

酸性雨生成における大気汚染ガス吸収に及ぼす降雨強度の影響
Effect of Rainfall-Rate on Absorption of Air-Pollution Gas
in Acid-Rain Formation

大阪大学基礎工学部 芝 定 孝 Sadataka SHIBA
大阪大学基礎工学部 伊 藤 龍 象 Ryuzo ITO
大阪大学工学部 末 石 富太郎 Tomitaro SUEISHI

Acid-rain problem is a typical one in which the air and water pollutions are coupled with each other. Pollutants in the air go into waterdrops in clouds and during precipitation events to be called the pollutant scavenging (i.e., washout), and form acid-rain. Washout of pollution gas has been investigated with the Newman type unsteady diffusion equation. A description for the relationship between the gas scavenging and rainfall-rate, which is a popular item of hydro-meteorological observation, is developed with use of the equation of the Marshall-Palmer raindrop size distribution in order to estimate the influence of rainfall-rate upon the rain water quality on the surface.

Keywords: acid-rain, gas-absorption, mass-transfer, rainfall-rate, washout

1. 緒 言

酸性雨とは文字どおり酸性を呈する降雨（広義には雪なども含めた降水）の事である。雨を酸性にする物質は、ほぼ確かめられており、大気汚染物質のうち、主として二酸化イオウと窒素酸化物であるとされている。粒子状あるいはガス状のこれら汚染物質が雲粒や雨滴に溶解する事により、雨滴内の水素イオン濃度が増大した結果、雨水が酸性となる。この酸性雨の生成には、（1）汚染物質（一次物質）から雨を酸性化せしめる物質（二次物質）への化学変化、（2）汚染物質を凝結核とする雨雲の形成、（3）粒子状、ガス状汚染物質の雨雲や雨滴への取り込み、の三つの主要な機構が関与している。本研究では、このうち、雲底より下でのガス状汚染物質の雨滴への取り込み、すなわち、ウォッシュアウト（washout）を取り扱っている。これに対して雲中での汚染物質の取り込みをレインアウト（rainout）と称している。汚染ガスの吸収は雨滴の直径、形状、汚染状態、その他のミクロな物理化学的因子に支配されるが、雨滴径は最も重要な因子と考えられる。しかし、実用的な見地からすれば、測定の困難なミクロな因子である滴径よりも、容易に観測されるマクロな水文気象要素と相関づける事が望ましい。そこで、本研究では拡散方程式から求めた雨滴による汚染ガス吸収量のミクロな評価式と、水文気象観測に基づいたMarshall-Palmerの雨滴径分布式とを用いて、マクロな水文気象要素である降雨強度が雨滴の汚染ガス吸収に及ぼす影響について検討した。

2. 雨滴による大気汚染ガス吸収の支配方程式

雨滴による大気汚染ガス吸収は、気液二相間の拡散による物質移動と考えられる。一方、汚染ガスの大気中での拡散は、雨滴中での拡散に比して非常に速い（ $D_a/D_p \sim 10^4$ ）ので、雨滴周囲の適当な範囲では、大気濃度を均一と仮定し得る。従って、雨滴についてのみ単独で適当な初期および境界条件のもとに拡散方程式を解けば良い。液滴の物質移動モデル（反応なし）では、内部に流れが無いものと仮定したNewmanのRigid Sphere Modelと内部にHadamard-Rybczynskiの循環流が存在するとしたKronig-Brinkの

Circulation Modelとが良く知られている¹⁾。通常、雨は汚染されている為に、滴内の流れは押さえられるので、ここでは、Newman タイプのモデルとする。支配方程式は Eq.1、初期条件および境界条件は Eq.2 から Eq.4 の様になる。 C は、例えば Fig.1 の $\text{SO}_2(\text{l})$ や $\text{H}_2\text{O}_2(\text{l})$ に相当する。 r は雨滴の

