

# 平成 21 年度国内モニタリングデータのとりまとめ

## 1. 調査目的

日本国内における酸性雨モニタリングデータを集約する国内センターとして、EANET 測定局を含む国設酸性雨測定所及び大気環境測定所、土壌・植生、陸水調査地点で得られた測定データ（平成 21 年度）を収集し、取りまとめを行った後、解析・評価を実施した。

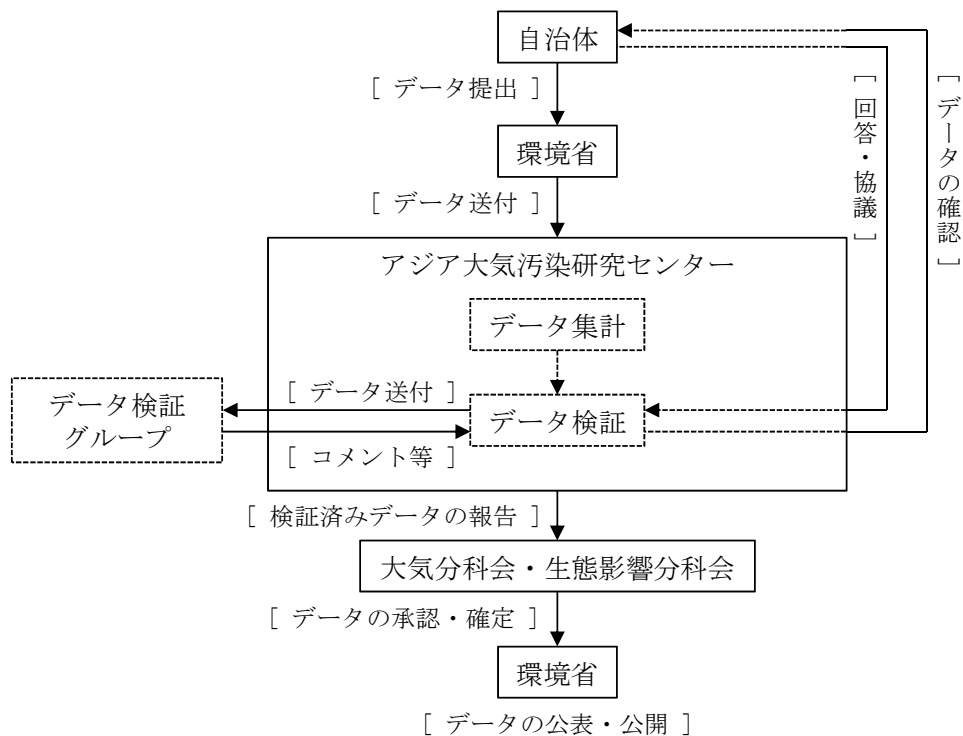
## 2. 調査方法

### 2.1 データ確定・公開までの手続き

自治体等から環境省に提出されたモニタリングデータは、(EANET 局以外のものも含めて) アジア大気汚染研究センターにおいて集計され、データの検証作業が行われた。その際、専門家から成るデータ検証グループのチェックを受けた。

集計及びデータ検証の終わったデータは、越境大気汚染・酸性雨対策検討会の大気分科会及び生態影響分科会において承認を得た時点で確定されたものとされ、環境省から公表・公開される。

なお、この手続きは平成 11 年度データより適用されている。また、公開されたデータを利用して発表等を行う者には、出典を明らかにすることを求めている。



[参考] 平成 21 年度データ検証グループ (敬称略)

- ①湿性：原宏、村野健太郎、野口泉、友寄喜貴、皆巳幸也
- ②乾性：高見昭憲、奥田知明、桜井達也、高橋章、松田和秀
- ③土壌・植生：池田重人、伊豆田猛、太田誠一、高松武次郎
- ④陸水：井上隆信、海老瀬潜一、福原晴夫、山田俊郎

⑤集水域：袴田共之、太田誠一、大原利眞、金子真司、林健太郎、福原晴夫

## 2.2 平成 21 年度国内モニタリングデータ

平成 21 年度国内モニタリングデータの調査内容は以下の通りである。

種 類	モニタリング地点	備 考
湿性沈着（降水）	26 ヲ所（24 都道府県市）	
大気汚染物質 （ガス・エアロゾル）	12 ヲ所（9 都道府県）（EANET 局） 9 ヲ所（9 府県）（EANET 局以外）	SO <sub>2</sub> , NO, NO <sub>2</sub> /NO <sub>x</sub> *, O <sub>3</sub> , PM <sub>10</sub> , PM <sub>2.5</sub>
土壌・植生	19 地点（16 道府県）	
陸水	11 湖沼（11 府県）	

[注] 利尻、隠岐及び落石岬においては、PM<sub>2.5</sub>も測定。

## 3. 調査結果

### 3.1 平成 21 年度国内酸性雨測定局湿性沈着モニタリングデータについて

#### 3.1.1 データ検証作業の手順について

##### （1）自治体担当者における測定結果の確定及び報告について

自治体担当者は「湿性沈着モニタリング手引き書（第2版）」及び平成21年度の管理運営委託業務実施要領に基づいて、以下の手順で測定結果の確定及び報告を行った。

- (1) 試料回収時に湿性沈着捕集現場記録表（様式9）に試料識別番号、捕集量、雨量計記録値、特記事項等を記録する。
- (2) 試料識別番号毎に（または捕集期間毎に）、全項目の分析を実施する。
- (3) イオンバランス（R1）、電気伝導率の計算値と測定値の比較（R2）のチェックを行った結果、必要とされる基準から外れていれば、再分析を行う。R1、R2が改善されれば、再分析結果を採用し、再分析においても改善がみられなければ、1回目の分析値を採用する。
- (4) 試料の分析データ以外の精度管理に関する以下の情報を記録する。
  - ① 検出下限値及び定量下限値の測定結果（様式12）
  - ② 湿性沈着分析コントロールチャート（様式13）
  - ③ 現地での空試験試料分析結果（様式14）
  - ④ 湿性沈着繰り返し測定結果（様式15）
- (5) 試料の分析データを湿性沈着分析結果（様式10）に以下の手順で入力する。
  - ① 採取記録と分析データから、湿性沈着分析結果（様式10）の記入要項に従って、各項目を入力する。
  - ② 検出下限値及び定量下限値の測定結果をもとに、検出下限値及び定量下限値未満の分析値にフラッグを入力する。その他のフラッグについても該当するものがあれば入力する。
  - ③ 備考欄に特記事項を入力する。

