

ISSN 2424-1083

季刊 全国環境研究会誌

JOURNAL OF ENVIRONMENTAL LABORATORIES ASSOCIATION

Vol.44 No.3 2019 (通巻 152 号)



目 次

[巻頭言]

環境調査センターの新たな船出…………… 戸澤 範行/ 1

[特 集/第6次酸性雨全国調査報告書2017(平成29)年度]

はじめに

1. 調査目的 / 2
2. 調査内容 / 5
3. 気象概況および大気汚染物質排出量の状況 / 9
4. 湿性沈着 / 12
5. 乾性沈着 (フィルターパック法) / 22
6. パッシブサンプラー / 40
7. まとめ / 43

…………… 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・久垣邦裕・宮野高光・北岡宏道・木戸瑞佳・濱村研吾・
三田村徳子・佐久間隆・山口高志・横山新紀・池田有里・
松本利恵・家合浩明・難波江芳子・宇野克之・紺田明宏

[報 文]

福岡県内河川におけるLAS負荷量解析

…………… 志水信弘・柏原 学・古閑豊和・石橋融子・米原淳史・定石佳子/ 44

岩手県におけるアツモリソウの現状と保全…………… 小山田智彰/ 50

北部九州及び山陰の離島で観測された2017年5月黄砂の粒径別化学特性

…………… 辻 昭博・大曲正祥・野田悠介・土肥正敬・佐藤嵩拓・菅田誠治/ 56

特定酵素基質培地法で大腸菌数に影響を及ぼす因子

…………… 渡邊圭司・池田和弘・柿本貴志・見島伊織・梅沢夏実・木持 謙・
中田仁志・川合裕子・木村久美子・和波一夫・石井裕一 / 63

C O N T E N T S

Analysis of LAS loads from Rivers in Fukuoka Prefecture
.....Nobuhiro SIMIZU, Manabu KASHIWABARA, Toyokazu KOGA,
Yuko ISHIBASHI, Atsushi YONEHARA, Yoshiko SADAISHI / 44

The present situation and conservation of *Cypridium macranthos* var. *speciosum* in Iwate Prefecture
.....Tomoaki OYAMADA / 50

Chemical Characteristics of Size-segregated Inorganic Components of Asian Dust Observed at Remote Island Sites in the Northern Kyushu Area and the San-in Region in May 2017
.....Akihiro TSUJI, Masayoshi OOMAGARI, Yuusuke NODA,
Masataka DOI, Takahiro SATO, Seiji SUGATA / 56

Influential factors on quantitative determination of *Escherichia coli* using a chromogenic enzyme substrate medium
.....Keiji WATANABE, Kazuhiro IKEDA, Takashi KAKIMOTO,
Iori MISHIMA, Natsumi UMEZAWA, Yuzuru KIMOCHI,
Hitoshi TANAKA, Yuko KAWAI, Kumiko KIMURA,
Kazuo WANAMI, Yuichi ISHII / 63

◆巻頭言◆

環境調査センターの新たな船出

愛知県環境調査センター 所長 戸澤 範行



今年度から、2か年にわたり全環研協議会東海・近畿・北陸支部支部長の任にあたります、愛知県環境調査センターの戸澤です。

日頃から皆様の多大なるご協力をいただき、心より感謝申し上げます。今後とも、共同研究や研究発表会などにおいてさらなるご協力のほどお願い申し上げます。

さて、本環境調査センターは、愛知県の環境行政を科学的・技術的に支える調査・研究機関として昭和45年に設置されましたが、老朽化に伴い、施設の建替えを進めています。今年度は旧施設を取り壊すとともに、新しい再生エネルギー活用施設等を設置し、2020年4月にはフルオープンとなる予定です。

新施設は、公共施設で全国トップクラスの省エネルギー施設を目指しており、建築物省エネルギー性能表示制度に基づきZEB(Nearly ZEB)の認証を2018年11月に受けることができました。ここでは、太陽光発電システム、太陽熱集熱システムなどの再生可能エネルギーを利用できるシステムを取り入れるとともに、高効率冷暖房設備、LED照明、人検知センサーによる照明制御、ビルエネルギー管理システムなどの省エネルギー施設を有しており、建築面においても高断熱ガラス、自然換気、地中熱利用、壁面緑化等を採用し、高い省エネルギー率を実現しています。

また、こうした新エネ・省エネ技術等の普及拡大を促進するため、新エネ・省エネ設備や建築技術の見学ルートを設定することとしています。併せて、小中学生が環境問題について学習する講座や実験、展示を行うことができる施設ともしています。さらに、県産木材やリサイクル材を積極的に利用するなど、地球環境にも配慮しています。

発足当初は、大気汚染や水質汚濁などの公害調査、環境調査が主でしたが、アスベスト、フロン類、ダイオキシン類、PM2.5、環境放射能といった新しい物質の分析が加わるとともに、地球環境問題、自然環境の保全のための調査など新たな業務に対応してきました。

最近の話題では、地球温暖化対策の一環として、環境調査センター内に愛知県気候変動適応センターを、本年

3月22日に設置いたしました。ここでの業務としては、県内の気候変動の影響や適応に関する情報の収集・整理・分析や事業者や県民等への情報提供のほか、市町村等に対し、適応策を推進するための技術的助言等を行ってまいります。また、毎月発行している環境情報誌「環境かわら版」に、愛知県気候変動適応センターだよりを掲載し、気候変動適応策などの情報を発信しています。

環境問題は、地球温暖化のように地域だけでなく地球規模での課題も多くなっており、これまで以上に各地区の地環研の協力が必要になってくるのではないのでしょうか。支部活動や全環研の活動を通じて、皆様と協力して取り組んでいきたいと存じます。今後ともご指導よろしくお願いいたします。



完成予想図

<特 集>

第6次酸性雨全国調査報告書2017（平成29）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，久垣邦裕，宮野高光，北岡宏道，木戸瑞佳，濱村研吾，三田村徳子，佐久間隆，山口高志，横山新紀，池田有里，松本利恵，家合浩明，難波江芳子，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2年目である2017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ンプ法を導入しました。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，これまでの調査に加え，窒素成分のより高度な沈着量や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。

第6次調査（2016年度～）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。

令和元年 9 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 神田 泰宏

（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年間の調査の後、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_{2.5})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NO₃⁻および

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	ハッシュサンプラー(O式およびN式)によるガス成分調査,月単位の試料採取	
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	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/01/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 (http://db.cger.nies.go.jp/dataset/acidrain/ja/02/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 (http://db.cger.nies.go.jp/dataset/acidrain/ja/03/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 (http://db.cger.nies.go.jp/dataset/acidrain/ja/04/index.html)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))				
調査対象	第5次酸性雨全国調査			第6次酸性雨全国調査				
	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 2017年度:63地点	2016年度:30地点 2017年度:28地点	2016年度:22地点 2017年度:20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	ハッシュサンプラー(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,インバク装置による粗大粒子と微小粒子(PM _{2.5})とを分けた採取を推奨	ハッシュサンプラー(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/05/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))			全国環境研究会誌 VOL.43, NO.3, (第6次酸性雨全国調査報告書(平成28年度))				

NH_4^+ 、乾性の粒子状 NO_3^- および NH_4^+ 、ガス状の HNO_3 （測定されている場合は HONO も含む）、 NO_2 、 NO および NH_3 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) $\text{PM}_{2.5}$ 成分データを得ることにより、 $\text{PM}_{2.5}$ 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>)に掲載されており、今後も順次掲載予定である。

2. 調査内容

2.1 調査概要

2017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63地点、乾性沈着調査地点は35地点(FP法:28地点、パッシブ法:20地点、自動測定機:17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¹⁾、²⁾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)が一部異なるため、数値が一致しない場合がある。

2017年度の調査期間は原則として2017年4月3日~2018年4月2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

支庁	都道府県名	地点名	調査機関名	排出量(t km ⁻² y ⁻¹)			地域区分(注1)	緯度(度)	経度(度)	湿性(注2)	乾性(注2)(注3)			標高(m)	海岸からの距離(km)	サンプラー設置位置地上高(m)	土地利用
				SO ₂	NO _x	NH ₃					FP	O式	自動NO _x				
北海道・東北	北海道	利尻	北海道立総合研究機構 環境科学センター	0.81	0.44	0.02	NJ	45.12	141.21	☆	☆	○	☆	45	0.8	Wet・FP:3, O式:4	未指定(草、笹)
		母子里	北海道立総合研究機構 環境科学センター	0.08	0.50	0.46	NJ	44.36	142.27	□	□	○		287	40	Wet・FP:8, O式:5	未指定(森林)
		札幌北	北海道立総合研究機構 環境科学センター	2.76	14.57	1.15	NJ	43.08	141.33	☆	○	○	☆	12	13	Wet:8, FP:O式:9	住居地域(市街地)
		札幌白	北海道立総合研究機構 環境科学センター	0.02	0.17	0.88	NJ	43.56	144.51			▲		550	30		1.5 未指定(森林)
	青森県	青森東道	青森県環境保健センター	0.74	2.19	0.42	NJ	40.83	140.79	○				3	0.7		20 住居地域(市街地)
		つげ沢舞戸	青森県環境保健センター	0.12	0.61	0.44	NJ	40.78	140.24	○				30	0.4		13 都市計画未指定
	岩手県	盛岡	岩手県環境保健センター	0.77	3.24	1.30	NJ	39.68	141.13			○		125	70		12 準工業地域(市街地)
		涌谷	宮城県環境保健センター	1.07	3.64	2.28	NJ	38.55	141.17	○				165	19		3 未指定(草、笹)
	秋田県	秋田千秋	秋田県健康環境センター	3.40	4.17	0.48	NJ	39.43	140.07	○				16	5.5		20 商業地域
		鶴岡	山形県環境科学センター	0.04	0.34	0.33	NJ	37.45	139.87			○		220	26		5 未指定(森林)
	山形県	福島天栄	福島県環境創造センター	0.40	0.64	0.42	EJ	37.25	140.04	○				941	84		1.2 田園
		三春(注4)	福島県環境創造センター	0.64	3.60	1.29	EJ	37.43	140.52	○				423	46		10 工業地域
	福島県	小名浜	いわき市環境監視センター	9.47	11.50	0.78	EJ	36.96	140.89	○		○	○	3	2.5	Wet:5, O式:1.5	住居地域(市街地)
		新島曾和	新潟県環境保健科学研究所	1.41	6.04	1.00	JS	37.85	138.94	○	○			2	3.1	Wet:2.5, FP:2.1	市街化調整区域
新潟県	長岡	新潟県環境保健科学研究所	0.66	2.83	0.59	JS	37.45	138.87	○	○			27	19		5 住居地域	
	新潟小新	新潟市衛生環境研究所	1.45	6.42	1.28	JS	37.88	138.98	○				0	1.7		15 住宅地域	
新潟県	日光(注5)	栃木県環境保健センター	0.09	0.45	0.16	EJ	36.74	139.48	○				1300	95		1 住宅地	
	宇都宮(注6)	栃木県環境保健センター	1.63	6.12	2.53	EJ	36.60	139.94	○				140	65		10 住宅地	
栃木県	小山	栃木県環境保健センター	1.55	7.42	2.71	EJ	36.31	139.83	○				35	63		6 住宅地	
	加須(注7)	埼玉県環境科学国際センター	1.06	10.36	2.83	EJ	36.09	139.56	○	○	▲	○	13	55		11 農業地域	
埼玉県	さいたま	さいたま市健康科学センター	3.70	28.65	4.67	EJ	35.86	139.65	○				15	35		15 商業地域	
	土浦	茨城県霞ヶ浦環境科学センター	0.90	4.54	3.09	EJ	36.08	140.27	○				18	31		1 未指定(草地)	
茨城県	前橋	群馬県衛生環境研究所	1.89	7.58	6.83	EJ	36.40	139.10	○	○		○	103	110		20 市街化調整区域	
	市原	千葉県環境研究センター	9.71	36.61	2.79	EJ	35.53	140.07	○	▲			3	1.2	Wet:5, FP:O式:10	工業地域	
千葉県	鎌子	千葉県環境研究センター	8.61	6.89	3.67	EJ	35.74	140.74	○				50	4.5		5 農業地域	
	一宮	千葉県環境研究センター	0.11	1.12	0.85	EJ	35.35	140.38	○				5	1		3 農業地域	
千葉県	旭	千葉県環境研究センター	8.59	6.93	3.87	EJ	35.73	140.72	○		▲		58	4.7		0 農業地域	
	佐倉	千葉県環境研究センター	1.72	15.47	2.54	EJ	35.73	140.21	○	○	▲		28	19		3 住居地域	
千葉県	清澄	千葉県環境研究センター	0.08	0.64	0.84	EJ	35.16	140.16	○	○			360	4.5		0 未指定(森林)	
	勝浦	千葉県環境研究センター	0.09	0.60	0.60	EJ	35.18	140.27	○	○			97	4.4	Wet:5, FP:3	農業地域	
千葉県	習志野	千葉県環境研究センター	7.35	31.11	3.69	EJ	35.69	140.03	○				14	3.1		3 住居地域	
	宮野木	千葉県環境保健研究所	8.33	29.28	3.36	EJ	35.65	140.10	○				21	4.1		3 住居地域(市街地)	
神奈川県	平塚	神奈川県環境科学センター	0.52	10.46	2.61	EJ	35.35	139.35	○				9	3.7		22 準工業地域	
	川崎(注8)	川崎市環境総合研究所	11.95	55.76	3.48	EJ	35.54	139.75	○				4	3.2		20 準工業地域	
長野県	長野	長野県環境保全研究所	0.87	2.64	0.57	CJ	36.84	138.18	○	○		○	363	52.5	Wet:15, FP:3	第一種住居	
	静岡小黒	静岡県環境保健研究所	2.07	6.27	1.08	CJ	34.97	138.40	○				14	3.6		8 住宅地	
静岡県	清水	静岡県環境科学センター	5.03	11.55	1.43	JS	36.70	137.10	○	○	▲	○	22	8	Wet:0, FP:O式:12.5	住宅専用地域	
	石川	静岡県環境保健センター	1.49	3.78	0.97	JS	36.53	136.71	○	○			120	14		14 第2種住居専用地域	
静岡県	福井	福井県衛生環境研究所	1.31	4.50	0.68	JS	36.07	136.26	○				11	18		9 市街化調整区域	
	伊自良湖	岐阜県環境保健研究所	1.12	3.14	1.25	CJ	35.57	136.69	☆	☆		☆	140	60		4.3 林地	
愛知県	豊橋	愛知県環境調査センター-東三河支所	1.42	6.49	3.81	CJ	34.74	137.38	○	○	▲	○	20	6		8 住居地域	
	名古屋南	名古屋市環境科学調査センター	8.83	35.50	3.82	CJ	35.10	136.92	○	○			0	3		19.2 準工業地域	
三重県	四日市桜	三重県環境保健研究所	2.57	12.56	2.08	CJ	34.99	136.49	○				190	15.1		15 原野	
	大津柳が崎	琵琶湖環境科学研究所	1.46	10.52	1.29	CJ	35.03	135.87	○				87	5.3		28 住宅地	
滋賀県	神戸須磨	(公社)ひょうご環境創造協会 兵庫県環境研究センター	6.64	18.72	1.13	CJ	34.65	135.13	○	○		○	15	0.9	Wet:29, FP:17	準工業地域	
	海南(注10)	和歌山県環境衛生研究センター	8.04	10.56	0.94	CJ	34.16	135.21	○	○	▲	○	3	0.4		12.5 商業	
和歌山県	海南(注10)東	和歌山県環境衛生研究センター	8.04	10.56	0.94	CJ	34.16	135.21	○	○	▲	○	2	0.4		1 住居地域	
	若桜	鳥取県衛生環境研究所	0.01	0.29	0.28	JS	35.35	134.49	○	○			800	28.4		2.5 未指定	
鳥取県	湯梨浜	鳥取県衛生環境研究所	0.10	0.72	0.77	JS	35.49	133.89	○	○			2	1.3		11 未指定	
	松江	鳥取県環境保健科学研究所	0.26	1.38	0.50	JS	35.47	133.01	○				6	6		1.2 区域外	
広島県	広島安佐南	広島市衛生研究所	1.89	7.35	0.99	WJ	34.46	132.41	○				73	11		10 住居地域	
	山口	山口県環境保健センター	1.17	7.33	0.57	WJ	34.15	131.43	○				13	13		1 住居地域(市街地)	
徳島県	徳島	徳島県立保健製薬環境センター	1.10	4.60	1.46	CJ	34.07	134.56	○				2	3		18 住居地域(市街地)	
	太宰府	福岡県環境保健研究所	2.44	12.89	1.92	WJ	33.51	130.50	○	○			30	15	Wet:16.4, FP:5.1	市街化調整区域	
福岡県	福岡	福岡市環境保健研究所	1.52	9.07	1.44	WJ	33.50	130.31	○				193	9.2		1 市街化調整区域	
	佐賀	佐賀県環境センター	1.20	3.87	1.46	WJ	33.27	130.27	○				4	11		8.5 第1種住居地域(市街地)	
長崎県	諫早	長崎県環境保健研究所	3.81	5.35	1.25	WJ	32.86	130.04	○				23	4		10 住居地域(市街地)	
	長崎	長崎県環境保健研究所	0.57	2.86	0.61	WJ	32.76	129.86	◇				5	1.3		2.6 商業地域	
熊本県	佐世保	長崎県環境保健研究所	4.82	8.15	1.34	WJ	33.18	129.72	◆				6	1.3		38 商業地域	
	阿蘇	熊本県環境保健科学研究所	0.22	0.76	1.62	WJ	32.07	131.05	○				481	46		3 未指定	
熊本県	宇土	熊本県環境保健科学研究所	1.19	5.04	1.36	WJ	32.67	130.65	○				20	2.7		1 未指定	
	画図町(注11)	熊本県環境総合センター	0.95	4.88	2.72	WJ	32.76	130.73	○		▲		5	12.0	Wet:14.7, O式:15.7	市街化調整区域	
大分県	大分久住	大分県衛生環境研究所	0.06	0.48	1.27	WJ	33.04	131.25	○	○			560	35		4.7 未指定(牧草地)	
	大分	大分県衛生環境研究所	11.58	17.02	1.16	WJ	33.16	131.61	○				90	11		14.3 住宅地	
宮崎県	宮崎	宮崎県環境保健研究所	0.31	1.84	1.02	WJ	33.45	131.42	○	○			14	3.5		14 都市地域(準工業地域)	
	鹿儿島	鹿児島県環境保健センター	1.00	3.55	1.31	WJ	31.58	130.56	○	○			1	0.1	Wet:4.5, FP:21	準工業地	
沖縄県	うるま(注12)	沖縄県衛生環境研究所	10.14	9.25	1.28	SW	26.38	127.83	○	○	▲		34	3.0	Wet:9.5, FP:11	未指定	
	辺戸岬	沖縄県衛生環境研究所	0.00	0.03	0.32	SW	26.87	128.25	☆	☆	▲	☆	60	0.2	Wet:1.5, FP:4.5	特別地域	

注1) NJ: 北部, JS: 日本海側, EJ: 東部, CJ: 中央部, WJ: 西部, SW: 南西諸島

注2) ☆: 環境省の委託事業, □: 北大との共同研究成果, ■: 国環研・地球環境研究センター, 北大との共同研究成果, ○: 長崎市長からデータ提供, ◆: 佐世保市長からデータ提供, ▲: 一部実施

注3) FP: インパクター付き5段式紙法または4段式紙法, O式: パッシブ法, 自動NO_x: 常時監視局自動測定装置によるNO_x測定結果

注4) 2015/11/27から測定地点変更 注5) 旧名称は日光中宮 注6) 旧名称は河内 注7) 旧名称は騎西 注8) 2013/1/23から測定地点変更 注9) 旧名称は小杉

注10) 2017/9/11から測定地点変更(海南市役所→日方小学校) 注11) 2016/3/7から測定地点変更(熊本-画図町) 注12) 2017/3/6から測定地点変更(大里→うるま)

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。2017～2018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。得られた試料の測定データを表2.1.2に示す月単位に集計して解析に用いた。

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、湿性沈着測定モニタリング手引き書—第2版—³⁾（以下、手引き書）に従った。また、イオンバランス(R₁)および電気伝導率バランス(R₂)が許容範囲を超える場合は再分析を行うなど、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HNO₃などを、3段目でSO₂とHClを、4段目でNH₃を捕集する従来の4段ろ紙法^{4) 5)}の構成に加え、前段にインパクト（I0ろ紙）を装

表2.1.2 調査期間の季節・月区分

季節	月	2017年度	週
春	4	4月3日～5月1日	4
	5	5月1日～5月29日	4
夏	6	5月29日～6月26日	4
	7	6月26日～8月7日	6
秋	8	8月7日～9月4日	4
	9	9月4日～10月2日	4
冬	10	10月2日～10月30日	4
	11	10月30日～11月27日	4
冬	12	11月27日～12月25日	4
	1	12月25日～2月5日	6
春	2	2月5日～3月5日	4
	3	3月5日～4月2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	愛媛県立衛生環境研究所	四宮 博人	H29-30	
理事委員	高知県環境研究センター	西森 郷子	H29	
	岡山県環境保健センター	岸本 壽男	H30	
支部委員	宮城県保健環境センター	佐藤 由美	H29	D
	〃	佐久間 隆	H30	D
	埼玉県環境科学国際センター	松本 利恵	H29-30	D, 5.3章
	滋賀県琵琶湖環境科学研究センター	三田村 徳子	H29-30	D
	広島市衛生研究所	宮野 高光	H29-30	D
	熊本県保健環境科学研究所	北岡 宏道	H29-30	D
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	H29-30	2章, 6章
	新潟県保健環境科学研究所	家合 浩明	H29-30	総括
	千葉県環境研究センター	横山 新紀	H29-30	6章
	富山県環境科学センター	木戸 瑞佳	H29-30	4章
	名古屋市環境科学調査センター	久恒 邦裕	H29-30	4章
	鳥取県衛生環境研究所	山添 良太	H29	5.3章
	島根県保健環境科学研究所	池田 有里	H30	5.3章
	福岡県保健環境科学研究所	濱村 研吾	H29-30	5.1-5.2章
	沖縄県衛生環境研究所	岩崎 綾	H29-30	1-3, 5.1-5.2章
	有識者	国立大学法人 東京農工大学 農学部	松田 和秀	H29-30
京都大学		村野 健太郎	H29-30	
公立大学法人 北九州市立大学		藍川 昌秀	H29-30	
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	H29-30	
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	H29-30	
大気環境学会中国・四国支部		大原 真由美	H29-30	
環境省		石飛 博之	H29	
〃		船越 吾朗	H29	
〃		上尾 一之	H30	
〃		仲井 哲也	H29	
事務局	愛媛県立衛生環境研究所	難波江 芳子	H30	
	〃	宇野 克之	H29-30	
	〃	紺田 明宏	H29-30	
	〃			

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。

備し、粗大粒子と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HONO測定を加えた構成（F2で採取された妨害分の一部のNO₂ガス量を評価するための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、解析に用いたデータは月単位とした。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 L min⁻¹で、その他の場合は1～5 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試薬、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一定期間大気に暴露させることにより、大気中ガス濃度を求める方法である。本調査では、分子拡散の原理に基づいた小川式パッシブ法（以下、パッシブ法）を用いており、風速や粒子状物質による汚染の影響を除くために捕集の前面に細孔を設けている。測定したガス成分の捕集量と理論的に証明されている計算式により、大気中ガス濃度が算出される。

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、田園地域および山林地域などから目的に応じ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、可能な限り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。

SO₂はNO_x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、K₂CO₃により改良された低濃度用ろ紙によるSO₂の測定結果と従来法との換算式が報告され⁸⁾、K₂CO₃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⁷⁾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。

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)	K ₂ CO ₃ 含浸セルロースろ紙
	4段目 (F3)	リン酸含浸セルロースろ紙
FP法 5段	1段目 (I0)	ポリカーボネート製PM _{2.5} 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)	K ₂ CO ₃ 含浸セルロースろ紙
	5段目 (F3)	リン酸含浸セルロースろ紙
項目		捕集ろ紙名
パッシブ法	NO ₂	トリエタノールアミン(TEA)含浸ろ紙
	NO _x	(TEA+PTIO)含浸ろ紙
	NH ₃	クエン酸含浸ろ紙
	O ₃	(NaNO ₂ +K ₂ CO ₃)含浸ろ紙

2.2.2.3 自動測定機の詳細

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、福井ら(2014)⁹⁾による2010年度ベースのSO₂、NO_x排出量およびNH₃発生量の情報を用いて、必要に応じて排出量別の解析を実施した。排出量は3次メッシュ（約1km四方）ごとに得られており、調査地点周辺の半径20km内のメッシュの排出量から算出した。なお対象メッシュは測定地点からメッシュの中心点までの距離が20km以内のものとした。

周辺排出量の計算は、第5次調査までは（排出量合計）/（半径20km内のメッシュ面積合計）として行っていたが、第6次調査からは（排出量合計）/（半径20kmの円の面積）に変更したため、数値が変化した。変更した理由は、離島などでは半径20kmの円内に排出量データベースでメッシュが設定されていない海域を含む場合があり、メッシュの有無によって周辺排出量に変化してしまうためである。さらに、本調査からは新しい2010年度ベースの排出

量情報を用いた計算に変更しており数値が大きく変わった地点があった。

－ 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 (2019.1.11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 (2019.1.11アクセス)
- 7) 平野耕一郎，齊藤勝美：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> (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) 福井哲央，國領和夫，馬場剛，神成陽容：大気汚染物質排出インベントリ－EAGrid2000-Japanの年次更新．大気環境学会誌，**49**，117-125，2014

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、SO₂、NO_xおよび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

2017年の概況は、次のとおりであった。梅雨前線の活動が活発となった時期があり、「平成29年7月九州北部豪雨」など記録的な大雨となった所があった。新潟県や秋田県などでも大雨となった日があった。8月は北・東日本太平洋側で、10月は北～西日本で曇りや雨の日が多く、不順な天候となった。沖縄・奄美では、夏は太平洋高気圧に覆われ晴れた日が多く、秋には南から暖かい空気が流れ込みやすかったため、気温のかなり高い状態が続いた。8月、9月は、2か月続けて記録的な高温となった。

春(3～5月)の概況は、次の通りであった。平均気温は、北・東・西日本で高く、沖縄・奄美では平年並だった。降水量は、北・東日本日本海側ではかなり少なく、北・東日本太平洋側、西日本で少なかった。沖縄・奄美では平年並だった。日照時間は、東日本と西日本日本海側でかなり多く、北日本、西日本太平洋側で多かった。沖縄・奄美では平年並だった。

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、東・西日本で高かった。北日本で平年並だった。降水量は、東日本日本海側でかなり多く、北日本日本海側で多かった。一方、東日本太平洋側、西日本日本海側と沖縄・奄美で少なかった。北・西日本太平洋側では平年並だった。日照時間は、東日本日本海側、西日本と沖縄・奄美で多かった。北日本と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、沖縄・奄美でかなり高かった。一方、北日本で低かった。東・西日本では平年並だった。降水量は、東日本太平洋側と西日本でかなり多く、北日本と東日本日本海側、沖縄・奄美で多かった。日照時間は、西日本でかなり少なく、沖縄・奄美で少なかった。北・東日本では平年並だった。

冬(12～2月)の概況は、次の通りであった。気温は、全国的に低く、特に西日本では32年ぶりの寒い冬となった。降雪量は西日本日本海側ではかなり多く、東日本日本海側は多かった。また、北～西日本日本海側では記録的な大雪となった所があったほか、北・東日本太平洋側でも大雪の降った日があった。日照時間は、東日本太平洋側ではかなり多く、西日本太平洋側でも多かった。¹⁾

黄砂観測日数は2016年度が11日に対し、2017年度は5日、5月と3月に観測された²⁾。

2017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 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、中国およびインド、極東ロシアが多い³⁾。図3.2.1に中国のSO₂、NO_x排出量のトレンド^{4,5)}を示した。NO_x排出量は2011年からNational Bureau of Statistics of Chinaの報告において自動車起源が加算されたため、グラフに*印を付けて示した。図3.2.1と図3.2.2に示した中国、韓国および日本のエネルギー消費のトレンド⁶⁾は2010年頃まで類似傾向にあった。SO₂排出量については、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年以降漸減したとの報告⁷⁾があるが、図3.2.1より、その排出量は2015年まで多いままであった。2016年以降は減少したが、今後も傾向を注視する必要がある。NO_x排出量については、2011年以降減少傾向にある。

国内における人為発生源由来の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発生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⁾。

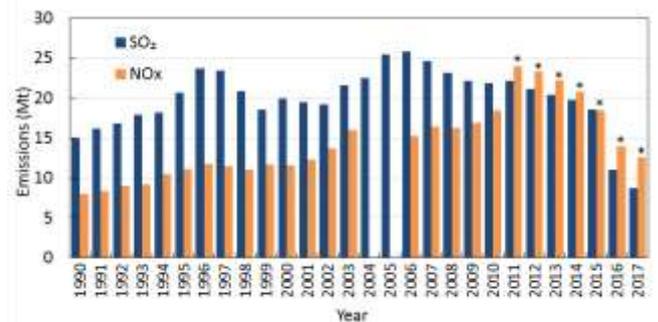


図3.2.1 中国におけるSO₂およびNO_x排出量⁴⁾
(*2011年以降はNO_xに自動車起源が加算)



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¹⁾

平均気温

4月	北・西日本で高かった。東日本、沖縄・奄美では平年並だった。
5月	北・東・西日本でかなり高かった。境、米子(以上鳥取県)、西郷(島根県)、下関(山口県)、厳原(長崎県)で5月の月平均気温の高い方から1位の値を更新し、他4地点で1位タイの値を記録した。沖縄・奄美では平年並だった。
6月	西日本で低かった。北・東日本と沖縄・奄美では平年並だった。
7月	北・西日本でかなり高く、東日本と沖縄・奄美で高かった。釧路(北海道)、輪島(石川県)など4地点で7月の月平均気温の高い方から1位の値を更新し、萩(山口県)、人吉(熊本県)など7地点で7月の月平均気温の高い方から1位タイの値を記録した。
8月	沖縄・奄美でかなり高く、西日本で高かった。名瀬(鹿児島県)、那覇、石垣島(以上、沖縄県)など9地点で8月の月平均気温の高い方から1位の値を更新し、延岡(宮崎県)、枕崎(鹿児島県)など5地点で8月の月平均気温の高い方から1位タイの値を記録した。北・東日本では平年並だった。
9月	沖縄・奄美でかなり高かった。沖永良部(鹿児島県)、西表島(沖縄県)など4地点で9月の月平均気温の高い方から1位の値を更新し、久米島(沖縄県)で9月の月平均気温の高い方から1位タイの値を記録した。一方、西日本では低かった。北・東日本では平年並だった。
10月	沖縄・奄美でかなり高かった。父島(東京都)で10月の月平均気温の高い方から1位の値を更新した。一方、北日本では低かった。東・西日本では平年並だった。
11月	東・西日本で低かった。一方、沖縄・奄美で高かった。北日本では平年並だった。
12月	強い寒気が断続的に流れ込んだため、全国的に気温が低く、西日本ではかなり低かった。
1月	東・西日本では強い寒気が流れ込みやすかったため、月平均気温は低かった。特に、中旬前半と下旬は顕著な低温となった。
2月	日本付近は強い寒気が覆われることが多かったため、全国的に月平均気温が低かった。
3月	日本付近は寒気が南下しにくく、南から暖かい空気が流れ込みやすかった。このため、全国的に気温が高く、北・東・西日本ではかなり高かった。東日本の月平均気温は平年差+2.5℃となり、1946年の統計開始以来3月として1位の高温となった。

降水量

4月	西日本で多かった。北・東日本、沖縄・奄美では平年並だった。
5月	東日本と西日本日本海側でかなり少なく、北日本と西日本太平洋側では少なかった。東京(東京都)、松江、西郷(以上島根県)、姫路(兵庫県)で5月の月降水量の少ない方から1位の値を更新した。沖縄・奄美では平年並だった。
6月	北日本でかなり多かった。小樽、倶知安、紋別(以上北海道)では6月の月降水量の多い方から1位の値を更新した。一方、東日本太平洋側でかなり少なく、東・西日本日本海側では少なかった。西日本太平洋側と沖縄・奄美では平年並だった。
7月	東日本日本海側でかなり多く、北日本日本海側で多かった。伏木(富山県)では7月の月降水量の多い方から1位の値を更新した。一方、東・西日本太平洋側と沖縄・奄美では少なかった。八丈島(東京都)では7月の月降水量の少ない方から1位の値を更新した。北日本太平洋側と西日本日本海側では平年並だった。
8月	東日本日本海側でかなり多く、西日本太平洋側で多かった。一方、沖縄・奄美では少なかった。宮古島(沖縄県)では8月の月降水量の少ない方から1位の値を更新した。北日本、東日本太平洋側と西日本日本海側では平年並だった。
9月	西日本日本海側と沖縄・奄美で多かった。宮古島(沖縄県)では9月の月降水量の多い方から1位の値を更新した。一方、東日本太平洋側では少なかった。北日本、東日本日本海側と西日本太平洋側では平年並だった。
10月	北日本太平洋側と東・西日本でかなり多く、北日本日本海側と沖縄・奄美で多かった。名古屋(愛知県)、大阪(大阪府)、広島(広島県)など27地点で10月の月降水量の多い方から1位の値を更新した。
11月	北・東日本日本海側と沖縄・奄美で多かった。一方、北・東日本太平洋側と西日本日本海側で少なかった。宮古(岩手県)では月降水量の少ない方から1位の値を更新した。西日本太平洋側では平年並だった。
12月	北日本や東日本日本海側では気圧の谷や低気圧の影響を受けやすく、東日本日本海側の降水量はかなり多く、北日本日本海側でも多かった。特に、12日頃や27日頃は発達した低気圧や、その後の強い冬型の気圧配置により北日本や東日本日本海側を中心に大雪となった。
1月	中旬前半と下旬は冬型の気圧配置が強まり、日本海側では東・西日本中心に大雪となる時期があり、月降雪量は東・西日本日本海側で多かった。
2月	冬型の気圧配置の日や高気圧に覆われる日が多く、低気圧や前線の影響を受けることが少なかったため、東日本太平洋側では月降水量がかなり少なかった。
3月	北・東・西日本では、南から湿った空気が流れ込みやすく、降水量が多く、北日本と東日本太平洋側でかなり多かった。東日本太平洋側の月降水量は平年比163%となり、1946年の統計開始以来3月として1位の多雨となった。

日照時間/積雪

4月	北・東日本太平洋側、西日本と沖縄・奄美で多かった。北・東日本日本海側では平年並だった。
5月	東日本日本海側と西日本でかなり多く、北日本と東日本太平洋側で多かった。福江(長崎県)、牛深(熊本県)で5月の日照時間の多い方から1位の値を更新した。沖縄・奄美では平年並だった。
6月	東日本でかなり多く、北日本太平洋側と西日本で多かった。諏訪(長野県)では6月の日照時間の多い方から1位の値を更新した。一方、北日本日本海側と沖縄・奄美では少なかった。
7月	北日本太平洋側でかなり多く、北日本日本海側と東日本太平洋側で多かった。苫小牧(北海道)、沖永良部(鹿児島県)、南大東島(沖縄県)では7月の月間日照時間の多い方から1位の値を更新した。東日本日本海側、西日本、沖縄・奄美では平年並だった。
8月	北・東日本太平洋側でかなり少なく、北・東日本日本海側で少なかった。大船渡(岩手県)、仙台(宮城県)、東京(東京都)では8月の月間日照時間の少ない方から1位の値を更新した。一方、沖縄・奄美ではかなり多かった。西表島(沖縄県)では8月の月間日照時間の多い方からの1位の値を更新した。西日本では平年並だった。
9月	北日本と東日本日本海側でかなり多く、東日本太平洋側と沖縄・奄美で多かった。一方、西日本で少なかった。
10月	北・東・西日本でかなり少なかった。酒田(山形県)、上野(三重県)、洲本(兵庫県)など5地点で10月の月間日照時間の少ない方からの1位の値を更新した。沖縄・奄美では平年並だった。
11月	日照時間は沖縄・奄美でかなり少なく、北日本日本海側で少なかった。江差(北海道)では月間日照時間の少ない方からの1位タイの値を記録した。一方、東日本と西日本日本海側で多かった。豊岡(兵庫県)では月間日照時間の多い方から1位の値を更新した。北・西日本太平洋側では平年並だった。降雪の深さ月合計は北日本日本海側で多かった。むつ(青森県)では降雪の深さ月合計値の多い方からの1位を更新した。北・東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かった。
12月	冬型の気圧配置となる日が多く、日照時間は北日本日本海側と沖縄・奄美でかなり少なく、東・西日本日本海側で少なかった。一方、東日本太平洋側では多かった。
1月	22日から23日にかけて、低気圧が発達しながら本州の南岸沿いを進んだ影響で、関東甲信地方や東北太平洋側では大雪となった。
2月	しばしば冬型の気圧配置が強まって日本海側では上旬後半と中旬前半を中心に、発達した雪雲が日本海から盛んに流れ込み、北陸地方を中心に記録的な大雪となった所があった。
3月	移動性高気圧に覆われやすく、寒気の影響も弱かったため、全国的に日照時間が多く、東・西日本と沖縄・奄美ではかなり多かった。月間日照時間は、東日本日本海側で平年比141%、西日本日本海側で平年比137%、沖縄・奄美で平年比171%となり、いずれも1946年の統計開始以来3月として1位の多照となった。

－ 引用文献 －

- 1) 気象庁報道発表資料, <http://www.jma.go.jp/jma/press/tenko.html> (2018.10.11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) (2018.10.11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) National Bureau of Statistics of China, <http://english.mee.gov.cn/Resources/Reports/> (2018.10.11アクセス)
- 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/> (2018.10.11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、2017年度のとりまとめについて報告する。

2017年度の湿性沈着調査に対し、44機関63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。

2017年度は、月間データでは756個中14データ（1.9%）が除外され、年間データでは63地点中1地点が除外された。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も、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、全ての項目が測定された747個のデータ中、R₁が許容範囲内にあったデータは709個（適合率94.9%）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729個（適合率97.6%）であった。R₁およびR₂の分布を図4.1.1に示す。2005～2017年度におけるR₁およびR₂の適合率は、R₁: 92～97%、R₂: 94～99%の範囲にあり高いレベルで保たれている^{1,3,-13)}。

次に、分析精度管理調査について検討した。環境省が国設酸性雨測定所（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、2017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）14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。このうち全環研の全国酸性雨調査に参加している機関（以下、全環研報告機関）は33機関であった。

