

越境大気汚染・酸性雨
長期モニタリング報告書
(平成25～29年度)
(案)

平成 3 1 年 月

環 境 省

はじめに

酸性雨については、1960 年代に欧米において湖沼の酸性化及び森林被害が国際問題となり、1970 年代には我が国においても湿性大気汚染が問題となりました。このため、環境省（庁）では、我が国における酸性沈着の状況やその影響を把握し、悪影響の未然防止を目的として、昭和 58 年度に酸性雨対策調査を開始しました。さらに、広域的かつ長期的な酸性雨モニタリングを継続的に実施するため、平成 14 年 3 月に「酸性雨長期モニタリング計画」を策定し、平成 15 年度から同計画に基づき、湿性・乾性沈着モニタリング、陸水モニタリング及び土壌・植生モニタリングを地方公共団体の協力を得て実施しています。また、同計画は越境大気汚染問題への関心の高まりを受け、酸性沈着のみならずオゾンやエアロゾルも対象に越境大気汚染を監視することを明確にするとの観点から、平成 21 年 3 月に内容を一部改定するとともに、名称を「越境大気汚染・酸性雨長期モニタリング計画」と改めました。

本報告書は、平成 25 年度から 29 年度に実施した越境大気汚染・酸性雨長期モニタリングの結果を中心にまとめたものです。取りまとめに当たっては、環境省に設置した越境大気汚染・酸性雨対策検討会並びに一般財団法人日本環境衛生センターアジア大気汚染研究センターに設置した 2 つのワーキンググループ（大気モニタリングデータ総合解析、オゾン・酸性沈着の生態系影響評価）において解析、評価、検討を行ってきました。

この場を借りて、本モニタリングの実施及び取りまとめにご協力いただいた関係各位に深く感謝の意を表します。

平成 31 年 月

環境省水・大気環境局

越境大気汚染・酸性雨長期モニタリング報告書（平成25～29年度）

目 次

報告書の概要

1. 越境大気汚染・酸性雨長期モニタリングの経緯	1
2. 調査の目的及び内容	5
2.1 目的	5
2.2 調査内容	5
2.2.1 湿性沈着モニタリング	5
2.2.2 大気汚染物質モニタリング（乾性沈着モニタリングを含む）	7
2.2.3 土壌・植生モニタリング	9
2.2.4 陸水モニタリング	12
2.2.5 集水域モニタリング	12
2.2.6 オゾンによる植物影響モニタリング	13
2.2.7 データの確定と精度保証・精度管理	14
3. モニタリングの結果	17
3.1 大気モニタリング	17
3.1.1 湿性沈着（降水）	17
(1) 湿性沈着の年平均値の傾向	17
(2) 湿性沈着の季節変動	37
(3) 湿性沈着の長期的傾向	43
(4) 湿性沈着モニタリングの成果	45
3.1.2 大気汚染物質（ガス、エアロゾル）	46
(1) 大気汚染物質濃度の季節変動	47
(2) 大気汚染物質濃度の地域的及び長期的傾向	55
(3) 大気汚染物質モニタリングにおける評価基準値	62
(4) ガス、エアロゾル濃度傾向のまとめ	64
3.1.3 越境大気汚染・酸性沈着に関する考察	66
(1) 総沈着量（湿性＋乾性）の算出結果	66
(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	69
(3) 日本の降水酸性度の海外との比較	71
3.2 生態影響モニタリング	78
3.2.1 土壌・植生モニタリング	78
(1) 平成25～29年度における土壌モニタリング結果	78
(2) 平成25～29年度における植生モニタリング結果	89
(3) 土壌・植生モニタリングの成果	95
3.2.2 陸水モニタリング	96
(1) 平成25～29年度における陸水モニタリング結果	96
(2) 陸水の長期的傾向	97

(3) 陸水モニタリングの成果	102
3.2.3 集水域モニタリング	106
(1) 流入・流出収支	106
(2) 伊自良湖集水域の酸性化・窒素飽和からの回復	109
(3) 河川中のSの起源	111
(4) 集水域モニタリングの成果	114
3.2.4 オゾンによる植物影響の可能性	116
(1) オゾン濃度の日内変動	116
(2) 植物成長期におけるオゾン濃度の季節性	117
(3) オゾン濃度の概況と影響指標	118
(4) 樹木の現地観察の状況	119
(5) パイロット・モニタリングの成果	120
4. 同位体比分析手法を用いた大気汚染物質の生態系内での挙動・動態解析	121
4.1 要監視地域における重点モニタリングの概要	121
4.1.1 はじめに	121
4.1.2 モニタリング地点	121
4.1.3 モニタリング項目	121
4.2 生態系に流入する物質の起源に関する解析	123
4.2.1 同位体比データに基づく越境大気汚染の評価	123
4.2.2 後方流跡線解析との協働	127
4.2.3 同位体比に基づく発生源寄与率の推計	129
4.2.4 まとめ	131
4.3 森林集水域における大気由来物質の動態に関する解析	132
4.3.1 生態系内でのSの動態	132
4.3.2 生態系内でのストロンチウムや塩基の動態	133
4.3.3 生態系内での水の循環過程	135
4.3.4 まとめ	136
4.4 同位体比分析手法の今後のモニタリングへの活用について	137
5. オゾン及び粒子状物質に係る解析	141
5.1 オゾン及び粒子状物質の長期的傾向及びトレンド解析	141
5.1.1 オゾン	141
5.1.2 PM ₁₀ 及びPM _{2.5}	150
5.2 大気モデルを用いた我が国への越境大気汚染現象の解析	153
5.2.1 オゾンのソース・レセプター解析	153
5.2.2 PM _{2.5} のソース・レセプター解析	154
5.2.3 酸性物質の大気モデル解析	154
5.2.4 PM _{2.5} のシミュレーションモデルの再現性及び精緻化に関する研究	154
5.2.5 アジア域排出インベントリシステムの開発、排出量変化分析	158

5.2.6 日本の大気汚染物質排出インベントリ（NEI）、MICS-Asia Phase III 排出インベントリの整備	160
5.3 オゾン、粒子状物質の長期的傾向、トレンド解析のまとめ	162
6. 越境大気汚染・酸性雨研究に関する国内外の主な取組	165
6.1 国内における取組	165
6.1.1 環境省環境研究総合推進費戦略的研究開発領域S-7、S-12 による研究活動	165
6.1.2 全国環境研協議会による酸性雨広域大気汚染全国調査	167
6.2 国際的な取組	168
6.2.1 東アジア酸性雨モニタリングネットワーク(EANET)の活動	168
(1) 東アジアにおける酸性雨の状況に関する第3次定期報告書(PRSAD3)の作成	168
(2) 東アジアにおける長距離輸送モデルの比較研究プロジェクト（MICS-Asia）	169
6.2.2 欧米における大気モニタリングネットワークの活動	171
(1) 欧州における活動	171
(2) 北米における活動	172
6.2.3 大気汚染半球輸送タスクフォースの活動	173
6.2.4 世界気象機関全球大気監視計画の活動	174
7. 越境大気汚染・酸性雨対策に関する今後の課題	177
7.1 国内における取組の推進	178
7.1.1 長期モニタリングの実施	178
(1) モニタリングの継続的な実施	178
(2) 越境大気汚染・酸性雨長期モニタリング計画の改訂	178
7.1.2 調査研究の推進	179
(1) 大気シミュレーションモデルの精緻化及び排出インベントリの高精度化	179
(2) 酸性化の要監視地域における生態影響の実態解明	180
(3) オゾン及び粒子状物質による植物影響評価に係る取組の推進	180
(4) 気候変動の緩和を考慮した大気汚染対策のための研究の推進	181
(5) 二酸化窒素濃度の測定法の適正化に関する検討	181
7.2 国際的な取組の推進	181
参考資料	
1. モニタリング地点の情報	
2. モニタリング結果の参考データ	
3. 東アジア酸性雨モニタリングネットワーク（EANET）について	
略語等一覧	

1 越境大気汚染・酸性雨長期モニタリングの経緯

昭和 40 年代末から 50 年代初めに湿性大気汚染として初めて認知された我が国の酸性雨問題は、東アジア地域の急速な経済発展に伴い多量の大気汚染物質がアジア大陸の風下に位置する我が国へ輸送されることへの懸念から、国際的な問題へと変化してきた。

環境省(庁)は、酸性雨が欧米において湖沼や森林等の生態系に深刻な影響を与えていることを踏まえ、我が国における酸性雨の実態を把握するため、昭和 58 年度(1983 年度)に第 1 次酸性雨対策調査を開始し、大気、土壌・植生、陸水の各分野で酸性雨モニタリングを実施した。2002 年度までの計 20 年間の調査結果を 2004 年 6 月に「酸性雨対策調査総合とりまとめ報告書」として取りまとめ、全国的に欧米並の酸性雨が観測されること、日本海側の地域では大陸に由来した汚染物質の流入が示唆されること、伊自良湖への流入河川や周辺土壌において酸性雨の影響が疑われる理化学性の変化が認められることなどを明らかにしてきた。また、2003 年度からは、広域的かつ長期的な酸性雨モニタリングを継続的に実施していくため、「酸性雨長期モニタリング計画」を策定し、これに基づくモニタリングを実施してきた。この結果は「酸性雨長期モニタリング報告書(平成 15～19 年度)」として取りまとめられ、伊自良湖集水域における酸性化プロセスの解明とともに、オゾンや粒子状物質等を統合した越境大気汚染モニタリングの必要性等が指摘された。

一方、東アジア地域においては、国際協調に基づく酸性雨対策を推進していくため、我が国が主導した「東アジア酸性雨モニタリングネットワーク(EANET)」が 2001 年 1 月に本格稼働を開始した(現在、13 カ国が参加)。EANET では、現在、東アジア地域の 100 を超える地点において統一された手法により湿性沈着、乾性沈着、土壌・植生、陸水及び集水域のモニタリングが参加各国によって継続的に実施されている。モニタリングの精度管理やデータ集計は我が国に設置されたネットワークセンターが担い、データレポート及び分析機関間の精度比較調査報告書が毎年刊行されている。また、5 年間隔で「東アジア地域における酸性雨の状況に関する報告書」(PRSAD)が刊行されている。EANET では、酸性沈着とその影響を対象としたモニタリングが進められているが、酸性沈着のみならず広く大気汚染問題を対象に加える可能性についても議論が重ねられている。

このような国内外における越境大気汚染問題への関心の高まりを受け、我が国では酸性沈着のみならず、オゾンや粒子状物質も対象に越境大気汚染を監視することを明確にする観点から、2009 年 3 月に「越境大気汚染・酸性雨長期モニタリング計画」を策定し、2009 年度からそれに基づくモニタリングが実施

されている。同計画は、酸性雨原因物質やオゾン等の大気汚染物質の長距離越境輸送や長期トレンド等を把握し、また、越境大気汚染や酸性沈着の影響の早期把握や将来の影響を予測することを目的として、EANET と密接に連携しつつ、大気及び生態影響モニタリングを長期間実施するものである。2008～2012 年度に実施された同調査の報告書(2014 年 3 月)においては、我が国の降水酸性度は依然として高い傾向にあり、ガス状や粒子状物質濃度の地域差や季節変動からも依然として大陸からの越境汚染の影響が示唆されている。また、一部の地点では土壌や河川水の pH 低下などの大気沈着との関連性が示唆される経年変化も観測され、オゾンによる植物影響の要監視地域も抽出された。

1983 年度から 2017 年度までの調査地点数の推移は、表 1-1 に示したとおりである。

本報告書は、2013～2017 年度に実施したモニタリングの結果を中心に取りまとめたものである。

表 1-1 調査地点数の推移

	第 1 次 調査	第 2 次 調査	第 3 次 調査	第 4 次 調査	—	長期モニタリング		
年度	1983～ 87 年度	1988～ 92 年度	1993～ 97 年度	1998～ 00 年度	2001～ 02 年度	2003～ 07 年度	2008～ 12 年度	2013～ 17 年度
大気	14～34 地点	29 地点	48 地点	55 地点	48 地点	31 地点	27 地点	27 地点
土壌・ 植生	12 地点	43 地点	88 地点	20 地点	18 地点	25 地点	25 地点	25 地点
陸水	133 地 点 (スクリーニング調 査)	5 地点	33 地点	17 地点	12 地点	11 地点	11 地点	11 地点
集水域						1 地点	1 地点	1 地点
その他		酸性雪 2 地域						

酸性雨と測定物質との関係

工場や自動車から排出された二酸化硫黄(SO_2)、窒素酸化物(NO_x)等のガス状の汚染物質は、光化学反応によって大気中に生成された水酸化ラジカル(OH)等の酸化性物質により、硫酸や硝酸という強酸に変換される。また、硫酸粒子として人為発生源から直接排出される酸も存在する。一方、大気中にはアンモニアガスや炭酸カルシウム粒子などの塩基性物質も存在し、これらの物質は大気中あるいは降水中で硫酸や硝酸の一部を中和する。大気中での中和過程では、弱酸性のアンモニウム塩や中性のカルシウム塩が生成され、大気中の粒子状物質濃度の上昇に寄与する。

大気中の汚染物質の地上への沈着には乾性沈着と湿性沈着の 2 つの過程がある。ガスや粒子状物質が雨や雪などに取り込まれ地上に沈着する過程が湿性沈着であり、降水の酸性度は溶け込んだ酸と塩基のバランスによってきまり、湿性沈着量は降水中の成分濃度と降水量の積によって求められる。一方、ガスや粒子状物質が風で輸送され、そのまま森林表面等に沈着する過程が乾性沈着であり、その沈着量は大気中のガスや粒子状物質の濃度と風速や温湿度等の気象データから推計することが出来る。

「酸性雨」という環境問題は、湿性沈着及び乾性沈着を併せたものとして捉えられており、土壌の酸性化による森林衰退、湖沼の酸性化による陸水生態系の被害、銅像等の文化財や建造物の損傷等については、降水酸性度、ガス状や粒子状の酸性物質濃度に加え、それら湿性及び乾性沈着量で評価することが重要である。

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

このように、「酸性雨」は様々な物質が関わる総合的な大気汚染として捉えることができ、降水中のイオン成分だけではなく、大気中の二酸化硫黄、窒素酸化物、オゾン、アンモニア等のガス状物質及びそれらから大気中で二次的に生成する $\text{PM}_{2.5}$ に代表されるような粒子状物質等を観測することで、相互の関係から大気汚染の状況をよりの確に把握することが可能となる。

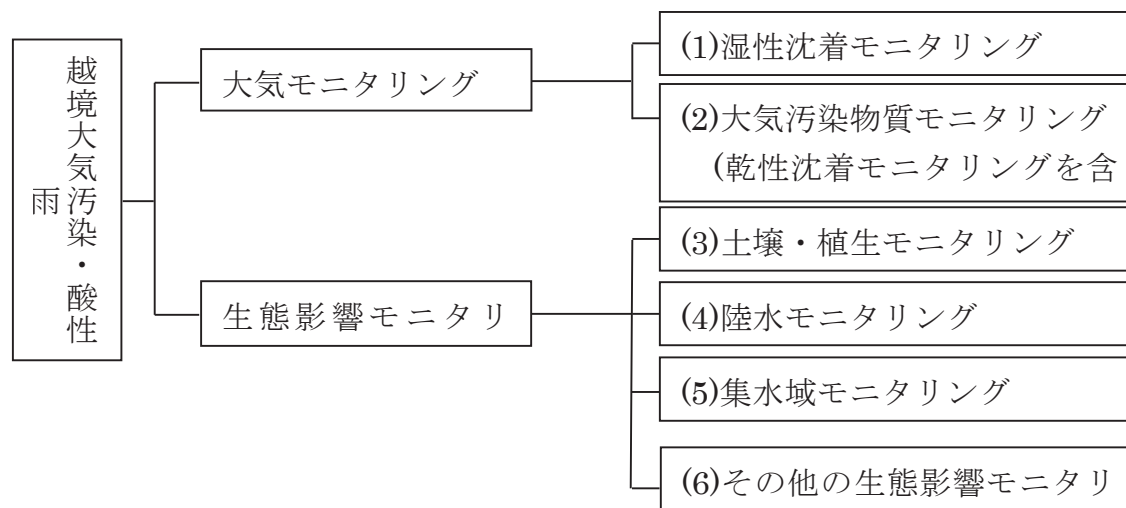
2 調査の目的及び内容

2.1 目的

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

2.2 調査内容

環境省では、越境大気汚染・酸性雨長期モニタリング計画(平成 21 年(2009 年)3 月)及び 2014 年 3 月に改訂された同計画に基づき、2013～2017 年度において、酸性沈着の状況を把握するため湿性沈着モニタリング及び大気汚染物質モニタリングを、また、酸性沈着による生態系への影響を把握するため土壌・植生モニタリング、陸水モニタリング及び集水域モニタリングをそれぞれ実施した。また、その他の生態影響モニタリングとして、オゾンによる植物影響モニタリング及び要監視地域における重点モニタリングを実施した。なお、要監視地域における重点モニタリングについては方法も含めて、4 章に詳述した。



2.2.1 湿性沈着モニタリング

湿性沈着モニタリングは、気候区分や測定局の特性、地域的なバランス等を考慮し、モニタリングを効果的・効率的に実施できるよう、大気モニタリング地点として選定された 27 地点(うち 3 地点は 2013 年度末で測定を休止)のうち、五島を除く 26 地点において実施された。なお、測定地点は、「Technical Manual for Wet Deposition Monitoring in East Asia -2010」[1]に従い、遠隔地域、田

園地域及び都市地域モニタリング地点に分類される(図 2-1 参照)。また、27 地点を地域別に分析する際には、年降水量や降水量の季節変化などを参考に、図 2-1 のとおり、北海道、本州中北部日本海側、太平洋側、瀬戸内海沿岸、山陰、東シナ海沿岸及び南西諸島に区分した。

降水試料(降雪を含む。以下同じ。)の捕集には降水時開放型捕集装置(降水時のみ蓋が開き、降水を捕集する装置)を使用し、試料は、「湿性沈着モニタリング手引き書(第 2 版(平成 13 年 3 月))」[2]に従って、水素イオン指数(pH)¹、電気伝導率(EC)、イオン濃度(硫酸イオン(SO_4^{2-})、硝酸イオン(NO_3^-)、塩化物イオン(Cl^-)、アンモニウムイオン(NH_4^+)、カルシウムイオン(Ca^{2+})、カリウムイオン(K^+)、マグネシウムイオン(Mg^{2+})、ナトリウムイオン(Na^+))の 10 項目について測定・分析を実施した。また、気象項目として降水量、風向及び風速等を測定した。

¹ 水素イオン(H^+)濃度の逆数の常用対数が水素イオン指数(pH)

- : 都市地域測定所 (Urban sites) 5 カ所
 ● : 田園地域測定所 (Rural sites) 7 カ所
 ▲ : 遠隔地域測定所 (Remote sites) 15 カ所

サイト名: EANET 局

Map of Japan showing EANET monitoring sites. The map is divided into several regions: 北海道 (Hokkaido), 本州中北部日本海側 (Central-Northern Honshu, Sea of Japan side), 山陰 (San'in), 東シナ海沿岸 (East China Sea coast), 太平洋側 (Pacific side), 瀬戸内海沿岸 (Seto Inland Sea coast), and 南西諸島 (Southwestern Islands). Major cities and locations marked include: 札幌 (Sapporo), 仙台 (Sendai), 青森 (Aomori), 弘前 (Hirogaki), 八幡平 (Hachihappi), 磐岳 (Iwagake), 新潟 (Niigata), 佐渡 (Sado), 越前 (Echigo), 富山 (Toyama), 石川 (Ishikawa), 福井 (Fukui), 山梨 (Yamanashi), 長野 (Nagano), 岐阜 (Gifu), 愛知 (Aichi), 三重 (Mie), 滋賀 (Shiga), 京都 (Kyoto), 大阪 (Osaka), 奈良 (Nara), 和歌山 (Wakayama), 徳島 (Tokushima), 高松 (Takamatsu), 香川 (Kagawa), 愛媛 (Ehime), 高知 (Kochi), 福岡 (Fukuoka), 佐賀 (Saga), 熊本 (Kumamoto), 大分 (Oita), 宮崎 (Miyazaki), 鹿児島 (Kagoshima), 沖縄 (Okinawa). Specific sites marked include: 利尻 (Rishiri), 落石 (Rakusui), 竜飛 (Ryufei), 八幡平 (Hachihappi), 磐岳 (Iwagake), 新潟 (Niigata), 佐渡 (Sado), 越前 (Echigo), 富山 (Toyama), 石川 (Ishikawa), 福井 (Fukui), 山梨 (Yamanashi), 長野 (Nagano), 岐阜 (Gifu), 愛知 (Aichi), 三重 (Mie), 滋賀 (Shiga), 京都 (Kyoto), 大阪 (Osaka), 奈良 (Nara), 和歌山 (Wakayama), 徳島 (Tokushima), 高松 (Takamatsu), 香川 (Kagawa), 愛媛 (Ehime), 高知 (Kochi), 福岡 (Fukuoka), 佐賀 (Saga), 熊本 (Kumamoto), 大分 (Oita), 宮崎 (Miyazaki), 鹿児島 (Kagoshima), 沖縄 (Okinawa).

八幡平、京都八幡、及び潮岬は2013年度末に測定を休止。

大気汚染物質モニタリングは、気候区分や測定局の特性、地域的なバランス等を考慮し、モニタリングを効果的・効率的に実施できるよう、大気モニタリング地点として選定された 27 地点(うち 3 地点は 2013 年度末で測定を休止)のうち、八幡平、潮岬を除く 25 地点において実施された。なお、大気汚染物質濃度から乾性沈着量の推計は、EANET マニュアル[3]に従った。各地点ごとの測定項目を表 2-1 に示す。

6

NO_x*)²、オゾン(O₃)³、粒径 10 μm 以下の粒子状物質(PM₁₀)⁴及び微小粒子状物質(PM_{2.5})⁵も測定した。なお、PM_{2.5}の測定は環境省が標準測定法と等価性を有すると評価した機種[4][5]によって実施された。EANET 局では、フィルターパック法⁶により、大気を 2 週間吸引した試料を分析し、二酸化硫黄(SO₂)、硝酸(HNO₃)、塩化水素(HCl)、アンモニア(NH₃)、粒子成分濃度(SO₄²⁻、NO₃⁻、Cl⁻、NH₄⁺、Ca²⁺、K⁺、Mg²⁺及び Na⁺)を測定した。自動測定機による測定は「環境大気常時監視マニュアル(第 6 版(平成 22 年 3 月))[6]」、フィルターパック法による測定は EANET の「Technical Manual for Air Concentration Monitoring Manual」[7]に従って実施した。また、乾性沈着量の推定に必要な気象要素(風向風速、降水量、温湿度及び日射量)も測定した。

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

² 一般的に、NO_xは NO と NO₂の和として評価されている。しかし、モリブデン変換器付き化学発光法を用いた測定法では、NO_xには NO 及び NO₂以外の硝酸、亜硝酸及びペルオキシアセチルナイトレート等の有機窒素化合物も測定される。遠隔地域及び田園地域ではこのアーティファクトの影響が無視できないことから、これらの地域の NO_xデータは「NO_x※」と表記する。一方、都市地域では NO_xの主要成分は NO 及び NO₂と考えられるため、「NO_x」と表記する。

³ オゾン計の校正方法については、従来はヨウ化カリウムを用いた吸収法等が用いられていたが、2010 年度から国際的なトレーサビリティが保証された基準器による方法に順次切り替え、2011 年度には完全移行している。

⁴ 一般的には「大気中に浮遊している粒径 10 μm 以下の粒子」のことをさす。実際には、「粒径(空気力学径)10 μm の粒子に対する捕集効率が 50%の分粒装置を用いて捕集した粒子状物質」として測定されている。

⁵ 一般的には「大気中に浮遊している粒径 2.5 μm 以下の粒子」のことをさす。実際には、「粒径(空気力学径)2.5 μm の粒子に対する捕集効率が 50%の分粒装置を用いて捕集した粒子状物質」として測定されている。

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

表 2-1 大気モニタリング地点ごとの測定項目一覧

	測定所名	都道府	分類	湿性沈	分析単	NO _x	SO	O ₃	PM ₁₀	PM _{2.5}	フィルターパッ	風向風	雨量	温湿度	日射量	EANET 局
1	利 尻	北海道	遠隔	○	日 毎	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
2	札 幌		都市	○	週 毎			○				○	○	○	○	
3	おちいし 落石岬*1		遠隔	○	日 毎	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
4	たっぴ 竜飛岬	青森県	遠隔	○	日 毎	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
5	はちまんたい 八幡平*2	岩手県	田園	○	週 毎							○	○			
6	のの だけ 簗 岳	宮城県	田園	○	週 毎			○				○	○	○	○	
7	赤 城	群馬県	田園	○	週 毎			○				○	○			
8	小笠原	東京都	遠隔	○	日 毎	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
9	東 京		都市	○	日 毎						○		○			○
10	佐渡関岬	新潟県	遠隔	○	日 毎	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
11	まき 新潟葵		田園	○	日 毎	○	○	○				○	○	○	○	
12	越前岬	福井県	遠隔	○	日 毎			○				○	○			
13	はっぼう 八方屋根	長野県	遠隔	○	日 毎	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
14	い じ ら 伊自良湖	岐阜県	田園	○	週 毎	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
15	やわた 京都八幡*2	京都府	都市	○	週 毎			○				○	○	○	○	
16	尼 崎	兵庫県	都市	○	週 毎			○				○	○	○	○	
17	しおの みさき 潮 岬*2	和歌山	遠隔	○	週 毎							○	○			
18	お き 隠 岐	島根県	遠隔	○	日 毎	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
19	ばんりゅう 蜷 竜 湖		都市	○	週 毎	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
20	ゆす はら 櫛 原	高知県	遠隔	○	日 毎	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
21	ちくごおり 筑後小郡	福岡県	田園	○	週 毎			○				○	○	○	○	
22	対 馬	長崎県	遠隔	○	日 毎			○	○	○		○	○			
23	五 島		遠隔					○				○	○			
24	くじゅう 大分久住	大分県	田園	○	週 毎			○				○	○			
25	えびの	宮崎県	遠隔	○	日 毎		○	○				○	○	○		
26	屋久島	鹿児島	遠隔	○	週 毎		○	○				○	○			
27	へど 辺戸岬	沖縄県	遠隔	○	日 毎	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○

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

*2 八幡平、京都八幡、及び潮岬は 2013 年度末に測定を休止。

2.2.3 土壌・植生モニタリング

土壌・植生モニタリングは、外部負荷の影響を受けやすいと考えられる山岳地域の天然林を中心に選定された「主に樹木への影響に着目した地点」、酸性沈着に対する感受性の高い土壌を中心に選定された「主に土壌への影響に着目した地点」、陸水への影響をみる上で重要となる「陸水への影響に着目した地点」の計 19 地域 25 地点(地点一覧は表 2-2、地点分布は図 2-2 参照)において、「土壌・植生モニタリング手引書(平成 15 年 3 月)[8]及び「Technical Manual for Soil and Vegetation Monitoring」[9]に基づき、以下のとおり実施した。なお、「主に土壌への影響に着目した地点」においては、酸に対する感受性が異なる 2 種類の土壌を選定し、それぞれモニタリング地点を設定した(表 2-2 における 14-19)。

①森林モニタリング

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

②土壌モニタリング

図 2-2 に示した土壌階層モニタリングの設計に従い、各地点(土壌に着目した地点の場合は土壌種)において 2 つのプロット(表 2-2 参照)を設定し、そのプロット内に設定した 5 つのサブプロットにおいて、表層(0~10 cm)及び次層(10~20 cm)の土壌を採取し、以下の項目を分析した。また、水分含量以外の必須項目については、表層及び次層、それぞれについて 2 回繰り返し分析を行った。なお、頻度は 5 年に 1 回である。

必須項目：水分含量、pH(H₂O)、pH(KCl)⁷、交換性塩基(Ca、Mg、Na、K)⁸、交換性 Al 及び H、交換酸度⁹、有効陽イオン交換容量(ECEC)¹⁰、炭酸塩含有量(石灰岩土壌のみ)

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

⁷ 土壌の水(H₂O)もしくは 1M KCl による抽出液の pH。

⁸ 土壌表面に吸着している各種のイオン濃度。

⁹ 土壌の 1MKCl による抽出液をアルカリで滴定して得られる酸度(本調査の測定方法においては交換性 Al と交換性 H の和に等しい)。

¹⁰ 交換性陽イオン(Ca, Mg, Na, K, Al, H)の和として算出。

表 2-2 土壌・植生モニタリング地点一覧

*1	地点名(所在道府県)	区分	直近の調査 実施年度*2	選定の際考慮した 樹種*3、土壌種*3、 集水域	調査プロット数		
					林分 の数	土壌 プロット数	植生 プロット数
1	知床国立公園(北海道)	樹木	2015年度	アカトドマツ	1	2	1
2	支笏洞爺国立公園 (北海道)	樹木	2013年度	ダケカンバ	1	2	1
3	十和田八幡平国立公園 (岩手県)	樹木	2014年度	オオシラビソ	1	2	1
4	磐梯朝日国立公園三面 山(新潟県)	樹木	2017年度	ブナ	1	2	1
5	日光国立公園(栃木県)	樹木	2013年度	ブナ	1	2	1
6	中部山岳国立公園 (富山県)	樹木	2015年度	ブナ	1	2	1
7	白山国立公園(石川県)	樹木	2016年度	ブナ	1	2	1
8	吉野熊野国立公園 (奈良県)	樹木	2014年度	ブナ	1	2	1
9	大山隠岐国立公園 (鳥取県)	樹木	2013年度	ブナ	1	2	1
10	石鎚国定公園(高知県)	樹木	2014年度	ブナ	1	2	1
11	阿蘇くじゅう国立公園 (大分県)	樹木	2015年度	ブナ	1	2	1
12	屋久島国立公園(鹿児 島県)	樹木	2014年度	スギ	1	2	1
13		樹木	2014年度	照葉樹林	1	2	1
14	せきどうさん・ほうりゅうざん 石動山・宝立山 (石川県)	土壌	2015年度	赤色土(宝立山)	1	2	1
				褐色森林土(石動山)	1	2	1
15	ほうどうじ・あまのさん 法道寺・天野山 (大阪府)	土壌	2014年度	黄色土(法道寺)	1	2	1
				黄色系褐色森林土 (天野山)	1	2	1
16	しもふりだけ・とくさがみね 霜降岳・十種ヶ峰 (山口県)	土壌	2013年度	黄色土(霜降岳)	1	2	1
				黒色土(十種が峰)	1	2	1
17	かしいぐう・こしよさん 香椎宮・古処山 (福岡県)	土壌	2017年度	赤色系褐色森林土 (香椎宮)	1	2	1
				褐色森林土(古処山)	1	2	1
18	いじらこ 伊自良湖周辺(岐阜県)	陸水	2016年度	褐色森林土(伊自良)	1	2	1