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \mathcal{D}_p \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial C}{\partial r} \right) - kC, \quad C = C_0 f(\hat{r}) \text{ at } t = 0, \quad (0 \leq r \leq a) \quad (1), (2)$$

$$C = \text{finite at } r = 0, \quad -\mathcal{D}_p \frac{\partial C}{\partial r} = \frac{k_g}{\mathcal{H}} (C - \mathcal{H} C_\infty g(\hat{t})) \text{ at } r = a \quad (3), (4)$$

$$\hat{C}(\hat{t}, \hat{r}) = \frac{\mathcal{H} C_\infty g(\hat{t}) - C}{\mathcal{H} C_\infty g(0) - C_0 \bar{f}}, \quad \hat{t} = \frac{t \mathcal{D}_p}{a^2}, \quad \hat{r} = \frac{r}{a}, \quad k = \frac{ka^2}{\mathcal{D}_p} \quad (5), (6), (7), (8)$$

$$\hat{C}(\hat{t}, \hat{r}) = \frac{2\text{Bi}}{\hat{r}} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\{\alpha_n^2 + (\text{Bi} - 1)^2\} \sin \alpha_n}{\alpha_n^2 \{\alpha_n^2 + (\text{Bi} - 1)^2 + (\text{Bi} - 1)\}} F_n(\hat{t}, \alpha_n), \quad \cot \alpha_n = (1 - \text{Bi})/\alpha_n \quad (9), (10)$$

$$F_n(\hat{t}, \alpha_n) = \left[\frac{\mathcal{H} C_\infty g(0) - C_0 \bar{f}_n}{\mathcal{H} C_\infty g(0) - C_0 \bar{f}} - \Omega(0) - \alpha_n^2 \int_0^{\hat{t}} \Omega(\lambda) e^{-(\alpha_n^2 + k)\lambda} d\lambda \right] e^{-(\alpha_n^2 + k)\hat{t}} + \Omega(\hat{t}) \quad (11)$$

$$\bar{f} = \int f(\hat{r}) dV / \int dV, \quad \bar{f}_n = \int_0^1 f(\hat{r}) (\hat{r} \sin \alpha_n \hat{r}) d\hat{r} / \int_0^1 (\hat{r} \sin \alpha_n \hat{r}) d\hat{r} \quad (12), (13)$$

半径方向座標[cm]、 $\mathcal{D}_p$ は雨滴内の拡散係数[cm²/sec]、 k は反応速度定数[1/sec]である。また、 a は雨滴の半径[cm]、 $C_\infty g(\hat{t})$ は大気中の汚染ガス濃度[mol/l]、 $C_0 f(\hat{r})$ は雨滴内の初期濃度分布[mol/l]、 k_g は大気側の境膜物質移動係数[1/sec]、 $\mathcal{H}$ は汚染ガスの雨滴への分配係数[-]である。ここで、数式的取り扱いの便宜上、Eq.5 から Eq.8 の様な無次元変数、無次元定数を導入し、Eq.1 を解くと雨滴内濃度が Eq.9 の様に求まる²⁾。ただし、 α_n は Eq.10 の根を小さい順に取ったものである。 $F_n(\hat{t}, \alpha_n)$ 、 $\bar{f}$ 、 $\bar{f}_n$ 、 $\Omega(\lambda)$ はそれぞれ Eq.11 から Eq.14 で与えられる。Bi はBiot数と呼ばれ大気側物質移動速度の程度を表す無次元量で、Eq.15 で定義されるが、Eq.16 の様に大気側のSherwood数 Sh_B

$$\Omega(\lambda) = \frac{\mathcal{H} C_\infty g(\lambda)}{\mathcal{H} C_\infty g(\lambda) - C_0 \bar{f}}, \quad \text{Bi} = \frac{k_g a}{\mathcal{H} \mathcal{D}_p} \quad (14), (15)$$

$$\text{Bi} = \frac{k_g 2a}{\mathcal{D}_B} \frac{\mathcal{D}_B}{\mathcal{D}_p} \frac{1}{2\mathcal{H}} = \text{Sh}_B \frac{\mathcal{D}_B}{\mathcal{D}_p} \frac{1}{2\mathcal{H}} \quad (16)$$

$$\text{Sh}_B = 2 + 0.6 \text{Re}_B^{1/2} \text{Sc}_B^{1/3}, \quad (\text{Re}_B = vD/\nu_{\text{air}}, \text{Sc}_B = \nu_{\text{air}}/\mathcal{D}_B) \quad (17)$$

