

筑波における大気中のオゾンとベリリウム-7の濃度変化*

土井 妙子^{*1}・細見 正明^{*2}・溝口 次夫^{*3}・佐藤 純^{*4}

要 旨

筑波山山頂のオゾン濃度と地表付近の大気中の⁷Be濃度を測定して、これらの濃度の季節変化を比較した。筑波山におけるオゾン濃度と⁷Beの地上濃度の季節変化のパターンはよく合致し、それぞれの月別平均値は4月と5月に高くなり、7月に低く、10月にも小さいピークが見られる二山型を示した。

筑波山山頂のオゾン濃度と土浦市のオキシダント濃度を比較すると、土浦市のオキシダント濃度は年間を通じて山頂より低く、秋季のピークは顕著ではなかった。秋季にピークが見られないのは、秋季から冬季にかけて頻繁に出現する接地逆転層のためと考えられた。

1. はじめに

地表付近の大気中に存在するオゾンは、人為起源および自然起源の双方に由来する。人為起源のオゾンは、自動車からの排ガスや、工場などから排出される窒素酸化物や炭化水素等の光化学反応によって生成するオキシダントである。オキシダントは、主としてオゾンであるが、このほかに少量含まれるPANなどの過酸化物に対する総称である。そして、オキシダントの濃度はオゾンの濃度とよく一致する(沖・江阪, 1980)。

自然起源のオゾンは成層圏から降下してくるオゾンが主であると考えられている(Singh *et al.*, 1978, 1980)。このオゾンをバックグラウンドオゾンと称し、地上で観測される濃度には季節変化が見られる。北半球中緯度付近では春季に高く、年平均の1.5倍ないし2倍になる。Ogawa and Miyata (1985) は、日本の非都市地域において観測される春季の高いオゾン濃度は成層圏からのオゾンの降下によるものであり、夏季に

オゾン濃度が低くなるのは太平洋高気圧の張り出しに関連して成層圏からのオゾンの輸送が低下するものと解釈している。

大気中に存在する⁷Be(半減期: 53.3日)の2/3は成層圏で宇宙線と酸素や窒素などの核反応により生成されたものである(Lal and Peters, 1967)。地上で観測される大気中の⁷Be濃度の季節変化は、低緯度地方と高緯度地方とでは異なっている。緯度が40~50°Nの高緯度地域では、夏季にだけ高濃度になる一山型変化を示す(Viegee and Singh, 1980; Hötzl and Winkler, 1987)のに対し、緯度が20~30°Nの地域および38°N付近では、冬季から初春にかけての季節と秋季に高くなる二山型の変化を示す(Viegee and Singh, 1980)。日本における⁷Be濃度の季節変化の観測例(阿部・阿部, 1991; 福崎, 1986; 多田ら, 1986)でも、観測地点の緯度が35~37°Nにあつて、春季と秋季に濃度が高くなる二山型変化の傾向を示している。成層圏と対流圏の大気の変換量は緯度に大きく依存し、このため⁷Be濃度の季節変化のパターンは緯度に依存すると考えられている(Viegee and Singh, 1980; Feely *et al.*, 1989)。

地上で観測されるオゾンのうち、成層圏起源のオゾンと人為起源のオゾンとを区別するために、成層圏起源物質のトレーサーとして⁷Beが利用できる可能性があると考えられる。しかし、⁷Be濃度とオゾン濃度の季節変化を平行して長期間観測した例は少なく、

* Variation of atmospheric ozone and ⁷Be concentrations in Tsukuba district.

*1 Taeko Doi, 国立環境研究所.

