

### 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、平成 26 年 3 月改訂)」に基づいて実施した平成 25～29 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、降水組成及び降水による酸や中和成分の沈着(湿性沈着)の傾向を整理した。降水量及び pH(水素イオン( $H^+$ )としての評価を含む)の他、降水を酸性化した酸の指標である非海塩性<sup>1</sup>硫酸イオン( $nss-SO_4^{2-}$ )及び硝酸イオン( $NO_3^-$ )、降水中の酸を中和した成分の指標であるアンモニウムイオン( $NH_4^+$ )及び非海塩性カルシウムイオン( $nss-Ca^{2+}$ )を評価対象とした。評価に当たっては、2.2.7 に示す有効判定基準をいずれも満たすモニタリング結果のみを使用した。

##### (1) 湿性沈着の年平均値の傾向

###### ① pH

降水 pH の各年度の降水量加重平均値（以下、加重平均値という。）及び 5 年間の加重平均値を地点別に図 3-1-1 に示す。このうち、平成 25 年度(2013 年度)から 2017 年度における降水 pH の地点別加重平均値(2013 年度末で休止の地点を含む)の範囲は 4.40(2014 年度・大分久住)～5.22(2013 年度・小笠原)であった。また、各地点における 5 年間の pH 加重平均値(2013 年度末で休止の地点を含む)は 4.58(大分久住)～5.16(小笠原)の範囲にあった。5 年間の pH 加重平均値は、小笠原(5.16)、落石岬(5.10)、辺戸岬(5.07)で比較的高く、大分久住(4.58)、屋久島(4.65)、越前岬(4.67)で比較的低かった。全地点の 5 年間の pH 加重平均値(2013 年度末で休止の地点を含む)は 4.77 であり、2008～2012 年度の加重平均値 4.72 よりわずかに上昇したが、依然として降水は酸性化した状態にあるといえる。

---

<sup>1</sup> 硫酸イオン及びカルシウムイオンは海水中にも含まれ、海塩として大気中に放出され降水に取り込まれる。海塩は降水の酸性化に直接影響しないため、その寄与を差し引いた両イオンの濃度を解析の対象としている。降水中のナトリウムイオンが全て海塩に由来すると仮定して、降水中の硫酸イオン及びカルシウムイオン濃度から、海水中のナトリウムイオンと両イオンの比率に基づき算出した海塩由来分を差し引くことにより、海塩に由来しない(non-sea-salt : nss-)非海塩性硫酸イオン( $nss-SO_4^{2-}$ )及び非海塩性カルシウムイオン( $nss-Ca^{2+}$ )濃度を求めている。



図 3-1-1 pH 分布図(2013～2017 年度)

2013 年度/2014 年度/2015 年度/2016 年度/2017 年度 (5 年間平均値)

--, 測定無し。\*\*, 当該年平均値が有効判定基準に適合せず、棄却されたことを示す。

平均値は降水量加重平均により求めた。

八幡平、京都八幡、潮岬は 2013 年度末で測定を休止。

五島では湿性沈着モニタリングは実施されていない。

## ② 降水量

年間降水量の範囲は 796 mm y<sup>-1</sup>(2016 年度・小笠原)～5,378 mm y<sup>-1</sup>(2015 年度・屋久島)であった。また、各地点における 5 年間の平均年間降水量は、屋久島、えびので 3,000 mm y<sup>-1</sup>以上と九州以南で多く、利尻、札幌、落石岬では 1,000 mm y<sup>-1</sup>程度と北海道の地点で少ない傾向がみられた。

各大気モニタリング地点(2013 年度末で休止の地点を除く)の降水量について、最寄りの気象観測地点の雨量及びその平年値をもとに考察した結果を表 3-1-1 に示す。最寄りの気象観測地点での雨量は全 23 地点中 17 地点で平年値よりも高く、全地点平均では平年値より約 5%多かった。特に、巻(新潟巻)、筑後小郡(朝倉)、えびの(加久藤)で平年値との偏差が大きかった。また、大気モニタリング地点の一部では気象観測地点との偏差が大きく、

最大で±40%程度となったが、地形(山岳、島嶼部、岬等)による局地的な降水状況の差異などが影響したものと考えられる。

表 3-1-1 大気モニタリング地点と気象観測地点の比較

大気モニタリング地点	2013-2017年 平均降水量 (mm y <sup>-1</sup> )	気象観測 地点との偏	最寄りの気 象観測地点	2013-2017年 平均雨量*1 (mm y <sup>-1</sup> )	平年値*2 との偏差	両地点間 の距離*3 (km)
利尻	1,114	23%	杓形	906	-2%	10
札幌	1,161	-7%	札幌	1,253	13%	4
落石岬	942	-20%	根室	1,178	15%	19
竜飛岬	1,160	-31%	今別	1,676	7%	14
篔岳	1,128	8%	米山	1,043	-2%	7
赤城	1,822	30%	黒保根	1,400	-4%	10
東京	1,612	-6%	東京	1,711	12%	1
小笠原	1,469	10%	父島	1,341	4%	4
佐渡関岬	1,242	-28%	弾崎	1,735	8%	11
新潟巻	1,761	-12%	巻	1,996	18%	6
八方尾根	2,600	38%	白馬	1,888	-1%	5
越前岬	2,259	-2%	越廼	2,314	10%	2
伊自良湖	3,001	-4%	樽見	3,120	-3%	11
尼崎	1,373	1%	豊中	1,356	6%	7
隠岐	1,233	-32%	西郷	1,800	0%	17
蟠竜湖	1,677	1%	益田	1,657	5%	4
禰原	2,889	2%	禰原	2,826	11%	2
筑後小郡	2,082	-1%	朝倉	2,095	20%	13
対馬	2,093	-8%	巖原	2,277	2%	6
大分久住	2,143	14%	竹田	1,882	3%	13
えびの	3,154	6%	加久藤	2,989	16%	6
屋久島	4,366	-5%	屋久島	4,593	3%	18
辺戸岬	1,809	-23%	奥	2,359	-6%	4

\*1 気象庁が観測した月毎の雨量[1]をもとに、年度毎の雨量を計算した。

\*2 平年値：1981年～2010年の30年間の観測値による平均値として、気象庁が公表した値[2]。

\*3 両地点の緯度及び経度から計算した距離。

### ③ 湿性沈着量<sup>2</sup>とイオン成分濃度

図 2-1 のように 26 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、南西諸島の 7 つの地域に区分した各地域区分における 5 年間の pH 及びイオン成分濃度の加重平均値を表 3-1-2 に、5 年間の湿性沈着量の平均値を示した結果を表 3-1-3 に示す。なお、各地域区分における平均値の算出にあたっては、2013 年度末までに測定を休止した 3 地点(八幡平、京都八幡、潮岬)の結果も含めた。

<sup>2</sup> 湿性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。

降水量は南西諸島が最高であり、次いで東シナ海沿岸及び太平洋側で高かった。東シナ海沿岸では全項目で湿性沈着量が上位3位以内に入っており、高い降水量が影響したものと推察される。一方、太平洋側では降水量は比較的多かったものの、イオン成分濃度はいずれも3位以下と他の地域区分と比較して低く、湿性沈着量も低い傾向がみられた。また、北海道では降水量が最も低かったほか、湿性沈着量でも全項目で最も低い値を示した。

pHは瀬戸内海沿岸で4.68と最も低く、次いで山陰が低い値となった。図3-1-1で示すとおり、瀬戸内海沿岸に属する尼崎及び京都八幡の5年間のpH加重平均値は全地点のほぼ中位であったが、大分久住では4.58と全地点で最も低く、その結果が反映されたものと考えられる。

H<sup>+</sup>湿性沈着量及びnss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>湿性沈着量は東シナ海沿岸及び南西諸島で高い値を示した。東シナ海沿岸の対馬、筑後小郡及びえびのではいずれも湿性沈着量は全調査地点の上位に位置しており、南西諸島では屋久島の高い湿性沈着量が影響している。NO<sub>3</sub><sup>-</sup>湿性沈着量においては、八方尾根を除く竜飛岬、佐渡関岬、新潟巻及び越前岬で他の地点と比較してNO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度が高い傾向にあり、本州中北部日本海側で最も高い結果となった。山陰では降水量は少なかったものの、隠岐、幡竜湖両地点での高いイオン成分濃度の影響で本州中北部日本海側に次いでNO<sub>3</sub><sup>-</sup>湿性沈着量は高い値となった。また、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、nss-Ca<sup>2+</sup>湿性沈着量では東シナ海沿岸で最も高い値を示した。NH<sub>4</sub><sup>+</sup>湿性沈着量は対馬、筑後小郡及びえびのいずれも全調査地点の上位に位置しており、nss-Ca<sup>2+</sup>湿性沈着量では全地点で最も高い値であったえびのの結果が反映されるかたちとなった。

表3-1-2 降水量の5年間平均値及びpH・イオン成分濃度の5年間加重平均値とその順位(2013～2017年度)

地域区分	5年平均 (mm y <sup>-1</sup> )		5年加重 平均		5年加重平均 (μmol L <sup>-1</sup> )							
	降水量		pH		nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>		NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>		NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>		nss-Ca <sup>2+</sup>	
北海道	1,073	7	4.83	6	9.0	6	11.1	4	13.4	3	2.5	3
本州中北部日本海側	1,804	4	4.74	3	11.9	3	16.4	2	14.8	2	2.9	2
太平洋側	2,010	3	4.84	7	8.9	7	12.1	3	12.8	5	1.8	6
瀬戸内海沿岸	1,748	5	4.68	1	11.5	4	10.5	5	11.6	6	2.5	3
山陰	1,455	6	4.69	2	13.3	1	19.0	1	14.9	1	3.7	1
東シナ海沿岸	2,397	2	4.79	5	12.2	2	10.3	6	13.0	4	2.4	5
南西諸島	3,087	1	4.76	4	9.1	5	8.1	7	7.7	7	1.0	7

pHは値の低い地域から順位付けをした。

表 3-1-3 湿性沈着量の 5 年間平均値とその順位(2013～2017 年度)

地域区分	5 年間の平均湿性沈着量( $\text{mmol m}^{-2} \text{y}^{-1}$ )									
	$\text{H}^+$		$\text{nss-SO}_4^{2-}$		$\text{NO}_3^-$		$\text{NH}_4^+$		$\text{nss-Ca}^{2+}$	
北海道	16.4	7	10.0	7	12.3	7	14.9	7	2.8	7
本州中北部日本海側	31.2	4	20.4	3	28.1	1	25.4	2	5.0	3
太平洋側	27.1	6	16.8	6	22.8	5	24.2	3	3.5	5
瀬戸内海沿岸	34.7	3	19.1	5	17.5	6	19.3	6	4.1	4
山陰	29.6	5	19.2	4	27.3	2	21.5	5	5.3	2
東シナ海沿岸	40.7	2	30.2	1	25.7	3	32.2	1	5.9	1
南西諸島	50.6	1	29.0	2	23.5	4	22.2	4	3.1	6

次に、2013～2017 年度のモニタリング結果について、1998～2012 年度のモニタリング結果を用いて以下のとおり評価を行った。まず、1998～2012 年度の有効なモニタリング結果(年間(加重)平均値)の各地点・項目の中央値

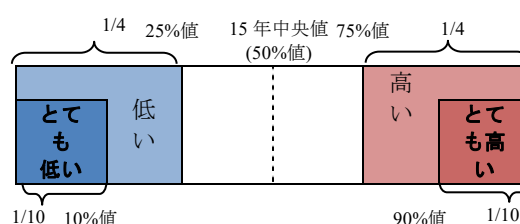


図 3-1-2 15 年間のパーセンタイル値の概念図

(50%値)を対象年度間<sup>3</sup>の 15 年中央値として定義する。評価にあたっては 25%値及び 75%値を境界とし、それより低い、高い値をそれぞれ「低い」、「高い」とした。更に、10%値より低い値及び 90%値より高い値をそれぞれ「とても低い」、「とても高い」と追加的に示した。但し、1998～2012 年度のうち年間データが有効であった年数が 12 年未満である地点・項目については 15 年中央値及び階級を参考データとして扱うほか、10%値及び 90%値も代表性が低いとみなし、追加的な評価を行わなかった。各地点の結果を表 3-1-4 から 3-1-26 に示す。また、参考として図 3-1-2、図 3-1-3 には 2013～2017 年度までの pH、イオン成分濃度と湿性沈着量の 5 年間の平均値と 1998～2012 年度のモニタリング結果から 10%値、25%値、中央値、75%値、90%値を 15 年間のパーセンタイル値として示す。なお、評価の基準となる 1998～2012 年度の詳細なデータは、巻末の参考資料に記載する。

各地点の 5 年間の平均値と 15 年間のパーセンタイル値を比較すると、pH では 23 地点中 14 地点で高いもしくはとても高い結果(参考データを含む)となった一方、大分久住では全地点中で唯一 10%値を下回り、とても低い結果となった。pH が高くなった地点では酸性化に寄与した  $\text{nss-SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ 濃度が 10%値もしくは 25%値を下回る傾向にあり、降水酸性化の緩和がみられる。大分久住における年度別の評価結果をみると、2014 年度の pH が 4.40 ととりわけ低い値であり、同年度の  $\text{nss-SO}_4^{2-}$ 濃度も 15 年間のパーセンタイル値の評価ではとても高い結果にあった。阿蘇山では 2014 年 8 月、11 月に噴火が確認され、大分久住

<sup>3</sup> 1998～2012 年度の 15 年間のうち、有効なデータが存在する最初と最後の年度の間を「対象年度間」とする。例えば、2007 年度からモニタリングを開始した東京では「2007～2012 年度の分布」となる。本項においては便宜上、すべての地点及び項目について 1998～2012 年度の 15 年中央値であるとして記述したが、個別の 15 年中央値の対象年度間については巻末の参考資料内に記載する。

でも降灰があったことから火山活動による影響を受けたものと推察される。 $\text{NH}_4^+$ 及び  $\text{nss-Ca}^{2+}$ 濃度においては、5年平均値が75%値を上回った地点は1地点のみであり、多くの地点で低い傾向にあることが示された。

また、各イオン成分の湿性沈着量に関してもイオン成分濃度と概ね同様の傾向がみられた。 $\text{H}^+$ 湿性沈着量は23地点中14地点で低いもしくはとても低い(参考データを含む)結果であった一方、大分久住では90%を上回りとても高い結果となったほか、屋久島でも75%値を上回った。屋久島においては15年中央値の降水量を大きく上回る年度もあり、降水量の多さが影響していると考えられる。 $\text{nss-SO}_4^{2-}$ 湿性沈着量では75%値を上回る地点は無く、半数以上の地点で低い結果であったことに加え、東日本で低くなる傾向が示された。 $\text{NO}_3^-$ 湿性沈着量は5年平均値で伊自良湖が最も高い値であったが、15年パーセンタイル値による評価ではとても低い状態にある。伊自良湖では  $\text{nss-SO}_4^{2-}$ 湿性沈着量もとても低い状態にあり、依然として他の調査地点と比較すると高い結果であるものの、降水の酸性化が緩和していることが伺える。

表 3-1-4 1998～2012 年度の 15 年間中央値での評価結果(利尻局)

<利尻>

項目	2013 年度	2014 年度	2015 年度	2016 年度	2017 年度	15年 中央値	対象年度 (うち有効データ数)
降水量 /mm	1093	1084	1044	<b>1285</b>	1064	922	1998～2012 年度
pH	4.69	4.76	4.77	4.88	4.79	4.75	2001～2012 年度
濃度/ μmol L <sup>-1</sup>	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	<b>10.4</b>	<b>10.4</b>	<b>8.8</b>	<b>8.2</b>	13.7	2001～2012 年度
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	<b>12.3</b>	9.7	<b>10.9</b>	<b>11.4</b>	<b>21.5</b>	2001～2012 年度
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	<b>13.1</b>	<b>12.3</b>	<b>12.4</b>	<b>12.0</b>	<b>26.7</b>	2001～2012 年度
	nss-Ca <sup>2+</sup>	2.8	2.7	<b>1.7</b>	<b>2.2</b>	4.6	2001～2012 年度
沈着量/ mmol m <sup>-2</sup>	H <sup>+</sup>	22.5	18.7	17.8	16.8	17.4	2001～2012 年度
	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	11.4	<b>11.3</b>	<b>9.2</b>	<b>10.6</b>	14.6	2001～2012 年度
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	13.4	<b>10.5</b>	11.4	14.7	<b>22.9</b>	2001～2012 年度
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	14.3	<b>13.4</b>	<b>12.9</b>	15.4	<b>28.4</b>	2001～2012 年度
nss-Ca <sup>2+</sup>	3.1	3.0	<b>1.8</b>	2.8	4.9	3.4	2001～2012 年度



pH は参考データ扱いであるが、2013～2016 年度にかけて上昇を示しており、イオン成分濃度は 2017 年度を除きとても低い状態にある。2017 年度はイオン成分濃度全般が高い結果であり、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>及び NH<sub>4</sub><sup>+</sup>濃度は 90%値を上回った。

表 3-1-5 1998～2012 年度の 15 年間中央値での評価結果(札幌局)

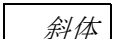
<札幌>

項目	2013 年度	2014 年度	2015 年度	2016 年度	2017 年度	15年 中央値	対象年度 (うち有効データ数)	
降水量/mm	1175	1200	1093	1224	1114	1043	1998～2012 年度	
pH	4.65	4.73	4.77	<b>4.87</b>	<b>4.93</b>	4.70	1998～2012 年度	
濃度/ μmol L <sup>-1</sup>	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	<b>10.9</b>	<b>10.0</b>	<b>9.6</b>	<b>7.5</b>	<b>7.8</b>	14.3	1998～2012 年度
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	14.3	<b>9.3</b>	12.4	<b>9.8</b>	<b>9.8</b>	13.4	1998～2012 年度
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	<b>17.4</b>	<b>12.5</b>	<b>16.3</b>	<b>13.1</b>	<b>15.4</b>	21.9	1998～2012 年度
	nss-Ca <sup>2+</sup>	<b>3.5</b>	<b>2.2</b>	<b>2.6</b>	<b>1.8</b>	<b>2.5</b>	4.6	1998～2012 年度
沈着量/ mmol m <sup>-2</sup>	H <sup>+</sup>	26.2	22.2	18.4	<b>16.4</b>	<b>13.1</b>	20.7	1998～2012 年度
	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	<b>12.8</b>	<b>12.0</b>	<b>10.5</b>	<b>9.2</b>	<b>8.7</b>	15.1	1998～2012 年度
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	16.8	<b>11.2</b>	13.6	12.0	<b>10.9</b>	15.0	1998～2012 年度
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	20.5	<b>15.0</b>	<b>17.9</b>	<b>16.0</b>	<b>17.1</b>	22.7	1998～2012 年度
nss-Ca <sup>2+</sup>	4.2	<b>2.6</b>	<b>2.9</b>	<b>2.2</b>	<b>2.8</b>	5.2	1998～2012 年度	

pH は、15 年パーセンタイル値の評価では 2013 年度で低かったが、年々上昇しており、2016 年度にはとても高い状態に転じた。また、イオン成分濃度及び湿性沈着量は多くの項目でとても低い状態が続いている。

 :高い  
 :低い

 **太字** :とても高い  
 **太字** :とても低い

 *斜体* :15 年中央値が参考データ  
(有効データ数が 12 未満)


 -- :年間値が無効

表 3-1-6 1998～2012 年度の 15 年間中央値での評価結果(落石岬局)

〈落石岬〉

項目	2013 年度	2014 年度	2015 年度	2016 年度	2017 年度	15年 中央値	対象年度 (うち有効データ数)	
降水量/mm	<b>1083</b>	840	841	<b>1094</b>	854	844	2000～2012 年度	
pH	<b>5.00</b>	--	--	<b>5.19</b>	<b>5.13</b>	4.86	2001～2011 年度	
濃度/ μmol L <sup>-1</sup>	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	--	--	<b>4.5</b>	<b>5.1</b>	9.5	2000～2012 年度	
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	9.2	--	--	<b>5.8</b>	9.9	2000～2012 年度	
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	10.2	--	--	<b>5.1</b>	10.8	2000～2012 年度	
	nss-Ca <sup>2+</sup>	--	--	--	<b>1.3</b>	1.8	2.7	2000～2011 年度
沈着量/ mmol m <sup>-2</sup>	H <sup>+</sup>	<b>10.8</b>	--	--	<b>7.1</b>	6.3	11.9	2001～2011 年度
	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	--	--	--	<b>4.9</b>	<b>4.3</b>	8.2	2000～2012 年度
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	<b>10.0</b>	--	--	<b>6.3</b>	<b>5.9</b>	8.3	2000～2012 年度
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	<b>11.0</b>	--	--	<b>5.6</b>	<b>5.6</b>	9.6	2000～2012 年度
nss-Ca <sup>2+</sup>	--	--	--	<b>1.4</b>	<b>1.5</b>	2.6	2000～2011 年度	

2014年度及び2015年度は捕集装置の故障に伴う欠測等により年間値は無効となっている(降水量を除く)。2016年度以降はいずれのイオン成分濃度及び沈着量も低く、pHは参考データ扱いではあるが高い状態が続いている。

表 3-1-7 1998～2012 年度の 15 年間中央値での評価結果(竜飛岬局)

〈竜飛岬〉

項目	2013 年度	2014 年度	2015 年度	2016 年度	2017 年度	15年 中央値	対象年度 (うち有効データ数)	
降水量/mm	1135	1129	1137	1199	1198	1175	1998～2012 年度	
pH	4.71	4.72	4.84	4.79	4.79	4.68	1998～2012 年度	
濃度/ μmol L <sup>-1</sup>	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	18.0	15.7	11.5	11.6	9.9	14.9	1998～2012 年度
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	25.5	20.8	14.8	18.0	18.2	17.5	1998～2012 年度
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	22.3	19.7	13.5	14.9	14.4	13.5	1998～2012 年度
	nss-Ca <sup>2+</sup>	7.2	3.8	2.8	3.5	3.0	4.9	1998～2012 年度
沈着量/ mmol m <sup>-2</sup>	H <sup>+</sup>	22.2	21.4	16.4	19.2	19.4	25.1	1998～2012 年度
	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	20.4	17.7	13.0	13.9	11.9	17.2	1998～2012 年度
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	29.0	23.5	16.8	21.5	21.9	21.3	1998～2012 年度
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	25.3	22.3	15.3	17.9	17.2	17.2	1998～2012 年度
nss-Ca <sup>2+</sup>	8.2	4.3	3.2	4.2	3.6	5.7	1998～2012 年度	

対象年度の有効データ数が12年未満であるため、全項目を参考データとしている。降水量は期間を通じて15年中央値からの大きな差異はみられなかった。2013年度には多くの項目で75%値を上回り高い状態にあったが、以降は25%値を下回る低い結果がみられる。

:高い  
 :低い

**太字** :とても高い  
 **太字** :とても低い

*斜体* :15年中央値が参考データ  
(有効データ数が12未満)

-- :年間値が無効



表 3-1-8 1998～2012 年度の 15 年間中央値での評価結果(箕岳局)

<箕岳>

項目	2013 年度	2014 年度	2015 年度	2016 年度	2017 年度	15年 中央値	対象年度 (うち有効データ数)	
降水量/mm	1310	1173	<b>950</b>	<b>972</b>	1235	1150	1998～2012 年度	
pH	4.98	<b>5.05</b>	4.90	4.98	<b>5.08</b>	4.77	1998～2012 年度	
濃度/ μmol L <sup>-1</sup>	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	8.3	<b>7.5</b>	8.9	<b>6.3</b>	<b>5.8</b>	10.1	1998～2012 年度
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	12.0	<b>9.8</b>	<b>11.5</b>	<b>9.5</b>	<b>7.9</b>	12.3	1998～2012 年度
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	14.0	12.4	12.9	<b>11.2</b>	<b>11.3</b>	13.7	1998～2012 年度
	nss-Ca <sup>2+</sup>	2.2	<b>1.8</b>	<b>1.8</b>	<b>1.2</b>	<b>1.1</b>	2.3	1998～2012 年度
沈着量/ mmol m <sup>-2</sup>	H <sup>+</sup>	13.7	<b>10.5</b>	<b>11.9</b>	<b>10.3</b>	<b>10.2</b>	20.1	1998～2012 年度
	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	10.9	<b>8.8</b>	<b>8.4</b>	<b>6.1</b>	<b>7.2</b>	13.1	1998～2012 年度
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	15.7	<b>11.4</b>	<b>10.9</b>	<b>9.3</b>	<b>9.8</b>	16.0	1998～2012 年度
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	18.3	14.5	<b>12.3</b>	<b>10.9</b>	14.0	16.8	1998～2012 年度
nss-Ca <sup>2+</sup>	2.9	2.1	<b>1.7</b>	<b>1.2</b>	<b>1.3</b>	3.0	1998～2012 年度	

2015 年度の NH<sub>4</sub><sup>+</sup>濃度を除き、2014 年度以降はイオン成分濃度、湿性沈着量で低いもしくはとても低い状態にある。また、pH は期間を通じて 5 付近と 15 年中央値と比較して高い状態で推移している。

表 3-1-9 1998～2012 年度の 15 年間中央値での評価結果(赤城局)

<赤城>

項目	2013 年度	2014 年度	2015 年度	2016 年度	2017 年度	15年 中央値	対象年度 (うち有効データ数)	
降水量/mm	1591	1962	1804	1651	2103	1672	2003～2012 年度	
pH	4.85	4.85	4.75	4.93	--	4.79	2003～2012 年度	
濃度/ μmol L <sup>-1</sup>	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	8.5	9.3	10.7	5.5	--	10.3	2003～2012 年度
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	16.1	14.5	14.0	10.4	--	18.5	2003～2012 年度
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	16.1	17.7	16.0	12.1	--	17.5	2003～2012 年度
	nss-Ca <sup>2+</sup>	1.9	1.8	1.7	0.9	--	2.1	2003～2012 年度
沈着量/ mmol m <sup>-2</sup>	H <sup>+</sup>	22.4	27.5	32.2	19.2	--	29.1	2003～2012 年度
	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	13.5	18.3	19.2	9.1	--	15.8	2003～2012 年度
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	25.5	28.5	25.3	17.2	--	29.0	2003～2012 年度
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	25.7	34.8	28.9	19.9	--	29.1	2003～2012 年度
nss-Ca <sup>2+</sup>	3.0	3.6	3.0	1.6	--	3.6	2003～2012 年度	

いずれの項目も参考データ扱いではあるが、2016 年度の結果ではイオン成分濃度及び沈着量の低下が顕著にみられた。NO<sub>3</sub>濃度は 2013 年度以降減少が続いており、pH では 75%値を上回る年度もみられた。

  :高い  
  :低い

**太字** :とても高い  
**太字** :とても低い

斜体 :15 年中央値が参考データ  
(有効データ数が 12 未満)

-- :年間値が無効

表 3-1-10 1998～2012 年度の 15 年間中央値での評価結果(東京局)

<東京>

項目	2013 年度	2014 年度	2015 年度	2016 年度	2017 年度	15年 中央値	対象年度 (うち有効データ数)	
降水量/mm	1772	1733	1648	1494	1414	1535	2007～2012 年度	
pH	5.03	4.83	4.81	4.92	4.92	4.78	2007～2012 年度	
濃度/ μmol L <sup>-1</sup>	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	11.4	11.6	10.4	9.0	8.2	14.5	2007～2012 年度
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	16.2	16.4	15.5	12.6	13.3	19.4	2007～2012 年度
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	23.7	21.7	19.6	18.3	17.8	26.5	2007～2012 年度
	nss-Ca <sup>2+</sup>	3.6	3.3	3.1	2.3	2.3	3.6	2007～2012 年度
沈着量/ mmol m <sup>-2</sup>	H <sup>+</sup>	16.6	25.9	25.5	17.9	17.0	22.8	2007～2012 年度
	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	20.1	20.1	17.2	13.4	11.7	21.0	2007～2012 年度
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	28.7	28.3	25.5	18.8	18.8	28.9	2007～2012 年度
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	42.0	37.5	32.2	27.3	25.2	38.8	2007～2012 年度
nss-Ca <sup>2+</sup>	6.4	5.7	5.0	3.5	3.2	5.7	2007～2012 年度	

イオン成分濃度は期間を通じて低い状態を示している。NH<sub>4</sub><sup>+</sup>濃度は全地点中で最も高い値が続いているが、他のイオン成分濃度同様、2013～2017 年度にかけて減少がみられる。pH は 15 年間中央値をいずれの年度も上回る結果となった。

表 3-1-11 1998～2012 年度の 15 年間中央値での評価結果(小笠原局)

<小笠原>

項目	2013 年度	2014 年度	2015 年度	2016 年度	2017 年度	15年 中央値	対象年度 (うち有効データ数)	
降水量/mm	1401	1432	1958	796	1760	1590	1998～2012 年度	
pH	5.22	5.07	5.20	5.16	--	5.11	1998～2012 年度	
濃度/ μmol L <sup>-1</sup>	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	5.1	4.0	--	2.9	--	4.1	1998～2012 年度
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	3.7	3.0	2.6	4.1	--	3.4	1998～2012 年度
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	6.1	3.8	3.4	3.7	--	4.9	1998～2012 年度
	nss-Ca <sup>2+</sup>	1.5	1.2	--	0.7	--	1.9	1998～2012 年度
沈着量/ mmol m <sup>-2</sup>	H <sup>+</sup>	8.5	12.1	12.4	5.5	--	11.6	1998～2012 年度
	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	7.1	5.7	--	2.3	--	7.5	1998～2012 年度
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	5.3	4.3	5.1	3.3	--	5.8	1998～2012 年度
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	8.5	5.4	6.7	3.0	--	6.9	1998～2012 年度
nss-Ca <sup>2+</sup>	2.1	1.7	--	0.6	--	3.6	1998～2012 年度	

NO<sub>3</sub><sup>-</sup>を除き各イオン成分濃度で減少がみられる。2016 年度は降水量が他の年度と比較し、とても低く、湿性沈着量も低いもしくはとても低い結果となった。pH は期間を通じて 5 以上と他の地点と比較して高い数値で推移している。

  : 高い  
  : 低い

: とても高い  
 : とても低い

: 15 年中央値が参考データ  
(有効データ数が 12 未満)

  : 年間値が無効

表 3-1-12 1998～2012 年度の 15 年間中央値での評価結果(佐渡関岬局)

<佐渡関岬>

項目	2013 年度	2014 年度	2015 年度	2016 年度	2017 年度	15年 中央値	対象年度 (うち有効データ数)
降水量/mm	<b>1636</b>	1358	<b>853</b>	<b>1006</b>	1356	1249	2000～2012 年度
pH	4.70	4.72	4.73	4.86	--	4.65	2000～2012 年度
濃度/ μmol L <sup>-1</sup>	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	13.7	14.4	12.8	10.4	--	16.9 2000～2012 年度
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	20.6	18.0	19.9	17.4	--	20.2 2000～2012 年度
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	19.2	17.8	16.8	16.5	--	18.0 2000～2012 年度
	nss-Ca <sup>2+</sup>	3.0	3.5	4.9	6.6	--	5.9 2000～2012 年度
沈着量/ mmol m <sup>-2</sup>	H <sup>+</sup>	32.5	25.9	15.9	13.9	--	26.1 2000～2012 年度
	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	22.4	19.5	10.9	10.5	--	19.5 2000～2012 年度
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	33.7	24.4	17.0	17.5	--	23.8 2000～2012 年度
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	31.4	24.1	14.3	16.6	--	20.7 2000～2012 年度
nss-Ca <sup>2+</sup>	4.9	4.8	4.2	6.6	--	6.7 2000～2012 年度	

湿性沈着量では nss-Ca<sup>2+</sup>を除き、2013 年度は高い状態にあった。当該年度は高い降水量が沈着量に影響したと考えられるが、以降は高い状態から低い状態へと推移していることが伺える。pH は期間を通じて 75% 値を上回っており、緩やかに増加している。

表 3-1-13 1998～2012 年度の 15 年間中央値での評価結果(新潟巻局)

<新潟巻>

項目	2013 年度	2014 年度	2015 年度	2016 年度	2017 年度	15年 中央値	対象年度 (うち有効データ数)
降水量/mm	<b>2123</b>	1691	<b>1421</b>	<b>1431</b>	<b>2142</b>	1693	2000～2012 年度
pH	4.65	<b>4.67</b>	4.65	<b>4.73</b>	<b>4.80</b>	4.60	2000～2012 年度
濃度/ μmol L <sup>-1</sup>	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	<b>13.4</b>	<b>12.1</b>	<b>13.1</b>	<b>11.5</b>	<b>10.4</b>	17.1 2000～2012 年度
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	17.7	<b>15.2</b>	16.4	<b>15.1</b>	<b>15.2</b>	18.5 2000～2012 年度
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	16.4	<b>14.7</b>	16.3	17.6	17.8	16.9 2000～2012 年度
	nss-Ca <sup>2+</sup>	<b>2.2</b>	<b>1.8</b>	<b>2.2</b>	<b>2.0</b>	<b>2.3</b>	4.4 2000～2012 年度
沈着量/ mmol m <sup>-2</sup>	H <sup>+</sup>	47.8	<b>36.3</b>	<b>32.0</b>	<b>26.7</b>	<b>33.9</b>	39.6 2000～2012 年度
	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	28.5	<b>20.4</b>	<b>18.7</b>	<b>16.5</b>	<b>22.2</b>	26.0 2000～2012 年度
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	<b>37.5</b>	25.7	<b>23.4</b>	<b>21.6</b>	32.5	30.4 2000～2012 年度
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	34.9	24.9	23.1	25.2	<b>38.1</b>	27.5 2000～2012 年度
nss-Ca <sup>2+</sup>	<b>4.7</b>	<b>3.1</b>	<b>3.1</b>	<b>2.8</b>	<b>4.9</b>	6.1 2000～2012 年度	

2014 年度以降は多くの項目で低い状態が続いており、特に nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度は期間を通じてとても低い状態にある。pH は年度で多少の増減はみられるものの、いずれも 75% 値を上回り高い状態にあることが示されている。

: 高い  
 : 低い

**太字** : とても高い  
 **太字** : とても低い

*斜体* : 15 年中央値が参考データ  
 (有効データ数が 12 未満)

-- : 年間値が無効

表 3-1-14 1998～2012 年度の 15 年間中央値での評価結果(八方尾根局)

<八方尾根>

項目	2013 年度	2014 年度	2015 年度	2016 年度	2017 年度	15年 中央値	対象年度 (うち有効データ数)
降水量/mm	2671	2479	2177	2516	<b>3156</b>	2486	1998～2012 年度
pH	<b>5.00</b>	<b>5.02</b>	--	--	--	4.92	1998～2012 年度
濃度/ μmol L <sup>-1</sup>	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	8.7	8.8	--	--	--	9.6 1998～2012 年度
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	8.8	10.3	--	--	--	8.4 1998～2012 年度
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	9.7	9.3	--	--	--	10.4 1998～2012 年度
	nss-Ca <sup>2+</sup>	2.5	4.1	--	--	--	2.8 1998～2012 年度
沈着量/ mmol m <sup>-2</sup>	H <sup>+</sup>	26.8	<b>23.8</b>	--	--	--	30.0 1998～2012 年度
	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	23.3	21.7	--	--	--	21.1 1998～2012 年度
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	<b>23.6</b>	<b>25.6</b>	--	--	--	20.3 1998～2012 年度
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	<b>26.0</b>	<b>23.1</b>	--	--	--	22.3 1998～2012 年度
	nss-Ca <sup>2+</sup>	6.6	<b>10.1</b>	--	--	--	6.8 1998～2012 年度



2015～2017 年度は捕集装置の故障等に伴う欠測により降水量以外の年間値は無効扱いである。イオン成分濃度はいずれも 15 年パーセンタイル値の評価では 25%値～75%値の範囲であったが、NO<sub>3</sub>湿性沈着量は 2013～2014 年度で高いもしくはとても高い状態となった。

表 3-1-15 1998～2012 年度の 15 年間中央値での評価結果(越前岬局)

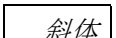
<越前岬>

項目	2013 年度	2014 年度	2015 年度	2016 年度	2017 年度	15年 中央値	対象年度 (うち有効データ数)
降水量/mm	<b>2554</b>	2198	2091	2004	<b>2450</b>	2024	1998～2012 年度
pH	<b>4.60</b>	<b>4.64</b>	<b>4.68</b>	<b>4.71</b>	<b>4.76</b>	4.57	1998～2012 年度
濃度/ μmol L <sup>-1</sup>	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	14.2	<b>13.1</b>	<b>12.1</b>	<b>9.8</b>	<b>11.3</b>	17.2 1998～2012 年度
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	18.8	<b>15.6</b>	17.3	16.6	17.5	19.8 1998～2012 年度
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	15.9	<b>13.0</b>	<b>13.6</b>	<b>10.8</b>	<b>13.8</b>	20.0 1998～2012 年度
	nss-Ca <sup>2+</sup>	<b>2.3</b>	<b>1.8</b>	<b>2.5</b>	<b>2.0</b>	2.6	4.0 1998～2012 年度
沈着量/ mmol m <sup>-2</sup>	H <sup>+</sup>	64.4	<b>50.7</b>	<b>43.6</b>	<b>38.7</b>	<b>42.9</b>	57.6 1998～2012 年度
	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	36.3	<b>28.7</b>	<b>25.3</b>	<b>19.6</b>	<b>27.6</b>	33.7 1998～2012 年度
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	<b>48.0</b>	<b>34.2</b>	36.3	<b>33.3</b>	<b>42.9</b>	40.7 1998～2012 年度
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	40.7	<b>28.5</b>	<b>28.4</b>	<b>21.6</b>	33.8	41.0 1998～2012 年度
	nss-Ca <sup>2+</sup>	6.0	<b>4.0</b>	5.2	<b>4.0</b>	6.4	8.6 1998～2012 年度

降水酸性化に寄与した nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>及び NO<sub>3</sub>濃度は期間を通じて低く、湿性沈着量も 2014 年度以降はとても低い状態で推移している。pH はいずれも 75%値を上回り高い状態にあるほか、2013 年度の pH4.60 から上昇が続いている。

 :高い  
 :低い

 **太字** :とても高い  
 **太字** :とても低い

 *斜体* :15 年中央値が参考データ  
(有効データ数が 12 未満)


 -- :年間値が無効

表 3-1-16 1998～2012 年度の 15 年間中央値での評価結果(伊自良湖局)

<伊自良湖>

項目	2013 年度	2014 年度	2015 年度	2016 年度	2017 年度	15年 中央値	対象年度 (うち有効データ数)
降水量/mm	2806	3107	3029	3084	2978	2730	1999～2012 年度
pH	<b>4.74</b>	4.70	<b>4.74</b>	<b>4.74</b>	<b>4.75</b>	4.54	2000～2012 年度
濃度/ μmol L <sup>-1</sup>	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	<b>10.3</b>	<b>11.3</b>	<b>9.7</b>	<b>10.4</b>	<b>8.9</b>	16.7 2000～2012 年度
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	<b>13.8</b>	15.8	<b>15.0</b>	16.7	15.3	21.6 2000～2012 年度
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	<b>12.5</b>	14.1	<b>12.3</b>	14.7	<b>12.2</b>	17.8 2000～2012 年度
	nss-Ca <sup>2+</sup>	<b>1.3</b>	<b>1.5</b>	<b>1.4</b>	<b>1.5</b>	1.9	2.9 2000～2012 年度
沈着量/ mmol m <sup>-2</sup>	H <sup>+</sup>	<b>50.5</b>	62.1	<b>54.5</b>	<b>56.7</b>	<b>52.5</b>	75.3 2000～2012 年度
	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	<b>29.0</b>	<b>35.2</b>	<b>29.3</b>	<b>32.0</b>	<b>26.5</b>	43.0 2000～2012 年度
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	<b>38.6</b>	49.2	<b>45.5</b>	51.4	<b>45.6</b>	53.7 2000～2012 年度
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	<b>35.0</b>	43.7	<b>37.2</b>	45.2	<b>36.4</b>	49.0 2000～2012 年度
nss-Ca <sup>2+</sup>	<b>3.6</b>	<b>4.7</b>	<b>4.3</b>	<b>4.7</b>	5.6	7.4 2000～2012 年度	



イオン成分濃度、湿性沈着量の多くの項目で低いもしくはとても低い状態にある。pHは期間を通じて高いもしくはとても高い状態で推移しており、降水の酸性化が緩和傾向にあることが示唆される。

表 3-1-17 1998～2012 年度の 15 年間中央値での評価結果(尼崎局)

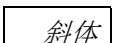
<尼崎>

項目	2013 年度	2014 年度	2015 年度	2016 年度	2017 年度	15年 中央値	対象年度 (うち有効データ数)
降水量/mm	<b>1496</b>	1244	1487	1349	1287	1294	1998～2012 年度
pH	4.79	4.65	4.81	4.83	<b>4.89</b>	4.71	1998～2012 年度
濃度/ μmol L <sup>-1</sup>	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	12.1	13.0	<b>8.7</b>	<b>7.9</b>	<b>7.2</b>	13.3 1998～2012 年度
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	12.3	16.1	12.6	11.9	<b>9.8</b>	14.8 1998～2012 年度
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	13.4	14.5	13.3	12.7	<b>10.1</b>	15.4 1998～2012 年度
	nss-Ca <sup>2+</sup>	3.6	4.0	2.9	<b>2.2</b>	<b>1.6</b>	4.0 1998～2012 年度
沈着量/ mmol m <sup>-2</sup>	H <sup>+</sup>	24.5	28.1	22.8	19.8	<b>16.8</b>	23.0 1998～2012 年度
	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	<b>18.1</b>	16.1	<b>12.9</b>	<b>10.6</b>	<b>9.3</b>	15.8 1998～2012 年度
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	18.4	20.0	18.7	16.1	<b>12.6</b>	18.5 1998～2012 年度
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	20.0	18.0	19.8	17.2	<b>13.0</b>	18.9 1998～2012 年度
nss-Ca <sup>2+</sup>	5.3	5.0	4.3	<b>3.0</b>	<b>2.1</b>	4.7 1998～2012 年度	

イオン成分濃度は nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>をはじめとして 2015 年度以降低い状態がみられており、2017 年度ではイオン成分濃度、沈着量ともにとっても低い結果であった。また、pH は 2015 年度以降上昇しており、2017 年度には pH 4.89 ととても高い結果となった。

 :高い  
 :低い

 **太字** :とても高い  
 **太字** :とても低い

 *斜体* :15 年中央値が参考データ  
(有効データ数が 12 未満)


 -- :年間値が無効

表 3-1-18 1998～2012 年度の 15 年間中央値での評価結果(隠岐局)

<隠岐>

項目	2013 年度	2014 年度	2015 年度	2016 年度	2017 年度	15 年 中央値	対象年度 (うち有効データ数)
降水量/mm	1447	<b>1024</b>	<b>1071</b>	1527	<b>1094</b>	1353	1998～2012 年度
pH	<b>4.61</b>	4.67	4.75	--	<b>4.81</b>	4.69	1998～2012 年度
濃度/ μmol L <sup>-1</sup>	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	16.3	14.7	11.3	--	12.9	15.7 1998～2012 年度
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	<b>24.6</b>	18.9	15.5	--	<b>22.6</b>	18.1 1998～2012 年度
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	17.4	12.2	11.7	--	<b>18.4</b>	14.9 1998～2012 年度
	nss-Ca <sup>2+</sup>	5.8	4.8	<b>3.3</b>	--	5.6	5.4 1998～2012 年度
沈着量/ mmol m <sup>-2</sup>	H <sup>+</sup>	<b>35.7</b>	<b>21.9</b>	<b>19.1</b>	--	<b>16.8</b>	25.4 1998～2012 年度
	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	23.6	<b>15.1</b>	<b>12.2</b>	--	<b>14.1</b>	18.6 1998～2012 年度
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	<b>35.6</b>	<b>19.3</b>	<b>16.6</b>	--	24.7	23.6 1998～2012 年度
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	25.2	<b>12.5</b>	<b>12.5</b>	--	20.1	19.1 1998～2012 年度
	nss-Ca <sup>2+</sup>	8.4	<b>4.9</b>	<b>3.6</b>	--	6.1	6.9 1998～2012 年度



湿性沈着量については、2013 年度の高いもしくはとても高い状態から 2014 年度以降はとても低い状態がみられる。NO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度は 2017 年度でとても高い結果であったが、降水中の酸を中和した成分の指標である NH<sub>4</sub><sup>+</sup>濃度もとても高かったため、結果として pH の顕著な減少はみられなかったものと考えられる。

表 3-1-19 1998～2012 年度の 15 年間中央値での評価結果(蟠竜湖局)

