

全国から見た福井県の酸性雨の特徴とその要因

高岡 大・吉川昌範

Characteristics and Factors of Acid Rain in Fukui Prefecture Compared with the Whole Country Data

Dai TAKAOKA, Masanori YOSHIKAWA

全国の降水の pH およびイオン成分データについて、グラフ解析、マッピング解析、発生源寄与解析および後方流跡線解析を実施した結果、冬の季節風によって SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 NH_4^+ を含む大陸由来の移流物質が、福井県を包括する日本海沿岸部の地域全体に渡って広域的な影響を及ぼしていることが明らかとなった。また、降水の酸性化に寄与する成分について、移流分が占める割合は、硫酸イオン濃度で 61.4%、硝酸イオン濃度で 85.1%、全体質量としては 31.8%と推計された。

1. はじめに

酸性雨については、20 世紀半ばの欧州において魚類への死や樹木の立ち枯れ、建造物の腐食劣化などが表面化し、深刻な環境問題として注目された¹⁾。現代においても、アジア大気汚染研究センターが東アジア酸性雨モニタリングネットワーク (EANET) を構築し、酸性雨状況の監視や原因物質の排出削減対策を推進している²⁾。

本県では、1987 年から通年での酸性雨調査を実施しており³⁾、現在は福井市原目町においてモニタリングを継続しているが、その結果から福井の降雨は全国でも酸性度が高い状況が続いていることがわかっている⁴⁾。

そこで本報では、全国の pH およびイオン成分データを解析するとともに、マッピングや発生源寄与解析 (PMF 法)、後方流跡線解析を活用することで福井県の酸性度が高い原因を明らかにする。

2. 方法

2. 1 解析対象データ

2. 1. 1 データ収集

解析対象データは、地球環境研究センターが公開している第 4 次および第 5 次酸性雨全国調査データ⁵⁻¹⁵⁾を用いた。データの詳細は次のとおり。

- ・期 間：平成 16～26 年度の月平均値
- ・地点数：56～72 地点 (年度によって変動)
- ・項 目：pH、イオン成分 (SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 Cl^- 、 NH_4^+ 、 Na^+ 、 K^+ 、 Ca^{2+} 、 Mg^{2+}) [$\mu\text{mol/L}$]、 H^+ 負荷量 [$\mu\text{mol} \cdot \text{mm/L}$]

なお、 H^+ 負荷量については pH 値から換算した H^+ 濃度 [$\mu\text{mol/L}$] と降水量 [mm] の積から算出した。

2. 1. 2 データスクリーニング

収集したデータについては、スミルノフ・グラブズ検定により有意水準 5% で外れ値を除外した (欠測と同じ扱い)。検定式は次のとおり。

$$\text{有意点 } \tau = \frac{(n-1)t}{\sqrt{n(n-2)+nt^2}}$$

n：標本数 t：t 分布の $\alpha/n \times 100$ パーセンタイル

a：有意水準

なお、実際には Microsoft Excel の関数機能を使って次の式により算出した。

$$\tau = \text{TDIST}(T, n-2, 2)$$

$$T = (x - \text{AVERAGE}(\text{全データ})) / \text{SQRT}(\text{VAR}(\text{全データ}))$$

$$x = \text{MAX}(\text{ABS}(\text{任意のデータ} - \text{AVERAGE}(\text{全データ})))$$

2. 1. 3 福井県との比較対象地点の選定

グラフを用いた解析では、収集した全地点のデータを用いると非常に煩雑となるため、次のような基準で福井県と比較する地点を選定した。なお、() 内は周辺環境を示している。

- ・金沢：福井県に最も近いリファレンス (住宅地)
- ・福岡：九州代表 (都市)
- ・京都木津：近畿代表 (都市)
- ・川崎：関東代表、京浜工業地帯に隣接 (工業地)
- ・青森東造道：東北代表 (住宅地)

また、上記以外に同一地点での測定継続年数が長いことや pH の欠測数が少ないことなども選定基準の一つとした。

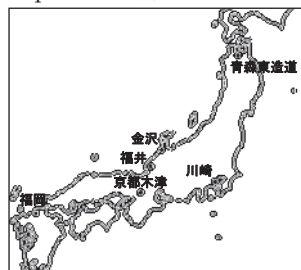


図 1 福井県比較用選定地点

2. 2 マッピング

マッピング解析は、全国の経時変化および地域特性を数値レベルごとに色分けして表示し、通常のグラフよりも視認性を高め、さらに位置情報を加えることでより感覚的な解析を行うことが可能である。

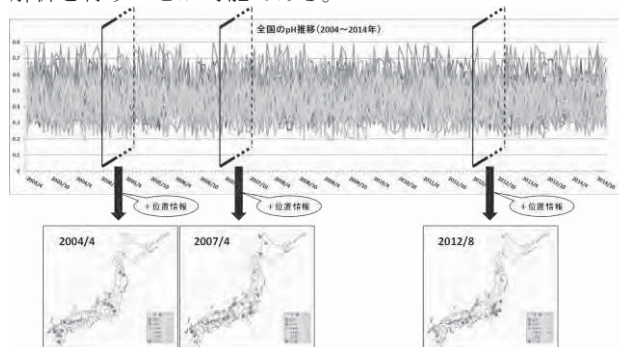


図 2 pH マップのイメージ

2. 2. 1 使用ソフト

マップの作成に当たっては、国立環境研究所が提供する「見え見えくん 3.6.1.1」¹⁶⁾を使用し、地図データは国土地理院基盤地図情報を用いた。

また、見え見えくんへの入力フォーマット (csv ファイル) には、地点ごとに pH、H⁺負荷量のデータ、日付け、測定地点ごとの緯度経度情報 (十進数) が含まれている。

2. 2. 2 マーカーの表示

マップでは、pH および H⁺負荷量の数値分布範囲を 6 つに区分し、それぞれに対して異なる色のマーカーを割り当て地図上に表示した。なお、項目別の数値範囲とマーカーの対応を次の表に示す。

表 1 マップ上での pH および H⁺負荷量の区分とマーカー表示の対応一覧

pH 区分	H ⁺ 負荷量区分 [μmol・mm/L]	マーカーの色	マーカーの表示
pH≤4.30	6000<負荷	紫	●
4.30<pH≤4.55	5000<負荷≤6000	赤	●
4.55<pH≤4.80	4000<負荷≤5000	橙	●
4.80<pH≤5.05	3000<負荷≤4000	黄	●
5.05<pH≤5.30	2000<負荷≤3000	水色	●
5.30<pH	負荷≤2000	青	●

2. 3 PMF 解析

2. 3. 1 使用ソフト

PMF 解析の実施に当たっては、アメリカ合衆国環境保護庁 (US-EPA) がウェブ上で公開している「EPA PMF 5.0」を用い、基本的な設定は「EPA PMF 5.0 User Guide¹⁷⁾」に準拠した。

2. 3. 2 データファイルの作成および不確実性の設定

まず、PMF 解析を実施するには測定データ (Concentration Data File) と不確実性データ (Uncertainty Data File) が必要である。測定データファイルには地点名、日付けおよびイオン成分濃度情報が含まれる。ただし、本報では月平均値データを取り扱うため、日付けについては実年月 (yyyy/mm) をダミー年月日 (yyyy'/mm'/dd') に変換し、EPA PMF の仕様に合わせる処理を施している。なお、地点の選定においては 3.3 で後述する理由で、日本海沿岸部地点のみに絞って解析を行っている (表 2)。

表 2 PMF 解析選定地点および測定期間一覧

地点名	測定期間	地点名	測定期間
太宰府	H16.4~H27.3	松江	H16.4~H27.3
福井	H16.4~H27.3	長岡	H16.4~H27.3
福岡	H16.4~H27.3	新潟小新	H16.4~H27.3
射水	H18.4~H27.3	新潟大山	H16.4~H27.3
金沢	H16.4~H27.3	新潟曾和	H16.4~H27.3
京都八重	H18.4~H26.3	若桜	H17.4~H27.3
山口	H16.4~H27.3	湯梨浜	H16.4~H27.3

