

報告 (Note)

西丹沢における大気汚染物質及び酸性雨の状況 (1996~2011)

武田麻由子, 小松宏昭, 岡敬一, 阿相敏明
(調査研究部)

Observational study of air pollutants and acid rain in the western part of Mts. Tanzawa
(2001-2011)

Mayuko TAKEDA , Hiroaki KOMATSU, Keiichi OKA, Toshiaki ASO
(Research Division)

キーワード：西丹沢, 大気汚染物質, 酸性雨, 経年変化

1 はじめに

ブナ林はわが国の冷温帯を代表する森林であり, 北海道南部から九州まで広範囲に分布している。自然性の高い極相林として存続している森林も多く, また生物多様性豊かな地域として保全されている地域も多い。しかし, 近年, 全国各地でブナ林の衰退が報告されている^{1,2)}。

神奈川県北西部に位置する丹沢山地では, 1970~1980年頃にブナの枯損が始まり, 現在も進行中である。特に檜洞丸(標高1600m)の稜線部の南斜面でブナ林の衰退や枯損が著しい¹⁾。ブナ林衰退の原因は気象要因や樹木の老齢化など様々な説があり, 大気汚染の影響も指摘されている³⁾。ブナ林の衰退防止対策とその再生のためには, ブナ林衰退の原因の究明が大きな課題となっている。

環境省では, 森林衰退の原因究明に資するため, 全国酸性雨調査の一環として, 1995年に西丹沢に国設酸性雨測定所を開設した。2002年度以降は神奈川県大気汚染常時監視測定局の研究局として継続して大気汚染物質等の現状把握を行っている。すでに報告済みの1995~2000年のデータ⁴⁾も含め, 計18年間のデータが得られたので, 大気汚染物質等の傾向について報告する。

2 調査方法

2.1 調査地点

調査地点は環境省が国設酸性雨測定所として開設し, 現在は神奈川県大気汚染常時監視測定局の研究局である犬越路測定局(山北町中川927-2, 北緯35度29分16秒, 東経139度5分

6秒, 標高920m, 以下, 「犬越路局」という。)である。犬越路局は, 丹沢山地の西部に位置する, 山北町側の犬越路林道と相模原市側の神ノ川林道を結ぶ犬越路隧道の山北町側にある。特に神ノ川林道の落石が著しいため, 1999年にゲートが設置され, 関係車両以外の通行はできなくなった。犬越路隧道の上に位置する犬越路峠(標高1060m)はブナ枯損の著しい檜洞丸から大室山(標高1587m)に至る尾根筋にあり, 檜洞丸より北西約4kmの地点にある。犬越路局は東京湾京浜工業地帯からは西に約55km, 相模湾, 駿河灘の海岸線からは北にそれぞれ約25km, 45kmである。また, 北16kmに中央高速道路が, 南13kmに東名高速道路が通っている。

檜洞丸から大室山周辺はヤマボウシーブナ群集に属し, 土壌は火山灰を母材とする適潤性黒ボク土である。犬越路隧道周辺は若干標高が低いいため, ブナの個体はそれほど多くなく, 衰退も檜洞丸に比較すると軽微である。

2.2 調査期間

大気汚染物質調査については1995年7月6日より, 酸性雨調査については同年5月25日より調査を開始し, 現在も継続して調査中である。解析には1996年4月1日~2012年3月31日のデータを使用した。なお, SO₂及びNO_xについては, 機器の故障により, 2011年度のデータは欠測とした。

2. 3 調査方法

大気汚染物質調査については、堀場製作所製のNO_x計 (APNA365)、SO₂計 (APSA365)及びO₃計 (APOA360)を用いた。

酸性雨調査については、小笠原計器製作所製の感雨式自動雨水採取装置 (U-420)を用い、0時から24時までの1日間の降雨を採取した。採取した降水は、重量を測定して降水量を算出した。なお、降水試料量が採取容器量 (最大約100mmの降水を採取可能)を超えた場合には、同局に設置してある転倒マス雨量計 (小笠原計器製作所製RS-222)の降水量データあるいは近傍のアメダス局である丹沢湖の降水量データを使用した。また、自動雨水採取装置の故障等により降水試料が採取できなかった場合も、転倒マス雨量計の降水量データあるいは丹沢湖の降水量データを使用し、降水量データを補完した。その後、一部をとってpH、ECを測定し、残りを0.22μmのろ紙でろ過し、イオンクロマトグラフィーを用いてイオン成分 (Cl⁻, NO₃⁻, SO₄²⁻, NH₄⁺, Na⁺, Mg²⁺, Ca²⁺, K⁺)濃度を測定した。なお、試料量が少なく、すべての項目について測定できない場合には、イオン成分分析を優先した。なお、降水量の算出方法が異なるため、1996~2000年のpH、EC及び各イオン成分濃度等が前報⁴⁾と若干異なる場合がある。

3 大気汚染物質調査結果

3. 1 SO₂, NO, NO₂, NO_x濃度の経年変化

犬越路局におけるSO₂, NO, NO₂, NO_x濃度の年平均値の経年変化を図1に示す。

犬越路局のSO₂濃度は、1996年度の1ppbから1999年度の0.5ppbまで経年的に低下していたが、2000~2001年度は三宅島火山の影響で2.3ppb、2.5ppbと上昇した。2002年度以降は三宅島火山の影響も小さくなり、2010年度は0.43ppbまで低下した。これは、固定発生源の燃料転換や景気の低迷及び自動車燃料の低イオウ化が影響していると考えられる。軽油中のイオウ含有率は1992年、1997年、2003年、2007年に規制が強化され、1992年以前は0.5%であったものがそれぞれ0.2%、0.05%、0.005%、0.001%となった。また、ガソリンについては2008年の規制に先立ち、2005年1月から0.001%以下のガソリンの供給が開始された。これらの対策の

