

C-1 東アジアにおける酸性、酸化性物質の動態解明に関する研究

(1) 地上観測による酸性、酸化性物質の動態解明に関する研究

- ① 同位体比測定による大気汚染物質の大陸からの寄与の推定と酸性物質沈着量マップ作成に関する研究

研究代表者 国立環境研究所地球環境研究グループ 村野健太郎

環境庁 国立環境研究所

地球環境研究グループ	統括研究官	安野正之
	主任研究官	村野健太郎
	酸性雨研究チーム	佐竹研一・畠山史郎
	温暖化現象解明研究チーム	向井人史
地域環境研究グループ	有害廃棄物対策研究チーム	西川雅高
大気圏環境部	大気反応研究室	福山 力
(委託先)	東大先端科学技術研究センター	秋元 肇
	鹿児島県環境センター	木山祐三郎
	島根県衛生公害研究所	中尾 充
	新潟県衛生公害研究所	田邊広和
	沖縄県衛生環境研究所	金城義勝

平成5-8年度合計予算額 60,497千円
(平成7年度予算額 20,173千円)

[要旨] 大陸からの越境汚染を捕らえるために八方尾根、隠岐島、沖縄本島等の国内の適地を選定し、雨水成分、エアロゾル成分、オゾン等の地上観測を行い、酸性物質沈着量を求め、硫黄、鉛同位体比の測定を行った。中国の中部から朝鮮半島を横切り気団が来る場合は、 $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ の値が高く相対的に古い鉛であり、日本から気団が来る場合は $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ の値が低く日本の都市の鉛同位体比になっていることが示唆された。新潟県の山岳の硫黄同位体比は、降雨に比べ降雪が5倍以上高い値を示し、降雨と降雪の SO_4^{2-} の起源の違いを示唆していた。非海塩性硫酸塩の硫黄同位体比は、沿岸からそれほど遠くない海洋大気エアロゾルの値の範囲内であった。乾性沈着量は粒子状物質と比較して、ガスが大きな部分を占めることが明らかとなった。

[キーワード] 東アジア、越境汚染、酸性物質沈着量、鉛同位体比、硫黄同位体比

1. 序

東アジア地域はヨーロッパ大陸、北米大陸に次いで酸性雨の前駆体物質である SO_2 、 NO_x の排出量が多く、工業の発展と人口の増加により、今後さらに増大することが予想されている。これらの前駆体物質は酸化反応により硫酸(塩)や硝酸(塩)となり沈着するため、東アジア地域の酸性物質降下量も増加し、いわゆる酸性雨の被害が我が国を含む東アジア地域において拡大するこ

とが懸念される。

2. 研究目的

東アジアにおける酸性、酸化性物質の動態解明のために、低汚染地帯である離島や山岳地帯で、さらに大陸からの大気汚染物質の移流を受ける可能性がある地点（南西諸島（沖縄本島）、日本海（隠岐島）、および八方尾根）において、雨水成分、エアロゾル成分、オゾン等の地上観測を行う。このことにより我国に降下する酸性物質の経年変化を知り、大気汚染物質の動態を知ると同時に、硫黄、鉛同位体比測定を行うことにより、越境汚染の定量化を行う。また、酸性物質沈着量を求めるための大気汚染物質の連続観測を行う。

3. 結果と考察

(1) 沖縄本島辺戸岬でのオゾンの観測

東アジア地域を対象とした酸性・酸化性物質の動態解明を行う目的で1991年10月から沖縄本島の最北端に位置する辺戸岬でオゾン等の調査を行っている。

オゾンの観測は高さ約5mの位置から内径8mmのテフロン管で外気を観測所内に取り入れ、ガラス製のマニホールを経由しテフロンフィルターを通過させた後、2 l/minでオゾン計に導入し行った。オゾン計は紫外線吸収式のDasibi Model-1006 AHJを主に使用した。

観測期間中のオゾン濃度は1ppbv以下から93ppbvの範囲に分布し、平均値は33.9ppbvであった。91年10月から95年12月までの月平均値の変動を図1に示す。季節変化と対応した変動がみられ、

