アイスランドにおける大気降下物質の量的年変化

鈴木 啓 助*

Annual Changes of Chemistry of Monthly Precipitation in Iceland

Keisuke SUZUKI

Abstract

This paper describes the chemical characteristics of monthly precipitation in Iceland. Monthly precipitation had been collected at Rjupnahaed from January 1958 till December 1979, and had been collected at Vegatunga from September 1960 till April 1973. Since 1980, monthly precipitation has been collected at Irafoss. In this paper, we discuss the chemistry of monthly precipitation at Rjupnahaed and Vegatunga. Monthly precipitation was collected by using an open sampler. The open sampler collects bulk precipitation containing the wet and dry deposition of chemical constituents. Bulk precipitation displays the combined effects of all water soluble airborne components of precipitation.

The data of chemical composition of monthly precipitation has several errors. These are mainly due to the procedures of collection and analysis of precipitation. The errors of using data are eliminated by the three steps.

The time series of the amount of monthly precipitation, pH and monthly chemical depositions at Rjupnahaed are shown in Fig. 4. Before the middle 1960's, pH of the monthly precipitation had decreased gradually. The coal for house heating has not been consumed since the middle 1960's in Iceland, and the consumption of clean energy (geothermal and electrical) has been increasing. The change of the energy form is considered to be the reason for the variation of pH of the monthly precipitation. As may be seen from Fig. 4, the monthly depositions have the seasonal variation. The amount of chemical deposition in winter is more than that in summer. The evident tendency of the long-range fluctuation of the amount of monthly chemical deposition has not been observed. The monthly depositions of sodium, potassium and magnesium show the same variation as that of chlorine.

We will discuss the chemical characteristics of monthly precipitation by using the mean data for each month, since the monthly chemical depositions clearly have the annual variation, as described before.

The sources of the chemical constituents are discussed by using the data of mean monthly depositions (Fig. 5). The predominant source of chlorine, sodium, potassium and magnesium is considered to be sea water. On the other hand, a part of sulfur in the precipitation comes from sea water, and anthropogenic emission in North America is considered to play an important role. Calcium depositions vary with location to a great degree. This

* 東京都立大学理学部地理学教室 Department of Geography, Tokyo Metropolitan University

result suggests that the source of the excess calcium exists in Iceland.

The mean monthly deposition of sea salt in Iceland is larger in winter than in summer. However, the mean monthly depositions of excess sulfur and excess calcium do not indicate the annual variation. In winter, the mean wind speed at 850mb is higher and the pressure at the surface is lower. This evidence suggests that the activity of air convection is stronger in winter. The activity of air convection is considered to govern the annual variation of the deposition of sea salt.

I. はじめに

1950年代初頭に、Rossby の提案により展開されたヨーロッパ大気化学観測網 (European Atmospheric Chemistry Network) により、主要化学成分の大気降水量のデータが1955年から得られるようになった。北部ヨーロッパの12ヶ国が参加し、観測点の数は最多で97地点 (1960年) あったが、1982年時点では45地点である (SODERLUND and GRANAT 1982)。この観測網により、北部ヨーロッパにおける酸性降水の実態や降水の pH の経年変化の様子などが明らかになった (ERIKSSON 1960, BARY and JUNGE 1963 MUNN and RODHE 1971, GRANAT 1972, 1978, SODERLUND and GRANAT 1981, 1982)。

この観測網にはアイスランドも参加しており、Reykjavik 市内の Rjupnaaed では1958年1月から1979年12月まで、Reykjavik の西約70km に位置する Vegatunga では1960年9月から1973年4月まで観測が続けられた (第1図)。1980年1月からは、観測所が Reykjavik の西約45km の Irafoss に移設され、現在も観測が続けられている。

アイスランドでは、国内のエネルギー消費に占める化石燃料の割合は30% (1982) で、しかも、その多くが漁船によって消費されている。暖房のために使われるエネルギーのうち化石燃料 (石油) は、わずか7%にすぎない (ORKUSTOFNUN 1982)。多くのエネルギーが、豊富な地熱と水力発電によって賄われて

