

降雪機構からみた北海道の酸性雪*

泉 裕明^{*1}・菊地 勝弘^{*2}・加藤 禎博^{*3}
高橋 暢宏^{*4}・上田 博^{*5}・遊馬 芳雄^{*6}

要 旨

近年、酸性降水に対する関心が高まり、日本各地においても降水の pH の測定結果が数多く報告されるようになってきた。しかし、降雨に対して降雪の観測例は極めて少ない。また、降雨は前線や低気圧によってもたらされるが、北海道西岸の降雪はそれ等の外に、季節風や季節風末期パターンといわれる独特の降雪機構をもっており、これ等の降雪機構による相違と降雪の化学成分濃度の変動に着目した研究はほとんどない。この研究では、環境の異なる複数の観測点で、30分から数時間毎に降雪の採取を行い、pH、電気伝導度の他、イオンバランスのとれる主要イオンを全て測定することにより、降雪機構の相違と降雪粒子の化学成分濃度の変動を調べたものである。

その結果、各観測点での pH の平均値は4.6~4.9で、いわゆる酸性雪であることがわかった。また、都市や海の影響が大きく、はっきり出ていることもわかった。イオン濃度組成は、降雪イベント毎によって大きく変動するが、酸性度に注目すると、季節風による降雪は pH が大きく、低気圧による降雪は小さい傾向があった。また、化学成分のウォッシュアウト率は、低気圧による降雪の方が高いことが明らかになった。

1. はじめに

地球規模の環境問題の1つとして、酸性降水が生態系に与える影響が強く懸念されている。ヨーロッパ各地や北米大陸における森林被害、湖沼の酸性化による生態系の破壊などが現実起きており、多くの研究者によって降水の pH 等が測定され、どこでどの程度の酸性度を持った雨が降っているかという実態は明らかになりつつある(大喜多, 1944)。諸外国においては、比較的早い時期から、酸性雨やそれに関連した大気化学、エアロゾルの長距離輸送が注目され、いろいろな

規模でのプロジェクトが行われてきた(例えば、Heidam, 1981; Miller, 1981; Rahn, 1981, 1985; Rahn and Heidam, 1981; Barrie and Hoff, 1985; Iversen and Joranger, 1985; Ottar, 1989; Patrinos *et al.*, 1989)。日本では、1988年から環境庁の第2次酸性雨対策調査が全国規模で行われ、モニタリング体制が整ってきている(原, 1991 a, 1991 b, 1991 c, 1994)。しかし、これらの研究、調査はおもに雨に対して行われており、雪についての研究はほとんど行われていない。降雨に対して降雪は前線や低気圧などによるもの他に、特に冬季北海道の日本海側では季節風による降雪と、季節風末期の降雪という独特の降雪機構がある。

降雪については、菊地(1975)、菊地・遠藤(1975)が札幌市内15地点で降雪を採取し、初めて酸性度の水平分布についての観測を行っている。また、Murakami *et al.*(1980)は高度の異なる観測点で降雪を採取し、雲底下での汚染物質の捕捉について調べた。Suzuki(1983)は札幌での冬期間の降雪を連続的に採取し、また、市内の積雪コアを採取しそれらの空間的特徴について述べている。最近 Kikuchi *et al.*(1995)は降雪、積雪そして融雪までの酸性度の挙動を一貫して追跡、調査をしている。

* Acid snow brought by different snowfall mechanisms in Hokkaido.

^{*1} Hiroaki Izumi, 北海道大学大学院環境科学研究科(現:日本気象協会中央本部)。

^{*2} Katsuhiko Kikuchi, 北海道大学大学院理学研究科。

^{*3} Yoshihiro Kato, 北海道大学大学院理学研究科(現:国立天文台)。

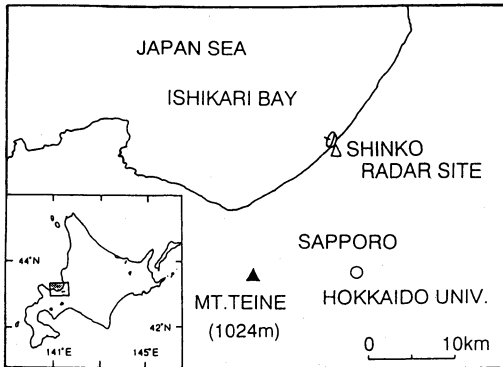
^{*4} Nobuhiro Takahashi, 北海道大学大学院理学研究科(現:通信総合研究所)。

^{*5} Hiroshi Uyeda, 北海道大学大学院理学研究科。

^{*6} Yoshio Asuma, 北海道大学大学院理学研究科。

—1994年8月29日受領—

—1995年11月30日受理—



第1図 観測地点配置図.

これらの研究は、主に1日単位で降雪採取をしており、乾性沈着の影響をうけていると思われ、また、風系による分類が困難であった。また、分析は主にpH、電気伝導度、数種類のイオンのみであった。

この研究では、低気圧や季節風など風系の相違に着目し、環境の異なる3地点で、1時間から数時間毎に降雪を採取し、分析を行った。観測期間は約3週間で、低気圧による降雪や季節風による降雪を何例か得ることができた。得られたサンプルはpHだけでなく、イオンバランスのとれる主要陰イオン、陽イオンを分析し、気象擾乱の違いによる降雪化学成分濃度の変動について調べた。

2. 観測および分析方法

観測は1992年1月18日から2月7日まで、札幌市西部の手稲山頂(1,024 m)にある北海道大学理学部手稲山雲物理観測所、ほぼ札幌市の中心にある北海道大学構内、また、札幌から北西の海岸沿いの石狩湾新港の3地点で降雪の採取を行った(第1図)。冬期の札幌の温度逆転層は高度300~400 mにみられ、汚染物質の多くはこの層内に閉じこめられる。また、雪雲の雲底は高度500~1000 mであるので、標高およそ1024 mの手稲山に降る雪は札幌の汚染物質の影響を直接受けていないと考えられる。北海道大学構内に降る雪は、札幌市とその周辺から放出される人間活動由来物質の影響を強く受けており、石狩湾新港に降る雪は、特に季節風や季節風末期の時には海洋の影響を強く受けていると考えられる。

降雪採取の方法は、内径49 cmのポリエチレン容器(サンプラー)にポリエチレン袋をセットし、30分から数時間毎に採取した。Dry depositionの影響を避ける

第1表 分析項目と使用した分析機器.

