1978年11月

Vol. 25, No. 11.

551. 510. 41; 551. 510. 7

大気化学における最近の諸問題*

杉 浦 吉 雄 杉 村 行 勇 編

は	しがき	杉浦吉雄	杉村行	ī勇
1.	降水の pH	猿橋勝子	金沢照	子
2.	大気・海洋間の二酸化炭素の交換	猿橋勝子	杉村行	ī勇
3.	一酸化炭素		川村	清
4.	窒素酸化物		川村	清
5.	大気,降水中における微量金属元素		鈴木	款
6.	有機物――アルデヒド類		伏見克	宦
7.	降水中の天然放射性核種――鉛-210とラド	ソ	杉村行	勇
8.	人工放射性物質		葛城幸	≧雄

はしがき

杉 浦 吉 雄** 杉 村 行 勇**

気象学は、おおむね空気(酸素と窒素の混合気体)と 水(水蒸気,氷晶,水滴を含む)の力学として、物理的 な立場からの解明が進められていた。しかし、大気中に は、窒素,酸素,水蒸気等のほかに多くの物質が、微量 ではあるが存在する.

大気や降水の中には、どんな物質がどのく らい 含ま れ、どんな分布をしているか.それらは、大気・海洋を 含めて、地球環境でどのような挙動をしているか、どん な役割を果たしているか等、大気化学的立場から研究を 進めることは、きわめて重要である。

大気化学の研究は,わが国では今からおよそ40年前に, 中央気象台において,三宅泰雄博士によって開始された. 以来,気象にかかわりの深い物質の研究が進められ た.その中でもとくに,オゾン,二酸化炭素,海塩物 質,放射性物質の研究のもつ,気象学的な重要性が明ら かにされてきた.核実験に伴って放出される人工放射性 物質の研究は,1954年以来,一貫して気象研究所地球化 学研究部において行なわれてきた.地球的規模に分布す る放射性物質の落下量の季節変動や,中緯度地帯への集 中落下などの注目すべき現象については,放射性物質の 成層圏から対流圏,対流圏から地表面への落下機構の解 明から,気象学的に明らかにすることができた.

大気化学の研究は、対象とする物質の濃度がきわめて 低い場合が多く、まずそれらの定量法の研究から始めな ければならない。大気あるいは降水中におけるその物質 の濃度・降下量の日変動、季節変動、経年変動、地域に よる変動、鉛直分布などを、発生源情報、気象要素等と ともに把握し、これらを科学的、総合的に解析する。た とえば、降水中濃度と、降水量の関係、大気中の濃度

1978年11月

^{*} Some, recent topics in the chemistry of atmosphere.

^{**} Y. Sugiura, I. Sugimura, 気象研究所地球化学 研究部.

と,降水中の濃度と降雨をもたらした雲に関する気象情 報,降水中濃度の経時変動と,気団の動き等の気象要素 の変動を考慮に入れて,科学的,総合的に解析を展開す る.

これらの研究は、主として海表面から発生する海塩成 分,地表面から発生する気体,鉱物質、土壌成分、火山 からの気体成分、宇宙線により生成される成分、産業排 出物,核実験からの放射性物質等を対象として進められ てきた.

とくに最近の傾向として,安定同位体や放射性核種に 着目して,降雨機構の解明や,雲粒が生成されてから, 地上に落下するまでの対流圏におけるその物質の挙動, 経過時間の推定への新しい試みもなされている。

ここでは、地球化学研究部で行なわれた研究を中心 に、以下のように8課題に分けて、カッコ内に示した各 執筆者にお願いして、大気化学の各分野の展望を試みる こととした。

pH (猿橋勝子・金沢照子), 二酸化炭素 (猿橋勝子), 一酸化炭素 (川村 清), 窒素酸化物 (川村 清), 微量 金属元素 (鈴木 款), アルデヒド類 (伏見克彦), 天然 放射性核種——鉛-210 とラドン (杉村行勇), 人工放射 性物質 (葛城幸雄).

1. 降水の pH

猿橋勝子*金沢照子*

1.1. はじめに

最近,都市における雨の酸性度が問題になっている. pH は,降水中に溶けている酸性物質と塩基性物質の含量の相対的なバランスを示すものである.したがって,降水中の化学成分を考慮に入れて pH を考えてゆくことが必要である.

1.2. pH の経年変化

われわれの観測による,1973年7月から最近までの東 京・高円寺(気象研究所)に降った降水のpH値の平均 値およびその範囲を第1.1表に示す。平均値は,一雨ご との降水量と降水中の水素イオンモル濃度の荷重平均か ら求めた年間の全降水量に対するpHの値である。この 5年間の364試料についてのpHの平均値は4.52であっ た。大気中の二酸化炭素の溶解により,大気汚染がなく ても降水はやや酸性でpH5.6~5.7付近の値をとると されているから,これより小さいpHを示すのは,あき らかに酸性物質が混入していることによる。

では、大気汚染があまりなかった頃の降水の pH はど うであったろうか。1937 年ごろの降水の pH の平均値 は、東京・丸ノ内で4.1 であったと報告されている(三 宅、1939).ここで注目すべきことは、東京の雨が40年 前に、すでに相当の酸性を示し、pH の平均値が最近よ りむしろ低いことである。三宅による東京・丸ノ内にお

第1.1表 東京・高円寺(気象研究所)における降 水の pH.

440	88	고 1 1년 북동		pH
刑	期間 武料		平 均	範囲
1973年	7月~12月	26	4.57	3.60~6.80
1974年	1月~12月	86	4.65	3.48~6.60
1975年	1月~12月	68	4.42	3.34~6.30
1976年	1月~12月	83	4.47	3.71~6.34
1977年	1月~12月	69	4.57	3.64~6.86
1978年	1月~ 7月	32	4.51	3.90~5.80
1973年 年 7月	7月~1978	364	4.52	

ける観測結果は、pH は夏に平均して4.2~5.0と高く、 冬には 3.9~4.3 と低くなる傾向があった. 当時の降水 は、夏は土壌から発生するアンモニアを多く溶解し、冬 は石炭などの燃焼のために発生する硫酸を多 く 含 む た めであった.これに対し、東京における最近の 降水の pH 値には、40年前のような季節変化はみられない.

三宅(1939)によると、1936~37年ごろ、降水の pH の 年平均値は、東京・丸ノ内では4.1、神戸では5.2、浜松 では5.6 であった。また、アンモニア態窒素含量は、東 京・丸ノ内で0.58、神戸で0.28、浜松で0.19(単位は mg/l) であった。都会の規模が大きくなるに従って pH は低く、一方、アンモニア含量は大きくなるという結果

◎天気/ 25. 11.

^{*} K. Saruhashi, T. Kanazawa, 気象研究所地球化 学研究部。

	pН	NH ⁺⁴ -N
東京・丸ノ内	4.1	0.58 mg/l
神戸	5.2	0.28
浜松	5.6	0.19

第1.2表 降水の pH とアンモニア態窒素含量の 年平均値(1937).

第13 素	車百における降水の 化学組成
衆 I. J 衣	朱泉におりる輝小り11子組成

	高円寺			丸ノ内
	1973~77	1964	1947~49	1935~38
pН	4.52			4.1
SO4 ²⁻	mg/ <i>l</i> 3.4	mg/l 5.9	mg/l 0.5∼4.2	mg/l 5.6
Cl-	1.5	1.8	0.5~7.1	1.8
NO_3^-	1.8	'	0.24	0.3
$\mathrm{NH_{4}^{+}}$	0.4		0.45	0.6
Na^+	0.3~1.4	0.74		1.4
K^+	0.1~0.5	0.23		0.2
Ca ²⁺	0.3~2.6	1.18		1.2
Mg^{2+}	0.1~0.4	0.31		0.2
Fe ³⁺	0.1~0.3			
Al ³⁺	0.1~0.2			
Si	0.5~1.4			

が得られている(第1.2表). アンモニアは, 天然では, 土壌, 腐敗植物等からバクテリアの作用で発生する. わ が国では, 梅雨期に増加し, 秋には減少する. また, 1948年の降水中の窒素化合物の含量をみると, アンモニ アが最大で, 次に硝酸, そして亜硝酸という順に小さく なってゆくことが報告されている(三宅, 杉浦, 1951).

1.3. pH と溶存物質

東京における降水中の溶存無機物質含量を年代別に第 1.3表に示す.1973~77年の最近の値(三宅,猿橋,金 沢,鈴木),1964年(三宅,角皆)および1947~49年(三 宅,杉浦,1950,1951,1954)の値は東京・高円寺におい て,また,1935~38年(三宅,1939)の値は東京・丸ノ 内において測定したものである.第1.3表に見られるよ うに,降水中に溶けている酸性物質は硫酸イオンがもっ とも多く,塩素イオン,硝酸イオンがこれに次ぐ.硝酸 イオンの最近の値は高円寺で1.8mg/l,1947~49年には 0.24mg/lであった.1935~38年には丸ノ内で0.3mg/l であり高円寺の1947~49年の値に近い.高円寺の最近の 値は1947~49年の6~7倍に増加していることは注目さ れる. 塩素イオンについては,年代によりあまり変化は ない. 硫酸イオンはあまり変わらず,むしろ現在の方が やや低い平均値を示している.

降水中に含まれている物質は、燃焼生成物(産業活動 や交通機関)のほかに、海塩起源、土壌物質起源など多 種多様である。降水中の酸性物質が増加すれば、大気中 に浮遊する土壌物質等の可溶性の塩類の一部が溶出する ことになる。酸によって溶解するアルカリ性物質として は、カルシウム、ナトリウム、ついでアンモニアが多 い。従って、大気中に放出される酸性物質が多くなれ ば、その増加に比例して pH の値が下がるという単純な 関係ではない。

降水中には,採水地点付近に由来する土壌物質のほか に,日本国内,また,遠く中国大陸から偏西風にのって 飛んでくる土壌物質もあり,それらの中には可溶性の炭 酸塩,硫酸塩,珪酸塩などが含まれていることは,よく 知られている.これらは,酸性物質がなければ,懸濁粒 子として降水中に存在する.したがって,これらが降水 のpHをほぼ一定の幅に保つような緩衝作用をしている と考えることができる.このような緩衝作用が働く結 果,酸性物質の増加と共に,当然,降水中のカルシウム, マグネシウム,鉄,アルミニウム等の含量が増加する結 果となる.

1937年ごろの東京・丸ノ内に比べ,最近では大気中に 放出される酸性物質は格段に増えていることはたしかで あるが,降水の測定値を見ればわかるように,酸性物質 が増加しても,それに比例して単純に pH の値が下がる ことはない.いわゆる酸性雨が降る条件としては,大気 中に存在する塩基性物質や,炭酸塩,硫酸塩などを含む 土壌物質が酸性物質に比べて相対的に少ない当量で存在 する場合であり,このような時は酸性物質が過剰となっ て降水の pH 値が下がることになる.

