

3.2 生態影響モニタリング

3.2.1 土壌・植生モニタリング

(1) 平成 20～24 年度における土壌モニタリング結果

基礎データの収集及び大気沈着による影響評価を目的として、主に樹木影響に着目した 13 地域と土壌影響に着目した 6 地域の計 19 地域（25 地点 50 プロット）での土壌・植生モニタリングを平成 15 年度から実施している。なお、土壌に着目した地域では、平成 13 年度からモニタリングを開始しており、経年変化評価にはこれらのデータも用いた。

①調査地点における土壌の化学的特性と酸緩衝能

現在までの土壌・植生モニタリング地点と、各地点における pH、及び酸性沈着への緩衝能の指標として用いられる交換性塩基（Ca+Mg+K）と交換性 Al の当量比（以下、(Ca+Mg+K)/Al 当量比¹⁾）の最新値（平成 20～24 年度）を図 3-2-1 に示した。

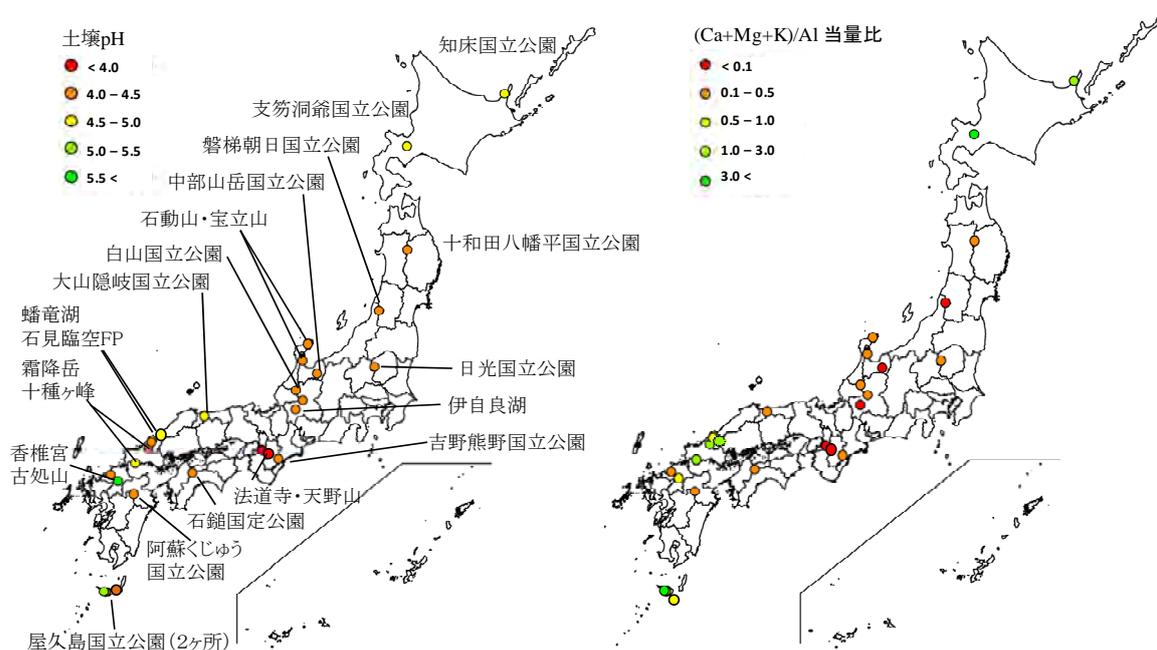


図 3-2-1 土壌・植生モニタリング地点における土壌表層（0-10 cm）の pH(H₂O) (左) と交換性 (Ca+Mg+K)/Al 当量比 (右)

注：各地点の最新値（2 プロット×5 サブプロットの平均）

¹⁾ 1M CH₃COONH₄ 溶液の NH₄⁺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⁺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 1 つ。

本モニタリングは森林植生を対象としており、調査地点の土壌は褐色森林土（14 地点）、黒ぼく土（4 点）、赤黄色土（4 点）、ポドゾル性土（3 点）の 4 つの大群（土壌種）² に分類される [1]。土壌種による明確な酸性度の違いは見られず、多くの地点で pH (H₂O) は 4.5 以下と強い酸性を示した。酸性沈着への緩衝能の指標として用いられる (Ca+Mg+K) /Al 当量比は、磐梯朝日国立公園（以下、国立公園及び国定公園は省略）、伊自良湖、石鎚（褐色森林土）、中部山岳（ポドゾル性土）、法道寺（赤黄色土）で 0.1 以下と他地点に比べ特に低かった。一方、知床、支笏洞爺、蟠竜湖、古処山、屋久島（褐色森林土）や霜降岳（赤黄色土）では比較的高い pH や (Ca+Mg+K) /Al 当量比が見られた。

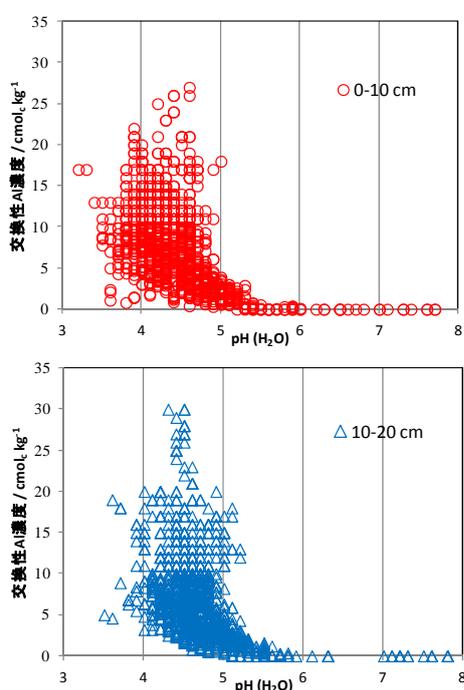


図 3-2-2 本モニタリングの土壌における pH と交換性 Al 濃度の変動範囲
注：平成 13～24 年度の全測定値

上記モニタリング地点の土壌 pH と交換性 Al 濃度の関係を図 3-2-2 に示した。土壌 pH が低いほど、交換性 Al 濃度が高くなる傾向がみられた。本モニタリングにおける土壌 pH は 4 から 5 の範囲に最も多く分布しており、4 以下の非常に低い pH は次層 (10-20 cm) よりも表層 (0-10 cm) で多く見られた。土壌酸性化過程では、pH によって異なる酸緩衝作用が働くことが知られており、次ページのコラムに示したように、Al の緩衝作用の働く pH 4～5 の範囲 [2]では、酸の負荷量が大きくても土壌 pH は容易に低下しない。本モニタリング地点における土壌のほとんどは 5.5 以下の pH 範囲にあったため、外部から流入する酸は主に Al による緩衝作用を受けていると考えられる。有機物が少なく鋳物 (Al を含む) がより多く存在する次層ではこうした緩衝能が高いものの、表層では鋳物による緩衝能が低く、さらに有機物由来の有機酸の影響を受けて pH がより低下する傾向があったと考えられる。緩衝に伴い土壌溶液中に溶解する Al³⁺ は植物根にとって有害であり、pH のみならず Al の挙動についても注視する必要がある。

以上のように、土壌の化学的特性及び酸緩衝能はモニタリング地点や深度によって大きく変動していた。こうした空間変動の多くは地質学的な時間スケールでの土壌生成作用によって生じたものであるが、土壌・植生に対する人為影響を評価するためにはこれらのメカニズムの下で生起する土壌化学特性の空間変動をあらかじめ考慮する必要がある。

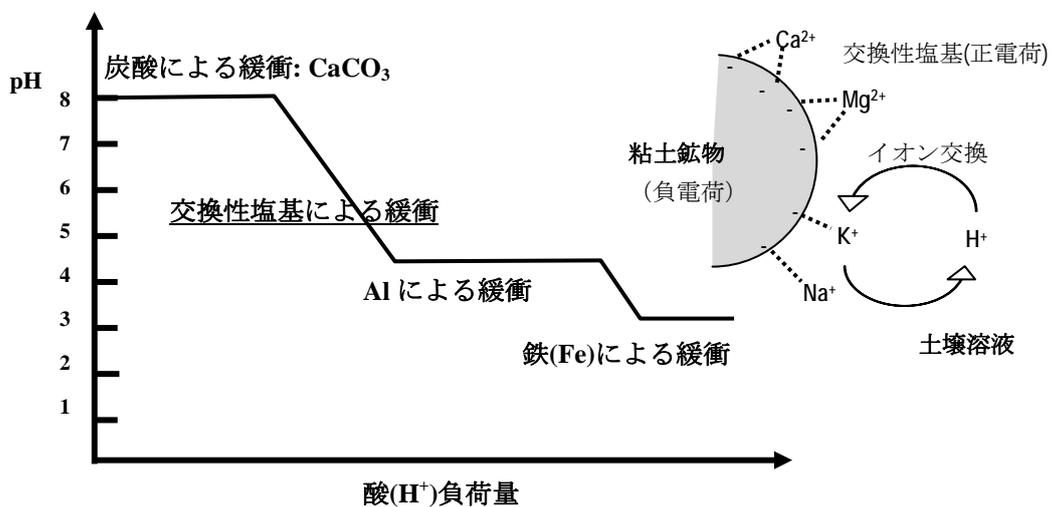
² 酸性沈着に対する緩衝能は土壌種によって異なる（コラムを参照）。

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、以下の土壌種の上から順に弱い。

- 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 ボドゾル性土：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^+ 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 Ca^{2+} や Mg^{2+} のような塩基が流出する。Al による緩衝作用が働く pH4 付近では pH は容易には低下しないが、植物に有害な Al^{3+} が溶解する（下図は Ulrich [2] を参考に作成）。



② 土壌化学性の経年変化

土壌モニタリングにおいては、土壌特性が大きな空間変動を示すことが多いため、図 2-2 に示した階層サンプリングにより各階層における分散（ばらつき）の大きさを評価できるシステム³を採用している。本システムでは、モニタリング地点の土壌につき、その土壌が分布する区域内にランダムに 2 つのプロットを選び、そのプロット内の 1 m²内に 5 つのサブプロットを置き、そこから表層土と次層土の分析用サンプルを採取し、2 回の繰り返し分析を行っている。5 年に 1 回、以上の手順による調査を実施した。土壌化学性の経年変化を評価するためには、このシステムを活用した枝分かれ分散分析により土壌毎に各年次間の分析値の比較をすることができる。

各地点の年次間の土壌化学性を比較するにあたっては、上記階層サンプリング・システムを考慮した枝分かれ分散分析により、まず地点レベルでの経年変化を評価した (i で詳述)。次に、地点の状況によっては 2 つ設定されたプロットのうち、一つのプロットだけで変化が見られた場合もあったため、プロットレベルでの経年変化も評価した (ii で詳述)。

i) 地点レベルでの土壌化学性の経年変化

地点レベルでの表層 (0-10 cm) 及び次層 (10-20 cm) における土壌 pH (H₂O) と塩基飽和度の経年変化を図 3-2-3 及び図 3-2-4 に示した。

³土壌モニタリングにおける階層サンプリングとそれを活用した分散分析：統計学的には、年次が母数因子（特定の水準がとりあげられる因子）、プロット、サブプロット、繰り返し分析が変量因子（不特定多数の集合から無作為に取り出された因子）からなる次のような混合モデル（母数、変量の両因子が混合しているモデル）として分散分析を行うことができる。

$$X_{ijkl} = \mu + \alpha_i + B_{ij} + C_{ijk} + \varepsilon_{ijkl}, \quad i = 1, 2 (\text{又は } 3), j = 1, 2, k = 1, \dots, 5, l = 1, 2, \\ \sum \alpha_i = 0, B_{ij} = N(0, \sigma_B), C_{ijk} = N(0, \sigma_C), \varepsilon_{ijkl} = N(0, \sigma)$$

ここで、測定値 X_{ijkl} に対し μ は全体の平均、 α_i 、 B_{ij} 、 C_{ijk} 、 ε_{ijkl} はそれぞれ年次、プロット、サブプロット、繰り返し分析であることを示し、 α_i は定数 ($\sum \alpha_i = 0$) であり、他方で、 B_{ij} 、 C_{ijk} 、 ε_{ijkl} は平均 0、分散 σ の正規分布からの確率変数である。この分散分析モデルでは、年次間に有意差があるかどうかを検定し、プロット以下については、分散の大きさを推定することとなる。表 3-2-1 に示すように、年次間の有意差検定は、年次の分散（平均平方）をプロットのそれで除して得られる F 値によることとなる。また、年次平均の標準誤差もプロットの分散から得られる。

表 3-2-1 各モニタリング地点における土壌毎の分散分析表

変動因	水準数	自由度	推定される分散の期待値
母数 年次	$n_A = 2$ 又は 3	$n_A - 1$	$\sigma^2 + n\sigma_C^2 + nn_C\sigma_B^2 + nn_Cn_B\kappa^2$
変量 プロット(同じ年)	$n_B = 2$	$n_A(n_B - 1)$	$\sigma^2 + n\sigma_C^2 + nn_C\sigma_B^2$
変量 サブプロット(同じプロット)	$n_C = 5$	$n_An_B(n_C - 1)$	$\sigma^2 + n\sigma_C^2$
変量 測定(同じサブプロット)	$n = 2$	$n_An_Bn_C(n - 1)$	σ^2

注：年次の分散の期待値にある κ は、母数因子の分散成分を示し、 σ は、変量因子の分散成分を示す。

全国の25調査地点において、表層のpH(H₂O)は宝立山でのみ有意に低下した。次層のpH(H₂O)は屋久島2と霜降岳で有意に低下しており、石鎚では有意に上昇した。表層の塩基飽和度は大山隠岐で減少したが、石見臨空及び宝立山では逆に増加した。次層の塩基飽和度は法道寺でのみ有意な増加が認められた。なお、その他の土壌特性値の統計解析結果については参考表2-62に示した。

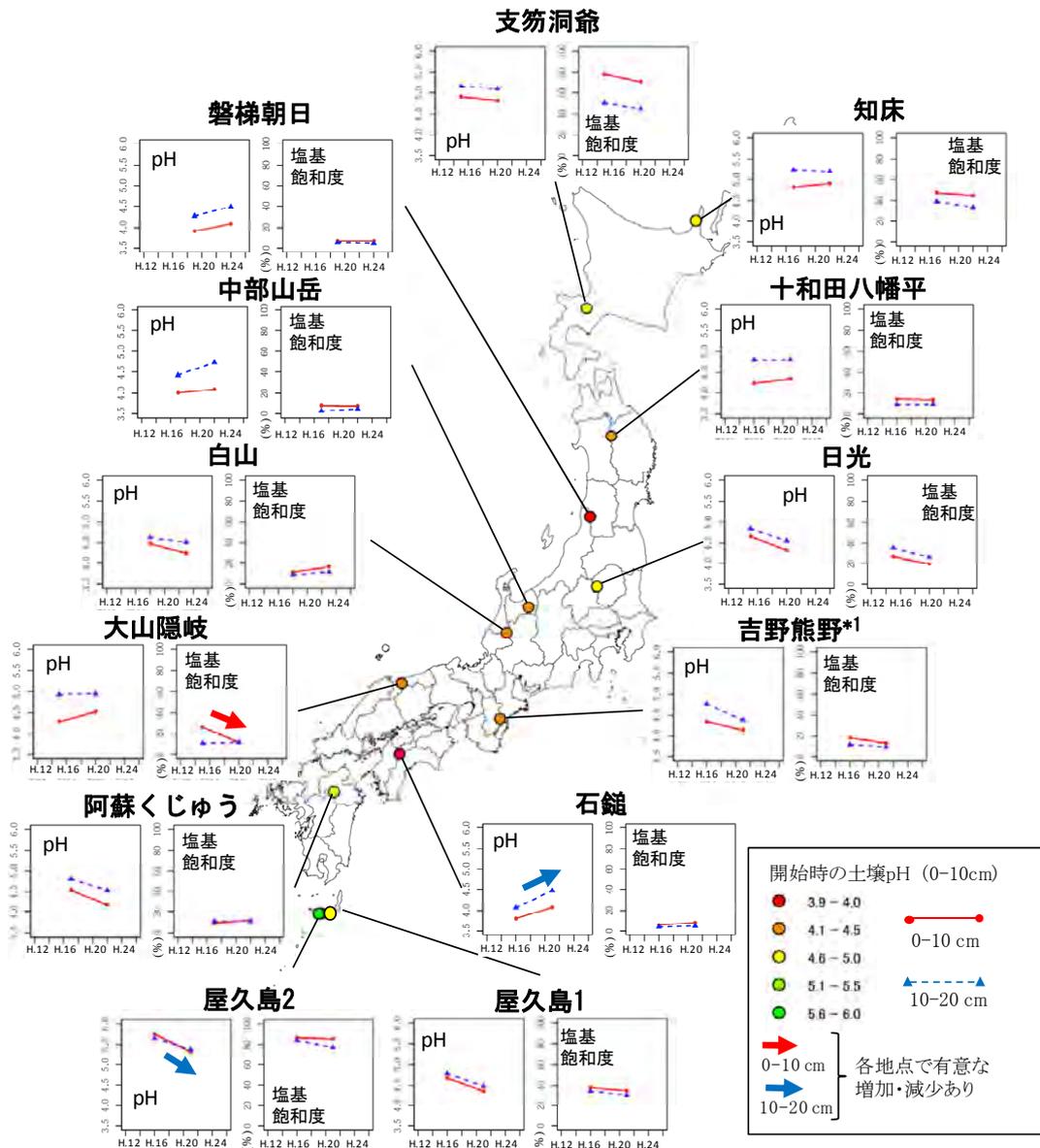


図 3-2-3 地点レベルでの pH (H₂O)と塩基飽和度の経年変化 (1)

注1：地図上に示された色分けの丸は各地点での本モニタリング開始時における各地点の表層 pH(H₂O)を示す。注2：繰り返し分析、サブプロット及びプロットによる枝分かれ分散分析 (表 3-2-1, n = 20) によって各地点での経年変化の効果を検定し、有意であった場合には太矢印で示した。(p < 0.05)。*1 吉野熊野における平成 16 年度の次層は 10-55 cm で採取されたため参考値として示す (統計解析なし)。

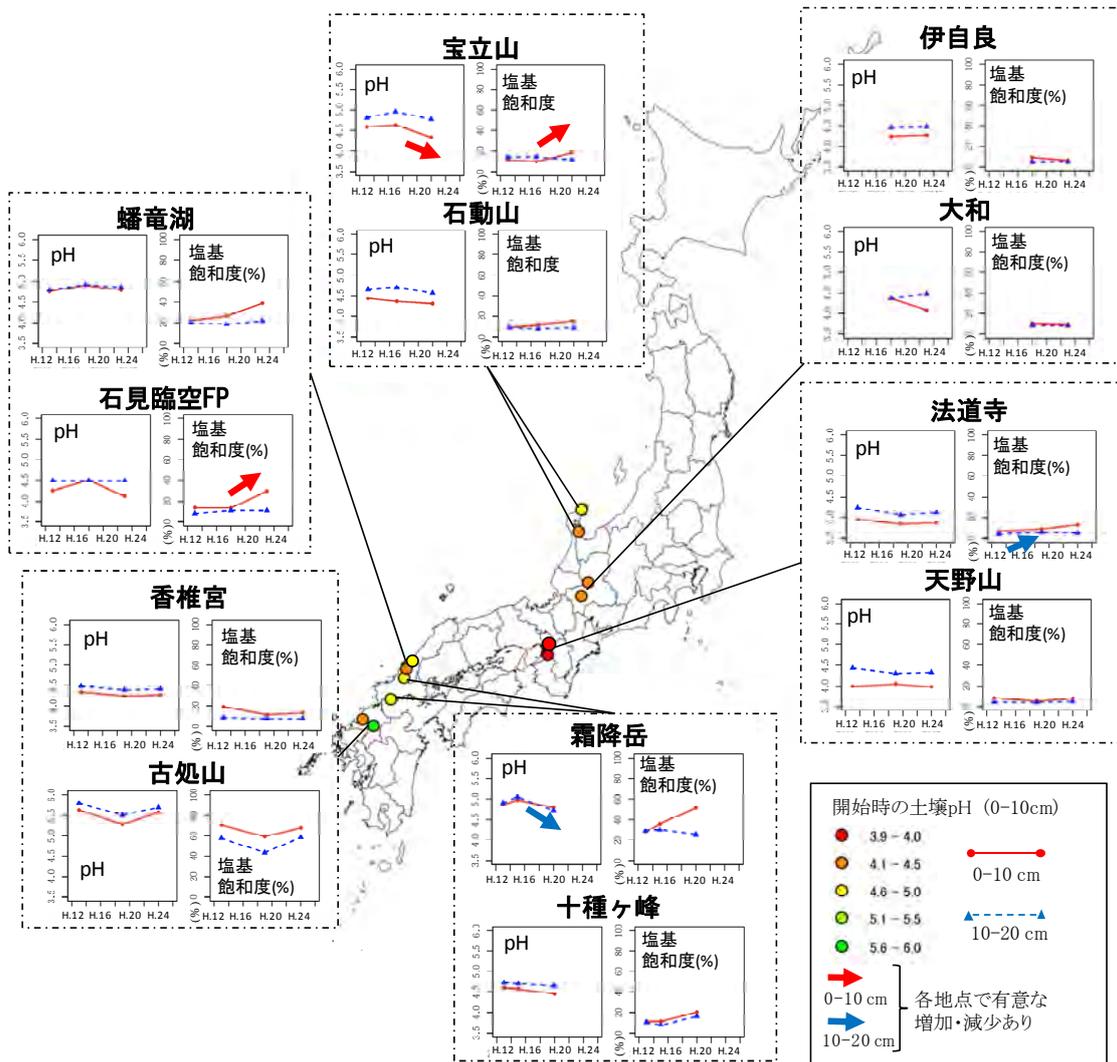


図 3-2-4 地点レベルでの pH (H₂O)と塩基飽和度の経年変化 (2)

注 1 : 地図上に示された色分けの丸は各地点での本モニタリング開始時における各地点の表層 pH(H₂O)を示す。注 2 : 繰り返し分析、サブプロット及びプロットによる枝分かれ分散分析 (表 3-2-1, n = 20) によって各地点での経年変化の効果を検定し、有意であった場合には太矢印で示した。3 回以上の調査が行なわれた地点における年次間の有意差は Tukey の方法により検定した ($p < 0.05$)。

ii) プロットレベルでの土壌化学性の経年変化

プロットレベルでの表層 (0-10 cm) 及び次層 (10-20 cm) における土壌 pH (H₂O)と塩基飽和度の経年変化を図 3-2-5 及び図 3-2-6 に示した。各地点に設置された 2 プロットのうち少なくとも 1 プロットで有意な経年変化が見られた場合に矢印で示した。その他の主な土壌特性値を含めた解析結果の詳細については参考表 2-63 に示した。

プロット毎に統計解析を実施した場合、全 50 プロット中の 11 プロットで表層 pH(H₂O)の一貫した上昇・低下が見られ、日光、吉野熊野、阿蘇くじゅう、屋久島、宝立山、大和、

石見臨空ファクトリーパーク（以下、石見臨空 FP）において各地域内に設置された 2 プロット中の少なくとも 1 プロットで表層 pH(H₂O)が低下していた。日光、阿蘇くじゅう、屋久島では同一プロットの表層と次層で pH(H₂O)が同時に低下しており、宝立山、石見臨空 FP、大和では表層のみ、霜降岳、法道寺では次層のみで pH(H₂O)が低下していた。一方、石鎚の 1 プロットでは表層と次層の pH(H₂O)が、磐梯朝日と中部山岳の 1 プロットでは次層の pH(H₂O)がそれぞれ有意に上昇していた。なお、石見臨空 FP の 1 プロットでは表層の pH(H₂O)が有意に上昇した後に再び低下しており、調査期間を通じての一貫した傾向が不明であった。表層の塩基飽和度は、支笏洞爺、日光、大山隠岐、吉野熊野、伊自良の少なくとも 1 プロットで有意な減少が見られた一方、十和田八幡平、阿蘇くじゅう、宝立山、蟠竜湖、石見臨空 FP、法道寺、霜降岳では逆に有意な増加が認められた。

地点代表性を持つ i)地点レベルでの経年変化に対し、ii)プロットレベルでの土壌化学性の経年変化は地点内の各プロットに見られたより局所的なスケールでの経年変化を示している。同一地点内においても地形等の要因によって酸の感受性は容易に変動するため、こうした局所影響の評価も重要と考えられる。これら地点、若しくはプロットの土壌毎で認められた変化に関し、特に大気沈着影響が関与する可能性のある表層 pH(H₂O)の変動要因について、塩基飽和度やその他の土壌化学特性値、さらに次項より述べる植生調査との関連を本項の最後に述べた（表 3-2-4 及び表 3-2-5）。

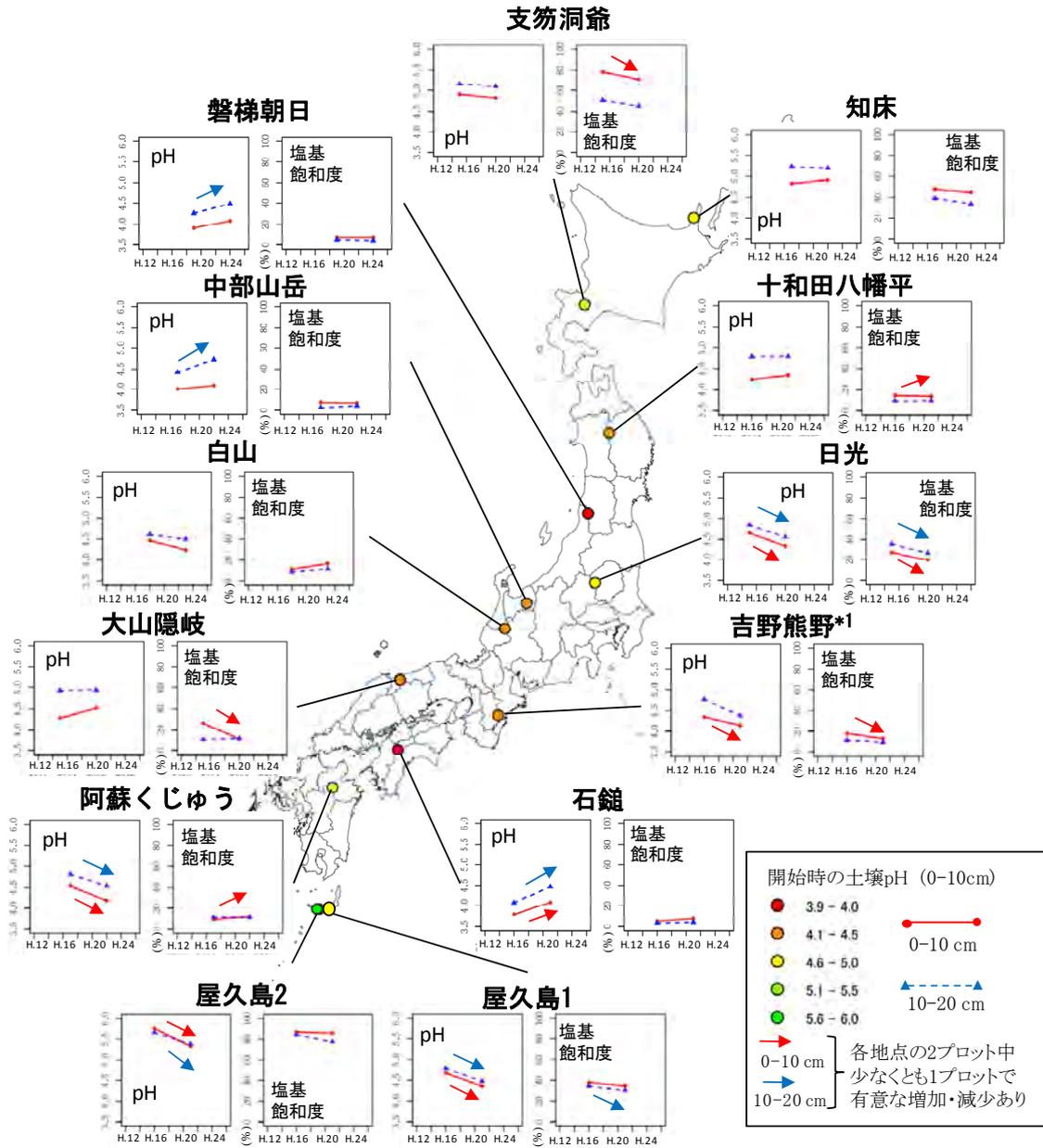


図 3-2-5 プロットレベルでの土壌 pH (H₂O)と塩基飽和度の経年変化 (1)

注：各地点に設置された2プロットのうち少なくとも1プロットで統計的に有意であった地点について矢印で示す。サブプロットと繰り返し分析による枝分かれ分散分析 (n = 10) をプロット毎に実施し、経年変化の効果が有意であった場合に細矢印で示した ($p < 0.05$)。*1 吉野熊野における平成 16 年度の次層は 10-55 cm で採取されたため参考値として示す (統計解析なし)。

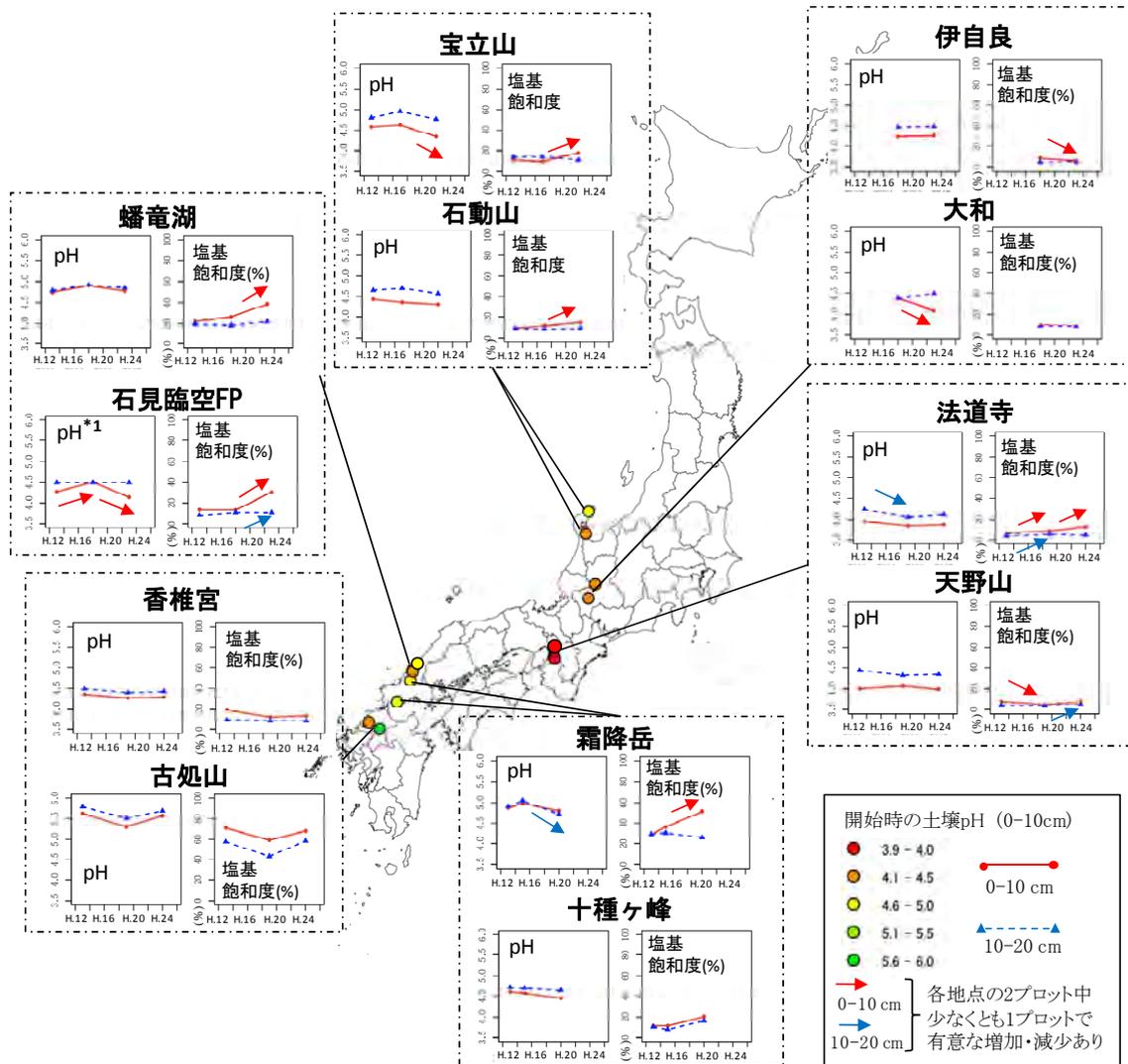


図 3-2-6 プロットレベルでの土壌 pH (H₂O)と塩基飽和度の経年変化 (2)

注：各地点に設置された2プロットのうち少なくとも1プロットで統計的に有意であった地点について矢印で示す。サブプロットと繰り返し分析による枝分かれ分散分析 (n = 10) をプロット毎に実施し、経年変化の効果が有意であった場合に細矢印で示した。3回以上の調査が行なわれた地点における年次間の有意差は Tukey の方法により検定した ($p < 0.05$)。*1 石見臨空の pH はプロット 1 で有意な低下のみ見られた一方、プロット 2 で有意に上昇した後に低下していた。

(2) 平成 20~24 年度における植生モニタリング結果

① 樹木衰退状況

樹木衰退度調査は毎年一回、すべてのプロットで実施されている。各観察項目の評価に加え、落葉率と葉色の異常を総合的に判断するダメージクラスによる評価を行った (表 3-2-2)。表 3-2-3 にこれらの兆候が見られた樹木の割合が多かった地点を順位で示した。大山隠岐では「樹勢変化」、「枝の成長異常」及び「葉の変形」の見られた割合が、吉野熊野

では「梢端の枯損」及び「枝葉の密度の異常」が見られた割合が、また磐梯朝日では、「落葉率」及び「葉色の変化」の見られた割合が、それぞれ最も高く、他の項目でも高い割合を示した。

また、磐梯朝日、大山隠岐、十和田八幡平、吉野熊野の4地点では1以上のダメージクラスが認められた樹木の割合が5%を超えていた。これらの地点は、平成22年度までの中間報告でもダメージクラスが高いことが指摘され、継続的に衰退度が指摘されている。このダメージクラスは、平成19年度から改訂されたEANETの様式 [3] に従って導入された、大気汚染影響との関連が特に指摘されている衰退度項目であり、これらの4地点について、衰退度項目の経年変化を図3-2-7に示した。十和田八幡平の衰退度は、平成16年度の台風被害の後、一度回復傾向を見せたものの、過去5年間は衰退が進行した。大山隠岐では、同様の傾向が見られたが、平成24年度には衰退度が減少した。吉野熊野でも、一時期再び衰退度が上昇したが、平成21年度以降は回復傾向が見られた。磐梯朝日は、平成19年度に新規設置された地点であり、平成22年度及び23年度に「落葉率」や「枝葉の密度の異常」の急激な上昇が見られたが、平成24年度にはこれらの項目の割合は減少し、回復が見られた。回復が見られつつある大山隠岐や磐梯朝日での長期的な傾向については今後更にデータの蓄積が必要である。

樹木衰退の要因としては、大気沈着のような人為的要因だけでなく、台風や積雪、病虫害といった自然的要因による影響が考えられる。特に磐梯朝日のケースにおいては、病虫害が平成22～23年度にかけてこの地域で大発生したことが落葉率に影響したと考えられる。また、吉野熊野国立公園内の大台ヶ原では近年になってシカ食害が多く報告されている [4]。

表 3-2-2 落葉率と葉色から判断されたダメージクラス

葉色 \ 落葉率	1	2	3
0	0	1	2
1	1	2	2
2	2	3	3
3	3	3	3

注：落葉率及び葉色は、それぞれ、5段階（0：落葉なし～4：枯死）及び4段階（0：変色なし～3：激しく（60%以上）変色）で、示し、その組み合わせでダメージクラスを算出。

表 3-2-3 異常が観測された樹木の出現率*1が高かった地点

梢端の枯損			落葉率			樹勢変化			枝葉の密度の異常		
順位	調査地点	出現率	順位	調査地点	出現率	順位	調査地点	出現率	順位	調査地点	出現率
1	吉野熊野	38%	1	磐梯朝日	36%	1	大山隠岐	55%	1	吉野熊野	53%
2	香椎宮1	33%	2	宝立山	15%	2	吉野熊野	41%	2	大山隠岐	35%
3	中部山岳	24%	3	法道寺	13%	3	中部山岳	27%	3	磐梯朝日	23%
4	大山隠岐	22%	4	吉野熊野	10%	4	伊自良	25%	4	白山	22%
5	知床	20%	5	大山隠岐	8%	5	十和田八幡平	22%	5	香椎宮1	21%
6	香椎宮2	20%	6	十和田八幡平	8%	6	知床	21%	6	中部山岳	18%
7	法道寺	19%	7	支笏洞爺	5%	7	法道寺	20%	7	法道寺	13%
8	支笏洞爺	19%	8	石見臨空FP	3%	8	大和	13%	8	霜降岳	11%
9	古処山1	18%	9	中部山岳	3%	9	霜降岳	13%	9	支笏洞爺	8%
10	日光	18%	10	白山	2%	10	日光	12%	10	香椎宮2	7%

