

雨水の酸性度を決定する要素について

平木 隆年・玉置 元則・堀口 光章・光田 寧

RAINFALL ACIDITY AS RELATED TO METEOROLOGICAL PARAMETERS

By Takatoshi HIRAKI, Motonori TAMAKI, Mitsuaki HORIGUCHI and Yasushi MITSUTA

Synopsis

Four years rainfall from 1984 to 1988 were collected in Kobe, and were analyzed for pH and electric conductivity. pH values were ranged from 3.27 to 6.95. Yearly variation of pH value was not recognized.

Rain events were classified into 4 categories, front type, low pressure type, trough type and typhoon type. The front type rainfall yielded the lowest mean pH value (4.30), and low pressure type showed higher pH value (4.70). The pH value was seen to be related to the intensity of updraft.

1. はじめに

近年、酸性雨は広域的な環境汚染として注目され、わが国においても全国的な酸性雨監視測定網が整備されつつある。酸性雨問題は、欧米において工業地域から非工業地域への大気汚染物質の長距離輸送に伴う生態系の破壊に関する問題として起こった。雨水を酸性化する元凶は硫酸であるとされ、その硫酸は大気汚染物質として放出された二酸化いおうが長距離輸送の過程で変化したものであった¹⁾。日本においては、関東における杉枯れの報告²⁾があるのみで、現在他に生態影響に関する報告はない。

雨水の酸性化は、主に燃焼過程などにより人為的に排出された気体状・粒子状の大気汚染物質の雨水への取り込みの結果起こっているとされ、大気汚染物質が雨水へ取り込まれる過程は、レインアウト(雲内除去)とウォッシュアウト(雲底下除去)があるが、現在ではレインアウトが主要な過程であろうと考えられている^{3,4)}。神戸市市街地の背後にある標高約1000mの六甲山山頂で行った調査結果もレインアウトの重要性を支持していた⁵⁾。しかし、その詳細は全く明らかにされていない。除去過程解明には、理論的な検討とともに実測として実際に雲の中に入って観測する必要があるが、このことが困難である場合が多い。Parungoらは、雨、雪、雲水、エアロゾル、土壌の分析を行い、凝結核、雲水、雨水、雪、夏のしゅう雨、地雨、霧雨のpHを、それぞれ6, 4, 4.79, 5.29, 4.0, 4.91, 5.91とした⁶⁾。Lazrusらは温暖前線の雨と雲を測定し、雲底近くの雨のpHは4.0であることと、その中にアルミニウムがほとんどないことを示し、雲ができるときに存在していた硫酸粒子のほとんどがきわめて速く除去され、新たな硫酸と硝酸が雲の中で生成されているとしている³⁾。Wolffらは気象因子と降雨のpHの関係を調べ、気団型のしゅう雨や雷雨前線性の雨は汚染地域を通過してきた空気で作られているので4.17の低いpHを示し、低気圧の雨は大西洋からの風と共に来るので4.40の高いpHを示すとしている⁷⁾。Singhらは、降雨前1日～3日の高層の気象要素と降雨成分の関係を示し、降水原因とpHの関係も示している⁸⁾。その中で彼らは、低いpHは前線性ではなく、地域的な降雨

で見られるとしている。これらの研究はいずれも降雨をもたらす気象的な原因によって、雨水のpHが変化することを示しているが、地域的な特殊性も加味しているためお互いに相反する結果を示しているものもあり、普遍的な降水システムとして捉えきれていない。

本研究では、地上の気象データを用いて、降雨時の気象要素について考察し、降水原因と、雨水のpHの関係を明らかにしようとした。

2. 方法

2.1 雨水の採取

1984年6月～1988年5月の4年間、兵庫県立公害研究所（以下採取地点）で、雨水自動採取装置（小笠原計器製R-200）を用い、雨水を採取した。

採取地点は神戸市の中西部にあたる須磨区の市街地に位置し（Fig. 1）、準住居地域にあるが幹線道路の影響がかなり多いところである。海岸まで約500mで、夏期には海塩粒子の影響を受けやすい。

