

# 秋田八幡平における降水及び霧水中の化学組成と 後方流跡線の関係

菊 地 良 栄\*<sup>1</sup>・預 幡 哲 也\*<sup>1</sup>・岡 村 朋 子\*<sup>1</sup>・岩 田 吉 弘\*<sup>2</sup>  
尾 関 徹\*<sup>3</sup>・世 良 耕 一 郎\*<sup>4</sup>・梶 川 正 弘\*<sup>1</sup>・小 川 信 明\*<sup>1</sup>

## 要 旨

1997年6～9月に秋田八幡平で採集した雨水と霧水の主要イオンの濃度をpHメーター(ガラス電極法)とイオンクロマトグラフィーで、不溶性成分をPIXE法で分析し、それらの汚染状態を検討した。また、72h後方流跡線解析を行い、空気塊の移動経路が霧の粒径と霧水中のイオン成分や不溶性成分の組成に与える影響を検討した。その結果、空気塊が中国北部・モンゴル付近から秋田八幡平に達する時の霧水は最も酸性化し、不溶性成分として大陸起源の土壌成分と思われる成分を含むことがわかった。粒径と濃度の両対数プロットの傾きの絶対値が3であることを見出した。これは、単純水希釈成長モデルで説明できることがわかった。

## 1. 緒言

日本における酸性降水被害は、1973～1975年に関東地方を中心に霧雨による被害が発生して以来、明らかな人的被害は認められてはいない。しかし、1993～1997年の環境庁の第3次調査(環境庁, 1999)の結果をみると、ほぼ全国にわたって平均pH4台の降水が観測されている。現在の被害は樹木の立ち枯れ(これも直接原因かどうかわからない)等以外には顕著ではないが、近い将来、他の生態系への影響が懸念されている。その中で農業県秋田では、農作物などに対する影響が心配されているが、酸性降水の系統的な研究は少なく、我々以外にはほとんど見られない。特に、一降水または1日毎のサンプリングの結果はほとんど報告されていない。そこで我々の研究グループでは1993年冬季から秋田県の降水を1日毎にサンプリングし、その化学組成を分析し、降水の酸性化の原因や汚染起源を特定するために化学的、統計的、気象学的な解析を行って

きた(Ogawa *et al.*, 1998; 小川ほか, 1998; Ozeki *et al.*, 1995; 1997)。1994年までの結果から、冬季降水の酸性化の主な原因が $\text{nss-SO}_4^{2-}$ であることを特定したものの、汚染物質全体の輸送や降水粒子の酸性化機構を十分に解析することはできなかった(Ogawa *et al.*, 1998)が、その後も降水の採集を続け、電気伝導度(EC)及び各イオンの月別推移や年別推移の調査を継続している。

一方、汚染物質の輸送と降水の酸性化に関して降水の前段階であり、通常の降水より酸性度が高いと言われている霧(雲)水(村野, 1993)の酸性化要因を解明するため、秋田八幡平で1997年8～9月に採集した降水と霧水、及び秋田市で1日毎に採集した降水のpH, EC, イオン濃度を測定し、霧の粒径と化学組成の関係を検討し、さらに霧水中の不溶性成分をPIXE法によって分析し、1977年に盛岡に飛来した黄砂の成分(井上・吉田, 1978)と比較してきた(Ogawa *et al.*, 1999 a; b)。

本研究は、これまでの分析結果に、新たに850 hPa高層天気図を用いた72h後方流跡線解析結果を加えて、1977年に盛岡に飛来した黄砂の成分や八幡平地域の岩石の組成と比較するとともに、空気塊の輸送経路と可溶性成分のイオン組成や不溶成分との関係を検討する

\*<sup>1</sup> 秋田大学工学資源学部・\*<sup>2</sup>秋田大学教育文化学部

\*<sup>3</sup> 兵庫教育大学・\*<sup>4</sup>岩手医科大学サイクロトロンセンター

—2000年4月20日受領—

—2002年1月15日受理—

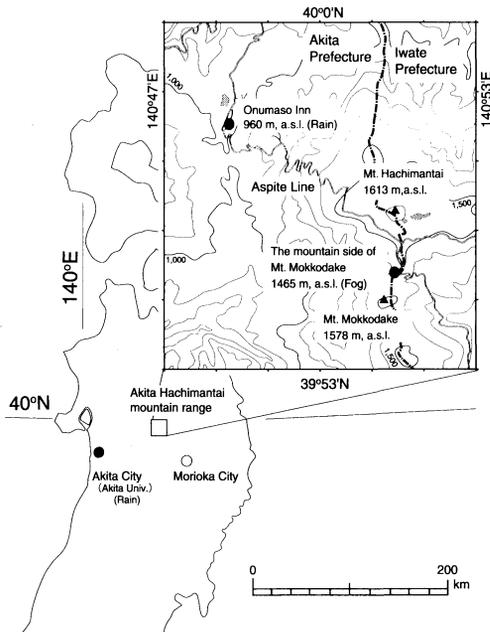


Fig.1 Location of sampling sites ●.