精度管理機関による測定成分毎のフラグ数と相対標準

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

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

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

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

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

Λ_{obs} : 降水試料の電気伝導率測定値

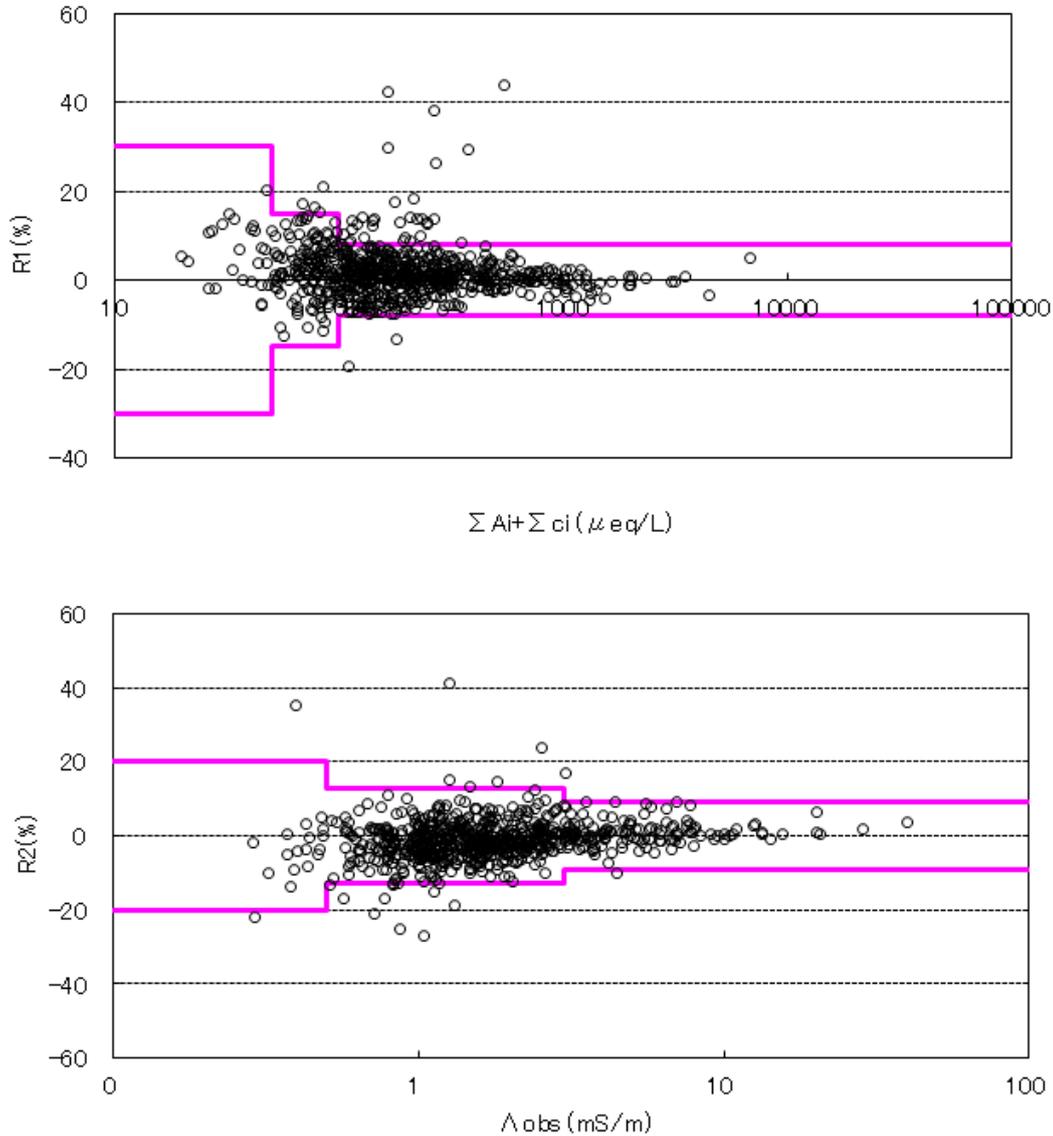


図4.1.1 イオンバランス(R_1)と総イオン濃度($\sum A_i + \sum C_i$)および電気伝導率バランス(R_2)と実測値との比較

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（DQO：Data Quality Objectives，分析の正確さ：±15%）を用い、DQOの2倍まで（±15%～±30%）の測定値にはフラグEを、DQOの2倍（±30%）を超える測定値にはフラグXを付けて判定した。相対標準偏差を求める際には、酸性雨測定分析機関間比較調査結果報告書¹⁴⁾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DQOを満たすデータが95.9%、フラグEまたはフラグXが付いたデータは、それぞれ1.8%および2.3%であった。また、低濃度試料では、DQOを満たすデータが89.5%、フラグEまたはフラグXが付いたデータは、それぞれ6.4%および4.1%であった。フラグ付与率は高濃度試料、低濃度試料とも2016年度¹³⁾と同程度で

あるが、2017年度は R_1 や R_2 にフラグが付与されたデータがみられた。 R_1 や R_2 にフラグが付与されたデータは入力ミスやEC値の異常が考えられた。フラグが陽イオン（特に低濃度試料）に多く付与される傾向は2016年度¹³⁾と同様であった。

一方、国設局管理機関（18機関）の2017年度分析精度管理調査¹⁴⁾では、高濃度試料でDQOを満たすデータは99.4%、フラグEが付いたデータは0.6%であり、フラグXが付いたデータはなかった。また、低濃度試料では、DQOを満たすデータは96.1%、フラグEまたはフラグXが付いたデータはそれぞれ2.8%および1.1%であった。高濃度試料、低濃度試料ともpHおよび陰イオンにフラグが付与されたデータはなかった。

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。2017年度の相対標準偏差は、高濃度試料は陰イオン：3.6～4.3%，陽イオン：3.7～8.5%，低濃度試料は陰イオン：5.0～5.4%，陽イオン：8.1～18.3%であり、2016年度¹³⁾と同様にK⁺、Ca²⁺およびMg²⁺のバラツキが大きかった。国設局管理機関における2017年度分析精度管理調査¹⁴⁾の相対標準偏差は、高濃度試料では陰イオン：2.2～2.4%，陽イオン：1.5～5.0%，低濃度試料では陰イオン：2.5～4.3%，陽イオン：4.5～13.9%であった。

以上の結果から、フラグ付与率および相対標準偏差は、全環研報告機関のほうが国設局管理機関より高かった。どの機関も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。特に低濃度試料の陽イオン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で相対標準偏差が大きい成分は、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のが期待される。また、pHはフラグが付与されたデータはなく、相対標準偏差も小さい（高濃度試料：1.8%，低濃度試料：2.1%）が、H⁺濃度に換算すると大きなバラツキが予想される。R₁およびR₂の計算過程ではH⁺濃度として効いてくること、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⁺濃度として機関間のバラツキがより小さくなるよう努力していく必要性が考えられる。

続いて、イオン成分の定量下限値とフラグ付与の関係について調べた。定量下限値は、イオン成分分析用検量

線を作成する際の最低濃度標準液を5回以上の繰り返し測定したときの標準偏差(s)から求められる。検出下限値は3s (μmol L⁻¹)、定量下限値は10s (μmol L⁻¹)として計算される。このため、定量下限値は、イオン類測定の際の定量値のバラツキ度合いとみなすことができる。イオン成分の定量下限値が定量下限値に係るDQO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DQOを満たしていない機関数は、SO₄²⁻で3機関と最も多く、次いでMg²⁺で2機関、Cl⁻、Na⁺およびK⁺でそれぞれ1機関であった。定量下限値がDQO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DQO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機関のみであった。フラグが付与されたからといって定量下限値>DQOであるということではなかったが、定量下限値>DQO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R₁およびR₂の管理だけにとどまらず、酸性雨測定分析精度管理調査を積極的に活用し、配布される模擬酸性雨試料などを「標準参照試料」として利用した日常的な分析精度の管理を実施していくことが望ましいと考える。また、分析に関する質問などがある場合には、当部会の相談窓口や各支部の担当者会議を活用していただきたい。

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

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 ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	Na ⁺	K ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	NH ₄ ⁺	
高濃度試料	フラグE	0	1	0	1	1	0	1	1	0	
	フラグX	0	0	1	1	1	2	1	1	1	
	相対標準偏差	1.6%	3.4%	3.6%	4.1%	4.3%	3.7%	8.5%	5.1%	5.7%	3.7%
	(n=39)	(n=39)	(n=39)	(n=39)	(n=39)	(n=39)	(n=39)	(n=39)	(n=39)	(n=39)	
低濃度試料	フラグE	0	1	1	1	1	3	7	2	6	3
	フラグX	0	1	1	1	1	2	4	2	2	2
	相対標準偏差	1.7%	4.8%	5.0%	5.4%	5.1%	10.3%	18.3%	8.2%	8.9%	8.1%
	(n=39)	(n=39)	(n=39)	(n=39)	(n=39)	(n=39)	(n=39)	(n=39)	(n=39)	(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 ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	Na ⁺	K ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	NH ₄ ⁺
定量下限値がDQOを満たしていない機関数	3	0	1	1	0	1	2	0
上記機関のうち、高濃度試料のフラグがついた機関数	1	0	0	0	0	0	0	0
上記機関のうち、低濃度試料のフラグがついた機関数	1	0	0	1	0	0	1	0
定量下限値に係るDQO(μmol L ⁻¹)	0.3	0.5	0.5	0.3	0.3	0.2	0.3	0.8
DQO:精度管理目標値								

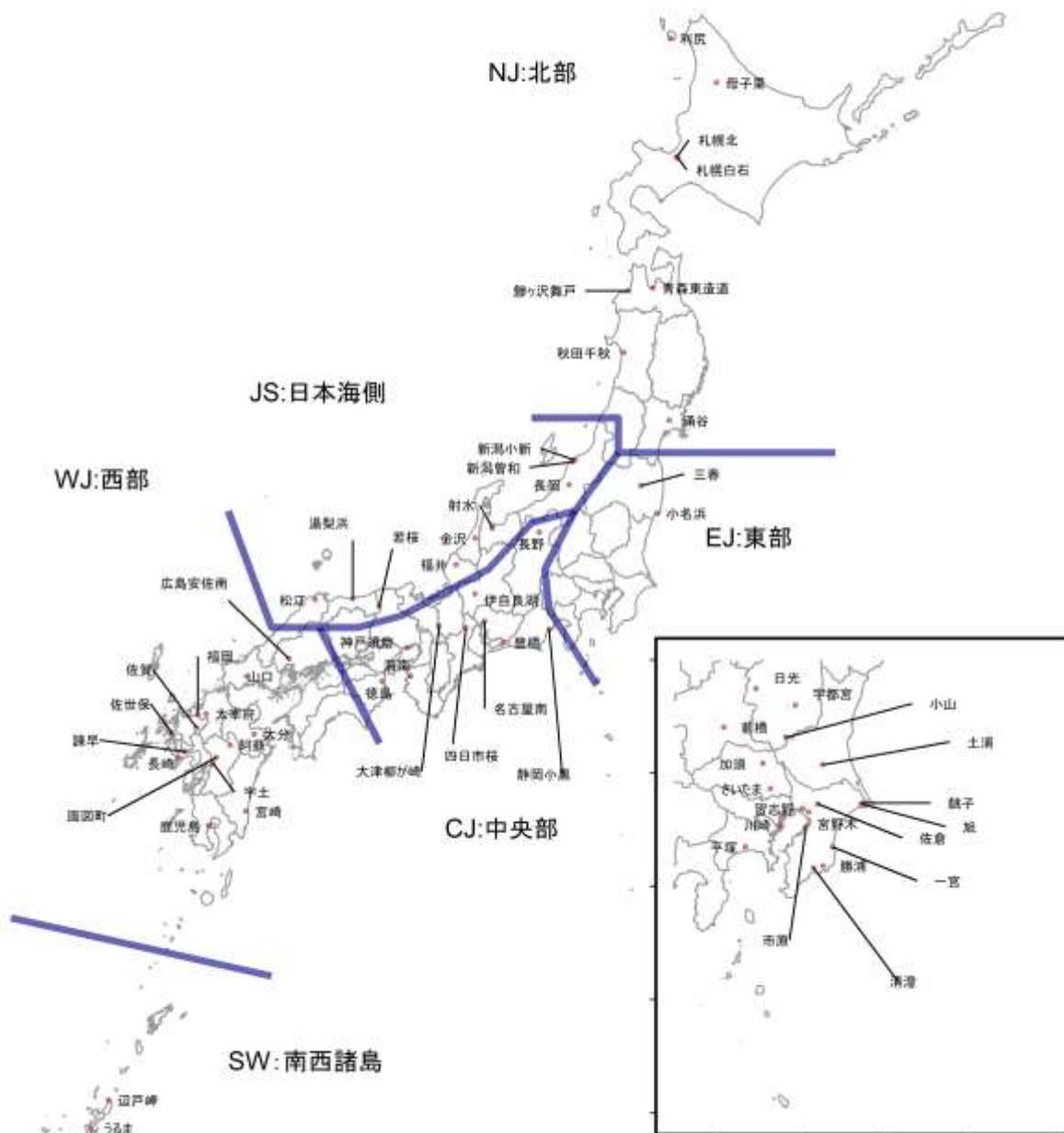


図4.2.1 地域区分

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⁴⁾。

FB試料から高濃度が検出された場合や、鳥の糞、黄砂、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 EGおよびイオン成分濃度

ここでは、2017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章で示したとおり、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

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														
利尻	NJ	0.81	0.44	0.02	961	4.78	5.73	30.7	13.2	20.7	325.6	25.1	288.6	7.8	10.6	4.2	17.5	16.6
母子里	NJ	0.08	0.50	0.46	(1705)	(5.05)	(2.53)	(15.9)	(10.3)	(18.1)	(107.2)	(22.5)	(92.6)	(5.0)	(8.4)	(6.3)	(11.6)	(9.0)
札幌北	NJ	2.76	14.57	1.15	1117	4.95	1.82	11.3	7.5	9.4	74.9	14.8	62.9	2.0	3.7	2.3	7.7	11.2
札幌白石	NJ	2.72	14.72	1.27	1133	4.90	2.23	14.3	9.7	12.7	88.3	19.1	75.8	2.5	5.1	3.4	8.7	12.5
青森東造道	NJ	0.74	2.19	0.42	1366	4.80	5.07	27.5	13.5	19.4	272.2	19.8	230.9	6.0	9.6	4.5	26.3	16.0
鯉ヶ沢舞戸	NJ	0.12	0.61	0.44	1431	4.86	6.67	33.3	12.8	19.4	397.0	18.5	338.1	8.3	12.0	4.4	38.7	13.9
涌谷	NJ	1.07	3.64	2.28	1095	5.08	0.95	7.1	6.0	8.2	22.0	11.6	18.1	0.6	1.5	1.1	2.1	8.4
秋田千秋	NJ	3.40	4.17	0.48	1802	4.86	4.04	24.6	13.0	19.9	220.1	25.0	190.6	5.5	8.2	3.9	21.4	13.9
三春	EJ	0.64	3.60	1.29	945	5.10	0.80	8.0	7.3	13.2	10.4	13.3	10.5	0.8	4.5	4.2	1.5	8.0
小名浜	EJ	9.47	11.50	0.78	1130	4.98	2.22	16.1	10.7	14.2	94.4	15.6	89.3	4.5	2.5	0.8	8.2	10.5
新潟曾和	JS	1.41	6.04	1.00	2199	4.82	3.77	21.3	10.9	16.3	201.8	19.3	172.0	4.5	6.7	2.8	19.9	15.2
長岡	JS	0.66	2.83	0.59	2913	4.82	3.81	22.3	12.0	18.0	200.1	21.7	170.5	4.4	6.4	2.6	19.7	15.2
新潟小新	JS	1.45	6.42	1.28	(1293)	(4.88)	(2.28)	(14.6)	(9.5)	(15.1)	(98.2)	(18.8)	(83.2)	(2.7)	(4.2)	(2.4)	(9.6)	(13.2)
日光	EJ	0.09	0.45	0.16	2074	5.06	0.73	6.8	6.5	8.2	6.0	7.4	4.8	0.7	2.1	2.0	0.8	8.7
宇都宮	EJ	1.63	6.12	2.53	1443	5.04	1.24	12.5	11.8	20.6	15.2	28.2	12.5	1.1	4.4	4.1	1.9	9.2
小山	EJ	1.55	7.42	2.71	1273	5.16	1.37	12.6	11.4	22.0	25.0	30.0	19.9	1.5	8.8	8.4	3.3	6.8
加須	EJ	1.06	10.36	2.83	1198	4.92	1.33	11.7	10.9	24.4	18.3	25.2	13.7	0.9	4.6	4.3	2.0	12.0
さいたま	EJ	3.70	28.65	4.67	1558	4.91	1.52	11.4	9.4	20.3	37.6	21.5	32.0	1.1	3.5	2.8	3.9	12.4
土浦	EJ	0.90	4.54	3.09	1147	5.07	1.29	10.9	9.1	17.1	34.3	23.2	29.8	2.1	4.9	4.2	3.6	8.5
前橋	EJ	1.89	7.58	6.83	1136	5.04	1.03	9.6	9.3	18.5	8.2	28.4	4.8	0.8	2.4	2.3	1.0	9.1
市原	EJ	9.71	36.61	2.79	1188	5.10	1.33	15.5	12.7	9.8	52.8	14.5	46.6	0.2	6.2	5.1	5.6	7.9
銚子	EJ	8.61	6.89	3.67	1829	5.49	2.11	13.0	6.4	8.8	129.9	19.2	108.7	1.5	2.9	0.6	10.4	3.2
一宮	EJ	0.11	1.12	0.85	1674	5.17	1.87	11.3	5.2	7.5	115.7	7.7	99.3	0.8	2.8	0.7	9.4	6.8
旭	EJ	8.59	6.93	3.87	1527	5.82	1.08	7.5	4.8	6.7	51.6	28.2	44.1	0.3	0.7	0.2	2.7	1.5
佐倉	EJ	1.72	15.47	2.54	1448	5.23	0.97	9.9	8.1	11.4	34.7	12.6	30.0	0.3	3.7	3.0	3.4	5.9
清澄	EJ	0.08	0.64	0.84	2084	5.24	2.12	14.6	8.3	9.2	120.3	6.9	103.0	2.7	7.7	5.4	11.5	5.8
勝浦	EJ	0.09	0.60	0.60	1983	5.15	2.14	12.4	4.8	5.1	144.7	5.1	124.3	2.0	2.8	0.3	12.4	7.1
習志野	EJ	7.35	31.11	3.69	1107	5.16	0.94	9.0	7.1	9.6	36.5	8.8	30.4	0.0	2.9	2.2	3.2	6.9
宮野木	EJ	8.33	29.28	3.36	1181	5.19	1.08	9.3	7.6	8.7	32.4	9.1	28.2	1.0	6.2	5.6	4.4	6.5
平塚	EJ	0.52	10.46	2.61	1672	5.06	2.19	13.3	7.8	15.8	107.1	20.9	90.9	2.9	5.4	3.4	10.6	8.6
川崎	EJ	11.95	55.76	3.48	1619	5.13	2.02	16.5	12.5	14.3	76.8	23.2	66.0	4.9	7.7	6.3	7.2	7.4
長野	CJ	0.87	2.64	0.57	815	5.05	0.72	6.5	6.3	9.8	4.7	11.4	3.3	0.5	2.3	2.2	1.1	8.9
静岡小黒	CJ	2.07	6.27	1.08	2373	5.07	1.76	9.6	5.2	8.6	84.7	6.8	73.2	1.4	2.9	1.3	8.4	8.6
射水	JS	5.03	11.55	1.43	2889	4.82	3.37	17.8	9.9	15.8	151.3	18.2	131.3	3.9	5.7	2.8	15.5	15.2
金沢	JS	1.49	3.78	0.97	3236	4.71	3.43	19.6	11.5	17.2	149.2	17.1	133.0	4.1	6.2	3.3	16.0	19.5
福井	JS	1.31	4.50	0.68	2477	4.79	3.89	23.7	13.6	21.4	190.9	17.2	165.8	4.6	7.8	4.1	17.7	16.1
伊自良湖	CJ	1.12	3.14	1.25	2977	4.75	1.29	9.8	8.9	15.3	17.8	12.2	14.8	0.6	2.2	1.9	1.9	17.7
豊橋	CJ	1.42	6.49	3.81	1753	5.17	1.27	9.7	7.4	12.4	44.4	11.4	37.7	1.2	5.4	4.6	4.8	6.7
名古屋南	CJ	8.83	35.50	3.82	1555	4.99	1.21	11.2	10.5	15.9	15.3	18.8	12.9	1.1	2.9	2.6	1.7	10.3
四日市桜	CJ	2.57	12.56	2.08	2030	4.80	1.30	9.3	8.2	16.2	22.1	20.2	18.6	0.8	1.6	1.2	1.8	15.9
大津柳が崎	CJ	1.46	10.52	1.29	1722	4.79	1.20	9.4	8.9	15.8	10.9	14.3	9.5	1.1	2.1	1.9	1.1	16.3
神戸須磨	CJ	6.64	18.72	1.13	1132	4.77	1.72	14.5	11.5	15.0	57.0	11.4	49.6	1.4	5.3	4.2	5.8	17.0
海南	CJ	8.04	10.56	0.94	1545	4.98	1.32	9.7	7.7	12.0	38.7	8.1	33.2	1.4	3.6	2.8	4.0	10.4
若桜	JS	0.01	0.29	0.28	2032	4.63	1.81	12.7	10.2	12.8	49.5	8.1	41.3	2.0	3.5	2.6	5.6	23.4
湯梨浜	JS	0.10	0.72	0.77	1794	4.60	3.65	23.3	12.6	17.4	213.4	10.1	176.9	4.5	7.0	3.1	19.4	25.2
松江	JS	0.26	1.38	0.50	1903	4.69	3.47	19.8	12.0	24.3	149.7	18.8	127.7	3.2	6.7	3.8	15.3	20.5
広島安佐南	WJ	1.89	7.35	0.99	1914	4.54	1.87	11.8	10.8	22.8	19.3	7.0	16.9	0.9	2.7	2.4	2.5	28.6
山口	WJ	1.17	7.33	0.57	1812	4.85	1.57	13.6	11.5	15.8	35.4	11.5	34.1	2.5	4.6	3.8	4.2	14.0
徳島	CJ	1.10	4.60	1.46	1599	4.85	1.88	11.6	7.2	11.1	87.6	10.9	73.0	2.2	4.3	2.6	8.6	14.0
太宰府	WJ	2.44	12.89	1.92	1343	4.85	1.61	12.9	10.4	14.0	44.4	15.3	40.5	1.2	4.0	3.0	4.6	14.2
福岡	WJ	1.52	9.07	1.44	2162	4.86	2.16	15.5	10.6	15.8	95.8	14.3	80.8	2.3	4.7	2.9	9.4	13.7
佐賀	WJ	1.20	3.87	1.46	1779	4.74	1.61	12.5	10.7	12.0	33.7	15.4	30.3	1.0	2.8	2.1	3.7	18.3
佐世保	WJ	4.82	8.15	1.34	1730	5.28	2.24	16.0	12.7	15.9	68.2	15.0	54.8	2.5	29.4	28.2	10.3	5.2
長崎	WJ	0.57	2.86	0.61	1066	5.01	0.99	10.1	9.0	11.2	22.4	13.3	19.0	0.8	1.8	1.4	2.5	9.8
諫早	WJ	3.81	5.35	1.25	2123	4.72	1.55	12.4	10.7	11.4	34.9	12.2	28.9	1.0	3.7	3.1	5.0	18.9
阿蘇	WJ	0.22	0.76	1.62	2655	4.74	1.21	12.5	12.0	9.1	12.6	12.4	9.4	0.8	2.2	2.0	1.3	18.4
宇土	WJ	1.19	5.04	1.36	2203	4.75	1.22	10.8	10.0	9.2	17.6	9.4	14.0	0.8	1.9	1.6	1.8	17.6
函岡町	WJ	0.95	4.88	2.72	1924	4.74	1.11	11.0	10.5	9.9	11.3	13.2	8.9	0.8	2.2	2.0	1.5	18.3
大分	WJ	11.58	17.02	1.16	2396	4.70	1.59	13.9	12.7	11.2	23.9	10.7	20.2	0.6	2.5	2.0	2.5	19.9
宮崎	WJ	0.31	1.84	1.02	3374	4.90	1.70	11.8	7.8	8.3	77.8	10.3	66.5	1.4	4.2	2.7	7.7	12.7
鹿児島	WJ	1.00	3.55	1.31	1645	4.47	3.11	23.4	18.7	11.7	102.3	13.7	78.3	2.5	5.8	4.0	8.5	33.9
辺戸岬	SW	0.00	0.03	0.32	1508	4.99	8.14	29.3	5.2	8.6	562.4	5.9	486.3	8.8	15.1	4.2	68.4	10.3
うるま	SW	10.14	9.25	1.28	2153	5.50	1.53	9.9	5.7	8.0	78.7	9.9	68.9	1.4	11.0	9.4	8.9	3.2
最低値					815	4.47	0.72	6.5	4.8	5.1	4.7	5.1	3.3	0.0	0.7	0.2	0.8	1.5
最高値					3374	5.82	8.14	33.3	18.7	24.4	562.4	30.0	486.3	8.8	29.4	28.2	68.4	33.9
加重平均値※					1752	4.87	2.18	14.5	9.8	13.8	92.0	14.8	78.8	2.2	5.2	3.4	9.2	13.4

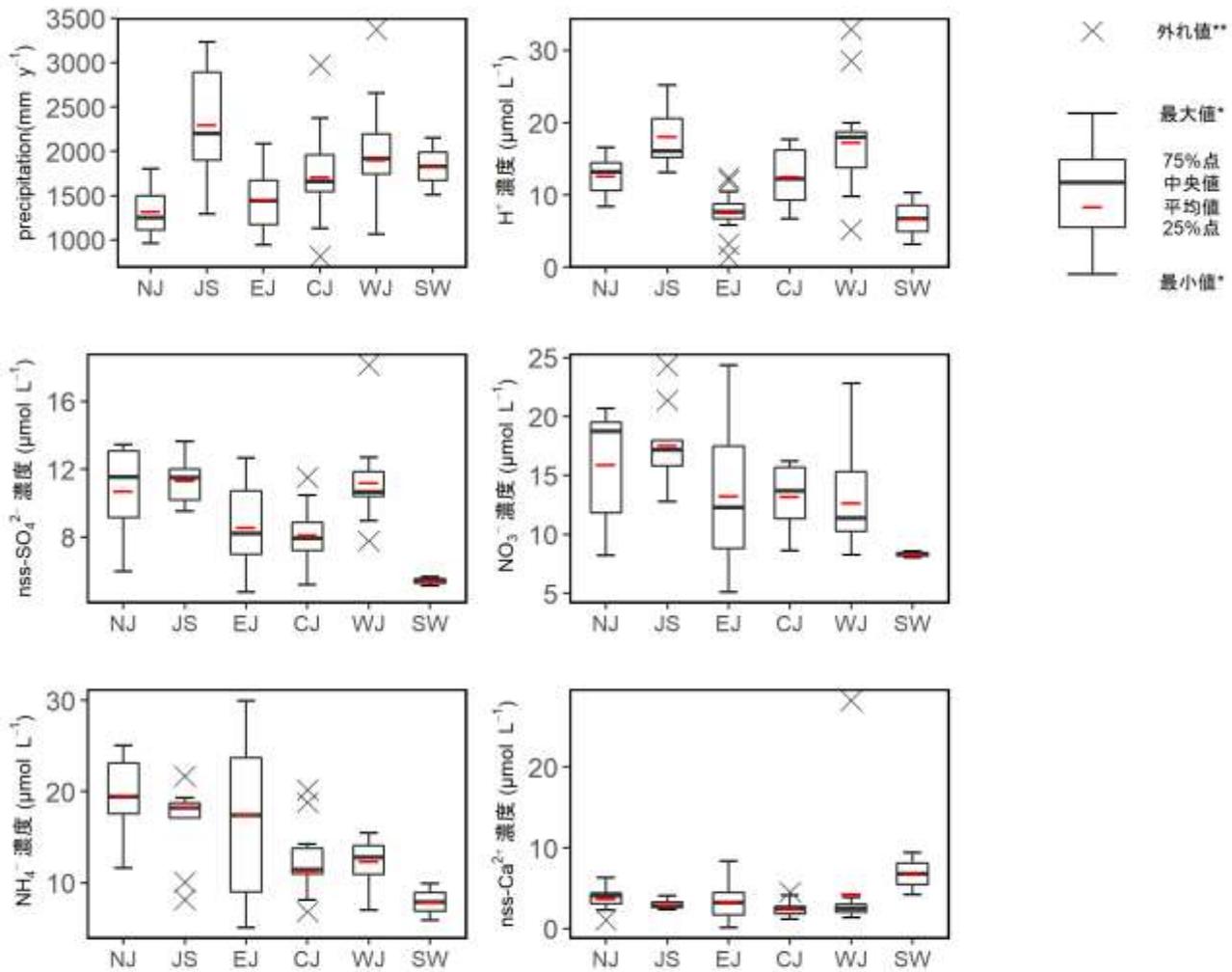
¹⁾地域区分 (NJ:北部、JS:日本海側、EJ:東部、CJ:中央部、WJ:西部、SW:南西諸島)

※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)



** 箱の端からの距離が箱の長さの1.5倍以上

* 外れ値を除いた最大値または最小値

図4.2.2 主要イオン成分の年加重平均濃度の分布

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¹⁾を参照頂きたい。

4.2.2 pH, ECおよびイオン成分濃度の年加重平均値

2017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⁺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。

2017年度の年間降水量は、815(長野)~3,374 mm(宮崎)の範囲にあり、単純平均は1,752 mmであった。地域別では、日本海側で多く、北部で少ない傾向を示した。年間平均pHは、4.48(鹿児島)~5.82(旭)の範囲で、加重平均は4.88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。

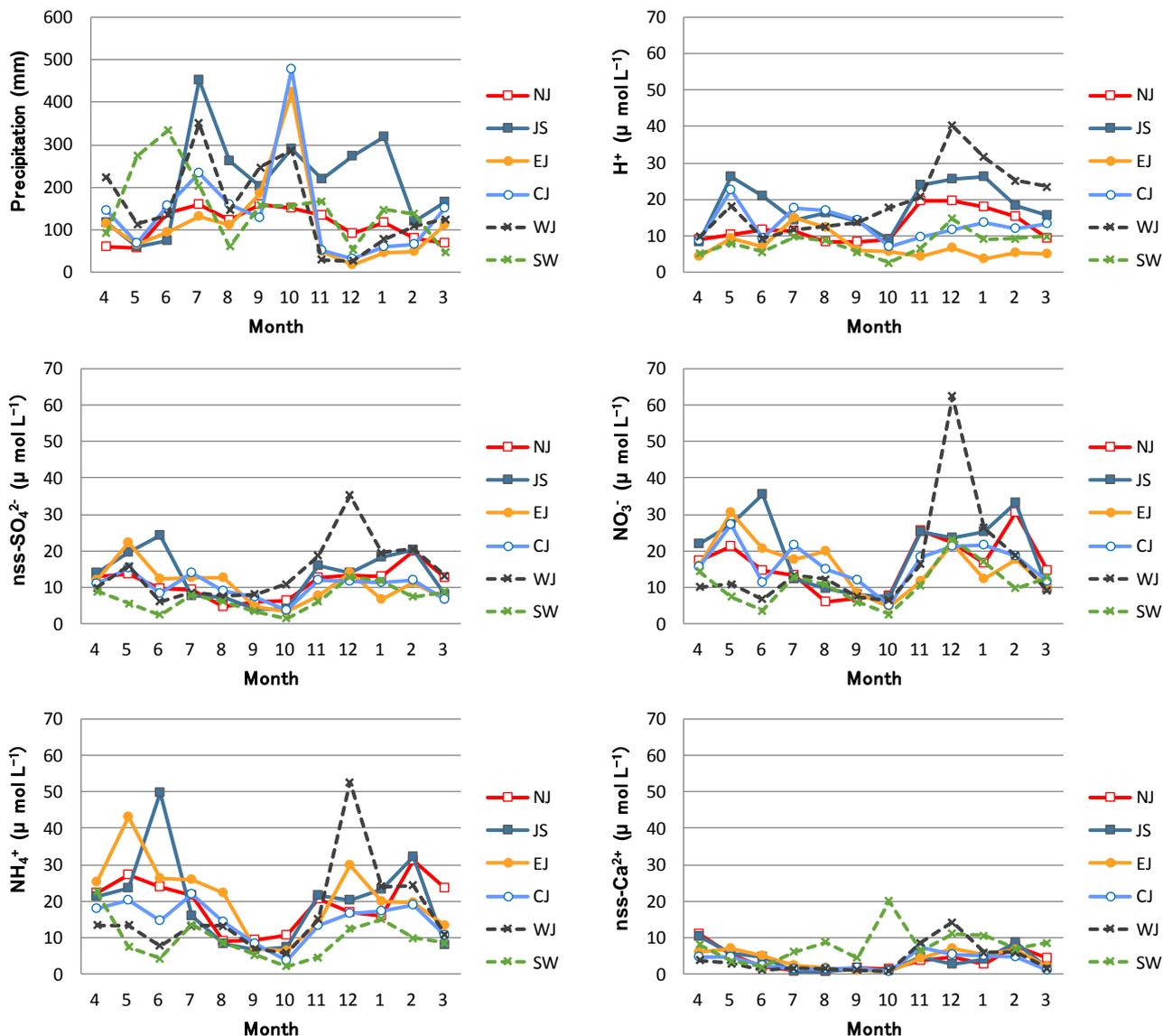


図4.2.3 イオン成分濃度の地域別季節変動（中央値）

H⁺濃度としては、加重平均は13.3 μmol L⁻¹であり、日本海側や西日本で高く、東部で低い傾向がみられた。

年間平均ECは、0.72(長野)～8.14 mS m⁻¹(辺戸岬)の範囲で、加重平均は2.19 mS m⁻¹であった。

海塩粒子からの寄与を示す成分としてはNa⁺が用いられる。2017年度の年間平均Na⁺濃度では、3.3(長野)～486.3 μmol L⁻¹(辺戸岬)の範囲で、加重平均は79.0 μmol L⁻¹であった。

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

降水の酸性化の原因となる酸性成分については、次のとおりであった。

年間平均nss-SO₄²⁻濃度は、4.8(勝浦および旭)～18.1 μmol L⁻¹(鹿児島)の範囲で、加重平均は9.8 μmol L⁻¹であった。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NO₃⁻濃度は、5.1(勝浦)～24.4 μmol L⁻¹(加須)の範囲で、加重平均は13.8 μmol L⁻¹であった。地域別では北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NH₄⁺濃度は、5.1(勝浦)～30.0 μmol L⁻¹(小山)の範囲で、加重平均は14.9 μmol L⁻¹であった。地域別では、北部および東部で高く、南西諸島で低い傾向を示した。

年間平均nss-Ca²⁺濃度は、0.2(旭)～28.2 μmol L⁻¹(佐世保)の範囲で、加重平均は3.5 μmol L⁻¹であった。地域別では、南西諸島で高く、中部で低い傾向を示した。

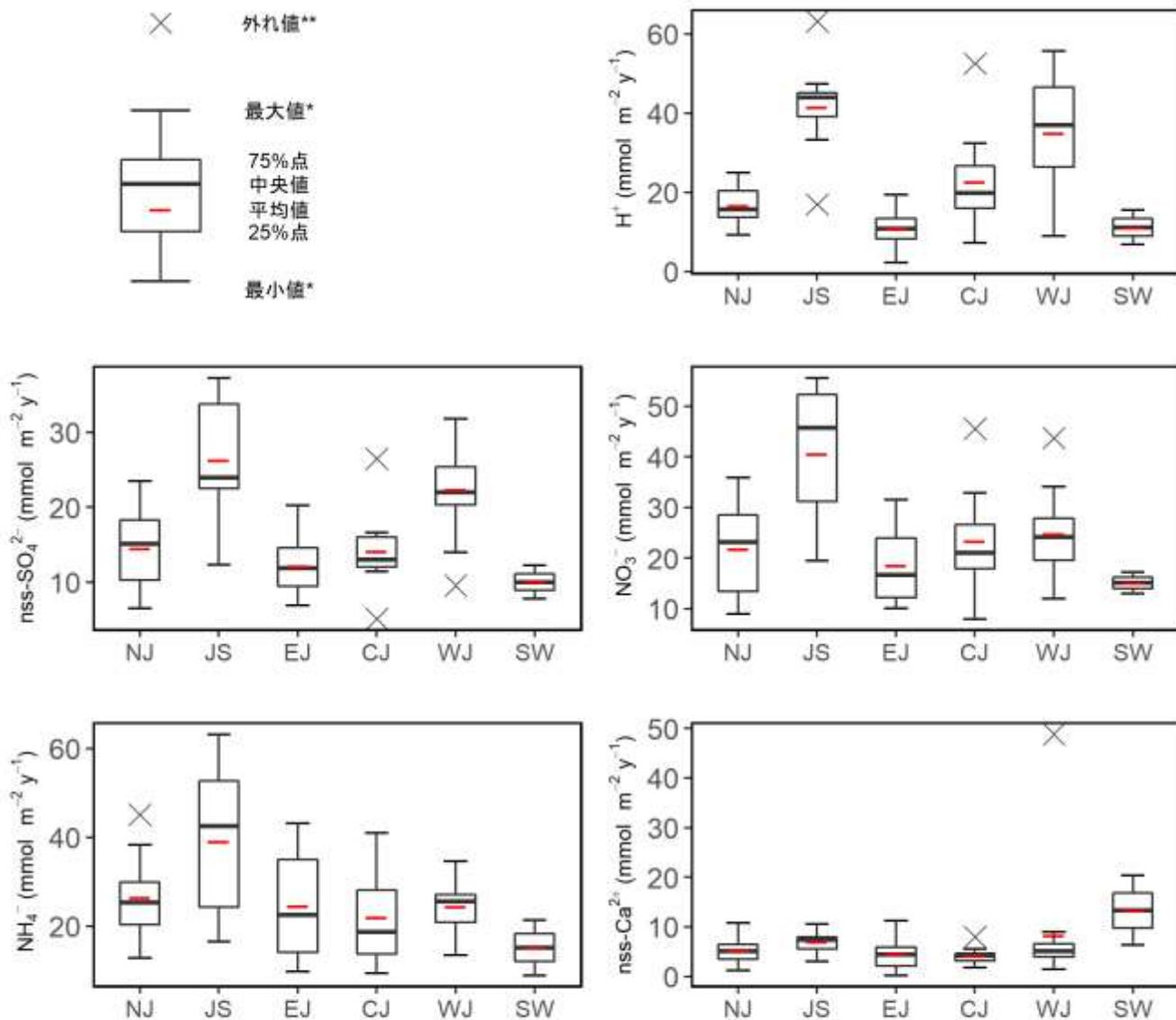
4.2.3 pHおよびイオン成分濃度の季節変動

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、2017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、南西諸島では春季に、日本海側と西部では夏季に、東部と中央部では秋季に多い傾向を示した。H⁺濃度は、日本海側では春季と冬季に、北部、および西部およびでは冬季に、高い傾向が見られた。

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 ⁻¹)	1674	815	(長野)
			3374	(宮崎)
nss-SO ₄ ²⁻	(mmol m ⁻² y ⁻¹)	15.0	5.1	(長野)
			37.3	(金沢)
NO ₃ ⁻	(〃)	21.4	8.0	(長野)
			55.6	(金沢)
NH ₄ ⁺	(〃)	24.6	8.9	(辺戸岬)
			63.2	(長岡)
nss-Ca ²⁺	(〃)	4.9	0.2	(旭)
			48.8	(佐世保)
H ⁺	(〃)	17.0	2.3	(旭)
			63.2	(金沢)