降水中に溶けている陰イオンと陽イオンの相対的濃度 と水素イオン濃度との関係の一例を第1.4表に示す.降 水中に含まれている酸性物質と塩基性物質との相対的関 係を考えてゆくには,溶存物質および pH を当量および 水素イオン濃度で表わす方が理解しやすい.第1.4表の 陰イオンについてみると,当量で示した各成分の溶存量 は pH 4.08の場合が, pH 4.81の場合にくらべ,多くな っている. pH の低い降水では,陰イオンも陽イオンも pH の高い降水より多くなっている. pH 4.08の場合, とくに硫酸イオンとアンモニウムイオンの多いのが注目 される. 陰イオンと陽イオンのバランスが保たれて,そ れぞれ pH が4.1および4.8となっていることが分かる.

1978年11月

第1.4表 東京における降水の化学組成*.

採水年月日	1976年3月29日	1975年10月8日
pH	pH 4.08	
[H+]	8.31×10 ⁻⁵ 当量/ <i>l</i>	1.54×10 ⁻⁵ 当量/l
	×10 ⁻⁵ 当量/l	×10 ⁻⁵ 当量/ <i>l</i>
SO_{4}^{2-}	8.75	2.92
Cl-	4.57	2.86
NO_3^-	5.16	1.61
NH_4^+	5.67	0.77
Na+	1.74	1.17
K+	0.46	0.28
Ca^{2+}	2.60	2.00
Mg^{2+}	3.58	1.58
Fe ³⁺	1.39	1.07
Al ³⁺	1.44	1.11
Si	0.036 mg-atom/l	0.021 mg-atom/l

* 溶存量を化学当量で示す

1.4. むすび

以上述べたように,降水の pH は,その中に含まれて いる物質の水素イオン濃度に対する緩衝作用によって決 まる. 溶存物質量が多くても少なくても,東京周辺で は pH は平均して 4から5の間におさまることが分かっ た.しかし,酸性物質の発生源近くでは,濃厚な酸性物 質が降水に伴って降ってくる可能性があるので,汚染物 質の発生源における放出量の制限は,今後も厳しくなけ ればならないことは言うまでもない.今後,降水の化学 成分および pH が環境に及ぼす影響はますます大きくな るであろう.降水の pH は降水中に含まれる各種化学成 分を同時に定量した上で,気象化学的考察を進める必要 があろう.

文 献

三宅泰雄, 1939: 雨水の化学, 気象集誌, 17, 20-38.

- Miyake, Y. and Y. Sugiura, 1950: The mechanism of dissolution of the atmospheric chloride into rain water. Pap. Met. Geophys., 1, 222-226.
-, and, 1951: A study of nitrogen compounds in the atmosphere, Geophys. Mag., 22, 1-4.

_____, and _____, 1954: The chemical studies of rain water accompanied by a typhoon, Geonhys. Mag., 26, 29-34.

2. 大気・海洋間の二酸化炭素の交換

猿橋勝子*杉村行勇*

2.1. はじめに

大気中には、ごくわずかの二酸化炭素(炭酸ガス, CO₂)が含まれ、それが陸上の生物体を作る材料物質に なっている。大気中の二酸化炭素は、植物の光同化作用 によって大気から取り除かれ、また、生物の呼吸や有機 物の酸化分解によって、大気中に放出されている。この ような大きい循環が、絶えず繰り返されているが、大気 中の二炭化炭素の分圧が一定に保たれているのは、地球 表面の約70%を占める海洋の緩衝作用によると考えられ てきた。

海洋には,大気中の二酸化炭素の約60倍の炭酸物質 が,重炭酸イオン,炭酸イオンおよび遊離炭酸として存 在している.これらの物質の存在比は,主として海水の pH によって決まる.表面海水の pH はどこでも,ほぼ 8.2 くらいであるので,表面海水中の二酸化炭素の分圧 はだいたい一定であり,大気中の二酸化炭素の分圧と平 衝になっているに違いないと考えられてきた.

近年になって、多量の石油・石炭が燃焼され、大量の 二酸化炭素が大気中に放出された. Callendar は1938年 に、石油・石炭の燃焼からくる二酸化炭素が、海洋には 十分吸収されず、大気中の二酸化炭素は増大し、そのた め地球上の気温が上昇しつつあるという説を出した. 二 酸化炭素は赤外線の吸収体であり、地面からの熱放射を 吸収し、いわゆる毛布効果によって、気温の上昇をもた らすと考えていた.

また, Svante Arrhenius は 1903 年に気温と二酸化炭 素の関係を指摘し,氷河時代の交代出現を大気中の二酸 化炭素と関係づけようとした.大気中の二酸化炭素の変 動は,火山活動の消長によるとした.

▶天気″25.11.

^{*} K. Saruhashi, I. Sugimura, 気象研究所地球化 学研究部



第2.1 図 ハワイ マウナ・ロア観測所および南極点基地における大気中の CO₂ の変化 (Keeling らの観測結果に基づき杉村作図).

1953~58年に地球観測年(IGY)が実施された.その 際,大気中と海水中の二酸化炭素の分圧の測定が計画さ れ,ハワイのマウナ・ロアでは,現在も観測が続けられ ている.その時点は第2.1図に示すように,大気中の二 酸化炭素はかなりの変動があるが,年々,着実に増えて いることが分かった.三宅・杉村・猿橋は,大気中の二 酸化炭素の増加の原因を明らかにするために,まず,太 平洋における大気・海洋間の二酸化炭素の交換について 調査研究を始めた.以下その研究結果について,その概 略を述べる.

2.2. 大気中の二酸化炭素

現在,大気中の二酸化炭素は容積比にして0.0320~ 0.0330%(320~330ppm)である.過去の大気中の二酸 化炭素の分圧について,三宅らは南極大陸氷に閉じ込め られた大気泡の分析から,かつては最大280ppm であっ たと推定している.また測定の精度はやや低いが,19世 紀末ごろの分析値の290ppm に比べても,大気中の二酸 化炭素は近年増加の傾向にあることは間違いない.

第2.1 図に示すように,ハワイのマウナ・ロア観測所 における連続観測結果から,大気中の二酸化炭素は年々 0.7~1.0ppm の割合で増加していることが分かった.

OECD(経済協力国際開発機構)の推算によると,第 2.2 図に示すように,石油石炭の消費によって生成され



1978年11月

た二酸化炭素の増加量は、1969年末までで、19世紀末の 大気中の二酸化炭素の23%と報告されている。19世紀末 の大気中の二酸化炭素を290ppm とすると、平均して30 ~40ppm の増加であり、10~12%しか増加していない、 言い換えると、放出された二酸化炭素の約2分の1が大 気から除去され、約2分の1だけが大気中にとどまって いることになる。

大気中の二酸化炭素の総量は2.3×10¹⁸gである.大 気中の二酸化炭素含量を支配する因子としては,光同化 作用,生物の呼吸,有機化合物の酸化分解,岩石・土壌 の侵蝕,石灰岩の沈積,火山活動および大気・海洋間の 交換が考えられる.なかでも,海洋が大気中の二酸化炭 素含量を調節する有力なレギュレーターと考えられてき た.

光同化作用によって大気から除去される二酸化炭素の 総量は、約 1.5×10^{17} g 1年と推定されている.呼吸およ び酸化分解によって放出される量とほぼ釣り合っている と考えられる.大気・海洋間の交換の速さについては、 二酸化炭素の大気中の平均滞留時間を $5 \sim 10$ 年とすれば オーダーとしては 10^{17} g/年 が得られ、光同化量にほぼ 等しい.

一方,石油石炭の燃焼によって放出される二酸化炭素 量は,近年 2×10¹⁶ g/年 となった.この全量がそのま ま大気中に残るとすれば計算上は毎年2~3 ppm の二 酸化炭素の増加になる.したがって,放出された二酸化 炭素の一部は,海洋と生物圏の二つに分配されていると 考えられる.

2.3. 測定の結果

太平洋のほぼ全域にわたる,約110,000km のべ約300 日の航海において,大気と表面海水の二酸化炭素分圧の 測定をした。

第2.3 図に,太平洋,インド洋および南極海の表面海 水中の二酸化炭素分圧の分布と,密度飛躍層の深さとの 関係を示す.海水中の二酸化炭素分圧は,南極大陸周辺 から極前線付近までかなり高い.亜熱帯しゅうれん線付 近(30°S付近)では極小,さらにその北に二つの極大 が見られる.図に×印で示したのは密度飛躍層の深さ で,海水中の二酸化炭素分圧との間に相関性が認められ る.密度飛躍層が深いほど,表層における生物の分解で 生じた二酸化炭素が,より多く表層に閉じ込められる.

海水中の二酸化炭素の鉛直分布は,表面から深層に向 かって次第に増大する.300~500mの深さで2~2.5倍 になる.したがって,南極大陸周辺のように,海水の上 下混合の盛んな海域では,表面海水中の二酸化炭素の分



 第2.3図 太平洋、インド洋および南極海の表面海 水中の二酸化炭素分圧の分布と密度飛躍
 層の深さとの関係。
 ○:海水中の二酸化炭素分圧
 ×:密度飛躍層の深さ
 -・ー:大気中の二酸化炭素分圧

圧は当然高くなる.

第2.4 図に南北両太平洋の表層海水中の二酸化炭素分 圧の水平分布を示す.大気中の二酸化炭素分圧はほとん ど一定であるので,表面海水中と大気中の分圧差の値を 示す.マイナスは海水中の分圧が大気より低く,プラス は高いことを示す.南アメリカの北部沖と中央アメリカ 沖に著しい湧昇流があり,有機物の生産と分解が盛んで あるため,海水中の二酸化炭素分圧が高い.分圧の高い 海水は、ペルー海流の末端から赤道海域の北赤道海流に 続いている.また,北太平洋西部の黒潮に近い海域で は、海水中の分圧が大気中のそれよりかなり低い.

2.4. 大気・海洋間の二酸化炭素の交換

大気・海洋間の二酸化炭素の分圧差は当然,大気・海 洋間の交換をもたらす.二酸化炭素の交換は分圧差の大 きいほど,また,その海域の風速が大きほど大きくな る.交換量の計算には,次の式を用いた.

$$F = -A \frac{dq}{dz} \tag{1}$$

$$q_{s}-q = \frac{F}{k_{0}\rho w} \left(\lambda k_{0} \frac{v}{\kappa} + \ln \frac{k_{0}w}{\kappa} Z\right)$$
(2)

$$\frac{\Delta P'}{\Delta P} = \frac{k_w}{k_w + \delta_1 k_0 w \Gamma} \tag{3}$$

$$\Gamma = \left(\lambda k_0 \frac{\nu}{\kappa} + \ln \frac{k_0 w}{\kappa} Z\right)^{-1} \tag{4}$$

◎天気/ 25. 11.