ことを目的とした。

## 2. 観測

降水は秋田市 (秋田大学屋上) (39°43'N, 140°08'E, 10 m a. s. l.), 秋田八幡平大沼 (39°59'N, 140°48'E, 960 m a. s. l.) で, 内径22.5 cm のプラスチック製円筒容器に透明なポリエチレン製の袋を装着した簡易バルクサンプラーで, 霧水は秋田八幡平もっこ岳登山口 (39°56'N, 140°51'E, 1,465 m a. s. l.) で, (株)白井工業研究所製細線式パッシブ霧水捕集器 (FWP-500) で採集した (Ogawa *et al.*, 1998, 1999 a ; b) (第1図). 秋田市の雨水及び秋田八幡平における霧水と雨水に関する採集時期は第1表に示した。

採集したサンプルは, 0.45  $\mu\text{m}$  のメンブレンフィルター (ADVANTEC DISMIC-13 cp) でろ過後, 東亜電波工業(株)製 HM-30S 型 pH メーター, CM-40 S 型電導度計により, それぞれ pH と EC を測定し, 東亜電波工業(株)製 ICA-5000 型イオンクロマトグラフ装置を用いて,  $\text{H}^+$  以外の 5 種類の陽イオン ( $\text{Na}^+$ ,  $\text{NH}_4^+$ ,  $\text{K}^+$ ,  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ ) に関しては, 陽イオン用カラム (TOA PCI-301) と 2.5 mM メタンスルホン酸溶液を用いて, 3 種類の陰イオン ( $\text{Cl}^-$ ,  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ ) に関しては, 陰イオン用カラム (TOA PCI-201S) と 2.5 mM フタル酸 + 2.4 mM トリス (ヒドロキシメチル)

アミノメタン溶液を用い各イオン濃度を分析した (Ogawa *et al.*, 1999 a ; b).

霧粒はツェダーオイルを塗布したスライドガラスを霧の流れにさらす方法によって採取し, ただちに顕微鏡で写真撮影して, 試料毎の粒径分布と体積加重平均粒径 ( $D_m$ ) を求めた (Okita, 1961).

さらに, 降水及び霧水のろ過後にメンブレンフィルター上に残った不溶性成分の元素 (Al, Si, Fe, K, Mg, Na, Ca, Ti, Mn) 分析を, 日本アイソトープ協会仁科記念サイクロトロンセンター (岩手県滝沢村) の荷電粒子励起蛍光 X 線 (PIXE) 分析装置で行い, Al に対する各元素の組成比を求めた。また, 後方流跡線は以下に述べるような第二近似法で求めた (Pettersen, 1956)。まず, 試料採集時刻に最も近い 850 hPa 高層天気図の風向・風速から 12 時間前の空気塊の位置を求め, 次に 12 時間前の高層天気図上のその位置での風向・風速から, さらに 12 時間前の空気塊の位置を求める。この 24 時間前の位置と八幡平との中間点を 12 時間前の位置とする。この操作をくりかえして 72 時間前までの空気塊の位置を求めた。

## 3. 結果と考察

この章では, 霧水の酸性化に寄与する要因についての考察を, 3.1 ではイオン・不溶性成分濃度および霧水の粒径との関連から, 3.2 は輸送経路との関連からそれぞれ述べる。

### 3.1 降水と霧水の化学的性質の比較

#### 3.1.1 降水と霧水中のイオン組成

1997 年 8~9 月の秋田市と大沼の降水及びもっこ岳登山口の霧水の全イオン濃度と各イオン濃度の単純平均及び pH の単純平均 (濃度換算後平均し, pH に直したものと) 最低 pH を第 1 表に示した。ここで, 濃度及び pH に関して単純平均を用いたのは霧水と降水を単純に比較するためである。

pH の単純平均は, 霧水で 4.07, 秋田市と大沼の降水で各々, 4.90 と 4.80 であった。また, 最低の pH は霧水で 3.56, 降水では各々, 4.45 と 4.31 であり, 秋田市や大沼の降水と比べてもっこ岳登山口の霧水が酸性化していることがわかった。また, 全イオン濃度, 各イオン濃度ともに, もっこ岳登山口の霧水が秋田市, 大沼の降水に比べて高い値を示した。その中で降水を酸性化する成分である  $\text{nss-SO}_4^{2-}$  の 8~9 月の単純平均濃度は, 霧水が秋田市及び大沼の降水の各々約 5.7 倍と約 3.6 倍の値を示した。降水を酸性化するもう 1 つの成分

