

降水成分調査について

吉明地 哲人 小山 功 石黒辰吉
門井守夫
(日本大学理工学部)

1 はじめに

これまでのわが国における酸性雨調査は比較的短期の調査例が多かった。これらのうち四日市¹⁾、熊本市²⁾の調査例は比較的長期に降水を採取し、pHの長期変動を示し、それによって大気汚染と降水のpHとの関係を明確にした。欧米では1950年代から降水調査が広域的に実施され、降水pHの長期的な推移³⁾、降水の酸性化の機構⁴⁾、酸性降水の地表面への影響等^{5) 6) 7)}の調査研究が多くなされてきた。当所では降水の植物、器物等への影響を調査研究するためのフィールドデータを得る目的で1973年より雨水成分常時調査を行ってきた。この調査ではすべての降水に対して、その初期降水30mm程度を分別して採取し、成分測定を行った。⁸⁾しかし、1974年“いわゆる酸性雨”被害の発生により調査研究は0~5mm程度の初期降水調査が主として行われるようになった。^{9) 10)}その後眼刺激等の人体被害の発生もほとんど報告されなくなり、わが国でも酸性雨の人体被害中心の短期の初期降水調査から環境への影響を重視した長期の降水全量採取調査へと調査の重点が移りつつある。^{11) 12)}降水の汚染が環境に対し、どのような影響を及ぼしているか究明していくためには長期にわたる正確な降水の測定値が必要である。本報告はこの目的に沿って調査を実施し、降水のpH電導度について検討したものである。

2 調査方法

(1) 調査期間

1973年9月から1980年12月まで

(2) 調査地点

千代田：千代田区有楽町2-7-1 調布：調布市調布ヶ丘3-29、青梅：青梅市友田2-728、奥多摩：西多摩郡奥多摩町留漕1390

(3) 試料採取方法

雨水採取器⁸⁾、雨水自動採取機¹¹⁾により採取した。

(4) 測定項目、方法

pH：ガラス電極法、導電率(EC)：導電率計により測定した。

3 調査結果

(1) 初期(0-1mm)降水のpH測定値の年平均値等を表1に示す。表1から地点別にpHの年平均値をみると都心部の千代田は他よりpHは高く、区部に隣接している調布、山間地に近い青梅でむしろ低い傾向を示した。調布、青梅、奥多摩の年平均pHは4.5以下であるのに対し、千代田は4.8以上であった。これを水素イオン濃度 $[H^+]$ (eq/l)で比較すると、千代田以外の3地点は千代田の約2倍、またはそれ以上の濃度であったといえる。

1975年(以下'75のように略記)からの経年変化をみると千代田は'75年から'78年までほとんど変動がみられず、'79、'80年に少し上昇がみられた。調布は'78年まで減少傾向であった。青梅は'78年まで調布と同様の傾向であり、'79、'80は千代田と同様に少し上昇した。奥多摩は'77年よりの測定であるが、青梅と同様の傾向を示した。これらの地点の経年変化から、'78年はとくに多摩地域でpHが低い傾向であったが6年間を通してみると増減の傾向はまだ不明確であるといえる。

pHの最低値は千代田では3.6-4.0と他地点より高く、山地に近い青梅、山間地の奥多摩が低い傾向であった。このように初期(0-1mm)降水では都心部より区部周辺、山間地でpHは低下する傾向が明確に認められた。

イ 導電率 (EC)

初期 (0-1 mm) 降水の導電率 (以下 EC と略記) 測定値の年平均値等を表 2 に示す。表 2 から地点別に EC の年平均値をみると千代田、調布は、青梅、奥多摩に比較し明確に高い傾向を示した。これを 6 年間の平均値でみると調布 91 > 千代田 89 > 青梅 59 > 奥多摩 35 であった。この順位から初期 (0-1 mm) 降水の EC は都市部で高く、都市部より距離が増加すると低下する傾向であり、pH とは異った地点間差を示した。'75 年からの経年変化をみると全地点の平均値の年別推移は少し減少傾向を示していると考えられる。

EC の最低値を地点別にみると各年とも千代田が最も高く 8.8-25 の値を示した。その他の地点は調布 4.3-14 > 青梅 2.3-5.4 > 奥多摩 2.2-2.5 であった。最低値でみても千代田、調布など大都市およびその周辺で高い傾向が明確に認められた。

