

TECHNICAL REPORTS OF THE METEOROLOGICAL RESEARCH INSTITUTE NO.1

DEVELOPMENT OF MONITORING TECHNIQUES  
FOR GLOBAL BACKGROUND AIR POLLUTION

By

MRI SPECIAL RESEARCH GROUP  
ON GLOBAL ATMOSPHERIC POLLUTION

気象研究所技術報告

第1号

バックグラウンド大気汚染

の測定法の開発

地球規模大気汚染特別研究班

気 象 研 究 所

METEOROLOGICAL RESEARCH INSTITUTE, JAPAN

MARCH 1978

## **Meteorological Research Institute**

Established in 1946

Director : Dr. J. Sugiura

Forecast Research Division	Head : Dr. N. Saito
Typhoon Research Division	Head : Mr. S. Fujiwhara
Physical Meteorology Division	Head : Mr. J. Kubo
Applied Meteorology Division	Head : Mr. Y. Kikuchi
Meteorological Satellite Division ,	Head : Dr. K. Naito
Seismology and Volcanology Division	Head : Mr. A. Suwa
Oceanographical Division	Head : Dr. T. Nan'niti
Upper Atmosphere Physics Division	Head : Dr. M. Misaki
Geochemical Division	Head : Dr. Y. Sugiura

35-8, Koenjikita 4-Chome, Suginami, Tokyo, 166, Japan

### **Technical Reports of the Meteorological Research Institute**

*Editor-in-chief* : Dr. Y. Sugiura

<i>Editors</i> :	Dr. Y. Okamura	Miss M. Wada	Dr. Y. Sasyo
	Dr. N. Yasuda	Mr. S. Koinuma	Dr. Y. Tanaka
	Dr. O. Asaoka	Dr. M. Kitamura	Dr. Y. Sugimura

*Managing Editors* : Mr. Y. Kojima      Mr. Y. Koyama

#### *Technical Reports of the Meteorological Research Institute*

has been issued at irregular intervals by the Meteorological Research Institute since 1978 as a medium for the publication of survey articles, technical reports, data reports and review articles on meteorology, oceanography, seismology and related geosciences, contributed by the members of the MRI.

# バックグラウンド大気汚染の測定法の開発

## 目 次

概 要 (和文) .....	1
アブストラクト (英文) .....	6
ま え が き .....	15
第 I 部 測定法および測定器の開発 .....	19
1. 大気中の微量 $\text{SO}_2$ , $\text{NO}_x$ および $\text{CO}$ の測定法の自動化 .....	19
2. 地上設置型低濃度 エロゾル測定装置の開発 .....	35
3. エロゾル・ゾンデの開発 .....	56
4. エロゾル粒子放射化分析のサンプリング法, 測定法, 解析法 .....	65
5. 個々のエロゾル粒子の物質構成分析法とその応用例 .....	80
6. 日射測定による大気混濁度の監視 .....	88
7. まとめ .....	102
第 II 部 候補地域 (南鳥島と小笠原父島) における予備観測 .....	105
1. 候補地域の環境 .....	106
2. 綾里, 乗鞍岳, 南鳥島, 父島における大気中の $\text{SO}_2$ , $\text{NO}_2$ , $\text{NO}$ , $\text{CO}$ , $\text{O}_3$ 濃度について .....	117
3. 南鳥島, 小笠原父島におけるエロゾル濃度 .....	124
4. 南鳥島, 小笠原父島におけるエロゾル濃度の島内分布 .....	134
5. 南鳥島, 小笠原父島におけるエロゾル粒子の放射化分析 .....	149
6. 日射の予備観測 .....	167
7. まとめ .....	177

## 発 刊 の 辞

気象研究所では昭和45年1月から52年10月までの間に、主として予報研究部の編集によって「大気」第1～第19号を発行したが、今回大気を発展的に解消し、これに代るものとして気象研究所技術報告を発行する。このような変更の理由は次のとおりである。

「気象研究所研究報告」には適切なページ数のもとに研究成果の要点を科学的に記述した論文が掲載されることになっている。従って取得された資料の一部しか論文に提示されない場合がある。そのような場合に、その他の資料を提示することが科学的に価値ありと認められるならば、それを掲載する場が欲しい。また総合研究において、部分的には原著論文として刊行されることがあっても、全体を総括して研究成果を発表する場が欲しいこともある。これらの要請に応える場として「気象研究所技術報告」を新設する。

「大気」に掲載されていた総合報告は新設の「技術報告」が利用できるし、技術解説や地方との技術交流などは、既存の「気象研究所ニュース」、「測候時報」、「天気」などを利用できるので「大気」を廃止する。

以上が変更の理由である。今後は「気象研究所技術報告」が順調に発展して行くことを期待する。

昭和53年3月

気象研究所長 杉 浦 次 郎

## 序

「気候に影響する大気汚染物質の測定法及びその監視のシステム化に関する研究」は48年度から51年度まで4か年計画で実施された国立機関公害防止等試験研究費による特別研究で、研究費の総額は87,760千円であった。この研究の要望原局は気象庁で、要望理由は“大気汚染が地球規模あるいは地域規模の気候の変化をおこし、ひいては人類の生活・活動に悪影響を及ぼすことを考慮し、大気中の気体及び微粒子のバックグラウンド値を長期に亘り正確に測定する機器・方法を開発する”ためであり、期待される成果は“地球規模のバックグラウンド大気汚染の基準観測所における観測方法を確立し、その監視システムに関する研究を行ない、気象庁において実施を予定している業務化に寄与する”ことであった。