##### （2）アジア大気汚染研究センターのデータ検証作業

アジア大気汚染研究センターはデータ検証を以下の手順で実施した。

- (1) データの欠落：捕集期間、試料量、降水量、分析値及びフラッグの欠落が確認された場合、自

治体担当者にお問い合わせ、データ欠落の穴埋めを行う。

- (2) 降水量のチェック：次の3つのデータを捕集期間ごとに比較する。①標準雨量計、②試料量からの計算値（相当雨量）、③直近のアメダス局
- (3) 試料捕集期間の特定：上記(2)の比較から、試料捕集期間に間違いがないかどうかをチェックし、疑いがある場合は自治体担当者に確認し、修正するかどうか決定する。
- (4) トラブル等の特記事項に関する処理：停電、装置故障等のトラブル、その他特記事項について、詳しい時刻、状況、考えられる原因を自治体担当者にお問い合わせ、必要があれば捕集期間あるいは降水量等を修正し、また、分析値がある試料について有効か無効かの判断をする（バルク等）。
- (5) 降水量の確定：上記(2)の比較から、捕集期間毎に最も適切と考えられる降水量を選択し（原則的な優先順位は上記(2)の順番）、フォーマットの降水量に入力する。
- (6) R1、R2のチェック：R1、R2をチェックし、極端に外れている試料があれば自治体担当者にお問い合わせる。
- (7) 検出下限値及び定量下限値未満の分析値：報告されている検出下限及び定量下限の測定結果から、検出下限値及び定量下限値未満の分析値にフラッグが入力されているかどうかチェックし、入力されていない場合は入力する。
- (8) その他、上記以外に報告フォーマットに入力されているあらゆるデータについて、疑問が生じたときは、自治体担当者にお問い合わせ、データを修正する。
- (9) 自治体担当者にお問い合わせの結果、原因が不明だった場合は、データは修正せず、試料は有効とする。
- (10) 下記の入力基準に従って、表示上は正しいが、入力されている分析値が持っている有効桁数が間違っていれば、正しい有効桁数に修正する。

参考：「湿性沈着モニタリング手引き書（第2版）」資料2-19（平成13年3月刊行）引用

測定項目	単位	入力桁数
各成分濃度	$\mu$ mol/L	小数点以下1桁（1000 $\mu$ mol/L以上は整数のみ）
電気伝導率（EC）	mS/m	小数点以下2桁
pH		小数点以下2桁
試料量	g	小数点以下1桁（1000g以上は整数のみ）
降水量	mm	小数点以下1桁

- (11) 報告フォーマットに入力されている生データを確定し、月間、年間の濃度平均値、最大・最小値、湿性沈着量、データの完全度等を集計する。なお、統計処理作業において月間、年間の濃度平均値、最大・最小値は、有効数字3桁、小数点以下1桁、沈着量は、有効数字3桁、小数点以下2桁とした。

※補足：主なデータ修正点

- ① 雨量計、相当雨量及び近傍のアメダス局のデータを比較し、データの入れ違い等の誤りがないかを確認した。また、雨量計と相当雨量の値が大きく異なる場合、機器故障等のトラブルが発生していたか照会を行い、必要な修正を行った。
- ② オーバーフローをおこした試料について、降水量を試料量から再計算するとともに、試料損失の有無を確認し、必要に応じて自治体への照会及びデータ修正を行った。

### (3) 国内データ検証グループによる検証作業

アジア大気汚染研究センターによる検証作業が終了した後、国内データ検証グループによるデータ検証を行った。アジア大気汚染研究センターでは、これらの指摘をもとに再度自治体への照会、修正等の作業を行った。

#### 3.1.2 データの集計方法について

##### (1) 有効データの判定

###### (1) 降水量

原則として、①標準雨量計、②試料量からの計算値の優先順位に従って降水量のデータを採用した。停電等でこれらのデータがいずれも利用できないときに限り、直近のアメダスデータを採用し、対象とするすべての期間で降水量のデータを確定させた。

###### (2) 分析データ

原則として、湿性沈着試料が存在し分析値があればそのデータを有効とし、以後の計算に用い、未測定イオン等を考慮して R1 及び R2 によるスクリーニング、統計的スクリーニングは実施しなかった。但し、以下の場合については、分析値を無効として計算から除外した。

- ① バルク捕集された場合
- ② 試料が汚染された場合
- ③ 試料の日付が特定されなかった場合
- ④ 捕集した試料量から計算した降水量(相当雨量)が確定された降水量に対して 10%未満であった場合(捕集効率が 10%未満)
- ⑤ pH、EC について希釈して測定した場合、その測定値
- ⑥ その他

なお、②の試料汚染について、虫などが試料に混入しても当該試料の R1 及び R2 が基準範囲内であれば、有効な試料として取り扱った。黄砂が混入した場合は、全て有効とした。

