

第3次酸性雨全国調査報告書*

(平成11年度)

はじめに

地球環境問題については、平成4年の地球サミットでシンクグローバリー・アクトローカーがいわれ、地方自治体でも主要な環境課題としての取組みがなされています。なかでも9つある地球環境問題の一つである酸性雨については、その影響が地域の問題としても懸念され、地球サミット以前から地域独自の調査等が取り組まれてきました。

全国公害研協議会(現全国環境研協議会、以下同様)は、広域的で統一的な調査の必要性を認識し、酸性雨調査研究部会を設置するとともに、環境庁(現環境省、以下同様)や国立環境研究所等の関係機関の協力を得て、平成3年から全国調査を展開しています。

その結果、ご承知のとおり、雨水等のpHで語られていた酸性雨が各種の酸性イオンとして検出されるとともに、酸性雨など湿性での沈着とガスや固体粒子での乾性沈着に分離した調査にも着手し、同時に各機関の調査研究成果を持ち寄って測定手法の開発にも大きな前進を見たところです。

また、これらの集大成が各年度で報告されたことで、全国の汚染状況が国際的な移流も考慮する必要があることも判明し、部会活動の先見性と高い識見が、地球環境という国際的な取組みが必要な問題に対して、「東アジア酸性雨モニタリング・ネットワーク」の設立に大きく寄与したものと考えます。この間の関係者の並々ならぬご努力と

地道な活動に、深く敬意を表する次第です。

ところで、「酸性雨」という表記については「酸性沈着」という表記がより正しいと思われませんが、外因性内分泌攪乱化学物質が一般的には「環境ホルモン」として通用していますので、同様に現在の部会名も一般的な名称を用いております。しかしながら、今回の報告書にも示しておりますとおり、調査研究の内容はより科学的な把握を深めており、必要な指標を詳しく掲載しております。

今回の報告は平成11年度から開始した第3次の共同調査の初年度報告で、酸性成分の湿性と乾性沈着に関する空間分布把握のための調査研究が柱であり、47都道府県市が参加して、日本での酸性成分の総沈着量を確認する手法も手がけております。また一方では、三宅島の噴火や気象の変化など自然現象を含めた調査の困難性に対して、調査の簡便性と精度の向上を図る検討も引き続いて精力的に行っております。

これらの調査研究成果については、各地域等での影響実態や対策の検討を行う上で貴重な知見を与えるものと願っています。また、皆様には今後と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13年5月

全国環境研協議会
酸性雨調査研究部会
理事委員 飯沼 宗和
(岐阜県保健環境研究所長)

1. 目 的

第3次共同調査は2本あり、一つは「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、もう一つは「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/粒子状物質濃

度の測定により、乾性沈着成分の見積もりを行い、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

調査参加機関を表 2.1 に示した。各機関の調査Ⅰおよび調査Ⅱへの参加状況を○印で示した。また、平成11年度の全公研酸性雨調査研究部会組織を表 2.2 に示した。

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	北海道環境科学センター	○	○	
	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	○		
	秋田県環境技術センター	○	○	
	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	○		
	栃木県保健環境センター	○		
	群馬県衛生環境研究所	○		
	埼玉県公害センター	○		
	千葉県環境研究所	○		2地点
	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	○	○	
	石川県保健環境センター	○		2地点
	福井県環境科学センター	○	○	
	愛知県環境調査センター	○	○	
	三重県保健環境研究所	○		
	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	○	○	
	島根県衛生公害研究所	○	○	
	岡山県環境保健センター	○		
	広島県保健環境センター	○	○	
	山口県環境保健研究センター	○		
	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	○	○	
	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	○	○		

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 年度)

区 分	機 関 名	職 名	氏 名	執筆分担
部会長	大阪府公害監視センター	所長	小川 広勲	
部会長*	大阪府公害監視センター	所長	吉田 誠宏	
理事委員	岐阜県保健環境研究所	所長	飯沼 宗和	はじめに
支部委員	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	5.5
同	兵庫県立公害研究所	主任研究員	平木 隆年	4.2, 4.4, 4.5, 5.2
同	鳥取県衛生研究所	研究員	木村 義明	
同	福岡県保健環境研究所	大気科長	宇都宮 彬	
同*	大分県衛生環境研究センター	主幹研究員	恵良 雅彰	
委員	北海道環境科学研究所	研究職員	野口 泉	5.2, 5.4, 5.5
委員	新潟県保健環境科学研究所	主任研究員	大泉 毅	4.3, 4.5
委員	千葉県環境研究所	主席研究員	押尾 敏夫	5.3
委員	奈良県衛生研究所	副主幹	松本 光弘	5.4, 5.5
委員*	名古屋市環境科学研究所	主任研究員	北瀬 勝	5.3
委員	兵庫県立公害研究所	主任研究員	藍川 昌秀	4.2, 5.3
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*	徳島県保健環境センター	専門研究員	片田 正巳	
委員	鹿児島県環境保健センター	主任研究員	遠矢 倫子	4.3
事務局	大阪府公害監視センター	主任研究員	田口 圭介	2, 3, 4.1, 5.1, 6
事務局	大阪府公害監視センター	主任研究員	西川 嘉範	2, 4.1, 5.1, 6

*:12年度

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1年目の1999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47地点であり、その分布を図 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、冷蔵庫付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、あらかじめ純水で洗浄したメンブランフィルターでろ過し、ろ液を測定・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き書」(以下、「手引き書」、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 法または吸光度法、他の陽イオンは IC 法、原子吸光度法または ICP 法によった。

最終的なデータは表 2.6 に示したようにあらかじめ定めた4週または5週分を月単位にまとめて評価した。

2.2.2 乾性沈着調査

(1) 地 点

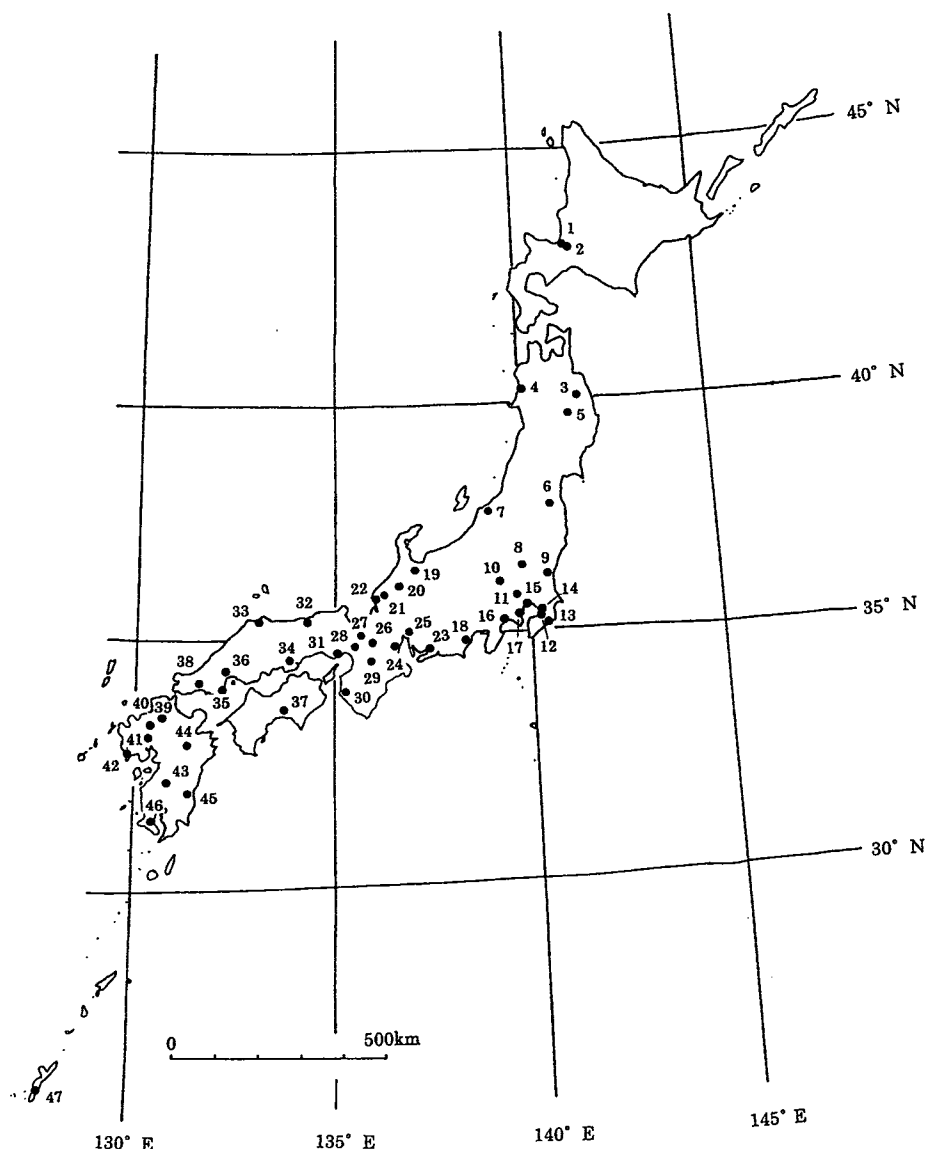


図 2.1 調査 I (湿性沈着) 調査地点

調査 II を実施した調査地点は 25 地点 (25 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 同様あらかじめ定めた (表 2.6) 4 週または 5 週分を月単位にまとめて評価した。

ガスと粒子状物質のサンプリングには 4 段ろ紙法を用いた。すなわち、市販のろ紙ホルダー (たとえば NILU 社製 4 段ホルダー) を用い、1 段目には市販の PTFE ろ紙 F₀ (孔径 0.8 μm, 直径 47 mm, ADVANTEC 社製 TO80A047A) を装着し、粒

子状物質を捕集し、2 段目には市販のポリアミドろ紙 F₁ (孔径 0.45 μm, 直径 47 mm, PALL 社製 UL-TIPOR 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、セルロースろ紙 F₂ (直径 47 mm, 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ろ紙 F₃ を調整し、NH₃ を捕集した。

サンプリングはろ紙ホルダーを適当なシェルター内に下向きに入れ、毎分 1 l の吸引速度で連続採取 (1 週間で約 10 m³) 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付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) 含浸ろ紙 F₂, F₃ の調製

表 2.3 平成11年度全公研第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	12.5	屋上 (地上高9m)	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 下名久井字塩釜(名川配水池)	40-20-30	141-21-40	99	18.4	地上 約1.4m	畑
秋田県環境技術 センター	4	八森	秋田県山本郡八森町字三十釜 八森ぶなつこランド内	40-23-13	140-01-36	50	3	地上	未指定
岩手県公署 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
宮城県保健環境 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
新潟県保健環境 科学研究所	7	新潟	新潟市曾和314-1	37-50-34	138-57-18	2	3.2	地上2.5m	市街化調整 区域
栃木県保健環境 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
茨城県公署 技術センター	9	水戸	茨城県水戸市石川1丁目4043-8	36° 23' 20"	140° 25' 47"	35.4	17	地上に設置	住居専用 区域
群馬県衛生環境 研究所	10	前橋	前橋市上沖町378	36° 24'	140° 6'	120		研究所の屋上 地上高20m	市街化調整 区域
埼玉県公署 センター	11	浦和	浦和市上大久保639-1	35-51-55	139-36-58	10+18	30	公署センター屋上	住居系
千葉県環境 研究所	12	市原	市原市岩崎西1-8-8 (環境研究所)	35-31-18	140-04-20	2	0.8	5m屋上	特別工業
	13	勝浦	勝浦市植野260 (上野小学校)	35-09-12	140-15-20	100	2	3m屋上	
千葉県環境保健 研究所	14	土気	千葉市緑区大権町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	0.8	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	35-24	139-21	4	4	4階 (地上22m)	準工業地域
横浜市環境 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 準住居専用地域
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閤山 17丁目1番	36-41-51	137-6-9	10	8	地上	第一種低層 住居専用 住宅用地
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	住宅地
	21	鳥越	石川県石川郡吉野谷村字吉野壬89	36-20	136-37-30	200	16	白山湧き出る敷地 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
愛知県環境調査 センター	23	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
三重県保健環境 研究所	24	四日市	三重県四日市市新正4-21-5	34-57	136-37	190	15.1	屋上	原野
名古屋市環境 科学研究所	25	緑	名古屋市緑区桃山四丁目905	35-5-56	136-59-22	60	9	地上1.1m	第一種低層 住居専用 住宅地
滋賀県立衛生 環境センター	26	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	27	周山	北桑田郡北町周山上の段	35-8-47	135-38-9	260	36	屋上・4階 地上約13m	未指定
大阪府公署監視 センター	28	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	29	奈良	奈良県奈良市大森町57-6	34-38-24	135-49-12	94	35	研究所屋上	商業
和歌山県衛生公署 研究センター	30	印南	和歌山県日高郡印南町印南原3191	33-52-16	135-14-27	110	7.1	地上	未指定
兵庫県立 公署研究所	31	神戸須磨	神戸市須磨区行平町3-1-27	34-39	135-08	15	0.75	屋上・6階 地上約17m	準工業地域
鳥取県衛生 研究所	32	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
鳥根県衛生公署 研究所	33	松江	鳥根県松江市西浜佐陀町582-1	35-13-1	133-0-4	6	約6	衛生公署研究所 屋上(地上高18m)	指定地域なし
岡山県環境保健 センター	34	岡山	岡山市内尾739-1	34-35-8	133-52-15	10	7.4	3階の屋上	市街化調整 区域
広島県保健環境 センター	35	倉橋島	倉橋町石休235	34-6-48	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	33-33	130-30	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	福岡市早良区石巻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
長崎県衛生公署 研究所	42	式見ダム	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
大分県衛生環境 研究所	44	大分	大分県直入郡久住町大字久住字	33-02-26	131-15-13	580	35	地面から3.5m (屋上から1.25m)	準工業地域
宮崎県衛生 環境研究所	45	宮崎	宮崎市学園木花台西2-3-2 県衛生環境研究所	31-49-48	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	46	喜入	鹿児島県喜入町中名高野東8227 町総合運動公園	31-22-21	130-32-41	50	0.275	地上1.5m	未指定
沖縄県衛生環境 研究所	47	大里	沖縄県大里村字大里2085	28.11	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(八戸公害事務所)	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
秋田県環境技術センター	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-330型	1週間	有	有
関東・甲信・静				
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
埼玉県公害センター	小笠原計器 US-400型	降雨毎	無	無
千葉県環境研究所	小笠原計器	1ヶ月	無	有
千葉県環境保健研究所	小笠原計器 C-U273型	1ヶ月	有	無
東京都環境科学研究所	柴田科学器械 W-121型	1週間	無	無
神奈川県環境科学研究所	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	2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
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
福井県環境科学センター	小笠原計器 R-500型	1週間	無	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
三重県保健環境研究所	小笠原計器 US-330型	1週間	有	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	無	無
和歌山県衛生公害研究センター	小笠原計器 US-330型	2週間	有	無
兵庫県立公害研究所	小笠原計器 US-300型	降雨毎	無	無
奈良県衛生研究所	小笠原計器 US-410型	1週間	無	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
鳥根県衛生公害研究所	小笠原計器 US-400型	1週間	有	無
岡山県環境保健センター	小笠原計器 R-1500型	1週間	無	無
広島県保健環境センター	紀本電子工業 AR-102SN型	2週間	無	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-300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	有
	小笠原計器 US-330D型	1週間	有	無
大分県衛生環境研究センター	小笠原計器 C-U427型	2週間	無	無
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	1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	無

F₂: 6% K₂CO₃ + 2% グリセリン水溶液を500 ml ビーカー 2個 (A, B) に調製し, 捕集用セル

ローズろ紙約20枚をAに浸し, 5分間超音波洗浄した。ろ紙を引き上げBに浸し, 再度5分間

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		mm	
pH	ガラス電極法		
EC	電気伝導率計	mS/m	
雨	SO ₄ ²⁻	イオンクロマトグラフィー(IC)	μ mol/l
	NO ₃	イオンクロマトグラフィー(IC)	μ mol/l
	Cl ⁻	イオンクロマトグラフィー(IC)	μ mol/l
水成分	NH ₄ ⁺	イオンクロマトグラフィー(IC)、インドフェノール法	μ mol/l
	Na ⁺	イオンクロマトグラフィー(IC)、原子吸光度法、ICP法	μ mol/l
	K ⁺	イオンクロマトグラフィー(IC)、原子吸光度法、ICP法	μ mol/l
	Ca ²⁺	イオンクロマトグラフィー(IC)、原子吸光度法、ICP法	μ mol/l
	Mg ²⁺	イオンクロマトグラフィー(IC)、原子吸光度法、ICP法	μ mol/l

表 2.6 平成11年度酸性雨調査の各月別調査期間

月	平成11年度 (1999)	週
4月	3月29日(月)～5月6日(木)	5週*
5月	5月6日(木)～5月31日(月)	4週*
6月	5月31日(月)～7月5日(月)	5週
7月	7月5日(月)～8月2日(月)	4週
8月	8月2日(月)～9月6日(月)	5週
9月	9月6日(月)～10月4日(月)	4週
10月	10月4日(月)～11月1日(月)	4週
11月	11月1日(月)～12月6日(月)	5週
12月	12月6日(月)～1月4日(火)	4週*
1月	1月4日(火)～1月31日(月)	4週*
2月	1月31日(月)～3月6日(月)	5週
3月	3月6日(月)～4月3日(月)	4週

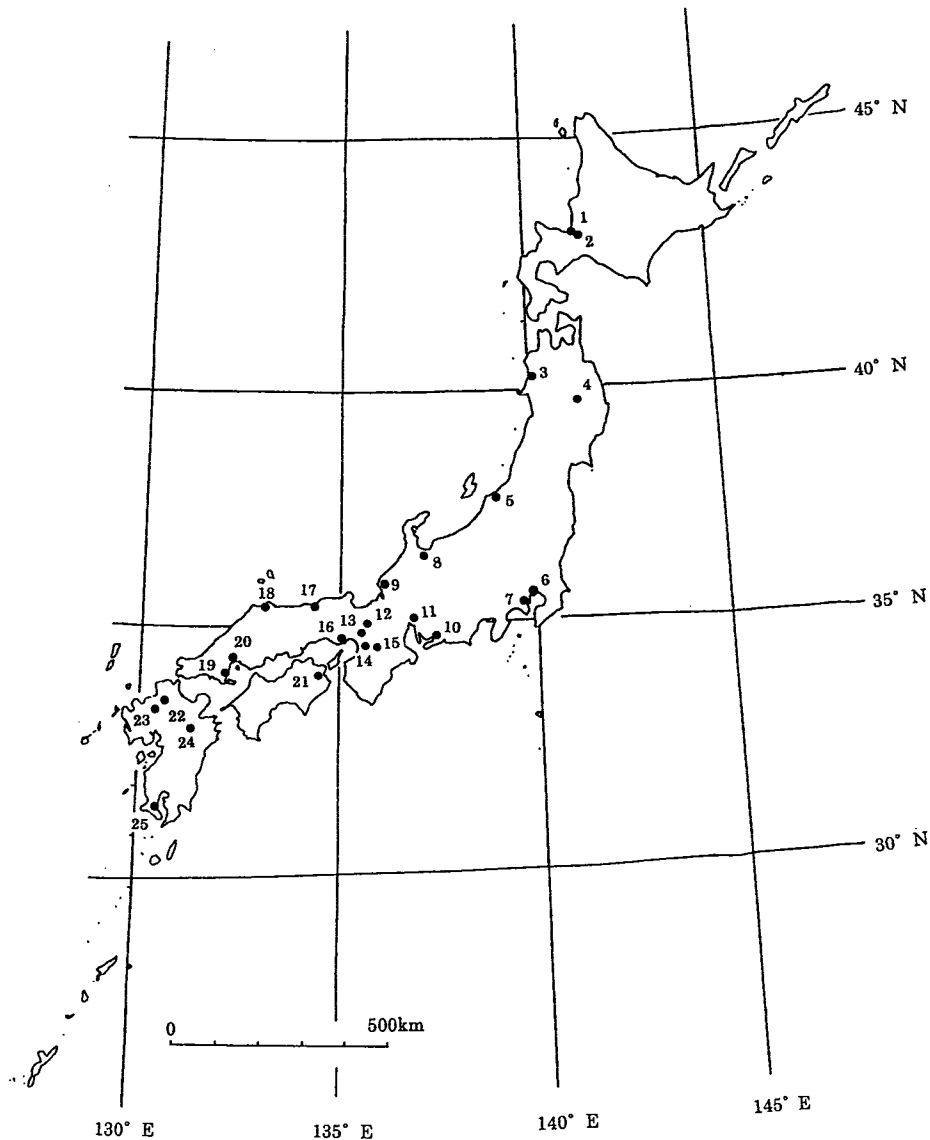


図 2.2 調査II(乾性沈着)調査地点

表 2.7 平成11年度全公研第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	12.5	屋上 (地上高9m)	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
秋田県環境技術 センター	3	八森	秋田県山本郡八森町字三十釜 八森ぶなっこだ内	40-23-13	140-01-36	50	3	地上	未指定
岩手県公害 センター	4	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	5	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	6	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 研究所	7	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	8	小杉	富山県射水郡小杉町中太閤山 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	9	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	10	豊橋	豊橋市富本町国隔20-8	34-44-20	137-23-15	20	約6	支所屋上2階	住居地域
名古屋市環境 科学研究所	11	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	12	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	13	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	14	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	15	奈良	奈良県奈良市大森町57-6	34-38-24	135-49-12	94	35	研究所屋上	商業
兵庫県立 公害研究所	16	神戸須磨	神戸市須磨区行平町3-1-27	34-39-	135-08-	15	0.75	屋上・6階 地上約17m	準工業地域
鳥取県衛生 研究所	17	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
島根県衛生公害 研究所	18	松江	島根県松江市西浜佐陀町582-1	35-13.1-	133-0.4-	6	約6	衛生公害研究所 屋上(地上高18m)	指定地域なし
広島県保健環境 センター	19	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	20	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
徳島県保健環境 センター	21	石井	徳島県名西郡石井町石井 2202-1 県農業大学校	34-3-52	134-26-56	15	14	屋上	
福岡県保健環境 研究所	22	太宰府	福岡県太宰府市大字向佐野39 県保健環境研究所	33-33-	130-30-	27	18	地上1m	市街化調整 区域
福岡市保健環境 研究所	23	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 研究所	24	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3.5m (設置高さ Fから1.26m)	
鹿児島県環境 保健センター	25	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

