

(17) 大気物質量が降水水質へ与える影響についての雨滴粒径分布に基づく検討

Examination of Effect of Air Substance Amount on Rainwater Quality
based on Raindrop Size Distribution

熱田洋一^{*}, 坂本康^{**}, 西田継^{**}, 平山公明^{**}

Yoichi ATSUTA, Yasushi SAKAMOTO, Kei NISHIDA, Kimiaki HIRAYAMA

ABSTRACT ; The issue of acid rain is one of the global environmental problems. It is required for solution of this problem that the mechanisms of acid rain are understood well. In this paper, water qualities of acid rain were analyzed based on the raindrop size distribution. Although the ion concentration of rain is influenced by rain intensity, this analysis method is able to get rid of the influence. Therefore, the effect of air substance amount on rainwater quality can be considered separately. Results showed the relation between rainwater quality and potential ozone. Furthermore, the effects of air substance formation on ion concentration could be estimated for each season. It was also suggested that the amount of NO_3^- and NH_4^+ controlled the acid rain quality in rainy season of Japan.

KEYWORDS: acid rain, raindrop size distribution, rainwater quality

1.はじめに

酸性雨は、地球環境問題のひとつとしてあげられており、森林生態系などへ与える影響が心配されている。酸性雨問題の解決には酸性雨生成機構の解明が必要である。そのため、多くの酸性雨モデルが提案されている。たとえば、大石ら¹⁾(2002)は、降水粒子の粒径分布が時間変化する様子を表現できる詳細な雲物理過程をもつ2次元解像モデルに化学過程を導入したモデルの提案を行った。また、雨滴が雲底下で物質を取り込む過程(ウォッシュアウト)に注目したモデルが、Pal²⁾(2000)やWatanabeら³⁾(2001)により提案されている。これらのモデルにおいて、雨滴粒径分布が降水水質に与える影響は大きいと考えられている。雨滴径と実測した降水水質の関係を調べた研究には、Adamsら⁴⁾(1986)によるものがある。この研究では、実測した雨滴径とpHの関係を示す曲線を調べ、粒径0.5mm付近の雨滴がより良い効率で大気の洗浄を行うことを示し、その原因について雨滴の物質移動係数と表面積/容積比の関連に基づいて検討している。また、坂本⁵⁾(1990)は、降水水質へ与える降雨強度の影響を雨滴粒径分布により推定した。その結果、降水水質の時間変化を簡単な式で表現した。このように雨滴粒径分布を考慮した検討は、非常に重要と考えられる。一方、Minouraら⁶⁾(1998)は降雨時の風向と大気汚染物質量との関係を検討し、工業地域や都市から輸送されてくる気塊には汚染物質が多く含まれていることを見出し、そのことと降水中の汚染物質濃度との関係を検討した。このことから、雨滴粒径分布以外に降水水質変動に大きな影響を与える要因として大気物質量が挙げられる。大気物質量については、夏期晴天時の硝酸生成速度が冬季晴天時の約2倍になるモデル計算結果が報告されている⁷⁾。降水水質と大気物質量との関係については、熱田ら⁸⁾(2001)の降水水質の降雨時期特性の研究の中で検討されているが、大まかな傾向が明らかとなっただけで詳しい検討は行われていない。このように、降水水質決定要因ごとの詳細な研

^{*}山梨大学大学院 工学研究科 (Graduate School of Eng, Yamanashi Univ.)

^{**}山梨大学 工学部 土木環境工学科 (Dept. of Civil and Environmental Eng, Faculty of Eng, Yamanashi Univ.)