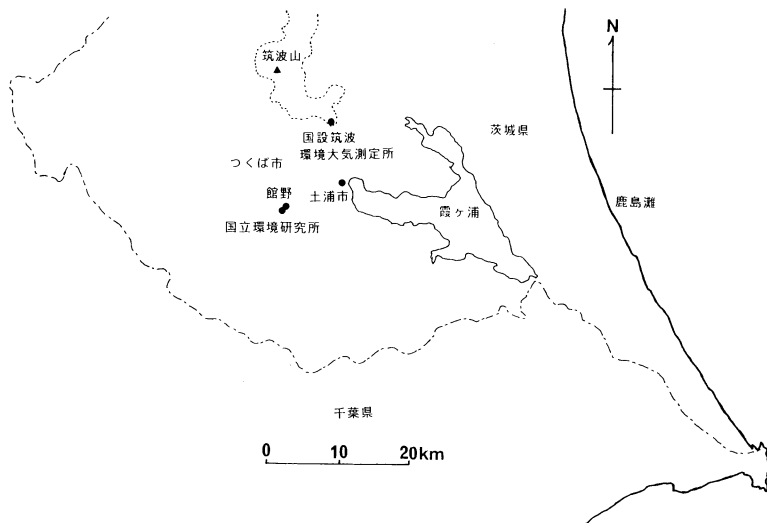
*2 Masaaki Hosomi, 国立環境研究所.

*3 Tsuguo Mizoguchi, 国立環境研究所. 現 国立公衆衛生院.

*4 Jun Sato, 明治大学理工学部.

—1992年9月7日受領—

—1993年6月18日受理—



第1図 観測地点

Dutkiewicz *et al.* (1981) と福崎 (1986) の報告以外はほとんどないようである。そこで、本報では、地表付近のオゾンの濃度変化に ^7Be の濃度変化がどのように対応しているのかを調査するために、地表面の標高が低く人為起源のオゾンの影響が大きい低地よりも成層圏由来のオゾンの寄与が大きいと推定される高地におけるオゾン濃度の季節変化と地表付近の ^7Be 濃度の季節変化を観測し、両方の変動パターンなどを比較した。観測期間は、オゾン濃度については1986年から1991年までで、 ^7Be 濃度については1987年から1991年までである。

2. 試料の採取と測定方法

^7Be の濃度は、エアロゾルを採取し、これに付着している ^7Be の放射能を測定することにより求めた。捕集は、ハイボリウム・エアサンプラーを用いて、第1図に示す国立環境研究所(つくば市, $36^{\circ}03'N$, $140^{\circ}07'E$)の3階建て建物の屋上(約10m)において1日ないし10日間ずつ連続して行った。吸引速度は $1\text{ m}^3/\text{min}$ である。なお、フィルターにはガラス繊維フィルター(Gelman, TYPE A/E)を用いた。測定試料は、フィルターを $39\text{ mm}\phi \times 3.2\text{ mm}$ 厚の円板状に加圧成型したものである。測定に供せられるフィルターの部分は全面積の80%に相当する。 ^7Be の放射能測定は、477 keV の γ 線を高純度ゲルマニウム検出器で計数することによった。測定時間は1試料当たり $(1\sim 20) \times 10^4$ 秒で、測定誤差は1~8%である。

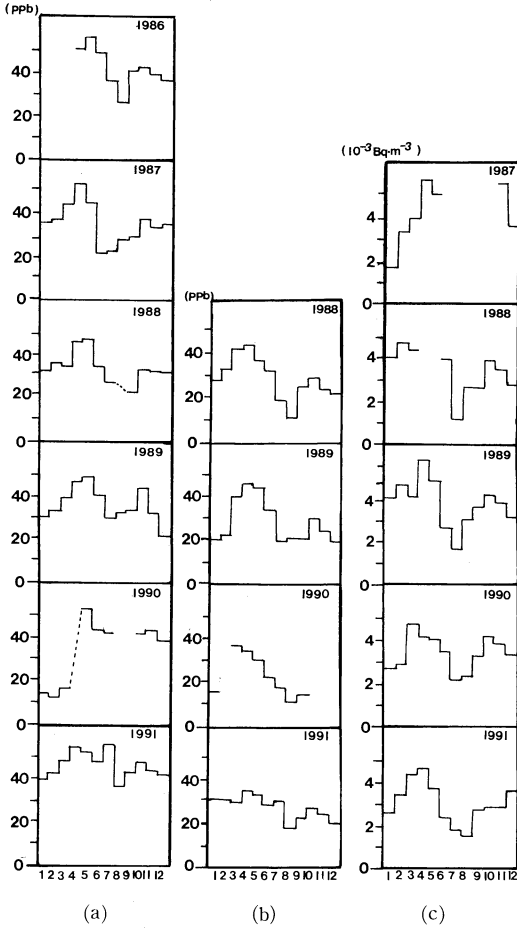
オゾン濃度の測定地点は、エアロゾルの捕集地点の北方約20kmの筑波山山頂にある気象庁筑波通信所内($36^{\circ}13'N$, $140^{\circ}06'E$, 標高868m)で、紫外線吸収式オゾン自動測定機(Dasibi, Model 1006-AHJ)を用いて連続測定を行った。この方法で得られた測定値に対して、高度補正を行い(栗田ら, 1982)地表付近のオゾン濃度に換算した。