超音波をかけた後、大型ろ紙(40cm×40cm, AD VANTEC社製590)で挟み、すばやく余分な水分を取った。洗浄済みのろ紙ケースに入れチャック

付きポリ袋に密閉し、デシケータに入れ、使用時まで冷蔵保存した。

F₃: 5%リン酸+2%グリセリン水溶液を500

表 2.8 4 段ろ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
	HNO ₃	NO ₃ ⁻	ポリアミド
	HCl	Cl ⁻	ポリアミド+ K ₂ CO ₃
	NH ₃	NH ₄ ⁺	ポリアミド+ H ₃ PO ₄
エアロゾル成分	SO ₄ ²⁻	SO ₄ ²⁻	テフロン
	NO ₃ ⁻	NO ₃ ⁻	テフロン
	Cl ⁻	Cl ⁻	テフロン
	NH ₄ ⁺	NH ₄ ⁺	テフロン
	Na ⁺	Na ⁺	テフロン
	K ⁺	K ⁺	テフロン
	Ca ²⁺	Ca ²⁺	テフロン
	Mg ²⁺	Mg ²⁺	テフロン

ml 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

試料採取後のろ紙を内容積 50ml のキャップ付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 ろ紙には 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ろ過した。このろ液は少なくとも 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 段目のポリアミドロ紙 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 段ろ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, ろ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^{1~3)}

4 月~5 月には, 前線や低気圧の影響の大きかった北海道・東北の太平洋側から関東甲信地方にかけて降水は多かった。

6 月下旬, 梅雨前線の活動が活発化し, 九州北部で総雨量 400mm~700mm, 中国・四国地方から中部地方にかけても総雨量 200mm~300mm という大雨が観測された。6 月 29 日, 前線上の低気圧が対馬海峡付近をゆっくり東進し, 前線の活動が活発化した。それとともに前線も北上し, 30 日にかけて西日本や東日本に再び大雨を降らせた。1 時間 100mm 前後の降水で福岡県や広島県では被害も出た。

7 月の梅雨明け後も西日本や南西諸島では, 湿った気流の吹込みや台風の影響で雨の日も多かった。7 月 25 日~26 日, 台風 5 号が奄美大島を通過し, 九州の西海上を北上。このため九州~四国地方にかけて大雨となった。

8 月に入ると, 太平洋高気圧の北への張出しが強くなったが, 西への張出しは弱く, そのため北日本, 東日本では降水量が少なかったが, 高気圧の西の縁から湿った空気が流入しやすかったことで西日本の太平洋側でまとまった降雨が続いた。8 月初めには台風 7 号が沖縄本島を通過し, また九州の西海上を北上した。5 号の場合と同様, 四国や九州に大雨があった。さらに, 8 月 6 日には台風 8 号が種子島の北部を通過し, 九州の西海上を北西に進み, その後熱帯低気圧になった。この影響で紀伊半島から九州南部にかけて大雨となった。

このように 3 つの台風が上陸はなかったが西日本に接近し, 大雨をもたらした。またこの他 7 月

～8月には、平年より高緯度の海域で発生した弱い熱帯低気圧が台風まで発達せず日本に接近し、大雨をもたらすケースもあった。

9月は全国的に残暑が厳しかったが、秋雨前線の活動は西日本を中心に活発化し、さらに中旬から下旬にかけて台風16号、18号が上陸、17号接近と西日本や南西諸島では暴風雨に見舞われた。18号は九州に上陸後日本海を北上し、再び北海道にも上陸した。その間、九州から四国、中部にかけて大雨をもたらした。

10月中旬から11月にかけては低気圧、高気圧が交互に通過したが、降雨はそれほど多くはなかった。12月からは各月の後半に冬型の気圧配置が現われ寒気の南下することが多かったが、東・西日本では低気圧、前線の影響は小さく、とくに太平洋側では晴れることが多く降水量は極端に少なかった。

また、1月上・中旬は冬型の気圧配置が現われず全国的に高温となったため、北陸・東北日本海側は少雪となった。一方、近畿日本海側から山陰地方にかけては、寒気の南下で降雪量は多かった。とくに2月後半には強い冬型が持続した。

以上の1999年度の気象概況を全国45地点の平年値(1961～1990年)⁴⁾と比較すると、①降水量の月別の全国平均では、6月と9月が平年より多く、10月、2月、4月および12月が少なかったが、年度の全国平均では約100mm多く、とくに九州、四国、東北では200mm以上多くなった地点が多かった。また、②平均気温の月別では、9月と1月が平年より2℃以上高く、とくに9月は全国平均が平年より2.6℃も高かった。一方、7月は西日本で、2月は全国的に平年より低くなったが、全国の年度平均としては0.9℃高く、とくに北日本や東日本ではほとんどの地点で1℃以上高かった。③日照時間の月別では、5月は全国平均で27時間増え、7月は21時間減り、年度平均としては8時間増えた。しかし、北海道・東北、瀬戸内海から九州にかけては、台風の影響もあり100時間以上減った。④平均風速は平年と比べ0.1m/sec下がったが、夏季太平洋側は平年より強い風が吹いた。

次に、SO₂発生量や降灰の大きい桜島について記述する。4月から1年間の桜島の爆発回数は計

327回であったが、とくに12月には88回、1月には58回、2月に44回と活発であった⁵⁾。鹿児島県の測定⁶⁾によれば、桜島の降灰量は桜島の南約4kmに位置する有村では4月から3月までの1年間で2万8,079g/m²であり、東に位置する黒神で1万2,925g/m²、西の赤水では4,099g/m²であった。有村での降灰量は12月2,498g/m²、1月8,639g/m²、そして2月が7,350g/m²と1月の方が多かった。降灰量は爆発ごとに噴煙量が異なることやその時の風向にもよって強く影響を受ける。

— 参 考 文 献 —

- 1) 高橋俊二：気象，43（8），34（1999）
- 2) 高野清治：気象，43（11），34（1999）
- 3) 高橋俊二：気象，44（5），34（2000）
- 4) 理科年表CD-ROM2001，国立天文台編，丸善
- 5) 桜島爆発原簿，鹿児島地方気象台，平成11年4月～12年3月
- 6) 平成11年度桜島降灰観測データ，鹿児島県総務部消防防災課

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)

「手引き書」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、従来の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つの濃度ランクにわけて、高濃度になるに従って厳格な基準を定めている。R₁、R₂は個々の試料についての測定値より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=489)についてR₁を計算し、その頻度分布を図4.1に示した。R₁が0～5にピークを持ち、-5～10に全データの82%が入る分布をしていた。±30を超えたのは4(0.8%)データであった。また、R₁の基準をオーバーしたのは78(16%)データであった。すべてのデータが基準を超えているのが2機関あり、R₁の基準をオーバーしたデータについて各機関での原因追及が望まれる。

表 4.1 R₁ および R₂ の許容範囲

$R_1 = (C-A)/(C+A) \times 100$		$R_2 = (\Lambda_{calc} - \Lambda_{meas}) / (\Lambda_{calc} + \Lambda_{meas}) \times 100$	
C+A ($\mu\text{eq/L}$)	R ₁ (%)	Λ_{meas} (mS/m)	R ₂ (%)
<50	±30	<0.5	±20
50-100	±15	0.5-3.0	±13
>100	±8	>3.0	±9

同様に伝導率についても R₂ を計算し、その頻度分布を図 4.2 に示した。R₂ が -5 ~ 0 にピークを持ち、±10 の範囲内に全データの 88% が入る分布をしていた。±30 を超えたデータはなかった。また、R₂ の基準をオーバーしたのは 42 (8.6%) データであった。

全体的な分布傾向として、R₁ がプラス側に 65% の出現頻度であり、R₂ がマイナス側に 55% といった分布をしていた。このことは、個々の試料について検討すべきであるが、マイナー成分としての亜硝酸や炭酸水素等陰イオンの存在が示唆される。

4.1.2 欠測率の評価

平成 11 年度は第 3 次調査の初年度に当たることから、wet-only のサンプラーが間に合わない等の理由により、4 月から実施できなかったのが参加全地点 47 に対して約 1/4 の 12 地点あった。また、月を限定して測定しているのが 1 地点あった。全測定期間を通じて月単位での欠測率は 13.7% (77/564) であった。月内に欠測週があるデータは約 1.2% (6/489) であり、付表 1 では網掛けで示した。

次年度からはサンプラーもそろっていることであり、月単位の欠測率は改善される見込みである。

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の地点および地域比較を行った。なお、地域比較を行う際の地域分類で、日本海側に分類した測定地点は八森(青森)、新潟(新潟)、小杉(富山)、金沢(石川)、鳥越(石川)、福井(福井)、鳥取(鳥取)、松江(島根)、山口(山口)、大宰府(福岡)、福岡(福岡)、佐賀(佐賀) および式見(長崎) であり、それ以外は太平洋側として分類した。

(1) 降水量

年間を通してデータがそろっている地点についてみると、年降水量の範囲は 940mm (札幌白石) ~ 3,456.5mm (宮崎) であり、報告されたデータ

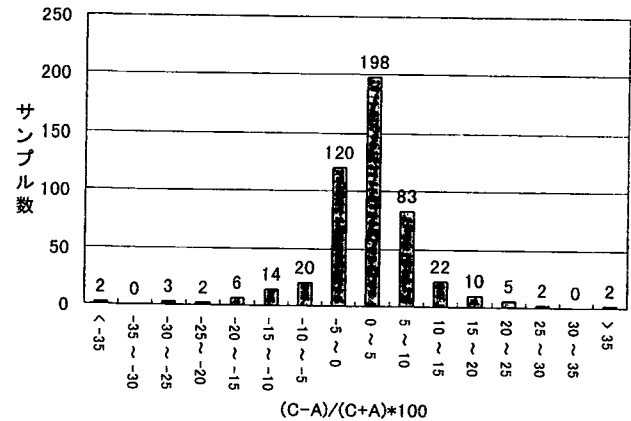


図 4.1 湿性イオンバランスの頻度分布

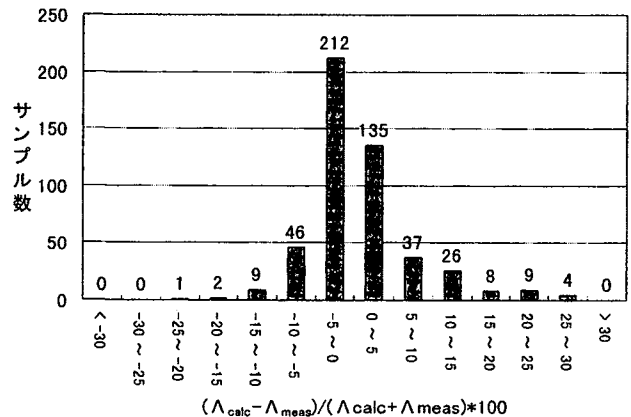


図 4.2 湿性導電率バランス頻度分布

すべてについてみると、全国平均は 1,469mm であった。中央値は 1,495mm であることから、年降水量はほぼ正規分布をしていると考えられる。地域分類ではおおむね日本海側の方が太平洋側よりも降水量が多かった。

(2) pH

年間を通してデータがそろっている地点についてみると、年平均 pH の範囲は 4.44 (福井) ~ 5.75 (大里) であり、報告されたデータすべてについてみると全国平均は 4.83 (地点ごとの加重平均値の算術平均値) であった。地点ごとの加重平均値の中央値は 4.80 であることから、pH はほぼ正規分布をしていると考えられる。季節変化では冬季に

低くなり、1月に最小値を示した(図4.3)。地域分類では4.68(日本海側)および4.89(太平洋側)であり、年間を通して日本海側の方が低く、とくに日本海側では冬季における低下が著しかった(図4.3)。環境庁による第3次酸性雨対策調査[4.4(倉敷島)~5.9(宇部), 第3次調査平均は4.8]と比べ、ほぼ同レベルの結果といえる。

(3) 電気伝導率

年間を通してデータがそろっている地点についてみると、年平均電気伝導率の範囲は1.02mS/m(大分)~4.44mS/m(大里)であった。報告されたデータすべてについてみると、全国平均は2.21mS/m(地点ごとの加重平均値の算術平均値)であった。季節変化では暖候季に低く、寒候季に高かった(図4.3)。地域分類では3.09mS/m(日本海側)および1.87mS/m(太平洋側)であり、暖候季には太平洋側が、寒候季には日本海側が高かった(図4.3)。

(4) nss-SO_4^{2-} 濃度

年間を通してデータがそろっている地点についてみると、年平均 nss-SO_4^{2-} 濃度の範囲は3.77 $\mu\text{mol/l}$ (大里)~77.1 $\mu\text{mol/l}$ (江東)であった。報告されたデータすべてについてみると、全国平均は13.5 $\mu\text{mol/l}$ (地点ごとの加重平均値の算術平均値)であった。季節変化では暖候季に低く、寒候季に高かった(図4.3)。地域分類では12.7 $\mu\text{mol/l}$ (日本海側)および13.8 $\mu\text{mol/l}$ (太平洋側)であり、4月、1月、3月を除いて太平洋側の方が高かった(図4.3)。環境庁による第3次酸性雨対策調査[8.7 $\mu\text{eq/l}$ (小笠原)~55.1 $\mu\text{eq/l}$ (大牟田), 第3次調査平均値は29.2 $\mu\text{eq/l}$]と比べ、平均値(27.0 $\mu\text{eq/l}$)についてはほぼ同レベルの結果であるが、本調査の中央値は10.5 $\mu\text{mol/l}$ (21.0 $\mu\text{eq/l}$)であることから中央値についてみると低めの結果であった。

(5) NO_3^- 濃度

年間を通してデータがそろっている地点についてみると、年平均 NO_3^- 濃度の範囲は5.56 $\mu\text{mol/l}$ (大分)~33.5 $\mu\text{mol/l}$ (四日市)であった。報告されたデータすべてについてみると、全国平均は17.7 $\mu\text{mol/l}$ (地点ごとの加重平均値の算術平均値)であった。季節変化ではおおむね暖候季に低く、寒候季に高かった(図4.3)。地域分類では19.2 μmol

l (日本海側)および17.1 $\mu\text{mol/l}$ (太平洋側)であり、おおむね暖候季には太平洋側が、寒候季には日本海側が高かった(図4.3)。環境庁による第3次酸性雨対策調査[3.2 $\mu\text{eq/l}$ (小笠原)~31.2 $\mu\text{eq/l}$ (北九州), 第3次調査平均値は14.4 $\mu\text{eq/l}$]と比べ、ほぼ同レベルかやや高めの結果といえる。

(6) NH_4^+ 濃度

年間を通してデータがそろっている地点についてみると、年平均 NH_4^+ 濃度の範囲は3.56 $\mu\text{mol/l}$ (静岡)~77.9 $\mu\text{mol/l}$ (四日市)であった。報告されたデータすべてについてみると、全国平均は22.0 $\mu\text{mol/l}$ (地点ごとの加重平均値の算術平均値)であった。季節変化ではおおむね暖候季に低く、寒候季に高かった(図4.3)。地域分類では21.2 $\mu\text{mol/l}$ (日本海側)および22.3 $\mu\text{mol/l}$ (太平洋側)であり、3月を除き太平洋側が高かった(図4.3)。環境庁による第3次酸性雨対策調査[1.7 $\mu\text{eq/l}$ (小笠原)~44.7 $\mu\text{eq/l}$ (宇部), 第3次調査平均値は17.9 $\mu\text{eq/l}$]と比べ、平均値についてはほぼ同レベルかやや高めの結果であった。

(7) nss-Ca^{2+} 濃度

年間を通してデータがそろっている地点についてみると、年平均 nss-Ca^{2+} 濃度の範囲は0.46 $\mu\text{mol/l}$ (大分)~63.4 $\mu\text{mol/l}$ (江東)であった。報告されたデータすべてについてみると、全国平均は6.42 $\mu\text{mol/l}$ (地点ごとの加重平均値の算術平均値)であった。季節変化ではおおむね暖候季に低く、寒候季に高かった(図4.3)。地域分類では5.26 $\mu\text{mol/l}$ (日本海側)および6.88 $\mu\text{mol/l}$ (太平洋側)であり、4月および3月を除いて太平洋側が高かったが、3月には日本海側で高濃度となった(図4.3)。環境庁による第3次酸性雨対策調査[1.4 $\mu\text{eq/l}$ (八幡平)~50.9 $\mu\text{eq/l}$ (宇部), 第3次調査平均値は9.7 $\mu\text{eq/l}$]と比べると、本調査の最大値は63.4 $\mu\text{mol/l}$ (127 $\mu\text{eq/l}$)(江東)と高い値であったが次に高い値は19.1 $\mu\text{mol/l}$ (38.2 $\mu\text{eq/l}$)(福井)であり、また中央値は4.07 $\mu\text{mol/l}$ (8.14 $\mu\text{eq/l}$)であることからほぼ同レベルかやや低めの結果といえる。

(8) 他のイオン成分濃度

表4.2に他のイオン成分濃度についての平均値等をまとめて示す。平均値(地点ごとの加重平均値の算術平均値)と中央値(地点ごとの加重平均値

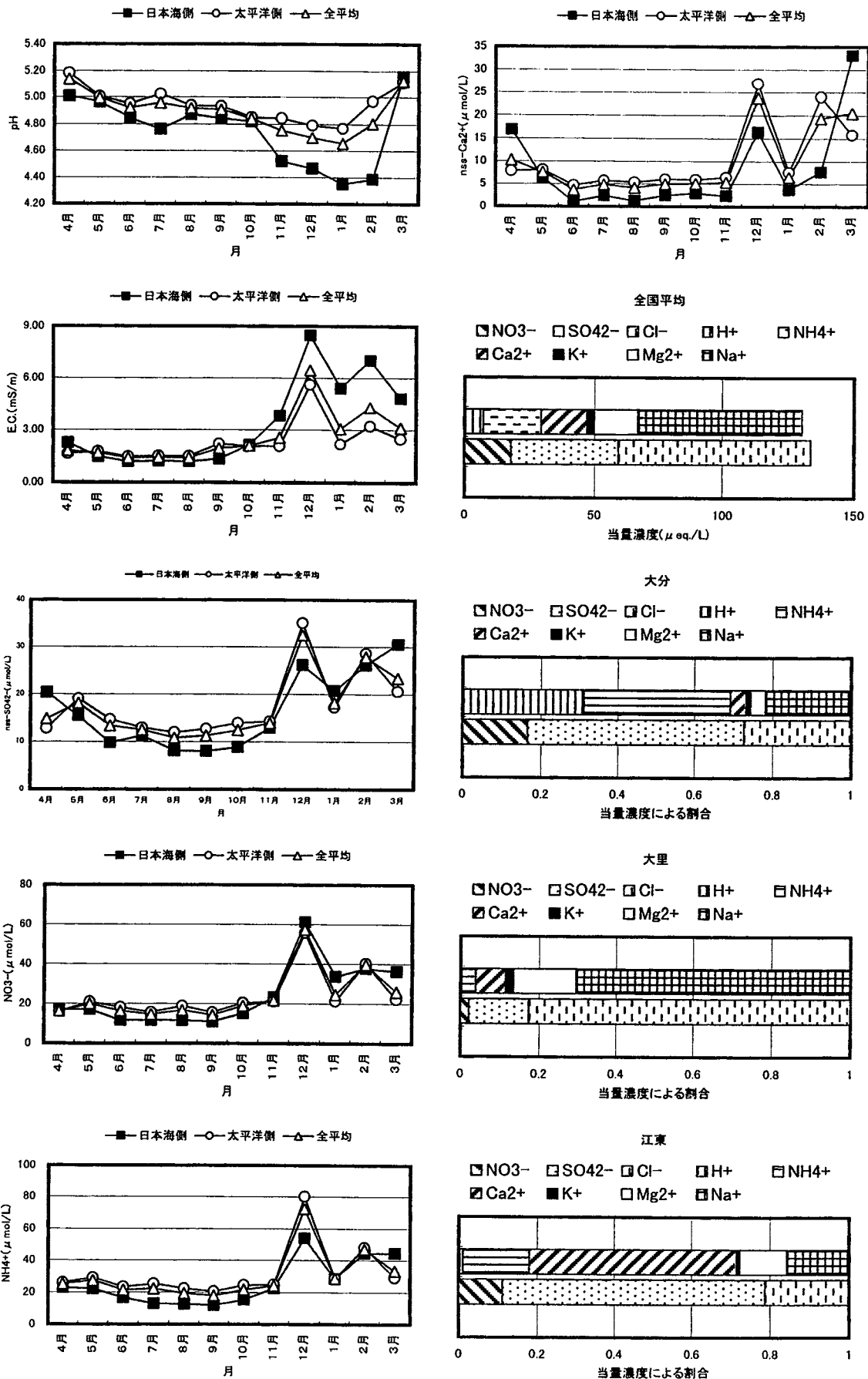


図 4.3 イオン成分等の濃度推移および当量濃度による割合

の中央値)をみると、 Cl^- 、 Na^+ 、 Ca^{2+} 、 $nss-Ca^{2+}$ および Mg^{2+} については、異常に大きい平均値を示す地点の値に影響を受けて平均値が高くなっていることがわかる。また、年平均値の最小値を示す地点では大分が多く成分で最小値を示している。これは降水量が多いために濃度が低くなっているのではなく、降水の特徴を反映しているものであると考えられる。一方、年平均値の最大値を示す地点では、大里が海塩粒子の影響を強く受け Na^+ および Cl^- が高濃度となっている。また、江東では SO_4^{2-} 、 $nss-SO_4^{2-}$ 、 Ca^{2+} および $nss-Ca^{2+}$ が高濃度となっており周辺環境の影響を強く受けていると考えられる。

