

研究種目：基盤研究（C）  
 研究期間：2006年度～2008年度  
 課題番号：18510004  
 研究課題名（和文）雲下洗浄過程における降雨の化学組成の実測  
 研究課題名（英文）Observation of Chemical Composition of Rainfall in Washout Process.  
 研究代表者  
 柳澤 文孝（Yanagisawa Fumitaka）  
 山形大学・理学部・教授  
 研究者番号：00239807

## 研究成果の概要：

大気中に存在する物質は乾性沈着あるいは湿性沈着によって除去されて地上に沈着する。降雨が落下する間に大気中にある物質を取り込むウォッシュアウトを野外で実測する試みが国内外で様々なされてきたが、実測された例はなかった。そこで、中国四川省峨眉山に降雨採取容器を設置して降雨の試料を採取し、化学分析を行うと共に分析結果の解析を行った。降雨に含まれる成分は高度が下がるに伴って増加する。両者の関係を数式化した。

## 交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2006年度	1,900,000	0	1,900,000
2007年度	1,100,000	330,000	1,430,000
2008年度	700,000	210,000	910,000
年度	0	0	0
年度	0	0	0
総計	3,700,000	540,000	4,240,000

## 研究分野：複合領域

科研費の分科・細目：環境学・環境動態解析

キーワード：環境分析・環境変動・大気汚染

## 1. 研究開始当初の背景

大気中に存在する物質は乾性沈着あるいは湿性沈着によって除去されて地上に沈着する。湿性沈着では降水によって大気から物質が取り除かれる。降水による洗浄過程には雲粒へ取り込まれるレインアウト（雲内洗浄）と降雨が落下する間に取り込まれるウォッシュアウト（雲下洗浄）の二つの過程があ

る。また、洗浄効果としてはウォッシュアウトが果たす役割の方が大きいことなどが明らかにされてきた。一方、降雨が落下する間に大気中にある物質を取り込むウォッシュアウトを野外で実測する試みが国内外で様々なされてきた。ウォッシュアウトを実測するには、同一地点で地表面までの任意の高度で降水を採取する必要である。これまでは、

航空機や山岳標高差を利用した研究が行われてきてきた。しかし、山岳地帯での観測では試料採取地点の確保が困難であったり、航空機やゾンデを用いた観測では観測時間が短いなどの問題があった。また、大気中に存在する物質の濃度が低い地点では、雲中と地上で採取した降雨で濃度差が小さくウォッシュアウトが実測できない。

このように、これまでの研究ではウォッシュアウトによる大気中の物質の取り込み現象を完全な形で実測された例はない。また、雲下での取り込みについてモデル化する試みが続けられているが、実測を伴わないモデル化はモデルの有効性を検証する点で疑問がある。そこで、本研究では高度別に降雨を採取して雲下洗浄過程における降雨の化学成分濃度の増加量の実測を行うとともに、雲下での取り込みについてより実的なモデルを構築しようとするものである。

## 2. 研究の目的

本研究では高度別に降雨を採取して、雲下洗浄過程における降雨の化学成分濃度の増加量の実測を行う。その実測を元に、雲下で溶存成分の取り込みについて、雨滴に含まれている化学成分濃度と落下高度との関係を数式化する。

## 3. 研究の方法

峨眉山は世界遺産にも指定されている名山であるが、山麓から山頂まで寺が点在しており年間を通じて人が常駐している。また、峨眉山には標高 2500m まで道路があり更に山頂までロープウェイが設置されていることから、年間を通じて山頂まで登頂ことが可能である。峨眉山の標高 2000-2500m 付近には常時、雲がかかっており降雨が降っている。峨眉山は第四紀の断層活動によって生じた山であり、垂直変位が大きく、山道に沿って降雨の採取地点を確保すれば、年間を通じてほぼ同一地点で山麓から山頂まで任意の高