3. 結果

第2図(a)に筑波山山頂におけるオゾン濃度の月別平均値の変化を示した。オゾン濃度は、冬季から春季にかけて上昇し、4月および5月に最大値を示す。7月と8月に低下し、10月に再び上昇し、その後、秋季から冬季にかけて低下する二山型になる年が多い。

第2図(b)に筑波山から11km南東の峰の中腹に位置する国設筑波環境大気測定所(茨城県新治郡, 標高154.5m)で観測された1988年1月から1991年12月までのオゾン濃度の月別平均値を示す。1988年と1989年の季節変化のパターンは、筑波山山頂で得られた春季と秋季にピークを示す二山型の季節変化パターンとよく合致している。

筑波山の18km南東に位置する土浦市のオキシダント濃度は茨城県公害技術センターにより中性緩衝ヨウ化カリウム法で連続測定されている。1987年から1991年までの観測結果を第3図(a)に示す。1987年1月から1991年12月までの月別平均値は、3月から5月にかけて高くなり、夏季から冬季にかけては低く、秋季



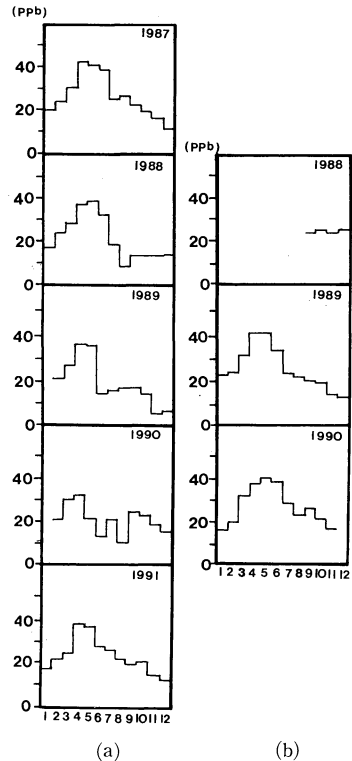
第2図 オゾンと ⁷Be 濃度の月別平均値

- (a) 筑波山山頂におけるオゾン濃度 (標高：868 m)
- (b) 国設筑波環境大気測定所におけるオゾン濃度 (標高：154.5 m)
- (c) つくば市における ⁷Be 濃度
点線は、欠測が多くデータ数の少ない期間を示す。

のピークがほとんど認められない一山型の季節変化である。

第3図(b)には高層気象台(つくば市館野, 標高 25 m)により紫外線吸収法で測定されたオゾン濃度の季節変化を示す。1988年9月から1990年11月までの月別平均値は3月から6月にかけて高くなり、夏季から冬季にかけて低くなる一山型の季節変化で、土浦市のオキシダント濃度の季節変化とよく類似している。

