

酸性雨調査（1都10県1市共同調査）

—長期実態調査—

押尾敏夫 井上智博

1 調査目的

大気環境中に廃棄された様々な物質はガス・粒子あるいは降水としていずれ大気環境から他の環境へ移行する。酸性雨対策のためだけに発生源対策は実施していないが、何らかの発生源対策を実施すれば当然酸性雨対策としても有効である。

国は1992年NO_x, SPM対策のため自動車NO_x法の施行や軽油中のS分の削減などの対策を講じ、さらに、1997年これら対策が強化した。最近の日本における二酸化硫黄の放出量は百数十万トン/年（うち、人為が数十万トン）程度であると推定されているが、2000年8月に三宅島が噴火し、日量数万トン（千葉県のはぼ1年分に相当）から数千トンの二酸化硫黄の放出が継続しており、これが原因と見られる大気中の二酸化硫黄の高濃度

現象や降水の酸性化が見られる。

そこで、調査開始当初からの調査結果を再度整理し、二度の対策の効果や2000年の三宅島噴火の影響を把握し、以て今後の環境対策に資する。

2 調査解析資料

調査解析資料は、長期実態調査として実施した表1に示す地点における大気降下物（ろ過式採取法）成分分析結果¹⁾及び対象地域の各都県における大気汚染常時監視調査結果のうちNO_x, SO_x年度平均値（但し、SO_xは最近5ヶ年間に限って全国の調査結果も取り扱った）とした²⁾。さらに、千葉県における固定発生源からのNO_x, SO_x排出量と自動車用軽油の販売量を収集した³⁾。

表1 調査地点

地 点	年 度											地 点	年 度																
	87	88	89	90	91	92	93	94	95	96	97		98	99	00	01	87	88	89	90	91	92	93	94	95	96	97	98	99
郡山		○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	松田						○	○	○	○				
水戸	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	新潟	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
宇都宮	○	○	○	○	○	○	○	○							長岡	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	
河内															六日町	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	
栃木	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	一之瀬								○	○	○	○	○	○	
小山															甲府	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	
前橋					○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	大月		○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	
太田															身延							○	○	○	○	○	○	○	
中之条															軽井沢							○	○	○	○	○	○	○	
熊谷	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	上田	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	
さいたま	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	諏訪							○	○	○	○	○	○	○	
堂平山	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	白馬							○	○						
騎西															八方								○	○	○	○	○	○	
市原	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	長野	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	
千代田					○										静岡		○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	
奥多摩															浜松							○	○	○	○	○	○	○	
横浜	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	御殿場							○	○	○	○	○	○	○	
平塚	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○															

3 調査結果

3・1 硫酸酸化物及び窒素酸化物の排出量傾向

硫酸酸化物及び窒素酸化物に係る排出量については、環境省が公表しているのは固定発生源について1996年度までであり、移動発生源については軽油販売量のみである。そこで、排出量の傾向を見るため、千葉県における硫酸酸化物（固定・移動）及び窒素酸化物（固定）の排出量傾向を表

2に示し、並びに千葉県における大気中の硫酸酸化物濃度及び窒素酸化物濃度から見た道路近傍由来（自排局と一般局との濃度差）の排出量傾向を表3に示す。

(1) 硫酸酸化物排出量傾向

固定発生源からの排出量は、表2に見られるようにほぼ横ばいの状況である。一方、移動発生源については1992年度及び1997年度の軽油対策の

結果大きく低下している。これを、自排局と一般局との濃度差から見積もった道路近傍由来の硫黄酸化物濃度は、前述の 1992, 1997 年度に明らかな濃度低下が見られ、軽油販売量からの見積もりとその傾向が一致し、いわゆる自動車由来の排出量は低下しているものと思われる。

(2) 窒素酸化物排出量傾向

固定発生源からの排出量は、表 2 に見られるように最近はやや低下傾向であるがほぼ横ばいの状況である。一方、移動発生源については確かな見積もりがなされていないので、自排局と一般局との濃度差から見積もった道路近傍由来の窒素酸化物濃度は、最近明らかな濃度低下が見られ、いわゆる自動車由来の排出量は低下しているものと思われる。

