

大気汚染物質の長距離輸送, 変質および除去過程*

鶴田 治雄**

1. はじめに

1981年の2月から3月にかけて, 約1ヶ月半北米及び欧州を訪問して, 大気汚染物質の長距離輸送, 変質及び除去過程とバックグラウンド大気中での光化学反応過程に関する調査研究に接して議論する機会を得た。本稿では, 現在, 世界中で問題となっている硫黄酸化物及び窒素酸化物等の長距離輸送と酸性降水現象, 窒素酸化物と炭化水素から生成される光化学オゾンの長距離輸送現象に関する海外での調査研究の現状の概要を紹介し, 最後に日本でのとりくみに関して筆者の考えを若干述べてみたい。

主な訪問先は, 米国立大気研究所 (NCAR, National Center for Atmospheric Research), 米環境保護庁 (EPA) の環境科学研究所 (ESRL, Environmental Sciences and Research Laboratory), ノルウェーの国立大気研究所 (NILU, National Institute for Air Research), オランダの国立環境衛生研究所 (TNO, Research Institute for Environmental Hygiene), 西独のブッパータル大学 (Wuppertal University), マックスプランク研究所 (Max-Planck Institute) 等である。

なお, 期間中の2月24日から2月27日までは, 第6回日米大気汚染気象委員会がノースカロライナ州で開かれ, 日本側の代表として, 気象研究所の村山信彦氏と原田朗氏及び筆者の3人が出席した。その会議の概要については, 既に気象庁から報告書が出されている(気象庁, 1981)。

2. 大気汚染現象のスケール

大気中に排出された汚染物質は, 輸送されながらその

大部分の物質は変質して, 雲粒にとりこまれたり地表面に沈着したりして大気中から除去される。生物, 土壌, 水質及び人体等に対する影響は, 除去過程で発生する。汚染物質の大気中での輸送, 変質, 除去過程という動態を調査研究する場合に重要な視点は, 発生源の規模・強度, 汚染物質の化学・物理的性質, 及び気象現象を考慮した汚染現象の空間, 時間スケールである。そこで汚染現象のスケールを5段階にまとめて, 第1表に示した。この中で特に注目すべきことは, 後述するように, 都市域及び高煙突化に伴う火力発電所等の単一発生源からの汚染物質の数百 km 以上にも及ぶ長距離輸送現象である。

日本における大気汚染現象の特徴の第1は, 幹線道路周辺での窒素酸化物やエアロゾルの高濃度現象であり, 第2は, 臨海部に都市及び工業地帯が存在する地域での局地風系に伴う小・中規模の汚染現象である。後者の代表としては光化学大気汚染があげられる。この典型的な地域の1つは南関東地域であり, 周囲を山塊に囲まれているので, 汚染分布は閉鎖構造を示している。

第1表 大気汚染現象のスケール。

スケール (水平距離)	現象
地球規模 (グローバル) $\geq 10^4$ km	ハロカーボンによる成層圏オゾン層の破壊, CO_2 等による気候変動
大規模 (リージョナル) $10^2 \sim 10^3$ km	酸性降水— SO_x , NO_x の長距離輸送, 光化学 O_3 の長距離輸送
中規模 (メソ) $10 \sim 10^2$ km	局地風系による広域大気汚染 光化学大気汚染 都市汚染
小規模 (ローカル) $1 \sim 10$ km	都市汚染 工業地帯近傍の高濃度汚染
局地 (マイクロ) 1 km \geq	幹線道路 付近の高濃度汚 交差点 染

* Long range transport, transformation and removal processes of atmospheric pollutants.

** Haruo Tsuruta, 横浜市公害研究所。

筆者はこれまで、南関東地域から伊豆諸島にかけての海域で、海陸風循環等の局地風系に伴う大気汚染物質の輸送及び変質過程に関する調査研究を行ってきた(鶴田, 1980 a)。また、対流圏バックグラウンド大気中の光化学反応に関する理論研究をも同時に行ってきた(鶴田, 1980 b)。広域化する汚染現象の解明に際しては、バックグラウンド大気中の光化学反応過程の研究も必要不可欠だからである。日本では、その地形の特殊性や周囲が海であることから、汚染物質の長距離輸送の実態を把握しにくいのではないかと、決してそうではない。筆者らの調査によれば、東京湾岸地域の都市や工業地帯からの汚染物質が、少なくとも風下側100~150 kmの海上にまで、高濃度の窒素酸化物(NO_x)あるいは光化学オゾン(O_3)を含む汚染気塊として、輸送されることが明らかになっている(鶴田, 1980 a)。また、東京湾岸地域の汚染物質中で生成された高濃度の光化学 O_3 を含む汚染気塊は、150 km北方の栃木県北部まで輸送される場合もあり(栃木県, 1974)、さらには福島県、長野県あるいは山梨県方面へも長距離輸送されている可能性がある。なお、ここでは、都市域の汚染大気中で光化学反応により生成される O_3 を、便宜上“光化学 O_3 ”

と呼んで、バックグラウンド大気中の O_3 (natural ozone)と区別している。対流圏のバックグラウンド大気中に20~40 ppb存在する O_3 の大部分は成層圏から輸送されたものであるが、一部は光化学反応により CH_4 の酸化過程で生成されている。

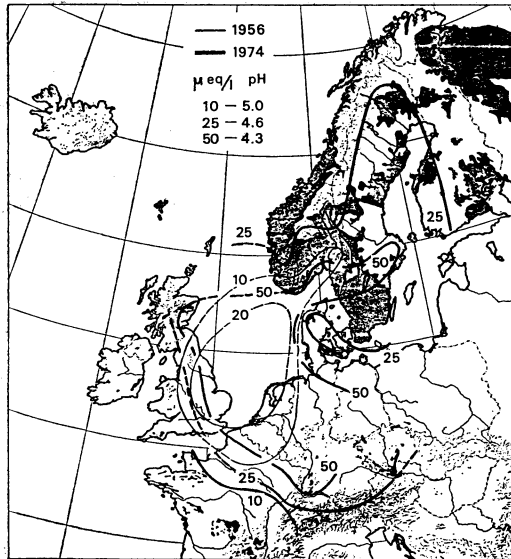
さらに、その寿命が年のオーダーであるハロカーボン、 CH_4 、 CO 、 CO_2 等による地球規模での大気汚染については、すでに小川(1977)が詳しく述べているので、本稿では、第1表の大規模な汚染現象を中心にして述べる。

3. 降水の酸性化

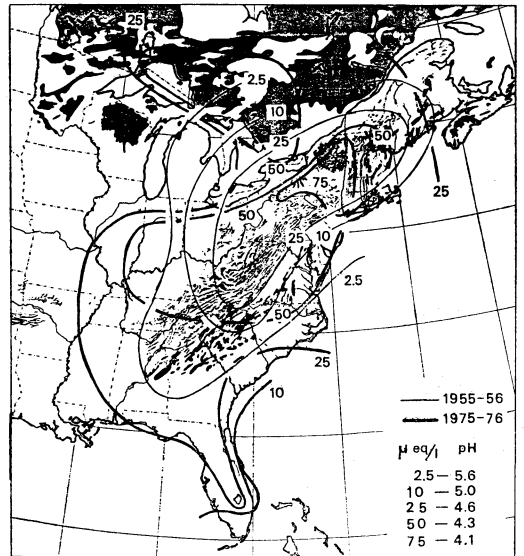
欧州北西部及び北米東部では、1950年代から、降水の酸性化と、それによると推測される生態系の被害が、観察され始めている。

雨や雪のpHは、大気中に330 ppm以上存在する CO_2 がその中に溶解しているために、通常はわずかながら酸性となっており、平衡状態の時のpHの値は5.6である。そこで、pHが5.6より低い雨や雪を、酸性降水と定義している。

第1図に、欧州北西部及び北米東部での、1950年代と



第1図 (a)



第1図 (b)

第1図 降水中の水素イオン濃度(単位: $\mu\text{eq/l}$)の約20年間における変化と、酸性降水に敏感な地質の地域(黒色の部分)。

(a) 欧州北西部(1956年と1974年)

(b) 北米東部(1955~56年と1975~76年)

なお図中に水素イオン濃度とpHとの関係を示した(Likens et al., 1979)。

1970年代における降水の水素イオン(H^+)濃度と、酸性降水に敏感な地質の地域を示した。過去20年の間に、降水の酸性化が広域に及んでいることが第1図から明らかである。特にスカンジナビア半島南部では、約20年間にpHが5から4.3に低下している。この地域では、半島の中央に位置する山岳地帯のために降水量も多く、地質も酸性降水に対して敏感であるという悪条件が重なっており、特に生態系への影響が著しい。また、カナダ南東部及び米国北東部でも、過去20年の間にpHは低くなっており、著しい地域では5.6から4.3へ、あるいは4.6から4.1へと低下している。

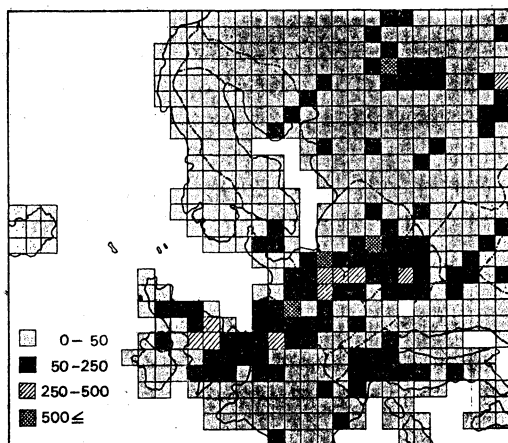
これらの地域の土壌は、カルシウム(Ca)分および微生物が少なく、酸性の腐植が含まれたポドゾル(Podzol)土壌が多い。さらに、その土壌の下に存在する基岩(bedrock)は、花崗岩、珪岩及び石英砂岩等で構成されている。これらの土壌及び基岩は、酸性降水に対しては、緩衝能力が小さいために非常に敏感にその影響を受けるので、その地域の土壌、植物、湖での生態系のバランスを崩すことになる。

日本での酸性降水現象については、1973、1974年の梅雨の季節の降雨時に、眼や皮膚への刺激等の人体被害が、関東及び東海地域で連続して発生し、社会問題となった。その後、関東地域の一都六県及び環境庁等が協力して、梅雨の季節に、降水のpHや化学成分、上空でのエアロゾルの測定等を約5年間実施し、その結果については詳細な報告書が出されている(環境庁, 1981: 大喜多・太田, 1980)。この調査で、南関東地域の梅雨の季節の降水時の初期のpHは3.5~4.5と低い値であることが明らかになった。一方、WMOが全世界に設置している測定網の日本の観測地点である岩手県綾里でのpHは、1976~1980年の平均値で約5であった(気象庁, 1976~1980)。

なお、酸性降水に関しては、Likensら(1979)、古明地(1980)、関(1981)がすでに一般的な紹介をしているので、参照していただきたい。

4. OECDによる汚染物質の長距離輸送プロジェクト(LRTAP)

1947年にスウェーデンで、降水の化学成分を分析するための初めての測定網が設置された。その後、1950年代になって、この測定網は欧州各国に拡がり、約100ヶ所からなるEACN(European Air Chemistry Network)という測定網が、ストックホルム大学の気象研究室をコー



第2図 1973年における欧州でのSO₂排出量分布(単位: kton・S/year). 1メッシュは60°Nで127×127 kmである(OECD, 1979).