要約すれば、標高が 100 m より高い筑波山山頂および国設筑波環境大気測定所におけるオゾン濃度の季節変化が春季と秋季にピークをもつ二山型であるのに対



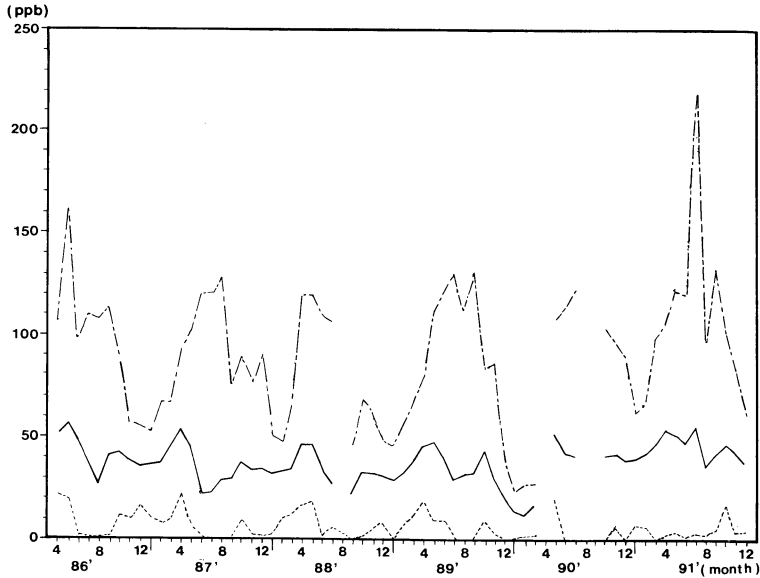
第3図 オキシダントとオゾン濃度の月別平均値

- (a) 土浦市におけるオキシダント濃度
- (b) つくば市におけるオゾン濃度

し、標高の低い土浦市のオキシダント濃度や、つくば市(館野)のオゾン濃度は春季にのみピークをもつ一山型で、秋季のピークは認められないということになる。

第2図(c)に1987年から1991年までに観測された ⁷Be 濃度の月別平均値の変化を示す。 ⁷Be 濃度も冬季から春季にかけて高くなり、3月から5月にかけて最大値を示し、7月から8月にかけて最小値を示し、10月に再び高くなり、冬季にかけて低下する二山型の季節変化を示す。

第2図(a)と(b)に示した筑波山山頂と国設筑波環境大気測定所におけるオゾン濃度の季節変化と第2図(c)に示した ⁷Be 濃度の季節変化を比較すると、オゾン濃度の変化パターンと ⁷Be 濃度の変化パターンは互いに



第4図 筑波山山頂におけるオゾン濃度の1時間値
 —— 1時間値の月平均値, ----- 1時間値の月最大値
 1時間値の月最小値

よく類似し、ともに4月・5月と10月にピークを持つ二山型で両者の変化パターンはよく合致している。

一方、第3図(a)と(b)と第2図(c)に示す土浦市のオキシダント濃度とつくば市のオゾン濃度および ^7Be 濃度の三者の季節変化を比較すると、標高の低い土浦市とつくば市におけるオキシダントやオゾンの濃度の季節変化は、春季のみピークを持つ一山型で、 ^7Be 濃度の季節変化とは、春季のピークは合致するものの秋季のピークは合致せず、低地のオゾン濃度変化は高地における変化とは異なることが認められる。

4. 考察

4.1 オゾン濃度の季節変化

筑波山山頂におけるオゾン濃度が春季に最大値を示すこと(第2図(a))は、Singh *et al.* (1978, 1980)が行った北米大陸・ハワイ・ドイツにおける観測結果と合致している。しかし、年間を通しての濃度変化の方は、緯度の異なる観測点によりまちまちで、濃度が夏季に最小となり秋季には再び高くなって冬季にかけて低下する筑波山山頂のオゾン濃度の季節変化パターンは、これらの報告に見られるものと必ずしも合致しない。一方、この変化パターンは、Ogawa and Miyata (1985)に示されているオゾンゾンデで観測されたつくば市館野(36°03'N, 140°08'E)の850 hPa(高度、