	(伊自良・大和)*4	土壌		黒色土(大和)	1	2	1
19	<small>ばんりゅうこ</small> 蟠竜湖周辺(島根県) <small>いわみりんくう</small> (蟠竜湖・石見臨空フア クトリーパーク(FP))*4	陸水 土壌	2016年度	褐色森林土(蟠竜湖)	1	2	1
				赤色土(石見臨空 FP)	1	2	1

*1 地点 No.14(石動山・宝立山)～19(蟠竜湖周辺)の6箇所については2つの土壌種でそれぞれモニタリング地点を設定したため、全体の調査地点数は25地点となる。

*2 森林総合調査及び土壌モニタリング実施年度。

*3 樹種は環境省植物目録、土壌種は林野土壌分類にそれぞれ準拠した。

*4 EANET モニタリング地点。

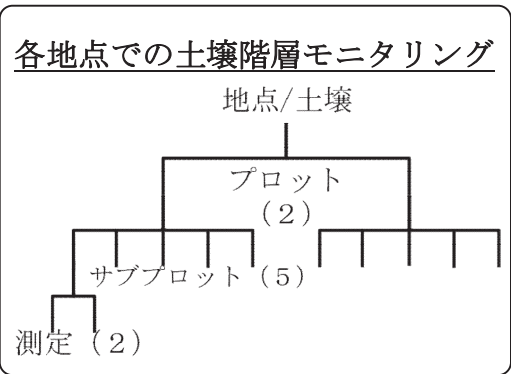
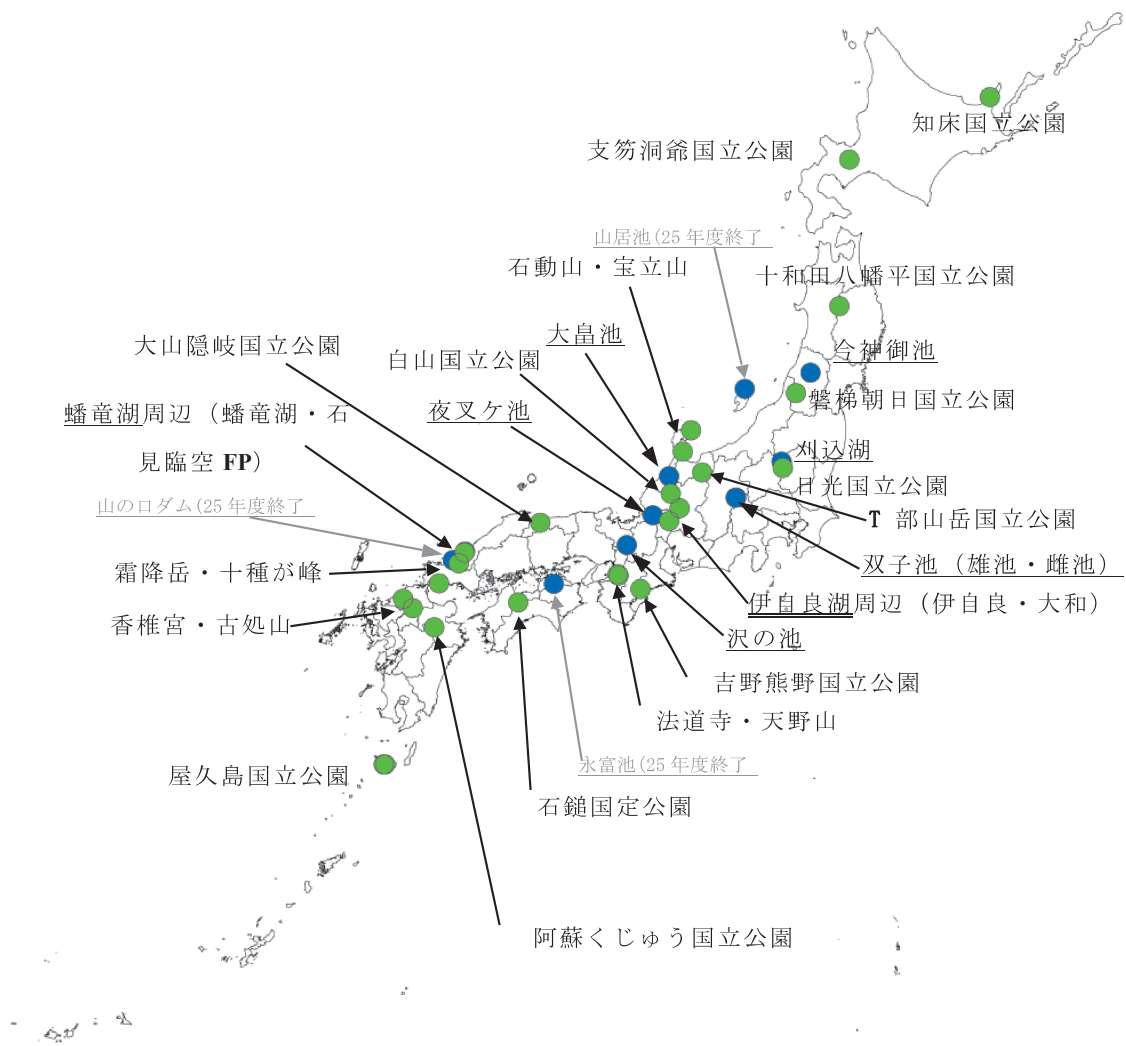


図 2-2 土壌・植生及び陸水モニタリング地点

陸水モニタリング地点は下線で示した。山居池、永富池、山のロダムのモニタリングは、2013 年度で終了した。二重線で示した伊自良湖(岐阜県)では土壌・植生、陸水に加え集水域モニタリングが実施されている。

2.2.4 陸水モニタリング

陸水モニタリングは、酸性沈着に対する応答が敏感なこと、人為的汚染が少ないこと、及び地域的バランス等を考慮して選定した 11 地点において、「陸水モニタリング手引き書(平成 17 年 2 月)」[10]に基づき実施した(地点一覧は表 2-3、調査地点の分布は図 2-2 参照)。測定項目は以下のとおりである。

①水質調査の測定項目

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

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

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

表 2-3 陸水モニタリング対象湖沼一覧

	湖沼名	都道府県	直近の底質調査 実施年度(5 年に 1 回)
1	今神御池	山形県	2015 年度
2	刈込湖	栃木県	2016 年度
3	山居池(2013 年度終了)	新潟県	-
4	大畠池	石川県	2017 年度
5	夜叉ヶ池	福井県	2016 年度
6	双子池(雄池・雌池)	長野県	2014 年度
7	伊自良湖*1 (流入河川：釜ヶ谷川・孝洞川)	岐阜県	2015 年度
8	沢の池	京都府	2013 年度
9	蟠竜湖*1	島根県	2017 年度
10	山の口ダム(2013 年度終了)	山口県	-
11	永富池(2013 年度終了)	香川県	-

*1 EANET モニタリング地点

2.2.5 集水域モニタリング

酸性雨長期モニタリング報告書(平成 15～19 年度)[11]において酸性化が指摘された伊自良湖集水域(図 2-3 参照)において、酸性沈着による影響を継続的に監視していくため、伊自良湖流入河川(釜ヶ谷川・孝洞川)におけるモニタリングを補強し、酸性物質の流入量(湿性+乾性による総沈着量)及び流出量の物質収支から、当該集水域における酸性物質の負荷量を検討、評価した。RW1 を基点とする集水域面積(図 2-3 の太枠部分)は約 298 ha である(RW2 を基点とした場合は約 363 ha)。主な測定、評価項目は以下のとおりである。

① 流入量(総沈着量)の推定

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

湿性・乾性沈着量：伊自良湖酸性雨測定所における湿性沈着量及び大気汚染物質モニタリングデータを基に推計した乾性沈着量。

② 流出量の推定

流量：釜ヶ谷川の水位を RW1 で連続測定し、水位・流量曲線を基に流量を推計。

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

流出量：上記の流量と河川水質を基に、2 週間毎の期間流出量を推計する。



図 2-3 伊自良湖集水域モニタリング装置配置図

図中の太枠は、物質収支の評価を行った釜ヶ谷川集水域を示す。図中の RW1、RW2、RW3 は、それぞれ釜ヶ谷川の上流、流入口、孝洞川の河川サンプリング地点を示す。釜ヶ谷川流入口の「青少年の家」に設置されていた雨量計は 2011 年 4 月に伊自良湖左岸に移設。釜ヶ谷川集水域内はヒノキ(49%：樹齢 31-35 年が最多)及び広葉樹(29%)、孝洞川集水域はアカマツ(46%：樹齢 66-70 年が最多)及び広葉樹(30%)が主体の森林(2005 年森林資源構成表による、樹齢は当時のもの)。

2.2.6 オゾンによる植物影響モニタリング

高濃度オゾンや樹木衰退が報告されている、摩周湖外輪山(北海道)、八海山(新潟県)、英彦山(福岡県)の周辺地域を対象とした(図 2-4)。定期観測に向けたパイロットモニタリングとして、対象地域内で、オゾン自動測定装置が設置・稼働可能な(電源が供給されている)地点を各 1 地点設定し、樹木成長期(5-10 月を目

処)における当該地域のオゾン濃度を測定した。また、森林・山岳地域におけるオゾン濃度の実測及び周辺樹木の状況に関する情報収集を実施した。

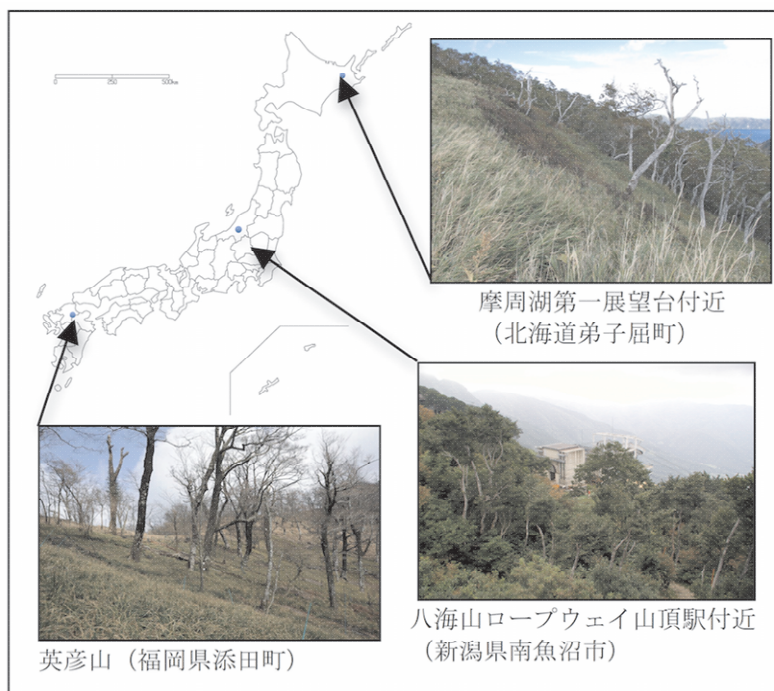


図 2-4 オゾン植物影響に関するパイロットモニタリング地点

それぞれ、森林地域に近い電源供給の可能な、摩周第一展望台、八海山展望台、福岡県立英彦山青年の家にオゾン計を設置した。地域の周辺樹木は、ダケカンバ(摩周湖外輪山)、ブナ・ミズナラ(八海山)、ブナ(英彦山)であった。

2.2.7 データの確定と精度保証・精度管理

2.2.1～2.2.6 の調査に当たっては、試料の捕集及び分析は原則として関係地方公共団体が行った。提出された結果はアジア大気汚染研究センター(ACAP)で集計し、データの検証作業が行われた。その後、専門家からなるデータ検証グループによる検証を経て、越境大気汚染・酸性雨対策検討会の下に設置した大気モニタリングデータ総合解析ワーキンググループ及びオゾン・酸性沈着の生態影響評価ワーキンググループ(2013 年度は大気分科会及び生態影響分科会)の承認を得てデータを確定した。

また、国際的な比較にも耐えうる、信頼できるデータを得るため、次の精度保証・精度管理(QA/QC)活動に係る調査を行った。

① 分析機関間比較調査

本調査は、モニタリングにおける測定分析の正確さ及び精度の確認・保証を目的として実施したものである。それぞれの測定分析担当機関に濃度を伏せた共通試料を配付し、その分析結果を集約・解析し、測定分析技能の向上を図る

契機とした。項目毎の調査に用いた試料の概要及び 2013～2017 年度の結果を表 2-4 に示す。すべての項目・年度において基準を満たした結果の割合はほぼ 90%以上であり、良好であった。

表 2-4 2013～2017 年度における分析機関間比較調査の実施状況

項目	配付試料	結果 (上段：参加機関数 下段：基準*1 を満たした結果の割合)				
		2013 年 度	2014 年 度	2015 年 度	2016 年 度	2017 年 度
湿性沈着	模擬降水試料 (100 倍濃縮)	21	18	18	18	18
		98.3%	97.2%	99.4%	98.9%	97.7%
乾性沈着 (フィルターパック法)	模擬フィルター パック試料	8	7	7	8	8
		89.6%	97.9%	97.9%	91.6%	97.9%
土壌	風乾後滅菌し た土壌試料	4	4	4	3	3
		--*2	--	--	--	--
陸水	模擬陸水試料	11	8	8	8	8
		95.9%	98.9%	100%	94.3%	98.9%

*1 結果については、設定値(模擬試料濃度の理論値)からの偏差が、EANET の精度管理目標値(DQO: Data Quality Objective、分析の正確さ：±15%)[12][13]の範囲内であることを基準として評価した。

*2 土壌の調査には実際に採取された土壌試料を用いたことから、設定値等を用いた評価を行わなかった。

② 現地調査

モニタリング精度の把握を目的として地点毎に現地調査を行い、周辺状況、試料採取・運搬状況及び、試験室での分析の状況等について確認した。また、調査に併せて、標準的モニタリング手法の実施に関する指導、助言及び担当者との情報交換を行った。2013～2017 年度における現地調査の実施状況を表 2-5 に示す。

表 2-5 2013～2017 年度における現地調査の実施地点数

	2013 年 度	2014 年 度	2015 年 度	2016 年 度	2017 年 度
大気モニタリング地点	11	7	7	8	7
土壌・植生モニタリング	4	4	4	3	5

地点					
陸水モニタリング地点	4	2	3	3	2
集水域モニタリング地点	--	--	--	--	--

--: 実施地点なし

(引用文献)

- [1] Network Center for EANET, Technical Manual for Wet Deposition Monitoring in East Asia -2010, Asia Center for Air Pollution Reserch (ACAP), 2010.
- [2] 環境省, 湿性沈着モニタリング手引き書(第 2 版), 環境省地球環境局・財団法人日本環境衛生センター酸性雨研究センター, 2001.
- [3] Network Center for EANET, Technical Manual on Dry Deposition Flux Estimation in East Asia, Asia Center for Air Pollution Reserch (ACAP), 2010.
- [4] 環境省, 平成 21 年度冬期～平成 22 年度夏期の等価性評価の結果, 環境省水・大気環境局大気環境課, 平成 22 年 10 月 15 日
- [5] 環境省, 平成 22 年度夏期～平成 22 年度冬期の等価性評価の結果, 環境省水・大気環境局大気環境課, 平成 23 年 7 月 4 日
- [6] 環境省, 環境大気常時監視マニュアル(第 6 版), 環境省水大気環境局, 2010.
- [7] Network Center for EANET, Technical Document for Air Concentration Monitoring in East Asia, Asia Center for Air Pollution Research Center (ACAP), 2013.
- [8] 環境省, 土壌・植生モニタリング手引き書, 環境省地球環境局・財団法人日本環境衛生センター酸性雨研究センター, 2003.
- [9] Network Center for EANET, Technical Manual for Soil and Vegetation Monitoring in East Asia, Acid Deposition and Oxidant Research Center (ADORC), 2000.
- [10] 環境省, 陸水モニタリング手引き書(初版), 環境省地球環境局・財団法人日本環境衛生センター酸性雨研究センター, 2005.
- [11] 環境省, 酸性雨長期モニタリング報告書(平成 15～19 年度), 環境省地球環境局, 2009.
- [12] Network Center for EANET, QA/QC Program for Wet Deposition Monitoring in East Asia, Acid Deposition and Oxidant Research Center (ADORC), 2000.
- [13] Network Center for EANET, QA/QC Program for Monitoring on Inland Aquatic Environment in East Asia, Acid Deposition and Oxidant Research Center (ADORC), 2000.

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¹¹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)で高く、大分久住(4.58)、屋久島(4.65)、越前岬(4.67)で低かった。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であることが認められた。

¹¹ 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。

② 降水量

年間降水量の範囲は 796 mm y⁻¹(2016 年度・小笠原)～5,378 mm y⁻¹(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⁻¹以上と九州以南で多く、利尻、札幌、落石岬では 1,000 mm y⁻¹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 ⁻¹)	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 ⁻¹)	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
籠岳	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	1,242	-28%	弾崎	1,735	8%	11
新潟巻	1,761	-12%	巻	1,996	18%	6
八方尾	2,600	38%	白馬	1,888	-1%	5
越前岬	2,259	-2%	越廼	2,314	10%	2
伊自良	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	2,082	-1%	朝倉	2,095	20%	13
対馬	2,093	-8%	厳原	2,277	2%	6
大分久	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。

*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¹²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

¹² 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。

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。

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⁺湿性沈着量及び nss-SO₄²⁻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。NO₃⁻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 NO₃⁻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、蟠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 NO₃⁻湿性沈着量が高い値となった。また、NH₄⁺、nss-Ca²⁺湿性沈着量では東シナ海沿岸で最も高い値を示した。NH₄⁺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-Ca²⁺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 ⁻¹)		5 年加 重平均		5 年加重平均 (μmol L ⁻¹)							
	降水量		pH		nss-SO ₄ ²⁻		NO ₃ ⁻		NH ₄ ⁺		nss-Ca ₂₊	
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	3,08 7	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($\text{mmol m}^{-2} \text{y}^{-1}$)					
	H^+	nss-SO_4^{2-}	NO_3^-	NH_4^+	nss-Ca_{2+}	
北海道	16.4	10.0	12.3	14.9	2.8	7
本州中北部日本海側	31.2	20.4	28.1	25.4	5.0	3
太平洋側	27.1	16.8	22.8	24.2	3.5	5
瀬戸内海沿岸	34.7	19.1	17.5	19.3	4.1	4
山陰	29.6	19.2	27.3	21.5	5.3	2
東シナ海沿岸	40.7	30.2	25.7	32.2	5.9	1
南西諸島	50.6	29.0	23.5	22.2	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

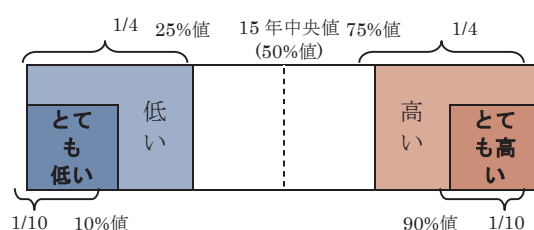


図 3-1-2 15 年間のパーセンタイル値の概念図

(50%値)を対象年度間¹³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

¹³ 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。

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 nss-SO_4^{2-} 、 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 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。 NH_4^+ 及び 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。 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。 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。 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 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	1285	1064	922	1998～2012 年
pH	4.69	4.76	4.77	4.88	4.79	4.75	2001～2012 年
濃度/ μmol L ⁻¹	nss-SO ₄ ²⁻	10.4	10.4	8.8	8.2	13.7	15.0 2001～2012 年
	NO ₃ ⁻	12.3	9.7	10.9	11.4	21.5	14.3 2001～2012 年
	NH ₄ ⁺	13.1	12.3	12.4	12.0	26.7	18.2 2001～2012 年
	nss-Ca ²⁺	2.8	2.7	1.7	2.2	4.6	3.6 2001～2012 年
沈着量 / mmol m ⁻²	H ⁺	22.5	18.7	17.8	16.8	17.4	17.3 2001～2012 年
	nss-SO ₄ ²⁻	11.4	11.3	9.2	10.6	14.6	14.9 2001～2012 年
	NO ₃ ⁻	13.4	10.5	11.4	14.7	22.9	14.8 2001～2012 年
	NH ₄ ⁺	14.3	13.4	12.9	15.4	28.4	17.6 2001～2012 年
	nss-Ca ²⁺	3.1	3.0	1.8	2.8	4.9	3.4 2001～2012 年

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、NO₃ 及び NH₄⁺ 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
pH	4.65	4.73	4.77	4.87	4.93	4.70	1998～2012 年
濃度/ μmol L ⁻¹	nss-SO ₄ ²⁻	10.9	10.0	9.6	7.5	7.8	14.3 1998～2012 年
	NO ₃ ⁻	14.3	9.3	12.4	9.8	9.8	13.4 1998～2012 年
	NH ₄ ⁺	17.4	12.5	16.3	13.1	15.4	21.9 1998～2012 年
	nss-Ca ²⁺	3.5	2.2	2.6	1.8	2.5	4.6 1998～2012 年
沈着量 / mmol m ⁻²	H ⁺	26.2	22.2	18.4	16.4	13.1	20.7 1998～2012 年
	nss-SO ₄ ²⁻	12.8	12.0	10.5	9.2	8.7	15.1 1998～2012 年
	NO ₃ ⁻	16.8	11.2	13.6	12.0	10.9	15.0 1998～2012 年
	NH ₄ ⁺	20.5	15.0	17.9	16.0	17.1	22.7 1998～2012 年
	nss-Ca ²⁺	4.2	2.6	2.9	2.2	2.8	5.2 1998～2012 年

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、年々上昇傾向にあり、2016 年度にはとても高い状態に転じている。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傾向が続いている。

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	1083	840	841	1094	854	844	2000～2012 年
pH	5.00	--	--	5.19	5.13	4.86	2001～2011 年
濃度/ μmol L ⁻¹	nss-SO ₄ ²⁻	--	--	4.5	5.1	9.5	2000～2012 年
	NO ₃ ⁻	9.2	--	5.8	6.9	9.9	2000～2012 年
	NH ₄ ⁺	10.2	--	5.1	6.6	10.8	2000～2012 年
	nss-Ca ²⁺	--	--	1.3	1.8	2.7	2000～2011 年
沈着 量/ mmol m ⁻²	H ⁺	10.8	--	7.1	6.3	11.9	2001～2011 年
	nss-SO ₄ ²⁻	--	--	4.9	4.3	8.2	2000～2012 年
	NO ₃ ⁻	10.0	--	6.3	5.9	8.3	2000～2012 年
	NH ₄ ⁺	11.0	--	5.6	5.6	9.6	2000～2012 年
	nss-Ca ²⁺	--	--	1.4	1.5	2.6	2000～2011 年

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
pH	4.71	4.72	4.84	4.79	4.79	4.68	1998～2012 年
濃度/ μmol L ⁻¹	nss-SO ₄ ²⁻	18.0	15.7	11.5	11.6	9.9	1998～2012 年
	NO ₃ ⁻	25.5	20.8	14.8	18.0	18.2	1998～2012 年
	NH ₄ ⁺	22.3	19.7	13.5	14.9	14.4	1998～2012 年
	nss-Ca ²⁺	7.2	3.8	2.8	3.5	3.0	1998～2012 年
沈着 量/ mmol m ⁻²	H ⁺	22.2	21.4	16.4	19.2	19.4	1998～2012 年
	nss-SO ₄ ²⁻	20.4	17.7	13.0	13.9	11.9	1998～2012 年
	NO ₃ ⁻	29.0	23.5	16.8	21.5	21.9	1998～2012 年
	NH ₄ ⁺	25.3	22.3	15.3	17.9	17.2	1998～2012 年
	nss-Ca ²⁺	8.2	4.3	3.2	4.2	3.6	1998～2012 年

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。

<div></div>	: 高い	<div></div>	太字 : とても高い	<div></div>	斜体 : 15 年中央値が参考データ (有効データ数が 12 未満)
<div></div>	: 低い	<div></div>	太字 : とても低い	<div></div>	-- : 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(簗岳局)
 <簗岳>

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	950	972	1235	1150	1998～2012 年
pH	4.98	5.05	4.90	4.98	5.08	4.77	1998～2012 年
濃度/ μmol L ⁻¹	nss-SO ₄ ²⁻	8.3	7.5	8.9	6.3	5.8	10.1 1998～2012 年
	NO ₃ ⁻	12.0	9.8	11.5	9.5	7.9	12.3 1998～2012 年
	NH ₄ ⁺	14.0	12.4	12.9	11.2	11.3	13.7 1998～2012 年
	nss-Ca ²⁺	2.2	1.8	1.8	1.2	1.1	2.3 1998～2012 年
沈着量 / mmol m ⁻²	H ⁺	13.7	10.5	11.9	10.3	10.2	20.1 1998～2012 年
	nss-SO ₄ ²⁻	10.9	8.8	8.4	6.1	7.2	13.1 1998～2012 年
	NO ₃ ⁻	15.7	11.4	10.9	9.3	9.8	16.0 1998～2012 年
	NH ₄ ⁺	18.3	14.5	12.3	10.9	14.0	16.8 1998～2012 年
	nss-Ca ²⁺	2.9	2.1	1.7	1.2	1.3	3.0 1998～2012 年

2014 年度以降はイオン成分濃度、湿性沈着量の多くの項目でとても低い状態が続いている。pH は 5 付近と高い状態で推移しており、nss-SO₄²⁻、NO₃ 濃度の減少による降水酸性化の緩和が示唆される。

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
pH	4.85	4.85	4.75	4.93	--	4.79	2003～2012 年
濃度/ μmol L ⁻¹	nss-SO ₄ ²⁻	8.5	9.3	10.7	5.5	--	10.3 2003～2012 年
	NO ₃ ⁻	16.1	14.5	14.0	10.4	--	18.5 2003～2012 年
	NH ₄ ⁺	16.1	17.7	16.0	12.1	--	17.5 2003～2012 年
	nss-Ca ²⁺	1.9	1.8	1.7	0.9	--	2.1 2003～2012 年
沈着量 / mmol m ⁻²	H ⁺	22.4	27.5	32.2	19.2	--	29.1 2003～2012 年
	nss-SO ₄ ²⁻	13.5	18.3	19.2	9.1	--	15.8 2003～2012 年
	NO ₃ ⁻	25.5	28.5	25.3	17.2	--	29.0 2003～2012 年
	NH ₄ ⁺	25.7	34.8	28.9	19.9	--	29.1 2003～2012 年
	nss-Ca ²⁺	3.0	3.6	3.0	1.6	--	3.6 2003～2012 年

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。NO₃ 濃度は 2013 年度以降減少傾向にあり、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
pH	5.03	4.83	4.81	4.92	4.92	4.78	2007～2012 年
濃度/ μmol L ⁻¹	nss-SO ₄ ²⁻	11.4	11.6	10.4	9.0	8.2	14.5 2007～2012 年
	NO ₃ ⁻	16.2	16.4	15.5	12.6	13.3	19.4 2007～2012 年
	NH ₄ ⁺	23.7	21.7	19.6	18.3	17.8	26.5 2007～2012 年
	nss-Ca ²⁺	3.6	3.3	3.1	2.3	2.3	3.6 2007～2012 年
沈着量 / mmol m ⁻²	H ⁺	16.6	25.9	25.5	17.9	17.0	22.8 2007～2012 年
	nss-SO ₄ ²⁻	20.1	20.1	17.2	13.4	11.7	21.0 2007～2012 年
	NO ₃ ⁻	28.7	28.3	25.5	18.8	18.8	28.9 2007～2012 年
	NH ₄ ⁺	42.0	37.5	32.2	27.3	25.2	38.8 2007～2012 年
	nss-Ca ²⁺	6.4	5.7	5.0	3.5	3.2	5.7 2007～2012 年

イオン成分濃度は期間を通じて低い状態を示している。NH₄⁺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 年度以降は減少傾向がみられている。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
pH	5.22	5.07	5.20	5.16	--	5.11	1998～2012 年
濃度/ μmol L ⁻¹	nss-SO ₄ ²⁻	5.1	4.0	--	2.9	--	4.1 1998～2012 年
	NO ₃ ⁻	3.7	3.0	2.6	4.1	--	3.4 1998～2012 年
	NH ₄ ⁺	6.1	3.8	3.4	3.7	--	4.9 1998～2012 年
	nss-Ca ²⁺	1.5	1.2	--	0.7	--	1.9 1998～2012 年
沈着 量/ mmol m ⁻²	H ⁺	8.5	12.1	12.4	5.5	--	11.6 1998～2012 年
	nss-SO ₄ ²⁻	7.1	5.7	--	2.3	--	7.5 1998～2012 年
	NO ₃ ⁻	5.3	4.3	5.1	3.3	--	5.8 1998～2012 年
	NH ₄ ⁺	8.5	5.4	6.7	3.0	--	6.9 1998～2012 年
	nss-Ca ²⁺	2.1	1.7	--	0.6	--	3.6 1998～2012 年

NO₃⁻を除き各イオン成分濃度は減少傾向にある。2016 年度は降水量がとても低かったこともあり、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

