

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

平成24年6月

環 境 省

越境大気汚染・酸性雨対策検討会 名簿

- 座長 秋元 肇 (財) 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
- 植田 洋匡 京都大学 名誉教授
- 太田 誠一 京都大学大学院 農学研究科 教授
- 大原 利眞 国立環境研究所 地域環境研究センター長
- 小倉 紀雄 東京農工大学 名誉教授
- 加藤 久和 帝京大学 法学部 教授
- 佐竹 研一 立正大学 地球環境科学部 教授
- 戸塚 績 (財) 日本環境衛生センター
アジア大気汚染研究センター 技術顧問
- 永島 達也 国立環境研究所 地域環境研究センター 主任研究員
- 袴田 共之 浜松ホトニクス(株) 企画開発部 顧問
- 原 宏 東京農工大学 農学部 教授
- 広瀬 健二 全国環境研協議会 酸性雨広域大気汚染調査研究部会長
(川崎市公害研究所長)
- 村野 健太郎 法政大学 生命科学部 教授

越境大気汚染・酸性雨対策検討会 大気分科会 名簿

- 座長 原 宏 東京農工大学 農学部 教授
- 植松 光夫 東京大学 大気海洋研究所附属 国際連携研究センター長・教授
- 田中 茂 慶應義塾大学 理工学部 教授
- 土器屋 由紀子 江戸川大学 名誉教授
- 畠山 史郎 東京農工大学大学院 農学研究院 教授
- 藤田 慎一 (財)電力中央研究所 環境科学研究所 研究顧問
- 永島 達也 国立環境研究所 地域環境研究センター 主任研究員
- 西川 雅高 国立環境研究所 環境計測研究センター 環境計測化学研究室長
- 松田 和秀 明星大学 理工学部 准教授
- 三笠 元 (公社)日本環境技術協会 常務委員・技術委員会大気部会長

越境大気汚染・酸性雨対策検討会 生態影響分科会 名簿

- 座長 小倉 紀雄 東京農工大学 名誉教授
- 伊豆田 猛 東京農工大学大学院 農学研究院 教授
- 井上 隆信 豊橋技術科学大学 建設工学系 教授
- 海老瀬 潜一 摂南大学 工学部 教授
- 太田 誠一 京都大学大学院 農学研究科 教授
- 河野 吉久 (財)電力中央研究所 環境科学研究所 研究顧問
- 小林 和彦 東京大学大学院 農学生命科学研究科 教授
- 新藤 純子 農業環境技術研究所 物質循環研究領域長
- 高橋 正通 森林総合研究所 企画部 研究企画科長
- 高松 武次郎 元 茨城大学 広域水圏環境科学教育研究センター 教授
- 袴田 共之 浜松ホトニクス(株) 企画開発部 顧問
- 福原 晴夫 新潟大学 教育学部 教授

越境大気汚染・酸性雨長期モニタリング調査結果とりまとめワーキンググループ 名簿

1. 大気モニタリングデータ総合解析ワーキンググループ

座長 畠山 史郎	東京農工大学大学院 農学研究院 教授
大原 利眞	国立環境研究所 地域環境研究センター長
高見 昭憲	国立環境研究所 地域環境研究センター 広域大気環境研究室長
林 健太郎	農業環境技術研究所 物質循環研究領域 主任研究員
原 宏	東京農工大学 農学部 教授
松田 和秀	明星大学理工学部 環境システム学科 准教授
山地 一代	海洋研究開発機構 地球環境変動領域 研究員

2. 酸性沈着の生態系影響評価ワーキンググループ

座長 袴田 共之	浜松ホトニクス (株) 企画開発部 顧問
太田 誠一	京都大学大学院 農学研究科 教授
大原 利眞	国立環境研究所 地域環境研究センター長
金子 真司	森林総合研究所 立地環境研究領域長
林 健太郎	農業環境技術研究所 物質循環研究領域 主任研究員
福原 晴夫	新潟大学教育学部 教授

3. オゾン等の植物影響評価ワーキンググループ

座長 伊豆田 猛	東京農工大学大学院 農学研究院 教授
大政 謙次	東京大学大学院 農学生命科学研究科 教授
河野 吉久	(財)電力中央研究所 環境科学研究所 研究顧問
小林 和彦	東京大学大学院 農学生命科学研究科 教授
清水 英幸	国立環境研究所 地域環境研究センター 主席研究員
須田 隆一	福岡県保健環境研究所 環境科学部 専門研究員
滝川 雅之	海洋研究開発機構 地球環境変動領域 大気物質循環研究チーム チームリーダー
野口 泉	地方独立行政法人北海道立総合研究機構 環境・地質研究本部環境科学研究センター 研究主幹
村野健太郎	法政大学 生命科学部 教授
家合 浩明	新潟県保健環境科学研究所 大気科学科 専門研究員

(アジア大気汚染研究センター担当者)

副所長	伊藤 隆晃 (平成 23 年 6 月まで)
	林 誠 (平成 23 年 7 月から)
情報管理部	塩崎 卓哉
	白井 隆太
大気圏研究部	大泉 毅
	佐藤 啓市
生態影響研究部	佐瀬 裕之
	内山 重輝
	山下 尚之

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
目次

中間報告の概要	1
1. 越境大気汚染・酸性雨長期モニタリングの経緯	6
2. 調査の目的及び内容	8
2.1 目的	8
2.2 調査内容	8
3. モニタリングの結果	17
3.1 大気モニタリング	17
3.1.1 湿性沈着（降水）	17
3.1.2 大気汚染物質（ガス、エアロゾル）	24
3.1.3 越境大気汚染・酸性沈着に関する考察	30
3.2 生態影響モニタリング	42
3.2.1 土壌・植生モニタリング	42
3.2.2 陸水モニタリング	50
3.2.3 集水域モニタリング	55
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	62
4. オゾン及び粒子状物質に係る解析	68
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	68
4.2 オゾン等による植物影響の可能性	79
4.2.1 樹木衰退とオゾン：丹沢山地のブナ衰退実態とオゾンの影響（レビュー）	79
4.2.2 オゾンによる植物影響の要監視地域の抽出方法の検討	85
4.2.3 オゾン植物影響に関するパイロット…モニタリングの開始	88
5. 越境大気汚染・酸性雨研究に関する国内外の主な取組	94
6. 総合とりまとめに向けて	98
参考資料	100
1. モニタリング地点の情報	101
2. モニタリング結果の参考データ	106

中間報告の概要

(1) この報告書について

- ☆ 「酸性雨長期モニタリング計画（平成 14 年 3 月）」及び「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）」に基づき、湿性沈着（降水）、大気汚染物質（ガス、エアロゾル）、土壌・植生、陸水、及び集水域の各モニタリングを平成 20～22 年度にかけて実施した。
- ☆ 伊自良湖（岐阜県）における集水域モニタリングは、平成 17～19 年度の重点調査の結果を受けて、開始したものである。
- ☆ 現在の長期モニタリング計画では、いわゆる酸性雨問題だけでなく、越境大気汚染問題全般に視点を広げ、近年漸増傾向にあるオゾン等の大気汚染物質に関する解析や、オゾンによる植物影響に関する検討等もあわせて行った。
- ☆ 本報告書は、平成 25 年度末に予定している総合とりまとめ報告（平成 20～24 年度）を前に、進捗状況を記載した中間報告である。

(2) 酸性沈着と越境大気汚染の状況

ポイント①：降水は引き続き酸性化の状態にある。

⇒pH の 3 年間の平均値は 4.54～5.15 の範囲にあり、全地点の平均 pH は 4.72 で、降水は引き続き酸性化した状態であることが認められた。（図 A）

ポイント②：非海塩性硫酸イオンなどの地域ごとの季節変動から、国内の酸性沈着における大陸からの影響が推定される。

⇒非海塩性硫酸イオン($nss\text{-SO}_4^{2-}$)及び硝酸イオン(NO_3^-)濃度は全体的に冬季から春季に上昇する傾向がみられ、特に山陰の NO_3^- 濃度に顕著な上昇がみられた一方で、太平洋側及び瀬戸内海沿岸は他地域と比較して季節的な変動は小さかった。（図 B）

ポイント③：大気汚染物質（ガス、エアロゾル）の 3 年間の季節変動の傾向は、以下のように物質によって異なる。（図 C）

二酸化硫黄 (SO_2)・・・全体的に夏季に低く、冬季にかけて最大となる傾向。一部の地点では火山の影響を受けている可能性が示唆される。

窒素酸化物 (NO_x^* , p.10 脚注参照)・・・伊自良湖では夏季に高く、幡竜湖、禰原、小笠原では冬季に高くなるなど地点ごとに傾向が異なる。

オゾン (O_3)・・・全体的に冬季から春季にかけて最大で、夏季は低い。

PM_{10} 及び $\text{PM}_{2.5}$ ・・・全体的に春季に高くなる。

ポイント④：大気汚染物質濃度の長期的傾向（平成 10 年度～22 年度）を見ると、二酸化硫黄濃度は、大陸に近い地点ほどその寄与が大きいと推測される。

⇒二酸化硫黄濃度について、日本海側の遠隔地域では、西側の隠岐が佐渡関岬よりも濃度が高い傾向が見られた。

⇒窒素酸化物濃度については、全体的に遠隔地域よりも非遠隔地域の方が濃度が高い。

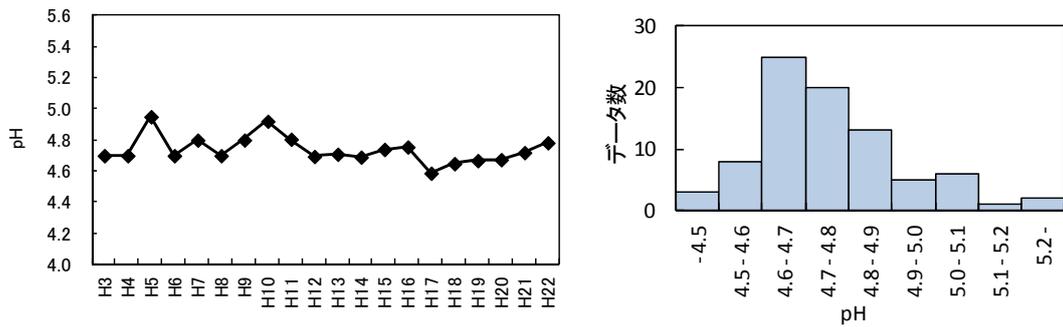


図 A 左：降水 pH の経年変化（地点別年平均値の中央値）
右：平成 20～22 年度における各地点の降水 pH 年平均値のヒストグラム

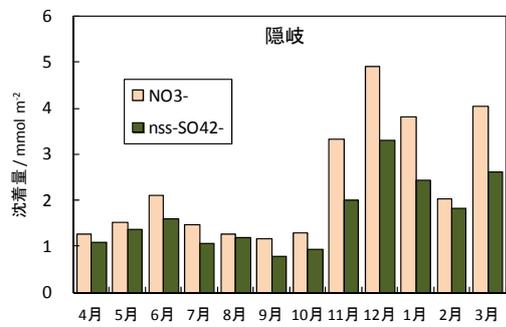


図 B 隠岐測定所全景及び NO_3^- 、 nss-SO_4^{2-} 湿性沈着量の経月変化（平成 20～22 年度平均値）

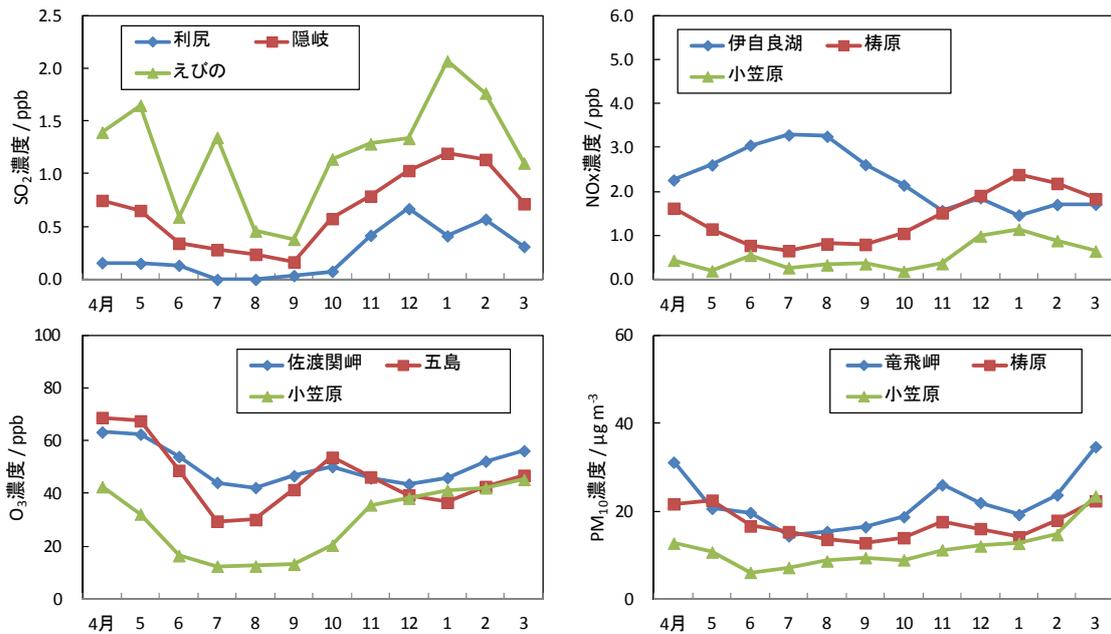


図 C ガス状及び粒子状物質濃度の経月変化（平成 20～22 年度平均値）

(3) 生態系への影響の状況

ポイント①：一部の地点で、土壌 pH 低下や樹木衰退の進行、湖沼や河川 pH の低下と NO_3 濃度の上昇など、大気沈着との関連性が示唆される経年変化を確認。
(図 D)

⇒表層土の pH は 8 プロットで統計的に有意な低下が、3 プロットで有意な上昇がある。
⇒樹木衰退度について、吉野熊野及び大山隠岐で、多くの観察項目の異常が報告。十和田八幡平では大気汚染との関連が示唆されている葉色と落葉率に異常が報告。
⇒陸水の調査開始時からの長期トレンドでは、夜叉ヶ池(2000~)及び釜ヶ谷川（伊自良湖流入河川）(1989~)で pH の低下傾向、夜叉ヶ池ではアルカリ度の低下傾向、双子池（雄池）では SO_4^{2-} の、伊自良湖集水域では NO_3 のそれぞれ有意な上昇傾向が確認。

ポイント②：過去の調査で酸性化が確認された伊自良湖での集水域モニタリングでは、 SO_4^{2-} 流出量は引き続き多いが、河川中の NO_3 濃度は 2005 年をピークに低下を始め、pH も上昇に転じつつあり、窒素飽和からの回復傾向が示唆。
(図 E)

⇒ SO_4^{2-} は流入量以上に流出しているため、窒素循環とあわせ今後さらに注意深く監視していく必要がある。

ポイント③：土壌影響と陸水影響に着目し、酸性沈着による影響を受けやすい要監視地域を抽出した。

⇒現時点では大まかなエリアを示したのみで、今後は各地域で詳細な評価を進める。

(4) オゾン及び粒子状物質の長期傾向について

ポイント①：オゾンについて、多くの遠隔地点で年平均濃度の増加傾向が見られたが、統計的に有意ではなかった。(図 F)

⇒特に八方尾根（長野県）では平成 19 年までは有意な上昇傾向（1.1 ppbv/year）が見られたが、その後減少に転じた。この原因については現在のところ解明されておらず、今後の推移を注視する必要がある。

ポイント②： PM_{10} および $\text{PM}_{2.5}$ 濃度についても、顕著な増減傾向は確認されなかった。

⇒ PM_{10} については多くの EANET 局で減少傾向が見られたが、統計的に有意ではなかった。(図 G) また、 $\text{PM}_{2.5}$ 濃度については、利尻、隠岐ともに顕著な増減傾向が確認されなかった。

ポイント③：オゾンによる植物影響の実態を評価するため、代表的な樹種に対するオゾンの影響に関する要監視地域を抽出した。

⇒オゾンの AOT40（1 時間値が 40 ppb を超えた分の積分値、p82 参照）、植生分布、個体乾物成長におけるオゾン感受性の樹種間差異などを用いて、わが国の代表的な樹種に対するオゾンの影響に関する要監視地域として、北陸地方・新潟・群馬北部及び関東西部を、樹木の成長が低下している可能性がある地域として抽出。(図 H)

⇒オゾン濃度に関するパイロット・モニタリングを平成 23 年度から 3 箇所を開始した。今後、オゾン濃度の実態や樹木衰退との関連性などがより明らかになり、オゾンのモニタリング手法や植物影響の評価手法の確立に役立つことが期待される。
(図 I)

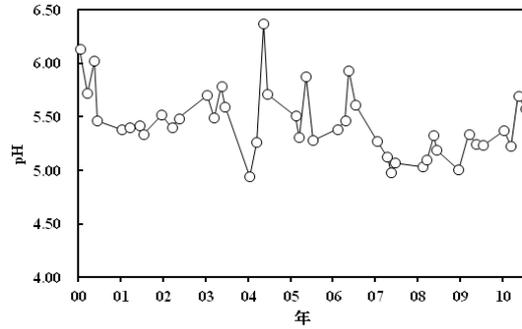
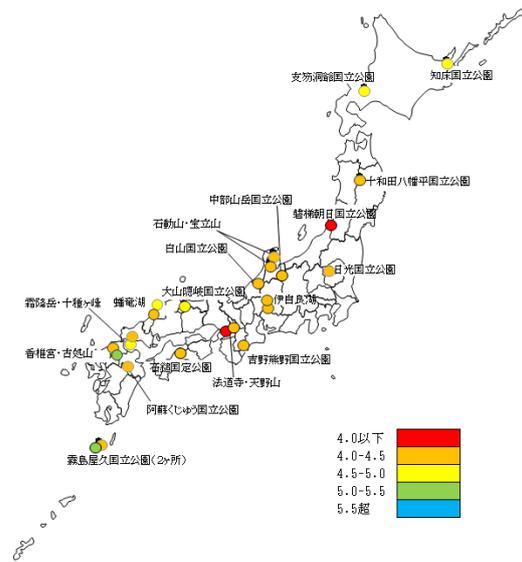


図 D 左：土壌表層(0-10 cm)の pH(H₂O) (平成 13-22 年度の平均値)
 右：夜叉ヶ池における表層水の pH 経年変化

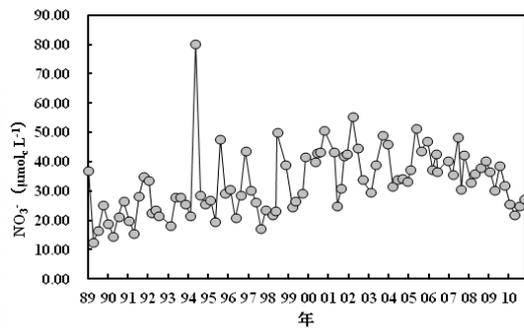


図 E 釜ヶ谷川 (伊自良湖流入河川) における採水風景及び NO₃ 濃度の経年変化

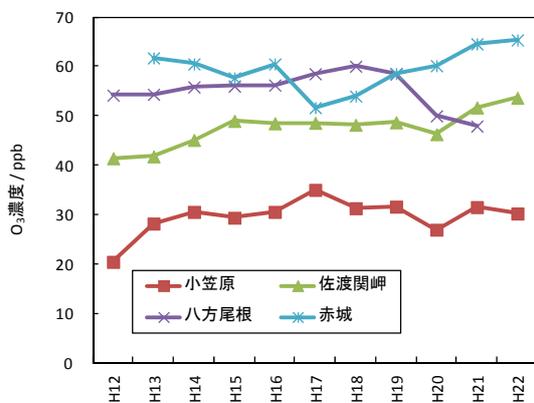


図 F オゾン濃度の経年変化

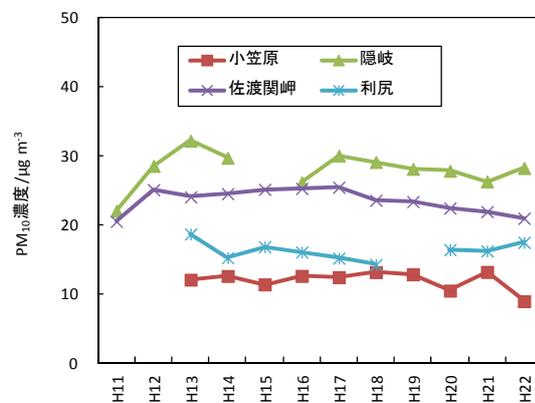


図 G PM₁₀ 濃度の経年変化

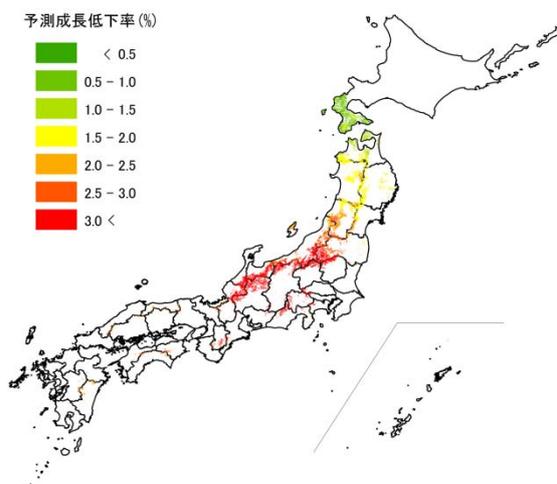


図 H オゾンによるブナの予測成長低下率の分布



図 I 八海山（左）及び英彦山（右）パイロットモニタリング地点付近

(5) 総合とりまとめに向けて（今後の重点課題）

- ☆酸性沈着と越境大気汚染について、地点別・地域別の総沈着量の解析、酸性化に寄与する因子の解析及び地域毎の特性・類型解析を進め、酸性沈着のメカニズムをさらに明確にする。
- ☆モニタリングデータと大気輸送モデルを効果的に活用した解析により、酸性沈着に加え、オゾンや微小粒子等の大気汚染物質の我が国への越境移動による影響についての考察を深める。
- ☆生態影響モニタリングでは、全ての地点で10年以上のデータによる解析が可能となり、大気沈着との関連を含めた長期的傾向についてより明確な考察を行う。
- ☆伊自良湖における集水域モニタリングでは、窒素飽和からの回復の兆候がこのまま継続するのか、今後の経過を注意深く監視する必要がある。
- ☆今回土壌影響及び陸水影響に着目して抽出した要監視地域に関し、乾性沈着量や大気シミュレーションの結果も考慮するなど、更に検討を進める。
- ☆オゾンの植物影響に関しては、パイロット・モニタリングの結果を受け、定常モニタリングに向けた検討や、オゾン影響に関する要監視地域に関する検討を引き続き行う。

1. 越境大気汚染・酸性雨長期モニタリングの経緯

東アジア地域では、大気汚染等の深刻な環境問題を抱えつつ経済が急速に発展しており、将来、酸性雨を含む越境大気汚染が深刻になることが懸念されている。

環境省（庁）は、昭和 58 年度に第 1 次酸性雨対策調査を開始し、大気、土壌・植生、陸水の各分野で酸性雨モニタリングを実施した。平成 14 年度までの計 20 年間の調査結果は平成 16 年 6 月に「酸性雨対策調査総合とりまとめ報告書」としてとりまとめられ、欧米並の酸性雨が見られること、冬季に日本海側で酸性成分が増加する傾向にあることなどが確認されている。また、平成 15 年度からは、広域的かつ長期的な酸性雨モニタリングを継続的に実施していくため、「酸性雨長期モニタリング計画」を策定してこれに基づくモニタリングを実施している。この結果は「酸性雨長期モニタリング報告書（平成 15～19 年度）」としてとりまとめられ（平成 21 年 3 月）、伊自良湖集水域における酸性化、オゾンやエアロゾルを含む越境大気汚染への取り組みの必要性等が指摘されている。

一方、東アジア地域においては、国際協調に基づく酸性雨対策を推進していくため、平成 10 年 4 月から「東アジア酸性雨モニタリングネットワーク（EANET）」が試行稼働し、平成 13 年 1 月から本格稼働を開始した（現在、13 カ国が参加）。EANET では、湿性沈着、乾性沈着、土壌・植生、陸水のモニタリングが各国で継続的に実施されるとともに、平成 22 年の第 12 回政府間会合において「EANET を強化するための文書」が採択され設立基盤の強化が図られ、さらに、平成 23 年の第 13 回政府間会合では「東アジア地域における酸性雨状況に関する第 2 次定期報告書」（PR SAD2）がとりまとめられた。EANET では酸性沈着とその影響を対象としてモニタリングを進めているが、酸性沈着のみならず広く大気汚染問題を対象に加える可能性について、議論が重ねられているところである。

上記のような国内外における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、オゾンやエアロゾルも対象に越境大気汚染を監視することを明確にする観点から、平成 21 年 3 月に「越境大気汚染・酸性雨長期モニタリング計画」を策定し、平成 21 年度からそれに基づくモニタリングが開始されている。越境大気汚染・酸性雨長期モニタリングは、酸性雨原因物質やオゾン等大気汚染物質の長距離越境輸送や長期トレンド等を把握し、また、越境大気汚染や酸性沈着の影響の早期把握や将来の影響を予測することを目的として、EANET と密接に連携しつつ、大気モニタリング及び生態影響モニタリングを長期間実施するものである。昭和 58 年度から平成 22 年度までの調査地点数の推移は、表 1-1 に示したとおりである。平成 20 年度からは、伊自良湖における集水域モニタリングも新たに追加されている。

本報告書は、平成 25 年度末に予定している総合とりまとめ報告（平成 20～24 年度）を前に、その進捗状況を記載した中間報告である。

表 1-1 調査地点数の推移

	第1次調査	第2次調査	第3次調査	第4次調査	—	長期モニタリング	
年度	昭和58年 ～62年度	昭和63年～ 平成4年度	平成5年～ 9年度	平成10年～ 12年度	平成13年～ 14年度	平成15年～ 20年度	平成21年度 ～
大気	14～34地点	29地点	48地点	55地点	48地点	31地点	26地点
土壌・植生	12地点	43地点	88地点	20地点	18地点	25地点	25地点
陸水	133地点 (スリーピング調査)	5地点	33地点	17地点	12地点	11地点	11地点
集水域						1地点 (平成20年 度～)	1地点
その他		酸性雪2地域					

酸性雨と測定物質との関係

工場や自動車から排出された二酸化硫黄(SO₂)、窒素酸化物(NO_x)等のガス状の汚染物質は、様々な化学的、物理的過程を経て最終的に地上に沈着する。

光化学反応によって大気中に生成された水酸化ラジカル(OH)などの酸化性物質により、SO₂やNO_xは硫酸や硝酸という強酸に変換される。一方、大気中にはアンモニアや炭酸カルシウムなどの塩基性物質も存在し、これらの物質は硫酸や硝酸を中和し、硫酸アンモニウムや硝酸アンモニウムなどの弱酸性の塩や硫酸カルシウムや硝酸カルシウムなどの中性の塩を生成し、地上へ沈着する。

大気中の汚染物質の地上への沈着には乾性沈着と湿性沈着の2つの過程がある。ガスや粒子状物質が雨や雪などに取り込まれ、地上へは水に溶け込んだ形で沈着する過程が湿性沈着であり、ガスや粒子状物質が風で輸送されるときにそのままの形で森林表面などに沈着する過程が乾性沈着である。「酸性雨」という環境問題は、湿性沈着及び乾性沈着を併せたものとして捉えられており、両者の合計である総沈着量の評価が最近の課題になっている。

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

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

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

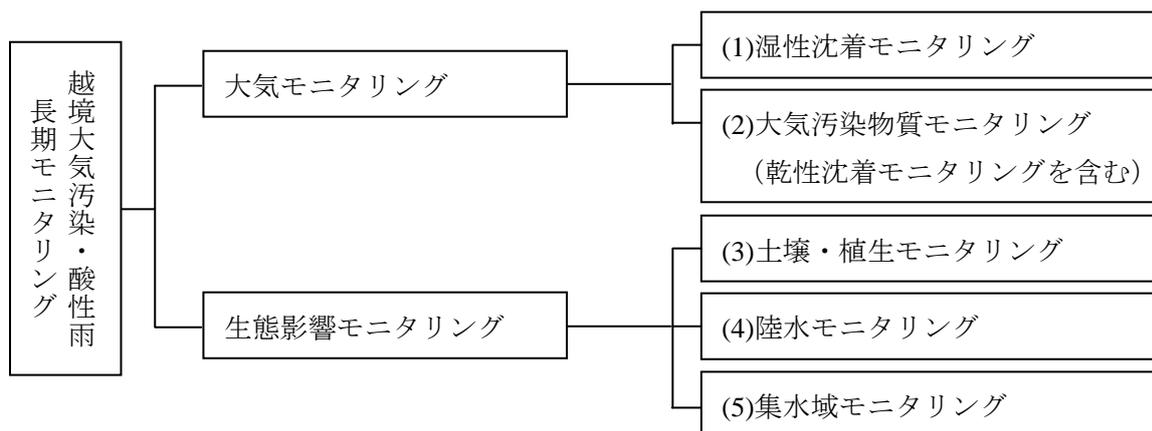
2. 調査の目的及び内容

2.1 目的

越境大気汚染・酸性雨長期モニタリングは、酸性雨原因物質やオゾン等大気汚染物質の長距離越境輸送や長期トレンド等を把握し、また、越境大気汚染や酸性沈着の影響の早期把握や将来の影響を予測することを目的に、EANET と密接に連携しつつ、大気モニタリング及び生態影響モニタリングを長期間実施するものである。

2.2 調査内容

環境省では、酸性雨長期モニタリング計画（平成 14 年 3 月）及び平成 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」に基づき、平成 20～22 年度において、酸性沈着の状況を把握するため湿性沈着モニタリング及び大気汚染物質モニタリングを、また、酸性沈着による生態系への影響を把握するため土壌・植生モニタリング、陸水モニタリング及び集水域モニタリングをそれぞれ実施した。伊自良湖集水域における集水域モニタリングは、平成 17～19 年度に実施された重点調査結果を踏まえ、平成 20 年度から定期観測項目として新たに加えられた。

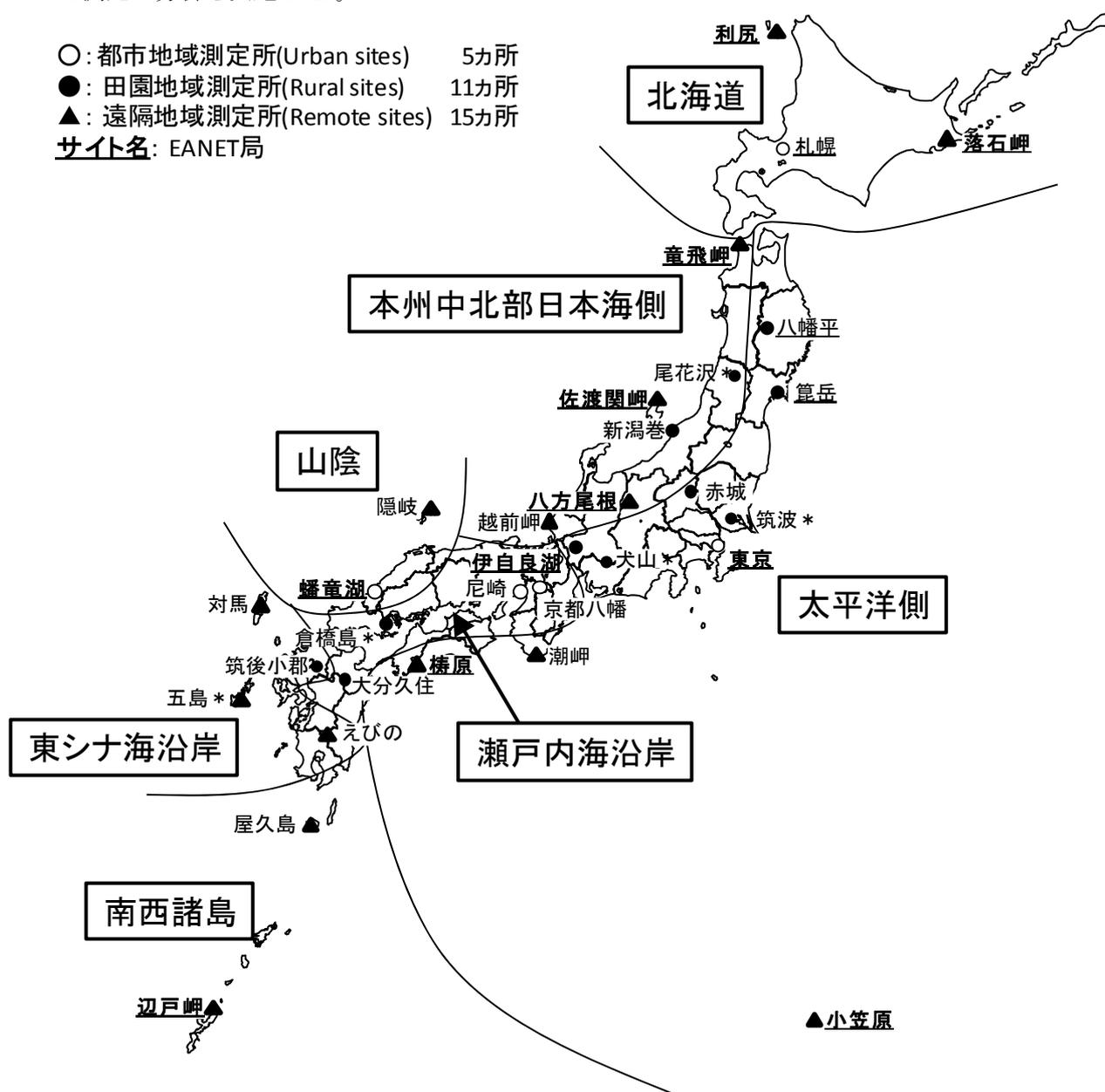


(1) 湿性沈着モニタリング

湿性沈着モニタリングは、気候区分や測定局の特性、地域的なバランス等を考慮し、モニタリングを効果的・効率的に実施できるよう、大気モニタリング地点として選定された 31 地点（うち 5 地点は平成 20 年度末で測定を休止）において実施された。なお、測定地点は、「Technical Manual for Wet Deposition Monitoring in East Asia」¹⁾ に従い、遠隔地域、田園地域及び都市地域モニタリング地点に分類される（図 2-1 参照）。また、31 地点を地域別に分析する際には、図 2-1 に示すとおり、北海道、本州中北部日本海側、太平洋側、瀬戸内海沿岸、山陰、東シナ海沿岸及び南西諸島に区分した。

降水試料（降雪を含む。以下同じ。）の捕集には降水時開放型捕集装置（降水時のみ蓋が開き、降水を捕集する装置）を使用し、試料は、「湿性沈着モニタリング手引き書（第2版（平成13年3月））」²⁾に従って、水素イオン指数（pH）¹⁾、電気伝導率（EC）、イオン濃度（硫酸イオン（SO₄²⁻）、硝酸イオン（NO₃⁻）、塩化物イオン（Cl⁻）、アンモニウムイオン（NH₄⁺）、カルシウムイオン（Ca²⁺）、カリウムイオン（K⁺）、マグネシウムイオン（Mg²⁺）、ナトリウムイオン（Na⁺）の10項目について測定・分析を実施した²⁾。

- ：都市地域測定所(Urban sites) 5カ所
 - ：田園地域測定所(Rural sites) 11カ所
 - ▲：遠隔地域測定所(Remote sites) 15カ所
- サイト名: EANET局



*：尾花沢、筑波、犬山、倉橋島及び五島（湿性沈着）は平成20年度末に測定を休止

図 2-1 大気モニタリング地点

¹⁾ 水素イオン（H⁺）濃度の逆数の常用対数が水素イオン指数（pH）

²⁾ 硫酸イオン及びカルシウムイオンは海水中にも含まれ、海塩として大気中に放出され、一部が降水に取り込まれる。降水中に含まれるこれら海塩由来の成分割合は、ナトリウムイオンを基準として海水中のナトリウムイオンに対する比率から算出し、全体から海塩由来を差し引くことにより、海塩粒子に由来しない（non-sea-salt：nss-）非海塩性硫酸イオン（nss-SO₄²⁻）及び非海塩性カルシウムイオン（nss-Ca²⁺）を求めた。本調査では、これらの nss-SO₄²⁻及び nss-Ca²⁺を考察の対象としている。

(2) 大気汚染物質モニタリング（乾性沈着モニタリングを含む）

乾性沈着モニタリングは、本来、乾性沈着量を把握するためのものであるが、乾性沈着の過程が極めて複雑であり、沈着量の測定法が標準化されていないことから、乾性沈着量の推定に資するよう、大気汚染物質の大気中濃度の測定を実施した。各地点ごとの測定項目を表 2-1 に示す。

(1) で述べた地点のうち、EANET に登録されている測定局（以下、「EANET 局」。東京局を除いた 11 地点）においては、自動測定機による二酸化硫黄（SO₂）、一酸化窒素（NO）、窒素酸化物（NO_x³）、オゾン（O₃）及び粒径 10μm 以下の粒子状物質（PM₁₀）⁴の各濃度の連続測定を実施した。また、利尻、落石岬及び隠岐では PM_{2.5}⁵も測定した。落石岬を除く EANET 局では、フィルターパック法⁶により、大気試料を 1 又は 2 週間吸引した試料を分析し、二酸化硫黄（SO₂）、硝酸（HNO₃）、塩化水素（HCl）、アンモニア（NH₃）、粒子成分濃度を測定した。自動測定機による測定は「環境大気常時監視マニュアル（第 5 版（平成 19 年 3 月）³）及び第 6 版（平成 22 年 3 月）⁴）」、フィルターパック法による測定は EANET の「Technical Document for Filter Pack Method in East Asia」⁵に従って実施した。

さらに、EANET 局以外の一部測定局においても、大気汚染物質の大気中濃度（主にオゾン。えびの及び屋久島局では二酸化硫黄も対象）のモニタリングを実施した。

(3) 土壌・植生モニタリング

土壌・植生モニタリングは、外部負荷の影響を受けやすいと考えられる山岳地域の天然林を中心に選定された「主に樹木への影響に着目した地点」、酸性沈着に対する感受性の高い土壌を中心に選定された「主に土壌への影響に着目した地点」、陸水への影響をみる上で重要となる「陸水への影響に着目した地点」の計 19 地域 25 地点（地点一覧は表 2-2、地点分布は図 2-2 参照）において、「土壌・植生モニタリング手引書（平成 15 年 3 月）⁶」及び「Technical Manual for Soil and Vegetation Monitoring」⁷に基づき、以下のとおり実施した。

① 森林モニタリング

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

② 土壌モニタリング

各プロット（表 2-2 参照）に設定した 5 つのサブプロットにおいて、表層（0-10cm）及び次層（10-20cm）の土壌を採取し、以下の項目を分析した。なお、頻度は 5 年に 1 回である。

必須項目：水分含量、pH(H₂O)、pH(KCl)、交換性塩基（Ca、Mg、Na、K）、交換酸度^{*}、有効陽イオン交換容量（ECEC）^{**}、交換性 Al 及び H、炭酸塩含有量（石灰岩土壌のみ）

^{*} 交換酸度は、交換性 Al 及び H の分析操作から算出

^{**} 有効陽イオン交換容量（ECEC）は、交換性陽イオンの和として算出

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

³ 分析手法上、NO_x（NO 及び NO₂）以外のペルオキシアセチルナイトレート（PAN）及び一部の硝酸（HNO₃）も測定することになるため、「NO_x*」と表記する。なお、都市地域測定所での NO_x の主要成分は、NO 及び NO₂ と考えられるため、NO_x の測定値と NO の測定値の差を、NO₂ として集計している。

⁴ 粒径（空気力学径）10μm の粒子に対する捕集効率が 50% の分粒装置を用いて捕集した粒子状物質。

⁵ 粒径（空気力学径）2.5μm の粒子に対する捕集効率が 50% の分粒装置を用いて捕集した粒子状物質。

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

表 2-1 大気モニタリング地点ごとの測定項目一覧

測定所名	都道府県	分類	湿性沈着	分析単位	NOx	SO ₂	O ₃	PM ₁₀	PM _{2.5}	フィルタパック	風向風速	雨量	温湿度	日射	EANET局
1 利尻	北海道	遠隔	○	日毎	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
2 札幌		都市	○	週毎							○	○	○	○	
3 落石岬*1		遠隔	○	日毎	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
4 竜飛岬	青森県	遠隔	○	日毎	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
5 八幡平	岩手県	田園	○	週毎							○	○			
6 箕岳	宮城県	田園	○	週毎			○				○	○	○	○	
7 尾花沢*2	山形県	田園	○	週毎							○	○			
8 筑波*2	茨城県	田園	○	日毎			○				○	○	○	○	
9 赤城	群馬県	田園	○	週毎			○				○	○			
10 小笠原	東京都	遠隔	○	日毎	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
11 東京		都市	○	日毎							○	○			○
12 佐渡関岬	新潟県	遠隔	○	日毎	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
13 新潟春		田園	○	日毎				○				○	○	○	○
14 越前岬	福井県	遠隔	○	日毎			○				○	○			
15 八万尾根	長野県	遠隔	○	日毎	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
16 伊自良湖	岐阜県	田園	○	週毎	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
17 犬山*2	愛知県	田園	○	日毎			○				○	○	○	○	
18 京都八幡	京都府	都市	○	週毎			○				○	○	○	○	
19 尼崎	兵庫県	都市	○	週毎			○				○	○	○	○	
20 湖岬	和歌山県	遠隔	○	週毎							○	○			
21 隠岐	島根県	遠隔	○	日毎	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
22 蟠竜湖		都市	○	週毎	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
23 倉橋島*2	広島県	田園	○	日毎			○				○	○	○	○	
24 構原	高知県	遠隔	○	日毎	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
25 筑後小郡	福岡県	田園	○	週毎			○				○	○	○	○	
26 対馬	長崎県	遠隔	○	日毎			○				○	○			
27 五島*2		遠隔	○	日毎				○				○	○		
28 大分久住	大分県	田園	○	週毎			○				○	○	○	○	
29 えびの	宮崎県	遠隔	○	日毎			○				○	○	○	○	
30 屋久島	鹿児島県	遠隔	○	週毎			○				○	○	○	○	
31 辺戸岬	沖縄県	遠隔	○	日毎	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○

*1：落石岬の自動測定機による大気濃度及び気象項目は独立行政法人国立環境研究所地球環境研究センターによる測定
 *2：尾花沢、筑波、犬山、倉橋島及び五島（湿性沈着）は平成20年度末に測定を休止

表 2-2 土壌・植生モニタリング地点一覧

* 3	地域特性等	区分	直近の調査 実施年度* 2	選定の際考慮した 樹種、土壌種、集 水域	調査プロット数		
					林分 の数	土壌 プロット数	植生 プロット数
1	知床国立公園 (北海道)	樹木	平成22年度	トドマツ	1	2	1
2	支笏洞爺国立公園 (北海道)	樹木	平成20年度	ダケカンバ	1	2	1
3	十和田八幡平国立公園 (岩手県)	樹木	平成21年度	オオシラビソ	1	2	1
4	磐梯朝日国立公園三面山 (新潟県)	樹木	平成19年度	ブナ	1	2	1
5	日光国立公園 (栃木県)	樹木	平成20年度	ブナ	1	2	1
6	中部山岳国立公園 (富山県)	樹木	平成22年度	ブナ	1	2	1
7	白山国立公園 (石川県)	樹木	平成18年度	ブナ	1	2	1
8	吉野熊野国立公園 (奈良県)	樹木	平成21年度	ブナ	1	2	1
9	大山隠岐国立公園 (鳥取県)	樹木	平成20年度	ブナ	1	2	1
10	石鎚国定公園 (高知県)	樹木	平成21年度	ブナ	1	2	1
11	阿蘇くじゅう国立公園 (大分県)	樹木	平成22年度	ミズナラ	1	2	1
12	霧島屋久国立公園・	樹木	平成21年度	スギ	1	2	1
13	屋久島 (鹿児島県)	樹木	平成21年度	照葉樹林	1	2	1
14	せきどうざん・ほうりゅうざん 石動山・宝立山 (石川県)	土壌	平成22年度	赤色土/ 褐色森林土	2	2×2	2×1
15	ほうどうじ・あまのさん 法道寺・天野山 (大阪府)	土壌	平成19年度	黄色土/黄色系褐 色森林土	2	2×2	2×1
16	しもふりだけ・とくさのみね 霜降岳・十種ヶ峰 (山口県)	土壌	平成20年度	黄色土/黒ぼく土	2	2×2	2×1
17	かしいぐう・こしよさん 香椎宮・古処山 (福岡県)	土壌	平成19年度	赤色系褐色森林土 /褐色森林土	2	2×2	2×1
18	いじらこ 伊自良湖周辺 (岐阜県) (伊自良・大和) * 1	陸水	平成18年度	伊自良湖集水域 褐色森林土/黒ぼ く土	2	2×2	2×1
19	ばんりゅうこ 蟠竜湖周辺 (島根県) (蟠竜湖・石見臨空ファク トリーパーク (FP)) * 1	陸水	平成18年度	蟠竜湖集水域 黄色系褐色森林土 /赤色土	2	2×2	2×1

注) * 1 : EANET モニタリング地点。

* 2 : 森林総合調査及び土壌モニタリング実施年度。

* 3 : 14 (せきどうざん・ほうりゅうざん 石動山・宝立山) ~ 19 (ばんりゅうこ 蟠竜湖周辺) の5箇所については調査地点が2地点あるため、全体の調査値点数は25地点となる。