研究全体の責任者は48年度当初大田正次物理気象研究部長であったが、48年7月1日に大田部長が退職した後に斉藤博英物理気象研究部長が引継いだ。斉藤部長はこの特別研究終了と同時に、52年4月1日退職したので、52年度におけるこの研究報告作成の責任者は三崎方郎高層物理研究部長が担当した。

この特別研究は四つの部分研究から成るが、それぞれの部分研究の題目とそれらの主任研究者は次のとおりであった。

1. 気体状汚染質の測定法の研究：川村清（地球化学研究部第1研究室長）
2. エーロゾル測定法の開発研究：斉藤博英（物理気象研究部長）
3. 日射の波長別測定による汚染質測定法の開発研究：48～50年度・関原彊（高層物理研究部長）  
51年度・村井潔三（高層物理研究部第4研究室長）
4. 候補地域におけるデータ収集：斉藤博英（前出）

この報告がバックグラウンド大気汚染基準観測所の業務化に寄与することができれば幸である。

昭和53年3月

気象研究所長 杉 浦 次 郎

## バックグラウンド大気汚染の測定法の開発

### 地球規模大気汚染特別研究班\*

#### 概 要

1970年10月および1971年5月になされた世界気象機関(WMO)の決議(Resolution 12 (EC-XXII) (1970 Oct), 10 (Cg-VI) (1971 May))によれば、気象および気候に影響すると見られる大気組成物質の長期変動を監視するための全地球的観測網の展開の計画を明かにし、その観測所の設立を各国に要請している。この決議にしたがって、気象庁は1981年からの開始を目標として大気バックグラウンド汚染監視基準観測所を適当な地点に設立することを決定した。観測のための測器とその観測システムの開発は気象研究所がその任に当り、4年間の計画で実施した。測器としては、バックグラウンド状態にある低濃度の気体状および粒子状の汚染物質を正確に検出し得るものであることが必須条件であり、また、観測は遠隔地において少人数で行われるものと予想されるので、装置の十分な自動化と安定な作動とが要求される。

装置の開発は1973年から1976年の間になされた。第I部にはその詳細が述べてあるが、以下に内容を要約して述べる。

#### 1. 大気中の微量 $\text{SO}_2$ 、 $\text{NO}_x$ およびCOの測定法の自動化

大気中の極低濃度 $\text{NO}_x$ および $\text{SO}_2$ を6時間に一回ずつ自記する測定器を開発した。

$\text{NO}_x$ の測定には捕集液に水酸化ナトリウムと亜硝酸ナトリウムの混液を使用する方法を採用した。測定器の検出限界は $\text{NO}_2$ については約 $0.05 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、 $\text{NO}$ に対しては $0.07 \mu\text{g}/\text{m}^3$ である。 $\text{NO}_2$ が捕集液に吸収されて亜硝酸イオンとなる割合、すなわち転換係数、を決めるための一連の観測を南鳥島で行った。その結果、転換係数は平均して0.88となった。 $\text{SO}_2$ の測定にはよく知られているWest-Gaeke法を採用した。測定器の検出限界は約 $0.06 \mu\text{g}/\text{m}^3$ である。

CO分析計を開発した。測定の実理はCOを200℃に保った酸化第二水銀と反応させることにより生成する水銀蒸気を吸光光度法により決定することにある。分析計の検出限界は約3 ppbであり、実験室で得た結果から計算した標準偏差はCO 0.11 ppmにおいて約3.2%である。

---

\*主任研究者：斉藤博英(元物理気象研究部)

共同研究者

気体状汚染質：川村清，伏見克彦(地球化学研究部)

粒子状汚染質：伊藤朋之(物理気象研究部)，小野晃(元物理気象研究部)

エーロゾル・ゾンデ：三崎方郎，金沢五寿雄，池上三和子(高層物理研究部)

中性子放射化分析：矢野直，山路勲(応用気象研究部)，前橋紀恵子(元応用気象研究部)

日射分光測定：村井潔三，小林正治，後藤良三，山内豊太郎(高層物理研究部)

## 2. エーロゾル濃度自動測定装置の開発

気象研究所において開発された高信頼度の自動式ブラックカウンターの光量検出部をさらに改良し、極低濃度、すなわち、 $1,000$  個/cm 以下の濃度を精密に測定し得る装置を試作した。改良点は、検出部に光電流平衡回路とモーター駆動による光量調節用フィルターを付属させたことである。前者は装置の感度の増加をもたらし、後者は光電流の減衰の割合の基準として用いられる。

粒子濃度の絶対値の較正を高い精度で行うために新しい検定装置を試作した。これは、気象研究所が1974年に開発したエートケン・カウンターと自動調節付きポラロイド・カメラとによって構成される。この装置により、エーロゾルの数密度の絶対値は2～3分以内で決定される。

## 3. エーロゾル・ゾンデの開発

エーロゾル濃度の垂直分布を測定するゾンデを2種類開発した。第1種のゾンデは、大粒子（直径 $0.3\mu\text{m}$ 以上）の濃度測定用に設計したもので、測定原理はノズルから噴出する試料空気の細流束中の個々のエーロゾル粒子による散乱光パルスを検出し計数することによる。第2種のゾンデは小粒子（直径 $0.3\mu\text{m}$ 以下）の濃度測定用で、断熱膨張式の霧箱法によるものである。