<蟠竜湖>

項目	2013 年度	2014 年度	2015 年度	2016 年度	2017 年度	15 年 中央値	対象年度 (うち有効データ数)
降水量/mm	<b>2055</b>	1444	1599	1777	1511	1494	1999～2012 年度
pH	4.63	4.59	4.65	<b>4.91</b>	--	4.62	2000～2012 年度
濃度/ μmol L <sup>-1</sup>	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	<b>13.4</b>	16.7	<b>12.7</b>	<b>9.4</b>	--	16.8 2000～2012 年度
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	17.8	22.3	19.3	<b>12.8</b>	--	20.4 2000～2012 年度
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	15.5	18.3	14.7	<b>11.1</b>	--	17.5 2000～2012 年度
	nss-Ca <sup>2+</sup>	<b>2.1</b>	4.1	3.4	<b>2.1</b>	--	4.2 2000～2012 年度
沈着量/ mmol m <sup>-2</sup>	H <sup>+</sup>	<b>48.3</b>	36.9	36.1	<b>21.9</b>	--	36.8 2000～2012 年度
	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	27.5	24.1	20.3	<b>16.6</b>	--	25.0 2000～2012 年度
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	<b>36.5</b>	32.2	30.8	<b>22.7</b>	--	30.5 2000～2012 年度
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	<b>31.9</b>	26.4	23.4	<b>19.8</b>	--	2012.6 2000～2012 年度
	nss-Ca <sup>2+</sup>	4.4	6.0	5.4	<b>3.8</b>	--	5.7 2000～2012 年度

2013 年度は降水量がとても高く、湿性沈着量も高い結果であったが、2016 年度ではいずれのイオン成分濃度及び沈着量もとても低い結果となった。nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度は 2014 年度を除く 3 年度で 10%値を下回っており、低い状態で推移していることが伺える。

 :高い  
 :低い

 **太字** :とても高い  
 **太字** :とても低い

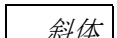

 *斜体* :15 年中央値が参考データ  
(有効データ数が 12 未満)  
 -- :年間値が無効

表 3-1-20 1998～2012 年度の 15 年間中央値での評価結果(構原局)

<構原>

項目	2013 年度	2014 年度	2015 年度	2016 年度	2017 年度	15年 中央値	対象年度 (うち有効データ数)
降水量/mm	2427	<b>3604</b>	2975	2658	2779	2532	2000～2012 年度
pH	4.77	--	--	4.78	--	4.78	2000～2011 年度
濃度/ μmol L <sup>-1</sup>	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	8.4	--	--	8.2	9.2	2000～2011 年度
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	6.8	--	--	<b>9.4</b>	7.5	2000～2011 年度
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	7.2	--	--	<b>8.2</b>	6.9	2000～2011 年度
	nss-Ca <sup>2+</sup>	1.5	--	--	1.2	1.7	2000～2011 年度
沈着量/ mmol m <sup>-2</sup>	H <sup>+</sup>	41.5	--	--	44.1	46.1	2000～2011 年度
	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	20.3	--	--	21.7	2011.3	2000～2011 年度
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	16.6	--	--	<b>25.1</b>	19.5	2000～2011 年度
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	17.6	--	--	<b>21.7</b>	17.9	2000～2011 年度
nss-Ca <sup>2+</sup>	3.6	--	--	3.3	--	4.4	2000～2011 年度

2014～2015、2017 年度は捕集装置の故障に伴う長期欠測により降水量以外の項目の年間値は無効としているため、5 年間の推移は不明瞭であるが、2016 年度では NO<sub>3</sub><sup>-</sup>及び NH<sub>4</sub><sup>+</sup>濃度がとても高い結果が示されている。

表 3-1-21 1998～2012 年度の 15 年間中央値での評価結果(筑後小郡局)

<筑後小郡>

項目	2013 年度	2014 年度	2015 年度	2016 年度	2017 年度	15年 中央値	対象年度 (うち有効データ数)	
降水量/mm	2067	1900	2013	<b>2558</b>	1871	1956	1998～2012 年度	
pH	<b>4.64</b>	4.69	<b>4.84</b>	<b>4.89</b>	4.80	4.76	1998～2012 年度	
濃度/ μmol L <sup>-1</sup>	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	14.3	15.0	<b>11.9</b>	<b>9.1</b>	<b>11.8</b>	14.9	1998～2012 年度
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	13.3	13.2	<b>10.0</b>	<b>8.0</b>	14.7	14.4	1998～2012 年度
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	<b>15.6</b>	<b>16.9</b>	<b>13.1</b>	<b>12.1</b>	18.8	23.0	1998～2012 年度
	nss-Ca <sup>2+</sup>	2.8	2.6	2.2	<b>1.6</b>	2.3	3.8	1998～2012 年度
沈着量/ mmol m <sup>-2</sup>	H <sup>+</sup>	47.1	38.9	29.0	33.2	29.4	33.1	1998～2012 年度
	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	29.5	28.5	<b>24.0</b>	<b>23.3</b>	<b>22.2</b>	28.4	1998～2012 年度
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	27.5	25.0	<b>20.0</b>	<b>20.4</b>	27.5	28.5	1998～2012 年度
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	<b>32.3</b>	<b>32.1</b>	<b>26.3</b>	<b>30.9</b>	<b>35.1</b>	43.6	1998～2012 年度
nss-Ca <sup>2+</sup>	5.8	4.9	4.5	4.2	4.3	8.3	1998～2012 年度	

nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度は2015年度以降とても低い状態が続いており、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度も2017年度は上昇に転じたものの、2015～2016年度ではとても低い結果となった。pHは2013年度にはとても低い結果であったが、2015年度以降は高いもしくはとても高い状態で推移している。

:高い  
 :低い

**太字** :とても高い  
 **太字** :とても低い

*斜体* :15年中央値が参考データ  
 (有効データ数が12未満)

-- :年間値が無効

表 3-1-22 1998～2012 年度の 15 年間中央値での評価結果(対馬局)

〈対馬〉

項目	2013 年度	2014 年度	2015 年度	2016 年度	2017 年度	15 年 中央値	対象年度 (うち有効データ数)	
降水量/mm	2006	1876	<b>2917</b>	2123	<b>1544</b>	2075	1998～2012 年度	
pH	4.74	4.72	4.81	--	--	4.66	1998～2012 年度	
濃度/ μmol L <sup>-1</sup>	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	15.3	15.0	12.2	--	--	16.8	1998～2012 年度
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	14.3	14.5	10.8	--	--	16.1	1998～2012 年度
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	15.9	16.5	10.8	--	--	17.7	1998～2012 年度
	nss-Ca <sup>2+</sup>	2.0	1.8	1.6	--	--	2.7	1998～2012 年度
沈着量/ mmol m <sup>-2</sup>	H <sup>+</sup>	36.4	36.0	45.3	--	--	44.5	1998～2012 年度
	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	30.7	28.1	35.6	--	--	34.3	1998～2012 年度
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	28.7	27.2	31.6	--	--	33.6	1998～2012 年度
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	31.9	30.9	31.5	--	--	32.5	1998～2012 年度
nss-Ca <sup>2+</sup>	4.1	3.4	4.7	--	--	5.0	1998～2012 年度	



イオン成分濃度及び湿性沈着量で低い結果であった項目が複数みられる。2015 年度の降水量は 90%値を上回りとても高かったものの、イオン濃度は総じて低い結果であったため、沈着量が 75%値を上回ることにはなかったものと考えられる。

表 3-1-23 1998～2012 年度の 15 年間中央値での評価結果(大分久住局)

〈大分久住〉

項目	2013 年度	2014 年度	2015 年度	2016 年度	2017 年度	15 年 中央値	対象年度 (うち有効データ数)	
降水量/mm	1938	1884	2006	<b>2731</b>	2156	1933	1998～2012 年度	
pH	4.66	<b>4.40</b>	--	4.69	--	4.69	1998～2012 年度	
濃度/ μmol L <sup>-1</sup>	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	12.3	<b>18.6</b>	--	12.5	--	13.3	1998～2012 年度
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	9.6	8.7	--	7.4	--	8.6	1998～2012 年度
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	12.9	10.1	--	10.7	--	14.6	1998～2012 年度
	nss-Ca <sup>2+</sup>	2.6	3.0	--	1.4	--	2.1	1998～2012 年度
沈着量/ mmol m <sup>-2</sup>	H <sup>+</sup>	42.4	<b>75.6</b>	--	<b>55.6</b>	--	41.1	1998～2012 年度
	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	23.8	35.0	--	34.3	--	27.3	1998～2012 年度
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	18.7	16.4	--	20.2	--	18.2	1998～2012 年度
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	24.9	19.1	--	29.1	--	30.1	1998～2012 年度
nss-Ca <sup>2+</sup>	5.0	5.7	--	3.8	--	4.3	1998～2012 年度	

2014 年度は nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度がとても高く、pH は 4.40 と全地点で最も低い値であった。大分久住周辺には硫黄山(北西 8 km)や隣県に阿蘇山が位置していることから、火山活動が結果に影響を与えているものと考えられる。

 :高い  
 :低い

 **太字** :とても高い  
 **太字** :とても低い

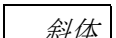

 *斜体* :15 年中央値が参考データ  
(有効データ数が 12 未満)  
 -- :年間値が無効



表 3-1-24 1998～2012 年度の 15 年間中央値での評価結果(えびの局)

<えびの>

項目	2013 年度	2014 年度	2015 年度	2016 年度	2017 年度	15年 中央値	対象年度 (うち有効データ数)	
降水量/mm	3220	2908	--	3483	3006	3148	2000～2012 年度	
pH	4.73	4.70	--	5.02	4.86	4.70	2000～2012 年度	
濃度/ μmol L <sup>-1</sup>	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	12.6	13.9	--	8.0	10.5	13.8	2000～2012 年度
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	8.6	8.2	--	8.1	6.8	8.3	2000～2012 年度
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	10.6	11.7	--	10.5	10.3	13.3	2000～2012 年度
	nss-Ca <sup>2+</sup>	2.9	3.7	--	1.6	3.3	1.9	2000～2012 年度
沈着量/ mmol m <sup>-2</sup>	H <sup>+</sup>	59.9	57.7	--	33.2	42.0	54.6	2000～2012 年度
	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	40.6	40.6	--	27.9	31.7	41.6	2000～2012 年度
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	27.7	23.7	--	28.3	20.5	2012.0	2000～2012 年度
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	34.1	33.9	--	36.4	30.8	38.6	2000～2012 年度
nss-Ca <sup>2+</sup>	9.4	10.8	--	5.5	9.9	4.9	2000～2012 年度	



NH<sub>4</sub><sup>+</sup>濃度は期間を通じて低い状態で推移している。えびの局南方にはえびの高原や新燃岳、桜島などがあり火山活動の影響も受ける地点であるが、nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度は2016年度以降低い結果となった。また、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度は2013～2016年度は同程度で推移していたが、2017年度は低い結果であった。

表 3-1-25 1998～2012 年度の 15 年間中央値での評価結果(屋久島局)

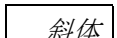
<屋久島>

項目	2013 年度	2014 年度	2015 年度	2016 年度	2017 年度	15年 中央値	対象年度 (うち有効データ数)	
降水量/mm	3330	4102	5378	4155	4863	3646	1998～2012 年度	
pH	4.59	4.59	4.71	4.70	--	4.67	1998～2012 年度	
濃度/ μmol L <sup>-1</sup>	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	11.9	10.7	8.7	9.7	--	12.0	1998～2012 年度
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	10.4	7.2	7.2	9.4	--	10.6	1998～2012 年度
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	8.9	6.9	6.1	7.4	--	10.1	1998～2012 年度
	nss-Ca <sup>2+</sup>	1.2	--	0.6	0.9	--	1.7	1998～2012 年度
沈着量/ mmol m <sup>-2</sup>	H <sup>+</sup>	84.7	106.3	105.6	82.2	--	80.3	1998～2012 年度
	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	39.7	43.8	46.8	40.2	--	44.3	1998～2012 年度
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	34.5	29.4	38.6	39.1	--	40.8	1998～2012 年度
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	29.7	28.2	33.0	30.7	--	38.8	1998～2012 年度
nss-Ca <sup>2+</sup>	3.9	--	3.4	3.6	--	6.3	1998～2012 年度	

イオン成分濃度は期間を通じて概ね低い状態にあるものの、H<sup>+</sup>、nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>湿性沈着量では降水量の影響もあり同じような傾向はみられなかった。特にH<sup>+</sup>湿性沈着量は2014～2015年度で75%値を上回り高い結果を示した。

 :高い  
 :低い

 **太字** :とても高い  
 **太字** :とても低い

 *斜体* :15年中央値が参考データ  
(有効データ数が12未満)




 -- :年間値が無効

表 3-1-26 1998～2012 年度の 15 年間中央値での評価結果(辺戸岬局)


〈辺戸岬〉


項目	2013 年度	2014 年度	2015 年度	2016 年度	2017 年度	15 年 中央値	対象年度 (うち有効データ数)
降水量/mm	<b>1501</b>	2225	2196	<b>1514</b>	<b>1609</b>	2016	2000～2012 年度
pH	4.93	5.14	5.11	5.21	5.00	4.97	2000～2011 年度
濃度/ μmol L <sup>-1</sup>	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	9.8	4.4	--	5.3	--	7.0 2001～2011 年度
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	9.9	5.9	7.1	8.1	8.5	7.2 2000～2011 年度
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	11.1	7.2	11.2	7.5	6.0	7.8 2000～2011 年度
	nss-Ca <sup>2+</sup>	2.3	1.2	--	1.2	--	1.7 2001～2011 年度
沈着量/ mmol m <sup>-2</sup>	H <sup>+</sup>	17.6	16.3	17.1	9.3	15.9	22.1 2000～2011 年度
	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	14.7	9.8	--	8.0	--	14.9 2001～2011 年度
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	14.9	13.1	15.5	12.2	13.7	15.4 2000～2011 年度
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	16.6	16.1	24.6	11.4	9.6	17.3 2000～2011 年度
nss-Ca <sup>2+</sup>	3.5	2.6	--	1.8	--	4.1 2001～2011 年度	

nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度は 2013 年度では高い結果であったものの、以降は低い状態で推移しており、pH も 2014 年度以降は pH 5 を上回る高い状態にあるほか、H<sup>+</sup>沈着量も期間を通じて低い状態にある。なお、2015 年度及び 2017 年度は海塩粒子の寄与率が 75%を上回ったため、nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、nss-Ca<sup>2+</sup>の年間値は無効としている。

 :高い  
 :低い

 **太字** :とても高い  
 **太字** :とても低い

 *斜体* :15 年中央値が参考データ  
(有効データ数が 12 未満)

 -- :年間値が無効

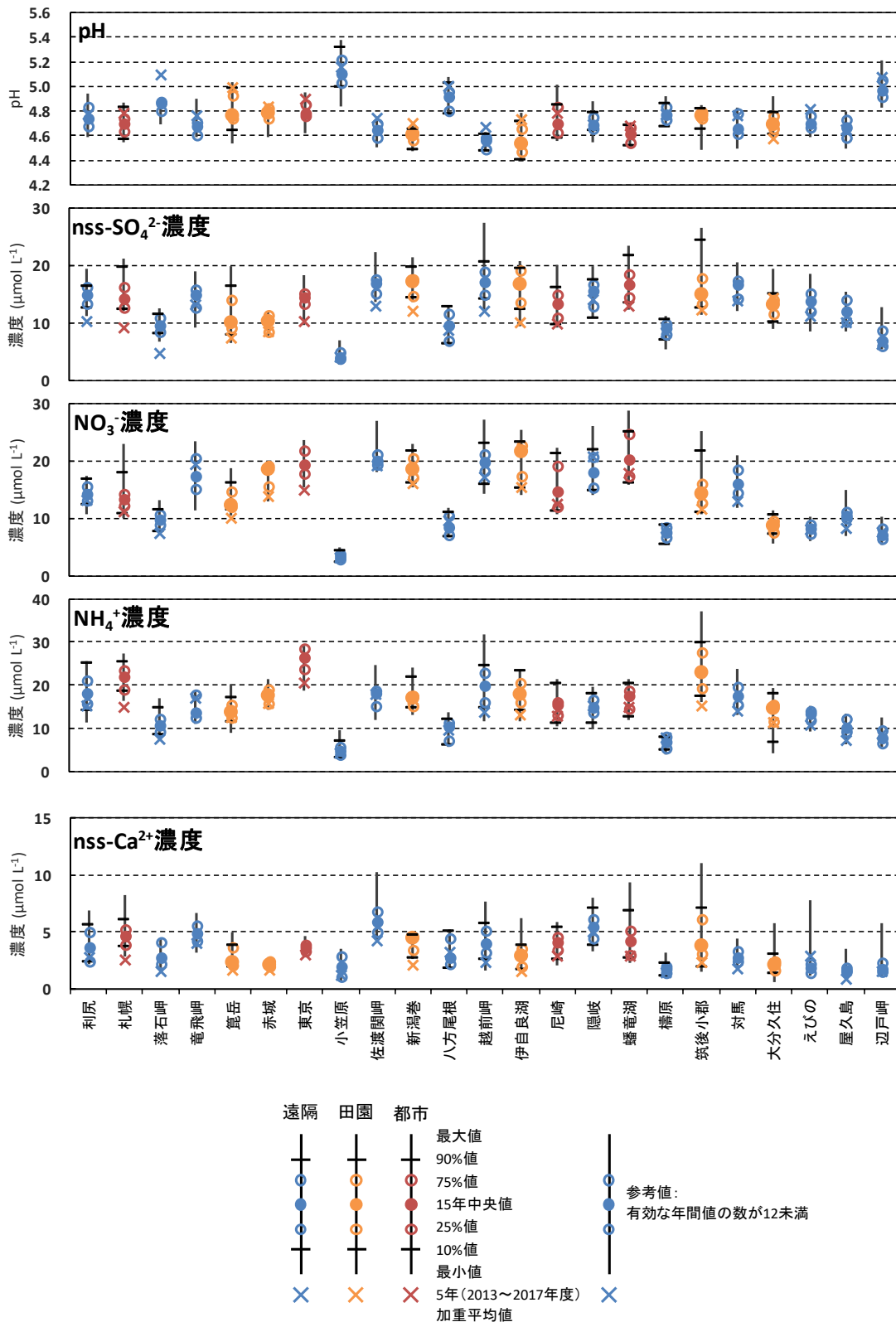


図 3-1-2 pH、イオン濃度の 5 年(2013~2017 年度)加重平均と 1998~2012 年度のパーセンタイル値

2013 年度末までに測定を休止した 3 地点(八幡平、京都八幡、潮岬)の結果は含めなかった。

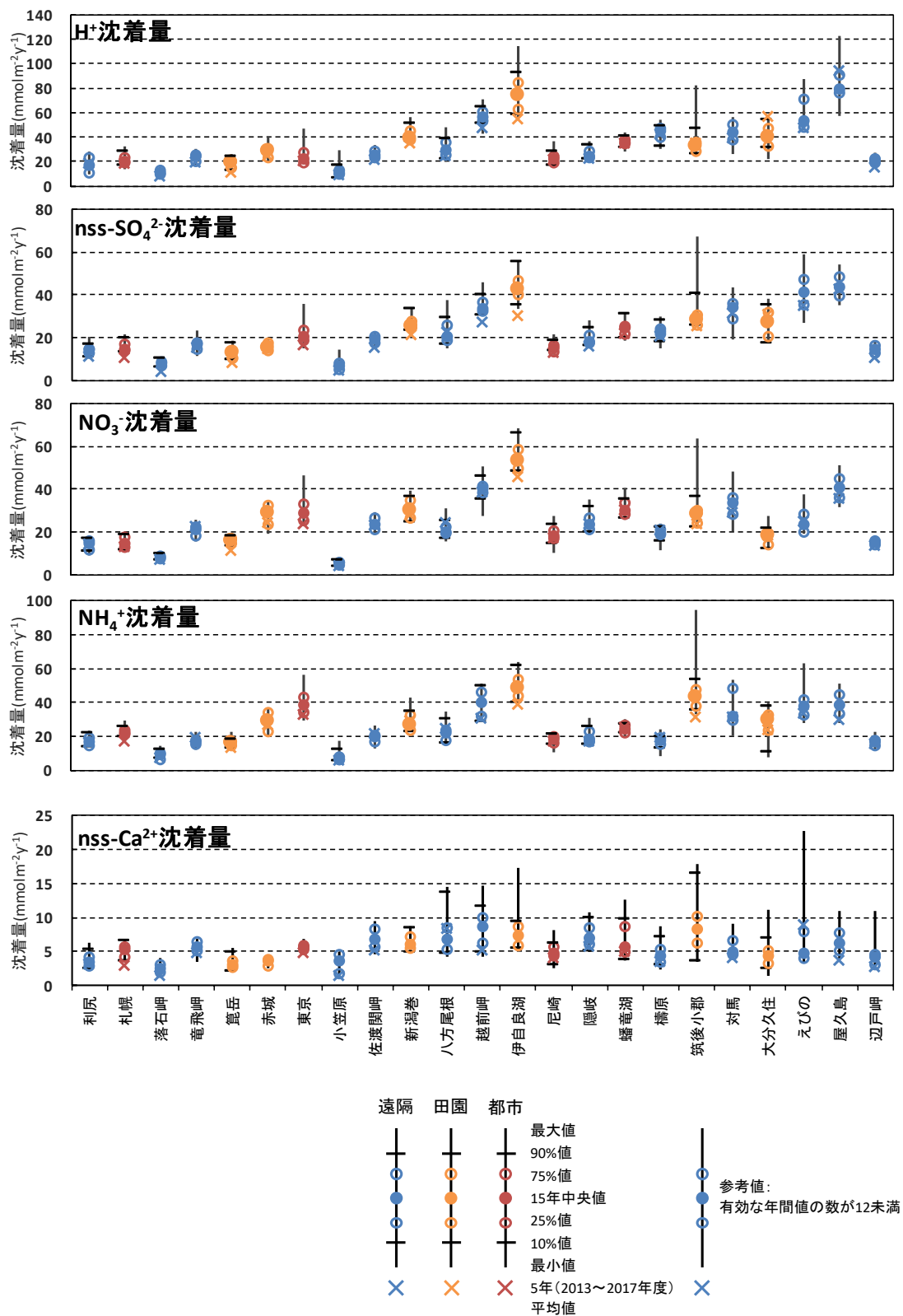


図 3-1-3 湿性沈着量の 5 年(2013~2017 年度)平均と 1998~2012 年度のパーセンタイル値  
 2013 年度末までに測定を休止した 3 地点(八幡平、京都八幡、潮岬)の結果は含まなかった。

## (2) 湿性沈着の季節変動

図 2-1 のように 26 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、南西諸島の 7 つの地域に区分し、地域区分毎に降水量、イオン成分濃度及びイオン成分湿性沈着量の季節変動の解析を行った。降水量及びイオン成分湿性沈着量については平均値を、イオン成分濃度については降水量による加重平均値を用いた。 $\text{nss-SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{NH}_4^+$ 、 $\text{nss-Ca}^{2+}$ 及び  $\text{H}^+$ の濃度及び湿性沈着量等の季節変動をそれぞれ図 3-1-4～図 3-1-8 に示す。

$\text{nss-SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ 及び  $\text{NH}_4^+$ 濃度は、ほぼ同じ季節変動を示し、全体的に夏季に低く冬季に高くなる傾向が認められたほか、大陸に近い本州中北部日本海側及び山陰では他の地域に比べ、冬季に顕著な上昇がみられた。また、これらのイオン成分の湿性沈着量においては、濃度が低い夏季でも一部地域で降水量の増加に伴い湿性沈着量が上昇したことを除き、イオン成分濃度と類似した傾向がみられた。こうした冬季を中心としたイオン成分濃度及び湿性沈着量の増加から、国内発生源に加えて大陸からの越境汚染の影響を受けていることが示唆された。

また、 $\text{nss-Ca}^{2+}$ についても  $\text{nss-SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ 及び  $\text{NH}_4^+$ とほぼ同じ挙動を示しており、本州中北部日本海側、山陰では他の地域と比較して顕著な季節変動を示し、冬季と春季に高くなる傾向がみられた。 $\text{H}^+$ 濃度の季節変動も  $\text{nss-SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ 及び  $\text{NH}_4^+$ 同様、冬季に高かったが、 $\text{H}^+$ 湿性沈着量では瀬戸内海沿岸、東シナ海沿岸で夏季に降水量が多いことに伴い、 $\text{H}^+$ 湿性沈着量も高くなる傾向となった。

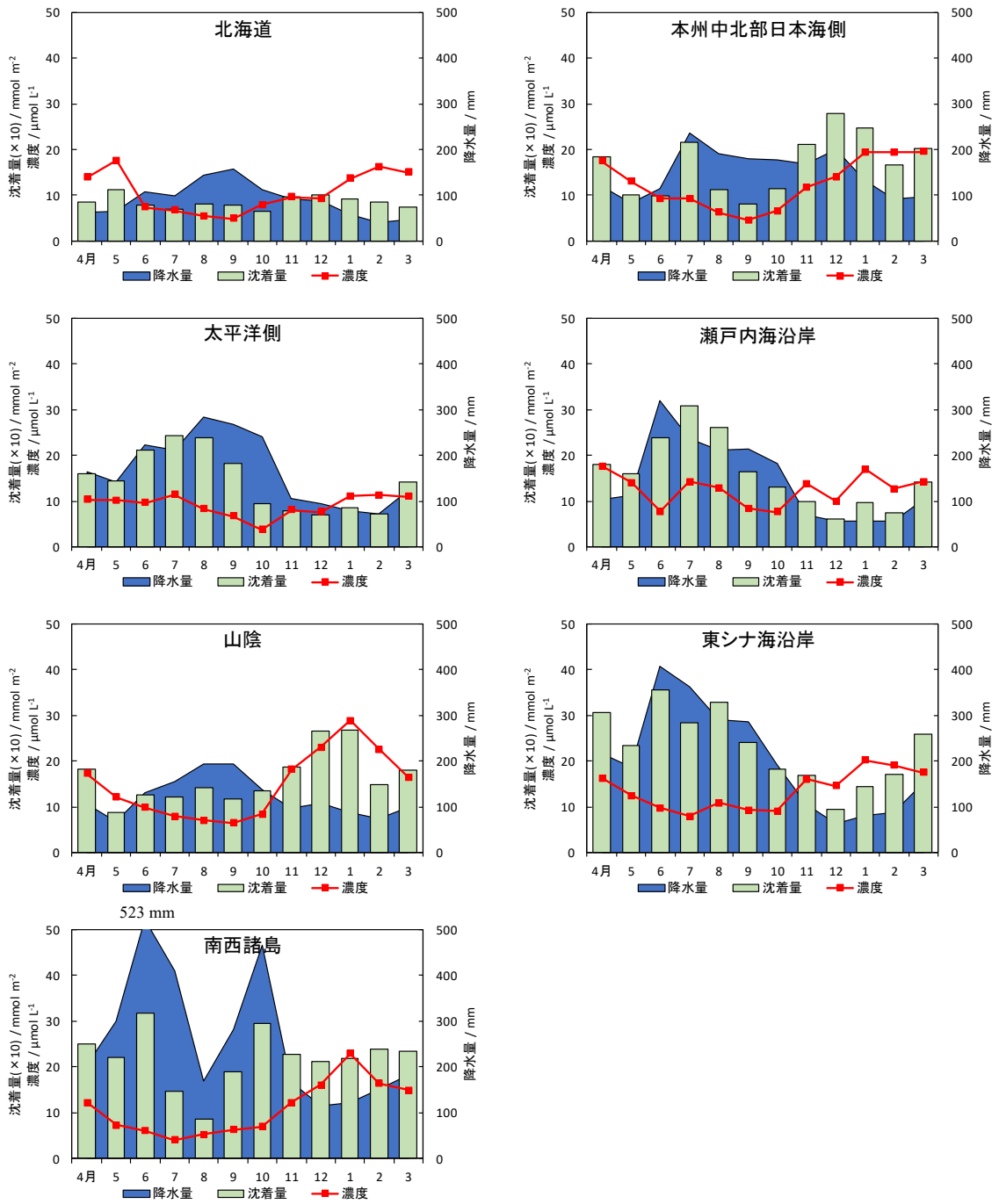


図 3-1-4 nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度及び湿性沈着量、並びに降水量の季節変動(2013～2017 年度平均値)

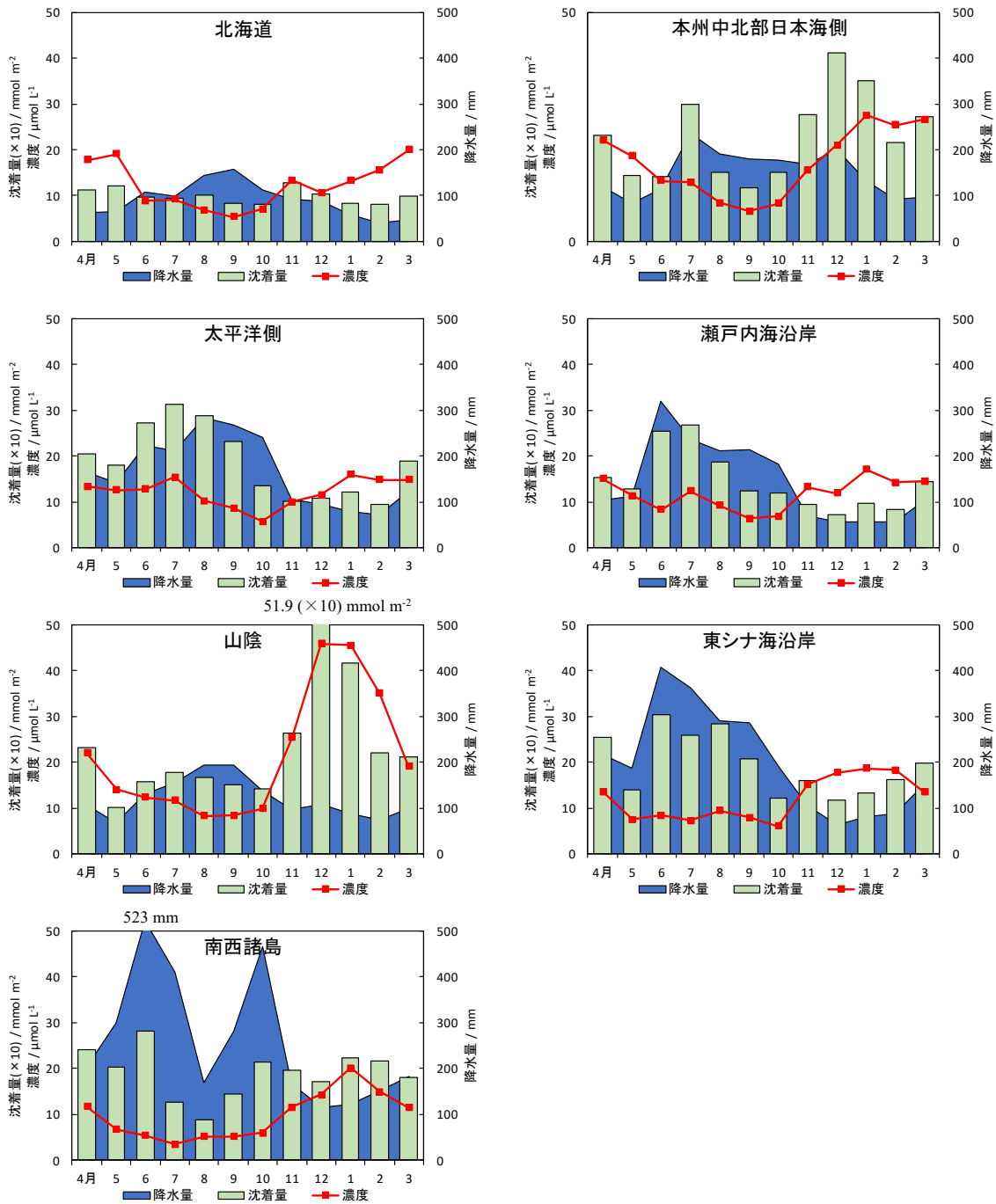


図 3-1-5 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度及び湿性沈着量、並びに降水量の季節変動(2013~2017 年度平均値)

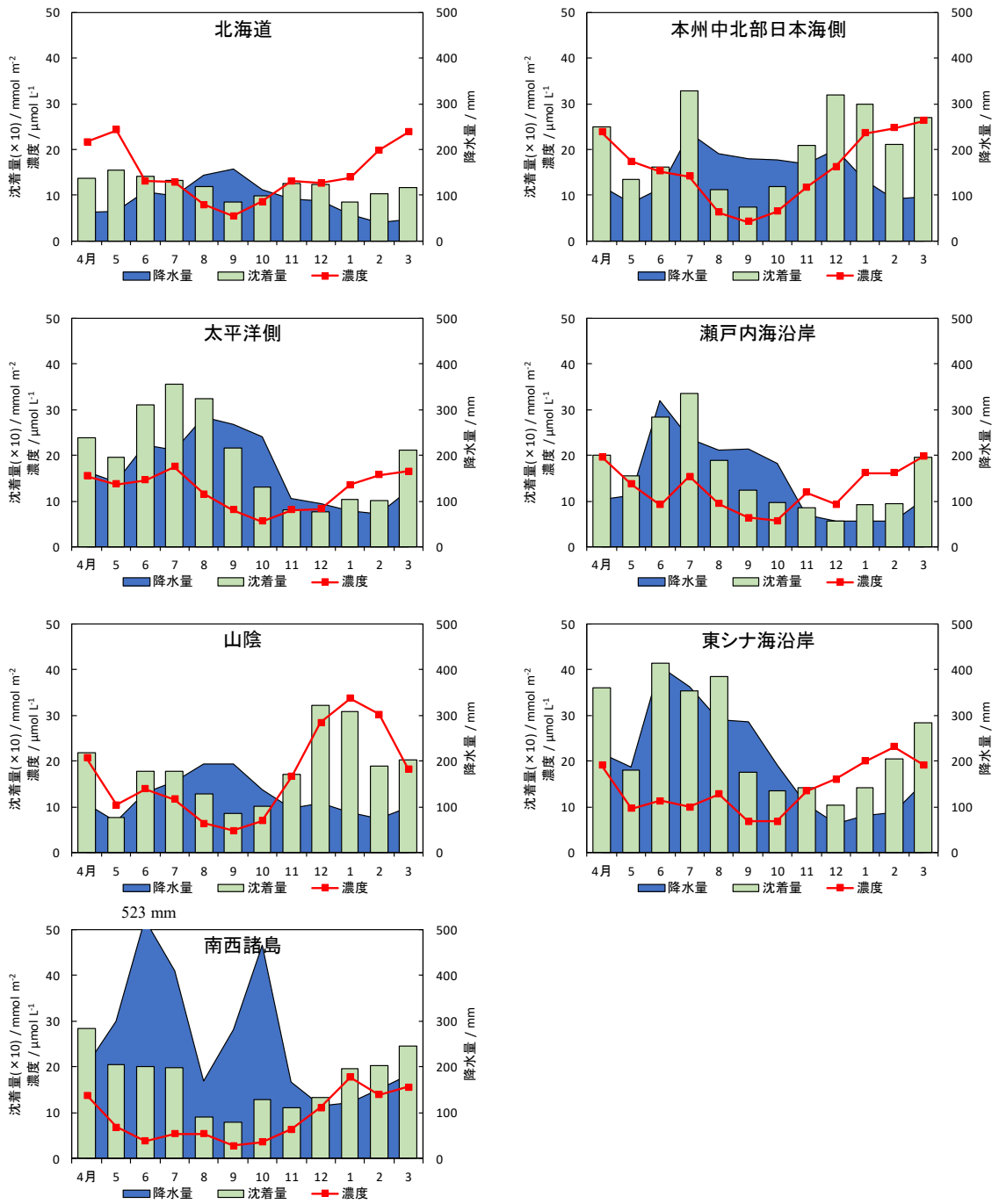


図 3-1-6  $\text{NH}_4^+$ 濃度及び湿性沈着量、並びに降水量の季節変動(2013~2017 年度平均値)



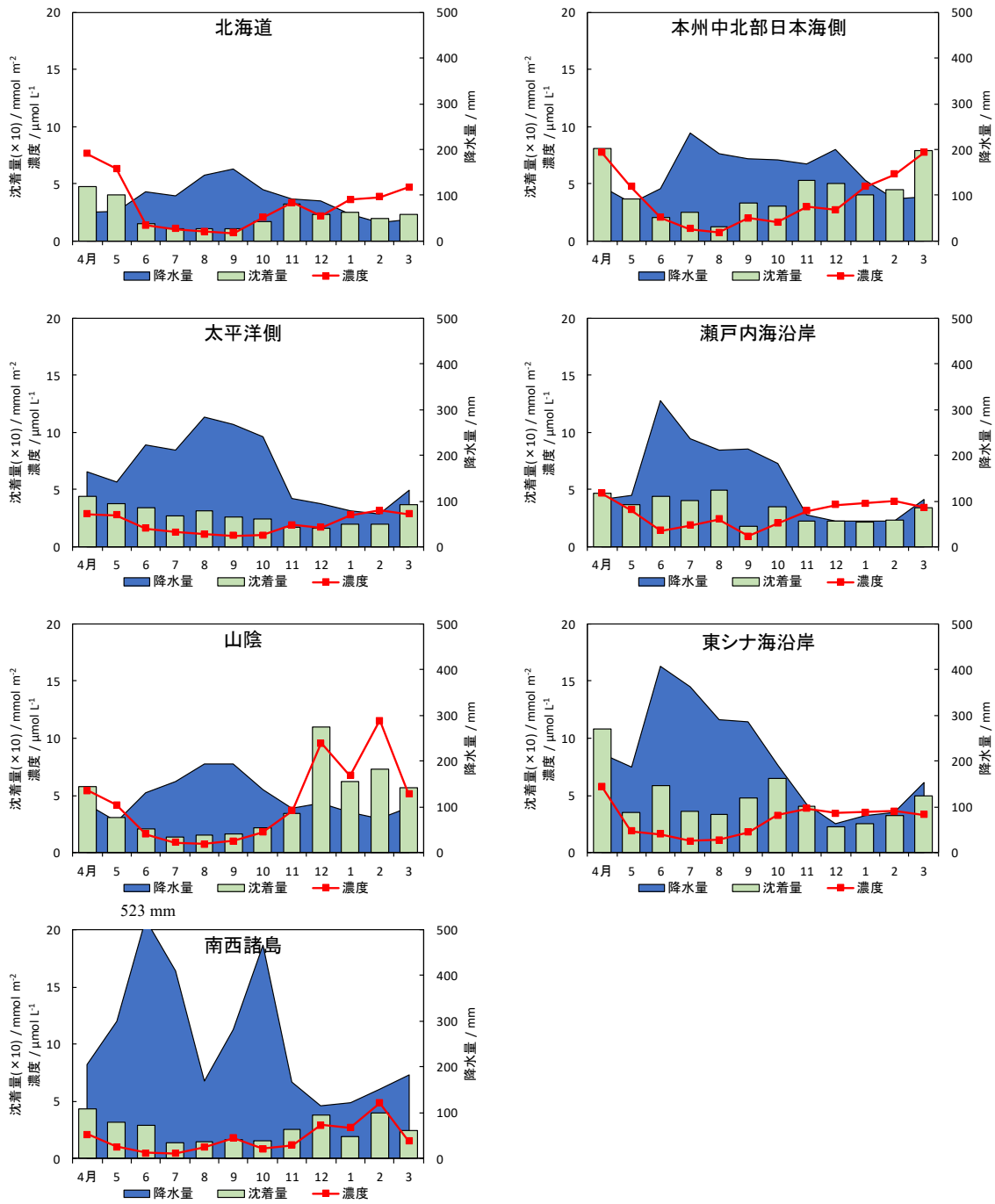


図 3-1-7 nss-Ca<sup>2+</sup>濃度及び湿性沈着量、並びに降水量の季節変動(2013～2017 年度平均値)

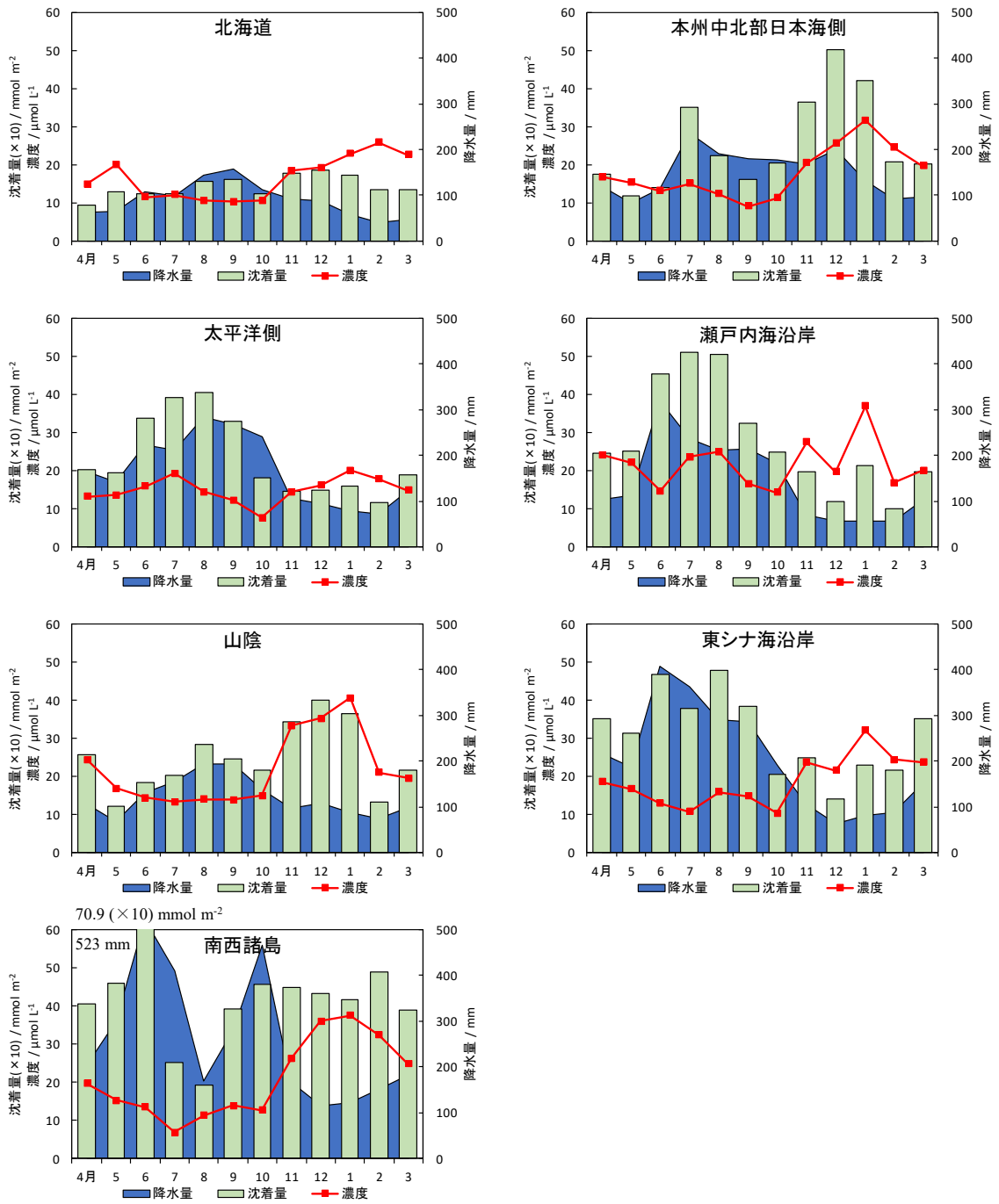


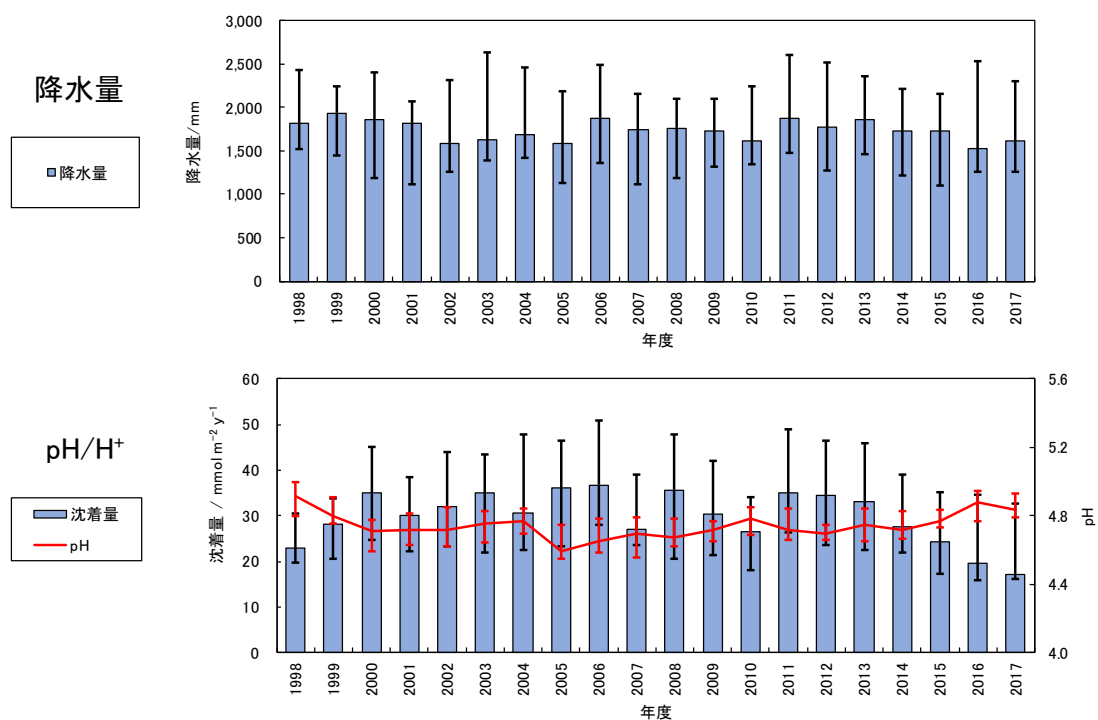
図 3-1-8 H<sup>+</sup>濃度及び湿性沈着量、並びに降水量の季節変動(2013～2017 年度平均値)