(9) 平均イオン組成

図 4.3 に平均イオン組成を当量濃度で示す。 Na^+ と Cl^- が組成の半分以上を占めており、全国平均的に見て海塩粒子の影響を強く受けていることがわかる。図 4.3 にイオン成分濃度で特徴的な地点であった大分、大里、江東のイオン組成を当量濃度による割合で示す。地点ごとに特徴的な組成を示し、江東では SO_4^{2-} および Ca^{2+} が、大里では Cl^- および Na^+ が、大分では SO_4^{2-} 、 H^+ および NH_4^+ が大きな割合を示すことがわかる。

このことから、江東は周辺環境の影響を強く受けていることが、大里では海塩粒子の影響を受けていることがわかる。大分では非海塩性成分であ

る NH_4^+ が大きな割合を示す。陰イオンでは SO_4^{2-} が大きな割合を示すが、非海塩粒子由来の割合が高く、イオン組成から判断して大気中の $(NH_4)_2SO_4$ (aerosol) 由来ではないかと推察される。

4.3 イオン成分湿性沈着量

湿性沈着に伴う酸性物質などの地表面への負荷量は、各成分の降水中濃度と降水量の積により算出される。ここでは湿性沈着量の空間的分布を明らかにするために、各測定地点の年間値や月間値を用いて地点および地域間の比較を行った。

湿性沈着物の捕集が行われた47地点の内、13地点(名川、八森、河内、前橋、金沢、鳥越、緑、大津、印南、鳥取、広島安佐南、香北、人吉)は、欠測期間が長い(3カ月以上)あるいは捕集方法が異なるために解析から除いた。34地点を5地域(太平洋側、日本海側、瀬戸内海沿岸、東シナ海沿岸、南西諸島)および2つの属性(アーバン、ルーラル)に区分して解析を行った。属性区分においては、調査地点の半径20km内に人口20万人以上の市街地地域がないことを目安として、ルーラル地点を選定した。

4.3.1 年間沈着量の全地点平均値と地域的特徴

表 4.3 に全解析地点の年降水量と年間沈着量を示した。降水量の全地点平均値は1,668mmで九州地域を中心に平年値を超えた地点が多く、とくに宮崎は3,457mmで最高値を示した。

表 4.2 イオン成分濃度等の平均値、最大値、最小値

表4-2 イオン成分濃度等の平均値、最大値、最小値

	地点毎の加重平均値 の算術平均値(※1)	地点毎の加重平均 値の中央値(※2)	年平均値(※3)			
			最大値	地点	最小値	地点
降水量	1469	1495	3456.5	宮崎	940	札幌白石
pH	4.83	4.80	5.75	大里	4.44	福井
E.C.	2.21	1.84	4.44	大里	1.02	大分
SO_4^{2-} 濃度	20.8	16.2	81.7	江東	9.45	大分
$nss-SO_4^{2-}$ 濃度	13.5	10.5	77.1	江東	3.77	大里
NO_3^- 濃度	17.7	16.2	33.5	四日市	5.56	大分
Cl^- 濃度	74.3	48.6	258	大里	9.14	大分
H^+ 濃度	16.3	15.7	36.0	福井	1.78	大里
Na^+ 濃度	63.3	36.5	243	大里	8.29	大分
NH_4^+ 濃度	22.0	20.4	77.9	四日市	3.56	静岡
K^+ 濃度	2.73	2.25	6.85	大里	0.39	大分
Ca^{2+} 濃度	8.92	5.80	65.0	江東	0.78	大分
$nss-Ca^{2+}$ 濃度	6.42	4.07	63.4	江東	0.46	大分
Mg^{2+} 濃度	8.61	5.24	32.3	福井	0.73	大分

単位は降水量についてはmm,E.C.についてはmS/m,イオン濃度については $\mu mol/L$

※1 降水量については地点毎年降水量の算術平均値

※2 降水量については地点毎年降水量の中央値

※3 年平均最大値及び年平均最小値は年間通してデータがそろっている地点についての加重平均値。

※3 降水量については地点毎の年降水量

降水を酸性化する物質の指標となる成分(以下、酸性成分という)である nss-SO_4^{2-} と NO_3^- 沈着量は、全地点平均値で $26.1, 26.5 \text{ mmol} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{year}^{-1}$ を示した。 nss-SO_4^{2-} 沈着量は江東と福井で極端に高く、土気で最低値を示した。 NO_3^- は、四日市で最高値を、大分で最低値を示し、九州や

北海道で低い値を示す地点が多かった。

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 NH_4^+ と nss-Ca^{2+} 沈着量は、全平均値で $35.3, 11.1 \text{ mmol} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{year}^{-1}$ を示した。 NH_4^+ は四日市で極端に高く、静岡と勝浦で低い値を示した。 nss-Ca^{2+}

表 4.3 年降水量と湿性沈着量年間値

No.	地点名	降水量	mmol $\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{year}^{-1}$											地域	属性
		mm $\cdot\text{year}^{-1}$	SO_4^{2-}	nssSO_4^{2-}	NO_3^-	Cl^-	H^+	NH_4^+	Na^+	K^+	Ca^{2+}	nssCa^{2+}	Mg^{2+}		
1	札幌北	1020	20.4	15.3	12.4	105	20.6	23.2	85.3	2.78	6.62	4.74	10.0	J	U
2	札幌白石	940	18.2	15.2	11.2	65.2	14.7	19.5	48.7	1.72	5.45	4.38	6.51	J	U
5	盛岡	1314	15.1	13.4	18.8	31.6	13.7	29.1	26.8	1.59	7.07	6.48	3.92	P	U
6	丸森	1956	23.0	19.6	29.7	70.2	23.9	29.4	56.1	2.26	5.61	4.37	7.78	P	R
7	新潟	1915	47.4	29.7	29.9	327	35.3	34.1	292	8.68	11.9	5.47	31.2	J	U
9	水戸	1256	14.1	12.2	22.2	34.0	11.1	25.1	31.2	2.04	7.09	6.41	4.15	P	U
11	浦和	1263	17.4	16.2	38.4	26.4	29.1	41.6	18.5	0.80	6.76	6.35	2.65	P	U
12	市原	1028	23.9	22.6	21.8	40.6	10.2	13.9	20.9	3.14	11.7	11.2	8.31	P	U
13	勝浦	1762	32.2	20.1	25.1	208	17.1	7.21	199	10.0	8.03	3.94	29.1	P	R
14	土気	1234	12.5	9.79	13.7	63.4	7.02	22.2	44.4	8.36	5.74	4.76	6.85	P	U
15	江東	1310	107	104	35.1	67.4	11.9	53.8	50.2	2.37	85.2	84.1	19.2	P	U
16	平塚	1281	15.5	12.2	20.1	69.8	11.2	36.0	55.3	1.99	7.15	5.93	6.19	P	U
17	磯子	1646	25.7	22.8	34.3	80.6	25.5	56.7	48.5	1.42	6.59	5.53	6.71	P	U
18	静岡	1447	16.7	15.1	27.9	36.1	15.9	5.16	26.0	0.99	8.42	7.85	3.33	P	U
19	小杉	1988	46.9	34.8	36.4	254	36.8	50.6	200	7.30	23.2	18.8	27.2	J	R
22	福井	1988	120	104	52.8	308	71.5	60.5	271	8.90	49.8	43.8	64.2	J	U
23	豊橋	1601	16.7	13.5	20.6	61.7	15.2	22.9	52.6	2.36	9.38	8.22	6.74	P	U
24	四日市	1654	42.6	38.9	55.4	76.4	13.9	129	60.3	6.84	24.5	23.2	16.8	P	U
27	周山	1257	15.7	14.1	24.2	30.5	17.4	19.2	26.6	3.13	4.54	3.97	4.51	I	R
28	池田	1742	21.4	19.9	27.5	33.7	32.4	24.7	23.4	1.25	6.28	5.76	3.15	I	U
29	奈良	1567	22.2	21.1	32.5	31.6	19.1	84.5	18.2	1.94	10.4	9.98	3.80	I	U
31	神戸須磨	1155	23.0	18.9	21.3	76.3	22.3	25.1	68.3	2.09	8.93	7.43	8.47	I	U
33	松江	1738	44.4	29.7	41.7	281	32.2	39.6	243	10.1	20.0	14.6	28.7	J	U
34	岡山	930	18.7	18.2	15.6	13.1	25.3	14.5	8.79	0.77	5.36	5.17	2.49	I	U
35	倉橋島	1406	17.3	16.2	17.0	21.6	26.1	20.1	17.0	2.39	1.98	1.60	1.87	I	R
38	山口	2263	38.2	33.8	41.6	80.9	63.2	38.9	72.8	6.59	9.07	7.56	5.95	J	U
39	太宰府	1917	27.4	23.9	22.1	63.5	27.9	34.5	58.4	5.38	11.1	9.83	6.34	E	U
40	福岡	2455	38.4	32.9	33.7	110	40.7	52.4	89.6	6.67	14.0	12.0	10.1	E	U
41	佐賀	2130	30.2	27.7	23.5	53.7	36.3	36.4	42.4	2.55	10.2	9.30	4.76	E	U
42	式見	2422	38.4	31.0	26.3	134	43.0	35.4	122	4.94	10.6	7.96	14.2	E	U
44	大分	1881	17.8	16.8	10.5	17.2	30.0	27.4	15.6	0.73	1.47	1.14	1.37	I	R
45	宮崎	3457	46.5	30.6	30.0	300	41.8	33.3	264	6.77	11.2	5.42	29.5	P	U
46	喜入	2024	29.2	18.8	16.2	210	33.5	32.3	172	7.92	8.76	4.98	19.8	E	R
47	大里	1756	41.7	15.9	11.8	453	3.12	21.7	427	12.0	23.0	13.6	48.7	S	U
	最高値	3457	120	104	55.4	453	71.5	129	427	12.0	85.2	84.1	64.2		
	最低値	930	12.5	9.79	10.5	13.1	3.12	5.16	8.79	0.73	1.47	1.14	1.37		
	平均値	1668	31.93	26.14	26.51	112.8	25.86	35.29	95.74	4.38	13.15	11.06	13.36		
	標準偏差	521	23.48	21.11	11.16	110.7	14.92	23.13	101.5	3.28	15.48	15.01	14.29		

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

は江東で極端に高く、大分と倉橋島で低い値を示した。

これら4成分の前駆物質である酸と塩基のバランスで決定されるH⁺の全平均値は25.9mmol・m⁻²・year⁻¹を示し、福井で極端に高く、大里で低い値を示した。また、海塩の指標と考えられるNa⁺沈着量は地点差が大きく、全平均値で95.7mmol・m⁻²・year⁻¹を示し、大里で最高値を岡山で最低値を示した。

イオン成分沈着量は降水量の影響を受け、正規分布に近い分布型を示すことが予想され、ここでの測定値についてもNa⁺とCl⁻以外はこの傾向がみられる。ただし、江東のSO₄²⁻、Ca²⁺や福井のSO₄²⁻、H⁺、Mg²⁺などの値は全体の分布から高い側に極端にはずれ、四日市のNH₄⁺についても同様の傾向がある。これらの原因については現在までのところ不明であるが、以下の解析はこれらの高い値(正規分布確率の高濃度側0.25%)を除いて行った。

降水量および各成分の平均値と標準偏差から成分ごとのパーセンタイル値を求め、表4.4に示した。各項目の10%値と90%値を比較すると、イオ

ン成分の沈着量はいずれも降水量より大きな分布幅を示しているが、その中でもSO₄²⁻、酸性成分、H⁺およびNH₄⁺は分布幅が相対的に狭いのに対し、粒子状物質に由来すると考えられる海塩成分やnss-Ca²⁺は広い分布幅を示している。nss-SO₄²⁻とNO₃⁻の50%値から計算されるN/S比(当量比)は0.62、H⁺と降水量の50%値から計算されるpHは4.83である。

表4.3の右端に示した地域分類に従って求めた降水量および各イオン成分沈着量の地域別平均値を表4.5に、主要成分平均値の全体分布におけるパーセンタイル値を図4.4に示した。降水量は東シナ海沿岸で多く、瀬戸内海沿岸でもっとも少ない。酸性成分の内、nss-SO₄²⁻沈着量は東シナ海沿岸と日本海側で多い他は、3地域ともに同程度の平均値を示している。瀬戸内海沿岸の7地点における標準偏差が非常に小さいのが特徴的である。NO₃⁻は日本海側と太平洋側で多く、南西諸島で少ない傾向にある。一方、塩基性成分ではNH₄⁺は東シナ海沿岸と日本海側で多く、南西諸島で少なく、nss-Ca²⁺は日本海側と南西諸島で多く、瀬戸内海沿岸で少ない。またH⁺沈着量は

表4.4 年降水量と湿性沈着量年間値のパーセンタイル値(平成11年度)

パーセンタイル %	降水量 mm・year ⁻¹	SO ₄ ²⁻	nssSO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	H ⁺	NH ₄ ⁺	Na ⁺	K ⁺	Ca ²⁺	nssCa ²⁺	Mg ²⁺
		mmol・m ⁻² ・year ⁻¹										
10	1000	12.4	11.3	12.2	-29.0	8.1	11.4	-34.3	0.2	-0.5	-1.1	-2.6
20	1229	17.4	14.7	17.1	19.6	13.7	18.6	10.3	1.6	3.4	2.3	2.3
30	1394	20.9	17.2	20.7	54.8	17.8	23.8	42.5	2.7	6.3	4.8	5.9
40	1536	24.0	19.3	23.7	84.8	21.2	28.3	70.0	3.5	8.7	6.9	9.0
50	1668	26.8	21.3	26.5	113	24.5	32.5	95.7	4.4	11.0	8.8	11.8
60	1800	29.7	23.2	29.3	141	27.7	36.6	121	5.2	13.2	10.8	14.7
70	1941	32.7	25.4	32.4	171	31.2	41.1	149	6.1	15.7	12.9	17.7
80	2106	36.3	27.8	35.9	206	35.2	46.3	181	7.1	18.5	15.4	21.3
90	2335	41.3	31.2	40.8	255	40.8	53.5	226	8.6	22.4	18.8	26.3

表3.3.1のデータから江東のSO₄²⁻、nss-SO₄²⁻、Ca²⁺、nss-Ca²⁺、四日市のNH₄⁺、福井のSO₄²⁻、nss-SO₄²⁻、H⁺、Mg²⁺を除いて算出

表4.5 年降水量と湿性沈着量年間値の地域別平均値(平成11年度)

地域	地点数	項目	降水量	SO ₄ ²⁻	nssSO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	H ⁺	NH ₄ ⁺	Na ⁺	K ⁺	Ca ²⁺	nssCa ²⁺	Mg ²⁺
			mmol・m ⁻² ・year ⁻¹											
太平洋側	14	平均値	1586	23.21	19.00	28.09	83.26	17.68	28.96	68.17	3.64	9.18	7.67	10.80
		標準偏差	593.9	10.99	8.27	10.54	76.61	9.37	15.76	71.86	3.01	4.99	5.04	9.16
日本海側	7	平均値	1693	35.90	26.42	32.30	203.0	33.80	38.06	173.1	6.58	17.99	14.20	18.25
		標準偏差	511.5	13.29	8.90	15.58	114.5	16.83	14.41	102.1	3.18	15.52	14.17	11.92
瀬戸内海沿岸	7	平均値	1420	19.44	17.90	21.21	32.01	24.67	30.76	25.40	1.76	5.56	5.01	3.67
		標準偏差	335.5	2.77	2.38	7.54	21.03	5.48	24.07	19.75	0.89	3.31	3.13	2.38
東シナ海沿岸	5	平均値	2190	32.71	26.85	24.33	114.2	36.29	38.23	96.74	5.49	10.95	8.82	11.02
		標準偏差	239.4	5.26	5.68	6.41	62.77	5.98	8.09	51.75	2.02	1.92	2.60	6.09
南西諸島	1	平均値	1756	41.72	15.86	11.78	453.4	3.12	21.73	427.4	12.03	23.01	13.60	48.73
全国	34	平均値	1668	26.83	21.28	26.51	112.8	24.47	32.46	95.74	4.38	10.97	8.84	11.82
		標準偏差	521.0	11.26	7.77	11.16	110.7	12.75	16.44	101.5	3.28	8.95	7.79	11.29

表3.3.1のデータから江東のSO₄²⁻、nss-SO₄²⁻、Ca²⁺、nss-Ca²⁺、四日市のNH₄⁺、福井のSO₄²⁻、nss-SO₄²⁻、H⁺、Mg²⁺を除いて算出

東シナ海と日本海側で多く、南西諸島で少ない。

地点別の年降水量とH⁺および酸性成分年沈着量の相関を図4.5に示した。nss-SO₄²⁻沈着量は全体として降水量との相関性が高く、とくに日本海側と東シナ海沿岸ではその傾向が顕著である。NO₃⁻沈着量は東シナ海沿岸地域のデータが低沈着量側に分布しているためnss-SO₄²⁻に比較して全体としての降水量との相関性は低い。H⁺沈着量は降水量2,000mm未滿では相関性が低いが、それを越えた日本海側や東シナ海沿岸の地点は高い相関を示している。

属性をルーラルと指定した7地点(表4.3)については、塩基性成分の沈着量は小杉を除きいずれの地点も全平均値および地域別平均値と同程度かそれ以下の値が得られているが、H⁺と酸性成分については全平均値あるいは地域別平均値に比較して、高い値を示す場合がみられた。

4.3.2 沈着量の地域別季節変動

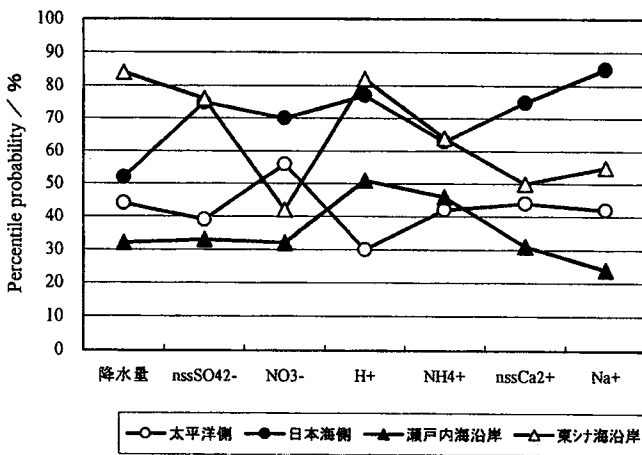


図4.4 全測定値分布における地域別平均値のパーセントイル値

全国および地域分類に従って求めたH⁺、酸性成分、塩基性成分および海塩の影響と考えられるNa⁺沈着量の季節変動を、降水量と合わせて図4.6に示した。

降水量は、日本海側では6月、9月に若干多かったが年間の変動は小さかった。他の地域はおおむね暖候季(4~9月)に多く、寒候季(10~3月)に少ないパターンを示し、瀬戸内海沿岸と東シナ海沿岸ではとくに6月に400~600mm、南西諸島では7月と9月に約350mmの降水量を記録している。6、7月は梅雨前線の9月は台風の影響をそれぞれ受けたためである。

