

# 酸性雨長期モニタリング報告書 (平成 15～19 年度)

平成 2 1 年 3 月

環 境 省



国設小笠原酸性雨測定所



試料捕集装置と雨量計(国設東京酸性雨測定所)



白山(石川県)での土壌試料採取



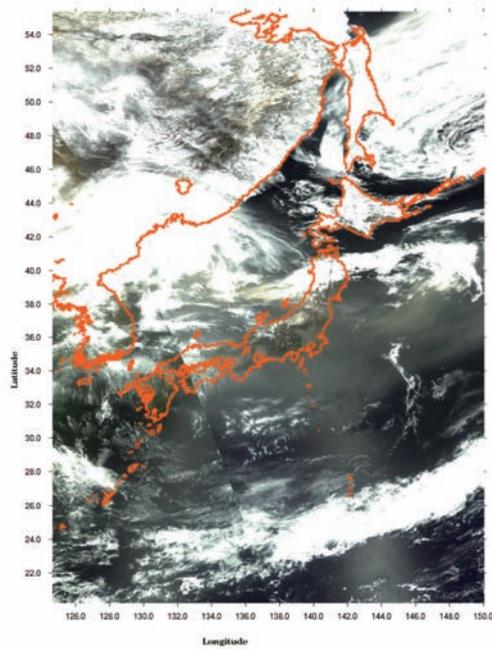
永富池(香川県)での陸水試料採取



伊自良湖(岐阜県)流入河川水採水地点(孝洞川)



伊自良湖林内雨測定地点

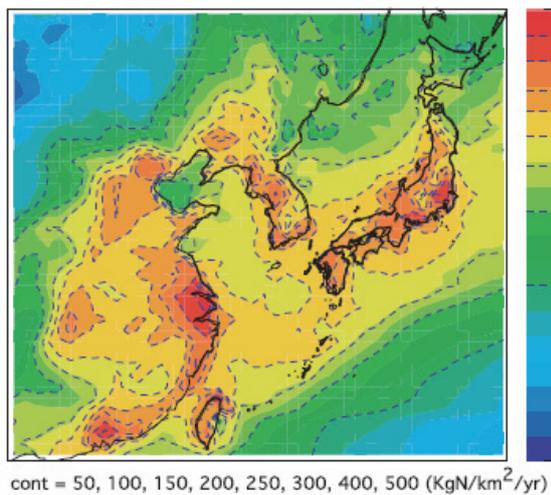


大陸からの黄砂（2006年4月18日）

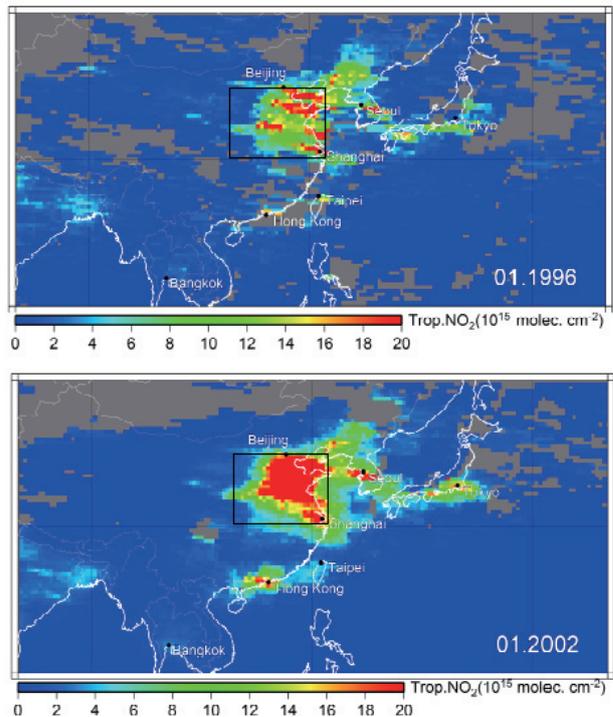
浅間山の噴煙（2004年9月16日）

NASAの地球観測衛星Terra及びAquaに搭載されたMODISによる画像

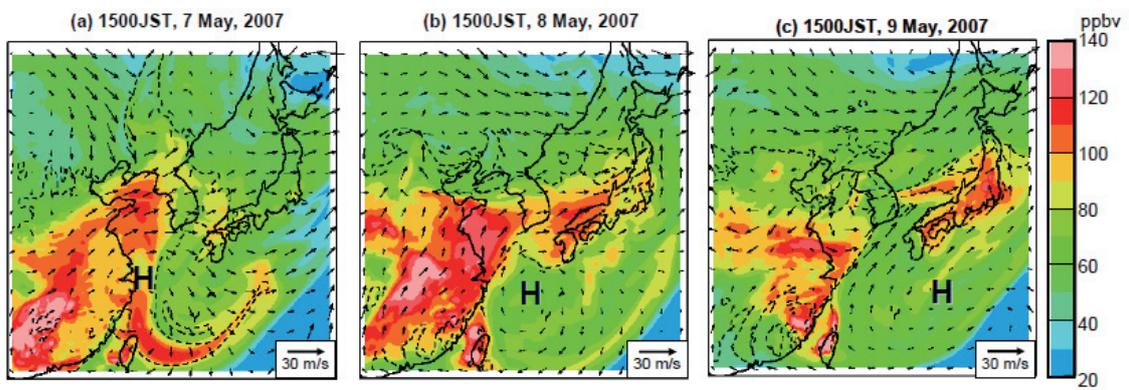
（宇宙航空研究開発機構 提供）



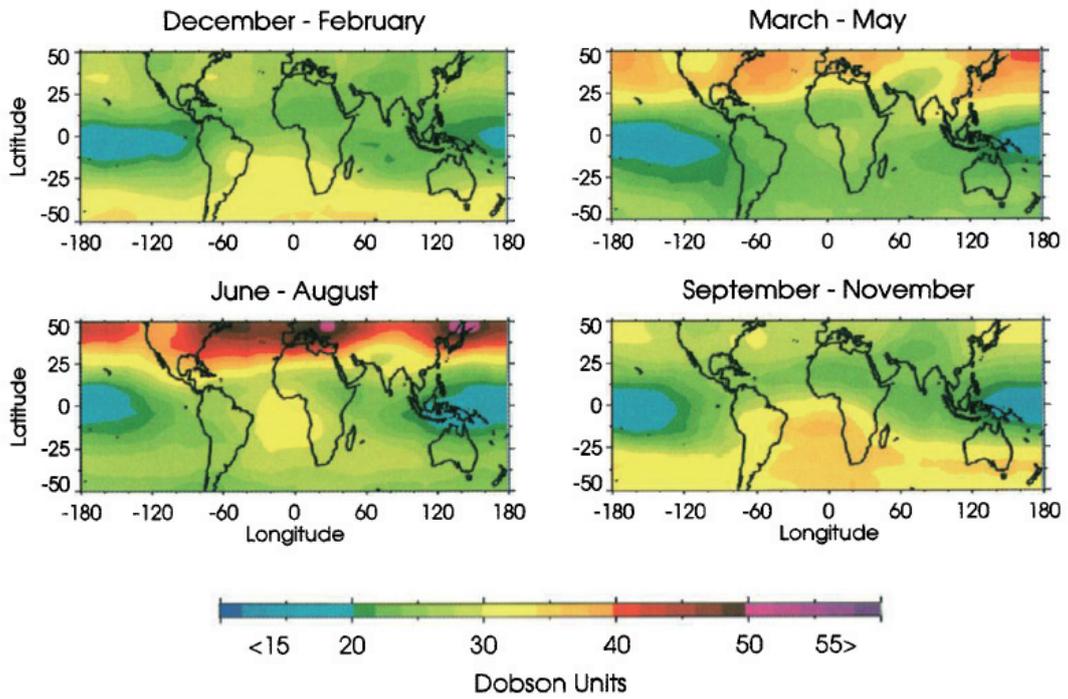
窒素の年間沈着量分布（2002年）  
（Unoら, 2007）



GOMEで測定された東アジアにおけるNO<sub>2</sub>の対流圏濃度分布。上図は1996年1月、下図は2002年1月の平均濃度を示す。なお、グレーの部分はデータの欠損を示す。（海洋研究開発機構, 2005）



東アジア地域におけるオゾン越境汚染シミュレーション図（2007年5月7～9日）  
（大原ら, 2008）



衛星観測による季節別オゾン全球分布図（Fishman, Jら, 1997）



## はじめに

酸性雨については、1960年代に欧米において湖沼の酸性化及び森林被害が国際問題となり、1970年代には我が国においても湿性大気汚染が問題となりました。このため、環境省（庁）では、我が国における酸性沈着の状況やその影響を把握し、悪影響の未然防止を目的として、昭和58年度から酸性雨対策調査を実施しました。また、広域的かつ長期的な酸性雨モニタリングを継続的に実施するため、平成14年3月に「酸性雨長期モニタリング計画」を策定し、15年度からは同計画に基づき、湿性・乾性沈着モニタリング、湖沼等を対象とした陸水モニタリング、土壌・植生モニタリングを地方公共団体の協力を得て実施しています。

本報告書は、平成15年度から19年度に実施した長期モニタリングの結果に加え、これまでの調査結果から、周辺土壌等の酸性化が認められる岐阜県伊自良湖集水域において17年度から19年度に実施した重点調査結果を中心にとりまとめたものです。また、近年、光化学オキシダント注意報発令地域の広域化やその濃度の漸増傾向の一因として、アジア大陸からの越境汚染が指摘されるなど、酸性雨のみならず、オゾンやエアロゾルも含む越境大気汚染問題への懸念が高まっていることから、シミュレーションモデルによる計算結果など既存の研究結果をレビューし、調査結果と併せて我が国への越境大気汚染の状況を検討しました。

本報告書は、環境省に設置した酸性雨対策検討会並びにその分科会である大気分科会及び生態影響分科会における検討結果をとりまとめたものです。また、とりまとめ作業にあたっては、酸性雨研究センターにおいて関連データの整理、解析を行うとともに、同センターに4つのワーキンググループ（酸性沈着解析、生態影響解析、伊自良湖重点調査、越境大気汚染）を設置して調査結果の解析評価を行いました。この場を借りて、本モニタリングの実施及びとりまとめにご協力いただいた関係者各位に深く感謝の意を表する次第です。

平成21年3月  
環境省地球環境局

## 酸性雨対策検討会 名簿

座長	秋元 肇	海洋研究開発機構地球環境フロンティア研究センター 大気組成変動予測研究プログラムディレクター
	植田 洋匡	財団法人日本環境衛生センター酸性雨研究センター所長
	太田 誠一**	京都大学大学院農学研究科教授
	小倉 紀雄	東京農工大学名誉教授
	小田 孝**	全国環境研協議会酸性雨調査研究部会長 (高知県環境研究センター所長)
	加藤 久和	名古屋大学名誉教授
	後藤 良三**	社団法人日本環境技術協会酸性雨部会長 (東亜ディーケーケー株式会社)
	佐竹 研一	立正大学地球環境科学部環境システム学科教授
	土器屋 由紀子	江戸川大学社会学部ライフデザイン学科教授
	戸塚 績	財団法人日本環境衛生センター酸性雨研究センター技術顧問
	戸矢崎 保雄*	社団法人日本環境技術協会酸性雨部会長 (紀本電子工業株式会社)
	袴田 共之	浜松ホトニクス株式会社顧問
	原 宏	東京農工大学農学部教授
	久武 正義*	全国環境研協議会酸性雨調査研究部会長 (高知県環境研究センター所長)

堀井 一雄\*\* 新潟県県民生活・環境部副部長

村野 健太郎 法政大学生命科学部環境応用化学科教授

山本 進一\* 新潟県県民生活・環境部副部長

\* 平成 19 年度のみ参画

\*\* 平成 20 年度のみ参画

## 酸性雨対策検討会・大気分科会 名簿

座長	原 宏	東京農工大学農学部教授
	青木 正敏*	東京農工大学大学院共生科学技術研究院教授
	植松 光夫	東京大学海洋研究所 附属海洋科学国際共同研究センター長・教授
	鶴野 伊津志	九州大学応用力学研究所教授
	大泉 毅	新潟県保健環境科学研究所大気科学科専門研究員
	後藤 良三*	社団法人日本環境技術協会酸性雨部会副部会長 (東亜ディーケーケー株式会社)
	清水 英幸	国立環境研究所アジア自然共生研究グループ主席研究員
	田中 茂	慶應義塾大学理工学部応用化学科教授
	土器屋 由紀子	江戸川大学社会学部ライフデザイン学科教授
	畠山 史郎	東京農工大学大学院共生科学技術研究院教授
	藤田 慎一	財団法人電力中央研究所環境科学研究所研究参事
	松田 和秀	明星大学理工学部環境システム学科准教授
	村野 健太郎	法政大学生命科学部環境応用化学科教授
	李 虎**	社団法人日本環境技術協会酸性雨部会副部会長 (株式会社堀場製作所)

\* 平成 19 年度のみ参画

\*\* 平成 20 年度のみ参画

## 酸性雨対策検討会・生態影響分科会 名簿

座長	小倉 紀雄	東京農工大学名誉教授
	池田 重人	森林総合研究所立地環境研究領域チーム長 (環境モニタリング担当)
	伊豆田 猛	東京農工大学大学院共生科学技術研究院教授
	井上 隆信	豊橋技術科学大学建設工学系教授
	海老瀬 潜一	摂南大学工学部都市環境システム工学科教授
	太田 誠一	京都大学大学院農学研究科教授
	清水 英幸	国立環境研究所アジア自然共生研究グループ主席研究員
	新藤 純子	農業環境技術研究所物質循環研究領域上席研究員
	須田 隆一	福岡県保健環境研究所専門研究員
	高松 武次郎	茨城大学広域水圏環境科学教育研究センター長・教授
	戸塚 績	財団法人日本環境衛生センター酸性雨研究センター技術顧問
	中島 拓男	滋賀県琵琶湖環境科学研究センター専門研究員
	袴田 共之	浜松ホトニクス株式会社顧問
	福原 晴夫	新潟大学教育学部教授

## 酸性雨長期モニタリング調査結果とりまとめワーキンググループ 名簿

### 1. 越境大気汚染ワーキンググループ（敬称略）

- 秋元 肇（海洋研究開発機構地球環境フロンティア研究センター  
大気組成変動予測研究プログラムディレクター）
- 鵜野 伊津志（九州大学応用力学研究所教授）
- 大原 利眞（国立環境研究所アジア自然共生研究グループ  
広域大気モデリング研究室長）
- 畠山 史郎（東京農工大学大学院共生科学技術研究院教授）
- 原 宏（東京農工大学農学部教授）
- 山地 一代（海洋研究開発機構地球環境フロンティア研究センター  
大気組成変動予測研究プログラム研究員）

### 2. 酸性沈着解析ワーキンググループ（敬称略）

- 原 宏（東京農工大学農学部教授）
- 藍川 昌秀（兵庫県立健康環境科学研究所大気環境部主任研究員）
- 大泉 毅（新潟県保健環境科学研究所大気科学科専門研究員）
- 高見 昭憲（国立環境研究所アジア自然共生研究グループ  
アジア広域大気研究室長）
- 友寄 喜貴（沖縄県衛生環境研究所環境科学班主任研究員）
- 野口 泉（北海道環境科学研究所環境科学部環境科学科長）
- 林 健太郎（農業環境技術研究所物質循環研究領域主任研究員）
- 松田 和秀（明星大学理工学部環境システム学科准教授）

### 3. 生態影響解析ワーキンググループ（敬称略）

- 小倉 紀雄（東京農工大学名誉教授）
- 池田 重人（森林総合研究所立地環境研究領域チーム長）
- 新藤 純子（農業環境技術研究所物質循環研究領域上席研究員）
- 高松 武次郎（茨城大学広域水圏環境科学教育研究センター長・教授）
- 袴田 共之（浜松ホトニクス株式会社顧問）
- 福原 晴夫（新潟大学教育学部教授）
- 山田 俊郎（国立保健医療科学院水道工学部主任研究官）

### 4. 伊自良湖重点調査ワーキンググループ（敬称略）

- 袴田 共之（浜松ホトニクス株式会社顧問）
- 井上 隆信（豊橋技術科学大学建設工学系教授）
- 角田 寛（岐阜県保健環境研究所衛生環境技術指導員）
- 高橋 正通（森林総合研究所立地環境研究領域長）
- 中原 治（北海道大学大学院農学研究科准教授）
- 松田 和秀（明星大学理工学部環境システム学科准教授）

※ \_\_\_\_\_：座長

(酸性雨研究センター担当者)

副所長	世一 良幸 (平成 19 年 6 月まで)
	新田 晃 (平成 19 年 7 月から)
情報管理部	仲山 伸次
	桜井 達也 (平成 20 年 3 月まで)
	佐藤 啓市 (平成 20 年 4 月から)
大気圏研究部	家合 浩明
	谷口 博和
	遠藤 朋美
生態影響研究部	佐瀬 裕之
	上迫 正人 (平成 20 年 3 月まで)
	松原 裕樹 (平成 20 年 3 月まで)
	小林 亮 (平成 20 年 4 月から)



# 目 次

調査結果の総括 .....	1
<b>1. 酸性雨調査の経緯 .....</b>	<b>5</b>
<b>2. 調査の目的及び内容 .....</b>	<b>7</b>
2.1 目的 .....	7
2.2 調査内容 .....	7
<b>3. モニタリングの結果 .....</b>	<b>15</b>
3.1 酸性沈着モニタリングの結果 .....	15
3.1.1 湿性沈着モニタリングの結果 .....	15
3.1.2 乾性沈着モニタリングの結果 .....	23
3.1.3 酸性沈着に対する総合的考察 .....	34
3.2 生態影響モニタリングの結果 .....	49
3.2.1 土壌・植生モニタリングの結果 .....	49
3.2.2 陸水モニタリングの結果 .....	59
3.2.3 酸性沈着の生態影響に対する総合的考察 .....	63
3.3 伊自良湖重点調査の結果 .....	70
3.3.1 伊自良湖集水域における酸性化徴候 .....	70
3.3.2 重点調査の内容 .....	73
3.3.3 調査結果の概要 .....	75
3.3.4 集水域酸性化の現状と今後の集水域解析の方向性 .....	87
3.4 諸外国との比較 .....	90
3.4.1 大気系 .....	90
3.4.2 生態系 .....	97
<b>4. 越境大気汚染の問題 .....</b>	<b>101</b>
4.1 世界からみた越境大気汚染と東アジアの状況 .....	101
4.2 東アジアにおける大気汚染物質排出量の増大 .....	102
4.3 越境大気汚染の我が国への状況 .....	105
4.3.1 我が国における越境大気汚染の状況 .....	105
4.3.2 我が国への影響の将来予測 .....	116
4.4 大陸間輸送と半球汚染 .....	119

4.4.1	半球輸送タスクフォース (CLRTAP/TF-HTAP)	119
4.4.2	大陸間輸送モデルによる解析	121
<b>5.</b>	<b>今後の酸性雨対策の課題</b>	<b>129</b>
5.1	国内における酸性雨対策の推進	129
5.2	国際的な酸性雨対策の推進	134
<b>参考資料</b>		<b>137</b>
1.	酸性雨のメカニズムと影響	138
2.	モニタリング地点の情報	140
3.	モニタリング結果の参考データ	144
4.	東アジア酸性雨モニタリングネットワーク (EANET) の概要	182
5.	欧米における越境大気汚染対策の経緯	184
<b>略語等一覧</b>		<b>187</b>

## 調査結果の総括

### 1. 調査の概要

- ・ 環境省では、我が国の酸性沈着の状況やその影響を把握するため、昭和58年度から酸性雨対策調査を実施しており、平成15年度からは、酸性雨長期モニタリング計画（14年3月策定）に基づき、国内の湿性・乾性沈着モニタリング（31地点）、湖沼等を対象とした陸水モニタリング（11地点）、土壌・植生モニタリング（25地点）を実施している。
- ・ 本報告書は、平成15年度から19年度に実施した酸性雨長期モニタリングの結果、及び周辺土壌等の酸性化が認められる岐阜県伊自良湖集水域において17年度から19年度に実施した重点調査の結果をとりまとめたほか、我が国への越境大気汚染の状況を検討したものである。

### 2. 酸性沈着と越境大気汚染の状況

#### (1) 酸性沈着モニタリングの結果

- ・ 降水pHの5年間の地点別平均値はpH4.51（伊自良湖）～pH4.95（小笠原）の範囲（全平均値はpH4.68）にあり、依然として酸性雨が観測されている。植物に対して急性被害が懸念されるpH3.0未満の降水は観測されなかったものの、降水の日捕集を行っている14地点の調査結果を解析したところ、pH4.0未満の強い酸性の降水が全体の4.5%を占めていた。
- ・ 10年以上調査が実施されている地点において、降水pHは年により増減し、近年やや低い地点もあるが、全体として横ばいの状況にあった。また、非海塩性硫酸イオン沈着量は期間を通して変動があるもののほぼ横ばい、硝酸イオン沈着量は1990年代半ば以降横ばいであった。
- ・ 我が国における年間の酸性成分沈着量を計算したところ、非海塩性の硫黄が16～54mmol m<sup>-2</sup> y<sup>-1</sup>、窒素が22～130mmol m<sup>-2</sup> y<sup>-1</sup>であった。
- ・ 晩秋から春季にかけて、降水による酸性成分沈着量は本州中北部日本海側及び山陰で増加し、また、大気中の二酸化硫黄濃度が日本海側や西日本で顕著に増加する傾向がみられた。これらの地域では、硫黄や窒素の酸化物の大気中への供給量が晩秋から春季にかけて増加していると考えられ、大陸に由来した汚染物質の流入が示唆された。
- ・ 我が国は降水により沈着する非海塩性硫酸イオンや硝酸イオンの量が欧米より2～3倍多く、これは降水量が多いためである。また、水素イオンの沈着量も欧米より数倍多く、東アジアの中でも最も多い地域であり、これは、降水量が多いことと、大気中あるいは降水中で塩基性物質により中和される酸の割合が低いためである。
- ・ 非海塩性カルシウムイオンの湿性沈着量、PM10濃度及びエアロゾル中のカルシウム

イオン濃度が全国的に春季に最大になり、黄砂の影響が示唆された。

- ・ 全国的に春季のオゾン濃度の上昇がみられ、越境汚染の影響が示唆された。また、オゾン濃度の年平均値の経年変化は全国的に漸増傾向であった。

#### (2) 越境大気汚染に関する調査研究のレビュー

- ・ 我が国における酸性沈着量に対する越境汚染による寄与率は、研究結果によって異なるものの、最近のシミュレーションモデルの計算によれば、年間で非海塩性硫酸イオンが約30～65%、硝酸イオンが約35～60%と推計されている。
- ・ 我が国のオゾン濃度への越境汚染の影響は、地域、季節、また日によって大きく変動するが、モデル計算によると、本州付近の春季の月平均オゾン濃度に対して概ね10～20数%程度が東アジア起源であると考えられ、また、欧米からも春季に数ppb程度の影響があることが推定された。
- ・ また、モデル計算によれば、中国において現状以上の大気汚染対策がとられず、汚染物質排出量が現状と同様に増加する場合、2020年には、我が国のオゾン濃度の年平均値が2000年に比べて2～6 ppb増加すると予測されている。

### 3. 生態系への影響

#### (1) 土壌・植生モニタリングの結果

- ・ 平成19年度には、全25調査地点のうち17地点で何らかの樹木衰退の徴候がみられたが、酸性沈着や土壌酸性化が主要因として断定される衰退木は確認されなかった。
- ・ 伊自良湖では、平成2年度から16年度の間に土壌の表層及び次層においてpH(H<sub>2</sub>O)が低下傾向を示しており、16年度の表層は平均pH3.9と、植物の生長に影響を与えるアルミニウムイオンが土壌水中に溶出し得る酸性度であったことから、継続したモニタリングが必要である。
- ・ その他の土壌調査地点では、一部調査項目において経年的な変化が認められたが、各調査項目を総合的にみると土壌の明確な酸性化傾向はみられなかった。

#### (2) 陸水モニタリングの結果

- ・ 湖沼表層水のpHは5.36～7.34、アルカリ度は0.017～0.512mmol<sub>c</sub> L<sup>-1</sup>の範囲にあった。双子池・雌池（長野県）、夜叉ヶ池（福井県）及び沢の池（京都府）は、pHが5.8以下、アルカリ度が0.030mmol<sub>c</sub> L<sup>-1</sup>以下で、特に酸感受性の高い湖沼であると言えるが、全ての湖沼で酸性沈着の明確な影響は確認されなかった。
- ・ 伊自良湖集水域では、流入河川である釜ヶ谷川において、平成8年以降15年までpHは低下傾向にあったが、16年以降についてはpH7付近を推移している。また、伊自良湖表層水及び2つの流入河川水において、硝酸イオン濃度の有意な上昇がみられた。

#### 4. 伊自良湖集水域重点調査の結果

- ・ 昭和63年度から平成14年度までの調査により、伊自良湖集水域の流入河川や周辺土壌において、pHの低下等酸性沈着の影響が疑われる変化が認められたことから、酸性化徴候やそのプロセスを定量的に明らかにするため、17年度から19年度にかけて集水域への流入量・流出量調査及び増水時河川集中観測等を重点的に実施したものである。
- ・ 以下の i ~ iii の知見を基に、伊自良湖集水域では、酸性雨など大気からの酸性沈着により土壌に蓄積した硫黄 (S) や窒素 (N) が溪流に流出し、集水域の酸性化が継続していると考えられた。
  - i 伊自良湖集水域におけるNの総沈着量は、欧米における渓流水への硝酸イオン流出の指標である  $10 \text{ kg-N ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$  を超える  $18.2 \sim 28.7 \text{ kg-N ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$  と推計され、90年代半ば以降は硝酸イオンの流出も高濃度で維持されている。この多量のN沈着に伴う硝酸イオンの流出が河川の酸性化に寄与していると考えられた。
  - ii 集水域の物質収支を推計した結果、Sの流出量が流入量の約2倍であり、過去に土壌に蓄積されたSによる河川の酸性化への寄与が考えられた。
  - iii 増水時における硫酸イオン及び硝酸イオンの濃度上昇の傾向から、集水域内の地表面付近に蓄積しているSとNの流出が示唆された。
- ・ 一方、伊自良湖集水域の酸性化のメカニズムは複雑であり、科学的に解明すべき余地が残されていることから、将来の酸性化の進行を定量的に示すことは現時点では困難である。
- ・ 現時点で、直ちに人の健康及び生態系に何らかの影響を及ぼす状況にはないものの、将来的な影響の発現や、伊自良湖集水域と同様な条件の他の地域の酸性化が懸念されることから、酸性化のリスクの高いホットスポットにおける調査が必要である。

#### 5. 今後の酸性雨対策の課題

##### (1) 長期モニタリングの実施

- ・ 酸性雨による影響は長期継続的なモニタリング結果によらなければ把握しにくく、また、湖沼や土壌の緩衝能力が低い場合には一定量以上の酸性物質の負荷の集積により急激に影響が発現する可能性があること等から、今後とも長期モニタリングを着実に実施していく必要がある。

##### (2) 国際的な取組の推進

- ・ 東アジア酸性雨モニタリングネットワーク (EANET) の活動スコープを、従来の酸性沈着モニタリングから東アジア地域における大気環境管理へ拡大することを目指すなど、大気汚染を防止するため国際的な協力関係を構築し、地域協力を推進する必要がある。

##### (3) 越境大気汚染問題への取組

- ・ 光化学オキシダント注意報発令地域の広域化やその濃度の漸増傾向の一因として東

アジア大陸からの越境汚染が指摘され、また、黄砂の飛来頻度が増加傾向にあることなどから、酸性沈着のみならず、オゾン及びエアロゾル等を統合した越境大気汚染モニタリングを実施していくことが必要である。

#### (4) 調査研究の推進

- ・ 今後、長距離越境大気汚染の状況やその影響を把握するため、大気シミュレーションモデルの精緻化及び排出インベントリの高精度化、土壌・植生及び陸水の感受性指標の検討、酸性化リスクの高いホットスポットの抽出等の調査研究の推進が必要である。

## 1. 酸性雨調査の経緯

酸性雨は、原因物質が長距離にわたって輸送され、その影響が、発生原因国内にとどまらず国境を越えて広がる恐れがあることから、地球環境問題のひとつと位置付けられている。我が国では、昭和 49～51 年の梅雨期に北関東を中心に霧や霧雨による目や皮膚への刺激、タバコなどの農作物への影響が問題となり、酸性雨への社会的な関心が高まった。

ヨーロッパにおいては、1950 年代から北欧の湖沼の酸性化等酸性雨の被害が顕在化し、昭和 54 年（1979 年）に長距離越境大気汚染に関する条約が締結された。同条約に基づき、酸性雨の共同モニタリング、汚染物質の排出削減対策等が進められ成果を上げている。

一方、東アジア地域においては、急速な経済発展に伴い大気汚染物質の排出量が増加しており、将来、酸性雨を含む越境大気汚染が深刻になることが懸念されている。東アジア地域において国際協調に基づく酸性雨対策を推進していくため、我が国のイニシアティブにより、平成 10 年（1998 年）4 月から「東アジア酸性雨モニタリングネットワーク (EANET)」の試行稼働が開始され、13 年（2001 年）1 月から本格稼働しているところである（現在、東アジア地域 13 カ国が参加）。

環境庁（当時）においては、昭和 58 年度から、我が国の酸性雨の実態及びその影響を明らかにするため、大気汚染、土壌・植生、陸水等の専門家等から成る「酸性雨対策検討会」を設置するとともに、酸性雨対策調査を実施してきた。

その結果、平成 16 年 6 月には、酸性雨対策検討会において、昭和 58 年度から平成 14 年度までの計 20 年間の調査結果が「酸性雨対策調査総合とりまとめ報告書」としてとりまとめられ、次のような結果が得られている。

- ① 全国的に欧米並みの酸性雨が観測されており（全平均値 pH4.77）、また、日本海側の地域では大陸に由来した汚染物質の流入が示唆された。
- ② 現時点では、酸性雨による植生衰退等の生態系被害や土壌の酸性化は認められなかった。
- ③ 酸性雨に対し生態系が脆弱であると考えられる岐阜県伊自良湖等への流入河川や周辺土壌において、pH の低下等酸性雨の影響が疑われる理化学性の変化が認められた。ただし、これらの変化はいずれも直ちに人の健康並びに流域の植物及び水生生物等の生態に何らかの影響を及ぼすレベルにはない。

このように、我が国における酸性雨による生態系等への影響は現時点では明らかになっていないが、一般に酸性雨による土壌・植生、陸水等に対する影響は長い期間を経て現れると考えられているため、現在のような酸性雨が今後も降り続けるとすれば、将来、酸性雨による影響が顕在化する可能性がある。このため、環境省は、広域的かつ長期的な酸性

雨モニタリングを継続的に実施していくため、平成14年3月に「酸性雨長期モニタリング計画」を策定し、15年度より、この計画に基づき、国内の湿性・乾性沈着モニタリング、湖沼等を対象とした陸水モニタリング、土壌・植生モニタリングを実施している。

表 1-1 調査地点の推移

	第1次調査	第2次調査	第3次調査	第4次調査	—	長期モニタリング
年度	昭和58～ 62年度	昭和63～ 平成4年度	平成5～ 9年度	平成10～ 12年度	平成13～ 14年度	平成15～ 19年度
大気	14～34 地点	29 地点	48 地点	55 地点	48 地点	31 地点
土壌・植生	12 地点	43 地点	88 地点	20 地点	18 地点	25 地点
陸水	133 地点 (スクリーニング調査)	5 地点	33 地点	17 地点	12 地点	11 地点
その他		酸性雪2地域				

### 酸性雨と測定物質との関係

工場や自動車から排出された二酸化硫黄、窒素酸化物等の大気汚染物質は、大気中で硫酸や硝酸に酸化され、再び地上に戻ってくる（沈着）。その形態には2種類あり、雨や雪に溶け込んで沈着する場合（湿性沈着）と、そのままガスや粒子（エアロゾル）の形で沈着する場合（乾性沈着）がある。このため、「酸性雨」という環境問題は、湿性沈着及び乾性沈着を併せたものとして捉えられており、より科学的には「酸性沈着」という。

酸性雨による影響としては、土壌の酸性化による森林の衰退、湖沼の酸性化による陸水生態系の被害、銅像等の文化財や建造物の損傷等が指摘されている。この影響は、酸性沈着の量によって決まるため、例えば雨の場合、酸性度を示す pH だけではなく、そのときの降水量も考慮した沈着量に着目する必要がある。

オゾンは、人の健康や植物への悪影響が知られる大気汚染物質であるが、二酸化硫黄や窒素酸化物を酸化する反応性の高い酸化性物質でもあり、酸性雨の生成メカニズムは、オゾンの生成とも密接なつながりがある。

また、大気中にはアンモニアなどの塩基性物質もあり、硫酸や硝酸と反応すると硫酸アンモニウムや硝酸アンモニウムを生成する。これらの物質はエアロゾルとして乾性沈着するか、雨に取り込まれて湿性沈着する。

このように、「酸性雨」は種々の物質に関わる総合的な大気汚染として捉えることが大切であり、降水だけではなく、二酸化硫黄、窒素酸化物、オゾン、アンモニアなどのガス及び関連するエアロゾル等を観測する必要がある。

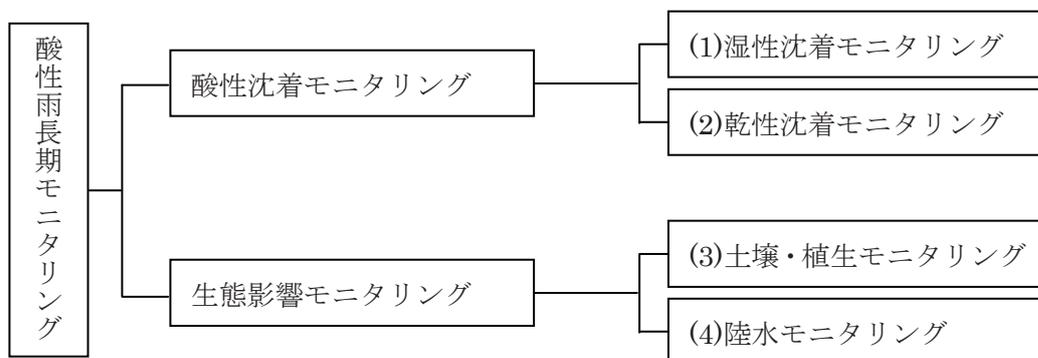
## 2. 調査の目的及び内容

### 2.1 目的

酸性雨長期モニタリングは、酸性沈着による影響の早期把握、酸性雨原因物質の長距離越境輸送、長期トレンド等を把握し、また、将来の酸性雨の影響を予測するために、EANET と密接に連携しつつ、酸性沈着モニタリング及び生態影響モニタリングを長期間実施することにより、酸性沈着量の時間的空間的变化とその影響を把握することを目的としている。

### 2.2 調査内容

環境省では、酸性雨長期モニタリング計画に基づき、平成 15～19 年度において、酸性沈着の状況を把握するため湿性沈着モニタリング及び乾性沈着モニタリングを、また、酸性沈着による生態系への影響を把握するため土壌・植生モニタリング及び陸水モニタリングをそれぞれ実施した。



#### (1) 湿性沈着モニタリング

湿性沈着モニタリングは、気候区分や測定局の特性、地域的なバランス等を考慮し、モニタリングを効果的・効率的に実施できるよう、酸性沈着モニタリング地点として選定された 31 地点において実施された。なお、測定地点は、EANET 湿性沈着モニタリング技術マニュアルに従い、遠隔地域、田園地域及び都市地域モニタリング地点に分類される (図 2-1 参照)。

降水試料 (降雪を含む。以下同じ。) の捕集には降水時開放型捕集装置 (降水時のみ蓋が開き、降水を捕集する装置) を使用し、試料は、「湿性沈着モニタリング手引き書 (第 2 版) (平成 13 年 3 月)」に従って、水素イオン指数 (pH)<sup>1</sup>、電気伝導率 (EC)、イオン濃度 (硫酸イオン (SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>)、硝酸イオン (NO<sub>3</sub><sup>-</sup>)、塩化物イオン (Cl<sup>-</sup>)、アンモニウムイオン (NH<sub>4</sub><sup>+</sup>)、カルシウムイオン (Ca<sup>2+</sup>)、カリウムイオン (K<sup>+</sup>)、マグネシウムイオン (Mg<sup>2+</sup>)、ナトリウムイオン (Na<sup>+</sup>) の 10 項目について測定・分析を実施した<sup>2</sup>。

<sup>1</sup> 水素イオン (H<sup>+</sup>) 濃度の逆数の常用対数が水素イオン指数 (pH)

<sup>2</sup> 硫酸イオン及びカルシウムイオンは海水中にも含まれ、海塩として大気中に放出され、一部が降水に取り込まれる。降水中に含まれるこれら海塩由来の成分割合は、ナトリウムイオンを基準として海水中のナトリウムイオンに対する比率から算出し、全体から海塩由来を差し引くことにより、海塩粒子に由来しない (non-sea-salt : nss-) 非海塩性硫酸イオン (nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>) 及び非海塩性カルシウムイオン (nss-Ca<sup>2+</sup>) を求めた。本調査では、これらの nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 及び nss-Ca<sup>2+</sup> を考察の対象としている。

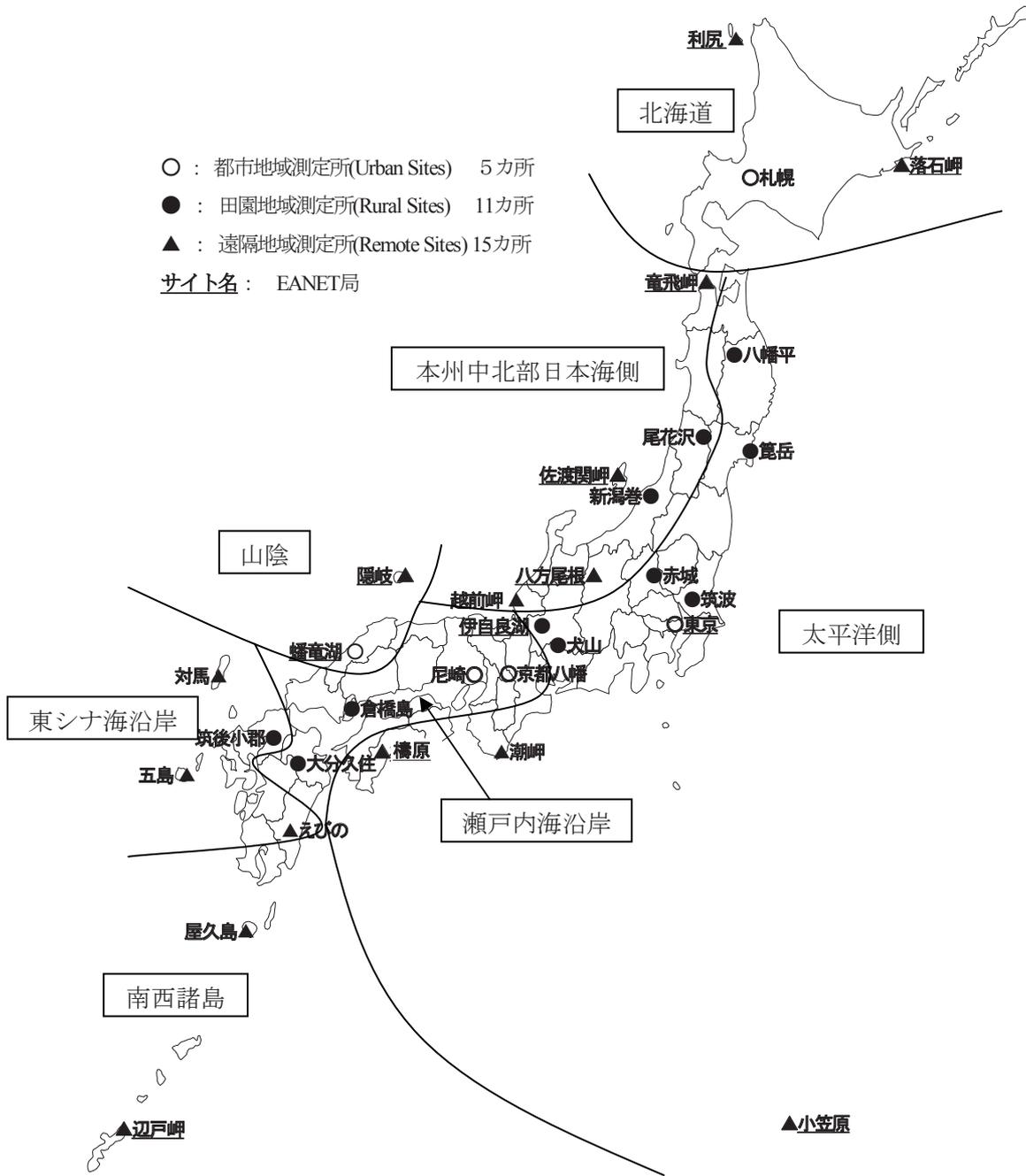


図 2-1 酸性沈着モニタリング地点

## (2) 乾性沈着モニタリング (大気濃度測定)

乾性沈着モニタリングは、本来、乾性沈着量を把握するためのものであるが、乾性沈着の過程が極めて複雑であり、沈着量の測定法が標準化されていないことから、乾性沈着量の推定に資するよう、大気濃度の測定を実施した。

(1) で述べた酸性沈着モニタリング地点のうち、EANETに登録されている EANET 局 (東京局を除いた 11 地点) においては、自動測定機による二酸化硫黄 (SO<sub>2</sub>)、一酸化窒素 (NO)、窒素酸化物 (NO<sub>x</sub><sup>3</sup>)、オゾン (O<sub>3</sub>) 及び粒径 10 μm 以下の粒子状物質 (PM10)<sup>4</sup> の各濃度の連続測定を実施した (利尻、落石岬及び隠岐では PM2.5<sup>5</sup>も測定)。また、落石岬を除く EANET 局では、フィルターパック法<sup>6</sup>により、大気試料を 1 ないし 2 週間吸引した試料を分析し、二酸化硫黄 (SO<sub>2</sub>)、硝酸 (HNO<sub>3</sub>)、塩化水素 (HCl)、アンモニア (NH<sub>3</sub>)、粒子成分濃度を測定した。

さらに、EANET 局以外の一部測定局においても、大気濃度 (主に O<sub>3</sub>、えびの局は SO<sub>2</sub> も測定) のモニタリングを実施した。

酸性沈着のモニタリング地点ごとの測定項目を表 2-1 に示す。

## (3) 土壌・植生モニタリング

土壌・植生モニタリングは、外部負荷の影響を受けやすいと考えられる山岳地域の天然林を中心に選定された「主に樹木への影響に着目した地点」、酸性沈着に対する感受性の高い土壌を中心に選定された「主に土壌への影響に着目した地点」、陸水への影響をみる上で重要となる「陸水への影響に着目した地点」の計 19 地域 25 地点 (地点一覧は表 2-2、地点分布は図 2-2 参照) において、「土壌・植生モニタリング手引書 (平成 15 年 3 月)」及び「EANET 土壌・植生モニタリング技術マニュアル」に基づき、以下のとおり実施した。

### ① 森林モニタリング

森林総合調査 (毎木調査 (樹種名、胸高直径、樹高) 及び下層植生調査) を 5 年に 1 回、樹木衰退度調査 (衰退度観察、写真による記録及び衰退原因の推定) を 1 年に 1 回実施した。

### ② 土壌モニタリング

表層 (0-10cm) 及び次層 (10-20cm) の土壌を採取し、以下の項目を分析した。なお、頻度は 5 年に 1 回である。

- 必須項目：水分含量、pH(H<sub>2</sub>O)、pH(KCl)、交換性塩基 (Ca、Mg、Na、K)、交換酸度<sup>\*</sup>、有効陽イオン交換容量 (ECEC)<sup>\*\*</sup>、交換性 Al 及び H、炭酸塩含有量 (石灰岩土壌のみ)
  - <sup>\*</sup> 交換酸度は、交換性 Al 及び H の分析操作から算出
  - <sup>\*\*</sup> 有効陽イオン交換容量 (ECEC) は、交換性陽イオンの和として算出
- 選択項目：全窒素含有量、全炭素含有量、有効態リン酸イオン、硫酸イオン、土壌密度、土壌硬度

<sup>3</sup> 分析上、NO<sub>x</sub> (NO 及び NO<sub>2</sub>) 以外のペルオキシアセチルナイトレート (PAN) 及び一部の硝酸 (HNO<sub>3</sub>) も測定することになるため、「NO<sub>x</sub><sup>\*</sup>」と表記する。なお、都市地域測定所での NO<sub>x</sub> の主要成分は、NO 及び NO<sub>2</sub> と考えられるため、NO<sub>x</sub> の測定値と NO の測定値の差を、NO<sub>2</sub> として集計している。

<sup>4</sup> より正確には、粒径 (空気力学径) 10 μm に対する捕集効率が 50% の分粒器を用いて捕集した粒子状物質。

<sup>5</sup> 粒径 (空気力学径) 2.5 μm に対する捕集効率が 50% の分粒器を用いて捕集した粒子状物質。

<sup>6</sup> 乾性沈着を評価するための測定方法のひとつ。大気中のガス、エアロゾル状成分の測定に用いられている。取扱いが簡便であるため長期間の測定に適しており、EANET 参加国において採用されている。

表 2-1 酸性沈着モニタリング地点ごとの測定項目一覧

測定所名	都道府県	分類	湿性沈着	分析単位	NOx	SO <sub>2</sub>	O <sub>3</sub>	PM10	PM2.5	フィルタパック	風向風速	雨量	温湿度	日射	EANET 局
1 利尻	北海道	遠隔	○	日毎	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
2 札幌		都市	○	週毎							○	○	○		
3 落石岬*1		遠隔	○	日毎	○	○	○	○	○	○		○	○	○	○
4 竜飛岬	青森県	遠隔	○	日毎	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
5 八幡平	岩手県	田園	○	日毎							○	○			
6 箕岳	宮城県	田園	○	日毎			○				○	○	○	○	
7 尾花沢	山形県	田園	○	週毎							○	○			
8 筑波	茨城県	田園	○	日毎			○				○	○	○	○	
9 赤城	群馬県	田園	○	日毎			○				○	○			
10 小笠原	東京都	遠隔	○	日毎	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
11 東京*2		都市	○	日毎							○	○			○
12 佐渡関岬	新潟県	遠隔	○	日毎	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
13 新潟巻		田園	○	日毎							○	○	○	○	○
14 越前岬	福井県	遠隔	○	日毎							○	○			
15 八方尾根	長野県	遠隔	○	日毎	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
16 伊自良湖	岐阜県	田園	○	週毎	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
17 犬山	愛知県	田園	○	日毎			○				○	○	○	○	
18 京都八幡	京都府	都市	○	日毎			○				○	○	○	○	
19 尼崎	兵庫県	都市	○	日毎							○	○	○	○	
20 潮岬	和歌山県	遠隔	○	日毎							○	○			
21 隠岐	島根県	遠隔	○	日毎	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
22 蟠竜湖		都市	○	週毎	○	○	○	○	○	○		○	○	○	○
23 倉橋島	広島県	田園	○	日毎			○				○	○	○	○	
24 櫛原	高知県	遠隔	○	日毎	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
25 筑後小郡	福岡県	田園	○	日毎			○				○	○	○	○	
26 対馬	長崎県	遠隔	○	日毎			○				○	○			
27 五島		遠隔	○	日毎								○	○		
28 大分久住	大分県	田園	○	週毎							○	○			
29 えびの	宮崎県	遠隔	○	日毎			○				○	○	○	○	
30 屋久島	鹿児島県	遠隔	○	週毎							○	○			
31 辺戸岬	沖縄県	遠隔	○	日毎	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○

\*1：落石岬の自動測定機による大気濃度及び気象項目は独立行政法人国立環境研究所地球環境研究センターによる測定

\*2：東京は平成 19 年度から測定

表 2-2 土壌・植生モニタリング地点一覧

	地域特性等	区分	調査実施 年度*2	選定の際考慮した 樹種、土壌種、集 水域	調査プロット数		
					林分 の数	土壌 プロット数	植生 プロット数
1	知床国立公園 (北海道)	樹木	平成17年度	トドマツ	1	2	1
2	支笏洞爺国立公園 (北海道)	樹木	平成15年度	ダケカンバ	1	2	1
3	十和田八幡平国立公園 (岩手県)	樹木	平成16年度	オオシラビソ	1	2	1
4	磐梯朝日国立公園 (新潟県)	樹木	平成19年度	ブナ	1	2	1
5	日光国立公園 (栃木県)	樹木	平成15年度	ブナ	1	2	1
6	中部山岳国立公園 (富山県)	樹木	平成17年度	ブナ	1	2	1
7	白山国立公園 (石川県)	樹木	平成18年度	ブナ	1	2	1
8	吉野熊野国立公園 (奈良県)	樹木	平成16年度	ブナ	1	2	1
9	大山隠岐国立公園 (鳥取県)	樹木	平成15年度	ブナ	1	2	1
10	石鎚国定公園 (高知県)	樹木	平成16年度	ブナ	1	2	1
11	阿蘇くじゅう国立公園 (大分県)	樹木	平成17年度	ミズナラ	1	2	1
12	霧島屋久国立公園・	樹木	平成16年度	スギ	1	2	1
13	屋久島 (鹿児島県)	樹木	平成16年度	照葉樹林	1	2	1
14	石動山・宝立山 (石川県)	土壌	平成17年度	赤色土/ 褐色森林土	2	2×2	2×1
15	法道寺・天野山 (大阪府)	土壌	平成19年度	黄色土/黄色系褐 色森林土	2	2×2	2×1
16	霜降岳・十種ヶ峰 (山口県)	土壌	平成15年度	黄色土/黒ぼく土	2	2×2	2×1
17	香椎宮・古処山 (福岡県)	土壌	平成19年度	赤色系褐色森林土 /褐色森林土	2	2×2	2×1
18	伊自良湖周辺 (岐阜県) (伊自良・大和) *1	陸水	平成18年度	伊自良湖集水域 褐色森林土/黒ぼ く土	2	2×2	2×1
19	蟠竜湖周辺 (島根県) (蟠竜湖・石見臨空ファク トリーパーク (FP)) *1	陸水	平成18年度	蟠竜湖集水域 黄色系褐色森林土 /赤色土	2	2×2	2×1

注) \*1 : EANET モニタリング地点。

\*2 : 森林総合調査及び土壌モニタリング実施年度。

## 凡例

●: 土壌・植生モニタリング地点

(下線は土壌に着目した地点、太字は  
EANET モニタリング地点を示す。)



図 2-2 土壌・植生モニタリング地点

#### (4) 陸水モニタリング

陸水モニタリングは、酸性沈着に対する応答が敏感なこと、人為的汚染が少ないこと、及び地域的バランス等を考慮して選定した 11 地点において、「陸水モニタリング手引き書（平成 17 年 2 月）」に基づき実施した（地点一覧は表 2-3、調査地点の分布は図 2-3 参照）。測定項目は以下のとおりである。

##### ① 水質調査の測定項目

年 4 回測定：水温、pH、電気伝導率、アルカリ度、 $\text{NH}_4^+$ 、 $\text{Ca}^{2+}$ 、 $\text{Mg}^{2+}$ 、 $\text{Na}^+$ 、 $\text{K}^+$ 、 $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{Cl}^-$ 、Chl-a、DO（溶存酸素）

年 1 回以上測定： $\text{NO}_2^-$ 、 $\text{PO}_4^{3-}$ 、DOC、透明度、水色

##### ② 底質調査の測定項目（5年に1回測定）： $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{NH}_4^+$

表 2-3 陸水モニタリング対象湖沼一覧

	湖沼名	都道府県	底質調査実施年度 (5年に1回)	EANET モニタリング地点
1	今神御池	山形県	平成 17 年度	
2	刈込湖	栃木県	平成 18 年度	
3	山居池	新潟県	平成 15 年度	
4	大畠池	石川県	平成 19 年度	
5	夜叉ヶ池	福井県	平成 18 年度	
6	双子池	長野県	平成 16 年度	
7	伊自良湖	岐阜県	平成 17 年度	○
8	沢の池	京都府	平成 15 年度	
9	蟠竜湖	島根県	平成 19 年度	○
10	山の口ダム	山口県	平成 16 年度	
11	永富池	香川県	平成 19 年度	

なお、調査に当たっては、試料の捕集及び分析は原則として関係地方公共団体がを行い、その結果を酸性雨研究センターで集約（同センター及び外部の専門家によるデータチェックを含む。）後、酸性雨対策検討会（大気分科会及び生態影響分科会）の検討を経てデータを確定した。

また、モニタリングの精度保証・精度管理（QA/QC）活動の一環として、各分析機関に降水、フィルターパックのろ紙及び陸水の模擬試料、並びに土壌試料を送付し、その分析結果を比較する調査（分析機関間比較調査）を行うとともに、周辺環境の状況、機器の管理の状況等について現地調査を行った。

モニタリングの結果（QA/QC 活動を含む。）は次章に示す。

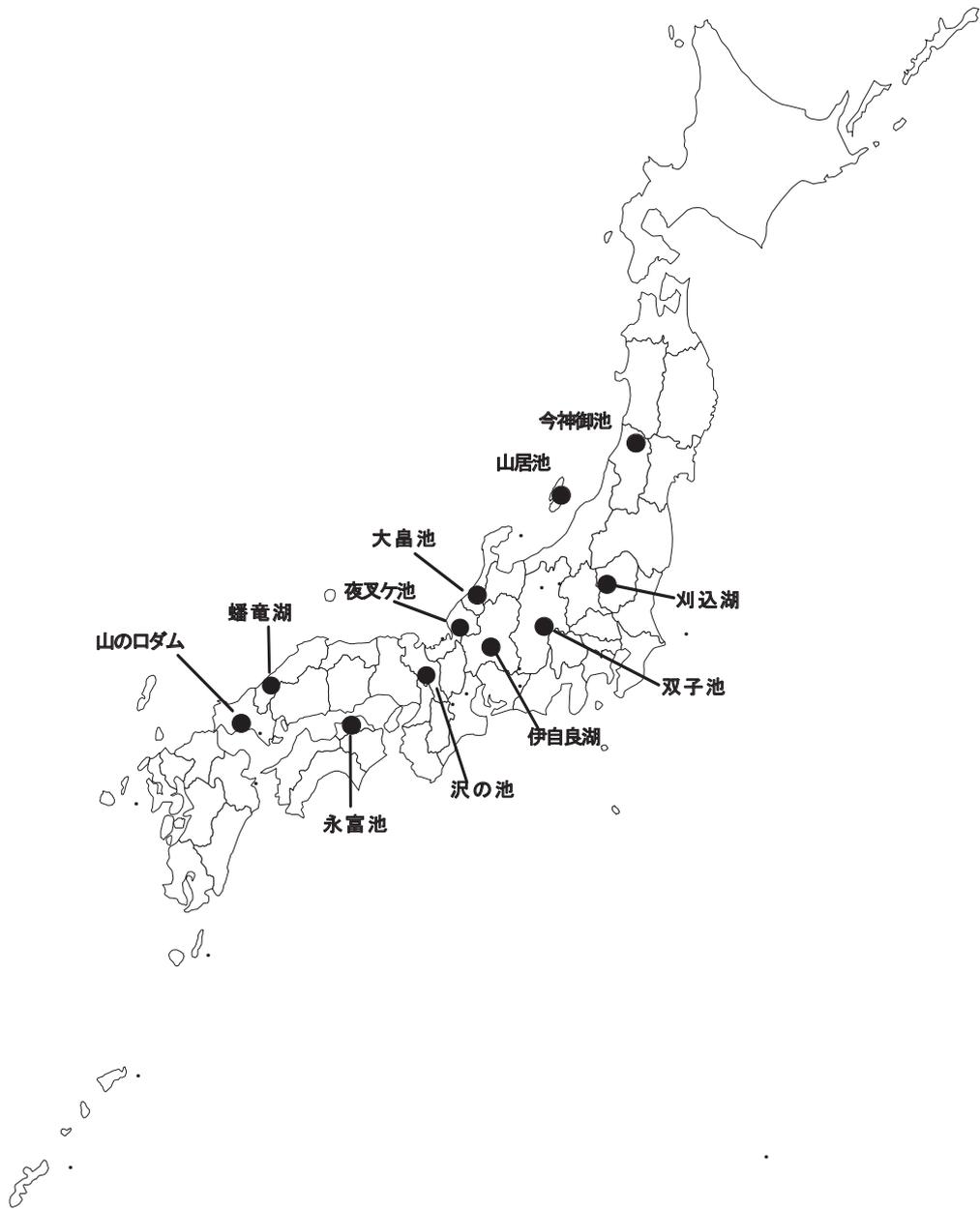


図 2-3 陸水モニタリング地点

### 3. モニタリングの結果

#### 3.1 酸性沈着モニタリングの結果

##### 3.1.1 湿性沈着モニタリングの結果

###### (1) 湿性沈着の年平均値の傾向

有効判定基準<sup>1</sup>を満たした結果（有効地点の割合：平成 15 年度 90%（27/30）、16 年度 67%（20/30）、17 年度 70%（21/30）、18 年度 80%（24/30）、19 年度 90%（28/31））をまとめ、地点間の比較等を行った。なお、19 年度からは東京でモニタリングを開始したため、地点数が 31 地点となった。

###### ① 降水量

年間降水量の範囲は 626mm y<sup>-1</sup>（平成 16 年度・落石岬）～5123mm y<sup>-1</sup>（16 年度・屋久島）であった。また、各地点について 5 年間の平均値では、屋久島（3831mm y<sup>-1</sup>）、えびの（3117mm y<sup>-1</sup>）、橿原（2949mm y<sup>-1</sup>）で多く、落石岬（830mm y<sup>-1</sup>）、利尻（961mm y<sup>-1</sup>）、札幌（1018mm y<sup>-1</sup>）で少ないことから、四国や九州の太平洋側で多く、北海道の地点で少ない傾向が認められた。また、5 年間の変動ではいずれの地点も目立った増加、または減少の傾向は認められなかった（詳細なデータは参考資料参照）。

###### ② pH

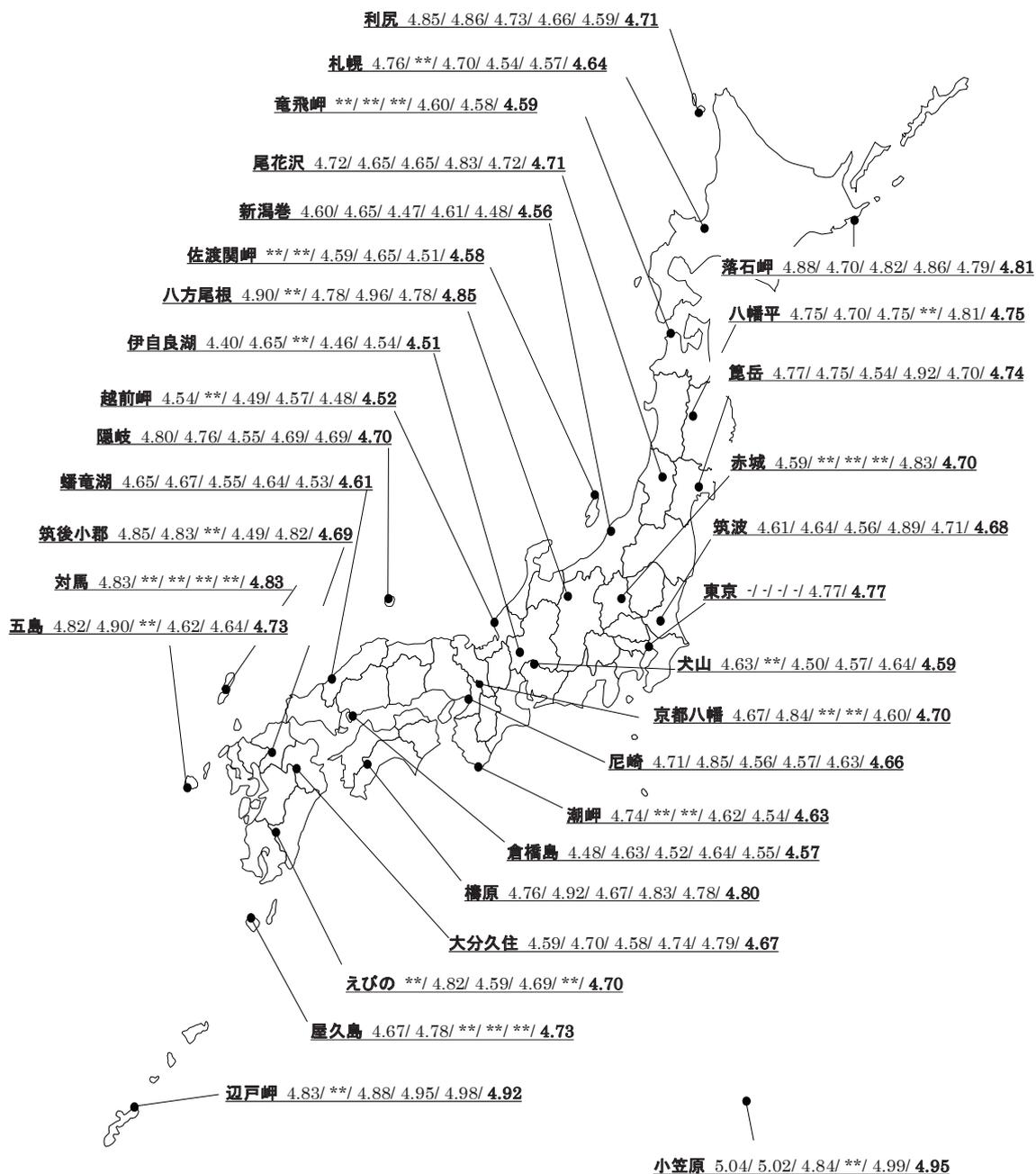
pH の各年度の平均値及び 5 年間の平均値を地点別に図 3-1-1 に示す。pH の地点別年平均値の範囲は pH 4.40（平成 15 年度・伊自良湖）～pH 5.04（15 年度・小笠原）であり、近年利尻、札幌及び五島などで低めであった。また、5 年間の平均値は pH 4.51（伊自良湖）～pH 4.95（小笠原）の範囲にあり、全地点の平均は pH 4.68 で、降水は引き続き酸性化していることが認められた。各地点の 5 年間の平均値をみると、小笠原（4.95）、辺戸岬（4.92）、八方尾根（4.85）で高く、伊自良湖（4.51）、越前岬（4.52）、新潟巻（4.56）で低い傾向があった。

###### ③ 主なイオン成分濃度と沈着量

pH は酸と塩基のバランスで決定され、湿性沈着の酸としては硫酸及び硝酸が、塩基性成分としてはアンモニア及び塩基性カルシウム化合物が考えられている。このため、降水中の nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>及び NO<sub>3</sub><sup>-</sup>は湿性沈着の酸性化に寄与する指標、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>及び nss-Ca<sup>2+</sup>は酸性化を抑制する指標とみなすことができる。また、イオン成分の湿性沈着量は、生態系等に対する長期的な影響の把握に有効な情報である。これらの 4 種類のイオン成分と H<sup>+</sup>の濃度及び沈着量の概要を表 3-1-1 に示す。

<sup>1</sup> ①月間・年間値については、対象期間中における有効試料の割合が 80%以上であること、かつ降水量の測定日数が対象日数の 80%以上であること、②nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>と nss-Ca<sup>2+</sup>については、海塩粒子の寄与率が 75%以下であること。

平成15年度/16年度/17年度/18年度/19年度/5年間平均



—:未測定

\*\* :年判定基準で年平均値が棄却されたもの

注) 平均値は降水量加重平均とした。

図 3-1-1 pH 分布図

表 3-1-1 降水中の主なイオン成分濃度及び沈着量

イオン成分	濃 度	沈 着 量
nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	範囲：4.1（平成 16 年度・小笠原） ～26.6μmol L <sup>-1</sup> （18 年度・筑後小 郡、19 年度・五島） 全平均値：13.8μmol L <sup>-1</sup> 筑後小郡、越前岬で高く、小笠原、 橿原、辺戸岬で低い傾向	範囲：5.0（16 年度・小笠原）～ 67.5mmol m <sup>-2</sup> y <sup>-1</sup> （18 年度・筑後小 郡） 屋久島、伊自良湖、えびので多く、 落石岬、小笠原で少ない傾向
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	範囲：3.2（17 年度・小笠原）～ 28.8μmol L <sup>-1</sup> （19 年度・蟠竜湖） 全平均値：14.2μmol L <sup>-1</sup> 竜飛岬、佐渡関岬、越前岬で高く、 小笠原、橿原、えびので低い傾向	範囲：4.8（16 年度・小笠原）～68.0 mmol m <sup>-2</sup> y <sup>-1</sup> （18 年度・伊自良湖） 伊自良湖、屋久島、越前岬で多く、 小笠原、落石岬で少ない傾向
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	範囲：3.6（17 年度・小笠原）～ 37.2μmol L <sup>-1</sup> （18 年度・筑後小郡） 全平均値：15.1μmol L <sup>-1</sup> 東京、筑後小郡、札幌で高く、小 笠原、橿原、辺戸岬で低い傾向	範囲：5.7（15 年度・小笠原）～94.2 mmol m <sup>-2</sup> y <sup>-1</sup> （18 年度・筑後小郡） 筑後小郡、伊自良湖で多く、小笠原、 落石岬で少ない傾向
nss-Ca <sup>2+</sup>	範囲：0.8（17 年度・小笠原）～ 11.0μmol L <sup>-1</sup> （19 年度・筑後小郡） 全平均値：3.3μmol L <sup>-1</sup> 竜飛岬、筑後小郡、佐渡関岬で高く、 えびの、小笠原、橿原で低い傾向	範囲：1.7（17 年度・小笠原）～17.9 mmol m <sup>-2</sup> y <sup>-1</sup> （19 年度・筑後小郡） 筑後小郡、八方尾根で多く、落石岬、 小笠原、利尻で少ない傾向
H <sup>+</sup>	範囲：9.1（15 年度・小笠原）～ 39.7μmol L <sup>-1</sup> （15 年度・伊自良湖） 全平均値：20.8μmol L <sup>-1</sup> 伊自良湖、越前岬で高く、小笠原、 辺戸岬で低い傾向	範囲：10.8（15 年度・落石岬）～115 mmol m <sup>-2</sup> y <sup>-1</sup> （15 年度・伊自良湖） 伊自良湖、屋久島で多く、落石岬、 小笠原、利尻で少ない傾向

※ 詳細なデータは参考資料参照

## (2) 湿性沈着の季節変動

地域の湿性沈着の季節変動を把握するため、図 2-1 のように 31 調査地点を北海道、本州中北部日本海側、太平洋側、瀬戸内海沿岸、山陰、東シナ海沿岸及び南西諸島に区分し、地域ごとにイオン成分沈着量等の季節変動の解析を行った。降水の酸性化に寄与する指標である  $\text{nss-SO}_4^{2-}$  及び  $\text{NO}_3^-$  沈着量等の季節変動をそれぞれ図 3-1-2 及び図 3-1-3 に示す（その他の成分は参考資料を参照）。

降水量は、本州中北部日本海側、太平洋側、瀬戸内海沿岸、山陰及び東シナ海沿岸において7月、南西諸島においては6月が最大であり、梅雨の影響が大きく、9月に降水量が最大の北海道では台風の影響を受けているものと考えられる。

$\text{nss-SO}_4^{2-}$  濃度は北海道を除く地域で、 $\text{NO}_3^-$  濃度は南西諸島を除く地域で冬季から春季に高くなる傾向がみられた。 $\text{nss-SO}_4^{2-}$  及び  $\text{NO}_3^-$  沈着量は、本州中北部及び山陰において晩秋から春季に多くなる傾向がみられ、これらの地域では、酸性物質の大気中への供給が晩秋から春季にかけて増加していると考えられ、大陸に由来した汚染物質の流入が示唆された。一方、太平洋側、瀬戸内海沿岸及び東シナ海沿岸においては降水量の多い7月に最大になり、太平洋側及び瀬戸内海沿岸では冬季に最少になった。なお、北海道では  $\text{nss-SO}_4^{2-}$  及び  $\text{NO}_3^-$  沈着量ともに年間を通して他の地域より少ない傾向がみられた。 $\text{NH}_4^+$  の濃度及び沈着量は、 $\text{NO}_3^-$  と同様な傾向がみられ、硝酸とアンモニアの挙動が似ていることが示唆された。 $\text{nss-Ca}^{2+}$  については、南西諸島を除く地域において、濃度及び沈着量が春季に最大となり、南西諸島でも春季にそれらが比較的多く、全地域で春季に黄砂の影響が示唆された。

$\text{H}^+$  濃度は、本州中北部日本海側、山陰、東シナ海沿岸及び南西諸島において冬季に最大となり、北海道、太平洋側及び瀬戸内海沿岸では明確な季節変動を示さなかった。また、沈着量は本州中北部日本海側及び山陰において冬季に多く、太平洋側、瀬戸内海沿岸及び東シナ海沿岸では7月に最大になった。

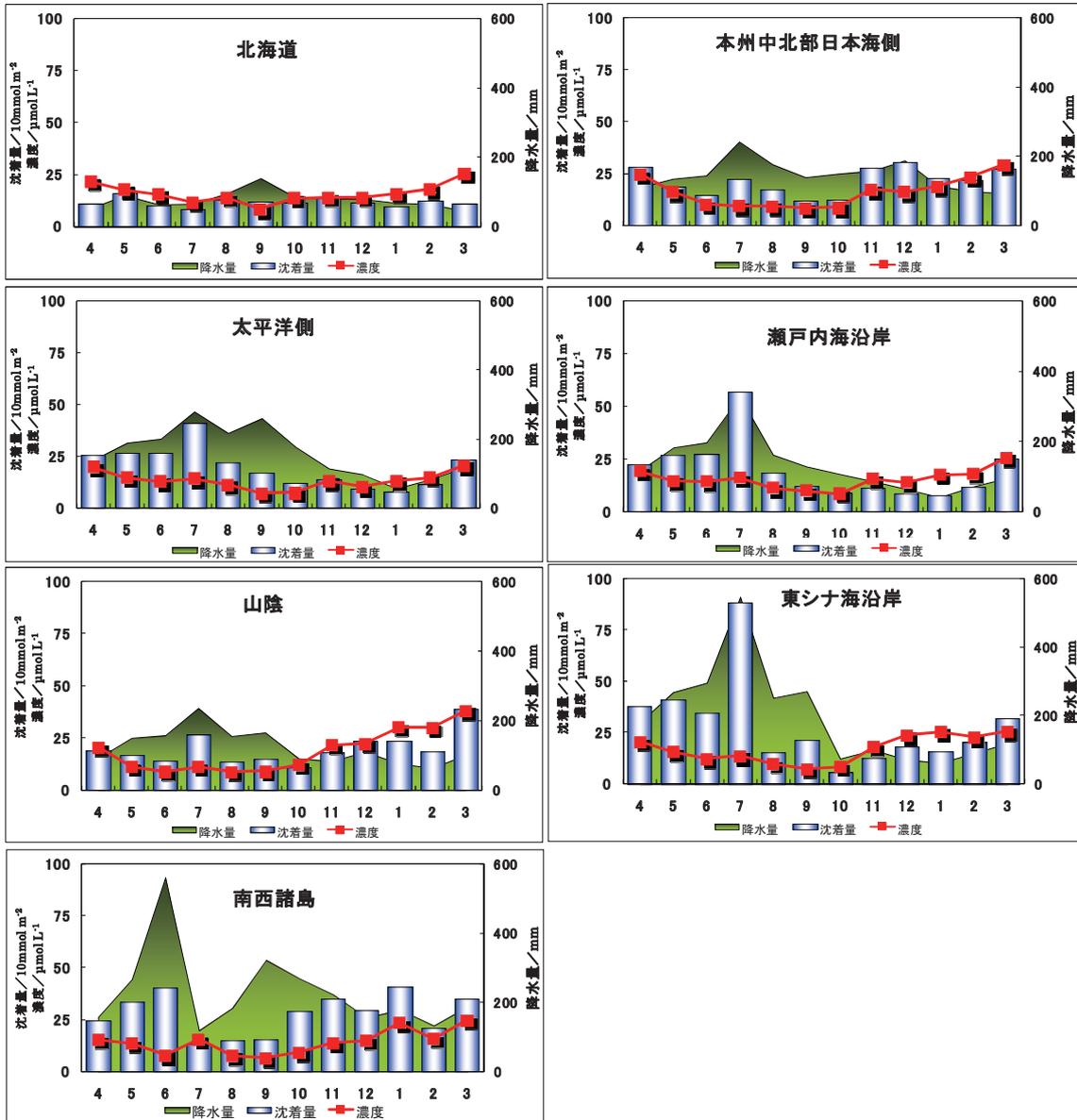


図 3-1-2 nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度及び沈着量、並びに降水量の季節変動（平成 15～19 年度平均値）

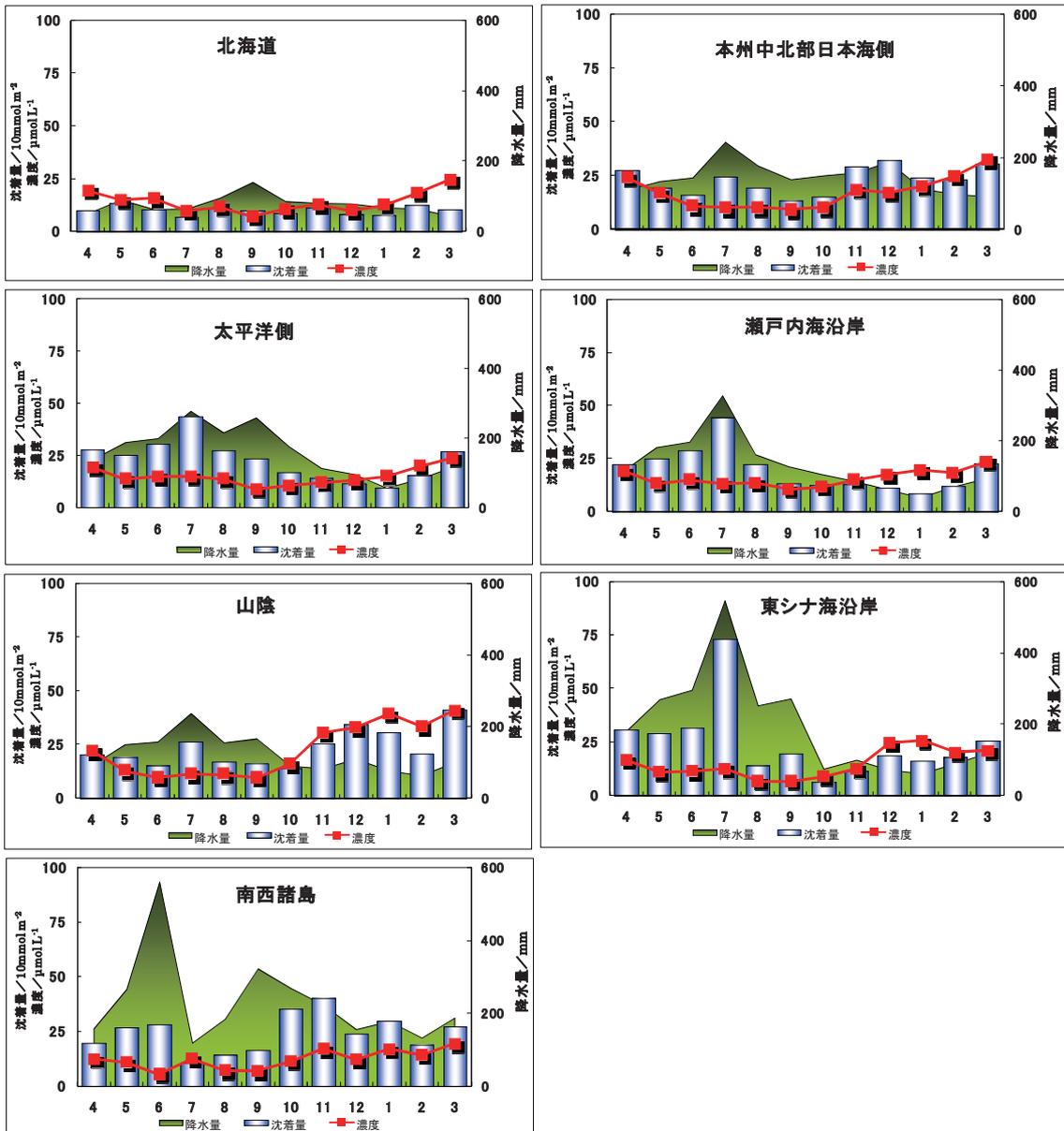


図 3-1-3 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度及び沈着量、並びに降水量の季節変動 (平成 15~19 年度平均値)

### (3) 湿性沈着の長期的傾向

湿性沈着の長期的傾向を把握するため、1991年度（平成3年度）～2007年度（19年度）に10年以上の調査が実施された地点の結果を用い（有効データのみ）、年降水量、年沈着量及び年平均濃度の全国中央値の変動を検討した。

降水量及びイオン成分沈着量の全国中央値の経年変化を図3-1-4に示す。降水量は、1990年代に増減を繰り返し、2000年代は横ばいで推移した。nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>沈着量は、期間を通して変動があるものの横ばいであった。NO<sub>3</sub>沈着量は1990年代中頃に増加し、それ以降は横ばいで推移した。NH<sub>4</sub><sup>+</sup>及びnss-Ca<sup>2+</sup>沈着量は期間を通して変動があるものの横ばいであった。H<sup>+</sup>沈着量は1990年代半ばから2000年度（平成12年度）まで増加傾向を示し、その後増減を繰り返した。

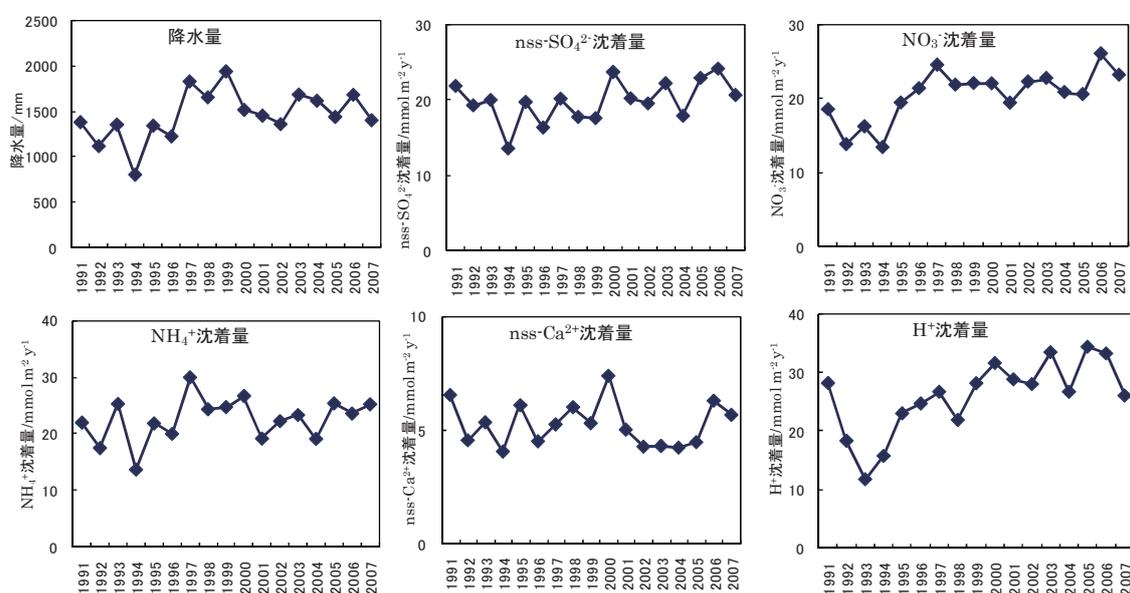


図3-1-4 降水量及びイオン成分沈着量の全国中央値の経年変化

pH及びイオン成分濃度の全国中央値の経年変化を図3-1-5に示す。pHは年により増減するものの全体として横ばいで推移した。近年pHが低めの地点については、今後のモニタリング結果に特に注意を払う必要がある。nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度は1999年度（平成11年度）まで減少し2000年度（12年度）に増加した後は、横ばいで推移した。NO<sub>3</sub>濃度は2004年度（16年度）まで変動はしているものの横ばいで推移し、2005年度（17年度）以降は増加する傾向を示した。NH<sub>4</sub><sup>+</sup>濃度は年により増減はするものの全体として横ばいで推移した。nss-Ca<sup>2+</sup>濃度は2000年度（12年度）に高く、2003年度（15年度）及び2004年度（16年度）で低いなど、年により増減するものの全体として横ばいで推移した。

なお、地点別の経年変化については参考資料を参照。

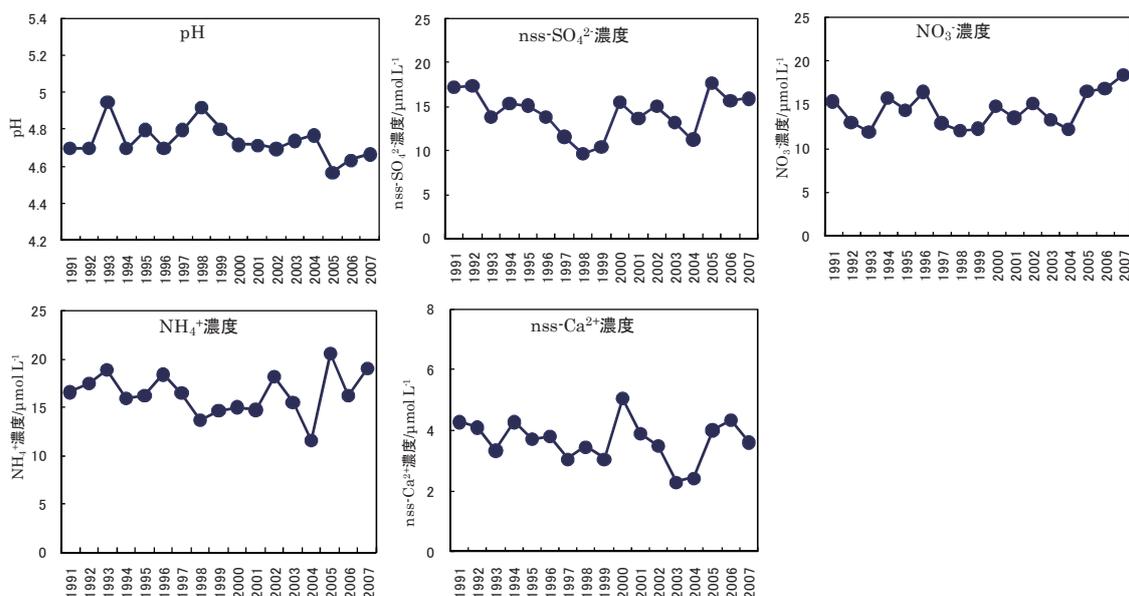


図 3-1-5 pH 及びイオン成分濃度の全国中央値の経年変化

#### (4) データの精度保証・精度管理 (QA/QC)

湿性沈着モニタリングの精度管理は、湿性沈着モニタリング手引き書（第2版）に基づき、試料の捕集から分析、データの評価に至る手法の統一化を図ることにより確保している。また、酸性雨研究センターによる現地調査及び分析機関間比較調査を実施しているほか、国内センター及び幾つかの試験機関は、WMO、EMEP 等の海外のネットワークが実施している分析機関間比較調査に参加し、国際的な比較にも耐えうる精度の確保に努めている。

##### ① 分析機関間比較調査（湿性沈着）

分析機関間比較調査は、分析手法や測定機器の使用条件、測定経験等との関係から問題点を明らかにし、モニタリング精度の向上を図るため、毎年実施している。模擬降水試料2種類（高濃度用及び低濃度用）を各分析機関で分析し、その分析結果について、EANETの精度管理目標値（DQOs: Data Quality Objectives、分析の正確さ：±15%）によって評価しており<sup>2</sup>、調査期間中、高濃度試料については約99%、低濃度試料については、約90%の精度が確保されていることが確認できた。

##### ② 酸性雨測定所等の現地調査

精度保証・精度管理活動の一環として、EANET局は2年に1回、その他の国内局は3年に1回、測定所とその周辺状況及び試験機関について、酸性雨研究センターによる現地調査が実施されており、降水の捕集効率に影響を与える捕集装置の設置状況、周辺の障害物及び発生源の有無の確認、試料捕集手順及び分析操作手順等について調査が行われている。

<sup>2</sup> DQOsの2倍まで（±15%～±30%）の分析値にはフラグ E を、DQOsの2倍（±30%）を超える分析値にはフラグ X を付けて表している。