## 4. 自動粒子サンプラーと粒子分析法の開発

非汚染地域のサンプリングのためのサンプラーを3種類開発した。このうち2種類は中性子放射化分析のためのサンプラーで、他の1つは電子顕微鏡分析用である。

開発したサンプラーの特徴は、(1)正確な流量の測定、(2)測定器自身の汚染のチェック、(3)サンプラーの自動操作にあった。

器機による中性子放射分析の分析処理および原理について述べた。

## 5. 大気混濁度の測定

エーロゾル粒子等による大気混濁の状態を監視する目的で、複式分光光度計を主体とする二種の分光日射計を試作した。一つは、直達日射の分光測定を行う目的のものである。他は全天日射と天空散乱日射の分光測定を目的とする。前者の測定から、エーロゾルによる消散係数の波長分布を求め、これに対応するエーロゾルの粒径分布の推定を行う。全天日射量の測定は、地表面への入射エネルギーの常時監視の意味を有し、天空散乱日射の測定は、直達日射から求めた消散係数の波長分布の結果と併せて解析することによる。エーロゾル粒子の光学的特性、とくに、屈折率の推定のための資料として用いられる。

第Ⅱ部では候補地において行った予備観測の結果が述べてある。この観測の目的は、第1に、開発した各種の測定器の実用試験であり、第2には、候補地における現時点での汚染レベルを把握することであり、第3には、基準観測所設置地点の選定に資する基礎資料を得ることにあつた。観測は1975年夏季と秋季に南鳥島で、1976年秋季には小笠原父島で実施された。以下にこれらの候補地域における気候環境と、観測により得られた主な結果を要約して述べる。

### 1. 候補地域の環境

はじめに基準大気汚染観測所の建設に適するための立地条件に合う候補地として南鳥島と父島が考慮されたことを記し、次に両島の環境を、欠点となりそうな事項を中心として、概略を記した(1.1~1.3)。

次に、1.4では、この地域の大気の汚染状況に最も影響の大きい気流系について調べ、大気汚染のバックグラウンド値を求めるための好条件は、父島では6月から9月までの4か月、南鳥島では4月から10月までの7か月の間に生じ易いこと、また本州やアジア大陸上の汚染源からの影響を受けやすい期間は、父島では10月から4月の7か月、南鳥島では12月から2月の3か月間であることを示した。

1.5では両島の気温や天気日数の統計値を示し、両島の気候条件の差を明らかにし、かつ父島には5月から6月の初めにかけて、南支那海方面からの南西季節風が届く機会もあることを示した。

## 2. 気体状汚染質の測定

乗鞍岳(36°06'N, 137°33'E, 海拔2770m), 南鳥島および父島における大気 $\text{NO}_x$ ,  $\text{SO}_2$ , COおよび $\text{O}_3$ の濃度を著者らの開発した自動測定器、オゾン分析計および手動式方法により測定した。

乗鞍岳における $\text{NO}_2$ , NO, COおよび $\text{O}_3$ の観測は1976年10月に実施されたが、これらの平均濃度はそれぞれ $1.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ,  $0.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ,  $0.13 \text{ ppm}$  および  $0.039 \text{ ppm}$ であった。南鳥島で観測した大気 $\text{NO}_2$ , NO,  $\text{SO}_2$  およびCOの平均濃度はそれぞれ $1.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ,  $0.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ,  $0.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ,  $0.15 \text{ ppm}$ であった。また父島で観測した $\text{SO}_2$ , COおよび $\text{O}_3$ の平均濃度はそれぞれ $0.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ,  $0.08 \text{ ppm}$  および  $0.024 \text{ ppm}$ であった。観測結果が不足のため、海洋大気中のNO濃度はまだわかっていない。南鳥島で観測されたNO濃度は大陸を除く他のすべての地域における濃度推定値よりも2倍大きい。

南鳥島および父島で観測した気体状成分のうち特に $\text{NO}_2$  および  $\text{SO}_2$  の大気バックグラウンド濃度は他の研究者により得られた結果によく一致する。

## 3. エロゾル濃度の測定

エロゾル濃度については、候補地における現在のバックグラウンド値をたしかめるために、南鳥島では1975年夏と秋にそれぞれ2週間、父島では1976年秋に2週間、連続記録を行った。

南鳥島の夏の観測結果によると、同島におけるエアロゾル粒子濃度は極めて安定して、低濃度(200~300ヶ/cc)に保たれていたが、秋の観測では時として2000ヶ/ccに達することも記録された。気団の流跡線解析によると、これは同島が日本本土から来た汚染気団におおわれていた場合であることがわかった。父島の観測でも同様のことが再度、しかももっと著しく現われたことが確認された。すなわち、本土から最も遠く離れたこれらの島でも、風系によって日本本土の汚染の影響が到達することがあるということを示すものである。

大粒子濃度の時間的変動はエアロゾル粒子に比べるとかなり複雑で、南鳥島でもかなり変動があり、時として気温・湿度と、また時として風向との相関が認められた。父島における平均濃度は約20ヶ/ccで、これは南鳥島における平均値の約2倍であった。

## 4. 南鳥島、父島で捕集したエロゾル粒子の放射化分析

大気エアロゾル粒子が父島とマーカスにおいてサンプルされた。父島における浮遊粒子の濃度は16.4



$\mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。また、粒子の元素別濃度とその粒径分布を測定した。

元素の主な発生源を分類するために、濃縮度を定義した。発生源としては、(1)海水、(2)地殻物質、(3)人間活動によるもの其他である。

Na, Br, Cl, Mg, K が(1)のグループに分類された。これらの元素の粒径分布は対数正規型を示し、そのモードは  $4\mu\text{m}$  であった。但し、マークスのデータは父島のそれと異っていた。その理由は巨大な海水のしぶき粒子によって説明された。