雨水の採取は、連続した降雨を一降雨として、一降雨毎に行った。降雨途中で降雨が中断した場合でも、その期間が6時間未満の場合は連続した降雨とした。

採取した雨水のpHおよび導電率の測定は、化学変化などによる誤差を最小にとどめるために直ちに行い、それが困難な場合は、後日の分析までポリプレピレン容器に入れて冷蔵庫に保存した。

pHの測定はpHメータ（オリオン社製Model-501）を用い、導電率（以下E.C.）は導電率計（京都電子工業社製CM-07）を用いて測定した。

なお、1987年9月から1988年3月まで酸性雨自動測定機（紀本電子工業社製AR-102SNA）を用いて降水量1mm毎のpH、E.C.、硫酸イオン濃度、硝酸イオン濃度も同時に測定した。

2.2 気象データ

解析に用いた気象データは、1984年6月1988年5月の（気象庁発行）印刷天気図と、同期間内に地域気象観測システム（AMeDAS）によって岡山、姫路、神戸、大阪で測定された風向、風速、気温、降水量の1時間値を用いた。岡山、姫路、神戸、大阪の測定点は、雨水の採取地点のそれぞれ西110km、西北西45km、北東7km、東40kmにある（Fig. 1）。また、特徴的な降雨については、大阪気象レーダデータも使用した。

これらの気象データを用いて、採取した雨水の降水原因を大きく前線による影響と低気圧による影響とそれ以外に分類した。前線は、温暖前線、停滞前線、寒冷前線、閉塞前線を、一括して前線とした。

以下に示す基準に当てはまるものによる降雨をそれぞれ前線、低気圧による降雨とした。

a. 前線の基準

1. 温暖前線と停滞前線は、神戸の南300kmまでに位置する場合を目安にし、前線の移動とともに雨域が移動していることが明らかな場合は、500km程度まで延ばして考えた。

2. 寒冷前線は、前線面から後方100km以内に影響を及ぼしていると考えた。

3. 閉塞前線は温暖前線と寒冷前線の複合したものであるが、温暖前線に近い範囲に影響を及ぼしていた。

b. 低気圧の基準

1. 前線をまったく伴っていない低気圧。

2. 前線をもっているが、神戸から700km以上離れている場合。

3. 温暖前線の前方500km以遠、寒冷前線の後面100km以遠の降雨。

4. 寒冷前線と温暖前線の間暖域の降雨。

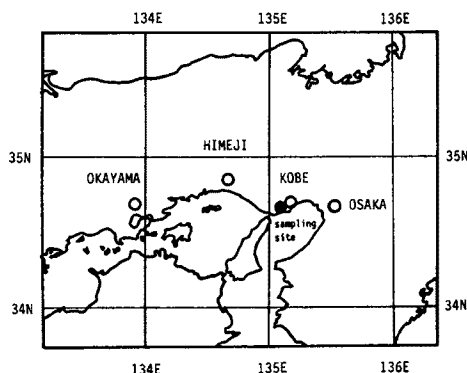


Fig. 1. Sampling site and meteorological observatories.

その他、当時の天気概況したがって分類できるものは、それに従った。

3. 結果と考察

3.1 降雨の概要

降水原因を前線によるものと低気圧によるものと、それ以外のものに分けると、前線と低気圧によるものが合わせて全体の75%を占めていた (Table 1)。それぞれの降雨回数は136と117回で似た値であった。神戸から見た前線および低気圧の位置に従って、4方位と直上通過の5段階に、降雨をそれぞれ分類した。前線では、前線が神戸を通過する場合に降雨があることが最も多く、次いで南に前線が接近している場合に降雨があることが多い。前線が東・西および北にある場合には降雨は希であった。低気圧が接近通過する場合、南を通過する場合に降雨があることが多い。次いで北の順であった。東および西に低気圧がある場合に降雨は希であった。

測定期間中の総降水量は337回の降雨で3966 mm 降り、初年度から順次に1182 mm, 940 mm, 886 mm, 958 mm であった。一降雨の降水量は0 mm (0.1 mm 以下) から114 mm の範囲にあり、平均11.8 mm (出現率の中央値: AMeDAS-6 mm, mesure-6.5 mm) であり降水原因による差は明確でなかった。1時間降水量は0 mm から44 mm の範囲にあり、平均1.16 mm であった。月別の降雨では、5, 6月に降雨量が多い傾向を示し、梅雨前線による影響が強かった。

3.2 雨水のpHの測定値

雨水の酸性度 (pH) は、何も溶け込んでいない状態では、蒸留水と同じくpHは7を示す。しかし、自然にある炭酸ガスの溶解の結果pHは5.6を示す。この値が雨水pHのバックグラウンド値と考えられている。