### 3.1.2 乾性沈着モニタリングの結果

#### (1) 乾性沈着の年平均値の傾向及び季節変動

平成15年度から19年度における主な測定項目の乾性沈着モニタリング結果について、概要を表3-1-2に示す。また、図3-1-6、図3-1-7及び図3-1-8にはSO<sub>2</sub>、O<sub>3</sub>及びPM<sub>10</sub>・PM<sub>2.5</sub>の月平均濃度を月ごとに5年間平均した経月変化を示す(その他の項目は参考資料参照)。なお、解析に使用した年間値及び月間値は、有効データ(自動測定機：1時間値、フィルターパック：2週間値)の得られた時間が調査対象時間の70%以上であった値のみである。

#### [主な測定項目]

##### ① 自動測定機

SO<sub>2</sub> (12 地点)、NO<sub>x</sub>\* (11 地点)、O<sub>3</sub> (21 地点)、PM<sub>10</sub> (11 地点)、PM<sub>2.5</sub> (3 地点)

##### ② フィルターパック法

- ・粒子状成分濃度 (SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、Ca<sup>2+</sup>) (11 地点)
- ・ガス状成分濃度 (HNO<sub>3</sub>、NH<sub>3</sub>) (11 地点)

なお、粒子状成分のうち、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>については湿性沈着と同様にNa<sup>+</sup>を海塩粒子の指標として用い、海塩粒子に由来しない非海塩性のSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>を算出して考察の対象とした。

表 3-1-2 主な測定項目の結果

項目	年平均値の傾向、月平均濃度の変化
SO <sub>2</sub> (自動測定機)	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ 範囲：&lt;0.1ppb（平成 15、16、19 年度・小笠原）～1.2ppb（17 年度・                      橈原、19 年度・蟠竜湖、えびの）                      橈原、えびの、蟠竜湖で高く、小笠原で低い傾向。</li> <li>・ 全平均値：0.6ppb</li> <li>・ 月平均濃度の変動：晩秋から春季にかけて濃度が上昇する地点が多く、                      西日本で濃度上昇が大きい。小笠原では年間を通して低濃度で推移。晩                      秋から春季にかけての濃度上昇は、3.1.1(2)で記述した nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>沈着量                      の季節変動と同様に越境汚染の影響と考えられる。</li> </ul>
NO <sub>x</sub> * (自動測定機)	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ 範囲：0.4ppb（15、16、19 年度・小笠原）～4.2ppb（15 年度・蟠竜                      湖）                      蟠竜湖、伊自良湖で高く、小笠原で低い傾向。</li> <li>・ 全平均値：1.7ppb</li> <li>・ 月平均濃度の変動：西日本や日本海側の地域では秋季から春季にかけて                      濃度が上昇する傾向がみられ、3.1.1(2)で記述した NO<sub>3</sub><sup>-</sup>沈着量の季節変                      動と同様に越境汚染の影響と考えられる。伊自良湖では冬季に濃度が                      低く、利尻、落石岬、八方尾根、辺戸岬では年間を通して変動が小さ                      い。</li> </ul>
O <sub>3</sub> (自動測定機)	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ 範囲：19ppb（17 年度・伊自良湖）～60ppb（16 年度・赤城、18 年度・                      八方尾根）                      八方尾根、赤城で高く、伊自良湖、京都八幡で低い傾向。</li> <li>・ 全平均値：39ppb</li> <li>・ 月平均濃度の変動：全体的に春季に濃度が高く、夏季に低く、西日本で                      は秋季にも高くなる傾向。年間を通して標高の高い八方尾根や赤城で濃                      度が高い。春季の濃度上昇は越境汚染の影響と考えられる。</li> </ul>
PM <sub>10</sub> (自動測定機)	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ 範囲：11μg m<sup>-3</sup>（15 年度・小笠原）～37μg m<sup>-3</sup>（17 年度・辺戸岬）                      辺戸岬で高く、小笠原、八方尾根で低い傾向。</li> <li>・ 全平均値：22μg m<sup>-3</sup></li> <li>・ 月平均濃度の変動：春季に濃度が高い傾向がみられ、秋季にも濃度がや                      や高くなる地点がみられた。春季の濃度上昇は、下欄のエアロゾル中の                      Ca<sup>2+</sup>濃度も春季に高いことから、黄砂の影響を受けていると考えられ                      る。</li> </ul>
PM <sub>2.5</sub> (自動測定機)	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ 範囲：7μg m<sup>-3</sup>（16 年度・落石岬）～16μg m<sup>-3</sup>（17 年度・隠岐）                      隠岐、落石岬、利尻の順に高い。</li> <li>・ 全平均値：11μg m<sup>-3</sup></li> </ul>

	<ul style="list-style-type: none"> <li>・月平均濃度の変動：隠岐は春季に濃度がやや高く、利尻と落石岬は年間を通して変動が小さい。</li> </ul>
$\text{nss-SO}_4^{2-}$ (フィルターバック)	<ul style="list-style-type: none"> <li>・範囲：0.52<math>\mu\text{g m}^{-3}</math> (16年度・小笠原) ～6.60<math>\mu\text{g m}^{-3}</math> (17年度・蟠竜湖) 蟠竜湖、禰原で高く、小笠原で低い傾向。</li> <li>・全平均値：3.56<math>\mu\text{g m}^{-3}</math></li> <li>・月平均濃度の変動：夏季に濃度が高い地点が多い。</li> </ul>
$\text{NO}_3^-$ (フィルターバック)	<ul style="list-style-type: none"> <li>・範囲：0.11<math>\mu\text{g m}^{-3}</math> (16年度・小笠原) ～4.08<math>\mu\text{g m}^{-3}</math> (19年度・東京) 辺戸岬、蟠竜湖で高く、小笠原、八方尾根で低い傾向。 東京が最高値であったが、1年間のみの数値である。</li> <li>・全平均値：0.87<math>\mu\text{g m}^{-3}</math></li> <li>・月平均濃度の変動：全体的に春季に濃度が高い傾向</li> </ul>
$\text{HNO}_3$ (フィルターバック)	<ul style="list-style-type: none"> <li>・範囲：0.03ppb (15、16年度・小笠原) ～0.93ppb (19年度・東京) 禰原、伊自良湖で高く、小笠原、利尻で低い傾向。 東京が最高値であったが、1年間のみの数値である。</li> <li>・全平均値：0.24ppb</li> <li>・月平均濃度の変動：夏季にやや濃度が高い傾向がみられる。小笠原、辺戸岬は濃度が低く、変動も少ない。</li> </ul>
$\text{NH}_4^+$ (フィルターバック)	<ul style="list-style-type: none"> <li>・範囲：0.08<math>\mu\text{g m}^{-3}</math> (16年度・小笠原) ～1.90<math>\mu\text{g m}^{-3}</math> (19年度・東京) 伊自良湖、蟠竜湖、禰原で高く、小笠原、利尻で低い傾向。 東京が最高値であったが、1年間のみの数値である。</li> <li>・全平均値：0.83<math>\mu\text{g m}^{-3}</math></li> <li>・月平均濃度の変動：夏季に濃度が高い地点が多い。</li> </ul>
$\text{NH}_3$ (フィルターバック)	<ul style="list-style-type: none"> <li>・範囲：0.18ppb (15年度・小笠原) ～5.64ppb (19年度・東京) 伊自良湖、蟠竜湖で高く、利尻、竜飛岬、八方尾根で低い傾向。 東京が最高値であったが、1年間のみの数値である。</li> <li>・全平均値：0.78ppb</li> <li>・月平均濃度の変動：春季から夏季に濃度が高い地点が多い。東京は1年間のみの数値であるが、高い濃度で推移している。</li> </ul>
$\text{Ca}^{2+}$ (フィルターバック)	<ul style="list-style-type: none"> <li>・範囲：0.02<math>\mu\text{g m}^{-3}</math> (16年度・小笠原) ～0.57<math>\mu\text{g m}^{-3}</math> (19年度・東京) 辺戸岬で高く、小笠原で低い傾向。 東京が最高値であったが、1年間のみの数値である。</li> <li>・全平均値：0.24<math>\mu\text{g m}^{-3}</math></li> <li>・月平均濃度の変動：春季にほとんどの地点で濃度が高い傾向がみられ、黄砂の影響が示唆された。</li> </ul>

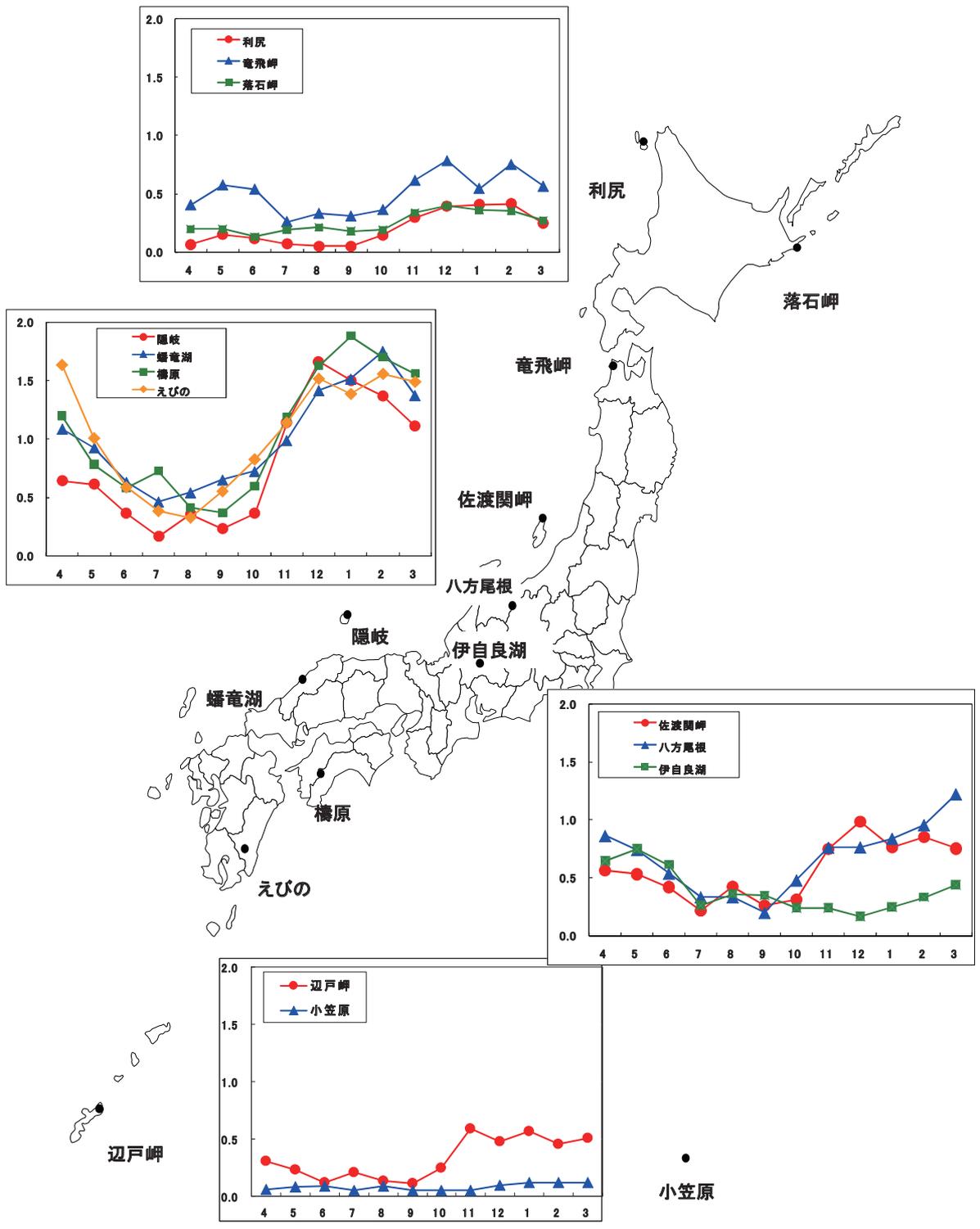


図 3-1-6 SO<sub>2</sub> 濃度の季節変動(単位:ppb、平成 15~19 年度平均)

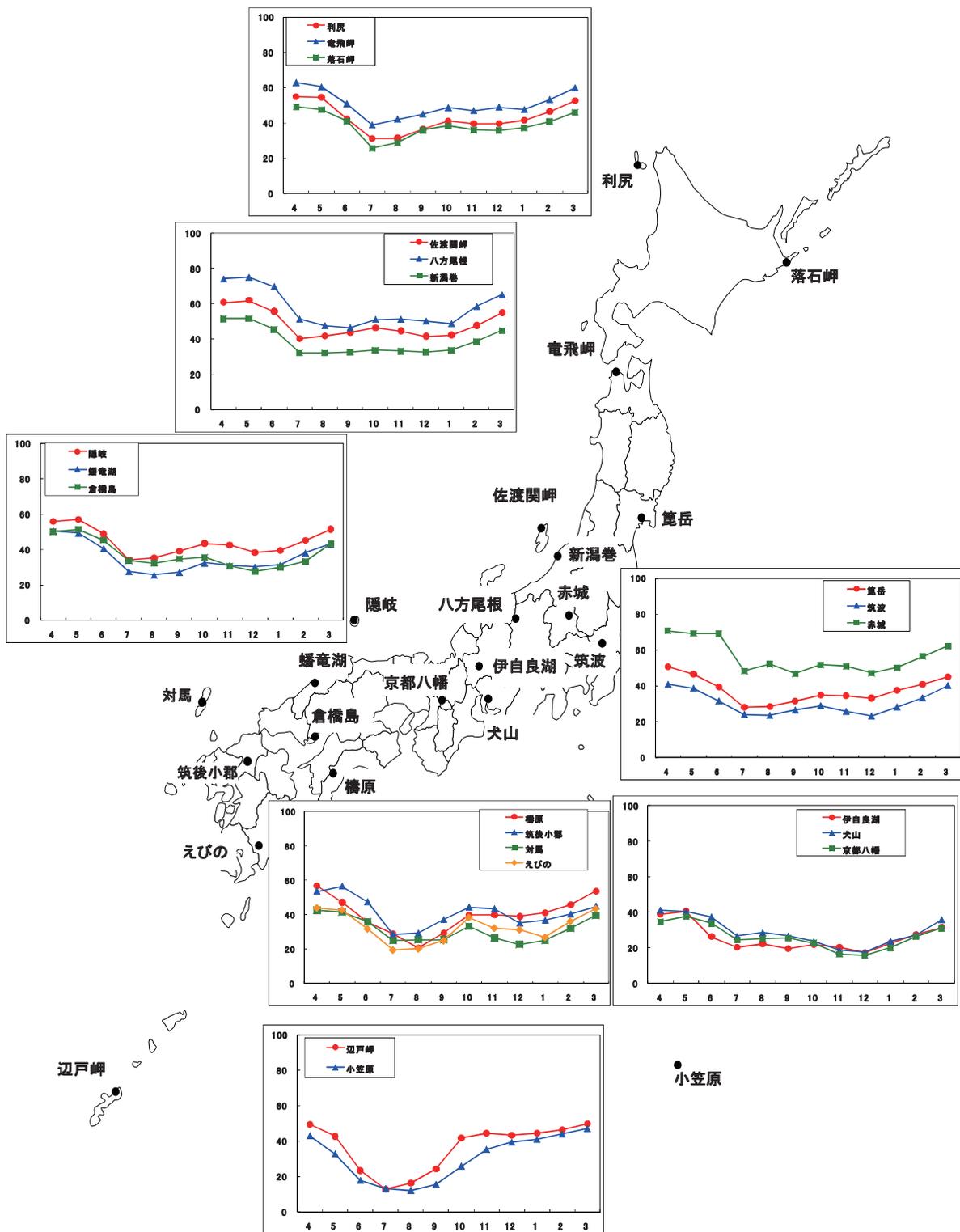


図 3-1-7 O<sub>3</sub>濃度の季節変動(ppb、平成 15~19 年度平均)

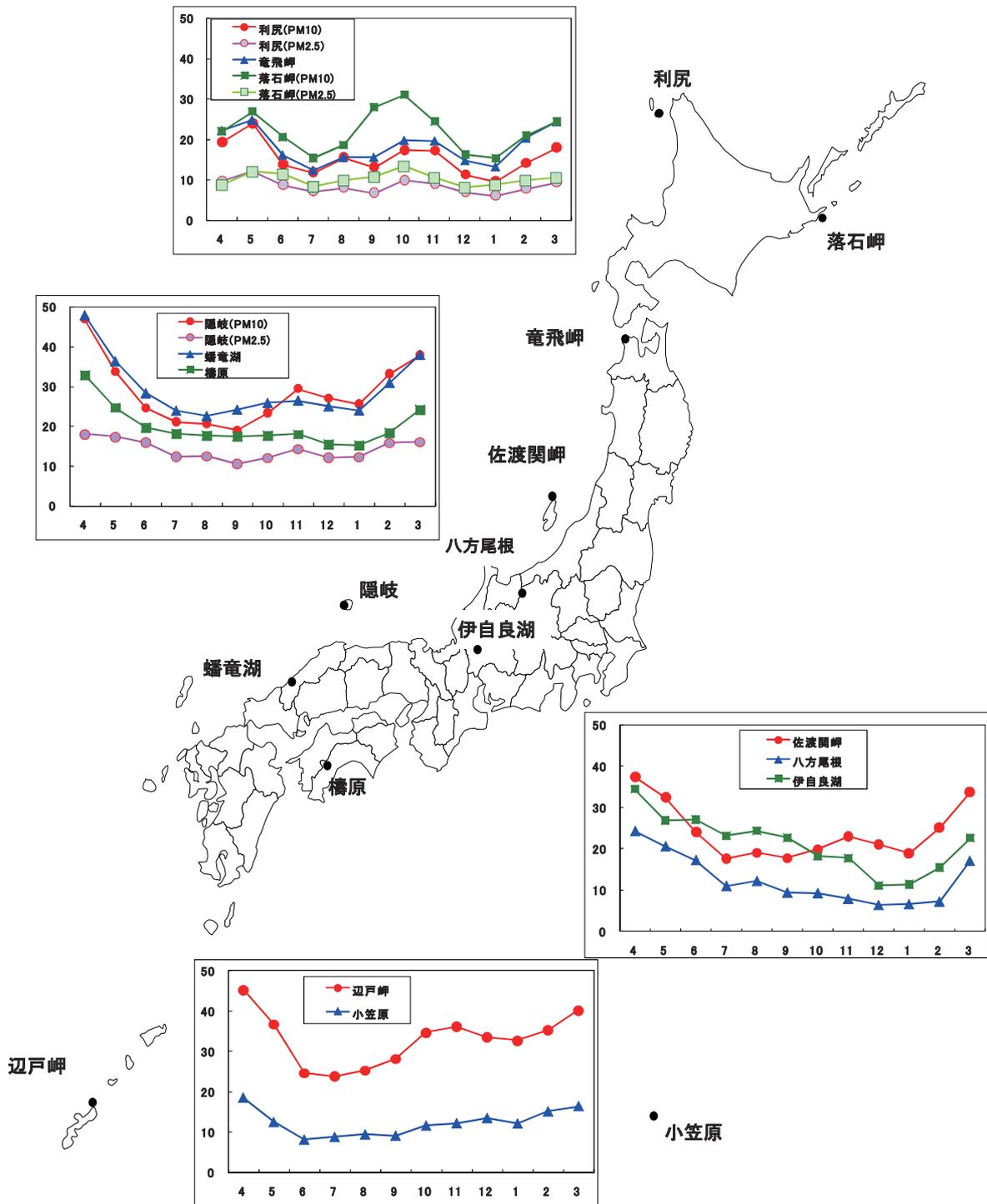


図 3-1-8 PM<sub>10</sub>、PM<sub>2.5</sub> 濃度の季節変動 (単位:  $\mu\text{g m}^{-3}$ 、平成 15~19 年度平均)

## (2) 乾性沈着の長期的傾向

### ・SO<sub>2</sub>

平成10年度（1998年度）から19年度（2007年度）において、有効データが6年以上得られた地点のSO<sub>2</sub>濃度の経年変化を図3-1-9に示す。

遠隔地域では、全体的に1.0ppb以下の低濃度で推移しており、調査期間を通して構原で濃度が高く、大陸から離れた小笠原及び利尻において低い。また、日本海側の遠隔地域では、隠岐、佐渡関岬、竜飛岬、利尻の順に西側から濃度が高い傾向がみられ、大陸に近い地点ほど、その寄与の大きいことが伺われる。一方、桜島に近いえびのを含む非遠隔地域では、調査期間を通して、えびの及び蟠竜湖が同程度で伊自良湖より高濃度であった。

佐渡関岬、八方尾根、伊自良湖及び構原では、平成12年度（2000年度）及び13年度（2001年度）の濃度が高くなっており、平成12年（2000年）8月の三宅島噴火の影響が伺われ、この影響を勘案すると、近年、竜飛岬、隠岐、構原、辺戸岬では増減はあるものの増加傾向に、伊自良湖では減少傾向にあるものと考えられる。

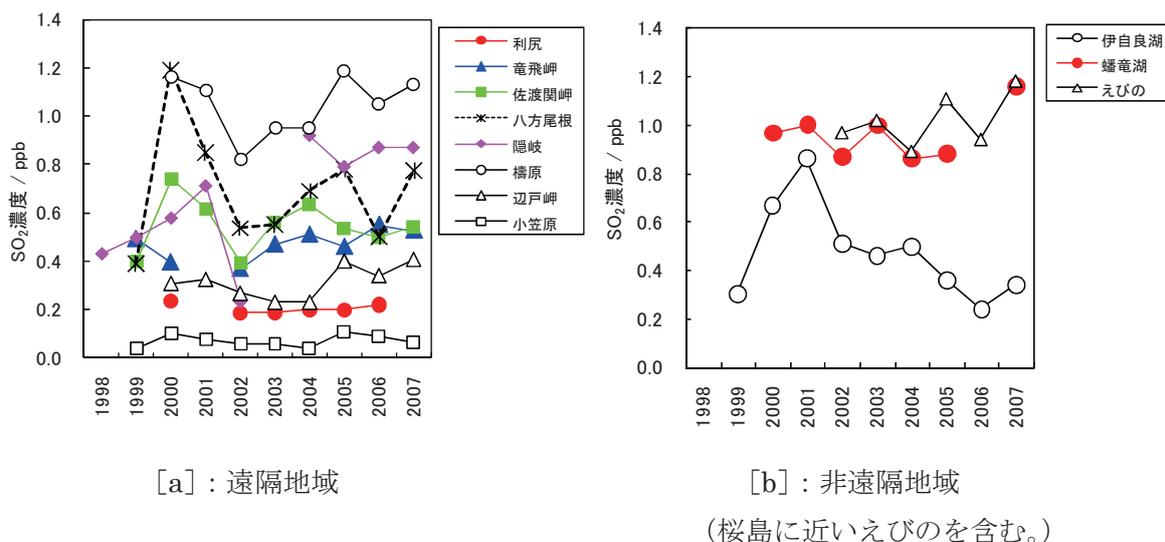


図 3-1-9 SO<sub>2</sub>濃度の経年変化

### ・NO<sub>x</sub>\*

平成10年度（1998年度）から19年度（2007年度）において、有効データが6年以上得られた地点のNO<sub>x</sub>\*濃度の経年変化を図3-1-10に示した。

非遠隔地域の伊自良湖及び蟠竜湖が調査期間を通して遠隔地域より濃度が高い。遠隔地域では、小笠原及び辺戸岬において濃度が低く、八方尾根で高かった。なお、長期的傾向については、構原、伊自良湖及び蟠竜湖で減少傾向を示し、その他の地点ではほぼ横ばいで推移した。

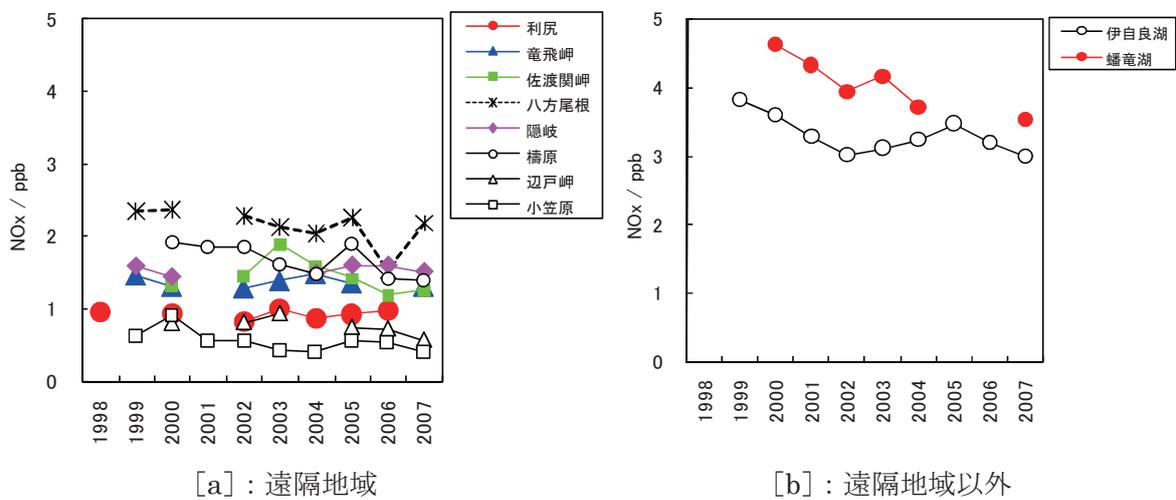


図 3-1-10 NOx\*濃度の経年変化

・PM<sub>10</sub>

平成 11 年度（1999 年度）から 19 年度（2007 年度）において、有効データが 5 年以上得られた地点の PM<sub>10</sub> 濃度の経年変化を図 3-1-11 に示した。

遠隔地域では、調査期間を通して小笠原及び八方尾根において濃度が低く、大陸から近い辺戸岬で高かった。また、日本海側の遠隔地域では、隠岐、佐渡関岬、竜飛岬、利尻の順に西側から濃度が高い傾向がみられ、大陸に近い地点ほど、その寄与の大きいことが伺われる。非遠隔地域では、調査期間を通して蟠竜湖の方が伊自良湖より高濃度であった。なお、長期的傾向については辺戸岬以外において、ほぼ横ばいで推移した。

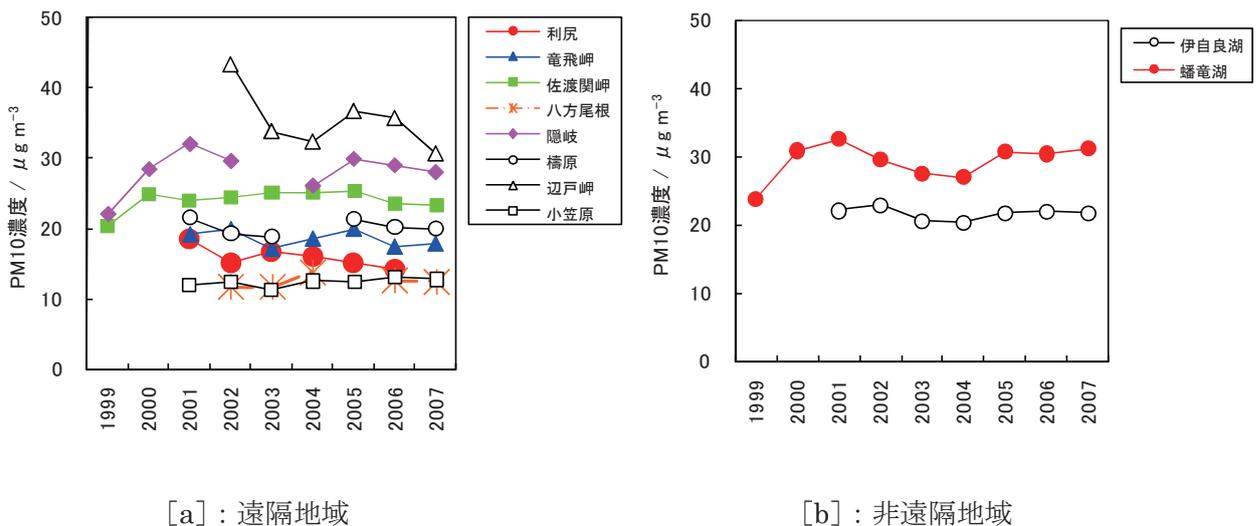


図 3-1-11 PM<sub>10</sub>濃度の経年変化

・ O<sub>3</sub>

平成 10 年度（1998 年度）から 19 年度（2007 年度）において有効データが 7 年以上得られた地点を対象に、遠隔地域（利尻、竜飛岬、小笠原、佐渡関岬、隠岐、橈原、対馬、辺戸岬）、非遠隔地域（伊自良湖、京都八幡、幡竜湖、倉橋島、筑後小郡）、高山遠隔地域（八方尾根）及び高山非遠隔地域（赤城）に区分し、12 地点以上で有効値が得られた平成 12 年度（2000 年度）から 19 年度（2007 年度）における地域ごと及び全地点、それぞれの O<sub>3</sub> 平均濃度の経年変化を図 3-1-12 に、遠隔地域の地点ごとの O<sub>3</sub> 濃度の経年変化を図 3-1-13 に示した。

地域ごとの平均濃度については、高山地域、遠隔地域、非遠隔地域の順に濃度が高いことから、高山地域においては地上よりも成層圏からの影響を受けていること、非遠隔地域においては遠隔地域よりも NO による O<sub>3</sub> の消滅反応が生じていることが伺われる。また、遠隔地域、非遠隔地域、高山遠隔地域及び全地点の O<sub>3</sub> 平均濃度は漸増傾向を示している。

遠隔地域の調査地点では、調査期間を通して、高山地域、日本海側、太平洋側の順に濃度が高い傾向がみられた。

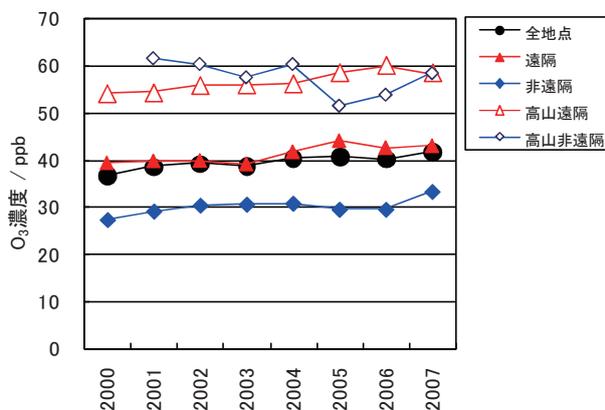


図 3-1-12 地域ごとの O<sub>3</sub> 濃度の経年変化

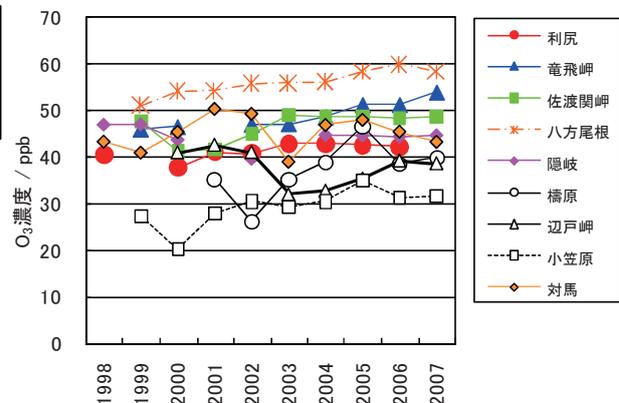


図 3-1-13 遠隔地域の O<sub>3</sub> 濃度の経年変化

(3) 乾性沈着量の推計

平成 15 年度から 19 年度にフィルターパック法により大気中成分を測定した 10 地点（東京及び落石岬を除く EANET 測定局）において、乾性沈着量（ガス状物質：SO<sub>2</sub>、HNO<sub>3</sub>、NH<sub>3</sub>、粒子状物質中のイオン成分：nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>）を推計し、結果を表 3-1-3 に示した。推計方法は大気中成分濃度とその成分の沈着速度の積から求める推定法（Inferential 法）とし、各成分の沈着速度は松田の方法<sup>1)</sup>に基づき気象要素等のデータを用い、沈着表面は森林及び草地と設定した。

乾性沈着はガス状物質、粒子状物質ともに森林への沈着量が草地より多かった。ガス

状物質の森林への沈着量については、SO<sub>2</sub>は幡竜湖、辺戸岬、佐渡関岬及び竜飛岬で多く、伊自良湖及び利尻で少ない傾向を、HNO<sub>3</sub>は禰原、八方尾根、佐渡関岬、幡竜湖、竜飛岬で多く、小笠原で少ない傾向を示した。また、NH<sub>3</sub>は幡竜湖で多い傾向を示した。粒子状物質の森林への沈着量については、竜飛岬、辺戸岬で多く、小笠原、伊自良湖で少ない傾向を示した。なお、竜飛岬及び佐渡関岬では、ガス状物質と粒子状物質濃度が他地点より特段高くはないが、成分によっては風速が大きいほど、沈着速度が大きくなる傾向にあることから、他地点に比べて風速の大きい両地点では乾性沈着量が多く見積もられたものと考えられる。

表 3-1-3 乾性沈着量

地点名	年度	ガス状物質 (mmol m <sup>-2</sup> y <sup>-1</sup> )						粒子状物質 (mmol m <sup>-2</sup> y <sup>-1</sup> )					
		森林			草地			森林			草地		
		SO <sub>2</sub>	HNO <sub>3</sub>	NH <sub>3</sub>	SO <sub>2</sub>	HNO <sub>3</sub>	NH <sub>3</sub>	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>
利尻	平成15年度	4.0	7.2	4.7	2.2	2.0	2.7	7.7	4.5	8.6	0.8	0.4	0.9
	平成16年度	4.1	5.1	5.2	2.1	1.4	3.0	7.1	4.6	6.5	0.6	0.4	0.6
	平成17年度	3.9	7.0	4.6	2.1	1.9	2.7	8.9	4.5	9.1	0.8	0.3	0.9
	平成18年度	4.3	4.9	4.5	2.3	1.3	2.3	7.2	3.9	7.3	0.7	0.3	0.7
	平成19年度	**	**	**	**	**	**	**	**	**	**	**	**
竜飛岬	平成15年度	15.9	19.4	5.2	7.3	5.4	3.9	13.5	11.6	19.2	1.0	0.7	1.4
	平成16年度	16.9	21.2	5.2	7.2	5.9	3.5	17.9	14.0	19.3	1.1	0.7	1.3
	平成17年度	14.1	22.0	**	6.2	6.1	**	21.8	16.7	25.3	1.6	0.9	1.8
	平成18年度	16.6	16.7	2.8	8.0	4.7	2.1	19.1	16.2	22.7	1.4	0.9	1.7
	平成19年度	15.2	20.7	4.1	7.8	5.8	3.2	22.9	18.3	23.5	1.5	1.0	1.7
小笠原	平成15年度	7.6	2.0	2.3	2.7	0.5	1.2	1.5	1.1	1.0	0.4	0.2	0.3
	平成16年度	7.6	2.3	3.4	3.3	0.6	2.0	0.5	0.3	0.4	0.1	0.1	0.1
	平成17年度	9.9	2.5	7.1	3.7	0.7	4.0	1.6	0.7	1.0	0.4	0.1	0.2
	平成18年度	**	**	**	**	**	**	**	**	**	**	**	**
	平成19年度	1.9	2.6	5.1	0.7	0.7	2.8	4.3	1.9	3.0	0.7	0.3	0.5
佐渡関岬	平成15年度	12.5	18.3	3.3	5.4	5.0	2.4	10.1	6.5	8.3	0.7	0.4	0.7
	平成16年度	12.3	19.5	4.9	5.1	5.4	3.6	14.5	7.7	21.8	1.0	0.5	1.5
	平成17年度	16.1	28.8	4.2	7.0	7.9	3.2	15.4	7.7	14.3	1.3	0.5	1.3
	平成18年度	20.7	23.2	4.4	8.1	6.4	3.2	12.7	7.8	12.0	1.0	0.5	1.1
	平成19年度	22.5	20.3	4.5	9.6	5.6	3.5	18.9	13.3	17.4	1.3	0.8	1.3
八方尾根	平成15年度	11.8	21.8	6.8	5.5	6.1	3.1	8.7	3.2	10.9	0.8	0.2	1.2
	平成16年度	15.9	23.4	5.3	6.8	6.6	2.9	11.0	4.0	13.0	1.0	0.3	1.4
	平成17年度	16.5	14.9	6.9	7.4	4.2	3.7	12.3	3.5	14.2	1.2	0.2	1.6
	平成18年度	10.9	23.6	5.1	5.5	6.5	2.8	9.5	1.6	10.8	1.0	0.1	1.2
	平成19年度	10.6	24.5	4.2	5.1	6.8	2.3	9.7	1.8	12.0	1.0	0.2	1.3
伊自良湖	平成15年度	3.9	4.5	8.9	1.4	1.2	3.3	1.7	0.4	3.1	0.5	0.1	1.0
	平成16年度	4.2	7.0	8.5	1.6	1.9	3.5	2.5	0.6	3.7	0.9	0.2	1.3
	平成17年度	3.4	7.5	7.9	1.4	2.0	3.3	2.6	0.5	3.9	0.9	0.2	1.4
	平成18年度	3.0	6.6	7.6	1.3	1.8	3.2	2.3	0.5	3.4	0.9	0.1	1.4
	平成19年度	2.3	5.1	5.9	1.0	1.4	2.7	2.0	0.5	3.0	0.8	0.2	1.3
隠岐	平成15年度	12.0	7.2	5.0	5.4	2.0	3.2	11.5	5.7	8.6	1.1	0.4	0.9
	平成16年度	12.7	8.4	5.8	5.6	2.3	4.0	10.7	6.9	12.8	1.1	0.6	1.4
	平成17年度	15.8	16.4	5.5	6.7	4.5	3.9	17.5	8.9	19.8	2.0	0.7	2.4
	平成18年度	15.5	15.9	4.1	7.2	4.3	3.2	16.8	9.0	20.1	1.9	0.7	2.3
	平成19年度	16.3	14.6	3.7	7.9	4.0	3.1	14.9	9.8	18.0	1.5	0.7	1.8
幡竜湖	平成15年度	18.5	12.7	10.3	8.2	3.5	6.1	8.3	4.3	8.1	1.0	0.4	0.9
	平成16年度	21.6	19.8	13.1	9.0	5.4	7.8	11.7	6.8	15.3	1.5	0.6	2.0
	平成17年度	16.9	23.0	8.3	8.1	6.3	5.3	14.4	8.0	19.4	2.1	0.7	2.7
	平成18年度	21.4	20.9	9.9	9.5	5.7	6.1	15.6	8.5	20.8	2.3	0.8	3.0
	平成19年度	21.2	21.2	8.8	9.5	5.8	5.5	15.6	8.2	20.1	2.0	0.8	2.7
禰原	平成15年度	11.7	16.7	5.4	5.8	4.6	3.0	8.3	2.8	10.3	1.4	0.4	1.7
	平成16年度	11.7	19.0	5.3	5.2	5.2	2.7	11.6	2.3	13.4	1.8	0.3	2.2
	平成17年度	12.3	25.5	3.6	6.4	7.2	2.2	11.9	2.7	15.0	2.5	0.4	3.1
	平成18年度	17.8	23.7	4.8	8.2	6.7	2.4	11.1	2.4	14.8	2.2	0.3	2.8
	平成19年度	17.5	25.3	7.3	8.5	7.1	3.5	12.5	2.5	15.5	2.3	0.4	3.0
辺戸岬	平成15年度	21.1	8.9	5.0	9.0	2.4	3.9	16.3	17.4	16.7	1.4	1.2	1.4
	平成16年度	28.9	14.2	6.7	12.6	3.9	5.2	9.6	6.6	7.9	0.9	0.5	0.7
	平成17年度	17.1	11.4	5.9	7.5	3.2	4.8	26.0	14.9	22.0	2.4	1.0	2.0
	平成18年度	13.8	8.6	5.4	6.4	2.4	4.3	24.4	14.9	19.4	2.3	1.1	1.9
	平成19年度	12.4	12.0	7.9	5.6	3.3	6.2	26.2	14.3	24.2	2.2	1.0	2.3

\*\* 有効データの得られた時間が調査対象時間の70%未満のため解析に用いなかった。

#### (4) データの精度保証・精度管理 (QA/QC)

EANET の第 3 回科学諮問委員会 (SAC3) における要請に基づき、平成 17 年度よりフィルターパック法について分析機関間比較調査を開始した。各分析担当機関は、 $K_2CO_3$  含浸ろ紙と  $H_3PO_4$  含浸ろ紙に、多量及び少量の対象物質 (塩化物、硫酸塩、アンモニウム塩の 3 項目) を添加したろ紙等について分析を行った。

分析結果を EANET の精度管理目標値 (DQOs、分析の正確さ:  $\pm 15\%$ ) を用いて判定したところ、少量添加試料については、DQOs を満たすデータは第 1 回目 83.3%、第 2 回目 85.7%、第 3 回目は 66.7%であった。多量添加試料については、第 1 回目 91.7%であり、第 2 回目は全ての値が DQOs を満たしていたが、第 3 回目は 95.2%であった。

### 3.1.3 酸性沈着に対する総合的考察

#### (1) 総沈着量

硫黄と窒素の総沈着量を湿性沈着量と乾性沈着量の合計値として算出した。湿性沈着量は 3.1.1 で示した実測値を用い、乾性沈着量は 3.1.2 (3) で推計した森林及び草地の乾性沈着量を測定局周辺約 1km の土地利用割合で重みづけ平均した値を用いた。ここでは、酸性沈着の主な原因物質である二酸化硫黄と窒素酸化物に対応する硫黄と窒素の総沈着量の分布を図 3-1-14 及び図 3-1-15 に示す。なお、対象期間は平成 15～19 年度までとし、年間値の基準等を満たさないデータは除外した。

硫黄の総沈着量は、降水中の  $\text{nss-SO}_4^{2-}$  の湿性沈着量、及びガス状物質の  $\text{SO}_2$  と粒子状物質の  $\text{nss-SO}_4^{2-}$  の乾性沈着量を合計した。なお、海塩由来成分の寄与も含む全  $\text{SO}_4^{2-}$  の沈着量は参考資料に掲載した。総沈着量を推計した 10 地点において、海塩由来成分を除く総硫黄沈着量の 5 年間平均値は、 $16\sim 54\text{mmol m}^{-2} \text{y}^{-1}$  の範囲であり、蟠竜湖及び伊自良湖で多く、利尻及び小笠原で少なかった。利尻や小笠原で総沈着量が少なかったのは、発生源地域から遠く離れていることが原因のひとつと考えられる。

総沈着量に対する湿性沈着及び乾性沈着の寄与をみると、伊自良湖、利尻、八方尾根及び小笠原で湿性沈着の方が大きく、竜飛岬、辺戸岬及び隠岐で乾性沈着の方が大きく、その他の地点では同程度であった。乾性沈着の寄与率は、地点により異なるが、同一地点では年度の違いによるばらつきは小さく（標準偏差/平均値は  $0.05\sim 0.23$ ）、湿性と乾性沈着量の比は安定していた。また、乾性沈着に占める粒子状成分の割合は、平均で 4 割程度であった。汚染物質が長距離輸送された際には粒子状成分に変化する場合が多く、前述したように乾性沈着における粒子成分の寄与が無視できない割合であり、乾性沈着における長距離輸送の影響が懸念される。

窒素の総沈着量は、降水中の  $\text{NO}_3^-$  と  $\text{NH}_4^+$  の湿性沈着、及びガス状物質 ( $\text{HNO}_3$ 、 $\text{NH}_3$ ) と粒子状物質 ( $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{NH}_4^+$ ) の乾性沈着量を合計した。窒素の総沈着量の 5 年間の平均値は  $22\sim 130\text{mmol m}^{-2} \text{y}^{-1}$  の範囲であり、伊自良湖及び蟠竜湖で多く、小笠原及び利尻で少なかった。周囲に顕著な発生源がなく、大陸からの長距離輸送の影響も受けにくい小笠原や利尻で総沈着量が少ない傾向を示した。日本海側及び太平洋側の地点間では総沈着量に明瞭な相違がみられなかった。

総沈着量に対する湿性沈着及び乾性沈着の寄与をみると、伊自良湖、利尻、小笠原、八方尾根、佐渡関岬、蟠竜湖及び辺戸岬で湿性沈着の方が大きく、竜飛岬では乾性沈着の方が大きく、その他の地点では同程度であった。乾性沈着量が総沈着量の約 4 割以上を占める地点も多く、湿性沈着のみの観測では大気由来の窒素沈着の把握に不十分であることが示唆された。本州中部に位置する伊自良湖を除くと、周囲に顕著な発生源がなく、大陸からの長距離輸送の影響も受けにくい小笠原や利尻では総沈着量に占める乾性沈着の寄与が小さい傾向を示した。

利尻、伊自良湖、辺戸岬及び小笠原を除く地点では、ガス状の  $\text{HNO}_3$  が窒素の乾性沈着に対して最も寄与の大きな物質であった。一方、竜飛岬、隠岐、蟠竜湖及び樽原ではガス

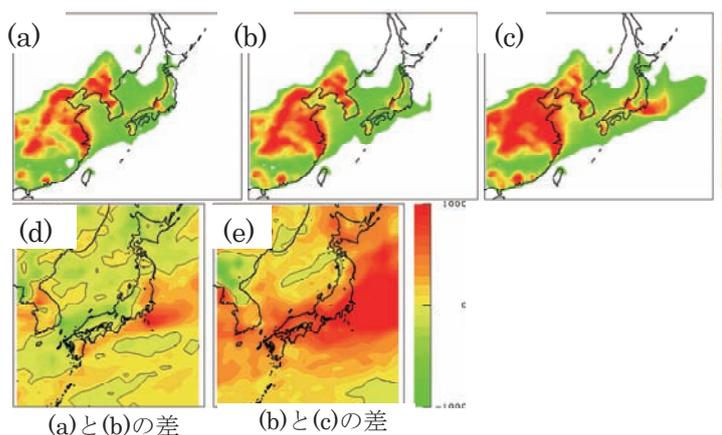
状の  $\text{HNO}_3$  に加えて粒子状の  $\text{NH}_4^+$  の寄与も大きく、さらに竜飛岬では粒子状の  $\text{NO}_3^-$  の寄与も大きかった。 $\text{NH}_4^+$  の乾性沈着が多い地点は日本海側に多くみられ、これらの地点では粒子状  $\text{nss-SO}_4^{2-}$  の沈着量も多いことから、これらの物質間の関連性も示唆された。

硫黄の湿性沈着量と乾性沈着量は、伊自良湖を除き、有意な正の相関（危険率 1%）を示し、さらに窒素の湿性沈着量及び乾性沈着量とそれぞれ有意な正の相関があった。湿性沈着と乾性沈着の原因物質は必ずしも同じ発生源に由来し、同じ経路で輸送されてきたものとは限らないが、このような相関は、硫黄及び窒素成分ともに大量に排出されている工業地帯や大都市圏の発生源の影響を受けていることを示唆している。

米国環境保護庁の CASTNET（Clean Air Status and Trends Network）では、アメリカ合衆国東部 5 地区（20 地点）で硫黄と窒素の総沈着量を推計している。乾性沈着に関しては、沈着速度の推計法が異なるため厳密な比較はできないが、参考までに、2003 年（平成 15 年）から 2006 年（平成 18 年）の平均値を比較した。硫黄の沈着量はアメリカ合衆国東部では  $14\sim 38\text{mmol m}^{-2}\text{y}^{-1}$  の範囲（平均  $26\text{mmol m}^{-2}\text{y}^{-1}$ ）であり、日本では小笠原及び利尻を除く地点でこの範囲を上回っていた。なお、CASTNET の硫黄沈着量は海塩由来成分を含むため、非海塩成分の総沈着量は、さらに低いと予想される。また、窒素については、CASTNET ではガス状の  $\text{NH}_3$  を含めた算出を行っていないため、我が国の総沈着量からガス状の  $\text{NH}_3$  を除いて比較したところ、アメリカ合衆国東部では  $26\sim 56\text{mmol m}^{-2}\text{y}^{-1}$  の範囲（平均  $45\text{mmol m}^{-2}\text{y}^{-1}$ ）であるのに対して、日本では小笠原、利尻及び辺戸岬を除く地点でこの範囲を上回っており、平均値は  $71\text{mmol m}^{-2}\text{y}^{-1}$  であった。

### モデル計算による東アジアの非海塩性硫酸イオンの沈着量

大気中に放出された二酸化硫黄は輸送され、硫酸に変換され、最終的に湿性沈着や乾性沈着で地表に沈着する。下図はこの過程を輸送・沈着モデルで評価した一例で、東アジア地域における非海塩性硫酸イオン ( $\text{nss-SO}_4^{2-}$ ) の沈着量を示している<sup>2)</sup>。上段の図は 3 つの異なる期間、(a) 1995-1997 年（平成 7-9 年）、(b) 1998-2000 年（10-12 年）、(c) 2001-2003 年（13-15 年）の沈着量を示しており、下段の図はこれら期間の差、つまり沈着量の増加量を表している。



図(a)～(c)から中国の東部で沈着量大きいこと、その範囲が徐々に広がっていることがわかる。また、(c)では日本の中央部で沈着量が急増しており、これは三宅島の噴火による二酸化硫黄が原因である。

図(d)、(e)からは、沈着量が日本付近で急激に増加していることが示唆される。

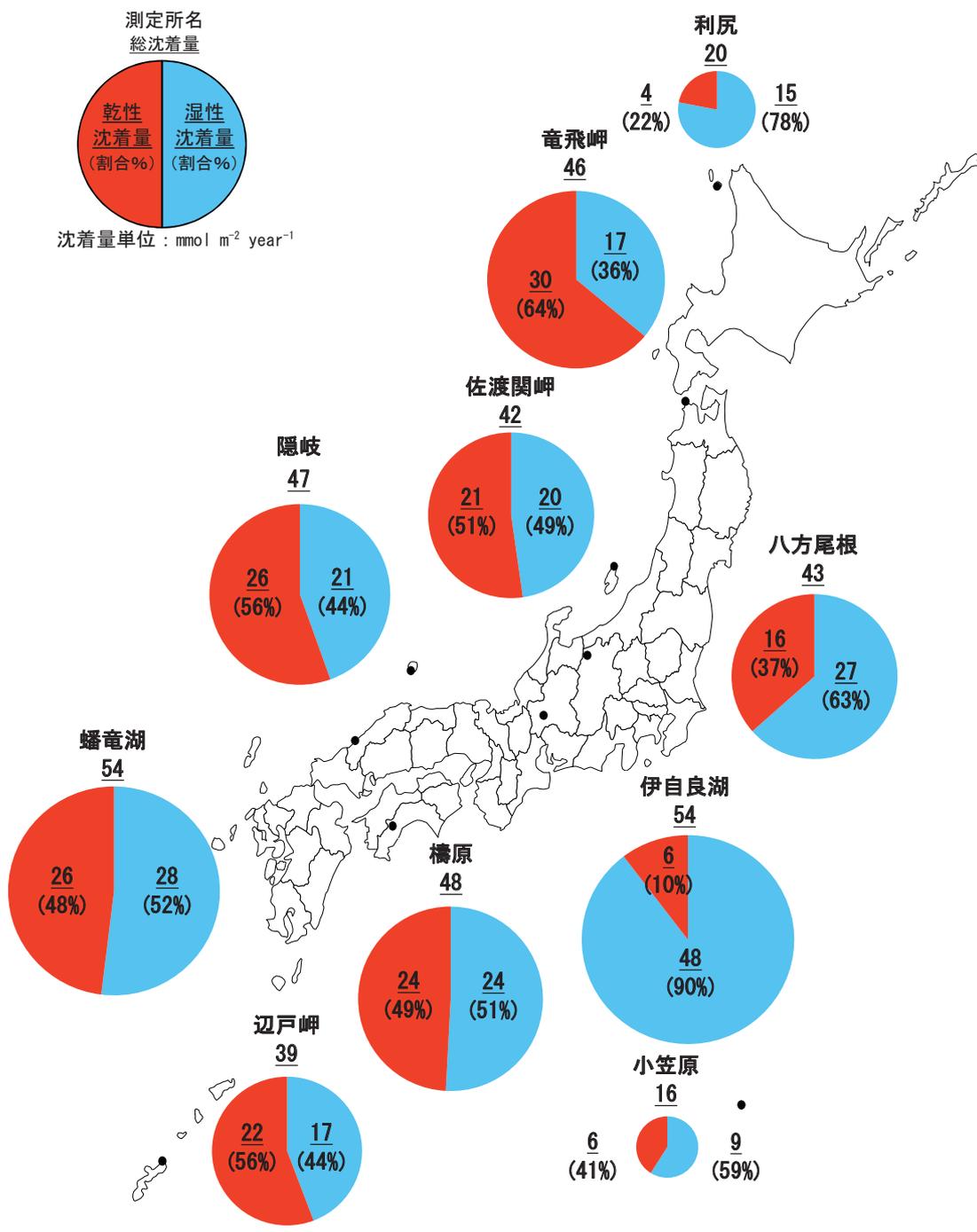


図 3-1-14 硫黄（非海塩由来）の年間沈着量（平成 15～19 年度平均）

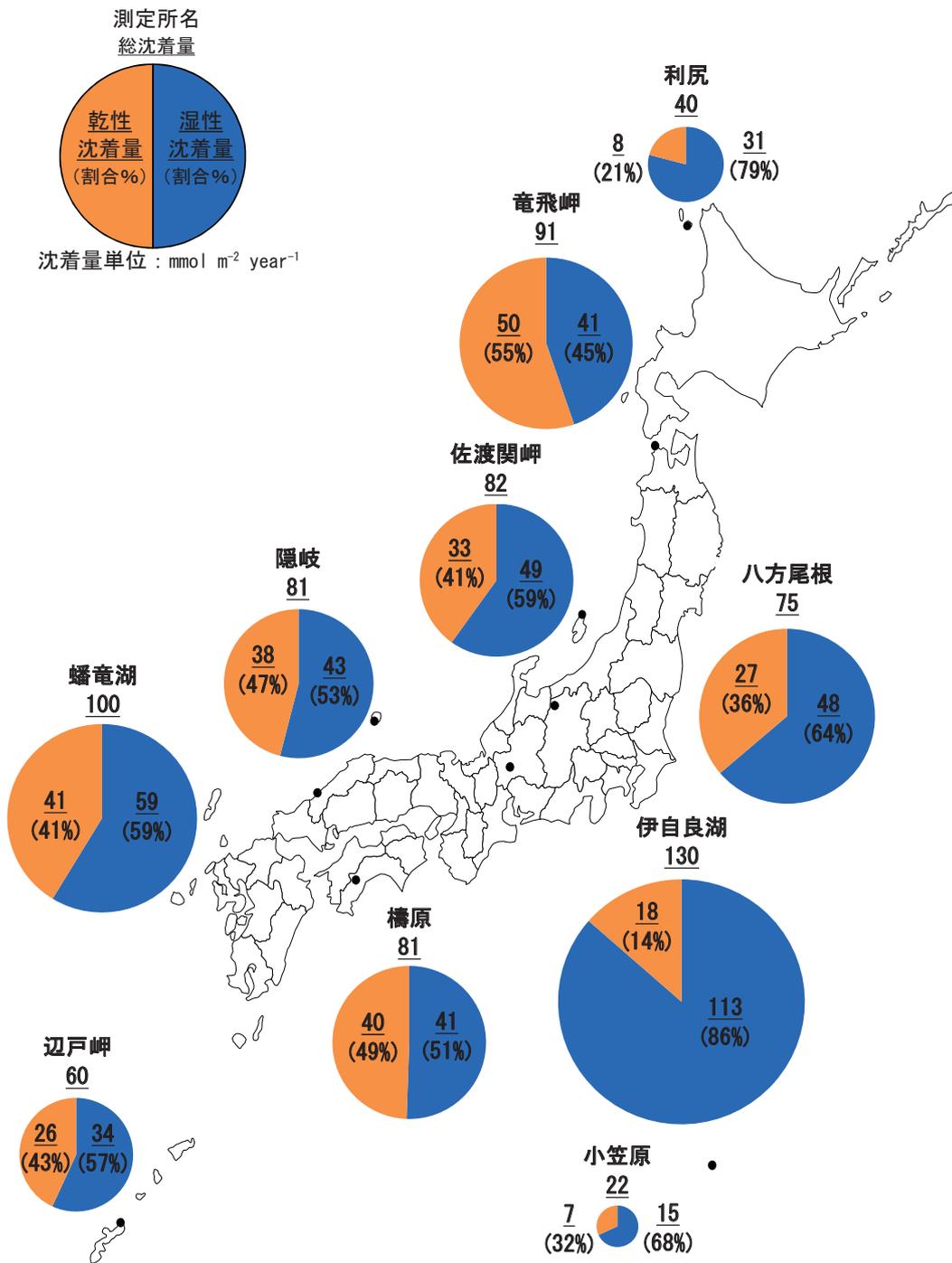


図 3-1-15 窒素の年間沈着量 (平成 15~19 年度平均)

## (2) 低い pH の降水の観測とその原因

### ① 平成 15～19 年度における pH の出現範囲

降水の pH は試料の捕集期間が長くなるほど平均化されるため、低い pH の降水を把握するためには、捕集期間の短い試料のデータを用いるのが適当である。ここでは、平成 15～19 年度に 1 日ごとに降水を捕集した 14 地点（利尻、落石岬、竜飛岬、小笠原、佐渡関岬、八方尾根、越前岬、潮岬、隠岐、構原、対馬、五島、えびの、辺戸岬）の 9,022 試料について、pH の値に対するヒストグラムを図 3-1-16 に示す。最もよく出現した pH は 4.8 であり、個々の pH を単純に平均すると pH4.76 であった。pH の出現範囲は 3.35～8.18 で、範囲幅は 4.83 であった。これは酸の原因となる水素イオンの濃度に換算すると 68,000 倍も異なっている。pH4 未満の試料は 409 試料あり、全体の 4.5% を占めた。

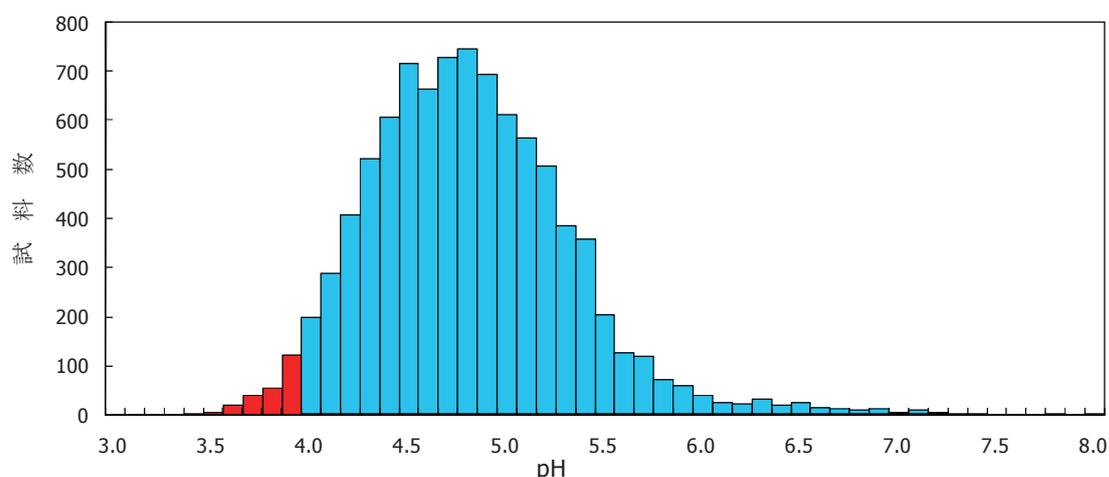


図 3-1-16 平成 15～19 年度における降水の pH 分布（全国 14 地点における日単位捕集）

### ② pH 4 未満の降水が観測された地点と季節

pH4 未満である 409 試料の降水が観測された地点及び季節を考える。

409 試料の降水のうち 240（59%）試料は 14 地点のうち、次の 4 地点でみられた：越前岬、潮岬、構原、えびの（表 3-1-4）。また、遠隔地点である小笠原でも pH4 未満の降水が 3 回観測されている。pH4 未満の降水が観測された季節は冬（12～2 月）の割合が 40% で最も多く、以下、春：24%、夏：19%、秋：17%であった。全国的には季節に関わらず pH4 未満の降水が観測されている。

表 3-1-4 通年及び各季節における pH4 未満の降水の出現頻度

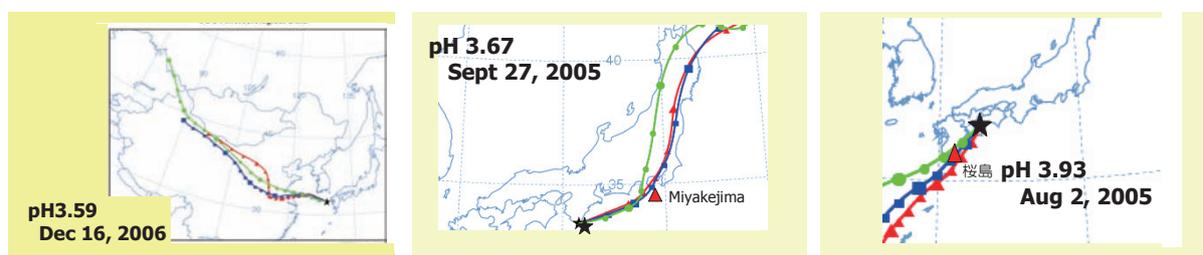
調査地点	通 年			春			夏			秋			冬		
	n	N	n/N(%)	n	N	n/N(%)	n	N	n/N(%)	n	N	n/N(%)	n	N	n/N(%)
利尻	8	670	1.2	2	149	1.3	5	123	4.1	0	178	0.0	1	220	0.5
落石岬	10	472	2.1	4	133	3.0	3	108	2.8	2	148	1.4	1	83	1.2
竜飛岬	22	494	4.5	5	109	4.6	9	132	6.8	3	143	2.1	5	110	4.5
小笠原	3	624	0.5	1	169	0.6	0	125	0.0	0	183	0.0	2	147	1.4
佐渡関岬	16	562	2.8	7	116	6.0	3	162	1.9	4	143	2.8	2	141	1.4
八方尾根	15	879	1.7	6	209	2.9	2	237	0.8	3	226	1.3	4	207	1.9
越前岬	71	872	<b>8.1</b>	15	200	7.5	9	177	5.1	9	182	4.9	38	313	12.1
潮岬	53	679	<b>7.8</b>	10	188	5.3	14	196	7.1	15	172	8.7	14	123	11.4
隠岐	29	669	4.3	8	156	5.1	2	152	1.3	3	148	2.0	16	213	7.5
橈原	67	741	<b>9.0</b>	15	191	7.9	10	218	4.6	12	160	7.5	30	172	17.4
対馬	25	450	5.6	3	115	2.6	8	166	4.8	1	103	1.0	13	66	19.7
五島	28	511	5.5	8	134	6.0	4	152	2.6	3	102	2.9	13	123	10.6
えびの	49	725	<b>6.8</b>	12	203	5.9	8	211	3.8	11	145	7.6	18	166	10.8
辺戸岬	13	674	1.9	2	183	1.1	0	150	0.0	4	171	2.3	7	170	4.1
合 計	409	9022	4.5	98	2255	4.3	77	2309	3.3	70	2204	3.2	164	2254	7.3

n: pH4 未満の降水試料数、N: 全降水試料数、n/N: 通年及び各季節における pH4 未満の降水の出現頻度  
 季節分類: 春 3~5 月、夏 6~8 月、秋 9~11 月、冬 12~2 月に分類

③ pH 4 未満の降水が観測されたときの気塊の起源

ある日時にある地点に存在する気塊がどこから来たのかを後方流跡線解析で評価することができる。降水に係る気塊の移動経路から関連する汚染物質の発生源を探る。

pH4 未満の降水に係る気塊の移動経路は図 3-1-17 の 3 パターンに分類することができた。



(a) 大陸からの気塊 (b) 火山を通過した気塊 (1) (c) 火山を通過した気塊 (2)

図 3-1-17 各イベントの気塊の移動経路

(流跡線は高度別に緑; 3500m、青; 2500m、赤; 1500mを示している。)

ひとつはアジア大陸からの気塊で、図 3-1-17(a)に pH3.59 の降水が五島で観測されたときの例を示す (平成 18 年 12 月 16 日)。この時の気塊は大陸中央部から東シナ海を渡って五島に到着している。他のふたつは火山を通過した気塊で、図 3-1-17(b)、図 3-1-17(c)はそれぞれ潮岬 (pH3.67、17 年 9 月 27 日)、橈原 (pH3.93、17 年 8 月 2 日) の降水で三宅島、桜島を通過した例である。これらの事例解析と化学組成などの考察から、これらの低い pH の降水は大陸からの越境輸送や火山からの放出に起因する SO<sub>2</sub> の寄与によるものと推定される。

また、平成 19 年 12 月 16 日には以下の 5 地点で pH4 未満の降水が観測され、いずれの

地点でも大陸からの気塊が関わっていると考えられた (図 3-1-18) : 越前岬 (pH3.86)、五島 (pH3.59)、潮岬 (pH3.92)、隠岐 (pH3.87)、対馬 (pH3.83)。

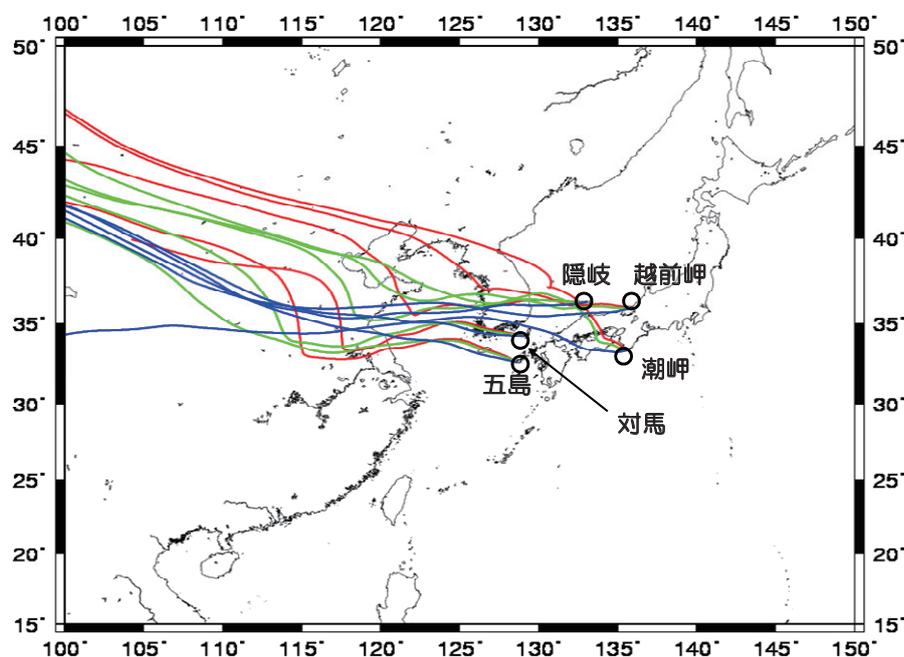


図 3-1-18 全国 5 地点に同じ日に降った pH4 未満の雨と関わる気塊 (流跡線は高度別に緑 ; 3500m、青 ; 2500m、赤 ; 1500mを示している。)

### (3) $O_3$ 、 $SO_2$ 等のモニタリング結果を利用した越境汚染の解析

#### ① 粒子状 $SO_4^{2-}$ 濃度と経度との関係

平成 15 年度から 19 年度における粒子状物質中の  $SO_4^{2-}$  濃度 (以下粒子状  $SO_4^{2-}$  濃度という。) の年平均値の範囲は 15 年度 ( $1.60 \mu g m^{-3} \sim 4.78 \mu g m^{-3}$ 、平均  $3.32 \mu g m^{-3}$ ) (10 地点)、16 年度 ( $0.71 \mu g m^{-3} \sim 5.17 \mu g m^{-3}$ 、平均  $3.38 \mu g m^{-3}$ ) (10 地点)、17 年度 ( $1.36 \mu g m^{-3} \sim 6.98 \mu g m^{-3}$ 、平均  $4.73 \mu g m^{-3}$ ) (10 地点)、18 年度 ( $2.38 \mu g m^{-3} \sim 6.60 \mu g m^{-3}$ 、平均  $4.46 \mu g m^{-3}$ ) (10 地点)、19 年度 ( $2.37 \mu g m^{-3} \sim 6.32 \mu g m^{-3}$ 、平均  $4.46 \mu g m^{-3}$ ) (11 地点) であった (モニタリング地点は遠隔地が主である。)。この濃度レベルは、日本の都市域等における粒子状  $SO_4^{2-}$  濃度とほぼ同レベル ( $2.26 \mu g m^{-3} \sim 6.54 \mu g m^{-3}$ 、平均  $4.45 \mu g m^{-3}$ ) (32 地点) (15~17 年度の 3 年間平均) であり<sup>3)</sup>、日本における粒子状  $SO_4^{2-}$  濃度は、地域における汚染に加え、より広い範囲での汚染を反映していることを示唆するものであった。

図 3-1-19 に観測地点の経度と各地点における 5 年間平均及び年平均の最高・最低粒子状  $SO_4^{2-}$  濃度との関係を示す。粒子状  $SO_4^{2-}$  濃度と経度との間には一定の関係が観測され、アジア大陸に近い観測地点ほど粒子状  $SO_4^{2-}$  濃度は高濃度となることがわかる。主に都市域に位置する観測地点 (32 地点) においても、図 3-1-19 と同様の粒子状  $SO_4^{2-}$  濃度と経度との関係があることが報告<sup>3)</sup>されている (図 3-1-20)。さらに、図 3-1-19 にも示したように、日本

における粒子状  $\text{SO}_4^{2-}$  の濃度レベルは韓国の EANET モニタリング地点における粒子状  $\text{SO}_4^{2-}$  の濃度レベルよりも概ね低いことを示している。

これらのことから、日本における粒子状  $\text{SO}_4^{2-}$  濃度の決定には、地域における汚染に加え、日本全域を含む、さらにはより広い範囲での粒子状  $\text{SO}_4^{2-}$  の生成、移流・拡散、沈着を含めた大気現象が深く関与していることが強く示唆された。

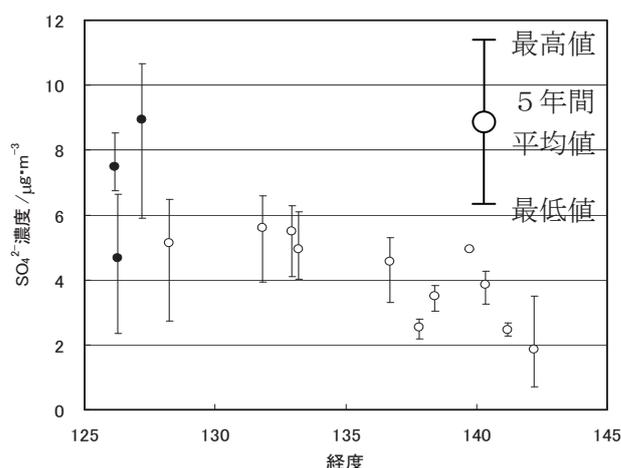


図 3-1-19 主に遠隔地域における観測地点の経度と粒子状  $\text{SO}_4^{2-}$  濃度（平成 15～19 年度）との関係（黒丸は韓国の EANET モニタリング地点を表す。）

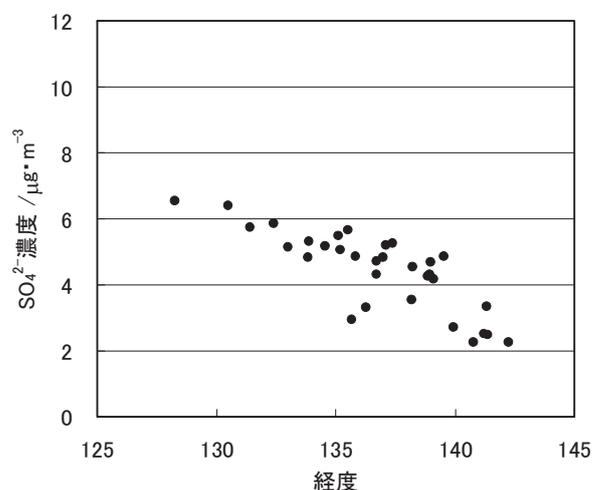


図 3-1-20 主に都市域に位置する観測地点における経度と粒子状  $\text{SO}_4^{2-}$  濃度（平成 15～17 年度の 3 年間平均値）との関係<sup>3)</sup>

② 沖縄辺戸岬における湿性沈着中及び粒子状物質中の  $\text{nss-SO}_4^{2-}$  の挙動について

沖縄県の辺戸岬は、東シナ海上のバックグラウンド地点として位置づけられ、越境大気汚染の影響を把握するのに適した地点である。国設辺戸岬酸性雨測定所及び隣接する国立環境研究所の辺戸岬大気・エアロゾル観測ステーションにおける観測結果から越境大気汚染について解析した。

冬季（12～2月）及び夏季（6～8月）において日単位で捕集された Wet-only 試料（5mm day<sup>-1</sup> 以上）について、流跡線解析プログラム（NIES-CGER METEX）を用いた後方流跡線の解析結果から、輸送経路を冬季は大陸側・その他、夏季は東南アジア側・太平洋側に分類し、各輸送経路の nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 沈着量を求めた（図 3-1-21）。なお、夏季は台風の影響を受けた試料を除いて集計した。

冬季では、後述の北日本地域のトレンドと同様に、大陸側からの nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 沈着量が平成 15 年度頃から増加傾向にあった。一方、夏季では、東南アジア側からの nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 沈着量が増加傾向にあり、nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 濃度は低いが降水量が多いため、沈着量は比較的多く、冬季の沈着量に匹敵する年もあった。以上のことから、日本本土に比較して低緯度で東南アジア地域に近い沖縄では、中国大陸のみならず、東南アジアからの越境大気汚染の影響も受けている可能性が示唆された<sup>4)</sup>。

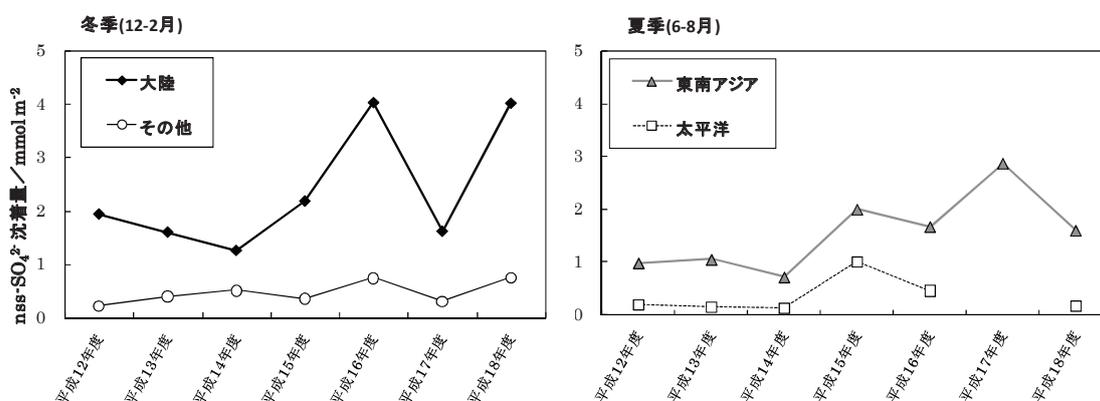


図 3-1-21 後方流跡線を用いて分類した移流別の nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 沈着量の季節別経年変動

また、辺戸岬大気・エアロゾル観測ステーションでは、近年中国などで排出量が増加している SO<sub>2</sub> 及びエアロゾル中の nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>（以下 nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(p) という。）に注目し、濃度を 1 時間ごとに測定している。

図 3-1-22 に、平成 17 年 3 月 12 日から 23 日における SO<sub>2</sub>、O<sub>3</sub> 及び nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(p) の経時変化を示す。3 月 17 日の夜から 3 月 18 日にかけて、辺戸岬酸性雨測定所の自動測定機では SO<sub>2</sub> と O<sub>3</sub> 濃度が増加した。SO<sub>2</sub> は、他の期間では 1ppbv 以下と非常に低いですが、3 月 17 日から 18 日にかけては約 5ppbv 程度まで上昇した。また、O<sub>3</sub> も前日は 40ppbv 程度だったのが、3 月 18 日には 80ppbv 近くまで上昇した。さらに、これと連動して nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(p) 濃度が急激に上昇して 20µg m<sup>-3</sup> を超えた。天気図をみると、3 月 18 日午前 9 時の段階で、前線が沖縄付近を通過して太平洋に移動しており、そのあと、高気圧が北京の南方に移っている。このとき等圧線が南北に走っており、気塊が大陸方面から移流しやすい状況になっている。さらに、NOAA HYSPLIT4 を使って後方流跡線を計算すると、前線通過後の沖縄地方には上海から山東半島にかけての中国の東海岸沿岸地域から気塊が移流されてきていることがわかる。これらのことより、3 月 18 日に観測された SO<sub>2</sub>、O<sub>3</sub> 及び nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(p) の濃度上昇は中国起源の気塊によってもたらされたと推測される<sup>5)</sup>。同様の現象がこのほかにも数回みられ、いずれも中国の上海から山東半島にかけての沿岸部から気塊が到達したときに nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(p) 濃度が高くなっていた。

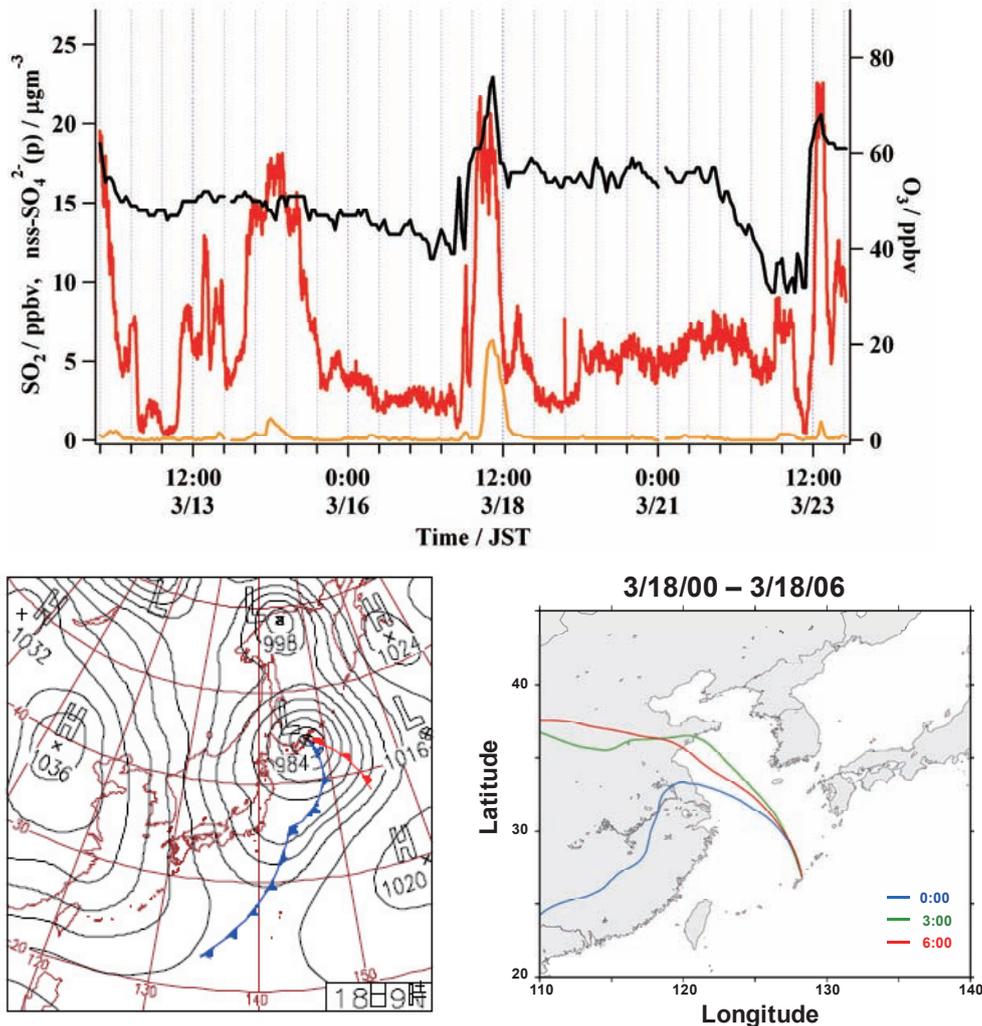


図 3-1-22 上段：辺戸岬酸性雨測定所及び大気・エアロゾル観測ステーションで測定した、SO<sub>2</sub> (黄土色)、O<sub>3</sub> (黒色) 及び nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(p) (赤色) の濃度変動。下段左：3月18日午前9時の天気図。下段右：後方流跡線解析計算結果 (3月18日午前0時、3時、6時を起点とした計算結果。)

### ③ 北日本における湿性沈着成分の挙動について

北海道など北日本地域は、他の地域と比較して降水成分濃度が低めであり、降水量も少ないことから湿性沈着量はあまり多くはない<sup>6)</sup>が、その沈着量に対する中国の発生源の寄与率は全国でも大きいこと、また特に冬季はその影響が顕著となることが報告されている<sup>7,8)</sup>ことから、越境汚染の影響をみるため、北日本の湿性沈着成分の挙動について検討を行った。

主な解析対象は、越境大気汚染の影響を受けやすい日本海側の利尻及び札幌局のデータであり、平成12年の三宅島雄山の噴火の影響を避けるため、13年度以降について検討を行った。降水量、nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub>濃度及びpHの経年変動を図3-1-23に示す。13、14、15年度はいずれもpHはやや上昇傾向にあったが、17年度以降にpHが大きく低下し、同時にnss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>及びNO<sub>3</sub>濃度は増加傾向を示し、nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub>及びH<sup>+</sup>沈着量も同様に増加した(これは前述の

辺戸岬局における冬季の  $\text{nss}\text{-SO}_4^{2-}$  沈着量の経年変動と同様)。これらの湿性沈着の近年の動向は、降水起源を特定できた低 pH (4.2 以下) 試料について後方流跡線解析を行った結果、その起源が大陸に遡る事例が多くみられた<sup>9)</sup>ことなどから、越境大気汚染の影響による可能性が示唆された。

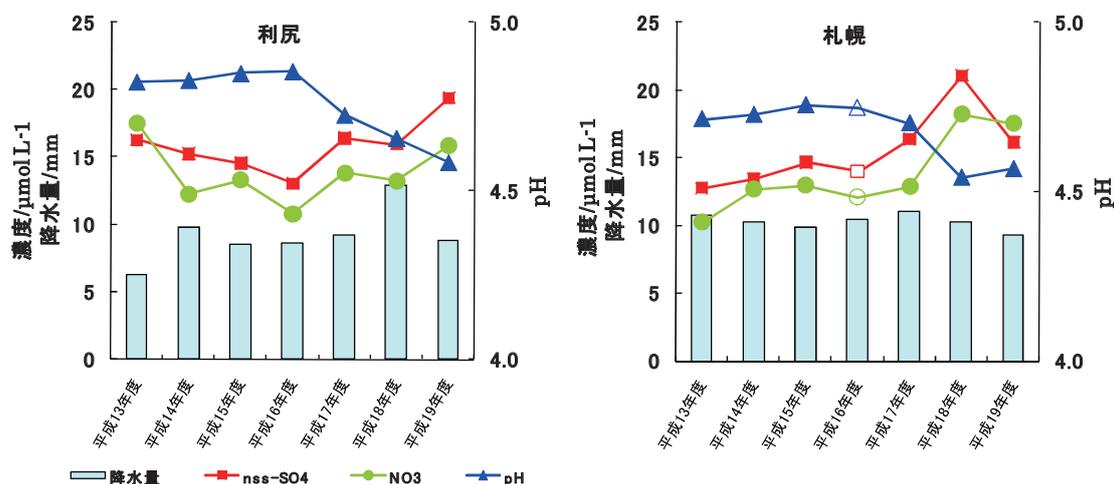


図 3-1-23 北海道における降水量、 $\text{nss}\text{-SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3$ 濃度及び pH の経年変動  
白抜きは年間値の有効判定基準を満たしていないため、参考値である。

#### ④ 黄砂及び $\text{O}_3$ の越境大気汚染状況

平成 19 年 5 月 26 日及び 27 日には東北から沖縄にかけて 50 以上の気象官署で黄砂が観測され、27 日には西日本の 7 県で光化学オキシダント注意報が発令されており、この期間の大気汚染状況について解析した。解析の対象は竜飛岬、佐渡関岬、伊自良湖、隠岐、橈原及び小笠原である。