と拡散係数の比 $\mathcal{D}_B/\mathcal{D}_p$ とで書きかえる事が出来る。大気側のSherwood数は Eq.17 のRanz-Marshallの式で計算する事が出

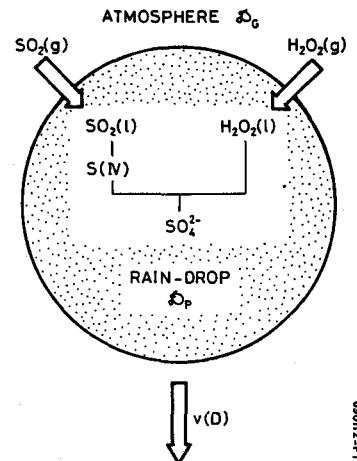


FIG.1.-WASHOUT AND REACTION

来る。Biは吸収されるガスの物性 ($\mathcal{D}_a$ 、 $\mathcal{D}_r$ 、 $\mathcal{H}$ など) および直径 D や落下速度 v に依存する。例えば、25℃では、 $\text{SO}_2(\text{g})$ については $\text{Bi} = 5.6 \times 10^2 \sim 4.1 \times 10^3$ 、 $\text{H}_2\text{O}_2(\text{g})$ については $\text{Bi} = 8.6 \times 10^{-3} \sim 6.0 \times 10^{-2}$ となり、雨滴径が大きくなる程、Biは大きくなる。

3. 汚染ガス吸収可能量と吸収量

汚染物質の雨滴内濃度 C と雨滴表面濃度 $\mathcal{H}C_{\infty g}(t)$ の大小関係によって、汚染ガスが雨滴に吸収 ($C < \mathcal{H}C_{\infty g}(t)$) されたり、放散 ($C > \mathcal{H}C_{\infty g}(t)$) されたりする。雨滴が大気から吸収し得る汚染ガスの

$$M(t) = \int (\mathcal{H}C_{\infty g}(t) - C) dV, \quad \bar{M}(t) = \frac{M(t)}{M(0)} = \int \left[\frac{\mathcal{H}C_{\infty g}(t) - C}{\mathcal{H}C_{\infty g}(0) - C_{\infty f}} \right] dV / \int dV = \int \bar{C} dV / \int dV \quad (18), (19)$$

$$\bar{M}(t) = 6\text{Bi}^2 \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\{\alpha_n^2 + (\text{Bi} - 1)^2\} \sin^2 \alpha_n}{\alpha_n^4 \{\alpha_n^2 + (\text{Bi} - 1)^2 + (\text{Bi} - 1)\}} F(t, \alpha_n), \quad M_a(t) = \int (C - C_{\infty f}(\bar{r})) dV \quad (20), (21)$$

$$\bar{M}_a(t) + \bar{M}(t) = 1, \quad \bar{C}(t) = \int C dV / \int dV = \mathcal{H}C_{\infty} - (\mathcal{H}C_{\infty} - C_{\infty f}) \bar{M} = C_{\infty f} + (\mathcal{H}C_{\infty} - C_{\infty f}) \bar{M}_a \quad (22), (23)$$

$$\bar{M}(t) = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{6}{(n\pi)^2} \left[\left(1 - \frac{\Omega k}{(n\pi)^2 + k} \right) \exp\{ -((n\pi)^2 + k)t \} + \frac{\Omega k}{(n\pi)^2 + k} \right] \quad \text{for } \text{Bi} \gg 1 \quad (24)$$

$$\bar{M}(t) = \left[1 - \frac{\Omega k}{\alpha_1^2 + k} \right] \exp\{ -(\alpha_1^2 + k)t \} + \frac{\Omega k}{\alpha_1^2 + k} \quad \text{for } \text{Bi} \ll 1 \quad (25)$$

$$\alpha_1 = \sqrt{3\text{Bi}/(1 + 0.2\text{Bi} + 0.05714\text{Bi}^2 + 0.01714\text{Bi}^3)} \quad (26)$$