** 箱の端からの距離が箱の長さの1.5倍以上
* 外れ値を除いた最大値または最小値

図4.3.1 主要イオン成分年間沈着量の分布

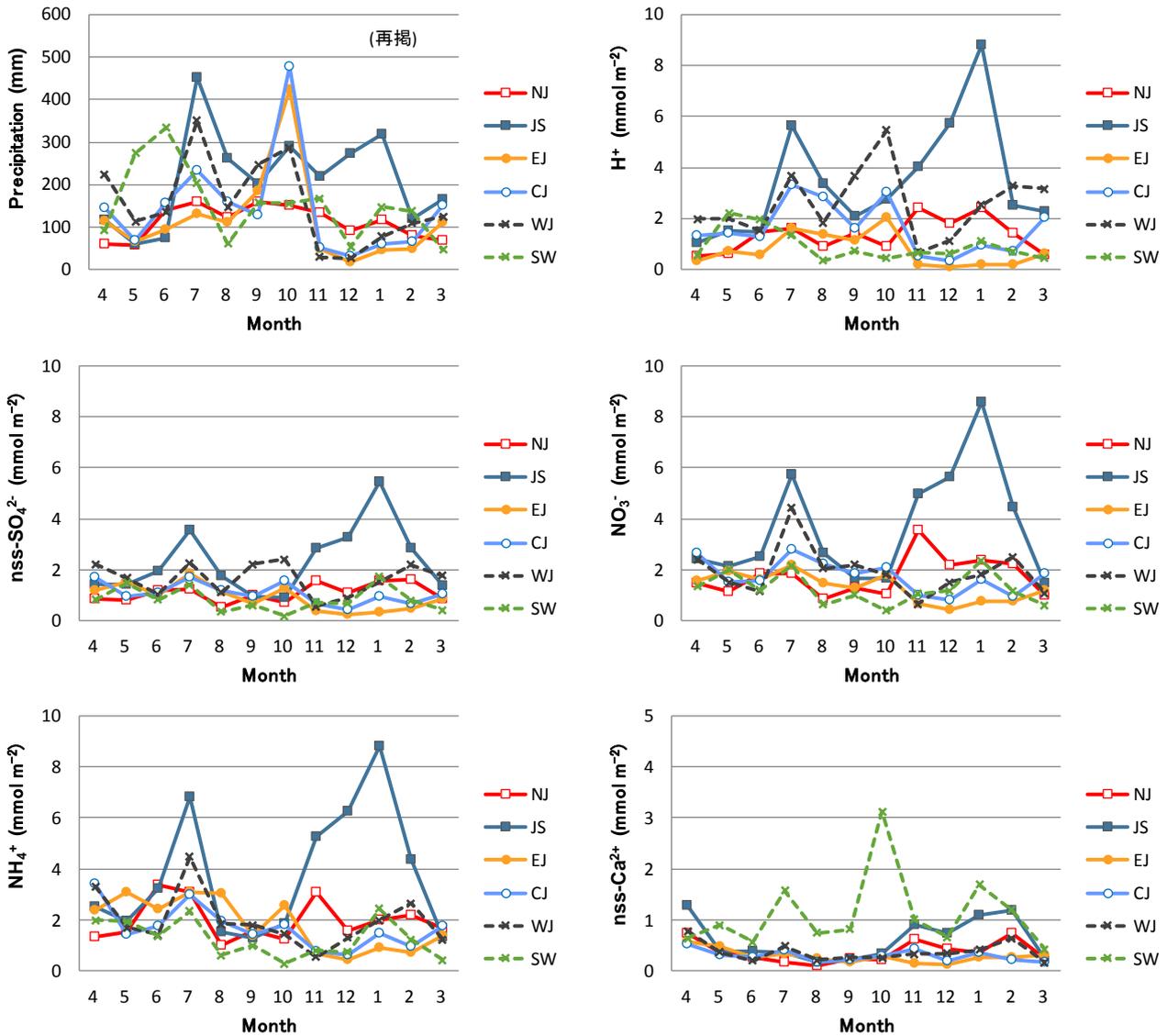


図4.3.2 イオン成分沈着量の地域別季節変動（中央値）

nss-SO₄²⁻濃度は、おおむねどの地域も、春季と冬季に高い傾向が見られた。

NO₃⁻濃度は、おおむねどの地域も秋季に低くなる傾向が示された。

NH₄⁺濃度も、おおむねどの地域も秋季に低くなる傾向が示された。

nss-Ca²⁺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、春季や冬季にやや高濃度となる傾向が見られた。ただし、南西諸島ではこの限りではなかった。

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秋季に濃度が低下した。また、冬季に多くの物質の濃度が高くなる傾向も確認された。地理的要因や冬季の風向等を考慮すると、大陸からの汚染物質の移流が示唆された。なお、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⁾が、2006年度にはその傾向が西部でも確認され³⁾、2007～2016年度も引き続き同様の傾向がみられた⁴⁻¹²⁾。

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

2017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⁺およびnss-SO₄²⁻沈着量は日本海側および西部で多く、中央値はそれぞれ24.0および22.0 mmol m⁻² y⁻¹であった。

NO₃⁻沈着量は日本海側で多い傾向を示し、中央値は45.7 mmol m⁻² y⁻¹、それ以外の地域では中央値が15.1～24.2 mmol m⁻² y⁻¹の間であった。

NH₄⁺沈着量は日本海側で多く中央値は42.5 mmol m⁻² y⁻¹、それ以外の地域では中央値が15.1～25.5 mmol m⁻² y⁻¹の間であった。

nss-Ca²⁺沈着量は南西諸島で多く、中央値は13.3 mmol m⁻² y⁻¹、それ以外の地域では中央値が3.1～7.3 mmol m⁻² y⁻¹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⁺沈着量は、日本海側では冬季に多い傾向であり、次いで7月に多く、西部では秋季に、中央部では7月から10月にかけて多かった。同様の傾向がnss-SO₄²⁻沈着量でみられた。

NO₃⁻沈着量は日本海側で7月および11月～2月に多い傾向であり、NH₄⁺沈着量でも同様の傾向が見られた。

nss-Ca²⁺沈着量は、南西諸島で7月、10月および1月で多くなった。日本海側では11月～2月で多くなった。

－ 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_deposition/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) 全国環境研協議会 酸性雨広域大気汚染調査研究部会：第6次酸性雨全国調査報告書（平成28年度），全国環境研会誌，**43**，3，79-119，2018

14) 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29年度酸性雨測定分析機関間比較調査結果報告書（大気系），2018

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 ₃ (g)	28	8	328	9	11	308	43	94	0	28	1	1	26	0	93
SO ₂ (g)	28	8	328	9	11	308	4	94	0	28	1	1	26	0	93
HCl(g)	28	8	328	9	11	308	4	94	0	28	1	1	26	0	93
NH ₃ (g)	28	8	328	9	11	308	0	94	0	28	1	1	26	0	93
SO ₄ ²⁻ (p)	28	8	328	9	11	308	0	94	0	28	1	1	26	0	93
NO ₃ ⁻ (p)	28	8	328	9	11	308	0	94	0	28	1	1	26	0	93
Cl ⁻ (p)	28	8	328	9	11	308	2	94	0	28	1	1	26	0	93
Na ⁺ (p)	28	8	328	9	11	308	0	94	0	28	1	1	26	0	93
K ⁺ (p)	28	8	328	9	11	308	0	94	0	28	1	1	26	0	93
Ca ²⁺ (p)	28	8	328	9	11	308	0	94	0	28	1	1	26	0	93
Mg ²⁺ (p)	28	8	328	9	11	308	0	94	0	28	1	1	26	0	93
NH ₄ ⁺ (p)	28	8	328	9	11	308	0	94	0	28	1	1	26	0	93

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%以上の場合、さらにインパクト付きでは積算流量から計算した平均流量が1.5~3.0 L min⁻¹の範囲を外れた場合)は年間を通して参考値としていた。2017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1地点であった。

5.1.2 定量下限値の設定

定量下限値は、EUNET³⁾の基準値(粒子:0.01 μg m⁻³, ガス:0.1 ppb)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。エラーバーは最小値と最大値を表し、箱の端からの距離が箱の長さの1.5倍以上の値は外れ値として×で示されている。

5.2.1.1 ガス状成分

SO₂(g)の年平均濃度の範囲は5.2~117.6 nmol m⁻³(平均値32.3 nmol m⁻³)であり、最高値は市原、次いで大分久住、最低値は利尻であった。市原は重油ボイラーが多く存在する工業地帯の影響で、大分久住は阿蘇山等を起源とする火山ガスの影響でSO₂(g)濃度が高いと考えられる。SO₂(g)濃度はWJで高く、JSおよびSWで低い傾向がみられた。

HNO₃(g)の年平均濃度の範囲は2.2~39.4 nmol m⁻³(平均値13.2 nmol m⁻³)であり、最高値は神戸須磨、次いで加須、最低値は母子里であった。HNO₃(g)濃度はWJ、CJおよびEJで高く、NJおよびSWで低い傾向がみられた。

HCl(g)の年平均濃度の範囲は5.8~39.5 nmol m⁻³(平均値21.5 nmol m⁻³)であり、最高値は神戸須磨、次いで市原、最低値は母子里であった。HCl(g)濃度はSWおよびEJで高く、NJで低い傾向がみられた。

NH₃(g)の年平均濃度の範囲は16.3~3255.8 nmol m⁻³(平均値235.5 nmol m⁻³)であり、最高値は旭、次いで前橋、最低値は利尻であった。NH₃(g)濃度はEJの旭や前橋、SWのうま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。

なお、これまでSO₂(g)、HNO₃(g)およびHCl(g)が高濃度であった「大分」でのFP法の調査は2016年度で終了した。

5.2.1.2 粒子状成分

SO₄²⁻(p)の年平均濃度の範囲は17.0~54.4 nmol m⁻³(平均値33.8 nmol m⁻³)であり、最高値は大分久住、次いで神戸須磨、最低値は母子里であった。nss-SO₄²⁻(p)の年平均濃度の範囲は15.8~53.1 nmol m⁻³(平均値30.8 nmol m⁻³)であり、最高値は大分久住、次いで神戸須磨および太宰府、最低値は母子里であった。nss-SO₄²⁻(p)濃度はWJで高く、NJで低い、西高東低の傾向がみられた。このようなnss-SO₄²⁻(p)濃度の分布は、Aikawa et al. (2008)⁵⁾が指摘しているように、アジア大陸の汚染大気の移流の影響を反映していると考えられる。

NO₃⁻(p)の年平均濃度の範囲は7.3~51.7 nmol m⁻³(平均値27.2 nmol m⁻³)であり、最高値は神戸須磨、次いで旭、最低値は伊自良湖であった。NO₃⁻(p)濃度はEJやWJで高く、NJで低い傾向がみられた。

Cl⁻(p)の年平均濃度の範囲は2.0~196.0 nmol m⁻³(平均値36.7 nmol m⁻³)であり、最高値は辺戸岬、次いでうるま、最低値は伊自良湖であった。Cl⁻(p)濃度はSWで高い傾向がみられた。

Na⁺(p)の年平均濃度の範囲は11.2~211.3 nmol m⁻³(平均値49.2 nmol m⁻³)であり、最高値は辺戸岬、次いでうるま、最低値は伊自良湖であった。Na⁺(p)濃度はSWで高い傾向がみられた。

K⁺(p)の年平均濃度の範囲は2.3~6.1 nmol m⁻³(平均値3.2 nmol m⁻³)であり、最高値は辺戸岬、次いでうるま、

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*	5.2	3.6	16.7	16.3
2	北海道	母子里*	10.5	9.2	5.8	17.5
3	北海道	札幌北*	45.8	7.2	12.3	59.2
4	新潟県	新潟曾和	11.2	9.2	23.6	67.1
5	新潟県	長岡	12.5	12.5	17.6	82.3
6	群馬県	前橋	16.9	26.2	18.2	487.3
7	埼玉県	加須*	22.7	30.4	27.0	175.1
8	千葉県	旭	16.5	5.2	16.9	3255.8
9	千葉県	勝浦	18.1	6.4	28.4	69.7
10	千葉県	清澄	31.4	6.8	24.0	72.7
11	千葉県	市原	117.6	17.5	37.0	162.7
12	千葉県	佐倉	33.9	15.1	33.3	142.2
13	長野県	長野	13.3	15.8	19.8	99.9
14	富山県	射水*	12.4	10.2	13.9	76.7
15	石川県	金沢	18.1	7.0	15.2	41.7
16	福井県	福井	(30.1)	(14.0)	(26.6)	(120.7)
17	岐阜県	伊自良湖	10.7	7.5	6.8	40.9
18	愛知県	豊橋*	28.0	17.9	23.6	145.6
19	名古屋市	名古屋南	35.6	23.6	28.7	107.2
20	和歌山県	海南*	32.9	15.3	16.1	104.9
21	兵庫県	神戸須磨*	87.9	39.4	39.5	89.4
22	鳥取県	湯梨浜*	9.3	4.9	10.7	117.3
23	福岡県	太宰府*	37.3	22.1	24.6	148.8
24	大分県	大分久住*	102.1	17.9	15.5	66.0
25	宮崎県	宮崎	(78.2)	(34.5)	(56.5)	(235.2)
26	鹿児島県	鹿児島*	81.7	11.9	26.6	92.3
27	沖縄県	うるま	17.5	3.6	23.0	331.3
28	沖縄県	辺戸岬	10.9	2.9	34.7	53.4
全国最低値			5.2	2.2	5.8	16.3
全国最高値			117.6	39.4	39.5	3255.8
全国中央値			18.1	11.1	21.4	90.9
全国平均値			32.3	13.2	21.5	235.5

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) *はインパクター付きフィルターパック法による。

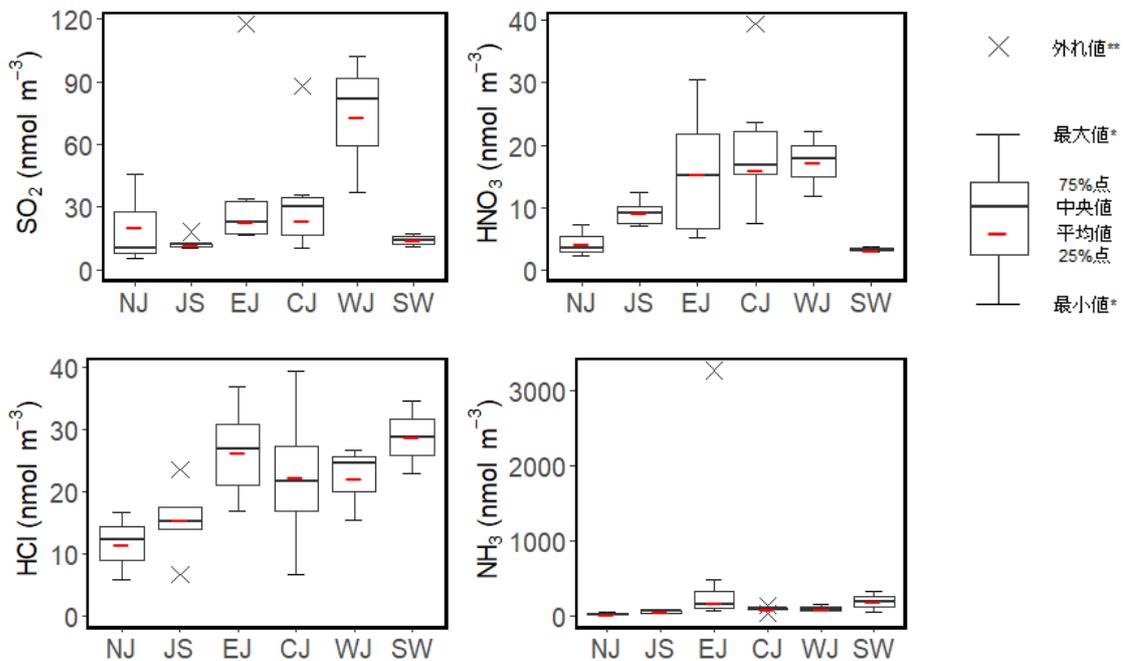


図5.2.1 ガス状成分の年平均濃度の分布（地域区分別）

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 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*	24.0	19.4	10.3	67.9	75.8	3.7	3.5	1.8	8.8	25.5
2	北海道	母子里*	17.0	15.8	7.8	13.7	18.8	2.5	2.1	1.7	2.3	30.9
3	北海道	札幌北*	26.3	24.2	21.0	30.2	34.1	3.1	5.5	4.8	3.9	58.1
4	新潟県	新潟曾和	29.2	25.3	21.4	51.3	63.7	3.7	5.4	4.0	7.8	38.4
5	新潟県	長岡	27.2	25.1	20.2	22.4	34.5	3.2	4.6	3.8	4.4	42.6
6	群馬県	前橋	26.5	25.5	43.7	10.3	17.5	4.0	13.2	12.8	3.5	64.7
7	埼玉県	加須*	27.9	26.6	39.8	14.4	21.5	3.8	7.6	7.1	2.8	70.1
8	千葉県	旭	33.2	28.5	44.5	75.7	78.7	3.0	5.7	4.0	8.3	76.5
9	千葉県	勝浦	36.4	31.1	28.7	64.9	87.3	3.4	6.8	4.8	9.6	38.3
10	千葉県	清澄	31.9	28.6	23.9	30.3	53.4	2.3	4.3	3.1	5.6	36.1
11	千葉県	市原	38.3	35.5	39.1	24.8	46.6	2.4	12.4	11.4	5.5	56.0
12	千葉県	佐倉	35.0	32.7	32.9	14.3	38.4	2.4	6.1	5.3	4.0	48.5
13	長野県	佐野	25.4	24.7	14.0	3.5	11.6	2.6	2.8	2.5	1.2	41.6
14	富山県	射水*	26.8	25.3	14.9	14.4	24.0	2.9	3.7	3.2	2.7	48.6
15	石川県	金沢	29.4	26.8	18.2	23.2	42.0	3.7	5.9	4.9	5.8	40.3
16	福井県	福井	(36.4)	(34.2)	(23.2)	(21.1)	(35.8)	(4.4)	(11.6)	(10.8)	(5.1)	(51.1)
17	岐阜県	伊自良湖	26.7	26.0	7.3	2.0	11.2	2.6	3.1	2.9	1.5	38.9
18	愛知県	豊橋*	32.1	30.2	29.8	20.4	31.2	3.0	7.5	6.8	5.7	61.4
19	名古屋市	名古屋南	32.0	30.3	37.6	17.1	27.2	4.1	9.2	8.5	3.7	59.6
20	和歌山県	海南*	35.7	34.0	23.3	16.0	28.1	3.0	5.9	5.2	3.6	69.7
21	兵庫県	神戸須磨*	49.1	46.0	51.7	30.6	51.9	2.6	8.5	7.4	6.2	100.8
22	鳥取県	湯梨浜*	38.7	35.4	21.3	41.7	53.4	2.6	5.5	4.3	5.5	69.1
23	福岡県	太宰府*	48.2	46.0	43.3	23.2	37.0	3.3	10.1	9.3	4.7	91.9
24	大分県	大分久住*	54.4	53.1	28.7	10.4	21.4	3.2	6.8	6.3	3.5	101.6
25	宮崎県	宮崎	(88.7)	(84.1)	(46.7)	(41.7)	(77.3)	(5.7)	(11.0)	(9.2)	(10.2)	(152.2)
26	鹿児島県	鹿児島*	47.1	44.6	30.7	29.6	41.2	2.5	8.5	7.6	5.2	91.0
27	沖縄県	うるま	36.6	29.4	26.6	105.4	118.4	4.3	19.8	17.1	15.7	33.2
28	沖縄県	辺戸岬	43.4	30.6	26.6	196.0	211.3	6.1	9.9	5.1	25.9	27.0
		全国最低値	17.0	15.8	7.3	2.0	11.2	2.3	2.1	1.7	1.2	25.5
		全国最高値	54.4	53.1	51.7	196.0	211.3	6.1	19.8	17.1	25.9	101.6
		全国中央値	32.0	29.0	26.6	23.2	37.7	3.1	6.0	5.0	5.0	52.3
		全国平均値	33.8	30.8	27.2	36.7	49.2	3.2	7.1	6.0	6.1	56.2

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) *はインパクタ付きフィルターバック法による。

最低値は清澄であった。K⁺(p)濃度はSWで高い傾向がみられた。

Ca²⁺(p)の年平均濃度の範囲は2.1~19.8 nmol m⁻³(平均値7.1 nmol m⁻³)、nss-Ca²⁺(p)の年平均濃度の範囲は1.7~17.1 nmol m⁻³(平均値6.0 nmol m⁻³)であり、いずれも最高値はうるま、次いで前橋、最低値は母子里であった。前年度まではCa²⁺(p)およびnss-Ca²⁺(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で最高値を観測していたが、市原におけるnss-Ca²⁺(p)濃度は前年度から約70%の減少となった。新たに測定地点となったうるまの周辺にはセメント工場が位置しており、その影響を受けて高濃度になったと考えられる。

Mg²⁺(p)の年平均濃度の範囲は1.2~25.9 nmol m⁻³(平均値6.1 nmol m⁻³)であり、最高値は辺戸岬、次いでうるま、最低値は長野であった。Mg²⁺(p)濃度はSWで高い傾向がみられた。

NH₄⁺(p)の年平均濃度の範囲は25.5~101.6 nmol m⁻³(平均値56.2 nmol m⁻³)であり、最高値は大分久住、次いで神戸須磨、最低値は利尻であった。NH₄⁺(p)濃度はWJで高く、NJおよびSWで低い傾向がみられた。

全国中央値を昨年度と比較すると、調査地点は異なるが、NO₃⁻(p)およびNH₄⁺(p)は10~15%増加、Cl⁻(p)、Na⁺(p)およびMg²⁺(p)は10~15%減少した。

5.2.1.3 ガス状および粒子状成分濃度の総評

非海塩由来の全硫黄(SO₂(g)+nss-SO₄²⁻(p))の年平均濃度の範囲は24.6~155.2 nmol m⁻³(平均値63.1 nmol m⁻³)であり、最高値は大分久住、次いで市原、最低値は利尻であった。全硫黄濃度はWJで高い傾向がみられた。

全硝酸(HNO₃(g)+NO₃⁻(p))の年平均濃度の範囲は10.1~91.1 nmol m⁻³(平均値40.4 nmol m⁻³)であり、最高値は神戸須磨、次いで加須、最低値は母子里であった。全硝酸濃度はWJ、EJおよびCJで高く、NJ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8.8~230.7 nmol m⁻³(平均値58.2 nmol m⁻³)であり、最高値は辺戸岬、次いでうるま、最低値は伊自良湖であった。全塩化物濃度はSW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41.8~3332.3 nmol m⁻³(平均値291.7 nmol m⁻³)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EJの旭や前橋、SWのうるまのように周辺の畜産業の影響を受けている地点や都市部で高い傾向が

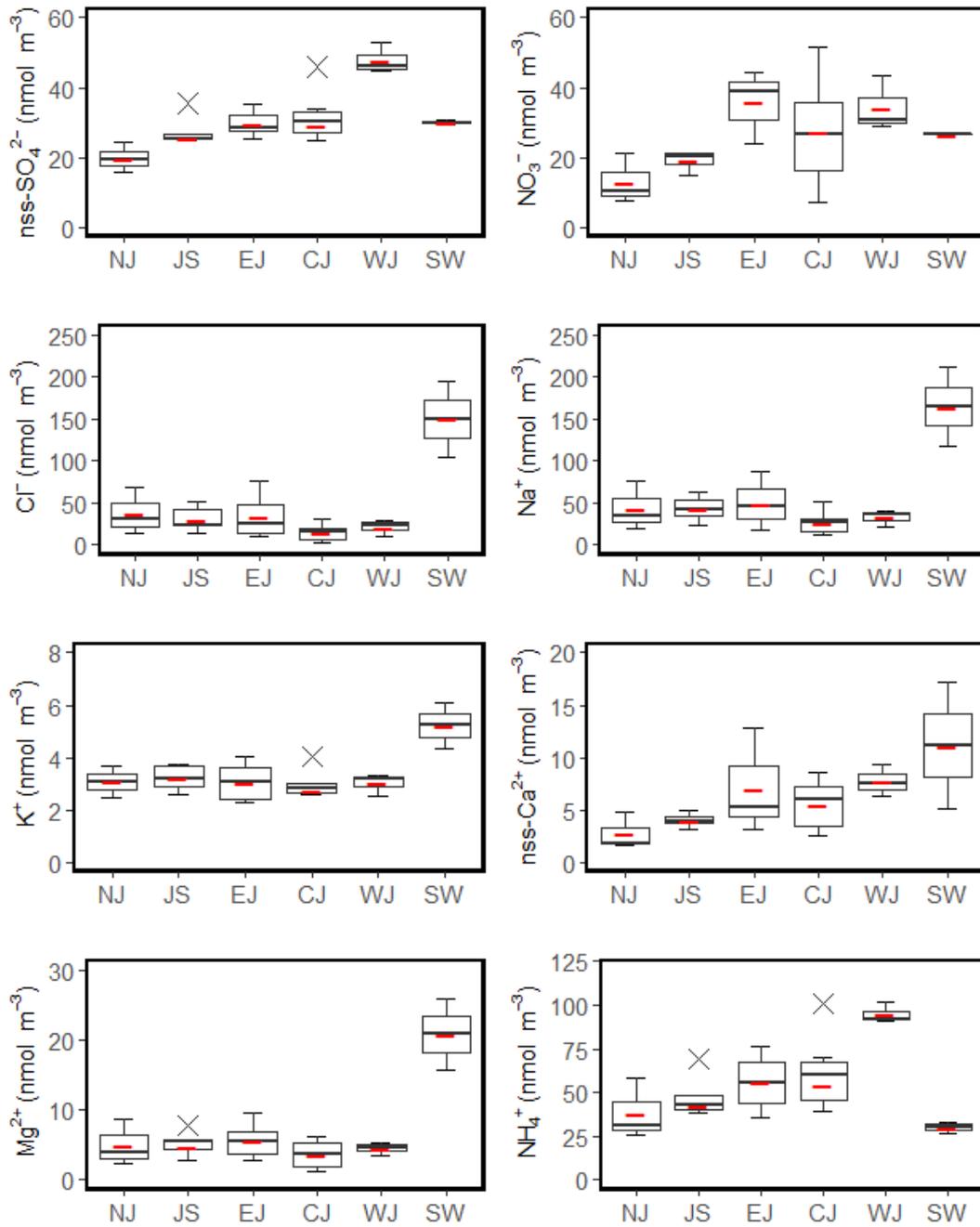


図5.2.2 粒子状成分の年平均濃度の分布（地域区別）

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 ₂ (g)+nss-SO ₄ ²⁻ (p)	HNO ₃ (g)+NO ₃ ⁻ (p)	HCl(g)+Cl ⁻ (p)	NH ₃ (g)+NH ₄ ⁺ (p)
(nmol m ⁻³)						
1	北海道	利尻*	24.6	13.9	84.6	41.8
2	北海道	母子里*	26.3	10.1	19.5	48.3
3	北海道	札幌北*	70.0	28.2	42.5	117.3
4	新潟県	新潟曾和	36.5	30.5	74.9	105.4
5	新潟県	長岡	37.5	32.7	40.0	124.8
6	群馬県	前橋	42.4	70.0	28.4	551.9
7	埼玉県	加須*	49.3	70.2	41.4	245.2
8	千葉県	旭	44.9	49.7	92.5	3332.3
9	千葉県	勝浦	49.2	35.1	93.3	107.9
10	千葉県	清澄	60.1	30.7	54.4	108.8
11	千葉県	市原	153.1	56.6	61.8	218.7
12	千葉県	佐倉	66.6	48.0	47.7	190.7
13	長野県	長野	38.0	29.8	23.2	141.5
14	富山県	射水*	37.7	25.1	28.3	125.3
15	石川県	金沢	45.0	25.2	38.4	82.0
16	福井県	福井	(64.3)	(37.2)	(47.7)	(171.8)
17	岐阜県	伊自良湖	36.8	14.9	8.8	79.9
18	愛知県	豊橋*	58.2	47.7	43.9	207.0
19	名古屋市	名古屋南	65.9	61.1	45.8	166.8
20	和歌山県	海南*	66.8	38.6	32.1	174.6
21	兵庫県	神戸須磨*	133.9	91.1	70.1	190.2
22	鳥取県	湯梨浜*	44.8	26.2	52.4	186.4
23	福岡県	太宰府*	83.3	65.5	47.8	240.7
24	大分県	大分久住*	155.2	46.6	25.9	167.6
25	宮崎県	宮崎	(162.2)	(81.2)	(98.2)	(387.3)
26	鹿児島県	鹿児島*	126.3	42.6	56.3	183.3
27	沖縄県	うるま	46.9	30.2	128.4	364.4
28	沖縄県	辺戸岬	41.5	29.5	230.7	80.4
全国最低値			24.6	10.1	8.8	41.8
全国最高値			155.2	91.1	230.7	3332.3
全国中央値			48.0	33.9	46.7	167.2
全国平均値			63.1	40.4	58.2	291.7

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) *はインパクタ付きフィルターパック法による。

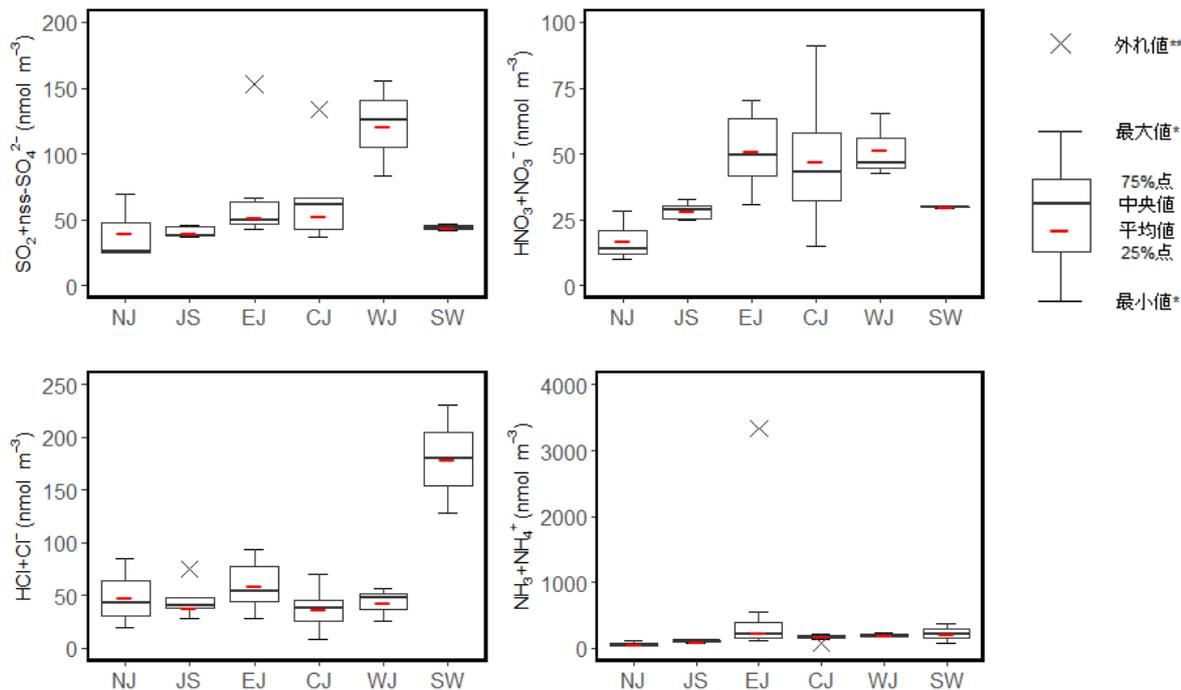


図5.2.3 ガス状および粒子状成分の総計の年平均濃度の分布（地域区別別）

みられた。

5.2.2 経月変化および地域特性

地点別月平均濃度を見ると、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、地域区分の特徴を捉えるため、地域区分別の成分ごとの外れ値を除いた平均値をもとに、経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⁶⁾に従い、本文中、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。SO₂(g)濃度は、WJを除き冬季から春季に高くなる傾向がみられた。NJでは5月から10月に低くそれ以外の月では比較的高い傾向があり、寒候期における暖房等の使用に伴う地域汚染の影響も考えられる。SO₂(g)濃度はWJで最も高く、アジア大陸に近いWJでは、大陸起源のSO₂(g)の影響を強く受けている可能性がある。また、WJでは活発な噴火活動が継続する桜島や阿蘇山、霧島山⁷⁾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。

HNO₃(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CJおよびWJで特に顕著であった。春季から夏季にHNO₃(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

HNO₃(g)への酸化が促進されることや、揮発性粒子であるNH₄NO₃などの解離が進むことなどが考えられる。

HCl(g)濃度はSW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。

NH₃(g)濃度は、夏季に高く冬季に低くなる傾向がみられた。NH₃(g)濃度の季節変化は、気温が上昇するとNH₄NO₃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。NH₃(g)濃度の高いSWおよびEJでは地域汚染の影響が強いと考えられる。SWでは春季から夏季にかけての高濃度が顕著であるが、これはうるまで極めて高い濃度を示したためである。うるまは周辺の畜産の影響を強く受けていると考えられる。EJでは外れ値となった旭以外に、前橋において月平均NH₃(g)濃度が278~684 nmol m⁻³と高かった。

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、SWで最も高かった。SWではNa⁺とCl⁻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。SWを除く地域では、陰イオンはSO₄²⁻、陽イオンはNH₄⁺またはNa⁺の占める割合が高かった。EJでは、他の地域と比べてNO₃⁻の割合が高かった。

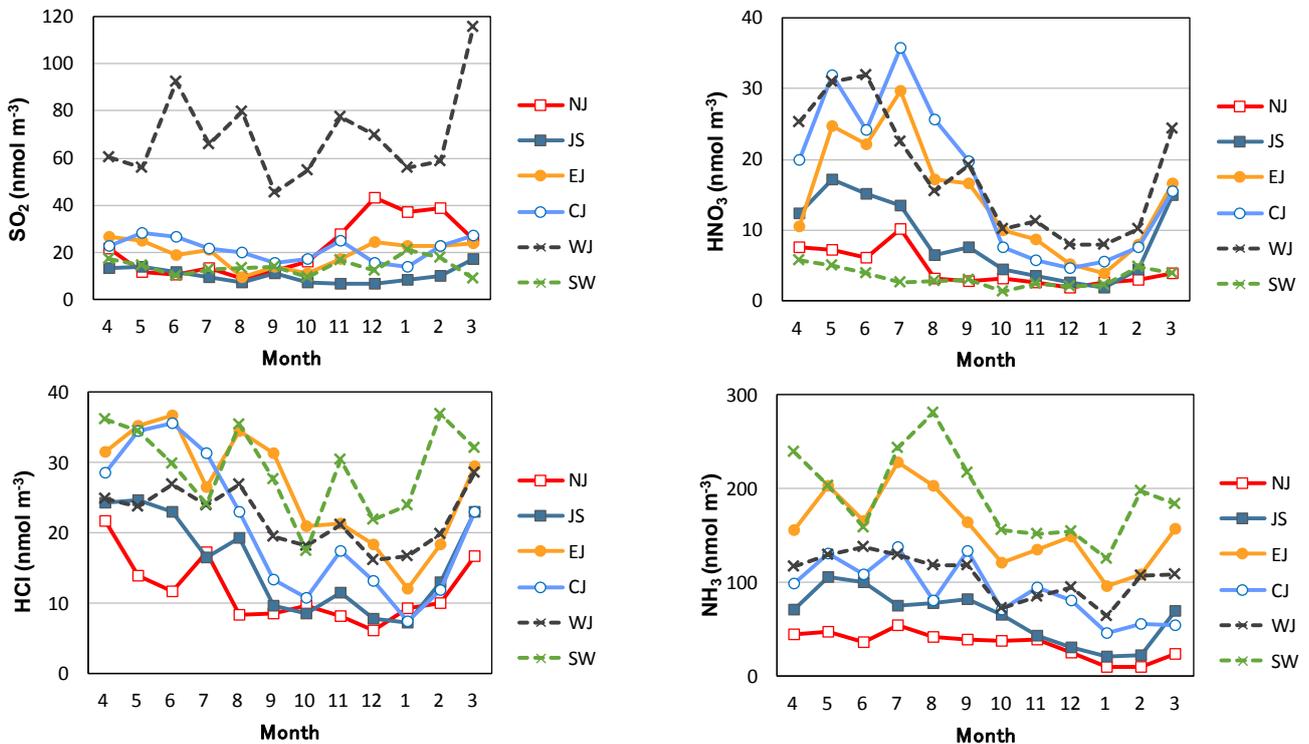


図5.2.4 ガス状成分濃度の経月変化（地域区分別）

粒子状成分濃度の経月変化を図5.2.7に示す。
 $nss-SO_4^{2-}(p)$ の濃度変動は、春季から夏季にかけて高い傾向がみられた。濃度はWJで高く、NJで低かった。

$NO_3^-(p)$ 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、 NH_4NO_3 などの揮発性粒子が解離した影響が考えられる。

$NH_4^+(p)$ 濃度の変動は、 $nss-SO_4^{2-}(p)$ 濃度とよく似ていた。 $NH_4^+(p)$ 濃度はWJで高い傾向がみられた。
 $nss-Ca^{2+}(p)$ 濃度は春季に高い傾向がみられた。2017年度は2017年5月および2018年3月に気象庁によって黄砂が観測されており⁸⁾、黄砂の飛来の影響を受けて $nss-Ca^{2+}(p)$ 濃度は高くなったと考えられる。また、年平均 $Ca^{2+}(p)$ 濃

度が最も高いうまでは、近傍のセメント工場の影響を受けている可能性が高いことから、 $nss-Ca^{2+}(p)$ 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。

$Na^+(p)$ 、 $Cl^-(p)$ および $Mg^{2+}(p)$ の濃度変動は明瞭でなく、濃度は1年を通してSWで高かった（縦軸は第2軸を使用）。SWの調査地点は海に近いため、海塩粒子の影響が大きいと考えられる。