次に不確実性データファイルは、各測定成分の検出下限値と変動率から構成されるもので、検出下限値については複数の値がある場合は最大値を用い、変動率については 5,10,15,20% の中からプレ解析結果が比較的良好な傾向であった (2.3.7 図 3) 5%を選択した。

また、ソフト中には不確かさを追加設定することができる「Extra Modeling Uncertainty」ファンクションが存在

するが、本報では 0% で計算を実施した。

2. 3. 3 欠測値の取り扱い

ある測定日のデータの内、特定の成分だけ欠測している場合には「-999」を代入し、ソフトウェア上で中央値に置き換え処理するように設定した。ただし、この処理を行うことで解析上の不確実性は増大することとなる。

2. 3. 4 発生源因子数

発生源因子の数は 3~12 の範囲で変化させ、解析結果の妥当性が最も高い因子数を最終解とした。

2. 3. 5 計算回数

計算回数は基本的に 100 回とし、繰り返し計算の始動位置を示す Seed は 1 に固定した。ただし、2.3.2 および 2.3.4 で述べた不確実性変動率と発生源因子数を選定するためのプレ解析においては、計算時間の短縮を図るため回数を 20 回とした。

2. 3. 6 成分の重み付け

解析計算における成分ごとの重み付けは、Signal/Noise (S/N) 比を参考に $0 \leq S/N < 0.5$ の場合は「Bad」(解析から除外)、 $0.5 \leq S/N < 1$ の場合は「Weak」(不確実性を 3 倍)、 $1 \leq S/N$ の場合は「Strong」(不確実性は等倍) とすることを基本とした。

2. 3. 7 Q 値

Q 値は、発生源因子数や変動率の設定が適切であるかを判断するための指標で、データ数、成分項目数および発生源因子数で決定される $Q(\text{theory})$ 、各成分データの通常の分布から大きく外れた値を除いて解析した時に得られる $Q(\text{robust})$ 、全てのデータを用いて解析した時に得られる $Q(\text{true})$ がある。

一般的に Q 値は小さいほどよいとされ、また、理論値である $Q(\text{theory})$ と $Q(\text{robust})$ および $Q(\text{true})$ は値が近いほどよい。なお、 $Q(\text{theory})$ は次の式により計算で求められ、 $Q(\text{robust})$ と $Q(\text{true})$ については EPA PMF 5.0 の解析結果から得られる。

$$Q(\text{theory}) = n \cdot m - p(n + m)$$

n : 試料数 m : 成分数 p : 発生源因子数

なお、2.3.2 および 2.3.4 で述べた不確実性変動率と発生源因子数の決定は、この Q 値を判断基準のひとつとしている (図 3)。

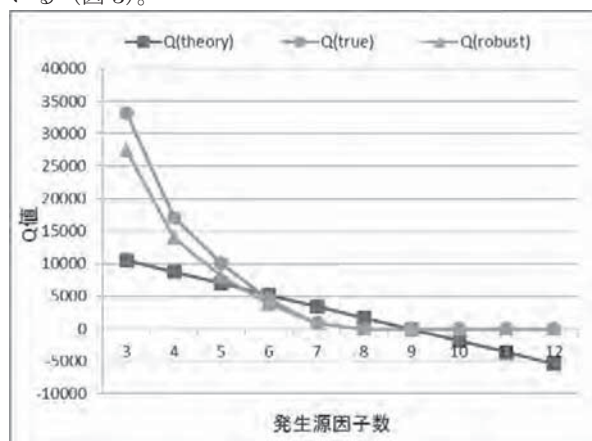


図 3 変動率 5% 時の Q 値と発生源因子数の関係グラフ

2. 3. 8 Bootstraps

Bootstraps 法は、乱数を用いて数値計算を行うモンテカルロ法の一種で、母集団の推定量の性質を近似分布に従っ

てサンプリングした時の性質を計算することで推定する手法である¹⁸⁾。PMF 解析では、基になる計算回 (Run Number) から各発生源因子の成分濃度を指定回数分だけ再計算し、Run Number の分析結果と比較することで解析結果の適正を判断するために用いる。各発生源因子の主要な構成成分の濃度が、再計算した結果の中心付近にあれば良好な解析結果といえる。

なお、今回の解析では Bootstraps の計算回数は発生源因子解析と同じ 100 回に設定した。

2. 4 後方流跡線解析

2. 4. 1 使用ソフト

解析の実施に当たっては、Wang¹⁹⁾らが開発した流跡線解析専用ツール「TrajStat 1.2.2.6」を用いた。本ツールは HYSPLIT モデルによる流跡の計算やクラスター分析等の統計的解析、GIS 機能による流跡線の描画まで行うことができる。

なお、ツールの操作に際しては、国立環境科学研究所のⅡ型共同研究「PM2.5 の環境基準超過をもたらす地域的／広域的汚染機構の解明」において作成されたマニュアル²⁰⁾を参考とした。

2. 4. 2 計算条件

計算条件は次のとおりとした。なお、計算期間については、解析対象データの中で最も新しい 2014 年度とし、各季節を代表する 1 ヶ月間を選択した。

- ・時間方向：後方
- ・開始地点：北緯 36.07
東経 136.26
福井県衛生環境研究センター (福井県福井市原目町 39-4)
絶対高度 1,300m
- ・開始時間：1:00 ～3 時間毎
- ・計算時間：72 時間
- ・計算期間：春 (2014.4.1～4.30)
夏 (2014.7.1～7.30)
秋 (2014.10.1～10.30)
冬 (2015.1.1～1.30)

3. 結果

3. 1 グラフによる他県との比較

3. 1. 1 pH

日本海に面する福井、金沢、福岡の pH は 2005 年以降ほぼ同じ水準で横ばいに推移している (図 4)。また、全体的な推移を見ると日本海側 3 地点が最も低いレベルで、次に京都木津が続く、川崎はほぼ全ての年で最高値を示しており日本海側から内陸、太平洋側に向かって減衰する要素が存在すると推測される。なお、青森東造道については、いずれの変動パターンにも属せず、日本海と太平洋の両海に挟まれた独自の地理的特性を反映して最低値と最高値の差が非常に大きいパターンを示していると考えられる。

上記地点の pH 経月変化を示した図 5 から、日本海に面する金沢、福岡は福井と同様に 11～2 月に低下する傾向が見られた。また、京都木津は一年を通してほぼ横ばいを示し、川崎は秋冬に逆に pH が高くなる傾向があることから日本海側からの影響は内陸に向かうほど弱くなり、太平洋側では別の要素が支配的であると推測される。

3. 1. 2 nss-SO₄²⁻ (非海塩性硫酸イオン)

nss-SO₄²⁻の推移では pH が総じて低かった日本海側 3

地点の数値が高く、pH への寄与は非常に大きいと考えられる (図 6)。他の地点については、最も酸性度の低かった川崎が日本海側 3 地点と同レベルの上、nss-SO₄²⁻と pH の変動パターンの相関が低いため、測定地点に極めて近い局所発生源の影響を受けていると考えられる (図 7)。

3. 1. 3 NO₃⁻

NO₃⁻の推移は、どの地点も nss-SO₄²⁻とほぼ同じ変動傾向を示していたことから、nss-SO₄²⁻と同一諸元からの影響であるといえる (図 8)。これは、NO₃⁻の多くが燃焼に伴う NO_x に由来することと一致する。

3. 1. 4 NH₄⁺

NH₄⁺の推移は、まず 2003～2006 年度の川崎の高濃度が顕著であるが、pH の変動パターンとの相関は見られないため、nss-SO₄²⁻と同じく測定地点に極めて近い局所発生源からの影響と考えられる (図 9)。NH₄⁺は、主に農業および酪農や化石燃料の燃焼に由来するが、どの地点も農業や酪農が特に盛んとされる地域はないため、化石燃料燃焼の寄与割合が高いと考えられる。また、日本海側 3 県の変動パターンはほぼ一致しているため、同一の広域的要素の影響を受けているといえる。