第1図 観測地点

Fig. 1 Location of the observation stations

いる。そのために、人為的に大気中に放出される物質の量は極めて少ない。また、アイスランドは大西洋上に浮かぶ島であることから、大気降下物質量のバックグラウンド値を検討するのに適当である。さらに、Rjupnahaed は海に近く、Vegatunga は内陸に位置するから、両者を比較することにより地理的条件の差異による大気物質降下量の違いを議論することもできる。

降下物の採取には、解放型のサンプラーが用いられているため、降水による降下 (wet deposition) と無降水時の降下 (dry deposition) の両者が採取される (WHITEHEAD and FETH 1964)。つまり、採取試料には降水はもちろん無降水時の降下物も溶け込んでいる。そのため、降水量と濃度の積で表される降下物質量は、大気から地上にもたらされる水溶性の成分の総量を示している。水循環に伴う地球上の物質移動機構を考える際に、大気から地上への物質降下量の特性を把握することは必須の要件である。降下物質の質と量は岩石の風化に関与するし、ひいては、河川水質にも影響をおよぼしている。

本論では、バックグラウンド値として長期間のデータが揃っている、アイスランドにおける大気降下物質量の経年変化や年変化の特性、および大気降下物質各成分の起源などを、水循環に伴う物質移動過程研究の一環として検討する。

II. 資料と研究方法

Rjupnahaed と Vegatunga で1ヶ月ごとに採取された試料は、ストックホルム大学の気象学教室 (1962年8月まではスウェーデン農業科学大学) に送られ、化学分析が行われた。分析項目は、S, Cl, $\text{NO}_3\text{-N}$, $\text{NH}_4\text{-N}$, Na, K, Mg, Ca の各濃度と pH, 電導度である。試料の容積は降水量に変換され、各成分濃度はその降水量との積である降下量 (mg/m^2) に換算され、降水量, pH, 電導度ともにアイスランド気象局発行の気象年報 (Vedrattan; 1958, 1959, 1960, 1961, 1962, 1967, 1970, 1974, 1979) に掲載されている。Rjupnahaed では264 (22年 $\times$ 12月) ヶ月分の試料, Vegatunga では152ヶ月分の試料について分析が行われているが、解放型のサンプラーによる1ヶ月ごとの試料には、各種のエラーが含まれている可能性が高い (GALLOWAY and LIKENS 1978) ので、まず、データの信頼性を吟味する必要がある。本論では次のような手続きで、過誤を含むデータの整理を行った。

第1段階

分析項目のうち、測定ミスなどにより、気象年報に記入されていない項目を含む場合は、その月全体のデータを解析から除く。この操作により Rjupnahaed で19ヶ月分, Vegatunga で25ヶ月分が除かれる。

第2段階

解放型のサンプラーによって採取された試料の容積は、降水量に変換されることを前述したが、アイスランド気象局では、それとは独立に降水量観測を Rjupnahaed (1959年4月～現在) と Vegatunga (1957年12月～1975年6月) の両地点で行っており、月降水量は同局発行の気象月報に掲載されている。化学分析のための試料から求めた降水量と、気象観測による降水量は一致するはずであるが、試料の採取時や運搬時および降水量の観測時のミスなどのほか、降水の極地的差異などによって両者の値は必ずしも一致しない。大気降下量を考える際に、降水量は大きなウェイトを占めるので、降水量の吟味も必要である。

Rjupnahaed における両者の値の関係を第2図に示す。月降水量はガンマ型の分布をとるので、正規化するために平方根でプロットしてある。1:1対応を示す実線に対して、ばらついているサンプルのあることがわかる。図中の破線は、ふたつの降水量は等しいとする推定に対する標準誤差の ± 1.96 倍を示す。本論では、気象観測による降水量に対して、標準誤差の ± 1.96 倍を超える降水量をとる場合はその月の降下量のデータを棄却する。Vegatunga での降水量についても同じ操作を施すと、Rjupnahaed で15ヶ月分, Vegatunga で7ヶ月分が棄却される。さらに、Rjupnahaed での降水量の気象観測は1959年4月から始まっているので、降水量による検定のできない、それ以前の降下量のデータも解析から除く。

第2図 気象観測による月降水量と大気降下物試料から求めた月降水量の関係
Fig. 2 Relation between the monthly amount of precipitation of meteorological data and that of chemical data at Rjupnahaed

第3図 大気降下物中の陽イオン当量と陰イオン当量の関係
Fig. 3 Relation between the cation and anion in the bulk precipitation at Rjupnahaed