$K^+(p)$ 濃度は、SWを除いて春季と秋季にやや高い傾向があった。 $K^+(p)$ は、海塩粒子やバイオマス燃焼の影響があったと考えられる。

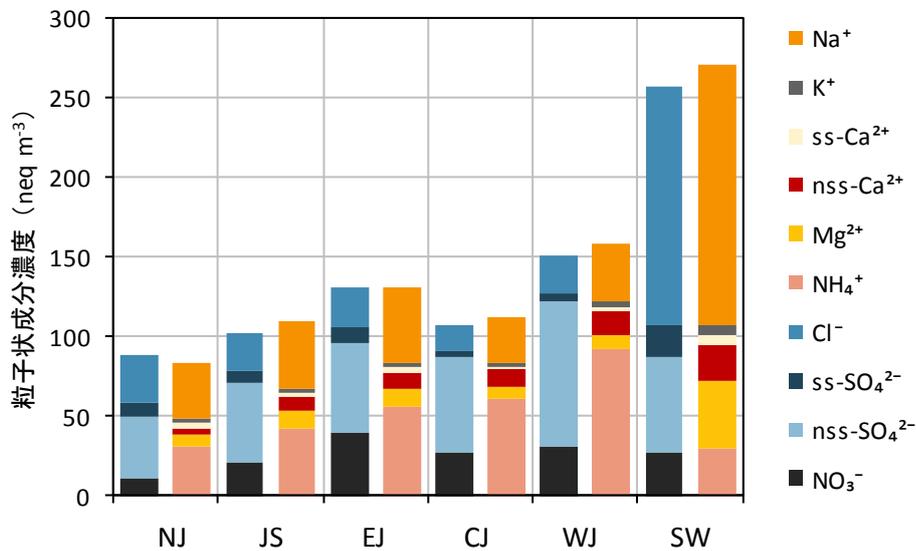


図5.2.5 粒子状成分の年平均当量濃度（地域区別別）

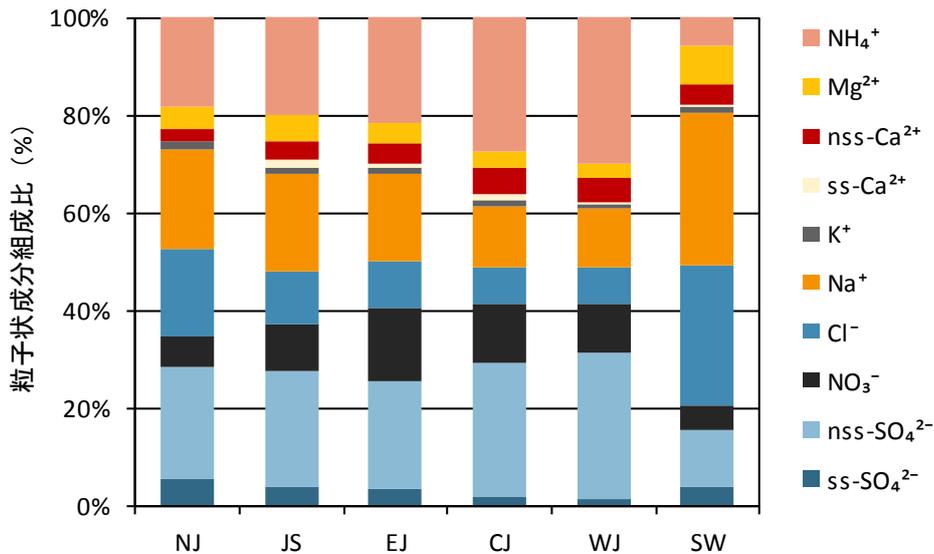


図5.2.6 粒子状成分の年平均組成比（地域区別別）

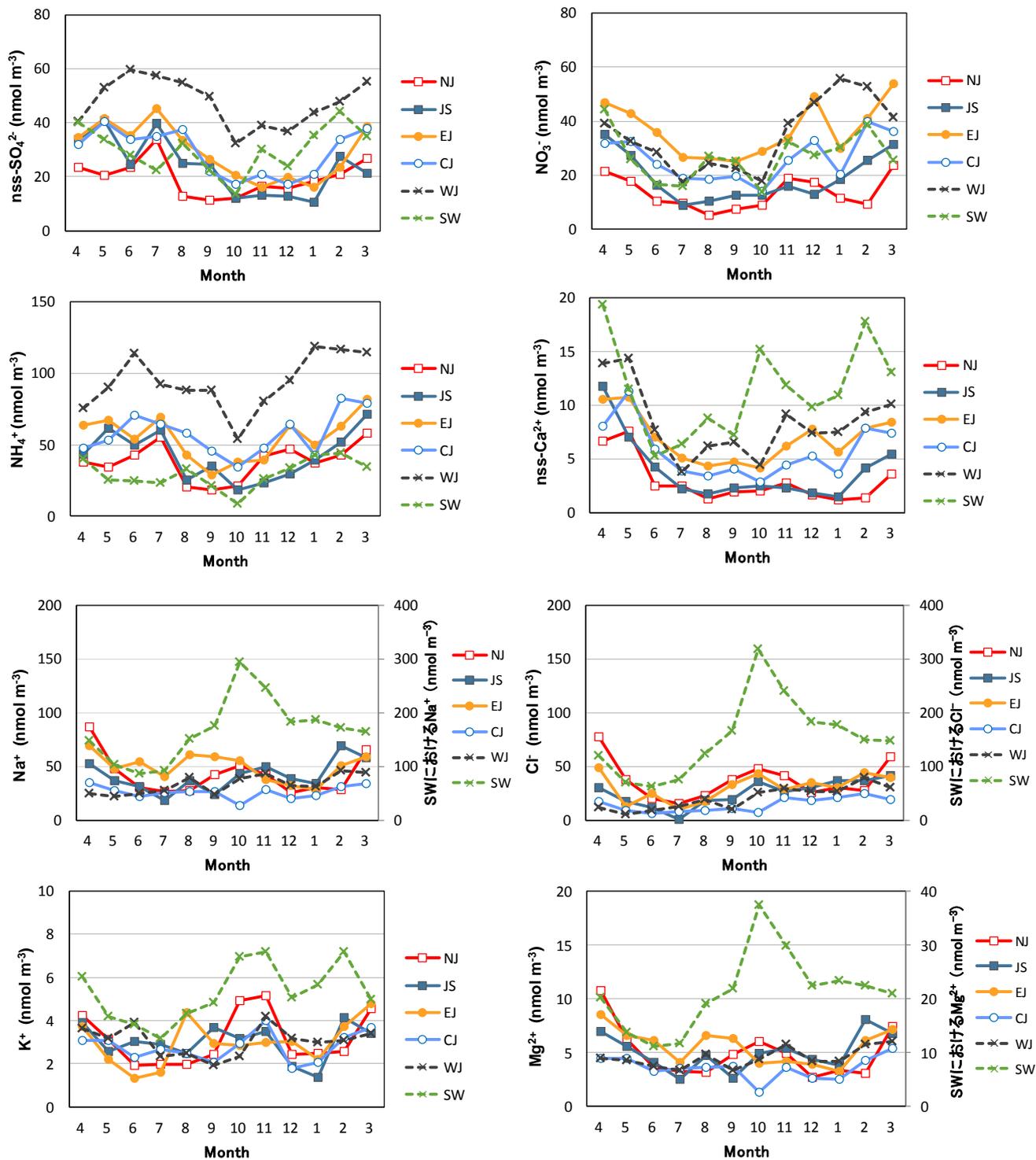


図5.2.7 粒子状成分濃度の経月変化（地域区別）

※Na⁺、Cl⁻ およびMg²⁺についてはSWの縦軸に第2軸（右側）を使用した。

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, NJ およびSWでは冬季から春季にかけて, JS, EJおよびCJでは春季から夏季にかけて高い傾向がみられた。WJでは濃度変動が大きく濃度が高かった。

全硝酸 ($\text{HNO}_3(\text{g}) + \text{NO}_3^-(\text{p})$) 濃度は, 春季に高くなる傾向がみられた。WJでは冬季も高濃度であった。

全塩化物 ($\text{HCl}(\text{g}) + \text{Cl}^-(\text{p})$) 濃度の経月変化は明確でなかった。SWでは1年を通して 90 nmol m^{-3} 以上と高濃度であった。

全アンモニア ($\text{NH}_3(\text{g}) + \text{NH}_4^+(\text{p})$) 濃度は, 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SWで高く, NJで低かった。

5.2.2.4 微小粒子 ($\text{PM}_{2.5}$) 状成分

インパクトを装着した5段ろ紙法では, ドーナツ型ろ紙に捕集された粒子は粗大粒子として, 後段のF0ろ紙に捕集された粒子は $\text{PM}_{2.5}$ としてそれぞれの粒径に分けて測定することができる。ここでは, 粗大粒子と $\text{PM}_{2.5}$ とを粒径別に捕集した12地点 (利尻, 母子里, 札幌北, 加須, 射水, 豊橋, 海南, 神戸須磨, 湯梨浜, 太宰府, 大分久住 および鹿児島) 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濃度を図5.2.9に, 各地点の組成比を図5.2.10に示す。年平均濃度の範囲は $2.3 \sim 7.2 \text{ } \mu\text{g m}^{-3}$ (平均値 $5.0 \text{ } \mu\text{g m}^{-3}$) であり, 最高値は大分久住, 次いで神戸須磨と太宰府, 最低値は母子里であった。どの地点も nss-SO_4^{2-} の割合が最も高く, $\text{PM}_{2.5}$ イオン濃度のうち $45 \sim 65\%$ を占めた。 nss-SO_4^{2-} に次いで多いのはどの地点も NH_4^+ ($16 \sim 25\%$) であるが, 加須, 札幌北, 太宰府および神戸須磨は他の地点と比べて NO_3^- の割合が高い傾向がみられた。

$\text{PM}_{2.5}$ 成分濃度の経月変化を図5.2.11に示す。

$\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$ 濃度は, 春季から夏季にかけて高くなる傾向がみられた。

$\text{NO}_3^-(\text{p})$ 濃度はほとんどの地点で冬季に濃度が高い傾向がみられた。

$\text{NH}_4^+(\text{p})$ 濃度は春季から夏季にかけて高く, さらに冬季にも高くなる傾向がみられた。

$\text{nss-Ca}^{2+}(\text{p})$ 濃度は, 春季に高くなる傾向がみられた。

$\text{Cl}^-(\text{p})$ 濃度は, 冬季に加須で顕著に高かった。

$\text{Na}^+(\text{p})$ および $\text{Mg}^{2+}(\text{p})$ 濃度は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。

$\text{NO}_3^-(\text{p})$ の $\text{PM}_{2.5}$ の割合は夏季に低く, 冬季に高い傾向があった。 $\text{NO}_3^-(\text{p})$ は夏季には粗大粒子に, 冬季には $\text{PM}_{2.5}$ に多く存在する傾向がみられた。

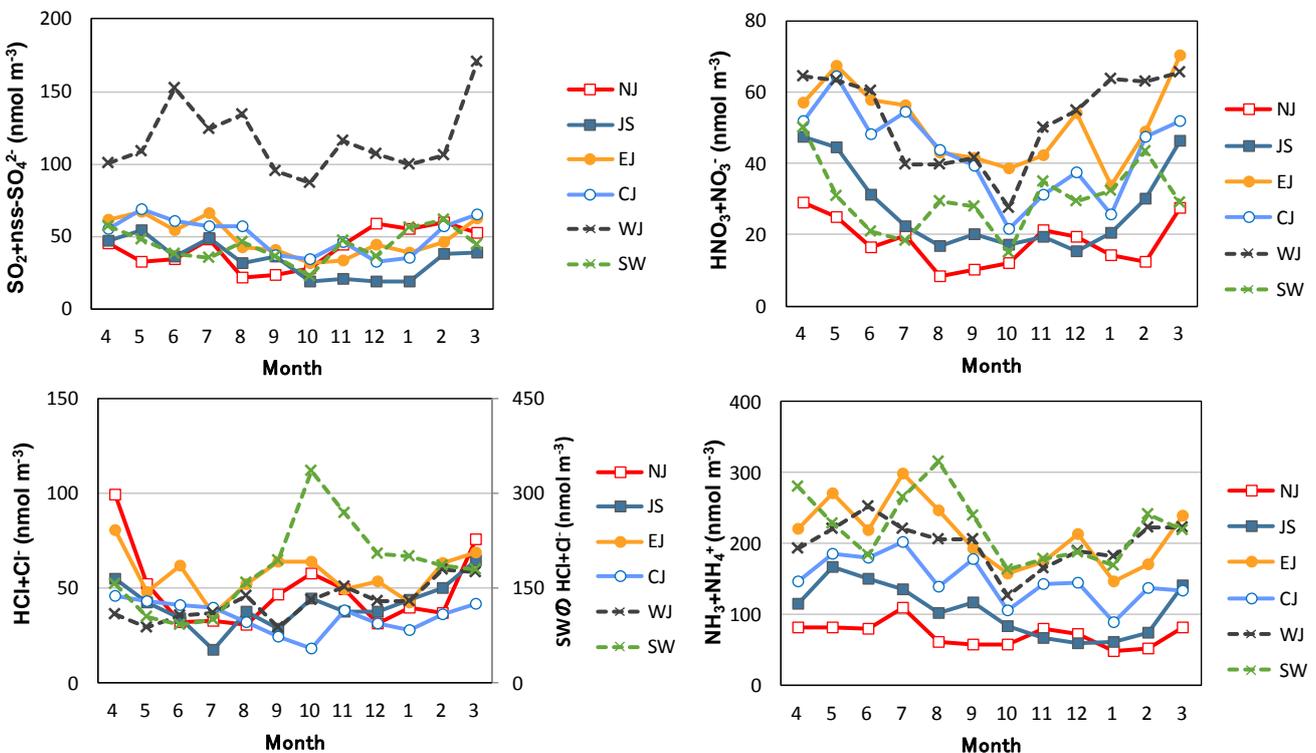


図5.2.8 ガス状および粒子状成分濃度の総計の経月変化 (地域区別)

※HCl+Cl⁻についてはSWの縦軸に第2軸 (右側) を使用した。

K⁺(p)のPM_{2.5}の割合は夏季に低い傾向があり、利尻、母子里、豊橋および湯梨浜で顕著であった。夏季以外のPM_{2.5}の割合はおおむね50%以上であることから、夏季は特定の発生源の影響を受けている可能性がある。

Cl⁻(p)のPM_{2.5}の割合は、冬季に加須で顕著に高かった。SO₄²⁻(p)およびNH₄⁺(p)は1年を通してPM_{2.5}の割合が高く、Na⁺(p)、Ca²⁺(p)およびMg²⁺(p)は1年を通してPM_{2.5}の割合が低かった。

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。

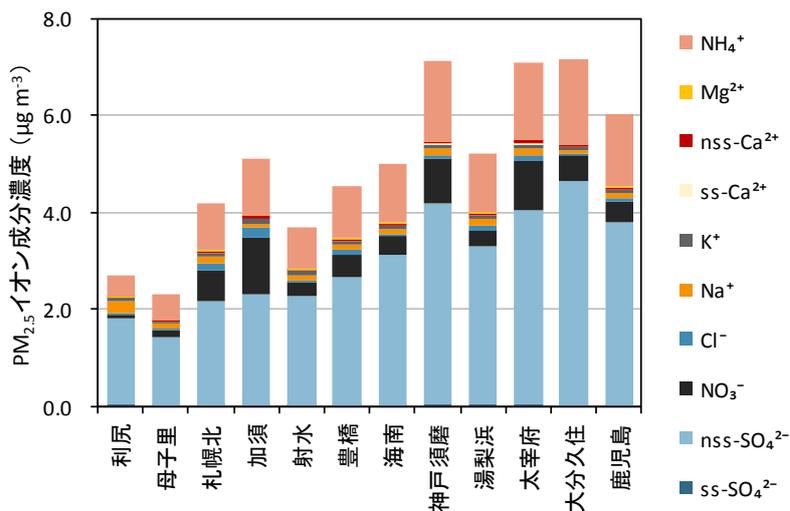


図5.2.9 PM_{2.5}イオン成分の年平均濃度（調査地点別）

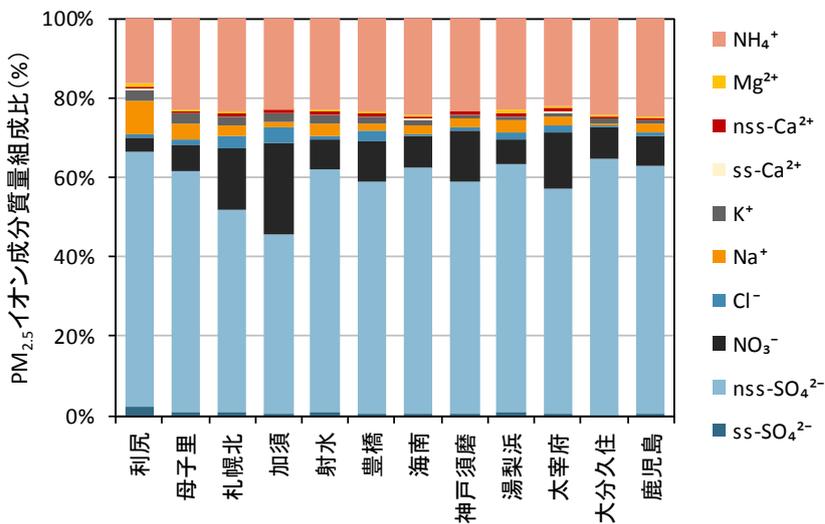


図5.2.10 PM_{2.5}イオン成分の年平均組成比（調査地点別）

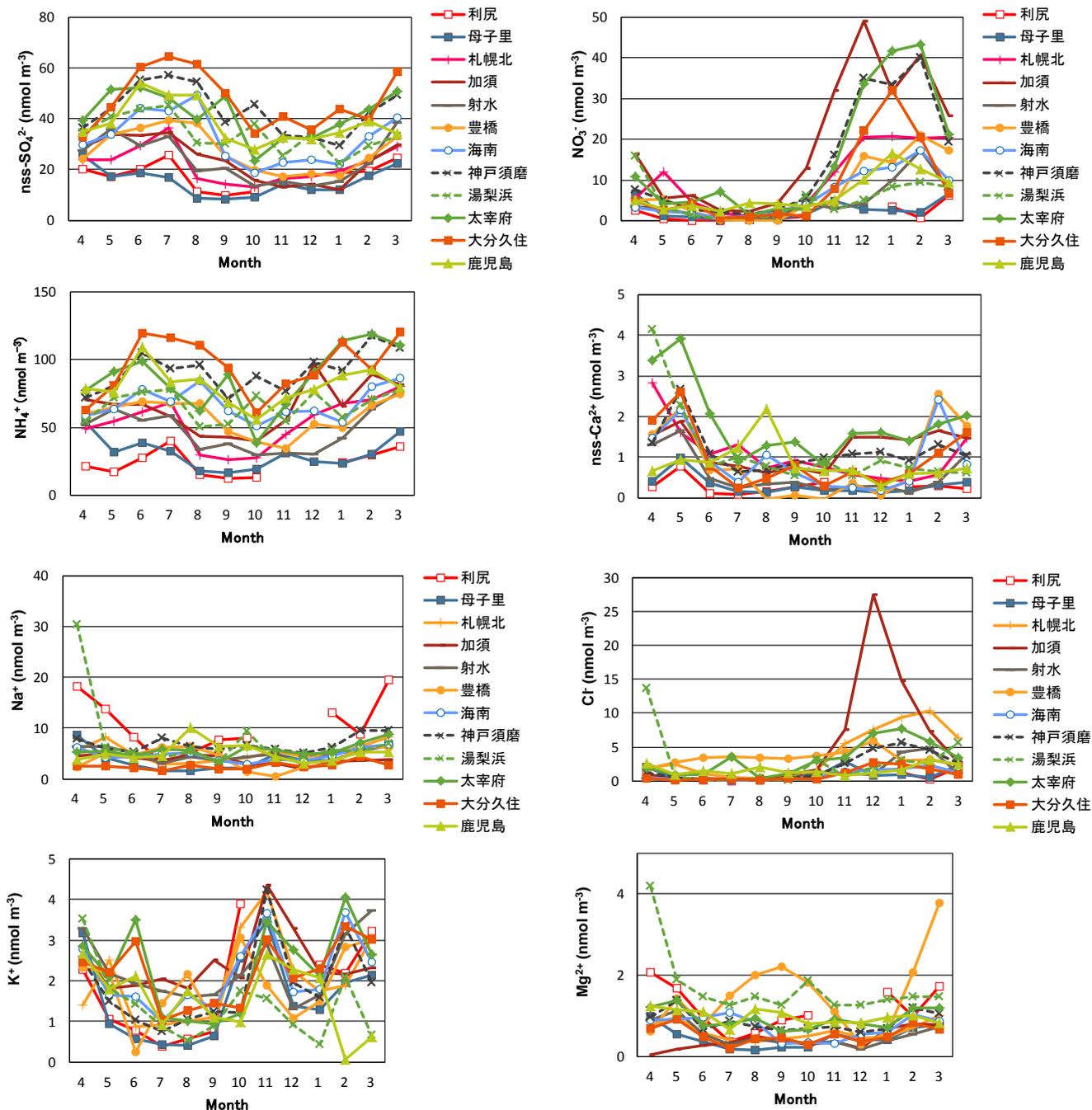


図5.2.11 PM_{2.5}成分濃度の経月変化（調査地点別）

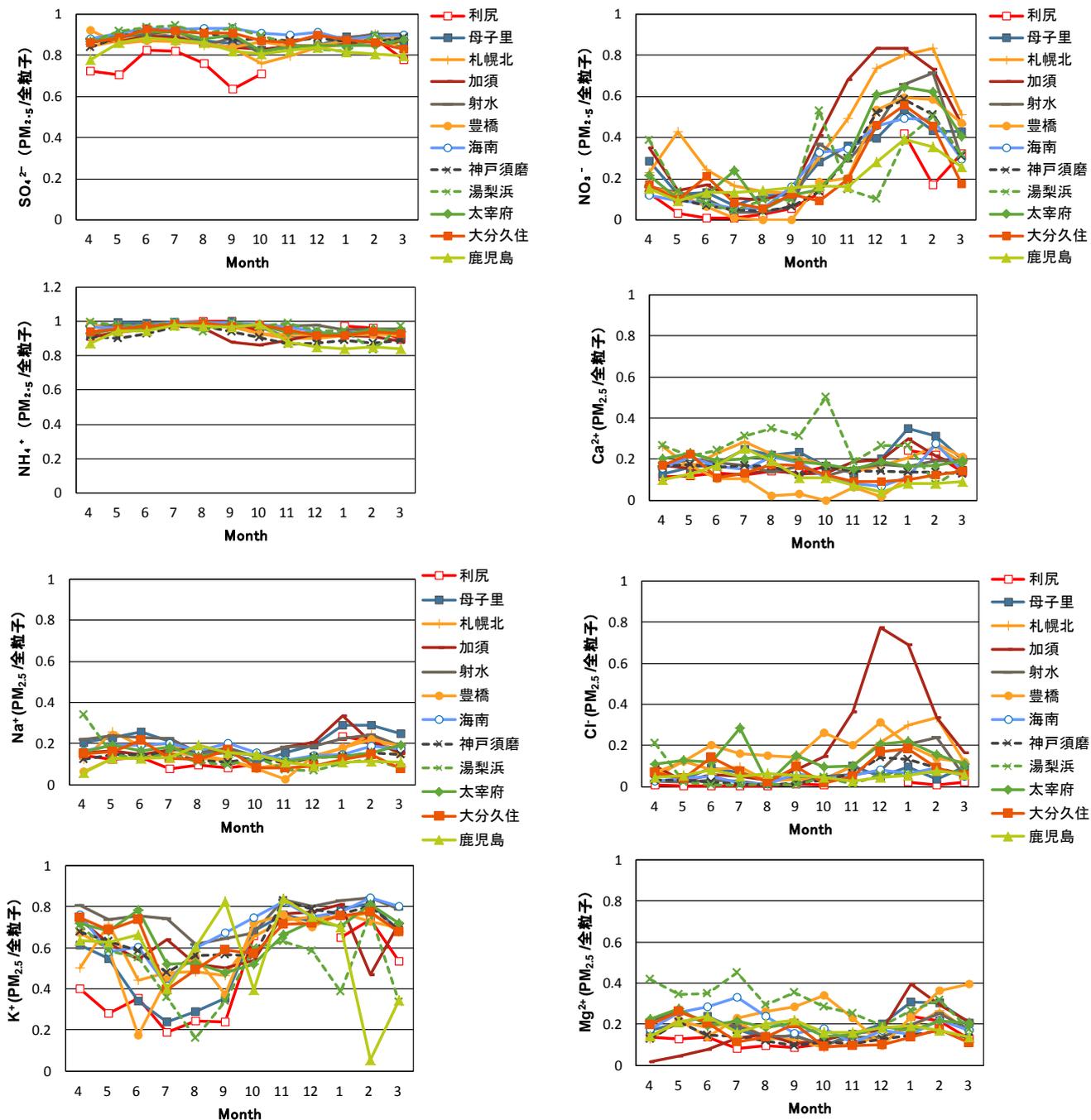


図5.2.12 全粒子状物質に占めるPM_{2.5}の割合の経月変化（調査地点別）

－ 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
- 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パ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6次酸性雨全国調査報告書（平成28年度），全国環境研会誌，**43**(3)，79-119，2018
- 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 SO₂ and SO₄²⁻ 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/known/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
- 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

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。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28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 NO_2 、 NO 測定を実施した18地点は、 NO_2 、 NO についても推計した。

V_d の算出において、乾性沈着推計ファイルに入力する気象データ(風速、気温、湿度、日射量、雲量)は、調査実施機関が指定する各調査地点に近い気象官署、アメダス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(SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 NH_4^+ 、以後(p)をつけて表示)およ

びガス状物質(SO_2 、 HNO_3 、 NH_3 、以後(g)をつけて表示、 NO 、 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、 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)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、測定局周辺半径20 kmを対象とした。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20 km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、さらに検討していく必要がある。

大気濃度は、FP法で測定した nss-SO_4^{2-} (p)、 NO_3^- (p)、 NH_4^+ (p)、 SO_2 (g)、 HNO_3 (g)、 NH_3 (g)、自動測定機またはパッシブ法で測定した NO_2 、 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 HNO_3 (g)と NO_3^- (p)、 NH_3 (g)と NH_4^+ (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

表5.3.1 土地利用状況別の平均沈着速度(2017年度)

	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	0.18	0.18	0.18	0.19	4.6	0.05	0.031	5.5E-09
森林地域	0.60	0.86	0.66	1.3	4.2	0.56	0.11	0.0024
農地	0.14	0.14	0.14	0.66	1.3	0.40	0.14	0.0020
草地	0.17	0.17	0.17	0.71	1.7	0.37	0.10	0.0020
積雪	0.11	0.11	0.11	0.43	0.44	0.48	0.0015	0.0003
水面	0.091	0.091	0.091	0.30	0.29	0.32	0.0012	0.00024

注) 各調査地点で、対象成分ごとに土地利用別に算出した沈着速度 V_d (cm s^{-1})の年間平均値

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、SO₂(g)が1.1(利尻)～21.0(鹿児島)(平均値6.8)mmol m⁻² y⁻¹、HNO₃(g)が1.7(母子里)～55.4(神戸須磨)(平均値12.4)mmol m⁻² y⁻¹、NH₃(g)が2.9(母子里)～497.1(旭)(平均値30.5)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)～8.8(辺戸岬)(平均値3.3)mmol m⁻² y⁻¹、NO₃⁻(p)が0.3(伊自良湖)～11.0(辺戸岬)(平均値3.6)mmol m⁻² y⁻¹、NH₄⁺(p)が1.1(伊自良湖)～17.4(湯梨浜)(平均値5.9)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、非海塩由来硫黄成分(SO₂(g)+nss-SO₄²⁻(p))が2.0(伊自良

湖)～24.9(大分久住)(平均値10.1)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2.2(伊自良湖)～62.4(神戸須磨)(平均値16.1)mmol m⁻² y⁻¹、還元態窒素成分(NH₃(g)+NH₄⁺(p))が5.6(伊自良湖)～503.8(旭)(平均値36.3)mmol m⁻² y⁻¹だった。

NO_x測定地点のNO₂乾性沈着量は、0.6(利尻)～19.3(神戸須磨)(平均値7.0)mmol m⁻² y⁻¹、NO乾性沈着量は0.003(海南)～0.047(豊橋)(平均値0.019)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3.4(母子里)～81.7(神戸須磨)(平均値21.7)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26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に示した。ここで、総沈着量は非海塩由来硫黄成分(SO₂(g), nss-SO₄²⁻(p), nss-SO₄²⁻(wet)), 酸化態窒素成分(HNO₃(g), NO₃⁻(p), NO₃⁻(wet))および還元態窒素成分(NH₃(g), NH₄⁺(p),

表5.3.2 年間乾性沈着量(2017年度地点別)

No.	都道府県市	地点名	SO ₂	HNO ₃	NH ₃	nss-SO ₄ ²⁻	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	NH ₄ ⁺	NO ₂	NO
			(g)	(g)	(g)	(p)	(p)	(p)	(p)	(g)	(g)
mmol m ⁻²											
1	北海道	利尻	1.1	2.8	3.6	2.1	2.6	1.5	3.1	0.6	0.004
2	北海道	母子里	1.5	1.7	2.9	1.5	1.6	1.0	3.1	0.7	0.029 PS
3	北海道	札幌北	6.5	6.6	4.8	1.9	2.1	2.0	4.7	7.0	0.015
4	新潟県	新潟曽和	2.1	6.9	6.8	1.5	1.7	1.3	2.3	7.2	0.019
5	新潟県	長岡	3.4	10.5	12.5	2.7	3.0	3.1	5.2	4.8	0.013
6	群馬県	前橋	2.0	14.0	35.6	1.4	1.5	2.8	3.7	8.4	0.010
7	埼玉県	加須	2.3	17.1	10.6	1.3	1.3	1.8	3.2	10.4	0.010
8	千葉県	旭	5.3	6.0	497.1	2.4	2.8	4.5	6.7	—	—
9	千葉県	勝浦	8.2	8.0	14.6	5.2	6.1	7.1	7.2	—	—
10	千葉県	清澄	14.4	8.7	16.3	5.0	5.6	6.1	7.2	—	—
11	千葉県	市原	18.3	17.5	12.1	2.3	2.4	2.8	3.6	—	—
12	千葉県	佐倉	5.8	13.8	11.9	2.6	2.7	2.8	3.7	—	—
13	長野県	長野	2.6	13.8	13.0	2.2	2.2	1.4	3.7	5.4	0.037
14	富山県	射水	2.7	8.2	9.8	1.7	1.8	1.3	3.6	7.2	0.028
15	石川県	金沢	4.8	8.2	5.9	3.0	3.3	2.7	4.9	—	—
16	福井県	福井	(4.2)	(6.6)	(9.0)	(1.6)	(1.7)	(1.4)	(2.5)	7.3	0.040
17	岐阜県	伊自良湖	1.4	1.9	4.5	0.6	0.6	0.3	1.1	1.3	0.008
18	愛知県	豊橋	7.8	23.2	19.7	4.1	4.4	5.3	9.1	13.2	0.047
19	名古屋市	名古屋南	3.4	24.9	5.4	1.7	1.8	2.1	3.2	—	—
20	和歌山県	海南	3.6	10.3	6.8	1.9	2.0	1.5	3.9	9.2	0.003
21	兵庫県	神戸須磨	15.7	55.4	6.5	5.2	5.6	7.0	11.7	19.3	0.028
22	鳥取県	湯梨浜	4.8	7.8	19.8	8.0	8.8	7.3	17.4	3.9	0.015
23	福岡県	太宰府	6.6	19.9	13.3	4.2	4.4	4.9	8.7	15.6	0.022
24	大分県	大分久住	20.3	13.0	7.5	4.7	4.8	3.3	9.5	—	—
25	宮崎県	宮崎	(40.0)	(54.3)	(44.2)	(20.2)	(21.5)	(17.1)	(40.6)	—	—
26	鹿児島県	鹿児島	21.0	10.8	11.7	3.4	3.6	3.1	7.5	—	—
27	沖縄県	うるま	5.2	7.4	30.1	5.3	6.7	6.2	6.2	3.1	0.017 PS
28	沖縄県	辺戸岬	6.7	5.2	9.1	8.8	12.7	11.0	8.4	0.9	0.003
最低値			1.1	1.7	2.9	0.6	0.6	0.3	1.1	0.6	0.003
最高値			21.0	55.4	497.1	8.8	12.7	11.0	17.4	19.3	0.047
中央値			5.0	9.5	11.1	2.5	2.8	2.8	4.8	7.1	0.016
平均値			6.8	12.4	30.5	3.3	3.7	3.6	5.9	7.0	0.019

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。

NH₄⁺(wet))に分類して考察した。大分久住の湿性沈着は大分の測定値を用いた。また、NO₂、NO測定を実施した地点のNOxの乾性沈着量は、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9.9(長野)～55.4(大分久住)(平均値27.4)mmol m⁻² y⁻¹、酸化態窒素成分が19.1(札幌北)～79.4(神戸須磨)(平均値40.3)mmol m⁻² y⁻¹、還元態窒素成分が23.3(海南)～546.9(旭)(平均値63.1)mmol m⁻² y⁻¹だった。NOxの乾性沈着量を含めた酸化態窒素成分は、24.8(利尻)～98.7(神戸須磨)(平均値48.7)mmol m⁻² y⁻¹だった。

総沈着量に占める乾性沈着量の比率(=乾性沈着量/(乾性沈着量+湿性沈着量)×100(%))は、非海塩由来硫黄成分が7%(伊自良湖)～67%(辺戸岬)(平均値36%)、NOxを除く酸化態窒素成分が5%(伊自良湖)～79%(神戸須磨)(平均値41%)、還元態窒素成分が13%(伊自良湖)～92%(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26地点を6つの地域区分(北部(NJ, 3地点)、日本海側(JS, 5)、東部(EJ, 7)、中央部(CJ, 6)、西部(WJ, 3)、南西諸島(SW, 2))に分類して集計した年間総沈着量の中央値を図5.3.2に示した。NOx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、還元態窒素成分はJSで多かった。

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、還元態窒素成分はSWで大きく、JS、NJはすべての成分で小さかった。

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)。

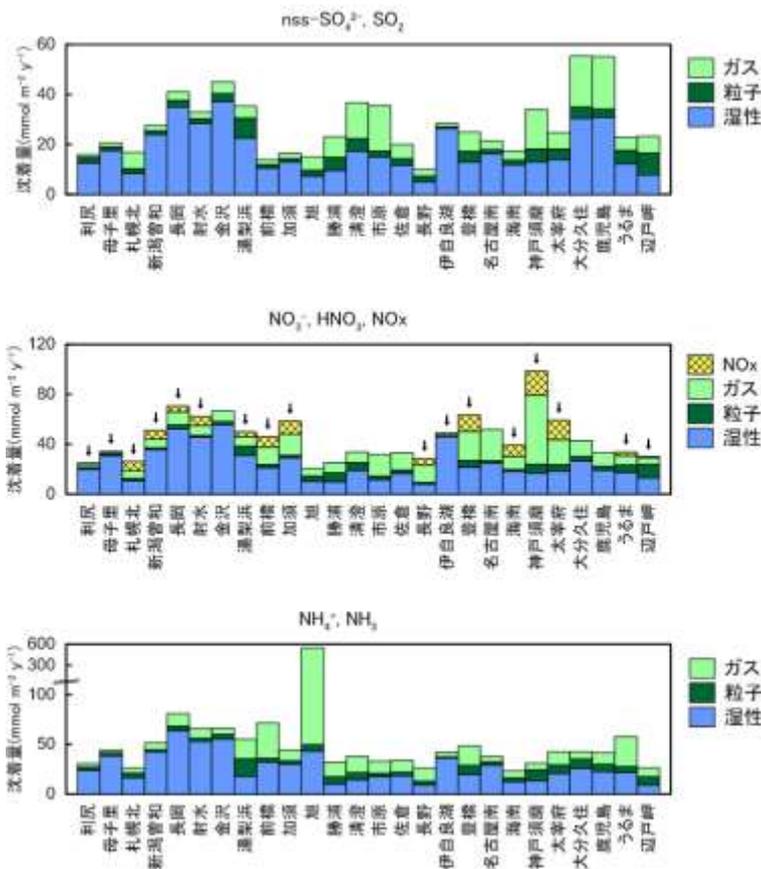


図5.3.1 調査地点の年沈着量(2017年度)

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。ただし、大分久住の湿性沈着は大分の測定値を用いた。

注)NOx(NO+NO₂)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)

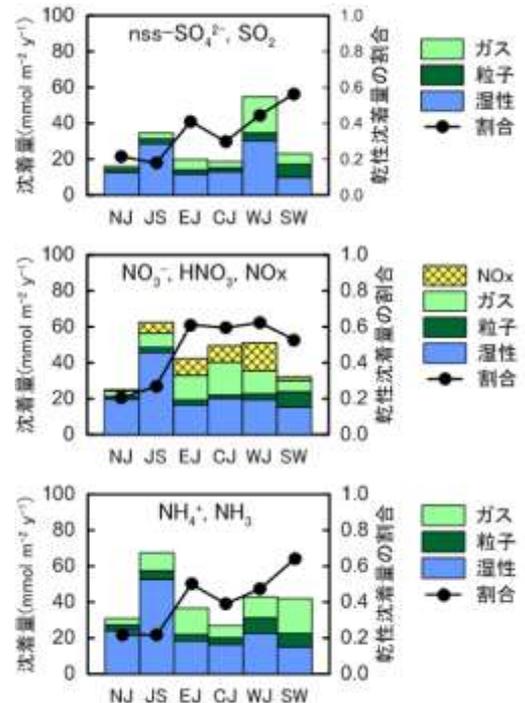


図5.3.2 各地域区別の年沈着量(2017年度中央値)

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。

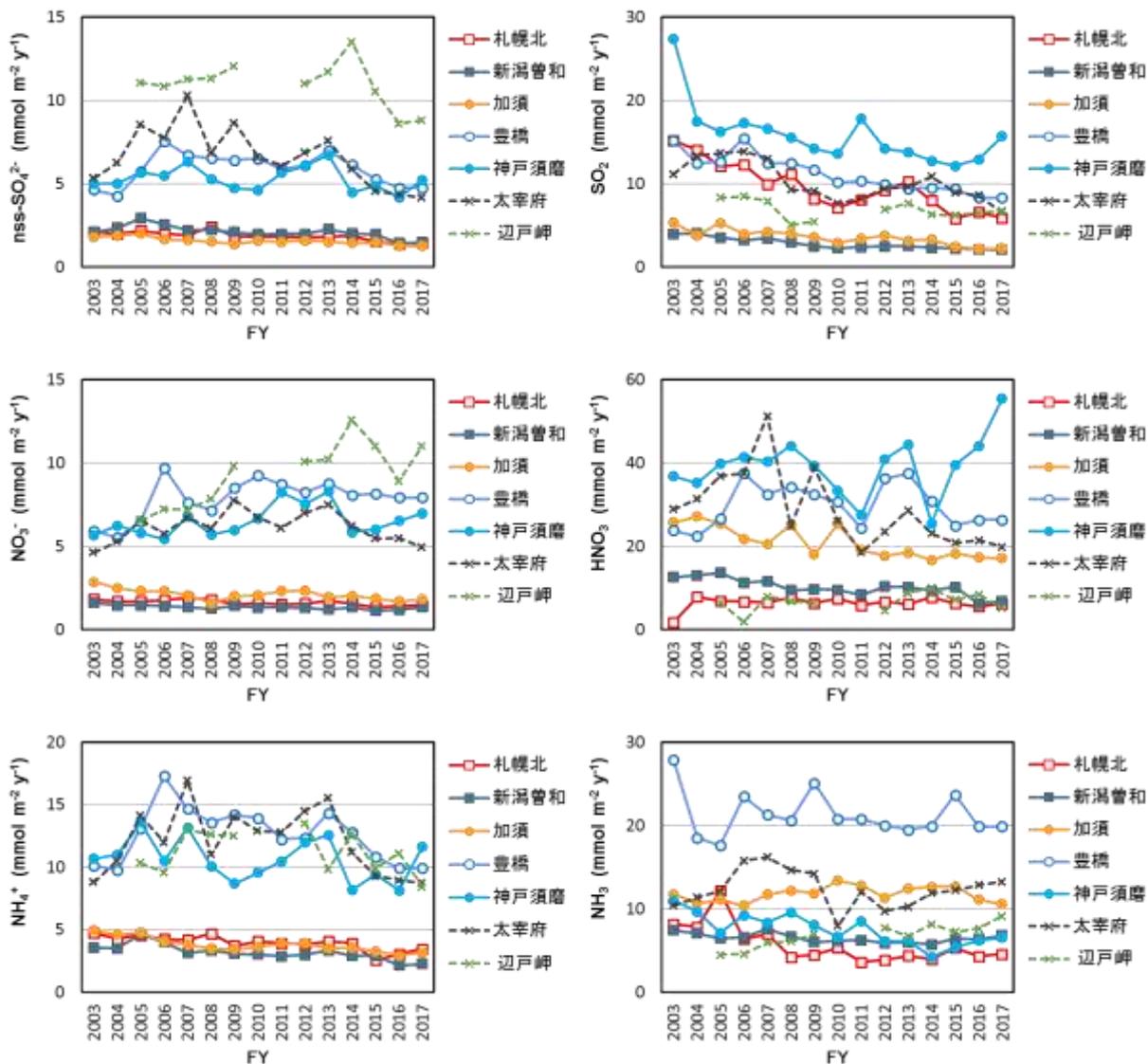


図5.3.3 継続調査地点における乾性沈着量の経年変化
(2003～2017年度)

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、 $nss-SO_4^{2-}(p)$ と $NH_4^+(p)$ は、2014年以降は横ばいまたは減少の傾向がみられた。 $NO_3^-(p)$ 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) Network Center for EANET: Technical Manual on Dry Deposition Flux Estimation in East Asia, Asia Center for Air Pollution Research, Niigata, 2010.