### (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、年降水量、年加重平均濃度及び年間湿性沈着量の変動を解析した。統計値の算出にあたっては、図 2-1 に示す平成 25 年度(2013 年)から 2017 年度に測定が実施された 26 地点を対象とした。第三次調査(1993～1997 年度)以前は測定地点が大きく異なることから、現行の測定地点の大半でデータがある第四次調査(1998～2000 年度)以降について評価した。

降水量、pH、イオン成分加重平均濃度及び湿性沈着量の 25%値、中央値及び 75%値の経年変化を図 3-1-9 に示す。また、pH、H<sup>+</sup>濃度及び H<sup>+</sup>湿性沈着量については、最近 10 年(2008～2017 年度)の経年変化を図 3-1-10 に示す(地点毎の経年変化については、巻末の参考資料を参照)。

降水量の中央値は 1,527 mm(2016 年度)から 1,947 mm(1999 年度)の範囲で推移したが、特徴的な増減はみられなかった。pH の中央値は 1998 年度の 4.91 が最高であり、2005 年度には最低の 4.59 を示した。その後は 2010 年度まで上昇に転じ、以降は 4.7 程度で推移していたが、近年は再び上昇の兆候がみられる。H<sup>+</sup>湿性沈着量の中央値も概ね pH と連動した挙動を示しており、2013 年度以降は pH の上昇に伴い、減少が続いている。2017 年度の中央値は 17.2 mmol m<sup>-2</sup> y<sup>-1</sup> であり、1998 年度以降で最低値を示した。また、nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>及び NO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度、湿性沈着量においても 2017 年度は上昇したものの、近年は減少の兆候がみられており、これらの濃度の中央値はいずれも 2016 年度に 1998 年度以降で最も低い値となった。このように、近年の pH の上昇の兆候は、降水の酸性化に寄与した nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>及び NO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度の減少を反映しているものと考えられる。



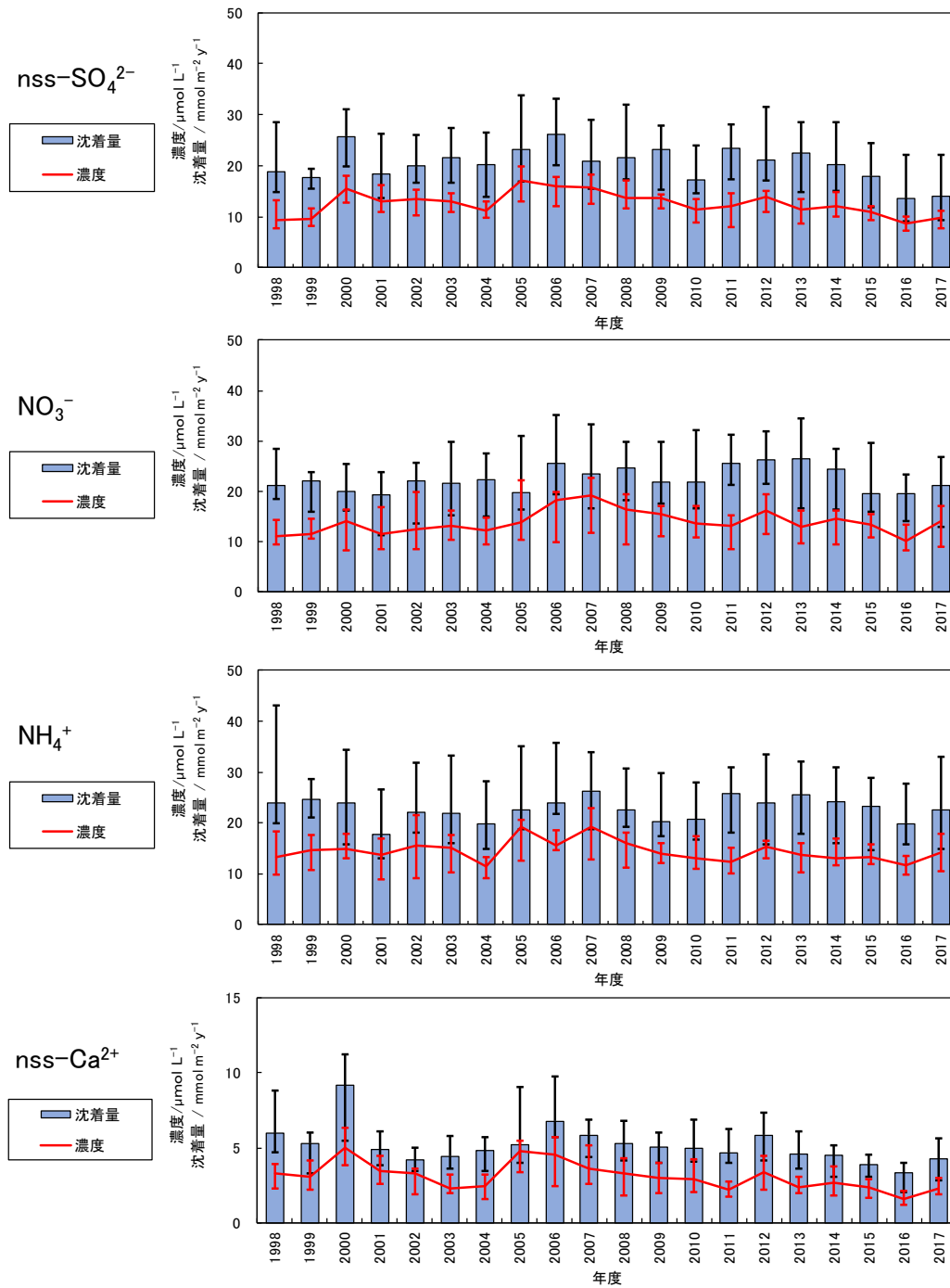


図 3-1-9 降水量、pH 及びイオン成分濃度・湿性沈着量(中央値)の経年変化 (1998～2017 年度)

有効判定基準により無効な年間値は含めずに計算した。誤差範囲：各年度の 25%値～75%値の範囲。

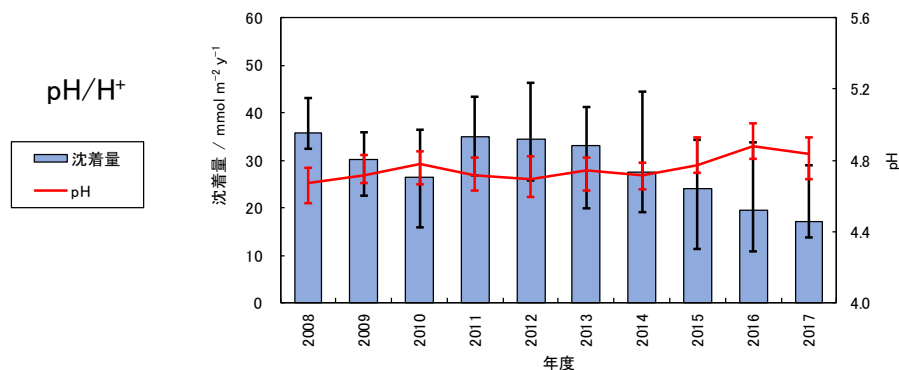


図 3-1-10 pH 及び水素イオン濃度・湿性沈着量(中央値)の経年変化(最近 10 か年)  
有効判定基準により無効な年間値は含めずに計算した。誤差範囲：各年度の 25%値～75%値の範囲。

#### (4) 湿性沈着モニタリングの成果

- 前回取りまとめを行った平成 20 年度(2008 年度)～2012 年度の湿性沈着モニタリングの結果に引き続き、2013～2017 年度に実施したモニタリングにより、日本における湿性沈着の長期的傾向を把握するためのデータが得られた。
- 2013～2017 年度のモニタリング結果のうち、全地点の 5 年間の pH 加重平均値(2013 年度末で休止の地点を含む)は 4.77 であり、降水は引き続き酸性化した状態にあるといえる。
- 降水中の  $\text{nss-SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$  及び  $\text{NH}_4^+$  濃度を全国の地域別でみたところ、ほぼ同じ季節変動を示し、全体的に夏季に低く冬季に高くなる傾向がみられた。山陰及び本州中北部日本海側は大陸に近く影響を受けやすいが、他の地域に比べて冬季に顕著な上昇がみられることから、国内発生源に加えて大陸からの越境汚染の影響が示唆された。
- 各地点における 1998～2012 年度モニタリング結果の 15 年間パーセンタイル値での評価では、半数以上の地点で pH が 75% 値を上回る結果となった。また、全地点での pH(中央値)の経年変化をみても、降水の酸性化に寄与した  $\text{nss-SO}_4^{2-}$  及び  $\text{NO}_3^-$  濃度の減少に伴い、近年は上昇の兆候がみられている。
- 今後も長期的な変動傾向や国内発生源及び越境大気汚染・酸性雨の実態と影響を的確に把握し、対策を講じていくためには、高い精度による湿性沈着モニタリングを引き続き実施していくことが必要である。

#### 【引用文献】

- [1] 雪と気象のデータベース, <http://122.1.29.10/yukiken/index.html> (2018.7.30 確認)
- [2] 気象庁ホームページ, <https://www.data.jma.go.jp/obd/stats/etrn/index.php> (2018.7.30 確認)

### 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。自動測定機は全項目、フィルターパック法については酸性沈着と関係の深い下記の項目を評価対象とした。年間値及び月間値については、それぞれ該当する年度及び月の全データ（自動測定機：1時間値、フィルターパック法：2週間値）の平均値を用いた。また、有効データの得られた時間が、70%以上であった年間値及び月間値のみを解析に使用した。

#### [評価対象項目]

##### 1) 自動測定機

SO<sub>2</sub> (17 地点)、NO<sub>x</sub>\*及び NO<sub>x</sub>/NO<sub>2</sub> (15 地点)、オゾン (O<sub>3</sub>) (23 地点)、PM<sub>10</sub> (12 地点)、PM<sub>2.5</sub> (15 地点)

##### 2) フィルターパック法

粒子状成分濃度 (SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、Ca<sup>2+</sup>) 及びガス状成分濃度 (HNO<sub>3</sub>、NH<sub>3</sub>) (12 地点)

なお、粒子状成分のうち、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>及び Ca<sup>2+</sup>については湿性沈着と同様に Na<sup>+</sup>を海塩粒子の指標として用い、海塩粒子に由来しない非海塩性の nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>及び nss-Ca<sup>2+</sup>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 3-1-11 に平成 25～29 年度(2013～2017 年度)における SO<sub>2</sub> の月平均濃度を月ごとに 5 年間平均した経月変化を示す。以降、地点を概ね地域毎にまとめて図示した。

SO<sub>2</sub> 濃度は全体的に夏季に低く、冬季にかけて高くなる傾向がみられ、大陸からの移流の影響が示唆された。大気濃度の支配要因には接地境界層の高さ等の他の気象要因も考えられるが、冬季の大陸から季節風が支配的だと思われる。また一方で、屋久島、えびの、檮原では火山由来と考えられる高濃度が観測された。薩南諸島の火山島群に位置する屋久島は、測定所の西側約 25 km 地点の口永良部島くちのえらぶじまをはじめとした火山の影響を、えびの及び檮原は桜島・新燃岳等の影響を受けた可能性が示唆された。

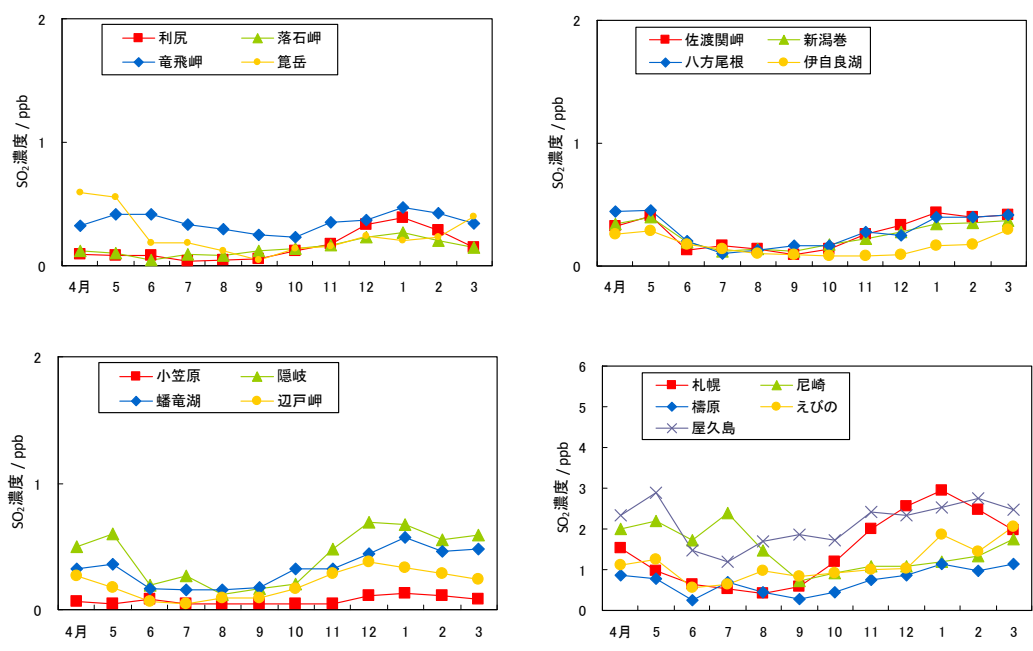


図 3-1-11 SO<sub>2</sub> 濃度の季節変動 (2013～2017 年度平均)

完全度が 70%未満の月間値は含めずに計算した。

図 3-1-12 に 2013～2017 年度における  $\text{NO}_x^*$ (遠隔・田園地域)及び  $\text{NO}_x$ ,  $\text{NO}_2$ (都市地域)の月平均濃度を月ごとに 5 年間平均した経月変化を示す。伊自良湖においては、夏季に伊勢湾からの海風が卓越しており、中京地域から放出された窒素酸化物が輸送されるため、濃度が高くなる傾向がみられた。一方で、蟠竜湖、禰原、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。

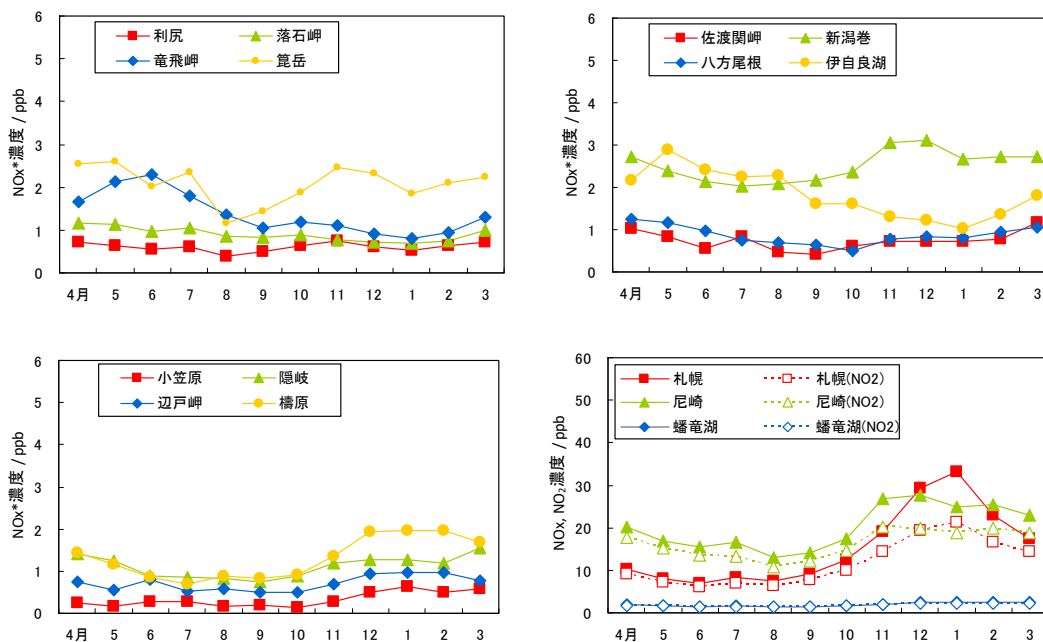


図 3-1-12  $\text{NO}_x^*$ 及び  $\text{NO}_x$ ,  $\text{NO}_2$  濃度の季節変動 (2013～2017 年度平均)

完全度が 70%未満の月間値は含めずに計算した。

図 3-1-13 に 2013～2017 年度における  $\text{O}_3$  の月平均濃度を月ごとに 5 年間平均した経月変化を示す。 $\text{O}_3$  濃度は全体的に春季に最大となり、夏季には低い傾向がみられた。この季節変動パターンは北東アジアの大部分で共通しており、要因としては、春季における大陸からのオゾンの移流及び成層圏からのオゾンの降下等が考えられ、夏季においては海洋性大気の流れによる低下等が指摘されている。大気モデルを用いた発生源寄与解析等の結果からも、春季にはオゾン移流の寄与が大きくなるとの報告がある (5.2.1 参照)。なお、赤城で特に高い濃度が観測されたが、これは、首都圏で生成された  $\text{O}_3$  の輸送の影響を強く受け、かつ付近に  $\text{O}_3$  と反応する大規模の  $\text{NO}_x$  発生源が存在しないためであると考えられる。



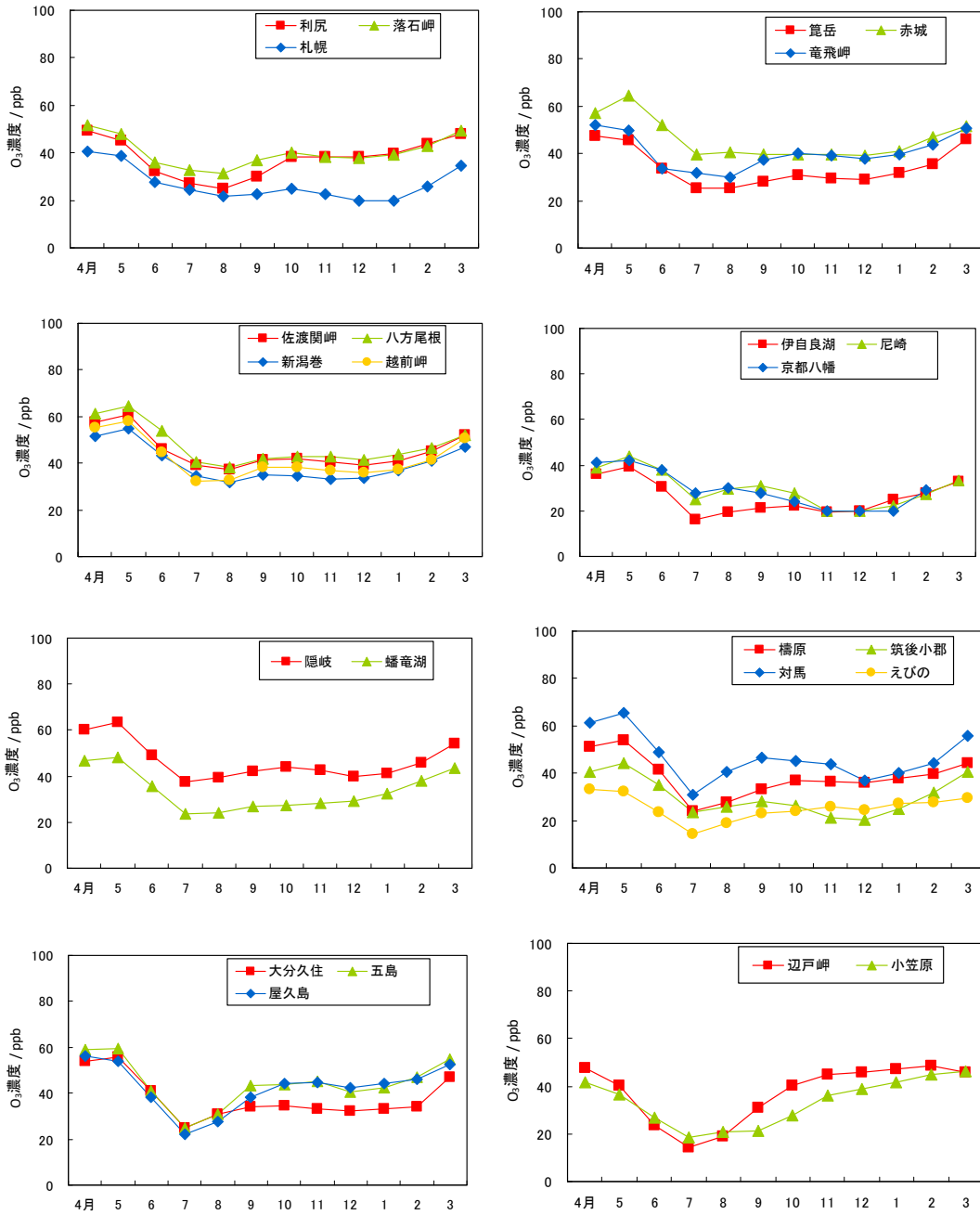


図 3-1-13 O<sub>3</sub> 濃度の季節変動 (2013～2017 年度平均)  
完全度が 70%未満の月間値は含めずに計算した。

図 3-1-14 に 2013～2017 年度における PM<sub>10</sub> 及び PM<sub>2.5</sub> の月平均濃度を月ごとに 5 年間平均した値の経月変化を示す。全体的に PM<sub>10</sub> 及び PM<sub>2.5</sub> 濃度は春季に高い傾向がみられることから、黄砂の飛来が影響していることが示唆された。

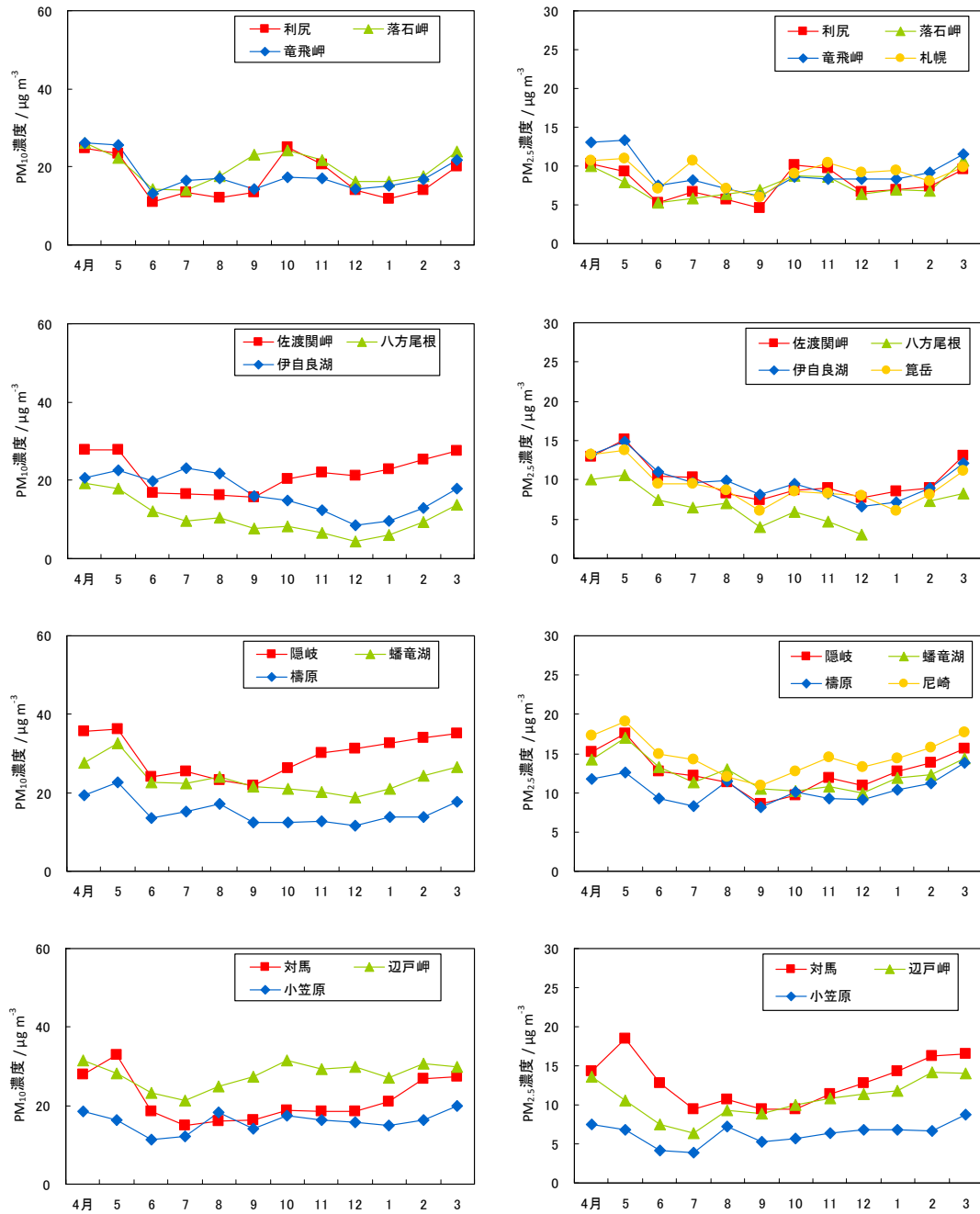


図 3-1-14 PM<sub>10</sub> (左)、PM<sub>2.5</sub> (右) 濃度の季節変動 (2013～2017 年度平均)

完全度が 70%未満の月間値は含めずに計算した。

図 3-1-15 に 2013～2017 年度における図 3-1-14 のデータから計算した  $PM_{2.5}/PM_{10}$  比の経月変化を示す。北日本の利尻、落石岬、竜飛岬では 6～7 月と 12～1 月にピークが見られ、類似した季節変動を示していた。辺戸岬、小笠原では年間を通じて 0.4 以下と他の地点と比べて低かった。これらは海洋の遠隔地点に位置することから、二次粒子の寄与が小さいことを示唆している。

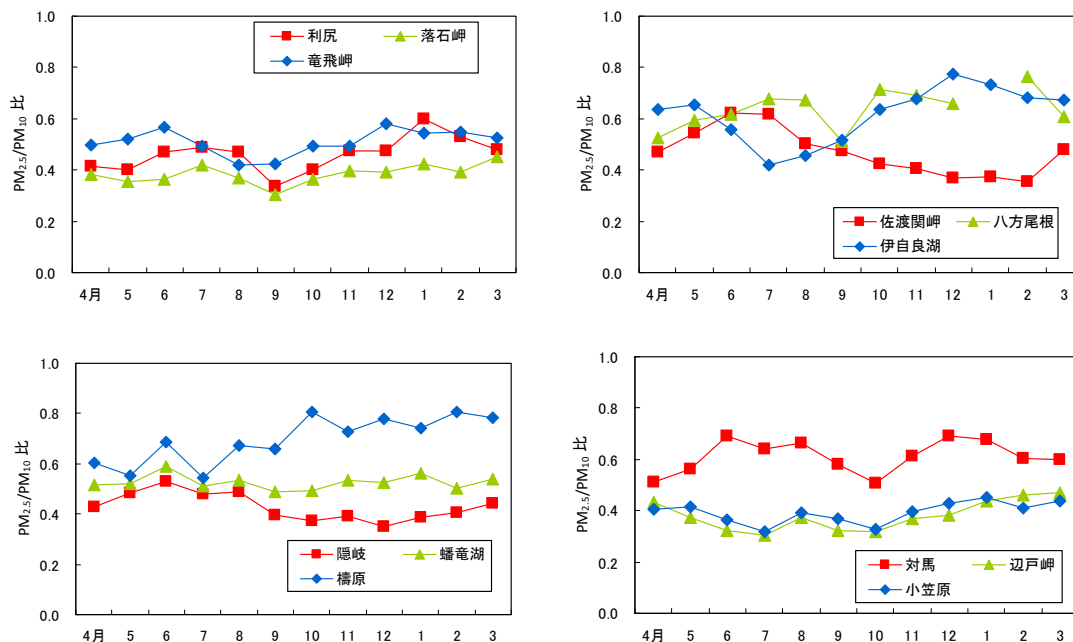


図 3-1-15  $PM_{2.5}/PM_{10}$  比の季節変動 (2013～2017 年度平均)

完全度が 70%未滿の月間値は含めずに計算した。

図 3-1-16～21 に、フィルターパック法によるガス状成分濃度( $HNO_3$  及び  $NH_3$ )と粒子状成分濃度( $nss-SO_4^{2-}$ 、 $NO_3^-$ 、 $NH_4^+$ 及び  $Ca^{2+}$ )をそれぞれ月ごとに 5 年間平均した経月変化を示す。

ガス状  $HNO_3$  濃度は全体的に春季から夏季にかけて高く、冬季に低い傾向を示した。小笠原は年間を通じて極めて低く、東京は他の地点と比べて高い濃度で推移した。

ガス状  $NH_3$  濃度は全体的に、夏季に高く冬季に低い傾向を示した。東京は他の地点と比べて極めて高い濃度で推移した。

粒子状  $nss-SO_4^{2-}$ 濃度は、小笠原と辺戸岬を除く地点では春季から夏季にかけて高く、晩秋季から冬季に低くなる傾向を示した。一方、小笠原及び辺戸岬では、夏季に低く冬季から春季に高くなる傾向を示した。

粒子状  $NO_3^-$ 濃度は全体的に春季に高くなる傾向を示したほか、夏季や秋季にもピークがみられる地点があった。東京は他の地点と比べて高い濃度で推移した。

粒子状  $NH_4^+$ 濃度は全体的に晩秋季から冬季に低い傾向がみられたが、隠岐、蟠竜湖及び樺原といった西側の地点では夏季にも低くなった。また、小笠原や辺戸岬では夏季に低く

冬季から春季にかけて高くなる傾向がみられた。

粒子状  $\text{nss-Ca}^{2+}$  濃度は、東京を除く地点で春季に顕著に高くなった。また、秋季にピークがみられる地点もあった。東京は年間を通じて比較的高い濃度で推移した。

また、粒子状イオン成分の項目間の類似性について、東京を除く地点では粒子状  $\text{nss-SO}_4^{2-}$  濃度と粒子状  $\text{NH}_4^+$  濃度が似た変動を示した。一方、東京では粒子状  $\text{NO}_3^-$  濃度と粒子状  $\text{NH}_4^+$  濃度が似た変動を示した。

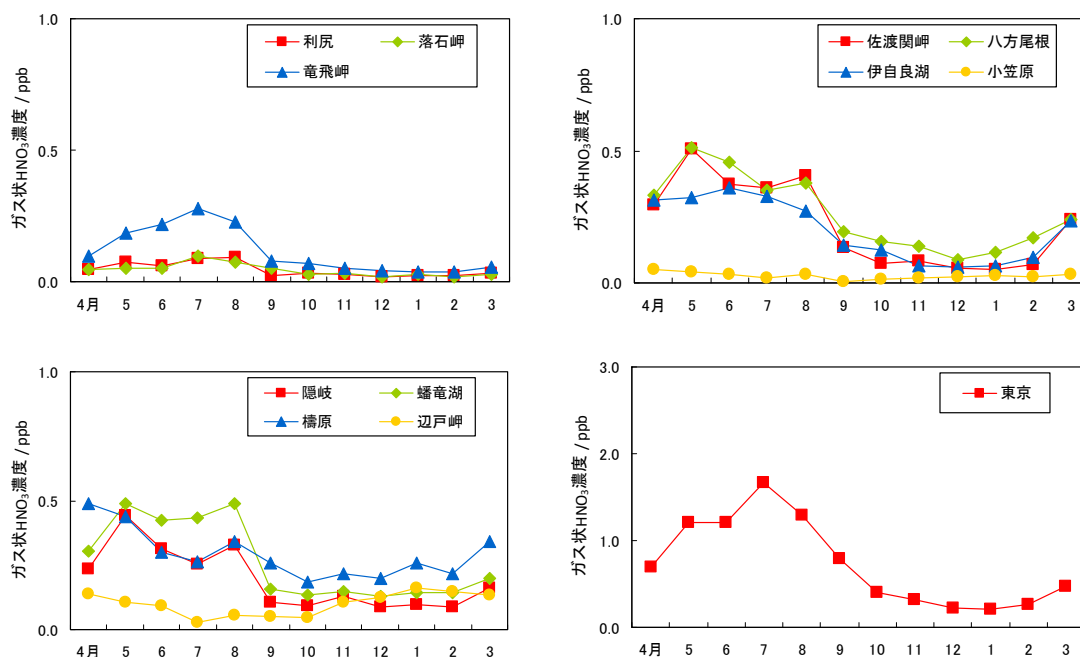


図 3-1-16 ガス状  $\text{HNO}_3$  濃度の季節変動 (2013~2017 年度平均)  
完全度が 70%未満の月間値は含めずに計算した。

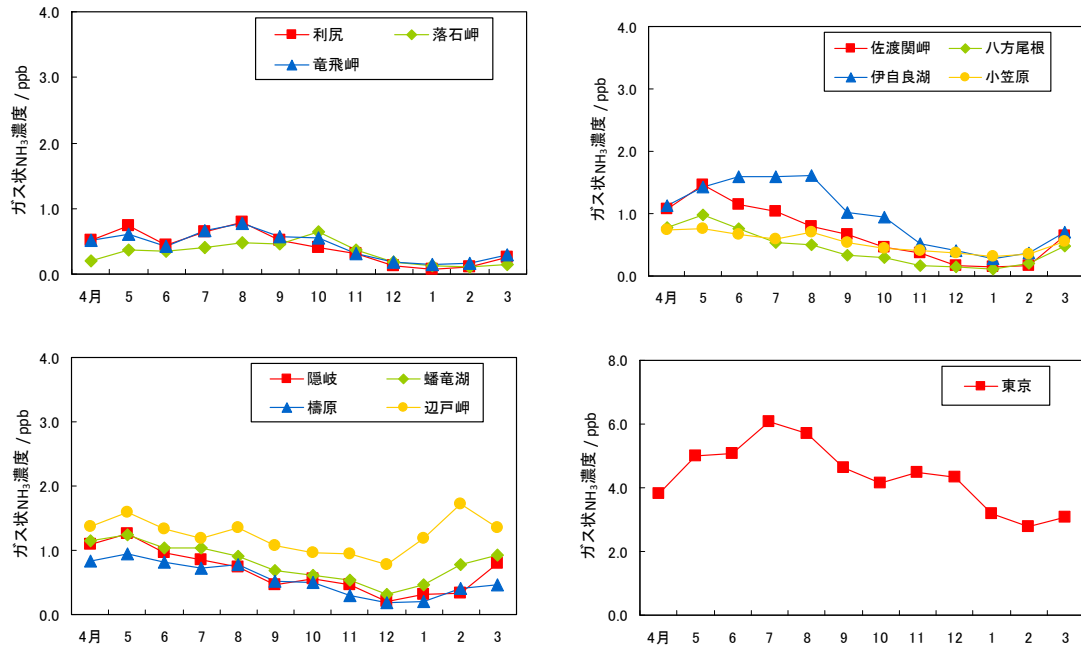


図 3-1-17 ガス状 NH<sub>3</sub> 濃度の季節変動 (2013~2017 年度平均)  
完全度が 70%未満の月間値は含めずに計算した。

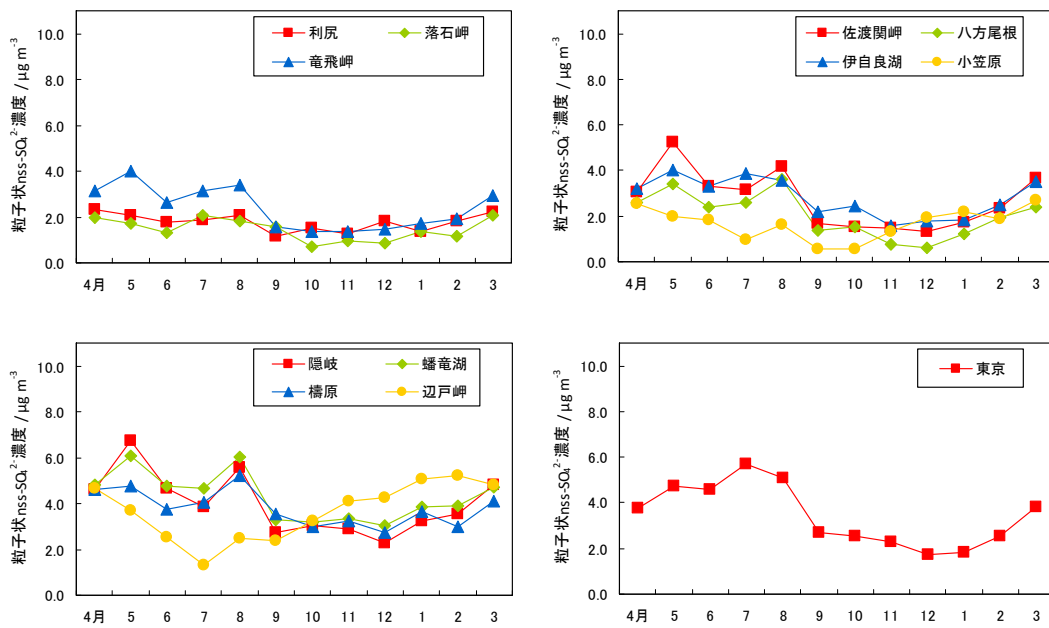


図 3-1-18 粒子状 nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度の季節変動 (2013~2017 年度平均)  
完全度が 70%未満の月間値は含めずに計算した。

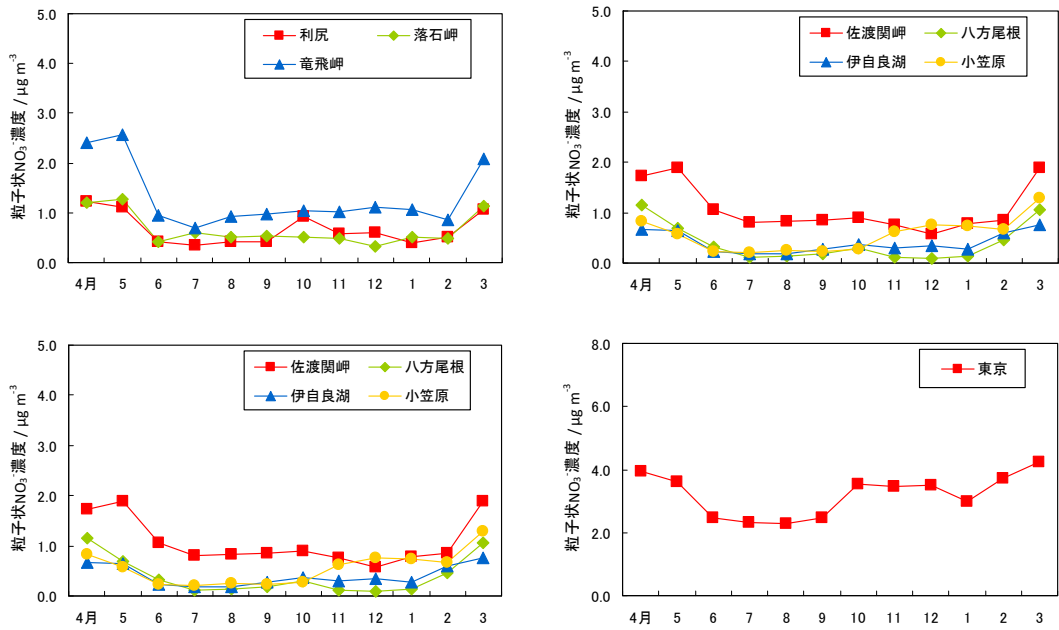


図 3-1-19 粒子状 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度の季節変動 (2013~2017 年度平均)  
完全度が 70%未満の月間値は含めずに計算した。

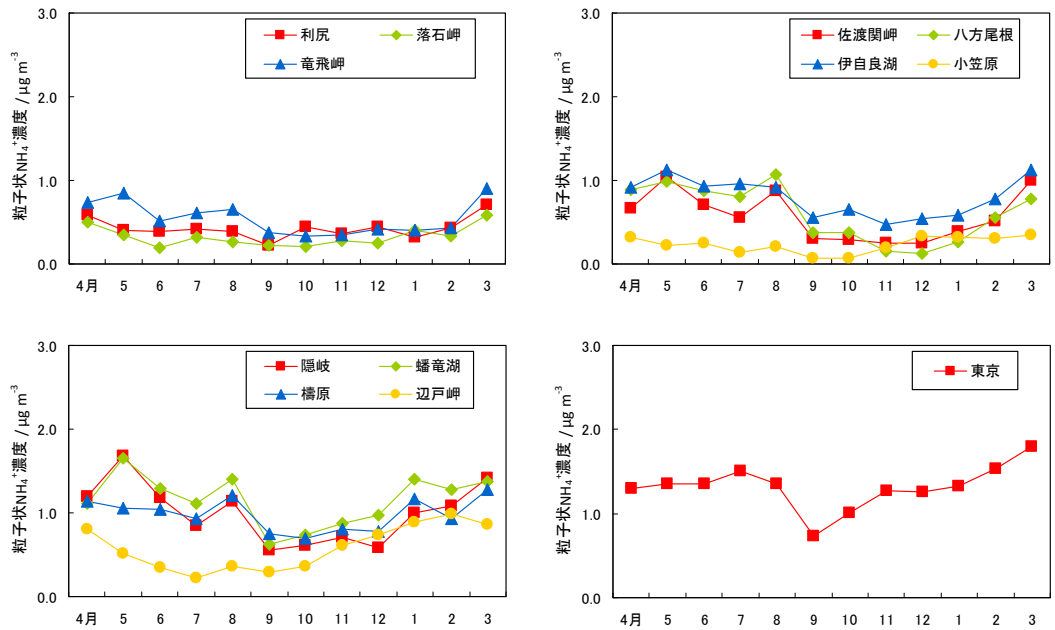


図 3-1-20 粒子状 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>濃度の季節変動 (2013~2017 年度平均)  
完全度が 70%未満の月間値は含めずに計算した。

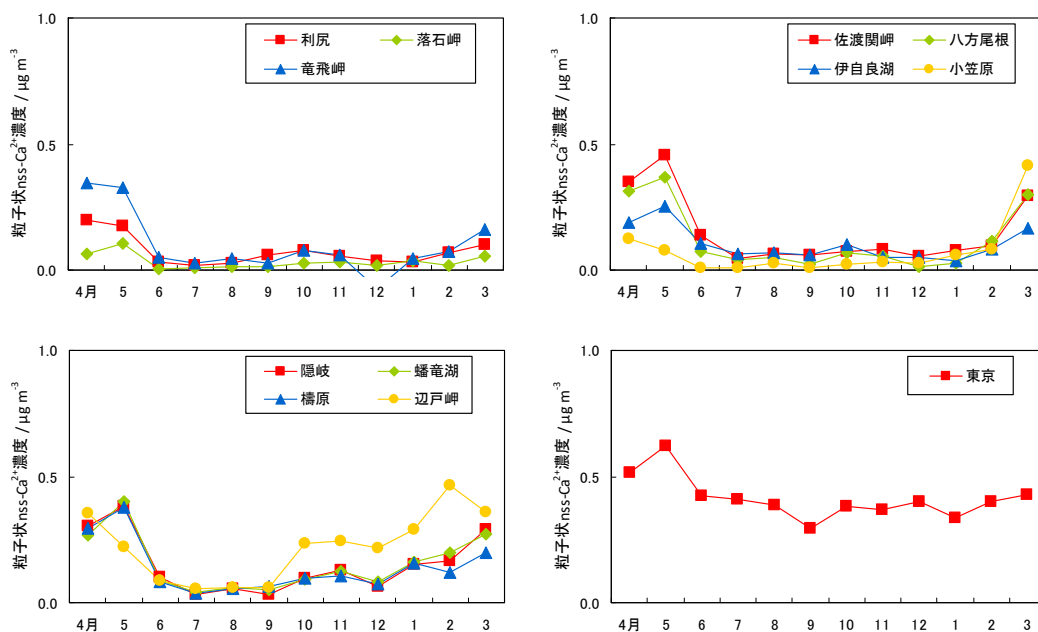


図 3-1-21 粒子状 nss-Ca<sup>2+</sup>濃度の季節変動 (2013～2017 年度平均)  
完全度が 70%未満の月間値は含めずに計算した。

## (2) 大気汚染物質濃度の地域的及び長期的傾向

各項目について、それぞれモニタリングを開始した年度以降を評価対象とした。

平成 10 年度(1998 年度)から 2017 年度における各地点における SO<sub>2</sub> 濃度の経年変化を図 3-1-22 に、全国平均及び遠隔地域、非遠隔地域、高濃度地点における SO<sub>2</sub> 濃度の経年変化を図 3-1-23 に示す。橿原、えびの及び屋久島は遠隔地域であるが、濃度が高いため非遠隔地域と同一の図に示した。