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 3-1-12 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	1636	1358	853	1006	1356	1249	2000～2012 年
pH	4.70	4.72	4.73	4.86	--	4.65	2000～2012 年
濃度/ μmol L ⁻¹	nss-SO ₄ ²⁻	13.7	14.4	12.8	10.4	16.9	2000～2012 年
	NO ₃ ⁻	20.6	18.0	19.9	17.4	20.2	2000～2012 年
	NH ₄ ⁺	19.2	17.8	16.8	16.5	18.0	2000～2012 年
	nss-Ca ²⁺	3.0	3.5	4.9	6.6	5.9	2000～2012 年
沈着 量/ mmol m ⁻²	H ⁺	32.5	25.9	15.9	13.9	26.1	2000～2012 年
	nss-SO ₄ ²⁻	22.4	19.5	10.9	10.5	19.5	2000～2012 年
	NO ₃ ⁻	33.7	24.4	17.0	17.5	23.8	2000～2012 年
	NH ₄ ⁺	31.4	24.1	14.3	16.6	20.7	2000～2012 年
	nss-Ca ²⁺	4.9	4.8	4.2	6.6	6.7	2000～2012 年

湿性沈着量では nss-Ca²⁺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	2123	1691	1421	1431	2142	1693	2000～2012 年
pH	4.65	4.67	4.65	4.73	4.80	4.60	2000～2012 年
濃度/ μmol L ⁻¹	nss-SO ₄ ²⁻	13.4	12.1	13.1	11.5	17.1	2000～2012 年
	NO ₃ ⁻	17.7	15.2	16.4	15.1	18.5	2000～2012 年
	NH ₄ ⁺	16.4	14.7	16.3	17.6	16.9	2000～2012 年
	nss-Ca ²⁺	2.2	1.8	2.2	2.0	4.4	2000～2012 年
沈着 量/ mmol m ⁻²	H ⁺	47.8	36.3	32.0	26.7	39.6	2000～2012 年
	nss-SO ₄ ²⁻	28.5	20.4	18.7	16.5	26.0	2000～2012 年
	NO ₃ ⁻	37.5	25.7	23.4	21.6	30.4	2000～2012 年
	NH ₄ ⁺	34.9	24.9	23.1	25.2	27.5	2000～2012 年
	nss-Ca ²⁺	4.7	3.1	3.1	2.8	6.1	2000～2012 年

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-SO₄²⁻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%値を上回り高い傾向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	3156	2486	1998～2012 年
pH	5.00	5.02	--	--	--	4.92	1998～2012 年
濃度/ μmol L ⁻¹	nss-SO ₄ ²⁻	8.7	8.8	--	--	9.6	1998～2012 年
	NO ₃ ⁻	8.8	10.3	--	--	8.4	1998～2012 年
	NH ₄ ⁺	9.7	9.3	--	--	10.4	1998～2012 年
	nss-Ca ²⁺	2.5	4.1	--	--	2.8	1998～2012 年
沈着 量/ mmol m ⁻²	H ⁺	26.8	23.8	--	--	30.0	1998～2012 年
	nss-SO ₄ ²⁻	23.3	21.7	--	--	21.1	1998～2012 年
	NO ₃ ⁻	23.6	25.6	--	--	20.3	1998～2012 年
	NH ₄ ⁺	26.0	23.1	--	--	22.3	1998～2012 年
	nss-Ca ²⁺	6.6	10.1	--	--	6.8	1998～2012 年

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、NO₃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	2554	2198	2091	2004	2450	2024	1998～2012 年
pH	4.60	4.64	4.68	4.71	4.76	4.57	1998～2012 年
濃度/ μmol L ⁻¹	nss-SO ₄ ²⁻	14.2	13.1	12.1	9.8	11.3	1998～2012 年
	NO ₃ ⁻	18.8	15.6	17.3	16.6	17.5	1998～2012 年
	NH ₄ ⁺	15.9	13.0	13.6	10.8	13.8	1998～2012 年
	nss-Ca ²⁺	2.3	1.8	2.5	2.0	2.6	1998～2012 年
沈着 量/ mmol m ⁻²	H ⁺	64.4	50.7	43.6	38.7	42.9	1998～2012 年
	nss-SO ₄ ²⁻	36.3	28.7	25.3	19.6	27.6	1998～2012 年
	NO ₃ ⁻	48.0	34.2	36.3	33.3	42.9	1998～2012 年
	NH ₄ ⁺	40.7	28.5	28.4	21.6	33.8	1998～2012 年
	nss-Ca ²⁺	6.0	4.0	5.2	4.0	6.4	1998～2012 年

降水酸性化に寄与した nss-SO₄²⁻及び NO₃濃度は期間を通じて低い傾向にあり、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 から年々数値は上昇傾向にある。

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
pH	4.74	4.70	4.74	4.74	4.75	4.54	2000～2012 年
濃度/ μmol L ⁻¹	nss-SO ₄ ²⁻	10.3	11.3	9.7	10.4	8.9	2000～2012 年
	NO ₃ ⁻	13.8	15.8	15.0	16.7	15.3	2000～2012 年
	NH ₄ ⁺	12.5	14.1	12.3	14.7	12.2	2000～2012 年
	nss-Ca ²⁺	1.3	1.5	1.4	1.5	1.9	2000～2012 年
沈着 量/ mmol m ⁻²	H ⁺	50.5	62.1	54.5	56.7	52.5	2000～2012 年
	nss-SO ₄ ²⁻	29.0	35.2	29.3	32.0	26.5	2000～2012 年
	NO ₃ ⁻	38.6	49.2	45.5	51.4	45.6	2000～2012 年
	NH ₄ ⁺	35.0	43.7	37.2	45.2	36.4	2000～2012 年
	nss-Ca ²⁺	3.6	4.7	4.3	4.7	5.6	2000～2012 年

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	1496	1244	1487	1349	1287	1294	1998～2012 年
pH	4.79	4.65	4.81	4.83	4.89	4.71	1998～2012 年
濃度/ μmol L ⁻¹	nss-SO ₄ ²⁻	12.1	13.0	8.7	7.9	7.2	1998～2012 年
	NO ₃ ⁻	12.3	16.1	12.6	11.9	9.8	1998～2012 年
	NH ₄ ⁺	13.4	14.5	13.3	12.7	10.1	1998～2012 年
	nss-Ca ²⁺	3.6	4.0	2.9	2.2	1.6	1998～2012 年
沈着量 / mmol m ⁻²	H ⁺	24.5	28.1	22.8	19.8	16.8	1998～2012 年
	nss-SO ₄ ²⁻	18.1	16.1	12.9	10.6	9.3	1998～2012 年
	NO ₃ ⁻	18.4	20.0	18.7	16.1	12.6	1998～2012 年
	NH ₄ ⁺	20.0	18.0	19.8	17.2	13.0	1998～2012 年
	nss-Ca ²⁺	5.3	5.0	4.3	3.0	2.1	1998～2012 年

イオン成分濃度は nss-SO₄²⁻をはじめとして 2015 年度以降低い傾向がみられており、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	1024	1071	1527	1094	1353	1998～2012 年
pH	4.61	4.67	4.75	--	4.81	4.69	1998～2012 年
濃度/ μmol L ⁻¹	nss-SO ₄ ²⁻	16.3	14.7	11.3	--	12.9	15.7 1998～2012 年
	NO ₃ ⁻	24.6	18.9	15.5	--	22.6	18.1 1998～2012 年
	NH ₄ ⁺	17.4	12.2	11.7	--	18.4	14.9 1998～2012 年
	nss-Ca ²⁺	5.8	4.8	3.3	--	5.6	5.4 1998～2012 年
沈着量 / mmol m ⁻²	H ⁺	35.7	21.9	19.1	--	16.8	25.4 1998～2012 年
	nss-SO ₄ ²⁻	23.6	15.1	12.2	--	14.1	18.6 1998～2012 年
	NO ₃ ⁻	35.6	19.3	16.6	--	24.7	23.6 1998～2012 年
	NH ₄ ⁺	25.2	12.5	12.5	--	20.1	19.1 1998～2012 年
	nss-Ca ²⁺	8.4	4.9	3.6	--	6.1	6.9 1998～2012 年

湿性沈着量は 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。
 NO₃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 NH₄⁺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。

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	2055	1444	1599	1777	1511	1494	1999～2012 年
pH	4.63	4.59	4.65	4.91	--	4.62	2000～2012 年
濃度/ μmol L ⁻¹	nss-SO ₄ ²⁻	13.4	16.7	12.7	9.4	--	16.8 2000～2012 年
	NO ₃ ⁻	17.8	22.3	19.3	12.8	--	20.4 2000～2012 年
	NH ₄ ⁺	15.5	18.3	14.7	11.1	--	17.5 2000～2012 年
	nss-Ca ²⁺	2.1	4.1	3.4	2.1	--	4.2 2000～2012 年
沈着 量/ mmol m ⁻²	H ⁺	48.3	36.9	36.1	21.9	--	36.8 2000～2012 年
	nss-SO ₄ ²⁻	27.5	24.1	20.3	16.6	--	25.0 2000～2012 年
	NO ₃ ⁻	36.5	32.2	30.8	22.7	--	30.5 2000～2012 年
	NH ₄ ⁺	31.9	26.4	23.4	19.8	--	2012.6 2000～2012 年
	nss-Ca ²⁺	4.4	6.0	5.4	3.8	--	5.7 2000～2012 年

2013 年度は降水量がとて高く、湿性沈着量も高くなる傾向がみられたが、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-SO₄²⁻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(櫛原局)

〈櫛原〉

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	3604	2975	2658	2779	2532	2000～2012 年
pH	4.77	--	--	4.78	--	4.78	2000～2011 年
濃度/ μmol L ⁻¹	nss-SO ₄ ²⁻	8.4	--	8.2	--	9.2	2000～2011 年
	NO ₃ ⁻	6.8	--	9.4	--	7.5	2000～2011 年
	NH ₄ ⁺	7.2	--	8.2	--	6.9	2000～2011 年
	nss-Ca ²⁺	1.5	--	1.2	--	1.7	2000～2011 年
沈着量 / mmol m ⁻²	H ⁺	41.5	--	44.1	--	46.1	2000～2011 年
	nss-SO ₄ ²⁻	20.3	--	21.7	--	2011.3	2000～2011 年
	NO ₃ ⁻	16.6	--	25.1	--	19.5	2000～2011 年
	NH ₄ ⁺	17.6	--	21.7	--	17.9	2000～2011 年
	nss-Ca ²⁺	3.6	--	3.3	--	4.4	2000～2011 年

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 年間の推移傾向は不明瞭であるが、2016 年度では NO₃⁻及び NH₄⁺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	2558	1871	1956	1998～2012 年
pH	4.64	4.69	4.84	4.89	4.80	4.76	1998～2012 年
濃度/ μmol L ⁻¹	nss-SO ₄ ²⁻	14.3	15.0	11.9	9.1	11.8	1998～2012 年
	NO ₃ ⁻	13.3	13.2	10.0	8.0	14.7	1998～2012 年
	NH ₄ ⁺	15.6	16.9	13.1	12.1	18.8	1998～2012 年
	nss-Ca ²⁺	2.8	2.6	2.2	1.6	2.3	1998～2012 年
沈着 量/ mmol m ⁻²	H ⁺	47.1	38.9	29.0	33.2	29.4	1998～2012 年
	nss-SO ₄ ²⁻	29.5	28.5	24.0	23.3	22.2	1998～2012 年
	NO ₃ ⁻	27.5	25.0	20.0	20.4	27.5	1998～2012 年
	NH ₄ ⁺	32.3	32.1	26.3	30.9	35.1	1998～2012 年
	nss-Ca ²⁺	5.8	4.9	4.5	4.2	4.3	1998～2012 年

nss-SO₄²⁻濃度は 2015 年度以降とても低い状態が続いており、NO₃⁻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にあり、降水の酸性化が緩和傾向にあることが伺える。

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 3-1-22 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	2917	2123	1544	2075	1998～2012 年
pH	4.74	4.72	4.81	--	--	4.66	1998～2012 年
濃度/ μmol L ⁻¹	nss-SO ₄ ²⁻	15.3	15.0	12.2	--	16.8	1998～2012 年
	NO ₃ ⁻	14.3	14.5	10.8	--	16.1	1998～2012 年
	NH ₄ ⁺	15.9	16.5	10.8	--	17.7	1998～2012 年
	nss-Ca ²⁺	2.0	1.8	1.6	--	2.7	1998～2012 年
沈着量 / mmol m ⁻²	H ⁺	36.4	36.0	45.3	--	44.5	1998～2012 年
	nss-SO ₄ ²⁻	30.7	28.1	35.6	--	34.3	1998～2012 年
	NO ₃ ⁻	28.7	27.2	31.6	--	33.6	1998～2012 年
	NH ₄ ⁺	31.9	30.9	31.5	--	32.5	1998～2012 年
	nss-Ca ²⁺	4.1	3.4	4.7	--	5.0	1998～2012 年

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%値を上回ることとはなかった。

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	2731	2156	1933	1998～2012 年
pH	4.66	4.40	--	4.69	--	4.69	1998～2012 年
濃度/ μmol L ⁻¹	nss-SO ₄ ²⁻	12.3	18.6	--	12.5	13.3	1998～2012 年
	NO ₃ ⁻	9.6	8.7	--	7.4	8.6	1998～2012 年
	NH ₄ ⁺	12.9	10.1	--	10.7	14.6	1998～2012 年
	nss-Ca ²⁺	2.6	3.0	--	1.4	2.1	1998～2012 年
沈着量 / mmol m ⁻²	H ⁺	42.4	75.6	--	55.6	41.1	1998～2012 年
	nss-SO ₄ ²⁻	23.8	35.0	--	34.3	27.3	1998～2012 年
	NO ₃ ⁻	18.7	16.4	--	20.2	18.2	1998～2012 年
	NH ₄ ⁺	24.9	19.1	--	29.1	30.1	1998～2012 年
	nss-Ca ²⁺	5.0	5.7	--	3.8	4.3	1998～2012 年

2014 年度は nss-SO₄²⁻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、火山活動が結果に大きな影響を与えているものと考えられる。

高い
低い

太字
太字

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
pH	4.73	4.70	--	5.02	4.86	4.70	2000～2012 年
濃度/ μmol L ⁻¹	nss-SO ₄ ²⁻	12.6	13.9	--	8.0	10.5	13.8 2000～2012 年
	NO ₃ ⁻	8.6	8.2	--	8.1	6.8	8.3 2000～2012 年
	NH ₄ ⁺	10.6	11.7	--	10.5	10.3	13.3 2000～2012 年
	nss-Ca ²⁺	2.9	3.7	--	1.6	3.3	1.9 2000～2012 年
沈着 量/ mmol m ⁻²	H ⁺	59.9	57.7	--	33.2	42.0	54.6 2000～2012 年
	nss-SO ₄ ²⁻	40.6	40.6	--	27.9	31.7	41.6 2000～2012 年
	NO ₃ ⁻	27.7	23.7	--	28.3	20.5	2012.0 2000～2012 年
	NH ₄ ⁺	34.1	33.9	--	36.4	30.8	38.6 2000～2012 年
	nss-Ca ²⁺	9.4	10.8	--	5.5	9.9	4.9 2000～2012 年

NH₄⁺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-SO₄²⁻濃度は 2016 年度以降低い結果となった。また、NO₃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
pH	4.59	4.59	4.71	4.70	--	4.67	1998～2012 年
濃度/ μmol L ⁻¹	nss-SO ₄ ²⁻	11.9	10.7	8.7	9.7	--	12.0 1998～2012 年
	NO ₃ ⁻	10.4	7.2	7.2	9.4	--	10.6 1998～2012 年
	NH ₄ ⁺	8.9	6.9	6.1	7.4	--	10.1 1998～2012 年
	nss-Ca ²⁺	1.2	--	0.6	0.9	--	1.7 1998～2012 年
沈着 量/ mmol m ⁻²	H ⁺	84.7	106.3	105.6	82.2	--	80.3 1998～2012 年
	nss-SO ₄ ²⁻	39.7	43.8	46.8	40.2	--	44.3 1998～2012 年
	NO ₃ ⁻	34.5	29.4	38.6	39.1	--	40.8 1998～2012 年
	NH ₄ ⁺	29.7	28.2	33.0	30.7	--	38.8 1998～2012 年
	nss-Ca ²⁺	3.9	--	3.4	3.6	--	6.3 1998～2012 年

イオン成分濃度は期間を通じて低い状態にあるものの、H⁺、nss-SO₄²⁻、NO₃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⁺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	1501	2225	2196	1514	1609	2016	2000～2012 年
pH	4.93	5.14	5.11	5.21	5.00	4.97	2000～2011 年
濃度/ μmol L ⁻¹	nss-SO ₄ ²⁻	9.8	4.4	--	5.3	--	7.0 2001～2011 年
	NO ₃ ⁻	9.9	5.9	7.1	8.1	8.5	7.2 2000～2011 年
	NH ₄ ⁺	11.1	7.2	11.2	7.5	6.0	7.8 2000～2011 年
	nss-Ca ²⁺	2.3	1.2	--	1.2	--	1.7 2001～2011 年
沈着 量/ mmol m ⁻²	H ⁺	17.6	16.3	17.1	9.3	15.9	22.1 2000～2011 年
	nss-SO ₄ ²⁻	14.7	9.8	--	8.0	--	14.9 2001～2011 年
	NO ₃ ⁻	14.9	13.1	15.5	12.2	13.7	15.4 2000～2011 年
	NH ₄ ⁺	16.6	16.1	24.6	11.4	9.6	17.3 2000～2011 年
	nss-Ca ²⁺	3.5	2.6	--	1.8	--	4.1 2001～2011 年

nss-SO₄²⁻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 を上回る高い傾向にあるほか、H⁺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-SO₄²⁻、nss-Ca²⁺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

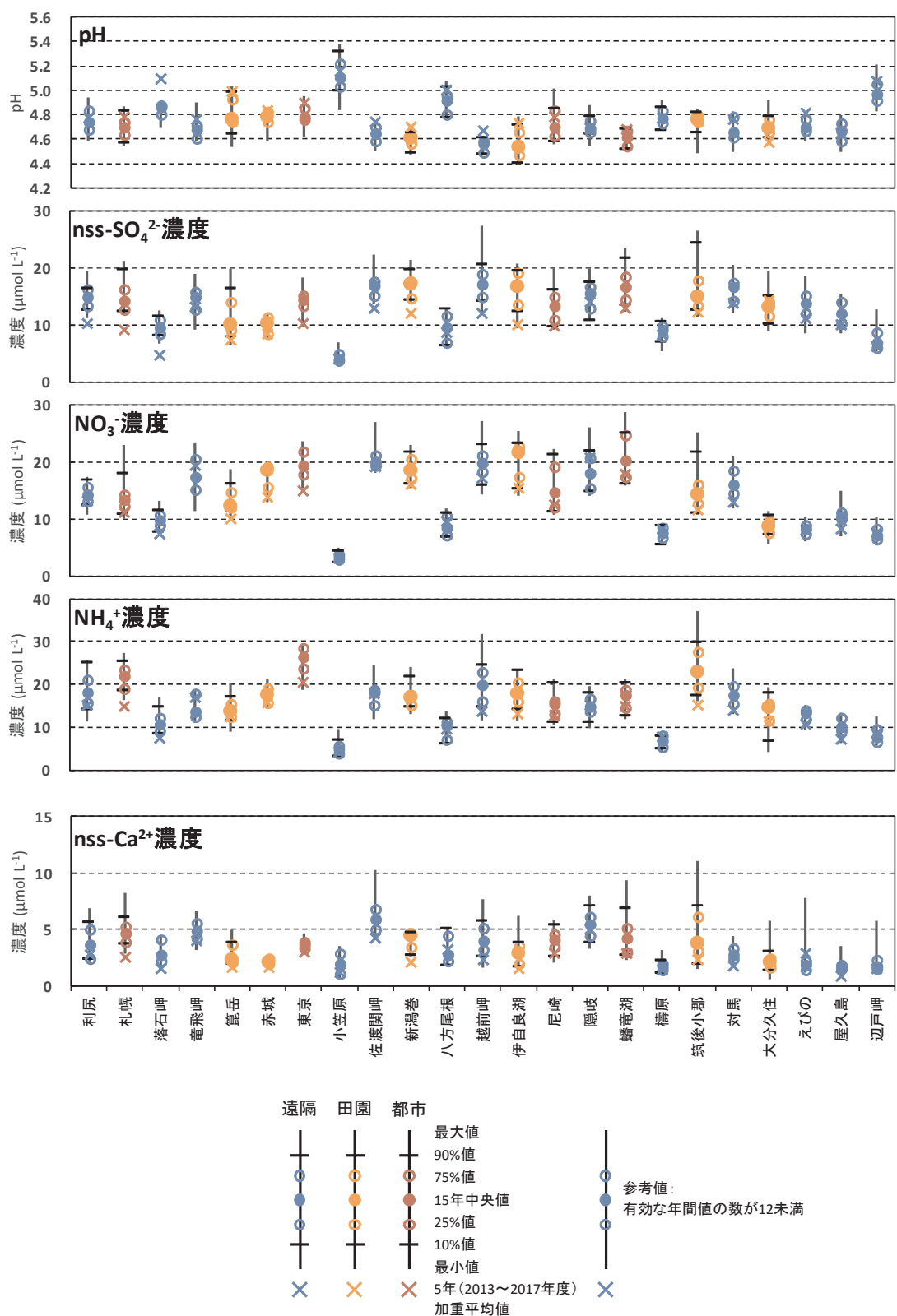


図 3-1-2 pH、イオン濃度の 5 年(2013~2017 年度)加重平均と
1998~2012 年度のパーセンタイル値

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。

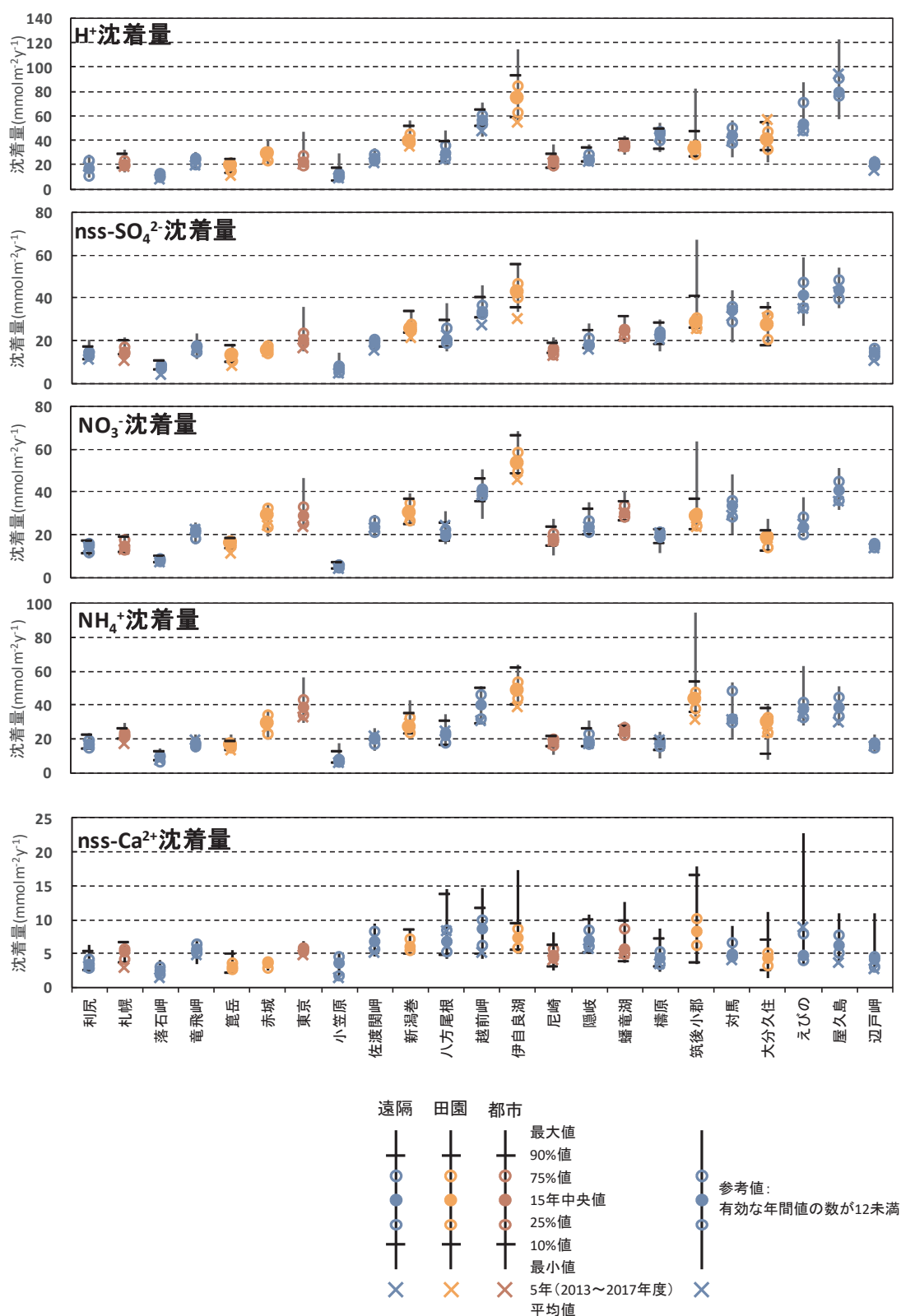


図 3-1-3 湿性沈着量の 5 年(2013~2017 年度)平均と 1998~2012 年度のパーセンタイル値

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)の結果は含めなかった。

(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。 nss-SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 NH_4^+ 、 nss-Ca^{2+} 及び 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。

nss-SO_4^{2-} 、 NO_3^- 及び 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、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増加したことを除き、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、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る。

また、 nss-Ca^{2+} についても nss-SO_4^{2-} 、 NO_3^- 及び 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。 H^+ 濃度の季節変動も nss-SO_4^{2-} 、 NO_3^- 及び NH_4^+ 同様、冬季に高かったが、 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、 H^+ 湿性沈着量も高くなる傾向となった。

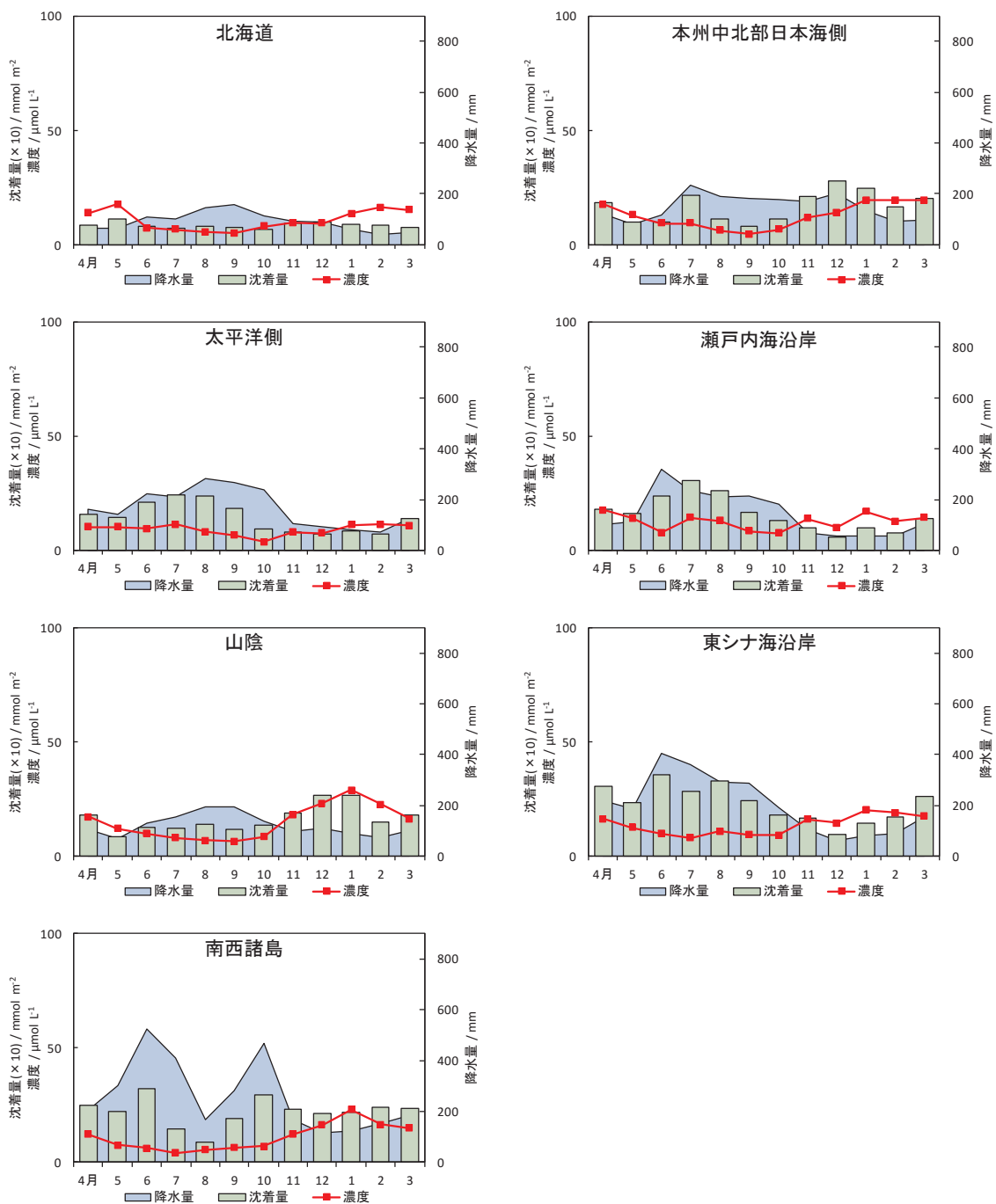


図 3-1-4 nss-SO_4^{2-} 濃度及び湿性沈着量、並びに降水量の季節変動(2013～2017 年度平均値)