H⁺および酸性成分沈着量は、太平洋側では暖候季に多く寒候季に少なく、日本海側では寒候季に多くなる傾向を示した。瀬戸内海沿岸では、梅雨前線の影響を受け降水量が最大値を示す6月に酸性成分沈着量もピークを示し、この月だけで年沈着量の約20%を占めている。東シナ海沿岸は瀬戸内海沿岸と同様に6月にピークをもち、春先(3~4月)にもnss-SO₄²⁻沈着量が上昇するが、4月のH⁺沈着量はそれほど大きく上昇していない。南西諸島では、6月と9月にピークをもつ変動を示した。月別H⁺沈着量が多かったのは、喜入(鹿児島)の3月で、nss-Cl⁻がnss-SO₄²⁻より大きな沈着量を示しているのが特徴的である。これは、桜島火山ガスの影響を強く受けたことが原因と考えられる。

海塩成分沈着量は、日本海側では暖候季に少なく、寒候季に多い。他の地域は降水量と同様の変動を示したが、台風の影響を受けたと思われる9月は多くの地域で沈着量が高い傾向にある。

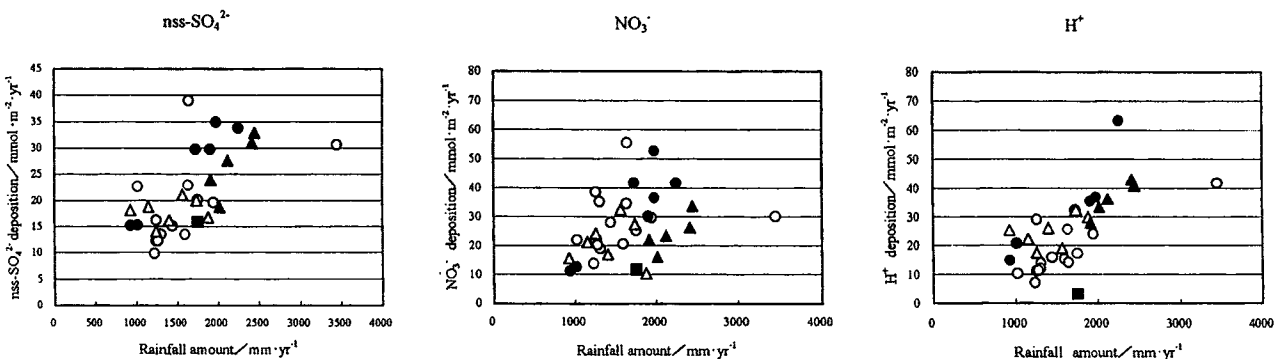


図4.5 年降水量と酸性成分年沈着量の相関

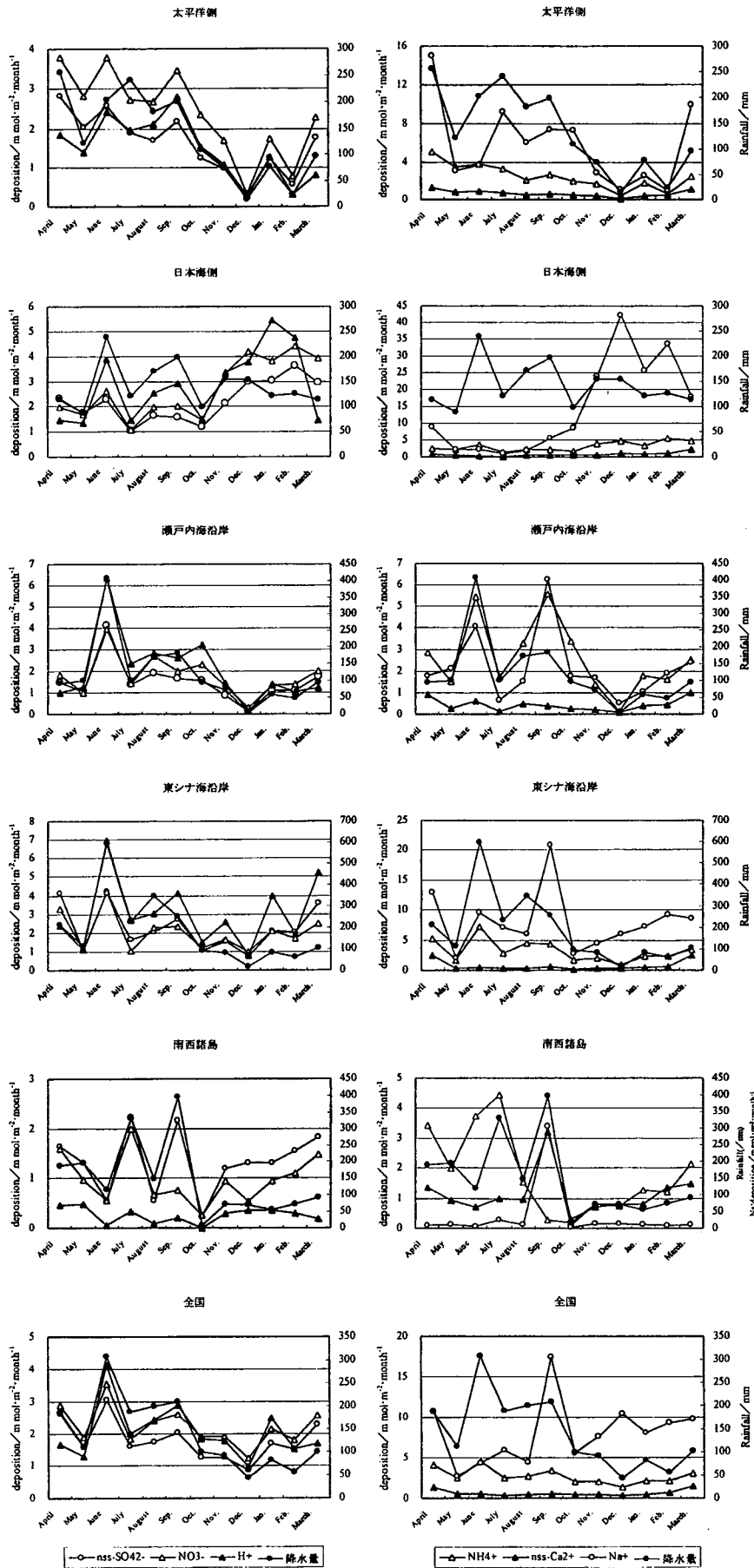


図 4.6 地域別季節変動

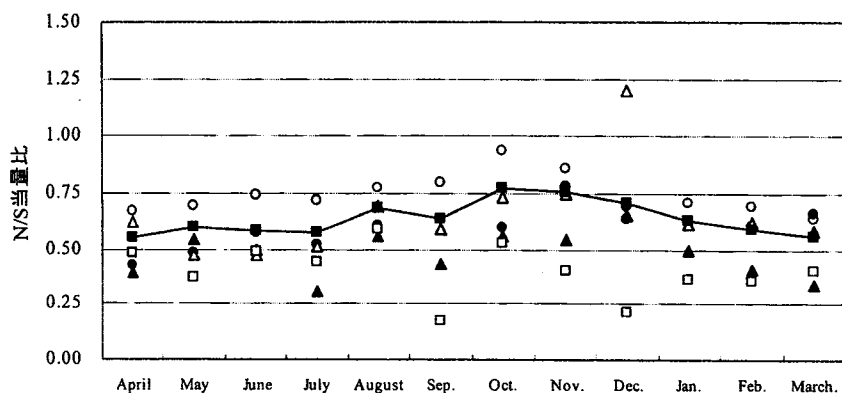


図 4.7 地域別 N/S 当量比の
変動

○ 太平洋側 ● 日本海側 △ 瀬戸内海沿岸 ▲ 東シナ海沿岸 □ 南西諸島 — 全国

塩基性成分沈着量は、太平洋側では大きな変動はみられなかったが、日本海側では寒候季に上昇する傾向がみられた。瀬戸内海沿岸では、 NH_4^+ 沈着量が6月と9月にピークをもつ変動がみられた。東シナ海では nss-Ca^{2+} 沈着量が春先に上昇するが、 NH_4^+ 沈着量は降水量とともに変動していた。南西諸島では nss-Ca^{2+} 沈着量が9月にピークをもち、 NH_4^+ 沈着量が暖候季に多く寒候季に少なかった。

N/S($\text{NO}_3^-/\text{nss-SO}_4^{2-}$ 当量)比の月別変動を図 4.7 に示す。太平洋側の N/S 比は年間を通じて全国平均よりも大きな値を示した。瀬戸内海沿岸の12月については、沈着量が非常に少なかったため(降水量が6.1mm)異常に高くなった。その他の地域は、年間を通じて全国平均より小さい値を示す場合がほとんどであり、とくに東シナ海沿岸の7月と3月、南西諸島の9月と12月は0.35以下の小さな値を示している。

4.4 第1次調査との比較(採取装置の変更による相違)

全国公害研協議会では過去に2回の酸性雨全国調査を行っているが、調査方法が異なっており単純な比較はできない。測定法の相違に基づく測定結果の偏差を明らかにするため、本年度調査結果を本調査と同じく通年調査を行った第1次調査^{1)~3)}(1991年4月~94年3月にろ過式採取装置を用い実施)の結果と比較した。本年度調査を実施した測定局の内、27地点は第1次調査を実施した地点であり、この27地点に限定して年平均値と比較すると図 4.8 に示すように各測定地点は降水

量をはじめ各成分沈着量は類似の値を示した。ただし、本年度調査が第1次調査の SO_4^{2-} 沈着量を大きく上回った地点が2地点あり、この2地点は Ca^{2+} 沈着量も第1次調査より多かったが、その原因を解明できていないが、ここでは削除して他の25地点の値で比較を行った。

図 4.8 でみられるように、第1次調査より少ない沈着量が得られている地点が多く、25地点の平均沈着量は表 4.6 に示すように、本年度湿性沈着量は第1次調査の沈着量の Ca^{2+} が45%、 SO_4^{2-} は70%、 NO_3^- は85%、 K^+ は65%程度、その他の成分は80%程度の沈着量であった。これらのことは、ろ過式採取装置と降雨時開放型採取装置の比較検討に関する報文^{4,5)}とも一致しており、採取方法の違いが大きい要素で、第1次調査は乾性沈着物の影響を大きく受けていたと思われる。

— 参 考 文 献 —

- 1) 全国公害研協議会酸性雨調査研究部会：平成3年度酸性雨全国調査報告書(1993)
- 2) 全国公害研協議会酸性雨調査研究部会：平成4年度酸性雨全国調査報告書，全公研会誌，19(2)(1994)
- 3) 全国公害研協議会酸性雨調査研究部会：酸性雨全国調査報告書(平成3年度から平成5年度)，全公研会誌，20(2)(1995)
- 4) 平木隆年，玉置元則：神戸地域における湿性および乾性降水量，兵庫県公害研究所報告，18，23-30(1986)
- 5) 西川嘉範，田口圭介，井上香織，吉村健一郎：ろ過式および自動式の採雨装置による酸性降水成分の比較，全公研会誌，24(4)，206-211(1999)

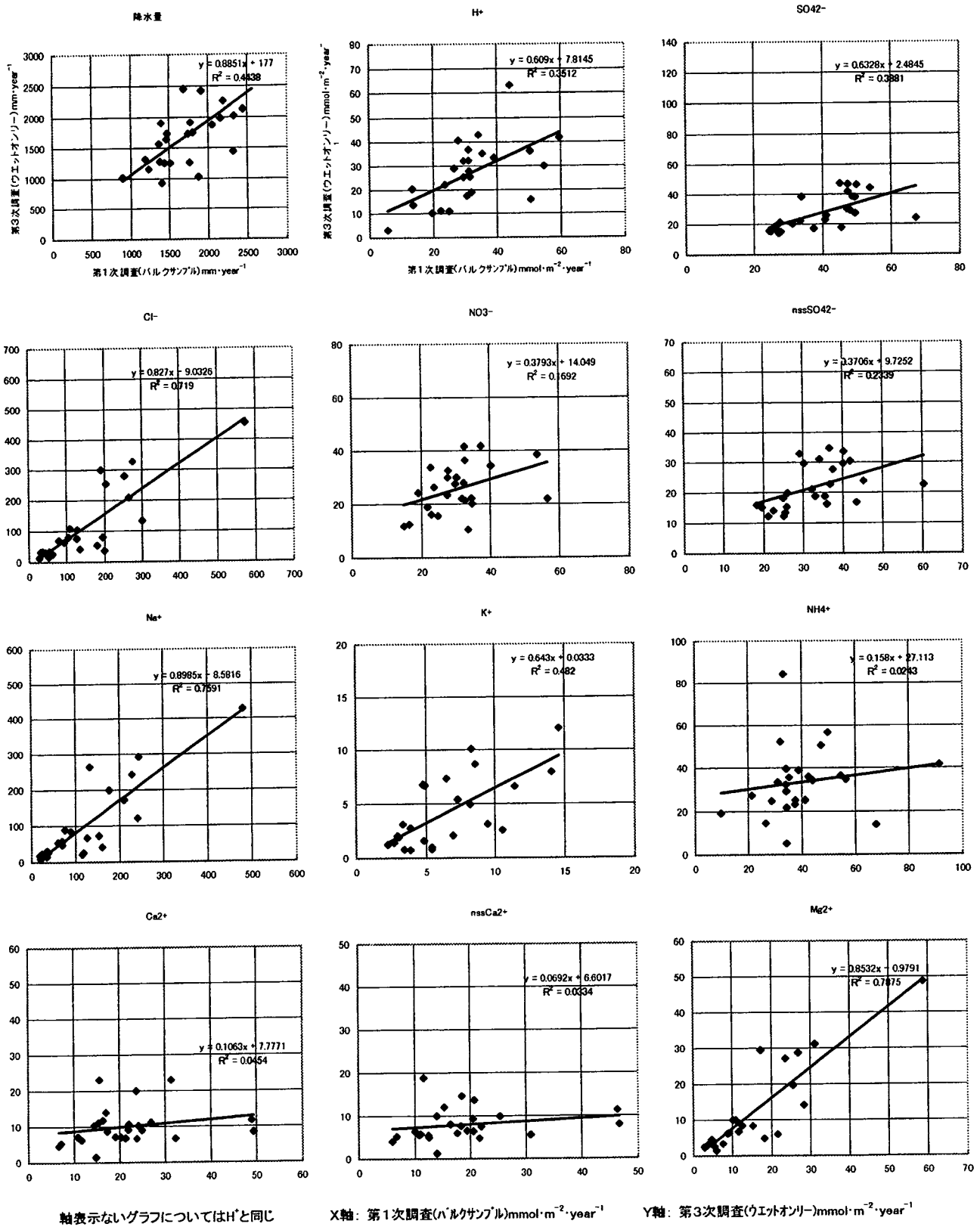


図 4.8 同一地点における第3次調査と第1次調査の比較

4.5 湿性沈着に関するまとめ

全国47地点で降水時開放型装置を用い年間を通じ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) 年降水量は、欠測期間が3カ月未満の地点で930~3,457mm・year⁻¹の範囲にあり、平

表 4.6 湿性沈着量と第 1 次調査での沈着量

	沈着量($\text{mmol} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{year}^{-1}$)		本年/第1次調査 比率(%)
	本年度調査	第1次調査	
降水量(mm)	1709	1737	98.4%
SO_4^{2-}	27.8	40.1	69.5%
nss SO_4^{2-}	21.9	32.9	66.6%
NO_3^-	25.6	30.5	84.0%
Cl^-	115.8	150.9	76.7%
H^+	27.1	31.7	85.6%
NH_4^+	33.4	39.9	83.8%
Na^+	98.2	118.9	82.6%
K^+	4.1	6.4	64.8%
Ca^{2+}	10.1	21.4	46.9%
nss Ca^{2+}	7.9	18.8	42.1%
Mg^{2+}	11.8	15.0	78.8%

均値は $1,668\text{mm} \cdot \text{year}^{-1}$ であった。

- pHは4.4~5.8の範囲にあり、平均値は4.8であった。日本海側の地点で冬季の低下が著しかった。
- 降水を酸性化する物質の指標となる nss- SO_4^{2-} と NO_3^- (酸性成分)は、濃度と沈着量の平均値がそれぞれ $15.7, 15.9\mu\text{mol} \cdot \text{l}^{-1}$ および $26.1, 26.5\text{mmol} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{year}^{-1}$ を示した。両成分の濃度は全国的に冬季に上昇したが、沈着量は日本海側でのみ冬季に増加の傾向にあった。また、年沈着量は nss- SO_4^{2-} が日本海側と東シナ海沿岸で、 NO_3^- が日本海側と太平洋側で多かった。
- 降水の酸性化を抑制する物質の指標と思われる NH_4^+ と nss- Ca^{2+} (塩基性成分)は、濃度と沈着量の平均値が $21.2, 6.6\mu\text{mol} \cdot \text{l}^{-1}$ および $35.3, 11.1\text{mmol} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{year}^{-1}$ を示した。両成分の濃度は全国的に冬季に上昇したが、沈着量は酸性成分と同様に日本海側で冬季に増加の傾向にあった。また、年沈着量は NH_4^+ は東シナ海沿岸と日本海側で、nss- Ca^{2+} は日本海側と南西諸島で多かった。
- 環境庁第3次酸性雨対策調査(1993~1997年度)の結果に比較して、本調査の地点平均値は濃度、沈着量共に高値側に分布幅が広く、平均値はやや大きな値を示している。この原因の一つとして、環境庁調査に比べ本調査の地点が都市域に多く分布していることが考えられる(図 4.9, 図 4.10)。

5. 乾性沈着

乾性沈着について、主要成分の月別測定結果を

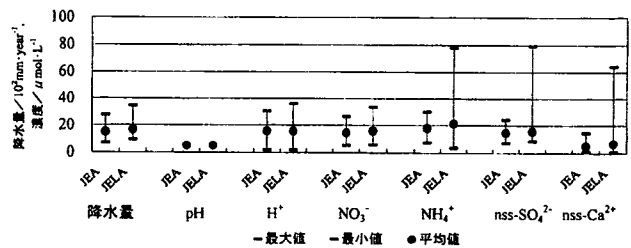


図 4.9 本年度調査(JELA 1999)と環境庁第3次酸性雨対策調査(JEA 1993-1997)との比較(地点別の降水量加重平均濃度)

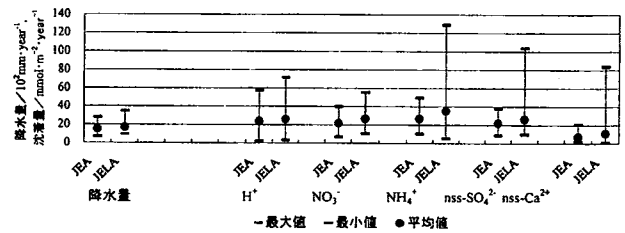


図 4.10 本年度調査(JELA 1999)と環境庁第3次酸性雨対策調査(JEA 1993-1997)との比較(地点別の年沈着量)

まとめて付表 2 に示す。

5.1 測定項目およびデータの精度(QA/QC)

5.1.1 測定項目に関する分析方法

乾性沈着の濃度測定は自動測定機、デニューダー法、フィルターパック法などにより測定されている。自動測定機では時間単位の測定が可能であるが、測定項目が限られている。デニューダー法はアーティファクトが少ないといわれているが、取扱いの煩雑さから多くの機関が参加する共同調査には向かない。したがって本調査ではフィルターパック法(4段ろ紙法)により実施することになった。

粒子状(エアロゾル)成分は最上段のテフロンろ紙で、ガス成分は後段のポリアミド、 K_2CO_3 含浸および H_3PO_4 含浸ろ紙に捕集することとしている。海外で実施されているフィルターパック法はEMEP(3段)、CastNet(3段)、Acid-MODES(4段)、ALPTRAC(4段)、WATOX-UMD(2段)、WATOX-AES(3段)、NSMCS(2段)などがあり段数、サンプリング期間、流速などまちまちである。このように、フィルターパック法自身必ずしも確立されたものとはなっていないが、本法によるデータの蓄積と有効性の検討をしていく必要がある。

5.1.2 データチェック

湿性試料ではデータチェックのため、イオンバランス(R_1)および伝導率比較(R_2)により測定値の有効性を検討している。乾性試料についてはまだ定まった方法がないが、テフロンろ紙およびポリアミドろ紙の抽出溶液では、湿性同様にイオンバランスによるQA/QCが可能と考えられる。そこで、機関1および機関2では、主要イオン成分に加えてろ紙抽出溶液のpHおよび電気伝導率(EC)を測定した。