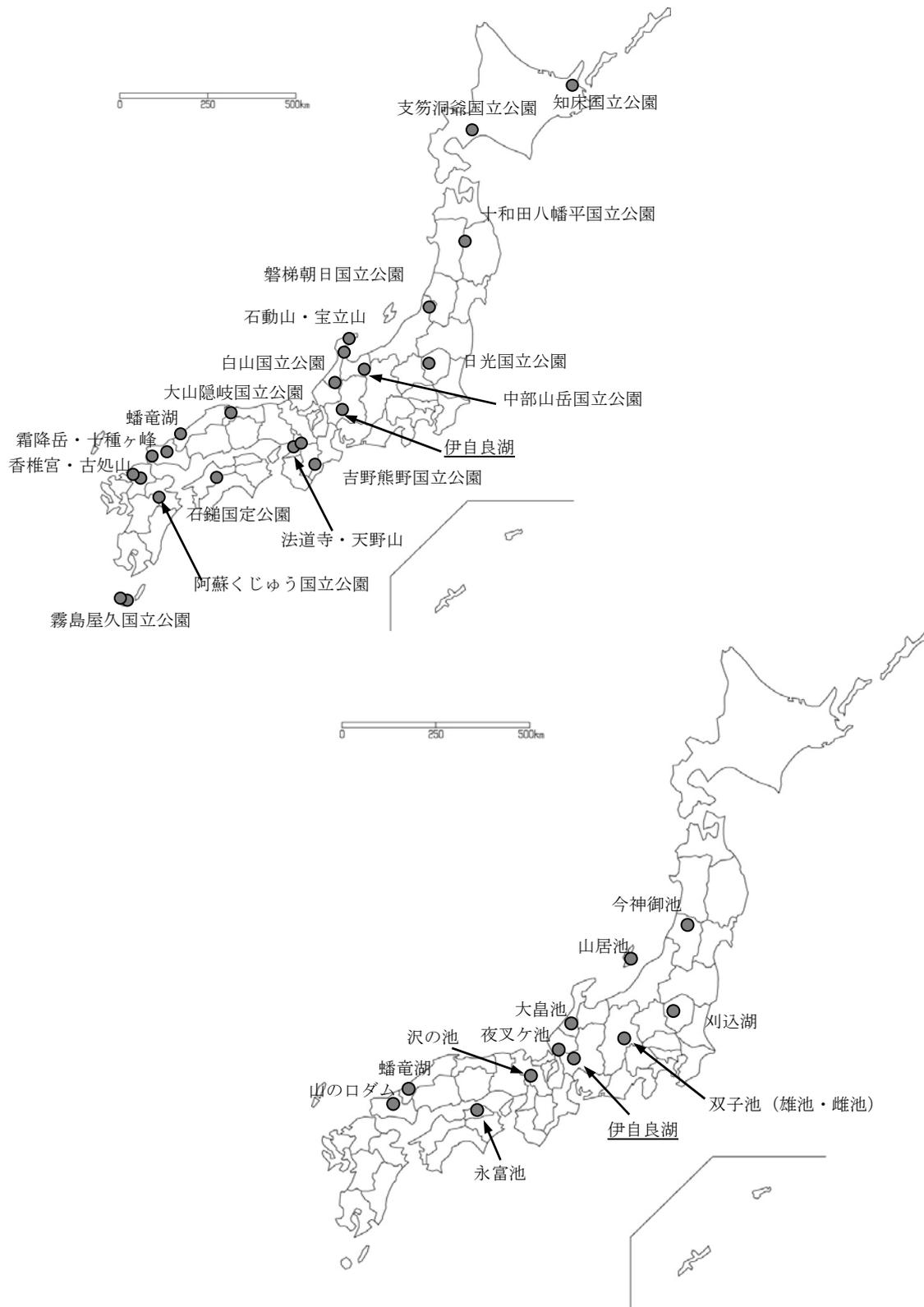


図 2-2 土壌・植生モニタリング地点 (上) 及び陸水モニタリング地点 (下)
伊自良湖 (岐阜県) では集水域モニタリングも実施されている。

(4) 陸水モニタリング

陸水モニタリングは、酸性沈着に対する応答が敏感なこと、人為的汚染が少ないこと、及び地域的バランス等を考慮して選定した 11 地点において、「陸水モニタリング手引き書（平成 17 年 2 月）」⁸⁾ に基づき実施した（地点一覧は表 2-3、調査地点の分布は図 2-2 参照）。測定項目は以下のとおりである。

① 水質調査の測定項目

年 4 回測定：水温、pH、電気伝導率、アルカリ度、 NH_4^+ 、 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 Na^+ 、 K^+ 、 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 Cl^- 、クロロフィル a (Chl-a)、溶存酸素 (DO)

年 1 回以上測定： NO_2^- 、 PO_4^{3-} 、DOC、透明度、水色

② 底質調査（間隙水）の測定項目（5 年に 1 回測定）： SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 NH_4^+

表 2-3 陸水モニタリング対象湖沼一覧

	湖沼名	都道府県	直近の底質調査 実施年度（5 年に 1 回）
1	いまがみおいけ 今神御池	山形県	平成 22 年度
2	かりこみこ 刈込湖	栃木県	平成 18 年度
3	さんきよいけ 山居池	新潟県	平成 20 年度
4	おおほたいけ 大畠池	石川県	平成 19 年度
5	やしやがいけ 夜叉ヶ池	福井県	平成 18 年度
6	ふたごいけ おいけ・めいけ 双子池（雄池・雌池）	長野県	平成 21 年度
7	いじらこ 伊自良湖 ^{*1} (流入河川：かまがたにがわ こうぼらがわ 釜ヶ谷川・孝洞川)	岐阜県	平成 22 年度
8	さわのいけ 沢の池	京都府	平成 20 年度
9	ぼんりゅうこ 蟠竜湖 ^{*1}	島根県	平成 19 年度
10	やまのくちだむ 山の口ダム	山口県	平成 21 年度
11	ながとみいけ 永富池	香川県	平成 19 年度

注.*1, EANET モニタリング地点

(5) 集水域モニタリング

酸性雨長期モニタリング報告書（平成 15-19 年度）⁹⁾ において酸性化が指摘された伊自良湖集水域（図 2-3 参照）において、酸性沈着による影響を継続的に監視していくため、伊自良湖流入河川（釜ヶ谷川・孝洞川）におけるモニタリングを補強し、酸性物質の流入量（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、評価した。主な測定、評価項目は以下のとおりである。

① 流入量（総沈着量）の推定

降水量分布：標高の異なる 3 地点（赤谷、青少年の家、及び伊自良湖酸性雨測定所）。

湿性・乾性沈着量：伊自良湖酸性雨測定所における湿性沈着量及び大気汚染物質モニ

タリングデータを基に推計した乾性沈着量。

② 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。

河川水質：2週間毎に釜ヶ谷川及び孝洞川で採取した。水温、pH、電気伝導率、アルカリ度（pH4.8、グランプロット法）、 NH_4^+ 、 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 Na^+ 、 K^+ 、 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 Cl^- 、TOC、溶存態全Al、 SiO_2

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。



図 2-3. 伊自良湖集水域モニタリング装置配置図

図中のRW1、RW2、RW3は、それぞれ釜ヶ谷川の上流、流入口、孝洞川の河川サンプリング地点を示す。

（6）データの確定と精度保証・精度管理

（1）～（5）の調査に当たっては、試料の捕集及び分析は原則として関係地方公共団体がを行い、その結果をアジア大気汚染研究センターで集約（同センター及び外部の専門家によるデータチェックを含む。）後、越境大気汚染・酸性雨対策検討会（大気分科会及び生態影響分科会）の検討を経てデータを確定した。

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

引用文献

- 1) EANET (2000) Technical Manual for Wet Deposition Monitoring in East Asia. Acid Deposition and Oxidant Research Center (ADORC), Niigata, Japan.
- 2) 環境省 (2001) 湿性沈着モニタリング手引き書 (第2版) . 環境省地球環境局・財団法人日本環境衛生センター酸性雨研究センター
- 3) 環境省 (2007) 環境大気常時監視マニュアル (第5版) . 環境省水大気環境局
- 4) 環境省 (2010) 環境大気常時監視マニュアル (第6版) . 環境省水大気環境局
- 5) EANET (2003) Technical Document for Filter Pack Method in East Asia. Acid Deposition and Oxidant Research Center (ADORC), Niigata, Japan.
- 6) 環境省 (2003) 土壌・植生モニタリング手引き書. 環境省地球環境局・財団法人日本環境衛生センター酸性雨研究センター
- 7) EANET (2000) Technical Manual for Soil and Vegetation Monitoring in East Asia. Acid Deposition and Oxidant Research Center (ADORC) , Niigata, Japan.
- 8) 環境省 (2005) 陸水モニタリング手引き書 (初版) . 環境省地球環境局・財団法人日本環境衛生センター酸性雨研究センター
- 9) 環境省 (2009) 酸性雨長期モニタリング報告書 (平成15～19年度) . 環境省地球環境局

3. モニタリングの結果

本章では、「酸性雨長期モニタリング計画（平成 14 年 3 月）」及び「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）」に基づいて実施した平成 20～22 年度のモニタリングの結果を整理し、併せて既存の調査結果を踏まえて酸性沈着に係る分析・考察を行った。

3.1 大気モニタリング

3.1.1 湿性沈着（降水）

本項では、降水を通じた酸性物質の沈着（湿性沈着）の傾向を整理した。以下において、モニタリング結果の評価を行うに当たっては、次の有効判定基準を満たすモニタリング結果のみを使用した。

- ①月間・年間値については、降水量の測定日数が対象日数の 80%以上であり、さらに対象期間中における有効試料の割合が 80%以上であること
- ② nss-SO_4^{2-} と nss-Ca^{2+} については、海塩粒子の寄与率が 75%以下であること

（1）湿性沈着の年平均値の傾向

平成 20～22 年度の湿性沈着のモニタリング結果のうち、有効判定基準を満たした結果（有効地点の割合：平成 20 年度 94%（29/31）、21 年度 85%（22/26）、22 年度 88%（23/26）¹）をまとめ、地点間の比較等を行った。詳細なデータについては参考資料参照。

①pH

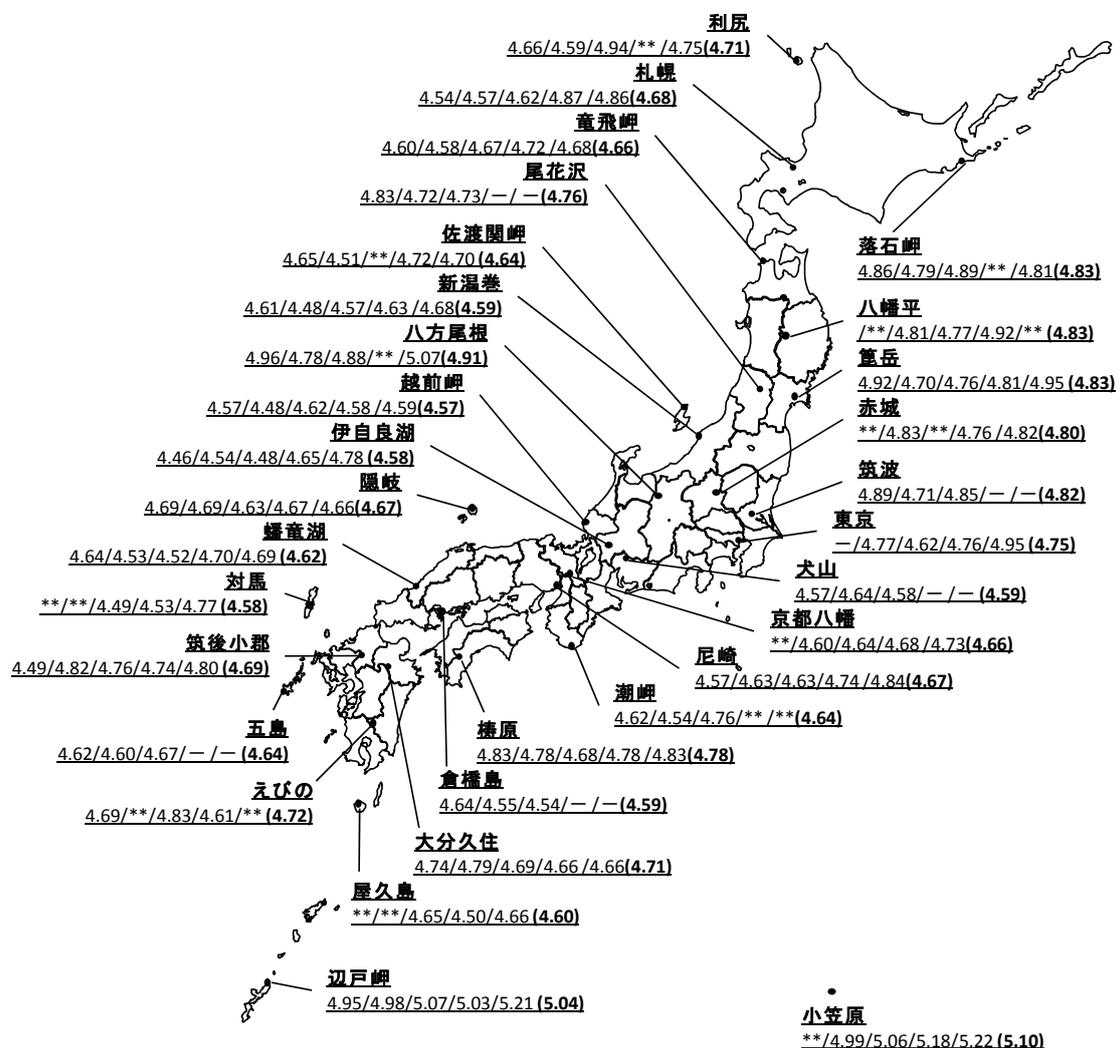
降水 pH の各年度の平均値及び 5 年間の平均値を地点別に図 3-1-1 に示す。このうち、平成 20 年度から 22 年度における降水 pH の地点別年平均値の範囲は 4.48（平成 20 年度・伊自良湖）～ 5.22（22 年度・小笠原）であった。また、各地点における 3 年間の pH 平均値は 4.54（倉橋島）～ 5.15（小笠原）の範囲にあり、全地点の pH 平均値は 4.72 であり、降水は引き続き酸性化した状態であることが認められた。3 年間の pH 平均値の地理的分布をみると、小笠原（pH 5.14）、辺戸岬（pH 5.10）、八方尾根（pH 4.97）で高く、倉橋島（pH 4.54）、犬山（pH 4.58）、対馬（pH 4.58）で低い傾向があった。

② 降水量

年間降水量の範囲は 809 mm/年（平成 20 年度・落石岬）～3692 mm/年（20 年度・えびの）であった。また、各地点における 3 年間の平均降水量の地理的分布をみると、屋久島、えびの、伊自良湖で 3000mm/年前後と多く、利尻、札幌、倉橋島で 1000mm/年前後と少ないことから、九州を始めとした太平洋側で多く、北海道や瀬戸内海沿岸の地点で少ない傾向が認められた。なお、いずれの地点にお

¹ 平成 20 年度末で尾花沢、筑波、犬山、倉橋島及び五島の 5 地点で測定を休止したため、平成 22 年度末現在の地点数は 26 地点となっている。

いても、平成20～22年度の間、降水量の目立った増加又は減少の傾向は観察されなかった。



平成18年度/平成19年度/平成20年度/平成21年度/平成22年度 (5年間平均値)

—: 測定せず

** : 当該年平均値が有効判定基準に適合せず、棄却された

注1) 平均値は降水量加重平均により求めた

注2) 東京は平成19年度より測定を開始

尾花沢、筑波、犬山、倉橋島及び五島は平成20年度末で測定を休止

図 3-1-1 pH 分布図

(2) 湿性沈着の季節変動

図2-1のように31調査地点を北海道、本州中北部日本海側、太平洋側、瀬戸内海沿岸、山陰、東シナ海沿岸及び南西諸島に区分し、地域ごとに降水量、イオン成分濃度及びイオン成分沈着量の季節変動の解析を行った。なお、沈着量はイオン成分濃度×降水量で計算される値であり、降水によって単位面積あたりに沈着したイオン成分の量を示すものである。降水の酸性化に寄与する指標である nss-SO_4^{2-} 及び NO_3^- の濃度及び沈着量等の季節変動をそれぞれ図3-1-2及び図3-1-3に示す。

nss-SO_4^{2-} 及び NO_3^- の濃度及び沈着量の季節変動で大きな差は認められなかった。 nss-SO_4^{2-} 及び NO_3^- の濃度は全体的に冬季から春季に上昇する傾向がみられ、特に山陰の NO_3^- 濃度に顕著な上昇がみられた一方で、太平洋側及び瀬戸内海沿岸は他地域と比較して季節的な変動は小さかった。 nss-SO_4^{2-} 及び NO_3^- の沈着量は、本州中北部、山陰及び南西諸島において晩秋から春季に多くなる傾向がみられ、これらの地域では、酸性物質の大気中への供給が晩秋から春季にかけて増加していると考えられる。一方、北海道、太平洋側、瀬戸内海沿岸及び東シナ海沿岸においては梅雨の影響で降水量の多い初夏に最大となり、秋季に最少となった。

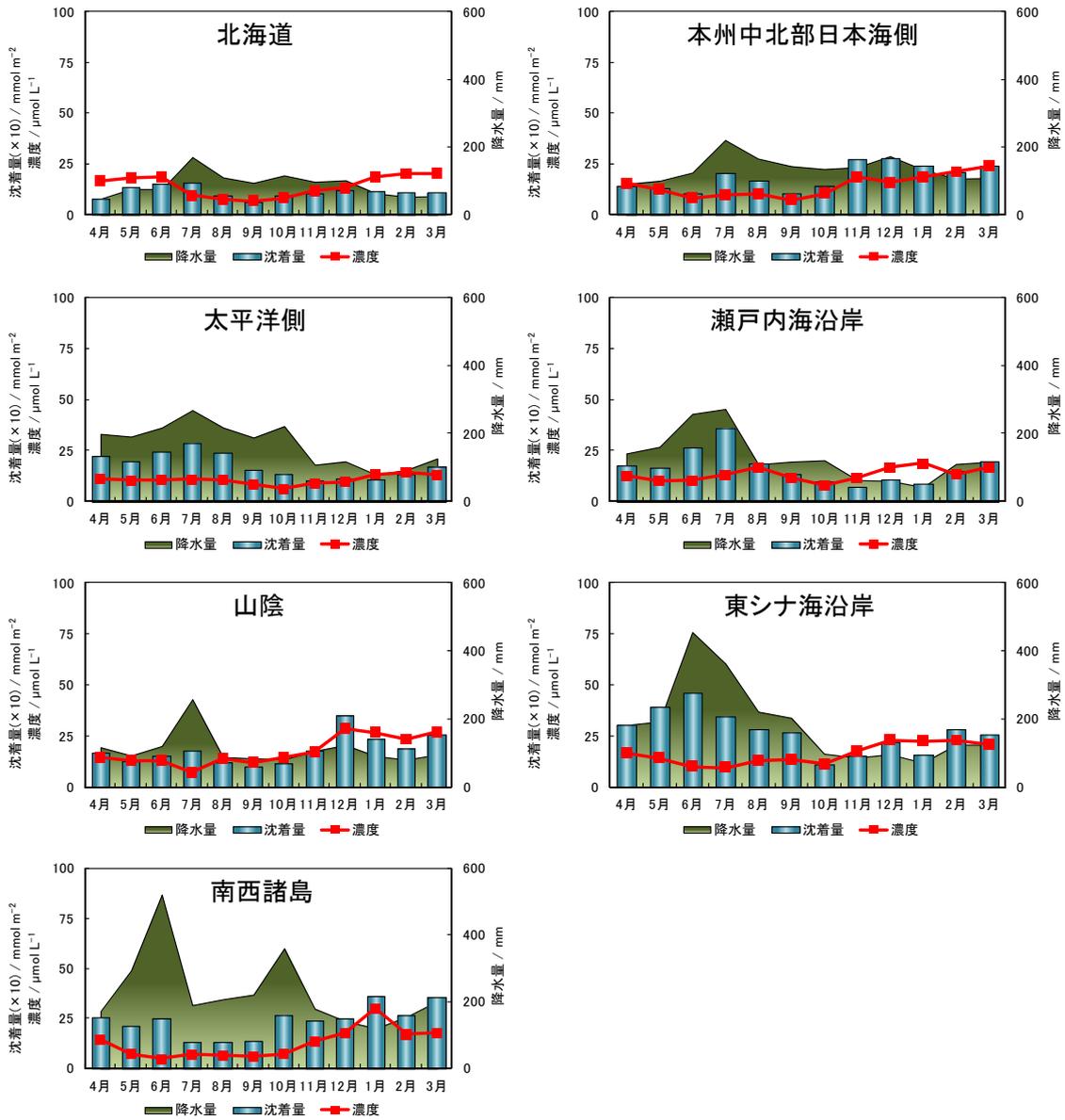


図 3-1-2 nss-SO₄²⁻濃度及び沈着量、並びに降水量の季節変動 (平成 20~22 年度平均値)

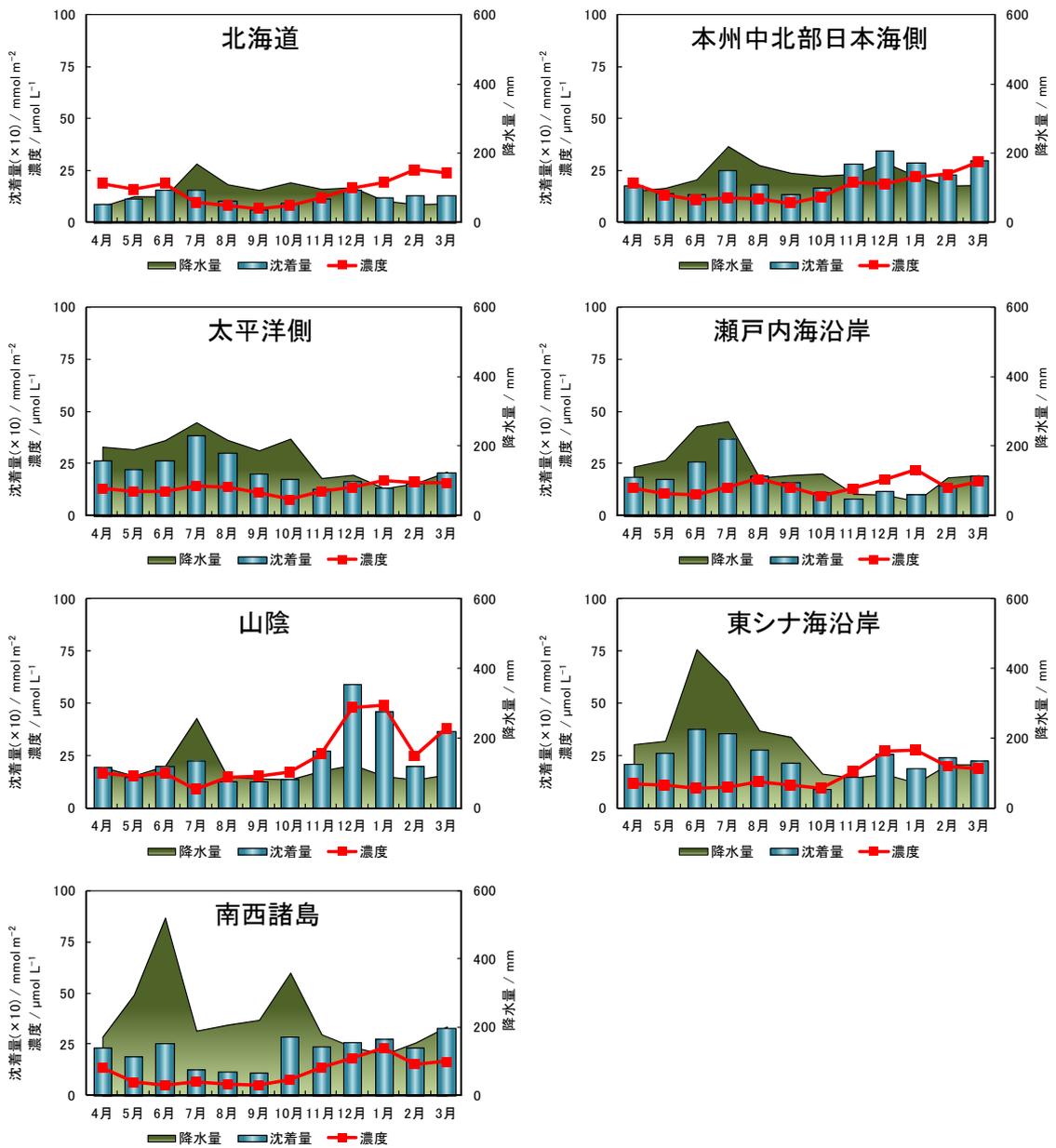


図 3-1-3 NO₃濃度及び沈着量、並びに降水量の季節変動 (平成20~22年度平均値)

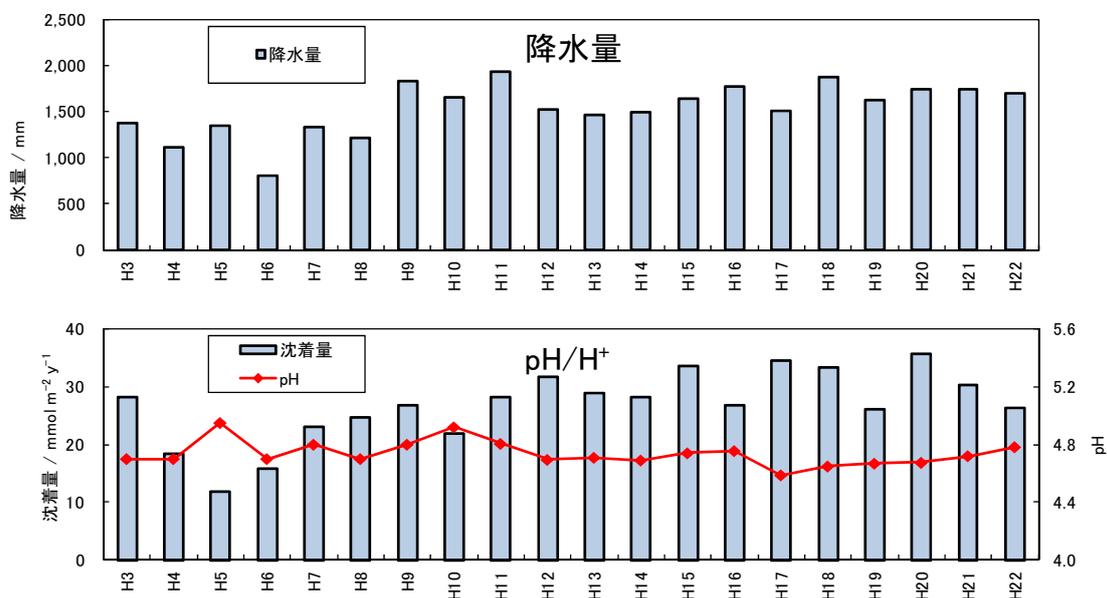
(3) 湿性沈着の長期的傾向

湿性沈着の長期的傾向を把握するため、1991年度（平成3年度）～2010年度（22年度）の間に延べ10年以上の調査が実施された地点の結果（有効データのみ）を用い、年降水量、年平均濃度及び年沈着量の全国中央値の変動を解析した。

pH、降水量、イオン成分濃度及び沈着量の全国中央値の経年変化を図3-1-4に示す。

降水量は、1990年代に増減を繰り返し、2000年代は横ばいで推移した。pHは年により増減するものの全体として横ばいで推移した。H⁺沈着量は1990年代半ばから2000年度（平成12年度）まで増加傾向を示し、その後増減を繰り返した。

nss-SO₄²⁻濃度は1999年度（平成11年度）まで減少し2000年度（12年度）に増加した後は、横ばいで推移した。nss-SO₄²⁻沈着量は、期間を通して変動があるもののほぼ横ばいであった。NO₃濃度は2004年度（16年度）まで変動はしているもののほぼ横ばいで推移し、2005年度（17年度）以降は増加する傾向を示した。NO₃沈着量は1990年代中頃に増加し、それ以降は横ばいで推移した。NH₄⁺濃度は年により増減はするものの全体として横ばいで推移した。nss-Ca²⁺濃度は2000年度（12年度）に高く、2003年度（15年度）及び2004年度（16年度）で低いなど、年により増減するものの全体として横ばいで推移した。NH₄⁺及びnss-Ca²⁺沈着量は期間を通して変動があるものの横ばいであった。



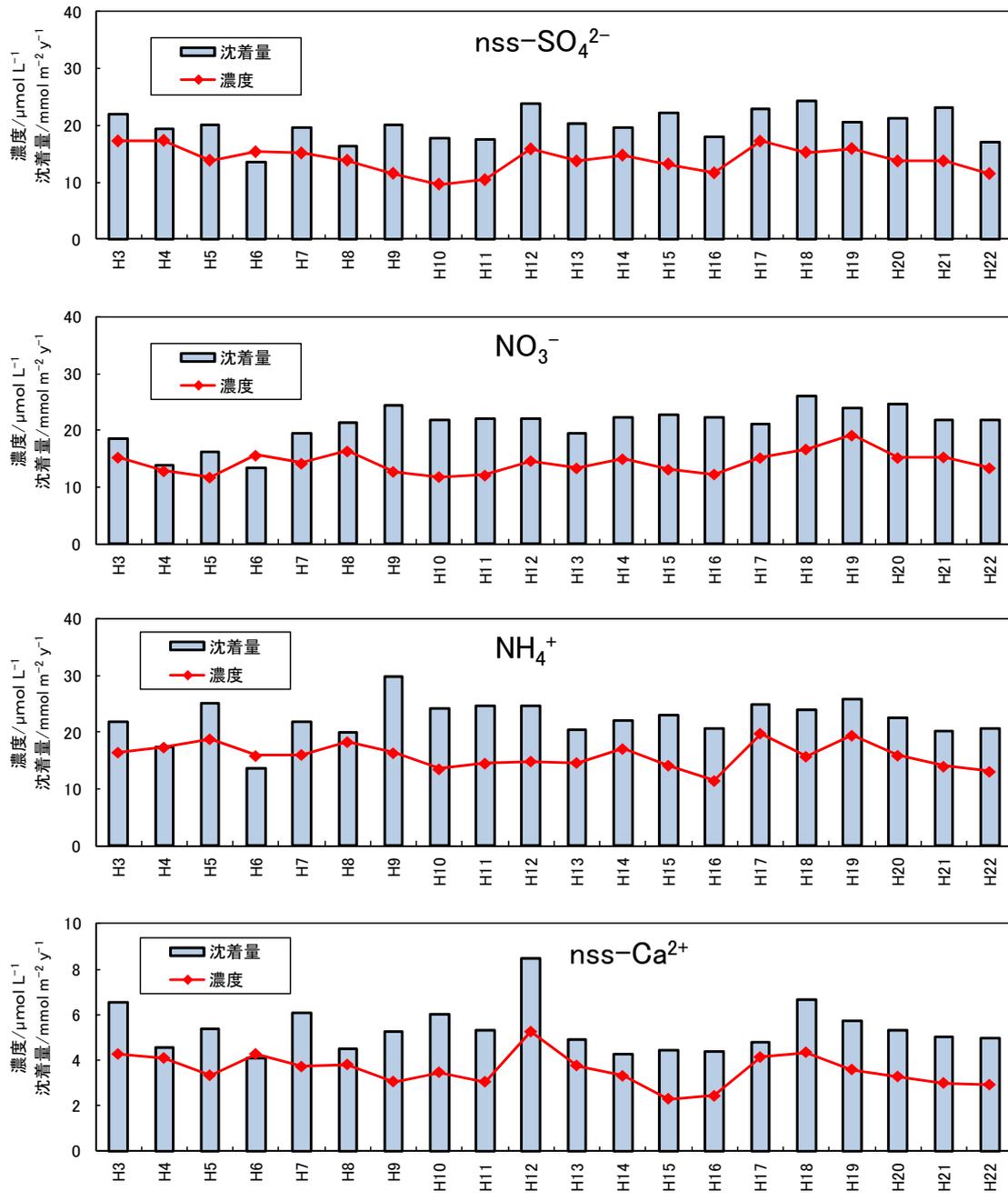


図3-14 降水量及びイオン成分濃度・沈着量の全国中央値の経年変化

3.1.2 大気汚染物質（ガス、エアロゾル）

本項では、大気汚染物質の乾性沈着の傾向を整理した。以下において、モニタリング結果の評価を行うに当たっては、有効データ（自動測定機：1時間値、フィルターパック：2週間値）の得られた時間が調査対象時間の70%以上であった値のみを年間値及び月間値の解析に使用した。

[主な測定項目]

① 自動測定機

SO₂ (12 地点)、NO_x* (11 地点)、オゾン (O₃) (21 地点)、PM₁₀ (11 地点)、PM_{2.5} (3 地点)

② フィルターパック法

粒子状成分濃度 (SO₄²⁻、NO₃⁻、NH₄⁺、Ca²⁺) 及びガス状成分濃度 (HNO₃、NH₃) (11 地点)

なお、粒子状成分のうち、SO₄²⁻については湿性沈着と同様にNa⁺を海塩粒子の指標として用い、海塩粒子に由来しない非海塩性のSO₄²⁻を算出して考察の対象とした。

(1) 大気汚染物質濃度の季節変動

図3-1-5に平成20年度から22年度におけるSO₂の月平均濃度を月ごとに3年間平均した経月変化を示す。SO₂濃度は全体的に夏季に低く、冬季にかけて最大となる傾向がみられた。屋久島、えびの、梶原で特に高い濃度が観測されたが、南九州や薩南諸島の火山群から排出されるの火山性ガスの影響を受けている可能性が示唆される。

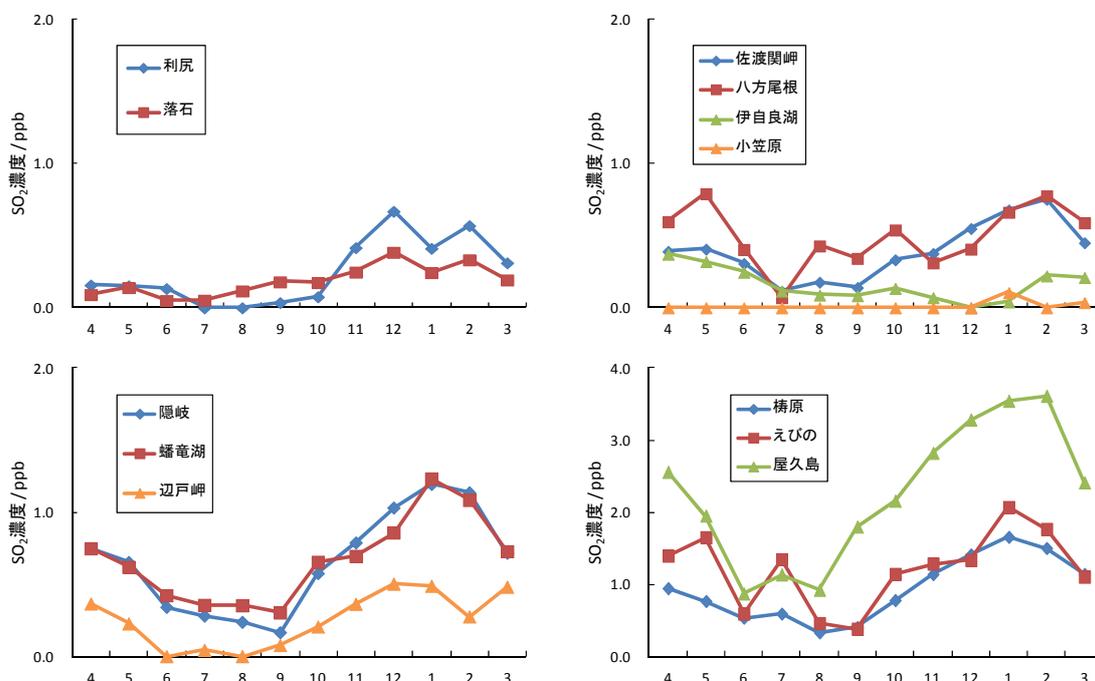


図3-1-5 SO₂濃度の季節変動(平成20~22年度平均)

※ 竜飛岬は期間を通じて欠測

図3-1-6に平成20年度から22年度におけるNOx*の月平均濃度を月ごとに3年間平均した経月変化を示す。NOx*濃度は伊自良湖では夏季に高くなる傾向がみられた一方で、蟠竜湖、構原、小笠原では冬季に高くなる傾向がみられ、測定地点ごとに異なった傾向を示した。

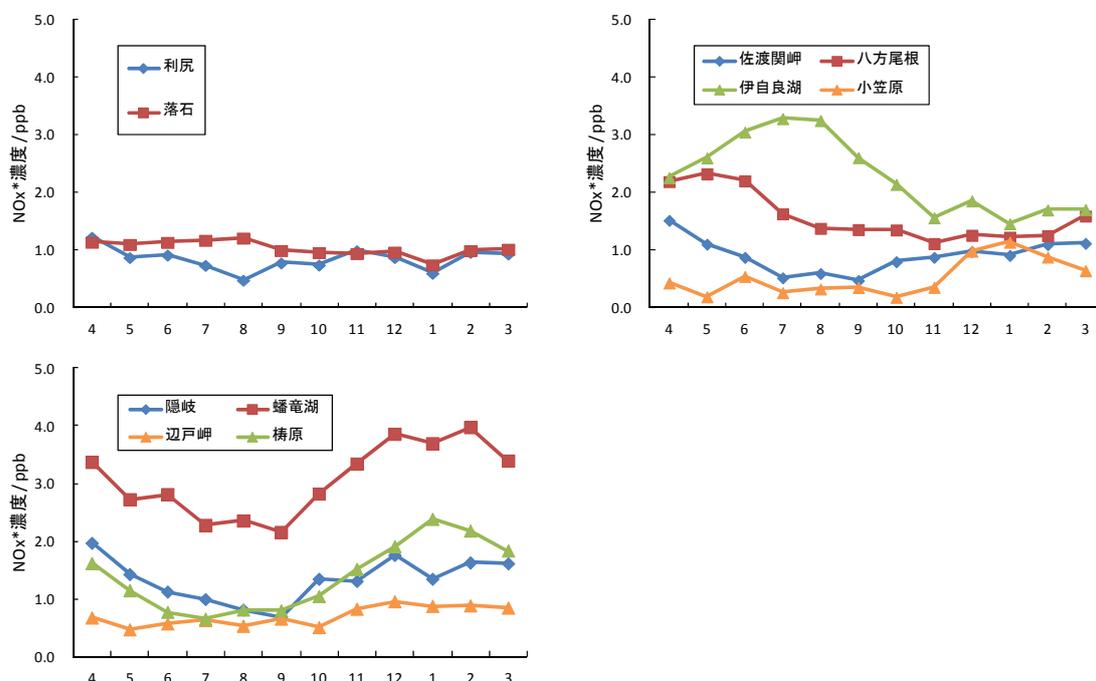


図3-1-6 NOx*濃度の季節変動(平成20~22年度平均)

※ 竜飛岬は期間を通じて欠測

図3-1-7に平成20年度から22年度におけるオゾンの月平均濃度を月ごとに3年間平均した経月変化を示す。オゾン濃度は全体的に冬季から春季にかけて最大となり、夏季には低い傾向がみられた。赤城で特に高い濃度が観測されたが、首都圏で生成されたオゾンの輸送の影響を強く受け、付近にオゾンと反応する大規模のNOx発生源が存在しないためであると考えられる。

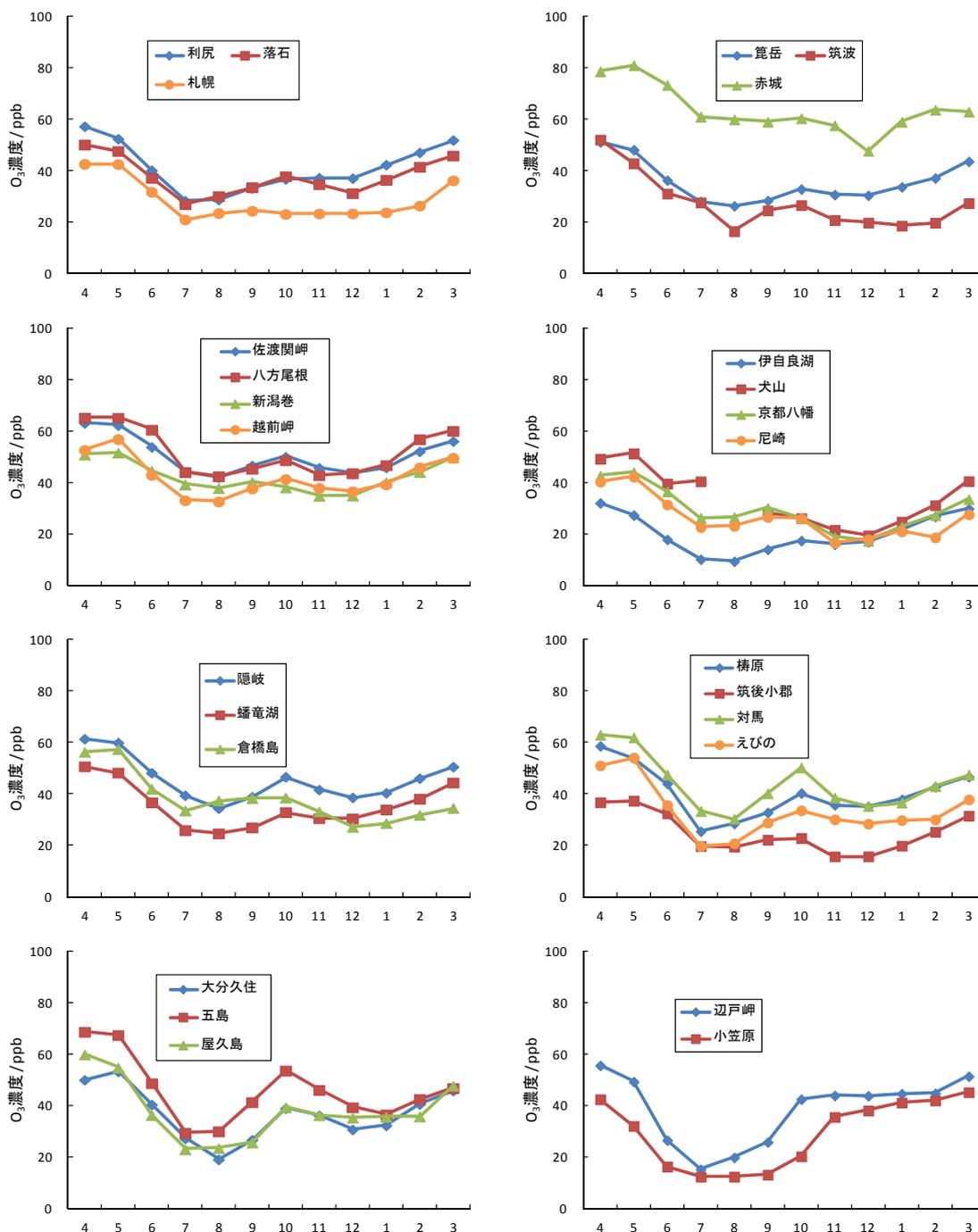


図3-1-7 オゾン濃度の季節変動(平成20~22年度平均)

※ 竜飛岬は期間を通じて欠測

図 3-1-8 に平成 20 年度から 22 年度における PM₁₀ 及び PM_{2.5} の月平均濃度を月ごとに 3 年間平均した経月変化を示す。PM₁₀ 濃度は全体的に春季に高くなる傾向がみられた。PM_{2.5} 濃度は PM₁₀ 濃度とほぼ同じ季節変動を示し、年間を通して同一地点の PM₁₀ 濃度よりも低い濃度で推移した。