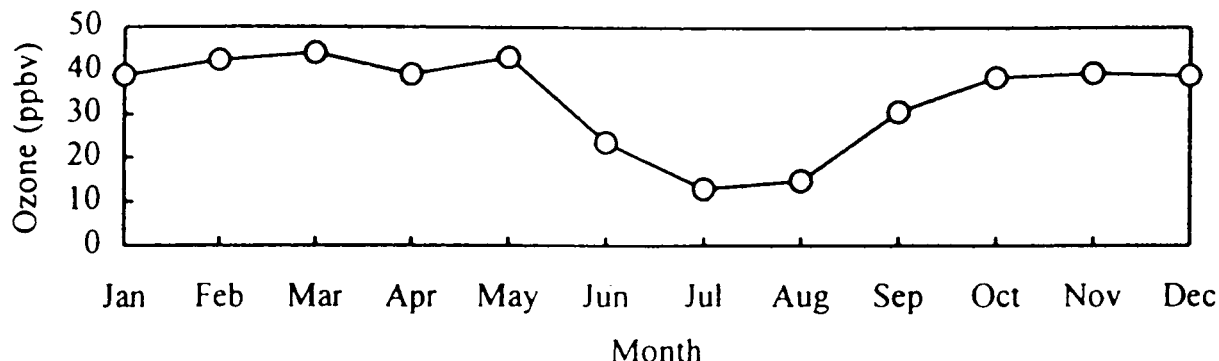


図1 月毎に平均したオゾン濃度の変動

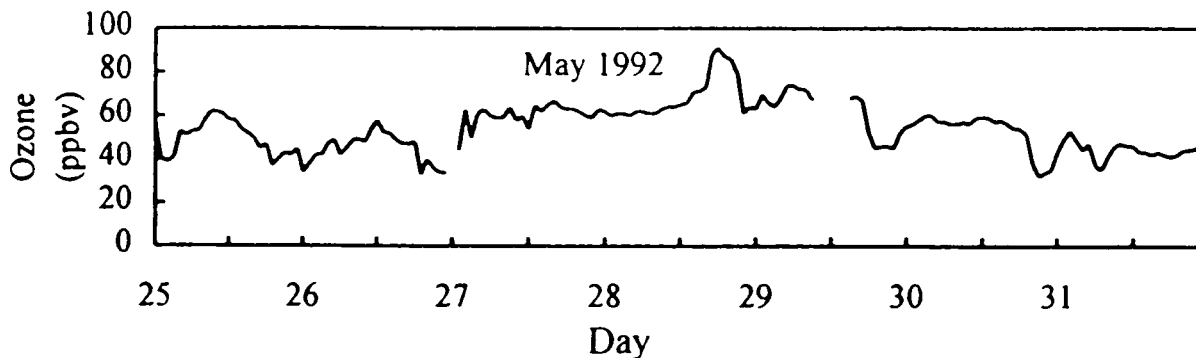
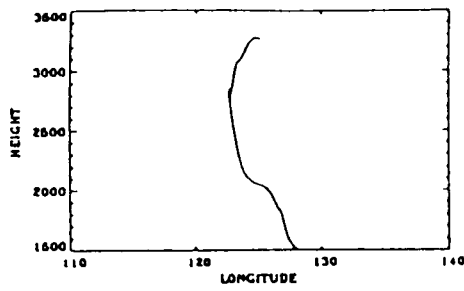


図2 '92年のオゾン濃度の最大濃度出現時の前後数日間の経時変化



*** INPUT DATA INFORMATION ***
 METHOD : 2
 S-YMDDHH : 92 5 28 10
 E-YMDDHH : 92 5 28 10
 NUMBER OF PARTICLES : 1
 ERROR TYPE : 1
 ERROR RANGE : 0
 START POINT : 26.88 126.23
 START HEIGHT : -1500

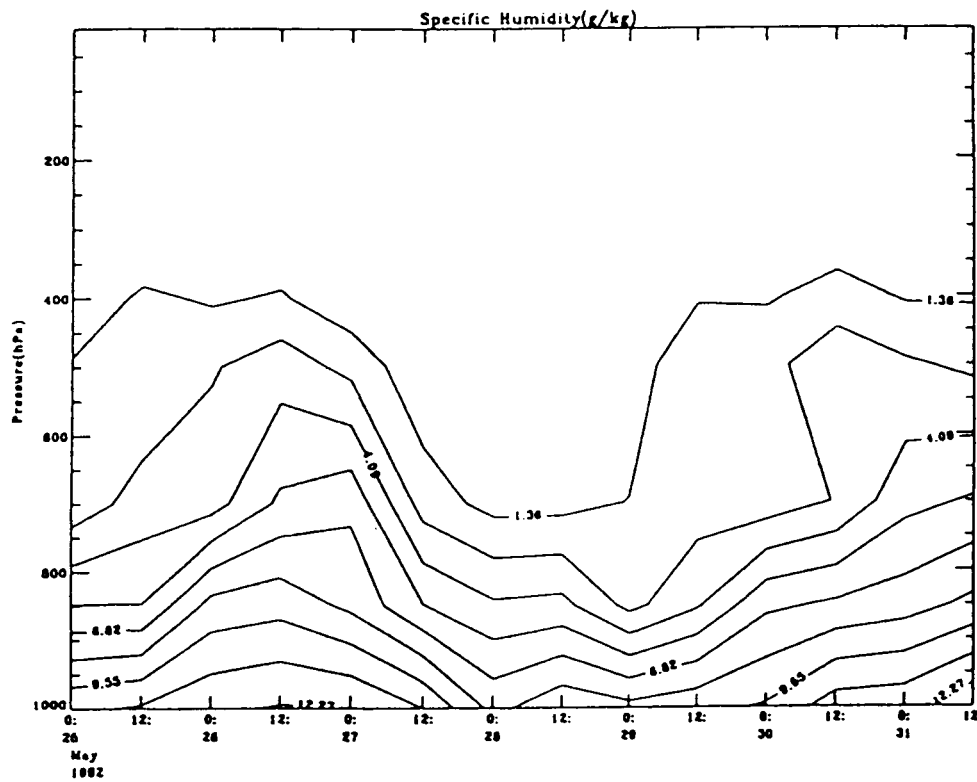
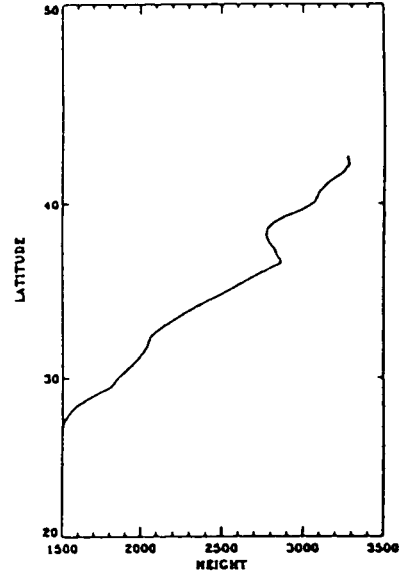
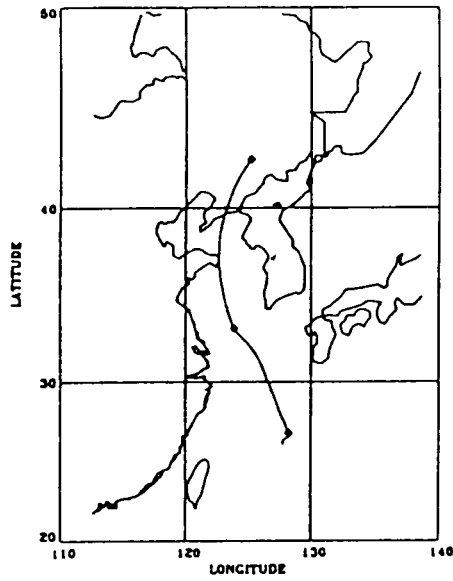


図3 '92年のオゾン濃度の最大濃度出現時の流跡線と比湿

一般に大陸性高気圧、移動性高気圧の影響を受ける1月から5月にかけては月平均値も38.9ppbv～44.1ppbvと高く、太平洋高気圧の影響を受け始める6月からは月平均値も23.6ppbvに減少した。太平洋高気圧の最も強い影響を受ける7月、8月は月平均値は13.0ppbv及び14.8ppbvと年間で最も低い値を示し、特に台風や低気圧の影響の少ない7月が最も低く、8月は台風等の低気圧の影響と思われる濃度上昇がみられた。9月からは台風等の低気圧の影響と共に、中旬から下旬にかけては大陸からの移動性高気圧の影響を受け、月平均値も30.7ppbvに上昇し、10月、11月は主として移動性高気圧の影響で月平均値も39.6ppbv、39.9ppbvの濃度を示した。12月からは大陸性高気圧の影響を受け始め月平均値も38.0ppbvと僅かながら低下した。'92、'93年及び'95年は梅雨入りした5月に年間最大濃度のオゾンが観測されたのに対し、'94年は9月に年間最大濃度のオゾンが観測された。