枝の成長異常			葉の変形			葉色の変化			1以上のダメージクラス		
順位	調査地点	出現率	順位	調査地点	出現率	順位	調査地点	出現率	順位	調査地点	出現率
1	大山隠岐	54%	1	大山隠岐	10%	1	磐梯朝日	38%	1	磐梯朝日	33%
2	白山	30%	2	吉野熊野	3%	2	大山隠岐	25%	2	大山隠岐	14%
3	宝立山	26%	3	中部山岳	1%	3	吉野熊野	13%	3	十和田八幡平	6%
4	十和田八幡平	23%	4	十和田八幡平	1%	4	石見臨空FP	5%	4	吉野熊野	5%
5	吉野熊野	18%				5	十和田八幡平	3%	5	法道寺	3%
6	中部山岳	17%				6	知床	3%	6	石見臨空FP	2%
7	法道寺	8%				7	宝立山	1%	7	知床	1%
8	石鎚	6%									
9	磐梯朝日	5%									
10	石見臨空FP	5%									

*1 出現率 = 異常が観測された樹木数 / 全観測木数。注1：平成15年度から平成24年度までの平均。注2：落葉率及びダメージクラスについては平成19年度から平成24年度の平均（平成19年度以降に導入されたため）。

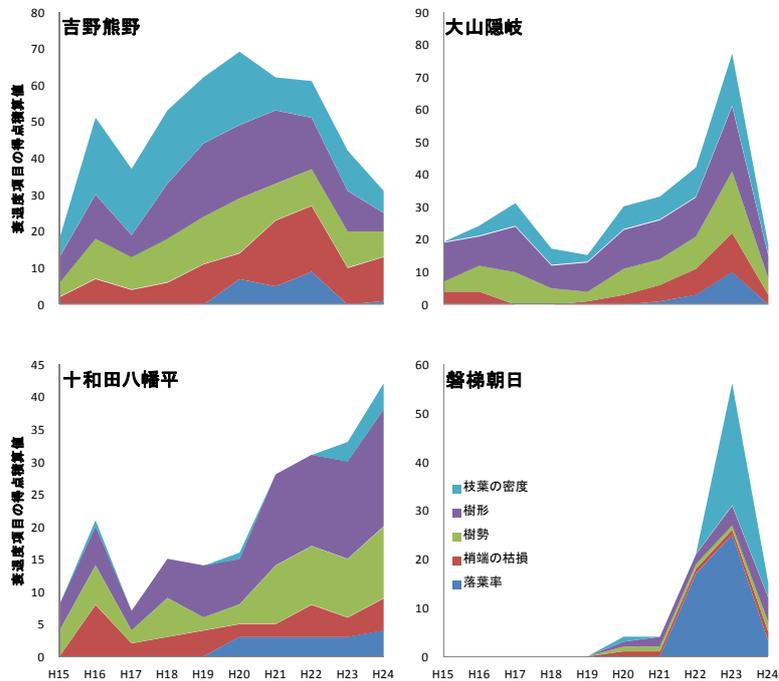


図 3-2-7 全観察木に占める各衰退度項目の得点合計の積算値とその経年変化
(吉野熊野、大山隠岐、十和田八幡平、磐梯朝日)

② 毎木調査による森林の状況

毎木調査結果を基に算出した単位面積当たりの胸高断面積の合計及び個体密度について、経年変化を図 3-2-8 に示した。樹木の肥大成長の指標である胸高断面積の合計は、1 回目の調査の値を 1 とすると、多くの地点でそれより大きな値を示し、モニタリング期間中にこれらの森林の樹木が成長していることを示していた。10%以上、胸高断面積合計が低下したのは、石鎚と伊自良だけであった。個体密度は増大している地点もあるが、倒木・枯死・間伐等で減少している地点も多く見られた。多くの場合は、個体密度が低下した結果、成長が促進されたように見受けられ、森林全体としての衰退は確認されていない。

石鎚の胸高断面積合計は、1 回目の調査値よりも約 20%も減少したが、個体密度も減少していた。これは直径数 10 cm の個体（ブナ）の枯死により、森林プロット全体の胸高断面積の合計値が低下したものであった。伊自良及び蟠竜湖の個体密度の減少は森林管理に伴う間伐によるものであった。蟠竜湖では胸高断面積合計が 3 回目の調査では 1 回目とほぼ同じレベルまで回復していたが、伊自良では、10%の胸高断面積合計の減少が見られた。伊自良では間伐後、まだ樹木が十分に成長していないと考えられた。特に、石鎚と伊自良については、今後の樹木の成長を注視する必要があると考えられた。

③ 下層植生の状況

下層植生調査の結果から、種数の経年変化、出現種数及び消滅種数を図 3-2-9 に示した。明確な減少傾向が確認された地点は、中部山岳、石動山、霜降岳、古処山 1 及び 2 であった。これらの地点とは逆に、十和田八幡平、磐梯朝日及び吉野熊野では大幅な種数の増加が見られた。また、総数としては大きな変化の見られなかった地点についても、出現種と消滅種を見てみると、実際には種組成が変化していることがわかる。ただし、石鎚、屋久島 1 及び 2 については、そういった種組成の変化も見られなかった。

下層植生の変化が見られた地点のうち、石動山では、チシマザサの優占が進み、他の植物種を抑制している可能性が指摘されている。また、霜降岳では、台風による樹木衰退からの回復に伴う林冠の状況の変化が下層植生に影響を与えた可能性が指摘されている。古処山では、やや若齢の天然林であったことから、植生遷移の進行により、多くの下層木が枯死したものと考えられており、ニホンジカの分布拡大による食害により、林床植生に影響が現れた可能性も指摘されている。

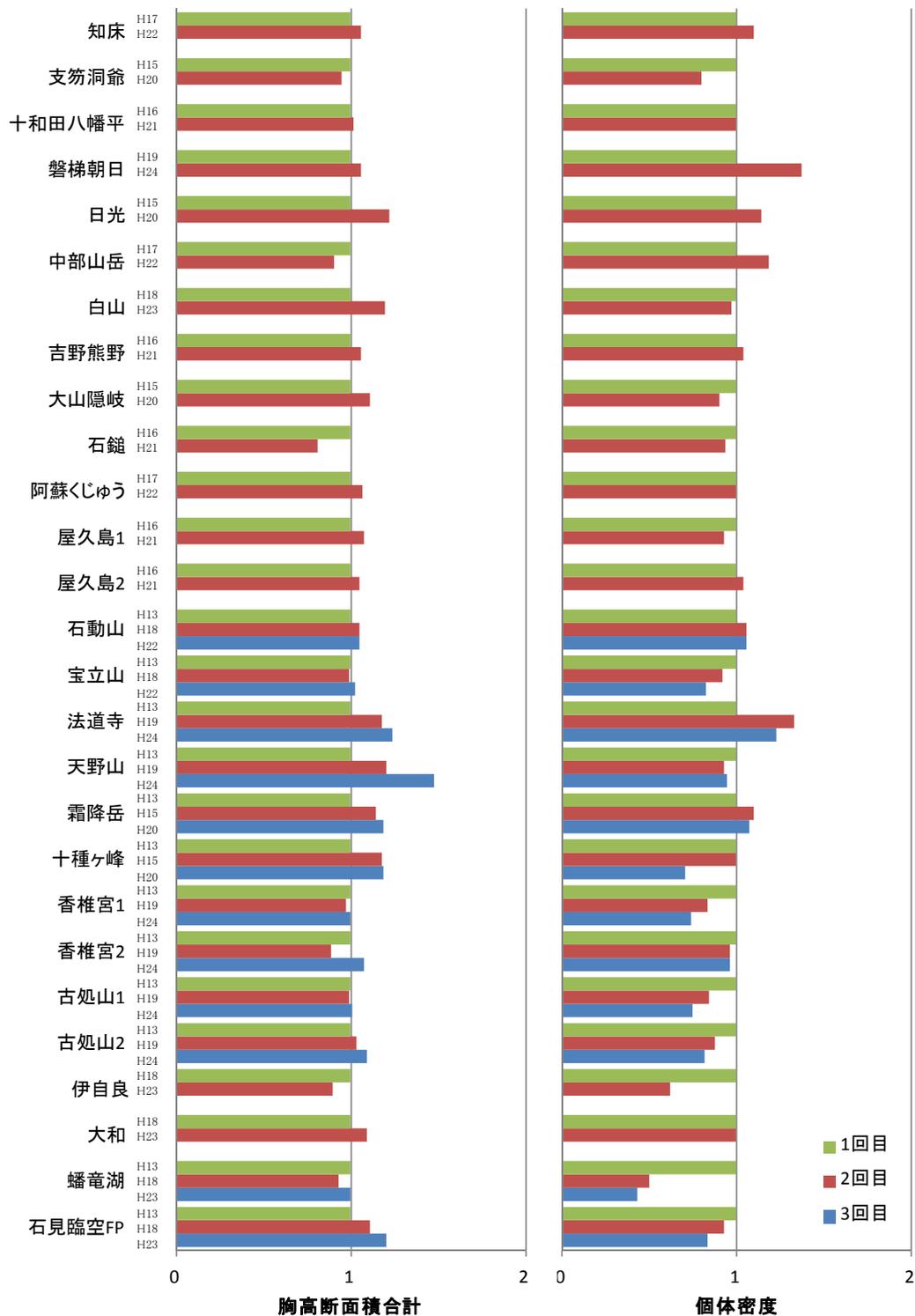


図 3-2-8 毎木調査（胸高直径 4cm 以上）による胸高断面積合計 ($\text{m}^2 \text{ha}^{-1}$) 及び
個体密度 (本数 ha^{-1}) の経年変化

注：図中の値は 1 回目の値を 1 とした 2 回目及び 3 回目調査での比率

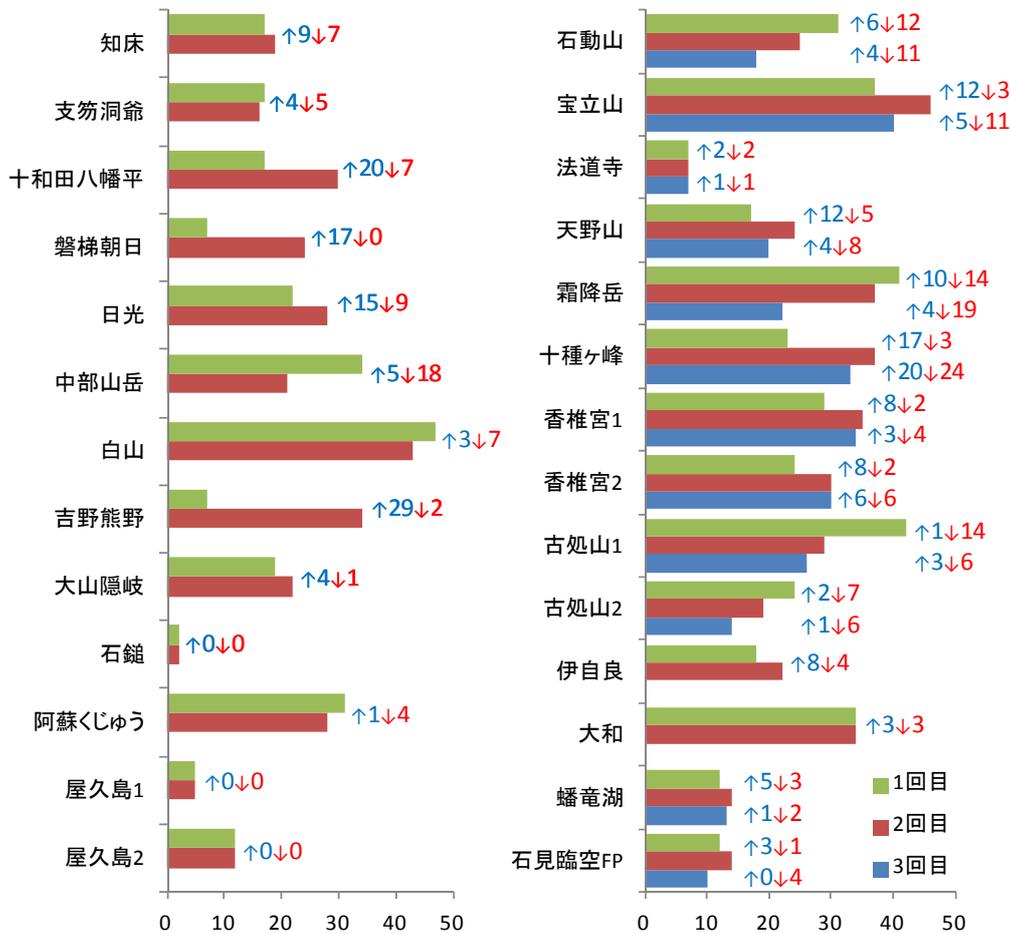


図 3-2-9 下層植生調査による種数の経年変化

注1：種の総数を棒グラフで、新たに出現した種数を青数字、消滅した種数を赤数字で示した。注2：各地点の下層植生調査は毎木調査と同年度に実施している。

(3) 土壌・植生特性に対する大気沈着の影響

森林における土壌化学性の経年変化は森林動態（種数、構造や生産量の変化等）と密接に関連しているため、大気沈着の影響を明らかにするためには土壌のみならず森林動態の全体に影響を与える外部要因を幅広く考慮する必要がある。特に近年ではニホンジカによる林床の裸地化（不嗜好性植物の増加）、マツ・ナラ枯れに代表される病虫害の増加などが全国で報告されており、台風、集中豪雨、豪雪等の増加による気象害も無視できない。本項では、特に大気沈着による影響を最も受けやすい表層土の pH(H₂O)において一貫した上昇・低下がみられた 11 プロットに着目し、土壌と植生の特性（表 3-2-4）及びそれらに影響する可能性のある外部要因（間接的な pH 規定要因）（表 3-2-5）を整理して示した。

表層の pH(H₂O)が低下した 11 プロットのうち、日光、屋久島 2、宝立山、石見臨空 FP の 5 プロットでは pH(KCl)の低下も同時に認められた（表 3-2-5）。pH(KCl)は土壌溶液中に溶

存している酸に加え、土壌の粘土鉱物等に静電的に吸着している酸を含むため、より長期的な土壌酸性の要因となる可能性がある。さらに日光、吉野熊野では塩基飽和度の低下が同時に見られたことから、これらのプロットでは土壌の持つ酸緩衝能の低下を伴って pH が低下した可能性があった。

胸高断面積は森林の衰退・回復の傾向を示す良い指標となる。吉野熊野、石鎚、宝立山を除くプロットでは胸高断面積合計が 5%以上増加（表 3-2-5）していたため、森林が通常の森林成長プロセス（回復）にあつて土壌養分の吸収が進んでいると考えられた。塩基性陽イオンを含む土壌養分の吸収は植物根からの水素イオンの放出を伴うため、短期的な時間スケールでの pH 低下要因になった可能性がある。こうした回復は風雪害（日光、阿蘇くじゅう、大和）や病虫害（石見臨空 FP）による多少の攪乱を受けた通常の生態応答であると推察され、大気沈着の影響と共に土壌 pH に関与すると考えられる。吉野熊野では胸高断面積の変化はほとんど見られなかったものの、下層植生の種数が 7 種から 34 種へと急速に回復していた。これは深刻なニホンジカの食害を防ぐためにシカ防護柵が設置された結果と考えられ、下層植生による養分吸収の増大が表層における pH 低下要因の一つとなった可能性もあった。一方、宝立山とその周辺ではナラ枯れ被害が過去に多く報告されており、枯死木周辺の表土流亡等を通じて pH の低下に影響する恐れもあるが、プロット内のナラ枯れは一部の樹木に限られており、短期的に見ればその可能性は低い。

これらの外部要因のうち特に大気沈着の影響を明らかにするため、後述の 3.2.4 で示す過去 25 年間の酸性沈着を考慮した酸性化リスクマップ（図 3-2-17）の強度を用いた。これによれば表層 pH の低下した吉野熊野、大和において酸性化のリスクは低く（強度 II-III）、pH の変化が上述のようなシカ食害、病虫害、風雪害とその回復に起因した一方で、大気沈着の影響は少なかったと考えられる。日光、阿蘇くじゅう、屋久島については酸性化リスクがやや高い（強度 IV）ものの、各種のかく乱要因と通常の森林成長プロセスも pH 低下に寄与した可能性があり、双方の要因を加味した上での議論が必要である。宝立山と石見臨空 FP ではナラ枯れの他に考慮された外部要因が見られなかったものの、pH の低下と同時に塩基飽和度の増加が認められた。前述のコラムに示したように、外部からの酸の流入は土壌中の塩基性陽イオン等の流亡を伴って pH の低下を引き起こすと考えられており、宝立山と石見臨空 FP の傾向はこれらの仮説に矛盾する。主に有機物層除去の程度に起因する土壌採取時の誤差等がこうした経年変化観測の不確実性要因となっていた可能性があった。一方、宝立山と石見臨空 FP は酸性化リスクが最も高い地域（強度 V）に含まれており、実際に酸性沈着の影響を最も受けやすい赤色土の上に森林が成立している。大気沈着の影響を受けやすい表層のみに pH の低下が見られていることから、両地域で大気沈着由来の酸が土壌の酸性化に一定の影響を及ぼした可能性は否定できない。特に宝立山では地点レベ

ルでの pH 低下が認められ、近傍の輪島試験林においても長期的な pH 低下が観測されている（後述のコラム）ことから、大気沈着による生態系影響を今後も注視する必要がある。

石見臨空 FP では 4.2.1 で後述するオゾンによる推定成長低下率が日光に次いで高い（表 3-2-5）が、これはオゾン感受性の高いスダジイが優占し、推定された AOT40（オゾン暴露量の指標）も比較的高いためである。このプロットでは毎年実施される樹木衰退度で葉色の変化（オゾン影響の指標となる）が報告されている。こうしたオゾンによる樹木影響を加味した土壌酸性化の議論も今後必要になると考えられる。

表 3-2-4 0-10 cm で土壌 pH の一貫した上昇・低下が見られた地点（11/50 プロット）
における土壌・植生の特性

地点名 (プロット 番号)	立地と表層土壌の特性*1							植生の特性*1				
	土壌	斜面方位	傾斜(度)	標高(m)	pH (H ₂ O)	塩基飽和度 (%)	C/N 比	植生タイプ	優占種	樹体密度 (tree ha ⁻¹)	優下層の種	下層の種数
日光(2)	ポドゾル土	北	10	1320	4.3	18	-	天然林	フナ ウラジロ モミ	400	ウラジロ モミ イロハ モミジ	28
吉野熊野 (1)	褐色森林土	-	0	1470	4.1	12	10-13	天然林	フナ ウラジロ モミ	550	ミヤマ スミレ	34
石鎚 (1)	褐色森林土	南	30.5	1470	4.1	9	16-17	天然林	フナ リョウブ	1150	スズタケ	2
阿蘇くじゅう (1)	黒ぼく土	南西	10	1230	4.4	12	16-17	天然林	フナ	417	コックバネ ウツギ タンナサ ワフタギ	28
阿蘇くじゅう (2)	黒ぼく土	南西	10	1230	3.9	11	17-19					
屋久島 1 (1)	褐色森林土	南西 ~北西	27	1140	3.7	32	16	天然林	スギ ハイノキ	1220	ハイノキ ヒサカキ	5
屋久島 2 (1)	褐色森林土	北東 ~南東	24	212	5.4	85	15	天然林	ヒサカキ サカキ	1540	サカキ ヒサカキ	12
宝立山 (1)	赤色土	南西	15	430	4.4	16	18-19	二次林	フナ ミズナラ	2370	ヒメモチ ハイイヌ ツゲ イワウチワ	40
宝立山 (2)	赤色土	南西	15	430	3.4	20	16-20					
大和 (1)	黒ぼく土	南西	10	700	3.9	9	-	人工林	ヒノキ	460	シロモジ	34
石見臨空 FP (1)	赤色土	西北西	19	100	3.9	32	18-21	二次林	スダジイ タブノキ	1300	スダジイ	10

*1 各土壌及び植生の特性値は直近の調査実施年度に得られた情報に基づく。

表 3-2-5 0-10 cm で土壌 pH の一貫した上昇・低下が見られた地点 (11/50 プロット)

における土壌・植生モニタリング項目の経年変化及び考慮した外部要因

土壌 pH の変化が見られた地点 (プロット番号)	土壌化学性の経年変化*1					植生の経年変化			考慮した外部要因							
	深度	pH (H ₂ O)	pH (KCl)	塩基濃度	交換酸度	塩基飽和度	樹木衰退度	胸高断面積	個体密度	下層の種数	ニホンジカ食害	病虫害	風雪害	酸性化リスクマップの強度	推定成長量低下率	オゾンによる
日光 (2)	表層	↘	↘	→	→	↘	樹形・枯損*7	↗	↗	↗	○	×	*8 ○	IV	3.9% (ブナ)	
	次層	↘	↘	→	→	↘		↗	↗	↗	○	×	*8 ○	IV		
吉野熊野 (1)	表層	↘	→	→	→	↘	樹形・枝成長・枯損・落葉率・葉色	→	→	↗	*9 ○	*10 ○	*8 ○	II	2.6% (ブナ)	
	次層	-	-	-	-	-		→	→	↗	○	○	○	II		
石鎚 (1)	表層	↗	→	↗	→	→	樹形・枯損・障害	↘	↘	→	×	○	○	II	2.6% (ブナ)	
	次層	↗	→	↗	→	→		↘	↘	→	×	○	○	II		
阿蘇くじゅう (1)	表層	↘	↗	→	→	→	なし	↗	→	↘	△	×	*8 ○	IV	2.3% (ブナ)	
	次層	↘	↗	↘	→	→		↗	→	↘	△	×	*8 ○	IV		
阿蘇くじゅう (2)	表層	↘	→	→	→	↗	なし	↗	→	↘	△	×	*8 ○	IV	2.3% (ブナ)	
	次層	↘	↗	→	→	→		↗	→	↘	△	×	*8 ○	IV		
屋久島 1 (1)	表層	↘	→	→	→	→	なし	↗	↘	→	△	×	×	IV	0.5% (スギ)	
	次層	↘	→	→	→	↘		↗	→	→	△	×	×	IV		
屋久島 2 (1)	表層	↘	↘	→	→	→	なし	↗	→	→	△	×	×	IV	-	
	次層	↘	↘	→	→	→		↗	→	→	△	×	×	IV		
宝立山 (1)	表層	↘	↘	→	→	↗	枝成長・落葉率	→	↘	↗	×	*11 ○	×	V	2.0% (ブナ)	
	次層	→	↘	→	→	→		→	↘	↗	×	*11 ○	×	V		
宝立山 (2)	表層	↘	↘	→	→	↗	枝成長・落葉率	→	↘	↗	×	*11 ○	×	V	2.0% (ブナ)	
	次層	→	↘	→	→	→		→	↘	↗	×	*11 ○	×	V		
大和 (1)	表層	↘	→	→	↗	→	樹形・枯損	↗	→	→	○	×	*12 ○	III	-	
	次層	→	↗	→	→	→		↗	→	→	○	×	*12 ○	III		
石見臨空 FP(1)	表層	↘	↘	→	→	→	樹形・枯損・葉色・障害	↗	↘	↗	×	*11 ○	×	V	3.3% (スダジイ)	
	次層	→	→	→	→	→		↗	↘	↗	×	*11 ○	×	V		

*1 統計的に有意な増加を ↗ 減少を ↘ で示し、有意差が見られなかった場合に → とした。*2 異常出現率が平均 5% 以上あった項目を示す。*3 5% 以上の増加あるいは減少を ↗ と ↘ で示した (2 回目に増加して 3 回目で減少した場合は ↗ とした)。*4 ○ はプロット内、△ は周辺地域において各種要因の報告があることを示し、× は報告例がないことを示す。*5 過去 25 年間の累積酸負荷量を考慮した土壌の酸性化リスクマップによる強度 (図 3-2-17 を参照 I: 酸性化リスクが低い → V: 酸性化リスクが高い)。*6 2011 年の気象場を用いた AOT40 (図 4-2-1) と樹種別のオゾン応答特性 (4.2.1) より算出された、各プロットの優占種における推定成長量低下率。括弧内は評価対象の樹種を示す。*7 梢端の枯損。*8 平成 16、17 年の台風。*9 平成 16 年にシカ防護柵を設置後は影響なし。*10 ブナハバチ・ブナアオシヤチホコ食害。*11 ナラ枯れの履歴あり。*12 平成 16、22 年の大雪。

土壌化学性の長期変動について（フォローアップ調査の概要）

土壌の長期的な酸性化傾向について確認するため、第3次酸性雨対策調査（平成5～9年度）の調査地点のうち、プロットの保存状況や自治体の実施体制等を考慮し、再調査可能と判断された地点についてフォローアップ調査が実施された。岩手県の磐清水で大幅なpHと塩基飽和度の低下が見られた。輪島試験林や（旧）石動山では表層の塩基飽和度が減少し、輪島試験林の次層でpHの有意な低下が見られた。大牟田や積川神社でみられた塩基飽和度の上昇や磐清水で見られた顕著な酸性化の原因は明らかではないが、輪島試験林と（旧）石動山は3.2.4で述べる酸性化リスクの高い地域に位置しており、近接する現行モニタリングの調査地点（宝立山）における酸性化傾向と矛盾しないため、この地域における長期的な大気沈着影響の可能性が示唆された。

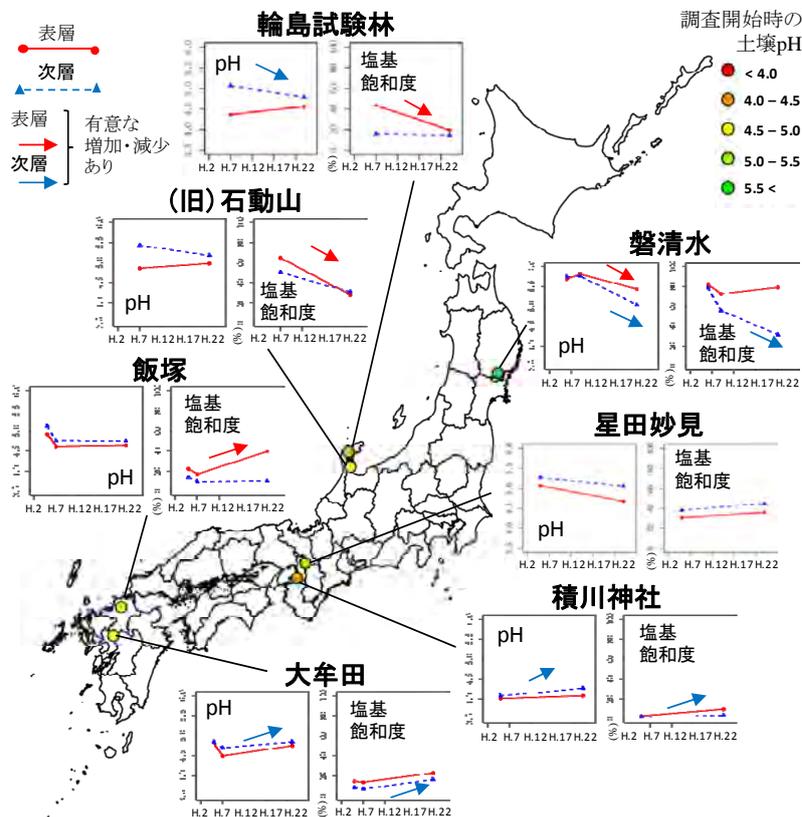


図 フォローアップ調査地点における土壌表層及び次層における pH(H₂O)と塩基飽和度の経年変化（平成5～24年度）各地点を示す丸点の色は調査開始年度の表層 pHを示す。
注：各地点の表層及び次層の層位区分については参考表 2-64 を参照。各地点で設定された5つのサブプロットのデータを基に、分散分析を用いて経年変化の有意差を検定した（ $p < 0.05$ ）。各地点の土壌種：磐清水（黒ぼく土）、輪島試験林（赤色土）、（旧）石動山（褐色森林土）、星田妙見（褐色森林土黄色系）、積川神社（褐色森林土）、飯塚（褐色森林土赤色系）、大牟田（褐色森林土黄色系）。

3.2.2 陸水モニタリング

(1) 平成 20～24 年度における陸水モニタリング結果

陸水モニタリングでは、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 [5]⁴を対象に 11 地点を選定し、年 4 回のモニタリングを実施した。

各調査地点の集水域の特徴を表 3-2-6 に示した。流紋岩やチャート等の比較的酸に対する緩衝能が低いと考えられる地質にある湖沼が多い。また今神御池、刈込湖、双子池等のように、ポドゾル性土壌が分布する比較的高地に位置する湖沼もある。

表 3-2-6 各調査地点の集水域の特徴

	湖沼名	表層地質	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	乾性ポドゾル化土壌等	ブナ・チシマザサ群落等
栃木県	刈込湖	流紋岩・安山岩	乾性及び湿性ポドゾル等	オシラビソ・シラビソ・コマツガ等
長野県	双子池	溶岩（横岳溶岩群・双子峰溶岩）	湿性腐食型弱ポドゾル土	ミドリキササグサ群落等
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	クヌギ群落とスギ・ヒノキ・ササ植物
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	コハクツバツツジ、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

上記調査地点の湖沼表層水及び流入河川水の水質について、平成 20～24 年度の 5 年間の平均値を表 3-2-7 に示した。本調査対象地点の大部分は $0.200 \text{ mmol}_c \text{ L}^{-1}$ 以下の低アルカリ度であった。特に、双子池（雌池）、夜叉ヶ池及び沢の池はアルカリ度が $0.030 \text{ mmol}_c \text{ L}^{-1}$ 以下、pH が 5.8 以下であり、酸感受性が高い湖沼として確認された。一方、永富池は他の地点に比べて比較的高いアルカリ度及び pH を示していた。NO₃⁻濃度では、伊自良湖の流入河川である釜ヶ谷川（伊自良湖への主要流入河川、過去の報告書では伊自良川とも記述された）が最も高い値を示し、同じく流入河川の孝洞川、及び伊自良湖も比較的高い値を示した。さらに、山居池及び蟠竜湖では比較的高濃度の Cl⁻や Na⁺が認められ、これらの湖沼が海塩の影響を受けていることが推測された。

⁴ EANET ではアルカリ度 $0.200 \text{ mmol}_c \text{ L}^{-1}$ 以下、EC 10 mS m^{-1} 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^{-1} 以下を基準とすべきであると提言されている。

表 3-2-7 各調査地点の水質（平成 20～24 年度）

湖沼名	採水地点	pH	EC (mS m ⁻¹)	アルカリ度 (mmol _e L ⁻¹)	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	NH ₄ ⁺	Na ⁺	K ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	
					(μmol _e L ⁻¹)								
山形県	今神御池	湖心表層	6.16	4.09	0.064	83.1	*1	187	*1	248	11.8	29.0	48.3
栃木県	刈込湖	湖心表層	6.87	3.37	0.167	112	3.86	19.6	*1	131	14.8	130	16.5
長野県	双子池(雄池)	湖心表層	7.05	1.83	0.114	33.8	15.2	10.0	*1	49.3	6.88	106	16.3
	双子池(雌池)	湖心表層	5.74	0.66	0.020	26.3	3.24	9.22	0.65	13.0	4.39	19.7	6.83
新潟県	山居池	湖心表層	6.90	9.28	0.112	96.0	*1	550	*1	522	31.8	80.1	114
石川県	大島池	湖心表層	6.70	4.50	0.146	34.8	10.8	186	3.06	199	28.4	66.6	79.5
福井県	夜叉ヶ池	湖心表層	5.30	1.66	0.012	38.5	7.56	62.1	3.57	60.7	8.52	18.8	17.3
岐阜県	伊自良湖	湖心表層	7.09	3.99	0.166	102	22.6	56.4	0.63	85.2	6.42	147	106
	釜ヶ谷川	流入河川	7.00	4.24	0.147	127	32.1	56.9	*1	89.1	6.48	147	118
	孝洞川	流入河川	6.89	3.63	0.132	96.4	23.7	60.1	*1	97.5	5.54	96.3	109
京都府	沢の池	中央表層	5.74	1.71	0.027	35.2	*1	79.7	*1	64.2	6.93	35.2	31.1
島根県	蟠竜湖	湖心表層	7.01	10.6	0.167	85.3	2.47	647	1.97	614	47.3	82.7	155
	蟠竜湖 No.3	湖心表層	6.99	10.4	0.173	87.9	2.50	633	1.93	606	47.6	88.8	156
山口県	山のロダム	湖心表層	6.56	6.13	0.097	102	8.97	292	*1	342	25.6	67.0	72.6
香川県	永富池	湖心表層	7.25	8.65	0.428	162	27.7	135	3.12	319	23.7	365	92.9

*1 定量下限値又は検出下限値未満。注：測定値が下限値未満の場合は 0 とみなし平均値を計算した。なお、pH の平均値は水素イオン濃度の算術平均とした。

上記 5 年間の平均値 (pH は H⁺ に換算) について、水質を特徴づける各分析項目を変数とした主成分分析⁵を行い、情報の集約化と解釈を試みた。その結果、変数間の分散を示す主成分負荷量 (a)、並びに調査地点毎の主成分得点 (b) が得られた (図 3-2-10)。なお、永富池は、他湖沼と比べてアルカリ度や Ca²⁺濃度が比較的高く、分析に含めると他の地点の傾向が分かりにくくなるため除外した。主成分負荷量 (a) 及び主成分得点 (b) について、第一主成分を X 軸、第二主成分を Y 軸として図示し、水質と調査地点の傾向を分類した。なお、第一主成分は 50.6% の情報量を集約し、第二主成分は 29.5% の情報量を集約していたことから、この 2 成分で約 80% が説明された。

各項目の主成分負荷量 (a) の結果より、EC 及び多くのイオン種が正方向に分布していることから、X 軸方向の第一主成分は、湖沼水又は河川水の「イオン濃度の高低」を示していると考えられた。特に、Na⁺や Cl⁻が大きな負荷量を示すことから海塩の影響を表している可能性があった。一方、Y 軸方向の第二主成分は、「水質の酸性度」を示していると考えられた。このことは、Ca²⁺やアルカリ度の分布に対し、H⁺が反対方向に分布していることから推測された。この第二主成分上では、正方向に SO₄²⁻や NO₃⁻の負荷量が大きく、本調査で解析対象となった湖沼・河川においては、これらの酸の多くが生態系内で中和され、

⁵ 複数の変数間の相関 (相関係数行列) を少数の合成変数 (主成分) で説明する統計手法。ここでは、分析結果は、バリマックス法回転により算出したものを用いた。

Ca²⁺等を伴い流出しているように考えられた。以上の結果より、図の第3象限は、酸性度が高かつ溶存イオン濃度が低い水質を示しており、酸性化に注意を要すると考えられる。

次に、各調査地点の主成分得点 (b) の結果より、各地点の特徴を確認したところ、今神御池、沢の池、双子池（雌池）及び夜叉ヶ池がそれぞれ第3象限に分布した。上述したようにこれらの湖沼は酸感受性が高いと考えられ、今後の酸性化傾向に留意する必要がある。一方、伊自良湖集水域（伊自良湖、釜ヶ谷川、孝洞川）では、酸性度はこれらの湖沼に比べ高くはないものの SO₄²⁻や NO₃⁻の濃度が高いことが特徴と考えられた。さらに、日本海沿岸に位置する山居池と蟠竜湖では、海塩由来の Na⁺や Cl⁻のほか、Mg²⁺や K⁺などの主要な陽イオンの濃度が高いことが確認された。