ディネイターとして発足した。その後、降水が次第に酸性化していること、降水中のpHの低下とSO₄²⁻濃度の増加との間に強い相関があることが明らかになった。それ故、降水の酸性化は、化石燃料の燃焼による硫酸化物や窒素酸化物等の大気汚染物質が、長距離輸送される過程でH₂SO₄やHNO₃等へ酸化されて、最終的に降水の中にとりこまれることが主な原因であると推測されるようになった。

1972年に、OECD(Organization for Economic Cooperation and Development)の中にLRTAP(Long Range Transport of Air Pollution)というプロジェクトが発足し、欧州の11ヶ国が参加し、ノルウェーの国立大気研究所がコーディネイターとなった。このプロジェクトでは、硫酸化物の長距離輸送を解明するために、ガス、エアロゾル及び降水の測定(及び飛行機を用いた上空での特別観測)、データ解析、モデリング等の調査研究が、1977年まで継続された(OECD, 1979)。

欧州におけるSO₂の排出量分布を第2図に示す。1メッシュは60°Nで127 km×127 km(関東地域と同じくらいの大きさ)である。第2図によれば、排出量の特によく多い地域は、英国中央部、西独のルール地方、東独、ポーランド南部、チェコスロバキアに集中している。LRTAPにおける地上での測定網は、76ヶ所であり、スカンジナビア半島(特にノルウェー)やスイスに多く設置された。各地点で共通して毎日分析された項目は、大気中のSO₂とエアロゾル中のSO₄²⁻、降水中のpHとSO₄²⁻である。ノルウェー等の数地点では、さらに、

NO₃⁻, NH₄⁺ 及び Ca²⁺, Na⁺, Cl⁻, Mg²⁺, K⁺ 等の陽イオン及び陰イオンも分析された。大気の採取と分析は、各国で独立に行なわれたので、データの信頼度及び互換性を得るために、ノルウェーが中心となって標準試料を各国に配布してクロスチェックを行なった。また、SO₄²⁻ については、海岸に近い所では海塩粒子による自然界からの寄与が大きいので、その寄与量を差し引いてデータを補正した。

エアロゾル中の SO₄²⁻ は大気中で2次的に生成されたものなので、大気中の SO₄²⁻ と SO₂ の濃度比は、その大気中の硫黄化合物が排出されてからの経過時間の指標となり得る。大発生源地帯の存在するイギリスや西独では、その濃度比は約 0.1~0.2 であるのに対して、ノルウェーやスウェーデンでは 0.4~0.7 と大きく、汚染物質が長距離輸送されていることを強く示唆していた。降水中の NO₃⁻ 濃度は、ノルウェーやフィンランドでは SO₄²⁻ 濃度の 0.25~0.5 倍であったが、スイスでは SO₄²⁻ 濃度と等しかった。

各国で行なわれた飛行機観測によれば、硫黄化合物は垂直方向にはたかだか 2 km まで運ばれており、また大発生源地帯からの煙流(プルーム)は、気象条件によっては、風下側数百 km まで存在していた。風が弱く混合

層高度の低いよんだ気象条件の時には、広範な地域で汚染物質濃度が高くなった。一方、ノルウェーの南部の限られた地域では、しばしば低気圧の影響で強い南寄りの風により湿って汚染された大気が山岳地帯へ吹きつけられるために、降水中の SO₄²⁻ 濃度が非常に高くなるのが観測されている。例えば、1974年1月5日から13日までの9日間に、降水中の SO₄²⁻ 沈着量は 300 mg・S/m² となり、欧州の大発生源地帯の1メッシュでの排出量に匹敵するものであった。

次に、LRTAP で用いられた長距離輸送に関するモデル (trajectory model) では、大気中の SO₂ 濃度 (q), エアロゾル中の SO₄²⁻ 濃度 (s) を、次の式で求めている。

$$\frac{Dq}{Dt} = -kq + (1 - \alpha - \beta) \frac{Q}{h}$$

$$\frac{Ds}{Dt} = -\epsilon s + \frac{3}{2} \left(k_1 q + \beta \frac{Q}{h} \right)$$

k : SO₂ の減衰速度 $\begin{cases} 4 \times 10^{-5} \text{ s}^{-1} \text{ (rain)} \\ 1 \times 10^{-5} \text{ s}^{-1} \text{ (dry)} \end{cases}$
(変質及び沈着を含む)

ε : エアロゾル中の SO₄²⁻ 濃度の減衰速度 $4 \times 10^{-6} \text{ s}^{-1}$

k₁ : SO₂ から SO₄²⁻ への変質速度 $3.5 \times 10^{-6} \text{ s}^{-1}$

α : 或るメッシュ内で排出された SO₂ が

第2表 1976年における欧州各国の硫黄化合物の排出量と乾燥及び降水による沈着量の計算値 (OECD, 1979)。合計は概算値である。(単位: kton・S/year)

リセプター \ 発生源 (ソース)	オーストリア	ベルギー	デンマーク	西独	フィンランド	フランス	オランダ	ノルウェー	スウェーデン	スイス	英国	チェコスロバ	東独	イタリア	ポーランド	その他	不特定	合計
オーストリア	70	6	1	50	0	20	3	0	0	4	10	40	40	30	15	20	40	350
ベルギー	0	100	0	20	0	20	7	0	0	0	20	1	5	0	0	0	8	200
デンマーク	0	1	60	8	0	3	1	1	2	0	10	3	15	0	4	1	10	120
西独	9	50	8	800	0	8	30	0	2	5	90	30	150	7	15	9	70	1,300
フィンランド	0	1	4	6	100	1	1	1	20	0	6	6	15	0	15	60	50	300
フランス	3	50	1	90	0	700	15	0	0	10	150	9	30	60	3	30	190	1,300
オランダ	0	10	1	20	0	10	60	0	0	0	20	1	6	0	1	0	8	150
ノルウェー	1	7	10	20	1	10	5	30	10	0	50	6	36	0	8	5	90	300
スウェーデン	1	5	30	30	10	9	4	7	150	0	30	15	60	1	20	30	100	500
スイス	2	4	0	15	0	20	1	0	0	30	5	3	6	9	1	1	20	120
英国	0	15	1	20	0	40	7	0	0	0	900	2	10	0	2	2	100	1,100
その他*	70	90	100	400	60	300	60	10	80	15	900	900	1,500	1,000	4,800	2,000	13,000	
合計	150	300	200	1,500	150	1,200	200	50	300	60	2,000	1,000	1,800	1,100	1,200	5,000	2,800	19,000

* チェコスロバキア, 東独, イタリア, ポーランド及びその他の地域をひとつにまとめたもの。

同一メッシュ内に沈着する割合	0.15
β : 発生源から直接 SO_4^{2-} として 排出される割合	0.05
h : 混合層高度	1,000 m
Q : 単位面積及び単位時間あたりの SO_2 排出量	
$\frac{3}{2}$: SO_4 と SO_2 の分子量の比	

このモデルでは, 850 mb での流跡線を 48 時間前まで求め, ラグランジュ的な計算手法で各メッシュでの濃度を計算する。さらに, SO_2 及びエアロゾル中の SO_4^{2-} の乾燥沈着速度を各 0.8 cm/s, 0.2 cm/s として, 1 年間の乾燥沈着量 (dry deposition) を最終的に求めている。一方, 降水による SO_4^{2-} の沈着 (wet deposition) に関しては, 降水中の SO_4^{2-} 濃度の実測値が計算で求めた大気中のエアロゾル中の SO_4^{2-} 濃度に比例することを利用して, 間接的に求めている。

計算は, 1974年から1976年までの3年間にわたって行なわれた。第2表は, 1976年における, 或る国で排出された硫黄化合物が, 他国の全硫黄化合物沈着量 (乾燥沈着及び降水による沈着) へどの程度寄与しているかを計算で求めたものである。この推定によれば, ノルウェー, スウェーデン及びフィンランドでは自国の沈着量のそれぞれ約90%, 70%及び70%が他国からの寄与であるのに対して, イギリス, 西独では, 逆に, それぞれ80%, 60%が自国からの寄与となっており, 北欧への硫黄化合物の長距離輸送が, 計算からもはっきりと示されている。

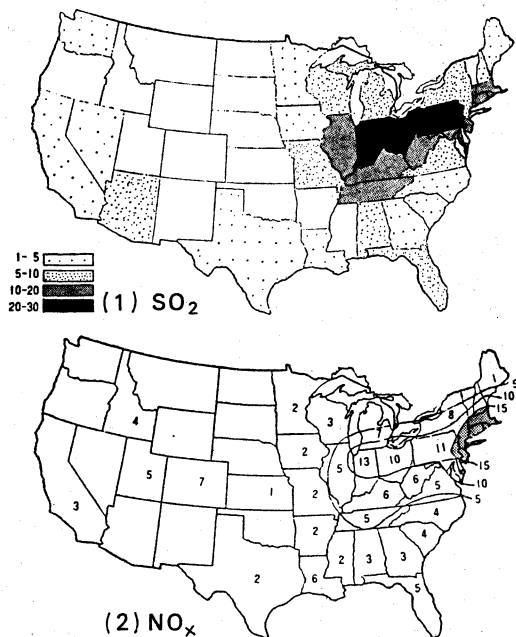
LRTAP によって得られた長期にわたる多大な成果は, 現在, 全欧州を含んだ形で発展しつつある。1977年10月に, ソ連や東欧諸国を含む約16ヶ国が参加して, EMEP (European Monitoring and Evaluation Programme) という計画が, 化学的なコーディネイティングセンター (CCC) にノルウェー国立大気研究所がなって, 開始された。この目的は, 全欧州を対象とした長距離輸送現象の解明である。発生源分布は, 1メッシュを 150 km×150 km にとって 39×37 メッシュで, 1978年の SO_2 の排出量を基礎にしている。EMEP の測定網は, 16ヶ国約60ヶ所であり, 測定項目は, 大気中の SO_2 とエアロゾル中の SO_4^{2-} , 降水中の pH, SO_4^{2-} , NO_3^- , NH_4^+ を中心としており, 24時間連続採取して, 毎日分析を行なっている。採取および分析は各国が独自に行なっているので, データの信頼度及び互換性を得るために, CCC が中心となって, 標準サンプルにより空間精度 (interlaboratory test) の検討を行なっている。データの解

析は現在始まったばかりであるが, 850 mb での 96 時間前までの流跡線を用いたセクター解析によれば, LRTAP と同様に欧州北部の地域での最高濃度の出現は, 南部からの長距離輸送現象が主原因であった。東欧及びソ連の排出量分布と硫黄化合物の環境濃度のデータをとり入れたことにより, 今後の解析で全欧州での長距離輸送現象が, さらに詳細に具体的に解明されていくであろう (EMEP/CCC, 1980)。

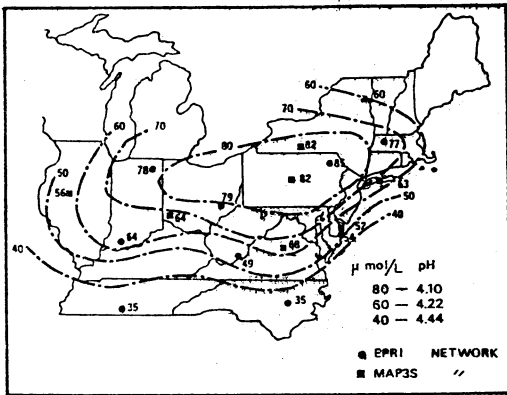
なお, 1979年, 国連の欧州経済委員会 (ECE) で, 欧州, ソ連, 米国及びカナダ等が参加して「国境を越える広域大気汚染に関する国際協定」が結ばれた。この協定により, EMEP は一段と進展するものと思われる。

5. 米国・カナダ間の越境大気汚染

第3図は, 1973年における米国での SO_2 及び NO_x の排出量分布である。米国では, SO_2 と NO_x の排出量は東部に集中しており, 排出量の最も多い地域は, SO_2 はオハイオ川沿いの地域, NO_x は同地域と北東部の沿岸地帯の都市域である。特に, 高さ 200 m から 300 m にも達する火力発電所の高煙突のブルームは, SO_2 , NO_x の長距離輸送に大きく寄与している。カナダ東部の SO_2



第3図 1973年における米国での (1) SO_2 , (2) NO_x の排出量分布 (単位: $g/m^2 \cdot year$) (USEPA, 1976).



第4図 米国での1978年8月から1979年6月までの期間における水素イオン濃度(単位: $\mu\text{mol/L}$)の平均値 (Miller, 1980). なお, 水素イオン濃度と pH との関係を図中に示した.