イオン成分等	分析機器
pH	ガラス電極 pH メータ HM-30S (東亜電波工業)
電気伝導度	数字式電導度計 CM-2A (東亜電波工業)
NO ₃ ⁻ SO ₄ ²⁻ Cl ⁻ NH ₄ ⁺ Ca ²⁺ K ⁺ Mg ²⁺ Na ⁺	イオンクロマトグラフ ICA-5000 システム(東亜電波工業)

ため、非降雪時はポリエチレン袋はセットせず、降雪時のみ採取を行うようにした。地吹雪の影響を避けるため、サンプラーは地上150 cm以上に設置した。また、石狩湾新港においては、北海道大学理学部ドップラーレーダーによる石狩平野に侵入する降雪雲の観測も同時に行われた(菊地・播磨屋, 1993)。

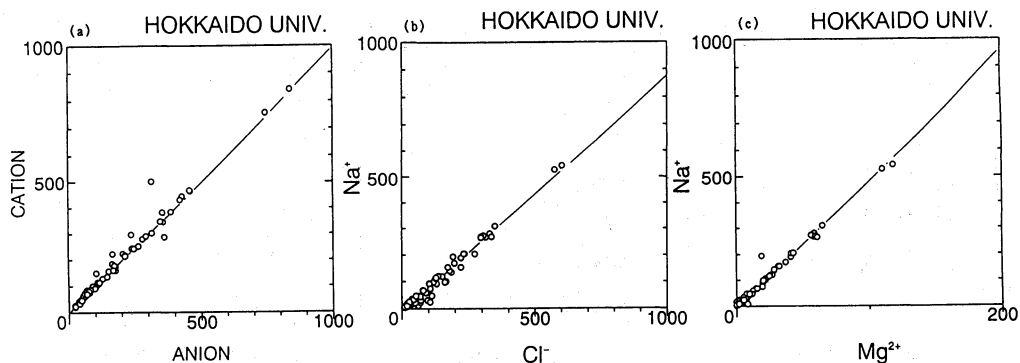
採取された雪(以下サンプル)は、分析まで、凍結したまま理学部気象学講座所有の低温室(約-25°C)に保存した。

採取され凍結保存したサンプルは、融解後、重量(容積)を測定し、ろ過した後、pH、電気伝導度(EC)、NH₄⁺、Ca²⁺、K⁺、Mg²⁺、Na⁺の陽イオンおよびNO₃⁻、SO₄²⁻、Cl⁻の陰イオンを測定した。pHの測定には東亜電波工業㈱のHM-30S型pHメーターを、電気伝導度の測定には、同社のCM-2A型電導度計、各陽イオンおよび陰イオン濃度の分析には、同社のイオンクロマトグラフICA-5000システムを使用した(第1表)。従来、陽イオンに関しては、原子吸光法や蛍光光度法が用いられてきたが、一価二価同時分析カラムの開発により、陰イオンと同様にイオンクロマトグラフによって同一の精度で測定できるようになったのも特徴の1つである。なお、H⁺濃度はpH値から逆算した。また、本研究において、濃度は、当量濃度、μeq l⁻¹を用いている。また、平均値は降水量で重みを付けた加重平均値を用い、pHは一度水素イオン濃度に換算し、加重平均計算をした後に、再びpHに直した。

3. 解析結果

3.1 イオンバランスと海塩起源成分

サンプルは電氣的に中性であるので、陽イオンと陰イオンの電荷はバランスし、それぞれの当量濃度の和



第2図 北大観測点における (a) 陽イオンと陰イオン, (b) Na^+ と Cl^- , (c) Na^+ と Mg^{2+} の相関図。

第2表 各観測点における各イオンの加重平均値 (単位: $\mu\text{eq l}^{-1}$) (観測期間: 1992年1月18日~2月7日)。

観測点	pH	H^+	NH_4^+	Ca^{2+}	K^+	Mg^{2+}	Na^+	NO_3^-	SO_4^{2-}	Cl^-	nss SO_4^{2-}	nss Ca^{2+}	nss Cl^-	サンプル数	降水量 (ml)
手稲山	4.91	12.4	8.7	9.7	3.1	14.0	68.7	7.1	31.7	79.2	23.4	6.8	-0.9	112	20220
北大	4.83	14.9	22.2	14.4	4.2	14.0	68.0	9.6	39.6	84.4	31.4	11.5	5.1	69	7414
新港	4.66	21.7	16.9	21.2	8.2	26.3	126.9	14.0	54.4	155.1	39.1	15.7	7.1	48	4179

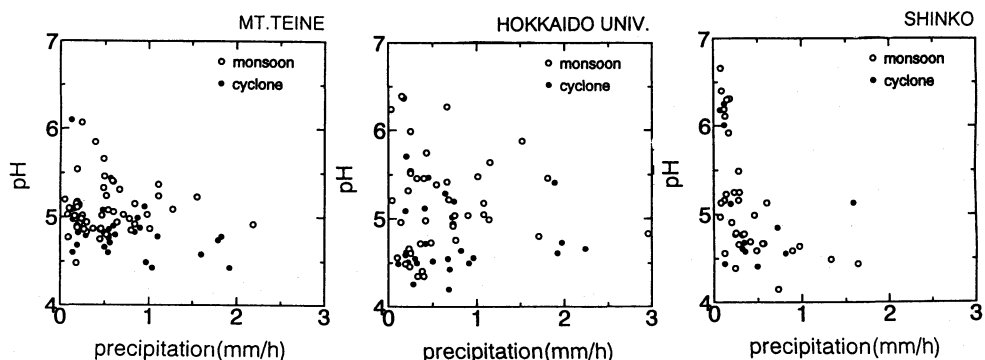
は等しくなければならない。第2図aに各観測点の内北大観測点における陽イオン和と陰イオン和の散布図を示す。ほぼ1対1の直線にのっており、イオンバランスがとれているといえる。このことはまた、測定された主要イオンでほぼ議論できることを示している。

次に、海塩起成分について考えてみる。降水に含まれる化学成分には人間活動起源、土壌起源、海洋起源等が考えられる。 SO_4^{2-} 、 Cl^- 、 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 等は人間活動起源と海洋起源の両方の寄与が考えられる。そこで、海塩起源を差し引いて非海塩起源 (non-seasalt, nss) を評価する必要がある。それには、 Na^+ 、 Cl^- 、 Mg^{2+} のうちどれかひとつをすべて海洋起源と仮定し評価する方法を用いる。第2図bに北大観測点における Na^+ と Cl^- の散布図を示す。直線は海水中の Na^+ と Cl^- の比を示しており、ほぼその直線にのっているといえる。北大と新港においては、やや Cl^- 過剰のサンプルがみられたが、これらは Cl^- が海塩以外の人為起源、例えば HCl によるものと考えられる。分析の都合上、 Cl^- を全て海塩起源と仮定し評価する場合は、人為起源の影響の大きいところでは注意が必要であろう。第2図cに Na^+ と Mg^{2+} の散布図を示す。これも第2図bと同様に海水中の比によくのっている。以上のことから、 Na^+ を全て海塩起源とし、また、海塩の組成は海水の組成と変わらないものとし、非海塩硫酸イオ