Ca, V, Co, Mn, Cr, Sc, Fe, Al, Ce, Sm は(2)グループに分類された。元素の粒径分布は(1)グループと同様であり、そのモードは  $5\mu\text{m}$  であった。

I, Zn, Se, Sb は(3)グループに分類された。この粒径分布は沃素の場合を除いて、殆んどがサブミクロン粒子に分布していることを示している。

## 5. 日射の分光測定

1975年7月、南鳥島において直達日射の分光測定を行い、大気中のエアロゾル粒子による消散係数を求めた。これ等の値は、東京における最大値と比べると約1桁小さい値を示している。一般的に短波長域における差が著しく現われている。

得られた消散係数の波長分布からエアロゾルの粒径分布の推定を行った。東京における測定から得られた粒径分布を比較すると、総量は勿論東京よりも小さく、とくに、半径約  $1.0\mu\text{m}$  よりも小さい粒子の量の差が著しい。

## 6. 汚染質濃度の島内分布の測定と地点選定

候補の島における基準観測所設置点選択に資するデータを得るために、1975年秋南鳥島で、1976年秋父島で、エアロゾル濃度の島内分布のサーベイを行った。この場合、島内の人工汚染源からの汚染粒子の分布と、波シブキから生ずる局所的な粒子濃度分布の検出に特別留意して観測を行った。

南鳥島は極めて単純な地形をしている関係上、エアロゾル濃度分布もまた単純なものであった。島内での主な汚染源は気象観測所および米国沿岸警備隊の発電棟の煙突からの排気であって、煙突から風下に向かって甚だしく高濃度なエアロゾル粒子の明瞭なブリュームが見出された。このブリュームの中には大粒子(直径  $0.3\mu\text{m}$ )の存在は見られなかった。大粒子の分布は風上側の海岸で最高濃度を示しており、内陸に入るにつれて指数関数的に減少していた。このことはそれがリーフ線での波シブキから発生していることを明らかに物語っている。南鳥島のような偏平な小島では、穏和な気象条件でも、このような波シブキの影響を避ける地点は見出せないように思われる。

一方、父島の地形は南鳥島とは対照的で、島の大部分は山岳地帯である。しかも観光地化しつつある島なので、住民の数もかなり多い。居住区は二見湾北岸に集中している。エアロゾル濃度分布の測定の結果によると、意外にも人口稠密地帯でも、山岳地帯でも殆んど差がなく、全島ほぼ一様である。幹線道路では稍交通量も多いが、濃度の一時的な擾乱をしばしばうけているものの、現在の程度の交通量では直ちに拡散してしまい、恒久的な高濃度地域を形成するに到っていないことがわかった。

父島では気体状汚染質の島内分布も測定された。すなわち三日月山に設けた固定観測点における $\text{SO}_2$ 、 $\text{CO}$ 、 $\text{O}_3$ の自動測定記録の他に島内4地点の移動観測点で1～2日ずつ、 $\text{NO}_2$ と $\text{SO}_2$ 濃度の測定を行った。その結果によると、島内の人工汚染がもっとも少いと予想された地区にある電々公社夜明山送信所、および海上自衛隊夜明山送信所（いずれも東海岸に面した崖上にある）でも、また背梁山脈の西斜面の山中にある亜熱帯農業センターでも、また更に、人口稠密地区と至近距離にある三日月山の固定観測点でも測定値は殆んど同じで、気体状汚染質についてもエアロゾルと全く同様に、島全域にわたってバックグラウンド値とみなされる殆んど様な濃度で分布していることが見出された。ただし、島中央部に近い東海岸崖上の宇宙開発事業団小笠原追跡所の周辺では、発電機から発生する汚染質の存在が認められたのが唯一の例外であった。

しかしながら、基準観測所設置の地点を選定するに当っては、当然ながら将来の同島の発展をも予測しなければならない。したがって、人口稠密地区である二見湾沿岸から三日月山に到る島の北西部、ならびに強力な自家発電施設をもつ宇宙開発事業団小笠原追跡所の周辺は避けねばならない。更に建設経費等の実行面も併せて考慮すれば、現段階での第一候補地は、電々公社夜明山送信所から海上自衛隊夜明山送信所に到る間の東海岸に面する地域が挙げられよう。

地点選定上の今後の問題としては、しぼられた候補地点におけるより長期な予備観測と、その周辺に限定したより精密な環境調査を実施することが肝要であると考えられる。

Development of Monitoring Techniques  
for Global Background Air Pollution

by

MRI Special Research Group  
on Global Atmospheric Pollution\*

Abstract

WMO decided in 1970 [Resolution 12 (EC-XXII)(Oct 1970)] and in 1971 [Resolution 10 (Cg-VI)(May 1971)] to launch a project aiming at the establishment of a global network of baseline air pollution stations designed to document longterm changes in atmospheric compositions of particular significance to weather and climate. Following to these resolutions, JMA decided to establish a baseline air pollution station at an appropriate site, which will become operational in 1981. The research group of MRI shares the responsibility of the developing feasible monitoring systems to monitor the atmospheric level of gaseous and particulate background pollutants at a baseline station. It is a basic requirement that the monitoring methods must be sufficiently sensitive, specific and reliable for the very low background concentration and be automated for a routine work at remote places.