第3段階

採取試料中に溶存している陽イオンと陰イオンの当量比は等しくなければならない。しかしながら、分析精度や分析エラーなどにより、異なる当量比を示すことがある。分析による過誤を含むデータを除外するために、当量比の検定を行う。

第1段階と第2段階の検定を通過したデータについて、主成分の陽イオンと陰イオンの当量比の関係を Rjupnahaed について示したのが第3図である。陽イオンの当量比から推定される、陰イオンの当量比の標準誤差の ± 1.96 倍を破線で示した。ふたつの破線の外側にプロットされるデータには、なんらかの過誤が含まれる確率が高いので、解析から除外する。Vegatunga での正負のイオン当量比についても同じ操作を施すと、Rjupnahaed で13ヶ月分、Vegatunga で6ヶ月分が棄却される。

以上の3段階の検定の結果、棄却されなかった各月の大気降下量のデータを用いて考察を進める。

III. 大気降下物質量の経年変化

1950年代初頭から、化石燃料の消費量が飛躍的に増加し、人為的に大気中に放出される硫黄化合物の量が大きくなった (SEMB 1978)。それに対応して、酸性降水が世界各地から報告されるようになり (BARRETT and BRODIN 1955, COGBILL and LIKENS 1974, KASINA 1980など)、大気から地上への降下物の質と量にも変化がみられた。そこで本論では、まずアイスランドにおける大気降下物特性の経年変化を検討する。

観測期間の長い Rjupnahaed での、各観測項目の経年変化を第4図に示す。後述するが、Na・K・Mg の各降下量は Cl の降下量との相関が高いので、第4図には降下量として Cl・Ca・SO₄ を掲げた。

本論で使用する pH の値は厳密には降水の pH を示さないが、その変化傾向をみると1960年代中頃まで低下を続け、1970年代以降は比較的安定していることがわかる。SO₄ 降下量の変化傾向が pH の変化傾向と必ずしも一致しないが、1960年代中頃までの pH の低下は、アイスランドにおけ

第4図 Rjupnaheadにおける月降水量, pH, 大気降下量の経年変化 実線は3項移動平均を示す。

Fig. 4 Sequence of monthly amount of precipitation, pH and monthly deposition of Cl, Ca and SO_4 at Rjupnahead. Solid lines indicate the running mean.

る石炭消費の状況に対応すると考えられる。アイスランドでは、1965年までエネルギー源として石炭が使われていたが、その後は使用されていない (ORKUSTOFNUN 1982)。温水や地熱、水力発電がおもなエネルギー源であり、Reykjavikの冬季においても、大気中には混濁物がみられず、まさに“Smokeless Island”と呼ぶにふさわしい大気環境である。そのために、人為による硫黄化合物などの大気への放出量の増加はなく、1965年以降は pH が安定している。また、大陸からの酸性化の影響もあまりみられない。

各成分の降下量に、年次ごとの顕著な変化傾向は認められないが、各成分とも年変化パターンが極めて明瞭である。

以上のように、アイスランドでは1965年までの石炭の使用に対応して、降水の pH は低下を続けていたが、1965年以降はさらに酸性化へと向かうような傾向は認められず、各成分の降下量にも顕著な経年変化傾向はみられない。

ここで、各成分の降下量は明瞭な年変化を示すことが明らかになったので、次ぎに、アイスランドにお

ける大気降下物質量を年変化の観点から検討する。

IV. 大気降下物質の起源

まず、大気から地上へもたらされる降下物の起源を考える。第5図には、Rjupnahaed と Vegatunga における各成分の平均月降下量を、横軸に平均月 Cl 降下量をとって示した。平均月降下量を平均月降水量で割れば濃度の単位になるので、第5図は各成分の Cl に対する濃度比に読み替えることができる。

降下量の Na/Cl 比は、両地点、各月とも海水中の Na/Cl 比と一致しており、アイスランドに降下する Na と Cl は海水を起源とするものであることがわかる。