ンおよび非海塩カルシウムイオンを計算した。非海塩カルシウムイオンは人為起源の他に土壌起源が考えられる。また、マグネシウムイオン、カリウムイオンはほぼ海塩組成に一致していることから、非海塩寄与分の計算は行わずに、全て海塩起源と考えた。

3.2 各観測点における化学成分濃度の特徴

各観測点で観測期間中に得られた全データの加重平均値を第2表に示した。観測期間が3週間であったため、必ずしも各観測点の冬期間の降雪の平均的特徴を表してはいないかもしれないが、この期間は季節風および季節風末期による降雪も含まれているのでおおよその傾向をみることはできよう。全体的な成分濃度を3地点でくらべると、先に推定したとおり、手稲山で濃度が低く、北大と新港では人為起源成分が増加し、新港ではさらに海塩起源成分が高いことがわかる。pHに関しては、手稲山がいちばん高く酸性度は3地点の中でいちばん低いが、高度が高く札幌市周辺の都市の影響が少ないにもかかわらず、pHは5以下であり、いわゆる酸性雪が降っていると言えよう。北大、新港は手稲山に比べて札幌周辺から放出された人為起源成分によってpHが低くなっている。新港の方が酸性物質濃度が高いが、これは石岡等(1988)が指摘したように下層の南寄りの陸風により札幌周辺の人為起源成分が石狩湾上に滞留し、その後再び陸上に輸送された



第3図 各観測点における降水強度と pH の関係 (○：季節風, ●：低気圧).

ケースが多かったためと考えられる。降水強度と pH についてみると、第3図に示されるように3地点とも降水強度が弱いと pH 値は大きな幅を持つことがわかる。特に、pH 5.6以上の値は降水強度の弱いときに現れている(菊地, 1975; Kikuchi *et al.*, 1995)。pH の低い値は降水強度が弱いときも強いときもよく現れているが、降水強度が強いときに低い pH 値が現れていることが特徴である。手稲山では、pH 4 後半から5前半に比較的集中している。これは、手稲山は札幌周辺の都市汚染の影響が少ないために変動幅が比較的小さい結果と考えられる。また、降水強度が1 mm/h以上の時の低い pH は低気圧性の雲からの降雪であることが明らかになった。北大では都市汚染の影響のため pH は比較的広い幅をもち、ばらついている。新港は降水強度が弱いときに pH は大きな幅があり、pH 4.5 前後の値は低気圧と季節風の降雪が混在していた。

その他の主要イオンと降水強度の関係(第4図)をみると、降水強度が弱いと値は大きな幅を持ち、降水強度の増加と共に、低くなるという従来の傾向が認められた。しかし、 nss-SO_4^{2-} や NH_4^+ でみられるように、降水強度の強いときでも高濃度の値がみられる場合も少なからずあった。

3.3 降雪イベント別にみた化学成分濃度の変動

降水のサンプリング時間については、その研究の目的によって様々であり、例えば、季節による変動をみる場合や何年間にもわたる傾向をみる場合、1日毎や1降水毎に採取するケースが多い。しかしこの研究では降雪機構との関連という観点から、30分から数時間毎にサンプリングを行い、気象条件の変化に対応できるようにした。このようにして得られたデータを降雪システムの違い(季節風による降雪、低気圧による降雪など)によって分けて平均し、イオン濃度の変動につ

いて議論する。

(a) イオン組成図

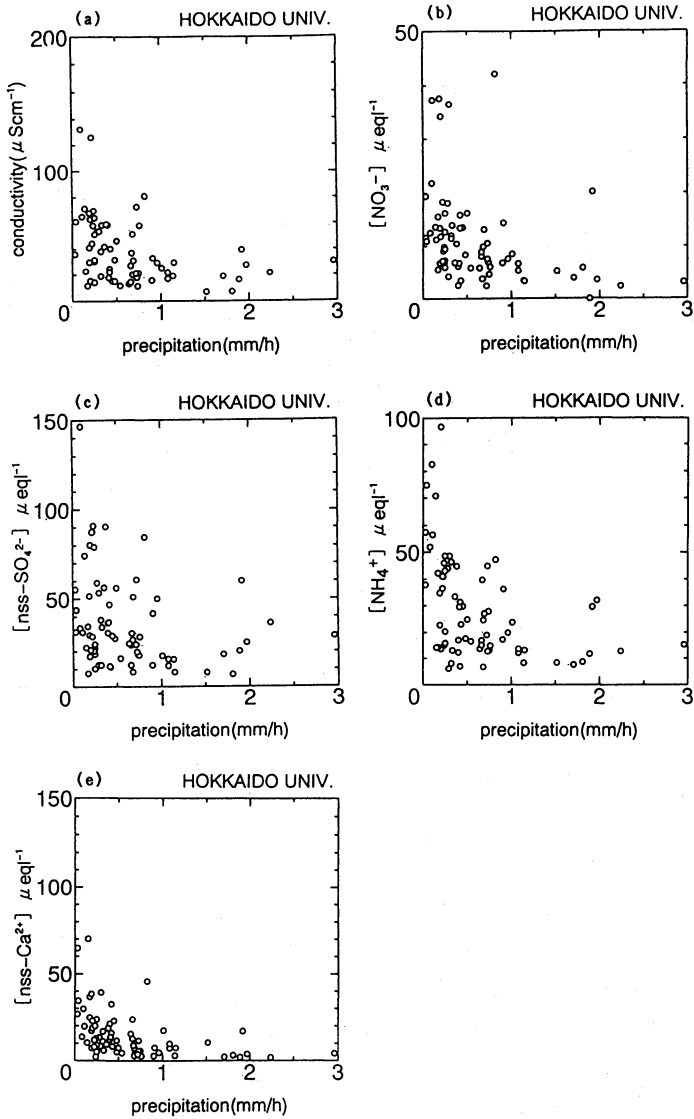
よく知られたイオン組成図の例を第5図に示した。上段に陽イオン、下段に陰イオンを示し、また、 Ca^{2+} と SO_4^{2-} の点線より右側を海塩寄与とみなす。この図から得られる情報を以下にまとめた。

- ①横棒グラフの長さから、測定された全イオン濃度
- ②点線の位置から海塩寄与の度合い
- ③ NO_3^- と nss-SO_4^{2-} の比から酸性化に大きく寄与したのはどちらか
- ④ H^+ と $(\text{NO}_3^- + \text{nss-SO}_4^{2-})$ を比べ、もともとあった H^+ がどの程度中和された後、残っているか
- ⑤ NH_4^+ と Ca^{2+} (nss-Ca^{2+}) を比べ、中和に寄与したのはどちらが大きい