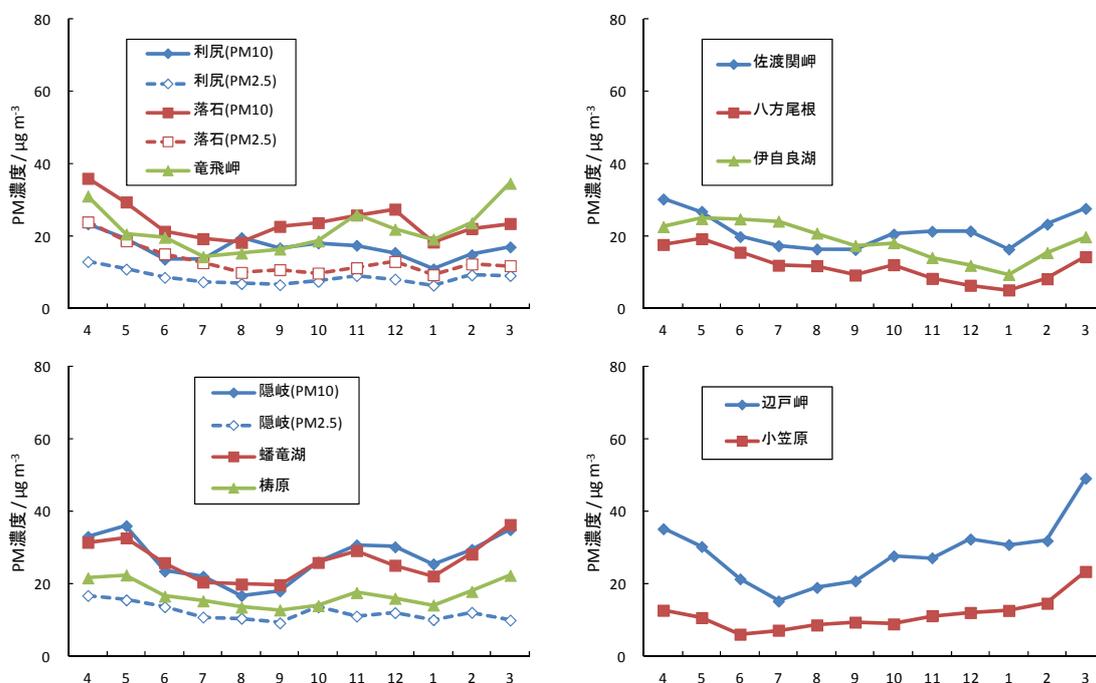
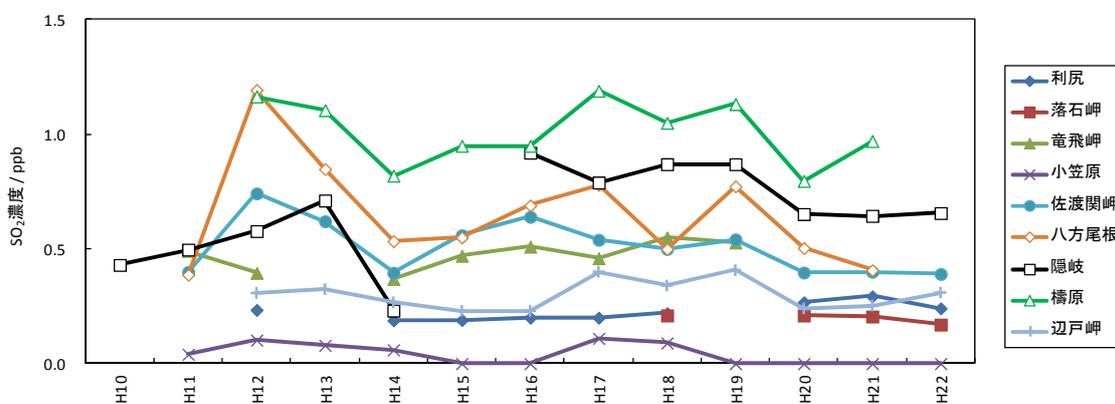


図 3-1-8 PM₁₀、PM_{2.5} 濃度の季節変動(平成 20~22 年度平均)

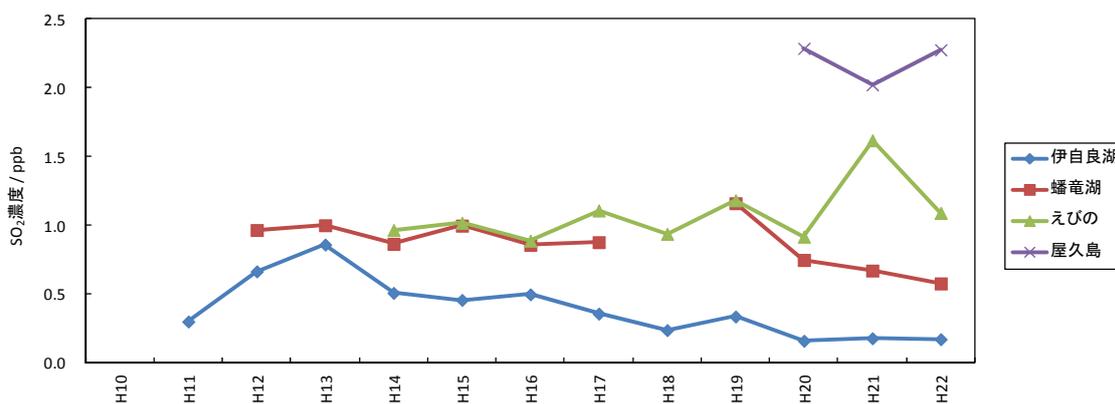
* 特に項目を指定しない地点は PM₁₀ 濃度のモニタリング結果

(2) 大気汚染物質濃度の長期的傾向

平成10年度から22年度におけるSO₂濃度の経年変化を図3-1-9に示す。遠隔地域では、全体的に1.0ppb以下の低濃度で推移しており、調査期間を通して禰原で濃度が高く、大陸から離れた小笠原において低い。また、日本海側の遠隔地域では、北寄りの風が強い冬季も通じて西側の隠岐が佐渡関岬よりも濃度が高い傾向がみられ、大陸からの移流の寄与が大きいことが伺われる。一方、えびの及び屋久島では調査期間を通して高濃度で推移した。これは、南九州や薩南諸島の火山群に近いことから、その影響を受けたためであると考えられる。非遠隔地域のうち、蟠竜湖は伊自良湖より高濃度であった。長期的傾向については、平成13年度を基準年として伊自良湖で-0.06 ppbv/yearの有意な減少傾向(p<0.05)を示したが、その他の地点で有意な傾向はみられなかった。



[a] : 遠隔地域

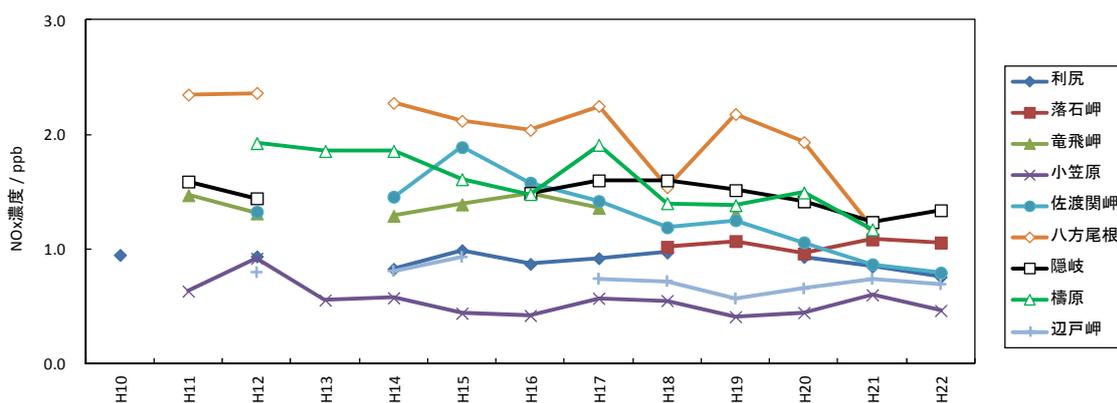


[b] : 非遠隔地域

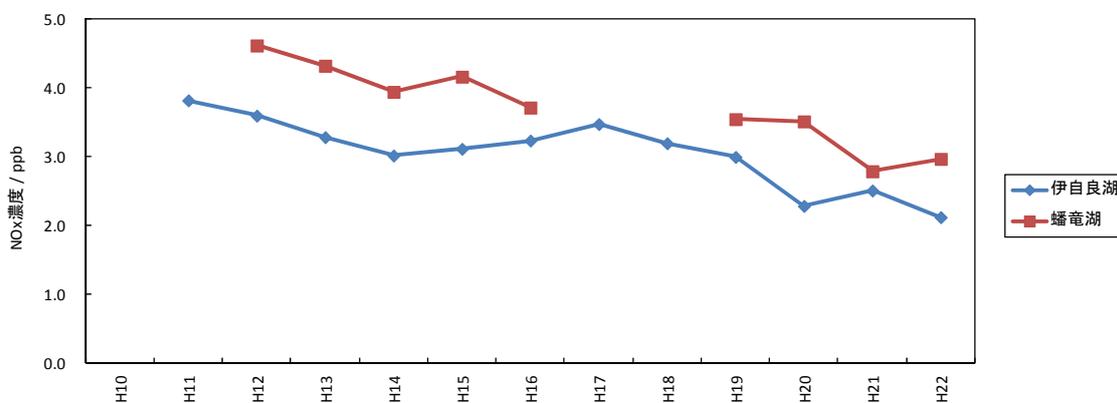
(桜島に近いえびの、屋久島を含む)

図3-1-9 SO₂濃度の経年変化

平成10年度から22年度におけるNOx*濃度の経年変化を図3-1-10に示した。非遠隔地域の伊自良湖及び蟠竜湖が調査期間を通して遠隔地域より濃度が高い。遠隔地域では、小笠原及び辺戸岬において濃度が低く、竜飛岬、八方尾根及び櫛原で高かった。なお、長期的傾向については測定開始時（平成10～12年度）を基準年として、伊自良湖(-0.2 ppbv/year)、蟠竜湖(-0.1 ppbv/year)、八方尾根(-0.08 ppbv/year)、佐渡関岬(-0.08 ppbv/year)、櫛原(-0.07 ppbv/year)で有意な減少傾向(p < 0.05)を示した。その他の地点で有意な傾向はみられなかった。



[a] : 遠隔地域



[b] : 非遠隔地域

図3-1-10 NOx*濃度の経年変化

なお、オゾン、PM₁₀及びPM_{2.5}の長期的傾向については、第4章4.1 (1)、(2) で述べる。

3.1.3 越境大気汚染・酸性沈着に関する考察

以下では、国設酸性雨局で得られたモニタリングデータを用いて、越境大気汚染・酸性沈着に係わり、中間報告の時点で考察できた事項について紹介する。1つめは、これまで国内データが無かった乾性沈着量及び総沈着量の算出結果を、2つめは長年蓄積されたモニタリングデータを用いて、統計的解析手法を用いて湿性沈着の傾向及び起源の推定を行った結果を、3つめは、長期モニタリングを行っている辺戸岬局のデータと、近傍で行われた集中観測データを統合して越境汚染の解析を行った結果を紹介する。

(1) 総沈着量（湿性＋乾性）の推計結果

平成 17～21 年にフィルターパック法により大気中成分を測定した 10 地点（東京及び落石岬を除く EANET 局）において、乾性沈着量（ガス状物質： SO_2 、 HNO_3 、 NH_3 、粒子状物質中のイオン成分： nss-SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 NH_4^+ ）を推計した。5 年平均値の結果を図 3-1-11、図 3-1-12 に示す。推計方法は大気中成分濃度とその成分の沈着速度の積から求める推定法（Inferential 法）¹⁾を用いた。各成分の沈着速度は EANET で採択された「Technical Manual on Dry Deposition Flux Estimation in East Asia」²⁾に基づき、測定局で観測されている気象要素（気温、相対湿度、風速、全天日射量、降水量）及び近傍の気象台における雲量データを用いて 1 時間毎に算出した。各サイトの沈着表面は、周辺 1km の土地利用から森林と草地の割合を求め、それぞれの表面に対する沈着速度を計算して重み付け平均した。各サイトにおける乾性沈着量は、土地利用割合で重み付け平均された沈着速度を大気中成分濃度の時間分解能（2 週間）にあわせて平均し、対象とする成分の濃度と沈着速度の積により求めた。なお、「酸性雨長期モニタリング報告書（平成 15～19 年度）」における乾性沈着推計法は、上記マニュアルの作成前に取りまとめられたため、空気力学的な設定等が異なり、乾性沈着量の比較はできない。

国内 EANET 局における硫黄及び窒素化合物の年間乾性沈着量（5 年平均値）の範囲はそれぞれ $2.1\text{--}22.2 \text{ mmol m}^{-2} \text{ y}^{-1}$ 、 $6.7\text{--}43.3 \text{ mmol m}^{-2} \text{ y}^{-1}$ であった。地域別に見ると西日本（隠岐、蟠竜湖、栲原）で高い傾向がみられ、竜飛岬で最大、伊自良湖及び小笠原で低かった。硫黄及び窒素化合物の大気中濃度は最大値と最小値では 2 倍程度の差しかなかったのに対し、沈着速度は最も大きい竜飛岬と最も小さい伊自良湖では最大で 10 倍以上の差があった。同一の高度における平均風速は、竜飛岬が伊自良湖の約 14 倍であり、各サイトの立地の影響を強く受ける気象の違いによるものと考えられる。

化学種別に乾性沈着量を見ると、硫黄の乾性沈着については、 SO_2 の寄与の方が大きい特徴が見られた。窒素の乾性沈着では、多くの地点で HNO_3 及び NH_4^+ の寄与が大きく、全窒素沈着量に占める割合はそれぞれ 20-50% 及び 10-40% であった。

全沈着量に対する乾性沈着の寄与を考察するために、図 3-1-11、図 3-1-12 では同地点での硫黄化合物及び窒素化合物の湿性沈着量（5 年平均値）も並べて示した。非海塩由来硫酸の湿性沈着量は、 $10.0\text{--}44.8 \text{ mmol m}^{-2} \text{ y}^{-1}$ の範囲にあり、利尻、八方尾根、伊自良湖、蟠竜湖、小笠原では湿性沈着量が顕著に大きかったが、その他の地点については乾性沈着量と湿性沈着量が同程度であった。一方、窒素化合物の湿性沈着量は $13.1\text{--}108.7 \text{ mmol m}^{-2} \text{ y}^{-1}$ の範囲にあり、多くの地点で全沈着量に対する湿性沈着

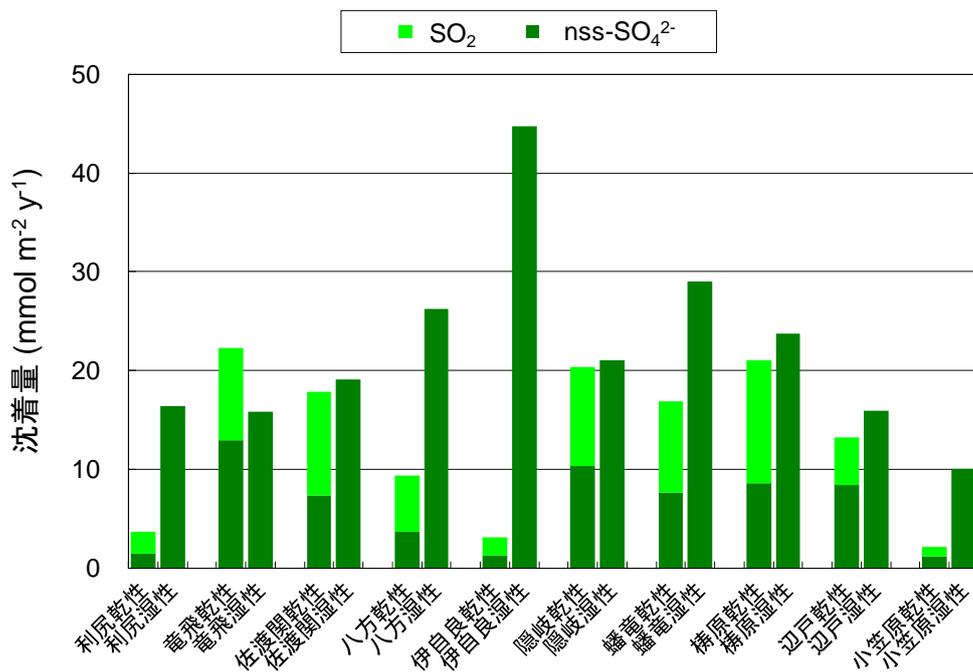


図3-1-11 平成17～21年の国内EANET局における硫黄化合物の乾性及び湿性沈着量の5年平均値
(年間完全度が湿性で80%、乾性で70%未満のデータを除く。)

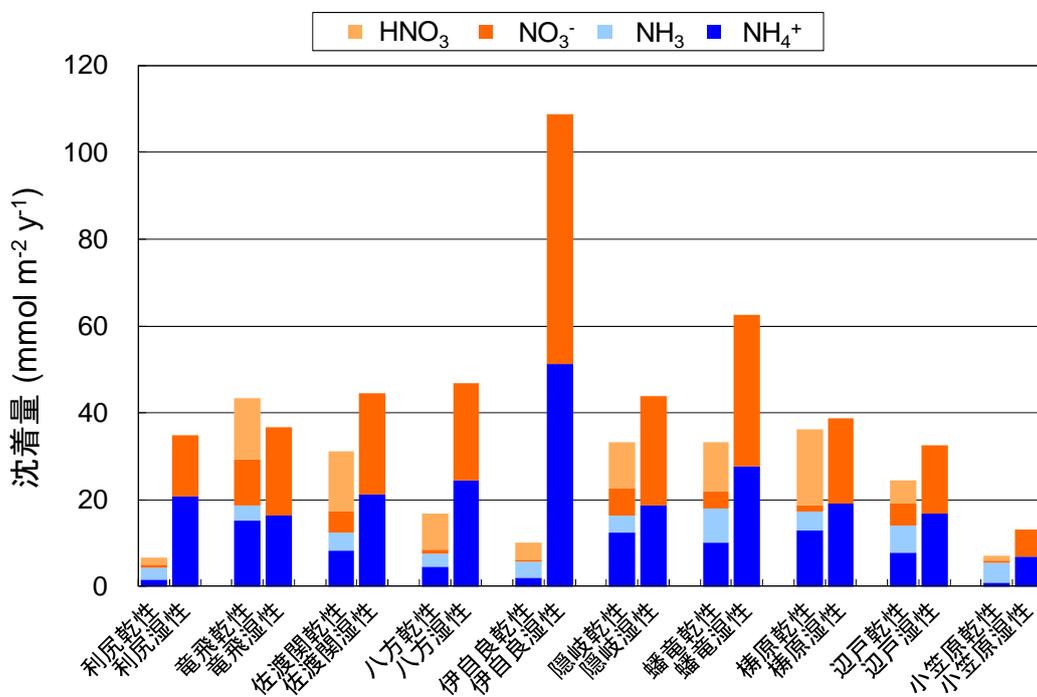


図3-1-12 平成17～21年の国内EANET局における窒素化合物の乾性及び湿性沈着量の5年平均値
(年間完全度が湿性で80%、乾性で70%未満のデータを除く。)

量の寄与が乾性沈着量と比べて大きかった。一方、竜飛岬では湿性沈着量と同等の乾性沈着量が算出された。

硫黄の総沈着量は、降水中の nss-SO_4^{2-} の湿性沈着量、及びガス状物質の SO_2 と粒子状物質の nss-SO_4^{2-} の乾性沈着量の総計で、窒素の総沈着量は、降水中の NO_3^- と NH_4^+ の湿性沈着量、及びガス状物質 (HNO_3 、 NH_3) と粒子状物質 (NO_3^- 、 NH_4^+) の乾性沈着量の総計で評価した。硫黄の総沈着量の5年間平均値は、 $12.2\sim 47.9 \text{ mmol m}^{-2} \text{ y}^{-1}$ の範囲であった。地域の特徴を見ると、西日本の遠隔地域、都市地域、郊外地域に位置する、伊自良湖、隠岐、蟠竜湖及び栲原で高く、発生源地域から遠く離れている利尻及び小笠原で少ない傾向が見られた。窒素の総沈着量の5年間の平均値は $20.2\sim 118.8 \text{ mmol m}^{-2} \text{ y}^{-1}$ の範囲であった。地域の特徴を見ると、都市地域、郊外地域に位置する伊自良湖及び蟠竜湖で高く、周囲に顕著な発生源がなく、大陸からの長距離輸送の影響も受けにくい小笠原や利尻で総沈着量が少ない傾向を示した。また、日本海側及び太平洋側の地点間では総沈着量に明瞭な相違がみられなかった。

国内 EANET 局、米国における清浄大気状況・トレンドネットワーク (CASTNET)、欧州における長距離移動大気汚染物質モニタリング・欧州共同プログラム (EMEP) で算出された、硫黄および窒素化合物の湿性、乾性沈着量の5年平均値(平成17~21年)を比較した結果を図3-3-13、図3-3-14に示す。国内 EANET 局は10サイト、米国 CASTNET の沈着量は78サイトについての平均値で示しており、欧州 EMEP の沈着量は27カ国を対象領域としたモデル計算による平均値で示している。国内 EANET 局の硫黄化合物の沈着量については、非海塩由来硫酸と海塩由来硫酸に区別して示しているが、欧米では区別していない。なお、沈着速度のパラメタリゼーションは各地域での検討結果に基づいたものであり、3つのネットワークで異なることに留意する必要がある。

国内 EANET 局における硫黄及び窒素化合物の総沈着量の平均値はそれぞれ 46.8 、 $70.5 \text{ mmol m}^{-2} \text{ y}^{-1}$ であり、ともに欧米の平均値より高かった。特に硫黄の湿性沈着量は欧米に比べて顕著に高かった。この理由として、CASTNET、EMEP での平均年間降水量は、それぞれ約 1000 mm 、約 700 mm であるのに対し、国内 EANET で約 1800 mm と降水量が多いことが考えられる。また、特に西日本で硫黄化合物の乾性及び湿性沈着量が大きくなっていることから、一部は越境汚染の寄与、一部は火山性ガスの放出が大きい沈着量に寄与していると考えられる。窒素化合物については、国内 EANET 局の乾性沈着量は EMEP と同レベルであるが、湿性沈着量は CASTNET 及び EMEP における湿性沈着量と比べて大きく、降水量の多さが大きい沈着量の一因であると考えられる。

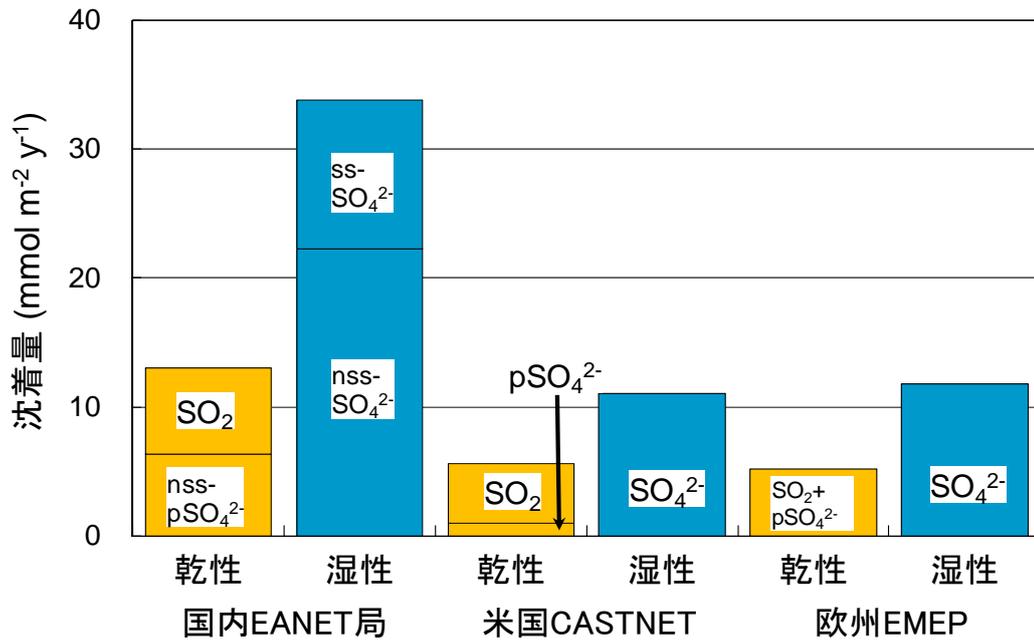


図3-1-13 国内EANET局、米国CASTNET、欧州EMEPにおける硫黄化合物の湿性、乾性沈着量の比較（平成17～21年の平均）

SO₂は二酸化硫黄ガス、nss-pSO₄²⁻は非海塩由来粒子状硫酸塩、pSO₄²⁻は粒子状硫酸塩、ss-SO₄²⁻は湿性沈着中海塩由来硫酸イオン、nss-SO₄²⁻は湿性沈着中非海塩由来硫酸イオン、SO₄²⁻は湿性沈着中硫酸イオン、を示す。

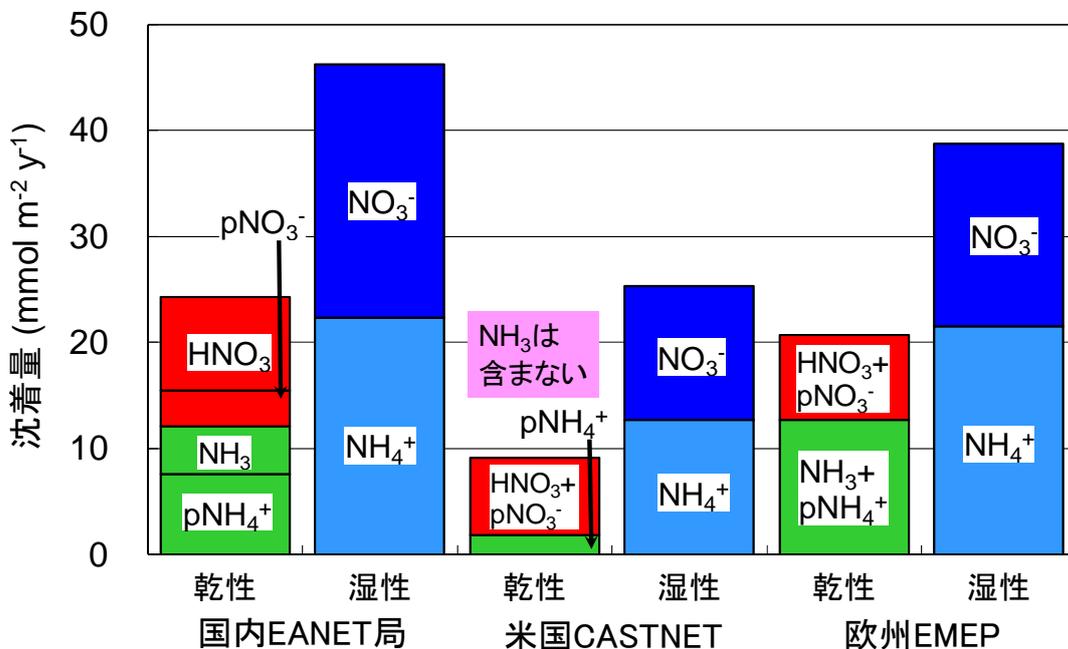


図3-1-14 国内EANET局、米国CASTNET、欧州EMEPにおける窒素化合物の湿性、乾性沈着量の比較（平成17～21年の平均）

HNO₃は硝酸ガス、pNO₃⁻は粒子状硝酸塩、NH₃はアンモニアガス、pNH₄⁺は粒子状アンモニウム塩、NO₃⁻は湿性沈着中硝酸イオン、NH₄⁺は湿性沈着中アンモニウムイオン、を示す。

(2) 統計的解析手法を用いたモニタリングデータの解析

①低い pH の降水の観測状況

降水の pH は降雨イベント毎に大きく変動しているため、試料の捕集単位が日、週、月と長くなるに従って平均化される。従って、低い pH の降水を把握するためには、捕集単位期間の短い試料のデータを用いるのが適当である。ここでは、平成 15～21 年度に 1 日ごとに降水を捕集した 14 地点（利尻、落石岬、竜飛岬、佐渡関岬、八方尾根、越前岬、潮岬、隠岐、橈原、対馬、五島、えびの、辺戸岬、小笠原）の 11,704 試料について、pH の値に対するヒストグラムを図 3-1-15 に示す。最もよく出現した pH は 4.6-4.8 であり、個々の pH を単純に平均すると pH4.75 であった。pH の出現範囲は 3.35～10.99 で、範囲幅は 7.64 であった。これは酸の原因となる水素イオンの濃度に換算すると 44,000,000 倍も異なっている。pH4 未満の試料は 524 試料あり、全体の 4.5%を占めた。

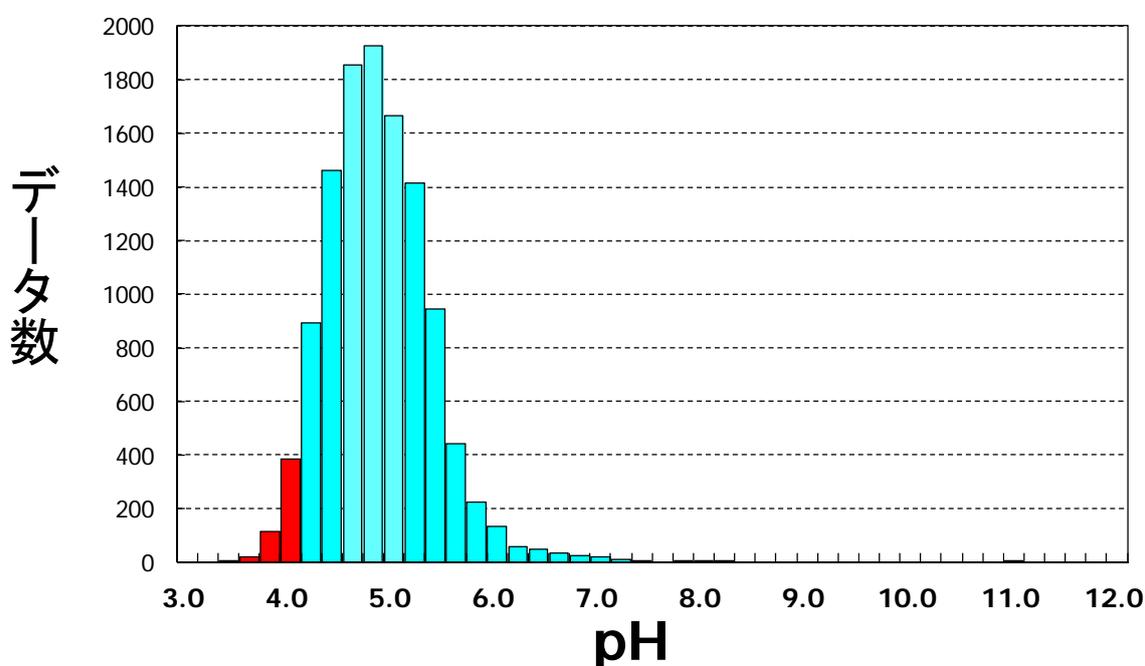


図 3-1-15 平成 15～21 年度における降水の pH 分布（全国 14 地点における日単位捕集）

②PMF 法を用いた国内 EANET 局における湿性沈着成分の解析

PMF (Positive Matrix Factorization) 法は多変量解析の一つである因子分析の一種であり³⁾、発生源の情報が無くても観測データのみから解析できることが特徴である。本項では、国内 EANET 局における湿性沈着成分データから PMF 法を用いて、湿性沈着成分の起源とその寄与について解析を行った結果を示す。

初めに、降水中の硫酸イオンを例にして PMF 法の概念を説明する。これまでナトリウムイオンを利用して硫酸イオンを海塩由来と非海塩由来に分けて評価していたが、PMF 法を用いると、硫酸という酸そのもの、硫酸アンモニウム、硫酸カルシウムなどの塩、そして海塩性の硫酸イオンなどに分類することができる（これら硫酸、硫酸アンモニウムなどを PMF 法では「因子」と呼ぶ）。さら

にそれぞれの因子の寄与の程度まで見積もることができる。この解析を応用するには十分な数のデータセットが必要で、最低で100セット以上、できれば300-400程度の数のデータセットが必要である。先述のように、湿性沈着成分はガス状物質、二次粒子、鉱物・海塩粒子等に由来する物質の混合体であると言えるので、PMF法を用いた解析は湿性沈着成分の起源とその寄与についての考察に有用である。

国内EANET局12地点の2000~2009年の湿性沈着成分のデータセットを対象とし、PMF法による解析を行ったところ、4つの特徴的な因子が抽出でき、それらの主要成分は以下の通りと解釈した。

(1) 酸：硫酸と硝酸

この因子は、 H^+ 、 SO_4^{2-} 、 NO_3^- が大きな寄与を占め、硫酸あるいは硝酸に由来すると解釈できる。この因子の寄与が大きいと降水のpHは低くなる。

(2) アンモニウム塩：硫酸アンモニウムと硝酸アンモニウム

NH_4^+ 、 SO_4^{2-} 、 NO_3^- が大きな寄与を占め、硫酸アンモニウムや硝酸アンモニウムのようなアンモニウム塩に由来すると思われる。この因子は酸がアンモニアによって中和され弱酸性を示し、降水の酸性化にはわずかに寄与すると考えられる。

(3) カルシウム塩：硫酸カルシウムと硝酸カルシウム

Ca^{2+} 、 SO_4^{2-} 、 NO_3^- が大きく寄与し、硫酸カルシウムあるいは硝酸カルシウムのような中性のカルシウム塩に由来する因子と解釈できる。この因子は、酸が炭酸カルシウムなどの塩基性カルシウムで中和されるプロセスに対応すると推測される。炭酸カルシウムは主に黄砂粒子に由来すると考えられる。

(4) 海塩等由来の因子

Na^+ 、 Mg^{2+} 、 SO_4^{2-} 、 Cl^- が大きな寄与を占め、それらの組成も海水比に非常に近いこと、主に海塩由来の因子と解釈できる。降水のpHにはほとんど影響しない。

図3-1-16及び図3-1-17に、各地点における降水中硫酸イオン、硝酸イオンの期間平均濃度に対してそれぞれの因子からの寄与量の積み上げグラフを示す。各因子からの寄与量の総和と実観測による硫酸イオン、硝酸イオン濃度がほぼ一致したことから、降水中硫酸イオン、硝酸イオンは酸由来、アンモニウム塩由来、カルシウム塩由来、海塩等由来のいずれかで説明することができる。

硫酸イオンについては、沿岸地点（利尻、落石岬、竜飛岬、佐渡関岬、隠岐、辺戸岬、小笠原）で海塩等由来の因子の寄与が大きく、すなわち海塩性硫酸イオンの寄与が大きいことが見いだされた。また、酸由来の因子が海塩等由来以外の因子の寄与の半分程度を占め、非海塩性硫酸イオンの半分程度は H_2SO_4 そのものが降水に取り込まれて沈着したものであると推察される。なお、東京と栲原においては、他の地点とは異なる酸由来の因子が抽出されたので、別の色で示した。

硝酸イオンについては、 HNO_3 そのものに由来する因子が小笠原を除けば30-60%を占めていた。なお、硝酸イオンについても、東京と栲原においては、他の地点とは異なる酸由来の因子が抽出さ

れたので、別の色で示した。竜飛岬、佐渡関、隠岐、蟠竜湖では、酸由来因子の寄与が全体の50%と他の地点に比べて比較的高いことがわかる。これらの地点は日本海側に位置しているため、大陸からの長距離輸送の影響等、その原因について今後更なる検討が必要である。

PMF法による統計解析が環境中で観測される成分の起源について有効な情報を常に提供するとは限らない。しかし、本項で示した国内EANET局の湿性沈着データに対する解析では硫酸イオンと硝酸イオンに関する組成について顕著な結果が得られたと判断される。今後、これらの結果から示唆される情報を湿性沈着の観測データそのものの変動解析、後方流跡線解析、輸送沈着モデル等による解析と合わせた総合解析に活用していくことが有用である。

【統計解析による湿性沈着の組成を決める化学的因子】

降水中のイオンは、一般にガス・粒子として存在する種々の化合物に由来する。例えば、降水中の硫酸イオン(SO_4^{2-})は強酸である硫酸(H_2SO_4)から放出されるだけでなく、弱酸性の硫酸アンモニウム($(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$)や中性の硫酸カルシウム(CaSO_4)などの塩や、弱塩基性の海水由来の海塩粒子からも放出される。海塩粒子からの海塩性硫酸イオン(ss- SO_4^{2-})は海水の主成分であるナトリウムイオンをトレーサーとして評価されるが、それ以外の硫酸の由来を区別するのは困難である。

本項で記述したPMFのような統計解析を応用して、それぞれの寄与を見積もる事例が最近見られるようになってきた。この手法は硝酸イオンのような他のイオン種についても適応でき、今後、湿性沈着データの解析、解釈に有用な手法と期待されるので、酸・塩基の化学的理論に基づいた考察と相補的に発展することが望まれている。

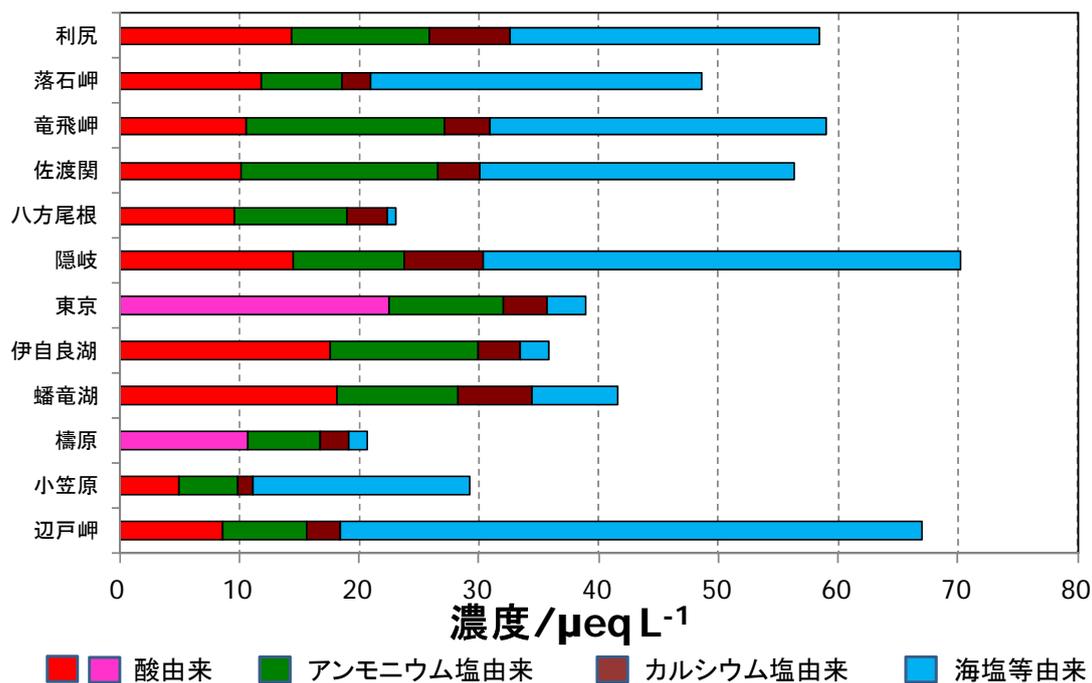


図 3-1-16 各地点における降水中硫酸イオンの各因子の寄与

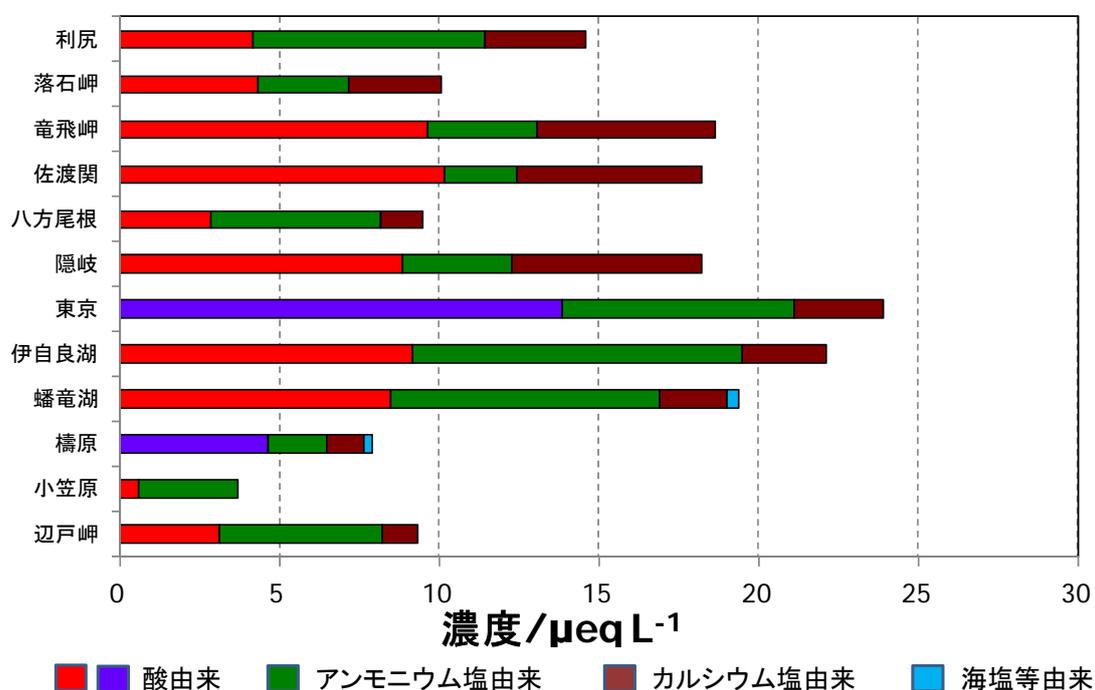


図 3-1-17 各地点における降水中硝酸イオンに対する各因子の寄与

(3) 辺戸岬におけるガス・粒子状アンモニア濃度変動の解析

①時間分解能の高い自動測定機によるNH₃、NH₄⁺の測定

EANETでは、ガス状アンモニア(NH₃)と粒子状物質に含まれるアンモニウムイオン(NH₄⁺)の濃度をフィルターパック法(FP法)とイオンクロマトグラフィーによる分析(IC分析)により測定し、平成12年以降のデータを蓄積している。EANETの測定手順では2週間に一度のフィルターパックの交換となっており、長期観測データとして十分な時間分解能であるが、オゾン、二酸化硫黄、気象などのデータや後方流跡線解析など1時間程度の時間分解能データを用いて大気汚染の詳細な解析を行うには、FP法の時間分解能2週間のデータでは濃度変動要因の詳細な検討は難しい。

OMNISENS社が開発した、光音響法を用いたNH₃の観測装置(TGM)は約20分の時間分解能を有する。またエアロダイン社が開発したエアロゾル質量分析計(AMS)は粒子状物質を約600℃で蒸発させ、四重極質量分析計で分析することで約10分の時間分解能で微小粒子に含まれるNH₄⁺を測定できる。国立環境研究所では、EANET局に隣接して設置されている「独立行政法人国立環境研究所 沖縄辺戸岬 大気・エアロゾル観測ステーション」において、平成20年3月から4月にかけて時間分解能の高い自動測定装置(TGM、AMS)を用いてNH₃、NH₄⁺を同時に測定した。測定データの解析からNH₃の濃度変動パターンやその変動要因及び長距離輸送の影響を検討した⁴⁾。

図3-1-18に観測期間中のNH₃、NH₄⁺、SO₄²⁻濃度を示す。SO₄²⁻濃度もAMSで測定した。NH₃、NH₄⁺、SO₄²⁻の平均濃度はそれぞれ0.56 ppbv、2.2 μgm⁻³、6.4 μgm⁻³であった。EANETのデータや誤差も考慮すると春季の沖縄辺戸岬におけるNH₃、NH₄⁺の平均的な濃度レベルはそれぞれ1 ppbv、2 μgm⁻³程度と考えられる。NH₃の濃度変動はNH₄⁺と異なっていたが、NH₄⁺とSO₄²⁻の濃度変動は類似していた。NH₄⁺、SO₄²⁻は、3月24日、4月1日、4月8日で大きなピークが見られたが、NH₃のピーク位置は3月23日、3月31日、4月7日、4月9日などであり、NH₄⁺やSO₄²⁻とピーク位置が異なっていた。

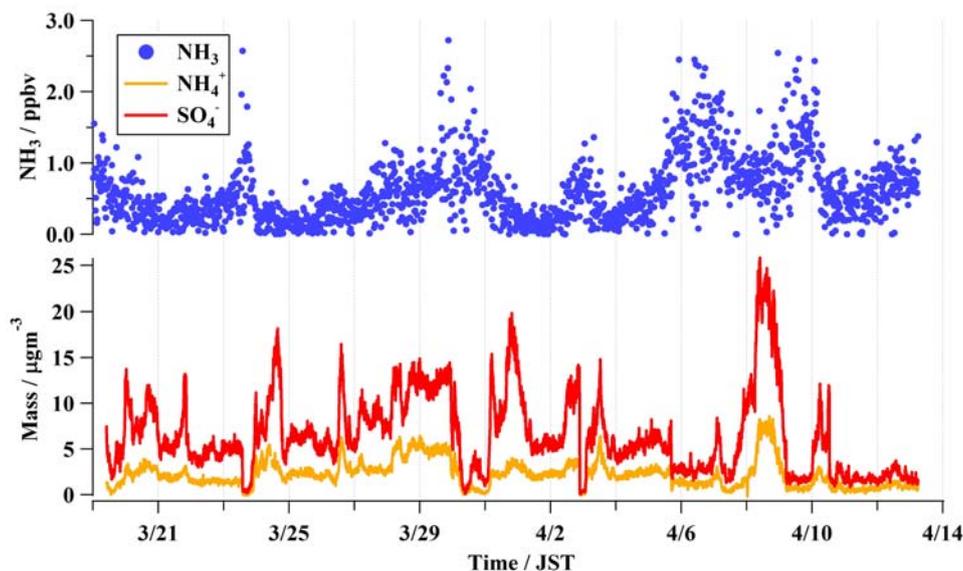


図3-1-18 辺戸岬におけるガス状NH₃、粒子状NH₄⁺、粒子状SO₄²⁻の時間変動(平成20年3~4月)