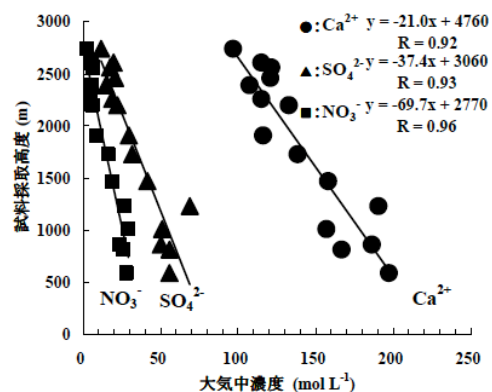
度で降水を採取可能である。このように、峨眉山は、四川盆地内に滞留している高濃度の大气汚染物質がウォッシュアウト（雲下洗浄）によって降雨に取り込まれる状況を明らかにできる絶好の地点である。

本研究では、峨眉山に高度 200m 毎に降雨採取地点をもうけて試料採取を行うとともに、峨眉山周辺や成都市内に降雨採取地点をもうけて試料採取を行い、降雨試料を相互に比較することで、大气汚染物質がどの様にして降雨に取り込まれていくのかを明らかにした。ついで、雨滴に含まれている化学成分濃度と落下高度との関係を数式化した。

## 4. 研究成果

峨眉山に降雨採取地点をもうけて試料採取を行うとともに、峨眉山周辺域など四川盆地内の各所で降雨や河川水・地下水の採取を行った。ついで、試料を相互に比較することで、大气汚染物質がどの様にして降雨に取り込まれていくのかを検討した。

本研究によって、高度が下がるにつれて降雨に含まれている硫酸イオンや硝酸イオン、カルシウムイオン等の濃度が増加することが明らかとなった。



また、雨滴に含まれている化学成分濃度と落下高度との関係を数式化した。雨滴の落

下距離に対する汚染物質濃度の増加量は、 $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ および  $\text{Ca}^{2+}$ について雨滴が100m 落下する毎にそれぞれ 2.18, 1.36 および 4.76 mol L<sup>-1</sup>であった。各イオン成分の below-cloud scavenging による濃度増加量の違いは、大気中での各成分の存在形態や物理・化学的性質の違いを反映しているものと考えられる。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 13 件)

(1) 赤田尚史・柳澤文孝・奥村信貴・鈴木伸一朗・阿部修・佐藤威・小杉健二・望月重人・佐藤篤司 (2009) 山形県新庄市における降雪の化学組成の特徴および酸性雪の経年変化 (1991/92 年～2002/03 年) ., 雪氷, 71, 印刷中, 査読あり.

(2) 柳澤文孝 (2009) 蔵王山山頂付近の気温経年変化., 東北の雪と生活, 24, 印刷中, 査読なし.

(3) 柳澤文孝・赤田尚史 (2009) 青森県八甲田山における着氷の化学組成., 東北の雪と生活, 24, 印刷中, 査読なし.

(4) 阿部修・柳澤文孝 (2009) 2009年2月3日に山形県大蔵村の雪面に見られた汚染物質について., 東北の雪と生活, 24, 印刷中, 査読なし.

(5) 赤田尚史・柳澤文孝・山下千尋・座間味一朗・松木 兼一郎・川端明子・上田晃 (2008) 山形蔵王で採取した着氷に含まれる硫酸イオンの硫黄同位体比., 雪氷, 70, 2, 105-112, 査読あり.

(6) 柳澤文孝 (2008) 蔵王の樹氷の環境問題., 日本雪工学会誌, 24, 4, 1-4, 273-276, 査読あり.

(7) K. kikuchi, Y. Sakurai, S. Gunji, F. Tokanai F. Yanagisawa and S. Udo (2007)

Size distribution of aerosols attached by cosmic nuclide Be-7 in the atmosphere at the TA telescope station., Proceedings of 30<sup>th</sup> International Cosmic Ray Conference, 721-724, 査読あり.