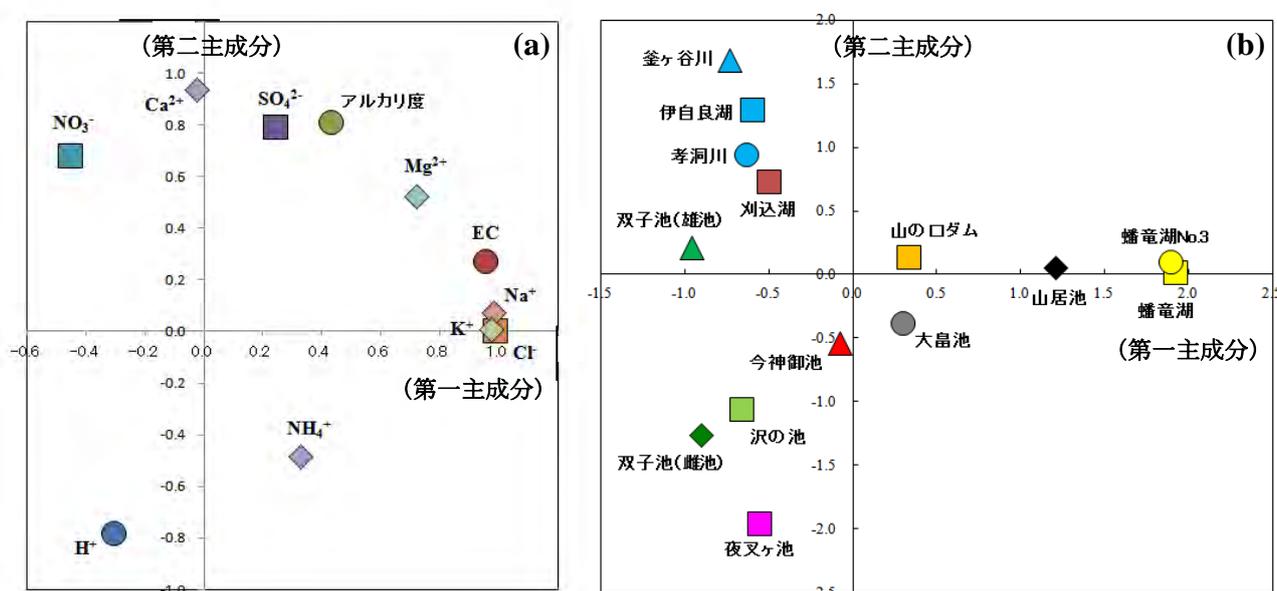


図 3-2-10 主成分分析における主成分負荷量 (a) 及び各地点の主成分得点 (b)

(2) 陸水の長期的傾向

表 3-2-8 に各調査地点における主要成分の長期トレンド解析結果を示した。全ての調査地点において、モニタリングを開始して以降、少なくとも 10 年は経過している。解析には年 4 回サンプリングの季節性を考慮した季節性 Mann-Kendall 検定 [6]を用いた。Mann-Kendall 検定とは、時間順序と観測データの順序の間の順位相関を用いたノンパラメトリックな検定方法で、データ間の差が正か負かの情報に基づいて上昇あるいは低下傾向性を検定する。ここでは、有意判定の際に用いる有意水準をそれぞれ 5% ($p = 0.05$), 1% ($p = 0.01$), 0.1% ($p = 0.001$) とした。

トレンド解析の結果、各調査地点の湖沼表層水及び流入河川水のうち、夜叉ヶ池及び釜ヶ谷川において pH の有意な低下傾向 ($p < 0.05$ 及び 0.01) が確認された。成分別に見ると、

アルカリ度では、夜叉ヶ池で有意な低下傾向 ($p < 0.001$) が見られたほか、双子池 (雌池) 及び永富池でもそれぞれ有意な低下傾向 ($p < 0.05$ 及び 0.01) が確認された。また、 SO_4^{2-} では双子池 (雄池) が、 NO_3^- では釜ヶ谷川が、それぞれ顕著に有意な上昇傾向 ($p < 0.001$) を示していた。なお、イオン種全般では、蟠竜湖及び蟠竜湖 No. 3 で多くの有意な上昇傾向が確認された。

前述の主成分分析における分析結果と併せ考えると、夜叉ヶ池は他の湖沼に比べ酸感受性が高く、酸性化が進行中であることが示唆された。また、伊自良湖集水域でも、 NO_3^- 濃度の上昇は主成分分析の結果とも一致していることから、今後はこれらの濃度変化についても留意する必要があると考えられる。

表 3-2-8 湖沼表層水及び流入河川水の水質長期トレンド解析結果

湖沼名	解析開始年	N	Z-score										
			pH	EC	アルカリ度	SO_4^{2-}	NO_3^-	Cl^-	NH_4^+	Na^+	K^+	Ca^{2+}	Mg^{2+}
今神御池	2001	46	-0.58	-0.04	-0.22	2.03*	0.3	0.65	1.15	3.12**	1.36	0.11	1.39
刈込湖	2003	40	1.3	1.44	2.24*	-2.82**	-1.71	-1.51	1.04	-0.58	0.59	0.76	1.34
双子池(雄池)	1998	45	3.17**	1.04	1.9	4.38***	-1.16	-3.36***	-1.52	3.55***	-0.36	2.99**	1.29
双子池(雌池)	1998	45	-0.8	-2.64**	-2.31*	0.59	-3.4***	-2.56**	-2.07*	1.43	-1.29	-2.28*	-3.74***
山居池	2001	47	-0.5	1.24	1.83	2.83**	-1.29	0.21	-2.24*	0.42	-0.18	-0.81	-0.78
大島池	2003	39	2.52*	4.32***	2.93**	-0.09	2.36*	-1.76	0.13	0.46	3.85***	1.77	3.99***
夜叉ヶ池	2000	49	-2.06*	-1.8	-3.68***	-2.03*	0.53	-2.79**	-2.38*	-2.19*	0	-2.04*	-2.77**
伊自良湖	1989	95	-0.49	3.25**	5.62***	-0.89	2.71**	-1.93	-1.67	-1.54	-4.32***	1.37	0.04
釜ヶ谷川	1989	96	-3.04**	1.61	2.16*	-0.89	4.04***	-1.02	-5.52***	-0.32	-2.53*	-0.62	-0.66
孝洞川	1989	74	1.81	3.57***	2.18*	1.93	2.25*	-1.69	-5.05***	1.02	-1.27	-0.18	0.39
沢の池	2003	40	1.97*	-1.4	2.72**	-0.58	-1.42	-2.38*	0	0.13	0.82	2.74**	1.24
蟠竜湖	1989	96	1.79	6.91***	5.43***	-2.73**	0.41	7.19***	0.3	7.34***	2.4*	2.21*	6.23***
蟠竜湖No.3	1989	96	2*	5.88***	6.07***	-1.83	0.84	6.5***	-0.15	7.21***	1.94	3.61***	5.15***
山のロダム	2003	40	-0.85	2.19*	-1.84	2.78**	0.31	1.57	-0.88	2.33*	2.27*	1.12	0.18
永富池	2003	40	-0.49	-2.29*	-2.56**	-2.74**	-0.58	-3.6***	-0.49	-0.99	-1.72	-2.43*	-1.93*

注：Z-score は変化傾向を検定するための統計量を表し、正の値が上昇傾向、負の値が低下傾向をそれぞれ意味する。なお、表中の*/**/**を付した値は、トレンド検定を行った結果、それぞれ、有意水準 5%、1%、0.1% で有意差が認められたことを示す。

特に、pH の有意な低下傾向が認められた夜叉ヶ池並びに伊自良湖集水域の釜ヶ谷川について、図 3-2-11 に各成分の経年変化を示した。有意な変化傾向が見られた項目については、図中に有意水準及び Z-score とともに矢印で上昇あるいは低下の傾向を示した。夜叉ヶ池は、釜ヶ谷川と比べると pH やアルカリ度が著しく低い。日本海に近い (約 20 km) 夜叉ヶ池山と三周ヶ岳との稜線付近にある夜叉ヶ池は、周囲に発生源はなく、溶存有機炭素 (DOC) の濃度が低く火山由来の湖沼でもないため、大気沈着の影響を直接的に反映し、酸性化が進行している可能性が考えられた。

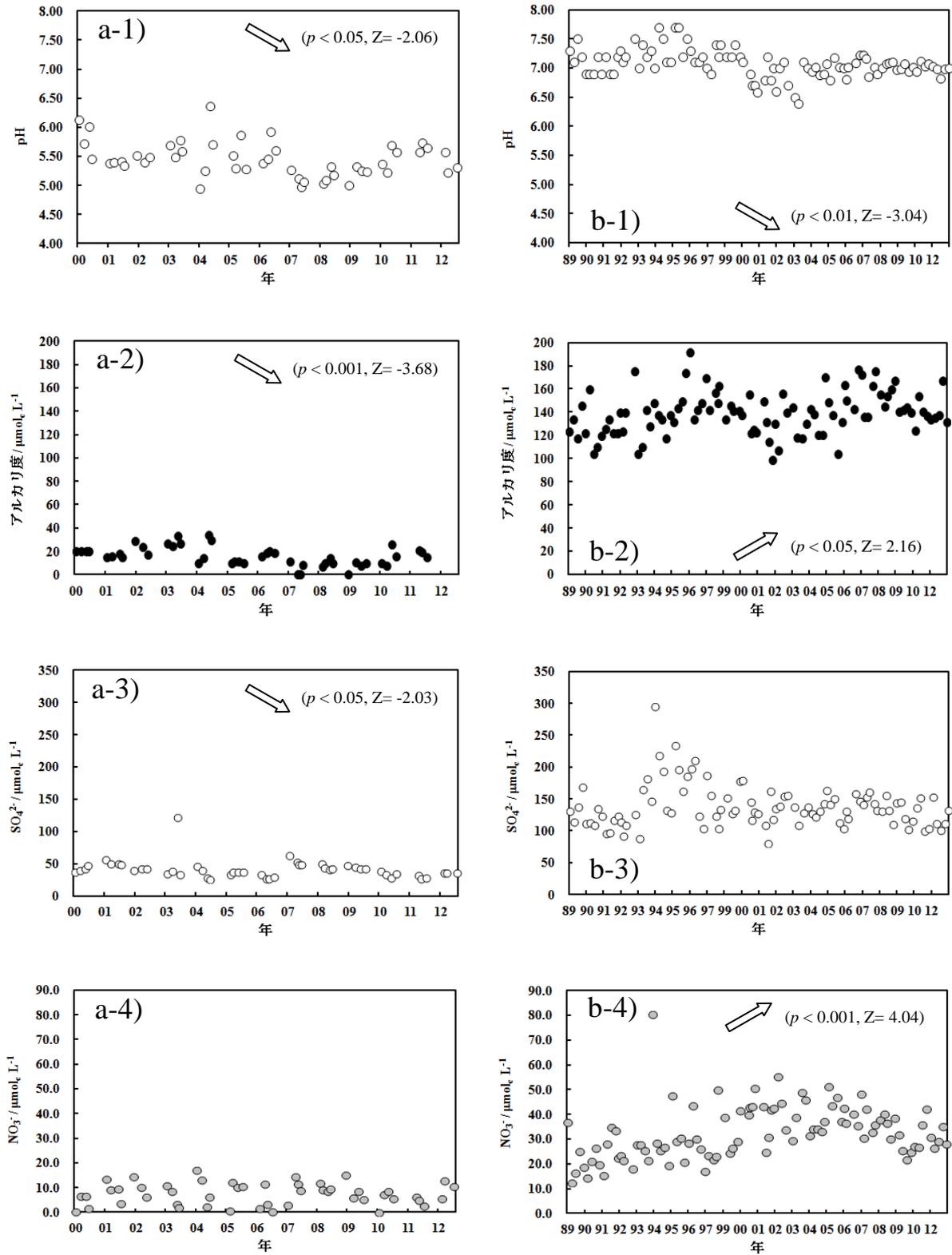


図 3-2-11 夜叉ヶ池表層水 (a) 及び釜ヶ谷川 (b) における pH、アルカリ度、 SO_4^{2-} 及び NO_3^- の経年変化

注1：各グラフは、a-1, b-1: pH、a-2, b-2: アルカリ度、a-3, b-3: SO_4^{2-} 、a-4, b-4: NO_3^- を示す。注2：夜叉ヶ池表層水のアルカリ度 (a-2) における 2007 年及び 2009 年データと、同じく夜叉ヶ池表層水の NO_3^- (a-4) における 2010 年データには、それぞれ定量下限未満値が含まれる。

3.2.3 集水域モニタリング

(1) 流入・流出収支

集水域モニタリングでは、集水域という一定面積において、大気沈着から河川水までの流入・流出過程をモニタリングすることにより、大気沈着と河川水質をより関連づけて考察するとともに、大気沈着による生態系影響を定量的に評価することが期待されている。岐阜県伊自良湖集水域では、1994年から1996年にかけてNO₃⁻、SO₄²⁻及びAlの特異的な高濃度流出やそれに伴うpHの低下傾向が指摘され [7]、それを受けて平成17年度（2005年度）から19年度まで行われた集中調査を基礎として、平成20年度（2008年度）から集水域モニタリングが定期モニタリングとして開始された。

①水収支

伊自良湖集水域では、降水及び河川流出の季節性を考慮して、比較的降水量も河川からの流出量も少ない11月初旬から翌年の同時期までを1水年とした。過去5水年における降水量、河川流出量及び流出率を表3-2-9に示した。降水量は、伊自良湖測定所で最も少なく、最も多い赤谷のそれと比較すると15-25%程度少なかった。そのため、②で示す集水域全体の物質収支の計算においては、湿性沈着による流入量は平均降水量を用いて補正を行った。流出率は、降水量が著しく多かった2009-2010水年を除けば、日本の森林集水域における既報値（降水量3000mmで60-70%程度 [8]）より低めであり、流出量を過小評価している可能性も考えられた。

表 3-2-9 各水年における降水量、河川流出量及び流出率

水年		2007-2008	2008-2009	2009-2010	2010-2011	2011-2012
降水量 (mm)	赤谷	2956	3547	4522	3913	3276
	伊自良湖測定所	2253	2678	3920	3157	2732
	青少年の家・湖岸	2793	2712	3717	3583	2986
	平均	2667	2979	4053	3551	2998
河川流出量 (mm)		1397	1677	2687	1703	1496
平均降水量に基づく流出率*1(%)		52	56	66	48	50
(赤谷の値に基づく流出率)		(47)	(47)	(59)	(44)	(46)

*1 河川流出量を降水量の平均で除して算出。

②主な物質の流入量・流出量

集水域への大気からの物質流入量は、国内 EANET 局でもある伊自良湖酸性雨測定所の湿性沈着及び乾性沈着モニタリングのデータを基に、湿性沈着量及び乾性沈着量の和として 1 年間の総沈着量を推計した。その際、湿性沈着量は、上述した斜面における降水量分布も考慮し、3 地点の平均値を用いて補正を行ったため、測定所における湿性沈着量よりは若干大きい値になっている。乾性沈着量は、EANET 乾性沈着量推定マニュアル [9]に従い、3.1.3 で用いられた推定 (Inferential) 法により算出した。河川からの 1 年間の物質流出量は、2 週間に 1 回分析された釜ヶ谷川の河川水濃度と河川流出量を基に算出した。

表 3-2-10-a 各水年の主な物質の年間流入量 (大気沈着量)

水年		SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	NH ₄ ⁺	Ca ²⁺	N
		kmol _c ha ⁻¹					kg ha ⁻¹
2007	2008	1.0	0.7	0.5	0.5	0.1	17.1
2008	2009	1.0	0.6	0.5	0.6	0.2	17.3
2009	2010	0.9	0.6	0.6	0.5	0.2	15.7
2010	2011	1.0	0.6	0.7	0.6	0.2	16.4
2011	2012	0.8	0.5	0.6	0.5	0.1	14.6

注 1 : 湿性沈着量と乾性沈着量の和として算出。注 2 : 湿性沈着量は、上述した斜面における降水量分布も考慮し、3 地点の平均値を用いて補正を行った。注 3 : mol_c は、イオンの量を電荷のモル数で示すもの。

表 3-2-10-b 各水年の主な物質の年間河川流出量

水年		アルカリ度	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	NH ₄ ⁺	Ca ²⁺
		kmol _c ha ⁻¹					
2007	2008	2.2	2.1	0.6	0.9	ND ^{*1}	2.1
2008	2009	2.4	2.2	0.7	1.0	0.001	2.0
2009	2010	3.6	3.2	0.8	1.5	0.054	3.0
2010	2011	2.0	2.1	0.6	0.9	0.004	2.1
2011	2012	2.0	2.0	0.5	0.8	0.002	1.9

注 : アルカリ度は pH4.8 法による。*1 NH₄⁺濃度が年間を通じて定量下限未満の場合、流出量も定量下限未満 (ND) とした。

物質流入量は、降水量が著しく異なっていたにも関わらず、水年による変化はほとんどなかった (表 3-2-10-a)。ここで得られた推計結果は、前回のとりまとめにおける 2006-2007 水年のそれと同じレベルであった [7]。窒素の総沈着量は、これまでの推計結果同様、河川

への NO_3^- 流出の閾値といわれる 1 年当たり 10 kg N ha^{-1} を大きく上回ったが、2007-2009 年の 2 水年と比較すると、2009-2012 水年の沈着量は若干低めであった。一方、流出量は、流量を反映して、2009-2010 水年は物質流出量も前の 2 水年より多く推計された (表 3-2-10-b)。

物質流入量と物質流出量を比較すると、 SO_4^{2-} 、 Cl^- 及び Ca^{2+} では、流出量が流入量を大きく上回っていた。前回のとりまとめにおける推計 [7] と同様に、 SO_4^{2-} の流出量は流入量の 2 倍以上であり、特に 2009-2010 水年には 3 倍以上にもなった。また、窒素については、溶存無機態窒素 ($\text{NO}_3^- + \text{NH}_4^+$) の流入量 ($1.0 - 1.1 \text{ kmol}_c \text{ ha}^{-1}$) の 50 - 80% 程度 ($0.5 - 0.9 \text{ kmol}_c \text{ ha}^{-1}$) が、 NO_3^- 又は NH_4^+ として流出していた (NH_4^+ は生態系内で硝化されるため、ほとんど NO_3^- として流出していた)。

Ca^{2+} については、土壤中に多く吸着・蓄積されているものが流出したと考えられるが、 Cl^- は生態系内でほとんど利用されないと考えられており、流入量と流出量が同程度になることが多いとされている。これを考慮して、仮に Cl^- の流入量が流出量と同程度であったとして、 SO_4^{2-} の流入量を Cl^- との組成比に合わせて増やしたとしても、5 水年の平均 SO_4^{2-} 流入量は $1.7 \text{ kmol}_c \text{ ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$ であり、平均の流出量 ($2.3 \text{ kmol}_c \text{ ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$) はそれを上回っていると考えられる。近年、過去に硫黄沈着量が多かった北米の集水域において、流入量以上に SO_4^{2-} が流出していることが報告されており、蓄積していた SO_4^{2-} が流出している可能性が示唆され、 SO_4^{2-} の流出は H^+ の生成を伴うことから、酸性化からの回復を遅らせる要因の一つとして着目されている [10]。鉱物由来の硫黄の可能性も考慮する必要があるが、平成 15~17 年度の集中調査時に実施された伊自良湖集水域内の土壌断面調査では、代表的な含硫黄鉱物であるパイライト (黄鉄鉱: FeS_2) は検出されず、地質面からの大きな影響は確認されていない。一方で、3.2.4 で議論する要監視地域の抽出作業により、伊自良湖集水域を含む岐阜県山間部で過去 25 年間の硫黄累積沈着量が全国的にも高いことが明らかとなった。また、それ以前の我が国の高度成長期には、さらに急速な沈着量の増大があったことが示唆されており [11]、その頃からの大気由来の硫黄の蓄積も考慮する必要がある。伊自良湖集水域内の土壌は、関東や中部に分布する岩石性土壌の中でも、酸性度が高く硫黄の蓄積能が高いことが示唆されており、全硫黄に占める有機態硫黄の割合が高いことが報告されている [12]。伊自良湖でも北米のケースと同様に、これまでに生態系内に蓄積した硫黄の流出が生じている可能性が考えられた。窒素飽和していると考えられる本集水域では、多くの窒素が生態系内で利用されず流出していることが示唆されたが、まだその流出量は流入量よりは少なく、流入した窒素の一定量は生態系内で消費・蓄積されており、生態系が窒素の放出源になるような段階 (Stage 3) [13] [14] には至っていないと考えられた。

③ 乾性沈着の不確実性の検討

②では詳述していないが、本地域の総沈着量に占める乾性沈着の寄与率は、多くの項目で10%未満であった。乾性沈着の推計に用いた Inferential 法が、本来斜面地に適用することを想定していないことに加え、伊自良湖測定所は谷間に位置するため風速が過小評価されている可能性が指摘されている。そのため、上記物質収支における乾性沈着の不確実性について、特に乾性沈着速度に大きな影響を及ぼす風速に着目し、伊自良湖測定所から東西南北10~20 km に位置するアメダス局（岐阜、美濃、樽見、揖斐川）の風速データを用いて乾性沈着速度を試算し、伊自良湖測定所データの不確実性を検討した。その他の気象要素は伊自良湖測定所のデータを用いた。

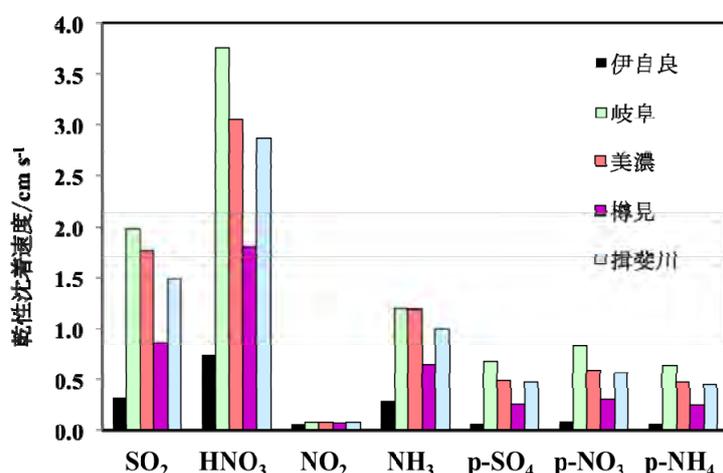


図 3-2-12 伊自良湖測定所及び近傍のアメダス局の風速データを用いた時の年平均乾性沈着速度（2010-2011 水年）

注：p-SO₄、p-NO₃、及び p-NH₄ は、それぞれの粒子状物質を示す。

伊自良湖測定所の年平均風速は 0.4 m s^{-1} とアメダス局に比べて顕著に低く、年間の約 25% が風速 0 であった。アメダス局については平均値が $1.1 \sim 2.6 \text{ m s}^{-1}$ の範囲にあり、平野部の岐阜局で数値が高かった。2010-2011 水年における近傍のアメダス局の風速データを用いて算出した乾性沈着速度を図 3-2-12 に示した。伊自良湖測定所の大気濃度の代表性について考慮する必要はあるものの、これらの沈着速度を用いて乾性沈着量を算出すると、硫黄化合物の乾性沈着量は伊自良湖測定所よりも 2.3~4.4 倍、窒素化合物の乾性沈着量は 2.4~5.6 倍大きい値になる可能性があった（図 3-2-13）。

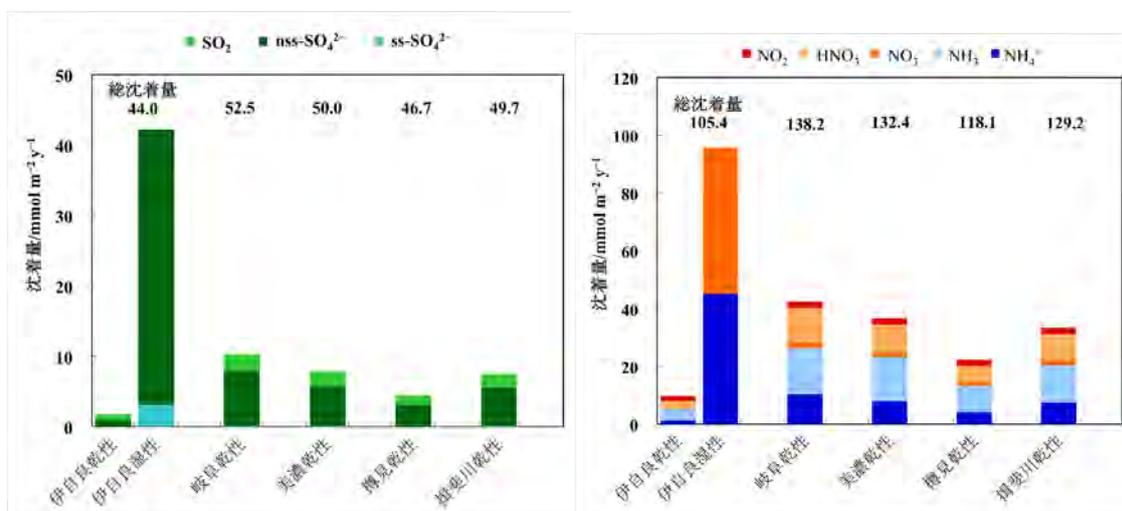


図 3-2-13 伊自良湖測定所及び近傍のアメダス局の風速データを用いた時の硫黄化合物（左）及び窒素化合物（右）の乾性及び湿性の年間沈着量（2010-2011 水年）

注 1：図中の総沈着量は、各アメダス局の気象データを用いて推定された乾性沈着と伊自良湖測定所の湿性沈着の和である。注 2：ここで示した湿性沈着量は伊自良湖測定所の実測値であるため、降水量分布で補正した湿性沈着量を用いた表 3-2-10-a の総沈着量とは値が若干異なる。

伊自良湖集水域における物質収支の議論の大きなポイントとしては、上述したように特に硫黄において、大気からの流入量以上に渓流水に流出している点である。2010-2011 水年の場合、推定された SO_4^{2-} の年間流出量は $2.1 \text{ kmol}_c \text{ ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$ ($103 \text{ mmol m}^{-2} \text{ y}^{-1}$) であった。図 3-2-13 上で示された最も乾性沈着量が多くなる岐阜局のケースでも、その総沈着量は $52.5 \text{ mmol m}^{-2} \text{ y}^{-1}$ であり、流出量の 50%未満であった。伊自良湖集水域全体への湿性沈着量は、伊自良湖測定所に比べ斜面上部でより降水量が多い可能性があり（表 3-2-9）、2010-2011 水年では、2 割程度斜面上部の降水量が多かった。その点を考慮したとしても、流入量に比べ流出量が著しく多いと考えられる。よって、硫黄の流入・流出収支については、乾性沈着の不確実性を考慮したとしても、これまでの議論と同様の結論が導き出せると考えられた。

しかしながら、硫黄及び窒素化合物のいずれのケースにおいても、伊自良湖測定所における推計値は過小評価である可能性が示されたため、今後、乾性沈着並びに総沈着量等の評価においては、これらの不確実性についても考慮すべきであると考えられた。

(2) 伊自良湖流入河川の水質の経年変化

湿性沈着量が全国のモニタリング地点で最も多い伊自良湖集水域では、1990 年代から河川水の pH やアルカリ度の低下傾向 [11]や NO_3^- 濃度の上昇傾向、更に土壌の酸性化傾向も見られ、窒素飽和が進んでいることが示唆されている [15]。また、今回も確認されたよう

に、 SO_4^{2-} の大气からの流入量に比べ河川からの流出量が著しく多く、過去に蓄積した硫黄が流出している可能性が指摘されている [7]。

釜ヶ谷川の主な水質について、河川流出量を加味した各水年の加重平均濃度を表 3-2-11 に示した。pH は横ばいかやや上昇気味であり、アルカリ度や SO_4^{2-} 濃度には一定の傾向は見られなかった。 NO_3^- 濃度は変動しているものの、2005-2008 年の 3 水年に比べると、2009-2012 年の 3 水年の値は低かった。大气からの流入量も近年低めであったため、それを反映した可能性も考えられた (表 3-2-10-a)。

伊自良湖集水域内の窒素飽和が進行したきっかけは、酷暑・干ばつの気象イベント後の無機窒素の放出と樹木成長量の低下に伴う窒素吸収の低下と考えられている [15]。集水域全体の詳細な施業記録は明らかではないが、人工林が多くを占める伊自良湖集水域内では 2002-2004 年、また 2006-2007 年に間伐が林班毎に段階的に実施されたことが記録されており、河川中の NO_3^- 濃度がそれ以降低めであることから、これらの施業により、森林の健全性が高まり窒素吸収が増大したことが影響している可能性はある。一方で、釜ヶ谷川流域の 2 地点では 2008-2009 水年以降、一時的に水温と NO_3^- 濃度との間に負の相関が見られるようになり、森林による窒素吸収の回復の兆候とも考えられたが、2010-2011 水年以降は再び水温と NO_3^- 濃度の関係は不明瞭となり、夏季においてもまだ高い NO_3^- 濃度が見られている (図 3-2-14)。また、pH やアルカリ度にも目立った変化は見られていないことから、現時点では、窒素飽和からの回復傾向はまだ明確ではない。また、上述したように、 SO_4^{2-} は流入量以上に流出しており土壌表層に蓄積していることも示唆されたため、今後更に注意深く監視していくことが重要であると考えられた。

表 3-2-11 伊自良湖集水域釜ヶ谷川における河川水質の各水年の加重平均濃度

水年		pH	アルカリ度	SO_4^{2-}		NO_3^-
				(μmol _e L ⁻¹)		
2005	2006	6.8	127	121	42.9	
2006	2007	6.9	137	139	41.3	
2007	2008	6.8	156	147	43.0	
2008	2009	7.0	142	131	39.3	
2009	2010	7.0	135	121	29.4	
2010	2011	6.8	120	120	36.4	
2011	2012	6.8	136	132	30.1	

注：各水年の RW1 における年間流出量を基に算出。

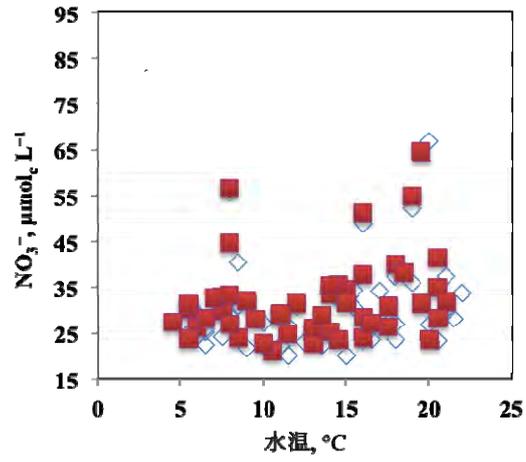


図 3-2-14 釜ヶ谷川における 2010-2012 水年の水温と NO₃⁻濃度との関係

注：流量が 0.5 m³ s⁻¹ を超えるような高流量時のデータは除いた。

3.2.4 生態系影響の要監視地域に関する抽出方法の検討

(1) 土壌・陸水酸性化の要監視地域

酸性沈着の土壌への影響は、酸に対して化学的特性が変化しやすい土壌（＝感受性が高い土壌）と、酸に対して化学的特性が変化しにくい土壌（＝感受性が低い土壌）によって異なる。陸域生態系の酸性化は、土壌・植生・地質の酸感受性が高く、かつ人為由来の酸沈着が多い地域で生じやすい（酸性化のリスクが高い）可能性があり、そのような地域を要監視地域として抽出することが求められる。本項では、大気質モデルによるシミュレーションを基に算出した25年間の酸累積負荷量及び土壌・植生・地質の地理情報を用い、陸域生態系の重要な構成要素である土壌・陸水の酸性化リスクを半定量的に評価・マッピングし、要監視地域を抽出した。

(2) 使用したデータとマッピングの方法

「酸感受性の高い土壌・地質を持ち、かつ過去の累積的な酸負荷が多い森林地域では土壌・陸水の酸性化リスクが高い」という仮定に基づいて各リスク要因を重み付けし、酸性化リスクの強度を評点化した。酸性化リスクに対する酸負荷量と酸感受性の重みは等しく、また、土壌の酸性化リスクは土壌の感受性を反映する一方で陸水の酸性化リスクは土壌と地質の感受性を等しく反映するものとした（図3-2-15）。評価グリッドの一辺を20kmとし、森林植生⁶が75%以上を占める集水域を抽出して評価対象とすることで、大気沈着影響の考慮が困難な農地・市街地及び大河川の中・下流域を除外した。化学輸送モデルCMAQ ver.4.4（空間解像度80km）により1981年から2005年までの東アジアにおける各化学種の沈着量を計算[16][17][18]し、硫黄・窒素酸化物及びNH₃（又はNH₄⁺）の湿性・乾性による沈着量を25年間にわたり積算したものを酸累積負荷量（図3-2-16）とした⁷。日本の陸域における酸累積負荷量の分布を自

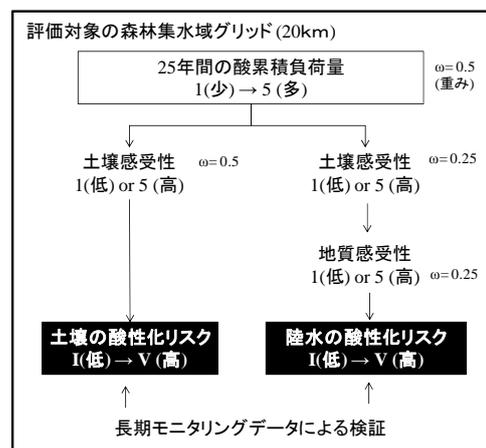


図3-2-15 土壌・陸水酸性化リスクの評価

るものとした（図3-2-15）。評価グリッドの一辺を20kmとし、森林植生⁶が75%以上を占める集水域を抽出して評価対象とすることで、大気沈着影響の考慮が困難な農地・市街地及び大河川の中・下流域を除外した。化学輸送モデルCMAQ ver.4.4（空間解像度80km）により1981年から2005年までの東アジアにおける各化学種の沈着量を計算[16][17][18]し、硫黄・窒素酸化物及びNH₃（又はNH₄⁺）の湿性・乾性による沈着量を25年間にわたり積算したものを酸累積負荷量（図3-2-16）とした⁷。日本の陸域における酸累積負荷量の分布を自

⁶ 環境省第5回自然環境保全基礎調査「植生調査」の成果（3次メッシュデータ）を使用した。群落コードより「市街地」「造成地」「果樹園」「水田」「畑地」「牧草地」等を除いた群落・群集・群団・植林を森林植生の分布とした。なお、一部の自然草地等、明瞭な分類が困難な群落も森林植生に含めた。

⁷ 全S沈着(kgS ha⁻¹25y⁻¹)=SO_{2w}+SO_{4wA}+SO_{2d}+SO_{4dA}, 全N沈着(kgN ha⁻¹25y⁻¹)=HNO_{3w}+NO_{3wA}+NO_{2w}+NO_w+HNO_{3d}+NO_{3dA}+NO_{2d}+NO_d+NH_{3w}+NH_{4wA}+NH_{3d}+NH_{4d}, 正味の酸負荷量(keq ha⁻¹25y⁻¹)=全S沈着/32.065×2+NO₃沈着/14.0067+NH₃沈着/14.0067×2として算出した(添字はwが湿性,dが乾性,Aが粒子状物質を示す)。尚、計算データが存在しないため塩基類の沈着は考慮されていない。

自然階級分類（Jenks の最適分類法）によって 5 つのカテゴリに分類し、土壌と地質の酸に対する感受性を 2 つのカテゴリに分類⁸して評価グリッド毎に属性値として与え（表 3-2-12）、算出された土壌・陸水の酸性化リスクの評点（I:低い, II:やや低い, III:中程度, IV:やや高い, V:高い）を全国でマッピングした（図 3-2-17）。なお、土壌・地質の酸に対する感受性については過去に発表された「酸性雨の土壌への影響予察図」 [19] や「酸性雨に対する感受性分布図」 [20]における分類等も参考にした。

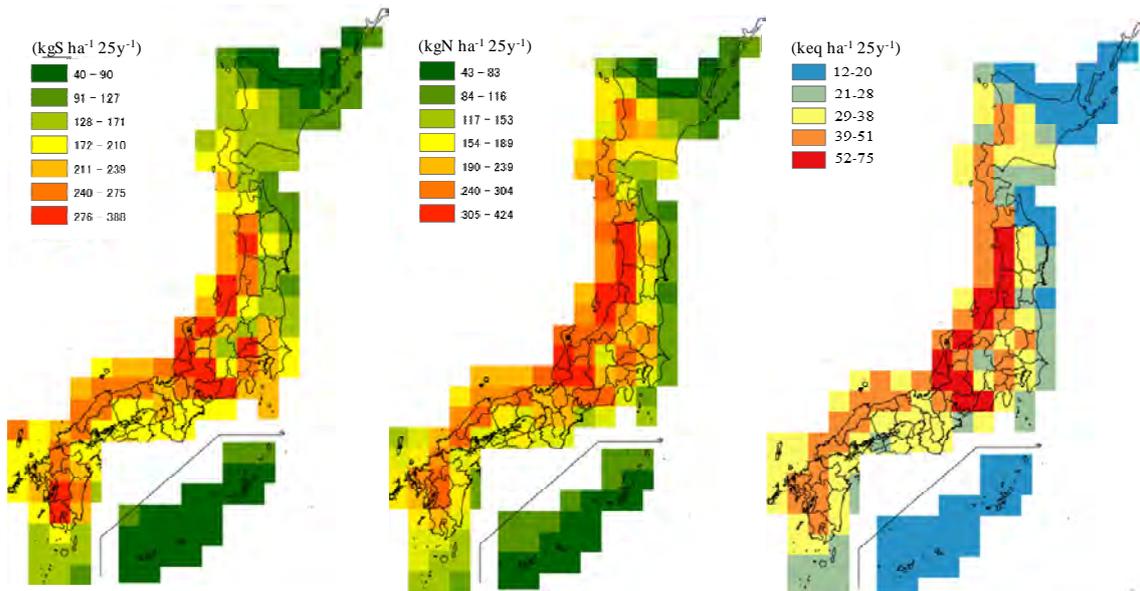


図 3-2-16 モデルによって推定された過去 25 年間の S 累積負荷量（左図）、N 累積負荷量（中図）及び正味の酸累積負荷量（右図）

表 3-2-12 正味の酸累積負荷量及び酸に対する感受性に応じた土壌・地質の分類と評点化

評点	正味の酸累積負荷量 (keq ha ⁻¹ 25y ⁻¹)	感受性	地質の酸感受性	土壌の酸感受性
1	12-20 ^{*1}	低い	石灰岩、蛇紋岩、かんらん岩、火山灰・ローム、安山岩、玄武岩、斑レイ岩、砂礫・泥岩（第四紀堆積岩）等	グライ土、黒ぼく土、暗赤色土、湿性褐色森林土
2	21-28			
3	29-38			
4	39-51		花崗岩、流紋岩、片麻岩、粘板岩・砂岩・チャート・輝緑凝灰岩（古生代堆積岩） ^{*2} 、砂岩・頁岩・礫岩（中生代堆積岩）等	乾性ポドゾル、乾性褐色森林土、赤黄色土、泥炭土、湿性ポドゾル、未熟土等
5	52-75	高い		