5 月 25 日から 30 日にかけての  $\text{PM}_{10}$ 、 $\text{O}_3$  及び  $\text{SO}_2$  濃度の推移を図 3-1-24 に示す。

隠岐、橈原、伊自良湖及び佐渡関岬では、26 日から 28 日にかけて  $\text{PM}_{10}$ 、 $\text{O}_3$  及び  $\text{SO}_2$  がほぼ連動した時間変化をし、橈原及び伊自良湖では  $\text{PM}_{10}$  及び  $\text{SO}_2$  が二山型の濃度変動を示した。4 地点ともに期間中の  $\text{PM}_{10}$  最高濃度が約  $300\mu\text{g m}^{-3}$  であり、遠隔地の隠岐及び橈原では期間中の  $\text{O}_3$  最高濃度が 100ppb 以上であった。隠岐・橈原、伊自良湖、佐渡関岬の順に西から  $\text{PM}_{10}$  が最高濃度になっており、26 日から 27 日にかけて地上で卓越していた西寄りの風の影響を受けているものと考えられる。竜飛岬では 26 日に  $\text{PM}_{10}$  と  $\text{O}_3$  の連動した上昇が観測され、 $\text{PM}_{10}$  の最高濃度は約  $70\mu\text{g m}^{-3}$  であった。小笠原では 28 日から 30 日にかけて  $\text{PM}_{10}$  及び  $\text{SO}_2$  がほぼ連動した時間変化を示しており、期間中の  $\text{PM}_{10}$  最高濃度は  $200\mu\text{g m}^{-3}$  を超え、橈原や伊自良湖で観測された二山型が 2 日程度遅れて観測されている。 $\text{O}_3$  については、 $\text{SO}_2$  が検出され始めて  $\text{PM}_{10}$  が高濃度になっている間、濃度が上昇し 50ppb を横ばいで推移した。

松江、新潟及び仙台のライダー\*では、図 3-1-25 の黄砂が PM<sub>10</sub> 高濃度時と同じ時間帯で観測されており、上記の PM<sub>10</sub> の増加は黄砂の影響とみられ、東北から西日本までを覆い、小笠原にまで高濃度で輸送された大規模な黄砂を本モニタリングにより捉えることができたと考えられる。また、この期間は O<sub>3</sub> 及び SO<sub>2</sub> が黄砂と連動して濃度上昇していることや西寄りの風が卓越していたことから、越境汚染の影響を受けているものと考えられる。

\* レーザー光を地上から上空に向けて放射し、黄砂等粒子状物質の垂直分布をリアルタイムで観測する装置。

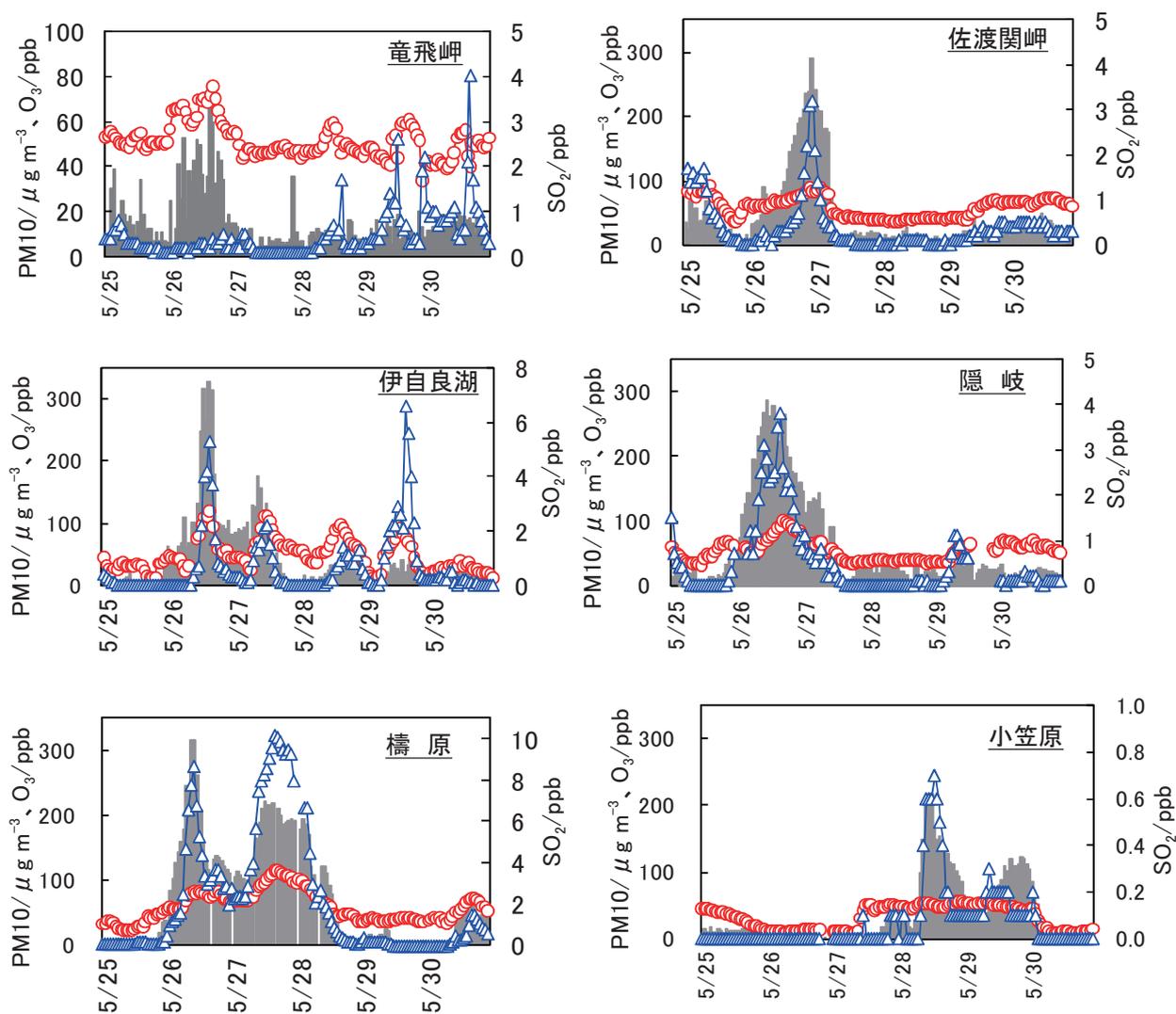


図 3-1-24 PM<sub>10</sub>、O<sub>3</sub> 及び SO<sub>2</sub> 濃度の推移（平成 19 年 5 月 25～30 日）



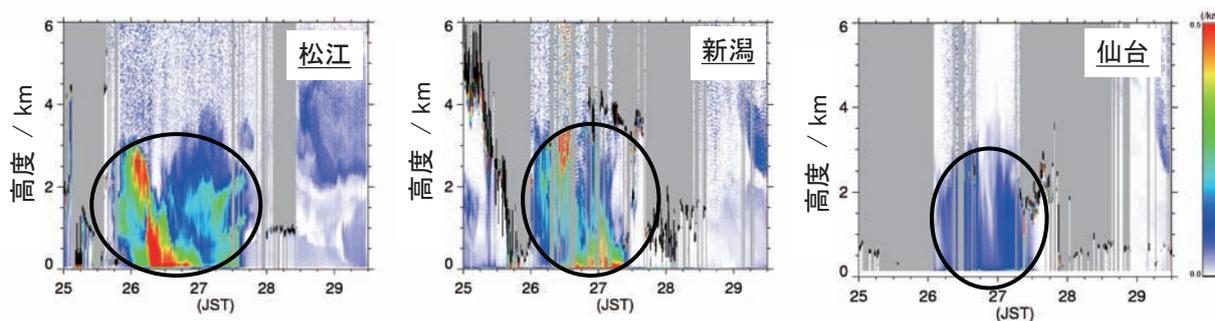


図 3-1-25 松江、新潟及び仙台のライダーによる観測結果（平成 19 年 5 月 25～29 日、丸囲み：非球形粒子（主に黄砂）の観測）

\* 1 国立環境研究所アジア自然共生研究グループ 清水 厚主任研究員 画像提供協力

\* 2 仙台：東北大学及び国立環境研究所による観測結果

(引用文献)

- 1) 松田和秀, 大気中硫黄および窒素化合物の乾性沈着推計-沈着速度推計法の更新-, 大気環境学会誌 43, 332-339 (2008).
- 2) 片山学, 大原利眞, 鶴野伊津志, 原 宏. 日本の  $\text{SO}_4^{2-}$ 沈着量における経年変動のモデル解析 大気環境学会誌 43, 136-146 (2008).
- 3) 藍川昌秀, 平木隆年, 大石興弘, 辻昭博, 向井人史, 村野健太郎, 全国酸性雨調査 (61) -----乾性沈着 ( $\text{SO}_2$  及び  $\text{SO}_4^{2-}$ 濃度から見た地域汚染と半球規模汚染) ----- 第 49 回大気環境学会年会講演要旨集, p.301 (2008).
- 4) 友寄喜貴, 嘉手納恒, 野口泉, 原宏, 辺戸岬における湿性沈着の経年変動(2000~2006 年度), 第 49 回大気環境学会年会講演要旨集, p.303 (2008).
- 5) Takami, A., Miyoshi, T., Shimono, A., Kaneyasu, N., Kato, S., Kajii, Y., Hatakeyama, S., : Transport of anthropogenic aerosols from Asia and subsequent chemical transformation, J. Geophys. Res. **112** D22S31 doi:10.1029/2006JD008120 (2007).
- 6) K. Hayashi, I. Noguchi, M. Aikawa, T. Ohizumi, Y. Minami, M. Kitamura, A. Takahashi, H. Tanimoto, K. Matsuda, H. Hara: Key features of wet deposition in Japan: Results of the Japanese Acid Deposition Survey for 20 years. IGACActivities Newsletter of the International Global Atmospheric Chemistry Project, 33, 2-6, 2006.
- 7) 池田有光, 東野晴行, 伊原国生, 溝畑朗:東アジア地域を対象とした酸性降下物の沈着量測定-モデルの開発および現況再現性評価-, 大気環境学会誌,32, 116 (1997).
- 8) 井上雅路,大原利眞, 村野健太郎, 片山学: 数値シミュレーションモデル RAMS/HYPACT による東アジアにおける硫黄化合物の年間ソース・リセプター解析. エアロゾル研究, 20, pp333-344 (2005).
- 9) 野口泉, 山口高志, 友寄喜貴, 原宏, 北海道における湿性沈着および乾性沈着の経年変動 (2001~2006 年度), 第 49 回大気環境学会年会講演要旨集, p.304 (2008)

# 全国環境研協議会酸性雨全国調査

(全国環境研協議会酸性雨調査研究部会)

## 1. 調査目的および概要

地方公共団体の環境研究所を会員とする全国環境研協議会(以下、全環研)では、日本を網羅する全国調査を平成3年度から共同で行ってきた。環境省が国際的・全国的見地から遠隔地等において酸性雨原因物質の長距離輸送の把握等を目的にモニタリングしているのに対して、本調査は、地域の環境保全の見地から都市域及び田園地域等における酸性沈着の評価・解析に重点をおいているが、第4次調査(平成15-20年度)では、急増する中国のSO<sub>2</sub>およびNO<sub>x</sub>排出量の影響も考慮し、

表1 全環研第4次酸性雨全国調査の概要

これまでの3年間で一区切りの調査期間を3ヵ年延長し、調査を実施しているところである。

第4次調査では、表1に示すように、①国際標準である降水時開放型捕集装置による湿性沈着調査、②フィルターパック法およびパッシブ法による乾性沈着調査を行い、③インファレンシャル法による乾性沈着量および湿

調査対象	湿性沈着		乾性沈着	
	降水時開放型装置による1週間単位の降水試料捕集	フィルターパック法による1週間単位のガスおよび粒子状成分の採取	パッシブ法による月単位のガス状成分捕集	
調査地点数	H15 : 61 地点 H16 : 61 地点 H17 : 62 地点 H18 : 57 地点 H19 : 61 地点	H15 : 32 地点 H16 : 34 地点 H17 : 35 地点 H18 : 28 地点 H19 : 28 地点	H15 : 59 地点 H16 : 61 地点 H17 : 59 地点 H18 : 39 地点 H19 : 34 地点	
データの公表	国立環境研究所地球環境研究センターホームページに掲載			
報告書の公表	全国環境研会誌 30, No.2 (2005); 31, No.3-4 (2006); 32, No.3-4 (2007); 33, No.3 (2008)			

性と合わせた総沈着量の評価を行っている。なお、湿性調査は観測手法および精度保証・精度管理方法がともに環境省調査に準拠し、フィルターパック法は環境省調査およびEANETでも活用されているものである。平成15-19年度の調査結果は次のとおりである。

## 2. 湿性沈着調査

平成15-19年度のpHの全国年平均値は、4.63/4.70/4.58/4.63/4.62(平成15/16/17/18/19年度)であった。地域区分(図1)毎の傾向をみると、pHは冬季の日本海側(JS)で低い傾向がみられた。JSでは、降水量が冬季に多く、nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub>およびH<sup>+</sup>の濃度と沈着量が共に冬季に高い値を示した。一方、他の地域のこれらの成分は、東部(EJ)では春季～夏季に沈着量が多く、中央部(CJ)および西部(WJ)では、濃度は夏低冬高であるが、降水量は夏多冬少であり、沈着量は夏多冬少であった。また、北部(NJ)と南西諸島(SW)では、沈着量が少ないなどの地域的特徴がみられた。

経年変動では、WJおよびJSで冬季におけるnss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>沈着量の増加傾向が認められ、越境汚染の影響が増大している可能性が示唆された。

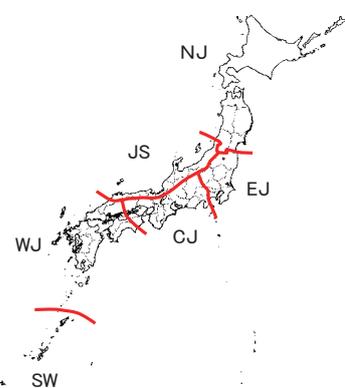


図1 地域区分

### 3. 乾性沈着調査

SO<sub>2</sub>、粒子状 nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、全硝酸成分(HNO<sub>3</sub>+粒子状 NO<sub>3</sub>)および全アンモニウム成分(NH<sub>3</sub>+粒子状 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>)の大気濃度について、湿性沈着と同様の地域別に、5カ年を対象(SW は辺戸岬の3カ年)として、経年変動と季節変動を検討した。経年変動では、WJ の nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>に増加傾向が認められ、汚染物質の移流の影響と併せて今後の推移を注目すべき状況にあった(図2)。その他の5地域では明確な変動傾向は認められなかった。また、nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>以外の3成分については、いずれの地域でも明確な変動傾向は認められず、横ばいで推移していた(全硝酸のみ図3)。季節変動では、SO<sub>2</sub>は冬季に、nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>は夏季に、全硝酸は春季～夏季に、全アンモニウムは夏季に高い傾向が全国的にみられた。

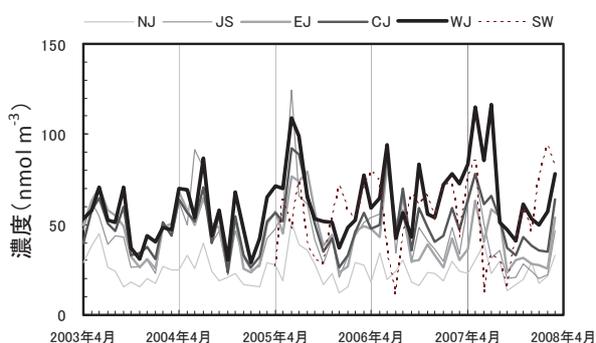


図2 地域区分別の粒子状 nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の推移

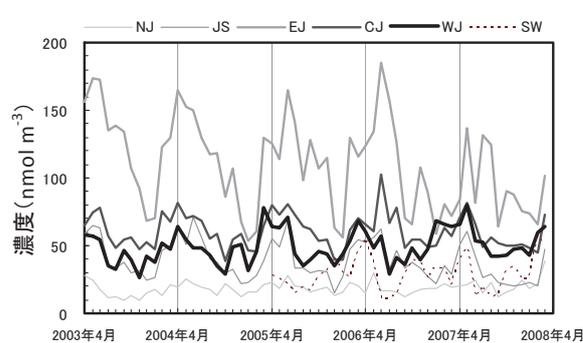


図3 地域区分別の全硝酸の推移

### 4. 総沈着量の評価

硫酸成分(SO<sub>2</sub>、粒子状 SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>)、硝酸成分(HNO<sub>3</sub>、粒子状 NO<sub>3</sub>)、アンモニウム成分(NH<sub>3</sub>、粒子状 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>)の大気濃度から、乾性沈着推計ファイル Ver.3-2<sup>1)</sup>を用いてインファレンシャル法による乾性沈着量(ガス、粒子)の推計を行った。湿性沈着量と合計した総沈着量およびその内訳を、地域区分(図1)毎の平均値として図4に示した。乾性沈着量に占める割合は、ガスが粒子より大きかった。また、概ね湿性が乾性沈着より多く、特に硫酸成分は湿性沈着の寄与が大きかった。硝酸成分及びアンモニウム成分は、硫酸成分に比べてガスによる乾性沈着の寄与が大きく、乾性が湿性沈着より多くなる地点も存在した。総沈着量を地域区分で比較すると、硫酸成分は湿性沈着の多いJS、WJで多く、硝酸成分とアンモニウム成分はNJとSWを除く4地域で多い傾向にあった。

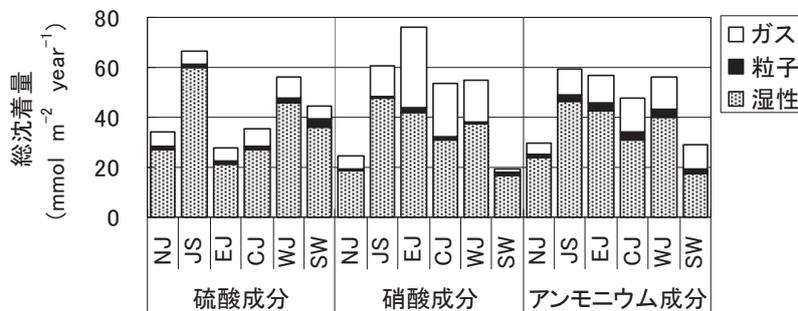


図4 地域区分別総沈着量 (平成18年度)

1) 全国環境研協議会：乾性沈着量推計ファイル (Ver.3-2) , URL: [http://www.hokkaido-ies.go.jp/seisakuka/acid\\_rain/kanseichinchaku/kanseichinchaku.htm](http://www.hokkaido-ies.go.jp/seisakuka/acid_rain/kanseichinchaku/kanseichinchaku.htm), 2007(本方法はさらにバージョンアップする可能性がある)。

## 3.2 生態影響モニタリングの結果

### 3.2.1 土壌・植生モニタリングの結果

#### (1) 平成 15～19 年度における土壌・植生モニタリング結果

本調査では、土壌や植生に関する基礎的データの収集とそれらを含む森林生態系に対する酸性沈着による影響の早期発見を目的として、主に樹木への影響に着目した国立公園特別地域等及び土壌への影響に着目した赤黄色系土壌<sup>1</sup>がみられる地域において、19 地域 25 地点（土壌 50 プロット）のモニタリング地点が設定され、土壌及び森林植生のモニタリングが行われた。

#### ① 調査地点における土壌の酸緩衝能及びその変動要因

我が国の森林土壌は全般的に酸性である。土壌化学性は各土壌の生成要因やその過程によって異なるものであり、人為的影響がない自然環境下においても、酸性土壌は生成され得る。したがって、土壌化学性を評価する上で、経年的な変化の有無とその度合いが重要な判断基準となるが、本節では各調査地点の土壌種を考慮しながら、主に酸性物質に対する緩衝能の評価を行った。土壌モニタリング地点における土壌表層の pH(H<sub>2</sub>O)及び交換性 (Ca+Mg+K)/Al 当量比の分析結果を図 3-2-1-1 に示す。

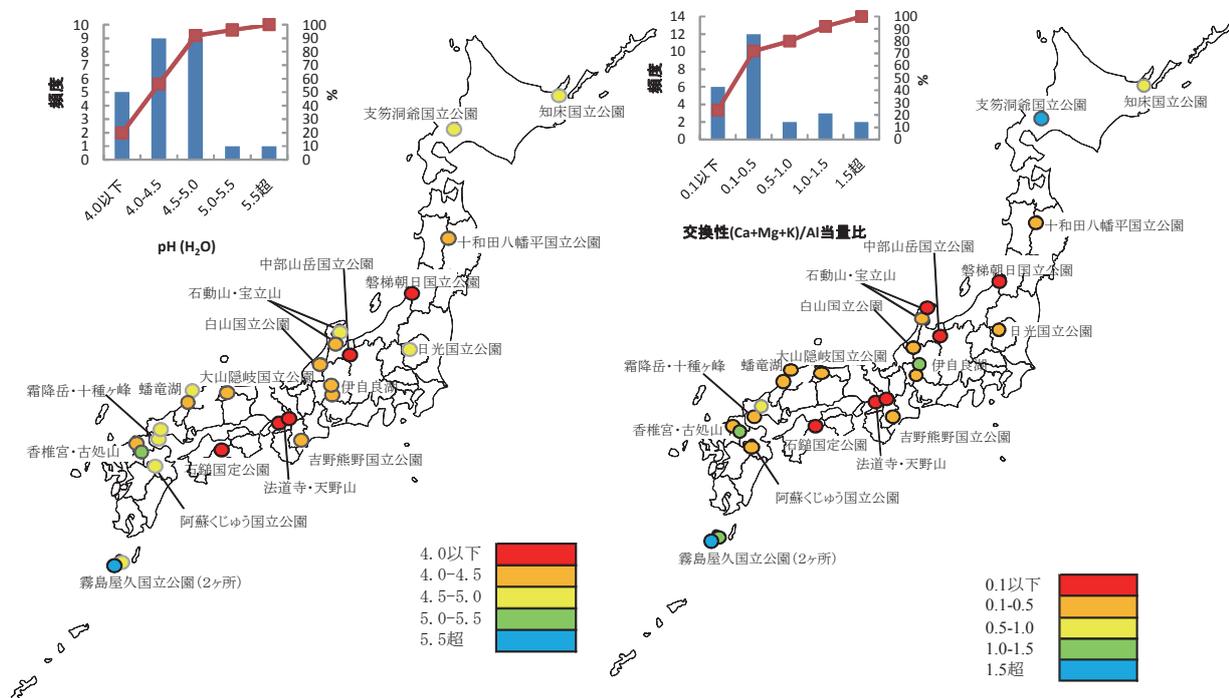


図 3-2-1-1 調査地点における土壌表層の pH (H<sub>2</sub>O) (左) と交換性 (Ca+Mg+K)/Al 当量比 (右)

<sup>1</sup> 酸性沈着の影響を受けやすい (=緩衝能が低い) 土壌種。

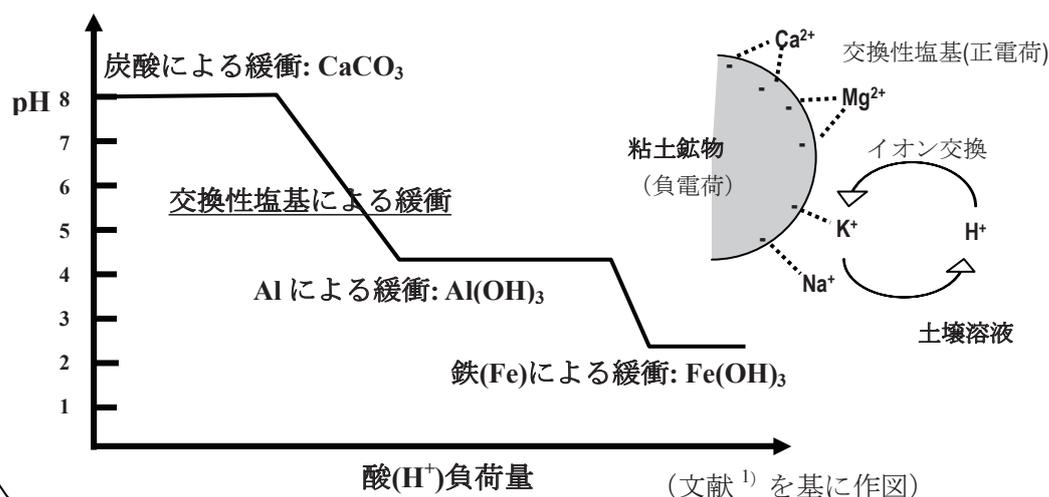
土壌 pH (H<sub>2</sub>O)は、屋久島の照葉樹林、古処山を除き、全ての地点で 5.0 以下であった。特に、磐梯朝日 (褐色森林土)、中部山岳 (ポドゾル性土) の各国立公園と、石鎚国立公園 (褐色森林土)、法道寺 (赤黄色土) 及び天野山 (褐色森林土) では、pH (H<sub>2</sub>O)は 4.0 以下であり、また、pH (KCl)<sup>2</sup>は屋久島の照葉樹林 (4.8)、古処山 (4.5)、日光 (4.1)、吉野熊野 (4.1) を除き 4.0 未満であった。中でも、石鎚国立公園、法道寺、磐梯朝日国立公園では pH (H<sub>2</sub>O) は 3.8、3.8、3.9、pH (KCl)は 3.1、3.2、3.4 という非常に低い pH をそれぞれ記録した。

### 【参考】土壌の種類と酸性沈着への緩衝能

酸性沈着に対する緩衝能は、以下の土壌種の順に弱い。

- ① 赤黄色土：化学的風化作用を強く受けた塩基が少ない Al に富む強酸性の土壌で、西南日本の丘陵地帯や洪積台地上に広く分布している。
- ② ポドゾル性土：湿潤寒冷な亜寒帯針葉樹林下において生成された強酸性の土壌で、北海道北部及び本州、四国、九州の山岳地帯に分布している。
- ③ 褐色森林土：我が国の代表的な森林土壌で全国に分布している。その多くは塩基飽和度が低い (50%未満) 酸性の土壌である。
- ④ 黒ぼく土：火山灰を母材とする有機物に富んだ土壌で、火山山麓に広く分布する。

土壌酸性化過程においては、pH によって異なる緩衝作用が働き、日本の森林土壌の多くが示す pH4 から 6 の間では、主に交換性塩基による緩衝が生じる。土壌溶液中の H<sup>+</sup>は、粘土鉱物表面に保持されていた交換性塩基とイオン交換により土壌に吸着され、植物にとって有用な塩基が溶出する。

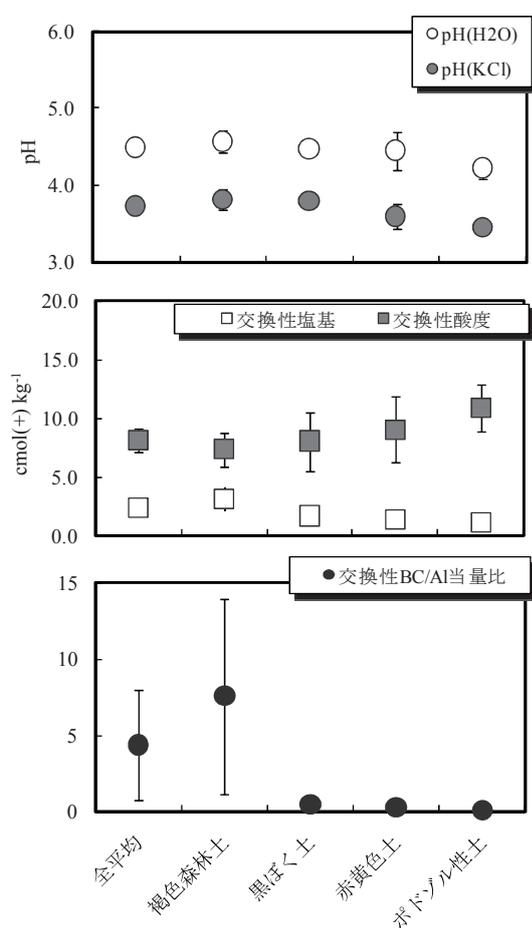


<sup>2</sup> pH (H<sub>2</sub>O)が 土壌:水=1:2.5 の重量割合で混合し測定した pH であるのに対し、pH (KCl)とは、土壌と 1M 塩化カリウム溶液を 1 : 2.5 の重量割合で混合し測定した pH (交換性 Al や交換性 H が浸出され、水の場合より低い値を示す。) であり、土壌の潜在的な酸性度を評価する指標のひとつ。

酸性沈着への緩衝能の指標として考えられる交換性塩基 (Ca+Mg+K) と交換性 Al の当量比 (交換性 BC/Al 当量比)<sup>3</sup>は、pH と同様の傾向を示し、土壌の pH が 4.0 以下と低い天野山、石鎚国定公園、磐梯朝日国立公園、法道寺で、それぞれ 0.06、0.07、0.09、0.09 であった。また、交換性 BC/Al 当量比は、土壌 pH (H<sub>2</sub>O) と pH (KCl) とそれぞれ比較的高い正の相関を示した (r: 0.611, 0.574)。

酸性雨対策調査総合とりまとめ報告書 (平成 16 年 6 月) における解析では、土壌酸性化実験 (室内実験) の結果から交換性 BC/Al 比が 0.1 未満の土壌においては、pH4.0 程度の酸性雨でも土壌溶液組成が変化しうるということが指摘されている。このため、上述した pH、交換性 BC/Al 比が低い地点では、今後、土壌化学性の変化を監視していく必要がある。

調査地点の土壌は、統一的土壌分類体系 (日本ペドロジー学会, 2002) によると、褐色森林土 (14 地点)、黒ぼく土 (4 地点)、赤黄色土 (4 地点)、ポドゾル性土 (3 地点) の 4 つの大群 (土壌種) に分類された。



各土壌種における主要な土壌化学性の平均値及び標準誤差を図 3-2-1-2 に示した。pH (H<sub>2</sub>O) では、ポドゾル性土 < 赤黄色土 ≒ 黒ぼく土 ≒ 褐色森林土の順であったが、pH (KCl) では、ポドゾル性土 < 赤黄色土 < 黒ぼく土 ≒ 褐色森林土の順に低い値を示した。低い土壌 pH を反映し、交換性の酸度は、全ての土壌種において、交換性の塩基 (Ca、Mg、K、Na の和) より 3~10 倍程度の値を示し、特にその差は、ポドゾル性土、赤黄色土で大きく、塩基が少なく酸度が多いことを示していた。

交換性 BC/Al 比は、ポドゾル性土 (0.1) < 赤黄色土 (0.3) ≒ 黒ぼく土 (0.5) << 褐色森林土 (7.6) の順であった。褐色森林土の平均値が大きいのは、上述した屋久島の照葉樹林の土壌が塩基に富んでいるからであり、この地点を除くと、その平均は 1.2 になるなど、褐色森林土ではばらつきが大きく、上述した石鎚国定公園、磐梯朝日国立公園、天野山に代表されるような比較的高い酸性度が高い調査地点も見受けられた。

図 3-2-1-2 各土壌種における主要な化学性

<sup>3</sup> 1M CH<sub>3</sub>COONH<sub>4</sub> 溶液の NH<sub>4</sub><sup>+</sup>によりイオン交換されて抽出される塩基 (Ca、Mg、K など) と 1M KCl 溶液の K<sup>+</sup>により抽出される Al を当量比で表現したもの。土壌酸性化過程においては、塩基の溶脱と Al の活性化が生じ、この比が小さくなる。塩基交換による酸緩衝能の指標のひとつ。

土壌モニタリングは、地域、土壌種（地点）、プロット、サブプロットと、最終的なデータの変動に影響する要因を考慮したサンプリング体系に基づき実施している。図 3-2-1-3 に各サンプリングレベルにおけるデータ変動の累積寄与率を示した。

酸度の指標である土壌 pH、交換性 Al においては、土壌種の違いが全体の変動に大きく影響しており、上述した土壌種による酸度の違いを反映していた。交換性 Ca については、サブプロットレベルと地域の変動の影響が大きく、前者は土壌表面における有機物層の厚さなどの不均一性を反映していると考えられ、後者は土壌種を超えた地質や気候等が大きく影響していると考えられた。

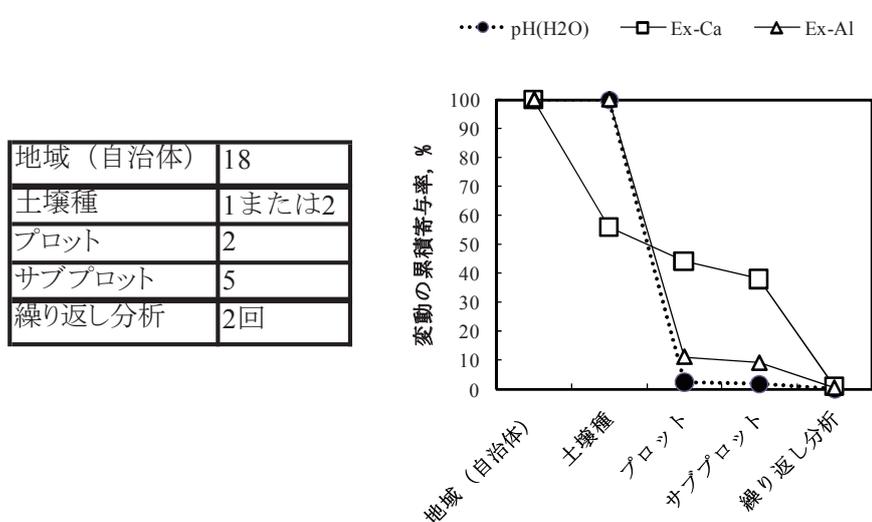


図 3-2-1-3 土壌サンプリング体系(左)と表層土壌の化学性データの分散に対する各サンプリングレベルの累積寄与率(右)

注) 累積寄与率の解析においては、サブプロット・プロットレベルで著しく変動が大きい古処山のデータを除いた。

## ② 土壌酸性化傾向の評価

土壌の調査地点は、ほとんどが平成 13 年度（2001 年度）に設定された地点であり、酸性沈着に対する感受性が高い赤黄色系の土壌が対比される土壌とともに選定されている。長期モニタリング計画に基づく 5 年に 1 度のローリング調査方式により、19 年度（2007 年度）までに、2～6 年の間隔をおいて 2 回目の調査が実施された。表 3-2-1-1 に各プロットの平均値（5つのサブプロットの平均）を比較した結果を示す。ほとんどの地点において明確な酸性化傾向はみられなかったが、石川県の 2 地点において、pH(KCl)の有意な低下がみられた。pH(KCl)は土壌中の潜在的な酸度を反映していることから、何らかの原因により土壌中の酸度が上昇していることが示唆された。また、天野山（大阪府）のプロット 1 では、pH はほぼ同じレベルだが、塩基飽和度や交換性 BC/Al 比で有意な低下がみられた。これらの地点は、交換性 BC/Al 当量比が 0.1 前後と低いことから、上述したように酸性沈着に対する感受性が高いと考えられるため、今後さらに継続してモニタリングすることが重要であ

る。一方で蟠竜湖（島根県）では塩基飽和度や pH(KCl)の上昇、十種ヶ峰（山口県）では pH(KCl)の上昇、法道寺（大阪府）では塩基飽和度や交換性 BC/Al 比の上昇など、逆の傾向もみられた。特に蟠竜湖の周辺においては、近年マツ枯れに関連した施業もあり、周辺状況の変化による影響も考えられた。

表3-2-1-1 赤黄色系土壌における表層土壌(0-10cm)の経年変化

地域・自治体	地点名 ふりがな	土壌種	プロット	調査年	pH		ECEC	塩基飽和度		交換性(Ca+Mg+K)/Al当量比
					H <sub>2</sub> O	KCl	cmol(+) kg <sup>-1</sup>	%		
石川県	石動山 せきどうざん	適潤性褐色森林土	1	2001	4.4	3.7	15.29	8.02	0.08	
				2005	4.3	3.5**	14.82	10.83	0.12	
			2	2001	4.5	3.8	13.16	11.19	0.13	
				2005	4.4	3.5**	13.50	12.38	0.15	
	宝立山 ほうりゅうざん	弱乾性赤色土	1	2001	4.6	3.8	17.17	9.87	0.10	
				2005	4.6	3.6	17.20	8.50	0.09	
大阪府	天野山 あまのさん	赤色系褐色森林土	1	2001	4.2	3.4	9.16	9.07	0.11	
				2007	4.1	3.4	9.03	5.22*	0.06*	
			2	2001	3.8	3.1	11.10	6.55	0.08	
				2007	4.0	3.3	10.47	4.72	0.05	
	法道寺 ほうどうじ	黄色土	1	2001	3.9	3.2	11.29	5.24	0.06	
				2007	3.8	3.1	10.51	9.12*	0.10*	
			2	2001	4.0	3.3	8.31	7.40	0.09	
				2007	3.9	3.2	9.13	8.14	0.09	
	島根県	蟠竜湖 ばんりゅうこ	褐色森林土	1	2001	4.8	3.9	4.30	17.07	0.21
					2006	4.9	3.8	5.13	30.39*	0.53
				2	2001	4.7	3.7	4.86	27.10	0.44
					2006	4.8	3.9*	4.83	21.97	0.33
石見臨空FP いわみりんくうファクトリーパーク		赤色土	1	2001	4.3	3.5	8.56	16.51	0.22	
				2006	4.5	3.7	7.58	15.65	0.21	
山口県	十種ヶ峰 とくさがみね	黒ぼく土	1	2001	4.6	3.8	11.87	10.08	0.12	
				2003	4.5	3.9*	11.43	13.03	0.20	
			2	2001	4.6	3.8	12.22	13.09	0.20	
				2003	4.6	3.9	11.39	10.01	0.13	
	霜降岳男山 しもふりだけおとこやま	黄色土	1	2001	4.9	3.9	5.18	31.14	0.77	
				2003	4.9	3.9	4.87	36.01	0.84	
2	2001	4.8	3.9	4.45	25.95	0.47				
	2003	5.0	4.0	4.05	36.11	0.97				
福岡県	香椎宮 かしいぐう	赤色系褐色森林土	1	2001	4.2	3.4	19.00	13.04	0.17	
				2007	4.1	3.3	18.71	8.57	0.09	
			2	2001	4.5	3.5	27.90	25.03	0.42	
				2007	4.4	3.4	23.62	15.13	0.18	
	古処山 こしょさん	湿性褐色森林土	1	2001	4.8	3.9	14.23	51.29	>1.0	
				2007	4.5	3.6	8.35	40.22	0.84	
2	2001	6.5	5.6	30.54	90.49	>1.5				
	2007	6.1	5.4	25.50	78.40	>1.5				

注. 数値の肩文字、「\*」及び「\*\*」は、サブプロットの平均値について行った t 検定において、それぞれ危険率 5%、1% で有意差があることを示す。

伊自良湖集水域内で、10 年以上土壌調査が継続されているプロットについて、表層土壌（深さ 3-5cm 程度）及び次層土壌（深さ 10-15cm 程度）の pH 変化を図 3-2-1-4 に示した。伊自良湖集水域内においては、平成 2 年（1990 年）に設定された 5 つのプロット全てにおいて、途中変動はあるものの、16 年（2004 年）までの 14 年間に、表層及び次層において pH (H<sub>2</sub>O) が低下した。なお、18 年（2006 年）に調査した土壌（深さ 0-10cm）の pH については、2 プロットの平均が 4.3 (3.9~4.4) であり、継続調査地点と同程度に酸性化していることが確認された。酸度の指標である交換性 Al は表層では多くのプロットで上昇傾向がみられ、次層でも上昇傾向がみられるプロットもあった。

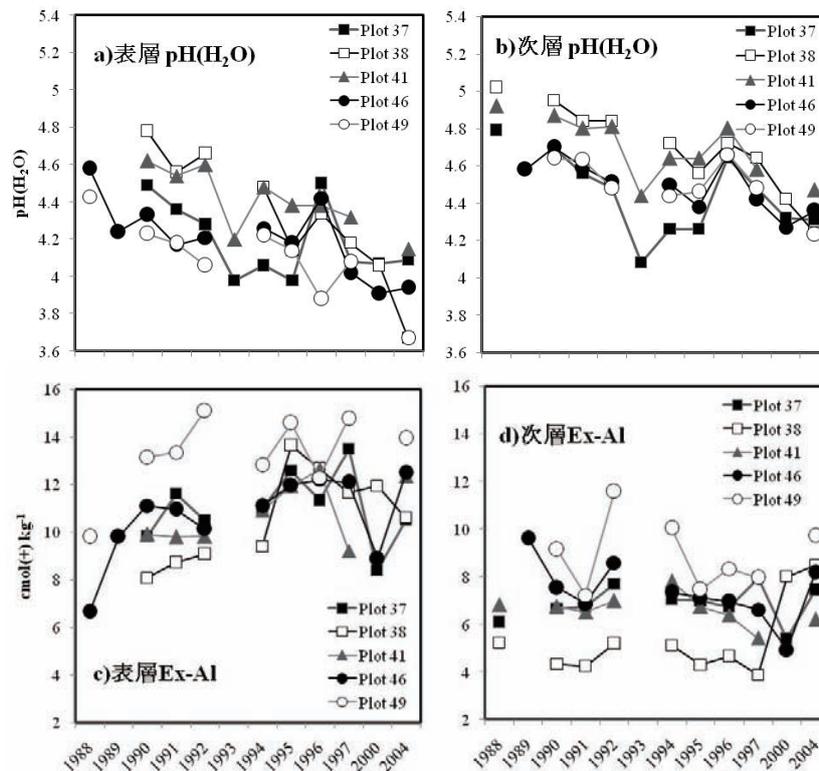


図 3-2-1-4 伊自良湖集水域長期モニタリング地点における土壌化学性の経年変化

表層は深さ 3-5cm ぐらいまで、次層は 10-15cm ぐらいまでの層位。pH(H<sub>2</sub>O)測定においては、土壌と水の比率を、1992 年（平成 4 年）までは 1:5、1993 年（平成 5 年）以降は 1:2.5 として分析した。

伊自良湖集水域内では、3.3 節でも述べるように、H<sup>+</sup>の湿性沈着量が我が国でも最大レベルであり、河川水質にも一時的な SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>流出と pH の低下、継続的な NO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度の増大傾向など、集水域全体の酸性化徴候がみられることから、土壌化学性の変化もその酸性化プロセスの一部として認識できる。土壌 pH は植物の成長期における急激な栄養塩吸収でも低下する可能性があるため、生態系内における H<sup>+</sup>生成と大気由来の H<sup>+</sup>流入のそれぞれの寄与率について詳細に評価する必要はあるが、3.3 節に示されるように、土壌が調査された期間の樹木成長量はむしろ低下傾向にあり、急激な土壌 pH 低下を植物吸収だけで説明することは困難である。本集水域では近年まで間伐がほとんど行われていなかったため、森林管理条件等についても考慮する必要はあるが、湿性沈着量の影響が土壌化学性に発現した可能性が考えられた。表層土壌の pH (H<sub>2</sub>O)は、平均で 3.9 と低いレベルまで低下しており、土壌の緩衝過程においては Al の酸化物や水和酸化物などによる緩衝過程にあり、植物の生長に影響を与える Al<sup>3+</sup>が土壌水中に溶出し得る段階に来ているとも考えられることから、この土壌の酸性化が樹木生理に与える影響についても、今後さらに監視が必要である。

### ③ 樹木衰退状況の評価

樹木衰退度指標として、目視観察によって、それぞれ5段階（枝葉の密度は4段階）で記録された「梢端の枯損」、及び「枝葉の密度」の各調査地点内の平均値を図 3-2-1-5 に示した。衰退度指標は、0（異常なし）から5（枯死）または4（枯死）の段階で記録され、数字が大きい場合に衰退徴候が明確であることを示している。

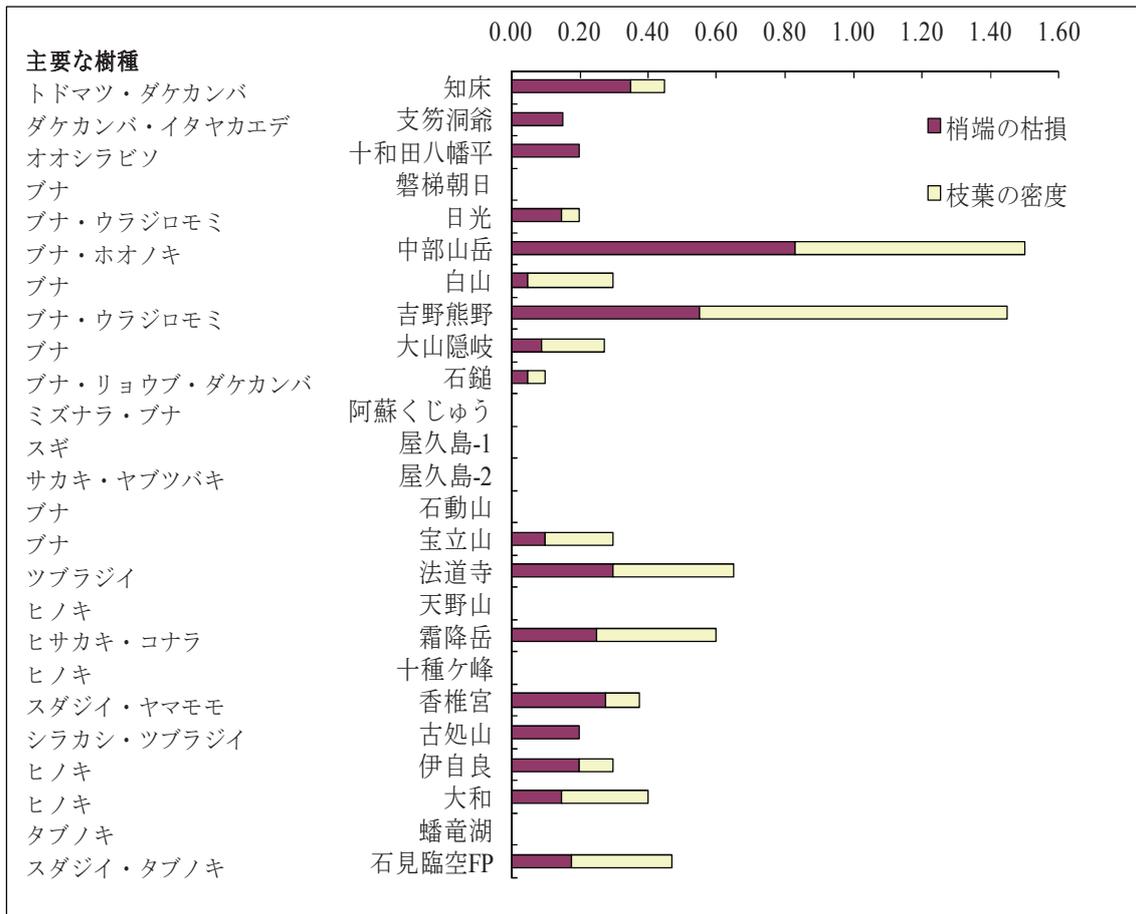


図 3-2-1-5 調査地点における主要な樹種と樹木衰退度（梢端の枯損及び枝葉の密度）の現況（平成 19 年）  
注）グラフは各指標の地点平均の積み上げ値を示す（値が高いほど衰退が著しい）。

全 25 地点の内、17 点で何らかの衰退の徴候がみられた（石動山、天野山については、樹形の変化が記録されているだけであり、図には含まれていない）。2つの指標の積み上げ値が最も高かった吉野熊野国立公園と中部山岳国立公園については、半数以上の樹木に何らかの徴候がみられた。吉野熊野国立公園については、台風が主原因として考えられ、ブナ、ウラジロモミなどに衰退がみられた。中部山岳国立公園においては、ブナ、ホオノキに衰退がみられ、原因不明とされているが、平成 19 年の成長期に降水量が少なかったことが指摘されている。また、他の地点においても、酸性沈着や土壌酸性化が主要因として断定される衰退木は確認されなかった。

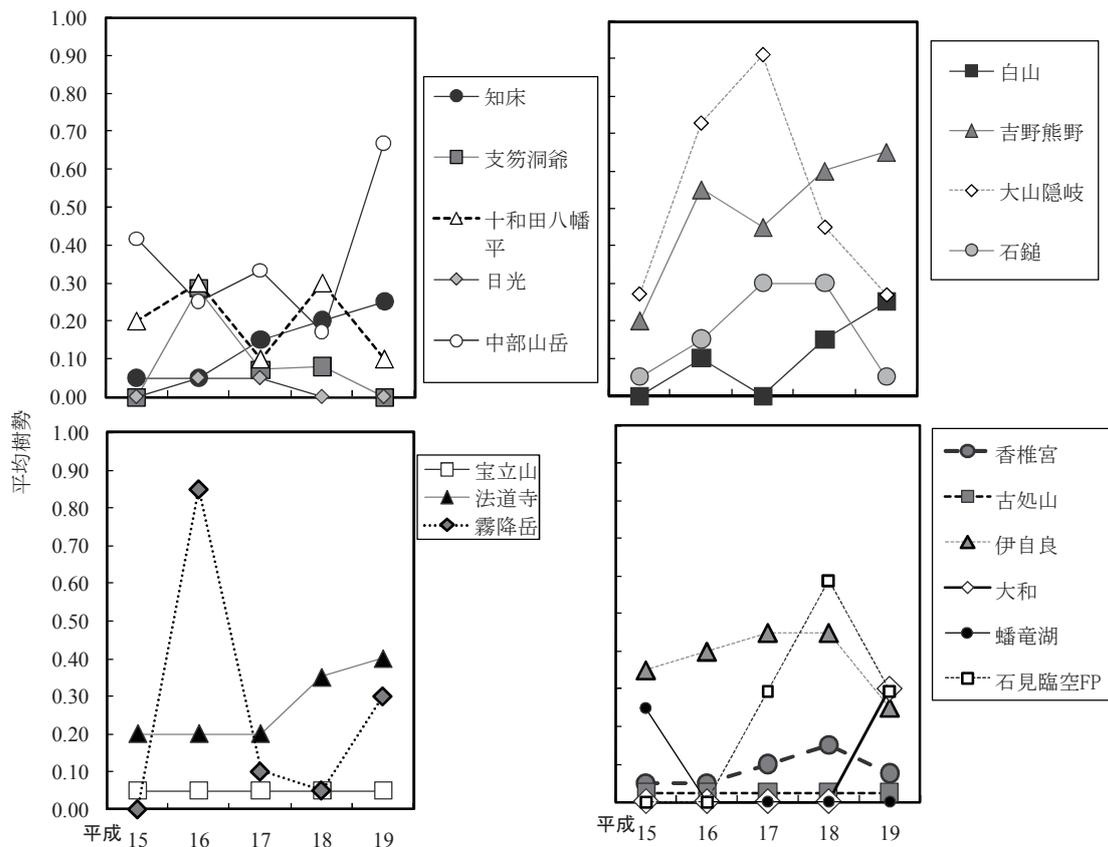


図 3-2-1-6 樹木衰退度（樹勢の衰退）の経年変化（値が大きいかほど衰退現象が著しい）

樹木活性の総合的な指標として記録された樹木衰退度（樹勢）の経年変化を図 3-2-1-6 に示す。支笏洞爺、日光、大山隠岐の各国立公園、石鎚国立公園では平成 16 年から 17 年にかけて進んだ衰退の回復が記録されており、台風害からの回復を示しているものと考えられた。樹木の目視観察においては、台風等の気象イベント、冷夏、干ばつ等の気象条件による変化と、酸性沈着や大気汚染による変化を明確に区別することは困難であるが、従来 3~5 年に 1 回程度しか行っていなかった目視観察を、酸性雨長期モニタリング計画に基づき毎年 1 回行うことにより、気象の影響をより明確に区別できるようになった。伊自良湖では、18 年の調査直後にスギ人工林の間伐施業が行われ、19 年には回復がみられている。

一方で、知床、中部山岳、吉野熊野、白山の各国立公園と法道寺では、徐々に衰退が進んでいるように見受けられる。これらの地域では他の樹木からの被圧や風害などが、推定される主原因だと報告されているが、法道寺は土壌 pH も極めて低いため、今後さらに注意深く監視する必要がある。

なお、森林モニタリングについては、森林総合調査として、毎木調査による樹木の計測や、下層植生の構成に関する調査も実施されており、調査林分の基本的な情報が集積されつつある。現時点では、5 年に 1 回の調査が一巡したところであるが、今後は各地点における樹木の成長量等に関する評価が可能になると期待される。

## (2) データの精度保証・精度管理 (QA/QC)

調査地点におけるプロットの設定や試料の採取方法、実験室の状況については、酸性雨長期モニタリング計画に基づき、酸性雨研究センターが定期的に現地の状況を確認することにより、データの精度が保証されている。土壌分析に関する分析機関間比較調査の結果、分析機関内の繰り返し精度や室内再現精度、機関間の再現精度とも高く、変動が小さいことから、信頼性のある分析値が得られていたと考えられる。

## 林野庁における土壌・植生・降水のモニタリング結果の概略

### 1. 林野庁の「酸性雨等森林衰退モニタリング事業」(1990～1999年の区画調査)

全国を約 20×20km のメッシュで区画して、その中の代表的森林において林分調査と降水・土壌の分析を行った。調査は5年間で全区画の林分を網羅するように行い、各林分において1990～1999年の期間に5年間隔で2回実施した。その結果、降水(6月下旬) pHの平均値は4.6～5.0の範囲で、5年間で大きな変化は認められなかった。また土壌の化学性は、樹種や地域により差がみられたが、平均 pH は5年間で5.1から5.0へと、わずかに低下した程度であった。林分調査では、樹冠の損傷や着葉の異常などの可視的な衰退の有無を調べた(図1)。健全林分は全体の約70%で、残りの30%程度に何らかの症状がみられた。その中で、「不明・記載なし」には酸性降下物に起因するものを含んでいる可能性があるが、5年間の変化は少なく衰退が進行しているとはいえなかった。そのほかには、過密や被圧など林分の手入れ不足が原因の衰退がみられた。

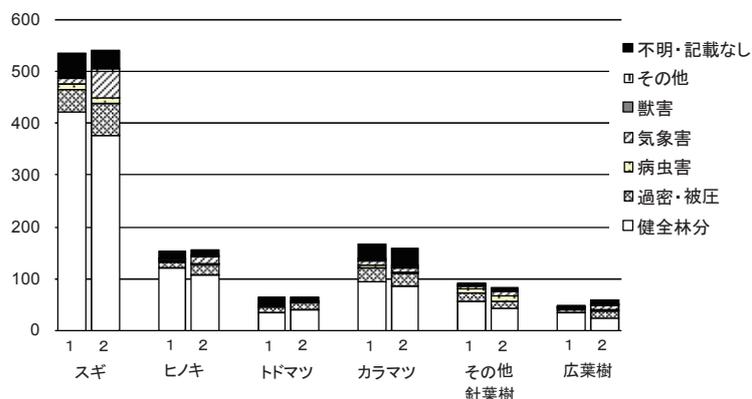


図1 各樹種の可視症状別の林分数

重複あり、1: 1990～1994年 2: 1995～1999年

### 2. 森林総合研究所の降水等モニタリング調査(1990年～現在)

全国7地域にある森林総合研究所本支所のモニタリング試験地を中心に調査を行っており、試験地の設定から始まり、内容を少しずつ変更しながら継続している。現在の主な調査内容は、森林流域における降水と渓流水の観測で、この結果から流域における溶存物質のフラックス収支を解明することを目指している。そのほかこれまで行った調査項目としては、林分及び土壌環境の調査、樹木衰退度調査、林内雨及び樹幹流の観測、などがある。結果の例として、東北における降水の pH・EC の変動を示した(図2)。これまでの調査からは、やや酸性度の強い降水が観測されることはあるものの、明白な森林衰退や渓流水の酸性化に結びつくような結果は得られていない。なお、調査結果のうち1995～2005年の水質データと関連情報をデータベース化し、一般に公開している(URL: <http://fasc.ffpri.affrc.go.jp/>)。

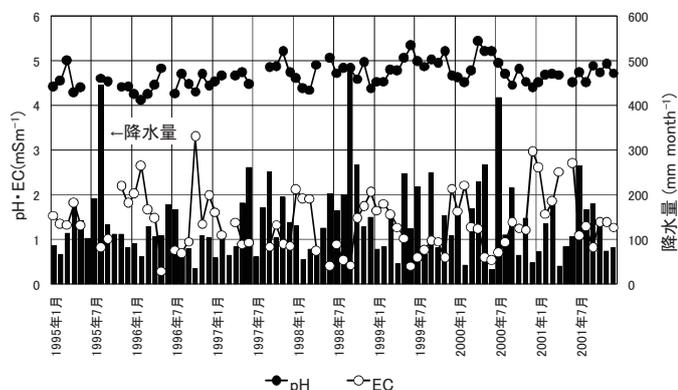


図2 岩手県姫神における1995～2001年の月降水量とpH・ECの変動(相澤ほか2003)

### 3.2.2 陸水モニタリングの結果

#### (1) 平成 15～19 年度における陸水モニタリング結果

本調査では、酸性化に対する感受性の高いと考えられる湖沼及び河川<sup>4</sup>を対象に 11 地点が選定され、モニタリングが行われた。平成 15 年度から 19 年度にかけての調査地点の湖沼表層水及び流入河川水の水質調査結果を表 3-2-2-1 に示した。本調査対象地点の大部分は 0.200 mmol<sub>c</sub> L<sup>-1</sup>以下の低アルカリ度である。双子池（雌池）、夜叉ヶ池、沢の池はアルカリ度が 0.030 mmol<sub>c</sub> L<sup>-1</sup>以下、pH が 5.8 以下で特に酸感受性が高い湖沼であったが、これらを含む、すべての湖沼で酸性沈着の明確な影響は確認されなかった。一方、永富池は他の地点と比べアルカリ度、pH が高かった。山居池、蟠竜湖は海塩の影響を受け Cl<sup>-</sup>や Na<sup>+</sup>濃度が支配的な水質であった。伊自良湖の表層水及び流入河川水は NO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度が全地点中最も高かった。蟠竜湖は他に比べ DOC 濃度<sup>5</sup>が高かった。

なお、参考のために表 3-2-2-1 (b) に各調査地点の集水域の特徴を示す。

表 3-2-2-1 (a) 各調査定点の水質（平成 15～19 年度）

湖沼名	採水地点	pH	EC mS m <sup>-1</sup>	Alkalinity mmol <sub>c</sub> L <sup>-1</sup>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Cl <sup>-</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	Na <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	
					μmol L <sup>-1</sup>								
山形県	今神御池	湖心表層	6.37	3.90	0.071	80.7	*1	175.3	*1	226.1	11.1	26.0	43.3
栃木県	刈込湖	湖心表層	6.91	3.25	0.156	115.2	5.3	20.0	1.4	131.0	14.0	117.8	14.3
長野県	双子池(雄池)	湖心表層	7.02	1.86	0.112	33.4	15.9	11.3	0.7	46.1	6.4	107.4	15.8
	双子池(雌池)	湖心表層	5.73	0.73	0.020	29.3	4.1	10.0	0.7	13.7	4.1	22.1	7.5
新潟県	山居池	湖心表層	6.87	8.49	0.109	92.8	2.1	542.6	1.1	510.9	30.9	81.8	113.8
石川県	大畠池	湖心表層	6.53	4.29	0.134	33.5	8.6	186.5	2.5	197.1	25.8	65.0	70.1
福井県	夜叉ヶ池	湖心表層	5.36	1.64	0.017	42.7	7.5	61.3	4.9	59.7	8.5	20.3	18.2
岐阜県	伊自良湖	湖心表層	7.03	4.24	0.163	108.8	31.0	64.7	3.5	91.9	7.9	153.3	110.7
	釜ヶ谷川	流入河川	6.96	4.43	0.140	136.2	39.6	63.2	*1	93.8	7.3	150.4	122.8
	孝洞川	流入河川	6.72	3.86	0.125	101.6	33.3	68.9	*1	102.5	6.5	100.5	116.5
京都府	沢の池	湖心表層	5.70	1.73	0.021	32.2	*1	83.4	*1	65.7	6.4	30.1	30.6
島根県	蟠竜湖	湖心表層	7.06	10.65	0.166	88.1	1.7	634.3	1.8	605.5	47.6	66.1	141.0
	蟠竜湖 No. 3	湖心表層	7.05	10.60	0.173	89.9	2.1	624.5	1.4	604.4	47.9	72.2	142.5
山口県	山の口ダム	湖心表層	6.64	6.02	0.107	97.8	9.7	285.8	*1	332.4	25.1	65.6	72.2
香川県	永富池	湖心表層	7.34	9.53	0.512	169.5	25.4	155.2	5.2	339.3	25.4	416.4	104.8

\*1：検出下限以下

注：長期モニタリング計画において定められた神浦ダム（長崎県）については近傍の汚染源（廃棄物処分場）の影響等を考慮し、平成 14 年度第 3 回生態影響分科会においてモニタリングを行わないこととされた。

<sup>4</sup> EANET ではアルカリ度 0.200 mmol<sub>c</sub> L<sup>-1</sup>以下、EC 10 mS m<sup>-1</sup>以下の湖沼や河川が酸性化に対して感受性が高いとされているが、我が国においては、より感受性の高い湖沼・河川を特定するために EC は 5 mS m<sup>-1</sup>以下を基準とすべきであると提言されている（酸性雨対策調査総合とりまとめ報告書より）。

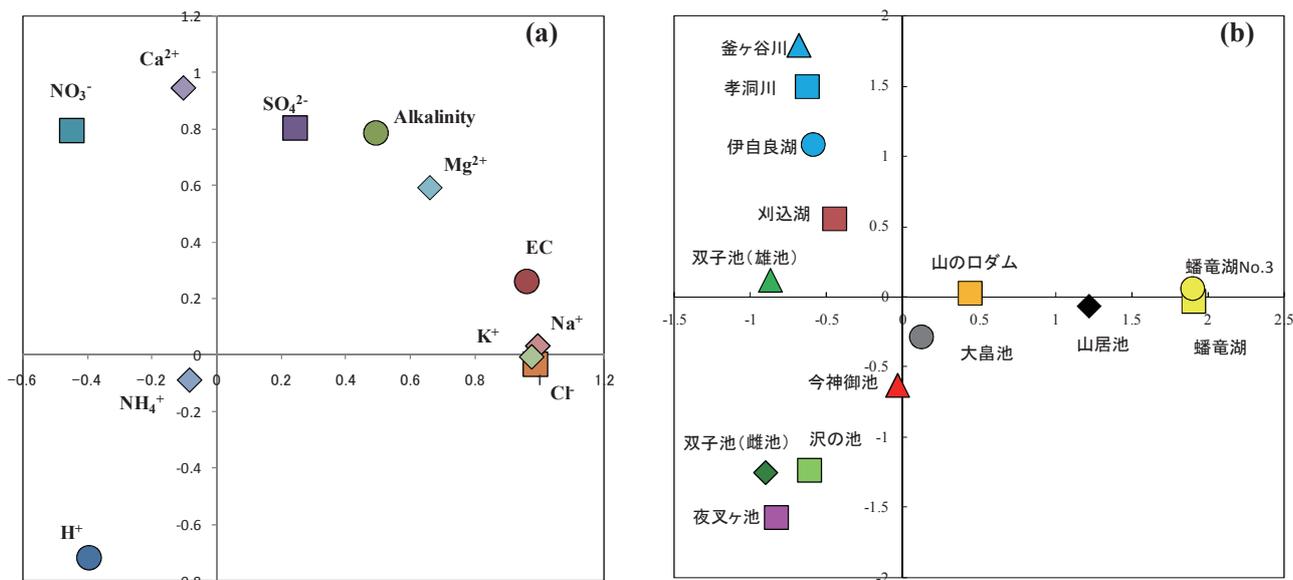
<sup>5</sup> DOC (dissolved organic carbon: 溶存有機態炭素) 濃度は、集水域内からの流入負荷等の有機物及び湖内生産・供給の有機物の指標のひとつ。

表 3-2-2-1 (b) 各調査地点の集水域の特徴

	湖沼名	表層地層	土壌の種類	植生
山形県	今神御池	半固結堆積物（地すべり層）等	乾性ボトゾル化土壌等	ブナ・チシマザサ群落等
栃木県	刈込湖	流紋岩・安山岩	乾性及び湿性ボトゾル等	オシロイソウ・シロソウ・コマクサ等
長野県	双子池	溶岩（横岳溶岩群・双子峰溶岩）	湿性腐食型弱ボトゾル土	ミドリキキョウ・タケカンバ群落等
新潟県	山居池	新第三紀中新世真更川層	褐色森林土壌	ミズナラ、コナラ、クリ等
石川県	大島池	流紋岩及び安山岩質火砕岩石類	乾性褐色森林土壌	クヌギ・ナラ群落とスギ・ヒノキ・ササ植生
福井県	夜叉ヶ池	砂岩・頁岩、チャート	褐色森林土壌	ブナ、オハコモジ
岐阜県	伊自良湖	チャート	褐色森林土壌	針葉樹（アカマツ、ヒノキ、スギ）等
京都府	沢の池	チャート	乾性褐色森林土	アカマツ、コナラ、ツツジ類
島根県	蟠竜湖	第4紀更新世堆積物 礫、砂、粘	残積性未熟土壌	アカマツ、クロマツ
山口県	山のロダム	流紋岩質岩石	褐色森林土壌	コハ・ハツバツツジ、アカマツ群集
香川県	永富池	閃緑岩	乾性褐色森林土壌	クスギ、コナラ、アカマツ等

上記の5年間の全平均値を用いて主成分分析<sup>6</sup>を行い、各水質項目の主成分負荷量(a)、及び各調査地点の主成分得点(b)の結果を図3-2-2-1に示した。第一主成分(X軸)の寄与率は45.0%、第二主成分(Y軸)の寄与率は33.9%であり、この2軸で75%以上が説明された。なお、永富池は他と比べてアルカリ度やCa<sup>2+</sup>濃度が非常に高く、主成分得点(b)の図に配置すると他の地点の傾向が分かりにくくなるため、ここでは分析に加えていない。今回は、アルカリ度が0.200mmol・L<sup>-1</sup>の酸感受性湖沼だけで解析したため、各湖沼・集水域の特徴が詳細に確認された。

図 3-2-2-1 主成分分析における主成分負荷量 (a)、及び各地点の主成分得点 (b)



<sup>6</sup> 複数の変数間の相関を少数の合成変数（主成分）で説明する統計手法。

まず、各水質項目の主成分負荷量(a)については、X軸方向の第一成分は、正の値に EC 及び主なイオン成分が分布しているため湖水中の溶存物質質量を示していると考えられる。また、Y軸方向の第二成分は、Ca<sup>2+</sup>、アルカリ度が正の値であるのに対しH<sup>+</sup>は負の値をとるため、水質の酸性度を示しているが、同時にSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>やNO<sub>3</sub><sup>-</sup>が大きな正の値を取り、これらのイオンの寄与も示していると考えられる。

次に、各調査地点の主成分得点(b)については、山居池、蟠竜湖は水質の酸性度は高くないが、ECやNa<sup>+</sup>、Cl<sup>-</sup>が高くX軸上の正方向に分布しており、海塩の影響を強く受けている。第3象限は水の酸性度が高くかつ溶存イオン濃度が低い酸感受性の高い水質の区分である。第3象限に分布する夜叉ヶ池、双子池(雌池)、沢の池は前述のとおり非常に酸感受性が高く、特に酸性化に関し注意を要する湖沼である。また今神御池も第3象限に位置し、比較的酸感受性が高い湖沼といえる。一方で、伊自良湖集水域は第2象限に位置しており、夜叉ヶ池等と比較すると酸性度は低いが、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>やNO<sub>3</sub><sup>-</sup>の濃度が高く、3.3節で詳述するように、窒素飽和に伴うNO<sub>3</sub><sup>-</sup>の流出や高濃度のSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>流出の影響を受けているものと考えられており、第3象限の地点とは異なる酸性化傾向に留意する必要があると考えられた。また、刈込湖は比較的高濃度のSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>やCa<sup>2+</sup>の影響が強い。

## (2) 陸水の長期的傾向

表3-2-2-2にseasonal Mann-Kendall tests (Hirsch et al, 1982)を用いた長期モニタリング定点における主要成分の長期トレンド解析結果を示した。なお、当該解析は調査期間が長期の地点のみ実施した。

表 3-2-2-2 長期モニタリング定点の湖沼表層水及び流入河川水の陸水化学性長期トレンド解析結果

湖沼名	調査期間	N	Z-score										
			pH	EC	Alkalinity	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Cl <sup>-</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	Na <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	Mg <sup>2+</sup>
双子池(雄池)	1998-2007	30	1.56	1.83	1.35	4.94***	0.52	-0.31	-0.29	2.35**	-1.74	2.18*	1.26
双子池(雌池)	1998-2007	30	-0.98	-1.77	0.73	3.53***	-1.66	-0.73	-1.83	2.94**	-1.84	0.05	-0.64
山居池	2001-2007	27	-1.52	0.95	0.96	0.00	0.24	0.87	-0.78	0.16	-0.48	0.39	0.00
夜叉ヶ池	2000-2007	41	-1.81	-1.10	-2.27*	-1.23	1.55	-2.58**	-0.66	-2.00*	0.97	-1.17	-0.91
伊自良湖	1988-2007	76	-0.74	5.68***	5.45***	0.87	5.43***	2.3*	1.89	0.89	-0.56	3.60***	2.55*
釜ヶ谷川	1988-2007	77	-2.07*	3.28**	1.19	1.03	6.00***	2.49*	-0.11	0.96	-0.05	1.49	1.68
孝洞川	1988-2007	57	-1.00	5.43***	1.66	2.20*	5.36***	2.28*	-0.41	2.87**	1.82	2.20*	3.16**
蟠竜湖	1989-2007	76	2.49*	5.14***	5.63***	-0.47	0.84	4.96***	-1.98*	6.00***	1.16	-0.97	3.61***
蟠竜湖 No.3.	1989-2007	76	2.40*	5.71***	4.60***	0.00	-0.11	4.28***	-1.61	5.61***	0.83	0.13	3.11**

注.\*、\*\*、\*\*\*は、年3～4回の季節毎のデータを用いてseasonal Mann-Kendall testsを用いてトレンド検定を行った結果、それぞれ危険率5%、1%、0.1%で有意差があることを示す。

解析対象地点の中では、釜ヶ谷川(伊自良湖流入河川)でpHの有意な低下傾向(p<0.05)が確認された。釜ヶ谷川では酸性雨対策調査総合とりまとめ報告書で示されたように、96年(平成8年)以降、顕著なpHの低下傾向がみられたが、2004年(16年)以降は横ばい

傾向にある（図 3-2-2-2(a)）。一方、蟠竜湖では pH の有意な上昇傾向が確認された（図 3-2-2-2(d)）。表層水のアルカリ度で有意な低下傾向を示した地点は夜叉ヶ池であり、伊自良湖、蟠竜湖（図 3-2-2-2(e)）で有意な上昇傾向が確認された。

伊自良湖集水域では湖沼表層水及び2つの流入河川水いずれでも、 $\text{NO}_3^-$ 濃度の有意な上昇（ $p < 0.001$ ）がみられた（図 3-2-2-2(b)）。釜ヶ谷川では pH が低下傾向にあるのに対し伊自良湖表層水のアルカリ度は顕著な上昇傾向にあり、また伊自良湖表層水及び孝洞川では  $\text{Ca}^{2+}$ 、 $\text{Mg}^{2+}$ 濃度といった塩基成分も上昇傾向にあった（図 3-2-2-2(c)）。表層水  $\text{SO}_4^{2-}$ 濃度の有意な上昇は、双子池の雄池及び雌池で確認された。雄池では  $\text{Na}^+$ 、 $\text{Ca}^{2+}$ 濃度も有意な上昇傾向がみられた。アルカリ度が顕著な上昇傾向にある蟠竜湖表層水では、 $\text{Na}^+$ 、 $\text{Cl}^-$ 、 $\text{Mg}^{2+}$ がともに顕著な上昇傾向にあった（図 3-2-2-2(f)）。 $\text{Ca}^{2+}$ は明確な長期トレンドを示していないが、海塩もしくは周辺における人間活動に由来すると考えられる成分が顕著な上昇傾向にあると考えられた。図 3-2-2-1 で特に酸感受性が高いと分類された夜叉ヶ池では、 $\text{Na}^+$ 、 $\text{Cl}^-$ の濃度が有意な低下傾向にあった。

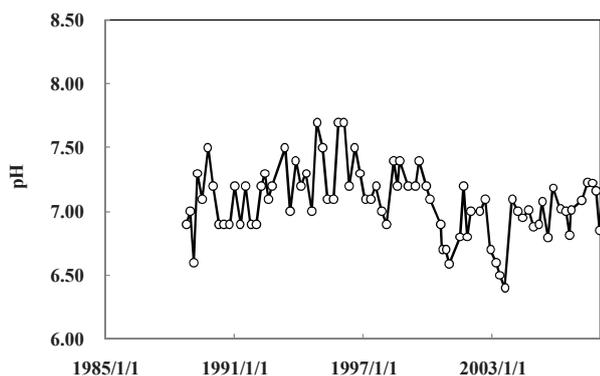


図 3-2-2-2(a)  
釜ヶ谷川における pH 経年変化

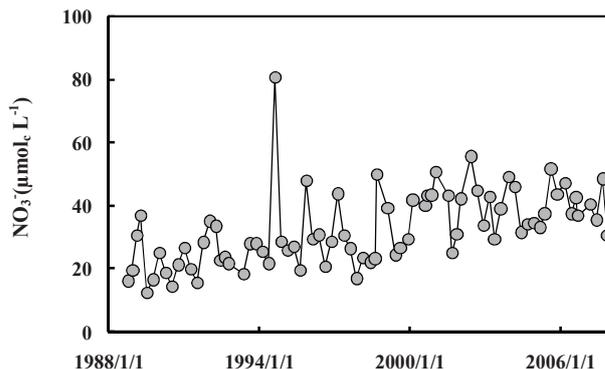


図 3-2-2-2(b)  
釜ヶ谷川における  $\text{NO}_3^-$  経年変化

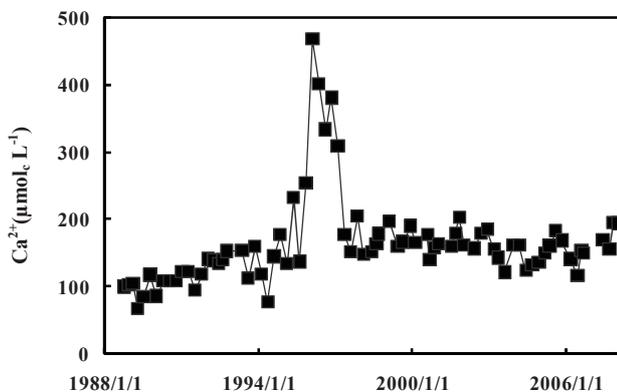


図 3-2-2-2(c)  
伊自良湖における表層水の  $\text{Ca}^{2+}$  経年変化  
1997年（平成9年）頃のピークについては原因不明

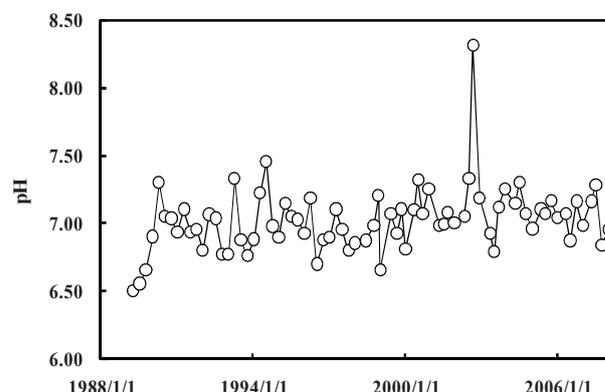


図 3-2-2-2(d)  
蟠竜湖における表層水の pH 経年変化

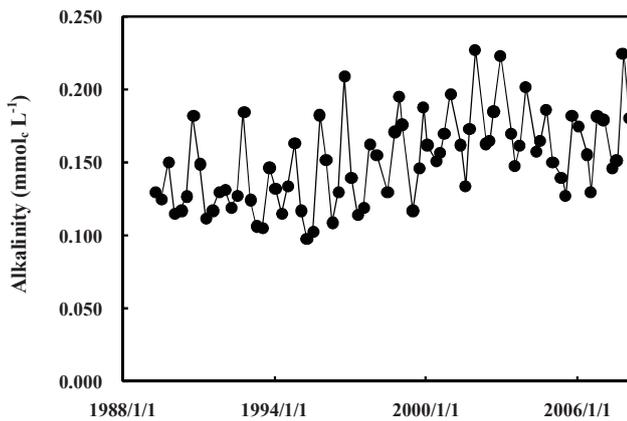


図 3-2-2-2(e)

蟠竜湖における表層水のアルカリ度経年変化

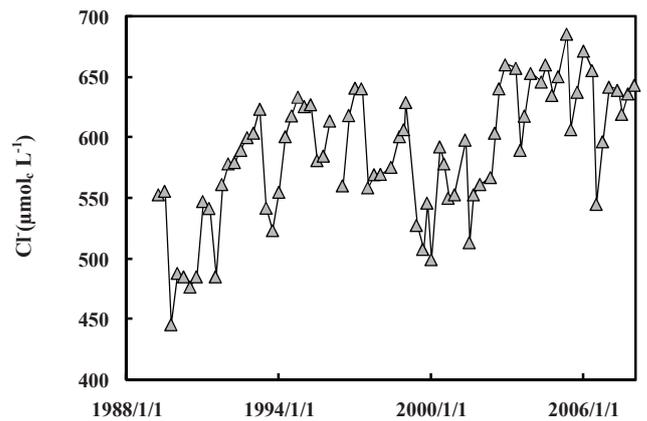


図 3-2-2-2(f)

蟠竜湖における表層水の CI 経年変化

### (3) データの精度保証・精度管理 (QA/QC)

調査地点における試料の採取方法、実験室の状況については、酸性雨長期モニタリング計画に基づき、酸性雨研究センターが定期的に現地の状況を確認することにより、データの精度が保証されている。平成 15 年度から 19 年度までの分析機関間比較調査の比較を、図 3-2-2-3 に示した。いずれの調査でも精度管理目標値を満たすデータが 90% 以上であり、全機関において長期にわたり比較的高い分析精度が確保され続けていた。ただし、成分別にみると、陽イオン成分（濃度が低い、あるいは 2 価の陽イオン成分）が、pH、電気伝導率 (EC)、陰イオンより比較的フラグ<sup>7</sup>が発生しやすく、また実験室間のばらつきも大きい傾向が例年みられた。陽イオン成分の分析精度については今後も注意が必要である。

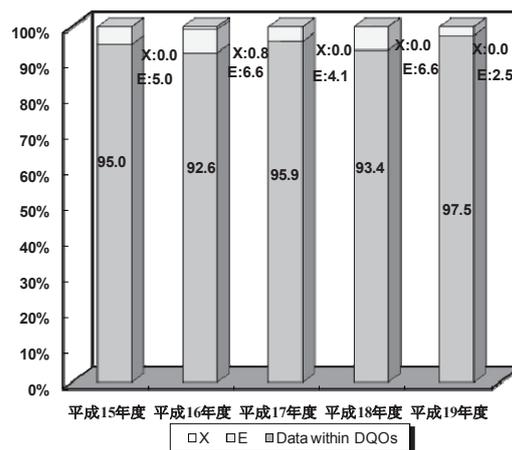


図 3-2-2-3 分析機関間比較調査におけるフラグ数の経年変化

### 3.2.3 酸性沈着の生態影響に対する総合的考察

上述したように、本期間中においては、明確な酸性化傾向や関連する樹木衰退はみられないものの、伊自良湖集水域では、土壌酸性化傾向がみられた。また、pH が 4.0 未満の土壌もみられたことから、今後、さらに土壌酸性化とその影響に関して、注意深く監視、評

<sup>7</sup> DQOs (EANET の精度管理目標値) の 2 倍まで (±15%~±30%) の分析値にはフラグ E を、DQOs の 2 倍 (±30%) 以上を超える分析値にはフラグ X を付けて表した。

価していく必要があると考えられた。3.3節でも取り上げるように、近年、伊自良湖集水域で酸性沈着の影響を示唆する酸性化徴候がみられるなど、土壌や地質の緩衝能が小さいと考えられる地域においては、河川の酸性化傾向も報告されつつある。本項においては、これまでの感受性に関する研究事例を参考とするとともに、全国における土壌や地質の状況を概観しながら、さらに沈着量との関係から、今後酸性化のリスクが高いと考えられる、ホットスポットとなる地域の抽出を試みた。

### (1) 酸感受性地域の抽出

酸性沈着に対する感受性の空間的分布に関しては、環境庁水質保全局・日本土壌肥料学会が、昭和58年に「酸性雨の土壌への影響予察図(1/200万)」を作成した(図3-2-3-1)。これは、酸に対する緩衝能によって土壌を6区分に分けて、その分布を土壌図上で示したものである(緩衝能の区分は、平成6年度の第2次酸性雨対策調査取りまとめ時に、強、中、弱の3区分に改められた)。これによると、酸性沈着に対する緩衝能が弱いとされる、未熟土、赤黄色土、乾性褐色森林土などの土壌は、主に西南日本に分布している。この図による評価は、土壌の緩衝能を基礎としているが、実際には土壌の母材となる岩石・鉱物の化学成分や風化による鉱物の溶解や、生態系(植生)の耐性も、各地域の感受性に大きく関わると考えられる<sup>2)</sup>。

この点を考慮し、吉永ら<sup>2)</sup>は、ストックホルム環境研究所(SEI)法<sup>3)</sup>により、国土数値情報を用いて、酸性沈着に対する日本列島の感受性分布図を作成した。SEI法では、環境要因として地質、土壌、土地利用、降水量の4項目を考慮し、1から5までの5段階で評価しており、年降水量が1200mm以上の針葉樹林で、ケイ酸質の風化速度の遅い岩石を母材とした緩衝能の低い土壌が分布する地点では感受性が高くなる。この方法で得られた感受性が最も高い5を示す点が集中しているのは、花崗岩類の分布地域で、多くは西南日本に分布するなど、上記影響予察図と類似する点も多い。感受性が4を示す地点がまとまって分布しているのも、花崗岩類の分布地域か、北海道道央の針葉樹林帯であった。高い感受性を示す地域には、西南日本以外の花崗岩等酸性岩の分布地域として、紀伊半島、岐阜県を含む中部山地や新潟県北部の朝日山地なども含まれていた。SEI法では、降水量1200mmを閾値としているが、日本ではほとんどの地域で降水量がそれ以上あるため、降水量の増減では地域差は明瞭にはならないことが、問題点のひとつとして指摘されている<sup>2)</sup>。

これらの取組から、感受性の高い生態系として、ケイ酸質に富む花崗岩等酸性岩が多く分布する地域で、未熟土、赤黄色土、乾性褐色森林土等に覆われた森林地域が指摘される。吉永ら<sup>2)</sup>の分布図の範囲には含まれていないが、九州南部の屋久島も花崗岩の島として有名である。植生も考慮されるべきであるが、我が国に多く分布する植林地はほとんどがスギ、ヒノキが植えられているため、植生分布による区分には留意が必要であると考えられる。

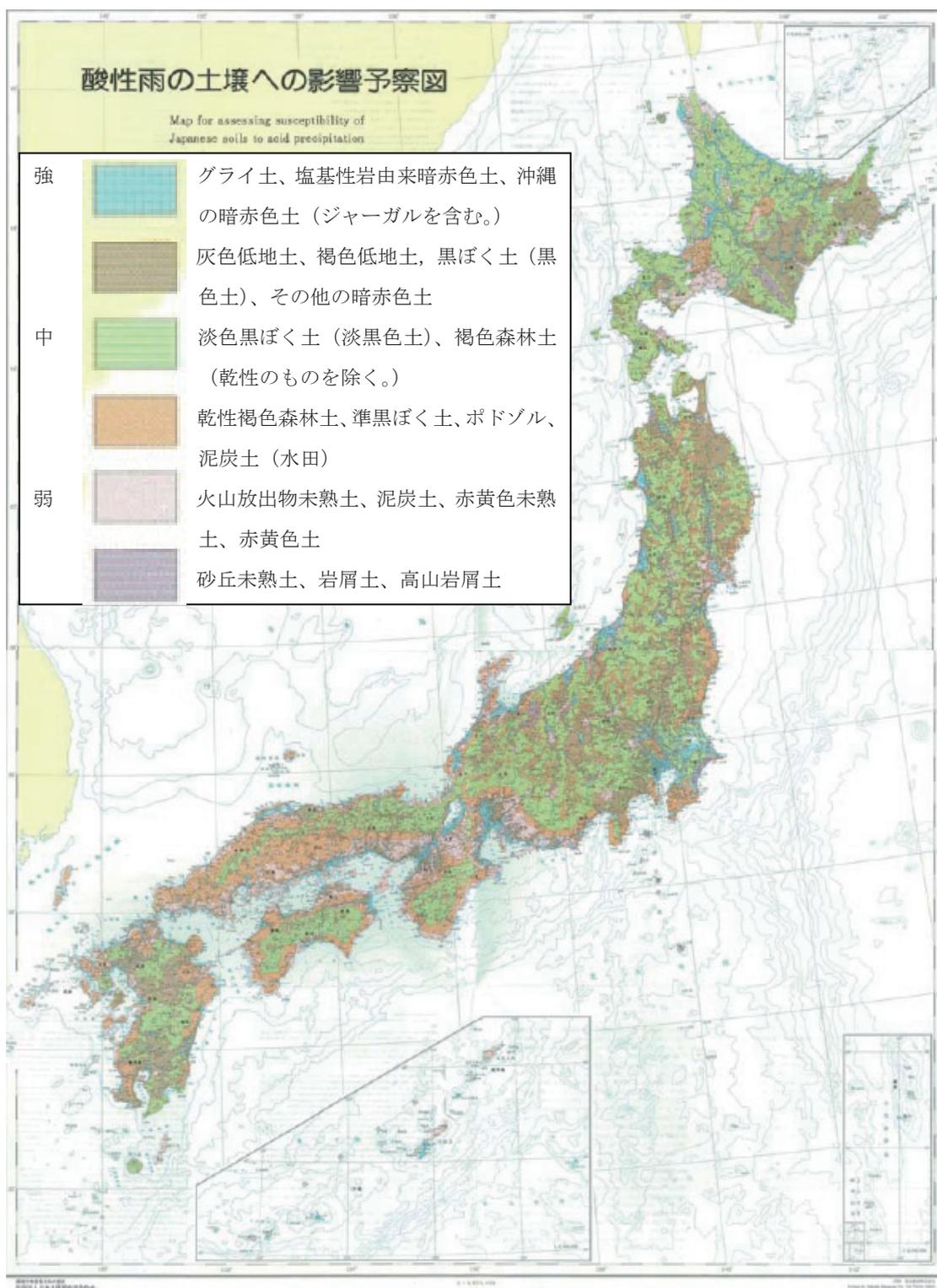


図 3-2-3-1 酸性雨の土壌への影響予察図（環境庁水質保全局・日本土壌肥料学会，1983）

上記、強・中・弱の3段階は、1994年（平成6年）に本予察図を基に再分類した、酸性沈着に対する耐性を示したもの。

## (2) 沈着量の分布

酸性沈着の生態系への影響は、酸に対する感受性が高く、かつ沈着量の多い地域で今後顕在化するものと考えられる。土壌化学性変化には、長い時間がかかることから、高度成長期等の過去における沈着量や積算量等についても、検討する必要がある。過去の沈着量の分布に関するデータは十分でないが、大都市や工業地帯の周辺地域については留意すべきであると考えられる。

全国の湿性  $H^+$  沈着量の分布を図 3-2-3-2 に示した。これは、3.3 節で詳述する広域的な集水域酸性化の可能性について検討するために、環境省による酸性雨調査（平成 10～16 年度）と全国環境研協議会による全国調査（平成 11～16 年度）における全 120 地点のデータを解析したものである。本来的には、

乾性沈着も考慮した総沈着量での議論が必要であるが、現時点では全国的な分布については、湿性沈着の方が充実しているため、ここでは暫定的に湿性沈着量の分布で議論する。ここに示した分布は比較的近年の結果を示しているが、伊自良湖及び静岡の 2 地点を含む中部地方、本州中部日本海側沿岸、四国や九州南部、屋久島などで、湿性の  $H^+$  沈着量が多い。3.3 節で詳述するように、これらの地点の沈着特性は若干異なっており、四国や九州南部、屋久島等の地点においては、比較的濃度は低いものの、降水量が著しく多いため、結果として沈着量が多くなっている。一方、伊自良湖や中部日本海側沿岸地域の地点では、濃度、降水量とも比較的高いため、沈着量が多い。沈着量を論ずる場合に、これらの特性についても考慮すべきであると考えられる。

## (3) 今後着目すべき地域

上述したように、感受性の高い生態系としては、ケイ酸質に富む花崗岩等酸性岩が多く分布する地域で、未熟土、赤黄色土、乾性褐色森林土等に覆われた森林地域が考えられ、新潟県北部、中部地方、紀伊半島、中国地方南部から九州までの西南日本に広く分布していた。湿性沈着量を考慮すると、伊自良湖周辺の中中部地方南部、新潟県を含む中部日本海側沿岸、鹿児島南部、及び屋久島等が、感受性が高く、湿性沈着量が多い地域として抽出

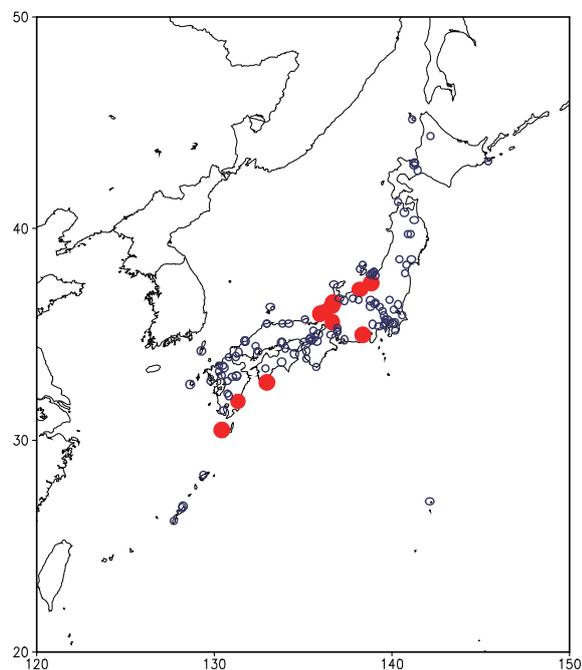


図 3-2-3-2 全国 120 地点における湿性  $H^+$  沈着量の分布 注) 地図中の丸は、環境省及び全国環境研協議会における調査地点を示し、赤丸は上位 10% の地点を示す。

される。3.3 節で詳述するように、岐阜県や新潟県北部では河川 pH の長期的酸性化傾向がみられており、特に新潟県北部では地質との関連性も明確であった。これらの地域では、土壌や河川を含む集水域酸性化に留意する必要がある、過去にデータが取得された地点の再調査も含め、今後土壌の長期的酸性化の可能性について検討が必要である。なお、屋久島においては、土壌層が比較的薄く、地形的特質から表面流出が多いと考えられるため、十分に中和されない水が多量に溪流・河川に流れ込む可能性もあり、土壌よりも溪流・河川及び水生生物により着目すべきと考えられた。

一方で、九州北部から瀬戸内地方では、現時点では湿性沈着量の多い地点として抽出されてはいないが、日本有数の工業地帯であることから、過去の沈着量は相当多かったと見積もられるので、これらの地域についても着目すべきであると考えられる。

また、上記の議論は、主に、土壌や河川を含む集水域酸性化について考慮した場合であったが、土壌を介さない樹木への直接影響を考慮した地域の抽出も重要である。近年のオゾン濃度の漸増傾向や光化学オキシダント注意報発令地域の広域化を考慮すると、オゾン暴露による植物影響について、今後検討する必要がある。各地のオゾン自動測定データを用いた AOT40（コラム参照）の算出や、パッシブサンプラーを活用した森林地域の濃度測定等を通じて、オゾン濃度が樹木に影響する閾値を越えて高濃度となるような地域を特定し、その上で、可視障害観察等オゾン影響に特化した生態系モニタリングの取組を検討する必要があると考えられる。

## オゾンの生態系影響とその評価基準について

オゾンには強い酸化作用があり、樹木の生長や光合成などの生理機能に悪影響を及ぼす。欧米の森林衰退や樹木枯損の原因のひとつとして、酸性沈着や過剰な窒素沈着とともにオゾンが挙げられているが、日本においても、オゾン濃度の上昇傾向や、樹木に悪影響を発生させる可能性がある濃度レベルのオゾンが森林地帯で観測されていることなどから、オゾンは森林衰退や樹木の枯損の原因物質となりうることが指摘されている。例えば、ダケカンバ、シラビソ、オオシラビソなどの衰退が観察されている奥日光やブナが衰退している神奈川県丹沢山地の檜洞丸では、100 ppb 以上の比較的高濃度のオゾンが観測されている。

農作物や樹木に対するオゾンの影響評価においては、欧州を中心にドース<sup>8</sup>の考えを取り入れたクリティカルレベルの概念が導入されている。クリティカルレベルとは、「現時点での知見に基づいて、生態系や材料などの受容体に対して直接的に悪影響を及ぼす可能性のある大気中の汚染物質の濃度」と定義されており、欧州では、40 ppb を超えるオゾン濃度を対象に 40ppb 以下の部分を除外して、

一定期間の積分値として求める AOT40 が採用されている (図)<sup>4)</sup>。ブナに対するオゾン暴露実験の結果を基に、その成長が 10% 低下する 6 ヶ月間の AOT40 である 10 ppm・h がオゾンのクリティカルレベルとして提案されている。一方、米国・カナダにおいては、1 時間値が 60 ppb を超える濃度の積分値である SUM60 (sum of hourly average ozone concentrations > or

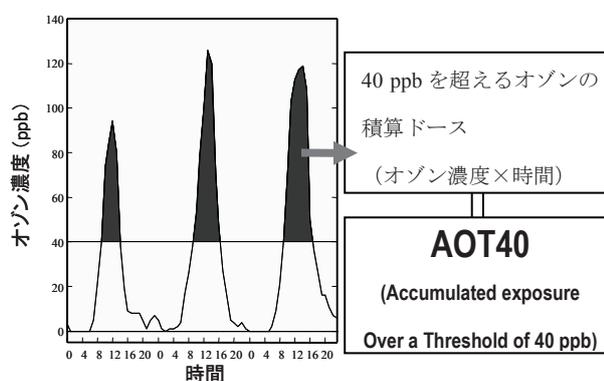


図 AOT40 の算出方法

=60 ppb) を指標としてオゾンの植物影響を評価している。

AOT40 及び SUM60 は、いずれも、オゾン濃度と曝露時間から算出したドースであるが、オゾンは気孔から葉内に吸収され、害作用を発生するため、近年、欧州では気孔を介したオゾンの葉内への取り込みを考慮した沈着フラックスをベースにしたクリティカルレベルが検討されている。例えば、葉からのオゾン吸収速度の閾値を  $1.6 \text{ nmol m}^{-2} \text{ s}^{-1}$  とした一成長期のフラックス積算値である  $2 - 6 \text{ mmol m}^{-2}$  が、オゾン感受性が比較的高い樹木のクリティカルレベルとして提案されている<sup>5)</sup>。現在、オゾンの植物影響に関する研究は、沈着フラックスによる評価が中心となってきており、森林地域における沈着フラックスの直接測定や沈着過程のモデル化によるフラックス推定の精緻化と樹木の応答に関する研究が進められ、より現実的なオゾンのクリティカルレベルの設定が議論されている。

(「増えつづける対流圏オゾンの脅威」より抜粋、一部改編。)

<sup>8</sup> 濃度に時間を乗じて得られる積算値。濃度だけでなく、その曝露時間との関係が重要であることから、植物への影響指標として、算出されることが多い。

(引用文献)

- 1) Ulrich, B 1991. An ecosystem approach to soil acidification. *In*: Ulrich, B and Sumner, M.E. (Eds.) Soil Acidity. Springer-Verlag.
- 2) 吉永ら, 1994.国土数値情報を用いた酸性雨に対する感受性分布図の作成. 日本土壤肥科学雑誌, 65, 565-568.
- 3) Hettelingh et al., 1991. Mapping critical loads for Europe, CCE Technical Report, No.1, p.86, Coordinate Center for Effects, National Institute of Public Health and Environment Protection, Bilthoven, Netherland.
- 4) Ashmore, M. R. and R. B. Wilson, 1992. Critical levels of air pollutants for Europe, background papers for UNECE workshop on critical levels.
- 5) Karlsson, P.-E., G. Sellden and H. Pleijel (eds.), 2003. Establishing ozone critical levels II-UNECE Workshop Report. IVL Report B 1523.