(8) 赤田尚史・柳澤文孝 (2007) 中国四川省成都市における大気中汚染物質の存在形態., 雪氷, 69, 5, 611-617, 査読あり.

(9) 柳澤文孝 (2007) 山形蔵王の着氷期間の短縮化., 東北の雪と生活, 22, 75-78, 査読なし.

(10) Xiao-Dong Li, Harue Masuda, Masako Ono, Minoru Kusakabe, Fumitaka Yanagisawa and Hai-Ao Zeng (2006) Contribution of atmospheric pollutants into groundwater in the northern Sichuan Basin, China., Geochemical Journal, 40, 1, 103-119, 査読あり.

(11) Xiao-Dong Li, Harue Masuda, Minoru Kusakabe, Fumitaka Yanagisawa, Hai-Ao Zeng (2006) Degradation of groundwater quality due to anthropogenic sulfur and nitrogen contamination in the Sichuan Basin, China., Geochemical Journal, 40, 4, 309-332, 査読あり.

(12) 赤田尚史・柳澤文孝・本山玲美・奥村信貴・松本寿子・鈴木伸一朗・中村有紀・松木兼一郎・李曉東・賈疎源 (2006) 中国四川省峨眉山地域における大気降下物の酸性度調査., 雪氷, 68, 5, 497-504, 査読あり.

(13) 赤田尚史・柳澤文孝・上田晃 (2006) 様々な環境試料の硫黄同位体比測定法と硫黄同位体比の利用法., 東北の雪と生活, 21, 69-72, 査読なし.

[学会発表] (計 29 件)

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

(1) 小林慈聖・柳澤文孝 (2008) 蔵王の樹氷

の酸性化と汚染源の特定., 第4回もがみがわ水環境発表会 ~清流化に取り組む市民の環と交流~, 山形県生涯学習センター 遊学館 第一研修室及び第二研修室, 第4回もがみがわ水環境発表会要旨集, 2008年11月22日.

(2) 柳澤文孝・小林慈聖・工藤純一・阿部修 (2008) 人工衛星画像を用いた越境汚染物質の動態解析., 第4回もがみがわ水環境発表会 ~清流化に取り組む市民の環と交流~, 山形県生涯学習センター 遊学館 第一研修室及び第二研修室, 第4回もがみがわ水環境発表会要旨集, 2008年11月22日.

(3) Fumitaka YANAGISAWA, Naofumi AKATA, Takashi KOTANI and Akira UEDA (2008) Long-term observation of concentration of chemical composition and sulfur isotope ratio of sulfate in atmospheric aerosols collected at Tsuruoka, Japan located facing the Japan Sea., International Aerosol Symposium 2008 in conjunction with 25th Annual Meeting of Japan Association of Aerosol Science and Technology, August 21 - 22, 2008, Building of Natural Science and Technology, Kanazawa University.

(4) 鈴木伸一郎・柳澤文孝・奥村信貴・赤田尚史・阿部修・佐藤威・小杉健二 (2008) 新庄で観測された降雪の酸性度調査 (1991/92年-2002/03年)., 2008年度(社)日本雪氷学会東北支部大会, 新庄雪の里情報館, 2008年5月16日.

(5) 小林慈聖・柳澤文孝・阿部修 (2008) 山形蔵王の着氷の化学組成とイオウ同位体組成., 2008年度(社)日本雪氷学会東北支部大会, 新庄雪の里情報館, 2008年5月16日.

(6) 柳澤文孝 (2008) 2008年3月3日に飛来した黄砂とチャイナヘイズの関係., 2008年度(社)日本雪氷学会東北支部大会,

新庄雪の里情報館, 2008年5月16日.

(7) 伊吹円・柳澤文孝・阿部修 (2008) 山形県鳥海山の心字雪で採取した氷コア中の粒子状物質., 2008年度(社)日本雪氷学会東北支部大会, 新庄雪の里情報館, 2008年5月16日.