の排出量は米国東部での1~2割であり, カナダでは自国で排出される汚染物質だけでなく, 米国東部から越境して輸送されてくると推測される汚染物質の影響にも悩まされている.

米国及びカナダでの酸性降水に対する本格的な取り組みは, 1970年代に入ってからである. カナダでは, 降水の化学成分を測定するために, WMOの測定網とあわせて約50ヶ所の CANSAP (Canadian Network for Sampling Precipitation) が1977年に設置され, 測定を開始しており, また, エアロゾルの測定も行なわれつつある. なお WMO では, 国連環境計画 (UNEP) の協力で, 世界中に100地点以上のバックグラウンド大気の測定網を設置しており, 降水の化学成分も測定されており, 最近そのデータが公開されつつある.

米国では, 1970年に始まった NOAA/EPA の測定網だけでなく, 現在エネルギー省が MAP3S (Multi-state Atmospheric Power Production Pollution Study) を確立させ, この調査研究には, 降水の採取, 分析及び解析が含まれている. さらに, NADP (National Atmospheric Deposition Program), EPRI (Electric Power Research Institute) Network があり, 測定網は飛躍的に充実しつつある (MacCracken, 1978; Perhac, 1978; Miller, 1980). これらによる最近の H^+ 濃度の米国東部での分布の一例を, 第4図に示した. 米国北東部のほぼ全域で pH が4.5以下であることに注目したい.

次に, 降水中の SO_4^{2-} と NO_3^- の濃度比は, 米国東部では2:1であるが, 西部海岸地帯では1:2と NO_x

の影響を強く受けており, 発生源形態の違いを明瞭に示している (Liljestrand and Morgan, 1978).

しかし, 東部においても NO_x の影響は次第に大きくなっている. Galloway and Likens (1981)は1964年から1979年までの15年間, ニューハンプシャー州の地域 (Hubbard Brook Experimental Forest) で長期的に測定された SO_4^{2-} , NO_3^- , H^+ 等のデータを解析して, NO_x の影響の重要性を指摘している. 即ち, この15年間に, 降水の H^+ 濃度に対する H_2SO_4 の寄与は30%も減少し, 一方 HNO_3 は, 50%も増加してきた, と述べている.

これらの実測値に対応する長距離輸送のモデルは, 米国及びカナダで, 欧州でのモデルを基礎にして, 開発されつつある. 特に混合層高度の季節や時間帯による変化, SO_2 から SO_4^{2-} への変質速度, SO_2 の乾燥沈着速度等の値は, 米国で大規模に行なわれた調査結果を利用している. これらのモデルによる地上への硫黄化合物の沈着量の計算結果は, ほぼ同じ値を示している. 即ち米国東部, カナダ東部での SO_2 の排出量を各12~14 $\text{Tg}\cdot\text{S}/\text{year}$, 2 $\text{Tg}\cdot\text{S}/\text{year}$ とすると, 米国東部で排出された硫黄化合物は, その約75%が自地域へ沈着し, 25%は越境してカナダ東部で沈着している. 一方, カナダ東部での沈着に対する寄与率は, 米国東部及び自地域からほぼ等しく50%である. 現在, 両国では欧州と同様なメッシュを用いて, 輸送マトリックス (transfer matrix) の作成を当面の目標としている. これは, 次の様な式で表わされる.

$$D_j = f_{ij} Q_i$$

D_j : j 番目のレセプターでの沈着量或いは濃度

Q_i : i 番目の発生源での排出強度

f_{ij} : D_j と Q_i との関係を表現するマトリックス

将来は, これを用いて Q_i での排出量の減少による D_j の減少量を推定しようと計画している (U.S./Canada RCG, 1979; U.S./Canada WG 2, 1980).

このような越境大気汚染に関しては, 欧州と同様に2国間の協力体制が不可欠である. 1978年10月, 米国とカナダは, 大気汚染物質の長距離輸送に関する共同研究グループを設置して, 情報の交換及び調査を行なってきた (U.S./Canada RCG, 1979; 1980). そして, 1980年の8月5日に, 2国間で越境汚染に関する覚え書き (Memorandum of intent on transboundary air pollution) がかわされ, 次の5つの作業委員会が設置された.

1. 環境影響に関するアセスメント
2. 大気中でのモデリング (調査, モデリング, モニ

タリング)

3A. 実施戦略の開発と遂行

3B. 排出, 費用と技術に関するアセスメント

4. 法律や制度上の協定

この委員会では, 欧州及び北米でのこれまでのデータ, 論文等の情報を集約し, レビューを行ない, 今後さらに焦点をしばって解析し, 将来の具体的指針を作製することが目的である. 1981年1月には第1期の活動の中間報告が各作業委員会から提出されており, 1982年1月には最終報告書を作成し, その後は, 技術的な方向に移行するというスケジュールである.

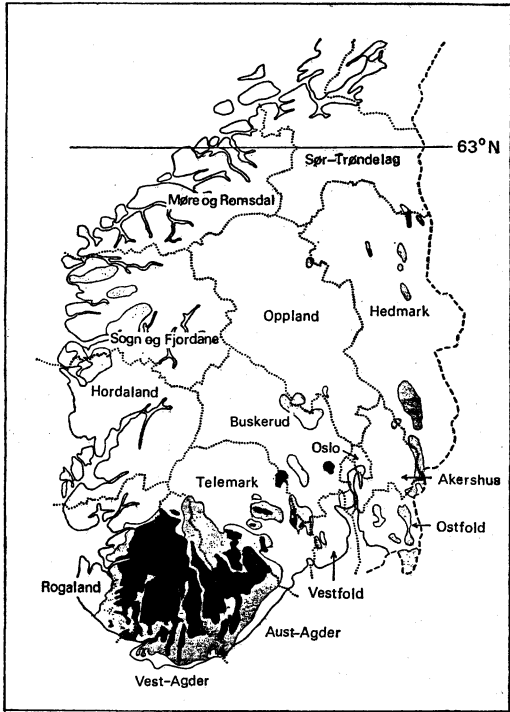
6. 酸性降水による生態系への影響

酸性降水による生態系への影響については, 河川(及

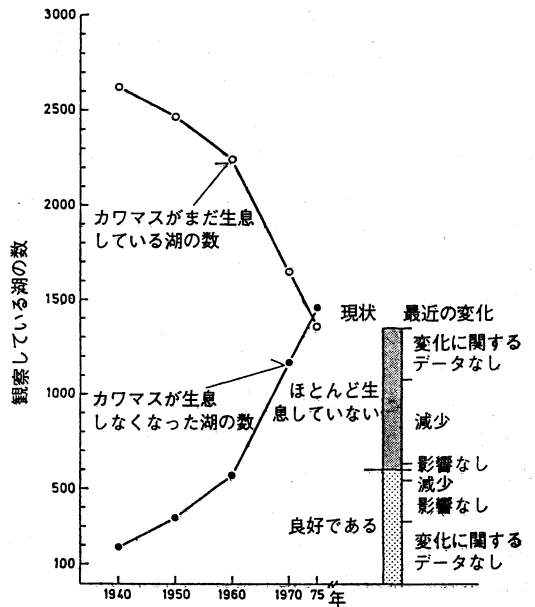
び水圏の生態系), 土壌, 森林, 農作物, 人類による建造物等へ広範囲に及んでいる. 欧州では, 最も深刻な被害を受けているノルウェー, スウェーデン等が中心になって調査研究が大規模に行なわれている. 一方, カナダや米国でも, 1970年以降, 影響調査研究が精力的に行なわれている. 1980年には, 酸性降水の生態系への影響に関する第3回目の国際シンポジウムが, ノルウェーで開催された.

ノルウェーは, 酸性降水の影響が最も著しい地域であり, 水質, 森林, 土壌, 生物, 大気等の多くの研究機関が参加して学際的な調査研究プロジェクト——「酸性降水とその森林及び魚への影響」(Acid precipitation-effects on forest and fish, SNSF-projects)が, 1972年から1980年まで実施された.

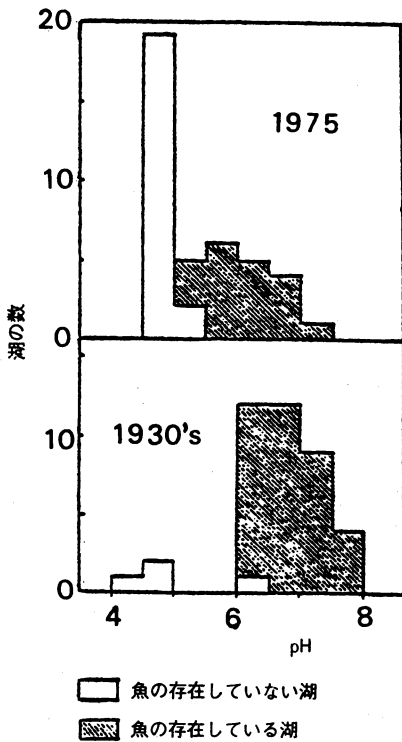
ノルウェー南部は, 前述したように悪条件が重なっているために被害が特に著しい地域である. 第5図は, ノルウェー南部で1974年から1979年まで約5,000の湖を調査して得られた, 魚の生息状態が影響を受けている地域を示している. その面積は, ベルギーよりも広い33,000 km²にも及んでおり, そのうちの13,000 km²の地域では実質的に魚はすでに生息せず, 残りの地域に存在する湖では, 現在魚の生息数が減少中であつた. また, pH



第5図 酸性降水により魚の生息状態が影響を受けたノルウェー南部の湖の広域分布 (Muniz and Leivestad, 1980). 黒色域は湖の魚がほぼ絶滅している地域, 灰色域は湖の魚が減少中の地域を示す. この分布図は, 1974年から1979年まで地方の漁業局や土地所有者に行なったインタビューを基礎としており, 同時に湖での直接調査も実施された (Sevaldrud et al., 1980).



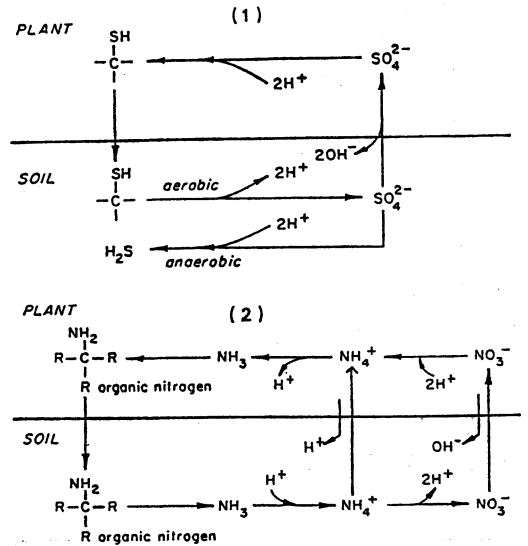
第6図 ノルウェー最南部の4地域での酸性降水の影響を受けている約3,000の湖におけるカワマス (brown trout) の生息状態の経年変化 (Muniz and Leivestad, 1980).



第7図 米国北東部のアディロンダック山地の非常に高い所に存在する湖での、1930年代と1975年の再調査により得られたpHと魚の生息状況のひん度分布 (Schofield, 1976).

の低い湖ほど、高い所に位置する湖ほど、また面積の小さい湖ほど、魚の生息していない湖の割合が多かった。第6図は、カワマス (brown trout) の生息している湖の数の経年変化を示したものである。1960年代からその減少は急激となり、このままの状態で行くと、1990年には、全体の80%が失われていくと推定されている (Sevaldrud et al., 1980).