また、海洋性気団に覆われる5月から8月にかけて大気安定した夜間に時として1ppbv以下の低濃度オゾンが観測された。特に、8月には低濃度オゾンが長時間にわたって観測される現象がみられた。

'92年5月28日の19時の最大濃度(91ppbv)出現時の前後数日間の経時変化を図2に示す。同様な現象として'93年は5月30日の22時に90ppbv、'94年は9月19日の13時に93ppbv及び'95年は5月16日の22時に84ppbvが観測された。また、出現日の数日前から60ppbv台の高い濃度の推移がみられ、現象が現れて終了するまでの時間は約48時間以内であった。このような特徴的な現象に対し、出現時刻を基準に48時間前までの高度1500m及び500mにおける流跡線解析を行った¹⁾。'92年及び'95年は500hPa付近の高高度からの乾燥した気塊の降下と流跡線も高度3000m以上からの移入が認められ、成層圏からの寄与が推察された。'93年は高度1500mの流跡線が韓国からの移入を示し、500mの流跡線は高度約2200m以上からの移入がみられた。そのため流跡線では不明確であったが、湿度分布曲線は高高度の500hPa付近からの乾燥気塊の降下がみられた事から、人為的な光化学反応オゾンと成層圏寄与のオゾンとの複合型の現象と推察された。'94年の流跡線は高度約2200m程度からの移入を示し、移入高度としては不十分であったが湿度分布曲線は高高度の500hPa付近からの乾燥気塊の降下がみられた事から成層圏からの寄与とみなされた。しかし、何れの流跡線も北緯40度以北からの移入を示した。'92年の解析例を図3に示す。

年平均値推移を図4に示す。'92年(年平均値:31.8ppbv)から'93年(年平均値:32.1ppbv)

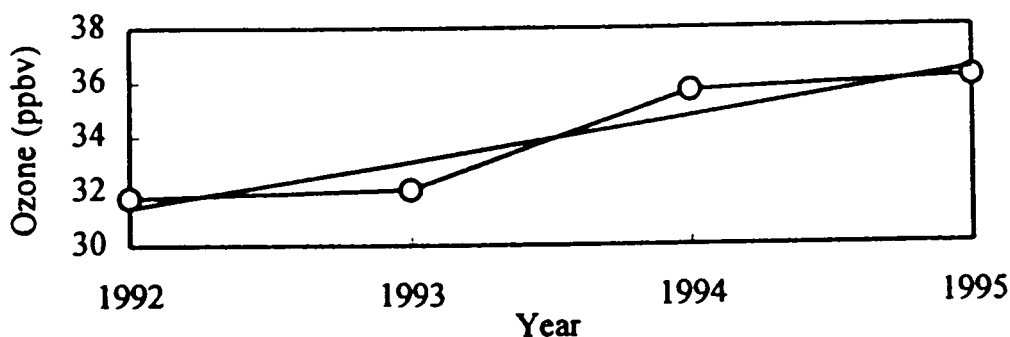


図4 オゾンの年平均濃度の推移

にかけては0.3ppbvの緩やかな増加であったが、'93年から'94年(年平均値:35.7ppbv)にかけては3.6ppbvと急激な増加がみられ、その要因として異常気象との関連が推察された。特に、夏季

及び秋季の増加が顕著であった。'94年から'95年（年平均値：36.1ppbv）にかけては0.4ppbvの緩やかな増加を示した。このような年毎の増加は秋季から春季の季節にみられ、人為的な光化学オゾンによる増加が推察された。（沖縄県衛生環境研究所担当）

（2）鉛同位体比を用いた大気汚染の長距離輸送に関する研究

大気中の鉛はその国や地域によって発生源が異なる。例えば、石炭使用の多い中国の都市では石炭の燃焼にともなって排出される鉛が強く鉛同位体比にも寄与している。中国の貴州省貴陽市でのエアロゾルの捕集と鉛同位体比分析を行ったが、石炭特有の非常に新しい年代の鉛同位体比が測定された。これに対し、タイなどでは有鉛ガソリン中の鉛が強く大気中鉛に寄与しており、古い鉛鉱床の値になっている。

アジア各地での都市の鉛の同位体比の分布を見ると、貴陽のように石炭が多くその発生源となっている地域では石炭特有の非常に新しい年代の鉛同位体比が測定された。これに対し、バンコク（タイ）やKandy（スリランカ）などでは英国製有鉛ガソリン中の鉛が強く大気中鉛に寄与しており古い鉛鉱床の値になっている。北京は石炭と工業起源の中間の値を示している。ソウルは変動が大きいことから工業起源の中でもかなり局地的な発生源が存在していると見られる。また日本は有鉛ガソリンの使用がない以上、主な発生源は燃焼施設と考えられるが、どこの都市でも似た値をしていることから、局地的な大発生源は考えにくいと評価される。このように、鉛同位体比はその都市特有の値を示した。

隠岐島において、各季節にエアロゾルを捕集しその時の鉛同位体比と気団の流れの分析を同時に行い、気団毎に鉛同位体比がどのように異なるかを調査検討した。エアロゾルはメンブレンフィルターに1日間捕集されたものを用いた。鉛同位体比の測定は誘導結合プラズマ質量分析装置を用いて測定した。鉛同位体比と流跡線解析の結果を同時に図5に示した。これから流跡線毎に、その鉛同位体比が異なっていることがわかる。特に朝鮮半島を横切り中国の中部から気団が来る場合は、 $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ の値が高く相対的に古い鉛であることがわかる。一方日本から気団が来る場合は $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ の値が低く、日本の都市の鉛同位体比になっていることがわかった。また、ロシア方面からくる場合はその値はこれらの中間的な値となっており