究はまだ不十分である。

そこで本論文では、降水水質に与えるさまざまな影響因子のうちで、大気物質量が降水水質に与える影響に注目した。そして、大気物質量が降水水質へ与える影響の大きさを表すパラメータ(坂本⁹⁾)を雨滴粒径分布に基づき算出し、その値と降水水質との関係を検討した。つまり、降水水質決定要因を降雨特性と大気物質量と仮定し、一方の降雨特性による影響を雨滴粒径分布に基づき推定しその影響を取り除くことにより、もう一方の大気物質量による影響について検討した。

2. 降水の採取方法と分析方法

採水は、甲府盆地北部に位置する山梨大学工学部構内の5階建て建物の屋上で行った。採水は、1時間ごとに雨を分取した。よって、以下の検討は、この1時間ごとのデータをもとに行っている。分析項目は、降雨強度、pH(ガラス電極pHメーター)、EC(電気伝導度計測器)、 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 Cl^- (イオンクロマトグラフ法)、 NH_4^+ (インドフェノール法)、 Na^+ 、 K^+ (フレイム光度法)、 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} (原子吸光光度法)である。採水は、平成8年、9年、10年は9月～12月、平成11年は6～7月、9～11月の期間中に40降雨に対して行った。熱田ら⁸⁾の検討で甲府盆地の降水水質の降雨時期特性が明らかとなっているので、それに基づき本論文では6月～7月の雨を梅雨、9月～10月前半の雨を秋雨、10月後半～12月の雨を初冬の雨としてグループ分けして検討した。また K^+ 、 Mg^{2+} は、他のイオンに比べ濃度が低いので、今回の解析の対象から除外した。

3. 雨滴粒径分布と降水水質を関係付ける理論と仮定

各時刻での雨滴粒径分布と降水水質の関係を表す基礎式は以下の3式である。

$$R = \frac{\pi}{6} \cdot \int N_{(D)} \cdot D^3 \cdot V_{(D)} \cdot dD \quad (1)$$

$$L = \frac{\pi}{6} \cdot \int N_{(D)} \cdot D^3 \cdot C_{(D)} \cdot V_{(D)} \cdot dD \quad (2)$$

$$C_R = \frac{L}{R} \quad (3)$$

ここで、 R : 降雨強度 $[\text{LT}^{-1}]$ 、 L : 降雨により単位時間あたりに単位面積に降下する物質の重量(物質沈着量) $[\text{ML}^{-2}\text{T}^{-1}]$ 、 C_R : 降水に含まれる汚染物質の濃度 $[\text{ML}^{-3}]$ 、 D : 雨滴の直径 $[\text{L}]$ 、 $N_{(D)}$: 直径 D の雨滴が現れる確率の確率密度関数 $[\text{L}^{-4}]$ 、 $C_{(D)}$: 直径 D の雨滴の水の汚染物質の濃度 $[\text{ML}^{-3}]$ 、 $V_{(D)}$: 直径 D の雨滴の落下速度 $[\text{LT}^{-1}]$ である。

$N_{(D)}$ 、 $C_{(D)}$ 、 $V_{(D)}$ は、坂本の論文⁹⁾に基づき下記の式(4)、(5)、(6)を仮定した。この仮定は、実測した降水水質に与える降雨強度の影響はそのときの雨滴粒径分布を用いて推定できるという考えに基づき、それぞれ複数の式を仮定し比較検討した結果、最もよく実測データの変動を再現できた仮定である。