結果、神奈川県におけるSO₂排出量は、固定発生源が1997年度の9,295t/y⁴⁾から2007年度の3,793t/y⁵⁾へ、移動発生源が2,182t/yから415t/yへと削減された (燃料油販売実績とイオウ含有量から算出)。2007年9月に柏崎刈羽原子力発電所停止による電力不足解消のため、休止していた横須賀火力発電所が再稼働し、SO₂排出量は増加したが、その後の原発の再稼働やリーマンショック等の景気後退から、2010年度には再度休止した。しかし、2011年3月の東日本大震災に伴う電力不足を踏まえ、休止していた横須賀火力発電所が再稼働しており、今後の排出量の増加が予想される。

犬越路局のNO_xは、その大部分がNO₂として存在しており、犬越路局周辺に発生源はなく、遠方から移流していると考えられる。犬越路局のNO_x濃度は1996年度の6.2ppbから年々低下し、2004年度は3ppbと約半減した。しかし、2006年度は4.8ppbと大きく上昇し、その後低下して2010年度は2.9ppbであった。2006年度にNO_x濃度が上昇した理由については、発生源等に大きな変化は見られず、神奈川県内の他の常時監視測定局では上昇傾向が見られなかったことなどから、測定機器等の不具合が原因と考えられる。

犬越路局のNO_x濃度の低下は、県内の発生源の排出量の減少の影響を受けているものと考えられる。すなわち、固定発生源の燃料転換、ディーゼル車の車種規制及び運行規制の影響が大きいと考えられる。神奈川県における移動発生源からのNO_x排出量は

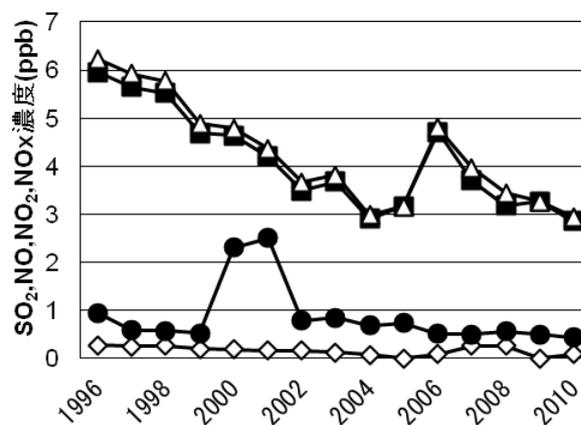


図1 犬越路局におけるSO₂, NO, NO₂及びNO_x濃度の経年変化
● : SO₂, ◇ : NO, ■ : NO₂, △ : NO_x

1997年度では23,400 t/yであったが、2007年度は12,400 t/yとなっており、約47%削減された⁶⁾。犬越路局におけるNO_x濃度の経年変化は、このようなNO_x排出量の減少と同調しており、このことから、2006年度のNO_x濃度の増加は測定機器等の不具合が原因と考えられる。犬越路局はNO_xの大気中濃度が非常に低いため、他の一般局の測定機より高感度の測定機を使用しており、精度管理が非常に困難な状況にある。

3. 2 O₃濃度の経年変化

3. 2. 1 O₃, PO及びO₃の1時間最高値の経年変化

犬越路局におけるO₃, POの年平均値及びO₃の1時間最高値の経年変化を図2に示す。ここでPOとは、ポテンシャルオゾン(=O₃生成量)を示す。O₃はNOと速やかに反応し、NO₂となることから、光化学反応の活性度を評価するためにNOによる分解量を見込んで補正した値であり、 $PO = O_3 + NO_2 - \alpha NO$ として算出される。 α は発生源から直接排出されるガス中のNO₂/NO_x比を表し、ここでは0.1として算出した。

犬越路局のO₃, PO濃度は、ともに経年的にやや低下傾向を示した。1996年度のO₃及びPO濃度はそれぞれ46 ppb, 51 ppbであったが、2010年度はそれぞれ38 ppb, 41 ppbであり、ともに低下していた。神奈川県内の他の測定局では、O₃濃度は上昇し、PO濃度は低下していた。これは、都市域において、O₃生成量は低下してい

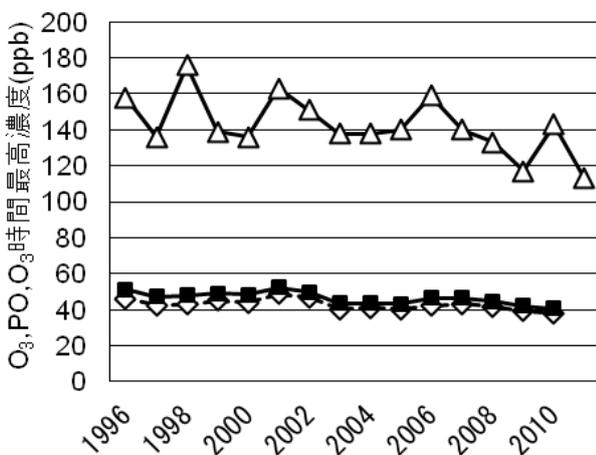


図2 犬越路局におけるO₃, PO濃度及びO₃1時間最高値の経年変化
◇ : O₃, ■ : PO, △ : O₃1時間最高値

るが、それ以上にO₃を分解するNOの排出量が大きく低下したため、O₃濃度が上昇したことを示している。O₃生成量が低下した要因として、この経年的低下は、夏季の気温変動と相関がないことから、気象的な要因のためではなく、神奈川県におけるNO_x排出量の削減及びVOC対策の効果であると推測される。犬越路局にはO₃を分解するNOの発生が元々ないため、O₃生成量の低下に伴い、O₃濃度が低下したものと考えられる。