Table 1 Arithmetic mean of pH, lowest pH, and arithmetic mean of total and various ion concentrations with standard deviation in the fog and rain samples in August to September, 1997.

	pH*	lowest pH	ion concentration / $\mu\text{eq/L}$									
			H <sup>+</sup>	Cl <sup>-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	Na <sup>+</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	nss-Ca <sup>2+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	total
Fog at Mt. Mokkodake (n=16)	4.07	3.56	85.3 ±70.2	159.6 ±127.0	81.7 ±70.3	163.7 ±123.6	164.9 ±135.3	134.7 ±112.6	12.4 ±7.9	29.0 ±32.0	40.6 ±34.4	898.9 ±584.0
Rain at Onuma (n=9)	4.80	4.31	16.0 ±15.7	23.7 ±18.8	32.6 ±51.1	44.9 ±90.1	22.7 ±18.2	30.2 ±46.2	3.9 ±4.1	31.3 ±72.5	7.7 ±10.8	216.6 ±302.9
Rain at Akita (n=22)	4.90	4.45	12.6 ±9.4	60.4 ±78.6	17.4 ±9.5	28.8 ±24.6	57.7 ±74.9	31.7 ±19.7	2.2 ±1.9	6.5 ± 8.7	12.7 ±16.4	239.6 ±207.2

\* It was calculated from the arithmetic mean of H<sup>+</sup> concentration.

である NO<sub>3</sub><sup>-</sup> の単純平均濃度は、霧水が秋田市及び大沼の降水の各々約4.7倍と約2.5倍の値を示した。

一方、降水の中和に関与する成分である NH<sub>4</sub><sup>+</sup> の単純平均濃度は、もっこ岳登山口の霧水が、秋田市及び大沼の降水の各々約4.5倍と4.3倍の値を示した。降水の中和に関与するもう1つの成分である nss-Ca<sup>2+</sup> の単純平均濃度は、霧水が秋田市の約4.4倍の値を示したが、大沼の降水とはほぼ同じ値であった。これらの結果をまとめると、結局もっこ岳登山口の霧水は、降水の中和に関与する成分の濃度は高い値を示しているが、酸性化成分濃度の方がより高濃度であること、つまり、([NO<sub>3</sub><sup>-</sup>] + [nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>]) >> ([NH<sub>4</sub><sup>+</sup>] + [nss-Ca<sup>2+</sup>]) のために単純平均 pH が低くなったものと考えられる。このことは各イベント毎についても定量的に確認されている。

また、一般に Na<sup>+</sup> と Cl<sup>-</sup> は海塩起源と考えられ、内陸にいくにしたがってその濃度は減少する傾向にある (Ogawa *et al.*, 1998)。秋田市より約80 km 内陸にある秋田八幡平の大沼の降水では海塩濃度は減少しているが、もっこ岳登山口の霧水では逆に秋田市よりも高い濃度を示す試料も多くあった。ただし、霧の場合には、後述の粒径の効果も一因であると考えられる。しかしながら、秋田市と大沼の降水及びもっこ岳登山口の霧水の [Na<sup>+</sup>]/[Cl<sup>-</sup>] については、ほとんどの試料が海塩比0.86に近い値を示していることから、Na<sup>+</sup> と Cl<sup>-</sup> は主に海塩起源であると考えられる (第1表)。

### 3.1.2 霧水中の不溶性成分濃度

もっこ岳登山口で採集された霧水の不溶性成分の元素分析を PIXE 法によって行い、Al に対する元素濃度の比率と、1977年に秋田市の東側に位置する盛岡市に

飛来した黄砂成分 (井上・吉田, 1978) の比率との偏差  $\sigma$  を求め比較した (第2表)。なお、偏差  $\sigma$  は次のような式によって求めた。 $\sigma = \sqrt{\sum_i (x_i - s_i)^2 / n}$ 、ここで  $x_i$  は試料の元素組成比、 $s_i$  は黄砂の元素組成比であり、 $n$  ( $= 9$ ) は元素の数である。

もっこ岳登山口で8月28~29日、9月13~14日に採集された霧水の不溶性成分は盛岡市に飛来した黄砂と似た組成比を持っていた (Ogawa *et al.*, 1999 a; b)。しかも、この2つの試料に関する偏差  $\sigma$  が最も小さいことから客観的にもこれらの試料が黄砂と似た組成比を持っていることがわかる。それ以外の組成比は黄砂の組成比と異なっており、近距離輸送の土壌粉塵等の影響が考えられる。