###### (3) 月の区分

1週間捕集の場合、捕集期間の中間日がどの月に属するか、ということから対象月を決定した。このため月間値の計算の対象となる月の日数が実際の日数と異なる場合がある。

##### (2) 非海塩性の硫酸イオン及びカルシウムイオン濃度の計算

非海塩性硫酸イオン濃度 (nss-[SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>]) 及び非海塩性カルシウムイオン濃度 (nss-[Ca<sup>2+</sup>]) は、以下の方法で算出した。

nss-[SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>]、nss-[Ca<sup>2+</sup>]の計算 (単位: μmol/L)

$$\text{nss-}[\text{SO}_4^{2-}] = [\text{SO}_4^{2-}] - 0.06028 \times [\text{Na}^+]$$

$$\text{nss-}[\text{Ca}^{2+}] = [\text{Ca}^{2+}] - 0.02161 \times [\text{Na}^+]$$

(海水中の濃度を Na<sup>+</sup>:468.3mmol/L, SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>:28.23mmol/L, Ca<sup>2+</sup>:10.12mmol/L とする。

気象庁編:海洋観測指針, 第1部, 財団法人気象業務支援センター, pp31 (1999))

##### (3) 月間値・年間値(平均値、湿性沈着量)の計算

すべての測定項目が測定されていない試料でも測定されている項目については有効として取り扱った。このため、測定項目によって計算対象となる試料数が異なる場合がある。月間値・年間値の計算は以下の方法で算出した。

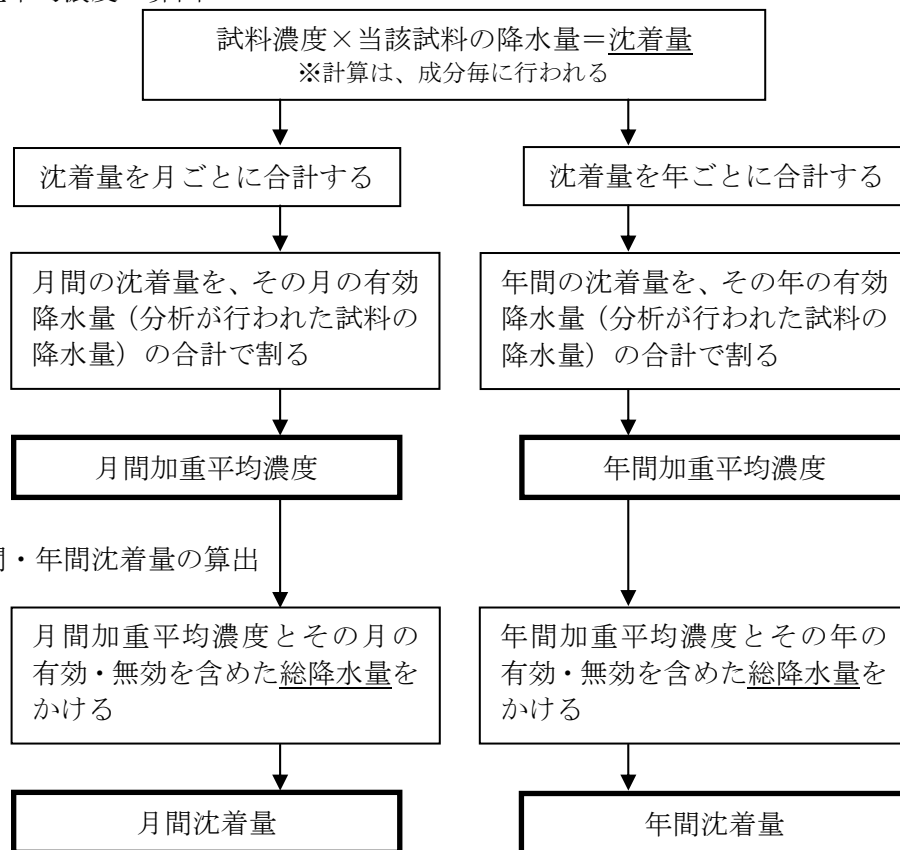
###### (1) pH、電気伝導率、各イオン濃度の月平均値及び年平均値

pH は H<sup>+</sup>濃度の降水量重みつき平均値の pH 換算値を、電気伝導率と各イオン濃度は、降水量の重みつき平均値を月間及び年間について、それぞれ算出した。

## (2) 湿性沈着量

各イオンの湿性沈着量は、イオン濃度（pH から算出される  $H^+$ 濃度を含む）が有効な試料から、月間及び年間の濃度平均値（降水量の重みつき）を算出し、それに月間または年間の降水量を乗じて算出した。即ち、分析値に欠測がある期間も濃度平均値の降雨があるという仮定に基づいて計算した。

### ①加重平均濃度の算出



## (4) データの評価基準

### (1) %PCL (Percent Precipitation Coverage Length)

降水量がいずれかの方法で測定された日数の割合（アメダスデータを除く）で、以下の式で求めた。

$$\%PCL = (\text{対象期間の日数} - \text{降水量欠測の日数}) / (\text{対象期間の日数}) \times 100$$

### (2) %TP (Percent Total Precipitation)

月間値、年間値について、測定項目毎に%TP を計算した。%TP は以下の式によって求めた。

$$\%TP = (\text{対象期間中における有効試料の降水量の合計}) / (\text{対象期間中の降水量の合計}) \times 100$$

### (3) $SO_4^{2-}$ 平均濃度、 $Ca^{2+}$ 平均濃度における海塩粒子の寄与率

$SO_4^{2-}$ 平均濃度、 $Ca^{2+}$ 平均濃度の月間値、年間値における海塩粒子の寄与率を以下の式によって求めた。

$$\cdot [SO_4^{2-}]$$

$$\text{海塩粒子の寄与率 (\%)} = [(\text{対象期間中における } SO_4^{2-}\text{平均濃度}) - (\text{対象期間中における nss-}SO_4^{2-}\text{平均濃度})] / (\text{対象期間中における } SO_4^{2-}\text{平均濃度}) \times 100$$