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
4) (財)気象業務支援センター: 気象観測月報2017年3月 - 2018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>

6. パッシブサンプラー

経緯

パッシブ法（以下、PS法）ではフィルターパック法（以下、FP法）で測定できないNO₂、NO_x、O₃と、FP法と共通で測定できるNH₃濃度の測定を行っている。

パッシブサンプラーは1ヶ月など比較的長期間の平均濃度の測定になるが、小さく電源を要しないため設置場所が自由に選べることと、安価であることから多地点での測定に有用な測定方法である。O₃はこれまでの調査から、常時監視局の少ない郊外や山岳部で濃度が高いことがわかっている。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地域におけるO₃濃度を把握することを目的としている。

NH₃については、FP法ではNH₃(g)とアンモニウム塩粒子(NH₄(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NH₄(p)の一部がNH₃(g)に変換されるため、特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。一方パッシブサンプラーは原理的にはNH₃(g)を捕捉するため、FP法の結果に対する検証材料としても使用できる。

6.1 測定方法

調査は通年で行い、試料捕集周期は1ヶ月（4週間または6週間）とした。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第5次調査と同様とした。

地点情報

各地点の位置と年平均濃度を図6.1.1に、項目ごとの地点数および欠測数を表6.1.1に示す。欠測の理由としては月期間適合度が60%未満、年期間適合度が80%未満もしくはサンプラーの紛失や測定上の問題などである。

2017年度の地点数はNH₃、NO_x、O₃がそれぞれ20、11、10地点だった。各地点により測定項目は異なりNO_x、O₃の測定地点の多くは北海道・東北地域に位置し、NH₃は北海道から沖縄まで分布している。NO_xは都市部では遠隔地の十倍以上高く、自動車等の排ガス濃度は局所的に高いことがわかる。O₃は札幌北が遠隔地の利尻より低く、これはNOの酸化でオゾンが消費されることと、札幌では本州大都市部のような光化学反応によるオゾン生成が少ないことが原因として挙げられる。NH₃はおおむね数倍の差であるが、畜舎や鶏舎などは高濃度の発生源であるため、ある程度そのような施設から距離を置いて設置してあると思われる。

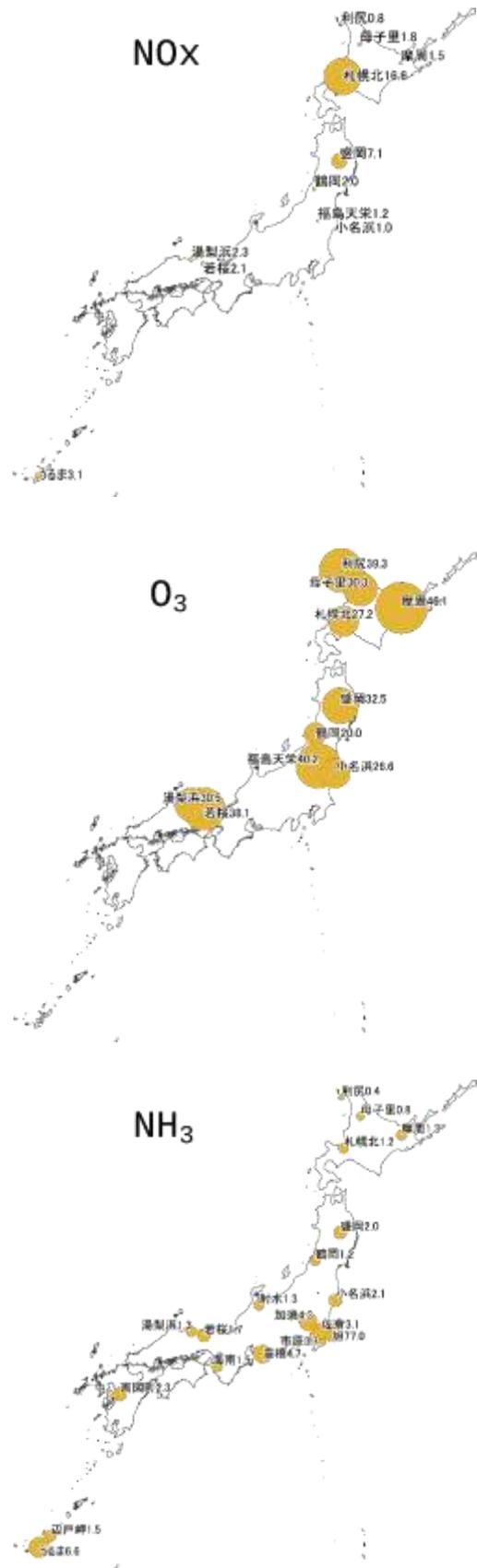


図6.1.1 各測定項目の地点と年平均濃度（ppb）
（旭は77ppbを1/10の7.7ppbの大きさで表示）

表6.1.1 パッシブ法の調査地点数および有効データ数

項目	地点数	月有効データ数	月欠測数	月有効割合 (%)	年有効データ数	年欠測数	年有効割合 (%)
NH ₃	20	226	14	94.2%	19	1	95.0%
NO ₂	11	131	1	99.2%	11	0	100.0%
NO _x	11	130	2	98.5%	11	0	100.0%
O ₃	10	116	4	96.7%	10	0	100.0%

6.2 測定結果

測定結果の図表は以下のとおりである。

- ・図6.1.2：各地点の月平均NO_x濃度
- ・図6.2.2：各地点の月平均O₃濃度
- ・図6.2.3：各地点(旭、うるま以外)の月平均NH₃濃度
- ・図6.2.4：NH₃の年平均濃度と周辺排出量の相関図
- ・表6.1.1：調査地点数および有効データ数
- ・表6.1.2：全地点の年平均濃度

6.2.1 NO_x

年平均濃度では札幌北の16.6ppbが最も高い。これは都市部で周辺排出量が高いことと、特に冬期に高濃度になるためである。冬季には暖房などによる排出量増加と逆転層の形成により高濃度が生じることが原因と考えられる。同様の傾向は盛岡でもある。年平均濃度の最低地点は利尻で0.8ppbだった。これらは例年どおりである。



図6.2.1 各地点の月平均NO_x濃度

6.2.2 O₃

年平均濃度では摩周の46.1ppbが最も高く、これは標高が高いことが一因と考えられる。また山岳部など風の強い地点ではパッシブ法による測定は乱流により過大評価になる場合があり、注意が必要である。一方、最も低いのは鶴岡の20.0ppbだった。これらはおおむね例年通りである。月平均濃度では例年どおり冬～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。

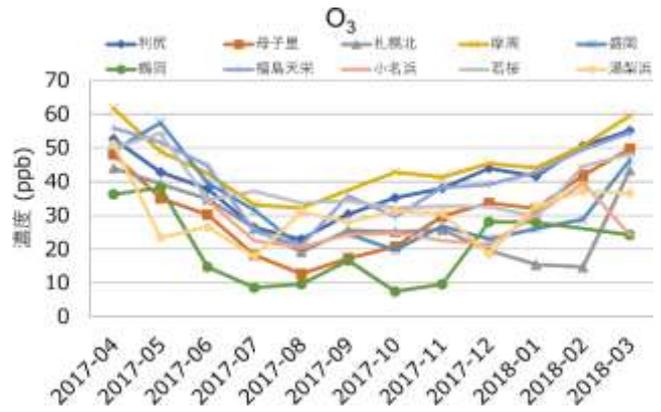


図6.2.2 各地点の月平均O₃濃度

6.2.3 NH₃

年平均濃度では旭が77.0ppbで最も高く、次に高いのはうるまの6.6ppbだった。これらの地点は周辺の畜産業等の影響を強く受けていると考えられる。最低は利尻の0.4ppbだった。低濃度の地点ではおおむね夏季に高く冬季に低い傾向にある一方で、豊橋や加須、市原は冬季に高い。これは近傍の発生源の状況によると思われる。

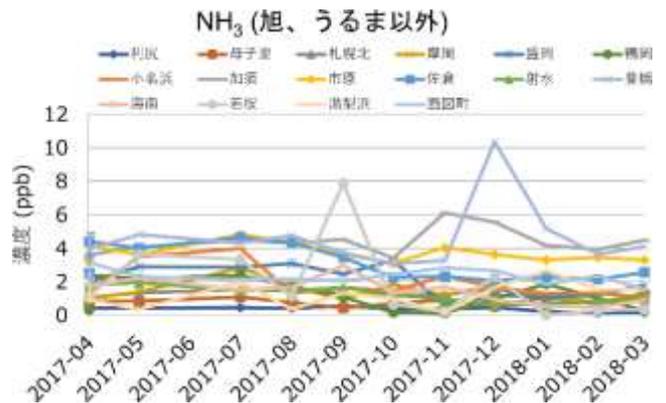
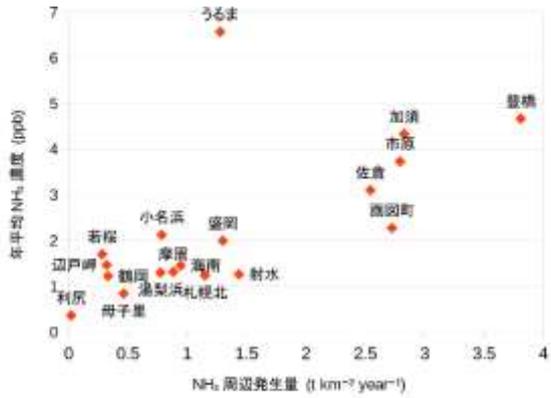


図6.2.3 各地点の月平均NH₃濃度

6.2.4 NH₃周辺発生量と年平均濃度の関係

旭は他地点よりきわめて濃度が高いため除外した。今回、周辺発生量はEAGrid2010から求めた値に変更したが、うるまを除くと従来通りおおむね年平均濃度と周辺発生量の相関は良い。うるまが周辺の発生量の割に濃度が高いのは測定地点と発生源が近いためと思われる。



	利尻	母子里	札幌北	摩周	盛岡	鶴岡	小名浜	加須	市原
年平均濃度 (ppb)	0.4	0.8	1.2	1.3	2.0	1.2	2.1	4.3	3.7
NH ₃ 周辺発生量(tkm ⁻² year ⁻¹)	0.02	0.46	1.15	0.88	1.30	0.33	0.78	2.83	2.79

	佐倉	射水	豊橋	海南	画図町	若桜	湯梨浜	508	辺戸岬
年平均濃度 (ppb)	3.1	1.3	4.7	1.5	2.3	1.7	1.3	6.6	1.5
NH ₃ 周辺発生量(tkm ⁻² year ⁻¹)	2.54	1.43	3.81	0.94	2.72	0.28	0.77	1.28	0.32

図6.2.4 NH₃周辺発生量と年平均濃度

一 引用文献一

1) 野口泉：ガス状および粒子状アンモニアの捕集測定方法(拡散デニューダ法, フィルターパック法およびパッシブ法), 第48回大気環境学会講演要旨集, 244-245, 2007.

表6.1.2 地点別年平均濃度 (ppb)

自治体	地点	NOx	O ₃	NH ₃
北海道	利尻	0.8	39.3	0.4
北海道	母子里	1.8	30.3	0.8
北海道	札幌北	16.6	27.2	1.2
北海道	摩周	1.5	46.1	1.3
岩手県	盛岡	7.1	32.5	2.0
山形県	鶴岡	2.0	20.0	1.2
福島県	福島天栄	1.2	40.2	欠測
いわき市	小名浜	1.0	26.6	2.1
埼玉県	加須			4.3
千葉県	市原			3.7
千葉県	旭			77.0
千葉県	佐倉			3.1
富山県	射水			1.3
愛知県	豊橋			4.7
和歌山県	海南			1.5
鳥取県	若桜	2.1	38.1	1.7
鳥取県	湯梨浜	2.3	30.5	1.3
熊本市	画図町			2.3
沖縄県	うるま	3.1		6.6
沖縄県	辺戸岬			1.5

注)全国最低値は網掛け、全国最高値は白抜きで示した。

7. まとめ

2017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

地点ごとの年加重平均濃度について、H⁺およびnss-SO₄²⁻は日本海側および西部で高く、例年と同じ傾向を示した。NO₃⁻は平均では日本海側で高かったが、地点ごとでは東部や西部でも高い値の地点があり、地域的な傾向は明確ではなかった。地域的な傾向が明確ではなく、地点ごとに特徴のある値を持つのは、NH₄⁺でも同様であった。季節別では多くの成分で春季および秋季に濃度が高くなる傾向があった。特に12月には西部で多くの成分の濃度が高くなった。濃度の値は、昨年度と同程度であった。

沈着量では、日本海側の冬季における降水量が高かった影響を受けて、当該地域・季節で多くの成分の沈着量が増加した。

7.2 FP法によるガスおよびエアロゾル濃度

28地点で乾性沈着調査を実施した。粒子状成分濃度の全国中央値を2016年度と比較すると、NO₃⁻(p)およびNH₄⁺(p)は10～15%増加、Cl⁻(p)、Na⁺(p)およびMg²⁺(p)は10～15%減少した。粒子状成分の総当量濃度は、南西諸島で最も高く、その他の地域では、陰イオンはSO₄²⁻、陽イオンはNH₄⁺またはNa⁺の占める割合が高かった。東部では他の地域と比べてNO₃⁻の割合が高かった。

12地点においてインパクトを使用して粗大粒子と微小粒子（PM_{2.5}）とを分けて捕集した結果、PM_{2.5}中イオン成分濃度の年平均値の範囲は2.3～7.2 μg m⁻³であった。どの地点もnss-SO₄²⁻の割合が最も高く、PM_{2.5}イオン濃度のうち45～65%を占めた。全粒子状物質に占めるPM_{2.5}の割合については、NO₃⁻(p)は夏季にPM_{2.5}の割合が低く、冬季に高い傾向があった。SO₄²⁻(p)およびNH₄⁺(p)は1年を通してPM_{2.5}の割合が高く、Na⁺(p)、Ca²⁺(p)およびMg²⁺(p)は1年を通してPM_{2.5}の割合が低かった。

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10.1 mmol m⁻² y⁻¹、NOxを含まない酸化態窒素成分16.1 mmol m⁻² y⁻¹、還元態窒素成分36.3 mmol m⁻² y⁻¹だった。

7.4 ガス成分濃度（パッシブ法）

パッシブサンプラーによりNOx、NO₂、O₃、NH₃の測定を行った。

年平均濃度が最も高かった地点はNOxでは札幌北(16.6 ppb)、O₃では摩周(46.1 ppb)、NH₃では旭(77.0 ppb)だった。

NH₃と周辺発生量の関係について、今年度周辺発生量の集計元はEAGrid2000からEAGrid2010に変更されたが従来のおりよい相関を示した。

お詫びと訂正

全環研会誌 Vol. 43 No. 3 (2018)に掲載の第6次調査報告書（平成28年度）において、表5.2.4の脱落がございました。110ページの前に下の表が入ります。謹んでお詫び申し上げます、ここに訂正いたします。

表5.2.4 粒径別粒子状成分の年平均濃度 (nmol m⁻³)

No.	都道府県市	地点名	粒径	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		利尻	粗大	4.5	1.1	7.2	56.5	55.3	1.5	2.1	0.9	6.3	0.7
			PM _{2.5}	17.0	16.5	1.2	0.6	7.9	1.5	0.4	0.2	0.9	22.5
2	北海道	母子里	粗大	2.1	1.2	4.3	12.6	14.1	0.9	1.1	0.8	1.7	1.7
			PM _{2.5}	14.7	14.5	1.6	0.6	3.3	1.2	0.3	0.3	0.4	27.5
3		札幌北	粗大	4.0	2.1	9.5	29.8	31.1	1.0	3.6	2.9	3.3	3.3
			PM _{2.5}	21.0	20.5	11.4	7.9	8.5	1.9	1.1	1.0	1.0	47.1
4	埼玉県	加須	粗大	4.0	2.8	19.3	10.2	19.4	1.4	5.2	4.7	2.4	3.3
			PM _{2.5}	24.8	24.5	17.1	4.4	4.3	2.5	1.2	1.1	0.5	61.1
5	静岡県	静岡北安東	粗大	2.8	1.7	15.4	8.2	17.0	1.5	2.9	2.5	2.3	1.5
			PM _{2.5}	23.1	22.9	1.6	0.4	3.4	3.5	0.9	0.9	0.5	43.1
6	富山県	射水	粗大	(2.5)	(1.5)	(8.3)	(13.9)	(17.4)	(0.6)	(2.3)	(1.9)	(2.0)	(1.4)
			PM _{2.5}	(16.9)	(16.6)	(4.6)	(1.2)	(4.4)	(1.6)	(0.4)	(0.3)	(0.6)	(34.3)
7	和歌山県	海南	粗大	3.1	1.7	18.2	14.4	23.9	0.5	4.1	3.6	3.0	2.4
			PM _{2.5}	31.4	31.1	4.2	0.6	5.2	3.4	1.1	1.0	0.8	61.7
8	鹿児島県	鹿児島	粗大	(6.0)	(3.9)	(21.3)	(26.2)	(34.6)	(1.0)	(5.7)	(4.9)	(3.7)	(5.9)
			PM _{2.5}	(38.8)	(38.4)	(8.7)	(2.9)	(6.7)	(1.9)	(1.0)	(0.8)	(0.6)	(80.9)
9	沖縄県	辺戸岬	粗大	11.0	2.2	20.0	148.8	144.4	3.5	6.6	3.4	18.6	0.1
			PM _{2.5}	29.2	28.2	1.6	3.3	17.3	1.4	0.6	0.2	2.4	35.3

注) ()は参考値を示す。

<報 文>

福岡県内河川におけるLAS負荷量解析*

志水 信弘**・柏原 学**・古閑 豊和**・石橋 融子**・米原 淳史***・定石 佳子***

キーワード ①LAS ②原単位 ③排出負荷量 ④流出負荷量 ⑤流出率

要 旨

LASの福岡県内河川における排出負荷量と流出特性を把握するため、負荷量解析を試みた。環境基準点が設定されている99河川のうち、86河川を対象とし原単位法により推計したLAS排出負荷量の合計は315t/年であり、その98.7%が未処理生活雑排水由来であった。LAS流出負荷量については、その相関関係を検討した結果、流域面積、LAS排出負荷量及び未処理生活雑排水人口が影響を与えていた。また、44河川について流出率を検討した結果、その度数分布には0.05以下の階級及び0.1より大きく0.15以下の階級の2つにピークがあり、0.3より大きい地点も一部見られた。また、流出率と人口密度の間には強い負の相関関係があったが、他項目との間で明瞭な関係が見られず、その原因は不明であった。

1. はじめに

直鎖アルキルベンゼンスルホン酸及びその塩(LAS)は、2012年度に水生生物の保全に係る水質環境基準に追加され、福岡県は環境基準の類型指定とともに環境基準達成に対する施策及びその必要性を検討している。そのためには、現在の河川流域におけるLAS排出負荷量や流出特性など、将来予測に必要な基礎情報の充実が求められる。一方、2000年代後半からPRTR制度の排出量情報を用いて、シミュレーションによる化学物質の環境中動態について研究¹⁾が進展した。しかし、これらの研究は、化学物質の一部河川における環境中濃度が主な検討対象であり、県域全体を対象としたLASの負荷量解析事例は少ない。

ところで、LAS排出負荷量のうち下水道については、放流量やそのLAS濃度を用いて把握可能である。また、LAS用途の8割が家庭洗濯剤である²⁾ことや、PRTR集計結果ではLAS排出量推計値の約7割が家庭由来である³⁾ことから、排出量の多くが家庭の生活雑排水由来と考えられる。そのため、未処理生活雑排水や合併処理浄化槽等のLAS排出原単位を解明できれば、これに汚水処理別人口データを乗じて下水道以外の排出負荷量を把握できる。福岡県では、汚水処理別人口データを過去の水質環境基準類型指定見直し調査^{4)~10)}により、ほぼ全県で流域別に整備している。一方、福岡県における普及率が9.4%¹¹⁾である合併処理浄化槽は、そのLAS排出実態の知見が少ない。そこで、福岡県におけるLASの排出負荷量と流出特性の把握を目的とし、合併処理浄化槽のLAS排出原単位の解明と原単位法を用いたLASの負荷量解析を試みた。

2. 調査方法

2.1 合併処理浄化槽放流水のLAS濃度

合併処理浄化槽放流水のLAS濃度調査は、福岡県内の戸建住宅用の処理能力が5~7人槽(以降、小型と表記する。)、4基、集合住宅用の140~430人槽(以降、大型と表記する。)、3基を対象とし、平成28年8月に実施した。

試料水は、各浄化槽の沈殿槽又は膜分離後の槽からポリプロピレン製容器に採取し、実験室に持ち帰った。LASの測定は、固相抽出-LCMS法により行い、試薬、分析方法及び分析機器は既報¹²⁾に従った。LASの抽出操作は即日行い、検液は測定まで-30℃で保存した。

2.2 排出負荷量の解析方法

2.2.1 LAS排出負荷量の定義

本研究においてLAS排出負荷量(以降、排出負荷量と略す。)は、家庭からの生活雑排水を排出源とし、これらが直接又は水処理施設を通じて河川へ排出される負荷量と定義する。また、排出負荷量は、排出源データ(汚水処理別人口及び下水処理場放流量)に原単位を乗じて計算した。なお、し尿処理が主である単独処理浄化槽は、排出源の対象としなかった。

2.2.2 対象河川及び流域

排出負荷量解析の対象河川及び流域を図1(河川：黒色実線又は青色実線、流域：灰色)に示す。対象河川は、水質環境基準類型指定見直し調査^{4)~10)}が行われた河川とした。福岡県で環境基準点が設定されている99河川のうち、

*Analysis of LAS loads from Rivers in Fukuoka Prefecture

**Nobuhiro Shimizu, Manabu Kashiwabara, Toyokazu Koga, Yuko Ishibashi (福岡県保健環境研究所)

***Atsushi Yonehara, Yoshiko Sadaishi (福岡県環境部環境保全課)

対象河川数を福岡県の地域区分別に示すと、豊前海流入河川（17河川）、北九州市内河川（19河川）、遠賀川水系河川（9河川）、博多湾流入河川（15河川）、筑後川水系河川（13河川）、矢部川水系河川（8河川）及び大牟田市内河川（5河川）の計7地域、86河川である。また、対象河川の最下流の環境基準点にLAS負荷量が流出する流域を対象とした。

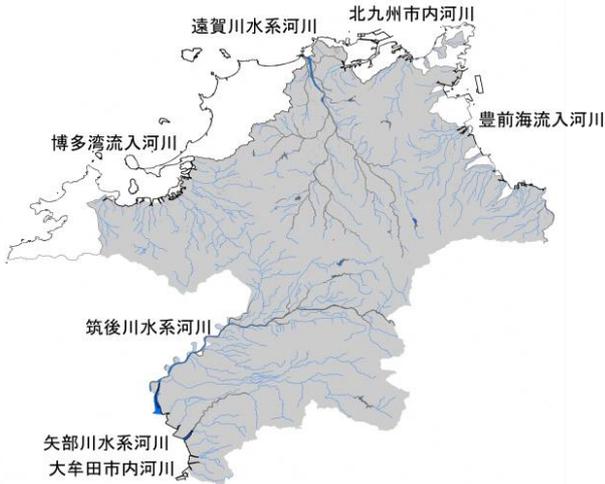


図1 調査対象河川及び流域

2.2.3 排出負荷量推計の方法

各河川流域の排出負荷量は、式(1)により計算した。

$$L_{Ei} = \left(P_{TLi}U_{TL} + P_{TSi}U_{TS} + P_{GWi}U_{GW} + E_{Si}C_s \times \frac{1000}{1000} \right) \times \frac{365}{1000} \quad (1)$$

ここで、 L_{Ei} ：各河川流域の排出負荷量 [kg/年]、 P_{TLi} ：各河川流域の合併処理浄化槽人口（大型）[人]、 U_{TL} ：合併処理浄化槽（大型）のLAS排出原単位 [g/人/日]、 P_{TSi} ：各河川流域の合併処理浄化槽人口（小型）[人]、 U_{TS} ：合併処理浄化槽（小型）のLAS排出原単位 [g/人/日]、 P_{GWi} ：各河川流域の未処理生活雑排水人口 [人]、 U_{GW} ：未処理生活雑排水のLAS排出原単位 [g/人/日]、 E_{Si} ：各河川流域の下水処理場放流量 [m³/日]、 C_s ：下水処理場放流水LAS濃度 [mg/L] とする。さらに式(2)によりLAS排出負荷量(L_E) [t/年]を計算した。

$$L_E = \sum_i L_{Ei} \times \frac{1}{1000} \quad (2)$$

使用したデータは、次のとおりである。汚水処理別人口は、福岡県資料^{4)~10)}の現況年度値（2000年前後）を使用した。ただし、博多湾流入河川の流域市町村では、下水道普及率の市町村平均値が32.7%（現況年度：1992年度）から91.5%（2017年度）¹¹⁾と急速に上昇しているため、下水道普及を見込んだ将来人口予測値（2005年度）

を使用した。また、汚水処理別人口として行政人口（博多湾流入河川のみ市町村別の行政人口）、し尿くみ取り人口、単独処理浄化槽人口及び合併処理浄化槽人口（501人槽未満及び501人槽以上に区分）を使用し、環境基準点に負荷量が流出する流域ごとに集計した。未処理生活雑排水人口は、これらのし尿くみ取り人口と単独処理浄化槽人口の和とした。

下水処理場は資料¹¹⁾に基づき、環境基準点より上流に放流先がある施設を対象とし、放流先河川の排出負荷量として取り扱った。下水処理場の放流量は、各施設の計画汚水量 [m³/日] の日平均値¹¹⁾を用いた。

合併処理浄化槽（501人槽未満）の原単位は、本調査の合併処理浄化槽（小型）のLAS排出原単位の平均値を使用した。また、合併処理浄化槽（501人槽以上）は、本調査の合併処理浄化槽（大型）のLAS排出原単位の平均値を使用した。未処理生活雑排水の原単位は、既報値（0.73 g/人/日）¹³⁾を用い、下水処理場放流水LAS濃度は、北九州市下水道局の公表値¹⁴⁾の平均値（0.0042 mg/L）を使用した。

2.3 LAS流出負荷量及び流出率の解析方法

2.3.1 LAS流出負荷量及び流出率の定義

本研究においてLAS流出負荷量（以降、流出負荷量と略す。）は、2.2.1で定義した排出負荷量が河川に排出後、流下過程で生分解等により減少し、最終的に環境基準点に流出する負荷量と定義する。また流出負荷量は、河川流量に河川水LAS濃度を乗じて計算した。流出率は、排出負荷量に対する流出負荷量の比とした。

2.3.2 対象河川及び流域

流出負荷量解析はモデルの単純化のため、上流に支川が無く、河川流量及び河川水LAS濃度のデータが利用できる河川を対象とした。具体的には、豊前海流入河川（15河川）、北九州市内河川（16河川）、遠賀川水系河川（6河川）及び矢部川水系河川（7河川）の計4地域、44河川である。

2.3.2 流出負荷量及び流出率の計算方法

各河川流域の流出負荷量は、式(3)により計算した。

$$L_{Ri} = \left(C_{Ri} \times \frac{1000}{1000 \times 1000} \right) \times (F_i \times 60 \times 60 \times 24 \times 365) \quad (3)$$

ここで、 L_{Ri} ：各河川流域の流出負荷量 [kg/年]、 C_{Ri} ：各河川の環境基準点における平均LAS濃度 [mg/L]、 F_i ：各河川の平均流量 [m³/秒] とする。さらに式(4)により各河川の流出率(R)を計算した。

$$R = \frac{L_{Ri}}{L_{Ei}} \quad (4)$$

使用したデータは、環境基準点における平均LAS濃度として、2014～2016年度の環境基準監視調査結果¹⁵⁾のLAS濃度(44河川, 44地点, 354個)を用い(ただし, LAS濃度が報告下限値以下の場合は検出下限値として取り扱った。), 対象環境基準点毎に計算した平均値[mg/L]を使用した。各河川の平均流量は, 福岡県資料^{4)~10)}から環境基準点近傍の平均流量のシミュレーション結果[m³/秒]を使用した。

3. 結果及び考察

3.1 合併処理浄化槽からのLAS排出実態

合併処理浄化槽からのLAS排出原単位は, 近年の資料が少ない。そこで, LAS排出原単位を明らかにするため, 合併処理浄化槽の放流水中のLAS濃度の実態調査を行った。調査した合併処理浄化槽は, 処理能力[人]及び使用人数[人]を設置自治体から情報収集した。また, 使用人数を処理能力で除して人員比率[%]を計算した。LAS排出原単位[g/人/日]は, 放流水LAS濃度[mg/L]に給水人口別家庭排水量原単位の平均値227 L/人/日¹⁶⁾を乗じて計算した。また, 平均値を小型と大型に分けて計算した。これらの結果を表1に示す。

放流水LAS濃度の範囲は, 小型が0.012~0.37 mg/L, 大型が0.0057~0.012 mg/Lであった。平均値は, 小型が0.14 mg/L, 大型が0.0086 mg/Lと大型の方が低かった。人員比率の平均値は, 小型が74.8%であり, 大型が51.7%と大型が低かった。このように人員比率が低い場合, 合併処理浄化槽の最大汚水処理量に対する実際の流入汚水量の減少が予想され, 合併処理浄化槽における汚水の平均滞留時間が小型より大型の方が長くなると考えられる。このため, 小型に対し大型の合併処理浄化槽の水学的滞留時間が長くなり, LASの生分解が進むため, 大型の放流水LAS濃度の平均値が小型より低かったと考えられる。

LAS排出原単位の範囲及び平均値は, 小型が0.0027~0.084 g/人/日及び0.032 g/人/日であり, 大型が0.0013

~0.0027 g/人/日及び0.0019 g/人/日と大型の方が大幅に小さかった。環境省による調査結果¹⁷⁾では, 本調査の区分における小型の合併処理浄化槽が対象であり, その放流水LAS濃度の範囲及び平均値は, それぞれ0.1未満~0.36 mg/L, 0.14 mg/Lと本調査とほぼ同じ値であった。このことから, 本調査結果は小型の合併処理浄化槽の一般的水質を反映するものと考えられた。

3.2 福岡県におけるLAS排出負荷量

福岡県におけるLAS排出状況を全県的に把握するため, 原単位法による排出負荷量の推計を行った。汚水処理別人口, 下水処理場放流量及び排出負荷量の集計値を表2上, 中段に示す。対象流域における汚水処理別人口割合は, し尿くみ取りが22.9%, 合併処理浄化槽人口(501人槽以上)が1.6%, 合併処理浄化槽人口(501人槽未満)6.0%, 単独処理浄化槽が4.6%であった。下水道人口割合は, 他項目との差し引きから64.9%と考えられる。

現況年度における排出負荷量の集計結果を表2下段に示す。対象流域の排出負荷量の合計は, 315 t/年であった。この値を用いて, 対象外流域も含めた福岡県全域の総排出負荷量を検討した。LAS排出は人為活動由来であることから, 排出負荷量は人口に比例すると仮定した。そこで, 対象河川流域人口を福岡県人口で除した人口カバー率を算出し, 排出負荷量を人口カバー率で割り戻すことにより総排出負荷量を計算した。対象河川流域人口の総計(約423万人)を, 使用データ年次に直近の福岡県人口(502万人:2000年国勢調査)と比較すると, 人口カバー率は84.3%であった。この値を用いて福岡県の総排出負荷量を求めると373 t/年であり, 2016年度PRTR集計結果の福岡県におけるLAS排出量(368 t/年)³⁾と比較すると, 差は+5 t/年であり, 同等であった。PRTR集計結果は, LAS出荷量の人口配分を元に導出しているが, 今回の結果は排出源の実態情報に基づき導出しており, 両者の計算条件は全く異なっている。しかし, 両者の値が同等であることから, 各値の妥当性が示唆された。

次に, 表2下段に排出負荷量を示す。内訳は, 下水処理場が1.04 t/年, 合併処理浄化槽人口(501人槽以上)が0.0472 t/年, 合併処理浄化槽人口(501人槽未満)が2.97 t/年及び未処理生活雑排水が311 t/年であった。未処理生活雑排水のLAS排出負荷量への寄与率は, 98.7%と著しく高かった。また, 未処理生活雑排水のLAS排出負荷量に対する寄与率が98%以上の河川は, 86河川中76河川であり, 多くの河川で未処理生活雑排水が主たる排出源であった。

表1 合併処理浄化槽放流水のLAS調査結果

No.	処理能力 (人)	人員比率 (%)	放流水 LAS濃度 (mg/L)	LAS 排出原単位 (g/人/日)
1	5	80.0	0.012	0.0027
2	6	66.7	0.14	0.032
3	6	66.7	0.37	0.084
4	7	85.7	0.038	0.0086
5	140	52.1	0.012	0.0027
6	180	58.9	0.0080	0.0018
7	430	44.0	0.0057	0.0013
小型 (No. 1~4) の平均値	6.0	74.8	0.14	0.032
大型 (No. 5~7) の平均値	250	51.7	0.0086	0.0019

表2 汚水処理別人口、下水場放流量及び排出負荷量の集計結果

項目	想定条件	下水処理場	し尿 くみ取り	合併処理浄化槽		単独処理 浄化槽	未処理 生活雑排水	総計
				501人槽以上	501人槽未満			
対象河川流域人口(人)	現況年度値	—	969,340	68,091	254,058	197,111	1,166,451	4,229,827*
放流量(m ³ /日)	現況年度値	675,477	—	—	—	—	—	—
排出負荷量(t/年)	現況年度値	1.04	—	0.0472	2.97	—	311	315

*:博多湾流入河川流域においては、総計値として平成17年度行政人口予測値を使用

表3 未処理生活雑排水削減後のLAS排出負荷量の集計結果

項目	想定条件	下水処理場	し尿 くみ取り	合併処理浄化槽		単独処理 浄化槽	未処理 生活雑排水	総計
				501人槽以上	501人槽未満			
排出負荷量(t/年)	予想1*	1.04	—	0.0472	14.3	—	52.5	67.9
排出負荷量(t/年)	予想2**	1.04	—	0.0472	16.6	—	0	17.7

*:全てのし尿くみ取り人口が合併処理浄化槽人口(501人槽未満)に転換した場合の試算値

** :全ての未処理生活雑排水人口人口が合併処理浄化槽人口(501人槽未満)に転換した場合の試算値

3.3 未処理生活雑排水の削減後排出負荷量

未処理生活雑排水の削減による排出負荷量への影響を検討するため、し尿くみ取り人口が合併処理浄化槽(501人槽未満)に全て転換した場合を予想1として、し尿くみ取り人口と単独処理浄化槽人口が全て転換した場合を予想2として、排出負荷量を計算した。その結果を表3に示す。排出負荷量は、予想1では67.9 t/年、予想2では17.7 t/年とそれぞれ現況の約5分の1または18分の1に大幅に削減された。これらの値を3.2と同様に人口カバー率で割り戻すと予想1では80.5 t/年、予想2では20.9 t/年となった。ところで、し尿くみ取り槽また単独処理浄化槽は戸建て住宅に設置されており、今後は住宅の建て替え時に合併処理浄化槽へほぼ転換されると考えられる。また、1997年調査の福岡県の住宅平均寿命は41.03年であり¹⁸⁾、今後40年前後で住宅建て替えが進むと考えられ、それに伴い福岡県の総排出負荷量も20~80 t/年程度へ大幅に削減されるものと考えられた。

3.4 LAS流出負荷量とその要因

LASの流出特性やその要因を検討するため、44河川について流出負荷量を計算した。表4に流出負荷量の範囲及び平均値を示す。流出負荷量の範囲は、0.359 ~ 1017 kg/年であり、平均で133 kg/年であった。流出負荷量と流域面積¹⁹⁾、排出負荷量、行政人口、合併処理浄化槽(501人槽以上又は500人槽以下)人口、未処理生活雑排水人口、人口密度及び汚水処理人口比の間でスピアマンの順位相関係数(ρ)を計算し、有意に強い相関関係(ρ ≥ 0.7)を有したものを表5に示す。流出負荷量は、流域面積(ρ = 0.768, p < 0.01)、排出負荷量(ρ = 0.737, p < 0.01)、未処理生活雑排水人口(ρ = 0.753, p < 0.01)及び合併処理浄化槽人口(500人槽未満)(ρ = 0.743, p < 0.01)と

表4 流出負荷量の範囲と平均値

項目	最小値	最大値	平均値
流出負荷量(kg/年)	0.359	1017	133

表5 流出負荷量の順位相関関係

項目	順位相関係数(ρ)
流域面積(km ²)	0.768 **
排出負荷量(kg/年)	0.737 **
未処理生活雑排水人口(人)	0.753 **
合併処理浄化槽(500人槽以上)人口(人)	0.743 **

** : p < 0.01

強い正の順位相関を有していた。

次に、流出負荷量と排出負荷量、未処理生活雑排水人口及び合併処理浄化槽(500人槽以下)との散布図を、それぞれ図2、図3及び図4に両対数スケールで示す。なお、以降の散布図は両対数スケールとし、対数変換したデータを直線近似した近似式とそのピアソンの積率相関係数(r)を図中に示す。流出負荷量と排出負荷量の間には、強い正の積率相関(近似式: 流出負荷量 [kg/年] = 0.0599 × 排出負荷量 [kg/年]^{0.966}, r = 0.739)があった。流出負荷量と未処理生活雑排水人口の間には、強い正の積率相関(近似式: 流出負荷量 [kg/年] = 0.0174 × 未処理生活雑排水人口 [人]^{0.966}, r = 0.763)があった。流出負荷量と合併処理浄化槽人口(500人槽未満)の間には、やや弱い正の積率相関(近似式: 流出負荷量 [kg/年] = 1.32 × 合併処理浄化槽人口(500人槽未満) [人]^{0.597}, r = 0.383)があった。