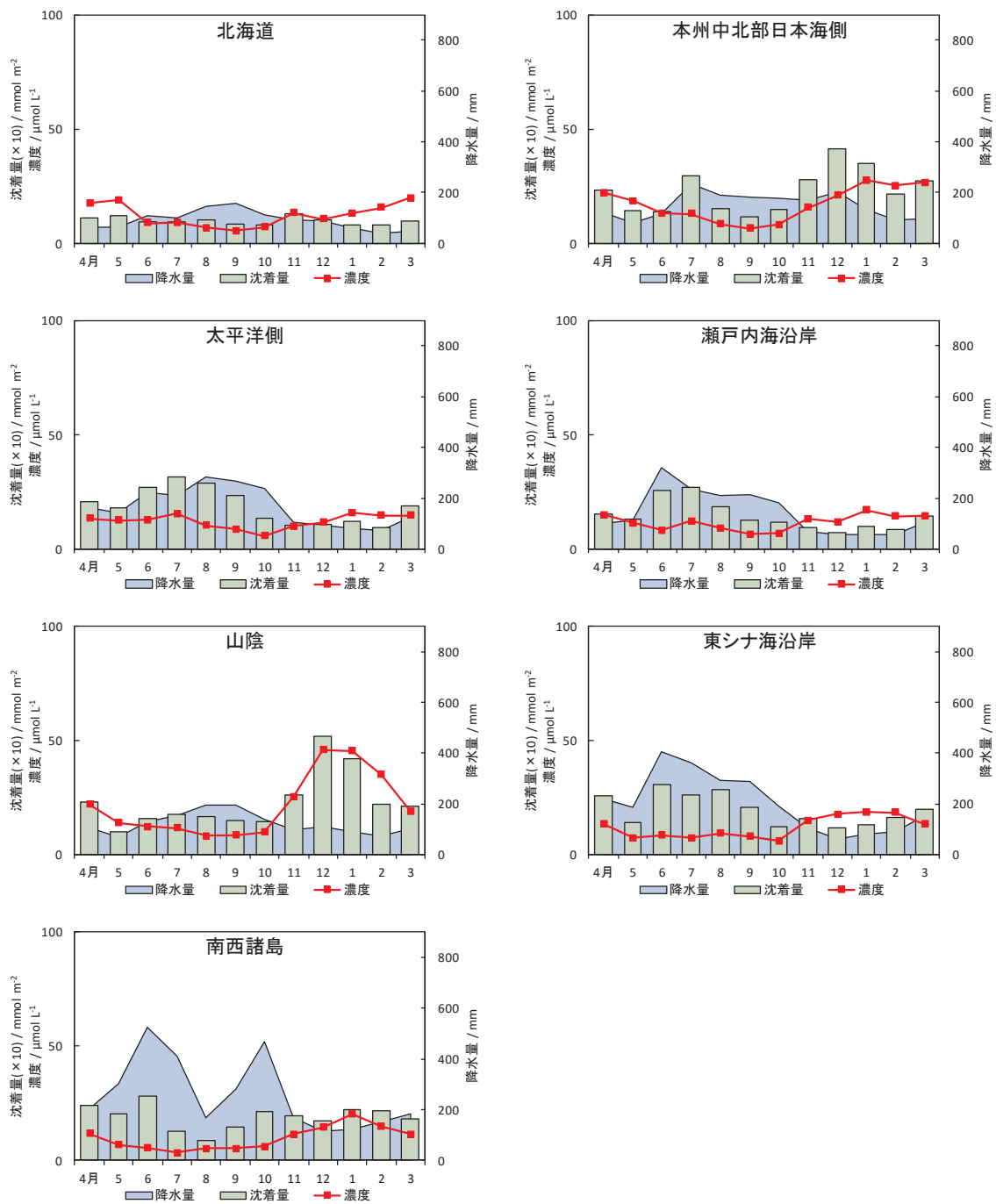


図 3-1-5 NO_3^- 濃度及び湿性沈着量、並びに降水量の季節変動(2013～2017 年度平均値)

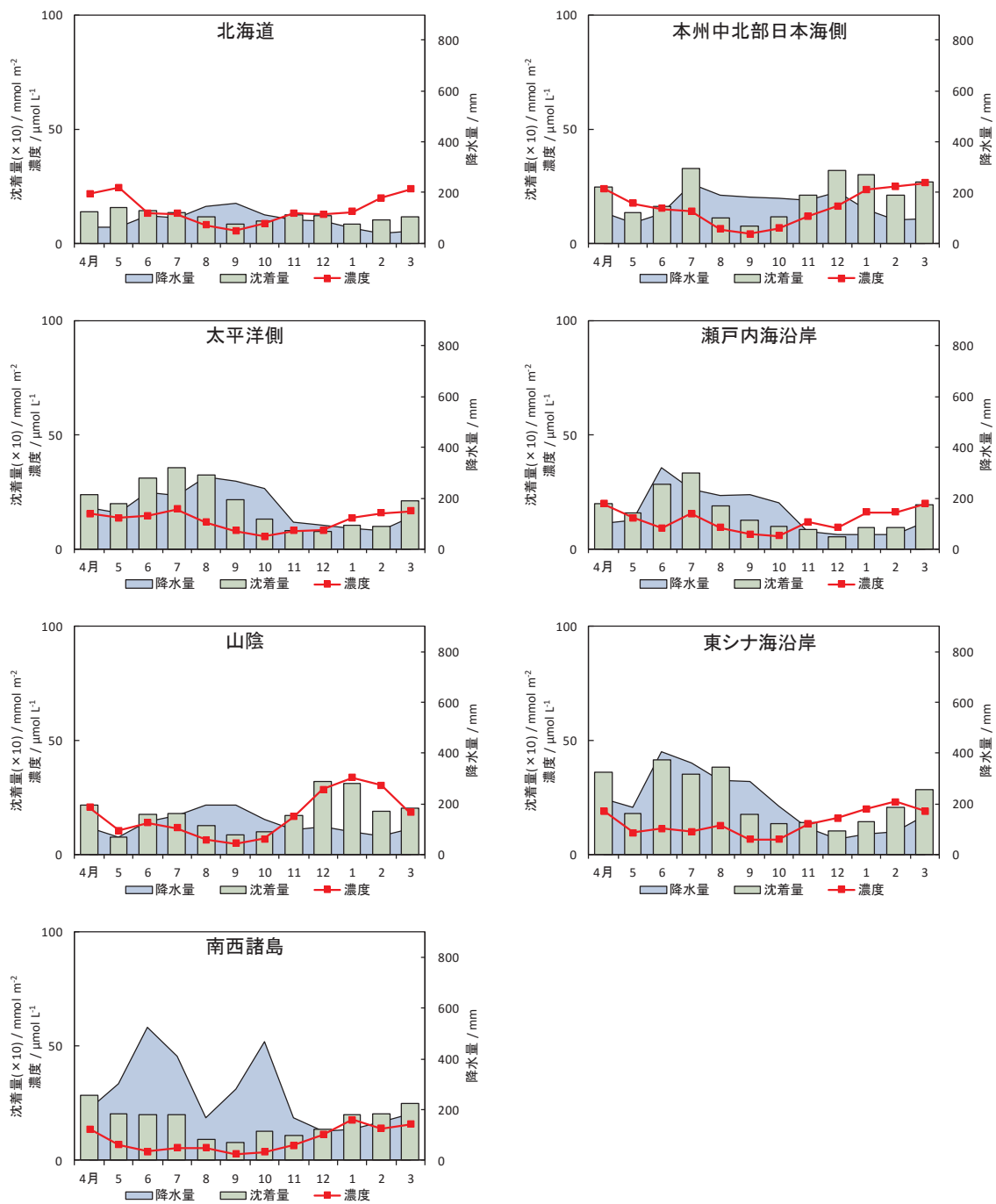


図 3-1-6 NH_4^+ 濃度及び湿性沈着量、並びに降水量の季節変動(2013～2017 年度平均値)

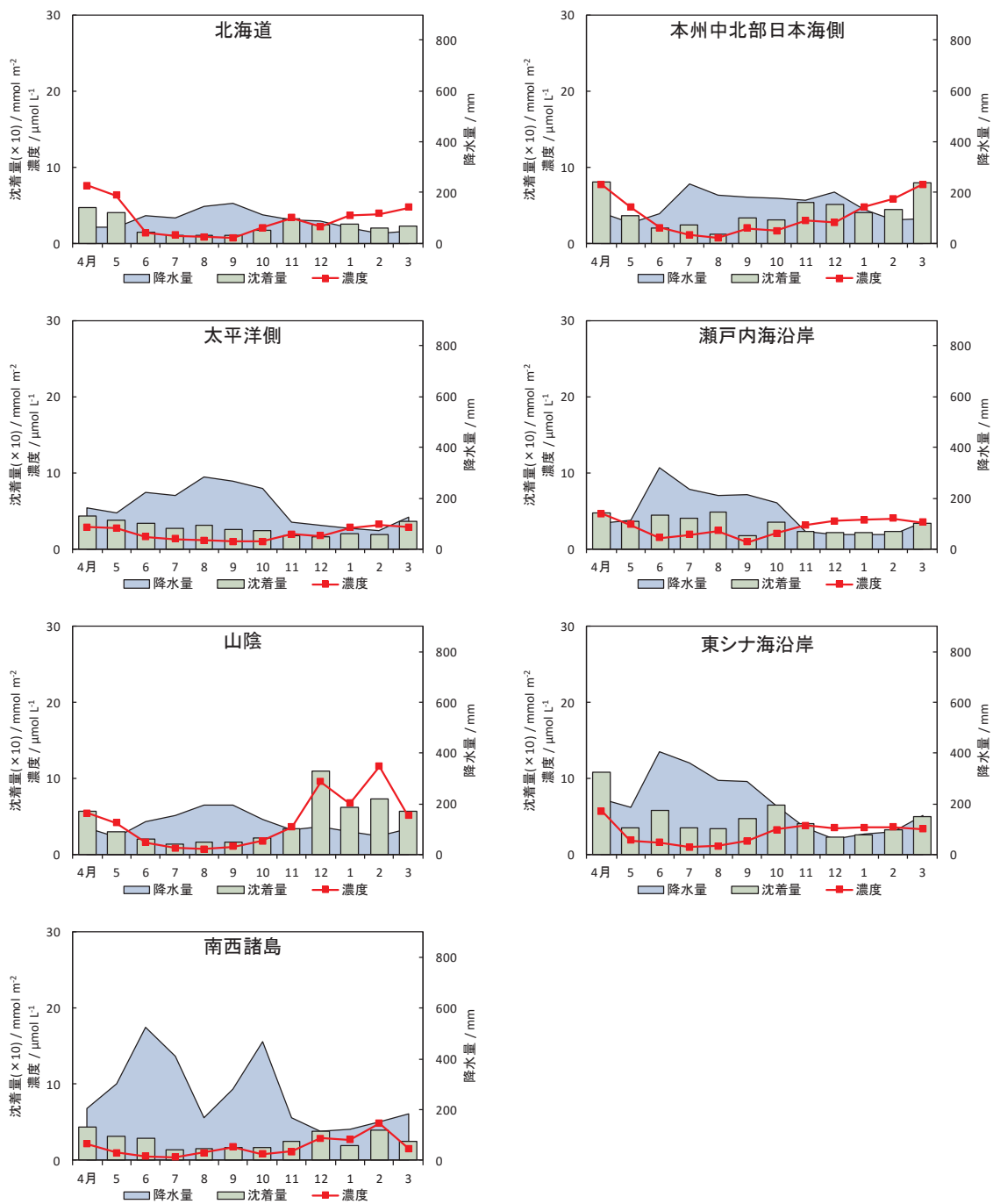


図 3-1-7 nss- Ca^{2+} 濃度及び湿性沈着量、並びに降水量の季節変動(2013～2017 年度平均値)

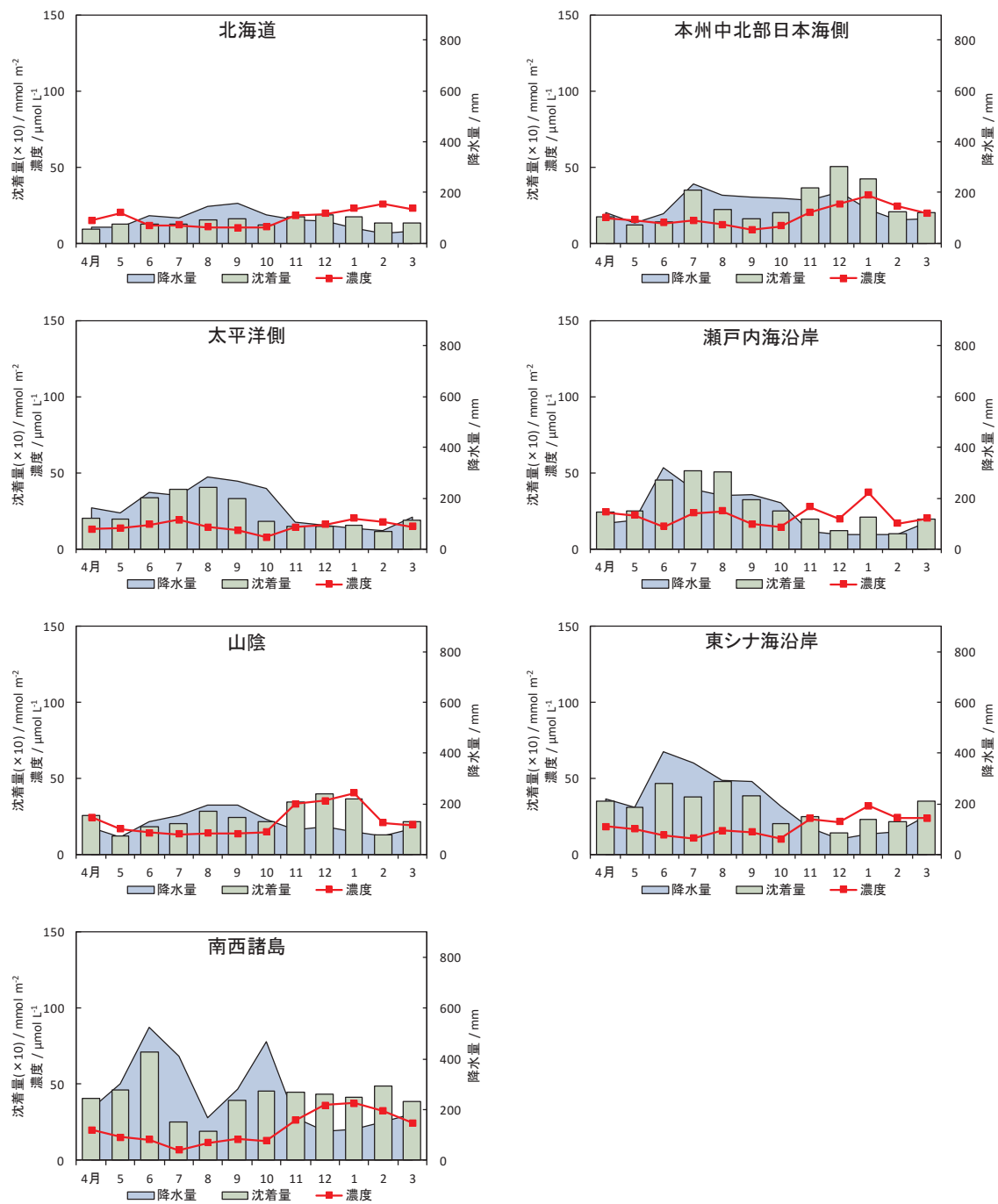


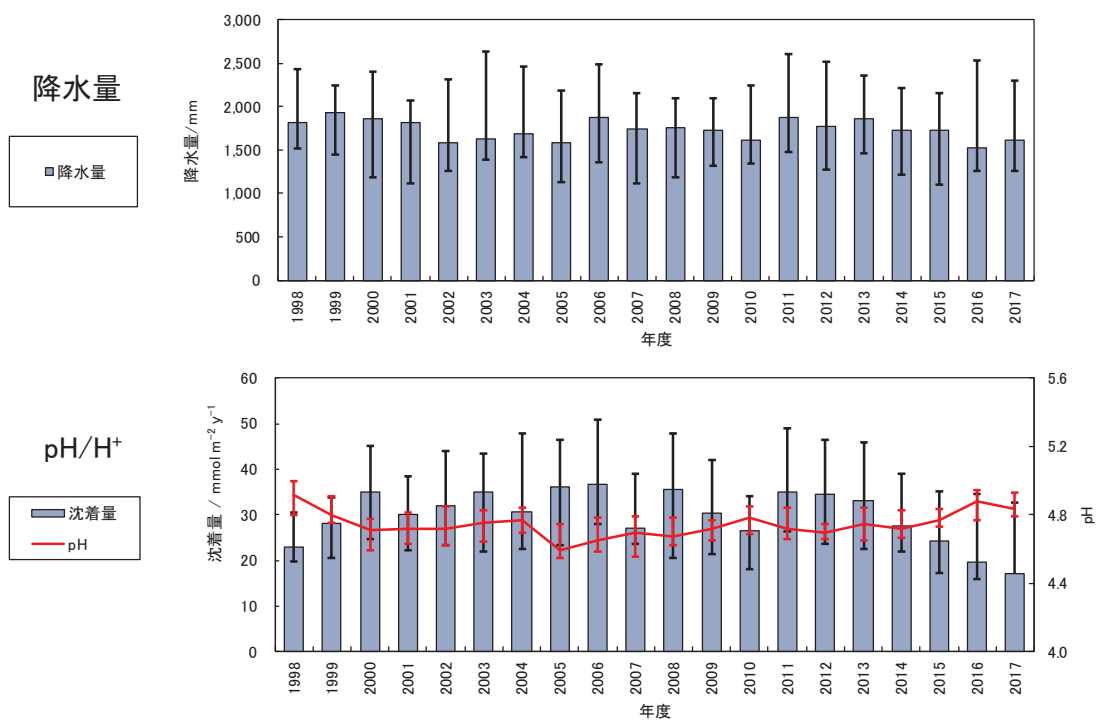
図 3-1-8 H^+ 濃度及び湿性沈着量、並びに降水量の季節変動(2013～2017 年度
 平均値)

(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、現行の測定地点のほとんど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。なお、地点毎の経年変化については、巻末の参考資料に示す。

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たが、以降は下降し、2013 年度からは再び上昇傾向にある。H⁺湿性沈着量の中央値は概ね 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、減少している。2017 年度の中央値は 17.2 mmol m⁻² y⁻¹ であり、1998 年度以降で最低値を示した。その他各イオン成分濃度及び湿性沈着量においても 2017 年度は上昇したものの、2013 年度から 2016 年度は減少傾向が示されており、降水の酸性化に寄与した nss-SO₄²⁻及び NO₃⁻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。近年の pH の上昇はこうしたイオン成分濃度の変動傾向が反映されているものと考えられる。



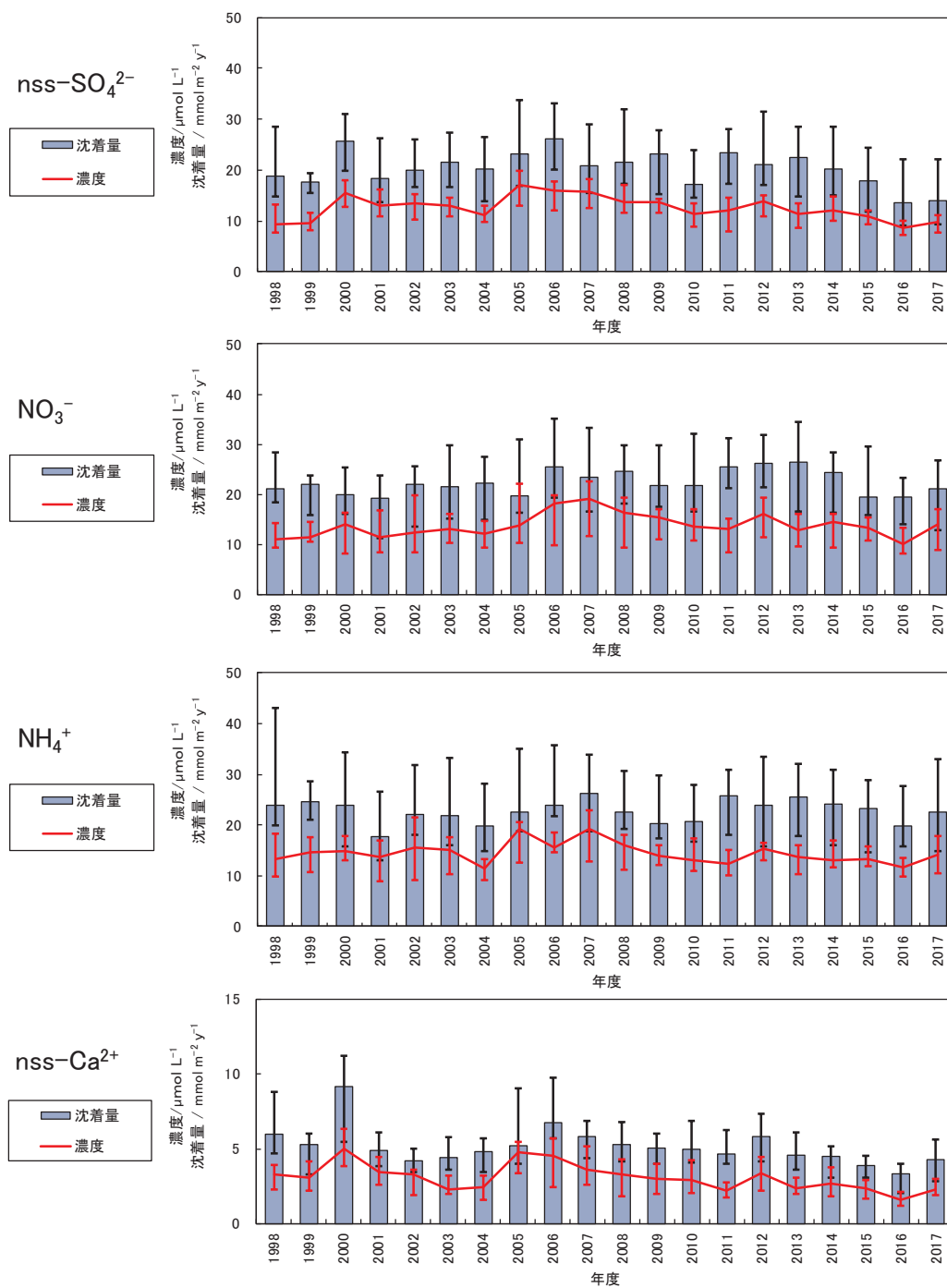


図 3-1-9 降水量、pH 及びイオン成分濃度・湿性沈着量(中央値)の経年変化
有効判定基準により無効な年間値は含めずに計算した。誤差範囲：各年度の 25%値～75%値の範囲。

(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であることが認められる。
- 大陸側に近い本州中北部日本海側、山陰では nss-SO_4^{2-} 、 NO_3^- 及び NH_4^+ 濃度は、他の地域と比較して夏季に低く冬季に高くなる傾向がより顕著にみられた。これらのイオン成分の湿性沈着量も概ねイオン成分濃度と類似した傾向が示されており、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、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る。
- 各地点における 1998～2012 年度の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 の上昇傾向がみられており、全地点の pH の中央値でも 2013 年度以降は上昇傾向にある。
- 今後も長期的な変動傾向やその影響を的確に把握し、対策を講じていくためには引き続き確実な湿性沈着モニタリングを実施していく必要がある。

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

SO₂（17 地点）、NO_x*及び NO_x/NO₂（15 地点）、オゾン（O₃）（23 地点）、PM₁₀（12 地点）、PM_{2.5}（15 地点）

2) フィルターパック法

粒子状成分濃度（SO₄²⁻、NO₃⁻、NH₄⁺、Ca²⁺）及びガス状成分濃度（HNO₃、NH₃）（12 地点）

なお、粒子状成分のうち、SO₄²⁻及び Ca²⁺については湿性沈着と同様に Na⁺を海塩粒子の指標として用い、海塩粒子に由来しない非海塩性の nss-SO₄²⁻及び nss-Ca²⁺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 3-1-10 に平成 25～29 年度(2013～2017 年度)における SO₂ 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。

SO₂ 濃度は全体的に夏季に低く、冬季にかけて最大となる傾向がみられ、大陸からの越境汚染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、橿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^{くちのえらぶしま}をはじめとした火山の影響を、えびの及び橿原は桜島・新燃岳^{しんもくだけ}等の影響を受けた可能性が示唆された。

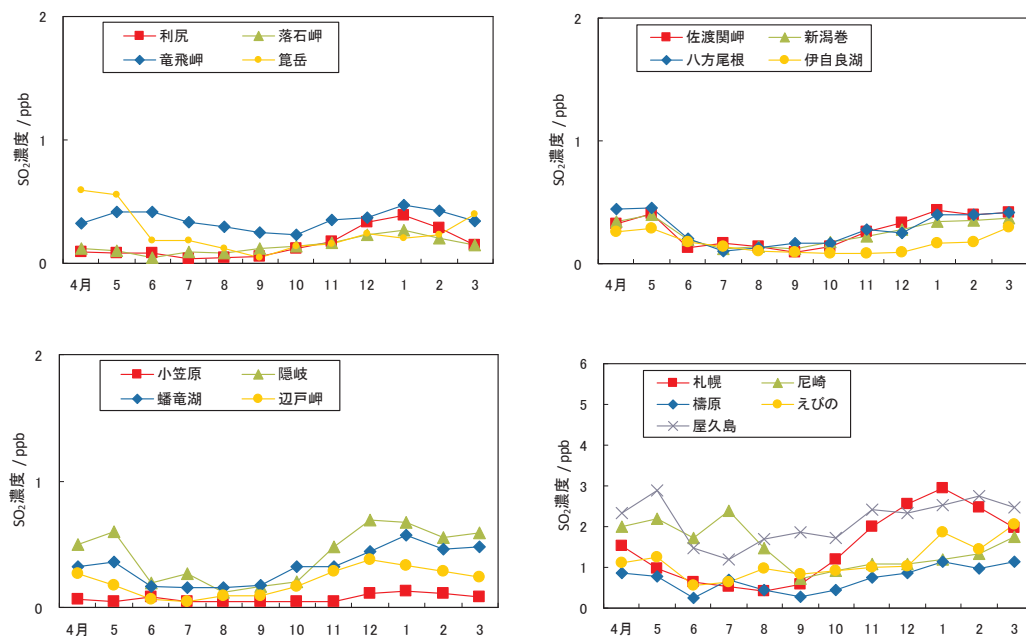


図 3-1-10 SO₂ 濃度の季節変動 (2013～2017 年度平均)

完全度が 70%未満の月間値は含めずに計算した。

図 3-1-11 に 2013～2017 年度における NO_x^* (遠隔・田園地域)及び NO_x , 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、檮原、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。

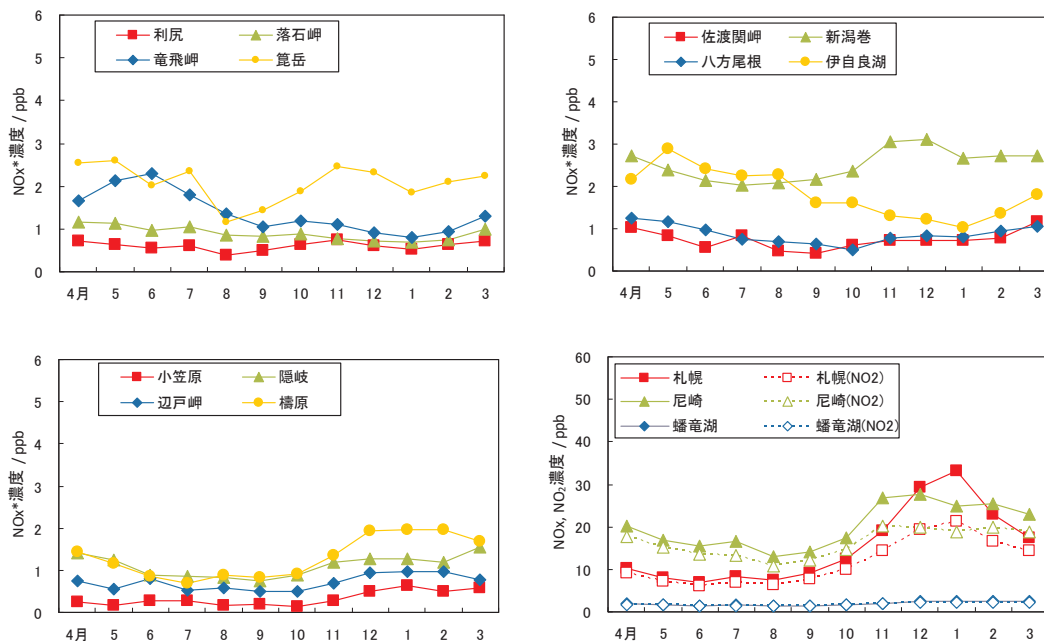


図 3-1-11 NO_x^* 及び NO_x , NO_2 濃度の季節変動 (2013～2017 年度平均)

完全度が 70%未満の月間値は含めずに計算した。

図 3-1-12 に 2013～2017 年度における 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。 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。多くの地点で秋季にもピークがみられた。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、春季の越境汚染、成層圏からの降下、夏季の海洋性大気の流れ等が指摘されている。北東アジアにおける O_3 濃度の季節変動の特徴については 5.1.3(1)で詳述する。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 O_3 の輸送の影響を強く受け、かつ付近に O_3 と反応する大規模の NO_x 発生源が存在しないためであると考えられる。