### 3.1.3 連続採集された霧水の体積加重平均粒径 ( $D_m$ ) とイオン濃度の関係

秋田八幡平での降水と霧水の採集期間中、9月26日から28日にかけては連続して霧水を採集することができた。このときは、ちょうど、東北北部を低気圧が通過中であった。霧粒の平均粒径 ( $D_m$ ) は、東風系 (岩手県側からの風向) のときに比べて、西風系 (秋田県側からの風向) のときに小さくなる傾向にあり、全イオン濃度は平均粒径が小さくなるにつれて高くなる傾向を示した。西風系のときの平均粒径とイオン濃度の関係と、比較のための傾き3の線を第2図に示した。なお、各イオン濃度及び総イオン濃度は平均粒径が大きくなるにつれて低くなっているが、各々傾きが異なっており、霧粒に対する汚染物質の取り込み機構がイオン種によって異なることを示唆している (Ogawa *et al.*, 1999a)。

仮に、吸湿性の汚染物質が霧粒 (粒径  $d$ ) の凝結核と

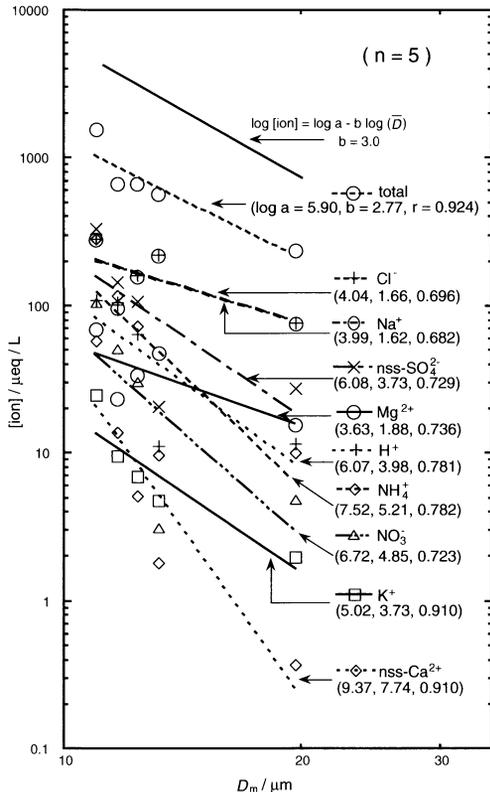


Fig.2 Plots of ion concentrations vs. the mean volume diameter ( $D_m$ ) of the fog droplets in westerly wind during 26-28th, September 1997. The  $b=3$  shows the theoretical slope of the dilution model by the simple diffusion growth.

なり、その後の凝結成長過程では汚染物質が霧粒内に取り込まれないとする(単純水希釈成長モデル)と、その汚染物質の濃度は体積 $4/3\pi(d/2)^3$ に比例して減少し、第2図のような両対数プロットの傾きの絶対値は3になると考えられる。全イオン濃度の傾きの絶対値は3に近く、全体としてはこのモデルに一致している。この単純水希釈成長モデルの傾きの絶対値3を基礎にして、各イオンの特徴を考えてみると、Cl<sup>-</sup>、Na<sup>+</sup>、Mg<sup>2+</sup>は主に海塩に由来するものであり、霧粒が成長過程においてもこれらのイオンを取り込んだために、傾きの絶対値が3よりも小さくなったものと考えられる。それ以外のイオンの場合は、例えば濃度が低く粒径の大きい他の霧粒との併合により濃度が減少し、傾きの絶対値が3よりも大きくなったものと考えられる。

### 3.2 72 h 後方流跡線解析

#### 3.2.1 後方流跡線と霧水のイオン濃度との関係

第3図に霧水試料採集時間に最も近い850 hPa 高層天気図から求めた72 h 後方流跡線(流跡線番号①-⑩)と盛岡市に黄砂が飛来した日の後方流跡線(流跡線番号⑪)を示した。なお、盛岡市に黄砂が飛来した日の後方流跡線も我々が求めた。空気塊の移動経路が、中国北部・モンゴルから日本海を横断して秋田に達する場合(流跡線番号①-④, グループ1)、朝鮮半島から日本海を通り西日本、関東、東北地方を縦断して秋田に達する場合(流跡線番号⑤と⑧, グループ2)、太平洋から房総半島又は近畿地方を経て東北地方を縦断して秋田に達する場合(流跡線番号⑥と⑦, グループ3)、太平洋から北海道沿岸を一周して秋田に達する場合(流跡線番号⑨と⑩, グループ4)の4つのグループに大別した。なお、流跡線番号⑤は、72 h 前では山陰地方にある。しかし、後述の3.2.2不溶性成分の組成との関係から、中国北部・モンゴルの影響が考えられたため、さらに流跡線を72 h 延長したところ点線で示したように朝鮮半島にあった。流跡線番号⑥, ⑦, ⑨そして⑩はさらに流跡線を72 h 延長しても大陸にまでは達していなかった。盛岡市に黄砂が飛来した時の流跡線⑪は、グループ1に類似し、中国北部・モンゴルから日本海を横断し秋田に達していたためグループ1とした。