合併処理浄化槽人口(500人槽未満)は、流出負荷量と高い正の順位相関を持つものの、積率相関は明瞭な関係が見られず、流出負荷量への影響は弱いと考えられた。

一方、未処理生活雑排水人口は、3. 2で述べたとおり排出負荷量へ強く影響する項目であり、未処理生活雑排水人口は流域面積に依存すると考えられる。これらの項目間（流域面積、排出負荷量、未処理生活雑排水人口）には、前述のような関係の存在が予想され、このため流出負荷量に対して強い影響を与えたと考えられた。

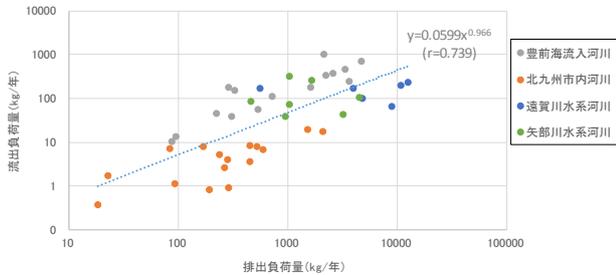


図2 流出負荷量と排出負荷量の関係

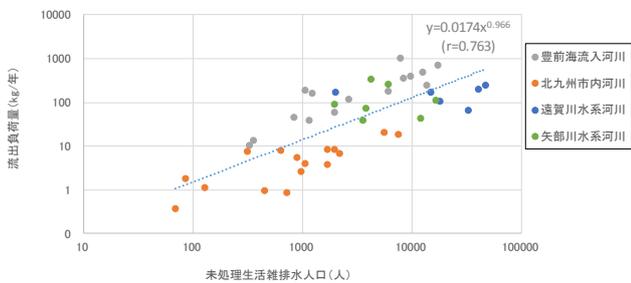


図3 流出負荷量と未処理生活雑排水人口の関係

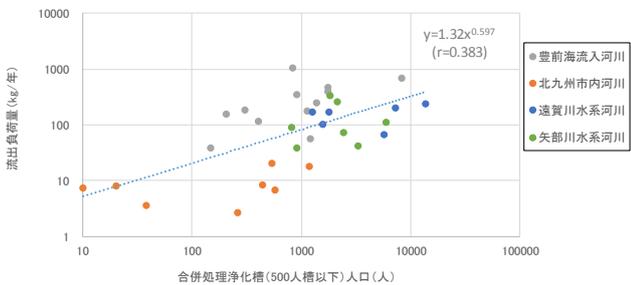


図4 流出負荷量と合併処理浄化槽人口（500人槽未満）の関係

3.5 LASの流出率

LASの流出特性を表す指標として流出率に着目し、3.4と同じ河川について流出率を算出し、その結果を地域毎にヒストグラムとして図5に示す。また、地域の平均値を図中に▼印で示す。

流出率全体の範囲は、0.007～0.624であり、約90倍の差があった。1992年に井上らは、8河川のLAS流出率について0.067～1.45と報告しており²⁰⁾、その差は約20倍であった。算出条件の違いがあり単純比較はできないが、今回得られた流出率と比較すると最大値は約半分、最小値は30分の1と全体的に低下していた。また、最大値と最小値の差は、今回の値が過去と比較し約5倍大きく、過去の報告より広範囲な流出特性を示した。

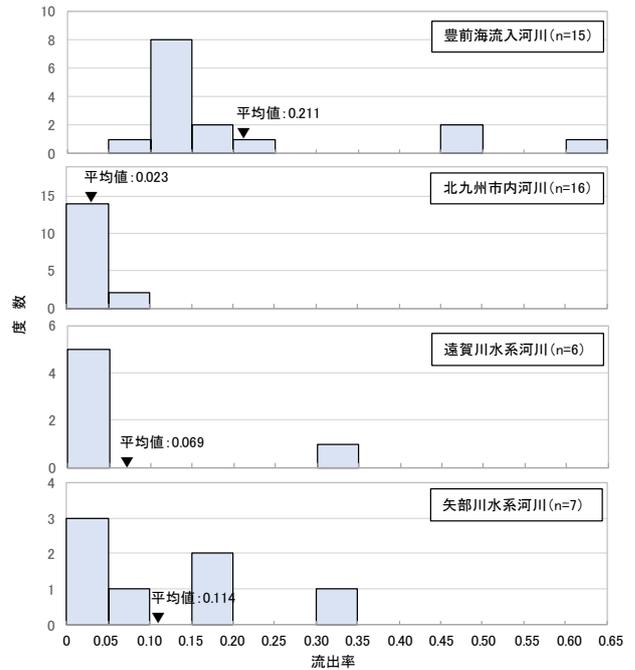


図5 各地域の流出率のヒストグラムと平均値

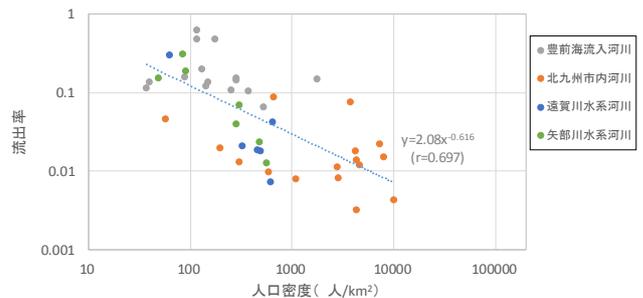


図6 流出率と人口密度の関係

次に各地域の流出率を見ると、豊前海流入河川では、平均値が0.211であり、ヒストグラムは0.1より大きく0.15以下の階級にピークを持ち、0.45より高い階級に属する地点もあった。北九州市内河川では、平均値は0.023であり、0.05以下の階級にピークがあった。遠賀川水系河川では、平均値は0.069であり、0.05以下の階級にピークを持ち、0.3より高い階級に属する地点もあった。矢部川水系河川では、平均値が0.114であり、0.05以下の階級にピークを持ち、0.3より高い階級に属する地点もあった。また、各地域の流出率の平均値に有意差はなかったが、ヒストグラムの特徴は、流出率が0.05以下の階級、又は0.1より大きく0.15以下の階級のいずれかにピークがあった。また、北九州市内河川では、流出率が0.3を超える地点は見られなかった。北九州市では、下水道普及率が99.811%¹¹⁾と非常に高く、未処理生活雑排水の流入は極めて少ないと予想されるため、流出率の高い地点が見られなかったものと考えられた。

次に、流出率に影響を与える要因を検討するため、3.4

と同様に流出率と各項目との間でスピアマンの順位相関係数 (ρ) を計算した。その結果、人口密度との間に強い負の相関 ($\rho = -0.742$, $p < 0.01$) があり、他の項目との間には強い相関関係は見られなかった。また、図6に示す流出率と人口密度の散布図では、両者の間に負の相関(近似式: 流出率 = $2.08 \times$ 人口密度 $[\text{人}/\text{km}^2]^{-0.615}$, $r = 0.697$) があり、人口密度の増加とともに流出率は減少していた。過去の報告によると、流出率と人口密度との間に明瞭な関係が見られず²⁰⁾、今回の結果は異なっていた。また、順位相関、積率相関とも流出率と他項目と間で明瞭な関係が見られず、人口密度との関係がどのような現象に起因するか不明であった。ところで流出率は、LAS負荷量が測定点まで流出する過程で受ける物理化学的、又は生物化学的な浄化を包括的に表す指標である。そのため、人口密度の増加に伴う流出率の変化は、LASの流出過程における浄化作用に何らかの差があることを示唆しており、その要因解明にはこれらの詳細な検討が必要であった。

4. まとめ

福岡県内河川におけるLASの排出負荷量を把握するため、86河川を対象としLAS排出負荷量の推計を行った。その結果、LAS排出負荷量の合計は315t/年であり、その98.7%が未処理生活雑排水由来であった。次に、44河川についてLASの流出負荷量を計算し、その相関関係を検討した結果、流域面積、LAS排出負荷量及び未処理生活雑排水人口と正の相関関係があった。さらに流出率を検討した結果、その度数分布には0.05以下の階級及び0.1より大きく0.15以下の階級の2つにピークがあり、0.3より大きい地点も一部見られた。また、流出率と人口密度の間には強い負の相関関係があったが、他項目との間で明瞭な関係が見られず、その原因は不明であった。

謝辞

本研究を行うにあたり、福岡県環境部環境保全課及び大牟田市環境保全課の皆様から多大なご尽力をいただきました。ここに記し、深く感謝いたします。

5. 引用文献

- 1) 鈴木規之, 村澤香織, 松橋啓介, 南齋規介, 桜井健郎, 森口祐一, 田邊潔, 中杉修身, 森田昌敏: 全国河川の河道データに基づく化学物質のGIS河川動態モデル(G-CIEMS)の開発と空間分布評価の試み. 環境化学, **15**, 385-395, 2005
- 2) 環境省. リスクコミュニケーションのための化学物質ファクトシート, <http://www.env.go.jp/chemi/communication/>

- factsheet.html (2018年12月時点)
- 3) 経済産業省: 集計結果の公表, http://www.meti.go.jp/policy/chemical_management/law/prtr/6.html (2018年12月時点)
- 4) 福岡県保健環境部: 博多湾の窒素及び燐の環境基準の類型指定並びに博多湾及び博多湾流入河川の水質環境基準の類型見直しに係る調査業務報告書, 1995
- 5) 福岡県保健環境研究所: 水質環境基準類型指定見直し調査業務報告書北九州市内河川編, 1997
- 6) 福岡県保健環境研究所: 水質環境基準類型指定見直し調査業務報告書豊前海流入河川編, 1999
- 7) 福岡県保健環境研究所: 遠賀川水系河川の水質環境基準の類型指定見直し調査業務報告書, 2001
- 8) 福岡県保健環境研究所: 水質環境基準類型指定見直し調査業務報告書豊前海流入河川(南部)編, 2003
- 9) 福岡県保健環境研究所: 矢部川水系河川の水質環境基準の類型指定見直し調査業務報告書, 2005
- 10) 福岡県保健環境研究所水質課: 有明海流域における汚濁負荷対策調査業務報告書, 2005
- 11) 福岡県建築都市部下水道課: 福岡県の下水道, 2017
- 12) 志水信弘, 柏原学, 古閑豊和, 森山紗好, 土田大輔, 藤川和浩, 熊谷博史, 石橋融子, 松本源生, 田中義人: 福岡県内河川における直鎖アルキルベンゼンスルホン酸及びその塩(LAS)の濃度. 福岡県保健環境研究所年報, **43**, 99-103, 2016
- 13) 志水信弘, 古閑豊和, 森山紗好, 土田大輔, 藤川和浩, 田中義人: 家庭用洗剤の直鎖アルキルベンゼンスルホン酸及びその塩(LAS)含有量と排出原単位に関する検討. 福岡県保健環境研究所年報, **42**, 80-85, 2015
- 14) 北九州市上下水道局: 直鎖アルキルベンゼンスルホン酸及びその塩(LAS)の調査結果, <http://www.city.kitakyushu.lg.jp/suidou/s01400003.html> (2018年10月時点)
- 15) 環境省: 水質関連システム (2018年10月時点)
- 16) 国土交通省水管理・国土保全局下水道部: 流域別下水道整備計画調査指針と解説, pp. 37, 2016
- 17) 環境省環境再生・資源循環局廃棄物適正処理推進課浄化槽推進室, 一般社団法人埼玉県環境検査研究会: 平成29年度単独浄化槽環境影響実態調査業務報告書, pp. 14, 2018
- 18) 小松幸男: 1997年と2005年における家屋の寿命推計. 日本建築学会計画系論文集, **73**, 2197-2205, 2008
- 19) 福岡県県土整備部河川管理課: 河川調書, 2017
- 20) 井上隆信, 海老瀬潜一: 河川における直鎖アルキルベンゼンスルホン酸塩(LAS)の流出特性. 水環境学会誌, **15**, 739-747, 1992

〈報文〉

岩手県におけるアツモリソウの現状と保全*

小山田智彰**

キーワード ①アツモリソウ ②種の保存法 ③野生絶滅 ④保全 ⑤チョウセンキバナアツモリソウ

要 旨

アツモリソウ (*Cypripedium macranthos* var. *speciosum*) は、国の「絶滅のおそれのある野生動植物の種の保存に関する法律」(「種の保存法」)によって特定第一種国内希少野生動植物種の指定を受け、野生株の採取、移動、譲り渡し等は厳しく制限されている。2007年から岩手県内におけるアツモリソウの自生地調査を継続した結果、9ヶ所あった自生地の6ヶ所が消失し、野生絶滅が現実的になっていることが判明した。残存3ヶ所のうち1ヶ所については、土地所有者である企業が山林の大規模開発を決定したため、絶滅回避策として2016年から2017年にかけて野生7株を開発区域外に設定した保護区に移植して生息域内保全を進めた。また、2017年に環境省の要請を受け、同省が自生地で採種し、新宿御苑管理事務所で保存していたチョウセンキバナアツモリソウ (*Cypripedium guttatum*) の種子を材料に、生育域外保全を行うための発芽試験に取り組んだ。

1. はじめに

アツモリソウの自生地は、県中央部に2ヶ所、県南部に1ヶ所である。県中央部の1ヶ所は2015年に発生した山林火災から立ち入り禁止となり、現状は不明である。もう1ヶ所は、花巻市所有牧野の山中で発見され、同市の要請を受けて今年度から保護措置を開始した。県南部の1ヶ所は、山林開発の大規模な開発行為に伴う保護措置として、開発区内で確認した7株を野生株が自生している別エリア「保護区」に移植し、小山田が開発していた培養技術等も用いて保全措置を行った。また、環境省の要請を受けて、野生絶滅が危惧されているチョウセンキバナアツモリソウについて、同省が採種・保存していた種子の発芽に取り組んだので紹介する。

2. 岩手県におけるアツモリソウの分布調査

岩手県環境保健研究センターには、本県の希少野生動植物種の分布データが地理情報システム (GIS) として保管されている。このGIS情報も含めながら県内全域にわたる自生地の確認調査を継続的に実施した結果、6ヶ所が消失し、残存する自生地はわずか3ヶ所になっていることが判明した (図1)。

3. 方法

3.1 移植地の選定

移植7株を保護区に移植するため、移植対象株の中で生

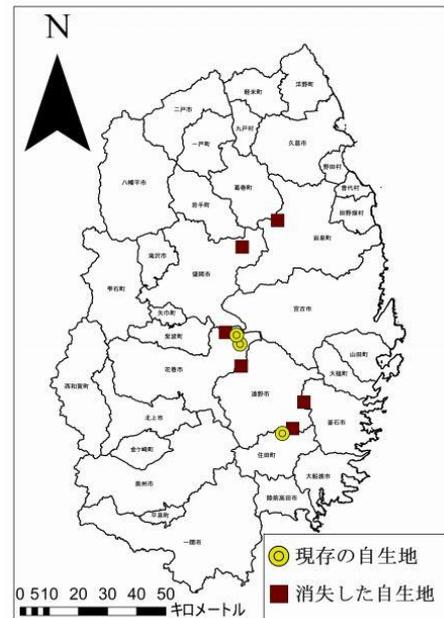


図1 アツモリソウの自生地分布地点 (2019年現在)

育が良いと判断した野生株 (指標株 : A1) の周辺環境を観察した後に、保護区内に自生する野生3株の周辺に移植候補地19地点を設定した。移植候補地の土壌を評価するために、指標株の発生地点から土壌を採取して分析を行い、移植地選定の指標とした。土壌採取は、根系の伸長範囲を確認して深度10cmを基準とし、分析項目は、植物

*The present situation and conservation of *Cypripedium macranthos* var. *speciosum* in Iwate prefecture

**Tomoaki Oyamada (岩手県環境保健研究センター) Iwate Prefectural Reserach Institute for Environmental Sciences and Public Health

の成長に関係する成分を中心に、アンモニア態窒素、硝酸態窒素、可給態リン酸、交換性カリウム、交換性カルシウム、交換性マグネシウム、可給態鉄、交換性マンガン、塩分、pH、ECの11項目とした。この土壌分析結果で選出した地点に、地域で栽培されているアツモリソウ栽培株を仮植し、移植後の生育状況を判断して移植地を決定した。

3.2 アツモリソウ野生株の移植試験

野生株の移植は、以下の方法で実施した。

- ①移植前に草丈、葉長、葉幅、シュート数、開花数を調査する。
- ②生育状態、根系の発達状況を目視で把握する。
- ③環境整備として移植地の選択的除草、堆積した枯れ枝や落ち葉を除去する。
- ④ウイルス感染を防ぐため、器具は滅菌処理を行う。作業靴は洗浄し、完全に土を落としたものを使用する。
- ⑤1株あたり1m×1mを移植スペースとして確保し、その中に移植株を移植する。移植株が複数ある場合は、1回の作業につき1株を行う。移植補助者は、移植の全工程について写真や動画、GPS、野帳への記録を行う。
- ⑥移植株の掘り出しは、全て小山田が行う。触手で作業を進め、安全を確認できる段階で移植ごてを使用する。アツモリソウの根系の多くは横方向に伸長し、内側および下方向にある根は短い。ラン科植物のアツモリソウは、土中のラン菌と共生関係を結んでいるため、根に付着した土を落とすことなく掘り取る。根を損傷させることなく、茎と鞘状葉の間に土砂が入らないようにする。
- ⑦移植に必要な穴の規模を計測し、移植地で待機する移植補助者に連絡する。移植地のスタッフは穴を掘って準備を整えるが、掘り出した土は「上層部：表層域」と「下層部：根系伸長域」に分け、野生株の到着を待つ。
- ⑧小山田培養液¹⁾を掘り出した株の土に十分に散布する。
- ⑨移植地への植え込みは、葉の展開方向を正確に配置し、植え付け深度は掘り出し時と同じレベルに取る。移植株の根系を整えて移植し、小山田培養液を十分に散布する。

3.3 樹木の伐採による光環境の改変試験

アツモリソウは草原性の植物であることから、自生地の光環境を改善する目安として、健全な株が栽培されている栽培試験地の開空度空疎率15%を目標値にして樹木を伐採した。伐採する樹木の選定は、栽培地と自生地を知る小山田が行い、東方向の樹木を1ヶ所当たり10本程度伐採し、下草の選択的除草を行った。樹木伐採の効果を把握するために、改変の前後の草丈と葉長、葉幅、シュート数および開花数の差について記録し、改変措置

あり区と改変措置なし区の差について比較を行った。

3.4 ニホンジカの食害対策試験

ニホンジカによる食害が数回にわたって確認されたため、野生株を金属製の保護柵で覆い、センサーカメラ(ACORN社製LTL-5210A)を設置した。センサーカメラの撮影設定は、写真を3枚撮影した後に、10秒間の動画を保存するようにし、撮影された動物の種別出現頻度と食害の有無を調査した。

3.5 消失リスク評価

保全措置の効果を確認するために、「消失リスク評価表(表1)を用いて評価した。この方法は、東日本大震災の津波が海浜性の希少植物に与えた影響を調査した際に、消失の危険度を把握するために利用した評価法²⁾をアツモリソウ専用として新しく作成したものである。

評価項目は、「繁殖」、「立地」、「個体数」、「採取」、「動物による食害等の影響」および「病虫害による影響」の6項目とし、「動物による食害等の影響」と「病虫害による影響」は、新たな項目として設定した。保護区内のアツモリソウ全株に生育調査を行いながら、この消失リスク評価表を取りまとめて保全措置の効果と課題の確認を行った。

表1 アツモリソウ消失リスク評価表

<p>a. 【繁殖】 (自然状態での繁殖能力について)</p> <p>5 増殖が認められない 4 弱い増殖力がある 3 中位の増殖力が認められる 2 著しい増殖力がある 1 強大な増殖能力がある</p>	<p>d. 【採取】(あり・なし) (採取の危険度について)</p> <p>5 極めて強い 4 強い 3 中 2 弱い 1 無い</p>
<p>b. 【立地】 (生息地の消失危険度について)</p> <p>5 極めて強い 4 強い 3 中 2 弱い 1 無い</p>	<p>e. 【動物による食害の影響】(あり・なし) (食害の影響について)</p> <p>5 消失した 4 大規模に食害を受けている 3 部分的に食害を受けている 2 一部に食害を受けている 1 変化なし</p>
<p>c. 【個体数】 (生息地点における個体数について)</p> <p>5 消失 4 1~2個体 3 3~5個体 2 6~9個体 1 10個体以上</p>	<p>f. 【病虫害による影響】(あり・なし) (病虫害の影響について)</p> <p>5 枯死した 4 大きな影響を受けている 3 部分的に影響を受けている 2 一部に影響を受けている 1 変化なし</p>

3.6 チョウセンキバナアツモリソウ保存種子の発芽試験

平成26年と27年に自生地で採種され、環境省新宿御苑管理事務所(新宿御苑)で保存されていた種子5サンプルを材料にして発芽試験を行った。最初に、顕微鏡下で種子数と胚の状態を調査した。種子の殺菌処理を行った後に、小山田培養液に浸水処理を24時間行い、クリーンベンチ内に搬入して小山田培地¹⁾に播種した。播種後は、インキュベーター内で培養を行い、発芽数を調査した。

3.7 統計解析

野生株の移植試験は、移植前と移植後の草丈、葉長および葉幅について Paired-t 検定を行い、シュート数、開花数および結実数についてウィルコクソンの符号付順位検定を行った。光環境改変措置の試験は、改変前と改変後の草丈の差、葉長の差および葉幅の差についてウェルチの t 検定を行い、シュート数の差および開花数の差についてマンホイットニーの U 検定を行った。

4. 結果

4.1 移植地の選定

指標株の発生地点から採取した土壌は、アンモニア態窒素と硝酸態窒素が低く、交換性カルシウムが高いこと。pH 7.5 前後と微アルカリ性で、EC が低いことが判明した。この性質に注目して、アンモニア態窒素が 1mg/100g 未満、硝酸態窒素が 5mg/100g 未満、交換性カルシウムが 150mg/100g 以上、pH が 7.0~8.1 で、EC が 80 $\mu\text{s}/\text{cm}$ 未満であることに注目して、5 項目の合計ポイントで移植候補地の評価を行った。さらに、地元で栽培されている栽培株を仮植して、移植後の生育状況から候補地 6 地点を移植地に決定した。

4.2 アツモリソウ野生株の移植試験

環境省への移植申請が完了した 2016 年から 2017 年に 6 地点に 7 株の移植を行った。1 回目は、A3 株を移植した。移植 1 年後に初開花が確認され、2 年後に開花と結実が確認された。2 回目は、A2 株を移植した。移植実施の年から初開花が確認され、その後も継続して開花が確認された。3 回目は、A10 株を移植した。移植 2 年後にシュート数が 1 から 6 開花数が 1 から 5 に、結実数は 0 から 5 に増加した。4 回目は、A1①株、A1③株と A1④株を移植した。A1①株は、移植から 2 年間でシュート数が 1 から 3 に、開花数が 1 から 3 に、結実は 1 から 2 に増加した。A1③株は、2017 年に初開花が確認され、A1④

株は、移植から 2 年間でシュート数が 1 から 2 に、開花数が 0 から 2 に増加した。5 回目の移植は、A1②を移植した。移植 1 年後に初開花と結実が確認された。以上の結果により、移植株の草丈、葉長、葉幅、シュート数、開花数および結実数について、移植前後に有意差はなかったものの、全項目の数値が増加し、全ての株の生存を確認した (表 2)。

4.3 樹木の伐採による光環境の改変試験

光環境を改善する目的で、開空度空隙率 15% を目標値にして、野生株の上を覆う樹木を伐採した。伐採した木はコナラが主であった。光環境改変措置の効果を把握するために、伐採前後の草丈と葉長、葉幅、シュート数および開花数の差について記録し、改変措置なし区と改変措置あり区の差について比較を行った結果、草丈、葉長、葉幅およびシュート数では有意な差は見られなかったが、開花数は改変あり区で有意に高かった (表 3)。

4.4 ニホンジカの食害対策試験

アツモリソウを近影できる地点に 17 台の自動撮影カメラを設置し、2016 年から 2017 年の記録映像を集計した結果、373 個体の動物が確認され、45.3% をニホンジカが占め、次いで 14.7% がネズミ類、11.5% が鳥類、9.9% がツキノワグマであった (図 2)。

映像からニホンジカは保護柵に侵入できず、食害も認められなかった。

4.5 消失リスク評価

「アツモリソウ消失リスク評価表」を用いて「繁殖」・「立地」・「個体数」・「採取」・「動物による食害等の影響」・「病虫害による影響」の 6 項目について評価を行った (表 4)。その結果、移植株は、「繁殖」・「立地」・「個体数」・「病虫害による影響」の 4 項目で消失リスクの値が減少し、特に、「立地」・「個体数」・「病虫害による影

表2 移植前と移植後の野生株7株の生育比較

	供試数	草丈 (cm)	葉長 (cm)	葉幅 (cm)	シュート数 (本)	開花数 (個)	結実数 (個)
移植前	7	28.0 ± 4.1 ^z	14.6 ± 1.0	6.3 ± 0.8	1.0 ± 0.0	0.6 ± 0.2	0.3 ± 0.2
移植後	7	35.4 ± 1.0	16.8 ± 1.8	8.3 ± 0.4	2.1 ± 0.7	2.0 ± 0.6	1.4 ± 0.6
有意性		n. s ^y	n. s	n. s	n. s ^x	n. s	n. s

^z 平均±標準誤差

^y Paired-t検定により、*は5%、**は1%水準で有意差があることを示す。

^x ウィルコクソンの符号順位検定により、*は5%、**は1%水準で有意差があることを示す。

表3 樹木の伐採による光環境の改変措置前後の生育比較

光環境改変	供試数	改変前後の草丈差 (cm)	改変前後の葉長差 (cm)	改変前後の葉幅差 (cm)	改変前後のシュート数差 (本)	改変前後の開花数差 (個)
なし	4	4.7 ± 6.2 ^z	0.1 ± 1.0	1.5 ± 0.7	-0.25 ± 0.3	0.0 ± 0.4
あり	8	7.1 ± 4.2	0.2 ± 1.0	0.8 ± 0.6	1.5 ± 0.7	2.6 ± 1.0
有意性		n. s ^y	n. s	n. s	n. s ^x	*

^z 平均±標準誤差

^y ウェルチのt検定により、*は5%、**は1%水準で有意差があることを示す。

^x マンホイットニーのU検定により、*は5%、**は1%水準で有意差があることを示す。

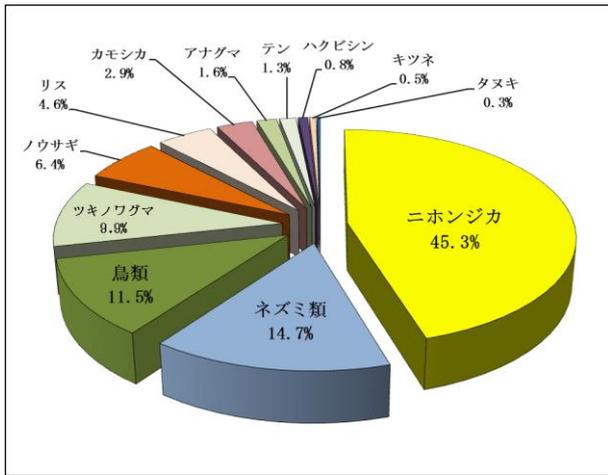


図2 自動撮影カメラに撮影された動物の割合

響」の数値が低くなった。2016年から2018年の3年間で4.9ポイント低くなった。自生株は、「個体数」・「動物による食害等の影響」・「病害虫による影響」の3項目で消失リスクの値が減少した。2016年の「病害虫による影響」は、食害による葉の損傷が確認されたため、数値が高くなった。損傷を受けた葉の内部にハエ類の幼虫が確認されたため、この幼虫を摘出して室内で羽化させた結果、ササカワフンバエであることが判明した。この処置として、殺菌剤の塗布による治療を行い、忌避効果をねらって野生株の周辺に殺菌剤を散布した結果、虫による食害は激減した。2016年から2018年までの合計数を年次比較すると、2016年から2018年の3年間で1.2ポイント低くなった。

表4 アツモリソウ消失リスク評価の年次推移

調査地	各項目	2016年	2017年	2018年
移植株 ²	a. 繁殖	5.0	4.8	4.7
	b. 立地	5.0	2.0	2.0
	c. 個体数	4.0	4.0	3.3
	d. 採取	2.0	2.0	2.0
	e. 動物による食害等の影響	1.0	1.5	1.0
	f. 病害虫による影響	2.2	1.7	1.3
	計	19.2	16.0	14.3
自生株 ³	a. 繁殖	5.0	5.0	5.0
	b. 立地	2.0	2.0	2.0
	c. 個体数	3.3	3.2	3.1
	d. 採取	2.0	2.0	2.0
	e. 動物による食害等の影響	1.3	1.2	1.2
	f. 病害虫による影響	2.7	1.9	1.8
	計	16.3	15.3	15.1

²移植した野生株の調査地点数n=4

³自生株の調査地点数は2016年がn=7、2017年がn=10、2018年がn=12

4.6 チョウセンキバナアツモリソウ保存種子の発芽試験

平成26年保存種子から6個が発芽し、その後の育成培養で生存した2個の幼苗を野外栽培に移行した。平成27年保存種子から100個が発芽し、育成培養を経て39個の幼苗を野外栽培に移行した(2019年6月26日現在)。保存種子の発芽傾向を知るために、盛岡市内のアツモ

リソウ属植物栽培試験地で栽培しているチョウセンキバナアツモリソウから採種し、発芽の比較をした。その結果、新宿御苑の保存種子は、発芽開始日数が長期間・断続的に発芽する傾向が見られた(図3)。発芽率の比較では、保存種子が1.1%となり、保存処理をしていない栽培株の種子34.7%と比較して著しく低いことが明らかになった。

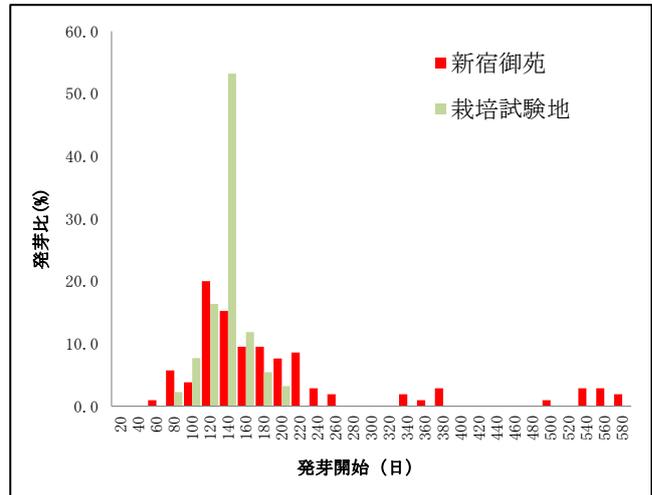


図3 環境省保存種子と栽培試験地の種子の発芽開始日の分布

5. 考察

5.1 移植地の選定と野生株の移植

本研究では、栽培30株を材料に移植の事前試験を行って移植の手法を確認した。移植地の決定は、保護区の環境を観察しながら、候補地19地点を候補地として見出した。次に、候補地と野生株A1の発生地点について土壌分析を行い、比較を行った。さらに、栽培株を仮植し、その後の生育が良いと判断された6地点を移植地に決定し、国内初と思われるアツモリソウ野生株の移植を実施した。

5.2 自生地の保全措置

本研究では、移植した野生株も含めて保護区のアツモリソウ全株について保護柵で囲む措置に取り組んだ(写真1)。アツモリソウを食害するニホンジカが自動監視カメラに記録されたものの、保護柵に侵入することはできなかったことから、保全上で有効な方法であることが明らかになった(写真2)。その他の食害では、虫による損傷が確認されたため、葉の内部から幼虫を摘出して室内で羽化させた結果、フンバエ科のササカワフンバエ(*Americina vittata*)であることが判明した。本種の幼虫は、ヨーロッパに分布する *Cypripedium calceolus*、北アメリカに分布する *C. acaule* と *C. parviflorum var. pubescens* および *C. reginae* につい

て食害の報告があるが³⁾、日本に自生するアツモリソウ (*C. macranthos* var. *speciosum*) を食害する虫として報告するのは、世界的に初となり、5月中旬から8月下旬までの期間に消毒薬による治療と虫の忌避を行うことで食害を防除できることも明らかになった。

アツモリソウの光環境を改善する目的で、野生株の上を覆う樹木の伐採を行った。この際、伐採範囲を選定方法として、開空度の空隙率 15%を伐採時の目標値として樹木の伐採を行った結果、伐採を行わなかった場所のアツモリソウと比較して、開花数で上回った。森林下に自生するアツモリソウでは、光環境の改変によって、開花個体の増加が期待できる可能性が示された。

本研究では、小山田培養液を散布した。本来、小山田培養液の使用効果はアツモリソウ培養苗の黒変死を防止するものとして開発したものであるが、野生株の生存維持と成長促進を期待して用いた。培養液の成分は、クローン増殖に使用される植物ホルモンを使用していないため、体細胞変異を生ずる問題も低いことから、自生地での活用の問題がないと思われる。

以上の保護措置を総合的に確認する評価法として「アツモリソウ消失リスク評価」を用いた。これは、優先して取り組む保全措置を明確に知るといって有効であった。特に、動物による食害や害虫の防除において万全の対策を講じるきっかけにもなり、消失リスク評価の活用が自生地の保全に有効であることを実証した。

5.3 チョウセンキバナアツモリソウ保存種子の発芽

「種の保存法」指定以前に入手したチョウセンキバナアツモリソウ (*C. guttatum*) の栽培株を材料に苗生産法の検討を行ったところ、アツモリソウ属植物の増殖用に開発していた小山田培地で発芽させることに成功し、野外に設定した栽培試験地に苗を定植して管理を継続した結果、開花と地下茎による増殖に成功した(写真3)。

この技術を用いて新宿御苑の発芽に取り組んだ結果、以下の工夫を講じることで発芽させることができた。

- ①採種・保存処理の方法を聞き取り、検鏡を行って種子の破損状態や胚の有無を確認する。
- ②培養液に液浸させて、発芽能がある種子を活性させる。
- ③無菌播種に用いる際は、十分な種子殺菌を行い、培地汚染が確認された時は、直ちに殺菌再培養を試みる。
- ④発芽に最適な培地を使用する。

以上、保存処理が施されたチョウセンキバナアツモリソウの種子を発芽させるためには、通常の播種法に用いない工夫が必要となるが、生息域内保全に用いる苗を作出できることを確認した。



写真1 保護柵の中で咲くアツモリソウ野生株



写真2 自動撮影カメラで撮影したニホンジカ



写真3 栽培試験地のチョウセンキバナアツモリソウ

* 小山田培養液・小山田培地を用いて発芽・育苗
 * 栽培株から採種・発芽させた培養苗 30 個体を栽培試験地に定植して増殖, 2019 年の開花数 256 (前年の開花数 239)

6. おわりに

岩手県のアツモリソウは、野生絶滅の危機に直面している。このような状況で自生地が山林開発されることは、保護の観点から見ると好ましくないことではあるが、山の一部を保護区として残し、山中に点在していたアツモリソウを集約した保護措置を行えた点では、またとない機会を得ることができた。その中で、「見守る保護」から「育てる保護」へと積極的な保全措置に取り組めたことは、蓄積してきた知識や技術を自生地保護策に導入できるきっかけとなり、アツモリソウの保全においても明るい話題と言えるだろう。

一方、全国的な視野で見ると、適正な保護対策が講じられずに姿を消しつつある植物もある。チョウセンキバナアツモリソウは、自生地の開花が数個体まで激減し、種子形成がほとんど見られないため、過去に採種した保存種子を発芽させなければならないほど危機的な状況にあることから、的確な保全対策を講じない限り、野生絶滅の危機から救いあげることが困難だろう。

7. 謝辞

本研究は、環境省に「種の保存法」に基づいた移植申請等の許可を行って実施した。自生地調査は、岩手県環

境保健研究センターの前田琢上席専門研究員、情報提供者の最上益雄氏と佐々木吉昭氏より協力をいただいた。野生株の移植作業は、岩手県環境保健研究センター地球科学部の前首席専門研究員・部長である佐藤卓主任専門研究員、鞍懸重和専門研究員、千葉文也非常勤職員より協力をいただいた。ここに記して感謝を申し上げる。

8. 引用文献

- 1) 小山田智彰, 平塚明, 鞍懸重和: ロールペーパーとパーミキュライトを培地支持材量に用いた絶滅危惧植物アツモリソウの苗生産に関する研究. 園芸学研究, 10 (3), 315-320, 2011
- 2) 小山田智彰, 鞍懸重和, 新井隆介, 山内貴義, 片山千賀志: 東日本大震災の津波による岩手県における海浜性植物の消滅. 薬用植物研究, 34 (1), 37-48, 2012
- 3) Kenji Suetsugu, Shumpei Kitamura and Masahiro Sueyoshi: Infestation of the orchid *Cephalanthera* spp. by *Parallelomma vittatum* (Meigen, 1826) (Diptera: Scathophagidae) in Japan. *Entomological Science*. Doi:10.1111/ens.12344, 2019

<報 文>

北部九州及び山陰の離島で観測された2017年5月黄砂の粒径別化学特性*

辻昭博** 大曲正祥*** 野田悠介*** 土肥正敬**** 佐藤嵩拓**** 菅田誠治*****

キーワード ①軽希土類元素ランタン ②粗大粒子 ③無機元素 ④黄砂粒子変質 ⑤硝酸カルシウム

要 旨

五島局、壱岐局、肥前局及び国設隠岐局の4局で観測ネットワークを構築し、2017年5月の黄砂現象について、エアロゾル粒子を $2.5\mu\text{m}$ を境に二粒径に分級採取し、イオン成分と無機元素成分を分析した。土壌性元素の二粒径の分配率は、カルシウム (Ca) が唯一異なり、 $\text{PM}_{2.5}$ 分率が低いことがわかった。イオン成分の当量濃度の検討から、粗大粒子中のCaは主に $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$ を形成していたと考えられた。潮解性の $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$ が吸湿膨張し、微小側から粗大側へ移行した粒子が存在したと考えられた。軽希土類のランタン (La) に着目し、La/Sc比やLa/Y比を検討したところ、標準黄砂試料や中国の上部地殻の値と近似し、日本の上部地殻の値と異なることから、大陸から輸送された土壌性粒子の識別法として有望と考えられた。

1. はじめに

中国大陸起源の風成塵である黄砂の飛来は、小児ぜんそくの急性増悪や心筋梗塞の患者の増加を招くことが報告されており^{1,2)}、黄砂の健康影響の解明が進んでいる。黄砂粒子は、方解石 CaCO_3 に富んでおり、輸送経路上の中国上空で酸性ガス (SO_x , NO_x) を吸収し、物理的・化学的に変質することから、酸性物質を長距離輸送する運搬媒体ともいえる。黄砂の成分分析は健康影響の要因解明のうえでも重要だが、主に粗大領域に分布するため、 $\text{PM}_{2.5}$ と比べると測定データが少ないことが課題である。国や自治体の常時監視局で運用されている $\text{PM}_{2.5}$ 自動測定機には $\text{PM}_{2.5}$ のみならず、粗大粒子 ($2.5\mu\text{m}$ 以上 $10\mu\text{m}$ 以下の粒子、 $\text{PM}_{10-2.5}$) も同時に採取できる機種がある。この機種を利用すれば、中心粒径が $3\sim 4\mu\text{m}$ とされる黄砂粒子に適した二粒径の粒子が採取できる³⁾。