3. 1. 5 nss-Ca²⁺

nss-Ca²⁺の推移は、福岡の 2007 年度のピークが顕著である (図 10)。Ca 成分は土壌の巻き上げや道路粉じんが主な発生源であるが、人工発生源の道路粉じんが年ごとに大きく異なるとは考えにくいので、自然由来の土壌 (黄砂) の原因の可能性を検討した (図 11)。2007 年度の福岡における黄砂日数は、2010 年度と並んで最も多いが、浮遊粒子状物質 (SPM) の日平均最大値はやや高い程度であり、nss-Ca²⁺の急上昇を全て説明できるほどではなかった。なお、黄砂も日本海側 (大陸) からの移流要素であるが、福岡は春先に酸性度が高くなる傾向は見られず、酸性雨に関する移流の原因が冬の季節風であるのに対し、黄砂は主に偏西風と、異なる移流メカニズムがその理由と考えられる。

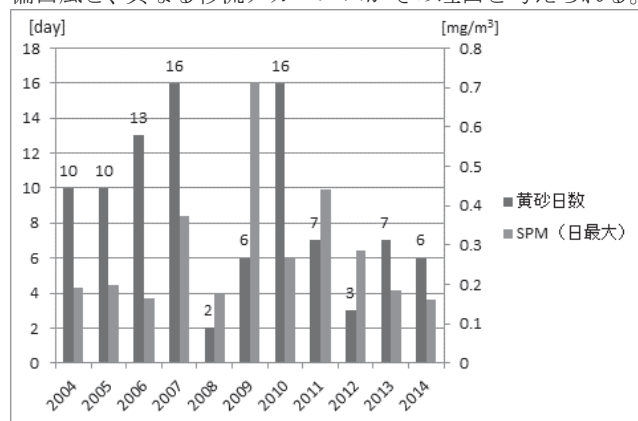


図 11 福岡の黄砂日数と大宰府の SPM 日平均最大値

3. 1. 6 グラフによる解析のまとめ

ここまでの総覧として、秋から冬にかけて顕現する SO₄²⁻、NO₃⁻、NH₄⁺を含む発生源の影響は測定地点の周辺環境によらず日本海沿岸部の地域全体に渡る広域的なもので、それは冬の季節風によって運ばれてきた大陸由来の移流物質であるとまとめられる。

3. 2 マッピング解析

マッピング解析に際しては全てのマップを一度に並べて観察し視覚的に実施するという性質上、1 枚当たり 15×

20cm スケールで紙媒体に出力し壁面に貼付して行った。

なお、作成したマップ図は、pH と H^+ 負荷量合わせて 264 枚 (12 ヶ月×11 年×2 項目) あるため、全ての図の掲載は割愛しホームページ上で公開する。

ホームページアドレス：

<http://www.erc.pref.fukui.jp/center/research/acidrain/acidrain.html>

3. 2. 1 pH マップ

(1) 典型的な pH マップ

似たパターンが多く見られた典型的な pH マップを図 12 に示す。このマップから pH の変動傾向は都道府県単位ではなくブロック単位でまとまった変動を示すことが分かった。ブロックのおおまかな区分は日本海沿岸部 (九州北部、中国地方北部、北陸)、瀬戸内海沿岸 (四国、中国地方南部、近畿、南紀)、関東の 3 つに分けられた。

その中で、季節を問わず最も酸性度が高い傾向を示したのは日本海沿岸部で、逆に最も低い傾向を示したのは関東

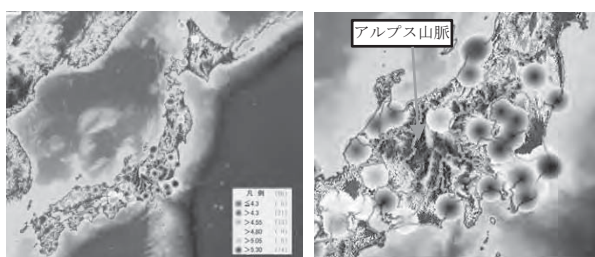


図 13 標高図ベースの pH マップ (2012 年 1 月)

であった。このことは、3.1 で述べたグラフによる解析結果と一致する。また、標高図ベースのマップから日本海沿岸部と関東の間には 3,000m 級の日本アルプスがそびえ立っており、雨雲が日本海側で降雨となるため影響が小さいと考えられる (図 13)。

(2) 2007 年 11 月の pH マップ

2007 年 11 月は全てのマップの中で全国的酸性度が最も高く、日本海沿岸部以外のブロックも総じて高かった (図 14)。このことから、通常は日本海沿岸部まで留まる移流の影響範囲が太平洋側にまでせり出すほど強い特徴的な月であったと考えられる。

(3) 2011 年 9 月の pH マップ

2011 年 9 月は全てのマップの中で全国的酸性度が最も低かった (図 15)。ほとんどの月のマップで酸性度が低い傾向を示す関東ブロックについても殊更低くなっていることから、次のようにいくつかの要因パターンが推察される。①移流の影響が非常に弱かった (関東も普段から少なからず移流の影響を受ける)。②移流の影響が非常に弱く、同じタイミングで関東範囲に中和要素が存在した (関東では普段は移流の影響を受けない)。③移流の影響が非常に弱く、かつ日本全域におよぶ広範囲の中和要素が存在した。④移流の影響を打ち消すほど強力かつ日本全域におよぶ広範囲の中和要素が存在した。ここで、中和項目の濃度推移に注目すると②～④については図 16,17 のとおり 9 月に顕著な上昇傾向は確認できず除外されるため、パターン①が全国的な低酸性度の要因であったと考えられる。

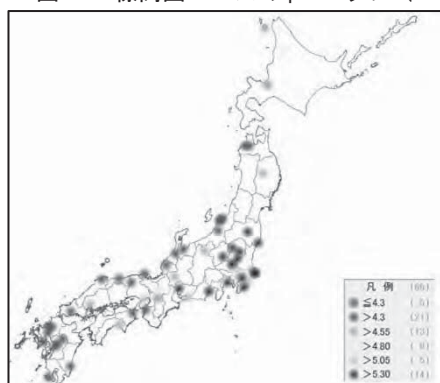


図 12 2012 年 1 月の pH マップ

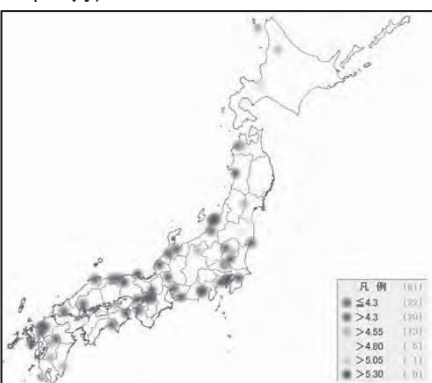


図 14 2007 年 11 月の pH マップ

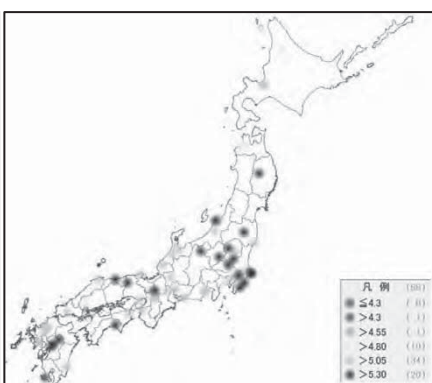


図 15 2011 年 9 月の pH マップ

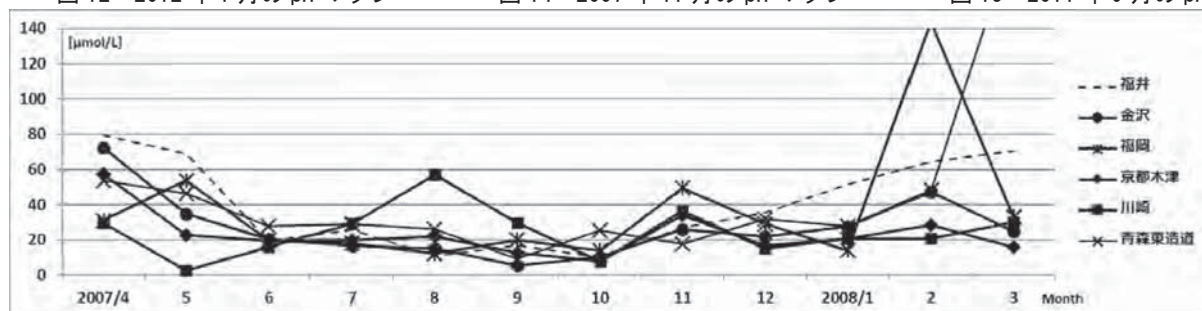


図 16 代表 5 地点の月平均 NH_4^+ の推移 (2007 年度)