第4図に採集された試料の体積加重平均粒径( $D_m$ )と各イオン濃度及び総イオン濃度を後方流跡線のグループ毎に平均して表わした。空気塊の移動経路がグループ1の場合は、中国北部・モンゴルを通過してくる試料の特徴である nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 濃度が高く(片桐、竹内, 1998)、日本海を通過することから海塩の影響と考えられる Na<sup>+</sup>、Cl<sup>-</sup>、Mg<sup>2+</sup>の濃度と中・近距離輸送が主な原因と考えられる NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>の濃度も極めて高く、中国北部・モンゴル、海、中・近距離地域の影響を受けていると考えられるが、酸性化の主なイオンは、3.1.1で述べたように nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>と NO<sub>3</sub><sup>-</sup>である。乗鞍岳で1991年に行われた観測結果(Minami and Ishizaka, 1996)及び1994年から1996年に行われた観測結果(Watanabe *et al.*, 1999)によると、霧水の酸性化の主なイオンは nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>と NO<sub>3</sub><sup>-</sup>であり我々と同様の結果を示しているが、その汚染源は観測地点付近の工業化された地域を想定している。しかしながら、秋田八幡平付近には nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の高い汚染源となる工業化された地域がないことから、汚染源としては中国

Table 2 Content ratio of various elements to aluminum in insoluble substances of the fog and rain samples in August to September, 1997.

Sample	Fog at Mt.Mokkodake															Kosa at Morioka City <sup>a)</sup>	
Date	8/22	8/23	8/28	8/29	8/30	9/12	9/13	9/26	9/26	9/27	9/27	9/27	9/27	9/28	9/28	2/24/1977	
Time	15:48	05:56	11:10	14:35	08:26	06:13	16:44	17:20	14:13	19:27	20:48	05:43	06:50	11:50	17:30	06:30	
Group No.	1	1	1	1	1	2	2	3	3	3	2	2	4	4	4	2	
No. <sup>a)</sup>	①	①	②	③	④	⑤	⑤	⑥	⑦	⑦	⑧	⑧	⑨	⑩	⑩	⑪	
$\sigma$ <sup>b)</sup>	0.80	0.37	0.42	0.30	0.35	-	0.36	0.24	0.85	0.78	0.25	0.34	0.46	1.22	11.6	-	
Si	3.3	3.1	2.6	2.7	2.9	3.1	2.6	2.8	3.3	3.1	2.8	2.6	2.3	5.0	8.6	11	2.7
Al	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1
Fe	0.62	0.56	0.74	0.53	0.74	0.49	0.65	0.57	0.62	0.56	0.41	0.44	0.36	0.37	0.59	0.51	0.58
K	0.12	0.18	0.16	0.14	0.17	0.23	0.18	0.18	0.12	0.23	0.14	0.13	0.12	0.27	0.95	0.92	0.24
Mg	0.13	0.09	0.08	0.10	0.10	0.14	0.16	0.14	0.13	0.22	0.20	0.16	0.14	0.22	1.1	2.8	0.25
Na	0.14	0.08	0.06	0.09	0.08	ND <sup>d)</sup>	0.15	0.11	0.14	0.09	0.10	0.09	0.07	0.34	1.7	5.4	0.17
Ca	0.39	0.10	0.06	0.11	0.06	0.12	0.23	0.10	0.39	0.39	0.11	0.05	0.02	0.52	4.1	12	0.12
Ti	0.05	0.037	0.06	0.04	0.04	0.028	0.05	0.05	0.054	0.04	0.03	0.032	0.029	0.026	0.06	ND <sup>d)</sup>	0.04
Mn	0.01	0.015	0.01	0.01	0.01	0.008	0.01	0.01	0.00	0.007	0.01	0.011	0.007	0.007	0.02	ND <sup>d)</sup>	0.01

<sup>a)</sup> No. corresponds to the number of back trajectory in Fig.3.

<sup>b)</sup>  $\sigma = \sqrt{\sum_i (x_i - s_i)^2 / n}$ ,  $x_i$ : component ratio of samples,  $s_i$ : component ratio of "Kosa",  $n(=9)$ : number of elements

<sup>c)</sup> Inoue and Yoshida (1978). <sup>d)</sup> ND=Not detected.