橿原、えびの及び屋久島以外の遠隔地域では、全体的に 1.0 ppb 以下の低濃度で推移しており、小笠原において特に低かった。また、日本海側の遠隔地域では、大陸により近い西側の隠岐が佐渡関岬と比べて長期継続的に濃度が高い傾向がみられ、西日本では大陸からの移流の寄与が大きいことが示唆された。

2003～2017 年度の 15 年間の長期的傾向は、利尻(-0.01 ppb y<sup>-1</sup>)、落石岬(-0.01 ppb y<sup>-1</sup>)、竜飛岬(-0.02 ppb y<sup>-1</sup>)、佐渡関岬(-0.03 ppb y<sup>-1</sup>)、八方尾根(-0.03 ppb y<sup>-1</sup>)、隠岐(-0.04 ppb y<sup>-1</sup>)、蟠竜湖(-0.06 ppb y<sup>-1</sup>)、橿原(-0.03 ppb y<sup>-1</sup>)、辺戸岬(-0.01 ppb y<sup>-1</sup>) で有意な減少傾向(p < 0.05)を示した。桜島の火山活動状況(図 3-1-24)が示すとおり、近年は九州南部・薩南諸島の火山群も活動が活発になっていると考えられる。また、鹿児島県内の一般大気測定局でも、2007～2014 年度に年平均濃度が 20ppb を超える地点があった。これは火山から放出される SO<sub>2</sub> の量が増加したことを直接裏付けるものではないが、えびのにおける 2009～2014 年の SO<sub>2</sub> の増加傾向は、火山活動の活発化の影響を受けたことが示唆された。また、屋久島では測定を開始した 2008 年度より、2.0 ppb を超える高い濃度で推移しており、これも火山から放出される SO<sub>2</sub> の影響を強く受けたものと考えられる。なお、過去にも火山活動の影

響とみられる SO<sub>2</sub> の高濃度が報告されており、2000～2001 年度の極大値は三宅島<sup>おやま</sup>雄山の火山活動の影響を受けたとされている。

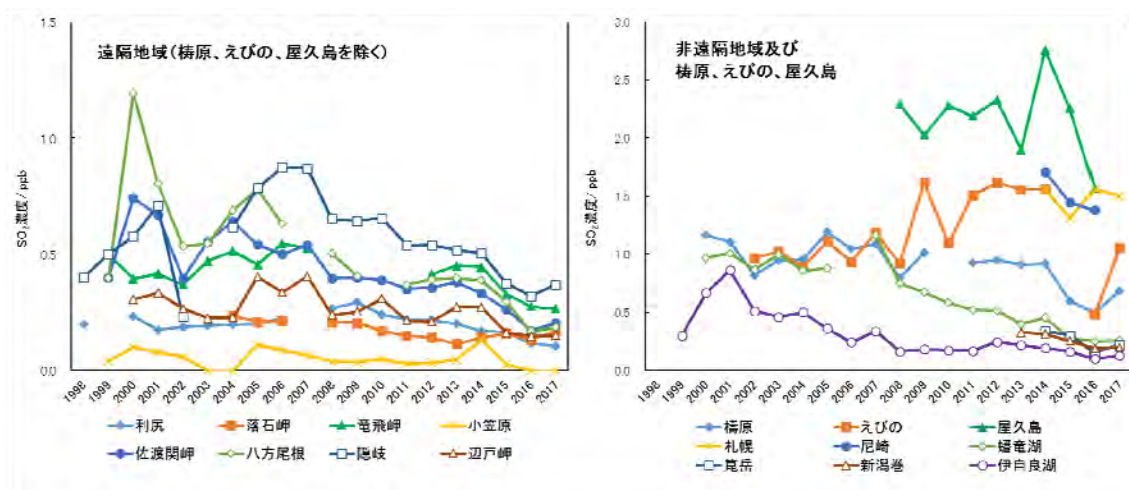


図 3-1-22 SO<sub>2</sub> 濃度の経年変化 (2003～2017 年度)

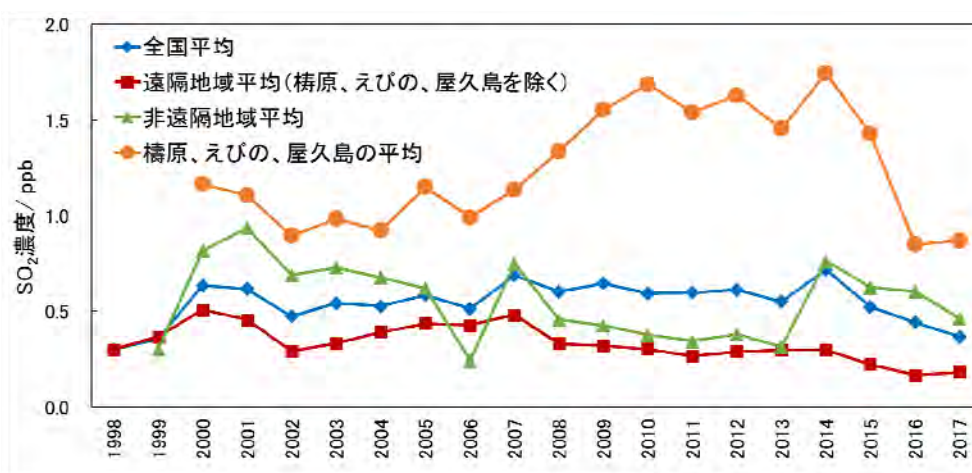


図 3-1-23 全国平均及び遠隔地域、非遠隔地域、高濃度地点(檜原、えびの、屋久島)における SO<sub>2</sub> 年平均濃度の経年変化 (2003～2017 年度)

完全度が 70%未満の年間値は含めずに計算した。また、非遠隔地域平均には、2013 年度までの伊自良湖、蟠竜湖に、2014 年度から札幌、籠岳、新潟巻、尼崎が加わっている。

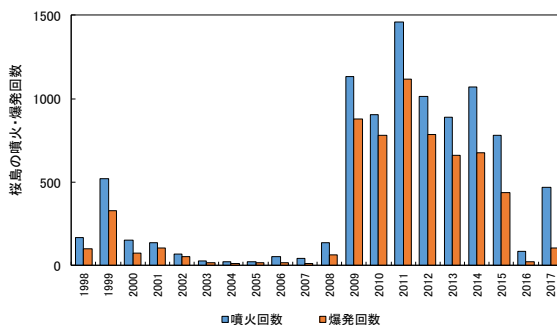


図 3-1-24 桜島の火山活動状況(出典：気象庁)



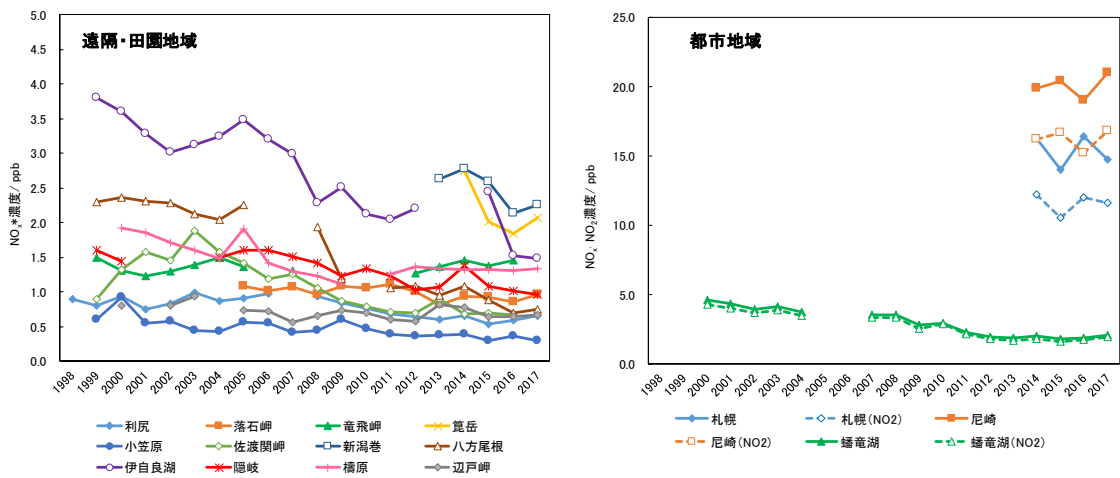


図 3-1-25 NO<sub>x</sub>\*及び NO<sub>x</sub>, NO<sub>2</sub> 濃度の経年変化  
完全度が 70%未満の年間値は表示しない。

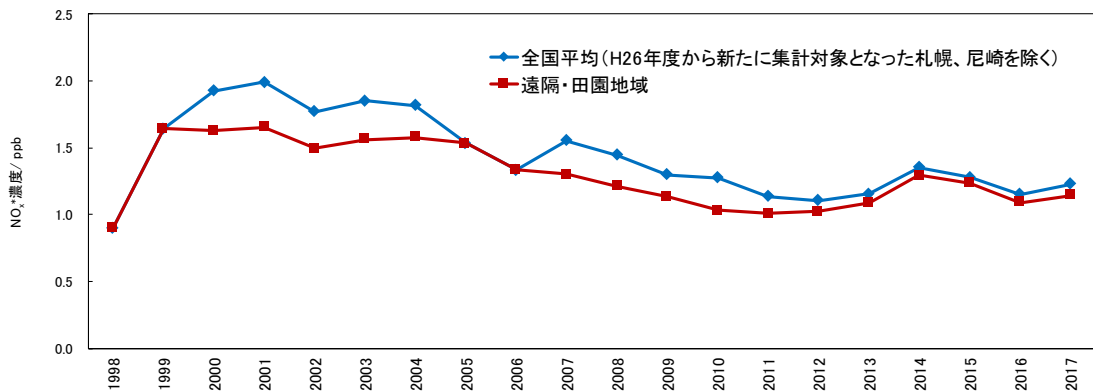


図 3-1-26 全国平均及び遠隔・田園地域における NO<sub>x</sub> 年平均濃度の経年変化  
完全度 70%未満の年間値は含めずに計算した。

全国平均、非遠隔地域の SO<sub>2</sub> 濃度についても 2007 年度より減少傾向(-0.02 ppb y<sup>-1</sup>)にあり、東アジアにおける SO<sub>2</sub> 排出量の減少傾向を反映していると思われる。

1998～2017 年度の各測定局における NO<sub>x</sub>\* (遠隔・田園地域) 及び NO<sub>x</sub>, NO<sub>2</sub> (都市地域) 濃度の経年変化を図 3-1-25 に、全国平均及び遠隔・田園地域における NO<sub>x</sub> 濃度の経年変化を図 3-1-26 に示す。遠隔・田園地域のうち、伊自良湖及び八方尾根において概ね 2 ppb 以上と比較的高濃度で推移したが、八方尾根では 2009 年度以降は他地点とほぼ同レベルとなった。また、小笠原及び辺戸岬において低濃度であった。2003～2017 年度の 15 年間の長期的傾向については、幡竜湖(NO<sub>x</sub>, NO<sub>2</sub> 共に-0.17 ppb y<sup>-1</sup>)、利尻(-0.03 ppb y<sup>-1</sup>)、落石岬(-0.02 ppb y<sup>-1</sup>)、佐渡関岬(-0.08 ppb y<sup>-1</sup>)、八方尾根(-0.11 ppb y<sup>-1</sup>)、伊自良湖(-0.13 ppb y<sup>-1</sup>)、隠岐(-0.05 ppb y<sup>-1</sup>)と、多くの地点で有意な減少傾向(p < 0.05)を示した。また、有意な増加傾向を示した地点

はなかった。

全国平均及び遠隔・田園地域における  $\text{NO}_x$  濃度についても、2000 年度よりそれぞれ  $-0.05 \text{ ppb y}^{-1}$ 、 $-0.03 \text{ ppb y}^{-1}$  と減少傾向にあり、国内における  $\text{NO}_x$  排出量の減少傾向を反映していると思われる。

フィルターパック法について、2002～2017 年度におけるガス状成分濃度( $\text{HNO}_3$  及び  $\text{NH}_3$ ) と粒子状成分濃度( $\text{nss-SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{NH}_4^+$  及び  $\text{nss-Ca}^{2+}$ )の経年変化を図 3-1-27～32 に示した。原則として東日本と西日本に分けて示したが、東京の濃度が極端に高い場合は単独で示した。

窒素を含む成分( $\text{HNO}_3$ 、 $\text{NH}_3$ 、粒子状  $\text{NO}_3^-$  及び粒子状  $\text{NH}_4^+$ )及び粒子状  $\text{nss-Ca}^{2+}$  の濃度は、東京で極めて高い値を示した。また、すべての成分について、全体的に西日本の方が東日本より高い濃度を示す傾向がみられた。

ガス状  $\text{HNO}_3$  濃度は測定開始後に増加し、6 地点で 2005 年度に最高値となった。2003～2017 年度の 15 年間の長期的傾向については、竜飛岬( $-0.01 \text{ ppb y}^{-1}$ )、伊自良湖( $-0.02 \text{ ppb y}^{-1}$ )、東京( $-0.02 \text{ ppb y}^{-1}$ )で有意な減少傾向( $p < 0.05$ )を示した。また、有意な増加傾向を示した地点はなかった。

ガス状  $\text{NH}_3$  濃度は、地点ごとに異なる変動を示した。2003～2017 年度の 15 年間の長期的傾向については、落石岬( $-0.02 \text{ ppb y}^{-1}$ )、伊自良湖( $-0.02 \text{ ppb y}^{-1}$ )、東京( $-0.12 \text{ ppb y}^{-1}$ )、蟠竜湖 ( $-0.04 \text{ ppb y}^{-1}$ )で有意な減少傾向( $p < 0.05$ )を示した。一方、佐渡関岬( $+0.01 \text{ ppb y}^{-1}$ )、辺戸岬( $+0.03 \text{ ppb y}^{-1}$ )で有意な増加傾向( $p < 0.05$ )がみられた。

粒子状  $\text{nss-SO}_4^{2-}$  濃度は 2002 年度の調査開始から数年間は増加傾向にあり、7 地点で 2005 年度に最高値となった。2003～2017 年度の 15 年間の長期的傾向については、伊自良湖( $-0.16 \mu\text{g m}^{-3} \text{ y}^{-1}$ )、禰原( $-0.15 \mu\text{g m}^{-3} \text{ y}^{-1}$ )、東京( $-0.18 \mu\text{g m}^{-3} \text{ y}^{-1}$ )での有意な減少傾向( $p < 0.05$ )を示した。また、有意な増加傾向を示した地点はなかった。 $\text{SO}_2$  濃度と同様に、日本海側の遠隔地域では、大陸により近い西側の隠岐が佐渡関岬と比べて長期継続的に濃度が高い傾向が見られ、 $\text{SO}_2$  と同様に西日本では大陸からの移流の寄与が大きいことが示唆された。

粒子状  $\text{NO}_3^-$  濃度は地点ごとに異なる変動を示した。2003～2017 年度の 15 年間の長期的傾向については、東京( $-0.1 \mu\text{g m}^{-3} \text{ y}^{-1}$ )で有意な減少傾向( $p < 0.05$ )を示した。また、佐渡関岬( $+0.03 \mu\text{g m}^{-3} \text{ y}^{-1}$ )、小笠原( $+0.02 \mu\text{g m}^{-3} \text{ y}^{-1}$ )で有意な増加傾向( $p < 0.05$ )がみられた。

粒子状  $\text{NH}_4^+$  濃度は測定開始後に増加する傾向があり、7 地点で 2005 年度に最高値となった。2003～2017 年度の 15 年間の長期的傾向については、竜飛岬( $-0.01 \mu\text{g m}^{-3} \text{ y}^{-1}$ )、伊自良湖( $-0.05 \mu\text{g m}^{-3} \text{ y}^{-1}$ )、禰原( $-0.03 \mu\text{g m}^{-3} \text{ y}^{-1}$ )、東京( $-0.08 \mu\text{g m}^{-3} \text{ y}^{-1}$ )で有意な減少傾向( $p < 0.05$ )を示した。また、有意な増加傾向を示した地点はなかった。

粒子状  $\text{nss-Ca}^{2+}$  濃度は、2003～2017 年度の 15 年間の長期的傾向について、禰原( $-0.01 \mu\text{g m}^{-3} \text{ y}^{-1}$ )、東京( $-0.01 \mu\text{g m}^{-3} \text{ y}^{-1}$ )で有意な減少傾向( $p < 0.05$ )を示した。また、有意な増加傾向を示した地点はなかった。

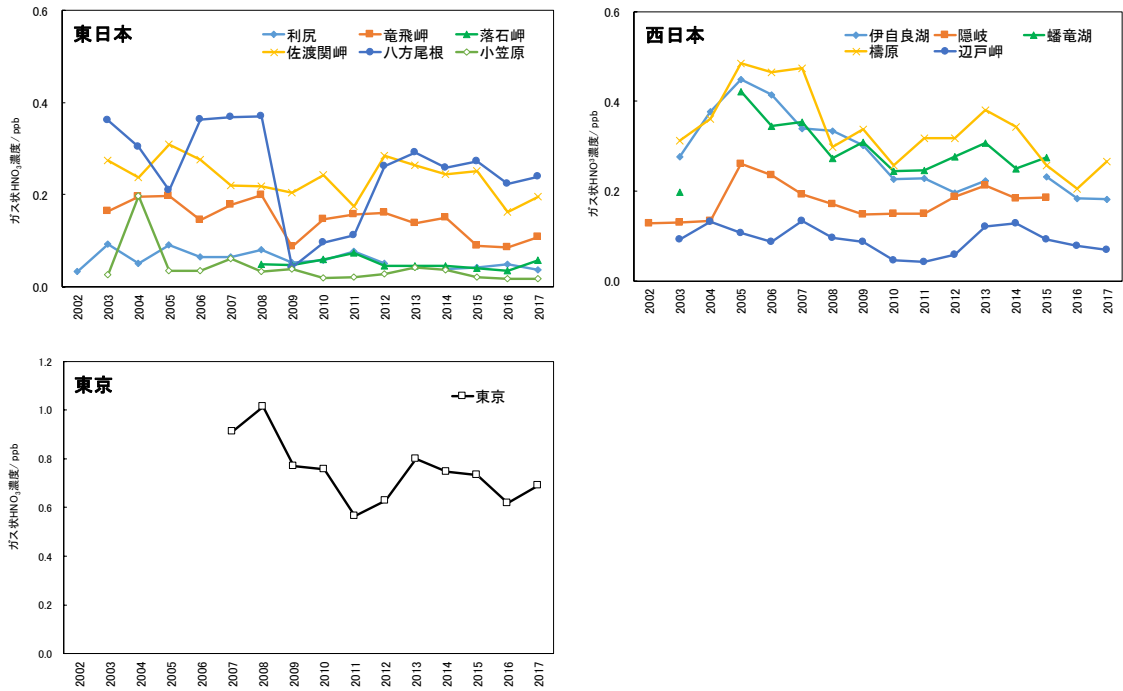


図 3-1-27 ガス状 HNO<sub>3</sub> 濃度の経年変化  
完全度が 70%未満の年間値は表示しない。

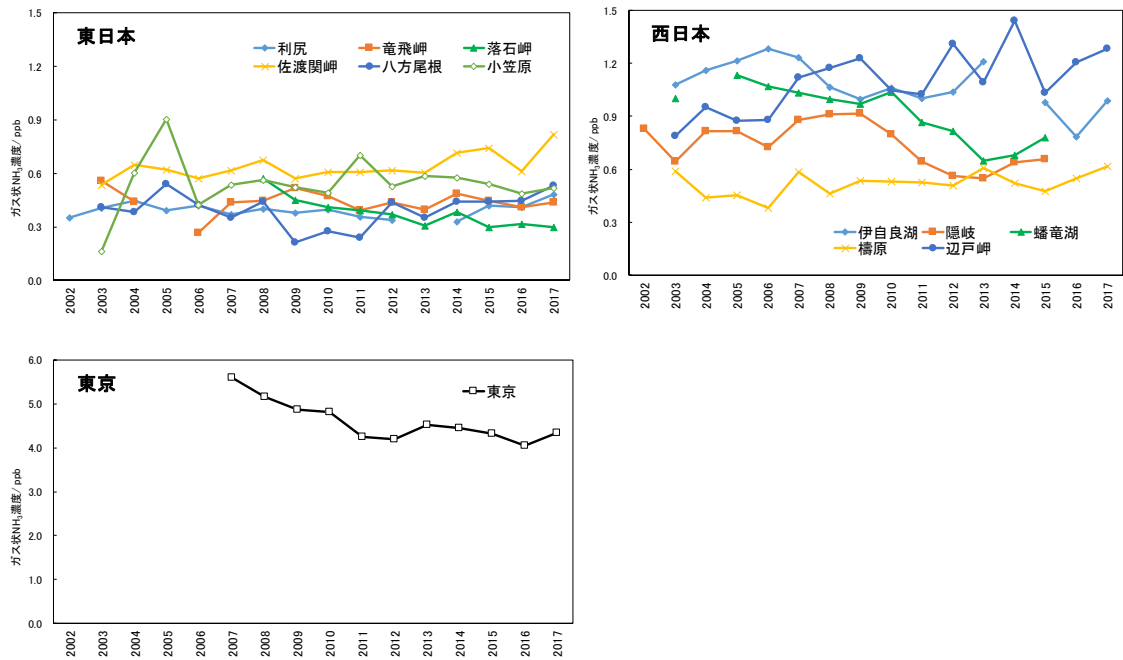


図 3-1-28 ガス状 NH<sub>3</sub> 濃度の経年変化  
完全度が 70%未満の年間値は表示しない。

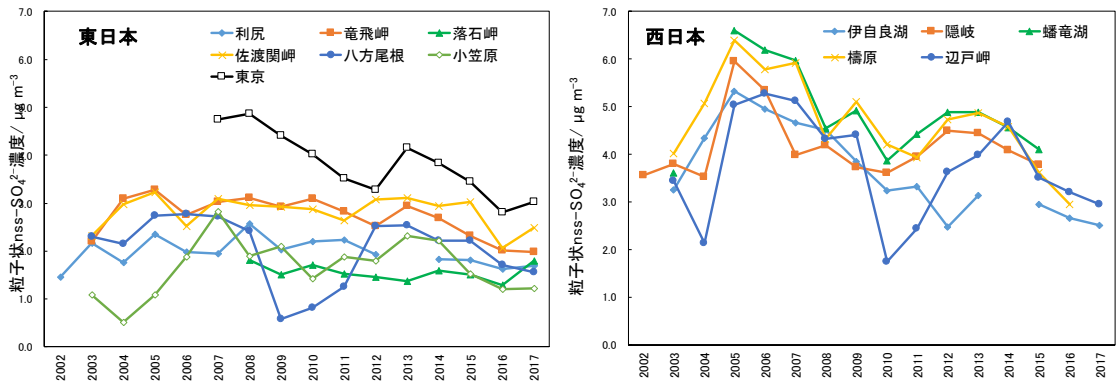


図 3-1-29 粒子状 nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度の経年変化

注：完全度が 70%未満の年間値は表示しない。

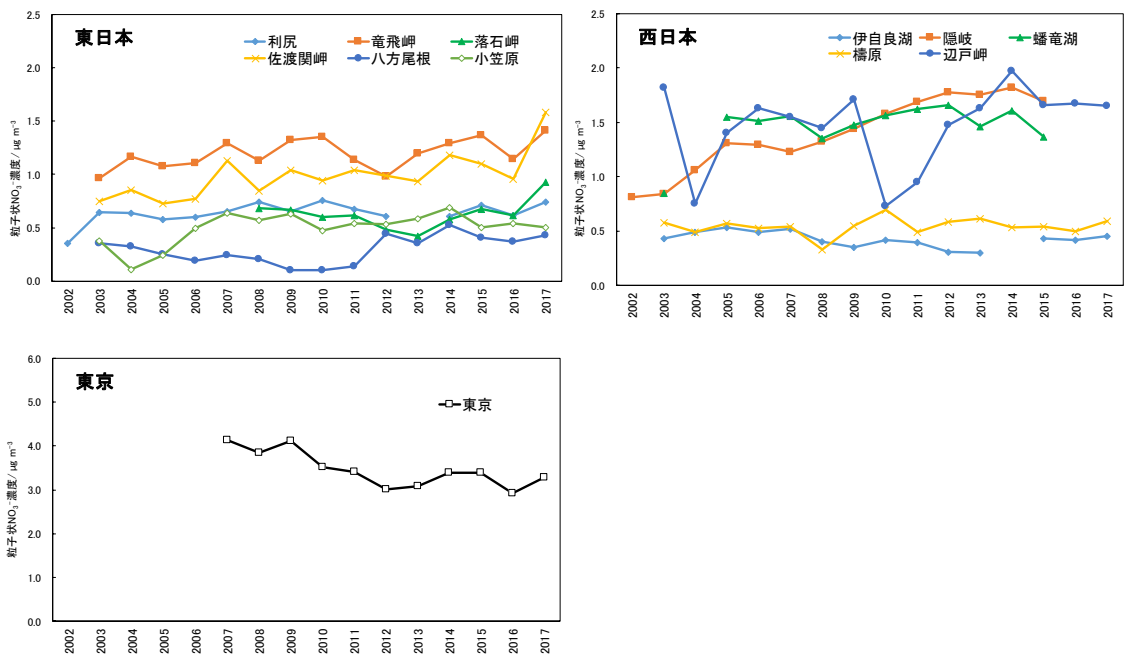


図 3-1-30 粒子状 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度の経年変化

完全度が 70%未満の年間値は表示しない。

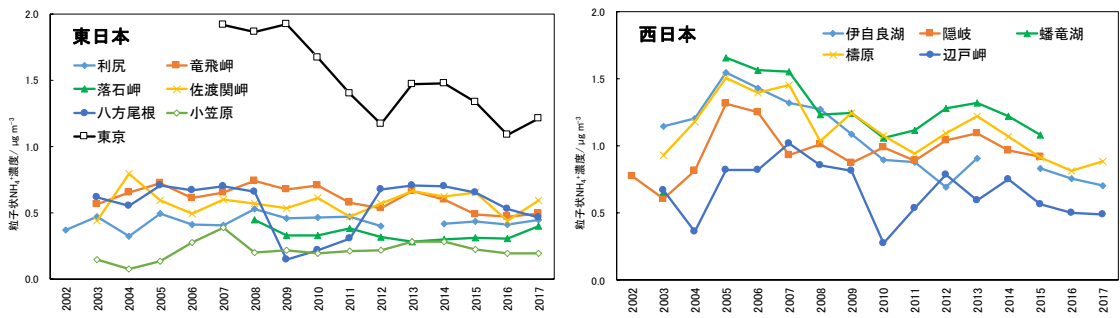


図 3-1-31 粒子状  $\text{NH}_4^+$ 濃度の経年変化  
完全度が 70%未満の年間値は表示しない。

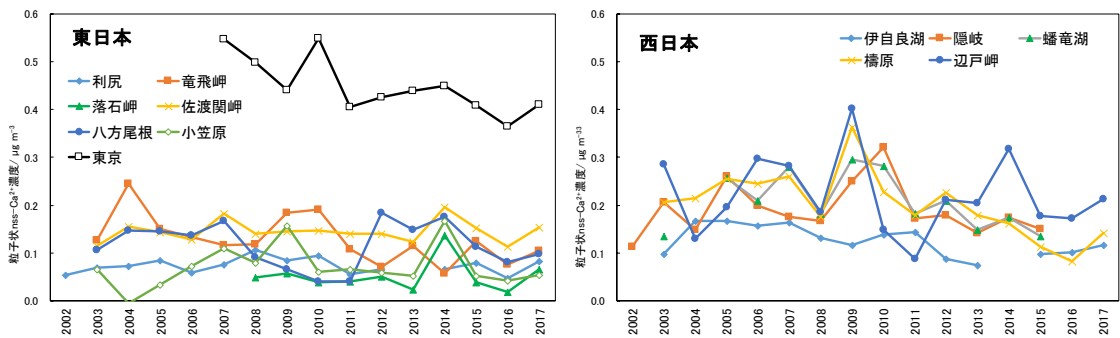


図 3-1-32 粒子状  $\text{nss-Ca}^{2+}$ 濃度の経年変化  
完全度が 70%未満の年間値は表示しない。

また、粒子状イオン成分の項目間の濃度変動の類似性については、辺戸岬を除く地点では粒子状  $\text{nss-SO}_4^{2-}$ 濃度と粒子状  $\text{NH}_4^+$ 濃度が似た変動を示した。一方、辺戸岬では粒子状  $\text{NO}_3^-$ 濃度と粒子状  $\text{NH}_4^+$ 濃度が似た変動を示した。

$\text{SO}_2$ 濃度、粒子状  $\text{nss-SO}_4^{2-}$ 濃度については、多くの地点で近年著しい減少傾向が見られたので、2008～2017年度の直近10年の傾向を調べた。図 3-1-33 に二酸化硫黄 ( $\text{SO}_2$ )濃度及び粒子状非海塩性硫酸イオン ( $\text{nss-SO}_4^{2-}$ )濃度の2008～2017年度の経年変化を示す。 $\text{SO}_2$ については、利尻( $-0.02 \text{ ppb y}^{-1}$ )、竜飛岬( $-0.04 \text{ ppb y}^{-1}$ )、佐渡関岬( $-0.02 \text{ ppb y}^{-1}$ )、八方尾根( $-0.03 \text{ ppb y}^{-1}$ )、隠岐( $-0.04 \text{ ppb y}^{-1}$ )、幡竜湖( $-0.06 \text{ ppb y}^{-1}$ )、橋原( $-0.04 \text{ ppb y}^{-1}$ )、辺戸岬( $-0.01 \text{ ppb y}^{-1}$ )、新潟巻( $-0.04 \text{ ppb y}^{-1}$ )で有意な減少傾向( $p < 0.05$ )を示した。特に、最近5年程度では低下の兆候がみられ、大陸における  $\text{SO}_2$ 排出量の減少傾向を反映しているものと考えられた。

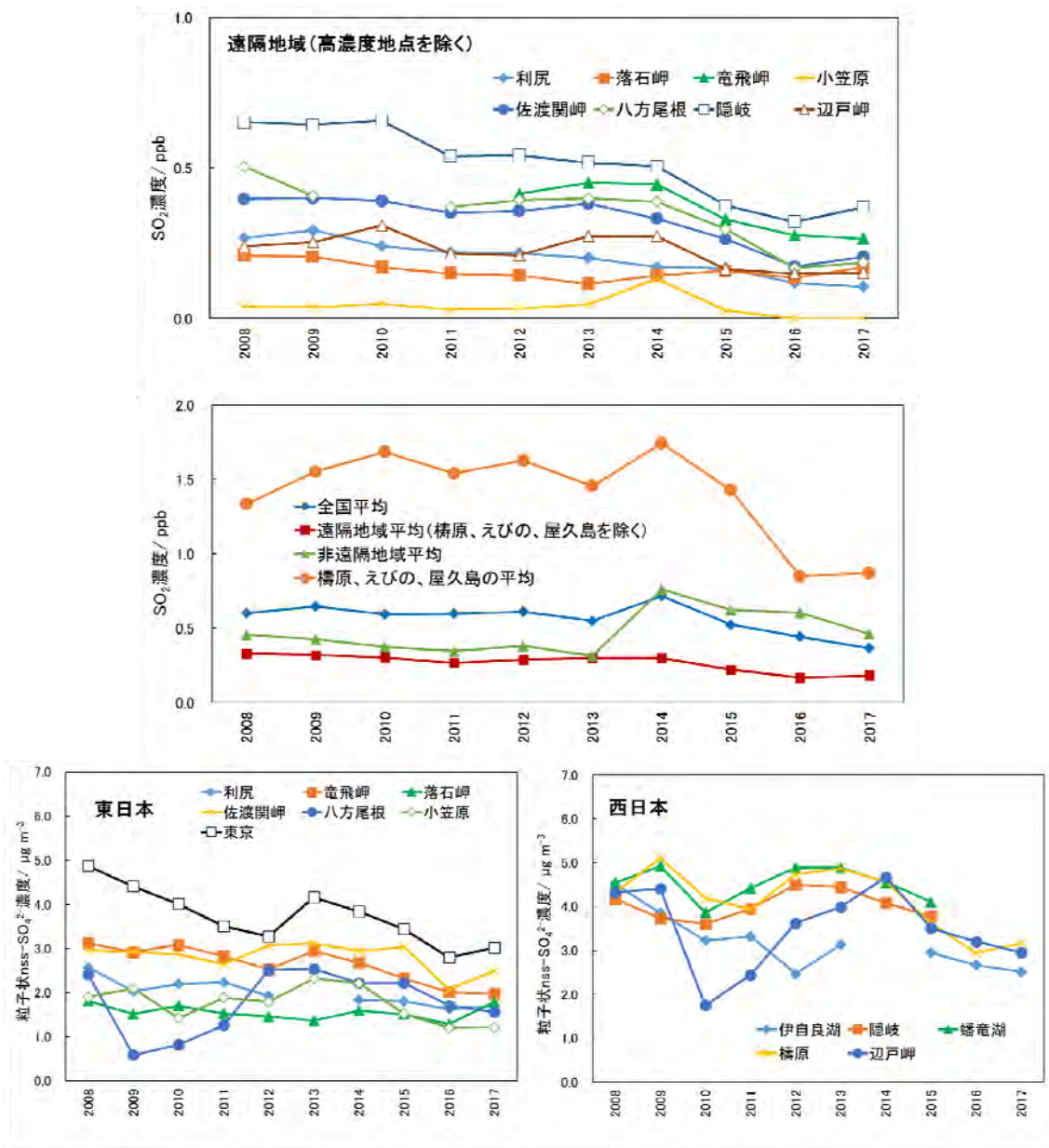


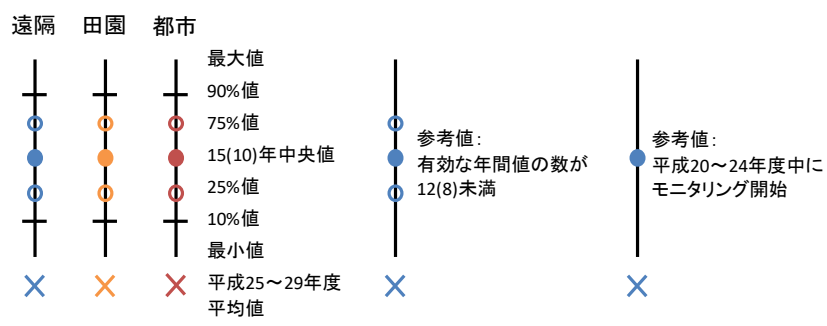
図 3-1-33 SO<sub>2</sub>濃度(上・中段)及び nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度(下段)の経年変化 (2008～2017 年度)  
 完全度が 70%未満の年間値は表示しない。また、非速隔地域平均には、2013 年度までの伊  
 自良湖、蟠竜湖に、2014 年度から札幌、笹岳、新潟巻、尼崎が加わっている。

### (3) 大気汚染物質モニタリングにおける評価基準値

本項では、越境大気汚染・酸性雨長期モニタリング報告書(2008～2012年度)で示した15年中央値及び分位値を評価基準値として大気濃度の高低を評価した。2003～2017年度の15年間のデータを対象とし、評価にあたっては25%値及び75%値を境界とし、それより低い、高い値をそれぞれ「低い」、「高い」として評価した。更に、10%値より低い値及び90%値より高い値をそれぞれ「とても低い」、「とても高い」と追加的に評価した。但し、2003～2017年度のうち年間データが有効であった年数が12年未満である地点・項目については15年中央値及び分位値を参考データとして扱うほか、10%値及び90%値も代表性が低いとみなし、追加的な評価を行わない。

図3-1-34に、各大気汚染物質濃度について15年中央値及び分位値(2003～2017年度)と5年平均値(2013～2017年度)の比較した結果を示す。5年平均値はO<sub>3</sub>を除く項目に低めの傾向がみられた。O<sub>3</sub>においては小笠原、越前岬、隠岐で若干高めの傾向を示していた。また大半の平均値が過去15年間の値の範囲に入っているが、伊自良湖のNO<sub>x</sub>\*、籠岳のO<sub>3</sub>等最低値を示す地点もあった。フィルターパック法による測定結果は、粒子状nss-Ca<sup>2+</sup>以外は高めの傾向を示す地点と低めの傾向を示す地点がほぼ同数であったが、粒子状nss-Ca<sup>2+</sup>のみ大半の地点で低めの傾向を示した。また竜飛岬NH<sub>3</sub>は特異的な高濃度が観測されたが、原因は不明である。

#### 凡例



＜自動測定機による測定結果＞

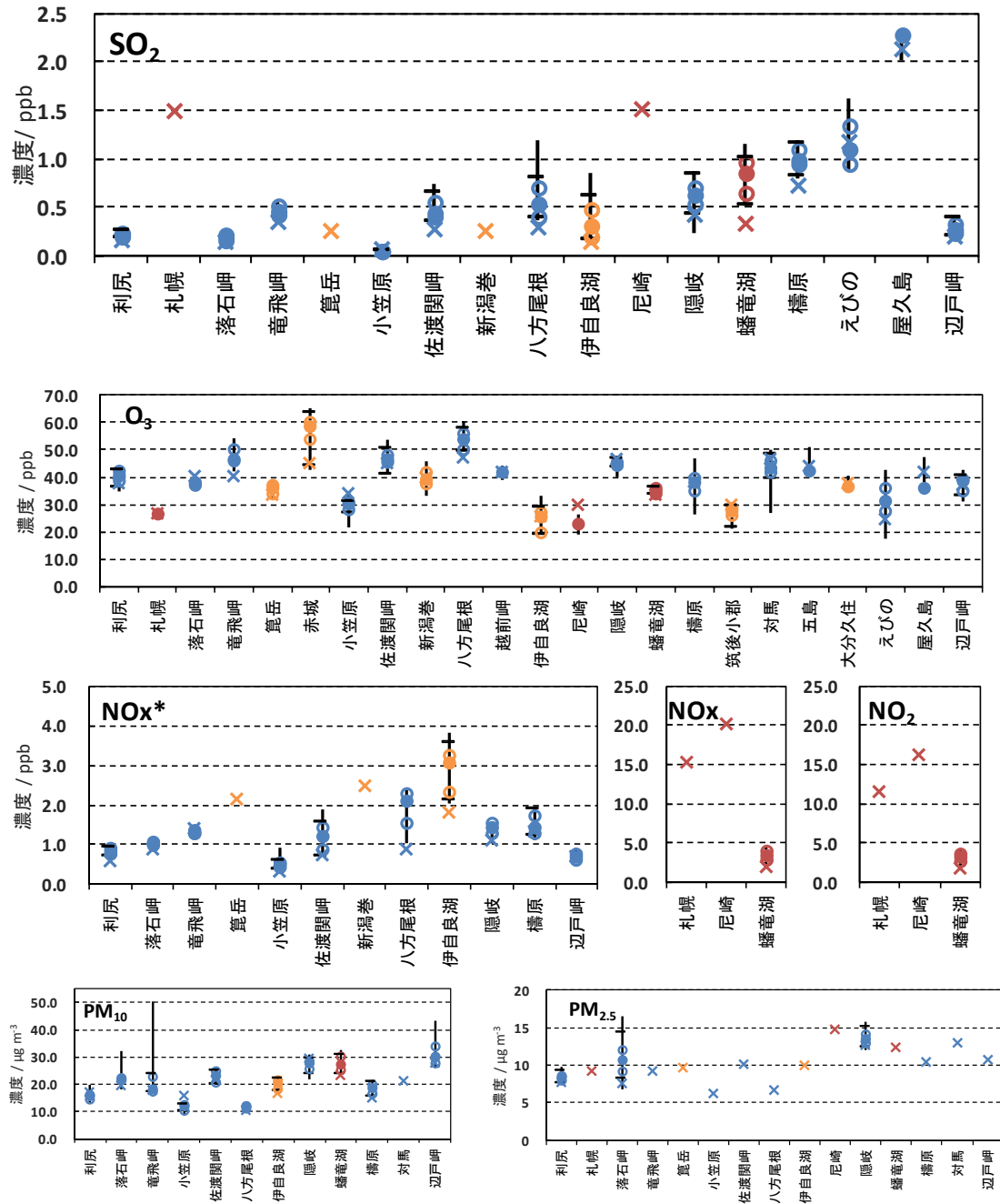


図 3-1-34 大気汚染物質濃度 15 年中央値及び分位値(2003～2017 年度)と 5 年平均値(2013～2017)年度の比較



＜フィルターパック法による測定結果＞

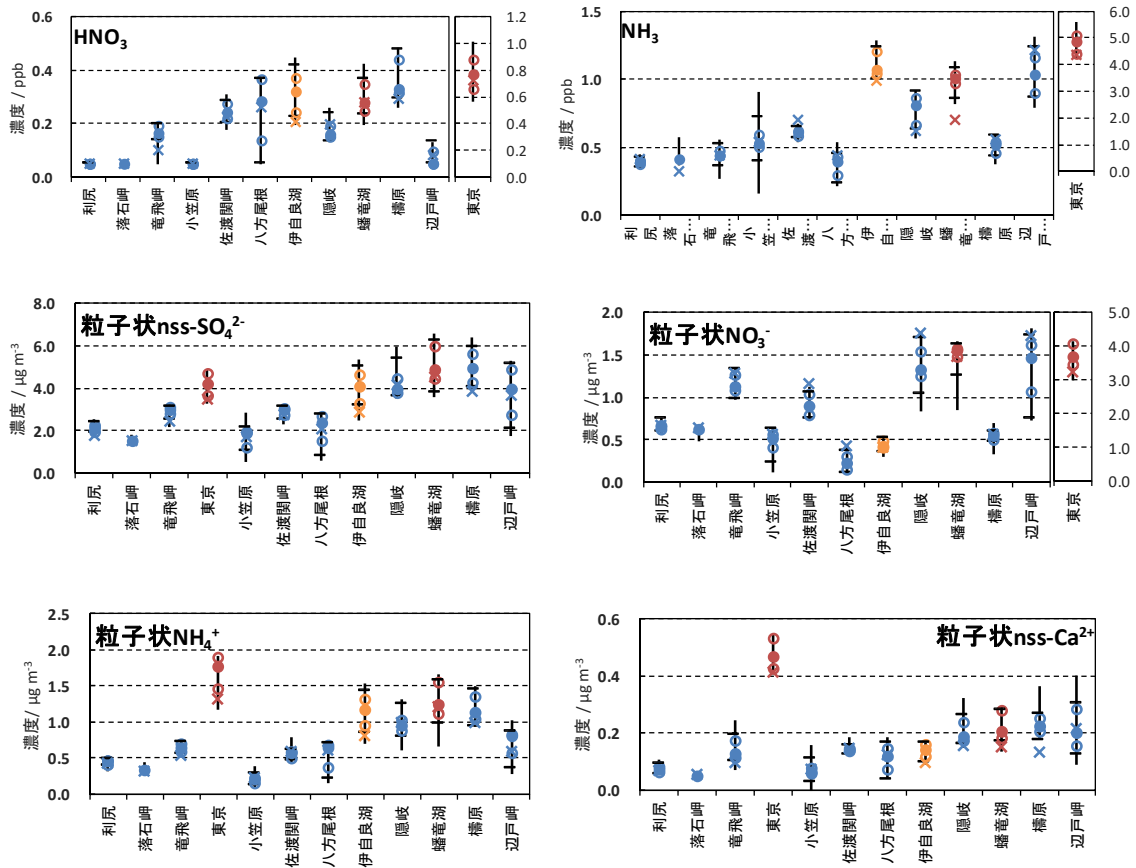


図 3-1-34 大気汚染物質濃度 15 年中央値及び分位値(2003～2017 年度)と 5 年平均値(2013～2017)年度の比較(続き)

(4) ガス、エアロゾル濃度傾向のまとめ

- SO<sub>2</sub> 濃度は全体的に夏季に低く、冬季に高い傾向がみられた。要因として、冬季の北西季節風による大陸からの移流の影響が示唆された。日本海側の遠隔地域では、大陸により近い西側の隠岐が佐渡関岬と比べて長期継続的に濃度が高い傾向がみられ、西日本では大陸からの移流の寄与がより大きいことが示唆された。一方で、屋久島、えびの、橿原では火山由来と考えられる高濃度が観測された。
- O<sub>3</sub> 濃度は全体的に春季に最大となり、夏季には低い傾向がみられた。この季節変動パターンは北東アジアの大部分で共通しており、要因としては、春季の大陸からの移流、成層圏からの降下、夏季の海洋性大気の流れによる低下等が指摘されている。
- PM<sub>10</sub> 濃度、PM<sub>2.5</sub> 濃度、nss-Ca<sup>2+</sup>濃度は全体的に春季に高い傾向がみられることから、黄砂飛来が影響していることが示唆された。

- 粒子状  $\text{nss-SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ 、粒子状  $\text{NH}_4^+$ 濃度は、全体的に春季から夏季にかけて高く、秋季から冬季に低くなる傾向を示した。 $\text{nss-SO}_4^{2-}$ 濃度については、西日本の測定地点が東日本の地点より高い傾向がみられたことから、 $\text{SO}_2$ と同様に、西日本では大陸からの移流の寄与がより大きいことが示唆された。
- $\text{SO}_2$ 濃度及び  $\text{nss-SO}_4^{2-}$ 濃度は、最近5年程度では低下の兆候がみられ、大陸における  $\text{SO}_2$ 排出量の減少傾向を反映しているものと考えられた。
- 高精度で連続して取得されているこれらの観測値は、地域の大気質の長期変動や季節変動等の解析のみならず、世界的にも大気汚染物質の排出量が多い東アジア地域を対象とした化学輸送モデルの再現性評価に広く使用されていることから、今後とも観測を続けていく必要があるものと考えられる。