・ [Ca<sup>2+</sup>]

海塩粒子の寄与率 (%) = [(対象期間中における Ca<sup>2+</sup>平均濃度) - (対象期間中における nss-Ca<sup>2+</sup>平均濃度)] / (対象期間中における Ca<sup>2+</sup>平均濃度) × 100

(4) 月間値・年間値の判定

(1)から(3)の評価基準を用いて、測定項目毎に月間・年間値の有効性の判定を行った。判定基準を下表に示す。なお、測定値が1項目以上ある試料を判定の対象とし、降水量が0.5mm未満の場合は、試料量から計算した値(相当雨量)を計算に用いた。

項 目	判 定 基 準
濃度・沈着量の月間・年間値	%TPが80%以上かつ%PCLが80%以上
nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> 、nss-Ca <sup>2+</sup> の月間・年間値	上記に加え、海塩粒子の寄与率が75%以下

(5) その他

以下の評価を行った。

・ %CE (Percent Collection Efficiency)

捕集量から求めた相当雨量と雨量計の値との比で、捕集量と雨量計の値の両方が利用可能な試料について、以下の式で計算される。

$$\%CE = (\text{対象期間中の捕集量から計算した降水量の合計}) / (\text{対象期間中の雨量計測定値の合計}) \times 100$$

・ %VSL (Percent Valid Sample Length)

有効な試料の日数の割合で、以下の式で計算される。

$$\%VSL = [(\text{有効試料の日数}) + (\text{無降雨の日数}) + (\text{0.5mm 未満のトレース試料の日数})] / (\text{対象期間の日数}) \times 100$$

\* 0.5mm 未満の試料でも有効な分析値を1つ以上持つ場合は、0.5mm 以上の試料と同じ扱いとなる。

・ %VSMP (Percent Valid Sample with Measured Precipitation)

有効な分析値を持つ試料の数の割合で以下の式で計算される。

$$\%VSMP = (\text{対象期間中 0.5mm 以上の有効な分析値をもつ試料数}) / (\text{対象期間中 0.5mm 以上の試料数}) \times 100$$

\* 0.5mm 未満の試料でも有効な分析値を1つ以上持つ場合は、0.5mm 以上の試料と同じ扱いとなる。

### 3.2 平成21年度乾性沈着モニタリングデータについて

#### 3.2.1 対象期間

本年度、確定の対象となり、検証作業を行った測定局及び機関は以下の通りであった。

➤ 国内 EANET 測定局(12局)：平成21年4月～平成22年3月

➤ その他の酸性雨測定局(9局)：平成21年4月～平成22年3月

なお、国内 EANET 測定局のうち、落石岬の自動計測器のデータは、独立行政法人国立環境研究所より提供されたものである。

### 3.2.2 調査地点および大気濃度モニタリング状況

国設酸性雨測定局において、平成 21 年度に測定された項目を表 1 に示す。

表 1 国設酸性雨測定局における測定項目

		自動計測器					フィルターパック
		SO <sub>2</sub>	O <sub>3</sub>	NO, NO <sub>x</sub> *	PM <sub>10</sub>	PM <sub>2.5</sub>	
E A N E T 局	利尻	○	○	○	○	○	○
	落石	○注1)	○注1)	○注1)	○注1)	○注1)	○
	竜飛岬	○	○	○	○	—	○
	佐渡関岬	○	○	○	○	—	○
	八方尾根	○	○	○	○	—	○
	伊自良湖	○	○	○	○	—	○
	隠岐	○	○	○	○	○	○
	蟠竜湖	○	○	○注2)	○	—	○
	檜原	○	○	○	○	—	○
	辺戸岬	○	○	○	○	—	○
	小笠原	○	○	○	○	—	○
	東京	—	—	—	—	—	○
他 の 国 設 局	籠岳	—	○	—	—	—	—
	赤城	—	○	—	—	—	—
	新潟巻	—	○	—	—	—	—
	京都八幡	—	○	—	—	—	—
	筑後小郡	—	○	—	—	—	—
	五島	—	○注3)	—	—	—	—
	対馬	—	○	—	—	—	—
	えびの	○	○	—	—	—	—
屋久島	○	○	—	—	—	—	

注 1) 落石局の自動測定器データは、運営管理を行っている国立環境研究所によりデータ確定を行うので、検証データ集には含めていない。

注 2) 蟠竜湖局はアーバンサイトであるため、NO<sub>2</sub>データも集計した。

注 3) 五島局の O<sub>3</sub> のモニタリングは平成 21 年 4 月より開始している。

注 4) 筑波局、犬山局、倉橋島局は平成 21 年 3 月で廃止された。

### 3.2.3 データ検証作業の手順

#### (1) 集計方法

各自治体から報告されたデータは、アジア大気汚染研究センターによって表 2 に示す集計項目別に従って集計した。自動測定器の月間平均値、月間中央値及び月間完全度については時間値データから算出し、月間最大値及び月間最小値については EANET データ報告様式に基づき、日平均値から求めた。ただし、フィルターパックの場合は、最高分解能データ（2 週間）から求めた月毎の平均値、完全度、最大・最小値を集計した。また、単位についても EANET データ報告様式に基づき、ガスは ppb、粒子は µg/m<sup>3</sup> を用いた。

表2 データ集計項目

a) 自動測定器の月間集計

集計項目	集計方法
Mean	時間値から算出した月間平均値
Median	時間値から算出した月間中央値
%	月の時間数に対する有効データ時間数の割合 (%)
%*	月の時間数に対する検出下限値以上の有効データ時間数の割合 (%)
Max, Min	日平均値の月間最大値、月間最小値

b) フィルターパックの月間集計

集計項目	集計方法
Mean	最高分解能データ (2週間) から求めた月間平均値
%	月の日数に対する有効データ測定日数の割合 (%)
Max, Min	最高分解能データ (2週間) から求めた月間最大値、月間最小値

