

第3次酸性雨全国調査報告書

(平成12年度)

はじめに

1980年以降、世界各地で問題になってきたのは地球温暖化、成層圏オゾン層破壊や酸性雨のような「地球規模の環境汚染」の問題であり、ここに世間の関心と対策の焦点が移りつつあるように見えていましたが、この数年はダイオキシン、環境ホルモンや自動車排ガス微粒子のような身近な「地域汚染」が再度重要視されるようになってきました。地球規模の環境汚染と地域汚染は相反する概念ではなく、単に原因物質と反応機序が異なるだけのことです。酸性雨はこの両者の間に位置しており、その本質とこれにどう対策を立てるべきかを示す指標ともなっています。今ほど環境問題に対する総合的視点と対策に対する姿勢が問われている時はありません。

現在、地方自治体の環境・公害関連の研究機関の役割においては、「高度な技術を必要とする環境監視」「自治体の環境施策の基本を支援する調査研究」や「環境危機管理への対応能力」などが求められています。酸性雨における取組みにおいても、費用対効果を考えながら、リアルタイムでのデータの発信、現実に枯損している森林生態系の原因、汚染物質の長距離輸送と地域での発生の関係、大気中の微粒子および窒素酸化物との関係を明確に示すことが求められています。自治体研究者は1970年代の関東地方での「湿性大気汚染」問題への適切な対処以来、酸性雨を媒介にして大気汚染等の環境諸分野で多くの研究成果をあげる

とともに、行政が有効な対策を立てるための根拠資料を多数提供してきました。

全公研(現全環研)では91年以来、3度にわたる全国調査を行ってきました。すでに初めての日本全体の酸性雨の概況を示すなどの成果を得てきましたが、現在実施中の第3次調査でも、酸性雨をもたらす窒素酸化物と二酸化硫黄の寄与の地域特性を示すとともに、効率よく乾性沈着の地域評価を行ってきました。このたび、環境省は酸性雨モニタリングに関する国と地方自治体とのすみわけを明確化させるとともに、全環研など自治体データの活用方法ならびに国設局データとの関係を明確にしました。さらに、酸性雨標準試料の配布範囲を拡大するなどして自治体の対処能力の向上のための方策を示しました。この中で、いっそう全環研を中心とした自治体データの重要性が浮彫りになってまいりました。ここに第3次調査の2年目の調査研究成果を公表しますが、この成果は各地での影響実態や対策の検討を行ううえで貴重な知見を与えるものと確信しています。今後も当部会の活動にご支援とご教示を賜りますようお願いいたします。

平成14年5月

全国環境研協議会

酸性雨調査研究部会

部会長 川 村 隆

(兵庫県立健康環境科学研究所長)

1. 目 的

全国公害研協議会(現全国環境研協議会)・酸性雨調査研究部会では第3次共同調査として、これまで十分に評価できていなかった乾性沈着に関する情報を得るために、湿性沈着と乾性沈着を個別に調査することとした。1つは「酸性成分の湿性沈着に関する空間分布把握のための調査研究」(調査Ⅰ)で、もう1つは「酸性成分の乾性沈着に関する空間分布把握のための調査研究」(調査Ⅱ)である。

調査Ⅰは国際的に標準的な方法によりモニタリ

ングを行い、日本国内における湿性沈着成分に関して、量的な空間分布を把握することを目的とした。また、調査Ⅱは大気中のガス/エアロゾル濃度の測定により、乾性沈着成分量の見積りを行い、日本国内における乾性沈着成分に関して、量的な空間分布を把握することを目的とした。

2. 内 容

2.1 調査組織

平成12年度調査は調査Ⅰが45機関48地点、調査Ⅱが26機関27地点で実施し、各機関の調査への参

表 2.1 調査参加機関

支部名	参加機関名	調査Ⅰ	調査Ⅱ	備 考
北海道・東北	北海道環境科学研究センター	○	○	調査Ⅱ：2地点
	青森県環境保健センター	○		
	岩手県公害センター	○	○	
	宮城県保健環境センター	○		
	秋田県環境センター	○	○	
	新潟県保健環境科学研究所	○	○	
	札幌市衛生研究所	○	○	
関東・甲信・静	茨城県公害技術センター	○		2地点
	栃木県保健環境センター	○		
	群馬県衛生環境研究所	○		
	埼玉県環境科学国際センター	○		
	千葉県環境研究センター	○		
	東京都環境科学研究所	○	○	
	神奈川県環境科学センター	○		
	静岡県環境衛生科学研究所	○		
	横浜市環境科学研究所	○	○	
千葉市環境保健研究所	○			
東海・近畿・北陸	富山県環境科学センター	○	○	2地点
	石川県保健環境センター	○		
	岐阜県保健環境研究所	○		
	福井県環境科学センター	○	○	
	愛知県環境調査センター	○	○	
	三重県科学技術振興センター	○		
	滋賀県立衛生環境センター	○		
	京都府保健環境研究所	○	○	
	大阪府公害監視センター	○	○	
	兵庫県立公害研究所	○	○	
	和歌山県衛生公害研究センター	○		
	奈良県衛生研究所	○	○	
	名古屋市環境科学研究所	○	○	
大阪市立環境科学研究所		○		
中国・四国	鳥取県衛生研究所	○	○	
	島根県保健環境科学研究所	○	○	
	広島県保健環境センター	○	○	
	山口県保健環境研究センター	○		
	徳島県保健環境センター		○	
	高知県環境研究センター	○	○	
	広島市衛生研究所	○	○	
九州	福岡県保健環境研究所	○	○	2地点
	佐賀県環境センター	○		
	長崎県衛生公害研究所	○		
	熊本県保健環境科学研究所	○		
	大分県衛生環境研究センター	○	○	
	宮崎県衛生環境研究所	○		
	鹿児島県環境保健センター	○	○	
	沖縄県衛生環境研究所	○		
福岡市保健環境研究所	○	○		

加状況を表 2.1 に○印で示した。また、12年度の全公研(現全環研)酸性雨調査研究部会組織を表 2.2 に示した。

2.2 調査内容

2.2.1 湿性沈着調査

(1) 期 間

調査 I および調査 II の調査期間は1999年(平成11年)4月から2002年3月の3カ年間である。本報告ではその2年目の2000年度のデータを対象とした。

(2) 地 点

調査 I を実施した45機関の調査地点は48地点であり、平成11年度から1機関増え1機関減り、新たな測定地点を設置した機関があった。その分布およびここで用いた地域区分を図 2.1 に示した。各地点の位置(経度・緯度)、土地利用区分等を表 2.3 に示した。各調査地点の選定に当たっては、調査 II についても同様だが、近傍の特定発生源の影響が無視できると判断されることを条件とし、可能な限り研究所屋上から離れた地点代表性のあ

表 2.2 全国公害研協議会酸性雨調査研究部会組織(平成 11/12/13 年度)

区 分	機 関 名	職 名	氏 名	執筆分担
部会長	兵庫県立公害研究所	所長	川村 隆	はじめに
部会長**	大阪府公害監視センター	所長	吉田 誠宏	
部会長*	大阪府公害監視センター	所長	小川 広勲	
理事委員	三重県科学技術振興センター	部長	中山 治	
理事委員**	岐阜県保健環境研究所	所長	飯沼 宗和	
支部委員	宮城県保健環境センター	主任研究員	北村 洋子	
同**	岩手県公害センター	大気科長	菅野 淳	
同	東京都環境科学研究所	主任研究員	古明地哲人	5.4
同	大阪府公害監視センター	主任研究員	田口 圭介	4.2, 4.4, 5.2
同**	兵庫県立公害研究所	主任研究員	平木 隆年	
同	島根県保健環境科学研究所	研究員	佐川 竜也	
同**	鳥取県衛生研究所	研究員	木村 義明	
同	大分県衛生環境研究センター	副部長	仲摩 聰	
同**	大分県衛生環境研究センター	主幹研究員	恵良 雅彰	
同*	福岡県保健環境研究所	大気科長	宇都宮 彬	
委員	北海道環境科学研究所	研究職員	野口 泉	5.2, 5.4, 6
委員	新潟県保健環境科学研究所	主任研究員	大泉 毅	4.3
委員	千葉県環境研究センター	主席研究員	押尾 敏夫	4.3, 4.4
委員	奈良県衛生研究所	総括研究員	松本 光弘	5.4,
委員	京都府保健環境研究所	主席研究員	山川 和彦	6
委員	名古屋市環境科学研究所	主任研究員	北瀬 勝	5.3, 7
委員	大阪府公害監視センター	主任研究員	西川 嘉範	4.2, 5.3, 6
委員**	兵庫県立公害研究所	主任研究員	藍川 昌秀	
委員	徳島県保健環境センター	専門研究員	片田 正巳	
委員*	徳島県保健環境センター	環境工学科長	森吉 通博	
委員	熊本県保健環境科学研究所	大気科学部長	上野 一憲	4.3
委員**	鹿児島県環境保健センター	主任研究員	遠矢 倫子	
事務局	兵庫県立公害研究所	主任研究員	平木 隆年	1, 2, 3, 4, 15.1, 8
事務局	兵庫県立公害研究所	主任研究員	藍川 昌秀	1, 2, 3, 4, 15.1, 8
事務局**	大阪府公害監視センター	主任研究員	田口 圭介	
事務局**	大阪府公害監視センター	主任研究員	西川 嘉範	

*: 11年度、**: 12年度

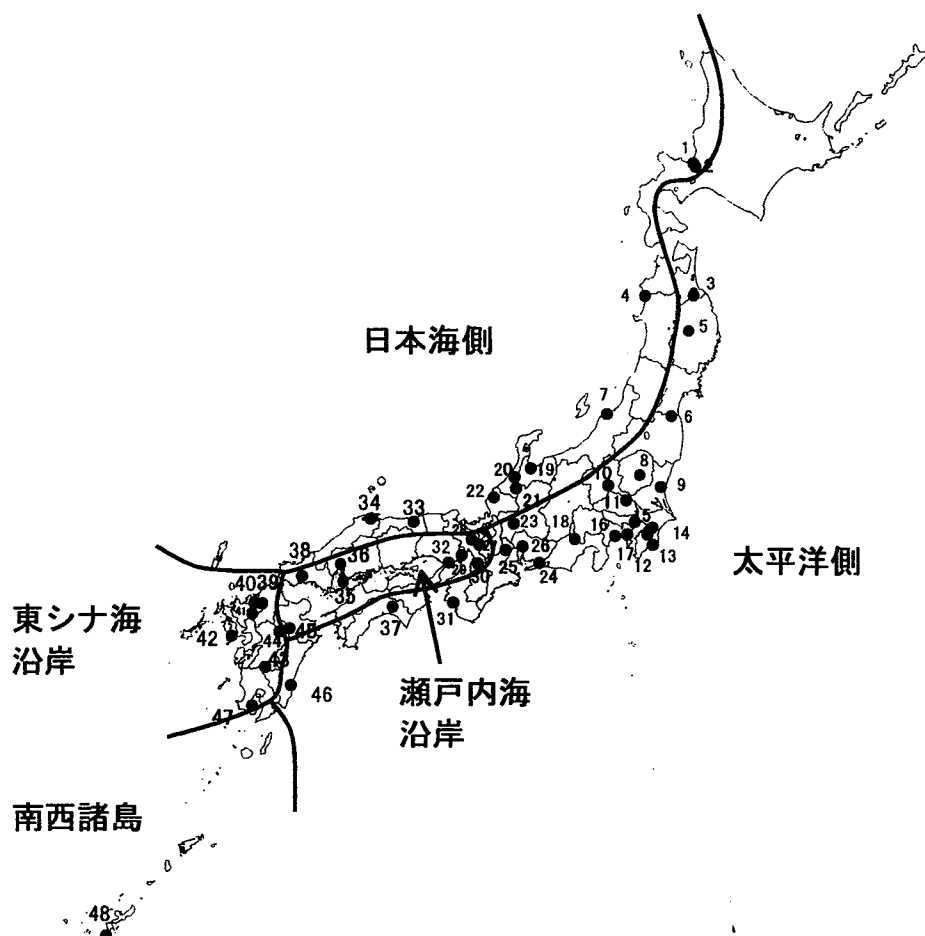


図 2.1 調査 I (湿性沈着)調査地点

る場所、とくに山間部の地点を優先的に選定するようにした。

(3) 方法

降水時開放型捕集装置を用いて通年調査とし、1週間単位で採取することを原則とし、調査地点が遠隔地や山間部で採取期間が2週間あるいはそれ以上になる場合は、冷蔵庫つき捕集装置を試料変質防止対策として推奨した。また、降雪地域においては凍結防止用ヒーターの装備などの対策を推奨したが、無理な場合は冬季間のみバルク捕集となるのも可とした。参加機関の使用した捕集装置については表 2.4 に示した。

採取した試料は貯水量を計測後、予め純水で洗浄したメンブランフィルターで濾過し、濾液を測定・分析用とした。測定項目と測定方法については表 2.5 に示したように、「湿性沈着モニタリング手引書」(以下、「手引書」、環境庁大気規制課、平成10年5月)に従った。降水量は貯水量を捕集面積で割って算出(単位 mm)し、溶存成分濃度の

単位は、電気伝導率が mS/m、イオン種成分濃度が $\mu\text{mol/l}$ とした。測定方法については、pH がガラス電極法、電気伝導率が伝導率計による方法、陰イオンは IC 法、 NH_4^+ は IC 法または吸光光度法、他の陽イオンは IC 法、原子吸光光度法または ICP 法に依った。

最終的なデータは表 2.6 に従って、予め定めた4週または5週分をまとめて月データとして評価した。

2.2.2 乾性沈着調査

(1) 地点

調査 II を実施した調査地点は27地点(26機関)であり、その分布を図 2.2 に示した。また、各地点の位置(経度・緯度)、土地利用区分等を表 2.7 に示した。可能な限り調査 I と同一地点を選定した。

(2) 採取方法

調査 I と同様、通年調査とし1週間単位を原則とした。最終的なデータはこれも調査 I 同様予め定めた(表 2.6)4週または5週分を月単位にまと

表 2.3 平成12年度全環研第3次酸性雨共同調査測定地点(調査I:湿性沈着)

機関名	番号	調査地点名	住所	緯度 (度・分・秒)	経度 (度・分・秒)	標高 (m)	海岸からの 距離(km)	サンダー 設置位置	土地 利用区分
北海道環境科学 研究センター	1	札幌北	札幌市北区北19条西12丁目	43-04-47	141-20-11	12	13	屋上 (地上高8m)	住宅地域
札幌市衛生 研究所	2	札幌白石	札幌市白石区菊水9条1丁目 市衛生研究所	43-3-36	141-23-11	13	17	地上4階	近隣商業
青森県環境保健 センター	3	名川	青森県三戸郡名川町大字 下名久井字塔殿(名川配水池)	40-20-30	141-21-40	99	18.4	地上 約1.4m	畑
秋田県環境 センター	4	八森	秋田県山本郡八森町字三十釜 八森ぶなっこランド内	40-23-13	140-01-13	50	3	地上	未指定
岩手県公害 センター	5	盛岡	岩手県盛岡市上の橋町1-12 県立衛生学院	39-42-11	141-9-40	130	70	4階建屋上	第1種住居
宮城県環境 センター	6	丸森	宮城県伊具郡丸森町大字南平 139-6	37-51-23	140-49-30	50	11	屋上4m GL	未指定
新潟県環境 科学研究所	7	新潟	新潟市管轄314-1	37-50-34	138-57-18	2	3.2	地上2.5m	市街化調整 区域
栃木県環境 センター	8	河内	栃木県河内郡河内町下岡本 2145-13	36-37-	139-56-	140	65	保健環境センター 屋上	住宅地
茨城県公害 技術センター	9	水戸	茨城県水戸市石川1丁目4043-8	36-23-21	140-25-46		17	地上2m	住居地
群馬県衛生環境 研究所	10	前橋	群馬県前橋市上沖町378	36-24	139-6	120		研究所の屋上 地上高さ20m	市街化調整 区域
埼玉県環境科学 国際センター	11	騎西	北埼玉郡騎西町大字上種足914	36-4-52	139-33-49	13+11	55	環境科学国際 センター屋上	農業系
千葉県環境 研究センター	12	市原	市原市岩崎西1-8-8 (環境研究センター)	35-31-18	140-04-20	2	0.8	5m屋上	特別工業
	13	勝浦	勝浦市穂野280 (上野小学校)	35-09-12	140-15-20	100	2	3m屋上	未指定
千葉市環境保健 研究所	14	土気	千葉市緑区大椎町1251-316	35-31-41	140-15-40	72	20	測定局舎屋上	住居系
東京都環境 科学研究所	15	江東	東京都江東区新砂1-7-5	35-39-53	139-49-39	0.6	3.5	庁舎屋上 地上約25m	準工業地域
神奈川県環境 科学センター	16	平塚	平塚市中原下宿842 145-13	35-21	139-21		4	4階 (地上22m)	準工業地域
横浜市環境科学 研究所	17	磯子	横浜市磯子区滝頭1-2-15 横浜市環境科学研究所	35-25-	139-37-	20	1.3	研究所屋上 (地上約20m)	住居地域
静岡県環境衛生 科学研究所	18	静岡	静岡市北安東4丁目27-2	34-59-5	138-23-23	10	7.1	9.3m屋上	市街化区域 第2種住居専用地域
富山県環境科学 センター	19	小杉	富山県射水郡小杉町中太間山 17丁目1番	36-41-51	137-6-9	10	8	地上	第一種中高層 住宅専用地域
石川県保健環境 センター	20	金沢	石川県金沢市太陽が丘1-11	36-30-	136-45-	100	13	県保健環境センター屋上 地上約9m	宅地
	21	鳥越	石川県石川郡吉野谷村字吉野王89	36-20-	136-37-30	200	16	白山消防署内敷地 地上	田畑・森林
福井県環境科学 センター	22	福井	福井市原目町39-4	36-04-15.5	136-15-54.2	11	18	2階建屋上	水田
岐阜県保健環境 研究所	23	伊自良	岐阜県山県郡伊自良村長滝釜ヶ谷27-7-3	35-34	136-42	140	60	地表4.3m	林地
愛知県環境調査 センター	24	豊橋	豊橋市富本町国隠20-8	34-44-20	137-23-15	20	約6	支所屋上2階	住居地域
三重県科学技術 振興センター	25	四日市	三重県四日市市新正4-21-5	34-57	136-37	10	2	2階屋上	準工業地域
名古屋環境 科学研究所	26	緑	名古屋市中区緑区桃山四丁目905	35-5-56	136-59-22	60	9	地上1.1m	第一種低層 住居専用
滋賀県立衛生 環境センター	27	大津	大津市御殿浜13-45	34-58-57	135-54-06	87.2	55	屋上12m	住宅地
京都府保健環境 研究所	28	周山	北桑田郡京北町周山の上の段	35-8-47	135-38-9	260	36	屋上・4階 地上約13m	未指定
大阪府公害監視 センター	29	池田	大阪府池田市畑1-7-4	34-49-18	135-27-01	70	15	2階建て屋上	第1種住専
奈良県衛生 研究所	30	奈良	奈良県奈良市大森町57-6	34-67	135-82	94	35	研究所屋上	商業
和歌山県衛生公害 研究センター	31	印南	和歌山県日高郡印南町印南原3191-1	33-52-16	135-14-27	110	7.1	地上	未指定
兵庫県立 公害研究所	32	神戸須磨	神戸市須磨区行平町3-1-27	34-54-00	135-45-36	15	0.75	屋上・6階 地上約17m	準工業地域
鳥取県衛生 研究所	33	鳥取	鳥取県鳥取市玄好町209 県自治研健所	35-30-15	134-13-55	5	4	屋上	住居地域
鳥取県保健環境 科学研究所	34	松江	鳥取県松江市西浜佐陀町582-1	35-13.1-	133-0.4-	6	約6	保健環境科学研 究所屋上(地上高18m)	指定地域なし
広島県保健環境 センター	35	倉橋島	倉橋町石休235	34-6-46	132-30-27	180	1.5	地面から4.3m	未指定
広島市衛生 研究所	36	広島安佐南	広島市安佐南区 沼田町大字伴6153	34-27-30	132-24-36	80	11	3階屋上 1.5m高	住居地域
高知県環境研究 センター	37	香北	高知県香美郡香北町 白石字西横谷371	33-35-10	133-52-00	230	21	ダム管理事務所 屋上(3階建)	区域外
山口県環境保健 研究センター	38	山口	山口県山口市朝田535	34-9-0	131-26-11	13	13	環境保健研究 センター敷地内	住居
福岡県保健環境 研究所	39	太宰府	福岡県太宰府市大字向佐野39 県保健環境研究所	33-30-32	130-30-9	27	18	地上13m	市街化調整 区域
福岡市保健環境 研究所	40	福岡	福岡市早良区石釜333-2 国民宿舎千石荘	33-28-41	130-19-34	260	12	屋上	市街化調整 区域
佐賀県環境 センター	41	佐賀	佐賀県鍋島町八戸溝119-1	33-27-	130-27-	5.5	11	地表	第1種住居地域
長崎県衛生公害 研究所	42	式見	長崎県長崎市向町 2916	32-47-14	129-48-18	70	1	地上1.5m	ダム管理地 (草地)
熊本県保健環境 科学研究所	43	人吉	熊本県人吉市寺町12-1 県人吉保健所	32-12-27	130-45-46	120	28	同敷地内大気測 定局舎屋上1階	住居専用
	44	阿蘇	熊本県阿蘇郡阿蘇町内牧1204	32-58-16	131-03-00	480	46	同敷地内芝生地	未指定
大分県衛生環境 研究センター	45	大分	大分県直入郡久住町大字久住字平木3991 -168	33-02-26	131-15-13	560	35	地面から3.5 m (屋上から1.25 m)	牧草地
宮崎県衛生 環境研究所	46	宮崎	宮崎市学園木花台西2-3-2 県衛生環境研究所	31-49-46	131-25-4	20	3.5	地上14m	準工業地域
鹿児島県環境保健 センター	47	喜入	鹿児島県喜入町中名高野東6227 町総合運動公園	31-22-21	130-32-41	50	0.275	地上2.2m	未指定
沖縄県衛生環境 研究所	48	大里	沖縄県大里村字大里2085	26.11	127.45	109	1.8	2階屋上	未指定

表 2.4 全公研酸性雨調査における自動雨水採取器の使用機器

調査機関	捕集装置の型式(メーカー)	採取期間	冷蔵庫	ヒーター
北海道・東北				
北海道環境科学研究センター	小笠原計器 US-420 型	1 週間	有	有
青森県環境保健センター	小笠原計器 US-330HD 型	1 週間	有	有
岩手県公害センター	小笠原計器 US-700 型	1 週間	無	有
秋田県環境センター	小笠原計器 US-330 型	1-2 週間	無	無
宮城県保健環境センター	柴田科学器械 AW-301 型	2 週間	無	無
新潟県保健環境科学研究所	小笠原計器 US-330 型	1-2 週間	有	有
札幌市衛生研究所	小笠原計器 US-303 型	1 週間	有	有
関東・甲信・静				
茨城県公害技術センター	小笠原計器 US-400 型	1 ヶ月	無	無
栃木県保健環境センター	小笠原計器 US-400 型	1 週間	無	無
群馬県衛生環境研究所	小笠原計器 US-330H 型	2 週間	有	有
埼玉県環境科学国際センター	小笠原計器 US-400 型	降雨毎	無	無
千葉県環境研究センター	小笠原計器	1 ヶ月	無	有
東京都環境科学研究所	柴田科学器械 W-121 型	1 週間	無	無
神奈川県環境科学センター	小笠原計器 US-400 型	2 回/週	無	無
静岡県環境衛生科学研究所	小笠原計器 US-300 型	1 週間	無	無
横浜市環境科学研究所	小笠原計器 US-400 型	降雨毎	無	無
千葉県環境保健研究所	小笠原計器 C-U273 型	1 ヶ月	有	無
東海・近畿・北陸				
富山県環境科学センター	小笠原計器 R-500 型	1 週間	無	有
石川県保健環境センター	小笠原計器 US-330H 型	1 週間	有	有
岐阜県保健環境研究所	小笠原計器 US-420 型	1 週間	有	無
福井県環境科学センター	小笠原計器 R-500 型	1 週間	有	有
愛知県環境調査センター	小笠原計器 US-400 型	降雨毎	無	無
三重県科学技術振興センター	小笠原計器 US-330 型	1 週間	無	無
滋賀県立衛生環境センター	小笠原計器 US-330 型	1 週間	有	無
京都府保健環境研究所	紀本電子工業 AR-102SNA 型	2 週間	有	有
大阪府公害監視センター	小笠原計器 US-500 型	1 週間	有	無
和歌山県衛生公害研究センター	小笠原計器 US-330 型	1 週間	有	無
兵庫県立公害研究所	小笠原計器 US-300 型	降雨毎	有	無
奈良県衛生研究所	小笠原計器 US-410 型	1 週間	有	無
名古屋市環境科学研究所	小笠原計器 US-330 型	1 週間	有	無
中国・四国				
鳥取県衛生研究所	小笠原計器 US-330 型	1 ヶ月	有	有
島根県保健環境科学研究所	小笠原計器 US-400 型	1 週間	有	無
広島県保健環境センター	紀本電子工業 AR-102SN 型	2 週間	有	無
山口県環境保健研究センター	小笠原計器 US-330 型	降雨毎	有	無
高知県環境研究センター	小笠原計器 US-330 型	2 週間	有	無
広島市衛生研究所	小笠原計器 US-330 型	1-2 週間	有	無
九州				
福岡県保健環境研究所	小笠原計器 US-300 型	1 週間	無	無
佐賀県環境センター	小笠原計器 US-400 型	降雨毎	無	無
長崎県衛生公害研究所	電気化学計器特注品	降雨毎	有	無
熊本県保健環境科学研究所	小笠原計器 US-330HD 型	1 週間	有	無
	小笠原計器 US-330D 型	1 週間	有	有
大分県衛生環境研究センター	小笠原計器 C-U427 型	2 週間	有	有
宮崎県衛生環境研究所	小笠原計器 US-330 型	2 週間	有	無
鹿児島県環境保健センター	電気化学計器 DRM-200E	2 週間	有	無
沖縄県衛生環境研究所	小笠原計器 C-U273 型	1 週間	有	無
福岡市保健環境研究所	小笠原計器 US-330 型	1 週間	有	有

めて評価した。

ガスとエアロゾルのサンプリングには4段濾紙法¹⁾を用いた。すなわち、市販の濾紙ホルダー(たとえば、NILU製4段ホルダー)を用い、1段目には市販のPTFE濾紙F₀(孔径0.8μm, 直径47mm, ADVANTEC社製TO80A047A)を装着し、エアロゾルを捕集し、2段目には市販のポリアミド濾紙F₁(孔径0.45μm, 直径47mm, PALL社製ULTIPOR

N66)を装着し、主としてHNO₃を捕集した。3段目にはSO₂, HClなどの酸性ガス成分捕集用に、セルロース濾紙F₂(直径47mm, ADVANTEC社製No.51A)に炭酸カリウム溶液を含浸させたものを調製し装着した。最後の4段目にはリン酸含浸セルロース濾紙F₃を調整し、NH₃を捕集した。

サンプリングは濾紙ホルダーを適当なシエーター内に下向きに入れ、毎分11の吸引速度で連

続採取(1週間で約10m³)を行った。採気量は原則として、ポンプの後に置いた乾式積算流量計で読み取った。スタート前にキャップをつけたフィルターパックを装着し、流路の漏れ試験を行った。

(3) 含浸濾紙 F₂, F₃の調製

F₂: 6%K₂CO₃+2%グリセリン水溶液を500mlビーカー2個(A, B)に調製し、捕集用セルロース濾紙約20枚をAに浸し、5分間超音波洗浄し

表 2.5 湿性成分の測定項目と測定方法

項目	測定方法	単位
降水量	貯水量を捕集面積で割る	mm
pH	ガラス電極法	
EC	電気伝導率計	mS/m
SO ₄ ²⁻	イオンクロマトグラフィー(IC)	μmol/l
NO ₃ ⁻	イオンクロマトグラフィー(IC)	μmol/l
Cl ⁻	イオンクロマトグラフィー(IC)	μmol/l
NH ₄ ⁺	イオンクロマトグラフィー(IC)、インドフェノール法	μmol/l
Na ⁺	イオンクロマトグラフィー(IC)、原子吸光光度法、ICP法	μmol/l
K ⁺	イオンクロマトグラフィー(IC)、原子吸光光度法、ICP法	μmol/l
Ca ²⁺	イオンクロマトグラフィー(IC)、原子吸光光度法、ICP法	μmol/l
Mg ²⁺	イオンクロマトグラフィー(IC)、原子吸光光度法、ICP法	μmol/l

表 2.6 平成12年度酸性雨調査の各月別調査期間

月	平成12年度(2000)	週
4月	4月3日(月)~5月1日(月)	4週
5月	5月1日(月)~5月29日(月)	4週
6月	5月29日(月)~7月3日(月)	5週
7月	7月3日(月)~7月31日(月)	4週
8月	7月31日(月)~8月28日(月)	4週
9月	8月28日(月)~10月2日(月)	5週
10月	10月2日(月)~10月30日(月)	4週
11月	10月30日(月)~11月27日(月)	4週
12月	11月27日(月)~12月25日(月)	4週
1月	12月25日(月)~1月29日(月)	5週
2月	1月29日(月)~2月26日(月)	4週
3月	2月26日(月)~4月2日(月)	5週



図 2.2 調査II(乾性沈着)調査地点

表 2.7 平成12年度全環研第3次酸性雨共同調査測定地点(調査Ⅱ:乾性沈着)