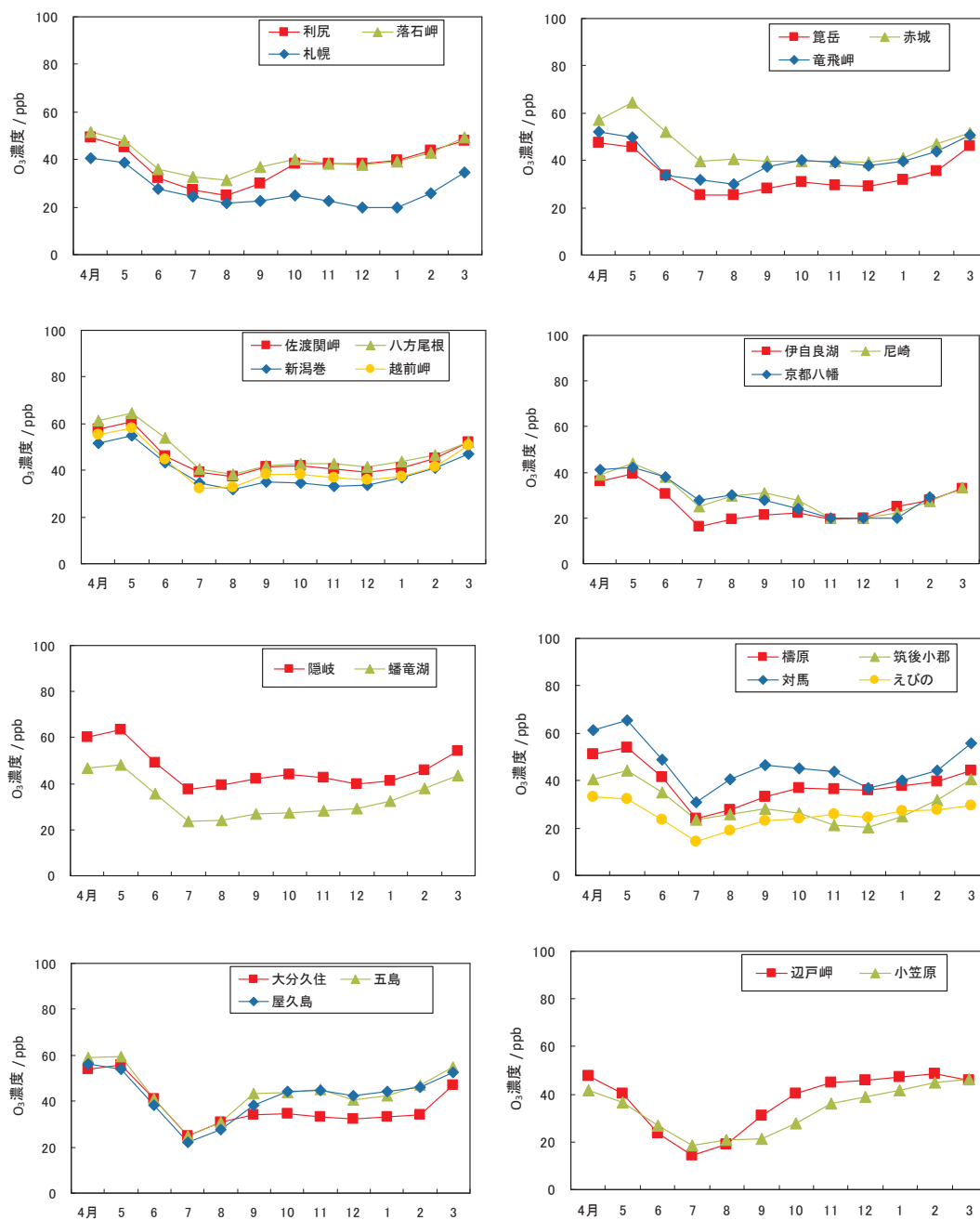


図 3-1-12 O₃ 濃度の季節変動 (2013~2017 年度平均)

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 PM₁₀ 及び PM_{2.5} 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。PM₁₀ 濃度は全体的に春季に高い傾向がみられた。PM_{2.5} 濃度は PM₁₀ 濃度とほぼ同じ季節変動を示した。春季に高い要因として、黄砂の飛来が影響していると考えられる。

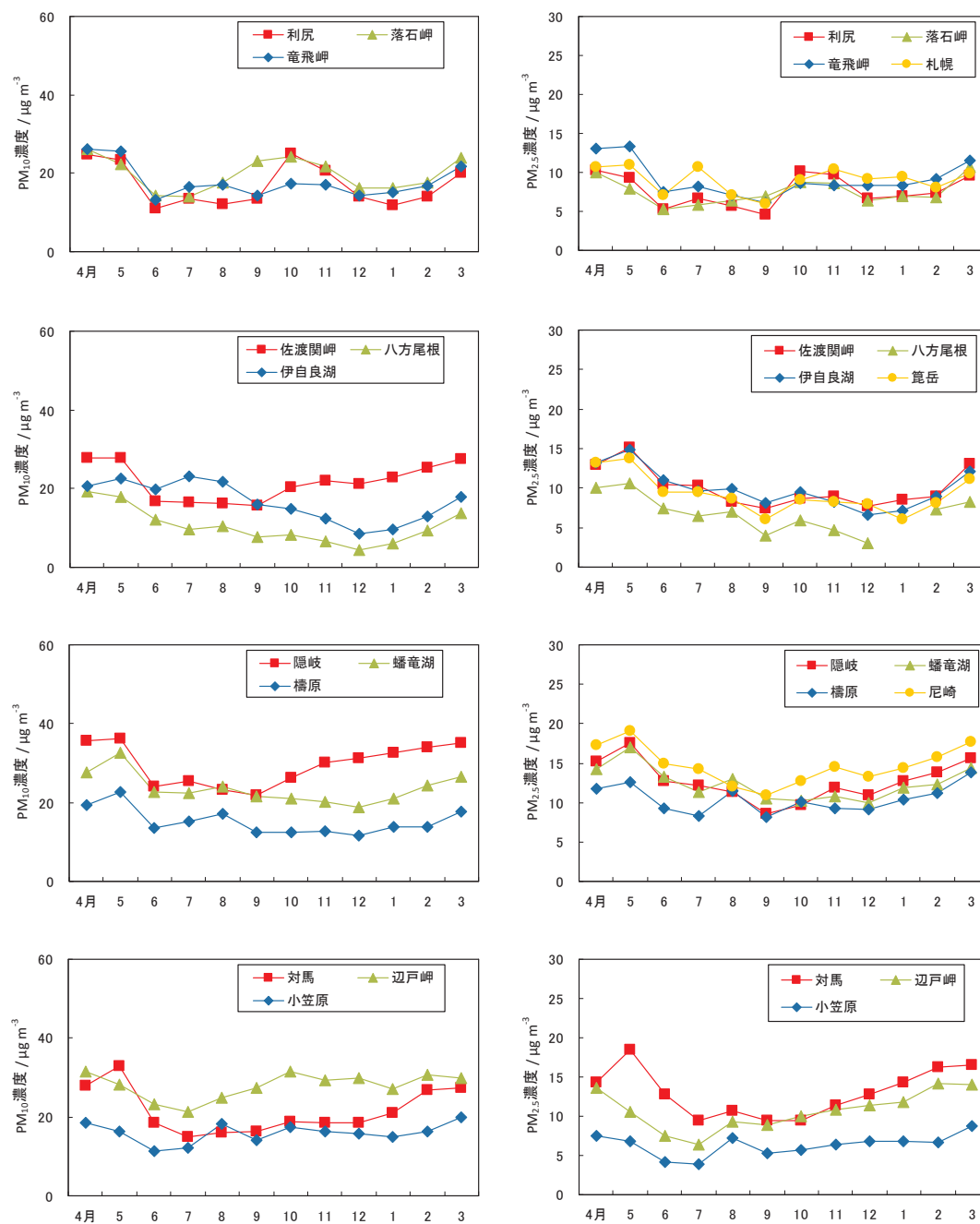


図 3-1-13 PM₁₀、PM_{2.5} 濃度の季節変動 (2013～2017 年度平均)

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 年度における図 3-1-13 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。

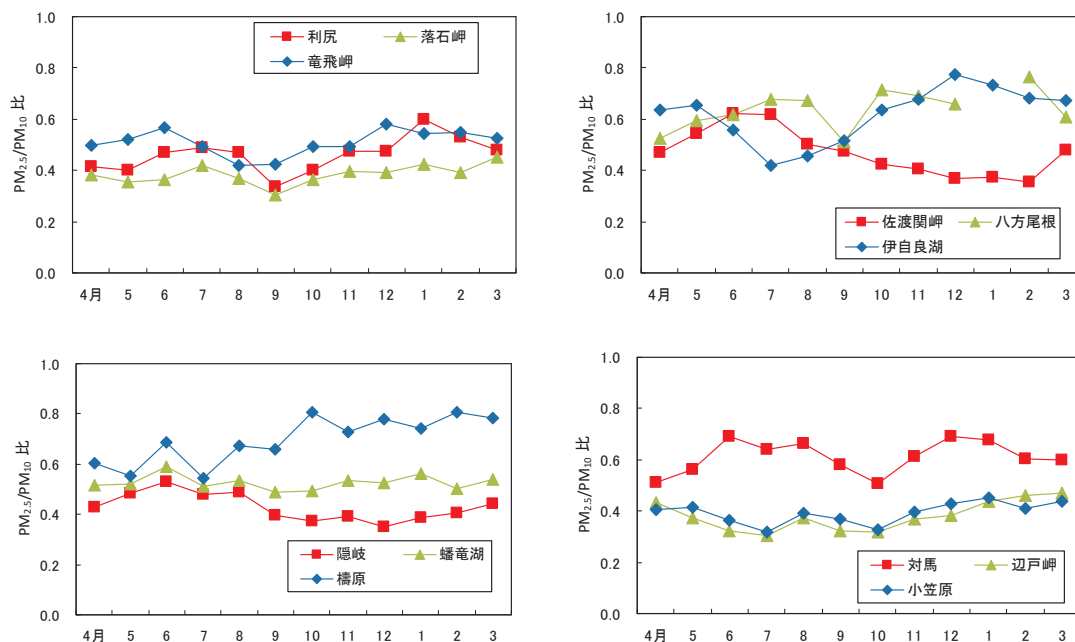


図 3-1-14 $PM_{2.5}/PM_{10}$ 比の季節変動 (2013～2017 年度平均)

完全度が 70%未満の月間値は含めずに計算した。

図 3-1-15～20 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、蟠竜湖及び櫛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 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 nss-SO_4^{2-} 濃度と粒子状 NH_4^+ 濃度が似た変動を示した。一方、東京では粒子状 NO_3^- 濃度と粒子状 NH_4^+ 濃度が似た変動を示した。

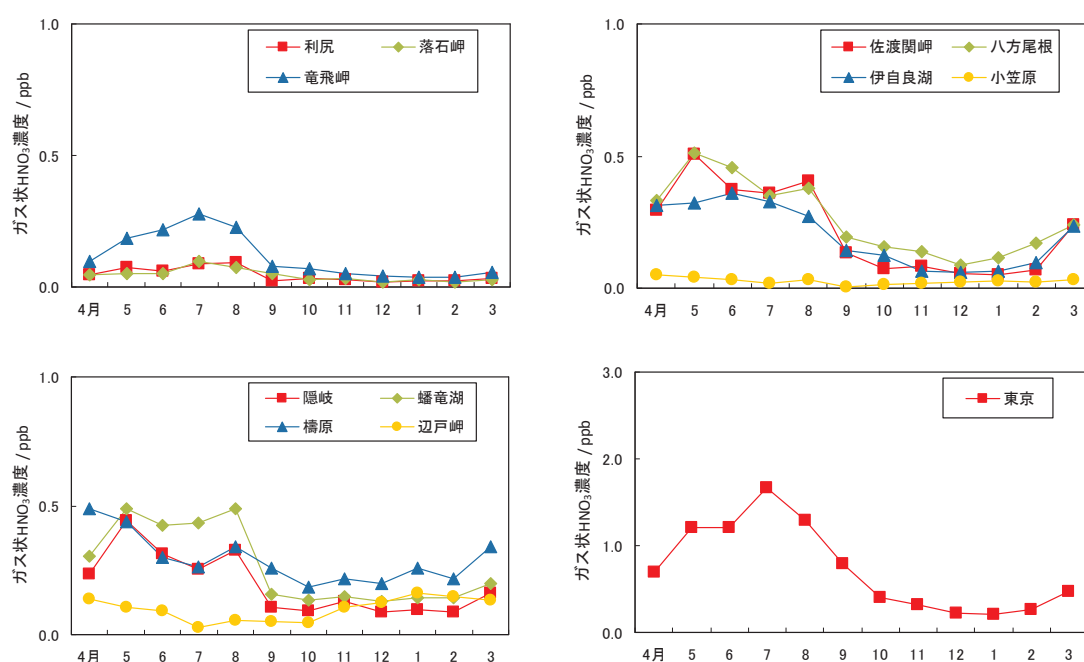


図 3-1-15 ガス状 HNO_3 濃度の季節変動 (2013～2017 年度平均)

完全度が 70%未満の月間値は含めずに計算した。

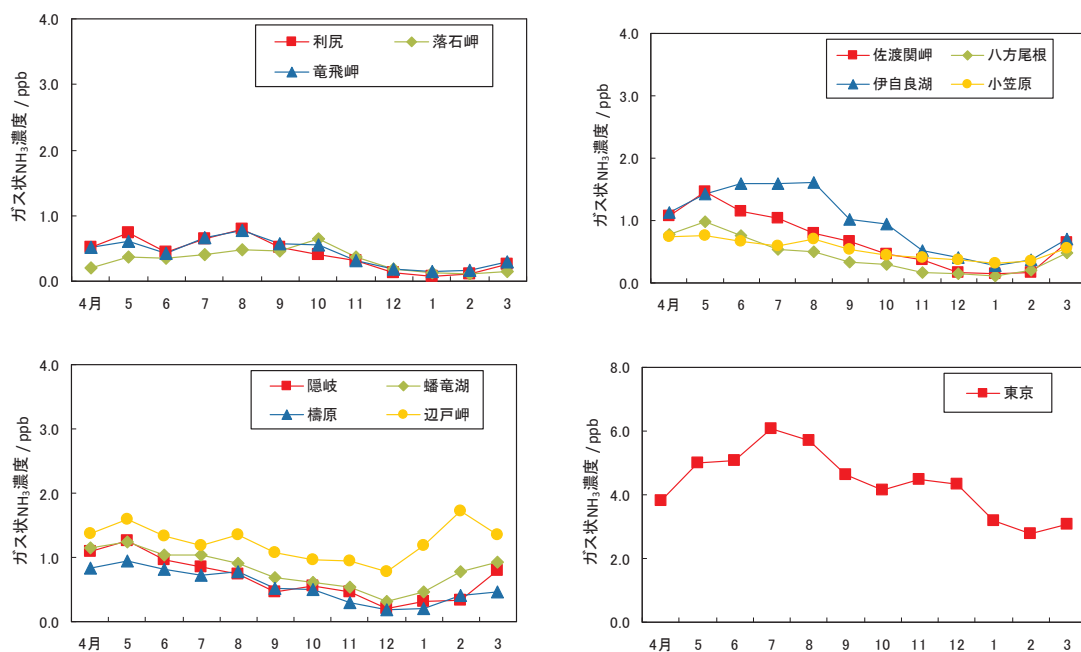


図 3-1-16 ガス状 NH_3 濃度の季節変動 (2013~2017 年度平均)
完全度が 70%未満の月間値は含めずに計算

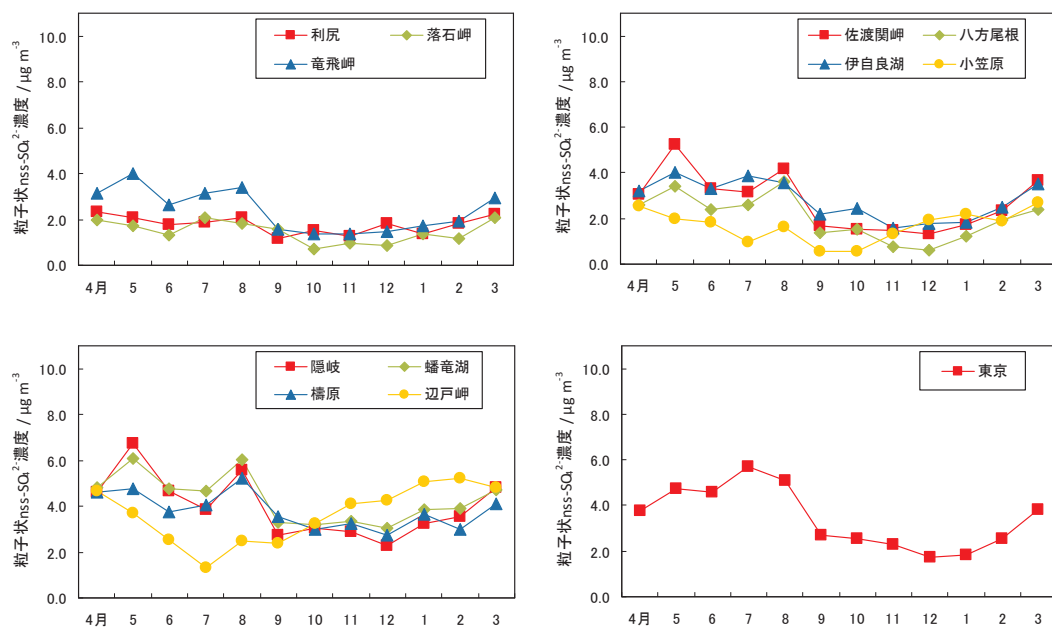


図 3-1-17 粒子状 nss-SO_4^{2-} 濃度の季節変動 (2013~2017 年度平均)
完全度が 70%未満の月間値は含めずに計算した。

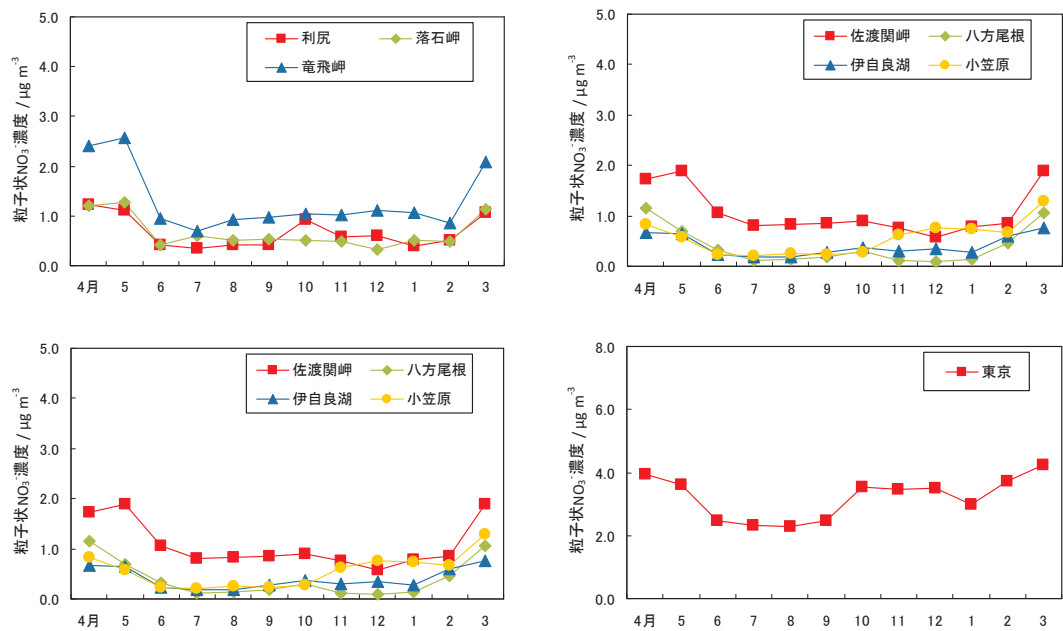


図 3-1-18 粒子状 NO_3^- 濃度の季節変動 (2013~2017 年度平均)
完全度が 70%未満の月間値は含めずに計算

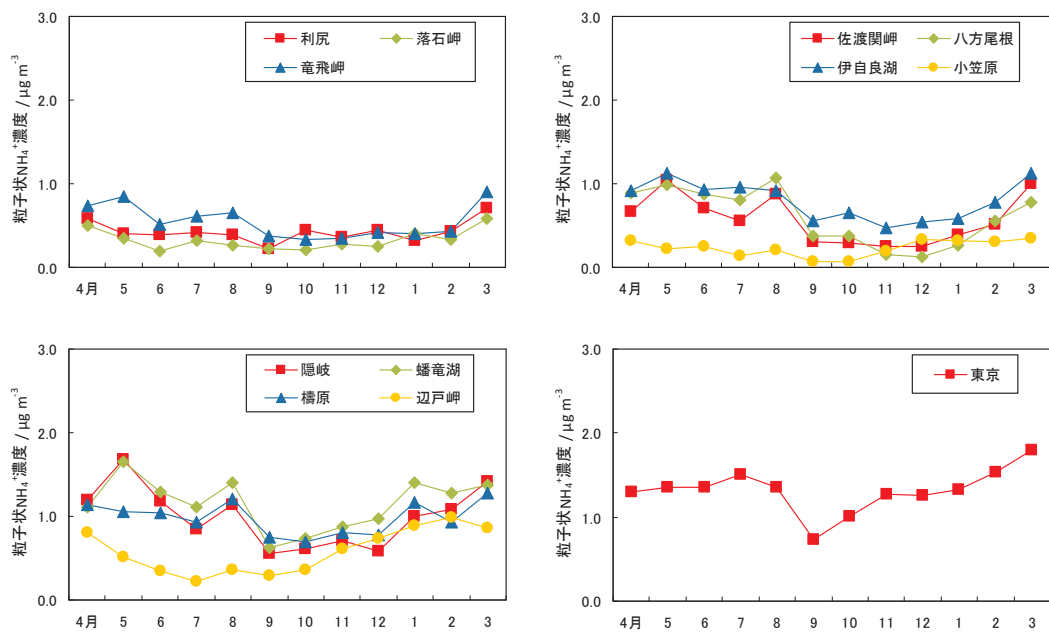


図 3-1-19 粒子状 NH_4^+ 濃度の季節変動 (2013~2017 年度平均)
完全度が 70%未満の月間値は含めずに計算した。

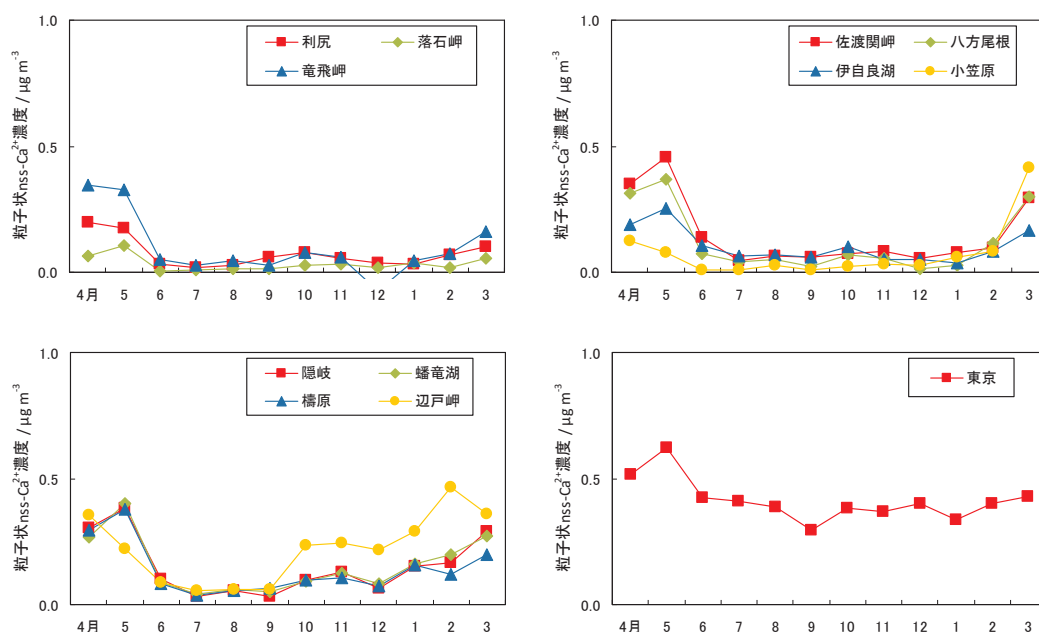


図 3-1-20 粒子状 nss-Ca²⁺濃度の季節変動 (2013~2017 年度平均)
完全度が 70%未満の月間値は含めずに計算した。

(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 SO₂ 濃度の経年変化を図 3-1-21 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 SO₂ 濃度の経年変化を図 3-1-22 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、西側の隠岐が佐渡関岬よりも濃度が高い傾向がみられ、大陸からの移流の寄与が大きいことが示唆された。

2003~2017 年度の 15 年間の長期的傾向は、利尻(-0.01 ppb y⁻¹)、落石岬(-0.01 ppb y⁻¹)、竜飛岬(-0.02 ppb y⁻¹)、佐渡関岬(-0.03 ppb y⁻¹)、八方尾根(-0.03 ppb y⁻¹)、隠岐(-0.04 ppb y⁻¹)、蟠竜湖(-0.06 ppb y⁻¹)、橿原(-0.03 ppb y⁻¹)、辺戸岬(-0.01 ppb y⁻¹) 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 3-1-23) 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。これは火山から放出される SO₂ 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 SO₂ 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SO₂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SO₂の高濃度が報告されており、2000～2001年度の極大値は三宅島雄山の火山活動の影響を受けたとされている。

全国平均、非遠隔地域のSO₂濃度についても2007年度より減少傾向(-0.02 ppb y⁻¹)にあり、東アジアにおけるSO₂排出量の減少傾向を反映していると思われる。

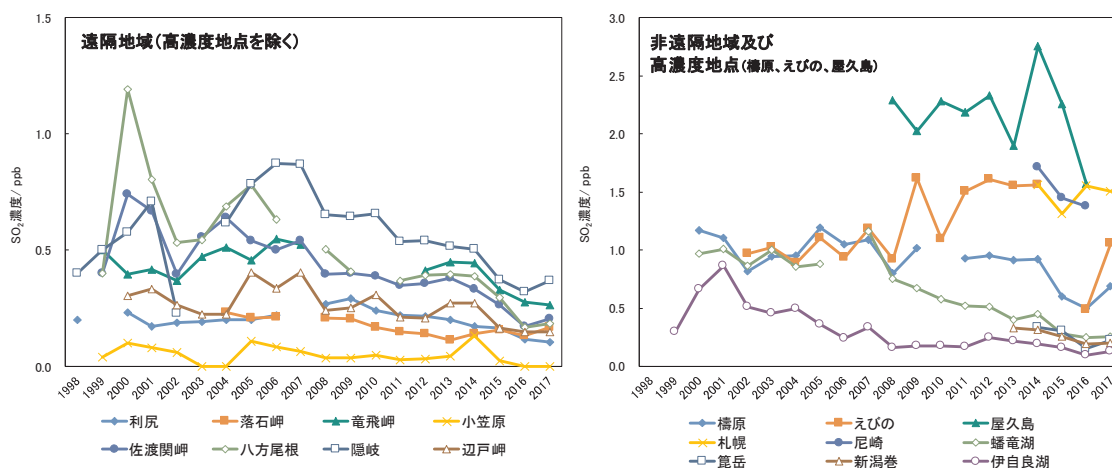


図 3-1-21 SO₂ 濃度の経年変化
完全度が 70%未満の年間値は表示しない。

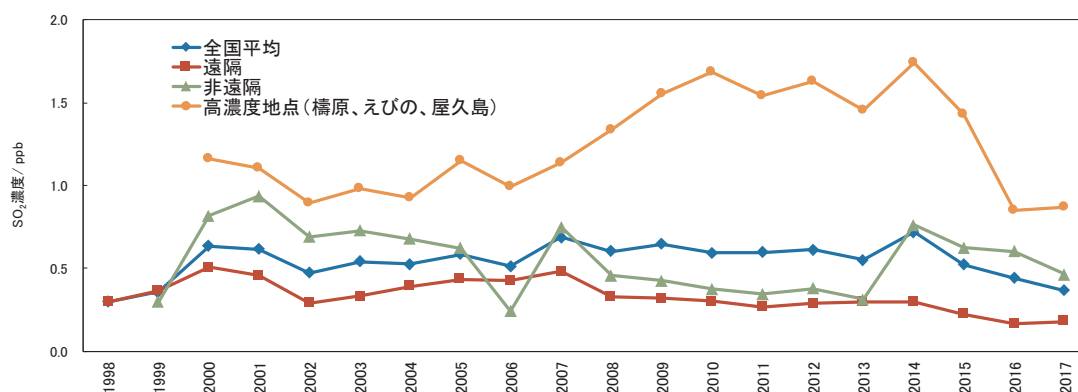


図 3-1-22 全国平均及び遠隔地域、非遠隔地域、高濃度地点(橿原、えびの、屋久島)

における SO₂ 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。

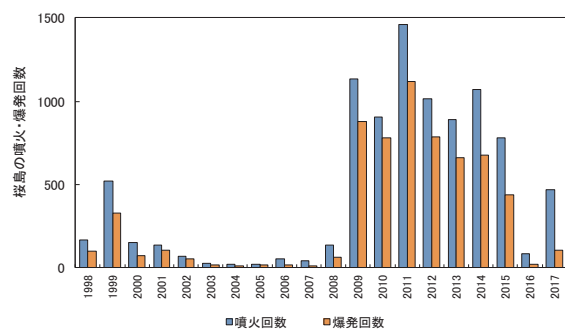


図 3-1-23 桜島の火山活動状況(出典：気象庁)