3・2 硫黄酸化物及び窒素酸化物濃度推移

関東及びその周辺地域の一般環境の SO_2 濃度推移を表 4 及び NO_x 濃度推移を表 5 に示す。

3・2・1 SO_2

大気中の硫黄酸化物濃度は表 4 に見られるように順調に濃度低下し、発生源対策効果がよく表現されている。しかし、前述のように 2000 年度は三宅島の大噴火により硫黄酸化物が大量に大気環境に放出されているにも拘わらず、東京都や山梨県にあっては他県と異なり 1999 年度に比べ濃度低下が見られ異常である。そこで、全国の測定値を測定法の変更年度により再整理し、表 4 (2) に示す。表から測定法の変更が濃度低下に大きく寄与していることがわかる。1999 年度以前に変更されたか、変更されていない地点の 1999 年度から 2000 年度の濃度上昇は 0.数 ppb 程度が見積もられ、三宅島の影響は全国平均では 0.数 ppb 程度の濃度上昇と見積もられた。

3・2・2 NO_x

大気中の窒素酸化物濃度は、3.1(2)で述べたように排出量としては低下傾向にあるものと考えられるが、表 5 に見られるように明瞭な濃度低下が見られない。このことは、「一般環境における窒素酸化物濃度に対して自動車由来の排出は大きくは寄与しない。」あるいは、「ここで考慮した以外の排出源、例えば東アジアからの越境大気汚染を考慮する必要がある。」等が、想起される。何れにしても、自動車に対する単体規制をしたにも拘わら

ず、一般公衆が生活する場の窒素酸化物濃度の低下という果実を手に入れることができなかった。

3・3 大気降下物沈着量

対象地域の大気降下物沈着量年度推移を表 6 に示す。表中、非海塩（海水中の Na との組成比で補正）由来の SO_4^{2-} , Cl^- , Ca^{2+} と NO_3^- , NH_4^+ さらに測定した成分のバランスで決まる H^+ などは、主に人為的活動（工業的活動を含む）によってもたらされる。そこで、これら 5 項目プラス H^+ について各項目毎に検討する。

3・3・1 nssSO_4^{2-}

表から、調査開始当初 70meq/m² 程度であったが、1992 年度以降 50meq/m² 程度で推移していた。2000 年度以降これが 70meq/m² と増加し、対策効果と環境負荷の増加が沈着量に反映していた。三宅島は調査対象地域の南 400km から 100 数十 km に位置し、東アジアの大発生源から見れば非常に近距離に立地する。ここからの排出量はほぼ中国と同程度である。また、環境負荷が距離の二乗（高さ方向の輸送を考慮すれば三乗）に反比例すると考えれば、東アジアの大発生源の影響は微々たるものと考えられる。つまり、近傍の対策が重要であると考えられる。

3・3・2 NO_3^-

3.1(2)で記述したように、 NO_x の大気環境への排出量は最近低下したと考えられるが、3.2(2)で述べたように一般環境の大気中濃度は必ずしも低下していない。沈着量については、調査開始当初から見れば僅かに増加傾向にあり、発生源対策効果が必ずしも反映していない。従って、今後とも注意が必要である。

3・3・3 NH_4^+

NH_3 については、横山らや村野によって排出量が見積もられつつある。大気中濃度についてはまだ不明な点が多い。沈着量は NO_3^- よりは多く nssSO_4^{2-} よりは少ない状況で調査開始当初より横ばいか最近僅かに増加傾向である。

3・3・4 nssCl^-

表から、調査開始当初は 10 ~ 20 程度沈着していたものが焼却場問題が表面化する以前の 1995 年度から 1 桁となっていた。その原因については定かではない。

3・3・5 nssCa^{2+}

この排出源は主に道路であり調査開始当初から見れば確実に低下し、いわゆるスパイクタイヤ対策の効果が如実に表現されている。

3・3・6 H'

これら測定した成分のイオンバランスで決定さ

れる H'は、2000 年度の三宅島噴火に伴って増加した Na_2SO_4 とほぼ同程度増加しており、三宅島噴火に伴う SO_4^{2-} は硫酸という形でもたらされたものと考えられる。