機関名	番号	調査地点名	住所	緯度 (度・分・秒)	経度 (度・分・秒)	標高 (m)	海岸からの 距離(km)	サンプラー 設置位置	土地 利用区分
北海道環境科学 研究センター	1	札幌北	札幌市北区北19条西12丁目	43・04・47	141・20・11	12	13	屋上 (地上高8m)	住宅地域
	2	母子里	雨竜郡幌加内町母子里	44・21・44	142・15・54	287	40	北海道雨竜地方演習林 母子里教育棟地上約8m	未指定
札幌市衛生 研究所	3	札幌白石	札幌市白石区菊水9条1丁目 市衛生研究所	43・3・36	141・23・11	13	17	地上4階	近隣商業
秋田県環境 センター	4	八森	秋田県山本郡八森町字三十釜 八森ぶなっランド内	40・23・13	140・01・13	50	3	地上	未指定
岩手県公害 センター	5	盛岡	岩手県盛岡市上の橋町1-12 県立衛生学院	39・42・11	141・9・40	130	70	4階建屋上	第1種住居
新潟県保健環境 科学研究所	6	新潟	新潟市曾和314-1	37・50・34	138・57・18	2	3.2	地上1.8 m	市街化調整 区域
東京都環境 科学研究所	7	江東	東京都江東区新砂1-7-5	35・39・53	139・49・39	0.6	3.5	庁舎屋上 地上約25m	準工業地域
横浜市環境科学 研究所	8	磯子	横浜市磯子区滝頭1-2-15 横浜市環境科学研究所	35・25・	139・37・	20	1.3	研究所屋上 (地上約20m)	住居地域
富山県環境科学 センター	9	小杉	富山県射水郡小杉町中太岡山 17丁目1番	36・41・51	137・6・9	10	8	3階建屋上	第一種中高層 住宅専用地域
福井県環境科学 センター	10	福井	福井市原目町39-4	36・04・15.5	136・15・54.2	11	18	2階建屋上	水田
愛知県環境調査 センター	11	豊橋	豊橋市富本町国隠20-8	34・44・20	137・23・15	20	約6	支所屋上2階	住居地域
名古屋環境 科学研究所	12	緑	名古屋市緑区桃山四丁目905	35・5・56	136・59・22	60	9	地上1.5m	第一種低層 住居専用
京都府保健環境 研究所	13	周山	北桑田郡京北町周山上の段	35・8・47	135・38・9	260	36	屋上・4階 地上約13m	未指定
大阪府公害監視 センター	14	池田	大阪府池田市畑1-7-4	34・49・18	135・27・01	70	15	2階建て屋上	第1種住専
大阪市立環境 科学研究所	15	大阪生野	生野区勝山北3-13-44 勝山中学校	34・39・06	135・31・52	25.6	9.5	3階建ての屋上	住居地域
奈良県衛生 研究所	16	奈良	奈良県奈良市大森町57-6	34・67	135・82	94	35	研究所屋上	商業
兵庫県立 公害研究所	17	神戸須磨	神戸市須磨区行平町3-1-27	34・54・00	135・45・36	15	0.75	屋上・6階 地上約17m	準工業地域
鳥取県衛生 研究所	18	鳥取	鳥取県鳥取市玄好町209 県自治研修所	35・30・15	134・13・55	5	4	屋上	住居地域
鳥根県保健環境 科学研究所	19	松江	鳥根県松江市西浜佐陀町582-1	35・13・1	133・0・4	6	約6	保健環境科学研究 所屋上(地上高18m)	指定地域なし
広島県保健環境 センター	20	倉橋島	倉橋町石休235	34・6・46	132・30・27	180	1.5	地面から4.3m	未指定
広島市衛生 研究所	21	広島安佐南	広島市安佐南区 沼田町大字伴6153	34・27・30	132・24・36	80	11	3階屋上 1.5m高	住居地域
高知県環境研究 センター	22	香北	高知県香美郡香北町 白石字西横谷371	33・35・10	133・52・00	230	21	ダム管理事務所 屋上(3階建)	区域外
徳島県保健環境 センター	23	石井	徳島県名西郡石井町石井 2202-1 県農業大学校	34・3・52	134・26・16	15	14	屋上	未指定
福岡県保健環境 研究所	24	太宰府	福岡県太宰府市大字向佐野39 県保健環境研究所	33・30・32	130・30・9	27	18	地上1m	市街化調整 区域
福岡市保健環境 研究所	25	福岡	福岡市早良区石釜333-2 国民宿舎千石荘	33・28・41	130・19・34	260	12	屋上	市街化調整 区域
大分県衛生環境 研究センター	26	大分	大分県直入郡久住町 大字久住字平木3991-168	33・02・26	131・15・13	561	36	地面から3.5 m (設置施設屋上から1.26 m)	牧草地
鹿児島県環境 保健センター	27	喜入	鹿児島県喜入町中名高野東 6227 町総合運動公園	31・22・21	130・32・41	50	0.275	地上1.5m	未指定

た。濾紙を引き上げBに浸し、再度5分間超音波をかけた後、大型濾紙(40cm×40cm, ADVANTEC社製590)で挟み、すばやく余分な水分を取っ

た。洗浄ずみの濾紙ケースに入れチャックつきポリ袋に密閉し、デシケータに入れ、使用時まで冷蔵保存した。

表 2.8 4 段濾紙法による測定項目と測定方法

項目	測定成分	捕集ろ紙	測定方法	
ガス成分	SO ₂	SO ₄ ²⁻	ポリアミド+ K ₂ CO ₃	IC 法
	HNO ₃	NO ₃ ⁻	ポリアミド	IC 法
	HCl	Cl ⁻	ポリアミド+ K ₂ CO ₃	IC 法
	NH ₃	NH ₄ ⁺	ポリアミド+ H ₃ PO ₄	IC 法、吸光光度法
エアロゾル成分	SO ₄ ²⁻	SO ₄ ²⁻	テフロン	IC 法
	NO ₃ ⁻	NO ₃ ⁻	テフロン	IC 法
	Cl ⁻	Cl ⁻	テフロン	IC 法
	NH ₄ ⁺	NH ₄ ⁺	テフロン	IC 法、吸光光度法
	Na ⁺	Na ⁺	テフロン	IC 法、原子吸光光度法、ICP 法
	K ⁺	K ⁺	テフロン	IC 法、原子吸光光度法、ICP 法
	Ca ²⁺	Ca ²⁺	テフロン	IC 法、原子吸光光度法、ICP 法
	Mg ²⁺	Mg ²⁺	テフロン	IC 法、原子吸光光度法、ICP 法

F₃: 5%リン酸+2%グリセリン水溶液を500ml ビーカー2個(A, B)に調製し, F₂の場合と同様に処理し, 保存した。

(4) 試料の前処理

試料採取後の濾紙を内容積50mlのキャップつきポリプロピレン試験管に入れ, F₀, F₁およびF₃には蒸留水20mlを各々加え抽出した。また, F₂濾紙には0.05%(V/V)H₂O₂溶液20mlを加え抽出した。抽出は約20分, 振とう器を用いて行った。これらの抽出液を孔径0.45μmのメンブランフィルターで, 分析に必要な量を濾過した。この濾液は少なくとも2~3日以内に分析した。それまでは冷暗所に保存した。

また, 2段目のポリアミド濾紙F₁ではHNO₃以外にもSO₂, HClおよびNH₃の一部を捕集するため²⁾, SO₂, HClについては3段目F₂の値に, またNH₃については4段目F₃の値に加算して大気濃度を求めた。本4段濾紙法による乾性沈着の測定項目, 測定方法等について表2.8にまとめる。

なお, 本報告書における採取方法, 濾紙の調整および試料の前処理については機関によって一部異なる場合もあるが, おおむね上記とほぼ同様の機材, 手順で行われている。

— 参 考 文 献 —

- 1) 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, 日化誌, 1998(7), 495(1998)
- 2) P.Masia, Di Palo and Possanzini: Uptake of ammonia by nylon filters in the filter pack systems, Atmos. Environ. 28(2), 365(1994)

3. 調査期間中の気象概況^{1~4)}

平成12年度は自然災害が多く発生した年で, 年度直前の3月31日には有珠山が21年ぶりに噴火し, 6月27日には三宅島で海底噴火が起こり7月8日に山頂で噴火が始まった。三宅島からは噴煙によって, 2万~8万t/日のSO₂が放出しているとされており, 気象条件によりその影響は関東甲信地域のみならず東海・近畿・北陸地域でもSO₂の高濃度が頻繁に観測されるなど, 広い範囲に影響を及ぼした。12年度は梅雨前線の活動が6月はほぼ平年なみであったが, 7月は不活発で梅雨前線による大雨は少なかった。9月上旬から中旬にかけて, 日本付近に停滞した前線が台風14号から温湿流により活動が活発になり, 全国的に大雨となった。とくに11日から12日にかけては, 東海地方を中心に豪雨となり, 名古屋の降水量は2日間で567mmを記録し, 河川の氾濫等で甚大な被害となった。

4月は低気圧と高気圧が交互に通過し, 天気は周期的に変わったものの, 移動性高気圧に覆われ東日本や西日本で晴れる日が多かった。九州から東海の西日本は平年より降水量が少なかった。中旬以降は低気圧が次々と通り, その影響の大きかった北日本や, 前線の影響を受けた南西諸島では降水量が多く平年の170%以上のところがあった。とくに北海道の一部では, 平年の300%を超えたところもあった。

5月も北日本では低気圧の影響で曇りや雨の日が多いため降水量が平年より多く, とくに北海道,

東北では平年の170%以上のところがあった。一方、北陸、東海、南西諸島では平年より少なく、月降水量が平年の10%以下となったところがあった。

6月は梅雨前線が西日本の南岸まで北上し、九州南部・北部では5月26日頃に梅雨入りし、四国は6月3日頃に、中国、北陸は8日頃に、近畿、東海、関東・甲信、東北南部は9日頃に梅雨入りし、中旬初めまで梅雨寒が続いた。北海道の太平洋側から東北北部では、低気圧や前線の影響が小さく、降水量が平年比60%程度とかなり少なかった。南西諸島では月初めまで少雨が続き、その後は梅雨前線の活動が活発化したが、20日頃梅雨明けした。

7月は梅雨前線の活動が不活発で、晴れて暑い日が多く、関東から東北の太平洋側(7～9日に台風第3号による大雨)と九州南部(下旬に大雨)を除き少雨となり、平年の40%以下となったところがあった。北海道、東北の太平洋側、関東、南西諸島では平年より多く、とくに北海道の一部では、平年の300%以上のところがあった。中旬以降、太平洋高気圧が次第に強まり、九州南部は15日頃、東海と関東・甲信は16日頃、九州北部は17日頃、四国、中国、近畿は18日頃、北陸と東北南部は19日頃に梅雨明けした。

8月は北・東・西日本では、おおむね太平洋高気圧に覆われ、晴れて暑い日が多かった。しかし、太平洋高気圧の勢力は安定せず、上空への寒気流入や太平洋高気圧縁辺の暖湿気流の影響でにわか雨や雷雨が頻発した。降水量は、北海道の日本海側、関東甲信、九州南部、南西諸島の一部で平年を上回り、平年の170%以上のところがあった。そのほかは全国的に平年より少なく、東北、北陸、西日本では平年の40%以下となったところがあった。平均気温は、南西諸島を除き、全国的に平年を上回り、とくに北海道北部や東日本の日本海側などでは、平年を2℃以上上回ったところがあった。神戸、伊吹山(滋賀県)では、月平均気温の最高値を更新した。

9月は暖かく湿った南西風が吹きやすかったため中旬を中心に気温の高い日が多く、南西諸島を除いて全国的に高温、東海、甲信地方で多雨であっ

た。中旬に本州上にあった秋雨前線が台風14号に伴う高温多湿の南風によって活発化し西・東日本の太平洋側を中心に多量の降水があった。とくに名古屋付近では11日から12日にかけて記録的な豪雨となった。降水量は、ほぼ全国的に平年を上回った。とくに東海、甲信の一部では平年の300%以上のところがあった。

10月は北日本で天気は周期的に変化したが、日本海側では寒冷低気圧や一時的な冬型気圧配置の影響で、曇りや雨(雪)の日が多く、太平洋側では晴れの日が多かった。東・西日本や奄美地方では、移動性高気圧の中心が北偏したため、前線や低気圧の影響を受けやすく曇りや雨の日が多かった。沖縄では太平洋高気圧におおわれて晴れる日が多かったが、下旬には台風の影響を受けた。降水量は中部、近畿、中国、九州の一部で平年を上回った。一方、北日本、関東、四国などで平年を下回り、とくに北海道、東北の太平洋側の一部では平年の40%以下のところがあった。

11月は太平洋高気圧が平年より北に位置して強かったため、南西諸島から本州の南岸にかけ前線が停滞。その前線上を低気圧が周期的に通過し、移動性高気圧も平年より北偏して日本付近を覆いやすかった。また、月初めには台風第20号から変わった低気圧が南西諸島から日本の南岸を通過し各地でまとまった降水となった。降水量は全国的に平年を上回り、とくに中部、近畿、九州北部、南西諸島では、平年の170%以上のところがあった。一方で、北海道の太平洋側、東北の日本海側、関東南部などで平年を下回ったところがあった。

12月は東日本以西で高温、関東、中国で少雨であった。東北の太平洋側、東日本、近畿、中国、九州北部で平年降水量を下回り、とくに関東・甲信の一部では平年の10%以下となったところがあった。一方で北海道、東北の一部、四国、九州の太平洋側、南西諸島で平年を上回り、九州南部の一部と南西諸島で平年の170%以上のところがあった。

1月は冬型の気圧配置となる日が多く、日本海側では雪や雨の日が多かった。中旬には強い寒気が南下して低温となった所が多く、日本海側では大雪が降った。東・西日本の太平洋側では、南岸を通る低気圧の影響で平年に比べて曇りや雨(雪)

の日が多く、東日本では寒気の影響も加わって平野部で3回の降雪があった。降水量が北海道を除いて全国的に平年値を上回った。東北地方南部から九州地方にかけての太平洋側は平年の170%以上となり、関東・甲信地方、東海地方、四国地方などでは平年の300%以上の所もあった。

2月は冬型の気圧配置となる日が多く、北日本では上旬から中旬にかけて強い寒気が入り低温となった。北海道は平年より2℃以上低かった。東・西日本では平年と同様に、日本海側では雪や雨の日が多く、太平洋側では晴れの日が多かった。降水量は北海道の一部、北陸、中国の瀬戸内海側、九州北部、南西諸島の一部で平年を上回り、瀬戸内海側の一部で平年の170%以上のところがあった。一方、北海道の太平洋側、東日本、九州南部、南西諸島の一部で平年を下回り、とくに北日本から東日本の太平洋側、南西諸島の一部では平年の40%以下となったところがあった。

3月は月を通して低気圧が日本付近を頻繁に通過し、月の前半と後半で対照的な天候となった。月前半は、北日本から西日本の日本海側に向け寒気の影響で曇りや雨または雪の日が多く、全国的に気温も平年を下回った。後半になると、低気圧は北日本を通ることが多くなり、西日本では高気圧に覆われ、晴れる日が多くなった。また、低気圧に向かって暖気が入り、全国的に気温が平年を大きく上回るようになった。降水量は関東から北の太平洋側および近畿、中国の日本海側で平年を上回り、北海道の一部で平年の170%以上の所があった。一方、東海より西の太平洋側をはじめ西日本で平年を下回り、とくに九州北部の一部では平年の40%以下となった所があった。

—参考資料—

- 1) 2001年版気象年鑑：日本気象協会編（財務省印刷局）
- 2) 気象要覧1217号：気象庁（平成13年1月）
- 3) 気象要覧1218号：気象庁（平成13年2月）
- 4) 気象要覧1219号：気象庁（平成13年3月）

4. 湿性沈着

湿性沈着について、主要成分の月別測定結果をまとめて付表1に示す。

4.1 測定項目およびデータの精度

4.1.1 イオンバランス(R₁)および電気伝導率バランス(R₂)

手引書によると、各イオンの測定値について、R₁およびR₂による2つの方法で測定値の信頼性を確保することとしている。これは従来から行ってきた単に比によるイオンバランスでなく、表4.1に示すようにR₁、R₂を計算し、3つの濃度ランクに分けて、高濃度になるに従って厳格な基準を定めている。R₁、R₂は個々の試料ごとに評価すべきであるが、ここでは月単位の加重平均値により評価することとした。

各機関から報告された湿性成分の月平均濃度の全データ(n=552)についてR₁を計算し、その分布を図4.1に示した。図中の直線は許容範囲を示

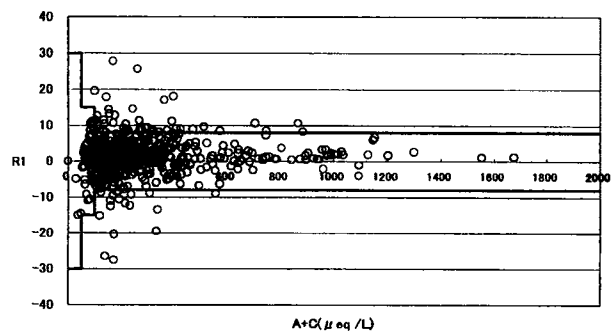


図 4.1 湿性沈着物のイオンバランス(R₁)

表 4.1 R₁ および R₂ の許容範囲

$\Sigma C_i + \Sigma A_i$ ($\mu\text{eq/l}$)	R ₁ (%) = $\{(\Sigma C_i - \Sigma A_i) / (\Sigma C_i + \Sigma A_i)\}$ ×100	Λ_{obs} (mS/m)	R ₂ (%) = $\{(\Lambda_{\text{cal}} - \Lambda_{\text{obs}}) / (\Lambda_{\text{cal}} + \Lambda_{\text{obs}})\}$ ×100
< 50	± 30	< 0.5	± 20
50 - 100	± 15	0.5 - 3.0	± 13
> 100	± 8	> 3.0	± 9

電気伝導率の計算値と測定値における許容範囲

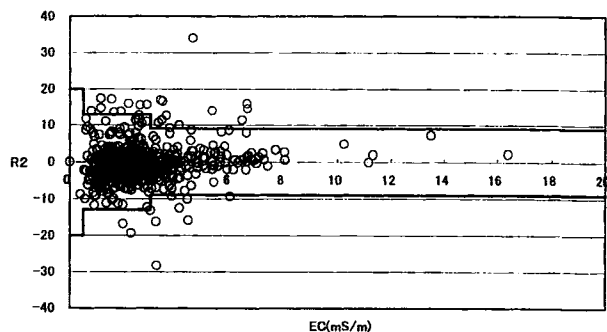


図 4.2 湿性沈着物の電気伝導度による検定 (R_2)

している。全国の測定結果の R_1 は 0 ~ 5 にもっとも多く出現し、 ± 10 に全データの 93% が入る分布をしていた。 ± 30 を超えたのは 1 (0.2%) データであった。また、 R_1 の基準をオーバーしたのは 66 (12%) データであり、平成 11 年度の 16% より向上が見られた。

同様に電気伝導率についても R_2 を計算し、その分布を図 4.2 に示した。 R_2 は -5 ~ 0 の範囲にもっとも多く出現し、 ± 10 の範囲内に全データの 93% が入る分布をしていた。 ± 30 を超える値はなかった。また、 R_2 の基準をオーバーしたのは 21 (4%) データであり、11 年度の 8.6% に比べて半分に減少した。全体的な分布傾向として、 R_1 がプラス側に 65% の出現頻度であり、陽イオンが陰イオン濃度を上回るデータがやや多く、 R_2 がマイナス側に 58% とやや多い分布をしていた。このことは個々の試料について検討すべきであるが、亜硝酸や炭酸水素などの分析項目以外の陰イオンの存在が示唆された。

4.1.2 欠測率の評価

平成 12 年度は機器の調達が平成 11 年度になされている地点が多いため、欠測率は 11 年度より低く 2 カ月以上欠測であった地点は 2 カ所のみであった。また、年間測定日はほとんどの地点で 365 日あり、それ以外の地点では 4 月に機器が導入された地点で 349 日であったが、それより少ない測定日数の地点は 4 カ所のみであった。全測定期間を通じて、月単位での欠測率は 2.0% (11/552) であった。月内に欠測週があるデータは約 1.8% (10/541) であった。

4.2 pH, EC およびイオン成分濃度

各測定地点の降水量、pH、電気伝導率およびイオン成分濃度について、地域・属性比較および

季節変動比較を行った。地域区分として太平洋側 (P)、日本海側 (J)、瀬戸内海沿岸 (I)、東シナ海沿岸 (E)、南西諸島 (S) の 5 地域、属性区分として田園 (R) および都市 (U) の 2 属性に分類した。表 4.2 に湿性調査参加全 48 地点の地域属性区分および湿性イオン成分等の年加重平均濃度を示す。また、いくつかの項目について地域属性区分別の季節トレンドを図 4.3 に示す。なお解析対象としたデータは、年間測定日数の 80% 以上のデータがそろっている地点についてのものであり、地域属性区分ごとの中央値を用いた。

年降水量の範囲は 1,016mm/年 (倉橋島) ~ 3,324mm/年 (宮崎) であり、全国平均は 1,758mm/年であった。平成 11 年度の全国平均 1,668mm/年と比べ今年度の降水量は 100mm 程度多かった。また、宮崎は 2 年連続で降水量が最高であった。月変化でみると、全国的に 12 月と 2 月の降水量は少なく、九州および沖縄を除く地域で 8 月も少雨であった。

年平均 pH の範囲は 4.42 (騎西) ~ 5.47 (大里)、加重平均は 4.64 であり、11 年度の同平均 4.81 に比べて低かった。月変化については、南西諸島 (大里) で 10 月 (4.8) を除き 5.0 以上と高かったが、太平洋側、日本海側、瀬戸内海沿岸はいずれもよく似た推移を示し、8 ~ 12 月にかけて低かった。

年平均電気伝導率の範囲は 1.46mS/m (緑) ~ 4.41mS/m (鳥取)、加重平均は 2.38mS/m であり、11 年度の同平均 2.03mS/m に比べてやや高かった。季節変化では、日本海側で暖候季に低く、寒候季に高かった。太平洋側と瀬戸内海沿岸はいずれもよく似た推移を示し、季節による変動は小さかった。

年平均 nss-SO_4^{2-} 濃度の範囲は 6.0 $\mu\text{mol/l}$ (大里) ~ 58.1 $\mu\text{mol/l}$ (福井)、加重平均は 20.9 $\mu\text{mol/l}$ であり、11 年度の同平均 15.7 $\mu\text{mol/l}$ に比べて降水量が多かったにもかかわらず高濃度であった。また、環境庁による第 3 次酸性雨対策調査 (4.4 $\mu\text{mol/l}$ (小笠原) ~ 27.6 $\mu\text{mol/l}$ (大牟田)、第 3 次調査平均値は 14.6 $\mu\text{mol/l}$) と比べても高かった。いずれも三宅島噴火の影響を受けたのではないかと考えられる。暖候季に低く、寒候季に高いという季節変化傾向は 11 年度ほど顕著に見られなかった。

年平均 NO_3^- 濃度の範囲は 5.2 $\mu\text{mol/l}$ (大里) ~

表 4.2 地点別地域属性区分および湿性イオン成分等の地点別年加重平均濃度(平成12年度)

地点名	地域区分	属性区分	Rain mm	pH	EC mS/m	$\mu\text{mol/L}$											nss-SO ₄	nss-Ca
						SO ₄	NO ₃	Cl	NH ₄	Na	K	Ca	Mg	H				
1	札幌北	J	U	1284	4.60	2.76	21.5	12.6	92.9	23.9	77.0	2.9	5.1	8.7	25.1	16.8	3.4	
2	札幌白石	J	U	1042	4.69	2.39	23.0	12.9	63.2	24.3	51.2	1.8	5.6	6.9	20.4	19.9	4.5	
3	名川	P	R	(1085)	(5.30)	(1.18)	(15.1)	(13.3)	(19.7)	(23.6)	(18.8)	(2.2)	(5.7)	(2.7)	(5.0)	(14.0)	(5.3)	
4	八森	J	R	(330)	(4.43)	(6.06)	(39.9)	(29.2)	(281.8)	(25.6)	(246.4)	(6.7)	(9.3)	(25.1)	(37.4)	(25.0)	(4.0)	
5	盛岡	P	U	1230	4.65	2.12	21.6	17.9	43.5	24.2	35.5	1.6	8.9	4.7	22.5	19.4	8.2	
6	丸森	P	R	1364	4.75	1.51	15.2	16.0	30.5	13.2	26.2	1.1	4.7	3.7	17.8	13.6	4.1	
7	新潟	J	U	1637	4.68	4.18	32.1	23.4	170.1	30.6	149.5	4.9	11.0	16.6	21.0	23.1	7.8	
8	河内	P	U	1652	4.50	2.42	23.1	29.6	16.5	35.0	12.5	2.1	7.1	2.2	31.6	22.4	6.9	
9	水戸	P	U	1312	4.60	1.89	20.3	22.7	22.6	22.9	19.4	1.0	5.4	2.3	25.3	19.1	5.0	
10	前橋	P	U	1392	4.69	2.27	28.8	51.9	17.3	78.5	12.1	3.4	8.6	4.0	20.6	28.1	8.3	
11	駒西	P	R	1616	4.42	2.64	23.0	41.3	19.3	41.2	11.4	1.4	8.4	1.9	37.7	22.4	8.1	
12	市原	P	U	1433	4.59	2.27	30.8	22.5	43.1	30.1	25.4	1.9	12.6	4.4	25.4	29.2	12.0	
13	勝浦	P	R	2230	4.53	2.46	21.6	10.5	94.7	11.2	75.1	2.2	6.7	9.4	29.4	17.1	5.1	
14	土気	P	U	1437	4.68	1.85	21.4	12.1	44.5	26.3	30.6	4.8	4.1	4.7	20.9	19.5	3.4	
15	江東	P	U	1403	4.62	2.51	30.2	32.2	45.6	42.3	36.7	2.1	14.9	3.5	23.8	28.0	14.1	
16	平塚	P	U	1511	4.47	3.10	24.2	15.3	56.8	25.3	33.7	1.4	6.9	4.2	33.6	22.2	6.2	
17	磯子	P	U	1720	4.45	2.85	25.1	21.5	52.6	36.7	25.8	0.9	5.2	3.1	35.8	23.6	4.6	
18	静岡	P	U	2352	4.50	2.19	21.9	18.3	28.9	10.6	16.5	1.0	8.8	2.8	31.8	20.9	8.5	
19	小杉	J	R	1958	4.78	3.34	29.9	21.7	134.0	25.1	111.9	4.1	14.6	14.8	16.6	23.2	12.2	
20	金沢	J	U	2337	4.60	3.77	29.3	20.9	141.4	19.6	130.4	3.9	11.6	14.1	25.0	21.4	8.8	
21	鳥越	J	R	2601	4.67	3.47	28.4	19.9	132.6	19.4	121.3	4.2	11.8	13.6	21.4	21.1	9.1	
22	福井	J	U	1909	4.43	3.71	65.7	23.2	142.4	27.0	127.4	4.0	25.1	33.2	36.8	58.1	22.3	
23	伊自良	P	R	2757	4.51	2.13	20.4	23.7	21.5	23.6	19.1	3.2	6.5	2.9	30.8	19.2	6.1	
24	豊橋	P	U	1626	4.68	1.91	18.6	16.9	40.9	17.1	33.9	2.1	6.9	4.6	21.0	16.6	6.2	
25	四日市	P	U	1991	4.51	2.43	49.7	19.4	24.0	30.8	22.6	2.4	15.2	8.1	30.8	48.3	14.7	
26	緑	P	U	1909	4.74	1.46	15.5	16.2	12.7	15.3	8.1	0.8	3.9	1.7	18.3	15.0	3.7	
27	大津	I	U	1626	4.63	1.94	21.0	22.0	11.7	23.8	10.2	1.0	5.9	1.9	23.5	20.3	5.7	
28	周山	I	R	(840)	(4.57)	(2.15)	(19.5)	(22.4)	(27.5)	(14.4)	(21.2)	(2.2)	(6.7)	(3.2)	(26.7)	(18.3)	(6.2)	
29	池田	I	U	1554	4.61	1.70	15.0	20.2	13.6	15.5	11.0	0.5	5.7	1.8	24.7	14.3	5.5	
30	奈良	I	U	1375	4.78	1.64	18.0	24.2	16.1	22.5	8.0	1.0	6.8	1.9	16.6	17.5	6.6	
31	印南	P	R	1829	4.73	1.61	13.5	12.4	36.5	9.0	28.2	1.3	4.0	3.4	18.6	11.8	3.4	
32	神戸須磨	I	U	1042	4.68	2.07	20.6	19.4	27.2	22.5	21.6	0.9	8.5	3.6	20.7	19.3	8.0	
33	鳥取	J	U	1805	4.63	4.41	37.8	27.2	197.5	23.9	179.6	5.7	15.8	22.0	23.5	26.9	11.9	
34	松江	J	U	1453	4.67	3.36	29.8	24.8	120.6	21.3	105.5	5.2	12.9	13.3	21.4	23.4	10.6	
35	倉橋島	I	R	1016	4.59	1.75	19.1	19.3	20.7	23.3	16.4	2.5	5.5	2.8	25.5	18.1	5.2	
36	広島安佐南	I	U	1584	4.59	2.36	25.8	24.9	39.6	22.4	39.6	2.3	12.6	5.2	26.0	23.4	11.8	
37	香北	P	R	(2132)	(4.75)	(1.60)	(13.9)	(10.0)	(37.4)	(8.9)	(32.2)	(1.5)	(5.3)	(4.0)	(18.0)	(12.0)	(4.6)	
38	山口	I	U	1571	4.63	2.16	23.2	21.1	34.6	21.1	32.6	3.4	10.9	4.3	23.2	21.2	10.2	
39	大宰府	E	U	1511	4.69	2.11	24.0	17.8	41.1	26.2	32.4	3.0	11.0	4.7	20.3	22.1	10.3	
40	福岡	E	U	2127	4.70	1.94	20.8	16.6	40.5	22.2	35.0	2.5	8.1	4.5	19.9	18.7	7.3	
41	佐賀	E	U	1761	4.75	1.71	18.0	14.2	24.5	18.0	23.4	1.4	7.6	2.9	17.9	16.5	7.1	
42	式見	E	R	1576	4.86	1.77	18.7	12.3	58.9	13.2	54.6	1.9	9.0	6.9	13.9	15.4	7.8	
43	人吉	E	U	1925	4.79	1.66	17.6	10.5	30.5	16.7	23.3	1.3	7.2	3.2	16.3	16.2	6.7	
44	阿蘇	E	R	2002	4.83	1.91	26.0	15.2	21.5	29.6	18.9	2.8	13.3	3.7	14.9	24.8	12.9	
45	大分	I	R	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	
46	宮崎	P	U	3324	4.78	1.62	15.2	9.6	50.1	6.7	50.1	1.3	3.0	5.3	16.6	12.2	1.9	
47	喜入	E	R	2253	4.84	1.82	14.7	9.3	59.9	12.1	49.2	2.8	4.8	6.3	14.5	11.7	3.8	
48	大里	S	U	2557	5.47	2.37	13.7	5.2	141.6	7.2	128.8	3.4	5.9	14.2	3.4	6.0	3.1	
最 小 値				1016	4.42	1.46	13.5	5.2	11.7	6.7	8.0	0.5	3.0	1.7	3.4	6.0	1.9	
最 大 値				3324	5.47	4.41	65.7	51.9	197.5	78.5	179.6	5.7	25.1	33.2	37.7	58.1	22.3	
加 重 平 均 値				1758	4.64	2.38	24.0	19.1	60.8	22.3	51.7	2.5	8.8	7.1	22.7	20.9	7.7	