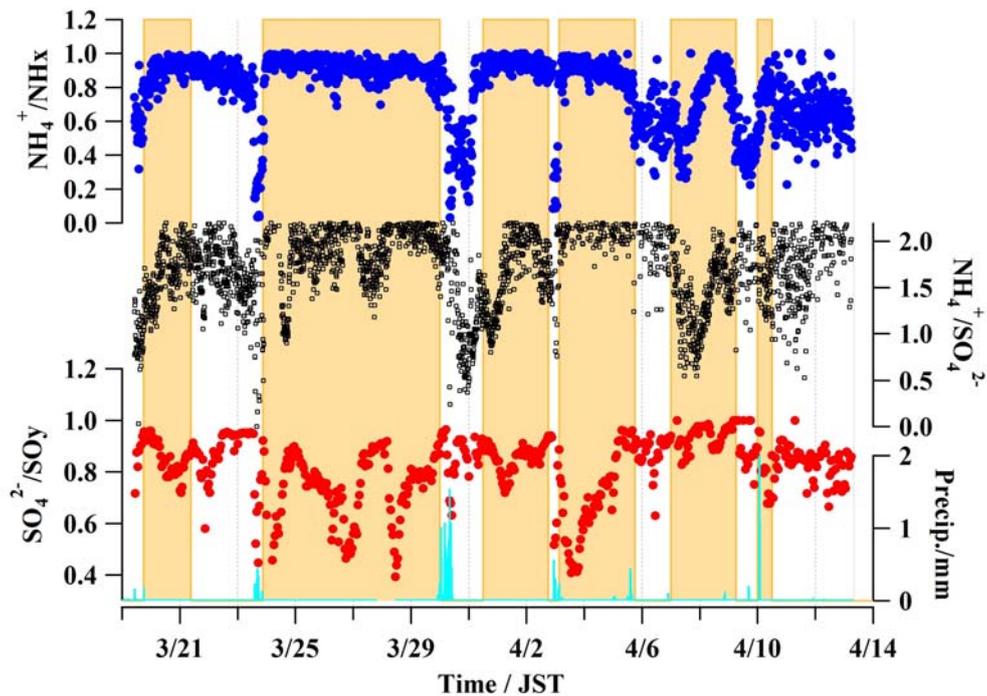


図3-1-19 辺戸岬における $\text{NH}_4^+ / (\text{NH}_3 + \text{NH}_4^+)$ 、 $\text{NH}_4^+ / \text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{SO}_4^{2-} / \text{SO}_y (= \text{SO}_2 + \text{SO}_4^{2-})$ 、及び降水量の時間変動

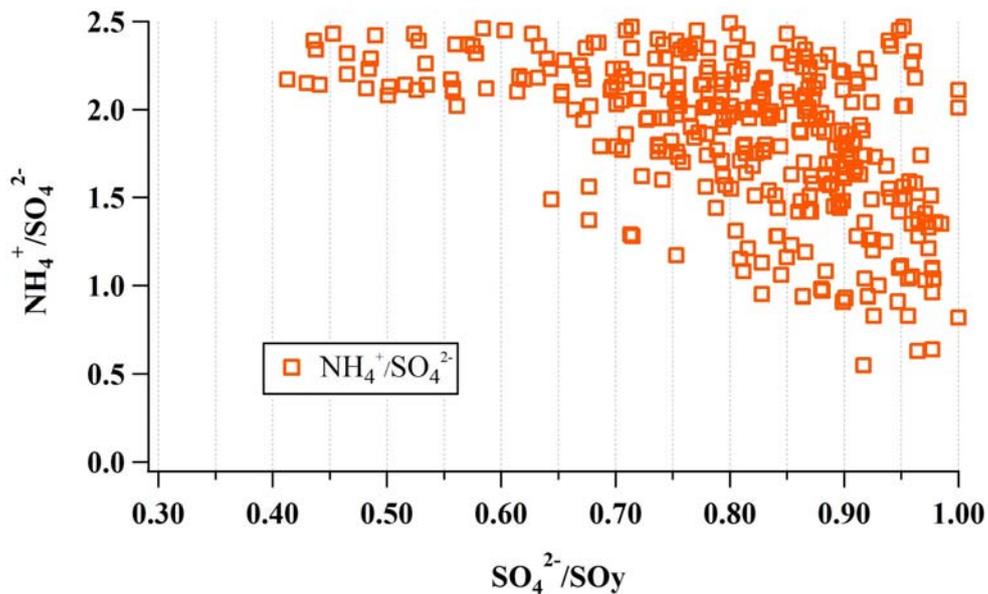


図3-1-20 辺戸岬における $\text{NH}_4^+ / \text{SO}_4^{2-}$ 比と $\text{SO}_4^{2-} / \text{SO}_y$ 比の相関プロット

NH_3 、および、 $1 \mu\text{m}$ 程度の微小粒子の乾性沈着速度は、それぞれ、 0.7 cm s^{-1} 、 0.1 cm s^{-1} と推定され⁵⁾、微小粒子に NH_4^+ として存在するほうが長距離輸送されやすいと考えられる。長距離輸送の実態解明の

ため、 $\text{NH}_4^+ / (\text{NH}_3 + \text{NH}_4^+)$ と NH_4^+ の粒子化の相手である SO_4^{2-} の変動について解析した。

図3-1-19は辺戸岬における $\text{NH}_4^+ / (\text{NH}_3 + \text{NH}_4^+)$ 、 $\text{NH}_4^+ / \text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{SO}_4^{2-} / \text{SO}_y (= \text{SO}_2 + \text{SO}_4^{2-})$ 、及び降水量の時間変動と示し、後方流跡線解析に基づき大陸方面から空気塊が飛来している期間を燈色のハッチで併せて示している。空気塊が大陸方面から飛来している場合には $\text{NH}_4^+ / (\text{NH}_3 + \text{NH}_4^+)$ は、ほぼ、0.8から1の間であった。3月23日、3月30—31日、4月3日はこの比が低くなっているが、これは降雨による湿性沈着の影響である。沖縄辺戸岬では、 NH_4^+ が「全アンモニア ($\text{NH}_3 + \text{NH}_4^+$)」の80%以上を占め、主に越境輸送によってもたらされていることが明らかとなった。一方で NH_3 は粒子状物質と挙動が異なり、比較的ローカルな影響が大きいと考えられる。

図3-1-20は、 $\text{SO}_4^{2-} / \text{SO}_y (= \text{SO}_2 + \text{SO}_4^{2-})$ 比に対する $\text{NH}_4^+ / \text{SO}_4^{2-}$ の比(モル比)をプロットしている。 $\text{SO}_4^{2-} / \text{SO}_y$ が1に近づくとつれ $\text{NH}_4^+ / \text{SO}_4^{2-}$ の値が低いデータの割合が増えている。 $\text{SO}_4^{2-} / \text{SO}_y$ の値が1に近づくとということは、 SO_2 、 NH_3 ガスから $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 粒子への粒子化が進んでいることに対応する。粒子化が進んだ空気塊では、本来 $\text{NH}_4^+ / \text{SO}_4^{2-}$ 比が2に近づくべきであるが、 $\text{NH}_4^+ / \text{SO}_4^{2-}$ の値も低下していることは、粒子化が進んだ空気塊中では粒子化されるべき NH_4^+ が不足していることを示している。

②FP法とMF法による NH_4^+ の測定値の差の検討

先述のとおりEANETではFP法を用いて NH_3 、 NH_4^+ を測定している。しかし、フィルターサンプリングにおいて、 NO_3^- や NH_4^+ を含む窒素化合物は、気温や湿度の変化によって気相と凝縮相(エアロゾル相)間の分配が変化することが指摘されており、それが測定不確かさの原因となる。

平成20年春季に、沖縄辺戸ステーションにおいて、国設辺戸岬局で観測されたFP法と、モニタリング現場での分析ができるマイクロフロー分析システム(MF法)を同じ期間並行して観測し、FP法とMF法による NH_4^+ の測定値の差を検討した⁹⁾。今回用いたFP法は粒子捕集を目的として3段に分級されており、ガス成分の捕集・分析はしていない。1日1回約23時間半程度の捕集を、約3週間を行った。MF法は、大気を液滴と接触させ大気に含まれる NH_3 、 NH_4^+ を液滴に吸収し、その溶液をICで分析する。大気導入口にガス状物質のみを採取できるデニューダーを取り付けて NH_3 を吸収するラインと、 NH_3 を吸収しないガラス管のみのラインとの差から、 NH_3 、 NH_4^+ の濃度を求める。

FP法とMF法による NH_4^+ の測定結果を図3-1-21に示す。この結果では NH_4^+ 測定値が良く一致していた。これは1日程度の測定頻度の NH_4^+ であればある程度、フィルターパック法のデータとの整合性が取れ、結果が信頼できることを示している。ただし、気温湿度によって気相と凝縮相の分配は変化するので、他の季節や、EANETのような2週間というFP交換頻度の場合にはさらなる検討を要する。

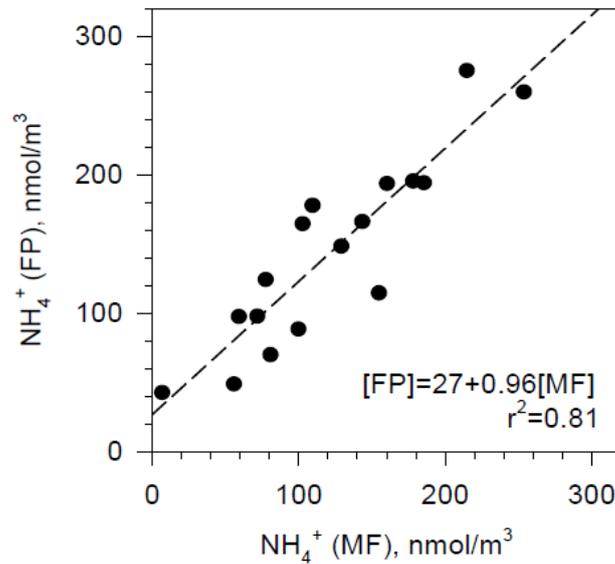


図3-1-21 辺戸岬局におけるフィルターパック（FP）の NH_4^+ 測定値とマイクロフロー分析システム（MF）による NH_4^+ 測定値の相関プロット（平成20年春季）

（引用文献）

- 1) 松田 和秀 (2009) 入門講座 大気沈着 ー第1講 乾性沈着ー、大気環境学会誌, 44(4): A1-A7.
- 2) Network Center for EANET (2010) Technical Manual on Dry Deposition Flux Estimation in East Asia. Asia Center for Air Pollution Research, Niigata, Japan.
- 3) P. Paatero and U. Tapper (1994) Positive matrix factorization: A non-negative factor model with optimal utilization of error estimates of data values, *Environmetrics*, 5(2): 111-126.
- 4) 高見 昭憲、長田 和雄、定永 靖宗、坂東 博 (2010) 沖縄辺戸岬における大気中のアンモニア／アンモニウム濃度の変動と分配、*エアロゾル研究*, 26(1): 42-46.
- 5) 松田 和秀 (2008) 大気中硫黄および窒素化合物の乾性沈着推計：沈着速度推計法の更新、*大気環境学会誌* 43(6): 332-339.
- 6) K. Osada, S. Ueda, T. Egashira, A. Takami, N. Kaneyasu (2011) Measurements of Gaseous NH_3 and Particulate NH_4^+ in the Atmosphere by Fluorescent Detection after Continuous Air-water Droplet Sampling, *Aerosol Air Qual. Res.*, 11(2): 170-178.

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 20～22 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、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 13 年度から実施している。

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、各地点における平成 13 年から平成 22 年度の 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 ($\text{Ca}^{2+} + \text{Mg}^{2+} + \text{K}^{+}$) と交換性 Al^{3+} の当量比 (以下、 $(\text{Ca} + \text{Mg} + \text{K}) / \text{Al}$ 当量比¹⁾) の平均値を図 3-2-1 に示した。

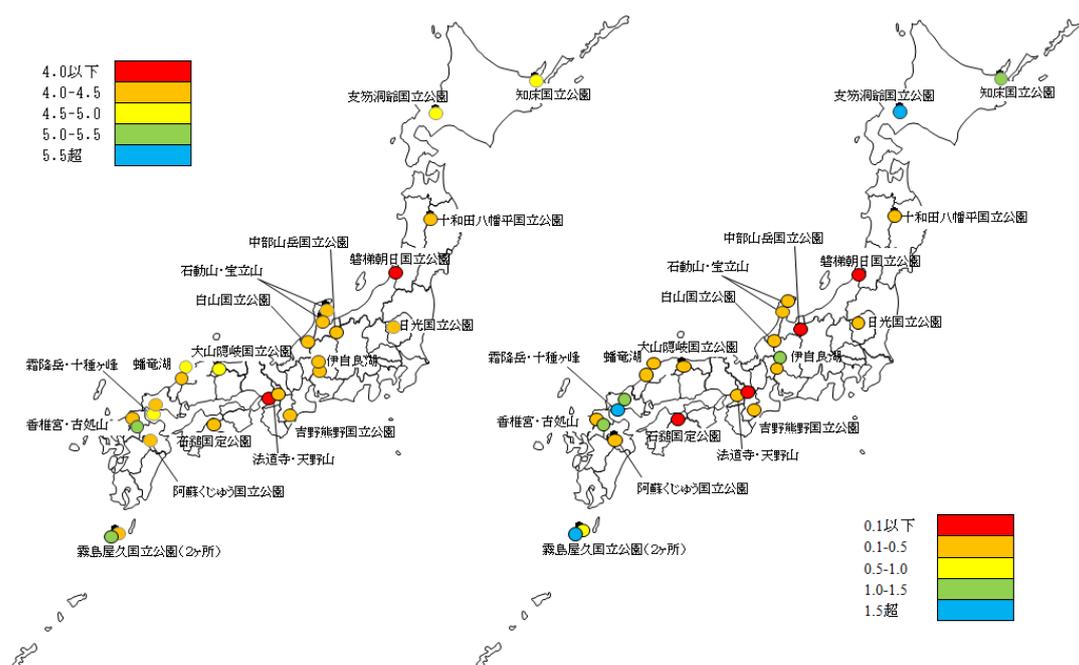


図 3-2-1 土壌・植生モニタリング地点における土壌表層 (0-10 cm) の pH (H_2O) (左) と交換性 ($\text{Ca} + \text{Mg} + \text{K}$) / Al 当量比 (右) (平成 22 年度までの最新値)

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)、

¹ 1M $\text{CH}_3\text{COONH}_4$ 溶液の NH_4^+ 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。

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。

磐梯朝日国立公園 (褐色森林土) と法道寺 (赤黄色土) において、pH (H₂O) は 4.0 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 (褐色森林土)、中部山岳 (ポドゾル性土)、天野山 (褐色森林土)、石鎚 (褐色森林土) で 0.1 以下と他地点に比べ特に低かった。一方、支笏洞爺 (褐色森林土)、霜降岳 (赤黄色土)、屋久島 (褐色森林土) では比較的高い pH や (Ca+Mg+K) /Al 当量比が見られた。

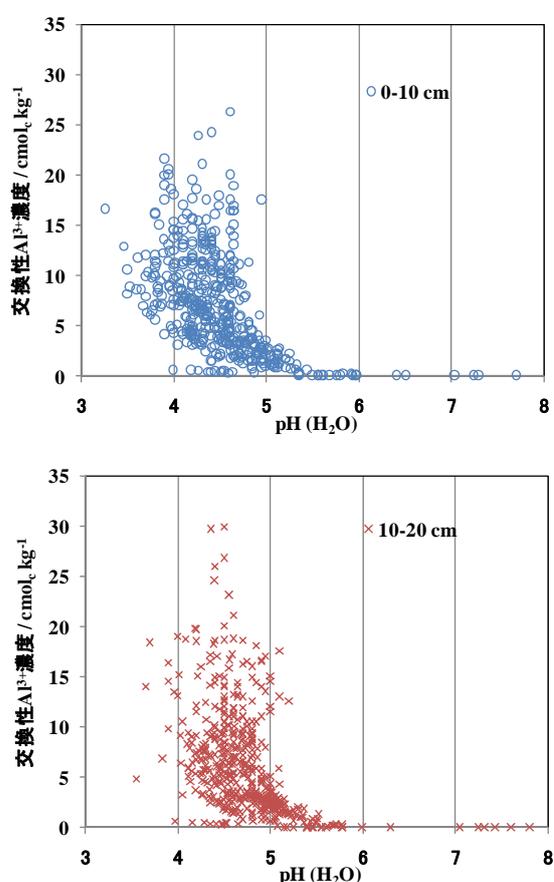


図 3-2-1-2 土壌・植生モニタリングにおける
土壌 pH と交換性 Al 濃度の変動 (平成 13 年
- 平成 22 年度における全サブプロットの値
(n=490))

上記モニタリング地点の土壌 pH と交換性 Al³⁺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 Al³⁺濃度³が高くなる傾向がみられた。表層 (0-10 cm) の pH は次層 (10-20 cm) よりも低い pH 範囲に多く分布する傾向が見られた。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多くは 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。有機物が少なく鉱物 (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、表層では鉱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

² 酸性沈着に対する緩衝能は土壌種によって異なる (次ページのコラムを参照)。

³ cmol_c kg⁻¹ (キログラム当たりのセンチモルチャージ) の単位で表示、mol_c は各イオンの電荷のモル数を示し、当量単位に等しい。本節では、mol_c 単位での表記をイオンの濃度、流入・流出量を表すのにも使用。

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。

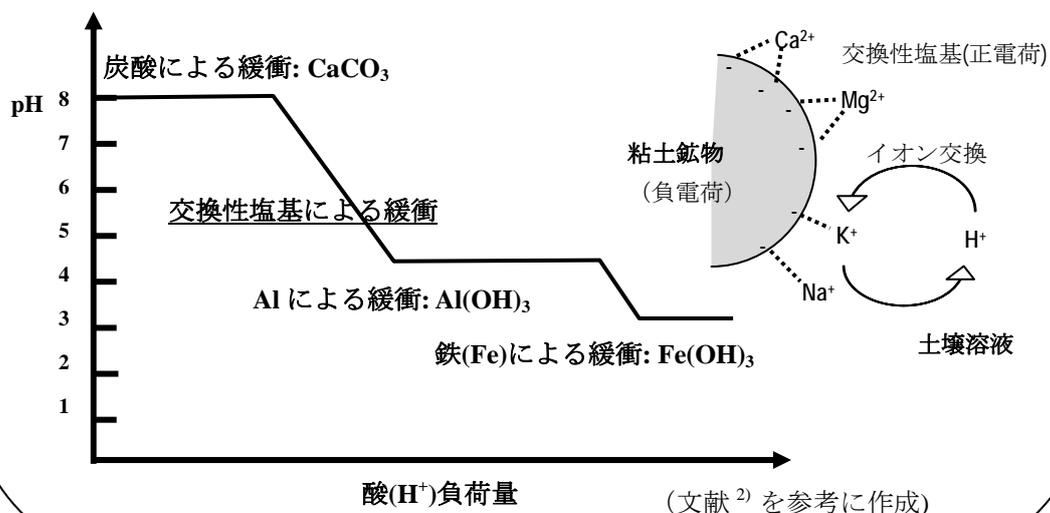
以上のように、土壌の化学的特性及び酸緩衝能はモニタリング地点や深度によって大きく変動していた。こうした変動の多くは地質学的な時間スケールでの土壌生成作用によって生じたものであるが、土壌・植生に対する人為影響を評価するためにはこうした自然条件下で形成された変動による土壌の化学的特性の違いを考慮する必要がある。

【参考】土壌の種類と酸性沈着への緩衝能

酸性沈着に対する緩衝能は、以下の土壌種の順に弱い。

- ① 赤黄色土: 化学的風化作用を強く受けた塩基が少ないAlに富む強酸性の土壌で、西南日本の丘陵地帯や洪積台地上に広く分布している。
- ② 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塩基が溶出する。



② 土壌の化学的特性の経年変化

土壌調査は各地点で5年おきに実施されている。モニタリングが開始された平成13年度から平成22年度にかけ、ほぼ全ての地点で2回以上の土壌モニタリングが実施されており、本項ではその経年変化を評価する。ただし、平成18年度以降に新規設置された地点では土壌調査が1回しか実施されていないため、経年変化の評価から除いた。

特に経年変化が大きかった表層土(0-10cm)の土壌の化学的特性について表3-2-1に示した。表層土のpH(H₂O)は2回以上調査された42プロット中8プロットで統計的に有意な低下が、3プロットで有意な上昇が見られた一方、その他のプロットでは有意な経年変化が見られなかった。pHの低下は宝立山、阿蘇くじゅうの全プロットと日光、吉野熊野及び屋久島の一部プロットで認められ、pHの上昇は十和田八幡平、石見臨空、石鎚の一部のプロットで認められた。土壌のpHは主に交換性Ca²⁺やK⁺等の塩基性陽イオン類の濃度に強く影響される。日光や吉野熊野ではpHの低下とともに塩基飽和度⁴の減少も見られたため、塩基性陽イオン類の減少が土壌の酸性化に関与したと考えられる。本調査でその要因を特定することは困難であるが、吉野熊野では次節で述べるように、平成21年度以降樹木衰退度が回復の方向に向かっていることから、植物のイオン吸収等の変化が土壌の化学的特性に影響を与えた可能性も考えられる。一方で外部からの酸の流入は、前ページのコラムに示したように、土壌中の塩基性陽イオン等の流亡を伴いpHの低下を引き起こすことから、大気沈着由来の酸が塩基性陽イオンの減少に寄与した可能性は否定できない。

⁴ 交換性陽イオン全体における塩基性陽イオンの割合を百分率で示したもの。土壌の栄養性を示す代表的な指標。酸性化過程においては塩基性陽イオンの流亡により、この値が小さくなる。

表 3-2-1 深さ 0-10 cm における土壌化学的的特性の経年変化

自治体	調査地点	プロット No.	調査年	pH(H ₂ O)	pH(KCl)	塩基性陽イオン*1 酸性陽イオン*2		塩基飽和度*3	C/N*4		
						cmol _c kg ⁻¹					
						%					
北海道	知床	1	H.17	4.9 (0.2)	4.0 (0.1)	2.6 (0.6)	3.4 (1.3)	44.9 (13.6)	-		
			H.22	4.9 (0.2)	4.0 (0.3)	2.9 (0.7)	3.2 (1.1)	48.5 (13.6)			
	支笏洞爺	2	1	H.17	4.7 (0.4)	3.9 (0.4)	4.3 (2.0)	4.3 (2.1)	50.3 (21.6)	-	
				H.22	4.9 (0.3)	4.0 (0.3)	2.2 (1.1)	3.1 (1.5)	41.1 (11.2)		
		2	1	H.15	4.9 (0.2)	3.9 (0.1)	5.7 (1.0)	2.4 (0.8)	70.1 (9.6)	-	
				H.20	4.7 (0.1)	3.8 (0.1)	6.3 (1.2)	2.8 (0.8)	68.8 (9.2)		
岩手	十和田 八幡平	1	H.16	4.1 (0.1) b	3.5 (0.1)	1.7 (0.6)	8.1 (1.6)	17.9 (7.5)	-		
			H.21	4.3 (0.2) a	3.5 (0.1)	1.2 (0.4)	7.0 (1.2)	14.5 (2.6)			
	2	1	H.16	4.3 (0.1)	3.7 (0.1)	0.8 (0.2)	7.0 (1.2)	10.5 (1.1) b	-		
			H.21	4.4 (0.2)	3.6 (0.1)	1.0 (0.1)	7.1 (1.3)	12.1 (1.0) a			
		2	1	H.15	4.8 (0.1) a	4.1 (0.2) a	1.6 (0.9)	3.5 (1.0)	30.7 (9.2) a	-	
				H.20	4.3 (0.1) b	3.8 (0.1) b	1.0 (0.2)	4.7 (0.8)	17.8 (3.8) b		
新潟	磐梯朝日	1	H.19	3.8 (0.2)	3.3 (0.2)	1.4 (1.0)	13.2 (1.1)	9.2 (6.3)	-		
			H.20	4.1 (0.2)	3.5 (0.3)	0.7 (0.3)	12.4 (4.9)	5.4 (1.2)			
栃木	日光	1	H.15	4.6 (0.2)	4.0 (0.1)	1.1 (0.2)	3.6 (1.0)	24.2 (4.7)	-		
			H.20	4.4 (0.1)	3.9 (0.1)	1.1 (0.6)	3.9 (1.2)	21.5 (6.2)			
		2	1	H.15	4.8 (0.1) a	4.1 (0.2) a	1.6 (0.9)	3.5 (1.0)	30.7 (9.2) a	-	
				H.20	4.3 (0.1) b	3.8 (0.1) b	1.0 (0.2)	4.7 (0.8)	17.8 (3.8) b		
富山	中部山岳	1	H.17	4.0 (0.1)	3.3 (0.2)	0.5 (0.1)	15.2 (4.8)	3.6 (1.3)	16.5 (0.5) b		
			H.22	4.2 (0.3)	3.5 (0.3)	0.6 (0.2)	13.7 (6.1)	4.4 (1.4)	17.9 (1.1) a		
		2	1	H.17	4.0 (0.2)	3.2 (0.2)	1.7 (1.5)	13.8 (3.5)	11.7 (11.9)	17.0 (0.8)	
				H.22	4.0 (0.3)	3.2 (0.3)	1.5 (0.8)	13.8 (2.9)	10.0 (4.9)	17.7 (0.9)	
			2	1	H.13	4.4 (0.1)	3.7 (0.1) a	1.2 (0.2)	14.1 (2.7)	8.0 (2.2)	14.1 (0.4)
					H.17	4.3 (0.1)	3.5 (0.1) b	1.6 (0.7)	13.2 (1.0)	10.8 (4.2)	14.2 (1.1)
石川	石動山	1	H.22	4.3 (0.2)	3.6 (0.2) b	1.8 (0.5)	13.0 (2.1)	12.4 (4.3)	15.0 (0.7)		
			2	1	H.13	4.5 (0.1)	3.8 (0.1) a	1.5 (0.4)	11.7 (1.2)	11.2 (2.1) b	12.2 (1.6) ab
		H.17			4.4 (0.1)	3.5 (0.1) b	1.7 (0.7)	11.8 (1.1)	12.4 (3.8) ab	11.6 (0.5) b	
		2	1	H.22	4.3 (0.2)	3.5 (0.1) b	2.3 (0.4)	11.4 (0.8)	17.0 (3.0) a	14.0 (2.0) a	
				2	1	H.13	4.6 (0.2) ab	3.8 (0.2) a	1.7 (0.5)	15.5 (4.5)	9.9 (2.4) b
			H.17			4.6 (0.2) a	3.6 (0.1) ab	1.5 (0.6)	15.7 (3.3)	8.5 (2.2) b	17.9 (2.7)
岐阜	伊自良		1	H.13	4.6 (0.1) a	3.8 (0.1) a	2.4 (0.5)	17.3 (4.1)	12.4 (3.1) ab	17.6 (1.2) ab	
		H.17		4.6 (0.0) a	3.6 (0.0) b	2.0 (0.6)	17.2 (2.9)	10.5 (3.5) b	16.0 (0.9) b		
		2	1	H.22	4.4 (0.2) b	3.3 (0.2) b	2.5 (0.7)	13.0 (1.8)	16.1 (4.6) a	19.8 (3.0)	
				2	1	H.13	4.6 (0.1) a	3.8 (0.1) a	2.4 (0.5)	17.3 (4.1)	12.4 (3.1) ab
			H.17			4.6 (0.0) a	3.6 (0.0) b	2.0 (0.6)	17.2 (2.9)	10.5 (3.5) b	16.0 (0.9) b
			大阪	天野山	1	H.22	4.3 (0.2) b	3.4 (0.2) b	3.1 (0.9)	12.7 (1.9)	19.8 (5.8) a
2	1	H.18				4.4 (0.2)	3.5 (0.1)	0.7 (0.3)	11.7 (3.0)	6.4 (3.7)	17.9 (1.1)
		2			1	H.18	4.5 (0.2)	3.5 (0.1)	1.5 (1.6)	9.4 (3.4)	15.7 (19.2)
2	1					H.18	4.2 (0.2)	3.5 (0.2)	0.8 (0.1)	8.7 (1.8)	8.4 (1.2)
		2			1	H.18	4.3 (0.1)	3.5 (0.0)	0.8 (0.1)	8.2 (0.9)	9.2 (2.0)
	2					1	H.18	4.3 (0.2)	3.9 (0.2)	0.7 (0.3)	0.6 (0.1)
		2	1	H.18	4.5 (0.1)		4.0 (0.1)	0.6 (0.1)	0.6 (0.1)	51.4 (2.4)	-
奈良	吉野熊野			1	H.13	4.2 (0.3)	3.4 (0.2)	0.9 (0.4)	8.3 (1.2)	9.1 (2.7) a	20.3 (1.7) a
		H.19	4.1 (0.1)		3.4 (0.1)	0.5 (0.1)	8.6 (1.3)	5.2 (1.3) b	10.3 (2.7) b		
		2	1	H.13	3.8 (0.2)	3.1 (0.2)	0.7 (0.4)	10.4 (0.5)	6.5 (2.8)	20.1 (0.8) *	
				H.19	4.0 (0.1)	3.3 (0.2)	0.5 (0.3)	10.0 (1.2)	4.7 (2.5)	14.0 (5.3)	
			2	1	H.13	3.9 (0.1)	3.2 (0.1)	0.6 (0.1) b	10.7 (2.3)	5.2 (1.1) b	22.3 (0.9)
					H.19	3.8 (0.1)	3.1 (0.1)	0.9 (0.2) a	9.6 (3.2)	9.1 (3.0) a	22.6 (7.6)
鳥取	大山隠岐	1	H.13	4.0 (0.1)	3.3 (0.2)	0.6 (0.2)	7.7 (1.1)	7.4 (1.8)	21.1 (2.1)		
			H.19	3.9 (0.2)	3.2 (0.2)	0.7 (0.2)	8.4 (1.5)	8.1 (1.8)	21.5 (5.3)		
		2	1	H.16	4.4 (0.2) a	4.1 (0.1)	1.0 (0.3)	5.0 (0.7)	16.5 (4.1) a	12.9 (0.7) a	
				H.21	4.2 (0.1) b	4.1 (0.1)	0.7 (0.2)	5.1 (0.7)	11.7 (0.9) b	10.9 (0.6) b	
			2	1	H.16	4.2 (0.2)	4.0 (0.1)	1.3 (0.4)	5.5 (0.4)	18.9 (4.3)	13.1 (0.5) a
					H.21	4.1 (0.1)	4.0 (0.1)	0.9 (0.2)	5.7 (0.3)	13.5 (2.5)	10.6 (0.6) b
2	1	H.15	4.4 (0.2)	3.6 (0.2) b	3.7 (1.8) a	9.5 (1.5) a	27.4 (8.6) a	-			
		H.20	4.6 (0.1)	4.0 (0.1) a	0.8 (0.2) b	5.5 (0.4) b	12.1 (2.3) b	-			
	2	1	H.15	4.2 (0.1)	3.4 (0.1) b	4.0 (2.9)	11.2 (1.9) a	25.4 (16.7)	-		
			H.20	4.4 (0.3)	3.9 (0.3) a	0.9 (0.4)	8.1 (2.3) b	10.0 (1.2)	-		

表 3-2-1 (続き)

自治体	調査地点	プロット No.	調査年	pH(H ₂ O)	pH(KCl)	cmol. ke ⁻¹		塩基飽和度 ^{*3} %	C/N ^{*4}
						塩基性陽イオン ^{*1}	酸性陽イオン ^{*2}		
島根	石見臨空	1	H.13	4.3 (0.1)	3.5 (0.1)	1.4 (0.5)	7.1 (0.7)	16.5 (3.8)	19.4 (0.6)
			H.18	4.5 (0.2)	3.7 (0.2)	1.2 (0.5)	6.4 (1.1)	15.6 (5.7)	18.4 (1.5)
		2	H.13	4.2 (0.1) b	3.3 (0.1) b	1.1 (0.3)	9.5 (1.4) a	10.7 (2.6)	21.8 (1.0) a
			H.18	4.5 (0.1) a	3.7 (0.1) a	0.8 (0.3)	6.5 (0.7) b	11.3 (3.1)	19.6 (1.3) b
	蟠竜湖	1	H.13	4.8 (0.2)	3.9 (0.1)	0.7 (0.4) b	3.6 (0.4)	17.1 (7.4) b	19.7 (1.0) b
			H.18	4.9 (0.2)	3.8 (0.2)	1.5 (0.5) a	3.6 (0.7)	30.4 (9.6) a	22.1 (2.3) a
		2	H.13	4.7 (0.3)	3.7 (0.2)	1.3 (0.6)	3.5 (0.6)	27.1 (11.7)	24.4 (1.8) a
			H.18	4.9 (0.2)	3.9 (0.2)	1.0 (0.2)	3.4 (0.6)	22.3 (5.4)	20.6 (1.6) b
山口	十種ヶ峰	1	H.13	4.6 (0.2)	3.8 (0.1) a	1.2 (0.5)	10.7 (0.9) a	10.1 (3.9)	-
			H.15	4.5 (0.1)	3.9 (0.1) a	1.5 (1.1)	10.0 (1.5) a	13.0 (10.5)	
			H.20	4.3 (0.3)	3.6 (0.1) b	1.3 (0.4)	8.0 (0.9) b	13.7 (4.9)	
		2	H.13	4.6 (0.2)	3.8 (0.1)	1.5 (1.6)	10.7 (2.2)	13.1 (14.0)	-
			H.15	4.6 (0.2)	3.9 (0.1)	1.0 (0.4)	10.4 (2.9)	10.0 (5.3)	
			H.20	4.6 (0.3)	3.7 (0.2)	3.2 (4.5)	6.5 (2.6)	27.1 (32.0)	
	霜降岳	1	H.15	4.9 (0.2)	3.9 (0.1)	1.8 (1.0) b	3.0 (0.8) a	36.0 (16.3) b	-
			H.20	4.8 (0.3)	3.8 (0.3)	3.6 (1.8) a	1.8 (0.9) b	63.4 (19.8) a	
			2	H.15	5.0 (0.2)	4.0 (0.2) a	1.5 (0.9)	2.6 (0.7)	
		H.20		4.8 (0.2)	3.8 (0.1) b	1.7 (1.1)	2.3 (0.8)	40.0 (22.3)	
		高知	石鎚	1	H.16	3.6 (0.3) b	3.0 (0.2)	0.9 (0.3) b	14.8 (3.8)
H.21	4.1 (0.2) a				3.1 (0.2)	1.9 (0.7) a	18.7 (2.6)	9.3 (3.4)	-
2	H.16		4.0 (0.2)	3.2 (0.2)	0.7 (0.5) b	14.0 (2.3) b	4.8 (2.7)	14.6 (1.1)	
	H.21		4.1 (0.2)	3.1 (0.1)	1.5 (0.2) a	20.4 (3.1) a	7.1 (0.7)	-	
福岡	古処山	1	H.13	4.8 (0.4)	3.9 (0.4)	8.6 (8.5)	5.6 (3.3)	51.3 (30.4)	15.1 (0.9)
			H.19	4.5 (0.4)	3.6 (0.2)	3.3 (1.4)	5.0 (2.0)	40.2 (15.9)	14.9 (1.4)
		2	H.13	6.5 (1.1)	5.6 (1.1)	29.5 (16.2)	1.0 (1.8)	90.5 (19.2)	13.3 (0.8)
			H.19	6.2 (1.1)	5.4 (1.2)	24.2 (19.9)	1.3 (1.6)	78.4 (31.1)	13.9 (1.6)
	香椎宮	1	H.13	4.2 (0.3)	3.4 (0.1)	2.5 (0.9)	16.5 (2.0)	13.0 (4.8)	15.5 (1.6)
			H.19	4.1 (0.2)	3.3 (0.1)	1.6 (0.4)	17.1 (1.9)	8.6 (2.7)	16.6 (1.0)
			2	H.13	4.5 (0.2)	3.5 (0.1)	6.6 (2.4) a	21.2 (7.2)	25.0 (10.9)
		H.19		4.4 (0.1)	3.4 (0.1)	3.5 (0.5) b	20.1 (3.1)	15.1 (3.0)	17.1 (1.7)
		大分	阿蘇 くじゅう	1	H.17	4.7 (0.1) a	4.0 (0.1) b	0.9 (0.2)	7.4 (1.7)
H.22	4.4 (0.2) b				4.4 (0.2) a	0.7 (0.2)	5.4 (1.8)	12.4 (2.2)	16.6 (0.6)
2	H.17		4.4 (0.2) a	3.7 (0.2)	1.2 (0.3)	14.6 (2.7)	7.7 (0.4) b	19.5 (1.9) a	
	H.22		3.9 (0.3) b	3.8 (0.3)	1.6 (0.6)	11.9 (1.9)	11.5 (2.8) a	17.0 (0.4) b	
鹿児島	屋久島1	1	H.16	4.8 (0.3) a	4.1 (0.3)	3.0 (2.7)	3.7 (1.8)	41.5 (11.8)	-
			H.21	4.2 (0.3) b	3.7 (0.2)	2.2 (0.6)	4.8 (1.0)	31.7 (6.9)	15.8 (0.6)
		2	H.16	4.6 (0.4)	3.9 (0.3)	2.5 (1.5)	4.7 (2.2)	34.2 (5.3)	-
			H.21	4.6 (0.4)	4.1 (0.3)	1.7 (0.9)	2.9 (1.5)	37.6 (6.0)	15.2 (0.8)
	屋久島2	1	H.16	5.9 (0.1) a	4.8 (0.1) a	6.9 (3.1)	0.5 (0.2)	91.6 (4.7)	-
			H.21	5.4 (0.2) b	4.6 (0.2) b	10.0 (5.4)	0.9 (0.5)	85.4 (17.6)	14.4 (0.3)
		2	H.16	5.6 (0.3)	4.8 (0.2)	4.1 (2.5)	0.8 (0.5)	82.5 (11.4)	-
			H.21	5.3 (0.3)	4.5 (0.4)	8.5 (5.2)	1.1 (0.7)	86.0 (8.1)	13.8 (1.1)

注. 値はプロット内に設置された 5 つのサブプロット間の平均値を示し、括弧の値は標準偏差を示す (n=5)。異なる小文字のアルファベット (a, b) は調査年度間の差が統計的に有意であることを示す (対応のある一元配置分散分析の後 Tukey の多重比較によって検定 $p < 0.05$)。赤字は直近の調査と過去の調査を比較した場合の減少傾向を示し、青文字は直近の調査と過去の調査を比較した場合の増加傾向を示す。

*¹ 交換性 Ca²⁺+Mg²⁺+K⁺+Na⁺, *² 交換性 Al³⁺+H⁺, *³ 塩基性陽イオン / (塩基性陽イオン+酸性陽イオン), *⁴ 全炭素濃度 / 全窒素濃度

(2) 平成 20～22 年度における植生モニタリング結果 (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。吉野熊野では梢端の枯損、落葉の異常、枝葉密度の異常が見られた割合が全調査地点中で最も高く、その他の項目においても高い順位であった。また、大山隠岐では樹勢変化、枝の異常成長、葉の障害、葉色の変化のいずれも全地点中で最も高い割合を示していた。

また、大山隠岐、吉野熊野、磐梯朝日、十和田八幡平の 4 地点では 1 以上のダメージクラスが認められた樹木が観測された。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 地点では各衰退度項目が増加傾向にあった (図 3-2-3)。大山隠岐、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、近年再び上昇を見せた。吉野熊野でも、同様の傾向が見られていたが、平成 21 年度、平成 22 年度と続けて衰退度項目が減少し、再び回復傾向が見られた。磐梯朝日では、平成 19 年度に新規設置された地点であり、平成 22 年度の異常な落葉率の高さに起因してダメージクラスが高くなっているが、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。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³⁾。

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

(平成 15 年度から平成 22 年度までの平均)

梢端の枯損			落葉の異常*2			樹勢変化			枝葉密度の異常		
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	37%	1	吉野熊野	11%	1	大山隠岐	53%	1	吉野熊野	56%
2	香椎宮1	33%	2	磐梯朝日	9%	2	吉野熊野	43%	2	大山隠岐	32%
3	中部山岳	28%	3	法道寺	7%	3	中部山岳	29%	3	白山	24%
4	香椎宮2	23%	4	十和田八幡平	5%	4	十和田八幡平	20%	4	法道寺	21%
5	知床	20%	5	大山隠岐	5%	5	知床	19%	5	香椎宮1	21%
6	洞爺	20%	6	洞爺	4%	6	霜降	16%	6	中部山岳	20%
7	大山隠岐	18%	7	宝立山	3%	7	法道寺	15%	7	宝立山	18%
8	古処山1	18%	8	中部山岳	2%	8	香椎宮2	11%	8	霜降	13%
9	古処山2	17%	9	霜降	2%	9	白山	9%	9	香椎宮2	8%
10	日光	17%	10	白山	1%	10	洞爺	8%	10	洞爺	5%

枝の成長異常			葉の障害			葉色の変化			1以上のダメージクラス*2		
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	52%	1	大山隠岐	15%	1	大山隠岐	14%	1	磐梯朝日	9%
2	白山	29%	2	石鎚	8%	2	吉野熊野	14%	2	大山隠岐	5%
3	宝立山	25%	3	霜降	4%	3	知床	11%	3	十和田八幡平	4%
4	吉野熊野	23%	4	洞爺	4%	4	十和田八幡平	5%	4	吉野熊野	3%
5	中部山岳	18%	5	吉野熊野	3%	5	日光	3%			
6	十和田八幡平	16%	6	日光	2%	6	洞爺	2%			
7	石鎚	7%	7	中部山岳	1%	7	中部山岳	1%			
8	法道寺	4%	8	白山	1%						
9	知床	3%									
10	磐梯朝日	2%									

*1 出現率 = 異常が観測された樹木数 / 全観測木数, *2 落葉の異常及びダメージクラスについては平成 19 年度から平成 22 年度の平均 (平成 19 年度以降に導入されたため)

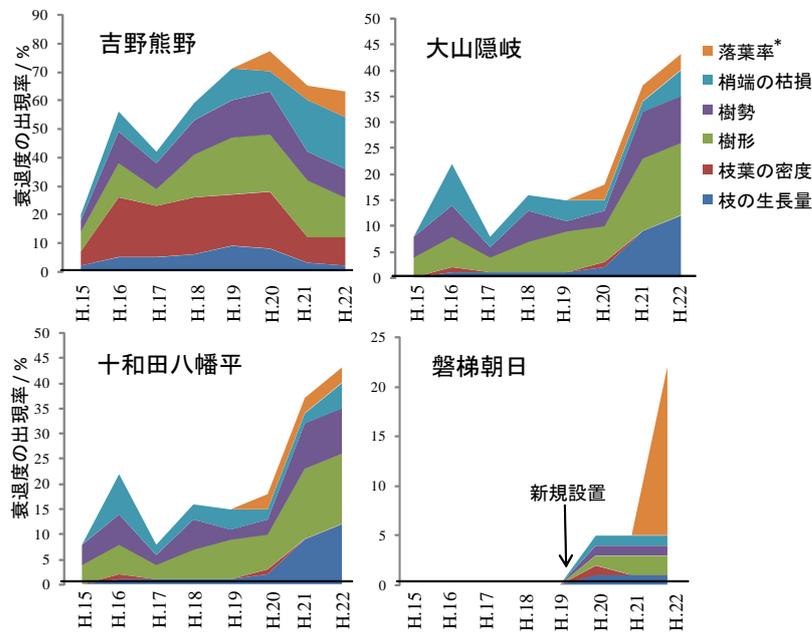


図 3-2-3 全観察木に占める各衰退度項目の出現率の積算値とその経年変化 (吉野熊野、大山隠岐、磐梯朝日、十和田八幡平) *落葉率は平成 19 年度から調査開始、磐梯朝日の落葉率は平成 22 年度のみに顕著な現象が見られたため変化が大きい。

3.2.2 陸水モニタリング

(1) 平成 20～22 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 3-2-4 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分布する湖沼もある。

表 3-2-4 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	オシロヒノ・シラヒノ・コムカサ等
長野県	双子池	溶岩（横岳溶岩群・双子峰溶岩）	湿性腐食型弱ポドゾル土	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	クヌギナラ群落とスギ・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、オオバクロモジ
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・ミツバツツジ、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 20～22 年度の 3 年間の平均値を表 3-2-5 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。

⁵ 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⁵⁾。

表 3-2-5 各調査定点の水質 (平成 20~22 年度)

湖沼名	採水地点	pH	EC (mS m ⁻¹)	アルカリ度 (mmol _c L ⁻¹)	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	NH ₄ ⁺	Na ⁺	K ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	
					(μmol _c L ⁻¹)								
山形県	今神御池	湖心表層	6.07	4.28	0.071	82.9	0.6	198	2.9	262	12.1	26.9	48.3
栃木県	刈込湖	湖心表層	6.84	3.35	0.168	114	4.0	20.1	1.6	133	14.9	132	16.8
長野県	双子池(雄池)	湖心表層	7.04	1.86	0.116	35.0	15.9	10.2	0.5	50.0	7.0	106	16.8
	双子池(雌池)	湖心表層	5.76	0.66	0.021	27.8	3.1	9.0	0.5	13.7	4.2	20.6	7.0
新潟県	山居池	湖心表層	6.89	9.55	0.110	93.2	0.5	579	0.8	538	33.2	83.3	118
石川県	大島池	湖心表層	6.71	4.50	0.138	37.3	10.4	187	3.8	198	27.8	61.4	77.6
福井県	夜叉ヶ池	湖心表層	5.24	1.73	0.011	41.3	7.9	62.7	2.8	60.7	8.5	20.0	18.6
岐阜県	伊自良湖	湖心表層	7.07	4.12	0.172	105	23.4	58.8	0.9	87.8	6.8	148	109
	釜ヶ谷川	流入河川	7.01	4.34	0.151	132	32.1	59.7	*1	91.3	6.6	147	120
	孝洞川	流入河川	6.85	3.73	0.135	99.2	24.9	63.2	*1	100	5.6	95.9	111
京都府	沢の池	湖心表層	5.69	1.76	0.028	37.7	0.2	80.8	*1	62.7	7.4	36.2	30.6
島根県	蟠竜湖	湖心表層	7.04	10.3	0.163	85.9	2.2	628	1.9	602	46.3	75.8	146
	蟠竜湖 No.3	湖心表層	7.01	10.1	0.169	88.6	2.3	613	1.9	593	46.5	81.4	147
山口県	山の口ダム	湖心表層	6.55	6.13	0.101	103	8.0	289	0.2	339	25.5	68.6	74.0
香川県	永富池	湖心表層	7.34	9.24	0.464	168	27.6	139	2.7	327	25.1	400	101

