

# 全環研酸性雨全国調査・フィルターパック法による乾性沈着成分濃度の動向

○辻 昭博

(京都府保健環境研究所)

[全国環境研協議会酸性雨調査研究部会]

【はじめに】 全環研酸性雨調査研究部会（以下「酸性雨部会」）では、湿性沈着に加えて、乾性沈着成分濃度の把握と乾性沈着量の推計を目的として、4 段階構成のフィルターパック法（以下「FP 法」）による乾性沈着物の大気中濃度の通年調査を続けており、年度毎のとりまとめを報告してきた。平成 11～13 年度（1999～2001 年度）に 3 ヶ年調査を実施して、平成 15～17 年度（2003～2005 年度）の 3 ヶ年調査から継続調査となり、貴重な長期データが蓄積されている。ここでは、平成 14 年度を除いた平成 11 年度から平成 18 年度まで実施された 7 年間の観測結果を振り返り、乾性沈着成分濃度の動向を中心に報告する。

【調査方法】 FP 法により初段の PTFE ろ紙（孔径 0.8  $\mu\text{m}$ ）で粒子状成分を採取し、2 段目のポリアミドろ紙、3 段目の炭酸カリウム+グリセリン含浸ろ紙および 4 段目のリン酸+グリセリン含浸ろ紙でガス状成分を採取した。吸引流速は 1L/min 程度、採取期間は 1 週間（あるいは 2 週間）単位として通年で観測した。月曜午前 9 時を境に 4 あるいは 5 週間分のデータを月区切りとして月平均濃度を算出した。データの一部は国設局や他の学術機関との共用データが含まれる。調査地点数は、年度毎の入れ替わりも含め、平成 11～13 年度調査は 25～29 地点、平成 15～17 年度調査は 32～35 地点、平成 18 年度調査は 28 地点であった（図 1）。地域特性を把握するため、全国を北部、日本海側、東部、中央



図 1 平成 18 年度調査地点と地域区分

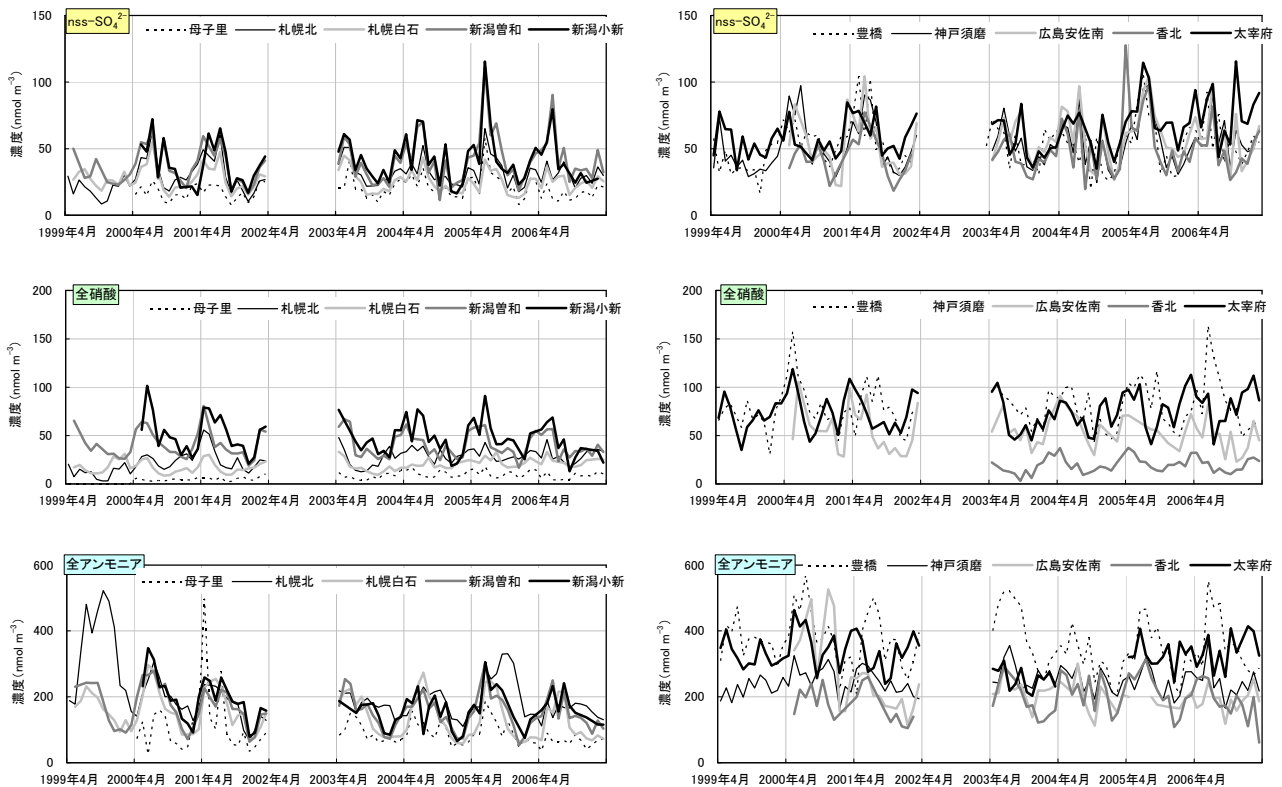


図 2 地点別の  $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$ 、全硝酸および全アンモニアの月平均濃度の推移

部、西部および南西諸島の6地域に区分して相関性および相対標準偏差を検討した。排出量は、大気汚染物質排出量グリッドデータ整備業務報告書(計量計画研究所・2000)から半径20km相当の年排出量を計算した。