質量 (吸収可能量) $M(t)$ は Eq.18 で与えられる。ただし、積分は体積積分である。Eq.18 を $M(0)$ によって無次元化したものを無次元吸収可能量 $\bar{M}(t)$ とすれば、Eq.19 が得られる。すでに求めた無次元濃度 $\bar{C}(t)$ 体積平均すれば $\bar{M}(t)$ となる事がわかる。そこで、Eq.9 の $\bar{C}$ を用いて $\bar{M}(t)$ を求めると Eq.20 の様になる。次に、吸収量 $M_a(t)$ は Eq.21 で与えられる。Eq.21 を $M(0)$ で無次元化したものを $\bar{M}_a(t)$ とすると、 $g(t) = g(0) = 1$ の場合 Eq.22 が得られる。従って、有次元の体積平均濃度 $\bar{C}$ は Eq.23 で与えられる。無次元量 Bi はガスの種類及び雨滴の直径に応じてかなり変化するが、Bi が SO_2 の様に非常に大きい値 ($\text{Bi} \gg 1$) のとき Eq.24 で、 H_2O_2 の様に非常に小さい値 ($\text{Bi} \ll 1$) のとき Eq.25 で、それぞれ近似される。ただし、Eq.25 の α_1 は Eq.26 で近似的に与えられる。Fig.2 に $\text{Bi} \gg 1$ の場合の無次元吸収可能量 $\bar{M}(t)$ の経時変化を示す。時間がたつにつれて、汚染ガスが吸収される為に $\bar{M}(t)$ はどんどん減少していく。しかし、雨滴内で化学反応が生じない物理吸収の場合 ($k = 0$) に比して、反応が生じる場合 ($k > 0$) は、 k が大きくなる程 $\bar{M}(t)$ の減少のしかたは緩やかとなる。すなわち、滴内の反応によって被吸収物質が消費される為に、雨滴の汚染ガス吸収可能量の増大する事がわかる。ただし、 $t < 0.01$ の比較的初期の段階では、 k のいずれの値に対しても大差なく、汚染ガス吸収