欧州と同様に、酸性降水による被害は、北米大陸の東部でも著しい。米国北東部のアディロンダック山地 (Adirondacks) は、酸性降水に対して最も敏感な地域の1つである。1975年に行なった214の湖での調査によれば、その52%の湖はpHが5より低く、これらの酸性化した湖の90%は魚がすでに生息していなかった。しかし1929年から1937年にかけてこれらの地域の高所に存在する40の湖で行なった調査によれば、pHが5以下の湖はわずか4%で、その湖では魚は生息していなかった。第7図は、これらの湖での40年間における酸性化を示して

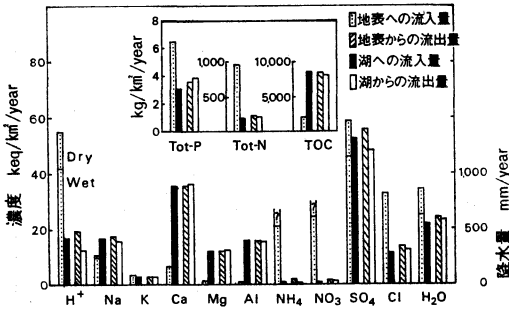


第8図 植物及び土壌での化学変化による単純化した(1)硫黄、(2)窒素の循環 (Reuss, 1976).

いる (Schofield, 1976). また、カナダのオンタリオ地域でも1950年代から湖での魚が次第になくなっていることが報告されている (Beamish and Harvey, 1972).

酸性降水により、土壌や水中に供給される H^+ 、 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 NH_4^+ 等のイオンは、そこでどのような化学的あるいは生物との反応を受けるだろうか？ これらについては非常に複雑な反応系であり、現在そのモデル化が行なわれつつある。 H^+ は土壌中でも生成される。 NO_3^- は第8図に示すように、植物によりすぐに吸収され、 OH^- を放出するが、この OH^- は、土壌中のpHを増加させるか、酸性物質の H^+ を中和させる。 NH_4^+ は、主に $(NH_4)_2SO_4$ として土壌に供給され、植物にとりこまれる過程で H^+ を放出する。硫黄も窒素と同じように植物にとって必要不可欠な栄養物であるが、他の植物の分解等により充分供給されている。このため、 SO_4^{2-} の大部分は、 NO_3^- と異なって、土壌あるいは植物に保持されずに流出していく。それ故、地表面水の酸性化を防ぐには、 NO_3^- よりも SO_4^{2-} の沈着を規制していく方がより効果的であろう、と米国・カナダの作業委員会では報告している (U.S./Canada WG1, 1981).

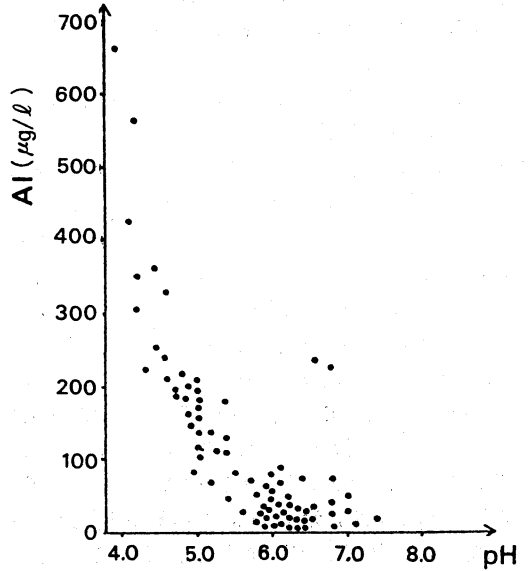
次に、土壌及び湖水中での陽イオンと陰イオンの物質収支は、どのようになっているのであろうか？ 第9図は、ノルウェー南部の Langtjern での土壌及び湖 (pH



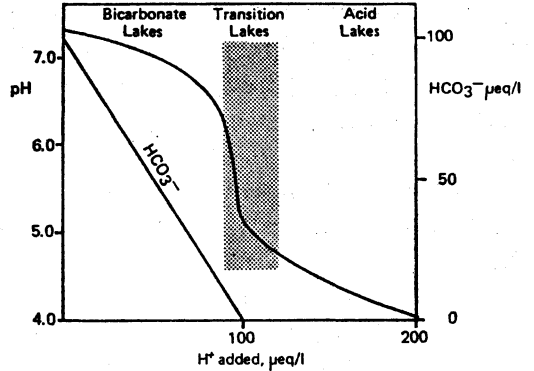
第9図 ノルウェー南部の pH の低い Langtjern 湖及び地表における流入と流出による物質収支。主なイオンについては1973年から1978年までの5年間の平均濃度, 全-P (リン化合物) は1976~77年, 全-N (窒素化合物) 及び全-C (炭素化合物) は1976~78年の2年間の平均濃度 (Wright and Johannessen, 1980)。

4.7) での, 各イオンの5年間の物質収支を示したものである (Wright and Johannessen, 1980)。これによれば, 土壌中では, 沈着量 (input) の方が流出量 (output) より多いものは, H^+ , NH_4 , NO_3 , SO_4 , Cl , Tot-P, Tot-N であり, 流出量の方が多量なのは, Na , Ca , Mg , Al , Tot-C である。つまり, 乾燥沈着及び降水により酸性物質が土壌中に入ってきて, HCO_3^- が少ないためにほとんど中和されることなく, その酸性により重金属が溶出していくことを示している。一方, 湖では, 地面より溶出したものと降水とによって流入量が決定されるが, 流入量が流出量より多いものは, 主に H^+ , SO_4 であり, これらは湖中で消費あるいは推積される。土壌や湖での物質収支については, 生物 (及び微生物) の物質代謝 (metabolism) を考慮する必要があり, これらの調査研究は, まだ始まったばかりである。湖水中での Mg , Ca , Na , Al 等の金属類の濃度は, pH が低くなるにつれて増加するが, Al と pH との関係について, 第10図に示した (Dickson, 1980)。

降水等による酸性物質の湖への流入と湖の酸性化過程について, Henriksen (1980) は, 第11図に示す滴定曲線を用いて3段階に分けて説明している。第1段階は, アルカリ度の低下期であるが, 酸性降水があっても HCO_3^- による緩衝作用が維持されていて pH は 5.5~6.0 であり, 魚の生息数にも変化はない (bicarbonate lakes)。第2段階では, 長い間に HCO_3^- による緩衝能力が失われ, pH は急激に変動及び低下し, 魚は繁殖



第10図 スウェーデンの湖での1976年夏から秋にかけての期間における pH と全 Al 濃度との関係 (Dickson, 1980)。2つのかけ離れたデータは, 非常に腐植した水中での値。



第11図 湖の酸性化過程を示す HCO_3^- 溶液に対する滴定曲線 (Henriksen, 1980)。初期の HCO_3^- 濃度を $100 \mu eq/l$ とする。

がとまって大量の悲劇的な死を迎える (transition lakes)。湖の酸性化の最終段階になると, pH は慢性的に 5.0 以下になり, 金属類, 特に Al の濃度が増加し, もはや魚は生息していない (acid lakes)。Henriksen はさらにこれらをモデル化し, 湖水中の $Ca^{2+}+Mg^{2+}$ (あるいは Ca^{2+} だけ) の濃度と SO_4^{2-} の濃度 (あるいは降水中の H^+ 濃度) から, その湖の pH を予測する図

(nomograph) を作成した。この予測図と、ノルウェー南部の湖での現象(3段階の湖と、pH及び魚の生息数との関係)とがよく一致したという結論を示している。

魚が生息できなくなる原因については、 H^+ 濃度の増加だけでは説明できず、金属類の増加もまた大きな要因である。地面から溶出して湖に流入した Al が、魚のえらの間に入りこんでふさいでしまうために、イオン交換能力が弱められるとともに呼吸困難になる、という実験結果も得られている (Muniz and Leivestad, 1980)。

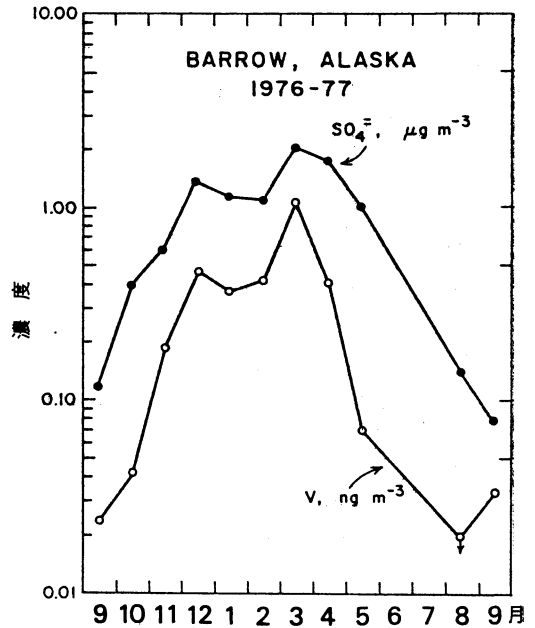
一方、米国でも湖の酸性化のモデルを検討しているが、Henriksen (1980) が提出したモデルは、必ずしもあてはまらないので、モデルの改良を積極的に行なっている。その原因としては、湖の酸性化に対して NO_3^- 、 NH_4^+ の寄与が考慮されていないこと、あるいは降水中の陽イオンによる変動等も考えられていないこと等が考えられている。なお、米国では、これまで硫酸塩エアロゾルに関しては健康影響及び視程悪化の面から主に調査研究が進められてきたが、今後は、生態系、特に農作物あるいは土壌の生産力への影響を中心に調査研究を進展させていく計画である (U.S./Canada WG 1, 1981)。

7. 北極のエアロゾル

北極上空での大規模な煙霧 (haze) の存在が観測されたから、すでに25年も経過したが、本格的な調査研究は1972年に北極での大気混濁度が非常に大きいことが明らかになってからである。その後、1976年秋から、Rahnらがアラスカのバローでエアロゾルに関する連続観測を実施しており、次のような新しい事実が得られ、その発生源に関する推定がなされている (Rahn and McCaffrey, 1980)。

(1) バローでのエアロゾル中の SO_4^{2-} とバナジウム (V) の濃度 (海塩粒子による寄与を補正した濃度である) の年変化を第12図に示した。 SO_4^{2-} 、Vともに、秋から急激に高くなり、冬に一定となり、3月に最高濃度を示し、晩春に急激に減少する季節変化を示した (北極の他の地点でのその後の観測でも同様な季節変化を示している)。 SO_4^{2-} 濃度の最高値は3月の $2 \mu g/m^3$ であったが、この値は、米国北東部での $5\sim 6 \mu g/m^3$ という値よりもわずか30~40%低いだけであった。

(2) 冬期のエアロゾル中の SO_4^{2-} と V の濃度比を北半球の代表的な地点で求めてみると、北極では、中高緯度の地域に比べて、 SO_4^{2-}/V の値が10倍以上も大きかった。Vは、重油中に含まれていて、その燃焼によって

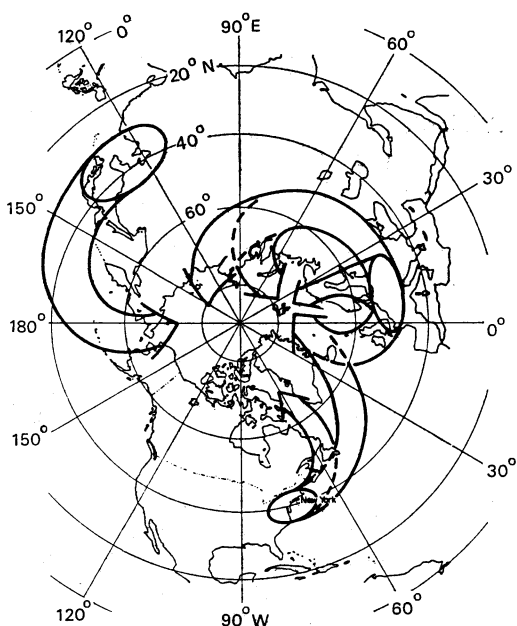


第12図 アラスカのバローで1976年から1977年にかけて測定されたエアロゾル中の SO_4^{2-} 、V (バナジウム) 濃度の月平均値 (Rahn and McCaffrey, 1980)。なお濃度は海塩粒子による寄与をさしひいた値である。