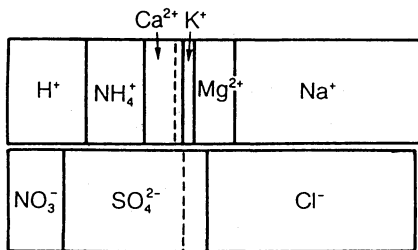
また、pH が同じであっても、降雪粒子の「質」が異なる場合もイオン組成図から簡単にわかる。これらをもとにして観測期間中の降雪毎の化学成分濃度を調べた。

(b) 降雪イベント別にみた化学成分濃度

1992年1月18日から2月7日の観測期間中の気象概況は、19日から20日にかけて冬型の気圧配置となり、日本海側で雪となった。21日から22日前半に低気圧が発達しながら通過し22日深夜から24日にかけて冬型の気圧配置が続いた。23日には石狩湾小低気圧が発生し、局地的に強い降雪があった。25、26日には気圧の谷が次々と通過した。27日に前線を伴った低気圧が発達しながら通過し、その後冬型は31日まで続いた。2月1日に低気圧が北海道の南海上を通過し、2日には冬型となった。3日に低気圧が通過し、4日にはさらに低気圧が北海道南海上を通過した。その後は季節風は卓越せず典型的な冬型にはならなかった。第6図に天気概況(上から札幌での天気記号、風向、気温、総観場、



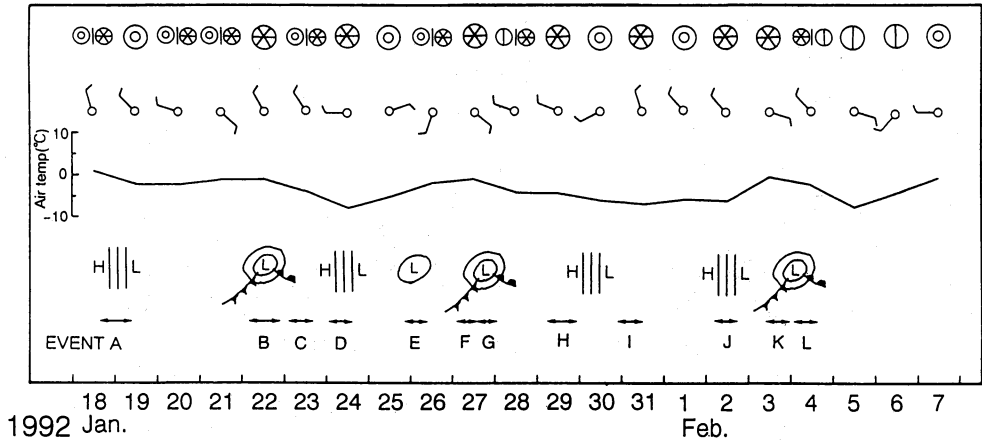
第4図 北大観測点における (a) 降水強度と電気伝導度, (b) NO_3^- , (c) nssSO_4^{2-} , (d) NH_4^+ , (e) nssCa^{2+} の関係。



第5図 イオン組成図。

イベント記号) とそれぞれのイベント (A~L) (地上天気図省略) を示した。

このようなイベント (A~L) による降雪別に、各観測点毎に得られたデータを分け、各成分毎に加重平均値をもとめた。第7図にイベント別の pH の平均値を示す。各イベント、各観測点によって値は大きく変動している。3地点で比べると、手稲山は札幌周辺の都市の影響が少ないために他に比べて pH は高いときが多く、また、変動幅もそれほど大きくはない。北大は都市の影響により、値が低いときが多く、変動幅也大



第6図 観測期間中の天気概況 (気温は札幌管区気象台の値)。

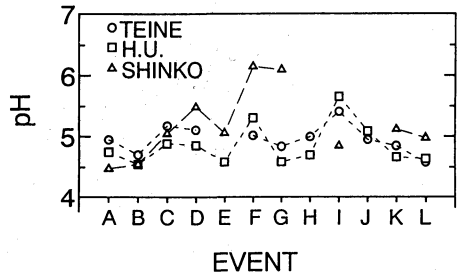
さい。新港は札幌の北西に位置し、風向によっては人為起源の影響を受けたり、海塩の影響を受けたりするので、その変動幅は大きいことがわかった。

次に各イベント毎のイオン組成図および特徴的なレーダーエコー図を用いて、いくつかのケースについて、化学成分濃度の特徴を議論する。

(1) Event B (低気圧) → C, D (季節風, 季節風末期)

1992年1月21日夕方にかけて前線を伴った低気圧が発達しながら札幌の北側を通過した。通過前はまとまった降雪はみられず、通過直後の層状雲からの降雪があり、また、日中には気温は0°Cを超え、湿った雪が各観測点で観測された (Event B)。降雪時は、西から西北西の風であったが、低気圧通過前は南東風であり札幌の汚染物質が海岸部 (または石狩湾上) まで輸送されたため新港では北大に比べて NO_3^- や SO_4^{2-} の濃度が高かった可能性が高い。第8図aに示されるように海塩寄与の割合は半分以下であるが、 NO_3^- と SO_4^{2-} 濃度が高く特に NO_3^- の比率が比較的高い。北大で Na^+ に対して Cl^- が過剰であるが、イオン組成図から考えると HCl , NH_4Cl , CaCl_2 であった可能性が高い。 NH_4^+ 濃度も高く、 $(\text{NH}_4^+/\text{Ca}^{2+})$ 比は全イベント中各観測点とも最高値であった。中和の大部分は NH_3 により行われたが、残った H^+ も多く、pH は北大と新港で4.55、手稲山で4.71とかなり低かった。