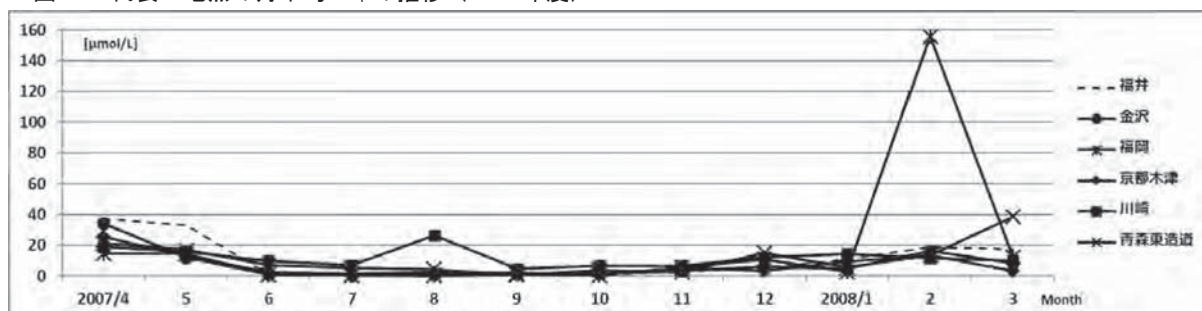


図 17 代表 5 地点の月平均 nss- Ca^{2+} の推移 (2007 年度)

3. 2. 2 H⁺負荷量マップ

H⁺負荷量は、単位時間当たりの酸による環境への影響度を計る指標で、負荷量が大きいと土壌の緩衝能の限界を上回り、生態系への悪影響が懸念される²¹⁾。

(1) 春夏季の H⁺負荷量マップ

4～9月にかけては、pHマップと比較してブロック変動の傾向が薄く、時には疎らなパターンも観測された。これは、H⁺濃度の変動幅(およそ10～50)に対して降水量(およそ100～300)が優勢であること(図18,19)と、降水量は距離が5km以上離れると相関が著しく低下する²²⁾狭域的な要素であることが原因と考えられる。

このことから、春夏季の H⁺負荷量は大陸からの移流のような広域的な影響よりも山沿い等の降雨に関わる地形や気候特性の寄与が大きいといえる。

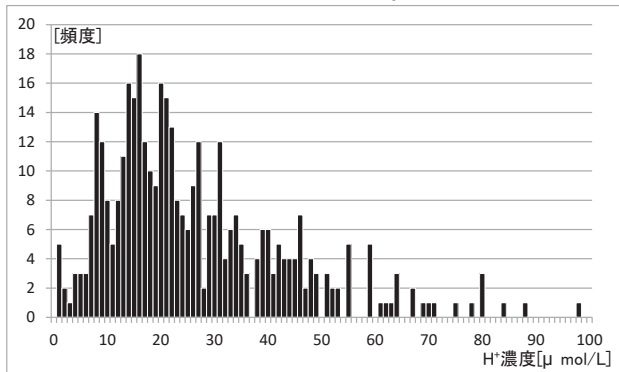


図 18 福井、福岡、川崎の H⁺濃度ヒストグラム (2003～2014 年度)

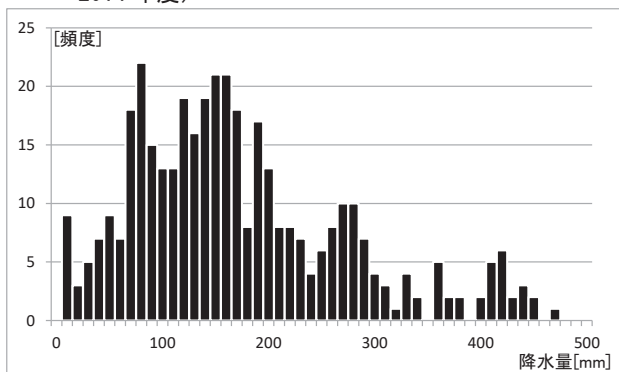


図 19 福井、福岡、川崎の降水量ヒストグラム (2003～2014 年度)

(2) 秋冬季の H⁺負荷量マップ

次に 3.2.1(1)で述べた pH がブロック単位での変動傾向を示した 2012 年 1 月の H⁺負荷量マップを見ると、北信越が高い値を示し、九州の日本海沿岸部と異なる傾向を示すことがわかった。また、同様の傾向は、当該年月に限らず 11 月～翌年 2 月の期間中で多く観測された。

これは 3.1.6 でまとめた冬の季節風による大陸由来の移流物質の影響と、降雪含む降水量が冬季に多くなる(図 20)北信越エリアの特性が重なるために、日本海沿岸部ブロックの中でも特に H⁺負荷量が大きくなっていると考えられる。

なお、当センターでは、酸性雨調査の初期段階から福井県の H⁺負荷量が全国でも大きいことを把握しており、植生への影響や土壌の酸性化耐性能に関する調査を実施している²³⁾が、現時点までに明確に酸性雨が原因と見られる環境被害は顕在化していない。

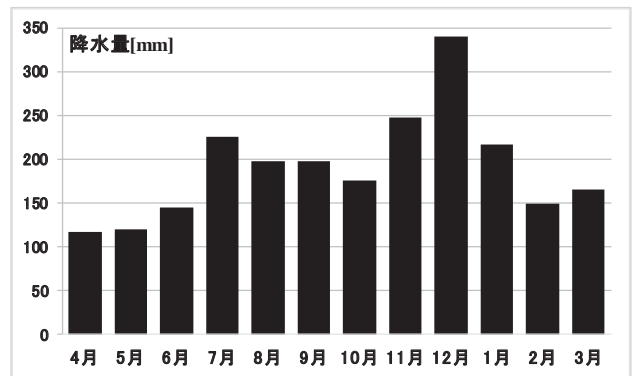


図 20 北信越 4 地点の月平均降水量 (2007～2014 年度)

3. 3 PMF 解析

発生源情報がなくても、観測値の挙動から寄与率の推定が可能な PMF 解析により、移流の寄与割合の計算を行った。なお、大陸からの移流を解析するために、解析対象データは 2.3.2 で示したとおり日本海沿岸のみ抽出したものをを用いた。

3. 3. 1 通年データ解析

まず、1～12 月の通年データを対象として PMF 解析を行った結果を図 21,22 に示す。発生源の種類は移流、地域由来硫酸系二次粒子、地域由来硝酸系二次粒子、海塩粒子、土壌の 5 種で、質量全体として最も寄与割合が高かったのは海塩粒子で 55.7%だった。

ここで注目すべき点は、硫酸および硝酸に関する発生源が 3 つに分類され、その内の一つは硫酸と硝酸の両方を高い割合で含む「移流ではないか」と強く思えるものが出現したことである。これまでに、PM_{2.5}を対象とした PMF 解析を数多く実施してきた²⁴⁾が、両方を高レベルで含むものが観測されたのは今回が初めてであった。