$$N_{(D)} = N_0 \cdot \exp(-\lambda D) \quad (4)$$

$$V_{(D)} = k_1 \cdot D \quad (5)$$

$$C_{(D)} = k_2 \cdot D^{-2} \quad (6)$$

ここに、 N_0 : 雨滴粒径分布に関する定数で $N_0 = 8 \times 10^6 [\text{m}^{-4}]$ 、

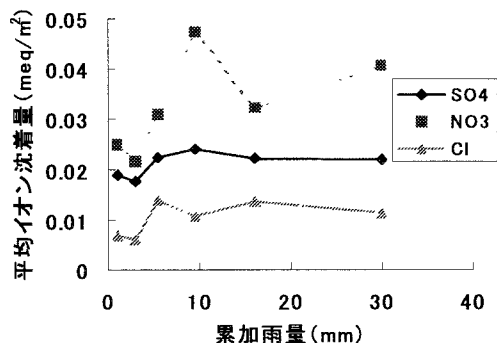


図1 梅雨の平均イオン沈着量と累加雨量の関係

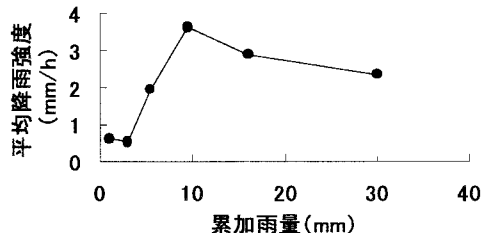


図2 梅雨の平均降雨強度と累加雨量の関係

Λ : N_0 を一定として降雨強度 R から決定される定数(たとえば, $R=1\text{mm/h}$ のとき $\Lambda=4283$), k_1 , k_2 : 定数である。ここでの N_0 は雨滴粒径分布関数として広く用いられ, 坂本⁵⁾の検討結果においても他の仮定よりも最適な結果が得られた Marshall&Palmer の式を用いている。なお, 雨滴粒径分布関数 N_0 は上式により降雨強度から推定できるため, 雨滴粒径分布の測定は不要である。また, V_0 は Allen 域での空気中の水粒子の落下速度で $k_1=4.278 \times 10^3 [1/\text{s}]$ である。また式(6)は, 雨滴濃度の変化速度が単位体積あたりの表面積に比例し, 落下速度に反比例すると考えたときの関係である。 k_2 は雨滴の大きさ以外の影響因子であり, 本論文では主に大気側の条件を総合的に示す指標と考える。

上記の仮定より式(6)の k_2 は, 実測の C_p , R とそのときの雨滴粒径分布の仮定を用いて次式で推定できる。

$$k_2 = \frac{C_p \cdot R}{\frac{\pi}{6} \cdot k_1 \cdot N_0 \cdot \int_{D_{\min}}^{D_{\max}} \exp(-\Lambda D) \cdot D^2 dD} \quad (7)$$

降水水質決定要因が大気物質と雨滴粒径分布であると仮定したとき, k_2 値は以下のように解釈できる。この式の分母は雨滴の大気物質洗浄能力であり雨滴粒径分布による。分子は実測大気物質湿性沈着量である。つまりこの k_2 値は, 実際の洗浄量と雲底下での大気中からの物質の取り込みが雨滴表面積と落下速度によるとしたときの洗浄能力との比であり, 大気中の物質の影響を大きく受けるものと考えられる。本論文では, この k_2 値を指標として検討した。

4. 結果と考察

4.1 イオン沈着量と降雨特性との関係

k_2 値の検討に先立ち, 降水がどれだけ物質を捕捉したのかをあらわすイオン沈着量と降雨特性との関係を検討する。図1に梅雨における累加雨量と平均イオン沈着量, 図2に同時期の累加雨量と平均降雨強度の関係を示す。同様に, 図3, 4に秋雨の平均イオン沈着量, 平均降雨強度と累加雨量の関係を示す。冬の雨は, 秋雨と同じ傾向であるために図は省略する。図の累加雨量とは雨の降り始めから採水時刻までの合計雨量であり, 図の値は累加雨量を6つの区間(0~2, 2~4, 4~7, 7~12, 12~20, 20~40mm)に分けたときのそれぞれの区間に含まれる降水の平均値(できるだけデータ数にばらつきが無いように区間を設定, データ数13個以上, 平均22個)である。

図1, 図3のように SO_4^{2-} 沈着量の変化は, 降雨強度の変化に対応している。同じ傾向は梅雨の NO_3^- 沈着量でも見られるが, 図3の秋雨の NO_3^- 沈着量は, 降雨強度の変化に関係なく累加雨量の増加に伴い減少している。また, 雨の初期では NO_3^- 沈着量は SO_4^{2-} 沈着量より多いが, 雨の後期では SO_4^{2-} 沈着量のほうが多くなっている。これらの傾向は, 図に示した数回の雨の平均についてだけではなく, 1回の雨の降雨継続に伴う沈着量変化においても同様に見られた。