788



第2.4図 太平洋における表面海水の ΔP co2 の分布 (単位:ppm).

ここに、Fは二酸化炭素の鉛直方向の流量(g/cm², 秒), Aは渦動拡散係数,Zは海面からの高さ, k_0 は Kármán 定数(0.4), k_w は水中の分子拡散,wは抵抗係数(0.03) と風速との積,ッは空気の粘性係数である。海水層の表 面にはごく薄い境界層があり,その中は乱流がないと考 えたとき、 $q \ge q_s$ はそれぞれ、空気中と境界層直上に おける二酸化炭素の分圧、 ΔP , $\Delta P'$ はそれぞれ空気と 海水間,海水の境界層の上下における二酸化炭素の分圧 差, δ は境界層の厚さ、 Γ は逃散係数, ρ は空気密度, λ は定数(11.5), κ は空気中二酸化炭素の分子拡散定数 (0°C, 0.14cm²/秒)である。

これらの式は元来,水蒸気の大気・海洋間の交換量を 求めるために用いられるが,三宅らは,これを南極海の二 酸化炭素の大気・海洋間の交換量の計算に用いた.風速 の分布については,1938年の U.S. Dept. of Agriculture Weather Bureau の "Atlas of Climatic Charts of the Ocean"を用いて,太平洋全域における年平均の風速分 布を求めた.

風速の分布と、大気・海洋間の二酸化炭素の分圧差を 上式に入れ、交換量を計算した.計算結果は、太平洋に ついては、海洋から大気へ放出される二酸化炭素は8× 10¹⁵g/年、大気から海洋に吸収される量は4×10¹⁵g/ 年となった.すなわち、太平洋では二酸炭化素の大気へ の放出量は、海洋への吸収量の約2倍であった.全海洋 については、大気・海洋間の二酸化炭素の交換は10¹⁶g /年のオーダーにあると推定される.この値は、従来考 えられていた10¹⁷g/年に比して一桁小さい.すなわ ち、二酸化炭素の大気中の平均滞留時間はかなり長く、 数十年ということになる.

2.5. まとめ

私たちの研究から分かったことは, つぎのようにまと めることができる.

まず,大気中の二酸化炭素と,表面海水中の二酸化炭 素分圧の間には平衡が成立していない.さらに重要なの

1978年11月

は、二酸化炭素の海洋への吸収量と、海洋からの放出量の間にも平衡が成り立っていないことである.太平洋に関しては、吸収量よりむしろ放出量の方が大きい.また、大気・海洋間の交換量は、いままでの推定値(10¹⁷ g/年のオーダー)より、1桁くらい小さいと考えられる.

これらの新しい知見から言えることは、海洋が大気中 の二酸化炭素含量を制御する力は意外に小さく、従来の ように、単純に、海洋が二酸化炭素のシンクであると考 えるのは誤まりである.

現在の地球上の二酸化炭素の収支をみると,光同化作 用が10¹⁷g/年,呼吸・酸化が10¹⁷g/年のオーダー,石 油・石炭からの二酸化炭素の放出が10¹⁶g/年のオーダー,石 ー,大気・海洋間の交換量が10¹⁶g/年のオーダーであ る.光同化作用と呼吸・酸化に比べて,あとの二つはい ずれも一桁小さい.もし,光同化と呼吸・酸化に10%く らいのアンバランスが生じれば,石油・石炭の燃焼から の放出や大気・海洋間の交換量は,そのアンバランスの 中に埋没してしまうであろう.

第2.1 図に示したように,大気中二酸化炭素含量の年 変化はかなり大きい.これは,大気中二酸化炭素は,さ らに長い周期の経年変動のあることを予想させる.

いままで観測された大気中二酸化炭素含量の増加が, 果たして石油石炭の燃焼によるものか,または長期の経 年変化の一部であるのか,さらに今後も石油・石炭の消 費量,および大気の二酸化炭素の動向を見続けなければ ならないであろう.

文 献

Keeling, C.D., R.B. Bacastow, W. E. Bainbridge,

C.A. Ekdahl, Jr., P.R. Guenther and L.S. Waterman, 1976: Atmospheric carbon dioxide variations at Mauna Loa Observatory, Hawaii, Tellus, 28, 538-551.

- Keeling, C.D., J.A. Adams, Jr., C.A. Akdahl, Jr. and P.R. Guenther, 1976: Amospheric carbon dioxide variations at the South Pole, Tellus, 28, 552-564.
- Miyake, Y. and S. Matsuo, 1963: A role of sea ice and sea water in the Antarctic on the carbon dioxide cycle in the atmosphere, Papers in Met. and Geophysi. 14, 120-125.
- —, and Y. Sugimura, 1969: Carbon dioxide in the surface water and the atmosphere in the Pacific, the Indian and the Antarctic Ocean areas, Rec of Oceanographic Works in Japan, 10, 23-28.
- —, and K. Saruhashi, 1974: The carbon dioxide content in the surface waters in the Pacific Ocean, Rec. of Oceanographic Works in Japan, 12, 45-52.
- —, and K. Saruhashi, 1976: The carbon dioxide system in the ocean, Pap. Met. Geophys., 27, 119-128.
- OECD, Organization for Economic Cooperation and Development, 1966. Energy Policy, Problems and Objective, OECD, Paris.
- Saruhashi, K., 1955: On the equilibrium concentration ratio of carbonic acids substances dissolved in natural water, A study on the metabolism in natural waters. II, Pap. Met. Geophys., 6, 38-55.
- The rate of fossil fuel CO₂ in the oceans, (ed. N.R. Andersen and A. Malahoff), Marine Science, 6, Plenum Press, New York, USA, 1977.

3. 一酸化炭素

川 村

3.1. はじめに

大気中には、ごくわずかの一酸化炭素 (CO) が含まれ ている。その存在は、1952年に、Migeotte と Neven に よって分光学的に確かめられ、Jungfraujoch において

* K. Kawamura, 気象研究所地球化学研究部.

研究が行なわれた。

清*

一酸化炭素は有機物の不完全酸化から生ずるので、地 球上のどこでもその発生は考えられるのだが、そのほか に、二酸化炭素の場合と同様に化石燃料の燃焼によって 大量に大気中に放出されている。1950年代の高山におけ る観測値からみて、都市からはなれた地域での CO は

▶天気/ 25. 11.

0.1ppm 程度であろうと考えられていた. これに対し, 都市の交通量の多い街路では100ppm 以上にも達するこ とがある.

地球上における CO 分布の研究は, Robinson ・ Robbins (1968) により, 彼等が開発した高感度の測定 器を用いて始められた. Robinson ・ Robinson(1968) や Robbins ら(1968) は, 水銀蒸気法を用いてグリーン ランド, 米国の西海岸, その他の地域における大気 CO を観測し, その結果から北半球における CO の平均濃 度は0.1ppm とした. 同様の方法による観測は, Seiler ・Jung (1970)および Seiler・Schmidt (1973)により南北 大西洋上で行なわれ, CO 濃度は南半球 の約0.05ppm に対し, 北半球では高く約0.15ppm であることを明ら かにした.

大気 CO の測定には、水銀蒸気法の他に赤外線吸収 法、ガスクロマトグラフ法などが用いられている.都市 大気中の CO (0.5~5ppm) 測定には主として赤外線 吸収法が用いられ、その測定は自動化されている.その 検出限界は約0.5ppm であるから、CO のバックグラウ ンド濃度(約0.1ppm)を赤外線吸収法で測定することは 困難である.微量 CO の測定には、現在、ガスクロマ トグラフ法か水銀蒸気法が使われている.水銀蒸気法は 比較的簡便で測定器も小型にできるので、著者ら(川 村・伏見、1978a;1978b)は Robinson らや Seiler ら と同じ原理に基づく微量 CO 測定器を製作し、大気 CO のバックグランド濃度を知り、その分布を明らかにする 目的で、海上の孤島、高山、北太平洋からインド洋にか けて研究を行なった。

3.2. 観測結果

1975年7~8月に南鳥島(24°18′N, 153°58′E), 1976 年10月に乗鞍岳の山頂付近(36°06′N, 137°33′E, 2,770 m),同年11月に父島(27°06′N, 142°11′E), さらに 1976年1~4月に東大海洋研究所白鳳丸の航海(KH-76 -1)で北太平洋西部および東部インド洋において大気 COを観測した.白鳳丸の航跡を第3.1図に,また観 測結果を第3-2図にそれぞれ示す.南鳥島,乗鞍岳, 父島における CO の濃度範囲および平均値(カッコ内 に示す)は、それぞれ0.10~0.19ppm(0.15±0.03ppm) 0.07~0.27 ppm(0.13±0.04 ppm), 0.06~0.12 ppm (0.08±0.02ppm)であった。

西部北太平洋における大気中の CO 濃度は第3.2図に 示すように、0.07~0.20ppm の範囲内にあり、低緯度 になるにつれて減少する傾向にあった。インド洋ではそ 1978年11月



の濃度が北太平洋に比べて低く,0.02ppm~0.08ppmを 示した。47°Sにおいては最低値0.02ppm を記録した。
Seiler・Junge (1970)が指摘したように,熱帯収束帯 (約5°N)付近で CO は急増し,8°N において最高値
0.20ppm が観測された。この観測結果は、Swinnerton
Lamontagne (1974) により米国のロングビーチから 南極マクマードまでの航海中に得られた観測結果とほぼ

ー致するが, Seiler・Schmidt (1973) により南北大西洋 の航海で得られた結果と比較すると,南半球での濃度に 差がある。15°S以南のインド洋では大西洋の約1/2であ った.

3.3. まとめ

著者らの観測によれば,大気中の CO 含量は北太平洋 西部海域では0.07~0.20ppm,東部インド洋では0.02~ 0.08ppm であり, 濃度は南下するにつれて減少の傾向 がある.南鳥島,父島での値は上述した北半球での値の 範囲内にあるが,乗鞍岳ので値はこの上限をやや上廻わ る(0.07~0.27ppm)ことが分かった.

対 対

川村 清,伏見克彦,1978 a : 大気中の微量 SO₂, NO_x および CO の測定法の自動化,気象研究所 技術報告,1,19-34.

-----, ----, 1978b:綾里, 乗鞍岳, 南鳥 島, 父島における大気中の SO₂, NO₂, NO, CO, Os 濃度について,気象研究所技術報告,1,117-123.