また、犬越路局のO₃の1時間最高値は、1990年代の150 ppb前後から近年の120 ppb前後へと低下傾向が見られた。

3. 2. 2 O₃高濃度出現日数及び出現時間の経年変化

犬越路局における120 ppbを越えるO₃高濃度出現日数の経年変化を図3に示す。

O₃高濃度日出現日数は、年に0~10日であった。2002年度以前は6~10日であったが、2003年度以降減少し、2009年度は120ppbを超える日はみられなかった。なお、O₃高濃度出現日を月別にみると、4月は2日、5月は16日、6月は15日、7月は18日、8月は16日、9月は5日、10月は2日であり、全74日のほとんどがブナ着葉期の5月から8月に集中していた。

3. 2. 3 4~9月におけるO₃濃度及びAOT40の経年変化

筆者らによる犬越路局における野外実験の結果、当地域におけるO₃濃度はブナの生長阻害に大きな影響を与えることが判明している⁷⁾。そこで、ブナ着葉期である4~9月の犬越路局におけるO₃濃度及びAOT40の経年変化を検討した。結果を図4に示す。ここでAOT40とは、40ppbを越える日中のO₃濃度の6ヶ月積算値を示し、 $AOT40 = \int (C - 40) dt$ (C: O₃濃度の1時間値, 積算期間: 6~18時, 4~9月)として算出する。欧米においては、ヨーロッパブナの苗木を用いた実験によって、1年当たりの成長が10%減少する値として、10 ppm・hrが提案されている。また、日本の森林の構成樹種を用いた検討では、13 ppm・hr^{8,9)}が提唱されている。

犬越路局の4~9月におけるO₃濃度は、40~50 ppbの範囲で増減を繰り返しているが、やや減少傾向にある。AOT40も4~9月におけるO₃

濃度と同様、低下傾向がみられたが、その低下傾向は O_3 の平均濃度より大きくなっていった。2011年度では、AOT40は12.8 ppm・hrであり、ブナの生長阻害が10%となるAOT40の13 ppm・hrを下回った。

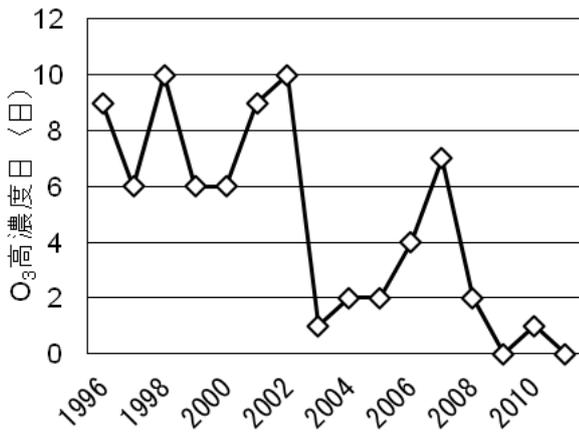


図3 犬越路局における O_3 濃度高濃度日出現日数の経年変化

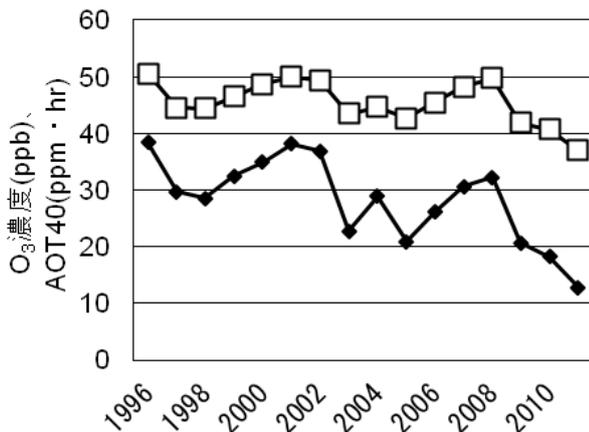


図4 犬越路局における4～9月の O_3 濃度及びAOT40の経年変化
□ : O_3 濃度, ◆ : AOT40

4 酸性雨調査結果

4.1 降雨状況及び降水 pH, EC の経年変化

犬越路局における降雨状況等の経年変化を表1及び図5～7に示す。降水量は年度によって大きく異なり、年間2000 mmから3700 mmの間で推移していた。近年は約2500 mm前後で横ばいで推移していたが、2011年度は特に降水量が多かった。これは、2011年9月に静岡県に上陸した台風15号の影響によるものであり、この月