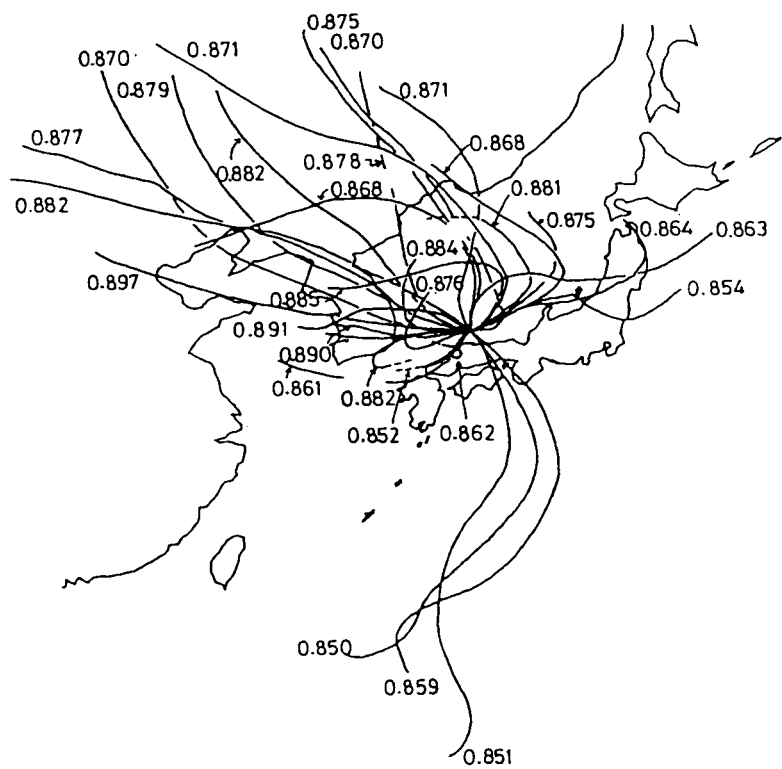


図5 隠岐島に於ける流跡線毎の鉛同位体比 ($^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$)

このように地域毎に鉛同位体比が異なる事からこれらの値は長距離輸送の良い指標になることが明らかになった。

(3) 硫黄同位体比測定

①鹿児島県における火山ガス、大気降下物等の硫黄同位体比

桜島からのSO₂の放出量は非常に大きいため、南系の風が卓越する暖候季には、火山噴出物が広域に影響を及ぼす可能性がある。降水中の硫酸イオンや高濃度SO₂の発生源寄与の推定を行うために、SO₂放出量の大きい桜島および薩摩硫黄島から発生する火山ガスの硫黄同位体比の測定を行った。

桜島では有村において、ガスの採取を行った。ガス採取は炭酸カリウム含浸ろ紙に一日毎に大気を採取し、または過酸化水素水をいれたインピンジャーに約10 l/minで大気を採取し、火山ガスを硫酸イオンとして捕集した。薩摩硫黄島硫黄岳（標高704m）山頂において、噴気孔からの噴気をインピンジャー中に導入し、火山ガスを吸収させた。各試料中の硫酸イオンを塩化バリウムにより硫酸バリウムとし、同位体比測定試料とした。

桜島から放出される火山ガスの $\delta^{34}\text{S}$ 値は+3.2%~+8.4%の範囲にあり、樽前山、有珠火山などの測定値と同様の $\delta^{34}\text{S}$ 値を示した（表1）。1992年に採取された5試料の重み付け平均値は

表1 桜島から放出される火山ガスの $\delta^{34}\text{S}$ 値

試料名	試料採取期間	SO ₂ 濃度 (ppb)*		$\delta^{34}\text{S}$ (%)
		最大	平均	
桜島火山ガス	1992. 2. 6~ 2. 7	590	155	+5.2
	2. 7~ 2. 8	1060	108	+8.4
	2. 8~ 2. 9	229	65	+7.4
	2. 9~ 2.10	253	60	+5.6
	2.12~ 2.13	561	100	+4.7
	1993. 2.11~ 2.12	380	56	+3.2
1995. 2. 1~ 2. 9	1030	46	+4.4	

* 一般環境大気測定局の測定結果

+5.8%であり、1993年及び1995年に採取された火山ガスの+3.2%、+4.4%より、やや高い値であった。桜島の爆発回数、火山性の地震回数は1992年2月に多く、火山活動が活発であったと考えられる。桜島においても、小坂ら²⁾の木曾御岳火山についての報告と同様、火山活動状況による $\delta^{34}\text{S}$ 値の変動が考えられる。薩摩硫黄島の火山ガスの $\delta^{34}\text{S}$ 値は+10.6~+13.5%であった（表2）。松葉谷ら³⁾の1974年の調査結果+8.5%~+14.0%と同様の結果であり、依然として他の火山

表2 薩摩硫黄島の火山ガスの $\delta^{34}\text{S}$ 値

試料名	試料採取期間	$\delta^{34}\text{S}$ (%)
薩摩硫黄島火山ガス (硫黄岳)	1995. 8. 19	+10.1
	1995. 8. 19	+13.5
	1995. 8. 19	+10.6
	1995. 8. 19	+12.6
薩摩硫黄島 硫黄	1995. 8. 19	- 1.0

の火山ガスよりも ^{34}S に富んだ火山ガスを放出していた。

大泉らが17種類の中国炭で行った燃焼実験の結果では、発生ガスの $\delta^{34}\text{S}$ 値は試料により広い範囲に分布し、 $\delta^{34}\text{S}$ 値の平均は+6.0%であった⁴⁾。特に桜島火山ガスと石炭燃焼ガスの平均 $\delta^{34}\text{S}$ 値は近く、この二つの発生源寄与の $\delta^{34}\text{S}$ 値による区別は困難と考えられ、気象解析等複数の手法による解析が必要であると考えられる。(鹿児島県環境センター担当)

②中国・ロシア産石炭及び石油中の硫黄同位体比と新潟県における大気降下物

新潟県内で人為発生源の少ない地域の大気降下物を採取するとともに、中国、ロシア炭等を入手し、それらの硫黄同位体比を測定することにより、新潟県内の大気降下物の酸性化に対する大陸からの汚染物質の影響について検討した。

産地の特定できる中国炭、ロシア炭及び石油を入手し、5gから0.5gを900°Cの管状炉内で燃焼させ、発生する燃焼排ガス中の硫酸酸化物を3%過酸化水素水で硫酸イオンとして捕集した。県南西部に位置する妙高山(標高2446m)中腹の笹ヶ峰(標高約1300m)及び杉ノ原(標高約1500m)において、ろ過式サンプラー又は円筒型採雪装置を用いて約15日ごとに大気降下物を採取した。試料中の硫酸イオンを硫酸バリウムとして分離した後、 SO_2 ガスに変換し、硫黄同位体比を測定した。