K と Mg の平均月降下量は、海水中の比から推定される値をわずかに上回っている。しかしながら、Cl 降下量に対するばらつきが小さく、Cl 降下量との一定の対応関係が認められる。海塩粒子が海水から生成されるときに、成分ごとに濃縮される割合に差があるため、海洋上のエアロゾルの組成比は必ずしも海水中の組成比とは一致しない。Na の Cl に対する濃縮比はほぼ1であるが、Kと Mg については1を超える(鈴木 1983, 1984)。この濃縮を考慮に入れば、アイスランドで大気から降下するKと Mg は、そのほとんどが海水起源であると考えることができる。

Ca の月ごとの降下量は、海水中の Cl との比から推定される量よりもはるかに高い値を示す。Rjupnahaed では Cl との対応関係が認められるが、Vegatunga では月ごとの変動が大きく、海に近い Rjupnahaed よりも降下量が多い。大気から降下する Ca は、海水を起源とするものの他に、陸上起源の部分が相当量あるものと考えられる。ふたつの地点間に降下量の差異が認められるから、陸上の供給源のひとつとしてアイスランド島の役割が大きいと考えられる。

第5図 降下物中の平均月 Cl 量と各成分の平均月降下量の関係

● : Rjupnahaed ○ : Vegatunga

Fig. 5 Relations between mean monthly deposition of Cl and those of other components

SO_4 の平均月降下量も、海水中の Cl との比から推定される量よりも高い値を示す。しかし、 Ca に比してふたつの地点間の差があまりみられない。このことは、海水以外の SO_4 の供給源が、Rjupnahaed や Vegatunga の近傍ではないことを示唆している。つまり、海水中の Cl との比から推定される量を超える SO_4 は、風系を考慮すれば、北米大陸の東海岸に由来するものなどの、広く大気中に存在する人為起源および海水以外の自然起源によるものと考えられる。アイスランドは火山島であり、地中からの噴出ガスの量も多いが、それが SO_4 降下量に対してどの程度寄与しているのかは本論では議論しない。

V. 大気降下物質量の年変化

第4図にみたように、大気降下物質量は年変化を示す。そこで、Rjupnahaed と Vegatunga における平均月降下量の年変化傾向を第6図に示す。

平均月降水量は一年を通じて Vegatunga のほうが Rjupnahaed よりも多い。両地点とも秋季にわずかに降水量が増加する他は、明瞭な年変化を示さない。

Cl 降下量の年変化傾向は明瞭であり、冬季に増大し夏季には少ない。降水量は年間を通じてそれほど変化しないから、濃度の大小が降下量の変化に寄与している。月平均 Cl 濃度は両地点とも7月に最も低く、Rjupnahaed で 2.7 mg/l 、Vegatunga で 1.54 mg/l である。最大値は、Rjupnahaed では2月の 19.50 mg/l 、Vegatunga では1月の 12.16 mg/l である。降水量の少ない Rjupnahaed のほうが、 Cl 降下量は年間を通じて多いことから、Rjupnahaed での降水中の Cl 濃度が大きいことがわかる。海岸部で海水起源物質の降下量が多いのは、海塩を含む降水粒子の落下速度が比較的大きいために、内陸まで運ばれにくいからである(鈴木 1984)。冬季に、海水起源である Cl の降下量が増大する機構については後述する。

Ca の降下量は夏季にわずかに減少するが、年間の変化量はそれほど多くない。Vegatunga の秋季には Ca 降下量の増加がみられ、年間を通じて Rjupnahaed よりも Ca 降下量が多い。しかしながら、濃度には両地点で大きな差はみられず、Vegatunga のほうが Rjupnahaed よりも降水量が多いために Ca 降下量に差異が生じているのである。海水以外を起源とする Ca の量を検討するために、

第6図 平均月降水量、 Cl 、 Ca 、 SO_4 の平均月降下量(丸印)と平均月過剰 Ca 、 SO_4 量(三角印)の年変化

Fig. 6 Annual changes of mean monthly precipitation, mean monthly deposition of Cl , Ca and SO_4 and mean monthly amount of excess Ca and SO_4
●, ▲: Rjupnahaed ○, △: Vegatunga

Ca と Cl の平均月降水量 (D) から、次ぎの式で平均月過剰 Ca 量 (exCa) を求める。

$$\text{exCa} = \text{Dca} - \text{Dcl} \cdot (\text{Ca/Cl})_{\text{sea water}}$$