### 3.3 伊自良湖重点調査の結果

#### 3.3.1 伊自良湖集水域における酸性化徴候

平成 16 年に公表された酸性雨対策調査総合とりまとめ報告書におけるデータ解析では、調査地点中、我が国で最も湿性沈着量の多い伊自良湖（岐阜県山県市）の集水域において、その流入河川や土壌に相互に関連した特徴的なイオン濃度の変化が確認された。本節では、とりまとめ報告書で指摘された酸性化徴候とメカニズムに関する議論について概説し、重点調査における論点を明確化する。

##### （1）全国最大級の湿性沈着量

伊自良湖集水域は、調査地点中我が国で最も湿性沈着量の多い地点であることが指摘された。伊自良湖は、第 2 次、第 3 次酸性雨対策調査で重点的な調査が行われた総合（パイロット）モニタリングの 5 地点や、それ以外の酸性雨対策調査地点と比較しても、全国最大レベルにあり、特に  $\text{nss-SO}_4^{2-}$  及び  $\text{H}^+$  の湿性沈着量は全国で最も多かった。また、N の年間総沈着量は約  $19\text{kg-N ha}^{-1} \text{y}^{-1}$  と推定され、欧米において、渓流水への  $\text{NO}_3^-$  流出を引き起こす沈着量の目安である  $10\text{kg-N ha}^{-1} \text{y}^{-1}$  を超えていることも指摘された。

##### （2）酸性沈着の中和能が低い地質・土壌条件と河川水質

伊自良湖集水域内にはチャートが分布しており、地質的に中和能が低い集水域と考えられる。実際に、3.2 節でも述べたように、伊自良湖集水域内の土壌は調査を開始して以来酸性化しており、植物吸収等による酸の生成や森林管理条件等についても考慮する必要があるが、上述した湿性沈着量の影響が土壌化学性に発現した可能性が考えられた。

集水域酸性化には、地質・土壌条件が大きく関連すると考えられる。ケイ酸質で塩基の含量が少ない花崗岩、流紋岩などの酸性岩やチャート、及びこれらの岩石由来の土壌は、酸の中和能が低いことが指摘されている。

河川水質は、集水域内の地質・土壌条件や土壌・植生系における物質循環の結果として、捉えることが可能である。陸水の中和能の指標であるアルカリ度は、 $200\mu\text{mol}_c \text{L}^{-1}$  以下であると酸感受性が高いといわれている。日本の多くの河川のアルカリ度は比較的高く、国内 225 の河川の平均は  $550\mu\text{mol}_c \text{L}^{-1}$  と報告されており、酸感受性が高いと判断される  $200\mu\text{mol}_c \text{L}^{-1}$  以下を示す河川は少ないとされてきた<sup>1)</sup>。一方、伊自良湖集水域は、域内の釜ヶ谷川（伊自良湖への流入河川）のアルカリ度が、約  $120\mu\text{mol}_c \text{L}^{-1}$  と低く、河川水質からも酸感受性が高いと考えられる。

##### （3）冷夏及び干ばつ・酷暑と連動した特徴的なイオン流出

伊自良湖に流入する釜ヶ谷川においては、図 3-3-1-1 に示したように、1994 年（平成 6 年）～1996 年（8 年）頃にかけて、 $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{SO}_4^{2-}$ 、Al の特異的な高濃度流出やそれに追従した pH

の低下傾向が指摘された。NO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度はさらにその後も上昇しており、上述した非常に多いN沈着量の影響を示唆していた。

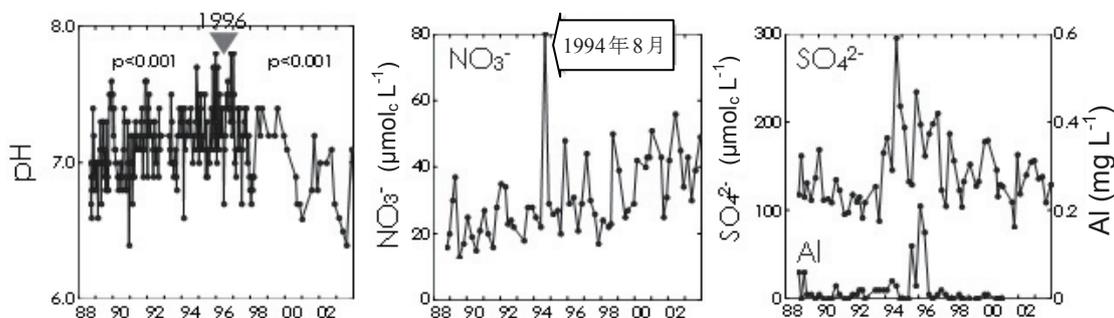


図 3-3-1-1 釜ヶ谷川における pH (左)、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度 (中)、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>及び Al 濃度 (右) の経年変化

同時に、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の流出量はその流入量を上回っていると推定されたことから、過去に蓄積された S が、流出していると考えられた。実際、集水域内の土壌の S 抽出分析結果は、上述した総合 (パイロット) モニタリングの他の地点より一桁あるいは二桁高い濃度であり、S を多く含む土壌であることを示していた。

イオンの高濃度流出後の pH の変化のメカニズムについては、1993 年 (平成 5 年) の冷夏、1994 年 (6 年) の干ばつ・酷暑による樹木成長の低下が N の循環過程の変化をもたらし、河川 pH に影響した可能性が示唆されている。図 3-3-1-2 に伊自良湖集水域内で間伐された樹木の年輪解析から算出した胸高断面積増加量の経年変化を示した。スギ、ヒノキとも、1982 年 (昭和 57 年) 以降と 1994 年 (平成 6 年) 以降に胸高断面積増加量の著しい減少がみられた。

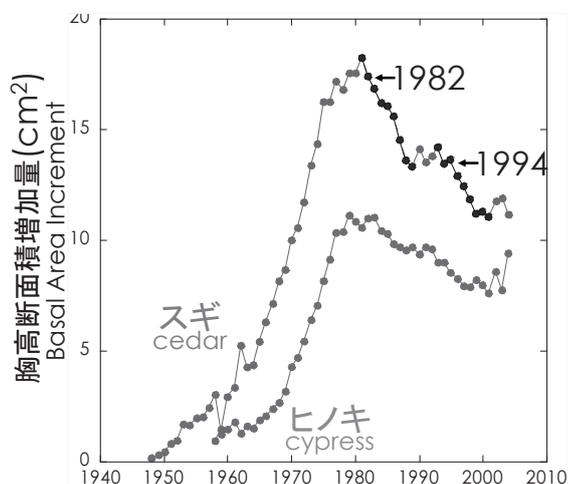


図 3-3-1-2 伊自良湖集水域における胸高断面積増加量の経年変化  
それぞれ間伐木 50 本より平均増加量を算出した。

1982 年 (昭和 57 年) 以降の減少の影響は本調査 (1988 年 (63 年) に調査開始) では明らかではないが、1994

年 (平成 6 年) に胸高断面積増加量が低下に転じたことにより、本集水域内では樹木による N の吸収が減少したことが、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>の河川への流出を引き起こし、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>の流出過程で生成される H<sup>+</sup>の流出が、河川 pH の低下を生じさせたと考えられた。さらに、この NO<sub>3</sub><sup>-</sup>流出の過程には、干ばつで土壌が乾燥化した後に、降水があると微生物活性が急激に高まり土壌

有機物の分解が促進される、いわゆる乾土効果による  $\text{NO}_3^-$  生成も寄与していたと考えられた<sup>1</sup>。この時期を境に、河川中の  $\text{NO}_3^-$  濃度の季節性が失われ、植物による N の吸収が盛んな夏季においても、 $\text{NO}_3^-$  濃度が高くなる現象がみられるようになった。このように、N の循環過程が、 $\text{NO}_3^-$  が河川に流出しやすい状態へと大きく変わり、それに伴って  $\text{H}^+$  が生成し、流出したことにより、河川 pH の低下をもたらしたと考えられた。

また、 $\text{SO}_4^{2-}$  の流出過程については詳細はまだ検討中であるが、同様に干ばつの影響により有機態 S の分解が促進された可能性があった<sup>2</sup>。有機態 S の分解過程でも  $\text{H}^+$  は生成されることから、この過程も河川 pH の低下に寄与した可能性が考えられた。イオン流出がみられた時期以降は、通常は関連性がみられない  $\text{NO}_3^-$  濃度と  $\text{SO}_4^{2-}$  濃度の間に相関関係がみられ、同時に流出したことを示していた。

#### (4) 集水域酸性化プロセスの仮説のまとめ

上述した集水域酸性化とイオン流出プロセスに関する仮説を図 3-3-1-3 にまとめた。酸性沈着の多大な負荷がかかった本集水域の生態系では、気象イベントが引き金になり、物質の循環過程、特に N の循環過程が N を保持できる状態から N を流出する状態へと大きく変化し、集水域の酸性化が進行したと考えられた<sup>2</sup>。そのプロセスは以下のように理解することが可能である。

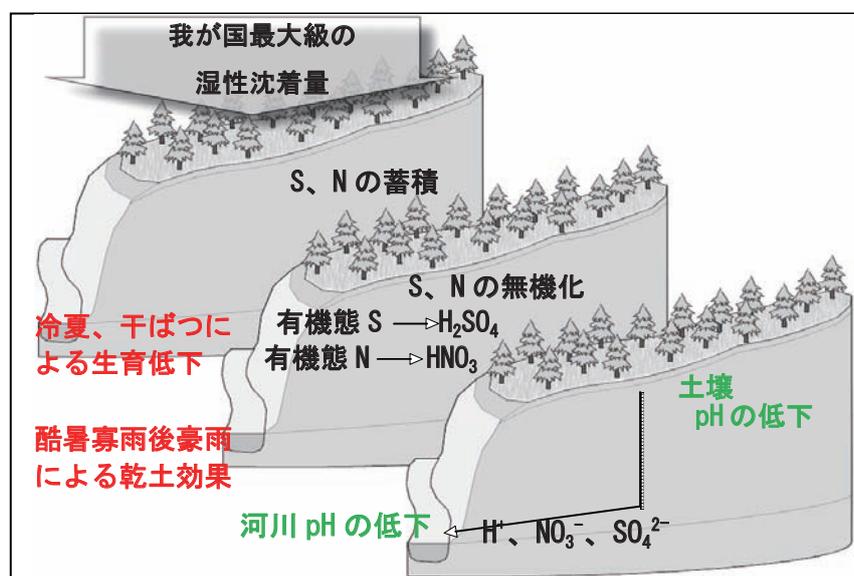


図 3-3-1-3 伊自良湖集水域酸性化とイオン流出プロセスの仮説

- ① 伊自良湖集水域の湿性沈着量は全国最大級である。
- ② 土壌 pH は低下しており、樹木への影響等が懸念される。

<sup>1</sup> 有機態 N は一般式では  $\text{R-NH}_2$  で表され、その無機化過程は次式のように  $\text{H}^+$  の生成を伴う。  
 $\text{R-NH}_2 + 2\text{O}_2 = \text{R-OH} + \text{NO}_3^- + \text{H}^+$

<sup>2</sup> 有機態 S は一般式では  $\text{R-SH}$  で表され、その無機化過程は次式のように  $\text{H}^+$  の生成を伴う。  
 $\text{R-SH} + 3/2\text{H}_2\text{O} + 7/4\text{O}_2 = \text{R-OH} + \text{SO}_4^{2-} + 2\text{H}^+$

- ③ 釜ヶ谷川は地質・土壌条件を反映した低いアルカリ度を示す、酸感受性の高い集水域である。
- ④  $\text{SO}_4^{2-}$ の流出量はその流入量を上回っていると推定され、土壌に蓄積していた S の流出が生じている。
- ⑤ N 負荷量は、渓流水への  $\text{NO}_3^-$ 流出を引き起こすレベルにあり、実際釜ヶ谷川の  $\text{NO}_3^-$ 濃度は現在も上昇を続けている。
- ⑥ N の主要な吸収源である樹木の成長が、90 年代半ばの冷夏、干ばつ等の気象イベントにより低下した。樹木による N の吸収低下と乾土効果により、蓄積していた有機態 N が急激に分解し、 $\text{NO}_3^-$ の高濃度流出を引き起こし、それに伴い集水域内で  $\text{H}^+$ が多く生成、河川に流出し、河川 pH も低下に転じた。
- ⑦ 樹木成長期である夏季でも河川には  $\text{NO}_3^-$ が高濃度で流出するようになった。
- ⑧ 干ばつの影響により、蓄積していた有機態 S の分解が促進されて  $\text{SO}_4^{2-}$ の高濃度流出を引き起こした可能性もあった。

以上のように、酸性雨対策調査総合とりまとめ報告書及びその後の議論によって、伊自良湖集水域における酸性化徴候に関するプロセスは明らかになりつつある。一方で、上記のプロセスを論ずる上では、湿性・乾性を含む総沈着量や集水域単位での生育・吸収量、流入量・流出量の収支の高い精度での推定が不可欠である。酸性雨対策調査においては、乾性沈着が十分に考慮されていなかったこと、河川濃度・流量測定が年4回であったこと、生育調査までできなかったことなど、定量的議論をする上で、必ずしも十分なデータが取得されていなかった点もあった。この問題点も踏まえて、上述した酸性化徴候や提唱された酸性化プロセスを、生物地球化学的な物質循環を基礎として、より定量的に明らかにするために、「集水域の酸性化メカニズム解明調査」が平成 17～19 年度の3年間行われた。

### 3.3.2 重点調査の内容

大気からの流入量（総沈着量）及び河川からの流出量の把握を主要課題として、同集水域内において流入量・流出量調査（現地調査）を行った。また、降雨に伴う増水時の流出特性について集中観測を行い、より詳細な酸性化プロセスについての検討も行った。また、伊自良湖集水域以外でも、山岳湖沼や花崗岩地帯に位置する溪流において、pH の低下やアルカリ度の低下の傾向を示す事例が報告されており、これらの現象についても、長期的な流入量（沈着量）が集水域生態系の許容限度を超えたことによって溪流に酸性化の影響が現れ始めたと考えられることから、全国の降水量・大気沈着量分布や中部日本における河川 pH の長期トレンドなど、既存データの解析を基に、より広域的に大気沈着による集水域酸性化の可能性を検討した。

調査項目は以下のとおりである。

- (1) 流入量・流出量調査（図 3-3-2-1 を参照）

集水域への流入量（総沈着量）及び河川からの流出量を推定することを目的に以下の調査を実施した。

- 林外雨・林内雨・樹幹流<sup>3</sup>・降水量・パッシブサンプラー<sup>4</sup>による二酸化窒素 (NO<sub>2</sub>)
- 河川流出量・水質・水質連続測定（釜ヶ谷川 2 地点、孝洞川 1 地点）

2 週間ごとに捕集・採水し、陽イオン、陰イオンの分析を実施した。また、河川試料については、イオン分析に加え、アルカリ度、全溶解性アルミニウム、SiO<sub>2</sub> 及び全有機態炭素 (TOC)<sup>5</sup>の分析を実施した。なお、流入量については、伊自良湖酸性雨測定所の湿性沈着及び乾性沈着（フィルターパック）モニタリングデータ、並びにパッシブサンプラーによる NO<sub>2</sub> のデータを用いた。

## （２）増水時河川集中観測（平成 18 年 7 月 18 日～20 日、19 年 7 月 13 日～16 日）

降雨に伴う河川増水時における物質流出特性の変化について確認することを目的に、自動採水器を用いて、それぞれ 2 日間の連続水質測定を実施した（1 時間に 1 度採水するよう設定：48 検体）。陽イオン、陰イオン、アルカリ度、全溶解性アルミニウム、SiO<sub>2</sub> 及び TOC の分析を実施した。

## （３）全国の沈着量解析

伊自良湖の湿性沈着量が全国最大レベルなのは、濃度レベルが比較的高いことに加え、降水量が 3000mm にも達することによることが指摘されている。今後の集水域酸性化を論ずる上で、沈着量の面から着目すべき地点を抽出することを目的に、全国アメダスデータ、環境省による酸性雨調査（1998 年度（平成 10 年度）～2004 年度（16 年度））及び全国環境研協議会による全国調査（1999 年度（11 年度）～2004 年度（16 年度））を総合的に解析し、岐阜県伊自良湖の全国的な位置づけや、伊自良湖以外の湿性沈着量の多い地点を抽出した。

## （４）新潟県・岐阜県内の溪流・河川データの解析及び現地調査

長野県では花崗岩等の酸性岩が分布する地域における河川の酸性化傾向が報告されている<sup>3)</sup>。それを参考に、より広範囲な中部日本について集水域酸性化の可能性を検討するため、新潟県、岐阜県の協力を得て、公共用水域における公表水質データを用いて、広域的な河川の長期トレンドについて解析を進めた。

<sup>3</sup> 林外雨：樹木の影響を受けていない林の外の降雨。林内雨：樹木の枝や葉に触れて降下する林の中の雨。樹幹流：樹木や枝に触れた後、枝や幹を伝って降下する雨水。林内雨や樹幹流は、無降雨期間に枝や葉に乾性沈着したガス状・粒子状物質の成分を含んでいると考えられるため、総沈着量を簡易的に見積もる方法として利用されている。

<sup>4</sup> 大気拡散によるフィルター上への沈着過程を利用した大気汚染物質の簡易測定装置。電源を用いないため、遠隔地での一定期間の平均濃度の把握に有効とされている。

<sup>5</sup> 地下水位上昇や表層流による有機態炭素の河川水への流入の指標となる。

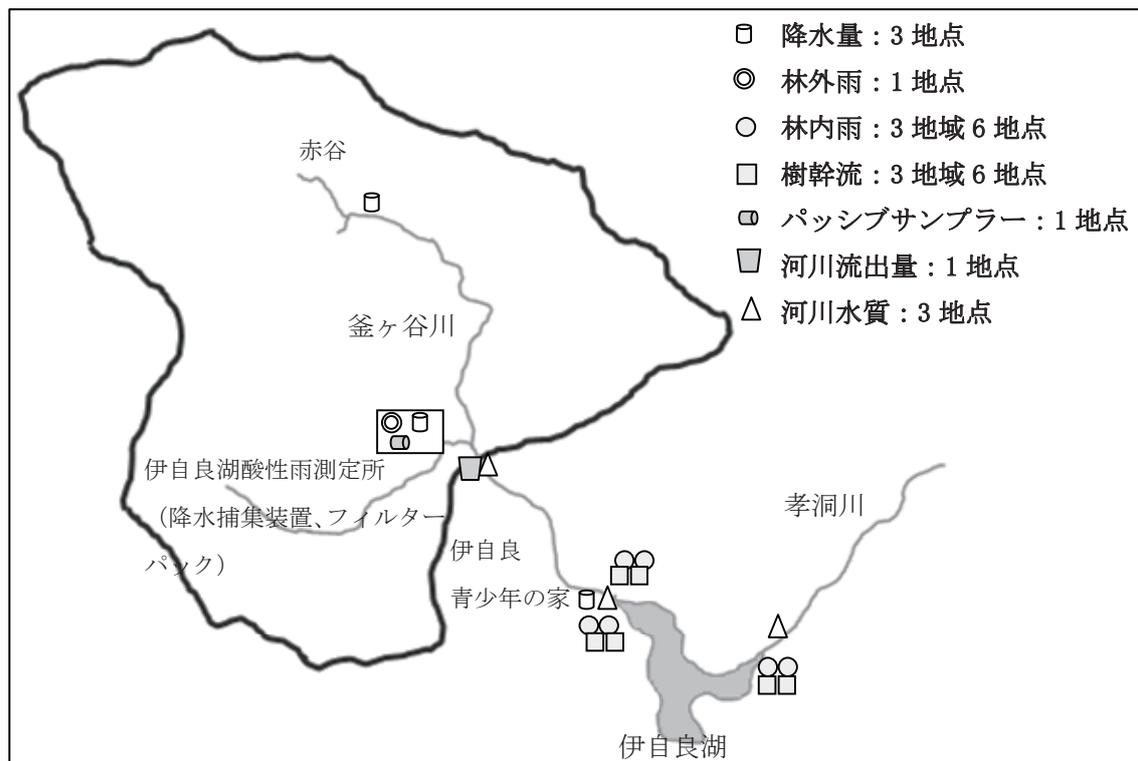


図 3-3-2-1 伊自良湖集水域内における測定機器の設置概略図

実線で囲まれた地域は、本調査において物質収支解析を行った集水域の範囲(約 298 ha)を示す。

### 3.3.3 調査結果の概要

以下には、調査結果のうちから主要な結果について記し概評を示すこととする。

#### (1) 伊自良湖集水域における酸の負荷量とその河川水質への影響評価

##### ①流入量・流出量調査

伊自良湖集水域内における月間降水量と釜ヶ谷川における水位変化(2005年(平成17年)8月~2007年(19年)11月)を図3-3-3-1に示した。ここで示した降水量には、冬季の積雪による降水も一部含んでいる。雨量計は赤谷(上流部)・伊自良湖酸性雨測定所(測定局舎:中流部)・伊自良青少年の家(青少年の家:下流部)と集水域内の異なる標高に設置され、月間降水量の季節変化は3地点で良好な一致を示した。釜ヶ谷川における水位変化は降水量のパターンを反映していた。降水量及び流量(水位)の季節変化に基づいて、両者の少ない11月初旬を水年<sup>6</sup>の区切りとした。

<sup>6</sup> 水の循環を基礎とした1年。

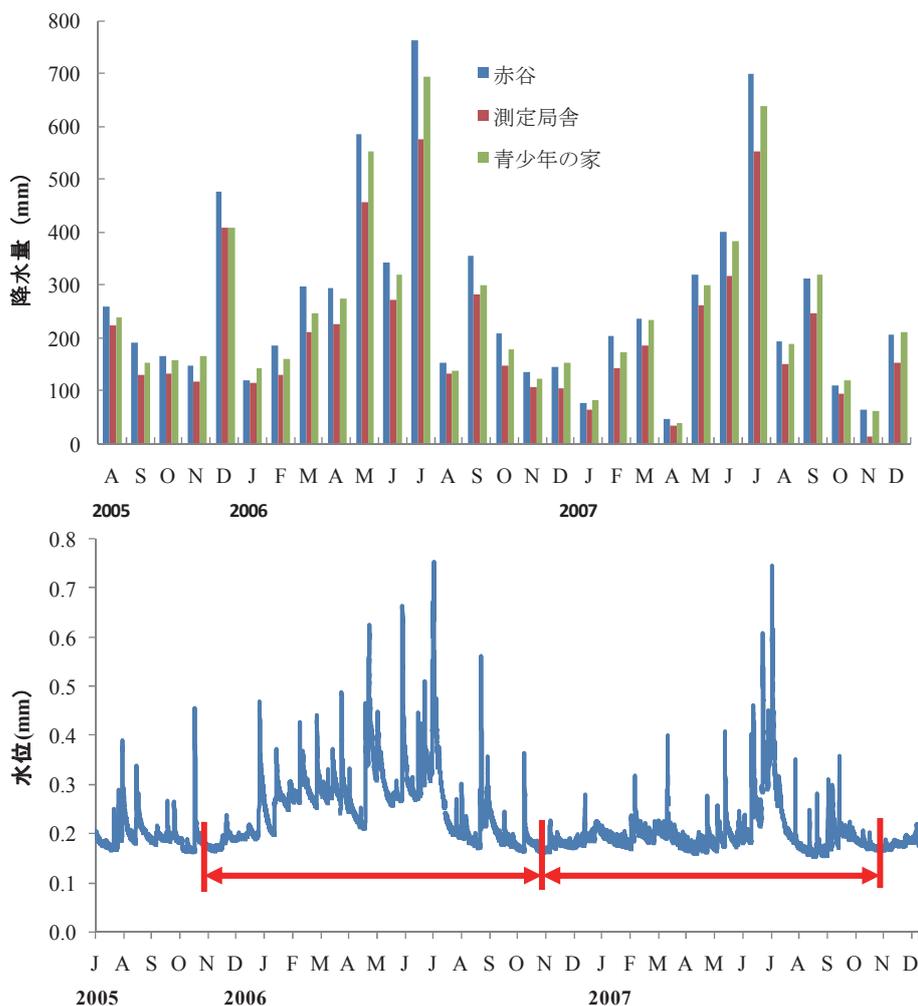


図 3-3-3-1 降水パターンと水位変化（2005年8月～2007年11月）  
 図中の矢印は、水年の区切りを示す。

図 3-3-2-1 で示した伊自良湖流入河川である釜ヶ谷川上流域の集水域（以下釜ヶ谷集水域という。）における上記2水年の水収支を図 3-3-3-2 に示した。3地点の年間降水量には差がみられ、両水年とも最も標高が高い「赤谷」が一番多く、次いで最下流部の「青少年の家」、中流部の「測定局舎」の順であった。測定局舎は、釜ヶ谷川支流の谷間に設置されているため、捕集効率が低く降水量が過小評価されていると考えられた。降水量は2006-2007水年の方が2005-2006水年よりも、平均で約800mmも少なかった。河川からの流出率は1水年目が約77%、2水年目が約49%であった。1水年目は蒸発散量を考慮すると、本集水域における水収支は妥当な値であると考えられたが、2水年目については流出量が少なめであった。集水域における水収支は、降水量と蒸発散量のバランスによって水年毎に変動もあるため、さらに引き続き検討する必要があるが、1水年目については物質収支を解析する上で十分な水収支が得られていると考えられた。

各水年における釜ヶ谷集水域内における年間総沈着量と乾性沈着の寄与率を図 3-3-3-3 に示した。伊自良湖の湿性沈着量は、その降水量の多さから、国内でも最も多い地点のひとつであることがこれまで報告されている。さらに上記の降水量分布の結果から、伊自良湖酸性雨測定所付近の降水量は、集水域内でも比較的少ないことが明らかになったため、ここでは3地点の平均値を用いて補正したところ、湿性沈着量はさらに増大した。結果として、乾性沈着の寄与率は、5~25%程度と比較的小さいことが明らかとなった。なお、ここで示した乾性沈着量は、基本的には3.1.2と同様の方法を用いたが、ここではパッシブサンプラー法で測定したNO<sub>2</sub>もNO<sub>3</sub>の沈着量に含んでいる。

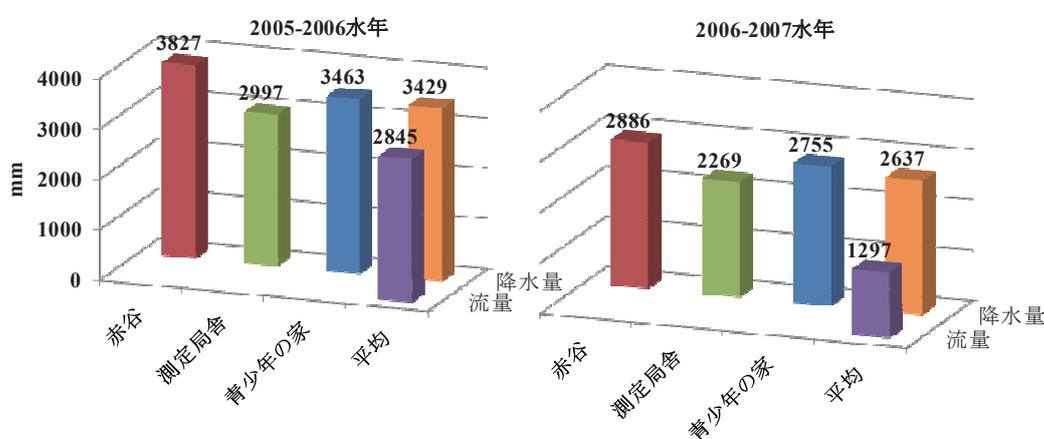


図 3-3-3-2 釜ヶ谷集水域における水収支（2005-2006 水年：364 日間、2006-2007 水年：365 日間、いずれも 11 月初旬から翌 11 月初旬まで）

伊自良湖集水域においては N 沈着量が多いことも指摘されていたが、今回得られた推計では、N 沈着量は 1 水年目が 28.7kg-N ha<sup>-1</sup> y<sup>-1</sup>、2 水年目が 18.2kg-N ha<sup>-1</sup> y<sup>-1</sup> となり、欧米で議論されている溪流・河川水質に影響を与える指標レベルである 10kg-N ha<sup>-1</sup> y<sup>-1</sup> をはるかに超えており、森林生態系における N 飽和とそれに伴う酸性化の可能性を示唆していた。

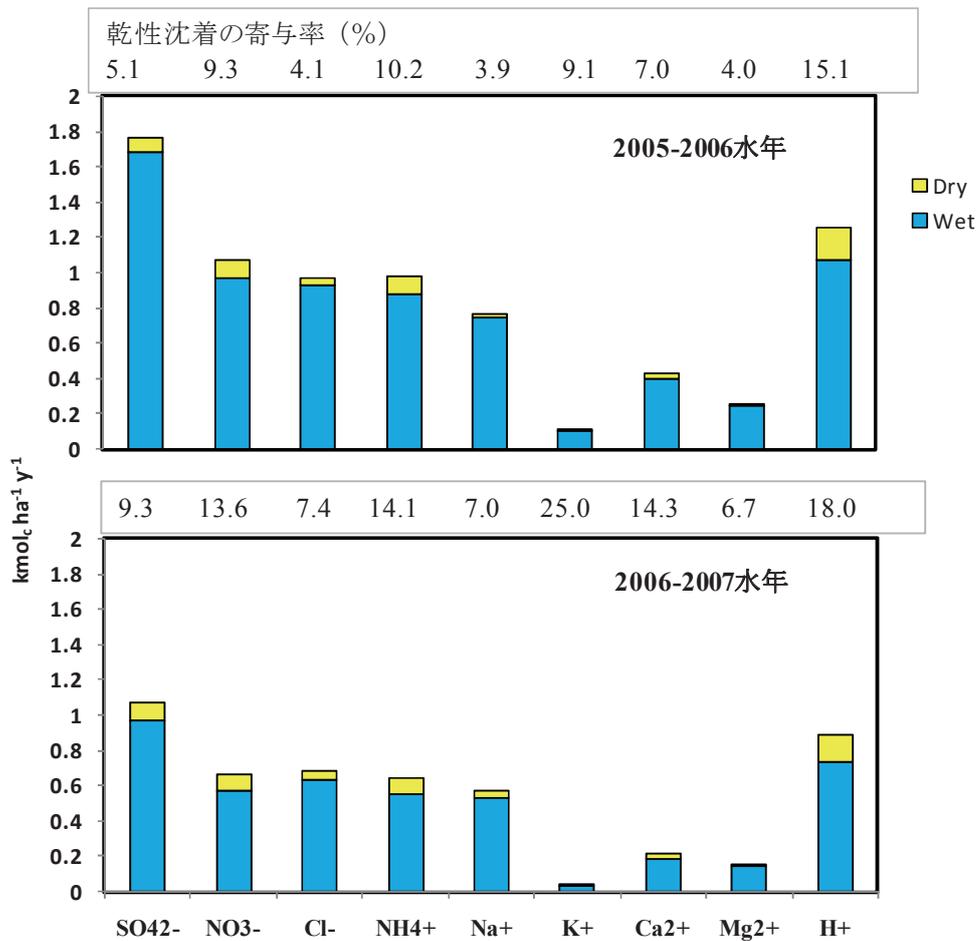


図 3-3-3 釜ヶ谷集水域における年間総沈着量と乾性沈着の寄与率

Wet, Dry はそれぞれ湿性沈着量、乾性沈着量を示す。湿性沈着量は、伊自良湖酸性雨測定所における降水捕集装置によるデータを基に、集水域斜面での雨量分布を考慮し、降水量の平均値で補正した値。NO<sub>3</sub> 乾性沈着量には、パッシブサンプラーで測定した NO<sub>2</sub> も含まれている。

また、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>や K<sup>+</sup>など、枝や葉における吸収・消費や溶出の影響が大きいイオンについては、これまで用いられた林内雨・樹幹流法では森林地域における正確な沈着量を見積もることが困難であったが、本重点調査において、湿性沈着量と乾性沈着量を個別に推計したことにより、これらのイオンの吸収や溶出の有無についても、より現実的な議論が可能となった。本重点調査における林内雨・樹幹流調査は主に伊自良湖畔の林分で行われたため、酸性雨測定所との距離や地形の違いから多少の誤差も含んでいるが、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>や NO<sub>3</sub><sup>-</sup>については、1年目は林冠における吸収・消費や溶出は明確ではなかったが、2年目は従来文献で報告されているように、上図で示した総沈着量のほとんどが林床に負荷されていると考えられた。一方、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>と H<sup>+</sup>の一部は林冠で吸収・消費・中和され、K<sup>+</sup>、Ca<sup>2+</sup>等は林冠から多く溶出していることが示された。林冠も含む生態系内での物質循環を論ずる上で、乾性沈着量の推計の重要性も改めて指摘された。

## ②増水時河川集中観測

夏季増水時に釜ヶ谷川で行われた集中調査においては、河川水のイオン濃度に特徴的な変化がみられた。図 3-3-3-4 に、2006 年（平成 18 年）の集中調査の結果を示した。流量がある程度増大している 7 月 18 日 15 時から観測を始めた。河川流量は 19 日 1 時頃から再び増大し 19 日 3 時頃最大に達し、それに伴い pH は急激に低下し、その後流量の減衰とともに上昇した（図 a）及び b）。この時、アルカリ度は pH と同様の変化を示した（図 c）。一方、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>や SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の濃度は最大流量時には一時的に低下するものの、その後直ちに上昇し、流量の減衰とともに濃度の低下がみられた。結果として、増水ピーク時（観測開始の 18 日 15 時から 19 日 12 時まで）においては、平水時にはみられなかった NO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度と SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度の正の相関がみられた。また、岩石の風化の指標で、地下深部から流れる水に多く含まれる SiO<sub>2</sub> は、他のイオン同様、流量増大とともに濃度が低下した（図 d）。なお、同様の現象は 2007 年（19 年）の集中調査でも確認された。

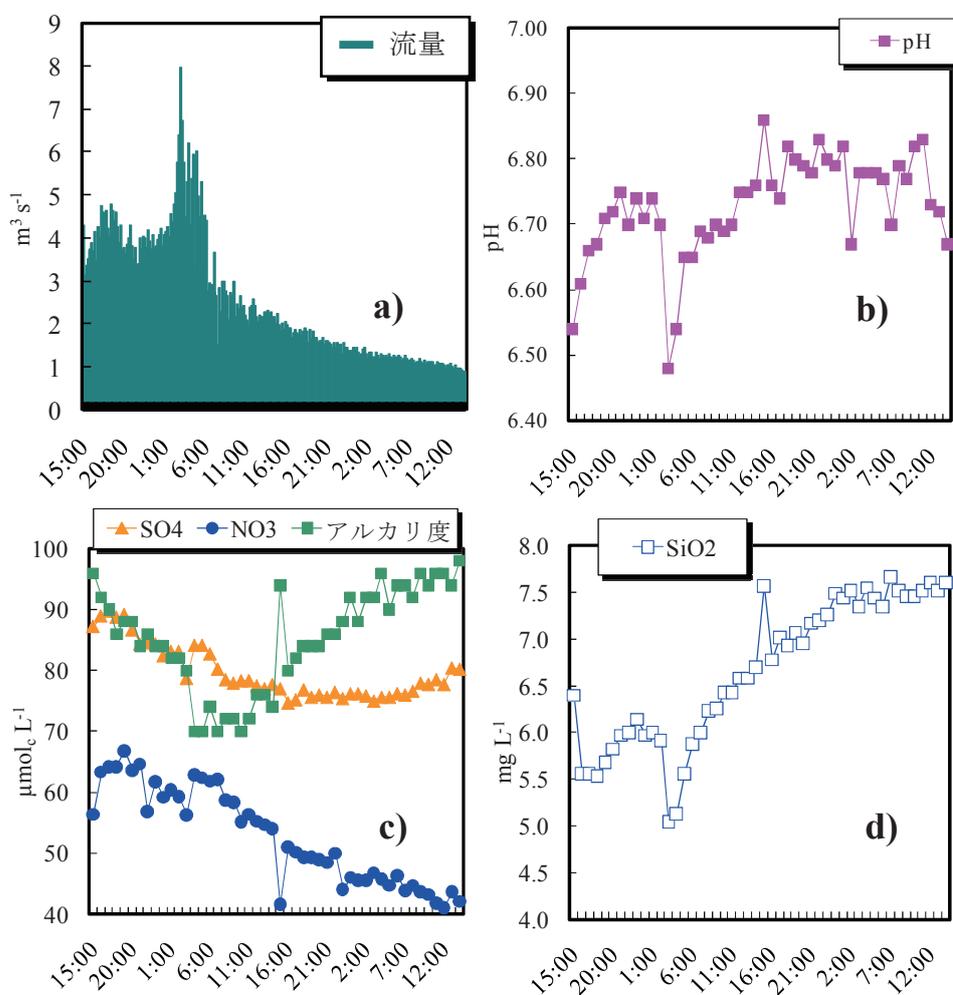


図 3-3-3-4 増水時の河川水質の変化

(2006 年（平成 18 年）7 月 18 日 15 時 ~20 日 14 時（1 時間毎）)

降水時は地下水レベルの上昇による土壌表層付近からのイオンの流出や表面流出の寄与が大きくなるため、表層付近に多く分布する N が、 $\text{NO}_3^-$ として流出することが知られている。これまでの多くの報告においては、増水時には  $\text{SO}_4^{2-}$ 濃度は低下することが指摘されているが、本集水域では、 $\text{NO}_3^-$ と同時に流出していることから、増水時の  $\text{SO}_4^{2-}$ 流出には、地表付近からの流出も大きく寄与している可能性が示唆された。また、本集水域では、これらの流出が河川の一時的な酸性化に寄与していると考えられた。後述するように、本集水域では、過去に蓄積したと考えられる S が、流入量（沈着量）以上に流出しており、S の蓄積形態とその起源について、今後さらに検討する必要がある。

### ③物質収支の概評

釜ヶ谷集水域における主要なイオンの流入・流出収支を図 3-3-3-5 に示した。本集水域では、 $\text{SO}_4^{2-}$ 流入量に対し、2005-2006 水年においては約 190%、2006-2007 水年においては約 170%の流出がみられ、流入量以上に  $\text{SO}_4^{2-}$ が流出していることが明らかとなった。1 水年目については、生態系内でほとんど利用されない  $\text{Cl}^-$ の収支バランスが取れていないが、この点を考慮して、仮に  $\text{Cl}^-$ の流入と流出が同程度であったとして補正した場合も、 $\text{SO}_4^{2-}$ は流入量の約 110%は流出している計算となった。

欧州では、酸性雨原因物質の排出量削減により沈着量が減少した現在でも、特に過去において沈着量が多かった地域で溪流・河川からの  $\text{SO}_4^{2-}$ の流出が続いていることが報告されており、過去に蓄積した S の流出が示唆されている。本集水域でも同様の現象が生じていると考えられ、上述した増水時における  $\text{SO}_4^{2-}$ の流出挙動は、何らかの形態で蓄積されている S の流出の寄与を示唆していた。また、 $\text{Ca}^{2+}$ 、 $\text{Mg}^{2+}$ などの塩基は、流入量に対し、900%以上も流出しており、河川水は中和されている一方で、土壌の中和能は減少しつつあることを示唆していた。

さらに、非常に多い N 沈着量を反映して  $\text{NO}_3^-$ も植物吸収が盛

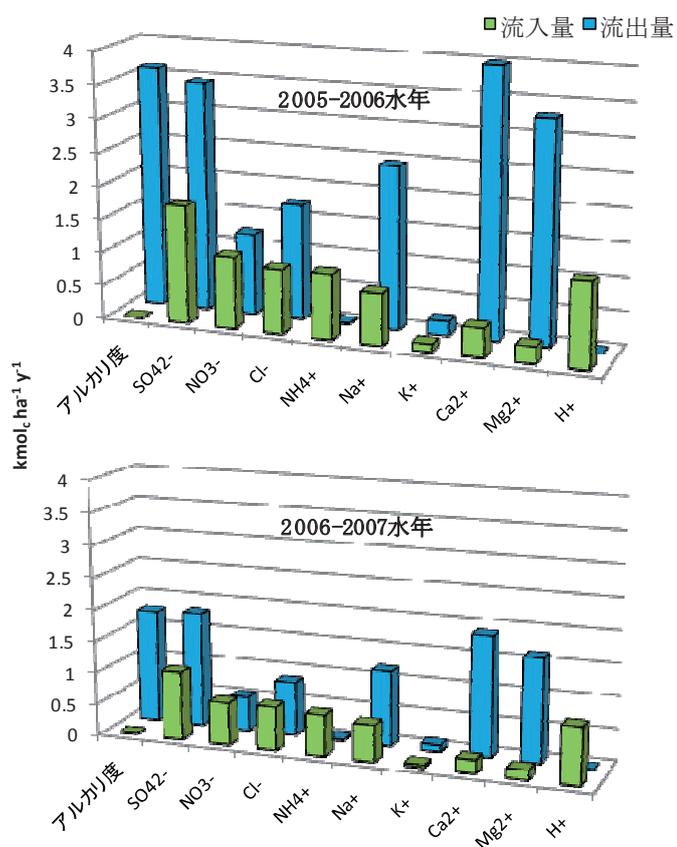


図 3-3-5 釜ヶ谷集水域における物質収支  
アルカリ度の流入量は 0 とした。

んな夏季においても一定量流出しており、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>流出に伴う河川への酸の負荷も示唆していた。実際、河川水中のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度は上昇しpHは低下していた。今後、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>流出による河川の酸性化の可能性について、継続して監視することが必要である。

酸性沈着による集水域酸性化を議論するためには、酸性沈着によるH<sup>+</sup>負荷や森林生態系内部の物質循環におけるH<sup>+</sup>を生成する過程と、生態系内でH<sup>+</sup>を消費する過程について、収支を計算することが有効である<sup>4)</sup>。日本の多くの集水域では、生態系外部由来（酸性沈着）によるH<sup>+</sup>負荷量より、生態系内におけるアルカリ度の生成量が多く、森林生態系における酸中和能が大きいことが報告されている<sup>5)</sup>が、釜ヶ谷集水域においては、表3-3-3-1に示すように、酸性沈着によるH<sup>+</sup>負荷が中和能を上回り、集水域酸性化を引き起こす可能性を示唆していた。

表 3-3-3-1 釜ヶ谷集水域における H<sup>+</sup>負荷量とアルカリ度生成量

水年	H <sup>+</sup> 負荷量		アルカリ度生成量
	kmol <sub>c</sub> ha <sup>-1</sup> y <sup>-1</sup>		
2005-2006 水年	4.04	>	3.61
2006-2007 水年	2.12	>	1.78

注. 外部由来の H<sup>+</sup>負荷量は、N、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>及び H<sup>+</sup>の収支<sup>7)</sup>から求めた。アルカリ度は流出量を生成量とした。

#### ④まとめ

本重点調査においては、これまでの議論を支持する定量的なデータとともに、今後の集水域解析を考える上で重要な情報も得られた。主な成果として、

- i. 山岳地域における降水量分布を考慮した湿性沈着量と、大気濃度実測から求めた乾性沈着量から、森林地域における総沈着量がより精緻に推計された。その結果、欧米における渓流水へのNO<sub>3</sub><sup>-</sup>流出の閾値とされている10kg-N ha<sup>-1</sup> y<sup>-1</sup>をはるかに超えるN沈着量（特に1水年目は28.7kg-N ha<sup>-1</sup> y<sup>-1</sup>）が確認された。
- ii. 増水時におけるSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の特徴的な流出傾向から、集水域内の地表面付近に蓄積しているSの寄与が示唆された。
- iii. 釜ヶ谷集水域の物質収支の結果も、流入量以上のS流出を示しており、過去に蓄積されたと考えられるSによる河川の酸性化への寄与を支持していた。
- iv. 蓄積していたSに加え、多量のN沈着に伴うNO<sub>3</sub><sup>-</sup>流出が、河川の酸性化に大きく寄与しているものと考えられた。

上記の成果から、伊自良湖集水域においては、過去に大気から負荷・蓄積したと考え

<sup>7)</sup> Nの収支に伴うH<sup>+</sup>の負荷量（純生成量）は、(NO<sub>3</sub><sup>-</sup><sub>[out]</sub> - NO<sub>3</sub><sup>-</sup><sub>[in]</sub>) + (NH<sub>4</sub><sup>+</sup><sub>[in]</sub> - NH<sub>4</sub><sup>+</sup><sub>[out]</sub>)として算出。SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>及びH<sup>+</sup>については流出量と流入量の差 (SO<sub>4</sub><sup>2-</sup><sub>[out]</sub> - SO<sub>4</sub><sup>2-</sup><sub>[in]</sub>、H<sup>+</sup><sub>[out]</sub> - H<sup>+</sup><sub>[in]</sub>)として算出。

られる S が溪流に流出する一方で、現在も、生態系の許容量を超える N 沈着により、集水域での酸性化が継続していると考えられた。

## (2) 広域的な集水域酸性化の可能性の検討

### ① 全国湿性沈着量の分布による伊自良湖集水域の位置づけとホットスポットの抽出

近年の全国の調査地点の中で、伊自良湖の  $\text{nss-SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{NH}_4^+$  及び  $\text{H}^+$  の湿性沈着量は全 120 地点分布の中で上位 10% 以内に位置づけられ、特に  $\text{H}^+$  は最大沈着量を示した。伊自良湖における酸性成分の大きな沈着量は、降水量が全国分布の上位 15% と多いことに加え、濃度も比較的高いことによる。 $\text{nss-SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ 、及び  $\text{H}^+$  濃度は全国分布の中でそれぞれ、上位 27%、19% 及び 2% の位置にあった (図 3-3-3-6)。

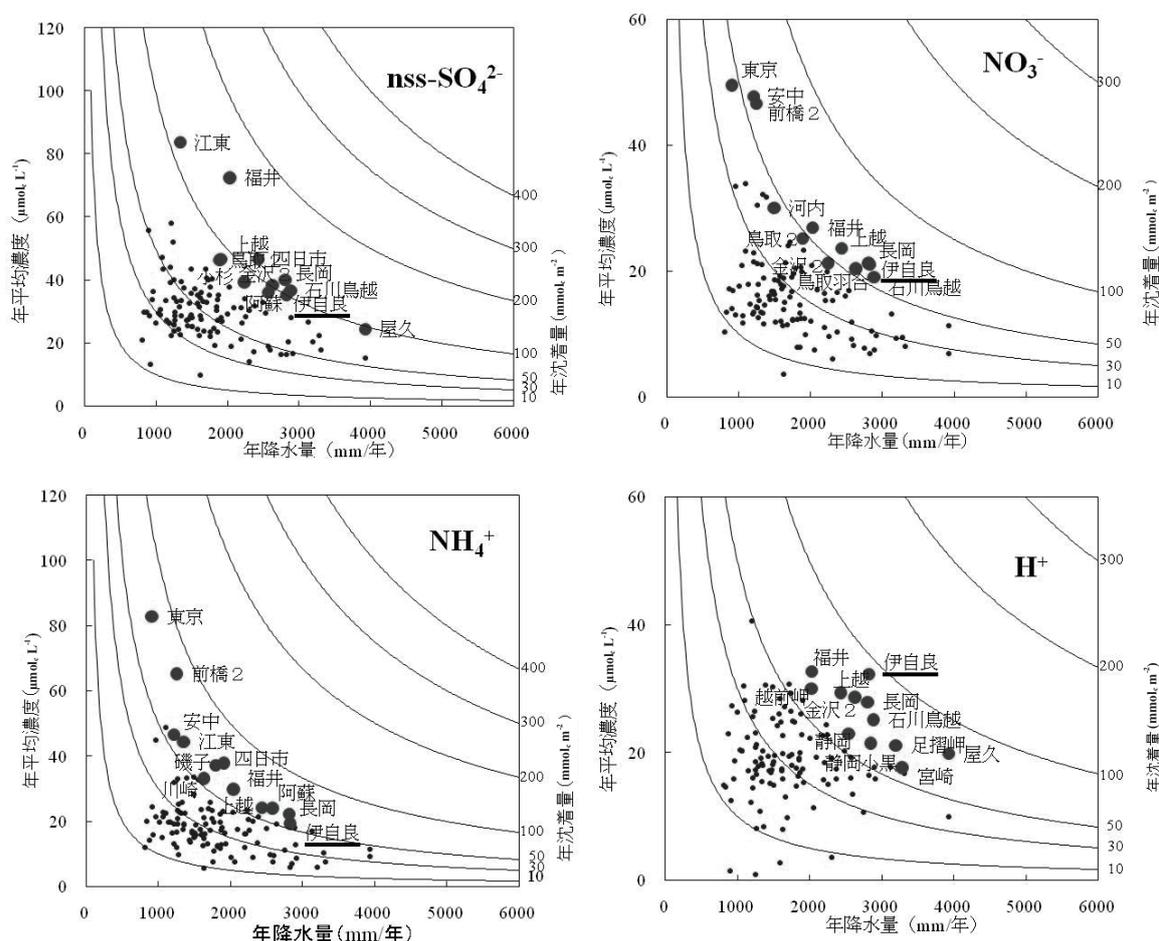


図 3-3-3-6 全環研 (1999-2004 年度 (平成 11-16 年度)) 及び環境省 (1998-2004 年度 (10-16 年度)) 調査地点の  $\text{nss-SO}_4^{2-}$ 、N ( $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{NH}_4^+$ )、 $\text{H}^+$  の降水量・濃度・湿性沈着量プロット

上記の 3.3.1 では、環境省による調査（約 50 地点）においてこれまで記録されたデータについて評価されたが、本調査では、全環研調査地点も入れた全 120 地点の過去約 5 年間の平均値について評価を行った。いずれの評価においても、伊自良湖の沈着量が全国最大レベルであることが示された。

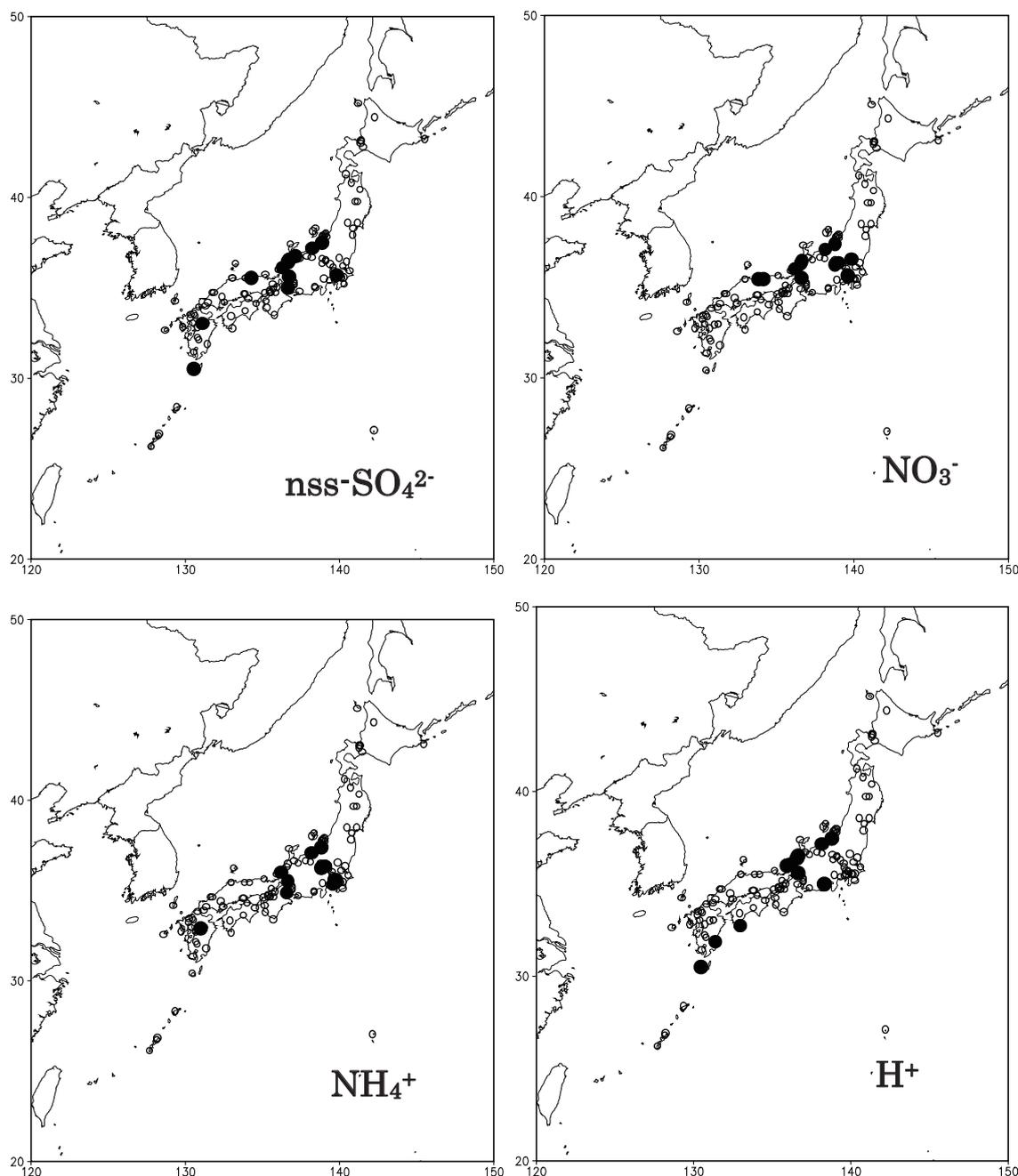


図 3-3-3-7 S、N、H<sup>+</sup>の湿性沈着量の地理的分布（図 3-3-3-6 を基に作成）

黒丸は沈着量が全体の上位 10%以内にある地点を示す。

一方で、本解析により、伊自良湖に匹敵するレベルで沈着量が多い地域も抽出された（図 3-3-3-7）。 $nss-SO_4^{2-}$ 沈着量は、伊自良湖、四日市を含む中京地域の他に、本州中部の日本海側（福井、長岡、上越、石川鳥越など）、山陰（鳥取）及び九州（阿蘇、屋久）等で多かつ

た。NO<sub>3</sub><sup>-</sup>沈着量は、伊自良湖以外は、本州中部の日本海側、山陰（鳥取の2地点）、東京及び北関東（安中、前橋）等で多かった。NH<sub>4</sub><sup>+</sup>沈着量は、伊自良湖、四日市を含む中京地域の他に、本州中部の日本海側、東京周辺（東京、川崎、磯子）、北関東（前橋、安中）等で多かった。H<sup>+</sup>沈着量は、伊自良湖以外では、本州中部の日本海側、東海（静岡の2地点）及び九州（宮崎、屋久）等で多かった。広域的な集水域酸性化のリスク評価のためには、今後、これら沈着量の多い地域における、地質、土壌、植生、地形等の生態系の諸条件について、検討する必要があると考えられた。

上記の評価は、近年の沈着量を基にしたものであるが、酸性沈着の生態系への影響を考える上では、その積算量を考慮する必要もある。特にSの沈着量については、高度成長期の主要な工業地帯周辺においては、現在より著しく多かったと考えられることから、過去からの蓄積を考慮した評価も検討する必要があると考えられる。

### ②中部日本における公共用水域調査対象地点における酸性化傾向の検討

公共用水域調査が行われている、新潟県内140地点及び岐阜県内120地点について、排水等の人為的な影響が少ない地点として、BODが1.0 mg L<sup>-1</sup>以下の河川をスクリーニングした結果、新潟県では34地点、岐阜県では40地点が抽出された（図3-3-3-8）。

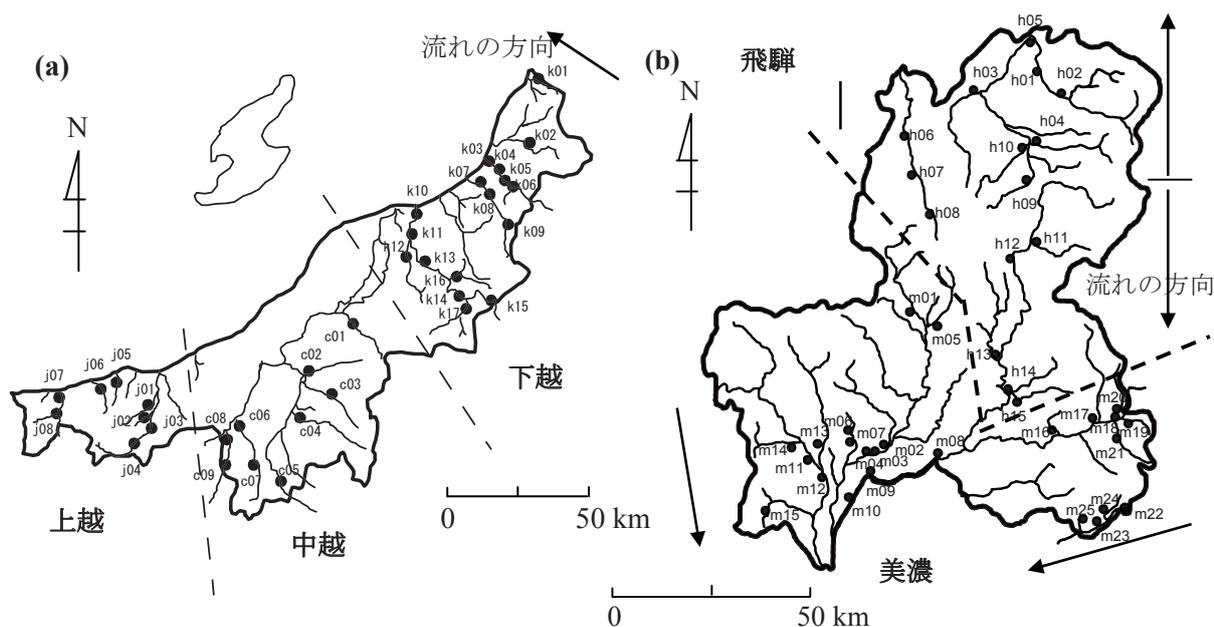


図 3-3-3-8 新潟県(a)及び岐阜県(b)における公共用水域 pH データの時系列的傾向の解析対象地点

人為的影響が少ないと考えられる BOD が 1.0 mg L<sup>-1</sup> 以下の地点（新潟県 34 地点、岐阜県 40 地点）

図中の矢印は、河川の流れの方向を示す。

これらの地点の1980年代半ばから2003年（平成15年）までのpHデータの時系列的傾向をSeasonal Mann-Kendall法を用いて解析を行った。また、河川pHの低下傾向がみられた地点については現地採水を実施し、イオン濃度やアルカリ度等について分析を行うとともに

に、水質に大きく影響すると考えられる土地利用割合及びその変化について文献調査を行った。さらに温泉水の流入について、その疑いがある地点周辺について河川流路に沿った採水を実施し、影響の有無について検討を行った。

時系列的傾向の解析の結果、新潟県 11 地点、岐阜県 13 地点で河川 pH の長期的酸性化傾向が確認された（表 3-3-3-2）。新潟県では、pH の低下傾向を示した地点はすべて北部の下越地方に位置しており明瞭な地域性が確認された。岐阜県では地域性は明瞭ではなく、各地域の上流域で低下傾向がみられる地点があった。

表 3-3-3-2 新潟県(a)及び岐阜県(b)の公共用水域調査地点における pH 長期トレンドの検定結果

(a)						(b)					
地域	水系	河川	地点名	n	Zscore	地域	水系	河川	地点名	n	Zscore
下越	大川水系	小俣川	k01	213	-2.45*	飛騨	高原水系	高原川	h01	191	-3.00**
			h02	191	-2.99**						
	三面川水系	三面川	k02	213	-3.06**		宮川水系	小鳥川	h03	96	3.24**
			h04	191	-3.08**						
	荒川水系	荒川	k03	211	-4.92***		宮川	h05	191	-1.70	
			k04	215	-4.71***						
			k05	213	-7.34***						
			k06	215	-8.22***						
			k07	205	-1.25						
	胎内川水系	胎内川	k08	211	-2.27*		庄川水系	庄川	h06	96	-2.87**
			k09	215	-1.42						
			k10	213	-0.28						
	阿賀野川水系	阿賀野川	k11	213	-0.95		宮川水系	宮川	h09	191	-6.65***
			k12	214	-1.12						
			k13	215	0.24						
			k14	213	-3.53***						
			k15	213	-3.58***						
k16			214	-3.31***							
k17			212	-3.78***							
中越	信濃川水系	五十嵐川	c01	214	-1.29	美濃(西部)	長良川水系	長良川	m01	192	3.42***
			c02	213	0.13						
			c03	213	-0.64						
			c04	196	1.03						
			c05	212	0.11						
			c06	215	2.65**						
			c07	212	0.66						
			c08	214	7.50***						
			c09	209	3.54***						
	信濃川水系	新谷川	k16	214	-3.31***		吉田川	m05	192	6.00***	
			k17	212	-3.78***						
			常浪川	k17	212			-3.78***			
				m06	192			8.53***			
上越	関川水系	矢代皮	j01	212	0.58	伊自良川	m07	192	0.489		
			j02	215	2.90**						
			j03	215	1.49						
			j04	214	5.50***						
			j05	215	1.08						
			j06	213	-0.95						
			j07	212	0.65						
			j08	214	0.38						
			能生川水系	能生川	j05		215	1.08	木曾川水系	木曾川	m08
	m09	192			-0.79						
早川水系	早川	j06	213	-0.95	揖斐川水系	揖斐川	m11	192	-5.03***		
		m12	192	-2.63**							
姫川水系	姫川	j07	212	0.65	根尾川	根尾川	m13	192	-2.62**		
		m14	188	1.27							
美濃(東部)	木曾川水系	中野方川	m16	96	3.11**	牧田川	m15	192	2.37*		
			m17	96	1.35						
			m18	96	1.39						
			m19	96	2.16*						
			m20	192	0.89						
			m21	96	2.98**						
			m22	191	3.33***						
m23	192	-4.28***									
上村川	阿妻川	m24	180	2.86**	矢作川水系	矢作川	m22	191	3.33***		
		m25	96	3.07**							

\*=p<0.05 \*\*=p<0.01 \*\*\*=p<0.001

\*=p<0.05 \*\*=p<0.01 \*\*\*=p<0.001

注. n は解析対象となったデータ数。Z-score は傾向の向きと大きさを示し、正の場合は上昇傾向、負の場合は低下傾向を示し、絶対値が大きいほどその傾向が明確であることを示す。有意に低下した地点の Z-score を網掛けで表示した。表(b)における飛騨地域の宮川水系の h09 や h10 の上流域には流紋岩が主に分布しており、地質的には木曾川水系の h11~h15 に近い。

これら pH 低下傾向を示した地点での現地採水の結果、新潟県下の解析対象地点の河川水質は、上流域の基岩地質が安山岩や石灰岩が支配的である上越・中越地方でアルカリ度及び EC が高く酸感受性が比較的小さいのに対し、上流域の大部分が花崗岩地質である下越地方では、多くの地点でアルカリ度は  $0.200\text{mmol}_c \text{L}^{-1}$  未満、EC は  $10\text{mS m}^{-1}$  と低く酸感受性が高いことが確認された。河川 pH の長期トレンドの地域性は、それを反映しているものと考えられた。岐阜県にも地質的に酸感受性が高いと考えられる花崗岩、流紋岩、チャートなどが分布している。その地質分布と関連した地域性や河川水質の酸感受性との関係は明確ではなかったが、比較的上流に位置する h02、h09、m11 等の地点で河川 pH の低下傾向がみられた。

河川水質には、その集水域内における土地利用形態が大きく影響すると考えられる。また、我が国の場合、火山が多く上流部に温泉・鉱泉が存在する可能性も高い。流路に沿った調査の結果、新潟県中越の c06～c09 の地点や岐阜県の h02 では、EC や  $\text{SO}_4^{2-}$  濃度が温泉付近で急激に上昇するなど、河川水質への温泉の影響が確認された。一方で、新潟県下越地方の k01、k06、k16、k17、岐阜県の h09、m11 などでは、集水域内の森林面積が 90%以上で、田畑が占める割合も低く、温泉水の流入や鉱山等の影響も最小限と考えられた<sup>6)</sup>。

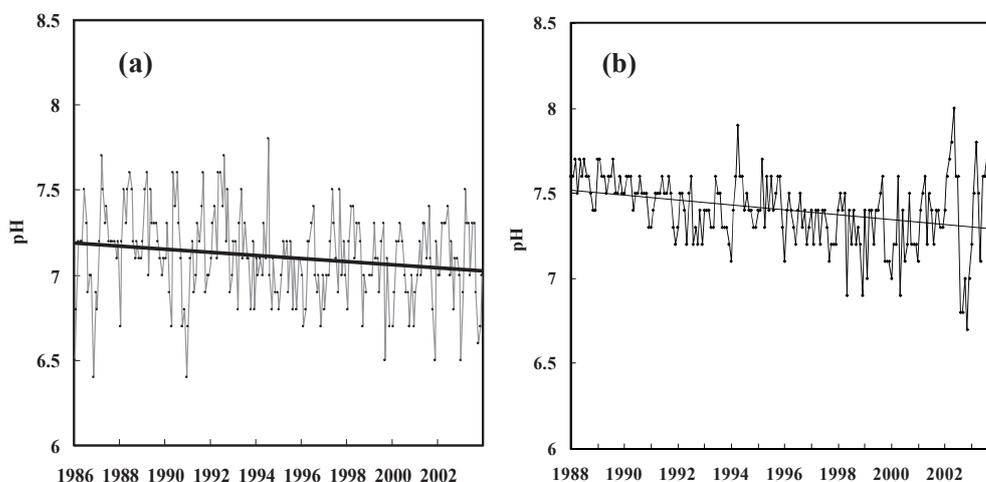


図 3-3-3-9 代表的地点の pH 低下傾向

(a): 新潟県 阿賀野川水系/新谷川 寿橋(k16) (b): 岐阜県 揖斐川 岡島橋(m11)

pH 低下傾向を示し、かつ土地利用形態や温泉水の影響が最小限と考えられた地点の典型的なトレンドを図 3-3-3-9 に示した。新潟県の地点の多くは図 a)に示す新谷川・寿橋 (k16) のように、比較的単調に継続して pH が低下する傾向がみられた。岐阜県については、図 b)に示す揖斐川・岡島橋 (m11) のように、伊自良湖流入河川の釜ヶ谷川と同様に 1996 年（平成 8 年）付近で低下がみられた。pH の有意な低下傾向が確認された釜ヶ谷川とは異なり、若干上昇するような傾向もみられた。新谷川の上流は花崗岩、揖斐川の上流はチャートを含む堆積岩や一部に花崗岩が分布していた。季節変動としては、新潟県、岐阜県の地点と

も、山間部の融雪期である4月あるいは5月に最も低いpHが記録されることが多く、いわゆるアシッドショック<sup>8</sup>を反映しているものと考えられた。

全国湿性沈着量分布でも明らかのように、日本海側と中部地方は全国的に湿性沈着量が多い地域と言える。本解析結果は河川水質への大気沈着を示す直接的な証拠となるものではないが、新潟県、岐阜県において酸性化を示した地点のうち、上述した地点については、温泉・火山といった自然要因、土地利用変化・農業活動・鉱山といった人為的要因では説明できないことも確かである<sup>6)</sup>。同様の現象が国内の酸感受性の高い他の地域で起こっている可能性もあり、今後溪流・河川水の酸性化についてさらに注目すべきであると考えられる。岐阜県内の地点については、同じ県内に位置する伊自良湖集水域でみられた酸性化傾向との関係について、集水域の特徴等についてさらに検討を行う必要がある。

### 3.3.4 集水域酸性化の現状と今後の集水域解析の方向性

これまでのモニタリングと本重点調査の結果、伊自良湖(釜ヶ谷)集水域においては、S、N、H<sup>+</sup>などの我が国で最も高い水準の負荷量が、森林生態系を介して溪流・河川水質に影響を与えたものと考えられた。

湿性沈着量、乾性沈着量を精緻に見積もった結果、当集水域では、欧米において溪流・河川へのNO<sub>3</sub>流出の閾値とされている10kg-N ha<sup>-1</sup> y<sup>-1</sup>をはるかに超えるN沈着量が確認された。実際に河川水のNO<sub>3</sub>濃度は上昇傾向にあり、植物の吸収が盛んな夏季においてもNO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度は高い値を示し、季節性は失われている。河川pHも低下し、著しく大きいN沈着が河川の酸性化に寄与していることを示していた。これらの現象が顕在化する引き金となったのは、1990年代半ばの気象イベントであったが、その後も引き続き、生態系の許容量を超えるN沈着に伴うNO<sub>3</sub>の流出により、集水域の酸性化が進みつつあると考えられた。

一方、Sは流入量以上に流出していることが明らかとなり、過去に蓄積したSが流出に転じて、上記の酸性化に寄与している可能性を示唆していた。増水時においてNO<sub>3</sub><sup>-</sup>とSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の濃度が同時に上昇する現象は、表層付近に蓄積しているSがNとともに流出していることを示唆していた。

伊自良湖集水域は、スギ、ヒノキ等の針葉樹が植林された、我が国の森林集水域としては典型的なもので、地質的にも同様の酸性岩が分布する地域は多い。集水域の酸性化は、本地域に特有の現象ではなく、集水域の酸感受性が高い上に酸性物質の沈着量が多いところに引き金となる気象イベントがあったという条件が満たされ、生じたものと考えられる。全国的な湿性沈着量評価の結果は、伊自良湖に匹敵する湿性沈着の負荷の大きな地域が他にも存在することを示しており、近年は特に本州中部の日本海側で湿性沈着量が多いことが明らかとなった。さらに、新潟県及び岐阜県における河川pHの長期低下傾向とその河川水質は、地質的に酸感受性が高く、酸性物質の沈着量が多い地域において、集水域の酸性化が生じている可能性を示していた。

<sup>8</sup> 融雪期に高濃度の酸が流入することにより河川水質が一時的に大きく酸性化する現象

これらの事象を考慮すると、3.2節でも述べたように、生態系の酸感受性が高く酸性物質の沈着量が多い地域の特定を今後さらに進め、ホットスポットとして着目し、河川水質等への影響の顕在化について、より詳細に検討する必要があると考えられる。さらに、伊自良湖集水域内ではすでに表層土壌 pH が 4 未満にまで低下しているため、植物の生長に影響を与える  $Al^{3+}$  の土壌水中への溶出量の増加が危惧されることから、樹木への影響を含めて、継続したモニタリングが必要である。

今回、特に伊自良湖集水域で酸性化傾向が明確に確認できた背景には、上記のようなホットスポットとして条件が揃った地域であったという他に、酸性沈着、土壌・植生、陸水を含む総合的なモニタリングを継続してきたことが大きいと考えられる。集水域を単位とした生物地球化学的な物質の流れを解析することにより、より定量的に酸性沈着の生態系への影響を検討することが可能になった。今後さらに、酸性沈着の影響を評価するための総合的モニタリング手法として、集水域解析を十分活用するためには、以下のような課題が考えられる。

#### ① 溪流・河川モニタリングの補強と集水域解析の推進

これまで湖沼中心であったモニタリングから、流域内の物質循環の変化を反映することが期待できる溪流・河川にも着目し、上述したホットスポットとなる地域を考慮しながら、より広く情報を収集する。伊自良湖集水域についても、今後も釜ヶ谷川の 2 週間に 1 回程度の継続的モニタリングを実施し、河川水質と流入・流出等の物質収支の長期的な評価を行う。将来的には、下記集水域モデルの開発と併せ、より効率的なデータの取得方法についても検討が必要である。

#### ② 森林生育や養分吸収量の効率的推定法の開発

集水域の酸性化には、上述したように、樹木の生育やそれに伴う養分吸収量が大きく関わっていると考えられる。酸性沈着のような外部由来の  $H^+$  により酸性化しているかどうかを定量的に評価するためには、森林全体としての生育や養分吸収量の推定が重要となってくる。これらのデータの推定には、森林成長に関する詳細かつ継続的な現地観測が必要とされているが、今後、集水域解析に用いる上で有用な効率的推定方法について検討する必要があると考えられる。