*1 日本の陸域における沈着量分布を自然階級分類(Jenks の最適分類法)によってカテゴリ化。 *2 輝緑凝灰岩の酸感受性は低いと考えられるが、地質図の同一カテゴリ（古生代堆積岩）に属するチャート及び砂岩の酸感受性は高いと考えられるため、リスク評価の観点から感受性の高いグループに分類した。

⁸ 国土調査による土地利用分類図 1/50,000 土地分類基本調査（土壌図及び表層地質図）を使用した。酸性化リスクが相対的に高い地域を検出するため、土壌・地質の酸感受性に 1 と 5 の明瞭な差をつけた。

(3) 土壌・陸水酸性化の要監視地域とマップの妥当性

土壌と陸水の酸性化リスクは西日本の日本海側、九州西部及び中部地方を中心に高い地域が見られ、酸性化の要監視地域として抽出された(図 3-2-17)。また、北陸以北の日本海側においても一部で酸性化リスクの強度が高い地点が見られた。一方、北海道や東北の太平洋側では酸性化のリスクが比較的低い地域が多かった。モデルにより推定された 25 年間の酸累積負荷量が日本海側と中部地方を中心に多かったのに加え(図 3-2-16)、西日本や中部地方で酸感受性の高い土壌や地質が幅広く分布する国土の特徴をよく反映していた。

陸水の酸性化リスクが高く算出された地域は、過去に酸性化が報告された伊自良湖集水域 [11]、沢の池 [21]、新潟県北部の河川 [22]を含み、土壌の酸性化リスクが高かった地域は同じく土壌の酸性化が報告された伊自良湖 [15]を含んでいた。また、本モニタリングにおいて土壌の酸性化が確認されている宝立山や石見臨空 FP (3.2.1)、陸水の酸性化が報告されている夜叉ヶ池 (3.2.2) もリスクが高い地域に含まれていた。このことから、示された酸性化リスクマップは現状をある程度反映した妥当なものであると考えられるため、同レベルのリスクが確認された地域を考慮したモニタリングが必要と考えられる。

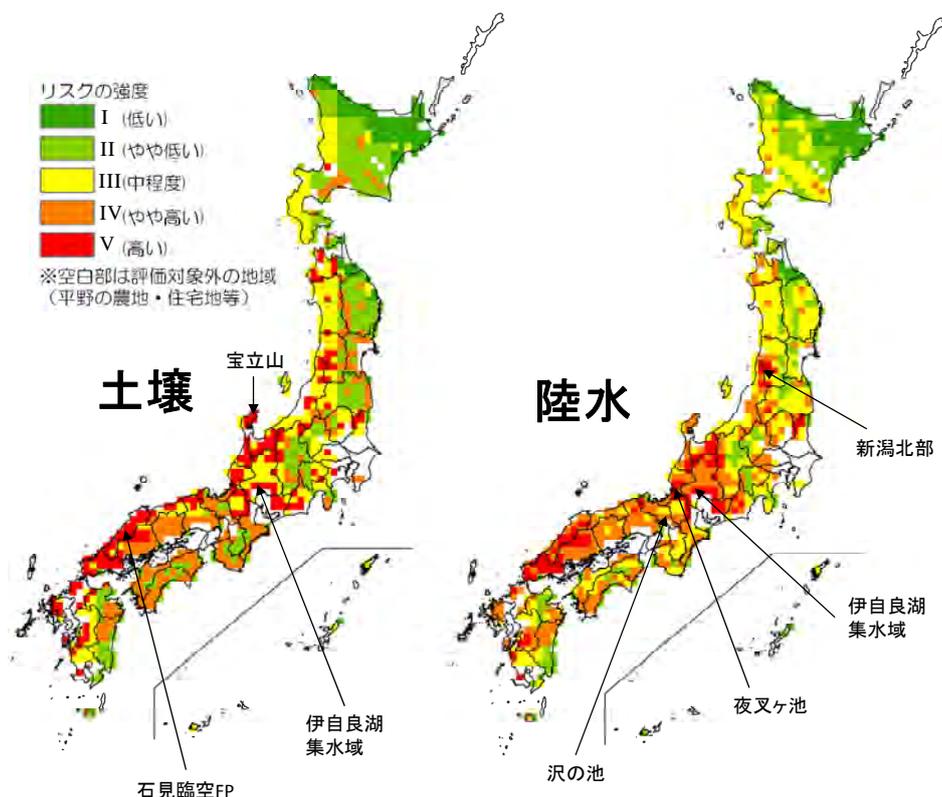


図 3-2-17 土壌・陸水の酸性化リスクマップ

注：例として、沢の池では推定された正味の酸累積負荷量が $37.4 \text{ keq ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$ (評点 3)、地質が粘板岩・砂岩・チャート・輝緑凝灰岩(評価 5)、土壌が残積性未熟土赤色系(評点 5)より、 $3 \times 0.5 + 5 \times 0.25 + 5 \times 0.25 = 4$ で陸水酸性化のリスク強度は IV となった。

(3.2 の引用文献)

- [1] 日本ペドロロジー学会第四次土壌分類・命名委員会, 日本の統一的土壌分類体系—第二次案—, 博友社, 2002.
- [2] B. Ulrich, “An ecosystem approach to soil acidification” In *Soil Acidity (Edited by B. Ulrich and M. E. Summer)*, Berlin, Springer-Verlag, 1991.
- [3] Network Center for EANET, Sub-manual on forest vegetation monitoring in EANET, Acid Deposition and Oxidant Research Center (ADORC), 2006.
- [4] 横田岳人, “ニホンジカが森林生態系に与える負の影響” *森林科学*, vol. 61, pp. 4-10, 2011.
- [5] 環境省酸性雨対策検討会, 酸性雨対策調査総合とりまとめ報告書, 環境省, 2004.
- [6] R. M. Hirsch, J. R. Slack and R. A. Smith, “Techniques of trend analysis for monthly water quality data” *Water Resour. Res.*, vol. 18, no. 1, p. 107–121, 1982.
- [7] 環境省, 酸性雨長期モニタリング報告書(平成 15～19 年度), 環境省, 2008.
- [8] 小川滋, “森林と水資源(第 3 章)” In *水文大循環と地域水代謝 (丹保・丸山編)*, 技報堂出版, 2003, pp. 45-71.
- [9] Network Center for EANET, Technical Manual for Dry Deposition Flux Estimation, Asia Center for Air Pollution Research (ACAP), 2010.
- [10] M. J. Mitchell and G. E. Likens, “Watershed Sulfur Biogeochemistry: Shift from Atmospheric Deposition Dominance to Climatic Regulation” *Environ. Sci. Technol.*, vol. 45, pp. 5267–5271, 2011.
- [11] T. Yamada, T. Inoue, H. Fukuhara, O. Nakahara, T. Izuta, R. Suda, M. Takahashi, H. Sase, A. Takahashi, H. Kobayashi, T. Ohizumi and T. Hakamata, “Long-term Trends in Surface Water Quality of Five Lakes in Japan” *Water, Air, and Soil Pollution, Focus 7*, pp. 259-266, 2007.
- [12] 谷川東子, 伊藤嘉昭, 福島整, 杉山暁史, 佐瀬裕之, 山下尚之, 今矢明宏, 高橋正通, “高分解能 2 結晶型 X 線分光を用いた伊自良湖集水域土壌のイオウ結合形態の評価 (P1-200)” *第 124 回森林学会学術講演集*, p. 141, 2013.
- [13] G. M. Lovett, K. C. Weathers and W. V. Sobczak, “Nitrogen saturation and retention in forested watersheds of the Catskill Mountains, New York” *Ecological Applications*, vol. 10, no. 1, pp. 73-84, 2000.
- [14] J. L. Stoddard, “Long-term changes in watershed retention of nitrogen” In *Environmental chemistry of lakes and reservoirs. Advances in Chemistry Series 237 (Edited by L. A. Baker)*, Washington, D.C., American Chemical Society, 1994, p. 223–284.
- [15] O. Nakahara, M. Takahashi, H. Sase, T. Yamada, K. Matsuda, T. Ohizumi, H. Fukuhara, T. Inoue, A. Takahashi, H. Kobayashi, R. Hatano and T. Hakamata, “Soil and stream water acidification in a forested catchment in central Japan” *Biogeochemistry*, vol. 97, pp. 141-158, 2010.
- [16] J. Kurokawa, T. Ohara, I. Uno, M. Hayasaki and H. Tanimoto, “Influence of meteorological variability on interannual variations of springtime boundary layer ozone over Japan during 1981 – 2005” *Atmos. Chem. Phys.*, vol. 9, p. 6287–6304, 2009.
- [17] Y. Morino, T. Ohara, J. Kurokawa, M. Kuribayashi, I. Uno and H. Hara, “Temporal variations of nitrogen wet deposition across Japan from 1989 to 2008” *J. Geophys. Res.*, vol. 116, D06307, 2011.
- [18] M. Kuribayashi, T. Ohara, Y. Morino, I. Uno, J. Kurokawa and H. Hara, “Long-term trends of sulfur deposition in East Asia during 1981–2005” *Atmos. Environ.*, vol. 59, p. 461–475, 2012.
- [19] 環境庁水質保全局・日本土壌肥料学会, 酸性雨の土壌への影響予察図 (1/200 万), 環境庁, 1983.

- [20] 吉永秀一郎, 鈴木裕一, 松倉公憲, 小林守, 新井正, “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” *日本土壌肥科学会雑誌*, vol. 65, no. 5, pp. 565-568, 1994.
- [21] S. Yoshikawa, S. Yamaguchi and A. Hata, “Paleolimnological investigation of recent acidity changes in Sawanoike Pond, Kyoto, Japan” *Journal of Paleolimnology*, vol. 23, no. 3, pp. 285-304, 2000.
- [22] H. Matsubara, S. Morimoto, H. Sase, T. Ohizumi, H. Sumida, M. Nakata and H. Ueda, “Long-term declining trends in river water pH in Central Japan” *Water air and soil pollution*, vol. 200, pp. 253-265, 2009.

4. オゾン及び粒子状物質に係る解析

これまでの酸性雨モニタリング報告書では、酸性沈着物に焦点をおいて、越境汚染及び国内における酸性沈着物が及ぼす大気負荷の解析を行ってきた。しかしながら、平成21年3月に改訂された越境大気汚染・酸性雨長期モニタリング計画では、越境大気汚染問題への関心の高まりを受け、酸性沈着のみならずオゾン(O₃)及び粒子状物質(PM)についても監視することを明確にしている。本章では、特にO₃、粒子状物質、酸性物質等の大気汚染物質に着目して、これまで蓄積されたデータを用いたトレンド解析、数値モデルを用いた越境大気汚染現象の解析、植物影響の可能性について、現時点で得られた知見を紹介する。

4.1 オゾン及び粒子状物質の長期的傾向及びトレンド解析

4.1.1 オゾン

平成12年度から平成24年度におけるO₃平均濃度の経年変化を図4-1-1に示す。評価にあたっては全国平均値のほか、測定地点を遠隔地域及びそれ以外の非遠隔地域に分けてそれぞれ平均値を求めた。また、高山地点(八方尾根、赤城)は過去の報告でも他の地点と比較して高い値で推移しているため個別に評価し、前述の平均値の算出には含めなかった。なお、平成22～23年度に順次O₃計校正方法が切り替えられたが、このこと自体は長期的傾向の評価に大きな影響を及ぼすものではないと考えている。

期間を通じて、非遠隔地域よりも遠隔地域でO₃濃度が高い傾向であった。これは、図3-1-30に示すとおりO₃と反応する窒素酸化物の濃度が遠隔地域で低く、窒素酸化物との反応によるO₃の消失が少ないためであると考えられる。また、長期的傾向については遠隔地域、非遠隔地域ともに、平成19年度まで増加傾向であったが、平成20年度以降減少傾向に転じている。この変動傾向の変化については、測定年数が短く、原因が明らかでないため、今後の推移を注視する必要がある。

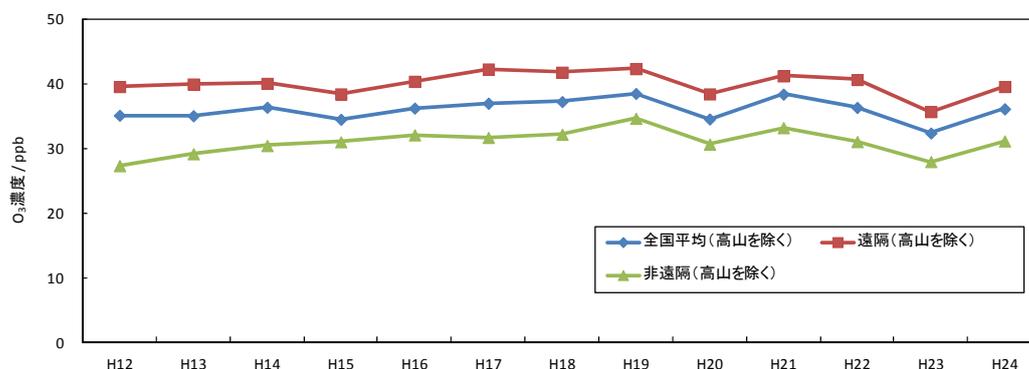


図4-1-1 遠隔地域及び非遠隔地域におけるO₃平均濃度の経年変化

注：完全度75%未満の年間値は含めずに計算した。

地点ごとのO₃濃度の経年変化を図4-1-2に示す。遠隔地域と非遠隔地域を、さらに地点別に示した。

平成15年度から平成24年度の10年間の長期的傾向については、八方尾根(-1.1 ppb y⁻¹)、利尻(-0.8 ppb y⁻¹)及び籠岳(-0.8 ppb y⁻¹)で有意な減少傾向(p < 0.05)を示し、隠岐で+0.2 ppb/年の有意な増加傾向(p < 0.05)を示した。なお、犬山でも+1.3 ppb y⁻¹の有意な増加傾向(p < 0.05)がみられたが、平成20年度末で測定を休止し、平成21年度以降のモニタリングは実施されていない。

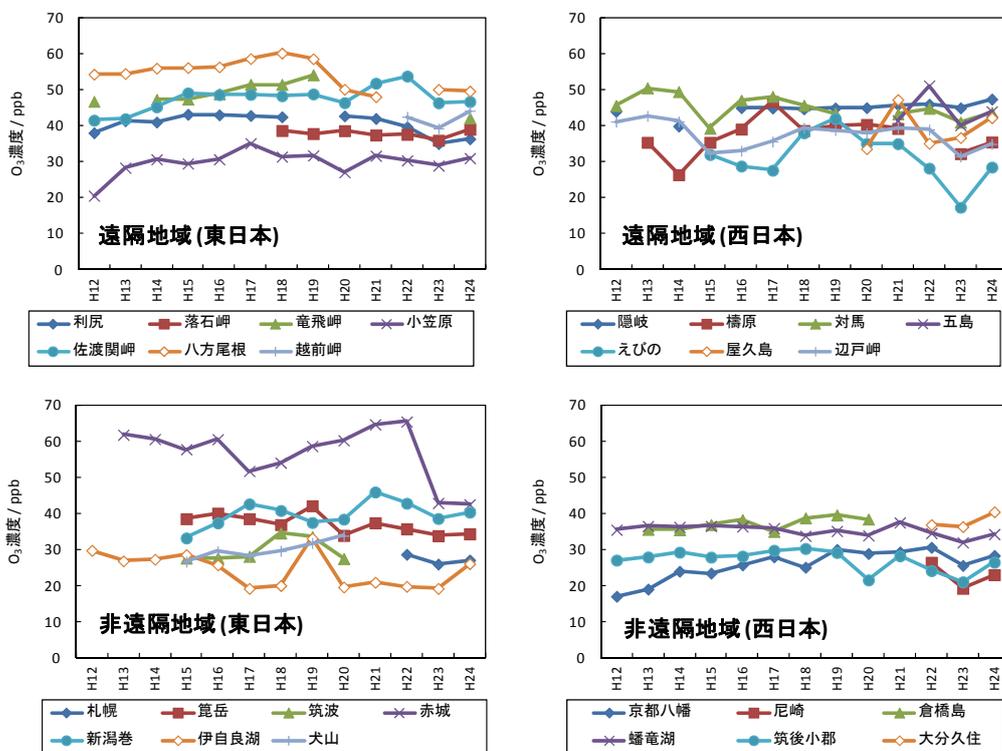


図4-1-2 各地点のO₃濃度の経年変化

注：完全度75%未満の年間値は表示しない。

平成15年度から平成24年度の10年間で5年ごとに前後半に分割し、各月のデータを比較したグラフを図4-1-3に示す。なお、評価にあたっては、双方の期間で年間データの完全度が75%以上の年が4年以上であった16地点を対象とした。

隠岐では7月及び10月の月間値が後半の方が有意に高く、その差はそれぞれ5 ppb及び3 ppbであった。一方、利尻、籠岳、八方尾根、伊自良湖、筑後小郡において、前半と比較して後半のO₃濃度が有意に低い月がみられ、主に夏季～秋季に多く、その差は4～11 ppbであった。特に八方尾根では平成19年度から20年度にかけての年間平均値の大きな変動が前後半の境と一致し、大きな差が生じたものと考えられる。また、赤城でも平成23年度以降の年間平均値に大きな低下がみられ、図中に参考として示したとおり年間を通じてO₃濃度が大きく低下した。この赤城局の大きな濃度変動の原因については、平成22年3月に改訂された環境大気常時監視マニュアル(第6版)[1]によるO₃計の校正体制の変更の違いによる可能性が考えられるが、校正履歴の変動では説明が付かなかった。

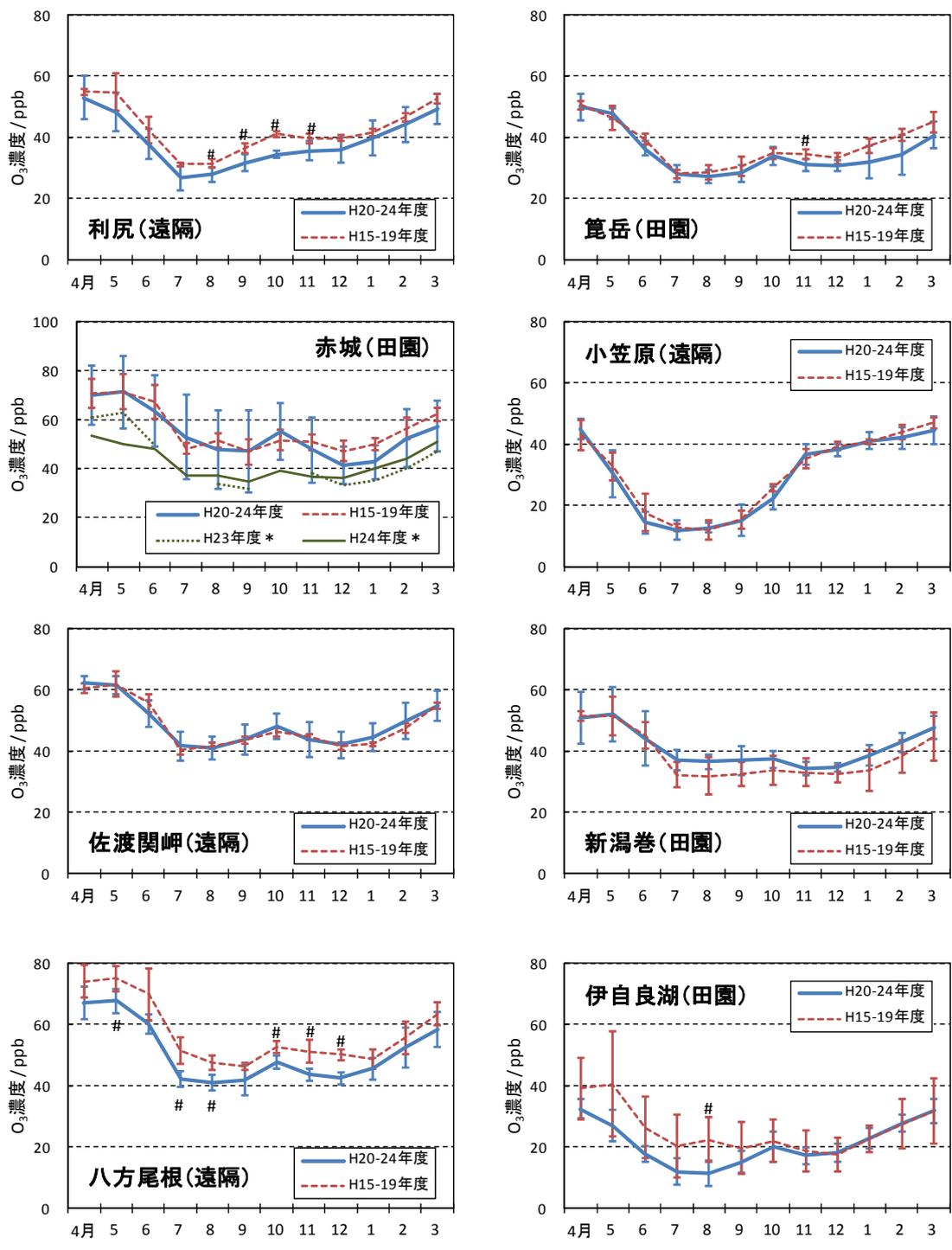


図4-1-3 平成15～19年度及び平成20～24年度の月別O₃濃度の推移

注：完全度75%未満の月間値は含めずに計算した。

エラーバー：月間値（有効データのみ）の平均値±標準偏差の範囲

#：統計的に有意な差(p<0.05)があった月

* 赤城では平成23年度以降O₃濃度が大きく低下したため参考として示した

4.1.2 PM₁₀及びPM_{2.5}

平成11年度から平成24年度におけるPM₁₀濃度及びPM_{2.5}濃度の経年変化を図4-1-4に示した。ここでは、PM₁₀とPM_{2.5}の両方を測定している地点（PM₁₀,PM_{2.5}測定地点）と、PM₁₀のみを測定している地点（PM₁₀測定地点）で分けて図示した。

調査期間を通して、PM₁₀濃度は小笠原及び八方尾根において低く、辺戸岬、隠岐及び幡竜湖で高かった。また、PM_{2.5}濃度はPM₁₀濃度と連動した変動を示し、PM_{2.5}/PM₁₀比は3地点とも期間を通じてほぼ一定で、概ね0.4~0.6の間で推移した。平成15年度から平成24年度の10年間の長期的傾向は、辺戸岬(-0.9 µg m⁻³ y⁻¹)、佐渡関岬(-0.9 µg m⁻³ y⁻¹)、幡竜湖(-0.6 µg m⁻³ y⁻¹)、構原(-0.5 µg m⁻³ y⁻¹)及び伊自良湖(-0.4 µg m⁻³ y⁻¹)でPM₁₀濃度の有意な減少傾向(p<0.05)がみられた。また、有意な増加傾向がみられた地点はなかった。PM_{2.5}濃度については、いずれの地点でも統計的に有意な増加・減少傾向はみられなかった。

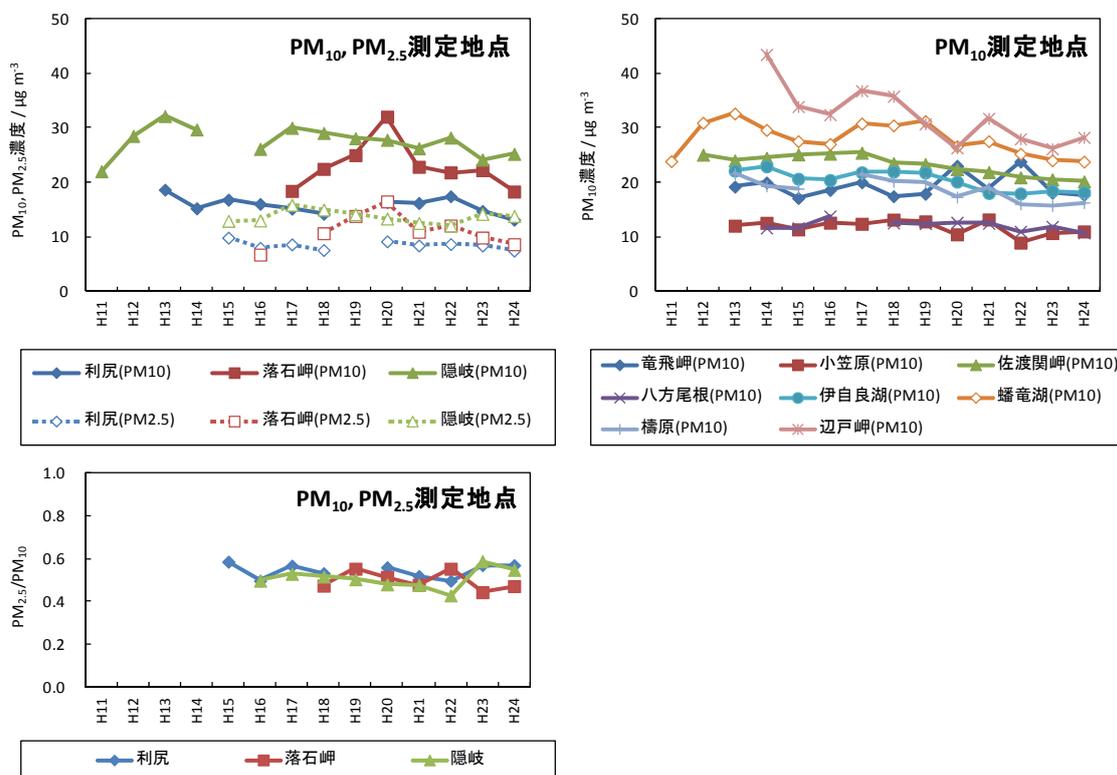


図4-1-4 PM₁₀濃度、PM_{2.5}濃度及びPM_{2.5}/PM₁₀比の経年変化

注：完全度75%未満の年間値は表示しない。

平成15年度から平成24年度の10年間で5年ごとに前後半に分割し、各月のデータを比較したグラフを図4-1-5に示す。なお、評価にあたっては、双方の期間で4以上の年間データが完全度75%を満たした10地点、延べ12項目を対象とした。

全体的に、前半と比較して後半にPM濃度の月間値が低くなる傾向があった。そのうち、小笠原、佐渡関岬、伊自良湖、隠岐、蟠竜湖、橿原において、後半のPM濃度が有意に低い月がみられた。主に冬季を除いた期間に分布し、その差は2~16 $\mu\text{g m}^{-3}$ であった。一方、竜飛岬では冬季から春季にかけて後半の方がPM濃度が高くなり、12月には5 $\mu\text{g m}^{-3}$ の有意な差がみられた。

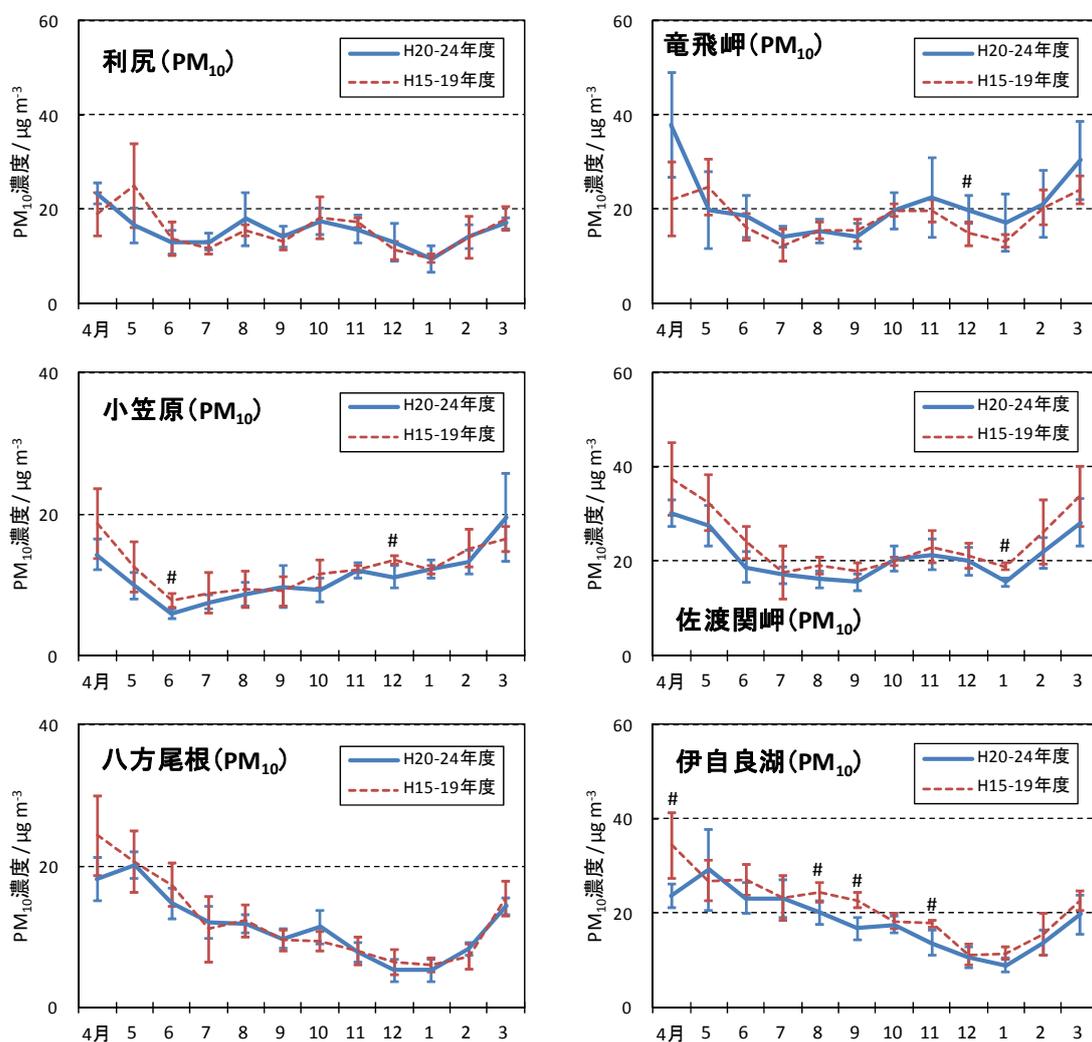


図4-1-5 平成15~19年度及び平成20~24年度の月別PM₁₀及びPM_{2.5}濃度の推移

注：完全度75%未満の月間値は含めずに計算した。

エラーバー：月間値（有効データのみ）の平均値±標準偏差の範囲

#：統計的に有意な差(p<0.05)があった月

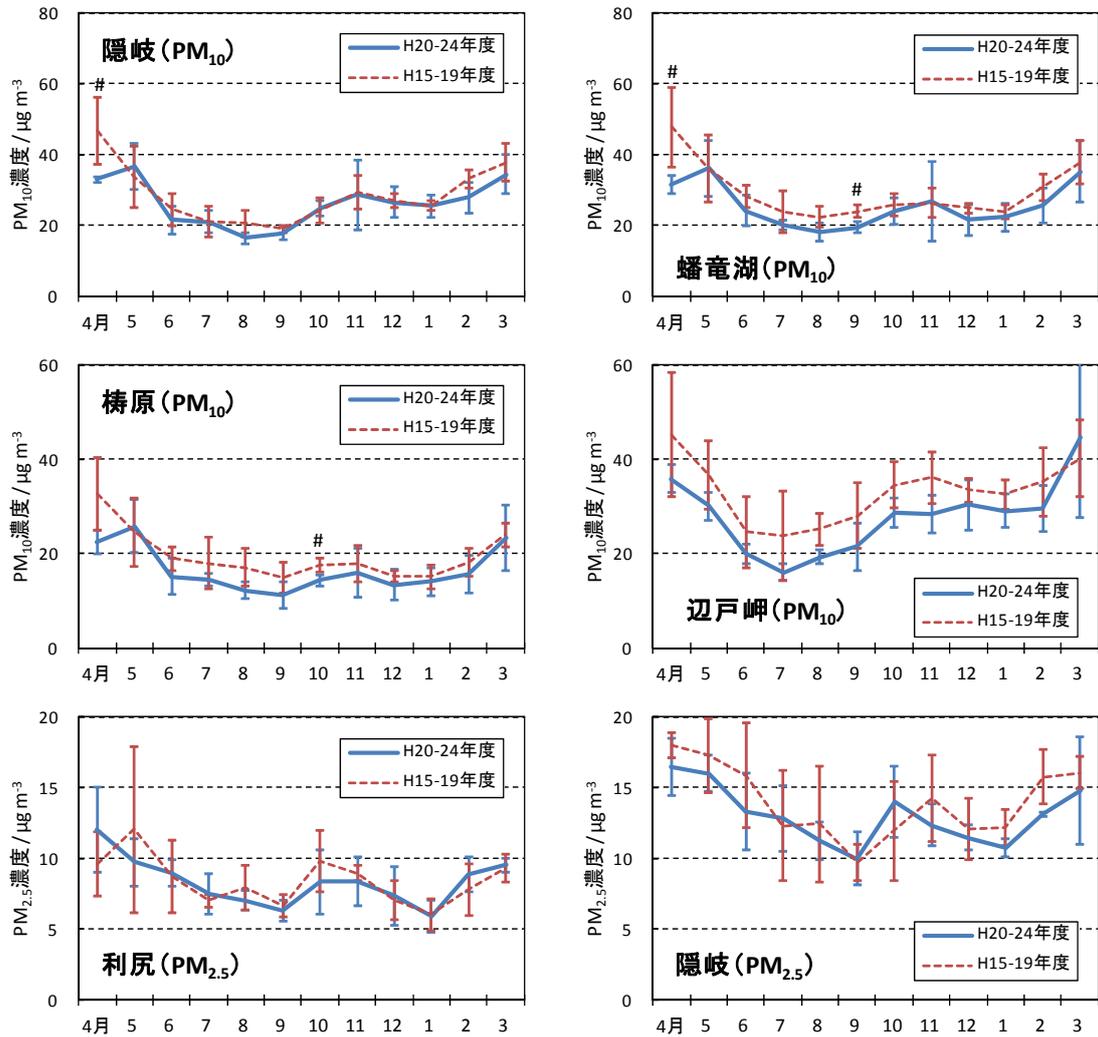


図 4-1-5 平成 15～19 年度及び平成 20～24 年度の月別 PM₁₀ 及び PM_{2.5} 濃度の推移 (続き)

注：完全度 75% 未満の月間値は含めずに計算した。

エラーバー：月間値 (有効データのみ) の平均値 ± 標準偏差の範囲

#：統計的に有意な差 ($p < 0.05$) があった月

4.1.3 モデルを用いた我が国への越境大気汚染現象の解析

国設酸性雨局による長期モニタリングは、測定局周辺の大気汚染による影響の長期的傾向を把握する上で有用である。一方、日本及び周辺域の大気汚染物質の濃度、沈着量分布、及び長距離輸送量を明らかにするためには、モニタリングの結果と組み合わせたモデル解析が必要となる。本項では、オゾン (O_3)、粒子状物質 (PM) の発生源寄与解析、酸性物質の大気モデル解析を行った、最近の研究事例を示す。なお、ここで示した研究事例はいずれも、大気シミュレーションモデルの再現性の評価等に越境大気汚染・酸性雨長期モニタリングデータが活用され論文となったものである。

(1) オゾンのソース・レセプター解析

永島らはグローバル大気化学輸送モデル (CHASER) を用いて、2000 年代初頭の東アジアにおける地表面オゾン (O_3) のソース・レセプター解析を行った[2]。この解析によって、北東アジア内の O_3 の地域間輸送及び北東アジア外からの O_3 の流入の様子が明らかになった。

温室効果ガス世界資料センター (WDCGC)、東アジア酸性雨モニタリングネットワーク (EANET)、中国における日中共同観測研究プロジェクトで取得された O_3 月平均濃度の観測値とモデル値を比較したところ、全ての地点で相関係数が 0.7 を超えており、半分の地点では 0.9 を超えていた。また、両者の O_3 濃度絶対値の偏差は 10 ppbv 以内であった。この結果から、モデルは東アジアにおける O_3 濃度の絶対値及び季節変動を良く再現できることがわかった。