- Robbins, R.C., K.M. Borg, and E. Robinson, 1968: Carbon monoxide in the atmosphere, J. Air Pollut. Contr. Ass., 18, 106-110.
- Robinson, E., and R.C. Robbins, 1968: Souces, abundance, and fate of gaseous atmospherric pollutants, Final report, Stanford Research Institute Project PR-6755, 49-63, Stanford, California.
- Seiler, W., and C. Junge, 1970: Carbon monoxide in the atmosphere, J. Geophys. Res., 75, 2217 -2226.
- ----, and U. Schmidt, 1973: Dissolved nonconservative gases in seawater, In "The Sea", 5(ed. E.D. Goldberg), Wiley Interse., New York.
- Swinnerton, J.W., and R.A. Lamontagne, 1974: Carbon monoxide in the south Pacific Ocean, Tellus, 26, 136-142.
- 4. 窒素酸化物

川村 清*

4.1. はじめに

大気の徴量成分として存在する窒素酸化物には、 N_2O NO および NO₂ がある。 N_2O は化学的にきわめて安 定であり、地球表面で発生した N_2O は破壊されずに大 気上層に達し、太陽紫外線の作用により分解する。 NO は上層大気中のD層生成の原因となるし、 NO₂ は化学 反応性に富むので、光化学的にも興味ある研究対象であ る。

最近は、このような天然起源のもののほか、化石燃料 の燃焼に伴って生ずる多量の窒素酸化物が都市の大気中 に増加し、窒素酸化物が大気中の酸化物(オキシダント) 生成に関係があるということで、その濃度や挙動が重視 されている.

現在、わが国の多くの都市における大気中の NO₂ 濃 度は 20~100 μ g/m³, NO は 20~60 μ g/m³ の 範囲内にあ る. これに反し、大気バックグランドレベルの NO₂ お よび NO 濃度の観測結果はきわめて少なく、NO₂ につ いては 1 ~ 3 μ g/m³ が得られているが (Junge, 1957, その他)、NO は0.3 μ g/m³ と推定されている(Robinson •Robbins, 1970).

バックグランドレベルの窒素酸化物の研究は地球上に おける窒素の循環の研究にきわめて重要で、そのために は外洋や高山などの信頼のおける測定値が必要である。 著者らは比色分析法を自動化した測定器等を用い、岩手 県綾里,南鳥島,小笠原父島,乗鞍岳および北太平洋西部 海域における大気中の NO₂ および NO を測定したの で、その結果をまとめた(川村、1971:川村・伏見、 1978 a ; 1978 b).

4.2. 測定結果

大気 NO₂ および NO を測定した場所,位置,標高,期 間および項目を第4.1表に示す. 岩手県綾里 における NO₂ 濃度は風向によって大きな差があり,東および南 寄りの風のとき約1 μ g/m³となる. この値は,後述す る南鳥島,父島,北太平洋西部海域で得られた値と差が ない.しかし,北および西寄りの風のとき濃度は高く, $4 \sim 5 \mu$ g/m³の値を示す. これは東に太平洋を持つ 綾 里の地理的,地形的条件の影響であろう.

乗鞍岳の山頂付近で測定した NO₂, NO の濃度範囲お よび平均値(カッコ内)は、それぞれ 0.9~7.2µg/m³ (1.8±0.6µg/m³)および0.4~2.1µg/m³(0.8±0.4µg

▶天気″25.11.

^{*} K. Kawamura, 気象研究所地球化学研究部

测存错踪	位置		標高		
测足场所	N	E	(m)	别间	垻 日**
岩手県綾里	39°02′	141°50′	260	3月26日~30日 (1974)	$\underline{\mathrm{NO}}_{2}$
南鳥島	24°18′	153°58′	17	7月26日~ 8月 9日 (1975)	NO ₂ , NO
乗 鞍 岳	36°06′	137°33′	2,770	10月 3日~10日 (1976)	NO_2 , NO
父 島	27°06′	142°11′	160	11月 2日~12日 (1976)	$\underline{NO_2}$
北太平洋西部海域	36°~45°	140°~178°	0	7日18日~ 8月16日 (1968)	$\underline{\mathrm{NO}_2}$

第4.1 表 測定した場所,位置,標高,期間および項目。

* アンダーラインした項目は自動測定器を用いずに測定したことを示す.

/m³)であった. NO₂ については,従来の報告値の 1.5
 ~3.1µg/m³ (Junge 1957; Georgii, 1960) とだいたい
 一致する. 山岳大気のNO濃度については比較する観測
 値がない.

南鳥島で測定した NO₂, NO の濃度範囲および平均値 は,それぞれ0.6~3.2 μ g/m³ (1.2±0.5 μ g/m³) および 0.3~1.4 μ g/m³ (0.6±0.2 μ g/m³),また,父島の島内 三地点で観測した NO₂ 濃度の平均値は,それぞれ0.9, 1.1, 1.3 μ g/m³ であった. NO の大気バックグランド 値は観測例がほとんどないが,南鳥島における濃度は Robinson・Robbins (1970) の海上大気中の推定値0.3 μ g/m³ の2倍に相当する. NO₂ については,ハワイで 2.9 μ g/m³ (Junge, 1957),北太平洋東部海域で2 μ g/m³ 以下 (Lodge *et al.* 1960) の値が得られている.

東大海洋研白鳳丸の航海(KH-68-3)の際,北太平洋 西部海域で観測した大気中の NO₂ 濃度は本州の東海岸 から離れるにつれて低下したが,160°E以東ではほぼ一 定値(1.2±0.2µg/m³)をとった.

本研究ならびに他の研究者により北半球で観測された 大気 NO₂ のバックグランド濃度を第4.1 図に示す.図 から,天然および人工源のある大陸上での観測値は海洋 上におけるより高いことが分かる.南鳥島,父島および 北太平洋西部海域における観測値は1.1~1.2 μ g/m³ で あり,これらの値はJunge (1957)のハワイの海岸で得 られた2.9 μ g/m³より低いが,Robinson-Robbins (1970) の海上大気中の平均濃度推定値1.0 μ g/m³ときわめてよ く一致する.

4.3. まとめ

南鳥島における大気中の NO₂ 濃度は0.6~3.2µg/m³, 1978年11月



第4.1 図 北半球で得られた大気 NO₂ バックグラ ンド濃度(単位: µg/m³). (1) Minamitorishima, 川村・伏見(1978 b). (2) Chichi-Jima, 川村・伏見(1978 b). (3) Mt. Norikura, 川村・伏見(1978 b). (4) Pacific Ocean, 川村 (1971) (5) St. Moritz, Georgii(1960) (6) Ireland, O'Connor(1962) (7) Panama, Lodge
Pate(1966) (8) Florida, Junge (1956) (9) Illinois and Missouri, Breeding et al. (1973) (10) Pacific Ocean, Lodge et al. (1960) (11) Hawaii, Junge(1957)

NO 濃度は0.3~1.4µg/m³ であるが, 乗鞍岳では NO₂ 0.9~7.2µg/m³, NO 0.4~2.1µg/m³ のように, 南鳥島 よりやや高い. 父島も南鳥島とほぼ同程度である. 北太 平洋西部海域では,本州東岸を離れるにつれて, NO₂濃 度は低下し, 160°E以東ではほぼ一定 $(1.2 \pm 0.2 \mu g/m^3)$ となった.

文 献

- Breeding, R.J., J.P. Lodge, Jr., J.B. Pate, D.C. Shee-sley, H.B. Klonis, B. Fogle, J.A. Anderson, T. R. Englert, P.L. Haagenson, P.B. McBeth, A. L. Morris, R. Pogue and A.F. Wartburg, 1973: Background trace gas concentrations in the central United States, J. Geophys, Res., 78, 7057 -7064.
- Georgii, H.W., 1960: Untersuchungen über atmosphärische Spurenstoffe and ihre Bedeutung für die Chemie der Niederschlage, Geofis. pura e appl., 47, 155-171.
- Junge, C.E., 1956: Recent investigations in air chemistry, Tellus, 8, 127-139.
- —, 1957: Chemical analysis of aerosol particles and of gas traces on the island of Hawaii, Tellus, **9**, 528-537.

- 川村 清, 1971:対流圏の汚染, 気象研究ノート, 107, 220-237.
- —, 伏見克彦, 1978 a : 大気中の微量 SO₂, NO_x および CO の測定法の自動化, 気象研究所技術 報告, 1, 19-34.
- —, —, 1978b:綾里, 乗鞍岳, 南鳥島, 島に 父おける大気中の SO₂, NO₂, NO, CO, O₃ 濃度 について,気象研究所技術報告, 1, 117-123.
- Lodge, J.P., Jr., A. J. MacDonald and E. Vihman, 1960: A study of the composition of marine atmosphere, Tellus, 12, 184-187.
- —, and J. B. Pate, 1966: Atmospheric gases and particulates in Panama, Science, 153, 408-410.
- O'Connor, T.C., 1962: Atmospheric condensation nuclei and trace gases, final report, contract DA-91-591-EUC-2126, Dep. of Phys., Univ. College, Galway, Ireland.
- Robinson, E. and R.C. Robbins, 1970: Gaseous nitrogen compound pollutants from urban and natural sources, J. Air pollut. Contr. Assoc., 20, 303-306.

5. 大気, 降水中における微量金属元素

鈴木 款*

5.1. はじめに

大気,降水中における微量金属元素の研究は,従来, 主として都市および都市近郊の大気汚染の影響評価の立 場から進められてきた.

われわれは、これらを単に局地的な汚染問題としてで はなく、地球的規模における微量金属元素の挙動、すな わち地球化学的サイクルの解明に向けてきた.大気、降 水中の数種の微量金属を同時に測定し、それらの元素の 発生源が地殻起源(アルミニウム、チタン、スカンジウ ム)であるか、あるいは海洋起源(ナトリウム、塩素イ オン)であるか等を考慮しながら、その元素の大気中に おける挙動を追跡することは、大気化学におけるきわめ て重要な課題である.

化学元素の挙動は、同一の元素でもその化学形により、たとえば、それが酸化物であるか塩化物であるかにより異なる.また元素の持つ原子価によっても挙動が異

* Y. Suzuki, 気象研究所地球化学研究部.

なることも知られている.大気,降水中では,微量金属 元素は,種々の化学形および異なる原子価を持っている ことが考えられるので,大気,降水における微量金属元 素の化学形と原子価を明らかにする研究が重要になって くる.しかし,この問題の解決には多くの困難があった. 大気中にきわめて微量に存在する金属元素の化学形,原 子価を決定する分析法の開発から着手しなければならな い.その研究方法としては,大別すれば現在つぎの二つ が考えられる.一つは,X線回折による方法である.こ の方法は,化学形が同定されるだけで,その存在量を正 確に定量することはできない.もう一つは,著者らが主 として用いている化学的な処理により化学形態を区別し ようとする方法である.この方法は,定量が可能である.