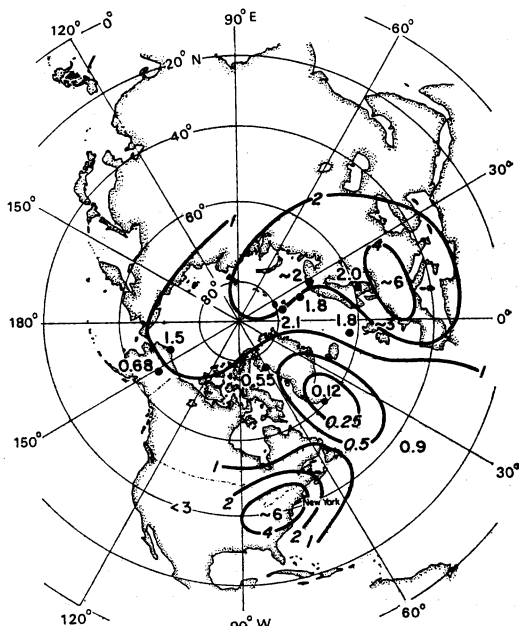
排出されるエアロゾル中に含まれている。一般に、Vは一次汚染物質、 SO_2 の酸化により生成された SO_4^{2-} は二次汚染物質の指標とみなすことができる。それ故、中緯度に存在する汚染物質の大発源地帯で排出された SO_2 が北極地域へ長距離輸送される過程で SO_4^{2-} へ酸化されるという可能性が考えられる。同時に測定されたエアロゾル中の ^{210}Pb (土壌から大気中に放出される ^{222}Rn の崩壊によって生成される) の濃度のデータからも、この長距離輸送の可能性を示唆していた。

(3) ところで、中緯度の発源地帯としては、英国、欧州及びソ連中央部を含むユーラシア、北米東部及び東アジアという3大地域が考えられる。そして、それらの発生源から北極への輸送経路については、第13図のように推測される。

(4) そこで、V、 SO_2 、 SO_4^{2-} 、 ^{222}Rn 及び ^{210}Pb の希釈、変質 ($SO_2 \rightarrow SO_4^{2-}$ 、 $^{222}Rn \rightarrow ^{210}Pb$) 及び除去に関して、バローに到達したエアロゾルの発生源についてモデル計算を行なったところ、東アジア及び北米東部よりもユーラシアから輸送された場合の濃度が最も実測と合うことが示された。この原因としては、東アジア及び北米



第13図 冬期、中緯度の発生源地域から北極への大気汚染物質の輸送の可能な経路 (Rahn, 1981).



第14図 北極及びその周辺地域の地上におけるエアロゾル中の SO_4^{2-} 濃度 (単位: $\mu\text{g}/\text{m}^3$) の冬期の平均値 (Rahn and McCaffrey, 1979).

東部からの大気は、各湿度が高くまた降水も多い北太平洋及び北大西洋上を通過してくるので、エアロゾルの大気中からの除去率が大きいことが、主な原因と考えられる。なお輸送日数は15日前後であると推測されている。

北極及びその周辺地域での観測網は、1980年には、米国だけでなく、ノルウェー、カナダ及びデンマーク等が参加して約15地点となっている。これらの地域でのエアロゾル中の SO_4^{2-} 濃度の冬期の平均値は、第14図のようである。第14図からも、北極のエアロゾルの発生源は、ユーラシアであると考えられる (Rahn, 1981)。さらに、プラネタリー波等の気象学的な解析も行なわれており、それによれば、北米大陸東部及びユーラシアから北極への輸送が可能であるという結果が得られている (Reiter, 1981)。

ノルウェーの国立大気研究所では、ノルウェーより北の北極圏にあるベア島 (74°N , 19°E) で1977年7月からガス及びエアロゾル濃度の測定を実施している (Rahn et al., 1980)。その結果によれば、 SO_2 濃度は冬期に日平均値で $1\sim 6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ と高くなることがしばしば測定された (同時にエアロゾル濃度も高くなる)。流跡線解析によれば、これらの汚染物質は、欧州から直接到達する

経路 (direct-flow) だけでなく、ソ連西部を通過して時計回りで到達する経路 (return-flow) も推測された。後者の場合、 SO_2 の滞留時間は5~10日間と推定されるが、この値は、LRTAP 等で用いられている欧州での1~2日より5倍も大きい。このことは、 SO_2 から SO_4^{2-} への変換が非常に遅いことを意味している。一方、北極では、降水が少ないこと、日射量が少ない等のことより、 SO_2 から SO_4^{2-} への酸化による変換が遅いことは充分考えられることである。これらをさらに調査研究することにより、 SO_2 から SO_4^{2-} への変換過程の解明に大きく寄与することが考えられる。

なお、これらの北極のエアロゾルは、北極での放射収支のバランスを変えることにより気候を大きく変える可能性がある。Shaw and Stamnes (1980) の試算によれば、このエアロゾルを含む大気中では約73% (65°N)、84% (75°N) も正味の放射の吸収量が増加し、一方、地表面での正味の吸収量は22~32%減少する。その結果、北極の気候に対する直接的な影響としては、雲量の減少、大気の乾燥化、逆転層の発達等が十分に考えられる。

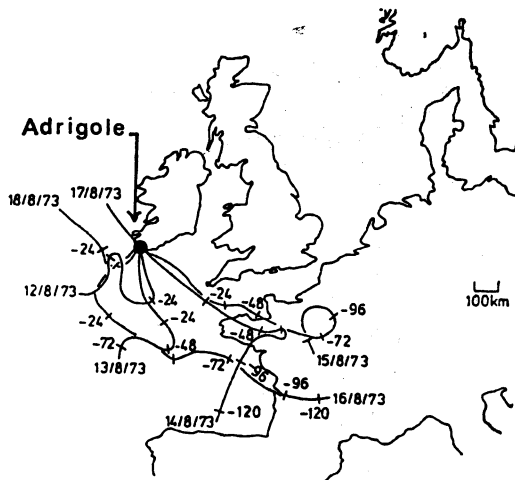
北極でのエアロゾルについての調査研究は始まったばかりであり, 最近その特集号が雑誌 *Atmospheric Environment* (vol. 15, 1345-1516, 1981) "Arctic Air Chemistry" として出版されているので, 関心のある方はぜひ一読していただきたい。

8. 欧州における光化学オゾンの長距離輸送

欧州においては各国で O_3 の測定が1970年前後から開始されており, それらのデータに基づいた広域的な解析がなされている (Guicherit and Dop, 1977; Schjoldager et al., 1981). それらによれば, 高気圧が欧州中央部, スカンジナビア半島, フィンランド等を広範囲におおっている時, 欧州北西部全域にわたって高濃度となる。次に, 高圧部が欧州中央部にある時, あるいは高気圧の中心が北海上にある時は, 欧州大陸や英国では高濃度になるが, スカンジナビア半島では非常に低くなっている。しかし, 欧州中央部が低圧部になったり低気圧の支配下にある時は, スカンジナビア半島では高濃度であるが, 欧州北西部は全体に非常に低くなる。そして, これらの高濃度の発生が局地的なものか中規模的なものか, あるいは長距離輸送が重要な役割を果たしているかについては, 多くの場合, これらが複合して発生していると推測される。中規模の発生では, 海陸風循環が重要な役割を果たしている。

英国では, 1973年から3地点で O_3 濃度の測定を開始した。2地点はイングランド南部に, 他の1地点はバックグラウンド濃度を測定する目的でアイルランド南部の海岸地帯のアドリゴール (Adrigole) に設置された。一般に都市及び郊外では日中に O_3 濃度は最高を示すが, アドリゴールでは夏期にしばしば夜中に 0.1 ppm 前後の最高値を示していた。1973年8月13日から16日にかけて, 北海上に高気圧が停滞したので, 3地点とも毎日 O_3 濃度が 0.1 ppm を超えた。この期間の風向は東寄りであり, 流跡線解析によれば, これらの高濃度の O_3 を含む汚染気塊は第15図に示すように, 数日前欧州大陸を通過して 500 km 以上も輸送されてアドリゴールに到達したことを示している (Cox et al., 1975)。

また, 英国のハーウェル (Harwell) では, 1976年の7月2日から7日まで毎日 O_3 の最高濃度が 200 ppb を超えた (最高は5日の258 ppb)。この期間は, 高気圧が停滞しており, 流跡線解析によれば, 欧州大陸からの汚染物質の輸送が, この高濃度現象の主な原因であるが, 英国内での発生源による光化学 O_3 の生成もある程



第15図 1973年8月12日から8月18日までの期間にアドリゴール (Adrigole) に到着した大気の流跡線解析 (Cox et al., 1976). 図中の-24は, 24時間前の大気的位置を示す。0.1 ppm を超す高濃度の O_3 は, 8月13日から8月16日までアドリゴールで測定された。

度寄与していると推測された (Apling et al., 1977; Ball and Bernard, 1978)。

なお, 汚染大気中での光化学 O_3 ではなく, 気圧の谷の通過に伴う成層圏大気対流圏下部への直接の侵入によると推測される約 100 ppb の高濃度の O_3 が, 英国の郊外でわずか1~2日間であるが測定されている (Derwent et al., 1978)。

OECD では, 光化学 O_3 に関する将来の共同調査研究のための計画会議を1978年にオスロで開いて, 炭化水素, NO_x の規制戦略, モデルの開発, モニタリング, 発生源調査, 植物被害, 光化学 O_3 の長距離輸送等について議論がなされた (NILU/OECD, 1978)。現在, 各国が自国の状況に応じて, 光化学 O_3 の調査及び規制方法について積極的に取り組んでいる。

なお, 欧州でも O_3 や PAN 等の光化学オキシダントによる植物被害が広範囲に発生しており, 現在, 農作物への影響を中心に調査をすすめている。

9. 米国東部における広域大気汚染調査研究

ロスアンジェルス地域での光化学大気汚染現象はよく知られているが, 米国では東部の都市とその郊外でも, 光化学大気汚染は多発し, さらに前述したように SO_4^{2-} 濃度の上昇と降水中の pH の低下による酸性降水, エア

ロゾルの増加による視程の悪化等に悩まされている。

そこで EPA が中心となって、都市及び火力発電所から排出された汚染物質がブルームとしてどのように輸送されその途中でどのように変質されていくか、 SO_2 から SO_4^{2-} への変質過程、 SO_4^{2-} 、 NO_3^- を含むエアロゾルや光化学 O_3 の長距離輸送過程等の研究を目的とした次のような特別調査を、1970年代半ばから後半にかけて実施した (Schiermeier, 1980)。

9.1. RAPS (Regional Air Pollution Study)

最初に RAPS 計画が、1974年から1977年にかけて、セントルイス市を中心とした地域で実施された。この目的は、都市及び郊外の固定及び移動発生源を把握して、約 100 km の範囲の地域における汚染物質のシミュレーションモデルを開発及び評価検討するものである。このため、セントルイス市に大気汚染物質及び気象要素の常時監視網 (RAMS, Regional Air Monitoring System) を設置して、精度の良い整合性のあるデータを取りその管理を集中的に行なった。また、汚染物質の輸送及び変質過程を解明するために、ヘリコプター等を用いて立体的な総合調査を随時実施した (Schiermeier, 1978)。これらの大量のデータは、現在やっとまとまり研究者が自由に解析できるように公開されつつある。

この期間中の1976年6月8日から9日にかけて、EPA は他の機関の協力を得て、 O_3 及びエアロゾル等の測定及び大気採取装置を搭載した有人バルーン (DaVinci