### 3.1.3 越境大気汚染・酸性沈着に関する考察

#### (1) 総沈着量（湿性＋乾性）の算出結果

東京、伊自良湖を除く EANET 局の 10 地点において、平成 25～29 年(2013～2017 年)の各年 1 月～12 月の期間の乾性沈着量(ガス状物質：SO<sub>2</sub>、HNO<sub>3</sub>、NH<sub>3</sub>、粒子状物質中のイオン成分：nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>)を推計した。窒素化合物については硝酸及びアンモニアを評価対象とした。

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」[1]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 1 km 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、対象とする成分の大気中濃度(SO<sub>2</sub>は 1 時間値、その他の成分は 2 週間値)と沈着速度の積により求めた。

図 3-1-35～図 3-1-37 に国内 EANET 局における硫黄化合物、窒素化合物の乾性沈着速度の 5 年平均値を示す。SO<sub>2</sub>、HNO<sub>3</sub>については沿岸地点の落石岬、竜飛岬、佐渡関岬、隠岐、辺戸岬で森林表面への沈着速度が他の地点より大きかった。これは、現在の沈着速度のモデルでは、測定地点の風速の大きさが沈着速度に反映していると思われる。SO<sub>2</sub>、HNO<sub>3</sub>についてはガス状物質の沈着速度が粒子状物質より大きかったが、NH<sub>3</sub>については、ガス状、粒子状物質の沈着速度は同程度であった。

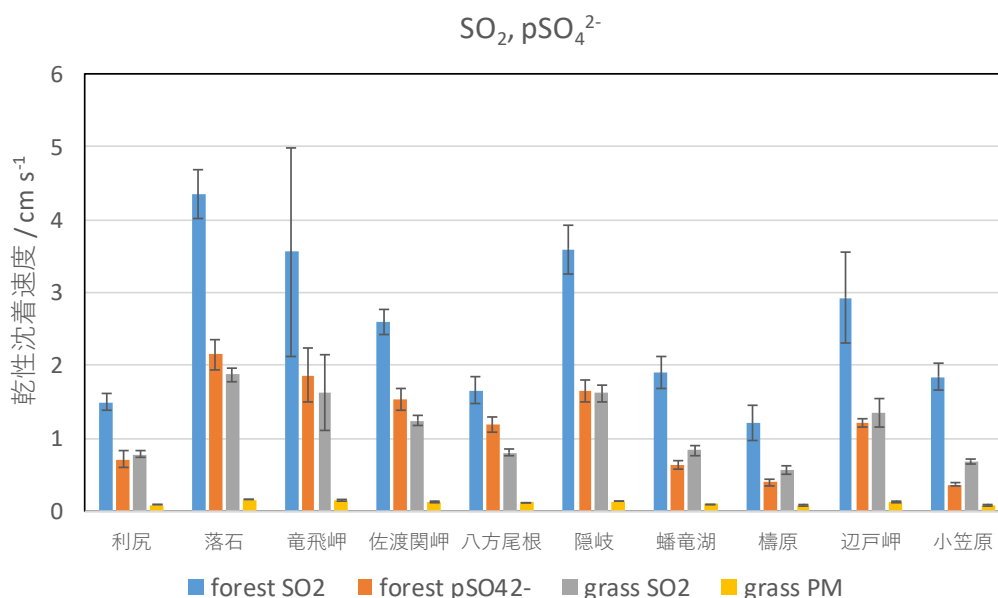


図 3-1-35 2013～2017 年の国内 EANET 局における SO<sub>2</sub>、粒子状 SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の乾性沈着速度の 5 年平均値

エラーバーは 5 年値の標準偏差を示す。

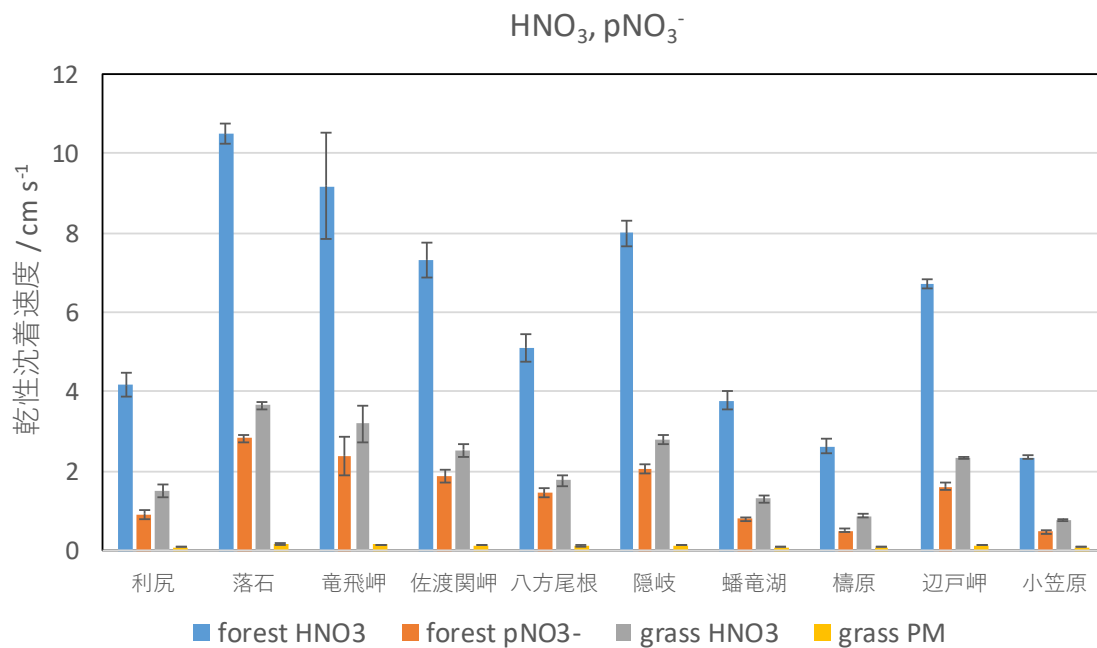


図 3-1-36 2013～2017 年の国内 EANET 局における  $\text{HNO}_3$ 、粒子状  $\text{NO}_3^-$  の乾性沈着速度の 5 年平均値  
エラーバーは 5 年値の標準偏差を示す。

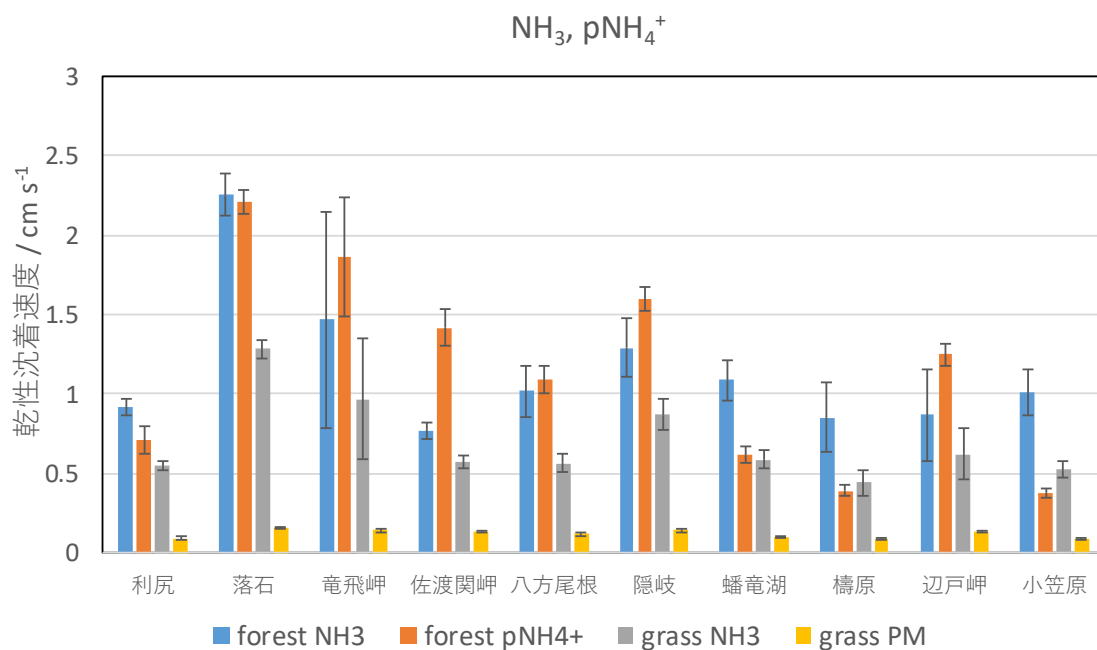


図 3-1-37 2013～2017 年の国内 EANET 局における  $\text{NH}_3$ 、粒子状  $\text{NH}_4^+$  の乾性沈着速度の 5 年平均値  
エラーバーは 5 年値の標準偏差を示す。

各地点における 2013～2017 年の硫黄化合物、窒素化合物の総沈着量の 5 年平均値を図 3-1-38、図 3-1-39 に示す。国内 EANET 局における硫黄及び窒素化合物の年間総沈着量の範囲は、各々 7.8-53.9  $\text{mmol m}^{-2} \text{y}^{-1}$ 、19.0-111.6  $\text{mmol m}^{-2} \text{y}^{-1}$  であった。なお、硫黄の総沈着量は、降水中の  $\text{nss-SO}_4^{2-}$  の湿性沈着量、及びガス状物質の  $\text{SO}_2$  と粒子状物質の  $\text{nss-SO}_4^{2-}$  の乾性沈着量の総計で、窒素の総沈着量は、降水中の  $\text{NO}_3^-$  と  $\text{NH}_4^+$  の湿性沈着量、及びガス状物質 ( $\text{HNO}_3$ 、 $\text{NH}_3$ ) と粒子状物質 ( $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{NH}_4^+$ ) の乾性沈着量の総計で評価している。硫黄化合物の総沈着量における地域的特徴では、日本海側の竜飛岬、西日本の遠隔地域に位置する禰原で高く、発生源地域から遠く離れている利尻、落石岬、小笠原で少ない傾向がみられた。一方、窒素化合物の総沈着量においても、日本海側の竜飛岬で高く、周囲に顕著な発生源が無く、大陸からの長距離輸送の影響も受けにくい利尻、落石岬及び小笠原では総沈着量が少ない傾向がみられた。竜飛岬では、沈着速度が大きくなっていることが、乾性沈着量および総沈着量が大きくなる要因だと考えられる。

次に総沈着量に対する湿性沈着、乾性沈着の割合について着目すると、 $\text{nss-SO}_4^{2-}$  の湿性沈着量は、5.3～23.0  $\text{mmol m}^{-2} \text{y}^{-1}$ 、硫黄化合物の乾性沈着量は 2.4～36.7  $\text{mmol m}^{-2} \text{y}^{-1}$  の範囲にあり、竜飛岬、隠岐以外の地点では湿性沈着量が乾性沈着量を上回る結果となった。また、窒素化合物の湿性沈着量は 10.3～57.0  $\text{mmol m}^{-2} \text{y}^{-1}$  の範囲、乾性沈着量は 5.4～69.8  $\text{mmol m}^{-2} \text{y}^{-1}$  にあり、多くの地点において総沈着量に対する湿性沈着量の寄与が乾性沈着量と比べて同等または大きかったが、隠岐では乾性沈着量が湿性沈着量を上回った。

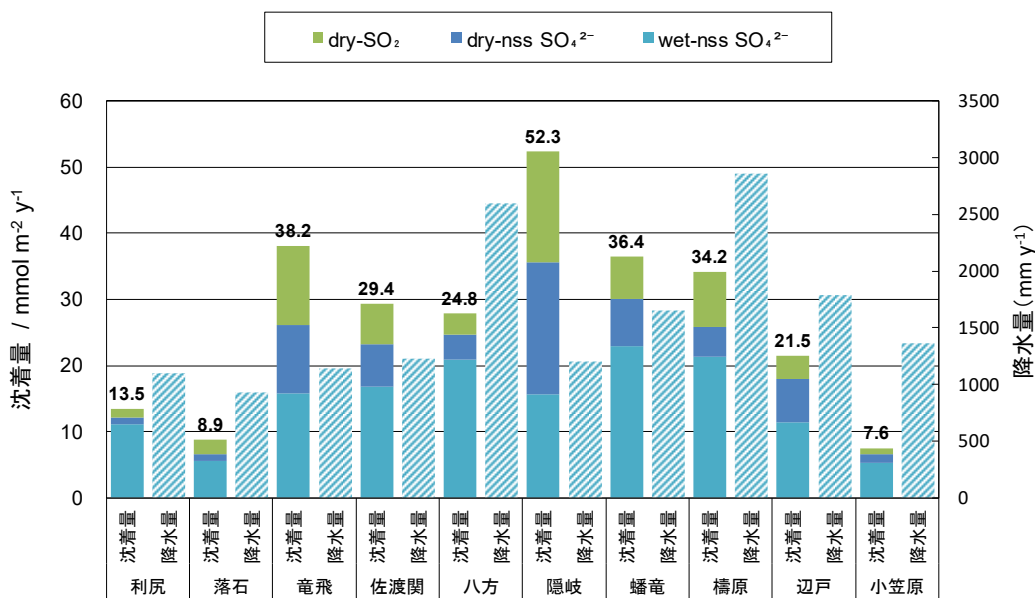


図 3-1-38 2013～2017 年の国内 EANET 局における硫黄化合物の沈着量と降水量の 5 年平均値

完全度が湿性で 80%、乾性で 70%未満の年間値は含めずに計算した。

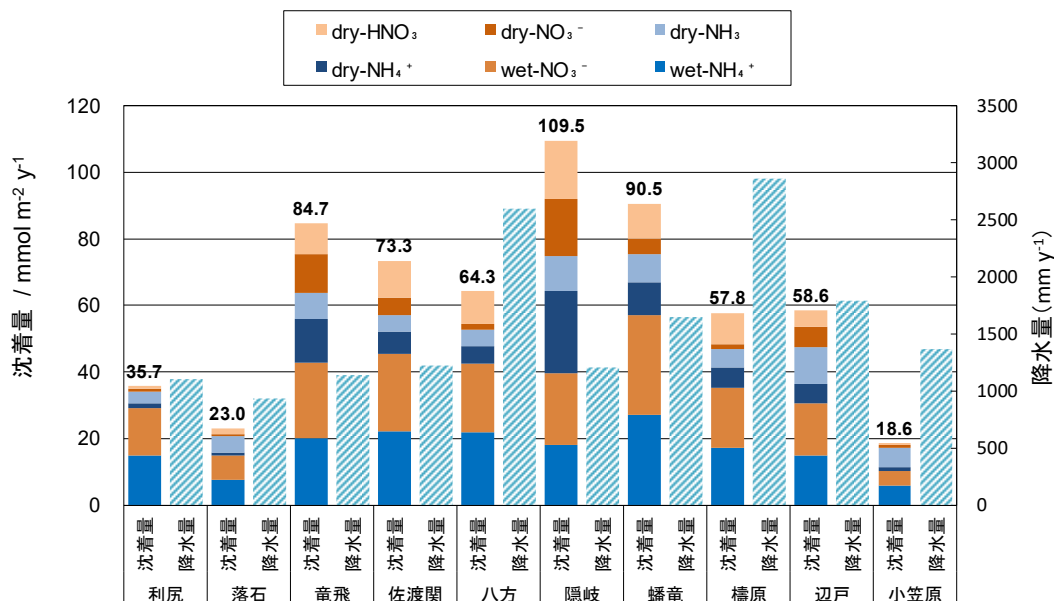


図 3-1-39 2013～2017 年の国内 EANET 局における窒素化合物の沈着量と降水量の 5 年平均値

完全度が湿性で 80%、乾性で 70%未満の年間値は含めずに計算した。

EANET 局では、2001 年よりガスおよび粒子状物質のモニタリングを行っており、大気沈着量の長期的評価が可能なデータが揃っている。伴らは、日本の広域における大気から森林の窒素沈着量の把握と長期的な変動の評価を目的として、2003～2012 年の 10 年間を対象に国内 EANET 局(8 局)における、窒素化合物 (HNO<sub>3</sub>、NH<sub>3</sub> ガス、降水および粒子中 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>) の大気沈着量の推計を行った[2]。利尻と小笠原を除いて窒素化合物の年間総沈着量は 10 kg N ha<sup>-1</sup> を超えていた。中日本では酸化態窒素の沈着量が大きく、国内起源の乾性沈着量の寄与が大きいと考えられる。また、国内における還元態窒素の排出量が増大傾向にあり、日本における窒素化合物の総沈着量が増大している要因であると考えられる。

## (2) 国設局のモニタリングデータ、国内センターが行っている調査研究結果を利用した大気沈着、越境大気汚染の解析

国設局、EANET 局のモニタリングデータは、国内外の多くの研究者に利用されており、大気沈着、越境大気汚染に関する知見の解明に大きく寄与している。本項では、国設局のモニタリングデータ、国内センターが行っている調査研究結果を利用した大気沈着、越境大気汚染の解析事例について紹介する。

板橋らは日本、中国、韓国の EANET を含む 6 つの観測ネットワークで取得された、2001～2015 年の降水中硫酸塩／非海塩性硫酸塩比の長期変動解析を行っており[3]、降水中濃度

と NO<sub>x</sub>、SO<sub>2</sub> の排出量及び衛星で観測された NO<sub>2</sub>、SO<sub>2</sub> のカラム濃度との関連を考察した。降水中硫酸塩濃度と NO<sub>x</sub> の排出量及び NO<sub>2</sub> のカラム濃度との関係は見られなかったが、降水中非海塩性硫酸塩と日本、中国、韓国の SO<sub>2</sub> 排出量の相関は部分的に見られた。降水中硫酸塩／非海塩性硫酸塩比は 2001～2005 年は変化が無かったが、2005～2010 年には増大し、2010～2015 年には再び一定になった。この比の変動は、NO<sub>x</sub>／SO<sub>2</sub> の排出量比及び NO<sub>2</sub>／SO<sub>2</sub> のカラム濃度比の変動と一致していた。これは、中国における NO<sub>x</sub>、SO<sub>2</sub> の排出が自国のみならず、下流域の日本の降水成分比にも影響を及ぼしていることが示された。

本州日本海側に位置する新潟市では、2014 年 2 月に PM<sub>2.5</sub> の日平均値が環境基準を超える 96 µg/m<sup>3</sup> の高濃度イベントが観測された。PM<sub>2.5</sub> の高濃度現象は近年全国的に見られるようになっており、新潟における濃度上昇の原因は、アジア大陸からの越境汚染と都市汚染の影響が複合している可能性が高いと考えられている。国内センターでは日本海側における PM<sub>2.5</sub> の特徴を明らかにするため、国設新潟巻酸性雨測定局で PM<sub>2.5</sub> の 24 時間サンプリングを、2015～2017 年の春季(5 月頃)、夏季(7 月頃)、秋季(10 月頃)、冬季(1 月頃)にそれぞれ約 2 週間行った。観測結果から、PM<sub>2.5</sub> の組成濃度変動の特徴を明らかにするとともに、正値行列因子分解(PMF)法および Potential Source Contribution Function (PSCF)法により、PM<sub>2.5</sub> の主要発生源および長距離輸送の寄与を解析した [4]。

PM<sub>2.5</sub> の日平均濃度の範囲は 4.2 ～33.4 µg m<sup>-3</sup> であり、日平均値の大気環境基準を下回っていた。新潟市内の亀田測定局と国設佐渡関岬測定局との PM<sub>2.5</sub> 日平均値の相関係数はそれぞれ、0.82、0.80 と高い相関が見られたことから、新潟県内の広域にわたって濃度変動の挙動が類似していた。

季節変動については、春季および夏季の降水量、風速が比較的低い時期に PM<sub>2.5</sub> 濃度が高くなる傾向が見られ、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、OC 濃度は同時期の気温、日射量が高くなる時期に高くなる傾向が見られた。このように PM<sub>2.5</sub> および構成成分濃度は気象要因に大きく影響を受ける傾向が見られた。年平均で見ると PM<sub>2.5</sub> 主成分は SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、OC、EC であり、新潟および首都圏の都市地域よりも NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、EC、EC/OC 比が低かったことから、化石燃料起源の影響が低いことが示された。

PMF 法による PM<sub>2.5</sub> の発生源解析結果から、6 つの発生源因子が抽出された。図 3-1-40 は各発生源因子からの発生源寄与を示す。2 次粒子の寄与が 44.4%と最も高く、この因子には SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、V、As、Se、Pb の負荷量が大きかったことから、化石燃料燃焼起源との関連が強いことが見出された。また、PSCF 法により、中国東北部からの長距離輸送の影響が、秋季にはバイオマス燃焼が、冬季には土壌粉じんの影響が強いことが示された。国内の影響については、西日本から 2 次粒子の寄与が強く、これは火力発電所の分布と一致していた。首都圏からの影響は気圧配置および中部山岳の地形に阻まれるために、ほとんど影響が見えなかった。海塩粒子は、測定地点近傍の影響が最も強く見られた。

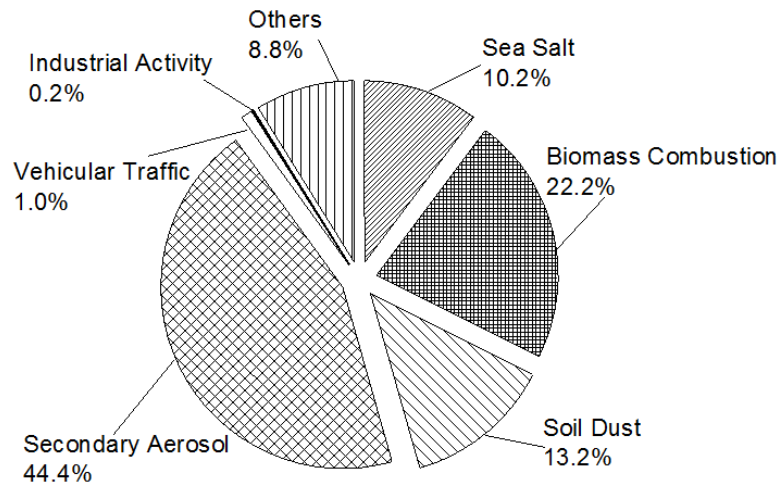


図 3-1-40 新潟巻における PM<sub>2.5</sub> 濃度に対する発生源寄与割合

固定発生源からの石炭燃焼、バイオマス燃焼を主な起源とする黒色炭素粒子による地球上の放射強制力が CO<sub>2</sub> に匹敵することが近年指摘されており、排出量の増加が著しい東アジア地域における黒色炭素粒子の物質収支を明らかにすることが重要である。国内センターでは、これまで長期観測データが全く無い日本国内の東京(都市地域)、新潟(郊外地域)、佐渡(遠隔地域)において、降水中炭素成分(EC、OC)及び炭素状エアロゾルの長期モニタリングを行った[5]。

降水、エアロゾル成分中有機炭素(OC)及び元素状炭素(EC)の平均濃度は、新潟と佐渡では顕著な違いが見られなかったが、東京では降水中不溶性炭素成分で約 2.5 倍、エアロゾル中炭素成分で約 1.5 倍濃度が高かった。EC/OC 比を見ると、降水成分、エアロゾル成分については、佐渡で最も低く、次いで新潟、東京の順に高くなった。東京では、ボイラーやディーゼルエンジン由来の大規模発生源が存在するため、EC 濃度が高く、黒色炭素粒子濃度と二次粒子成分などのイオンとの相関が高かった。一方、佐渡では中国北東部からの長距離輸送の影響を強く受け、冬季には石炭燃焼由来による黒色炭素粒子の起源が、春季には農業活動などのバイオマス燃焼による起源が推定された。

### (3) 日本の降水酸性度の海外との比較

我が国の降水酸性度の現状を評価するため、平成 25 年(2013 年)から 2015 年に観測された降水 pH について、日本の値を日本以外の EANET、北米 (NADP) および欧州 (EMEP) と比較した。各ネットワークの構成地点について、年平均 pH から 3 か年の降水量加重平均値を求め、ネットワーク全体のデータ分布を比較した。結果を図 3-1-41 に示す。なお、ここでの解析には各ネットワークの基準を満足する有効な年平均値のみを用いた。



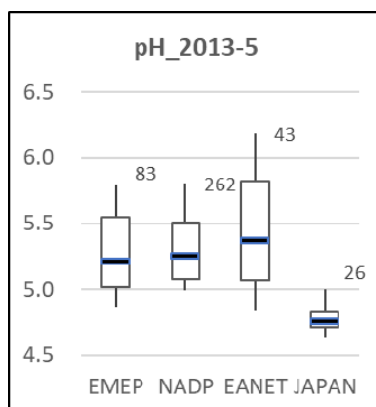


図 3-1-41 日本の降水 pH の国際ネットワーク (EMEP<sup>1</sup>: 欧州 [6]、NADP<sup>2</sup>: 北米 [7]、EANET: 日本以外の東アジア [8]) との比較  
構成地点の 2013~2015 年 (日本は年度) の降水量加重平均値の分布。  
図中の数値は地点数、箱ひげ図は上から 90, 75, 50, 25, 10 % 値をそれぞれ示す。

この期間の欧州、北米および日本以外の EANET 諸国の降水 pH は、中央値が 5.2 から 5.4 の範囲にあり、25 % 値がいずれのネットワークも 5.0 を超えている。これに対し、日本の降水 pH は、分布幅が狭く、殆どのデータが 5.0 以下であり、中央値が 4.7 で欧米および日本以外の EANET 諸国に比べて低い値を示している。この原因を明らかにするために、降水酸性度を決定する降水に溶解した酸と塩基の濃度の地域比較、また、降水 pH の経年変化について考察した。

降水酸性度は降水に溶解した酸と塩基のバランスによって決まり、また、溶け込んだ酸と塩基は降水中にイオンとして保存されることから、降水中の指標イオン成分濃度から、溶け込んだ酸と塩基の濃度を推測することが出来る。ここでは、降水を酸性化する酸として硫酸と硝酸、中和する塩基としてアンモニアと塩基性カルシウム粒子を想定し、降水中のそれらの指標イオン濃度から、酸濃度和 =  $nss\text{-SO}_4^{2-} + \text{NO}_3^-$ 、塩基濃度和 =  $\text{NH}_4^+ + nss\text{-Ca}^{2+}$  をそれぞれ当量濃度和として求め、評価を行った。

<sup>1</sup> EMEP: 長距離移動大気汚染物質モニタリング・欧州共同プログラム (Co-operative Program for Monitoring and Evaluation of the Long-Range Transmission of Air Pollutants in Europe)

<sup>2</sup> NADP: 米国国家大気降下物測定プログラム (National Atmospheric Deposition Program)

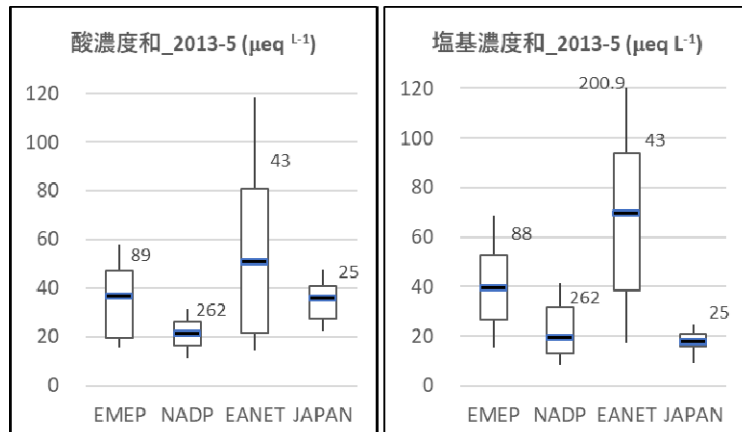


図 3-1-42 各ネットワークにおける酸 (左) 及び塩基 (右) 濃度和の比較

酸濃度和は  $\text{nss-SO}_4^{2-} + \text{NO}_3^-$ 、塩基濃度和は  $\text{NH}_4^+ + \text{nss-Ca}^{2+}$  (いずれも当量濃度)。  
 図中の数値及び箱ひげ図の説明は図 3-1-41 に同じ。

図 3-1-42 に各ネットワークの酸と塩基の濃度和を示した。日本の酸濃度和は EANET より低いものの、NADP より高く、EMEP と同程度の値を示している。一方、塩基濃度和は EANET、EMEP より低く、NADP と同程度の低い値を示している。各ネットワークにおける酸と塩基のバランスは、EMEP と NADP では酸と塩基がほぼ等しく、EANET では塩基が酸より高い。一方、日本では塩基が酸の半分程度の濃度を示しており、このことが日本の pH が低い値を示す原因と考えられた。次に、1970～80 年代には深刻な酸性雨の被害を経験した欧米が、どのように日本より低い降水酸性度を示すに至ったかを検証するために、欧米のネットワークにおける pH、酸及び塩基の濃度和の経年変化を解析した。

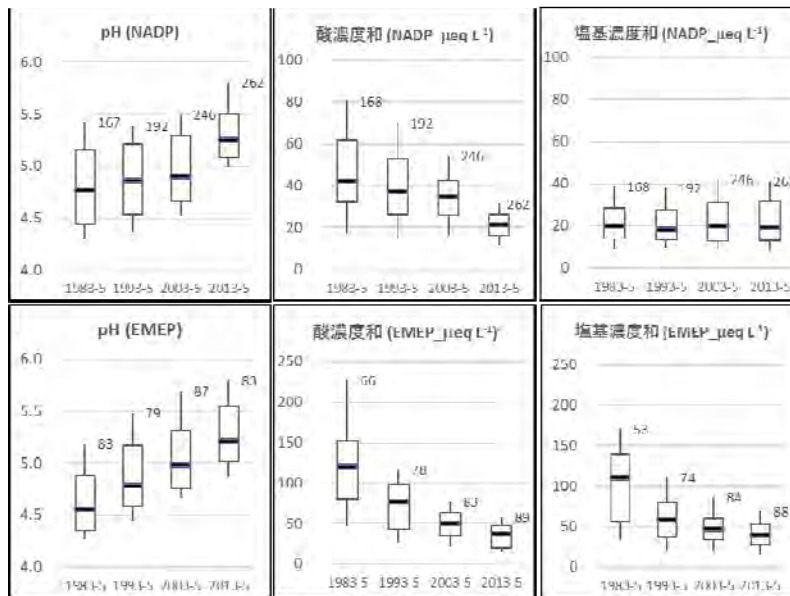


図 3-1-43 北米(上段)および欧州(下段)のネットワークにおける降水 pH 及び降水中の酸と塩基の濃度和の長期変動  
 図中の数値及び箱ひげ図の説明は図 3-1-41 に同じ

欧米のネットワークにおける pH、酸及び塩基の濃度和の長期変動を図 3-1-43 に示した。北米においては、1983～85年には酸と塩基の濃度和の中央値がそれぞれ  $40 \mu\text{eq L}^{-1}$  と  $20 \mu\text{eq L}^{-1}$  で酸が約 2 倍の濃度を示し、pH の中央値は 4.8 程度の値を示していたが、その後、酸の濃度和が着実に低下するとともに pH は上昇し、2013～2015年には酸と塩基が共に  $20 \mu\text{eq L}^{-1}$  となり、pH の中央値が 5.2 を示すに至っている。また、欧州においては、1983～85年には酸と塩基の中央値がそれぞれ  $120 \mu\text{eq L}^{-1}$  と  $110 \mu\text{eq L}^{-1}$  で pH の中央値が 4.6 程度の値を示していたが、酸と塩基の濃度和が共に低下し、2013～2015年には両者の濃度和が約  $40 \mu\text{eq L}^{-1}$  でほぼ等しくなり、pH の中央値は 5.2 を示している。この間の二酸化硫黄と窒素酸化物の排出量の 2013 年/1993 年比は、欧州で 38%と 56% (EMEP, 2018 [9])、米国で 22%と 52% (USEPA, 2018 [10])と見積もられ、上記の酸濃度和の低下は両地域におけるこれら硫黄や窒素の酸化物の排出量の削減によるものと考えられる。2 つのネットワークは地点数を増加させながら観測を継続し、この間の大きな状況変化の把握に重要な役割を担っていたものと考えられる。

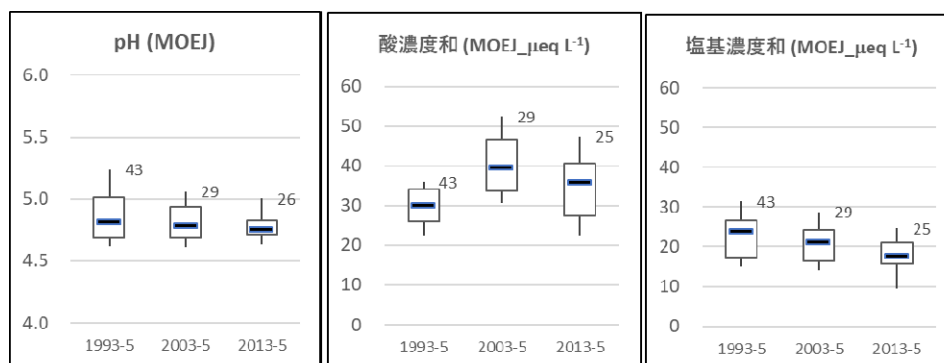


図 3-1-44 日本の降水 pH 及び降水中の酸と塩基の濃度和の長期変動  
 図中の数値及び箱ひげ図の説明は図 3-1-41 に同じ。

最後に、日本の降水 pH 及び降水中の酸と塩基の濃度和の長期変動を図 3-1-44 に示した。日本の酸濃度和は 1990 年代から 2000 年代に増加し、2010 年代にはやや低下の傾向にある。降水中の酸濃度に影響を与える硫黄や窒素の酸化物の大気中への排出量を図 3-1-45 に示す。日本国内では両酸化物の排出量が 1980 年代から低下傾向にある一方で、中国では硫黄については 1980 年に日本の 10 倍、1990 年代は 20~30 倍、2000 年代半ばには 40 倍まで増加し、その後、著しい低下の傾向にあることが分かる。窒素酸化物についても同様に日本国内の低下と中国の増加が確認できるが、中国における排出量のピークは硫黄に比べて 10 年程遅く、2010 年代に認められる。我が国の降水中の酸濃度和にみられるこれらの変動は、国内よりはむしろ中国における硫黄と窒素の排出量の変動と調和的であり、また、このことは日本海側地域における降水中硫黄の硫黄同位体比を用いた発生源寄与解析の結果からも支持される[11]。一方、降水の塩基濃度和は 1990 年代からやや低下の傾向にあるが、2010 年代の低下は黄砂日数の減少が一因と考えられ、長期的に一定の傾向には無いものと推測される。我が国の降水は、現状では 1990 年代の北米と同程度に酸が塩基より高い値が維持されており pH の上昇傾向には至っていないが、降水中の酸濃度和に大きな影響を与える中国における直近の硫黄や窒素の酸化物の排出量の変動傾向から、今後は欧米と同様に pH の上昇が期待される。

しかしながら、日本の降水は現状では世界の他地域に比べて pH が低く、また、降水量が多いために沈着量が海外に比べて多いことが特徴的であり、降水量と pH の中央値から求められる H<sup>+</sup>沈着量は 2013~2015 年で、NADP が 6.0、EMEP が 4.6、EANET が 6.2 mmol m<sup>-2</sup>y<sup>-1</sup>であるのに対し、日本は 31 mmol m<sup>-2</sup>y<sup>-1</sup>と他地域の 5~6 倍の非常に大きな値となる。このように、日本の降水酸性度は、現状では人の健康や植物に急性被害を与えるレベルには無いものの他地域に比べれば高く、降水量も多いことから、生態系への慢性的な影響を把握するためのインプットデータとして、今後ともモニタリングを継続していくことが重要と考えられる。

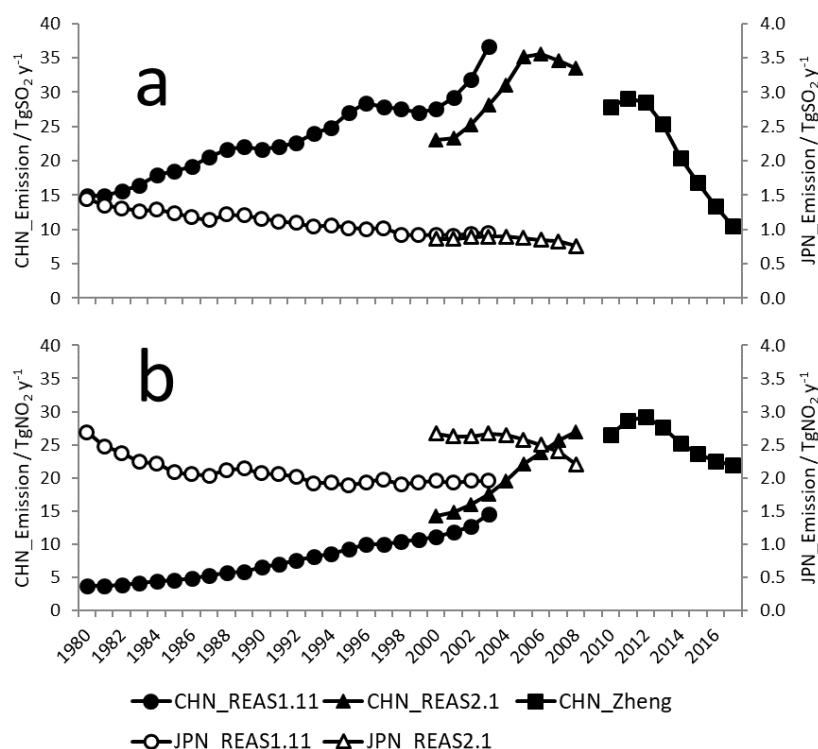


図 3-1-45 日本と中国における硫黄酸化物 (a) と窒素酸化物(二酸化窒素換算値) (b)の排出量の経年変動  
(REAS1.11 [12], REAS2.1 [13], 及び Zheng [14]より作成)

ここでは、日本の降水 pH を評価するために、世界の他地域との比較を行った。日本の降水 pH は欧米及び日本を除く EANET 各国（カンボジア、中国、インドネシア、ラオス、マレーシア、モンゴル、ミャンマー、フィリピン、韓国、ロシア、タイ、ベトナム）の平均値と比べて低く、降水を酸性化する酸の寄与と中和する塩基の寄与を各ネットワークの中央値を用いて地域間で比較してみると、欧米では両者がほぼ等しく、EANET 各国では塩基の寄与が酸より大きいものに対し、日本では酸と比べて塩基の寄与が小さく、酸の半分以下であることがその一因と考えられた。

欧米では 1990 年代からの硫黄や窒素の酸化物の排出量削減により、降水中の酸濃度の低下とともに pH の上昇が観測されている。東アジアにおいても、近年、中国における硫黄や窒素の酸化物の排出量の減少がみられることから、日本の降水への酸の寄与も低下傾向にあると考えられ、日本の降水 pH も近年は上昇の兆候がみられている (図 3-1-9, 図 3-1-10)。

一方、日本は降水量が多いため降水量と pH から求められる  $H^+$  沈着量は海外に比べて非常に大きな値となることから、生態系への慢性的な影響を把握するためのインプットデータとして、今後とも湿性沈着モニタリングを継続していくことが重要と考えられる。

## 【引用文献】

- [1] Network Center for EANET, Technical Manual on Dry Deposition Flux Estimation in East Asia, Asia Center for Air Pollution Research, Niigata, 2010.
- [2] Ban, S., Matsuda, K., Sato, K., Ohizumi T., Long-term assessment of nitrogen deposition at remote EANET sites in Japan, *Atmos. Environ.*, 146, 70-78, 2016.
- [3] Itahashi, S., Yumimoto, K., Uno, I., Hayami, H., Fujita, S., Pan, Y., Wang, Y., A 15-year record (2001–2015) of the ratio of nitrate to non-sea-salt sulfate in precipitation over East Asia, *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 2835-2852, 2018.
- [4] Li, P., Sato, K., Hasegawa, H., Huo, M., Minoura, H., Inomata, Y., Take, N., Yuba, A., Futami, M., Takahashi, T., Kotake, Y., Chemical Characteristics and Source Apportionment of PM<sub>2.5</sub> and Long-Range Transport from Northeast Asia Continent to Niigata in Eastern Japan, *Aerosol Air Qual. Res.*, 18, 938-956, 2018.
- [5] Huo, M., Sato, K., Ohizumi, T., Akimoto, H., Takahashi, K., Characteristics of carbonaceous components in precipitation and atmospheric particle at Japanese sites, *Atmos. Environ.*, 146, 164-173, 2016.
- [6] The Cooperative Programme for Monitoring and Evaluation of Long-range Transmission of Air Pollutants (EMEP) in Europe, Available at: <https://www.nilu.no/projects/ccc/emepdata.html> (2018.10.19 確認).
- [7] National Atmospheric Deposition Program (NADP) in United States, Available at: <http://nadp.slh.wisc.edu/data/NTN/> (2018.10.19 確認).
- [8] Acid Deposition Monitoring Network in East Asia, Available at: <http://www.eanet.asia/product/index.html#datarep> (2018.10.19 確認).
- [9] EMEP, Air pollution trend in the EMEP region between 1990 and 2012, <http://www.nilu.no/projects/ccc/reports/cccr1-2016.pdf> (2018. 7.20 確認).
- [10] USEPA, 2014 National Emission Inventory report, <http://gispub.epa.gov/neireport/2014/> (2018. 7.20 確認).
- [11] Ohizumi T., Take N., Inomata Y., Yagoh H., Endo T., Takahashi M., Yanahara K., Kusakabe M., Long-term variation of the source of sulfate deposition in a leeward area of Asian continent in view of sulfur isotopic composition, *Atmos. Environ.*, 140, 42-51, 2016.
- [12] Ohara, T., Akimoto, H., Kurokawa, J., Horii, N., Yamaji, K., Yan, X., and Hayasaka, T., An Asian emission inventory of anthropogenic emission sources for the period 1980-2020, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 4419-4444, 2007.
- [13] Kurokawa, J., Ohara, T., Morikawa, T., Hanayama, S., Greet, J.-M., Fukui, T., Kawashima, K. and Akimoto, H., Emissions of air pollutants and greenhouse gases over Asian regions during 2000-2008: Regional Emission inventory in ASia (REAS) version 2, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 11019-11058, 2013.

[14] Bo Zheng, Dan Tong, Meng Li, Fei Liu, Chaopeng Hong, Guannan Geng, Haiyan Li, Xin Li, Liqun Peng, Ji Qi, Liu Yan, Yuxuan Zhang, Hongyan Zhao, Yixuan Zheng, Kebin He, Qiang Zhang, Trends in China's anthropogenic emissions since 2010 as the consequence of clean air actions, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, <https://doi.org/10.5194/acp-2018-374>.