期間中のpH測定値は3.27~6.95の範囲の値を示し、年度毎の平均値は、59年度4.69 (平均水素イオン濃度のpH: 4.42), 60年度4.41 (4.26), 61年度4.42 (4.31), 62年度4.51 (4.37) で、60年度にやや低下しているが一定傾向の明確な経年変化は認められない (Fig. 2)。pHの出現率の分布を4年間を通じて調べると、

Table 1. Rain type classification

amount : average rainfall amount (mm/event)

EC : electric conductivity ($\mu\text{S}/\text{cm}$)

RAIN TYPE	POSITION	N	AMOUNT	pH	EC
FRONT	PASS	81	15	4.27	51
	N	5	2	4.59	182
	S	46	14	4.29	47
	E	—	—	—	—
	W	4	10	4.50	47
	ALL		136	14	4.30
LOW	PASS	22	16	4.50	45
	N	24	8	4.55	57
	S	64	13	4.49	34
	E	3	7	5.19	171
	W	4	5	4.71	146
	ALL		117	12	4.53
TROUGH		35	8	4.70	71
TYPHOON		21	11	5.03	62
UNKOWN		28	2	4.87	85

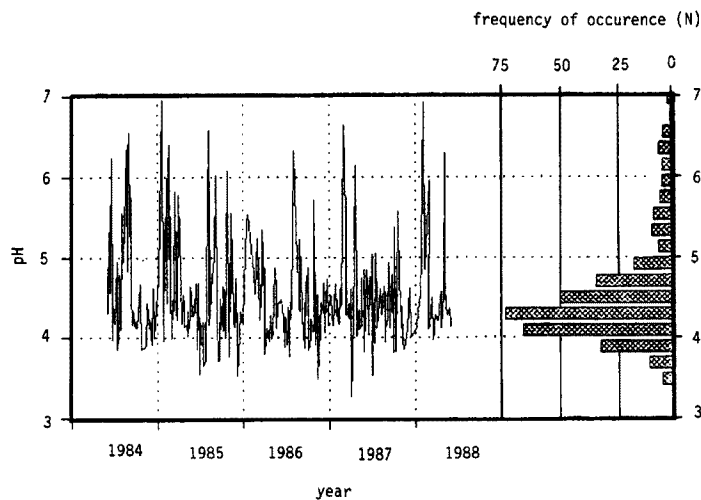


Fig. 2. Yearly variation and distribution of pH value.

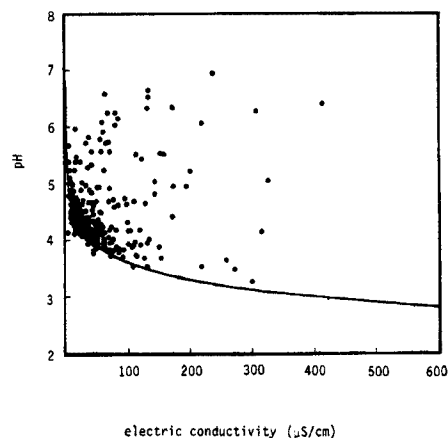


Fig. 3. Relationship between pH and electric conductivity.

solid line: dilute sulphuric acid

4.2~4.4の階級に出現する場合がもっとも多かった。

3.3 導電率とpHの関係

雨水中イオン成分濃度とpHの関係を調べるため導電率を測定した。導電率は、本来の物性的な測定意義とは別に、雨水に溶解イオン化している化学成分濃度の指標としての意義を持っている。鈴木らは、導電率から硫酸イオン濃度が推定できるとしている⁹⁾。さらに、導電率は、化学成分の総和と一次の比例関係を示すものとして、化学分析の精度の検定にも使用されることが多い¹⁰⁾。

雨水中の導電率とpHは、Fig. 3に示すように、双曲線に近い関係を示した。図中の実線は希硫酸の導電率とpHの関係を示す。なお酸は他の強酸であっても、たとえば希塩酸でも希硝酸でもほぼ同じ線上に乗る。雨水の実測値の外側の点は、pH5付近以下の部分でこの実線と一致しているの、基本的にpHはこれらの酸によって低められていた、特に実線上の雨水のイオン成分はこれらの酸のみであったと思われる。Lazrusらは温暖前線性の雨を雲底で採取して、硫酸と硝酸がほとんど純粋な酸の状態で存在したと報告している⁹⁾。測定値をさらに詳細に見ると、実線の左側には点はほとんどないが、右側の部分には広がりをもっている。こ