(8) 伊吹円・柳澤文孝・阿部修 (2008) 積雪中に存在する粒子状物質の融雪に伴う挙動に関する実験的研究., 2008年度(社)日本雪氷学会東北支部大会, 新庄雪の里情報館, 2008年5月16日.

(9) 石垣温子・柳澤文孝・阿部修 (2008). 名古屋市で採取したエアロゾルの化学組成., 2008年度(社)日本雪氷学会東北支部大会, 新庄雪の里情報館, 2008年5月16日.

(10) 遠藤智裕・柳澤文孝・阿部修 (2008) 下関市と福岡市で採取したエアロゾルの化学組成と粒子組成., 2008年度(社)日本雪氷学会東北支部大会, 新庄雪の里情報館, 2008年5月16日.

(11) 只野沙千江・柳澤文孝・阿部修 (2008) 那覇市でハイボリュームエアサンプラーによって採取したエアロゾルの化学組成とイオウ同位体比., 2008年度(社)日本雪氷学会東北支部大会, 新庄雪の里情報館, 2008年5月16日.

(12) 後藤秀美・柳澤文孝・阿部修 (2008) 中国青島市・北京市でハイボリュームエアサンプラーによって採取したエアロゾルの化学組成とイオウ同位体組成., 2008年度(社)日本雪氷学会東北支部大会, 新庄雪の里情報館, 2008年5月16日.

(13) 伊藤寛人・柳澤文孝 (2008) 中国四川省成都市でアンダーセンサンプラーを用いて採取したエアロゾルの粒径別の化学組成., 2008年度(社)日本雪氷学会東北支部大会, 新庄雪の里情報館, 2008年5月16日.

(14) 伊藤貴史・柳澤文孝 (2008) 中国四

川省成都市でハンディエアサンプラーを用いて採取したエアロゾルの化学組成., 2008年度(社)日本雪氷学会東北支部大会, 新庄雪の里情報館, 2008年5月16日.

(15) 阿部修・柳澤文孝・伊吹円 (2007) 新庄における近年の冬期降水中の固体粒子の変動傾向., 日本気象学会東北支部気象研究会, 2007年11月22日.

(16) K.kikuchi, Y.Sakurai, S.Gunji, F.Tokanai F. Yanagisawa and S.Udo (2007) Size distribution of aerosols attached by cosmic nuclide Be-7 in the atmosphere at the TA telescope station., 30<sup>th</sup> International Cosmic Ray Conference, Mexico, July 3-11, 2007.

(17) 赤田尚史・佐藤忠広・長谷川英尚・川端一史・築地由貴・古川郁・西村幸一・柳澤文孝・近藤邦男・久松俊一 (2006) 青森県内で採取した降水中硫酸イオンの硫黄同位体比., 日本地球化学会年会(日本大学) 講演要旨集, 2006年9月14日.

(18) Yanagisawa Fumitaka (2006) Characteristics of atmospheric composition of Shanxi Province, China, from standpoint of stable isotope., Abs. International Symposium : International Cooperation for Implementation of Technology on Environment in China., Forest Sendai, March 19 (report : May 6, 2006).

(19) Suematsu Takayuki, Ohkubo Satomi, Yanagisawa Fumitaka, Li Ya-Xin and Abe Osamu (2006) Chemical composition and particle composition of aerosol collected in Taiyuan, Shanxi Province, China., Abs. International Symposium : International Cooperation for Implementation of Technology on Environment in China.,

Forest Sendai, March 19 (report : May 6, 2006).

(20) Suematsu Takayuki, Yanagisawa Fumitaka, Ohkubo Satomi, Akada Naofumi, Li Ya-Xin, Akiko Kawabata, Akira Ueda and Abe Osamu (2006) Sulfur isotopic ratio, chemical composition and particle composition of aerosol collected using high volume air sampler in Taiyuan and Datong, Shanxi Province, China., Abs. International Symposium : International Cooperation for Implementation of Technology on Environment in China., Forest Sendai, March 19 (report : May 6, 2006).