第6図には、両地点での平均月過剰 Ca 量も併せて図示してある。平均月過剰 Ca 量は、Vegatunga でのみ秋季に大きくなることを除けば、年間を通じて変動量が小さいことがわかる。特に Rjupnahaed ではほとんど一定の値を示す。海水起源物質は年間の変動量が大きいと対照的である。また、内陸の Vegatunga では、海に近い Rjupnahaed よりも過剰 Ca の濃度が高く、過剰 Ca の降水量も多い。このことから、前述したように、比較的近傍からの Ca の供給が考えられる。

SO₄ の降水量は、Cl の降水量と同様に夏季に比して冬季に多くなっている。しかし、Ca と同じように平均月過剰 SO₄ 量を求めると、第6図のように年間を通じて変動が小さくなる。さらに、Rjupnahaed と Vegatunga での過剰 SO₄ 量の差があまりみられないことから、海水以外を起源とする SO₄ は、比較的コンスタントに大気中から降下しているといえる。さらに、その起源は、Rjupnahaed と Vegatunga との間の距離と同じオーダーでは考えられない。

次に、陽イオン組成の年変化傾向を検討する。第7図には、Rjupnahaed と Vegatunga における降下物中の陽イオン組成の月平均値を示す。K の占める割合はほとんど一定で、海水起源の Na・Mg と陸上起源の多い Ca との間での組成比の明瞭な年変化が認められる。両地点とも冬季には Na と Mg の占める割合が大きく、夏季には Ca の割合が大きくなる。この変動の幅は Vegatunga でより大きい。夏季に Ca の占める割合が大きくなるのは、第6図にみたように、海水起源物質の降水量が夏季に極端に減少するために、Ca の割合が大きくなるためであり、Ca の量が夏季に多くなるためではない。さらに、Vegatunga で相対的に夏季の Ca の割合が大きいの、内陸に位置するためである。

このように、降下物中の陽イオン組成が年変化を示すのは、降下物中に含まれる各物質の量に対するそれぞれの供給源の役割が、季節によって変化するためである。つまり、冬季には大気降下物量によぼす

第7図 降下物中の陽イオン組成の年変化

Fig. 7 Diagrams of relative percentage of milliequivalents for cations

海の影響が極めて大きく、夏季には相対的に陸上の影響が大きくなる。

VI. 大気降下物質量に影響をおよぼす気候要素

アイスランドにおいて、海水以外を起源とする物質の降下量は、年変化をせず、年変化を示す気候要素との対応を無視することができるが、海水起源物質の降下量は、明瞭な年変化を示すので、気候要素との対応が考えられる。海水起源物質の降水中における濃度は、対流混合層の厚さによって説明される（鈴木 1983）が、1ヶ月間の降下物試料に対応する対流混合層の厚さを求めることは極めて困難であるので、他の気候要素を考えよう。

海水起源物質が降水粒子に捕捉されやすい、対流の活発な時には、一般に風速が大きく地上気圧が低い。そこで、降水に関与する 850 mb の風速と地上気圧をとりあげる。両者の月平均値は、NOAA の発行する Monthly Climatic Data for the World に Keflavik（第1図）におけるデータが掲載されているので、それを採用した。風速はベクトル平均でなくスカラー平均を用いた。Rjupnahaed における降下物の採取期間と同じ期間についての各月の年平値を第8図に示す。気圧、風速ともに明瞭な年変化傾向を示す。冬季には地上気圧が低く、850 mb での風速が大きくなっている。そして、夏季には対照的に地上気圧が高く、850 mb での風速が小さくなっている。このことから、冬季には活発な対流が起きていることが推論される。そのため、冬季には海水からの海塩粒子の供給が活発で、海塩粒子の降水へのとりこみも多くなる。それに対応して、アイスランドにおける海水起源物質の降下量が冬季に大きく夏季に小さくなるのである。

第8図 Keflavik における 850 mb の月平均風速と月平均地上気圧

Fig. 8 Monthly mean wind speed at 850 mb and monthly mean pressure at surface at Keflavik

VII. まとめ

ヨーロッパ大気化学観測網の一部として、大気降下物量の観測が続けられているアイスランドにおいて、大気降下物質の起源や降下物量の経年変化、年変化を検討した。

Reykjavik 市内の Rjupnahaed における降水の pH は、1960年代中頃まで低下を続けるが、1970年代以降は比較的安定している。アイスランドでは、1965年まで暖房用に石炭が使われており、その影響が pH の変化傾向に表れている。