表2 千葉県における硫酸化物及び窒素酸化物排出量推計値 単位：10⁴mol

年度	1987	1988	1989	1990	1991	1992	1993	1994	1995	1996	1997	1998	1999	2000	2001
固定(S)	0.37	0.38	0.41	0.43	0.38	0.40	0.37	0.38	0.37	0.37	0.36	0.38	0.38	0.39	0.37
移動(S)	0.20	0.21	0.22	0.23	0.25	0.18	0.10	0.11	0.12	0.12	0.03	0.03	0.03	0.03	0.02
合計	0.57	0.59	0.62	0.66	0.63	0.58	0.47	0.49	0.48	0.49	0.39	0.41	0.41	0.41	0.40
固定(N)	0.83	0.90	0.98	1.00	0.96	0.96	0.96	1.00	0.98	0.97	0.95	0.92	0.91	0.91	0.86

注1) 硫酸化物の移動発生源は軽油販売量実績から推計

注2) 固定発生源：常時監視システムによる集計結果(概ね80%把握)

表3 千葉県における自排局と一般局の硫酸化物及び窒素酸化物濃度差推移 単位：ppb

年度	1987	1988	1989	1990	1991	1992	1993	1994	1995	1996	1997	1998	1999	2000	2001
SO ₂ (差)	4.0	6.0	4.0	5.0	5.0	3.0	3.0	3.0	3.0	4.0	2.0	2.0	1.0	1.0	2.0
NO _x (差)	54	54	51	46	47	48	51	52	51	49	45	41	37	37	37
NO ₂ (差)	14	14	14	13	14	14	15	15	16	15	14	13	12	12	12
NO(差)	40	40	37	33	33	34	36	37	35	34	31	28	25	25	25

表4 関東及びその周辺地域の一般環境のSO₂濃度推移 単位：ppb

年度	1987	1988	1989	1990	1991	1992	1993	1994	1995	1996	1997	1998	1999	2000	2001
福島	4.8	4.3	4.4	4.7	4.4	4.2	3.6	4.0	4.0	3.9	3.8	3.6	3.3	3.7	3.6
茨城	4.8	4.4	4.5	4.6	4.5	3.9	3.7	3.9	4.2	4.1	3.8	3.5	3.7	4.2	4.4
栃木	6.5	5.0	4.9	4.8	5.1	5.0	4.8	5.0	5.5	5.5	5.2	4.6	4.5	4.6	4.6
群馬	6.7	5.9	5.8	5.2	5.3	5.3	4.3	4.7	4.9	5.6	4.9	4.4	4.6	4.9	5.0
埼玉	7.0	6.8	7.2	7.1	7.3	6.3	5.2	5.6	5.6	5.8	5.0	4.1	3.7	4.3	4.0
千葉	6.0	6.2	6.2	6.2	6.2	5.6	5.3	5.8	6.0	5.8	5.4	4.7	4.7	5.1	5.3
東京	7.6	6.7	7.9	8.6	8.6	7.1	6.6	7.3	7.1	7.2	6.6	5.9	4.5	4.0	3.8
神奈川	8.0	8.3	8.3	7.9	8.5	7.2	6.2	6.5	6.7	7.2	6.0	5.9	5.2	6.2	6.4
新潟	4.5	4.4	4.6	4.3	4.3	4.2	3.5	3.9	3.9	4.2	3.6	3.6	3.3	3.6	3.2
山梨	6.7	6.7	6.3	6.7	6.0	5.3	4.0	4.0	5.5	5.0	4.5	2.5	4.5	2.0	2.5
長野	4.5	4.5	4.4	4.9	4.7	4.3	4.3	4.7	4.6	5.0	4.2	3.7	4.2	5.1	4.7
静岡	6.5	6.7	6.5	6.2	6.3	5.7	5.1	5.2	5.4	5.5	5.1	4.7	4.5	5.6	5.3
平均	6.1	5.8	5.9	5.9	5.9	5.4	4.7	5.0	5.3	5.4	4.8	4.3	4.2	4.4	4.4

表4(2) 日本における測定法別

測定局数	SO ₂ 濃度推移					変更年度
	1996	1997	1998	1999	2000	
30	5.6	3.0	2.3	2.3	2.6	1997
52	5.3	4.9	2.5	2.1	2.4	1998
47	5.2	4.6	4.2	1.9	2.3	1999
57	5.6	5.1	4.8	4.3	2.5	2000
1277	5.3	4.9	4.6	4.5	5.1	なし