(2) フィルターパック測定について

長期モニタリング計画に基づき、平成15年度より、EANET10局においてフィルターパック法によるガス・粒子成分の測定が開始された。小笠原局では1週間毎のサンプリングが、その他の測定局では2週間毎のサンプリングが実施されている。なお、国内EANET局では、自動測定器で観測されたSO<sub>2</sub>を各局における濃度として採用しているため、フィルターパックで観測されたSO<sub>2</sub>濃度は公開扱いになっていない。

フィルターパックによる測定では、フィルターパック用ろ紙4種に対してブランク値の定量が併せて実施されている。なお、ブランクフィルターの分析枚数は、平成15および16年度は月毎5枚ずつ、平成17年度以降は月毎3枚ずつとなっており、大気中濃度の定量に用いるブランク値には中央値を採用した。

(3) β線吸収法によるPM<sub>10</sub>測定値について

国内EANET局では、利尻局、八方尾根局、梶原局、辺戸岬局、小笠原局においてPM<sub>10</sub>濃度の測定にβ線吸収自動測定器が導入されている。β線吸収法では、原理的に核種崩壊の確率誤差を伴うため、±10 μg/m<sup>3</sup>相当程度の計数誤差を生じる。また、湿度影響も指摘されており、PM<sub>10</sub>が低濃度時には、その測定値はマイナスの出力となる場合がある。データ検証時には、上記の測定局における平均値算出についてはマイナス値をゼロ置換した場合 (PM<sub>10</sub>) とマイナス値を残した場合 (PM<sub>10</sub>\*) との2つの値を示し、マイナス値の取り扱い方も含めて検証委員による検証を行った。

(4) データ検証作業の手順

- ① 提出データの確認  
各自治体から提出されるデータに不備がないか確認し、必要なデータすべてを完備した。
- ② データのグラフ化  
データ検証に役立たせるため、全測定局の全測定成分について、自動測定器は1時間値、フ



フィルターパックはサンプリング期間値ベースの時系列グラフを作成した。

③ 予備的検証

データ検証グループに提出する前に、アジア大気汚染研究センターで予備的な検証を行い、明らかに機器の異常等が確認できた場合は、その時点で欠測にした。

④ データの集計

「3.2.3（1）集計方法」に基づき集計を行った。測定値の入力基準は下記に従う。自動測定器による測定値では装置の仕様に基づき、入力桁数を決定した。フィルターパックによる測定値では検出下限値より入力桁数を決定した。要求されている検出下限値及び入力桁数を表3に示す。

表3 各測定項目,検出下限値及び入力桁数

	測定項目	要求検出下限値	入力桁数
自動測定器	SO <sub>2</sub> , NO, NO <sub>2</sub> , NO <sub>x</sub> *	0.1 ppb	小数点以下1桁
	O <sub>3</sub>	1 ppb	整数
	PM <sub>10</sub> , PM <sub>2.5</sub>	1 µg/m <sup>3</sup>	整数
フィルターパック	ガス成分	0.1 ppb	小数点以下1桁
	粒子成分	0.01 µg/m <sup>3</sup>	小数点以下2桁

⑤ データ検証グループによるデータの検証

集計表および全グラフをデータ検証グループメンバー（奥田 知明 先生、桜井 達也 先生、高橋 章 先生、高見 昭憲 先生、松田 和秀 先生）に提出し、科学的な観点から疑問が生じるデータの抽出を行った。

⑥ ⑤で抽出されたデータに関し、その原因究明の調査を下記の要領で実施した。

- 測定状況の確認（報告書の確認、自治体担当者への照会）
- 機器に関する確認（ステータスデータの確認、機器メーカーへの照会）
- 発生源の調査（風向と大気濃度の関係の検討又は後方流跡線解析）
- 気象要素や他成分濃度との関連を調査
- フィルターパックの場合、粒子成分のイオンバランスの確認、SO<sub>2</sub>自動計測器との比較、ブランク値の確認
- その他

3.3 平成21年度国内酸性雨（土壌・植生）モニタリングデータについて

3.3.1 はじめに

平成15年度から、酸性雨長期モニタリング計画に従った新しいモニタリング体制のもと、土壌・植生モニタリングは、表4に示す「主に樹木への影響に着目した地点」、「主に土壌への影響に着目した地点」、「陸水への影響に着目した地点」及び「EANET登録地点」で、実施している。主に樹木への影響に着目した地点については、天然林に着目し、国立公園等の自然保護地域内でモニタリングが実施されている。なお、森林モニタリング（樹木衰退度調査）は、全ての地点において毎年実施されているが、土壌モニタリング及び森林モニタリング（森林総合調査）は、5年ローリング方式によって実施している（表5参照）。