5.2. X線回折を用いる化学形の研究

この方法は、固体状の微量金属元素(主に 鉛、銅, ニッケル)の測定,たとえば、フィルター上に捕集した 浮遊ふんじん中の金属元素の化学形を直接同定すること ができる.しかし、X線回折を行なう時,捕集に用いた

▶天気/ 25. 11.

フィルターの材質によるバックグランドの吸収と散乱, あるいは,大気中の塵の主成分がケイ酸化合物であるた めにマトリックス効果が大きいこと等から,良い分析結 果が得られなかった.最近,バックグランドの影響をで きるだけ小さくするためにフィルターの材質に工夫がな され,Biggins らは,都市大気中における鉛の化学形を 同定した.彼らは,アメリカのランカスターで,48時間, ハイボリュームサンプラーを用いて大気中の 塵を 捕 見,測定したところ,大部分が硫酸アンモニウム・硫酸 鉛の複塩であったという.この方法は,微量金属元素の 化学形を簡単に同定はできるが,正確には定量 できない.

5.3. 化学分析による化学形の研究

ここでは、微量金属元素の一つとしてセレンについて、著者らの研究室で行なわれている研究を紹介する.

セレンは、イオウの同族元素であり、水銀、ヒ素、ア ンチモンと同様に揮発し易い.地殻物質の舞い上がり、 火山噴気、化石燃料の燃焼によって、大気中に供給さ れ、降水や落下塵によって再び地上に降下する.

まず,降水中のセレン含量について述べる.東京(高 円寺)において降水を一雨ごとに採水し,セレン含量の 年変化を測定した結果,セレン含量は0.01~0.12 μ g/lの 範囲にあり,その平均値は0.05 μ g/l であった. 年間を 通してのセレン含量には,顕著な季節変化は認められな い.また,降水のタイプや風向によるセレン含量の変動 もはっきり認められなかった.

Relationship between content of total Se in each rain and amount of precipitation



第5.1図 降水中の全セレン含量と降水量の関係。

しかし、降水量との間には、第5.1 図に示すように、 降水量が増加すればセレン含量が減少する関係が認めら れた. セレンの降下量は 1.0~3.9 μ g/m² の範囲にあり、 年間では 76 μ g/m² であることが分かった. これにより、 三宅らの式を用いて気柱濃度を求めると 0.5~0.8 μ g/m² 平均は 0.65 μ g/m² となる.

都市および近郊における大気中のセレンの大部分が, 化石燃料の燃焼生成物であると推定される。降水中のセ レンについて,土壌の寄与を求めた。降水中のアルミニ ウムをすべて土壌起源として考え,セレンとアルミニウ ムの含量比からセレンの寄与を計算すると,降水中のセ レン含量(0.06/4g/l)の5%ぐらいと推定される。

次に、降水中のセレンの化学形について述べる。海水 中に溶存しているセレンの化学形に関して著者らの開発 した新しい分析法を用いて測定した結果、降水中におけ るセレンの50~70%は4価(亜セレン酸, SeO₃²⁻)とし て存在し、残りの30~50%は単体セレンであることが分 かった.そして、セレンのもう一つの原子価として予想 される6価(セレン酸, SeO42-)は、ほとんど存在してい ないことが分かった、大気中におけるセレンは、ガラス 繊維フィルター(東洋 GR-100)付のハイボリュームエア ーサンプラーによってフィルター上に捕集した。 大気中 のセレン含量は 2.3~3.9ng(10^{-9} g)/m³ の範囲にあり、 平均は 3.1µg/m³ であった。降水中のセレン含量と同様 に、季節的な変化はほとんど認められなかった、フィル ター上に捕集されたセレンの化学形を明らかにすること は容易なことではないが,著者らはフィルター (ガラス 繊維フィルター)を降水で繰り返し洗浄し、溶出してく るセレンの化学形を測定した。その結果、溶出液中のセ レンはすべて4価の亜セレン酸であり、フィルター上に 捕集された全セレンの50~60%が溶出することが分かっ た. 溶出の後フィルター上に残ったセレンは, 硝酸に可 溶であり、塩酸に不溶であることから、単体のセレンと して存在している可能性が大きい.

これらの結果から、大気中に存在しているセレンの化 学形は、単体セレン(おそらく大気中では 蒸気) と し て20~40%、残りの60~80%が水と反応すると亜セレン 酸になり易い化学形(おそらく、二酸化セレンあるいは セレン酸アンモニウム)であることが分かった。

石炭の燃焼によって排ガスプラントから放出されるセ レンは, Andren (1970) らによれば, 90%以上が蒸気 (単体セレン)であり大気中にそのままの形で留まると いう.しかし,著者らの結果は,上述のように,大気中

1978年11月

のセレンの化学形は単体セレンだけではないことを示している.

大気中の微量金属元素の粒径分布は、元素の起源と大 気中の挙動を知るための重要な因子の一つと 考 え られ る. 大気中におけるセレン、ヒ素、アンチモン等の揮発 し易い元素の粒径は、 Miklishansky らの測定によると 1µm 以下であるという. 1µm 以下の粒径をもつ粒子 は、一般に、雨滴や落下塵によって捕捉されにくいこと が分かっている. 一方, グリーンランドの年代の違う氷 のセレンとイオウの含量比を測定し、過去(BC 800)か ら現在に向かい、その比が次第に減少していることが見 出された. この原因として、Weiss らは,発生源から,グ リーンランドに達するまでにセレンはイオウに比べて早 く除去されるためと考えている。著者らの化学形等に関 する結果は、大気中のセレンは、すくなくとも、単体の セレンと二酸化セレンの二つの化学形をもって存在して いることを示した. 大気中のセレンを単一の化合物とし て、セレンの除去のされやすさを論ずるのは、少し単純 すぎるのではないだろうか. 今後の研究の進展が期待さ れる、セレン以外の微量金属元素についても、大気、降 水中では、どんな化学形で存在しているのであろうか. これらの元素の挙動を明らかにするためにも、化組形の 研究は重要である.

5.4. まとめ

大気,降水中における微量金属元素の研究-大気化学 は,その元素の起源や,地球化学的な挙動やサイクルを 明らかにすることが大きな目的の一つである.これは, 単に大気化学にとって重要であるばかりでなく,気象物 理学における,雨滴の形成や落下機構,エーロゾルの形 成とその挙動の解明にとってもきわめて有用であると考 えられる.

文 献

- Andren, A, W., D. H. Kline and Y. Talmi, 1957: Selenium in coal-fired steam plant emissions, Environ. Sci. Tech., 9, 856-859.
- Biggins, P.D. and R.M. Harrison, 1978: Identification of lead compounds in urban air, Nature, 272, 531-532.
- Miklishansky, A.Z., Yu.V. Yakovley and B.V. Savelyev, 1978: On the forms of the occurence of chemical elements in an atmosphere: Distribution of microelements between the vapor of atmospheric water and aerosol in the nearground later of air, Geochimia, 1, 3-10.
- Miyake, Y., K. Saruhashi, and Y. Katsuragi, 1959: The Sr-90 fallout and the air motion, Pap. Met. Geophys., Tokyo, 9, 172-176.
- —, and —, 1950: The mechanism of dissolution of the atmospheric chloride into rain water, Pap. Met. Geophys., 1, 222-226.
- Sugimura, Y., Y. Suzuki and Y. Miyake, 1976: The content of selenium and its chemical form in sea water, J. Oceanogr. Soc. Japan, 32, 235 -241.
-, and, 1977: A new fluorometric method of analysis of selenium in sea water, J Oceanogr. Soc. Japan, 33, 23-29.
- Weiss, H. V., M. Koide and E. D. Goldberg, 1971: Selenium and sulfur in Greenland Ice sheet; relation to fossil fuel, combustion, Science, 172, 261-263.

6. 有機物--アルデヒド類

伏 見 克 彦*

6.1. はじめに

対流圏大気中には、さまざまな種類の有機物がきわめ て微量に含まれていると考えられる.これらの有機物の 大部分は生物活動に起因すると思われるが、一部は燃焼 等により生成されるものもある.大気中の有機物の天然 源からの発生量は 6.7×10^{14} g/年, また, 人工源からの発 生量は, アメリカ国内だけで約 3.2×10^{13} g/年であると 見積もられている(Butcher・Charlson, 1972). これらの有 機物の大気中における挙動は, 無機物と同様に大気化学 においてきわめて重要であると考えられる. たとえば, 植物から放出されるテルペン類等の揮発性有機物は, 光 化学反応により凝結核を形成する と 報告 されている

▶天気/ 25. 11.

^{*} K. Fushimi, 気象研究所地球化学研究部.

(Went, 1966). エーロゾル中にも有機物が含まれている ことも知られている。また、不飽和炭化水素が対流圏の オゾンを分解しているとも報告されている しかし、そ れらの詳細についてはほとんど解明されていない。対流 圏大気中の有機物はメタンの含量がもっとも大きく,1 ~2 ppm の範囲にあると報告されている. その主な起 源は沼地や水田等における微生物活動によるものであろ 5. Koyama (1963)は、地球全体で2.7×10¹⁴g/年が 生成されると推定した. 大気中のメタンは, 光化学反応 により一酸化炭素を生成するとも言われているが、詳し いことは不明である。最近、成層圏のオゾン破壊に関連 して,人工源によるハロゲン化炭化水素の存在が重要視 されてきており、測定法の開発を含めて研究が急がれて いる. 大気中の有機物はその存在量が極低濃度であるた めに、測定法の研究、開発から始めなければならない 測定法が確立されているものか、または比較的簡単に測 定できる有機物についても,上述のようにわずかの研究 が行なわれているにすぎない、大気中の有機物について は、その種類および存在量もまだ明確にされていないも のが多く、その地球化学的サイクルについてはほとんど 手がつけられていないのが現状である

そこでわれわれは、大気中に存在する有機化合物のう ち,その化学的組成が簡単であり測定法の開発が比較的 進んでいると思われるアルデヒドについて研究を開始し た. 大気中に微量に含まれるアルデヒド化合物の中で, ホルムアルデヒドは大気中にあるメタンの酸化生成物で あると考えられている. また,植物からもある種のアル デヒドが大気中に放出されている. アルデヒド類は強い 還元性を持っているため,大気中に存在する水から生成 $(H_2O+O(^{1}D) \rightarrow 2OH)$ *された OH 基との光化学反応, または紫外線 ($\lambda \leq 370$ nm)による光分解の結果,一酸化 炭素を生成すると考えられている.