テフロンフィルターにおけるイオンバランスとECバランスを図5.1に示す。アニオン合計と計算ECをX軸、カチオン合計と実測ECをY軸にとり、それぞれ相関関係をみた。イオンバランスとECバランスともに決定係数は0.95以上、傾きは0.93~1.1とそれぞれ良好な対応関係が得られた。ポリアミドろ紙についても同様にイオンバランスとECバランスを図5.2に示す。ポリアミドでも、テフロン同様に良好なイオンバランスとECバランスを示していた。

ただし、テフロンろ紙では多くの場合pHが5以上であり、イオン合計に H^+ の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。本年度の月平均粒子状物質濃度(neq/m^3)のカチオン合計($C=NH_4^++Na^++K^++Ca^{2+}+Mg^{2+}$)とアニオン合計($A=SO_4^{2-}+NO_3^-+Cl^-$)の散布図をプロットしたところ、大きくイオンバランスのずれる地点があった。そのためデータを見直したところ、ある種のイオンに計算間違いがあることを発見した。このように、乾性についてもイオンバランスによるデータチェックは有効であると考えられる。図5.3に月平均粒子状物質濃度の全データについて $R_{SPM}=(C-A)/(C+A)*100$ を計算し、その頻度分布を示した。 R_{SPM} は±10%の範囲内に全データの8割近くあった、また、±30を超えるのは5%であり、良好なデータ群であることを示している。

本乾性沈着調査のマニュアルでは、 F_0 と F_1 ろ紙抽出溶液のpHとEC等を必須項目として測定することにはなっていないが、QA/QCの観点からは各機関においてこれらの測定を行うことが望まれる。

5.1.3 欠測率の評価

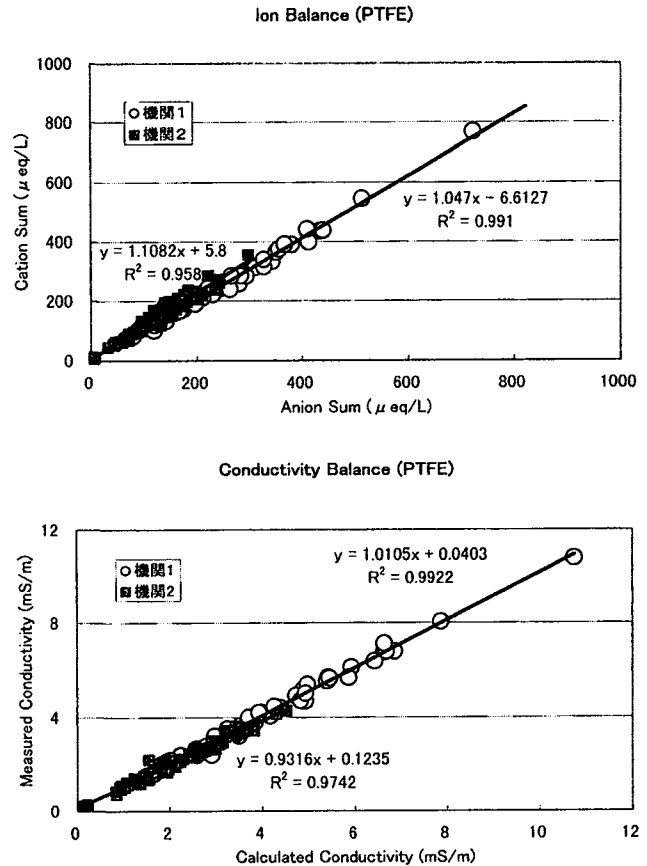


図5.1 テフロンフィルターにおけるイオンバランスと電気伝導率バランス

本第3次調査は新しい手法による全国調査であり、湿性調査と同様に4月当初から間に合わなかったり、遠隔地のため通年の調査ができなかった機関があった。乾性調査では、全参加地点25で全測定期間を通じて月単位の欠測率は16.3%(49/300)であった。月内に欠測週があるデータは4.8%(12/251)であり、付表2では網かけで示している。

5.1.4 フィルターバック法におけるブランク値

乾性沈着についても湿性同様に高い精度確保は当然であるが、全国規模の調査は初めての試みであり、時間的な問題もあって精度評価法については今後に残されている。今年度は部会委員を中心に13機関におけるろ紙の前処理法、調整法、抽出法およびろ紙ブランクなどについて情報収集した。

テフロン(F_0)およびポリアミド(F_1)ろ紙については、1機関を除き他の12機関において無処理で使用していた。含浸ろ紙である F_2 と F_3 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

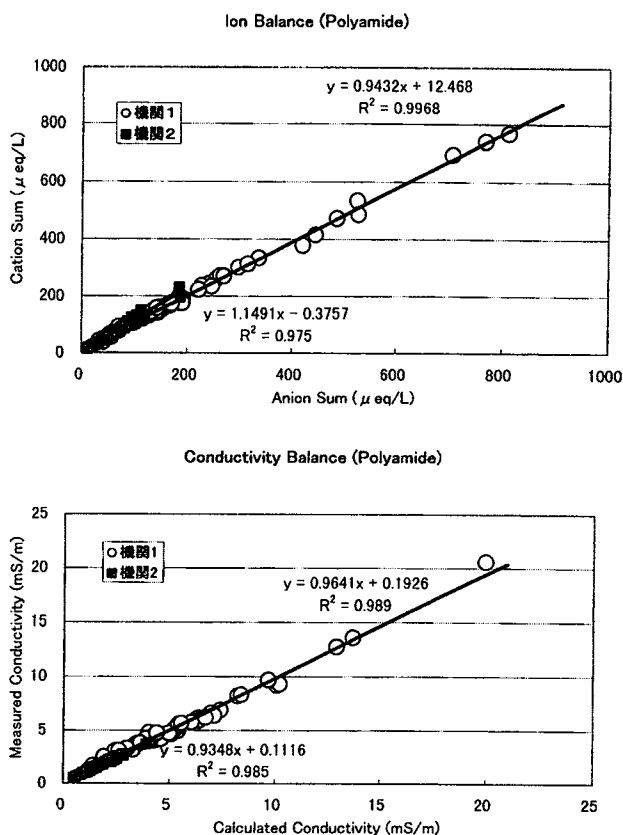


図 5.2 ポリアミドフィルターにおけるイオンバランスと電気伝導率バランス

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、風乾、何もしないところに分かれていた。ろ紙の抽出法については3機関が超音波、10機関が振とう抽出であった。

表 5.1 にフィルターパック法のろ紙ブランクをまとめる。いくつかの機関ではブランク値が並はずれて大きいところがあったことから、機関間平均値の3倍を超える値に*印を付け異常値として棄却して、おおよそのブランク平均値と標準偏差を計算した。F₀は他のろ紙に比べ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。F₁はCl⁻でブランク値が大きかった。機関3ではF₁ろ紙としてザルトリウス製ポリアミドを使用していたためか前洗浄をしないとSO₄²⁻が大きかった。そこで純水洗浄した場合とNa₂CO₃溶液洗浄後純水洗浄した場合について検討され、前洗浄の効果が示された。F₂とF₃については、純水洗浄または含浸液により前洗浄されているためかF₁ろ紙と同レベルであった。

機関ごとの前洗浄、乾燥法、抽出法の違いに関

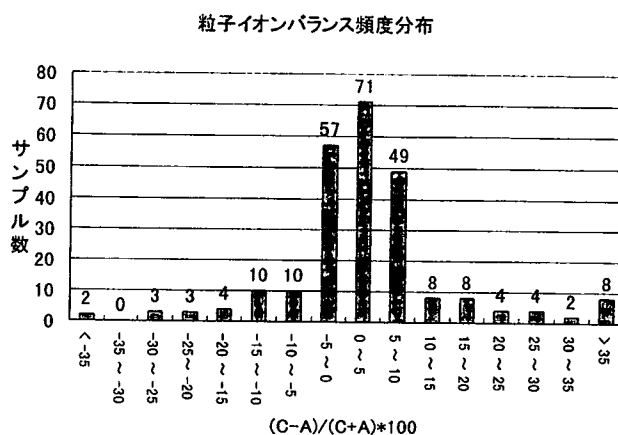


図 5.3 粒子状物質のイオンバランス

して明確なブランク値の差が得られなかったことから、マニュアルに従った方法でよいと考える。なお、*印のついた機関についてはその原因を追及し、それを取り除く努力が望まれる。

5.1.5 自動測定機による大気汚染データとの比較

本4段ろ紙法による測定項目の内、SO₂は大気自動測定局の自動測定機でもモニタリングされている。そこで、同じ地点で両法の測定がなされているSO₂についてデータの比較を実施した。乾性の25調査地点のうち、同一地点で調査しているのは12地点であった。12地点の自動測定機の方式は4地点が乾式、8地点が湿式であった。フィルターパック法と乾式自動測定機との間ではわずかに相関が見られたが、湿式測定機との間では相関が見られなかった。また、乾式は湿式に比べ濃度が低いところに多く分布していた。そこで、自動測定機によるSO₂月平均値をX、フィルターパック法によるSO₂月平均値をYとして、地点(機関)ごとに相関関係を調べ、表 5.2 にまとめてみた。

全体でみると相関がよくなかったが、地点別でみると相関ありのグループとそうでないグループに分かれる。相関があるグループの回帰直線の傾きは、乾式で0.26~0.46、湿式で0.23~0.34と両方式での差は少なかった。しかし、傾きが1より小さいということはフィルターパック法が低めに出ているか、自動測定機が高めに出ているかどちらかであり、今後の検討課題であろう。

5.2 フィルターパック法による大気汚染物質濃度

本項目では、フィルターパック法によって得られたガス成分(SO₂、HNO₃、HCl、NH₃)および粒子状成分(SO₄²⁻、NO₃⁻、Cl⁻、NH₄⁺、Na⁺、Mg²⁺、

表5.1 フィルターバック法(4段ろ紙法)のろ紙ブランク

ろ紙- 段	イオン 種	分析機関番号 (ろ紙ブランク単位: n mol/sheet, n: 測定回数)													平均×3以上棄却		試料年平均値 (nmol/sheet)			
		1	2	3 ¹⁾	3 ²⁾	3 ³⁾	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13		AVE	STD	n
F ₀	SO ₄ ²⁻	1.8	1.8	0.1	0.8	*45.1	4.2	*24.4	0.0	2.1	0.0	1.2	0.0	0.0	0.0	1.1	1.3	11	54-1242	
	NO ₃ ⁻	3.0	7.1	0.4	5.2	*55.0	10.1	29.4	0.0	3.2	0.0	5.5	0.0	*42.5		5.8	8.5	11	22-823	
	Cl ⁻	3.6	55.3	11.9	28.2	*89.5	9.7	26.0	0.0	9.6	8.5	32.2	28.2	0.0		17.8	16.5	12	17-720	
	NH ₄ ⁺	4.8	*176.5	9.6	20.8	34.9	19.0	0.0	22.2	5.5	0.0	27.7	0.0	32.7		14.8	13.0	12	138-1448	
	Na ⁺	5.6	22.7	17.8	14.1	*128.1	77.1	11.3	0.0	8.7	26.1	27.8	0.0	19.9		19.3	20.5	12	74-1058	
	K ⁺	1.5	*38.6	2.2	1.9	*61.8	5.1	0.0	0.0	2.6	7.7	5.6	0.0	6.4		3.0	2.8	11	7-143	
F ₁	Ca ²⁺	1.4	0.9	1.0	3.7	*43.9	7.0	0.0	9.8	2.5	14.7	12.3	19.6	9.6		6.9	6.4	12	1-488	
	Mg ²⁺	0.2	0.0	0.1	0.0	*26.0	1.2	0.0	0.0	4.1	0.0	5.8	0.0	0.0		0.9	1.9	12	5-139	
	n	14	17-18	8	8	7	7	5	2	2	1	1	1	1						
	SO ₄ ²⁻	4.5	2.8	*65.4	27.4	0.0	0.5	*50.3	3.9	25.4	0.0	1.0	0.0	3.7	0.0	0.0	0.0	13	31-382	
	NO ₃ ⁻	25.3	26.5	23.0	13.4	0.2	10.5	*60.7	19.4	33.3	0.0	1.6	43.5	17.4	0.0	27.9	17.3	14	48-327	
	Cl ⁻	72.5	228.1	150.0	36.1	12.0	55.7	174.3	72.5	20.3	99.7	14.1	287.7	82.4	22.6	112.8	96.1	15	59-564	
F ₂	NH ₄ ⁺	18.8	*261.7	24.4	13.8	8.6	16.6	49.0	11.1	0.0	22.2	----	*266.1	0.0	0.0	13.7	14.3	12	47-680	
	n	20	18	4	8	4	8	7	5	3	2	1	1	1						
	SO ₄ ²⁻	6.9	17.2	3.7	4.7	*53.4	20.5	33.4	26.4	1.0	0.0	8.7	0.0	0.0		10.2	11.4	12	98-1827	
	NO ₃ ⁻	8.6	23.4	3.1	24.2	50.4	11.5	34.1	2.2	1.6	0.0	12.9	*74.2	35.5		17.3	16.2	12	46-384	
	Cl ⁻	84.6	119.6	22.4	73.3	129.4	50.0	107.5	30.1	25.4	----	75.6	56.4	118.5		74.4	38.4	12	0-324	
	n	12	18	12	8	7	7	5	3	2	1	1	1	1						
F ₃	NH ₄ ⁺	65.7	*441.2	36.8	37.4	*405.0	23.8	113.3	0.0	110.9	66.5	54.3	66.5	62.1		57.9	33.9	11	259-2779	
	n	12	18	17	8	7	7	5	2	2	1	1	1	1						

注1) 3の機関ではF₁ろ紙の前洗浄として、3¹⁾は無処理、3²⁾は純水洗浄、3³⁾はNa₂CO₃溶液洗浄後純水洗浄について検討された。

注2) *で示した値は平均値の3倍を超えたブランク値

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ヵ月の内2ヵ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。

年平均大気汚染物質濃度の空間分布を図5.4に、大気汚染物質濃度の経月変動(全国平均値および中央値)を図5.5に、夏期および冬期大気汚染物質濃度の空間分布をそれぞれ図5.6、図5.7に示す。

(1) ガス成分(SO₂, HNO₃, HCl, NH₃)

SO₂濃度の月最高値は東京(江東)で3月に記録された647nmol/m³で、月最低値は小杉で12月に記録された4.9nmol/m³であった。年平均値では東京(江東)の292nmol/m³に次いで、福岡、札幌白石および神戸などの大都市の地点で高かった。また全地点の平均値、中央値の経月変動では5月および12～3月に高く、夏期に低かった。5月および12～3月に濃度が高かったのは大気の安定度などの影響が、また夏期に濃度が低かったのは粒子化しやすいことなどが考えられる。なお、夏期と冬期を比較すると西日本の日本海側などで濃度が高く、大陸からの汚染物質の影響についても検討する必要がある。

HNO₃濃度の月最高値は倉橋島で5月に記録された158nmol/m³で、月最低値は周山で1月に記録されたNDであった。年平均値では大分の32.7nmol/m³に次いで、名古屋(緑)、太宰府、倉橋島

および東京(江東)など、九州北部や瀬戸内、太平洋側の地点で高く、日本海側および北日本の地点では低かった。また全地点の平均値、中央値の経月変動では5月に高く、冬期に低かった。5月に濃度が高かったのはHNO₃生成に寄与するO₃などの濃度が高いこと、日射量が多いことなどが考えられる。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が考えられる。

HCl濃度の月最高値は札幌北で8月に記録された218nmol/m³で、月最低値は小杉で2月に記録された3.3nmol/m³であった。年平均値では東京(江東)の83.0nmol/m³に次いで、横浜(磯子)、札幌北および福岡などの大都市の地点で高かった。また全地点の平均値、中央値の経月変動では5～8月に高く、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(フィルターバック法では粒子を先に捕集するため、NaCl粒子がHNO₃ガスなどと反応し、HClガスが飛散し、後段のアルカリ含浸ろ紙に吸着されHClガス濃度を過大評価することがある。気温が高い場合に起こりやすい)の影響が示唆される。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、大気中におけるクロリンロス(大気中でNaCl粒子がHNO₃ガスなどと反応し、HClガスが発生すること)の影響についても検討する必要がある。

NH₃濃度の月最高値は東京(江東)で3月に記録された1,464nmol/m³で、月最低値は松江で2月に記録された9.2nmol/m³であった。年平均値で

表5.2 フィルターバック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	回帰式	相関係数	個数
1	乾式	$Y = 0.26 X + 91$	0.535	12
8		有意の相関なし	0.167	12
18		$Y = 0.28 X + 19$	0.927	12
25		$Y = 0.46 X - 14$	0.943	7
4	湿式	$Y = 0.29 X - 23$	0.899	9
9		有意の相関なし	0.110	12
10		有意の相関なし	0.026	12
11		$Y = 0.30 X + 22$	0.670	12
13		$Y = 0.23 X + 8.8$	0.727	12
15		有意の相関なし	0.298	12
16		有意の相関なし	0.432	12
22		$Y = 0.34 X + 15$	0.873	10

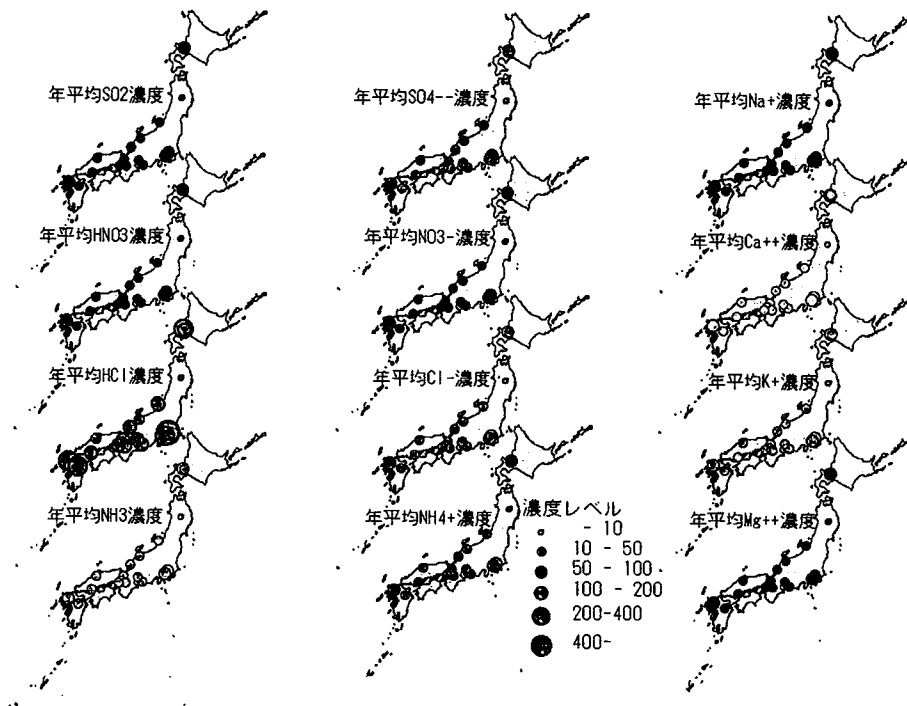


図 5.4 年平均大気汚染物質濃度の空間分布 (nmol/m³)