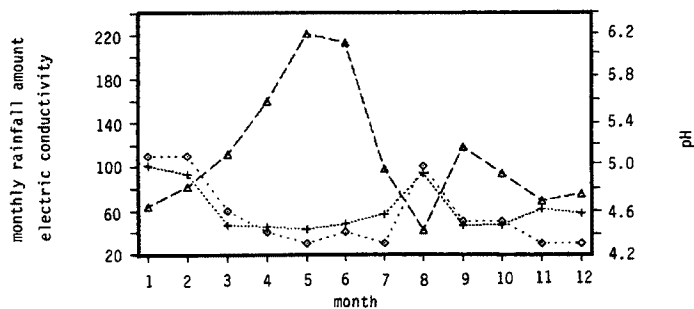


Fig. 4. Monthly variation of pH and electric conductivity.

◇: pH

+ : electric conductivity ($\mu\text{S}/\text{cm}$)

△: monthly rainfall amount (mm/month)

これらの右側にずれている雨水は弱酸またはアルカリのような H^+ を生成する量が少ないイオンによって導電率が高められており、さらに pH5 以上の測定値は Y 軸から大きくずれていたため、明かに特定のアルカリ源が存在していると思われる。

3.4 pH の季節変動

雨水の pH は大気汚染物質の取込によって低下しているため、夏期の光化学反応が活発な時期は雨水の pH も低下すると考えられているが、本調査期間中では Fig. 4 に示すように夏期に pH が低下する傾向は見られない。かえって、降水量が低下する 8 月に pH が一時的に上昇した。Fig. 4 で見ると、月毎の降水量の変化に伴って、pH、導電率が変化し、導電率は降水量と逆相関で、降水量が少ない 1、2、8 月に濃縮され高い値を示す。一方 pH は降水量が少ない月に高い値を示した。したがって、降水量が少ない月は降水量が多い月より、相対的に雨水中のアルカリ性物質の濃度が高く、高い pH を示していたと思われる。Parungo らは、凝結段階で雲を規定している凝結核は、地域の土壌粒子と人為的汚染物質の混じったものであるため、6 に近い平均 pH を示すとしている⁶⁾。神戸においても凝結核の pH が 6 であるとするならば、pH の高い雨水の大部分は、凝結核に近い成分で降下したと考え説明されるが、なお若干数の雨水が 6 よりも高い pH を示し説明されない。

3.5 降雨の持続時間と雨水中成分の変動

降雨をその持続時間によって、長雨、地雨、しゅう雨と分類する名称がある。梅雨前線は長雨をもたらすことが多いし、温暖前線は地雨をもたらすし、しゅう雨は対流性の雲より降る場合が多い。

持続時間の短い降雨は、しゅう雨のように局地的な上昇気流により形成されることが多く、地域の大気の状態をよく示すはずであるが、3-7 の広い範囲の pH 値を示した (Fig. 5)。持続時間の長い降雨は pH4.4 付近の狭い範囲の値をもった。また降雨の持続時間に対して雨水中の導電率は、時間と共に指数関数的にその値は減少する一定の傾向を示した。しかしその減少の傾向はゼロ付近では一定ではなく、pH と同じように収束値を持っていた。その収束値は pH4.4 の希釈された強酸の示す導電率 ($16 \mu S/cm$) に一致していた。

今日まで、雨水中の pH 値は降水量が少ない降雨は 3 から 8 の間でばらつくが、降水量が多い降雨は 4.4 付近の値を持つとされてきた¹¹⁾。しかし pH と一定の関係がある導電率は、降水量が多い降雨では、ゼロに近い値に収束し、この値は pH の収束値と等価でない。したがって、pH の収束値と導電率の収束値が一致しない降水量との関係より持続時間との関係の方が現象を正確に表現していると思われる。

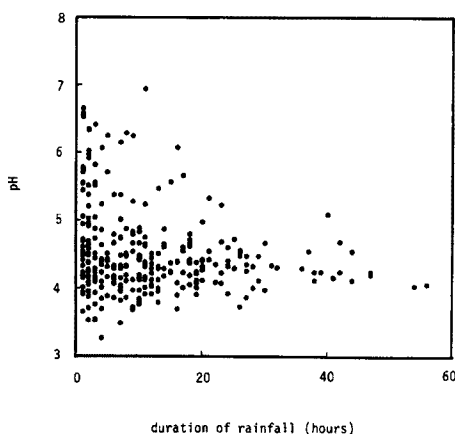


Fig. 5. Relationship between duration time and pH.

