

論文内容の要旨

論文題目 西部北太平洋域における汚染物質の循環
および長距離輸送に関する観測的研究

氏 名 林 和 彦

現在、人間活動によってイオウ化合物や窒素化合物に代表される汚染物質が、大気中に大量に放出されている。これらの汚染物質は気体からエアロゾル態に変化することで、雲核として機能する。そして、雲粒内で酸化されることで、降水の酸性化がおこる。そこで、放出される汚染物質が増加すると、降水は酸性化し、人畜・植生・建造物に直接被害をもたらす。このとき、汚染物質は地表に沈着するまでに、発生源から遠距離を輸送される場合があり、降水の酸性化は局所的な公害だけではなく、広域にわたる環境問題と認識されている。

本研究においては、人為的汚染源から遠く離れた領域において、降下物・降水中の汚染物質濃度を観測した。そして、汚染物質の時空間分布を把握し、汚染物質の輸送過程を明らかにした。

1987年から1990年にかけて、気象庁所属の海洋気象観測船上において降下物を採取した。試料の採取には円筒形のプラスチック容器を用い、2—3日程度ごとに採取容器を交換した。洋上での降下物試料からは、塩化物、硫酸塩、硝酸塩、ナトリウム、マグネシウム、カルシウムなどが高濃度で検出された。このうち、硝酸塩以外の成分は、海水中に大量に存在しているために、正確な汚染物質濃度の見積もりのためには、海塩起源成分を除去する必要がある。幸いにも、海水中の主要塩類の相対

比は一定であるので、そのすべてが海塩起源と考えられるナトリウム、塩化物、およびマグネシウムの濃度から、硫酸塩およびカルシウムの海塩起源成分を推測した。観測値からこのように推算した海塩起源成分を差し引くことで、非海塩起源成分の硫酸塩およびカルシウム降下量を決定した。この非海塩起源成分が、硫酸塩については人間活動によって放出された SO_2 が酸化されたもので、人為起源汚染物質であると考えられる。カルシウムについても、土壌起源と考えられ、大陸からの物質輸送を示すトレーサーとなる。

西部北太平洋上の降下物中の汚染物質濃度は、冬季に高緯度ほど高濃度であった。人為起源汚染物質として代表的な非海塩硫酸塩は、日本近海では冬季・夏季ともに $10\text{mg m}^{-2} \text{d}^{-1}$ 以上の高濃度を示した。とくに高濃度を示したのは、日本や大陸から気塊の移流が認められたときであった。逆に南海上からの気塊の移流があったときは、日本近海でも非海塩硫酸塩は比較的低濃度であった。このことから、洋上で観測された高濃度の非海塩硫酸塩の起源は、日本や大陸からの人為的発生源由来であると考えられる。硫酸塩と並んで、人為的汚染物質として代表的な酸性物質である硝酸塩の降下量も、硫酸塩と同様に日本近海で高濃度で $10\text{mg m}^{-2} \text{d}^{-1}$ を超えることもあった。また、北風が卓越するとき高濃度、南からの風の場合は低濃度の傾向があり、やはり硫酸塩と同様に日本や大陸からの人為的発生源からの移流が硝酸塩降下量を決定していると考えられる。非海塩カルシウムの降下量は、日本近海で硫酸塩・硝酸塩と同様高濃度を示したが、冬季で $10\text{mg m}^{-2} \text{d}^{-1}$ 程度に対して、夏季では $1\text{mg m}^{-2} \text{d}^{-1}$ 程度と、季節による濃度変化が硫酸塩・硝酸塩と比べて大きかった。これは起源として考えられる大陸の乾燥地帯からの土壌粒子の輸送量が、冬季に強まるためと考えられる。

一方、北緯 30° 以南での汚染物質の降下量は、日本近海よりも低濃度であった。非海塩硫酸塩降下量は、冬季にはほぼ緯度 10° 南下するごと、夏季には緯度 7° 南下するごとに半減した。これは冬季には北西季節風が強いために、南方への硫酸塩の輸送が効率的におこっているためと考えられる。また、夏季の硫酸塩緯度分布は、北緯 20° 以南で再び上昇に転じた。これは低緯度域に何らかの硫酸塩の発生源が存在することを示しており、海洋生物によって放出される DMS 起源の可能性もある。結局、非海塩硫酸塩の降下量は、夏季の北緯 20° 付近で極小値を示し、西部北太平洋域でのバックグラウンド値は $1\text{mg m}^{-2} \text{d}^{-1}$ 程度であることがわかった。夏季のこの緯度帯は、亜熱帯高気圧に広く覆われることから、清浄な気塊が沈降・発散すると考えられる。そこで、日本や大陸という大きな人為的発生源からの移流も、低緯度域にある小さな発生源からの移流も低く抑えられていると考えられる。