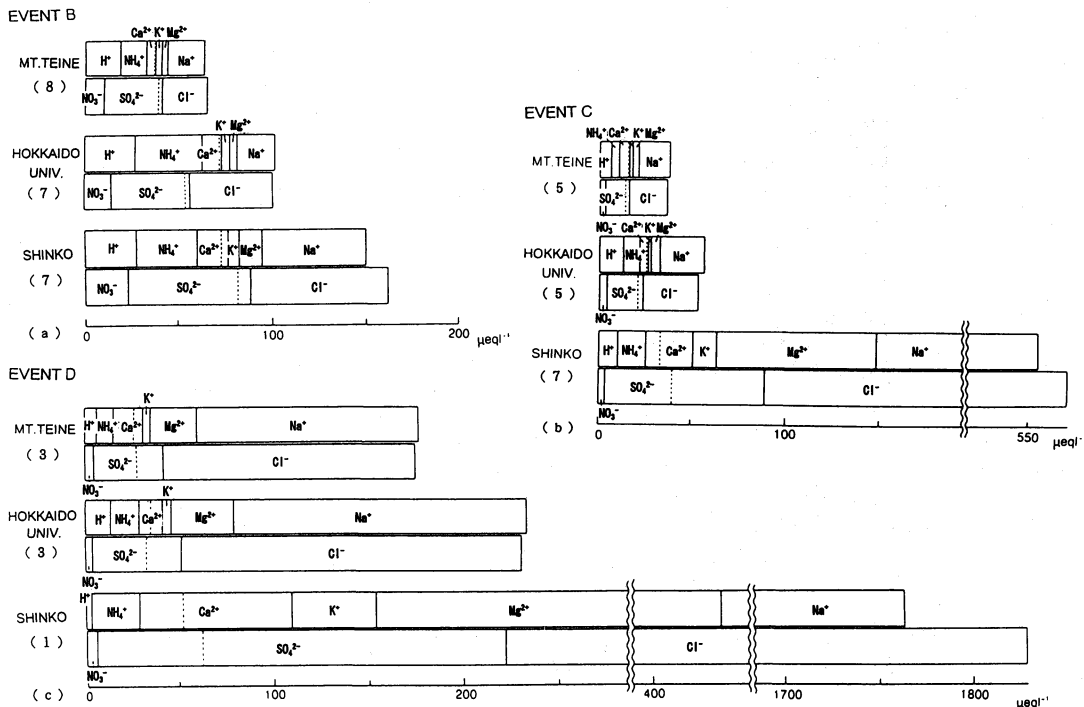
低気圧が通過した後、西高東低の冬型となり、北西の季節風が卓越した (Event C)。レーダーエコーでは冬型によくみられる帯状のエコーが特徴的であった。前日に比べ、手稲山と北大では、第8図bにみられるように海塩起源成分濃度はほぼ同じであるが、非海塩



第7図 各観測点におけるイベント別の pH 平均値 (○: 手稲山, □: 北大, △: 新港)。

起源成分濃度がかなり減少し、全イオン濃度は減少した。新港でも非海塩成分濃度は減少したが、海塩成分がかなり増加した。これは、北西の季節風のもとで、多くの海塩粒子が巻き上げられ、海岸近くでは降雪粒子がそれらを取りこんだためと考えられる。pH は前日に比べ5前後とやや高くなった。

24日早朝には石狩湾上に季節風末期に現れる渦状擾乱が発生し、幅約 20 km、高さ 5 km 以上の組織だった降雪雲が石狩平野に侵入し、かなりの降雪をもたらした (Event D)。手稲山、北大では23日には海塩の影響は少なかったが、このイベントではかなり濃度が高くなった (第8図c)。これは、海上での取束が強く、海塩粒子が雲中にまで取り込まれたために、高度の高いところや、内陸部までそれらの影響を受けたと考えられる。新港では海塩の影響が極端に高かった。また、非海塩成分濃度は23日に比べやや高くなったが、pH は手稲山・北大では23日とほぼ同じだったのは、中和



第8図 イベント B, C, D のイオン組成図 (地名の下の数値は試料数)。

が強いためであろう。

(2) Event F (低気圧, 前線通過前) → G (低気圧, 前線通過後)

前線を伴った低気圧が1月27日の昼過ぎに北海道の北側を通過した。北大と新港では、晴れ間をはさんで前線の通過前後に相当するまとまった降雪が2回あり、化学成分濃度に顕著な差がみられた。

前線通過前は3地点ともにイオン濃度は低く、pHも比較的高かった。レーダーエコー図から前線通過前は対流活動のほとんどない層状雲で化学成分を雲自体があまり取り込んでいないと考えられる(第9図a)。前線通過後は風向きは西北西となり、特に北大と新港で化学成分濃度が高くなった。この傾向は木村ほか(1982)とよく一致しており、これは前線通過前の雲に比べ通過後の雲は対流がやや活発であるため、化学成分をよく取り込んでいるからであろう。北大と手稲山ではpHは下がり酸性度は高くなった。新港ではNH₃やCaO等により中和されてpHは高かった。また、手稲山に比べ北大と新港では全体の濃度がかかなり高く雲底下での化学成分の捕捉が卓越していることを示唆している(第9図b)。

(3) Event I (季節風)

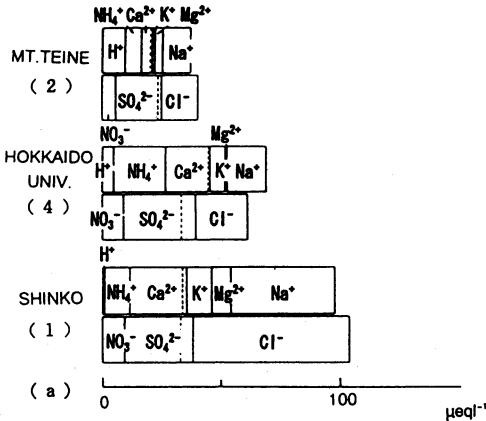
1月30日から冬型の気圧配置が続き、31日未明から早朝に3観測点で降雪があり、手稲山では昼過ぎまで続いた。レーダーエコーでは冬型特有の帯状の雲がみられた。イオン濃度が低く、北大・手稲山ではpHが5.5前後と高く、酸性度が低かった。この日は高層では北西風であったが下層では前日から弱い南東の風が吹いており、北大より新港の方が濃度が高いのは、札幌周辺起源成分の影響を受けたと考えられ、NO₃⁻濃度がやや高く、pHも4.85とやや低かった(第10図)。

以上に示したように、低気圧による降雪は比較的酸性度が高く、季節風による降雪はやや酸性度が低いという傾向が認められた。しかし、ケースによって、また、観測点によって、イオン組成は様々に変化していることがわかった。このような変動を理解するには、化学成分起源、そして、それらがどの過程で捕捉されたかを把握する必要がある。