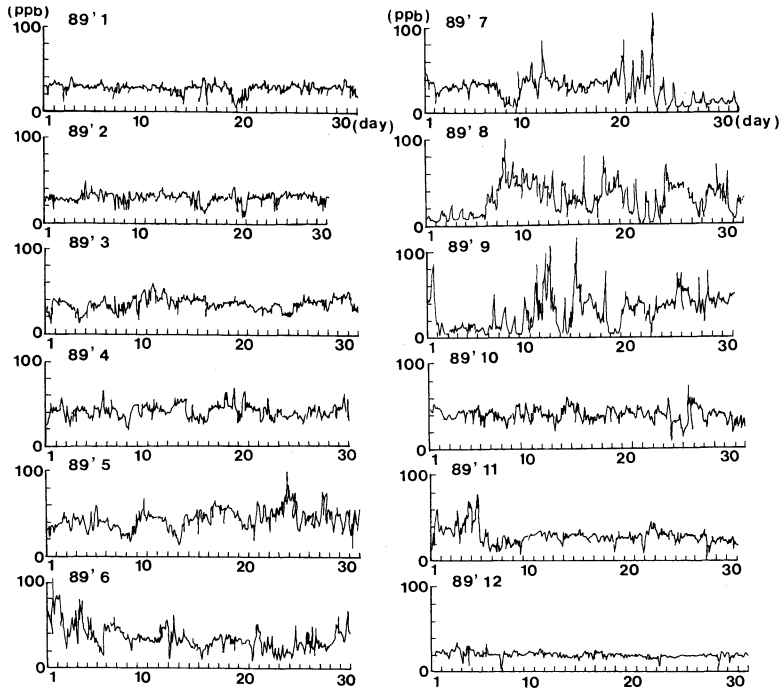
約1400 m)における変化パターンと合致する。これを見る限りでは、少なくとも筑波山周辺地域での季節変化パターンは二山型であると考えられる。

4.2 オゾン濃度の月平均値と変動幅

第4図に筑波山山頂におけるオゾン濃度の1時間の平均値(以下1時間値という。)の月平均値とあわせて1時間値の月最大値と月最小値を示した。各年のオゾン濃度の1時間値の最大値は、夏季または春季に現れることが多い。一方、月平均値の最大値は春季に現れることが多く、最小値は夏季に現われることが多い。第5図に筑波山山頂のオゾン濃度の1989年1年間の月ごとの時系列変化を示す。第6図に各時刻における1時間値の月平均値(1989年)を示すが、各月の日変化は、7月・8月・9月の3か月を除いて大きな変化はみられない。

夏季のオゾン濃度は、第5図に見られるように、変動幅が大きい。この原因としては、関東地方において梅雨明けの太平洋高気圧の張り出しによる南風の侵入によって、汚染成分を含んだ気団が筑波山より南に位置する大気汚染地域から移流する現象(溝口ら, 1989)と、オゾンが地表付近で生成消滅することの二つが考えられる。

このように、夏季には光化学反応によるオゾンの生成や人為起源のオゾンの移流があるにもかかわらず、



第5図 オゾン濃度の経日変化 (筑波山, 1989年)

夏季のオゾン濃度の月平均値が年間の最小値を示すことが多い。これは、地表付近での光化学反応によるオゾンの生成が対流圏下部のオゾン濃度を支配する主要因ではなく、第2図(c)に示した ^7Be 濃度の季節変動パターンと合致する変動パターンであることを考慮すると、むしろ夏季には成層圏からオゾンの降下が減少するためであることを示唆している。

夏季以外の季節のオゾン濃度の日変動は小さい。これは、光化学反応によるオゾンの生成量が小さいため(溝口ら, 1986)と考えられるので、10月頃から春季にかけてのオゾン濃度の変化には光化学反応によるオゾン生成の影響は小さいと考えられる。

4.3 高地のオゾン濃度と低地のオキシダント濃度またはオゾン濃度との関係

土浦市やつくば市(低地)のオキシダント濃度やオゾン濃度(第3図)と筑波山山頂(高地)のオゾン濃度(第2図(a))を比較してみると、通年にわたり低地のオキシダント濃度またはオゾン濃度は高地のオゾン濃度より低い値を示しており、その差は9月中旬から12月頃までが特に大きい。この現象の解釈の一つとして、秋季から冬季にかけてよく発達する接地逆転層の影響が考えられる。つくば市の気象研究所において、

オゾン濃度の鉛直分布を観測した結果は、7月には地表と高度195 mのオゾン濃度の相関はよく、10月の地表と高度175 mの相関は悪い(切刀ら, 1987)。つくば市周辺では、秋から冬にかけて高度50 mから100 m付近に接地逆転層が発生しやすい(切刀ら, 1987)。第1表に気象研究所で観測された月ごとの高度100 mと10 mでの気温の逆転時間と最大温度差の月平均値を示す(気象研究所, 1987)。これを見ると、年間を通して夜間には概ね気温の逆転が生じてはいるが、10月から2月にかけては逆転が生じている時間がとくに長く温度差も大きい。