は1000mmを超える降水が観測された。ECの年平均値については、0.62～1.48mS/mの範囲にあり、2000～2001年度に三宅島火山の噴火の影響で上昇したものの、その後は低下傾向にあった。降水pHの年平均値は4.63～5.11の範囲にあり、同様に2000年度に三宅島火山の噴火の影響で低下したものの、それ以降はわずかではあるが年々上昇傾向にあった。環境科学センター(平塚市)で測定している酸性雨調査の2006～2010年度の結果は年平均pHが4.6～4.9であり¹⁰⁾、犬越路局の方が若干酸性度が低いものの、ほぼ同程度であった。一日降水の最低pHは3.31～3.94の範囲にあり、平均pHと同様、経年的に上昇傾向にあった。

4.2 降水 pH の頻度分布の経年変化

犬越路局における降水pHの頻度分布の経年変化を図8に示す。全降水に占めるpH4以下の降雨の頻度は2001年度をピークに低下し、近年では数%程度となっており、ここからも犬越路局の降水の酸性度が経年的に改善している傾向が認められた。

4.3 降水イオン成分濃度

犬越路局における降水のイオン成分濃度の年平均値の経年変化を表2、図9及び10に示す。陽イオン成分に占める割合で最も高いのは H^+ であった。 H^+ 濃度は1996～1999年度まで年々低下していたが、2000～2001年度の三宅島火山の影響で倍増し、その後は年度による増減はあるものの、経年的には低下傾向であった。しかし、三宅島火山の噴火以前より高い濃度で推移しており、少なくともはなつたものの、引き続き三宅島火山の影響を受けていると考えられた。次に陽イオン成分に占める割合が高いのは NH_4^+ であり、 NH_4^+ 濃度は2002年度の特異的な高濃度を除き、2007年度まで緩やかに上昇し、2007年度以降低下に転じていた。 Na^+ 濃度は横ばいに推移していたが、2011年度は特異的に高かった。これは、上述の台風15号の影響によるものと考えられる。

Na^+ 濃度を基準に海塩起源を除いた非海塩起源(non sea salt = nss)である $nss-Ca^{2+}$ 、 $nss-Mg^{2+}$ については、2007年度まで緩やかに上昇し、2008年度に低下し、近年また緩やかに上昇して

表1 犬越路局における降水量, EC及びpHの経年変化

		1996	1997	1998	1999	2000	2001	2002	2003
降水量 (mm)		2011	2105	3709	2780	2637	2986	2421	2038
EC (mS/m)		1.15	0.96	0.68	0.62	1.31	1.47	1.02	1.07
pH	最低	3.53	3.45	3.50	3.78	3.52	3.41	3.71	3.67
	最高	6.30	7.00	6.55	7.04	6.68	7.37	5.80	5.73
	平均	4.79	4.87	5.03	5.11	4.65	4.63	4.79	4.70

		2004	2005	2006	2007	2008	2009	2010	2011
降水量 (mm)		2882	2176	2057	2272	2454	2635	2527	3817
EC (mS/m)		1.07	1.13	1.08	0.95	1.11	0.78	0.83	0.94
pH	最低	3.84	3.46	3.48	3.31	3.85	3.94	3.72	3.77
	最高	6.63	6.23	6.86	6.61	5.99	5.88	6.83	8.23
	平均	4.86	4.75	4.89	4.93	4.78	4.91	4.90	4.95