()で示した値は年間測定日数の20%以上の欠測がある場合

地域区分 (P: 太平洋側, J: 日本海側, I: 瀬戸内海沿岸, E: 東シナ海沿岸, S: 南西諸島)

属性区分 (R: 田園地域, U: 都市地域)

51.9 $\mu\text{mol/l}$ (前橋), 加重平均は19.1 $\mu\text{mol/l}$ であり, 11年度の同平均15.9 $\mu\text{mol/l}$ に比べやや高濃度であった。顕著な季節変化は見られず, 地域別

の濃度レベルは南西諸島<東シナ海沿岸<太平洋側, 瀬戸内海, 日本海側の順に濃度が高かった。NO₃⁻/nss-SO₄²⁻(当量比)の年平均値範囲は

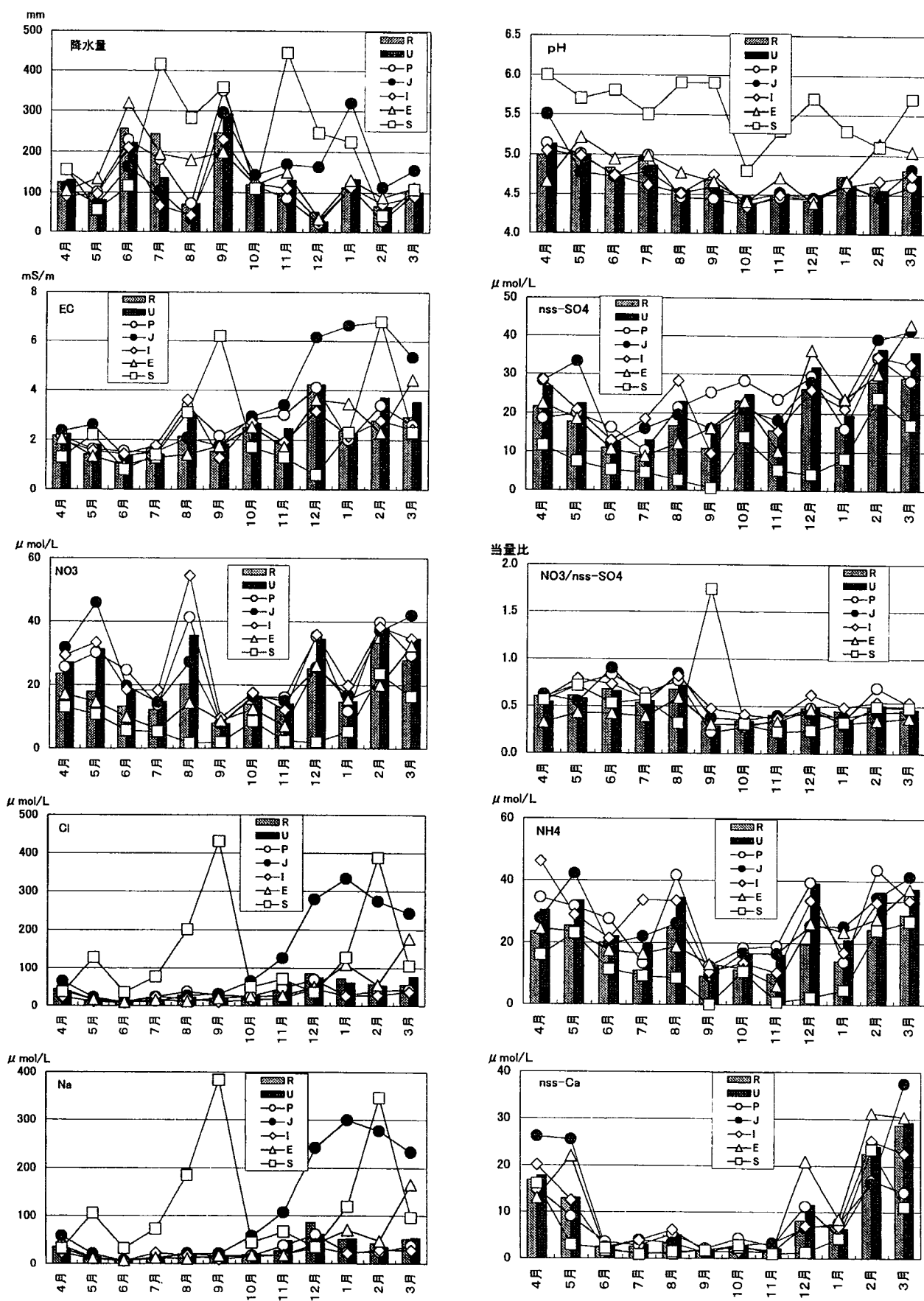


図 4.3 地域属性別イオン成分等の濃度推移

0.20(福井)~0.92(前橋), 平均は0.48であり, 11年度の同平均0.59に比べて小さかった。関東地方で大きいことも11年度と同じ傾向であった。季節変化では9月の大里を除き地域属性区分による違いは小さかった。また, 4~8月と9~3月を比べると明らかに9月以降が小さい値になっていた。ここでも9月以降の三宅島噴火の影響が垣間見られる。

年平均 Cl^- 濃度の範囲は $11.7\mu\text{mol/l}$ (大津)~ $197.5\mu\text{mol/l}$ (鳥取), 加重平均は $60.8\mu\text{mol/l}$ であり, 11年度の同平均 $67.5\mu\text{mol/l}$ に比べてやや低かった。最大値の鳥取は年平均 Na^+ 濃度も最大であった。季節変化では, 南西諸島では9月と2月に著しく高く, 日本海側では5~9月に低く11~3月にかけて高い暖低寒高の傾向が見られた。東シナ海沿岸では1~3月にやや高く他の月は低く, 太平洋側と瀬戸内海沿岸ではいずれも低めであった。

年平均 NH_4^+ 濃度の範囲は $6.7\mu\text{mol/l}$ (宮崎)~ $78.5\mu\text{mol/l}$ (前橋), 加重平均は $22.2\mu\text{mol/l}$ であり, 11年度の同平均 $21.2\mu\text{mol/l}$ とほぼ同レベルであった。季節変化では9~11月に低い傾向が見られた。

年平均 Na^+ 濃度の範囲は $8.0\mu\text{mol/l}$ (奈良)~ $179.6\mu\text{mol/l}$ (鳥取), 加重平均は $51.9\mu\text{mol/l}$ であり, 11年度の同平均 $57.3\mu\text{mol/l}$ に比べてやや低かった。季節変化は先に述べた Cl^- 濃度とほぼ同じ傾向であった。

年平均 nss-Ca^{2+} 濃度の範囲は $1.9\mu\text{mol/l}$ (宮崎)~ $22.3\mu\text{mol/l}$ (福井), 加重平均は $7.7\mu\text{mol/l}$ であり, 11年度の同平均 $6.7\mu\text{mol/l}$ に比べてやや高かった。季節変化では, いずれの地域もよく似た推移を示し, 6~11月に低く12~3月にかけて高い明瞭な暖低寒高の傾向が見られた。これは降水量の少ない時期に黄砂飛来時期が重なったことも一因ではないか。

属性区分として田園(R)と都市(U)に分けたが, nss-SO_4^{2-} , NO_3^- , NH_4^+ では常に都市の方が田園より高い傾向が見られたが, 他のイオン種では両者の違いは小さかった。

次に, 地域および属性区分ごとのイオン組成をみるため, 各区分の中央値を当量濃度($\mu\text{eq/l}$)で示すと図4.4のとおりである。各区分ともイオンバランスはよく取れている。日本海側と南西諸島はいずれも合計イオン濃度が高く(438と $357\mu\text{eq/l}$), Na^+ と Cl^- が組成の半分以上を占めており, 海塩粒子の影響を強く受けていることがわかる。太平洋側, 東シナ海沿岸および瀬戸内海沿岸の合計イオン濃度は同レベル(199, 186および $172\mu\text{eq/l}$)であり, 東シナ海沿岸でやや海塩組成が高いことを除きおおむね似た組成であった。属性区分では都市の合計イオン濃度は田園より高く(213および $178\mu\text{eq/l}$), おおむねよく似た組成をしていた。

4.3 イオン成分湿性沈着量

降水は大気中の成分を地表面へ効率よく輸送する。輸送量は湿性沈着量として, 成分濃度と降水

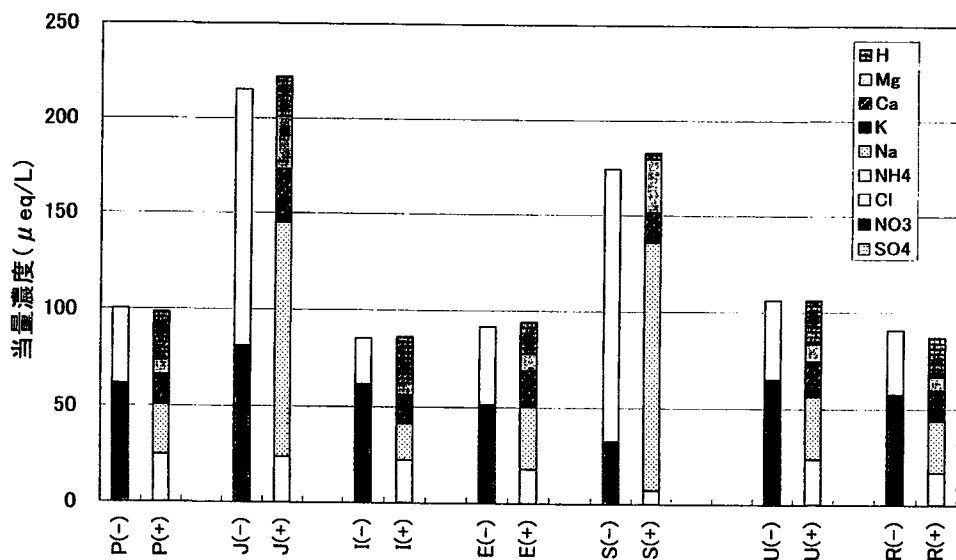


図 4.4 地域および属性別のイオン組成比較

量の積により評価される。ここでは湿性沈着量の空間分布を明らかにするために、各地点の年間値や月間値を用いて地点間および地域間の比較を

行った。時間代表性を確保するために、年間値と月間値の算出はそれぞれの対象期間に対して80%以上の捕集が行われた地点を対象とした。このた

表 4.3 年降水量と湿性沈着量年間値

No.	地点名	Rainfall mm·year ⁻¹	m mol·m ⁻² ·year ⁻¹											地域	属性
			SO ₄ ²⁻	nss-SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	H ⁺	NH ₄ ⁺	Na ⁺	K ⁺	Ca ²⁺	nss-Ca ²⁺	Mg ²⁺		
1	札幌北	1284	27.6	21.6	16.2	119.3	32.3	30.7	98.9	3.8	6.5	4.4	11.2	J	U
2	札幌白石	1042	23.9	20.7	13.5	65.8	21.2	25.3	53.3	1.9	5.8	4.6	7.2	J	U
5	盛岡	1230	26.5	23.9	22.1	53.5	27.7	29.8	43.6	1.9	11.0	10.0	5.8	P	U
6	丸森	1364	20.8	18.6	21.8	41.6	24.3	18.0	35.7	1.5	6.4	5.6	5.0	P	R
7	新潟	1637	52.6	37.8	38.3	278.5	34.3	50.1	244.7	8.0	18.0	12.7	27.1	J	U
8	河内	1652	38.2	37.0	48.9	27.2	52.2	57.9	20.6	3.5	11.8	11.4	3.6	P	U
9	水戸	1312	26.7	25.1	29.8	29.7	33.2	30.1	25.4	1.3	7.1	6.5	3.0	P	U
10	前橋	1392	40.1	39.1	72.3	24.1	28.7	109.3	16.8	4.8	12.0	11.6	5.5	P	U
11	駒西	1616	37.2	36.1	66.7	31.2	60.9	66.5	18.4	2.2	13.5	13.1	3.1	P	R
12	市原	1433	44.1	41.9	32.3	61.8	36.5	43.1	36.3	2.7	18.0	17.2	6.3	P	U
13	勝浦	2230	48.2	38.1	23.5	211.2	65.6	25.0	167.6	4.8	15.1	11.4	20.9	P	R
14	土気	1437	30.7	28.1	17.3	63.9	30.0	37.8	44.0	7.0	5.8	4.9	6.8	P	U
15	江東	1403	42.4	39.3	45.2	64.0	33.4	59.4	51.5	3.0	20.9	19.7	4.9	P	U
16	平塚	1511	36.6	33.5	23.1	85.8	50.8	38.2	50.9	2.1	10.5	9.4	6.3	P	U
17	磯子	1720	43.2	40.5	36.9	90.5	61.5	63.2	44.3	1.5	8.9	8.0	5.3	P	U
18	静岡	2352	51.5	49.1	43.1	67.9	74.9	24.8	38.8	2.4	20.8	19.9	6.5	P	U
19	小杉	1958	58.6	45.4	42.6	262.3	32.5	49.2	219.0	8.1	28.6	23.8	28.9	J	R
20	金沢	2337	68.5	50.1	48.8	330.5	58.5	45.9	304.6	9.0	27.1	20.5	32.9	J	U
21	鳥越	2601	73.9	54.9	51.8	344.8	55.7	50.4	315.6	10.8	30.6	23.7	35.5	J	R
22	福井	1909	125.5	110.8	44.3	271.9	70.2	51.5	243.1	7.7	47.9	42.5	63.4	J	U
23	伊自良	2757	56.2	53.1	65.3	59.3	84.9	65.0	52.6	8.7	18.1	16.9	8.0	P	R
24	豊橋	1626	29.3	26.0	25.0	65.2	34.4	26.5	54.2	3.2	10.1	8.9	7.0	P	U
25	四日市	1991	98.9	96.2	38.5	47.8	61.3	61.4	45.0	4.8	30.2	29.2	16.0	P	U
26	緑	1909	29.6	28.6	30.9	24.3	35.0	29.2	15.5	1.5	7.4	7.0	3.2	P	U
27	大津	1626	34.1	33.1	35.8	19.0	38.2	38.7	16.6	1.7	9.6	9.2	3.1	I	U
29	池田	1554	23.3	22.3	31.4	21.1	38.4	24.1	17.2	0.9	8.9	8.5	2.8	I	U
30	奈良	1375	24.8	24.1	33.3	22.1	22.8	31.0	11.0	1.4	9.4	9.1	2.6	I	U
31	印南	1829	24.7	21.6	22.6	66.7	34.1	16.5	51.6	2.4	7.4	6.3	6.2	P	R
32	神戸須磨	1042	21.5	20.2	20.2	28.3	21.5	23.5	22.6	1.0	8.8	8.3	3.7	I	U
33	鳥取	1805	68.2	48.6	49.0	356.4	42.5	43.1	324.2	10.3	28.5	21.4	39.8	J	U
34	松江	1453	43.3	34.0	36.1	175.3	31.1	30.9	153.3	7.6	18.7	15.4	19.3	J	U
35	倉橋島	1016	19.4	18.4	19.7	21.1	25.9	23.7	16.6	2.6	5.6	5.2	2.8	I	R
36	広島安佐南	1584	40.9	37.1	39.5	62.8	41.1	35.5	62.7	3.6	20.0	18.6	8.2	I	U
38	山口	1571	36.4	33.3	33.2	54.4	36.4	33.1	51.2	5.4	17.2	16.0	6.8	I	U
39	大宰府	1511	36.3	33.4	26.8	62.1	30.7	39.6	48.9	4.6	16.6	15.5	7.1	E	U
40	福岡	2127	44.2	39.7	35.3	86.2	42.3	47.3	74.4	5.2	17.2	15.6	9.5	E	U
41	佐賀	1761	31.6	29.1	24.9	43.2	31.5	31.7	41.2	2.5	13.4	12.5	5.1	E	U
42	式見	1576	29.4	24.2	19.3	92.7	21.8	20.8	86.0	3.0	14.2	12.3	10.9	E	R
43	人吉	1925	33.9	31.2	20.3	58.7	31.4	32.2	44.9	2.5	13.8	12.8	6.2	E	U
44	阿蘇	2002	52.0	49.7	30.3	43.0	29.7	59.2	37.8	5.6	26.6	25.8	7.3	E	R
46	宮崎	3324	50.5	40.4	32.0	166.4	55.2	22.1	166.5	4.4	9.9	6.2	17.5	P	U
47	喜入	2253	33.1	26.4	21.0	135.0	32.7	27.2	110.9	6.3	10.8	8.4	14.2	E	R
48	大里	2557	35.2	15.3	13.2	362.2	8.7	18.5	329.3	8.6	15.1	7.9	36.2	S	U
	最高値	3324	125.5	110.8	72.3	362.2	84.9	109.3	329.3	10.8	47.9	42.5	63.4		
	最低値	1016	19.4	15.3	13.2	19.0	8.7	16.5	11.0	0.9	5.6	4.4	2.6		
	平均値	1758	42.2	36.7	33.5	107.0	39.9	39.2	90.9	4.3	15.4	13.4	12.4		
	標準偏差	483	20.7	18.2	14.1	103.1	16.3	17.9	94.9	2.8	8.8	7.7	12.9		
	相対標準偏差(%)	27.5	49.0	49.5	41.9	96.4	40.9	45.7	104.4	64.0	56.8	57.6	104.3		

地域区分: P:太平洋側, J:日本海側, I:瀬戸内海沿岸, E:東シナ海沿岸, S:南西諸島

属性区分: U:アーバン, R:ルーラル

二重線:Max, 実線:Min, 破線:平均値に最も近い値

め年間値については捕集が行われた48地点の内、5地点(名川, 八森, 周山, 香北, 大分)を、月間値については延べ579月の内、42月を解析対象から除いた。地域区分と属性区分は前節と同様である。

4.3.1 年間沈着量の全地点平均値と地域的特徴

表 4.3 に年降水量と年間沈着量を示した。年降水量の全地点平均値は1,758mm/年で平成11年度(1,668mm/年)よりやや多かった。最高値は11年度と同様に宮崎(3,324mm/年)で記録されている。

降水を酸性化した物質の指標となる成分(以下、酸性成分という)である nss-SO₄²⁻ と NO₃⁻ 沈着量の平均値は、それぞれ36.7, 33.5mmol・m⁻²・year⁻¹で、nss-SO₄²⁻ は福井と四日市で非常に高く、大里で最低値を示した。NO₃⁻ は前橋で最高値を、大里で最低値を示した。降水の酸性化を抑制する物質の指標と思われる成分(以下、塩基性成分という)である NH₄⁺ と nss-Ca²⁺ の沈着量の平均値は、それぞれ39.2, 13.4mmol・m⁻²・year⁻¹を示した。NH₄⁺ は前橋で非常に高く、印南で最低値を示した。nss-Ca²⁺ は福井で非常に高く、札幌の2地点で低い値を示した。降水の酸性度(pH)は、これらの前駆物質である酸と塩基のバランスで決定される。pH から計算される H⁺ の沈着量は、平均値が39.9mmol・m⁻²・year⁻¹で、伊自良で最高値を、大里で最低値を示した。

これら降水の酸性化に直接関係する5成分の沈着量の相対標準偏差は40~60%の範囲にあり、海塩由来成分に比較して地点差が小さい。分布はほぼ正規分布に近い型を示すが、なかには高い側に極端に外れた地点もみられる。これらの原因は明

らかでないが、ここでは成分間の分布の違いや地域間の平均値の比較を行ううえで、これらの値(正規分布確率の上側0.25%)を異常値として除いた。異常値を除いた分布を正規分布とみなし、降水量および各成分の平均値と標準偏差からパーセントイル値を求め図 4.5 に示した。nss-Ca²⁺ は他の4成分に比較して沈着量が少なく、分布幅も狭い。nss-SO₄²⁻ と NO₃⁻ はほぼ同様の範囲に分布し、両成分の沈着量はともにおおむね30±15mmol・m⁻²・year⁻¹の範囲にあるといえる。H⁺ と NH₄⁺ はこれらに比べ高い沈着量側にやや広い範囲で分布している。11年度と比較すると nss-SO₄²⁻ と H⁺ の分布が高い沈着量の側にシフトしており、後述

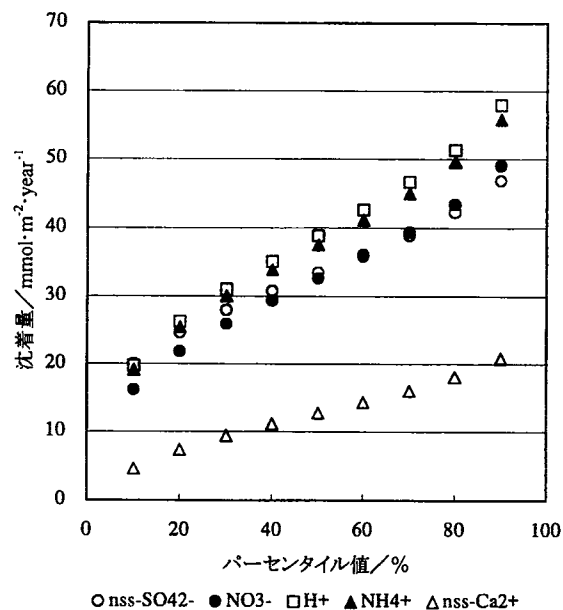


図 4.5 年沈着量の分布

表 4.3 のデータから前橋の NO₃⁻, NH₄⁺, 福井の nss-SO₄²⁻, nss-Ca²⁺, 伊自良の H⁺, 四日市の nss-SO₄²⁻ を除いて計算

表 4.4 年降水量と湿性沈着量年間値の地域別平均値

地域	地点数	項目	Rainfall	SO ₄ ²⁻	nss-SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	H ⁺	NH ₄ ⁺	Na ⁺	K ⁺	Ca ²⁺	nss-Ca ²⁺	Mg ²⁺
			mm・year ⁻¹	mmol・m ⁻² ・year ⁻¹										
太平洋側	19	平均値	1794.1	37.6	34.4	34.7	67.5	44.4	39.7	51.5	3.4	12.9	11.7	7.4
		標準偏差	542.5	10.3	9.4	14.4	47.6	15.7	17.7	42.7	2.0	6.3	6.3	5.0
日本海側	9	平均値	1780.6	52.1	39.1	37.8	245.0	42.0	41.9	217.4	7.5	20.5	15.8	25.2
		標準偏差	493.8	19.0	12.9	14.0	102.8	16.0	10.2	96.9	2.9	10.0	8.0	11.6
瀬戸内海沿岸	7	平均値	1395.5	28.6	26.9	30.4	32.7	32.1	29.9	28.3	2.4	11.3	10.7	4.3
		標準偏差	262.5	8.4	7.4	7.6	18.1	8.3	6.3	20.2	1.6	5.2	4.8	2.3
東シナ海沿岸	7	平均値	1879.3	37.2	33.4	25.4	74.4	31.4	36.9	63.4	4.3	16.1	14.7	8.6
		標準偏差	276.8	8.0	8.8	5.9	32.9	6.0	13.0	27.7	1.6	5.1	5.5	3.1
南西諸島	1	平均値	2557.4	35.2	15.3	13.2	362.2	8.7	18.5	329.3	8.6	15.1	7.9	36.2
全国	43	平均値	1758.0	38.8	33.4	32.6	107.0	38.8	37.6	90.9	4.3	14.7	12.7	11.2
		標準偏差	483.4	13.5	10.5	12.8	103.1	14.9	14.4	94.9	2.8	7.2	6.3	10.3

表 4.3 のデータから、前橋の NO₃⁻, NH₄⁺, 福井の SO₄²⁻, nss-SO₄²⁻, Ca²⁺, nss-Ca²⁺, Mg²⁺, 伊自良の H⁺, 四日市の SO₄²⁻, nss-SO₄²⁻ を除いて算出。

するように三宅島の影響を受けた2000年度の特徴が現われていると考えられる。同様のデータを用いて表4.3の区分に従い、降水量およびイオン成分沈着量の地域別平均値を求め表4.4に示した。降水量は南西諸島で多く瀬戸内海沿岸で少ない。酸性成分である $nss-SO_4^{2-}$ 沈着量は日本海側でもっとも多く、次いで太平洋側、東シナ海沿岸が多い。11年度と比較して太平洋側の平均値が約80%増加していることが特徴的である。同地域の降水量も11年度より10%程度多いが、これで沈着量の増加は説明できない。 NO_3^- は日本海側と太

平洋側が多い。塩基性成分では NH_4^+ が日本海側と太平洋側で多く、 $nss-Ca^{2+}$ は日本海側と東シナ海沿岸で多かった。また、 H^+ 沈着量は太平洋側と日本海側で多かった。南西諸島はこれら5成分の沈着量をもっとも少なかった。

太平洋側地域での $nss-SO_4^{2-}$ と H^+ 沈着量の増加を地点別に確認するため、地点別年間沈着量について、1999年度と2000年度を比較した(図4.6)。 NO_3^- についても合わせて示した。 NO_3^- は沈着量比が降水量比にほぼ依存しているのに対し、 $nss-SO_4^{2-}$ と H^+ は東北から東海に至る太平洋側で広

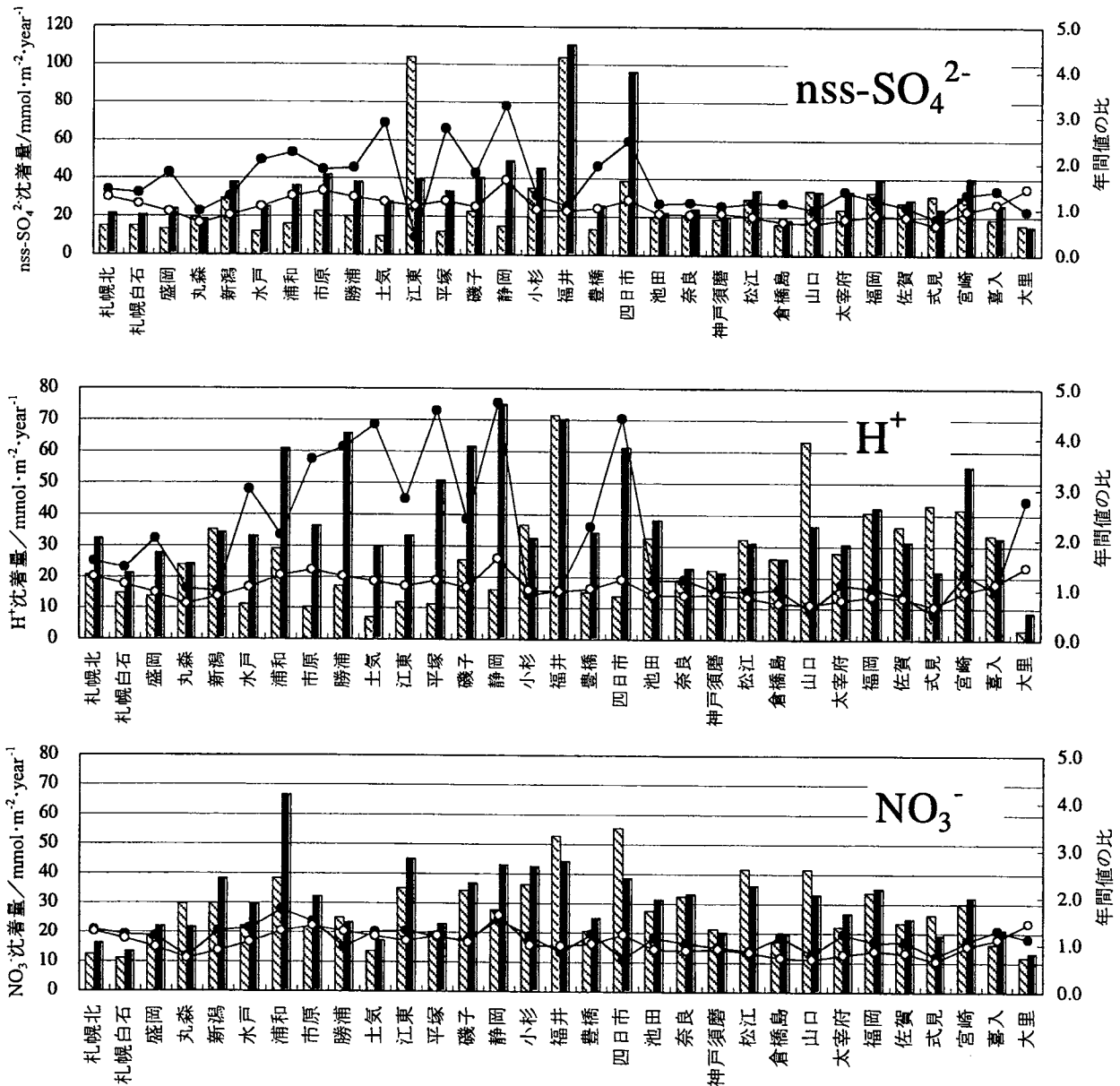


図4.6 年間沈着量の比較

範囲に沈着量が増加している。とくに土気、平塚、静岡では nss-SO_4^{2-} 沈着量が3倍程度増加し、 H^+ 沈着量は4倍以上増加している。これらが同時に増加したことは、大気中あるいは降水中で生成した硫酸が、中和されることなく、あるいは中和の程度が非常に低いままに地表へ沈着した結果と考えられる。本モニタリングは週単位での降水捕集を原則としているために、流跡線解析など気象要素と関連づけた解析には不適である。しかし、火