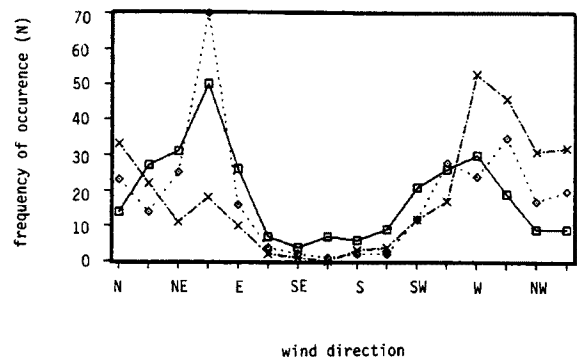


Fig. 6. Changes of wind direction with rain.

- : before 24 hour average
- ◇ : during rain
- × : after 24 hour average

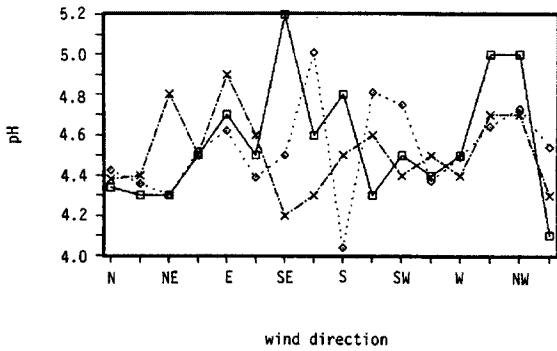


Fig. 7. Relationship between wind direction and pH.

- : before 24 hour average
- ◇ : during rain
- × : after 24 hour average

3.6 降雨と風向

降雨前後の風向を調べると、降雨前は南北の風が少なく東西の風が多い、降雨の直前から東北東の風が卓越し、降雨終了直後から東寄りの風は少なくなり西から北の風が多く見られ (Fig. 6), 収束性の降雨 (convective rain) の頻度が多いことを示していた。降雨前後で風向の出現頻度が変化しているが、風向毎の平均 pH は降雨前後で明確な差異は認められなかった。風向別の平均 pH は、東南東から南西にかけては出現頻度が少ないため平均値のバラツキが大きいが、北寄りの風の時やや低く、北西と東のかぜ風の時にやや高い (Fig. 7)。Wolff らは New York において風向別の平均 pH を調べ、北東から南にかけての風の時は東の大西洋の影響で 4.37 の高い値を示し、南西から北西の風の時は西の汚染地域の影響で 3.95 の低い値を示したとしている⁷⁾。神戸

の場合、New York に比べて風向別の差が小さく、明確な風向依存性がなかった。New York では、低気圧性と前線性などの降雨原因と風向との間に明確な関係が存在したが、神戸では降水原因にかかわらず北東方向の風が吹きやすいためであると思われる。

3.7 降水原因と pH

降水原因別の pH の平均値は、前線によるもの (pH: 4.30) が最も低く、次いで低気圧 (pH: 4.53)、気圧の谷 (pH: 4.70)、その他 (pH: 4.87)、台風 (pH: 5.03) の順であった。前線、低気圧の採取地点に対する位置関係では、前線が採取地点を通過するもの (N: 81/136, pH: 4.27) と、南に位置するもの (N: 46/136, pH: 4.29) が低い pH を示した。

低気圧による降水では低気圧の位置により、東がやや高い (pH: 5.19) が、他は 4.49 から 4.71 の範囲にあり方向の依存性はほとんどなかった。またその他の原因による降水は、前線や低気圧による降水よりも pH が高い傾向にあった。