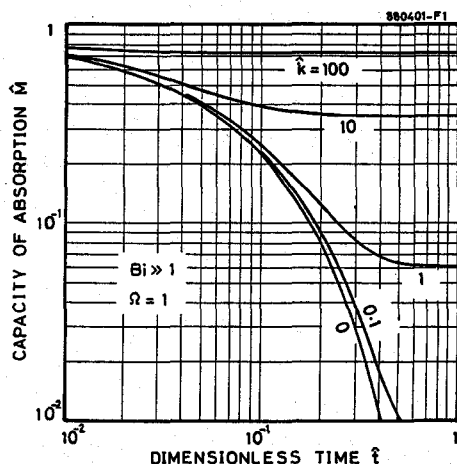


FIG.2-EFFECT OF REACTION ON ABSORPTION

に対する滴内反応の影響は小さいと言えよう。しかし、 $t > 0.1$ になると物理吸収と化学吸収とでは際立った差が見られる。

4. 降雨強度と雨滴の汚染ガス吸収

雨滴は、通常、直径が 0.02cm から 0.6cm のものである。水滴は直径が 0.6cm 程度よりも大きくなると大気中で分裂し、また、0.02cm 程度よりも小さくなると落下中に消滅する。大気中の雨滴径と降雨強度との関係は Eq.27 の Marshall-Palmer³⁾の式で与えられる。ただし、 N は単位体積中の雨滴数濃度 [cm^{-4}]、 $D(=2a)$ は雨滴の直径[cm]、 R は降雨強度[mm/hr]、である。 $N = 0.08$ 、 $p_1 = 41$ 、 $p_2 = 0.21$ とする事が多いが、 p_1 、 p_2 も R の関数とする場合は、例えば Eq.28、Eq.29 の様に与えられる⁴⁾。 p_1 、 p_2 を定数としたときの $N \sim D$ の関係を降雨強度 R をパラメータとして Fig.3 に示す。雨滴の小さいもの程、個数が多い。また、降雨強度が大きくなる程、直径の大きい雨滴の割合が大きくなる。雨滴は落下中に分裂や衝突併合が生じる為に必ずしも一定の直径ではないが、ここでは、Fig.3 の様な雨滴径分布を有するものと仮定する。定常状態では単位時間に地上で捕集される雨量は雨滴の個数と落下速度とに比例する。従って、直径 D に対する単位時間当たりの雨量密度関数を $l_1(D)$ とすれば $l_1(D)$ は

$$N = N_0 \exp(-p_1 D R^{-p_2}), \quad (D = 2a) \quad (27)$$

$$p_1 = 8.21 \times 10^{-1} + 1.83 \times 10^{-2} R - 2.62 \times 10^{-5} R^2 \quad (28)$$

$$p_2 = 72.9 R^{-0.20} \quad (29)$$

$$l_1(D) = D^3 v(D) N(D) / \int_{D_{\min}}^{D_{\max}} D^3 v(D) N(D) dD \quad (30)$$

$$v(D) = 9.58 \left\{ 1 - \exp \left[- \left(\frac{D}{0.177} \right)^{1.147} \right] \right\} \quad (31)$$

$$l_1(D) = D^3 N(D) / \int D^3 N(D) dD \quad (32)$$

$$t = \frac{H}{v(D)}, \quad \bar{C}_{\text{ex}} = \int_{D_{\min}}^{D_{\max}} \bar{C}(D) l_1(D) dD \quad (33), (34)$$

Eq.30 で与えられる。ただし、雨滴の落下速度 $v(D)$ [m/sec] は Best によると Eq.31 で求められる。また、一雨全体を地上で捕集した場合は、雨量は雨滴の落下速度