山ガスの測定値¹⁾や大気測定局での SO_2 ガスのモニタリングデータ²⁾から判断して、この増加は三宅島の火山活動の影響を受けていると推測される。

4.3.2 沈着量の季節変動

図4.7に降水量および主要5成分の地域別季節変動を示した。降水量は各地域がともに6月と9月にピークを持つ変動を示した。このうち太平洋側、日本海側および瀬戸内海沿岸はいずれも9月

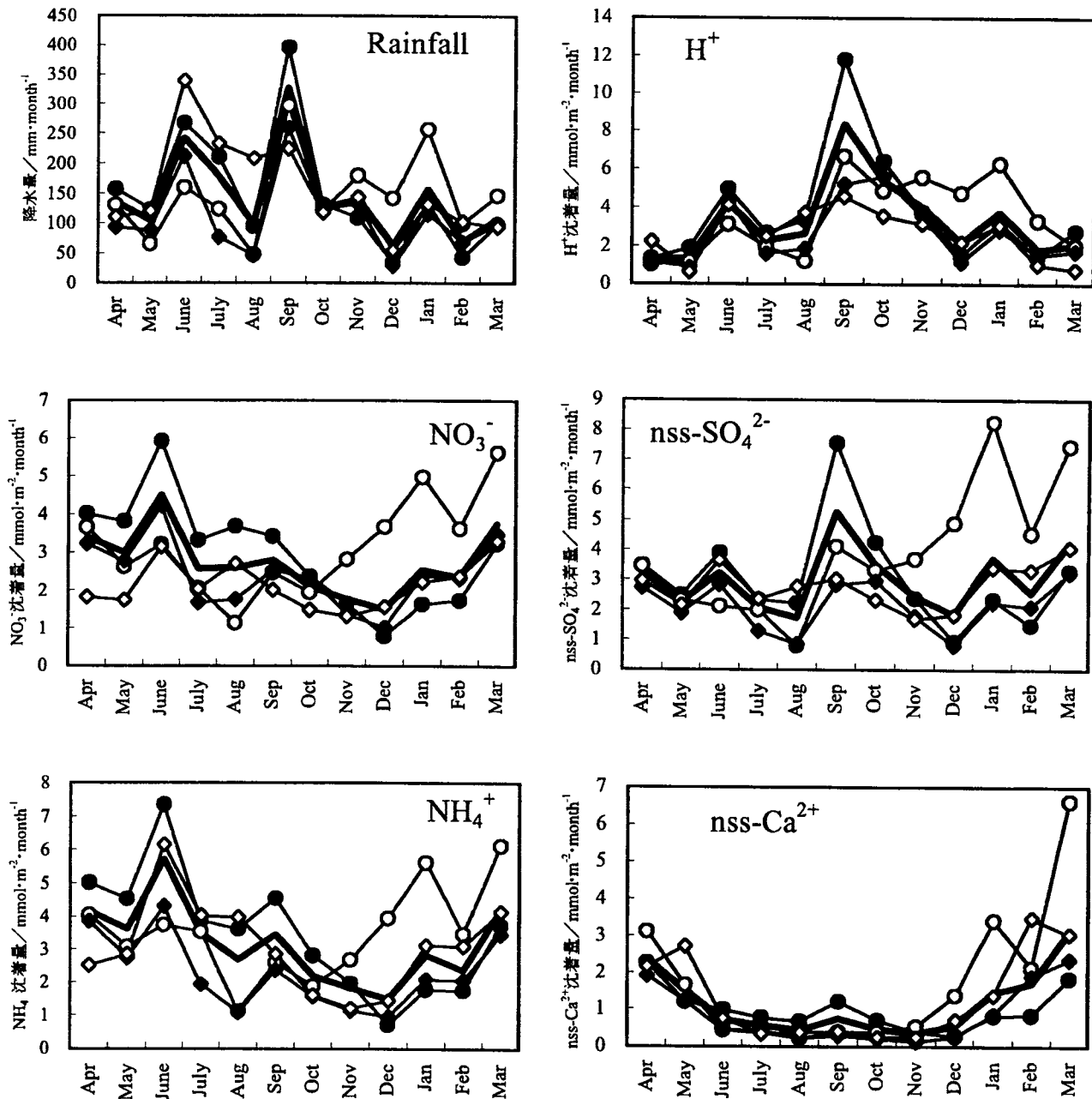


図4.7 降水量と沈着量の季節変動

●：太平洋側，○：日本海側，◆：瀬戸内海沿岸，◇：東シナ海沿岸，太線：全国

が最高値を示し、とくに太平洋側では400mmを超えているのが特徴的である。また、日本海側では例年と同様に冬季の降水量が他地域に比較して多い傾向にある。

塩基性成分である NH_4^+ の沈着量は、太平洋側では6月に最高値を示し、冬季に減少している。日本海側では冬季に沈着量が多い。同じく塩基性成分である nss-Ca^{2+} の沈着量は各地域ともに同様の季節変動を示し、夏季と秋季に少なく2月と3月に最大値がみられる。日本海側の3月のピークは非常に大きい。

酸性成分である NO_3^- 沈着量の季節変動は NH_4^+ に類似し、太平洋側と瀬戸内海沿岸では6月にピーク値を持ち、冬季に低い値を示すのに対し、日本海側では冬季の増加が顕著である。 nss-SO_4^{2-} 沈着量は、これまでと同様に冬季の日本海側での増加が顕著にみられる。これに対して太平洋側は9月に最大沈着量を示し、この値は同地域の年沈着量平均値の20%以上を占めている。 H^+ は nss-SO_4^{2-} から nss-Ca^{2+} を差し引いたような季節変動を示し、日本海側では冬季に増加し、太平洋側では9月に最大値を示す。

塩基性成分および NO_3^- 沈着量の季節変動に対する9月の降水量ピークの影響は、もっとも大きな降水量ピークがみられる太平洋側でも小さい。日本海側や瀬戸内海沿岸では、上記5成分すべてで9月の降水量ピークの影響はみられない。これらのことから、太平洋側で9月に nss-SO_4^{2-} と H^+ 沈着量が非常に多かった原因として、9月に降水量が多かったことに加えて、秋季に三宅島からの SO_2 ガスの供給量が多かったことが推測され、そのことが年沈着量の増加にも大きく寄与していると考えられる。

— 参 考 文 献 —

- 1) 風早康平：特別講演会「三宅島噴火と広域大気汚染」講演要旨集，pp. 17～25 (2001)
- 2) 岩瀬珠美：第17回酸性雨問題研究会シンポジウム「ネットワーク観測による首都圏における酸性雨の広域モニタリングの研究」，pp. 34～39 (2001)

4.4 湿性沈着に関するまとめ

全国48地点で降水時開放型装置を用い年間を通して、降水を捕集し成分濃度を測定した結果、以

下のことが明らかとなった。

- 1) 各機関から報告された月平均濃度の全データ ($n=552$)について、イオンバランス R_1 および電気伝導率バランス R_2 をみたところ、 R_1 の基準をオーバーしたのは66(12%)データであり、 R_2 の基準をオーバーしたのは21(4%)データであった。 R_1 および R_2 の検定で基準に満たなかった割合は、それぞれ前年の16%および8.6%から低下しており、平成12年度は11年度に比べて測定精度の改善がみられた。
- 2) 測定期間が80%以上確保された機関のデータについて解析を行った。年降水量は1,016～3,324mm/年の範囲にあり、平均値は1,758mm/年で、11年度(1,668mm/年)よりやや多かった。また、8月は南西諸島から東シナ海沿岸を除く地域で、12月も日本海側および南西諸島を除く地域で降水は少なかった。
- 3) pHは4.42～5.47の範囲にあり、全地点加重平均は4.64で、11年度の4.78より低下した。また月変化は4月～7月にかけて高く、8月～12月にかけて低下するパターンであった。南西諸島は10月を除き5以上で変化した。11年度の「全体的に4月から翌1月にかけて低下する月変化」とは異なった。
- 4) nss-SO_4^{2-} と NO_3^- (酸性成分)の濃度および沈着量は、平均値で20.9, 19.1 $\mu\text{mol/l}$ (加重)および36.7, 33.5 $\text{mmol} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{year}^{-1}$ を示し、いずれも11年度より上昇した。冬季と8月の降水量の少なかった地域では、両成分の濃度は高くなった。 nss-SO_4^{2-} 沈着量については前年同様冬季日本海側地点で上昇がみられたが、とくに太平洋側と日本海側地域では9月の上昇がめだだった。
- 5) NH_4^+ と nss-Ca^{2+} (塩基成分)の濃度と沈着量は、平均値で22.2, 7.7 $\mu\text{mol/l}$ (加重)および39.2, 13.4 $\text{mmol} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{year}^{-1}$ を示し、いずれも11年度と同程度であった。
- 6) $\text{NO}_3^-/\text{nss-SO}_4^{2-}$ 当量比の月変化は6月～8月にかけてやや高めの0.7～0.8であったが、9月には南西諸島を除く地域では0.5以下に下がり、その後徐々に上昇した。とくに太平洋側地点における低下がめだだった。これは4)とも合わせ、三宅島からの SO_2 移流による影響と考えら

れた。

- 7) 各地点を属性区分として、田園(R)と都市(U)に分けて濃度を比較したが、 nss-SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 NH_4^+ では常に都市の方が田園より高い傾向がみられたが、他のイオン種では両者に大きな差は認められなかった。
- 8) 各地域の成分濃度(中央値)でイオン組成をみると、日本海側と南西諸島いずれの地域も合計イオン濃度が他の地域よりも高く、その半分以上を Na^+ と Cl^- が占め、海塩の影響を強く受けていた。

5. 乾性沈着

5.1 測定項目およびデータの精度(QA/QC)

乾性沈着について、主要成分の月別測定結果をまとめて付表2に示す。

5.1.1 データチェック

平成11年度調査の結果から、テフロン濾紙では多くの場合pHが5以上であり、イオン合計に H^+ に占める割合は小さいことから、カチオン合計に H^+ を加えなくてもイオンバランスがとれることがわかっている。12年度のテフロン濾紙について、各地点各月ごとの粒子状物質質量(μeq)のカチオン合計($\text{C}=\text{NH}_4^++\text{Na}^++\text{K}^++\text{Ca}^{2+}+\text{Mg}^{2+}$)とアニオン合計($\text{A}=\text{SO}_4^{2-}+\text{NO}_3^-+\text{Cl}^-$)の散布図をプロットしたところ、おおむね良好な1:1の相関関係が得られた(図5.1)。

各地点各月ごとの平均粒子状物質濃度($\mu\text{eq}/\text{m}^3$)の全データについて $R_1=(\text{C}-\text{A})/(\text{C}+\text{A})$ を計算し、その頻度分布を示した(図5.2)。 R_1 は ± 0.1

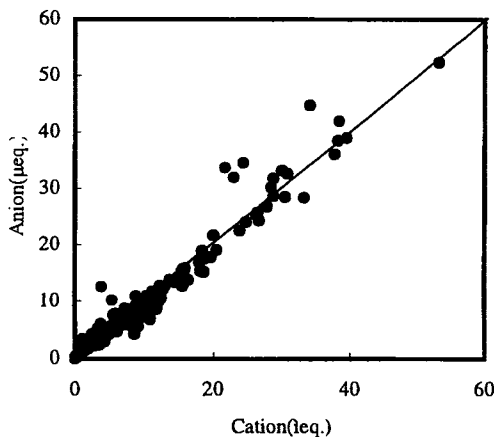


図 5.1 粒子状物質のカチオン合計とアニオン合計の比較

の範囲内に全データの82.8%が入り、また ± 0.3 を超えるのは1.7%であることから良好なデータ群であると考えられる。また、これらのデータを11年度と比べると11年度には R_1 は ± 0.1 の範囲内に8割近く、 ± 0.3 を超えるのは5%であったことから、同等かもしくはやや良好な結果であった。

5.1.2 欠測率の評価

乾性調査では全参加地点27で全測定期間を通じて、月単位の欠測率は6.8%(22/324)であった。月内に欠測週があるデータは5.6%(17/302)であった。また、これらのデータを平成11年度と比べると11年度には月単位の欠測率は16.3%、月内に欠測週があるデータは4.8%であったことから、月内に欠測週があるデータはほぼ同等、月単位の欠測率は大きく改善されたといえる。その理由は、本第3次調査は新しい手法による全国調査であることから、11年度には湿性調査と同様の4月当初からの参加に間に合わなかった機関があったが、12年度にはそれらの機関においても通年調査が行われたことによるものである。

5.1.3 フィルターバック法におけるブランク値

今年度は18機関における濾紙の前処理法、調整法、抽出法および濾紙ブランクなどについて情報収集した。

テフロン(F0)およびポリアミド(F1)濾紙については、1機関を除き他の17機関において無処理で使用していた。含浸濾紙であるF2とF3については、前洗浄として超純水洗浄をしているところと含浸液により洗浄している機関があり、乾燥法として乾燥機、デシケータ、何もしないところに分かれていた。濾紙の抽出法については4機関が超音波、14機関が振とう抽出であった。

フィルターバック法の濾紙ブランクをまとめた

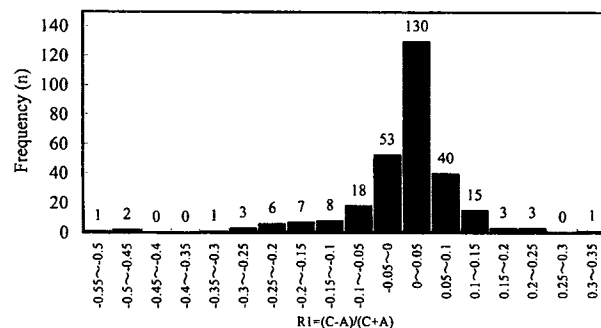


図 5.2 粒子状物質濃度の R_1 の頻度分布

表 5.1 フィルターバック法(4段濾紙法)の濾紙ブランク

フィルタ- 段	イオン 種	分析機関番号 (濾紙ブランク単位: n mol/sheet、n: 測定回数)																		AVE	STD	n
		1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17	18			
F ₀	SO ₄ ²⁻	0.4	8.6	0.3	1.8	3.2	3.8	4.2		3.1	24.4	9.6	0.0	0.0	18.7	8.3	0.0	0.0	0.0	5.1	7.1	17
	NO ₃ ⁻	0.2	22.8	6.5	3.0	2.6	11.5	5.2		2.1	29.4	14.3	0.0	0.0	38.7	32.3	0.0	12.9	0.0	10.7	12.7	17
	Cl ⁻	3.0	38.7	18.5	12.3	14.4	46.5	2.3		5.9	26.0	42.1	5.6	13.2	73.3	39.5	0.0	43.3	5.6	23.0	20.8	17
	NH ₄ ⁺	12.6	18.2	30.2	7.3	120.3	17.0	0.0		15.5	0.0	44.7	0.0	25.9	66.5	33.3	0.0	3.7	0.0	23.2	31.1	17
	Na ⁺	7.0	100.5	11.6	26.9	17.7	34.2	20.9		13.7	11.3	34.0	0.0	1.4	60.9	113.1	0.0	37.7	26.1	30.4	32.9	17
	K ⁺	1.9	2.9	1.1	19.9	5.0	15.7	3.1		0.5	0.0	37.5	0.0	0.0	30.7	5.1	0.0	15.3	2.6	8.3	11.6	17
	Ca ²⁺	0.2	1.5	0.5	9.1	1.7	22.3	18.6		4.7	0.0	8.1	0.0	8.2	0.0	34.3	0.0	1.6	7.4	7.0	9.7	17
	Mg ²⁺	0.0	0.8	0.0	8.3	0.2	5.8	0.0		0.0	0.0	2.7	0.0	0.0	0.0	8.2	0.0	2.7	0.0	1.7	2.9	17
	n		10	10	18	29	16-17	12	5		22	5	5	1	6	1	3	4	3	3		
F ₁	SO ₄ ²⁻	0.0	11.8	0.7	2.0	3.2	6.2	3.6		1.9	25.4	55.1	0.0	0.3	18.7	12.5	0.0	0.0	0.0	8.3	14.2	17
	NO ₃ ⁻	0.0	39.5	12.0	24.0	31.9	41.7	34.2		10.3	33.3	61.0	19.4	31.1	71.0	41.9	0.0	33.3	24.2	29.9	19.0	17
	Cl ⁻	5.3	139.2	52.0	95.4	185.5	164.9	106.4		62.5	20.3	125.5	112.8	155.1	186.2	95.9	79.0	171.1	248.2	118.0	64.0	17
	NH ₄ ⁺	11.1	31.5	30.8	8.2	148.4	21.3	0.0		12.3	0.0	26.2	0.0	35.2	88.7	33.3	0.0	3.7	0.0	26.5	38.5	17
	n		9	10	18	29	17	12	7		24	5	3	1	6	1	3	4	3	3		
F ₂	SO ₄ ²⁻	6.2	17.8	5.0	8.4	14.2	1.7	11.7		4.6	33.4	27.1	0.0	1.7	20.8	14.6	0.0	61.8	0.0	13.5	15.9	17
	NO ₃ ⁻	1.7	25.3	31.5	10.5	8.0	45.5	6.7		3.2	34.1	31.0	29.0	2.7	38.7	32.3	21.8	31.2	0.0	20.8	14.9	17
	Cl ⁻	7.6	52.8	42.6	22.0	475.2	26.3	18.1		75.0	107.5	41.5	50.8	59.2	265.2	406.2	26.8	56.4	0.0	102.0	141.3	17
	n		14	10	18	29	17	12	5		18	5	3	1	6	1	3	4	3	2		
F ₃	NH ₄ ⁺	24.7	26.5	53.3	7.2	236.3	63.0	19.4	64.5	120.6	113.3	615.3	33.3	98.2	110.9	99.8	61.0	1.8	49.9	99.9	140.2	18
n		16	10	18	27	17	12	4	10	8	5	3	1	6	1	3	4	3	4			

(表 5.1)。平成11年度とは異なり、とくに大きなブランクを示した機関はなかったためすべての機関について平均値と標準偏差を計算した。F₀は他の濾紙に比べすべての成分についてブランク値が小さかったが、Cl⁻、NH₄⁺、Na⁺でやや大きい値を示した。この傾向は11年度と同様であった。F₁はCl⁻でブランク値が大きかった。この傾向も11年度と同様であった。F₂についてはF₁と同レベルであったが、F₃についてはF₁よりも高い値を示していた。

図 5.3 に F₀ から F₃ の各濾紙におけるブランクと試料採取後の物質量の比較を示す。ブランクの物質量については18機関のデータを、試料採取後の物質量については機関 A(属性はアーバン)の通年の各週(52週分)のデータをそれぞれ用いた。

F₀については、平均値で見ればいずれの項目についても試料採取後の物質量はブランクの物質量の10倍以上あり、ブランクの物質量は十分に低いと考えられる。

F₁については、平均値で見ればCl⁻を除く項目については試料採取後の物質量はブランクの物質量の10倍以上あり、ブランクの物質量は十分に低いと考えられる。Cl⁻においては平均値で見ると試料採取後の物質量はブランクの物質量の約3.7倍であり、ブランクが高いことについては特定機

関の高い値により平均値が高くなったものではないことから、そのブランクの低減へ向けて今後検討を要する。

F₂については、その傾向はF₁と同様であり、SO₄²⁻およびNO₃⁻については問題ない(試料採取後の物質量はブランクの物質量のそれぞれ100倍および10倍以上)が、Cl⁻(試料採取後の物質量はブランクの物質量の2.1倍)についてはそのブランクの低減へ向けて今後検討を要する。

F₃については、平均値で見れば試料採取後の物質量はブランクの物質量の10倍以上あり、ブランクの物質量は十分に低いと考えられるが、いくつかの機関ではブランクが高くなっておりそれらの機関ではさらにブランクの低減が望まれる。

5.2 フィルターバック法による大気汚染物質濃度

本章ではフィルターバック法によって得られたガス成分(SO₂、HNO₃、HCl、NH₃)およびエアロゾル成分(SO₄²⁻、NO₃⁻、Cl⁻、NH₄⁺、Na⁺、Mg²⁺、K⁺、Ca²⁺)の空間的および時間的変動について報告する。なお、季節の平均値は4月、5月および3月を春期、6~8月を夏期、9~11月を秋期、12~2月を冬期として算出し、3カ月の内2カ月以上の結果が得られているものを有効値とした。また年平均値においては3つ以上の季節の結果が得られている場合を有効値とした。なお、解析にお

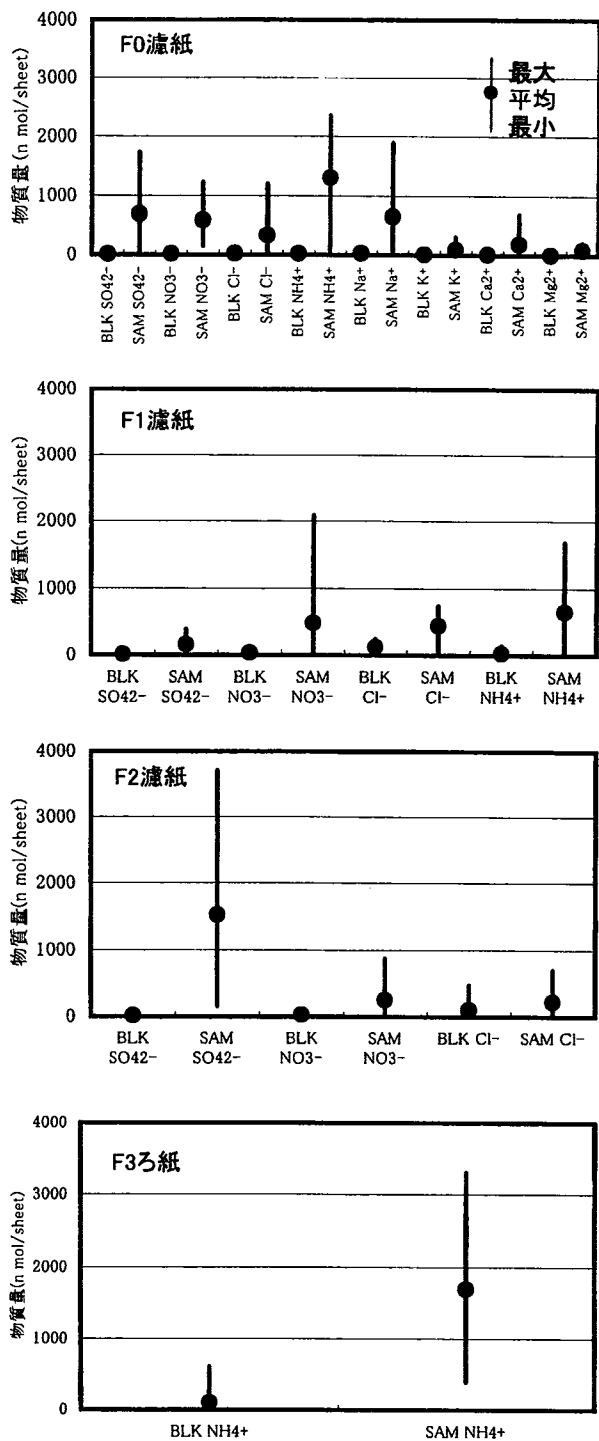


図 5.3 ブランクと試料採取後の物質量の比較
(BLK は濾紙ブランクを, SAM は試料採取後の濾紙を表わす)

いては吸引流量に異常値が認められた広島安佐南および石井のデータは除外している。

大気汚染物質濃度の全国平均値および中央値の経月変動を図 5.4 に、各地点の大気汚染物質濃度

の年平均値およびその範囲を図 5.5 および図 5.6 に示す。

5.2.1 ガス成分(SO₂, HNO₃, HCl, NH₃)

SO₂濃度の月最高値は江東(東京)で9月に記録された267nmol/m³で、月最低値は母子里(北海道)で9月に記録された2.1nmol/m³であった。年平均値では江東(東京)の156nmol/m³に次いで、神戸須磨などの地点で高かった。また全地点の濃度の平均値では9月、中央値は11月に高く、春～夏期に低かった。9月に濃度が高かったのは関東や東海で顕著であり、三宅島の噴火の影響が大きいと考えられた。一方、新潟を除く北海道東北地域や九州地域および山陰地域などでは、冬～春期の濃度が高く、大気の安定度の影響などが原因として考えられた。

なお、季節変動では関東・東海地域、北陸および関西地域などで9～10月に急激に濃度が増加しており、三宅島の噴火の影響があったと考えられた。

HNO₃濃度の月最高値は神戸須磨で7月に記録された108nmol/m³で、月最低値は母子里(北海道)で2月に記録された0.1nmol/m³であった。年平均値では奈良の37.3nmol/m³に次いで、神戸須磨および太宰府など西日本の地点で高く、北日本の地点では低かった。また全地点の濃度の平均値、中央値はいずれも7月に高く、1月に低かった。夏期に濃度が高かったのは日射量が多いことなどの影響が考えられた。また冬期に濃度が低かったのは気温が低くなるとアンモニウム塩などの粒子になりやすいことなどの影響が考えられた。

HCl 濃度の月最高値は喜入で3月に記録された102nmol/m³で、月最低値は香北で1月に記録された0.3nmol/m³であったが、月内に欠測がない場合の最低値は母子里(北海道)で1月に記録された2.5nmol/m³であった。年平均値では江東(東京)の58.0nmol/m³に次いで、磯子(横浜)、神戸須磨などの大都市の地点で高かった。また全地点の濃度の平均値、中央値は夏期に高く、冬期に低かった。夏期に濃度が高かったのは、アーティファクトの影響が考えられた。また冬期に濃度が低いのは粒子化しやすいことなどの影響が考えられた。なお、札幌における測定結果ではアーティファクトの影響に比べ、大気中におけるクロリンロスの