6~7月は大気中の NO_3^- の生成量が比較的多い⁷⁾。そのため, 梅雨(図1)では累加雨量が増え, 雨に NO_3^- が取り込まれても大気中の NO_3^- 量は減少せず, 上記のように降雨強度に対応して増減を繰り返すと推測できる。また, SO_4^{2-} は NO_3^- に比べ大気中から除去されにくい⁸⁾ため, 梅雨(図1), 秋雨(図3), 冬の雨のいずれにおいても大気中濃度よりも降雨強度の影響の方が大きくなると考えられる。一方, 秋雨(図3), 冬の雨では降雨前に大気中に存在した NO_3^- は比較的初期に除去され, かつ新たな NO_3^- 生成量が少ない⁹⁾ために, NO_3^- 沈着量は SO_4^{2-} 沈着量より降雨継続に伴う大気物質質量

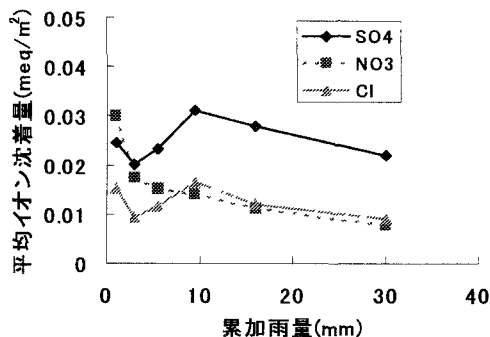


図3 秋雨の平均イオン沈着量と累加雨量の関係

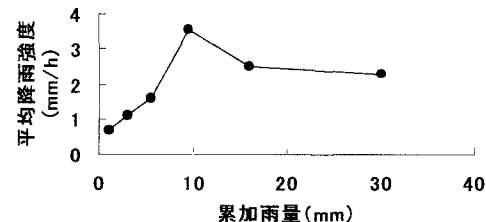


図4 秋雨の平均降雨強度と累加雨量の関係

の減少および雨滴による捕捉量の減少が起りやすくなったと考えられる。以上により、梅雨の時期は、長時間雨が降ってもあまり大気中の酸性物質が減少せず、多くの酸性物質が沈着し続けると推測される。これに対し、秋雨、冬の雨では、降雨が続くにつれ NO_3^- の雨の酸性化への寄与が小さくなり、雨の酸性度が比較的減少すると考えられる。

図5に梅雨の平均イオン濃度と累加雨量の関係を示す。梅雨の NO_3^- 沈着量は、前述したように降雨強度の影響を受け変化しているのに対し(図1)、梅雨の NO_3^- 濃度は降雨の継続とともに低下している(図5)。この濃度低下は、大気物質の影響と考えられる。この影響に注目して検討するためには、雨滴粒径分布に基づいて降雨特性の降水水質への影響を取り除いて検討することが必要である。以下では、この影響を取り除いた指標として k_2 値を検討する。