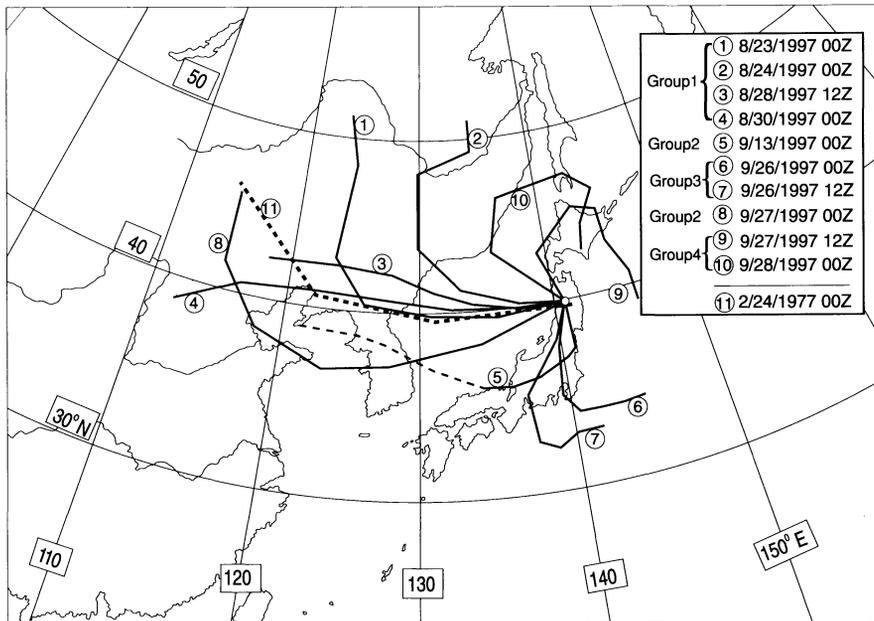


Fig.3 The 72 h back trajectories for fog events in the Hachimantai in August to September, 1997 and for Kosa event in the Morioka in February, 1977.

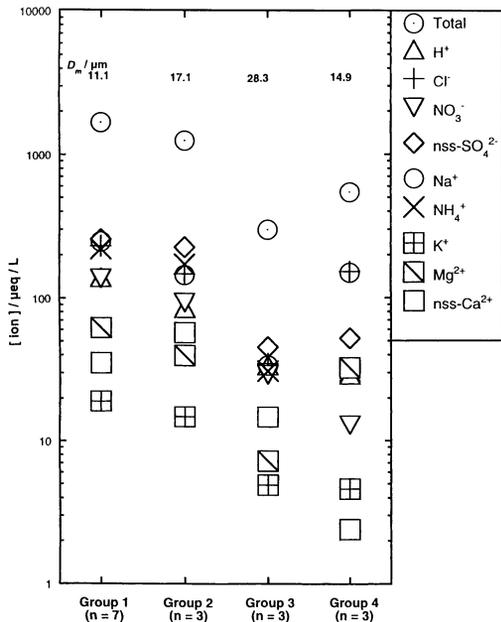


Fig.4 Comparison of the arithmetic mean value of various ion concentrations and mean diameter ( $D_m$ ) among group 1, 2, 3 and 4.

北部・モンゴルが考えられる。

また、このグループの霧粒の平均粒径は最も小さかった。これは、主要な雲核としての $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 、 $\text{H}_2\text{SO}_4$ 、 $\text{NaCl}$ が豊富なことに関係している可能性がある。グループ2の場合は、グループ1に比べて各イオン及び総イオン濃度が低いが、各イオン濃度の比率は似ているので、絶対量で比較する必要がある。しかしながら、雲水量等の測定が行われていないので、現時点ではグループ1とグループ2の差については議論できない。グループ3の場合は、各イオン及び総イオン濃度が最も低く、中国北部・モンゴルを通過していないことや海上の通過距離が短いことから、その影響が少なかったと考えられるが、 $\text{NH}_4^+$ 、 $\text{NO}_3^-$ 濃度が高いことから、これは秋田市周辺の近距離輸送の影響が考えられる。グループ4の場合は、中国北部・モンゴルを通過していないことや陸上の通過距離が短いことから、それらの影響は少なかったが、海上の通過距離が長いことから $\text{Na}^+$ 、 $\text{Cl}^-$ 、 $\text{Mg}^{2+}$ の濃度がグループ1、2と同様に高く、海の影響だけが強く現われていた。

### 3.2.2 後方流跡線と不溶性成分の組成比との関係

第2表にはもっとも岳登山口で採集された霧水に対応

する第3図の流跡線番号と1997年に盛岡市で観測された黄砂の飛来日に対応する第3図の流跡線番号及び各試料の採集時間と盛岡市で観測された黄砂成分の組成比に対する各試料の不溶性成分組成比の偏差 $\sigma$ が示されている。偏差 $\sigma$ と流跡線解析結果を含めて判断すると、8月28~29日(グループ1)、9月13~14日(グループ2)に採集された霧水の不溶性成分は、値が最も小さかった。また、盛岡市に飛来した黄砂と似た組成比を持っていた。