そこで、この機種が運用されている北部九州及び山陰の離島の $\text{PM}_{2.5}$ 常時監視局による観測網を構築することとし、2017年5月上旬に発生した黄砂現象を同時に観測した。二粒径のイオン成分及び無機元素成分の成分分析を行い、黄砂飛来時のエアロゾルの粒径別化学特性を検討した。得られた知見から、元素比による黄砂識別や、黄砂の変質に伴う粒子成長について考察した。

2. 方法

2017年5月6日～9日に飛来した黄砂を対象とした。観測地点は長崎県五島局・壱岐局、佐賀県肥前局及び島根県国設隠岐局の4地点とした (図1)。

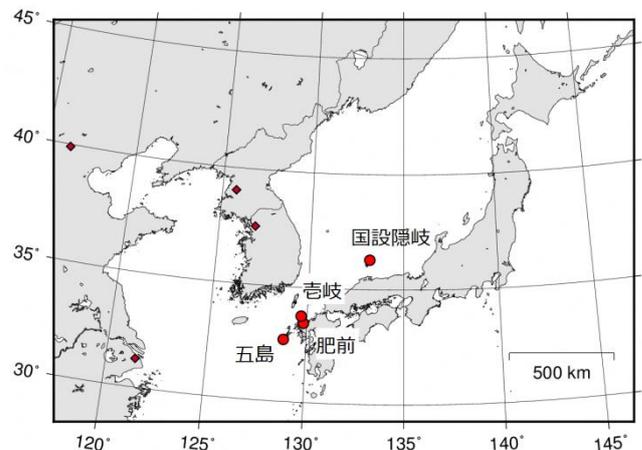


図1 観測地点

試料は $\text{PM}_{2.5}$ 自動測定機 (PM-712C, 紀本電子工業) のテープろ紙とした。カバーテープを装着することで採じん面を保護した。装置点検時に回収したため、半揮発性物質 ($\text{PM}_{2.5}$ 中の硝酸イオン等) は参考値扱いである。二

*Chemical Characteristics of Size-segregated Inorganic Components of Asian Dust Observed at Remote Island Sites in the Northern Kyushu Area and the San-in Region in May 2017

**Akihiro TSUJI (京都府保健環境研究所) Kyoto Prefectural Institute of Public Health and Environment

***Masayoshi OOMAGARI, Yuusuke NODA (佐賀県環境センター) Saga Prefectural Environmental Research Center

****Masataka DOI (長崎県環境保健研究センター) Nagasaki Prefectural Institute of Environment and Public Health

*****Takahiro SATO (島根県保健環境科学研究所) Shimane Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science

*****Seiji SUGATA (国立環境研究所) National Institute for Environmental Studies

粒径(PM_{2.5}及びPM_{10-2.5})の質量濃度はPM-712Cの1時間値を使用した。イオン及び無機元素成分の分析は、二粒径で一部異なり、PM_{2.5}では辻と日置⁴⁾に準拠して分析し、PM_{10-2.5}では同様に得られた分析値にバーチャルインパクトの補正式を適用した³⁾。時間分解能はイオン成分が3時間毎とし、無機元素成分が6時間毎とした。壱岐局及び国設隠岐局は京都府が分析を担当した。以下、本研究では粗大粒子(PM_{10-2.5})をPMcと表記する。

3. 結果と考察

3.1 黄砂イベントの概況

既往研究によると、この黄砂の発じん地はゴビ砂漠及び内モンゴル中央部と報告されている⁵⁾。SYNOP報によると、中国・北京市では5月4日に砂塵の影響を受け、視程1km程度まで低下した(www.ogimet.com, web site)。国内PM_{2.5}濃度の速報マップによると、黄砂による影響は西日本に集中し、5月6日から上昇し、5月8日に極大に達していた(環境省大気汚染物質広域監視システム, www.cr.chiba-u.jp/~database-jp/wiki/wiki.cgi?page=AEROS_soramame_images, web site)。

図2に、気象庁の地上天気図を示す。まず5月6日に寒冷前線が本州付近を通過し、続いて5月8日にシアライン(潜在的寒冷前線)と移動性高気圧が本州付近を通過した。こうした間欠的な低・高気圧の通過によって黄砂が断続的に輸送されたと考えられる。なお、黄砂期間の降水量は、寒冷前線通過時を含めてゼロであった。

気塊の後方流跡線解析によると、上述の黄砂発じん地上空の自由対流圏から、2~3日間程度の輸送時間で、下降性気流に運ばれて飛来したことが確認できた(図省略)。

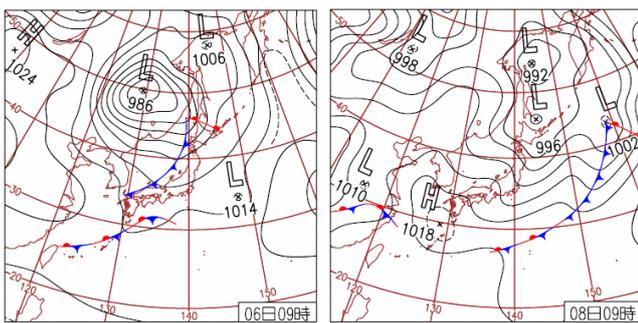


図2 地上天気(2017年5月6日及び8日)

図3に、五島、壱岐、肥前及び国設隠岐における二粒径(PM_{2.5}及びPMc)の1時間値を示す。5月6日の寒冷前線通過後に、各地で濃度が上昇し、9日に国設隠岐を最後に終息した。黄砂の飛来は濃度変動しながらも途切れることなく、その期間は約65~77時間であった。壱岐では7日の深夜から約24時間にわたって、PMc濃度150 μg/m³以上(PM₁₀濃度200 μg/m³以上)が継続するという顕著な高濃

度ピークがあった。やや大雑把にみれば、これが国設隠岐へと半日ほど遅れ、さらにPMc濃度が半分程度に減衰しながら到達したようにみえる。

SO₂濃度については、あまり上昇しておらず、PM_{2.5}あるいはPMc濃度との連動性も弱かった(図省略)。その最高値は壱岐及び肥前で3ppb、五島で2ppb、国設隠岐で2ppb未満であった。5月上旬は中国の石炭暖房期間ではないものの、中国大陸由来の気塊が飛来しても、最近はSO₂濃度があまり上昇しなくなっている。

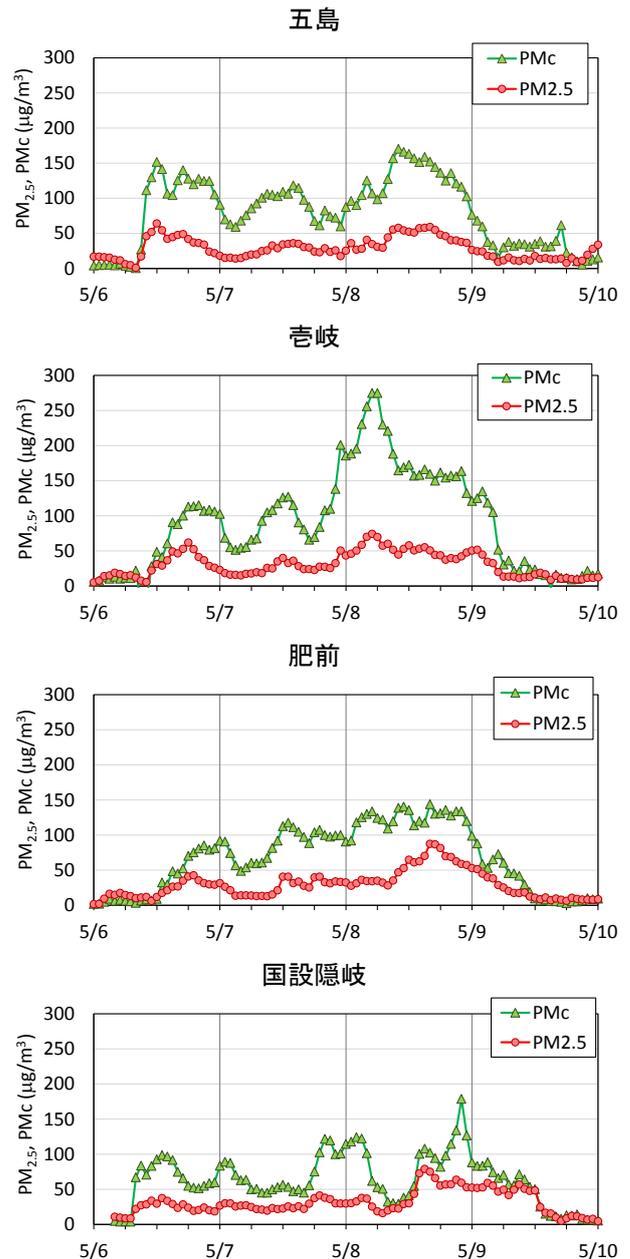


図3 二粒径(PM_{2.5}及びPMc)の1時間値の推移

3.2 硫酸イオンと硝酸イオンの比

表1に、黄砂が顕著であった5月8日における4地点のPM₁₀の質量濃度、硝酸イオン(NO₃⁻)及び硫酸イオン(SO₄²⁻)

濃度を示す。壱岐のPM₁₀は258 μg/m³と高く、200 μg/m³を大黃砂の閾値とすると⁶⁾、北部九州が大黃砂に相当した。

各地点ともNO₃⁻/SO₄²⁻比が1より高い。半揮発性のNH₄NO₃は揮散消失してしまうから、なおさらNO₃⁻の方が高濃度であろう。過去の黄砂報告によると⁶⁾、SO₄²⁻濃度の方が高い事例が大半であったことと対照的である。最近の中国では、石炭火力発電所での脱硫装置設置や、脱石炭化と呼ばれるエネルギー政策の転換により、SO_xの削減が進んでいるようであるが⁷⁾、入れ替わりにNO_xが問題となりつつある。各地点ともNO₃⁻/SO₄²⁻比が1より高い結果は、中国のSO_x排出量の低下とNO_x排出量の増加を反映しているかもしれない。

表1 5月8日のPM₁₀の質量、硝酸イオン及び硫酸イオン

	PM ₁₀ 質量	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻ /SO ₄ ²⁻
五 島	186	11.3	8.7	1.3
壱 岐	258	15.8	8.8	1.8
肥 前	191	10.0	8.2	1.2
国設隠岐	147	9.3	7.4	1.3

(単位μg/m³)

(※注：PM₁₀は水分補正前のPM_{2.5}とPMcの和である。)

3.3 カルシウム比, ランタン比

中国大陸は日本には存在しないカーボナタイト(炭酸塩鉱物からなる火成岩)鉱床が広く分布しており、カルサイトやバストネサイトが多く含まれている⁸⁾。このため中国の土壌はCaや軽希土類元素の濃集度が高い。

そこで表2に、黄砂期間における3地点の二粒径の元素濃度(アルミニウムAl, カルシウムCa, スカンジウムSc, イットリウムY, ランタンLa)と元素比(Ca/Al比, La/Sc比及びLa/Y比)を示す。まず、Ca/Al比を検討すると、日本の上部地殻⁹⁾の0.36よりも高い。ところが意外なこと

表2 黄砂期間の二粒径及びPM₁₀の元素濃度と元素比

	濃度 (ng/m ³)					元素比		
	Al	Ca	Sc	Y	La	Ca/Al	La/Sc	La/Y
PM _{2.5}								
壱 岐	2450	996	0.49	0.80	1.29	0.41	2.6	1.6
肥 前	1940	1010	0.29	—	0.83	0.52	2.9	—
国設隠岐	2040	920	0.49	0.76	1.28	0.45	2.6	1.7
PMc								
壱 岐	8930	7140	1.76	3.11	5.02	0.80	2.9	1.6
肥 前	3440	2780	0.55	—	1.70	0.81	3.1	—
国設隠岐	4500	3340	0.84	1.43	2.31	0.74	2.7	1.6
PM ₁₀								
壱 岐	11400	8140	2.25	3.91	6.31	0.71	2.8	1.6
肥 前	5380	3790	0.84	—	2.53	0.70	3.0	—
国設隠岐	6540	4260	1.33	2.19	3.59	0.65	2.7	1.6

に、二粒径のうち粗大側の値がより大きく、PM_{2.5}<PMcであった。これは3地点とも同様であった。この疑問は後ほど考察する。

Scは希土類元素ではあるが地殻中に分散された状態で存在し、偏在性が乏しく、前述のカーボナタイト鉱床にも濃集されない¹⁰⁾。そこでScを基準として元素比を算出することとした。La/Sc比は二粒径とも2.6~3.1と高い値を示し、La/Y比は二粒径とも1.6~1.7と高い値を示した。文献によると、La/Sc比は、ゴビ砂漠表層土由来の標準黄砂試料(NIES CRM No. 30ゴビ黄砂)の公式データ¹¹⁾から計算すると3.08となり、また中国東部の上部地殻¹²⁾では2.39となり、日本列島の上部地殻⁹⁾では平均1.36(範囲1.26~1.93)となる。今回の測定結果は、標準黄砂試料や中国東部の上部地殻の値に近く、日本の上部地殻の値とは異なる。これらの知見から、La/Sc比の使用は大陸からの輸送の識別法として有望と考えられる。また、La/Y比も同様の検討を行っており、これも有望と考えられる。なお、PM_{2.5}中に石油の流動接触分解(FCC)由来のLaが含まれることがあり¹³⁾、この影響を避けるために、二粒径に分級の上、PMc中の元素比の使用がより推奨される。また、これらの元素は微量ではあるが、コリジョンガスを使用せずにICP-MS法で精度良く測定できる。

3.4 主要成分の推移

図4に、壱岐及び国設隠岐におけるPMcのAl, Ca, NO₃⁻, 非海塩性(nss-)SO₄²⁻, Na⁺, Cl⁻の6時間値の推移を示す。以下、本論文ではこの2地点に絞って述べる。両地点とも、土壌性元素のAlやCaは、人為汚染物質のNO₃⁻やSO₄²⁻と変動が類似し、両者は輸送過程で反応していたと考えられる。概況として、壱岐から国設隠岐へと黄砂が半日ほど遅れ、さらにPMc濃度が半分程度に減衰しながら到達したようにみえると述べたが(3.1)、Al及びCa濃度も半分程度の濃度に減少しており、整合的であった。またNa⁺とCl⁻は連動しており、海塩由来とみられるが、Al, Ca, SO₄²⁻, NO₃⁻とは連動性が乏しく、黄砂や人為汚染物質とはあまり混合されていなかった。両地点ともnss-SO₄²⁻はPMc質量の1~2%を占めていた。両地点ともNO₃⁻はPMc質量の7~8%を占めていた。鶴野ら¹⁴⁾は、2014年5月の黄砂をACSA-12で測定して、NO₃⁻/PMcの重量比は5~8%に達することを示しており、本研究と整合的である。

また、壱岐及び国設隠岐におけるPM_{2.5}成分の6時間値の推移を調べた(図省略)。国設隠岐では明確ではなかったが、壱岐では黄砂初期にnss-SO₄²⁻及びNH₄⁺の濃度が上昇していた。同時に化石燃料燃焼の指標元素であるV, Ni, As, Se, PbのAl相対濃度比も極大となったが、いずれも時間とともに減少していた。寒冷前線通過後、黄砂に先んじて人為汚染物質が飛来したとみられる。

8日のPM_cのイオンの当量バランスを示す。PM_cの陰イオンは主に海塩由来とみられるCl⁻を除けば、NO₃⁻が多い。PM_cでは、未中和のCaCO₃のほか、CaSO₄とCa(NO₃)₂が形成されていたと考えられ、両者の割合はCaSO₄ < Ca(NO₃)₂と考えられる。黄砂土壌にはカルサイトCaCO₃や石膏CaSO₄・H₂Oがもともと存在しているが、NO₃⁻はほとんど含まれないことから、以下の式のとおり、CaCO₃と硝酸ガスが輸送過程で反応してCa(NO₃)₂を形成したとみられる。

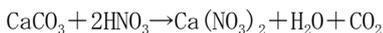


図9に、5月8日のPM_{2.5}のイオンの当量バランスを示す。PM_c(図8)と比べると、PM_{2.5}のイオンはnss-SO₄²⁻が多く、Ca²⁺が少ない。半揮発性のNH₄NO₃は全て消失している可能性を考慮しても、イオンバランスはほぼ揃っており、未中和のCaCO₃の存在は考えにくい。CaSO₄やCa(NO₃)₂が形成されていたとしても、Ca(NO₃)₂はかなり少ないと考えられる。この結果は、森川ら¹⁵⁾が2003年に京都府北部の遠隔地において、黄砂粒子は粗大側でNO₃⁻が多く、微小側でSO₄²⁻が多いと報告していることと整合的である。黄砂はNO₃⁻の安定な輸送媒体といえるだろう。

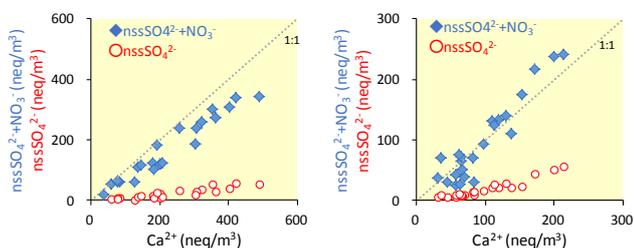


図7 黄砂期間の壱岐(左)及び国設隠岐(右)におけるPM_cのCa²⁺とnss-SO₄²⁻あるいはnss-SO₄²⁻+NO₃⁻の当量関係

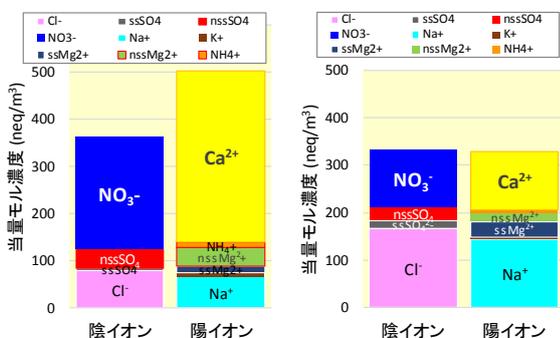


図8 5月8日の壱岐(左)及び国設隠岐(右)におけるPM_cのイオンの当量バランス

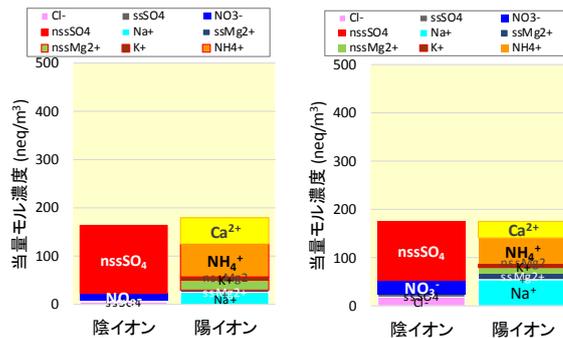


図9 5月8日の壱岐(左)及び国設隠岐(右)におけるPM_{2.5}のイオンの当量バランス

3.7 黄砂粒子の変質による粒子成長の仮説

ここまで得られたCaについての解析結果を結び付けると、次に述べるようなメカニズム仮説が提案できる。CaCO₃やCaSO₄は潮解しないが、Ca(NO₃)₂は高い潮解性を持ち、湿度10~20%程度から潮解する¹⁶⁾。Laskin et al. は、サハラ砂漠由来ダスト粒子を用いた検討において、CaCO₃がCa(NO₃)₂へ変質すると相対湿度に依存した粒子成長がおこり、高湿時(~90%)には、元のCaCO₃粒子と比べて2.2~2.4倍の大きさになり、5~6倍の重さになることを報告している¹⁷⁾。黄砂土壌のCaCO₃がPM_{2.5}よりもPM_cに濃集していた可能性を完全否定することはできないが、CaCO₃がCa(NO₃)₂となって、粒子成長がおこり、一部がPM_{2.5}からPM_cへ移行したというメカニズムは十分考えられる(図10)。実際、壱岐及び国設隠岐は海に囲まれており、水蒸気量は一般に多く、特に国設隠岐の黄砂ピーク日(5月8日)の相対湿度は80%と高く(壱岐の湿度は未測定)、吸湿膨張に寄与したと考えられる。

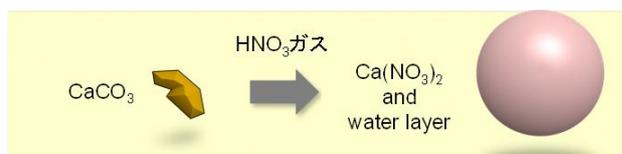


図10 Ca粒子の変質による粒子成長の推定メカニズム

観測データに基づいて、PM_{2.5}からPM_cへ移行したCaの割合(Ca移行率)を計算で推定してから、付随して移行したNO₃⁻がPM_c中に占める割合(NO₃⁻占有率)がどの程度であったか見積もりを試みることにした。まずCa移行率は以下の(1~3)式により求められる。

$$[\text{Ca}^*] = [\text{Ca}]_{\text{PM}_{10}} \times [\text{A1}]_{\text{PM}_{2.5}} / [\text{A1}]_{\text{PM}_{10}} \dots (1)$$

$$[\text{Ca}^\dagger] = [\text{Ca}^*] - [\text{Ca}]_{\text{PM}_{2.5}} \dots (2)$$

$$\text{Ca移行率} = [\text{Ca}^\dagger] / [\text{Ca}^*] \dots (3)$$

ここで、[Ca*]は移行前のPM_{2.5}のCa濃度、[Ca[†]]は

PMcへ移行したCa濃度である(図11の書き込みを参照されたい)。(3)式により6時間毎のCa移行率を求めると、壱岐が40±11%, 国設隠岐が24±15%(平均±標準偏差)と計算できる。本来ならPM_{2.5}のCaとなるはずが、それだけPMcへ移行したと推察される。

次に、PMcへ移行したNO₃⁻の占有率は以下の(4, 5)式により求められる。

$$[\text{NO}_3^-] = [\text{Ca}^\dagger] \dots (4)$$

$$\text{NO}_3^- \text{占有率} = [\text{NO}_3^-] / [\text{NO}_3^-]_{\text{PMc}} \dots (5)$$

ここで、[NO₃⁻]は移行したNO₃⁻当量濃度、[Ca[†]]の単位は当量濃度とする。(5)式により6時間毎の移行したNO₃⁻占有率を求めると、壱岐が25±7%, 国設隠岐が18±11%(平均±標準偏差)と計算できる。それだけPMcのNO₃⁻が增量されたと推察される。

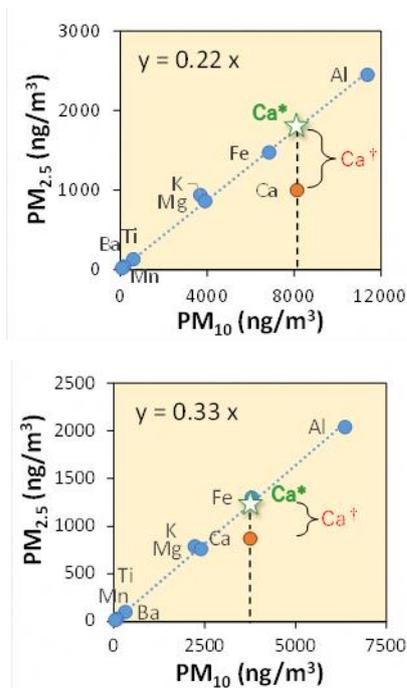


図11 壱岐(上)及び国設隠岐(下)におけるPM₁₀及びPM_{2.5}中の主な土壌性元素の関係(書き込みはPM_{2.5}からPMcへ移行したCaの移行率の計算方法を示す。本文に解説。)

図12にPMcのNO₃⁻とCa²⁺及びCa[†]の当量関係を示す。NO₃⁻とCa²⁺は強い相関があり、PMcのNO₃⁻が主にCa(NO₃)₂として存在することを示唆しているが、NO₃⁻はCa[†]とも強い相関があり、PMcのNO₃⁻の一部がPM_{2.5}から移行したCa(NO₃)₂で占有されたことを示唆している。

過去の黄砂の観測において、PM_{2.5}を境に分級して多元素分析したような報告はそもそも少なく、こうしたCaのふるまいは、我々の知る限り報告されていない。ところ

が、ソウルで採取された2001年の黄砂の元素データ¹⁸⁾を用いて検証したところ、全元素のうちCaのPM_{2.5}分率だけが低く、本研究と整合した結果が得られることがわかり、今回だけの現象でもないようである。なお、黄砂表面のガスの不均一反応に関しては鈴木ら¹⁹⁾の総説が詳しく、本研究の参考とした。Ca(NO₃)₂の形成による黄砂の形態変化過程(表面が角張った形状から液滴に変化する過程)は、最近になって中国・北京での詳細な野外観測で確認されており²⁰⁾、雲・降水過程の変調や気候変化の解析への活用が期待されている注目の研究分野でもある。黄砂時のCaの微小側から粗大側への移行については、まだ仮説であって、たとえば多段階に分級できるアンダーセンサーを用いた粒径分布調査による検証が有効だと考えられる。

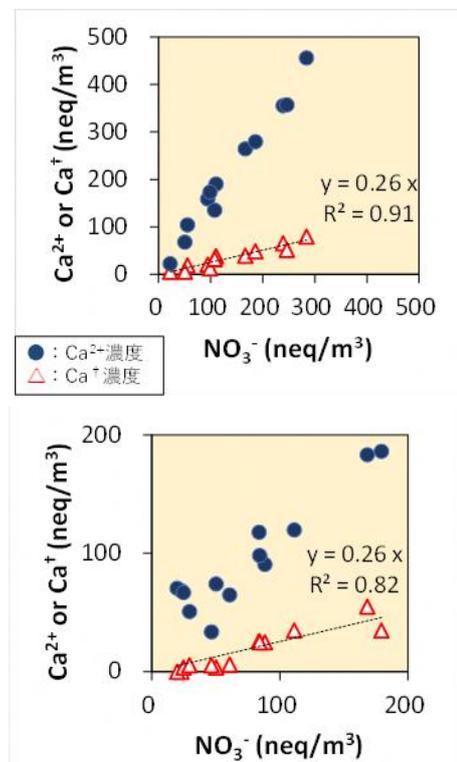


図12 壱岐(上)及び国設隠岐(下)におけるPMc中のNO₃⁻とCa²⁺あるいはCa[†]の当量関係(ここで、[Ca[†]] = [Ca^{*}] - [Ca]PM_{2.5})

4. 結論

2017年5月上旬の黄砂時に五島局、壱岐局、肥前局及び国設隠岐局で大気エアロゾル中のPM_{2.5}とPMcを採取し、イオン成分と無機元素の大気濃度を6時間毎に測定した。黄砂の元素組成の特徴や黄砂の変質を検討した。土壌性元素について二粒径の分配率を調べると、Caだけが唯一異なり、PM_{2.5}分率が低いことがわかった。これは黄砂粒子が変質してCa(NO₃)₂を生成すると、その潮解性のために吸

湿膨張して、PM_{2.5}からPM_cへ移行したためと推定された。軽希土類のLaに着目し、La/Sc比やLa/Y比を検討したところ、標準黄砂試料や中国大陸上部地殻の値と近似し、日本の上部地殻の値とは異なることがわかり、大陸から輸送された土壌粒子の識別法として有望と考えられた。

5. 謝辞

本研究は、国環研と地環研のⅡ型共同研究で行われた。京都府保健環境研究所・日置正氏に多くの助言を頂いた。

6. 引用文献

- 1) Kanatani, K., Ito, I., Al-Delaimy, W-K., Adachi, Y., Mathews, W-C., Ramsdell, J-W.: Desert dust exposure is associated with increased risk of asthma hospitalization in children. *Am. J. Respir. Crit. Care Med.*, **182**, 1475-1481, 2010
- 2) Kojima, S., Michikawa, T., Ueda, K., Sakamoto, T., Matsui, K., Kojima, T., Tsujita, K., Ogawa, H., Nitta, H., Takami, A.: Asian dust exposure triggers acute myocardial infarction. *Eur. Heart J.*, **38**, 3202-3208, 2017
- 3) 辻昭博, 日置正: 大気エアロゾル中のイオン成分および無機元素成分の粒径別高時間分解能観測による黄砂と人為起源物質の越境輸送の詳細解析. 大気環境学会誌, **48(2)**, 82-91, 2013
- 4) 辻昭博, 日置正: PM_{2.5}自動測定機テープろ紙を用いた成分分析1時間値の分析精度. 全国環境研会誌, **43(1)**, 25-30, 2018
- 5) Zhang, X., Sharratt, B.S., Liu, L., Wang, Z., Pan, X., Lei, J., Wu, S., Huang, S., Guo, Y., Li, J., Tang, X., Yang, T., Tian, Y., Chen, X., Hao, J., Zheng, H., Yang, Y., Lyu, Y.: East Asian dust storm in May 2017: observations, modelling and its influence on Asia-Pacific region. *Atmos. Chem. Phys.*, **18**, 8353-8371, 2018
- 6) 西川雅高, 早崎将光, 森育子, 大西薫, 清水厚, 日下部正和: 日本で捕集した典型的な黄砂エアロゾルの化学組成. 大気環境学会誌, **51(5)**, 218-229, 2016
- 7) Li, C., McLinden, C., Fioletov, V., Krotkov, N., Carn, S., Joiner, J., Streets, D., He, H., Ren, X., Li, Z., Dickerson, R.-R.: India is overtaking China as the world's largest emitter of anthropogenic sulfur dioxide. *Scientific Reports*, **7**, 14304, 2017
- 8) 渡辺寧: レアメタルテキスト(1)希土類. 資源地質, **60(2)**, 103-122, 2010
- 9) Togashi, S., Imai, N., Okuyama-Kusunose, Y., Tanaka, T., Okai, T., Koma, T., Murata, Y.: Young upper crustal chemical composition of the orogenic Japan Arc. *Geochem. Geophys. Geosystems*, **1**, 2000GC000083, 2000
- 10) 彌富信義, 南條道夫: レアメタルの精製錬スカンジウム. 東北大学選鑛製錬研究所彙報, **45**, 66-76, 1989
- 11) Nishikawa M., Batdorj D., Ukachi M., Onishi K., Nagano K., Mori I., Matsui I., Sano T.: Preparation and chemical characterisation of an Asian mineral dust certified reference material. *Anal. Methods*, **5**, 4088-4095, 2013.
- 12) Gao, S., Luo, T.C., Zhang, B.R., Zhang, H.F., Ha, Y.W., Zhao, Z.D., Hu, Y.K.: Chemical composition of the continental crust as revealed by studies in East China. *Geochem. Cosmochim. Acta.*, **62**, 1959-1975, 1998
- 13) 溝畑朗: 大気エアロゾル粒子中の希土類元素と発生源. エアロゾル研究, **1(4)**, 274-285, 1986
- 14) 鶴野伊津志, 長田和雄, 弓本桂也, 板橋秀一, 桑原昇平, Xiaole PAN, 原由香里, 山本重一: 九州北部で2014年5月下旬から1週間継続した黄砂期間の硝酸塩の越境輸送のモデル解析. 大気環境学会誌, **51(4)**, 181-189, 2016
- 15) 森川敦史, 東野達, 笠原三紀夫: 個別粒子分析法から得た黄砂粒子変質成分の短時間変動. エアロゾル研究, **21(3)**, 239-246, 2006
- 16) Al-Abadleh, H.A. Krueger, B.J., Ross, J.L., Grassian, V.H.: Phase transitions in calcium nitrate thin films. *Chem. Commun.*, 2796-2797, 2003
- 17) Laskin, A., Iedema, M.J., Ichkovich, A., Graber, E.R., Taraniuk, I., Rudich, Y.: Direct observation of completely processed calcium carbonate dust particles. *Faraday Discuss.*, **130**, 453-468, 2005
- 18) Kim, K-H., Choi, G-H., Kang, C-H., Lee, J-H., Kim, J.Y., Youn, Y.H., Lee, S.R.: The chemical composition of fine and coarse particles in relation with the Asian dust events. *Atmos. Environ.*, **37**, 753-765, 2003
- 19) 鈴木一成, 長嶺篤, 赤木右: 大気化学における鉱物ダストの役割. 九大理研報/地球惑星, **22(3)**, 1-8, 2009
- 20) Pan, X.L, Uno, I., Wang, Z., Nishizawa, T., Sugimoto, N., Yamamoto, S., Kobayashi, H., Sun, Y., Fu, P., Tang, X., Wang, Z.F.: Real-time observational evidence of changing Asian dust morphology with the mixing of heavy anthropogenic pollution. *Nature Scientific Reports*, **7**, Article number: 335, 2017

<報文>

特定酵素基質培地法で大腸菌数に影響を及ぼす因子*

渡邊圭司**・池田和弘**・柿本貴志**・見島伊織**・梅沢夏実**・木持 謙**・田中仁志**・川合裕子***
 ・木村久美子****・和波一夫*****・石井裕一*****

キーワード ①特定酵素基質培地 ②大腸菌数 ③保存期間 ④保存温度 ⑤定点観測

要 旨

特定酵素基質培地法で大腸菌数を測定する際に、市販培地及びメンブレンフィルターの種類の違い、試料の保存温度及び保存期間が測定値に及ぼす影響を検討した。その結果、培地の種類、試料の保存温度及び保存期間は、大腸菌数に影響を及ぼした。また、定点観測による河川の大腸菌数の経日変化を調べたところ、5日間で大腸菌数がおよそ5倍変動した。以上の結果から、大腸菌数の測定における測定精度の管理及び測定値の代表性に関する基礎的知見が得られた。

1. 緒言

環境水中の病原微生物（クリプトスポリジウム、ジアルジア、赤痢菌、*Salmonella*属細菌、*Campylobacter*属細菌など）は、人が水に接することで感染する恐れがあり、そのリスク管理は行政機関の重要な課題である。埼玉県では、1996年に越生町で水道原水の汚染を原因としたクリプトスポリジウムによる集団下痢感染事故が起きている。それら病原微生物の主な発生源は、人や家畜のふん便である。公共用水域の水質調査では、1971年頃から現在まで長きにわたり、ふん便汚染の指標として大腸菌群数の測定が行われてきた¹⁾。この大腸菌群数は、ブリアント・グリーン乳糖胆汁イオン培地最確数法(BGLB法)で算出される。しかし、BGLB法では、測定方法の原理上、ふん便汚染に全く関係のない河川や土壤中に生息している細菌の一部(*Aeromonas*属細菌など)も大腸菌群として計測されてしまうため、ふん便汚染の実態を過大評価しているという問題点が指摘されている。近年、大腸菌群数に比べより正確なふん便汚染の指標となる大腸菌数を、簡便かつ迅速に測定することができる特定酵素基質培地法が考案された。この方法は、大腸菌のみが保有するβ-グルクロニダーゼという酵素の反応を利用し、発色酵素

基質を使ってコロニーの呈色により大腸菌を検出する手法である。このような測定技術の進歩から、これまで長きにわたり公共用水域の生活環境項目及び水浴場の水質判定基準の測定項目であった大腸菌群数に替えて、大腸菌数を新たなふん便汚染の指標として環境基準項目に加えるべく、環境省を中心に現在検討が進められている²⁾。

このような背景を踏まえ、本稿では、特定酵素基質培地法による大腸菌数の測定に関し、市販の培地及びメンブレンフィルターの種類、試料の保存温度及び保存期間が測定値に及ぼす影響について検討を行った。また、河川の定点観測により、大腸菌数が1週間でどのように変動するのか経日変化を調べた。これらの検討を通じて、測定値に影響を及ぼす因子を明らかにし、特定酵素基質培地法で大腸菌数を測定する際の測定精度の管理及び測定値の代表性に関する基礎的知見を得ることを目的とした。

2. 方法

試料は、埼玉県内の河川を対象に、表層水をバケツで採取したものとした。採水地点、採水日及び調査項目は表1に示した。特定酵素基質培地法では、疎水性格子付き

*Influential factors on quantitative determination of *Escherichia coli* using a chromogenic enzyme substrate medium

**Keiji WATANABE, Kazuhiro IKEDA, Takashi KAKIMOTO, Iori MISHIMA, Natsumi UMEZAWA, Yuzuru KIMACHI, Hitoshi TANAKA (埼玉県環境科学国際センター) Center for Environmental Science in Saitama

***Yuko KAWAI (さいたま市健康科学研究センター) Saitama City Institute of Health Science and Research

****Kumiko KIMURA (環境省環境調査研修所) National Environment Research and Training Institute

*****Kazuo WANAMI (東京都環境局) Bureau of Environment Tokyo Metropolitan Government

*****Yuichi ISHII (東京都環境科学研究所) The Tokyo Metropolitan Research Institute for Environmental Protection

メンブレンフィルター (HGMF) もしくはメンブレンフィルター (MF) を用いる方法があるが³⁾, 本稿では, メンブレンフィルターを用いる方法を採用した。メンブレンフィルターの仕様は, 直径47 mm, 素材が親水性セルロース混合エステル, 平均粒子保持径0.45 μm, 微生物検査用の格子入りのものとし, 各試験で同一のロットとなるようにした。培養温度及び培養時間は, 市販の特定酵素基質培地に添付の取扱説明書に従った。各試料について適宜希釈操作を行い, それぞれ5連で繰り返し試験を行った (定点観測は3連)。大腸菌のコロニーの計測には, ライトボックス及び拡大鏡 (3.5倍) を使用した。

表1 調査地点, 採水日及び調査項目

河川名	地点名	採水日	調査項目
笹目川	笹目樋管	2016年 1月12日	コロニーの遺伝子解析
槻川	兜川合流点前	2017年 8月1日	培地の影響
		2017年 9月5日	
		2017年 10月3日	フィルターの影響
		2017年 11月7日	
小山川	一の橋	2017年 8月3日	培地の影響
		2017年 9月7日	
		2017年 10月5日	フィルターの影響
		2017年 11月8日	
中川	行幸橋	2017年 8月9日	培地の影響
		2017年 9月6日	
		2017年 10月4日	フィルターの影響
		2017年 11月6日	
荒川	御成橋	2017年 8月24日	培地の影響
		2017年 9月13日	
		2017年 10月6日	フィルターの影響
		2017年 11月6日	
元荒川	渋井橋	2017年 12月19日	保存期間と保存温度の影響
		2018年 1月9日	
元荒川	渋井橋	10月22日	定点観測による経日変化
		2018年 10月28日	

2.1 市販の特定酵素基質培地の種類と大腸菌数の測定値の関係

市販の特定酵素基質培地の種類が, 大腸菌数の計測値に影響するのか検討を行った。市販の特定基質酵素培地は, ESコリマーク寒天培地 (栄研化学), XM-G寒天培地 (日水製薬), クロモアガーECC寒天培地 (関東化学), クロモカルトコリフォーム寒天培地 (メルク) 及びPromediaアガートリコロール (エルメックス) の5種類を用いた。試料水は, 2017年の8月1日及び9月5日の槻川・兜川合流点前, 8月3日及び9月7日の小山川・一の橋, 8月9日及び9月6日の中川・行幸橋及び8月24日及び9月13日の荒川・御成橋で採取した計8試料とした。各培地の取扱説明書に従って培養を行い, 大腸菌数を計測した。