#### ③ 既存試験地との連携

大学や研究機関による既存試験地における調査・研究の事例を参考に、酸性雨長期モニタリングとの連携について検討する。期間を定めた共同観測やデータ比較のための観測手法の標準化などを推進する。将来的に、伊自良湖データを含めた我が国における集水域に関する総合的な評価を検討する。これらの評価を通じて、酸性雨長期モニタリング計画における集水域解析の位置づけをより明確にしていく必要があると考えられる。

#### ④ 東アジアへの普及

集水域解析は、今後さらに酸性沈着原因物質の排出量が増大すると予測される東アジア

ア地域にとって、生態影響を論ずる上で有効な手法になることが期待され、東アジアにおける集水域解析の事例を増やすことが望まれる。

⑤ 集水域モデルの開発

本重点調査の定量的データ、国内の既存試験地や東アジアにおける事例などの関連データの活用を図り、既存モデルの比較調査を含めた集水域モデルの開発を推進させる必要があり、上述した伊自良湖の酸性化メカニズムの検証にもモデルが必須である。なお、上記①②は、モデルの検証データとして有用である。

上記課題を考慮し、その有効性を十分に認識し広く理解を得ることによって、集水域解析手法を生態系影響の総合的モニタリング・評価手法として、推進していく必要があると考えられる。

(引用文献)

- 1) Kobayashi J. 1960. A chemical study of the average quality and characteristics of river waters of Japan. *Berichte des Ohara Instituts fuer Landwirtschaftliche Biologie Okayama Universitaet* 11: 313-358.
- 2) Nakahara, O., Takahashi, M., Sase, H., Yamada, T., Matsuda, K., Ohizumi, T., Fukuhara, H., Inoue, T., Takahashi, A., Kobayashi, H., Hatano, R., Hakamata, T. 2008. Stream water acidification and increasing  $\text{NO}_3^-$  discharge in a forested catchment in central Japan (submitted).
- 3) 栗田秀實・植田洋匡, 2006. 中部山岳地域上流域における陸水 pH の長期的低下—過去30年間の pH の低下と酸性雨の状況—. *大気環境学会誌* 41(2): 45-64.
- 4) van Breemen, N., Mulder, J. Driscoll, C.T. 1983. Acidification and alkalinization of soils. *Plant and Soil* 75: 283-308.
- 5) 徳地直子・大手信人 1998. 森林生態系における  $\text{H}^+$  収支. *日本生態学会誌* 48: 287-296.
- 6) Matsubara, M., Morimoto, S., Sase, H., Ohizumi, T., Sumida, H., Nakata, M. Ueda, H. 2008. Long-term declining trends of river water pH in Central Japan. *Water Air Soil Pollut* (in press). doi: 10.1007/s11270-008-9909-3

### 3.4 諸外国との比較

EANETは、1998年からの試行稼働を経て2001年より本格稼働を開始しており、モニタリングの成果はデータレポートとして毎年報告されている。2007年には、2000年から2004年における5年間のモニタリング活動の成果をとりまとめた「東アジアにおける酸性沈着に関する第1次評価報告書」<sup>1)</sup>が公表され、初めてEANETにおける酸性沈着の科学的な解析、評価が行われた。また、北米では米国国家大気降下物測定プログラム (NADP) 等、欧州では長距離移動大気汚染物質モニタリング・欧州共同プログラム (EMEP) の枠組みで継続的なモニタリングが実施されている。

本節では、これらのデータを活用して、我が国における酸性沈着の状況と東アジア地域や欧米の状況とを比較した。

#### 3.4.1 大気系

##### (1) 湿性沈着の状況

日本、東アジア、北米及び欧州における湿性沈着の状況について解析を行った。日本については、本モニタリングの遠隔地域及び田園地域に加え、全国環境研協議会酸性雨調査<sup>2)~5)</sup>の非都市地域のデータも併せて用いた。また、東アジアは EANET<sup>6)</sup>、北米は NADP<sup>7)</sup>、欧州は EMEP<sup>8)</sup>の観測データを用いた。対象期間は、日本が2003年4月から2007年3月、その他は2003年1月から2006年12月とし、各地点の年間値は、完全度 (%TP 及び %PCL) が80%以上の観測データを用いた。

日本、北米及び欧州の3地域の降水量及び主な成分濃度等について、各地域の10、25、50、75、及び90パーセンタイル値を求めて図3-4-1-1に示した。また、図中には等沈着量線を加えた。日本の降水量は北米や欧州に比べ多雨域に広く分布しており、中央値の比較では、日本が $1680\text{mm y}^{-1}$ で北米及び欧州よりそれぞれ1.7倍及び2.5倍多い。 $\text{nss-SO}_4^{2-}$ 濃度は、日本の観測データが北米や欧州に比べ高濃度側の狭い範囲に分布しており、日本の10パーセンタイル値が欧州の中央値にほぼ相当する。中央値の比較では、日本が北米及び欧州に比較して、それぞれ1.6倍及び1.3倍高い。結果として、日本の $\text{nss-SO}_4^{2-}$ 沈着量は、中央値で $20\text{mmol m}^{-2}$ を越え、北米及び欧州に比較して3倍程度多いことが分かる。 $\text{NO}_3$ 濃度は、欧州の広い分布範囲に日本と北米がほぼ含まれ、中央値の比較では欧州が最も高く、日本はその7割程度である。しかしながら、日本は降水量が多いために、沈着量は日本が北米や欧州に比較して2倍程度多い。

降水酸性度については、日本の分布幅が北米や欧州に比較して非常に狭いことが特徴的である。日本のデータがpH4台後半の狭い範囲に分布するのに対し、北米や欧州ではpH4台中盤からpH5台中盤までの広い範囲に分布している。中央値の比較では、日本がpH4.7、北米がpH4.9、欧州がpH5.0で、水素イオン濃度としては日本が北米及び欧州に比較して、

それぞれ 1.7 倍及び 2.2 倍高い。その結果、正味の酸の沈着量である水素イオン沈着量を中央値と比較すると、日本が北米及び欧州の 3 倍及び 6 倍程度多いこととなる。日本と北米の水素イオン沈着量の違いは、酸性成分濃度と降水量の違いでほぼ説明できる。しかし、日本と欧州の違いは、それらに加えて酸の中和の程度の違いを考慮しなければ説明できず、日本の降水は欧州に比べ、大気中あるいは降水中で中和される酸の割合が低いと考えられる。

次に、これらの 3 地域に東アジアの観測データを加えた評価を行った(図 3-4-1-2)。EANET による東アジアの観測データは、地域環境の多様性のため地点差が大きいことから、統計的な処理は行わず、各地点の対象期間平均値をそのままプロットした。 $\text{nss-SO}_4^{2-}$ は中国の地点の濃度が非常に高いことが特徴的である。最高濃度は  $150\mu\text{mol L}^{-1}$  を越えており、これは日本の中央値の 10 倍以上に相当する。中国の観測地点の降水量は比較的少ないが、高い濃度のため、沈着量は最大で日本の中央値の 6 倍程度に相当する。また、韓国、インドネシアやベトナムでも、日本の分布範囲の上限に相当する比較的大きな沈着量が観測されている。 $\text{NO}_3$ は中国、韓国、及びインドネシアで日本の分布範囲を超えた高い濃度が観測されている。これらの地点の多くは比較的降水量が少ないが、インドネシアと中国の地点は、高い濃度のために日本の中央値の 2 倍程度の比較的大きな沈着量を示している。

一方、これら酸性成分の大きな沈着量とは対照的に、降水酸性度及び水素イオン沈着量については、日本の分布範囲を超える東アジアの地点はみられない。これは、対象とした東アジアの地点では、日本に比べて、大気中あるいは降水中での酸の中和が進んでいることを示しているものと推測される。

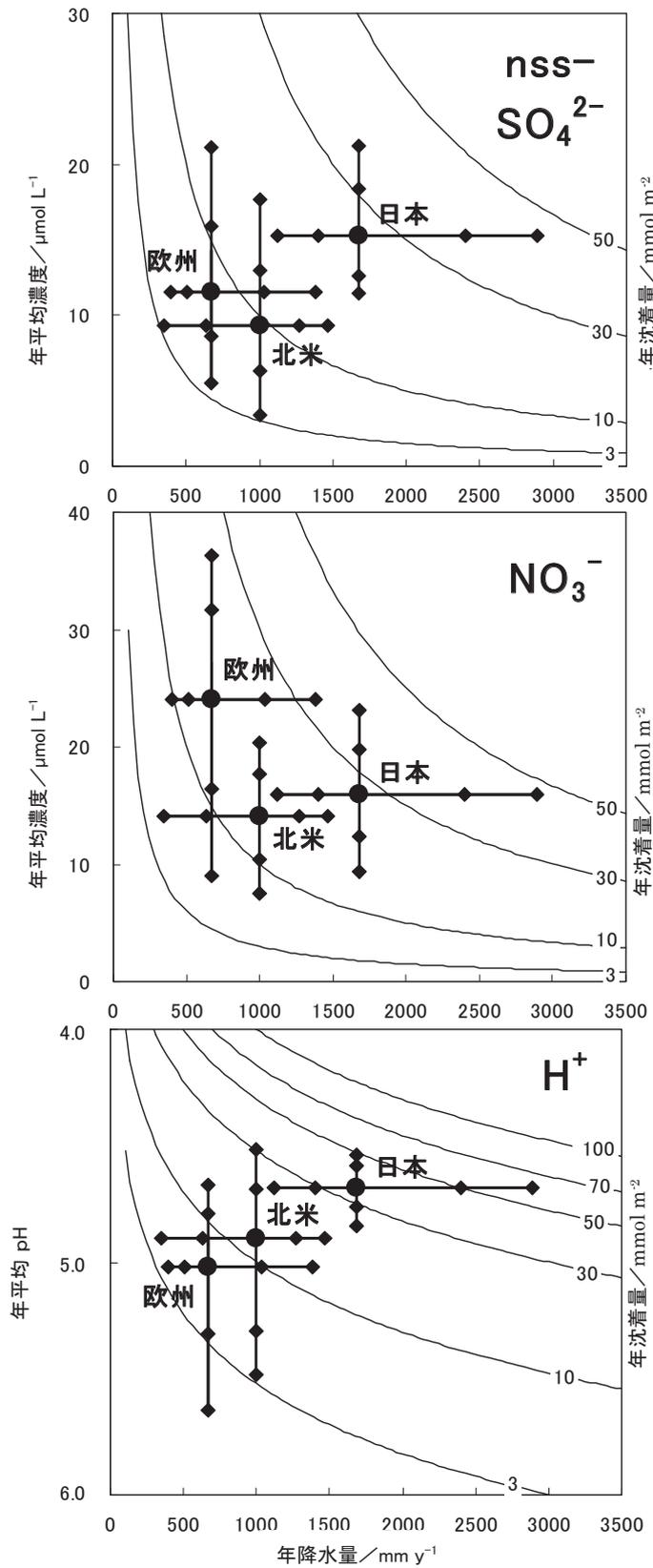


図 3-4-1-1 欧米との湿性沈着量の比較 (2003-2006)

- 1) 日本：本調査+全国環境研協議会調査[n=68]、北米：NADP[n=250]、欧州：EMEP[n=97]
- 2) 日本、北米及び欧州の分布を 10、25、50、75 及び 90 パーセントイル値で表記

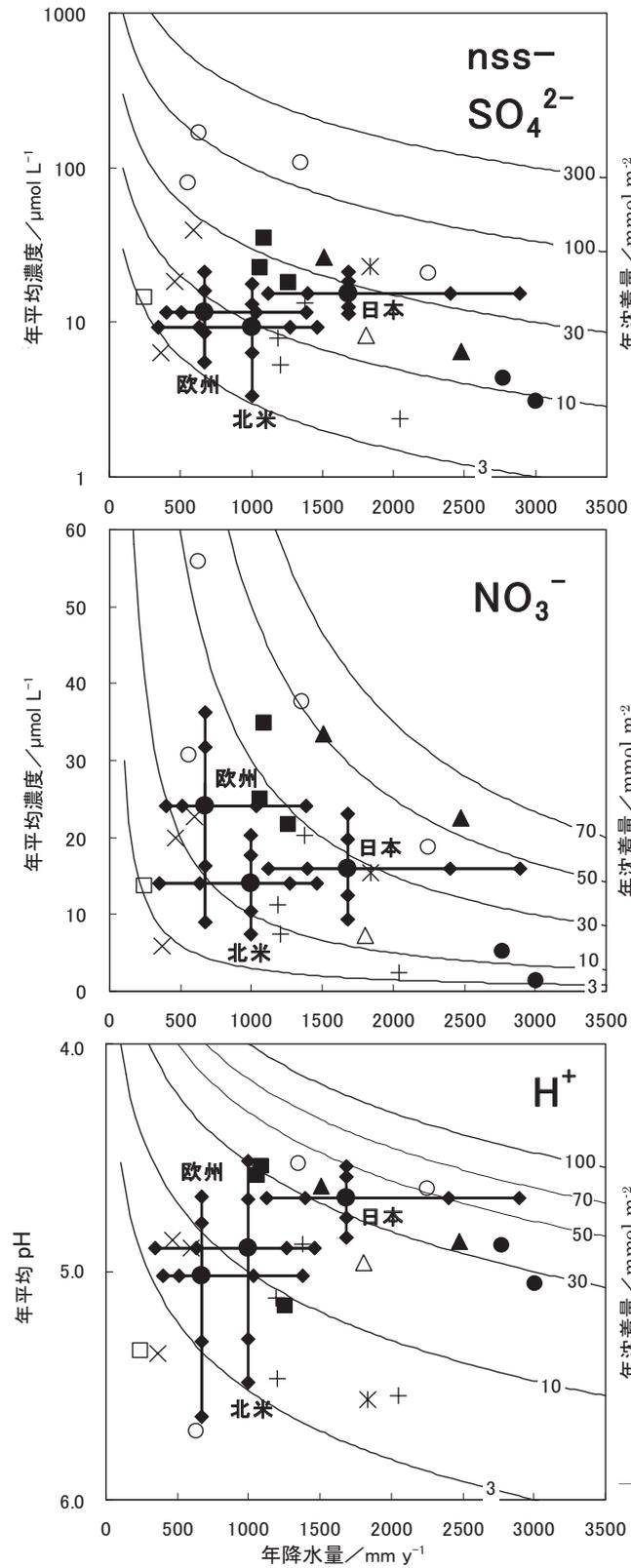


図 3-4-1-2 欧米及び東アジアとの湿性沈着量の比較 (2003-2006)

- 1) 日本：本調査+全国環境研協議会調査[n=68]、北米：NADP[n=250]、欧州：EMEP[n=97]
- 2) 東アジア：○：中国、▲：インドネシア、●：マレーシア、□：モンゴル、△：フィリピン、■：韓国、×：ロシア、+：タイ、\*：ベトナム
- 3) 日本、北米及び欧州の分布を 10、25、50、75 及び 90 パーセント値で表記

## (2) 乾性沈着の状況

日本、欧州及び米国におけるガス状物質及びエアロゾル中のイオン成分を比較した。日本は本モニタリング、欧州はEMEP、米国はCASTNETの2006年（日本は2006年度）のデータを用い、それぞれ測定地点の年平均値について、25、50、75パーセンタイル値及び最大値・最小値を求めて、図3-4-1-3に示した。日本の観測データの分布範囲は、欧州及び米国と比較して狭く、各項目の濃度の中央値は概ね同等の濃度レベルであり、特にオゾンでは中央値だけでなく、濃度範囲も同レベルであった。

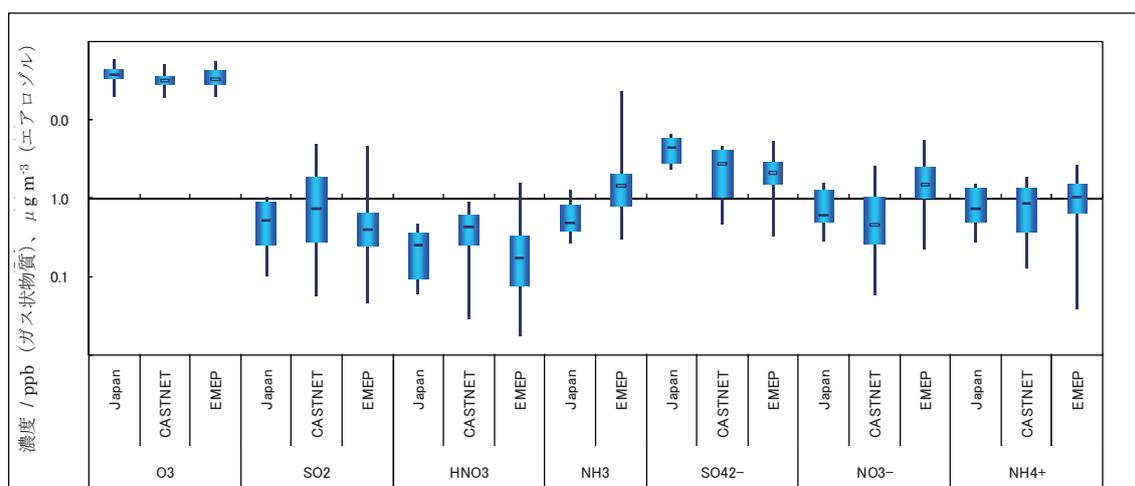


図3-4-1-3 欧米とのガス状物質及びエアロゾル中のイオン成分の比較

注) 欧州についてはEMEP、米国についてはCASTNETのデータを使用した。

次に、EANETのデータを用い、日本及び東アジア地域における大気中のガス状物質及びエアロゾル中のイオン成分を比較した。EANET測定地点における、2003年から2007年までの5年間のSO<sub>2</sub>平均濃度を図3-4-1-4に示した。SO<sub>2</sub>平均濃度は0.2ppbから15.8ppbの範囲にあった。中国の濃度が特に高く、中国以外においてもほとんどの都市、田園地域で1ppbを超えていた。一方、日本の測定地点はほとんどが1ppb以下であり、東アジア地域において日本のSO<sub>2</sub>濃度の低いことが示された。

図3-4-1-5には、遠隔地域、都市地域別に、乾性沈着物質として代表的な硫黄もしくは窒素を含むガス状物質及びエアロゾル中のイオン成分について、2003年から2007年までの5年間の平均濃度を示した。我が国の遠隔地域のデータは全遠隔地域の平均濃度であり、都市地域の濃度は東京<sup>1</sup>のデータとした。全ての項目において都市地域の濃度が高い傾向にある。

<sup>1</sup> 東京のデータは2007年度の1年間の平均値である。

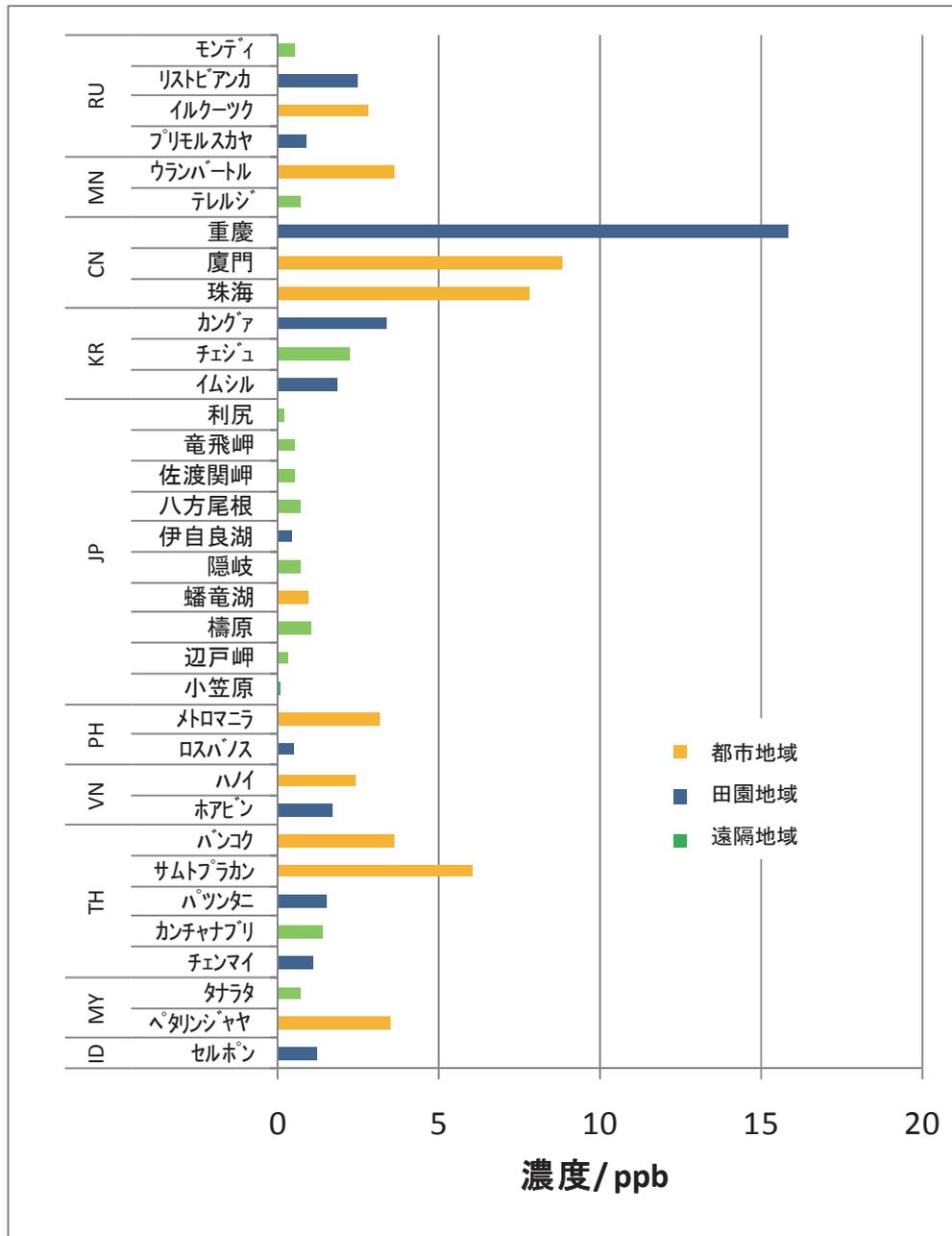
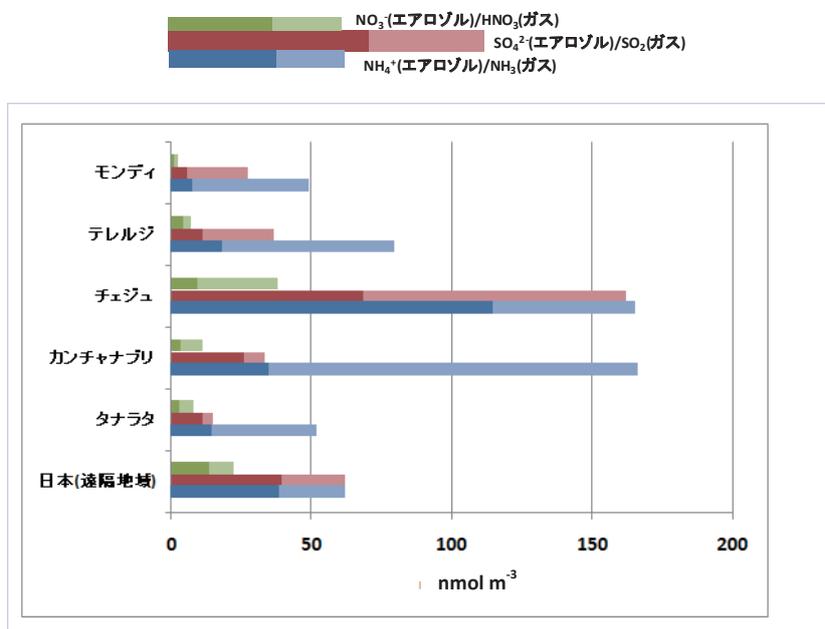


図3-4-1-4 EANET測定地点のSO<sub>2</sub>濃度の平均 (2003-2007)

a. 遠隔地域



b. 都市地域

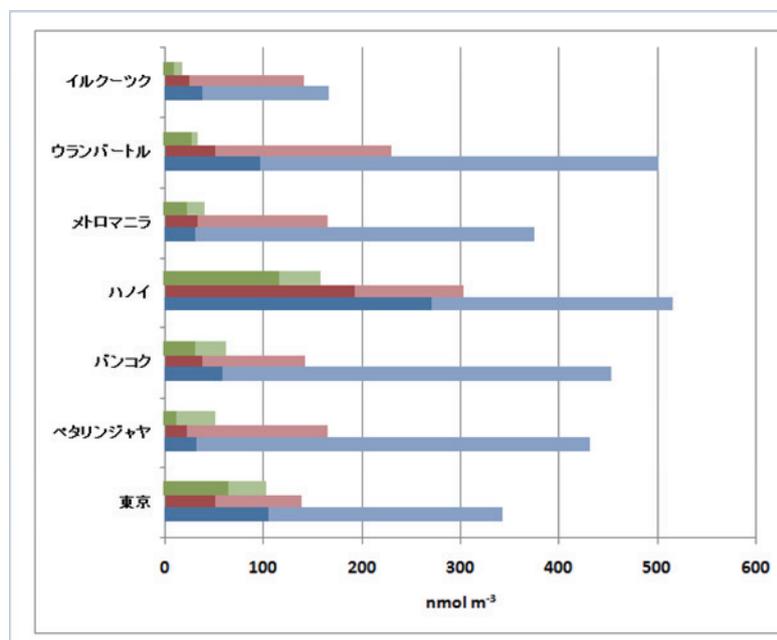


図 3-4-1-5 日本及び東アジアにおける大気中の硫黄及び窒素系のガス状物質、エアロゾル中のイオン成分濃度

注) ガス状物質とエアロゾル中のイオン成分の濃度単位を同一にするために、nmol m<sup>-3</sup>を用いた。

### 3.4.2 生態系

#### (1) 土壌の酸性化の状況

土壌は酸緩衝能を持つため、酸性化過程は段階的に時間をかけて進むことから、短期間のモニタリングではその変化を検出できないことが多い。

EANET では、これまで実施された土壌調査が 1、2 回に過ぎないため、この 5 年間での土壌の酸性化に関する判断はできないが、EANET モニタリング地点としても登録されている伊自良湖の場合は、酸性雨対策調査において 1988 年以来長期的なモニタリングを継続していたため、酸性化傾向を捉えることができた。現時点では、伊自良湖集水域での土壌酸性化が、酸性沈着の影響によると考えられる長期的な土壌酸性化の東アジア地域で唯一の例と言える。

一方、欧州では、森林への大気汚染影響の評価・監視に関する国際共同計画 (ICP Forests) により、1994 年から広域的な土壌モニタリングデータの収集・解析が開始されているが、モニタリングは 5300 プロットを対象に 10 年に 1 回の頻度で実施されているため、近年ようやく 2 回目のモニタリングが各国で実施されつつある現時点では、経時的な変化についてまとまった報告はまだされていない。欧州における土壌酸性化の代表例であるスウェーデン南西部は、1927 年に調査された地域を 1982-1984 年に詳細に調査をすることによって明らかにされたものである<sup>9)</sup>。

#### (2) 樹木の衰退の状況

東アジアにおける樹木の衰退の現状を図 3-4-2-1 に示した<sup>1)</sup>。多くのモニタリング地点で樹木衰退が確認されており、中国の Dabagou (西安市内)、ロシアの Bolshie Koty や Irkutsuk (ともにバイカル湖周辺) では、全ての樹木に何らかの障害がみられていた。衰退の原因として推定されたのは、病虫害が最も多く、次に気象・立地条件に由来するものであったが、原因が特定されない地点も多かった。原因の特定されていないロシアの地点 (Irkutsuk) については、バイカル湖周辺の工業地帯からの大気汚染の影響が、現地研究者により指摘されていた<sup>1)</sup>。

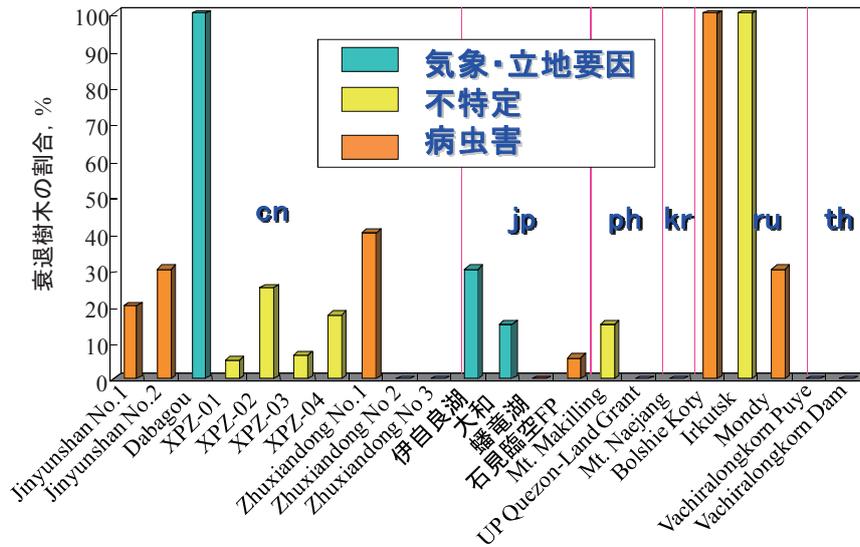


図 3-4-2-1 EANET モニタリング地点における樹木衰退の現状  
 2000-2004 年における観察の最新データを基に作成、観察対象木：20 本（最低 12 本以上）  
 cn：中国、jp：日本、ph：フィリピン、kr：韓国、ru：ロシア、th：タイ（EANET, 2006）

また、上記モニタリング地点には含まれていなかったが、モンゴルの首都ウランバートル近郊のボグドカーン山では、カラマツの枯損が報告されており（図 3-4-2-2）、火力発電所や移動住居（ゲル）における石炭燃焼由来の SO<sub>2</sub> 等の影響が示唆されている。ウランバートル市は盆地にあるため、冬季には大気汚染物質が滞留し、市街地では煤塵が目視で確認できるほどであり、ボグドカーン山には常時スモッグがかかった状態にある。枯損が主にみられるボグドカーン山斜面のカラマツ葉の S 濃度は、対象地域の 2 倍以上であった（約 2mg-S g<sup>-1</sup>）<sup>1),10)</sup>。



図 3-4-2-2 モンゴルウランバートル近郊のボグドカーン山のカラマツ枯損  
 正面は、ウランバートル第 3 火力発電所

上記のように、EANET 参加国における大気汚染による樹木衰退は、工業地帯や都市周辺域など、比較的局所的な大気汚染の影響を受けていると考えられるケースが現時点では多い。我が国においても、原因の特定できない事例はあるが、関東平野部のスギ枯損や日光、赤城など北関東山岳地域における樹木衰退など、樹木衰退は大都市周辺でみられたものが多く、越境大気汚染による影響を明確に示唆する事例は報告されていない。

一方で、近年、我が国ではオゾン濃度が漸増傾向にあるとともに光化学オキシダント注意報発令地域が広域化しており、その一因としてアジア大陸からの越境大気汚染が挙げられている。赤城や八方尾根等の高標高地点では年平均 60ppb 以上であり、竜飛岬、佐渡関岬、隠岐や対馬等、離島や日本海側沿岸でも、年平均で 40ppb を超えていた (3.1.2 参照)。また、東アジア諸国でも高濃度オゾンが報告されている。表 3-4-2-1 に、タイ熱帯季節林における雨季・乾季のオゾン濃度を示した。ここで示した値は、パッシブサンプラーを用いて測定した 15 日間の平均値であるが、最大で 60ppb を超える濃度が検出され、特に乾季は平均値でも 40ppb を超えていた。植物への影響を考える場合は、40ppb 以上の時間の積算値が成長衰退の指標として用いられている (3.3 節コラム参照) ことから、今後は森林地域における高濃度オゾン及びその植物影響について、十分に監視していく必要があると考えられる。

表 3-4-2-1 タイ熱帯季節林 (サケラート林業研究ステーション) におけるオゾン濃度

年	季節	平均	中央値	最小値	最大値
2005-2006	乾季(Dec - Mar)	43.0	40.6	29.7	64.2
2006	雨季(Apr - Nov)	29.2	25.6	19.8	66.7
2006-2007	乾季(Dec - Mar)	45.5	43.0	34.0	58.1

注) オゾン濃度は、小川式パッシブサンプラーを用いて測定された 15 日平均値 (ppbv) を示す。

欧州では、オゾンの植物影響について、ICP Forests による取組が開始されつつあり、パッシブサンプラーを用いて、森林地域のオゾン濃度の広域的な評価を推進するとともに、オゾン可視障害の観察による評価を進めている。2001 年 4 月から 9 月にかけて行われた試行期間では、イタリア、スペインなど地中海諸国の多くの地点で、平均濃度が 45ppb 以上であった。

### (3) 陸水の酸性化の状況

EANET では、陸水の酸性化傾向は報告されていない。アルカリ度が  $0.200\text{mmol}_e \text{L}^{-1}$  未満、EC が  $10\text{mS m}^{-1}$  未満の酸感受性が高いとされる湖沼は、中国、日本、ロシアなどで報告されているが、東南アジア諸国のモニタリング湖沼の多くは、上記の条件を満たしていなかった。湖沼は、モニタリング適地をみつけることが困難で、酸緩衝メカニズムも複雑なため、現在 EANET では、集水域の物質循環の影響を直接反映すると考えられる河川をより積極的

に選定していく方向で議論が進められている。

欧州では、河川・湖沼の監視・評価のための国際共同計画（ICP Waters）による広域的な陸水のモニタリングが実施されてきた。欧州においては、排出量の削減により、河川・湖沼水中の  $\text{SO}_4^{2-}$  濃度は年々減少しており、特にその減少率は 1990 年代に大きかったと報告されている。 $\text{SO}_4^{2-}$  の河川への流出は  $\text{SO}_4^{2-}$  沈着量により制御されている一方で、 $\text{NO}_3^-$  濃度は明確なトレンドを示さず、その流出プロセスがより複雑であることが報告されている。アルカリ度は 2/3 の地点で変化はみられず、1/3 の地点で上昇傾向がみられていた。1990-2001 年の期間には 14% の地点で酸性化が進んでいたが、酸性化がこれ以上進む地域はないと報告されている。このように、欧州では既に陸水は回復傾向にあるといえる。

一方、我が国においては、酸性雨対策調査総合とりまとめ報告書で、酸緩衝能の低い山岳地帯の河川・湖沼における酸性化傾向や、融雪期における一時的な酸性化などが指摘されている。さらに、本報告書において、伊自良湖集水域だけでなく、新潟県、岐阜県等で広域に河川が酸性化している可能性が指摘されたことから、東アジア及び我が国の陸水における酸性沈着の影響については、今後も注意して監視していく必要があると考えられる。

（引用文献）

- 1) EANET, 2006. Periodic Report on the State of Acid Deposition in East Asia, Part I: Regional Assessment and Part II: National Assessment. <http://www.eanet.cc/product.html>
- 2) 全国環境研協議会、第 4 次酸性雨全国調査報告書(平成 15 年度)、全国環境研会誌、30(2)、19-37、2005
- 3) 全国環境研協議会、第 4 次酸性雨全国調査報告書(平成 16 年度)、全国環境研会誌、31(3)、13-33、2006
- 4) 全国環境研協議会、第 4 次酸性雨全国調査報告書(平成 17 年度)、全国環境研会誌、32(3)、3-31、2007
- 5) 全国環境研協議会、第 4 次酸性雨全国調査報告書(平成 18 年度)、全国環境研会誌、33(3)、2-72、2008
- 6) Network Center for EANET, Acid Deposition Monitoring Network in East Asia (EANET) Data Report 2003, 2004, 2005, and 2006.
- 7) NADP, 2008. Data access. National Atmospheric Deposition Program (NADP), [http://nadp.sws.uiuc.edu/sites/ntnmap.asp?](http://nadp.sws.uiuc.edu/sites/ntnmap.asp)
- 8) EMEP, 2008. EMEP measurement online. EMEP Chemical Coordinating Centre at NILU, <http://www.nilu.no/projects/ccc/emepdata.html>
- 9) Hallbäcken & Tamm, 1986. Changes in soil acidity from 1927 to 1982-1984 in a forest area of south-west Sweden. *Scand. J. For. Res.* 1: 219-232.
- 10) Sase H., Bulgan T., Batchuhuluun T., Shimizu H., Totsuka T. 2005. Tree decline and its possible causes around Mt. Bogdkhan in Mongolia. *Phyton* (Horn, Austria) 45: 583-590.

## 4. 越境大気汚染の問題

### 4.1 世界からみた越境大気汚染と東アジアの状況

歴史的にみると「越境大気汚染」という言葉が生まれたのは、1960年代に顕在化したヨーロッパにおける酸性雨問題が契機である。スカンジナビア半島で湖沼が酸性化し、魚が死滅するなどの大きな環境問題となったとき、スウェーデンの気象学者によってその原因がヨーロッパ大陸、英国などの主要発生源地域からの酸性物質の長距離輸送によるものであることが示された<sup>1)</sup>。酸性物質の長距離輸送の研究は、その後ヨーロッパにおける酸性雨問題のさらなる深刻化、また北米大陸における米国、カナダ間の酸性雨越境汚染の顕在化を受けて、1970年代から80年代に欧米における研究が飛躍的に展開された<sup>2)</sup>。この間に生まれたのが、1979年に締結された、旧ソ連を含むヨーロッパ諸国と米国、カナダが批准している長距離越境大気汚染条約（CLRTAP）である。以後、欧米では硫黄酸化物・窒素酸化物の排出規制が強化され、1990年代には酸性雨は環境問題の主役の座から退いている。

これに代わって注目されるようになったのがオゾン汚染である。欧米においては窒素酸化物対策やVOC対策が進んでいるにもかかわらず、オゾンの環境基準が達成されない一因として、大陸間輸送による北半球オゾンのバックグラウンド濃度の上昇があり、オゾンの環境基準の達成には、半球規模での国際的な取組が必要であるという議論が生まれてきた。そのような考え方に従って、CLRTAPの下に最近「大気汚染の半球輸送に関するタスクフォース（TF-HTAP）」（4.4.1参照）が設置されている。

一方、東アジアにおいては欧米に代わって1990年代以降、酸性雨に対する関心が高まり、「東アジア酸性雨モニタリングネットワーク（EANET）」が設立された。それに伴って東アジアにおける酸性物質の越境輸送にも関心が向けられ、我が国の硫黄酸化物沈着量の内、中国、韓国などからの寄与分についての計算結果が報告されている<sup>3)</sup>。それらの報告値にはかなり大きなばらつきがある一方、東アジアでは酸性雨の環境影響は差し迫った問題というよりは長期的リスクの問題として捉えられるようになってきている。

また、東アジアにおいてもオゾン汚染が注目されるようになってきており、特に我が国においては、オゾン前駆体物質であるVOC、NO<sub>x</sub>の大気中濃度の減少にも関わらず、都市域のみならず日本列島全域でオゾン濃度の長期上昇傾向がみられており、中国の急速な経済発展に伴うオゾン汚染の悪化と、越境輸送による我が国への影響が議論され始めた。一方、大陸間輸送によるオゾンの半球規模汚染は、東アジアのバックグラウンドオゾン濃度も上昇させており、我が国の環境基準の全国的な未達成問題にも大きな関わりがあることが分かってきた。従って、今後我が国のオゾン抑止対策を論ずるに当たっては、東アジア全域におけるオゾン濃度の上昇に伴うアジア域内での越境輸送の問題と、大陸間輸送・半球規模汚染の問題とを結びつけた国際的な枠組みの中での議論が必要である。

## 4.2 東アジアにおける大気汚染物質排出量の増大

アジア域排出インベントリ REAS (Regional Emission inventory in Asia) <sup>4)</sup>の結果をもとに、東アジアにおける大気汚染物質排出量 (NO<sub>x</sub>、SO<sub>2</sub>、NMVOC を対象とする。) の経年変化と将来動向について整理する。

### (1) 大気汚染物質排出量の経年変化

図 4-1 に、地域別排出量の 1980～2003 年の経年変化を示す。また、表 4-1 には東アジアにおける 1980、1990、2003 年の排出量を示す。2000 年におけるアジア全体の NO<sub>x</sub> 排出量は 2,511 万トンで、中国 (45%) とインド (19%) の排出量が非常に多く、最大の排出国である中国では、石炭火力発電所 (34%)、工場等の石炭燃焼 (25%)、自動車等の石油燃焼 (25%) が大きな割合を占める。1980 年から 2003 年におけるアジア全域の変化に着目すると、燃料消費量がこの間に 2.3 倍増加したことに伴い、NO<sub>x</sub> 排出量も 2.8 倍に増加した。中でも、中国における増加は 3.8 倍 (平均年率 6%) と非常に大きく、特に、2000 年以降は過去最高となっている (3 年間で 1.3 倍)。

SO<sub>2</sub> 排出量は 2000 年にはアジア全域で 4,149 万トンであり、工場・火力発電所などの石炭燃焼施設からの排出割合が 64% と高い。1980 年から 2003 年の間に排出量はアジアでは 2.2 倍、東アジアでは 2.1 倍、中国では 2.5 倍に増加している。一方、NMVOC の 2000 年におけるアジア全域の排出量は 4,024 万トンで、発生源種類別には工場・火力発電所などの燃焼施設 (38%) と自動車などの輸送機関 (33%) が大きな割合を占める。また、1980 年から 2003 年の間に NMVOC 排出量はアジアでは 2.1 倍、東アジアでは 2.4 倍、中国では 2.5 倍に増加している。

### (2) 大気汚染物質排出量の将来動向

将来の排出シナリオを設定し、東アジア地域における 2020 年の将来排出量を予測した結果を表 4-2 に示す。ここで、中国については、将来のエネルギー消費と環境対策の動向を考慮して、現状推移型 (燃料消費や環境対策が現状のまま推移し排出量が最も増加するシナリオ:PFC)、持続可能性追求型 (エネルギー対策や環境対策を適度に進めたシナリオ。排出量は 3 種類のシナリオの中位:REF)、対策強化型 (エネルギー対策や環境対策を強力に進めることにより、排出量が最も少ないシナリオ:PSC) の 3 種類のシナリオを設定している。これらの排出シナリオ PSC、REF、PFC のコンセプトはそれぞれ、IPCC の B1、B2、A2 シナリオ<sup>5)</sup>に近い。また、中国以外の国については、国際エネルギー機関 (IEA) のエネルギー需要予測に基づく排出シナリオが設定されている。その結果、2020 年における中国の NO<sub>x</sub> 排出量は、REF と PFC のシナリオでは、2000 年に較べて、それぞれ、39%、128% 増加するが、PSC シナリオではわずかに減少する。しかし、2000 年以降の排出量や燃料消費量の増加傾向、衛星観測結果などから判断すると、現在の NO<sub>x</sub> 排出量は、最も排出量の多い PFC シナリオの 2020 年予測値付近に達している可能性があり、シナリオを上回るペースで排出量が増加していると考えられる (図 4-2a 参照)。

また、アジア地域の SO<sub>2</sub> 将来排出量は、どの排出シナリオでも 2000 年より増加することが予測

されているが、中国においては、2000年に較べて-28% (PSC)、-3% (REF)、+163% (PFC) となっている (図 4-2b 参照)。また、2020年の中国における NMVOC 排出量は 2000年に較べ、+97% (PSC)、+139% (REF)、+163% (PFC) と、いずれのシナリオでも大幅に増加する (図 4-2c 参照)。

表 4-1 東アジアの 1980~2003 年の排出量

領域	1980	1990	2003
NOx			
中国	3.8	6.6 (1.7)	14.5 (3.8)
その他の東アジア	3.6	3.8 (1.1)	4.7 (1.3)
東アジア合計	7.4	10.4 (1.4)	19.2 (2.6)
SO <sub>2</sub>			
中国	14.9	21.6 (1.4)	36.6 (2.5)
その他の東アジア	3.9	3.8 (1.0)	2.4 (0.6)
東アジア合計	18.8	25.3 (1.3)	39.0 (2.1)
NMVOC			
中国	6.8	9.7 (1.4)	17.2 (2.5)
その他の東アジア	2.0	3.1 (1.6)	3.9 (1.9)
東アジア合計	8.8	12.8 (1.5)	21.1 (2.4)

単位は Mt yr<sup>-1</sup>、( ) は 1980 年に対する増加率

表 4-2 東アジアの排出量の将来変化

領域	2000	2020		
		PSC	REF	PFC
NOx				
中国	11.2	11.0 (1.0)	15.6 (1.4)	25.5 (2.3)
その他の東アジア	4.4	5.5 (1.3)	5.5 (1.3)	5.5 (1.3)
東アジア合計	15.6	16.5 (1.1)	21.1 (1.4)	31.0 (2.0)
SO <sub>2</sub>				
中国	27.6	19.9 (0.7)	26.8 (1.0)	40.9 (1.5)
その他の東アジア	2.6	3.6 (1.4)	3.6 (1.4)	3.6 (1.4)
東アジア合計	30.2	23.5 (0.8)	30.4 (1.0)	44.5 (1.5)
NMVOC				
中国	14.7	29.0 (2.0)	35.1 (2.4)	38.6 (2.6)
その他の東アジア	3.7	6.3 (1.7)	6.3 (1.7)	6.3 (1.7)
東アジア合計	18.4	35.3 (1.9)	41.4 (2.3)	44.9 (2.4)

単位は Mt yr<sup>-1</sup>、( ) は 2000 年に対する増加率

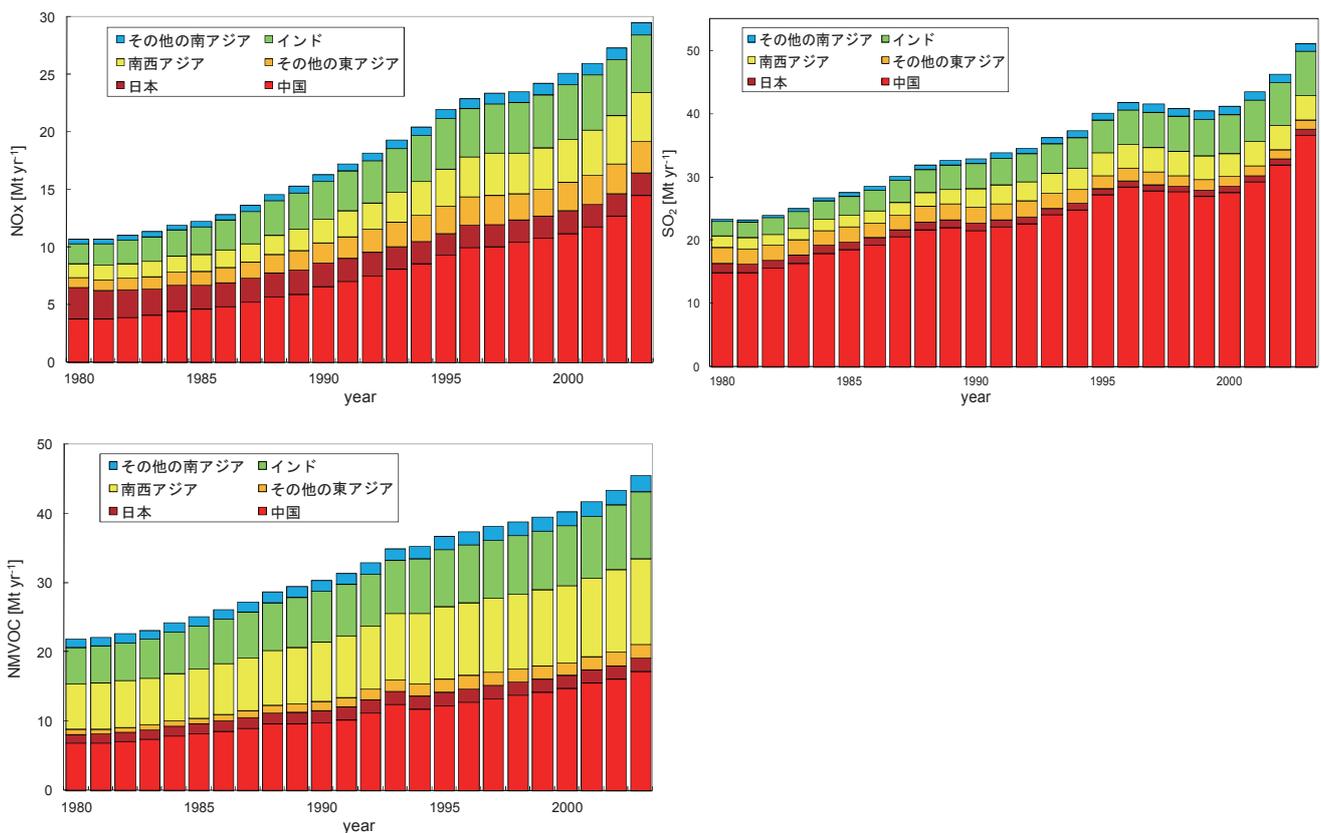
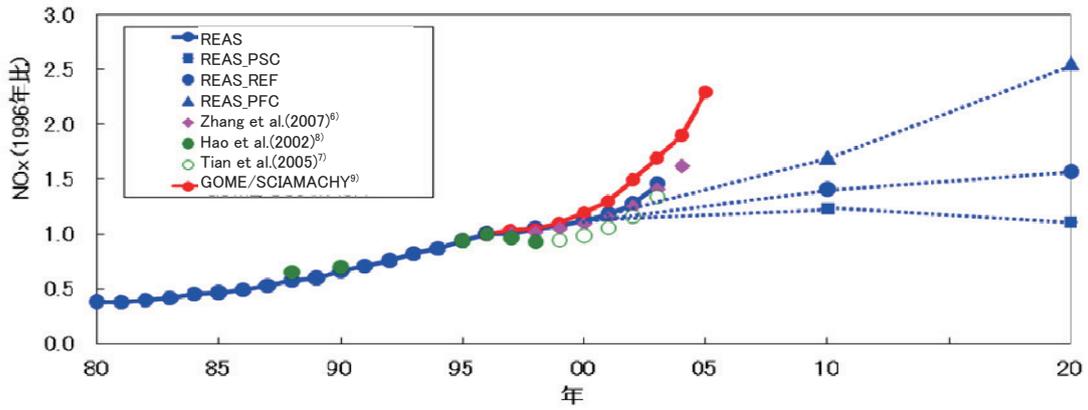
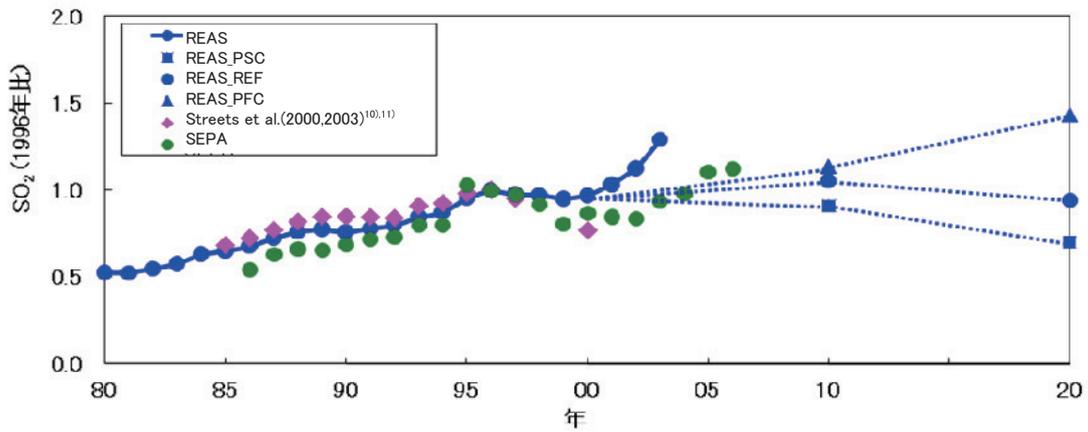


図 4-1 アジアにおける NOx、SO<sub>2</sub>、NMVOC 排出量の経年変化

a)



b)



c)

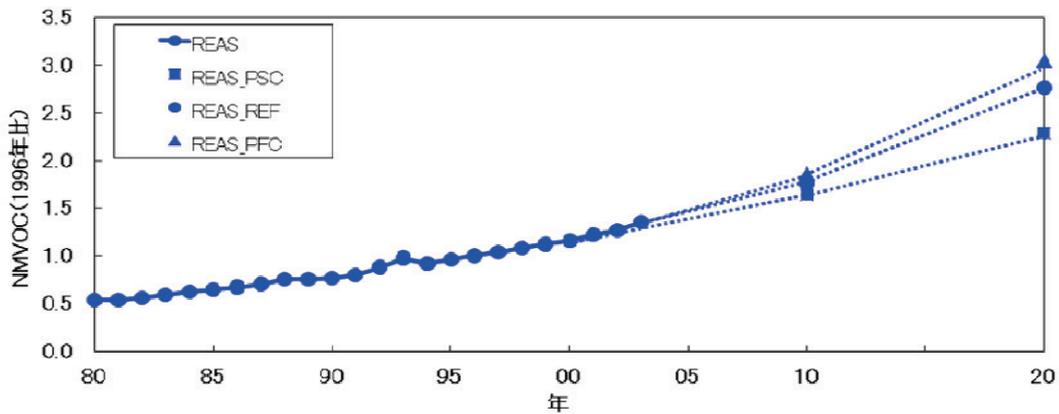


図 4-2 中国における NO<sub>x</sub>、SO<sub>2</sub>、NMVOC 排出量の推移

注) 縦軸は 1996 年を基準とした大気汚染物質排出量比であり、同年を含む経年変化を推計している結果のみをまとめた。

REAS : アジア域排出インベントリ (Regional Emission inventory in Asia) の略

REAS\_PSC : エネルギー対策や環境対策を強力に進めることにより、排出量が最も少ないシナリオ

REAS\_REF : エネルギー対策や環境対策を適度に進めたシナリオ、排出量は 3 種類のシナリオの中位

REAS\_PFC : 燃料消費や環境対策が現状のまま推移し排出量が最も増加するシナリオ

GOME/SCIAMACHY : 対流圏衛星観測 GOME/SCIAMACHY による NO<sub>2</sub> カラム濃度<sup>9)</sup>

SEPA : 中国国家環境保護総局 (現在の中国国家環境保護部) による推計

## 4.3 越境大気汚染の我が国への影響

### 4.3.1 我が国における越境大気汚染の状況

#### (1) オゾン

##### ①東アジア地域のオゾン汚染

東アジア地域のオゾン汚染の時・空間的な把握を目指して、アジア域の排出量データベース REAS<sup>13)</sup>と領域化学輸送モデル CMAQ<sup>14)</sup> (Community Multiscale Air Quality) を利用した東アジアオゾン濃度の解析を行った<sup>15)</sup>。図 4-3 に、2000 年の隠岐と対馬における、モデルと観測の日平均オゾン濃度の比較結果を示す。日本域のオゾン濃度は、気象因子(日射・気温・気流)の影響を受け、①春季から初夏にかけて日射と気温の増加とともに上昇、②清浄な海洋性気団の影響が強まる盛夏に減少、③海洋性気団の影響が弱まる秋季に再上昇、④日射・気温が低下する冬季に減少する。日射と気温はオゾンの光化学生成量を左右し、気流の変化は日本域が清浄気塊(海洋性気団)と汚染気塊(大陸性気団)のいずれの影響が強いかを左右するが、その結果は数値モデルからも確認できる。図 4-4 には、CMAQ モデルによって計算された 2000 年 5~6 月及び 7~8 月の地表オゾンの平均濃度(2ヶ月平均)を示す。5~6 月には、中国~朝鮮半島~日本(北緯 30°~45° 付近)にかけてオゾン濃度が高く、地表オゾンの 2ヶ月平均濃度は、華北平原で 65-70 ppbv、中国北東部、朝鮮半島、及び日本の一部地域で 60-65 ppbv に達する。一方、夏季の 7~8 月には、海洋性気団の影響を受ける中国南部、朝鮮半島、日本では、オゾン濃度が減少するが、中国北東部(特に華北平原)では、60 ppbv 以上のオゾンに覆われる。

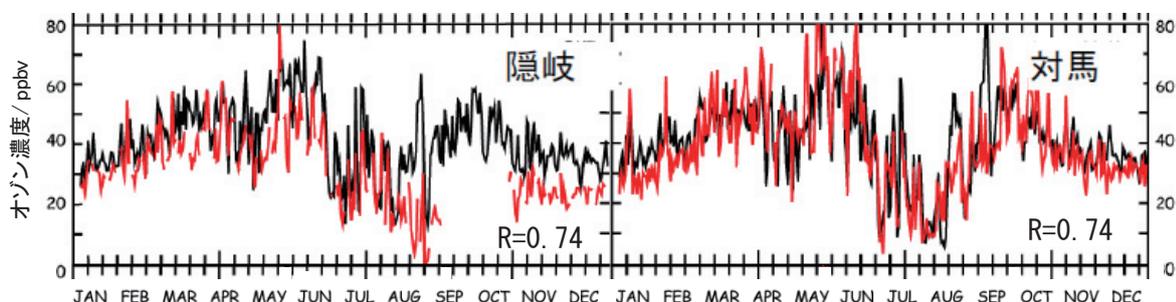


図 4-3 隠岐と対馬のオゾン濃度(黒色:モデルと赤色:観測)<sup>15)</sup>

図中の数字は相関係数を示す。

越境輸送されるオゾンの寄与を調べるために、排出量をゼロにしたモデル実験(排出量ゼロ実験)を行い、東アジアのオゾン汚染が、「モデル領域内(東アジア内)からのオゾン前駆汚染物質の排出」と「モデル領域外(東アジア以外)からの流入」のいずれに起因しているかを調べた<sup>15)</sup>。図 4-5 には、我が国を含む東アジアから排出された汚染物質によって生成された地表オゾンの平均濃度(2ヶ月平均)を示す。5~6月の我が国を含む東アジアの汚染物質起源のオゾン濃度は、関東以南の日本域で 20-35 ppbv に達し、7~8月には太平洋高気圧の影響により九州、四国及び本州南部では 10-20 ppbv に低下する一方で、本州北部は 20-25 ppbv であり、東アジアの汚染物質起源の寄与率は 50%以上にまで達する。日本を含む東アジアからの汚染物質の排出による影響は、日射や気温の増加に伴

って春から夏にかけて増大するが、東アジア起源のオゾンのみでは、図 4-4 の地表オゾン濃度に達せず、東アジア外からの影響も十分に大きいといえる。

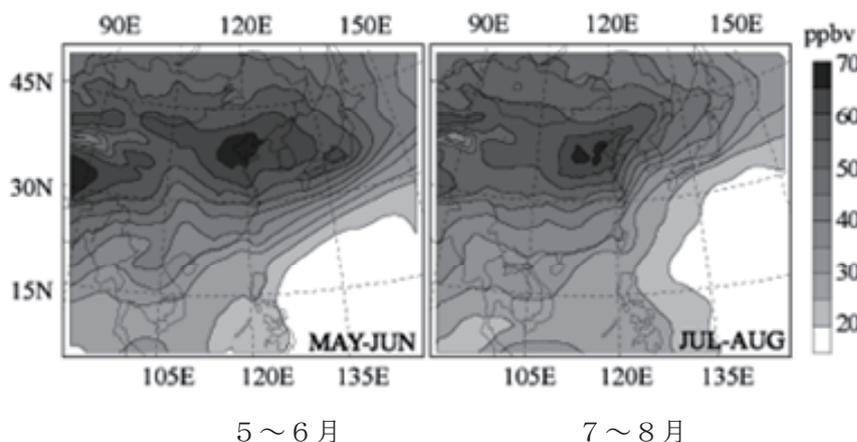


図 4-4 2000 年 5～6 月と 7～8 月における地表オゾン濃度<sup>15)</sup>

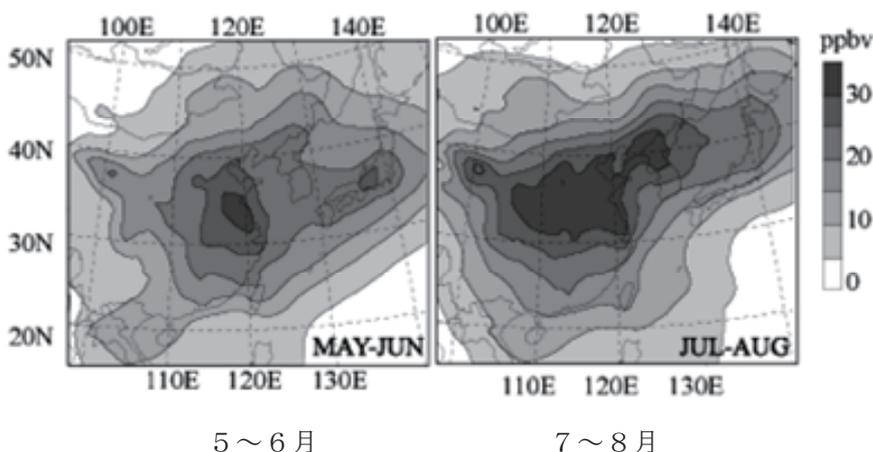


図 4-5 2000 年 5～6 月と 7～8 月における東アジアの汚染物質起源の光化学生成地表オゾン濃度<sup>15)</sup>

## ②アジア域外からの影響

全球化学輸送モデルを用いて、ヨーロッパ・北米大陸のオゾン前駆汚染物質排出量ゼロ実験を行ない、アジア域外の影響を調べた結果<sup>16)</sup>、ユーラシア大陸を横断する大気は東アジアへの入口に位置する東シベリアのモンディにおけるオゾン濃度は、ヨーロッパから 0.5-3.5 ppbv、北米から 1.2-3.3 ppbv、それぞれ影響を受けていることを示した。その影響は冬から春にかけて増大してピークを迎えた後、夏季に減少（ヨーロッパ：1.8 ppbv、北米：1.4 ppbv）する季節変動を示し、春季におけるヨーロッパと北米からの寄与は、東アジアの清浄地域のオゾン濃度に対して合わせて約 15%であることが示された。一方、全球規模で輸送されるオゾンの起源を調べるため、全球モデルを用いたタグ付きトレーサー実験を行なった結果<sup>17)</sup>、ヨーロッパから東アジアへの影響は、例えば、鹿児島県の境界層内

のオゾンに対し、4月に2-2.5 ppbv程度で、7月に1 ppbv以下に減少した。また、北米からの影響も、4月に1-2 ppbv程度で、7月に0.5 ppbv以下に減少した。一方、ヨーロッパ・北米の寄与と比較すると、中国の境界層内で生成したオゾンの影響は非常に大きく、春季には15ppbvに達し、夏季にもアジアの自由対流圏で生成したオゾンと合わせて、15 ppbvに達することが分かった。また成層圏寄与も、冬季から春季に多く10-15 ppbvであった。

### ③東アジア起源の汚染気塊の輸送状況及びその寄与

観測データにより、隠岐と八方尾根に到達する異なる気塊（RPC：東アジア地域汚染気塊、BK：東アジア大陸性清浄気塊）中のオゾン濃度をトラジェクトリー解析によって調べた<sup>18)</sup>。図4-6は、東アジア地域汚染気塊と東アジア大陸性清浄気塊のオゾン濃度、及びこれらの濃度差から求められた東アジア汚染起源のオゾン濃度（EA）の季節変動を示す。隠岐に到達する東アジア地域汚染気塊中のオゾン濃度は、春季から夏季にかけて増大し、4～9月の月平均値が約55 ppbvである。また、八方尾根に到達する東アジア地域汚染気塊中のオゾン濃度は、5月に最大値を示し、月平均値が60ppbvを超える。これらの結果は、光化学活性の活発な時期に大陸から日本へ流入する気塊中の月平均オゾン濃度が、既に日本の環境基準（60 ppbv）に近いことを示している。東アジア汚染起源のオゾン濃度は、何れの地点も、6～7月に最大で15-20 ppbvに達し、冬季に最低（数 ppbv）であることも観測データの解析から示された。

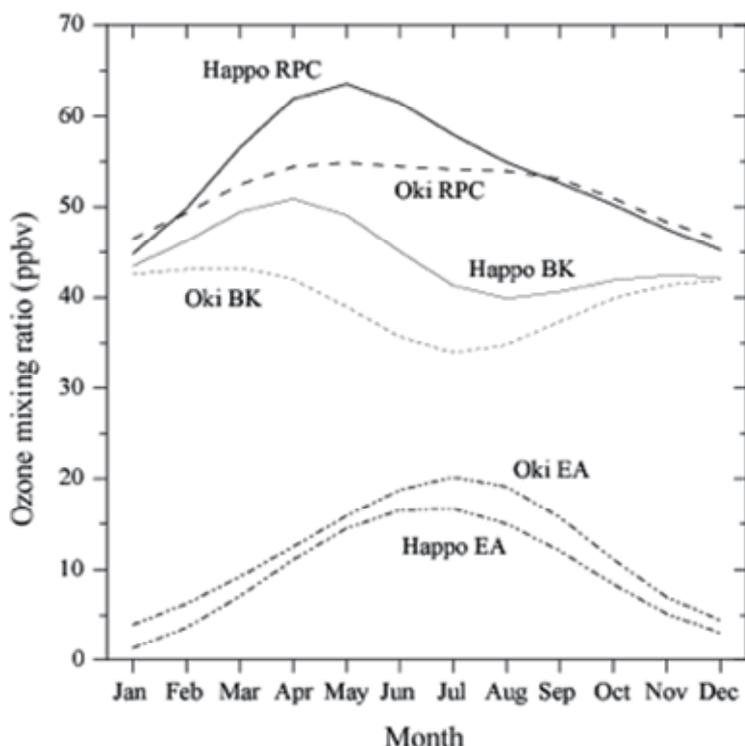
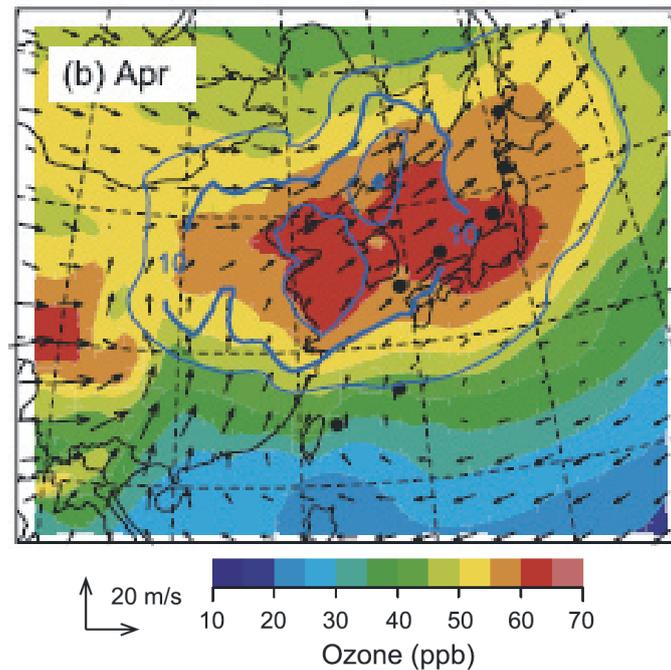


図4-6 隠岐及び八方尾根における東アジア地域汚染気塊（RPC）と東アジア大陸性清浄気塊のオゾン濃度（BK）、及びこれらの濃度差から求められた東アジア汚染起源のオゾン濃度（EA）<sup>18)</sup>

また、アジア大陸から我が国への越境汚染の影響については、図 4-7 に 2002 年 4 月の地表オゾンの月平均濃度分布と東アジア（中国及び韓国）からのオゾン前駆物質起源の寄与を示した。東アジアからのオゾン前駆物質を起源とするオゾンは月平均 5-10 ppb 程度の寄与があり、本州付近のオゾン濃度が 50~60 ppbv である<sup>19)</sup>ことから、概ね 10~20 数%程度が東アジア起源であると考えられた。



[青色のコンターが東アジア（中国及び韓国）起源のオゾン濃度]

図 4-7 2002 年 4 月の地表オゾン濃度の平均分布及び東アジア起源のオゾンの寄与<sup>19)</sup>

#### ④高濃度エピソードの解析

春季の高濃度エピソードの一例として、2007 年 5 月 8～9 日の現象（8～9 日にかけて九州から西日本の広い範囲で高濃度の光化学オキシダントが観測、9 日には 22 都府県で光化学オキシダント注意報が発令された。）について、CMAQ モデルを用いて解析した<sup>20)</sup>。全国の大気汚染常時測定局データによれば、5 月 8 日には九州北部から中国地方西部において 120 ppbv を超える高濃度が観測され、翌 9 日には北海道及び東北北部を除く広い地域で 100 ppbv 以上の高濃度が観測されている。80 ppbv 以上の高濃度時における中国寄与率を計算したところ、青森県以北を除く日本全国で 25%以上であり、九州地域では 40-45%であった（図 4-8）。

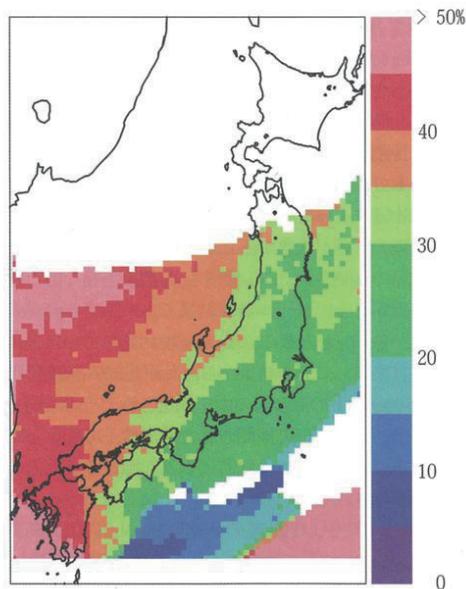


図 4-8 2007 年 5 月 8～9 日における高濃度オゾン観測時の中国寄与率<sup>20)</sup>

## (2) エアロゾル

長距離輸送されるエアロゾルに含まれる硫酸、硝酸及びその塩は最終的には降水に溶けて沈着されるものであり、これまで酸性雨の観点から降水の化学成分が検討されてきた。アジアスケールでのエアロゾルの輸送や分布、気候への影響などの研究は、UNEP（国連環境計画）の ABC プロジェクト等で実施されてきたが、最近ではエアロゾルの化学成分を高い時間分解能で分析できる装置により、同時に測定されるガス状成分と遜色のない解析が可能になりつつあるので、今後はエアロゾル化学成分も対象とした長距離越境大気汚染の議論が活発になると考えられる。

### ①エアロゾルの長距離輸送の観測

リモート地域におけるエアロゾルの長距離輸送として、沖縄辺戸岬での人為起源エアロゾル及び黄砂の観測結果<sup>21)</sup>が TF-HTAP（4.4.1 参照）の報告書<sup>22)</sup>に紹介されている。

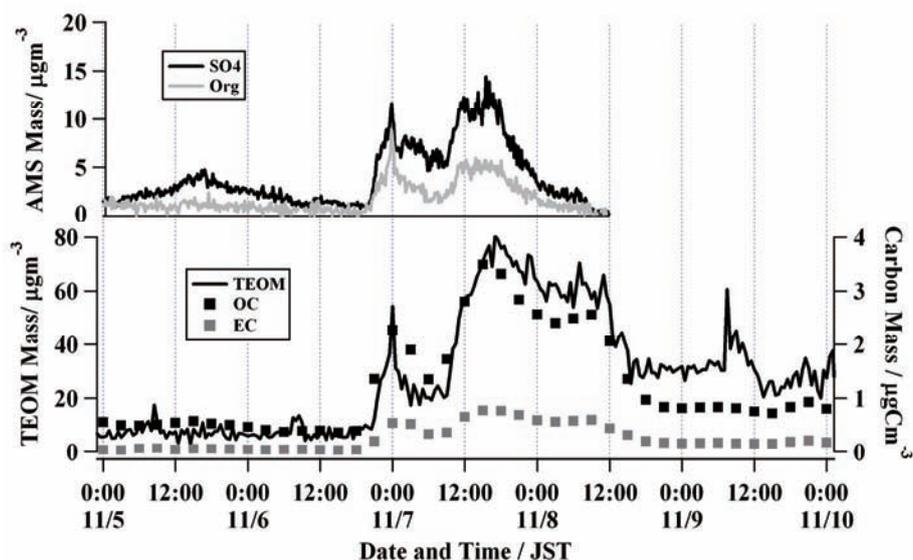


図 4-9 エアロゾル質量分析計、TEOM、EC/OC 計などで分析したエアロゾル化学成分 (Org.: 有機成分、TEOM: PM<sub>2.5</sub>、OC: 有機炭素、EC: 元素状炭素)

図 4-9 にみられるように、辺戸岬では、11 月 7 日 0:00 頃寒冷前線通過とともに硫酸塩、有機物の増加が観測された。これらは一旦減少したが、7 日 12:00 ごろより再び大きく増加した。後方流跡線から判断すると、前者は台湾起源であり後者は中国中部起源とみられる。その後 8 日 12:00 頃までには硫酸塩や有機物は減少した。ライダー観測では、7 日 12:00 頃より黄砂粒子が観測され始め、8 日 12:00 以降は黄砂が卓越していた。人為起源エアロゾルが観測されている間は EC/OC 比は 0.2 程度で一定であった。この事例では、日本の南岸を通る前線の通過に伴い、まず台湾起源の人為起源エアロゾルが沖縄に輸送され、引き続き大陸から移動してきた高気圧によって、人為起源エアロゾルと黄砂がほぼ同時に大陸から輸送されてきたものと考えられる。その後、別の高気圧が再び大陸から東シナ海に移動して黄砂が輸送され、後半は黄砂が卓越した状態であった。

黄砂の前面で人為起源エアロゾルが観測される現象は、大陸からの大規模な越境汚染を示唆するものであり、これまでもいくつか報告されているが<sup>23, 24)</sup>、気象場によりその詳細は大きく異なる。

リモート地域における越境汚染の把握については、富士山頂においても 2004 年 1 月から 7 月に SO<sub>2</sub> や CO などの連続観測が行われた<sup>25)</sup>。この観測から、アジア大陸から太平洋に向けての輸送現象が把握され、その季節変化が明らかにされた。SO<sub>2</sub> の高濃度イベントは CO の高濃度と同時に起こり、その季節的な変化は大陸における SO<sub>2</sub> 発生源の季節変化とは一致しない。季節変化に最も大きく寄与しているプロセスは雲過程で、湿度の低い冬には SO<sub>2</sub> の除去が少なく、湿度の高い夏には多くなる。

## ②モデルによる解析例

また、エアロゾルの長距離輸送に関しては、シミュレーションモデルを利用した解析も行われている。化学輸送モデル RAMS/CFORS<sup>26)</sup> は、人為起源汚染物質 (CO、SO<sub>2</sub>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>エアロゾル、燃焼による炭素性エアロゾル) と自然起源物質 (ダスト、海塩粒子、火山ガス) 等の大気中の約 20 の化学成分の流れを、アジア域を対象として再現するものである。同モデルを用いた 2001 年 4 月の越境大気汚染の解析例を以下に示す。図 4-10 には、2001 年 4 月 9 日から 12 日の越境輸送の水平分布を示す。図から、非常に大きなダストの気塊が寒冷前線の背後に広く分布し、低気圧と前線の東進に伴い大陸から順に朝鮮半島、日本列島に流れ出す様子が明瞭に把握できる。ダストの気塊の東進は高緯度ほど早く、西日本ではその到来が利尻よりも 1～2 日程度遅い。ダストの高濃度域の前面に SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>エアロゾルの高濃度域の存在が再現され、観測とモデルの結果を解析することで、黄砂が SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>エアロゾルに数時間の遅れを持って日本に飛来することが鮮明に示され、大陸から自然起源と人為起源の汚染質がほぼ同時に高低気圧の波動に伴って越境輸送されることが示されている。また、同期間の黒色炭素粒子の輸送は SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>エアロゾルと極めて類似しており、低気圧と寒冷前線の東進が、大規模な越境大気汚染のきっかけになっていることも確認されている<sup>27)</sup>。

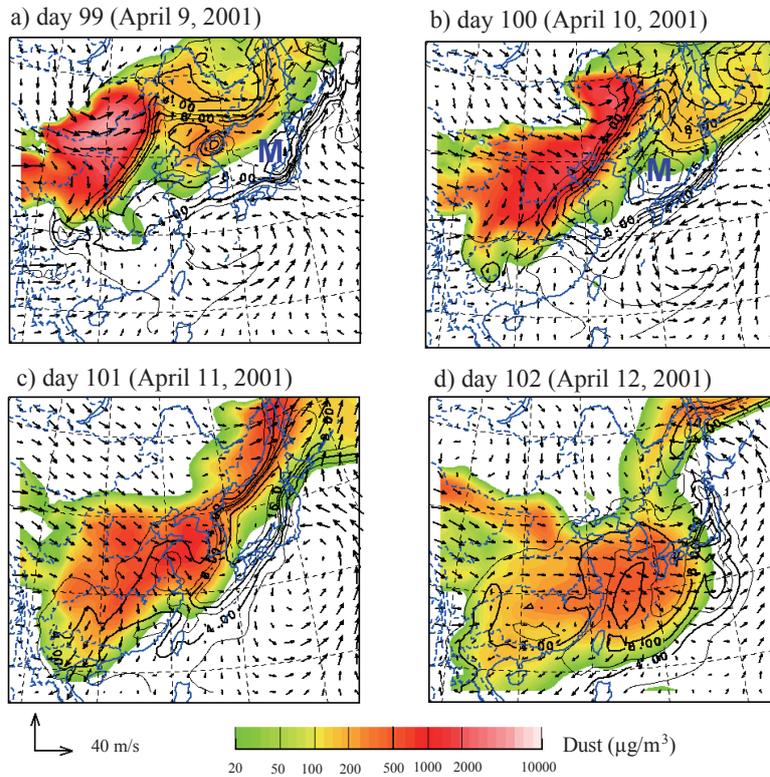


図4-10 2001年4月9日から12日のダストとSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>エアロゾルの濃度分布  
 トーンは境界層中の平均ダスト濃度、コンター線は平均SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>エアロゾル濃度、ベクトルは地上500mの風向・風速、Mは三宅島起源のSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>エアロゾルの寄与の大きな領域を示す。

### ③長距離輸送間のエアロゾルの化学組成の変化

長距離輸送されるエアロゾルの化学組成やその変化に関する研究も行われている。

北東アジアの気塊を受ける東シナ海上空では、酸性成分の指標としてはSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>が卓越しており<sup>28)</sup>、通常SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>はNH<sub>4</sub><sup>+</sup>とほぼ1:1かやや過剰であるが、黄砂が飛来しているときには大きく過剰となる<sup>29)</sup>(図4-11下)。また、通常、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>とNH<sub>4</sub><sup>+</sup>の相関はあまり良くないのに対して、中国大陆から大規模汚染が輸送される(NO<sub>3</sub><sup>-</sup>>100neq m<sup>-3</sup>)ときには、全体として相関が良くなる(図4-11上)。これは、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>とNH<sub>4</sub><sup>+</sup>との相関が高い中国沿岸部におけるエアロゾルの化学成分分布<sup>30)</sup>とよく一致している。

中国のNH<sub>3</sub>の放出量は、2000年の統計でNH<sub>3</sub>が13.6Tg(8.0x10<sup>11</sup>mol)と、SO<sub>2</sub>の20.4Tg(3.2x10<sup>11</sup>mol)をモルで上回っており<sup>31)</sup>、中国上空で生成した酸性物質はNH<sub>3</sub>によって

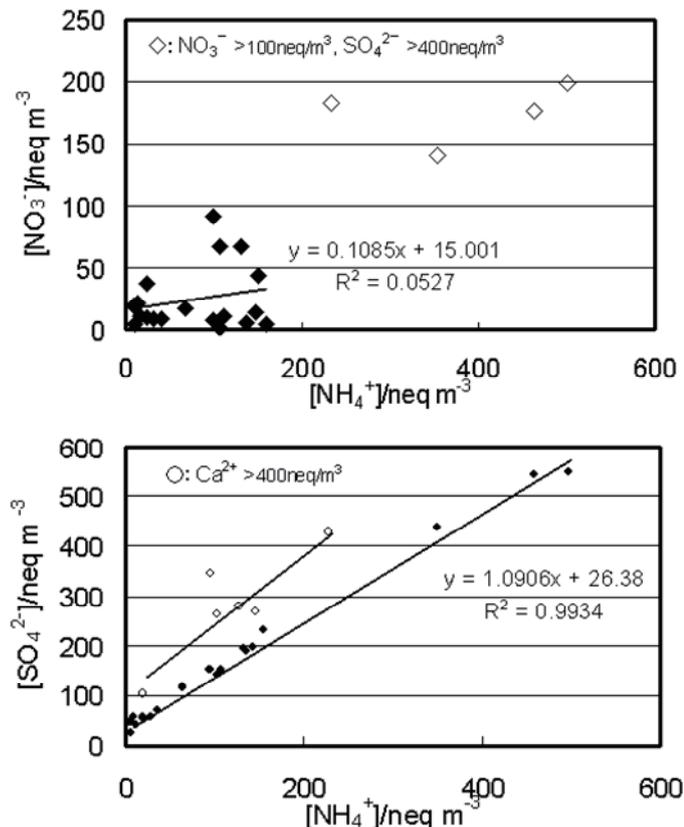


図4-11 東シナ海上空におけるNO<sub>3</sub><sup>-</sup>(上)、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(下)とNH<sub>4</sub><sup>+</sup>の相関

素早く中和され、海上ではこうした化学形態のエアロゾルが観測されたと考えられる。

一方、日本で採取されるエアロゾルや降水は酸性であることが多い。これは、長距離輸送に伴って、エアロゾルの酸性化が進行していることを示唆する。太平洋上のエアロゾルのS成分が、陸地から離れるに従って硫酸アンモニウム→硫酸水素アンモニウム→硫酸というように酸性に変化することは20年以上前に報告されているが、同様のことが大陸から輸送されるエアロゾルについても起こっているものと考えられる。

図4-12<sup>32)</sup>は中国大連及び青島で2002年3月に測定されたエアロゾル中の $\text{SO}_4^{2-}/\text{NH}_4^+$ 当量比（左側の2点）と、1990年代後半に日本の各地で測られたエアロゾル中の $\text{SO}_4^{2-}/\text{NH}_4^+$ 当量比を北京からの距離に対してプロットしたものであるが、距離とともに $\text{SO}_4^{2-}$ の割合が $\text{NH}_4^+$ に対して大きくなり、酸性化が進行していることを示している。

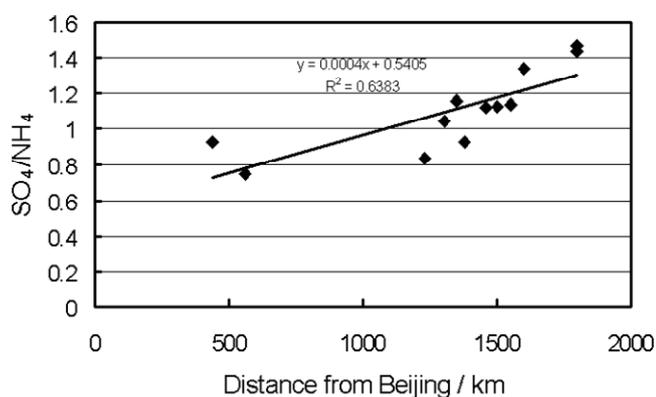


図 4-12 地図上での北京からの距離に対してプロットした  $\text{SO}_4^{2-}/\text{NH}_4^+$

### (3) 酸性沈着

東アジアスケールのシミュレーションモデルによる硫黄酸化物と窒素酸化物を対象としたソース・リセプター解析<sup>1</sup>結果等を整理し、日本国内の酸性沈着に対する越境汚染の影響について検討した。

#### ①シミュレーションモデルによる越境汚染の影響評価

これまでに論文等に発表されているモデル研究結果<sup>33~42)</sup>による日本の酸性沈着量の発生源別寄与率を表4-3に示す。2000年以降の文献値について比較した場合、越境汚染の影響は、非海塩性 $\text{SO}_4^{2-}$  (nss- $\text{SO}_4^{2-}$ )は32~66%、 $\text{NO}_3^-$ は35~61%と推計されている。このように推計結果が異なる原因として、シミュレーションモデルの構造やパラメータによる違い、対象年による気象条件の違い、排出量データの違いなどが考えられる<sup>43,44)</sup>。特に、2001年は三宅島の噴火の影響により、nss- $\text{SO}_4^{2-}$ について、火山の寄与率が大きくなることに留意が必要である。