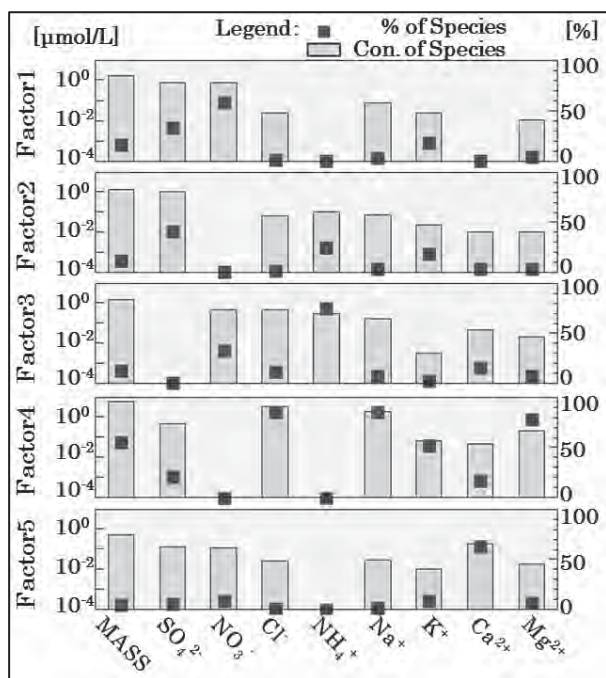
その移流発生源に着目すると硫酸イオン濃度に占める割合は 33.8%、硝酸イオン濃度に占める割合は 58.9%、地域発生源由来は 32.2%で、全体質量としては 16.0%を占めていた。移流の特徴として硫酸よりも硝酸の方が影響度が高いことがわかった。

3. 3. 2 秋冬季データ解析

秋冬季の移流の寄与割合をより詳細に解析するために対象データを 11 月～翌 2 月に絞って PMF 解析を行った(図 23,24)。その結果、移流が硫酸イオン濃度に占める割合は 61.4%、硝酸イオン濃度は 85.1%、全体質量としては 31.8%を占めていた。通年データの解析結果と比較すると秋冬季は硫酸、硝酸、全体質量の全てで寄与割合が増加しており(表 3)、このことは秋冬季に移流の影響が強くなるという実測データに基づく考察結果と一致する。

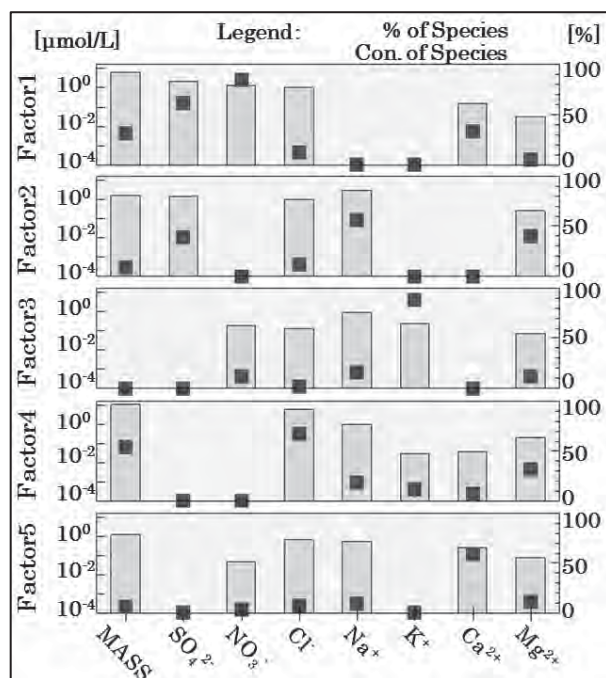
次にマッピング解析において酸性度が非常に低かった 2011 年 9 月の状況と秋冬季の移流寄与割合を並べて比較した(図 25)。その結果、質量、硫酸、硝酸イオン濃度の全ての項目で移流を除外した値とほぼ一致しており、2011 年 9 月は移流の影響がないバックグラウンド値を示していたと考えられる。なお、2011 年 9 月の福井の pH は 5.28 であった。(1 月の平均 pH : 4.30、7 月の平均 pH : 4.65)

また、「2011 年 9 月は移流の影響がないバックグラウンド値を示している」とことと「PMF 解析による推測値が正しい」ことは、それぞれ真であるとは言い切れないものの、一方を真と仮定すると他方が真といえる共役関係にあるため、ある程度の信頼性が見込まれる。



	発生源の種類	指標成分
Factor1	移流	SO ₄ ²⁻ , NO ₃ ⁻
Factor2	地域由来 SO ₄ ²⁻	SO ₄ ²⁻
Factor3	地域由来 NO ₃ ⁻	NO ₃ ⁻
Factor4	海塩粒子	Na ⁺ , Cl ⁻ , Mg ²⁺
Factor5	土壌	Ca ²⁺

図 21 発生源プロファイル (通年)



	発生源の種類	指標成分
Factor1	移流	SO ₄ ²⁻ , NO ₃ ⁻
Factor2	地域由来 SO ₄ ²⁻	SO ₄ ²⁻
Factor3	地域由来 NO ₃ ⁻	NO ₃ ⁻
Factor4	海塩粒子	Na ⁺ , Cl ⁻ , Mg ²⁺
Factor5	土壌	Ca ²⁺

図 23 発生源プロファイル (冬季)

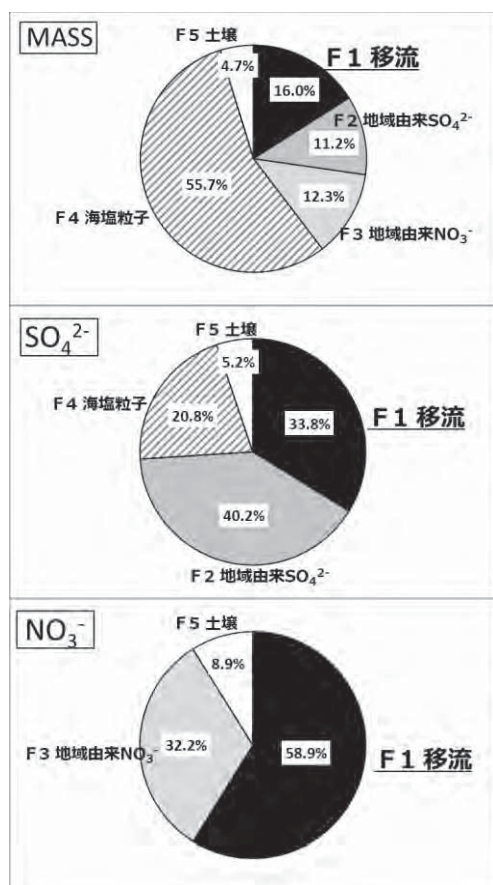


図 22 質量、SO₄²⁻、NO₃⁻濃度の発生源寄与割合 (通年)

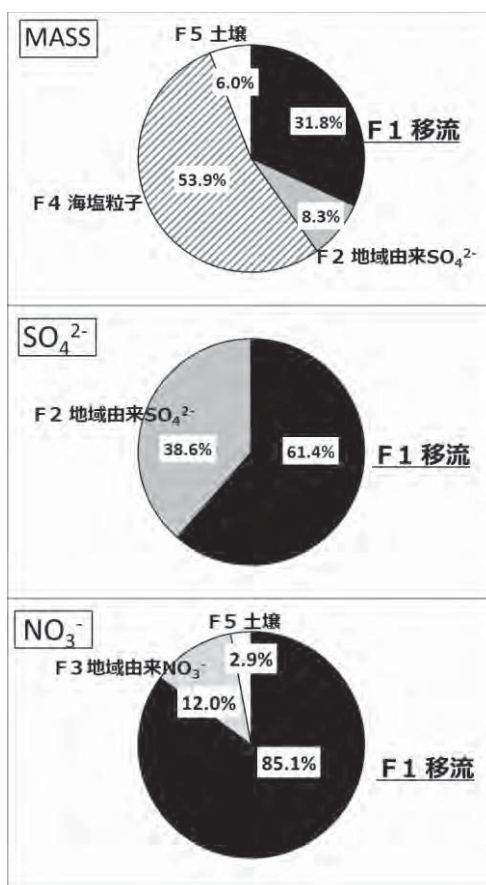


図 24 質量、SO₄²⁻、NO₃⁻濃度の発生源寄与割合 (冬季)

表 3 日本海沿岸部の寄与割合比較 (2004~2014 年冬季平均と 2011 年 9 月)