---

\* Principal Investigator:

H. Saito (Formerly Physical Meteorological Division)

Co-Investigators:

Gaseous pollutants:

K. Kawamura, K. Fushimi (Geochemical Division)

Particulate pollutants:

T. Ito, A. Ono (Physical Meteorology Division)

Aerosol-Sonde: M. Misaki, I. Kanazawa, M. Ikegami  
(Upper Atmosphere Physics Division)

Neutron activation analysis: N. Yano, I. Yamaji,

K. Maebashi (Applied Meteorology Division)

Atmospheric turbidity: K. Murai, M. Kobayashi, R. Goto,

T. Yamauchi (Upper Atmosphere Physics Division)

During the period from 1973 to 1976, considerable efforts at MRI have been extended in the research on monitoring methods, the development of prototype monitoring system and the observations on Minamitori-shima and Chichi-jima for site selection as described in this report.

## 1. Measurement of gaseous pollutants

Automated instruments which provide measurements of extremely low concentration of  $\text{NO}_x$  and  $\text{SO}_2$  in the air at a rate of once per 6 hours have been developed.

The procedure for the measurement of  $\text{NO}_x$  is fundamentally based on the method which uses a mixed solution of sodium hydroxide and sodium arsenite as an absorption solution. The detection limit of the instrument in terms of concentration is about  $0.05\mu\text{g}/\text{m}^3$  for  $\text{NO}_2$  and  $0.07\mu\text{g}/\text{m}^3$  for  $\text{NO}$ . A series of observation to evaluate the nitrite ion equivalence of  $\text{NO}_2$  gas absorbed in the above mentioned mixed solution has been done at Minamitori-shima. The results of observation showed that the equivalence was 0.88 on the average. As for the measurement of  $\text{SO}_2$ , the procedure is a modification of the well known West-Gaeke method and the detection limit of the instrument is about  $0.06\mu\text{g}/\text{m}^3$ .

An automatic CO analyzer has been developed. The principle of measurement is based on the reaction of CO with mercury oxide at a temperature of  $200^\circ\text{C}$ . The detection limit of the analyzer is about 3ppb, and the standard deviation computed from the results obtained in our laboratory is about 3.2% at the CO concentration of 0.11ppm.

## 2. Development of automatic counter for aerosol concentration measurement

The MRI type automatic Pollak Counter of high reliability has been improved further in the part of photo-detector so as it can

detect small variation precisely in the very low concentration of aerosol particles, say, below 1000 particles per  $\text{cm}^3$ . The improved photo-detector includes a photo-electric current balancing circuit and a motor driven optical filter system over the photocell. The former increases the sensitivity of the measurement, while the latter serves as a reference for the percentage extinction of photo-electric current.

In order to ensure the accuracy of the concentration measurement, a new model of calibration system was built up. It consists of the MRI type Aitken Counter, exploited in 1974, and a polaroid camera with an automatically operating control device. With the instrumentation an absolute value of aerosol concentration is obtained within a few minutes.

### 3. Development of aerosol-sonde

Two kinds of radiosonde for measuring the concentration of aerosol particles have been developed. The first one was designed for the large particles, with the diameter more than  $0.3\ \mu\text{m}$ , with the photo-electric sensing technique which detects and counts the pulse of light scattered by the individual particle in the sample air. The second type of sonde was for the small particles, with the diameter less than  $0.3\ \mu\text{m}$ , with the conventional technique utilizing the fog chamber method.

### 4. Development of automatic aerosol samplers and analytical method

Three types of aerosol samplers were developed in order to make a sampling in unpolluted atmosphere. Two of them are the samplers which can collect the size separated samples for instrumental neutron activation analysis, and the other is the sampler for electronmicroscopic analysis.

Main special features of the samplers are; (1) Accurate flow rate measurement, (2) Check of self instrumental contamination and

(3) Automatic operation of the samplers. Principle and analytical procedure of the instrumental neutron activation analysis are described in this report.

#### 5. Measurement of atmospheric turbidity

A spectro-pyrheliometer and a spectro-pyranometer were designed for the monitoring of the atmospheric turbidity due to aerosol particles. The direct solar radiation is measured by the spectro-pyrheliometer which is set on the equatorial mounting and we get the spectral distributions of extinction coefficient due to the scattering and absorption by aerosol particles. From the spectral distributions of extinction coefficient, we can infer the size distributions of particles. By using the spectro-pyranometer, the spectral distribution of global and diffuse sky radiation are measured, and the analysis of data leads to determination of the optical properties of the aerosols.

#### 6. Data collection for site selection

The present atmospheric level of a background air pollution was measured on Minamitori-shima (24°18' N; 153°58' E) and Chichi-jima (27°05' N; 142°11' E) which are the proposed sites for establishment of a baseline air pollution station in Japan. The expeditions were made in summer and autumn in 1975, and in autumn in 1976. The main results of the observations are described as follows.

The concentrations of gaseous pollutants in the atmosphere were measured at Mt. Norikura (36°06' N; 137°33' E, elevation 2770m), Minamitori-shima and Chichi-jima.

The observations of NO<sub>2</sub>, NO, CO and O<sub>3</sub> in the air at Mt. Norikura were carried out in October, 1976, and their average values were 1.8 µg/m<sup>3</sup>, 0.8 µg/m<sup>3</sup>, 0.13 ppm and 0.039 ppm, respectively. The average values of NO<sub>2</sub>, NO, SO<sub>2</sub> and CO in the

air observed at Minamitori-shima were  $1.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ,  $0.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ,  $0.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$  and 0.15 ppm, and those of  $\text{SO}_2$ , CO and  $\text{O}_3$  in the air measured at Chichi-jima were  $0.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ , 0.08 ppm and 0.024 ppm, respectively. Because of scanty data, it is not yet known about the concentration of NO in the maritime air. The concentration of NO observed at Minamitori-shima is two times larger than that assumed to exist over all other areas except land.

