

# 論文内容要旨（和文）

平成 13 年入学 大学院博士後期課程 地球共生圏科学専攻 環境保全科学講座  
氏 名 \_\_\_\_\_ 赤田 尚史 

論文題目 中国四川省峨眉山地域における大気汚染物質の沈着過程に関する研究

大気中に存在しているガスやエアロゾルは、乾性沈着 (dry deposition)・湿性沈着 (wet deposition) の 2 つの経路により地表面に沈着する。一般的には乾性沈着より湿性沈着が主であると言われている。湿性沈着も、雲の中で雲粒に取り込まれることを雲中過程と (in-cloud scavenging : rainout)、雲の下において落下していく雨滴や雪片に取り込まれる雲底過程(below-cloud scavenging : washout)とに分けられる。湿性沈着の中では一般的に in-cloud scavenging process が主であるとされているが、大気中物質が高濃度で存在する湿潤な地域では、below-cloud scavenging process による影響が支配的であると考えられている。これまでの研究では、航空機を利用する等して雲水を採取する事による in-cloud scavenging process の研究例はあるが、長期観測の困難さ等の理由から below-cloud scavenging process をフィールド調査により実測した例はほとんど無く、モデル計算により沈着量が推定されているだけである。フィールド実測によって below-cloud scavenging process による地表面への沈着量を求ることは、大気中からの物質の除去機構の解明、我々の生活環境への影響およびモデル計算結果の検証を行うという観点からも極めて重要である。近年、急速な経済成長を続けている中国では大気汚染が人々の生活環境に影響を及ぼしている。中でも、四川省は周囲を 4000m 級の山々に囲まれた四川盆地に位置しており、地形的条件により雲による大気境界層や気温の接地逆転層が発達する。そのため大気汚染物質が拡散しにくい状況になりその影響が特に深刻である。

本研究では、大気拡散が抑制されるという条件から四川盆地を天然のチャンバーと考え、盆地南西部に位置する峨眉山の登山ルートに沿って大気降下物を採取し、溶存化学成分 ( $F^-$ ,  $Cl^-$ ,  $NO_3^-$ ,  $SO_4^{2-}$ ,  $Na^+$ ,  $NH_4^+$ ,  $K^+$ ,  $Mg^{2+}$ ,  $Ca^{2+}$ ) 濃度の高度分布を求めた。その結果、四川盆地内の 大気降下物に影響を及ぼす主な成分としては、 $NO_3^-$ ,  $SO_4^{2-}$ ,  $NH_4^+$ ,  $Ca^{2+}$ であることが明らかとなった。また、これらの成分について雨滴が落下する際に大気中に存在する成分を取り込む below-cloud scavenging process による濃度の増加量について求めた。その結果、測定した成分の中でも特に  $SO_4^{2-}$  イオンは雲の位置する高度から山麓にかけて濃度増加していく傾向が年間を通じて顕著に見られた。この傾向は、四川盆地内で幅広く使用されているエネルギー源は主に石炭であり、この石炭燃焼によって  $SO_4^{2-}$  イオンの前駆物質である  $SO_2$  が大気中に放出される事に起因するためである。また、濃度の増加

(10pt 2,000 字程度 2 頁以内)

量は冬季に高くなる傾向が認められた。本研究における大気エアロゾルの観測結果から、冬季から春季にかけて大気中濃度が増加し、その原因としては冬季の暖房用に石炭の使用量が増加する事に起因して大気中の汚染物質濃度が上昇する。この高濃度に存在する大気中成分を雨滴が取り込むことにより、雨滴の落下に伴う濃度増加量が冬季に高くなったものと言える。

このフィールド実測により得られた雨滴の落下距離と  $\text{SO}_4^{2-}$  イオン濃度増加量の関係を係数とした経験式より、below-cloud scavenging process による地表面への沈着量を求めることができる。この式を用いて山麓における  $\text{SO}_4^{2-}$  イオンの below-cloud scavenging process による寄与率を求めたところ、年間を通じて 60%以上を占めると見積もることができた。この結果は、同じ四川盆地に位置する重慶市において、in-cloud scavenging process の観測とモデル計算を組み合わせによる報告と同程度であり、四川盆地内では全域において below-cloud scavenging process による寄与が大きいと判断された。

これまでの研究による below-cloud scavenging process による沈着量はモデル計算式により見積もられてきているが、実測データが無いため、詳細な検証は行われてきていません。本研究において得られた below-cloud scavenging process による沈着量を求める経験式は、四川盆地内において有効であり、このような経験式はこれまでの研究で例は無い。そこで、一般的なモデル式により成都市における below-cloud scavenging process による沈着量を計算し、本研究により峨眉山で得られた経験式と実測値による検証を行った。その結果、およそ一致する結果が得られた。また、一般式に用いるパラメータとして大気中濃度の詳細な観測結果を得ることがモデルの精度向上の為に重要であることが明らかとなった。

