

研究報告

酸性雨 - 雨水中のイオン挙動について -

箕浦宏明

Ion Scavenging in Gentle Precipitation

Hiroaki Minoura

要 旨

酸性雨は、大気汚染物質が酸化され雨により沈着する現象である。雨水中のイオン濃度変化を短時間観測することで、大気中のイオンに関する種々の情報が得られる。本研究は、独自に改造した雨水計測装置による酸性雨の短時間連続観測を実施し、雨水中のイオン濃度の変化を大気汚染ガス濃度や気象の変化と同時観測して解析したものである。降雨初期には、大気中に生成した酸性の大気汚染物質のため雨水中のイオン濃度が高く、降雨進行とともに雨による大気洗浄の結果イオン濃度が低下する。イオン濃度の低下の度合いは、イオン種により異なり、微粒子で存在する硫酸イ

オンの沈着速度は、硝酸イオンに比べ小さいことが定量的に明らかとなった。従来、局所的に分布するため測定が困難であった硝酸イオンについても、汚染物質の移流や気象条件の変化による影響を受けない静穏時の降雨に限定したイオン濃度変化から、沈着速度定数が求まった。沈着速度常数は降雨強度の線形関数として表現でき、従来の累乗関数で表現できなかった驟雨や酸性霧のイオン沈着量評価が可能となった他、初期濃度と降雨強度変化を与えることでその後のイオン濃度やpHの変化が予測でき、観測結果と良く一致することが確認できた。

キーワード

酸性雨，硝酸イオン，イオン沈着，沈着速度，エアロゾル，大気汚染物質，降水気象

Abstract

Acid rain is the phenomenon in which oxidized atmospheric pollutants are scavenged by raindrops. By short time observations of ion concentration changes in rainwater, various information about ions in the atmosphere is obtained. In this study, short time and continuous observations of acid rain were performed with an automatic rain analyzer which was originally remodeled. A change in ion concentration in the rainwater as well as a change in the air pollution gas concentration and weather, were observed at a same time in order to understand the ion scavenging mechanism. During the early stage of precipitation, highly concentrated ions in rainwater were observed due to acidic air contaminants formed in the atmosphere, and ion concentrations fell as a result of the ion scavenging by the rain with time. A decreasing ratio of ion concentration was found to be different based on ionic species, and the deposition velocity of

sulfate, which was suspended as a small particle in the air, was quantitatively obtained and was clearly small when compared with nitrate. The deposition velocity of nitrate was considered to be difficult to measure because of its local distribution. However, it could be estimated from the nitrate concentration change in rainwater under calm weather conditions when no of change in the wind direction or the transportation of pollution occurred. The deposition velocity constant could be expressed as a linear function of the rainfall intensity in this study, and evaluation of the ion deposition flux during gentle precipitation or acidic mist, which were not able to be previously expressed by a power function, became possible. A change in ion concentration and pH of the sequel could be predicted by knowing the initial concentration and rainfall intensity changes, and these results were in good agreement with the observations.

Keywords

Acid rain, Nitrate, Sulfate ion, Ion deposition, Scavenging velocity, Aerosol, Pollutant, Precipitation weather

1. 都市域で見られる酸性雨

大気に放出された汚染物質は、光化学反応を経て酸性物質に変質する。酸性雨は、これら酸性物質が雨に取り込まれて発現する現象である¹⁾。大気中には二酸化炭素が存在するため、純水に炭酸ガスが溶け込み示すpH = 5.6を下回る酸性度の雨を酸性雨と呼ぶ。酸性の原因物質としては、硫酸イオン・硝酸イオン・塩素イオンが主である。多量の酸性イオンを含んでいても、カルシウムイオンやアンモニウムイオンの存在でpHにかかわらず「汚れた雨」が観測される。このことから近年になって、pHに関係なく雨水に溶け込んでいるイオン量に着目して酸性雨現象を扱う場合が増えてきた。

国内の酸性雨の調査は、環境庁が実施している全国酸性雨調査が1984年以降第3期となっている。それによるとFig. 1に示すように、日本海側で特に南西日本でpHが比較的低く、イオン分析の報告から硫酸イオンを多く含む雨が観測されている²⁾。この原因として、中国や韓国を始め東南アジアの諸国から長距離輸送された汚染気塊の影響が考えられている³⁾。一方、都市およびその周辺地域では、硫酸イオンに比べ硝酸イオン濃度の高い雨が観測されている。この原因として、国内の産業活動（主に燃焼）により生成したNO_xが酸

化して硝酸イオンとなったことが知られている⁴⁾。

これまでの酸性雨研究は、地域分布調査や年平均濃度調査を目的とし、1週間や1ヶ月単位の降雨採取等、比較的長い時間スケールでの観測が主であった（JEA Phase-I Study）⁵⁾。大気環境改善を目的として酸性雨を大気汚染の最終沈着過程と考える場合、イオンの沈着機構を詳細に調べる必要がある。イオンの沈着機構は、雲物理過程と密接な関係があり^{1, 6)}、一降雨をできる限り細かく分割した短い時間スケールでの雨水中のイオン挙動を把握する必要がある。これまでこの種の短時間測定を実施した例はほとんどなく、ここ2～3年ようやくイオン沈着に関する研究が始まったと言える⁷⁾。

2. 一降雨中のイオン濃度変化とイオン沈着

降雨中のイオン沈着過程を調べるためにFig. 2に示す雨水自動計測装置を使用した。Fig. 2の装置は、雨滴をセンサで感知して雨水を捕集するwet-only samplerで、環境庁が主体となり全国に50台程度配備されているものと同一機種である。0.5mm降雨ごとにpHと電気伝導度、1mmごとに硫酸イオンと硝酸イオンの濃度を自動測定する仕組みとなっている。ここで示す機種以外に、雨水採取部の下流にイオンクロマト分析器を組み込み、上記以外のイオン濃度も測定可能にした装置