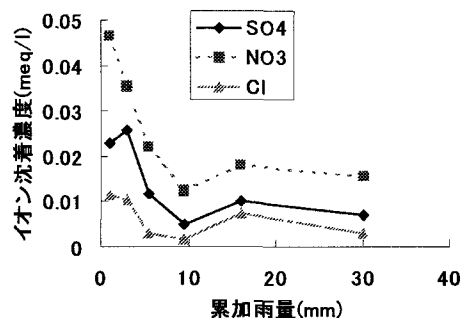


図5 梅雨の平均イオン濃度と累加雨量の関係

4.2 k_2 値減少量とイオン沈着量の関係

この節以後、濃度と降雨強度のデータを用い、式(7)により求められる1時間ごと、測定イオン種ごとの k_2 値を用いる。図6に梅雨、図7に初冬の雨における NO_3^- の k_2 値減少量 $[dk_2/dt = -(k_{2n} - k_{2n+1}) / (t_n - t_{n+1})]$ と NO_3^- 沈着量 $[p_n]$ の関係を示す。図6の梅雨の場合は明確な関係は見られないが、図7の初冬の雨では沈着量が多かった次の時刻の降水は、 k_2 値の減少が大きい傾向があることがわかる。沈着量が多いということは、大気中の物質の取り込み量が多いということであり、大気物質量の大きな減少により k_2 値の減少量が大きくなったと推測される。秋雨においても同様の結果が得られた。一方、梅雨は大気中の新たな NO_3^- 生成量が多いために他の時期と異なった傾向を示したと考えられる。他のイオン種についても同様の検討を行った結果、高い相関(相関係数0.7以上を基準とした)が得られたのは、3つの降雨時期のCa, Cl, Naと秋雨の NH_4^+ であった。その他のもの、特に SO_4^{2-} は、高い相関が得られなかった。このことから SO_4^{2-} は他のイオンと違った減少傾向を示すことが推測された。

4.3 平均 k_2 値、降水中平均イオン濃度の変動特性の比較

図8に初冬の雨における Cl^- の平均 k_2 値、平均イオン濃度の変動傾向を示す。この k_2 値とイオン濃度は、降雨の1時間ごとのデータすべてについて、各累加雨量の区間(4.1と同じ)ごとに平均したものを用いた。この図から、 k_2 値の変動と平均イオン濃度の変動傾向がほぼ同じであることがわかる。この変動傾向の一致は、すべてのイオン種において同様に見られた。この傾向は、以下の原因によると推測される。降雨初期において k_2 値が急激に減少しているが、これは大気物質量が降雨初期に急激に減少することを示す。一方イオン濃度は、大気物質量と降雨強度(雨滴径)の影響を受けるが、平均値で見ると初期の大気物質量減少の影響が大きいため降雨強度の変化の影響は隠され、主に大気物質量の減少の影響を受け変化する。よって、 k_2 値、イオン濃度ともに大気物質量の変化の影響を大きく受けて変化するために同様の変動傾向を示したと考えられる。なお、平均値の検討では累加雨量区分ごとのサンプル数が異なることの影響も考えられるが、1降雨ごとに見ても上記の傾向は、たいいていの降雨において見られた。しかし、1降雨ごとに見ると上述したように濃度変動等への降雨強度等の影響も見られた。そこで、次節からは1降雨ごとの k_2 値について検討する。

4.4 初期降雨と後期降雨の区分

図9に平成11年11月15日の累加雨量と NO_3^- の k_2 値の関係を示す。本節以降さらに細かく検討を行うために、図9のように k_2 値の変動が0.02以下になった時点境界として初期降雨と後期降雨とに分けた。さらに、初期降雨区間では減少傾向を直線で近似し、直線の切片を f 値とした。たとえば図9では、初期降雨期間中の降り始めから5時