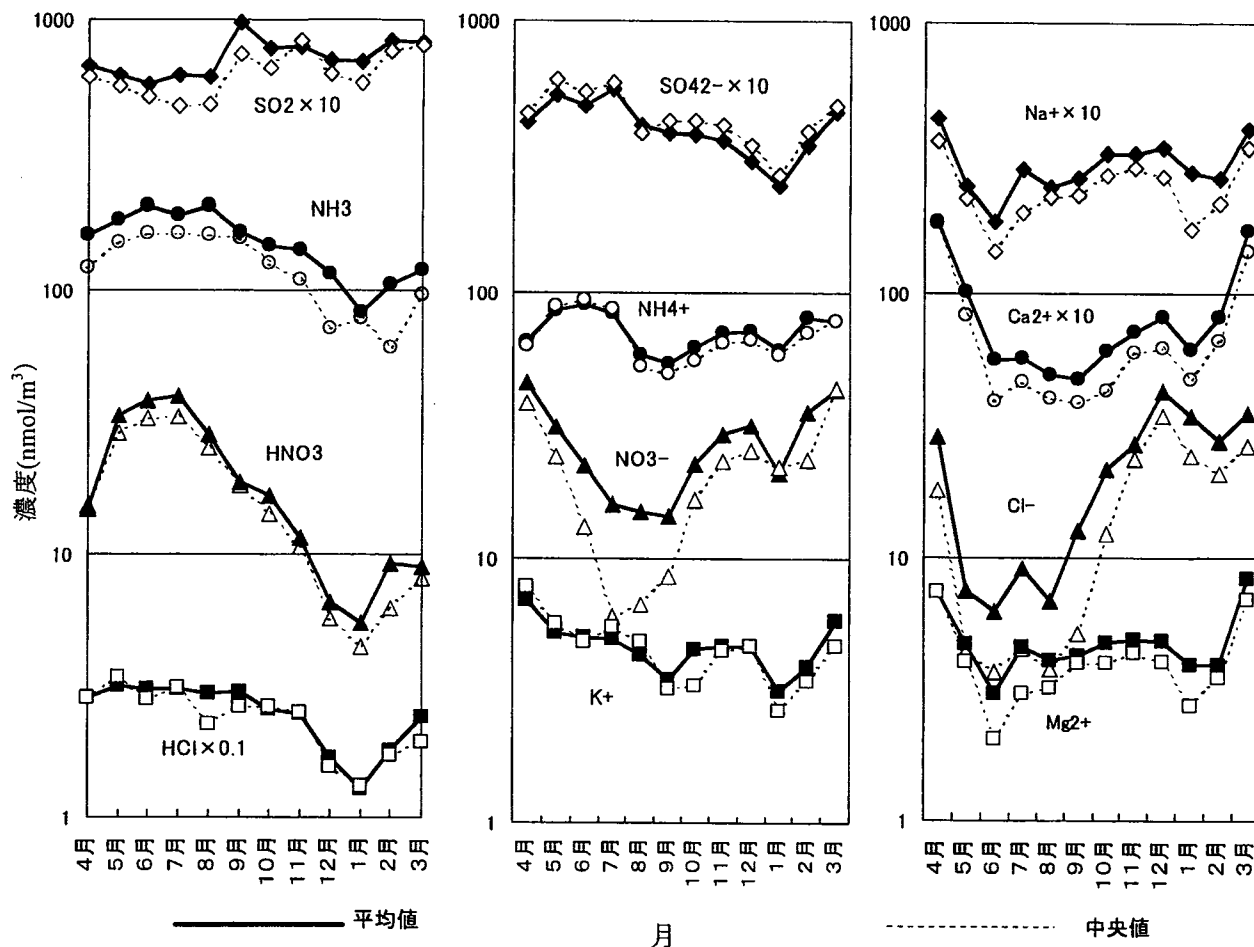


図 5.4 大気汚染物質濃度の全国平均値および中央値の経月変動

影響は無視できるほどであったが、他の地点ではクロロシロスの影響についても検討する必要がある。

NH₃濃度の月最高値は大阪生野で8月に記録された541nmol/m³で、月最低値は母子里(北海道)で12月に記録された14.8nmol/m³であった。なお、母子里(北海道)の6月はF₃が欠測であったことから除外している。年平均値では江東(東京)の352nmol/m³に次いで、大阪生野、豊橋などの都市部の地点で高かった。また全地点の濃度の平均値、中央値はHNO₃濃度と同様の挙動を示し、7月に高く、1月に低かった。冬期に濃度が低かったのは、土壌等からの発生量が少ないこと、粒子化しやすいことなどの影響が考えられた。

5.2.2 エアロゾル成分(SO₄²⁻, NO₃⁻, Cl⁻, NH₄⁺, Na⁺, Mg²⁺, K⁺, Ca²⁺)

SO₄²⁻濃度の月最高値は江東(東京)で8月に記録された113nmol/m³で、月最低値は小杉で12月

に記録された0.3nmol/m³であった。年平均値では江東(東京)の64.0nmol/m³に次いで、松江、神戸須磨および福井などの大都市部および日本海側の地点で高かった。また全地点の濃度の平均値、中央値は5月および7月に高く、1月に低かった。

NO₃⁻濃度の月最高値は江東(東京)で4月に記録された154nmol/m³で、月最低値は福岡で12月に記録されたNDであったが、月内に欠測がない場合の最低値は小杉で12月に記録された0.1nmol/m³であった。年平均値では江東(東京)の96.9nmol/m³に次いで、磯子(横浜)および豊橋など太平洋側の都市の地点で高かった。また全地点の濃度の平均値、中央値は3および4月に高く、7~9月に低かった。

Cl⁻濃度の月最高値は江東(東京)で12月に記録された182nmol/m³で、月最低値は大阪生野で6~8月に記録されたNDであった。年平均値では江東(東京)の83.6nmol/m³に次いで、松江、新潟

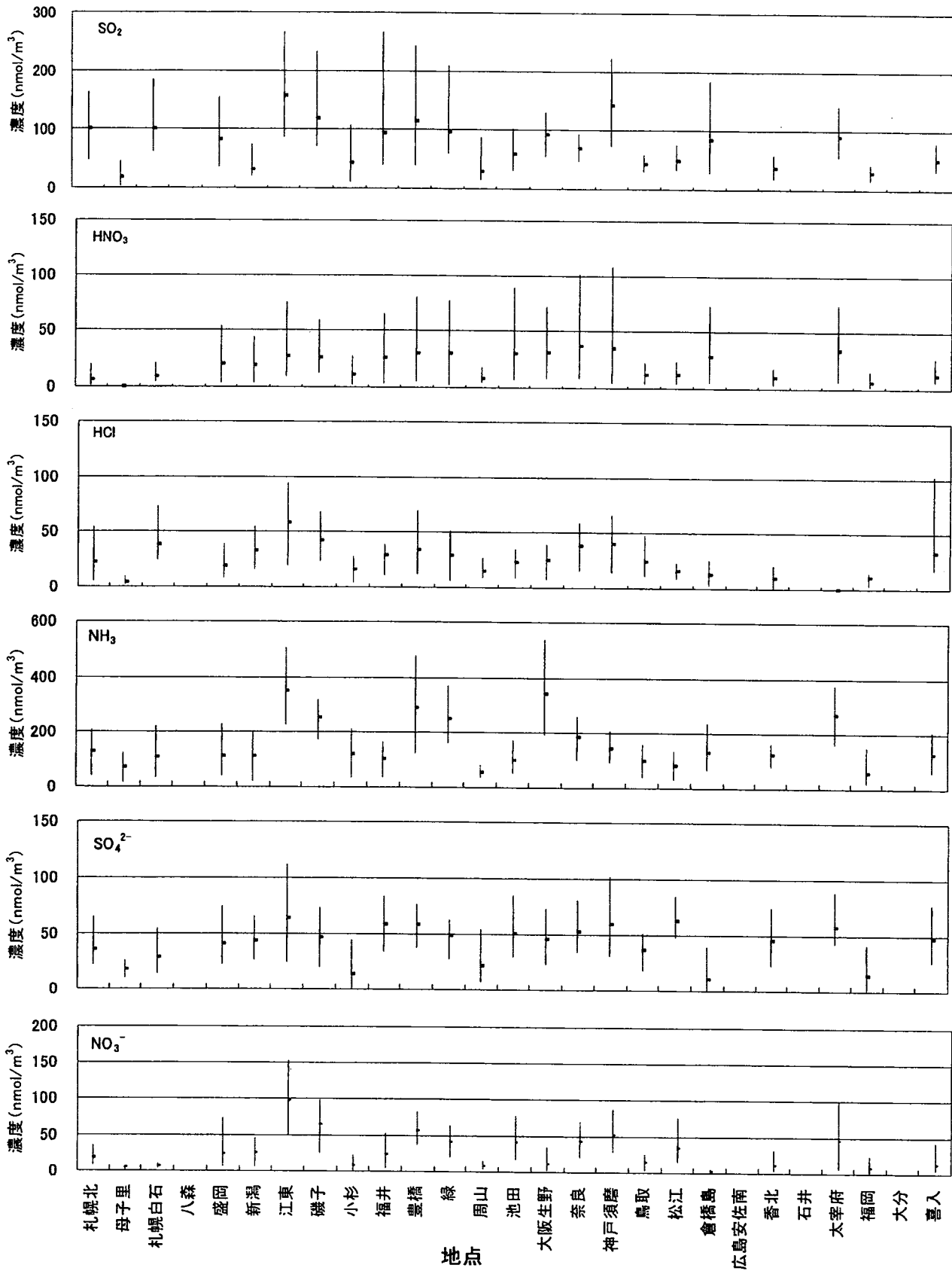


図 5.5 大気汚染物質濃度の年平均値およびその範囲(1)

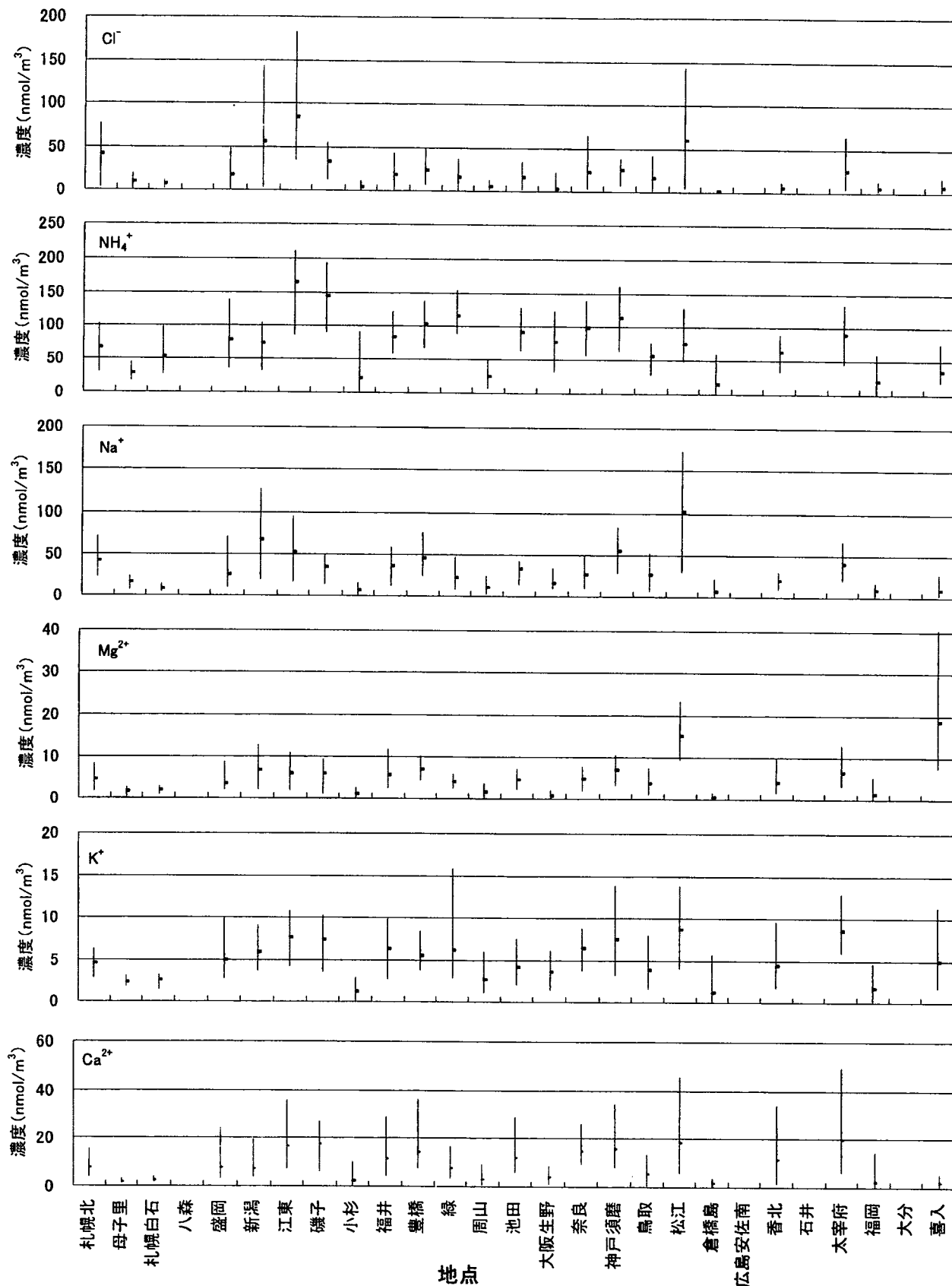


図 5.6 大気汚染物質濃度の年平均値およびその範囲(2)

および札幌北などで、江東(東京)以外は日本海側の地点であった。また全地点の濃度の平均値、中央値は12月に高く6~8月に低かった。Cl⁻の発生源としては海塩由来とHClガス由来などが考えられ、江東(東京)の10~1月などの場合はNa⁺濃度が低いことから後者の影響が考えられた。また、6~8月にCl⁻がNa⁺より濃度が低いのは前述したアーティファクトあるいはクロリンロスの影響が考えられた。

NH₄⁺濃度の月最高値は江東(東京)で6月に記録された211nmol/m³で、月最低値は小杉の12月および倉橋島で1月に記録された0.4nmol/m³であった。年平均値では江東(東京)の165nmol/m³に次いで、磯子(横浜)および神戸須磨などの都市部の地点で高かった。また全地点の濃度の平均値、中央値は5~7月に高く、9月に低かった。

Na⁺濃度の月最高値は松江で1月に記録された174nmol/m³で、月最低値は小杉の12月および倉橋島で5月に記録されたNDであった。年平均値では松江の102nmol/m³に次いで、新潟で高く、いずれも日本海側の地点であった。また全地点の濃度の平均値、中央値は3月および4月に高く、6月に低かった。Na⁺の発生源としては海塩由来と土壌由来が考えられたが、海岸部で濃度が高いことから主に海塩由来と考えられた。

Mg²⁺濃度の月最高値は喜入(沖縄)で3月に記録された40.6nmol/m³で、月最低値は大阪生野および倉橋島で1月に記録されたNDであった。年平均値では喜入(沖縄)の18.6nmol/m³に次いで、松江で高かった。また全地点の濃度の平均値、中央値は3月および4月に高かった。Mg²⁺の発生源としては海塩由来と土壌由来が考えられ、喜入(沖縄)ではNa⁺濃度およびCa²⁺濃度よりMg²⁺濃度が高く、海塩および土壌以外の発生源の影響が考えられた。

K⁺濃度の月最高値は緑(名古屋)で4月に記録された15.9nmol/m³で、月最低値は小杉の12月および倉橋島の1月に記録されたNDであった。年平均値では松江の8.7nmol/m³に次いで、太宰府で高かった。また全地点の濃度の平均値、中央値は4月に高く、1月に低かった。K⁺の発生源としては海塩、土壌および植物(花粉や種子)、乾燥した鳥のふんなどの影響が考えられる。また化石

燃料の燃焼などの人為発生源の影響も考えられ、その挙動を解析するに当たっては地点周辺の詳細な情報が必要である。

Ca²⁺濃度の月最高値は大宰府で3月に記録された49.7nmol/m³で、月最低値は小杉の12月、倉橋島の1~3月および福岡の12月に記録されたNDであった。年平均値では大宰府の19.6nmol/m³に次いで、松江で高かった。また全地点の濃度の平均値、中央値は3月および4月に高く、6~9月に低かった。Ca²⁺の発生源としては海塩由来や土壌由来が考えられるが、Na⁺濃度の挙動ともよく似ており、さらに検討が必要である。また、とくに黄砂の影響についても検討する必要がある。

平成12年度の測定地点では、海塩由来成分であるCl⁻、Na⁺およびMg²⁺を除いた成分は、都市域の測定地点における濃度が、田園地域(母子里、小杉、周山、倉橋島、香北および喜入)に比べて高い場合が多く、広域的状況を把握するには田園地域における測定地点を増やすことが必要であると考えられた。

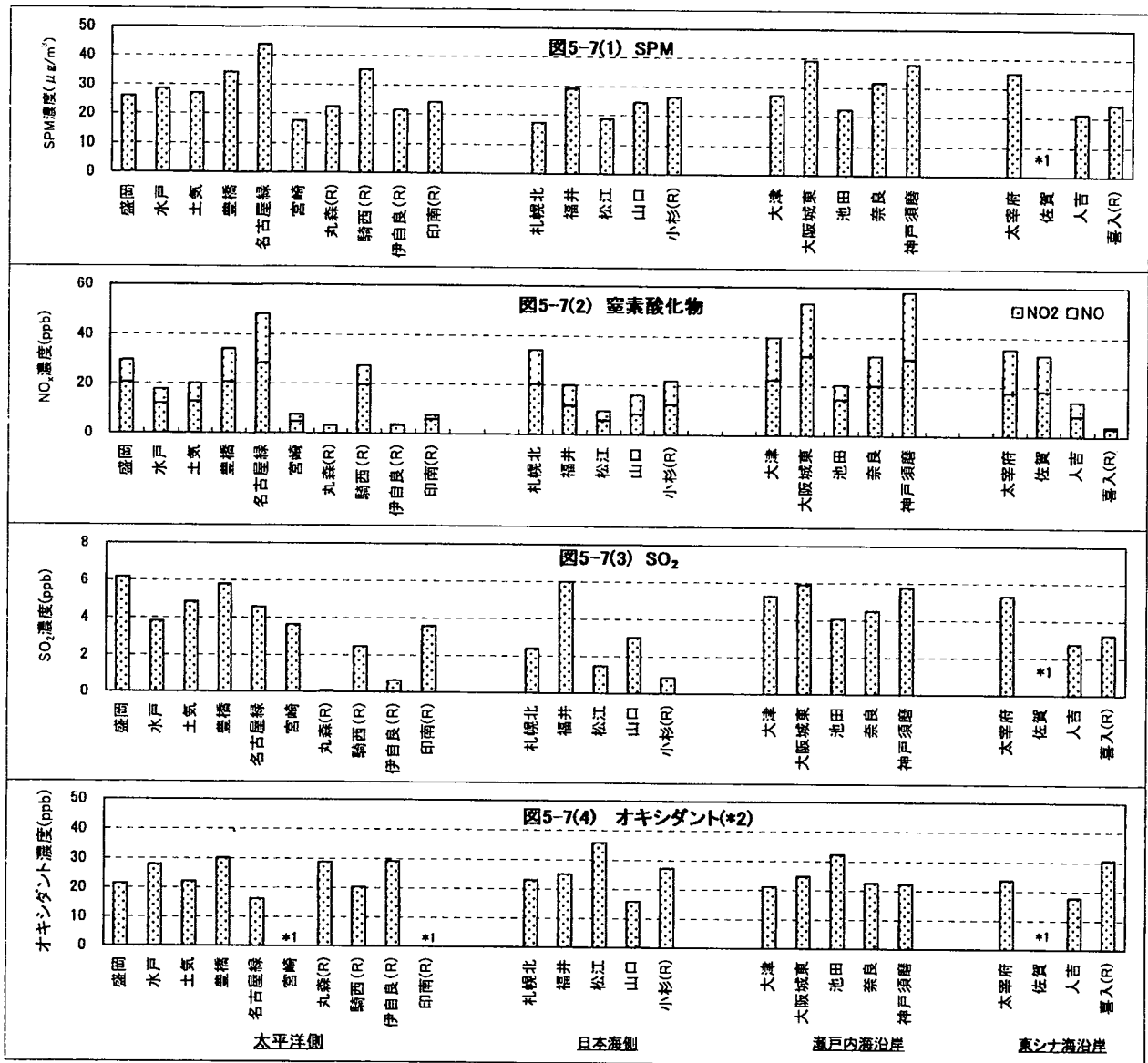
またSO₂濃度において三宅島噴火による影響と考えられる現象がみられたが、SO₄²⁻濃度においては、明らかな影響は判別できなかった。これは、時間分解能が低いために顕著な影響が検出できなかったものと考えられた。そこで、SO₂濃度において三宅島噴火による影響と思われる現象が観測された9月について地域ごとの週単位の平均値を算出し、解析することとした。解析結果については、第6章に示す。

5.3 自動測定機による大気汚染データ

各地方自治体に設置されている大気汚染測定局では、フィルターパック法による調査で測定していないオキシダント、窒素酸化物等の成分や気象条件などの項目をモニタリングしている。そこで、湿性(調査I)および乾性(調査II)と同じ場所に測定局がある地点のデータを本調査に合わせた月単位で収集した。ここではこれらのデータとの検討結果について述べる。

5.3.1 地点別の年平均濃度

地点別の大気汚染物質濃度を図5.7に示した。SPMは田園地点で20μg/m³程度の低い濃度である地点が多かったのに対し、東海、近畿および北九



(R): 田園地点 *1: 欠測 *2: 丸森、騎西、伊自良、大阪城東、奈良(8ヶ月)、松江、山口、太宰府は乾式によるオゾン濃度

図 5.7 地点別の大気汚染物質濃度(年平均値)

州の都市部計6地点では30μg/m³以上であった。都市部地点でも札幌北や松江、宮崎の3地点では20μg/m³以下と低濃度であった。窒素酸化物(NO_x)は田園地点の4地点で10ppb以下の非常に低い濃度であったほか、札幌北を除く日本海側の地点でも比較的低濃度であった。一方、近畿と東海の大都市地点では45ppb以上の高い濃度であった。SO₂は全般的にかなり低い濃度レベルであったが、5ppbを上回った地点数は7地点あり、平成11年度より多くなった。オキシダントは地点間の濃度差が小さかったが、都市部の松江、池田、豊

橋と田園地点である喜入の計4地点では30ppb以上と比較的高い濃度であった。

11年度濃度レベルと比較すると、全般的に各地点ともSPM、NO_x、SO₂ではやや高め、オキシダントではやや低めの傾向であった。

5.3.2 経月変化

大気汚染物質濃度の経月変化の代表例を図5.8に示した。

SPMは名古屋緑と大阪城東で5~6月と11~12月に高くなったのに対し、盛岡と小杉では夏季に高く、また松江と山口では春季に高くなったも

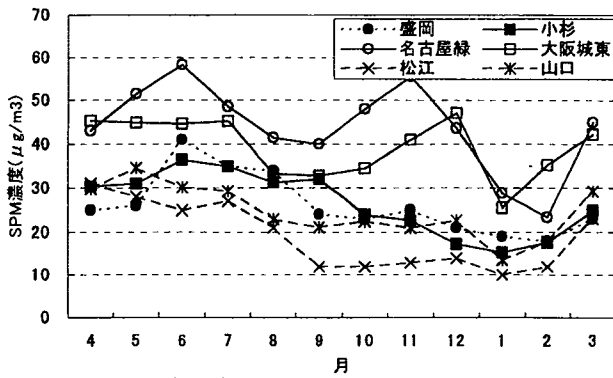


図5-8(1) SPMの経月変化

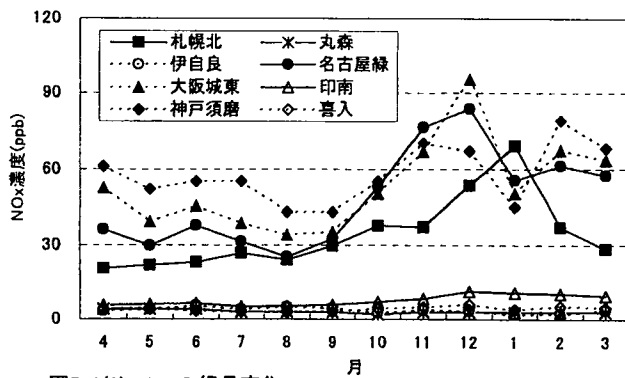


図5-8(2) NOxの経月変化

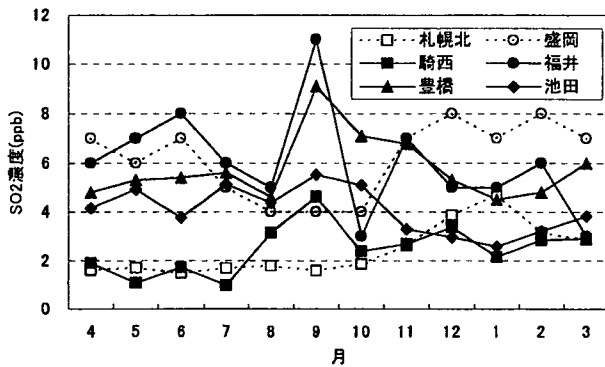


図5-8(3) SO2の経月変化

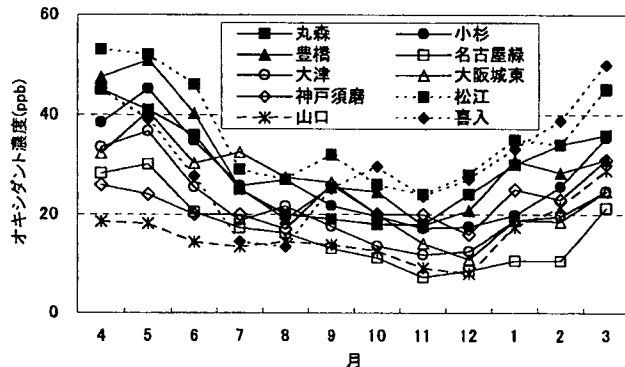


図5-8(4) オキシダントの経月変化
白抜き印はNOx40ppb以上の地点
丸森、松江は乾式によるオゾン濃度

図 5.8 大気汚染物質濃度の経月変化

のいずれの地点でも11~12月に高くなることはなかった。各地点の経月変化が他地点と類似した変化をしていたかどうかを地点間相関でみると、地点間相関のある組合せが比較的少なかったが、北日本、北陸と東海、近畿、中国と北九州、南九州などの各地域内の地点間については相関のある組合せが多かった。一方、騎西と土気は他のどの地点とも正の相関がみられなかった。

NOxについては、西日本の多くの都市地点で秋季から冬季にかけて高濃度となり夏季と1月に低くなる変化をしていたのに対し、札幌北では1月にもっとも高濃度となった。丸森、伊自良、印南、喜入などの田園地点では非常に低濃度で推移しており、経月変化がほとんどみられなかった。地点間相関では、全体的に正の相関のある組合せが多かったが、丸森と伊自良の2地点は他のどの地点との間にも正の相関がみられず、一部地点との間には負の相関がみられた。

SO2については、北日本の2地点では11年度と同様に冬期に高くなっていったものの、今年度はそれ以外の地点で9月から10月に最高濃度となった

地点が多かったことが特徴的であり、北陸や東海、関東の全地点と近畿の一部地点の計11地点では9月に最高濃度となった。11年度のSO2が7~9月の夏期に低濃度であったことから、8月中旬からSO2放出量が急増した三宅島噴火の影響が考えられる。地点間相関では、全体として相関がある組合せが少なかったが、近畿の4地点間や東海の3地点間、関東の1組の隣接地点間にそれぞれ相関があった。

オキシダントについては、NOx濃度が低かった5地点(図5.8(4)で黒いマーカー表示)のオキシダント濃度は5月に大きなピークとなってから急激に低下し、7月または8月を底として徐々に増加していく変化を示した。一方、高かった4地点(図5.8(4)で白抜きマーカー表示)でも5月に濃度が高くなったもののそのピークは前者地点ほど大きくはなく、また7月あるいは8月にかけて低濃度となった後も濃度がほとんど上昇しないで11月から1月にかけて低濃度の状態が続いていた。山口はNOx濃度がかなり低い地点であったが、オキシダント濃度も年平均値で16ppbともっとも低

いレベルであり、とくに春季に低濃度であることが特徴的であった。地点間相関では、ほとんど全地点間に非常によい相関があったが、伊自良と神戸須磨は相関がある地点が少なかった。

5.3.3 4段濾紙法との比較

本4段濾紙法(FP)による測定項目のうち、SO₂は大気自動測定局の自動測定機(AUTO)でも測定されているので、両法のデータの比較を実施した。乾性の27調査地点のうち、同一地点で調査しているのは13地点であり、自動測定機の方式は4地点が乾式、9地点が湿式であった。本調査では月ごとのデータを収集しているが、FP法は週サンプリングなのでいくつかの機関では両法の週データも集めた。

AUTOによるSO₂平均値(nmol/m³に換算)をX、FP法によるSO₂平均値をYとして、地点(機関)ごとに相関関係を調べ表5.2に示した。月平均データでは、乾式は全4地点でFP法と有意の相関を示したが、湿式では9地点中3地点で有意の相関を示さなかった。乾式(地点5を除く)は湿式に比べ濃度が低いところに多く分布しており、相関があるグループの回帰直線の傾きは、乾式で0.4~0.8、湿式で0.2~0.9であった。月および週デー

タによる回帰式を比べてみると、乾式ではあまり変わらなかったが、湿式では週データの傾きが月データよりもやや大きくなっていった。いずれにしても乾式、湿式ともにAUTOはFP法よりも高めになるという結果である。この理由として考えられるのは、FP法は週測定値であるのに対して、AUTOは時間測定値を月または週平均値にしたもので比較していること、SO₂以外のガス成分の干渉などが考えられる。

とくに湿式自動は他のガス成分の干渉を受けるといわれているが、都合のよいことにFP法では同時に酸性ガスとアルカリ性ガスを計測している。そこで湿式自動のSO₂月平均濃度を目的変数、対応するFP法のSO₂、HNO₃、HCl、NH₃濃度を説明変数として、重回帰分析を行った結果は次のとおりであった。

重回帰式:

$$[SO_2]_{AUTO} = 1.1[SO_2]_{FP} + 0.4[HNO_3]_{FP} - 1.0[HCl]_{FP} + 0.2[NH_3]_{FP} + 105$$

F値: $[SO_2]_{FP}=90, [HNO_3]_{FP}=2, [HCl]_{FP}=6, [NH_3]_{FP}=8, C=42$

重相関係数: $\gamma=0.738$, データ数: $n=94$

なお、F値は偏回帰係数の有意性を判断するための統計量であり、 $F値 = \{(\text{偏回帰係数}/\text{偏回帰係数の標準誤差})\}^2$ で定義され、F値が高い説明変数ほど、目的変数を予測(説明)するうえでの貢献度が高いと考えられる。

湿式自動は電気伝導率で計測しているためにHNO₃、HClが正の干渉、NH₃が負の干渉をするはずであったが、予想に反してHClは負、NH₃は正の寄与を示した。これは本来できるだけ時間分解能の高いデータで解析すべきであるのに、報告