## 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 25～29 年度における土壌モニタリング結果

土壌・植生モニタリング調査は、森林地域を対象として主に樹木影響に着目した 13 地域と土壌影響に着目した 6 地域の計 19 地域(25 調査地 50 プロット、表 3-2-1)で、森林生態系の基礎データの収集および大気沈着による影響評価を目的として行われている。本調査は 5 年に一度のローリング方式で平成 15 年(2003 年)から実施されており、2017 年度の終了時点で 25 調査地を 3 巡したところである。これに加えて土壌影響に着目した地域では、2001 年度にも調査が行われているため、4 回分の経年データが蓄積している調査地も存在する。

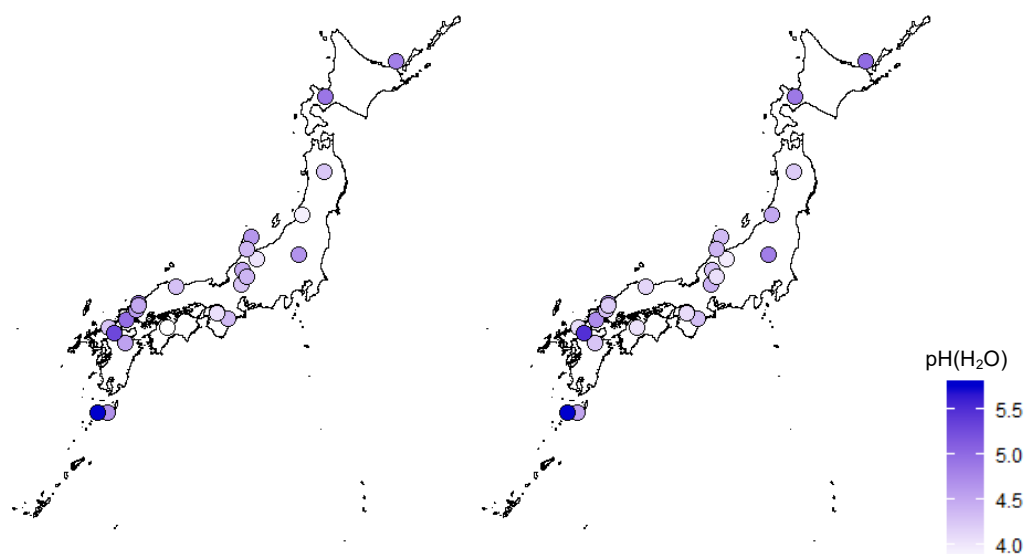


図 3-2-1 土壌・植生モニタリング地点の土壌表層(0～10 cm)の pH(H<sub>2</sub>O)  
2003～2007 年度(左)と 2013～2017 年度(右)

最新の表層土壌の pH(H<sub>2</sub>O) (図 3-2-1 右)は、10 年前の調査(同図左)と比べて場所によって若干変動があるものの、東北、中部、近畿、四国地方で低く九州、北海道で高いという全体的な傾向は変わっていないように見える。本項では、土壌の化学的特性や酸性度が地域的にどのような分布をしているのか、またそれらが長期的にどのように変動しているのかについて説明する。



表 3-2-1 土壌・植生モニタリング調査地点の概要

地点番号*1	調査地名	北緯	東経	標高 (m)	土壌群*2	林相	優占樹種*3	表層地質
1	知床国立公園	44°04'	145°02'	350	褐色森林土	針葉樹-天然林	アカトドマツ	普通輝石・紫蘇輝石・安山岩質岩層
2	支笏洞爺国立公園	42°53'	141°08'	800	褐色森林土	落葉広葉樹-天然林	ダケカンバ	安山岩質岩石
3	十和田八幡平国立公園	39°58'	140°52'	1550	ポドゾル土	針葉樹-天然林	オオシラビソ	安山岩質岩石
4	磐梯朝日国立公園	38°18'	139°43'	300	褐色森林土	落葉広葉樹-天然林	ブナ	花崗岩
5	日光国立公園	36°42'	139°28'	1320	褐色森林土	落葉広葉樹-天然林	ブナ	火山性堆積物(固結)・流紋岩質凝灰岩
6	中部山岳国立公園	36°35'	137°28'	1080	ポドゾル土	落葉広葉樹-天然林	ブナ	第四系新期安山岩
7	白山国立公園	36°07'	136°43'	1270	ポドゾル土	落葉広葉樹-天然林	ブナ	主に砂岩・泥岩・礫岩をばさむ手取層群
8	吉野熊野国立公園	34°11'	136°05'	1490	褐色森林土	落葉広葉樹-天然林	ブナ	砂岩
9	大山隠岐国立公園	35°23'	133°34'	1080	黒色土	落葉広葉樹-天然林	ブナ	火山砕屑物
10	石鎚国立公園	33°47'	133°11'	1470	褐色森林土	落葉広葉樹-天然林	ブナ	三波川結晶片岩帯
11	阿蘇くじゅう国立公園	33°08'	131°15'	1230	黒色土	落葉広葉樹-天然林	ブナ	輝石安山岩
12	屋久島国立公園 1	30°20'	130°25'	1140	褐色森林土	針葉樹-天然林	スギ	花崗岩
13	屋久島国立公園 2	30°20'	130°23'	210	褐色森林土	常緑広葉樹-天然林	ヒサカキ・マテバシイ	花崗岩
14	宝立山	37°26'	137°10'	430	赤黄色土	落葉広葉樹-天然林	ブナ	花崗岩
15	石動山	36°58'	136°58'	480	褐色森林土	落葉広葉樹-天然林	ブナ	花崗岩
16	法道寺	34°27'	135°31'	110	赤黄色土	常緑広葉樹-天然林	ツブラジイ	砂岩
17	天野山	34°26'	135°32'	170	褐色森林土	ヒノキ-人工林	ヒノキ	砂岩
18	霜降岳	34°00'	131°16'	210	赤黄色土	落葉広葉樹-天然林	ヒサカキ	砂岩
19	十種ヶ峰	34°27'	131°41'	820	黒色土	ヒノキ-人工林	ヒノキ	花崗岩
20	香椎宮	33°39'	130°27'	30	褐色森林土	常緑広葉樹-天然林	スダジイ	ダイサイト・流紋岩
21	古処山	33°29'	130°43'	300	褐色森林土	常緑広葉樹-天然林	ツブラジイ	砂岩・シルト岩
22	伊自良	35°34'	136°41'	130	褐色森林土	ヒノキ-人工林	ヒノキ	泥質黒色片岩(部分的に結晶質石灰岩)
23	大和	35°50'	136°57'	700	黒色土	ヒノキ-人工林	ヒノキ	チャート
24	蟠竜湖 2	34°40'	131°48'	30	褐色森林土	常緑広葉樹-天然林	タブノキ	凝灰角礫岩または火山角礫岩
25	石見臨空アクトパーク	34°37'	131°47'	100	赤黄色土	常緑広葉樹-天然林	スダジイ	粘土・砂礫
26								片状砂岩

本表は、業務を実施した各自治体から環境省への報告情報ならびに現地調査結果等をもとに作成した。

\*1 地点番号は、表 2-2 の番号と共通。地点番号 14~19 は「土壌への影響に着目した地点」で 2 種類の土壌種を設定しているため、1 地域につき 2 ヶ所の調査地点がある。

\*2 土壌群は、林野土壌分類[1]による。

\*3 樹種名は、環境庁植物目録[2]に準拠した。

## ① 調査地点における土壌の化学的特性と酸性度

25 調査地の土壌の代表的な化学的特性値がどのような変動をもって分布しているかを図 3-2-2 に示す。pH(H<sub>2</sub>O)は、植物根がさらされている土壌孔隙を満たす水(土壌溶液)の pH を表しており、植物の生育環境を表す基本的な項目である。一般的に日本は温暖で降水量が多いので、土壌の塩基成分が溶脱しやすく土壌は酸性になりやすい。2013～2017 年に調査された pH(H<sub>2</sub>O)は、古処山や屋久島 2 を除きおおむね 4～5.5 の間に分布しており、日本の森林土壌としては標準的である[3]。深さ別にみると、どの調査地も表層(0～10 cm)よりも次層(10～20 cm)の方が高かった。これは、土壌表層は有機物分解が活発で有機酸が生じるため、pH が低くなること、土壌の下層では、基岩からアルカリ性のカルシウムイオン(Ca<sup>2+</sup>)やマグネシウムイオン(Mg<sup>2+</sup>)などが供給されるので、中和されて pH が上昇するためと考えられる。

pH(KCl)は、現時点では土壌コロイドに吸着されて酸としての性質は示さないが、土壌溶液のイオン濃度が変化すると、土壌水に溶出して植物根等へ影響を及ぼす可能性のある酸(交換性酸度)の指標である。分析操作としては、pH(H<sub>2</sub>O)が水(純水)で溶出した水溶液を測定するのに対し、pH(KCl)は 1 mol L<sup>-1</sup> の塩化カリウム溶液(KCl)で溶出した成分の pH を測定する。pH(KCl)はどの地点でも、pH(H<sub>2</sub>O)よりも 0.5～1 程度低い値をとることが多かった。これは、KCl により土壌コロイドから溶出した水素イオン(H<sup>+</sup>)やアルミニウムイオン(Al<sup>3+</sup>)が水溶液中では酸性を示すためと考えられる。

交換性塩基は、塩基成分(Ca<sup>2+</sup>、Mg<sup>2+</sup>、K<sup>+</sup>、ナトリウムイオン(Na<sup>+</sup>))の土壌コロイドによる吸着保持量を示す。古処山以外の調査地ではおおむね 5 cmol<sub>c</sub> kg<sup>-1</sup> 以下だったが、古処山だけ飛び抜けて高い値を示した。これは、この地域には石灰岩が部分的に存在するため、Ca<sup>2+</sup>や Mg<sup>2+</sup>の濃度が高いためと考えられる。

交換性酸度は、土壌コロイドに吸着保持された酸性物質(H<sup>+</sup>、Al<sup>3+</sup>)の合計量を示す。おおむね pH が低い地点では交換性酸度が増加する傾向を示した。pH が低い地点(土壌酸性度の高い地点)では、土壌コロイドに保持されている酸性物質の量が多いことを示している。

有効陽イオン交換容量は、交換性塩基と交換性酸度の合計量で、土壌コロイドに保持されている陽イオンの総量である。交換性塩基に比べて交換性酸度が多いため、調査地間の分布傾向は、交換性酸度と同じような傾向を示した。

塩基飽和度は有効陽イオン交換容量に対して、交換性塩基がどのくらいの割合かを示す。一部の調査地を除き、おおむね 50%以下であり、土壌コロイドには塩基成分よりも酸性成分の方が多く占めていることを示していた。

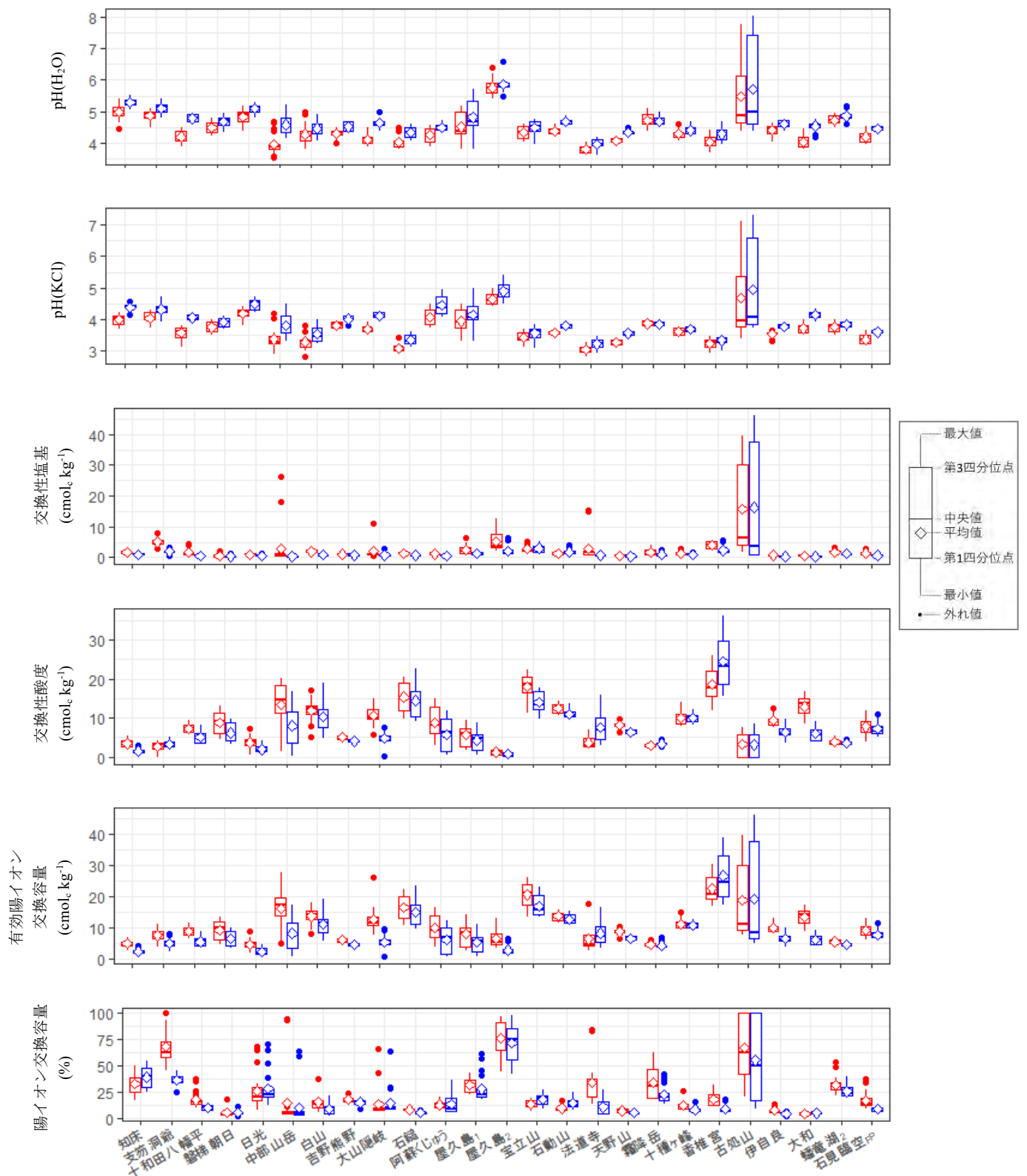


図 3-2-2 代表的な化学的特性値の変動範囲(2013~2017 年度調査)

赤は表層(0~10 cm)、青は次層(10~20 cm)を示す。

次に、基岩が特殊な古処山を除いて、調査地点の土壌の種類や植生によって、これらの化学特性値に違いがあるかどうかについて検討する。なお、後述の通り、調査地点数が少ないことや、土壌群ごと、植生ごとの調査地点数に偏りがあるため、以下の記述は全国的な傾向を示すものではないことに留意されたい。

調査地点の土壌は褐色森林土(13 地点)、黒色土(4 地点)、ポドゾル土(3 地点)、赤黄色土(4 地点)の4つの土壌群に分類される(表 3-2-2、林野土壌分類、土じょう部、1976)。各種の土壌化学性は土壌群による違いがみられた。pH(H<sub>2</sub>O)は褐色森林土で4.7と有意に高く、他の3つの土壌は4.4以下であった。pH(KCl)は、黒色土と褐色森林土で3.9と高く、他の2つの土壌は3.5~3.6であった。交換性塩基は赤黄色土>褐色森林土>ポドゾル土>黒色土の順に大きく、交換性酸度はポドゾル土>黒色土>赤黄色土>褐色森林土の順に大きかった。有効陽イオン交換容量は、褐色森林土が他の3つの土壌群に比べて有意に少ない値を示した。塩基飽和度は褐色森林土>赤黄色土>ポドゾル土≒黒色土の順に高かった。一般的に、ポドゾル土は土壌有機物の分解が遅いため有機酸が蓄積されやすく、土壌 pH が低い傾向にあるが、本調査ではポドゾル土に分類される調査地の土壌 pH が他の土壌群と比べて有意に低い傾向はみられなかった。

調査地点の植生は、針葉樹天然林(3 地点)、落葉広葉樹天然林(12 地点)、常緑広葉樹天然林(5 地点)、ヒノキ人工林(4 地点)の4種類に分類された(表 3-2-3)。ヒノキ人工林の pH(H<sub>2</sub>O)、pH(KCl)と塩基飽和度は4種類の植生の中で最も低く、交換性塩基は最も少なく、交換性酸度は最も高いことから、ヒノキ人工林の土壌は調査した中で最も酸性度が高かった。一方、アカトドマツやオオシラビソ、天然のスギ林などで構成される針葉樹天然林では pH が高く酸性度は低かった。落葉・常緑広葉樹天然林は、4つの植生分類の中では中間の値をとることが多かった。

表 3-2-2 土壌群ごとの化学特性値(2013~2017 年度の調査の平均値)

土壌群	調査 地点数	pH(H <sub>2</sub> O)		pH(KCl)		交換性 塩基		交換性 酸度		有効陽イオン 交換容量		塩基 飽和度	
		—	—	—	—	cmol <sub>c</sub> kg <sup>-1</sup>	cmol <sub>c</sub> kg <sup>-1</sup>	cmol <sub>c</sub> kg <sup>-1</sup>	cmol <sub>c</sub> kg <sup>-1</sup>	%			
褐色 森林土	13	4.70	a	3.86	a	1.59	a	7.20	b	8.80	b	23.95	a
		(0.50)		(0.48)		(1.58)		(6.18)		(6.43)		(22.28)	
黒色土	4	4.36	b	3.92	a	0.93	b	8.67	a	9.61	ab	10.27	c
		(0.25)		(0.33)		(1.25)		(3.71)		(4.11)		(8.78)	
ポドゾル土	3	4.39	b	3.59	b	1.36	ab	9.39	a	10.75	a	12.49	c
		(0.37)		(0.38)		(2.89)		(4.77)		(5.10)		(14.37)	
赤黄色土	4	4.34	b	3.48	b	1.76	a	8.11	ab	9.87	ab	19.59	b
		(0.35)		(0.31)		(1.88)		(5.54)		(6.24)		(13.84)	

古処山を除く。下段のカッコ内は標準偏差。アルファベットは土壌群間で統計的有意差があることを示す(p<0.05)。

表 3-2-3 植生ごとの化学特性値(2013～2017 年度の調査の平均値)

植生	調査地数	pH(H <sub>2</sub> O)		pH(KCl)		交換性塩基		交換性酸度		有効陽イオン交換容量		塩基飽和度	
		—	—	—	—	cmol <sub>c</sub> kg <sup>-1</sup>	cmol <sub>c</sub> kg <sup>-1</sup>	cmol <sub>c</sub> kg <sup>-1</sup>	cmol <sub>c</sub> kg <sup>-1</sup>	cmol <sub>c</sub> kg <sup>-1</sup>	cmol <sub>c</sub> kg <sup>-1</sup>	%	%
針葉樹天然林	3	4.77 (0.46)	a	4.01 (0.35)	a	1.42 (0.97)	b	4.58 (2.48)	b	6.01 (3.06)	b	26.37 (13.03)	a
落葉広葉樹天然林	12	4.52 (0.35)	b	3.80 (0.41)	b	1.48 (1.93)	b	8.41 (5.44)	a	9.89 (5.80)	a	17.72 (17.20)	b
常緑広葉樹天然林	5	4.60 (0.71)	b	3.68 (0.62)	c	2.23 (2.27)	a	7.90 (7.95)	a	10.12 (8.32)	a	30.12 (25.94)	a
ヒノキ人工林	4	4.35 (0.23)	c	3.65 (0.25)	c	0.62 (0.42)	c	8.69 (2.70)	a	9.31 (2.87)	a	6.49 (3.55)	c

古処山を除く。下段のカッコ内は標準偏差。アルファベットは植生間で統計的有意差があることを示す(p<0.05)。

以上のように、本項では土壌の酸性度や土壌コロイドに吸着されている塩基や酸性物質を把握するために、さまざまな化学特性値を示した。それぞれの特性値は、同一の調査地では深さ方向で値が異なり、有機物分解や基岩の風化などの過程がこの差異に関わっていると考えられた。また化学特性値は地点間で大きな差があり、それらの差異に土壌や植生の種類が関わっていることがわかった。土壌や植生に対する酸性降水の影響を評価するためには、土壌の中で起こる様々な過程や植生との相互作用、そしてそれらの空間的な分布を考慮する必要がある。

## ② 土壌の化学的的特性値の経年変化

土壌モニタリングでは土壌の化学的的特性値が大きな空間変動を示すことが多いため、図 2-2 に示した階層サンプリングにより各階層における分散(ばらつき)の大きさを評価するシステムを採用している。すなわち本システムでは、1 調査地につき 1 m<sup>2</sup> のプロットをランダムに 2 箇所設置し、それぞれのプロット内の 5 つのサブプロットから表層土と次層土の 2 層位のサンプルを採取し、それぞれ 2 回の繰り返し分析を行っている。土壌モニタリングでは、5 年に一度、この手順による調査を各調査地で実施しており、このシステムを利用した枝分かれ分散分析により調査地レベル、およびプロットレベルで特性値の経年変化を把握することができる<sup>1</sup>。

<sup>1</sup> 土壌モニタリングにおける階層サンプリングとそれを活用した分散分析：統計学的には、年次が母数因子(特定の水準がとりあげられる因子)、プロット、サブプロット、繰り返し分析が変量因子(不特定多数の集合から無作為に取り出された因子)からなる次のような混合モデル(母数、変量の両因子が混合しているモデル)として分散分析を行うことができる。

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

ここで、測定値  $X_{ijkl}$  に対し  $\mu$  は全体の平均、 $\alpha_i$ 、 $B_{ij}$ 、 $C_{ijk}$ 、 $\varepsilon_{ijkl}$  はそれぞれ年次、プロット、サブプロット、繰り返し分析であることを示し、 $\alpha_i$  は定数 ( $\sum \alpha_i = 0$ ) であり、他方で、 $B_{ij}$ 、 $C_{ijk}$ 、 $\varepsilon_{ijkl}$  は平均 0、分散  $\sigma$  の正規分布からの確率変数である。

各調査地の土壌の化学的特性値の経年変化を検討するにあたり、まず調査地レベルでの経年変化を評価した(i)。次に、地点によっては2つのプロットのうち、片方のプロットだけで統計的に有意な変化がみられた場合があったため、プロットレベルでの経年変化も評価した(ii)。なお紙面の都合上 pH(H<sub>2</sub>O)の結果のみ示すが、巻末の参考表(2-59、2-60)に他の特性値の経年変化も掲載しているので、参考にされたい。

#### i) 調査地レベルでの土壌化学性の経年変化

調査地レベルでの表層(0~10 cm)および次層(10~20 cm)の pH(H<sub>2</sub>O)の経年変化を図 3-2-3 に示す。pH(H<sub>2</sub>O)の経年変化パターンは、地点ごとに大きな差異がみられた。たとえば、磐梯朝日では調査年度を追うごとに有意に上昇した一方、宝立山では1回目と比較して2回目に有意に上昇した後、3回目、4回目と有意に下降するといった変動がみられた。しかし多くの地点では、磐梯朝日や宝立山のような一貫した上昇あるいは下降傾向は認められなかった。全25調査地点のうち、国立公園地域を主とする10地点(磐梯朝日、日光、中部山岳、白山、吉野熊野、大山隠岐、石鎚、阿蘇くじゅう、宝立山、石動山)はブナを優占樹種とする落葉天然林である。ブナは、寡雪地域と多雪地域で遺伝的な差異があり環境応答特性が異なる[4]が、太平洋側と日本海側のブナ林に分けて検討しても、土壌化学性に有意な経年変化を検出することはできなかった。土壌の酸に対する感受性は前項に述べたとおり土壌種と植生、これに加えて地形、気候などの要因によっても変化する。さまざまな環境に立地する土壌をモニタリングし、酸感受性を規定する要因を検討していく必要があると考えられる。

経年変化を詳しくみると、表層の pH(H<sub>2</sub>O)が第1回目の調査の値と比較して、3回目あるいは4回目で有意に低下したのは、大山隠岐、阿蘇くじゅう、宝立山、法道寺、十種ヶ峰、香椎宮および大和の7地点、有意に上昇したのは、磐梯朝日、日光、石鎚および伊自良の4地点だった。同様に、次層の pH(H<sub>2</sub>O)が有意に低下した調査地は、大山隠岐、阿蘇くじゅう、宝立山、法道寺、霜降岳、十種ヶ峰および香椎宮の7地点であった。一方、有

この分散分析モデルでは、年次間に有意差があるかどうかを検定し、プロット以下については、分散の大きさを推定することとなる。表 3-2-4 に示すように、年次間の有意差検定は、年次の分散(平均平方)をプロットのそれで除して得られる F 値によることとなる。また、年次平均の標準誤差もプロットの分散から得られる。

表 3-2-4 各モニタリング地点における土壌毎の分散分析表

変動因	水準数	自由度	推定される分散の期待値
母数 年次	n <sub>A</sub> = 2 又は 3	n <sub>A</sub> - 1	$\sigma^2 + n\sigma_c^2 + nnc\sigma_B^2 + nncnBk^2$
変数 プロット(同じ年)	n <sub>B</sub> = 2	n <sub>A</sub> (n <sub>B</sub> - 1)	$\sigma^2 + n\sigma_c^2 + nnc\sigma_B^2$
変数 サブプロット(同じプロット)	n <sub>C</sub> = 5	n <sub>ANB</sub> (n <sub>C</sub> - 1)	$\sigma^2 + n\sigma_c^2$
変数 測定(同じサブプロット)	n = 2	n <sub>ANBNC</sub> (n - 1)	$\sigma^2$

年次の分散の期待値にある  $\kappa$  は、母数因子の分散成分を示し、 $\sigma$  は、変数因子の分散成分を示す。

意に上昇した調査地は、磐梯朝日、日光、石鎚、屋久島 2、伊自良および大和の 6 地点であった。以上のように、大山隠岐、阿蘇くじゅう、宝立山、法道寺、十種ヶ峰および香椎宮で表層、次層ともに有意な低下がみられ、磐梯朝日、日光、石鎚、伊自良は 2 層位でともに有意な上昇がみられた。

## ii) プロットレベルでの土壌化学性の経年変化

プロットレベルでの表層(0~10 cm)および次層(10~20 cm)の pH(H<sub>2</sub>O)の経年変化を図 3-2-4 および図 3-2-5 に示す。プロットレベルでの経年変化は調査地レベルでの変化をおおむね踏襲しているものの、プロット間で変動レンジが大きく異なる調査地もみられた。たとえば古処山は、プロット 2 に局所的に存在する石灰岩質土壌のため、プロット 1 と 2 とでは pH(H<sub>2</sub>O)の変動レンジが 1 以上異なった。このように、同一地点内においても地質や地形等の要因によって酸に対する感受性は変化するため、局所影響の評価も重要と考えられる。

プロットレベルでの経年変化を詳しくみると、表層の pH(H<sub>2</sub>O)が第 1 回目の調査の値と比較して、3 回目あるいは 4 回目で有意に低下した調査地-プロットは、十和田八幡平-2、白山-2、吉野熊野-1、大山隠岐-1 および 2、阿蘇くじゅう-1 および 2、屋久島 1-1、屋久島 2-1、宝立山-1 および 2、法道寺-1 および 2、天野山-1、霜降岳-2、十種ヶ峰-1 および 2、香椎宮-2、大和-1 および 2 の 20 プロットだった。一方、有意に上昇した調査地-プロットは、知床-1、磐梯朝日-1 および 2、日光-1 および 2、石鎚-1、屋久島 2-2、天野山-2、および伊自良-2 の 9 プロットだった。同様に、次層の pH(H<sub>2</sub>O)が有意に低下したのは白山-2、大山隠岐-1 および 2、阿蘇くじゅう-1 および 2、屋久島 1-1、宝立山-1 および 2、法道寺-1 および 2、天野山-1、霜降岳-2、十種ヶ峰-1 および 2、香椎宮-1 の 15 プロット、有意に上昇したのは、磐梯朝日-1 および 2、日光-1 および 2、中部山岳-1、石鎚-1 および 2、屋久島 2-1 および 2、伊自良-1 および 2、大和-1 および 2、および蟠竜湖 2-2 の 14 プロットだった。以上のように、大山隠岐、阿蘇くじゅう、宝立山、法道寺、および十種ヶ峰でプロット 1・2、かつ表層・次層ともに有意な低下がみられ、磐梯朝日および日光で両プロットかつ 2 層位で有意な上昇がみられた。

以上のように、調査地レベル、プロットレベルともに、現在までのところ、土壌酸性化が顕著に進んでいる地点はみられなかった。土壌モニタリングは原則として 5 年に一度の調査であり、長期的な傾向が把握できるようになるためには息の長い観測が必要である。今後も越境大気汚染物質流入の多い状態が継続し、土壌化学性への悪影響が懸念されるため、土壌モニタリングを継続していく必要がある。

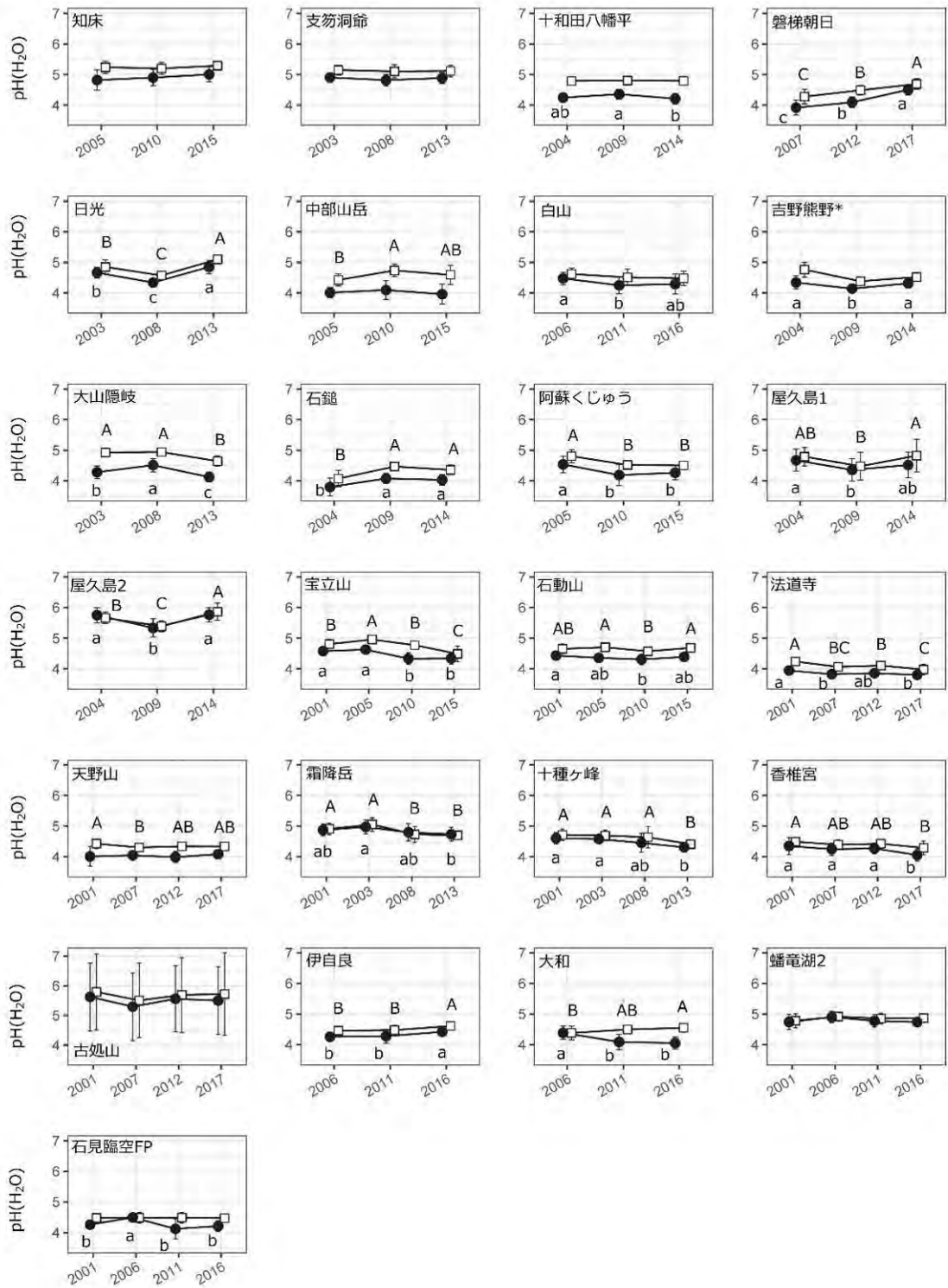


図 3-2-3 調査地レベルでの pH(H<sub>2</sub>O)の経年変化

●は表層、□は次層、誤差は標準偏差(n=20)を示す。繰り直し分析、サブプロットおよびプロットによる枝分かれ分散分析(表 3-2-4, n=20)によって各調査地での調査年度の効果を検定し、有意であった場合には多重比較を行った。アルファベットは年度の差が有意であることを示す(Tukey-HSD test,  $p < 0.05$ , 小文字は表層、大文字は次層)。\* 吉野熊野の 2004 年度の次層は 10~55 cm で採取されたため参考値として示す(統計解析なし)。



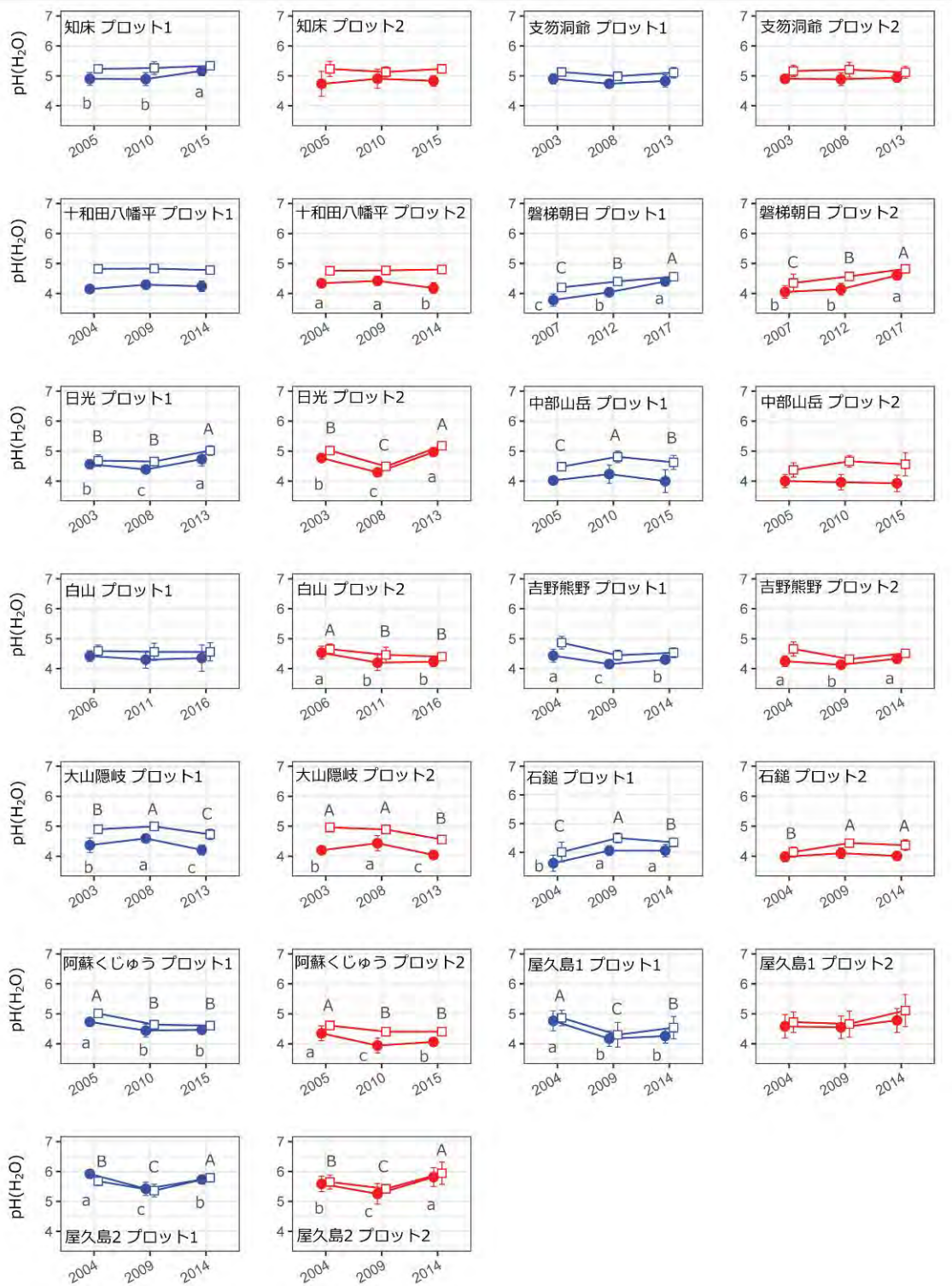


図 3-2-4 プロットレベルでの土壌 pH(H<sub>2</sub>O)の経年変化(1)

●は表層、□は次層、誤差は標準偏差 (n=10) を示す。繰り返し分析およびサブプロットによる枝分かれ分散分析 (表 3-2-4, n=10) によって各プロットでの調査年度の効果を検定し、有意であった場合には多重比較を行った。アルファベットは年度の差が有意であることを示す (Tukey-HSD test,  $p < 0.05$ , 小文字は表層、大文字は次層)。\* 吉野熊野の 2004 年度の次層は 10~55 cm で採取されたため参考値として示す (統計解析なし)。

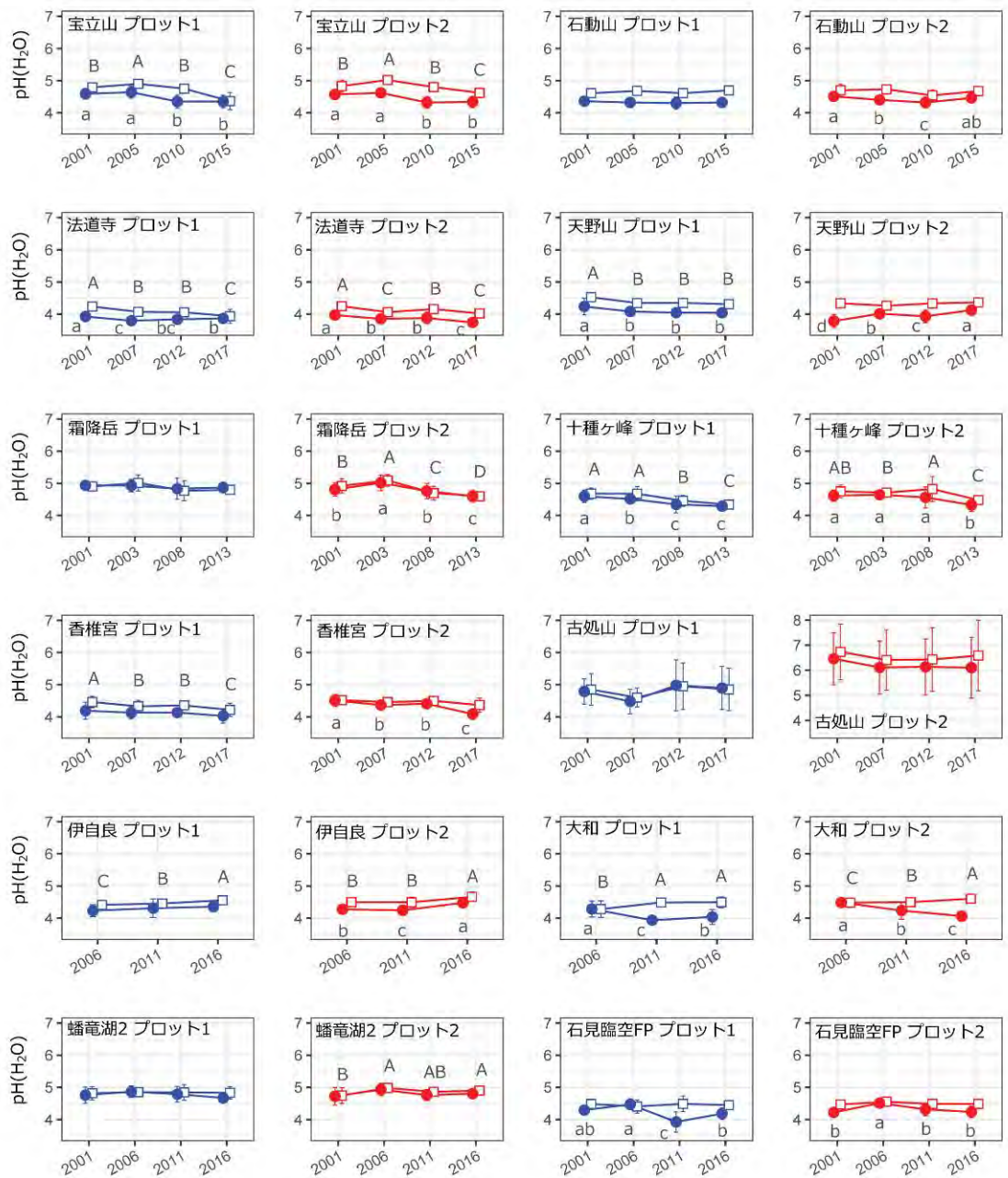


図 3-2-5 プロットレベルでの土壌 pH(H<sub>2</sub>O)の経年変化(2)

●は表層、□は次層、誤差は標準偏差(n=10)を示す。繰り返し分析およびサブプロットによる枝分かれ分散分析(表 3-2-4, n=10)によって各プロットでの調査年度の効果を検定し、有意であった場合には多重比較を行った。アルファベットは年度の差が有意であることを示す(Tukey-HSD test,  $p < 0.05$ , 小文字は表層、大文字は次層)。

## (2) 平成 25～29 年度における植生モニタリング結果

### ① 樹木衰退状況

樹木衰退度調査は毎年一回、すべての調査地で実施されており、各種の衰退度項目に加え、着葉異常と葉色から判定するダメージクラスによる評価を行っている(表 3-2-5、[5])。表 3-2-6 に衰退の兆候がみられた樹木の出現率が高かった調査地を順位で示した。大山隠岐は 1 位となる衰退度項目が多く、「樹形の異常」、「樹勢の低下」、「枝の成長異常」および「葉色の異常」の 4 項目で出現率が 1 位だった。十和田八幡平は、「着葉異常」と判定される観察木の出現率が 1 位で、「樹形の異常」、「枝の成長異常」、「1 以上のダメージクラス」で出現率が 2 位となるなど、衰退の兆候がみられる樹木が多かった。吉野熊野では「梢端の枯損」で出現率が 1 位となり、「樹勢の低下」および「葉色の異常」で出現率が 2 位となった。磐梯朝日は「1 以上のダメージクラス」で出現率が 1 位、「葉色の異常」で 3 位だったが、他の項目の出現率は低かった。

特に衰退度の高かった大山隠岐、十和田八幡平、吉野熊野および磐梯朝日における衰退度項目の積算値の経年変化を図 3-2-6 に示す。大山隠岐は平成 23 年度(2011 年度)に各種の衰退度項目が急上昇しているが、これは冠雪害によって梢端折れや幹折れ、倒状などの被害がおよんだ個体が多かったためである。2012 年度以降は、衰退度は横ばいではあるが引き続き高い状態が続いており、今後の経過を注視する必要がある。十和田八幡平は、衰退度が一貫して上昇傾向で、気象害(凍害、寒風害、雪害)の被害が蓄積し続けている。吉野熊野は、2004、2005 年の台風到来によって 2008 年にかけて葉の脱落が増加したことや、その後 2010 年にかけては食葉性昆虫の被害により、衰退度が上昇した。その後も隣接木の被圧等によって衰退度は高い状態が続いており観察の継続が必要である。磐梯朝日は食葉性昆虫の大発生により 2010～2011 年度に葉の障害に関する項目が急激に上昇した。その後、回復をみせたものの、近年にかけては気象害(雪害、風害)によって、樹形や樹勢に関する項目が上昇しており、樹木全体の衰退の進行が懸念されている。

全体として、樹木衰退の要因としては台風や積雪による気象害、食葉性昆虫やヤドリギなどの病虫害、ニホンジカによる獣害といった自然的要因が目立った。これは、樹木衰退との因果関係を推定しやすいことも一因であることが考えられる。一方、大気沈着などの人為影響による樹木被害は因果関係の推定が容易ではないと考えられ、長期の観察に基づいて判断される性質のものであるから、今後も計測して観察を行う必要がある。

衰退木調査を行っている 25 調査地のうち、10 調査地はブナを優占樹種とする落葉広葉樹林である。上述の、特に樹木衰退傾向が目立つ 4 地点のうち、十和田八幡平を除く 3 地点はブナを優占としているが、同じブナを優占樹種とする調査地でも、目立った衰退傾向の認められない地点もある(たとえば、石鎚、阿蘇くじゅう、石動山)。上述のように樹木衰退の要因としては、ブナに特有の病害もあるが、気象害など森林全体に及ぼすものもあるため、今後もモニタリングを継続し、衰退傾向とその要因を注視していく必要がある。

表 3-2-5 ダメージクラスの判定方法[5]

		葉色		
		1	2	3
着葉異常	0	0	1	2
	1	1	2	2
	2	2	3	3
	3	3	3	3

着葉異常は5段階(0:落葉なし~4:枯死)、葉色は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判定する。

表 3-2-6 異常が観測された樹木の出現率\*が高かった地点

順位	樹形の異常		樹勢の低下		梢端の枯損		枝の成長異常	
	調査地	出現率	調査地	出現率	調査地	出現率	調査地	出現率
1	大山隠岐	67%	大山隠岐	47%	吉野熊野	42%	大山隠岐	51%
2	十和田八幡平	49%	吉野熊野	37%	香椎宮 1	33%	十和田八幡平	33%
3	伊自良	44%	十和田八幡平	33%	十和田八幡平	29%	白山	28%
4	吉野熊野	41%	法道寺	23%	大山隠岐	23%	宝立山	23%
5	日光	33%	伊自良	22%	中部山岳	21%	支笏洞爺	18%
6	支笏洞爺	28%	中部山岳	21%	香椎宮 2	21%	吉野熊野	15%
7	法道寺	28%	知床	21%	日光	20%	法道寺	15%
8	知床	27%	支笏洞爺	16%	古処山 1	19%	石見臨空 FP	12%
9	中部山岳	27%	日光	13%	法道寺	18%	中部山岳	12%
10	香椎宮 2	18%	香椎宮 2	13%	支笏洞爺	17%	屋久島 1	9%

順位	着葉異常		葉色の異常		1以上のダメージクラス	
	調査地	出現率	調査地	出現率	調査地	出現率
1	十和田八幡平	35%	大山隠岐	14%	磐梯朝日	15%
2	法道寺	21%	吉野熊野	14%	十和田八幡平	13%
3	吉野熊野	20%	磐梯朝日	13%	大山隠岐	12%
4	支笏洞爺	18%	石見臨空 FP	7%	石見臨空 FP	7%
5	磐梯朝日	16%	十和田八幡平	5%	吉野熊野	4%
6	大山隠岐	16%	霜降岳	3%	法道寺	3%
7	屋久島 1	8%	屋久島 1	2%	日光	2%
8	石見臨空 FP	7%	支笏洞爺	2%	知床	1%
9	中部山岳	6%	法道寺	2%	屋久島 1	1%
10	知床	4%	宝立山	2%	支笏洞爺	1%