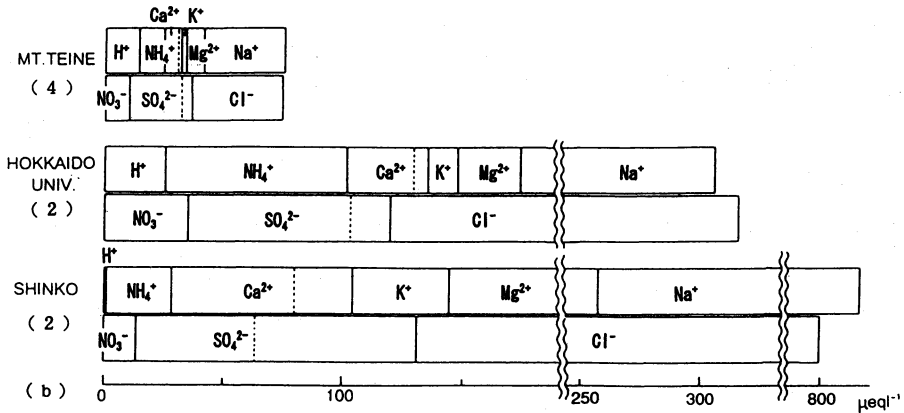
4. 考察

降雪粒子は、気象条件や地理的条件によって、様々な化学成分濃度や組成を持つことがわかった。この章では濃度や組成はどのような要素・要因によってきま

EVENT F

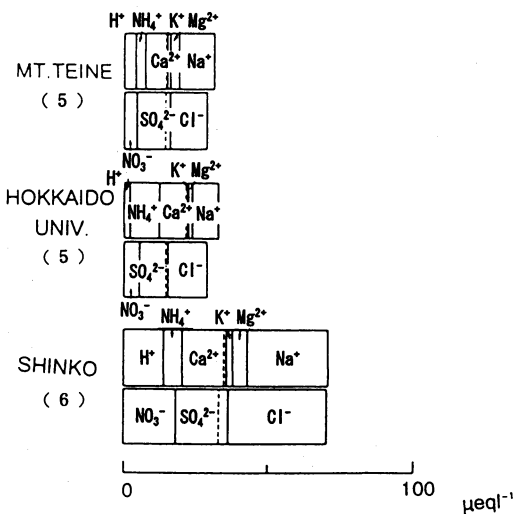


EVENT G



第9図 イベント F,G のイオン組成図 (地名の下の数値は試料数).

EVENT I

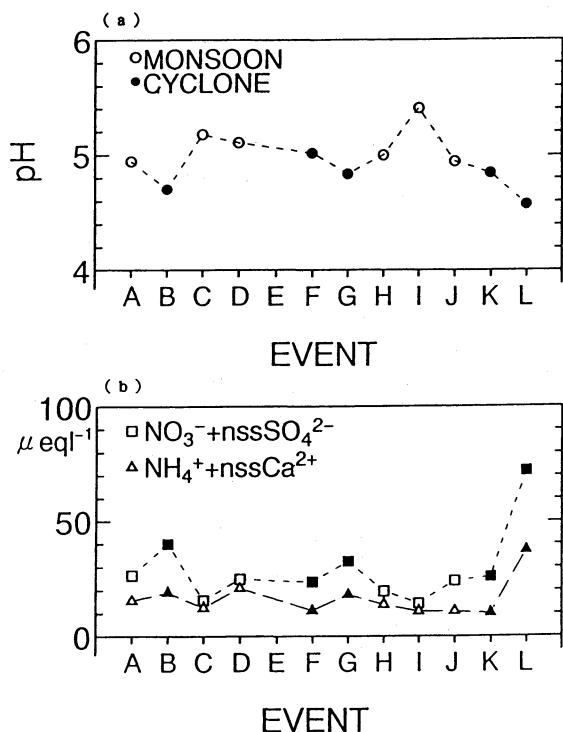


第10図 イベント I のイオン組成図 (地名の下の数値は試料数).

るのかを考察してみる。

4.1 レインアウトを主とする降雪の化学成分濃度

冬期の札幌上空では高度 300~400 m に強い温度逆転層があるので、札幌周辺起源の汚染物質の多くはこの層内に閉じこめられる。また、降雪雲の雲底高度は 500~1000 m なので、標高 1024 m の手稲山頂での降雪は、これら汚染物質の影響は直接受けていないと考えることができる。つまり、ウォッシュアウト過程を経していないので、札幌周辺に降る降雪粒子のバックグラウンド値を示しているといえよう。第11図 a に手稲山でのイベント毎の pH の変動を示した。黒丸で示した低気圧による降雪は冬型によるもの比べてどちらかといえば pH が低い傾向にある。つまり、冬型に比べて低気圧性の時は、雲自体が多くの酸性物質を含んでいることを示している。そこで、H⁺ を放出したと考えられる HNO₃ と H₂SO₄ の濃度を示す NO₃⁻ と SO₄²⁻ の合計値と、H⁺ の幾分かを中和した NH₃ と CaO 等



第11図 手稲山におけるイベント毎のpHの平均値(a)と $\text{NO}_3^- + \text{nssSO}_4^{2-}$ と $\text{NH}_4^+ + \text{nssCa}^{2+}$ (b)の変動(白:季節風,黒:低気圧).

の濃度を示す NH_4^+ と nssCa^{2+} の合計値をとってみると酸性物質は低気圧のとき高く、アルカリ性物質も同様の変動をしている。また、それらの差は冬型より低気圧の方が大きくpHの変動とよく一致している(第11図b)。

低気圧にともなう降雪の酸性度が高いことは、それが発生・発達・移動の過程で季節風による降雪より多くの酸性物質を取り込んだことになる。季節風の寒気の吹き出しにともなう筋状の雲は、日本海上で発生・発達し降雪をもたらすのに対し、低気圧は擾乱規模も大きく、遠くは大陸で発生し発達しながら移動してくる。その違いから、雲粒の化学成分濃度が異なることは十分に考えられる。また、低気圧によっても、その擾乱規模や発生場所、移動・通過経路、lifetime等によって化学成分濃度が異なるであろうし、同じ低気圧でも前面または後面の吹き込みによる風系の違いなどもある。観測期間中、低気圧による降雪は第6図にみられるように4回あった。イベントF,Gに相当する低気圧は大陸で発生し沿海州を越えて移動してきたが、

その他は朝鮮半島の東海上で発生し、日本海を通過して移動し、北海道を通過した。しかしこれらのケースの差を認める化学データは得られなかった。高層天気図から、低気圧の発生や発達段階で大陸からの吹き込みがあり、それを起源とする酸性物質が雲中に取り込まれ長距離輸送があった可能性はある。勿論、大陸ばかりでなく、広い範囲に存在しているグローバルなバックグラウンド成分も取り込んでいるであろうし、日本起源の成分も取り込んでいると考えられるので、長距離輸送の寄与があるか、またはその寄与がどのくらいかは一概には言えない。

4.2 ウォッシュアウト効果

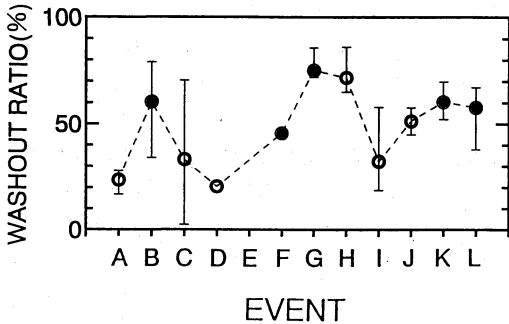
観測期間中の降雪イベントで得られたデータのうち、石狩湾新港に設置した北大理学部気象レーダーによって得られたPPIレーダーエコー図を用いて、手稲山と北大に同じ降雪雲により降雪がもたらされたと考えられる1時間から数時間ごとのデータをそれぞれピックアップし、それらの濃度差からウォッシュアウトによる寄与を評価した。イベント毎の比較をするため1イベント内で得られた個々のデータの全イオン濃度を手稲山・北大でそれぞれ平均した。