EC の各年の最高値は変動が大きく、かつ、地点間に規則的な差異が認められなかった。

(2) (0-5 mm) 降水

ア pH

表 3 に (0-5 mm) 降水 pH の年平均値等を示す。表 3 より (0-5 mm) 降水 pH の年平均値は (1) (0-1 mm) 降水 pH の場合と比較し、地点間の差異が小さく不明確であった。ただ千代田のみは他地点より pH が高い傾向であった。'73-'80 年の 8 年間について平均値を算出し比較すると千代田 4.56 > 青梅 4.45 > 奥多摩 4.42 > 調布 4.38 であった。このことから (0-5 mm) 降水の場合も初期 (0-1 mm) 降水と同様に都心部で pH は高く、その周辺部で pH はむしろ低下する傾向であった。ただ、地点毎にみると千代田の (0-1 mm) 降水の 6 年間平均値 4.87 から (0-5 mm) 降水 8 年間平均値 4.56 へと降水量の差による pH の差は pH の低い側へ移行したが、他の 3 地点は千代田の場合と逆に (0-1 mm) 降水より (0-5 mm) 降水の pH が高い傾向であった。8 年間の (0-8 mm) 降水の経年変化をみると千代田 '74 年の 4.9、同様に青梅の 4.8 を除くと他は 4.5 付近に分布しており、経年的な増減傾向は認められなかった。pH の最低値について地点間の比較を行うと千代田が他地点よりも高い場合が多くみとめられた。pH 最低値の経年変化は '75 年以降 4.5 付近に分布し大きな変化はみられなかった。この場合も (0-1 mm) 降水の地点間差ほど大きな差は

みられなかった。このように pH、EC とも初期 (0-1 mm) 降水において (0-5 mm) 降水よりも地点間の差異は大きい傾向であった。

最高値の地点間の差異についてみると '73 年調布が低く、'75 年調布、'78 年千代田が著しく高い値を示したが、他の年は pH 6-pH 8 の間の値であった。なかでも、青梅 '76-'80 年の最高値は他より低い場合が多いことが示された。

イ EC

表 4 に (0-5 mm) 降水 EC の年平均値等を示す。年平均値について地点間差をみると (0-1 mm) 降水の場合ほど顕著ではないが、明らかな地点間の差が認められた。これを年平均値で比較すると千代田 50 > 調布 48 > 青梅 39 > 奥多摩 23 の順位であった。この順位は (0-1 mm) 降水 EC の最低値と同様であった。

EC 年平均値の経年変化では千代田は明確な漸減傾向を示し、ここ数年の間に降水の EC は低下したといえる。青梅は千代田と比較すると小さいが、千代田と同様にここ数年の間、EC は漸減したと考えられる。奥多摩の EC は各年とも差が小さく、平均すると降水の EC は 22-25 の間であり、きわめて安定した値を示した。

EC の最低値について地点間の差をみると '73 年を除くすべての年において千代田の EC 最低値が他地点よりも高いことがみとめられた。最低値の平均値の順位は千代田 17 > 調布 9.8 > 青梅 4.0 > 奥多摩 2.4 であり、地点間の差が大きいことが認められた。最低値の経年変化では、年平均値の場合と同様に最低値が漸減していることがみとめられた。

EC 最高値の地点間の差異をみると、最高値のうちでの最高値の出現頻度の最も高い地点は調布であり、'74、'76 年の値は特に顕著であった。その他の年では '79 年の千代田の最高値が高い値を示した。調布は (0-1 mm) 降水の場合も高い値を示し、EC がとくに高い値となる傾向がみとめられた。

(3) 全降水

全降水は降水開始から終了まで一降水毎に採取した場合の降水である。全降水の pH、EC 測定値の年平均値を表 5、6 に示す。

ア pH

全降水測定値は '78 年より 3 カ年の結果のみである。表 5 から全降水平均 pH は千代田 4.3-4.8、青梅

表1 降水(0-1mm)のpH

年	千代田			調布			青梅			奥多摩		
	平均	測定数	最低-最高	平均	測定数	最低-最高	平均	測定数	最低-最高	平均	測定数	最低-最高
1975	4.8	63	3.8-7.8	4.5	89	3.4-10	4.4	99	3.5-7.7			
1976	4.8	70	3.6-7.1	4.3	123	3.3-6.9	4.5	112	3.6-6.3			
1977	4.8	67	3.9-6.9	4.5	61	3.6-6.9	4.3	106	3.6-6.5	4.3	90	3.3-7.2
1978	4.8	75	3.6-4.8	4.2	79	3.5-7.2	4.3	69	3.4-6.1	4.2	95	3.5-7.5
1979	5.2	79	4.0-7.2				4.4	99	3.9-7.6	4.5	120	3.5-7.5
1980	4.9	76	3.6-8.2				4.4	122	3.4-6.8	4.5	113	3.3-7.8