オゾンは、光解離により分解されたり、降下してくる間に地表付近の一酸化窒素などとの反応で分解して(松野・島崎, 1981)濃度が低くなる。一酸化窒素の発生源が地表付近に多いため、逆転層の下ではオゾンの一部は分解するが、逆転層の上のオゾンは分解されることがなく残存することになる。夜間にも成層圏からのオゾンは降下してくるが、逆転層のため地表までは達することができず、分解されずに残り、逆転層が解消されるまでその濃度が維持される。従って、秋季から冬季にかけての逆転層の下のオキシダント濃度の平均値は高度100 m以上(逆転層の上)と比べると低く

なり、春季のピークより小さい秋季のピークは顕著ではなくると推定される。このため、逆転層の上にあ

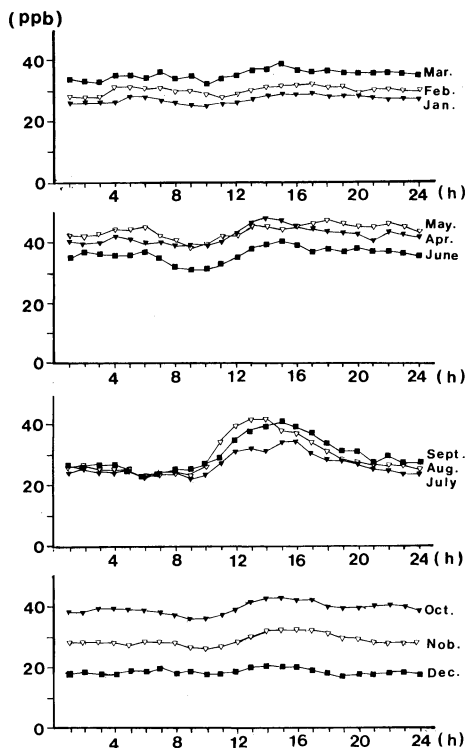
る筑波山山頂および国設筑波環境大気測定所のオゾン濃度の月平均値は、春季と秋季にピークがある二山型変化であるのに対し、逆転層の下になる土浦市やつくば市のオキシダント濃度またはオゾン濃度は春季のピークのみで、秋季のピークが顕著ではない一山型変化となると考えられる。

4.4 オゾン濃度と ⁷Be 濃度の季節変化

これまでに報告されている ⁷Be 濃度の観測例 (阿部・阿部, 1991; Feely *et al.*, 1989; 福崎, 1986; Hötzl and Winkler, 1987; 多田ら, 1986; Viegee and Singh, 1980) と本報の観測結果を比較すると、本報の ⁷Be 濃度の季節変化は、春季に年平均値の1.4倍の高濃度のピークをもち秋季にも小さいピークをもつ二山型で、中緯度付近での観測結果とよく合致している。

筑波山山頂でのオゾン濃度の季節変化と国設筑波環境大気測定所で観測されたオゾン濃度の季節変化もまた、春季と秋季にピークを示す二山型の季節変化で、春季には ⁷Be と同様に年平均値の1.4倍の濃度を示す。溝口ら (1989) が測定した日本列島の緯度 28~44° N にある大気の清浄な山岳地域のバックグラウンドオゾン濃度の季節変化を見ても、春季のピーク程顕著ではないが、10月頃にもピークが認められる。このことから、春季と秋季にピークをもつ二山型の季節変化は筑波山周辺地域に限らず日本の中緯度地方に見られる変化と思われる。

春季や秋季には移動性高気圧が頻繁に通過し、春季



第6図 オゾン濃度の時刻別月平均値 (筑波山, 1989年)

第1表 高度 100 m と 10 m の気温の逆転時間と逆転時の最大温度差の月平均値 (1984年~1986年)