表 5.2 4段濾紙法と自動測定機の地点別相関関係

地点番号	自動測定機の方式	月データ		週データ	
		回帰式(個数)	相関係数	回帰式(個数)	相関係数
1	乾式	$Y = 0.79X + 21(12)$	0.915	$Y = 0.70X + 26(52)$	0.832
5		$Y = 0.46X - 33(12)$	0.767		
9		$Y = 0.77X + 15(12)$	0.564		
19		$Y = 0.39X + 16(12)$	0.797	$Y = 0.39X + 15(47)$	0.744
10	湿式	有意の相関なし(12)	0.442		
11		$Y = 0.94X - 111(12)$	0.842		
12		$Y = 0.53X - 6.3(11)$	0.981	$Y = 0.60X - 21(47)$	0.957
14		$Y = 0.50X - 25(12)$	0.868	$Y = 0.63X - 46(50)$	0.921
15		$Y = 0.20X + 43(11)$	0.596		
16		$Y = 0.28X + 18(12)$	0.614	$Y = 0.51X - 30(43)$	0.786
17		有意の相関なし(12)	0.384	$Y = 0.56X + 14(51)$	0.603
24		有意の相関なし(12)	0.213		
27		$Y = 0.25X + 17(12)$	0.610		

表 5.3 湿式SO₂自動測定機と4段濾紙法のガス成分の地点別重回帰分析

地点	重回帰式 (F値)	重相関係数 (データ数)
A	$[SO_2]_{AUTO} = 1.5[SO_2]_{FP} + 0.7[HNO_3]_{FP} - 0.5[HCl]_{FP} - 0.2[NH_3]_{FP} + 90$ F値 ($[SO_2]_{FP}=452, [HNO_3]_{FP}=7, [HCl]_{FP}=1, [NH_3]_{FP}=5, C=21$)	0.937 (97)
B	$[SO_2]_{AUTO} = 1.4[SO_2]_{FP} + 0.7[HNO_3]_{FP} - 0.1[HCl]_{FP} - 0.2[NH_3]_{FP} + 82$ F値 ($[SO_2]_{FP}=199, [HNO_3]_{FP}=17, [HCl]_{FP}=0, [NH_3]_{FP}=3, C=75$)	0.891 (103)
C	$[SO_2]_{AUTO} = 1.2[SO_2]_{FP} + 0.5[HNO_3]_{FP} + 0.7[HCl]_{FP} - 0.3[NH_3]_{FP} + 127$ F値 ($[SO_2]_{FP}=424, [HNO_3]_{FP}=19, [HCl]_{FP}=11, [NH_3]_{FP}=30, C=90$)	0.940 (104)
D	$[SO_2]_{AUTO} = 1.0[SO_2]_{FP} + 0.8[HNO_3]_{FP} - 0.0[HCl]_{FP} - 0.1[NH_3]_{FP} + 111$ F値 ($[SO_2]_{FP}=96, [HNO_3]_{FP}=23, [HCl]_{FP}=0, [NH_3]_{FP}=2, C=75$)	0.796 (93)

F値 = $\{(\text{偏回帰係数}/\text{偏回帰係数の標準誤差})\}^2$

されたデータが月平均値にまとめられたものであること、HClについては試料濃度に対し4段濾紙ブランク値が高いこと、NH₃についてはSO₂自動測定機にアンモニアスクラバー設置の有無に関する情報がなかったことなどが考えられる。

そこで、アンモニアスクラバーが設置されていないいくつかの地点別について、平成11~12年度2年間の両法週データを収集し、同様に重回帰分析を行い表5.3にまとめた。F値は[SO₂]FP>>切片C>[HNO₃]FP, [NH₃]FP>[HCl]FPの順で、2以上なら有効な変量、2未満なら不要な変量とすると、偏回帰係数の値は[SO₂]FPで1.0~1.5, [HNO₃]FPで0.5~0.8, [NH₃]FPで-0.1~-0.3, [HCl]FPは1地点のみ有意で0.7であった。このように地点ごとに解析してみると、酸性ガスが正、アルカリ性ガスが負の干渉と理論的に予想される寄与を示した。

5.4 乾性沈着の評価

5.4.1 乾性沈着評価手法について

乾性沈着評価手法については前報¹⁾に記載したが、今回は概要について示す。

これまで日本においては、酸性沈着物のモニタリングは主に湿性沈着についての調査・研究であった。しかしながら、酸性降下物による森林等への生態系への影響を評価するためには、ガス、粒子状物質による乾性沈着を無視することができなくなってきた。日本での乾性沈着についての研究の遅れは、やはり湿性沈着に比べその測定方法および評価方法が複雑なためと考えられる。

現在、乾性沈着の定常的観測は主として間接法である Concentration Monitoring Approach(濃度法)という考え方に基ついて行われている^{2,3)}。この方法は沈着物質の大気中濃度Cを実測し、Vd

を別の何らかの方法で推定してその積(F=C×Vd)で沈着量を推定する方法である。Vdの推定法としては、代表的地点で沈着速度測定法(たとえば、質量バランス法、勾配法、乱流相関法等)によりVdを測定し、あるいは林内雨および樹幹流の測定により森林に対するVdを測定し、外挿法により観測地点におけるVdを推定する方法とモデルを用いてVdを推定する方法がある。

濃度法の代表的なものとしてインファレンシャル法^{4,5)}(Inferential method)がある。インファレンシャル法は米国のHicks⁴⁾とWeselyら⁵⁾により1980年代半ばに開発されたもので、乾性沈着のプロセスを比較的簡単なモデルで表現し、気象条件等と沈着表面の状況から沈着物質の各種沈着表面に対するVdを推定し、大気中濃度との積で沈着量を推定するものである。日本においても最近、この方法を用いて電力中央研究所(高橋ら)^{6,7)}や酸性雨研究センター(松田ら)⁸⁾は、乾性沈着量の試算を行っており、この方法が今後の主流になると考えられる。

なお、松本・村野⁹⁾や大石ら¹⁰⁾はインファレンシャル法によりHicksらの報告した既成のVdを用いて森林等への乾性沈着量を推定しており、これらは簡易インファレンシャル法と呼べる。第3次全国調査においても同様の手法を用いており、ある程度の乾性沈着量の推定法としては評価できる。

第3次全国調査において乾性沈着量の推定法としては、最初の段階として多くの論文より日本に適したVdの範囲を選出し、各測定地点共通の日本に適した沈着速度(範囲)を用いたが、日本は南北に長く気象条件が異なるため、次の段階として

表 5.4 今回の調査に使用したガスおよび粒子の沈着速度の範囲

	(1)フィルターバック法					
	ガス			粒子		
	SO ₂	HNO ₃	HCl	NH ₃	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻
	cm/s					
最小値	0.1	0.77	1.9	0.60	0.1	0.1
最大値	2.6	5.8	3.2	1.2	0.96	0.50

	(2)自動測定機		
	ガス		
	O ₃	NO ₂	NO
	cm/s		
最小値	0.28	0.081	0.03
最大値	1.0	0.72	0.27

表 5.5 今回の調査に使用した針葉樹(スギ)に対するガスおよび粒子の平均沈着速度

季節*	(1)フィルターバック法					
	ガス			粒子		
	SO ₂	HNO ₃	HCl	NH ₃	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻
	cm/s					
寒候季	0.61	2.8	3.2	0.85	0.26	0.26
暖候季	1.1	1.7	1.9	1.1	0.15	0.15

季節*	(2)自動測定機		
	ガス		
	O ₃	NO ₂	NO
	cm/s		
寒候季	0.50	0.081	0.12
暖候季	0.50	0.091	0.12

*)寒候季:10月-3月、暖候季:4月-9月

表 5.6(1) フィルターバック法で測定したガスおよび粒子状物質の年平均濃度から推定した乾性沈着量の範囲

地点名	SO ₂		HNO ₃		HCl		NH ₃		SO ₄ ²⁻		NO ₃ ⁻	
	最小値	最大値	最小値	最大値	最小値	最大値	最小値	最大値	最小値	最大値	最小値	最大値
	mmol・m ⁻² ・year ⁻¹		mmol・m ⁻² ・year ⁻¹		mmol・m ⁻² ・year ⁻¹		mmol・m ⁻² ・year ⁻¹		mmol・m ⁻² ・year ⁻¹		mmol・m ⁻² ・year ⁻¹	
1 札幌北	3.1	81.9	1.5	10.9	13.5	22.7	24.7	49.4	1.1	10.9	0.6	3.0
2 母子里	0.5	14.0	0.1	0.7	2.6	4.3	12.7	25.4	0.6	5.5	0.1	0.6
3 札幌白石	3.1	81.8	2.2	16.8	22.7	38.3	20.5	41.0	0.9	8.7	0.2	1.0
4 八森	(0.3)	(8.3)	(1.5)	(11.7)	(11.1)	(18.6)	(10.7)	(21.4)	(1.2)	(11.3)	(0.2)	(1.2)
5 盛岡	2.6	68.6	4.9	36.6	11.5	19.4	21.6	43.2	1.3	12.5	0.7	3.7
6 新潟	1.0	26.0	4.6	34.8	19.8	33.3	21.3	42.7	1.4	13.4	0.8	3.9
7 江東	4.9	128.0	6.6	49.4	34.7	58.5	66.5	132.9	2.0	19.4	3.1	15.3
8 磯子	3.7	96.6	6.2	47.0	25.5	43.0	47.8	95.7	1.5	14.3	2.0	10.1
9 小杉	1.4	35.2	2.8	21.0	9.7	16.4	22.9	45.8	0.4	4.2	0.3	1.3
10 福井	3.0	77.5	6.4	48.2	17.4	29.3	20.1	40.2	1.9	17.9	0.7	3.6
11 豊橋	3.6	93.6	7.3	55.3	20.3	34.1	55.2	110.3	1.9	17.9	1.8	8.8
12 緑	3.0	78.9	7.3	54.9	17.3	29.1	47.4	94.7	1.5	14.7	1.3	6.5
13 周山	0.9	24.2	1.8	13.9	8.9	15.0	10.5	21.0	0.7	6.7	0.2	1.1
14 池田	1.9	49.1	7.3	55.0	13.6	22.9	19.1	38.1	1.6	15.4	1.3	6.3
15 大阪生野	(2.9)	(76.3)	(7.5)	(56.4)	(15.0)	(25.2)	(64.7)	(129.4)	(1.4)	(13.8)	(0.3)	(1.7)
16 奈良	2.2	56.8	9.1	68.2	23.0	38.7	35.3	70.5	1.7	16.0	1.3	6.7
17 神戸須磨	4.5	116.3	8.5	63.9	24.1	40.6	27.1	54.1	1.9	18.2	1.6	8.0
18 鳥取	1.4	36.2	2.9	21.8	14.5	24.4	18.8	37.6	1.1	10.2	0.4	2.0
19 松江	1.5	40.0	3.0	22.3	9.4	15.8	15.8	31.7	2.0	19.0	1.1	5.3
20 倉橋島	2.7	69.0	6.9	51.7	8.1	13.7	24.9	49.9	0.4	3.5	0.1	0.3
21 広島安佐南	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
22 香北	(1.2)	(30.6)	(2.4)	(18.3)	(6.3)	(10.6)	(23.9)	(47.8)	(1.4)	(13.8)	(0.4)	(1.8)
23 石井	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
24 太宰府	2.8	73.7	8.2	62.1	-	-	51.1	102.3	1.8	17.4	1.4	7.0
25 福岡	0.9	24.5	1.4	10.3	6.5	10.9	11.6	23.2	0.5	4.5	0.2	1.2
26 大分	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
27 喜入	1.6	42.0	3.0	23.0	19.7	33.2	24.4	48.7	1.5	14.5	0.4	1.9
最小値	0.5	14.0	0.1	0.7	2.6	4.3	10.5	21.0	0.4	3.5	0.1	0.3
最大値	4.9	128.0	9.1	68.2	34.7	58.5	66.5	132.9	2.0	19.4	3.1	15.3
平均値	2.4	62.6	4.9	36.6	16.1	27.2	28.5	57.1	1.3	12.6	0.9	4.7

()で示した値は1ヶ月以上の欠測がある場合

表 5.6(2) 自動測定機で測定したガスおよび粒子状物質の年平均濃度から推定した乾性沈着量の範囲

地点名	Ox		NO ₂		NO	
	最小値	最大値	最小値	最大値	最小値	最大値
	mmol・m ⁻² ・year ⁻¹		mmol・m ⁻² ・year ⁻¹		mmol・m ⁻² ・year ⁻¹	
1 札幌北	84.6	302.2	21.5	191.5	5.4	46.9
2 母子里	-	-	-	-	-	-
3 盛岡	78.3	279.6	21.6	191.8	3.6	32.4
4 丸森	105.8	377.8	3.4	29.9	-	-
5 水戸	102.6	366.4	12.7	112.7	2.3	20.3
6 駒西	(74.7)	(266.9)	20.9	185.5	3.1	27.7
7 土気	81.5	291.1	13.4	119.2	2.9	26.2
8 小杉	100.3	358.1	13.0	115.5	3.8	34.2
9 福井	92.6	330.9	12.2	108.5	3.3	30.1
10 伊自良	106.9	381.8	3.5	31.0	0.1	1.2
11 豊橋	110.6	394.9	21.9	194.6	5.3	47.6
12 緑	59.6	212.8	30.1	267.1	7.9	70.7
13 大津	77.8	278.0	23.8	211.5	6.8	61.2
14 周山	-	-	-	-	-	-
15 大阪城東	90.7	323.9	33.9	301.4	8.4	75.4
16 池田	118.4	423.0	15.5	137.4	2.4	21.4
17 奈良	82.9	295.9	21.5	191.1	4.7	42.5
18 印南	-	-	6.2	55.0	0.7	6.5
19 神戸須磨	81.9	292.7	32.7	290.9	10.6	95.2
20 松江	131.8	470.7	6.2	55.0	1.4	13.0
21 山口	58.2	207.8	8.9	79.2	3.0	27.0
22 太宰府	(87.1)	(310.9)	18.6	165.1	7.0	62.8
23 佐賀	-	-	19.1	169.8	5.8	52.2
24 人吉	65.3	233.2	8.9	79.2	2.2	20.1
25 宮崎	-	-	4.9	43.7	1.2	10.4
26 喜入	112.3	401.0	3.7	32.9	0.2	2.2
最小値	58.2	207.8	3.4	29.9	0.1	1.2
最大値	131.8	470.7	33.9	301.4	10.6	95.2
平均値	91.7	327.4	15.7	140.0	4.0	36.1

()で示した値は1ヶ月以上の欠測がある場合

全国を5ブロック程度に分けモデルを用いてその代表的なVd,あるいは各測定地点別におけるVdをより精度の高いモデルから推定する必要があると考えている。

5.4.2 既知のVdを用いた簡易インファレンシャル法による乾性沈着量の試算

前回の文献調査¹⁾により得られたSO₂, HNO₃, HCl, NH₃, O₃, NO₂, NO, SO₄²⁻, NO₃⁻のVdの最小値と最大値を表5.4に,また日本においては陸地面積の6~7割¹¹⁾を森林が占めるため,森林に対する乾性沈着量を試算することはきわめて重要であることより,森林(針葉樹:スギ)に対するVdの平均的な値を表5.5に示した。平均的な値についてSO₂, HNO₃, HCl, NO₂のVdは高橋ら⁶⁾の値を基にし, NH₃, NOのVdはPuxbaumら¹²⁾の値を基にした。SO₄²⁻のVdは高橋ら⁷⁾の値を基にし, O₃のVdはBrookら¹³⁾の値を基にした。なお, NO₃⁻のVdについてはVdが粒径に依存することと, Edgertonら¹⁴⁾の報告よりSO₄²⁻のVdに近いことより, SO₄²⁻と同程度と推定した。

表5.4に示したガス成分(SO₂, HNO₃, HCl, NH₃, O₃, NO₂, NO)と粒子状物質のイオン成分(SO₄²⁻, NO₃⁻)のVdの範囲と大気中濃度を用いて試算した各地点における年間の乾性沈着量の最大値および最小値を表5.6に示した。また,表5.5に示した上記のガス成分および粒子状物質のイオン成分の森林(針葉樹:スギ)に対する平均的な

表 5.7(1) フィルターパック法で測定したガスおよび粒子状物質濃度から推定した針葉樹(スギ)に対する平均沈着量

地点名	SO ₂	HNO ₃	HCl	NH ₃	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻
	mmol・m ⁻² ・year ⁻¹					
1 札幌北	25.1	3.4	15.4	41.6	2.3	1.4
2 母子里	3.8	0.2	3.4	21.2	1.2	0.3
3 札幌白石	25.0	5.9	29.0	35.0	1.7	0.4
4 八森	(2.6)	(3.9)	(14.4)	(19.0)	(2.3)	(0.5)
5 盛岡	21.7	11.7	14.0	37.3	2.4	1.5
6 新潟	8.4	11.3	24.8	36.8	2.7	1.7
7 江東	44.8	16.7	44.3	110.8	3.8	6.3
8 磯子	31.1	16.7	32.3	78.4	2.9	4.4
9 小杉	12.3	7.7	12.7	37.6	0.7	0.4
10 福井	24.8	15.7	22.8	33.9	3.7	1.6
11 豊橋	28.9	18.4	24.8	92.5	3.7	3.6
12 緑	25.4	17.8	20.8	78.7	3.0	2.8
13 周山	7.4	5.2	12.2	17.2	1.4	0.5
14 池田	16.6	18.0	17.0	32.3	3.1	2.6
15 大阪生野	(25.6)	(19.8)	(20.5)	(106.0)	(2.8)	(0.8)
16 奈良	18.1	22.4	28.5	58.4	3.3	2.9
17 神戸須磨	40.3	20.6	30.2	44.2	3.6	3.3
18 鳥取	11.4	7.4	17.6	32.1	2.1	0.9
19 松江	12.6	7.8	13.5	26.7	4.0	2.2
20 倉橋島	21.5	19.9	11.2	40.7	0.7	0.1
21 広島安佐南	-	-	-	-	-	-
22 香北	(9.6)	(6.5)	(7.4)	(38.9)	(3.0)	(0.8)
23 石井	-	-	-	-	-	-
24 太宰府	22.6	21.5	-	84.4	3.7	3.2
25 福岡	8.2	3.6	8.3	19.9	0.9	0.5
26 大分	-	-	-	-	-	-
27 喜入	13.5	8.8	27.4	41.1	3.1	0.8
最小値	3.8	0.2	3.4	17.2	0.7	0.1
最大値	44.8	22.4	44.3	110.8	4.0	6.3
平均値	20.2	12.4	20.5	47.6	2.6	2.0

()で示した値は1ヶ月以上の欠測がある場合

表 5.7(2) 自動測定機で測定したガスおよび粒子状物質濃度から推定した針葉樹(スギ)に対する平均沈着量

地点名	Ox	NO ₂	NO
	mmol・m ⁻² ・year ⁻¹		
1 札幌北	151.1	22.6	21.7
2 母子里	-	-	-
3 盛岡	139.8	22.8	14.4
4 丸森	188.9	3.6	-
5 水戸	183.2	13.3	9.0
6 駒西	(138.0)	21.9	12.3
7 土気	145.6	13.9	11.7
8 小杉	179.0	13.6	15.2
9 福井	165.4	12.8	13.4
10 伊自良	190.9	3.7	0.5
11 豊橋	197.4	23.0	21.2
12 緑	106.4	31.6	31.4
13 大津	139.0	25.1	27.2
14 周山	-	-	-
15 大阪城東	161.9	35.8	33.5
16 池田	211.5	16.3	9.5
17 奈良	148.0	22.7	18.9
18 印南	-	6.5	2.9
19 神戸須磨	146.3	34.7	42.3
20 松江	235.3	6.5	5.8
21 山口	103.9	9.4	12.0
22 太宰府	(151.6)	19.6	27.9
23 佐賀	-	20.2	23.2
24 人吉	116.6	9.3	8.9
25 宮崎	-	5.2	4.6
26 喜入	200.5	3.9	1.0
最小値	103.9	3.6	0.5
最大値	235.3	35.8	42.3
平均値	163.7	16.6	16.0

()で示した値は1ヶ月以上の欠測がある場合

Vdを用いて試算した各地点における年間の平均的な乾性沈着量を表 5.7 に示した。

今回得られた森林に対する沈着量は都市部や田

園地域での調査地点の大気中濃度を用いているため、都市部や田園地域における森林における乾性沈着量である。森林地域における森林に対する乾性沈着量を試算する場合、森林地域での大気中濃度を測定して試算するのが妥当である。なお、SO₂, HNO₃, HCl, NH₃, SO₄²⁻, NO₃⁻の各成分の大気中濃度はフィルターパック法により得られた濃度を用いた。O₃, NO₂, NOについては自動測定機により得られた濃度を用いた。基準高さは地上から最大25mであり、おおむね10m前後である。なお、()で示した値は1ヶ月以上の欠測がある場合の値である。

(1) 空間変動

表 5.6 に示した各地点における年間の乾性沈着量の最大値と最小値について、SO₂の沈着量は0.5~128.0mmol・m⁻²・year⁻¹(以下、mmol・m⁻²・year⁻¹を略)、HNO₃の沈着量は0.1~68.2, HClの沈着量は2.6~58.5, NH₃の沈着量は10.5~132.9, SO₄²⁻の沈着量は0.4~19.4, NO₃⁻の沈着量は0.1~15.3, O₃の沈着量は58.2~470.7, NO₂の沈着量は3.4~301.4, NOの沈着量は0.1~95.2であり、最大値だけで比較すればO₃がもっとも多く、NO₃⁻がもっとも少なく、O₃>NO₂>NH₃>SO₂>NO>HNO₃>HCl>SO₄²⁻>NO₃⁻の順であった。

表 5.7 に示した各地点における年間の針葉樹(スギ)に対する平均的な乾性沈着量について、SO₂の沈着量は3.8~44.8(平均20.2)mmol・m⁻²・year⁻¹(以下、mmol・m⁻²・year⁻¹を略)、HNO₃の沈着量は0.2~22.4(12.4), HClの沈着量は3.4~44.3(20.5), NH₃の沈着量は17.2~110.8(47.6), SO₄²⁻の沈着量は0.7~4.0(2.6), NO₃⁻の沈着量は0.1~6.3(2.0), O₃の沈着量は103.9~235.3(163.7), NO₂の沈着量は3.6~35.8(16.6), NOの沈着量は0.5~42.3(16.0)であり、平均値だけで比較すればO₃がもっとも多く、NO₃⁻がもっとも少なく、O₃>NH₃>HCl>SO₂>NO₂>NO>HNO₃>SO₄²⁻>NO₃⁻の順であった。

地点別にみればSO₂, HCl, NH₃, NO₃⁻の沈着量の最大値は江東(東京), HNO₃の沈着量の最大値は奈良(奈良), SO₄²⁻, O₃の沈着量の最大値は松江(島根), NO₂の沈着量の最大値は大阪城東(大阪), NOの沈着量の最大値は神戸須磨(兵

庫)であった。

(2) 時間変動

表5.7に示した針葉樹(スギ)に対する平均的な乾性沈着量の暖候季, 寒候季の分類より, 乾性沈着量を比較すればSO₂(暖候季: 13.2, 寒候季: 8.6mmol·m⁻²·1/2year⁻¹, 以下暖候季, 寒候季, mmol·m⁻²·1/2year⁻¹を略), HNO₃(8.0, 4.3), NH₃(33.1, 15.9)およびO₃(91.6, 71.0)の沈着量は暖候季>寒候季であり, HCl(9.4, 10.8), NO₂(7.6, 9.0), NO(4.8, 11.3), SO₄²⁻(1.1, 1.4)およびNO₃⁻(0.6, 1.3)の沈着量は逆の寒候季>暖候季であった。

HNO₃の乾性沈着量が暖候季に多いのは, 暖候季にVdが小さくなるにもかかわらず暖候季に, オキシダントの2次生成物として生じるHNO₃濃度が高くなるためと考えられる。また, 粒子状物質であるSO₄²⁻とNO₃⁻の沈着量は寒候季にガス成分が凝縮して粒子状物質に変化するために, Vdの大きい寒候季にさらに大気中濃度が高くなるので, これらの粒子状物質の乾性沈着量が多くなったと考えられる。

5.4.3 インファレンシャル法による乾性沈着量の試算

上記の5.4.2で試算した乾性沈着量は, 文献調査により求めた沈着速度の最大値と最小値あるいは暖候季と寒候季の一定の沈着速度を用いて試算したものであるが, 沈着速度は気象条件により異なるため, 南北に長い日本においては各地域による沈着速度を用いるのが望ましいと思われる。酸性雨研究センターの松田らは, EANET乾性沈着モニタリング活動の一環として, インファレンシャル法に基づいた沈着速度モデルの研究を進めている¹⁵⁾。当該モデルは, 日本の地方気象台で常時観測されている気象要素(気温, 湿度, 日射量, 風速, 雲量)を使って, 1時間ごとの沈着速度を計算できるように構築されている。現在, 当該モデルの検証, 改良作業が行われているところであるが, 以下に現バージョンでの計算結果を紹介する。なお, インファレンシャル法についてはHicks^{2,4)}やWesely⁵⁾らによりその方法が詳細に報告されており, その代表的な文献^{4,5,7,16~18)}を参考文献に記載した。

平成12年4月から13年3月までの新潟地方気象台の気象データを用いて試算されたSO₂の通年の

沈着速度は森林(針葉樹)0.09~1.02(平均0.35)cm/s, 農地0.04~1.42(0.52), 水面0.01~1.28(0.32), HNO₃の通年の沈着速度は森林(針葉樹)0.13~19.20(4.88)cm/s, 農地0.04~6.41(1.62), 水面0.01~1.28(0.32)であり, 平均値でみれば, HNO₃はSO₂に比較して森林(針葉樹)で約14倍, 農地で約3倍, 水面で同じであった。上記の5.4.2で使用したSO₂およびHNO₃の針葉樹に対する平均沈着速度はSO₂が暖候季1.1cm/s, 寒候季0.61, HNO₃が暖候季1.7cm/s, 寒候季2.8であり, 松田らの値と比較すればSO₂で暖候季2.75倍, 寒候季2.0倍と大きく, 一方HNO₃で暖候季0.39倍, 寒候季0.52倍と小さかった。しかしながら沈着速度は地域や表面, さらに気象条件に依存し, さらにモデルの改良も進められていることを踏まえると, 現段階ではある程度の幅を持って評価すべきであり, これらの差は許容範囲であり, 妥当であると考えられる。

インファレンシャル法は各地域の気象条件を考慮して沈着速度を求めるため, 全国的調査においては望ましい方法であると考えられるが, 気象条件や推定しなければならぬ表面状態のパラメータがあり, 現段階においては報告されている沈着速度と併用して試行錯誤的に用いるのが妥当であると考えられる。

— 参 考 文 献 —

- 1) 全環研酸性雨調査部会: 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, 26, 66-116(2001)
- 2) Hicks, B.B., Meyers, T.P. and Baldocchi, D.D.: Principles of Environmental Sampling, Keith, L.H. ed., American Chemical Society, p297-315(1988)
- 3) NDDN: Overview of the USEPA National Dry Deposition Network, C-NDDNGEN. 2/OYRY-1.1~4.4, p1-25(1988)
- 4) Hicks B.B., Baldocchi D.D., Meyers T.P., Hosker Jr R.P. and Matt D.R.: A preliminary multiple resistance routine for deriving dry deposition velocities from measured quantities, Water Air Soil Pollut., 36, 311-330(1987)
- 5) Wesely M.L.: Parametrization of surface resistances to gaseous dry deposition in regional-scale numerical models, Atmospheric Environment, 23, 1293-1304(1989)
- 6) 高橋章, 佐藤一男, 若松孝志, 早水 洋: スギ林への酸の総沈着量の推定, 電中研研究報告, T99055, (2000)
- 7) 高橋章, 佐藤一男, 若松孝志: インファレンシャル法による森林への硫黄化合物の乾性沈着量の推定-SO₂の乾性沈着に及ぼす葉面のぬれの効果-, 電中研研究報告, T99002(1999)
- 8) 松田和秀, 福崎紀夫: インファレンシャル法による硫黄

- および窒素酸化物の乾性沈着量の推定, 第41回大気環境学会年会講演要旨集, p. 454 (2000)
- 9) 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-奈良市における通年観測-, 日化誌, 1998, 495-505(1998)
 - 10) 大石興弘: 九州北部地域におけるフィルターバック法によるガス・粒子状物質調査について, 第41回大気環境学会年会講演要旨集, p. 168-169(2000)
 - 11) 環境庁自然保護局: 第4回自然環境保全基礎調査植生調査報告書(1994年3月)
 - 12) Puxbaum H. and Gregori M.: Seasonal and annual deposition rates of sulphur, nitrogen and chloride species to an oak forest in north-eastern Austria, Atmospheric Environment, 32, 3557-3568(1998)
 - 13) Brook J.R., Zhang L., Li Y., Johnson D.: Description and evaluation of a model of deposition velocities for routine estimates of dry deposition over North America. Part II: review of past measurements and model results, Atmospheric Environment, 33, 5053-5070(1999)
 - 14) Edgerton E.S. et al., Preliminary data from the USEPA dry deposition network, Environmental Pollution, 75, 145-156(1992)
 - 15) Matsuda K, Fukuzaki N, Maeda M: A case study on estimation of dry deposition of sulfur and nitrogen compounds by inferential method, Water, Air, and Soil Pollution 130, 553-558(2001)
 - 16) Seinfeld and Pandis, "Atmospheric Chemistry and Physics", p.971(1998)
 - 17) Wesely M.L. and Hicks B.B.: J. Air Pollut. Control Assoc. 27, 1110(1977)
 - 18) Golder D.: Boundary-Layer Meteorology 3, 47(1972)