大気中アルデヒドのもう一つの起源は人為的なもので ある.一般に微量の気体状アルデヒドは,エチレン,プ ロピレン,ブチレン等のオレフィン系の炭化水素から, オゾンとの酸化反応によって二次的に生成される.した がって,都市の大気中では二次的に生成された大気汚染 物質の一つとして,ホルムアルデヒドだけではなく,ア セトアルデヒド,アクリルアルデヒド(アクロレイン) 等の他の脂肪族アルデヒド類も存在すると考えられる.

今まで調べられた大気中アルデヒド類の測定値を,第 6.1表に示した.都市から離れた地域では,ホルムアル デヒド(HCHO),全脂肪族アルデヒド(RCHO)はそれ ぞれ大気1m³中に0~16 μ g,0.3~34 μ g であるが,都 市域ではそれぞれ7~214 μ g,7~300 μ g が報告されて いる.これらの結果は,都市域の大気が明らかに人工源 のホルムアルデヒドと脂肪族アルデヒドで汚染されてい ることを示している.

測 定 場 所	ホルムアルデヒド (μg/m ³)	全脂肪族アルデヒド (µg/m³)	文 献
都市域			
ロサンゼルス		10~300	Junge (1963)
ロサンゼルス	7~214	7~188	Altshuller • McPherson (1963)
ニュージャージー州(ベイヨン)	8 (平均值)		Cleveland et al. (1977)
東 京	1~26	3~56	著者ら
都市から離れた地域			
パナマ		0.3~5	Londge • Pate (1966)
ヨーロッパ	0~16		Cauer (1951)
イリノイおよびミズリー州		1~3	Breeding et al. (1973)
南極大陸		0.5~34	Fischer et al. (1968)
西部北太平洋	1~4	1~6	著者ら
南部インド洋	1~4	1~4	著者ら
乗鞍岳山頂	1~4	2~4	著者ら

第6.1表 大気中アルデヒド含量の測定値

* O(¹D)はオゾンの光分解により生じた励起状態の 酸素原子である。

1978年11月

そこで、われわれ(伏見ら、1976)は、ホルムアルデ ヒドおよび全脂肪族アルデヒドの含量とそれらの化学的 組成の都市、海上および高山の各大気間における違いを 明らかにしたいと考え、東京、北太平洋西部およびイン ド洋東部海域、および乗鞍岳山頂(高度 2,770m)の表 面大気について測定を行なった。

6.2. 北太平洋西部およびインド洋東部海上大気中の アルデヒド類の含量

北太平洋西部およびインド洋東部海域における海上大 気中のホルムアルデヒド含量の測定結果を第6.1 図に示 した.これらの測定は,気象庁の凌風丸船上で Ry-75-05次航海(1975年4~5月)の際,および東大海洋研究 所所属の白鳳丸船上で KH-76-1 次航海(1976年1~4 月)の際に行なわれた.ホルムアルデヒド含量は,日本 列島沖の北太平洋西部海域では大気1m³中に1~4 μ g であり,南シナ海のフィリピンおよびボルネオに沿う海 域では2~10 μ g であった.インド洋上では,ホルムアル デヒドの含量は南に向かって減少する傾向を示し,スマ トラ付近(2~3°N,94°E)の7 μ g から40°S付近の 1 μ g に減少した.赤道から20°Sにかけての含量は7~ 2 μ g であったが,20°S以南では2~1 μ gに減少した. HCHO/RCHO 比を見ると,インド洋上の大気中では



第6.1 図 航跡図および海上大気中のホルムアルデ ヒド含量(µg/m³).

50~100%の範囲にあった.

北太平洋西部海域では、全脂肪族アルデヒド含量は日 本列島から離れるに従い 6 //g から 1 //g へと急激に 減 少するのが見られた. HCHO/RCHO 比は、日本列島 から距岸 1,000km 以内では 60~30%であったが、距岸 1,000km 以上の洋上では100%近くに増大した. HCHO /RCHO 比の低い大気は、陸上大気の影響を受けたも のであると考えられる. すなわち、インド洋南部と北太 平洋西部海域の、陸地を遠く離れた海上の大気中に含ま れるアルデヒドのほとんど大部分がホルムアルデヒドで あることが分かった.

6.3. 乗鞍岳山頂における大気中アルデヒド類含量

陸上におけるアルデヒド類のバックグランド値を求め るため、都市からの直接的な影響の少ない観測地点とし て乗鞍岳山頂(2,770m)において、1974年9月から10月 にかけて測定を行なった。その結果、ホルムアルデヒド は大気1m³ 中に平均2±0.7 μ g、全脂肪族アルデヒド は3±0.6 μ g で、HCHO/RCHO 比の平均は80±19% であった。すなわち、地上から3,000m 上空の大気中の



第6.2 図 東京における地表大気中アルデヒド 含 量,および全脂肪族アルデヒドに占める ホルムアルデヒドの割合の月平均値。

▶天気″25.11.



ヒド含量および風速の日変化(1974年 12月)。

アルデヒドは,そのほとんど大部分がホルムアルデヒド であった.

6.4. 東京における地上大気中のアルデヒド含量

1974年8月から1975年9月までの期間,東京・高円寺 において地上大気中のアルデヒド含量を測定した。その 月平均値を示したのが第6.2図である。測定された大気 中のホルムアルデヒド含量は,大気1m³中に1~24 μ g の範囲にあり,全測定値の平均は9±4 μ gであった。全 脂肪族アルデヒドの含量は3~56 μ g の範囲で,全測定 値の平均は16±7 μ gであった。HCHO/RCHO 比は15 ~80%の範囲で,その平均は56±15%であった。一般に ホルムアルデヒドおよび全脂肪族アルデヒドの含量は, ともに冬に低い値を示した。

東京における大気中のアルデヒド類含量は,一日のう ちでかなり大きく変化するが,風速が4m/秒を超える 日にはアルデヒド類含量の変化は見られなかった.一例 として,1974年12月14日と19日の全脂肪族アルデヒド含 量の日変化を第6.3 図に示した.都市大気におけるアル デヒド類含量の日変化は,気象条件とくに風速に依存し ているように思われる.

6.5. まとめ

われわれの測定結果から次のことが明らかになった. 陸地から遠く離れた海上大気および3,000mの高山の山 頂付近の大気では,全脂肪族アルデヒド類の含量は 1m³ 中にそれぞれ1~2 µg および3 µg であり,その大部分 はホルムアルデヒドであった.他方,都市の大気中のア ルデヒド類含量は平均16µgで,海上大気の約10倍大き い.都市大気中の全脂肪族アルデヒドに占めるホルムア ルデヒドの割合は平均60%であり,アルデヒド類の大部 分は人工源によるものであると考えられる.なお,アル デヒド類の生成消滅機構および大気・海洋間における交 換等の地球化学的循環における定量的考察は,今後の研 究を待たなければならない.

文 献

- Altshuller, A.P. and S.P. McPherson, 1963: Spectrophotometric analysis of aldehydes in the Los Angeles atmosphere, J.Air Pol. Cont. Ass., 13, 109-111.
- Breeding, B.W., J. P. Lodge, Jr., J.B. Pate, D.C. Sheesley, H.B. McBeth, A.L. Morris, R.Pogue and A.F. Wartburg, 1973: Background trace gas concentrations in the central United States, J. Geophys. Res., 78, 7057-7064.
- Butcher, S.S. and R.J. Charlson, 1972: An Introduction to Air Chemistry, Academic Press. New York, pp. 144-145.
- Cauer, H., 1951: Some problems of atmospheric chemistry, Compendium of Meteorology, 1126-1136.
- Cleveland, W.S., T.E.Graedel and B. Kleiner, 1977: Urban formaldehyde: observed correlation with source emissions and photochemistry, Atmos. Environ., 11, 357-360.
- Fischer, W.H., J.P. Lodge, Jr., A.F. Wartburg and J.B. Pate, 1968: Estimation of some atmospheric trace gases in Antarctica, Environ. Sci. Technol. 2, 464-466.
- Junge, C, 1963: Air Chemistry and Radioactivity, Academic Press, New York.
- Koyama, T., 1963: Gaseous metabolism in lake sediments and paddy soils and the production of atmospheric methane and hydrogen, J. Geophys. Res., 68, 3971-3973.
- Lodge, J.P., Jr. and J.B. Pate, 1966: Atmospheric gases and particulates in Panama, Science, 153, 408-410.
- Went, F.W., 1966: On the nature of Aitken condensation nuclei, Tellus, 18, 549-556.

1978年11月

7. 降水中の天然放射性核種――鉛-210とラドン

杉村行勇*

7.1. はじめに

降水中の放射能の存在が,初めて Wilson (1902)により見出されて以来,大気と降水中の天然放射性核種に関 する多くの研究が行なわれてきた.

天然放射性核種には,地殻のウランやトリウム系元素 の放射性壊変により生じて大気中に供給されたものと, 大気上層で行なわれる宇宙線と大気物質との核反応の結 果生ずるものとがある.いずれも微量ではあるが,気象 現象を研究するために有効なものが多い.

ここでは,主に東京におけるラドンとその壊変生成物 の²¹⁰Pb について,大気・降水中の含量やその季節変動 の研究結果をまとめた.

ラドン (²²²Rn) は天然に存在する不活性放射性気体で (α 放射体, 半減期3.8日), 岩石・土壌, 植生・海水等 に含まれるラジウム (²²⁶Ra)の放射性壊変によって生成 し, 大気中に放出される。

ラドンが大気中から除かれる重要な過程は放射性壊変 だけであるから、大気中におけるラドンの水平・鉛直分 布は、大気の運動を追跡するための理想的なトレーサー となる.

ラドンは,大陸から平均 4 ×10^{−17}Ci/cm²/秒 の放出 があるが,海洋からの放出量はこの約 1 /100と考えられ ている.

その娘核種には比較的長寿命の²¹⁰Pb(β, 半減期22年), ²¹⁰Bi(β, 半減期5日)および²¹⁰P₀(α, 半減期138日)が あって,大気中でラドンの壊変によって生成する.

これらの娘核種は、ラドンと異なり大気中では微粒子 として存在し、降水や落下塵として地表面に落下してく る.したがって、空気中でも、また降水中でも、親のラ ドンとその壊変生成物との間には放射平衡の成立してい ない場合が多い.

最近,²¹⁰Pb の大気および降水中における含量 や分布 の研究が行なわれている。その含量の緯度分 布 を み る と,一般に北半球に高く,南半球に低い。これは,親核 種のラドンが主として大陸地殻から放出されることと関

* I. Sugimura, 気象研究所地球化学研究部

係があり,陸地の面積の緯度分布と対応している.