II) をセントルイス市上空に放球し、同時に移動測定車でバルーンを追跡して、地上と上空での汚染物質の立体調査を実施した。バルーンは、11時30分頃から15時まで都市上空の強い熱対流により高度 1,700 m にまで上昇したが、その後、熱対流が弱まるとともに高度を下げ、16時から翌朝まで一定高度 (700~800 m) で浮遊していた。地上と上空の O_3 濃度は第16図に示すように、日中は 0.10~0.15 ppm とほぼ一致していた。しかし夜間になると、移動測定車での地上の O_3 濃度は19時頃から急激に減少して 0.05 ppm となったのに対し、上空 700~800 m では 0.11~0.13 ppm とほとんど減少しなかった。この地域では夜間に強い接地逆転層が形成されたので、逆転層より下層での O_3 は NO 等の物質や地表面等で分解されて減少したが、バルーンが浮遊していた逆転層より上層では O_3 を分解する物質がなかったために O_3 濃度は減少しなかった。なお、バルーンは19時以後 4~5 m/s の速さで東に流され、翌朝 9 時頃にはセントルイス市東方約 190 km のイリノイ州南部に到達した。この地域では第16図に示すように、午前中に O_3 濃度が 0.1 ppm を超えているが、この O_3 の高濃度は、セントルイス市の都市のブルームが、逆転層より上層で長距離輸送され、翌朝の日の出とともに逆転層が破壊されて上層の高濃度の O_3 を含む大気が垂直混合されたため、と推測された (Decker *et al.*, 1977; Vukovich *et al.*, 1979)。

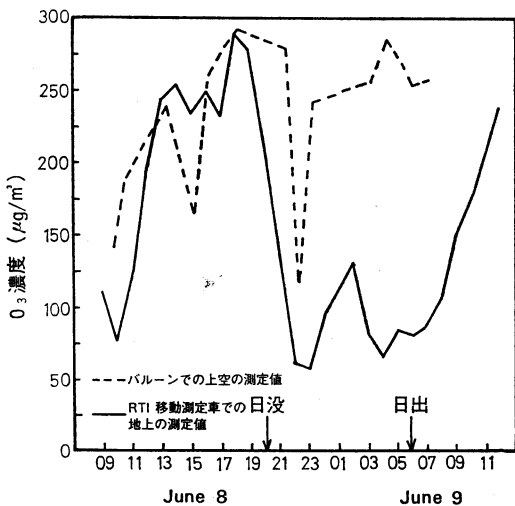
9.2. MISTT (Midwest Interstate Sulfur Transport and Transformation)

この特別調査の目的は、火力発電所及び都市のブルーム中でのガスからエアロゾルへの変換、特に SO_2 から SO_4^{2-} への変質過程及び変質速度、さらには地表面での沈着速度を、航空機及びタワー等を用いて、定量的に推測することであった。MISTT は、RAPS と並行して、1975年から1977年にかけてセントルイス市を舞台として実施された。その主要な結果を次に示す (Wilson, 1978; Gillani *et al.*, 1978)。

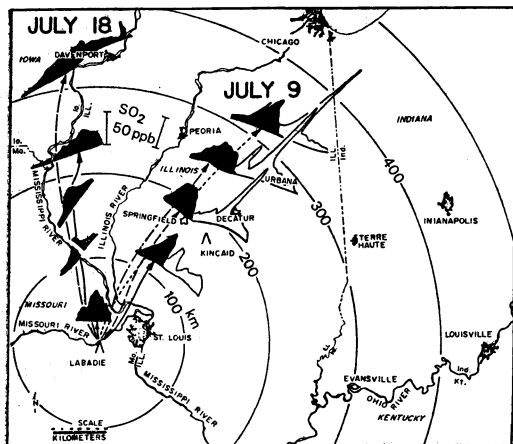
(1) 火力発電所や都市のブルームは、第17図にみられるように風下側少なくとも約 300 km まで長距離輸送されていることが確認された。

(2) 火力発電所からのブルーム中での SO_2 から SO_4^{2-} への変質速度は、0.5~5%/h であり、その速度は、日射量、相対湿度、周囲の O_3 濃度等によって変化するが、夏の日中は、日射量の影響が最も大きかった。

(3) 硫酸塩エアロゾルの粒径は 0.1~1 μm に存在し、この粒径のエアロゾルの地表面への沈着速度は、一般に



第16図 1976年6月8日から9日にかけての DaVinci II の浮遊中における上空及び地上での O_3 濃度の時間変化 (Decker *et al.*, 1977)。



第17図 ラバディー火力発電所のブルームを航空機で横断して測定された SO_2 濃度の水平分布. 1976年7月9日は一定高度450 m (AGL), 7月16日は750 m で飛行した. 黒い部分がラバディーブルーム中の SO_2 濃度であり, 同時に流跡線をも示した (Gillani *et al.*, 1978).

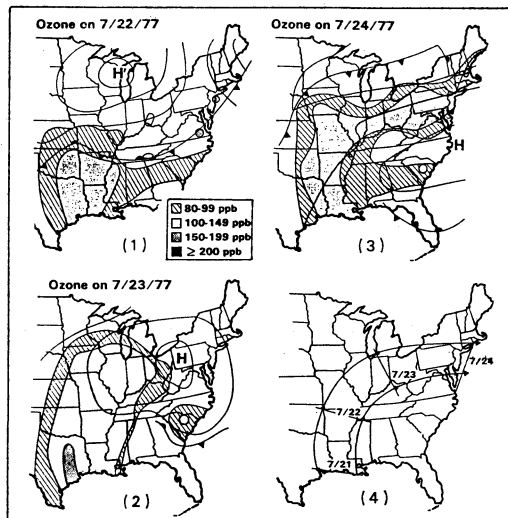
SO_2 のそれよりも小さい. それ故, 火力発電所の高煙突から排出された SO_2 は地表面に到達する前に大気中でエアロゾルに変質する割合が大きいため, 生成された硫酸塩エアロゾルは大気中での滞留時間が長く, 従って長距離輸送される.

(4) このように, 火力発電所等の高煙突化は, 発生源付近の高濃度現象を防止するのに効果があったが, 硫酸塩エアロゾルを含んだブルームの長距離輸送現象をもたらした.

(5) 0.10~0.15 ppm の高濃度の光化学 O_3 を含んだ都市のブルームが, 少なくとも 200 km 風下側まで輸送されていることが, 航空機観測により明らかになった.

9.3. STATE (Sulfur Transport and Transformation in the Environment)

MISTT で得られた成果をさらに発展させて, 前述した米国北東部の汚染物質の数百 km から 1,000 km 以上にも及ぶ長距離輸送現象の解明とモデル化を目的として, 1978年から STATE が実施されている (Schiermeier *et al.*, 1979). STATE は2つのプロジェクトから成っており, 1つは, 単一の高煙突大発生源のブルームを, 可能な限り (2~3日間, 約 500 km 以上) 追跡して, 鉛直方向の混合過程や夜間の逆転層形成時の輸送過程等を大気境界層の測定を同時に行ないながら明らかにしようとしている. また, SO_2 から SO_4^{2-} , NO_x か



第18図 高気圧の移動に伴って高濃度の O_3 を含む汚染気塊が長距離輸送される例 (Wolff, 1980).

(1) 1977年7月22日の O_3 濃度の最高値の分布 (1時間平均値),

(2) 7月23日の O_3 濃度の最高値の分布,

(3) 7月24日の O_3 濃度の最高値の分布,

(4) 流跡線解析から求めた, 7月21日から7月24日までの境界層内の大気の平均的な動き.

ら NO_3^- への変質過程をも測定から解明しようというものである. 1978年の夏, テネシー峡谷に存在する約 300 m の高煙突からのブルームに関する調査が実施された (TPS, Tennessee Plume Study). 他の1つは, 大陸的なスケールで, 大気塊がある発源地域を通過した後他の発源地域を次々に通過していく時, 汚染物質の補給を受けてその大気質がどのように変化していくか, 各地域での大気質に与えるこれらの蓄積影響を定量化させることである (PEPE, Persistent Elevated Pollution Episodes). このスケールでの調査は, 1980年の夏に実施された.

9.4. NEROS (Northeast Regional Oxidants Studies)

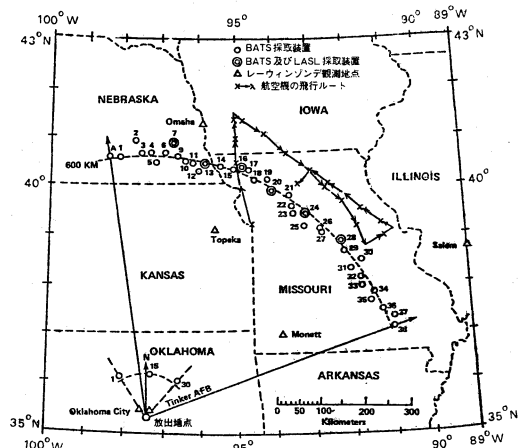
米国東部では, 第18図に示したように, 夏期大陸をゆっくり東進する高気圧のふちに沿って高濃度の O_3 を含む汚染気塊が移動していく現象が, しばしば発生している (Vukovich *et al.*, 1977; Vukovich, 1979; Wolff,

1980). さらに, この汚染気塊はカナダ東部にまで輸送されている. このような広域大気汚染現象では, 高濃度になったその地域の発生源を規制するだけでは不十分であり, また本質的な解決策にはならない. そこでこの現象を解明するためのプロジェクトとして NEROS (前述の PEPE と関係があるので, PEPE/NEROS と呼ばれている) が計画された. NEROS は, また 2 つの調査研究から成っており, 1 つは, オハイオ州付近からの汚染気塊が南西ないし西寄りの風により, 垂直及び水平方向にどのようにひろがりながら長距離輸送されていくかを調査するものである. 他の 1 つは, ワシントンを通じた大気が, ボルチモア, フィラデルフィア, ニューヨーク, ボストンと大都市を通過していく時に, 高濃度の O_3 を含む汚染気塊が各都市で汚染物質を補給しながらどのように変質していくかを明らかにするものである. これらの解明に際しては, 大気境界層の構造及びその日変化を把握する必要があり, 大規模な気象調査も計画されている (気象庁, 1981).

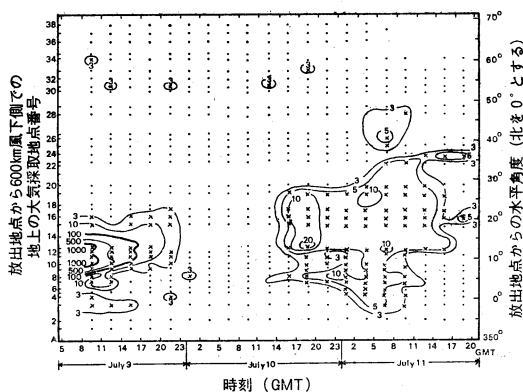
なお, エアロゾルを含んだ汚染気塊の存在は, 人工衛星による北米大陸の写真でも明瞭に識別されており, その長距離輸送を解明する一手段として衛星写真が用いられている (Lyons, 1980).

9.5. 大気中での長距離拡散実験

トレーサーを用いた拡散実験は, 汚染物質の輸送現象を解明する一手段として, 広範に行なわれている. NOAA では, 前述した 500 km から 1,000 km にも達する汚染物質の長距離輸送に対応した拡散実験を計画し, 新しいトレーサー, 連続採取装置及び分析装置を用いることによって 1980 年の夏に初めて成功させた (Ferber et al., 1981). 従来行なわれてきた小・中規模拡散実験では SF_6 が主なトレーサーとして用いられている. しかし, SF_6 のバックグラウンド濃度が 0.6 ppt と高いこと, また SF_6 の局地的な発生源があるためにその濃度の変動が大きいので, 長距離の拡散実験には不相当である. そこで NOAA では, バックグラウンド濃度が非常に低く, しかも SF_6 の場合の約 10% の費用ですむパーフロカーボン (C_7F_{14} , バックグラウンド濃度は約 0.0024 ppt) を, トレーサーに用いた. 実験は, 1980 年夏, オクラホマ州で第 19 図のように放出地点から風下側 100 km と 600 km に連続採取装置を設置して, 気象情報のボランティアの協力を得て実施された. なお同時に, レーウィンゾンデによる上層風の連続観測, また航空機によるトレーサーの採取と気象要素の測定を行なっ



第19図 放出地点から 600 km 風下側での大気連続採取装置 (BATS, LASL) の設置地点及び採取用の航空機の飛行コース (Ferber et al., 1981). なおレーウィンゾンデの観測地点も同時に示した.