表4 土壌・植生モニタリング地点一覧

地点番号	地域特性等	区分	対象とする樹種、土壌種、又は湖沼	備考		
				林分の数	土壌プロット数	植生プロット数
1	知床国立公園（北海道）	樹木	トドマツ	1	2	1
2	支笏洞爺国立公園（北海道）	樹木	ダケカンバ	1	2	1
3	十和田八幡平国立公園（岩手県）	樹木	オオシラビソ	1	2	1
4	磐梯朝日国立公園（新潟県）	樹木	ブナ	1	2	1
5	日光国立公園（栃木県）	樹木	ブナ	1	2	1
6	中部山岳国立公園（富山県）	樹木	ブナ	1	2	1
7	白山国立公園（石川県）	樹木	ブナ	1	2	1
8	吉野熊野国立公園（奈良県）	樹木	ブナ	1	2	1
9	大山隠岐国立公園（鳥取県）	樹木	ブナ	1	2	1
10	石鎚国定公園（高知県）	樹木	ブナ	1	2	1
11	阿蘇くじゅう国立公園（大分県）	樹木	ブナ	1	2	1
12	霧島屋久国立公園・屋久島（鹿児島県）	樹木	スギ	1	2	1
13		樹木	照葉樹林	1	2	1
14	石動山・宝立山（石川県）	土壌	赤色土/ 褐色森林土	2	2×2	2×1
15	法道寺・天野山（大阪府）	土壌	黄色土/黄色系褐色森林土	2	2×2	2×1
16	霜降岳・十種が峰（山口県）	土壌	黄色土/黒ボク土	2	2×2	2×1
17	香椎宮・古処山（福岡県）	土壌	赤色系褐色森林土/ 褐色森林土	2	2×2	2×1
18	伊自良湖（岐阜県）	EANET（陸水）	伊自良湖集水域 褐色森林土/	2	2×2	2×1
19	蟠竜湖（島根県）	EANET（陸水）	蟠竜湖集水域 赤色土/黄色系褐色森林土	2	2×2	2×1

表5 土壌モニタリング及び森林モニタリング（森林総合調査）実施時期

グループ番号	土壌調査の開始年度 <sup>(*)</sup>	担当自治体（地点番号 <sup>(**)</sup> ）
G1	H15（2003）	栃木県（5）、鳥取県（9）、北海道（2）山口県（ <u>16</u> ）
G2	H16（2004）	鹿児島県（12、13）、岩手県（3）、奈良県（8）、高知県（10）
G3	H17（2005）	北海道（1）、石川県（ <u>14</u> ）、大分県（11）、富山県（6）
G4	H18（2006）	石川県（7）、島根県（ <u>19</u> ）、岐阜県（ <u>18</u> ）
G5	H19（2007）	新潟県（4）、大阪府（ <u>15</u> ）、福岡県（ <u>17</u> ）

(\*) 樹木衰退度調査は、平成15年度から全地点で実施する。森林総合調査は、土壌調査と同じ年に実施する。

(\*\*) 地点番号の下線は、土壌2種類（土壌4プロット、森林2プロット）が設定される地域を示す。それ以外は、土壌1種類（土壌2プロット、森林1プロット）が設定される。

### 3.3.2 土壌・森林基礎調査の概要

以下の調査を5年に1回の頻度で実施する。

#### (1) 土壌モニタリング

##### (1) 調査方法

- 土壌種が異なる（感受性が異なる）2カ所の林分（最低 0.2ha、1ha 以上が望ましい）を選定。
- 大気（湿性・乾性沈着）モニタリング地点から 50km 以内が望ましい。
- 1林分につき、5×5～10m×10m の調査定点（プロット）を2カ所設定する。
- プロットを設定する時に、土壌断面調査を実施する（初年度のみ）。
- 各プロットにおいて5つのサブプロットを設定する。
- 各サブプロットにおいて、リター層を取り除いた後、表層（0-10cm）及び次層（10-20cm）の土壌を1～2kg 採取し、分析を実施する。
- 分析は精度管理のため、2回実施する。

上記手順に従った場合、

2調査林分（土壌2種）×2プロット×5サブプロット×2層×2回分析=80データが得られる。

なお、国立公園等の樹木への影響に着目した地点においては、調査林分は1つ（土壌1種）となる。

##### (2) 調査項目

必須項目：含水率、pH (H<sub>2</sub>O) pH (KCl)、交換性塩基 (Ca、Mg、Na、K)、交換酸度、有効交換塩基容量 (ECEC：塩基と酸度より算出)、交換性 Al 及び H  
(石灰岩性の土壌の場合は、炭酸塩含有率を分析すること)

選択項目：全炭素含有量、全窒素含有量、有効態リン酸、硫酸イオン、土壌密度、土壌硬度

#### (2) 森林モニタリング（森林総合調査）

##### (1) 調査方法

- 土壌モニタリングと同じ林分で実施する。
- 毎木調査にあたっては、大きさの異なる3つの同心円プロットを設定する。
- 樹木衰退度調査にあたっては、林分の中心から東西南北4方位に約 12m 離れた地点において、5本ずつ優勢木を選定し、計 20 本について観察を実施する。

##### (2) 調査項目

必須項目：毎木調査（樹種、胸高直径、樹高）、下層植生調査、樹木衰退度調査

選択項目：衰退度記録（写真による）、衰退原因推定

### 3.3.3 アジア大気汚染研究センターによるデータ整理と検証作業

環境省経由で提出された報告書に基づき、データ整理及び検証作業をアジア大気汚染研究センターにおいて実施した。作業内容及び実施上の留意点は以下の通り。

- 1) 調査方法及びデータ数の確認：調査方法及び結果として得られるデータ数が「技術マニュアル」及び手引書に従っているか確認を行い、疑問が生じた場合は、自治体担当者に問い合わせた。
- 2) 報告様式の整理：表形式等を手引書の報告様式に準じて整理、統一した。
- 3) データの再計算及び様式変更：計算から得られる土壌データの ECEC については、再計算を行った。ECEC は、交換酸度と交換性陽イオンの和として算出した。

- 4) 土壌データの検証：交換性 Al と交換性 H の和が、理論上一致すべき交換酸度と著しく異なることはないかチェックした。
- 5) 土壌データ繰り返し精度の確認：2 回の繰り返し分析が大きく異なることはないかチェックした。

### 3.4 平成 21 年度国内酸性雨（陸水）モニタリングデータについて

#### 3.4.1 はじめに

平成 15 年度より、酸性雨長期モニタリング計画に従って、陸水の酸性雨モニタリングが実施されている。今回のデータ検証は、平成 21 年度（平成 21 年 4 月～平成 22 年 3 月）の国内モニタリング湖沼のデータを取りまとめた結果である。