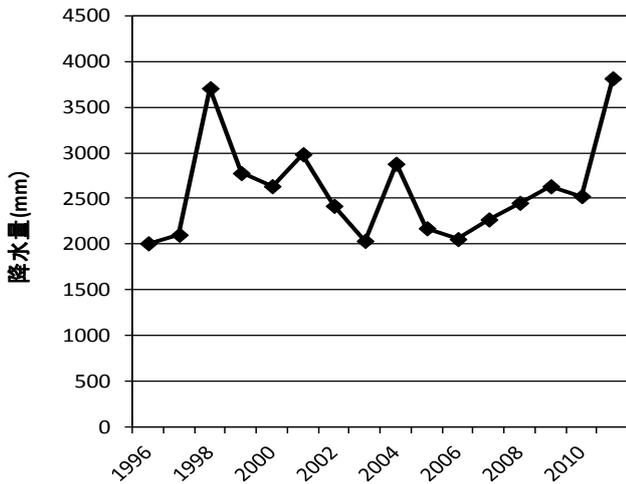


図5 犬越路局における降水量の経年変化

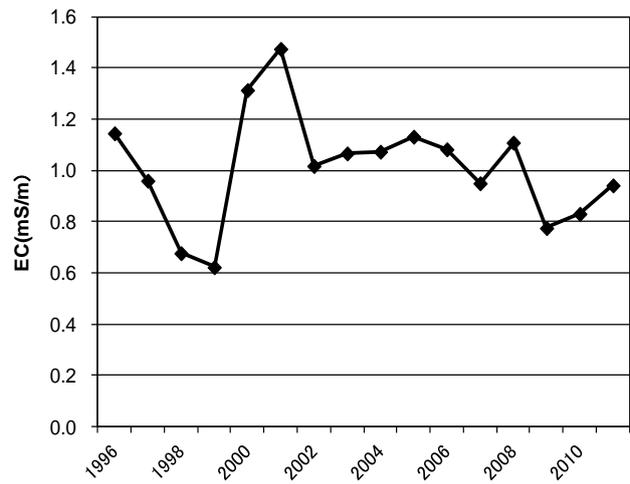


図6 犬越路局におけるECの経年変化

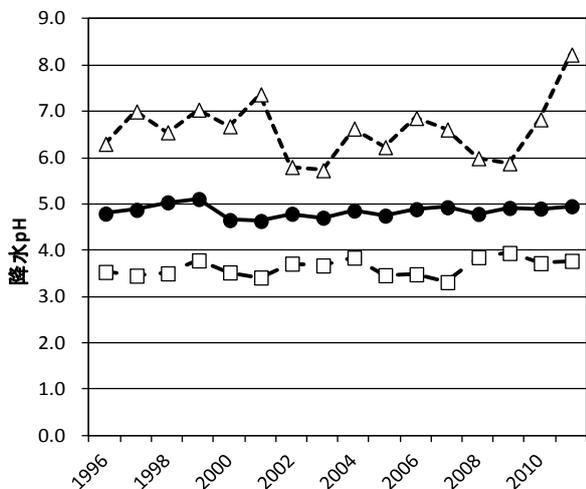


図7 犬越路局における降水 pH の経年変化

● : 年平均 pH, □ : 最低 pH, △ : 最高 pH

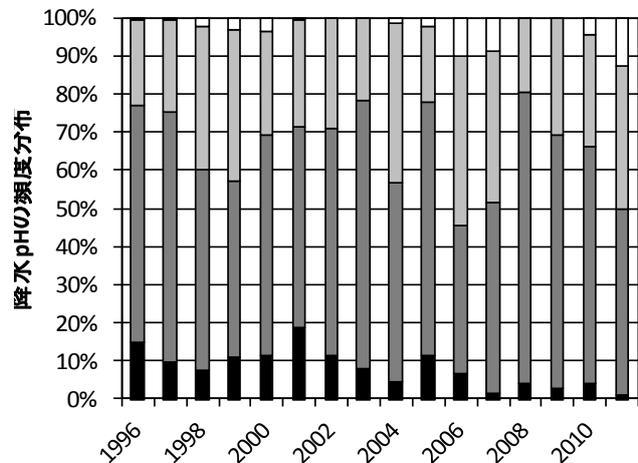


図8 犬越路局における降水 pH の頻度分布の経年変化

■ : pH4以下, ■ : pH4~5, ■ : pH5~6, □ : pH6以上

表2 犬越路局における降水イオン成分濃度の経年変化 (μmol/l)

		1996	1997	1998	1999	2000	2001	2002	2003
陽イオン	H ⁺	16.2	13.4	9.2	7.8	22.3	23.3	16.3	19.8
	NH ₄ ⁺	11.2	7.6	8.3	6.2	6.3	7.7	15.3	10.1
	Na ⁺	9.5	11.4	6.6	7.5	6.8	11.1	5.6	7.1
	nss-K ⁺	0.8	0.7	0.5	0.8	0.7	0.4	0.8	1.7
	nss-Ca ²⁺	2.7	1.2	1.0	1.6	2.0	2.2	1.0	1.2
	nss-Mg ²⁺	0.2	0.0	0.0	0.4	0.1	0.4	0.0	0.0
陰イオン	nss-Cl ⁻	1.5	0.8	1.3	0.9	3.7	3.1	1.2	1.2
	NO ₃ ⁻	15.1	11.8	9.0	8.7	9.5	9.7	12.1	14.3
	nss-SO ₄ ²⁻	7.9	5.8	4.6	4.8	11.5	12.3	9.4	10.7

		2004	2005	2006	2007	2008	2009	2010	2011
陽イオン	H ⁺	13.9	17.9	13.0	11.8	16.4	12.2	12.6	11.2
	NH ₄ ⁺	9.7	10.4	10.9	11.0	10.1	8.1	6.8	5.1
	Na ⁺	10.0	6.9	9.2	7.3	6.5	6.6	6.4	17.1
	nss-K ⁺	0.8	0.6	0.7	0.7	0.7	0.8	1.1	1.1
	nss-Ca ²⁺	1.7	1.8	3.6	4.6	1.5	1.9	2.4	2.6
	nss-Mg ²⁺	0.4	0.6	1.4	1.8	0.1	0.2	0.5	0.4
陰イオン	nss-Cl ⁻	0.2	0.0	0.0	0.0	0.9	0.8	0.3	0.3
	NO ₃ ⁻	10.7	14.4	14.6	14.8	10.6	8.4	10.6	6.5
	nss-SO ₄ ²⁻	9.0	10.6	11.5	10.3	8.3	5.9	6.7	6.4