石炭の硫黄同位体比測定結果を表3に示す。石炭中燃焼性硫黄の

表3 石炭の硫黄同位体比

$\delta^{34}\text{S}$ 値はロシア炭1種を除いて正の値を示し、標準物質に比べて重い硫黄(^{34}S)を多く含んでいるといえる。ロシア炭の燃焼性硫黄の $\delta^{34}\text{S}$ 値は-2.5~+0.4%の範囲にあり、平均値±標準偏差は $4.5 \pm 4.0\%$ を示した。中国炭の燃焼性硫黄の $\delta^{34}\text{S}$ 値は+0.5~

試料 No.	国名	産地	燃焼性硫黄 $\delta^{34}\text{S}$ (%)	S分 (%)	全硫黄 $\delta^{34}\text{S}$ (%)	S分 (%)
1	ロシア	KUZNETSKY	2.6	0.2	2.7	0.2
2	ロシア	NERYUNGRINSKY	4.1	0.1	6.3	0.1
3	ロシア	DENISOVSKOJE	9.4	0.2	7.9	0.3
4	ロシア	KUZNETSKY	-2.5	0.4	-2.1	0.4
5	ロシア	TUGNUY D	8.8	0.1	7.7	0.2
6	中国	LINFEN (臨汾)	0.5	0.5	1.3	0.5
7	中国	DATONG (大同)	3.2	0.7	2.8	0.7
8	中国	HEBI (鶴壁)	5.4	0.2	4.5	0.3
9	中国	FUSHUN (撫順)	7.6	0.5	8.0	0.4
10	中国	YANZHOU (兗州)	10.5	0.3	11.9	0.3
11	中国	DATONG (大同)	8.6	0.7	9.7	1.3
12	中国	SHENMU (神木)	3.3	0.2	3.3	0.3
13	中国	HEGAN (鶴崗)	12.6	0.1	9.6	0.2
14	中国	LINFEN (臨汾)	0.2	0.3	0.1	0.4
25	中国	DATONG (大同)	2.7	0.4	2.1	0.4
26	中国	PINGSHUO(平朔)	27.1	0.6	27.5	0.8
27	中国	PINGSHUO(平朔)	28.6	0.8	29.0	0.9
28	中国	XINING (西寧)	3.8	0.04	-	-
29	インドネシア	サツイ	13.9	0.5	-	-
30	オーストラリア	ガネタ	2.3	0.6	-	-

+28.6%の範囲にあり、平均値±標準偏差は $8.8 \pm 9.25\%$ を示した。Hong, Y.らは中国における石炭中硫黄(全硫黄)の同位体比を測定し、中国炭の硫黄同位体比は揚子江を境に北はほとんどが正の値($\delta^{34}\text{S}$ 値:-3.0~+11.2%)を、南は負の値($\delta^{34}\text{S}$ 値:-14.0~-0.7%)を示すことを報告⁵⁾している。今回測定した中国炭は山西省周辺及び東北部を産地としており、これらの値と概ね一致する。中国炭、ロシア炭は、ともにその燃焼ガス中に、ほとんどが石油を燃料としている

新潟県内の工場排ガス中硫黄 ($\delta^{34}\text{S}$ 値: $-2.7 \pm 4.1\%$ 、 $n=17$)⁶⁾ に比べ、明らかに重い硫黄 (^{34}S) を多く含んでいるといえる。

石油の硫黄同位体比測定結果をによると、石油中燃焼性硫黄の $\delta^{34}\text{S}$ 値は、中東及びインドネシア産原油混合物が負の値であるのに対し、中国産石油 ($\delta^{34}\text{S}$ 値: $+10.8 \pm 4.4\%$) 及び新潟県産の原油では正の値を示した。

調査期間の大気降下物の $\delta^{34}\text{S}$ 値は、降雨では95年7月前半の1回を除き、ほぼ+2から+5%の範囲に収まるのに対し、降雪では+4から+12.5%と上昇し、顕著な相違を示した(表4)。硫黄同位体比 ($\delta^{34}\text{S}$) 及び非海塩性硫黄同位体比 ($\delta^{34}\text{S}_{\text{nss}}$) は、ともに降雪が降雨に比べ5倍以上の値を示し、これは降雨と降雪間の SO_4^{2-} の起源の違いを示唆するものと考えられる。県内の降水中の SO_4^{2-} には、県内工場の排ガスに含まれる硫黄に比べ、重い硫黄 (^{34}S) がより多く含まれている⁶⁾ ことから、降水等の硫黄同位体比と中国炭、ロシア炭の値とを比較することにより、日本海側地域における酸性雨の主要原因物質である降雪中の SO_4^{2-} に対する大陸、特に中国の人為活動の影響についての知見が得られた。(新潟県衛生公害研究所担当)

表4 大気降下物の $\delta^{34}\text{S}$ 値

	$\delta^{34}\text{S}$ %	$\delta^{34}\text{S}_{\text{nss}}$ %
降雨	1.3	1.0
降雪	7.7	5.4
雪/雨	5.9	5.4

③エアロゾル中の非海塩硫酸イオンの硫黄同位体比

海水中 SO_4^{2-} の $\delta^{34}\text{S}$ 値として+20.3%が報告されているので、その値から nss-SO_4^{2-} の硫黄同位体比を得た。

エアロゾル nss-SO_4^{2-} の $\delta^{34}\text{S}_{\text{nss}}$ 値とそれを採取した日の21:00LTに隠岐島の採取地点に到達した流跡線を図6に示す¹⁾。冬季には中国東北部からのもの(セクター1)が大部分で、輸送距離