(21) Ishigaki Atsuko, Yanagisawa Fumitaka, Li Chun-Fu and Abe Osamu (2006) Chemical composition and particle composition of aerosol collected using high volume air sampler in Tianjin, China., Abs. International Symposium : International Cooperation for Implementation of Technology on Environment in China., Forest Sendai, March 19 (report : May 6, 2006).

(22) Akata Naofumi, Yanagisawa Fumitaka, Jia Shu-Yuan and Li Xiao-Dong (2006) Altitude distribution and deposition process of the major ionic species collected along the altitudinal gradient on Mt. Emei, Sichuan, China., Abs. International Symposium : International Cooperation for Implementation of Technology on Environment in China., Forest Sendai, March 19 (report : May 6, 2006).

(23) Akada Naofumi and Yanagisawa Fumitaka (2006) Sulfur isotope ratio of

coal and atmospheric precipitation - seasonal variation and contribution of pollutant which exceeds the border - ., Abs. International Symposium : International Cooperation for Implementation of Technology on Environment in China., Forest Sendai, March 19 (report : May 6, 2006).

(24) Matsuki Kenichiro, Yanagisawa Fumitaka, Akada Naofumi, Yamashita Chihiro and Abe Osamu (2006) Chemical composition and particle composition of rime collected in Mt. Zao., Abs. International Symposium : International Cooperation for Implementation of Technology on Environment in China., Forest Sendai, March 19 (report : May 6, 2006).

(25) Zamami Kazuaki, Yanagisawa Fumitaka, Matsuki Kenichiro, Akada Naofumi, Yamashita Chihiro and Abe Osamu (2006) Sulfur isotope ratio of rime collected in Mt. Zao., Abs. International Symposium : International Cooperation for Implementation of Technology on Environment in China., Forest Sendai, March 19 (report : May 6, 2006).

(26) Onodera Kenichi, Yanagisawa Fumitaka, Akiko Kawabata, Akira Ueda and Kotani Takashi (2006) Sulfur isotopic ratio and chemical composition of aerosol collected using high volume air sampler in Tsuruoka, Yamagata Prefecture, Japan., Abs. International Symposium : International Cooperation for Implementation of Technology on Environment in China., Forest Sendai, March 19 (report : May 6, 2006).

(27) Endo Tomohiro, Yanagisawa Fumitaka and Abe Osamu (2006) Chemical composition and particule composition of aerosol collected using high volume air sampler in Shimonoseki, Yamaguchi Prefecture, Japan., Abs. International Symposium : International Cooperation for Implementation of Technology on Environment in China., Forest Sendai, March 19 (report : May 6, 2006).

(28) Ibuki Madoka, Yanagisawa Fumitaka and Abe Osamu (2006) Particulate matter in ice core drilled in Shinjiyuki snow patch, Mt. Chokai, Yamagata Prefecture, Japan., Abs. International Symposium : International Cooperation for Implementation of Technology on Environment in China., Forest Sendai, March 19 (report : May 6, 2006).

(29) Ohkubo Satomi, Yanagisawa Fumitaka, Jia Shu-Yuan and Li Xiao-Dong (2006) Chemical composition of aerosol collected in Chengdu, Sichuan Province, China., International Symposium : International Cooperation for Implementation of Technology on Environment in China., Forest Sendai, March 19 (report : May 6, 2006).

〔図書〕 (計1件)

(1) 柳澤文孝・赤田尚史・矢吹貞代 (2007) 地球化学講座 第7巻「環境の地球化学」第8章 酸性雨と黄砂, 日本地球化学会編, 培風館, 202-229.

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

柳澤文孝 (Yanagisawa Fumitaka)

山形大学・理学部・教授

研究者番号 : 00239807