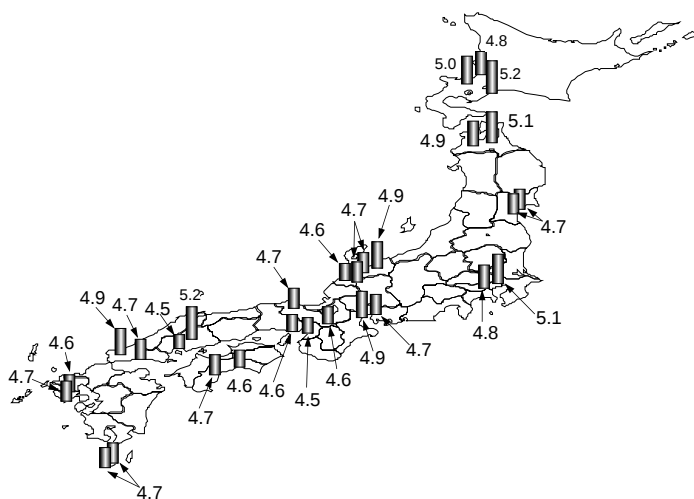


Fig. 1 The distribution of pH contained in rainwater observed by the Japan Environmental Agency phase-I study from April 1984 to March 1986 (Hara, 1994).

が考案されている⁸⁾。しかし、クロマト分析に時間を要し、降雨強度が高い雨(3mm/hr以上)には適用できない問題点を含んでいる。Fig. 2に示した装置は、0.5mm降雨ごとに採取した雨水の一部をフラクションコレクタで試験管に分配採取できるように改造を加えたものである。採取した雨水は、直ちにイオンクロマト分析器で陰・陽イオン濃度を測定する。なお、通常のガラス試験管からはナトリウムイオン等が採取試料に溶出する可能性があるため、本研究ではポリプロピレン製試験管を使用した。

一降雨中にイオン濃度は大きく変化する。Fig. 3に一降雨中のイオン濃度変化の代表例を示す。降雨初期にはイオン濃度が高いのが一般的傾向である。これは、雲形成時に雲核から雨滴に成長する段階で周辺大気中の大気汚染物質を取り込んだり、雨滴が落下する過程で主に粒子状物質を捕捉するためである^{9, 10)}。降雨が進行すると雨により大気が洗浄されるため、雨水中のイオン濃度も低下する。一方、観測エリアに汚染気塊を含む新しい気団が流入すると、Fig. 3に示すように風向・風速の変化を伴って雨水中のイオン濃度が増加する。雨水中のイオン濃度は、大気中の汚染物質濃度を良く反映していると言える^{11, 12)}。

一降雨中のイオン濃度の低下速度は、イオンの

種類によって異なる。Fig. 4は、1年間に観測された降雨中のイオン濃度変化を降雨量別に重ね合わせたものである。Fig. 4に示されるように硫・硝酸イオンとも指数関数で近似できる濃度低下が見られた。さらに、硫酸イオン濃度の変化に比べ硝酸イオン濃度の低下が早い傾向のあることが明らかとなった。この原因として、両者の化学物性(飽和蒸気圧)の違いによることが考えられる。すなわち、硫酸はガス化しにくく微小液滴を形成する化学的性質を持つのに対し、硝酸はガス化して土壌粒子など比較的粒径の大きい物質表面に吸着したり硝酸塩を形成したりする傾向にある。このように生成した酸性粒子のうち、比較的大きな粒子は微粒子に比べ速やかに落下するため、硝酸イオンの沈着速度は硫酸イオンに比べ大きくなると考えることができる¹³⁾。

Fig. 3では、気団の入れ替わりによる汚染物質の降雨域への新たな注入で、イオン濃度が上昇するケースを示した。しかし、Fig. 4の示すようにイオン濃度が指数関数的に減少する一般傾向から、汚染物質の流入による濃度変動はあまり小さくなく、雨による沈着がイオン濃度変化(低下)に影響を与える最も大きい因子であることが明らかとなった。

硫酸イオンが比較的広範囲に分布することが

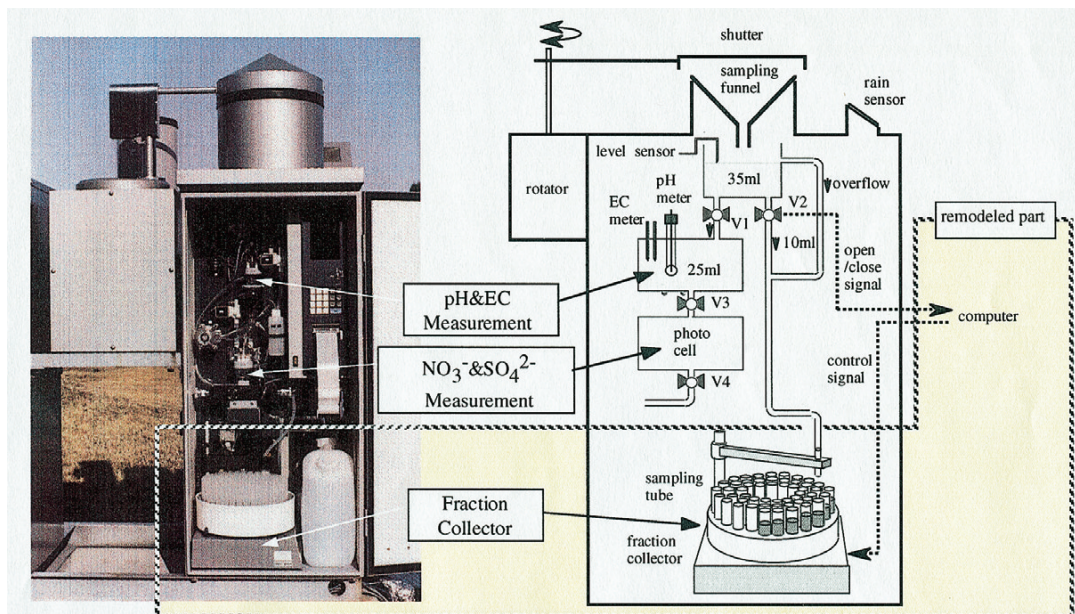


Fig. 2 The automatic wet-only rain analyzer and the schematic diagram of the rain analyzer and the original rain sampling system with a fraction collector.