東京における²¹⁰Pb の研究例は少ないので, 1972 年か ら 1975年にかけて気象研究所における降水の²¹⁰Pb の降 下量,含量の季節変動の研究を行なった結果をまとめた.

東京における一雨ごとの 210 Pb 含量は, 0.1~13pCi/l であり,平均2.5pCi/l を示す. この結果は 1966年 に当 研究部で得られた平均 2.4pCi/l と良く一致しており, 年平均で見ると,降水中の 210 Pb の量はここ十年間には あまり大きい変化がないことが分かる.

7.2. 観測結果

第7.1 図に月間降下量の変化を示した. 降下量は20か ら1,042pCi (10⁻¹²Ci)/m²/月で,年間の全降下量は3~ 4 nCi(10⁻⁹Ci)/m² となる.この年間降下量は,北半球中 緯度における他の地点の降下量とほぼ等しい.

東京における月間降下量は,第7.1 図に示したように 年変化が少ない.²¹⁰Pb の降下量に年変化が少ないこと は,これもまた世界各地における観測結果と共通した現 象である.

月間降水量と²¹⁰Pb の間にはよい相関があり、第7.2



第7.1図 東京における²¹⁰Pb の月間降下量と降水 中の²¹⁰Pb 平均含量.

18

♥天気″25.11.



料7.2 図 東京における ²¹⁰Pb の降下量と降水量と の関係。

第7.1表 東京における降水中の²¹⁰Pb 含量と雲の 厚さ

母の同ふ	10な - 小 一日		²¹⁰ Pb
妻の厚さ (km)	降水重 (mm)	降下量 (pCi m ⁻ ?)	平均含量 (pCi 1 ⁻¹)
1~2	39.7	8	0.20 (0.19~ 0.21)
2~3	151.3	44	0.29 (0.26~ 0.33)
3~4	245.2	365	1.5 (0.6 \sim 4.3)
$4 \sim 5$	172.3	424	2.5 (1.4 \sim 4.3)
>5	393.8	1,527	3.9 (1.0~11.6)

図に示すようにその相関係数は+0.9となる。

空気中の²¹⁰Pb は,一般には大部分小粒子(半径約0.1 μm) と行動を共にしていると言われているので,²¹⁰Pb の大気からの除去に重要な過程は,洗浄効果 では な く て,むしろ雨滴生成過程にあると考えられる.

この考えを確かめるため,1973年の降水 に つ い て, 一雨ごとの²¹⁰Pb の濃度と,雨雲の厚さとの関係を調べ た.

その結果は,第7.1表に示すように,雨雲の厚さが3 km 以下の場合は²¹⁰Pb の含量が0.2~0.3pCi/l にすぎ ないが,雲の厚さが3km を超えると²¹⁰Pb 含量は急激 に増加し,5km よりも厚い雨雲からの雨では1.1~16 pCi/l (平均3.9pCi/l) となることが明らかになった. これは,空気中の²¹⁰Pb は上層大気中において,過冷却 の水滴中に凝結核としてすみやかに取り込まれることも 一因と考えられるが,この機構については今後の研究に 待ちたい.

大気と降水との間のラドンの分配,および ラドンと ²¹⁰Pb との間の放射平衡を研究するために,次の研究を 進めた.

大気と降水中のラドン含量は、降水には、 $63\sim530$ fCi (10⁻¹⁵Ci)/l, 地上70cm の大気中では、 $9\sim110$ fCi/l と 大幅な変動が見られる。ラドンは降水中でほぼ飽和して いるものと考えられるが、これに対する ²¹⁰Pb の量を比 べてみると、²¹⁰Pb の量は、ラドンと平衡にあるべき量 の約10倍存在していることが分かった。

ラドンに対するこの過剰な ²¹⁰Pb については, ラドン が気体であるのに対し, ²¹⁰Pb が粒子として大気中に存 在し凝結核として取り込まれるためと考えられる.

文 献

- Blifford, I.H., L.B. Lockhart, Jr. and H.B. Rosenstock, 1952: On the natural radioactivity in the air, J. Geophys. Res., 57, 499-509.
- Burton, W.M. and N.G. Stewart, 1960: Use of long-lived natural radioactivity as an atmospheric tracer, Nature, 186, 584-586.
- Fry, L.M. and K. K. Menon, 1962: Determination of the tropospheric residence time of lead -210, Science, 137, 994-996.
- Gavini, M.B., J.N. Beck and P.K. Kuroda, 1974: Mean residence time of the long-lived radon daughters in the atmosphere, J. Geophys. Res., 79, 4447-4452.
- Israel, H., 1951: Radioactivity of the atmosphere, in Compendium of Meteorology, (ed. T.F. Malone), Amer. Met. Soc., Boston, 155-161.
- Jacobi, W., A. Schraub, K. Aurand and H. Muth, 1959: Uber das Varhalten der Zerfallprodukte des Radons in der Atmosphare, Beitr. Phys. Atmos., 31, 244-257.
- Joshi, L.U., C. Rangarajan and S. Gopalakrishnan, 1969: Measurement of lead-210 in surface air and precipitation, Tellus, 21, 107-112.
- Junge, C.E., 1963: Air Chemistry and Radioactivity, Academic Press, New York., 382pp.
- Kawano, M., 1959: The absolute measurement of the concentration of the radioactive substances in the atmosphere in Tokyo, J. Geomag. Geoelec., 10, 56-63.
- ----, 1961: Size distribution of naturally occurring radioactive dust measured by a cascade

1978年11月

impactor and autoradiography, Geofisica Pura e Applicata, 50, 243-248.

- King, P., L.B. Lockhart. Jr., R.A. Baus, R.I. Patterson, H. Friedman and I. H. Blifford, 1956: RaD, RaE and Po in the atmosphere, Nucleonics, 14, 78-84.
- Kuroda, P.K. and Y. Yokoyama, 1948 a : Radioactivity of rain water, J. Chem. Soc. Japan, 69, 79-85.
- —, and —, 1948 b: On the equilibrium of the radioactive elements in the hydrosphere, Bull. Chem. Soc. Japan, 21, 58-65.
- ----, and ----, 1954: Determination of the shortlived decay products of radon in natural waters, Anal. Chem., 26, 1509-1512.
- Lockhart, Jr., L. B., 1964: Radioactivity of the Rn-222 and Rn-220 series in the air at ground level, in Natural Radiation Environment, (ed. J.A. Adams), Univ. Chicago Press, Chicago, 331-344.
- Miyake Y., K. Saruhashi, Y. Sugimura, T, Kanazawa, Y. Katsuragi and H. Uemura, ²¹⁰Pb and. ²²²Rn contents of Rain water in Tokyo, in Naturel Radietion Environment-II (in Press.).
- Moore, H.E., S.E. Poet and E. A. Martell, 1973: ²²²Rn, ²¹⁰Pb, ²¹⁰Bi and ²¹⁰Po profiles and aerosol residencetimes varsus altitude, J. Geophys, Res., 78, 7065-7075.
 - —, and —, 1972: Tropospheric aerosol residence times indicated by radon and radondaughter concentrations, in Natural Radiation Environment-II, (ed. J.A.S. Adams, W.M. Lowder and T.F. Gesell), proc. 2nd Intnl. Symp. "The Natural Radiation Environment", Houston, National Tech. Inform. Service, Springfield, Virginia, CONF-720805-P1, 775-786.

-, - and , 1977: Vertical profiles of ²²²Rn and its long-lived daughters over the Pacific, Environ. Sci. Tech., 11, 1207–1210.

- Nevissi, A., J.N. Beck and P.K. Kuroda, 1974: Long-lived radon daughters as atmospheric tracers, Health. Phys., 27, 181–188.
- Patterson, R.L. and L.B. Lockhart, Jr., 1964: Geographical distribution of lead-210 in the ground level air, in Natural Radiation Environment, (ed. J.A. Adams), Univ. Chicago Press, Chicago, 383-392.
- Pierson, D.H., R.S. Cambray and G.S. Spicer, 1966: Pb²¹⁰ and Po²¹⁰ in the atmosphere, Tellus, 18, 427-437.
- Poet, S.E., H.E. Moore and E.A. Martell, 1972: Lead-210, Bismuth-210 and Polonium-210 in the atmosphere: Accurate ratio measurement and application to aerosol residence time determinaton, J. Geophys. Res., 77, 6515-6521.
- Rutherford, E., J. Chadwick and C.D. Ellis, 1930: Radiations from Radioactive Substances, pp. 153-158, 560-561, Camridge Univ. Press, Cambridge.
- Tsunogai, S. and K. Fukuda, 1974: Pb-210, Bi-210 and Po-210 in meteoric precipitation and the residence time of tropospheric aerosol, Geochemi. J., 8, 141-152.
- Wilson, C.T. R., 1902: On radioactive rain, Proc. Cambridge Phil. Soc., 11, 428-438.
- Wilkening, M.H., 1952: Natural radioactivity as a tracer in the sorting of aerosols according to mobility, Rev. Sci. Instr., 23, 13-16.
- —, 1959: Daily and annual courses of natural atmospheric radioactivity, J. Geophys. Res., 64, 521-526.

8. 人工放射性物質

葛城幸雄*

8.1. はじめに

著者らは,核実験によって大気中に放出された¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr,²³⁹⁺²⁴⁰Pu,²³⁸Pu,³H,³⁹Sr などの測定を1957年以来 続けてきた.これら測定結果をもとに気象学的な解析を 行ない,多くの事実を明らかにした.一例を挙げれば, 上記核種の地上積算降下量,日本における¹³⁷Cs,⁹⁰Sr 降下 量の地理的分布,太平洋側地域における⁹⁰Sr 降下量の 春の極大,日本海側(秋田で代表される)における冬の 極大,南・北両半球における中緯度地帯への集中的な降 下,成層圏および対流圏における放射性物質の滞留時 間,対流圏内の放射性物質の東西方向への移動の速さな どである.それらの概略を記す.

***天気" 25. 11.**

^{*} Y. Katsuragi, 気象研究所地球化学研究部.



第8.1 図 日本の6地点における⁹⁰Sr 月間降下量 (1970年~1975年).

8.2.⁹⁰Sr 降下量と高層の気象条件

第8.1 図に日本の6地点における最近(1970~1975年) の⁹⁰Sr 降下量の経年変化を示した.この図から次のようなことが分かる.

第一に、これらの6地点の中では、日本海側の秋田で ⁹⁰Sr 降下量が最も高く、大阪で最も低い.

第二に,秋田では冬に⁹⁰Sr 降下量が極大となるが, これに対して太平洋側では春に極大となる.また,札 幌,福岡では冬でも⁹⁰Sr 降下量が比較的多く,そのた め春の極大は明らかではない.