		年間	冬季
SO ₄ ²⁻ 濃度	移流	33.8	61.4 ↓
	地域由来	40.2	38.6 ↑
NO ₃ ⁻ 濃度	移流	58.9	85.1 ↓
	地域由来	32.2	12.0 ↑
全体質量	移流	16.0	31.8 ↓
	地域由来	23.5	8.3 ↑

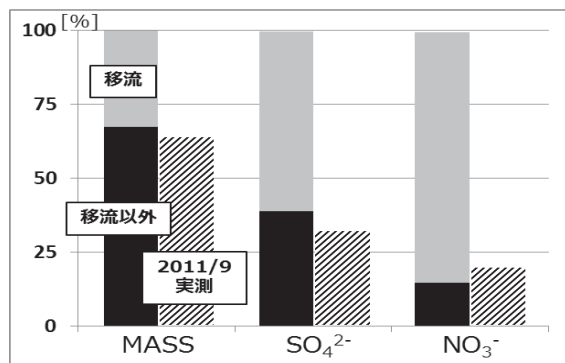


図 25 日本海沿岸部の寄与割合比較 (2004~2014 年冬季平均 PMF と 2011 年 9 月実測値)

3. 3. 3 解析結果の堅牢性

3.2.1 および 3.2.2 で述べた計算回の Bootstraps Run の結果を表 4~7 に示す。なお、表 5,7 では Bootstraps の結果が四分位範囲内であれば「Yse」、範囲外であれば「No」と表記され、さらに各 Factor の指標成分のセルは灰色で示している。

通年解析結果については「Factor2: 地域由来硫酸系二次粒子」の再現性が低く、「Factor4: 海塩粒子」の指標成分が全て「No」であることから、これらの発生源因子の堅牢性は低いといえる。

冬季解析結果については「Factor3: 地域由来硝酸系二次粒子」の再現性が低く「Factor2: 地域由来硫酸系二次粒子」および「Factor4: 海塩粒子」の指標成分で「No」が出現していることから、これらの発生源因子の堅牢性は低いといえる。

以上のことから、今回の PMF 解析結果の考察について上述の Factor の信頼性の低さを考慮する必要がある。なお、約 400 回行った試行解析結果の中には、非常に堅牢性の高い結果もいくつか存在したが、それらは発生源因子の寄与率あまりにも実態と解離していたため除外した。

表 4 通年データの Bootstraps 解析結果 (発生源因子別)

	Factor 1	Factor 2	Factor 3	Factor 4	Factor 5	Unmapped
Factor 1	0	0	98	0	2	0
Factor 2	1	33	27	32	7	0
Factor 3	0	0	0	0	100	0
Factor 4	0	100	0	0	0	0
Factor 5	100	0	0	0	0	0

表 5 通年データの Bootstraps 解析結果 (成分別)

	Factor 1	Factor 2	Factor 3	Factor 4	Factor 5
MASS	Yes	Yes	Yes	No	Yes
SO ₄ ²⁻	Yes	Yes	No	Yes	Yes
NO ₃ ⁻	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes
Cl ⁻	Yes	Yes	No	No	Yes
NH ₄ ⁺	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes
Na ⁺	Yes	Yes	No	No	Yes
K ⁺	Yes	Yes	No	No	Yes
Ca ²⁺	No	Yes	Yes	Yes	Yes
Mg ²⁺	Yes	Yes	No	No	Yes

表 6 冬季データの Bootstraps 解析結果 (発生源因子別)

	Factor 1	Factor 2	Factor 3	Factor 4	Factor 5	Unmapped
Factor 1	0	1	99	0	0	0
Factor 2	100	0	0	0	0	0
Factor 3	13	70	13	3	1	0
Factor 4	2	3	8	0	87	0
Factor 5	0	0	2	98	0	0

表 7 冬季データの Bootstraps 解析結果 (成分別)

	Factor 1	Factor 2	Factor 3	Factor 4	Factor 5
MASS	Yes	Yes	No	Yes	Yes
SO ₄ ²⁻	Yes	No	Yes	Yes	Yes
NO ₃ ⁻	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes
Cl ⁻	No	Yes	No	Yes	Yes
Na ⁺	Yes	No	Yes	No	No
K ⁺	Yes	Yes	No	No	Yes
Ca ²⁺	No	Yes	Yes	Yes	Yes
Mg ²⁺	Yes	Yes	Yes	No	No

なお、それぞれの計算回における発生源因子数および成分の重み付け設定は次のとおり。

表 8 通年および冬季データ解析時の成分の重み付け設定

	MASS	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	NH ₄ ⁺	Na ⁺	K ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺
通年	Weak	Strong	Strong	Strong	Strong	Strong	Strong	Strong	Strong
冬季	Weak	Strong	Weak	Strong	Bad	Strong	Strong	Strong	Weak

3. 4 後方流跡線解析

ここまでの考察で、日本海沿岸部は冬の季節風による大陸からの移流の影響を受けていることがわかったため、流跡線による解析を試みた。まず、2014 年の各季について福井を始点とした後方流跡線を図 26 に示す。

pH の低下が顕著な傾向を示した冬季は、大陸を起源とする北西方向から移流していることが明らかで、前述の解析結果とも一致する。さらに細かく見ると大陸上の流跡線はほぼ東西に伸びており、海岸線付近で北西向きにカーブを描いている。これは大陸上では偏西風に乗り、海付近では季節風の影響を受けているためである。

次に春季については、北西方向の密度が減少するとともに太平洋側にも線が伸びていたことから季節風の影響が弱まっていることがわかる。このタイミングは pH の上昇 (酸性度の低下) 開始時期と一致することから日本海沿岸部の酸性度上昇の要因が大陸からの移流であることがより裏付けされた。

最後に夏秋季を見ると夏はやや南よりの風向きとなり、かつ流跡の長さも短い傾向が見られ、秋になるとまた北西の季節風が強くなる傾向がわかる。

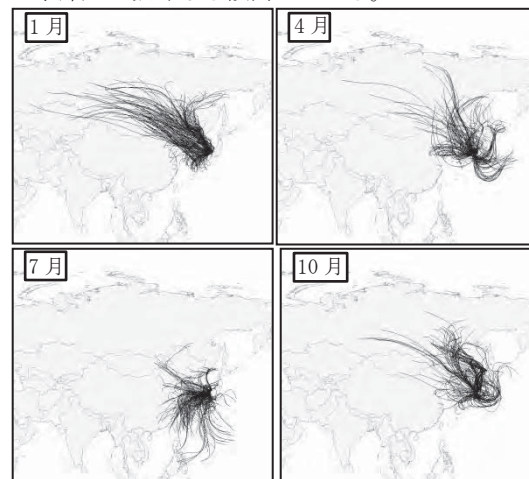


図 26 福井を始点とした後方流跡線図 (2014 年度)

4. まとめ

本研究では福井県の降雨の酸性度が全国でも高い要因について次のとおりまとめた。

- ①グラフ解析の結果、冬の季節風により SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 NH_4^+ を含む大陸由来の移流物質が日本海沿岸部の広域に影響をおよぼし、降雨の酸性化要因となっている事がわかった。
- ②マッピング解析により pH の変動傾向は都道府県単位ではなくブロック単位でまとまった変動を示すことが分かった。また、そのブロック単位は日本海沿岸部、瀬戸内海沿岸、関東の3つに分けられた。
- ③pH マップから最も酸性度が高い傾向を示すのは日本海沿岸部で、反対に最も低いのは関東であることがわかった。
- ④関東では大陸からの移流の影響が日本アルプスによって遮られていると推測された。
- ⑤ただし、完全にゼロに遮られているわけではなく、移流の影響度が非常に強い場合には関東の pH にも低下が見られた。
- ⑥H⁺ 負荷量マップから秋冬季には日本海沿岸部の中でも特に北信越の負荷量が大きくなることがわかった。また、その原因は冬の季節風による大陸由来の移流物質の影響と、降雪含む降水量が冬季に多くなる地域特性が重なるためと考えられる。
- ⑦PMF 解析の結果、冬の季節風による移流の寄与割合は全体質量の 31.8%、 SO_4^{2-} 濃度の 61.4%、 NO_3^- 濃度の 85.1%と推計された。
- ⑧実測値と PMF 推計値の比較から、2011 年 9 月は移流の影響がないバックグラウンド値を示していたと考えられる。
- ⑨後方流跡線解析の結果、冬季は東アジアに向かって流跡線が伸びており、大陸からの移流の影響が強いと考えられる。