備考 軽油中のS：0.2質量% → 0.05 三宅島噴火SO₂等大量放出

注) 変更年度は、測定方法を溶液導電率法から紫外線蛍光法に変更した年度を指す。

表5 関東及びその周辺地域の一般環境のNO₂濃度推移

単位：ppb

年度	1987	1988	1989	1990	1991	1992	1993	1994	1995	1996	1997	1998	1999	2000	2001
福島	11	11	11	12	12	12	11	12	11	11	12	12	11	12	11
茨城	12	11	12	12	12	12	12	13	14	13	12	13	12	11	12
栃木	15	14	15	15	16	16	16	16	16	17	16	16	15	15	15
群馬	22	22	23	22	21	19	17	17	17	19	18	18	17	18	18
埼玉	23	23	24	25	26	25	25	25	25	25	25	25	23	24	23
千葉	17	17	18	18	19	18	18	18	18	18	18	18	17	17	17
東京	29	29	29	30	32	30	30	30	31	31	31	30	28	28	28
神奈川	28	29	29	30	31	30	29	29	29	30	30	30	27	27	28
新潟	10	10	11	10	11	11	11	11	11	12	12	11	11	11	11
山梨	19	20	20	19	17	16	16	16	15	15	15	16	14	16	15
長野	11	12	13	12	13	12	12	12	12	12	13	12	12	13	12
静岡	17	18	18	18	19	18	18	18	18	18	18	18	17	17	18
平均	17.7	17.9	18.5	18.7	19.1	18.1	18.0	18.1	18.1	18.4	18.4	18.2	16.9	17.4	17.4

表6 関東及びその周辺地域の大气降水物沈着量年度推移

調査年度	降水量 mm	pH	H ⁺	NH ₄ ⁺	K ⁺	Na ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	非海塩由来		
												SO ₄ ²⁻	Cl ⁻	Ca ²⁺
1987	1278	5.19	8	49	5	80	49	25	80	35	107	70	13	46
1988	1616	5.11	13	45	5	67	48	23	85	37	89	77	11	45
1989	1617	5.01	16	47	5	71	45	21	80	36	98	72	15	42
1990	1528	5.07	13	46	5	95	43	28	75	35	121	64	11	39
1991	1923	4.99	20	51	4	54	46	16	71	38	79	64	17	44
1992	1371	4.87	18	47	4	65	37	16	62	37	87	54	12	35
1993	1576	5.01	15	51	4	63	37	18	57	39	91	49	17	35
1994	1240	4.84	18	45	4	51	43	17	57	40	80	51	21	40
1995	1270	4.94	15	41	5	60	37	20	58	36	74	51	4	34
1996	1318	5.07	11	44	6	54	39	17	60	39	69	53	5	37
1997	1441	5.07	12	53	4	54	37	15	55	41	70	49	7	35
1998	1725	5.18	12	47	5	60	34	15	55	41	71	52	1	32
1999	1498	5.38	6	52	4	66	31	18	57	44	84	49	7	28
2000	1515	4.58	40	61	5	67	36	18	78	47	82	70	4	33
2001	1491	4.62	36	52	4	62	38	17	79	43	82	71	9	36

注1) 出典：関東地方環境対策推進本部大気環境部会 酸性雨調査報告書

注2) 2001年度は現在とりまとめ中で速報値である。

注3) 非海塩由来**は海水中のNa組成との比で補正した非海塩由来の**を表す。

今後の課題

NO_x や SPM 対策のため、軽油中の S 分は 1997 年度対策の 500ppm から 2003 年度は 50ppm へ、更に近い将来にはガソリン並の 5ppm へと対策が強化されるものと期待される。また、特定地域においてはディーゼル車の保有制限がなされ、かつ乗り入れ制限も実施されつつある。従って、数年後には大気環境は劇的に改善されるものと期待をし、その成果について検証・評価する必要がある。(関東地方環境対策推進本部大気環境部会酸性雨調

査会議で行ったものに、新たな資料を加え解析し、一部大気環境学会年会(2003)で発表したものである)

引用資料

- 1) 関東地方環境対策推進本部大気環境部会：「酸性雨調査報告書」平成13年度など
- 2) 環境省環境管理局：「大気汚染状況報告書」平成13年度版など
- 3) 千葉県環境生活部大気保全課：「大気環境報告書」平成13年度など