地上に落下した降雪粒子はレインアウトとウォッシュアウトの両方の過程を経ているから、それらのうちウォッシュアウトの占める割合を示すウォッシュアウト率(washout ratio)を求めた。計算方法は手稲山と北大の陰イオンと陽イオンの全ての濃度の差をウォッシュアウト効果分とみて、その濃度差を北大の濃度で割った。この値のイベント別変動を第12図に示した。ウォッシュアウト率は、約20~70%と大きく変動しているが、これはMurakami *et al.* (1981)で得られた変動幅と一致している。ウォッシュアウト効果を左右する要素には、気温、湿度、降水強度、大気中の化学成分濃度、雪質(結晶形)、粒子の落下速度など様々なものが考えられ、それらが複雑に作用しているために大きく変動すると考えられる。図から明らかなように、低気圧の時、ウォッシュアウト効果が高い。一般に低気圧の通過時は気温が高く、各観測点で湿った雪が観測されており、27日の午後(イベントG)にはみぞれが観測された。このように雪質が湿っている場合、ガス状物質やエアロゾルの捕捉効率が高くなるためと考えられる。そこで、気温とウォッシュアウト率の関係を調べたのが第13図aである。この図では平均をとったイベント別の値ではなく、個々のデータを用いた。気温はアメダスの札幌の値を用いた。1対1の直

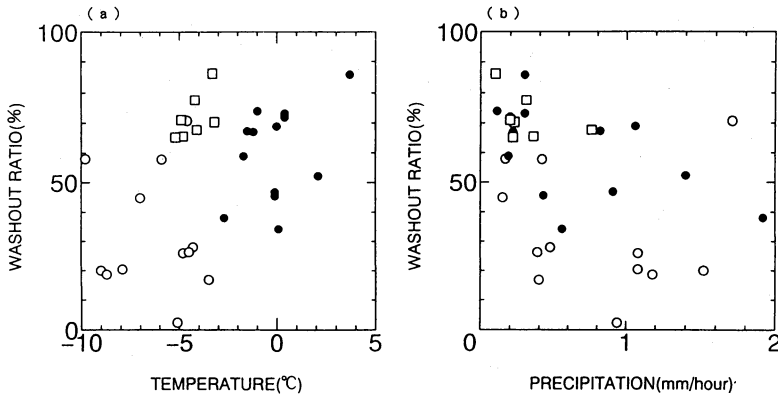
線がひけるほどの相関はないが、傾向として、低気圧の時は気温が高く、ウォッシュアウト率が40%以上で60から70%に多く分布しているのに対し、季節風の時は当然ながら気温が低く、ウォッシュアウト率は低下した。しかし、変動幅がかなり大きかった。季節風時にも-5°C位で70%前後の値があるが、これは1月29日のイベントHに相当し、季節風の中では突出して高い例であった。この日の平均相対湿度は66%と他のイベントに比べて10%以上も低かった。このため、降雪粒子が蒸発しながら落下し、成分が濃縮した可能性が

ある。そこで、イベントHでのウォッシュアウト計算に使用したデータの各イオンの手稲山と北大での加重平均値とその濃度比を示したのが第3表である。海塩成分は K^+ を除いて、手稲山と北大の濃度比が2.9であった。また非海塩成分は NO_3^- の濃度比が2.2とやや低いが、2.9以上となっている。以上のことから、降雪粒子が蒸発しながら非海塩成分を捕捉しつつ落下したと推察される。次に、降雪強度とウォッシュアウト率との関係をしらべた(第13図b)。大気中の物質濃度が一定で、降雪強度が強い時と弱い時とを比べた場合、強い時はうすめられ相対的に物質の濃度が低くなり、弱い時は濃度が高くなると考えられる。この図でも降水強度が弱いときはウォッシュアウト率が高い傾向がある。また、低気圧と季節風を比べた場合、ともに右下がりの傾向はみられるが、低気圧は降雪強度が強くても余り減少しなかった。

以上は、全濃度に対する雲底下で付加された濃度の割合を示した相対的な値であるウォッシュアウト率を用いたが、付加された絶対量である手稲山と北大の濃度差を使って考察する。第14図に濃度差と地上気温の関係を示した。イベントH(図中□)を除いて、季節風の時は全てのサンプルで低く、それに対して低気圧の時は値の幅が大きいのが特徴である。また降水強度



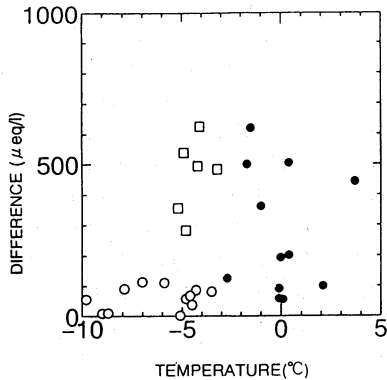
第12図 イベント毎のウォッシュアウト率 (白：季節風；黒：低気圧)。



第13図 ウォッシュアウト率と地上気温 (a) と降水強度 (b) の関係 (○：季節風, □：季節風・イベントH, ●：低気圧)。

第3表 イベントHのイオン組成の加重平均値と2地点の濃度比 (単位： $\mu eq l^{-1}$)

観測点	H^+	NH_4^+	Ca^{2+}	nss Ca^{2+}	ss Ca^{2+}	K^+	Mg^{2+}	Na^+	NO_3^-	SO_4^{2-}	nss SO_4^{2-}	ss SO_4^{2-}	Cl^-	全濃度	サンプル数
手稲山	10.0	5.8	8.1	4.8	3.3	2.6	15.0	75.5	4.5	24.3	15.2	9.1	84.4	230.4	8
北大	19.8	44.4	23.3	13.9	9.4	9.1	43.1	218.2	9.8	98.1	71.8	26.3	243.7	709.5	9
北/手	2.0	7.7	2.9	2.9	2.9	3.5	2.9	2.9	2.2	4.0	4.72	2.9	2.9	3.1	



第14図 手稲山と北大での濃度差と地上気温の関係 (○: 季節風, □: 季節風・イベントH, ●: 低気圧).