図 4-1-6 は北東アジアの 10 領域 (JPN-N: 北日本、JPN-S: 南日本、JPN-W: 西日本、JPN-E: 東日本、CHN-NE: 中国北東部、CHN-NCP: 中国華北平原、CHN-YRB: 中国揚子江盆地、CHN-SE: 中国南東部、KOR-N: 北朝鮮、KOR-S: 韓国) における 2000~2005 年の O_3 濃度の月間値の平均及び地域別の寄与率を示している。この結果から季節変動のいくつかの特徴が見られる。1つ目は中国北東部を除く北東アジア全域で成層圏からの寄与濃度 (各図の上部青実線) が、冬季~初春にかけて大きくなり、夏季には最小になる。2つ目は大気境界層からの寄与濃度 (各図の上部黒点線) が、地域によって異なる。すなわち、中国揚子江盆地、中国南東部及び南日本では春季と秋季に大きくなり、中国北東部及び中国華北平原では夏季に大きくなり、南日本以外の日本の大部分及び朝鮮半島では春季~夏季に大きくなった。

各図下部の寄与率に着目すると、北東アジア域外からの移流 (各図の下部棒グラフの緑色) が 10~3 月にかけて大きくなり、中国揚子江盆地及び中国南東部を除いて冬季では約 70% の寄与になった。中国揚子江盆地及び中国南東部では北東アジア域外からの移流の寄与が低く、約 50% であった。冬季には、成層圏及び北米、欧州、中央アジアから自由対流圏を経た O_3 の流入が中国北部で支配的になり、北東アジア域内の寄与 (各図の下部棒グラフの赤色) は 10% 程度であった。冬季には光化学反応が抑制され O_3 の大気中寿命が長くなるため、大陸間輸送の寄与が顕著となり、シベリア高気圧によって北東アジアに輸送されると考えられる。一方、4~9 月には北東アジア域内の寄与 (各領域内生成を含む) が大きくなり、中国北東部、南日本を除いて、春季では全体の約 50%、夏季には全体の約 70% 以上までになり、成層圏、自由対流圏からの寄与が低くなった。春季~夏季には光化学反応が活発になり、北東アジア域内の O_3 生成量が増大する一方、 O_3 の大気中の寿命が短くなるため、大陸間輸送の寄与が

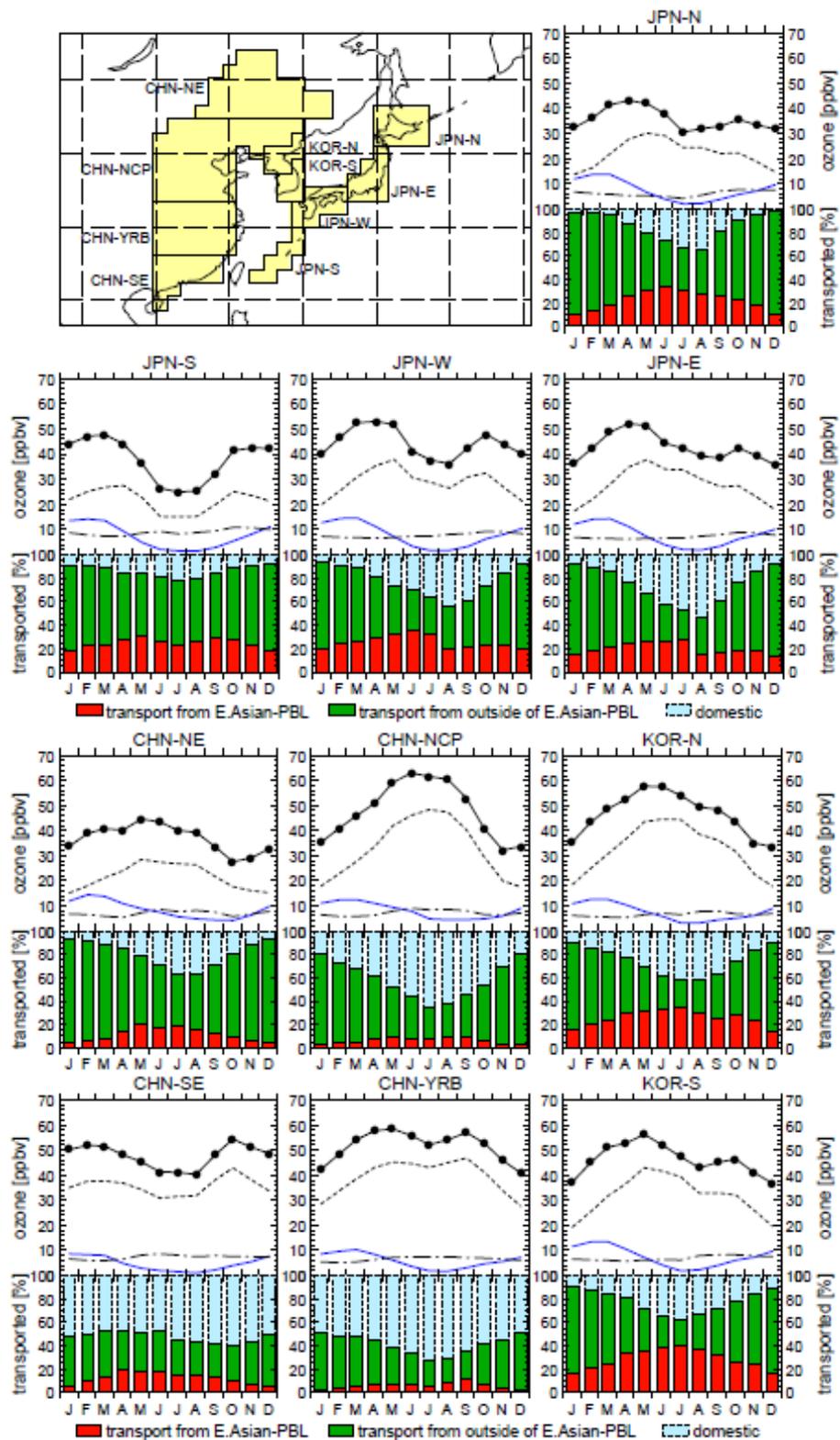


図 4-1-6 北東アジアの各領域における 2000～2005 年の O₃ 濃度及び寄与率の月別変動 [2]

下部の棒グラフの赤色は北東アジア（地図中の黄色で示す領域）の地域間輸送、緑色は北東アジア域外からの移流、水色は各領域内の生成の寄与を示す。また、上部の黒実線は領域内の平均地表面 O₃ 濃度を、青実線は成層圏からの、黒点線は大気境界層からの、一点鎖線は自由対流圏からの寄与濃度を示す。

低くなったと考えられる。

図4-1-7に、北東アジアの各領域（CHN-NE: 中国北東部、CHN-NCP: 中国華北平原、CHN-YRB: 中国揚子江盆地、CHN-SE: 中国南東部、KOR: 朝鮮半島、JPN E+W: 東西日本）における2000～2005年のO₃濃度の寄与率を、春季（3～5月）と各領域内生成寄与分が大きい夏季（6～8月）の場合で示す。春季には中国北東部を除いて各領域内の寄与が最も大きく、東西日本では21.5%、朝鮮半島では22.8%、華北平原では40.2%、中国南部では48.2%の寄与であった。夏季では、更に各領域内の寄与が増大し、東西日本では42.2%、朝鮮半島では38.4%、中国北東部では34.5%であった。また、東西日本及び朝鮮半島に対する中国全土からの寄与は春季と夏季で同程度であり、それぞれ約10%、約20%であった。東西日本に対する朝鮮半島からの寄与は中国からの寄与より少なく、春季では約6%、夏季では5%未満であった。中国と朝鮮半島から日本の地表O₃濃度に対する寄与率の総和は春季では17.8%であり、これは約10 ppbvのO₃濃度に相当する。日本から朝鮮半島への寄与は、春季には偏西風が卓越し、西方向に輸送されないため非常に小さい。一方、夏季には太平洋高気圧の張り出しで若干の寄与が見られ、日本から朝鮮半島、朝鮮半島から華北平原への寄与率はいずれも5.2%であった。

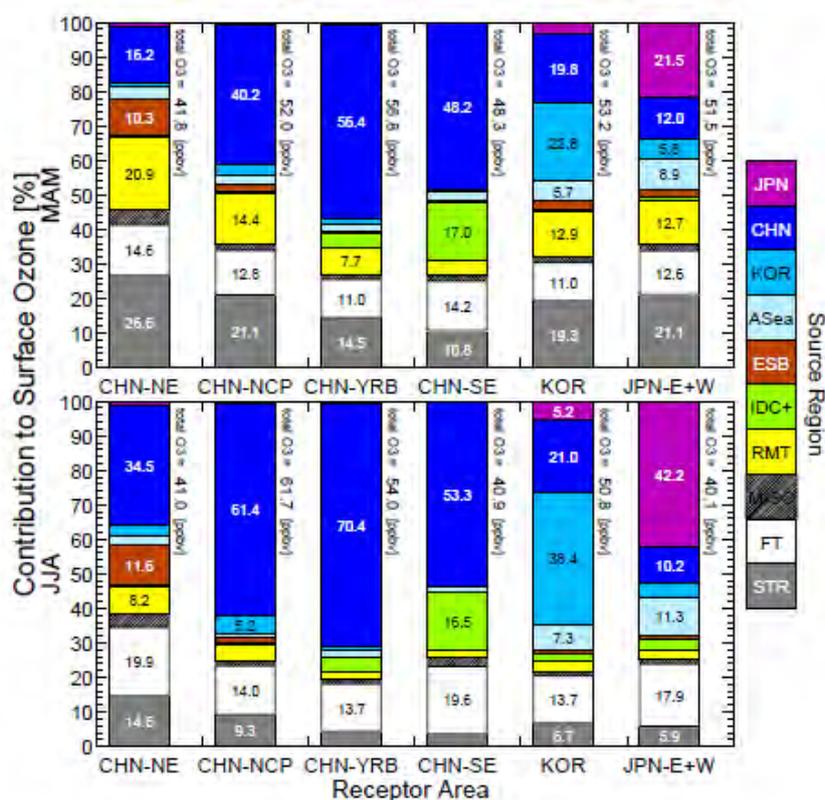


図 4-1-7 北東アジアの各領域（中国北東部(CHN-NE)、中国華北平原(CHN-NCP)、中国揚子江盆地(CHN-YRB)、中国南東部(CHN-SE)、朝鮮半島(KOR)、日本(JPN-E+W)）における2000～2005年のO₃濃度の寄与率、MAM（上図）は春季（3～5月）の平均、JJA（下図）は夏季（6～8月）の平均を示す。[2]

JPN: 日本、CHN: 中国、KOR: 朝鮮半島、ASea: 周辺海域、ESB: 東シベリア、
 IDC+: インドシナ半島及びインド、RMT: アジア域外の北半球、MISC: その他の地表面、
 FT: 自由対流圏、STR: 成層圏

(2) PM_{2.5}のソース・レセプター解析

池田らは領域大気化学輸送モデル（CMAQ ver. 4.7.1）を用いて、2010年の福江島におけるPM_{2.5}濃度の発生源寄与を大気汚染物質発生源域の排出量を減少させる感度解析によって評価した[3]。モデルの再現性についての結果は、図4-1-8に示すように日平均値の時間変動が概ね再現されており、モデル値と観測値の相関係数は0.67であった。月間値でみると、両者の季節変動パターンは類似していたが、年間を通してモデル値が観測値を過小評価しており、その差異は観測値の24.1%~66.7%であった。この理由として、有機炭素（OC）及び水分の影響がモデルでは十分再現できていないためであると考えられる。

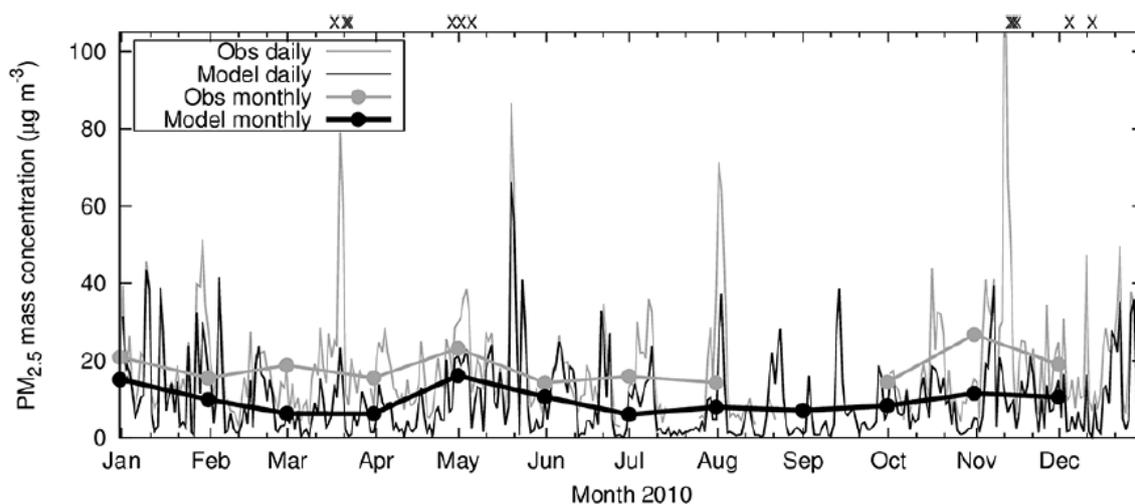


図4-1-8 2010年の福江島におけるPM_{2.5}のモデル値と観測値の比較 [3]

上部のXはダストの飛来イベントを示す。

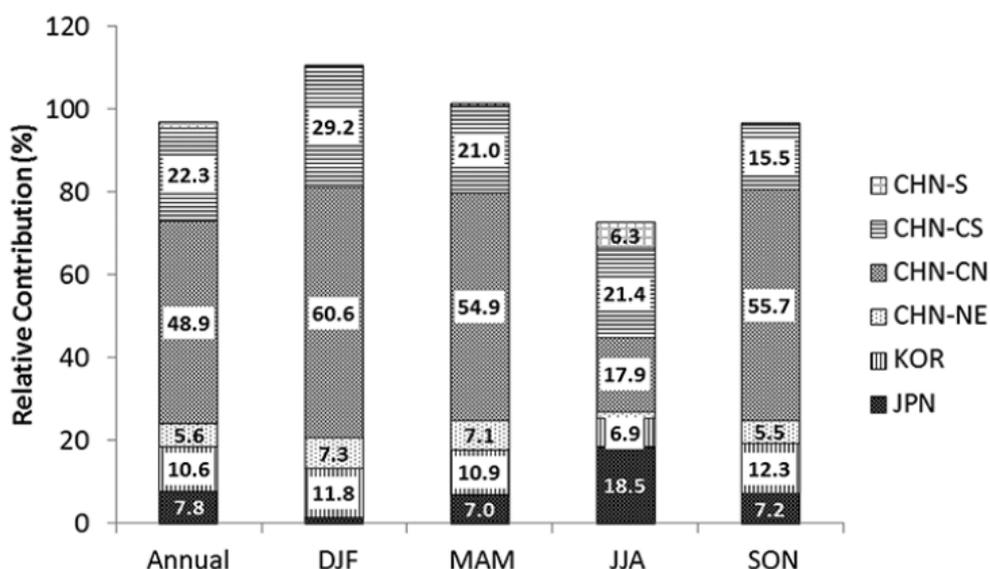


図4-1-9 2010年の福江島におけるPM_{2.5}の発生源寄与の年平均及び季節平均 [3]

DJF: 冬季 (12~2月)、MAM: 春季 (3~5月)、JJA: 夏季 (6~8月)、SON: 秋季 (9~11月)

CHN-NE: 中国北東部、CHN-CN: 中国中北部、CHN-CS: 中国中南部、CHN-S: 中国南部、

KOR: 朝鮮半島、JPN: 日本

図 4-1-9 は 2010 年の福江島における PM_{2.5} の発生源寄与の年平均及び季節平均を示す。中国中北部 (CHN-CN) の寄与は夏季 (JJA) を除いて最も大きく、次いで中国中南部 (CHN-CS) の寄与が大きかった。これらの寄与の総和は約 40%~90%にのぼり、福江島における PM_{2.5} 濃度の時間変動に大きく影響を及ぼすことが示唆される。発生源地域別寄与は季節的特徴を示し、その特徴は気象条件に起因すると考えられる。冬季 (DJF) には北西の季節風により中国、韓国からの寄与が大部分を占め、日本からの影響はほとんど見られなかった。一方、夏季 (JJA) には太平洋高気圧の張り出しにより越境輸送の寄与は減少し、日本 (JPN) からの寄与が 18.5% を占めた。

図 4-1-10 は、2010 年の福江島、隠岐、籠岳、利尻における PM_{2.5} の発生源寄与の年平均を示している。これら 4 地点の年平均 PM_{2.5} 濃度の観測値は、18.0 µg/m³ (福江島)、12.0 µg/m³ (隠岐)、11.5 µg/m³ (籠岳)、8.6 µg/m³ (利尻) と南西から北東にかけて低くなる傾向であった。モデル値も同様の地域的傾向を再現できているが、絶対値は観測値よりも約 30~50%過小評価であった。隠岐の発生源寄与率の構成は福江島と類似しており、中国中北部の寄与が 44.9%、中国中南部の寄与が 14.2% であった。一方、利尻では中国北東部の寄与が最も大きく (50.9%)、中国中北部の寄与も西日本よりは少ないが大きな割合を占めていた (30.8%)。籠岳は離島の観測と比べて日本国内から寄与が大きかった (40.4%)。全体を見ると、全国的に中国中北部からの寄与が大きく、西日本に位置する福江島及び隠岐では日本国外からの寄与が支配的で、東日本に位置する籠岳では国内の影響が支配的であるが、国外からの影響も一定の寄与を示すという地域的傾向が見られた。

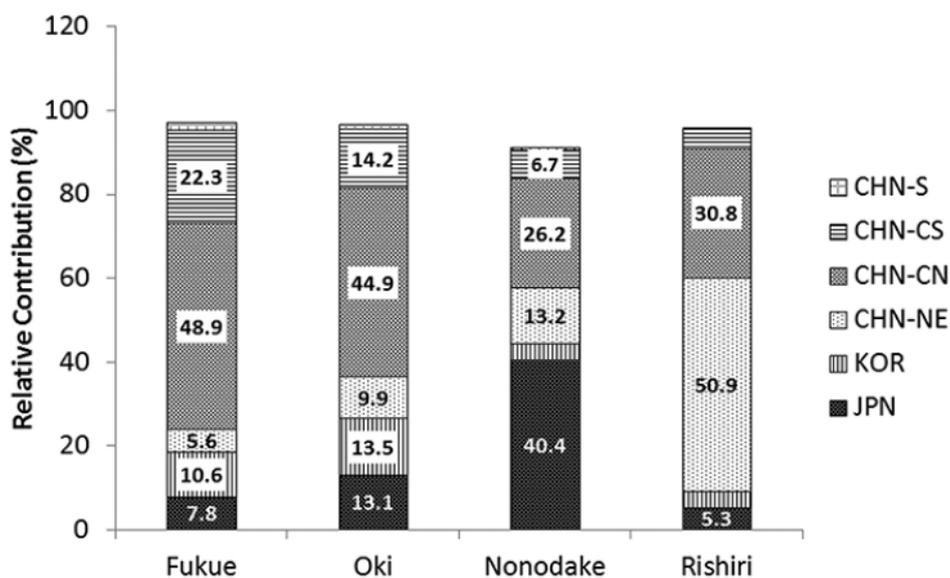


図 4-1-10 2010 年の福江島、隠岐、籠岳、利尻における PM_{2.5} の発生源寄与の年平均 [3]
発生源の表記は図 4-1-9 と同じ。

(3) 酸性物質の大気モデル解析

森野らは領域大気化学輸送モデル (CMAQ ver. 4.4) を用いて、1989～2008 年の日本における窒素化合物の湿性沈着量の長期変動のモデル解析を行った[4]。この解析には、国設酸性雨局の観測データが再現性評価に利用されている。観測値とモデル値の比較では、 NO_3^- 、 NH_4^+ の沈着量についてのモデル計算値のそれぞれ 55%、61%が観測値の 2 分の一から 2 倍の範囲内にあり、再現性は概ね良いことが示されている。

図 4-1-11 は、1989～1993 年及び 2004～2008 年の NO_3^- 、 NH_4^+ の湿性沈着量、降水量の分布を比較している。 NO_3^- の湿性沈着量は日本海側や中国東北部で、 NH_4^+ の湿性沈着量は日本海側や東シベリアで顕著に増加している。日本を 3 つの地域 (北東、中央、南西) に区分した場合の各地域における 1989～2008 年の間の平均増加率はいずれの項目も 2～5% yr^{-1} の範囲にあった。なお、降水量の経年変動が湿性沈着量の増加量に影響を及ぼすことが示された。

栗林らは同じ CMAQ (ver. 4.4) を用いて、1981～2005 年の東アジアにおける硫黄化合物の大気沈着量の長期変動のモデル解析を行った[5]。この解析にも、国設酸性雨局及び EANET 局の観測データが再現性評価に利用されている。非海塩性硫酸イオン (nss-SO_4^{2-}) の湿性沈着量、 SO_2 ガス濃度、粒子状 SO_4^{2-} 濃度は、それぞれ 79%、60%、75%の結果で観測値とモデル値が 2 倍以内で一致しており、再現性は概ね良いことが示されている。

図 4-1-12 は、1981～2005 年の日本における硫黄化合物の沈着量、排出量、流入量の経年変動を示している。沈着量の結果 (図(a)) から、日本における全硫黄沈着量に対する湿性沈着量の占める割合 ((a) 中の▲) はこの期間の平均で 78%、粒子状非海塩性硫酸イオンの占める割合 ((a) 中の■) はそれぞれ 82%であった。排出量及び流入量 (図(b)と図(c)) の結果から、期間平均で中国の人為起源から排出された SO_2 の内の 29.4%が、日本に到達したと算出された。また、2000 年に起こった三宅島の噴火による寄与率は、2001～2005 年の平均で 3%であった。日本における硫黄の年間大気沈着量は、1981～1985 年の 5 年平均は $15.6 \text{ Gmol S y}^{-1}$ であったが、2001～2005 年の平均では $23.9 \text{ Gmol S y}^{-1}$ に増加した。この増加は先述の中国からの寄与量の増大 ($7.0 \text{ Gmol S y}^{-1}$) と三宅島の噴火による寄与量 ($2.4 \text{ Gmol S y}^{-1}$) の影響を受けていると考えられる。

図 4-1-13 は、硫黄化合物の年間総大気沈着量、総大気沈着量の年間増加率、総大気沈着量に対する湿性沈着量の寄与、降水量、総大気沈着量に対する湿性沈着量の寄与の増加率の 1981～2005 年の平均値をそれぞれ示している。硫黄の大気沈着量は、華北平原、珠江デルタ、重慶、三宅島東部では年 3% を超える割合で顕著に増加しているが (図(b))、三宅島東部では 2000 年の噴火以降急激に沈着量が増加している一方、中国での沈着量の著しい増加は、華北平原を中心とする中国における SO_2 排出量の継続的な増加に起因すると考えられる。総大気沈着量に対する湿性沈着量の寄与は、北日本日本海側及び中国北東部で 85%を超えていたが、華北平原及び重慶では 40%未満であった (図(c))。湿性沈着量の寄与が大きい地域は、降水量の多い地域と概ね一致する (図(c)及び図(d))。湿性沈着量の寄与の増加率は、日本及び中国北東部では 75%以上、華北平原、重慶では 50%未満、中国南部では 50～70%であった (図(e))。東アジアにおける SO_2 の年間乾性沈着量は 1981～1985 年の平均で $3.53 \text{ mmolS m}^{-2} \text{ y}^{-1}$ 、2001～2005 年の平均で $7.34 \text{ mmolS m}^{-2} \text{ y}^{-1}$ と約 2.1 倍、粒子状非海塩性硫酸イオンの年間湿性沈着量は

1981～1985 年の平均で $9.84 \text{ mmolS m}^{-2} \text{ y}^{-1}$ 、2001～2005 年の平均で $15.24 \text{ mmolS m}^{-2} \text{ y}^{-1}$ と約 1.5 倍増加しており、これらの増加量が湿性沈着量の寄与の増加率に影響している。

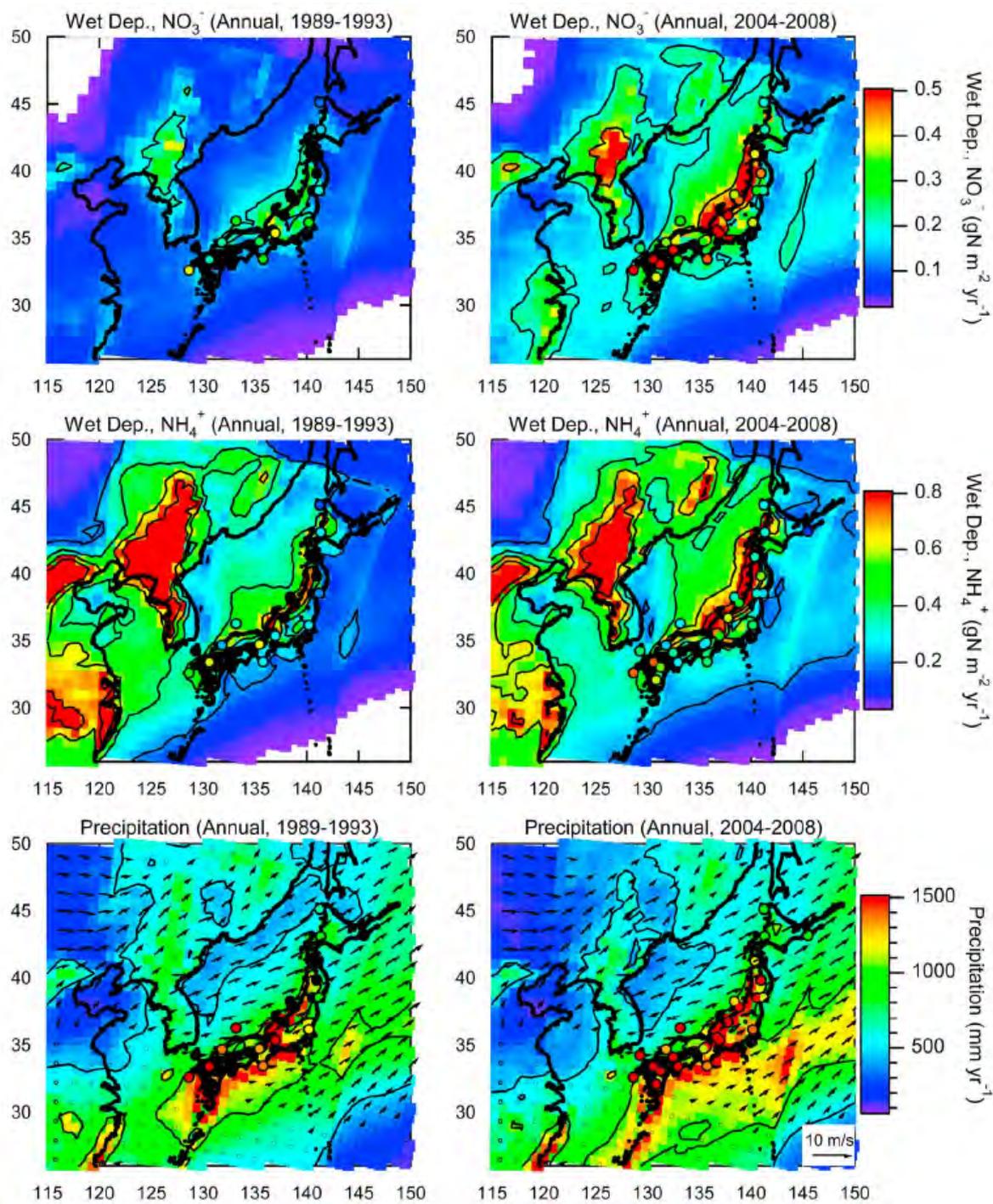


図4-1-11 1989～1993年(左列)及び2004～2008年(右列)の NO_3^- (上段)、 NH_4^+ (中段)の湿性沈着量、降水量(下段)の比較 [4]

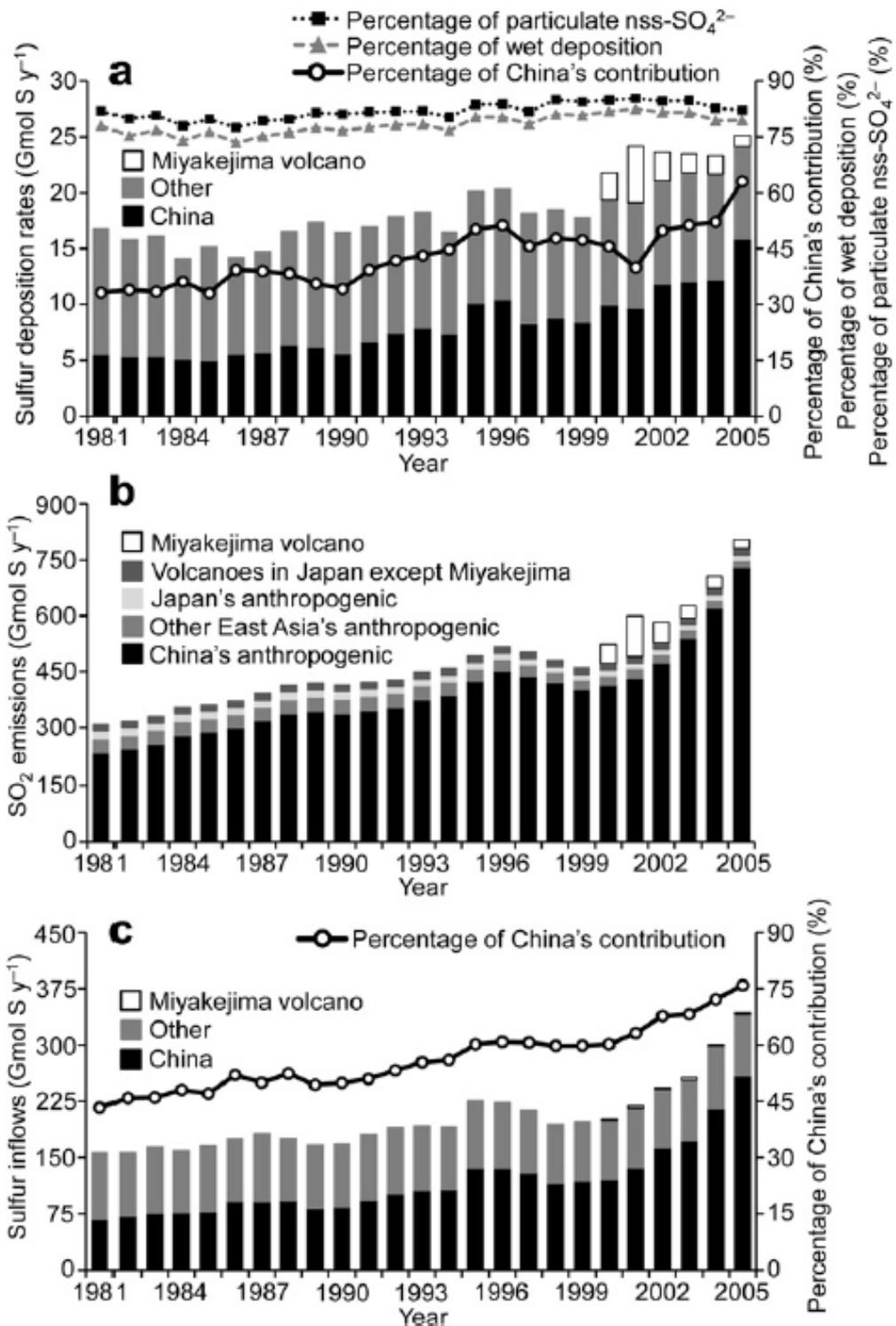


図 4-1-12 1981～2005 年の日本における硫黄化合物の沈着量(a)、排出量(b)、流入量(c)の経年変動 [4]
 いずれも棒グラフは左側の縦軸、折れ線グラフは右側の縦軸で読み取る。
 上図 (a) 中、▲は全硫黄沈着量に占める湿性沈着量の割合を、■は全硫黄沈着量に占める粒子状非海塩性硫酸イオンの占める割合を、○は中国からの寄与の割合をそれぞれ示す。

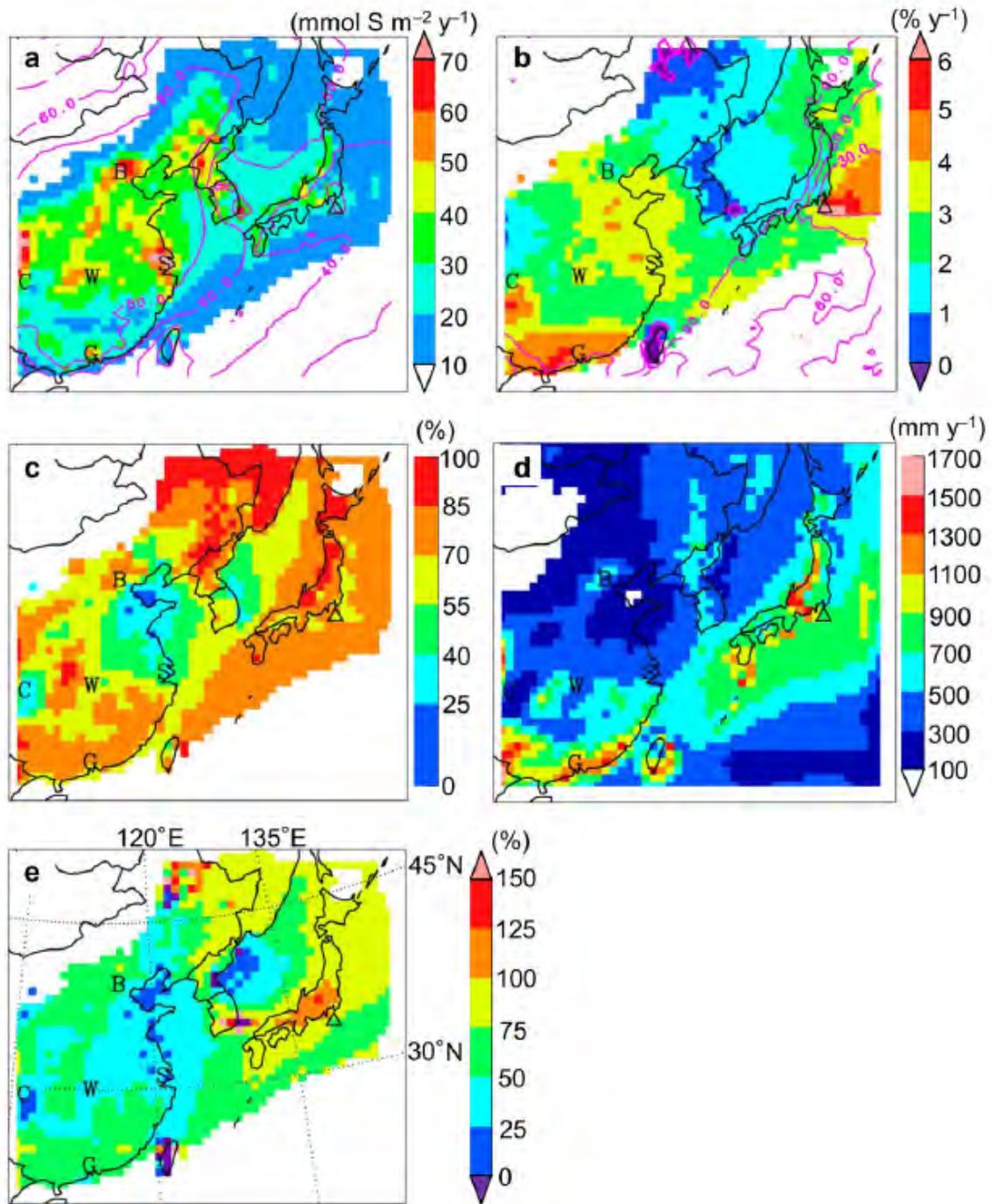


図 4-1-13 硫黄化合物の年間総大気大沈着量(a)、総大気沈着量の年間増加率(b)、総大気沈着量に対する湿性沈着量の寄与(c)、降水量(d)、総大気沈着量に対する湿性沈着量の寄与の増加率(e)の1981~2005年の平均値 [5]

PM_{2.5} 濃度発生源寄与解析に関する研究事例（参考）

PM_{2.5} 濃度の発生源寄与等に関する定量的な情報はまだ少ない。ここでは、越境大気汚染・酸性雨長期モニタリングデータは活用していないものの、PM_{2.5} の発生源寄与解析が行われた研究事例を紹介する。