参考文献

- 1) 石弘之：地球環境報告,岩波新書 213-214(1988)
- 2) 一般財団法人アジア大気汚染研究センター：東アジア酸性雨モニタリングネットワークパンフレット,(2011)
- 3) 福井県環境科学センター：福井県の酸性雨 モニタリング調査結果平成元～10 年,(1999)
- 4) 井上由里香 他：福井県における酸性雨調査 - 湿性沈着の経年・経月変化について -,福井県衛生環境研究センター年報,9,106-108(2010)
- 5) 全国環境研協議会酸性雨調査研究部会：第 4 次酸性雨全国調査報告書(平成 16 年度), 全国環境研究会誌,31(3), 118-186(2006)
- 6) 全国環境研協議会酸性雨調査研究部会：第 4 次酸性雨全国調査報告書(平成 17 年度), 全国環境研究会誌,32(3), 78-152(2007)
- 7) 全国環境研協議会酸性雨調査研究部会：第 4 次酸性雨全国調査報告書(平成 18 年度), 全国環境研究会誌,33(3), 126-196(2008)
- 8) 全国環境研協議会酸性雨調査研究部会：第 4 次酸性雨全国調査報告書(平成 19 年度)(1), 全国環境研究会誌,34(3), 193-223(2009)
- 9) 全国環境研協議会酸性雨調査研究部会：第 4 次酸性雨全国調査報告書(平成 20 年度), 全国環境研究会誌,35(3), 88-138(2010)
- 10) 全国環境研協議会酸性雨調査研究部会：第 5 次酸性雨全国調査報告書(平成 21 年度), 全国環境研究会誌,36(3), 106-146(2011)
- 11) 全国環境研協議会酸性雨調査研究部会：第 5 次酸性雨全国調査報告書(平成 22 年度), 全国環境研究会誌,37(3), 110-157(2012)
- 12) 全国環境研協議会酸性雨調査研究部会：第 5 次酸性雨全国調査報告書(平成 23 年度), 全国環境研究会誌,38(3), 84-126(2013)
- 13) 全国環境研協議会酸性雨調査研究部会：第 5 次酸性雨全国調査報告書(平成 24 年度), 全国環境研究会誌,39(3), 100-146(2014)
- 14) 全国環境研協議会酸性雨調査研究部会：第 5 次酸性雨全国調査報告書(平成 25 年度), 全国環境研究会誌,40(3), 98-142(2015)
- 15) 全国環境研協議会酸性雨調査研究部会：第 5 次酸性雨全国調査報告書(平成 26 年度), 全国環境研究会誌,41(3), 2-37(2016)
- 16) 曾我稔：環境系データ解析支援ソフト見え見えくんマニュアル,(2016)
- 17) US-EPA：VISIBILITY MONITORING GUIDANCE (1999)
- 18) 汪金芳：ブートストラップ法 最近までの発展と今後の展望, 行動計量学, 19(2), 50-81(1992)
- 19) Ya-Qiang Wang et al：TrajStat: GIS-based software that uses various trajectory statistical analysis methods to identify potential sources from long-term air pollution measurement data(2009)
- 20) 中坪良平：TrajStat による PSCF の手順 Version 1.0(2014)
- 21) 新藤純子：酸性雨による土壌影響, 農業土木学会誌, 60(12), 1099-1102(1992)
- 22) 佐溝昌彦 他：鉄道防災情報システムと雨量計配置に関する一考察, 土木学会第 48 回年次講演会講演集, 4, 340-341(1995)
- 23) 前川勉 他：福井県における酸性雨と生態系の実態について (第 1 報), 福井県環境センター年報, 20, 90-101(1990)
- 24) 高岡大 他：PMF 法による福井県内の $\text{PM}_{2.5}$ 発生源寄与解析, 福井県衛生環境研究センター年報告, 14, 55-60

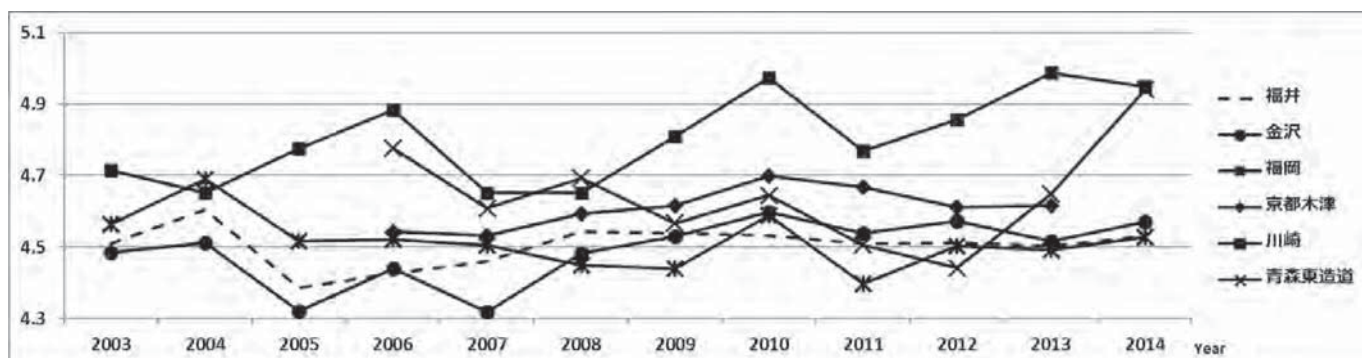


図4 代表5地点の年平均 pH の推移 (2003～2014 年度)

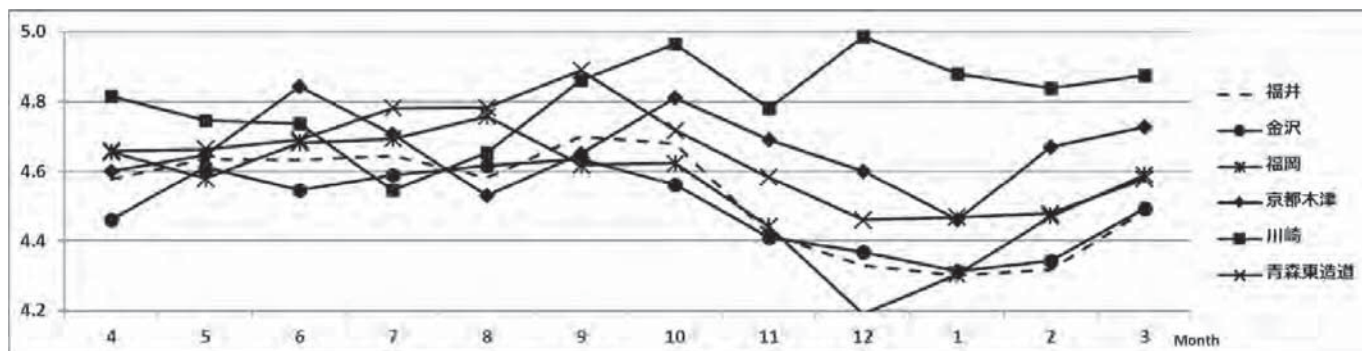


図5 代表5地点の月平均 pH (2003～2014 年度)