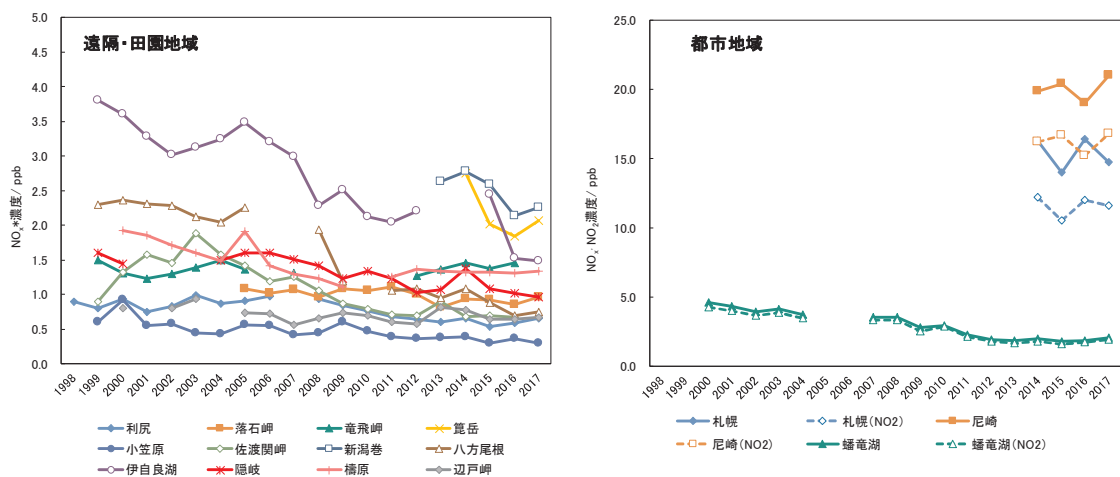


図 3-1-24 NO_x^* 及び NO_x , NO_2 濃度の経年変化
完全度が 70%未満の年間値は表示しない。

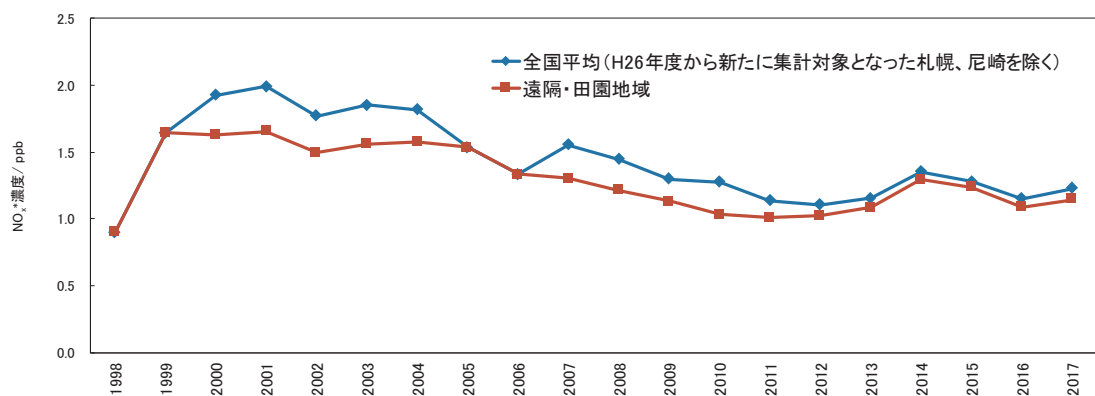


図 3-1-25 全国平均及び遠隔・田園地域における NO_x 年平均濃度の経年変化
完全度 70%未満の年間値は含めずに計算した。

1998～2017 年度の各測定局における NO_x^* (遠隔・田園地域)及び NO_x , NO_2 (都市地域)濃度の経年変化を図 3-1-24 に、全国平均及び遠隔・田園地域における NO_x 濃度の経年変化を図 3-1-25 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、蟠竜湖(NO_x , NO_2 共に -0.17 ppb y^{-1})、利尻(-0.03 ppb y^{-1})、落石岬(-0.02 ppb y^{-1})、佐渡関岬(-0.08 ppb y^{-1})、八方尾根(-0.11 ppb y^{-1})、伊自良湖(-0.13 ppb y^{-1})、隠岐(-0.05 ppb y^{-1})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 NO_x 濃度についても、2000 年度よりそれぞれ -0.05 ppb y^{-1} 、 -0.03 ppb y^{-1} と減少傾向にあり、国内における 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(HNO_3 及び NH_3)と粒子状成分濃度(nss-SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 NH_4^+ 及び nss-Ca^{2+})の経年変化を図 3-1-26～31 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(HNO_3 、 NH_3 、粒子状 NO_3^- 及び粒子状 NH_4^+)及び粒子状 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 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 ppb y^{-1})、伊自良湖(-0.02 ppb y^{-1})、東京(-0.02 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 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 ppb y^{-1})、伊自良湖(-0.02 ppb y^{-1})、東京(-0.12 ppb y^{-1})、蟠竜湖 (-0.04 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 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($-0.16 \mu\text{g m}^{-3} \text{ y}^{-1}$)、橈原($-0.15 \mu\text{g m}^{-3} \text{ y}^{-1}$)、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。 SO_2 濃度と同様に、日本海側の遠隔地域では、西側の隠岐が佐渡関岬よりも濃度が高い傾向が見られ、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 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 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 ($-0.05 \mu\text{g m}^{-3} \text{y}^{-1}$)、檮原 ($-0.03 \mu\text{g m}^{-3} \text{y}^{-1}$)、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 nss-Ca^{2+} 濃度は、2003～2017 年度の 15 年間の長期的傾向について、檮原 ($-0.01 \mu\text{g m}^{-3} \text{y}^{-1}$)、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。

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 nss-SO_4^{2-} 濃度と粒子状 NH_4^+ 濃度が似た変動を示した。一方、辺戸岬では粒子状 NO_3^- 濃度と粒子状 NH_4^+ 濃度が似た変動を示した。

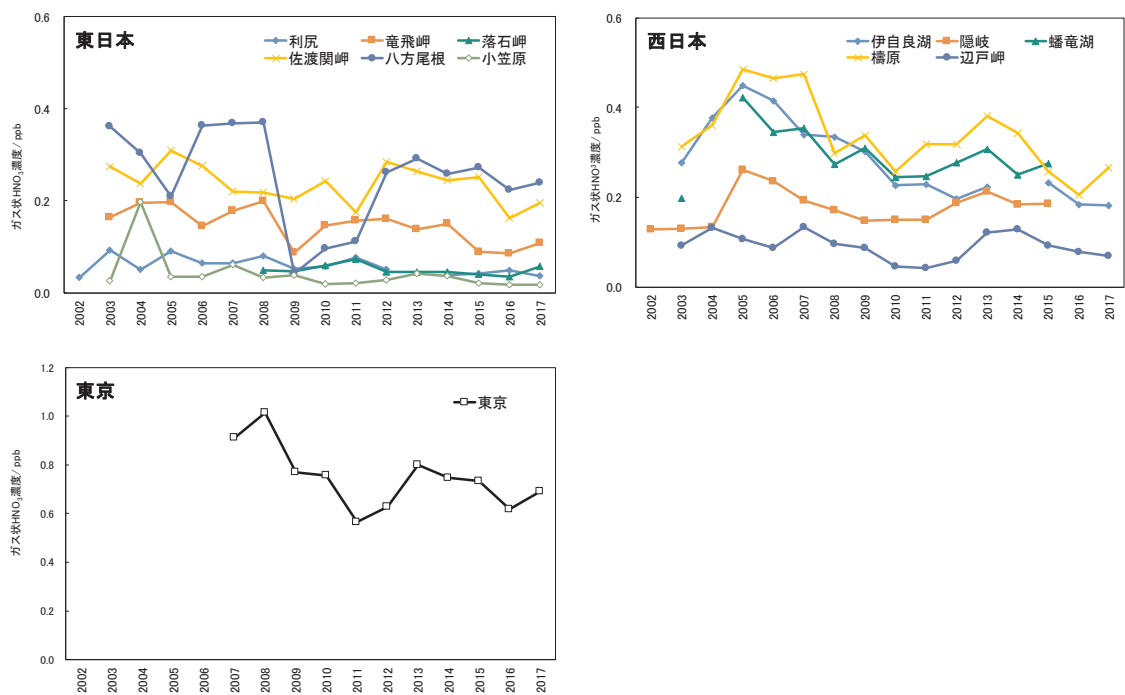


図 3-1-26 ガス状 HNO₃ 濃度の経年変化

完全度が 70%未満の年間値は表示しない。

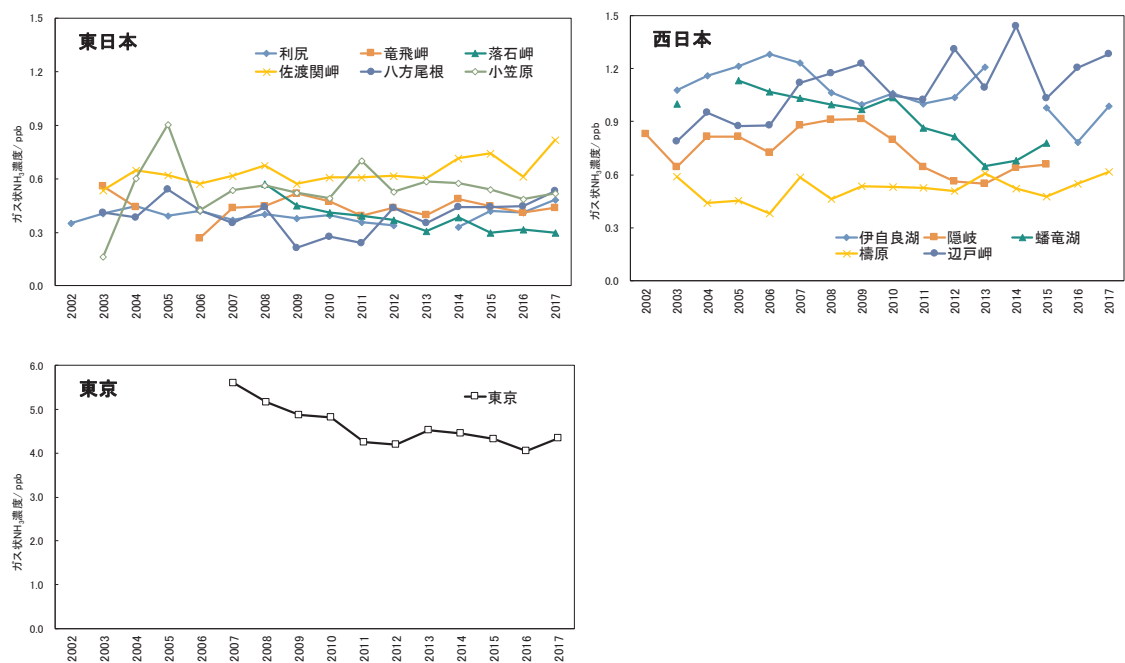


図 3-1-27 ガス状 NH₃ 濃度の経年変化

完全度が 70%未満の年間値は表示しない。

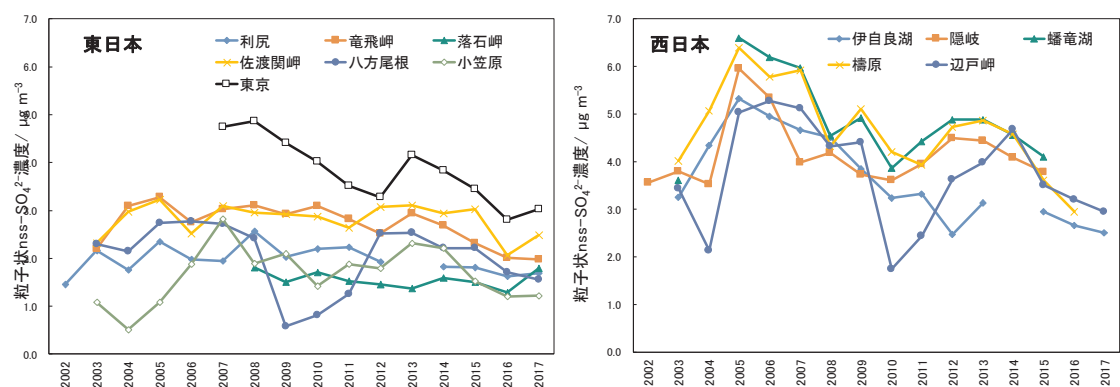


図 3-1-28 粒子状 nss-SO_4^{2-} 濃度の経年変化

注：完全度が 70%未満の年間値は表示しない。

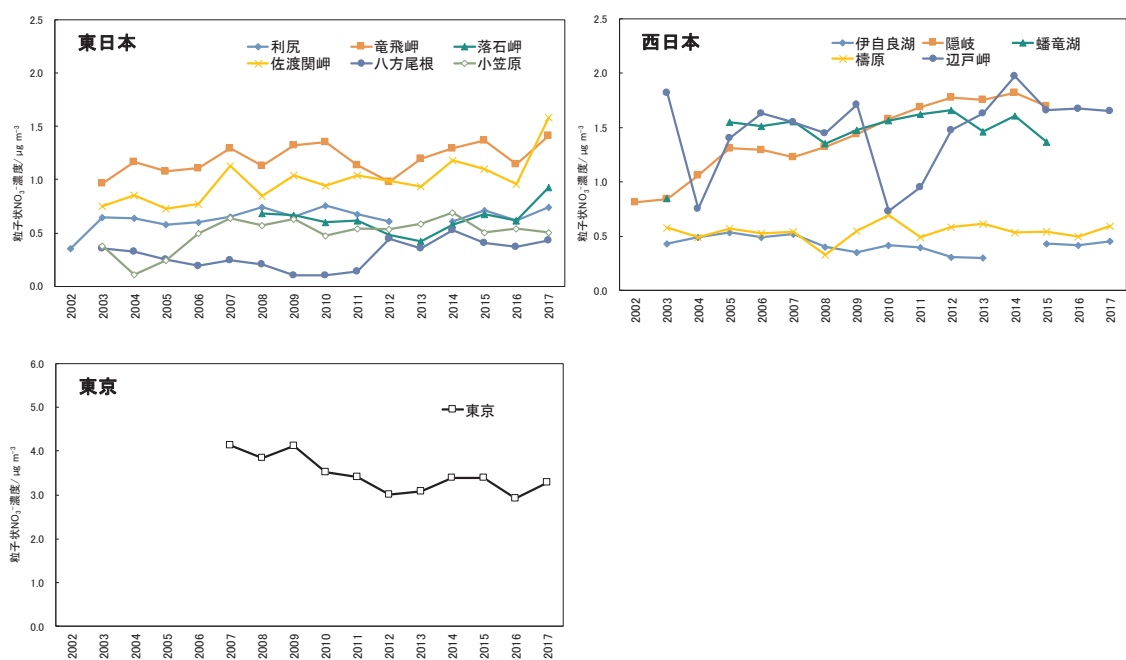


図 3-1-29 粒子状 NO_3 濃度の経年変化

完全度が 70%未満の年間値は表示しない。

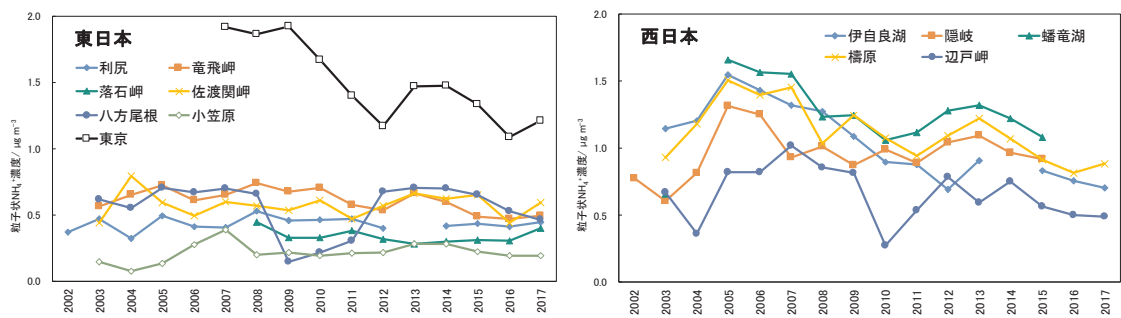


図 3-1-30 粒子状 NH_4^+ 濃度の経年変化

完全度が 70%未満の年間値は表示しない。

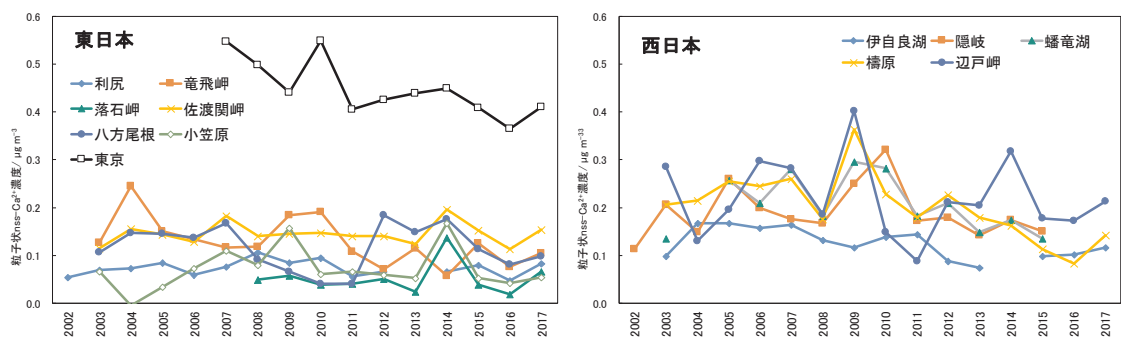


図 3-1-31 粒子状 nss- Ca^{2+} 濃度の経年変化

完全度が 70%未満の年間値は表示しない。

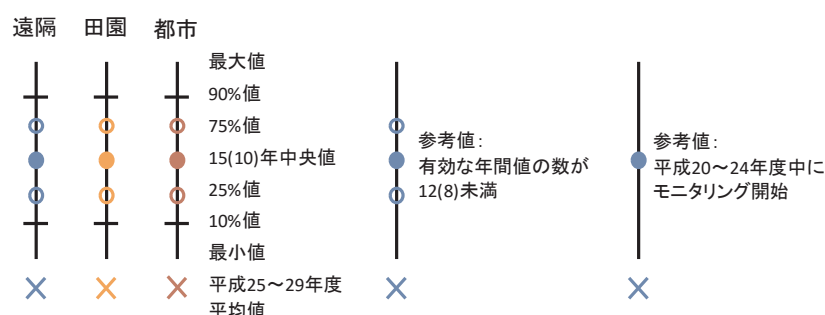
なお、 O_3 、 PM_{10} 及び $\text{PM}_{2.5}$ の長期的傾向については、第 5 章 5.1.1 及び 5.1.2 で述べる。

(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 3-1-30 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_3 を除く項目に低めの傾向がみられた。 O_3 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_x^* 、篛岳の O_3 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 $nss-Ca^{2+}$ 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 $nss-Ca^{2+}$ のみ大半の地点で低めの傾向を示した。また竜飛岬 NH_3 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＞

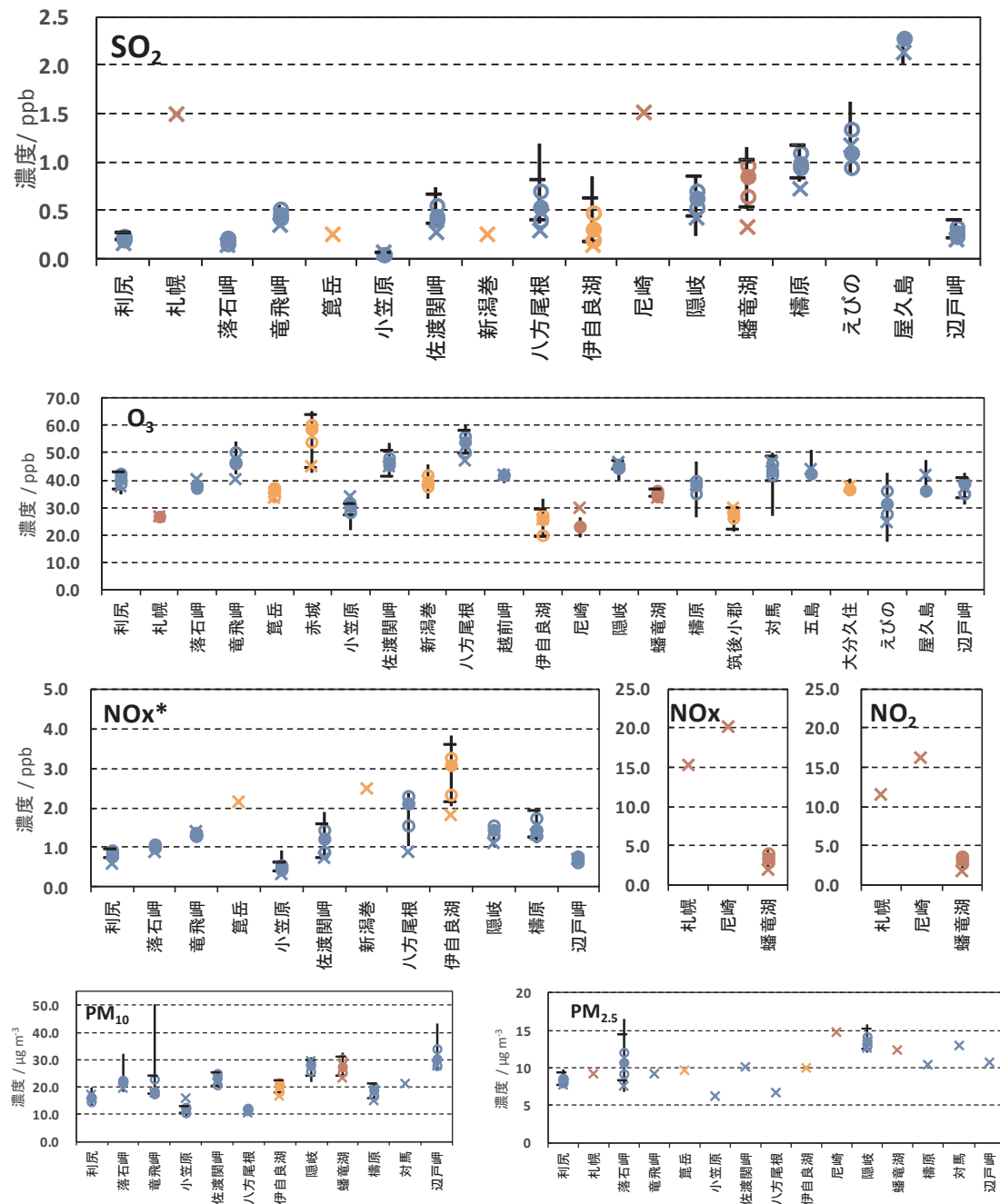


図 3-1-29 大気汚染物質濃度 15 年中央値及び分位値(2003～2017 年度)と 5 年平均値(2013～2017)年度の比較

＜フィルターパック法による測定結果＞

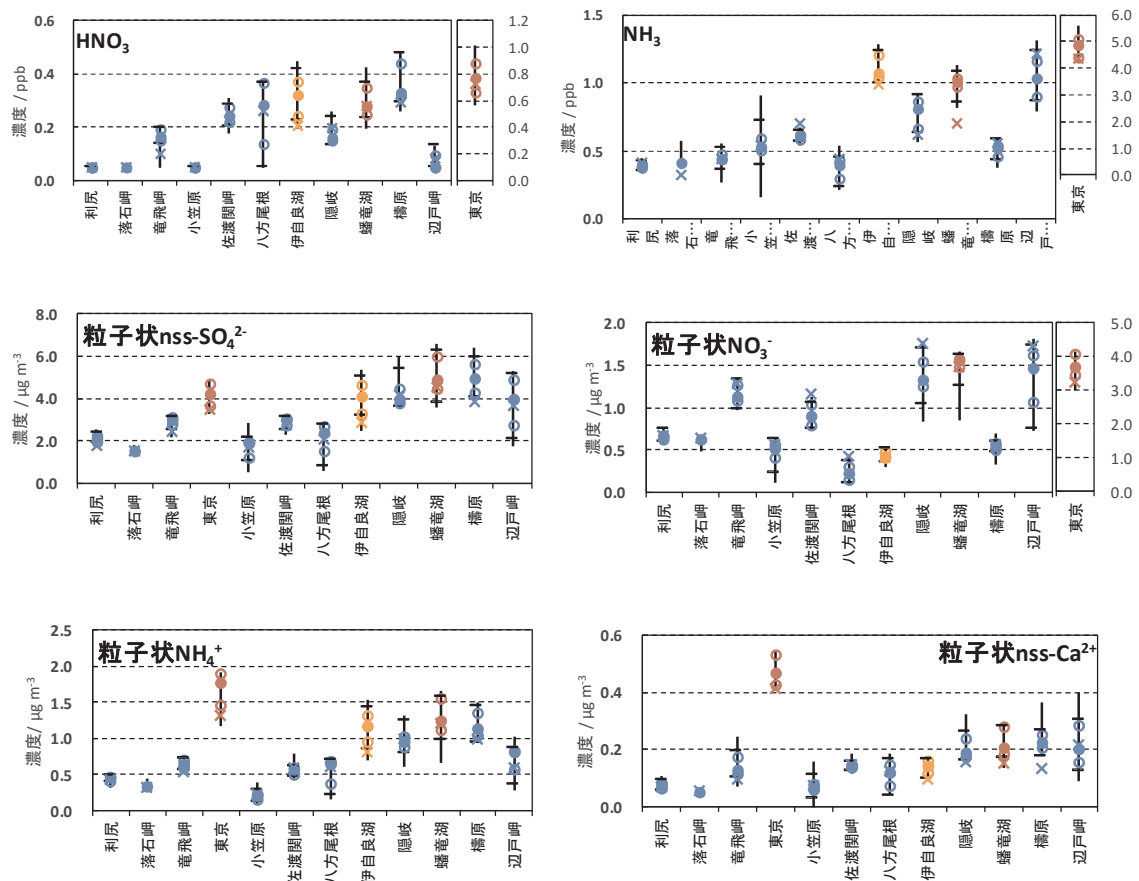


図 3-1-29 大気汚染物質濃度 15 年中央値及び分位値(2003～2017 年度)と 5 年平均値(2013～2017)年度の比較(続き)

(4) ガス、エアロゾル濃度傾向のまとめ

- SO_2 濃度は全体的に夏季に低く、冬季にかけて最大となる傾向がみられ、大陸からの越境汚染の影響が示唆された。その一方で、屋久島、えびの、橋原では火山由来と考えられる高濃度が観測された。
- 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。多くの地点で秋季にもピークがみられた。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、春季の越境汚染、成層圏からの降下、夏季の海洋性大気の流れ等が指摘されている。
- PM_{10} 濃度、 $\text{PM}_{2.5}$ 濃度、 nss-Ca^{2+} 濃度は春季に高い季節変動を示し、黄砂の飛来が影響していると考えられる。

- 粒子状 nss-SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、粒子状 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。
- 窒素を含む成分(HNO_3 、 NH_3 、粒子状 NO_3^- 及び粒子状 NH_4^+)及び粒子状 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。
- 過去 15 年間値と比較すると、5 年平均値は O_3 を除く項目に低めの傾向がみられた。 O_3 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_x^* 、篁岳の O_3 等最低値を示す地点もあった。低めの傾向が今後どのように推移していくかを注視する必要がある。
- 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_2 、 HNO_3 、 NH_3 、粒子状物質中のイオン成分： nss-SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 NH_4^+)を推計した。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」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_2 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 3-1-32～図 3-1-34 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_2 、 HNO_3 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_2 、 HNO_3 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_3 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。