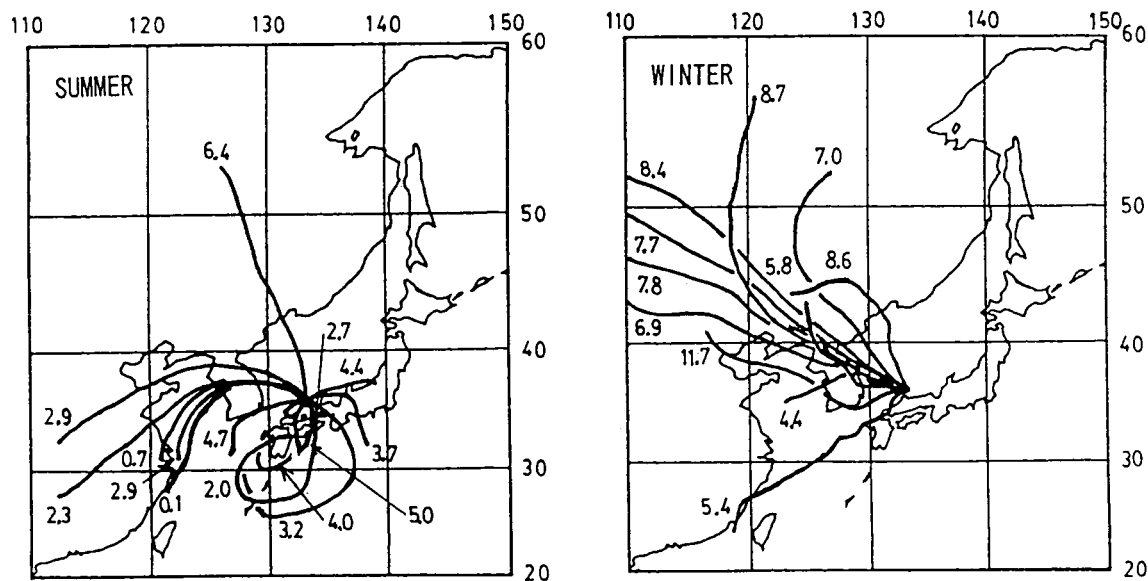


図6 採取地点に到達した流跡線とエアロゾル中の nss-SO_4^{2-} の硫黄同位体比が長くなっているが、夏季には中国南東部から朝鮮半島を経由するもの(セクター2)と南海上

から日本列島を通過するもの（セクター3）とがあり、夏季の輸送距離は冬季のそれより短くなっている。このように、隠岐島に到達する気団の輸送の状況は季節によって明らかに異なる。

$\delta^{34}\text{S}_{\text{nss}}$ 値を季節別、セクター別に図7に示した。セクター別には $\delta^{34}\text{S}_{\text{nss}}$ 値はセクター1

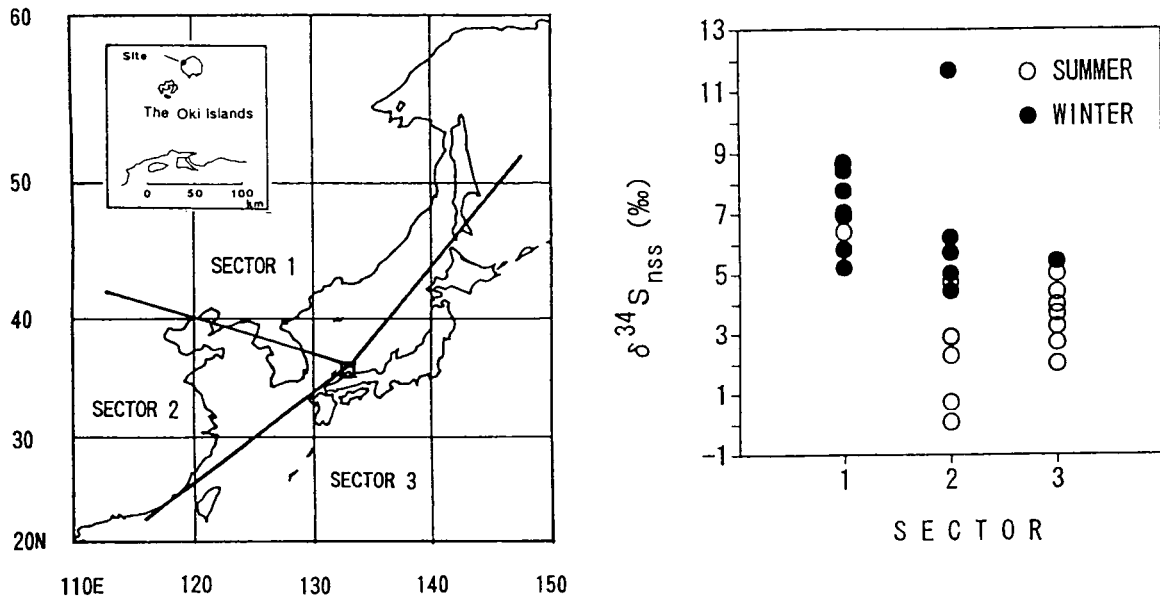


図7 季節別、セクター別に示した $\delta^{34}\text{S}_{\text{nss}}$ 値

が $+7.5 \pm 0.06\%$ ($n=9$)、セクター2が $+3.7 \pm 3.4\%$ ($n=8$)、セクター3が $+3.8 \pm 1.1\%$ ($n=8$)であった。セクター1の値は最も大きく、その変動は小さい。セクター2は冬季に流跡線が北京・天津方向から到達している試料が異常に大きな値を示したが、それでも $\delta^{34}\text{S}_{\text{nss}}$ 値は最も小さく、バラツキは異常値を除いても最も大きい。セクター3は平均ではセクター2に近い値を示すが、バラツキはそれより小さい。以上のことから、それぞれのセクターにおける硫黄化合物の主要な発生源としては、セクター1には重い硫黄化合物を放出する同じような発生源、セクター2では重い硫黄化合物や軽い硫黄化合物を放出する種々の発生源、セクター3はセクター2ほどではないが多様なもの、が考えられる。

また、季節別には $\delta^{34}\text{S}_{\text{nss}}$ 値は夏季 $+3.2 \pm 1.7\%$ ($n=14$)、冬季 $+7.5 \pm 2.0\%$ ($n=11$)であり、冬季が夏季より約2倍大きな値を示す。この季節変動の理由としては、冬季には重い硫黄化合物を放出する発生源の寄与が、また夏季には軽い硫黄化合物を放出する発生源の寄与がそれぞれ大きくなることのほか、この傾向は各セクターに共通していることを考えると、大気中 SO_2 の SO_4^{2-} への酸化過程で同位体効果が季節により異なることがあげられる。この同位体効果についてSaltzmanら⁷⁾は、この酸化反応は暖候期には気相酸化が、寒候期には液相酸化がそれぞれ優勢となり、前者では生成物 SO_4^{2-} の $\delta^{34}\text{S}$ 値は前駆物質 SO_2 のそれより小さくなるが、後者では逆に大きくなることを示している。(島根県衛生公害研究所担当)

(4) 酸性物質沈着量マップ作成

粒子状 nss-SO_4^{2-} 濃度及び SO_2 濃度の経月変化によると、粒子状 nss-SO_4^{2-} 及び SO_2 の平均濃度はそれぞれ 130 、 $408\text{neq}/\text{m}^3$ で、 SO_2 濃度は nss-SO_4^{2-} 濃度より約3倍高い値であった。 nss-SO_4^{2-} 濃度