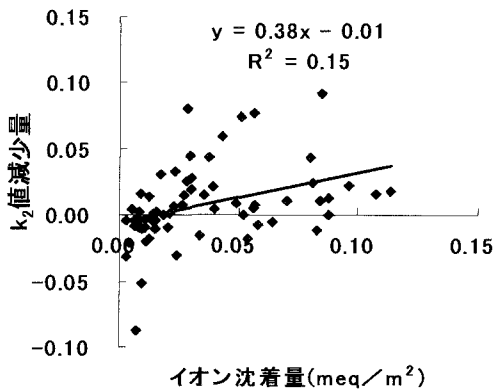


図6 梅雨の NO_3^- の k_2 値減少量と NO_3^- 沈着量の関係

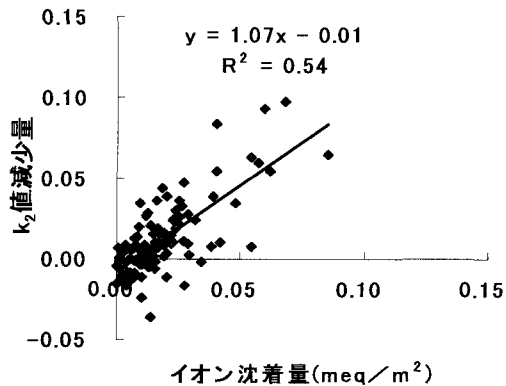


図7 初冬の雨の NO_3^- の k_2 値減少量と NO_3^- 沈着量の関係

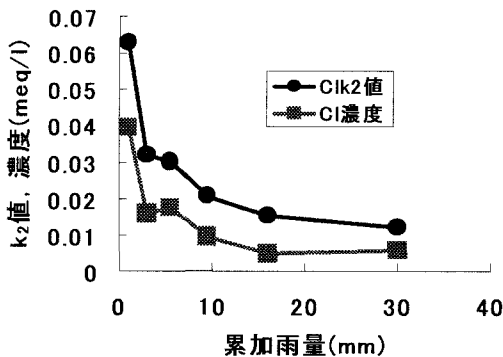


図8 初冬の雨における Cl^- の平均 k_2 値、平均濃度と累加雨量の関係

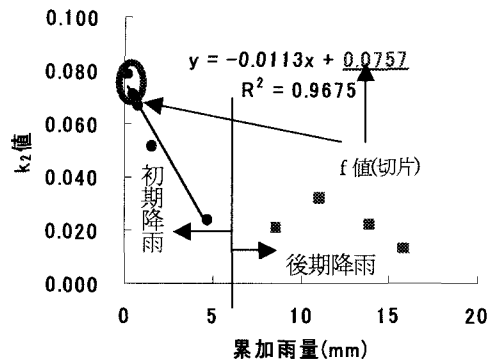


図9 H11.11.15の NO_3^- の k_2 値と累加雨量の関係

間目までの累加雨量と k_2 値の関係を直線で近似した。その直線の式が図9中の式である。この直線の切片の値である0.0757が平成11年11月15日の雨のf値となる。初期降雨は、降雨直前の大気中の物質を取り込んでいる期間であり、f値は、降雨直前の大気中の汚染度(この場合は、大気中の NO_3^- 濃度)を表す指標と考えられる。なお、測定した雨は、通常、図9のような変化を示したが、降雨初期から k_2 値が小さく後期降雨のような傾向を示した雨もあり、この場合は初期降雨期間無しとした。

4.5 f値と大気物質濃度

図10に大気濃度観測データ⁹⁾の入手できた平成8,9年の秋と初冬の降雨のf値とその降雨の前48時間の平均PO(potential ozone)濃度の関係を示す。 NO_x-O_3 の光化学反応において、 NO_2 が光分解すると速やかに O_3 と NO になり、さらに O_3 と NO が1対1で反応して NO_2 になると仮定すると、 O_3 と NO_2 の和は保存される。この和がPOと定義されている¹⁰⁾。f値と平均PO濃度の間には図10のような線形関係(相関係数 $r=0.78$)が得られた。ここでf値を用いたのは、初期濃度(f値の場合と同様に、累加雨量と濃度の関係を近似した直線の切片の値)と累加雨量の関係よりもf値と累加雨量の関係のほうが大きな相関係数が得られたためである。初期濃度よりf値との間の相関係数が大きくなったのは、 k_2 値は大気中の物質濃度の影響を大きくうけて変化するものであるのに対し、濃度の値は大気中の物質濃度だけでなく降雨強度などの影響も受けるためと推測される。また、POを用いたのは、 O_3 、 NO 、 NO_2 よりもf値との間の相関係数が大きかったためである。