表2 降水(0-1mm)のEC

年	千代田			調布			青梅			奥多摩		
	平均	測定数	最低-最高	平均	測定数	最低-最高	平均	測定数	最低-最高	平均	測定数	最低-最高
1975	120	72	10-510	98	90	11-580	73	99	2.3-450			
1976	82	74	88-200	84	125	4.3-830	55	73	4.1-170			
1977	83	67	16-250	89	62	9.8-200	62	106	4.9-250	37	91	2.2-200
1978	84	75	25-280	94	78	14-280	65	68	5.4-280	35	95	2.4-130
1979	92	79	21-670				44	99	3.4-310	35	120	2.5-310
1980	72	76	20-190				57	122	3.6-270	34	113	2.3-280

表3 降水(0-5mm)のpH

年	千代田			調布			青梅			奥多摩		
	平均	測定数	最低-最高	平均	測定数	最低-最高	平均	測定数	最低-最高	平均	測定数	最低-最高
1973	4.6	8	3.9-6.3	4.4	14	3.9-5.0	4.5	16	3.7-5.6			
1974	4.9	63	3.5-7.2	4.5	96	3.0-7.4	4.8	87	2.5-8.0			
1975	4.5	63	3.6-7.9	4.4	89	3.4-10	4.4	99	3.1-7.7			
1976	4.6	70	3.6-7.1	4.4	123	3.3-6.9	4.5	112	3.6-6.3			
1977	4.5	67	3.6-6.9	4.4	61	3.6-7.1	4.3	106	3.4-6.5	4.4	90	3.3-7.2
1978	4.4	75	3.3-9.2	4.2	79	3.4-7.2	4.2	69	3.3-6.2	4.3	95	3.5-7.4
1979	4.5	79	3.6-7.2				4.5	99	3.3-7.6	4.5	120	3.5-7.7
1980	4.7	76	3.6-8.2				4.5	122	3.4-6.8	4.5	113	3.3-7.8

1) '73, '74年は0~4.6mmを0~5.0mmとみなした。

表4 降水(0-5mm)のEC

年	千代田			調布			青梅			奥多摩		
	平均	測定数	最低-最高	平均	測定数	最低-最高	平均	測定数	最低-最高	平均	測定数	最低-最高
1973	69	8	5.5-125	37	14	12-62	41	16	12-130			
1974	57	63	7.4-192	40	96	7.0-660	51	87	3.6-330			
1975	69	72	12-510	62	90	3.0-580	44	99	2.3-490			
1976	48	74	9.2-200	40	125	2.6-830	35	73	3.8-170			
1977	49	67	5.3-250	54	62	5.0-200	40	106	1.3-250	25	91	1.7-200
1978	43	75	5.3-280	51	78	3.7-280	37	68	3.3-280	22	95	1.3-130
1979	49	79	5.1-670				30	99	2.8-310	23	120	1.6-310
1980	39	76	5.1-190				38	122	2.4-300	23	113	1.4-280

表5 降水(全量)のpH

年	千代田			青梅			奥多摩		
	平均	測定数	最低-最高	平均	測定数	最低-最高	平均	測定数	最低-最高
1978	4.3	75	3.3-9.2				4.5	95	3.5-7.4
1979	4.6	79	3.6-7.2	4.7	99	3.3-7.6	4.8	120	3.5-7.7
1980	4.8	76	3.6-8.2	4.7	122	3.4-6.8	4.7	113	3.3-7.8

1) 降水1mmより算出, 最低-最高も, 降水1mm単位の測定値より算出

表6 降水(全量)のEC

年	千代田			青梅			奥多摩		
	平均	測定数	最低-最高	平均	測定数	最低-最高	平均	測定数	最低-最高
1978	26	75	5.3-280				13	95	1.4-130
1979	32	79	4.8-670	22	99	2.8-310	12	120	1.6-310
1980	28	76	5.1-190	21	122	2.4-300	15	113	1.4-280