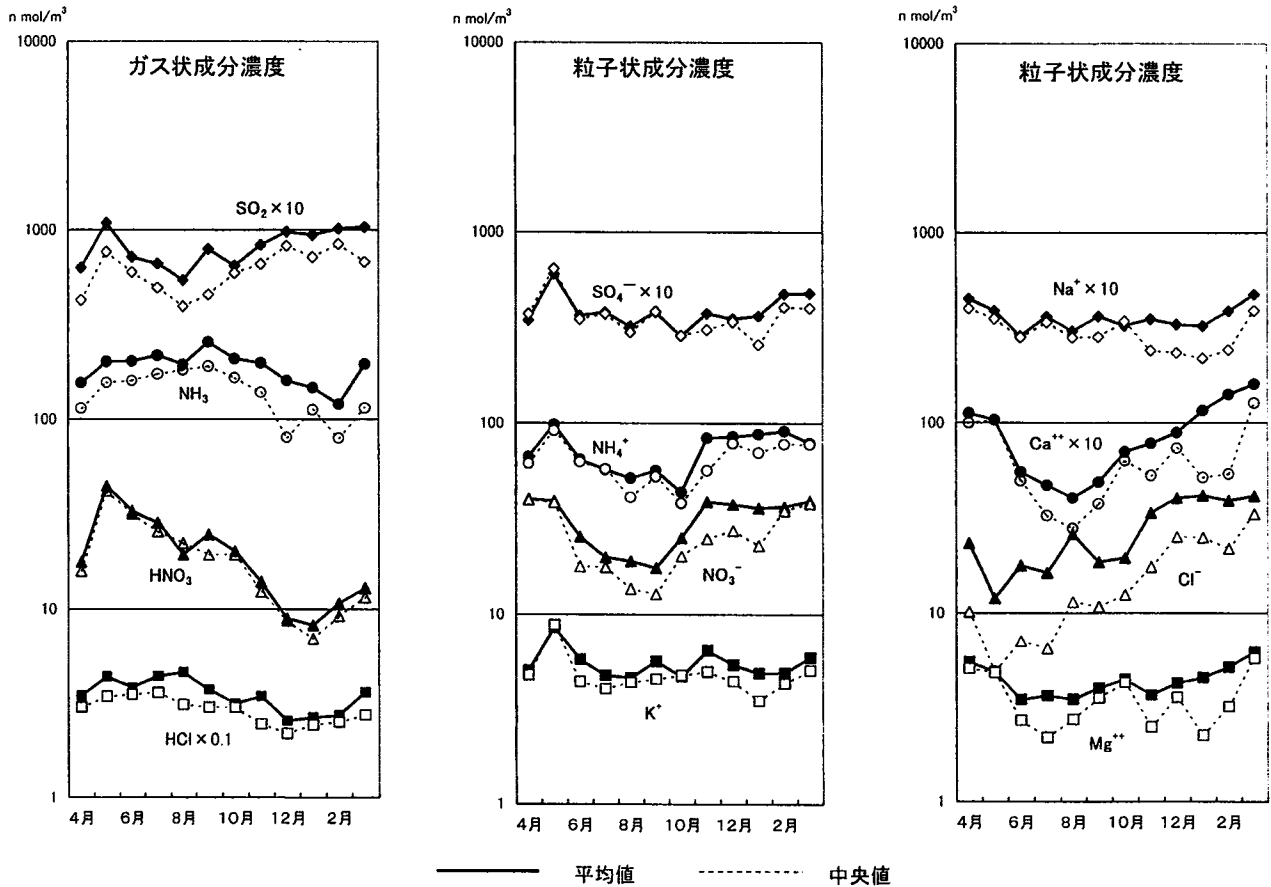


図 5.5 大気汚染物質濃度 (全国平均値および中央値) の経月変動

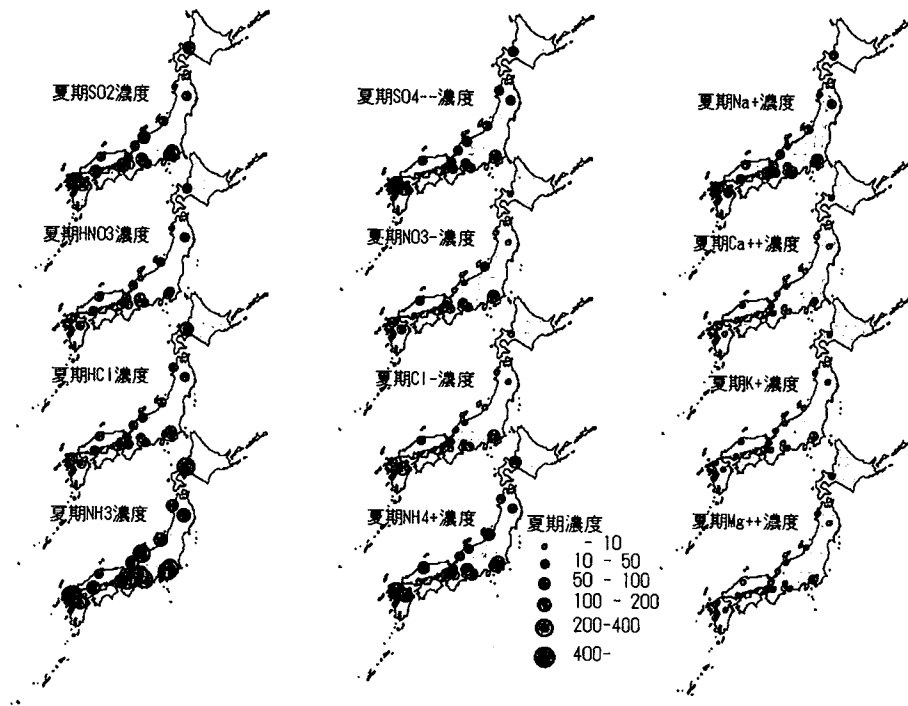


図 5.6 夏期大気汚染物質濃度の空間分布 (nmol/m³)

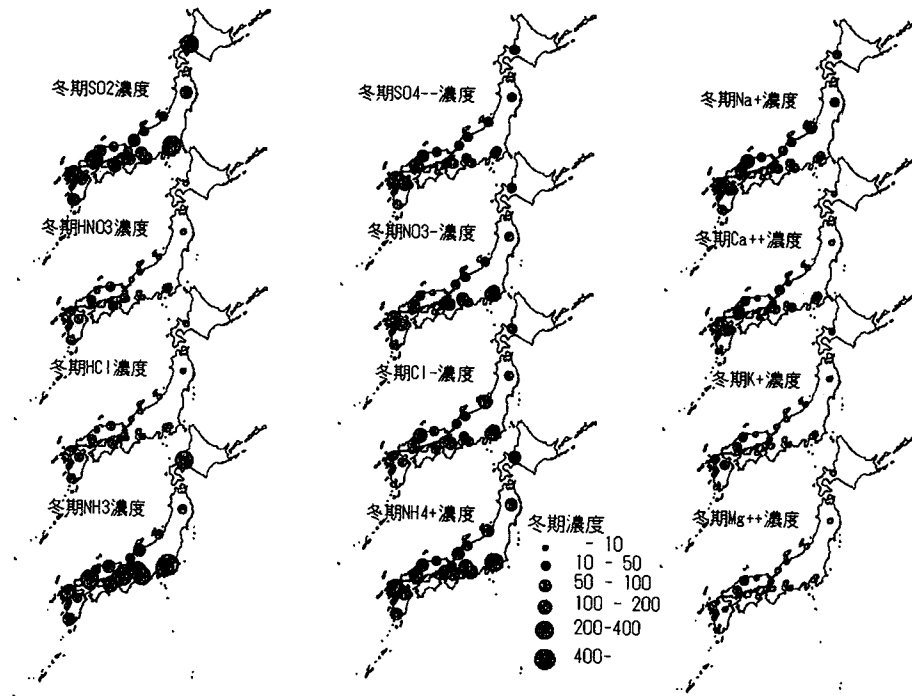


図 5.7 冬期大気汚染物質濃度の空間分布 (nmol/m³)

は東京(江東)の617nmol/m³に次いで、札幌北、横浜(磯子)および豊橋などの大都市の地点で高かった。また全地点の平均値、中央値の経月変動では5~10月に高く、冬期に低かった。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、

粒子になりやすいことなどが考えられる。

(2) 粒子状成分(SO₄²⁻, NO₃⁻, Cl⁻, NH₄⁺, Na⁺, Mg²⁺, K⁺, Ca²⁺)

SO₄²⁻濃度の月最高値は広島で1月に記録された253nmol/m³で、月最低値は石井で12月および

1月に記録されたNDであった。年平均値では大分の104nmol/m³に次いで、福岡、太宰府および松江などの九州北部および西日本の日本海側地点で高かった。また全地点の平均値、中央値の経月変動では5月、2月および3月に高かった。5月および冬期に濃度が高かったこと原因としては前述のSO₂と同様に大陸からの汚染物質の影響について検討する必要がある。

NO₃⁻濃度の月最高値は横浜(磯子)で11月に記録された179nmol/m³で、月最低値は大阪生野で3月および9～2月に記録されたNDであった。年平均値では東京(江東)の82.3nmol/m³に次いで、横浜(磯子)、豊橋および名古屋(緑)など、太平洋側の都市の地点で高く、日本海側および北日本の地点では低かった。また全地点の平均値、中央値の経月変動では4月、5月および11～3月に高く、7～9月に低かった。秋期から春期にかけて濃度が高かったのは、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が考えられる。

Cl⁻濃度の月最高値は大分で8月に記録された265nmol/m³で、月最低値は大阪生野で9月に記録されたNDであった。年平均値では東京(江東)の72.0nmol/m³に次いで、新潟、松江および横浜(磯子)などの大都市あるいは日本海側の地点で高かった。また全地点の平均値、中央値の経月変動では12～3月に高く、5～7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、大分の8月や東京(江東)、横浜(磯子)の11～1月などの場合はNa⁺濃度が低いことから後者の影響が大きいと思われる。また、4～10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が示唆される。

NH₄⁺濃度の月最高値は福岡で11月に記録された437nmol/m³で、月最低値は小杉で4月に記録された4.3nmol/m³であった。年平均値では福岡の145nmol/m³に次いで、大分、横浜(磯子)および東京(江東)などの地点で高かった。また全地点の平均値、中央値の経月変動では5月および11～3月に高く、8～10月に低かった。5月および冬期に濃度が高かったのは、気温が低いと粒子になりやすいことなどが考えられる。また、NH₄⁺は

SO₄²⁻などとの塩として長距離を輸送されるため、前述のSO₄²⁻と同様に大陸からの汚染物質の影響についても検討する必要がある。

Na⁺濃度の月最高値は松江で3月に記録された166nmol/m³で、月最低値は小杉で9月に記録された0.5nmol/m³であった。年平均値では松江の106nmol/m³に次いで、新潟、福岡および東京(江東)などの海岸部の地点で高かった。また全地点の平均値、中央値の経月変動では春期に高かった。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思われる。

Mg²⁺濃度の月最高値は広島で1月に記録された27.9nmol/m³で、月最低値は八森の6月、小杉の4月、倉橋島10月および2月、福岡の8～10月および1月に記録されたNDであった。年平均値では松江の12.4nmol/m³に次いで、横浜(磯子)、太宰府および名古屋(緑)などの地点で高かった。また全地点の平均値、中央値の経月変動では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、広島の1月および2月などのNa⁺濃度に対して比較的Mg²⁺濃度が高い場合を除いては、海岸部で濃度が高い場合が多く、主に海塩由来の場合が多いと考えられる。

K⁺濃度の月最高値は福岡で11月に記録された41.9nmol/m³で、月最低値は鳥取の10月および倉橋島10月に記録されたNDであった。年平均値では福岡の14.3nmol/m³に次いで、横浜(磯子)、太宰府および名古屋(緑)などの地点で高かった。また全地点の平均値、中央値の経月変動では5月に高かった。K⁺の発生源としては海塩、土壌および植物(花粉や種子)などの自然発生源由来の他、人為発生源由来の影響も考えられ、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分で2月に記録された120nmol/m³で、月最低値は小杉の4月、倉橋島6～10月、12月、2月および3月に記録されたNDであった。年平均値では大分の23.6nmol/m³に次いで、太宰府、松江および東京(江東)などの地点で高かった。また全地点の平均値、中央値の経月変動では3月に高く、7～9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、福岡の2月および広島1月などNa⁺濃度に対してCa²⁺濃度が高い場合では土壌由来の影響が、松江の3月などNa⁺濃度が高くCa²⁺濃度も高い場合は海塩由来の影響が大きいのではないだろうか。なお、土壌粒子に関しては周辺の発生源と黄砂等の影響についても検討する必要がある。

本報告においては初年度であるため欠測も多かった。そのため、都市部と田園地域による違い、地域別の挙動の違い、成分挙動の類似点および成分比などについては今後のデータと合わせて検討するつもりである。

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、本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)と同じ場所で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。以下にこれらのデータの検討結果について示す。

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5.8(1)~(4)に示した。

SPM：ルーラル地点で15 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 程度の低濃度である地点が多かったのに対し、関東や東海、近畿と北九州の都市部の計7地点では30 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上の濃度であった。

窒素酸化物(NO_x)：ルーラル地点の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：全般的に比較的低い濃度レベルであり、5ppbを上回った地点は関東、北日本、北九州における計4地点だけであった。

オキシダント：地点間の濃度差が小さかったが、他の大気汚染物質濃度が低かったルーラル地点と、池田、松江、豊橋では30ppb以上の比較的高い濃度であった。

5.3.2 経月変化

SPM：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ということについてみると

(以下、各物質とも同じ)、地点間相関が見られる組合せは非常に少なく、隣接地点間など比較的狭い地域内の地点間に相関が見られる程度であった。

関東の都市部では代表的な経月変化の例(市原)を図5.9(1)に示したように、11月に高く夏季に低くなる変化をしていた。その他の地点では、神戸須磨の例を示したように春季から夏季に高く、冬季に低くなる地点が比較的多かった。

札幌、水戸、勝浦、山口では経月変化が非常に小さかった。

NO_x：全体的には地点間の相関が見られる組合せが多かったが、丸森は2地点との間に相関があるだけであった。

多くの地点の経月変化は、代表的な地点について図5.9(2)に示したように秋季から冬季にかけて高濃度となり夏季に低くなる変化をしていた。一方、丸森、印南、喜入などのルーラル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見られなかった。

SO₂：全体としては地点間の相関が見られる組合せは少なかったが、近畿の各地点間や東海、北陸の各隣接地点間、関東の2組の隣接地点間に相関が見られた。

経月変化の傾向としては、北日本の2地点と浦和、松江、太宰府では冬季に高くなっていたのに対し、近畿を中心とした西日本では5月と10月に高く、夏季と冬季に低くなる地点が多かった。それぞれの代表的な経月変化の例を図5.9(3)に示した。

オキシダント：ほとんど全地点間に非常によい相関が見られたが、浦和は2地点との間に相関があっただけであった。これは、他の地点が4月から5月にかけて濃度が高くなる経月変化であったのに対して、浦和では3月に高濃度になった以外に大きな濃度変化がないまま推移していたことによると考えられた。

図5.9(4)にNO_x濃度が低かった4地点(図中の黒いマーカー表示)と高かった4地点(図中白抜きマーカー表示)でのオキシダント濃度の経月変化を示した。前者地点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

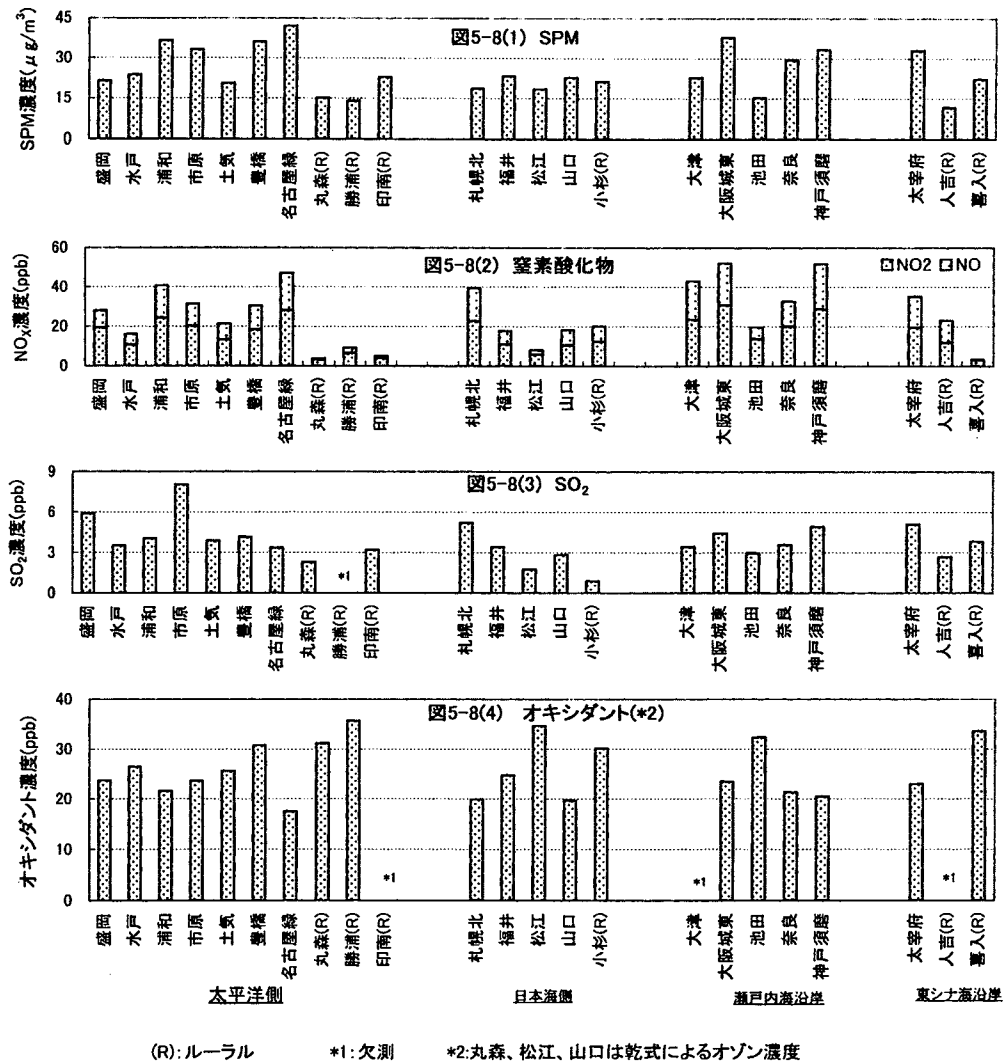


図 5.8 地点別の大気汚染物質濃度(年平均値)

した。一方、後者地点でも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。

5.4 乾性沈着の評価

この項では調査結果に入る前に、乾性沈着評価手法について最近の論文も参照しながら概論した。

5.4.1 乾性沈着評価手法について

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関する研究

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。

乾性沈着の測定法は当初、湿性沈着の測定法と同様に湿/乾分別採取機によるバケットを用いるなどの代理表面法であったが、この方法では乾性沈着の粒子状物質の比較的粒子の大きい成分だけを捕集するため、森林等への影響評価としては不适当であることから欧米では1980年代後半では使用されなくなっていた。代わって、森林等へ沈着量を直接測定する林内雨～樹幹流測定法が行われたが、多大な労力を要するため、森林を対象に乾性沈着を検討した報告はまだあまり多くない。

こうした状況のもと、1980年代以降、欧米では乾性沈着の推定法が試みられてきた。米国でNDDN(The National Dry Deposition Network)やCASTNet(Clean Air Status and Trends Network)に

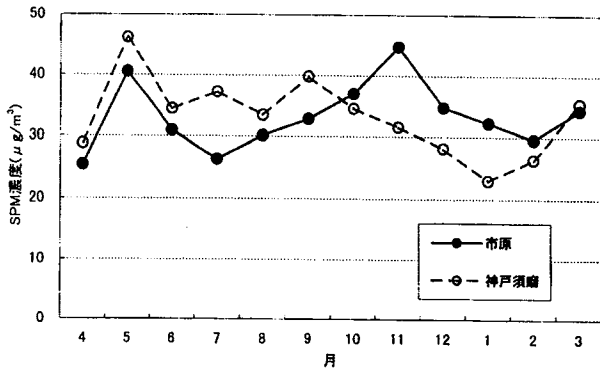


図5-9(1) SPMの経月変化

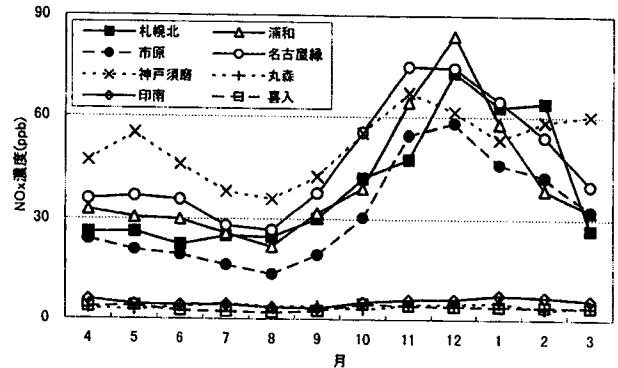


図5-9(2) NOxの経月変化

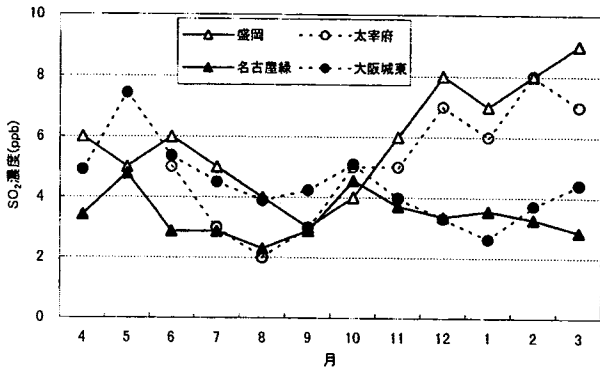


図5-9(3) SO₂の経月変化

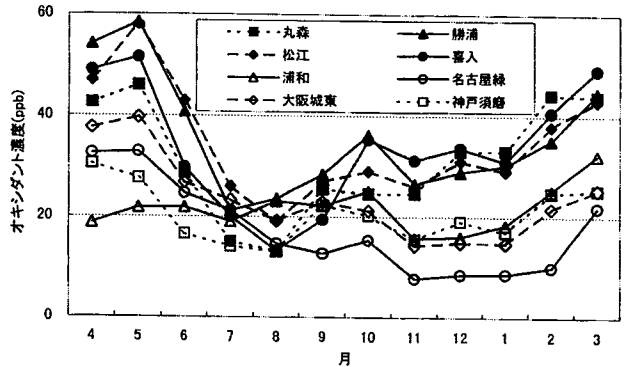


図5-9(4) オキシダントの経月変化

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 5.9 大気汚染物質濃度の経月変化

用いられている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) という考え方に基いて行われている^{1,2)}。この方法は沈着物質の大気中濃度 C を実測し、 V_d を別の何らかの方法で推定してその積 ($F = C \times V_d$) で沈着量を推定する方法であり、代理表面法および林内雨樹幹流法と区別される。 V_d 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 V_d 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 V_d を測定し、外挿法により観測地点における V_d を推定する方法とモデルを用いて V_d 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 (Inferential method) がある。インファレンシャル法は米国の Hicks³⁾ と Wesely ら⁴⁾ 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 V_d 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)^{5,6)} や酸性雨研究センター (松田ら)⁷⁾ 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⁸⁾ や大石ら⁹⁾ はインファレンシャル法により Hicks らの報告した既成の V_d 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。今回の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。