*1: 定量下限値又は検出下限値を超えて検出されたことのないもの。

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 3 年間の平均値 (pH は H⁺ に換算) を用いて主成分分析⁶を行い、各分析項目の主成分負荷量(a)及び各調査地点の主成分得点(b)を求めた (図 3-2-4)。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、他の地点の傾向を分かりにくくするために分析から除外した。

分析の結果、第一主成分 (X 軸) の寄与率は 49.5%、第二主成分 (Y 軸) の寄与率は 30.3% であり、この 2 軸で約 80% を説明できることが確認された。

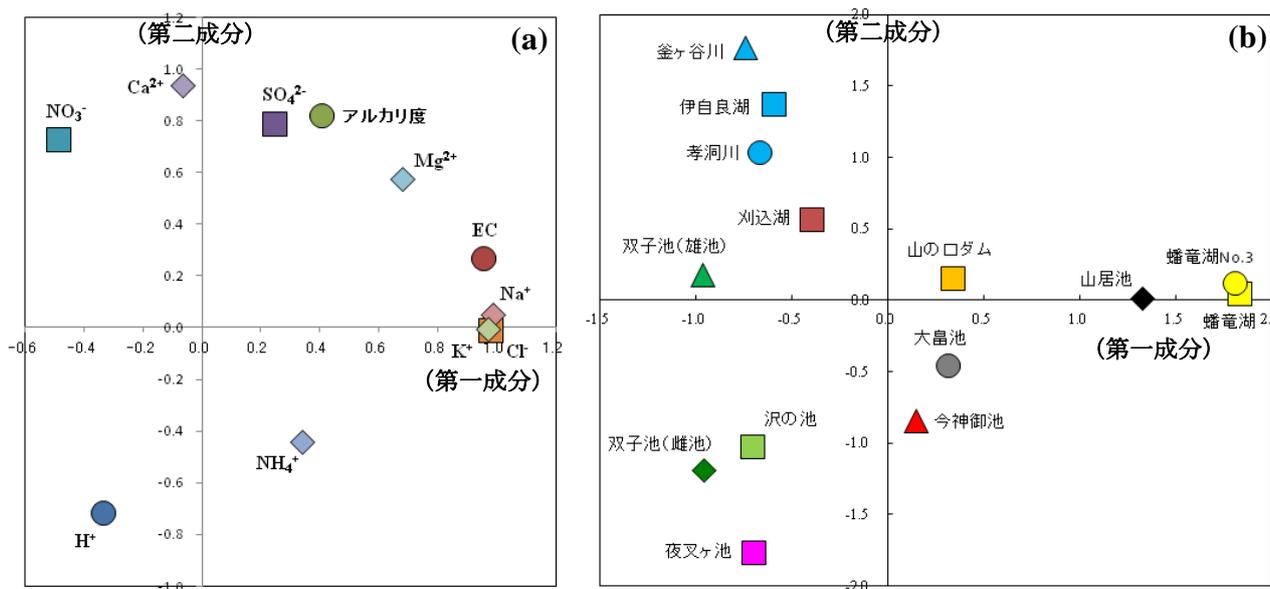
各項目の主成分負荷量(a)の結果より、EC 及び主要なイオンが同じく正方向に分布していることから、X 軸方向の第一成分は、湖沼水又は河川水の溶存物質質量を示している可能性が考えられた。一方、Y 軸方向の第二成分は、水質の酸性度を示している可能性が考えられた。このことは、Ca²⁺やアルカリ度の分布に対し、H⁺が反対方向に分布していることから推測された。以上の結果より、図の第 3 象限は、酸性度が高くかつ溶存イオン濃度が低い水質を示しており、酸性化に注意を要するものと考えられる。

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、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

⁶ 複数の変数間の相関を少数の合成変数 (主成分) で説明する統計手法。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。

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、伊自良湖集水域では、酸性度は高くないものの SO_4^{2-} や NO_3^- の濃度に影響を受けている可能性が考えられた。さらに、山居池と蟠竜湖では、 Na^+ や Cl^- のほか主要なイオンの影響下にあることが確認された。

図 3-2-4 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 3-2-6 に長期モニタリング定点における主要成分の長期トレンド解析結果を示した⁷。なお、当該解析は、調査期間が長期にわたる地点のみを対象に実施した。解析対象とした地点のうち、夜叉ヶ池及び釜ヶ谷川において、pH の有意な低下傾向 ($p < 0.01$) が確認された。また、夜叉ヶ池では、アルカリ度の有意な低下傾向 ($p < 0.001$)、双子池 (雄池) では SO_4^{2-} の、伊自良湖集水域では NO_3^- のそれぞれ有意な上昇傾向 ($p < 0.001$) が確認された。なお、蟠竜湖では、EC やアルカリ度をはじめ多くのイオン種について、濃度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。

⁷ 解析には年 4 回サンプリングの季節性を考慮した seasonal Mann-Kendall tests⁶⁾を用いた。

表 3-2-6 長期モニタリング定点の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	調査期間	N	Z-score										
			pH	EC	アルカリ度	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	NH ₄ ⁺	Na ⁺	K ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺
双子池 (雄池)	1998-2010	40	2.55*	2.52*	2.38*	5.49***	0.07	-2.45*	-0.54	4.04***	-0.22	3.43***	2.44*
双子池 (雌池)	1998-2010	40	-0.42	-1.81	-1.8	2.26*	-3.1**	-2.34*	-2.56*	3**	-2.29*	-0.92	-2.63**
山居池	2001-2010	39	-1.16	3.57***	0.98	0.42	-0.77	3.1**	-1.33	2.74**	1.12	1.07	1.02
夜叉ヶ池	2000-2010	43	-3.14**	-1.25	-3.49***	-0.97	0.76	-2.89**	-2.42*	-2.37*	0.08	-1.05	-1.41
伊自良湖	1989-2010	87	-0.84	4.59***	5.94***	0.07	3.87***	-0.09	0.11	-0.14	-2.85**	1.96*	1.36
釜ヶ谷川	1989-2010	88	-2.98**	2.52*	2.47*	0.03	4.72***	0.82	-4.96***	0.66	-1.63	-0.18	0.38
孝洞川	1989-2010	67	0.25	4.79***	2.47*	2.67**	3.6***	0.1	-4.43***	2.2*	-0.21	0.1	1.32
蟠竜湖	1989-2010	88	2.37*	5.88***	5.01***	-1.71	0.39	5.82***	-0.21	6.35***	1.46	0.32	4.77***
蟠竜湖 No3.	1989-2010	88	2.5*	4.79***	5.7***	-0.82	0.42	5.14***	-0.72	6.33***	1.05	1.84	3.68***

注：Z-score は変化傾向を検定するための統計量を表し、正の値が増加傾向、負の値が減少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、危険率 5%、1%、0.1% で有意差が認められたことを示す。

特に、酸性化と関連すると考えられる顕著な長期トレンドが見られた地点について、図 3-2-5 にその経年変化を示した。夜叉ヶ池では pH、アルカリ度とも 2004 年前半に見られる比較的低い値を除き、同年後半まではやや上昇傾向であったが、それ以降は低下傾向に転じている (図 3-2-5 (a) 及び(b))。釜ヶ谷川の pH は、1990 年代半ばまでは上昇傾向、その後、2003 年付近までは低下し、その後再び上昇傾向にある (同(c))。また、釜ヶ谷川の NO₃ 濃度は 2005 年頃まで上昇を続け、その後低下に転じるとともに季節による振幅も小さくなる傾向にある (同(d))。一方で、伊自良湖の表層湖水の NO₃ 濃度は 2000 年までは上昇傾向が明らかであったが、それをピークに低下傾向にある (同(e))。なお、双子池 (雄池) の SO₄²⁻ 濃度は、上昇傾向にある (同(f))。

夜叉ヶ池や伊自良湖集水域での水質の経年変化の傾向は、ある時期を境に、大きく変化している。伊自良湖集水域で見られた 1990 年代半ばからの酸性化傾向については、気象イベントや集水域内の樹木の成長などがきっかけとなって、大気沈着の影響が顕在化したことが示唆されている⁷⁾。近年の pH 上昇や NO₃ 濃度の低下は酸性化からの回復傾向とも考えられるが、これが一時的なものか、このまま回復していくのか、長期のトレンドだけでなく、一定期間ごとの変化も同時に注意深く監視していく必要がある。

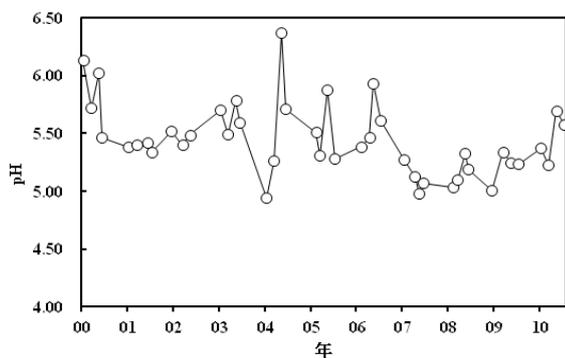


図 3-2-5(a)

夜叉ヶ池における表層水の pH 経年変化

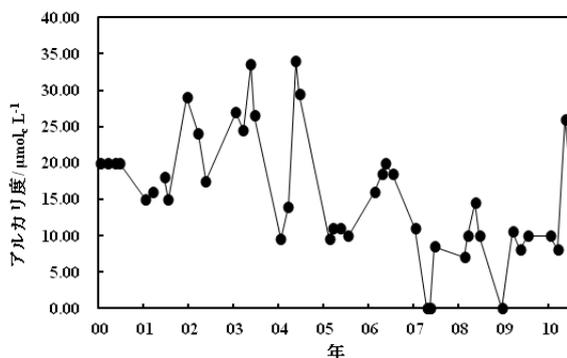


図 3-2-5(b)

夜叉ヶ池における表層水のアルカリ度経年変化
(2007年及び2009年は定量限界未満)

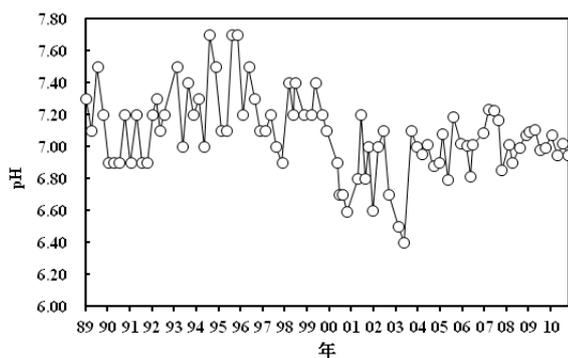


図 3-2-5(c)

釜ヶ谷川における pH 経年変化

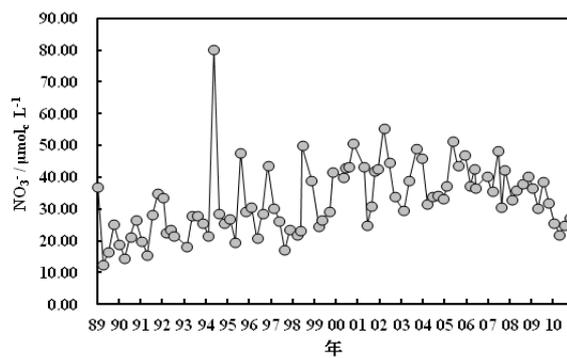


図 3-2-5(d)

釜ヶ谷川における NO₃ 経年変化

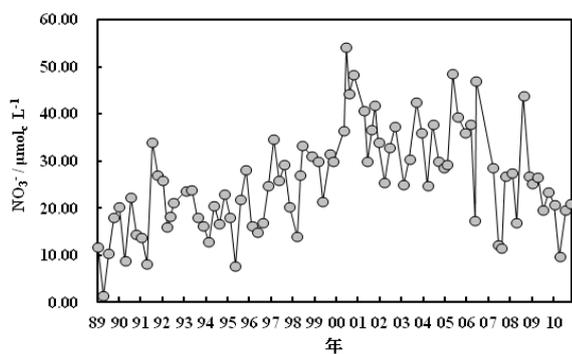


図 3-2-5(e)

伊自良湖における表層水の NO₃ 経年変化

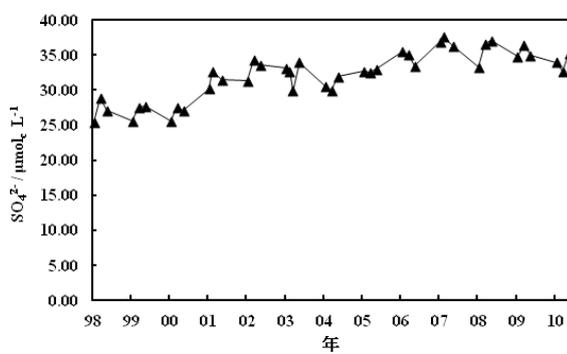


図 3-2-5(f)

双子池 (雄池) における表層水の SO₄²⁻ 経年変化

3.2.3 集水域モニタリング

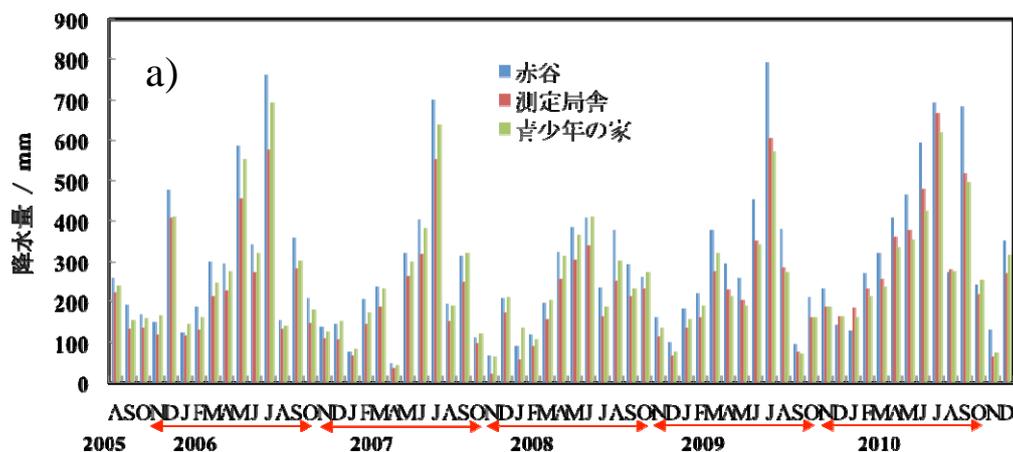
(1) 流入・流出収支

集水域モニタリングでは、集水域という一定面積における、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、平成 17 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。ここでは、集中調査以降の 3 水年（水の循環を考慮した年度：2007-2008、2008-2009、2009-2010 水年、いずれも 11 月から翌年 10 月まで）における流入・流出収支の結果について述べる。

① 水収支

伊自良湖集水域における降水量及び流出量の季節性を図 3-2-6 に示す。降水及び河川流出の季節性を考慮して、伊自良湖集水域では、比較的降水量も河川からの流出量も低い 11 月初旬から翌年の同時期までを 1 水年とした。また後述するように、斜面中部に位置する伊自良湖酸性雨測定所（測定局舎）の降水量は、斜面上部や下部に比べ低い傾向が認められた。

各水年における降水量、河川流出量、及び流出率を表 3-2-7 に示した。2009-2010 水年は、前の 2 水年に比べ、著しく降水量が多かったが、流出量も多かった。流出率は、前の 2 水年は低めであったが、2009-2010 水年は 66% であり、日本の森林集水域における流出率の既報値（降水量 3000 mm で 60-70% 程度⁸⁾）に近い値であった。



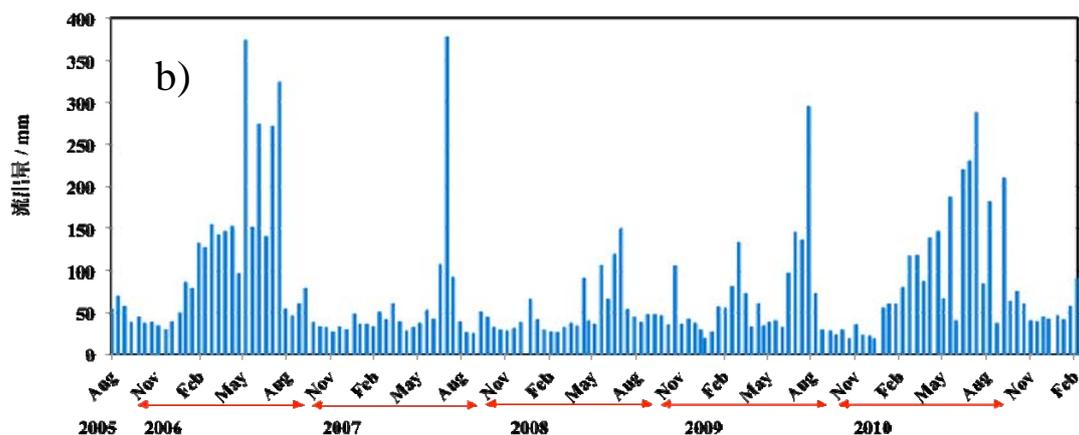


図 3-2-6 伊自良湖集水域における降水量 (a) 及び河川流出量 (b) の季節性。降水量は、斜面上部 (赤谷)、中部の谷間 (測定局舎)、下部 (青少年の家) の 3 地点で測定した月降水量で、横軸のアルファベットは各月のイニシャルを示す。河川流出量は伊自良湖への主要流入河川である釜ヶ谷川における 2 週に 1 回実施される採水間隔に合わせた流出量。図中の矢印は、水年の目安。

表 3-2-7 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
降水量 (mm)	赤谷	2956	3547	4522
	測定局舎	2253	2678	3920
	青少年の家	2793	2712	3717
	平均	2667	2979	4053
河川流出量 (mm)		1397	1677	2687
流出率 (%) ¹		52	56	66

注. 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。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 節で用いられた推定 (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。

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3-2-8-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¹⁰⁾。窒素の総沈着量は、これまでの推計結果同様、河川へのNO₃⁻流出の閾値と言われる1年当たり10 kg N ha⁻¹を大きく上回った。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3-2-8-b)。

表3-2-8-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

表3-2-8-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	0	2.1
2008	2009	2.4	2.2	0.7	1.0	0	2.0
2009	2010	3.6	3.2	0.8	1.5	0.1	3.0

注. アルカリ度はpH4.8法による。

物質流入量と物質流出量を比較すると、SO₄²⁻、Cl⁻及びCa²⁺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¹⁰⁾と同様に、SO₄²⁻の流出量は、流入量の2倍以上、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(NO₃⁻ + NH₄⁺)の流入量(1.1 kmol_c ha⁻¹)の80%程度(0.9 kmol_c ha⁻¹)が、NO₃⁻またはNH₄⁺として流出していた。

土壌中に多く吸着・蓄積されているCa²⁺はそれ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あったとして、SO₄²⁻

の流入量を Cl^- との組成比に合わせて増やしたとしても、各水年の SO_4^{2-} 流入量は、2.0、1.9、及び 2.3 $\text{kmol}_e/\text{ha} \cdot \text{年}$ 程度であり、いずれの水年も流出量が流入量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ている¹¹⁾。伊自良湖でも同様の現象が生じている可能性がある。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)¹²⁾¹³⁾には至っていないと考えられた。

(2) 増水時の河川水質の変化

河川水の水質は、集水域内の土壌、植生、地質等を含む生物地球化学的過程の影響を受けるが、豪雨や融雪時期等の増水時には、流出過程が変化することにより、水質も大きく変化することが知られている。釜ヶ谷川における河川流量の変化に伴う濃度変化を図 3-2-7 に示した。

生態系内でほとんど利用されない Cl^- や岩石の風化を起源とする SiO_2 は、平水時の基底流を構成する主要な成分として知られている。イベントによって若干異なるパターンを示すものの、これらの成分は河川流量の増大に伴い濃度が低下する傾向を示した。一方で、土壌表層に多く分布し、硝化や有機物の無機化によって生じる NO_3^- は、河川流量増大によって濃度の上昇が見られた。 SO_4^{2-} は、河川流量増大に伴い濃度が低下するものの、一定以上河川流量が増大すると濃度も上昇に転じた。ここで SO_4^{2-} 濃度が上昇に転じた、流量が $2 \text{ m}^3 \text{ sec}^{-1}$ を超えるようなデータに注目すると、平水時には SO_4^{2-} と負の相関を示した NO_3^- は増水時に正の相関を示し、反対に平水時に SO_4^{2-} と正の相関を示した SiO_2 は増水時に負の相関を示した。

河川水中の SO_4^{2-} 濃度は、多くの場合、河川流量の増大とともに Cl^- 等と同様に希釈され、濃度が低下することが報告されているが¹⁴⁾、上述した北米で SO_4^{2-} が流出している集水域では、正味の流出量 (及びそれを濃度に換算した値) が河川流出量に伴い増大していることが報告され、表層に蓄積した有機態硫黄を起源とするものと考えられている¹¹⁾。伊自良湖集水域においても、 NO_3^- と同様に、土壌表層付近に硫黄 (S) が何らかの形で蓄積されている可能性が考えられ、これまで物質収支から示唆された集水域内における硫黄の蓄積を支持していた。

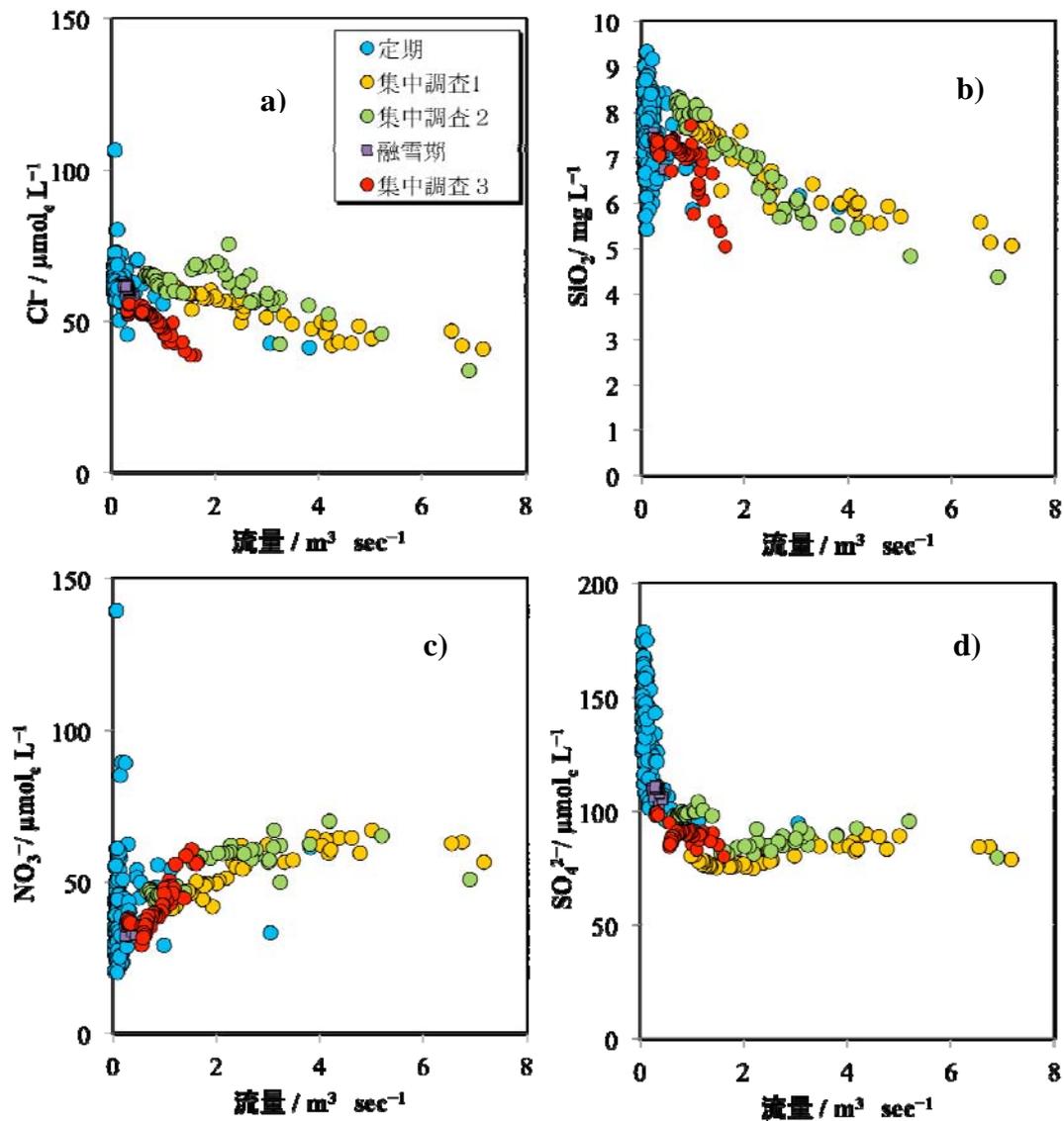


図3-2-7. 釜ヶ谷川における河川流出量による河川中の Cl^- (a)、 SiO_2 (b)、 NO_3^- (c)及び SO_4^{2-} (d)の濃度変化

凡例の「定期」は2週間毎の定期モニタリング、「集中調査1、2、3」は2006年、2007年、2010年の豪雨時の集中モニタリング、「融雪期」は2010年の融雪時の集中モニタリングのデータを示す。

(3) 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¹⁵⁾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⁷⁾。また、今回も確認されたように、 SO_4^{2-} の大気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¹⁰⁾。一方で、近年は酸性化からの回復傾向を示す兆候も見られている(前節を参照)。

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 3-2-9 に示した。pH は横ばいかやや上昇気味であり、 SO_4^{2-} 濃度は 2005-2006 水年から 2007-2008 水年まで上昇したものの 2009-2010 水年には再び同じレベルに戻り、 NO_3^- 濃度は 2007-2008 水年まで変化せずその後 2 水年続けて低下が見られた。アルカリ度は SO_4^{2-} 濃度同様に一度上昇したものの同じレベルまで低下していた。

NO_3^- 濃度の低下は流出していた窒素が再び生態系内で健全に循環しつつある兆候であり、 NO_3^- 濃度が高かった 2008-2009 水年に比べ pH が高いのもそれを反映している可能性があった。生態系内での窒素の循環には樹木による吸収が大きな役割を占め、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た⁷⁾。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 2005 年をピークに低下を始めていることから、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も考えられた。一方で、上述したように、 SO_4^{2-} は流入量以上に流出しているため、今後更に注意深く監視していく必要性が示唆された。

窒素飽和が進行した 1990 年代半ば以降、夏季においても高い NO_3^- 濃度が河川水で記録されるようになった。夏季には生態系内において植生等による吸収・消費が旺盛となるため、河川水中の NO_3^- 濃度は低下するのが一般的である。そのため、冬季に低く夏季に高くなる水温と NO_3^- 濃度との間には、通常負の相関関係が見られるが、伊自良湖集水域においては、1990 年代半ば以降、その関係が失われ、水温が高くなる夏季においても生態系内で窒素が十分に使われず流出していることを示していた⁷⁾。2005 年以降の 3 水年の間も水温との関係は見られなかったが、夏季における高濃度の頻度は 2007 年以降減少傾向にあり、釜ヶ谷川流域の 2 地点では 2008-2009 水年以降、水温と NO_3^- 濃度との間に負の相関が見られるようになった(図 3-2-8)。これも、植物成長期において樹木吸収による窒素循環の制御が回復しつつあることを示唆していた。孝洞川では水温との関係は明確ではなかったが、 NO_3^- 濃度は同様に低下しつつある。今後、これらの回復傾向がこのまま続くかどうか、 SO_4^{2-} の流出に加え、窒素循環も注意深く監視していく必要がある。

表 3-2-9 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

注. 各水年の RW1 における年間流出量を基に算出。

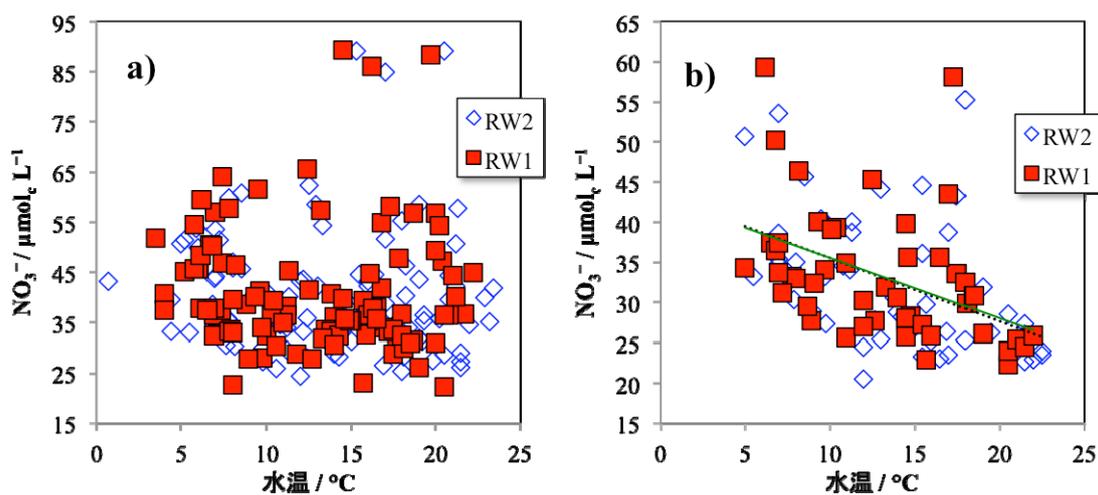


図 3-2-8 釜ヶ谷川における 2005-2008 年の 3 水年 (a) と 2008-2010 年の 2 水年 (b) における水温と NO₃⁻ 濃度との関係 NO₃⁻ 濃度は流量の影響を大きく受けるため、流量が 0.5 m³ sec⁻¹ を超えるような高流量時のデータは除いた。相関を示す緑色の実線及び黒色の破線の近似直線は、それぞれ RW1 (R²=0.188, *p* < 0.01) 及び RW2 (R²=0.212, *p* < 0.01) のデータによるものを示す。

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) 土壌影響の要監視地域

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。酸性沈着の土壌への影響は土壌の感受性が高く沈着量の多い地域で顕在化する可能性があり、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。

①土壌の感受性マップ

土壌図及び地質図⁸を用いて、感受性の高い土壌を以下の2種類に分類した。

- ・ Type 1: 未熟土及び赤黄色土
- ・ Type 2: 表層地質が酸性岩 (花崗岩類、流紋岩類等) である褐色森林土

未熟土、赤黄色土、乾性褐色森林土は「酸性雨の土壌への影響予察図」によって感受性が高いとされている¹⁶⁾。一方、我が国の森林地帯に広く分布する褐色森林土の感受性は、地域によって大きく異なるため、母材となる表層地質が酸性岩である褐色森林土を特に酸に対する感受性が高い土壌とした。

②沈着量との比較

要監視地域の抽出のためには、上記の酸感受性地域の分布状況と大気沈着量の分布を比較する必要があるが、現時点では、湿性沈着量と乾性沈着量を合わせた大気からの総沈着量の分布状況を示す全国的な実測データは得られていない。将来的には、大気シミュレーションモデル等の活用が期待されているが、比較に用いるべき積算期間、時間・空間解像度等、議論すべき点も多い。ここでは全国的な分布が一定以上評価可能な、全国環境研協議会 (全環研) 及び環境省のモニタリングサイト (120 地点) において観測された年間の湿性沈着量 (平成 10 年度から平成 16 年度の平均: NO_3^- 及び非海塩性の SO_4^{2-}) の分布を土壌の感受性マップと重ね合わせて比較した。

⁸ 国土交通省「1/20,000 土地分類基本調査 (土壌図)」及び国土交通省「1/20,000 土地分類基本調査 (表層地質図)」

③結果

感受性の高い土壌は、火山性未熟土の多い北海道の一部、酸性岩が多い福島県と新潟北部、赤色系土壌と酸性岩が多い中部・西日本・北九州の広い範囲に出現していた(図 3-2-9)。特に、中部山岳地域では酸性沈着が多く、かつ感受性の高い土壌が多く分布していたため、土壌影響に対する要監視地域として考慮する必要があると考えられる。

(2) 陸水影響の要監視地域

陸水水質は流域内の地質に大きく影響を受け、酸性岩が多くを占める流域では塩基性岩が多くを占める流域よりも河川の酸性化が生じやすい(=陸水の感受性が高い)可能性がある¹⁷⁾。陸水の感受性の高い流域が多く分布し、かつ沈着量が多い地域では、酸性沈着の陸水影響が顕在化する可能性があり、このような地域を陸水影響の要監視地域として抽出することが求められる。農地や都市部では大気影響以外の要因によって水質が変化する可能性があるため、本報告では特に森林植生が大部分を占める流域を調査対象とした。

①森林集水域の抽出

地理情報ソフトウェア⁹⁾を用いて標高データ¹⁰⁾から全国の集水域を区分した(上流域 3,600 ha 以上)。さらに、植生図¹¹⁾を用いて森林植生の面積が 70%以上である集水域を抽出し、これを「森林集水域」として感受性の評価対象地域とした。

②森林集水域内における陸水の感受性

抽出された森林集水域内の表層地質¹²⁾に占める非塩基性岩(花崗岩類、流紋岩類等の酸性岩及び砂岩・泥岩・礫岩)の割合を算出し、その割合が 50%以上である流域を陸水の感受性が高い地域として地図上に示した。

③沈着量との比較

前述の土壌影響の要監視地域と同様に、全環研及び環境省のモニタリングサイト(120 地点)において観測された年間の湿性沈着量(1998-2004 年の平均: NO_3^- 及び非海塩性の SO_4^{2-})の分布を重ね合わせて比較した。

④結果

⁹⁾ ArcGIS10.0(ESRI)

¹⁰⁾ 国土交通省「数値地図 50m メッシュ(標高)」

¹¹⁾ 環境省生物多様センター運営の生物多様情報システムの 3 次メッシュデータ(http://www.biodic.go.jp/dload/mesh_vg.html)

¹²⁾ 国土交通省「1/20,000 土地分類基本調査(表層地質図)」

陸水の感受性が高い流域は、福島東部・新潟北部・北陸・中部・中国地方に幅広く分布していた(図3-2-10)。特に、新潟北部・北陸の一部と中部山岳地帯では酸沈着量が多く、かつ感受性も高いため、陸水に対する要監視地域として考慮する必要があると考えられた。

(3) 要監視地域の更なる特定に向けて

これまでの解析によって、土壌・植生や陸水の酸性化に関する要監視地域として、上述したように幾つかの地域が特定されつつある。しかしながら、現時点では、大まかな地域(エリア)を示したにすぎず、全国レベルの地図では、地域内の細かい状況を十分に評価することは困難である。今後、要監視地域として監視すべき地点を特定していくためには、地域レベル(例えば、伊自良湖を含む中部山岳地域など)での土壌・地質条件や大気沈着量等を含めた更なる評価が必要になると考えられる。また、現行の環境省モニタリング地点や伊自良湖等、これまで比較的多くの流域情報や土壌、陸水のデータが集められた地域の情報と併せて評価することにより、土壌化学的特性や陸水化学的特性を説明する上で有用な指標を見出すことができる可能性もある。

上記の試みにおいては、大気沈着としてデータが全国規模で整っている湿性沈着量だけを考慮しており、地域によっては総沈着量の半分以上を占める乾性沈着量は考慮されていない。さらに、感受性が高いと思われるような山岳地域には、現時点ではモニタリング地点がないように見受けられる。今後、大気シミュレーションモデルの計算結果等も参考にしながら、大気沈着と生態系の感受性を比較していく必要があると考えられる。

将来必要な酸性雨対策の検討を考慮すると、要監視地域の特定は今後のモニタリング計画の策定において不可欠であり、更に検討を進める必要がある。

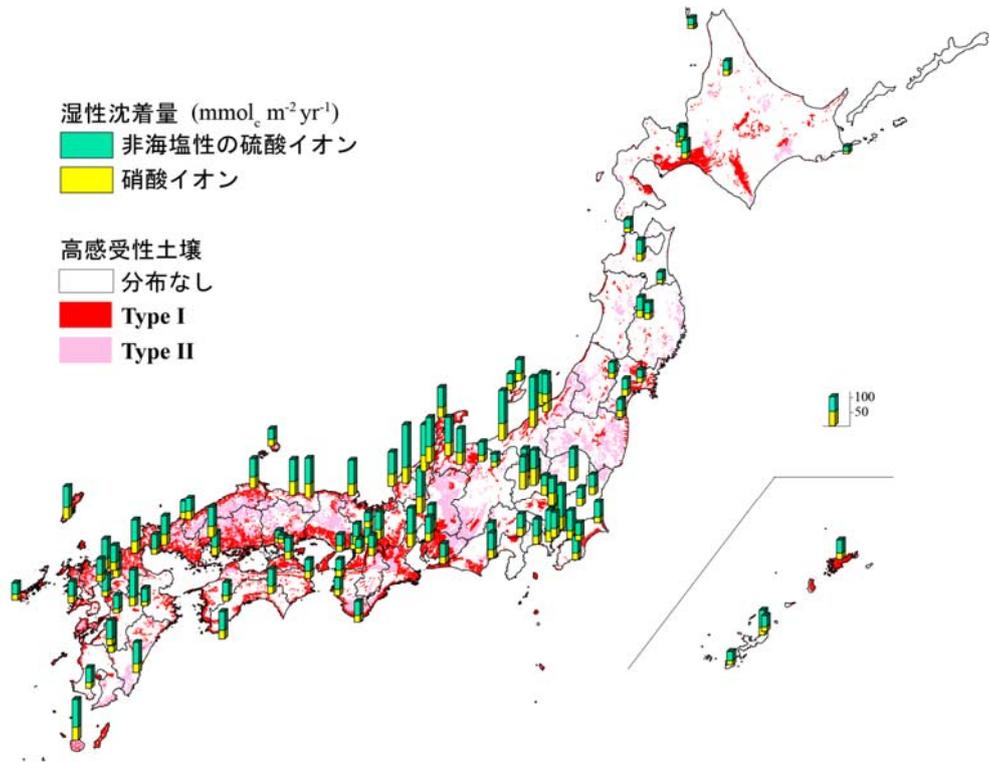


図 3-2-9 酸性沈着の土壌への影響が生じやすい地域の分布

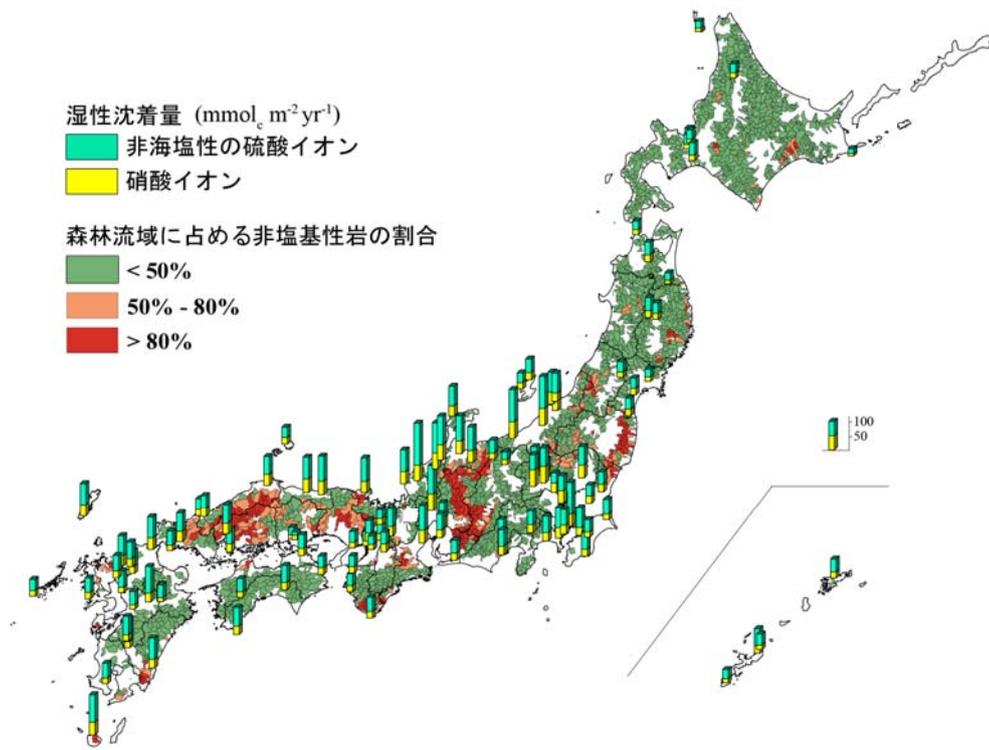


図 3-2-10 酸性沈着の陸水への影響が生じやすい森林流域の分布

(引用文献)

- 1) 日本ペドロジー学会第四次土壌分類・命名委員会 (2002) 日本の統一的土壌分類体系—第二次案—. 博友社.
- 2) B. Ulrich (1991) An ecosystem approach to soil acidification. *In*: B. Ulrich, M. E. Summer (Eds.), *Soil Acidity*. Springer-Verlag Berlin Heidelberg.
- 3) EANET (2006) Sub-manual on forest vegetation monitoring in EANET. Network Center for EANET, Acid Deposition and Oxidant Research Center (ADORC), Niigata, Japan.
- 4) 横田岳人 (2011) ニホンジカが森林生態系に与える負の影響. *森林科学* 61: 4-10.
- 5) 環境省酸性雨対策検討会 (2004) 酸性雨対策調査総合とりまとめ報告書. 環境省.
- 6) R. M. Hirsch, J. R. Slack, R. A. Smith (1982) Techniques of trend analysis for monthly water quality data, *Water Resour. Res.*, 18(1): 107–121.
- 7) O. Nakahara, M. Takahashi, H. Sase, T. Yamada, K. Matsuda, T. Ohizumi, H. Fukuhara, T. Inoue, A. Takahashi, H. Kobayashi, R. Hatano, T. Hakamata (2010) Soil and stream water acidification in a forested catchment in central Japan. *Biogeochemistry* 97: 141-158.
- 8) 小川滋 (2003) 森林と水資源(第3章), 水文大循環と地域水代謝 (丹保・丸山編), 技報堂出版, 45-71.
- 9) EANET (2010) Technical Manual for Dry Deposition Flux Estimation. Network Center for EANET, Asia Center for Air Pollution Research (ACAP), Niigata, Japan.
- 10) 環境省酸性雨対策検討会 (2008) 酸性雨長期モニタリング報告書(平成15～19年度). 環境省.
- 11) M. J. Mitchell, G. E. Likens (2011) Watershed Sulfur Biogeochemistry: Shift from Atmospheric Deposition Dominance to Climatic Regulation. *Environ. Sci. Technol.* 45: 5267–5271.
- 12) G. M. Lovett, K. C. Weathers, W. V. Sobczak (2000) Nitrogen saturation and retention in forested watersheds of the Catskill Mountains, New York. *Ecological Applications*, 10(1): 73-84.
- 13) J. L. Stoddard (1994) Long-term changes in watershed retention of nitrogen. *In*: L. A. Baker (Ed), *Environmental chemistry of lakes and reservoirs. Advances in Chemistry Series 237*, American Chemical Society, Washington, D.C., USA, 223–284.
- 14) M. Kamisako, H. Sase, T. Matsui, H. Suzuki, A. Takahashi, T. Oida (2008) Seasonal and annual fluxes of inorganic constituents in a small catchment of a Japanese cedar forest near the Sea of Japan. *Water, Air, and Soil Pollution*, 195, 51-61
- 15) T. Yamada, T. Inoue, H. Fukuhara, O. Nakahara, T. Izuta, R. Suda, M. Takahashi, H. Sase, A. Takahashi, H. Kobayashi, T. Ohizumi, T. Hakamata (2007) Long-term Trends in Surface Water Quality of Five Lakes in Japan, *Water, Air, and Soil Pollution: Focus* 7: 259-266.

- 16) 環境庁水質保全局・日本土壌肥料学会 (1983) 酸性雨の土壌への影響予察図 (1/200 万).
環境庁.
- 17) H. Matsubara, S. Morimoto (2009) Long-term declining trends in river water pH in Central Japan. *Water air and soil pollution* 253-265.