Parungo らは、雨水、雪、夏のしゅう雨、地雨、霧雨の pH を、それぞれ 4.79, 5.29, 4.0, 4.91, 5.91 とし、Wolff らは気象因子と降雨の pH の関係を調べ、低気圧の接近による降雨は約 4.4 の平均値を示し、陸上で発生した低気圧より海上で発生した低気圧による降雨の方が低い pH を示すこと、気団性の雷雨がもっとも低い pH (3.91) を示し、次いで低気圧が接近していない寒冷前線による降雨が 4.17 の pH を示した。また彼らはハリケーンによって 5.16 の高い pH を得ている。また、Singh は測定結果として、寒冷前線では 3.4-4.9 の値を、温暖前線は 4.2-4.5 を、地域的な降雨では 3.5-4.5 の pH を示している。これらの値は、測定された地域が、Parungo はコロラド、Wolff はニューヨーク、Singh はカナダのケベックと離れているが、降水原因別の傾向は一致しているように思われる。

われわれの結果は、対流性降雨を前線性およびその他の降雨と分離できていないと思われるが、前線と低気圧の関係など文献の結果とよく一致していた。

pH の平均値が、前線による降水の場合に最も低く、次いで低気圧、気圧の谷、その他、台風の順になった、この傾向は、上昇気流の激しさ (または上昇気流を形成する収束域の狭さ) の順に一致しているようである。下層大気中に人為的に排出された汚染物質によって、降水の酸性化がもたらされていると考えられるので、上昇気流の強さは、下層大気中にある汚染物質を効率よく雲のなかに運び込む能力の強さと等価であると考えられる。したがって、降水の酸性化を支配していたのは、上昇気流の強さであり、その上昇気流によって維持されていたレインアウトのメカニズムであると思われる。

3.8 pHの変化と気象条件

雨水のpHは、降雨の時間経過にしたがって、上昇する場合と、下降する場合と、一定の傾向を持たず変動する場合がある。1987年10月の3降雨を選んで、これらの変化傾向について詳細に検討した。

10月6日の降雨は、3時間の短時間にpHの低い雨水と高い雨水の2種類の雨水の降った特徴のある降雨であった(Fig. 8-1)。降水量9 mmの前半の4 mmがpH3.5-4.0で、後半の5 mmが5.0-5.5であった。天気図によると、三日前から日本をおおっていた移動性高気圧が東に後退し、九州南西海上に発生した低気圧が四国南岸へ接近しつつあり、低気圧と気圧の谷による降雨が見られた。天気図から予測される地衡風は東南東の風であるが、観測された風向は地点、時間によって大きく変化していた。4地点の風向を用いて下層大気の気流を推定すると、3-5時に神戸・姫路間に、6-9時に大阪・神戸間に収束域が考えられた。岡山、姫路、神戸、大阪で観測された降水量は、それぞれ1 mm, 6 mm, 10 mm, 1 mmで神戸周辺が特に多く、降雨をもたらした擾乱は局地的なものではないかと思われた。また、レーダによる観測結果では、この降雨は、神戸の緯度で東西方向に230 kmの距離を持つ、ハの字型をした降雨帯の後続の部分による降雨であった。この後続の降雨帯は寒冷前線に似た形をしていたが、神戸周辺で特徴的な動きを示した。中国地方から東進してきた降雨帯は神戸周辺で壁に阻まれたようにその幅を細くするのみで、まったく移動せず、和歌山南から舞鶴沖にかけて南北300 km最大幅東西60 kmの細長い降雨帯が60分間停滞していた。pHの低い雨水が降った時間帯と、この細長い降雨帯の停滞時間帯が一致していたので、この時の降雨システムによって低いpHの雨水がもたらされたと思われる。その後、細長い降雨帯が突如急激に広がりが増しながら進み始め、それとともに雨水pHも高くやった。Wolffらは高気圧の後方に出来た降雨帯で低いpHが出現したとしているが、この降雨も同様の条件下にあった。

10月11日の降雨は降雨の開始からpHが高く、変化の幅(4.7-5.4)も小さかった(Fig. 8-2)。九州と北海道に低気圧があり、西日本は全域で降雨が見られ、岡山、姫路、神戸、大阪の降水量はそれぞれ4 mm, 4 mm, 8 mm, 12 mmであった。低気圧による地衡風は東北東の風であり、岡山、神戸、大阪の観測結果と一致している。前線などの地域的な収束による降雨ではなく、低気圧によるような大きな場における収束による降雨は、pHが高く、変化が小さいようである。