ら、これまでの研究では硫酸イオンの沈着速度が詳しく調べられてきた^{14, 15)}。一方、硝酸イオンは(沈着速度が大きい)局所的にしか分布せず、沈着速度の推定がほとんど行われていなかった。イオンの沈着速度定数Aは、大気中のイオン濃度Cが単位時間当りに変化する変化量で定義される¹⁶⁾。

$$\delta C / \delta t = A \times C$$

ここで、大気中のイオンが比較的速やかに雨滴に溶解することから¹⁷⁾、雨水中の濃度変化から

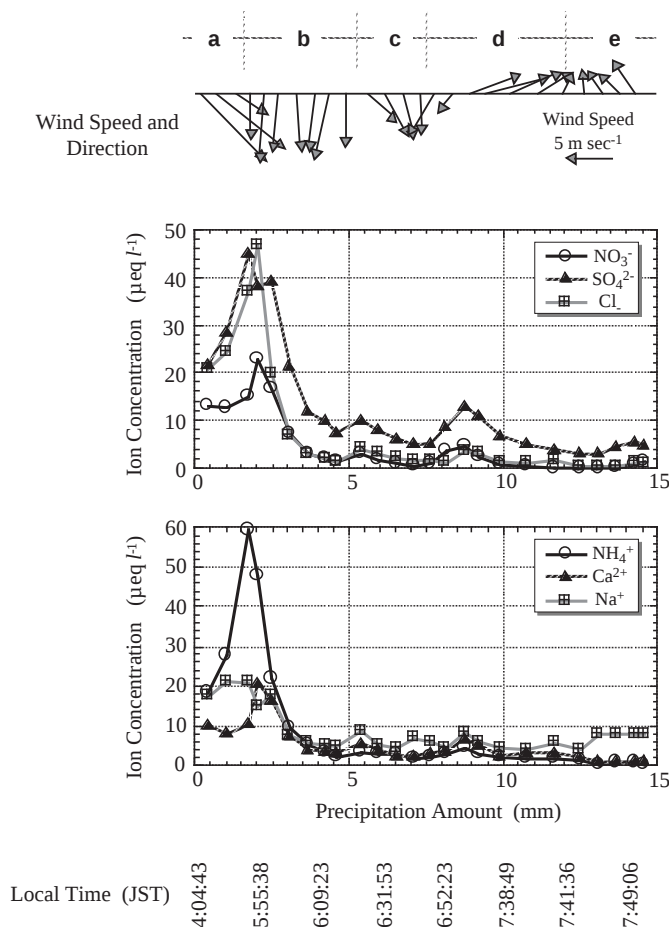


Fig. 3 A typical example of ion concentration changes during individual precipitation observed on August 18, 1993. This rain event was divided into five stages considering the meteorological data especially wind directions. Due to the supplement of ions to the precipitation area by the transportation of polluted air mass, ion concentrations contained in rainwater were increased during the precipitation such as "d".

擬似的に推定することができる。Fig. 4では降雨量の関数としてイオン濃度の変化を示したが、降雨タイプによりイオン濃度の低下は異なり、時間の関数として表現するためには降雨タイプごとに分類する必要がある。

都市における酸性雨を議論する際、大気中の粒子濃度の増加やヒートアイランドに伴う都市大気中の水分量の低下により、降雨強度の低い雨が今後ますます増加する傾向にあり、驟雨でのイオン沈着速度を推定する必要がある。さらに、酸性霧に代表されるように、降雨強度の低い雨は高いイオン濃度を持つ傾向にあり、酸性雨の影響を考える場合にも重要な降雨タイプである。

本研究では、1991年7月から1年間に観測した降雨について、降雨強度が15mm/hrと比較的低く、風速2.5m/sec以下で1mm降雨間に風向の変化が90度以下の安定した気団の中で観測される降雨を選別し、イオン濃度の時間変化を求めた。得られた平均の沈着速度は、硫酸イオンが $2.2 \times 10^{-4} \text{ sec}^{-1}$ で、硝酸イオンが $5.2 \times 10^{-4} \text{ sec}^{-1}$ であった。硫酸イオンの沈着速度は、Eliassen¹⁸⁾などが示す従来の値

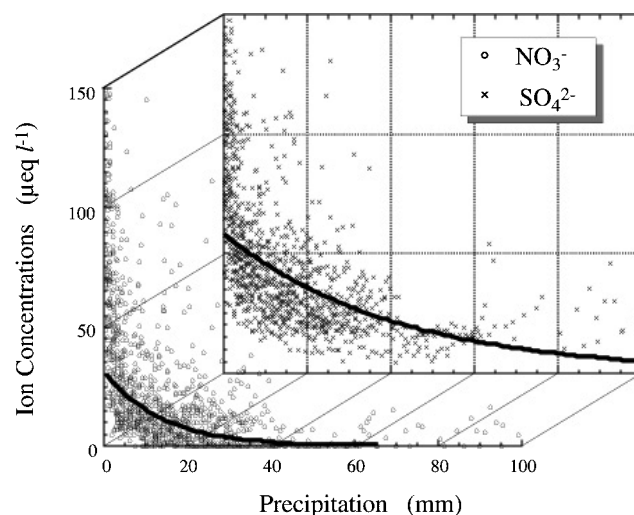


Fig. 4 Diminution of ion concentrations in rainwater observed from July 1, 1991 to June 30, 1992. The relationships between ion concentrations ($\mu\text{eq l}^{-1}$) and precipitation amounts (mm) are described as follows :
 $[\text{NO}_3^-] = 3.15 \times \exp(-0.0733 P)$
 $[\text{SO}_4^{2-}] = 58.9 \times \exp(-0.0248 P)$
 where P is the precipitation amount.