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、酸性沈着のみならず、近年越境汚染による我が国への大気環境への影響が懸念されるオゾン及び粒子状物質 (PM) についても監視することを明確にしている。本章では、特にオゾン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、オゾンによる植物影響の可能性について、現時点で得られた知見について紹介する。なお、この章のトレンド解析の部分では、5 年区切りでデータ比較を行うために 2009 年までのデータを解析対象とした。

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

(1) オゾン

12 地点以上で有効値が得られた平成 12 年度から 22 年度におけるオゾン平均濃度の経年変化を、遠隔地域と非遠隔地域、また高山地域と非高山地域に区分して図 4-1-1 に示し、このうち遠隔地域の地点ごとのオゾン濃度の経年変化を図 4-1-2 に示した。なお、高山の 2 地点 (八方尾根、赤城) は全国平均及び地域区分ごとの平均を算出する際には除外した。

高山地域は非高山地域より濃度が高い傾向があり、高山地域においては地上よりも欧米や東アジアから長距離汚染の影響と成層圏からの影響を強く受けていることが伺われた。しかしながら、高山地域である八方尾根のオゾン濃度は平成 20 年度以降減少傾向にあるため、今後の推移を注視する必要がある。

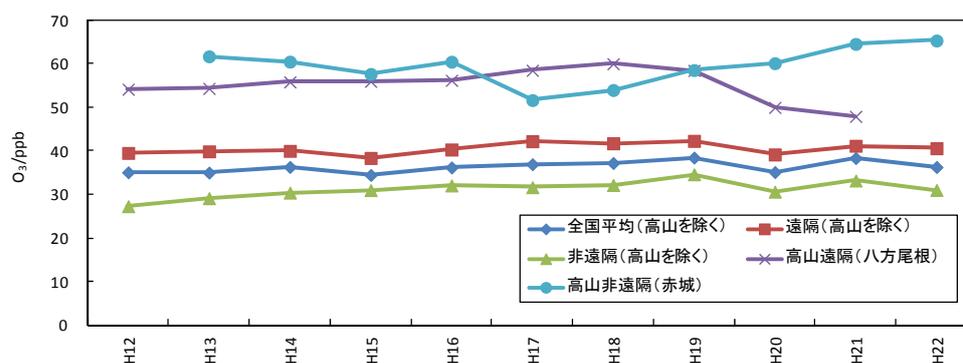
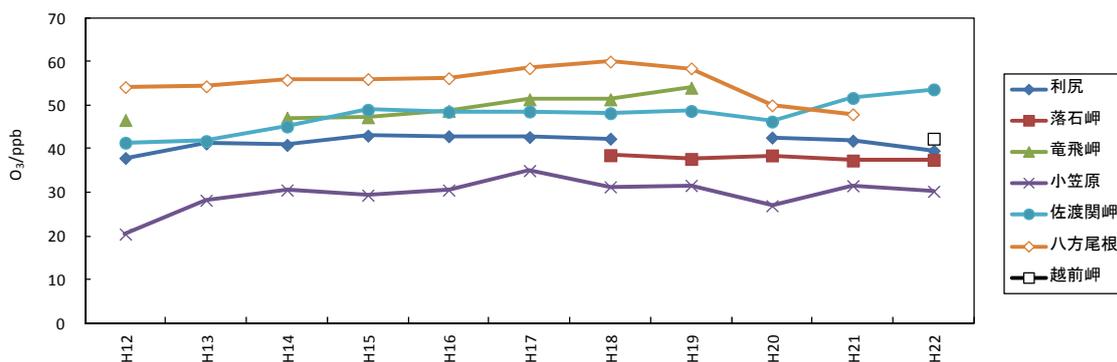


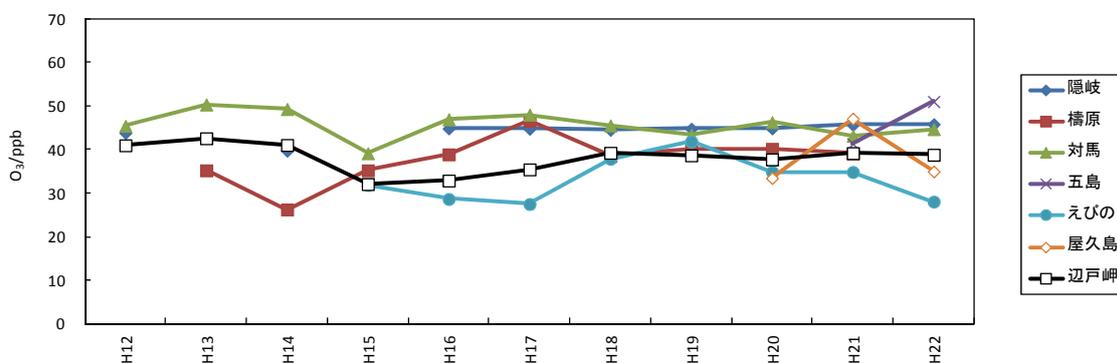
図 4-1-1 地域ごとのオゾン濃度の経年変化

図 4-1-1 及び 4-1-2 に示されているオゾン濃度の経年変化から、多くの遠隔地点でオゾン濃度の増加傾向が見出された。平成 12 年を基準年とした直線回帰により、国内 EANET 局におけるオゾン濃度年平均値のトレンドを調べたところ、利尻 (0.4 ppbv/year)、竜飛岬 (1.0 ppbv/year)、佐渡関岬 (0.7 ppbv/year) で有意 (95%信頼区間) な増加傾向が見られた。一方、隠岐 (0.3 ppbv/year)、梶原 (0.8 ppbv/year)、小笠原 (0.5 ppbv/year) でも増加傾向が見られたが、統計的に有意ではなかった。八方尾根については 2007 年までは有意な上昇傾向 (1.1 ppbv/year) が見られたが、その後減少に転じていた。

このように多くの国内 EANET 局の遠隔地点において、オゾン濃度の増加傾向が見られたが、データ数が少ないため統計的に有意な増減傾向が評価できないケースが多かった。そこで、国内 EANET 局において前半 5 年間（平成 12～16 年）及び後半 5 年間（平成 17～21 年）の月間オゾン濃度の平均値を比較した（図 4-1-3）。これらのサイトでは、春高夏低の季節変動が共通で見られ、この季節変動パターンは前半 5 年間と後半 5 年間で変わらなかった。月間オゾン濃度を比較すると、伊自良湖（郊外サイト）、蟠竜湖（都市サイト）を除いて後半 5 年間の値が前半 5 年間よりも高かった。特に、大陸からの移流の寄与が大きく、オゾン濃度が極大になる春季で上昇傾向が顕著であったことから、近年の越境汚染によるオゾン濃度の上昇が全国的に生じていることが分かった。



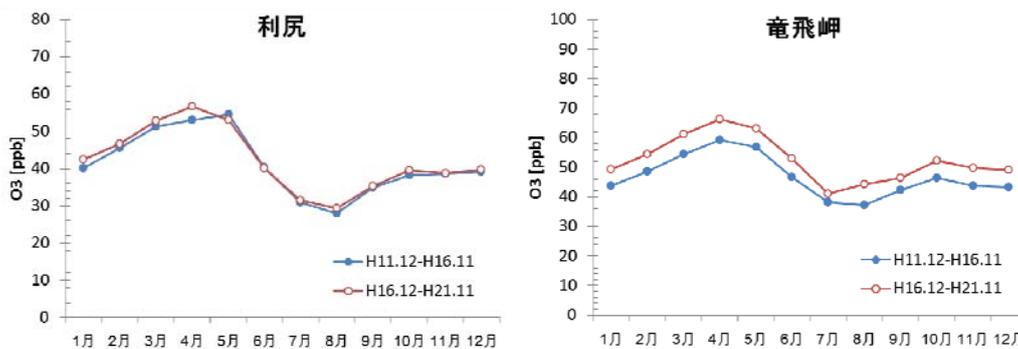
[a] : 東日本サイト



[b] : 西日本サイト

図 4-1-2 遠隔地域のオゾン濃度の経年変化

(a)



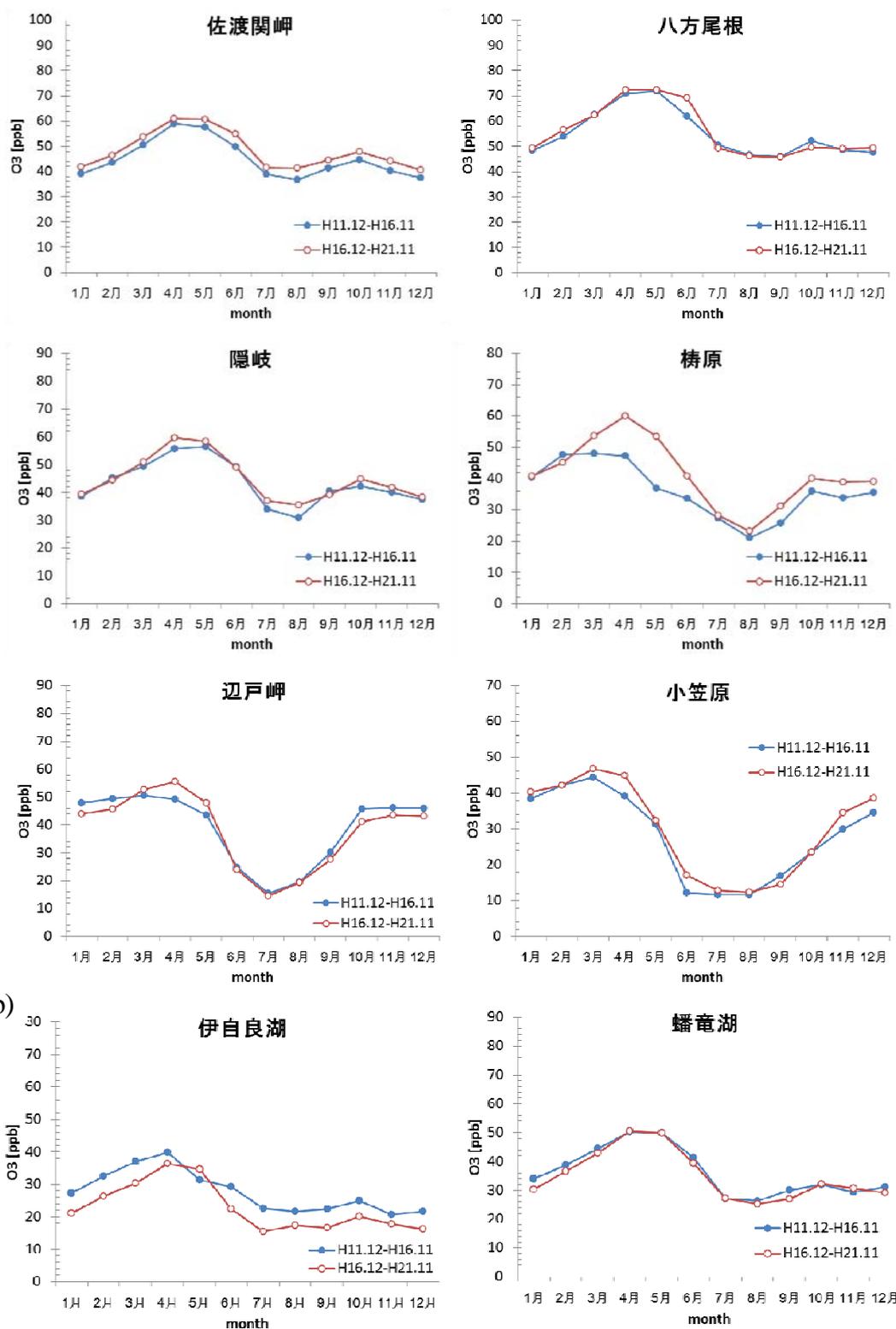
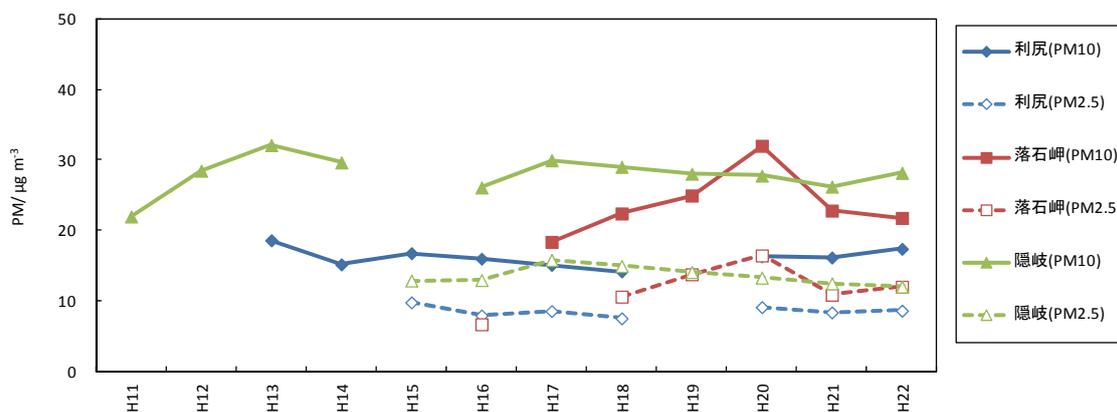


図4-1-3 国内EANET局の(a) 遠隔地域、(b) 都市及び郊外地域における前半5年間(平成12~16年)及び後半5年間(平成17~21年)の月間オゾン濃度の平均値
月間完全度70%未満のデータは集計から除いた。

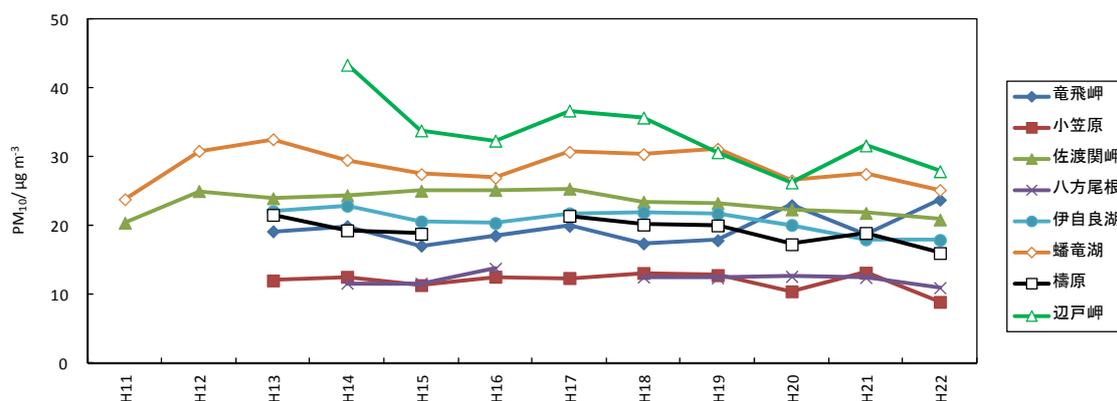
(2) PM₁₀及びPM_{2.5}

平成11年度から22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。

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濃度が低く、大陸から近い辺戸岬及び隠岐で高かった。また、PM_{2.5}濃度はPM₁₀濃度よりも低い濃度で推移した。なお、長期的傾向については辺戸岬以外において、ほぼ横ばいで推移した。



[a] : PM_{2.5}測定地点



[b] : その他地点

図4-1-4 PM₁₀濃度及びPM_{2.5}濃度の経年変化

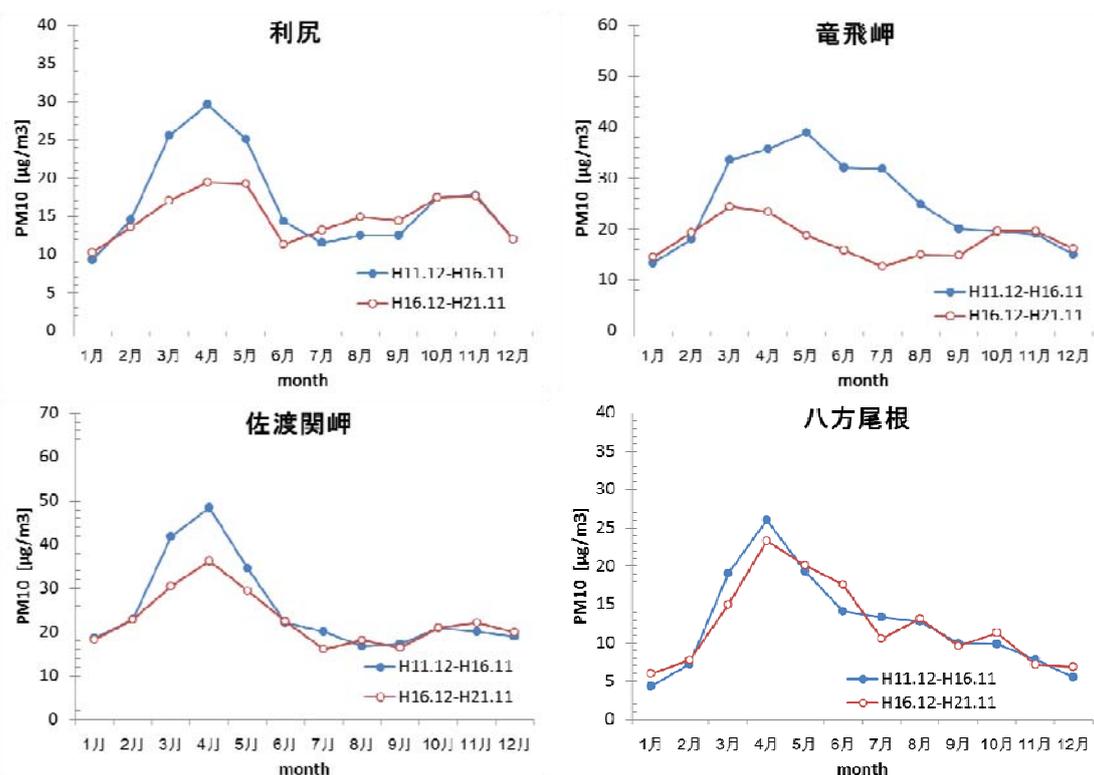
PM₁₀及びPM_{2.5}濃度についても、国内EANET局における平成12年を基準年とした直線回帰により、年平均値のトレンドを調べたところ、PM₁₀については利尻 (-0.3 µg/m³/year)、竜飛岬 (-0.4 µg/m³/year)、佐渡関岬 (-0.4 µg/m³/year)、伊自良湖 (-0.7 µg/m³/year)、隠岐 (-0.3 µg/m³/year)、蟠竜湖 (-0.3 µg/m³/year)、梶原 (-0.4 µg/m³/year)、辺戸岬 (-1.7 µg/m³/year)、小笠原 (-0.1 µg/m³/year) で減少傾向が見られたが、統計的に有意ではなかった。また、PM_{2.5}濃度については、利尻、隠岐ともに顕著な増減傾向が確認されなかった。

このように、多くの国内EANET局の遠隔地点においてPM₁₀濃度の減少傾向が見られたが、データ数が少ないため統計的に有意な増減傾向が評価できなかった。そこで、国内EANET局において前半5年間(平成12~16年)及び後半5年間(平成17~21年)の月間PM₁₀濃度の平均値を比較した(図

4-1-5)。これらの局では春季の極大現象が共通で見られ、この季節変動パターンは前半5年間と後半5年間で変わらなかった。月間PM₁₀濃度を比較すると、小笠原を除いて、特に3～5月の春季で後半5年間の値が前半5年間よりも低かった。この時期には黄砂の飛来が顕著である時期であるため、黄砂の飛来の程度の変動が一部の地点でのPM₁₀濃度の減少傾向の一因になっているのではないかと考えられる。

国内の気象観測所における黄砂観測延べ日数の推移を調べてみると、過去40年程度の長期的に見れば黄砂観測日数は有意な増加傾向 ($p < 0.01$) であったが、上述の10年間(平成12～21年)について着目すると、2000～2002(平成12～14)年にかけて顕著に高かった(図4-1-6)。対象期間前半における高頻度の黄砂飛来イベントが日本国内のPM₁₀濃度のトレンドに大きく影響を及ぼしたことが考えられる。また、中国のEANET局であるJinyunshanとHongwenでは2006(平成18)年以降PM₁₀濃度の減少が顕著であり、日本国内では多くの地点で越境汚染により多くが生成されると考えられる粒子状硫酸塩濃度が減少傾向¹⁾にあったことから、中国大陸における大気質の改善が関与している可能性も考えられる。

(a)



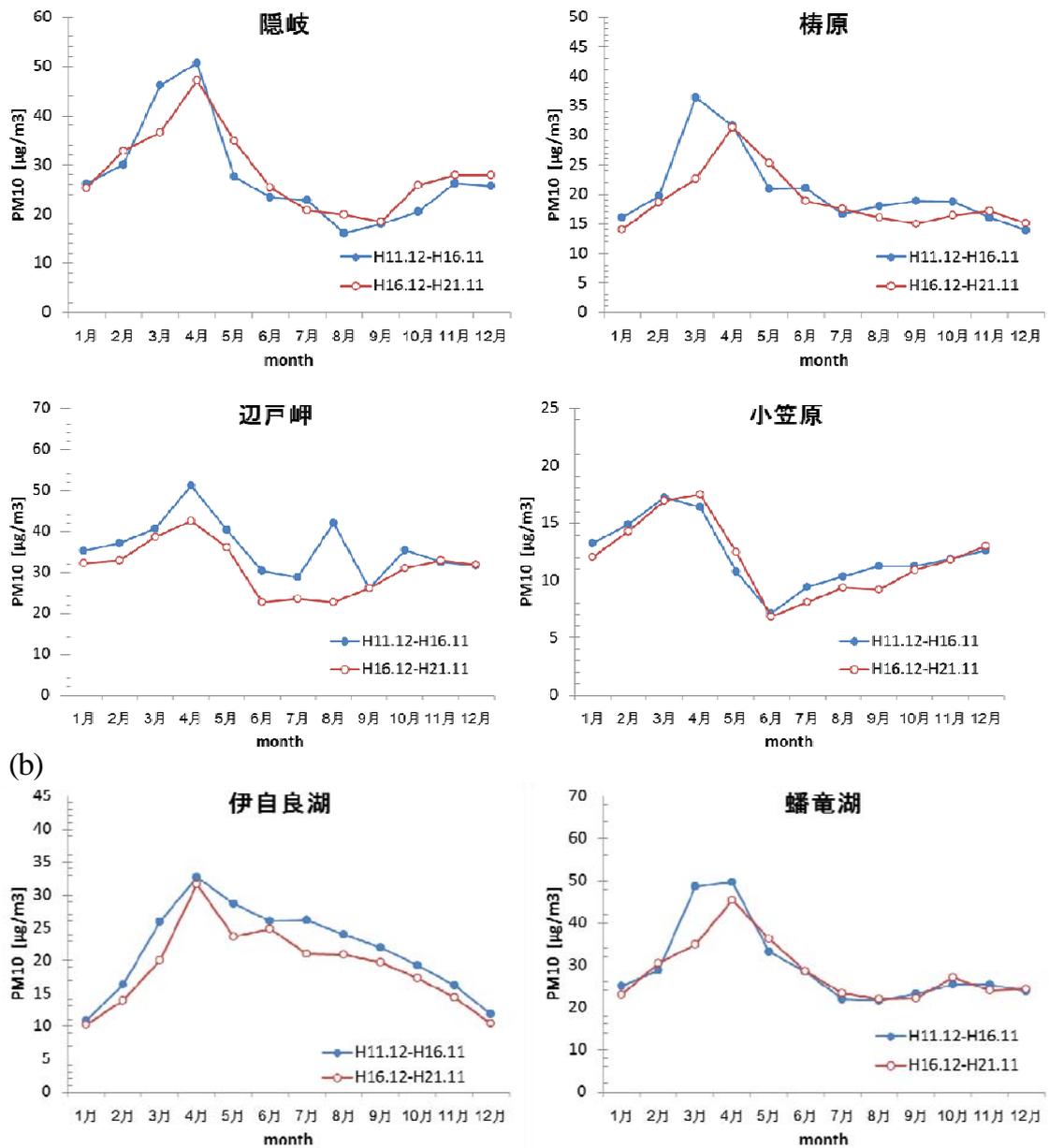


図4-1-5 国内EANET局の(a) 遠隔地域、(b) 都市及び郊外地域におけ前半5年間(平成12～16年)及び後半5年間(平成17～21年)の月間PM₁₀濃度の平均値
月間完全度70%未満のデータは集計から除いた。

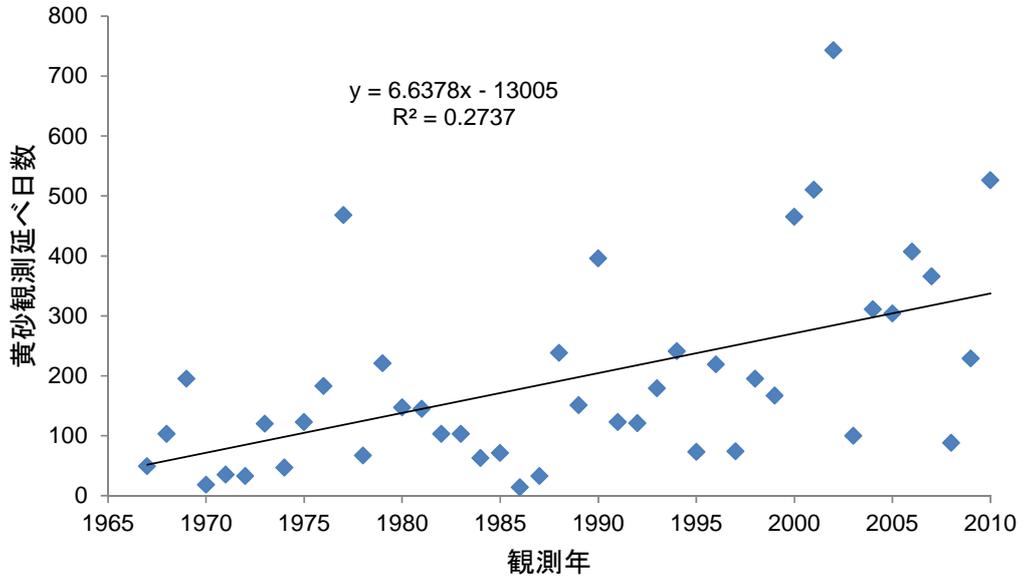


図 4-1-6 国内の気象観測所における黄砂観測延べ日数の推移 (1967~2009年)

(3) 数値モデルを用いた越境大気汚染現象の解析

①数値モデルによる高濃度イベント時の広域汚染解析の例（平成17年6月20日の例）

図4-1-7には、平成17年6月20日に観測されたオゾンとPM_{2.5}の高濃度イベントについて、領域化学輸送モデルWRF/CMAQによる²80kmメッシュでの計算によって算出された、オゾン、及びPM_{2.5}の主要成分のひとつであるSO₄²⁻の濃度分布、並びに、日本、韓国及び中国中央部の排出量感度モデル実験により得られた各地域起源の排出量の影響量分布を示す。日本付近の濃度分布に着目すると、6月20日には、日本海南西地域においてオゾンとSO₄²⁻の高濃度が確認できた。また、6月19-21日の間に、汚染塊が日本海を北東方向へ移動することがモデル実験で示され、この汚染塊の広域的輸送影響が示唆された。この期間について、オゾン濃度に関しては、日本の排出量の影響に加えて中国中央部及び韓国の影響を受けている可能性が、また、SO₄²⁻に関しては、中国中央部の影響が大きい可能性がモデル実験によって示された。

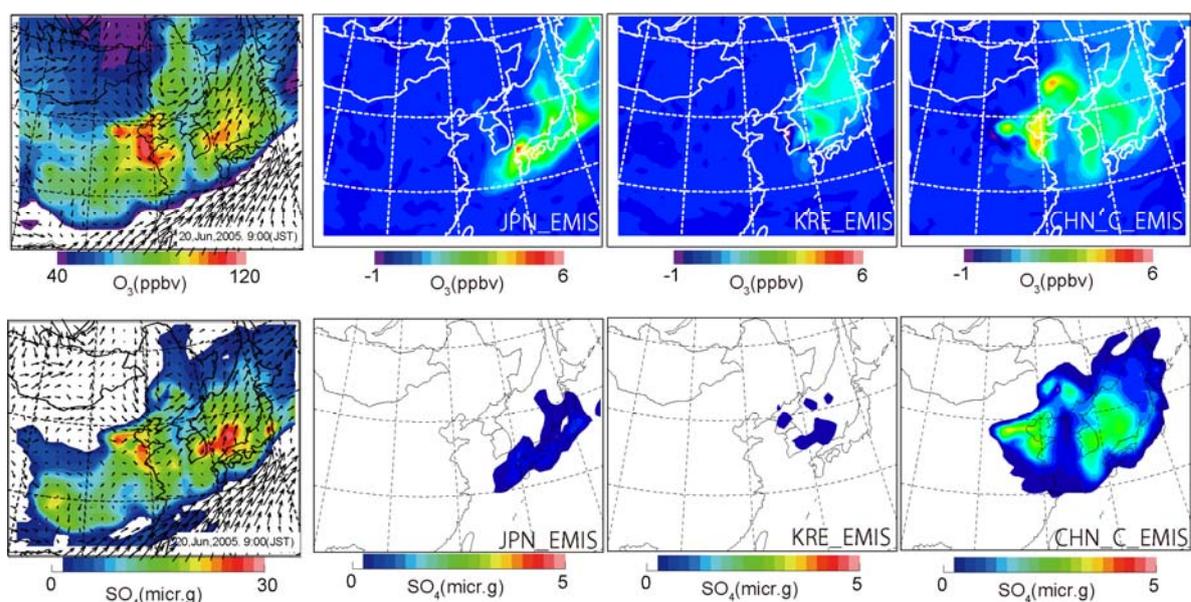


図4-1-7 平成17年6月20日午前9時(日本時間)の高濃度イベント時のモデル解析例、JPN_EMIS (日本の排出量の影響)、KRE_EMIS (韓国の排出量の影響)、CHN_C_EMIS (中国中央部の排出量の影響)

【数値モデルによる観測値の再現性の評価について】

①平成 17 年オゾン濃度の観測値と数値モデル計算値の比較

国内 EANET 局においてオゾン濃度の 1 時間値の観測値と領域モデル計算値を比較したところ、オゾン濃度の季節変動特性や遠隔観測地（伊自良湖、蟠竜湖以外の局）におけるオゾン濃度の 1 時間値を良好に再現できていた（図 4-1-8）。

一方、非遠隔地（伊自良湖、蟠竜湖）については、ここで使用した数値モデルは空間解像度が 80km と大きく、観測地近傍の排出量の影響を考慮できないため、夜間のオゾン濃度減少を表現できていないことがわかった。北日本域（利尻、竜飛）については、領域モデルの境界に近いことから、特に冬季において、境界濃度の設定に起因すると思われる数値モデルの系統的なオゾン濃度の過小評価が見られた。

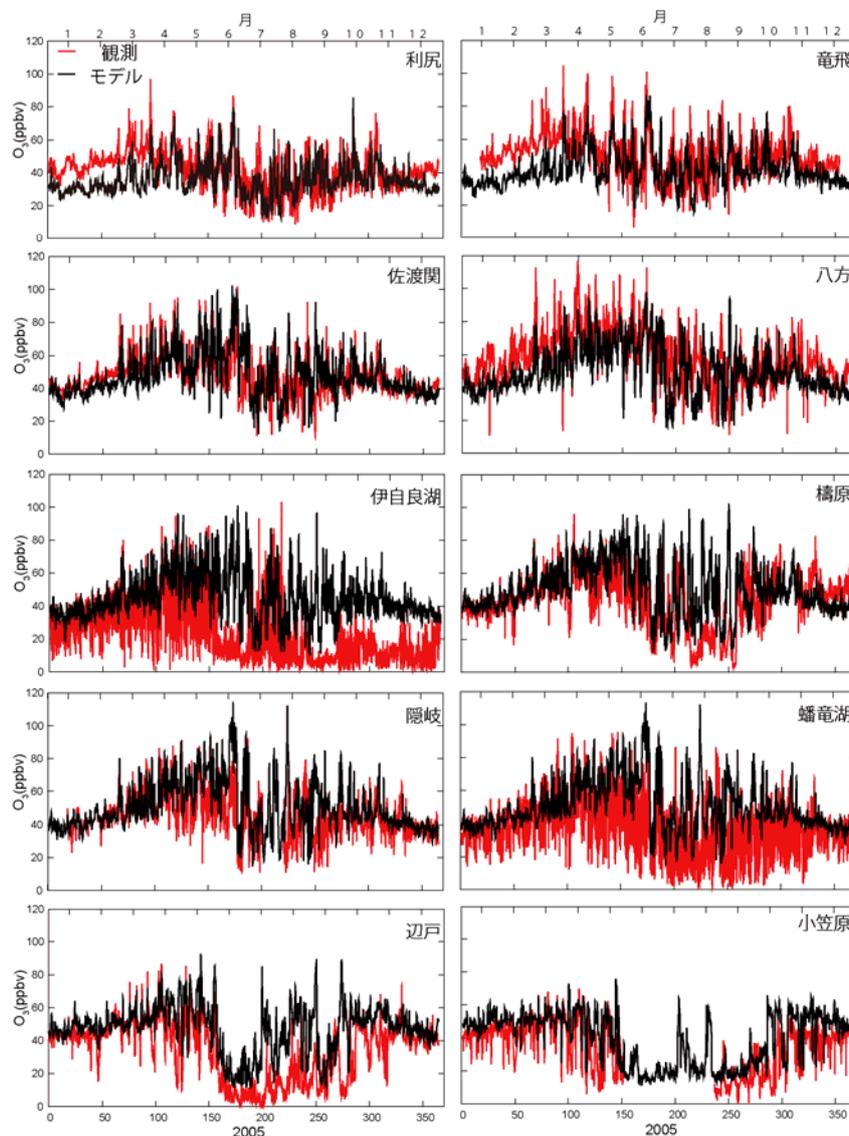


図 4-1-8 国内 EANET 局におけるオゾン濃度の 1 時間値の観測値とモデル計算値の比較（平成 17 年）

②平成17年PM_{2.5}濃度の観測値と数値モデル計算値の比較

利尻及び隠岐においてPM_{2.5}濃度の1時間値の観測値と領域モデル計算値を比較したところ、年間を通して、領域モデルはPM_{2.5}濃度を過小評価していた(図4-1-9)。一方、領域モデルは5～6月にかけて見られるようなPM_{2.5}の高濃度イベントを概ね再現できていた。

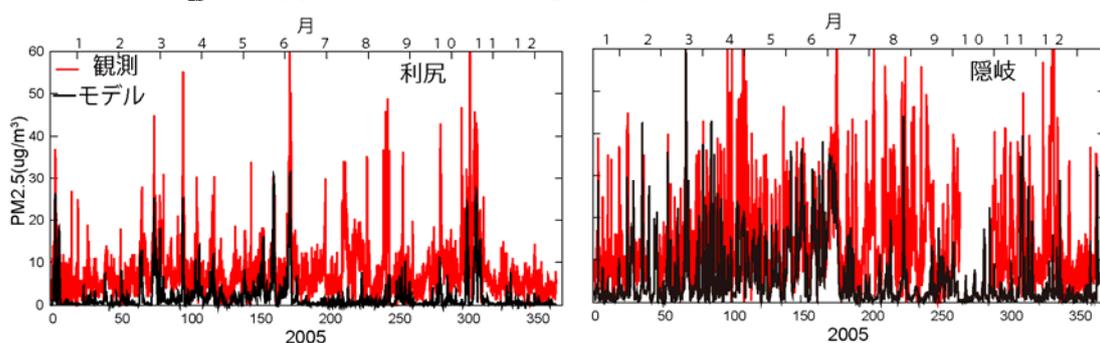


図4-1-9 利尻及び隠岐におけるPM_{2.5}濃度の1時間値の観測値とモデル計算値の比較(平成17年)

②近年の中国華北平原のNO₂カラム濃度変化と日本遠隔地域のオゾン濃度変化

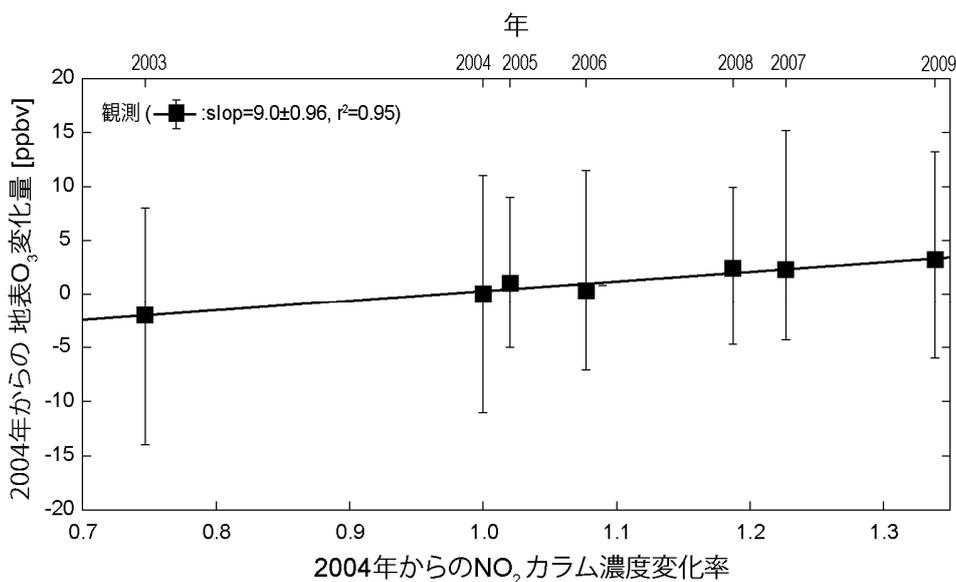


図4-1-10 中国華北平原の衛星NO₂カラム濃度(4月の月平均値)と国内EANET局遠隔地域のオゾン濃度(4月の中間値)の変化量³⁾

NO₂カラム濃度は2004(平成16)年に対する相対値、オゾン濃度の変化量は2004年を基準とした増減値で示した。

図4-1-10には、2003～2009(平成15～21)年の間の、春季の中国華北平原における衛星観測によるNO₂カラム濃度(地表から上空までの全NO₂濃度の積算値)変化と国内EANET局遠隔地域(8局)のオゾン濃度変化の関係を示す。オゾン観測濃度は地点によってばらつきが大きいものの、2004(平

成 16) 年を基準とした中国華北平原の NO₂ カラム濃度変化率 (x 軸) と遠隔地域のオゾン濃度 1 ヶ月中間値の変化量 (y 軸) に正の相関が存在し、中国華北平原での NO₂ カラム濃度が 10% 増減した場合に日本遠隔地域のオゾン濃度も 0.9 ppbv 増減していることがわかる。このことは大陸からの汚染物質の輸送により、遠隔地域のオゾン濃度が増加していることを示唆している。さらに、排出量感度モデル実験によって、このオゾン濃度の増加のうちの 60% は人為的な前駆物質の排出量の増加によるものと推定された。一方、人為的な排出量の感度のみを評価するモデル実験では、残りの 40% は説明できなかった。

(引用文献)

- 1) Network Center for EANET (2011) EANET Data Report 2010.
- 2) Yamaji, K., Ohara, T., Uno, I., Tanimoto, H., Kurokawa, J., and Akimoto, H. (2006) Analysis of the seasonal variation of ozone in the boundary layer in East Asia using the Community Multi-scale Air Quality model: What controls surface ozone levels over Japan?, *Atmos. Environ.*, 40(10), 1856-1868.
- 3) Yamaji, K., Uno, I., Irie, H. (2012) Investigating the response of East Asian ozone to Chinese emission changes using a linear approach, *Atmos. Environ.* (in press)

4.2. オゾン等による植物影響の可能性

4.2.1. 樹木衰退とオゾン：丹沢山地のブナ衰退実態とオゾンの影響（レビュー）

(1) はじめに

丹沢山地(図 4-2-1 中の赤線枠内)では, 1960 年代から大山のモミの衰退現象が指摘され, 1980 年代からは山頂や尾根筋を中心にブナの衰退が進行している²⁾。丹沢山地のブナ衰退要因に関して, 様々な要因が指摘されているが, 丸田ら³⁾は 1994~1995 年に実施された調査結果を基に, 高濃度オゾンの影響を指摘している。このような指摘を基に, 武田・相原⁴⁾は, 西丹沢(犬越路)地点において小型オープントップチャンバー(OTC)を用いて, 浄化・非浄化空気によるブナの暴露試験を行い, オゾンがブナの落葉(老化)を促進し, 成長を抑制している可能性を実験的に明らかにしている。

丹沢山地内の西丹沢(犬越路: 標高 920m) 地点ではオゾンの連続観測が 1995 年~2000 年度に実施されており, 年平均値として 42~46ppb, 1 時間値の最高値として 136~176ppb が記録されている⁵⁾。また, 実際に衰退が観察される地点を中心に丹沢山地内にパッシブサンプラーを配置し, 実態把握が行われている⁶⁾。ここでは, 相原らの報告⁸⁾以降に得られた知見を加えて丹沢山地におけるブナ衰退の実態とオゾン濃度やオゾン曝露量等との関連性を中心に概略を整理した。

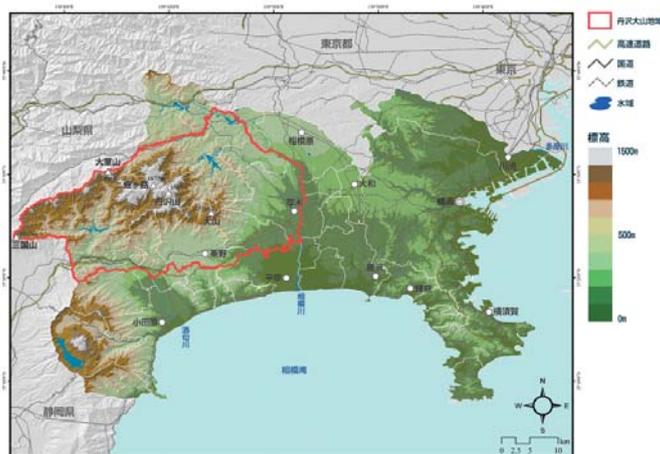


図 4-2-1 丹沢山地¹⁾

(2) ブナの衰退状況

丹沢山地では, 1990 年代以降, ブナ林の衰退実態やその原因の解明に向けた様々な調査研究が進められてきた¹⁾⁹⁾。衰退実態に関しては, 越地ら²⁾が, 戦後以降の空中写真を時系列的に判読して丹沢のほぼ全域の冷温帯林を対象にモミやブナの枯死の発生状況を調べ, 天然林の約 3 割の範囲に枯死木が分布するが, 特に丹沢山, 蛭ヶ岳, 檜洞丸の各山頂付近に多いこと, 枯死は 1970~1980 年頃にまとまって発生し, その後も続いていること, などを明らかにしている。また, 大室山から檜洞丸, 蛭ヶ岳, 丹沢山, 塔ノ岳, 鍋割山を結ぶ主稜線部では, 高標高地の森林群落に衰退が目立ち, 鞍部や急傾斜地になるところで特に衰退が著しいこと, 風衝地では風上側における衰退度が大きいことが指摘されている¹⁰⁾。

山根ら¹¹⁾は, 2002~2004 年に実施した現地踏査に加えて GIS 植生図と衛星画像を組み合

わけてブナ衰退の時系列的な変化を解析し、ブナ林の衰退は丹沢山地のブナ林全体に認められること、地区により進行状況が異なっていることを明らかにしている（図 4-2-2）。鍋割山、塔ノ岳、丹沢山、蛭ヶ岳など、東丹沢から丹沢中央の標高が 1400m を超える主稜線部にかけてブナの衰弱・枯死が激しく、衰退が少ないのは、西丹沢の大室山、城ヶ尾峠、菰釣山や、東丹沢の北側に位置する丹沢三峰山稜、堂平などである。空中写真の時系列的な解析からは、檜洞丸から塔ノ岳の一带にかけての主稜線部では、1980 年以降に少なくとも 17ha のブナを含むと考えられる森林が消失し、草地化したことも指摘されている¹²⁾。

地形条件との関係では、衰退の進んだ地点は、高標高の尾根付近の南向きの斜面が多く、尾根及び斜面上部での割合が高い。さらに、衰退の進んだ丹沢山と檜洞丸の山頂一帯での集中的な調査結果を GIS 植生図や地形図などと重ね合わせて検討した結果によれば、衰退は、ブナを含む落葉広葉樹の高木に一樣に及ぶのではなく、ブナで衰退が目立つこと、南から西向き斜面のブナ林に衰退の進んだブナが多い傾向などが明らかになっている¹¹⁾。

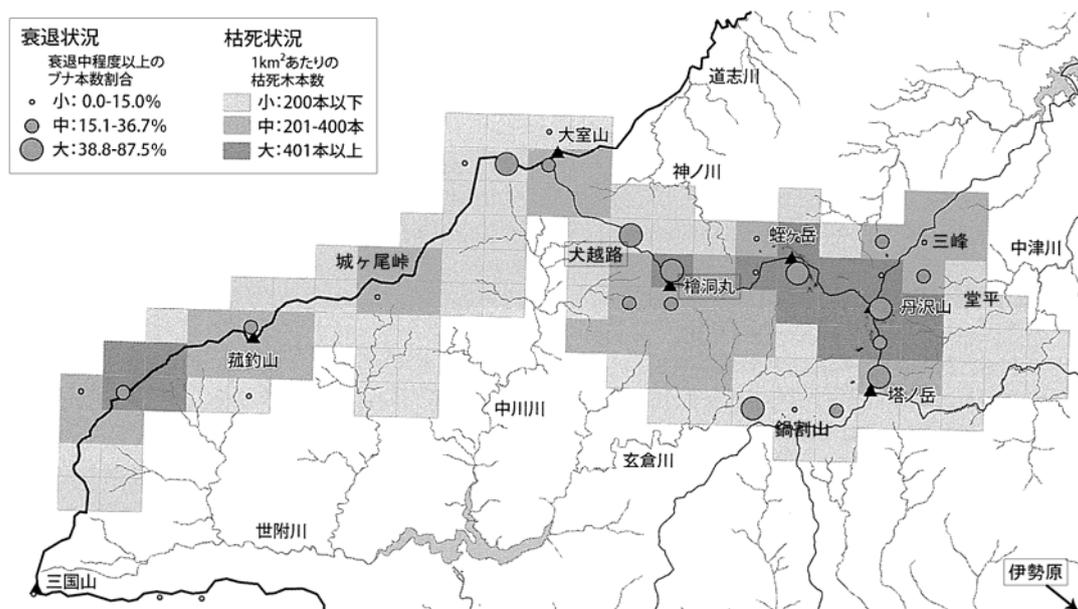


図 4-2-2 丹沢山地におけるブナの衰退状況¹¹⁾（河野改編）

衰退状況：2002～2004 年のブナの調査結果、枯死状況：1980 年代の空中写真解析に基づくブナを含めた枯死木調査の結果

(3) 丹沢山地におけるオゾン濃度

① 日変化

河野ら¹³⁾が檜洞丸地点において2004年8月～2006年7月までの2年間に観測したオゾン濃度の1時間値の最高値は2005年9月1日の119ppbであった。この日の経時変化を図4-2-3に示した。山麓に位置する伊勢原では15時に最高値147ppbが記録され、西丹沢(犬越路)においても同時刻に134ppbが記録されている。檜洞丸では同時刻に118ppbが記録されているが、一旦濃度がわ