これらの結果から、フィールド実測により below-cloud scavenging process を求めることができない地域では、モデル計算式を利用することにより雲底下における取り込み量を推定する事も有効であると言える。

# 論文内容要旨（英文）

平成 13 年入学 大学院博士後期課程 地球共生圈科学専攻 環境保全科学講座  
氏 名 \_\_\_\_\_ 赤田 尚史 

論文題目 中国四川省峨眉山地域における大気汚染物質の沈着過程に関する研究

Chemical compounds in the atmosphere can exist as gases, aerosols, and inclusions in clouds. Removal of gases and aerosols from the atmosphere serves an important role in inter-reservoir transfer mechanisms. Among the deposition processes, wet deposition is the most effective scavenger of pollutants from the atmosphere. Scavenging by precipitation occurs in two processes: in-cloud (rainout) and below-cloud (washout) scavenging. The relating importance of these two processes is different in various regions of the world. At serious air pollution areas, the below-cloud scavenging process could be more predominant. In the Sichuan Basin, located in Southwestern China, suppressing atmospheric diffusion by inversion layer coming from partial geographical features (bowl-shaped basin). Therefore, Sichuan Province is one of the serious air pollution regions.

In this study, we measured ionic species in monthly atmospheric depositions collected along the altitudinal gradient of Mt. Emei, and obtained the increase rate of concentration by falling raindrops. In September 2001, respective rates of increase in  $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{NO}_3^-$  and  $\text{Ca}^{2+}$  were 5.33, 1.36 and 9.51  $\mu\text{eq L}^{-1}$  when raindrops fell 100 m. It is possible to estimate the deposition flux onto earth surface by using the empirical equation of below-cloud scavenging converted from the increased rate of concentrations of rainfall. The contribution ratio of below-cloud scavenging of  $\text{SO}_4^{2-}$  at the foot of Mt. Emei was obtained by using this equation. As a result, the annual below-cloud scavenging contributions were estimated to be over 60 %. In addition, when this empirical equation and the model equation used in general were verified by observation values in Chengdu, we can see the approximations. From these results, it was shown that even in areas where it was not possible to estimate the amount of below-cloud scavenging by field observation date, the amount of below-cloud scavenging could be estimated using the model.

# 論 文 目 錄

地球共生圏科学専攻 環境保全科学講座  
学生番号 01522101  
氏 名 赤田 尚史 

## 1. 学位論文題目（英文の場合は、その和訳を（ ）を付して併記すること。）

中国四川省峨眉山地域における大気汚染物質の沈着過程に関する研究

## 2. 印刷公表の方法及び時期

(1) 全 著 者 名 赤田尚史, 柳澤文孝, 賈疎源, 李曉東, 鐘國華, 王能峰, 楊慧東  
論 文 名 中国四川省峨眉山で 2001 年 9 月 20 日から 11 月 19 日に採取した  
降雨の化学組成

発 表 年 月 2002 年 8 月

発 表 機 関 *Journal of Ecotechnology Research*, 8, 1, 41-45.

(2) 全 著 者 名 Naofumi AKATA, Fumitaka YANAGISAWA, Hitoshi KAWABATA  
論 文 名 Major ionic components in atmospheric depositions  
collected along the altitudinal gradient of Mt. Emei,  
Sichuan, China

発 表 年 月 2005 年 8 月

発 表 機 関 *Radioisotopes*, in press.

## 3. 国際会議

(1) 全 著 者 名 Naofumi AKATA, Fumitaka YANAGISAWA, Harue MASUDA,  
Shuyuan JIA, Huidong YANG, Xinnan WAN, Shinji NAKAYA,  
Naoko KITADA

論 文 名 Chemical Characteristics of Wet Deposition in  
Emeishan Area, China

発 表 年 月 2001 年 12 月

発 表 機 関 8th Asian Symposium on Ecotechnology, Toyama, Japan

(2) 全 著 者 名 Naofumi AKATA, Fumitaka YANAGISAWA, Shuyuan JIA,  
Xiodong LI, Huidong YANG, Harue MASUDA

論 文 名 Seasonal variation and altitude distribution of bulk deposition chemistry at Mt. Emei, Sichuan Province, China

発 表 年 月 2003年9月

発 表 機 関 13th V.M.Goldschmidt Conference, Kurashiki, Japan

(3) 全 著 者 名 Naofumi AKATA, Fumitaka YANAGISAWA, Shuyuan JIA, Xiodong LI

論 文 名 Seasonal variation of bulk deposition chemistry over the Mt. Emei region, Sichuan Province, China

発 表 年 月 2003年12月

発 表 機 関 10th Asian Symposium on Ecotechnology, Toyama, Japan

(4) 全 著 者 名 Naofumi AKATA, Fumitaka YANAGISAWA, Xiodong LI, Shuyuan JIA

論 文 名 Seasonal variation and concentration of major components in aerosols collected at foothill of Mt. Emei, Sichuan Province, China