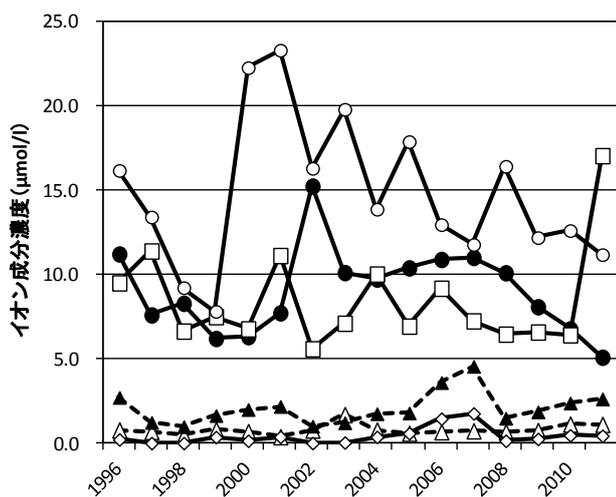


図9 犬越路局における降水中の陽イオン濃度の経年変化

○ : H⁺, ● : NH₄⁺, □ : Na⁺, △ : nss-K⁺,
▲ : nss-Ca²⁺, ◇ : nss-Mg²⁺

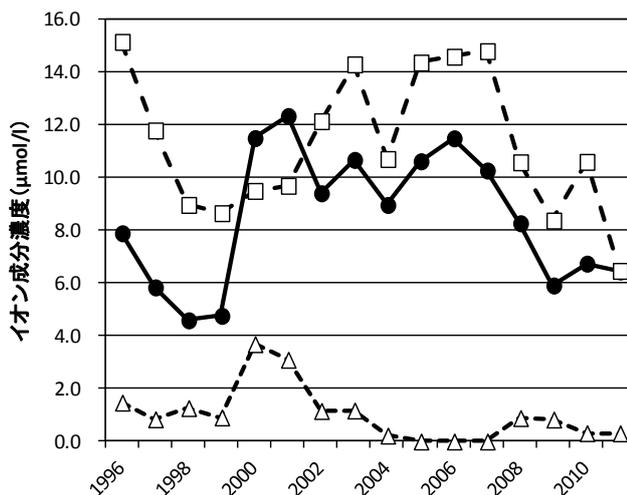


図10 犬越路局における降水中の陰イオン濃度の経年変化

△ : nss-Cl⁻, □ : NO₃⁻, ● : nss-SO₄²⁻

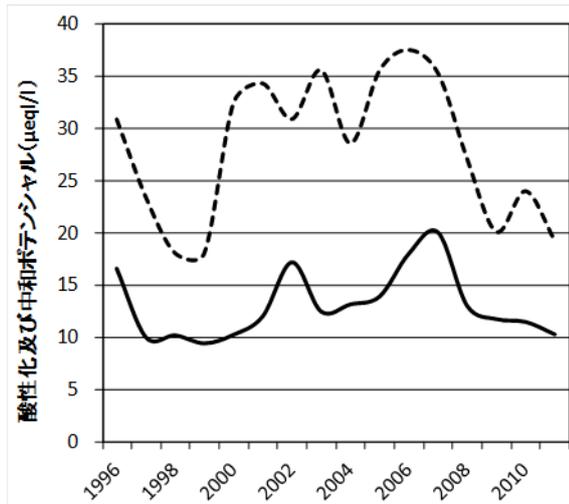


図 11 犬越路局における酸性化ポテンシャル及び中和ポテンシャルの経年変化

実線：中和ポテンシャル，
破線：酸性化ポテンシャル

いた。nss-K⁺については、低濃度で横ばいに推移していた。

陰イオン成分に占める割合で最も高いのは、三宅島火山の影響を受けた 2000～2001 年度を除き、NO₃⁻であり、次いで nss-SO₄²⁻であった。NO₃⁻濃度は 2001 年度より上昇し、2004 年度を除き、2003～2007 年度は約 14 μmol/l で横ばいであったが、近年は低下傾向を示していた。nss-SO₄²⁻濃度は 2000～2001 年度に三宅島火山の影響で上昇したが、その後は経年的に低下したものの、H⁺濃度同様、三宅島火山の噴火以前より高い濃度で推移していた。nss-Cl⁻濃度は、2000～2001 年度を除けば、1996 年以降、低下傾向を示した。

NO₃⁻と nss-SO₄²⁻の当量濃度和を酸性化ポテンシャル、NH₄⁺と nss-Ca²⁺の当量濃度和を中和ポテンシャルと定義すると¹¹⁾、酸性化ポテンシャルは三宅島火山が噴火した 2000 年度から 2007 年度まで、年度による増減はあるものの概ね 35 μeq/l で推移し、2007 年度以降低下していた (図 11)。

表 3 1996～2011 年度の降水イオン成分降下量の経年変化 (mmol/m²/y)

		1996	1997	1998	1999	2000	2001	2002	2003
陽イオン	H ⁺	32.6	28.2	34.2	21.4	55.2	69.6	39.2	34.1
	NH ₄ ⁺	22.6	16.0	30.8	17.0	15.6	23.1	36.7	17.4
	Na ⁺	19.1	24.0	24.7	20.5	16.8	33.2	13.5	12.2
	nss-K ⁺	1.6	1.5	1.7	2.2	1.7	1.1	1.9	2.9
	nss-Ca ²⁺	5.5	2.6	3.6	4.5	4.9	6.5	2.4	2.1
	nss-Mg ²⁺	0.4	0.0	0.0	1.0	0.3	1.1	0.0	0.1
陰イオン	nss-Cl ⁻	3.0	1.8	4.7	2.5	9.1	9.2	2.8	2.0
	NO ₃ ⁻	30.4	24.8	33.2	23.7	23.5	28.9	29.2	24.6
	nss-SO ₄ ²⁻	15.9	12.3	15.7	12.0	28.5	36.8	22.6	18.4