<sup>1</sup> 大気汚染物質発生源と受動地における沈着量の関係を定量的に解析したものの。

表4-3 日本の沈着量の発生源地域別寄与率の比較

	実施主体	発表年	基準年	モデル種類	寄与率(%)				
					日本	火山	中国	朝鮮半島	その他
nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	酸性雨研究センター <sup>33)</sup>	2008	2002	グリッド	54				
	東京大学 <sup>34)</sup>	2008	2001	グリッド	18	50	15	4	13
	国立環境研究所 <sup>35)</sup>	2005	1995	グリッド	21	13	49	12	5
	電力中央研究所 <sup>36)</sup>	2001	1995	トラジェクトリ	26-29	24-32	29-32	12-13	1-2
			1990	トラジェクトリ	27-30	25-31	24-27	17-19	1-2
		世界銀行(RAINS-Asia) <sup>37)</sup>	1995	1990	トラジェクトリ	38	45	10	7
	電力中央研究所 <sup>38)</sup>	1998	1988-1989	ハイブリッド	40	18	25	16	1
	大阪府立大学 <sup>39)</sup>	1997	1988	グリッド	37	28	25	10	0
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	東京大学 <sup>40)</sup>	2008	2001	グリッド	56		21	15	8
	国立環境研究所 <sup>41)</sup>	2005	1995	グリッド	39		34	18	9
	コロンビア大学 <sup>42)</sup>	2002	1990	グリッド	65		18	15	2
	大阪府立大学 <sup>39)</sup>	1997	1990	グリッド	76		13	11	1

また、図 4-13 は地域別にみた nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>沈着量の発生源別割合の推計例<sup>35)</sup>である。北海道や東北では中国からの寄与率が半分以上を占め、SO<sub>2</sub>発生源地域を抱える中部・関東や中国・四国・近畿では日本国内の寄与が高い。また、九州や中国・四国・近畿では桜島等の活火山の影響を受けるため火山の寄与が高く、その寄与率は約 20%である。なお、図 4-13 の結果が、他の推計結果に比べて中国寄与率が高い原因は明らかでなく今後の課題であるが、寄与率の推計結果を比較する場合には、評価対象領域の大きさや対象年、計算された沈着量の絶対値の差異などにも注意する必要がある。

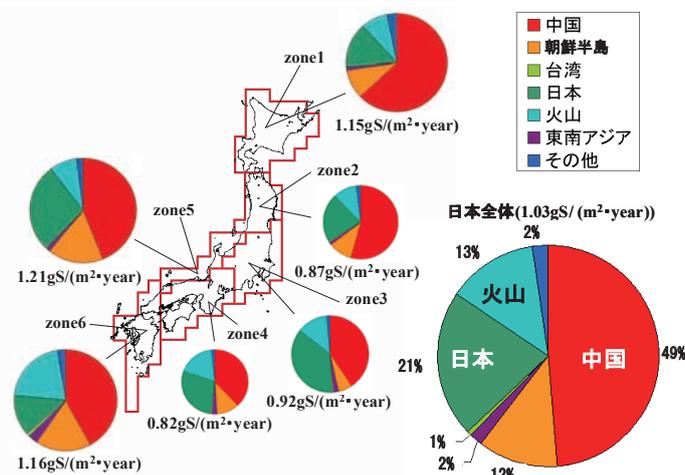


図 4-13 nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>年間沈着量 (gSm<sup>-2</sup>yr<sup>-1</sup>) の発源地地域別割合の推計 (1995 年)<sup>35)</sup>

また、RAQM (Regional Air Quality Model) を用いた 2002 年における我が国の硫黄化合物総沈着量に対する月別発生源別寄与率の推計例を表 4-4 に示す<sup>33)</sup>。年間平均で越境汚染による寄与が約 35% (うち中国が約 30%) と推計されており、季節変動に着目すると、朝鮮半島からの寄与に対しては明確な季節変動はみられなかったが、中国中央部及び中国南部の寄与については、秋季から春季にかけて高く、夏季に低い。これは、硫黄化合物を高濃度に含む石炭の使用量が中国では冬季に最も多くなることや冬季に卓越している北西季節風によって大陸から大気汚染物質が流入することによると考えられる。

表 4-4 2002 年における日本の硫黄化合物総沈着量に対する月別発生源別寄与率の推計<sup>33)</sup>  
(%)

	1月	2月	3月	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	年平均
中国北部	4	5	3	2	2	3	3	2	3	4	5	3	3.3
中国中央	24	28	21	14	16	13	17	9	9	21	23	17	17.7
中国南部	10	11	10	10	7	8	5	3	3	6	8	6	7.3
朝鮮半島	3	4	4	5	4	4	5	5	5	5	4	4	4.3
日本	38	36	47	57	64	61	61	73	75	55	38	45	54.2
その他	21	16	15	12	7	11	10	7	6	10	22	24	13.4

また、排出インベントリ REAS (4.2 参照) による 1980~2000 年排出量と 1995 年のソース・リセプターマトリックスを使って日本の  $\text{nss-SO}_4^{2-}$  沈着量の寄与率の経年変化を推計した結果<sup>41)</sup>によると、1980 年には日本と中国の寄与率がほぼ同じ (35%) であったが、その後、中国の  $\text{SO}_2$  排出量が増加し日本の排出量は逆に減少したことに伴って、中国の寄与率は 1990 年には 43% に増加し、1992 年以降は 45~50% で推移している。

化学輸送モデル CMAQ と REAS を使用した 1995~2003 年の計算結果<sup>45)</sup>によると、モデルは日本における  $\text{nss-SO}_4^{2-}$  月間湿性沈着量 (環境省酸性雨調査 18 地点の平均値) の経年・経月変動を良く再現し (図 4-14)、東アジアにおける  $\text{SO}_2$  排出量 (三宅島の影響を除く。) の増加によって 2000 年以降、沈着量が急増していることを示している (図 4-15)。このことは、 $\text{SO}_2$  排出量が中国では増加しているのに対して、日本や韓国では減少していることから、中国からの越境汚染の影響が増加していることを示唆する。

一方、日本の  $\text{NO}_3^-$  沈着量に対する越境汚染の寄与率は文献により  $\text{nss-SO}_4^{2-}$  と同程度の幅で推定されているが、日本と中国における  $\text{NO}_x$  排出量の最近の動向 (4.2 参照) を考慮すると、沈着量が増加するとともに、越境汚染の寄与率が上昇している可能性が高い<sup>46)</sup>。

以上のことから、研究結果によって異なるものの、発表年が 2000 年以降のモデル計算によれば、我が国の酸性沈着量に対する近年の越境汚染の影響は、非海塩性硫酸イオン  $\text{nss-SO}_4^{2-}$  が約 30~65% (うち中国が約 15~50%)、硝酸イオン  $\text{NO}_3^-$  が約 35~60% (うち中国が約 20~35%) と推計され、特に冬季の北日本において影響が大きいと考えられる。

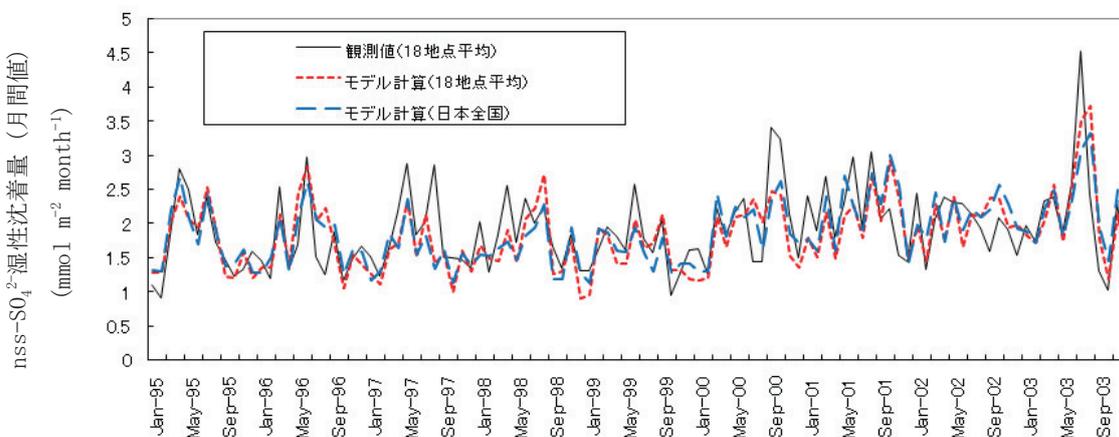


図 4-14 1995~2003 年の非海塩性  $\text{SO}_4^{2-}$  湿性沈着量 (月間値) の実測とモデルの比較<sup>45)</sup>

実線は環境省酸性雨調査による全国 18 地点で観測された平均値、赤点線は 18 地点におけるモデル計算結果の平均値、青破線は日本全域におけるモデル計算結果の平均値を示す。

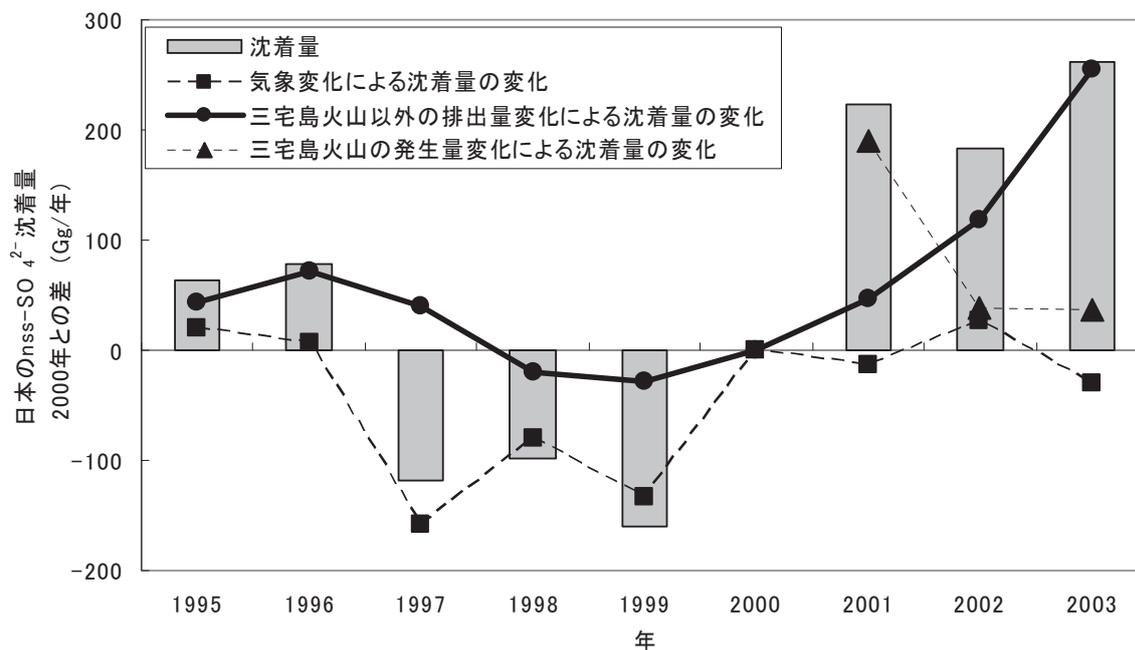


図 4-15 日本における非海塩性  $\text{SO}_4^{2-}$  沈着量の 1995～2003 年の変化の推計<sup>45)</sup>

図中の線はそれぞれ、気象変化による沈着量の変化（細い破線）、三宅島火山以外の  $\text{SO}_2$  排出量変化による沈着量の変化（太い実線）、三宅島火山の  $\text{SO}_2$  発生量変化による沈着量の変化（細い点線）を示す。

## ②硫黄同位体比<sup>2</sup>による越境汚染の影響評価

また、日本における硫黄同位体比 ( $\delta^{34}\text{S}$ ) の観測データをもとに、越境汚染の影響を評価した研究もある。新潟県内に湿性沈着した  $\text{SO}_4^{2-}$  及び  $\text{nss-SO}_4^{2-}$  の硫黄同位体比は、冬季に高く夏季に低くなる季節変動を示し、冬季に高くなる原因として、北東アジアの石炭燃焼起源の影響が大きくなるため ( $\text{SO}_4^{2-}$  に占める寄与率は約 20%) と考えられた<sup>47)</sup>。また、冬季に全国 19 地点で同様の解析を行った結果によると、 $\text{nss-SO}_4^{2-}$  の硫黄同位体比は北日本ほど高くなり、その値が東アジアで産出した石炭の値に近いことから、冬季に北日本に湿性沈着した  $\text{nss-SO}_4^{2-}$  は大陸からの長距離輸送による影響を受けていることが示唆された<sup>48)</sup>。

<sup>2</sup> 硫黄同位体比 ( $^{34}\text{S}/^{32}\text{S}$ ) は、起源の違いにより、異なった値を持つため、同位体比を比較することにより、環境中での硫黄の循環や発生源についての情報を得ることができる。 $\delta^{34}\text{S}$  は、標準物質との偏差の千分率を表し、単位は‰である。

#### 4.3.2 我が国への影響の将来予測

越境大気汚染の我が国への影響を予測するためには、各国の社会経済活動の将来動向を考慮した排出量予測値を入力データとして用いて、化学物質輸送モデルにより大気物質濃度の変動予測が重要である。海洋研究開発機構地球環境フロンティア研究センター、国立環境研究所等による研究グループは、4.2 節で紹介されたアジア地域排出インベントリー REAS<sup>3), 13)</sup>と領域化学物質輸送モデル CMAQ<sup>49)</sup>を利用し、東アジアにおける大気汚染物質濃度の将来予測を進めてきた。

領域化学輸送モデルによる 2000-2020 年の対流圏オゾン濃度の増加予測量を図 4-16<sup>50)</sup>に示す。2020 年の REAS 排出量は、中国に対しては 3 種類の排出シナリオ : PSC (対策強化型)、REF (持続可能性追求型)、PFC (現状推移型) を採用し、他国に対しては国際エネルギー機関 (IEA) のエネルギー需要予測に基づく基準排出シナリオを採用している<sup>4)</sup>。中程度の排出シナリオ (REF) に従うと、我が国の対流圏オゾン濃度は、2000-2020 年の間に、年平均値が 0-4ppbv 増加すると予測された。排出量増加の少ないシナリオ (PSC) は、年平均値が 2ppbv 程度以下の増加を示した。最も排出量増加の多いシナリオ (PFC) に従うと、年平均値が 2-6ppbv、対流圏オゾン濃度の高くなる 6 月の月平均値が 2-14ppbv 増加すると予測された<sup>50)</sup>。特に本州中部のオゾンは、我が国自身の NO<sub>x</sub> の排出量が減少すると予測されるにも関わらず、夏季 (6~8 月) の 3 ヶ月平均で約 6ppbv 増加すると予測された<sup>51)</sup>。中国以外の国の将来排出量はシナリオ間に差がないことから、中国の排出量の将来変動が、将来、我が国の対流圏オゾン濃度に大いに影響することが予測される。さらに、REAS の将来排出量シナリオは 2000 年を基準年としており、2000 年以降の中国における排出量の急激な伸び<sup>4), 52)</sup>が十分に考慮されていないことに注意しなければならない。仮に、

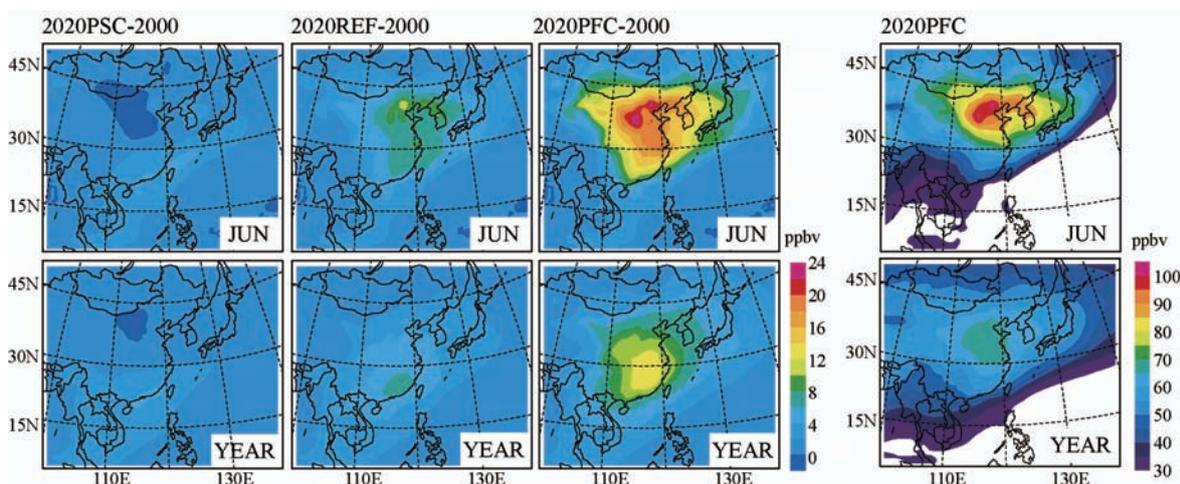


図 4-16 REAS(PSC, REF, PFC)を用いた対流圏オゾン濃度予測<sup>50)</sup>

2020PSC-2000: PSC による 2000-2020 年の間のオゾン濃度増加量、2020REF-2000: REF による 2000-2020 年の間の濃度増加量、2020PFC-2000: PFC による 2000-2020 年の間のオゾン濃度増加量 2020PFC: 2020 年のオゾン濃度(PFC)

急激な成長が今後も続き、PFCのシナリオが現実となれば、2020年には日本の対流圏オゾン濃度は、年平均値が45-60ppbv、6月の月平均値が50-75ppbvに達すると予測され（図4-16）、我が国のオゾン汚染が深刻なレベルに達することが懸念される<sup>53)</sup>。これらの結果は、将来の中国におけるNO<sub>x</sub>などの排出削減対策が、中国国内の環境保護のためばかりでなく、我が国の光化学汚染対策にとっても重要であることを示している<sup>51)</sup>。

また、IPCC第4次評価報告書作成に向けた中期将来予測実験が、26種類の全球大気化学輸送モデルによって行なわれた。この一連のモデル実験では、統一した3種類の排出シナリオ：CLE（current legislation）、MFR（maximum feasible reduction）、IPCC-A2が用いられた。各排出シナリオに従うと、2000-2030年の間に、東アジア（東南アジアを含む。）の地表オゾンの年平均濃度は、 $3.8 \pm 0.7$ ppbv（CLE）及び $7.7 \pm 1.8$ ppbv（A2）増加すると予測され、MFRを用いたモデル実験のみがオゾン濃度の減少（ $-3.6 \pm 0.5$ ppbv）を予測した<sup>54), 55)</sup>。さらに、これらのモデル実験に基づくと、我が国の窒素・硫黄の年間沈着量は、2000-2030年の間に、CLEに従うと微量変化（NO<sub>y</sub>:  $-3.0$ mg-N m<sup>-2</sup>、NH<sub>x</sub>:  $+47.0$ mg-N m<sup>-2</sup>、SO<sub>x</sub>:  $-18.5$ mg-S m<sup>-2</sup>）、MFRに従うと大幅に減少（NO<sub>y</sub>:  $-249.8$ mg-N m<sup>-2</sup>、SO<sub>x</sub>:  $-404.3$ mg-S m<sup>-2</sup>）、A2に従うと大幅に増加（NO<sub>y</sub>:  $+278.6$ mg-N m<sup>-2</sup>、NH<sub>x</sub>:  $+135.0$ mg-N m<sup>-2</sup>、SO<sub>x</sub>:  $-782.6$ mg-S m<sup>-2</sup>）するという予測結果が発表された<sup>56)</sup>。

これらの全球モデルでは、現状の再現実験でさえもモデル間に大きなばらつきがあり、同じ排出量シナリオを用いたとしても、大気汚染物質濃度の将来予測結果にはさらに大きな差が生じることに注意しなければならない。また、最新のモデル実験結果にも関わらず、2000年以降、特に東アジア域の排出量は予測値を超過する勢いであり、上述のモデル実験に利用された多くの排出シナリオが、この期間の排出量急増を考慮していない可能性があることにも留意しなければならない。しかしながら、これらのモデル実験結果に基づくと、排出抑制が今後著しく強化されない限り、東アジア域の大気環境が憂慮すべきレベルに達するものと予測され、我が国の越境大気汚染問題もますます深刻化する可能性があることが示唆された。

## 東アジア長距離輸送モデル比較研究（MICS-Asia）の概要

北半球の中でも東アジアは、越境大気汚染問題の深刻さに比べ、その理解に対する国際合意形成はほとんどなされていない状況にある。越境大気汚染の国際合意形成には、長距離輸送モデルによるシミュレーションが重要な役割を担うが、東アジア各国及び欧米の研究者によって開発されている東アジア規模での大気質や酸性雨を対象とした長距離輸送モデル間には、計算結果の有意な差が生じており、今後の国際的合意形成の妨げとなることが予想される。このような背景のもと、「東アジアにおける長距離輸送モデルの比較研究（MICS-Asia : Model Inter-Comparison Study in Asia）」が立ち上げられ、2003年から同プロジェクトのPhase 2として、硫黄化合物、窒素化合物及びオゾンなどを対象としたモデルの精度比較が進められている。

Phase 2 プロジェクトは酸性雨研究センターと国際応用システム分析研究所（オーストリア）との共同プロジェクトである。同プロジェクトでは、アジアや欧米から20もの研究機関が参加しており、それぞれが開発を進めている発生源インベントリーや長距離輸送モデルの比較が進められてきた。各モデルによる計算結果は、提供されたデータ・プロトコルに従って報告され、最終的に8つのモデルを対象とした比較研究が実施された。計算対象期間は2001年3月、7月、12月と2002年3月の4ヶ月であり、黄砂の飛来や北東アジアにおける高濃度オゾンの出現、夏季・冬季における大気汚染物質の挙動等をターゲットとしている。また、モデル結果の検証には「東アジア酸性雨モニタリングネットワーク（EANET）」の公開データが活用されている。

MICS-Asia Phase 2の成果は、プロジェクトの参加者によって8本の論文にとりまとめられ、国際誌「Atmospheric Environment」から特別論文集として出版されている。また、2008年からは同プロジェクトのPhase 3が稼動しており、Phase 2で扱えなかった「東アジア地域における発生源寄与率」の解析や、「北半球モデルとの比較検討」、「東アジアのメガシティの解析」、「大気汚染と気象の関係」、「新規エミッションインベントリーの開発」などが進められている。

参考資料：MICS-Asia Phase 2 ウェブサイト

(<http://www.adorc.gr.jp/adorc/mics.html>)

## 4.4 大陸間輸送と半球汚染

### 4.4.1 半球輸送タスクフォース (CLRTAP/TF-HTAP)

大気汚染物質の大陸間輸送に関する科学的関心は 1990 年代の後半に高まり、1990 年代の末頃から多くの研究成果が発表されるようになってきた<sup>57)</sup>。大陸間輸送としてはアジア大陸からの黄砂が太平洋を越えて北米に達する現象が比較的初期に着目されている<sup>58), 59), 60), 61), 62)</sup>。また、同時に米国では、アジアに起因するオゾンが米国の環境基準の達成に無視し得ない影響を及ぼすとの議論がなされるようになり<sup>63), 64), 65), 66)</sup>、これに平行して、ヨーロッパでは大西洋を渡る北米からのオゾンの影響が議論されるようになった<sup>67), 68), 69), 70)</sup>。一方、ヨーロッパからユーラシア大陸をまたいでアジアへ到達するオゾンの大陸間輸送の研究により、ヨーロッパのみならず北米からの影響もこれに匹敵するくらい大きく、ヨーロッパと北米からのオゾンは合わせて、日本の環境基準値(60ppb)に比べて無視し得ない影響があることが分かってきた<sup>71), 72), 73)</sup>。このように北半球では、それぞれの大陸からの大気汚染物質の影響が巡り巡ってお互いに影響し合っていることが明らかになり、ここに「半球輸送、半球汚染」という概念が生まれてきている。

こうした科学的研究成果を受けて 2004 年に米国と EC の主導により長距離越境大気汚染条約 (CLRTAP) の下に「大気汚染の半球輸送に関するタスクフォース (TF-HTAP)」が正式に発足し、US/EPA と UN/ECE とに事務局が置かれた。タスクフォースは、大気汚染物質の北半球輸送を理解するために必要な技術的問題を扱うとされ、政策立案に必要な科学的サポートを得て、最終的に条約の議定書に反映させることを目的としている。半球輸送の対象物質としては現在オゾン、エアロゾルの他に水銀と残留性有機汚染物質 (POPs) が扱われている。タスクフォースは条約加盟国の専門家から構成されているが、北半球の条約非加盟国の専門家を招くことが推奨されている。これまで、年に 1 回のタスクフォース会合と一連のワークショップが開催されており、我が国を初めとするアジア諸国からも研究者、行政官が参加している。また、大気汚染物質の排出をテーマにした 2006 年のワークショップは条約加盟国以外の中国・北京で開催された。TF-HTAP では 2007 年に中間報告書を取りまとめたり、最終報告書を 2009 年にとりまとめることになっている。

ここではこの中間報告書に取り上げられている文献レビューの一部を紹介する。表 4-5 は地表オゾンに対しヨーロッパ及び米国を受容 (リセプター) 領域とみたとき、発生源 (ソース) 領域である北米、アジア、ヨーロッパからの影響による増加分がどれだけになるかのモデル計算結果をまとめたものである。例えばヨーロッパに対する北米からの影響は、年平均値では 2-4ppb、イベント的には 10-15ppb、アジアからの影響は年平均で 0.8-数 ppb と報告されている。また、アジアから米国への影響も年平均では 1-4ppb であるが、イベント的には 3-10ppb、場合によっては 30ppb に達するという報告もある。ここにはヨーロッパ、北米からアジアへの影響は掲げられていないが、それぞれ年平均では 2-3ppb 程度である<sup>72), 73)</sup>。このように、大陸間輸送の影響は年平均、季節平均では一般に 1-5ppb 程度であるが、季節的には晩春に最も大きくなることで、これまでの研究の結果は一致している。大西洋をわたる距離が太平洋、ユーラシア大陸に比べて相対的に短いことから、大陸間輸送は北米からヨーロッパへの影響が最も大きい。

表 4-5 北半球中緯度の大陸間輸送に関する既存文献による、それぞれのリセプター領域に対するソース領域からの影響による地表オゾンの増加の計算結果

リセプター領域	ソース領域	オゾン濃度の増加	方法	文献
欧州	米国	2	a)	Wild and Akimoto(2001)
欧州	北米	2-4	b)	Auvray and Bey(2005)
欧州	北米	5.8-12.2	c)	Derwent et al.(2004)
欧州	北米	3-5(夏平均); 5-10(イベント)	b)	Guerova et al.(2006)
欧州(夏)	北米	2-4(昼平均); 5-10(イベント)	b)	Liu et al.(2002)
欧州(年平均)	北米	18(大西洋沿岸); 10-15(欧州中部)	c)	Derwent et al.(2002)
欧州(高々度)	北米	10-12(イベント)	d)	Huntrieser et al.(1998)
Mace Head(アイルランド)	北米	0.4(冬);0.2(春); -0.3(夏);-0.9(秋)	e)	Derwent et al.(1998)
欧州	アジア	0.8	a)	Wild and Akimoto(2001)
欧州	アジア	9(大西洋沿岸); 5-7(欧州中部)	c)	Derwent et al.(2002)
欧州	アジア	3.5-6.6	c)	Derwent et al.(2004)
欧州	アジア	1.5-4	b)	Auvray and Bey(2005)
米国	アジア	1	a)	Wild and Akimoto(2001)
米国北西部(春)	アジア	4(平均); 7.5(最大)	b)	Berntsen et al.(1999)
米国北西部(春)	アジア	4	f)	Jaegle et al.(2003)
米国西部(春)	アジア	3-10(平均、アジア汚染 イベント)	g)	Yienger et al.(2000)
米国	アジア(将来)	2-6(米国西部); 1-3(米国東部); 最大4-6月	h)	Jacob et al.(1999)
米国西部(春)	アジア(将来)	30-40(最大、アジア汚 染イベント)	i)	Yienger et al.(2000)
米国	欧州	0.9	a)	Wild and Akimoto(2001)
米国(夏)	アジア+欧州	4-7(午後の代表レン ジ); 14(最大)	b)	Fiore et al.(2002a;2002b)
米国	バックグランド(1980-1998)	3-5(春、秋)	j)	Lin et al.(2000)
米国(2001年3-10月)	バックグランド(半球汚染)	4-12(午後の平均の代 表レンジ)	k)	Fiore et al.(2003)
米国(夏)	バックグランド(人為メタン)	6(午後平均)	l)	Fiore et al.(2002a;2002b)
米国西海岸	バックグランド(1984-2002)	10	m)	Jaffe et al.(2003)
アジア	欧州	1.1	a)	Wild and Akimoto(2001)
東アジア(春)	欧州	3(昼平均)	b)	Liu et al.(2002)
日本	欧州	0.2-2.5	b)	Wild et al.(2004a)
東シベリア	欧州	2(年間); 3(春-夏)	n)	Pochanart et al.(2003)
アジア	米国	0.8	a)	Wild and Akimoto(2001)

- a) ソース領域からの排出が10%増加した場合のSensitivity Simulationによる年平均の増加; 結果はソース領域からの人為的発生量の全体効果を見積もるために10倍されている。  
b) 人為的排出量をゼロとしたSensitivity Simulation(メタン排出量は含まない)  
c) ソース領域の対流圏で生成されたオゾン  
d) 北米ブルームでの発生源と月平均値の測定値の比較  
e) 北米、カナダとアイスランド、グリーンランドからのエアマス中の1990-1994年の平均オゾン濃度の比較  
f) Cheeka Peek観測点での標識化されたオキシダントトレーサシミュレーション  
g) 全ての発生源排出量をゼロとしたSensitivity Simulation  
h) 3倍したアジアでのNO<sub>x</sub>とNMVOCs排出量でのSensitivity Simulation  
i) 標識化されたCOトレーサとパラメータ化したオゾン化学; アジアでの排出量を4倍としたシナリオ  
j) ルーラルサイトでのオゾンの頻度分布の低四分位の測定値のトレンド  
k) 4倍したアジアでの排出量でのSensitivity Simulation  
l) メタンの人為起源の排出量がグローバルで50%減少した場合のSensitivity Simulation; 結果は人為的メタンからの全体の増加を見積もるために2倍されている。  
m) 地表及び飛行機からの排出からの測定値のトレンド(1984-2002)  
n) 欧州とシベリア、高緯度地域からのエアマス中の実測オゾン濃度の中央値の比較

#### 4.4.2 大陸間輸送モデルによる解析

オゾン、一酸化炭素、エアロゾルなど数日から1ヶ月以上の大気寿命を持つ大気汚染物質濃度の季節変動・トレンドなどに対する大陸間長距離輸送・変質過程の研究は、上に述べたように1990年末頃から研究結果が発表されるようになってきた。図4-17には、全球三次元化学輸送モデルによって明らかにされた、対流圏オゾンのヨーロッパからアジアへの trans-Eurasia、アジアから北米への trans-Pacific、北米からヨーロッパへの trans-Atlantic 大陸間輸送の特質を示している<sup>72)</sup>。同図は各大陸からの人為起源のNO<sub>x</sub>、VOC、COの排出量を10%増加させたときに増加するオゾンがどのように半球規模で輸送されるかを示したものである。図にみられるようにアジアで生成するオゾンは活発な鉛直輸送によって上部対流圏に効率的に運ばれ、その影響は半球スケールに広がる。これに対し、ヨーロッパで生成されたオゾンは鉛直輸送が活発でないため、増加したオゾンは対流圏の中部・下部に留まり、アジアへの大陸間輸送も対流圏の比較的下層で起こっている。北米で生成したオゾンはこれらのほぼ中間のケースとなっている。この差は主として、それぞれの大陸の主要大気汚染地域の緯度の差に起因しており、アジアの場合比較的緯度が低いため鉛直輸送が活発に起こり、北米、ヨーロッパと緯度が高くなるにつれて対流圏下層に留まる傾向がみられる。

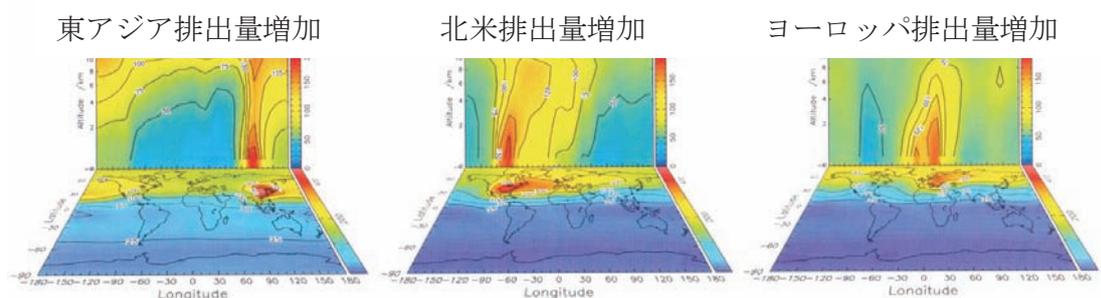


図4-17 各大陸からの人為汚染物質の排出量をそれぞれ10%増加させたときに増加するオゾンの大陸間輸送・変質<sup>72)</sup>

この結果に基づいて、特にヨーロッパ及び北米から我が国の八方尾根に対する、オゾンとCOの影響を高度別・月別に調べた結果を図4-18に示す<sup>73)</sup>。COに対するヨーロッパの影響は2～3月に境界層内部で最大となり、予想されるようにヨーロッパからの影響が北米よりも大きい。これに対してオゾンについては、ヨーロッパ、北米ともその影響は中部対流圏の春季4、5月に最大となり、両者の影響は同程度である。地表付近に関してはヨーロッパからの影響は3、4月、北米からの影響は2、3月に最大となっており、北米からの影響がヨーロッパからの影響と同程度（月平均値で2-3ppb）であることが分かった。遙かに遠い北米からの影響がヨーロッパからの影響と同程度である理由としては、上にみたように北米で生成

したオゾンがヨーロッパで生成したオゾンより高々度に鉛直輸送され、より効率よく長距離輸送されて、日本付近で沈降するためと考えられる。

大陸間輸送の影響が比較的に大きいと思われる4月について、八方尾根における地表オゾンの観測データと全球モデル計算結果を比較し、オゾン濃度の内訳をみたものを図4-19に示す<sup>73)</sup>。

この期間、実測オゾン濃度はしばしば60-100 ppbに達しているが、20日以降には我が国自身の寄与が主要であるのに対して、5~10日、15~18日には中国など東アジアからの越境輸送の寄与が、我が国からの寄与と同程度である。一方、ヨーロッパ・北米及び成層圏からの移流が全期間を通じてバックグラウンド的に大きな寄与をなしていることがわかる。このように、東アジア内での越境輸送は、我が国の高濃度オゾンに対して、大きな影響を与えるケースとそうでないケースとが明確であるのに対して、大陸間輸送は日々変動が小さく、バックグラウンドに一定の寄与を与え続けているのが大きな特徴である。その寄与はヨーロッパ、北米合わせて数ppb程度と思われ、一見大きくないように

思われるが、月平均値では中国などからの越境輸送に匹敵する。このことはAOT40など暴露積算量で評価されるオゾンの植物影響などに対して、大きな影響を与えているものと思われる。

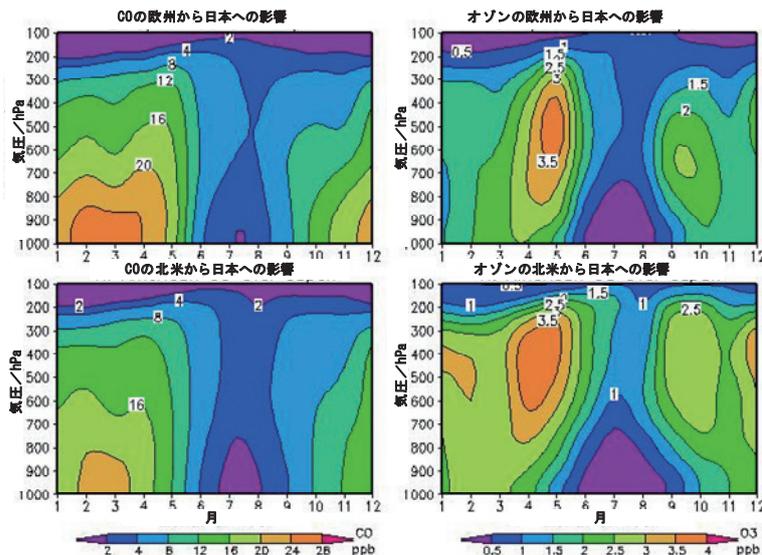


図4-18 CO (左列) 及びO<sub>3</sub> (右列) の日本 (八方尾根) に対するヨーロッパ (上段) 及び北米 (下段) からの高度別・月別影響<sup>73)</sup>

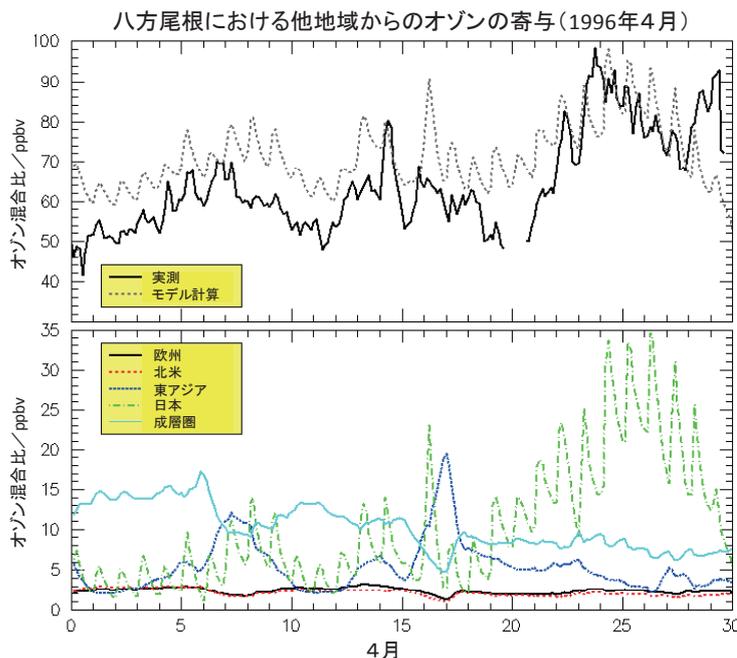


図4-19 我が国の長野・八方尾根の1996年4月の地表オゾン変化<sup>73)</sup>

このことはAOT40など暴露積算量で評価されるオゾンの植物影響などに対して、大きな影響を与えているものと思われる。

## 引用文献

- 1) Oden, S., 1976: *Water, Air and Soil Pollution*, 6, 137-166.
- 2) Johnson, R.W., G.E. Gordon, Eds., 1987: *The Chemistry of Acid Rain, Sources and Atmospheric Processes*, ACS Symposium Series 349, American Chemical Society, Washington, DC
- 3) EANET, *First Periodic Report on the State of Acid Deposition in East Asia*, 2007.
- 4) Ohara, T., Akimoto, H., Kurokawa, J., Horii, H., Yamaji, K., Yan, X., and Hayasaka, T.: An Asian emission inventory of anthropogenic emission sources for the period 1980-2020, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 4419-4444, 2007.
- 5) Nakicenovic, N. J. and Swart, R. (Eds.): *IPCC special report on emissions scenarios*, Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, 2000.
- 6) Zhang, Q., Streets, D. G., He, K., Wang, Y., Richter, A., Burrows, J. P., Uno, I., Jang, C. J., Chen, D., Yao, Z., and Lei, Y. : NO<sub>x</sub> emission trends for China, 1995–2004: The view from the ground and the view from space, *J. Geophys. Res.*, 112, D22306, doi:10.1029/2007JD008684, 2007.
- 7) Tian, H., Hao, J., and Nie, Y.: Recent trends of NO<sub>x</sub> emissions from energy use in China, *Conference abstracts of Acid Rain 2005*, 32, 2005.
- 8) Hao, J., Tian, H., and Lu, Y.: Emission inventories of NO<sub>x</sub> from commercial energy consumption in China, 1995–1998, *Environ. Sci. Technol.*, 36, 552–560, 2002.
- 9) He, Y., Uno, I., Wang, Z., Ohara, T., Sugimoto, N., Shimizu, A., Richter, A., and Burrows, J. P.: Variations of the increasing trend of tropospheric NO<sub>2</sub> over central east China during the past decade, *Atmos. Environ.*, 41, 4865-4876, 2007.
- 10) Streets, D. G., Tsai, N. Y., Akimoto, H., and Oka, K.: Trends in emissions of acidifying species in Asia, 1985–1997, *Water Air Soil Poll.*, 130, 187–192, 2001.
- 11) Streets, D. G., Bond, T. C., Carmichael, G. R., Fernandes, S. D., Fu, Q., He, D., Klimont, Z., Nelson, S. M., Tsai, N. Y., Wang, M. Q., Woo, J.-H., and Yarber, K. F.: An inventory of gaseous and primary aerosol emissions in Asia in the year 2000, *J. Geophys. Res.*, 108, 8809, doi:10.1029/2002JD003093, 2003.
- 12) SEPA (State Environmental Protection Administration): *Report on the state of the environment in China*, State Environmental Protection Administration of China, Beijing, 2003.
- 13) REAS, <http://www.jamstec.go.jp/frcgc/research/p3/emission.htm>
- 14) Byun, DW. and JKS. Ching (Eds.), *Science algorithms of the EPA Models-3 community multi-scale air quality (CMAQ) modeling system*, NERL, Research Triangle Park, NC. EPA/600/R-99/030, 1999.
- 15) Yamaji, K., T. Ohara, I. Uno, H. Tanimoto, J. Kurokawa, and H. Akimoto, Analysis of seasonal variation of ozone in the boundary layer in East Asia using the Community Multi-scale Air

- Quality model: What controls surface Ozone level over Japan? *Atmospheric Environment*, 40(10), 1856-1868, 2006.
- 16) Wild, O., P. Pochanart, and H. Akimoto, Trans-Eurasian transport of ozone and its precursors, *Journal of Geophysical Research*, 109, D11302, doi:10.1029/2003JD004501, 2004.
  - 17) Sudo, K. and H. Akimoto, Global source attribution of tropospheric ozone: Long-range transport from various source regions, *Journal of Geophysical Research*, 112, D12302, doi:10.1029/2006JD007992, 2007.
  - 18) Pochanart, P., S. Kato, T. Katsuno, and H. Akimoto, Eurasian continental background and regionally polluted levels of ozone and CO observed in northeast Asia, *Atmospheric Environment*, 38(9), 1325-1336, 2004.
  - 19) Tanimoto, H., Y. Sawa, H. Matsueda, I. Uno, T. Ohara, K. Yamaji, J. Kurokawa, and S. Yonemura, Significant latitudinal gradient in the surface ozone spring maximum over East Asia, *Geophysical Research Letters*, 32, L21805, doi:10.1029/2005GL023514, 2005.
  - 20) 大原利眞、鶴野伊津志、黒川純一、早崎将光、清水厚 (2008) 2007年5月8、9日に発生した広域的な光化学オゾン汚染—オーバービュー—, *大気環境学会誌*, 43, 198-208.
  - 21) 高見昭憲、今井孝典、清水厚、松井一郎、杉本伸夫、畠山史郎 (2006) 沖縄辺戸で観測された人為起源エアロゾルと黄砂の輸送、*エアロゾル研究*、21,341-347
  - 22) UNECE, *Hemispheric Transport of Air Pollution 2007*, United Nations, New York, 2007.
  - 23) Uematsu, M., Yoshikawa, A., Muraki, H., Arao, K., and Uno, I.: Transport of mineral and anthropogenic aerosols during a kosa event over East Asia, *J. Geophys. Res.*, 107, D7, 4059, doi:10.1029/2001JD000333 (2002).
  - 24) Matsumoto, K., Uyama, Y., Hayano, T., Tanimoto, H., Uno, I. and Uematsu, M.: Chemical properties and outflow patterns of anthropogenic and dust particles on Rishiri Island during the Asian Pacific Regional Aerosol Characterization Experiment (ACE-Asia), *J. Geophys. Res.*, 108, D23, 8666, doi:10.1029/2003JD003426 (2003).
  - 25) Igarashi Y., et al., Seasonal variations in SO<sub>2</sub> plume transport over Japan: Observations at the summit of Mt. Fuji from winter to summer, *Atmos. Environ.*, 40, 7018-7033 (2006).
  - 26) Uno, I., G. R. Carmichael, D. G. Streets, et al. (2003a): Regional chemical weather forecasting system CFORS: Model descriptions and analysis of surface observations at Japanese island stations during the ACE-Asia experiment, *J. Geophys. Res.*, 108, 8668, doi:10.1029/2002JD002845.
  - 27) Uno, I., G. R. Carmichael, D. Streets, et al. (2003b): Analysis of surface black carbon distributions during ACE-Asia using a regional-scale aerosol model, *J. Geophys. Res.*, 108, 8636, doi: 10.1029/2002JD003252.
  - 28) Jordan, C. E., J. E. Dibb, B. E. Anderson, and H. E. Fuelberg (2003), Uptake of nitrate and sulfate on dust aerosols during TRACE-P, *J. Geophys. Res.*, 108 (D20), 8817,

- doi:10.1029/2002JD003101.
- 29) Hatakeyama, S., A. Takami, F. Sakamaki, H. Mukai, N. Sugimoto, A. Shimizu, and H. Bandow, "Aerial measurement of air pollutants and aerosols during March 20–22, 2001, over the East China Sea" *J. Geophys. Res.*, 109, D13304, doi:10.1029/2003JD004271 (2004).
  - 30) Hatakeyama, S., A. Takami, W. Wang, and D. Tang, "Aerial observation of air pollutants and aerosols over Bo Hai, China" *Atmos. Environ.*, 39(32), 5893-5898, doi:10.1016/j.atmosenv.2005.06.025, (2005).
  - 31) Streets, D., T.C. Bond, G.R. Carmichael, S.D. Fernandes, Q. Fu, D. He, Z. Klimont, S.M. Nelson, N.Y. Tsai, M.Q. Wang, J.-H. Woo, and K.F. Yarber (2003), An inventory of gaseous and primary aerosol emissions in Asia in the year 2000, *J. Geophys. Res.*, 108(D21), 8809, doi:10.1029/2002JD003093.
  - 32) 畠山史郎、高見昭憲、三好猛雄、王瑋、中国から東シナ海を経て沖縄まで輸送されるエアロゾル中の主要イオンの関係、エアロゾル研究、21, 147-152 (2006).
  - 33) The secretariat of LTP project、 The 11th Expert Meeting for the Long-range Transboundary Air Pollutants in Northeast Asia: Proceeding (2008).
  - 34) Lin, M., T. Oki, M. Bengtsson, S. Kanae, T. Holloway, D.G. Streets (2008). Long-range transport of acidifying substances in East Asia—Part II: Source-receptor relationships. *Atmospheric Environment*, 42, 5956-5967.
  - 35) 井上雅道、大原利眞、片山学、村野健太郎 (2005) 数値シミュレーションモデル RAMS/HYPACT による東アジアにおける硫黄化合物の年間ソース・リセプター解析, エアロゾル研究, 20, 333-344.
  - 36) Ichikawa, Y., H. Hayami, T. Sugiyama, M. Amann, and W. Schopp (2001). Forecast sulfur deposition in Japan for various energy supply and emission control scenarios, *Water, Air, & Soil Pollution*, 130, 301-306.
  - 37) Carmichael G. R. and R. L. Arndt (1995) Chapter 5, ATMOS module, Long range transport and deposition of sulfur in Asia (Rains-Asia: An assessment model for air pollution in Asia, Foell, W. et al., Report on the World Bank Sponsored Project “Acid Rain and Emission Reductions in Asia”), V51-V58.
  - 38) Ichikawa, Y., H. Hayami, and S. Fujita (1998) A long-range transport model for East Asia to estimate sulfur deposition in Japan, *J. Applied Meteorology*, 37, 1364-1374.
  - 39) 池田有光、東野晴行 (1997) 東アジア地域を対象とした酸性降水物の沈着量測定 (II) — 発生源寄与を中心とした検討 —, *大気環境学会誌*, 32, 175-186.
  - 40) Lin, M., T. Oki, T. Holloway, D.G. Streets, M. Bengtsson, S. Kanae (2008). Long-range transport of acidifying substances in East Asia—Part I: model evaluation and sensitivity studies. *Atmospheric Environment*, 42, 5939-5955.
  - 41) Ohara, T., M. Inoue, M. Katayama, and K. Murano (2005). Annual source-receptor relationships

- of sulfur and nitrogen oxides in East Asia using a regional transport modeling system coupled with a meteorological model, Conference abstracts of Acid Rain 2005, 57.
- 42) Holloway, T., H. Levy II, and G. Carmichael (2002). Transfer of reactive nitrogen in Asia: development and evaluation of a source-receptor model, *Atmos. Environ.*, 36, 4251-4264.
  - 43) Carmichael, G., et al. (2001). Model intercomparison study of long range transport and sulfur deposition in East Asia (MICS-ASIA), *Water, Air, & Soil Pollution*, 130, 51-62.
  - 44) Acid Deposition Monitoring Network in East Asia (EANET), Periodic report on the state of acid deposition in East Asia, Part 1: Regional Assessment, 2006.
  - 45) 片山学、大原利眞、鶴野伊津志、原宏 (2008). 日本の  $\text{SO}_4^{2-}$ 沈着量における経年変動のモデル解析, *大気環境学会誌*, 43, 136-146.
  - 46) Uno, I., M. Uematsu, Y. Hara, Y. J. He, T. Ohara, A. Mori, T. Kamaya, K. Murano, Y. Sadanaga, and H. Bandow (2007). Numerical study of the atmospheric input of anthropogenic total nitrate to the marginal seas in the western North Pacific region, *Geophys. Res. Lett.*, 34, L17817, doi:10.1029/2007GL030338.
  - 47) Ohizumi, T., N. Fukuzaki, and M. Kusakabe (1997). Sulfur isotopic view on the sources of sulfur in atmospheric fallout along the coast of the sea of Japan, *Atmos. Environ.*, 31, 1339-1348.
  - 48) Yanagisawa, F., N. Akata, R. Motoyama, A. Kawabata, and A. Ueda (2001). Seasonal variation of sulfur isotope ratios on non-sea salt sulfate in wet deposition in Japan, *J. Ecotechnology Res.*, 7, 1-6.
  - 49) Byun, D.W. and J.K.S. Ching (Eds.), Science algorithms of the EPA Models-3 community multiscale air quality (CMAQ) modeling system. NERL, Research Triangle Park, NC. EPA/600/R-99/030, 1999.
  - 50) Yamaji, K., Ohara, T., Uno, I., Kurokawa, J., Pochanart, P., and Akimoto H., Future Prediction of Surface Ozone over East Asia using Models-3 Community Multiscale Air Quality Modeling System (CMAQ) and Regional Emission Inventory in ASia (REAS), *JGR-Atmosphere*, Accepted.
  - 51) 独立行政法人海洋研究開発機構プレスリリース「アジア域の大気汚染物質排出シナリオを用いた将来のオゾンの増加予測」(2008年04月24日)より
  - 52) Akimoto, H., T. Ohara, J. Kurokawa, and N. Horii, Verification of energy consumption in China during 1996-2003 by satellite observation, *AE*, 40, 7663-7667, 2006.
  - 53) 山地一代, 秋元肇, 最近のモデル研究による東アジアオゾン汚染の現状と将来予測, *資源環境対策*, 43(7), 28-35, 2007.
  - 54) Stevenson, D.S., F.J. Dentener, M.G. Schultz, K. Ellingsen, T.P.C. van Noije, O. Wild, G. Zeng, M. Amann, C.S. Atherton, N. Bell, D.J. Bergmann, I. Bey, T. Butler, J. Cofala, W.J. Collins, R.G. Derwent, R.M. Doherty, J. Drevet, H.J. Eskes, A.M. Fiore, M. Gauss, D.A. Hauglustaine, L.W. Horowitz, I.S.A. Isaksen, M.C. Krol, J.-F. Lamarque, M.G. Lawrence, V. Montanaro, J.-F. Müller, G. Pitari, M.J. Prather, J.A. Pyle, S. Rast, J.M. Rodriguez, M.G. Sanderson, N.H. Savage, D.T.

- Shindell, S.E. Strahan, K. Sudo, and S. Szopa, Multimodel ensemble simulations of present-day and near-future tropospheric ozone, *JGR-Atmosphere*, 2006.
- 55) Dentener, F., D. Stevenson, K. Ellingsen, T. van Noije, M. Schultz, M. Amann, C. Atherton, N. Bell, D. Bergmann, I. Bey, L. Bouwman, T. Butler, J. Cofala, B. Collins, J. Drevet, R. Doherty, B. Eickhout, H. Eskes, A. Fiore, M. Gauss, D. Hauglustaine, L. Horowitz, I. Isaksen, B. Josse, M. Lawrence, M. Krol, J.F. Lamarque, V. Montanaro, J.F. Muller, V.H. Peuch, G. Pitari, J. Pyle, S. Rast, J. Rodriguez, M. Sanderson, N.H. Savage, D. Shindell, S. Strahan, S. Szopa, K. Sudo, R. Van Dingenen, O. Wild, G. Zeng, The global atmospheric environment for the next generation, *EST*, 40(11), 3586–3594, 2006.
- 56) Dentener, F., J. Drevet, J. F. Lamarque, I. Bey, B. Eickhout, A. M. Fiore, D. Hauglustaine, L. W. Horowitz, M. Krol, U. C. Kulshrestha, M. Lawrence, C. Galy-Lacaux, S. Rast, D. Shindell, D. Stevenson, T. Van Noije, C. Atherton, N. Bell, D. Bergman, T. Butler, J. Cofala, B. Collins, R. Doherty, K. Ellingsen, J. Galloway, M. Gauss, V. Montanaro, J. F. Müller, G. Pitari, J. Rodriguez, M. Sanderson, F. Solmon, S. Strahan, M. Schultz, K. Sudo, S. Szopa, and O. Wild, Nitrogen and sulfur deposition on regional and global scales: A multimodel evaluation, *GBC*, 20, GB4003, doi:10.1029/2005GB002672,2006.
- 57) 秋元肇「大気汚染物質の大陸間輸送と半球規模汚染」大気環境学会誌, 41(1), A1-A8, 2006.
- 58) Husar, R.B., et al. (2001) The Asian dust events of April 1998, *J. Geophys. Res.*, 106, 18, 18317-18333.
- 59) Jaffe, D., T. Anderson, D. Convert, K. Kotchenruther, B. Trost, J. Daneilson, W. Simpson, Bernstein, T.K., S. Karlsdottir, D. Blake, J. Harris, G. Carmichael (1999) I. Uno, Transport of Asian air pollution to North America, *Geophys. Res. Lett.*, 26, 711-714.
- 60) McKendry, I.G., J.P. Hacker, R. Stull, S. Sakiyam, D. Mignacca, and K. Reid (2001) Long-range transport of Asian dust to the Lower Fraser Valley, British Columbia, Canada, *J. Geophys. Res.*, 106, 18,361-18,370.
- 61) Uno, I., H. Amano, S. Emori, K. Kinoshita, I. Matsui, , NN. Sugimoto (2001) Trans-Pacific yellow sand transport observed in April 1998: A numerical simulation, *J. Geophys. Res.*, 106, 18331-18344.
- 62) Vaughan, J.K., C. Claiborn, and D. Finn (2001) April 1998 Asian dust event over the Columbia Plateau, *J. Geophys. Res.*, 106, 18,381-18,402.
- 63) Bernstein, T.K., S. Karlsdottir, D.A. Jaffe (1999) Influence of Asian emissions on the composition of air reaching the north eastern United States, *Geophys. Res. Lett.*, 26, 2171-2174.
- 64) Jacob D.L., J.A. Logan, P.P. Murti (1999) Effect of rising Asian emissions on surface ozone in the United States, *Geophys. Res. Lett.*, 26, 2175-2178.
- 65) Yienger, J. J., M. Galanter, T. A. Holloway, M. J. Phadnis, S. K. Guttikunda, G. R. Carmichael, W. J. Moxim, and H. Levy II (2000) The Episodic Nature of Air Pollution Transport from Asia to

- North America. *J. Geophys. Res.*, 105, 26,931-26,945.
- 66) Fiore, A.M., D.J. Jacob, I. Bey, R.M. Yantosca, B.D. Field, A.C. Fusco, and J.G. Wilkinson (2002) Background ozone over the United States in summer: Origin, trend, and contribution to pollution episodes, *J. Geophys. Res.*, 107 (D15), doi:10.1029/2001JD000982.
- 67) Derwent, R.G., P.G. Simmonds, S. Seuring, C. Dimmer (1998) Observation and interpretation the seasonal cycles in the surface concentrations of ozone and carbon monoxide at Mace Head, Ireland from 1990 to 1994, *Atmos. Environ.*, 32, 145-157.
- 68) Li, Q., D. J. Jacob, I. Bey, P.I. Palmer, B.N. Duncan, et al. (2002) Transatlantic transport of pollution and its effects on surface ozone in Europe and North America, *J. Geophys., Res.*, 107, doi:10.1029/2001JD001422.
- 69) Stohl, A., and Trickl (1999) A textbook example of long-range transport: Simultaneous observations of ozone maxima of stratospheric and North American origin in the free troposphere over Europe, *J. Geophys. Res.*, 104, 30,445-30,462.
- 70) Stohl, A., S. Eckhart, C. Forster, P. James (2002) Spichtinger, *J. Geophys. Res.*, 106, doi:1029/2001 JD001396.
- 71) Pochanart, P., H. Akimoto, Y. Kajii, V.M. Potemkin, and T. Khodzer (2003) Regional background ozone and carbon monoxide variations in remote Siberia/ East Asia, *J. Geophys. Res.*, 108, doi: 10.1029/2001JD001412
- 72) Wild O., and H. Akimoto (2001) Intercontinental transport of ozone and its precursors in a three dimensional global CTM, *J. Geophys. Res.*, 106, 27,729-27,744.
- 73) Wild, O., and H. Akimoto (2004) Trans-Eurasian transport of ozone and its precursors, *J. Geophys. Res.*, 109, doi:10.1029/2003JD004501.

## 5. 今後の酸性雨対策の課題

酸性雨長期モニタリング計画に基づく平成15年度から19年度のモニタリング結果について、昭和58年度から平成14年度までの調査結果と比較すると、湿性沈着は全体として同じレベルであった。また、酸性沈着の影響と判断される植生衰退等の生態系被害は認められなかった。一方、伊自良湖重点調査により、伊自良湖集水域では酸性沈着を原因とする土壌の酸性化が継続していることが明らかにされた。

近年、東アジア地域では著しい経済発展により、酸性雨の原因物質である大気汚染物質の排出量が増加しており、今後も増加し続けることが予測されている。また、光化学オキシダント注意報発令地域の広域化等の一因として東アジア大陸からの越境汚染が挙げられていること、及び黄砂の飛来頻度が増加していることなどから、越境大気汚染の影響が懸念されている。さらに、オゾンやエアロゾル等大気汚染物質の大陸間輸送による半球規模汚染も問題となってきた。

このようなことから、酸性沈着だけでなく、オゾンやエアロゾル等も対象に越境大気汚染全般について取り組んでいくことが重要である。また、伊自良湖だけでなく、他の地域においても酸性沈着による生態系への影響が発現する恐れがある一方で、その影響把握には長期継続的なモニタリングが必要であることから、生態影響の監視に重点を置いたモニタリングを適正に実施していくことも必要である。

東アジア地域では、酸性雨問題に関する地域協力体制の確立を目的として、EANETが参加国共通の手法による酸性雨モニタリングなど、活発な活動を展開している。しかし、今後、大気汚染問題が深刻化する恐れがあるとともに、我が国が地理的・気象条件等により越境大気汚染の影響を受けやすいことから、地域の酸性雨対策の推進が必要である。

このような状況を踏まえ、今後の酸性雨対策を進めるにあたり、主に以下の取組を推進していくことが重要と考えられる。

### 5.1 国内における酸性雨対策の推進

#### (1) 長期モニタリングの実施

##### ア. 長期モニタリングの着実な実施

酸性雨による影響は長期継続的なモニタリング結果によらなければ把握しにくく、また、湖沼や土壌の緩衝能力が低い場合には一定量以上の酸性物質の負荷の集積により急激に影響が発現する可能性があること等から、今後も長期モニタリングを着実に実施していく必要がある。また、近年pHの低い地点に対しては、注視していくことが重要である。

また、本モニタリングは地方公共団体の協力を得て実施されているが、地方公共団体の環境・公害関連試験研究機関では、モニタリング等に関する経験・技術が豊富な団塊の世代の大量退職によりその伝承が困難になっている。質の高いモニタリ

ングを継続していくため、研修等により測定現場の技術水準を維持する努力やモニタリングに携わっている地方公共団体と環境省の一層緊密な連携協力が重要である。

#### イ. 酸性雨長期モニタリング計画の見直し

##### (ア) 測定所の集約化

東アジア地域における大気汚染物質の排出量の増加等、我が国への影響が懸念されていることから、今後も引き続き確実なモニタリングを実施する必要があるが、立地条件や気象状況により欠測率の高い測定所が見うけられること、機器更新の遅れ、及び機器の老朽化に伴う故障の増加などにより、質の高いデータを継続して取得することが困難になっている。

このため、平成19年度酸性雨対策検討会等において、これまでのモニタリング結果を踏まえつつ、課題及び予算規模に応じた確実なモニタリング体制の構築に向けて計画が見直された。その結果、大気汚染物質の長距離輸送の監視や生態系への影響監視に重点をおき、測定所の集約化を図ることが必要とされ、尾花沢、筑波、犬山及び倉橋島の測定所を廃止し、五島における湿性沈着モニタリングの廃止及びオゾンモニタリングを実施することとされた。なお、21年度より新たなモニタリング体制へ移行する予定としている。

##### (イ) 降水捕集単位の変更

酸性雨長期モニタリング計画において、降水の捕集は、pHの低い降水の把握や汚染物質の長距離輸送の解明等のため、原則24時間毎（daily）に捕集しており、流跡線解析など汚染源の推定のための解析に用いることができる。また、沈着量を把握し生態系への影響を監視することを主な目的とする地点については、1週間毎（weekly）に試料を捕集している。

しかしながら、dailyの捕集装置は構造が複雑であるためか、weeklyの捕集より完全度が低くなる状況がみられている。このため、dailyをweeklyに変更することにより、故障の低減による完全度の改善や捕集装置の円滑な修繕が期待できることから、次の基本的な考え方に従い、捕集単位の見直しを行った。

- ①EANET局はdaily
- ②生態影響監視局はweekly
- ③長期継続局は、データの継続性を確保するため同じ方法
- ④降水量の多い局はdaily
- ⑤シミュレーションを用いた長距離輸送の解明に資する局はdaily
- ⑥上記以外の局は weekly

検討の結果、八幡平、篔岳、赤城、京都八幡、尼崎、潮岬及び筑後小郡は daily から weekly に変更し、対馬についてはデータ取得率が改善されない場合は daily から weekly に変更することとされた。

#### (ウ) 乾性沈着モニタリングの充実化

本報告書では、乾性沈着に関しては、大気濃度と沈着速度を基に乾性沈着量を推計している。乾性沈着量を推計することにより、湿性沈着量と併せて、土壌・植生、陸水への影響を評価する道が開かれたことになる。しかし、乾性沈着モニタリングは、湿性沈着モニタリングと比較して測定局によりモニタリング項目のばらつきがあることから、湿性沈着量のデータを生かすためにも、測定局間の均質化が望ましい。一方、PM<sub>2.5</sub>については測定法に関する検証が進められており、また、オゾン計についても校正方法の適正化が検討されているところである。これらの検討の動向を見極め、対応していくことが重要である。

#### (エ) 溪流・河川モニタリングの追加

溪流・河川は、流域内での土壌酸性化を中心とした物質循環の変化が直接反映されるため、湖沼よりもダイナミックな応答が期待される。近年、山岳地域の溪流・河川の長期的酸性化が示唆されており、伊自良湖重点調査についても流入河川での変化が最初の議論の出発点であったことから、より溪流・河川に着目したモニタリングが必要である。このため、まずは、伊自良湖流入河川（釜ヶ谷川）のモニタリングを補強するため、重点調査終了後も2週に1回程度の採水を継続し、併せて流入・流出等の物質収支についても長期的に評価することが必要である。

#### (オ) オゾンによる植物影響に関する調査の検討

欧州では、植物葉についてオゾンに特有な可視障害の観察が実施されており、オゾン影響の早期発見に力が入れている。一方、我が国においては、近年、光化学オキシダント注意報発令地域の広域化やその濃度が漸増傾向にあり、その影響の未然防止を図るため、大気汚染との因果関係を明示できる可能性があるオゾン可視障害の観察を、新たなモニタリング項目として検討することが望まれる。

具体的には、パッシブサンプラーの活用と植物の配置法などのモニタリング手法を検討し、今後2、3年を目途にパイロットモニタリングを実施した上でモニタリングを開始するような段階的な取組が想定される。

### (2) 調査研究の推進

#### ア. 乾性沈着モニタリング体系の検討

乾性沈着モニタリングは、自動測定機を用いたモニタリングと、フィルターパック法によるモニタリングが実施されている。これらの大気モニタリングは、採取地点の気候条件による影響を受けやすいことが知られている。特に、東南アジア地域

のような高温、多湿の地域では、フィルターパック法におけるアーティファクト<sup>1</sup>の影響や、自動測定機への湿度等による影響等、データの精度に影響を及ぼしていることが考えられる。EANETにおけるモニタリングを支援する観点から、我が国以外の地域におけるこれらのモニタリングの精度の検証が重要であるとともに、将来に向けた改善方法等についての検討が必要である。また、EANET参加国における乾性沈着モニタリングの拡大の必要性から、適当な簡易測定法の導入を含む乾性沈着モニタリング体系の総合的な検討が求められる。

#### イ. 大気シミュレーションモデルの精緻化及び排出インベントリの高精度化

モニタリングは限られた数の地点で行わざるを得ないため、酸性沈着やオゾン等大気汚染の状況を総合的に解析評価するためには、シミュレーションモデルの開発、精緻化が不可欠であり、また、シミュレーションモデルの精緻化には東アジア地域の排出インベントリの高精度化が必要とされる。シミュレーションモデルを活用することにより、時間的空間的な沈着量分布の把握に加え、大気汚染状況の変動要因の抽出や定量的なソース・レセプター関係の解明を含めた総合的な解析評価、さらには汚染物質の排出から移送、沈着を経て生態影響にいたる一連のプロセスに対する理解を深めることが可能になると期待される。また、モニタリングデータの解析とシミュレーションモデルを用いた将来予測結果を基に、酸性雨等越境大気汚染対策の立案を行うことも期待される。

#### ウ. 土壌、陸水、植生に係る評価方法の検討

##### (ア) 土壌、陸水、植生の感受性指標の検討とホットスポットの抽出

酸性沈着を含む越境大気汚染による生態系への影響に関して、より明確な評価とメッセージが出せる仕組みを検討することが重要である。近年、伊自良湖集水域で酸性沈着の影響を示唆する酸性化徴候がみられるなど、土壌や地質の緩衝能が小さいと考えられる地域においては、河川の酸性化傾向も報告されつつある。今後、酸性化のリスクが高いと考えられるホットスポットとなる地域の抽出は重要な課題である。そのため、土壌及び陸水の感受性の定量的指標に関する議論を始める必要があると考えられる。

また、水生生物の種組成は、河川 pH のわずかな低下でも変化する場合があることから、酸性化の指標となる水生生物種を特定し、生物指標として、影響評価に活用することが期待される。さらに、植物においては、可視障害が生じる前にクロロフィルが発する遅延蛍光がストレス指標として活用できる可能性が示されるなど、新たな指標が提案されている。これらの情報の収集、ケーススタディの推進などを通じて、生物影響のモニタリング手法の高度化を検討すべきである。

<sup>1</sup> 捕集フィルター上で起こる、共存物質による化学反応や物質の揮散などの要因により起こる観測誤差

#### (イ) 土壌の長期的酸性化を評価するための酸性雨対策調査のフォローアップ

土壌の長期的酸性化の評価についてより明確な議論を進めるため、過去の土壌調査における調査地点で再調査を実施することが必要である。具体的には、比較的多くのプロットが設定された第3次酸性雨対策調査地点（平成5～9年度）において、再度、土壌を採取・分析して土壌化学性の変化を把握するものである。なお、再分析を実施する地点については、赤黄色系の土壌、花崗岩地域に分布する乾性褐色森林土など、酸性物質に対する感受性が高い土壌を中心に、地点の保存状況などを考慮しながら選定する。

#### エ. 集水域解析の推進

伊自良湖の事例でも明らかなように、集水域を単位とした生物地球化学的な物質の流れを解析することにより、より定量的に酸性沈着の生態系への影響を検討することが可能である。また、大学や研究機関による既存試験地における調査・研究との連携も進め、期間を定めた共同観測やデータ比較のための観測手法の標準化などを推進することによって、伊自良湖データを含めた我が国における集水域に関する総合的な評価が可能になると考えられる。これらの取組を基に、集水域解析手法を生態系影響の総合的モニタリング・評価手法として、推進していくことが期待される。

#### オ. 生態系シミュレーションモデルの開発・精査

酸性沈着の影響を評価するための総合的モニタリング手法として、集水域解析を十分活用するためには、伊自良湖重点調査で得られた定量的データを基に集水域モデルの開発を進める必要がある。さらに、開発された集水域モデルを活用することにより、伊自良湖集水域における酸性化メカニズムの検証や酸性化の将来予測が進められるとともに、今後酸感受性が高いと考えられる地域での集水域酸性化の顕在化の可能性について有用な情報が得られることが期待される。

### (3) 越境大気汚染問題への取組

近年の光化学オキシダント注意報発令地域の広域化やその濃度の漸増傾向の一因として東アジア大陸からの越境汚染が指摘されている。また、黄砂については飛来頻度が増加傾向にある。さらに、オゾンやエアロゾル等大気汚染物質の大陸間輸送による半球規模汚染も問題となってきている。オゾンは、EANETの乾性沈着の将来方向性に係る戦略ペーパーの中で、第1種優先物質に位置づけられており、黄砂は酸性物質の中和に関わりを持ち、酸性沈着と深い関連のある現象である。このため、酸性雨対策を越境大気汚染対策のひとつに位置づけ、酸性沈着だけでなく、オゾン及びエアロゾル等を統合した越境大気汚染モニタリングを実施していくことが必要である。

## 5.2 国際的な酸性雨対策の推進

### (1) EANET における現行モニタリング活動の強化

2007年（平成19年）11月に開催されたEANET第9回政府間会合において、今後のEANETの活動を発展させるために、2つのタスクフォース（観測機器タスクフォース及び調査・研究・企画・調整タスクフォース）と4つの専門家グループ（乾性沈着量の算定、湿性沈着モニタリング技術マニュアルの改訂、陸水モニタリング技術マニュアルの改訂及び第2次評価報告書の作成に係る専門家グループ）を新しく設置することが合意された。これらのうち、特に専門家グループの活動は、国内酸性雨モニタリングと密接に関わる事項であることから整合性を図る必要がある。そのためにも、国内においてもこれらの活動を支援、検討することが求められており、その体制を整える必要がある。

### (2) EANET 活動の範囲の拡大

地理的・気象条件等により越境大気汚染の影響を受けやすい我が国にとっては、大気汚染が環境に与える悪影響を防止又は低減するための国際的な協力関係を構築していくことが重要である。現在、EANETは酸性沈着のモニタリングに重点を置いた活動を行っているが、東アジア地域における大気環境管理の推進に取り組むため、範囲を拡大し、オゾンやエアロゾル等の大気汚染問題への取組や、排出インベントリの策定、シミュレーションモデルの活用等の活動の実施に向けてEANET参加国の合意が得られるよう努める必要がある。

### (3) 他のイニシアティブとの連携

オゾンやエアロゾル等大気汚染物質については、大陸間輸送によって北半球のバックグラウンド濃度が上昇しており、特にオゾンについてはその環境基準の達成に影響を及ぼしている。このような問題に対しては、東アジア地域における環境協力だけでなく、長距離越境大気汚染条約（CLRTAP）参加国で構成される長距離移動大気汚染物質モニタリング・欧州共同プログラム（EMEP）等の地域的なモニタリングネットワークや世界気象機関（WMO）による全球大気監視（GAW）計画等の国際機関のモニタリングネットワークとEANETの連携が密となるよう、積極的役割を担うことが期待される。また、大気汚染の半球移動に関するタスクフォース（TF-HTAP）等との科学的知見の交換など、連携を進めていくことが必要である。

### (4) クリーンアジア・イニシアティブの推進

平成19年11月に開催された第3回東アジア首脳会議において気候変動や環境問題が主要議題のひとつとなり、20年からその枠組で環境大臣会合が行われることになるなど、アジア地域における環境政策の充実が重要課題となってきた。「21世紀環境立国

戦略（19年6月閣議決定）」に盛り込まれた「クリーンアジア・イニシアティブ（CAI）」は、日本の経験・技術・組織・制度をパッケージとして移転することにより、アジア諸国の経済発展がリープ・フロッグし、持続可能な社会の構築を目指すものである。東アジアにおいては、科学的知見をベースとした包括的な大気汚染防止戦略がないことから、環境大臣会合の枠組みにおいて将来のビジョンを示せるよう、各国の大気汚染物質の排出量予測や影響評価、大気環境管理施策の動向等の解析に基づき、越境大気汚染の軽減に効果的な東アジア大気汚染物質削減シナリオを検討し、国際的な合意形成に向けた取組を推進する必要がある。



## 参考資料

## 1. 酸性雨のメカニズムと影響

### ・ 酸性雨のメカニズム

酸性雨は、化石燃料などの燃焼で大気中に排出された硫黄酸化物や窒素酸化物などが、雲粒に取り込まれ、そこで反応して硫酸イオンや硝酸イオンなどに変化して、pHの低い雨や霧、雪など（湿性沈着）及びガスやエアロゾル（乾性沈着）の形態で沈着するものを全てあわせて酸性雨と呼んでいる。

酸性雨が生じる仕組みを簡単に示すと、次のようになる。

火力発電所、工場などの発生源（固定発生源という）や自動車、飛行機などの発生源（移動発生源という）から硫黄酸化物や窒素酸化物が排出される



排出された硫黄酸化物や窒素酸化物が大気中で硫酸、硝酸等に変化する



大気中で変化した硫酸や硝酸等が取り込まれた雨や雪等及びガスやエアロゾルが地上に沈着する

### ・ 森林への影響

酸性雨や硫黄酸化物、窒素酸化物、オゾン等の大気汚染物質が複合的に作用することにより樹木の黄変、芽や葉の喪失、樹木の枯死などの影響が生じることが、ヨーロッパ諸国等において報告され、1970～1980年代にはドイツのシュバルツバルト（黒い森）の被害に代表されるようにヨーロッパでは非常に深刻な問題となり、また、北米や中国においても大規模な被害が報告されている。ヨーロッパにおける森林枯損は、1990年から継続して取得されている広域評価（観察木：38,000～45,000本）によると、平均落葉率が1994年をピーク（約25%）に減少に転じ回復がみられたが、近年は22-23%ぐらいで横ばい傾向にある（ICP Forests 2008）。プロット単位では、1997年から2007年までの10年間に、28.7%のプロットで落葉率の上昇がみられ、減少がみられたのは10.2%であった。残りの61.1%のプロットで明確な傾向はみられていない。現在、欧米では酸性雨による影響よりもオゾンによる影響が懸念されている（「3.4 諸外国との比較」参照）。

### ・ 湖沼への影響

ヨーロッパや北米では、1950年代に酸性雨による湖沼の酸性化が深刻な問題になり、酸性化した湖沼を中和するために大量の石灰を散布するなどの処置を行った国もあった。なお、現在欧州においては、排出量の削減により陸水は回復傾向にある（「3.4 諸外国との比較」参照）。

図 生物が生息できる水



淡水中の pH の低下に対する水生生物・様々な淡水種が生存できるおおよその限界を示す。多くの種は pH6 以下では生存不可能であり、pH5 では魚類は湖から消滅する。(出典：スウェーデン農業環境省 第 82 委員会、1982 年)

- その他の影響  
その他の影響として建築物や石像などの歴史的資産への影響などが問題となっている国もある。

引用文献：

ICP Forests 2008. The Condition of Forests in Europe, 2008 Executive Report. Institute of World Forestry, Hamburg.