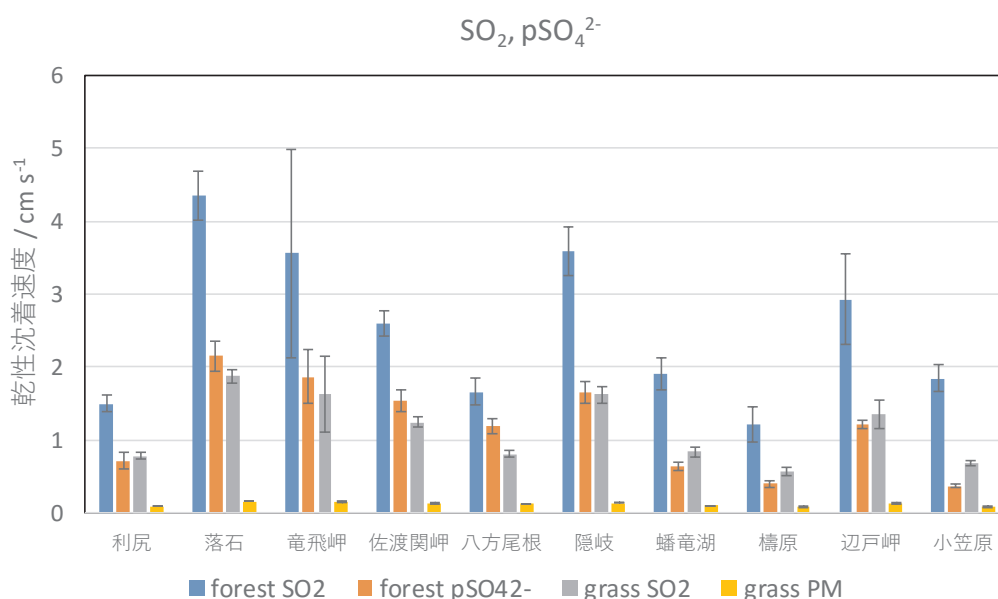


図 3-1-32 2013～2017 年の国内 EANET 局における SO_2 、

粒子状 SO_4^{2-} 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。

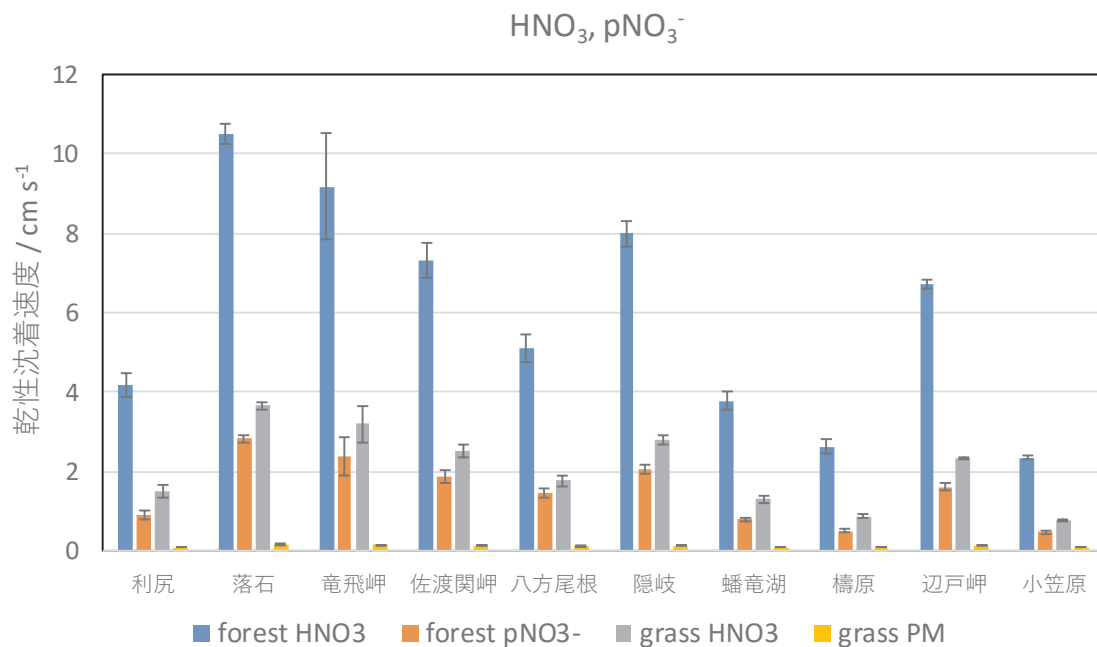


図 3-1-33 2013～2017 年の国内 EANET 局における HNO_3 、
粒子状 NO_3^- の乾性沈着速度の 5 年平均値

エラーバーは 5 年値の標準偏差を示す。

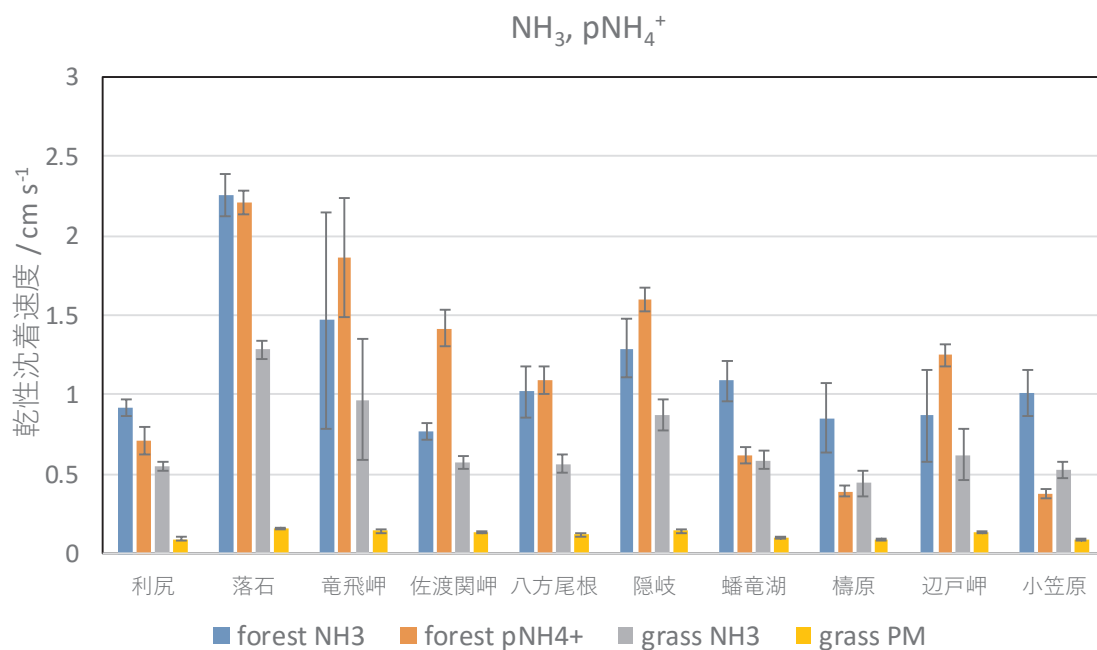


図 3-1-34 2013～2017 年の国内 EANET 局における NH_3 、粒子状 NH_4^+ の

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3-1-35、図3-1-36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 mmol m⁻² y⁻¹、19.0-111.6 mmol m⁻² y⁻¹であった。なお、硫黄の総沈着量は、降水中のnss-SO₄²⁻の湿性沈着量、及びガス状物質のSO₂と粒子状物質のnss-SO₄²⁻の乾性沈着量の総計で、窒素の総沈着量は、降水中のNO₃⁻とNH₄⁺の湿性沈着量、及びガス状物質(HNO₃、NH₃)と粒子状物質(NO₃⁻、NH₄⁺)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檮原で高く、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、nss-SO₄²⁻の湿性沈着量は、5.3～23.0 mmol m⁻² y⁻¹、硫黄化合物の乾性沈着量は2.4～36.7 mmol m⁻² 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 mmol m⁻² y⁻¹の範囲、乾性沈着量は5.4～69.8 mmol m⁻² 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。

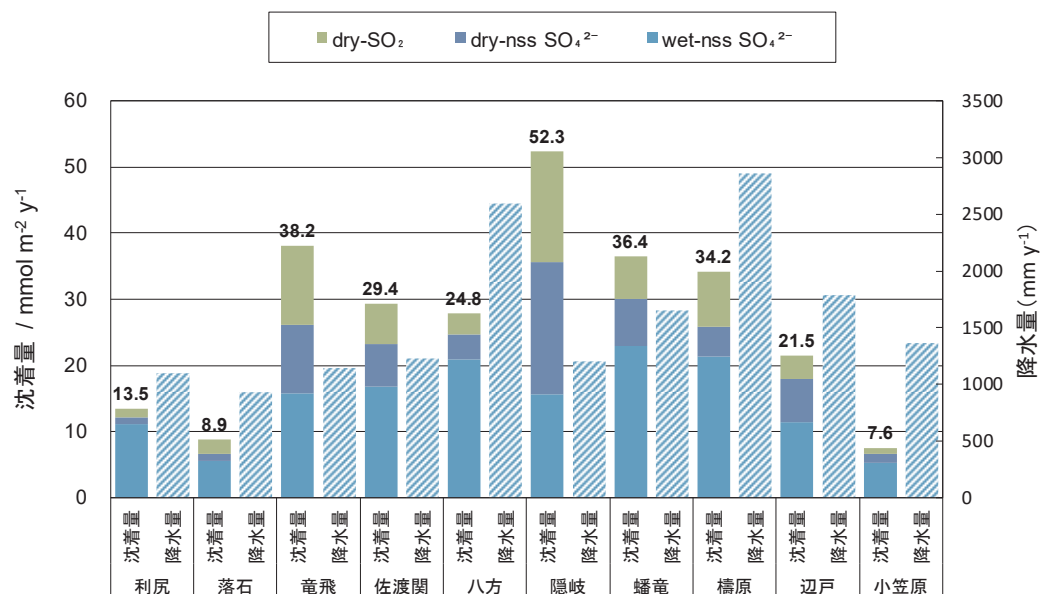


図 3-1-35 2013～2017 年の国内 EANET 局における硫黄化合物の沈着量と降水量の 5 年平均値

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。

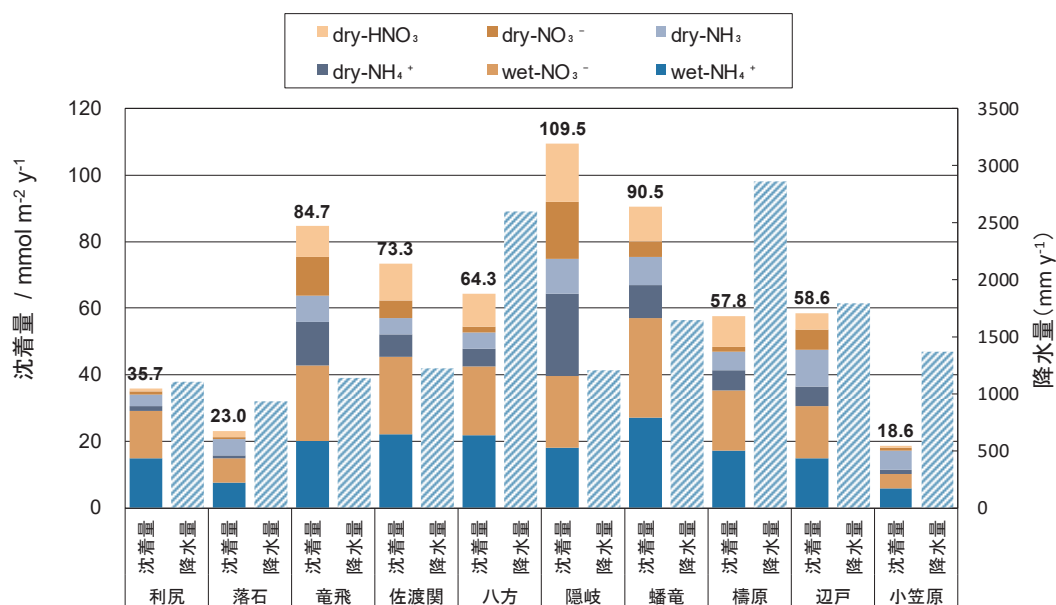


図 3-1-36 2013～2017 年の国内 EANET 局における窒素化合物の沈着量と降水量の 5 年平均値

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_3 、 NH_3 ガス、降水および粒子中 NO_3^- 、 NH_4^+) の大気沈着量の推計を行った (Ban et al., Atmos. Environ., 2016)。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^{-1} 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 (Itahashi et al., Atmos. Chem. Phys., 2018)、降水中濃度と NO_x 、 SO_2 の排出量及び衛星で観測された NO_2 、 SO_2 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_x の排出量及び NO_2 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_2 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_x ／ SO_2 の排出量比及び NO_2 ／ SO_2 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_x 、 SO_2 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 $\text{PM}_{2.5}$ の日平均値が環境基準を超える $96 \mu\text{g}/\text{m}^3$ の高濃度イベントが観測された。 $\text{PM}_{2.5}$ 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 $\text{PM}_{2.5}$ の特徴を明らかにするため、国設新潟巻酸性雨測定局で $\text{PM}_{2.5}$ 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_{2.5}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_{2.5}の主要発生源および長距離輸送の寄与を解析した(Li et al., Aerosol. Air Qual. Res., 2018)。

PM_{2.5}の日平均濃度の範囲は4.2 ~33.4 $\mu\text{g m}^{-3}$ 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_{2.5}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_{2.5}濃度が高くなる傾向が見られ、SO₄²⁻、NH₄⁺、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_{2.5}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_{2.5}主成分はSO₄²⁻、NO₃⁻、NH₄⁺、OC、ECであり、新潟および首都圏の都市地域よりもNO₃⁻、EC、EC/OC比が低かったことから、化石燃焼起源の影響が低いことが示された。

PMF法によるPM_{2.5}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3-1-37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SO₄²⁻、NH₄⁺、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。

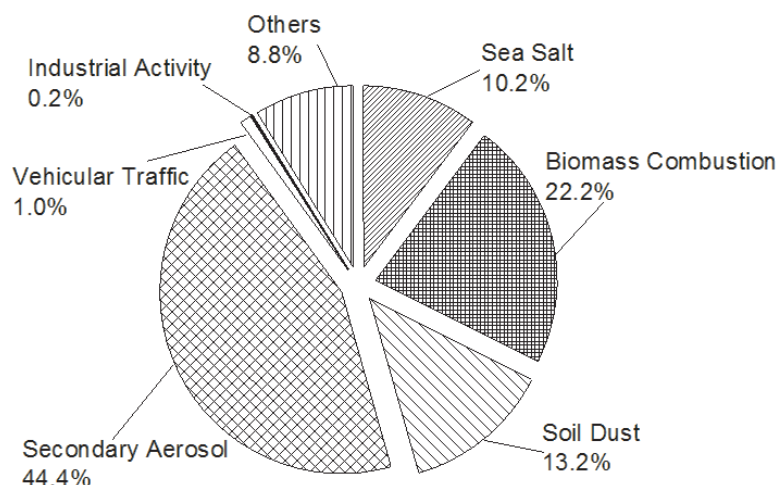


図 3-1-37 新潟巻における PM_{2.5} 濃度に対する発生源寄与割合

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 CO₂ 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(Huo et al., Atmos. Environ., 2016)。

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 3-1-38 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。

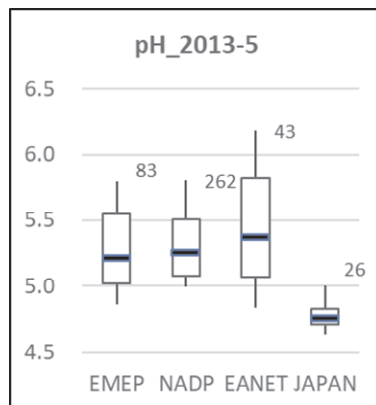


図 3-1-38 日本の降水 pH の国際ネットワーク (EMEP¹⁴: 欧州 [1]、NADP¹⁵: 北米 [2]、

EANET: 日本以外の東アジア [3]) との比較

構成地点の 2013~15 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 諸国に比べて非常に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 = $\text{nss}\cdot\text{SO}_4^{2-} + \text{NO}_3^-$ 、塩基濃度和 = $\text{NH}_4^+ + \text{nss}\cdot\text{Ca}^{2+}$ をそれぞれ当量濃度和として求め、評価を行った。

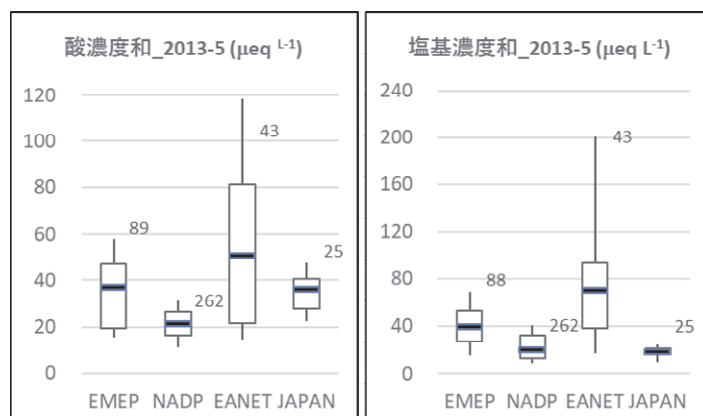


図 3-1-39 各ネットワークにおける酸 (左) 及び塩基 (右) 濃度和の比較

酸濃度和は $\text{nss}\cdot\text{SO}_4^{2-} + \text{NO}_3^-$ 、塩基濃度和は $\text{NH}_4^+ + \text{nss}\cdot\text{Ca}^{2+}$ (いずれも当量濃度)。

図中の数値及び箱ひげ図の説明は図 3-1-38 に同じ。

図 3-1-39 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

¹⁴ 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)

¹⁵ NADP: 米国国家大気降下物測定プログラム (National Atmospheric Deposition Program)

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、日本では酸が塩基の 2 倍以上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。

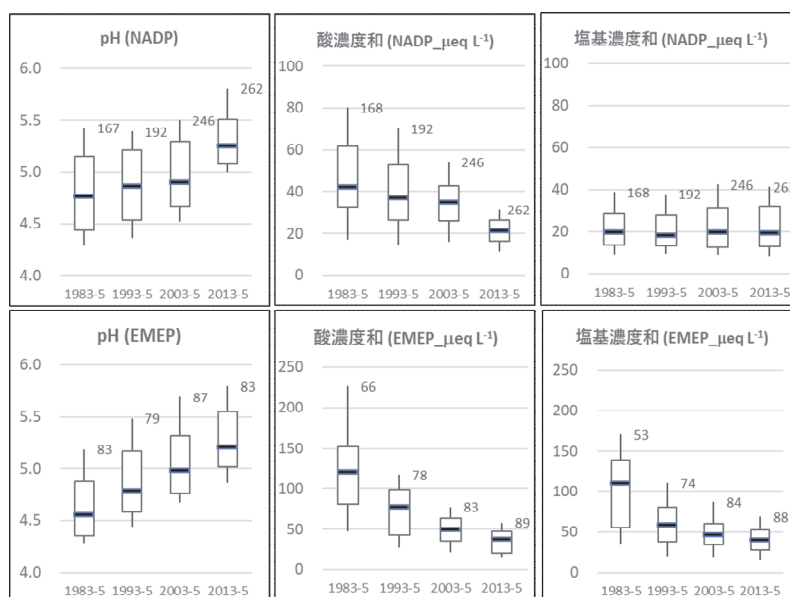


図 3-1-40 北米(上段)および欧州(下段)のネットワークにおける降水 pH 及び降水中の酸と塩基の濃度和の長期変動

図中の数値及び箱ひげ図の説明は図 3-1-38 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 3-1-40 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、2013～15 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、2013～15 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 [4])、米国で 22%と 52% (USEPA, 2018 [5])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。

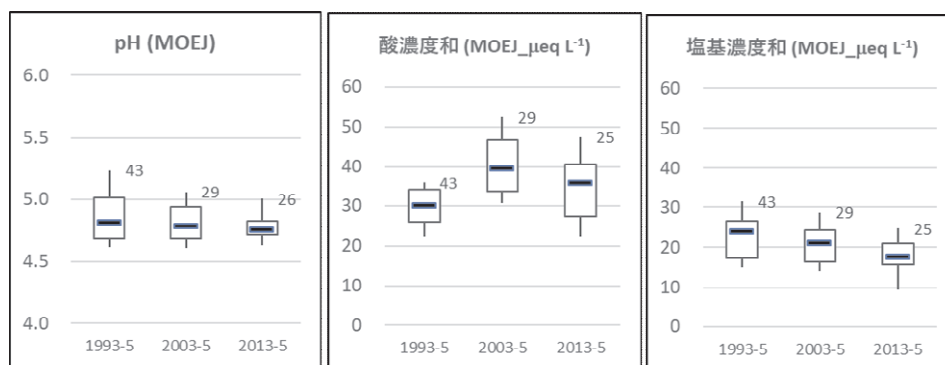


図 3-1-41 日本の降水 pH 及び降水中の酸と塩基の濃度和の長期変動

図中の数値及び箱ひげ図の説明は図 3-1-38 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 3-1-41 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 3-1-42 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[6]。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^+ 沈着量は 2013～2015 年で、NADP が 6.0、EMEP が 4.6、EANET が 6.2 $mmol\ m^{-2}\ y^{-1}$ であるのに対し、日本は 31 $mmol\ m^{-2}\ y^{-1}$ 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。

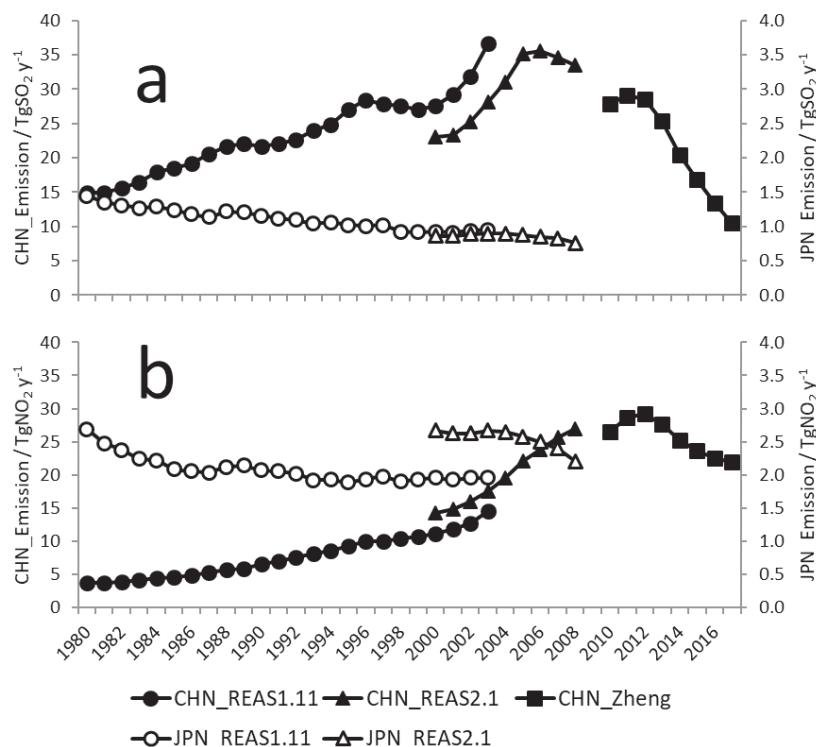


図 3-1-42 日本と中国における硫黄酸化物 (a) と窒素酸化物 (b) (二酸化窒素換算値) の

排出量の経年変動

(REAS1.11 [7], REAS2.1 [8], 及び Zheng [9]より作成)

【引用文献】

- [1] 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).
- [2] National Atmospheric Deposition Program (NADP) in United States, Available at: <http://nadp.slh.wisc.edu/data/NTN/> (2018.10.19 確認).
- [3] Acid Deposition Monitoring Network in East Asia, Available at: <http://www.eanet.asia/product/index.html#datarep> (2018.10.19 確認).
- [4] 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).
- [5] USEPA, 2014 National Emission Inventory report, <http://gispub.epa.gov/neireport/2014/> (2018. 7.20 確認).

- [6] 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.
- [7] 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.
- [8] 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.
- [9] 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。

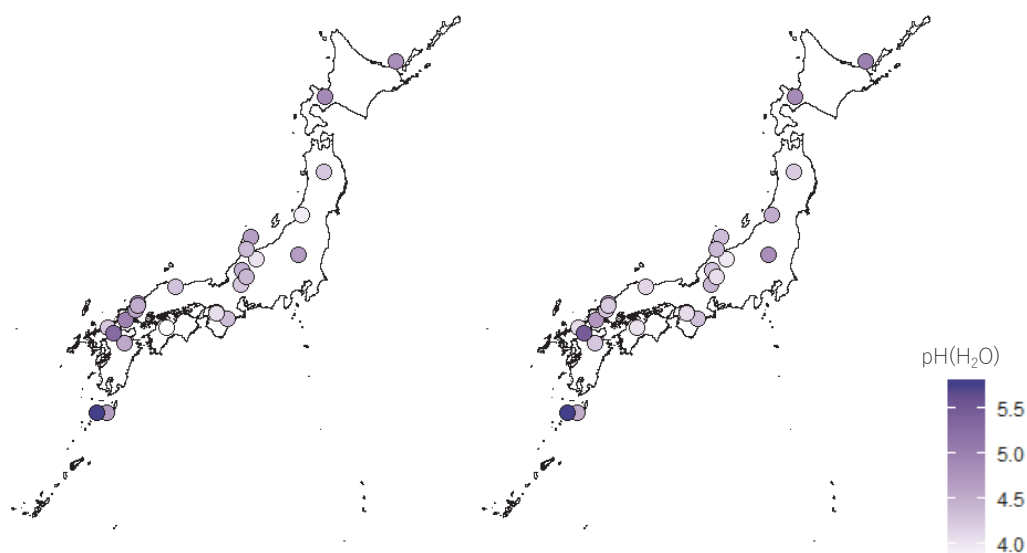


図 3-2-1 土壌・植生モニタリング地点の土壌表層(0～10 cm)の pH(H₂O)
2003～2007 年度(左)と 2013～2017 年度(右)

最新の表層土壌の pH(H₂O) (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・礫岩をはさむ手取層群
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	石鎚国定公園	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	デイサイト質火砕岩
	石動山	36°58'	136°58'	480	褐色森林土	落葉広葉樹・天然林	ブナ	砂岩
15	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
	天野山	34°26'	135°32'	170	褐色森林土	ヒノキ・人工林	ヒノキ	砂岩
16	霜降岳	34°00'	131°16'	210	赤黄色土	落葉広葉樹・天然林	ヒサカキ	花崗岩
	十種ヶ峰	34°27'	131°41'	820	黒色土	ヒノキ・人工林	ヒノキ	デイサイト・流紋岩
17	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	砂岩・シルト岩
	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	泥質黒色片岩(部分的に結晶質石灰岩)
18	伊自良	35°34'	136°41'	130	褐色森林土	ヒノキ・人工林	ヒノキ	チャート
	大和	35°50'	136°57'	700	黒色土	ヒノキ・人工林	ヒノキ	凝灰角礫岩または火山角礫岩
19	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	粘土・砂礫
	石見臨空ファクトリーパーク	34°37'	131°47'	100	赤黄色土	常緑広葉樹・天然林	スダジイ	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(土じょう部, 1976)による。

*3 樹種名は、環境庁植物目録(環境庁自然保護局, 1994)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。 $\text{pH}(\text{H}_2\text{O})$ 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 $\text{pH}(\text{H}_2\text{O})$ 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(森林土壌研究会, 1993)。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^{2+})やマグネシウムイオン(Mg^{2+})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。

$\text{pH}(\text{KCl})$ 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、 $\text{pH}(\text{H}_2\text{O})$ が水(純水)で溶出した水溶液を測定するのに対し、 $\text{pH}(\text{KCl})$ は 1 mol L^{-1} の塩化カリウム溶液(KCl)で溶出した成分の pH を測定する。 $\text{pH}(\text{KCl})$ はどの地点でも、 $\text{pH}(\text{H}_2\text{O})$ 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^+)やアルミニウムイオン(Al^{3+})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^{2+} 、 Mg^{2+} 、 K^+ 、ナトリウムイオン(Na^+))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 $\text{cmol}_\text{c} \text{ kg}^{-1}$ 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^{2+} や Mg^{2+} 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^+ 、 Al^{3+})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。

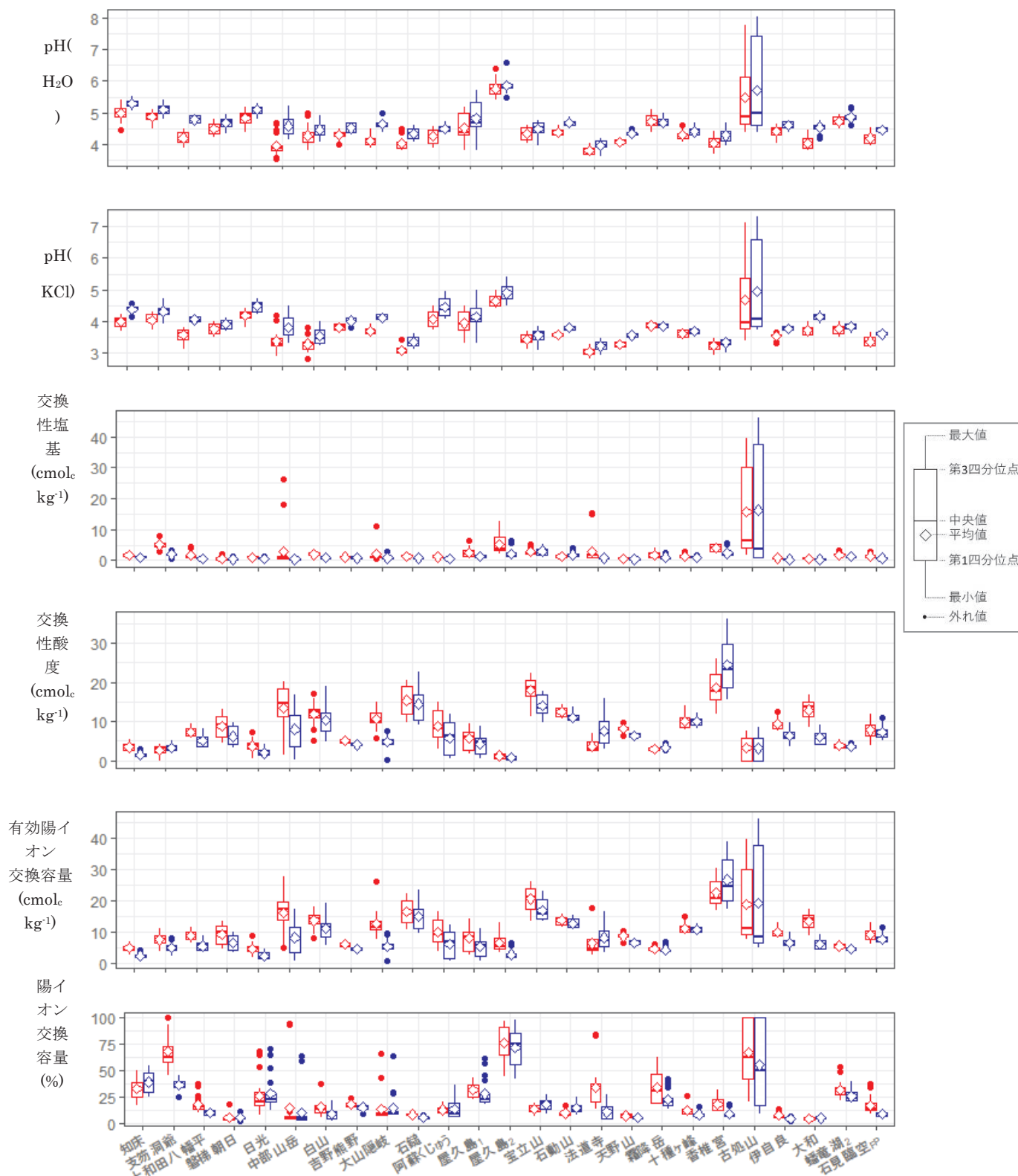


図 3-2-2 代表的な化学的特性値の変動範囲(2013～2017 年度調査)

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(H₂O)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(H₂O)、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 ₂ 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 _c kg ⁻¹		cmol _c kg ⁻¹		cmol _c kg ⁻¹		%	
褐色 森林土	1 3	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 ₂ O)		pH(KCl)		交換性 塩基 cmol _c kg ⁻¹		交換性 酸度 cmol _c kg ⁻¹		有効陽イオン 交換容量 cmol _c kg ⁻¹		塩基 飽和度 %	
		—		—									
針葉樹 天然林	3	4.77	a	4.01	a	1.42	b	4.58	b	6.01	b	26.37	a
		(0.46)		(0.35)		(0.97)		(2.48)		(3.06)		(13.03)	
落葉広葉樹 天然林	1	4.52	b	3.80	b	1.48	b	8.41	a	9.89	a	17.72	b
	2	(0.35)		(0.41)		(1.93)		(5.44)		(5.80)		(17.20)	
常緑広葉樹 天然林	5	4.60	b	3.68	c	2.23	a	7.90	a	10.12	a	30.12	a
		(0.71)		(0.62)		(2.27)		(7.95)		(8.32)		(25.94)	
ヒノキ 人工林	4	4.35	c	3.65	c	0.62	c	8.69	a	9.31	a	6.49	c
		(0.23)		(0.25)		(0.42)		(2.70)		(2.87)		(3.55)	

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下物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 土壌の化学的特性値の経年変化

土壌モニタリングでは土壌の化学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 m² 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¹⁶。