つくば市 気象研究所気象観測用鉄塔

	気温の逆転時刻						気温の逆転時間 [時間]				最大温度差 [°C]		
	1984年		1985年		1986年		1984年	1985年	1986年	平均	1984年	1985年	1986年
	開始時刻	終了時刻	開始時刻	終了時刻	開始時刻	終了時刻							
1月	17:00~	9:20	17:10~	9:00	17:15~	9:15	16.3	15.8	16.0	16.0	3.2	2.8	3.1
2月	18:30~	8:45	19:30~	8:30	18:30~	8:40	14.3	13.0	14.2	13.8	1.7	1.3	2.2
3月	20:30~	7:40	1:45~	7:10	18:00~	7:45	10.2	5.4	13.8	9.8	1.4	0.3	1.1
4月	23:30~	6:30	23:00~	6:40	20:00~	7:15	7.0	7.7	13.3	9.3	0.7	1.1	1.2
5月	3:00~	5:15	2:00~	6:00	21:00~	6:30	2.3	4.0	9.5	5.3	0.2	0.4	1.1
6月	逆転無し		逆転無し		0:00~ 6:10		0	0	6.2	2.1	無し	0.1	0.5
7月	逆転無し		4:00~ 5:30		逆転無し		0	1.5	0	0.5	無し	無し	無し
8月	23:00~ 6:10		3:00~ 5:30		逆転無し		7.2	2.5	0	3.2	0.4	0.1	無し
9月	23:00~ 7:00		1:30~ 5:00		1:00~ 6:50		8.0	3.5	5.8	5.8	1.1	0.3	0.4
10月	17:00~ 8:00		17:30~ 7:50		18:00~ 8:00		15.0	14.3	14.0	14.4	1.2	1.9	2.1
11月	17:30~ 8:50		16:50~ 8:10		17:30~ 8:45		15.3	15.3	15.3	15.3	3.7	2.1	2.5
12月	16:30~ 9:30		16:50~ 9:00		17:00~ 9:30		17.0	16.2	16.5	15.6	3.3	3.3	3.2

気象観測用鉄塔観測資料 第3号 (1984~1986年) p 41-54 気象研究所による

だけでなく秋季にも成層圏から対流圏への大気の流れがおこりやすく、このため成層圏起源の⁷Beやオゾンが地上へ導入されやすい(Wolff *et al.*, 1979). 秋季はこの移動性高気圧のために、大気が安定し太平洋高気圧におおわれることの多い夏季に較べ、⁷Beやオゾンの地上濃度が増加して二山型の季節変化を示すことになると考えられる。

5. まとめ

筑波山山頂(標高868m)でのオゾン濃度と低地の地表付近の⁷Be濃度の観測を行い、両者の関連について検討した。また、筑波山山頂と国設筑波環境大気測定所(標高154.5m)のオゾン濃度と低地のつくば市のオゾン濃度と土浦市のオキシダント濃度を比較して、以下の結果が得られた。

① 筑波山山頂のオゾン濃度と低地の地表付近の⁷Be濃度の季節変化はよく一致し、春季には年平均値の1.4倍ぐらい高くなり、夏季に低く、秋季にも小さいピークがみられる二山型の変化である。従来からオゾン濃度は春季に高くなることは知られているが、夏季に低下するだけでなく、秋季にも高くなることが認められた。

② 筑波山山頂のオゾン濃度の1時間値の最大値は夏季に現れることが多いにもかかわらず、月平均値が夏季に最小値を示すことが多い。このことは光化学反応によるオゾンの生成が一年を通じての対流圏オゾンを支配している主要因ではないことを示していると考えられた。

③ 筑波山山頂および高度150mのオゾン濃度は、春季と秋季にピークを持つ二山型の季節変化を示したが、土浦市とつくば市のオキシダント濃度とオゾン濃度は、春季にピークを持つ一山型の季節変化を示した。秋季にオキシダント濃度のピークが認められないのは、秋季から冬季にかけて発達する接地逆転層のためと考えられた。

謝辞

筑波山山頂におけるオゾン濃度の測定に際しては、気象庁の施設を使わせていただき、国立環境研究所の西川雅高博士と宇野由利子氏にご協力いただいた。記して謝意を表する。

参考文献

阿部道子・阿部史朗, 1991: 環境モニタリング技術, 環

境モニタリングの今日的意義(岩倉哲男・稲葉次郎編), III 環境モニタリング技術, III-5 浮遊じん, 放医研環境セミナーシリーズ, No. 17, 実業公報社.

Dutkiewicz, V. A., L. Husain and A. Rusheed, 1981: Stratospheric ozone in the planetary boundary layer, Proc. Quadrenn. Int. Ozone Symp., Meeting Date 1980, 1, 632-639.