## 2. モニタリング地点の情報

### 酸性沈着モニタリング地点の概要

(注 1)

地点名	区分	所在地	緯度 <sup>(注2)</sup> (北緯, 度, 分, 秒)	経度 <sup>(注2)</sup> (東経, 度, 分, 秒)	標高, ロー・ト 地上 高(m)	捕集 単位	捕集装 置名	分析 単位	調査地点の概況	サン プー の 位置	調査地点の評価(都市地域調 査地点参照) <sup>(注3)</sup>			
											(1)	(2)	(3)	(4)
利尻	遠隔	北海道利尻郡利尻町仙法志字神磯193	45.07.11	141.12.33	40 3.0	日毎	DKK DRS-20 0分離型	日毎	利尻島南西部。海岸から約3 km。付近の地面は、笹、雑草、低木で覆われている。	屋上	○	○	○	○
札幌	都市	札幌市北区北19条西12丁目	43.04.54	141.20.01	12 9.0	週毎	小笠原 US-420	週毎	札幌市中央部に位置する北海道環境科学研究所センター屋上。付近に幹線道路・研究機関の建物あり。	屋上	—	—	—	—
落石岬	遠隔	北海道根室市落石西243-2	43.09.43	145.29.50	49 2.0	日毎	小笠原 US-420	日毎	北海道東部根室半島の南端落石岬の先端部に位置。落石港の南南西2 km。付近は湿地帯及び草地。	地上	○	○	○	○
竜飛岬	遠隔	青森県東津軽郡外ヶ浜町三厩字鉄山国有林84林班り2小班	41.15.06	140.20.59	106 3.3	日毎	小笠原 US-420 分離型	日毎	竜飛岬から南東、津軽海峡側に約1km。海岸から200m。付近に電柱、送電線、送電鉄塔有り。草地。	屋上	○	○	○	×
八幡平	田園 (生態)	岩手県岩手郡雫石町大字長山第53地割字小松倉14-2	39.49.28	140.56.20	830 5.0	日毎	DKK DRS-20 0分離型	日毎	岩手山・南西山麓のスキー場リフト山麓乗場から10m。北・西側は草地。南・東は雑木林。	屋上	○	○	×	×
笠岳	田園	宮城県遠田郡涌谷町小塚字桜清水ニ1-1	38.33.21	141.10.18	165 5.0	日毎	小笠原 US-421	日毎	宮城県北東部・笠岳山(232m)の丘陵地。北・東～南側は草地・ゴルフ場に、西側は広葉樹林に面する。	屋上	○	○	○	×

尾花沢	田園 (生態)	山形県尾花沢市 大字鶴子字屋敷 平国宥林 96 林班 イ小班	38. 31. 41	140. 32. 08	366 6.8	日毎	小笠原 US-420 分離型	週毎	山形県北東部・宮城県境に近い新 鶴子ダム湖畔に位置する。西側は 山林に、東側はダム湖畔に面す る。	屋上	○	○	○	○
筑波	田園	茨城県土浦市永 井 987	36. 09. 50	140. 10. 58	155 4.8	日毎	小笠原 US-420	日毎	筑波山南東部の丘陵地域。土浦市 北方約 10km。周囲は広葉樹林。 南西側は広葉樹が近接。	屋上	×	×	×	○
赤城	田園 (生態)	群馬県勢多郡富 士見村大字赤城 山 1-2	36. 32. 16	139. 10. 53	1500 5.6	日毎	DKK DRM-2 00	日毎	赤城山地蔵岳の麓。赤城小沼から 西に約 400m。周囲は 5m 程度の 雑木林。道路及び駐車場に近接。	屋上	○	○	○	○
小笠原	遠隔	東京都小笠原村 父島旭山地内	27. 05. 30	142. 12. 58	230 5.0	日毎	小笠原 US-420 分離型	日毎	父島北東部・夜明山山頂付近の窪 地に位置する。雑木林に囲まれ今 後、樹木が仰角条件を超える恐れ がある。	屋上	○	○	○	○
東京	都市	東京都千代田区 北の丸公園 2 番 1 号	35. 41. 18	139. 45. 22	26 22	日毎	小笠原 US-420	日毎	測定所は、皇居の北部の北の丸公 園内に立地する科学技術館の 5 階屋上に設置されている。	屋上	-	-	-	-
佐渡関岬	遠隔	新潟県佐渡市関 204	38. 14. 59	138. 24. 00	136 4.6	日毎	小笠原 US-420 分離型	日毎	佐渡島北西部関岬に位置する。南 東 150m にオートキャンプ場が 有るが夏季のみ営業。	屋上	○	○	○	○
新潟巻	田園	新潟県西蒲区越 前浜字向谷地 5876-2	37. 48. 33	138. 51. 09	52 1.7	日毎	小笠原 US-420	日毎	新潟市中心部から南西約 20km の砂丘丘陵地。県青少年研修セン ター敷地内。西 1.5km に日本海。 付近は畑地及び松林。	地上	○	○	○	○
越前岬	遠隔	福井県丹生郡越 前町血ヶ平 9 字上 丸山 2-2	35. 58. 52	135. 58. 04	220 5.6	日毎	小笠原 US-420 分離型	日毎	福井県越前岬に位置する。西 150m に保養所。大きな固定発生 源はない。南西～西～北方向は日 本海。	屋上	○	×	○	×
八方尾根	遠隔	長野県北安曇郡 白馬村大字北城 4488-227	36. 41 48	137. 47 53	1850 5.0	日毎	小笠原 US-420 分離型	日毎	北アルプス唐松岳八方尾根スキ ー場の頂上付近に位置する。麓側 100m に山小屋。周囲は低木・草 地。	屋上	○	○	×	×

伊自良湖	田園 (生態)	岐阜県山県市長 滝釜ヶ谷 27-7-3	35. 34 20	136. 41. 38	140 4.3	週毎	小笠原 US-420 分離型	週毎	岐阜市の北方約 15km。伊自良湖の北西 1.2 km、釜ヶ谷川沿いの谷間に位置。周囲は桜等の広葉樹。	地上	×	×	○	○
犬山	田園	愛知県犬山市大 字犬山字東洞 15	35. 23. 10	136. 57. 52	100 5.0	日毎	紀本 ARS- 100	日毎	愛知・岐阜県境の木曽川に近接する浄水場の南東一角に位置。東側は公園、南から南西側に果樹園。	地上	○	○	○	○
京都八幡	都市	京都府八幡市男 山雄徳 1	34. 52. 27	135. 41. 37	70 1.6	日毎	紀本 ARS- 100	日毎	京都府と大阪府の境界近くの都市近郊田園地域に位置。北側と東側は竹林、南に児童公園樹木あり。	地上	—	—	—	—
尼崎	都市	兵庫県尼崎市東 難波町 4-16-21	34. 43. 33	135. 24. 53	0 20.0	日毎	小笠原 US-420	日毎	尼崎市の中心部・阪神尼崎駅から北西 1km。社会福祉センター(5階) 屋上(H19,2 まで)、総合老人センター敷地内(H19,3 より)。	地上	—	—	—	—
潮岬	遠隔	和歌山県東牟婁 郡串本町潮岬 668-1	33. 26. 26	135. 46. 52	70 4.0	日毎	紀本 ARS- 100	日毎	紀伊半島南端・潮岬に位置。20m 以内は平坦な草地。100m 以内は樹高 20m 以内の樹林又は草地。	地上	○	○	○	×
隠岐	遠隔	島根県隠岐郡隠 岐の島町北方福 浦 1700	36. 17. 19	133. 11. 06	90 1.5	日毎	小笠原 US-420	日毎	隠岐諸島、島後北西部・福浦崎灯台から東 200m。西郷市から北西 15 km。付近は草地、低い松林。	地上	○	○	○	○
蟠竜湖	都市 (生態)	島根県益田市高 津町イ 2340-3	34. 40. 54	131. 47. 59	53 1.5	週毎	小笠原 US-420	週毎	島根県南西部・益田市中心部から西方約 4km に位置する。南方 500m に石見空港。西方 50m 以内に県道有。	地上	—	—	—	—
倉橋島	田園	広島県呉市倉橋 町石休 235	34. 06. 56	132. 30. 16	178 4.3	日毎	紀本 ARS- 100	日毎	呉市南方、倉橋島の南部地域に位置する。市営グラウンド、照明設備・電柱等に近接。	地上	×	×	○	×
構原	遠隔	高知県高岡郡梶 原町太郎川 3757-2	33. 22. 45	132. 56. 05	790 1.5	日毎	小笠原 US-420	日毎	高知県北西部愛媛県境に近い梶原町の中心部から約 2 km。山地頂上付近の森林を切開いた造成地。	地上	○	○	○	○

筑後小郡	田園	福岡県小郡市大字井上字尾辺田434	33. 24. 31	130. 34. 50	25 4.0	日毎	小笠原 US-420	日毎	福岡県南部佐賀県境に近い小郡市中心部から北東約3km。周辺150m以内は水田、雑木林等。	屋上	×	×	×	×
対馬	遠隔	長崎県対馬市厳原町北里大多羅(上見坂公園内)	34. 14. 30	129. 17. 09	390 5.0	日毎	小笠原 US-421	日毎	対馬市厳原町の北部高台の公園内に位置する。展望台・駐車場に近接。南方4.5kmに厳原港。	屋上	×	×	×	×
五島	遠隔	長崎県五島市玉之浦町大宝1148	32. 36. 23	128. 39. 24	95 4.6	日毎	小笠原 US-420	日毎	五島列島南西部・福江島西端に位置する。五島市中心部から南西20km。市営グラウンドに近接。	屋上	×	×	×	×
大分久住	田園 (生態)	大分県竹田市久住町大字久住平木3991-168	33. 02. 38	131. 15. 04	560 3.5	週毎	小笠原 US-420	週毎	大分市の南西40km、日田市の北西16km。九重連山山麓の牧草地帯に位置する。南方30mに国道。	屋上	○	○	×	×
えびの	遠隔	宮崎県えびの市大字榎田字北野570-1	32. 04. 59	130. 49. 56	720 1.6	日毎	小笠原 US-420	日毎	宮崎県南西部えびの市中心部から北方2km。自衛隊えびの送信所内山頂部付近。南方60kmに桜島。	地上	○	×	○	○
屋久島	遠隔 (生態)	鹿児島県熊毛郡上屋久島町一湊字手ノ字都西2377-3	30. 26. 42	130. 28. 51	250 4.0	日毎	小笠原 US-420	週毎	屋久島北部のシイ、カシ、杉、ヒノキ、サワラ林山地に位置する。宮之浦港から西10km、一湊漁港1km。	屋上	○	○	○	×
辺戸岬	遠隔	沖縄県国頭郡国頭村字宜名真	26. 51. 58	128. 14. 55	60 1.5	日毎	小笠原 US-420	日毎	沖縄県北端辺戸岬灯台から150mに位置する。名護市の北東40km。海岸線から南東に300m。雑草地。	地上	○	○	○	○

(注1：本表は、各調査地点の捕集地点及び試料捕集に関する自治体から環境省への報告情報(平成18年度調査報告書)及びサイトの現地調査結果等から作成した。

(注2：測定局の緯度経度は、世界測地系表記に統一した。

(注3：調査地点の評価は、最新のサイト現地調査結果報告書をもとに作成した。調査地点の条件は(都市調査地点を除く)、以下の通り。

- (1) 開放的な草地で近傍にいかなる障害物もないこと。
- (2) 大きな障害物までの距離が、障害物の高さの2倍以上、または捕集装置から見た障害物の最上部の仰角が30度未満であること。
- (3) 廃棄物処分場、焼却炉、駐車場、駐車場、農作物の野外貯蔵庫、家庭の暖房等局地汚染源からの汚染が無く、これらから100m以上離れていること。
- (4) 捕集装置と雨量計、または乾性沈着の捕集装置の間には、2m以上の距離を保ち、かつ、降水時の卓越風向に対して垂直に設置すること。

### 3. モニタリング結果の参考データ

参考表 1 年間降水量

(単位: mm y<sup>-1</sup>)

調査地点	平成15年度 (2003年度)	平成16年度 (2004年度)	平成17年度 (2005年度)	平成18年度 (2006年度)	平成19年度 (2007年度)	5年平均
利尻	852	857	922	1291	881	961
札幌	991	1043	1102	1028	926	1018
落石岬	827	626	844	958	897	830
竜飛岬	1219	1468	1164	1006	959	1163
八幡平	2067	2444	2325	2185	2041	2212
篔岳	1211	1294	924	1503	1001	1186
尾花沢	1421	1600	1439	1678	1643	1556
筑波	1379	1647	1194	1570	1271	1412
赤城	1563	1607	1565	1873	1819	1685
小笠原	1467	1220	1999	1502	1788	1596
東京	-	-	-	-	1267	1267
佐渡関岬	1278	1535	1085	1316	1085	1260
新潟巻	1630	1771	1581	1901	1693	1715
八方尾根	2627	3126	2910	2729	2162	2711
越前岬	1957	2539	2192	2086	1998	2154
伊自良湖	2883	3650	2607	2685	2174	2800
犬山	1796	2077	1433	1544	1400	1650
京都八幡	1656	1612	**	1527	1300	1524
尼崎	1389	1426	842	1365	979	1200
潮岬	2675	2424	2177	2339	2227	2368
隠岐	1538	1415	1281	1356	1211	1360
蟠竜湖	1589	1795	1350	1873	1408	1603
倉橋島	1704	1983	1197	1779	1277	1588
禰原	2754	4124	2184	3148	2532	2949
筑後小郡	1815	1958	1348	2533	1622	1855
対馬	2921	**	**	**	2123	2522
五島	2016	1871	1801	1894	1132	1743
大分久住	2091	1603	1740	2482	1933	1970
えびの	3312	3148	2493	4300	2333	3117
屋久島	3646	5123	3561	3850	2973	3831
辺戸岬	1467	1901	1788	1879	2602	1927
最大値	3646	5123	3561	4300	2973	3831
最小値	827	626	842	958	881	830
平均値	1858	2031	1680	1972	1634	1830

- 未測定。

\*\* 年判定基準で年間値が棄却されたもの。

最大値 年判定基準で有効とされた年間値を対象とした。

最小値 年判定基準で有効とされた年間値を対象とした。

平均値 全地点について、年判定基準で棄却された年間値を除いた平均値とした。

参考表 2 pH の年平均値

調査地点	平成15年度 (2003年度)	平成16年度 (2004年度)	平成17年度 (2005年度)	平成18年度 (2006年度)	平成19年度 (2007年度)	5年平均
利尻	4.85	4.86	4.73	4.66	4.59	4.71
札幌	4.76	**	4.70	4.54	4.57	4.64
落石岬	4.88	4.70	4.82	4.86	4.79	4.81
竜飛岬	**	**	**	4.60	4.58	4.59
八幡平	4.75	4.70	4.75	**	4.81	4.75
篔岳	4.77	4.75	4.54	4.92	4.70	4.74
尾花沢	4.72	4.65	4.65	4.83	4.72	4.71
筑波	4.61	4.64	4.56	4.89	4.71	4.68
赤城	4.59	**	**	**	4.83	4.70
小笠原	5.04	5.02	4.84	**	4.99	4.95
東京	-	-	-	-	4.77	4.77
佐渡関岬	**	**	4.59	4.65	4.51	4.58
新潟巻	4.60	4.65	4.47	4.61	4.48	4.56
八方尾根	4.90	**	4.78	4.96	4.78	4.85
越前岬	4.54	**	4.49	4.57	4.48	4.52
伊自良湖	4.40	4.65	**	4.46	4.54	4.51
犬山	4.63	**	4.50	4.57	4.64	4.59
京都八幡	4.67	4.84	**	**	4.60	4.70
尼崎	4.71	4.85	4.56	4.57	4.63	4.66
潮岬	4.74	**	**	4.62	4.54	4.63
隠岐	4.80	4.76	4.55	4.69	4.69	4.70
蟠竜湖	4.65	4.67	4.55	4.64	4.53	4.61
倉橋島	4.48	4.63	4.52	4.64	4.55	4.57
禰原	4.76	4.92	4.67	4.83	4.78	4.80
筑後小郡	4.85	4.83	**	4.49	4.82	4.69
対馬	4.83	**	**	**	**	4.83
五島	4.82	4.90	**	4.62	4.64	4.73
大分久住	4.59	4.70	4.58	4.74	4.79	4.67
えびの	**	4.82	4.59	4.69	**	4.70
屋久島	4.67	4.78	**	**	**	4.73
辺戸岬	4.83	**	4.88	4.95	4.98	4.92
最大値	5.04	5.02	4.88	4.96	4.99	4.95
最小値	4.40	4.63	4.47	4.46	4.48	4.51
平均値	4.69	4.76	4.63	4.67	4.67	4.68

- 未測定。

\*\* 年判定基準で年平均値が棄却されたもの。

最大値 年判定基準で有効とされた年平均値を対象とした。

最小値 年判定基準で有効とされた年平均値を対象とした。

平均値 全地点での降水量による加重平均値とし、年判定基準で棄却された年平均値は除いた。

参考表 3 nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>年平均濃度

(単位: μmol L<sup>-1</sup>)

調査地点	平成15年度 (2003年度)	平成16年度 (2004年度)	平成17年度 (2005年度)	平成18年度 (2006年度)	平成19年度 (2007年度)	5年平均
利尻	14.6	13.1	16.4	16.0	19.4	15.9
札幌	14.7	**	16.4	21.0	16.1	17.1
落石岬	8.1	12.5	11.3	11.0	9.4	10.4
竜飛岬	**	**	**	18.2	15.7	17.0
八幡平	10.9	11.6	17.2	**	13.1	13.2
篔岳	10.1	10.1	19.9	9.2	14.1	12.1
尾花沢	12.5	11.7	15.3	10.0	12.1	12.2
筑波	15.8	13.9	16.1	9.9	16.1	14.2
赤城	12.2	**	**	**	7.7	9.8
小笠原	**	4.1	7.1	**	4.8	5.5
東京	-	-	-	-	15.2	15.2
佐渡関岬	**	**	17.8	15.0	20.2	17.5
新潟巻	14.4	14.5	21.4	17.6	20.1	17.5
八方尾根	7.0	**	12.9	9.6	12.2	10.4
越前岬	16.6	**	21.0	17.0	19.3	18.5
伊自良湖	19.4	12.4	**	20.8	16.3	16.9
犬山	14.6	**	18.2	15.6	15.0	15.8
京都八幡	13.3	9.9	**	**	16.1	12.9
尼崎	11.6	9.9	20.0	15.9	16.3	14.1
潮岬	13.2	**	**	13.8	17.2	14.6
隠岐	10.9	12.9	19.9	18.0	15.7	15.3
蟠竜湖	13.2	14.1	23.5	16.8	22.3	17.6
倉橋島	16.5	12.1	20.0	14.7	17.8	15.7
禰原	8.5	5.4	10.6	9.5	9.0	8.2
筑後小郡	14.9	13.4	**	26.6	26.1	20.6
対馬	12.9	**	**	**	**	12.9
五島	11.3	9.2	**	18.9	26.6	15.3
大分久住	13.5	10.9	19.3	13.2	12.8	13.9
えびの	**	8.6	16.0	13.6	**	12.6
屋久島	14.6	9.7	**	**	**	11.7
辺戸岬	12.7	**	9.4	8.7	6.4	8.8
最大値	19.4	14.5	23.5	26.6	26.6	20.6
最小値	7.0	4.1	7.1	8.7	4.8	5.5
平均値	13.1	10.6	16.2	14.9	14.8	13.8

- 未測定。

\*\* 年判定基準で年平均値が棄却されたもの。

最大値 年判定基準で有効とされた年平均値を対象とした。

最小値 年判定基準で有効とされた年平均値を対象とした。

平均値 全地点での降水量による加重平均値とし、年判定基準で棄却された年平均値は除いた。

参考表 4 NO<sub>3</sub>年平均濃度

(単位: μmol L<sup>-1</sup>)

調査地点	平成15年度 (2003年度)	平成16年度 (2004年度)	平成17年度 (2005年度)	平成18年度 (2006年度)	平成19年度 (2007年度)	5年平均
利尻	13.3	10.8	13.8	13.3	15.8	13.4
札幌	13.0	**	12.8	18.2	17.5	15.3
落石岬	8.5	13.1	10.3	10.7	9.2	10.2
竜飛岬	**	**	**	22.8	23.4	23.1
八幡平	11.0	10.9	15.2	**	12.9	12.5
篔岳	12.3	12.3	18.7	12.1	15.5	13.8
尾花沢	13.2	12.4	13.9	9.4	12.8	12.2
筑波	20.4	17.2	19.1	16.5	22.6	19.0
赤城	19.1	**	**	**	19.1	19.1
小笠原	**	3.9	3.2	**	4.4	4.1
東京	-	-	-	-	20.2	20.2
佐渡関岬	**	**	20.0	19.3	27.0	21.9
新潟巻	18.6	15.3	22.9	18.5	21.7	19.3
八方尾根	6.8	**	10.6	7.3	10.6	8.8
越前岬	20.4	**	22.9	19.9	23.1	21.6
伊自良湖	23.1	15.4	**	25.3	21.8	20.9
犬山	18.1	**	25.4	22.5	20.0	21.3
京都八幡	17.0	13.6	**	**	23.6	17.7
尼崎	13.3	11.9	22.2	**	22.0	17.1
潮岬	9.5	**	**	11.8	14.3	11.7
隠岐	14.1	16.8	22.5	21.2	19.3	18.6
蟠竜湖	16.0	17.2	25.1	18.8	28.8	20.7
倉橋島	16.5	13.2	17.6	14.7	17.1	15.5
禰原	7.1	5.5	8.9	7.6	7.8	7.1
筑後小郡	13.4	14.6	**	25.2	23.1	19.5
対馬	11.9	**	**	**	**	11.9
五島	10.7	10.3	**	17.0	24.2	14.5
大分久住	9.1	7.6	11.3	8.8	8.6	9.1
えびの	**	6.0	9.6	8.8	**	8.1
屋久島	10.8	9.9	**	**	**	10.3
辺戸岬	10.3	**	9.2	8.3	6.3	8.2
最大値	23.1	17.2	25.4	25.3	28.8	23.1
最小値	5.0	3.9	3.2	7.3	4.4	4.1
平均値	13.2	11.4	15.1	15.0	16.6	14.2

- 未測定。

\*\* 年判定基準で年平均値が棄却されたもの。

最大値 年判定基準で有効とされた年平均値を対象とした。

最小値 年判定基準で有効とされた年平均値を対象とした。

平均値 全地点での降水量による加重平均値としたが、年判定基準で棄却された年平均値は除いた。

参考表 5 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>年平均濃度

(単位: μmol L<sup>-1</sup>)

調査地点	平成15年度 (2003年度)	平成16年度 (2004年度)	平成17年度 (2005年度)	平成18年度 (2006年度)	平成19年度 (2007年度)	5年平均
利尻	18.8	16.1	19.8	17.0	25.3	19.2
札幌	22.2	**	23.3	25.9	24.3	23.9
落石岬	8.5	11.1	9.3	14.8	7.4	10.3
竜飛岬	**	**	**	18.7	18.3	18.5
八幡平	11.2	11.5	21.2	**	16.3	15.1
篔岳	12.4	13.1	20.3	14.9	17.2	15.2
尾花沢	14.2	13.4	17.0	11.4	15.0	14.1
筑波	22.1	15.6	23.0	16.1	27.7	20.4
赤城	17.5	**	**	**	19.7	18.7
小笠原	3.9	5.7	3.6	**	7.4	5.1
東京	-	-	-	-	29.0	29.0
佐渡関岬	**	**	17.8	18.2	24.5	20.1
新潟巻	15.2	14.8	22.3	17.5	20.4	18.0
八方尾根	6.2	**	12.0	8.8	10.9	9.5
越前岬	21.3	**	23.4	19.3	25.0	22.3
伊自良湖	19.9	13.9	**	23.3	19.3	18.7
犬山	17.7	**	26.6	21.3	20.4	21.3
京都八幡	16.3	12.0	**	**	20.4	15.9
尼崎	15.5	11.3	20.7	16.1	20.0	16.1
潮岬	7.6	**	**	9.3	11.8	9.4
隠岐	9.9	10.7	15.9	14.8	13.9	12.9
蟠竜湖	12.7	12.7	20.7	14.6	21.4	16.0
倉橋島	13.5	11.6	20.8	12.9	15.5	14.3
禰原	6.2	4.9	8.7	7.7	8.0	6.8
筑後小郡	23.4	19.6	**	37.2	29.6	28.1
対馬	17.6	**	**	**	**	17.6
五島	13.8	10.0	**	18.9	24.3	15.9
大分久住	15.9	9.0	19.1	15.5	14.8	15.0
えびの	**	9.2	15.1	14.7	**	13.0
屋久島	12.5	9.2	**	**	**	10.6
辺戸岬	10.2	**	12.6	8.8	6.9	9.3
最大値	23.4	19.6	26.6	37.2	29.6	29.0
最小値	3.9	4.9	3.6	7.7	6.9	5.1
平均値	14.0	11.2	17.1	16.3	17.4	15.1

- 未測定。

\*\* 年判定基準で年平均値が棄却されたもの。

最大値 年判定基準で有効とされた年平均値を対象とした。

最小値 年判定基準で有効とされた年平均値を対象とした。

平均値 全地点での降水量による加重平均値とし、年判定基準で棄却された年平均値は除いた。

参考表 6 nss-Ca<sup>2+</sup>年平均濃度

(単位:  $\mu\text{mol L}^{-1}$ )

調査地点	平成15年度 (2003年度)	平成16年度 (2004年度)	平成17年度 (2005年度)	平成18年度 (2006年度)	平成19年度 (2007年度)	5年平均
利尻	4.9	2.4	4.2	2.4	2.6	3.2
札幌	5.4	**	5.0	5.3	3.7	4.9
落石岬	2.2	4.1	4.1	4.1	2.5	3.4
竜飛岬	**	**	**	6.7	5.9	6.3
八幡平	2.8	2.1	5.7	**	3.5	3.5
篔岳	1.7	2.3	3.8	3.5	3.6	2.9
尾花沢	2.3	2.7	3.0	1.9	2.0	2.4
筑波	4.6	2.7	1.9	4.6	5.8	3.9
赤城	2.5	**	**	**	2.4	2.5
小笠原	2.9	**	0.8	**	1.6	1.7
東京	-	-	-	-	4.6	4.6
佐渡関岬	**	**	5.8	6.1	6.6	6.2
新潟巻	3.4	2.8	4.5	4.5	3.6	3.8
八方尾根	1.7	**	5.0	5.2	3.1	3.8
越前岬	3.2	**	5.0	5.6	4.0	4.5
伊自良湖	2.9	1.7	**	2.4	2.8	2.4
犬山	2.8	**	3.7	4.2	3.1	3.4
京都八幡	2.3	2.6	**	**	5.3	3.3
尼崎	2.1	3.4	5.4	4.5	5.9	4.0
潮岬	3.0	**	**	2.5	2.5	2.7
隠岐	4.4	4.3	6.5	8.0	5.0	5.6
蟠竜湖	2.3	3.0	9.3	4.6	6.9	5.0
倉橋島	1.6	1.8	2.6	2.6	4.4	2.5
禰原	1.6	1.1	2.2	2.1	1.9	1.7
筑後小郡	1.9	5.2	**	6.8	11.0	6.2
対馬	2.0	**	**	**	**	2.0
五島	1.8	2.1	**	3.6	3.6	2.7
大分久住	1.5	1.2	2.3	1.9	3.2	2.0
えびの	**	1.2	1.9	1.8	**	1.6
屋久島	2.2	1.6	**	**	**	1.8
辺戸岬	3.4	**	2.9	5.8	1.7	3.3
最大値	5.4	5.2	9.3	8.0	11.0	6.3
最小値	1.5	1.1	0.8	1.8	1.6	1.6
平均値	2.6	2.2	3.9	3.9	3.8	3.3

- 未測定。

\*\* 年判定基準で年平均値が棄却されたもの。

最大値 年判定基準で有効とされた年平均値を対象とした。

最小値 年判定基準で有効とされた年平均値を対象とした。

平均値 全地点での降水量による加重平均値とし、年判定基準で棄却された年平均値は除いた。

参考表 7 H<sup>+</sup>年平均濃度

(単位:  $\mu\text{mol L}^{-1}$ )

調査地点	平成15年度 (2003年度)	平成16年度 (2004年度)	平成17年度 (2005年度)	平成18年度 (2006年度)	平成19年度 (2007年度)	5年平均
利尻	14.1	14.0	18.8	22.0	26.0	19.3
札幌	17.5	**	19.8	28.7	27.1	23.2
落石岬	13.0	20.2	15.3	13.8	16.2	15.4
竜飛岬	**	**	**	25.1	26.0	25.5
八幡平	17.6	20.2	17.8	**	15.6	17.9
篔岳	17.0	17.9	28.7	12.1	20.1	18.3
尾花沢	19.1	22.5	22.5	14.9	19.0	19.5
筑波	24.3	22.8	27.5	12.8	19.3	21.1
赤城	25.9	**	**	**	14.8	19.9
小笠原	9.1	9.5	14.5	**	10.3	11.2
東京	-	-	-	-	16.9	16.9
佐渡関岬	**	**	25.8	22.2	31.0	26.1
新潟巻	25.4	22.4	33.5	24.4	33.3	27.6
八方尾根	12.6	**	16.4	11.0	16.7	14.1
越前岬	28.9	**	32.4	27.0	32.8	30.3
伊自良湖	39.7	22.3	**	34.3	28.8	30.8
犬山	23.2	**	31.6	26.8	22.7	25.9
京都八幡	21.2	14.6	**	**	25.2	20.0
尼崎	19.6	14.1	27.5	26.9	23.3	21.7
潮岬	18.2	**	**	23.7	28.7	23.2
隠岐	15.8	17.2	28.2	20.4	20.3	20.1
蟠竜湖	22.6	21.4	28.1	23.1	29.6	24.6
倉橋島	33.0	23.4	30.4	22.7	27.9	27.1
禰原	17.5	12.1	21.3	14.7	16.6	15.8
筑後小郡	14.2	14.9	**	32.5	15.1	20.4
対馬	14.8	**	**	**	**	14.8
五島	15.2	12.5	**	24.0	25.3	18.5
大分久住	25.7	20.1	26.4	18.3	16.2	21.2
えびの	**	15.0	25.6	20.4	**	20.0
屋久島	21.3	16.7	**	**	**	18.6
辺戸岬	14.9	**	13.1	11.2	10.4	12.1
最大値	39.7	23.4	33.5	34.3	33.3	30.8
最小値	9.1	9.5	13.1	11.0	10.3	11.2
平均値	20.6	17.6	23.5	21.3	21.3	20.8

- 未測定。

\*\* 年判定基準で年平均値が棄却されたもの。

最大値 年判定基準で有効とされた年平均値を対象とした。

最小値 年判定基準で有効とされた年平均値を対象とした。

平均値 全地点での降水量による加重平均値とし、年判定基準で棄却された年平均値は除いた。

参考表 8 nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>年間湿性沈着量

(単位: mmol m<sup>-2</sup> y<sup>-1</sup>)

調査地点	平成15年度 (2003年度)	平成16年度 (2004年度)	平成17年度 (2005年度)	平成18年度 (2006年度)	平成19年度 (2007年度)	5年平均
利尻	12.4	11.2	15.1	20.6	17.1	15.3
札幌	14.5	**	18.0	21.6	15.0	17.3
落石岬	6.7	7.8	9.6	10.5	8.5	8.6
竜飛岬	**	**	**	18.3	15.0	16.7
八幡平	22.5	28.3	40.0	**	26.7	29.4
篔岳	12.3	13.1	18.4	13.9	14.2	14.3
尾花沢	17.8	18.7	22.0	16.8	19.9	19.0
筑波	21.8	23.0	19.3	15.5	20.5	20.0
赤城	19.0	**	**	**	14.0	16.5
小笠原	**	5.0	14.1	**	8.6	9.3
東京	-	-	-	-	19.3	19.3
佐渡関岬	**	**	19.3	19.7	21.9	20.3
新潟巻	23.4	25.6	33.8	33.4	34.1	30.1
八方尾根	18.3	**	37.6	26.2	26.3	27.1
越前岬	32.4	**	45.9	35.5	38.5	38.1
伊自良湖	56.1	45.1	**	55.8	35.4	48.1
犬山	26.2	**	26.0	24.0	21.0	24.3
京都八幡	22.0	15.9	**	**	20.9	19.6
尼崎	16.2	14.1	16.8	21.7	16.0	16.9
潮岬	35.2	**	**	32.2	38.3	35.2
隠岐	16.7	18.3	25.4	24.4	19.1	20.8
蟠竜湖	21.1	25.3	31.7	31.5	31.4	28.2
倉橋島	28.1	24.1	23.9	26.1	22.7	25.0
禰原	23.5	22.2	23.2	30.0	22.7	24.3
筑後小郡	27.1	26.3	**	67.5	42.3	40.8
対馬	37.6	**	**	**	**	37.6
五島	22.7	17.3	**	35.7	30.1	26.5
大分久住	28.3	17.5	33.6	32.8	24.7	27.4
えびの	**	26.9	39.8	58.7	**	41.8
屋久島	53.2	49.5	**	**	**	51.4
辺戸岬	18.6	**	16.8	16.3	16.7	17.1
最大値	56.1	49.5	45.9	67.5	42.3	51.4
最小値	6.7	5.0	9.6	10.5	8.5	8.6
平均値	24.4	21.8	25.3	28.7	22.9	25.4

- 未測定。

\*\* 年判定基準で年間値が棄却されたもの。

最大値 年判定基準で有効とされた年間値を対象とした。

最小値 年判定基準で有効とされた年間値を対象とした。

平均値 全地点について、年判定基準で棄却された年間値を除いた平均値とした。

参考表 9 NO<sub>3</sub>-年間湿性沈着量の経年変化

(単位: mmol m<sup>-2</sup> y<sup>-1</sup>)

調査地点	平成15年度 (2003年度)	平成16年度 (2004年度)	平成17年度 (2005年度)	平成18年度 (2006年度)	平成19年度 (2007年度)	5年平均
利尻	11.3	9.3	12.8	17.1	13.9	12.9
札幌	12.9	**	14.1	18.7	16.2	15.5
落石岬	7.1	8.2	8.7	10.3	8.3	8.5
竜飛岬	**	**	**	23.0	22.4	22.7
八幡平	22.7	26.7	35.4	**	26.4	27.8
篔岳	14.8	16.0	17.3	18.1	15.5	16.3
尾花沢	18.8	19.8	20.0	15.8	21.0	19.1
筑波	28.1	28.4	22.8	25.9	28.8	26.8
赤城	29.8	**	**	**	34.7	32.3
小笠原	**	4.8	6.4	**	7.9	6.6
東京	-	-	-	-	25.6	25.6
佐渡関岬	**	**	21.7	25.4	29.3	25.5
新潟巻	30.4	27.1	36.1	35.1	36.8	33.1
八方尾根	17.8	**	30.8	20.0	22.9	22.9
越前岬	39.8	**	50.3	41.5	46.2	44.4
伊自良湖	66.5	56.2	**	68.0	47.5	59.5
犬山	32.6	**	36.4	34.7	28.0	32.9
京都八幡	28.2	21.9	**	**	30.6	26.9
尼崎	18.4	17.0	18.7	27.2	21.5	20.6
潮岬	25.3	**	**	27.6	31.9	28.3
隠岐	21.6	23.8	28.8	28.8	23.4	25.3
蟠竜湖	25.5	30.9	33.9	35.2	40.5	33.2
倉橋島	28.1	26.3	21.1	26.2	21.9	24.7
禰原	19.6	22.7	19.5	23.9	19.6	21.1
筑後小郡	24.3	28.6	**	63.9	37.5	38.6
対馬	34.8	**	**	**	**	34.8
五島	21.5	19.3	**	32.2	27.4	25.1
大分久住	19.0	12.3	19.6	21.9	16.7	17.9
えびの	**	18.9	23.8	37.6	**	26.8
屋久島	39.5	51.0	**	**	**	45.2
辺戸岬	15.1	**	16.4	15.6	16.5	15.9
最大値	66.5	56.2	50.3	68.0	47.5	59.5
最小値	7.1	4.8	6.4	10.3	7.9	6.6
平均値	24.5	23.4	23.6	28.9	25.7	26.3

- 未測定。

\*\* 年判定基準で年間値が棄却されたもの。

最大値 年判定基準で有効とされた年間値を対象とした。

最小値 年判定基準で有効とされた年間値を対象とした。

平均値 全地点について、年判定基準で棄却された年間値を除いた平均値とした。

参考表 10 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>年間湿性沈着量の経年変化

(単位: mmol m<sup>-2</sup> y<sup>-1</sup>)

調査地点	平成15年度 (2003年度)	平成16年度 (2004年度)	平成17年度 (2005年度)	平成18年度 (2006年度)	平成19年度 (2007年度)	5年平均
利尻	16.0	13.8	18.3	22.0	22.3	18.5
札幌	22.0	**	25.7	26.6	22.5	24.2
落石岬	7.0	6.9	7.8	14.2	6.7	8.5
竜飛岬	**	**	**	18.8	17.5	18.2
八幡平	23.2	28.0	49.4	**	33.2	33.4
篔岳	15.0	17.0	18.8	22.4	17.2	18.1
尾花沢	20.2	21.4	24.5	19.2	24.6	22.0
筑波	30.5	25.7	27.5	25.3	35.1	28.8
赤城	27.3	**	**	**	35.8	31.6
小笠原	5.7	6.9	7.2	**	13.3	8.3
東京	-	-	-	-	36.8	36.8
佐渡関岬	**	**	19.3	24.0	26.6	23.3
新潟巻	24.8	26.2	35.3	33.2	34.6	30.8
八方尾根	16.2	**	35.0	24.0	23.6	24.7
越前岬	41.7	**	51.2	40.3	50.0	45.8
伊自良湖	57.4	50.9	**	62.7	41.9	53.2
犬山	31.8	**	38.1	32.9	28.5	32.9
京都八幡	26.9	19.4	**	**	26.5	24.3
尼崎	21.5	16.1	17.4	21.9	19.6	19.3
潮岬	20.3	**	**	21.7	26.3	22.7
隠岐	15.2	15.1	20.4	20.1	16.8	17.6
蟠竜湖	20.1	22.9	27.9	27.4	30.1	25.7
倉橋島	22.9	22.9	24.9	23.0	19.7	22.7
禰原	17.0	20.1	19.1	24.1	20.1	20.1
筑後小郡	42.4	38.4	**	94.2	48.0	55.8
対馬	51.5	**	**	**	**	51.5
五島	27.8	18.7	**	35.8	27.5	27.4
大分久住	33.2	14.5	33.3	38.4	28.6	29.6
えびの	**	28.9	37.6	63.2	**	43.2
屋久島	45.7	46.9	**	**	**	46.3
辺戸岬	14.9	**	22.5	**	18.1	18.0
最大値	57.4	50.9	51.2	94.2	50.0	55.8
最小値	5.7	6.9	7.2	14.2	6.7	8.3
平均値	25.9	23.0	26.7	31.3	26.8	28.5

- 未測定。

\*\* 年判定基準で年間値が棄却されたもの。

最大値 年判定基準で有効とされた年間値を対象とした。

最小値 年判定基準で有効とされた年間値を対象とした。

平均値 全地点について、年判定基準で棄却された年間値を除いた平均値とした。

参考表 11 nss-Ca<sup>2+</sup>年間湿性沈着量の経年変化

(単位: mmol m<sup>-2</sup> y<sup>-1</sup>)

調査地点	平成15年度 (2003年度)	平成16年度 (2004年度)	平成17年度 (2005年度)	平成18年度 (2006年度)	平成19年度 (2007年度)	5年平均
利尻	4.1	2.1	3.9	3.1	2.3	3.1
札幌	5.3	**	5.5	5.5	3.4	4.9
落石岬	1.8	2.6	3.5	4.0	2.3	2.8
竜飛岬	**	**	**	6.8	5.7	6.2
八幡平	5.8	5.2	13.3	**	7.2	7.9
篔岳	2.0	3.0	3.5	5.2	3.6	3.5
尾花沢	3.3	4.2	4.4	3.2	3.2	3.7
筑波	6.3	4.5	2.3	7.2	7.4	5.6
赤城	3.9	**	**	**	4.4	4.2
小笠原	4.3	**	1.7	**	2.8	2.9
東京	-	-	-	-	5.8	5.8
佐渡関岬	**	**	6.3	8.0	7.2	7.1
新潟巻	5.5	5.0	7.2	8.6	6.1	6.5
八方尾根	4.6	**	14.5	14.2	6.8	10.0
越前岬	6.3	**	11.0	11.8	8.0	9.3
伊自良湖	8.4	6.0	**	6.3	6.1	6.7
犬山	5.0	**	5.3	6.4	4.4	5.3
京都八幡	3.8	4.2	**	**	6.9	5.0
尼崎	2.9	4.8	4.6	6.2	5.7	4.8
潮岬	8.0	**	**	5.9	5.6	6.5
隠岐	6.7	6.1	8.4	10.9	6.0	7.6
蟠竜湖	3.6	5.4	12.6	8.7	9.8	8.0
倉橋島	2.8	3.5	3.1	4.6	5.7	3.9
禰原	4.4	4.4	4.8	6.5	4.8	5.0
筑後小郡	3.4	10.2	**	17.3	17.9	12.2
対馬	5.8	**	**	**	**	5.8
五島	3.7	3.9	**	6.8	4.1	4.6
大分久住	3.2	2.0	4.0	4.6	6.3	4.0
えびの	**	3.9	4.7	7.6	**	5.4
屋久島	7.9	8.1	**	**	**	8.0
辺戸岬	5.0	**	5.2	11.0	4.3	6.4
最大値	8.4	10.2	14.5	17.3	17.9	12.2
最小値	1.8	2.0	1.7	3.1	2.3	2.8
平均値	4.7	4.7	6.2	7.5	5.9	5.9

- 未測定。

\*\* 年判定基準で年間値が棄却されたもの。

最大値 年判定基準で有効とされた年間値を対象とした。

最小値 年判定基準で有効とされた年間値を対象とした。

平均値 全地点について、年判定基準で棄却された年間値を除いた平均値とした。

参考表 12 H<sup>+</sup>年間湿性沈着量の経年変化

(単位: mmol m<sup>-2</sup> y<sup>-1</sup>)

調査地点	平成15年度 (2003年度)	平成16年度 (2004年度)	平成17年度 (2005年度)	平成18年度 (2006年度)	平成19年度 (2007年度)	5年平均
利尻	12.0	12.0	17.3	28.4	22.9	18.5
札幌	17.4	**	21.8	29.5	25.0	23.4
落石岬	10.8	12.6	12.9	13.2	14.5	12.8
竜飛岬	**	**	**	25.2	24.9	25.1
八幡平	36.4	49.3	41.4	**	31.8	39.7
篔岳	20.6	23.1	26.6	18.2	20.2	21.7
尾花沢	27.2	36.0	32.4	25.0	31.2	30.4
筑波	33.6	37.6	32.8	20.1	24.5	29.7
赤城	40.5	**	**	**	26.9	33.7
小笠原	13.4	11.6	29.0	**	18.5	18.1
東京	-	-	-	-	21.4	21.4
佐渡関岬	**	**	28.0	29.2	33.6	30.3
新潟巻	41.4	39.6	53.0	46.4	56.4	47.4
八方尾根	33.2	**	47.8	30.0	36.2	36.8
越前岬	56.5	**	71.1	56.2	65.5	62.3
伊自良湖	114.5	81.4	**	92.1	62.7	87.7
犬山	41.6	**	45.3	41.4	31.8	40.0
京都八幡	35.1	23.5	**	**	32.8	30.4
尼崎	27.2	20.1	23.2	36.7	22.8	26.0
潮岬	48.6	**	**	55.5	63.9	56.0
隠岐	24.3	24.4	36.1	27.7	24.5	27.4
蟠竜湖	35.9	38.3	38.0	43.4	41.7	39.5
倉橋島	56.2	46.3	36.4	40.4	35.7	43.0
禰原	48.2	50.1	46.5	46.2	41.9	46.6
筑後小郡	25.9	29.2	**	82.4	24.6	40.5
対馬	43.3	**	**	**	**	43.3
五島	30.6	23.3	**	45.4	28.6	32.0
大分久住	53.8	32.2	45.9	45.4	31.4	41.7
えびの	**	47.2	63.7	87.5	**	66.1
屋久島	77.8	85.3	**	**	**	81.5
辺戸岬	21.9	**	23.3	21.1	27.0	23.3
最大値	114.5	85.3	71.1	92.1	65.5	87.7
最小値	10.8	11.6	12.9	13.2	14.5	12.8
平均値	38.1	36.2	36.8	41.1	33.0	38.0

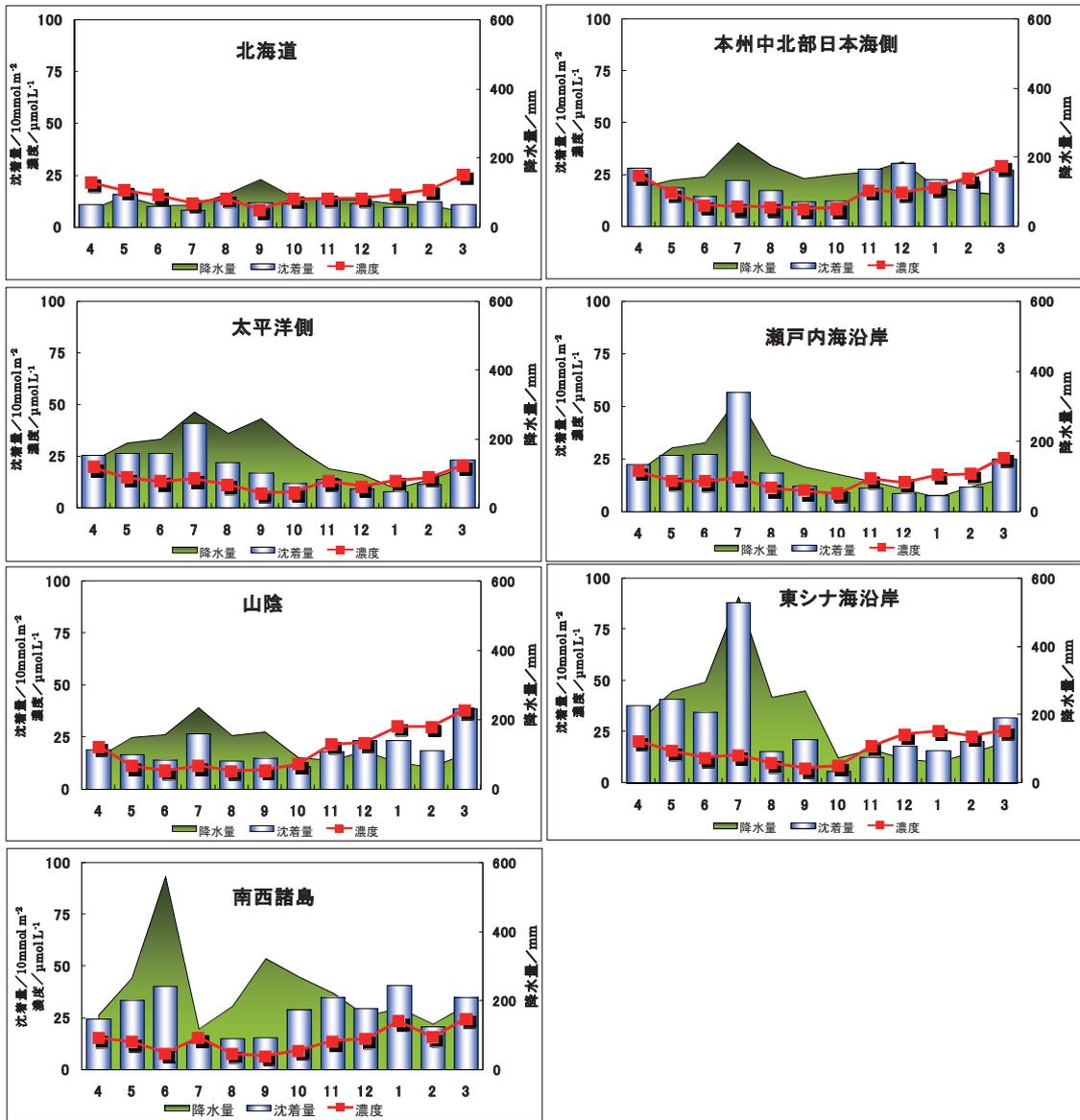
- 未測定。

\*\* 年判定基準で年間値が棄却されたもの。

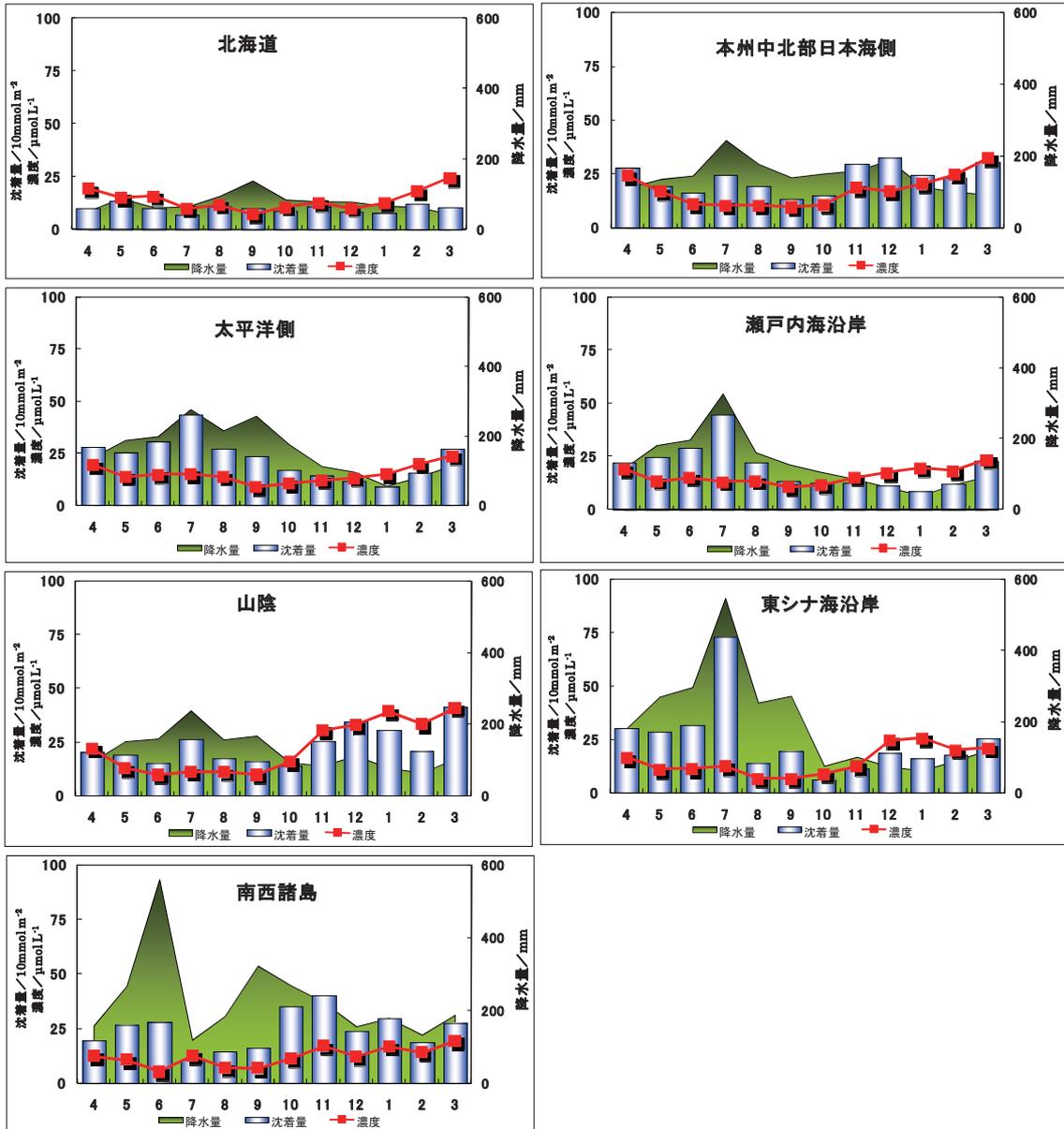
最大値 年判定基準で有効とされた年間値を対象とした。

最小値 年判定基準で有効とされた年間値を対象とした。

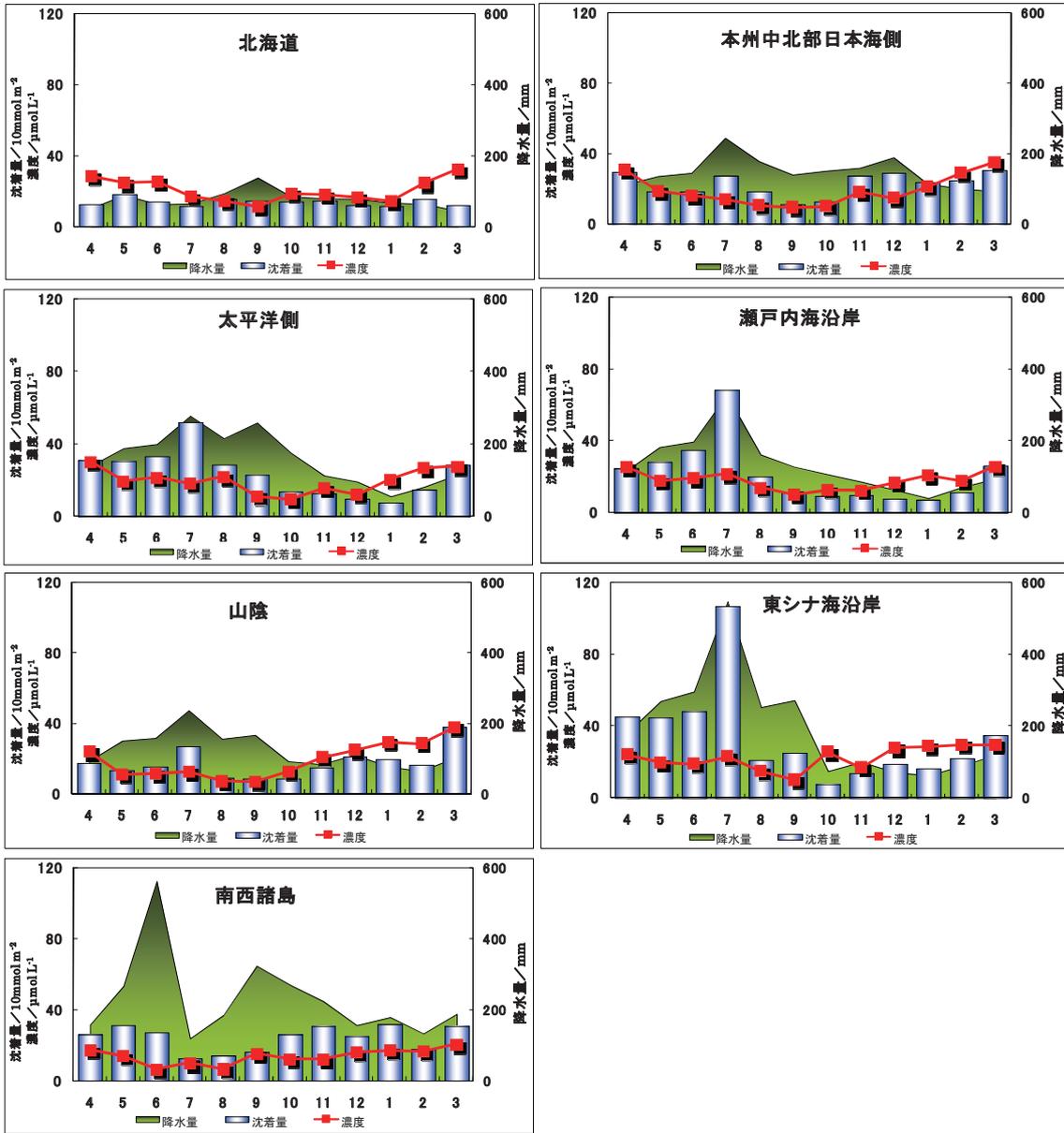
平均値 全地点について、年判定基準で棄却された年間値を除いた平均値とした。



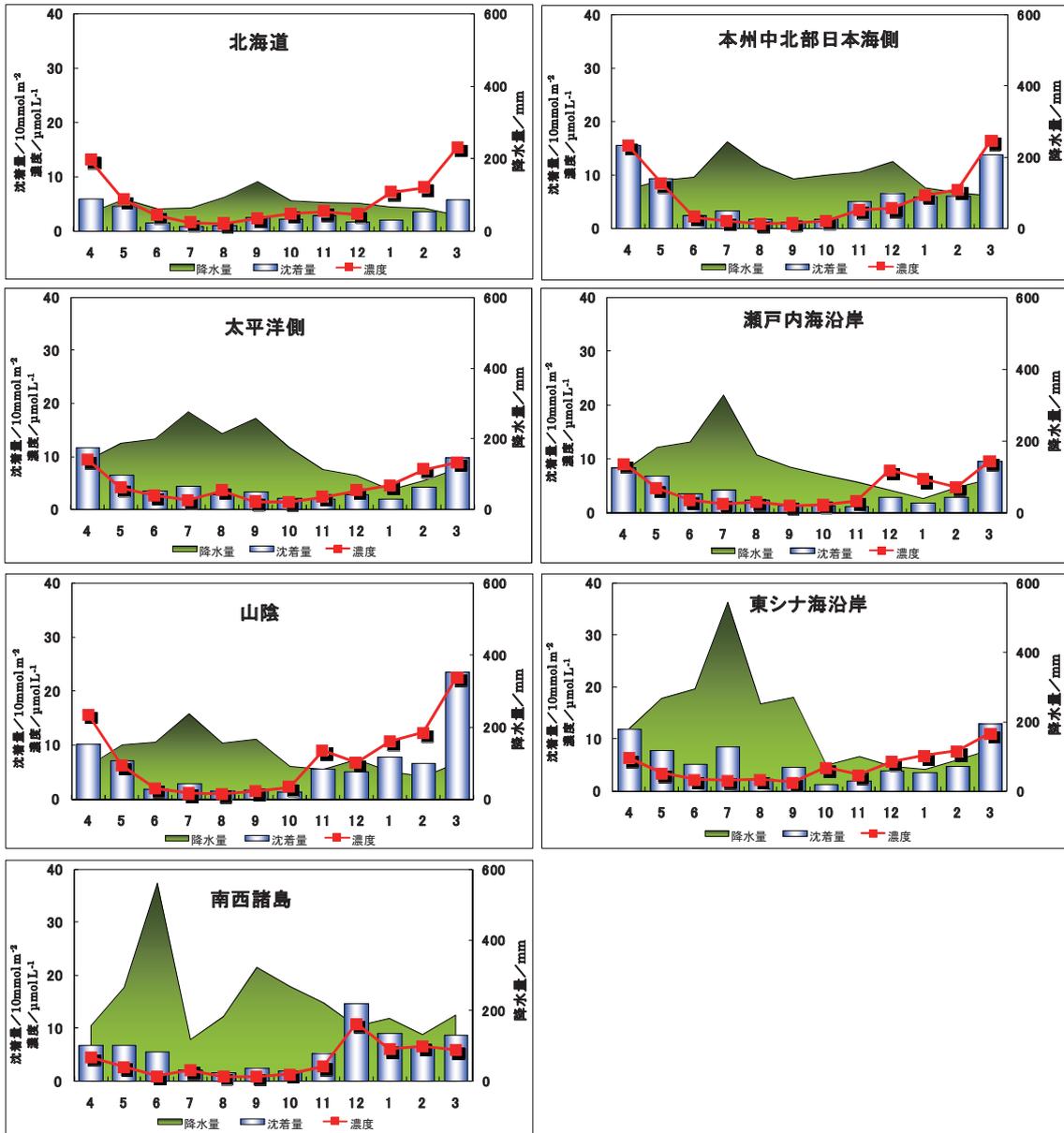
参考図1 nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度及び沈着量、並びに降水量の地域別季節変動  
(平成15~19年度平均値)



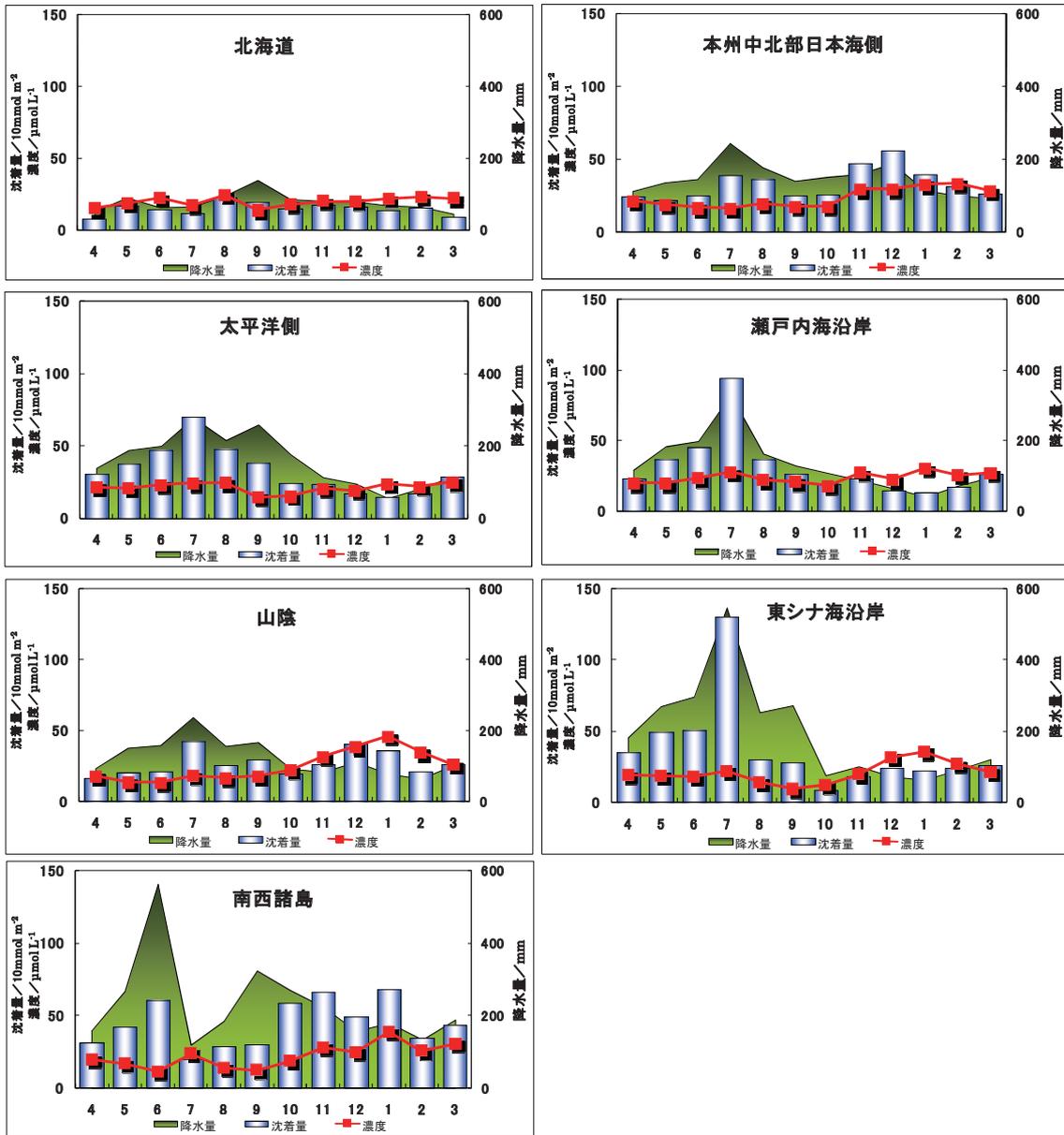
参考図 2 NO<sub>3</sub>濃度及び沈着量、並びに降水量の地域別季節変動  
(平成 15~19 年度平均値)



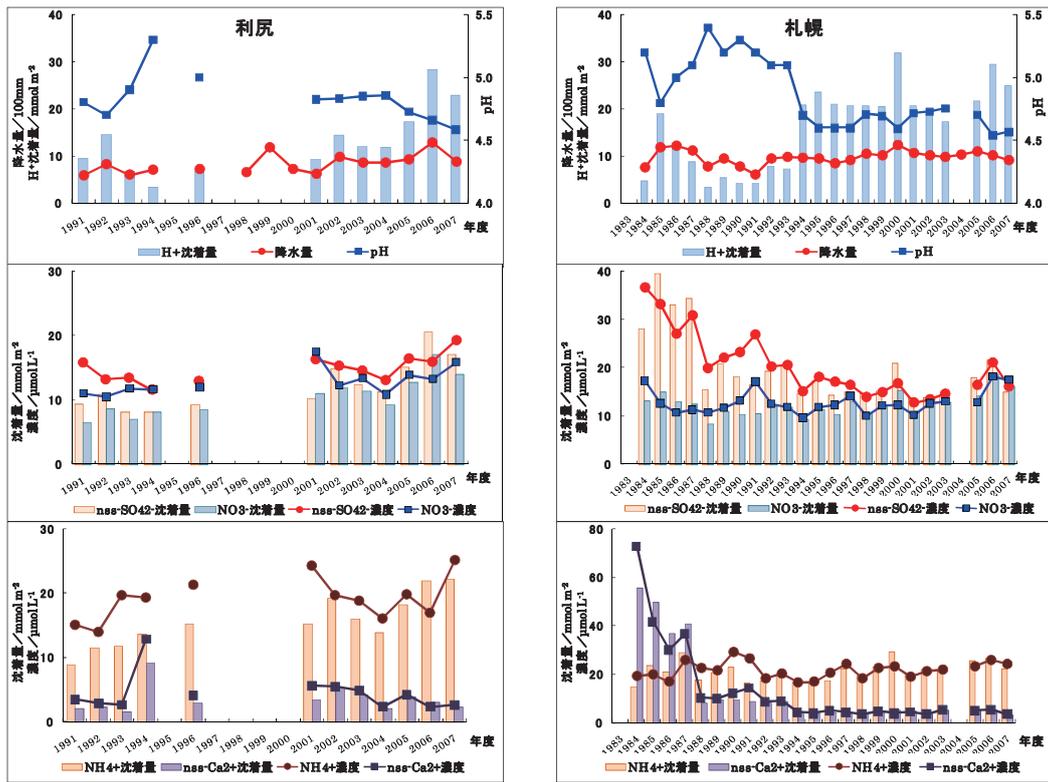
参考図3 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>濃度及び沈着量、並びに降水量の地域別季節変動  
(平成15~19年度平均値)



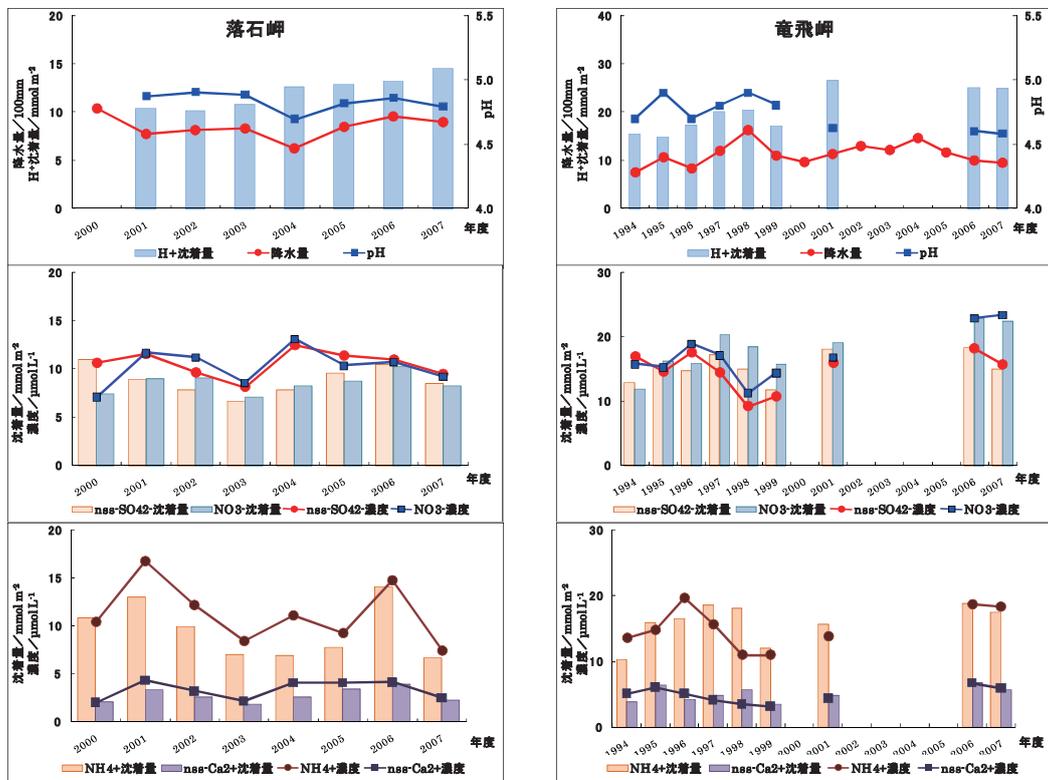
参考図 4 nss-Ca<sup>2+</sup>濃度及び沈着量並びに降水量の地域別季節変動  
(平成 15～19 年度平均値)



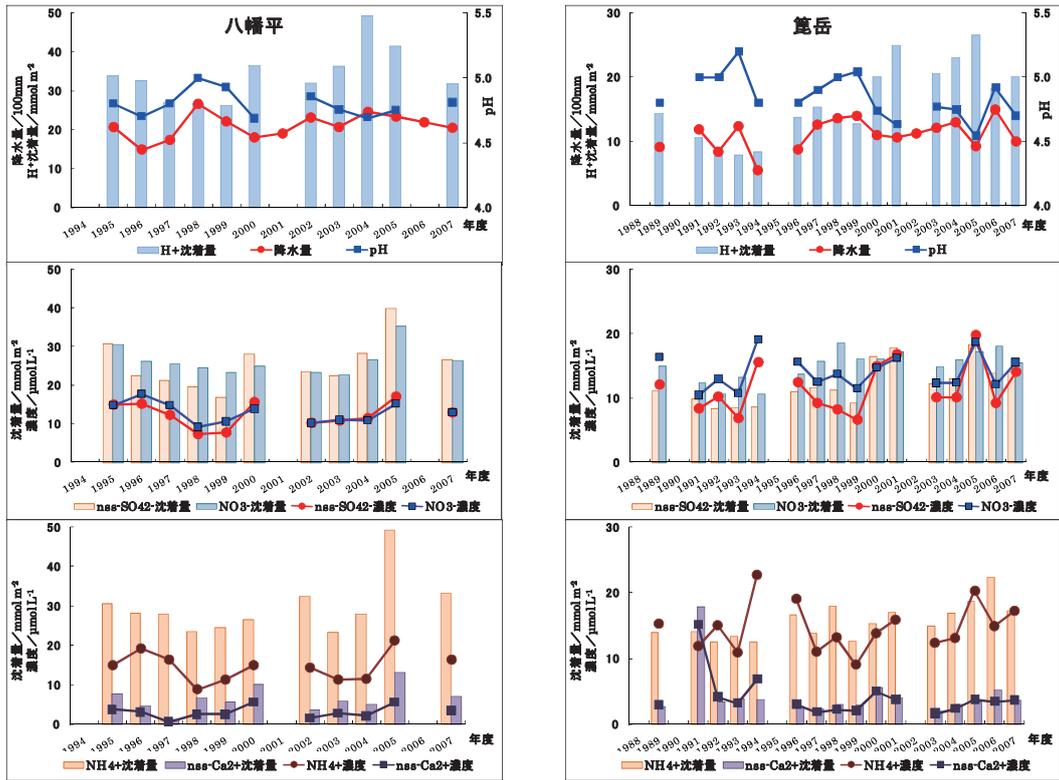
参考図 5 H<sup>+</sup>濃度及び沈着量、並びに降水量の地域別季節変動  
(平成 15~19 年度平均値)



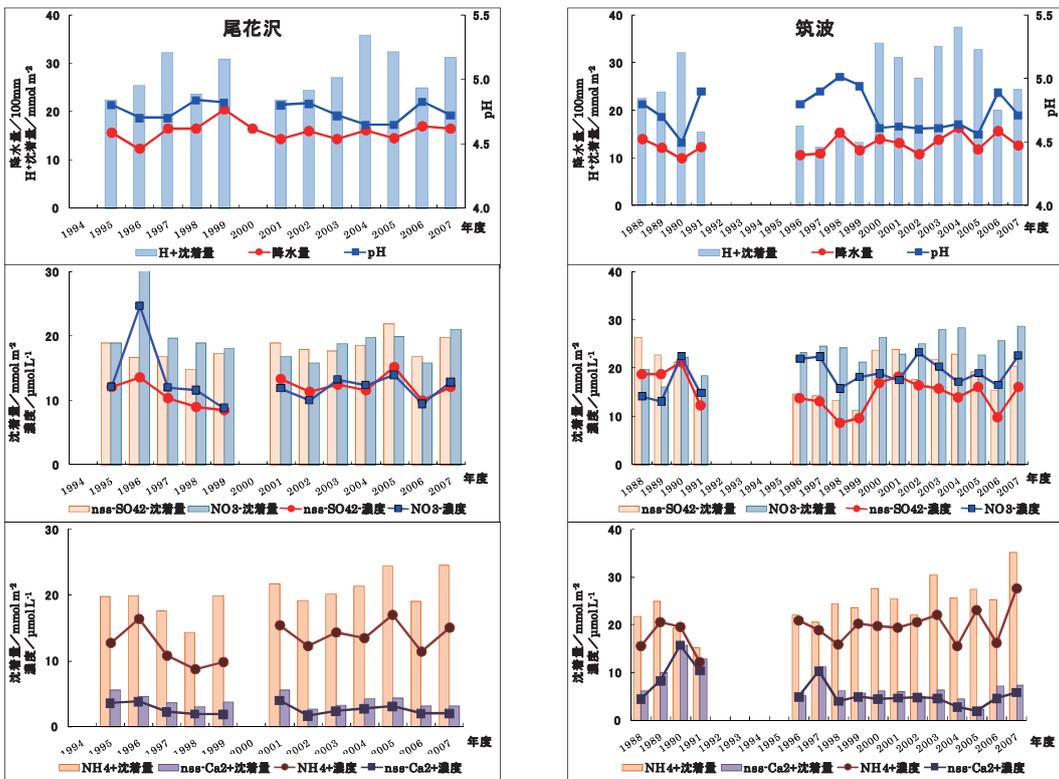
参考図 6 利尻及び札幌における降水量、pH、イオン成分濃度及び沈着量の経年変化  
 年判定基準で棄却された年間値は除いて示した。



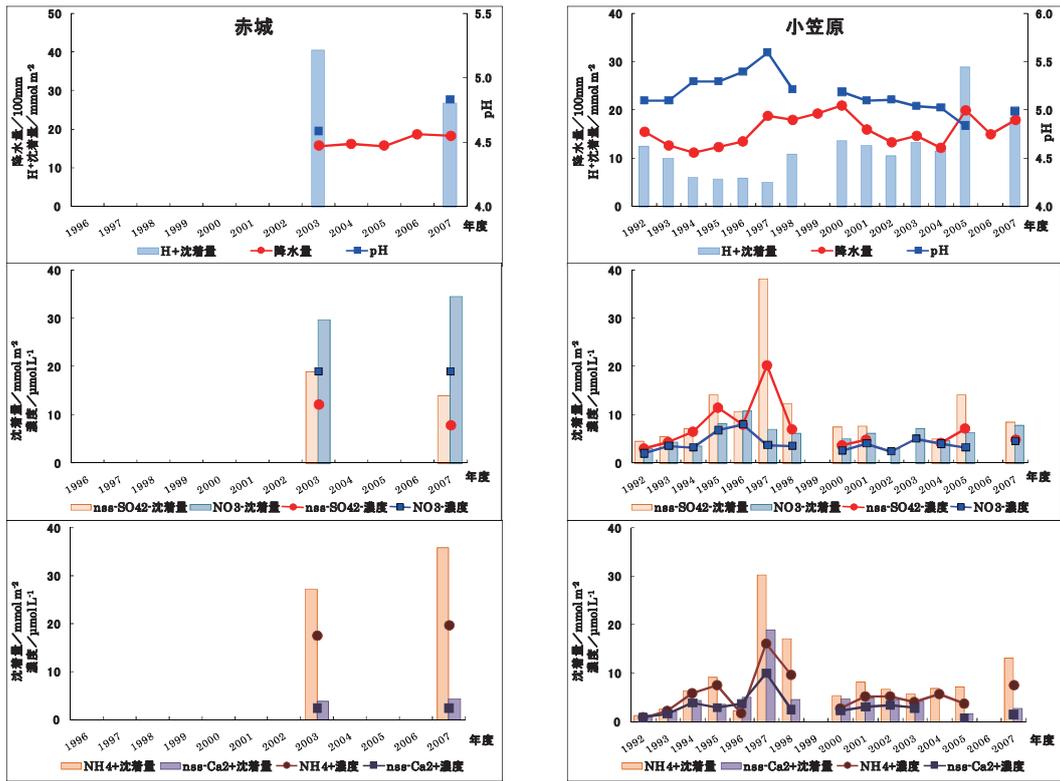
参考図 7 落石岬及び竜飛岬における降水量、pH、イオン成分濃度及び沈着量の経年変化  
 年判定基準で棄却された年間値は除いて示した。



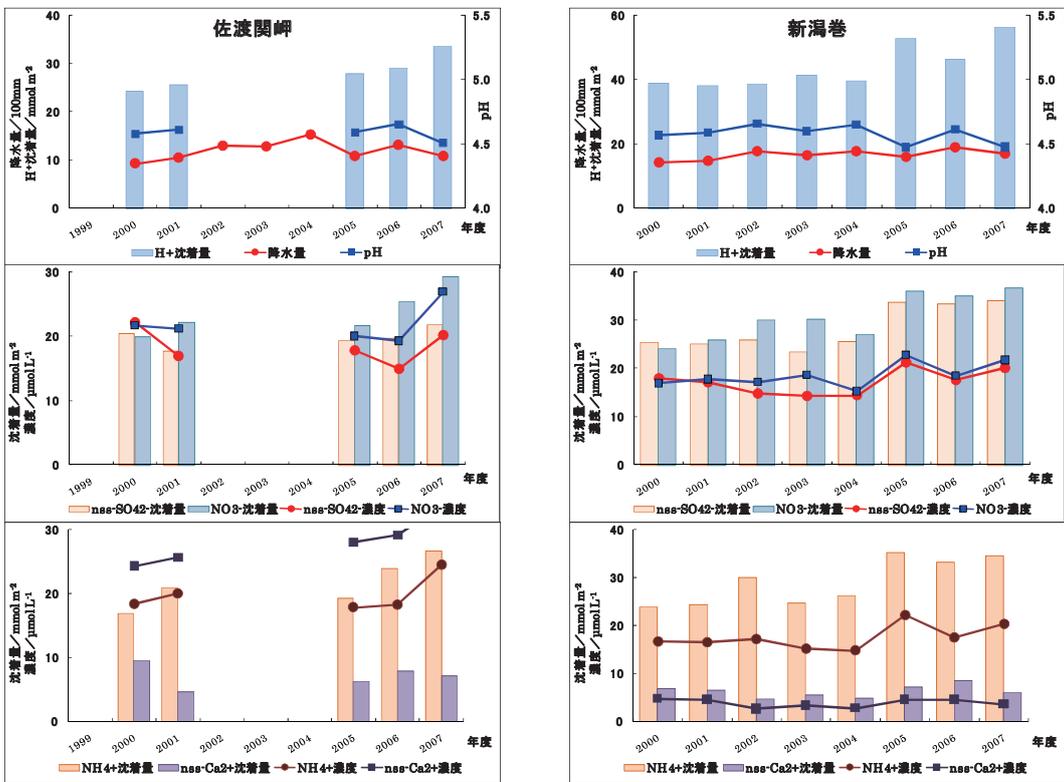
参考図 8 八幡平及び箕岳における降水量、pH、イオン成分濃度及び沈着量の経年変化  
年判定基準で棄却された年間値は除いて示した。



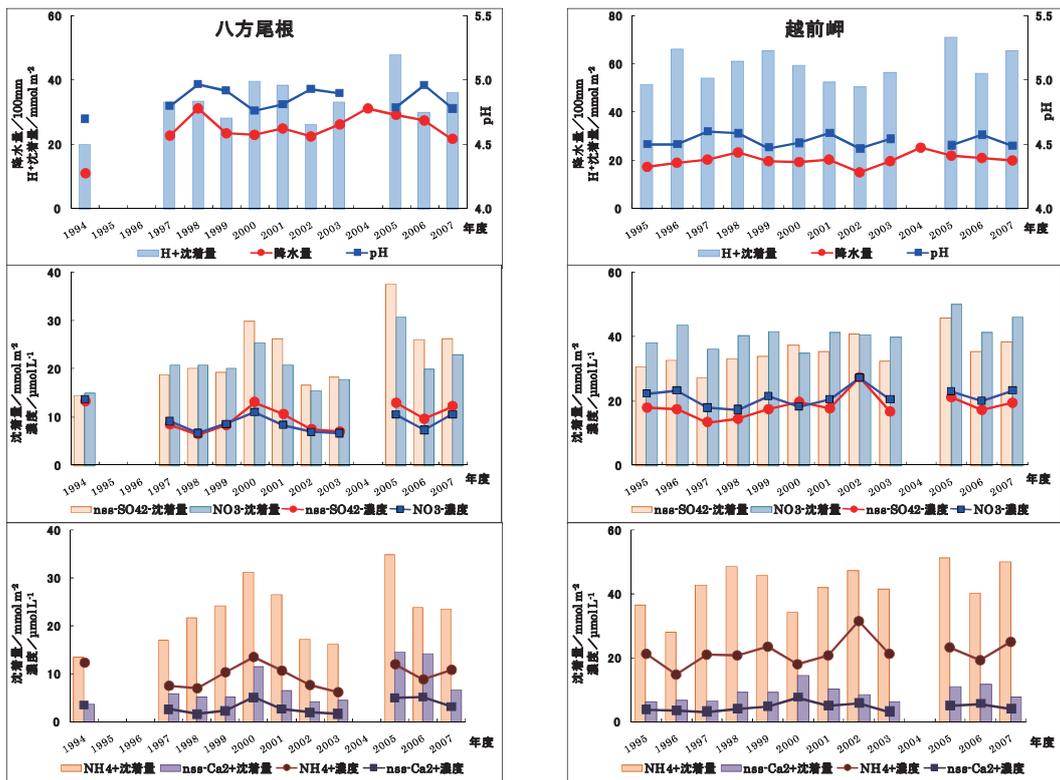
参考図 9 尾花沢及び筑波における降水量、pH、イオン成分濃度及び沈着量の経年変化  
年判定基準で棄却された年間値は除いて示した。



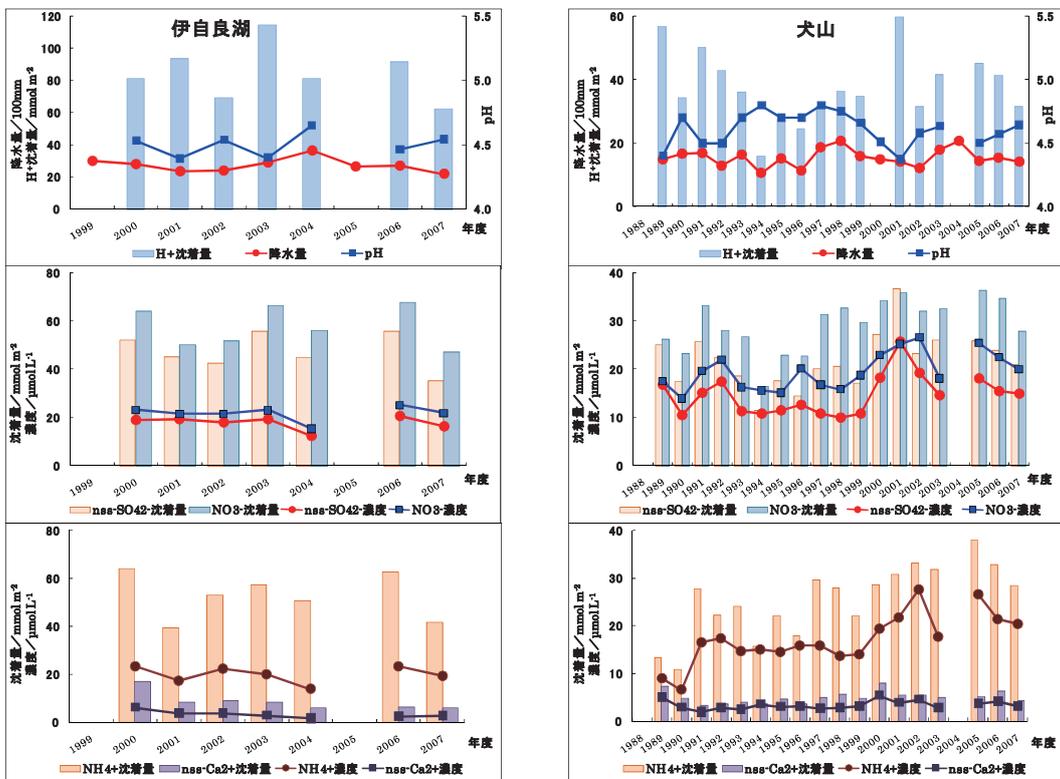
参考図 10 赤城及び小笠原における降水量、pH、イオン成分濃度及び沈着量の経年変化  
年判定基準で棄却された年間値は除いて示した



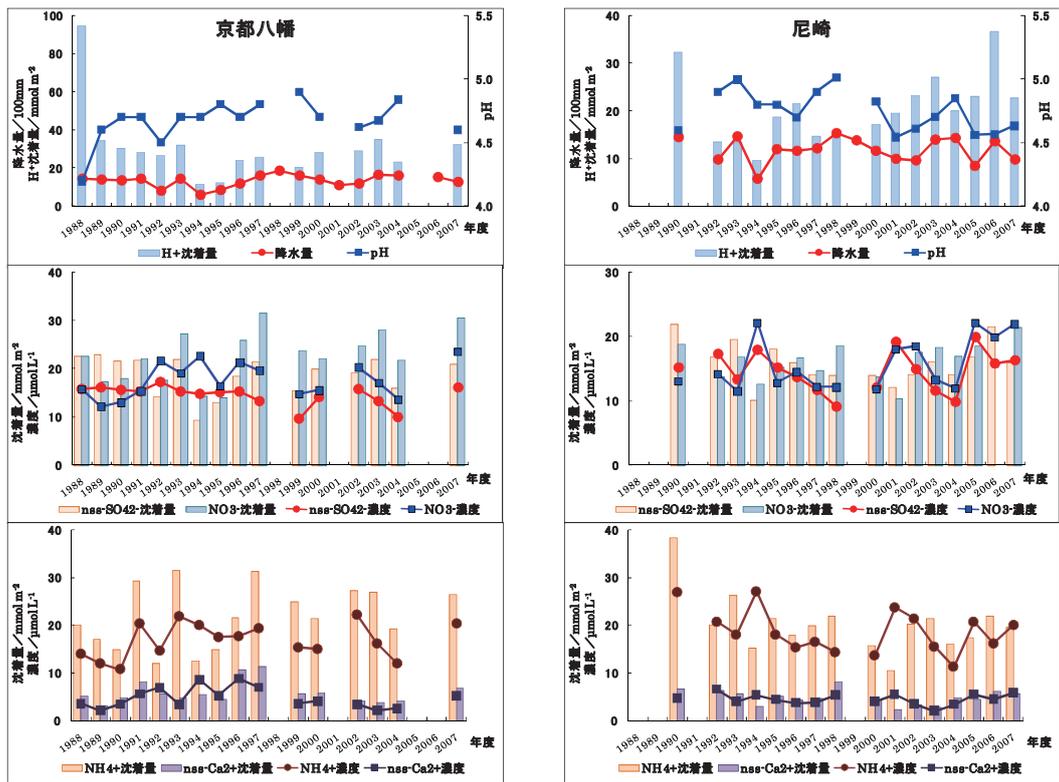
参考図 11 佐渡関岬及び新潟巻における降水量、pH、イオン成分濃度及び沈着量の経年変化  
年判定基準で棄却された年間値は除いて示した。



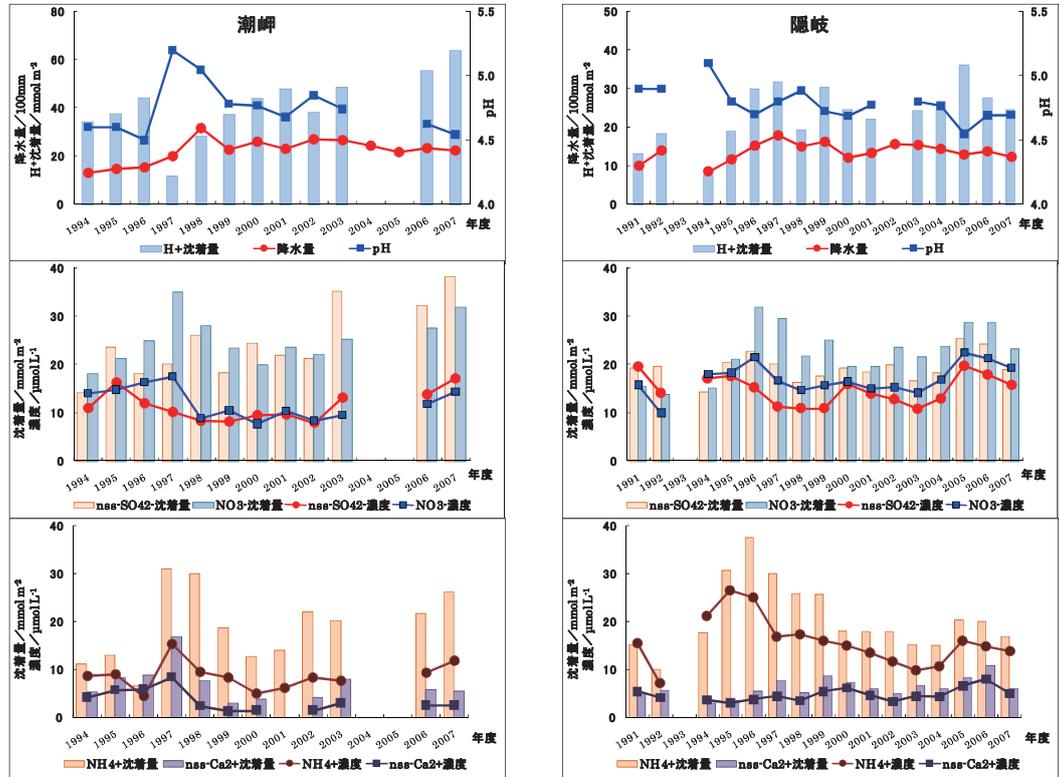
参考図 12 八方尾根及び越前岬における降水量、pH、イオン成分濃度及び沈着量の経年変化  
 年判定基準で棄却された年間値は除いて示した。



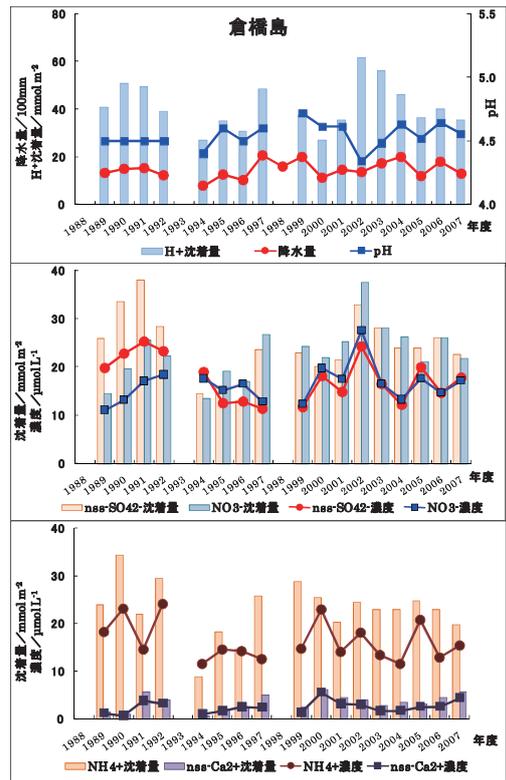
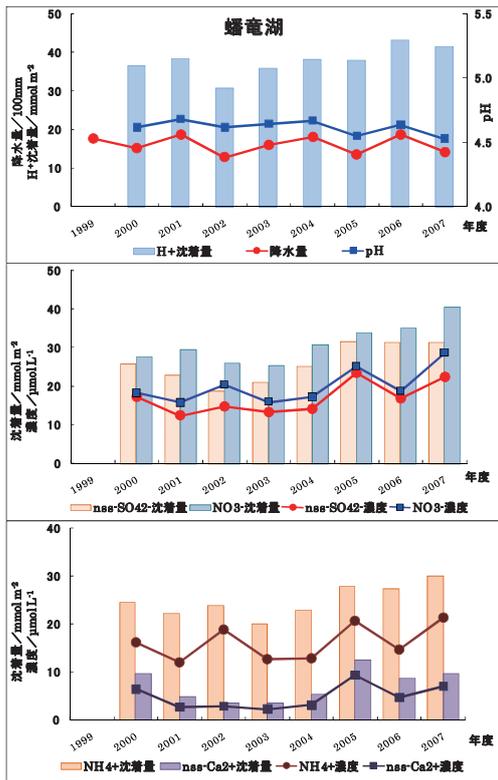
参考図 13 伊自良湖及び犬山における降水量、pH、イオン成分濃度及び沈着量の経年変化  
 年判定基準で棄却された年間値は除いて示した。