大気降下物各成分の起源を考えると、Cl・Na・K・Mg については、そのほとんどが海水起源である。一方、Ca は陸上起源つまり岩石・土壌から由来するものが多く、Rjupnahaed と Vegatunga における過剰 Ca 降下量や陽イオン組成の変化などから、アイスランド島からの供給が考えられる。また、SO₄ は過剰降下量が年間を通じてほとんど変化しないことや、Rjupnahaed と Vegatunga での降下量に差がみられないことから、海水以外の起源としては、アイスランド内の近傍ではなく、風系から考えて北米大陸の東海岸から輸送されて来るものであろう。

海水を起源とする物質の降下量は、明瞭な年変化を示し、冬季に多く夏季には少ない。しかし、海水以外を起源とする物質は、年間を通じてほぼ一定の量が大気中から地上に降下している。

海水起源物質の大気降下量の年変化に関与する気候要素は、大気の大気対流活動度である。Keflavik における地上気圧と850mbでの風速の年変化傾向を検討すると、冬季には地上気圧が低く風速が大きい。一方、夏季には対照的に、地上気圧が高く風速が小さい。直接に対流活動度の年変化を求めることはできないが、間接的には海水起源物質降下量の年変化は、対流活動に反映されるような気候要素の年変化傾向によって説明することができる。

謝 辞

本研究の機会を与えていただいた、浅井辰郎先生、中村一郎先生に深く感謝いたします。ストックホルム大学気象学教室の L. GRANAT 博士には、ヨーロッパ大気化学観測網についてご教示いただきました。また、東京都立大学地理学教室の皆様には有益な討論をしていただきました。記して感謝の意を表します。なお、本研究は東海大学極地調査委員会の援助で行われました。

文 献

- BARRETT, E. and BRODIN, G. (1955): The acidity of Scandinavian precipitation *Tellus*, **7**, p. 251-257.
- BARY, E. and JUNGE, C. (1963): Distribution of sulfur and chlorine over Europe. *Tellus*, **15**, p. 370-381.
- COGBILL, C. V. and LIKENS, G. E. (1974): Acid precipitation in the Northeastern United States. *Wat. Resour. Res.*, **10**, p. 1133-1137.
- ERIKSSON, E. (1960): The yearly circulation of chloride and sulfur in nature; meteorological, geochemical and pedological implications. *Tellus*, **12**, p. 63-109.
- GALLOWAY, J. N. and LIKENS, G. E. (1978): The collection of precipitation for chemical analysis. *Tellus*, **30**, p. 71-82.
- GRANAT, L. (1972): On the relation between pH and the chemical composition in atmospheric precipitation. *Tellus*, **24**, p. 550-560.
- (1978): Sulfate in precipitation as observed by the European Atmospheric Chemistry Network. *Atmos. Environ.*, **12**, p. 413-424.
- KASINA, S. (1980): On precipitation acidity in Southeastern Poland. *Atmos. Environ.*, **14**, p. 1217-1221.
- MUNN, R. E. and RODHE, H. (1971): On the meteorological interpretation of the chemical composition of monthly precipitation samples. *Tellus*, **23**, p. 1-13.
- ORKUSTOFNUN (1982): *Arsskýrsla* 1982. Reykjavik, 25p.
- SEMB, A. (1978): Sulfur emissions in Europe. *Atmos. Environ.*, **12**, p. 455-460.
- SODERLUND, R. and GRANAT, L. (1981): Sodium in precipitation—A presentation of data from the European Air Chemistry Network. Report CM-54, University of Stockholm, 69p.
- and — (1982): Chloride in precipitation—A presentation of data from the European Air Chemistry Network. Report CM-56, University of Stockholm, 70p.
- 鈴木啓助 (1983): 札幌における降雪の化学的性質—とくに海水起源物質濃度の成因について—。地理学評論, **56**, p. 171-184.
- (1984): 札幌における積雪中の化学物質濃度の空間分布。地理学評論, **57**, p. 349-361.
- WHITEHEAD, H. C. and FETH, J. H. (1964): Chemical composition of rain, dry fallout, and bulk precipitation at Menlo Park, California, 1957-1959. *Jour. Geophys. Res.*, **69**, p. 3319-3333.

(1986年3月5日受理)