$0.1 \sim 3.0 \times 10^{-4} \text{sec}^{-1}$ とほぼ一致した結果が得られた。一方、硝酸イオンについては、Seinfeld¹⁹⁾が測定の難しさを指摘しており、Dop²⁰⁾以外調査された結果がほとんど見られないが、Carmichaelら²¹⁾のシミュレーション値 $6.5 \times 10^{-4} \text{sec}^{-1}$ に近い結果が得られた。さらに、イオンの沈着速度は降雨強度に依存して変わり得ることが従来の雨滴の成長速度とイオン補足から理論的に予測されていた¹⁷⁾。すなわち、従来理論で導かれた関係は累乗関数に従いその係数は0.75とされていた。しかし、本研究で得られた沈着速度定数と降雨強度との関係はFig. 5に示すように直線に近い関係が得られた。従来理論の場合、降雨強度の低い領域ではゼロに収束し、イオン沈着がほとんど起こらないことを示す。しかし、現実には降雨強度が弱い場合でもイオン沈着が起こり、むしろ高濃度のイオンが溶解しており大きな被害となっていることが知られている。本観測結果から得られた特性か

らはある程度の値を有する結果となり、酸性霧による沈着まで連続的に表現できる新たな関数形の提案ができた²²⁾。

Fig. 6は、本研究で求めた降雨強度に依存したイオン沈着速度定数を用い、初期濃度を与えた後の雨水中のイオン濃度変化とpH変化を予測した結果である。一般に降水強度は初期に弱く、降雨進行とともに次第に強度が高くなる。さらに、降雨終了時に再び降雨強度は低下する。多くの場合、降水強度の時間変化はガウス分布で表すことができると考えられる。Fig. 6に示した予測計算でも降雨強度の時間変化をガウス分布で与え、ピーク強度と反値幅を観測結果に合わせた。予測されたイオン濃度とpHの時間変化は、観測結果と良い一致が見られ、大気質シミュレーションから予測されるイオン濃度と気象シミュレーションから予測される降雨強度の情報を合わせるにより、酸性雨の予測計算ができることが明らかとなった。

3. 汚染物輸送と酸性雨

これまで何度も述べているように、酸性雨は大気汚染物質の最終沈着過程である。Fig. 7に観測点である長久手町に至る主な気流を、大和田²³⁾を参考にプロットした。この地域には、卓越した3つのルートが存在することが、大和田らの研究から指摘されている。すなわち、矢作川をさかのぼって輸送される南よりの気塊、名古屋港から熱田方面を経由して輸送される南西風、関ヶ原方面から冬季に季節風として強く吹き降ろす西風である。南よりの気流は、三河地方の工業地域から排出される汚染気塊の影響を受け、西よりの気流は、名古屋都市域から排出される汚染の影響を含んでいる。Fig. 8は、大気中のオゾンや NO_x の濃度を測定時の風向で整理した結果を示す²⁴⁾。名古屋から輸送される気塊（西よりの風）には高濃度のNOが含まれており、三河方面から輸送される気塊（南よりの風）は高い NO_2 濃度が観測された。これは、名古屋および三河の中心から長久手にある観測点までの距離が異なり、三河-長久手間が名古屋と比べ長い間、汚染気塊が輸送される間に酸化が進み NO_2 濃度が高まったと考えられる。

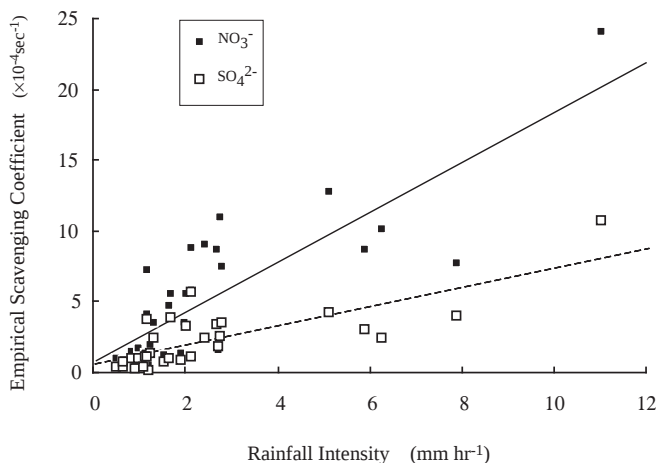


Fig. 5 The empirical scavenging coefficients of NO_3^- and SO_4^{2-} vs. rainfall intensities. The solid line shows the linear correlation of NO_3^- and the broken line shows that of SO_4^{2-} . The relationships between the coefficients and rainfall intensities are follows :
 $A(\text{NO}_3^-) = 1.8 \times 10^{-4} \text{RI} + 0.77 \times 10^{-4}$
 $A(\text{SO}_4^{2-}) = 0.70 \times 10^{-4} \text{RI} + 0.39 \times 10^{-4}$
 where A is the empirical scavenging coefficient (sec^{-1}) and RI is the rainfall intensity (mm hr^{-1}).