は春期にやや高くなるが季節変化は少なく、約130neq/m³で推移した。これに対し、SO₂濃度は冬期から春期にかけて500neq/m³を越える高い値であった。全(nss-SO₄²⁻+SO₂)濃度(以下T-S)及びnss-SO₄²⁻/(nss-SO₄²⁻+SO₂)当量濃度比(粒子率)の経月変化を図8に示す。T-S濃度は、約530neq/m³で、nss-SO₄²⁻濃度の季節変化が少ないのに対し、SO₂濃度は冬期から春期にかけて高い

ため、SO₂濃度と同様の季節変化を示した。粒子率は冬期20%以下に対し、夏期30~40%と高い傾向にあるが、平均粒子率は24%の低い値であった。気温と粒子率との関係は相関係数r=0.88で、気温が高い程粒子率は高くなっており、NO₃⁻及びNH₄⁺との挙動の違いが見られた。

年間の大気汚染物

質(SO₂、SO₄²⁻、HNO₃、NO₃⁻)の濃度測定により、各月の平均濃度を求め、乾性沈着速度を乗づることにより、乾性降下物量を見積もった。SO₂、SO₄²⁻、HNO₃、NO₃⁻の各月の乾性沈着速度は、文献値を使用した⁸⁾。例えば8月はそれぞれ0.24、0.48、2.6、0.88cm/sであった。

図9に示したようにS化合物は冬季から春季に乾性沈着量が大き

く、硝酸系化合物は春季から夏季に乾性沈着量が大きかった。乾性沈着量は4季節の変動よりも物質による差異のほうが大きく、全体的にガスが粒子状物質よりも大きく、SではSO₂がSO₄²⁻のほぼ2倍で、HNO₃がNO₃⁻よりも2倍以上大きかった。

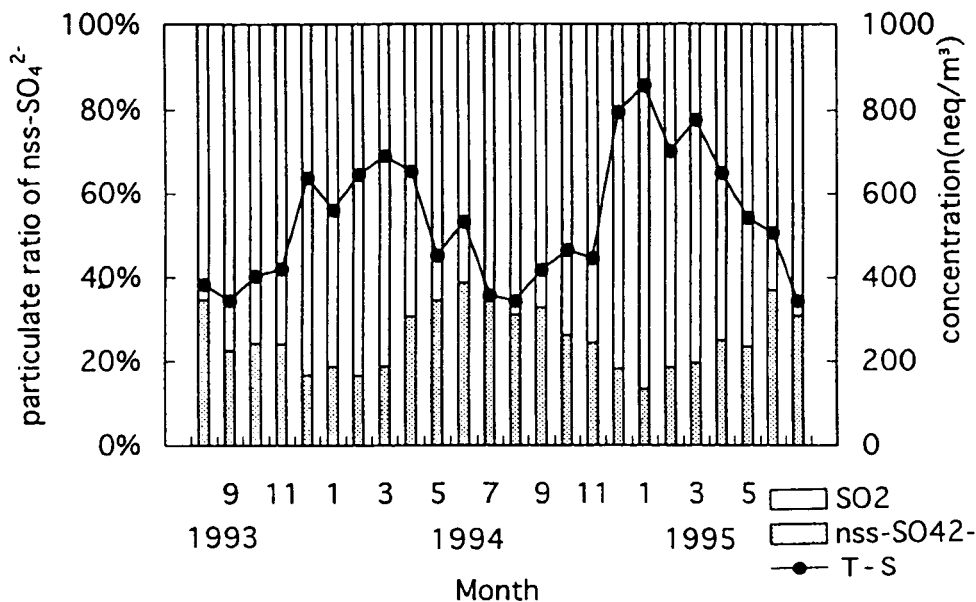


図8 全S濃度及びS粒子率の経月変化

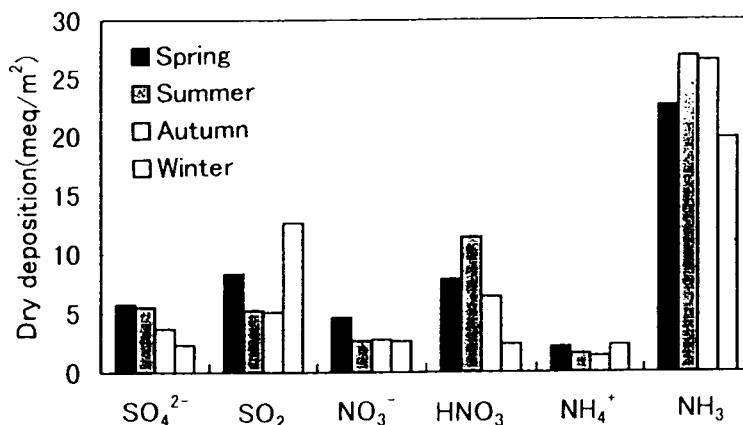


図9 年間の大気汚染物質の乾性沈着量

4. 参考文献

- 1) Hayashida-Amano, S., Sasano, Y. and Iikura, Y., Volcanic disturbance in the stratospheric aerosol layer over Tsukuba, Japan, measured by the National Institute for Environmental Studies of Lidar from 1982 through 1986, J. Geophys. Res., 96, 15, 469-15, 478 (1991)

- 2) 小坂文予, 小沢竹二郎, 酒井均, 平林順一, 木曾御岳火山1979年噴火後の活動状況と地球化学的研究, 火山第2集, 28, 59-74 (1983)
- 3) 松葉谷治, 上田晃, 日下部実, 松久章敬, 酒井均, 佐々木昭, 薩摩硫黄島および九州の二, 三の火山ならびに温泉についての同位体化学的調査報告, 地質調査所月報, 26, 375~392 (1975)
- 4) 大泉 毅, 福崎紀夫, 日下部実: 硫黄同位体比を利用した大気降下物中硫黄の供給源寄与率の推定, 日本化学会誌, 1994, 822-827 (1994)
- 5) Hong Y., Zhu Y., Zhang H., Piao H., Jiang H., Zeng Y., Liu G., Developments in Geochemistry, Institute of Geochemistry Chinese Academy of Science, Seismological Press, 241-250
- 6) 大泉 毅, 福崎紀夫, 森山 登, 漆山佳雄, 日下部実, 硫黄同位体比から見た大気降下物中硫黄の供給源-新潟県の場合-, 日本化学会誌, 1991, 675-681 (1991)
- 7) Saltzman, E. S., Brass, G. W. and Price, D. A., The mechanism of sulfate aerosol formation, chemical and sulfur isotopic evidence, Geophys. Res. Lett., 10, 513-516 (1983)
- 8) Voldner, E. C., Sirois, A., Monthly mean spatial variations of dry deposition velocities of oxides of sulphur and nitrogen, Water, Air and Soil Pollution, 30, 179-186 (1986)