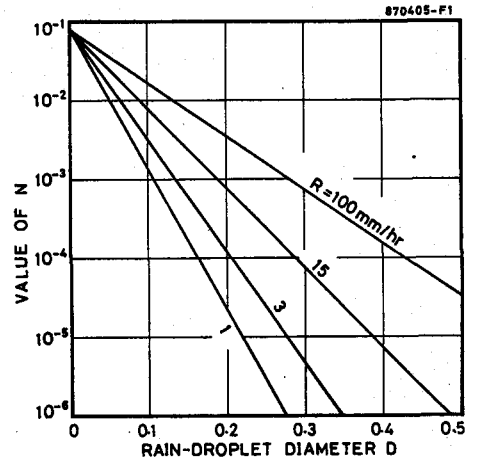


FIG.3-DISTRIBUTION OF RAIN-DROPLET NUMBER

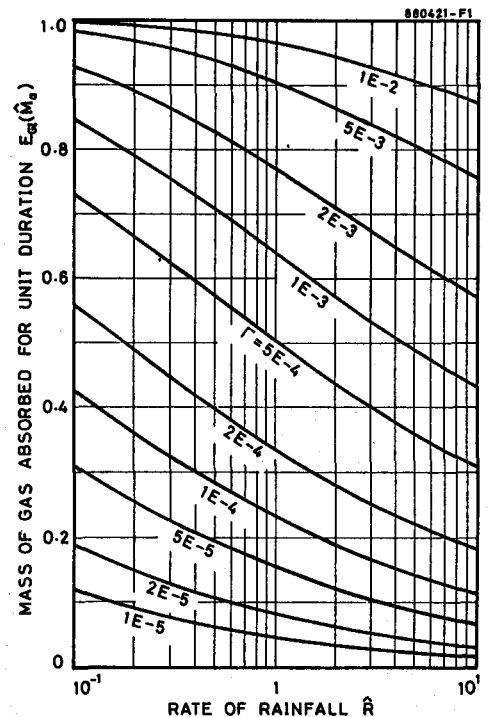


FIG.4-RELATIONSHIP BETWEEN $E_g(\hat{M}_g)$ AND $\hat{R}$

とは無関係となるから、一雨全体の雨量密度関数 $L_r(D)$ は Eq.32 で与えられる。一方、時間の原点を雨滴が雪底を離れる時にとれば、Eq.33 で t と D とは一対一に対応づけられる。ただし、 H は雪底高である。Eq.33 で $\bar{C}(t)$ の t を D に変換すれば地上での雨水水質 $\bar{C}_{\text{EX}}$ は Eq.34 で与えられる。ただし、第二添字 X は単位時間当たりの雨水水質の場合 I 、一雨全体の雨水水質の場合 T である。Eq.23 と Eq.34 とより Eq.35 を得る。ただし、 $E_{\text{EX}}(\dot{M}_a)$ 、 $E_{\text{EX}}(\dot{M})$ は Eq.36 で与えられる。 Y は $\dot{M}_a$ または $\dot{M}$ である。

$$\begin{aligned}\bar{C}_{\text{EX}} &= C_{\text{a}}\bar{f} + (\mathcal{H}C_{\infty} - C_{\text{a}}\bar{f})E_{\text{EX}}(\dot{M}_a) \\ &= \mathcal{H}C_{\infty} - (\mathcal{H}C_{\infty} - C_{\text{a}}\bar{f})E_{\text{EX}}(\dot{M})\end{aligned}\quad (35)$$

$$E_{\text{EX}}(Y) = \int Y L_r(\dot{D}) d\dot{D}, \quad E_{\text{EX}}(\dot{M}_a) = \frac{\bar{C}_{\text{EX}} - C_{\text{a}}\bar{f}}{\mathcal{H}C_{\infty} - C_{\text{a}}\bar{f}} \quad (36), (37)$$

$$\begin{aligned}E_{\text{EX}}(\dot{M}_a) &= 1 - E_{\text{EX}}(\dot{M}) \\ &= 1 - \frac{\int \dot{M} \dot{D}^2 f(\dot{D}) \exp\{-g(\dot{D}) - h(\dot{D})\} d\dot{D}}{\int \dot{D}^2 f(\dot{D}) \exp\{-h(\dot{D})\} d\dot{D}}\end{aligned}\quad (38)$$

$$f(\dot{D}) = \begin{cases} 1 - \exp(-4.056 \dot{D}^{1.147}) & \text{for } X = I \\ 1 & \text{for } X = T \end{cases} \quad (39)$$

$$g(\dot{D}) = (\alpha_0^2 + k)\Gamma \frac{3.931 \dot{D}^{-2}}{1 - \exp(-4.056 \dot{D}^{1.147})} \quad (40)$$

$$h(\dot{D}) = 13.93 \dot{D} \bar{R}^{-0.21} \quad (41)$$

$$\dot{D} = \frac{D}{D_0}, \quad \bar{R} = \frac{R}{R_0}, \quad \hat{v}(\dot{D}) = \frac{v(D)}{v(D_0)}, \quad \Gamma = \frac{\mathcal{D}_p H}{D_0^2 v(D_0)} \quad (42), (43), (44), (45)$$