Our results on the atmospheric background concentrations of gaseous components, particularly  $\text{NO}_2$  and  $\text{SO}_2$  observed at Minamitori-shima and Chichi-jima agree well with those obtained by the other researchers.

The concentrations of Aitken particles and the large particles (with diameters more than  $0.3 \mu\text{m}$ ) were continuously recorded for 2 weeks in summer and 2 weeks in late fall of 1975 in Minamitori-shima.

In summer season, the concentration of Aitken particles was found to be steadily in low value of 200-300 particles/cc. In fall season the concentration was mostly low, being under the influence of maritime air mass as in summer, but occasionally enhanced up to 2000 particles/cc when the island was reached by polluted air mass which came from the main land of Japan. The same situation was also found again but more markedly in case of the observation in Chichi-jima carried out for two weeks in fall 1976.

The time variation of the large particles was rather complicated even in Minamitori-shima, sometimes being related more or less with temperature and humidity, and sometimes with the wind direction. The average concentration of the large particles was determined as 20 particles/cc, which was about two times higher than that in Minamitori-shima.

The surface distribution of the aerosol concentration was surveyed in both islands, Minamitori-shima and Chichi-jima, in 1975 and in 1976, respectively, for the purpose of the site

selection, with the particular caution for the particles produced from the anthropogenic origin and from sea spray raised at the coral reef.

Minamitori-shima has the extremely simple topography, shaped as a triangle with about 2000 m sides, having a flat surface of the highest elevation of 8 m, and surrounded by the coral reef. There is no habitant except the members of a weather station of JMA and U.S. Coast Guard. High concentration of the small particles was found only in the plumes of the effluents from the stacks of the electric power stations. On the other hand, no increase in the concentration of the large particles was detected in the effluents. The highest concentration of the large particles was found along the coast line of the windside, decaying with the distance towards the leeside. This apparently indicated that those particles were produced from sea spray at the coral reef. Even under the normal weather condition, it was found that such unfavorable situation was prevailing throughout the small, flat, island.

The topographical condition of Chichi-jima is quite complicated, mostly occupied by mountains of about 300 m elevation, partly populated in the sea shore area. The result of the survey revealed that there was no particular area polluted with the persistent high concentration of aerosols. Anthropogenic effects on the aerosol concentration was not remarkable even in the most densely populated area in the island. The particular pollutants, which were released into the atmosphere by man's activities seemed to be scattered immediately, and caused no significant enhancement of the back ground level of concentration.

Atmospheric aerosols have been sampled at Chichi-jima and Minamitori-shima. The mean concentration of total suspended particles at Chichi-jima was  $16.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ . Also the concentrations of the trace elements and their mass-size distributions



were determined in the samples.

Enrichment factor was defined in order to classify the main sources of elements. The sources are sea water(group 1), crust (group 2), and man-made and so on(group 3).

Na, Br, Cl, Mg, K were classified into the group 1. Mass-size distributions and their modes were 4  $\mu\text{m}$  in diameter. But the data of Minamitori-shima was different from that of Chichi-jima. The reason was explained by giant sea spray particles.

Cs, V, Co, Mn, Cr, Sc, Fe, Al, Ce and Sm were classified into the group 2. The size distributions of the elements were similar to that of group 1 and their modes were 5  $\mu\text{m}$  in diameter.

I, Zn, Se, Sb were classified into the group 3. The size distributions show that the most parts of the mass distributed in submicron particles except Iodine.

Spectral values of the extinction coefficient of the aerosol particles contained in vertical column of the atmosphere at Minamitori-shima were determined from spectral measurements of direct solar radiation in 1975. These values are smaller by about one order than the maximum value obtained in Tokyo. In general, the discrepancies of the values are larger in shorter wave-length region than in the longer.

By using the inversion technique, we inferred the size distributions of aerosols based on the measured extinction coefficients. Comparisons of the size distributions between Minamitori-shima and Tokyo show that the amount of particles in Minamitori-shima is smaller than in Tokyo, especially in the region of particle radius smaller than about 1.0  $\mu\text{m}$ .

#### Conclusion on the site selection

Considering the result of the preliminary observations on the gaseous and particular pollutants in Minamitori-shima and Chichi-jima, proposed islands as the site of Japanese baseline atmospheric

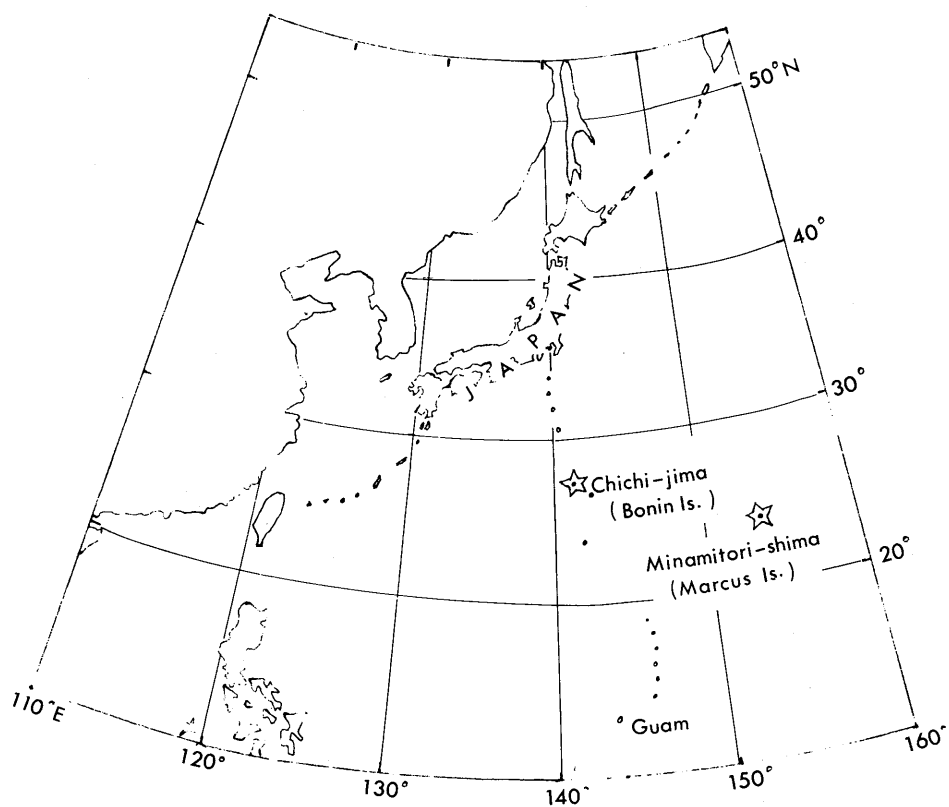
pollution station (BAPS), it is concluded as follows.