#### 3.4.2 データ検証作業の手順について

##### (1) アジア大気汚染研究センターのデータ集計作業

##### (1) モニタリングの状況

平成 21 年度の陸水モニタリングは、下記 11 湖沼（11 自治体）で実施された。

今神御池（山形県）、刈込湖（栃木県）、双子池（雄池・雌池）（長野県）、山居池（新潟県）、大島池（石川県）、夜叉ヶ池（福井県）、沢の池（京都市）、永富池（香川県）、山のロダム（山口県）、伊自良湖\*（岐阜県）、蟠竜湖\*（島根県）

平成 21 年度は双子池（雄池・雌池）（長野県）、山のロダム（山口県）にて、底質分析が実施された。

表 6 調査・分析状況

湖沼名	調査地点数	調査回数	サンプリング回数	繰り返し分析回数
今神御池	2	4	2	3
刈込湖	2	4	2	3
双子池（雄池）	2(1)**	3(1)**	2(1)**	3(3)**
双子池（雌池）	2(1)**	3(1)**	2(1)**	3(3)**
山居池	2	4	2	3
大島池	2	4	2	3
夜叉ヶ池	2	4	2	3
沢の池	2	4	2	3
永富池	2	4	2	3
山のロダム	2(1)**	4(1)**	2(1)**	3(3)**
伊自良湖*	6	4	2	3
蟠竜湖*	3	4	No.2 湖沼表層・底層：2 No.3 湖心表層：1	No.2 湖沼表層・底層：3 No.3 湖心表層：1

\*：国内 EANET サイト      \*\*：（ ）は底質調査状況。湖心底質の表層・中層・底層を分析。

##### (2) 分析結果の取扱い

- 2 試料測定を行い、3 回の繰り返し分析を行っている。  
繰り返し分析の値を算術平均した 2 試料の平均値を求め、測定データとした。  
(pH については、水素イオン濃度の算術平均)
- 年平均値を記載した。(pH については、水素イオン濃度の算術平均)
- 測定値が定量下限値未満の場合は「0」として計算し、平均値および R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub> を計算した。
- 年平均値を集計表にまとめた。桁数は個別表の有効桁数とした。  
(年平均値のアルカリ度については、小数点以下 3 桁で揃えた。)

## (2) データ検証作業

各自治体から提出されたデータについて、アジア大気汚染研究センターで  $R_1$ 、 $R_2$  の再チェックを行い、異常値を確認したら、自治体に問い合わせ再確認した。上記の検証・確認を終えた集計データについて、国内データ検証グループによるデータ検証を行った。

### 3.5 平成21年度集水域モニタリングデータ

#### 3.5.1 はじめに

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（以下、長期モニタリング計画）」では、平成17~19年度に実施された重点調査結果を踏まえ、酸性化が継続していると考えられる伊自良湖集水域における集水域モニタリングを、定期観測項目として新たに加えたところである。

集水域モニタリングについては、東アジア酸性雨モニタリングネットワーク（EANET）でも、モニタリング手法が精査され、2010年10月に開催された科学諮問委員会（SAC10）において、集水域モニタリング・ガイドラインが承認され、参加国からの定期観測データの提出が期待されている。

#### 3.5.2 集水域モニタリングの観測項目

表7に主な観測項目を示した。流入量（湿性+乾性による総沈着量）及び流出量の物質収支から、当該集水域における酸性物質の負荷量を検討、評価する。水年の区切りは、流入・流出の季節変化を基に、11月初旬としている。

表7 伊自良湖集水域モニタリングの観測項目

調査項目		方法等
流入量（総沈着量）の推定	降水量分布	釜ヶ谷川集水域内の標高の異なる3地点（伊自良湖酸性雨測定所を含む。）における降水量を継続観測する。
	NO <sub>2</sub>	伊自良湖酸性雨測定所においてパッシブサンプラー法により測定する。
	湿性沈着量	伊自良湖酸性雨測定所における湿性沈着モニタリングデータを基に、上記降水量分布を考慮して補正し、湿性沈着量を推計する。
	乾性沈着量	伊自良湖酸性雨測定所におけるフィルターパック法による大気汚染物質モニタリングデータ及び上記パッシブサンプラー法によるNO <sub>2</sub> データを基に乾性沈着量を推計する。
	流入総沈着量	総沈着量は上記の湿性沈着量及び乾性沈着量の和とする。
流出量の推定	流量	釜ヶ谷川の水位を連続測定し、水位・流量曲線を基に流量を推計する。
	河川水質	2週間毎に釜ヶ谷川及び孝洞川で採取し、次の測定を行う。測定項目：水温、pH、電気伝導率（EC）、アルカリ度（pH4.8、グランプロット法）、NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> 、Ca <sup>2+</sup> 、Mg <sup>2+</sup> 、Na <sup>+</sup> 、K <sup>+</sup> 、SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> 、NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> 、Cl <sup>-</sup> 、TOC、溶存態全Al、SiO <sub>2</sub>
	流出量	上記の流量と河川水質を基に、2週間毎の期間流出量を推計する。

（「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）」より）



図 7-1. 伊自良湖集水域モニタリング装置配置図

### 3.5.3 データの検証について

集水域モニタリングにおいては、独自に取得されるデータの分析精度を検証するだけでなく、流入・流出収支等におけるデータの整合性を含めたデータセットとして確定していくことが求められることから、データ検証は、「酸性沈着による生態系影響評価ワーキンググループ」を主体として行われた。

本年度においては、平成 19 年度末（2008 年 3 月）の伊自良湖重点調査終了直後から、現在とほぼ同様の調査が行われていたため、重点調査の解析に用いられなかった 2007 年 11 月から始まる、2007-2008 水年（平成 19~20 年度）及び 2008-2009 水年（平成 20~21 年度）を、データ確定の対象とした。