さらに8月28~29日に採集された霧水に対応する流跡線(グループ1に属する流跡線番号③)は、黄砂が盛岡市に飛来したときの流跡線(流跡線番号⑪)と類似していることから、この霧水は大陸起源の土壌と汚染成分を含んだ可能性が高いと考えられる。9月13~14日に採集された霧水の流跡線(グループ2に属する流跡線番号⑤)は、72h前では山陰地方に達しているが、さらに72hさかのぼると点線で示したように朝鮮半島に達する。また、このサンプルの採集期間が長いことから、この流跡線の1日前と1日後の流跡線で表わされる空気塊の影響も受けていることが考えられるが、これらの流跡線は、朝鮮半島を通らずに流跡線番号④と同様の経路で秋田に達していた。以上のことから、この試料も大陸起源の土壌と汚染成分を含んでいた可能性が高いと考えられる。

しかしながら、空気塊の移動経路が北海道沿岸を1周するように秋田に達するグループ4(流跡線番号⑨、⑩)の試料に含まれていた不溶性成分の組成比は、Si、K、Mg、Na、Caが非常に高い値を示した(第2表)。これは他のグループに属する試料に含まれる不溶性成分の組成比と明らかに異なっている。この不溶性成分の組成比のように、SiのAlに対する組成比が特に高いといわれている岩石として溶岩が知られている。八幡平周辺の溶岩のSiの組成比は、5.2~6.8の範囲内であり、Na、Caの組成比は、0.16~0.24、1.18~1.49の範囲内である(大場ほか、1991)。また、溶岩(流紋岩)のSiのAlに対する組成比は9.5、NaとCaのAlに対する組成比は、それぞれ0.35と0.24である(地学団体研究会、1982)。グループ4試料に含まれていた不溶性成分と比べると、これらの岩石は、Siの組成比は高いが、Na、Caの組成比は低い。したがって、グループ4の試料に含まれていた不溶性成分の組成比は、これらの岩石の組成比と必ずしも一致するものではなかった。この点に関しては、霧のサンプル数を増やすことやNa、Caの含有量の多い土壌について

さらに検討する必要がある。

#### 4. 結論

本研究で得られた主な結果は、以下のようにまとめることができる。

- 1) 秋田八幡平もつこ岳登山口の霧水は秋田市、秋田八幡平の降水に比べて、 $\text{nss-SO}_4^{2-}$ と $\text{NO}_3^-$ の両方によって酸性化されていた。特に、空気塊が中国北部・モンゴル付近から秋田八幡平に達するときは、 $\text{nss-SO}_4^{2-}$ と $\text{NO}_3^-$ によって霧が酸性化している。なお $\text{nss-SO}_4^{2-}$ は中国北部・モンゴル起源と考えられ、 $\text{NO}_3^-$ に関しては中・近距離輸送による部分も無視できないと思われる。しかし、その濃度比はイベント毎に異なり空気塊の移動経路や汚染状態の違いにより霧水・降水の化学組成に大きく影響することが確認された。
- 2) 粒径と濃度の両対数プロットの傾きの絶対値が3であることを見出した。これは単純水希釈成長モデル(雲凝結核の活性化後、核として取込まれた汚染物質以外の汚染物質を取込まないと仮定すると直径 $d$ の水滴中の濃度は体積 $4\pi/3(d/2)^3$ に比例して減少する)で説明できることがわかった。
- 3) 流跡線解析から、空気塊が中国北部・モンゴル付近から秋田八幡平に達していると思われる3つの試料に関しては、組成比が黄砂の組成比と似ており、大陸起源の土壌と汚染成分を含む可能性が高かった。

#### 謝辞

本研究を行うにあたり、秋田市の降水の採集においては秋田大学教育文化学部の武藤哲男技術専門職員(故人)、本荘高校の石塚 忍講師にご協力をいただいた。また、土壌・岩石・鉱物の化学組成に関する考察には、本学教育文化学部の林 信太郎教授に有用な御助言を頂いた。心より感謝の意を表す。

本研究の一部には文部省科学研究補助金奨励研究(B)課題番号10915008の研究費を使用した。記して謝意を表す。

#### 参考文献

- 井上克弘, 吉田 稔, 1978: 岩手県盛岡市に降った“赤雪”中のレスについて, 日本土壌肥料科学雑誌, **49**, 229-230.
- 片桐正光, 竹内浩士, 1998: 酸性雨と大気汚染, 三共出版, 109pp.