\* 出現率 = 異常が観測された樹木数 / 全観測木数。2003年度から2017年度までの平均。着葉異常およびダメージクラスについては2007年度から2017年度の平均(2007年度以降に導入されたため)。

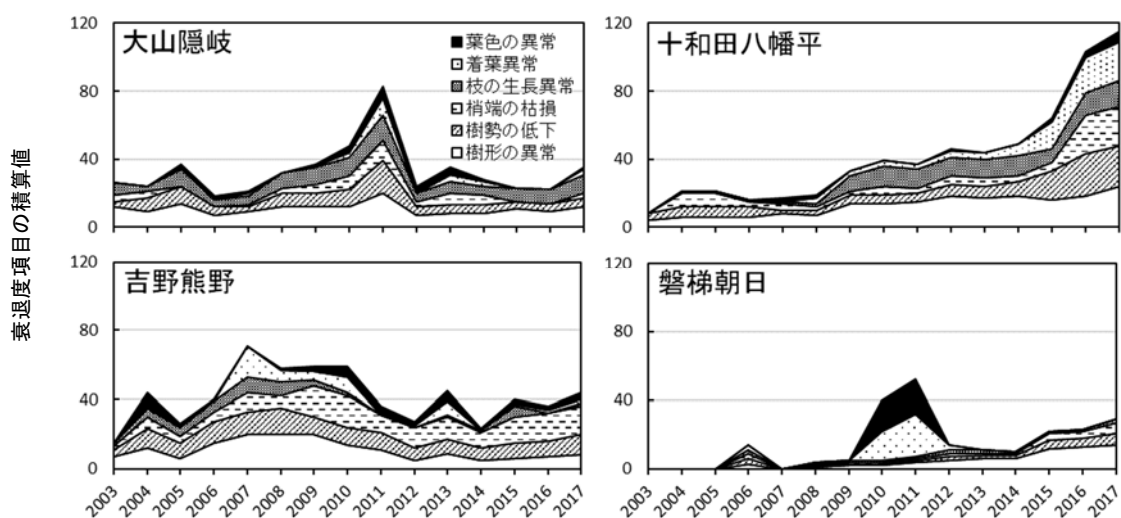


図 3-2-6 衰退度項目の積算値の経年変化  
(大山隠岐、十和田八幡平、吉野熊野、磐梯朝日)

### ② 毎木調査による森林の状況

毎木調査では、0.1 ha のプロット内の樹木の樹種、胸高直径および樹高を記録しており、後述の下層植生調査とともに各調査地で 5 年に一度実施されている。毎木調査の結果を基に算出された単位面積当たりの胸高断面積合計および本数密度の経年変化を、各調査地の 1 回目の調査の値を 1 としたときの比率として図 3-2-7 に示す。樹木の肥大成長の指標である胸高断面積合計は、多くの調査地で 2 回目以降は 1 以上の値となり、モニタリング期間中、経時的に樹木が成長していることを示していた。胸高断面積合計が 10% 以上減少したのは、吉野熊野、石鎚および大和だった。吉野熊野では 3 回目の調査(2014 年度)で優占樹種のブナの枯死が確認されたため、胸高断面積合計が減少した。石鎚でも 2 回目の調査(2009 年度)で優占樹種のブナの枯死のために胸高断面積合計が減少した。第 3 回目の 2014 年度の調査で残存木が成長し、いくらか断面積の増加がみられたものの、枯死木の断面積を補うほどではなかったため、1 回目の調査に比べて胸高断面積合計が少ない状態が続いている。大和の胸高断面積合計が、第 1 回目の調査に比べて第 3 回目(2016 年度)で約 50% と大幅に減少したのは、ヒノキ人工林の間伐が行われたためである。

一方、本数密度は増加している調査地もあるが、倒木・枯死・間伐等で減少している調査地も多かった。多くの場合は、本数密度が減少した結果、残存木の光環境が改善されて成長が促進されたように見受けられた。前述のように胸高断面積合計が一部の調査地を除いて増加傾向であったことから、樹木成長の観点からは森林衰退は確認されなかった。

### ③ 下層植生の状況

下層植生調査の結果を基に算出した種数と、調査年度に新たに出現した種数および消

減した種数の経年変化を図 3-2-8 に示す。全ての調査回で一貫して種数が減少傾向だった調査地は、知床、支笏洞爺、白山、阿蘇くじゅう、石動山、霜降岳、古処山 1、2 および大和であった。一方、十和田八幡平、磐梯朝日、日光および吉野熊野では一貫して種数の増加がみられた。また、総数としては大きな変化の見られなかった調査地についても、出現種と消滅種を見てみると、実際には種組成が変化していることがわかる。ただし、石鎚、屋久島 1 および 2 については、そういった種組成の変化も見られなかった。

下層植生の変化が見られた調査地のうち、知床、支笏洞爺、白山、石動山では、ササ類の優占が進み、他の植物種を抑制している可能性が指摘されている。霜降岳では、台風による樹木衰退からの回復に伴い、林冠が閉鎖したことによる下層植生への影響が指摘されている。古処山ではニホンジカの分布拡大による食害により、林床植生が大幅に減少している。

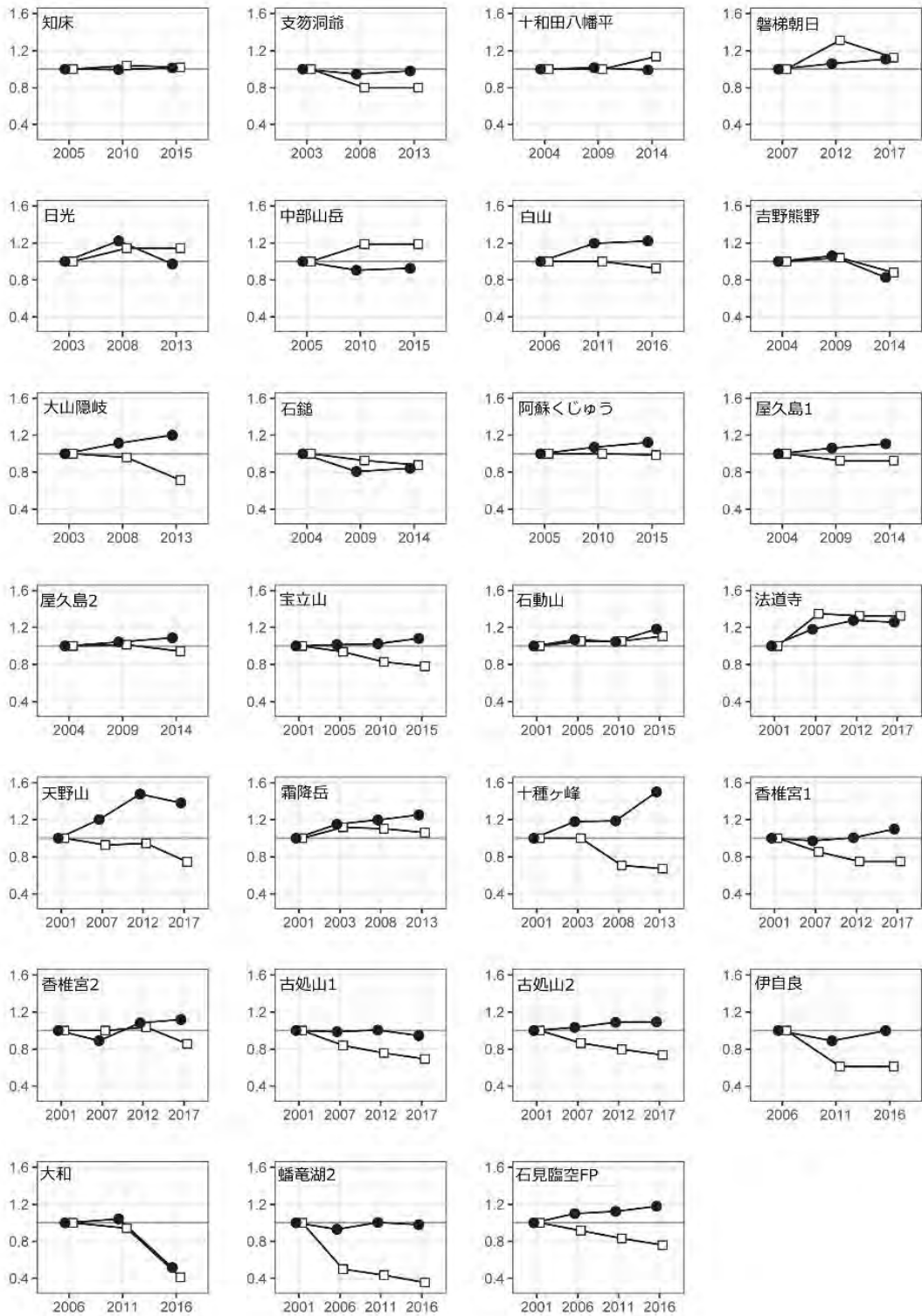


図 3-2-7 胸高断面積合計と本数密度の経年変化

図中の値は1回目を1としたときの比率。●は胸高断面積合計、□は本数密度を示す。

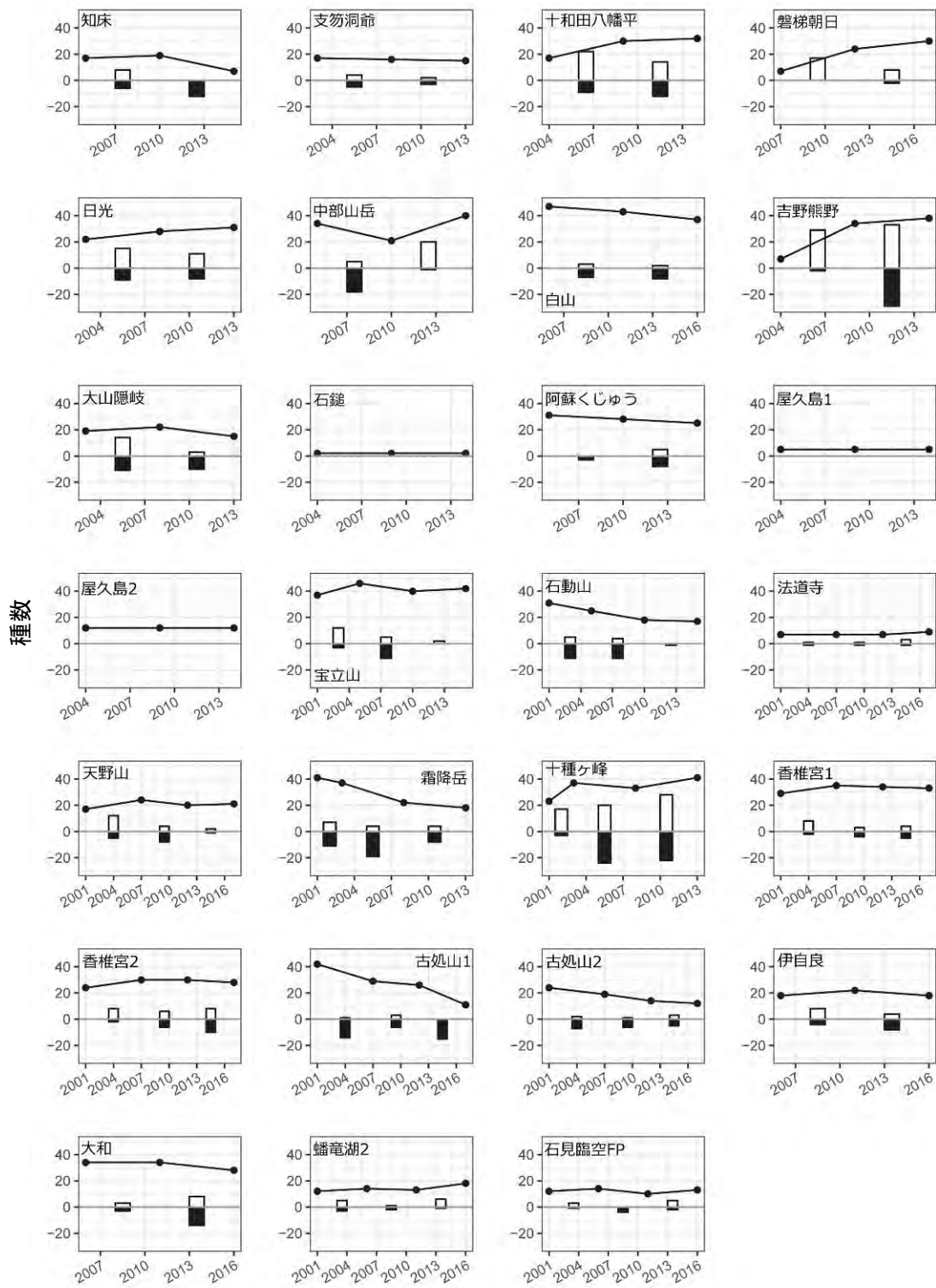


図 3-2-8 下層植生の種数の経年変化

種の総数を折れ線グラフで、調査年度に新たに出現した種数を白の棒グラフ、消滅した種数を黒の棒グラフで示す。



### (3) 土壌・植生モニタリングの成果

- 平成13年度(2001年度)あるいは2003年度から5年周期で実施した土壌・植生モニタリングにより、過去10年以上に渡る土壌の化学特性値、及び森林の成長・衰退等の経年変化を評価できるデータが得られた。
- これまでの3回あるいは4回の調査で、土壌の代表的な化学特性値であるpH(H<sub>2</sub>O)は、一部の地点を除きおおむね4.0～5.5の間に分布した。ほとんどの地点では、調査地レベル、プロットレベルともに長期的な上昇あるいは下降傾向は認められなかった。
- 土壌の化学特性値は、土壌種、植生、地形や気候などの影響を受けるため、さまざまな環境に立地する土壌をモニタリングする必要がある。また、現時点では土壌酸性化が顕著に進んでいる地点はみられなかったが、土壌モニタリングは原則として5年に一度の調査であるため、長期的な傾向を把握するために、今後も継続的にモニタリングを実施する必要がある。
- 毎年実施されている樹木衰退度調査では、大山隠岐、十和田八幡平、吉野熊野および磐梯朝日で、衰退度が高く、継続的に衰退度の上昇が見られる地点もあった。多くは気象害、病虫害、及び獣害によるものと考えられ、大気汚染を含む人為的影響がどの程度寄与しているのかはまだ明らかでない。
- 毎木調査に基づく胸高断面積合計は、一部のモニタリング地点を除いて増加傾向であり、樹木成長の観点からは森林衰退は確認されていない。一部のモニタリング地点では土壌の酸性化傾向や樹木衰退の兆候も見られるため、それらが森林レベルで影響しているかどうかを含めて、植生モニタリングを注意深く継続する必要がある。
- 土壌・植生モニタリングの調査地には国立・国定公園地域が多く含まれており、遷移後期にある天然林も対象としている。わが国の貴重な自然の現状を把握し、その保護・保全に役立てていく上で、本調査で得られるデータは貴重であると考えられる。
- 現時点では、大気汚染・酸性沈着による森林生態系への影響は十分把握できていない。今後も変動する東アジアの大気環境下において、我が国の森林生態系がどのように応答していくのかを把握するために、土壌・植生モニタリングを継続することが必要である。

#### 【引用文献】

- [1] 土じょう部 1976. 林野土壌の分類(1975). 林業試験場研究報告 280: 1-28.
- [2] 環境庁自然保護局 1994. 自然環境保全基礎調査植物目録修正版.
- [3] 森林土壌研究会 1993. 森林土壌の調べ方とその性質. 林野弘済会, 東京.
- [4] 小池孝良 2008. 第11章 ブナの環境応答特性の地域変異—光合成機能と葉の形態・構造—, ブナ林再生の応用生態学, 寺澤和彦・小山浩正編, 文一総合出版, 東京.
- [5] EANET 2006. Sub-manual on forest vegetation monitoring in EANET. Network Center for EANET, Acid Deposition and Oxidant Research Center, Niigata, Japan.

### 3.2.2 陸水モニタリング

#### (1) 平成 25～29 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[1]<sup>1</sup>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(うち 3 地点は平成 25(2013)年度で調査を終了した)。

各調査地点の集水域の特徴を表 3-2-7 に示した。流紋岩やチャート等の比較的酸に対する緩衝能が低いと考えられる地質にある湖沼が多い。また今神御池、刈込湖、双子池等のように、ポドゾル性土壌が分布する比較的高地に位置する湖沼もある。

表 3-2-7 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・シマザサ群落等
栃木県	刈込湖	流紋岩・安山岩	乾性及び湿性ポドゾル等	オシロヒソコ・シロヒソコ・コマカ等
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	ミドリキキリ・カシバ群落等
新潟県	山居池 <sup>*1</sup>	新第三紀中新世真更川層	褐色森林土壌	ミズナラ、コナラ、クワ等
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・ササ植林
福井県	夜叉ヶ池	砂岩・頁岩、チャート	褐色森林土壌	ブナ、オハコモシ
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、クマツ
山口県	山の口ダム <sup>*1</sup>	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 <sup>*1</sup>	閃緑岩	乾性褐色森林土壌	クスギ、コナラ、アカマツ等

\*1 2013 年度のみ調査を実施。

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、2013～2017 年度の 5 年間の平均値を表 3-2-8 に示した。本調査対象地点の大部分は  $0.200 \text{ mmol/L}$  以下の低アルカリ度であった。特に、夜叉ヶ池及び沢の池はアルカリ度が  $0.030 \text{ mmol/L}$  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。硝酸イオン( $\text{NO}_3^-$ )濃度では、永富池が最も高く、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)、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塩化物イオン( $\text{Cl}^-$ )やナトリウムイオン( $\text{Na}^+$ )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。なお、大島池では、魚の養殖のため、エサ撒き等の活動が報告されており、今後のデータへの影響が懸念された。

<sup>1</sup> EANET ではアルカリ度  $0.200 \text{ mmol/L}$  以下、EC  $10 \text{ mS m}^{-1}$  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  $5 \text{ mS m}^{-1}$  以下を基準とすべきであると提言されている。

表 3-2-8 各調査地点の水質(2013~2017 年度)

湖沼名	採水地点	pH	EC (mS m <sup>-1</sup> )	アルカリ度 (mmolc L <sup>-1</sup> )	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Cl <sup>-</sup>	(μmolc L <sup>-1</sup> )					
								NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	Na <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	
山形県	今神御池	湖心表層	6.42	4.03	0.070	3.83	*1	6.52	*1	5.39	0.49	0.65	0.62
栃木県	刈込湖	湖心表層	6.78	3.97	0.182	5.94	0.19	0.75	*1	3.30	0.66	2.82	0.22
長野県	双子池(雄池)	湖心表層	7.00	1.90	0.127	1.41	0.83	0.37	0.03	1.16	0.27	2.21	0.20
	双子池(雌池)	湖心表層	5.82	0.60	0.022	1.11	0.09	0.32	0.02	0.29	0.14	0.33	0.07
新潟県	山居池*2	湖心表層	7.01	9.32	0.121	4.69	*1	18.8	*1	12.2	1.26	1.65	1.42
石川県	大畠池	湖心表層	6.80	4.42	0.149	1.40	0.35	6.59	*1	4.61	1.13	1.39	0.90
福井県	夜叉ヶ池	湖心表層	5.32	1.55	0.011	1.64	0.50	2.04	0.07	1.27	0.28	0.30	0.18
岐阜県	伊自良湖	湖心表層	7.08	3.79	0.153	4.94	1.11	1.87	*1	1.89	0.26	2.51	1.19
	釜ヶ谷川	流入河川	7.08	4.01	0.142	5.95	1.45	1.90	*1	1.95	0.25	2.55	1.32
	孝洞川	流入河川	7.00	3.54	0.133	4.60	1.16	2.00	*1	2.20	0.24	1.74	1.23
京都府	沢の池	中央表層	5.80	1.64	0.026	1.46	*1	2.68	*1	1.56	0.26	0.52	0.36
島根県	蟠竜湖	湖心表層	7.08	10.11	0.165	4.22	0.10	22.32	*1	13.47	1.72	1.66	1.83
	蟠竜湖 No.3*3	湖心表層	6.73	9.87	0.167	4.22	0.13	21.20	*1	13.20	1.82	1.88	1.84
山口県	山の口ダム*2	湖心表層	6.76	5.80	0.092	5.09	0.65	9.30	*1	7.20	0.95	1.15	0.81
香川県	永富池*2	湖心表層	7.24	7.69	0.347	7.15	1.73	4.31	0.24	6.77	0.67	5.48	1.02

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。

\*1 定量下限値又は検出下限値未満

\*2 2013年度のみ調査を実施。

\*3 2014年度まで調査を実施。

## (2) 陸水の長期的傾向

表 3-2-9 に 2017 年度末現在調査を継続している 8 地点(11 湖沼及び河川)における主要成分の長期トレンド解析結果を示した。全ての調査地点において、モニタリングを開始して以降、少なくとも 10 年は経過している。解析には年 4 回サンプリングの季節性を考慮した季節性 Mann-Kendall 検定[2]を用いた。Mann-Kendall 検定とは、時間順序と観測データの順序の間の順位相関を用いたノンパラメトリックな検定方法で、データ間の差が正か負かの情報に基づいて上昇あるいは低下傾向性を検定する。ここでは、有意判定の際に用いる有意水準をそれぞれ 5% ( $p = 0.05$ ), 1% ( $p = 0.01$ ), 0.1% ( $p = 0.001$ ) とした。また、各地点とも、上段に調査開始時からの解析結果を、下段に中国における二酸化硫黄(SO<sub>2</sub>)排出量がピークとなった 2006 年からの解析結果を示した。

調査開始時からの解析において、pH が有意な低下傾向を示したのは夜叉ヶ池( $p < 0.05$ )、釜ヶ谷川( $p < 0.05$ )の 2 地点、有意な上昇傾向を示したのは大畠池( $p < 0.001$ )、双子池(雄池)( $p < 0.01$ )、孝洞川( $p < 0.001$ )、沢の池( $p < 0.001$ )の 4 地点であった。アルカリ度は夜叉ヶ池で有意な低下傾向( $p < 0.01$ )を、8 地点で有意な上昇傾向を示した。硫酸イオンは孝洞川で有意な上昇傾向( $p < 0.05$ )が、5 地点で有意な低下傾向が確認された。硝酸イオンは刈込湖( $p < 0.01$ )、双子池(雄池)( $p < 0.01$ )、(雌池)( $p < 0.001$ )の 3 地点で有意な低下傾向が認められ、有意に上昇している地点は無かった。また、塩化物イオンは 8 地点で有意な低下傾向が認められた。一方、陽イオン種では、有意な上昇傾向を示す成分が存在する地点(今神御池、

刈込湖、大畠池、双子池(雄池)、蟠竜湖)と有意な低下傾向を示す成分が存在する地点(夜叉ヶ池、双子池(雌池)、伊自良湖、釜ヶ谷川、孝洞川)の2つに明確に分類できた。

表 3-2-9 湖沼表層水及び流入河川水の水質長期トレンド解析結果

湖沼名	解析開始年	N	Z-score										
			pH	EC	アルカリ度	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Cl <sup>-</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	Na <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	Mg <sup>2+</sup>
今神	2001	66	1.46	0.02	0.64	-0.11	-0.07	0.60	0.83	1.99	2.90	2.27	3.48
御池	2006	48	1.61	-0.24	-0.17	-2.57	-0.66	0.24	-1.27	-1.03	1.82	3.60	3.16
刈込湖	2003	60	1.66	3.19	5.07	1.81	-3.06	2.23	-0.11	3.39	4.61	3.81	4.24
	2006	48	2.09	2.26	3.67	3.12	-3.86	2.40	-1.07	3.81	4.40	3.33	3.44
大畠池	2003	59	4.23	2.53	2.74	-3.98	-0.08	-2.08	-0.11	0.30	4.23	1.57	1.87
	2006	47	2.75	0.21	2.75	-5.01	-2.31	-1.98	-0.60	0.32	3.11	1.80	0.21
夜叉ヶ池	2000	69	-2.34	-2.88	-2.97	-3.85	1.55	-3.24	-2.27	-3.10	-2.99	-5.57	-4.61
	2006	46	0.69	-1.82	0.81	-2.95	1.64	-1.13	-0.98	-1.13	-3.14	-4.70	-3.01
雄池	1998	60	2.60	2.66	5.44	0.54	-3.07	-3.66	-1.66	4.94	0.45	3.10	1.49
	2006	35	0.21	2.27	5.47	-6.54	-5.93	-1.48	0.14	1.96	-0.16	0.51	-2.01
雌池	1998	60	0.75	-5.26	-0.77	-2.77	-5.80	-3.58	-3.13	0.38	-3.57	-4.94	-6.30
	2006	35	1.03	-5.84	-0.05	-7.33	-5.65	-2.90	0.07	-3.93	-4.20	-6.99	-7.07
伊自良湖	1989	112	-0.61	1.09	4.89	-0.99	0.30	-4.71	-4.15	-3.11	-5.38	-1.07	-2.27
	2006	44	0.69	-3.79	-3.22	-1.15	-2.83	-4.98	-2.97	-3.22	-2.49	-4.36	-3.18
釜ヶ谷川	1989	116	-2.23	-0.64	2.13	-1.78	0.10	-4.01	-4.21	-2.16	-3.80	-3.37	-3.46
	2006	48	0.93	-3.74	-2.09	-2.16	-5.79	-5.69	1.12	-4.08	-1.96	-3.67	-3.74
孝洞川	1989	92	4.62	2.14	2.93	2.22	-0.69	-4.41	-4.35	-0.34	-0.58	-2.61	-1.79
	2006	41	4.07	-2.02	-0.55	-0.76	-3.40	-4.87	*1	-2.48	0.17	-2.81	-2.31
沢の池	2003	60	3.34	-3.76	2.97	-2.82	-0.50	-4.92	1.91	1.71	-0.30	-1.76	0.00
	2006	48	2.57	-3.16	1.47	-3.02	1.41	-4.77	1.63	1.47	-1.85	-5.38	-1.06
蟠竜湖	1989	116	1.22	5.43	5.30	-2.60	-1.53	6.87	3.91	6.43	0.61	3.58	6.32
	2006	48	-1.47	-1.72	-1.37	-1.99	-2.94	0.75	0.46	-1.20	-2.78	1.54	0.62

p<0.05	-	+	Z-score は変化傾向を検定するための統計量を表し、正の値が上昇傾向、負の値が低下傾向をそれぞれ意味する。なお、表中の色を付けたを付した値は、トレンド検定を行った結果、それぞれ、有意水準 5%、1%、0.1%で有意差が認められたことを示す。 *1 全て不検出のため、Z-score が算出できなかった。
p<0.01	-	+	
p<0.001	-	+	

一方、2006 年以降の解析結果を調査開始時からの結果と比較すると、pH では有意な低下傾向を示す地点は存在しなくなり、酸性化の進行が止まっていることが確認された。アルカリ度においては、夜叉ヶ池は低下傾向から有意な変化無しに変わっている一方で、伊自良湖、釜ヶ谷川は有意な上昇傾向から有意な低下傾向に変化した。硫酸イオンは 3 地点、

硝酸イオンは5地点で有意な傾向無しから有意な低下傾向に変化し、全体的に見て大陸における排出量の低下を反映していた。また、塩化物イオンは有意な低下傾向であった2地点及び有意な上昇傾向であった蟠竜湖が、それぞれ有意な傾向無しに変化した。陽イオンでは、蟠竜湖は上昇傾向を示す成分が存在しなくなった。さらに、カルシウムイオン及びマグネシウムイオンは有意な低下傾向を示す地点が2地点ずつ増加した。一方で、今神御池、刈込湖、大畠池では目立った傾向の変化は無かった。

これらのことから、酸性物質の排出量減少により、陸水の pH 低下傾向が抑えられたことその他、地域差があるものの、現在は pH やアルカリ度の上昇よりも、カルシウム等の流出量減少に繋がっていることが確認された。酸性物質の排出量減少に陸水がどのように応答していくか、今後とも注視していく必要がある。

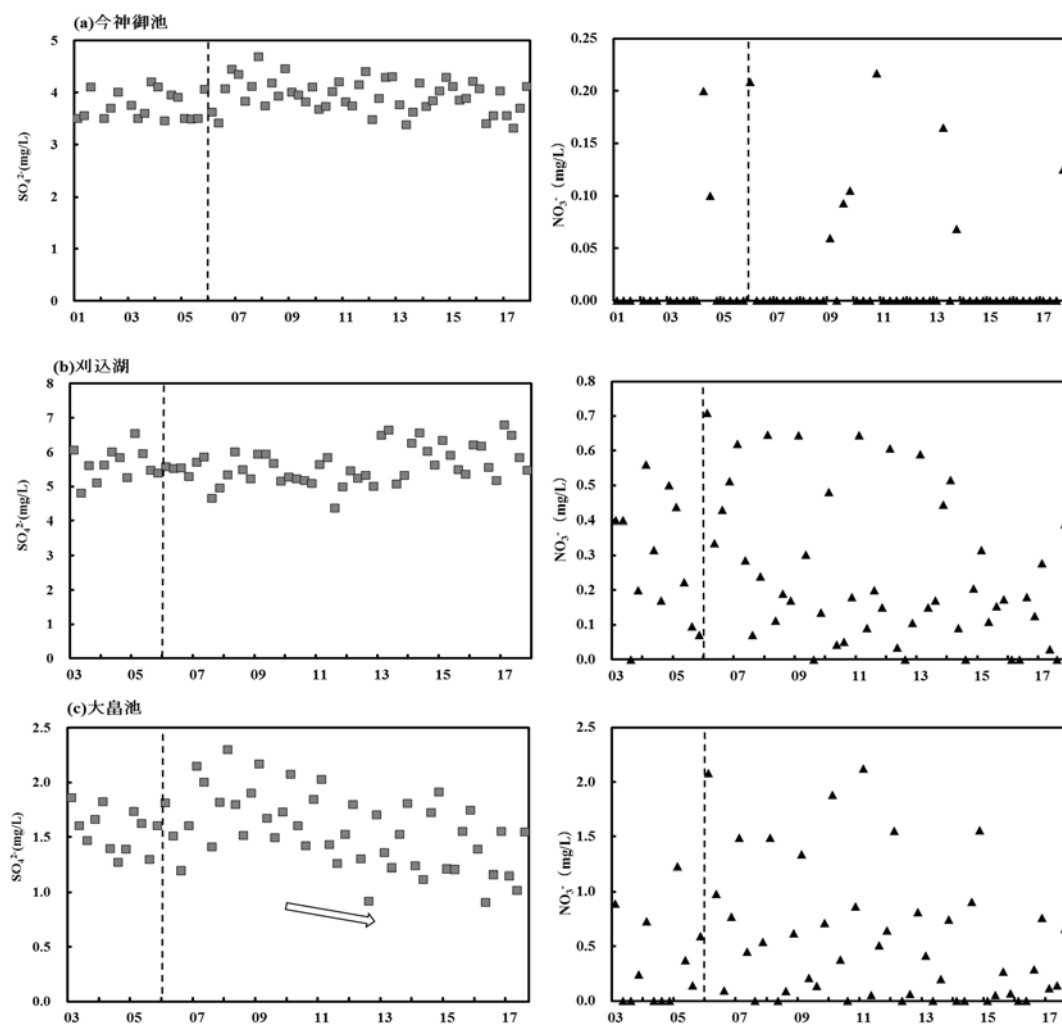


図 3-2-9 陸水モニタリングにおける硫酸イオン及び硝酸イオン濃度の経年変化(1/3)  
各地点とも左が硫酸イオン、右が硝酸イオン濃度を示す。グラフ中の矢印は有意な上昇及び低下傾向を示しており、解析開始から 2017 年度末までの有意な傾向をプロット上部に、2006 年から 2017 年度末までの有意な傾向をプロットの下部に示した。

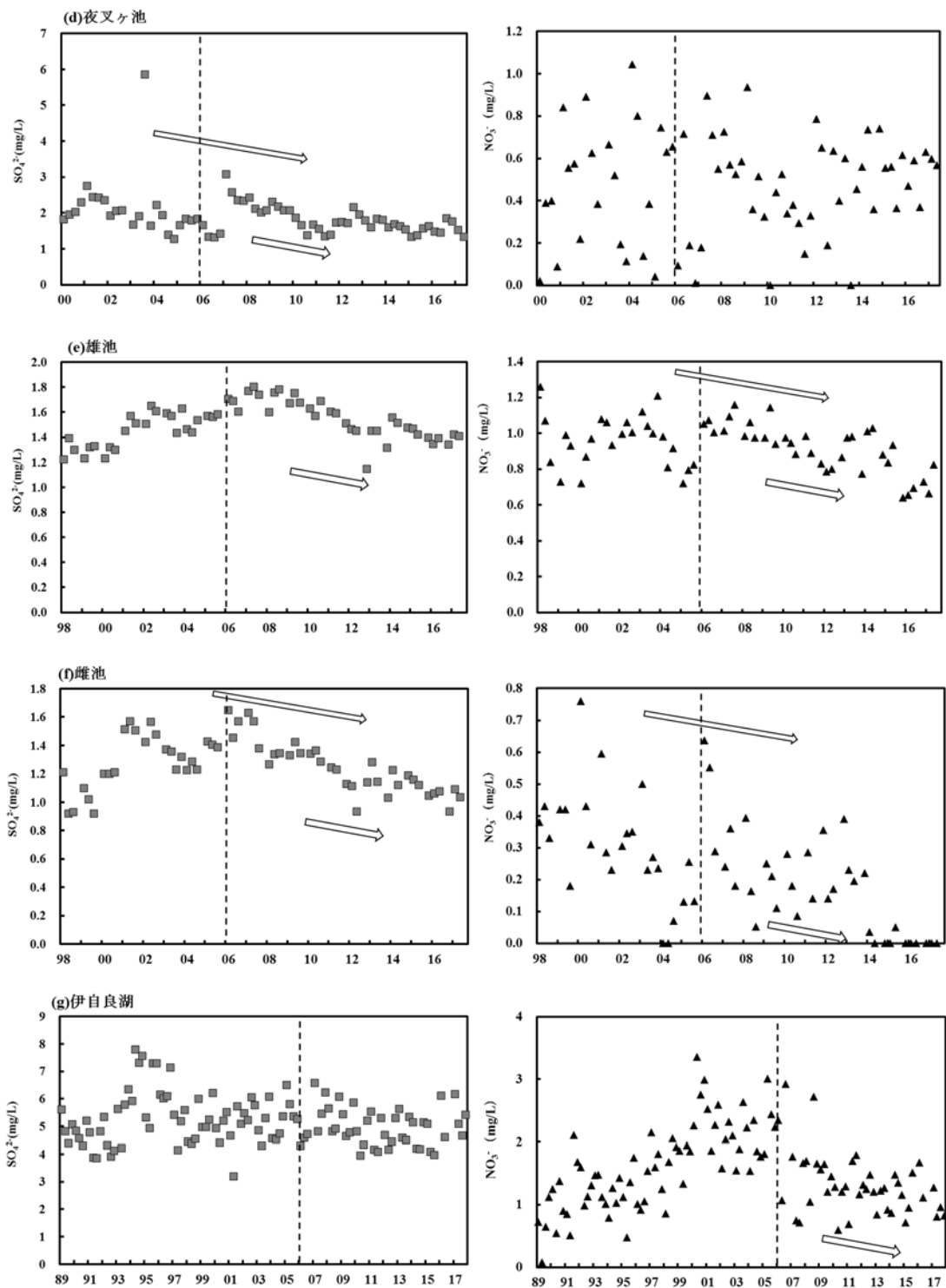


図 3-2-9 陸水モニタリングにおける硫酸イオン及び硝酸イオン濃度の経年変化(2/3)  
 各地点とも左が硫酸イオン、右が硝酸イオン濃度を示す。グラフ中の矢印は有意な上昇及び低下傾向を示しており、解析開始から 2017 年度末までの有意な傾向をプロット上部に、2006 年から 2017 年度末までの有意な傾向をプロットの下部に示した。

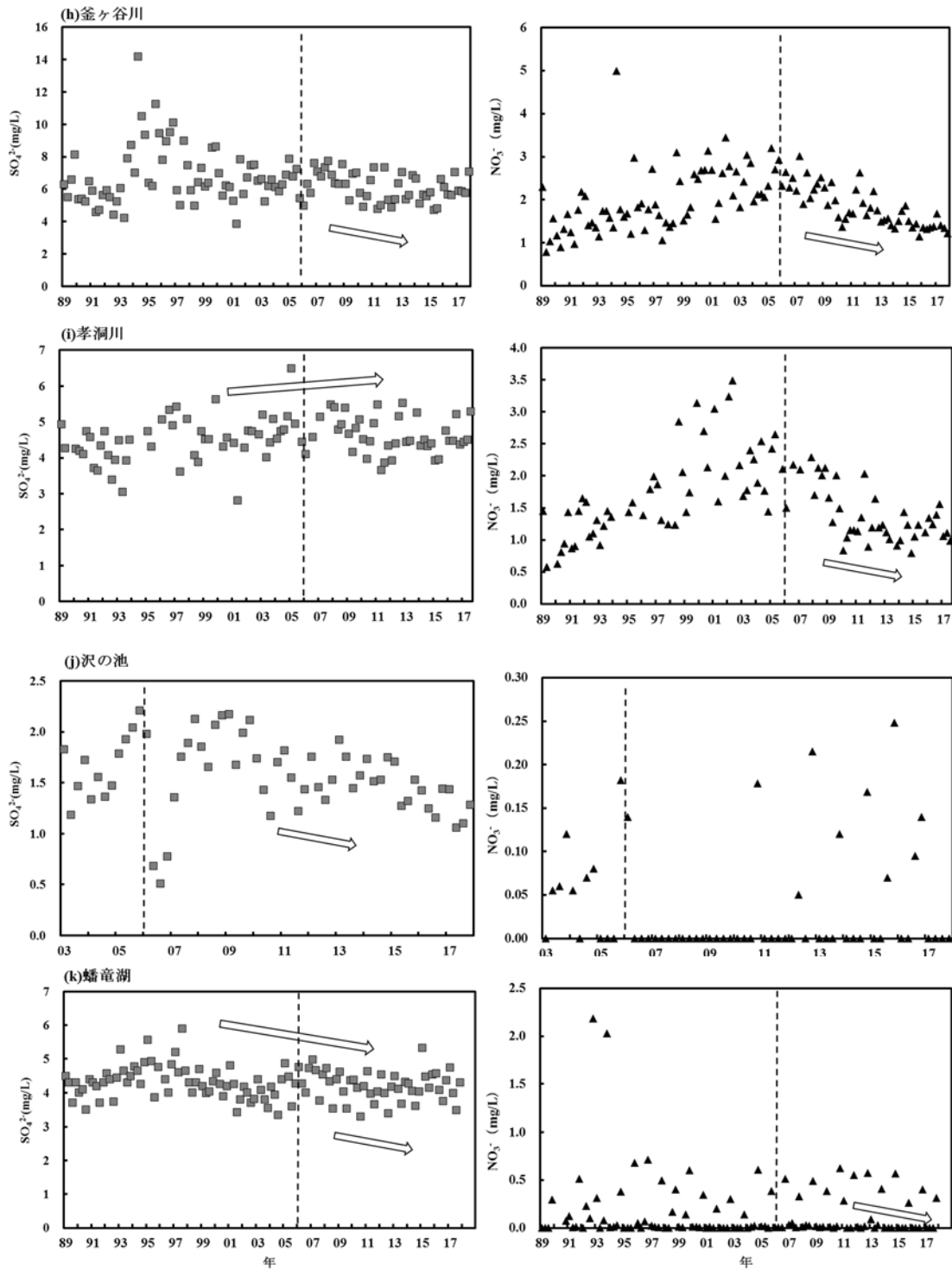


図 3-2-9 陸水モニタリングにおける硫酸イオン及び硝酸イオン濃度の経年変化(3/3)  
 各地点とも左が硫酸イオン、右が硝酸イオン濃度を示す。グラフ中の矢印は有意な上昇及び低下傾向を示しており、解析開始から 2017 年度末までの有意な傾向をプロット上部に、2006 年から 2017 年度末までの有意な傾向をプロットの下部に示した。

### (3) 陸水モニタリングの成果

- 現在モニタリングが継続されている 9 湖沼は、比較的酸感受性が高い地質と考えられる流紋岩やチャート等が分布する地域にあるが、その陸水化学性もアルカリ度が  $0.200 \text{ mmol}_e \text{ L}^{-1}$  以下の酸感受性が高い湖沼であることが確認された。
- 2006 年以降の解析結果では、pH の有意な低下を示す地点がなくなる等、酸性化からの回復傾向がみられた。アルカリ度や陽イオン濃度の経年変化は地点によって差があるものの、ほとんどのモニタリング湖沼で硫酸イオン、硝酸イオン濃度は低下傾向にあった。
- 前回の報告書（平成 20～24 年度）では、2000 年から 2012 年までの評価で pH やアルカリ度が有意に低下し酸性化が進行中であると示唆された夜叉ヶ池（福井県）においても、2006 年以降 2017 年までの評価では、pH やアルカリ度の有意な低下傾向はみられなくなり、硫酸イオン濃度も低下していた。近年の東アジア地域の酸性物質の排出量の減少傾向を反映した、大気沈着量の減少に伴う陸水の酸性化からの回復の兆候と考えられる。
- 陸水の水質は大気沈着と森林生態系内での物質循環の結果を反映したものであることから、今後さらに変動する東アジアの大気環境下において、我が国の森林生態系がどのように応答し、順調に回復していくかを見る上でも、陸水モニタリングを継続することが必要である。

#### 【引用文献】

- [1] 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.
- [2] Hirsch, R.M., Slack, J.R., and Smith, R.A. 1982. Techniques of trend analysis for monthly water quality data. *Water Resour. Res.*, 18 (1), 107–121.