間接法である濃度法による乾性沈着量の試算方法は大きく分けて 2 つの段階がある。まず、最初の段階は沈着物質の大気中濃度を求めることであり、その方法としてフィルターパック、デニューダー管、自動測定機、パッシブサンプラーを用いた方法がある。いずれの方法も一長一短があり、すべてを満足する方法はない。現時点ではフィルターパックを用いる方法が堅牢さ、経済的、扱いやすさの面から最適の方法と考えられ本調査に用いた。また、自動測定機を併用することにより O_3 、 NO_2 の測定が可能となる。

次の段階として沈着物質の沈着表面に対する V_d を推定する方法として、たとえば勾配法等から V_d を実測する方法とインファレンシャル法のようにモデルを用いて V_d を推定する方法がある。 V_d を実測する方法はその地域に適合していると考えられ、実際に影響が顕在化しやすい地域などでの調査であれば、モデルを用いた方法よりも実測した V_d を用いた方がよいと考えられる。しかし、多くの地点で V_d を実測するには労力、コストもかかるため、今回の調査のように広域調査の場合はモデルを用いたインファレンシャル法が有効であると考えられる。現時点では、既成の V_d を用いる簡易インファレンシャル法が簡便で利用しやすく、当初のステップとして最適と考えられる。

現在、Hicks と Wesely らにより開発されたインファレンシャル法は乾性沈着量を把握するのにきわめて有力な方法であるが、この方法に Erisman ら¹⁰⁾は表面状態の「濡れ」の効果を導入し、より精度を上げるようになった。とくに SO_2 等のガス成分の V_d は沈着表面の状態に大きく影響される。Erisman は北米に比べて湿潤な気候条件にあるオランダでは沈着表面の「濡れ」により SO_2 の V_d が増大することを明らかにし、約2倍の V_d を試算している。湿潤な日本においても当然、この「濡れ」の影響を考慮しなければならない。

今回の調査では、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 V_d 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 V_d 、あるいは各測定地点別における V_d 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 乾性沈着速度(V_d)の評価

乾性沈着とは沈着物質(気体または粒子状物質等)が降水によらずに大気から沈着表面(たとえば地表面、建造物表面、植物表面、または水面等)へ輸送され、それらの沈着表面に補足される過程である。そのため乾性沈着量は沈着物質の大気中濃度および気象条件と沈着表面の状態により決まる。

乾性沈着による輸送は大きく分けて3つの過程(①乱流境界層内の輸送過程、②層流境界層内の輸送過程、③表面での捕捉過程)よりなるものと考えられる。

乾性沈着を記述するモデルとして通常、下記のモデル式で表わされる。

$$F = V_d C(Z_r)$$

ここで、 F : 沈着表面への沈着物質のフラックス(沈着量)、 V_d : 沈着速度、 $r = 1/V_d$: 沈着抵抗、 $C(Z_r)$: 基準高さ Z_r における沈着物質濃度

また、 r は上記した3つの過程に対応する3項の和で表わされる。

$$r = r_a + r_b + r_c$$

ここで、 r_a : 空気力学的抵抗

沈着物質が乱流境界層を輸送される過程での抵抗であり、大気安定度などの気象条件により決まり、次式により計算できる。

$$r_a = 4 (u\sigma^2)^{-1} \text{ (中立, 安定時)}$$

$$r_a = 9 (u\sigma^2)^{-1} \text{ (不安定時)}$$

ここで、 σ : 風向変動幅の標準偏差、 u : 風速
 r_b : 層流層抵抗

沈着表面近傍の層流境界層を輸送される過程での抵抗であり、主に分子拡散係数などの沈着物質自身の性質に支配され、次式により計算できる。

$$r_b = 2 (Sc/Pr)^{2/3} [k(u/r_a)^{1/2}]^{-1}$$

ここで、 Sc : シュミット数、 Pr : プラントル数、 k : カルマン数、 r_c : 表面抵抗

沈着物質が沈着表面で捕捉される過程で生じる相互作用により決まり、沈着表面の表面状態により異なるが、たとえば森林の場合次式により計算できる。

$$r_c = [r_{stom}^{-1} + (r_{inc} + r_{soil})^{-1} + r_{cut}^{-1}]^{-1}$$

ここで、 r_{stom} : 気孔抵抗、 r_{inc} : 樹冠内抵抗、 r_{soil} : 土壌抵抗、 r_{cut} : クチクラ抵抗

ただし、粒子の場合は $r_c \sim 0$ である。

現在、日本も含めて V_d の測定例は少なく、しかも V_d は気象条件により影響されるが、それに付随する気象条件等の報告が不十分である。現在用いられている乾性沈着の基本式($F = V_d \times C$)に用いている V_d は上記した3つの過程を全体として一つの V_d で記述するため、 V_d は多くのパラメータに依存することになる。

表5.3に、これまでに報告されているガスおよび粒子状物質の V_d をまとめた。大喜多ら¹¹⁾は実

測による森林への V_d をまとめ、 SO_2 については0.2~4.0cm/sであるが、おおむね0.5cm/s程度である。 SO_4^{2-} についてはおおむね0.2~0.3cm/s前後である。 HNO_3 については1~2cm/s程度である。 NO_3^- については SO_4^{2-} よりやや大きく0.3~0.5cm/s程度と報告している。

一方、1980年代以降、欧米において種々の乾性沈着の推定法が提案されているが、その代表的なものとしてインファレンシャル法(Inferential method)があり^{3,4)}、これまでに利用できる V_d の代表的なものとしては、多少問題があるものB.HicksらのWMOのドラフト¹²⁾に示されている V_d 、あるいは米国の乾性沈着ネットワーク¹³⁾で使用されている V_d がある。これらの値は「濡れ」が考慮されておらず、湿潤な気候である日本では「濡れ」を考慮すべきであると考えられる。

最近、高橋ら¹⁴⁾は、アカマツとスギについて SO_2 について、「濡れ」の影響を考慮した V_d を推定し、「濡れ」を考慮しない場合に比べ寒候季には約3倍、暖候季には約4倍という結果を得た。また、高橋ら⁶⁾は「濡れ」を考慮した場合、HicksとErismanの2方法はほぼ同じ V_d であるが、Hicksの方法の場合、「濡れ」を考慮しない場合に比べて寒候季に約1.9倍、暖候季に約3.2倍大きく、Erismanの方法の場合も、「濡れ」を考慮しない場合に比べて寒候季に約1.4倍、暖候季に約1.2倍大きくなることより「濡れ」の効果がきわめて重要であることを明らかにした。さらに高橋ら⁵⁾は、「濡れ」を考慮した針葉樹(スギ)に対する SO_2 、 NO_2 、 HNO_3 、 HCl の V_d を推定した。

Brookらは北アメリカでRoutine Deposition Model に用いられている SO_2 、 O_3 、 HNO_3 、 SO_4^{2-} の V_d を示した¹⁵⁾。この V_d は森林の各種沈着表面における値を示しており、種類別の乾性沈着量を評価するのに有用であると思われる。日本においては陸地面積の6~7割¹⁶⁾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。

Puxbaumらは北東部オーストリアにおけるオーク(樺)林における NO 、 NO_2 、 HNO_3 、 SO_2 、 NH_3 、 HCl 、粒子状物質の V_d を示した¹⁷⁾、また、Erismanはオランダにおける各種沈着表面(落葉樹、針葉樹、草地、裸地)に対する SO_2 の V_d を示し

た¹⁸⁾。Hofschreuderらは粒子状物質のイオン成分の V_d を示した¹⁹⁾。また、粒子状物質の V_d についてはMcRaeら²⁰⁾により示されている各種沈着表面(氷、雪、海面、砂漠、草地、農地、森林、都市部)の粗度長とSeinfeldら²¹⁾の粒径と V_d の関係図よりある程度、粒子状物質のイオン成分の V_d が推定できる。Dolskeらは実測による O_3 の V_d を示した²²⁾。これらの値は今後日本において使用する V_d の参考データとなる。

以上のことより、 SO_2 、 HNO_3 、 HCl 、 NH_3 、 O_3 、 NO_2 、 NO 、 SO_4^{2-} 、 NO_3^- の V_d を表5.3にまとめ、表5.4に V_d の最小値と最大値を示した。また、平均的な値を表5.5に示した。平均的な値について SO_2 、 HNO_3 、 HCl 、 NO_2 の V_d は高橋ら⁵⁾の値を基にし、 NH_3 、 NO の V_d はPuxbaumら¹⁷⁾の値を基にした。 SO_4^{2-} の V_d は高橋ら⁶⁾の値を基にし、 O_3 の V_d はBrookら¹⁵⁾の値を基にした。なお、 NO_3^- の V_d については V_d が粒径に依存すること、Edgertonら¹³⁾の報告より SO_4^{2-} の V_d に近いことより、 SO_4^{2-} と同程度と推定した。

このように、現段階ではどのような V_d を用いるかについてはさまざまな問題点を内包しているが、乾性沈着量の推定、とくに日本では全国規模の調査は行われておらず、湿性沈着量との比較、総沈着量の推定は切望されるところである。これらのことから、本報告では多くの論文より問題点を整理し明らかにした上で、今の段階で日本に適した V_d を選出し、乾性沈着量を推定した。

今後、今回使用しなかった沈着物質(たとえば、 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 以外のイオン成分)の沈着表面に対する V_d の推定が行われた場合にはそれを引用する予定であり、また沈着物質の沈着表面に対する V_d が新しく推定された場合にはそれ付け加える予定である。あるいは当協議会のグループで妥当なモデルを含めた V_d の推定を行う予定をしている。なお、日本は湿潤な気候のため V_d に対する「濡れ」の影響を無視できないことから、平成11年度も含め、降水1mm以上の降水日数と降水日数の翌日をも含めた「濡れ」日数および結露日数を12年度からは報告し、より妥当な V_d を推定するための基礎資料としたい。

5.5 乾性沈着量の評価(V_d による算出)

表5.4に示したガス成分(SO_2 、 HNO_3 、 HCl 、

表 5.3 報告されているガスおよび粒子状物質の沈着速度(その1)

(1)SO₂

沈着速度 (cm・sec ⁻¹)		季節	測定法	測定手法	沈着表面	沈着表面詳細	研究者	年号	文献番号
範囲	平均値								
	0.4	夏季	実測		森林		Waren and Spring Laborator	1983	11
	0.2	冬季	実測		森林		Waren and Spring Laborator	1983	11
	0.4		実測	ボックス法	森林	マツ	Granat	1983	11
	0.4		実測		森林		Irwin	1985	11
	0.5		実測	渦相関法	森林	オーク・ヒッコリー	Lindbergら	1986	11
	1.5		実測	勾配法	森林		青木ら	1986	11
	0.5		実測	勾配法	森林	混交林	大喜多ら	1987	11
	0.79		実測	樹間透過雨	森林	コナラ	大喜多ら	1988	11
0.3-0.4			モデル		裸地		WMO/ADA Draft		12
0.3-0.5			モデル		草地		WMO/ADA Draft		12
0.3-0.5			モデル		農地		WMO/ADA Draft		12
0.3-0.4		夏季	モデル		落葉樹林		WMO/ADA Draft		12
0.1-0.2		冬季	モデル		落葉樹林		WMO/ADA Draft		12
0.3-0.4			モデル		針葉樹林		WMO/ADA Draft		12
0.2-0.4							Edgertonら	1992	13
	0.61	寒候季	モデル		針葉樹林	スギ	高橋ら	2000	5
	1.1	暖候季	モデル		針葉樹林	スギ	高橋ら	2000	5
0.20-1.0	0.55		モデル	インフレンシャル法	森林	オーク林	Puxbaumら	1998	17
0.34-0.89	0.54	植生季	モデル	インフレンシャル法	森林	オーク林	Puxbaumら	1998	17
0.1-0.6			実測		落葉樹林		Erisman	1994	18
0.3-1.1			モデル		落葉樹林		Erisman	1994	18
0.7-2.5			実測		針葉樹林		Erisman	1994	18
0.6-2.6			モデル		針葉樹林		Erisman	1994	18
1.3-1.7			実測		草地		Erisman	1994	18
0.7-1.5			モデル		草地		Erisman	1994	18
0.8-1.4			実測		裸地		Erisman	1994	18
0.7-1.9			モデル		裸地		Erisman	1994	18
	0.89		モデル		広葉樹、針葉樹混合林		Brookら	1999	15
	0.97		モデル		常緑針葉樹		Brookら	1999	15
	0.58		モデル		農地、草地		Brookら	1999	15
	0.86		モデル		広葉落葉樹		Brookら	1999	15

(2)HNO₃

沈着速度 (cm・sec ⁻¹)		季節	測定法	測定手法	沈着表面	沈着表面詳細	研究者	年号	文献番号
範囲	平均値								
	2.0		実測	渦相関法、勾配法	森林	オーク、ヒッコリー	Lindberg	1986	11
	1.0		実測	勾配法	森林	混交林	大喜多ら	1987	11
	0.77		実測	樹間透過雨	森林	コナラ	大喜多ら	1988	11
1-3			モデル		裸地(温帯地帯)		WMO/ADA Draft		12
1-3			モデル		草地(温帯地帯)		WMO/ADA Draft		12
1-3			モデル		農地(温帯地帯)		WMO/ADA Draft		12
2-4		夏季	モデル		落葉樹林(温帯地帯)		WMO/ADA Draft		12
1-2		冬季	モデル		落葉樹林(温帯地帯)		WMO/ADA Draft		12
2-4			モデル		落葉樹林(温帯地帯)		WMO/ADA Draft		12
1.0-2.0							Edgertonら	1992	13
	2.8	寒候季	モデル		針葉樹林	スギ	高橋ら	2000	5
	1.7	暖候季	モデル		針葉樹林	スギ	高橋ら	2000	5
1.5-3.8	2.7		モデル	インフレンシャル法	森林	オーク林	Puxbaumら	1998	17
1.9-4.2	2.7	植生季	モデル	インフレンシャル法	森林	オーク林	Puxbaumら	1998	17
	4.5		モデル		農地、草地		Brookら	1999	15
	5.0		モデル		広葉落葉樹		Brookら	1999	15
	5.0		モデル		森林		Brookら	1999	15
	5.8		モデル		常緑針葉樹		Brookら	1999	15

(3)SO₄²⁻

沈着速度 (cm・sec ⁻¹)		季節	測定法	測定手法	沈着表面	沈着表面詳細	研究者	年号	文献番号
範囲	平均値								
0.09-0.13			実測		森林		Lindbergら	1981	11
	0.7		実測	渦相関法	森林	テーダマツ	Hicksら	1982	11
	0.2		実測	渦相関法	森林	オーク、ヒッコリー	Lindbergら	1986	11
	0.07		実測	勾配法	森林	混交林	大喜多ら	1987	11
	0.27		実測	樹間透過雨	森林	コナラ	大喜多ら	1988	11
	0.1		モデル		裸地(温帯地帯)		WMO/ADA Draft		12
0.1-0.2			モデル		草地(温帯地帯)		WMO/ADA Draft		12
0.1-0.2			モデル		農地(温帯地帯)		WMO/ADA Draft		12
0.2-0.3			モデル		落葉樹林(温帯地帯)		WMO/ADA Draft		12
0.1-0.2			モデル		落葉樹林(温帯地帯)		WMO/ADA Draft		12
0.3-0.4			モデル		落葉樹林(温帯地帯)		WMO/ADA Draft		12
0.1-0.2							Edgertonら	1992	13
	0.26	寒候季	モデル		針葉樹	スギ	高橋ら	1999	6
	0.15	暖候季	モデル		針葉樹	スギ	高橋ら	1999	6
	0.2	通年	モデル		針葉樹	スギ	高橋ら	1999	6
	0.08		実測	枝洗浄	森林		Hofschreuderら	1997	19
	0.06		実測	プラスチック枝	森林		Hofschreuderら	1997	19
	0.30		実測	林内雨	森林		Hofschreuderら	1997	19
	0.13		モデル		森林		Hofschreuderら	1997	19
	0.96		モデル		常緑針葉樹		Brookら	1999	15
	0.75		モデル		広葉落葉樹		Brookら	1999	15
	0.34		モデル		農地、草地		Brookら	1999	15

表 5.3 報告されているガスおよび粒子状物質の沈着速度(その 2)

(4)NO ₂ ⁻									
沈着速度(cm・sec ⁻¹)		季節	測定法	測定手法	沈着表面	沈着表面詳細	研究者	年号	文献番号
範囲	平均値								
	0.3		実測	勾配法	森林	混交林	大喜多ら	1987	11
	0.50		実測	樹間透過雨	森林	コナラ	大喜多ら	1988	11
	0.1		モデル		裸地(温帯地帯)		WMO/ADA Draft		12
0.1-0.2			モデル		草地(温帯地帯)		WMO/ADA Draft		12
0.1-0.2			モデル		農地(温帯地帯)		WMO/ADA Draft		12
0.2-0.3			モデル		落葉樹林(温帯地帯)		WMO/ADA Draft		12
0.1-0.2			モデル		落葉樹林(温帯地帯)		WMO/ADA Draft		12
0.3-0.4			モデル		落葉樹林(温帯地帯)		WMO/ADA Draft		12
0.1-0.2							Edgertonら	1992	13
	0.08		実測	枝洗浄	森林		Hofschreuderら	1997	19
	0.07		実測	プラスチック枝	森林		Hofschreuderら	1997	19
	0.08		実測	林内雨	森林		Hofschreuderら	1997	19
	0.19		モデル		森林		Hofschreuderら	1997	19

(5)HCl									
沈着速度(cm・sec ⁻¹)		季節	測定法	測定手法	沈着表面	沈着表面詳細	研究者	年号	文献番号
範囲	平均値								
	3.2	寒候季	モデル		針葉樹林	スギ	高橋ら	2000	5
	1.9	暖候季	モデル		針葉樹林	スギ	高橋ら	2000	5
2.4-2.5	2.5		モデル	インフレンシヤル法	森林	オーク林	Puxbaumら	1998	17
2.4	2.4	植生季	モデル	インフレンシヤル法	森林	オーク林	Puxbaumら	1998	17

(6)NH ₃									
沈着速度(cm・sec ⁻¹)		季節	測定法	測定手法	沈着表面	沈着表面詳細	研究者	年号	文献番号
範囲	平均値								
0.60-1.2	0.85		モデル	インフレンシヤル法	森林	オーク林	Puxbaumら	1998	17
1.0-1.2	1.1	植生季	モデル	インフレンシヤル法	森林	オーク林	Puxbaumら	1998	17

(7)O ₃									
沈着速度(cm・sec ⁻¹)		季節	測定法	測定手法	沈着表面	沈着表面詳細	研究者	年号	文献番号
範囲	平均値								
0.35-0.47	0.49		実測	渦相関法	草地		Dolskeら	1985	22
0.28-0.49			実測	勾配法	草地		Dolskeら	1985	22
	1.0		モデル		森林地域		Brookら	1999	15
	0.50		モデル		広葉落葉樹		Brookら	1999	15
	0.67		モデル		農地、草地		Brookら	1999	15
	0.51		モデル		広葉樹、針葉樹混合林		Brookら	1999	15

(8)NO ₂									
沈着速度(cm・sec ⁻¹)		季節	測定法	測定手法	沈着表面	沈着表面詳細	研究者	年号	文献番号
範囲	平均値								
	0.081	寒候季	モデル		針葉樹林	スギ	高橋ら	2000	5
	0.091	暖候季	モデル		針葉樹林	スギ	高橋ら	2000	5
0.13-0.33	0.22		モデル	インフレンシヤル法	森林	オーク林	Puxbaumら	1998	17
0.36-0.72	0.54	植生季	モデル	インフレンシヤル法	森林	オーク林	Puxbaumら	1998	17

(9)NO									
沈着速度(cm・sec ⁻¹)		季節	測定法	測定手法	沈着表面	沈着表面詳細	研究者	年号	文献番号
範囲	平均値								
0.03-0.27	0.12		モデル	インフレンシヤル法	森林	オーク林	Puxbaumら	1998	17