- 環境庁編, 1999: 平成11年度版環境白書, 大蔵省印刷局, 403pp.
- Minami, Y. and Y. Ishizaka, 1996: Evaluation of chemical composition in fog water near the summit of a high mountain in Japan, *Atmos. Environ.*, **30**, 3363-3376.
- 村野健太郎, 1993: 酸性雨と酸性霧, 裳華房, 179pp.
- 小川信明, 菊地良栄, 後藤博, 梶川正弘, 尾関 徹, 1998: 制限斜交回転因子分析法による秋田の降水中の海塩起源汚染物質の評価, *分析化学*, **47**, 503-511.
- Ogawa, N., T. Adzuhata and M. Kajikawa., 1998: Chemical characterization of acid snowfall in the coast and inland areas of Akita Prefecture in Japan, *Seppyo*, **60**, 143-156.
- Ogawa, N., R. Kikuchi., T. Okamura., T. Adzuhata., M. Kajikawa, and T. Ozeki, 1999a: Cloud droplet size dependence of the concentrations of various ions in cloud water at a mountain ridge in northern Japan, *Atmos. Res.*, **51**, 77-80.
- Ogawa, N., R. Kikuchi., T. Okamura. M. Kajikawa., T. Adzuhata., Y. Iwata and T. Ozeki., 1999b: Chemical characterization of acid precipitation and fog of Akita Prefecture in Japan, *Int. J. of Mat. Eng. for Resources*, **7**, 282-295.
- Okita, T., 1961: Size distribution of large droplets in precipitating cloud, *Tellus*, **13**, 509-521.
- 大場 司, 吉田武義, 渡部 均, 青木謙一郎, 1991: 東北本州弧, 八幡平火山群におけるマグマ組成の時空変化, *核理研究報告*, **24**, 286-311.
- Ozeki, T., K. Koide. and T. Kimoto., 1995: Evaluation of sources of acidity in rain water using a constrained oblique rotational factor analysis, *Environ. Sci. Technol.*, **29**, 1638-1645.
- Ozeki, T., K. Koide., N. Ogawa., T. Adzuhata., M. Kajikawa and T. Kimoto, 1997: Numerical evaluation of contributions of pollutant sources extracted by constrained oblique rotational factor analysis for precipitation data. Extraction of features of precipitations at Hyogo and Akita Areas, *Anal. Sci.*, **13**, 169-176.
- Pettersen, S., 1956: *Weather Analysis and Forecasting*, (2nd ed.), Vol.1, McGraw-Hill, 428pp.
- 地学団体研究会編, 1982: 自然を調べる地学シリーズ3, 東海大学出版会, 181.
- Watanabe, K., Y. Ishizaka and C. Takenaka, 1999: Chemical composition of fog water near the summit of Mt. Norikura in Japan, *J. Meteor. Soc. Japan*, **77**, 997-1006.

---

## Relationship between the Chemical Components in Rain and Fog Water in the Akita Hachimantai Range and the Back Trajectory.

Ryoei KIKUCHI<sup>\*1</sup>, Tetsuya ADZUHATA<sup>\*1</sup>, Tomoko OKAMURA<sup>\*1</sup>,  
Yoshihiro IWATA<sup>\*2</sup>, Toru OZEKI<sup>\*3</sup>, Kouichiro SERA<sup>\*4</sup>,  
Masahiro KAJIKAWA<sup>\*1</sup> and Nobuaki OGAWA<sup>\*1</sup>

<sup>\*1</sup> (*Corresponding author*) Faculty of Engineering and Resource Science, Akita University  
1-1 Tegata Gakuen-cho, Akita 010-8502, Japan

<sup>\*2</sup> Department of Chemistry, Faculty of Education and Human Studies, Akita University

<sup>\*3</sup> Hyogo University of Teacher Education

<sup>\*4</sup> Cyclotron Research Center, Iwate Medical University

(Received 20 April 2000 : Accepted 15 January 2002)

### Abstract

The relationship between the acidification of rain/ fog and the droplet size of fog was investigated. Samples of rain and fog water were collected in the Akita Hachimantai mountain range from June to August 1997. The ionic components were analyzed by ion chromatography and the insoluble substances were analyzed by PIXE analysis. Combining 72 h back trajectory analysis and chemical analysis, the effect of the course of transportation of the air mass on the chemical composition of the samples was also studied.

When the air mass was transported from northern China to the Hachimantai range, the fog and rain water contained soil dust particles from China and the acidity of the fog water was higher than that in other cases. The slope of log-log plots of the ion concentration versus the droplet size of fog was found to be minus three, and this can be explained on the basis of a simple droplet growth model involving a diffusion process.

---