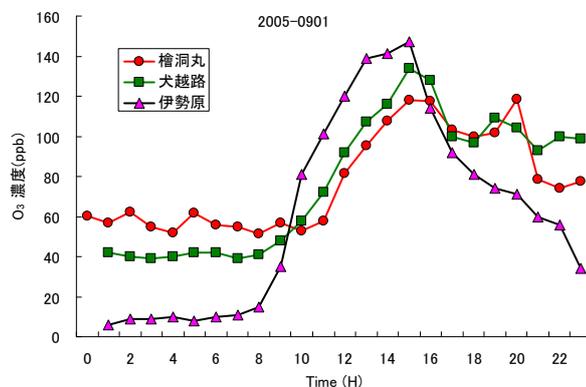


図4-2-3 最高濃度出現日(2005年9月1日)

ずかに低下した後、20時に最高値119ppbが記録されている。しかし、この最高値は、阿相ら⁵⁾が1995～2000年度に西丹沢(犬越路)において記録した最高値176ppb(1998年度)よりも大幅に低い値であったことから、ピーク濃度の出現状況は年度間変動が大きいことが想定される。

② 年平均濃度

河野ら¹³⁾によれば、上述した檜洞丸地点における24時間平均値(日平均値)、日中12時間平均値(6時～18時)及び日中8時間平均値(9時～17時)の年平均値は、表4-2-1に示したとおり、ほとんど差が見られない。また、檜洞丸と西丹沢(犬越路)地点にはほとんど差異が見られないが、伊勢原の場合には24時間値の年平均値は西丹沢や檜洞丸よりも低い傾向にある。また、24時間平均値で見ると伊勢原の年平均値は西丹沢及び檜洞丸地点における年平均値の約1/2の濃度レベルであり、高標高地点では夜間のオゾン濃度が高いことが特徴として指摘されている。

表4-2-1. 丹沢山地におけるオゾンの年平均濃度

地点	日平均	日中12時間平均	日中8時間平均
ppb			
檜洞丸	42.7	41.7	42.0
犬越路	40.4	42.4	43.3
伊勢原	21.9	28.5	32.0

注. 2004年及び2005年の平均; 日平均(24時間); 12時間平均(6～18時); 8時間平均(9～17時)。

③ 季節変化

檜洞丸及び伊勢原について、日報から毎月の時間毎の平均値を求め、3ヶ月毎に平均して季節別のオゾン濃度を求めた結果によれば、オゾン濃度は春季に高く、標高の高い檜洞丸地点では特に冬季の日内時間変動がほとんど見られないことが確認された(図4-2-4)。

また、平地部の伊勢原地点では日中にピークが見られる典型的な日変化パターンが見られ、春季以外の3季の深夜から早朝にかけての濃度は約10ppbであった。これに対して、檜洞丸地点では深夜から早朝にかけての濃度が伊勢原地点よりも高く、標高の高い地点では山型の日変化パターンが見られない傾向にあることが報告されている¹³⁾。

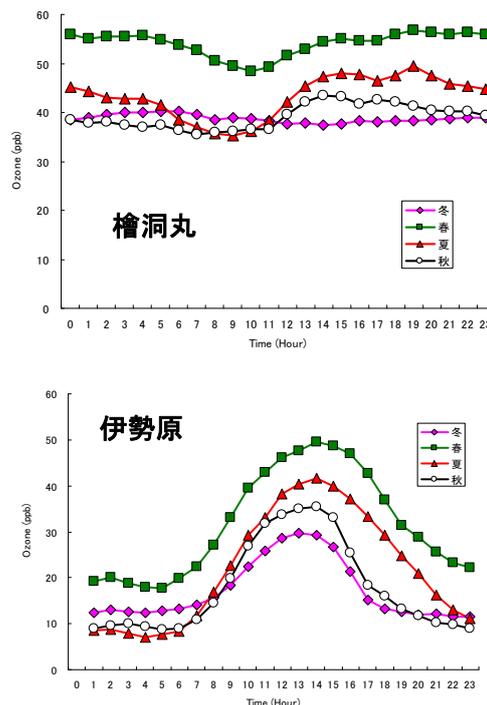


図4-2-4 檜洞丸と伊勢原地点における季節別オゾン濃度の変化(冬:2004年12月～2005年2月、春:2005年3月～5月、夏:2005年6月～8月、秋:2005年9月～11月)

④ AOT40 (Accumulated exposure Over a Threshold of 40 ppb)

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40ppbを超えた部分(差分)を積分した値である。したがって、1時間値が40ppbを超えなければAOT40の値はゼロとなる¹⁴⁾¹⁵⁾。

上述した2年間の檜洞丸地点における4～9月の6ヶ月間の積算平均AOT40(24h、12h、8h)はそれぞれ46、20、14ppm・h、西丹沢(犬越路)地点では36、22、15ppm・h、伊勢原地点では18、15、11ppm・hであった¹³⁾。檜洞丸、西丹沢(犬越路)及び伊勢原の3地点とも日中のAOT40は概ね類似しているが、夜間～早朝については伊勢原地点ではオゾン濃度が40ppb以下になるため、AOT40の値は積算されない。このため、伊勢原地点のAOT40は低い値となっている。

一方、AOT40が特に高い時期は4～6月の期間であり、7月以降は急激に低下する傾向にある。丹沢山地におけるブナの芽吹きから落葉までの着葉期間(5月～9月)におけるAOT40(日中12h)は、檜洞丸地点で概ね15ppm・hで、西丹沢(犬越路)では17ppm・h、伊勢原では12ppm・hであった。ブナに対するオゾンの暴露実験結果から、ブナの成長が抑制されるクリティカルレベルは、4～9月までの6ヶ月間を対象としたAOT40(12h)で表示した場合に17ppm・hである¹⁶⁾。したがって、丹沢山地に分布するブナは、このクリティカルレベルに近いオゾンの潜在的なストレスを受けていることが想定されている。さらに、Matyssekら¹⁷⁾は、日中暴露のみならず夜間暴露によっても樹木の成長が抑制され、その抑

制の程度はオゾン曝露量に比例することを指摘している。この指摘が日本のブナにも適用できると考えた場合、AOT40(24h)の値を見ると、檜洞丸周辺のブナは5～9月の間にクリティカルレベルの2倍を超えるオゾン曝露を受けていることになり、オゾンの影響は非常に大きい可能性が示唆されている¹³⁾

(4) 風速、オゾン濃度と地形との関係

数値解析モデルによると、風速は地表の起伏に応じて増減し、稜線又は峰の頂上部付近で極大となる。ブナの衰退地点は峰の頂上部付近の南側斜面に集中しているが、これは地形に起因して風速が増加する地点と対応していることから、衰退現象の局所性は局地風の影響を強く受けている可能性のあることがSutoら¹⁸⁾によって指摘されている。また、尾根付近では主風向のわずかな変化によって風速が変化することから、樹木への長期的影響を評価するためには、年間を通じての風向の変化に十分に配慮する必要があることも指摘されている^{13) 18)}。

地表付近におけるオゾン濃度は山の風上側斜面でかつ高標高ほど高くなるが、濃度の空間的な変化は非常に小さく、風上側の地形の影響を受けやすい傾向にある。一方、地表面に平行に輸送されるオゾン量を表すオゾンの移流フラックスは、樹木に及ぼす風速と濃度の複合影響を評価するための指標の一つになると考えられている。濃度の空間変化は風速の変化に比べて非常に小さいため、移流フラックスは風速分布と非常に類似したものとなる。樹木に対して、風とオゾンが相乗的に（フラックスとして）影響するかどうかについてはこれまで十分な実験的検討がなされていないが、オゾン濃度よりも移流フラックスとして評価した方が衰退状況との対応が良好であることが指摘されている^{13) 18)}。

また、西丹沢（犬越路）地点と檜洞丸地点を比較した場合や、山頂や稜線沿いでも南側斜面と北側斜面においてオゾン濃度やAOT40に大きな差異が見られないのにブナの衰退度に顕著な差異がみられる原因の一つとして、西丹沢（犬越路）地点、稜線や山頂の北側では主風向の風速が小さいため、移流フラックスに大きな差異があることが考えられる^{13) 18)}。

(5) 酸性沈着等の影響

丹沢山地における大気中のNO_x濃度は極めて低い²⁹⁾が、林外における窒素の総沈着量は約12kg/ha/年の負荷がある³⁰⁾。これに葉に捕捉された窒素が酸性の降雨や霧水とともに洗い落とされて加わるため、ブナ林への窒素負荷量はこの数値よりも大きく、ブナ林は窒素過多あるいは窒素飽和状態になっている可能性もある^{31) 32)}。また、Shigiharaら³³⁾は、ブナに対してpH3とpH5の人工酸性霧を暴露した結果、pH5よりもpH3で落葉が促進されること、幹中へのデンプンの蓄積が減少したことから、慢性的に酸性霧に暴露されることによってブナの生理活性が低下し、成長が抑制されている可能性があるとして指摘している。また、ブナは窒素負荷量が増加するとオゾンの悪影響が加速される^{16) 34)}。しかし、これまでに報告されているオゾンや、酸性雨又は酸性霧やミストの暴露実験結果から、現状で観察される

高濃度や高曝露量のオゾン、降水の酸性度はブナの成長抑制や葉内物質の溶脱の促進をするものの、個体を直接枯死するまでに至るほどのストレスではないと考えられる。

(6) ブナハバチ等による食害の影響

丹沢山地のブナは太平洋型ブナ林を代表するもので、日本海型ブナ林に比べ積雪量が少ないことやブナの優占度が低いことなどからブナの更新が困難な条件下にあり、これに高密度のシカによる食害がなくなならない限りブナ林としての維持は難しいと島野²⁸⁾は指摘している。

また、ブナの衰退の一因として、害虫の発生も考えられる。ブナの食葉性害虫としてはブナアオシャチホコの大発生が報告されている¹⁹⁾が、ハバチ類によるブナの食害としては、これまでブナヒメハバチによるものが報告されている²⁰⁾。

丹沢山地では1993年に丹沢山頂付近でハバチの大発生したことが記録され²¹⁾、このハバチは新種のブナハバチとして報告された²²⁾。ブナハバチ食害の特徴は、大発生時にはブナの葉を全て食い尽くす激害型被害が発生しやすいこと、同じ個体が繰り返しの連年被害を受けやすいことから、これによって急激な樹勢低下が進み、ストレス抵抗力の弱い個体から衰弱枯死していくことなどが指摘されている²³⁾²⁴⁾²⁵⁾。

山上ら²⁶⁾が、堂平から丹沢山頂にかけてマーキングした激害ブナの春の芽吹き状況を調査した結果によれば、ブナハバチによる全失葉を伴う激害を受けたブナ個体は、翌年以降の春の芽吹きが遅れる傾向にある。これらの結果を基に、ブナハバチ食害が引き起こすブナ枯死のメカニズムとして、山上ら²⁶⁾はオゾンなどの大気汚染物質、シカの摂食圧による林床植生退行に伴う土壌の乾燥化及びブナハバチ食害などの複数のストレス要因が関与して衰弱したブナ個体は、翌年春の芽吹きが遅れ、そこにブナハバチが集中して産卵する。集中産卵されたブナは高密度の幼虫に摂食され、全失葉する激害を受け、翌年の芽吹きは再び遅れる。こうして短期間に繰り返しブナハバチによる激害を受け、枯死に至ると推察している。

なお、丹沢山地ではブナアオシャチホコの発生が1917年に記録されているが、2005年に88年ぶりに西丹沢で大発生した。被害は標高900m～1300mまでの地域で数ha規模のもので、2006年も大発生が予想されたが低密度の発生に終わり、2007年もほとんど発生しなかったことからブナアオシャチホコの発生は一過性のものであると考えられている²⁷⁾。

一方、食葉性のブナハバチ幼虫による葉の食害は慢性的な衰弱木に発生する傾向にあるとともに、繰り返しの食害が個体の枯死に直結している可能性が高い。また、シカによる林床植生の採食により土壌侵食が促進されるなど丹沢山地のブナ林は極めて劣悪な環境条件になっている³⁵⁾³⁶⁾。シカの食害により林床植生が破壊され、乾燥化が進行するとともに、ブナハバチによる食害がブナの衰退を加速、枯死させるため、樹冠の隙間が拡大する。これにより林内風速が高くなるためオゾンの移流フラックスも増加し、加速的に衰退が進行している可能性が考えられる。

4.2.2. オゾンによる植物影響の要監視地域の抽出方法の検討

(1) はじめに

近年、日本列島全体におけるオゾン濃度は上昇傾向にあり、前節でも述べたように、高濃度オゾンによる影響を窺わせる樹木衰退の事例も報告されている。

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。

以上のことから、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、大気中のオゾン濃度や植生の感受性を考慮した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。本節では、近い将来に本格実施が期待される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、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。

(2) 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。生物調査 3 次メッシュデータ³⁷⁾を基に 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）を選択し、各グループの分布域におけるオゾン影響の評価を実施した。作物については、今後の課題とした。

② AOT40 を用いた成長低下率の推定

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¹⁾。以下に、本報告で用いた渡辺らによる成長低下率推定式^{38)、39)、40)、41)、42)}を示す。

- スギの成長量の相対値 = $-0.047 \times (\text{AOT40})$
- アカマツの成長量の相対値 = $-0.144 \times (\text{AOT40})$

¹⁾ 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。

- カラマツの成長量の相対値= $-0.201 \times (\text{AOT40})$
- ブナの成長量の相対値: $-0.141 \times (\text{AOT40})$
- コナラの成長量の相対値: $-0.079 \times (\text{AOT40})$
- スダジイの成長量の相対値: $-0.231 \times (\text{AOT40})$

成長低下率推定式では係数が小さい（絶対値が大きい）ほどオゾンによって成長が低下しやすいことを示す。渡辺ら⁴²⁾によれば、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、オゾンに対する感受性が最も低い植生はスギであった。

③ AOT40 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²⁾した。今回の実験では滝川らの設定⁴³⁾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。2007 年から 2009 年の 4 月から 9 月の期間における AOT40 を成長低下率のマッピングに用いた。

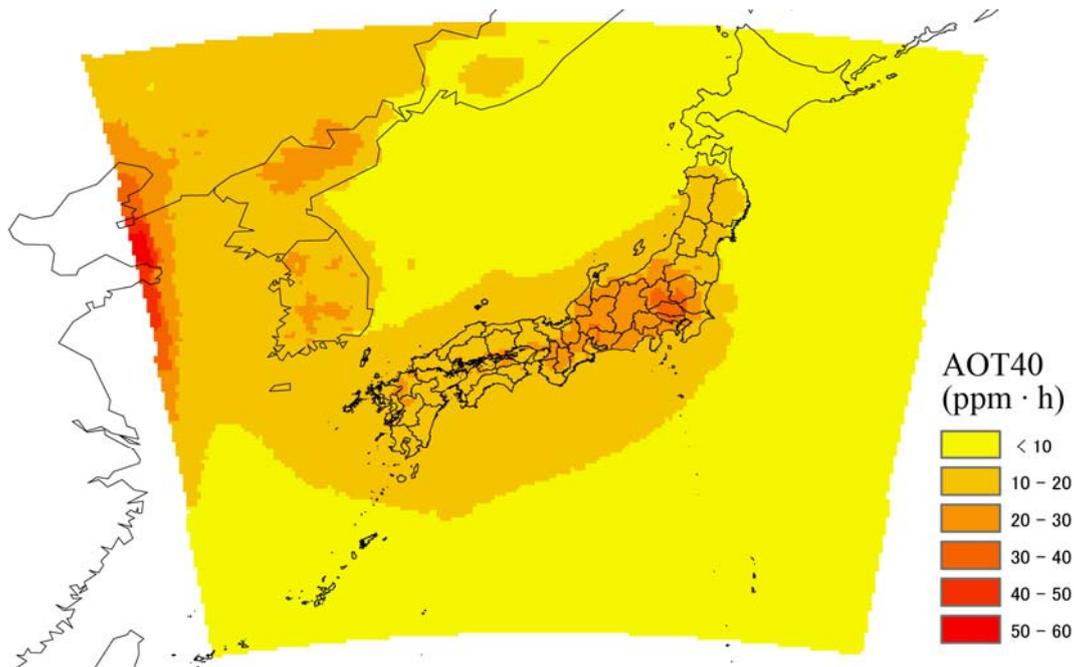


図 4-2-5 2007-2009 年における AOT40 のモデル推定結果（4 月～9 月の 6:00～18:00 におけるオゾン濃度積算値）

²⁾ 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。また夜間を除き接地境界層内部に 10 から 15 層程度含まれている。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 EAggrid2000 をそれぞれ利用した。また低解像度(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。

④ 成長低下率のマッピング

AOT40 当たりの成長低下推定式及び AOT40 推定分布図より、各植生グループの成長低下率を推定した。これらをもとに色分けしてマッピングすることにより、要監視地域の抽出を行った。

(3) 結果の概要

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、スギ以外の樹種では予測される成長低下率が 2.5% を超える地域が一部で見られた。特に関東地方のコナラ、北陸地方・新潟・群馬北部および関東西部のブナ、九州北部・北陸及び東海沿岸のスタジイ、長野、関東北部および福島のカラマツ、中部地方及び関東地方のアカマツで高い成長低下率が予測された。例としてブナとスギの成長低下リスクレベルの全国分布を図 4-2-6 に示した。色がついている地域はブナ又はスギが主としてその地域に分布していることを示し、色分けは成長低下率を示す。空白の地域はブナ又はスギが主としてその地域に分布していないことを示す。

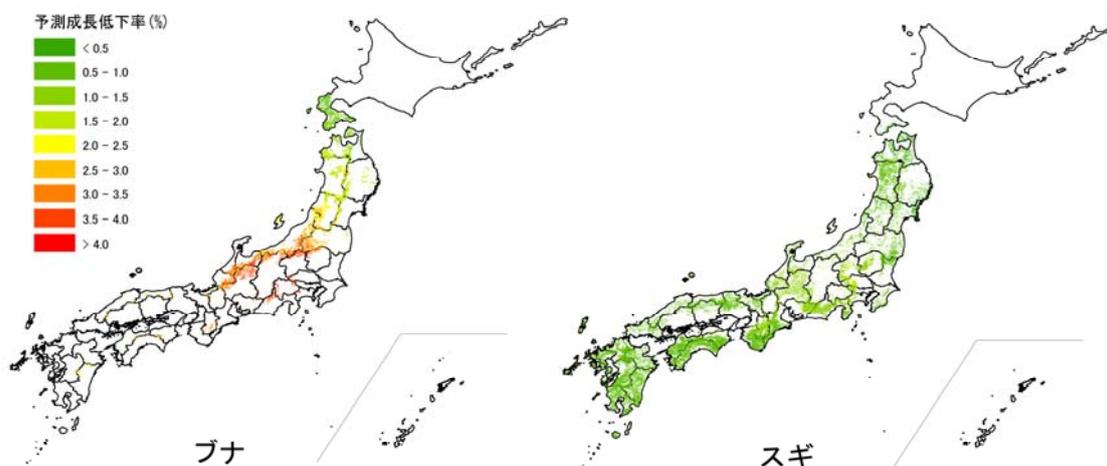


図 4-2-6 オゾンによる予測成長低下率の分布（左図：ブナ、右図：スギ）

(4) 今後の検討課題

① 要監視地域における衛星データの活用について

衛星データから得られる情報は、オゾン影響に特有なものではないが、フェノロジー（植物季節）や生理活性の状況を評価する上では、有用であると考えられる。上記作業から抽出される要監視地域において、衛星データを活用した追加的評価を検討する必要がある。

② オゾン吸収量による評価

将来的には、曝露量だけではなく、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、樹木及び作物において、全国的な評価は困難である。

4.2.3. オゾン植物影響に関するパイロット・モニタリングの開始

(1) はじめに

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。4.2.1節でも論じたように、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、関連自治体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。

(2) オゾン植物影響（パイロット）モニタリングの基本設計について

平成22年度までの検討結果、以下のような基本設計が提言された。

- ① 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。
- ② 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。気象計等の追加機器整備についても検討する。
- ③ 上記ステーション周辺に観測プロットを設定し、パッシブサンプラー法によるオゾン濃度測定や樹木活性等の測定・観察を実施し、当該地域のオゾン濃度と樹木応答に関する実態をより明確化する。具体的な観測項目の候補は以下のとおり。
 - パッシブサンプラー法によるオゾン濃度測定
 - 可視障害観察
 - フェノロジー（植物季節）の観察：展開、落葉の時期の記録等。

- 樹木活性の測定：SPAD 葉緑素計による測定
- 樹木成長量の測定：デンドロメータ（周囲長計）の設置による樹幹肥大成長量の測定

（3）パイロット・モニタリングの開始

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 4-2-7）。

- 摩周湖外輪山：北海道
- 八海山：新潟県
- 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。

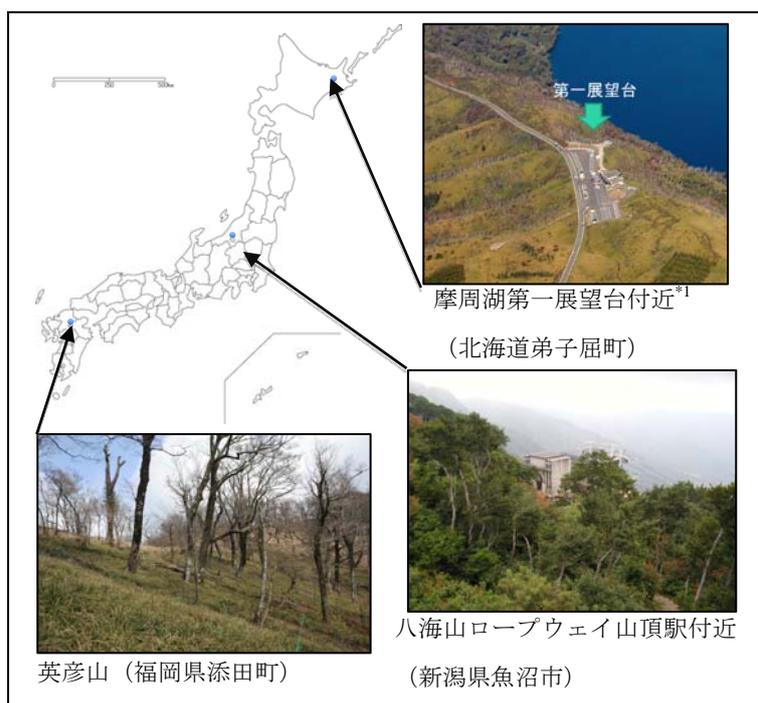


図 4-2-7 オゾンによる植物影響評価のためのパイロット・モニタリング実施地点^{*1}、写真は国立環境研究所提供

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	摩周湖	八海山	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
標高	555m	1,147 m	790 m
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。	標高 1,140 – 1,180 m 付近の北岳南北斜面に おいて、ブナの枯死又 は衰退が認められる。
オゾン自動測 定の開始	平成 23 年 10 月 17 日	平成 23 年 7 月 14 日	平成 23 年 7 月 28 日

パイロット・モニタリングは、平成 23 年夏季より開始し、初年度においては、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こととした。また、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。周辺観測プロットにおける樹木活性・成長量調査等は、順次検討することとしている。

(4) オゾン植物影響モニタリング手法の確立にむけて

上記パイロット・モニタリングにおいては、北海道、新潟県、福岡県の代表的な山岳・森林地域におけるオゾン濃度の実態が明らかになり、併せて周辺樹木の状況も整理されることが期待される。さらに観測プロットにおける樹木活性調査等を進めることにより、オゾン濃度との関連性等から、モニタリングすべき項目が明確化され、オゾンによる植物影響に特化したモニタリング手法が確立され、平成 26 年度を目途に定常的なモニタリングが開始されることが望まれる。

引用文献：

- 1) 丹沢大山総合調査団 (2007) 丹沢大山総合学術調査報告書. (財)平岡環境科学研究所
- 2) 越地正, 鈴木清, 須賀一夫 (1996) 丹沢山地における森林衰退の調査研究 (1) ブナ, モミ等の枯損実態. 神奈川県森林研究所研究報告 22:7-18.

- 3) 丸田恵美子, 志摩克, 堀江勝年, 青木正敏, 土器屋由紀子, 伊豆田猛, 戸塚績, 横井洋太, 坂田剛 (1999) 丹沢・檜洞丸におけるブナ林の枯損と酸性降下物. *環境科学会誌* 12(2):241-250.
- 4) 武田麻由子, 相原敬次 (2005) 丹沢山地の環境オゾンがブナ苗におよぼす影響. 神奈川県環境科学センター研究報告 28:88-89.
- 5) 阿相敏明, 武田麻由子, 相原敬次 (2001) 西丹沢における酸性雨及び大気汚染物質の汚染状況. 神奈川県環境科学センター研究報告 24:82-89.
- 6) 阿相敏明, 中嶋伸行 (2004) 丹沢のブナ林衰退に係る檜洞丸におけるオゾン濃度分布調査. 神奈川県環境科学センター研究報告 27: 113-115.
- 7) 阿相敏明, 内山佳美, 齋藤央嗣 (2005) 丹沢のブナ衰退の機構解明のためのオゾン濃度分布調査. 第46回大気環境学会年会講演要旨集, 386.
- 8) 相原敬次, 阿相敏昭, 武田麻由子, 越路正 (2004) 森林衰退の現状と取り組み (II) 神奈川県の丹沢山地における樹木衰退現象. *大気環境学会誌* 39(2):A29-A39.
- 9) 神奈川県 (1997) 丹沢大山自然環境総合調査報告書. 神奈川県環境部.
- 10) 星直斗, 山本詠子, 吉川菊葉, 川村美岐, 持田幸良, 遠山三樹夫 (1997) 自然林の現状とその保護 丹沢山地の自然林. 175-257, 丹沢大山自然環境総合調査報告書, 神奈川県環境部.
- 11) 山根正伸, 相原敬次, 鈴木透, 笹川裕史, 原慶太郎, 勝山輝男, 河野吉久, 山上明 (2007) ブナ林の再生に向けた総合解析. 703-710, 丹沢大山総合学術調査報告書, (財)平岡環境科学研究所
- 12) H. Sasakawa, M. Yamane, T. Yoshida, K. Hara, T. Suzuki and N. Kamagata(2005) Identifying declining forests – A case of beech forests in Tanzawa Mountain. D2-P27, Proceedings of ACRS2005.
- 13) 河野吉久, 須藤仁, 石井孝, 相原敬次, 内山佳美 (2007) 丹沢山地周辺のオゾン濃度の実態とブナに対する影響. 383-395, 丹沢大山総合学術調査報告書, (財)平岡環境科学研究所
- 14) 伊豆田猛, 松村秀幸 (1997) 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* 32 (6) :A73-A81.
- 15) 電中研 (2001) 酸性雨の総合評価, 電中研レビュー43. (財)電力中央研究所.
- 16) 河野吉久 (研究代表者) (2006) 環境省地球環境研究総合推進費終了研究成果報告書『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) 』
- 17) R. Matyssek, M. S. G-Goerg, S. Maurer, and T. Keller (1995) Nighttime exposure to ozone reduces whole-plant production in *Betula pendula*. *Tree Physiol.* 15: 159-165.
- 18) H. Suto, Y. Hattori, N. Tanaka, and Y. Kohno (2008) Effects of strong wind and ozone on localized tree decline in the Tanzawa Mountains of Japan. *Asian J. Atmos. Environ.* 2(2): 81-89.

- 19) 鎌田直人, 五十嵐正俊, 金子繁, 菱谷文雄 (1989) ブナアオシヤチホコの食害に伴うブナの大量枯損とその後の経過. *森林防疫*, 38 : 144-146.
- 20) T. Okutani (1959) Three new species of priophorus from Japan. *Transactions of the Shikoku Entomological Society* 6(3): 36.
- 21) 山上明, 林長閑, 谷晋 (1997) ブナ枯れ木穿孔性昆虫類の種組成と密度. 289-305, 丹沢大山自然環境総合調査報告書, 神奈川県環境部.
- 22) A. Shinohara, V. Vikberg, A. Vinovjev and A. Yamagami (2000) *Faginerura cretativora*, a new genus and species of sawfly injurious to beech trees in japan. *Bull. Natn. Sci. Mus. Tokyo, Ser.A.* 26(3): 113-124.
- 23) 越地正 (2002) 丹沢山地におけるブナハバチ大発生の経過とブナの被害実態. 神自環保セ研報, 29 : 27-34.
- 24) 越地正, 田村淳, 山根正伸 (2006) 丹沢山地におけるブナハバチの加害と影響に関するブナ年輪幅変動の解析. 神奈川県自然環境保全センター研究報告 3:11-24.
- 25) 越地正, 谷脇徹, 田村淳, 山根正伸 (2008a) 丹沢山地における2007年に大発生したブナハバチ被害とこれまでのブナの衰弱枯死経過. 神自環保セ報, 5 : 3-9.
- 26) 山上明, 谷晋, 伴野英雄 (2007) ブナハバチ食害によるブナ枯死とブナ林の衰退. 256-268, 丹沢大山総合学術調査報告書, (財)平岡環境科学研究所
- 27) 越地正, 田村淳, 藤澤示弘, 高橋長三郎, 山根正伸 (2008b) 西丹沢に発生したブナアオシヤチホコの被害. 神自環保セ報, 5 : 11-13.
- 28) 島野光司 (1999) 丹沢のブナ林, その現状と将来. *生態環境研究*, 6(1) : 103-111.
- 29) 井川学, 永池英佑, 中山槿子, 松本潔, 内山佳美 (2007) 丹沢山塊における微量ガス成分の濃度分布. 403-404, 丹沢大山総合学術調査報告書, (財)平岡環境科学研究所
- 30) 戸田浩人, 白木克繁, 石川芳治, 内山佳美, 鈴木雅一 (2007) 大洞沢の降雨水質. 400-402, 丹沢大山総合学術調査報告書, (財)平岡環境科学研究所.
- 31) M. Igawa, K. Matsumura, and H. Okochi (2001) Fog water chemistry at Mt. Oyama and its dominant factors. *Water Air Soil Pollut.*, 130: 607-612.
- 32) H. Okochi and M. Igawa (2001) Elevational patterns of acid deposition into a forest and nitrogen saturation on Mt. Oyama, Japan. *Water Air Soil Pollut.*, 130:1091-1096.
- 33) Shigihara, A., K. Matsumoto, N. Sakurai and M. Igawa (2008) Growth and physiological responses of beech seedlings to long-term exposure of acid fog, *Sci. Total Environ.* 391: 124-131.
- 34) 松村秀幸, 山口真弘, 渡辺誠, 岩崎真弓, 松尾直樹, 山下理絵, 伊豆田猛, 河野吉久 (2006) 日本の代表的な6樹種の生育におよぼすO₃と土壌への窒素負荷の複合影響. 第47回大気環境学会年会講演要旨集 1 I 1024, CD-ROM.
- 35) 山根正伸 (2003) ニホンジカ被害問題に残されている課題 神奈川県丹沢山地の経験から. *森林科学*, 39 : 35-40.
- 36) 初磊, 石川芳治, 白木克繁, 若原妙子, 内山佳美 (2010) 丹沢堂平地区のシカによる林

- 床植生衰退地における新床合計被覆率と土壌侵食量の関係. *日林誌*, 92 : 261-268.
- 37) 環境省生物多様センター運営の生物多様情報システムの 3 次メッシュデータ (http://www.biodic.go.jp/dload/mesh_vg.html)
- 38) M. Watanabe, M. Yamaguchi, M. Iwasaki, N. Matsuo, J. Naba, C. Tabe, H. Matsumura, Y. Kohno and T. Izuta (2006) 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, 320-334.
- 39) M. Watanabe, M. Yamaguchi, C. Tabe, M. Iwasaki, R. Yamashita, R. Funada, M. Fukami, H. Matsumura, Y. Kohno and T. Izuta (2007) Influences of nitrogen load on the growth and photosynthetic responses of *Quercus serrata* seedlings to O₃. *Trees*, Vol. 21 No. 4, 421-432.
- 40) M. Watanabe, M. Yamaguchi, H. Matsumura, Y. Kohno and T. Izuta (2008) Effects of ozone on growth and photosynthesis of *Castanopsis sieboldii* seedlings grown in different nitrogen loads. *Journal of Agricultural Meteorology*, Vol. 24, No. 3. 143-155.
- 41) M. Yamaguchi, M. Watanabe, M. Iwasaki, C. Tabe, H. Matsumura, Y. Kohno and T. Izuta (2007) Growth and photosynthetic responses of *Fagus crenata* seedlings to O₃ under different nitrogen loads. *Trees*, Vol. 21 No. 6, 707-718.
- 42) 渡辺誠, 山口真弘 (2011) 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, 89-96.
- 43) M. Takigawa, M. Niwano, H. Akimoto and M. Takahashi (2011) Development of an one-way nested global-regional air quality forecasting model. *SOLA*, Vol. 3, 81-84, 10.2151/sola.2007-021, 2007.

5. 越境大気汚染・酸性雨研究に関する国内外の主な取組

- 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（環境省環境研究総合推進費、S-7）

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を進めている。さらに、既存及び本研究で得られた科学的知見を基に、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大気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研究を進めている。本研究プロジェクトでは、「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)」、「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「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ている。

テーマ1 (S-7-1) 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）関係を確立するとともに、オゾン、ブラックカーボン、SO₂ 等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。オゾン・エアロゾル汚染の現状の実態解明と、それに基づくモデル精緻化の研究では、国内 EANET 局、大気常時監視局データの解析・全球モデル解析などから、我が国を含む北東アジアは世界で最もオゾン汚染の深刻な地域であること、衛星からの観測データから特に中国中東部では 1996（平成 8）～2010（平成 22）年までオゾン前駆体物質である NO₂ の濃度増加がなお続いていることを明らかにした。

テーマ2 (S-7-2) 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、アジア地域における排出インベントリ (REAS) について、2008（平成 20）年までのデータの更新とその高精度化を図ってきた。また、今後 S-7-1 における将来予測、S-7-3 における国際枠組みの議論、共便益アプローチなどの議論に利用する大気汚染物質削減シナリオを作成するため、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 との整合化を図った。

テーマ3 (S-7-3) では、我が国の大気汚染の低減に必要な、半球汚染を含む越境汚染の低減に各国が協同して取り組むための国際的な枠組みに関する提言を行うとともに、共便益アプローチの制度設計を行った。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、農作物影響の評価を行った。

● 全国環境研協議会酸性雨広域大気汚染全国調査

地方公共団体の環境研究所を会員とする全国環境研協議会では、日本を網羅する全国調査を平成3年度から共同で行っている。環境省調査が国際的・全国的見地から遠隔地等における酸性雨原因物質の長距離輸送の把握等を目的としているのに対して、本調査は地域の環境保全の見地から都市域及び田園地域等における酸性沈着の評価・解析に重点を置いており、第4次調査(平成15-20年度)では、国際標準である降水時開放型捕集装置による湿性沈着調査(57~61地点)、フィルターパック法(28~35地点)及びパッシブ法(34~61地点)による乾性沈着調査を行い、推定(Inferential)法による乾性沈着量及び湿性沈着量と合わせた総沈着量の評価を行った。平成21年度からは期限を限定しない第5次調査を第4次調査とほぼ同様の内容で実施中であり、同年度における調査地点数は湿性沈着が72、乾性沈着がフィルターパック法で32、パッシブ法で42、自動測定法で28を擁する。調査結果は国立環境研究所地球研究センターの地球環境データベース(http://db.cger.nies.go.jp/ja/database_B2.html)にて順次公開されている。なお、湿性調査は観測手法及び精度保証・精度管理方法が共に環境省調査に準拠し、フィルターパック法は本調査において開発・改良された内容が環境省調査及びEANETで活用されている。

その他、海外での取組について

● 欧米における大気モニタリングネットワークの活動

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(昭和47)年に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(Co-operative Program for Monitoring and Evaluation of the Long-Range Transmission of Air Pollutants in Europe, EMEP)が発足し、ヨーロッパ全域に酸性雨の測定網が広げられた。1979(昭和54)年には、UNECEにおいて長距離越境大気汚染条約(Convention on Long-range Transboundary Air Pollution, CLRTAP)が採択され、1983(昭和58)年3月に発効した。CLRTAPには、ヨーロッパ諸国を中心に、米国、カナダなど49カ国(当時のEC含む)が加盟(日本は加盟していない)し、加盟国に対して、酸性雨等の越境大気汚染の防止対策を義務づけるとともに、酸性雨等の被害影響の状況の監視・評価、原因物質の排出削減対策、国際協力の実施、モニタリングの実施、情報交換の推進などを定めている。

ヨーロッパに比較すると対応が遅れていた北米でも、カナダと米国との間で酸性雨による被害の問題が深刻化し、1980(昭和55)年6月に米国で酸性物降下法が定められ、降水のモニタリング、生態影響調査等を内容とする全国酸性降下物調査計画(NAPAP)を10カ年計画で実施した。また、同年8月には、両国の政府間で越境大気汚染に関する合意覚書を交わした。さらに、両国は、酸性雨被害の拡大を防止するための大気保全の二国間協定を1991(平成3)年3月に調印した。北米における酸性雨

のモニタリングは、米国が米国国家大気降下物測定プログラム(National Atmospheric Deposition Program, NADP)、カナダがカナダ降水採水網(Canadian Air and Precipitation Monitoring Network, CAPMoN)の下で実施している。

● 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(Task Force on Hemispheric Transport of Air Pollution, TF HTAP)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(CLRATP)の執行機関の下で2004(平成16)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) CLRATP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など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することができ、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。この報告書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100人以上の研究者により執筆が行われている。2007(平成19)年12月には、北半球におけるオゾン、エアロゾルやその前駆物質の大陸間輸送に焦点を置いて、最初の中間報告書(HTAP 2007 Interim Report)を作成した。この報告書はCLRATPの執行機関に提出され、CLRATPにおける大気汚染物質排出量の数値目標を定めたGothenburg Protocol(1999年採択)の再検討に有用な情報を与えている。

次のステップとして、水銀や残留性有機汚染物質(POPs)も対象物質として含めた包括的な報告書(HTAP 2010 Assessment Report)の作成作業に着手し、学術機関、政府機関及びその他の機関に所属する専門家が協力して2008(平成20)年より作業が進められ、2010(平成22)年12月に出版された。本報告書は、大気汚染物質の大陸間輸送及びソース・レセプター間の関係について理解の助けになる情報が掲載され、いくつかの独自の調査結果、査読付き学術論文に掲載された研究結果、その他引用元が追跡できる報告書の内容が盛り込まれており、以下のような構成になっている。

エグゼクティブ・サマリー

Part A: オゾン、微小粒子状物質

Part B: 水銀

Part C: 残留性有機汚染物質(POPs)

Part D: 政策決定者向けの総括

HTAP 2010 Assessment Report には、アジア大気汚染研究センターの秋元肇所長が Part A の主執筆者として貢献したほか、アジア大気汚染研究センターが共同プロジェクトで行っている東アジア地域における長距離輸送モデルの比較研究 (MICS-Asia : Model Inter-Comparison Study in Asia) の活動メンバーの数人も、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着実な研究の蓄積が TF HTAP の活動に多大な貢献を果たすことにつながったと評価される。

● EANET 第2次定期報告書の作成

EANET では、報告されたモニタリングデータに基づき、5年に1度「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) を作成している。第2次報告書 (PR SAD2) は2005 (平成17) 年から2009 (平成21) 年までの5年間に蓄積された酸性雨に関するデータをとりまとめ、東アジアにおける酸性雨の状況を解析・評価する報告書について、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なされてきた。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。

報告書の最終案は、2010 (平成23) 年11月に開催された EANET 第13回政府間会合において、必要な修正を行った上で正式に了承され、2011 (平成24) 年3月に印刷・公表される予定である。

6. 総合とりまとめに向けて

本章では、平成 25 年度末に作成が予定されている総合とりまとめ報告（平成 20～24 年度）に向けた主要な課題等を整理する。

（1）酸性沈着と越境大気汚染

酸性沈着と越境大気汚染については、これまでのモニタリング結果について、年平均値の推移、季節別の傾向の解析を行うだけでなく、湿性沈着及び大気汚染物質由来の乾性沈着量の推定値からの地点別・地域別の総沈着量の解析、酸性化に寄与する因子の解析又は地域毎の特性とそのタイプの解析を通して、酸性沈着のメカニズムを明確にすることを目指す。

また、東アジア地域における排出インベントリデータやモニタリングデータなどを効果的に活用した大気輸送モデルの解析をさらに進めることにより、酸性沈着だけでなく、オゾンや微小粒子等の大気汚染物質の我が国への越境移動による影響についての考察を進める。

（2）生態系への影響

生態影響モニタリングについては、平成 22 年度までのデータの蓄積により、多くの地点において、経年変化の議論が可能となった。土壌 pH の低下や樹木衰退の進行、湖沼や河川 pH の低下と NO₃ 濃度の上昇等、大気沈着との関連性を示唆する傾向も見受けられた。今後、総合取りまとめが行われる平成 25 年度までには、全ての地点で 10 年以上のデータによる解析が可能になることから、これらの傾向について、より明確な考察が可能になると考えられる。

また、酸性雨長期モニタリング報告書（平成 15-19 年度）において酸性化が認められていた伊自良湖における集水域モニタリングでは、SO₄²⁻の流出量は引き続き多いものの、河川中の NO₃ 濃度は平成 17 年をピークに低下を始め、pH も上昇に転じつつある。このような窒素飽和や酸性化からの回復の兆候がこのまま継続するのか、今後の経過を注意深く監視する必要がある。

生態影響の要監視地域に関し、今回土壌影響及び陸水影響に着目して抽出を行ったが、要監視地域の特定は今後のモニタリング計画の策定において不可欠であり、今後は現在考慮していない乾性沈着量も考慮し、また大気シミュレーションの結果も参考にするなど、

更に検討を進める必要がある。

(3) オゾン等の大気汚染物質の影響

オゾン及び粒子状物質の長期的傾向については、多くの地点でオゾン年平均濃度の上昇傾向と PM₁₀ 年平均濃度の減少傾向が見られたが、統計的に有意な結果が得られなかった。特に八方尾根については平成 19 年に上昇傾向が減少に転じていた。今後もデータの蓄積を重ねることによって、長期的傾向の統計的評価やオゾン濃度の推移に対して注視し続ける必要がある。

また、大気輸送モデルの計算値と観測値との比較により、オゾン及び PM_{2.5} の濃度の季節変動特性や遠隔地における濃度レベルを再現できていたことを踏まえ、モデル解析結果と組み合わせて近年の変動要因について詳細に検討する必要がある。さらに、モデル解析によって、高濃度イベント時の広域汚染解析についても必要に応じて検討する予定である。

大気中のオゾン濃度、植生分布及びオゾン感受性の樹種間差異などを考慮した要監視地域の抽出は、今後の生態影響モニタリングを効率的に進める上で極めて重要な情報となりうる。オゾンによる植物影響の要監視地域の分布図は、今後、最新のインベントリを用いた数値モデルを用いて更新される予定である。

現在、摩周湖外輪山（北海道）、八海山（新潟県）及び英彦山（福岡県）で実施されているオゾンの植物影響に関するパイロット・モニタリングでは、これまでデータが十分ではなかった山岳・森林地域におけるオゾン濃度の実態や樹木衰退との関連性などがより明らかになることが期待される。これらの知見に基づき、平成 26 年度を目途に開始が予定されているオゾンの植物影響に関する定常モニタリングの手法や実施のための科学技術的提言を総合報告書で取りまとめる予定である。

(4) 越境大気汚染・酸性雨モニタリングの今後の方向性

総合とりまとめ報告の策定にあわせて今後のモニタリングの考え方や方向性などについても検討し、「越境大気汚染・酸性雨モニタリング計画」を見直す必要がある。

参考資料

1. モニタリング地点の情報

酸性沈着モニタリング調査地点の概要 (注1)

地点名	区分	所在地	緯度 ^(注2) (北緯, 度, 分, 秒)	経度 ^(注2) (東経, 度, 分, 秒)	標高, ト地上高 (m)	捕集 単位	捕集装 置名	分析 単位	調査地点の概況	サン プ ー の 位 置	調査地点の評価(都市地域 調査地点を除く) ^(注3)			
											(1)	(2)	(3)	(4)
利尻	遠隔	北海道利尻郡利尻 町仙法志字神磯 193	45. 07. 11	141. 12. 33	40 3.0	日毎	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. 04. 54	141. 20. 01	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	—	—	—	—
おおいし 落石岬	遠隔	北海道根室市落石 西243-2	43. 09. 43	145. 29. 50	49 2.0	日毎	小笠原 US-420	日毎	北海道東部根室半島の南端落石岬 の先端部に位置。落石港の南南西2 km。付近は湿地帯及び草地。	地上	○	○	○	○
たっぴ 竜飛岬	遠隔	青森県東津軽郡外 ヶ浜町三厩字鉄山 国有林84林班り2 小班	41. 15. 06	140. 20. 59	106 3.3	日毎	小笠原 US-420 分離型	日毎	竜飛崎から南東、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	○	○	○	×
おちまんたい 八幡平	田園 (生態)	岩手県岩手郡雫石 町大字長山第53 地割字小松倉14-2	39. 49. 28	140. 56. 20	830 5.0	週毎	DKK DRS-200 分離型	週毎	岩手山・南西山麓のスキーマー場リフ ト山麓乗場から10m。北・西側は 草地。南・東は雑木林。	屋上	○	○	×	×