#### (1) データ集計と解析の方法について

##### (1) 水収支（降水量及び流出量）

- 降水量
  - 伊自良湖酸性雨測定所（EANET データとして確定済み）を含め 3 地点で測定されている標準雨量計による降水量データを集計、月・年降水量等を算出した。
  - 欠測期間については、重点調査の期間で明らかになっていた 3 地点間の降水量の関係を基に、補完データを推計し、月間値、年間値の算出に用いた。
- 河川流出水量
  - 水位及び流量は、RW1 と RW2 で定期的に観測している。
  - RW1 での水位と流量の定期観測結果を基に水位・流量曲線を作成し、RW1 付近に設置してある水位ロガーによる連続水位データを基に、10 分毎の流量を推計した。
  - 渓流水のサンプリング（2 週間毎）のタイミングに合わせ、前回のサンプリングと今回のサンプリングの間に流れた流量（期間流量）を算出した。
  - 今後の流量推計には、今回用いた水位・流量曲線を用いる予定である。

- 水年と水収支
  - ▶ 水年は、重点調査と同様、降水量、流量とも低い 11 月から翌年 10 月までとした。
  - ▶ 物質収支解析に用いる流入水量は、伊自良湖測定所の降水量が著しく低いため、3 地点の平均値を用いた（湿性沈着量を平均値で補正した）。
  - ▶ 水収支の確認のため、RW1 を基点とした集水域面積（298ha）で流出水量を規格化し、降水量と同じ単位（mm）に換算した。

## (2) 流入量（総沈着量）

- 湿性沈着量
  - ▶ 伊自良湖酸性雨測定所で捕集・分析されている EANET 湿性沈着データを本集水域内の代表値とし、公表されている EANET データの月間値を基に、水年当りの沈着量を算出した。
  - ▶ 上記の年間沈着量を、伊自良湖酸性雨測定所の降水量と集水域の年平均降水量（3 地点の平均）の比率で補正し、集水域全体への湿性沈着量を算出した。
- 乾性沈着量
  - ▶ フラックス推計には、EANET データとして公表されたフィルターパック法（2 週毎）及び自動測定装置（NO<sub>x</sub> 及び SO<sub>2</sub>）による大気濃度データを用いた。
  - ▶ 乾性沈着速度は、気象データを基に、環境省モニタリングのとりまとめ等で従来用いられてきた沈着速度推計ファイルを使って 1 時間毎の沈着速度を算出した。沈着表面は、森林と設定した。
  - ▶ 上記、大気濃度及び沈着速度から、1 時間毎の乾性沈着フラックスを推計し、それを基に、月間値、年間値を算出した。
  - ▶ 乾性由来の H<sup>+</sup> 流入量は、酸性ガスに由来するとして推定した。
- 総沈着量
  - ▶ 単位を物質収支解析に適した当量単位（kmol<sub>c</sub> ha<sup>-1</sup> y<sup>-1</sup>）に換算し、年総沈着量を上記湿性沈着量と乾性沈着量の和として算出した。

### 留意点：

- ▶ 現行の推定ファイルに HCl 沈着速度が入っていないため、それがまだ考慮されていない。
- ▶ 乾性沈着速度については、SAC10 で EANET における沈着フラックスの推計マニュアルが承認されたため、推計ファイルのアップデートが現在行われている。この準備ができた段階で、再計算する予定である。
- ▶ 谷間に位置する伊自良湖測定所は、集水域内の代表としては、風速が過小評価されているため、現在、周辺气象台やアメダスのデータによる補正が可能か確認している。
- ▶ 上記沈着速度推計ファイルのアップデート及び風速の補正等については、平成 23 年 4 月頃までには完了する予定である。
- ▶ 上記アップデートにより、乾性沈着量が多少上下する可能性はあるが、全体の収支の傾向には大きな変化はないと考えられた。

## (3) 渓流水濃度及び流出量

- 渓流水濃度
  - ▶ 渓流水は分析機関に到着後、できるだけ早く分析を行った。分析結果は、陸水モニタリングにおける手引書及び EANET の QA/QC プログラムに従い、R1、R2 の確認を行い、問題があれば再分析を行った。
  - ▶ 平成 21 年度までの分析機関は、アジア大気汚染研究センター（旧酸性雨研究センター）

が実施する、分析機関間比較調査にも参加し、分析レベルのチェックが定期的に行われた。また、QA/QCプログラムに従い、国内センターによる実験室の確認も行った。

- ▶ 報告された分析値の単位は当量単位 ( $\text{mol}_c \text{L}^{-1}$ ) に換算した。
- ▶ RW1、RW2 及び RW3 の 3 地点の濃度を重点調査の結果から連続してプロットし、3 地点間の変化傾向を確認した。
- ▶ 定期サンプリング及び増水時調査 (2009 年度は 2010 年 3 月に実施、2008 年度は実施せず) の結果を水位とともにプロットし、増水時のイオン濃度変化傾向を確認した (本資料には詳細は示さないが、一定以上増水すると  $\text{NO}_3^-$  とともに、 $\text{SO}_4^{2-}$  も濃度が増大する傾向が見られ、表層付近に蓄積した  $\text{SO}_4^{2-}$  の流出を示唆していた)。

- 流出量

- ▶ 前回の渓流水濃度と今回の渓流水濃度の平均濃度でこの間流れたと仮定し、期間流量を乗じて、この期間の流出量を算出した。
- ▶ 上記期間流出量を積算し、水年当りの流出量を算出した ( $\text{kmol}_c \text{ha}^{-1} \text{y}^{-1}$ )。

(4) 流入・流出収支

- 上記流入量及び流出量を基に、物質収支表を作成した。
- アルカリ度の流入量は 0 とした。
- 硫黄及び窒素の形態変化による酸生成量を推定した。