4.7, 奥多摩4.5-4.7であった。青梅は2年間のみであるが, 3年間についての各地点の平均値を求めると千代田4.5, 青梅4.7, 奥多摩4.7であった。このように全降水の場合は, (0-1mm), (0-5mm)降水と異なり, 千代田のpHが他地点と比較し, 同程度か少し低い値を示した。千代田は降水初期でpHは比較的高いが, 降水量の増加により, 他地点よりは低い値となる場合が多いと考えられる。これを(0-1mm), (0-5mm), 全降水の順に3年間の平均値で示すと, 千代田4.9→4.6→4.5, 青梅4.4→4.5→4.7, 奥多摩4.4→4.4→4.7であった。

全降水pHの最高値, 最低値とも(0-5mm)降水のそれらの値と一致した。このことは全地点とも(0-5mm)の降水初期にほとんどの場合低pHの降水となることを示している。

イ EC

表6から地点別のEC年平均値をみると3年とも千代田>青梅>奥多摩であり, 非常に明確な地点間差を示した。最低値も年平均値と同様の順位を明確に示した。

最高値は地点, 年ともにバラツキが大きく地点間差は不明確であった。

4 結果の考察

本報告での平均値の算出はすべて降水1mmあたりの算術平均である。降水成分の分布の解析から対数正規分布にもとづく幾何平均値を算出している例もある。¹³⁾

上記, 調査結果でふれた項目のうちいくつかについて検討した。

ア 降水量とpH, ECの関係

一般に降水中の成分濃度は降水初期に高く降水量の増加にともない減少する例が多いと報告されている。

^{9), 14), 15)} pHと降水量との関係を図1に示す。図1から千代田のpHは降水初期に高く, 降水量の増加とともに低下することがみとめられた。これを年別にみると'78年では(0-1mm), (0-5mm), 全降水とpHは順次低下したが, '79, '80年の場合は(0-5mm)降水でpHは最も低下し, 全降水でわずかに上昇した。青梅, 奥多摩では(0-1mm), (0-5mm), 全降水と降水量の増加にともないpHは上昇した。これらの結果から都心部の千代田はすでに筆者等が指摘したように⁹⁾, 降水初期において降水の酸性化を抑制するように作用する緩衝性物質が降水水中にとりこまれてくる場合が多いと考えられる。

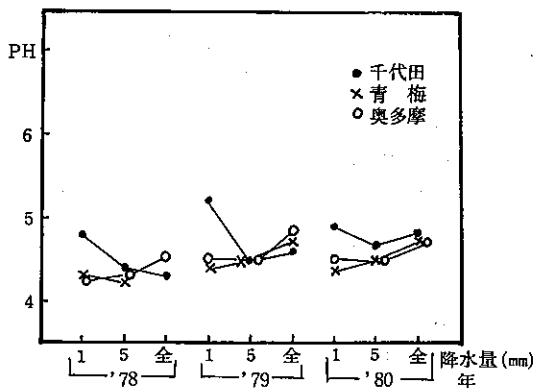


図1 降水量とpHの関係

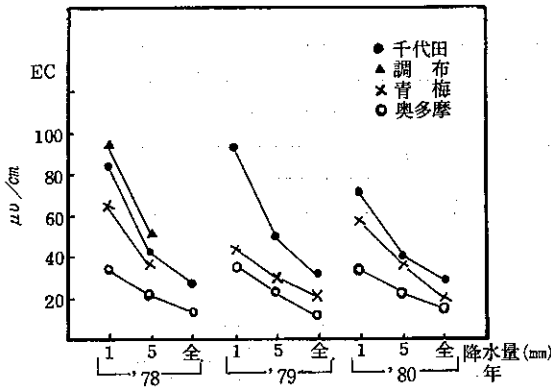


図2 降水量とECの関係

ECと降水量との関係を図2に示す。図2からECは3地点とも(0-1mm)降水の値が大きく、(0-5mm)、全降水と降水量の増加にともない減少する傾向を明確に示した。これを降水量の増加によるECの減少率としてみると都心部千代田の減少率が最も大きく、つぎに青梅、奥多摩の順位であった。このことから、都心部では降水のECに寄与する物質の降水による除去効果が大いと考えられる。さらに、千代田では(0-1mm)から(0-5mm)降水の間のECの減少率が(0-5mm)から全降水の減少率より大きいことがみとめられる。これは、千代田では降水初期においてECに關与する大気中の物質をより多く取り込んでくるためと考えられる。青梅も千代田と同様の傾向が認められるが、都心よりの距離が増加するのにともないこの傾向は減少した。とくに、奥多摩では降水量の増加にともない、ECは直線的に減少した。また、奥多摩では3か年とも降水量の増加にともなうECの減少率はほとんど同程度であることから、降水量に対するEC測定値をさらに得ることにより両者の関係を数式により示すことも可能であると考えられる。