ののけし 篁岳	田園	宮城県遠田郡涌谷町小塚字桜清水ニ1-1	38. 33. 21	141. 10. 18	165 5.0	週毎	小笠原 US-421 分離型	週毎	宮城県北東部・篁岳山(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 ^(注2)	田園 (生態)	山形県尾花沢市大字鶴子字屋敷平国 有林 96 林班イ小 班	38. 31. 41	140. 32. 08	366 6.8	日毎	小笠原 US-420 分離型	週毎	山形県北東部・宮城県境に近い新鶴子ダム湖畔に位置する。西側は山林に、東側はダム湖畔に面する。	屋上	○	○	○	○	○
筑波 ^(注2)	田園	茨城県土浦市永井 987	36. 09. 50	140. 10. 58	155 4.8	日毎	小笠原 US-420	日毎	筑波山南東部の丘陵地域。土浦市北方約 10km。周囲は広葉樹林。南西側は広葉樹が近接。	屋上	×	×	×	×	○
赤城	田園 (生態)	群馬県勢多郡富士見村大字赤城山 1-2	36. 32. 16	139. 10. 53	1500 5.6	週毎	DKK DRS-200	週毎	赤城山地蔵岳の麓。赤城小沼から西に約 400m。周囲は 5m 程度の雑木林。道路及び駐車場に近接。	屋上	○	○	○	○	○
小笠原	遠隔	東京都小笠原村父 島旭山地内	27. 05. 30	142. 12. 58	230 5.0	日毎	小笠原 US-420 分離型	日毎	父島北東部・夜明山山頂付近の窪地に位置する。雑木林に囲まれ今後、樹木が仰角条件を超える恐れがある。	屋上	○	○	○	○	○
東京	都市	東京都千代田区 北の丸公園 2 番 1 号	35. 41. 30	139. 45. 10	26 22	日毎	小笠原 US-420	日毎	測定所は皇居の北部の北の丸公園内に立地する科学技術館の 5 階屋上に設置されている。	屋上	—	—	—	—	—
佐渡関岬	遠隔	新潟県佐渡市関 204	38. 14. 59	138. 24. 00	136 4.6	日毎	小笠原 US-421 分離型	日毎	佐渡島北西部関岬に位置する。南東 150m にオートキャンプ場があるが夏季のみ営業。	屋上	○	○	○	○	○

新潟巻	田園	新潟県新潟市西蒲区越前浜字向谷地5876-2	37. 48. 33	138. 51. 09	52 1.7	日毎	小笠原 US-420	日毎	新潟市の南西約20kmの砂丘丘陵地。研修センター敷地内。西1.5kmに日本海。付近は畑地及び松林。	地上	○	○	○	○
越前岬	遠隔	福井県丹生郡越前町血ヶ平9字上丸山2-2	35. 58. 52	135. 58. 04	220 5.6	日毎	小笠原 US-421 分離型	日毎	福井県越前岬位置する。西150mに保養所。大きな固定発生源は無い。南西～西～北方向は日本海。	屋上	○	×	○	×
八方尾根	遠隔	長野県北安曇郡白馬村大字北城4488-227	36. 41 48	137. 47 53	1850 5.0	日毎	小笠原 US-420 分離型	日毎	北アルプス唐松岳八方尾根スキー場の頂上付近に位置する。麓側100mに山小屋。周囲は低木・草地。	屋上	○	○	○	×
伊自良湖	田園 (生態)	岐阜県山県市長滝釜ヶ谷27-7-3	35. 34 20	136. 41. 38	140 4.3	週毎	小笠原 US-420 分離型	週毎	岐阜市の北方約15km。伊自良湖の北西1.2km、伊自良川沿いの谷間に位置。周囲は桜等の広葉樹。	屋上	×	×	○	○
犬山(注2)	田園	愛知県犬山市大字犬山字東洞15	35. 23. 10	136. 57. 52	100 5.0	日毎	紀本 ARS- 100	日毎	愛知・岐阜県境の木曾川に近接する浄水場の南東一角に位置。東側は公園、南西側に果樹園。	屋上	○	○	○	○
京都八幡	都市	京都府八幡市男山雄徳1	34. 52. 27	135. 41. 37	70 1.6	週毎	小笠原 US-421 分離型	週毎	京都府と大阪府の境界近くの都市近郊田園地域に位置。北側と東側は竹林、南に児童公園樹木がある。	屋上	—	—	—	—
潮岬	遠隔	和歌山県東牟婁郡串本町潮岬668-1	33. 26. 26	135. 46. 52	70 4.0	週毎	小笠原 US-421	週毎	紀伊半島南端・潮岬に位置。20m以内は平坦な草地。100m以内は樹高20m以内の樹林又は草地。	屋上	○	○	○	×
尼崎	都市	兵庫県尼崎市東難波町4-16-21	34. 43. 33	135. 24. 53	0 20.0	週毎	小笠原 US-420	週毎	尼崎市の中心部・阪神尼崎駅から北西1km。社会福祉センター(5階)屋上。建屋・気象ポール近接。	屋上	—	—	—	—

隠岐	遠隔	島根県隠岐郡隠岐の島町北方福浦1700	36. 17. 19	133. 11. 06	90 1.5	日毎	小笠原 US-420	日毎	隠岐諸島、島後北西部・福浦崎灯台から東 200m。西郷市から北西 15 km。付近は草地、低い松林。	地上	○	○	○	○	○
蟠竜湖	都市 (生態)	島根県益田市高津町イ 2340-3	34. 40. 54	131. 47. 59	53 1.5	週毎	小笠原 US-420	週毎	島根県南西部・益田市中心部から西方約 4km に位置する。南南西 500m に石見空港。西方 50m 以内に県道有。	地上	—	—	—	—	—
倉橋島 ^(注2)	田園	広島県呉市倉橋町字石休 235	34. 06. 56	132. 30. 16	178 4.3	日毎	紀本 ARS-100	日毎	呉市南方、倉橋島の南部地域に位置する。町営グラウンド、照明設備・電柱等に近接。	屋上	×	×	×	×	×
構原	遠隔	高知県高岡郡構原町太郎川 3757-2	33. 22. 45	132. 56. 05	790 2.2	日毎	小笠原 US-420	日毎	高知県北西部愛媛県境に近い構原町の中心部から約 2 km。山地頂上付近の森林を切開いた造成地。	地上	○	○	○	○	○
筑後小郡	田園	福岡県小郡市大字井上字尾辺田 434	33. 24. 31	130. 34. 50	25 4.0	週毎	小笠原 US-420	週毎	福岡県南部、佐賀県境に近い小郡市中心部から北東約 3km。周辺 150 m 以内は水田、雑木林等。	屋上	×	×	×	×	×
対馬	遠隔	長崎県対馬市巖原町北里大多羅(上見坂公園内)	34. 14. 30	129. 17. 09	390 5.0	日毎	小笠原 US-421	日毎	対馬市巖原町の北部高台の公園内に位置する。展望台・駐車場に近接。南方 4.5km に巖原港。	屋上	×	×	×	×	×
五島 ^(注2)	遠隔	長崎県五島市玉之浦町大宝 1148	32. 36. 23	128. 39. 24	95 4.6	日毎	小笠原 US-420	日毎	五島列島南西部、福江島西端に位置する。福江市から南西 20km。町営グラウンドに近接。	屋上	○	○	○	○	×

大分久住 ^{くじゅう}	田園 (生態)	大分県竹田市久住 町大字久住字平木 3991-168	33. 02. 38	131. 15. 04	560 3.5	週毎	小笠原 US-420	週毎	大分市の南西40km、日田市の北西 16km。九重連山麓の牧草地帯に 位置する。南方30mに国道。	○	○	×	×
えびの	遠隔	宮崎県えびの市大 字 榎 田 字 北 野 570-1	32. 04. 59	130. 49. 56	720 1.6	日毎	小笠原 US-420	日毎	宮崎県南西部えびの市中心部から 北方2km。自衛隊えびの送信所内 山頂部付近。南方60kmに櫻島。	○	×	○	○
屋久島	遠隔 (生態)	鹿児島県熊毛郡上 屋久町一湊字手ノ 宇都西 2377-3	30. 26. 42	130. 28. 51	250 4.0	週毎	小笠原 US-420	週毎	屋久島北部のシイ、カシ、杉、ヒノキ、 サワラ林山地に位置する。宮之浦 港から西10km、一湊漁港1km。	○	○	○	×
辺戸岬 ^{へと}	遠隔	沖縄県国頭郡国頭 村字宜名真	26. 51. 58	128. 14. 55	60 1.5	日毎	小笠原 US-420	日毎	沖縄島北端辺戸岬灯台から100m に位置する。名護市の北東40km。 海岸線から南東に200m。雑草地。	○	○	○	○

(注1：本表は、各調査地点の捕集地点及び試料捕集に関する自治体から環境省への報告情報（平成22年度調査報告書）及びサイトの現地調査結果から作成した。

ただし、平成20年度末で測定を休止した尾花沢、筑波、犬山、倉橋島及び五島（湿性沈着）については測定休止時の情報を記載した。

(注2：平成20年度末で測定を休止（五島の乾性沈着モニタリングは継続）

(注3：測定局の緯度経度は、世界測地系表記に統一した。

(注4：調査地点の評価は、最新のサイト現地調査結果報告書をもとに作成した。調査地点の条件は（都市調査地点を除く）、以下の通り。

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

2. モニタリング結果の参考データ

参考表 1 年間降水量

調査地点	(単位: mm y ⁻¹)			
	H20年度 (2008)	H21年度 (2009)	H22年度 (2010)	3年平均
利尻	921	1045	1016	994
札幌	832	1020	1298	1050
落石岬	809	1537	1038	1128
竜飛岬	953	1375	1363	1231
八幡平	2096	2428	2213	2262
麓岳	1181	1091	1383	1218
尾花沢	1441	--	--	1441
筑波	1763	--	--	1763
赤城	2028	1299	1249	1525
小笠原	1523	1629	1727	1626
佐渡関岬	1095	1067	1305	1155
新潟巻	1329	1728	1789	1616
八方尾根	1851	2559	2322	2244
越前岬	1789	2108	2366	2088
伊自良湖	2511	2915	3533	2986
大山	1707	--	--	1707
潮岬	2805	3180	2925	2993
京都八幡	1730	1456	1661	1616
尼崎	1275	1152	1294	1240
倉橋島	1064	--	--	1064
隠岐	1117	1179	1353	1216
幡豆湖	1221	1756	1388	1455
橿原	2182	2096	2198	2159
筑後小郡	1865	2001	2212	2026
大分久住	2408	1943	1860	2070
対馬	1739	1744	1570	1684
五島	1840	--	--	1840
えびの	3692	2137	3405	3078
屋久島	3501	2957	3570	3343
辺戸岬	2089	2097	2411	2199
東京	1952	1706	1560	1740
最大値	3692	3180	3570	3343
最小値	809	1020	1016	994
平均値	1752	1816	1923	1799

-- 未測定
 年判定基準で年間値が棄却された参考値
 参考値を含む(下線で示す)
 参考値を含む(下線で示す)
 年判定基準で棄却された年間値を除いた平均値

参考表 2 pH の年平均値

調査地点	年平均値			
	H20年度 (2008)	H21年度 (2009)	H22年度 (2010)	3年平均
利尻	4.94	4.67	4.75	4.83
札幌	4.62	4.87	4.86	4.79
落石岬	4.89	5.01	4.81	4.84
竜飛岬	4.67	4.72	4.68	4.69
八幡平	4.77	4.92	4.94	4.85
麓岳	4.76	4.81	4.95	4.84
尾花沢	4.73	--	--	4.73
筑波	4.85	--	--	4.85
赤城	4.82	4.76	4.82	4.80
小笠原	5.06	5.18	5.22	5.15
佐渡関岬	4.59	4.72	4.70	4.67
新潟巻	4.57	4.63	4.68	4.63
八方尾根	4.88	5.03	5.07	4.97
越前岬	4.62	4.58	4.59	4.60
伊自良湖	4.48	4.65	4.78	4.64
大山	4.58	--	--	4.58
潮岬	4.76	4.80	4.86	4.76
京都八幡	4.64	4.68	4.73	4.68
尼崎	4.63	4.74	4.84	4.73
倉橋島	4.54	--	--	4.54
隠岐	4.63	4.67	4.66	4.65
幡豆湖	4.52	4.70	4.69	4.64
橿原	4.68	4.78	4.83	4.75
筑後小郡	4.76	4.74	4.80	4.77
大分久住	4.69	4.66	4.66	4.67
対馬	4.49	4.53	4.77	4.58
五島	4.67	--	--	4.67
えびの	4.83	4.61	4.72	4.73
屋久島	4.65	4.50	4.66	4.60
辺戸岬	5.07	5.03	5.21	5.10
東京	4.62	4.76	4.95	4.74
最大値	5.07	5.18	5.22	5.15
最小値	4.48	4.50	4.59	4.54
平均値	4.69	4.70	4.78	4.72

-- 未測定
 年判定基準で年間値が棄却された参考値
 参考値を含む(下線で示す)
 参考値を含む(下線で示す)
 降水量による加重平均値とし、年判定基準で棄却された年間値を除いた平均値

参考表3 (a) nss-SO₄²⁻ 平均濃度

調査地点	(単位: μmol L ⁻¹)				3年平均
	H20年度 (2008)	H21年度 (2009)	H22年度 (2010)		
利尻	16.2	13.6	14.8	14.9	
札幌	21.1	13.0	12.8	15.0	
落石岬	8.4	6.2	8.5	8.4	
竜飛岬	15.2	13.6	12.6	13.6	
八幡平	13.6	9.5	9.9	11.3	
箕岳	11.1	9.5	8.0	9.4	
尾花沢	12.2	--	--	12.2	
筑波	10.7	--	--	10.7	
赤城	5.7	9.8	11.5	10.7	
小笠原	3.9	4.9	2.7	3.8	
佐渡関岬	17.0	15.1	13.7	15.1	
新潟巻	17.4	13.7	15.8	15.5	
八方尾根	11.6	7.2	6.5	8.8	
越前岬	18.0	14.3	14.0	15.3	
伊自良湖	17.2	14.1	9.4	13.1	
犬山	14.8	--	--	14.8	
潮岬	9.1	7.6	8.4	9.1	
京都八幡	11.7	12.1	9.1	10.9	
尼崎	13.6	13.6	10.7	12.6	
倉橋島	13.8	--	--	13.8	
隠岐	16.6	15.7	16.8	16.4	
蠍竜湖	19.4	14.6	14.5	15.9	
構原	9.7	11.2	8.3	9.7	
筑後小郡	15.0	14.2	11.4	13.4	
大分久住	13.3	14.0	13.4	13.6	
対馬	20.4	17.2	12.0	16.5	
五島	15.6	--	--	15.6	
えびの	11.7	14.6	13.6	12.8	
屋久島	13.1	14.5	12.0	13.1	
辺戸岬	6.0	7.0	5.5	6.1	
東京	18.2	14.3	9.5	14.3	
最大値	21.1	17.2	16.8	16.5	
最小値	3.9	4.9	2.7	3.8	
平均値	13.5	12.8	10.8	12.4	

-- 未測定
 年判定基準で年間値が棄却された参考値
 参考値を含む(下線で示す)
 参考値を含む(下線で示す)
 降水量による加重平均値とし、年判定基準で棄却された年間値は除いた

参考表3 (b) nss-SO₄²⁻ 年間湿性沈着量

調査地点	(単位: mmol m ⁻² y ⁻¹)				3年平均
	H20年度 (2008)	H21年度 (2009)	H22年度 (2010)		
利尻	14.9	14.2	15.1	14.7	
札幌	17.5	13.3	16.6	15.8	
落石岬	6.8	9.5	8.8	8.4	
竜飛岬	14.5	18.7	17.1	16.8	
八幡平	28.5	23.1	21.9	24.5	
箕岳	13.1	10.3	11.0	11.5	
尾花沢	17.5	--	--	17.5	
筑波	18.9	--	--	18.9	
赤城	11.6	12.8	14.4	12.9	
小笠原	6.0	7.9	4.6	6.2	
佐渡関岬	18.7	16.1	17.9	17.5	
新潟巻	23.2	23.7	28.3	25.1	
八方尾根	21.5	18.3	15.0	18.3	
越前岬	32.2	30.2	33.2	31.9	
伊自良湖	43.2	41.2	33.3	39.3	
犬山	25.3	--	--	25.3	
潮岬	25.6	24.1	24.6	24.8	
京都八幡	20.2	17.7	15.1	17.6	
尼崎	17.3	15.7	13.9	15.6	
倉橋島	14.7	--	--	14.7	
隠岐	18.6	18.6	22.7	20.0	
蠍竜湖	23.7	25.6	20.1	23.1	
構原	21.1	23.4	18.3	20.9	
筑後小郡	28.0	28.4	25.3	27.2	
大分久住	32.0	27.3	25.0	28.1	
対馬	35.6	29.9	18.9	28.1	
五島	28.8	--	--	28.8	
えびの	43.3	31.1	46.4	40.3	
屋久島	45.7	42.8	42.8	43.8	
辺戸岬	12.5	14.7	13.2	13.5	
東京	35.5	24.4	14.9	24.9	
最大値	45.7	42.8	46.4	43.8	
最小値	6.0	7.9	4.6	6.2	
平均値	23.1	21.7	20.7	21.8	

-- 未測定
 年判定基準で年間値が棄却された参考値
 参考値を含む(下線で示す)
 参考値を含む(下線で示す)
 年判定基準で棄却された年間値を除いた平均値

参考表 4 (a) NO₃⁻ 平均濃度

調査地点	(単位: μmol L ⁻¹)				3年平均
	H20年度 (2008)	H21年度 (2009)	H22年度 (2010)		
利尻	17.0	15.3	15.6	16.0	16.0
札幌	23.0	14.4	13.9	16.4	16.4
落石岬	7.6	6.0	9.5	8.6	8.6
竜飛岬	18.1	14.8	16.2	16.2	16.2
八幡平	13.1	9.7	12.2	11.2	11.2
箕岳	12.1	12.0	10.6	11.5	11.5
尾花沢	11.9	--	--	11.9	11.9
筑波	14.4	--	--	14.4	14.4
赤城	12.6	14.9	17.9	16.5	16.5
小笠原	3.8	3.0	3.4	3.4	3.4
佐渡関岬	19.4	17.9	20.7	19.5	19.5
新潟巻	18.5	16.0	21.8	18.9	18.9
八方尾根	10.7	6.9	7.3	8.8	8.8
越前岬	15.2	18.2	19.4	17.8	17.8
伊自良湖	22.7	19.1	14.0	18.1	18.1
大山	20.6	--	--	20.6	20.6
潮岬	9.3	8.5	10.1	9.3	9.3
京都八幡	17.2	16.4	13.1	15.5	15.5
尼崎	19.3	16.3	12.6	16.0	16.0
倉橋島	15.2	--	--	15.2	15.2
隠岐	21.1	20.5	26.0	22.7	22.7
蠍竜湖	24.8	17.4	25.0	21.9	21.9
構原	8.8	7.4	8.3	8.2	8.2
筑後小郡	16.3	16.1	13.4	15.2	15.2
大分久住	7.6	10.0	10.8	9.3	9.3
対馬	21.0	16.6	13.0	16.8	16.8
五島	14.0	--	--	14.0	14.0
えびの	7.2	10.2	9.7	8.3	8.3
屋久島	10.1	14.4	11.2	11.7	11.7
辺戸岬	6.7	7.7	5.3	6.5	6.5
東京	23.7	18.5	15.3	19.5	19.5
最大値	24.8	20.5	26.0	22.7	22.7
最小値	3.8	3.0	3.4	3.4	3.4
平均値	14.1	14.0	13.5	13.9	13.9

-- 未測定
 年判定基準で年間値が棄却された参考値
 参考値を含む(下線で示す)
 参考値を含む(下線で示す)
 降水量による加重平均値とし、年判定基準で棄却された年間値は除いた

参考表 4 (b) NO₃⁻ 年間湿性沈着量

調査地点	(単位: mmol m ⁻² y ⁻¹)				3年平均
	H20年度 (2008)	H21年度 (2009)	H22年度 (2010)		
利尻	15.6	16.0	15.9	15.9	15.9
札幌	19.1	14.7	18.0	17.3	17.3
落石岬	6.2	9.2	9.9	8.4	8.4
竜飛岬	17.3	20.4	22.1	19.9	19.9
八幡平	27.5	23.5	27.0	26.0	26.0
箕岳	14.2	13.1	14.7	14.0	14.0
尾花沢	17.1	--	--	17.1	17.1
筑波	25.4	--	--	25.4	25.4
赤城	25.5	19.4	22.4	22.4	22.4
小笠原	5.8	5.0	5.8	5.5	5.5
佐渡関岬	21.2	19.1	27.1	22.5	22.5
新潟巻	24.6	27.6	39.1	30.4	30.4
八方尾根	19.7	17.8	16.9	18.1	18.1
越前岬	27.3	38.3	46.0	37.2	37.2
伊自良湖	57.0	55.6	49.3	54.0	54.0
大山	35.2	--	--	35.2	35.2
潮岬	26.2	27.0	29.7	27.6	27.6
京都八幡	29.8	23.8	21.8	25.1	25.1
尼崎	24.6	18.8	16.3	19.9	19.9
倉橋島	16.2	--	--	16.2	16.2
隠岐	23.6	24.2	35.2	27.7	27.7
蠍竜湖	30.3	30.5	34.7	31.8	31.8
構原	19.2	15.6	18.2	17.7	17.7
筑後小郡	30.5	32.2	29.7	30.8	30.8
大分久住	18.2	19.5	20.1	19.3	19.3
対馬	36.4	29.0	20.5	28.6	28.6
五島	25.7	--	--	25.7	25.7
えびの	26.6	21.8	33.0	27.1	27.1
屋久島	35.2	42.5	39.8	39.2	39.2
辺戸岬	14.1	16.1	12.9	14.4	14.4
東京	46.2	31.6	23.9	33.9	33.9
最大値	57.0	55.6	49.3	54.0	54.0
最小値	5.8	5.0	5.8	5.5	5.5
平均値	24.6	23.5	25.0	24.3	24.3

-- 未測定
 年判定基準で年間値が棄却された参考値
 参考値を含む(下線で示す)
 参考値を含む(下線で示す)
 年判定基準で棄却された年間値を除いた平均値

参考表5 (a) NH₄⁺ 平均濃度

調査地点	(単位: μmol L ⁻¹)				3年平均
	H20年度 (2008)	H21年度 (2009)	H22年度 (2010)		
利尻	25.4	14.6	17.5	19.1	19.1
札幌	27.3	19.5	18.9	21.2	21.2
落石岬	9.1	7.1	9.9	9.5	9.5
竜飛岬	16.3	12.2	13.2	13.6	13.6
八幡平	16.1	12.1	14.5	13.8	13.8
箕岳	13.7	11.2	12.1	12.4	12.4
尾花沢	14.4	--	--	14.4	14.4
筑波	16.3	--	--	16.3	16.3
赤城	11.7	15.3	17.5	16.4	16.4
小笠原	3.2	4.4	5.6	4.4	4.4
佐渡関岬	18.8	11.9	13.2	14.5	14.5
新潟巻	16.9	13.2	24.0	18.2	18.2
八方尾根	11.3	7.4	6.3	8.5	8.5
越前岬	16.3	14.0	15.9	15.4	15.4
伊自良湖	18.0	17.6	11.4	15.3	15.3
大山	17.4	--	--	17.4	17.4
潮岬	7.1	5.2	9.4	7.1	7.1
京都八幡	13.5	13.9	12.0	13.1	13.1
尾崎	15.9	15.8	12.8	14.8	14.8
倉橋島	9.7	--	--	9.7	9.7
隠岐	17.2	16.2	19.5	17.7	17.7
蠡竜湖	18.3	15.3	19.3	17.4	17.4
構原	7.6	7.9	6.1	7.2	7.2
筑後小郡	23.9	27.5	17.4	22.7	22.7
大分久住	11.2	15.5	12.6	13.0	13.0
対馬	17.7	18.5	13.1	16.5	16.5
五島	14.2	--	--	14.2	14.2
えびの	11.6	13.2	11.0	12.2	12.2
屋久島	9.8	11.4	10.4	10.5	10.5
辺戸岬	6.1	8.6	6.4	7.0	7.0
東京	29.1	25.9	18.7	24.9	24.9
最大値	29.1	27.5	24.0	24.9	24.9
最小値	3.2	4.4	5.6	4.4	4.4
平均値	14.3	14.5	13.0	14.0	14.0

-- 未測定
 年判定基準で年間値が棄却された参考値
 参考値を含む(下線で示す)
 参考値を含む(下線で示す)
 降水量による加重平均値とし、年判定基準で棄却された年間値は除いた

参考表5 (b) NH₄⁺ 年間湿性沈着量

調査地点	(単位: mmol m ⁻² y ⁻¹)				3年平均
	H20年度 (2008)	H21年度 (2009)	H22年度 (2010)		
利尻	23.4	15.3	17.8	18.8	18.8
札幌	22.7	19.9	24.5	22.4	22.4
落石岬	7.4	11.0	10.2	9.5	9.5
竜飛岬	15.5	16.8	18.0	16.8	16.8
八幡平	33.7	29.4	32.1	31.7	31.7
箕岳	16.2	12.3	16.8	15.1	15.1
尾花沢	20.7	--	--	20.7	20.7
筑波	28.8	--	--	28.8	28.8
赤城	23.7	19.9	21.8	21.8	21.8
小笠原	4.8	7.2	9.7	7.2	7.2
佐渡関岬	20.6	12.7	17.3	16.9	16.9
新潟巻	22.5	22.8	43.0	29.4	29.4
八方尾根	20.8	18.9	14.7	18.1	18.1
越前岬	29.2	29.6	37.5	32.1	32.1
伊自良湖	45.2	51.4	40.4	45.7	45.7
大山	29.6	--	--	29.6	29.6
潮岬	19.8	16.5	27.5	21.3	21.3
京都八幡	23.4	20.2	20.0	21.2	21.2
尾崎	20.2	18.2	16.5	18.3	18.3
倉橋島	10.3	--	--	10.3	10.3
隠岐	19.3	19.1	26.4	21.6	21.6
蠡竜湖	22.4	26.9	26.8	25.4	25.4
構原	16.5	16.6	13.4	15.5	15.5
筑後小郡	44.5	55.0	38.4	46.0	46.0
大分久住	27.0	30.1	23.4	26.8	26.8
対馬	30.8	32.3	20.6	27.9	27.9
五島	26.1	--	--	26.1	26.1
えびの	42.7	28.2	37.3	36.1	36.1
屋久島	34.2	33.7	37.2	35.0	35.0
辺戸岬	12.7	18.1	15.4	15.4	15.4
東京	56.7	44.3	29.2	43.4	43.4
最大値	56.7	55.0	43.0	46.0	46.0
最小値	4.8	7.2	9.7	7.2	7.2
平均値	24.9	24.1	24.5	24.4	24.4

-- 未測定
 年判定基準で年間値が棄却された参考値
 参考値を含む(下線で示す)
 参考値を含む(下線で示す)
 年判定基準で棄却された年間値を除いた平均値

参考表6 (a) nss-Ca²⁺ 平均濃度

調査地点	(単位: μmol L ⁻¹)				3年平均
	H20年度 (2008)	H21年度 (2009)	H22年度 (2010)	3年平均	
利尻	6.9	3.2	4.1	4.7	
札幌	8.2	6.4	5.1	6.3	
落石岬	1.8	1.6	2.7	2.3	
竜飛岬	5.3	4.2	4.5	4.6	
八幡平	3.4	2.5	3.5	2.9	
箕岳	2.3	1.8	2.0	2.0	
尾花沢	2.2	--	--	2.2	
筑波	3.2	--	--	3.2	
赤城	1.8	1.9	2.2	2.1	
小笠原	0.7	1.0	1.4	1.1	
佐渡関岬	5.0	5.3	6.9	5.8	
新潟巻	4.6	3.5	4.9	4.3	
八方尾根	4.3	2.8	2.8	3.5	
越前岬	2.4	2.9	3.7	3.0	
伊自良湖	2.1	3.0	1.6	2.2	
大山	3.4	--	--	3.4	
潮岬	3.3	1.2	3.2	3.3	
京都八幡	3.0	3.3	2.4	2.9	
尾崎	4.2	4.2	3.5	3.9	
倉橋島	2.0	--	--	2.0	
隠岐	6.2	6.0	7.5	6.6	
蛸竜湖	4.2	3.6	5.1	4.3	
構原	1.5	1.8	1.6	1.6	
筑後小郡	3.8	4.1	3.8	3.9	
大分久住	1.6	2.2	2.4	2.0	
対馬	3.1	2.5	2.9	2.8	
五島	3.5	--	--	3.5	
えびの	1.2	1.8	4.9	1.5	
屋久島	1.2	1.7	1.7	1.5	
辺戸岬	1.5	1.9	1.8	1.7	
東京	3.5	3.0	3.2	3.2	
最大値	8.2	6.4	7.5	6.6	
最小値	0.7	1.0	1.4	1.1	
平均値	2.9	3.0	3.1	3.0	

-- 未測定
 年判定基準で年間値が棄却された参考値
 参考値を含む(下線で示す)
 参考値を含む(下線で示す)
 降水量による加重平均値とし、年判定基準で棄却された年間値は除いた

参考表6 (b) nss-Ca²⁺ 年間湿性沈着量

調査地点	(単位: mmol m ⁻² y ⁻¹)				3年平均
	H20年度 (2008)	H21年度 (2009)	H22年度 (2010)	3年平均	
利尻	6.4	3.3	4.1	4.6	
札幌	6.8	6.5	6.6	6.7	
落石岬	1.5	2.5	2.8	2.3	
竜飛岬	5.0	5.7	6.1	5.6	
八幡平	7.2	6.0	7.7	7.0	
箕岳	2.7	2.0	2.8	2.5	
尾花沢	3.1	--	--	3.1	
筑波	5.7	--	--	5.7	
赤城	3.7	2.5	2.7	3.0	
小笠原	1.1	1.7	2.4	1.7	
佐渡関岬	5.4	5.6	9.0	6.7	
新潟巻	6.1	6.0	8.8	7.0	
八方尾根	7.9	7.0	6.5	7.1	
越前岬	4.3	6.1	8.7	6.4	
伊自良湖	5.3	8.6	5.8	6.5	
大山	5.7	--	--	5.7	
潮岬	9.3	3.8	9.5	7.5	
京都八幡	5.1	4.8	4.0	4.6	
尾崎	5.3	4.8	4.5	4.9	
倉橋島	2.1	--	--	2.1	
隠岐	6.9	7.1	10.2	8.1	
蛸竜湖	5.1	6.4	7.1	6.2	
構原	3.3	3.7	3.5	3.5	
筑後小郡	7.1	8.3	8.3	7.9	
大分久住	3.8	4.3	4.4	4.2	
対馬	5.5	4.3	4.6	4.8	
五島	6.5	--	--	6.5	
えびの	4.6	3.9	16.8	8.4	
屋久島	4.2	4.9	6.2	5.1	
辺戸岬	3.1	3.9	4.4	3.8	
東京	6.8	5.2	5.0	5.6	
最大値	9.3	8.6	16.8	8.4	
最小値	1.1	1.7	2.4	1.7	
平均値	5.1	5.0	6.2	5.3	

-- 未測定
 年判定基準で年間値が棄却された参考値
 参考値を含む(下線で示す)
 参考値を含む(下線で示す)
 年判定基準で棄却された年間値を除いた平均値

参考表 7 (a) H⁺ 平均濃度

調査地点	(単位: $\mu\text{mol L}^{-1}$)				3年平均
	H20年度 (2008)	H21年度 (2009)	H22年度 (2010)		
利尻	11.6	21.3	17.9	14.9	
札幌	23.9	13.6	13.7	16.2	
落石岬	12.9	9.8	15.5	14.3	
竜飛岬	21.2	19.3	20.7	20.3	
八幡平	17.0	11.9	11.4	14.1	
箕岳	17.5	15.4	11.3	14.5	
尾花沢	18.5	--	--	18.5	
筑波	14.0	--	--	14.0	
赤城	15.2	17.5	15.2	16.3	
小笠原	8.8	6.6	6.1	7.1	
佐渡関岬	25.5	18.9	20.0	19.5	
新瀉巻	26.8	23.7	20.7	23.4	
八方尾根	13.3	9.3	8.5	10.6	
越前岬	23.8	26.1	25.5	25.2	
伊自良湖	33.0	22.6	16.5	23.1	
大山	26.4	--	--	26.4	
潮岬	17.4	16.0	13.9	17.4	
京都八幡	22.7	21.1	18.5	20.8	
尾崎	23.2	18.2	14.5	18.6	
倉橋島	28.7	--	--	28.7	
隠岐	23.2	21.6	21.8	22.1	
蟠竜湖	30.1	19.8	20.5	23.0	
構原	21.1	16.7	14.9	17.6	
筑後小郡	17.4	18.2	15.9	17.1	
大分久住	20.4	21.8	22.1	21.4	
対馬	32.2	29.4	16.8	26.2	
五島	21.2	--	--	21.2	
えびの	14.9	24.5	19.2	18.5	
屋久島	22.4	31.7	21.7	24.9	
辺戸岬	8.6	9.4	6.2	7.9	
東京	24.3	17.5	11.2	18.2	
最大値	33.0	31.7	25.5	28.7	
最小値	8.6	6.6	6.1	7.1	
平均値	20.5	20.0	16.4	19.1	

-- 未測定
 年判定基準で年間値が棄却された参考値
 参考値を含む(下線で示す)
 参考値を含む(下線で示す)
 降水量による加重平均値とし、年判定基準で棄却された年間値は除いた

参考表 7 (b) H⁺ 年間湿性沈着量

調査地点	(単位: $\text{mmol m}^{-2} \text{y}^{-1}$)				3年平均
	H20年度 (2008)	H21年度 (2009)	H22年度 (2010)		
利尻	10.6	22.3	18.2	17.0	
札幌	19.9	13.9	17.8	17.2	
落石岬	10.4	15.0	16.1	13.9	
竜飛岬	20.2	26.5	28.2	24.9	
八幡平	35.7	29.0	25.3	30.0	
箕岳	20.7	16.8	15.7	17.7	
尾花沢	26.6	--	--	26.6	
筑波	24.8	--	--	24.8	
赤城	30.9	22.7	19.0	24.2	
小笠原	13.4	10.7	10.5	11.5	
佐渡関岬	27.9	20.1	26.1	24.7	
新瀉巻	35.7	41.0	37.0	37.9	
八方尾根	24.7	23.7	19.7	22.7	
越前岬	42.5	55.1	60.3	52.6	
伊自良湖	83.0	65.8	58.3	69.0	
大山	45.1	--	--	45.1	
潮岬	48.8	50.9	40.7	46.8	
京都八幡	39.2	30.7	30.7	33.5	
尾崎	29.5	21.0	18.8	23.1	
倉橋島	30.5	--	--	30.5	
隠岐	25.9	25.4	29.4	26.9	
蟠竜湖	36.8	34.8	28.5	33.4	
構原	46.0	35.1	32.8	37.9	
筑後小郡	32.4	36.4	35.2	34.7	
大分久住	49.1	42.4	41.1	44.2	
対馬	56.0	51.3	26.4	44.6	
五島	39.0	--	--	39.0	
えびの	55.2	52.4	65.4	57.7	
屋久島	78.4	93.7	77.5	83.2	
辺戸岬	17.9	19.6	14.9	17.5	
東京	47.3	29.9	17.4	31.6	
最大値	83.0	93.7	77.5	83.2	
最小値	10.4	10.7	10.5	11.5	
平均値	35.6	34.1	31.2	33.7	

-- 未測定
 年判定基準で年間値が棄却された参考値
 参考値を含む(下線で示す)
 参考値を含む(下線で示す)
 年判定基準で棄却された年間値を除いた平均値

参考表 8 SO₂年 年平均濃度

調査地点	(単位: ppb)				3年平均
	H20年度 (2008)	H21年度 (2009)	H22年度 (2010)	H22年度 (2010)	
利尻	0.3	0.3	0.2	0.2	0.3
落石岬	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2
竜飛岬					
小笠原	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
佐渡関岬	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4
八方尾根	0.5	0.4	0.4	0.4	0.5
伊自良湖	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2
隠岐	0.7	0.6	0.7	0.7	0.7
蟠竜湖	0.8	0.7	0.6	0.6	0.7
構原	0.8	1.0			0.9
えびの	0.9	1.6	1.1	1.1	1.2
屋久島	2.3	2.0	2.3	2.3	2.2
辺戸岬	0.2	0.3	0.3	0.3	0.3
--	未測定				
	欠測				
3年平均	欠測期間を除外した平均値				

参考表 9 NOx*年 年平均濃度

調査地点	(単位: ppb)				3年平均
	H20年度 (2008)	H21年度 (2009)	H22年度 (2010)	H22年度 (2010)	
利尻	0.9	0.8	0.8	0.8	0.8
落石岬	1.0	1.1	1.1	1.1	1.0
竜飛岬					
小笠原	0.4	0.6	0.5	0.5	0.5
佐渡関岬	1.1	0.9	0.8	0.8	0.9
八方尾根	1.9	1.2			1.6
伊自良湖	2.3	2.5	2.1	2.1	2.3
隠岐	1.4	1.2	1.3	1.3	1.3
蟠竜湖	3.5	2.8	3.0	3.1	3.1
構原	1.5	1.2			1.3
辺戸岬	0.7	0.7	0.7	0.7	0.7
--	未測定				
	欠測				
3年平均	欠測期間を除外した平均値				

参考表 10 O₃年 年平均濃度

調査地点	(単位: ppb)				3年平均
	H20年度 (2008)	H21年度 (2009)	H22年度 (2010)	H22年度 (2010)	
利尻	43	42	40	40	41
札幌	--	--	29	29	29
落石岬	38	37	37	37	38
竜飛岬					
小笠原	34	37	36	36	36
佐渡関岬	27	--	--	--	27
赤城	60	65	65	65	63
小笠原	27	32	30	30	30
佐渡関岬	46	52	54	54	51
新潟巻	38	46	43	43	42
八方尾根	50	48			49.0
越前岬	--	--	42	42	42
伊自良湖	20	21	20	20	20
大山	34	--	--	--	34
京都八幡	29	29	31	31	30
尼崎	--	--	26	26	26
倉橋島	38	--	--	--	38
隠岐	45	46	46	46	45
蟠竜湖	34	37	35	35	35
構原	40	39			39.7
筑後小郡	22	28	24	24	25
大分久住	--	--	37	37	37
対馬	46	43	45	45	45
五島	--	41	51	51	46
えびの	35	35	28	28	33
屋久島	33	47	35	35	39
辺戸岬	38	39	39	39	39
--	未測定				
	欠測				
3年平均	欠測期間を除外した平均値				

参考表 11 PM₁₀ 年平均濃度

調査地点	(単位: µg/m ³)			
	H20年度 (2008)	H21年度 (2009)	H22年度 (2010)	3年平均
利尻	16	16	17	17
落石	32	23	22	26
竜飛岬	23	19	24	22
小笠原	10	13	9	11
佐渡関岬	22	22	21	22
八方尾根	13	12	11	12
伊自良湖	20	18	18	19
隠岐	28	26	28	27
蟠竜湖	27	28	25	26
構原	17	19	16	17
辺戸岬	26	32	28	29
--	未測定			
	欠測			
3年平均	欠測期間を除外した平均値			

参考表 13 mss-SO₄²⁻年平均濃度 (フィルターパック法)

調査地点	(単位: µg/m ³)			
	H20年度 (2008)	H21年度 (2009)	H22年度 (2010)	3年平均
利尻	2.56	2.03	2.20	2.26
落石	1.81	1.51	1.70	1.68
竜飛岬	3.12	2.92	3.08	3.04
小笠原	1.90	2.09	1.42	1.81
東京	4.87	4.41	4.01	4.43
佐渡関岬	2.96	2.93	2.87	2.92
八方尾根	2.41	0.59	0.82	1.27
伊自良湖	4.51	3.86	3.23	3.87
隠岐	4.18	3.73	3.60	3.84
蟠竜湖	4.55	4.92	3.86	4.45
構原	4.32	5.11	4.20	4.54
辺戸岬	4.33	4.41	1.75	3.50
--	未測定			
	欠測			
3年平均	欠測期間を除外した平均値			

参考表 12 PM_{2.5} 年平均濃度

調査地点	(単位: µg/m ³)			
	H20年度 (2008)	H21年度 (2009)	H22年度 (2010)	3年平均
利尻	9	8	9	9
落石	16	11	12	13
隠岐	13	13	12	13
--	未測定			
	欠測			
3年平均	欠測期間を除外した平均値			

参考表 14 NO₃⁻年平均濃度 (フィルターパック法)

調査地点	(単位: µg/m ³)			
	H20年度 (2008)	H21年度 (2009)	H22年度 (2010)	3年平均
利尻	0.74	0.65	0.76	0.72
落石	0.68	0.66	0.60	0.65
竜飛岬	1.13	1.32	1.35	1.27
小笠原	0.57	0.63	0.47	0.56
東京	3.84	4.12	3.52	3.83
佐渡関岬	0.85	1.04	0.94	0.94
八方尾根	0.21	0.10	0.10	0.14
伊自良湖	0.40	0.35	0.42	0.39
隠岐	1.32	1.44	1.58	1.45
蟠竜湖	1.35	1.47	1.56	1.46
構原	0.33	0.55	0.69	0.52
辺戸岬	1.45	1.71	0.73	1.30
--	未測定			
	欠測			
3年平均	欠測期間を除外した平均値			

参考表 15 HNO₃ 年平均濃度 (フィルターパック法)

調査地点	(単位: ppb)			
	H20年度 (2008)	H21年度 (2009)	H22年度 (2010)	3年平均
利尻	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
落石	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
竜飛岬	0.2	<0.1	0.1	0.17
小笠原	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
東京	1.0	0.8	0.8	0.85
佐渡関岬	0.2	0.2	0.2	0.22
八方尾根	0.4	<0.1	<0.1	0.37
伊自良湖	0.3	0.3	0.2	0.29
隠岐	0.2	0.1	0.1	0.16
蟠竜湖	0.3	0.3	0.2	0.28
構原	0.3	0.3	0.3	0.30
辺戸岬	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
--	未測定			
	欠測			
3年平均	欠測期間を除外した平均値			

参考表 17 NH₃ 年平均濃度 (フィルターパック法)

調査地点	(単位: ppb)			
	H20年度 (2008)	H21年度 (2009)	H22年度 (2010)	3年平均
利尻	0.4	0.4	0.4	0.4
落石	0.6	0.4	0.4	0.5
竜飛岬	0.4	0.5	0.5	0.5
小笠原	0.6	0.5	0.5	0.5
東京	5.2	4.9	4.8	4.9
佐渡関岬	0.7	0.6	0.6	0.6
八方尾根	0.4	0.2	0.3	0.3
伊自良湖	1.1	1.0	1.1	1.0
隠岐	0.9	0.9	0.8	0.9
蟠竜湖	1.0	1.0	1.0	1.0
構原	0.5	0.5	0.5	0.5
辺戸岬	1.2	1.2	1.0	1.1
--	未測定			
	欠測			
3年平均	欠測期間を除外した平均値			

参考表 16 NH₄⁺ 年平均濃度 (フィルターパック法)

調査地点	(単位: µg/m ³)			
	H20年度 (2008)	H21年度 (2009)	H22年度 (2010)	3年平均
利尻	0.53	0.46	0.47	0.48
落石	0.45	0.33	0.33	0.37
竜飛岬	0.74	0.68	0.71	0.71
小笠原	0.20	0.22	0.19	0.20
東京	1.86	1.92	1.67	1.82
佐渡関岬	0.57	0.53	0.61	0.57
八方尾根	0.66	0.15	0.22	0.34
伊自良湖	1.27	1.09	0.90	1.09
隠岐	1.01	0.87	0.99	0.96
蟠竜湖	1.23	1.25	1.06	1.18
構原	1.03	1.24	1.08	1.12
辺戸岬	0.86	0.82	0.28	0.65
--	未測定			
	欠測			
3年平均	欠測期間を除外した平均値			

参考表 18 Ca²⁺ 年平均濃度 (フィルターパック法)

調査地点	(単位: µg/m ³)			
	H20年度 (2008)	H21年度 (2009)	H22年度 (2010)	3年平均
利尻	0.18	0.16	0.17	0.17
落石	0.23	0.16	0.14	0.18
竜飛岬	0.40	0.36	0.33	0.36
小笠原	0.17	0.26	0.14	0.19
東京	0.53	0.48	0.58	0.53
佐渡関岬	0.25	0.25	0.24	0.25
八方尾根	0.10	0.07	0.04	0.07
伊自良湖	0.14	0.13	0.15	0.14
隠岐	0.27	0.36	0.45	0.36
蟠竜湖	0.23	0.36	0.33	0.31
構原	0.19	0.38	0.24	0.27
辺戸岬	0.33	0.58	0.24	0.38
--	未測定			
	欠測			
3年平均	欠測期間を除外した平均値			