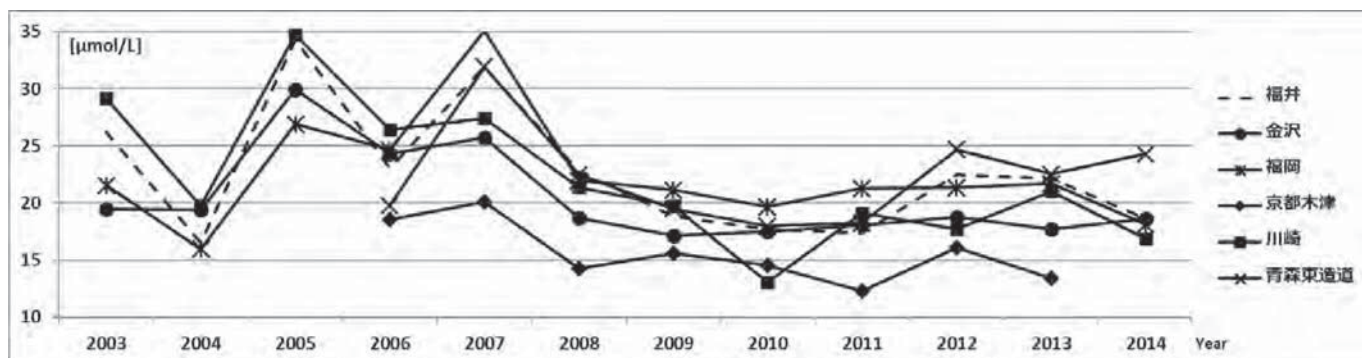


図6 代表5地点の年平均 nss-SO₄²⁻ の推移 (2003～2014 年度)

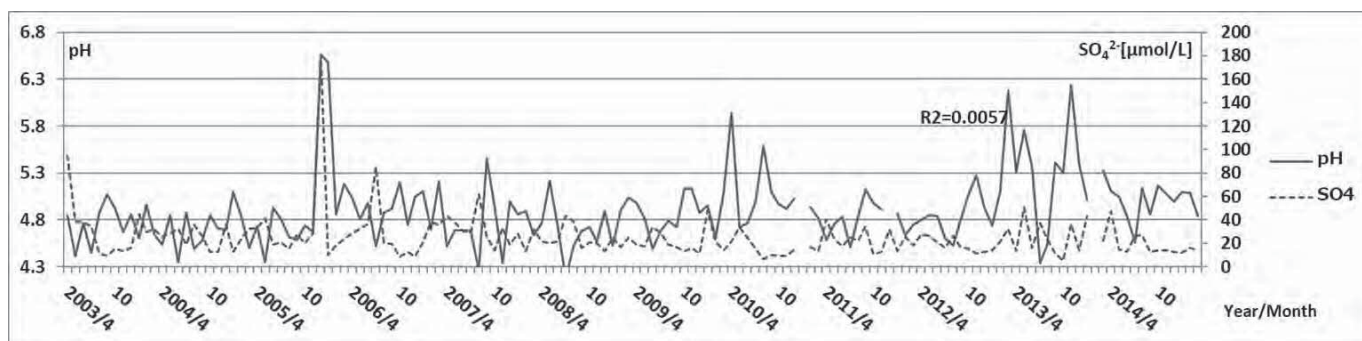


図7 川崎の月平均 pH と nss-SO₄²⁻ の推移 (2003～2014 年度)

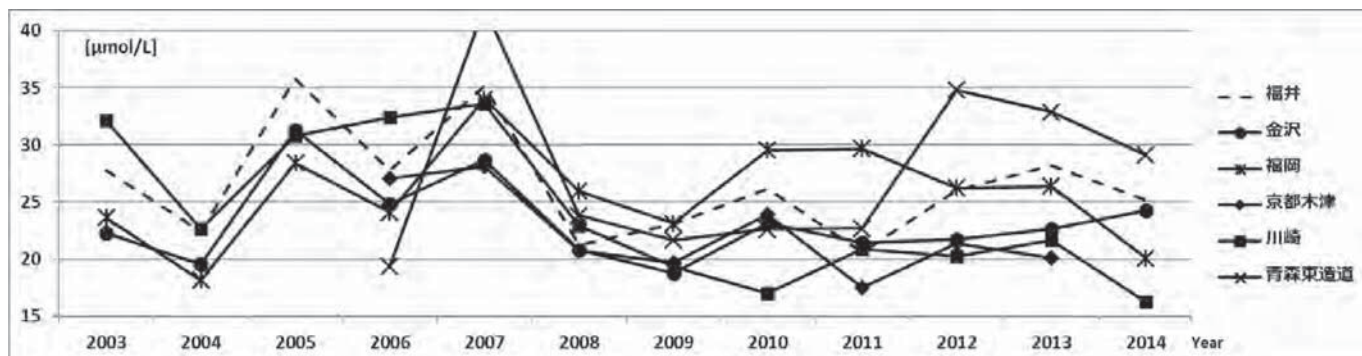


図 8 代表 5 地点の年平均 NO₃⁻の推移 (2003~2014)

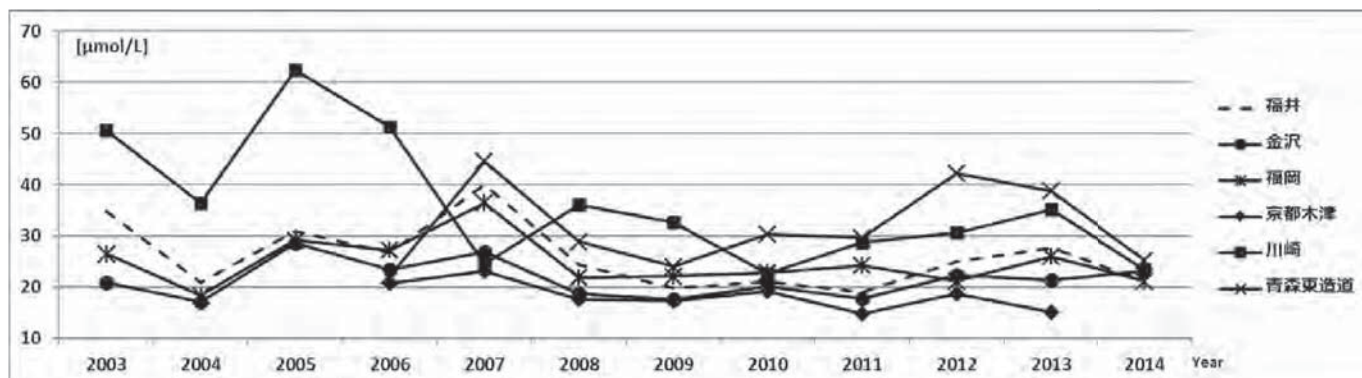


図 9 代表 5 地点の年平均 NH₄⁺の推移 (2003~2014)

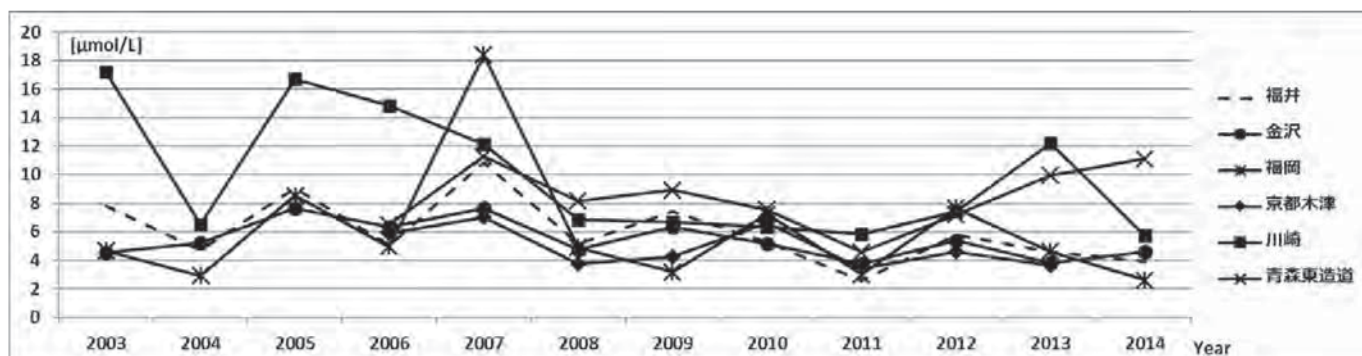


図 10 代表 5 地点の年平均 nss-Ca²⁺の推移 (2003~2014)