Feely, H. W., R. J. Larsen and C. G. Sanderson, 1989: Factors that cause seasonal variations in beryllium-7 concentrations in surface air, J. Environ. Radioactivity, 9, 223-249.

福崎紀夫, 1986: 新潟地域における春季高濃度オキシダントの原因, 大気汚染学会誌, 21, 296-304.

Hötzl, H. and R. Winkler, 1987: Activity concentrations of ²²⁶Ra, ²²⁸Ra, ²¹⁰Pb, ⁴⁰K and ⁷Be and their temporal variations in surface air, J. Environ. Radioactivity, 5, 445-458.

気象研究所, 1987: 気象観測用鉄塔観測資料, 第3号(1984-1986), 41-54.

切刀正行・柴田恵子・土井妙子・溝口次夫, 1987: 大気汚染成分の鉛直分布, 国立公害研究所研究報告, 第107号, 85-101.

栗田秀實・若松伸司・小川 靖・五井邦宏・奥田典夫, 1982: 気圧の変化が O₃, NO, NO_x 測定器に及ぼす影響, 大気汚染学会誌, 17, 243-251.

Lal, D. and B. Peters, 1967: "Encyclopaedia of Physics Vol. XLVI/2 (Cosmic Rays)", K. Sitte, ed., 551-612, Springer Verlag, New York.

松野太郎・島崎達夫, 1981: 大気科学講座3. 成層圏と中間圏の大気, 21-22, 44-48, 東京大学出版会.

溝口次夫・光本茂記・西川雅高, 1989: 日本列島を覆う対流圏下層オゾンの動態に関する研究, 環境科学会誌, 2, 87-99.

溝口次夫・甲斐沼美紀子・内藤正明, 1986: グローバルスケールにおける大気汚染レベルを評価するための新しい指標の提案, 国立公害研究所研究報告, 第88号, 77-91.

Ogawa, T. and A. Miyata, 1985: Seasonal variation of the tropospheric ozone: A summer minimum in Japan. J. Meteorol. Soc. Japan, 63, 937-946.

沖 玄憲・江阪 忍, 1980: オキシダント自動測定機の精度に関する研究, 京都府衛生公害研究所年報, 25, 64-71.

Singh, H. B., F. L. Ludwig and W. B. Johnson, 1978: Tropospheric ozone: Concentrations and variabilities in clean remote atmospheres, Atmos. Environ., 12, 2185-2196.

Singh, H. B., W. Viezee, W. B. Johnson and F. L. Ludwig, 1980: The impact of stratospheric ozone

on tropospheric air quality, *J. Air Pollut. Control Assoc.*, **30**, 1009-1017.

多田哲郎・趙 蘭才・小村和久・坂上正信, 1986: 大気中の放射性核種濃度の変動に関する研究, *地球化学*, **20**, 98-102.

Viegee, W. and H. B. Singh, 1980: The distribution of beryllium-7 in the troposphere: Implications on

stratospheric/tropospheric air exchange, *Geophys. Res. Lett.*, **7**, 805-808.

Wolff, G. T., M. A. Ferman and P. R. Monson, 1979: The distribution of beryllium-7 within high-pressure systems in the eastern United States, *Geophys. Res. Letts.*, **6**, 637-639.

会員の所属支部指定について

日本気象学会理事会

先の総会で改正された定款に基づき第28期役員選挙が1994年早々に行われます。その際、会員各位の所属支部を指定する必要があります。定款には会員の支部指定の定義がありませんので、なるべく慣例に沿った形で所属支部を指定することにし、その原則として「連絡先住所つまり天気誌の郵送先住所をもって、その会員の所属支部を指定する」と理事会で決められました。ただし、職場住所あるいは自宅住所などの事情により、所属支部を特に自分で指定したい会員の場合には、そ

の希望を入れることができる、という付帯事項も決められました。

就きましては、自分の所属支部を自分で指定したい会員は、本年12月24日までに、学会事務局気付理事長宛で、文書により、然るべき事情と希望支部を申し出て下さい。

なお、各支部（地区）に属する都道府県は、日本気象学会細則第6条1項（天気3月号219頁参照）によります。