第20図 1980年7月9日08時 (GMT) から7月11日20時 (GMT) までの期間中の放出地点から 600 km 風下側での C_7F_{14} 濃度 (単位: $10^{-15} v/v$) の 3 時間平均値 (Ferber et al., 1981). ●印地点の濃度は $3 \times 10^{-15} v/v$ 未満, ×印地点の濃度は $3 \times 10^{-15} v/v$ 以上を表わす.

た. トレーサー (C_7F_{14} の他にも, C_8F_{16} , SF_6 , $^{12}CD_4$, $^{13}CD_4$ も用いた) の放出は, 7月8日の19時から22時 (GMT) まで行なわれ, 100 km では 21時から45分間ずつ 16地点で, また 600 km では翌日の08時から3時間ずつ 35地点で, 大気の採取を行なった.

100 km 地点では, ほぼ予想された時間にトレーサー

が到達したが、600 km 地点では予想よりも早く到達した。第20図に示すように、600 km 地点では、最初の採取時間に C_7F_{14} の濃度は最高を示し、その後は次第に減少した。この原因は、夜間に発達する低層ジェット流が予想よりも速かったためと考えられている。さらに注目すべきことは、第20図から明らかなように、9日の23時頃にバックグラウンド値になってから15時間後の10日の14~17時にトレーサのブルームが再び出現した現象である。なおその濃度は、最初のブルーム中での濃度の1/100以下と非常に低かった。この現象が、最初のブルームが戻ってきたのか、あるいは何らかの理由で最初のブルームの背後にとり残されたトレーサがやってきたのか等については、気象データを参考に現在解析中である。この実験は、長距離輸送現象の解明に役立つものとして、今後の進展が非常に期待される。

10. 一次汚染物質の一生——変質及び除去過程

以上、欧州と北米大陸及び北極での汚染物質の長距離輸送現象の概要を述べた。しかし、汚染物質の変質及び除去過程については、まだ解明されていない部分が多く、その調査研究は、今後、引き続き重要な課題である。特に、排出された一次汚染物質について、各物質毎の変質及び除去過程とその速度を求めることが、モデリング及びシミュレーションを行なうに際して、必要不可欠である。

(1) 気体の SO_2 から硫酸塩エアロゾルの変質過程については、次の3過程が主なものである。

- (i) SO_2 と OH , HO_2 , RO_2 との気相反応、
 - (ii) 雲粒や雨滴に SO_2 がとりこまれた時、同時に存在する O_2 , H_2O_2 , O_3 , あるいは Mn , Fe 等により酸化される液相反応、
 - (iii) 有機化合物やすす及び金属を含むエアロゾルの表面で接触等により酸化される反応。
- (i) は、特に夏の日に重要な反応であるが、(ii)、(iii) は強い日射がなくても反応が起こるので、雲の生成時、降雨時、夜間、冬等は、特に重要な反応である。

大気中での実際の SO_2 から SO_4^{2-} への変質速度は、前述した MISTT でも述べたが、大喜多 (1980)、及び Hegg and Hobbs (1980) も最近の各国で実施された結果をまとめている。個々の調査によってかなり変動が大きいことは、その変質過程の複雑さを意味している。また、地表面でのエアロゾルの沈着速度も変動が大きい。なお、Sehmel (1980) は、ガスとエアロゾルの乾燥沈着

の実測及び理論に関して、詳しい解説を行なっている。

(2) NO_x の変質過程については、 SO_2 のそれよりも、もっと未知の部分が多く、また調査研究も遅れている。バックグラウンド大気中では、 NO_2 と OH との反応によって HNO_3 へ変換される過程が主なものと考えられる。汚染大気中では、 PAN や HNO_2 の生成も重要である。また、 NO_x から NO_3^- への変質速度については、測定上の困難もあってまだはっきりしていない。さらに、夜間等に、 H_2O との不均質反応で、 HNO_3 や HNO_2 が生成すると推測されているが、その速度もまだわかっていない。

(3) 炭素化合物の中では、含酸素炭素化合物、例えば、アルデヒド、ケトン、アルコール、カルボン酸等の変質過程について、未知な部分が多い。特にアルデヒドは、自動車排出ガス中に大量に存在する一次汚染物質であると同時に、光化学反応でも炭化水素から生成される重要な物質であるが、 OH , HO_2 等のラジカルの生成、消滅にどのような影響を与えているか？

また、有機炭素化合物、特にエアロゾル中に含まれている有機炭素化合物は、酸性降水現象の中で一定の役割を演じていると考えられるが、その変質・除去過程を明らかにすることは、大きな課題の1つであろう。

なお、「すす」(elemental carbon のこと)は、自動車から大量に排出されており、粒径も小さく滞留時間も長いので、やはり長距離輸送されている。アラスカのパーでのエアロゾルは灰色がかっており、分析でも「すす」が大量に存在していることが明らかになっている。この「すす」は、日射をよく吸収するので、大気中に大量に存在すると、放射収支のバランスを変化させる可能性がある。また、その表面では、様々な接触反応が起こっていて、他物質の変質過程にも寄与していると推測される。それ故、人体への影響をも含めてその性質等について、今後充分な調査研究がなされるべきであろう (Wolff, 1981)。

最後に、最近東京湾等の推積物中に、多環芳香族炭化水素 (PAH) が検出されてきている。現在、これらの大気中を含めた発生源とその経路についての解析がなされつつある (服部, 1980)。このような事実や、また酸性降水現象を考える時、汚染物質の追跡は、大気中だけにとどまらずに、水中や土壌中での変質を含めて行なわれる必要があり、その物質の一生や循環を解明することが将来の環境科学の研究にとって非常に重要な課題となるであろう。

11. 日本での広域大気汚染調査研究

発生源としては、高煙突(点源)、幹線道路(線源)、都市(面源)及び工業地帯(立体源)が存在するが、広域大気汚染の場合には、火力発電所のような高煙突、工業地帯及び都市が、主な対象となる。

このような発生源からの日本での汚染現象のスケールについて考えてみたい。

(1) まず、関東地域のような同一大気圏内での総合調査が必要であろう。同一大気圏とは汚染物質が閉鎖構造を示す地域 (air basin) であり、日本では、臨海型と盆地型とがある。前者としては、東京湾を中心とした関東地域駿河湾地域、伊勢湾及び三河湾地域、大阪湾地域、瀬戸内海沿岸地域があり、日本海側でも富山湾地域等が存在する。これらの地域では、海陸風循環やさらに規模の大きい局地風系により、或る地域で排出された汚染物質が他の地域へ輸送されており、その濃度に寄与している。この越境汚染は、 O_3 のような二次汚染物質については欧州と同様に深刻な問題であり、或る発生源地域から他の地域への寄与の割合を求めることが必要である。それ故、これらの地域における共同調査研究の組織化がぜひとも望まれる。調査研究の対象は、光化学大気汚染だけでなく、硫黄酸化物、窒素酸化物、炭素化合物等の変質による酸性降水現象についても、夏だけでなく冬を含めて長期間の計画に基づいて実施する必要がある。これまでの調査結果の概要については、大喜多・太田(1980)、鶴田(1980 a)を参照していただきたい。

一方、盆地型の大気汚染では、京都、奈良、長野等があげられる。この場合も、特有な局地風系が、大気汚染の構造に大きく影響を与えている。また、長野市の光化学大気汚染のように、夏期の日中だけでなく夜間にもオキシダント濃度の高くなる時があるが(長野県, 1980)、局地風系あるいはバックグラウンド大気中の O_3 との関連で、さらには、関東地域からの長距離輸送の可能性等を含めて調査解析が行なわれつつある。

(2) 次に、さらに大規模な汚染現象については、まず第一に、最近九州や四国で建設あるいは計画中の、石炭を用いた高煙突の火力発電所の影響である。大気は、高低気圧の移動に伴って西から東へ移動するので、これらの高煙突から排出された汚染物質は、九州、四国から関西方面にまで長距離輸送される可能性が充分にある。日本でも、これまでに建設された火力発電所に代表される高煙突単一大発生源からの煙流中での汚染物質の輸送及び変質過程に関する総合調査を実施して、将来起こり得

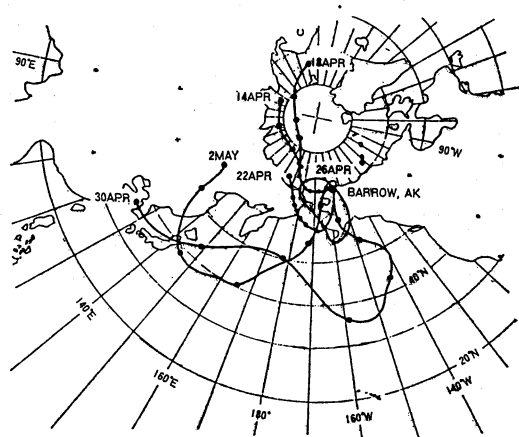
る汚染の未然防止に役立てることが重要であろう。

また、太平洋側の沿岸地帯には、大工業地帯が多く存在するが、それらの汚染気塊が日本海側まで長距離輸送されている可能性はないだろうか？

(3) 次に、隣接するアジア大陸の諸国との関係を考えてみよう。まず、朝鮮半島や中国の汚染物質は、東支那海や日本海上空を經由して日本にまで輸送されているであろう。それらによる光化学大気汚染や酸性降水等の現象は、九州や四国地方で観測される可能性が充分にある。気象衛星「ひまわり」の写真では、春先、中国のゴビ砂漠で発生した黄砂が日本上空を広範囲におおっている現象を見事に捕えており(石坂, 1979)、隣国の工業化の進展は、日本の大気汚染現象に大きく影響を与える可能性がある。

一方、日本で排出される汚染物質は、他国へ影響を及ぼしているであろうか？ 幸い、日本は大陸の東岸に位置し、海に囲まれており、隣国への直接の影響は少ないと考えられる。しかし、夏期、光化学 O_3 の長距離輸送による影響については検討する余地がある。

(4) 先に述べた黄砂現象は、日本上空を通過した後、ハワイや第21図に示したようにアラスカでも観測されて



第21図 図中に示された月日にバローに到達した大気の 700 mb での流跡線解析。1976年4月30日前後にアラスカ上空で航空機により Al, Mn を大量に含むエアロゾルを採取した。これらの物質の発生源を流跡線解析で求めたところ、図に示すようにアジア大陸から移動してきたことが判明した。それ故、これらのエアロゾルは、黄砂に由来するものであると推測された。なお流跡線の黒丸と黒丸の間は1日の経過を意味する (Rahn and Borys, 1977)。

いる (Shaw, 1980; Rahn and Borys, 1977) ことを考えると, 日本からの汚染物質も, 寿命 (life time) の長いものについては, 1,000 km から 10,000 km 以上輸送されている可能性が充分にある。

(5) 現象が広域化するにつれて, バックグラウンド大気との関係を明らかにしていくことは, 特に O_3 について重要である。日本でも, 鹿児島西方約 200 km の海上で 1980年5月22日夜から23日の午前中にかけて 80 ppb 以上の O_3 濃度が測定されており (山口, 1980), また, 富山県では春のフェーン現象時の夜間に約 100 ppb のオキシダント濃度が測定されている (富山県公害センター, 1977)。これらの原因としては, 光化学 O_3 の長距離輸送, あるいは成層圏下部または対流圏上部の高濃度の O_3 を含む大気の沈降とが考えられる。成層圏から対流圏への O_3 の輸送過程については, 大気大循環や圏界面の折れ込み (tropopause folding) 現象等があるが, 詳細は別の機会に述べる。