茶谷らは、領域大気化学輸送モデルCMAQ (ver. 4.7) を用いて、2005年の日本の三大都市圏（首都圏、愛知・三重圏、大阪・兵庫圏）におけるPM_{2.5}濃度発生源寄与解析を行い、地域、季節、成分における違いを明らかにしている[6]。モデルの再現性については、2005年度にPM_{2.5}の連続測定を行っていた一般環境大気測定局の籠岳（宮城県）、尼崎（兵庫県）、町田（東京都）、綾瀬（東京都）における年平均値及び月平均値をモデル値と比較すると、モデル値はいずれの地点においても年平均値で30～40%程度の過小評価となっていた。月平均値についてもモデル値は観測値と同様の月変動を示したが年間を通じて過小評価となっていた。この理由として、元素状炭素（EC）と有機炭素（OC）のモデルでの過小評価が主要因と考えられる。

図1の結果から、大阪・兵庫圏では国外の人為起源の寄与（Fm）が48%を占めるが、愛知・三重圏、首都圏と小さくなり、東京23区では26%となっている。首都圏、東京23区では、国外の人為起源の寄与が低くなる分、火山（Vol）、船舶（Shp）、自動車排気（Veh）、自動車以外燃焼（Cmb）、NH₃の寄与が高くなっている。

本文で紹介した池田らの解析結果とともに、西日本と東日本では、PM_{2.5}の日本への越境汚染の寄与率が異なることを示している。

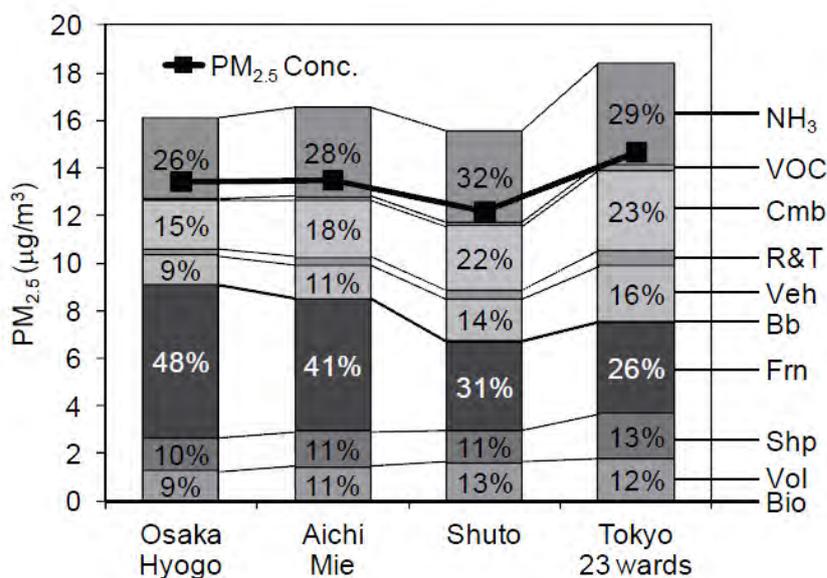


図1 2005年の大阪・兵庫圏、愛知・三重圏、首都圏、東京23区におけるPM_{2.5}の成分別発生源寄与 [6]

NH₃: アンモニアガス、VOC: 揮発性有機炭素、Cmb: 自動車以外燃焼、R&T: ロードダスト及びタイヤ摩耗粉塵、Veh: 自動車排ガス、Bb: バイオマス燃焼、Fm: 国外の人為起源、Shp: 船舶、Vol: 火山、Bio: 生物起源

大気環境影響評価のための排出インベントリの重要性

アジア地域では、火力発電所、工場、自動車等による石炭や石油の燃焼などによって、様々な大気汚染物質が大量に放出されており、その排出量は経済成長に伴って急増している。しかしながら、大気汚染物質がアジア地域でどれだけ排出されてきたのか、今後どのように変化するのかについては、定量的には十分明らかにされていない。最近、我が国で光化学オキシダント、酸性物質、粒子状物質等の越境汚染による影響が懸念されており、これらの影響評価のためには観測、大気モデル解析、排出インベントリを統合して解析する必要がある。

アジア域での大気環境の長期的傾向を解析するために、大原らはアジア域の総合インベントリ (Regional Emission Inventory in ASia, REAS ver. 1.1) を作成し、初めて排出量の経年及び将来予測データを提供した[7]。REAS ver. 1.1 の対象物質は SO₂, NO_x, CO, NMVOC, BC, OC, NH₃ 等、対象年は 1980～2003 年であり、2010～2020 年の将来予測も行っている。REAS ver. 1.1 は多くの大気モデル研究者に利用されてきたが、エネルギー消費量が 2003 年以降継続的に伸びていることと、単位エネルギーあたりの大気汚染物質の排出係数の経年変化を考慮していないため、近年の大気汚染抑制技術の向上により排出係数の顕著な変化が再現できない問題点があった。

この背景を踏まえて、黒川らは排出インベントリの更新を行い、REAS ver. 2.1 を作成した[8]。図 1 は、2000～2008 年の SO₂, NO_x, PM₁₀, PM_{2.5} の地域別、セクター別の排出インベントリを示している。2000 年と比べて 2008 年では、アジア域の SO₂, NO_x, PM₁₀, PM_{2.5} の排出量はそれぞれ、56.9 Tg (34%)、53.9 Tg (54%)、24.7 Tg (42%)、3.03 Tg (35%) 増加していた。国別で見ると、中国とインドがアジアにおける第 1、第 2 の排出国で、両国の増加率は他の国よりも大きく、産業活動の顕著な発展に伴うエネルギー使用量の増加に起因すると考えられる。

中国では、排出量の抑制対策が徐々に取られており、2000～2006 年の間は SO₂ の排出量が増加し続けていたが、2007 年以降は発電所に脱硫装置が導入され始めたため、減少に転じている。他の地域での排出量は、経済活動の停滞や排出規制の強化により減少しており、特に日本、韓国、台湾で顕著であった。他の地域の排出量が減少していることと、中国、インドの排出量が増加していることから、アジアにおける両国の排出量が占める割合は年々増加している。

REAS ver. 2.1 による、国別、排出セクター別の各物質の年間排出量や、緯度経度が 0.25 度×0.25 度の解像度のグリッド状排出インベントリの月間値等のデータは、次のサイトで公開されている。

<http://www.nies.go.jp/REAS/>

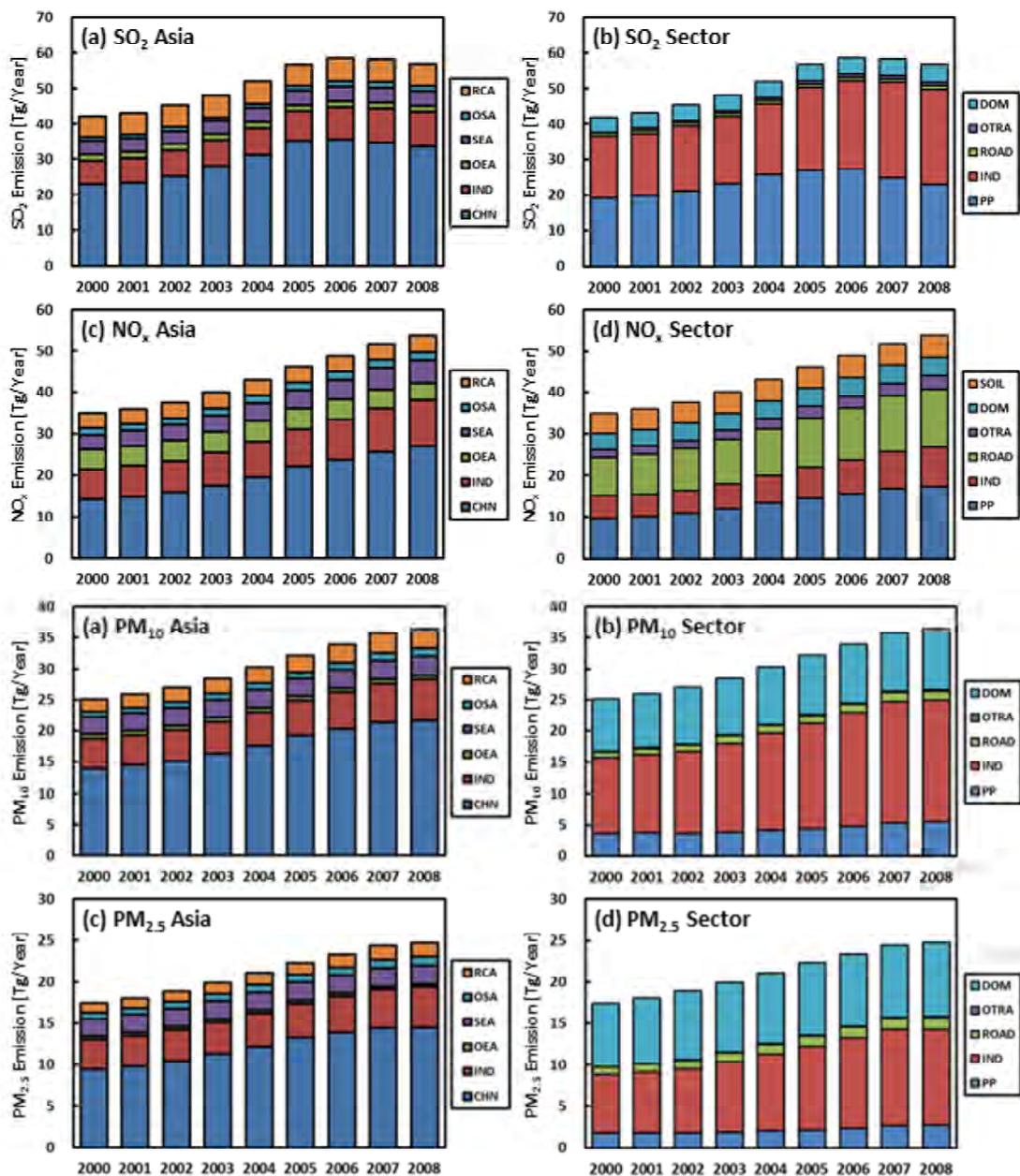


図1 2000～2008年のSO₂, NO_x, PM₁₀, PM_{2.5}の地域別、セクター別の排出インベントリ[8]
 CHN: 中国、IND: インド、OEA: 中国以外の東アジア、SEA: 東南アジア、OSA: インド以外の南アジア、
 RCA: アジア域のロシア及び中央アジア、PP: 発電所、IND: 工業、ROAD: 道路輸送、OTRA: 道路以外の輸送、
 DOM: 一般家庭、SOIL: 土壌

(4.1 の引用文献)

- [1] 環境省 水・大気環境局, 環境大気常時監視マニュアル (第6版) pp. 144-150, 2010.
- [2] T. Nagashima, T. Ohara, K. Sudo and H. Akimoto, "The relative importance of various source regions on East Asian surface ozone" *Atmos. Chem. Phys.*, vol. 10, no. 4, pp. 11305-11322, 2010.
- [3] K. Ikeda, K. Yamaji, Y. Kanaya, F. Taketani, X. Pan, Y. Komazaki, J. Kurokawa and T. Ohara, "Sensitivity Analysis of Source Regions to PM_{2.5} Concentration at Fukue Island, Japan", *J. Air & Waste Manage. Assoc.* (DOI: 10.1080/10962247.2013.845618), 2013.
- [4] Y. Morino, T. Ohara, J. Kurokawa, M. Kuribayashi, I. Uno, H. Hara, "Temporal variations of nitrogen wet deposition across Japan from 1989 to 2008" *J. Geophys. Res.*, vol. 116, p. D06307, 2011.
- [5] M. Kuribayashi, T. Ohara, Y. Morino, I. Uno and J. Kurokawa, "Long-term trends of sulfur deposition in East Asia during 1981-2005" *Atmos. Environ.*, vol. 59, pp. 461-475, 2012.
- [6] 茶谷聡, 森川多津子, 中塚誠次, 松永壮, "3次元大気シミュレーションによる2005年度日本三大都市圏PM_{2.5}濃度に対する国内発生源・越境輸送の感度解析" *大気環境学会誌* vol. 46, no. 2, pp. 101-110, 2011.
- [7] T. Ohara, H. Akimoto, J. Kurokawa, N. Horii, K. Yamaji, X. Yan and T. Hayasaka, "An Asian emission inventory of anthropogenic emission sources for the period 1980-2020" *Atmos. Chem. Phys.*, vol. 7, no. 16, pp. 4419-4444, 2007.
- [8] J. Kurokawa, T. Ohara, T. Morikawa, S. Hanayama, J. M. Greet, T. Fukui, K. Kawashima and H. Akimoto, "Emissions of air pollutants and greenhouse gases over Asian regions during 2000-2008: Regional Emission inventory in Asia (REAS) version 2" *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, vol. 13, no. 4, pp. 10049-10123, 2013.

4.2 オゾン等による植物影響の可能性

4.2.1 オゾンによる植物影響の要監視地域の抽出方法の検討

これまでの土壌・植生モニタリングでは、主に大気沈着による土壌の酸性化等を介した樹木衰退や植生の攪乱を想定し、土壌の化学分析とともに、樹木衰退度・成長量及び下層植生の調査（観察）が行われてきたが、ガス状・粒子状の汚染物質の直接暴露による植物への影響の把握には、森林地域での大気汚染物質の実測やそれに敏感な植物活性の測定など、より特化した取組が必要である。

オゾンによる植物影響はオゾン濃度が高く、かつ、オゾンに対する感受性の高い植生が分布する地域で発生する可能性が高いことから、今後オゾンの直接暴露による植物影響の実態を明確にするためには、そのような地域（要監視地域）における効率的なモニタリングが求められる。ここではオゾンによる植物影響モニタリングに資することを目的に、全国的なオゾン濃度の分布、植生の分布とその感受性等を考慮した上で、オゾンによる植物影響のリスクが高いと考えられる要監視地域の全国的な分布に関する基礎情報を集約し、それらの情報の日本地図上での可視化を進めた。

（1）オゾンによる植物影響の評価の方法

①評価対象樹種

天然林等の自然植生と主要な植林地を主な評価対象とした。植生図より 6 つの植生グループ（スギ、アカマツ、カラマツ、ブナ、コナラ、スダジイ）の分布域を抽出¹し、各グループのオゾン影響評価を実施した。作物については、今後の課題とした。

②AOT40²を用いた成長量低下率の推定

オゾンによる樹木影響の評価には苗木の暴露実験で得られた AOT40 当たりの成長量低下率を用いた。本報告に用いた AOT40 は 4-9 月の 6 か月間における AM6:00 - PM6:00 の 12 時間を対象期間とした³。本報告で用いた渡辺らによる成長量低下率の推定式 [1] [2] [3] [4] [5]を以下に示す。

¹ 環境省第 5 回自然環境保全基礎調査「植生調査」の成果（3 次メッシュデータ）を使用した。群落コードより、「スギ」、「アカマツ」、「カラマツ」、「ブナ」、「コナラ」、「スダジイ」の名称を含む群落・群集・群団・植林を抽出し、各植生グループの分布域とした。「アカマツ-コナラ群落」・「スギ-ブナ群落」等は両方の植生グループに属するものとした。なお、カラマツについては落葉針葉樹植林、スギについては常緑針葉樹植林（「スギ植林」の記述がない一部自治体のみ）も分布の対象とした。

² AOT40 は、オゾンの暴露量を示す指標の一つで、特定の時間帯を対象に 1 時間値が 40 ppb を超えた部分（差分）を積分した値。閾値の設定については多くの研究事例があるが、ここでは欧州で主に用いられている 40 ppb を閾値とする AOT40 を用いた。

³ AOT40 の算出では日射量を基準とした積算方法もあり、EU の基準では 50W m⁻² 以上の時間帯を対象に積算している。

➤ スギの成長量低下率	=	-0.047	×	(AOT40)
➤ アカマツの成長量低下率	=	-0.144	×	(AOT40)
➤ カラマツの成長量低下率	=	-0.201	×	(AOT40)
➤ ブナの成長量低下率	=	-0.141	×	(AOT40)
➤ コナラの成長量低下率	=	-0.079	×	(AOT40)
➤ スダジイの成長量低下率	=	-0.231	×	(AOT40)

ここで、成長量低下率とは通常の成長量に対するオゾン暴露された成長量の割合（％）である。この推定式では係数の絶対値が大きいほどオゾンによって樹木成長量が低下しやすいことを示す。すなわち、オゾンに対する感受性が最も高い植生はスダジイであり、逆にスギやコナラはオゾンに対する感受性が低かった [5]。

③AOT40 の全国分布の推定

AOT40 は非静力領域化学輸送モデル (WRF/Chem) による 15km メッシュのオゾン濃度推定結果を基に算出⁴した (図 4-2-1)。今回の推定では滝川らの設定 [6] を基に、離島を除くほぼ日本全域を計算対象領域としている。2008 年における排出インベントリを基に 2011 年の気象場を用い、2011 年の 4 月から 9 月の期間における AOT40 分布を推定して成長量低下率のマッピングに用いた。

④推定成長量低下率のマッピング

AOT40 当たりの成長量低下率推定式及び AOT40 推定分布図を用い、2011 年の気象場における各植生グループの成長量低下率分布を推定した。これを全国で色分けマッピングすることにより、オゾン植物影響における要監視地域の抽出を実施した。

⁴ 鉛直層数は 34 層として計算を行っている。鉛直座標系は地表面との比率に基づく地形に沿った座標系であり、大気最下層の高度は地表面から約 10m である。夜間を除き接地境界層内部に 10 から 15 層が含まれている。気象場については 5km メッシュ、3 時間間隔の気象庁メソ解析を、オゾン前駆物質の地表放出源強度分布については 1km メッシュ、1 時間間隔の REAS ver. 2 をそれぞれ利用した。低解像度(240km メッシュ)の全球化学輸送モデルによる計算結果を側面境界とすることにより、領域外からの大気汚染物質の影響についても考慮している。

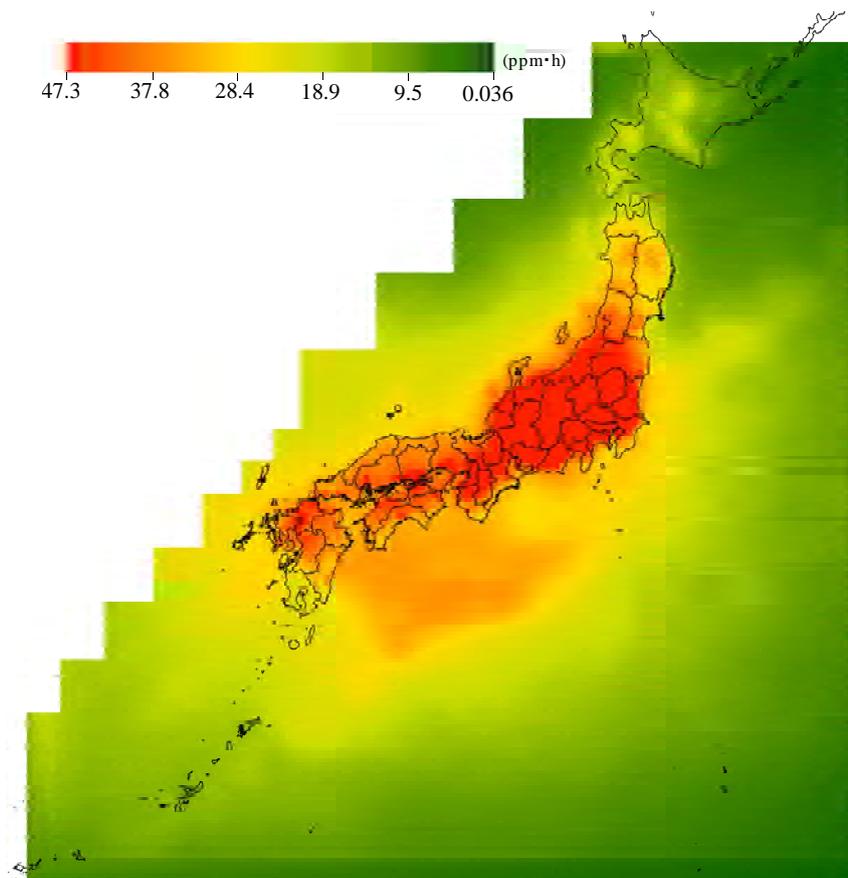


図 4-2-1 2011 年の気象場を用いた AOT40 のモデル推定結果

注：4 月～9 月の AM6:00～PM6:00 におけるオゾン濃度積算値

(2) 成長量低下率の推定結果

推定された成長量低下率の全国分布を図4-2-2に示した。色がついている地域は各植生(スギ・ブナ・アカマツ・カラマツ・コナラ・スダジイ)が分布していることを示し、色分けは推定された成長量低下率を示す。空白の地域は各植生がその地域には分布していないことを示す。各植生において、オゾンの AOT40、植生分布、樹種の感受性の違いによる要監視地域が抽出され、スギ・コナラ以外の樹種では推定される成長量低下率が 3%を超える地域が広範囲に見られた。北陸地方、新潟、関東北部及び西部のブナ、関東、中部、関西地方及び瀬戸内海の一部におけるアカマツ、関東甲信地方のカラマツ、九州北部のスダジイで高い成長量低下率が推定された。

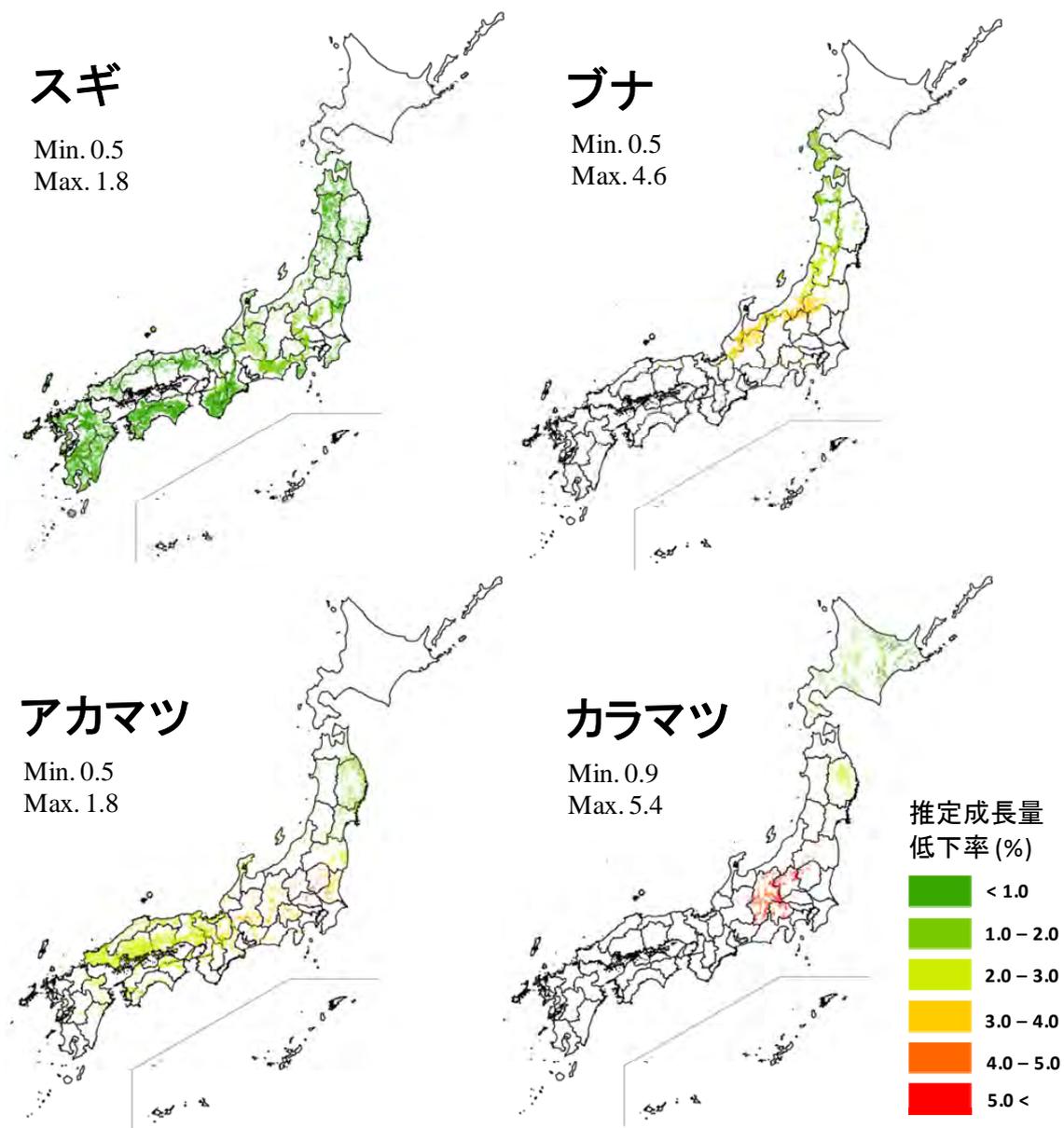


図 4-2-2 2011 年の気象場を用いたオゾンによる推定成長量低下率

注1 : オゾン暴露がない場合の成長量を 100%とした場合の低下率 注2 : 3 次メッシュ (1 km×1 km) 植生データに基づく表示

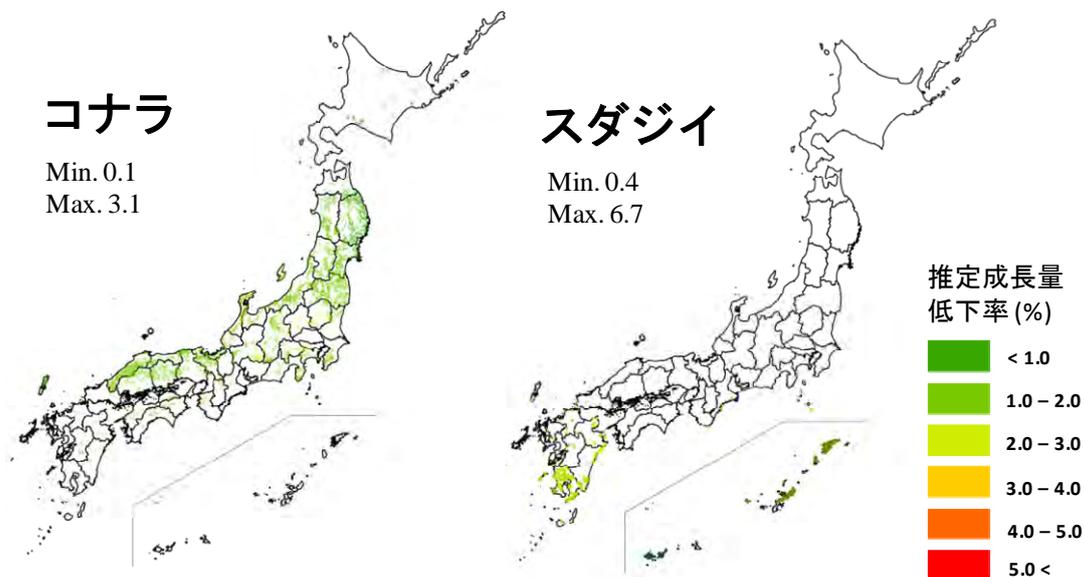


図 4-2-2 (続き) 2011 年の気象場を用いたオゾンによる推定成長量低下率

(3) オゾンによる植物影響の要監視地域マップに関する留意点

将来的には、暴露量だけではなく、実際に気孔を通じて吸収されるオゾンの量（吸収フラックス）を用いた評価も必要と考えられるが、現時点では、基礎的データの不足により樹木及び作物において全国的な評価は困難である。

4.2.2 オゾン植物影響に関するパイロット・モニタリング

越境大気汚染・酸性雨長期モニタリング計画において、これまで実施されてきた土壌・植生モニタリングでは、主に大気沈着による土壌の酸性化等を介した樹木衰退や植生の攪乱が念頭におかれ、土壌化学性分析とともに、樹木衰退度・成長量及び下層植生の調査（観察）が行われてきたが、ガス状・粒子状の汚染物質の直接暴露による植物への影響の把握には、森林地域での大気汚染物質の実測やそれに敏感な植物活性の測定など、より特化した取組が必要である。越境大気汚染・酸性雨長期モニタリング（平成20-22年度）中間報告 [7] においても、対流圏オゾンの濃度上昇に伴う樹木衰退の可能性が指摘され、オゾンによる植物影響の評価に対する取組がより重要になってきた。

平成21年3月に改訂された「越境大気汚染・酸性雨長期モニタリング計画」では、新たな生態影響モニタリングとして、オゾンによる植物影響のモニタリングを検討することを提言している。それに基づき、平成22年度まで設置された「オゾン植物影響モニタリング手法検討会」では、オゾンによる植物影響のモニタリング手法に関する検討を行ってきた。その結果、今後の定常モニタリングのための手法を確立するために、平成23年度からオゾン関連研究を実施している自治体（北海道、新潟県、福岡県）において、パイロット・モニタリングを開始することとし、その進捗状況については、関係自治体の専門家を加え再

編された「オゾン等の植物影響評価ワーキンググループ」において検討することとされた。

(1) オゾン植物影響（パイロット）モニタリングの概要

平成22年度までの検討結果から、以下のような基本設計が提言された。

- i) 高濃度オゾンや樹木衰退が報告されている地域で実施する。
- ii) 対象地域内で、オゾン自動測定装置が既に稼働している地点又は設置可能な（電源が供給されている）地点を、各1地点、ステーションとして設定し、当該地域のオゾン濃度変化について明らかにする。

上記基本設計に基づき、オゾン関連研究を実施している自治体の以下の山岳・森林地域を、パイロット・モニタリングの対象地域として選定した（図4-2-3）。

- ましゅうこがいらんざん 摩周湖外輪山：北海道
- はっかいざん 八海山：新潟県
- ひこざん 英彦山：福岡県

上記地域では、これまでの各自治体における研究により、1時間値として80 - 100 ppbの高濃度オゾンが記録されており、摩周湖外輪山や英彦山では樹木の衰退も認められており、特に摩周湖外輪山におけるダケカンバの枯死は著しい。各地域の概要は表4-2-1のとおりである。パイロット・モニタリングは、平成23年夏季より開始し、当面は、最も基本的かつ必須な項目である、各地域のステーションにおける自動測定装置によるオゾン濃度測定を実施するとともに、代表樹木の葉の展開・落葉時期等の周辺情報の収集・記録を行うこととした。

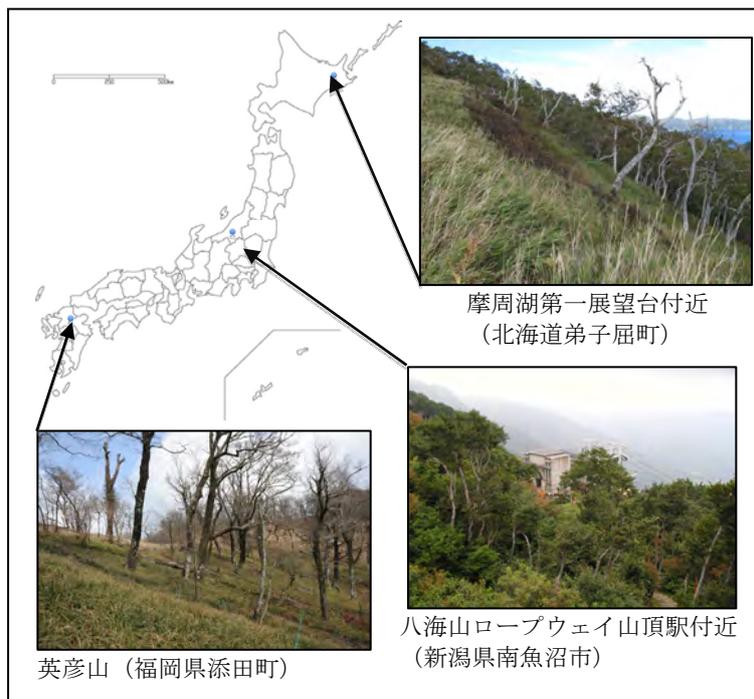


図 4-2-3 オゾンによる植物影響評価のためのパイロット・モニタリング実施地点

表 4-2-1 パイロット・モニタリング地域の概要

自治体	北海道	新潟県	福岡県
地域名	ましゅうこがいらんざん 摩周湖外輪山	はっかいざん 八海山	ひこざん 英彦山
ステーション (オゾン自動 測定装置設置 地点)	摩周第一展望台	八海山展望台	福岡県立英彦山青年の家
緯度経度	北緯 43° 33' 30'' 東経 144° 30' 26''	北緯 37° 07' 33'' 東経 138° 59' 30''	北緯 33° 29' 19'' 東経 130° 55' 27''
標高	555 m	1,165 m	790 m
使用機器*	Model 1180 (ダイレック) APNA365 (堀場製作所：窒素酸化物)	GUX-253 (東亜ディーケーケー)	1006-AHJ (Dasibi)
地域の優占樹種	ダケカンバ	ブナ、ミズナラ	ブナ
樹木衰退の概況	摩周湖外輪山西側、第一展望台付近から第三展望台付近まで、ダケカンバの枯死木が認められる。	顕著な樹木衰退は認められない。	北岳から中岳にかけての稜線域を中心に、ブナの枯死又は衰退が認められる。

*自動観測装置は、各自治体研究機関で保有している機器を使用し、必要に応じて本事業のため補修等を行った。摩周湖外輪山においては、展望台駐車場の自動車排ガスに由来する窒素酸化物 (NO 及び NO₂) の影響が認められたため、これらの項目も併せて測定した。

(2) パイロット・モニタリングの進捗状況

各地のパイロット・モニタリングは、1年中アクセスが可能な摩周湖外輪山を除き、冬季は積雪により継続観測が困難であるため、融雪後の植物成長期を中心に行った。平成23年度は、機器整備等により開始時期が秋季以降となった地点もあったため、ここでは平成24年度の結果を中心に報告する。摩周湖外輪山及び英彦山については、5月から10月の6ヶ月間のデータを、積雪の多い八海山については、融雪後の6月から降雪が本格化する11月までの全調査データを用いた。また、摩周湖外輪山については、展望台駐車場の自動車排ガスに由来する窒素酸化物 (NO 及び NO₂) の影響が認められたため、これらによるオゾンの消失を考慮し、下式により、潜在的なオゾン濃度 (ポテンシャル・オゾン, PO) も併せて評価した。

$$PO = O_3 + NO_2 - 0.1NO_x \quad (NO_2: \text{二酸化窒素}, NO_x: NO+NO_2)^5$$

⁵ 本地域では NO_x 測定に影響する硝酸等の濃度は非常に低いため、NO_x = NO + NO₂ として算出した。

八海山及び英彦山については、標高が低く都市部に位置する六日町（八海山から南西方向、

約12 km）及び太宰府（英彦山から西方向、約40 km）のデータもそれぞれ併せて評価した。

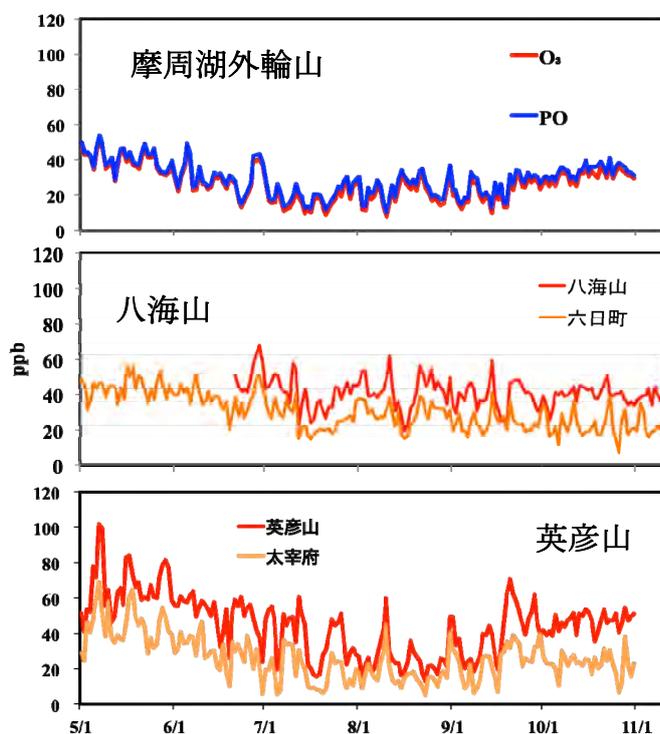


図 4-2-4 パイロット・モニタリング地点における
オゾン日平均濃度の変化（平成 24 年度）

注：摩周湖外輪山ではポテンシャル・オゾン（P0）濃度、八海山及び英彦山では近隣の六日町局及び太宰府局のオゾン濃度もそれぞれ併せて示した。

①季節変化

各地点における日平均濃度の調査期間中の変化を図 4-2-4 に示した。摩周湖外輪山や英彦山では、春季に高く、夏季に向かって低下し、秋季に再び上昇する傾向が見られた。摩周湖外輪山では、窒素酸化物の影響も考慮した P0 濃度は、オゾン濃度よりも若干高い値を示したが、調査期間を通じてオゾン濃度とほぼ同様の变化を示した。英彦山のオゾン濃度は、摩周湖外輪山に比べると春季や秋季により高く、特に春季には日平均として 100 ppb を超える高濃度が記録され、7-8 月の盛夏にも日平均が 60 ppb を超えることがあった。また、標高が低く都市部に位置する太宰府に比べると、英彦山のオゾン