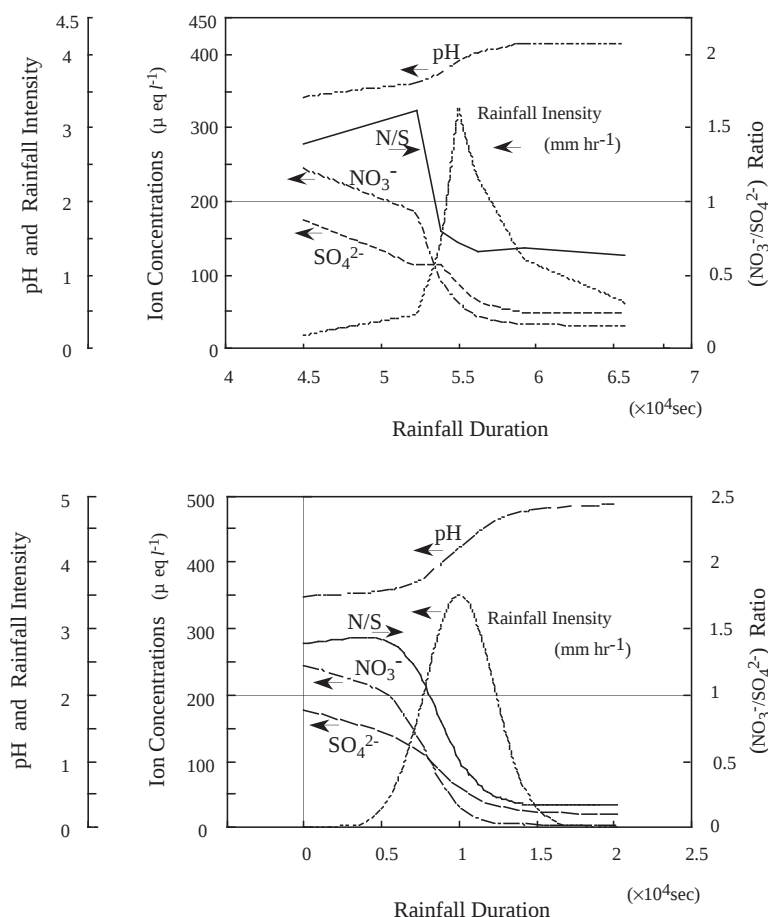


Fig. 6 Simulation of ion concentration changes and pH changes during a drizzling rain. (a) Observation data. (b) Simulation results. The initial concentration of NO_3^- and SO_4^{2-} , the initial value of pH, and the distribution of rainfall intensity are matched with the observation. The empirical scavenging coefficient of $\text{ex}[\text{H}^+]$ is calculated as follows: $A(\text{ex}[\text{H}^+]) = 1.3 \times 10^{-4} \text{ RI} + 3.0 \times 10^{-4}$, where A is the empirical scavenging coefficient (sec^{-1}) and RI is the rainfall intensity (mm hr^{-1}).

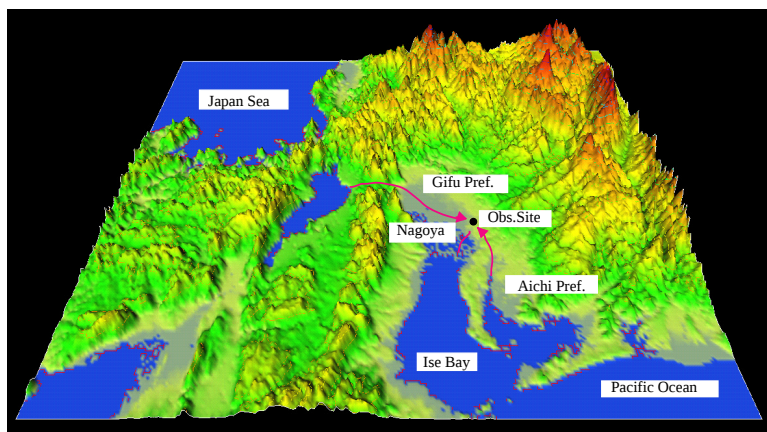


Fig. 7 Wind streams toward the Nagakute observation site.

上記した輸送過程の違いは、雨水中のイオン濃度の差としても明確に現れている。特に、降雨初期には、大気中の汚染を良く反映したイオン濃度が観測される。降雨初期（降雨量 1.0mm 以下）のイオン濃度と、降雨採取時の平均風向とを比較して Fig. 9 に示す。Fig. 9 の分布曲線は、1993 年 4 月から 1994 年 3 月までの降雨より求めたものである。その結果、南よりの風が卓越した場合に硝酸イオンや非海塩性硫酸イオンが高くなる分布が見られた。一方、カチオンについては、アンモニウムイオンの濃度分布が他のイオンと異なり特異的である。すなわち、風向が南から北西にかけて観測された時の雨水に比較的高いアンモニウムイオン濃度が観測されるが、特に名古屋方面の風向に相当する風が吹く時には低い濃度となり、名古屋周辺の方位となる場合に高濃度となる分布が得られた。アンモニアの発生は自然起源が多いとされているが、名古屋周辺部に存在する発生源の解明には至っていない²⁵⁾。

発生源の分布の違いによっても雨水中のイオン濃度に差が出てくる。雨水中のイオン濃度と雨水採取時の平均風速との関係から、土壌粒子などに吸着して比較的沈着しやすい硝酸イオンは、発生源も産業活動の集中している地域に限定されて比較的ローカルに点在し、風速による濃度減衰が大きい傾向が見られる。一方、ナトリウムイオンは海水を起源としているため、グローバルな発生源と言える。ナトリウムイオンの場合、風速の増加とともにイオン濃度の上昇する関係が得られた²⁶⁾。硫酸イオンの場合、人為起源と海洋起源の両者により、硫酸および硫酸塩の微粒