¹⁶ 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。

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

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(H₂O)の結果のみ示すが、巻末の参考表(2-62、2-63)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(H₂O)の経年変化を図 3-2-3 に示す。pH(H₂O)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(小池, 2008)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

$$\sum \alpha_i = 0, B_{ij} = N(0, \sigma_B), C_{ijk} = N(0, \sigma_C), \varepsilon_{ijkl} = N(0, \sigma)$$

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

この分散分析モデルでは、年次間に有意差があるかどうかを検定し、プロット以下については、分散の大きさを推定することとなる。表 3-2-4 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	$n_A = 2$ 又は 3	$n_A - 1$	$\sigma^2 + n\sigma_C^2 + nnc\sigma_B^2 + nncnBK^2$
変量	プロット(同じ年)	$n_B = 2$	$n_A(n_B - 1)$	$\sigma^2 + n\sigma_C^2 + nnc\sigma_B^2$
変量	サブプロット(同じプロット)	$n_C = 5$	$n_An_B(n_C - 1)$	$\sigma^2 + n\sigma_C^2$
変量	測定(同じサブプロット)	$n = 2$	$n_An_Bn_C(n - 1)$	σ^2

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

る。

経年変化を詳しくみると、表層の $\text{pH}(\text{H}_2\text{O})$ 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 $\text{pH}(\text{H}_2\text{O})$ 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 $\text{pH}(\text{H}_2\text{O})$ 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 $\text{pH}(\text{H}_2\text{O})$ 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 $\text{pH}(\text{H}_2\text{O})$ 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 $\text{pH}(\text{H}_2\text{O})$ 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。

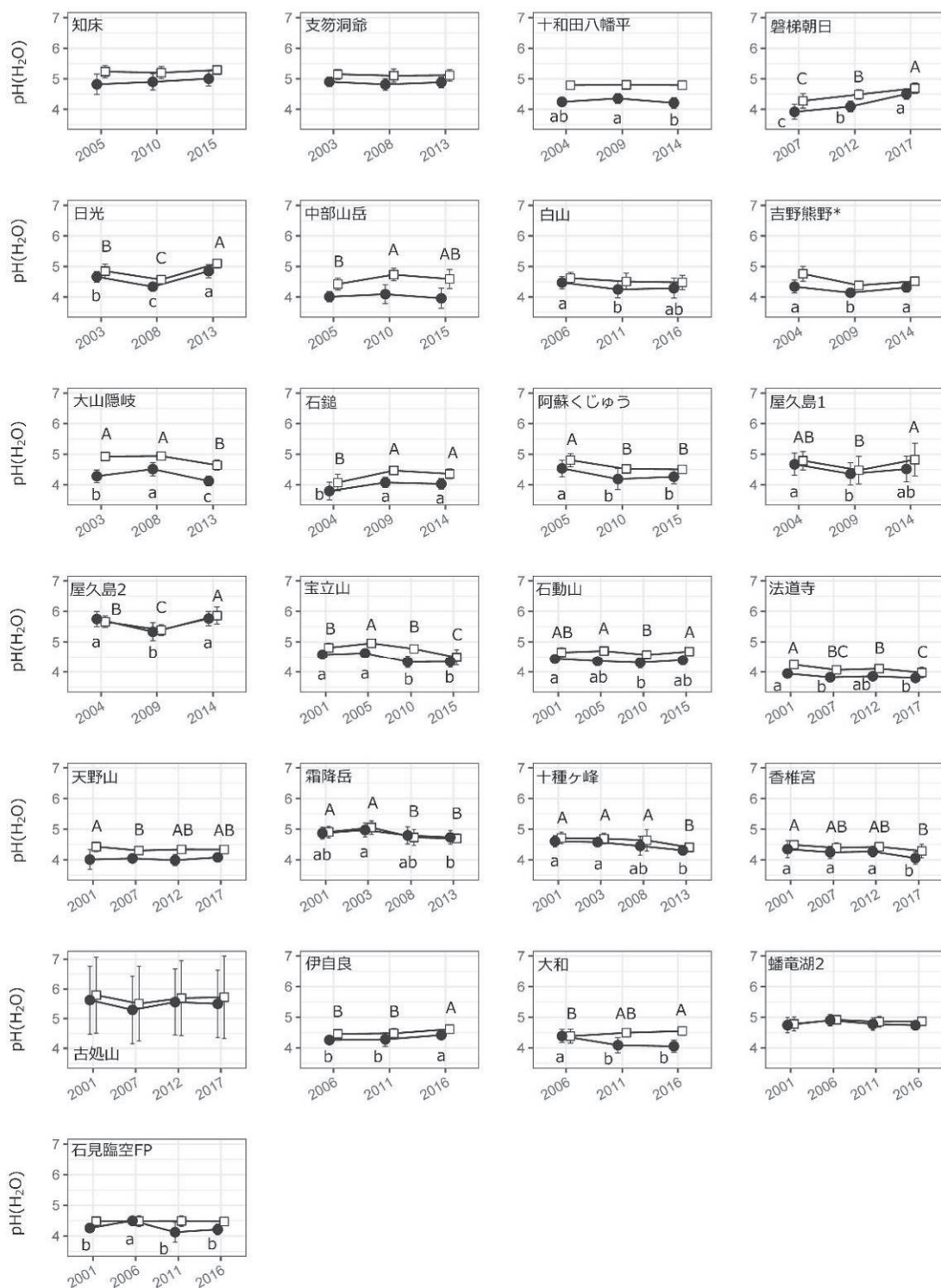


図 3-2-3 調査地レベルでの pH(H₂O)の経年変化

●は表層、□は次層、誤差は標準偏差(n=20)を示す。繰返し分析、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)。

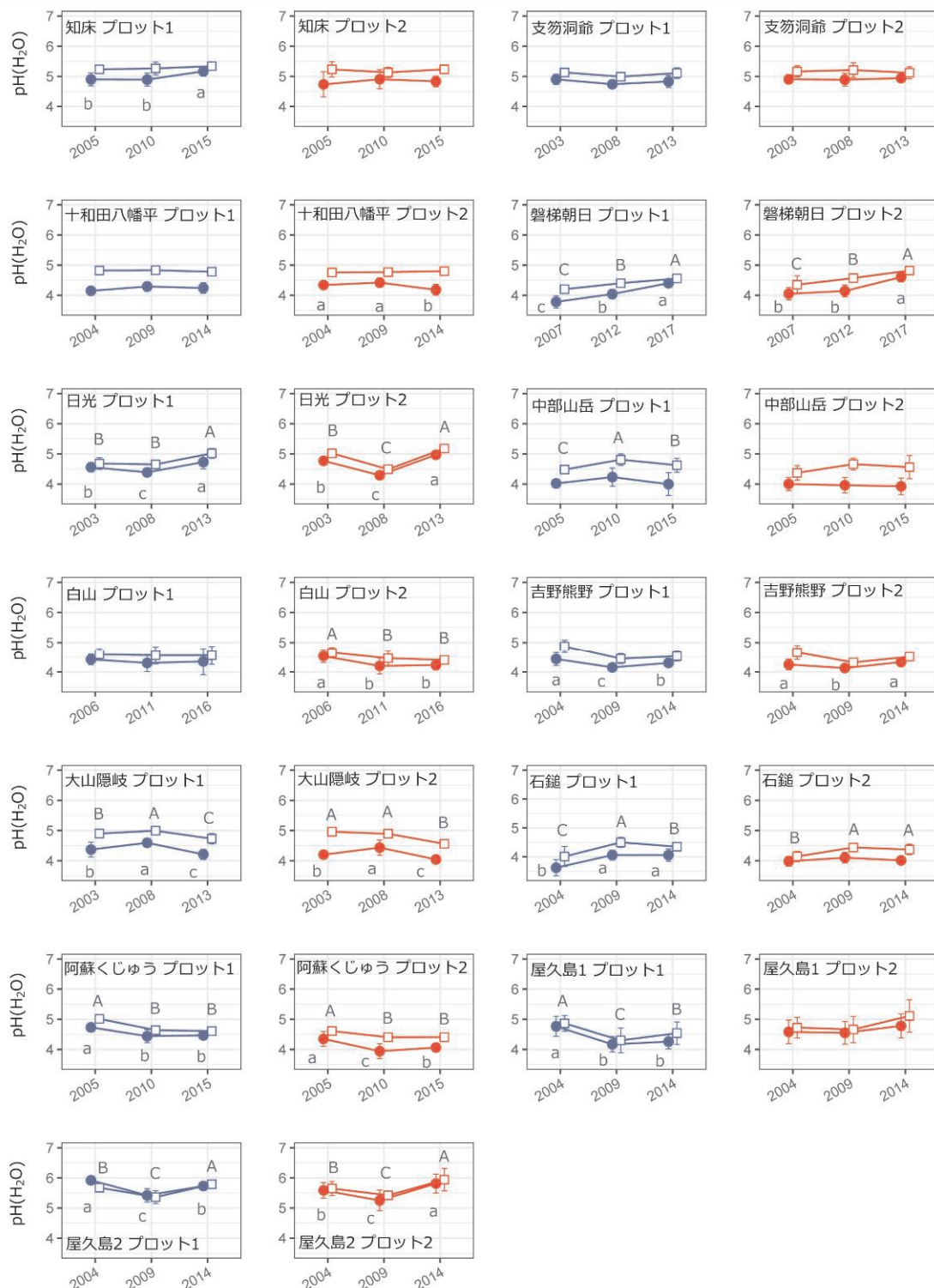


図 3-2-4 プロットレベルでの土壌 pH(H₂O)の経年変化(1)

●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)。

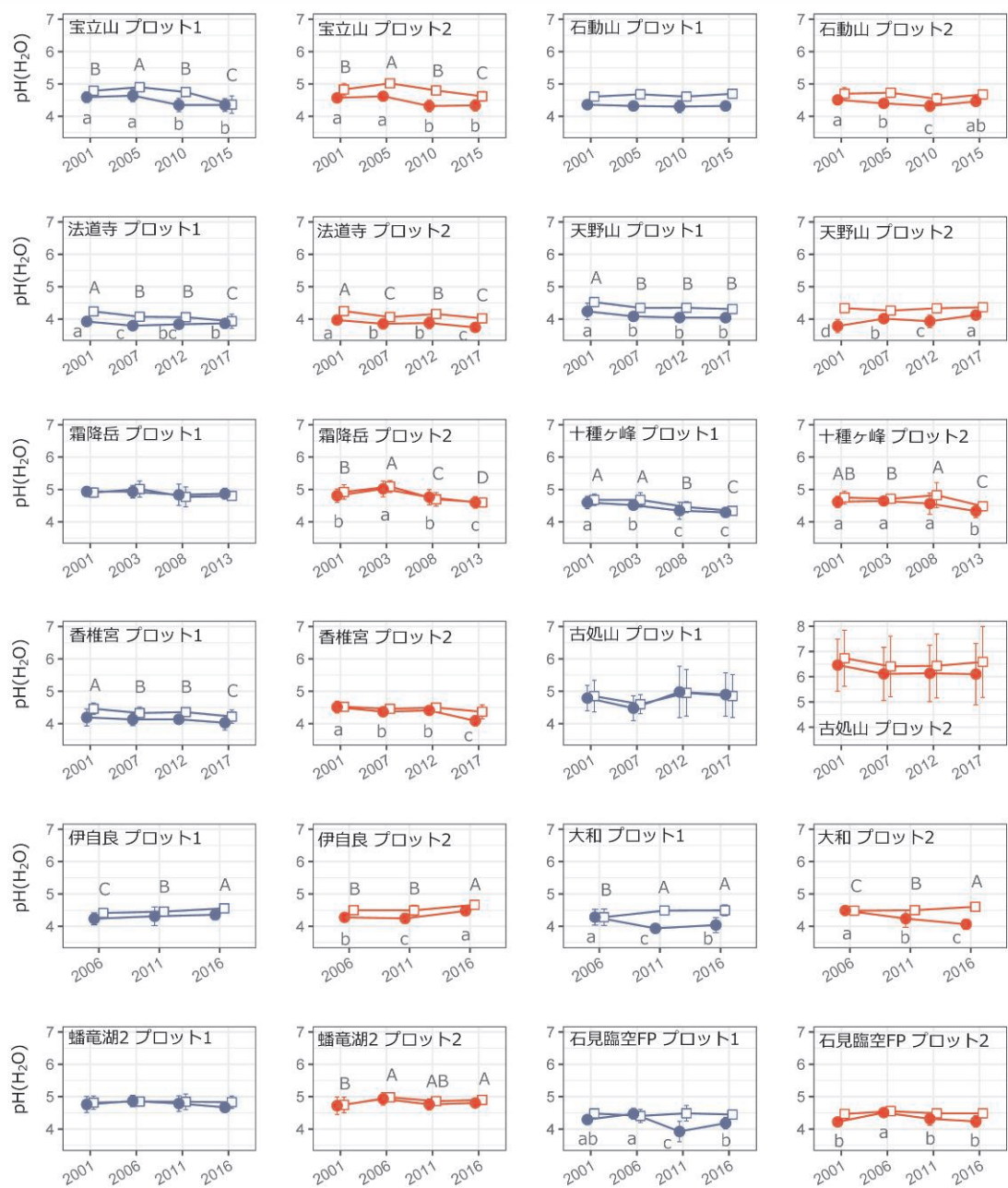


図 3-2-5 プロットレベルでの土壌 pH(H₂O)の経年変化(2)

●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、EANET, 2006)。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(EANET, 2006)

葉色 着葉異常	葉色		
	1	2	3
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)。

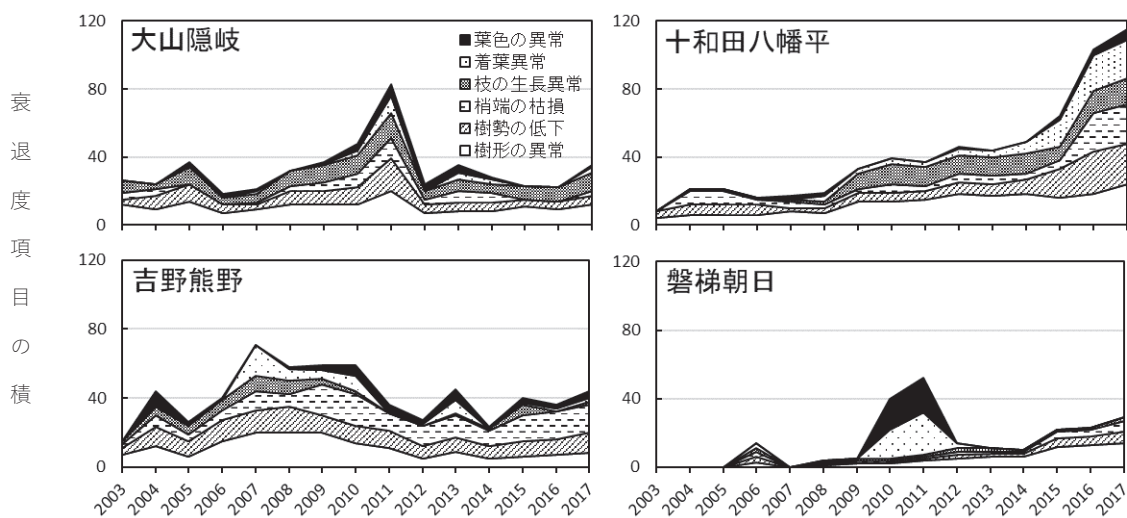


図 3-2-6 衰退度項目の積算値の経年変化

(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滅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。

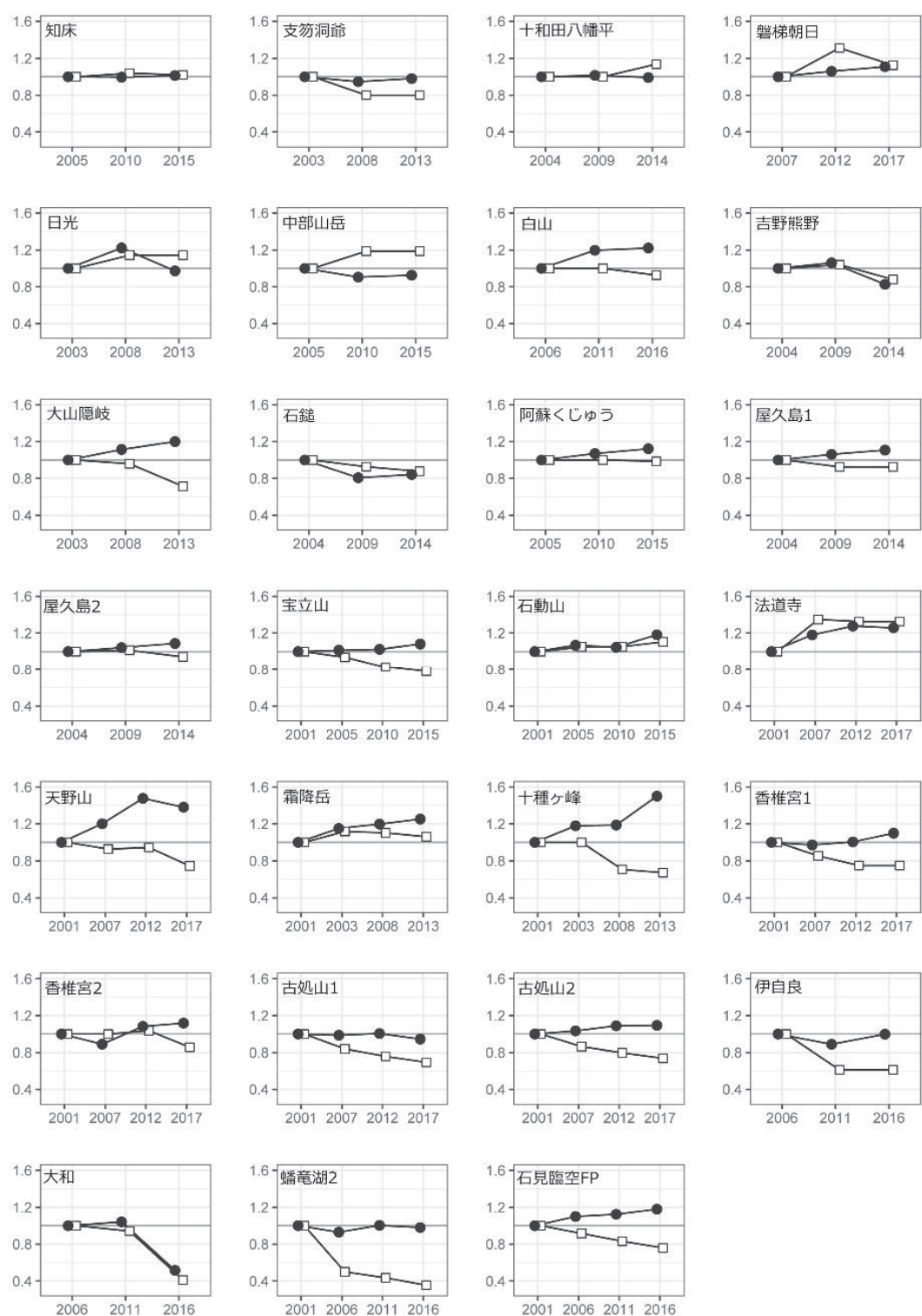


図 3-2-7 胸高断面積合計と本数密度の経年変化

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。

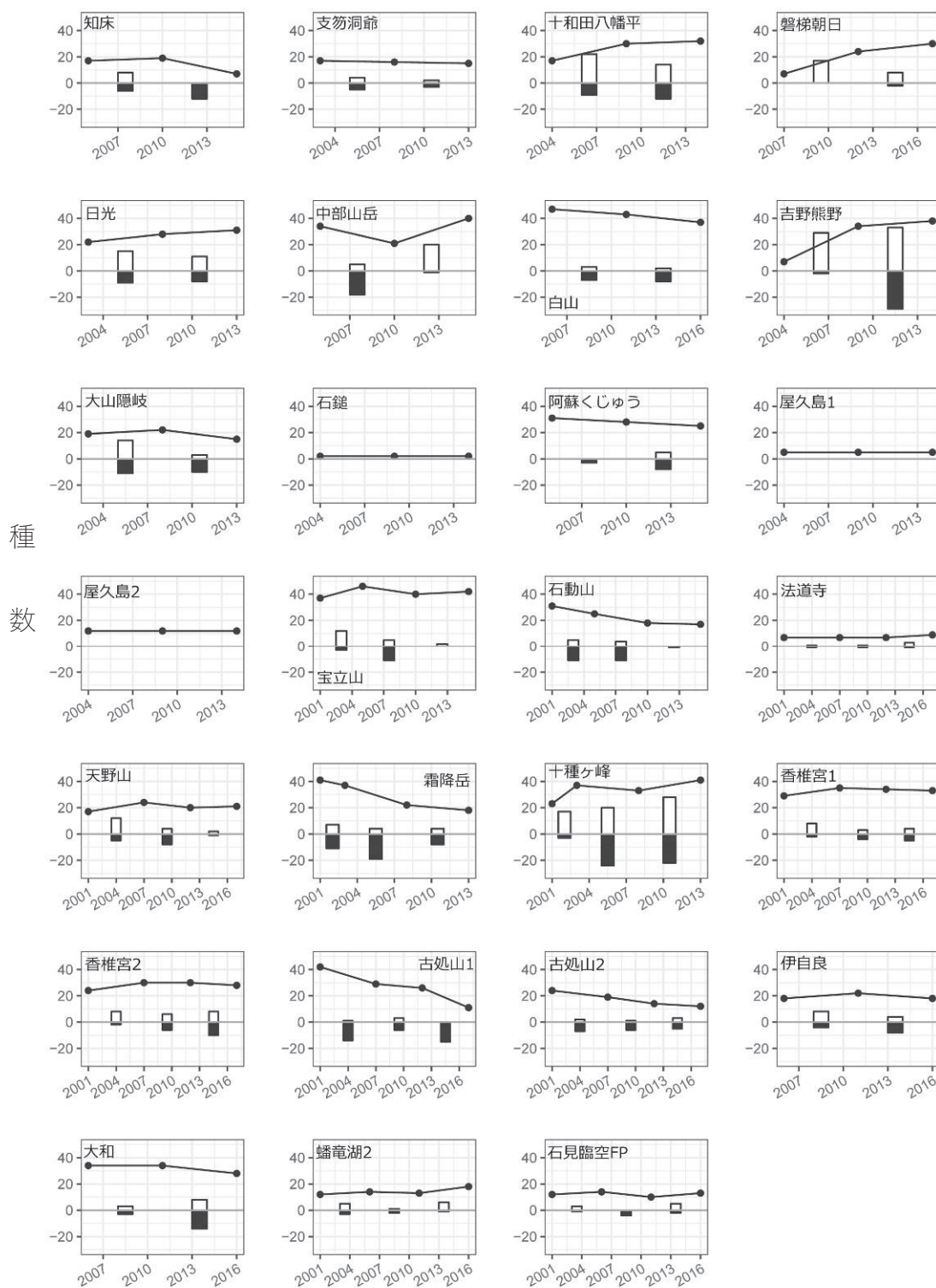


図 3-2-8 下層植生の種数の経年変化

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 年毎に実施した土壌・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(H₂O)について、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一貫した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、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ったことから、樹木成長の観点からは森林衰退は進行していないと考えられた。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。

引用文献リスト(章ごとにまとめる)

- 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.
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.
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.
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.
EANET (2006) Sub-manual on forest vegetation monitoring in EANET. Network Center for EANET, Acid Deposition and Oxidant Research Center, Niigata, Japan.

中部日本における陸水長期変動と融雪水の影響

【はじめに】

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)では、酸の累積沈着量や地質・土壌の酸に対する感受性を基に、土壌・陸水の酸性化のリスクが高い要監視地域の抽出を進めた。その結果、25 年間(1981～2005 年)の酸の累積沈着量は、日本海側・中部地方で多く、地質・土壌の感受性を考慮したリスクマップでは、中部地方から南西日本でリスクが高い地域として抽出された(Yamashita et al. 2016, JFR)。中部地方では、長野県(栗田・植田, 2006, 大気環境学会誌)及び新潟県・岐阜県(Matsubara et al. 2009, WASP)の公共用水域データ解析により、特に酸中和能が低い地質条件の地域で長期的な河川・湖沼の pH 低下傾向が報告されており、これらの報告とも調和的であった。また、河川 pH は大きく季節変動し、融雪期の春季に大きく低下することも指摘されている(栗田・植田, 2006)。特に、日本海側では、冬季季節風による降雪により酸性物質の沈着量が増大することから、融雪水の化学性は越境大気汚染の影響を大きく受けている可能性がある。なお、これらの河川 pH の低下に関連した魚類等への影響はこれまで確認されていない。一方で、中国の SO₂ 排出量は 2006 年をピークに低下を始めており(Lu et al. 2011, ACP)、N 酸化物の排出量の低下も近年報告されている。これに伴い本報告書の陸水モニタリングや集水域モニタリングでも述べられているように、酸性化からの回復傾向を示唆するデータも得られつつある。越境大気汚染の低下が我が国の生態系の回復に寄与しているのかどうか、より広域に評価するために、1990 年代に酸性化が確認された上記の中部 3 県(新潟県、長野県、岐阜県)について、融雪水に着目し、公共用水域(河川)で得られている pH データの長期変動の解析を行った。

【解析方法】

環境省水環境総合情報サイトで公開されている 1984～2016 年度までの 33 年間の公共用水域調査の河川水質データ(基本的に月毎)を基礎データとして、先行研究を参考に、人為的な汚染の影響が小さいと考えられる地点を選定した(BOD < 1 mg L⁻¹)。それらの地点のうち、年 10 回以上の有効データが得られた年(完全度、80%以上)が、1986 年以降 20 年以上ある地点について、河川 pH の長期トレンドの解析(季節性を考慮した Seasonal Mann-Kendall test)を行った。また、融雪水の影響する時期は年や地点によって異なるが、各年において、その影響を受ける可能性がある期間(3～6 月)の最低 pH の長期トレンドの解析(Mann-Kendall test)を行った。解析にあたっては、1986～2016 年度までの期間を通じた解析に加え、先行

研究において酸性化が指摘された 2000 年までの期間(1986～2000 年)、さらにそれ以降の期間(2001～1986 年)に分けた解析も行い、近年の回復傾向を精査した。

【結果】

河川 pH の長期変動

中部 3 県全てで共通の傾向が見られた(表 1)。すなわち、全期間(1986～2016 年)の解析においては、pH 上昇を示す地点数が、pH 低下を示す地点数を大きく上回っていた。また、解析期間の前期(2000 年まで)においては pH 低下を示す地点が多かったが、後期(2001 年以降)では pH 上昇傾向を見せる地点が多くなった。実際、前期に pH が低下した地点の多くが上昇に転じていた。広域的な酸性化からの回復が示唆される。

表 1 中部 3 県の公共用水域(河川)における長期 pH 変動(地点数)

自治体	変動傾向	解析期間		
		1986～2016	1986～2000	2001～2016
新潟県	pH 上昇	15	6	11
	pH 低下	6	10	4
長野県	pH 上昇	9	3	9
	pH 低下	4	5	1
岐阜県	pH 上昇	22	9	12
	pH 低下	2	17	9

融雪時期(3～6 月)の最低 pH の長期変動

新潟県では有効データが得られた年の 65%、長野県では 40%、岐阜県では 50%で、3-6 月に最低 pH が観測された(全有効データの延数での割合)。冬季降雪をもたらす北西季節風により越境大気汚染の影響が大きくなる新潟県では、内陸の長野県や太平洋側の岐阜県よりも融雪水の影響が比較的大きいことが示唆される。

融雪時期の最低 pH の長期変動においても、中部 3 県で共通の傾向が見られた(表 2)。すなわち、全期間(1986～2016 年)の解析においては、pH 上昇を示す地点数が、pH 低下を示す地点数を大きく上回っていた。また、解析期間の前期(2000 年まで)においては pH 低下を示す地点が多かったが、後期(2001 年以降)では pH 上昇傾向を示す地点が多くなった。前期に pH 低下が見られた地点でも、後期にその傾向は明瞭ではなくなった。越境大気汚染の影響を大きく反映する融雪期においても、回復傾向にある可能性が示された。

表 2 中部 3 県の公共用水域(河川)における融雪時期(3-6 月)の最低 pH 変動(地点数)

自治体	変動傾向	解析期間		
		1986~2016	1986~2000	2001~2016
新潟県	pH 上昇	8	1	3
	pH 低下	2	4	1
長野県	pH 上昇	2	1	7
	pH 低下	0	1	0
岐阜県	pH 上昇	9	2	4
	pH 低下	1	12	0

【まとめ】

中部 3 県の公共用水域データに基づく解析の結果、2000 年まで pH 低下傾向を示す地点が多かったが、2001 年以降、そのような地点は減少し pH 上昇傾向を示す地点が増えた。融雪水の影響を受けると考えられる時期の最低 pH で解析した場合も同様であり、2001 年以降、pH 上昇傾向を示す地点が増えた。広域的に、酸性化からの回復が進んでいる可能性が示唆される。

- [1] Yamashita, N., Sase, H., Ohizumi, T., Kurokawa, J., Ohara, T., Morino, Y., Kuribayashi, M., Ohta, S., Kaneko, S., Hayashi, K., Fukuhara, H., Hakamata, T. 2016. Mapping of the relative risk of surface water acidification based on cumulative acid deposition over the past 25 years in Japan. *Journal of Forest Research*, 21, 115-124.
- [2] Matsubara, H., Morimoto, S., Sase, H., Ohizumi, T., Sumida, H., Nakata, M., Ueda, H. 2009. Long-term declining trends in river water pH in central Japan. *Water, Air and Soil Pollution* 200, 253–265. doi: 10.1007/s11270-008-9909-3
- [3] 栗田・植田, 2006 中部山岳地域上流域における陸水 pH の長期的低下, 過去 30 年間の pH の低下と酸性雨の状況. *大気環境学会誌* 41, 45-64.
- [4] Lu, Z., Zhang, Q., Streets, D.G. 2011. Sulfur dioxide and primary carbonaceous aerosol emission in China and India, 1996-2010. *Atmospheric Chemistry and Physics* 11, 9839-9864.