【結果と考察】 長期的動向 平成14年度を除いた平成11年度から平成18年度調査まで7年分の全調査期間のうち、6年以上の継続調査地点を検討した。東部および南西諸島には継続地点がなく検討から除外した。図2に地点別の $nss-SO_4^{2-}(p)$ 、全硝酸( $HNO_3(g)+NO_3^-(p)$ ) および全アンモニア( $NH_3(g)+NH_4^+(p)$ )の月平均濃度の推移を示す。 $nss-SO_4^{2-}(p)$ の推移にはほとんどの地点で明瞭な変化傾向はみられなかったが、大陸に近い太宰府で濃度増加の傾向がみられた。全硝酸の推移には明瞭な変化傾向はみられなかった。全アンモニアの推移には明瞭な変化傾向はみられなかった。

季節変動 平成15～18年度調査から、3年以上有効な調査地点を対象に検討した。南西諸島には継続地点がなく検討から除外した。 $nss-SO_4^{2-}(p)$ の4ヵ年最高濃度は大半の地点で6あるいは7月に記録され、夏に高く冬に低い季節変動がみられた。全硝酸の4ヵ年最高濃度は大半の地点で4～6月に記録され、春夏に高く冬に低い季節変動がみられた。全アンモニアの4ヵ年最高濃度は大半の地点で6あるいは7月に記録され、夏に高く冬に低い季節変動がみられた。

地域特性 平成15～18年度調査から、3年以上有効な調査地点を対象に検討した。南西諸島には継続地点がなく検討から除外した。なお、本年会の全国酸性雨調査(60)の中でも平成18年度調査に限定した同様の解析を報告している。

① $nss-SO_4^{2-}(p)$ の地域特性： $nss-SO_4^{2-}(p)$ の地点別の4ヵ年平均最高濃度は太宰府、次いで山口、広島安佐南の順となり、言い換えると西部の観測地点に偏りが見られた。逆に4ヵ年平均最低濃度は母子里、次いで利尻、札幌白石、札幌北の順で、北部の観測地点に偏りが見られた。地域区分別の $nss-SO_4^{2-}(p)$ の月平均濃度を検討した。その結果、相関係数0.7以上の強い相関は、日本海側・東部・中央部・西部の4地域間で認められ、4地域の相対標準偏差は平均18%であり、バラつきの小さい濃度の収束性がみられた。その他に北部と東部の地域間で強い相関が認められた。また、地点別の前駆体ガスである $SO_2$ の4ヵ年平均濃度や排出量に対する $nss-SO_4^{2-}(p)$ の4ヵ年平均濃度の関係に、いずれも有意な相関はみられなかった。以上より、 $nss-SO_4^{2-}(p)$ 濃度は地域汚染より大陸からの越境汚染の影響が大きいことが示唆されるが、九州の火山の寄与も考えられる。

②全硝酸の地域特性：全硝酸( $HNO_3(g)+NO_3^-(p)$ )の地点別の4ヵ年平均最高濃度は騎西、次いで大阪、豊橋、神戸須磨の順となり、東部と中央部への偏りがみられる。逆に4ヵ年平均最低濃度は母子里、次いで利尻、香北、伊自良湖の順で、特定の地域区分への偏りはみられない。地域区分別の全硝酸の月平均濃度を検討した。その結果、相関係数0.7以上の強い相関は、日本海側・東部・中央部の3地域間に認められたものの、3地域の相対標準偏差は平均51%であり、 $nss-SO_4^{2-}(p)$ でみられた濃度の収束性はみられなかった。濃度レベルは常に、東部>中央部>日本海側の順であった。また、地点別の前駆体ガスである $NO_x$ の4ヵ年平均濃度や排出量に対する全硝酸の4ヵ年平均濃度の関係に、いずれも有意な相関関係が認められた。以上より、全硝酸濃度は越境汚染よりも周囲の汚染を反映した地域汚染の影響が大きいことが示唆された。

③全アンモニアの地域特性：全アンモニア( $NH_3(g)+NH_4^+(p)$ )の地点別の4ヵ年平均最高濃度は豊橋、次いで大阪、騎西の順となり、中央部および東部への偏りがみられる。逆に4ヵ年平均最低濃度は利尻、次いで母子里、金沢、伊自良湖の順で、特定の地域区分への偏りはみられない。地域区分別の全アンモニアの月平均濃度を検討した。その結果、相関係数0.7以上の強い相関は、北部と日本海側の地域間に認められただけで、他の地域間の相関は弱かった。また、地点別の前駆体ガスである $NH_3$ の4ヵ年平均濃度や排出量に対する全アンモニアの4ヵ年平均濃度の関係に、いずれも有意な相関関係が認められた。以上より、全アンモニア濃度は越境汚染よりも周囲の汚染を反映した地域汚染の影響が大きいことが示唆された。

【おわりに】7年分の調査結果は、長期的動向の視点で見ると、一部の地域で $nss-SO_4^{2-}(p)$ の増加傾向がみられたものの、ほとんどの観測地点では乾性沈着物の大気中濃度に明瞭な変化傾向はみられなかった。しかし、継続調査地点数が限定されていること、途中で調査休止期間を1年挟んでいること、硫黄化合物への平成12年の三宅島噴火の寄与も考慮すると、汚染の増減の判断は難しい。長期的動向の結論は、今回検討した7年分データだけでなく、調査継続中のデータを加味して検討するのが妥当ではないかと考えられる。現在、平成20年度調査として28地点の参加が予定されている。調査地点の増減はあっても全国観測網は維持されており、全国的な視点からの長期的動向の検討が期待される。

【謝辞】本調査に参加頂いた全環研協議会会員機関、並びに全面的な支援及び協力を頂いた環境省、(独)国立環境研究所、(財)日本環境衛生センター酸性雨研究センターに、厚く御礼申し上げます。