子を形成し硝酸イオンに比べ比較的沈着しにくい。結果として、風速の増加によりイオン濃度は低下するものの、硝酸イオンよりは低下は遅い傾向を示す。

近年では、雨水中のイオン濃度より発生源推定をする研究が進みつつある。その際、上記傾向はもとより、イオウや酸素の同位体分析からより詳細な発生源推定を行っている。

雨水中のイオン濃度は、輸送される方位や風速によって受ける影響が異なるが、季節によっても異なる挙動が見られる。Fig. 10は、降雨初期のイ

オン濃度を季節別にプロットしたものである。全体傾向として、硫酸イオンとカルシウムイオンとが比較的似た濃度分布を示している。カルシウムの起源は、海塩やコンクリートダストにも含まれているが、主に土壌によると考えられる。冬季から春季にかけて強い季節風により、中国大陆から輸送されてくる。その一部は黄砂として馴染み深いものとなっている^{27, 28)}。この時期の硫酸イオンは、おそらく海塩起源および東アジアを起源とした SO_2 や硫黄化合物が酸化し、塩を形成しつつ輸送されてきているものと考えられる。特に黄砂の観測される春季には、Fig. 10でKと記した期間において、雨水中のカルシウムイオンと硫酸イオンが、1週間程度の短い期間に高濃度で観測され

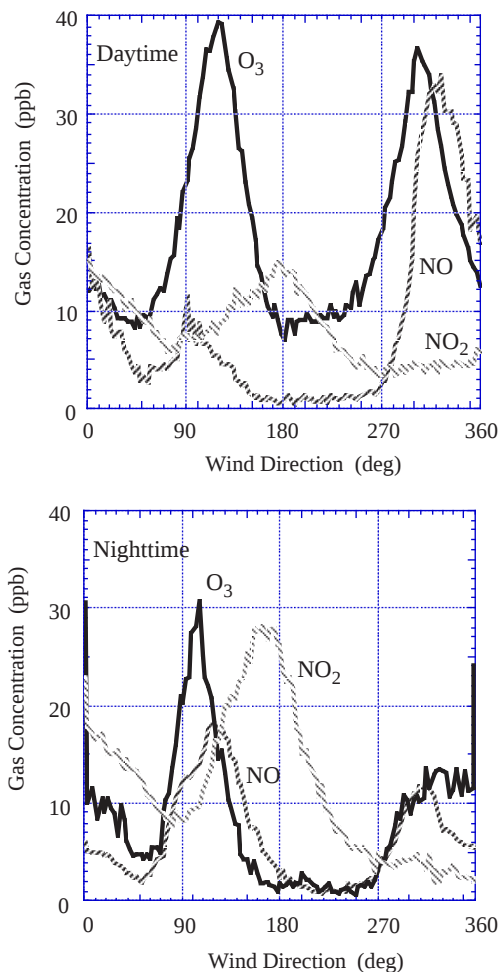


Fig. 8 Variation of minutely averaged concentrations of O_3 , NO , and NO_2 gases during the rain observation period as a function of wind directions.
a) the daytime average for each wind direction
b) the nighttime average for each wind direction

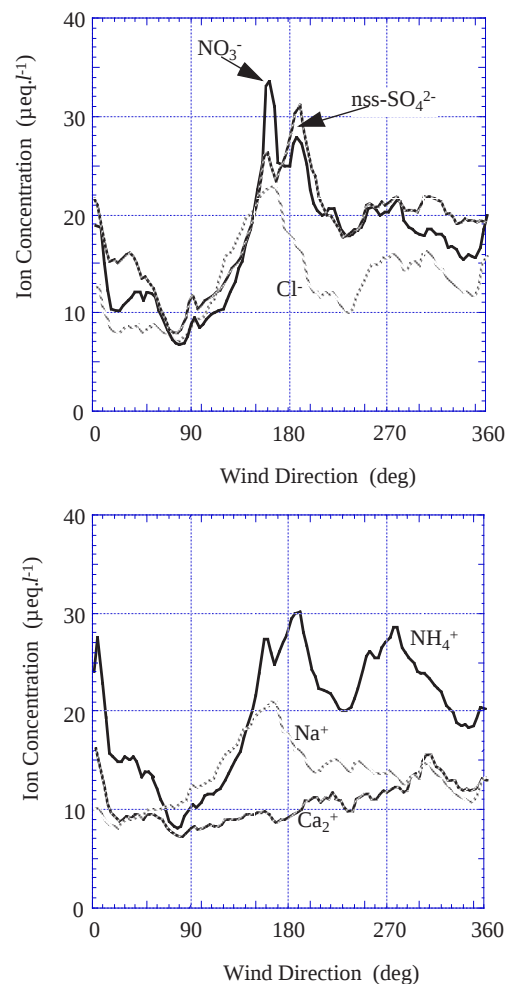


Fig. 9 Changes in ion concentrations in the rainwater as a function of the averaged wind directions during the first 0.5 mm precipitation sampling.