		2004	2005	2006	2007	2008	2009	2010	2011
陽イオン	H ⁺	40.0	38.9	20.3	24.1	40.3	29.1	31.9	42.7
	NH ₄ ⁺	28.1	22.6	17.1	22.6	24.8	19.3	17.1	19.5
	Na ⁺	28.9	15.1	14.4	14.8	15.9	15.7	16.2	65.1
	nss-K ⁺	2.2	1.3	1.1	1.5	1.7	1.8	2.9	4.2
	nss-Ca ²⁺	5.0	3.9	5.6	9.3	3.6	4.4	6.0	10.0
	nss-Mg ²⁺	1.1	1.3	2.3	3.6	0.3	0.6	1.2	1.7
陰イオン	nss-Cl ⁻	0.6	0.0	0.0	0.0	2.2	2.0	0.8	1.2
	NO ₃ ⁻	30.8	31.2	22.8	30.3	26.0	20.0	26.8	24.7
	nss-SO ₄ ²⁻	25.8	23.1	18.0	21.0	20.3	14.1	17.0	24.6

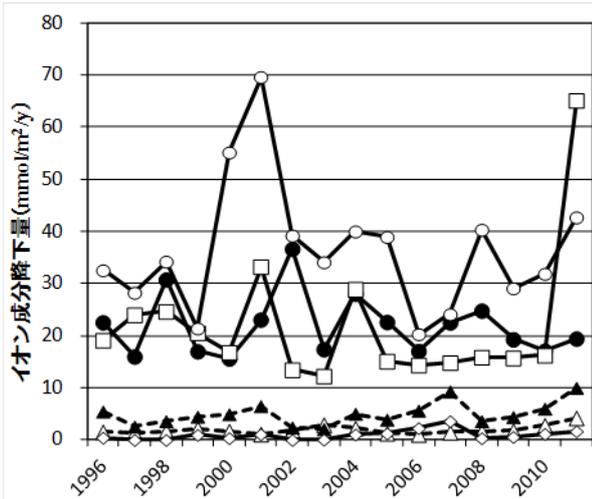


図 12 犬越路局における陽イオン降下量の経年変化

○ : H^+ , ● : NH_4^+ , □ : Na^+ , △ : $nss-K^+$,
▲ : $nss-Ca^{2+}$, ◇ : $nss-Mg^{2+}$

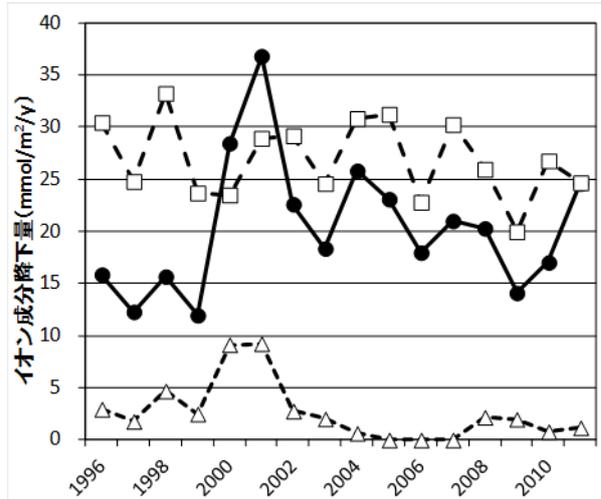


図 13 犬越路局における陰イオン降下量の経年変化

△ : $nss-Cl^-$, □ : NO_3^- , ● : $nss-SO_4^{2-}$

中和ポテンシャルは 2007 年度まで緩やかに上昇したのち、同様に 2007 年度以降低下した。2007 年度以降に汚染物質濃度が低下する傾向は、全環研酸性雨部会の調査結果¹²⁾にも表れており、全国的な傾向であった。

4. 4 降水イオン成分降下量

犬越路局における降水によるイオン成分降下量の年平均値の経年変化を表 3、図 12 及び図 13 に示す。

降水による H^+ 降下量は三宅島火山の影響を受けた 2000~2001 年度は特異的に高く、逆に 2006, 2007 年度は特異的に低かったが、それらを除けば概ね 30~40 $mmol/m^2/y$ の範囲で横ばいに推移していた。 NH_4^+ 降下量は 2002 年度を除き、概ね 20 $mmol/m^2/y$ 程度であった。

降水による $nss-SO_4^{2-}$ 降下量は、三宅島火山の影響を受けた 2000~2001 年度は大きい値であったが、それ以降は年度による増減はあるものの経年的に低下していた。 NO_3^- 降下量は 25~30 $mmol/m^2/y$ 程度で横ばいに推移していた。 $nss-Cl^-$ 降下量は、2000~2001 年度を除けば 1996 年度から 2011 年度まで低下していた。2011 年度は降水量が多かったため、 H^+ 降下量及び $nss-SO_4^{2-}$ 降下量が上昇した。

5 まとめ

丹沢山中の犬越路局において、1995 年 7 月から 2012 年 3 月まで大気汚染物質 (SO_2 , NO , NO_2 , NO_x 及び O_3) 及び酸性雨の測定を行い、以下の結果を得た。

SO_2 , NO , NO_2 , NO_x 及び O_3 濃度は、いずれも経年的に低下傾向を示し、それぞれの発生源対策の結果と考えられた。

SO_2 濃度は、1996 年度の 1 ppb から年々低下したが、2000~2001 年度に三宅島火山の影響で 2 ppb 以上の高濃度を示した。しかし、その後は火山の影響が少なくなり、2010 年度は 0.43 ppb となった。この経年的低下は、固定発生源における重油から LNG への燃料転換や軽油中の S 分が 1992 年以前の 0.5% から 2005 年の 0.001% まで段階的に改善されたためと考えられた。