6. 三宅島噴火の影響

三宅島火山である雄山は東京の南方約100km, 伊豆・小笠原弧の火山フロント上に位置する活火山で, 火山噴火の記録は数多く残されている。今回は平成12年6月26日の火山性群発地震から活動を始め, 28日には三宅島西方で海底噴火, 7月8日には山頂部の崩落とともに噴煙が上がった。その後も大規模な噴火活動となり, 噴煙高が14,000mにも達するようになった¹⁾。また, 噴火により多量の火山灰や火山ガス等が放出され²⁻⁴⁾, 島民の安全が懸念され島外避難することになった。その後, 1年以上経過しても島民は帰島できない状態にあり, 1日も早く三宅島の島民が帰島できる日が待たれるところである。

12年8月28日には関東方面で火山性ガスの影響と思われる高濃度の二酸化硫黄(SO₂)が観測され, 8月30日には関西方面にも同様に影響がみられた。以後, 気圧配置により頻繁に影響を受けることになり, 気象条件によっては環境基準を超え

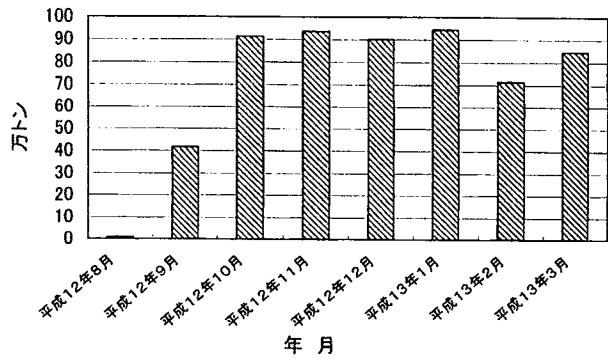


図 6.1 三宅島の噴火による SO₂ 放出推定量⁶⁾

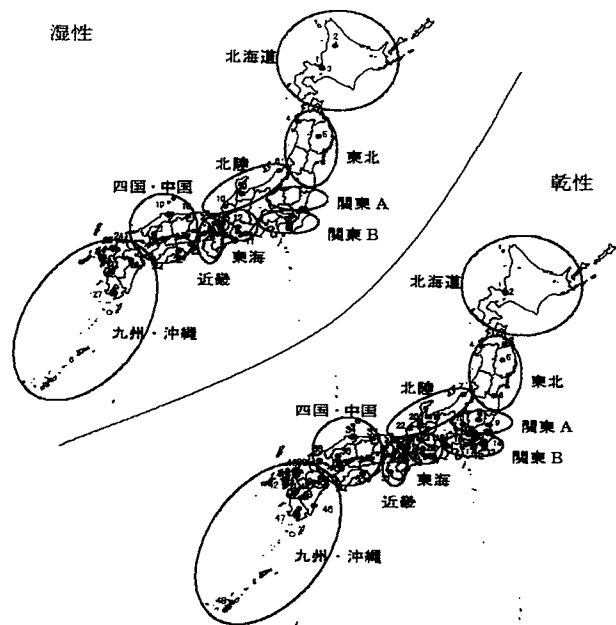


図 6.2 地域割り図

る値が観測された⁵⁾。

三宅島の位置からみて関東方面に高濃度の SO₂ が観測される時期は三宅島の南側に高気圧があり, 日本海側に低気圧が位置する時で, 関西方面においては三宅島の東側に高気圧があり, 沖縄から九州に台風もしくは前線や低気圧が位置した時である。また, このような気圧配置が生じた1~2日後には降雨がみられており, 三宅島の火山活動の降水に対する影響が示唆される。

三宅島における SO₂ 等の火山ガスの放出は図 6.1 のとおりで, 13年3月末日現在で SO₂ の放出量は570万tに及んでいると推測される。13年に入って減少傾向が認められるものの, 1年経過しても止まる気配はみられない⁶⁾。

酸性雨として三宅島の影響について検討するう

表 6.1 酸性度上位100位の月別出現状況
(46測定地点)

月	上位100位
4	0
5	0
6	1
7	1
8	14
9	11
10	25
11	13
12	18
1	3
2	12
3	2
計	100

えで、三宅島からの距離が大きく関係すると考えられることから、調査地点を図 6.2 のとおり 9 区域の地域割りでを行った。

6.1 湿性沈着における影響

12年度における各調査機関から報告された湿性成分の pH を、月平均濃度の全データ (n=552) について酸性度の強い (pH が低い) 順に並べた。酸性度の強い上位100試料の月別出現頻度は表 6.1 のとおりであった。この結果から、8月を境に降雨の酸性度が強い降水が多く出現する傾向が明らかであった。そこで、この原因として三宅島の噴火による影響があるかどうか検討を行った。

6.1.1 pH の変化

平成12年度における pH の全国平均値は前述のとおり測定日数80%以上の地点の加重平均が4.64で、11年度⁷⁾の4.81に比べ0.17低い結果であった。経月変化は12年度の7月までは11年度と同レベルで推移していたが、8月以降は13年1月における結果が11年度より高い値を示したほかは pH が低いレベルであった。とくに12年10月には pH4.41 ともっとも低く、11年度より0.46低下しており明らかに差が認められた。

地域別にみると、近畿から北の地域では12年度の方が pH の低い値を示し、とくに東海、関東において11年度と12年度との差が大きかった。また、四国・中国および九州・沖縄地域においても11年度に対する12年度の差がそれぞれ0.07、0.03と pH が低下した。

12年度における各地域ごとの pH 値は図 6.3 のとおりで、11年度と比べ8月から pH の低下がみられ、ほとんどの地域で8、9および10月は低い値を示した。なかでも12年9月における各週の

pH の変化は第3週までの pH4.80から第4週になると pH4.22と急激に低下し大きな変化がみられた。

6.1.2 pH と nss-SO₄²⁻ の沈着量との関係

平成12年度における pH の経月変化では、11年度に比べて12年度では8月から低くなったが、三宅島の噴火による SO₂ の放出は8月下旬頃から急激に増加した。このことから8月の pH の低下は三宅島の噴火による影響ではないと思われる。

そこで、nss-SO₄²⁻ の沈着量について検討を行った⁸⁾。nss-SO₄²⁻ の沈着量の経月変化は図 6.4 のとおりであり、全国平均値でみると12年度の8月までは11年度と同レベルの nss-SO₄²⁻ の沈着量であったが、9月以降急激に nss-SO₄²⁻ 沈着量が増加していた。地域別にみても、nss-SO₄²⁻ 沈着量は三宅島から距離の短い関東、北陸および東海地域の9月以降の増加が顕著であり、ほとんどの地域においても同様の傾向を示していた。

6.1.3 nss-SO₄²⁻/NO₃⁻ と pH との関係

nss-SO₄²⁻/NO₃⁻ 比の関係^{9,10)}は図 6.5 のとおり、全国平均の経月変化図において、三宅島の噴火による影響を受けたと考えられる9月から12月において、明らかに比が増加している。この比により三宅島の噴火による影響の検討を行った。

nss-SO₄²⁻/NO₃⁻ の比は平成11年度の0.79に比べ12年度が1.01と明らかに大きい比を示した。これは4月から8月までは11年度と12年度には差がなかったが、9月には11年度の0.69に対し12年度が1.76ともっとも比に差が生じ、10、11および12月と次第に差が少なくなり、13年1月には12年度の方が高いものと同じレベルとなった。

nss-SO₄²⁻/NO₃⁻ との比が9月をピークに徐々に小さくなったのは、図 6.1 のとおり三宅島噴火による SO₂ 等の火山ガス放出が減少したのではなく、前述の図 5.8 に示した大気汚染物質濃度の SO₂ 経月変化において、北海道地域の冬期に SO₂ 濃度が上昇傾向を示している以外は SO₂ 濃度の下降傾向がみられている。これは、大阪管区气象台によると気象の影響と考えられ、偏西風や冬型の気圧配置となる西高東低となる機会が増加しているためと思われる⁷⁾。

nss-SO₄²⁻/NO₃⁻ の比を地域別でみると、図 6.5 のとおりいずれの地域も9月からの比が11年度よ

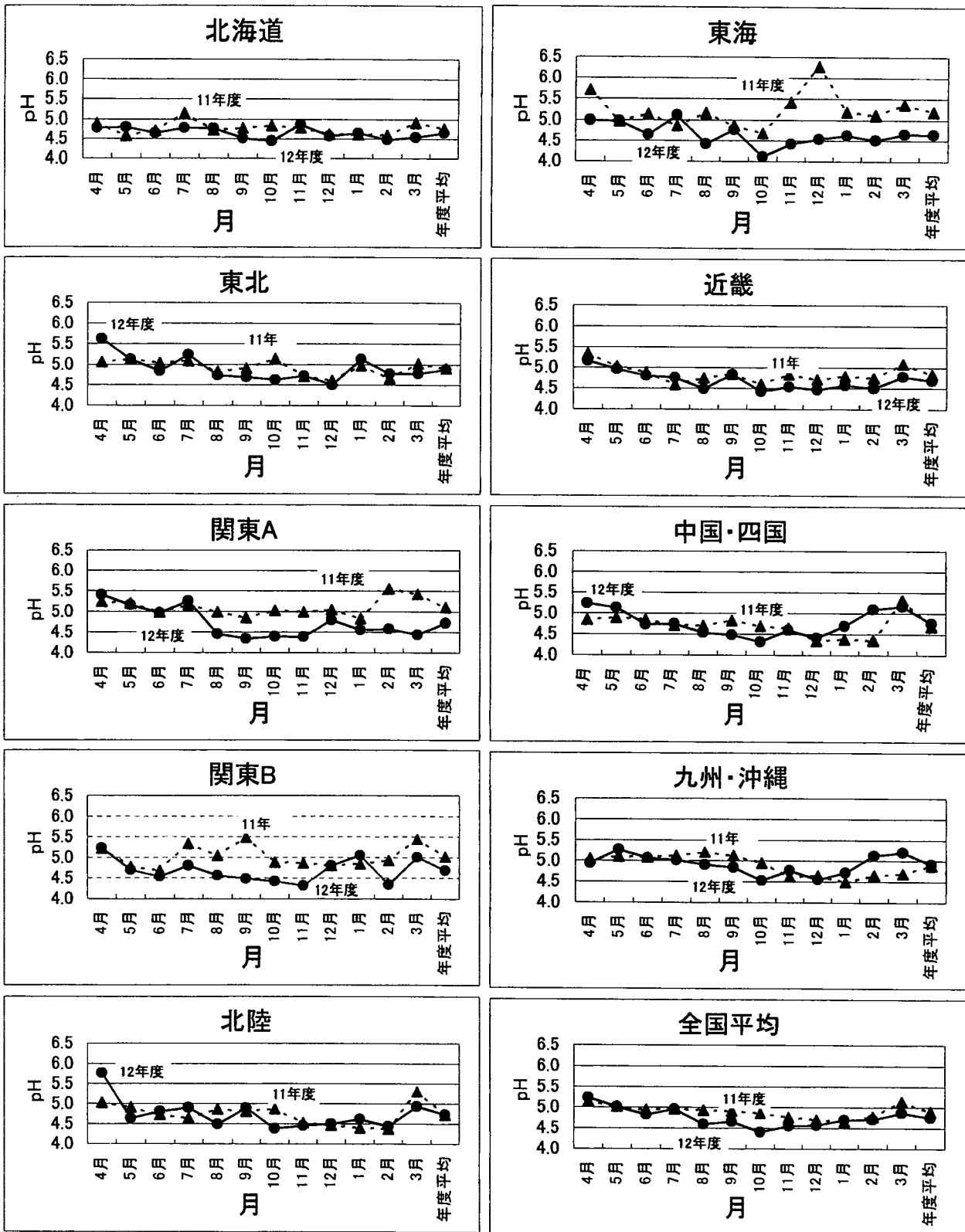


図 6.3 pH の経月変化(湿性)

り12年度の方が高い結果であり、とくに比が大きかった地域は関東A、東海、関東Bであった。ま

た北海道、東北、四国・中国、九州・沖縄地域では11月頃から、11年度と12年度は同じレベルと

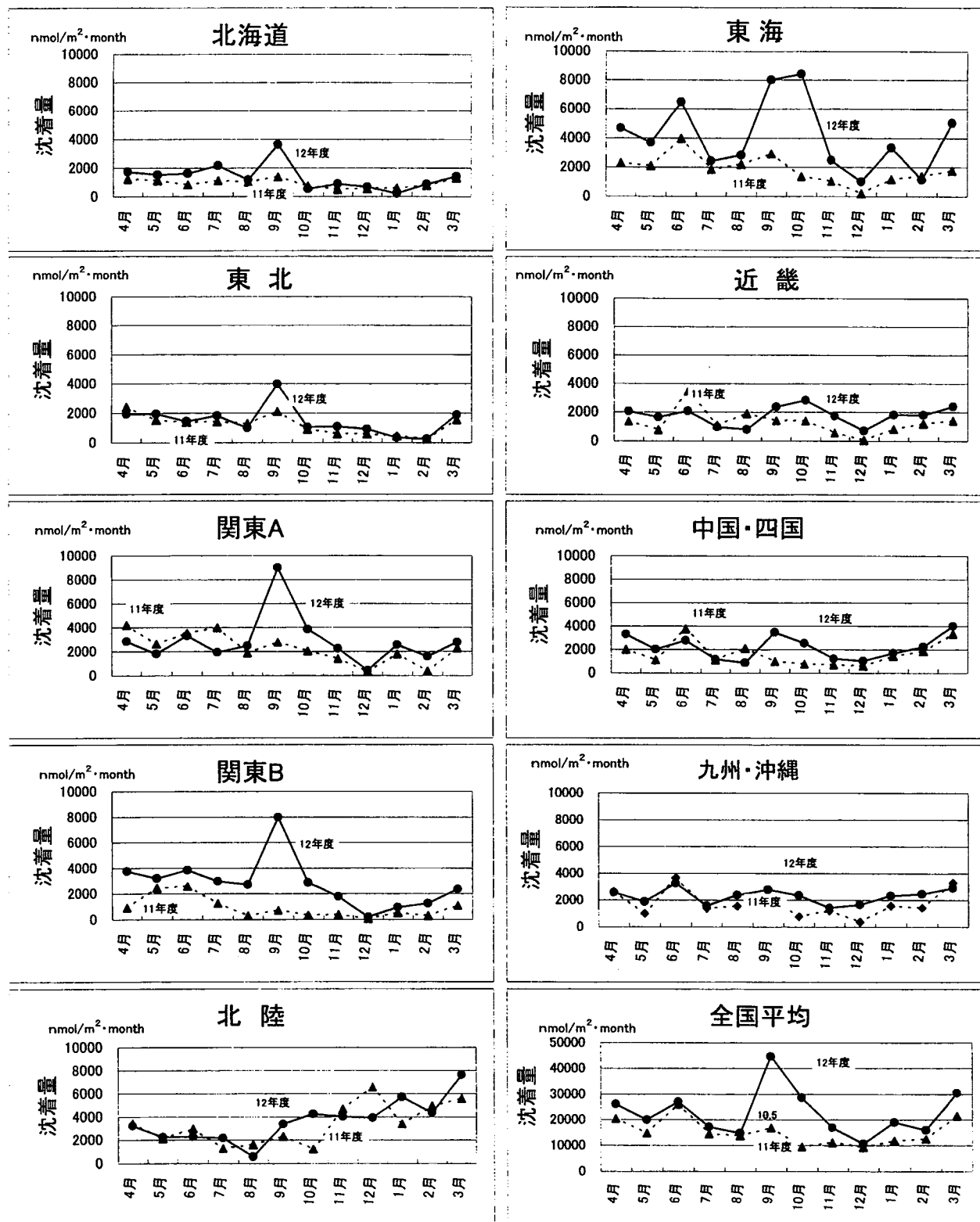


図 6.4 nss-SO₄²⁻沈着量の経月変化(湿性沈着)

なった。

各ブロックごとに平均した pH の階級別 nss-SO₄²⁻/NO₃⁻比の平均は表 6.2 のとおりで、11年

度の pH の階級別 nss-SO₄²⁻/NO₃⁻比の平均値に変化が少ないが、12年度は11年度より pH 階級範囲が低く、pH の階級別 nss-SO₄²⁻/NO₃⁻比は大

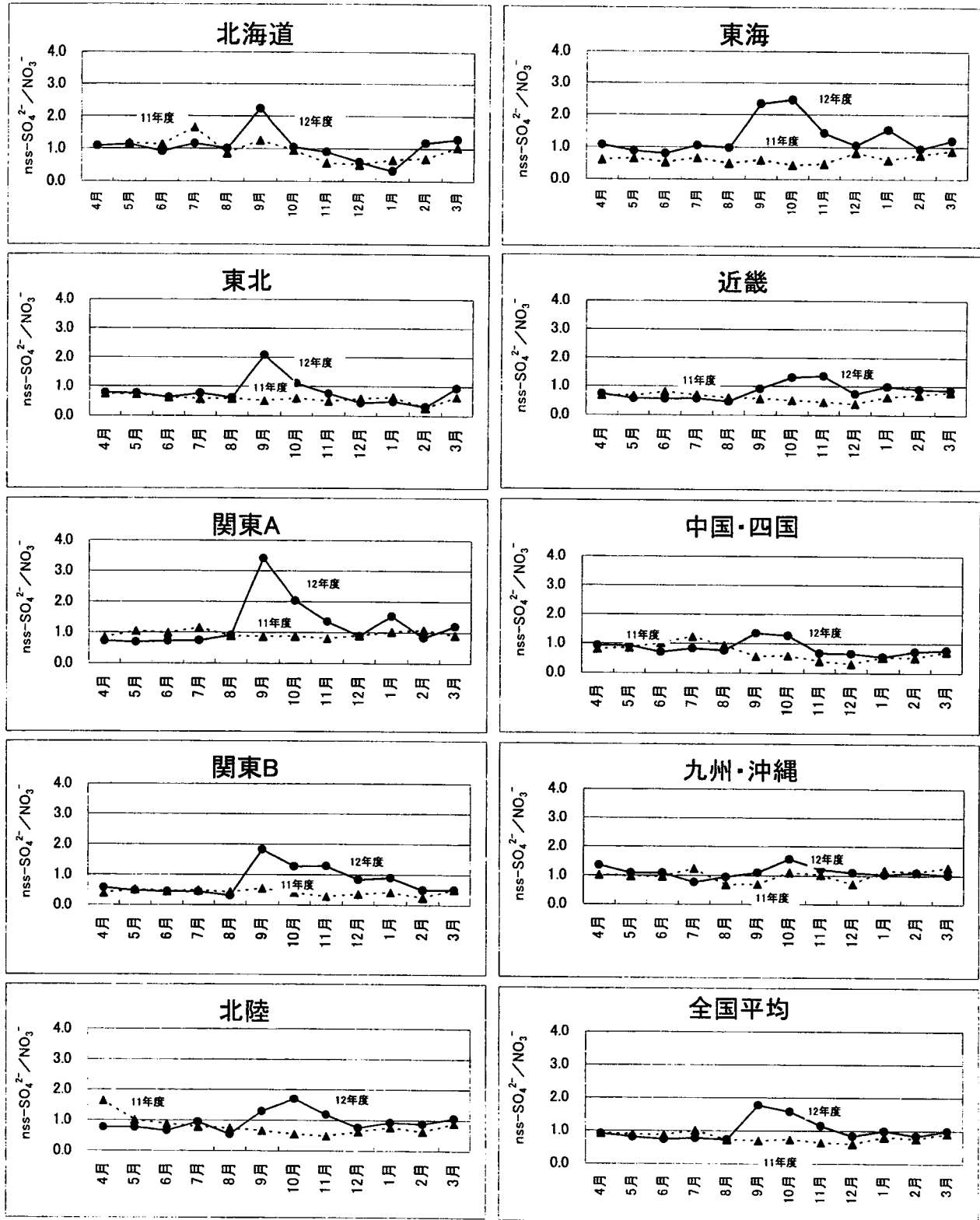


図 6.5 $nss-SO_4^{2-}/NO_3^-$ の経月変化(湿性)

きかった。また、12年度は pH 値が低くなると $nss-SO_4^{2-}/NO_3^-$ の比が大きくなるのがわかる。

6.1.4 HCl と pH との関係

火山から噴出する HCl ガスの影響は SO_2 ガスに

比べ火山近傍に現われ、影響を受けた湿性沈着物は Cl^-/Na^+ 比(当量比)が大きく pH 低下の要因となることが報告されている¹¹⁾。

Cl^- 濃度は三宅島から最近傍に当たる関東 B に

表 6.2 pH の範囲と nss-SO₄²⁻/HNO₃⁻ 平均値

pHの範囲	12年度		11年度	
	頻度	nssSO ₄ ²⁻ /HNO ₃ ⁻	頻度	nssSO ₄ ²⁻ /HNO ₃ ⁻
4.01-4.20	1	2.46	0	0.00
4.21-4.40	7	1.65	5	0.55
4.41-4.60	34	1.03	8	0.74
4.61-4.80	30	0.94	25	0.74
4.81-5.00	15	0.90	31	0.72
5.01-5.20	13	0.85	25	0.84
5.21-5.40	6	0.80	7	0.70
5.41-5.60	2	0.77	5	0.70
5.61-	0	0.00	2	0.71

において平成11年度の平均が30.33μmol/mlで、12年度が39.99μmol/mlであったが、これは12月に230μmol/mlの結果がもたらしたもので、他の月は11年度と12年度でまったく差がなかった。また、Cl⁻/Na⁺比は11年度が1.15と12年度には1.55差が認められたが、年間平均して一定の差を示していたため三宅島の噴火の影響よりも他の原因によるものと考えられる。

以上のことから、湿性沈着についてみると12年度のpHは11年度より酸性を示し、その要因として三宅島の噴火による影響が明らかになった。また、その影響を受けていた地域は三宅島にもっとも近い関東A,B、および東海はもとより、程度の差がみられたものの北海道、東北から九州に至る全国に及んでいた。

6.2 乾性沈着結果における影響

6.2.1 フィルターパック法による乾性ガスおよび粒子状物質の経月変化

フィルターパック法によるSO₂およびnss-SO₄²⁻の全国平均の経月変化は図6.6に示したとおりで、SO₂は平成11年度5月にピークがあり、12年度には9月にピークが認められたことが特徴である。しかし、11年度のピークが12年度の9月のピークよりも大きく、顕著に三宅島の噴火による影響が現われているとは認め難い結果であった。また、nssSO₄²⁻についても11年度と12年度で、5月にピークの11年度と、7月にピークの12年度に特徴が認められたが、12年9月にピークが認められなかった。

6.2.2 乾性沈着量の地域別評価

フィルターパック法によるSO₂の地域別経月変化は図6.7に示したとおりである。各地域とも変動パターンが異なっており、地域差が認められる。SO₂濃度は北海道が冬季に、九州・沖縄では5

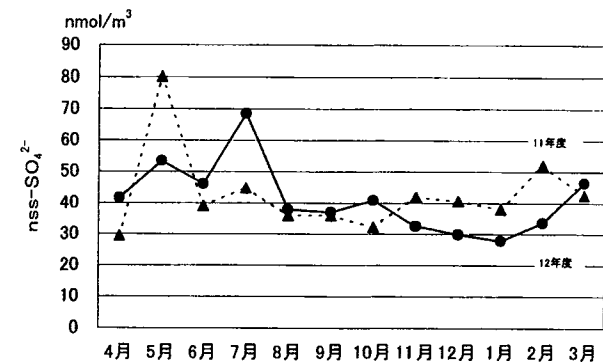
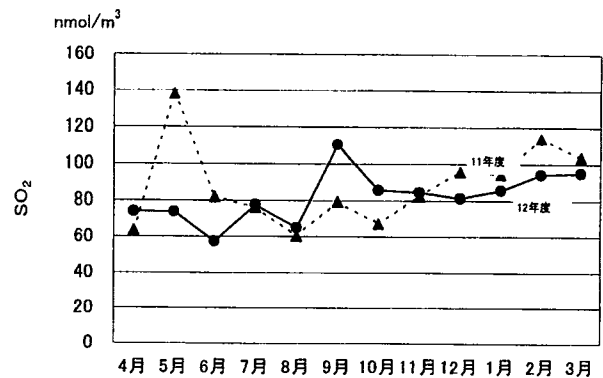


図 6.6 フィルターパック法による乾性ガスおよび粒子状物質の経月変化

月および2月に平成11年度の方が12年度より高濃度となっていた。東北および中国・四国は11年度と12年度が同レベルであった。三宅島の噴火による影響が大きかったとみられた関東地域では9月では平成11年度と平成12年度に差認められなかった。これはSO₂濃度レベルが高く、三宅島の噴火による影響が加味されなかったことが考えられる。しかし、東海地域ではSO₂濃度変動がnss-SO₄²⁻の湿性沈着量の経月変化と同様の変化を示しており、三宅島の噴火の影響がうかがえる。また、北陸、近畿地域においても同様の傾向が認められた。

6.3 9月における週単位の評価

湿性沈着および乾性沈着の検討を行ったなかで、9月に三宅島噴火の影響が典型的に認められ、大気中のSO₂環境濃度⁹⁾および気象¹⁰⁾面からも9月における湿性沈着および乾性沈着の挙動に注目することが重要と考えられた。そこで、9月の調査結果を詳細に検討した。

6.3.1 9月の週測定結果からみた湿性および乾性沈着の年平均値との比

9月における週データがすべてそろっていたの

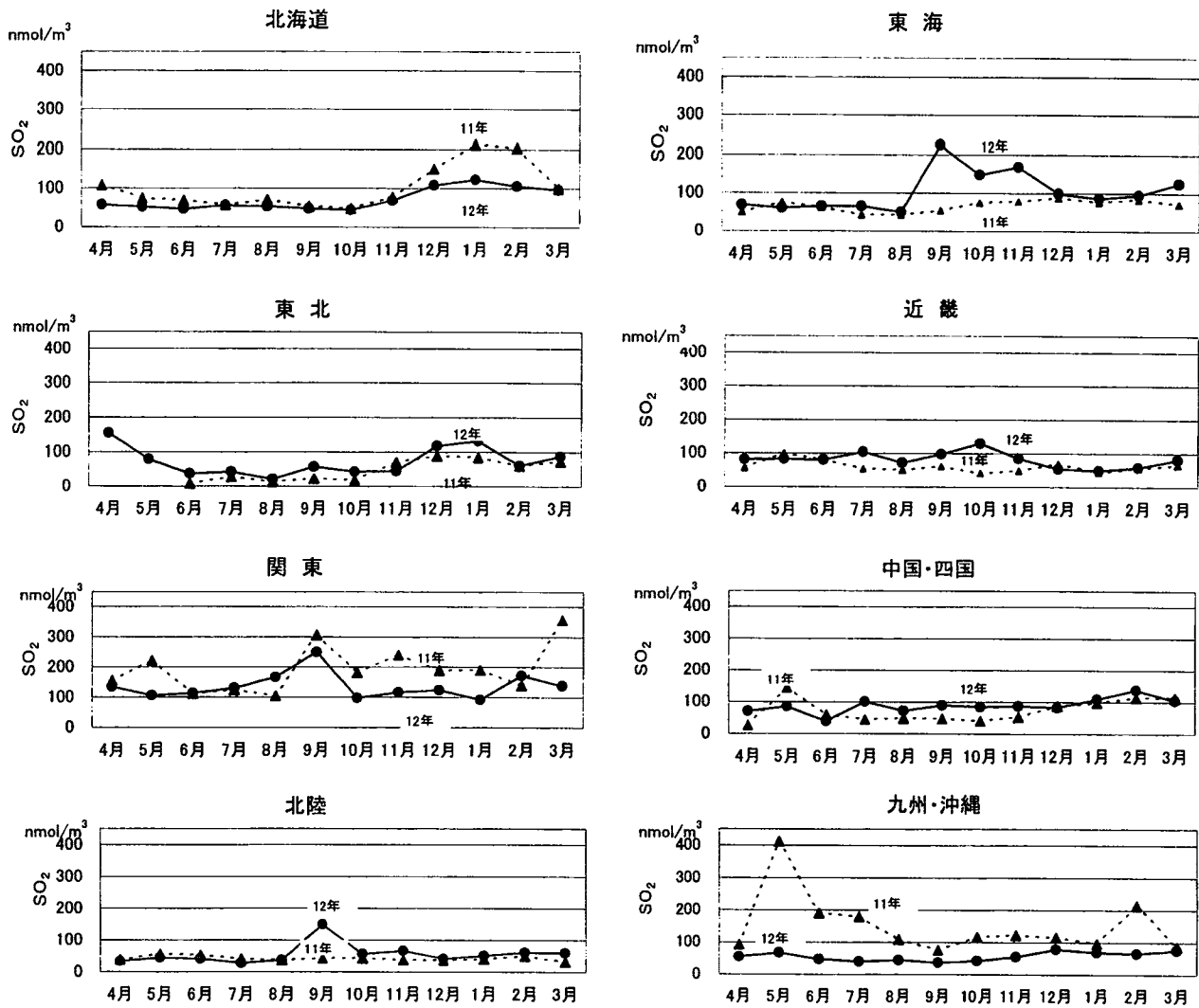


図 6.7 フィルターパック法による SO₂ の地域別経月変化

は湿性沈着で21地点, 乾性沈着で8地点であった。これら地点の湿性, 粒子並びにガス中の硫酸 (nss-SO₄および SO₂), 硝酸 (NO₃) および塩酸 (Cl) 成分について地点別の各週濃度と対応する各地点の年平均濃度の比を求めた。なお, 湿性については濃度が降水量に影響されるので, 週濃度および年平均濃度をそれぞれの合計イオン濃度で割ったものの比を用いた。この比の平均値は地域ごとに図 6.8 に示した。