国際共同研究等の状況

「東アジアにおける酸性雨モニタリングとSO₂、NO_xのエミッション・インベントリー手法の統一に関する国際ワークショップ」を1996年2月13~2月15日に国立環境研究所で開催し、韓国、台湾よりの研究者の参加があった。

研究発表の状況

論文 (○は査読誌)

- 1) K. Oikawa, K. Murano, Y. Enomoto, K. Wada, T. Inomata, "Automatic Monitoring System for Acid Rain and Snow Based on Ion Chromatography." J. Chromatography A, 671, 211-215 (1994).
- 2) H. Mukai, A. Tanaka, T. Fujii, "Lead Isotope Ratios of Airborne Particulate Matter as Tracers of Long-range Transport of Air Pollutants Around Japan. J. Geophys. Res. 99, 3717-1326 (1994).
- 3) 下原孝章、大石興弘、村野健太郎、森林地域に沈着する二次生成粒子の化学形態評価、大気環境学会誌、30, 169-179 (1995).
- 4) 村野健太郎、及川紀久雄、榎本保典、佐藤和栄、猪俣保、イオンクロマトグラフを組み合わせた酸性雨自動IC分析装置の開発、大気環境学会誌、30, 268-275 (1995).
- 5) 安念清、大西勝典、藤谷亮一、早狩進、福崎紀夫、佐々木一敏、清水源治、小山功久米一成、土器屋由紀子、丸田恵美子、島山史郎、村野健太郎、山岳地帯における酸性降下物中のイオン種濃度と降水量、日本化学会誌、1995, (11), 916-921 (1995)
- 6) H. Akimoto, H. Mukai, M. Nishikawa, K. Murano, S. Hatakeyama, Chung-Ming Liu,

M. Buhr, K. J. Hsu, D. A. Jaffe, L. Zhang, R. Honrath, J. T. Merrill,
R. E. Newman, Long-range Transport of Ozone in the East Asian Pacific Rim Region
J. Geophys. Res., 101, 1999-2010 (1996)

- 7) 宇都宮彬、宝来俊一、山下敬則、穴井功一、森崎澄江、今村修、川井田哲郎、金城義勝
大和康博、大石興弘、畠山史郎、村野健太郎、九州・沖縄地域の粒子状硫酸塩の特性
大気環境学会誌、31, 132-140 (1996)
- 8) 鹿角孝男、薩摩林光、佐々木一敏、鹿野正明、太田宗康、畠山史郎、村野健太郎、
八方尾根および長野市における浮遊粒子状物質と酸性降下物の特性、大気環境学会誌、31,
印刷中 (1996)
- 9) Evaluation of Factors Affecting Intense Corrosion at Around the Mountain Top
T. Shimohara, K. Murano, Atmos. Environ., 投稿中

学会発表

- 1) 笠作欣一、實成隆志、木山祐三郎、掛須雅子、向井人史、畠山史郎、村野健太郎、IGAC
調査(8) - 屋久島におけるSO₂, NO_x, オゾン測定 -、第36回大気環境学会(東京)
(1995年11月)
- 2) 向井人史、村野健太郎、掛須雅子、笠作欣一、實成隆志、IGAC調査(10) - 屋久島にお
ける冬期の大气中ガス・エアロゾル成分の変化 -、第36回大気環境学会(東京)(1995年
11月)
- 3) 鹿角孝男、塩澤憲一、太田宗康、薩摩林光、内田英夫、村野健太郎、畠山史郎、IGAC調査
(12) - 八方尾根における大气中ガス、エアロゾル成分の挙動 -、第36回大気環境学会
(東京)(1995年11月)
- 4) 金城義勝、比嘉尚成、村野健太郎、畠山史郎、秋元肇、IGAC調査(13) - 沖縄・辺戸岬
における地上観測オゾンについて -、第36回大気環境学会(東京)(1995年11月)
- 5) 中尾允、向井人史、村野健太郎、和久利浩幸、田中文雄、山口幸祐、多田納力、原宏、IGA
C調査(14) - 隠岐島で捕集されたエアロゾルの硫黄同位体比 -、第36回大気環境学会
(東京)(1995年11月)
- 6) 丸山隆雄、福崎紀夫、種岡裕、大泉毅、村野健太郎、IGAC調査(15) - 新潟県における
降下物及び中国・ロシア炭中硫黄の同位体比 -、第36回大気環境学会(東京)(1995年11月)
- 7) 實成隆志、笠作欣一、遠矢倫子、宝来俊一、木山祐三郎、村野健太郎、IGAC調査(16)
- 紫尾山におけるガス・エアロゾル成分の季節変化 -、第36回大気環境学会(東京)(
1995年11月)
- 8) 梶井克純、秋元肇、駒崎雄一、田中茂、John Merrill、隠岐におけるオゾンおよび他の微量気
体の地上観測 - PEACANPOT(B) -、第36回大気環境学会(東京)(1995年11月)
- 9) 金城義勝、比嘉尚成、村野健太郎、畠山史郎、沖縄・辺戸岬の降水特性について、第36回大
気環境学会(東京)(1995年11月)
- 10) 松本光弘、村野健太郎、奈良における乾性沈着(II)、第36回大気環境学会(東京)(
1995年11月)
- 11) 下原孝章、村野健太郎、代理表面(溶液面)を用いた乾性沈着評価(I) - 乾性沈着量の測定

- における成分の揮発及び科学的変質の影響一、第36回大気環境学会（東京）（1995年11月）
- 12) 下原孝章、大石興弘、村野健太郎、代理表面（溶液面）を用いた乾性沈着評価（II）－エアロゾルとがガスの分別捕集による乾性降下物の沈着速度，沈着量の推定－、第36回大気環境学会（東京）（1995年11月）
- 13) 大石興弘、下原孝章、宇都宮彬、村野健太郎、ガス・エアロゾル中の SO_4^{2-} 、 NO_3^- の粒子率及び乾性沈着量の推定、第36回大気環境学会（東京）（1995年11月）