(6) 日本の土壌や水質は, ボドゾル土壌の欧州及び北米東部ほど酸性降水に対して敏感ではない。また, 日本の湖の汚染については, pH は7以上であり, むしろ工場や家庭排水中の窒素及びリン等による富栄養化が最大の問題となっている。しかし第11図の滴定曲線にみられるように, 緩衝能力がなくなると急激に酸性化する可能性もある。それ故, 今後とも, 降水の測定網の設置, 汚染物質の変質及び除去過程, 酸性降水の森林及び農作物等への影響に関する調査研究を, 学際的にしかも長期的に実施することが望まれる。

(7) 最後に, 地球規模での汚染現象の解明に際しては, 対流圏と成層圏との間での大気の大気交換過程を解明することが大きな課題であり, 現在始まったばかりの国際共同観測である MAP 計画の成功が期待されている。

12. おわりに

以上, 地球規模の大気汚染現象を中心に述べたので, 反応機構あるいは日本での研究等の個々の詳細な議論についてはふれなかった。勿論, これらの現象の解明に際しては, 高低気圧に伴う大気の大気3次元な運動や大気大循環等の大気の大気構造及び, ガス, エアロゾルの化学反応機構等を明らかにしていくことが必要不可欠であり, 今後の大気物理化学の研究の進展に対して各方面から大きな期待が寄せられている。

文献

- Apling, A.J., E.J. Sullivan, M.L. Williams, D.J. Ball, R.E. Bernard, R.G. Derwent, A.E.J. Eggleton, L. Hamilton and R.E. Waller, 1977: Ozone concentrations in south-east England during the summer of 1976, *Nature*, **269**, 569-573.
- Ball, D.J. and R.E. Bernard, 1978: An analysis of photochemical pollution incidents in the Greater London area with particular reference to the summer of 1976, *Atmos. Environ.*, **12**, 1391-1401.
- Beamish, R.J. and H.H. Harvey, 1972: Acidification on the La Cloche Mountain lakes, Ontario, and resulting fish mortalities, *J. Fish. Res. Board Can.*, **29**, 1131-1143.
- Cox, R.A., A.E.J. Eggleton, R.G. Derwent, J.E. Lovelock and D.H. Pack, 1975: Long-range transport of photochemical ozone in north-western Europe, *Nature*, **225**, 118-121.
- Decker, C.E., J.J.B. Worth, L.A. Ripperton and W.D. Bach, 1977: Ambient monitoring aloft of ozone and precursors near and downwind of St. Louis, EPA-450/3-77-009, USEPA.
- Derwent, R.G., A.E.J. Eggleton, M.L. Williams and C.A. Ball, 1978: Elevated ozone levels from natural sources, *Atmos. Environ.*, **12**, 2173-2177.
- Dickson, W., 1980: Properties of acidified waters, *Proceedings of an international conference on ecological impact of acid precipitation*, Sandefjord, Norway, March 11-14 (1980), 75-83.
- EMEP/CCC, 1980: Co-operative programme for monitoring and evaluation of the long-range transmission of air pollutants (Summary report from the Chemical co-ordinating Centre for the first phase of EMEP), EMEP/CCC-Report 4/80, Norway.
- Ferber, C.J., K. Telegadas, J.L. Heffter, C.R. Dickson, R.N. Dietz and P.W. Krey, 1981: Demonstration of a long range tracer system using perfluorocarbons, EPA-600/7-81-006, USEPA.
- Galloway, J.N. and G.E. Likens, 1981: Acid precipitation: the importance of nitric acid, *Atmos. Environ.*, **15**, 1081-1085.
- Gillani, N.V., R.B. Husar, J.D. Husar, D.E. Patterson and W.E. Wilson, 1978: Project MISTT: Kinetics of particulate sulfur formation in a power plant plume out to 300 km, *Atmos. Environ.*, **12**, 589-598.
- Guicherit, R. and H. van Dop, 1977: Photoche-

- mical production of ozone in western Europe (1971-1975) and its relation to meteorology, *Atmos. Environ.*, **11**, 145-155.
- Hegg, D.A. and P.V. Hobbs, 1980: Measurements of gas-to-particle conversion in the plumes from five coal-fired electric power plants, *Atmos. Environ.*, **14**, 99-116.
- Henriksen, A., 1980: Acidification of freshwaters—a large scale titration, Proceedings of an international conference on ecological impact of acid precipitation, Sandefjord, Norway, March 11-14 (1980), 68-74.
- 服部明彦, 1980: 沿岸域における汚染物質の挙動, 産業公害, **16**, 1008-1014.
- 石坂重次, 1979: 1979年4月中旬の黄砂, 天気, **26**, 725-729.
- 環境庁・光化学二次生成物質検討会, 1981: 湿性大気汚染調査総合報告書(総括編).
- 気象庁, 1976~1980: 大気バックグラウンド汚染観測年報(昭和51~55年).
- , 1981: 第6回日米大気汚染気象委員会概要報告.
- 古明地哲人, 1980: 酸性雨—その生成と影響—, 現代化学, No. 112, 61-65.
- Likens, G.E., R.F. Wright, J.N. Galloway and T.J. Butler, 1979: Acid rain, *Scientific American*, **241**, 43-51.
- Liljestrand, H.M. and J.J. Morgan, 1978: Chemical composition of acid precipitation in Pasadena, Calif., *Environ. Sci. Technol.*, **12**, 1271-1273.
- Lyons, W.A., 1980: Evidence of transport of hazy air masses from satellite imagery, *Ann. N.Y. Acad. Sci.*, **338**, 418-433.
- MacCracken, M.C., 1978: MAP 3S: An investigation of atmospheric energy related pollutants in the northeastern United States, *Atmos. Environ.*, **12**, 649-659.
- Miller, J.M., 1980: Special session on precipitation chemistry at the GMCC annual meeting, 6 March 1980, Boulder, Colo., *Bull. Am. Met. Soc.*, **61**, 1622-1627.
- Muniz, I.P. and H. Leivestad, 1980: Acidification—effects on freshwater fish, Proceedings of an international conference on ecological impact of acid precipitation, Sandefjord, Norway, March 11-14 (1980), 84-92.
- 長野県, 1980: 長野市における高濃度オキシダント調査(昭和52, 53年).
- NILU/OECD, 1978: The long range transport of photochemical oxidants, Report from a planning conference on future research co-operation, Oslo, 12-14 Sept. (1978), NILU NR 16/78.
- OECD, 1979: Long range transport of air pollutants—measurements and findings—, Second edition, Paris.
- 小川利紘, 1977: 大気組成のグローバルな人工変成, 天気, **24**, 507-517.
- 大喜多敏一, 1980: エロゾルの生成から消滅に至る機構, 産業公害, **16**, 995-1007.
- , 太田幸雄, 1980: 湿性大気汚染(酸性雨), 「大気汚染の機構と解析」(鈴木武夫編), 産業図書, 203-231.
- Perhac, R.M., 1978: Sulfate regional experiment in northeastern United States: The "SURE" program, *Atmos. Environ.*, **12**, 641-647.
- Rahn K.A. and R.D. Borys, 1977: The Asian source of arctic haze bands, *Nature*, **268**, 713-715.
- and R.J. McCaffrey, 1979: Long-range transport of pollution aerosol to the Arctic: A problem without borders, Papers presented at the WMO symposium on the long range transport of pollutants and its relation to general circulation including stratospheric/tropospheric exchange processes, Sofia, 1-5 October 1979, 25-35.
- , E. Joranger, A. Semb and T.J. Conway, 1980: High winter concentrations of SO₂ in the Norwegian Arctic and transport from Eurasia, *Nature*, **287**, 824-826.
- and R.J. McCaffrey, 1980: On the origin and transport of the winter Arctic aerosol, *Ann. N.Y. Acad. Sci.*, **338**, 486-503.
- , 1981: Relative importances of North America and Eurasia as sources of Arctic aerosol, *Atmos. Environ.*, **15**, 1447-1455.
- Reiter, E.R., 1981: Planetary-wave behavior and Arctic air pollution, *Atmos. Environ.*, **15**, 1465-1471.
- Reuss, J.O., 1976: Proceedings of the first international symposium on acid precipitation and the forest ecosystem, Columbus, Ohio, May 12-15, 1975, 791-813.
- Schiermeier, F.A., 1978: Air monitoring milestones: RAPS' field measurements are in, *Environ. Sci. Technol.*, **12**, 644-651.
- , W.E. Wilson, F. Pooler, J.K.S. Ching and J.F. Clarke, 1979: Sulfur transport and transformation in the environment (STATE): A major EPA research program, *Bull. Am. Met. Soc.*, **60**, 1303-1312.
- , 1980: A review of urban plume studies, *Ann. N.Y. Acad. Sci.*, **338**, 198-201.
- Schjoldager, J., H. Dovland, P. Grennfelt and J. Saltbones, 1981: Photochemical oxidants in north western Europe 1976-79—a pilot project

- , NILU NR 19/81.
- Schofield, C.L., 1976: Acid precipitation: Effects on fish, *Ambio*, 5, 228-230.
- Schmel, G.A., 1980: Particle and gas dry deposition: A review, *Atmos. Environ.*, 14, 983-1011.
- 関莊一郎, 1981: 酸性雨, *環境研究*, No. 33, 129-132.
- Sevaldrud, I.H., I.P. Muniz and S. Kalvenes, 1980: Loss of fish populations in southern Norway: Dynamics and magnitude of the problem, Proceedings of an international conference on ecological impact of acid precipitation, Sandefjord, Norway, March 11-14 (1980), 350-351.
- Shaw, G.E., 1980: Transport of Asian desert aerosol to the Hawaiian Islands, *J. Appl. Met.*, 19, 1254-1259.
- , and K. Stamnes, 1980: Arctic haze: Perturbation of the polar radiation budget, *Ann. N.Y. Acad. Sci.*, 338, 533-539.
- 栃木県, 1974: 栃木県大気汚染環境調査報告書 (昭和48年度).
- 富山県公害センター, 1977: 県内におけるオキシダント濃度の解析, 富山県公害センター年報, 第5号 (昭和51年度), 23-32.
- 鶴田治雄, 1980 a: 大気汚染物質の輸送および変質過程に関する調査研究, 「大気汚染の機構と解析」 (鈴木武雄編), 産業図書, 140-202.
- , 1980 b: 対流圏バックグラウンド大気的光化学反応, 光化学大気汚染と酸化反応シンポジウム, 茨城県筑波 (1980年1月).
- U.S./Canada RCG, 1979: The LRTAP in North America: A preliminary review.
- , 1980: Second report of the United States-Canada research consultation group on the long range transport of air pollutants.
- U.S./Canada WG 1, 1981: Interim report on impact assessment.
- U.S./Canada WG 2, 1981: Interim report on atmospheric modeling.
- USEPA, 1976: National emissions report (1973): NEDS of AEROS, EPA-450/2-76/007.
- Vukovich, F.M., W.D. Bach Jr., B.W. Crissman, and W.J. King, 1977: On the relationship between high ozone in the rural surface layer and high pressure systems, *Atmos. Environ.*, 11, 967-983.
- , 1979: A note on air quality in high pressure systems, *Atmos. Environ.*, 13, 255-265.
- , W.J. King, J.W. Dunn III and J.J.B. Worth, 1979: Observations and simulations of the diurnal variation of the urban heat island circulation and associated variations of the ozone distribution: A case study, *J. Appl. Met.*, 18, 836-854.
- Wilson, W.E., 1978: Sulfates in the atmosphere: A progress report on Project MISTT, *Atmos. Environ.*, 12, 537-547.
- Wolff, G.T., 1980: Mesoscale and synoptic scale transport of aerosols, *Ann. N.Y. Acad. Sci.*, 338, 379-388.
- , 1981: Particulate elemental carbon in the atmosphere, *J. Air Pollut. Control Assoc.*, 31, 935-938.
- Wright, R.F. and M. Johannessen, 1980: Input-output budgets of major ions at gauged catchments in Norway, Proceedings of an international conference on ecological impact of acid precipitation, Sandefjord, Norway, March 11-14 (1980), 250-251.
- 山口道夫, 1980: 東支那海の男女群島周辺におけるオゾン濃度, 第7回環境保全・公害防止研究発表会講演集, 44.