湿性沈着では比はおおむね nss-SO₄²⁻, NO₃, Cl の順に高く, 東北以北および北陸地域での影響が顕著であった。また, とくに第4週目の nss-SO₄²⁻ は全国的に高かった。

乾性の粒子状物質では, nss-SO₄²⁻ は第1週目の東北以北と第4週目の東海, 近畿でやや高く, NO₃, Cl は平年なみまたは平年より低い傾向を示

した。乾性のガスについては SO₂ が第2週目の関東, 第3週目の東海, 第4週目の近畿で年平均値の3.7~6.2倍と非常に高く, HNO₃ が第4週目の関東, 東海, 近畿で HCl が第3週目の東海, 第4週目と5週目の関東が年平均値の2倍前後であった。このように, 地域によってピークとなる週が変わったのは, 台風の襲来や, 前線の影響など気象による要因が大きいものと考えられる。

6.3.2 フィルターパック法による大気汚染物質濃度に対する影響

フィルターパック法によって得られたガス成分の SO₂ およびエアロゾル成分の SO₄²⁻ に対する影響は 5.2 のとおり, 月単位の SO₂ 濃度で三宅島噴火による影響と考えられる現象がみられた。SO₄²⁻ 濃度においてそのような影響がなかったのは, 酸化反応過程を経るためと時間分解能が低い

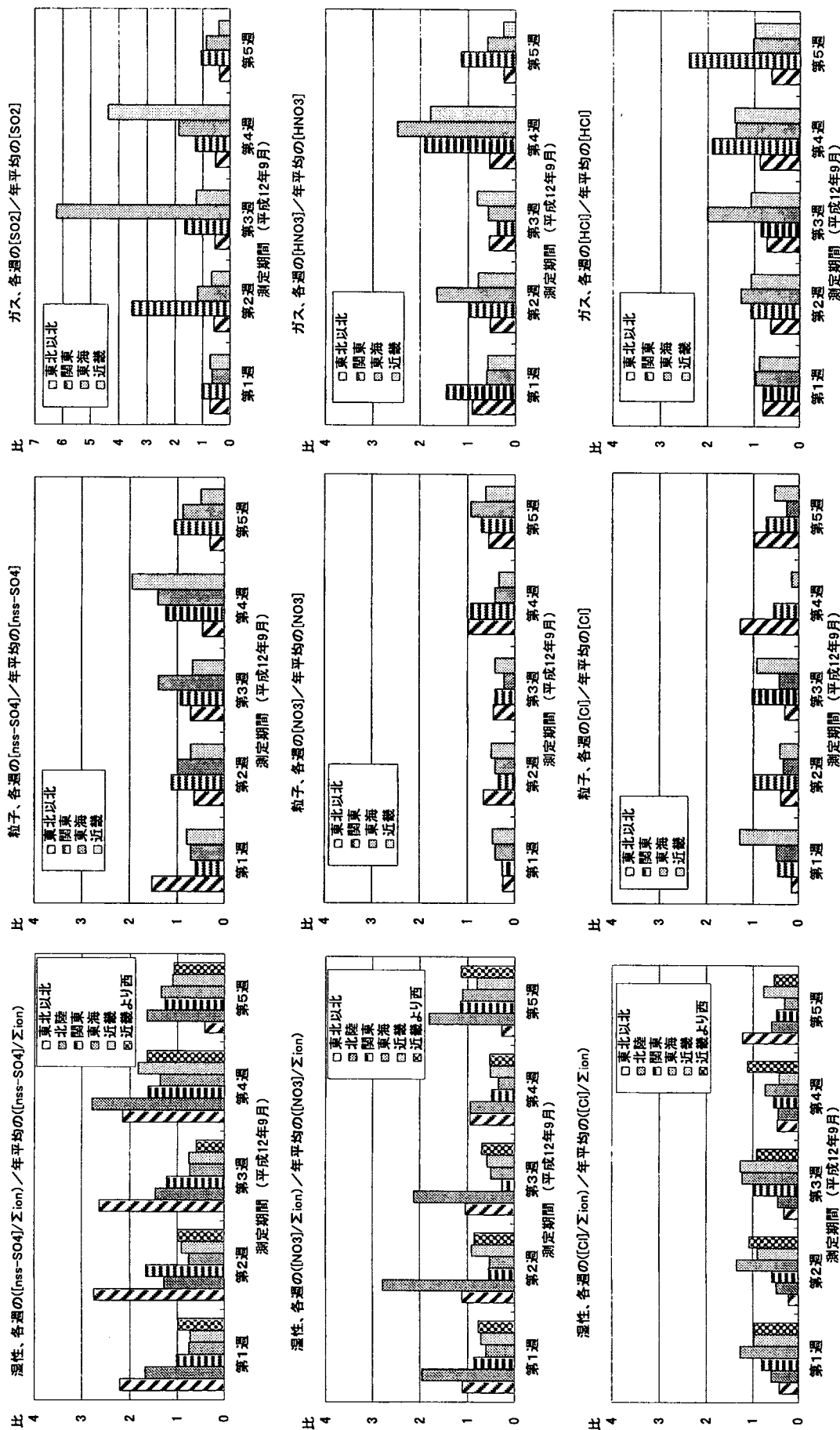


図 6.8 湿性および乾性主要成分の年平均値に対する9月各週測定値の比

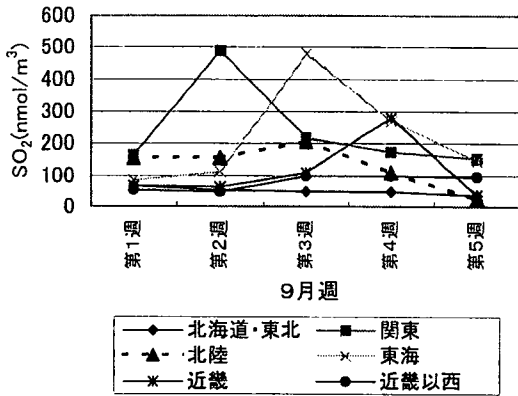


図 6.9(1) 9月の地域別 SO₂ 濃度(フィルターバック法)

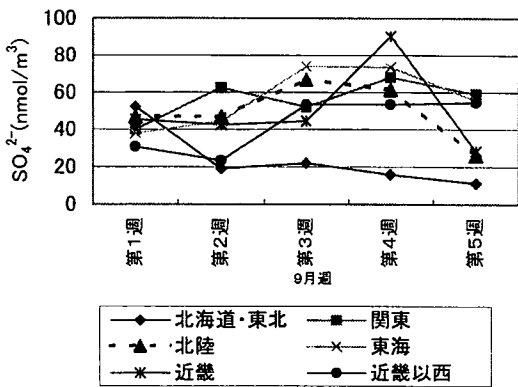


図 6.9(2) 9月の地域別 SO₄²⁻濃度(フィルターバック法)

ために顕著な影響が検出できなかったことが考えられる。

9月における地域別 SO₂濃度の変動は図 6.9(1)に示したとおりである。北海道・東北および近畿以西の地域における SO₂濃度は高濃度現象が現われなかったことから、SO₂として三宅島噴火の影響をあまり受けていないと考えられた。一方、関東、東海北陸および近畿の地域では、順に第2週、第3週および第4週にピークがみられ、ピークの大きさは関東がもっとも高く、西の地域ほどピークは低かったことから、距離による濃度拡散があったものと思われるとともに、時間的、空間的にずれた高濃度を示す結果が得られた。

SO₄²⁻濃度の変動は図 6.9(2)に示したとおり、北海道東北地域では噴火に伴う明確な挙動は観測されていない。しかし、東海、北陸および近畿以西では第3~4週に、近畿では第4週にピークがみられ、とくに近畿のピークがもっとも高かった。このことは、三宅島噴火による SO₂が運ばれる間に酸化され、SO₄²⁻に変換されたためと考えられた。一方、北海道・東北で SO₂および SO₄²⁻濃度

があまり上昇しなかったのは、エアロゾルの SO₄²⁻が上空などに運ばれたため、地表面では検出できなかったことなどが原因として考えられた。このことは、北海道において三宅島噴火の影響を受けた低 pH の降水が観測されたにもかかわらず、地表面の SO₂および SO₄²⁻濃度が上昇しなかったこととも合致する¹²⁾。

— 参 考 文 献 —

- 1) 平成12年度の三宅島の噴火活動：気象(2000. 12)
- 2) 三宅島噴火と広域大気汚染：大気環境学会 特別講演要旨集(2001. 2)
- 3) 火山ガスと酸性雨：大気環境学会酸性雨分科会ほか、「21世紀幕開けの酸性雨講演会」(2001. 3)
- 4) SPEEDIによる三宅島火山性ガスの大気拡散シュミレーション：日本原子力研究所東海研究所環境科学研究部 JAERI Research 2001-012(2001)
- 5) 全環研東海・近畿・北陸支部酸性雨研究会：「三宅島噴火に伴う東海・近畿・北陸地域の硫黄酸化物高濃度事例」, 全国環境研会誌 Vol.26 No. 4, p.43 (2001)
- 6) 三宅島亜硫酸ガス放出量データ：気象庁, 産総研, 東工大(2001.11)
- 7) 第3次酸性雨全国調査報告書：全国環境研会誌(Vol.26 No. 2, p.243 (2001)
- 8) 地球環境の行方「酸性雨」：環境庁地球環境部(1997.11)
- 9) 酸性雨全国調査結果報告書：全国公害研会誌(Vol.20 No. 2, p.58 (1995)
- 10) 第2次酸性雨全国調査報告書：全国公害研会誌(Vol.23 No. 2, p.186 (1998)
- 11) 噴煙と火山ガスの動態を探る：鹿児島大学噴煙火山ガス研究グループ(2001. 3)
- 12) 野口泉, 秋山雅行, 恵花孝昭：「北海道の降水に対する三宅島噴火の影響」, 第42回大気環境学会講演要旨集, 北九州, p.432 (2001)

7. 海塩寄与の検討

日本は四方を海に囲まれており、季節風や台風などにより広範囲の地域で海塩の影響がある。そのため酸性雨調査で得られた湿性沈着量について、人為的な汚染物質の沈着量を評価するには海塩由来に相当する成分を除外する必要がある、その方法として一般的には Na 沈着量のすべてを海塩によるものとして非海塩成分量を算出している。しかし、湿性沈着物中の Na や K, Ca, Mg などの組成比の関係は必ずしも海塩と一致しておらず、このことは海塩以外の発生源も Na の沈着量に対して寄与していることを示していると考えられる。そこで湿性沈着物に対する海塩成分による寄与をよりの確に把握するためにケミカルマスバランス法(CMB法)を応用した推計を試みた。

表 7.1 解析に用いた発生源データ

成分	海塩	道路粉じん	ゴミ焼却
	4成分に占めるモル組成(%)		
Na	86	15	59
K	1.7	9.0	27
Ca	1.9	69	11
Mg	10	7.2	2.8

CMB法は浮遊粒子状物質(SPM)の発生源寄与を推計するために広く採用されている手法であり、本調査で得られたフィルターパック法による粒子状物質についても海塩寄与を推計した。

7.1 方法

この酸性雨調査で測定されている成分のうちCMB法に利用できるのはNa, K, Ca, Mgの4成分と考えられることから、これら4種成分の合計モル量に占める各成分の組成比を解析データとして用いた。推計対象の発生源としては文献でこれらの水溶性成分量が得られた海塩、道路粉じん¹⁾、ゴミ焼却^{2,3)}の3種を選択した。各発生源データを表7.1に示した。

解析にはCMB法解析マクロ(CMB8J)⁴⁾を用いた。このソフトでは解析データの標準偏差として各データの5%値が設定されているが、ほかの発生源データと比べて成分組成が一定であると考えられる海塩の全成分と環境データのうちで比較的高濃度であるNaとCaについては標準偏差として1%値を用いた。道路粉じんやゴミ焼却では実際には5%よりも大きな標準偏差となると考えられるが、これらの標準偏差は設定値のままで解析した。

解析により得られた各発生源寄与から次式により海塩Na沈着量(または濃度)を算出した。

海塩Na沈着量(濃度) = 合計モル量(濃度) × CMBによる海塩寄与 × 海塩Na組成比

合計モル量(濃度) : 沈着物中または粉じん中のNa, K, Ca, Mg合計モル量(濃度)

海塩Na組成比 : 合計モル量(濃度)に占めるNaの比

7.2 推計結果

7.2.1 湿性沈着物(平成12年度の年沈着量)

図7.1に示すように、CMB法により推定した3発生源からのNa沈着量は測定値の96~103%(全地点平均値100%)であり、Na沈着量はこれら3発生源からの寄与によりほとんど説明できると

考えられた。Na沈着量のうちCMB法により海塩起因とされた比率は地点により56~99%の範囲にあり、45地点中の30地点で90%以上を占めていた。

これらのCMB法計算結果を基にして算出された(以下、CMB法による)非海塩SO₄²⁻は、図7.2に示すようにNaの全量を海塩起因として算出された(以下、Na換算による)非海塩SO₄²⁻の100~102%であった。湿性沈着物中には海塩起因以外のSO₄²⁻がかなり多いことから、Na換算により非海塩SO₄²⁻を計算してもその評価に大きな違いが生じなかったものと考えられた。

図7.3にCMB法による非海塩Cl⁻とNa換算による非海塩Cl⁻の計算値を示す。湿性沈着物中の非海塩Cl⁻は海塩以外の塩化物粒子や塩化水素ガスの寄与を示していることから正の値になると考えられたが、Na換算による計算結果は45地点中の21地点で負になり、CMB法による計算結果でも10地点で負となった。図7.4に示すようにCMB法による非海塩Cl⁻は海塩Naとの間に負の相関があったことから海塩Cl⁻が過大評価されて差し引かれたためと考えられ、海塩成分の評価方法について検討する必要があると考えられた。

7.2.2 フィルターパック法による粒子状物質(平成12年度の年平均値)

図7.5に示すように、CMB法により3発生源が寄与したと推定されたNa濃度は測定値の86~107%(全地点平均値101%)であり、ややばらつきがあるもののこれら3発生源からの寄与によりほぼ説明できると考えられた。CMB法により海塩起因とされたNaの測定値に占める比率は、地点により3~88%と広範囲にわたっており、24地点中13地点で70%以下であった。

CMB法による非海塩SO₄²⁻濃度をNa換算による非海塩SO₄²⁻濃度と比較すると、図7.6に示すように全地点で101~102%の範囲にあった。両計算結果の間で非海塩SO₄²⁻に大きな違いが生じなかったのは、粒子状物質中にはアンモニウム塩などの非海塩SO₄²⁻が非常に多く、海塩起因SO₄²⁻量計算結果の違いがほとんど反映されなかったためと考えられた。

非海塩Cl⁻の濃度はCMB法、Na換算ともに図7.7に示すようにほとんどの地点で負となった。この原因として大気中での粒子のクロリンロスの

影響,あるいは測定時にテフロンフィルター上で海塩が反応したりアンモニウム塩が揮発したりすることによる粒子状Clの損失の影響が考えられた。

フィルターパック法ではテフロンフィルターの

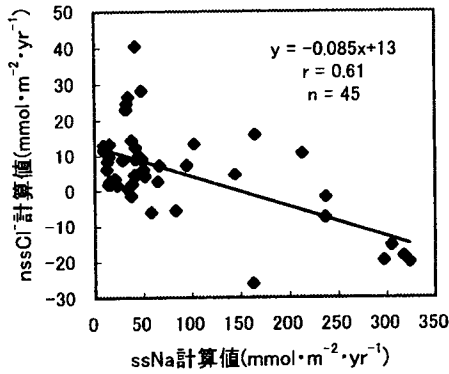


図 7.4 CMBによる海塩Naと非海塩Cl⁻計算値の関係(湿性降下物)

後段で塩化水素ガスを捕集しているが,この方法で得られる塩化水素ガス濃度はテフロンフィルター上でのClの損失分に,1次排出された塩化水素ガスや大気中で起こった二次反応生成物の塩化水素ガスも加わっているはずであり,非海塩Cl⁻の濃度にこの塩化水素ガス濃度を加えた値は正になると考えられた。しかし,この合計値は図7.8に示すように非海塩Cl⁻としてNa換算値を用いたときは5地点で負となり,一方CMB法では1地点だけで負となった。この1地点を除いたとき,非海塩Cl⁻と塩化水素ガスの合計値はCMB法によるごみ焼却Na濃度との間に正の相関があったことから,これらの非海塩Cl⁻に対してごみ焼却が寄与していると考えられた。

これまで湿性沈着物や粒子状物質を含めた乾性沈着物についての非海塩Cl⁻が評価されることは少なかったが,CMB法はその評価に有効な手段

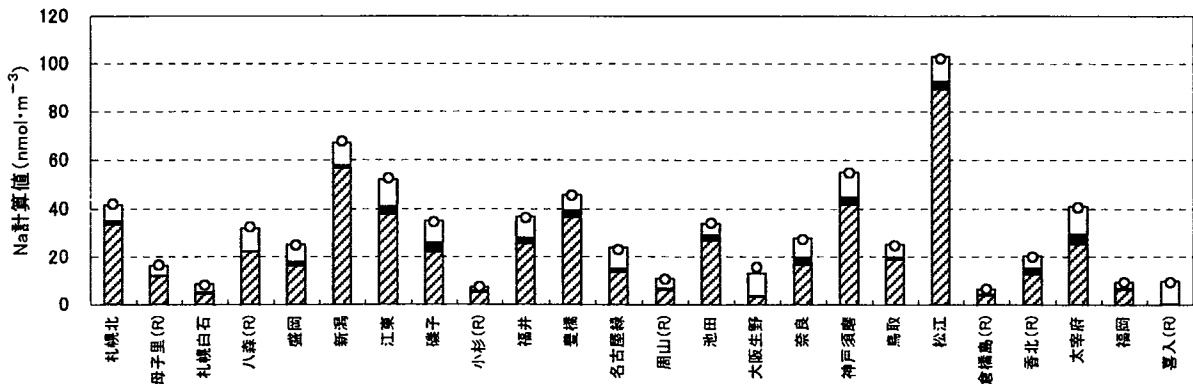


図 7.5 CMBによる発生源別のNa濃度計算値(フィルターパック法)
 海塩 道路 ごみ焼却 Na測定値

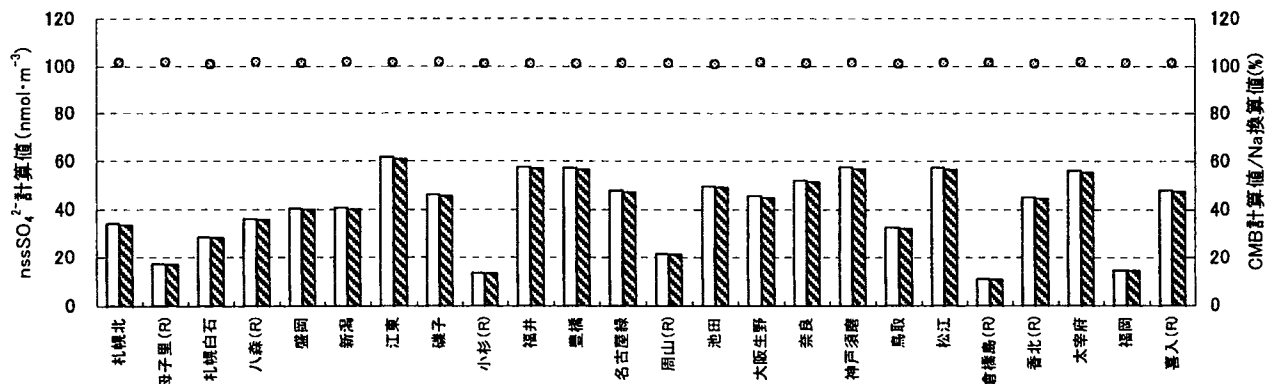


図 7.6 フィルターパック法による粒子状非海塩SO₄²⁻濃度計算値
 CMBによるnssSO₄ Na換算によるnssSO₄ CMB計算値/Na換算値

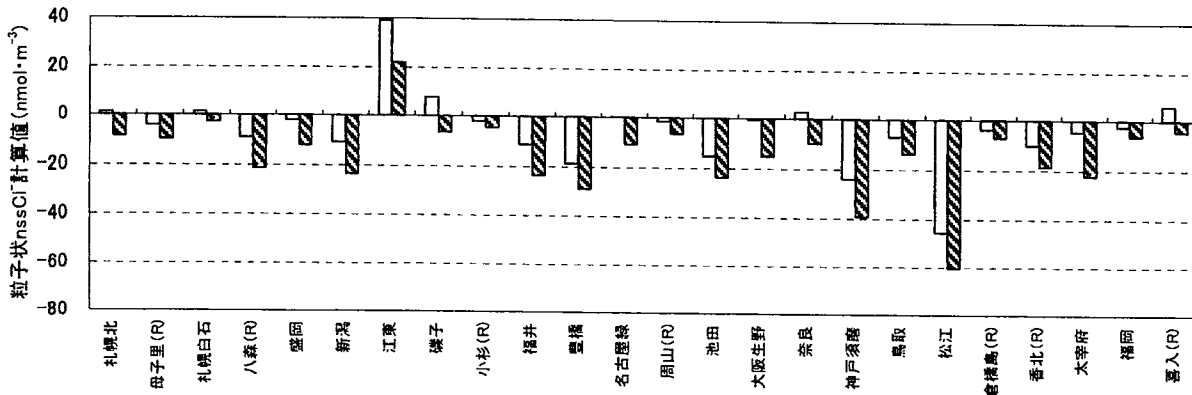


図 7.7 フィルターパック法による粒子状非海塩 Cl⁻濃度計算値
□CMB による nssCl ▨Na 換算による nssCl

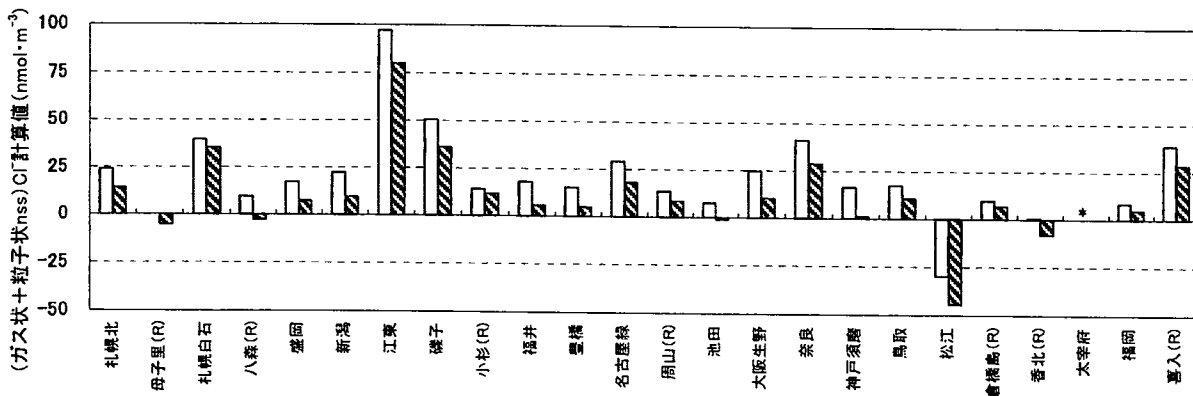


図 7.8 フィルターパック法によるガス状 Cl⁻と粒子状非海塩 Cl⁻の合計濃度計算値
□ガス状+CMB による粒子状 nssCl ▨ガス状+Na 換算による粒子状 nssCl * 欠測

であることが示唆された。より正確な評価をするためには発生源データの地域特性や海塩の輸送に伴う組成変化について検討していく必要があると考えられた。

— 参 考 文 献 —

- 1) 宮崎竹二, 神浦俊一, 船坂邦弘, 瓦家敏男, 黒田孝一: 大阪市立環科研報告, 57, 1-8 (1995)
- 2) 辰市祐久, 上野広行, 秋山薫, 吉岡秀俊, 鎌滝裕輝, 岩崎好陽: 東京都環科研年報, 1996, 121-127 (1996)
- 3) 井上俊明, 古川功二, 三澤隆弘, 石田哲夫, 湯川茂夫, 川村和弘: 川崎市公害研年報, 27, 5-11 (2000)
- 4) 早狩進, 花石竜治: 大気環境学会誌, 36, 39-45 (2001)

8. ま と め

全国公害研協議会(現全国環境研協議会)・酸性雨調査研究部会が平成11年度より3カ年計画で実

施している第3次共同調査の平成12年度結果をまとめた。

- 1) 平成12年度は第3次共同調査の2年目に当たり、調査Ⅰが45機関48地点、調査Ⅱが26機関27地点の参加があった。各機関から報告された湿性沈着の月平均濃度の全データ(n=552)について、イオンバランス R₁および電気伝導率による検定 R₂を行ったところ、基準に満たなかったデータはそれぞれ66(12%)データおよび21(4%)データで、前年の割合の16%および8.6%から低下しており、12年度は11年度に比べて測定精度の改善がみられた。乾性沈着については、R₁は±0.1の範囲内に全データの82.8%が入り、また±0.3を超えるのは1.7%であり、11年度と比べ同等もしくはやや良好な結果であった。

- 2) 年降水量は1,016~3,324mm・year⁻¹の範囲にあり、全国平均値は1,758mm/年で、平成11年度(1,668mm/年)よりやや多かった。pHは4.42~5.47の範囲にあり、全地点加重平均は4.64で、11年度の4.81より低下した。電気伝導度率の範囲は1.46mS/m~4.41mS/mで、全国平均は2.38mS/mであり、11年度の2.03mS/mに比べてやや高かった。
- 3) nss-SO₄²⁻とNO₃⁻の濃度および沈着量は、平均値で20.9, 19.1μmol/l(加重)および36.7, 33.5mmol・m⁻²・year⁻¹を示し、いずれも11年度より上昇した。nss-SO₄²⁻沈着量については前年同様冬季日本海側地点で上昇がみられたが、とくに太平洋側と日本海側地域では9月の上昇がめだつた。NO₃⁻/nss-SO₄²⁻当量比の月変化は6月~8月にかけてやや高めの0.7~0.8であったが、9月には南西諸島を除く地域では0.5以下に下がり、その後徐々に上昇した。とくに太平洋側地点における低下がめだち、三宅島からのSO₂移流による影響と考えられた。
- 4) 各地点を属性区分として、田園(R)と都市(U)に分けて濃度を比較したが、nss-SO₄²⁻、NO₃⁻、NH₄⁺では常に都市の方が田園より高い傾向が見られたが、他のイオン種では両者に大きな差は認められなかった。
- 5) フィルターパック法におけるブランク値は、11年度とは異なりとくに大きなブランクを示した機関はなく、ブランクと試料採取後の物質量の比較した場合ほとんどの項目で10倍以上の差があり環境濃度の測定が十分可能であった。しかしながらF₁、F₂についてCl⁻のブランクがやや高い傾向があり、低減へ向けて今後検討する必要が認められた。
- 6) フィルターパック法によるSO₂、HNO₃、HClおよびNH₃濃度の全国平均値はそれぞれ82.0, 23.2, 30.5, 183nmol/m³で11年度と同じ濃度レベルでありNH₃濃度が高かった。また、粒子状物質のSO₄²⁻、NO₃⁻、NH₄⁺、Ca²⁺はそれぞれ46.9, 29.1, 81.8, 9.89nmol/m³でガス状成分と同様に11年度と同じ濃度レベルであった。
- 7) 濃度法の代表的な手法であるインフアレンシャル法によりスギ林における平均的な沈着量の最小値と最大値をSO₂、HNO₃、HCl、NH₃、O₃、NO₂、NO、SO₄²⁻、NO₃⁻について試算した結果それぞれ、2.4~62.6mmol・m⁻²・year⁻¹(以下、単位省略)、4.9~36.6, 16.1~27.2, 28.5~57.1, 91.7~327, 15.7~140, 4.0~36.1, 1.3~12.6, 0.9~4.7と算出され、ガス状成分が粒子状成分より沈着量が多く、ガス状のO₃の沈着量がとくに多いと推定された。本調査では多くの論文から日本に適したVdの範囲を選出し、各測定地点共通の沈着速度(範囲)を用いたが、日本は南北に長く気象条件が異なるため、次の段階として全国を5ブロック程度に分けモデルを用いてその代表的なVd、あるいは各測定地点別におけるVdをより精度の高いモデルから推定する方法等を検討する必要が認められた。
- 8) 三宅島の噴煙により東海・関東地方はもとより遠くは北海道まで影響がみられ、湿性沈着物のpHに関しては8月以降低下し、11年度と比較した場合10月の全国平均は11年度より0.46低い4.41であった。pH低下の原因物質として各地で高濃度となったSO₂が考えられた。nssSO₄²⁻に注目し解析した結果、nssSO₄²⁻/NO₃⁻比で評価した場合11年度の平均が0.79であったのに対し12年度は1.01と明らかに大きな値を示し、いずれの地点も9月から比が大きくなっておりpHの低下と比の増大は一致していた。
- 9) 沈着物の成分を解析する場合に重要な要素となる海塩成分の評価方法について、ナトリウムの発生源とみられる海水、道路、ごみ焼却の影響をケミカルマスバランス法(CMB法)を応用した推計方法で解析した。Na沈着量のうちCMB法により海塩起因とされた比率は地点により56~99%の範囲にあり、45地点中の30地点で90%以上を占めていた。また非海塩SO₄²⁻は、CMB法と従来法(Naの全量を海塩起因として算出した)がほぼ同じ結果となり、従来法でもその評価に大きな違いが生じなかった。