### 3.2.3 集水域モニタリング

集水域モニタリングでは、集水域という単位面積において、大気沈着から河川水までの流入・流出過程をモニタリングすることにより、大気沈着と河川水質をより関連づけて考察するとともに、大気沈着による生態系影響を定量的に評価することが期待されている。岐阜県伊自良湖集水域では、平成6年～8年（1994～1996年）にかけてNO<sub>3</sub><sup>-</sup>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>及びAlの特異的な高濃度流出やそれに伴うpHの低下傾向が指摘され[1]、それを受けて2005年度から2007年度まで行われた集中調査を基礎として、2008年度から集水域モニタリングが定期モニタリングとして開始された。本節では、2005年度からの長期傾向を含めて論じる。

#### (1) 流入・流出収支

##### ①水収支

伊自良湖集水域では、降水及び河川流出の季節性を考慮して、比較的降水量も河川からの流出量も少ない11月初旬から翌年の同時期までを1水年とした。便宜上、ここでは翌年で表示する。すなわち2012年11月から2013年10月を2013水年とする。降水量は3地点で観測しているが、谷間にある伊自良湖測定所や標高が最も低い湖岸における降水量は、標高が最も高い赤谷よりも10～25%程度少なかった。そのため、②で示す集水域全体の物質収支の計算においては、湿性沈着による流入量は平均降水量を用いて補正を行った。

2006～2017水年までの12年の水収支によると、降水量が多い年にはそれに従って流出量が増えるものの、流出率としては50%未満の水年、あるいは2006水年には90%を超えるなど、不確実性が示唆された(図3-2-10)。また水年当たりの降水量や流出水量、流出率は、統計的に有意なトレンドは示さなかった(Mann-Kendall Test)。

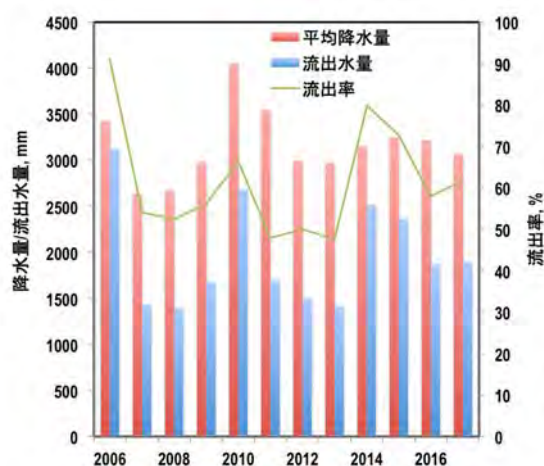


図3-2-10 伊自良湖集水域における水収支の経年変化

降水量は、赤谷、伊自良湖酸性雨測定所、及び湖岸の3地点の平均を用いた。

## ②主な物質の流入量・流出量

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

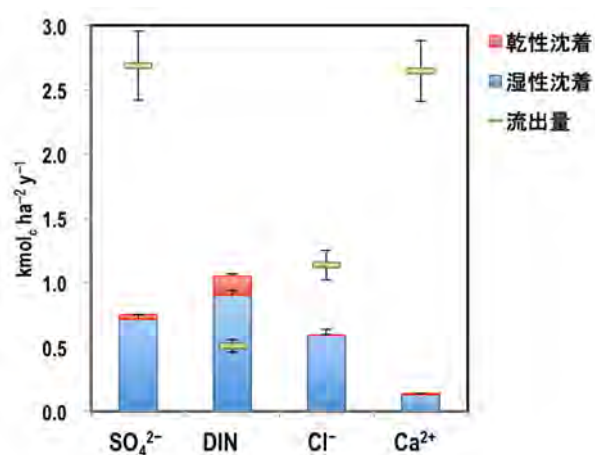


図 3-2-11 伊自良湖集水域における主な物質の過去5水年の平均流入・流出収支

エラーバーは標準誤差。DIN, dissolved inorganic nitrogen: 溶存態無機窒素。

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。

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(図 3-2-11)。一方、流出量は、流出水量の変動も反映し、その変動が大きかった。それらの変動を考慮しても、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>や Ca<sup>2+</sup>の流出量は、大気からの流入量を著しく超過していた。すでに越境大気汚染・酸性雨長期モニタリング報告書(平成 20~24 年度)でも議論されたように、生態系内での反応性に乏しく保存的であるとされる Cl<sup>-</sup>の流入量と流出量が釣り合うと仮定して規格化した場合においても、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>や Ca<sup>2+</sup>の流出量は流入量を超過していた。Ca<sup>2+</sup>については、鉱物風化等の生態系内の起源が考えられるが、4章における Sr 同位体比の測定でもそれを示唆する結果が得られているのでこちらも参照されたい。SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の収支やその起源については本節で後述する。

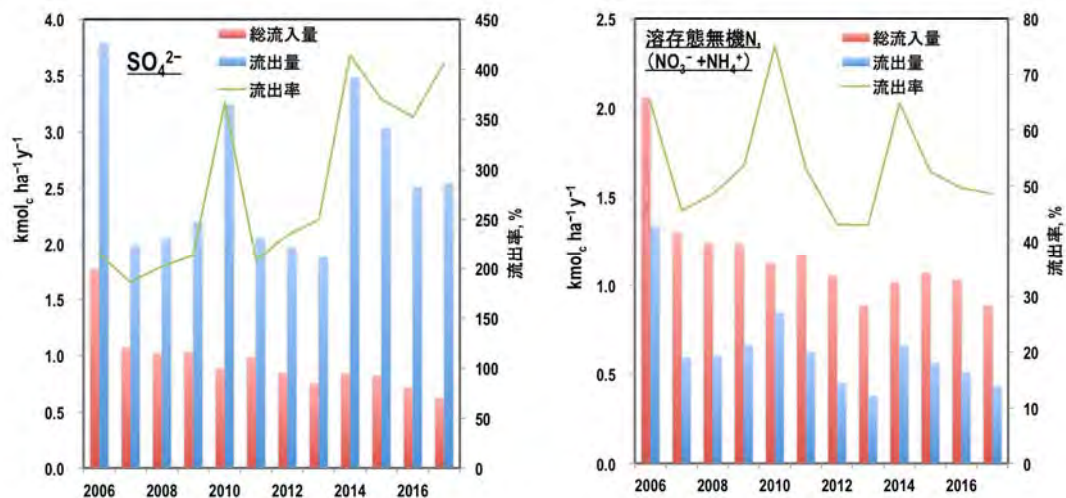


図 3-2-12 伊自良湖集水域における  $\text{SO}_4^{2-}$  及び溶存態無機窒素 (N) の流入・流出収支の経年変化

$\text{SO}_4^{2-}$  及び溶存態無機窒素の大気からの総流入量(総沈着量)は、低下傾向(Mann-Kendall Test)を示した(図 3-2-12)。窒素については、 $\text{NO}_3^-$  や  $\text{NH}_4^+$  としてもそれぞれ低下傾向を、また、 $\text{K}^+$ 、 $\text{Ca}^{2+}$ 、及び  $\text{H}^+$  も低下傾向を示した。一方で、河川からの流出量は、溶存態無機 N( $\text{NH}_4^+$  としての流出はほとんど検出できないため実質は  $\text{NO}_3^-$  として流出)のみ低下傾向を示した。 $\text{SO}_4^{2-}$  においては、流入量だけが低下したため、結果的に流出率は上昇傾向を示した。

### ③ 乾性沈着の不確実性の検討

本地域の総沈着量に占める乾性沈着の寄与率は、多くの項目で 10% 未満であった。乾性沈着の推計に用いた Inferential 法が、本来斜面地に適用することを想定していないことに加え、伊自良湖測定所は傾斜地形に囲まれた森林の中に設置されており、EANET で規定された仰角 30 度以内にも、樹木が確認されている。このように周辺が閉塞された地形と森林が、大気中の汚染ガス濃度や風速を低下させ、乾性沈着の寄与を過小評価させている可能性が指摘されたため、伊自良湖酸性雨測定所に近接し周囲が解放された場所である伊自良湖湖畔(雨量計設置地点近傍)で並行測定を 2017 年 5~7 月に実施した。

表 3-2-10a フィルターパック法によるガス状汚染物質の並行測定結果

	測定番号	サンプリング期間		ガス (ppb)			
		開始	終了	$\text{SO}_2$	$\text{HNO}_3$	HCl	$\text{NH}_3$
湖畔局 (並行測定地点)	1	2017/5/15	2017/5/29	0.29	0.40	0.25	1.48
	2	2017/5/29	2017/6/12	0.26	0.37	0.31	1.32
	3	2017/6/12	2017/6/26	0.41	0.48	0.30	1.48
伊自良湖	4	2017/5/15	2017/5/29	0.69	0.37	0.19	1.61

酸性雨測定所	5	2017/5/29	2017/6/12	0.26	0.40	0.23	1.38
	6	2017/6/12	2017/6/26	0.37	0.47	0.22	1.39

表 3-2-10b フィルターパック法による粒子状汚染物質の並行測定結果

測定番号	粒子 ( $\mu\text{g m}^{-3}$ )							
	$\text{SO}_4^{2-}$	$\text{NO}_3^-$	$\text{Cl}^-$	$\text{NH}_4^+$	$\text{Na}^+$	$\text{K}^+$	$\text{Mg}^{2+}$	$\text{Ca}^{2+}$
1	3.05	0.59	0.06	0.87	0.25	0.10	0.04	0.19
2	3.06	0.53	0.04	0.93	0.27	0.12	0.04	0.12
3	3.57	0.49	0.01	0.99	0.27	0.09	0.05	0.17
4	3.73	0.46	0.03	0.95	0.29	0.11	0.05	0.24
5	3.16	0.36	0.01	0.91	0.24	0.11	0.04	0.12
6	3.42	0.32	0.00	0.96	0.23	0.09	0.03	0.13

表 3-2-11 平均風速及び平均湿度

	平均風速(m/s)	平均湿度(%)
湖畔局	0.65	77.2
伊自良湖酸性雨測定所	0.51	85.9

フィルターパック法によるガス状・粒子状物質の並行測定結果を表 3-2-10 に、平均風速及び平均湿度を表 3-2-11 に示した。並行測定結果では伊自良湖酸性雨測定所と近傍の湖畔局の大気濃度が同レベルであることがわかった。この結果は、局舎周辺の樹木の影響よりは、局舎を含む伊自良湖集水域が平野部から奥まった谷間地形に位置しており、汚染物質が岐阜市街地から谷間に輸送される過程で濃度低下している可能性が高いことが示唆される。伊自良湖局の大気データは中京地域全体を代表するデータとして利用するのは適当でないが、伊自良湖集水域が位置する谷間周辺の大気データとしては利用ができるということが示唆された。

## (2) 伊自良湖集水域の酸性化・窒素飽和からの回復

伊自良湖集水域では、釜ヶ谷川で 1980 年代から陸水モニタリングとして年 4 回の長期モニタリングが実施されている。すでに 3.2.2 節でも述べられたように、2006 年以降、pH の上昇、 $\text{SO}_4^{2-}$ や  $\text{NO}_3^-$ 濃度の低下等の酸性化からの回復を特徴づける傾向が確認されている。集水域モニタリングで得られた詳細データでも、2006 年 11 月からの 2007 水年以降、同様に pH の上昇、 $\text{SO}_4^{2-}$ や  $\text{NO}_3^-$ 濃度の低下傾向が確認されている(毎月下旬に採水されたデータを用いた季節性を考慮した Seasonal Mann-Kendall Test による)。しかしながら、河川水のイオン濃度は、流量の影響を大きく受けるため、上述した流入量、流出量のデータを用いて、年間加重平均濃度を算出して、そのトレンドを検討した。大気濃度のトレンドは主な流入経路である降水の濃度に着目した。 $\text{SO}_4^{2-}$ は降水濃度の低下傾向は明確であったが(Mann-Kendall Test)、河川濃度は明確な傾向は示さなかった(図 3-2-13 左)。一方で、溶存態

無機窒素は降水濃度、河川水濃度とも低下傾向を示した(図 3-2-13 右)。なお、降水濃度では  $\text{NO}_3^-$  や  $\text{NH}_4^+$  として、河川水濃度では  $\text{NO}_3^-$  として、それぞれ低下傾向を示した(河川水濃度では、 $\text{NH}_4^+$  は定量限界未満のことが多いため、傾向は見られない)。また、降水、河川水とも  $\text{H}^+$  濃度の低下傾向にあり、降水 pH は 4.5 から 4.7 に、河川水 pH は 6.8 から 7.0 へと上昇し、河川水 pH は 7.0 前後であった 1990 年代前半のレベルに戻りつつある [2]。

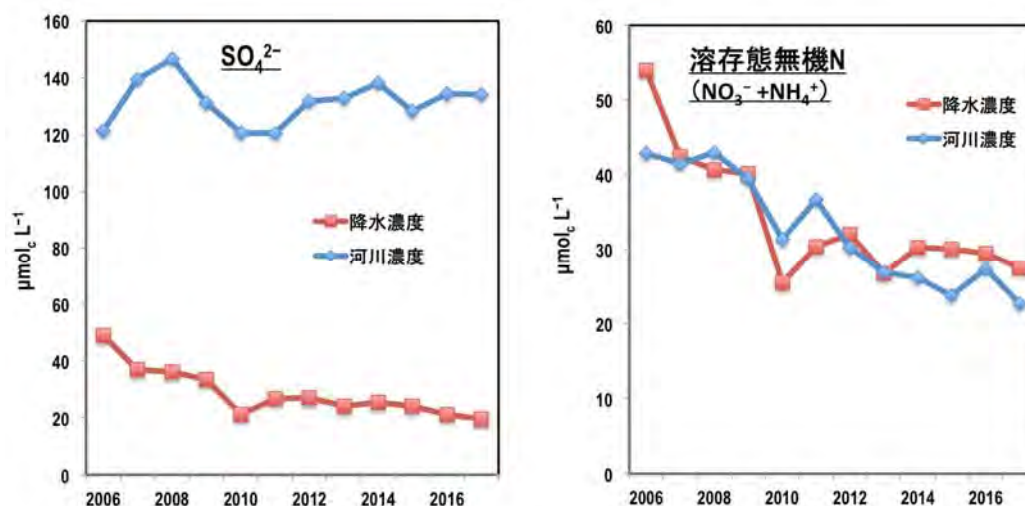


図 3-2-13 伊自良湖集水域における  $\text{SO}_4^{2-}$  及び溶存態無機窒素 (N) の加重平均濃度の経年変化

上記のように、 $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{H}^+$ 等の酸性物質の降水濃度や大気からの総流入量の低下に伴い、河川水では pH 上昇や  $\text{NO}_3^-$ 濃度の低下が見られ、酸性化や窒素飽和から回復傾向にあることが明確になった。窒素飽和は、大気からの窒素流入量の増加により、生態系における  $\text{NH}_4^+$ や  $\text{NO}_3^-$ が植物や微生物の栄養要求量を超えた状態[3]と考えられるが、溪流・河川中の  $\text{NO}_3^-$ 濃度の上昇や季節性などからその段階(Stage)が議論されている[4]。また、我が国においては、越境大気汚染や季節風の影響が大きいこと、菌根菌が共生するスギ・ヒノキの成熟や施業が十分でないこと等の複数の要因が、大気 N 沈着の上昇に対する森林生態系の感受性をより高める可能性が指摘されている[5]。伊自良湖においては、1990 年代半ばまでは河川中の  $\text{NO}_3^-$ 濃度は比較的 low、夏季に低下する季節性が見られたが(Stage 1)、1996/1997 年以降、 $\text{NO}_3^-$ 濃度が上昇し季節性が失われたことから(Stage 2)、この頃窒素飽和が進んだと考えられた[1]。過去に酸性化や窒素飽和が進んだ理由としては、著しく大きい酸性物質の大気沈着に加え、1990 年代半ばの冷夏(1993 年)や干ばつ(1994 年)が大きなきっかけになったとされている[1]。特に干ばつ年は年降水量がわずか 1604 mm であったが、その後、伊自良湖集水域ではそれに匹敵する少ない降水量は記録されておらず、集水域モニタリングの実施期間中に年降水量が 2500 mm を下回ることはなかった(図 3-2-10 を参照)。大気沈着の低下傾向に加え、1990 年代に生じたような大きな気象イベントがなかったこと

も、酸性化や窒素飽和からの回復に寄与した可能性があった[2]。

### (3) 河川中の硫黄の起源

上述したように、伊自良湖集水域では硫黄流出量が流入量を著しく超過していた。この硫黄の流出超過については、過去に大気沈着し生態系内に蓄積していた硫黄が流出したのではないかとの議論がされてきた。河川に流出する硫黄の起源を明らかにするため、要監視地域における重点モニタリング(4章で詳述)として、主要な水試料の同位体分析を行った。その結果、伊自良湖集水域内の河川水中の硫黄同位体比( $\delta^{34}\text{S}$ )は、降水や土壌溶液のそれとは大きく異なり、著しく低いマイナス値(平均:  $-13\text{‰}$ )を示した(図 3-2-14)。硫黄は、生態系内において硫酸還元などの微生物作用で比較的大きな同位体分別を生じる可能性はあるが、多くの場合は硫黄同位体比が上昇する方向であり、これら河川の著しく低いマイナス値の硫黄同位体比を分別作用で説明することは不可能である。よって、河川水の硫黄は、少なくとも現在の大気沈着由来の硫黄とは異なる起源を持っていることが示唆される。

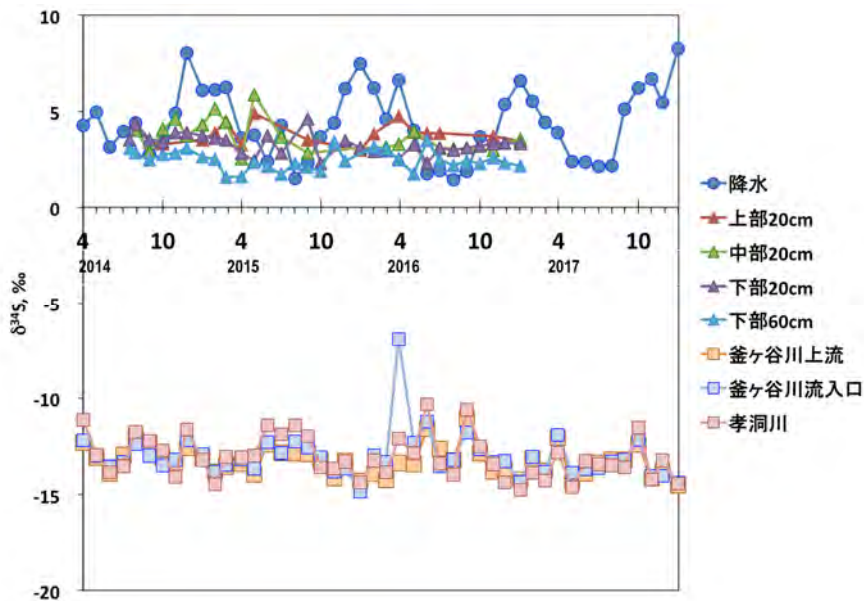


図 3-2-14 伊自良湖集水域における降水、土壌溶液、河川水の硫黄同位体比

一方で、我が国で主に燃料として使用されている石油のうち、中東産のものに含まれる硫黄同位体比はマイナス値を示し、その最も低いものは $-10\text{‰}$ 程度である[6]。実際、1980年代までに測定された名古屋近辺の樹木葉や降水の硫黄同位体比は $-5\sim 0\text{‰}$ であったことが報告されている[7]。また、中京地域の年輪解析では、四日市市周辺で得られたスギでは年輪に含まれる硫黄同位体比が1960年代に急激に低下し1970年頃には $-7\text{‰}$ 程度まで低下した[8]。また、伊自良湖集水域内で得られた年輪でも1960年代から1980年頃までに $-2\text{‰}$ 程度まで硫黄同位体比が低下している。1970年頃にピークに達したと言われる我が国の $\text{SO}_2$ 排出量のトレンド[9]が年輪に記録されていると考えられる。これらの事例は、伊自良

湖を含む中京地域で、人為発生源由来の硫黄が、周辺の生態系に一定以上沈着・蓄積していたことを示しているが、それだけで伊自良湖集水域の河川水が示す-13‰の低い硫黄同位体比を説明することは不可能である。

河川の主要な硫黄起源として最も可能性が高いのが地質である。伊自良湖を含む中部地方から近畿地方にかけては美濃丹波帯と呼ばれるチャート<sup>1</sup>等を含む堆積岩の地質帯が広がっている。伊自良湖集水域もほとんどチャートが分布しているが、美濃丹波帯のチャートにはパイライト( $\text{FeS}_2$ )が混在し比較的硫黄含有量が多く、その同位体比は-30~-15 ‰程度である[10]。

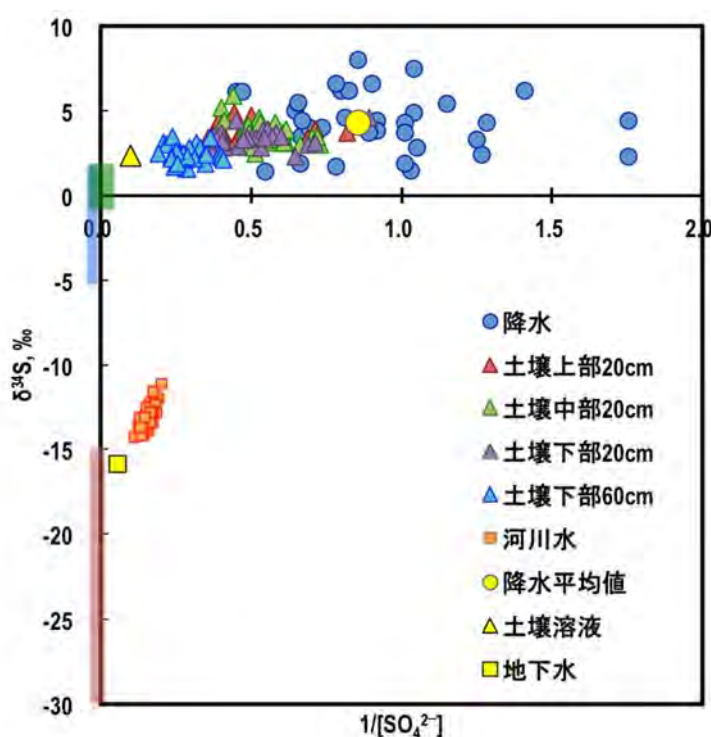


図 3-2-15 伊自良湖集水域における降水、土壌溶液、河川水の  $\text{SO}_4^{2-}$ 濃度( $\text{mg L}^{-1}$ )の逆数と硫黄同位体比

土壌溶液の分析が行われた 2017 年 3 月までのデータをプロット。河川水は RW1 で得られた結果。y 軸の緑、青、茶色のバーは、それぞれ年輪中の硫黄、過去の大気硫黄、岩石中の硫黄の範囲を示す。

現在の大气沈着由来の硫黄、土壌・植生系で蓄積・循環している硫黄(過去の大气沈着も含む)、そして地質由来の硫黄が、どんな割合で河川水に寄与しているかを検討するために、主要な水試料の  $\text{SO}_4^{2-}$ 濃度の逆数に対し、硫黄同位体比をプロットした(図 3-2-15)。これらのプロットにおいて線形関係が認められた場合には、その試料が 2 つの端成分(エンドメンバー)の混合によって生成されていることを示し、その線形回帰直線の切片は  $\text{SO}_4^{2-}$ 濃度を上昇させる主要な S 起源の同位体比を示す[11][12]。河川水は  $\text{SO}_4^{2-}$ 濃度が上昇すると硫黄

<sup>1</sup> 放散虫・海綿動物などの殻や骨片が海底に堆積してできた岩石。主成分は  $\text{SiO}_2$ 。

同位体比が低下し、濃度の逆数とのプロットでは、その切片は-17.5‰付近にあり、美濃・丹波帯のチャート中の硫黄同位体比の範囲にあった。また、その回帰直線は、降水や土壤溶液が分布する付近を通過する。また、土壤溶液試料にも線形関係が認められ、その切片(+2.1‰)は年輪硫黄の範囲にあり、それは降水試料の間を通過する。これらのプロットから、降水が土壤溶液と混合し、さらに岩石の影響を大きく受けた地下水と混合することにより、河川水が生成されていることが示唆される。そこで、[12]による 2 成分系のモデルを発展させ、以下のような 3 成分による混合モデルを設定した[2]。

$$S_{rw} = S_{wd}f_{wd} + S_{ss}f_{ss} + S_{gw}f_{gw} \quad (1)$$

$$\delta^{34}S_{rw} = \delta^{34}S_{wd}(S_{wd}/S_{rw})f_{wd} + \delta^{34}S_{ss}(S_{ss}/S_{rw})f_{ss} + \delta^{34}S_{gw}(S_{gw}/S_{rw})f_{gw} \quad (2)$$

$$f_{wd} + f_{ss} + f_{gw} = 1 \quad (0 < f_{wd}, f_{ss}, \text{または } f_{gw} < 1) \quad (3)$$

ここで  $S$  は  $SO_4^{2-}$ 濃度( $mg L^{-1}$ )、 $\delta^{34}S$  は硫黄同位体比であり、添字の  $rw$ 、 $wd$ 、 $ss$  及び  $gw$  は、河川水、降水(湿性沈着)、土壤溶液、及び地下水をそれぞれ示す。また、各端成分の混合により目的の河川  $SO_4^{2-}$ 濃度を生成するための分配係数を  $f$  とする。また、河川の硫黄同位体比を構成する各端成分の寄与率は以下のように計算可能である。

$$(S_{wd}/S_{rw})f_{wd} \times 100, (S_{ss}/S_{rw})f_{ss} \times 100, \text{または } (S_{gw}/S_{rw})f_{gw} \times 100 \quad (4)$$

ここで、各端成分として、表 3-2-12 を仮定した。これらを用いて、式 (1)~(4)により河川水の平均  $SO_4^{2-}$ 濃度( $6.53 mg L^{-1}$ )と平均硫黄同位体比(-13.2‰)を生成するための各端成分の寄与率を計算すると、

降水(湿性沈着) : 12%

土壤溶液 : 2%

地下水 : 86%

と推計される。岩石由来の硫黄の影響を大きく受ける地下水が、河川水の生成に大きく寄与していることが明らかとなった。

表 3-2-12 混合モデルで仮定した各端成分

端成分	$SO_4^{2-}$ 濃度( $mg L^{-1}$ )	$\delta^{34}S$ (‰)	備考
降水(湿性沈着): 大気由来の硫黄	1.17	4.3	降水試料の平均値
土壤溶液 : 土壤・植生系で蓄積・循環している硫黄	10.0	2.4	土壤溶液の最高濃度の硫黄同位体比と回帰直線の $y$ 切片との平均
地下水 : 岩石由来の硫黄	17.5	-15.9	河川水の最も低い硫黄同位体比と回帰直線の $y$ 切片との平均

上記のように、伊自良湖集水域において硫黄流出量が硫黄流入量を超過している理由と



しては、岩石由来の硫黄が大きく寄与していることが同位体分析によって示唆された。一方で、岩石由来の硫黄が河川水中の 86%も占めるとすると、過去 5 年の平均  $\text{SO}_4^{2-}$  流出量 ( $2.57 \text{ kmolc ha}^{-1}$ )のうち  $2.21 \text{ kmolc ha}^{-1}$  が岩石由来であり、大気由来の硫黄と考えられる画分は  $0.31 \text{ kmolc ha}^{-1}$  であり、これは大気総流入量( $0.79 \text{ kmolc ha}^{-1}$ )の 40%程度である。よって、大気から流入する硫黄の半分以上、約 60%は土壌・植生系で蓄積・循環していることが示唆される。土壌に多く含まれる有機態硫黄[13]や年輪中に保存されている硫黄は、この推計結果と調和的である[2]。伊自良湖集水域では、1994 年の干ばつ年に河川の  $\text{SO}_4^{2-}$ 濃度の急激な上昇が見られ、生態系内で蓄積されていた有機態硫黄が急激に分解されたことによると示唆されており[1]、この時期を境に河川では酸性化が進んだ。同様の極端気象が将来的に起こる可能性もあり、伊自良湖集水域は全国的にも大気沈着量が多い地点でもあることから、土壌・植生系内で蓄積・循環している大量の大気由来の硫黄が、今後どのように集水域に影響を与えるか注意深く監視していく必要があると考えられる。

#### (4) 集水域モニタリングの成果

- 酸性沈着による影響を継続監視している伊自良湖集水域では、降水や河川水において溶存態無機窒素濃度の低下や pH の上昇傾向がみられており、窒素飽和や酸性化からの回復が示唆された。
- 集水域モニタリングが始まった 2006 年以降、降水由来の硫黄や窒素の流入量が低下傾向にあり、特に溶存態無機窒素濃度についてはそれに応答し流出量も低下傾向にあることが示唆された。また降水濃度や河川水濃度も同様の傾向であった。
- 河川水の年加重平均 pH も 2006 年から 2017 年までに 6.8 から 7.0 まで上昇して 1990 年代前半のレベルに戻りつつあることから、伊自良湖集水域は、大気からの汚染物質の流入量の低下により、窒素飽和、酸性化から回復しつつあることが示唆された。
- 大気からの流入量の推計に関して、その不確実性が懸念されてきたが、酸性雨測定所と伊自良湖畔で実施した大気の並行測定の結果から、伊自良湖局の大気データは中京地域全体を代表するデータとして利用するのは適当でないが、伊自良湖集水域が位置する谷間周辺の大気データとしては利用できるということが示唆された。
- これらの結果により、伊自良湖集水域は、大気からの汚染物質の流入量の低下により、窒素飽和、酸性化から回復しつつあることが示唆された。
- 硫黄については流入量を流出量が超過することから、河川に流出する硫黄の起源を特定する必要性が指摘されてきた。要監視地域における重点モニタリングによる硫黄同位体比分析結果は、河川に流出する硫黄のほとんどは岩石由来であることを示していた。一方でこの結果は、大気由来の硫黄が生態系内に多く蓄積していることを示唆している。
- 今後、伊自良湖集水域における窒素飽和や酸性化からの回復が順調に進むか、注視する必要がある。さらに、過去の事例からも明らかなように、冷夏・干ばつなどの極端

気象により、生態系内に蓄積している硫黄が急激に流出する可能性もある。

- 引き続き、伊自良湖集水域の窒素飽和、酸性化の傾向を把握するため、現状のモニタリングを継続する必要がある。

#### 【引用文献】

- [1] Nakahara, O et al. 2010. Soil and stream water acidification in a forested catchment in central Japan. *Biogeochemistry*, 97, 141–158.
- [2] Sase, H et al. 2019. Response of river water chemistry to changing atmospheric environment and sulfur dynamics in a forested catchment in central Japan. *Biogeochemistry*, accepted.
- [3] Aber, J et al. 1989. Nitrogen saturation in northern forest ecosystems. *Bioscience*, 39, 378-386.
- [4] Stoddard, JL 1994. Long-term changes in watershed retention of nitrogen - Its causes and aquatic consequences. *Environ Chem Lakes Reservoirs*, 237, 223–284.
- [5] Chiwa, M et al. 2018. Nitrate leaching from Japanese temperate forest ecosystems in response to elevated atmospheric N deposition, *Journal of Forest Research*, DOI: 10.1080/13416979.2018.1530082
- [6] 丸山隆雄ら 2000. 中国および日本で使用される石炭と石油の硫黄同位体比. *日本化学会誌*, 1, 45-51.
- [7] 中井信之 1984. 硫黄の循環と人間生活. *現代化学*, 165, 39-44.
- [8] Ishida, T et al. 2015. Characterization of sulfur deposition over the period of industrialization in Japan using sulfur isotope ratio in Japanese cedar tree rings taken from stumps. *Environmental Monitoring and Assessment*, 187, 459.
- [9] Smith, SJ et al. 2011. Anthropogenic sulfur dioxide emissions: 1850-2005. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11, 1101-1116.
- [10] Kajiwar, Y et al. 1994. Development of a largely anoxic stratified ocean and its temporary massive mixing at the Permian/Triassic boundary supported by the sulfur isotopic record. *Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology*, 111, 367-379.
- [11] Krouse, HR 1980. Sulphur isotopes in our environment. In: Fritz P, Fontes J-C(ed) *Handbook of Environmental Isotope Geochemistry*. Elsevier, Amsterdam, pp. 435–471.
- [12] Hosono, T et al. 2007. Impact of fertilizer on a small watershed of Lake Biwa: Use of sulfur and strontium isotopes in environmental diagnosis. *Science of the Total Environment*, 384, 342-354.
- [13] 環境省 2013. 越境大気汚染・酸性雨長期モニタリング報告書(平成 19～24 年度)

### 3.2.4 オゾンによる植物影響の可能性

対流圏オゾン(地表付近のオゾン)は、紫外線を吸収する成層圏のオゾン層とは異なり、人体を含む生物にとって有害な大気汚染物質である。高濃度オゾンの長期的な曝露は、植物の光合成や成長を抑制し、農作物の収量や質の低下、また、森林による CO<sub>2</sub>吸収等を含む生態系の公益的機能の低下を引き起こす可能性がある。我が国のオゾン濃度は、漸増傾向が指摘されてきたが、その観測のほとんどは人の生活環境の保全のために都市部で実施されており、森林地域や山岳地域での観測事例が限られていた。そのため、越境大気汚染・酸性雨長期モニタリングでは、オゾンによる植物影響モニタリングとして、平成23年度(2011年度)から高濃度オゾンや樹木衰退が報告されている以下の地域でパイロット・モニタリングを実施してきた。

- 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。本節では、上記モニタリング地点における過去5年間のオゾンの自動測定結果を中心に、オゾンによる植物影響の可能性について記述する。

#### (1) オゾン濃度の日内変動

摩周湖外輪山、八海山、そして英彦山におけるオゾン濃度の日内変動を図3-2-16に示した。八海山では7～9 ppbの振幅が認められたが、摩周湖外輪山や英彦山では、オゾン濃度の日内変動は比較的小さく、安定していた。都市部においては日中オゾン濃度が上昇することが知られており、八海山や英彦山の麓に位置する一般環境大気測定局(六日町や太宰府)でも、日中は夜間に比べ20 ppb以上もオゾン濃度の上昇が見られ、14～15時付近にその濃度が最も高くなることが確認されている[1]。都市部に比べると、山岳地域ではそのような大きな日内変動がないため、高濃度になった場合、その曝露時間も長く、曝露量も大きくなることによって、植物への影響がより顕著になることが懸念される。

過去5年間においては、各地点における日内変動のパターンはほぼ同様であったが、後述するように摩周湖外輪山では2017年に最も高く、八海山では2013年に著しく低いなど、各年の濃度レベルが平均の日内変動でも捉えられた。また、濃度レベルは、高い方から、八海山 ≅ 英彦山 >> 摩周湖外輪山の順であった。

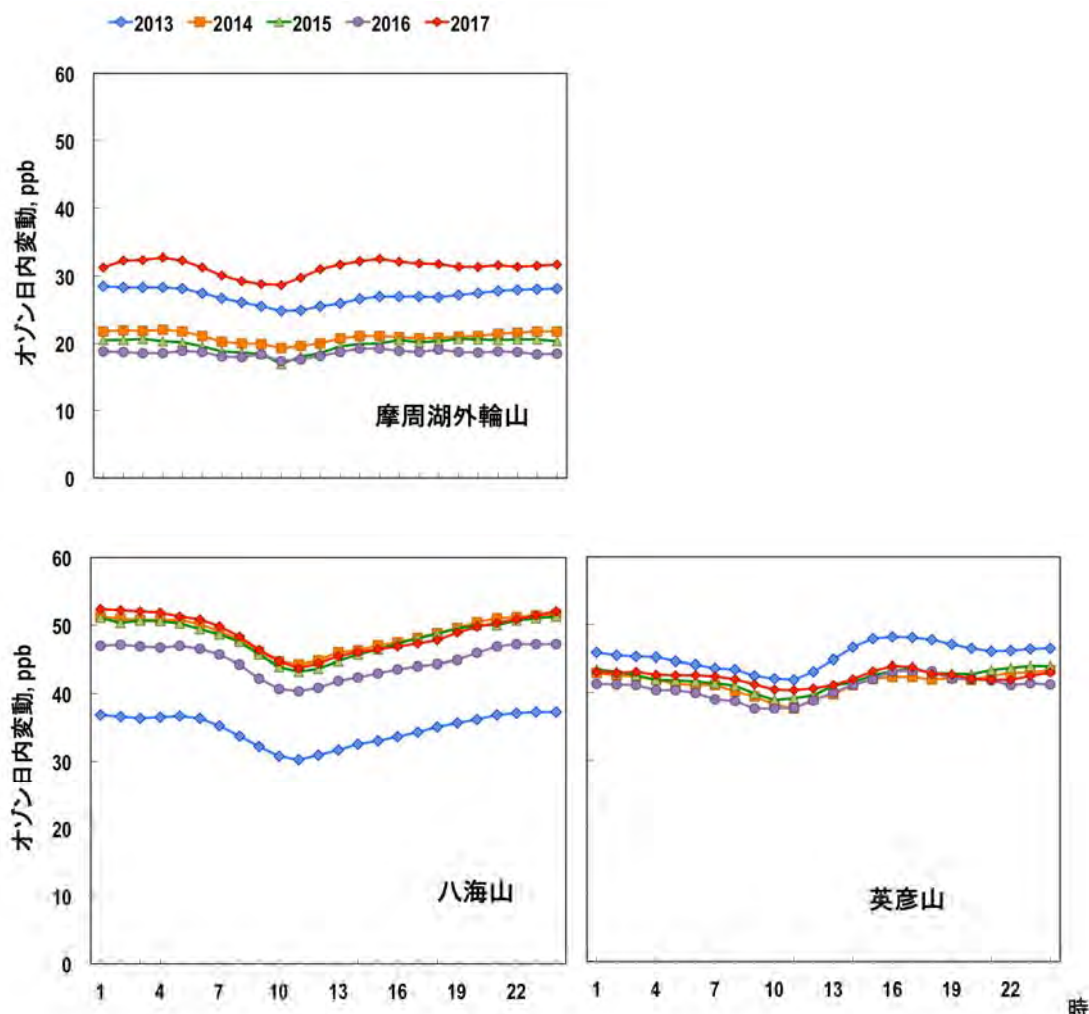


図3-2-16 摩周湖外輪山、八海山、英彦山におけるオゾン濃度の日内変動  
4月から10月までの平均値。

## (2) 植物成長期におけるオゾン濃度の季節性

摩周湖外輪山、八海山、英彦山における日平均オゾン濃度の季節変化を図3-2-17に示した。各年の季節トレンドを比較するために、30日間の移動平均を同時にプロットした。いずれの地点も春季から初夏、5～6月に最も高く、夏季に一旦低下した後、周期に漸増した。樹木の生物季節との関係では、摩周湖外輪山や八海山では、展葉時期に最もオゾン濃度が高く、英彦山では、展葉後しばらくしてから濃度が高くなるようなタイミングであった。いずれも樹木葉が比較的若い時期にオゾン濃度が高いことから、この時期に特異的にオゾン濃度が高い場合に、どのような影響が生じ得るか、今後関連情報を収集すべきであると考えられた。

また、年々変動は比較的小さいように見受けられるが、摩周湖外輪山では2017年の植物成長時期を通じて、比較的高濃度であった。また、八海山の2013年は特に春先から初夏にかけてのオゾン濃度が低かった。

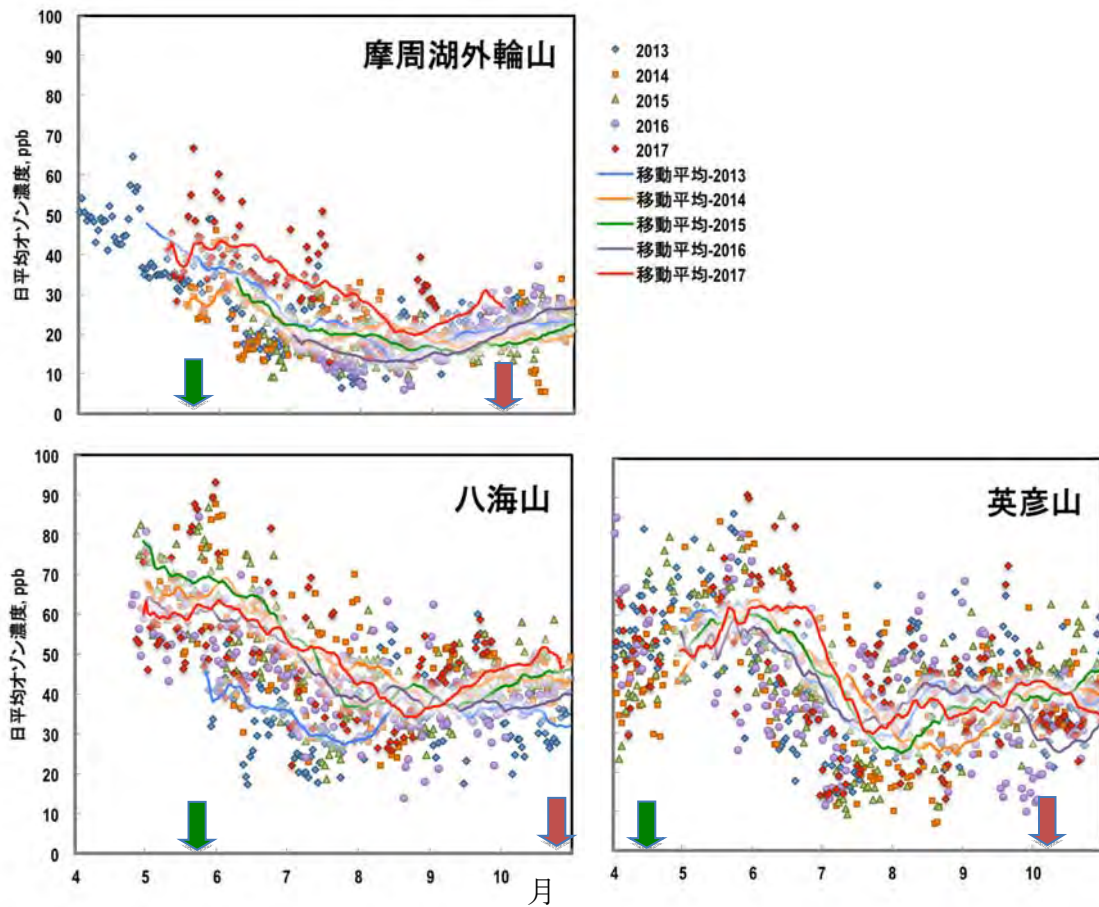


図3-2-17 摩周湖外輪山、八海山、英彦山における日平均オゾン濃度の季節変化

折れ線は30日間移動平均。緑と赤茶の矢印は、それぞれ、ダケカンバ(摩周湖)及びブナ(八海山、英彦山)の展葉時期と落葉時期の目安。

### (3) オゾン濃度の概況と影響指標

摩周湖外輪山、八海山、及び英彦山における樹木成長期のオゾン濃度の概況と影響指標を表3-2-13にまとめた。各地点とも年によっては欠測期間があり、5年間の傾向を正確には論じることができないが、濃度レベルは、先に述べたように、高い方から、八海山 ≒ 英彦山 >> 摩周湖外輪山の順であった。

摩周湖外輪山では、先に述べた比較的高濃度であった2017年を除くと中央値で20 ppbであり、オゾン濃度が40 ppbを超えた時間は少なく、計算されたAOT40も1 ppm・hを超えることはなかった。比較的高い2017年でも、欧州の感受性の高い樹木で適用される5 ppm・hを超えることはなく、AOT40という影響指標においては、樹木に大きな影響を与えるレベルではなかった。

表 3-2-13 摩周湖外輪山(上段)、八海山(中段)、及び英彦山(下段)における  
樹木成長期のオゾン濃度の概況と影響指標

摩周湖外輪山(5～10月)					
年	2013	2014	2015* <sup>1</sup>	2016* <sup>2</sup>	2017* <sup>3</sup>
95パーセンタイル値	40	35	32	30	54
中央値	22	20	20	18	30
5パーセンタイル値	9.3	11	10	7.7	14
AOT40(ppm・h)	0.39	0.23	0.01	-	2.4
八海山(5～10月)					
年	2013* <sup>4</sup>	2014	2015	2016	2017* <sup>5</sup>
95パーセンタイル値	52	78	77	69	80
中央値	35	46	46	43	47
5パーセンタイル値	12	27	25	24	26
AOT40(ppm・h)	2.3	19.5	19.4	13.8	15.9
英彦山(5～10月)					
年	2013	2014	2015	2016* <sup>6</sup>	2017* <sup>6</sup>
95パーセンタイル値	73	72	69	69	74
中央値	42	41	42	38	40
5パーセンタイル値	17.5	13	13	13	15
AOT40(ppm・h)	16.8	15.7	15.4	11.8	15.4

\*1. 測定期間：6-10月。\*2. 測定期間：7-10月。\*3. 測定期間：5～8月。\*4. 測定期間：5月下旬から。\*5. 測定期間：5～9月。\*6. 測定期間：5月初旬欠測。AOT40(Accumulated exposure Over a Threshold of 40ppb)は40ppbを超えたオゾン濃度を6時から18時まで積算した。

八海山においては、中央値でも40ppbを超える年が多く、AOT40も20ppm・hに近くなることもあった。また、英彦山も近い濃度レベルであり、AOT40は15ppm・hを超えることが多かった。これらの地点の代表的樹種であるブナは比較的オゾンに対する感受性が高く、これまでの苗木を用いた2年程度の曝露実験データに基づく、一成長期(6ヶ月)における成長量を10%低下させるAOT40は、8～15ppm・hと報告されており[2]、この5年間で観測されたオゾン濃度は、その上端レベルをすでに超えつつある。オゾン曝露による樹木の成長量低下を、野外観測で検出することは困難であるが、現状のオゾン濃度レベルは、樹木の成長量低下を引き起こすリスクはあり、今後も引き続き観測を続けていく必要があると考えられる。

#### (4) 樹木の現地観察の状況

オゾン曝露により葉脈間に特異的に生じる斑紋(可視障害)の野外観察は、欧州では標準的に行われているが、我が国でのフィールド観察の実例はほとんどない。本パイロット・モニタリングにおいても、

同様の観察手法を近年導入してきたが、いずれの地点でもオゾンによる可視障害と思われる症状は確認されていない。八海山では、2012年にオゾン可視障害によると思われるブナ葉が確認されたが、その後は同じような症状を示すブナ葉は見つかっていない。

摩周湖外輪山ではダケカンバの、英彦山ではブナの立ち枯れが報告されているが、オゾンとの関係は明確ではない。一方で、摩周湖外輪山では、ダケカンバの苗木を用いた現地曝露実験ではオゾンによる樹木の水分・養分生理への影響や、霧水によるN負荷の増大など、大気汚染が樹木生理に影響を与える可能性が指摘されている[3]。オゾン濃度がより高い八海山や英彦山も含め、今後も引き続き現地での観察を行うことが重要である。

## (5) パイロット・モニタリングの成果

- これまで明らかになっていなかった森林・山岳地域の植物成長時期におけるオゾン濃度の調査により、八海山や英彦山での現状のオゾン濃度は、樹木の成長量低下を引き起こす可能性があるレベルであることが示唆された。
- 山岳地域においては、都市部と比べて日内変動があまり大きくないことから、一旦高濃度になった場合には、その曝露時間や曝露量が大きくなることによって、植物への影響がより顕著になることが懸念される。
- 八海山（新潟県）や英彦山（福岡県）<sup>ひこきん</sup>では、現時点において、オゾンによる樹木への影響は確認されていない。一方で、樹木成長への影響指標である「40 ppb を超えたオゾン濃度の積算値 (AOT40<sup>1</sup>)」をみると、これまでの苗木を用いた2年程度の曝露実験データに基づくと、一成長期（6ヶ月）におけるブナの成長量を10%低下させるとの報告があるレベル（8~15ppm・h）にあった。
- 今後も、これらの地域において、オゾン濃度のモニタリングや樹木の状況について観測していくことは必要である。

### 【引用文献】

- [1] 環境省 2013. 越境大気汚染・酸性雨長期モニタリング報告書(平成19~24年度)
- [2] Watanabe et al. 2017. Effects of ozone on Japanese trees, *In*: T. Izuta (ed.), Air Pollution Impacts on Plants in East Asia, Springer Japan, pp. 73-100.
- [3] Yamaguchi et al. 2017. Tree decline at the somma of Lake Mashu in Northern Japan. *In*: T. Izuta (ed.), Air Pollution Impacts on Plants in East Asia, Springer Japan, pp. 135-150.

<sup>1</sup> AOT40 (Accumulated exposure Over a Threshold of 40ppb) は40 ppb を超えたオゾン濃度の積算値。ここでは5~10月の樹木成長期に合わせて6時から18時まで積算した。