太平洋側(東京, 仙台, 大阪) で ⁹⁰Sr 降下量が春に 極大を示す原因は高層における気象条件によることを明 らかにした(三宅, 1962; Miyake *et al.*, 1960; Miyake, 1962b).

500mb あるいはそれ 以上の高さに気圧の谷が 通り, 同時にジェット流の中心が観測点の真上かやや南に下っ たときの降水中の放射性物質の濃度は,それ以外の条件 の降水の約3倍に増加することが分かった.上述の気象 条件が,高層に存在する放射性物質のより多くを地上に 運ぶ役割を果たしていると思われる。このような高層の 気象条件は日本では春に現われることが多く,極大の主 な原因になっている。

⁹⁰Sr 降下量は,北半球中緯度地帯に集中していること が観測結果から明らかにされている。この原因について も,著者らは春の極大を説明したと同様に高層における 二つの気象条件によって説明できることを明らかにし た.(三宅,1962; Miyake, 1962a). すなわち,この 気象条件は北半球では中緯度地帯で最も起こり易いため である.

8.3. 放射性物質の降下量の地域差

第8.1表は,わが国の6地点における ⁹⁰Sr 積算 降下 量と降水中の ⁹⁰Sr 比放射能を,降水量とともに示す. 秋田は積算降下量についても比較放射能についても最高 で,大阪は最低である.最低値に対する最高値の比率 は,⁹⁰Sr 降下量について 2.7,比放射能において 2.1で あるが,降水量についてわずかに 1.3 である.このこと は,降水量だけでは最高と最低との間の差を説明できな いことを示している.

前述の秋田における ⁹⁰Sr 積算降下量の最大は,秋田 に冬季,比放射能の高い多量の降雪があることが原因で ある.シベリア大陸から流出する冷気団が日本海を吹き わたるとき,下方から暖められて鉛直不安定になり,そ のために鉛直拡散が強められる結果,対流圏上層に貯わ えられた放射性ちりが下層に運ばれ,これが降水ととも に地表にもたらされるためであることが明らかにされ た.なお風向については,とくに北西風のときに,降水 中の ⁹⁰Sr 比放射能の値がその他の風向のときに比べて およそ8倍高いことが確認されている (Miyake *et al.*, 1976).

次に, ⁹⁰Sr 積算降下量や降水中の ⁹⁰Sr 比放射能の値 が,大阪でとくに低い原因は,降水量にあるのでもスプ

			The second se
地点	. ⁹⁰ Sr 積算降下量 (1954~1975年) mCi/km ²	降水量 (1954~1975年) mm	⁹⁰ Sr 比放射能 pCi/l
札幌	92	25,964	3.5
秋田	148	40,032	3.7
仙台	82	26,720	3.1
東京	. 77	32,175	2.4
大阪	55	31,134	1.8
福岡	85	35,770	2.4
			1

第8.1表 日本の6地点における⁹⁰Sr 積算降下量, 降水量および⁹⁰Sr 放射能の比較。

1978年11月

リング・ピークの高さにあるのでもなく,風向にあるこ とが明らかにされた. すなわち,大阪の主風向は,年間 を通じて 北-東北東 である. しかし,風向が 西ないし 北北西のとき,降水中の ⁹⁰Sr の比放射能は,その他の 風向のときに比べ,前述のように高いことが秋田で確か められている.この風向の出現頻度は,秋田で最高で次に 東京,大阪の順に低くなる.これが秋田で比放射能が最高 で,大阪で最低となる原因である(Miyake *et al.*, 1976).

8.4. 大気中の人工放射性物質の滞留時間

中国は,現在まで23回核実験を行なっている. このう ち水爆実験は,1967年6月(第6回),1968年12月(第8 回),1969年9月(第10回),1970年10月(第11回),1973 年6月(第15回),1974年6月(第16回),1976年11月 (第21回)の計7個である.

中国が最初の水爆実験を行なった1967年から,⁹⁰Sr 降 下量は減少を示さず横ばい状態であった(1969~1971 年). 第8.1 図に見られるように,水爆実験が停止される とその翌年から⁹⁰Sr 降下量は1/2以下に減少した(1972 ~1973年). 水爆実験が再開されると翌1974年には再 び⁹⁰Sr 降下量が増加した(葛城,1976). 第6,8,10 お よび第11回の中国核実験によって大気中に放出された放 射性物質は,いずれも地上13~25kmの範囲(極大濃度 18km)に分布している.また,放出時の圏界面高度は10~ 12km の範囲であったので,これらの水爆実験によって 放出された放射性物質の大部分は成層圏に入っている (Telegadas, 1974).

上記の4個の水爆実験によって成層圏に放出された放 射性物質の滞留時間を,東京における⁹⁰Sr 降下量の経 年変化から計算すると,いずれも約1年の値が得られた (三宅・葛城, 1976).

1961年および1962年の核実験によって成層圏に放出さ れた放射性物質の滞留時間については約1.4年の値が得 られている(三宅・葛城, 1970, 1976).

1961年,1962年核実験と中国水爆実験との間に若干の 滞留時間の差が認められる.この大きな原因は,核爆発 規模による大気中の放射性物質の鉛直分布の相違による ものであろう.

次に、中国の原爆実験(数十~数百 KT)について見ると以下のようになる。

数十KT 級(第13回) および数百KT 級(第3,14回) の核実験によって対流圏に放出された放射性物質につい て滞留時間を求めた結果,数十KT 級では約20日,数 百KT 級では70~80日の値が得られた.このことは,比 較的小型の原爆実験では放射性物質の大部分が対流圏下 部に,大型原爆実験では対流圏上部に放出されることを 示している.

8.5. 東京におけるその他の核種の降下量

第8.1表で示したように,東京における⁹⁰Sr 積算降 下量は 77mCi/km² である.これに対して,¹³⁷Cs 積算 降下量は 199mCi/km² で⁹⁰Sr の約2.6倍である.

1958年以来,著者らは ²³⁹Pu (²⁴⁰Pu を含む) および ²³⁸Pu 降下量の測定を行なってきた. これらの二つのプ ルトニウム同位体は,ともに核爆発の際に生じた中性子 と爆弾の原料物質との核反応によって生成される.²³⁹Pu は ⁹⁰Sr の約 1.6%, ²³⁸Pu は ²³⁹Pu の約 3% 作られる.

現在までの²³⁹Pu 積算降下量は 1.2mCi/km² である. ²³⁸Pu の積算降下量は1966年末までで41µCi/km² (²³⁹Pu の約3%)あった.その後,1967年から²³⁸Pu/²³⁹Pu 比 は急増した.この²³⁸Pu の増加は,1964年春にインド洋 上空で SNAP-9 A衛星が軌道に乗り損ねて 爆発したこ とが原因である. SNAP-9 A衛星には,電源用として ²³⁹Pu が17kCi 積み込まれていた.SNAP-9 A衛星起源 の²³⁸Pu は,東京では約3年後に降下し始めたことにな る.現在までの²³⁸Pu 積算降下量は54µCi/km² である.

1963年以来,東京における降水中の 3 H 濃度の測定を 行なってきた.大気中では宇宙線によって,また最近で は水爆実験によって 3 H が生成されるが,最近の降水中 の 3 H のほとんどすべては核実験に起因している.

1961~1962年のソ連およびアメリカの核実験に起因す る³H 降下量は10,000mCi/km² で,⁹⁰Sr 降下量の約300 倍である.また,³H 降下量の経年変化から,成層圏に おける³H の滞留時間を計算すると約2年となった.

文献

- **葛城幸雄, 1976:**日本における放射性降下物,天 気, 23, 333-345.
- Miyake, Y., K. Saruhashi, Y. Katsuragi and T. Kanazawa, 1960: Radioactive fallout in Japan and its bearing meteorological. condition, Pap. Met. Geophys., 2, 151.
- 三宅泰雄, 1962: フォールアウトの気象学的側面, 天気, 9, 1.

....,,, 1962 a: The peak in radioactive fallout in the temperate zone of the northern hemisphere, J. Rad, Res., 3, 148-152.

.....,,, 1962 b: Seasonal variation of radioactive fallout, J. Geophys. Res., 67, 189-193. 三宅泰雄, 葛城幸雄, 1970: 最近の日本における放 射性塵の降下, 天気, 17, 593-598.

- ---, ----, 1974: 最近の ⁹⁰Sr 降下物の起源,天 気, 21, 639-644.
- ---, ---1974:中国核実験による対流圏降下物の 滞留時間,日本気象学会秋季大会講演予稿集.
- ---, ----1976:中国水爆実験による成層圏降下物 の滞留時間,日本気象学会秋季大会講演予稿集.
- Miyake, Y., T. Kanazawa, K. Saruhashi and Y. Katsuragi, 1976: A meteorological study on

the local chages in radioactive fallout, Pap. Met. Geophsy., 27, 90-98.

- ----, Y. Katsuragi and Y. Sugimura, 1975: Plutonium fallout in Tokyo, Pap. Met. Geophys., 1-8.
- Telegadas, K., 1974: Radioactivity distribution in the stratosphere from Chinese and French high yield nuclear test (1967-1970), USAEC, HASL-281.

気象研究ノート既刊号リスト

第116号(1973年11月)	大気汚染気象特集
ライダ(レーザレーダ)と気象観測	大気境界層の拡散に関する構造横山 長之
第119号(1974年6月)	大気中のガスや粒子状物質の変遷大喜多敏一
都市・建築と気象	光化学大気汚染に関するシンポジウム
第121号(1974年6月)	・光化学大気汚染中の反応のモデル化と
雲物理特集 I ――氷の物性――	その素反応論的基礎秋元 肇
第 122 号 (1974年11月)	・大気汚染物質の分布と気象条件との
雲物理特集 Ⅱ ───雲核・氷晶核───	関係福岡 三郎
第 123 号(1974年12月)	・光化学大気汚染のモデリングと
雲物理特集 Ⅲ 一雲結晶・あられ・ひょうの生成一	シミュレーション木村富士男
第124号(1975年8月)	• 討 論
流れの可視化法	(付録)大気汚染気象用語集河村 武
追 補 境界層と乱流	第 128 号 (1976年 3 月)
第125号(1975年10月)	最近の気象学と気象事業の展望
海陸風と山越え気流	──気象庁創立百年を記念して──
第 126 号 (1975年11月)	第 129 号 (1976年 9 月)
大気中の内部重力波	台風特集
Ⅰ. 内部重力波の理論田中 浩	第1章 台風の構造と発達の力学山岬 正紀
Ⅱ. 超高層の大気波動	第2章 熱帯低気圧の発生と台風観測
第 127 号 (1975年12月)	井沢 龍夫・門脇俊一郎

1978年11月