$$\hat{v}(\dot{D}) = 1.018 \{1 - \exp(-4.056 \dot{D}^{1.147})\} \quad (46)$$

Eq.35 を変形すれば Eq.37 となり、 $E_{\text{EX}}(\dot{M}_a)$ が地上での雨水の無次元濃度（吸収量）を表す事がわかる。Eq.35、Eq.36 より $E_{\text{EX}}(\dot{M}_a)$ は Eq.38 で求める事が出来る⁵⁾。ただし、 $f(\dot{D})$ 、 $g(\dot{D})$ 、 $h(\dot{D})$ は Eq.39 から Eq.41 の様なものである。また、 $\dot{D}$ 、 $\bar{R}$ 、 $\hat{v}(\dot{D})$ 、 Γ はそれぞれ Eq.42 から Eq.45 で定義される。ただし、 D_0 は 0.6cm、 R_0 は 15mm/hr であり、 $\hat{v}(\dot{D})$ は Eq.46 の様になる。 SO_2 ($\text{Bi} \gg 1$) について、

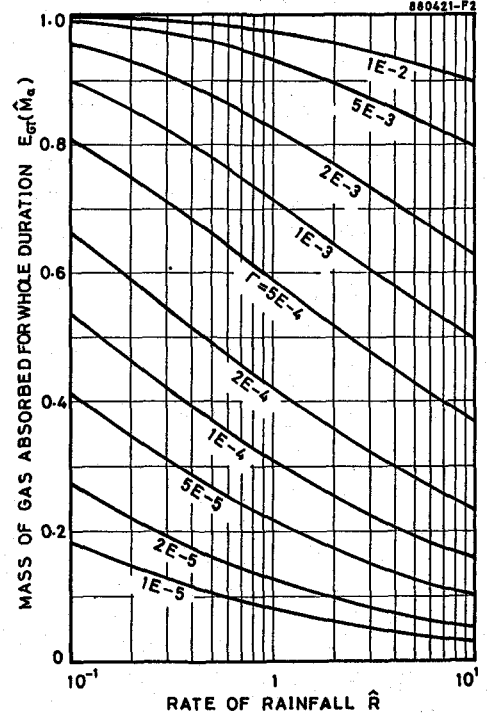


FIG.5.-RELATIONSHIP BETWEEN $E_{\text{G}}(\dot{M}_a)$ AND $\hat{R}$

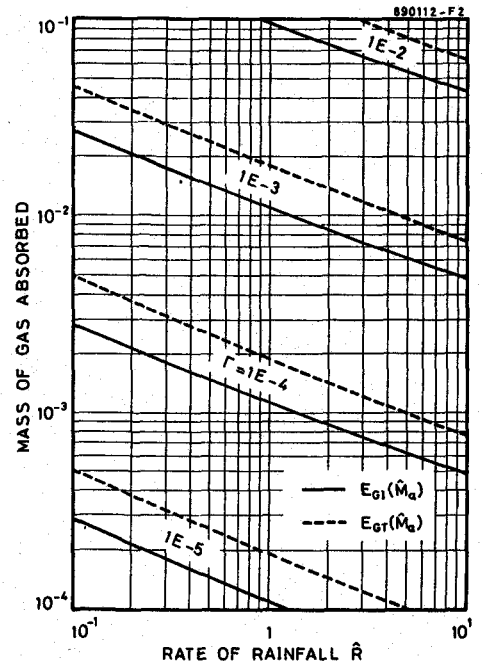


FIG.6.-RELATIONSHIP BETWEEN $E_{\text{G}}(\dot{M}_a)$ AND $\hat{R}$

無次元降雨強度 $\bar{R}$ に対する $E_{\text{in}}(\bar{M}_a)$ 、 $E_{\text{out}}(\bar{M}_a)$ のそれぞれの変化を Fig.4 と Fig.5 とに示す。また、 H_2O_2 ($\text{Bi} \ll 1$) については Fig.6 に $E_{\text{ox}}(\bar{M}_a)$ と $\bar{R}$ との関係を図示してある。これらの図は物理吸収 ($k=0$) の場合で、 Γ をパラメータとしている。いずれも降雨強度 $\bar{R}$ が増大するにつれ地上における雨水濃度 $E_{\text{ox}}(\bar{M}_a)$ は減少する。言い換えれば、降雨強度が小さくなればなる程、雨水水質が低下する(汚染物質の吸収量が多くなる)事を示している。古明地らの大都市中央部で降雨強度が低下すると、雨水成分濃度が上昇してくると言う結果⁶⁾と矛盾しない。同一の Γ に対しては、 $E_{\text{out}}(\bar{M}_a)$ の方が $E_{\text{in}}(\bar{M}_a)$ よりもかなり大きく、単位時間当たりの雨水より一雨全体の雨水の方が汚染物質濃度の高い事を示している。従って、単位時間濃度から一雨全体で地上にもたらされる汚染物質量を推定するのは危険であると言えよう。単位時間濃度が一雨全体濃度よりも低いと言う傾向は、降雨強度が低い程、助長される事がわかる。また、Fig.4 から Fig.6 より、 Bi が小さければ、汚染ガスの吸収量は少なく、雨水濃度は低いと言える。また、パラメータ Γ (無次元滞空時間)の影響は Bi が小さいと強く、対数的効果となる事が分かる。