濃度は調査期間を通じて高く、その差は特に春季や秋季に大きかった。八海山では、積雪により観測開始が遅れたため明瞭な季節変化は認められなかったが、近隣の六日町では、摩周湖外輪山や英彦山と同様に春季に高く夏季に向かって低下する傾向が見られた。

摩周湖周辺の土地利用は森林や農業利用であり、ローカルなオゾンの発生はほとんどないと考えられている。最も近い大規模な大気汚染発生源は釧路であり、約 60 km 離れている。ここで見られた季節変化パターンは、札幌北、天塩や利尻でも同様に見られることから、越境大気汚染等による比較的広域の影響を反映しているものと考えられた。

八海山や英彦山の日平均オゾン濃度が、標高が低い六日町や太宰府よりも高いのは、後述するように、日内変動が小さく、都市部のオゾン濃度が大きく低下する夜間や早朝でも、高い濃度を維持するからであった。太宰府の日内変動がより顕著な春季と秋季には、日平均の差が大きくなるようであった。英彦山（青年の家）における 5/7-8 の日平均 100 ppb を超える高濃度は、後方流跡線解析等により、大陸からの移流の可能性が示唆されている（濱村・須田、未発表）。この時に、調査期間の 1 時間値の最高値である 138 ppb が記録されている。

②日内変動

各地点の平均日内変動を図4-2-5に示した。日内変動は、八海山では約10 ppbの振幅が認められたが、摩周湖外輪山や英彦山では、より振幅は小さかった。変動パターンは地点によって異なっており、八海山ではオゾン濃度は昼前に最も低下し、昼過ぎから夜間にかけて上昇した。一方で近隣の六日町では昼間に高く夜間に低い明確な日変動を示し、日中は標高の高い八海山よりも高い値を示すことが多かった。前述したように日平均としては八海山の方が高く、夜間にかけてオゾン濃度が上昇するため、日中のオゾン濃度だけを対象にした評価では過小評価となる可能性もあり、留意が必要であると考えられた。

摩周湖外輪山では、9時から20時ぐらいまでの間、オゾン濃度はP₀濃度よりも低い値を示し、特に10時頃にその差は大きくなり、近接する駐車場に集まる観光バスから排出されると考えられる窒素酸化物による影響が示唆された。P₀濃度は早朝に最も低くなり、その後緩やかに上昇するという傾向が見られたが、その振幅は数ppbであった。

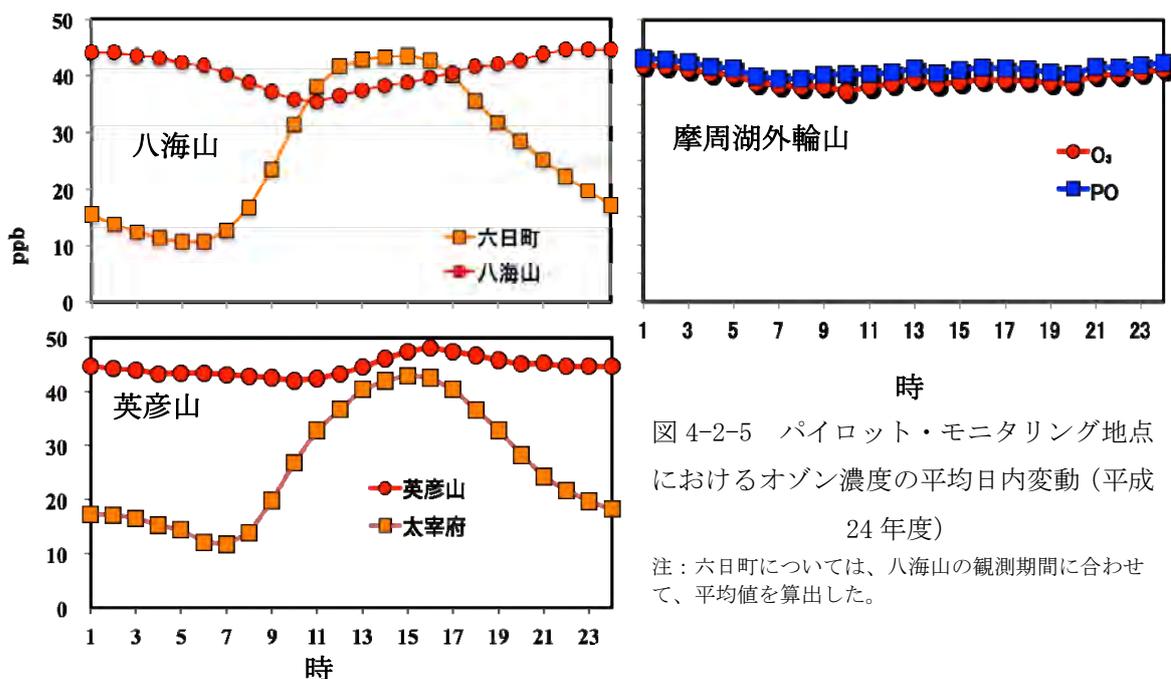


図 4-2-5 パイロット・モニタリング地点におけるオゾン濃度の平均日内変動（平成24年度）

注：六日町については、八海山の観測期間に合わせて、平均値を算出した。

英彦山のオゾン濃度は、夜間から午前中までほぼ一定であり、10時頃に最低値を記録した後、午後から夕方にかけて緩やかな上昇が見られ、16時頃に最高値に達した。一方、その約40km西に位置する太宰府ではより大きな日変動が見られ、7時頃に最低値を記録した後、15時頃に最高値に達した。周辺に発生源がほとんどない英彦山では地域内生成の寄与が小さく、窒素酸化物によるオゾンの消失効果も小さいため、福岡都市圏にある太宰府に比べて日変動が小さいと考えられる。また、ピークのずれは汚染源からの距離を反映していると考えられる。

③オゾン濃度の評価

平成24年度の植物成長期における、パイロット・モニタリング地点のオゾン濃度の概要を表4-2-2に示した。オゾン濃度は、英彦山、八海山、摩周湖外輪山の順で高く、英彦山や八海山は平均値や中央値でも、植物成長に影響を与えると考えられる40 ppb を超えていた。摩周湖外輪山では、窒素酸化物の影響を考慮した P0 でも、平均値や中央値は30 ppb 未満であった。植物成長への影響指標である AOT40⁶も、英彦山、八海山、摩周湖外輪山の順で高く、英彦山の AOT40は摩周湖外輪山のそれを20倍近く上回っていた。

欧州では、AOT40を用いた基準値（クリティカルレベル）が提言されており、世界保健機関（WHO）欧州地域事務所では大気質指針として、農作物及び森林に対し、それぞれ3 ppm・h（3ヶ月の積算値、5%の減収）及び10 ppm・h（6ヶ月の積算値、10%の成長量低下）をクリティカルレベルとして提言している [8]。欧州長距離越境大気汚染条約（CLRTAP）においても、1999年の議定書「Protocol to Abate Acidification, Eutrophication and Ground-level Ozone」の実行において、農作物に同じクリティカルレベルを採用 [9]し、樹木や自然植生の保全のためにも適用するとしている。また、森林については、オゾン暴露に対する感受性が高い地域では、5 ppm・h（6ヶ月の積算値）にすべきであることが提言されている [10]。我が国においては、代表的な樹種において10%の成長量低下を引き起こす AOT40は、8 ppm・h から21 ppm・h の間にあると考えられ [11]、そのクリティカルレベルとして20 ppm・h が提言されている [12]。

表4-2-2 平成24年度植物成長期におけるオゾン濃度の概要

	摩周湖外輪山*1	八海山	英彦山
モニタリング期間	5月1日～10月31日	6月21日～11月9日	5月1日～10月31日
平均値 (ppb) *2	27 (29)	41	45
中央値 (ppb) *2	27 (29)	40	46
95 パーセンタイル値 (ppb) *2	45 (47)	60	77
5 パーセンタイル値 (ppb) *2	11 (13)	25	17
AOT40 (ppm・h)*3	1.2 (1.9)	4.7	21.8

*1 ポテンシャル・オゾン (P0) の結果も併せてカッコ内に示した。*2 平均値等の算出は、夜間も含めた全時間値を対象とした。*3 AM6:00-PM6:00 (12時間) の40ppb を超えたオゾン濃度の時間積算値。各地点の積算期間はモニタリング期間に示したとおり。

これらのクリティカルレベルを考慮して、各地点の AOT40を評価すると、英彦山では、我が国の代表的な樹種に適用すべきであると提言されているクリティカルレベルを超えており、すでに樹木の成長が抑制されている可能性も考えられた。英彦山では、既にブナの枯

⁶ 40 ppb を超えたオゾン濃度の時間積算値 (Accumulated exposure Over a Threshold of 40 ppb, AOT40)。農作物の場合は 5-7 月の 3 ヶ月間、森林の場合は 4-9 月の 6 ヶ月間の積算値が多く用いられる。

死や衰退が報告されていることから、オゾンとの関連性についてより留意すべきであると考えられた。八海山ではAOT40はそれほど高くはないが、欧州における感受性が高い地域に適用されるべき値 (5 ppm·h) に近く、また、上述したように、八海山では夜間に向けてオゾン濃度が高くなる傾向があるため、積算する時間帯によっては AOT40はより大きくなる。AOT40は通常日中の時間帯で積算されているが、夜間のオゾン濃度も考慮すべきという報告 [13] [14]もある。また、八海山では、欧州の観察基準 [15]に照らした場合、オゾン暴露によるものと疑われる可視障害が生じたブナ葉も確認されたことから、樹木への影響についてもさらに情報を収集すべきであると考えられた。摩周湖外輪山ではAOT40は低く、現時点ではオゾンによる樹木への影響を示唆するレベルにはないが、植物の展葉前(3-4月)は恒常的にオゾン濃度が40-50 ppb 程度と比較的高いことが、これまでの調査で明らかになっている。展葉時期は6月半ば頃であり、現時点では直接的な影響は小さいと考えられるが、気候変動・温暖化などの影響で展葉時期が早まるとオゾンの影響が現在より強くなる可能性も考えられた。

4.2.3 PM の植物影響に関する研究の状況

PM とは Particulate Matter の略で、粒子状物質のことである。大気中の粒子状物質の体積粒度分布は、粒径1~2 μm 付近を谷として微小粒子と粗大粒子の二山型分布として表され、人為起源の PM は主に微小粒子として存在する [16]。したがって、アジア大陸から越境輸送される大気汚染物質に含まれる PM_{2.5}(大気中に浮遊している粒径が 2.5 μm 以下の粒子状物質)などの微小粒子状物質が植物に及ぼす影響を明らかにするためには、平均粒子径が数百 nm (サブミクロン)の微小粒子状物質を対象とした実験的研究や野外観測などを行う必要がある。これまでに、数 μm 以上の粒子径を持つ粗大粒子状物質が植物に及ぼす化学的又は物理的影響は報告されている。しかしながら、サブミクロンサイズの微小粒子状物質が植物に及ぼす影響はほとんど明らかにされていない [17] [18] [19]。

ここでは、植物に対する粒子状物質の影響に関する既存研究の結果を紹介し、樹木に対するサブミクロンサイズのブラックカーボン粒子の影響に関する実験的研究を概説し、今後の課題を示す。

(1) 植物に対するエアロゾルの影響に関する既存研究

植物に対する粒径が数μm以上の粒子状物質の化学的影響として、火力発電所やセメント工場から排出される粉塵に関する報告がある [20]。Darley [21]とLerman and Darley [22]は、アルカリ性を示すセメント粉塵を露滴と共にインゲンマメの初生葉に暴露すると、可視障害が発現し、葉のCO₂ 吸収速度が低下することを報告した。Krishnamurthy and Rajachidambaram [23]は、セメント粉塵と葉からの蒸散による水蒸気によってアルカリ溶液が生じ、孔辺細胞を損傷させることを報告した。Godzik *et al.* [24]は、亜鉛製錬所や高速道路の周辺においては葉内の重金属含有量は高いが、気孔 (サイズが数μm以上)を通して重金

属が葉内に取り込まれることは極めて少ないことを指摘している。今村ら [25]は、火力発電所由来の煤塵によるキャベツの葉の可視被害は吸湿した煤塵が強酸性の水滴となり、表皮細胞を損傷・脱水したことが原因であると考察した。河野ら [26] [27] [28]は、火力発電所の集塵装置から採取した煤塵がインゲンマメの初生葉に及ぼす影響を調べた結果、吸湿性や潮解性が強く、低pHで電気伝導度が高い煤塵による可視障害の程度が著しかったことを報告している。

植物に対する粒子状物質の物理的影響として、葉面に付着した粉塵による遮光、葉温上昇及び気孔閉塞による光合成阻害などが報告されている。Peirce [29]やParish [30]は、セメント工場周辺のアレンジ園で調査した結果、葉の向軸面でセメント粉塵が層状に堆積し、雨によって洗い流されないことを報告した。Peirce [29]は、セメント粉塵が付着したアレンジの葉でデンプン合成が減少し、この原因として粉塵による遮光を指摘した。Eller [31]は、道路粉塵が付着した葉では日射吸収量の増大によって葉温が約4°C上昇したことを報告し、光合成への悪影響を懸念した。Borka [32] は、鉄製錬所から飛来した粉塵に覆われた葉において葉温が上昇し、暗呼吸速度が上昇することを報告している。Singh and Rao [33]は、セメント粉塵で覆われたコムギの葉の蒸散速度や成長が低下した原因として、粉塵による葉の遮光と気孔が詰まったことによる葉のガス交換能力の阻害を指摘した。Thompson *et al.* [34]は、化学的に不活性な粉塵を付着させたサンゴジュの葉の純光合成速度は低下し、水蒸気気孔拡散抵抗は昼間は高くなったが、夜間は逆に低くなったことを報告している。Krajickova and Mejstrik [35]は、フライアッシュが付着した葉を顕微鏡で観察した結果、粉塵が入り込んだ気孔はなく、粉塵が孔辺細胞を刺激したため水蒸気気孔拡散抵抗が低下したと推測している。一方、Beasley [36]は、気孔が存在する葉の背軸面に粒子を付着させると夜間における蒸散量が増大したが、気孔が存在しない葉の向軸面に付着させても影響がないことを確認し、粒子は気孔の完全な閉鎖を妨げることを指摘した。また、Ricks and Williams [37]は、工場周辺に生育するウマメガシの葉では、気孔に粉塵が入り込んでいることを観察し、気孔が閉じられないため夜間の気孔拡散抵抗が小さくなったことを報告した。さらに、Flückiger *et al.* [38]は、ポプラの葉の背軸面に気孔が開いている状態でシリカゲル粒子を付着させると、粒径15 µm以下の粒子は昼夜の水蒸気気孔拡散抵抗を低下させることを示した。Eveling [39]は、シリカゲルや粘土などの粒子の懸濁液が葉面で乾燥する際、摩擦や吸水作用によってクチクラワックスを破壊し、クチクラ抵抗の低下に伴う水分損失が引き起こされることを指摘した。平野ら [40] [41] [42] [43] [44]及びHirano *et al.* [45]は、粉塵の植物影響に関する詳細な研究を行い、キュウリやインゲンマメなどの葉面に付着した粉塵は遮光作用によって純光合成速度を低下させ、明期では気孔を塞いで気孔コンダクタンスを低下させるが、暗期では気孔閉鎖を妨げて気孔コンダクタンスを上昇させることを報告している。また、葉表面に付着した粉塵による葉温上昇によって蒸散速度は上昇したが、純光合成速度は適温域以下では上昇し、適温域以上では低下したことを報告している。Bačić *et al.* [46]は、クロアチアのセメント工場周辺に生育しているアレポマツ(*Pinus halepensis*)の針葉表面を

電子顕微鏡で観察した結果、不定形の粒子が気孔を塞いでいることを報告した。Chaston and Doley [47]は、葉面に沈着したフライアッシュなどによる葉温上昇を報告している。

(2) 樹木に対するサブミクロンサイズのブラックカーボン粒子の影響に関する研究

粒子状物質には、燃焼過程などによって大気中に直接放出される一次粒子と窒素酸化物、硫黄酸化物及び揮発性有機化合物(VOCs)の光化学反応とそれに続く凝縮によって生成される二次粒子がある [48]。黒色炭素(ブラックカーボン)は、炭素を主成分とする燃料が高温で不完全燃焼する際に発生する。具体的には、ディーゼルエンジンの排気、石炭燃焼及び森林火災などからブラックカーボンは生じる。ブラックカーボンは、世界全体で年間に 8.0 Tg 発生し、その約 40%がアジア起源であり、世界最大の発生国は中国であるとの報告もある [48]。

平成 20 年度新学術領域研究(平成 20~24 年度)として、「東アジアにおけるエアロゾルの植物・人間系へのインパクト」(領域代表者: 畠山史郎, 東京農工大学)が採択された。この研究領域の研究項目 A03(研究項目代表者: 伊豆田 猛, 東京農工大学)では、東アジアの森林を構成している樹木に対するブラックカーボン粒子や硫酸アンモニウム粒子の影響に関する実験的研究(写真 1)や観測用鉄塔を用いた野外調査(写真 2)などが行われた [49] [50]。ここでは、樹木に対するサブミクロンサイズのブラックカーボン粒子の影響に関する実験的研究を概説する [17] [19]。供試樹木として、鹿沼土を詰めたポットに植栽したブナ(*Fagus crenata*, 3年生苗)、スダジイ(*Castanopsis sieboldii*, 2年生苗)、カラマツ(*Larix kaempferi*, 1年生苗)及びスギ(*Cryptomeria japonica*, 1年生苗)を用いた。2009年6月1日に、各樹種の苗木を16ポットずつ、6基の粒子暴露チャンバー内(昼 25/夜 18°C, 相対湿度 70±5%)にそれぞれ配置し、2010年11月2日までの2成長期間にわたって育成した(写真 1)。なお、2010年1月7日~3月19日までの期間は、圃場で苗木を育成した。本実験においては、4樹種の苗木へのブラックカーボン粒子の暴露を行わない対照区とブラックカーボン粒子の暴露を行うブラックカーボン暴露区を設定した。各処理区あたり3基の粒子暴露チャンバーを用いることにより、3チャンバーレプリケーションを設定した。2009年6月13日~2010年1月6日及び2010年3月21日~6月12日において、2日に1回、8:00~9:00の間に、静電気力型噴霧装置を用いたブラックカーボン粒子の暴露を10分間及び超音波力型噴霧装置を用いた暴露を5分間にわたって行った。2010年6月13日~10月31日においては、1日1回、6:00~9:00の間に、静電気力型噴霧装置を用いたブラックカーボン粒子の暴露を50分間及び超音波力型噴霧装置を用いた暴露を25分間にわたって行った。



写真1 粒子暴露チャンバー
(東京農工大学, 東京都府中市)
注: チャンバー内部の中央に、ブラックカーボン粒子発生装置が設置されている

2 成長期間終了時(2010 年 11 月)における単位葉面積当たりのブラックカーボン沈着量は樹種によって異なり、スダジイ>スギ>カラマツ>ブナの順に高かった(写真 3)。2010 年 8 月におけるブナ、スダジイ、カラマツ及びスギの光飽和条件下における純光合成速度、葉温及び光合成の光利用効率にブラックカーボン粒子の暴露の有意な影響は認められなかった。さらに、2010 年 8 月におけるブナ、スダジイ、カラマツ及びスギの葉の光化学系 II の最大量子収率(Fv/Fm)及びブナとスダジイの葉の分光特性に対するブラックカーボン粒子の暴露の有意な影響は認められなかった。これらの結果から、本実験で行った暴露によって葉表面に沈着したブラックカーボン粒子が光を吸収することによって樹木の葉内に到達する光の量が減少することや葉温が上昇することはなかったと考えられる。また、本実験で暴露したブラックカーボン粒子は、ブナ、スダジイ、カラマツ及びスギの葉の気孔に侵入して気孔開閉に影響を及ぼすことはなかった。2010 年 11 月におけるブナ、スダジイ、カラマツ及びスギの樹高、根元幹直径及び個体乾重量にブラックカーボン粒子の暴露の有意な影響は認められなかった。したがって、本実験における暴露による葉面ブラックカーボン沈着量の増加量(<1 mg C m⁻²)は少なかったため、4 樹種の成長や光合成などの生理機能に有意な影響が発現しなかったと考えられる。

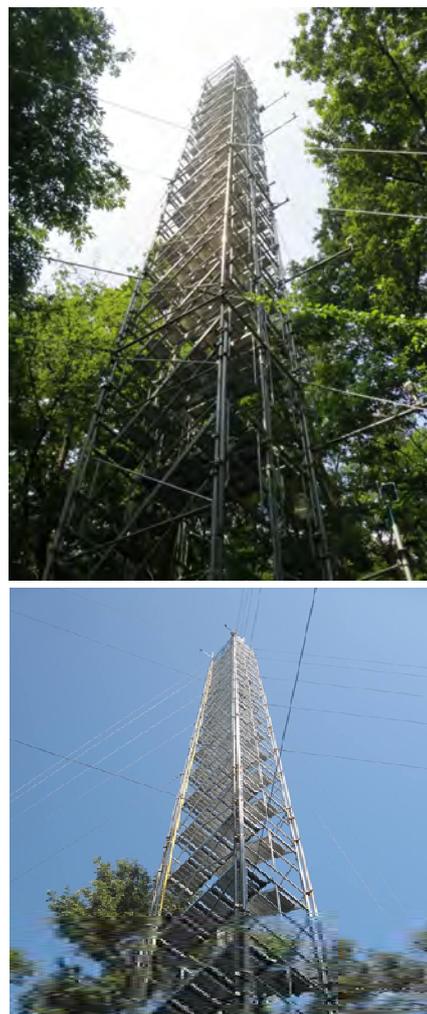


写真 2 粒子状物質の観測用鉄塔
注：上の鉄塔は東京都八王子市(東京農工大学 FM 多摩丘陵)に、下の鉄塔はタイ国サケラートに設置されている

ブラックカーボン粒子が樹木の葉のガス交換速度に及ぼす影響を明らかにするために、静電気力型噴霧装置を用いてブナ、スダジイ、カラマツ及びスギの葉に最長 50 時間にわたって連続的にブラックカーボン粒子の短期暴露を行った [51]。暴露の前後に葉のガス交換速度とブラックカーボン粒子の葉面沈着量を測定した [52]。4 樹種の葉に連続 50 時間にわたってサブミクロンサイズのブラックカーボン粒子を暴露した結果、暴露後の純光合成速度は暴露前のそれに比べて

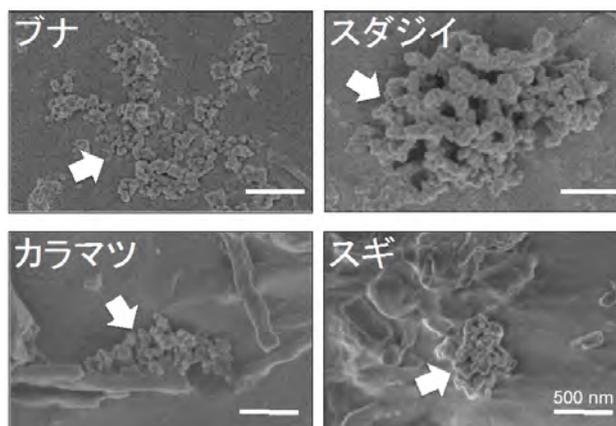


写真3 ブナ、スダジイ、カラマツ及びスギの葉に沈着したブラックカーボン粒子

注：矢印は、葉の表面に沈着した暴露由来のブラックカーボン粒子である

低かった。そこで、暴露後に測定した純光合成速度の相対値(暴露前の値を 1 とした時の値)と暴露によって増加した葉面ブラックカーボン沈着量との関係を調べた。その結果、いずれの樹種においても両者の間に有意な負の直線関係が認められた。しかしながら、4 樹種における直線回帰式の傾きの絶対値は異なり、ブラックカーボン粒子の葉面沈着量の増加に伴う純光合成速度の低下程度はスダジイ>ブナ>スギ>カラマツの順に著しいことが明らかになった。この短期暴露実験の結果に基づくと、4 樹種の純光合成速度が 10%低下する葉面ブラックカーボン沈着量は、3.2(スダジイ)、8.5(ブナ)、12.3(スギ)及び 39.0 mg C m⁻²(カラマツ)であった。上記の長期暴露実験に比べて、本実験における暴露による葉面ブラックカーボン沈着量の増加量が多かったため、暴露後の純光合成速度が暴露前のそれに比べて低下したと考えられる。

(3) 今後の課題

最近、日本では、アジア大陸から輸送される PM_{2.5} などの微小粒子状物質による越境大気汚染が深刻な環境問題として注目を集めている。しかしながら、アジアの森林を構成している樹木に対する微小粒子状物質の影響やアジアの森林における粒子状物質の乾性沈着に関する研究は始まったばかりである [53]。したがって、今後も、様々な森林樹木に対する微小粒子状物質の影響を解明する必要がある。また、アジアの森林樹木は、微小粒子状物質のみならず、光化学オキシダントの主成分であるオゾン(O₃)の影響も受けている可能性が高い。したがって、一刻も早く、微小粒子状物質とオゾンが森林樹木に及ぼす複合影響を解明し、アジア全域を対象とした越境大気汚染物質による森林影響評価を行う必要がある。

(4.2 の引用文献)

[1] M. Watanabe, M. Yamaguchi, M. Iwasaki, N. Matsuo, J. Naba, C. Tabe, H. Matsumura, Y.

- Kohno and T. Izuta, "Effects of ozone and/or nitrogen load on the growth of *Larix kaempferi*, *Pinus densiflora* and *Cryptomeria japonica* seedlings" *Journal of Japan society for Atmospheric Environment*, vol. 41, no. 6, pp. 320-334, 2006.
- [2] M. Watanabe, M. Yamaguchi, C. Tabe, M. Iwasaki, R. Yamashita, R. Funada, M. Fukami, H. Matsumura, Y. Kohno and T. Izuta, "Influences of nitrogen load on the growth and photosynthetic responses of *Quercus serrata* seedlings to O₃" *Trees*, vol. 21, no. 4, pp. 421-432, 2007.
- [3] M. Watanabe, M. Yamaguchi, H. Matsumura, Y. Kohno and T. Izuta, "Effects of ozone on growth and photosynthesis of *Castanopsis sieboldii* seedlings grown in different nitrogen loads" *Journal of Agricultural Meteorology*, vol. 24, no. 3, pp. 143-155, 2008.
- [4] M. Yamaguchi, M. Watanabe, M. Iwasaki, C. Tabe, H. Matsumura, Y. Kohno and T. Izuta, "Growth and photosynthetic responses of *Fagus crenata* seedlings to O₃ under different nitrogen loads" *Trees*, vol. 21, no. 6, pp. 707-718, 2007.
- [5] 渡辺誠, 山口真弘, "日本の森林樹種 6 種に対する窒素沈着を考慮したオゾンのリスク評価" *日本生態学会誌*, vol. 61, no. 1, pp. 89-96., 2011.
- [6] M. Takigawa, M. Niwano, H. Akimoto and M. Takahashi, "Development of an one-way nested global-regional air quality forecasting model" *SOLA*, vol. 3, pp. 81-84, 2007.
- [7] 環境省, 越境大気汚染・酸性雨長期モニタリング (平成 20-22 年度) 中間報告, 環境省, 2012.
- [8] WHO Regional Office for Europe, "Chapter 12 Effects of ozone on vegetation: critical levels" in *Air Quality Guidelines - Second Edition*, Copenhagen, Denmark., WHO Regional Office for Europe, 2000.
- [9] UNECE, "Section IX. 1999 Protocol to Abate Acidification, Eutrophication and Ground-level Ozone" in *Handbook for the 1979 Convention on Long-Range Transboundary Air Pollution and its Protocols*, UNECE, 2004.
- [10] P. Karlsson, G. Sellden, H. Pleijel, Establishing Ozone Critical Levels II UNECE Workshop Report. IVL Report B1523, IVL Swedish Environmental Research Institute, Ltd., 2003, p. 379.
- [11] 伊豆田猛, 松村英幸, "植物保護のための対流圏オゾンのクリティカルレベル" *大気環境学会誌*, vol. 32, pp. A73-A81, 1997.
- [12] 河野吉久, "東アジアにおける酸性・酸化性物質の植生影響評価とクリティカルレベル構築に関する研究 (平成 15~17 年度)" In *環境省地球環境研究総合推進費終了研究成果報告書*, 環境省, 2006.
- [13] R. Matyssek, M. S. Gunthardt and S. K. T. Maurer, "Nighttime exposure to ozone reduces whole-plant production in *Betula pendula*" *Tree Physiology*, vol. 15, p. 159-165, 1995.
- [14] S. Mereu, G. Gerosa, A. Finco, L. Fusaro, B. Muys and F. Manes, "Improved sapflow methodology reveals considerable night-time ozone uptake by Mediterranean species" *Biogeosciences*, vol. 6, p. 3151-3162., 2009.
- [15] K. Novak, J. Skelly, M. Schaub, N. Kraeuchi, C. Hug, W. Landolt and P. Bleuler, "Ozone air pollution and foliar injury development" *Environmental Pollution*, vol. 125, pp. 41-52., 2003.
- [16] 笠原三紀夫, "エアロゾル用語集 (日本エアロゾル学会編)" *京都大学出版会*, pp. 22-23, 2004.
- [17] M. Yamaguchi, K. Takeda, Y. Otani, N. Murao, H. Sase, I. W. Lenggoro, K. Yazaki, K. Noguchi, A. Ishida and T. Izuta, "Optical method for measuring deposition amount of black carbon particles on foliar surface." *Asian Journal of Atmospheric Environment*, vol. 6, pp. 268-274, 2012.
- [18] K. Yamane, S. Nakaba, M. Yamaguchi, K. Kuroda, Y. Sano, I. W. Lenggoro, T. Izuta and R. Funada, "Visualization of artificially deposited submicron-sized aerosol particles on the surfaces of leaves and needles in trees" *Asian Journal of Atmospheric Environment*, vol. 6, pp.

275-280, 2012.

- [19] 伊豆田猛, 山口真弘, 山根健一, 半智史, 石田厚, 矢崎健一, 野口享太郎, W. Lenggoro, “森林樹木に対するブラックカーボン粒子の影響に関する実験的研究” *エアロゾル研究*, vol. 29, 印刷中, 2014.
- [20] A. M. Farmer, "The effects of dust on vegetation" *A review, Environ. Pollut*, vol. 79, pp. 63-75, 1993.
- [21] E. F. Darley, "Studies on the effect of cement-kiln dust on vegetation" *J. Air Pollut. Contr. Assoc.*, vol. 16, pp. 145-150, 1966.
- [22] S. L. Lerman and E. F. Darley, "Particulates" in *Responses of Plants to Air Pollution (Edited by Mudd, J. B. and Kozłowski, T. T.)*, New York, Academic Press, 1975, pp. 141-158.
- [23] K. V. Krishnamurthy and C. Rajachidambaram, "Factors associated with reduction in photosynthetic oxygen evaluation in cement dust coated leaves" *Photosynthetica*, vol. 20, pp. 164-168, 1986.
- [24] S. Godzik, T. Florkowski, P. S. and M. M. A. Sassen, "An attempt to determine the tissue contamination of *Quercus robur* and *Pinus sikkvestris* L. foliage by particles from zink and lead smelters" *Environ. Pollut*, vol. 18, pp. 97-106, 1979.
- [25] 今村三郎, 沖野英男, 稲垣育雄, “火力発電所粉塵によるカンランの被害” *愛知県農業総合試験場 研究報告B (園芸)*, vol. 6, pp. 102-107, 1974.
- [26] 河野吉久, 高梨成行, 石川春彦, “ばいじんの植物におよぼす影響に関する研究. インゲン初生葉のばいじん付着障害とばいじんの pH および電気伝導度との関係” *電力中央研究所研究報告*, vol. 477001, pp. 1-20, 1977.
- [27] 河野吉久, 高梨成行, 石川春彦, “ばいじんの植物におよぼす影響に関する研究. ボイラー燃料とインゲン葉におけるばいじん障害との関係” *電力中央研究所研究報告*, vol. 478001, pp. 1-10, 1978.
- [28] 河野吉久, 高梨成行, 石川春彦, “ばいじんの植物におよぼす影響に関する研究. インゲン初生葉におよぼす水溶性成分の影響” *電力中央研究所研究報告*, vol. 479001, pp. 1-14, 1979.
- [29] G. Peirce, "An effect of cement dust on orange trees" *Plant World*, vol. 13, pp. 283-288, 1910.
- [30] S. B. Parish, "The effects of cement dust on citrus trees" *Plant World*, vol. 13, pp. 288-291, 1910.
- [31] B. M. Eller, "Road dust induced increase of leaf temperature" *Environ. Pollut*, vol. 13, pp. 99-107, 1977.
- [32] G. Borka, "Effect of metalliferous dust from dressing works on the growth, development, main metabolic processes and yield of winter wheat in situ and under controlled conditions" *Environ. Pollut*, vol. 35, pp. 67-73, 1984.
- [33] S. N. Singh and D. N. Rao, "Certain responses of wheat plants to cement dust pollution" *Environ. Pollut*, vol. 24, pp. 75-81, 1981.
- [34] J. R. Thompson, P. W. Mueller, W. Flückiger and A. J. Rutter, "The effects of dust on photosynthesis and its significance for roadside plants" *Environ. Pollut*, vol. 34, pp. 171-190, 1984.
- [35] A. Krajickova and V. Mejstrik, "The effects of fly ash particles on the plugging of stomata" *Environ. Pollut*, vol. 36, pp. 83-93, 1984.
- [36] E. W. Beasley, "Effects of some chemically inert dusts upon the transpiration rate of yellow coleus plants" *Plant Physiol*, vol. 17, pp. 101-108, 1942.
- [37] G. R. Ricks and R. J. H. Williams, "Effects of atmospheric pollution on deciduous woodland Part 2, Effects of particulate matter upon stomatal diffusion resistance in leaves of *Quercus petraea* (Mattuschka) Leibl" *Environ. Pollut*, vol. 6, pp. 87-109, 1974.

- [38] W. Flückiger, J. Oertli, H. Flückiger, "Relationship between stomatal diffusive resistance and various applied particle size on leaf surfaces" *Z. Pflanzenphysiol*, Vol. 91, pp. 173-175, 1979.
- [39] D. W. Eveling, "Scanning electron microscopy of damage by dust deposits to leaves and petals" *Bot. Gaz*, vol. 147, pp. 159-165, 1986.
- [40] 平野高司, 清田信, 北宅善昭, 相賀一郎, "植物葉の光合成速度に与える粉じんの物理的影響" *農業気象*, vol. 46, pp. 1-7, 1990.
- [41] 平野高司, 清田信, 相賀一郎, "粉じんによる機構閉塞作用と葉温上昇作用が植物葉の光合成速度に与える影響" *農業気象*, vol. 46, pp. 215-222, 1991a.
- [42] 平野高司, 清田信, 相賀一郎, "温州ミカンの葉面に付着した道路粉じんの遮光作用が光合成に与える影響評価" *大気汚染学会誌*, vol. 26, pp. 352-358, 1991b.
- [43] 平野高司, 清田信, 関和雄, 相賀一郎, "雲仙普賢岳と桜島火山灰の付着がキュウリの葉温と気孔コンダクタンスに与える影響" *農業気象*, vol. 48, pp. 139-145, 1992.
- [44] 平野高司, "植物葉の光合成に与える粉じんの影響に関する研究" *大阪府立大学紀要*, Vol. 46, pp. 137-271, 1994.
- [45] T. Hirano, M. Kiyota and I. Aiga, "Physical effects of dust on leaf physiology of cucumber and kidney bean plants" *Environ. Pollut*, vol. 89, pp. 225-261, 1995.
- [46] T. Bačić, A. H. Lynch and D. Cutler, "Reaction to cement factory dust contamination by *Pinus halepensis* needles" *Environ. Exp. Bot*, vol. 41, pp. 155-166, 1999.
- [47] K. Chaston and D. and Doley, "Mineral particulates and vegetation, Effects of coal dust, overburden and flyash on light interception and leaf temperature" *Clean Air Environ. Quality*, vol. 40, pp. 40-44, 2006.
- [48] 近藤豊, "ブラックカーボンと地球温暖化" *日本地球惑星連合ニュースレター*, vol. 3, pp. 1-3, 2007.
- [49] 伊豆田猛, 船田良, "東アジアにおけるエアロゾルの森林影響の解明をめざして" *北方林業*, vol. 62, pp. 61-64, 2010.
- [50] 伊豆田猛, "植物に対するエアロゾルの影響に関する研究" *エアロゾル研究*, vol. 26, pp. 120-126, 2011.
- [51] 伊豆田猛, 石田厚, 矢崎健一, 野口享太郎, W. Lenggoro, 山口真弘, 大谷葉子, 竹田健太, 李咄冉, 長尾宙, "樹木に対するエアロゾルの影響とその樹種間差異の解明" *第53回大気環境学会年会講演要旨集*, vol. 80, 2012.
- [52] M. Yamaguchi, Y. Otani, K. Takeda, W. Lenggoro, A. Ishida, K. Yazaki, K. Noguchi, H. Sase, N. Murao, S. Nakaba, K. Yamane, K. Kuroda, Y. Sano, R. Funada and T. Izuta, "Effects of long-term exposure to black carbon particles on growth and gas exchange rates of *Fagus crenata*, *Castanopsis sieboldii*, *Larix kaempferi* and *Cryptomeria japonica* seedlings" *Asian Journal of Atmospheric Environment*, vol. 6, pp. 259-267, 2012.
- [53] K. Matsuda, H. Sase, N. F. T. Murao, K. Khoomsub, P. Chanonmuang, T. Visaratana and P. Khummongkol, "Dry and wet deposition of elemental carbon on a tropical forest in Thailand" *Atmos. Environ*, vol. 54, pp. 282-287, 2012.