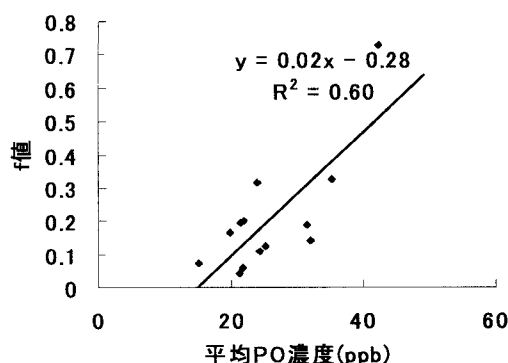


図 10 平成 8,9 年の各降雨の f 値と降雨前 48 時間の平均 PO 濃度の関係

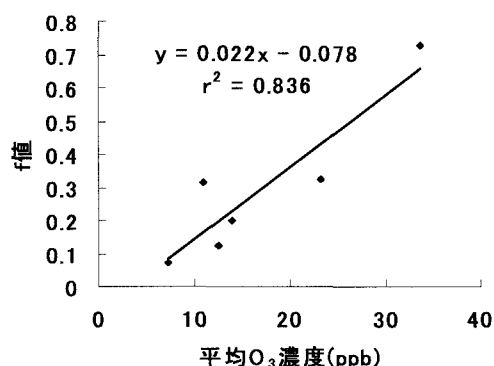


図 11 平成 8,9 年の秋雨における各降雨の f 値と降雨前 48 時間の平均 O₃ 濃度の関係

表 1 降雨後期の平均 k_2 値より推定した降雨強度 1mm/h の時の各イオン種の濃度

	梅雨	秋雨	冬の雨
SO_4^{2-}	0.008	0.015	0.010
NO_3^-	0.019	0.009	0.010
Cl^-	0.004	0.006	0.006
NH_4^+	0.027	0.008	0.010
Ca^{2+}	0.001	0.006	0.006

表 2 降雨後期の実測した降雨強度 0.5~1.5mm/h の時の各イオン種の平均濃度

	梅雨	秋雨	冬の雨
SO_4^{2-}	0.008	0.019	0.014
NO_3^-	0.021	0.012	0.011
Cl^-	0.004	0.010	0.006
NH_4^+	0.021	0.013	0.014
Ca^{2+}	0.001	0.008	0.006

次に、図 11 に平成 8, 9 年の f 値と降雨前 48 時間の平均 O₃ 濃度の関係を示す。図では、相関係数が大きい($r=0.91$)秋雨についてのみ示す。初冬の雨では、図 11 のような線形関係は得られなかった。このことから、秋の PO 値(特に、PO 値の一部である O₃ 濃度)と NO₃⁻ の f 値は何らかの関連があると考えられる。O₃ 濃度は大気中の酸化能力を表すと考え、秋は O₃ 濃度の高いときに HNO₃ ガスなどの生成量も多くなり NO₃⁻ の f 値も上昇したと考えられる。一方冬は、O₃ ガス生成量が少なく変動も小さいために上記の関係がみられなかったと考えられる。

4.6 後期降雨の平均 k_2 値を用いた検討

表 1 に後期降雨の平均 k_2 値と降雨強度との関係より推定した降雨強度 1mm/h のときの各イオン種の推定濃度を示す。この推定濃度は、式(7)に後期降雨の降雨時期毎の平均 k_2 値、 $R=1\text{mm/h}$ および 1mm/h の雨に対応する雨滴粒径分布を代入したときの値である。また、表 2 には降雨強度 0.5~1.5mm/h の後期降雨各イオン種の実測濃度を示す。表 1 での推定濃度と表 2 の実測濃度とで一部を除き余り差がないことがわかる。つまり、後期降雨では降雨時期がわかれば降雨強度から濃度が推定できるといえる。後期降雨は、降雨前の大気物質が初期降雨により洗浄された後、新たに生成される大気物質を取り込んでいる期間と考えられる。この降雨期間は、図 8 のように初期降雨に比べ濃度変化が少ない。よって、この推定された濃度は、1 時間あたりに新たに生成された大気物質が降雨をどの程度汚染するかを表し、新たに生成される大気物質の降水汚染力を表す指標と考えることができる。表の値で特徴的なのは、梅雨の NO₃⁻ と NH₄⁺ 推定濃度が他の時期に比べ、NO₃⁻ で約 2 倍、NH₄⁺ で約 3 倍と大きいことである。このことは、梅雨では降雨の酸性化に対する NO₃⁻、NH₄⁺ の生成量の影響が大きいことを示唆している。