(10)粒子状物質									
沈着速度(cm・sec ⁻¹)		季節	測定法	測定手法	沈着表面	沈着表面詳細	研究者	年号	文献番号
範囲	平均値								
0.08-0.40	0.18		モデル	インフレンシヤル法	森林	オーク林	Puxbaumら	1998	17
0.08-0.20	0.14	植生季	モデル	インフレンシヤル法	森林	オーク林	Puxbaumら	1998	17
0.08-0.62			実測	枝洗浄	森林		Hofschreuderら	1997	19
0.05-0.42			実測	プラスチック枝	森林		Hofschreuderら	1997	19
0.08-0.57			実測	林内雨	森林		Hofschreuderら	1997	19
0.10-0.58			モデル		森林		Hofschreuderら	1997	19

NH₃, O₃, NO₂, NO)と粒子状物質のイオン成分(SO₄²⁻, NO₃⁻)のV_d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に示した上記ガス成分および粒子状物質のイオン成分の平均的なV_dで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。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。

SO₂の濃度測定について、今回の調査ではフィ

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

	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

	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*	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*	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

ルターパック法と自動測定機による方法で行ったが、SO₂自動測定機(=溶液導電率型、以下、湿式型SO₂計と略)はその装置の性格上、妨害ガスや蒸発損失のため、実際のSO₂濃度よりも約1.5~2倍程度高くなることが報告されている²³⁾。今回の調査においてもフィルターパック法とSO₂自動測定機による大気中SO₂濃度も同様の傾向が認められるため、SO₂の大気中濃度についてはフィルターパック法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、カッコで示した値は1カ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0.8~239.2mmol・m⁻²・year⁻¹(以下、mmol・m⁻²・year⁻¹を略)、HNO₃の沈着量は1.7~56.3、HClの沈着量は7.8~83.8、NH₃の沈着量は6.2~233.5、SO₄²⁻の沈着量は0.4~17.3、NO₃⁻の沈着量は0.2~13.0、O₃の沈着量は64.4~467.7、NO₂の沈着量は3.2~290.0、NOの沈着量は0.1~81.9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>SO₂>NH₃>HCl>NO>HNO₃>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6.7~75.4(平均20.2)mmol・m⁻²・year⁻¹(以下、mmol・m⁻²・year⁻¹を略)、HNO₃の沈着量は4.5~19.0(12.3)、HClの沈着量は10.1~63.2(25.4)、NH₃の沈着量は10.5~186.6(62.0)、SO₄²⁻の沈着量は0.7~3.6(2.4)、NO₃⁻

の沈着量は0.4~5.1(2.3)、O₃の沈着量は115.0~233.9(172.5)、NO₂の沈着量は3.4~34.9(17.7)、NOの沈着量は0.4~36.4(15.3)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の沈着量の最大値は江東(東京)、HNO₃の沈着量の最大値は緑(愛知)、HClの沈着量の最大値は江東(東京)、NH₃の沈着量の最大値は江東(東京)、SO₄²⁻の沈着量の最大値は大宰府(福岡)、NO₃⁻の沈着量の最大値は江東(東京)、O₃の沈着量の最大値は勝浦(千葉)、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。乾性沈着量の最大値はおむね都市部に集中していた。

(2) 時間変動

表 5.5 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、HNO₃、NH₃、NO₂およびNOの沈着量は暖候季>寒候季であり、HCl、SO₄²⁻、NO₃⁻およびO₃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、寒候季にV_d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、V_d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。

表 5.6 ガスおよびエアロゾル濃度から推定した乾性沈着量の範囲

(1) フィルターパック法

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											
1 札幌北	2.6	66.4	1.7	12.4	31.3	52.8	57.4	114.9	0.7	6.3	0.2	0.8
2 札幌白石	(3.9)	(102.6)	(1.8)	(13.5)	(15.7)	(26.4)	(20.0)	(40.1)	(0.9)	(8.2)	(0.4)	(1.8)
3 八森	(0.5)	(13.3)	(1.2)	(8.8)	(19.6)	(33.0)	(13.4)	(26.9)	(1.4)	(13.4)	(0.4)	(2.2)
4 盛岡	(1.7)	(45.1)	(1.5)	(11.6)	(5.6)	(9.4)	(14.3)	(28.6)	(0.6)	(6.0)	(0.5)	(2.3)
5 新潟	0.8	20.2	3.7	28.2	20.1	33.9	22.0	43.9	1.1	10.8	0.8	3.9
6 江東	9.2	239.2	6.6	49.6	49.7	83.8	116.8	233.5	1.5	14.4	2.6	13.0
7 磯子	(2.4)	(62.8)	(5.2)	(39.0)	(33.6)	(56.5)	(55.9)	(111.8)	(1.2)	(11.6)	(2.3)	(11.7)
8 小杉	1.2	31.1	2.7	20.4	7.8	13.2	28.1	56.3	0.5	4.6	0.3	1.4
9 福井	2.0	53.1	5.7	43.3	20.9	35.3	19.3	38.5	1.5	14.7	0.7	3.6
10 豊橋	2.1	54.6	5.0	37.8	20.4	34.3	54.8	109.7	1.3	12.2	1.6	7.8
11 緑	2.1	55.8	7.5	56.3	17.5	29.5	51.2	102.5	1.4	13.0	1.4	7.0
12 周山	0.8	21.5	3.5	26.0	14.0	23.5	13.2	26.4	0.4	4.0	0.4	1.9
13 池田	1.2	32.5	5.9	44.5	14.2	23.9	19.7	39.5	1.3	12.3	1.3	6.3
14 大阪生野	(2.6)	(66.5)	(4.9)	(37.2)	(18.1)	(30.4)	(57.6)	(115.3)	(0.9)	(8.8)	(0.1)	(0.4)
15 奈良	1.5	37.7	4.5	34.2	15.3	25.7	31.9	63.8	1.1	11.0	1.3	6.5
16 神戸須磨	3.7	97.1	5.9	44.3	23.0	38.7	26.4	52.8	1.4	13.1	1.3	6.4
17 鳥取	(1.2)	(31.2)	(3.1)	(23.5)	(17.2)	(28.9)	(18.2)	(36.3)	(0.4)	(4.0)	(0.3)	(1.7)
18 松江	1.3	33.6	2.5	18.8	11.1	18.7	6.2	12.5	1.7	16.0	1.0	5.1
19 倉橋島	(2.3)	(60.8)	(6.6)	(49.7)	(21.9)	(36.8)	(20.0)	(40.0)	(0.2)	(1.6)	(0.1)	(0.7)
20 広島安佐南	(7.0)	(181.1)	7(4.6)	(34.4)	(19.8)	(33.3)	(49.9)	(99.8)	(3.9)	(37.6)	(1.7)	(8.5)
21 石井	(2.3)	(60.2)	(4.0)	(30.0)	(53.2)	(89.6)	(36.2)	(72.4)	(0.2)	(2.0)	(0.3)	(1.6)
22 太宰府	2.9	75.3	7.0	52.7	-	-	43.7	87.5	1.8	17.3	1.3	6.5
23 福岡	(5.0)	(129.4)	(6.2)	(46.7)	(30.1)	(50.8)	(48.2)	(96.5)	(2.5)	(23.9)	(1.4)	(7.0)
24 大分	(3.2)	(83.7)	(7.9)	(59.8)	(25.2)	(42.5)	(20.0)	(40.1)	(3.3)	(31.5)	(1.3)	(6.4)
25 喜入	(2.2)	(57.2)	(3.2)	(23.8)	(15.8)	(26.6)	(22.0)	(44.0)	(1.2)	(11.5)	(0.6)	(2.8)
最小値	0.8	20.2	1.7	12.4	7.8	13.2	6.2	12.5	0.4	4.0	0.2	0.8
最大値	9.2	239.2	7.5	56.3	49.7	83.8	116.8	233.5	1.8	17.3	2.6	13.0
平均値	2.4	62.9	4.8	36.0	20.4	34.4	37.8	75.5	1.2	11.5	1.1	5.4

()で示した値は1ヶ月以上の欠測がある場合

(2) 自動測定機

地点名	O ₃		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					
1 札幌北	(73.2)	(264.1)	24.2	214.8	6.5	58.3
2 盛岡	86.9	310.5	20.6	183.4	3.4	30.4
3 丸森	114.6	409.2	3.2	28.4	0.3	2.9
4 水戸	97.3	347.4	11.5	101.9	2.1	19.1
5 浦和	79.3	283.1	25.9	230.6	6.4	57.7
6 市原	86.5	309.0	21.6	192.0	4.4	39.4
7 勝浦	131.0	467.7	6.9	61.2	1.1	10.2
8 土気	95.1	339.7	14.1	125.5	3.1	27.5
9 小杉	110.7	395.5	13.3	118.0	3.0	27.4
10 福井	90.9	324.7	11.7	103.9	2.7	23.9
11 豊橋	112.9	403.4	19.7	174.7	4.7	42.5
12 緑	64.4	230.0	29.9	265.8	7.4	66.9
13 大津	(73.5)	(262.4)	(25.0)	(222.6)	(7.6)	(68.8)
14 大阪城東	86.2	307.9	32.6	290.0	8.4	75.6
15 池田	118.8	424.4	14.7	130.6	2.3	20.7
16 奈良	78.4	279.9	21.3	189.7	4.9	44.3
17 印南	-	-	4.1	36.7	0.5	4.6
18 神戸須磨	75.2	268.6	30.4	270.5	9.1	81.9
19 松江	127.3	454.8	6.1	54.3	1.0	8.6
20 山口	72.2	257.8	11.3	100.4	3.0	26.9
21 太宰府	84.5	301.7	20.7	184.2	6.2	55.5
22 人吉	(69.8)	(249.2)	(12.8)	(113.3)	(4.3)	(39.0)
23 喜入	123.5	441.1	3.4	29.9	0.1	0.8
最小値	64.4	230.0	3.2	28.4	0.1	0.8
最大値	131.0	467.7	32.6	290.0	9.1	81.9
平均値	96.6	345.1	16.5	147.0	3.8	34.5

()で示した値は1ヶ月以上の欠測がある場合

表 5.7 針葉樹林(スギ)に対するガスおよびエアロゾルの乾性沈着量(推定)

(1) フィルターバック法

地点名	SO ₂	HNO ₃	HCl	NH ₃	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻
	mmol・m ⁻² ・year ⁻¹					
1 札幌北	19.6	4.5	35.5	93.4	1.3	0.4
2 札幌白石	(30.5)	(5.0)	(21.0)	(35.4)	(1.7)	(0.8)
3 八森	(3.9)	(3.6)	(28.1)	(22.3)	(3.4)	(1.1)
4 盛岡	(10.6)	(4.8)	(7.7)	(27.2)	(1.3)	(0.9)
5 新潟	6.7	9.2	24.8	38.0	2.2	1.6
6 江東	75.4	17.5	63.2	186.6	2.7	5.1
7 磯子	(17.0)	(15.2)	(45.0)	(86.6)	(2.5)	(5.0)
8 小杉	11.7	7.0	10.1	47.1	1.0	0.6
9 福井	16.5	14.2	27.8	32.4	3.1	1.6
10 豊橋	16.5	13.4	25.9	90.4	2.6	3.3
11 緑	17.9	19.0	22.2	85.2	2.7	3.0
12 岡山	7.6	8.9	17.1	21.6	0.7	0.7
13 池田	11.0	15.2	17.6	33.4	2.6	2.7
14 大阪生野	(26.2)	(15.0)	(23.5)	(104.0)	(1.9)	(0.1)
15 奈良	11.4	12.1	19.4	53.0	2.4	2.9
16 神戸須磨	34.1	14.4	27.2	42.8	2.7	2.6
17 鳥取	(10.6)	(8.2)	(20.0)	(36.5)	(0.7)	(0.6)
18 松江	10.5	6.7	14.1	10.5	3.5	2.2
19 倉橋島	(22.9)	(17.4)	(29.3)	(34.9)	(0.4)	(0.3)
20 広島安佐	(21.2)	(8.3)	(16.6)	-	(5.1)	(2.2)
21 石井	(7.1)	(7.3)	(44.8)	-	(0.3)	(0.4)
22 太宰府	23.1	18.5	-	72.3	3.6	2.9
23 福岡	(40.7)	(18.6)	(40.7)	(92.0)	(5.1)	(2.8)
24 大分	(30.4)	(22.8)	(34.8)	(36.0)	(6.8)	(3.0)
25 喜入	(13.1)	(8.5)	(21.4)	(38.1)	(2.5)	(1.1)
最小値	6.7	4.5	10.1	10.5	0.7	0.4
最大値	75.4	19.0	63.2	186.6	3.6	5.1
平均値	20.2	12.3	25.4	62.0	2.4	2.3

()で示した値は1ヶ月以上の欠測がある場合

(2) 自動測定機

地点名	Ox	NO ₂	NO
	mmol・m ⁻² ・year ⁻¹		
1 札幌北	(131.5)	26.0	25.9
2 盛岡	155.2	22.1	13.5
3 丸森	204.6	3.4	1.3
4 水戸	173.7	12.3	8.5
5 浦和	141.5	27.8	25.6
6 市原	154.5	23.4	17.5
7 勝浦	233.9	7.5	4.5
8 土気	169.8	15.4	12.2
9 小杉	197.7	14.2	12.2
10 福井	162.3	12.6	10.6
11 豊橋	201.7	21.1	18.9
12 緑	115.0	32.0	29.7
13 大津	(128.4)	(24.6)	(27.0)
14 大阪城東	154.0	34.9	33.6
15 池田	212.2	15.7	9.2
16 奈良	139.9	22.9	19.7
17 印南	-	4.5	2.1
18 神戸須磨	134.3	32.5	36.4
19 松江	227.4	6.6	3.8
20 山口	128.9	12.1	12.0
21 太宰府	150.9	22.2	24.7
22 人吉	(124.6)	(14.3)	(17.3)
23 喜入	220.6	3.6	0.4
最小値	115.0	3.4	0.4
最大値	233.9	34.9	36.4
平均値	172.5	17.7	15.3

()で示した値は1ヶ月以上の欠測がある場合

— 参 考 文 献 —

- Hicks, B. B., Meyers, T. P. and Baldocchi, D. D.: Principles of Environmental Sampling, Keith, L. H. ed., American Chemical Society, p297-315 (1988)
- NDDN: Overview of the USEPA National Dry Deposition Network, C-NDDNGEN. 2/OYRY-1.1-4.4, p 1-25 (1988)
- 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)
- Wesely M. L.: Parametrization of surface resistances to gaseous dry deposition in regional-scale numerical models, Atmospheric Environment, 23, 1293-1304 (1989)
- 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)
- 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)
- 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, 2 G1030, p. 454 (2000)
- 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)

- 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)
- Erisman, J. W. and Wyers, G. P.: Continuous measurements of surface exchange of SO₂ and NH₃—Implications for their possible interaction in the deposition process, Atmospheric Environment, 27A, 1937-1949 (1993)
- T. Okita, K. Murano, M. Matsumoto and T. Totsuka: Determination of dry deposition velocities to forest canopy from measurements of throughfall, Stemflow and the vertical distribution of aerosol and gaseous species, Environmental Sciences, 2, 103-111 (1993)
- B. B. Hicks: WMO/ADA draft
- E. S. Edgerton et al., Preliminary data from the USEPA dry deposition network, Environmental Pollution, 75, 145-156 (1992)
- 高橋章, 藤田慎一: 森林への乾性沈着の推定, 国際セミナー—酸性物質の輸送と影響評価— 予稿集, 1996年11月28-29日
- J. R. Brook, L. Zhang, Y. Li, D. Johnson: Description and evaluation of a model of description velocities for routine estimates of dry deposition over North America. Part II: review of past measurements and model results, Atmos. Environ., 33, 5053-5070 (1999)
- 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)

- 17) H. Puxbaum and M. Gregori: 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)
- 18) J. W. Erisman: Evaluation of a surface resistance parametrization of sulfur dioxide, *Atmospheric Environment*, 28, 2583-2594 (1994)
- 19) P. Hofschreuder et al: Deposition of aerosol on spruce forest, *Atmospheric Environment*, 31, 351-357 (1997)
- 20) McRae et al., *Atmos. Environ.*, 16, 679 (1982)
- 21) Seinfeld and Pandis, "Atmospheric Chemistry and Physics", p. 971 (1998)
- 22) D. A. Dolske and D. F. Gatz: A field intercomparison of methods for the measurement of particle and gas dry deposition, *Journal of Geophysical Research*, 90, 2076-2084 (1985)
- 23) 松本光弘, 溝口次夫: SO₂自動測定機(溶液導電率型)によるSO₂濃度測定の問題点とその吸収液のイオンクロマトグラフィーへの応用, *環境科学会誌*, 9, 497-505 (1996)

6. ま と め

平成11年度から3カ年計画で始めた第3次全公研酸性雨共同調査の1年目の結果をまとめた。これまでの共同調査と異なる点は、「降雨時開放型捕集装置を用いて湿性沈着成分に関して量的空間分布を把握すること」(調査I)と「フィルターパック法による大気中ガス・粒子状物質濃度測定から乾性沈着成分についても量的空間分布を把握すること」(調査II)である。参加機関は調査Iの方が45機関(47地点), 調査IIは25機関(25地点)であった。

調査I, 調査IIはともに原則として1週間サンプリングとしたが, 各機関のデータはあらかじめ定めた1カ月単位で集計した。

- 1) 各機関から報告された湿性沈着成分のQA/QCはかなりよかったが, イオンバランス基準R₁をオーバーしたデータは全データの16%あり, 電気伝導率バランス基準R₂をオーバーしたデータは全データの8.6%あった。また, 調査の初年度でもあり, 装置が間に合わない機関もあり, 月単位の欠測率は13.7%であった。
- 2) 降水量の全国平均は平年より約100mm多い1469mmであった。pHの全国平均は4.83で, 冬季日本海側の低下が著しかった。年平均ECは2.21mS/mで, 暖候季には太平洋側が寒候季には日本海側が高かった。

- 3) 陸水を酸性化する物質の指標となるnss-SO₄²⁻, NO₃⁻の湿性沈着量の全国平均値は各々26.1, 26.5mmol・m⁻²・year⁻¹であり, 冬季日本海側で増加の傾向を示した。一方, 酸性化を抑制する物質の指標となるNH₄⁺, nss-Ca²⁺の全国平均値は各々35.3, 11.1mmol・m⁻²・year⁻¹であり, 同様に冬季日本海側で増加の傾向を示した。各イオン濃度および沈着量は環境庁第3次酸性雨対策調査(1993~1997年度)の結果と比べ, 同レベルかやや高めであった。この原因の一つとして, 本調査の地点が環境庁調査に比べて都市域に多く分布していることが考えられた。
- 4) フィルターパックに用いたろ紙のブランク値を13機関についてみたところ, 1機関を除き比較的良好な結果であった。たとえば, NO₃⁻についてみると, F₀のテフロンろ紙1枚当たりには5.8±8.5nmol, F₁のポリアミドろ紙では17.3±13.7nmol, 炭酸含浸ろ紙F₂には17.3±16.2nmolであり, 十分環境測定が可能であった。機関間のSD%がまだ高めであるのは各ろ紙のロット, 前処理法, 乾燥法, 抽出法等が異なることも考えられ, 共同調査の精度を上げるためには各機関のいっそうの努力が望まれた。
- 5) フィルターパック法によるSO₂, HNO₃, HClおよびNH₃ガスの全国平均濃度は各々93.3, 18.8, 37.1, 194nmol/m³でNH₃ガスが高かった。また, 粒子状物質中SO₄²⁻, NO₃⁻, Cl⁻およびNH₄⁺は, 48.8, 29.9, 27.7および74.4nmol/m³でやはりNH₄⁺が高かった。
- 6) 乾性沈着量を評価するに当たり, 簡易インファレンシャル法(F=V_dC)を用いることとし, Cはフィルターパック法または自動測定機によるデータを, V_dについては最近の文献値を引用してFを推定した。実際に計算に用いたV_dは森林における値で, 気象条件や沈着表面の状態(例えば植生の有無や濡れ条件)により影響を受けるので, V_dの最大値と最小値から幅を求めた。また, スギ林における平均的な値も試算した。結果としてSO₂, HNO₃, HClおよびNH₃ガスの沈着量は各々0.8~239.2mmol・m⁻²・year⁻¹(以下この単

位略す), 1.7~56.3, 7.8~83.8, 6.2~233.5と算出され, 同様に, SO_4^{2-} , NO_3^- についても0.4~17.3, 0.2~13.0と各々推定された。また, 自動測定機の O_3 , NO_2 のデータから各々64.4~467.7, 3.2~290.0と推定された。乾性沈着量が大きいののはガス成分の中でも O_3 であり, HNO_3 は小さかった。

乾性沈着量については本報告では現時点で

引用可能な日本に適した V_d を選び, 最大値~最小値として求めたが, 他の方法から推定される値と比べ高すぎる可能性もある。また, 環境濃度の比較的高い NH_4^+ や Ca^{2+} については適当な V_d を選ぶ必要があり, 濡れの実態をよりよく反映させた V_d の見直しなども今後に残された課題となった。