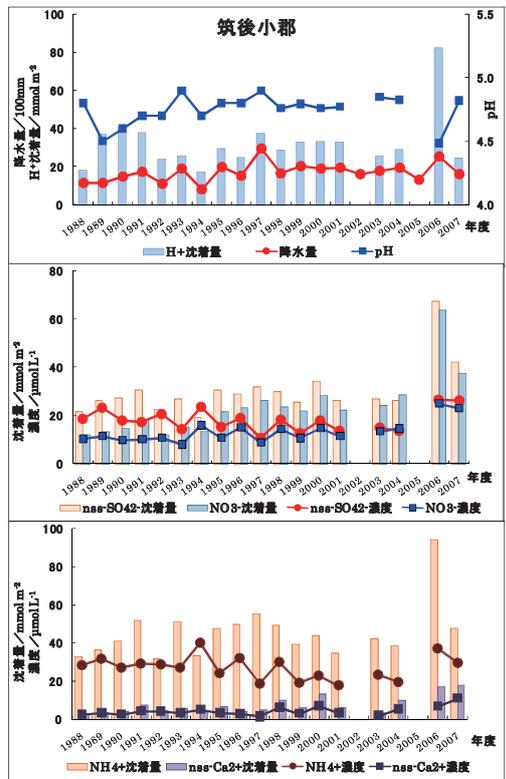
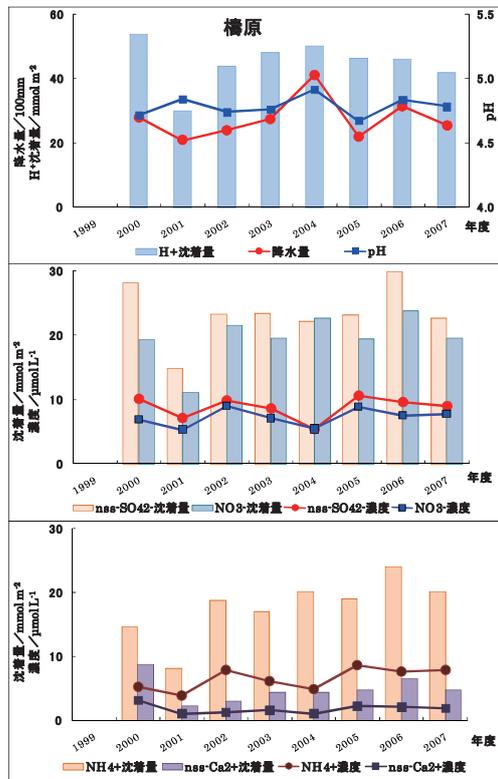
参考図 14 京都八幡及び尼崎における降水量、pH、イオン成分濃度及び沈着量の経年変化  
 年判定基準で棄却された年間値は除いて示した。



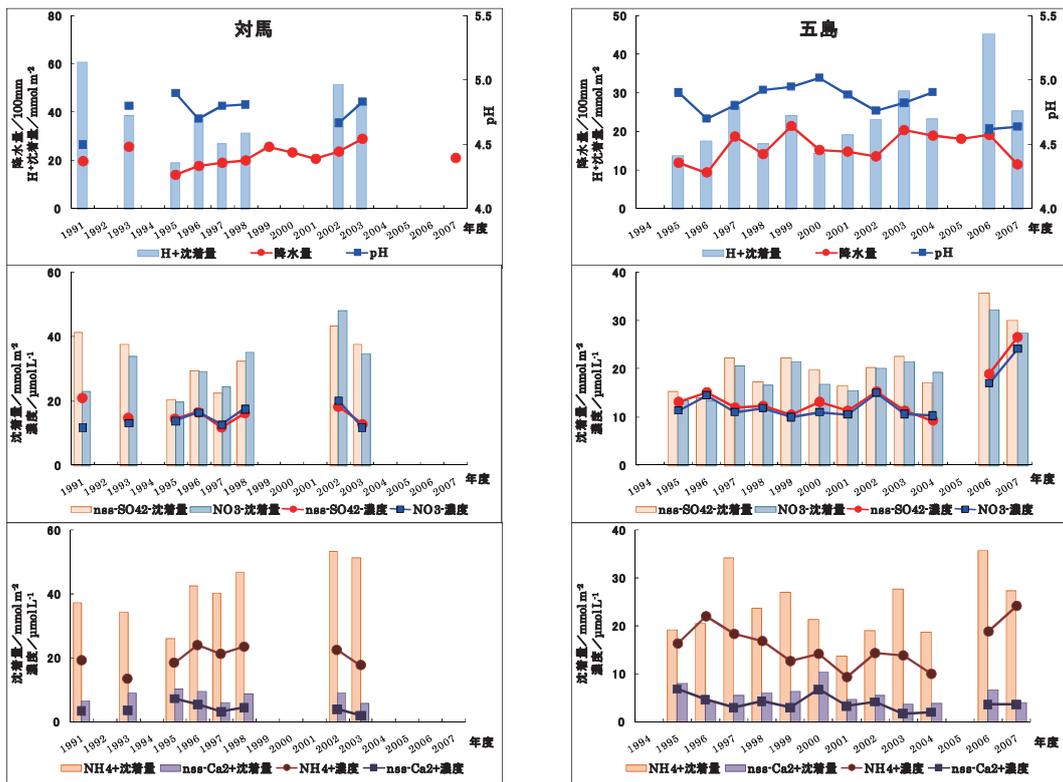
参考図 15 潮岬及び隠岐における降水量、pH、イオン成分濃度及び沈着量の経年変化  
 年判定基準で棄却された年間値は除いて示した。



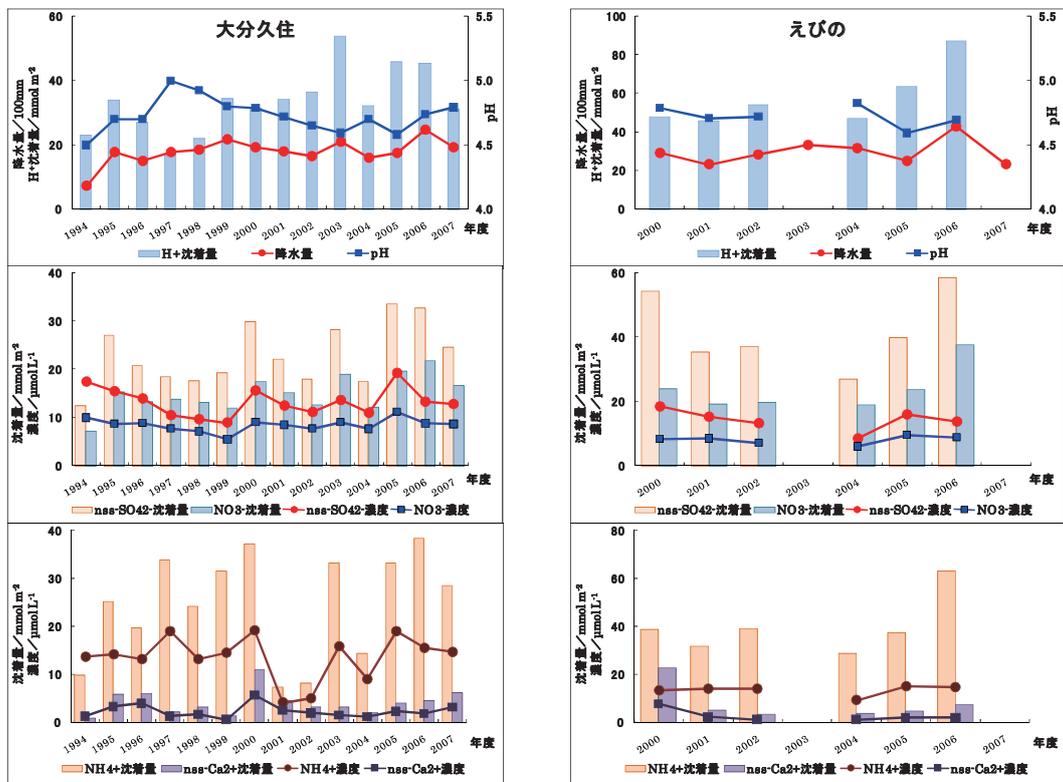
参考図 16 蟠竜湖及び倉橋島における降水量、pH、イオン成分濃度及び沈着量の経年変化  
 年判定基準で棄却された年間値は除いて示した。



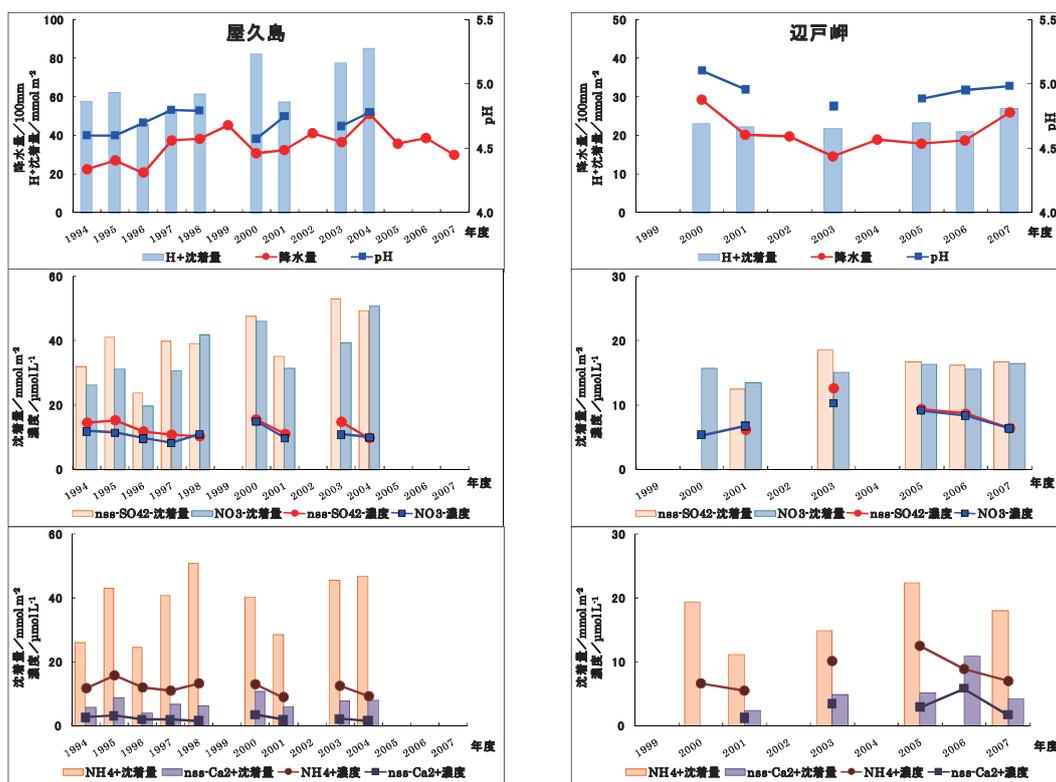
参考図 17 構原及び筑後小郡における降水量、pH、イオン成分濃度及び沈着量の経年変化  
 年判定基準で棄却された年間値は除いて示した。



参考図 18 対馬及び五島における降水量、pH、イオン成分濃度及び沈着量の経年変化  
 年判定基準で棄却された年間値は除いて示した。



参考図 19 大分久住及びえびのにおける降水量、pH、イオン成分濃度及び沈着量の経年変化  
 年判定基準で棄却された年間値は除いて示した。



参考図 20 屋久島及び辺戸岬における降水量、pH、イオン成分濃度及び沈着量の経年変化  
 年判定基準で棄却された年間値は除いて示した。

参考表 13 SO<sub>2</sub>年平均濃度

(単位: ppb)

調査地点	平成15年度 (2003年度)	平成16年度 (2004年度)	平成17年度 (2005年度)	平成18年度 (2006年度)	平成19年度 (2007年度)	5年平均
利尻	0.2	0.2	0.2	0.2	**	0.2
落石岬	**	0.2	0.2	0.2	**	0.2
竜飛岬	0.5	0.5	0.5	0.6	0.5	0.5
小笠原	< 0.1	< 0.1	0.1	0.1	< 0.1	0.1
佐渡関岬	0.6	0.6	0.5	0.5	0.5	0.6
八方尾根	0.6	0.7	0.8	0.5	0.8	0.7
伊自良湖	0.5	0.5	0.4	0.2	0.3	0.4
隠岐	**	0.9	0.8	0.9	0.9	0.9
蟠竜湖	1.0	0.9	0.9	**	1.2	1.0
禰原	1.0	1.0	1.2	1.1	1.1	1.1
えびの	1.0	0.9	1.1	0.9	1.2	1.0
辺戸岬	0.2	0.2	0.4	0.3	0.4	0.3

\*\* 有効データの得られた時間が調査対象時間の70%未満のため解析に用いなかった。

参考表 14 NOx\*年平均濃度

(単位: ppb)

調査地点	平成15年度 (2003年度)	平成16年度 (2004年度)	平成17年度 (2005年度)	平成18年度 (2006年度)	平成19年度 (2007年度)	5年平均
利尻	1.0	0.9	0.9	1.0	**	0.9
落石岬	**	1.1	1.1	1.0	1.1	1.1
竜飛岬	1.4	1.5	1.4	**	1.3	1.4
小笠原	0.4	0.4	0.6	0.6	0.4	0.5
佐渡関岬	1.9	1.6	1.4	1.2	1.3	1.5
八方尾根	2.1	2.0	2.3	1.5	2.2	2.0
伊自良湖	3.1	3.2	3.5	3.2	3.0	3.2
隠岐	**	1.5	1.6	1.6	1.5	1.6
蟠竜湖	4.2	3.7	**	**	3.6	3.8
禰原	1.6	1.5	1.9	1.4	1.4	1.6
辺戸岬	0.9	**	0.7	0.7	0.6	0.7

\*\* 有効データの得られた時間が調査対象時間の70%未満のため解析に用いなかった。

参考表 15 O<sub>3</sub>年平均濃度

(単位: ppb)

調査地点	平成15年度 (2003年度)	平成16年度 (2004年度)	平成17年度 (2005年度)	平成18年度 (2006年度)	平成19年度 (2007年度)	5年平均
利尻	43	43	43	42	**	43
落石岬	**	36	40	39	38	38
竜飛岬	47	49	51	51	54	51
籠岳	38	40	38	37	42	39
筑波	28	28	28	35	33	30
赤城	58	60	52	54	59	56
小笠原	29	31	35	31	32	32
佐渡関岬	49	48	49	48	49	49
新潟巻	33	37	43	41	37	38
八方尾根	56	56	59	60	58	58
伊自良湖	29	26	19	20	33	25
犬山	27	29	28	30	32	29
京都八幡	23	26	28	25	30	26
隠岐	**	45	45	45	45	45
蟠竜湖	36	36	36	34	35	36
倉橋島	37	38	35	39	40	38
禰原	35	39	47	39	40	40
筑後小郡	28	28	30	30	29	29
対馬	39	47	48	46	43	45
えびの	32	29	28	38	42	34
辺戸岬	32	33	35	39	39	36

\*\* 有効データの得られた時間が調査対象時間の70%未満のため解析に用いなかった。

参考表 16 PM<sub>10</sub> 及び PM<sub>2.5</sub> 年平均濃度

・ PM<sub>10</sub>

(単位:  $\mu\text{g m}^{-3}$ )

調査地点	平成15年度 (2003年度)	平成16年度 (2004年度)	平成17年度 (2005年度)	平成18年度 (2006年度)	平成19年度 (2007年度)	5年平均
利尻	17	16	15	14	**	16
落石岬	**	18	22	22	25	22
竜飛岬	17	19	20	17	18	18
小笠原	11	13	12	13	13	12
佐渡関岬	25	25	25	24	23	24
八方尾根	12	14	**	13	12	13
伊自良湖	21	20	22	22	22	21
隠岐	**	26	30	29	28	28
蟠竜湖	28	27	31	30	31	29
禰原	19	**	21	20	20	20
辺戸岬	34	32	37	36	31	34

\*\* 有効データの得られた時間が調査対象時間の70%未満のため解析に用いなかった。

・ PM<sub>2.5</sub>

(単位:  $\mu\text{g m}^{-3}$ )

調査地点	平成15年度 (2003年度)	平成16年度 (2004年度)	平成17年度 (2005年度)	平成18年度 (2006年度)	平成19年度 (2007年度)	5年平均
利尻	10	8	9	8	**	9
落石岬	**	7	9	11	14	10
隠岐	13	13	16	15	14	14

\*\* 有効データの得られた時間が調査対象時間の70%未満のため解析に用いなかった。

参考表 17 nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>年平均濃度

(単位  $\mu\text{g m}^{-3}$ )

調査地点	平成15年度 (2003年度)	平成16年度 (2004年度)	平成17年度 (2005年度)	平成18年度 (2006年度)	平成19年度 (2007年度)	5年平均
利尻	2.16	1.76	2.35	1.97	1.94	2.04
竜飛岬	2.20	2.91	3.32	2.75	3.03	2.84
小笠原	1.08	0.52	1.09	1.88	2.82	1.48
東京	-	-	-	-	4.72	4.72
佐渡関岬	2.32	2.98	3.22	2.22	3.10	2.77
八方尾根	2.13	2.15	2.74	2.77	2.62	2.48
伊自良湖	3.25	4.34	5.32	4.96	4.67	4.51
隠岐	3.80	3.52	5.96	4.92	3.99	4.44
蟠竜湖	3.17	4.30	6.60	6.18	5.73	5.20
禰原	4.02	5.06	6.39	5.78	5.91	5.43
辺戸岬	3.30	2.13	5.04	5.28	5.10	4.17

- 未測定

参考表 18 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>年平均濃度

(単位 μg m<sup>-3</sup>)

調査地点	平成15年度 (2003年度)	平成16年度 (2004年度)	平成17年度 (2005年度)	平成18年度 (2006年度)	平成19年度 (2007年度)	5年平均
利尻	0.64	0.64	0.54	0.57	0.66	0.61
竜飛岬	0.96	1.17	0.93	1.11	1.29	1.09
小笠原	0.40	0.11	0.20	0.50	0.64	0.37
東京	—	—	—	—	4.08	4.08
佐渡関岬	0.75	0.86	0.65	0.77	1.13	0.83
八方尾根	0.35	0.33	0.25	0.22	0.24	0.28
伊自良湖	0.43	0.49	0.48	0.49	0.52	0.48
隠岐	0.84	1.06	1.22	1.29	1.23	1.13
蟠竜湖	0.89	1.27	1.45	1.51	1.56	1.34
禰原	0.58	0.49	0.60	0.52	0.54	0.55
辺戸岬	1.84	0.75	1.14	1.63	1.54	1.38

— 未測定

参考表 19 HNO<sub>3</sub>年平均濃度

(単位 ppb)

調査地点	平成15年度 (2003年度)	平成16年度 (2004年度)	平成17年度 (2005年度)	平成18年度 (2006年度)	平成19年度 (2007年度)	5年平均
利尻	0.09	0.05	0.09	0.07	0.07	0.07
竜飛岬	0.16	0.20	0.20	0.15	0.18	0.18
小笠原	0.03	0.03	0.04	0.04	0.06	0.04
東京	—	—	—	—	0.93	0.93
佐渡関岬	0.27	0.24	0.29	0.28	0.22	0.26
八方尾根	0.36	0.30	0.21	0.36	0.37	0.32
伊自良湖	0.28	0.38	0.44	0.42	0.34	0.37
隠岐	0.13	0.13	0.24	0.24	0.19	0.19
蟠竜湖	0.20	0.33	0.42	0.35	0.35	0.33
禰原	0.31	0.36	0.45	0.47	0.47	0.41
辺戸岬	0.09	0.13	0.11	0.09	0.13	0.11

— 未測定

参考表 20 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>年平均濃度

(単位  $\mu\text{g m}^{-3}$ )

調査地点	平成15年度 (2003年度)	平成16年度 (2004年度)	平成17年度 (2005年度)	平成18年度 (2006年度)	平成19年度 (2007年度)	5年平均
利尻	0.47	0.32	0.46	0.41	0.40	0.41
竜飛岬	0.59	0.65	0.65	0.61	0.65	0.63
小笠原	0.16	0.08	0.11	0.28	0.39	0.20
東京	—	—	—	—	1.90	1.90
佐渡関岬	0.44	0.79	0.79	0.49	0.60	0.62
八方尾根	0.61	0.55	0.71	0.66	0.70	0.65
伊自良湖	1.14	1.20	1.52	1.43	1.32	1.32
隠岐	0.60	0.82	1.22	1.25	0.93	0.96
蟠竜湖	0.66	1.13	1.57	1.57	1.55	1.30
禰原	0.97	1.18	1.44	1.40	1.45	1.29
辺戸岬	0.70	0.36	0.68	0.82	1.01	0.71

— 未測定

参考表 21 NH<sub>3</sub>年平均濃度

(単位 ppb)

調査地点	平成15年度 (2003年度)	平成16年度 (2004年度)	平成17年度 (2005年度)	平成18年度 (2006年度)	平成19年度 (2007年度)	5年平均
利尻	0.41	0.45	0.39	0.35	0.37	0.39
竜飛岬	0.56	0.44	0.33	0.26	0.44	0.41
小笠原	0.18	0.60	0.85	0.42	0.53	0.52
東京	—	—	—	—	5.64	5.64
佐渡関岬	0.54	0.65	0.63	0.57	0.61	0.60
八方尾根	0.41	0.38	0.53	0.42	0.35	0.42
伊自良湖	1.08	1.16	1.17	1.28	1.23	1.18
隠岐	0.64	0.81	0.78	0.73	0.88	0.77
蟠竜湖	1.00	1.34	1.13	1.07	1.03	1.11
禰原	0.59	0.44	0.44	0.38	0.59	0.49
辺戸岬	0.83	0.95	0.83	0.88	1.11	0.92

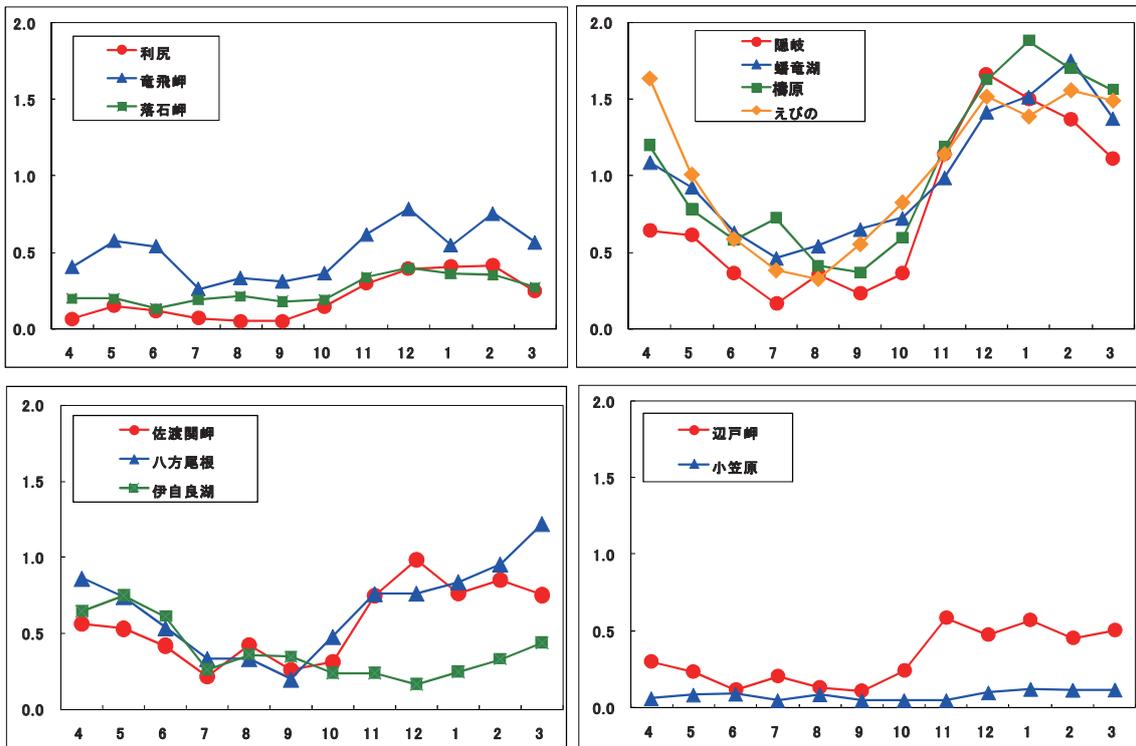
— 未測定

参考表 22 Ca<sup>2+</sup>年平均濃度

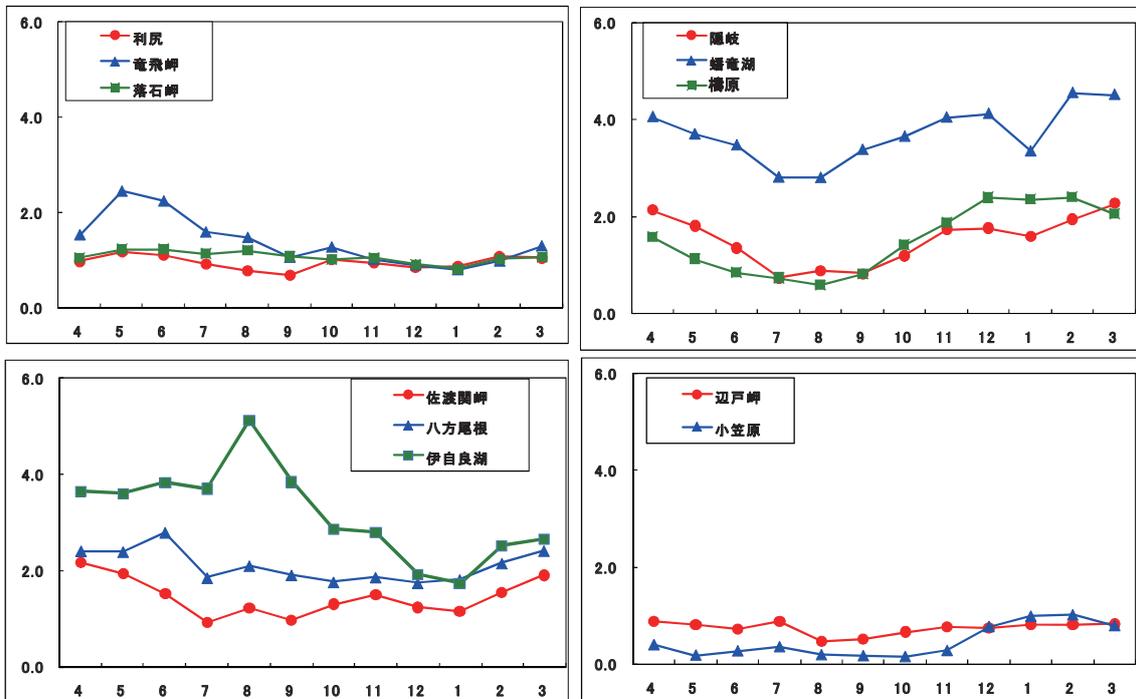
(単位  $\mu\text{g m}^{-3}$ )

調査地点	平成15年度 (2003年度)	平成16年度 (2004年度)	平成17年度 (2005年度)	平成18年度 (2006年度)	平成19年度 (2007年度)	5年平均
利尻	0.14	0.15	0.14	0.13	0.14	0.14
竜飛岬	0.29	0.33	0.28	0.32	0.25	0.29
小笠原	0.15	0.02	0.06	0.16	0.21	0.12
東京	—	—	—	—	0.57	0.57
佐渡関岬	0.22	0.26	0.22	0.22	0.29	0.24
八方尾根	0.12	0.15	0.15	0.16	0.17	0.15
伊自良湖	0.11	0.18	0.17	0.17	0.18	0.16
隠岐	0.27	0.22	0.32	0.28	0.25	0.27
蟠竜湖	0.20	0.21	0.28	0.27	0.33	0.26
禰原	0.24	0.25	0.27	0.26	0.28	0.26
辺戸岬	0.52	0.22	0.37	0.48	0.45	0.41

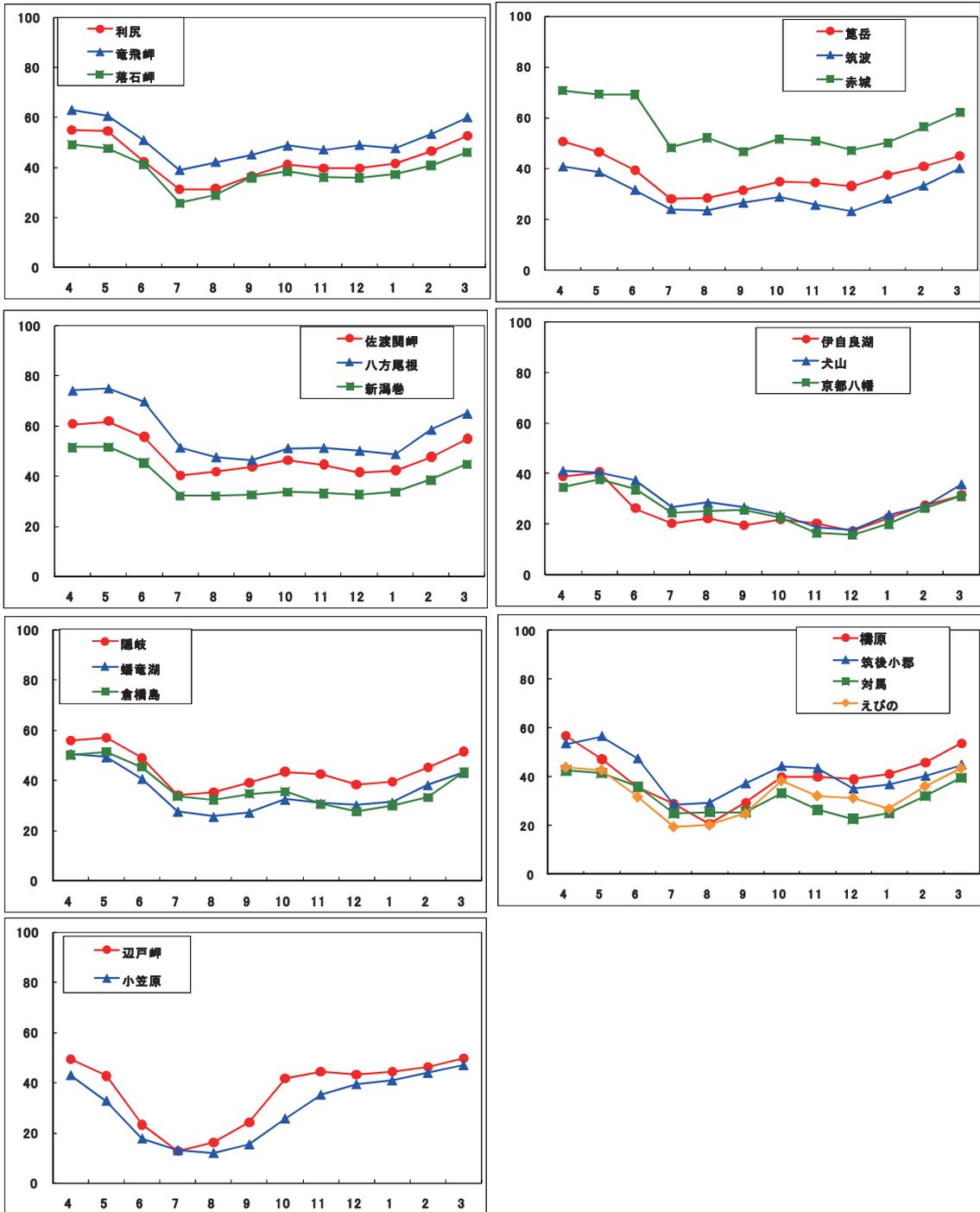
— 未測定



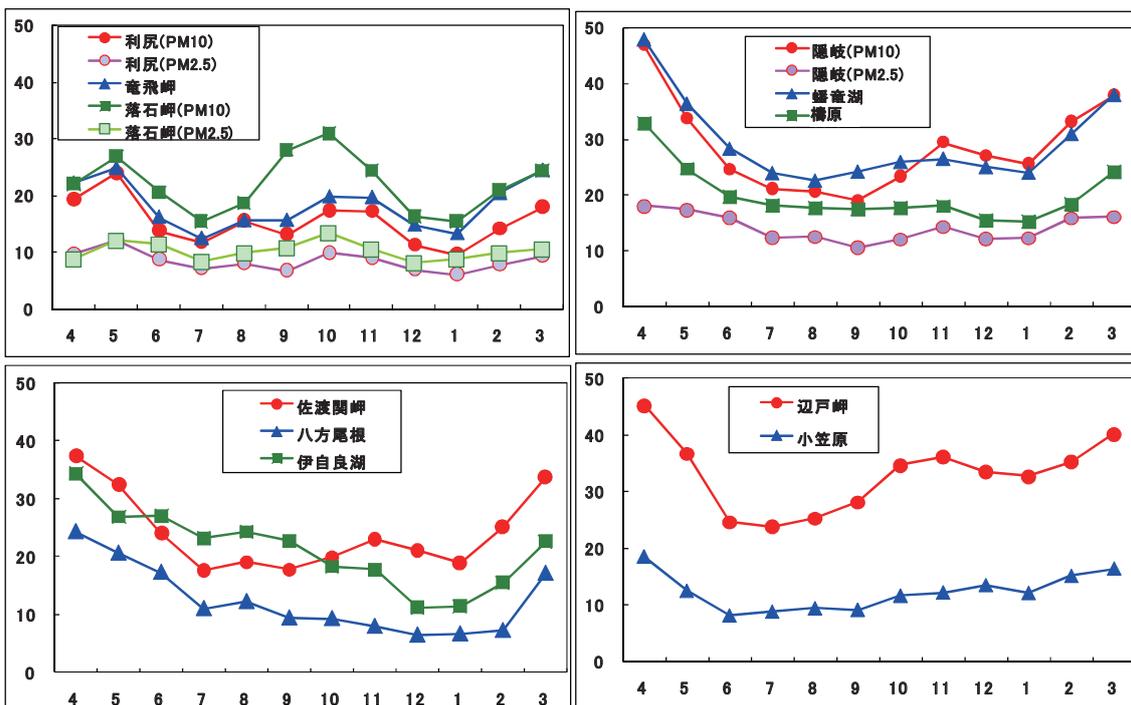
参考図 21 SO<sub>2</sub>濃度の季節変動 (平成 15~19 年度平均値、単位:ppb)



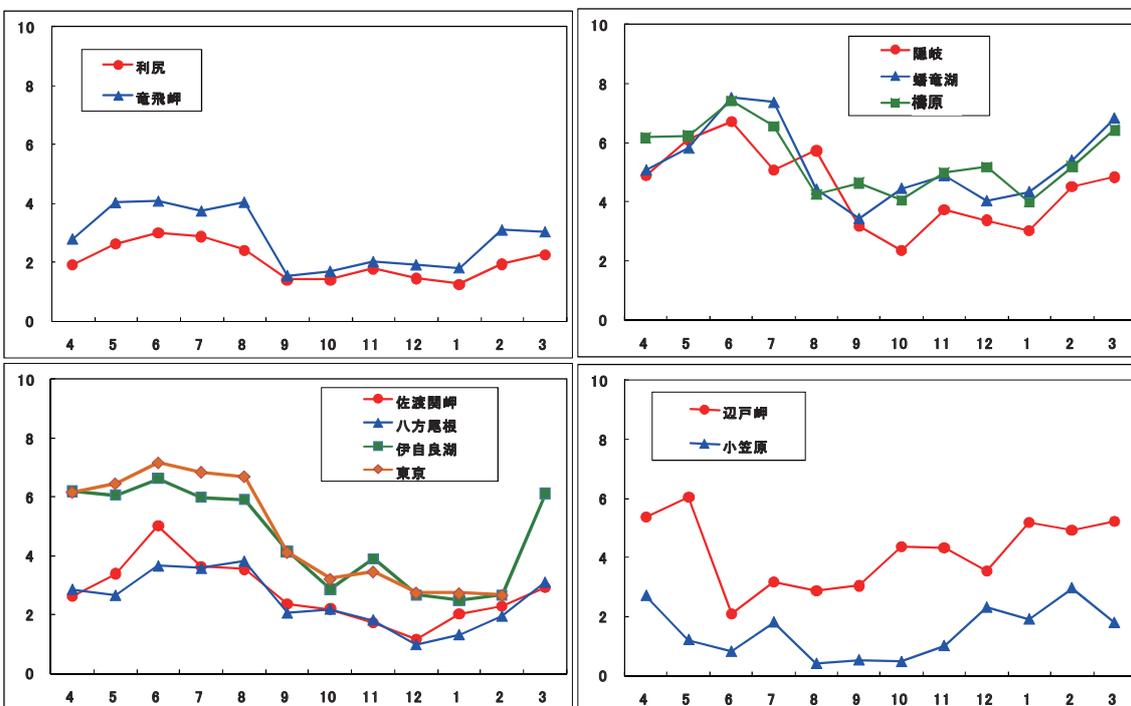
参考図 22 NO<sub>x</sub>\*濃度の季節変動 (平成 15~19 年度平均値、単位:ppb)



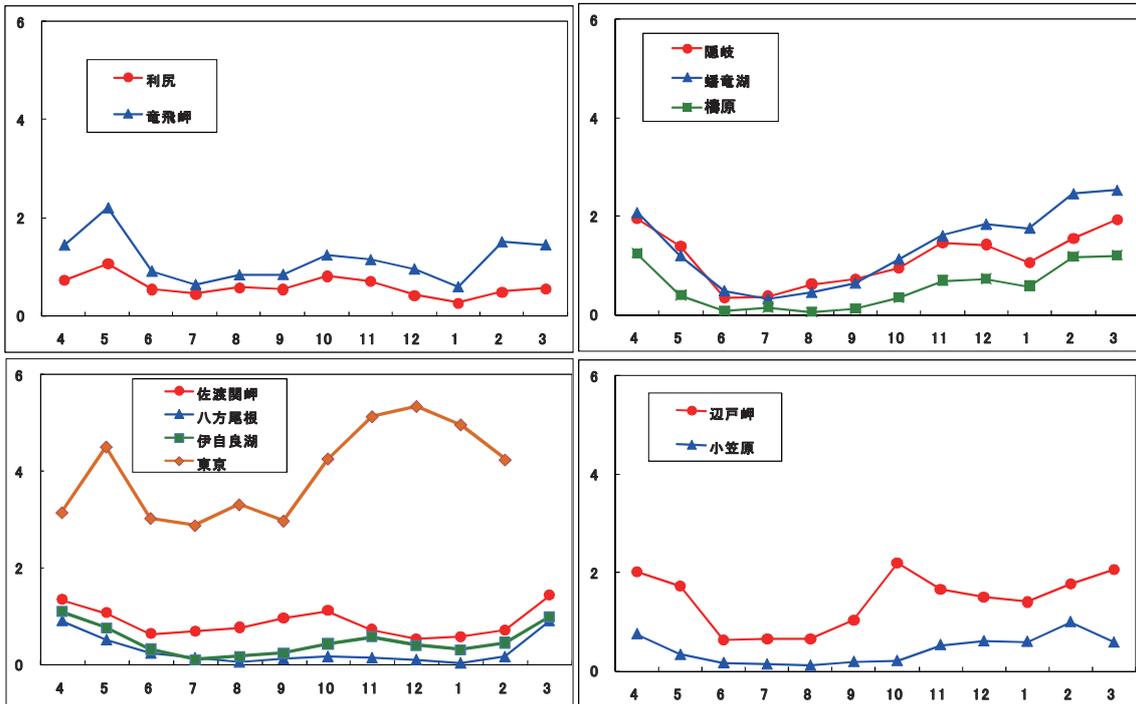
参考図 23 O<sub>3</sub>濃度の季節変動 (平成 15~19 年度平均値、単位:ppb)



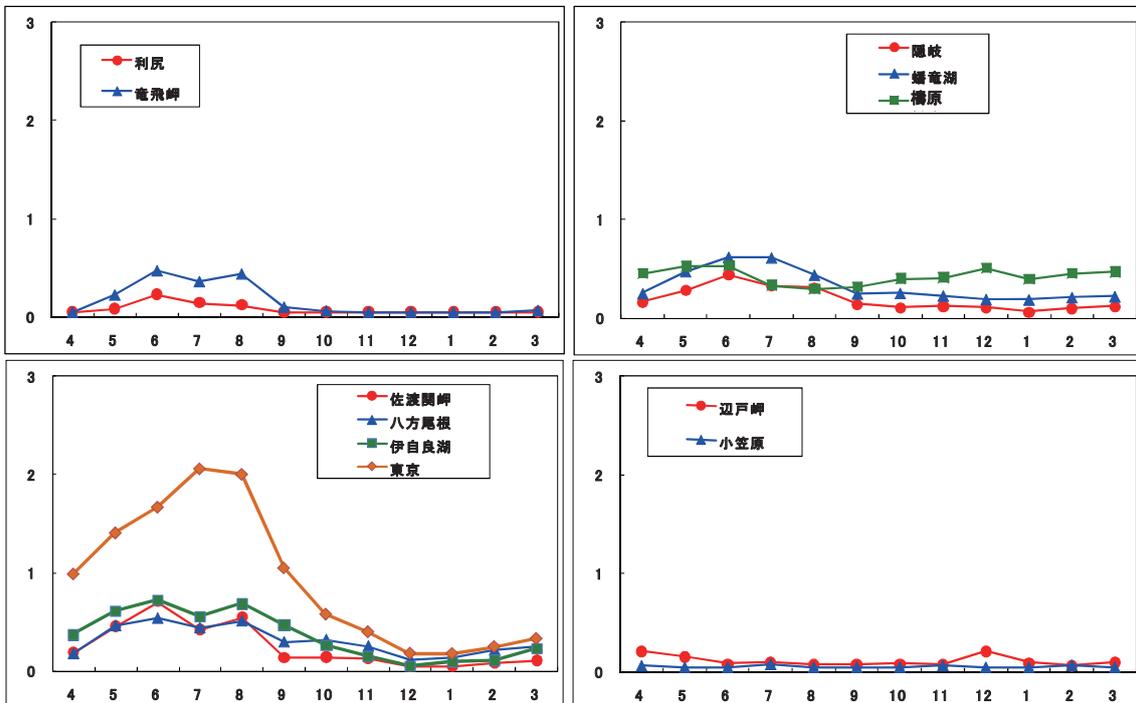
参考図 24 PM<sub>10</sub> 及び PM<sub>2.5</sub> 濃度の季節変動 (平成 15~19 年度平均値、単位:  $\mu\text{g m}^{-3}$ )



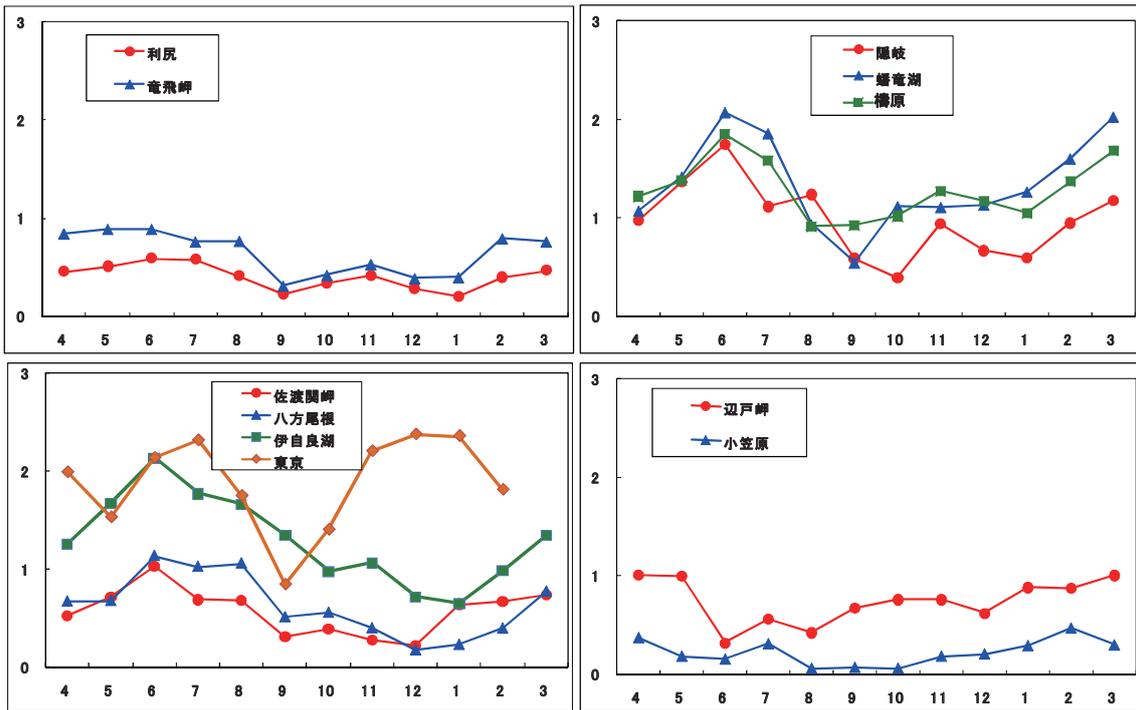
参考図 25 nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 濃度の季節変動 (平成 15~19 年度平均値、単位:  $\mu\text{g m}^{-3}$ )



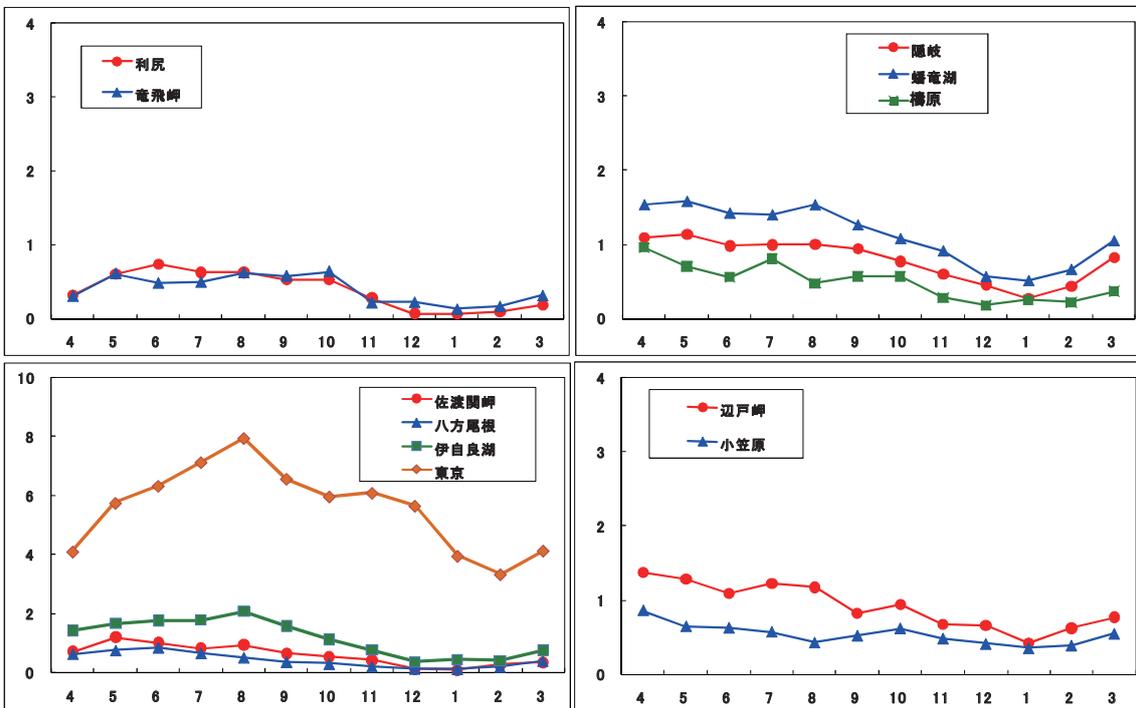
参考図 26  $\text{NO}_3^-$  濃度の季節変動 (平成 15~19 年度平均値、単位: $\mu\text{g m}^{-3}$ )



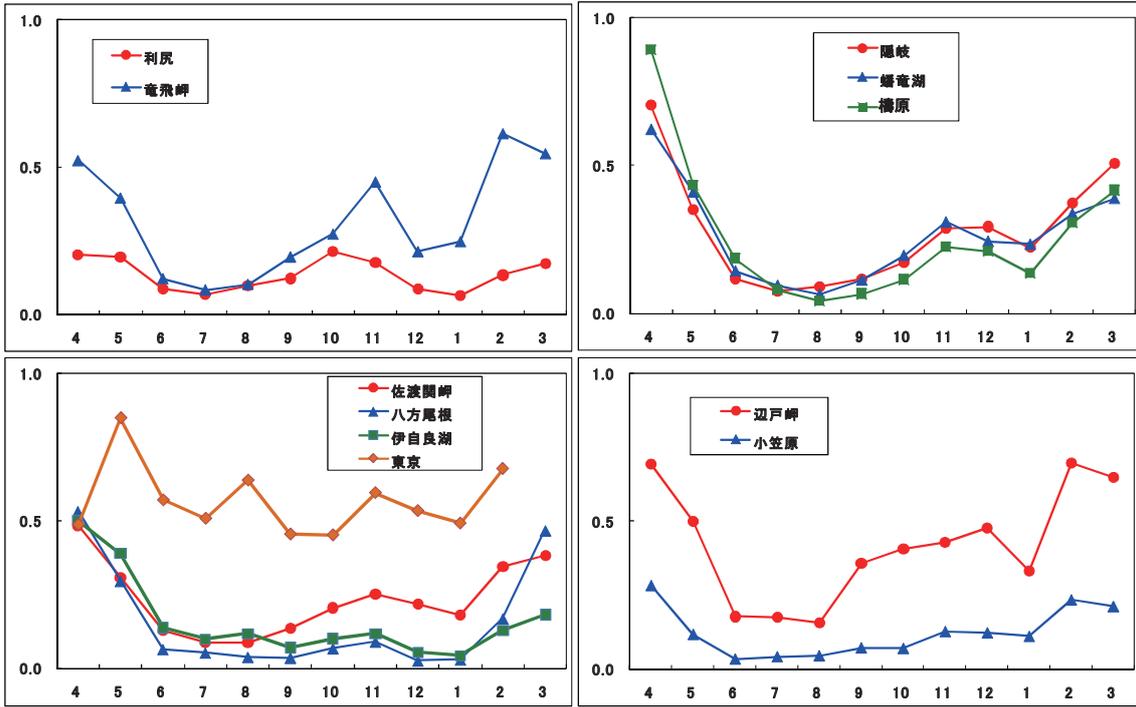
参考図 27  $\text{HNO}_3$  濃度の季節変動 (平成 15~19 年度平均値、単位:ppb)



参考図 28  $\text{NH}_4^+$  濃度の季節変動 (平成 15~19 年度平均値、単位: $\mu\text{g m}^{-3}$ )



参考図 29  $\text{NH}_3$  濃度の季節変動 (平成 15~19 年度平均値、単位:ppb)



参考図 30  $\text{Ca}^{2+}$  濃度の季節変動 (平成 15~19 年度平均値、単位: $\mu\text{g m}^{-3}$ )

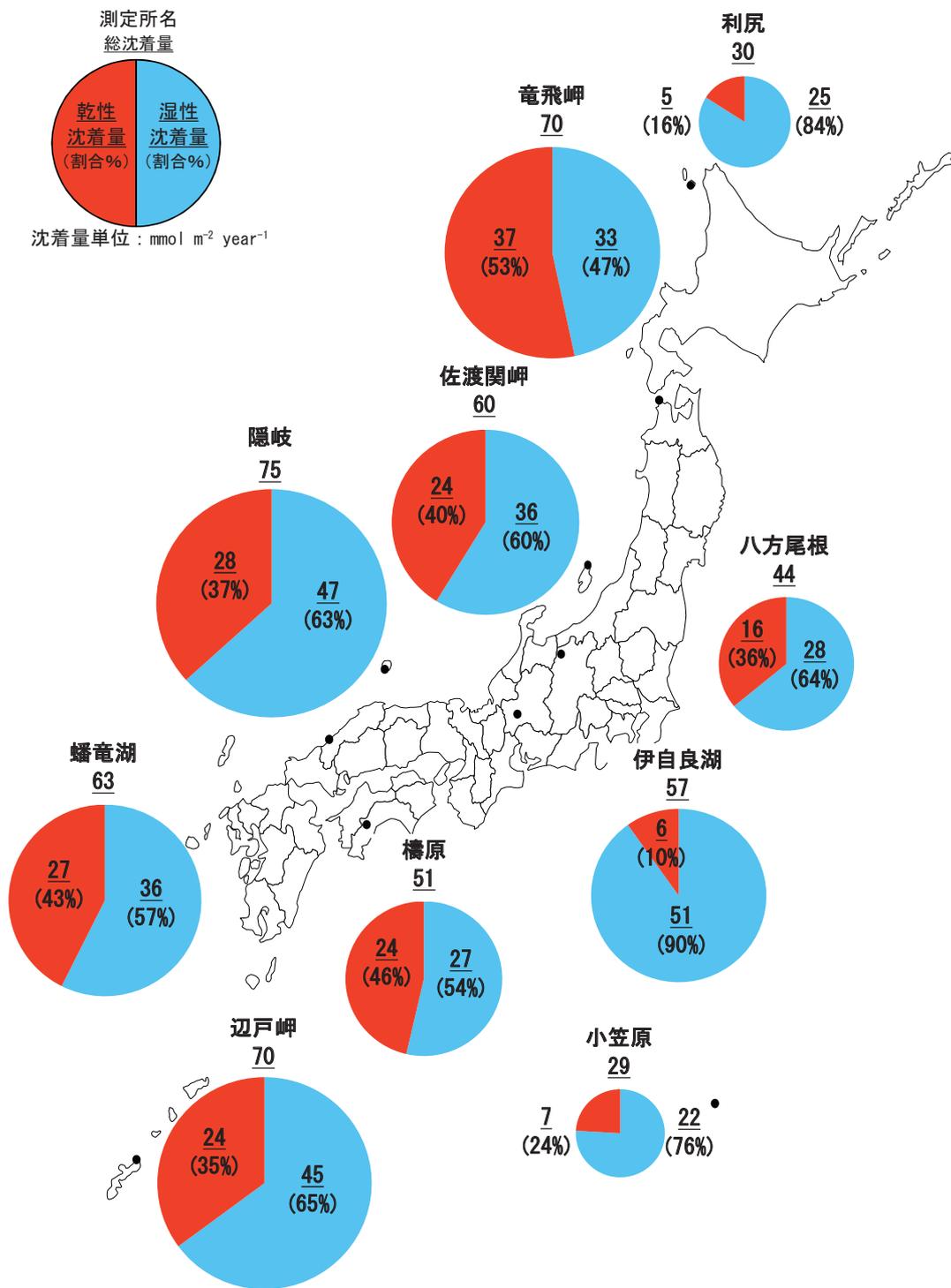
参考表 23 乾性沈着量（測定所周辺の土地利用割合で重み付けをしたもの）

地点名	年度	ガス状物質 (mmol m <sup>-2</sup> year <sup>-1</sup> )			粒子状物質 (mmol m <sup>-2</sup> year <sup>-1</sup> )			
		SO <sub>2</sub>	HNO <sub>3</sub>	NH <sub>3</sub>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>
利尻	平成15年度	2.5	2.8	3.0	2.3	1.9	1.0	2.1
	平成16年度	2.4	2.0	3.3	2.2	1.6	1.0	1.5
	平成17年度	2.4	2.7	3.0	2.6	2.1	1.0	2.2
	平成18年度	2.6	1.9	2.7	2.1	1.7	0.9	1.8
	平成19年度	**	**	**	**	**	**	**
竜飛岬	平成15年度	14.3	16.7	4.9	18.0	11.0	9.5	15.7
	平成16年度	15.0	18.2	4.9	21.6	14.7	11.4	15.8
	平成17年度	12.5	18.9	**	27.4	17.8	13.6	20.8
	平成18年度	14.9	14.4	2.7	24.5	15.7	13.2	18.6
	平成19年度	13.7	17.8	3.9	25.2	18.8	15.0	19.2
小笠原	平成15年度	5.6	1.4	1.8	1.6	1.0	0.7	0.7
	平成16年度	5.9	1.6	2.9	0.5	0.3	0.2	0.3
	平成17年度	7.5	1.7	5.9	1.4	1.1	0.4	0.7
	平成18年度	**	**	**	**	**	**	**
	平成19年度	1.5	1.9	4.2	3.6	2.9	1.3	2.0
佐渡関岬	平成15年度	9.5	12.7	2.9	8.7	6.1	3.9	5.1
	平成16年度	9.3	13.5	4.3	11.4	8.8	4.6	13.2
	平成17年度	12.2	19.9	3.8	11.8	9.4	4.7	8.8
	平成18年度	15.4	16.1	3.9	10.3	7.8	4.7	7.4
	平成19年度	17.0	14.0	4.1	14.9	11.4	8.0	10.6
八方尾根	平成15年度	8.8	14.3	5.0	5.0	4.9	1.8	6.3
	平成16年度	11.5	15.3	4.1	6.3	6.2	2.2	7.5
	平成17年度	12.2	9.8	5.3	7.0	7.0	1.9	8.2
	平成18年度	8.4	15.4	4.0	5.5	5.5	0.9	6.2
	平成19年度	8.0	16.0	3.3	5.6	5.5	1.0	6.9
伊自良湖	平成15年度	3.9	4.4	8.9	1.7	1.6	0.4	3.0
	平成16年度	4.2	6.9	8.4	2.5	2.5	0.6	3.6
	平成17年度	3.4	7.4	7.8	2.6	2.5	0.5	3.9
	平成18年度	3.0	6.5	7.5	2.3	2.2	0.5	3.4
	平成19年度	2.3	5.1	5.9	2.0	2.0	0.5	2.9
隠岐	平成15年度	11.2	6.6	4.8	11.8	10.4	5.1	7.7
	平成16年度	12.0	7.8	5.6	11.2	9.6	6.2	11.6
	平成17年度	14.8	15.1	5.3	17.8	15.8	8.0	17.9
	平成18年度	14.6	14.7	4.0	17.0	15.1	8.1	18.1
	平成19年度	15.3	13.4	3.6	15.4	13.4	8.8	16.2
蟠竜湖	平成15年度	15.3	9.8	9.0	6.7	6.1	3.1	5.9
	平成16年度	17.7	15.3	11.4	9.3	8.5	4.9	11.2
	平成17年度	14.2	17.8	7.4	11.3	10.6	5.8	14.2
	平成18年度	17.7	16.2	8.8	12.4	11.5	6.2	15.3
	平成19年度	17.6	16.4	7.8	12.1	11.4	5.9	14.8
檜原	平成15年度	11.0	15.4	5.1	7.7	7.6	2.5	9.4
	平成16年度	11.0	17.5	5.0	10.8	10.6	2.0	12.2
	平成17年度	11.7	23.5	3.4	11.1	10.9	2.4	13.7
	平成18年度	16.8	21.8	4.5	10.4	10.2	2.2	13.5
	平成19年度	16.5	23.4	6.9	11.6	11.4	2.2	14.2
辺戸岬	平成15年度	13.8	5.0	4.3	10.5	7.3	7.6	7.5
	平成16年度	19.0	8.0	5.8	5.9	4.3	2.9	3.6
	平成17年度	11.3	6.4	5.2	16.0	11.7	6.5	9.9
	平成18年度	9.3	4.8	4.8	13.8	11.0	6.6	8.8
	平成19年度	8.3	6.8	6.9	14.5	11.7	6.3	11.0

\*\* 有効データの得られた時間が調査対象時間の70%未満のため解析に用いなかった。

参考表 24 酸性沈着量 (平成 15~19 年度平均)

地点名	湿性沈着量 (mmol m <sup>-2</sup> y <sup>-1</sup> )			乾性沈着量 (mmol m <sup>-2</sup> y <sup>-1</sup> )			総沈着量 (mmol m <sup>-2</sup> y <sup>-1</sup> )		
	Total-S	nss-S	Total-N	Total-S	nss-S	Total-N	Total-S	nss-S	Total-N
利尻	25.1	15.3	31.4	4.8	4.3	8.3	29.9	19.6	39.6
竜飛岬	32.7	16.7	40.9	37.4	29.7	50.5	70.1	46.4	91.4
小笠原	21.7	9.3	14.9	6.9	6.5	6.9	28.5	15.7	21.8
佐渡関岬	35.6	20.3	48.8	24.1	21.4	33.3	59.6	41.7	82.0
八方尾根	27.9	27.1	47.6	15.7	15.6	27.1	43.6	42.7	74.7
伊自良湖	51.1	48.1	112.7	5.6	5.5	17.7	56.7	53.6	130.4
隠岐	47.1	20.8	42.8	28.2	26.4	37.7	75.4	47.2	80.6
蟠竜湖	36.1	28.2	58.9	26.8	26.1	41.4	63.0	54.3	100.3
禰原	27.5	24.3	41.1	23.7	23.5	40.2	51.2	47.8	81.3
辺戸岬	45.2	17.1	33.9	24.5	21.5	25.7	69.7	38.6	59.6



参考図 31 全硫黄の年間沈着量 (平成 15～平成 19 年度平均)

## 4. 東アジア酸性雨モニタリングネットワーク（EANET）の概要

### （1）EANET 発足の背景

- 東アジア地域における近年のめざましい経済成長等に起因して、酸性雨の原因となる大気汚染物質の排出量が増加しており、今後もさらなる増加が予測されていることから、近い将来、酸性雨による影響が深刻なものとなることが懸念。
- このため、東アジア地域における酸性雨の現状やその影響解明に向け、地域協力体制の確立を目的として、2001年1月から EANET が本格稼働を開始。
- EANET は、これまで財政面・技術面ともに日本が主体となって進めてきた取組であり、我が国としては EANET 活動の基盤確立や将来的な発展・拡大により、大気環境管理に向けた当該地域の国際協力が推進されることを重要視。

### （2）EANET の概要

#### ア. 参加国

カンボジア（2001年から）、中国、インドネシア、日本、ラオス（2002年から）、マレーシア、モンゴル、ミャンマー（2005年から）フィリピン、韓国、ロシア、タイ、ベトナムの計13カ国

#### イ. 活動目的

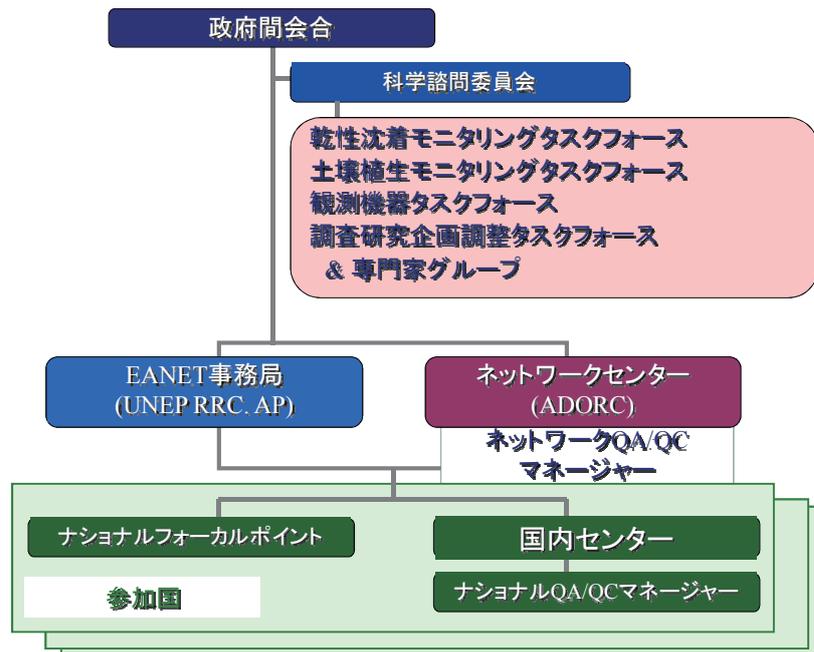
- 東アジア地域における酸性雨問題の状況に関する共通理解の形成促進
- 酸性雨防止対策に向けた政策決定に当たっての基礎情報の提供
- 東アジア地域における酸性雨問題に関する国際協力の推進

#### ウ. 活動の概要

- 共通の手法を用いた酸性雨モニタリングの実施
- データの収集、評価、保管及び提供
- 精度保証・精度管理（QA/QC）活動の推進
- 参加国への技術支援と研修プログラムの実施
- 酸性雨に関連した調査研究活動の推進
- 普及啓発活動の推進
- 関係国際機関との情報交換

#### エ. 実施体制

UNEP アジア太平洋地域資源センター(RRC. AP) (タイ) が EANET 事務局、財団法人日本環境衛生センター酸性雨研究センター（新潟市内）が技術的対応を行うネットワークセンターに指定されている。



#### オ. 最近の動向

- 第5回政府間会合（2003年11月にパタヤで開催）の決定に基づき、2005年から、EANET事務局経費について、基本的に「国連分担率」をベースとして、すべての参加国が何らかの形で資金貢献を果たすことを目指すとしており、日本に加えタイ、マレーシア、中国、韓国、カンボジア、モンゴルが拠出（2008年）。
- 第7回政府間会合（2005年11月に新潟で開催）において、EANET参加国が、EANETへの資金拠出のための確固とした基盤となる文書とその法的性格についての議論を開始する決定を行った（新潟決定）。この決定に基づき、参加国は、今後3年間議論を行い、その結果を第10回政府間会合に報告することとされた。
- 第8回政府間会合（2006年11月にハノイで開催）では、今後5年間にEANETが進めるべき越境大気汚染に関する調査研究等の戦略が採択され、また、東アジア地域の酸性雨の状況を取りまとめた第1次評価報告書（PR SAD）が報告された。
- 第9回政府間会合（2007年11月にビエンチャンで開催）では、第8回会合で採択された「EANET発展戦略」に基づく活動を実現するために、2つのタスクフォースと4つの専門家グループを、科学諮問委員会に新たに設置することが合意された。
- 第10回政府間会合（2008年11月にハノイで開催）では、第7回会合で決定された「新潟決定」をうけて、将来発展作業部会において検討された、文書に含めるべき要素や活動のスコップ、文書の法的性格等について報告があった。今後は、各国が国内の調整を進めつつ、文書の最終合意に向けた検討が将来発展作業部会において引き続きなされることになった。

## 5. 欧米における越境大気汚染対策の経緯

ヨーロッパでは、1950年代から、北欧の湖沼や河川が酸性化して魚や植物が死滅するなど、生態系に深刻な影響が生じていることが問題となり、1968年にはスウェーデンのオーデンがその原因として、イギリスや中部ヨーロッパからの酸性物質によるものであることを報告している。1972年には、OECDはスウェーデンからの働きかけ等を受けて大気汚染物質のモニタリング計画を発足させ、さらに1977年には、国連欧州経済委員会（United Nations Economic Committee for Europe, UNECE）の下で、欧州全域を含む長距離移動大気汚染物質モニタリング・欧州共同プログラム（Co-operative Program for Monitoring and Evaluation of the Long-Range Transmission of Air Pollutants in Europe, EMEP）が発足し、ヨーロッパ全域に酸性雨の測定網が広げられた。

1979年には、UNECEにおいて長距離越境大気汚染条約（Convention on Long-range Transboundary Air Pollution, CLRTAP）が採択され、1983年3月に発効した。CLRTAPには、ヨーロッパ諸国を中心に、米国、カナダなど49カ国（当時のEC含む。）が加盟（日本は加盟していない。）し、加盟国に対して、酸性雨等の越境大気汚染の防止対策を義務づけるとともに、酸性雨等の被害影響の状況の監視・評価、原因物質の排出削減対策、国際協力の実施、モニタリングの実施、情報交換の推進などを定めている。発効後、資金供与について定めたEMEP議定書（1984）、SO<sub>x</sub>の30%削減を定めたヘルシンキ議定書（1985）、NO<sub>x</sub>の削減について定めたソフィア議定書（1988）、VOC規制議定書（1991）、SO<sub>x</sub>の削減について定めたオスロ議定書（1994）、重金属議定書（1998）、POP<sub>s</sub>議定書（1998）、酸性化・富栄養化・地上レベルオゾン低減議定書（1999）の8つの議定書により、補足・強化されてきている。

ヨーロッパに比較すると対応が遅れていた北米でも、カナダと米国との間で酸性雨による被害の問題が深刻化し、1980年6月に米国で酸性物降下法が定められ、降水のモニタリング、生態影響調査等を内容とする全国酸性降下物調査計画（National Acid Precipitation Assessment Program, NAPAP）を10カ年計画で実施した。また、同年8月には、両国の政府間で越境大気汚染に関する合意覚書を交わした。さらに両国は、酸性雨被害の拡大を防止するための大気保全の二国間協定を1991年3月に調印した。北米における酸性雨のモニタリングは、米国が米国国家大気降下物測定プログラム（National Atmospheric Deposition Program, NADP）、カナダがカナダ降水採水網（Canadian Air and Precipitation Monitoring Network, CAPMoN）の下で実施されている。なお、米国では大気沈着に係る地域ネットワークとして、NADPの他に清浄大気状況・トレンドネットワーク（Clean Air Status and Trends Network, CASTNET）及び水銀沈着ネットワーク（Mercury Deposition Network, MDN）等が稼働している。

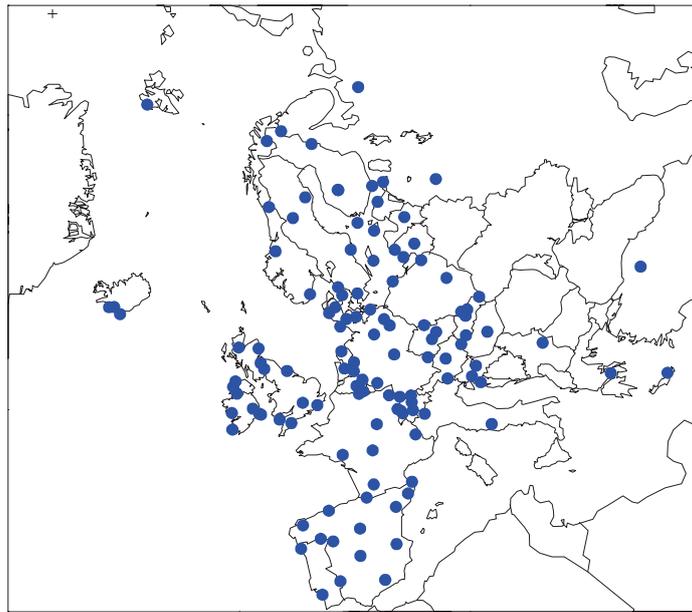
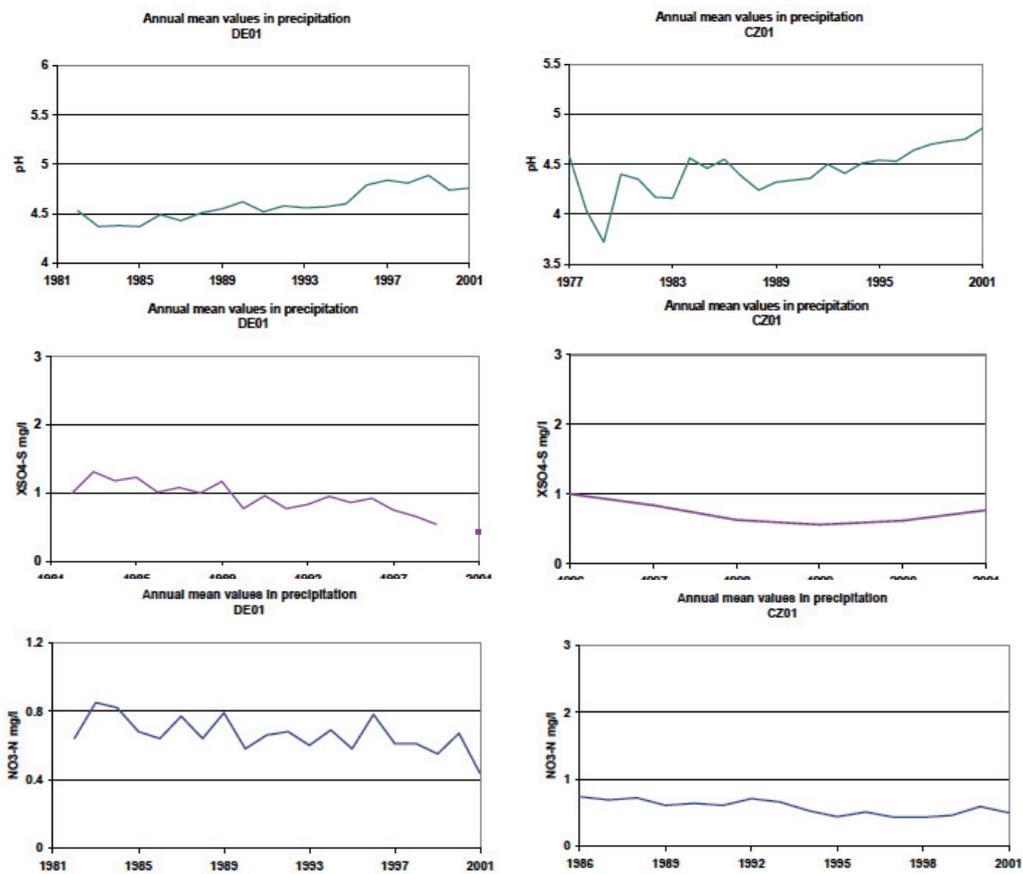
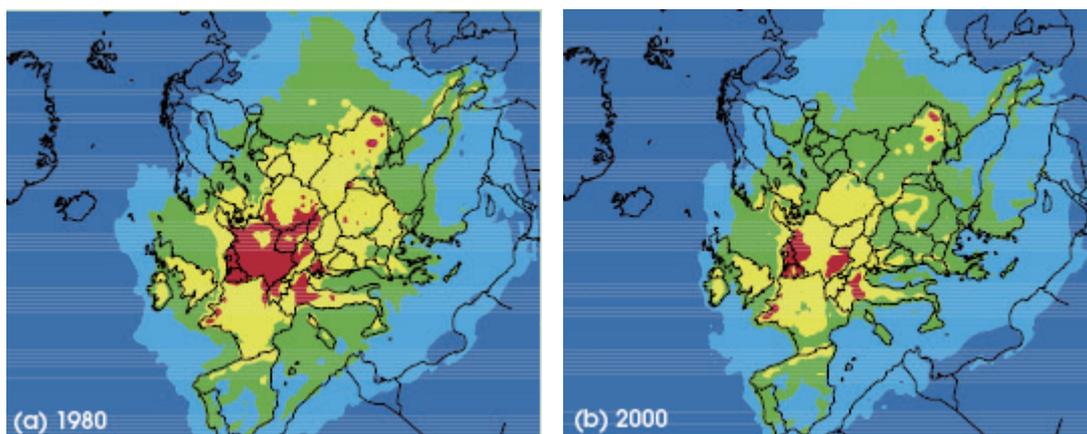


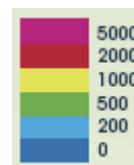
図 EMEP のモニタリングステーションの配置図 (2006年) .



EMEP サイト (ドイツ、チェコ) における降水中の pH、硫酸イオン及び硝酸イオン濃度の長期トレンド



ヨーロッパにおける 1980 年 (左) と 2000 年 (右) の窒素沈着量マップ  
 (出典 : EMEP/EEA Joint Review Report)



単位 :  $\text{mg-N m}^{-2} \text{ yr}^{-1}$

$$\left( \begin{array}{l} 100\text{mg-N m}^{-2} \text{ yr}^{-1} \\ \doteq 7.1\text{mmol-N m}^{-2} \text{ yr}^{-1} \end{array} \right)$$

## 略語等一覧

---

### 記号及び略語

---

➤ 物質（原子、分子、イオン等）及び指標	
Al	アルミニウム
Al <sup>3+</sup>	アルミニウムイオン
Ca <sup>2+</sup>	カルシウムイオン
CaCO <sub>3</sub>	炭酸カルシウム
CEC	陽イオン交換容量（cation exchange capacity）
Chl-a	クロロフィル a
Cl <sup>-</sup>	塩化物イオン
CO	一酸化炭素
COD	化学的酸素要求量（chemical oxygen demand）
DOC	溶存有機炭素量（dissolved organic carbon）
EC	電気伝導率（electric conductivity）
ECEC	有効陽イオン交換容量（effective cation exchange capacity）
Ex-BC/Al 比	交換性塩基性陽イオン（exchangeable basic cation）と交換性アルミニウムイオンとの比率（本報告書では当量比）
H <sup>+</sup>	水素イオン
HNO <sub>3</sub>	硝酸
H <sub>2</sub> O	水
H <sub>2</sub> O <sub>2</sub>	過酸化水素
K <sup>+</sup>	カリウムイオン
K <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>	炭酸カリウム
Mg <sup>2+</sup>	マグネシウムイオン
Na <sup>+</sup>	ナトリウムイオン
NaCl	塩化ナトリウム
Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>	炭酸ナトリウム
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	アンモニウムイオン

NMHC	非メタン炭化水素 (non-methane hydrocarbon)
NMVOC	非メタン揮発性有機化合物 (non-methane volatile organic compounds)
NO	一酸化窒素
NO <sub>2</sub>	二酸化窒素
NO <sub>2</sub> <sup>-</sup>	亜硝酸イオン
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	硝酸イオン
NO <sub>x</sub>	窒素酸化物 (NO+NO <sub>2</sub> )
NO <sub>x</sub> *	窒素酸化物 (NO <sub>x</sub> の他にペルオキシアセチルナイトレート等を含むことを表す場合に使用。)
nss-Ca <sup>2+</sup>	非海塩性 (non-sea-salt) カルシウムイオン
nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	非海塩性 (non-sea-salt) 硫酸イオン
O <sub>3</sub>	オゾン
pH	水素イオン指数 (水素イオン濃度の逆数の常用対数)
pH(H <sub>2</sub> O)	土壌と水を 1 : 2.5 の割合で混合した懸濁液について測定した pH
pH(KCl)	土壌と 1 モル塩化カリウム溶液を 1 : 2.5 の割合で混合した懸濁液について測定した pH (交換性 Al や H が浸出されるため、水の場合より低い値を示す。)
PM	粒子状物質 (particulate matter)
PM <sub>2.5</sub>	粒径 2.5 μm の粒子状物質に対する捕集効率が 50% の分粒器を用いて捕集した粒子状物質
PM <sub>10</sub>	粒径 10 μm の粒子状物質に対する捕集効率が 50% の分粒器を用いて捕集した粒子状物質
PO <sub>4</sub> <sup>3-</sup>	リン酸イオン
PTFE	ポリテトラフルオロエチレン
R1	陽イオン及び陰イオンのバランスに関する指標 $R1 = ((C - A) / (C + A)) \times 100 (\%)$ C: 陽イオンの当量濃度の総和、A: 陰イオンの当量濃度の総和
R2	電気伝導率に関する計算値と実測値との比較のための指標 $R2 = ((\Lambda_{cal} - \Lambda_{meas}) / (\Lambda_{cal} + \Lambda_{meas})) \times 100 (\%)$ $\Lambda_{cal}: \text{計算によって求められる電気伝導度、} \Lambda_{meas}: \text{実測値}$
SO <sub>2</sub>	二酸化硫黄
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	硫酸イオン

SPM	浮遊粒子状物質 (suspended particulate matters)
TOC	全有機態炭素 (total organic carbon)
VOC	揮発性有機化合物 (volatile organic compounds)
交換酸度	土壌表面の交換性部位に吸着されている酸性陽イオンの総量 (本調査の測定方法においては、交換性 Al と H の和に等しい。)
交換性 Al	土壌表面に吸着しているアルミニウムイオン
交換性 Ca	土壌表面に吸着しているカルシウムイオン
交換性 K	土壌表面に吸着しているカリウムイオン
交換性 Mg	土壌表面に吸着しているマグネシウムイオン
交換性 Na	土壌表面に吸着しているナトリウムイオン
▶ その他	
ABC プロジェクト	アジアの大気褐色雲計画(Atmospheric Brown Cloud-Asia)
CBM	Carbon Bond Mechanism
CAPMon	カナダ降水採水網 (Canadian Air and Precipitation Monitoring Network)
CASTNET	清浄大気状況・トレンドネットワーク (Clean Air Status and Trends Network)
CLRTAP	長距離越境大気汚染条約 (Convention on Long-range Transboundary Air Pollution)
CORINAIR	EEA(European Environment Agency)の汚染物質排出情報協同プロジェクトの大気版。(Core Inventory of Air Emissions in Europe)
DQOs	精度管理目標値 (Data Quality Objectives)
EANET	東アジア酸性雨モニタリングネットワーク (Acid Deposition Monitoring Network in East Asia)
EMEP	長距離移動大気汚染物質モニタリング・欧州共同プログラム (Co-operative Program for Monitoring and Evaluation of the Long-Range Transmission of Air Pollutants in Europe)
ICP Forests	森林への大気汚染影響の評価・監視に関する国際共同計画 (International Co-operative Programme on Assessment and Monitoring of Air Pollution Effects on Forests)
ICP Waters	河川・湖沼の監視・評価のための国際共同計画 (International Co-operative Programme on Assessment and Monitoring of Rivers and Lakes)

NADP	米国国家大気降下物測定プログラム (National Atmospheric Deposition Program)
NAPAP	全国酸性降下物調査計画 (National Acid Precipitation Assessment Program)
NCAR	米国国立大気科学センター (National Center for Atmospheric Research)
NCEP	米国国立環境予測センター (National Centers for Environmental Prediction)
QA/QC	精度保証・精度管理 (Quality Assurance/Quality Control)
SOP	標準作業手順書 (Standard Operating Procedure)
TF/HTAP	大気汚染の半球輸送に関するタスクフォース (Task Force on Hemispheric Transport of Air Pollution)
UNEP/RRC.AP	UNEP (国連環境計画) のアジア太平洋地域資源センター (Regional Resource Center for Asia and the Pacific)
UNFCCC	国連気候変動枠組条約 (United Nations Framework Convention on Climate Change)

---

単位

---

cmol(+) kg <sup>-1</sup>	センチモルプラス (10 <sup>-2</sup> mol) / キログラム (10 <sup>3</sup> g)
Gg	ギガグラム (10 <sup>9</sup> g)
kmol <sub>c</sub> ha <sup>-1</sup> y <sup>-1</sup>	キロモルチャージ / ヘクタール / 年
Mg	メガグラム (10 <sup>6</sup> g)
mol <sub>c</sub> L <sup>-1</sup>	モルチャージ (=ミリ当量 (10 <sup>-3</sup> 当量)) / リットル
mg L <sup>-1</sup>	ミリグラム (10 <sup>-3</sup> g) / リットル
mmol m <sup>-2</sup> y <sup>-1</sup>	ミリモル (10 <sup>-3</sup> mol) / 平方メートル / 年
mmol m <sup>-2</sup> day <sup>-1</sup>	ミリモル (10 <sup>-3</sup> mol) / 平方メートル / 日
mS m <sup>-1</sup>	ミリジーメンズ (10 <sup>-3</sup> S) / メートル
nmol m <sup>-3</sup>	ナノモル (10 <sup>-9</sup> mol) / 立方メートル
μg m <sup>-3</sup>	マイクログラム (10 <sup>-6</sup> g) / 立方メートル
μmol L <sup>-1</sup>	マイクロモル (10 <sup>-6</sup> mol) / リットル
Pcal	ペタカロリー (10 <sup>15</sup> cal)
ppb	十億分の一
Tcal	テラカロリー (10 <sup>12</sup> cal)
Tg	テラグラム (10 <sup>12</sup> g)

(備考) 当量 : 酸、塩基及び塩の化学当量。1 モルの H<sup>+</sup>と反応する物質の相当量。

モル (mol) : 0.012kg の <sup>12</sup>C に含まれる原子と等しい数 (アボガドロ数) の構成要素を含む系 (原子、分子、イオン、電子等) の物質質量。mol(+)は、土壌中の陽イオンの量を正電荷のモル数で示すもの。