5. 越境大気汚染・酸性雨研究に関する国内外の主な取組

5.1 国内における取組

5.1.1 環境省環境研究総合推進費戦略的研究開発領域 S-7 による研究活動

環境省では平成 21 年度から 25 年度までの計画で、環境研究総合推進費戦略的研究開発領域における研究活動として、「東アジアにおける広域大気汚染の解明と温暖化対策との共便益を考慮した大気環境管理の推進に関する総合的研究 (S-7)」(研究代表者：秋元肇 一般財団法人日本環境衛生センター アジア大気汚染研究センター所長)を行った。本研究プロジェクトでは、我が国におけるオゾン・エアロゾル汚染に関し、東アジア地域の広域汚染及び半球規模汚染からの長距離輸送による寄与の定量化とともに、科学的知見を基に、越境大気汚染及び地球温暖化防止の双方に効果的な共便益(コベネフィット)を考慮した東アジア地域の大气汚染物質削減シナリオを開発し、その実現への国際的な合意形成に向けた道筋について検討を行った。本研究プロジェクトは、テーマ 1「数値モデルと観測を総合した東アジア・半球規模のオゾン・エアロゾル汚染に関する研究 (S-7-1)」、テーマ 2「東アジアにおける排出インベントリの高精度化と大気汚染物質削減シナリオの策定 (S-7-2)」及びテーマ 3「東アジアの大気汚染対策促進に向けた国際枠組とコベネフィットアプローチに関する研究 (S-7-3)」の 3 テーマ体制で研究を実施した。

テーマ 1 においては、東アジア(北東アジア及び東南アジア)におけるオゾンと $PM_{2.5}$ の長距離越境輸送に関するソース・レセプター(排出源と受容地)関係を定量化するとともに、削減感度実験により大気汚染物質排出量の削減効果を評価した。また、衛星・地上観測によりモデルの精緻化を進めるとともに、長崎県福江島では越境大気汚染が主な理由で $PM_{2.5}$ の環境基準を達成できない状況にあること、衛星からの観測データから、特に中国中東部では 1996 年～2010 年までオゾン前駆体物質である NO_2 の濃度増加がなお続いていることを明らかにした。さらに、オゾン、ブラックカーボン、 SO_2 等の大気汚染物質の気候影響を評価するための研究を行い、共便益アプローチを含めた国際取組の必要性を指摘した。

テーマ 2 では、テーマ 1 でのソース・レセプター解析や気候影響解析のために用いるアジア域における排出インベントリ (REAS) について、衛星観測の結果も活用して 2008 年までのデータの更新とその高精度化を図り、アジアにおける大気汚染物質の排出量の傾向、燃料・部門別の構成等を明らかにした。また、気候変動に関する政府間パネル (IPCC) で作成されているシナリオの中の大気汚染物質インベントリと REAS との整合化を図るとともに、アジアにおける対策技術評価モデルを組み込んだ大気汚染物質削減シナリオを構築した。

テーマ 3 では、大気汚染と気候変動とのコベネフィットアプローチの制度設計を含め、越境大気汚染問題の解決のための国際的枠組みのあり方とその実現に向けた有効な合意形成プロセスについて提言を行った。また、今後の広域大気汚染に関する各国間の共通認識を形成する上で重要と思われる大気汚染の環境影響に関し、アジアにおけるオゾンと $PM_{2.5}$ による健康影響及び農作物影響について、経済評価を含む定量的評価を行った。

5.1.2 全国環境研協議会による酸性雨広域大気汚染全国調査

地方自治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、1991年度から日本を網羅する酸性雨全国調査を共同で実施している。調査開始は環境省調査の8年後であるが、全国の150以上の地点で取得されたデータはシミュレーションモデル開発の基礎資料として活用された。その後も、流跡線解析による越境汚染の評価、世界標準の降水時開放型捕集装置の採用、ガス・粒子濃度測定手法の開発・改良、乾性沈着量の評価等を通じて、日本の酸性雨研究の発展に寄与してきた。特にガス・粒子濃度測定用のフィルターパック法（FP法）については、本調査で開発・改良された方法が環境省調査及び東アジア酸性雨モニタリングネットワーク（EANET）の標準法として採用されている。近年は、環境省調査が国際的・全国的な見地から、遠隔地等における酸性雨及びその原因物質の長距離輸送の観測に主眼を置いているのに対し、本調査は近隣諸国からの越境汚染に注目しつつも地域の環境保全の見地から都市及び田園地域等における酸性沈着の評価に重点を置いている。従来の第1次から第4次調査は3-6年を単位に実施されてきたが、平成21年度からの第5次調査は期限を設定しない体制となり、湿性・乾性沈着の観測・評価に加え、窒素成分のより高精度な沈着量の把握やバックグラウンドオゾン濃度の把握等を主眼に調査が実施されている。平成24年度時点での地点数は、湿性沈着が66、FP法によるガス・粒子濃度測定が34、パッシブ法（PS法）によるガス濃度測定が36である。これらのデータからは、汚染物質の広域的な移動状況や各地域における沈着量など、様々な解析結果が得られており、全国環境研会誌や大気環境学会等の場を通じて広く情報提供されている。また、国立環境研究所地球環境研究センターの地球環境データベース（<http://db.cger.nies.go.jp/dataset/acidrain/>）においても順次データが公開されている。

5.2 国際的な取組

5.2.1 東アジア酸性雨モニタリングネットワーク（EANET）の活動

（1）東アジアにおける長距離輸送モデルの比較研究プロジェクト（MICS-Asia）

東アジアは、近年の経済成長に伴う大気汚染物質・オゾン前駆物質排出量の増加により、大気質悪化の影響が世界で最も懸念されている地域となっている。平成19年5月に発生した光化学オキシダントによる広域大気汚染は、東アジアにおける越境大気汚染が大きく顕在化した事例として社会問題となった。更に、平成25年1月以降に中国全域で発生した、PM_{2.5}を起源とする東アジア大気環境の深刻な悪化と健康影響に関する懸念は報道で大きく取り上げられ、現在の国民的関心事項となっている。これらの課題に対処するためには、東アジアの国々が越境大気汚染についての国際的な共通理解を深め、地域協力により取組を推進していくことが必要であるが、必ずしも国際的な合意形成を得るには至っていないのが現状である。

越境大気汚染状況の定性・定量的理解においては、大気化学モデルによるシミュレーションが不可欠である。大気化学モデルによる研究は、かつては大規模な計算設備が必要であり、専門の研究者が

独自のモデルを開発して行うものであったが、近年の大幅な計算機能力の向上・低価格化と、無償で使用可能なコミュニティーモデルの普及に伴い、大気化学モデルは一般的な研究ツールとなりつつある。しかし、大気化学モデルにはモデル内でのプロセスの取り扱い、地表面や境界における入力データ、空間分解能設定等の違いによる不確実性が存在し、東アジア規模での大気質や酸性雨を対象としたシミュレーション結果にはモデル間で有意な差が生じている。従って、単一のモデルによる結果では参加国において共通理解の共有が進まない可能性が高い。

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プロジェクト (MICS-Asia : Model Inter-Comparison Study in Asia)」が EANET における研究活動の一つとして立ち上がり、2010 年より第 3 期の活動を行っている。第 3 期では、欧米及び東アジア地域のシミュレーション研究の専門家が参加して、その活動内容の検討と成果報告を行う「東アジアにおける大気モデル研究の国際ワークショップ」が、中国において毎年開催されている。

2011 年 9 月に中国・成都で開催された第 3 回ワークショップにおいて、第 3 期では次の 3 つのテーマを主な研究トピックとすることが決定され、各研究トピックに関心を有する研究者によるグループディスカッションが行われた。

- i) マルチスケールにおけるモデル間の相互比較
- ii) 排出インベントリの相互比較
- iii) 大気質と気候変動の関係に関するモデル間相互比較

2013 年 3 月に中国・昆明で開催された第 4 回ワークショップでは、平成 25 年の研究活動計画について議論が行われ、次回ワークショップまでに気象モデルの計算データ、人為起源、自然起源の排出インベントリの提出と参加研究者への配布、2010 年を対象とした東アジアにおける大気化学モデルの計算結果の報告を行うことが定められた。

今後は、2010 年の計算結果と大気汚染物質濃度の月間値・1 時間値の観測結果との比較及び参加モデル間の相互比較を行い、大気化学モデルにおける不確実性の要因となるプロセスを検証するとともに、特定地域及び発生源の排出量の削減に対する大気質の応答感度のモデル間の相互比較や、将来排出量シナリオに対する大気質の応答感度のモデル間の相互比較も進める。更に、大気質と気候変動の関係の観点から、短寿命気候汚染物質 (SCLPs : Short-Lived Climate Pollutants) の濃度、沈着量のシミュレーションとその結果から、SLCPs による放射強制力と気候への影響、健康、農業、生態系等への影響についても評価していく予定である。

(2) 東アジアにおける酸性雨の状況に関する第 2 次定期報告書 (PR SAD2) の作成

EANET では、報告されたモニタリングデータに基づき、東アジアにおける酸性雨問題に関する理解の促進を目的として、「東アジアにおける酸性雨の状況に関する定期報告書」(PR SAD : Periodic Report on the State of Acid Deposition in East Asia) を 5 年に 1 度作成している。第 2 次報告書 (PR SAD2) は 2005 年から 2009 年までの 5 年間に蓄積された酸性雨に関するデータを取りまとめ、東アジアにおける酸性雨の状況を解析・評価した。作成に当たっては、EANET 科学諮問委員会において起草委員会を立ち上げ、原稿の作成及び内容検討が行われ、2011 年 11 月に開催された EANET 第 13 回政府間会合におい

て了承を経た後、2012年3月に公表された。

本報告書は Part I (地域アセスメント版)、Part II (国別アセスメント版) 及び Part III (エグゼクティブ・サマリー) の3つのパートから構成されている。雨水の5年間平均pHは全EANETモニタリングサイトの60%以上で5.0未満であり、依然として酸性雨が東アジアの広範囲で降り続けていること、樹木の成長阻害及び下層植物の種の数の減少は確認されていないこと、日本のほとんどのモニタリングサイトで5年間のオゾンの月平均濃度は前の5年間よりも高い値となっていること、いくつかのモニタリングサイトで陸水の硝酸イオン濃度の上昇やpHの低下傾向が確認されたことなどが報告されている。

5.2.2 欧米における大気モニタリングネットワークの活動

(1) 欧州における活動

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、1972年に経済協力開発機構(OECD)において発足した大気汚染物質のモニタリング計画に続き、1977年には、国連欧州経済委員会(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(EMEP: Co-operative Program for Monitoring and Evaluation of the Long-Range Transmissions of Air Pollutants in Europe)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(CLRTAP: Convention on Long-range Transboundary Air Pollution)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、カナダ等49カ国が加盟し、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付けるとともに、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、情報交換の推進等を定めている。

ヨーロッパにおけるモニタリングネットワークを指揮するEMEPは、当初は酸性化と富栄養化関連物質の越境輸送の評価を主目的としていたが、その後、地表オゾン、最近ではPOPs、重金属、粒子状物質に評価対象を拡張している。EMEPは、i) 発生源データの収集、ii) 大気質と降水組成の測定、iii) 大気汚染物質の輸送と沈着のモデル化、の3要素を組み合わせることによって、大気汚染物質の排出量、濃度及び沈着量、越境フラックス量及び臨界負荷量とその閾値超過に関して、必要とされる評価と定期報告を行っている。EMEP傘下の主な組織とその役割は、① CCC (Chemical Coordination Center, Norwegian Institute for Air Research): 大気質と降水の化学組成のモニタリングについての調整と機関間精度管理、② CEIP (Center on Emission Inventories and Projections, Environment Agency Austria): 酸性化関連大気汚染物質、重金属、エアロゾル、光化学オキシダントの排出量と予測量の収集、③ CIAM (Centre on Integrated Assessment Modeling, International Institute for Applied Systems Analysis, Austria): 統合評価モデルセンター、④ MSC-E (Meteorological Synthesizing Centre-East, Russia): 重金属とPOPsのモデル開発、⑤ MSC-W (Meteorological Synthesizing Centre-West, Norwegian Meteorological Institute): 硫黄、窒素、光化学オキシダント、エアロゾルのモデルによる評価、である。2009年に採択された2010-2019年を対象としたモニタリング戦略には、3種類の異なった目的を担う測定局の設置が示されている。レベ

レベル1測定局は、酸性化・富栄養化物質、エアロゾル、光化学オキシダント等、従来の測定の長期継続を担い、レベル2の測定局は、大気汚染物質の長距離輸送を含む大気汚染評価のために必要な関連項目の理化学組成情報を提供する測定局と位置付けられ、レベル1の全測定項目のモニタリングに加えて、高時間分解能測定、半揮発性窒素化合物のガス・エアロゾル形態別情報、光化学オキシダントの前駆物質の化学種別測定、エアロゾルの物理的・光学的特性、エアロゾルの光学的厚さ、等の測定が求められている。また、レベル3は研究主体の活動を行う測定局とされ、地域の大気汚染とその対策に関連した、オゾンやエアロゾルの鉛直分布、水銀の形態別測定、有機炭素の化学形態別測定、等が期待されている。最新のデータ報告書(2011年)によれば、EMEPの降水と大気濃度モニタリング地点数はそれぞれ88地点と110地点で、時間分解能は降水が日毎あるいは週毎、ガス・エアロゾルはオゾンが1時間、それ以外は1日である。

(2) 北米における活動

北米では、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月に米国で酸性降下物法が定められ、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(NAPAP: National Acid Precipitation Assessment Program)を10か年計画で実施した。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(NADP: National Atmospheric Deposition Program)、カナダがカナダ降水採取網(CAPMoN: Canadian Air and Precipitation Monitoring Network)の下で実施している。

米国のNADPは、①NTN(National Trend Network, 1981~, 250地点)、②AIRMoN(Atmospheric Integrated Research Monitoring Network, 1992~, 7地点)、③MDN(Mercury Deposition Network, 1996~, 100地点)、④AMNet(Atmospheric Mercury Network, 2009~, 21地点)、⑤AMoN(Ammonia Monitoring Network, 2010~, 50地点)、を包括するプログラムであり、この中で湿性沈着は最も歴史の古いNTNでモニタリングが継続されている。現在、全国250地点において週単位で捕集された試料について、pH、EC、 SO_4^{2-} 等の8イオン成分濃度が測定されている。測定は全て中央実験室で実施されている。また、大気中の酸性ガスや粒子については、AIRMoNにおいて研究的なモニタリングが実施されている。

この他米国では、大気沈着に係るネットワークとして、清浄大気状況・トレンドネットワーク(CASTNET: Clean Air Status and Trends Network)が稼働している。CASTNETは、1991年の米国大気浄化法の改正に基づく排出量削減計画による酸性物質沈着量の経時変化を評価するために設立された長期環境観測ネットワークであり、米国とカナダに90地点を擁し、米国国立公園局、連邦、州及び地方の関係機関の協力のもと、米国環境保護庁によって管理運営されている。硫黄と窒素及びオゾンの一般環境大気濃度モニタリングから、酸性汚染物質沈着量、オゾンの広域水平分布や経時変化が報告されている。CASTNETは長期の酸性物質乾性沈着フラックスを提供する米国で唯一のネットワークであり、200以上の地点を有するNADP-NTNが提供する湿性沈着データと相補的に、酸性物質の総沈着量及び生態系の健康に関する長期変動を評価するために必要なデータを供給している。

一方、1983年に活動を開始したカナダのCAPMoNにおいても、湿性沈着、乾性沈着（インファレンシャル法）、酸性沈着に関連するガス・粒子の大気濃度のモニタリングが継続して実施されている。2010年時点における地点数は33で、降水組成及びガス・粒子濃度が日単位で測定され、他に、降水中・大気中の水銀、オゾン、PM_{2.5}等の測定が実施されている。

5.2.3 大気汚染半球輸送タスクフォースの活動

大気汚染半球輸送タスクフォース(TF/HTAP : Task Force on Hemispheric Transport of Air Pollution)は、北半球における大気汚染物質の大陸間輸送に関する十分な理解を発展させることを目的とし、国連欧州経済委員会(UNECE)の長距離越境大気汚染条約(CLR TAP)の執行機関の下で2004年に設立された。TF/HTAPの主な任務としては以下のものが挙げられる。

- i) 条約議定書の内容の再検討のため、半球汚染の十分な理解に必要な技術的作業を企画実行すること
- ii) 条約議定書の再検討やEMEPの運営団体に技術報告を行うために、特定の物質に対する半球輸送の状況を評価するのに必要な技術的作業を企画実行すること
- iii) CLR TAPの執行機関の他の職務と連携して年次作業計画の策定に貢献すること

会合の結果や評価報告書の作成過程等はウェブサイト上で常時公開されている(<http://www.htap.org>)。TF/HTAPの参加者は、政府、民間を問わず、半球大気汚染問題に興味を持つ関係者が登録することによって参加でき、国際間の科学者及び政策決定者のコミュニティとしての役割も果たしている。

TF/HTAPは政策と関連のある半球大気汚染の問題提起及びそれに対する科学的裏づけに基づいた回答を行うために、定期的に評価報告書を作成している。2010年12月には、地球規模及び地域規模の大気モデル、排出インベントリ、将来予測、大気観測など様々な分野を専門とする研究者が協力して、オゾン、エアロゾルやその前駆物質、水銀、残留性有機汚染物質(POPs)を対象物質として含む包括的な報告書(HTAP 2010 Assessment Report)を出版した。本報告書では、アジア大気汚染研究センターの秋元肇所長がオゾン、粒子状物質に係る部分の主執筆者として執筆に貢献したほか、先述のMICS-Asiaの参加研究者の数人も執筆を担うなど、EANETの活動及び東アジア地域における大気汚染研究に関する研究の知見がTF/HTAPの活動に貢献している。

HTAP 2010 Assessment Reportの出版後、CLR TAPの執行機関はTF/HTAPの使命を以下のように改訂した。

- i) 欧州の域内及び域外における可能な汚染物質抑制対策の評価
- ii) 地域・全球規模の大気汚染、健康、生態系、短期間気候変動への影響評価
- iii) CLR TAP内外の他のグループとの協力

その後、2011年には上記の使命に従って次期の作業計画を検討し、2012年～2016年の計画を策定した。計画は以下の6つのテーマで構成されている。

- i) 排出インベントリと将来予測
- ii) 発生源寄与解析とソース・レセプター解析
- iii) 観測値を用いたモデルの性能評価

- iv) 健康、生態系、気候変動の評価
- v) 気候変動が大気汚染に与える影響
- vi) データネットワークと解析ツールの拡張

これらの 6 つのテーマを統合して、政策決定のための科学的知見の提供、科学的理解の改善、半球汚染問題に対する共通認識を形成するための普及啓発を最終的な目標としている。

TF/HTAP の会合は年 2~3 回開催され、2013 年 3 月にスイス・ジュネーブで開催された会合において、観測値を用いたモデルの性能評価、既存のデータを管理するための基盤についての議論が行われた。また、同年 12 月に米国・サンフランシスコで開催された会合において、2008~2010 年を対象期間とする全球排出インベントリ、インベントリの将来シナリオ、モデルの性能評価、データネットワーク基盤についての議論が行われた。全球排出インベントリのアジア地域のデータについては、先述の MICS-Asia における第 3 期活動で作成したインベントリが用いられている。

6. 越境大気汚染・酸性雨対策に関する今後の課題

東アジア地域における経済発展は著しく、大気汚染と酸性雨の原因となる大気汚染物質の排出量についても、多くの種類の物質において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については、引き続き高濃度の汚染状況が継続し、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影響が指摘されているほか、PM_{2.5}についても国民の関心が高まっており、オキシダントと同様に越境大気汚染が懸念されている。さらに、オゾンやエアロゾル等大気汚染物質については、大陸間輸送による半球規模汚染も着目されるようになってきている。

このようなことから、今後は人の健康や生態系への影響を把握、防止することを念頭に、酸性物質、オゾン、PM_{2.5}（エアロゾル）等を統合的に捉え、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、生態影響については、伊自良湖だけでなく、他の地域においても酸性化・窒素飽和のリスクが高い要監視地域内のモニタリングを適切に実施していくこと、オゾンによる植物影響については、AOT40等の指標値が高い地域を要監視地域として、植物被害状況の把握等を含むモニタリングを適切に実施していくことが必要である。

一方、東アジアに目を向けると、この地域では酸性雨問題に関する地域協力体制の一つとして、東アジア酸性雨モニタリングネットワーク（EANET）による取組が10年以上に渡って進められており、参加国共通の手法による質の高いモニタリングデータが蓄積され、この地域における酸性雨に関する共通理解の醸成に貢献している。また、東アジアでは、PM_{2.5}をはじめとする大気汚染物質による人の健康等への影響に対して関心が高まっており、EANETにおいてもオゾンやPM_{2.5}のモニタリングの強化について議論が行われている。東アジアでは今後も経済発展が予測され、それに伴い大気汚染問題が深刻化するおそれがあり、これは各国共通の課題であること、地理的な位置関係と気象条件等が要因となり、我が国は越境大気汚染の影響を受けやすいことなどからも、地域協力により東アジア地域における大気汚染対策を推進していくことが必要である。

このような状況を踏まえ、今後の越境大気汚染・酸性雨対策を進めるに当たり、以下の取組を推進していくことが特に重要である。

6.1 国内における取組の推進

6.1.1 長期モニタリングの実施

(1) 長期モニタリングの継続的な実施

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蓄積により急激に酸性化による影響が発現する可能性があることから、近年 pH の低い地点については特に注視して、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、PM_{2.5}等に関する国民の関心が高まっていることなど、モニタリングに比重をおくべき項目も変化しており、このことにも対応しつつ総合的、長期継続的なモニタリングを実施していく必要がある。このため、例えば、現在では十分に濃度が低く今後も高まる見込みがない物質や影響が発生する可能性が十分に低いと推測される地点については、モニタリングの意義、モニタリングサイトの地理的特性、国際モニタリングネットワークにおける活動との調和等を踏まえ、随時モニタリングの内容について見直しを図っていくことも必要である。

さらに、越境大気汚染・酸性雨長期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・衛生・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や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。

(2) 越境大気汚染・酸性雨長期モニタリング計画の改定

東アジア地域における大気汚染物質排出量の増加等に伴う、我が国への越境大気汚染の深刻化への国民の関心の高まり等に対応するため、越境大気汚染・酸性雨長期モニタリング計画（平成 21 年 3 月改訂）を次のとおり改訂し、これらを着実に実施していくことが必要である。

①測定所の集約化

今後も引き続き中長期の視点で確実なモニタリングを実施する必要がある。しかしながら、限られた予算において今後も機器更新を含む測定所の維持管理を適切に行いつつ、国民の関心が高い大気汚染物質についてモニタリングの充実を図るため、これまでのモニタリング結果も踏まえて測定所を集約化することとし、平成25年度末をもって八幡平、京都八幡及び潮岬の大気モニタリングを、山居池、山の口ダム及び永富池の陸水モニタリングを終了する。

②PM_{2.5}モニタリングの強化

PM_{2.5}については、平成 25 年度末時点において、利尻、落石岬及び隠岐の 3 か所の酸性雨測定所でモニタリングを行っているが、いずれも環境省が定める標準法等等価性が保証されていない機種によりモニタリングが行われている。このため、我が国の環境基準との比較可能性の確保の観点からも、機器更新時等において速やかに等価性を有する機種に変更

する。

また、PM_{2.5}のモニタリングの充実を図るため、佐渡関岬、対馬等、越境大気汚染の状況の把握にも資する酸性雨測定所を優先しつつ、モニタリング地点を増やしていく。

酸性化の要監視地域における重点的なモニタリングの実施

土壌や地質の酸緩衝能が小さく酸性沈着量の多い地域では、酸性化のリスクが高い可能性があることから、重点的に監視していく必要がある。3.2.4における解析によると、酸性化リスクが高い可能性があると考えられた地域（要監視地域）は、中部地方、日本海沿岸及び九州西部等に多く分布しており、その中には伊自良湖集水域等、これまでに酸性化・窒素飽和が指摘、報告された地域が複数確認されている。これら要監視地域内のモニタリング地点において、越境大気汚染等の大気沈着による土壌・陸水への影響を解明するため、安定同位体比分析等による重点的なモニタリングを実施するとともに、新たな集水域モニタリング地点の設定を検討する。

④オゾンによる植物影響に関するパイロットモニタリングの実施

近年、我が国のオゾン濃度は漸増傾向にあるとともに、AOT40等の指標値が高い地域もあり、その影響が懸念されることから、オゾンによる生態系への影響を監視していくことが重要である。このため、オゾンによるリスクが高い要監視地域における定期モニタリングの将来的な実施に向け、当面、パイロットモニタリング等により、森林・山岳地域におけるオゾン濃度の実測と周辺樹木の状況等に関する情報収集を行い、オゾンによる植物影響を評価するためのモニタリング手法について検討を進める。森林・山岳地域におけるモニタリングデータは、大気化学輸送モデルの検証等にも重要であることから、観測とモデルの連携により、4.2.1で抽出したオゾンによる植物影響の要監視地域のレビュー等に役立てられることも期待できる。

また、オゾン等の大気汚染とそれ以外の要因（病害虫等）による複合的な影響の評価を目的として、そのような影響の可能性のある地域における被害状況の把握に努める。

6.1.2 調査研究の推進

①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による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なる。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、汚染物質の排出から移送、沈着を経て

生態影響に至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。さらに、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、越境大気汚染対策の立案を行うことも期待される。

また、特に国民の関心の高いPM_{2.5}のシミュレーションモデルについては、既存研究は少ない。発生源が多岐に渡り、生成過程が極めて複雑であることもモデルの構築を難しくしている一つの要因と考えられ、現時点では、必ずしも十分な精度を有するシミュレーションモデルの開発が行われているとは言えない状況であり、さらに調査研究を進める必要がある。

②酸性化の要監視地域における生態影響の実態解明

土壌・植生及び地質の酸感受性が高く、かつ、人為由来の酸沈着が多い地域では、陸域生態系の酸性化のリスクが高い可能性があり、そのような地域（要監視地域）を優先して生態影響メカニズムの解明を進めていくことが求められる。要監視地域の抽出に当たっては、大気モニタリングと生態影響モニタリングを統合した評価により行ってきたところであるが、今後も越境大気汚染による影響を含めた総合的な解析を継続していく必要がある。

硫黄等の安定同位体比の分析は、大気沈着と陸水の酸性化・窒素飽和との関連性の解明に資することから、このような手法を活用した調査研究を推進することが望まれる。例えば、硫黄の安定同位体比は、越境大気汚染や火山ガス等の影響に関する情報を含み、また、土壌・植生系の循環等で分別を受けるため、大気由来の硫黄の生態系内での滞留・流出時間等を発生源情報と共に評価することが可能である。さらに、硝酸イオン中の窒素や酸素の安定同位体比については、大気由来の窒素酸化物に起因する硝酸イオンと生態系内で生じるものとは大きく異なることから、大気沈着の流域への影響を評価することが可能となる。

③オゾン及び粒子状物質による植物影響評価に係る取組の推進

平成23年度より、北海道、新潟県及び福岡県の山岳地域において、オゾンによる植物影響の評価のためのパイロットモニタリング及び代表樹種の葉の展開等に関する情報収集を実施している。特に福岡県英彦山^{ひこきん}では、欧州においてオゾンによる植物影響の評価に用いられる指標であるAOT40の値が高く、樹木の衰退も報告されている。このため、引き続き調査を継続して山岳地域におけるオゾンの特徴を明らかにするとともに、樹木の葉の可視障害、植物活性や成長に関わる項目を順次検討し、オゾンによる影響評価の手法の確立に努めていくことが必要である。

また、AOT40はオゾンの暴露量を表現する指標であるが、実際に葉の気孔を通じて吸収されるオゾンの量（吸収フラックス）を用いた評価の可能性に関する検討や、大気汚染とそれ以外の要因（病虫害等）による複合的な影響の評価を目的として、必ずしも大気汚染による影響とは結論付けられていない地域について、その全国的な被害状況の把握に努め

ていく必要がある。

さらに、粒子状物質との関係については、PM_{2.5}等の大気汚染物質の越境大気汚染に対する関心は高まっているものの、アジアの森林を構成している樹木に対する粒子状物質の影響等に関する研究は始まったばかりである。特にアジアにおいてはオゾンの影響も受けている可能性が高いことから、粒子状物質とオゾンが森林樹木に及ぼす複合影響を解明する取組が必要である。

④気候変動の緩和を考慮した大気汚染対策のための研究の推進

粒子状物質を構成するブラックカーボンやオゾン等の短期寿命気候汚染物質（SLCPs：Short-Lived Climate Pollutants）は、それ自身が大気汚染物質であるだけでなく、その排出量の抑制が中期的な気候変動の抑制にも貢献し得ることが国際的に認知されてきており、SLCPsの削減を目的とする国際的なイニシアティブも設立されている。このような大気汚染と気候変動を併せて緩和するアプローチにも着目して、大気汚染対策が国際的に進められることも期待される。このため、SLCPs削減のための有効な対策の提案とその効果の定量的評価、SLCPsの削減に伴う気候変動や大気汚染の抑制効果等を明らかにするための研究を推進する。

⑤二酸化窒素濃度の測定法の適正化に関する検討

二酸化窒素（NO₂）は酸性雨の原因物質であると共に光化学オキシダントの前駆物質であり、都市地点のみならず、局地的オゾン生成と越境大気汚染の状況の把握のため、田園地点や遠隔地点における観測も重要である。しかしながら、現在、酸性雨測定所に配備されているモリブデン変換器付き化学発光法を用いた窒素酸化物自動測定機は、硝酸、亜硝酸、ペルオキシアセチルナイトレート等の有機窒素化合物、粒子状硝酸にも感度を有するため、NO₂に対してこれらの物質の濃度が高い田園地点や遠隔地点では、得られるNO₂濃度は過大評価となり、正確な濃度を測定することはできない。

窒素の乾性沈着やポテンシャルオゾンの評価には、NO₂のより正確な測定が必要となる。このような課題に対応できる自動測定器も市販されているが、まだ一般にはほとんど普及していない。このため、国際的な導入状況も確認し、必要に応じて既存の自動測定機との並行試験によるデータ特性を確認するための調査を行いながらその有用性を評価し、将来的には田園地点や遠隔地点においてもNO₂が精度よく測定できる体制の整備を検討していく必要がある。

6.2 国際的な取組の推進

①EANETにおける現行のモニタリング活動の強化

EANETにおけるモニタリング項目としては、窒素酸化物、二酸化硫黄等の他、酸性雨の

関連物質という位置付けでオゾンや粒子状物質（PM₁₀/PM_{2.5}）が含まれている。オゾンや粒子状物質は、広域性、越境性をもって東アジア地域に影響を及ぼし、我が国を含む東アジアの複数の国においても関心が高い。そのため、実態把握の促進、モデリング研究等での活用とその成果の EANET への還元等の観点から、EANET の参加国全体においてこれらのモニタリング活動が活発に行われることは有益である。しかしながら、EANET におけるこれらのモニタリングは、参加国における技術的、人材的、経済的な課題により、必ずしも十分に実施されていない。

技術的課題については、EANET のネットワークセンターが参加国に対してこれまでも必要な支援を行ってきており、引き続き参加国の要請に応じていくことが必要である。また、新たにモニタリングを開始することは経済面等で大きな負担を伴うが、参加国の中には EANET 以外の枠組みにおける国内活動として既にモニタリングを行っている場合もある。モニタリングサイトが適切に設置、管理、運営されていることを確認しつつ、このような既存のモニタリングを新たに EANET の活動として位置付けていくことは、参加国における追加的な負担を軽減する一つの方策である。このような視点も含めて参加国に働きかけを行い、EANET におけるオゾン、粒子状物質等のモニタリングを充実させていくことが必要である。

②既存イニシアティブとの連携等

アジア地域では大気汚染問題が各国の国民の健康に影響を及ぼしかねない共通の課題となっている。EANET の活動に加え、深刻な大気汚染問題を克服してきた我が国の豊富な経験と先進的な技術を活用して、アジア各国が清浄な大気を共有できるよう、地域協力の強化に取り組むことが必要である。

その際、この分野における活動に顕著な実績のある既存の国際的な組織、ネットワーク、プログラム等との連携により、各種の活動を検討、展開していくことも一つの方策として考えられる。例えば、大気環境に関する政府・研究者主体のネットワークを形成し、科学的基盤の強化及び地域枠組みの運営等に貢献している国連環境計画（UNEP）や、アジア地域における 200 以上の大気環境に関する国際機関、援助機関、国、都市、企業、研究機関等の多様な主体と幅広い協力関係を形成して、国・都市の大気汚染対策や能力構築等に貢献しているクリーン・エア・アジア（CAA）、南アジアや南部アフリカ地域を中心に大気汚染問題に関する幅広い活動を展開しているプログラムである、発展途上国における地域大気汚染（RAPIDC）等との連携が考えられる。

また、政府間に限らず、研究者間、地方自治体間、民間企業間等、様々なチャンネルを通じた国際的な取組を支援していく視点も必要である。

③科学を基盤とした広域大気汚染対策の推進

1979 年に締結された長距離越境大気汚染条約（CLRTAP）に基づく活動は、一定の科学的

知見の共有のもとで広域大気汚染問題への取組が進められてきた。また、気候変動の分野では、気候変動に関する政府間パネル（IPCC）により科学的知見が提供され、国際交渉のベースとして活用されている。

しかしながら、アジアにおける広域大気汚染問題に関して、アジアには科学的な知見を共有しつつそれに基づく議論を展開し、国際協調により取組を進めるような土壌があるとは言えない。アジアにおける広域大気汚染問題に対処するための国際的な取組を推進するため、まず、科学者間で科学的な知見の共有を促進させること、そのための枠組みを構築することが最初のステップとして有効である可能性がある。したがって、そのような視点での取組の有効性とその具体的方策を検討することが必要である。

参考資料

1. モニタリング地点の情報

参考表 1-1 大気モニタリング調査地点の概要

地点名	区分	所在地	緯度*1 (北緯)	経度*1 (東経)	標高, ポット地上 高(m)	捕集 単位	捕集装 置名	分析 単位	調査地点の概況	キャンプ の位置	調査地点の評価(都市地 域調査地点を除く)*2			
											(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度 07分 30秒	141度 14分 30秒	40 3.0	日毎	小笠原 US-421	日毎	利尻島南西部。海岸から約700m。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度 04分 54秒	141度 20分 01秒	12 9.0	週毎	小笠原 US-427	週毎	札幌市中央部に位置する北海道環境科学研究センター屋上。付近に幹線道路・研究機関の建物あり。	屋上	—	—	—	—
落石岬 <small>おとしさき</small>	遠隔	北海道根室市落石西 76	43度 09分 43秒	145度 29分 50秒	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 <small>たつび</small>	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度 15分 06秒	140度 20分 59秒	105.5 3.3	日毎	小笠原 US-420	日毎	竜飛崎から南東、津軽海峡側に約 1km。海岸から 360m。付近に電柱、送電線、送電鉄塔有り。草地。	屋上	○	○	○	×
八幡平 <small>はちまんたい</small>	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度 49分 16秒	140度 56分 25秒	830 5.0	日毎	小笠原 US-421	週毎	岩手山・南西山麓のスギ一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	○	○	○	×
篔岳 <small>のぶだけ</small>	田園	宮城県遠田郡涌谷町小塚字桜清水 1-1	38度 33分 10秒	141度 10分 31秒	165 5.0	日毎	小笠原 US-421	週毎	宮城県北東部・篔岳山(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*3	田園 (生態)	山形県尾花沢市大字鶴子字屋敷平国有林 96 林班イ 1 小班	38度 31分 41秒	140度 32分 08秒	366 6.8	日毎	小笠原 US-420	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*3	田園	茨城県土浦市永井 987	36度 09分 50秒	140度 10分 58秒	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	×	×	×	○