10月24日の降雨のpHは、始めやや低い値であったが、時間の経過とともに高くなった(Fig. 8-3)。また、降雨途中で降雨強度が大きくなるとpHが高くなる傾向も見られた。この日は南岸に停滞前線があり、前線上に低気圧が発生過程にあった。それらの影響で全国的に降雨が見られ、岡山、姫路、神戸、大阪の降水量は、それぞれ28 mm, 31 mm, 30 mm, 36 mmであった。前線に向かって吹き込む風は北東の風であるが、観測結果では風向の変化が激しく、たくさんの降水セルが生じていたと思われる。一雨の降水量も多い部類に属しているため、この時の降水原因は、不安定大気が前線面を上昇して生じた積乱雲によると思われた。

降雨のpHは、降雨の時間経過と共に変化するが、基本的にはその降雨の降水原因に支配されており、寒冷前線のような細い降雨帯を形成するような降水原因による降雨は低いpHを示し、低気圧のように大きなスケールで雲を形成するものは、高いpHを示す。温暖前線は寒冷前線や、対流性の降雨に比べると大きなスケールの降雨であるが、暖域から前線付近にかけてレインバンド構造の降雨帯が形成されることが多く¹²⁾、低いpHを示すことが多い。降雨途中であっても、降雨機構の構造が変化すると、雨水のpHは大きく変化する。ま

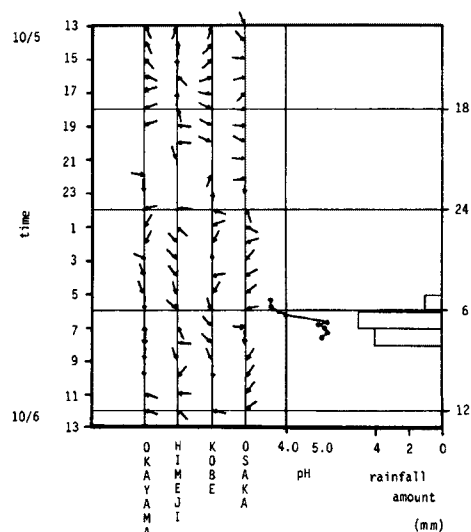


Fig. 8-1. pH as related to wind direction.

(October 5, 1987)

た、高気圧の後ろに形成された降雨域では、高気圧によって下層大気に押し込められていた大気汚染物質が濃縮されたような形で雲の生成、成長の場に収束してくるため雨水は低い pH を示す。また、低気圧による降雨は、基本的に大きな面積から収束して来るので、汚染物質を多く含む都市の空気は相対的に薄められており、雨水の pH は高い値を示すと思われる。

4. まとめ

1984年6月～1988年5月の4年間、兵庫県公害研究所で、雨水を採取し pH の傾向を気象因子によって調べた。降水原因は前線と低気圧によるものが合わせて全体の75%を占めていた。pH 測定値は3.27～6.95の範囲の値を示し、4.2から4.4の値が多かった。年度毎の平均値は4.41から4.61の値を示し、経時変化は認められなかった。同時に測定した導電率と pH の間には、pH5以下で、強酸と似た関係が成り立った。また、月毎の pH の変化は降水量の変化と一致しており、降水量が多い月は pH が低く、少ない月は高かった。

降雨の持続時間が長くなるにしたがって、導電率は指数関数的に低下し 16 μ S/cm 付近に落ち着き、pH は3から7にばらついてきた値が4.4付近に収束した。この特徴は、今後数値実験をする際に重要な事実になると思われる。

降水原因別の pH の平均値は、前線によるもの (pH: 4.30) が最も低く、次いで低気圧 (pH: 4.53)、気圧の谷 (pH: 4.70)、その他 (pH: 4.87)、台風 (pH: 5.03) の順であった。この傾向は、上昇気流の激しさの順に一致しており、下層大気中にある汚染物質を効率よく雲のなかに運び込む能力の強さと等価であると考えられる。したがって、降水の酸性化を支配していたのは、上昇気流の強さであり、その上昇気流によって維持されてたレインアウトのメカニズムであると思われる。