NO_x についても、1996 年度の 6.2 ppb から年々低下し、2010 年度には 2.9 ppb まで低下した。この経年的低下は、固定発生源における重油から LNG への燃料転換、ディーゼル車の車種規制、運行規制によるものと考えられた。

ブナの生長阻害に影響を及ぼすと考えられる O_3 濃度は、1996 年度の 46 ppb から 2010 年度の 38 ppb まで低下し、 O_3 最高濃度も調査当初の 150 ppb 前後から近年では 120 ppb 前後と低下していた。また、 O_3 高濃度出現日数及び時間は、調査当初は 6~10 日、12~36 時間であったが、

近年は 120 ppb を超える日数、時間とも非常に少なくなり、2009 年度、2011 年度は 120 ppb を超えた日はみられなかった。更に、AOT40 も調査当初は 30 ppm・hr を超えることが多かったが、近年は大きな低下傾向を示し、2011 年度では 12.8 ppm・hr とブナの生長阻害が 10%程度であるクリティカルレベルまで低下した。この経年的低下は、夏季の気温変動と相関がないことから、気象的な要因のためではなく、固定発生源における重油から LNG への燃料転換やディーゼル車の車種規制、運行規制に加え、VOC 対策によるものと考えられ、ブナ林再生のためには、更なるこれらの対策が有効であると考えられる。

酸性雨調査の結果、降水量は年間 2000 mm から 3700 mm の間で推移し、近年は約 2500 mm 前後で横ばいに推移していたが、2011 年度は特に降水量が多かった。EC は 0.62~1.48 mS/m の範囲にあり、2000~2001 年度に三宅島火山の噴火の影響で上昇したものの、その後は低下傾向にあった。降水 pH の年平均値は 4.63~5.11 の範囲にあり、同様に 2000 年度に三宅島火山の噴火の影響で低下したものの、それ以降はわずかではあるが年々上昇傾向にあった。全降水に占める pH 4 以下の降雨の頻度も近年は数%程度であった。

降水中の H^+ 濃度、 $nss-SO_4^{2-}$ 濃度及び $nss-Cl$ 濃度は 2000 年度の三宅島火山の影響を受けて大きく上昇し、 H^+ 濃度、 $nss-SO_4^{2-}$ 濃度についてはその後緩やかに低下したものの、噴火以前よりは高い濃度で推移していた。一方 $nss-Cl$ 濃度は、速やかに噴火以前の濃度に低下した。 NH_4^+ 濃度は 2007 年度まで緩やかに上昇し、2007 年度以降低下に転じていた。 NO_3^- 濃度は 2001 年度より上昇し、2003~2007 年度は横ばいであったが、2007 年度以降は低下傾向を示していた。2007 年度以降に降水中の汚染物質濃度が低下する傾向は、全環研酸性雨部会の調査結果にも表れており、全国的な傾向であった。

降水による H^+ 降下量、 $nss-SO_4^{2-}$ 降下量及び $nss-Cl$ 降下量は 2000 年度の三宅島火山の影響を受けて大きく上昇し、その後低下して横ばいに推移していた。 NH_4^+ 降下量及び NO_3^- 降下量は近年横ばいであった。

固定発生源や移動発生源の対策に伴い、ガス状大気汚染物質濃度は経年的に低下していたが、降水による汚染物質降下量の低下は顕著に

は見られなかった。このことは、酸性雨の汚染過程が複雑であることを示唆した。

参考文献

- 1) 越地正・鈴木清・須賀一夫：丹沢山地における森林衰退の研究(1) ブナ・モミ等の枯損実態. 神奈川県森林研究所報告 22, 7-18 (1996)
- 2) 猪上信義・野田亮・佐々木重行：福岡県英彦山におけるブナ林の衰退現象と立地との関係, 九州森林研究 No.55 (2002)
- 3) 山根正伸・相原敬次・鈴木 透・笹川裕史・原慶太郎・勝山輝男・河野吉久・山上 明：ブナ林の再生に向けた総合解析, 丹沢大山総合調査団 (編). (財)平岡環境科学研究 所丹沢大山総合調査学術報告書, 703-710 (2007)
- 4) 神奈川県:神奈川の大気汚染(平成 18 年度)
- 5) 神奈川県:神奈川の大気汚染(平成 19 年度)
- 6) 神奈川県自動車排出窒素酸化物及び粒子状物質総量削減計画策定協議会 専門委員会資料 (平成 23 年度)
- 7) 武田麻由子・相原敬次：丹沢山地の大気中オゾンがブナ (*Fagus crenata*) 苗に及ぼす影響, 大気環境学会誌, 42(2), 107-117 (2007)
- 8) Matsumura H. and Kohno Y. : Effects of ozone and/or sulfur dioxide on tree species, Proceedings of CRIEPI International Seminar on Transport and Effects of Acidic Substances, Central Research Institute of Electric Power Industry, 190-205 (1997)
- 9) 伊豆田猛・松村秀幸：植物保護のための対流圏オゾンのクリティカルレベル, 大気環境学会誌, 32(6), A73-A81 (1997)
- 10) 神奈川県：平成 22 年度 神奈川の大気汚染
- 11) 鶴田治雄：東アジアの酸性雨, 科学, 59, 305-315 (1989)
- 12) 第 5 次酸性雨全国調査報告書：全国環境研究会誌, 37(3), 110-158 (2012)