(i) Minamitori-shima

Minamitori-shima was raised first as the most favorable site for BAPS because it is remotest from Japan Proper Island, and also because the island is almost free from the origin of the anthropogenic pollution. The result of the preliminary investigation, however, showed that the influence of sea spray raised along the periphery of the island could not be disregarded for the accuracy of the measurements and for the maintenance of the instruments of high precision.

(ii) Chichi-jima

According to the observational result on the surface distribution of aerosol concentration and gaseous pollutants in the island, there was no particular area where the pollution was remarkable. Although the situation seems to be favorable for the time being, the decision on the site selection must be done taking into consideration the fact that anthropogenic activities have been increasing in this island.



## まえがき

斎藤 博 英\*

### 問題の背景

大気汚染が世界的規模で進行する情勢の中で、世界気象機関(WMO)は経済協力開発機構(OECD)の要請に応じ、1969年第21回執行委員会において、全地球的規模の大気汚染観測網の確立を決議し、翌年10月に開かれた第22回執行委員会で、この観測を実施する具体案を決定した。そして、翌1971年5月の第6回総会において、この案を採択し、次の2つの事項を加盟各国に要請した。すなわち、

- (1) 第22回執行委員会の決議12に示されたプログラムに応じて、バックグラウンド大気汚染の測定に適した観測所を、その領土内に設置するよう処置する。
  - (2) 大気汚染質の拡散、降下およびライフタイムに関する気象学的研究を、その国で、あるいは必要に応じて他の加盟国と協力して行なうこと、
- となっている。

この第22回執行委員会の決議12には、各加盟国が大気汚染に関する地域観測所を建設することと、適当な場所を持つ国では基準観測所を建設することを要請している。そして、この決議の附属書18には、バックグラウンド大気汚染を測定するための観測所のネットワークを確立することについてのプログラムが示されている。このプログラムでは、地域的な規模の汚染の平均的状況およびその変化を調べるための地域観測所と、全地球規模の汚染の長期変化を監視するための基準観測所とを区別して、それぞれについて、ネットワークの密度、場所の選定条件、観測すべき汚染質の種類などに関し、詳しく記されている。

気象庁では、WMOの要請に応じ、1973年～1975年に3つの地域大気汚染観測所を建設し、1976年に降から1つの基準大気汚染観測所の建設に着手することを、第1次の計画として立案した。

これは、地域観測所の義務観測項目は現在の技術で行なえるものであるから、直ちに着手できるに対し、基準観測所に要望されている観測項目の中には、現在の技術では実施不能のものが多く、その技術および測定機器の開発に相当の時間を必要とするためであった。そして、この開発研究は気象研究所に期待されることとなった。

### 計画の事情

上述の背景により、この研究は、基準観測所を建設するときに、その観測が所期の目的に沿い得るようにするため、都市や工業地帯の汚染と異なる極めて微量な汚染物質を、十分な精度で長期にわたり測定できる装置の開発、その観測方法の検討、観測地点の選定、およびそれらを総合した観測業務のあり方を検討することを目標として、1971年の末から1972年の前半にかけて計画された。

---

\* 元物理気象研究部・1977年4月退職

この時点では、アメリカの海洋大気庁 (NOAA) が G M C C (Geophysical Monitoring for Climatic Change) 計画をたて、ハワイの Mauna Loa で既に観測していた  $\text{CO}_2$ 、オゾン全量、日射の分光観測、およびガードナー・カウンタによる凝結核数などの観測に  $\text{SO}_2$ 、 $\text{NO}_2$  の測定を加え、これを軸として実施に踏み切った他は、各国とも個々の研究者による部分的な研究以外に明確な動きはなかった。NOAA では 1972 年以後、年とともに観測方法の改善、機器や施設の改良、増強を行なっている。

わが国の基準観測所で行なう観測種目は、上述の WMO や NOAA の計画を考慮の上で、次のように計画された。

#### (1) 気体状汚染質

a.  $\text{CO}_2$ 、オゾン全量、地表オゾンの 3 種目は、気候との関連性も大きく、既に観測方法も確立されており、観測を業務として行なっている所もあるので、実行することは容易である。基準観測所のような遠隔の地での観測は必要であり、当然行なわれる。

b.  $\text{CO}$ 、 $\text{CH}_4$ 、 $\text{SO}_2$ 、 $\text{H}_2\text{S}$ 、 $\text{NO}$ 、 $\text{NO}_2$  の 6 種目は WMO でも優先順位の第 2 グループにあげられている。しかし、このうち  $\text{CH}_4$  は気候変化に対する影響が小さいと考えられるので省略する。また、 $\text{H}_2\text{S}$  はバックグラウンド値を業務的に継続して測定する機器の開発が現時点では困難なので、後の問題として残すこととした。