6. 結論

雨滴粒径分布の仮定に基づき甲府盆地の降水水質を検討したところ以下のような結果が得られた。

- 1) NO₃ 沈着量は、梅雨では降雨強度の影響を受けるが、秋雨、初冬の雨では、降雨強度の影響を受けず降雨の継続と

ともに減少する。 SO_4^{2-} 沈着量は、どの時期でも降雨強度の変化の影響を受け変動する。

2) 秋雨、初冬の NO_3^- 、秋雨の NH_4^+ 、すべての時期の Cl^- 、 Na^+ 、 Ca^{2+} で k_2 値減少量と沈着量との間に関係が見られた。 SO_4^{2-} はすべての時期で k_2 値減少量と沈着量との間に関係が見られなかった。

3) すべての降雨時期、すべてのイオン種についてイオン濃度と k_2 値は同様の变化傾向を示した。

4) 秋と初冬の降雨で NO_3^- の f 値と降雨前の PO との間に線形関係が見られた。

5) 後期降雨の平均 k_2 値から推定した平均濃度を用いて、降雨時期毎に1時間あたりに新たに生成した大気物質の平均降水汚染力を評価した。この検討により、梅雨の NO_3^- 、 NH_4^+ の生成量が多いことがわかった。

降水水質は、多くの影響因子が複雑に絡み合って決定するための個々の影響因子の検討が難しかった。そこで本論文では、既報⁹⁾の考え方、仮定に基づき雨滴粒径分布の影響を取り除き、影響因子のひとつである大気物質量の降水水質への影響を推定した。その結果、大気物質量は多くの影響因子の中で、降水水質へ与える影響がかなり大きいことがわかった。本論文の考え方にさらに雨滴中への物質の移動機構の概念を導入すれば、雨滴粒径、大気物質量の測定データにより雲底下での降水水質の変化を説明できるモデルの構築が可能と考えられる。しかし、これまでは酸性雨原因物質の HNO_3 ガスなど降水水質に直接影響のある物質の多くは、測定の難しさ、煩雑さなどから十分に測定されていなかった。そのためモデル構築の意義は十分認識されていなかった。現在は、それらの分析技術の向上などから、しだいに観測が行われるようになってきており、今後その結果を取り入れたモデル等の開発の必要性が高まったといえる。

参考文献

- 1) 大石哲, 松井光弘, 池淵周一: 詳細な雲物理過程を含む酸性雨・酸性雪予測モデルの開発, 水工学論文集, 第46巻, pp. 1-6, 2002.
- 2) Pal, D.: A numerical model of acidification of raindrops by oxidation of SO_2 , J. Environ. Studies, Vol. 57, pp. 167-177, 2000.
- 3) Watanabe, K., Shiba, S. and Hirata, Y.: CHARACTERISTICS OF RAINDROP ACIDIFICATION BY CO-WASHOUT OF $\text{SO}_2(\text{G})$ - $\text{H}_2\text{O}_2(\text{G})$ - $\text{HNO}_3(\text{G})$, Water Air and Soil Pollution, Vol. 130, pp. 313-318, 2001.
- 4) Adams, S. J., Bradley, A. G., Stow, C. D. and Mora, S. J.: Measurements of pH versus drop size in natural rain, Nature, Vol. 321, No. 26, pp. 842-847, 1986.
- 5) 坂本康: 雨滴粒径分布に基づく降水水質の時間変化の解析, 水文・水資源学会誌, 第3巻, 第2号, pp. 31-37, 1990
- 6) Minoura, H. and Mizawa, S.: Seasonal change of major cations and anions in precipitations in urban Nagoya, Japan, Journal of Meteorological Society of Japan, Vol. 76, No. 1, pp. 13-27, 1998.
- 7) 日本化学会編: 大気の化学, 学術出版センター, pp. 99-115, 1990.
- 8) 熱田洋一, 坂本康, 西田継: イオン当量濃度割合の多変量解析と変動特性解析による降水水質の検討, 水工学論文集, 第45巻, pp. 283-288, 2001.
- 9) 山梨県森林環境部: 平成8, 9年度大気常時監視測定データ.
- 10) 坂野泰之, 坂東博, 前田泰昭, 浅山淳, 田中正宣: 都市における NO_x の支配要因, 第42回大気環境学会講演要旨集, pp. 202-203, 2001.