謝辞

本研究を実施するにあたり、大阪気象レーダデータを提供してくださいました大阪管区气象台の関係各位に感謝します。

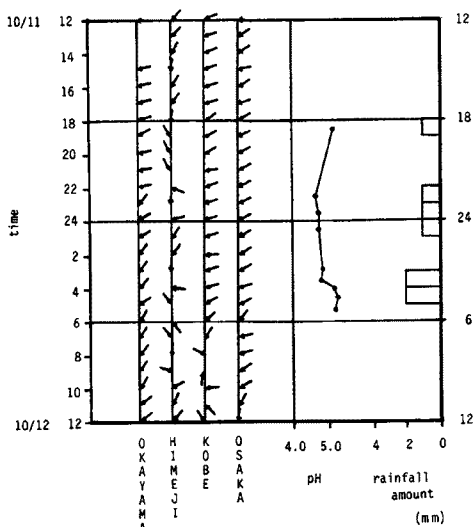


Fig. 8-2. pH as related to wind direction. (October 11, 1987)

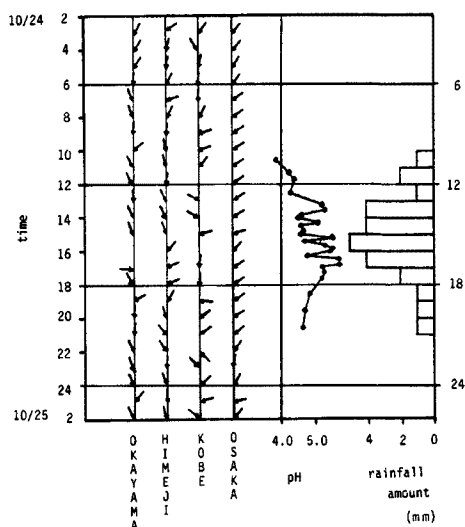


Fig. 8-3. pH as related to wind direction. (October 24, 1987)

参 考 文 献

- 1) OECD : Long Rang Transport of Air Pollutants, 1979.
- 2) Sekiguchi K., Hara Y. and Ujiiye A. : Dieback of *Cryptomeria Japonica* and Distribution of Acid Deposition and Oxidation in Kanto District of Japan, *Environmental Technology Letters*, Vol. 7, 1986, pp. 263-268.
- 3) Lazarus A. L., Haagenson P. L., Kok G. L., Huebert B. J., Kreitzberg C. W., Mohnen V. A., Wilson W. E. and Winchester J. W. : Acidity Air and Water in a Case of Warm Frontal Precipitation, *Atmos. Environ.*, Vol. 17, No. 3, 1983, pp. 581-591.
- 4) Nagamoto C. T., Parungo F., Pueschel R. and Gerish T. : Acid Clouds and Precipitation in Eastern Colorado, *Atmos. Environ.*, Vol. 17, No. 6, 1983, pp. 1073-1082.
- 5) 平木隆年, 玉置元則, 鳥橋義和 : 濾過式採取装置による大気降下量の地域特性, 兵庫県立公害研究所研究報告, 第19号, 1987, pp. 25-33.
- 6) Parungo F., Nagamoto C. and Madel R. : A Study of the Mechanisms of Acid Rain Formation, *J. Atmos. Sci.*, Vol. 44, No. 21, 1987, pp. 3162-3174.
- 7) Wolff G. T., Liroy P. J., Golub H. and Hawkins J. S. : Acid Precipitation in the New York Metropolitan Area : Its Relationship to Meteorological Factors, *Environ. Sci. Technol.*, Vol. 13, No. 2, 1979, pp. 209-212.
- 8) Singh B., Nobert M. and Zwack P. : Rainfall Acidity as Related to Meteorological Parameters in Northern Quebec, *Atmos. Environ.*, Vol. 21, No. 4, 1987, pp. 825-842.
- 9) 鈴木将夫, 大道貞夫 : 石油コンビナート付近で採取した雨水の分析—硫酸イオン濃度, 電導度, pH, 千葉県公害研究所報告, 第2号, 1974, pp. 53-67.
- 10) 玉置元則, 平木隆年, 光木偉勝, 松本光弘 : 雨水成分の分析法 (基本操作と問題点), *環境技術*, Vol. 14, 1985, pp. 462-467, 574-579, 611-617.
- 11) 神奈川県環境部 : 湿性大気汚染 (酸性雨) 測定結果 (昭和49年度-昭和56年度), 1982.
- 12) 植村八郎 : 低気圧に伴う雲域について, *天気*, 28(4), 1981, pp. 225-236.