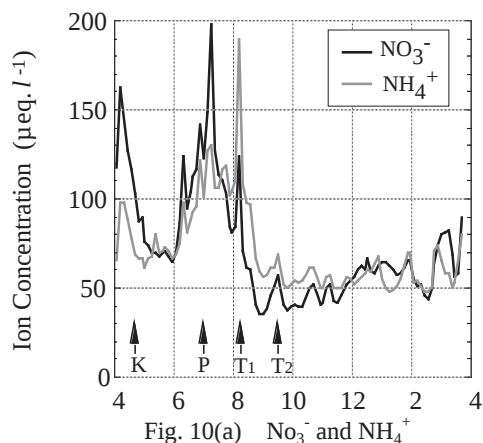
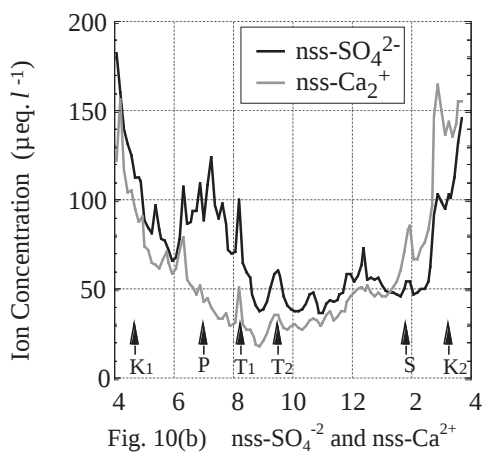
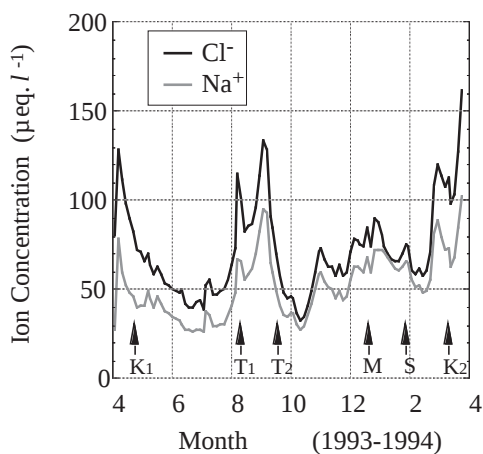
Fig. 10(a) NO_3^- and NH_4^+ Fig. 10(b) nss-SO_4^{2-} and nss-Ca^{2+} Fig. 10(c) Cl^- and Na^+

Fig. 10 The seasonal change in ion concentrations obtained first 1 mm precipitation amount. In this figure, "K" means the observed periods of Kosa events, "P" means highly activated periods of the photochemical reaction and the biogenic production, "T" means typhoons, "M" means the observed period of strong monsoons, and "S" means the observed periods of the snowfall.

る。一方、夏季には光化学反応が卓越し、高い濃度の硝酸イオンや硫酸イオンが観測される (Fig. 10中、P点) 他、動植物の生命活動も活発化し、アンモニアの放出量が増える。その結果、硝酸アンモニウムや硫酸アンモニウムなどの塩が大気中に増えることが、イオン濃度およびその変化量の相関から推定される。台風の影響を頻繁に受ける秋季 (Fig. 10中、T点) には、ナトリウムイオンや塩素イオンが南の方位に集中して高濃度になる傾向が見られる。また、冬季に見られる強い季節風により西風と高い相関で高濃度のナトリウムイオンや塩素イオンが観測される特徴を持つ (Fig. 10中、M点)。

このように、雨滴は大気中の汚染物質 (とりわけイオン) を効率良く集めて我々に情報を提供してくれるスカベンジャー (天からの手紙) である⁷⁾。

4. まとめ

酸性雨は、大気汚染物質が光化学反応を経て到達する酸性物質や粒子が雨に取り込まれて発現する現象である。大気環境改善を目的として酸性雨を大気汚染の最終沈着過程と考える場合、イオンの沈着機構を詳細に調べる必要がある。そのため、一降雨をできる限り細かく分割して短い時間スケールで雨水を採取し、その中のイオン濃度変化を気象や大気汚染ガス濃度の変化と合わせて解析した。結果を下記にまとめる。

(1) 雨水中のイオン濃度は、降雨初期に高く次第に低下する傾向が見られる。それらは、降水量に依存した指数関数で表すことができた。気団の入れ替わりなどで新たに流入した汚染物質によりイオン濃度は上昇するが、その影響はあまり小さくなく、雨による沈着がイオン濃度変化 (低下) に影響を与える最も大きい因子であることが明らかとなった。

(2) 降雨強度が比較的低く、安定した気団の中で観測される降雨について、イオン濃度の時間変化からイオンの沈着速度定数を求めることができた。得られた平均の沈着速度は、硫酸イオンが $2.2 \times 10^{-4} \text{sec}^{-1}$ で、硝酸イオンが $5.2 \times 10^{-4} \text{sec}^{-1}$ であった。イオンの沈着速度は降雨強度に依存して変

化し，直線で近似した関数が得られた。従来の累乗関数で予測する場合には，降雨強度の低い領域でゼロに収束し，イオン沈着が非常に小さい結果となるのに対し，驟雨時に比較的高濃度で観測されるイオン沈着を再現良く表すことができ，酸性霧による沈着まで連続的に表現できる関数の提案ができた。

(3) 降雨初期の雨水に含まれるイオンは，大気中のエアロゾルの情報を反映し，長久手で観測された硝酸イオンは三河方面からの汚染気塊の流入による点など，風向・風速別に解析することで，輸送過程が推察できる可能性を持つことが明らかとなった。