との関係を見ると降水強度が弱いときは幅が大きく、強くなると濃度差は小さくなる傾向があった。

5. まとめ

1992年1月中旬から2月上旬にかけて、手稲山頂、北海道大学構内、石狩湾新港の大気環境の異なる3地点で、約3週間にわたって降雪を採取し、主要イオン濃度の測定を行った。その結果、各観測点でのpHの平均値をみると約pH 4.6~4.9で、いわゆる酸性雪が降っていることがわかった。手稲山は札幌周辺の都市汚染の影響を直接うけないため、その変動は比較的小さかったが、北大や新港では都市汚染の影響のため、pHの変動は大きく、特に海塩の影響をうける新港は変動が大きかった。イオン濃度組成はイベントによって大きな変動があるが、酸性度に注目すると、季節風が卓越する冬型の気圧配置時の降雪は比較的酸性度は低く、低気圧による降雪の方が酸性度が高い傾向があった。そこで、ウォッシュアウト過程を経ていない手稲山のイベント別変動をみると、低気圧の時にpHが低く、発生、発達、移動過程で、多くの酸性物質を捕捉してきたためと考えられる。次に、雲底下の化学成分の捕捉を考えるために、レーダーエコー図を用いて手稲山と北大に同じ雲から降雪があったと考えられるデータを使用し、その全イオン濃度差から、ウォッシュアウト率を求めた。その結果、低気圧の時に化学成分をよくウォッシュアウトすることがわかった。低気圧の時は気温が高く、湿った雪やみぞれが多く、これらがガス状物質やエアロゾルをよく捕捉していると

考えられる。また、ウォッシュアウト効果が大きいときは降水量が少ないときに多くみられた。しかし、降雪粒子の化学成分濃度を決定する要素は数多くあり、それらがどのような時にどう効いてくるのか、という問題は非常に難しい。いずれにせよ、観測例を増やし、また、それらの要素を定量的に見積もることができる観測が必要だと思われる。

謝辞

この研究の一部は1990年度日本生命財団、および1991年度北海道大学特定研究経費によるものである。各観測点における降雪のサンプリングおよび石狩湾新港での降雪雲のドップラーレーダー観測は、北大理学部地球物理学教室気象学講座の大学院生の協力によるところが大きかった。記して謝意を表すものである。

参考文献

- Barrie, L. A. and R. M. Hoff, 1985: Five years of air chemistry observations in the Canadian Arctic, *Atmos. Environ.*, **19**, 1995-2010.
- 原 宏, 1991a: 酸性雨—第1講「酸性雨」とpH—, 大気汚染学会誌, **26**, A1-A 8.
- 原 宏, 1991b: 酸性雨—第2講「酸性雨とその生成メカニズム」—, 大気汚染学会誌, **26**, A33-A40.
- 原 宏, 1991c: 酸性雨—第3講「酸性雨のデータをどうみるか」—, 大気汚染学会誌, **26**, A51-A59.
- 原 宏, 1994: 世界の酸性雨の現状—日本—, 気象研究ノート, **182**, 3-13.
- Heidam, N. Z., 1981: On the origin of the Arctic aerosols: A statistical approach, *Atmos. Environ.*, **15**, 1421-1428.
- 石岡 太, 李 東仁, 谷口 恭, 菊地勝弘, 1988: 係留気球による大気境界層内のエアロゾルの測定, 北海道大学地球物理学研究報告, **51**, 15-34.
- Iversen, T. and E. Joranger, 1985: Arctic air pollution and large scale atmospheric flows, *Atmos. Environ.*, **19**, 2099-2108.
- 菊地勝弘, 1975: 降雪の電気伝導度および水素イオン濃度測定による札幌市内の大気汚染の水平分布, 北海道大学地球物理学研究報告, **34**, 67-77.
- 菊地勝弘, 遠藤辰雄, 1975: 札幌における冬期間のエロゾル濃度と降雪の電気伝導度の測定, 北海道大学地球物理学研究報告, **33**, 1-8.
- 菊地勝弘, 播磨屋敏生, 1993: 都市の豪雪災害の予測と軽減・防除に関する研究. 文部省科学研究費重点領域研究, 「自然災害の予測と防災力」研究成果, NO. A-4-2, 609 pp.

- Kikuchi, K., M. Yoshizawa, Y. Asuma and H. Uyeda, 1995 : The acidity of snowfalls and its variation through the processes of accumulation and melting, *J. Meteor. Soc. Japan*, **73**, 47-58.
- 木村 勉, 村上正隆, 遠藤辰雄, 1981 : 手稲山における rain out 効果の観測, *環境科学(北海道大学)*, **4**, 223-232.
- Miller, J. M., 1981 : A five-year climatology of five-day back trajectories from Barrow, Alaska, *Atmos. Environ.*, **15**, 1401-1406.
- Murakami, M., C. Hiramatsu and C. Magono, 1981 : Observation of aerosol scavenging by falling snow crystals at two sites of different heights, *J. Meteor. Soc. Japan*, **59**, 763-771.
- 大喜多敏一, 1994 : 世界の酸性雨の現状—欧州, 米国—, *気象研究ノート*, **182**, 41-58.
- Ottar, B., 1989 : Arctic air pollution : a Norwegian perspective, *Atmos. Environ.*, **23**, 2349-2356.
- Patricions, A. A. N., M. J. Leach, R. M. Brown, R. T. Tanner and F. S. Binkowski, 1989 : An acid rain study in the Washington, D. C. area, *J. Appl. Meteor.*, **28**, 948-968.
- Rahn, K. A., 1981 : The Arctic air-sampling network in 1980, *Atmos. Environ.*, **15**, 1349-1352.
- Rahn, K. A., 1985 : Progress in Arctic air chemistry, 1980-1984, *Atmos. Environ.*, **19**, 1987-1994.
- Rahn K. A. and N. Z. Heidam, 1981 : Progress in Arctic air chemistry, 1977-1980 : A comparison of the first and second symposia, *Atmos. Environ.*, **15**, 1345-1348.
- Suzuki, K., 1983 : Transfer mechanisms of chemical substances with the hydrologic cycle under snowy cold environment, Ph. D. Thesis of Hokkaido Univ., 123 pp.

春季大会予稿集の申し込みについて

1996年春季大会(大宮)の予稿集(69号)の予約希望者は下記を記入のうえ葉書またはFAXで学会事務局宛にお申し込みください。すでに定期購読されている会員は不要です。

記

- 1) 氏名(会員番号がわかる場合は会員番号も)
- 2) 送付先または所属(会員番号を記入した場合は省略してもよい)
- 3) 69号(春季大会予稿集)のみの場合; 69号のみ、69号以降定期購読の場合; 69号以降定期と記してください。

〒100 東京都千代田区大手町1-3-4 気象庁内
日本気象学会 事務局
TEL 03-3212-8341 内線 2546
FAX 03-3216-4401

注. *印刷部数が限られているので、購読希望の方は定期購読をお勧めします。大会当日は売り切れとなることがあります。

頒布価格(円)	個人会員	団体会員
69号のみ	2,300	2,500
定期購読	2,000	2,200

予稿集の申込締切りは1996年5月10日(金)です。