北緯 30°以南の硝酸塩降下量は $0.1 \sim 0.2 \text{ mg m}^{-2} \text{ d}^{-1}$ で、硫酸塩降下量と比較してかなり小さかった。これは、硝酸塩には硫酸塩とは異なり低緯度に発生源が存在しないためである。また、汚染気体から硝酸塩の生成速度は硫酸塩よりも 10 倍程度はやく、速やかにエアロゾル化し地表に沈着するために、硝酸塩の分布は発生源付近に局所的にとどまる傾向があるためと考えられる。

非海塩カルシウムも冬季には北緯 30°以南には輸送され、緯度 5°南下するごとに濃度は半減した。カルシウムは発生したときからエアロゾルである一次粒子のため、硫酸塩よりも長距離輸送をされにくいと考えられる。夏季の北緯 30°以南の非海塩カルシウムは、 $0.2 \text{ mg m}^{-2} \text{ d}^{-1}$ の極小値をとり、この値がバックグラウンド値であると考えられる。

以上のように、西部北太平洋上の汚染物質の降下量を調べたことで明らかになったことは、この領域の汚染物質のバックグラウンドは北緯 30°以南に（硫酸塩は北緯 20°付近に）存在することである。この領域には他領域からの汚染大気の移流が小さく、かつ大きな発生源が存在しないことが原因と考えられた。それゆえ、特に大きな汚染源をもつ日本や大陸からの季節風の強い冬季には、汚染物質が清浄な南方にまで輸送されることがあった。また、硝酸塩やカルシウムと比較すると、沈着速度の遅い硫酸塩はより長距離を輸送されることがわかった。

また、1990 年から 1997 年にかけて、富士山頂（標高 3776m）にある富士山測候所での降水を採取した。富士山は周囲に他の山塊のない孤峰であることから、山頂では境界層を通じた下層の影響を受けにくい。そこで、東アジア域での自由対流圏（中部対流圏）における汚染物質の分布をしり、汚染物質の長距離輸送を把握するためには、最適の場所である。降水は、洋上の降下物と同様、プラスチック製の円筒容器で原則として一雨ごとに採取した。降雪の場合は、積雪を掬い取って試料とした。

富士山頂での降水中の化学成分においては、硫酸塩、硝酸塩、およびカルシウムが卓越する場合が多かった。また、これらの 3 種イオン間の濃度変動には相関があった。これらのイオンが高濃度を示す場合は、上層の気塊は大陸・朝鮮半島および西日本を経て、西方から富士山に移流していた。これは、人間活動に由来する汚染物質である硫酸塩および硝酸塩と、土壌起源と考えられるカルシウムという起源の異なる物質であっても、同時に西方から長距離輸送されたことを示している。また、これらの降水中の汚染物質は、冬季よりも夏季に高濃度であった。硫酸塩・硝酸塩は下層の発生源の強さに季節変化は考えにくく、カルシウムについてはむしろ冬季のほうが発生源としては大きいはずである。そこで、汚染物質は対流がおりやすい夏季に下層から富士山頂の高度にまでもちあげられ、水平方向に長距離輸送される

と考えられる。冬季には大気の安定度が増し、下層（境界層内）の汚染物質が鉛直輸送されないために、自由対流圏での汚染物質は低濃度で推移する、すなわちバックグラウンド値をとると考えられる。富士山頂での冬季降水中化学成分の平均濃度は、硫酸塩、硝酸塩、カルシウムではそれぞれ 10, 3, $3\mu\text{eq l}^{-1}$ であった。これは全国平均と比べると 1/5 程度の低濃度であった。

一方、汚染物質の濃度が低濃度のときには、塩化物やナトリウムといった海塩起源成分が卓越していた。このとき、海洋性の暖かく湿った気塊が、南西から富士山頂に移流していた。

本研究においては、汚染物質のバックグラウンド値を得るまでに、汚染物質の循環像を明確にした。ただし、本研究によって得られたデータには、時空間スケールが粗いものが多い。とくに洋上の降水物については、時間で数日間、距離にして数千 km にわたる試料採取間隔をとっており、これより小さなスケールの輸送現象を捉えることができない。もしも、汚染物質の輸送が、時空間スケールが小さくかつ不規則な周期の移流によって支配されているとすれば、さらにきめ細かい観測網の整備をし、詳細な汚染物質の輸送像をつくる必要がある。

本研究によって、汚染物質のバックグラウンド値とそれを示す領域が明らかになった。バックグラウンド領域で汚染物質の監視を続ければ、地球規模での汚染の進行度を的確に把握することができる。この結果をもとにすれば、汚染物質拡散の機構をより理解することで、発生源および輸送過程における汚染物質の拡散を抑制するてがかりとなる。そして、地球環境の保全に大きく貢献することが期待できる。