発 表 年 月 2004年12月

発 表 機 関 11th Asian Symposium on Ecotechnology, Toyama, Japan

(5) 全 著 者 名 Naofumi AKATA, Fumitaka YANAGISAWA, Shuyuan JIA, Xiodong LI, Hitoshi KAWABATA

論 文 名 Preliminary study of below-cloud deposition rates of the major ionic species using atmospheric depositions collected along the altitudinal gradient on Mt. Emei, Sichuan, China

発 表 年 月 2005年1月

発 表 機 関 Fourth ADEC(Aerolian Dust Experiment on Climate Impact) Workshop, Nagasaki, Japan

# 学位論文の審査及び最終試験の結果の要旨

平成17年8月18日

大学院理工学研究科長 殿

## 課程博士論文審査委員会

主査 中島 和夫

副査 山野井 徹

副査 柳澤 文孝



学位論文の審査及び最終試験の結果を下記のとおり報告します。

## 記

### 1. 論文申請者

専攻名 地球共生圈科学専攻

氏名 赤田 尚史 学生番号 01522101

### 2. 論文題目（英文の場合は、その和訳を併記すること。）

中国四川省峨眉山地域における大気汚染物質の動態と沈着に関する研究

### 3. 学位論文公聴会

開催日 平成17年8月3日

場所 理学部先端科学実験棟4階S401教室

### 4. 審査年月日

論文審査 平成17年8月 1日 ~ 平成17年8月15日

最終試験 平成17年8月18日 ~ 平成17年8月18日

### 5. 学位論文の審査及び最終試験の結果（「合格」・「不合格」で記入すること。）

(1)学位論文の審査 合格

(2)最 終 試 験 合 格

### 6. 学位論文の審査の要旨(1,200字程度)

別紙のとおり

### 7. 最終試験の結果の要旨

別紙のとおり

## 別 紙

専攻名	地球共生圏科学専攻	氏 名	赤田 尚史
学位論文の審査結果の要旨			
<p>大気中に浮遊している物質は雲中および雲下で雨滴へ取り込まれる。雲下洗浄を実測するにはほぼ同一地点で雲中から地表面までの任意の高度で降水を採取して解析する必要がある。しかし、これまで行われてきた、航空機やゾンデを用いた観測では観測時間が短すぎ、山岳標高差を利用した観測では同一地点での試料採取に難があった。また、雲中と地上で採取した降雨の濃度差が小さく雲下洗浄を実測できないこともあった。このように従来の研究にはさまざまな問題点が存在していた。このため、これまでに野外で雲下洗浄を実測できた例は無かった。このことは、降雨の化学組成を決める最も基礎的な測定値が欠落していることを意味するものである。従来、雲下洗浄は大気中濃度や雲水中濃度および降水中濃度を観測し、大気の定常状態を仮定する事によって推定されたにすぎない。また、雲下洗浄についてモデル化する試みも続けられているが、実測値がないことから、実測値と理論値を付き合わせることによるモデルの有効性の検証もできていない状況であった。</p>			
<p>本研究では中国四川省南西部に位置する峨眉山の登山ルートに沿ってステーションを25カ所設置して大気降下物を採取し、溶存化学成分濃度の高度変化を求めている。峨眉山は第四紀の断層活動によって生じた山で垂直変位が3000mあり、また、山麓から山頂まで寺が点在して人が常駐しており年間を通じてほぼ同一地点で降水を採取可能である。</p>			
<p>本研究により、高度が低下するに従って大気降下物の濃度が増加する雲下洗浄が野外ではじめて実測された。次に、高度と大気降下物の濃度の関係を用いて雨滴の落下距離に伴う濃度増加量を求め、これを係数化して雲下洗浄による地表面への沈着量を求める計算式を得ている。そして、実測で得られた雲下洗浄の実測式と、一般に用いられている理論から導き出したモデル式がほぼ一致することを明らかにした。しかし、一方、モデル式で用いられている大気中の濃度のパラメータが大きすぎることも明らかとした。このことは、実測により雲下洗浄量を求めることができない地域でも、大気中濃度のパラメータに配慮することによって、モデル式を用いての推定が可能である事を示したものである。</p>			
<p>このように本研究では、雲下洗浄を初めて実測するとともに、沈着量を求める計算式を求め、計算式とモデル式を比較してモデル式の有効性を検証したものである。得られた結果は地球化学的・気象学的に極めて重要な新知見である。また、研究手法は独自性があり、今後、同種の観研究を行う際の新たな手法を提供するものである。</p>			
<p>本研究は英文を含む8つの論文、国際学会を含む国内外の学会で12回発表され、いずれも高い評価を得ている。</p>			
<p>以上のことより、この論文は博士学位論文として十分な内容を持つと判断され、合格と判定した。</p>			
最終試験の結果の要旨			
<p>最終試験においての質疑応答は適切になされたことから、本学の博士の学位に値する研究能力を持つことが認められた。</p>			
<p>提出論文の内容についての論議、公表されている英文論文、国際学会を含むこれまでの学会発表内容なども勘案して、最終試験を合格と判定した。</p>			