5. 結 論

酸性雨形成における重要な物質移動現象である、雲底下での雨滴による汚染ガス吸収(washout)のモデル式を拡散方程式から導き、降雨強度が汚染ガス吸収に及ぼす影響について検討した。その結、次の様な結論を得た。

(1) 汚染ガスの吸収可能量 $\bar{M}(\bar{t})$ (Eq.20)を導き、更に、 $\text{Bi} \gg 1$ および $\text{Bi} \ll 1$ に対する $\bar{M}(\bar{t})$ の近似式(Eq.24、Eq.25)を得た。(2) これらの式によると反応速度定数が大きい程、ガス吸収の増加する事(Fig.2)が分かった。(3) Marshall-Palmerの雨滴径分布式を用いて、降雨強度と地上の雨水水質との関係を表す式(Eq.38)を得た。(4) Eq.38を用いたシミュレーション計算によると、降雨強度が弱い程、雨水水質の低下(汚染ガス吸収量の増加)する事(Figs.4、5、6)が分かった。(5) 単位時間濃度(吸収量)は一雨全体濃度よりも低く、地上に落下する汚染物質量の予測としては、危険側の値を与える事(Figs.4、5、6)が分かった。

本研究は、大気汚染と水質汚濁とを、さらには大気、水、土壌の三圏の環境汚染を統合的に取り扱う事を目的として、文部省科学研究費補助金(一般研究B、課題番号:60460167、代表者:末石富太郎・大阪大学教授)の交付により行った。本研究の遂行に当たり、北田敏廣(豊橋技術科大学)、内藤正明(国立公害研究所)、合田 健(摂南大学)、大喜田敏一(国公研)の各先生より有益な御助言や貴重な資料の御提供を頂いた。ここに記して、心より感謝致します。

参考文献

- 1) Clift, R., J.R. Grace and M.E. Weber (1978). *Bubbles, Drops, and Particles*. Academic Press, New York, USA.
- 2) 芝 定孝, 伊藤龍象, 末石富太郎(1988). 「雨滴の汚染ガス吸収と滴内液相反応」, 土木学会第43回年次学術講演会概要集, 広島, 822-823.
- 3) Marshall, J.S. and W.M. Palmer (1948). "The distribution of raindrops with size." *Journal of Meteorology*, 5, 165-166.
- 4) Markowitz, A.H. (1976). "Raindrop size distribution expressions." *Journal of Applied Meteorology*, 15, 1029-1031.
- 5) 芝 定孝, 伊藤龍象, 末石富太郎(1987). 「降雨強度と雨滴による汚染ガス吸収」, 土木学会第42回年次学術講演会概要集, 札幌, 732-733.
- 6) 玉木元則(1985). 「我が国の雨水の化学的性状」, 環境技術, 14(2), 132-145.