2.2 メンブレンフィルターの種類と大腸菌数の測定値の関係

メンブレンフィルターの種類が, 大腸菌数の計測値に影響するのかを検討した。市販のメンブレンフィルター

は, エステルメンブレンフィルタ (アドバンテック東洋), GN-6メトリセルMCEメンブレンフィルター (日本ポール), MF-ミリポアメンブレン (メルク) の3種類を用いた。試料水は, 2017年の10月3日及び11月7日の槻川・兜川合流点前, 10月5日及び11月8日の小山川・一の橋, 10月4日及び11月1日の中川・行幸橋及び10月6日及び11月6日の荒川・御成橋の計8試料とした。培地はクロモアガーECC寒天培地とし, インキュベーターで37°C, 24時間培養後, 大腸菌数を計測した。

2.3 試料の保存温度と保存期間が大腸菌数に与える影響

採水した試料の保存温度及び保存期間が大腸菌数の計測値に与える影響を調べた。採水は荒川・御成橋で行い, 1回目は2017年12月19日, 2回目は2018年1月9日に採取した。温度を5°C, 25°C, 35°Cに設定したインキュベーター3台を準備し, 保存開始から6日目までは毎日, 最後に9日目に測定を行い, 保存温度と保存期間が大腸菌数の計測値に与える影響を調べた。対照区の大腸菌数は, 試料搬入後直ちに試験を開始した保存開始前の0日目の試料の値とした。測定は, 培地をクロモアガーECC寒天培地及びメンブレンフィルターをMF-ミリポアメンブレンとし, インキュベーターで37°C, 24時間培養後, 大腸菌数を計測した。

2.4 定点観測による大腸菌数の経日変化

定点観測により, 大腸菌数がどのくらい経日変化するのか調べた。採水は元荒川・渋井橋で行い, 2018年10月22日から28日 (1週間) まで, 午前10時頃に行った。測定は, 培地をクロモアガーECC寒天培地及びメンブレンフィルターをMF-ミリポアメンブレンとし, インキュベーターで37°C, 24時間培養後, 大腸菌数を計測した。

2.5 統計解析

各データは, 初めにShapiro-Wilk検定により正規性を, Levene検定により等分散性を確認した。その後, 各データはその特徴に合わせてone way ANOVA, Kruskal-Wallis検定, Welch検定, Games-Howell検定及びSteel検定に供した。Steel検定及びGames-Howell検定では, 対照区を保存開始前の0日目 (採水当日) の大腸菌数とした。Steel検定は, オープンソースの統計解析ソフトであるR 3.6.0を, その他の検定についてはIBM SPSS Statistics 25 (日本IBM) を使用して解析を行った。

2.6 特定酵素基質培地で検出される細菌の同定

特定酵素基質培地による検出では, 様々な性状 (例えば色) のコロニーがフィルター上に検出される。ここでは, 得られた様々な色のコロニーからDNAを抽出し, 16S rRNA遺伝子の部分配列から, それらのコロニーがどのような細菌に属するのか相同性検索を行った。試料は2016年1月12日に笹目川・笹目樋管で採取したのものとし, リン

酸バッファーで100倍に希釈した。培地をクロモアガーECC寒天培地及びメンブレンフィルターをMF-ミリポアメンブレンとし、インキュベーターで37℃、24時間培養した。様々な色調の8菌株をランダムに白金耳で釣菌し、新しいクロモアガーECC寒天培地に塗抹し、37℃で24時間培養した。1.5mL容量のチューブ（エッペンドルフ）に滅菌超純水100 μLを入れ、単離した菌株を個別に白金耳で米粒大の量となるように懸濁した。DNeasy Blood & Tissue Kit（キアゲン）で各菌株のDNAを抽出した。それぞれの菌株のDNAから、F27modとR1492プライマー及びTaKaRa Ex Taq Hot Start Version（タカラバイオ）を用いて、16S rRNA遺伝子領域をTaKaRa PCR Thermal Cycler Dice Touch（タカラバイオ）により増幅した。得られたPCR産物は、QIAquick PCR Purification Kit（キアゲン）で精製を行った。精製後のPCR産物から、DTCS Quick Start Kit（AB SCIEX）及びF341とR907プライマーを用いてサイクルシーケンス反応及び精製を行い、遺伝子解析システム GenomeLab GeXP（AB SCIEX）で16S rRNA遺伝子の部分配

列（約400～500 bp）を読んだ。各菌株から得られた16S rRNA遺伝子の部分配列データを、DDBJのBLASTによる相同性検索に供した。

3. 結果と考察

3.1 市販の特定酵素基質培地の種類と大腸菌数の測定値の関係

市販の特定酵素基質培地の種類と大腸菌数の関係を図1に示す。測定した8試料のうち、2017年の8月3日の小山川・一の橋、8月9日及び9月6日の中川・行幸橋、8月24日及び9月13日の荒川・御成橋の5試料に関しては、培地間で大腸菌数に有意な差が見られた（one way ANOVA及びKruskal-Wallis検定, $p < 0.001 \sim 0.01$ ）。一方、2017年の8月1日及び9月5日の槻川・兜川合流点前、2017年9月7日の小山川・一の橋の3試料に関しては、培地間で大腸菌数に有意な差は認められなかった（one way ANOVA, Welch検定及びKruskal-Wallis検定, $p = 0.054 \sim 0.764$ ）。繰り返し試験による各培地の大腸菌数の変動係数の平

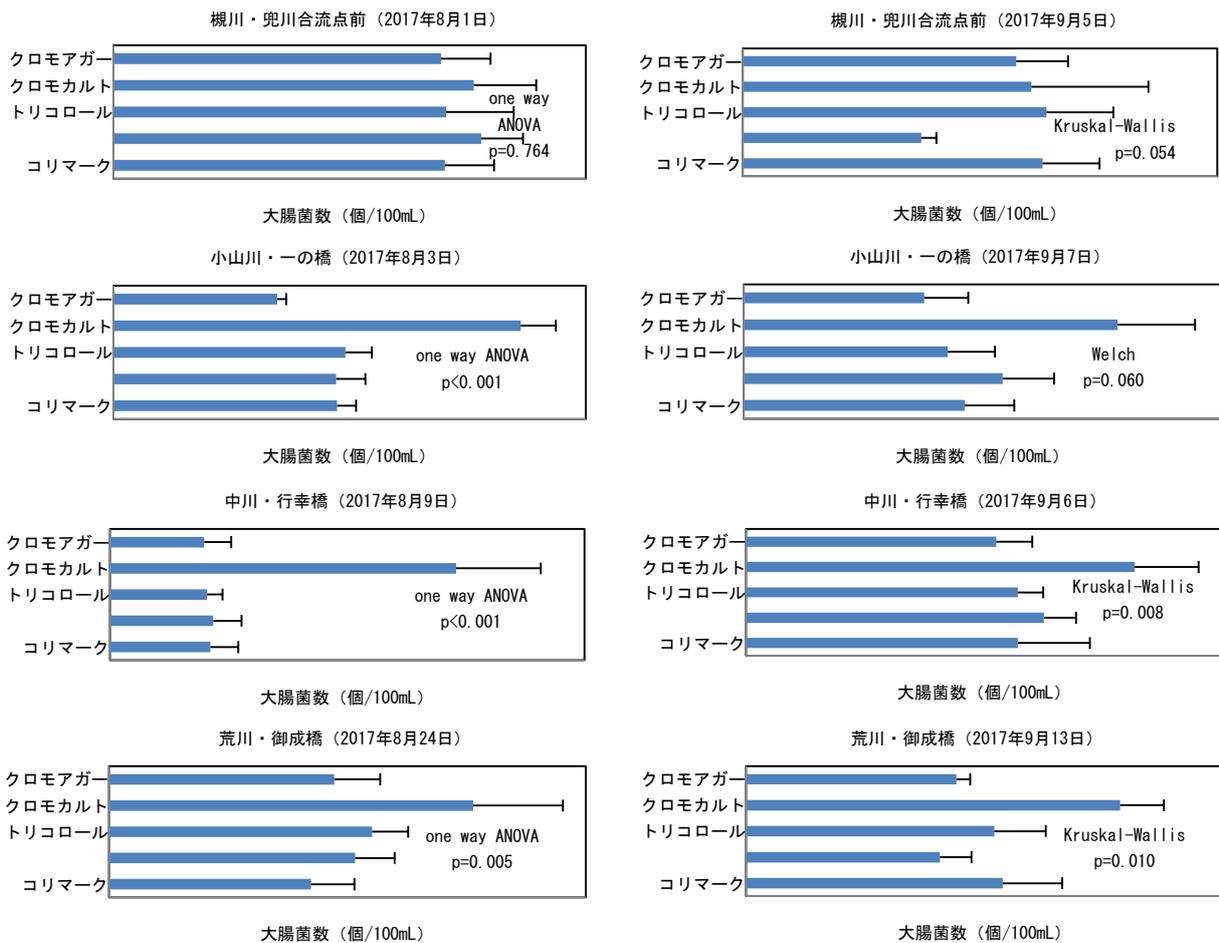


図1 市販の特定酵素基質培地の種類と大腸菌数の関係

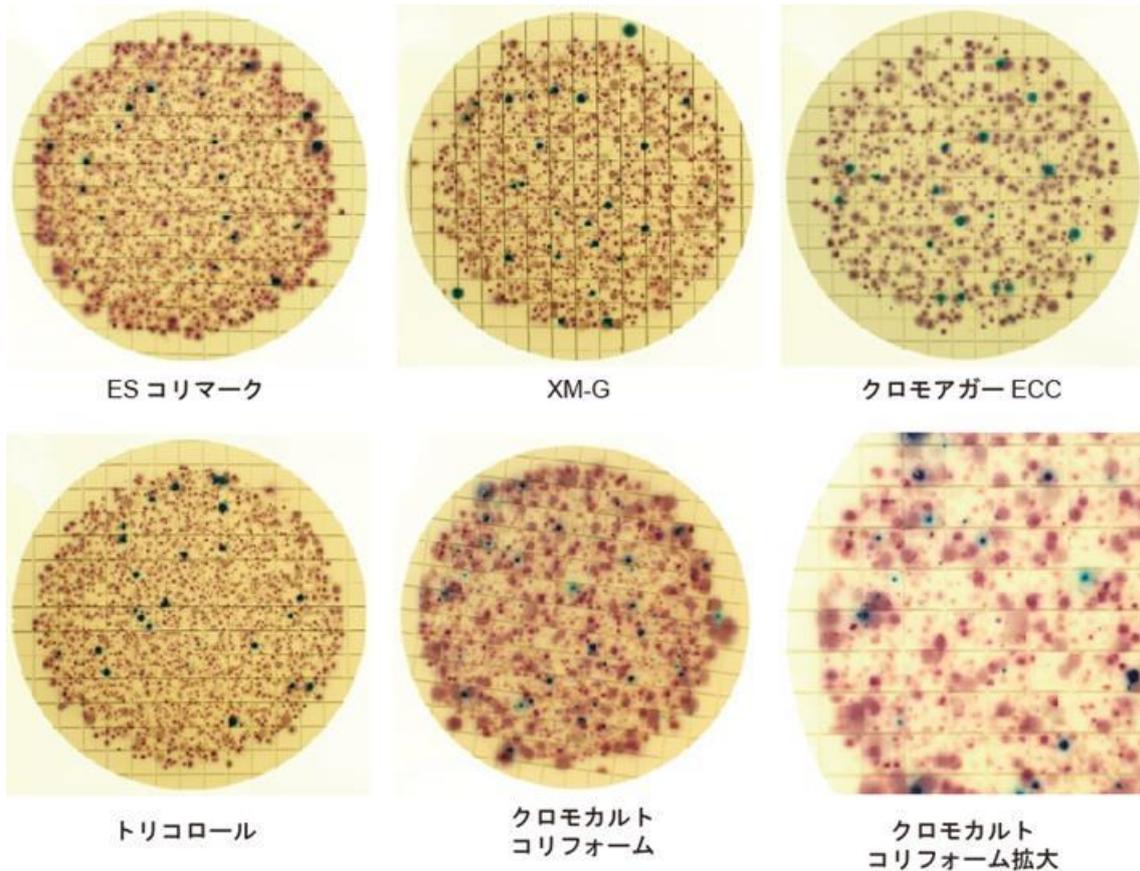


図2 市販の特定酵素基質培地上のコロニーの様子 (2017年8月24日の荒川・御成橋の試料)

均値及び標準偏差は、ESコリマーク寒天培地が $20.5 \pm 6.0\%$ 、XM-G寒天培地が $15.4 \pm 5.6\%$ 、クロモアガーECC寒天培地が $16.8 \pm 7.6\%$ 、クロモカルトコリフォーム寒天培地が $20.6 \pm 9.2\%$ 及びアガートリコロールが $17.1 \pm 4.9\%$ であり、培地間で大きな差は見られなかった。以上の結果より、試料によっては、使用する培地の種類により大腸菌数の計測値に違いが生じることが示された。特に、クロモカルトコリフォーム寒天培地を使用した場合、他の培地と比較して大腸菌数が高い値を示す試料が多く見られ、特に、2017年8月3日の小山川・一の橋の試料では、培地間の大腸菌数の平均の最大値（クロモカルトコリフォーム寒天培地を用いた場合の1824 CFU/100mL）と最小値（クロモアガーECC寒天培地を用いた場合の496 CFU/100mL）の差が最も大きく、その差は1328 CFU/100mLであった。このように、クロモカルトコリフォーム寒天培地は、試料によって他の培地と比べて大腸菌の検出感度が高いことが示された。しかし、クロモカルトコリフォーム寒天培地を使用した場合は、他の培地と比べて赤色を呈した大腸菌群のコロニーがにじんでいるものが多く見られ、一方、青色を呈した大腸菌のコロニーは極小のものが多く見られるため（図2）、他の培地を使用した場合

と比べ、大腸菌のコロニーの計測に時間を要した。クロモカルトコリフォーム寒天培地以外の4種類の培地では、大腸菌数に大きな違いが見られなかった。木瀬⁴⁾も、3種の特定酵素基質寒天培地（クロモアガーECC寒天培地、XM-G寒天培地及びクロモカルトコリフォーム寒天培地）で大腸菌数を比較したところ、クロモカルトコリフォーム寒天培地は大腸菌と大腸菌群の色調の識別がややくいこと、試料によっては3種の培地間で大腸菌数に有意な差が見られたことを報告している。以上の結果は、公共用水域の水質測定で大腸菌数の90%値や幾何平均値を算出する際には、同一種の特定酵素基質培地を用いて計測された値を用いること、また、データ同士を比較する際にも、同一の培地を使用して算出されたデータなのかなどに注意する必要があることを示唆している。

3.2 メンブレンフィルターの種類と大腸菌数の測定値の関係

メンブレンフィルターの種類と大腸菌数の測定値の関係を図3に示した。測定した8試料のうち、2017年11月7日の槻川・兜川合流点前の1試料のみ、メンブレンフィルターの種類と大腸菌数に有意な差が見られたが（Kruskal-Wallis検定、 $p=0.006$ ）、大腸菌数の平均の

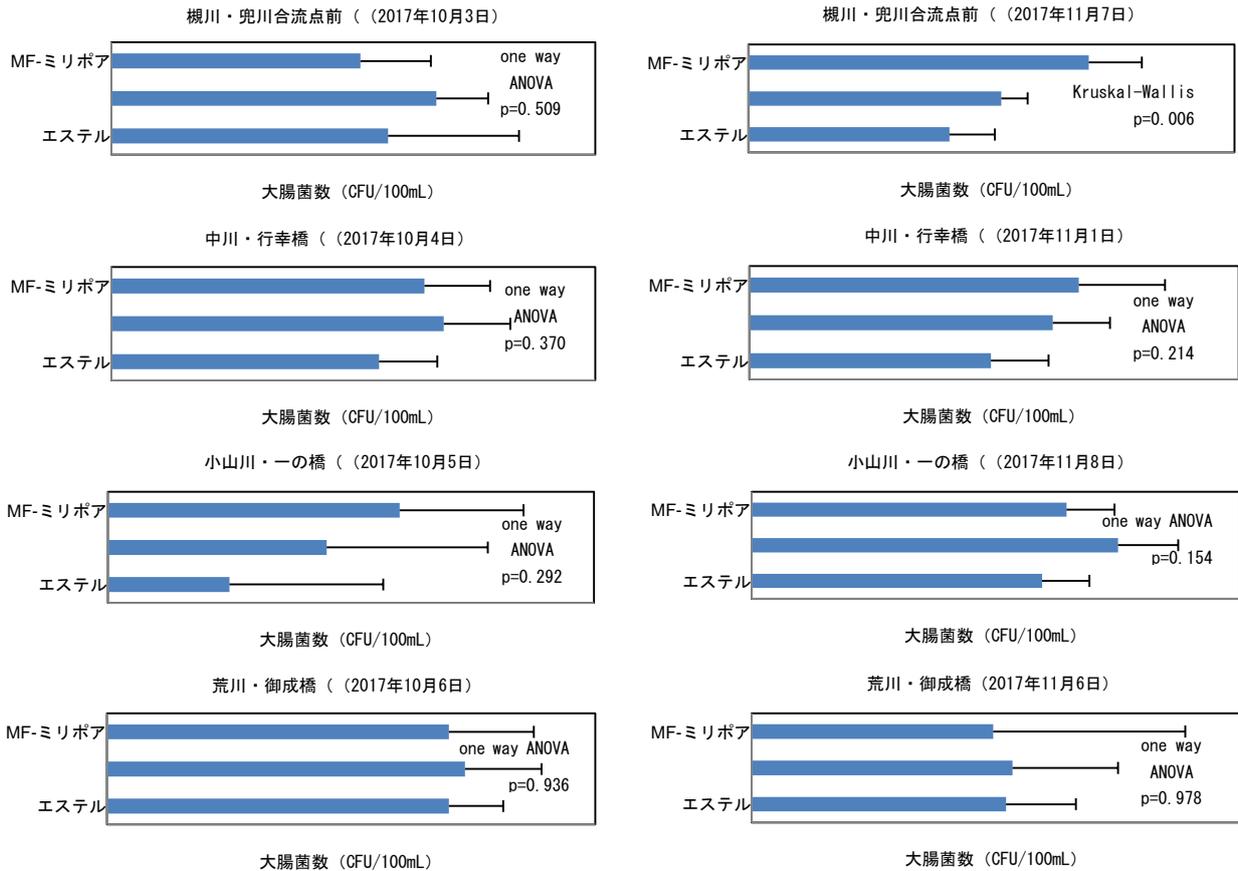


図3 メンブレンフィルターの種類と大腸菌数の関係

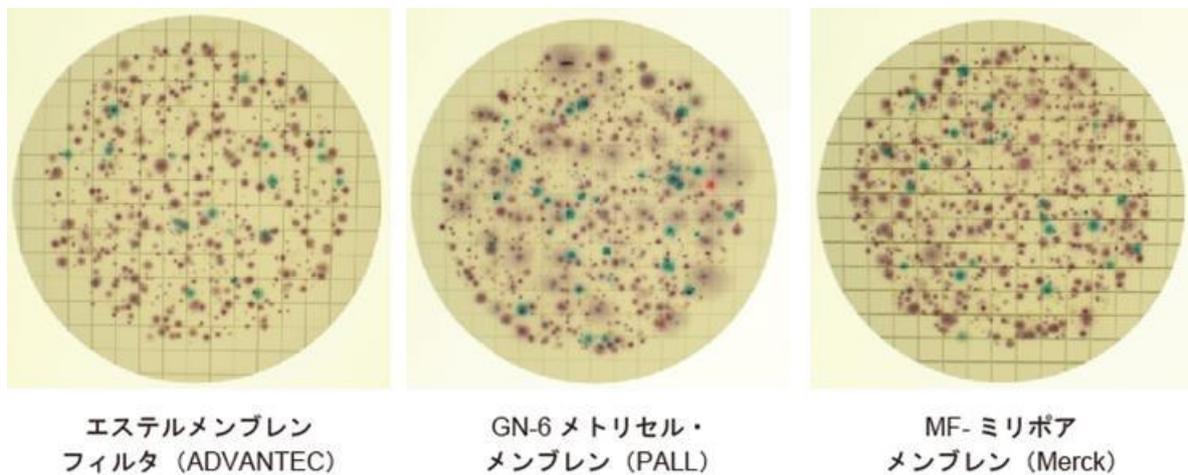


図4 各メンブレンフィルター上のコロニーの様子 (2017年11月8日の小山川・一の橋の試料)

最大値 (MF-ミリポアメンブレンを使用した場合の210 CFU/100mL) と最小値 (エステルメンブレンフィルタを使用した場合の124 CFU/100mL) の差は86 CFU/100mLで、大腸菌数はおよそ1.7倍の違いであった。繰り返し試験による各メンブレンフィルターを使用した場合の大腸菌数の変動係数の平均値及び標準偏差は、エステルメンブ

レンフィルタが37.7±34.8%, GN-6メトリセルMCEメンブレンが27.1±19.4%及びMF-ミリポアメンブレンが31.6±19.8%であり、メンブレンフィルター間で大きな差は見られなかった。以上の結果より、メンブレンフィルターの種類が大腸菌数の測定値に及ぼす影響は小さいことが明らかとなった。しかし、GN-6メトリセルMCE

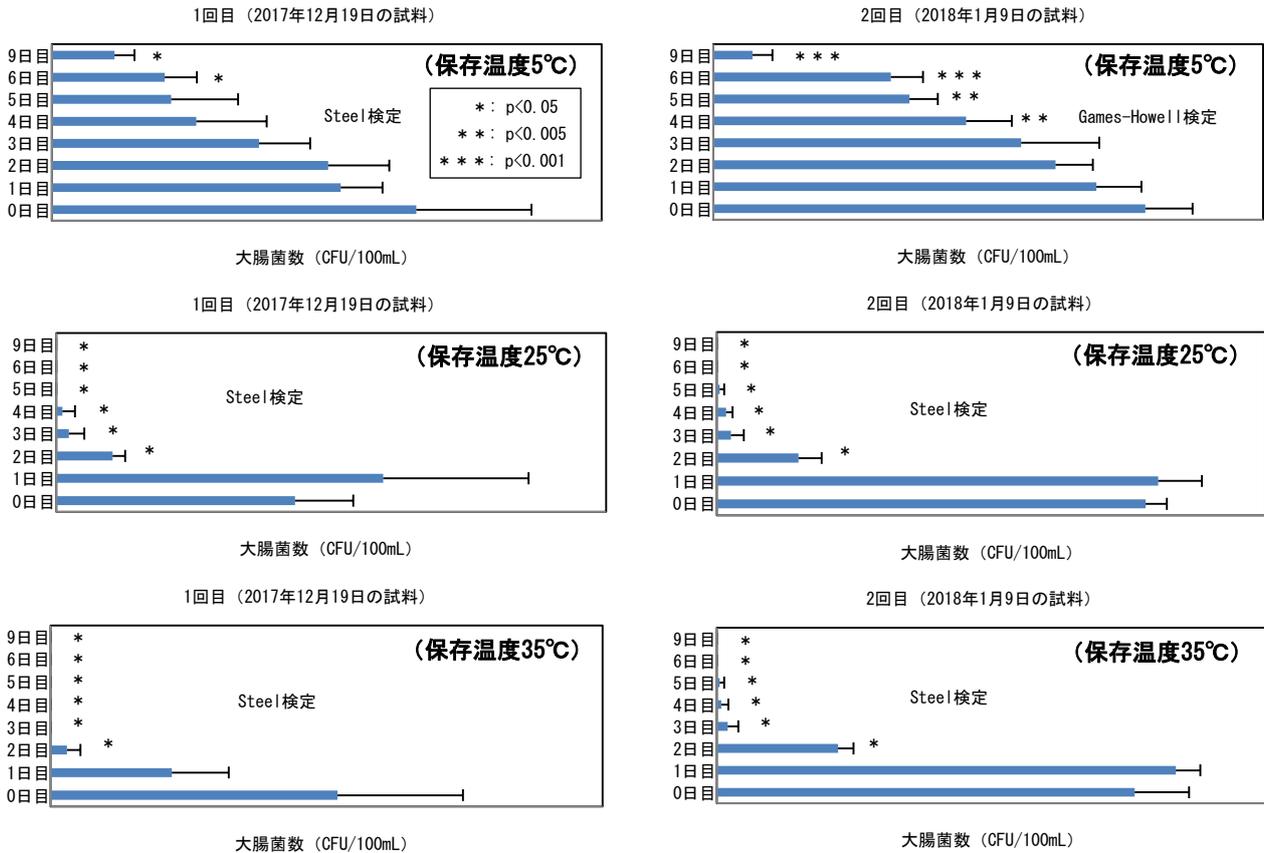


図5 大腸菌数と試料保存温度及び保存期間の関係

メンブレンは、試料によって赤色を呈した大腸菌群のコロニーがにじみ（図4）、青色を呈した大腸菌のコロニーの判別を難しくするケースがあった。

3.3 試料の保存温度と保存期間が大腸菌数に与える影響

試料の保存温度と保存期間が大腸菌数に与える影響を図5に示した。どの保存温度でも、保存開始後1日目（24時間後）までは、保存開始前の0日目（採水当日の対照区）との間で大腸菌数に有意な差は見られなかった（Steel検定及びGames-Howell検定, $p=0.171\sim0.999$ ）。一方、試料の保存温度が25°C及び35°Cでは、保存開始後2日目以降には大腸菌数が半数以下に減っていた。試料の保存温度が5°Cの場合は、1回目の試験（2017年12月19日の荒川・御成橋の試料）では保存開始後5日目まで（Steel検定, $p=0.099\sim0.932$ ）、2回目の試験（2018年1月9日の荒川・御成橋の試料）では保存開始後3日目まで（Games-Howell検定, $p=0.182\sim0.707$ ）、保存開始前の0日目の大腸菌数と比較して有意な差が認められなかった。木瀬ら⁵⁾は、4°Cで保存した場合の保存開始後2日目の大腸菌の生残率は、初日菌数の33~90%であったのに対し、20°Cで保存した場合は11~52%であったこと

を報告している。以上の結果は、特定酵素基質培地法による大腸菌数の測定では、採水した試料はクーラーボックス等に入れて実験室に持ち帰り直ちに測定試験を開始することが望ましいが、直ちに測定試験を開始できない場合は試料を冷蔵保存（5°C以下）し、保存した後は24時間以内に培養を開始することで保存開始前と同等の値を得ることができることを示した。

3.4 定点観測による大腸菌数の経日変化

定点観測による大腸菌数の経日変化を図6に示した。元荒川・渋井橋で、大腸菌数の経日変化を1週間モニタリングしたところ、大腸菌数に有意な差が見られた（Kruskal-Wallis検定, $p=0.004$ ）。5日間の期間で、大腸菌数の最小値（2018年10月23日の試料の407 CFU/100mL）と最大値（2017年10月28日の試料の2153 CFU/100mL）で1746 CFU/100mLの差（約5倍の値の違い）が見られた。以上の結果より、公共用水域の大腸菌数の測定では、試料によっては採水日が数日前後することで、大腸菌数が数倍異なる計測値となる可能性が示唆された。

3.5 特定酵素基質培地法で検出された細菌の同定

図7に示した特定酵素基質培地上のメンブレンフィル

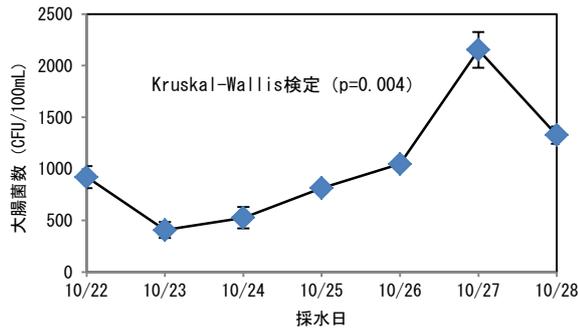


図6 元荒川・渋井橋の大腸菌数の1週間の経日変化

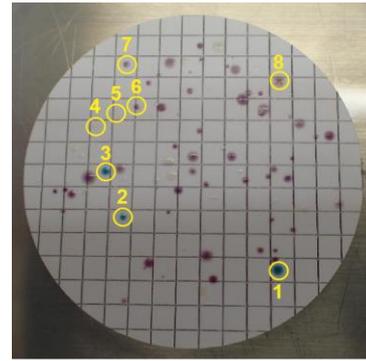


図7 16S rRNA遺伝子解析に供したコロニー（番号は表2の菌株番号に対応）

表2 各菌株の16S rRNA遺伝子解析による相同性検索の結果

菌株番号	コロニーの色調	最も相同性の高かった細菌名 (Accession number)	塩基配列の長さ (bp)	相同性 (%)
1	青	<i>Escherichia coli</i> Ec1-Bat (MK418911)	422	100
2	青	<i>Escherichia coli</i> Ec1-Bat (MK418911)	464	100
3	青	<i>Escherichia coli</i> YHE-35 (KR010977)	423	99
4	白	<i>Pseudomonas otitidis</i> W5-3 (MG905280)	508	100
5	白	<i>Pseudomonas otitidis</i> W5-3 (MG905280)	464	100
6	赤	<i>Aeromonas hydrophila</i> ATCC 7966T (X74677)	505	100
7	薄赤	<i>Enterobacter roggenkampii</i> DSM 16690 (CP017184)	464	99
8	茶	<i>Cronobacter sakazakii</i> Hc3 (MG238591)	464	99

ターから、青色を呈した3菌株、白色を呈した2菌株及び赤色を呈した3菌株の合計8菌株を単離した。各菌株の16S rRNA遺伝子の部分配列を基に相同性検索を行った結果を表2に示した。青色を呈した3菌株は、大腸菌 (*Escherichia coli*) と99~100%の高い相同性を示した。白色を呈した2菌株 (特定酵素基質培地法では大腸菌にも大腸菌群にも属さない) は、*Pseudomonas otitidis*と100%の相同性を示した。赤色を呈した大腸菌群に分類される3菌株は、それぞれ*Aeromonas hydrophila*と100%、*Enterobacter roggenkampii*と99%及び*Cronobacter sakazakii*と99%の相同性を示した。以上の結果より、特定酵素基質培地上に生じた青色を呈した菌株は全て大腸菌であるが、赤色を呈した大腸菌群には、以前から指摘されているように非腸内細菌で自然由来と考えられる*Aeromonas*属細菌などが含まれることが確認された。和波ら⁶⁾は、PCR-DGGE法による菌叢解析を行ったところ、BGLB法で検出される陽性管の大腸菌群の中に、ふん便由来でない菌種

(*Aeromonas*属細菌など) が存在しており、それらの菌種は水圏や土壌由来のものと推測されると報告している。

4. まとめ

メンブレンフィルターを使用した特定酵素基質培地法により大腸菌数の測定を行う際に、計測値に影響を及ぼす因子の検討を行った。実験結果から得られた要点を以下にまとめる。

- ・特定酵素基質培地では、使用する培地の種類によって

大腸菌数に違いが生じる試料があったことから、データの取得及びデータの比較を行う際は、培地が同一種類となるようにする必要がある。

- ・メンブレンフィルターの種類の違いは大腸菌数の計測値にほとんど影響しなかった。
- ・大腸菌数の測定は、実験室に試料を持ち帰った後24時間以内に試験 (培養) を開始すれば、試料搬入後直ちに試験を開始したものと同等の値を得ることができた。
- ・試料の保存温度を5℃以下 (冷蔵保存) にすることで、大腸菌数は数日間 (1~2日程度) 安定に維持された。
- ・河川の定点観測は、大腸菌数が数日間で数倍変動する (本稿では5日間で約5倍変動) 可能性があることを示した。

以上のように、特定酵素基質培地法による大腸菌数の計測に関し、測定精度の管理及び測定値の代表性に関する基礎的知見を得ることができた。

5. 引用文献

- 1) 環境庁告示59号：水質汚濁に係る環境基準について
- 2) 環境省：中央環境審議会水環境部会生活環境項目環境基準専門委員会 (第9回) 配布資料，
https://www.env.go.jp/council/09water/post_102.html
- 3) 環境省：環水大発第110324001号別添2，要測定指標 (大腸菌数) の測定について
- 4) 木瀬晴美 他：大腸菌の特定酵素基質培地による測

- 定比較. 東京都環境科学研究所年報, 42-43, 2015
- 5) 木瀬晴美 他: 環境水の大腸菌の生残性について.
東京都環境科学研究所年報, 72-73, 2016
- 6) 和波一夫 他: 都内河川の大腸菌群数に関する研究
(2) -多摩川の大腸菌群の遺伝子解析-. 東京都環境科学研究所年報, 20-30, 2010

<近況>

京都府保健環境研究所及び京都市衛生環境研究所の建物は、双方とも築後40年以上が経過し、建替えの時期を迎えております。

このため、府市協調事業として、共同で新たな施設を整備することとし、一昨年秋から建設工事が始まり、本年12月の開所に向けて準備を進めています。

新しい研究所では、府民・市民の皆様の健康や環境を守るため、共同整備を契機に、更なる機能強化を目指しています。

府市共同整備により、次のような効果を見込んでいます。

○健康危機管理事案への対応力の強化

- ・府市研究所の相互応援で、より多くの検体への対応が可能
- ・職員の技術交流による分析対応能力の向上により、原因究明の迅速化

○建物・検査機器等の共同化によるコスト低減

- ・共同整備による延べ床面積の削減による建設コストの削減
- ・検査機器や付帯設備等の共同利用による維持管理コストの削減

○地域に開かれた研究所の実現

- ・府市それぞれの研究成果等を活かした府民・市民向けの公開講座や体験教室の共催等

(京都府保健環境研究所・京都市衛生環境研究所)



<支部だより>

中国・四国支部

中国・四国支部の活動について報告します。

(支部事務局：山口県環境保健センター)

1. 平成30年度支部総会

(担当機関：広島市衛生研究所)

支部総会及び各部会(所長・企画部会, 水環境部会, 大気環境部会等)を, 地方衛生研究所全国協議会中国四国支部会議と合同で開催した。

- (1) 日時 平成30年5月17日～18日
- (2) 場所 広島サンプラザ(広島市)
- (3) 内容

- ①支部長表彰 5人を表彰
- ②支部長報告
- ③特別講演

「地球温暖化問題を地歴的に考える」

広島市安佐動物公園元園長 福本幸夫

- ④部会



2. 第54回水環境フォーラム山口

(担当機関：山口県環境保健センター)

- (1) 日時 平成31年1月17日
- (2) 場所 山口県庁(山口市)
- (3) 内容

- ①特別講演

「ワンヘルスに資する環境薬剤耐性菌研究の現状と本邦の環境モニタリングの取組み」

国立感染症研究所

病原体ゲノム解析研究センター長 黒田誠

「環境DNA研究の最前線と今後の展開」

山口大学大学院創成科学研究科

准教授 赤松良久

- ②一般講演 4題

3. 平成30年度環境測定分析統一精度管理フォーラム会議

(担当機関：高知県環境研究センター)

- (1) 日時 平成31年3月5日
- (2) 場所 高知城ホール(高知市)
- (3) 内容
 - ①環境測定分析統一精度管理調査について
 - ②平成30年度環境測定分析統一精度管理調査結果について
 - ③環境測定分析における留意点及び精度管理について

4. 令和元年度支部総会

(担当機関：鳥取県衛生環境研究所)

支部総会及び各部会(所長・企画部会, 水環境部会, 大気環境部会等)を, 地方衛生研究所全国協議会中国四国支部会議と合同で開催した。

- (1) 日時 令和元年5月16日～17日
- (2) 場所 米子コンベンションセンター(米子市)
- (3) 内容

- ①支部長表彰 4人を表彰
- ②支部長報告
- ③記念講演

「ダイオキシン類に関する調査研究について」

広島県立総合技術研究所保健環境センター
環境研究部副部長 大原俊彦

- ④特別講演

「様変わりする日本の感染症、その原因と対策」

鳥取大学医学部ウイルス学分野
教授 景山誠二

- ⑤部会



編集後記

新元号が令和に変わり、最初の梅雨入りは東海から東北地方北部までが平年並みに先に梅雨入りしましたが、九州北部・四国・中国・近畿地方の西日本の梅雨入りが記録的に遅れました。梅雨明け後、猛暑日という言葉をよく耳にしましたが、台風や局地的な豪雨により、各地で被害が発生しました。被害に遭われた方々には心からお見舞い申し上げます。

さて、今回はこれから話題を集めそうな長野県諏訪地域をご紹介します。この地域は長野県のほぼ中央に位置し、標高759メートルにある県内最大の諏訪湖があります。かつての諏訪湖は社会・経済活動の発展に伴い水質汚濁が進行しましたが、環境改善の取組の結果、大きく水質が改善し、現在はこの諏訪湖を中心として、八ヶ岳、蓼科高原、霧ヶ峰高原など周辺の自然環境も生かした観光地として有名になっています。また、諏訪湖畔には温泉があり、古事記に登場する由緒正しき諏訪大社もあって門前町や宿場町が栄えています。さらに美術館・博物館も多く、大勢の観光客に訪れていただいています。特に諏訪大社は諏訪湖の周りに4つのお宮を持ち、年間多くの参拝者が訪れていますが、最大神事が「御柱（おんばしら）祭」です。社殿の四隅に建てられた「御柱」と呼ばれる樹齢200年程のモミの巨木を7年に一度曳き建て替える神事が行われ、日本三大奇祭のひとつとされています。その歴史は平安初期以前に遡るといわれ、巨木にまたがる男たちが坂道を滑り降りる様子が有名です。4つのお宮にそれぞれ4本ずつ、計16本のモミの大木をご神木として各地区の氏子が分担で山から里へ、そして各お宮の境内へと、人の手だけで曳いていきます。諏訪地域20万人がこの祭に取り組み、氏子は、木遣りやラップに合わせて御柱を曳行します。諏訪大社

の祭神は五穀豊穡、狩猟・風・水・農耕の神として古くから信仰されており、それらを祈願するものであったと推測されています。先ごろ、令和4年の御柱祭に向け、御用材となるモミの「仮見立て」が行われ、20メートル近い巨木が選ばれました。令和初の御柱祭に向け、氏子たちの機運が高まりつつあります。

長野県へお越しの際には、ぜひ諏訪地域にお立ち寄りいただき、地域に宿るパワーを感じながら温泉につかって、日頃の疲れをとっていただければと思います。



諏訪湖

最後になりましたが、巻頭言を執筆いただきました愛知県環境調査センター所長様、特集の「酸性雨全国調査報告書」を担当いただきました酸性雨広域大気汚染調査研究部会の皆様、報文を投稿いただきました皆様、「支部だより」を執筆いただきました山口県環境保健センター様には、お忙しいところご協力をいただき、ありがとうございました。今後とも会誌への積極的な投稿についてご協力をお願いします。

(長野県環境保全研究所)

令和元年度

全国環境研協議会広報部会

< 部 会 長 > 長野県環境保全研究所長
 < 広報部会担当理事 > 山梨県衛生環境研究所長

季刊 全国環境研会誌 Vol.44 No.3(通巻152号)

Journal of Environmental Laboratories Association

2019年9月25日発行

発行 全国環境研協議会

編集 全国環境研会誌 編集委員会