$\text{CO}$  は自然発生源によるものもあるが寿命がやや長く、人為的汚染度の指標として有用であるので測定器を開発する。

$\text{CO}_2$ 、 $\text{NO}_x$  は大気中で酸化変質し、微粒子となり、放射収支に影響を及ぼす可能性があり、人為的発生量も多いので、残留時間は短かいが、それなりに監視の重要性が認められる。測定器を開発して観測する。

結局、基準観測所の観測項目は、 $\text{CO}_2$ 、オゾン全量、地表オゾン、 $\text{CO}$ 、 $\text{SO}_2$ 、 $\text{NO}$ 、 $\text{NO}_2$  の 7 種目とし、それらのうち後の 4 種目について、測定法および測定装置を開発する。

#### (2) 粒子状汚染質

WMO のプログラムには降水、降下塵の化学分析および大気混濁度として間接的に含まれているが、粒子状汚染質 (エアロゾル粒子) を直接観測することを明示されていない。これは測定法等に問題が多いため、研究が進んでから取り上げる方針であろうと解釈された。太陽からの入射光を途中で消散させ、放射収支に与える影響が大きい要素であり、人為的にも直接および間接的に多く発生しているので、この変化を知ることは極めて重要であり、当然観測しなければならない。その際、粒子状汚染質の濃度とともに、その粒子の大きさと化学組成を知ることが必要である。したがって、これらの測定装置を開発し、化学組成の検出法を研究する。

#### (3) 大気混濁度

大気混濁度の変化は気候変化の重要な因子である。基準観測所の観測では、エアロゾルによるものと水蒸気などによるものを区別して求めることが必要である。この目的に適するように、波長区分の精度

が高く、各波長の日射量を高い精度で測定する装置を開発する。

- (4) 上記の他、降水、降下塵の化学成分分析、放射量および気象要素の観測は当然実施する。しかし、これらの方法は既に確立されているので、改めて研究する必要はない。

このようにして、気象庁の大気汚染基準観測所の建設計画に伴って、その実施に必要な上述の各種の研究事項が、気象研究所の研究に託されることとなった。

## 研究計画の骨組み

この研究は、上述の経緯をふまえて、次のような分類と方針によって実施された。

- (1) 基準観測所は遠隔の地に建設されるので、その業務はかなり少数の人員によって運営出来るように計画されねばならない。このため使用する測定装置は、極めて稀薄な汚染質を正確に測定できるような高精度が要求される他に、できるだけ自動式にして、観測の手数を省くことが重要となる。具体的には、
- a. 気体状汚染質：CO，SO<sub>2</sub>，NO および NO<sub>2</sub> のそれぞれの濃度を充分な精度で、自動的に測定できること，
  - b. 粒子状汚染質：太陽光の散乱に特に強い効果を持つ半径 0.1 μm 以上の大粒子の数、それより小さい粒子の数、できれば粒径分布、粒子数の垂直分布を充分な精度で、自動的に測定できること、粒子の化学組成または成分を検出すること、およびそのためのサンプリングを自動的に行なうこと，
  - c. 大気混濁度：日射量の波長別測定を、その測定値からエアロゾルと水蒸気などの消散効果を区別して求められ、できればエアロゾルの状態についての情報が得られる程度の高精度で、自動的に行なうこと，
- の各項目および目標を達成する。
- (2) 上記各項の研究により試作された測定装置および利用できる他の測定器等により、基準観測所建設候補地域において、大気汚染の測定を行ない、その特質を調べ、その地が目的の条件に適するかどうかを検討する。
- (3) 上記の研究により得られた成果と研究の途次に派生した問題や経験などに基づいて、観測業務のシステム化について検討し、気象庁が行なう基準大気汚染観測所の建設およびその運用の計画に活用できるようにまとめる。

## 実施経過および謝辞

実施に当っては、1973年度は各測定要素の測定法の検討と測定装置の設計を主とし、直ちに着手できる一部の装置の試作を行ない、1974年度は測定装置の試作を主として行なった。1975年度は試作装置および他の利用できる装置により、基準観測所建設候補地での予備観測を南鳥島で行ない、その地域での汚染状況の確認と試作装置の機能の検討および改善とを行なった。また、1976年度には、同様の予備観測を小笠原諸島の父島で行ない、試作装置の改善も引き続き行なった。

上述の経過の中で、南鳥島での予備観測に際しては、測定装置等物質および人員の輸送について、防衛庁本庁、海上自衛隊、航空自衛隊の各関係部門および特に海上自衛隊第4航空群に全面的に支援を仰いだ。また観測に当っては、気象庁海務課および南鳥島気象観測所の方々の協力に依る所が大きかった。

父島での予備観測では、東京都小笠原支庁、同小笠原総合事務所、同亜熱帯農業センター、同公園緑地部自然公園係、海上自衛隊父島夜明山送信所、日本電信電話公社父島夜明山送信所、宇宙開発事業団打上管制部小笠原追跡所および気象庁父島気象観測所と多くの機関およびそれぞれの職員の方々の理解ある協力をいただいた。

なお、この研究の推進に当っては終始気象庁測候課の支持と協力を仰いだ。

このような僻遠の地における困難な野外観測が実行できたことは、これら多くの方々の御協力の賜物である。研究者全員の深い感謝の心をこめて、ここに記し、お礼を申し上げる。