参考文献

- 1) Lindberg, S. E., Page, A. L. and Norton, S. A. : Acid precipitation, Ed. by Lindberg, S. E., Page, A. L. and Norton, S. A., Vol.3 (1990), 322, Springer-Verlag
- 2) Hara, H. : "The Condition of Acid Rain", Kishyo Kenkyu Note, Meteorol. Soc. Jpn, 182(1994), 3 ~ 13(in Japanese)
- 3) Hara, H. : "Acid Deposition Chemistry in Japan", Bull. Inst. Public Health, 42-3(1993), 426 ~ 437
- 4) Calvert, J. G. and Stockwell, W. R. : "SO₂, NO and NO₂ Oxidation Mechanisms: Atmospheric Considerations", Acid precipitation Ed. by Calvert, J. G., Ser. 3(1994), 1 ~ 62, Butterworth Publishers, London
- 5) Hara, H., Ito, E., Katou, T., Kitamura, Y., Komeiji, T., Oohara, M., Okita, T., Sekiguchi, K., Taguchi, K., Tamaki, M., Yamanaka, Y. and Yoshimura, K. : "Analysis of Two-Year Results of Acid Precipitation Survey within Japan", Bull. Chem. Soc. Jpn., 63(1990), 2691 ~ 2697
- 6) Tanner, R. L. : "Sources of Acids, Bases, and their Precursors in the Atmosphere", Acid precipitation, Ed. by Lindberg, S. E., Page, A. L. and Norton, S. A., Vol.3(1990), 1 ~ 19, Springer-Verlag
- 7) Minoura, H. : "Ion Scavenging in Urban Precipitation", (1998), Ph.D. Thesis Nagoya Univ.
- 8) Umeda, M., Onoguchi, A., Tanaka, S., Inomata, T. and Hanaoka, Y. : "Development of Automatic Measurement System of Chemical Constituents in Rain Water and Its Application for Rain Chemistry", Proc. of the 35th Annual Meet. of the Jpn. Soc. of Air Pollut., Morioka City, E310(1994) (in Japanese)
- 9) Collett, J. L., Prévôt, A. S. H., Staehelin, J. and Waldvogel, A. : "Physical Factors Influencing Winter Precipitation Chemistry", Environ. Sci. Technol., 24-4(1991), 782 ~ 788
- 10) Collett, J. L. Jr., Oberholzer, B., Mosimann, L., Staehelin, J. and Waldvogel, A. : "Contributions of Cloud Processes to Precipitation Chemistry in Mixed Phase Clouds", Water, Air, and Soil Pollut., 68(1993), 43 ~ 57
- 11) Dore, A. J., Choularton, T. W., Fowler, D. and Crossley, A. : "Orographic enhancement of snowfall", Environ. Pollut., 75(1992), 175 ~ 179
- 12) Tsuruta, H. : "Medium-range Transport, Transformation and Deposition of Gases and Aerosols from the Tokyo Metropolitan Area to Mountainous Area", Aerosols, 2(1990), 1082 ~ 1085
- 13) Schwartz, S. E. : "Gas-Aqueous Reactions of Sulfur and Nitrogen Oxides in Liquid-Water Cloud, In: SO₂, NO and NO₂ Oxidation Mechanisms : Atmospheric Considerations", Acid Precipitation, Ed. by Calvert, J. G., Ser. 3(1984), 173 ~ 208, Butterworth Publishers, London
- 14) Barrie, L. A. : "Scavenging Ratios, Wet Deposition, and In-Cloud Oxidation : An Application to the Oxides of Sulfur and Nitrogen", J. Geophys. Res., 90-D3(1985), 5789 ~ 5799
- 15) Venkatram, A., Kuntasal, G. and Karamchandani, P. : "Regional Acid Deposition Modeling", Atmospheric Chemistry-Models and Predictions for Climate and Air Quality, Ed. by Sloane, C. S. and Tesche, T. W., (1991), 93 ~ 115, Lewis Publishers, Inc.
- 16) Okita, T. : "Wet Deposition: Matter Entrainment in Mechanism to Precipitation and Cloud Physics", Kisho Kenkyu Note, 158(1987), 107 ~ 118 (in Japanese)
- 17) Jacob, D. J. and Hoffmann, M. R. : "A Dynamic Model for the Production of H⁺, NO₃⁻, and SO₄²⁻ in urban Fog", J. Geophys. Res., 88-C11(1983), 6611 ~ 6621
- 18) Eliassen, A. : "A Review of Long-range Transport Modeling", J. Appl. Met., 19(1989), 231 ~ 240
- 19) Seinfeld, J. H. : Atmospheric Chemistry and Physics of Air Pollution, (1986), 738, Wiley Interscience
- 20) Dop, H. van : "Models for Deposition Processes" Regional and Long-range Transport of Air Pollution, (1986), 413 ~ 435, Elsevier Sci. Pub. B. V., Amsterdam
- 21) Carmichael, G. R., Peters, L. K. and Kitada, T. : "A Second Generation Model for Regional-scale Transport/Chemistry/Deposition", Atmos. Environ., 20(1986), 173 ~ 188
- 22) Minoura, H. and Iwasaka, Y. : "Ion Concentration Changes Observed in Drizzling Rains", Atmos. Res., 45(1986), 165 ~ 182
- 23) Owada, M. : Atmospheric Environment of the Ise-Bay and its Surrounding Area, (1994), 219, The Univ. of Nagoya Press (in Japanese)
- 24) Minoura, H. : "Observational Study of Surface Ozone Concentration", Int. Symp. on Atmos. Chem. and Future Global Environ., (1994), 281 ~ 284
- 25) Minoura, H., Mizawa, S. and Iwasaka, Y. : "Seasonal Concentration Changes in Major Cations and Anions in Precipitations in Urban Nagoya, Japan: Local Emission and

- Long-Range Transport by Asian Dust Storms (KOSA) and Typhoons", J. Meteorol. Soc. Jpn., 76(1998), 13 ~ 27
- 26) Minoura, H. and Iwasaka, Y. : "Rapid Change in Nitrate and Sulfate Concentrations Observed in Early Stage of Precipitation and Their Deposition Processes", J. Atmos. Chemist., 24(1996), 39 ~ 55
- 27) Iwasaka, Y., Minoura, H. and Nagaya, K. : "The Transport and Spatial Scale of Asian Dust-Storm Clouds: A Case Study of the Dust-Storm Event of April 1979", Tellus, 35B(1983), 189 ~ 196
- 28) Minoura, H. and Arao, K. : Kosa, (1991), 37 ~ 55, Water Res. Inst. Nagoya Univ., Kokonsyoin Tokyo (in Japanese)
(1999年10月20日原稿受付)

著者紹介



箕浦宏明 Hiroaki Minoura

生年：1956年。

所属：反応制御研究室。

分野：大気環境計測と解析に関する研究。

学会等：日本気象学会，大気環境学会，

日本エアロゾル学会会員。

理学博士。