

研究課題名：同位体を用いる揮発性物質の循環過程の研究  
共同利用研究者：林 寧子（九州大学大学院理学研究科）  
受入研究者：日下部 実  
研究期間：平成9年11月1日～17日

#### 【はじめに】

自然界で硫黄は、ジメチルサルファイド、硫化水素、二酸化硫黄などの揮発形として大気に放出される。また、化石燃料の燃焼でも二酸化硫黄として大気へ放出されている。降水中の硫黄同位体とトリチウム濃度を同時に測定することで、人為起源の大気汚染物質の中国大陸からの長距離輸送に関する知見を得ることを目的として研究を行った。

#### 【実験】

1995年5月～1997年12月（45試料）の降水を福岡市で一雨ごとに採取した。雨に含まれる $\text{Ca}^{2+}$ 、 $\text{Na}^+$ 、 $\text{K}^+$ 、 $\text{Cl}^-$ 、 $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{SO}_4^{2-}$ 濃度を原子吸光法とイオンクロマト法で定量した。水素イオン濃度はpHメータで測定し、トリチウム濃度は雨を電解濃縮してから液体シンチレーションカウンターで定量した。雨に含まれる硫酸イオンの硫黄同位体比（ $\delta^{34}\text{S}$ ）は質量分析法で求めた。

#### 【結果と考察】

水素イオン濃度とトリチウム濃度は正の相関を示し、pHの低い雨ほどトリチウム濃度が高い傾向を示した。中国大陸の雨や陸水のトリチウム濃度は海に囲まれた日本より低いことが知られており、また日本が大陸性気団に覆われたときには高いトリチウム濃度の雨が観察されることと、今回の結果は一致している。非海塩性硫酸イオン濃度はpH及びトリチウム濃度と正の相関を示し、非海塩性硫酸イオンも長距離輸送されてきた可能性を示唆している。しかし、非海塩性硫酸イオンの硫黄同位体比は、pH及びトリチウム濃度と有意な相関は示していない。

中国大陸では燃料としての石炭の利用が高いと考えられていることから、排出される二酸化硫黄の硫黄同位体比は、石炭の高い硫黄同位体比に連動して高くなると考えられる。これらの二酸化硫黄が大気中で酸化され硫酸イオンとなって雨に取り込まれるならば、その影響を大きく受けた雨の硫酸イオンの硫黄同位体比も増加すると予想される。非海塩性硫酸イオンは明確な季節変化を示し、その濃度は冬季に増加していた。同様な傾向が非海塩性Ca、水素イオン濃度、非海塩性硫酸イオンの硫黄同位体比、トリチウム濃度に観察された。そこで試料を春（3月-5月）、夏（6月-8月）、秋（9月-11月）、冬（12月-2月）にわけてテューキーの方法により検定を行った。その結果、非海塩性硫酸イオンの硫黄同位体比を除いたいずれの成分も、冬は夏と危険率5%で差があることが明らかになった。このことから冬季に非海塩性硫酸イオン、トリチウムなどが雨と共に中国大陸から運ばれてきていると言える。硫黄同位体比は検定では有意差を示さなかったが、同位体比は平均で2.02%（春）、1.90%（夏）、2.49%（秋）、3.87%（冬）と冬季に高い値を与えている。

トリチウム濃度は冬と春に高い値を示した。長距離輸送される他の化学成分の増加が春に観察されていないことから、春のトリチウム濃度の増加は、成層圏で生成されているトリチウムが圏界面を通して対流圏に輸送されたためと考えられる。月平均でトリチウム濃度を測定している限りは、成層圏から対流圏への物質の移動、いわゆるスプリングピークは、最近では核実験の影響が少なくなったため、トリチウムではもはや観察されないとされていた。本研究では、一雨ごとに分析したので、春先の成層圏から対流圏へのトリチウム移行が観察されたと考えられる。本研究結果は、冬季に中国大陸から偏西風によって福岡市に大気汚染物質が長距離輸送されていることを示している。