ECに対しpHは大気中の酸性物質だけでなく塩基性物質も関係してくるため、ECの場合よりは複雑であると考えられる。

イ 水素イオン濃度[H⁺]とECとの関係

降水量別に[H⁺]とECとの関係を図3, 4, 5, に示した。図3, 4, 5中の直線(HCl)はHClの[H⁺]とECの関係を示す直線である。通常、降水のECは降水中のECに關与する物質がすべてHClのような酸ではなく、他の中性塩等も含んでいるため

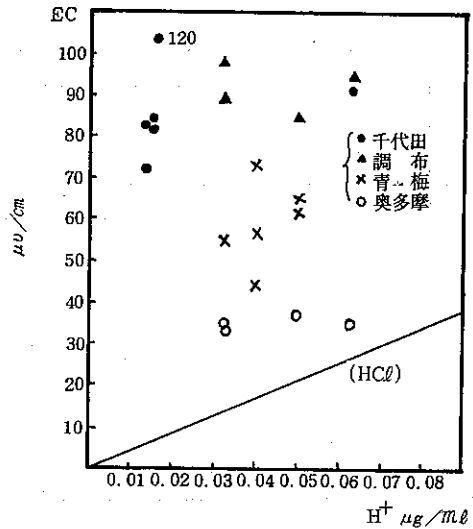


図3 H⁺とECとの関係

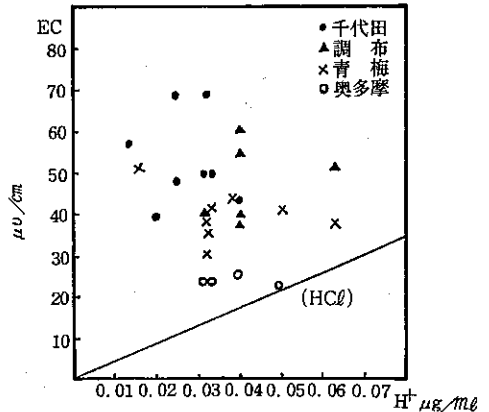


図4 H⁺とECとの関係 (0-5mm降水)

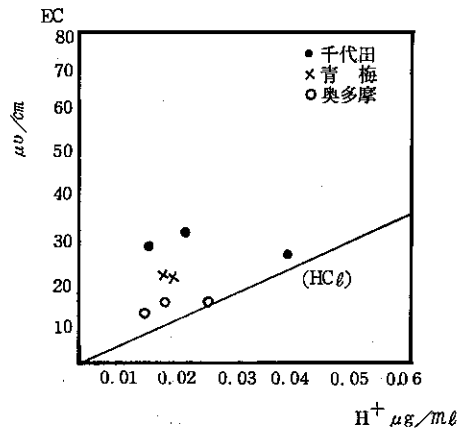


図5 H⁺とECとの関係 (降水全量)

に $[H^+]$ に対し HCl だけの場合よりも大きい EC を示す。図3から(0-1mm)の初期降水の EC は、直線 (HCl) より著しく高い値を示した。この傾向はとくに千代田で顕著であり、都心よりの距離が増すと直線 (HCl) に近づく傾向を明確に示した。千代田の EC が $[H^+]$ に対し著しく高いのは、千代田の初期(0-1mm)降水が $[H^+]$ に対し、著しく多量の中性塩等を含んでいるためと考えられる。図4は図3と同様に $[H^+]$ 、 EC の関係を(0-5mm)降水について示したものである。地点別の差異は図3(0-1mm)の場合より小さく、直線 (HCl) に近くなっている。

図5も図3と同様の関係を全降水について示したものであるが、この場合は図4よりもさらに直線 (HCl) に近づいた。図3、4、5から降水の $[H^+]$ と EC との関係は降水初期では全地点とも $[H^+]$ に対する EC は高く、降水量の増加にともない低下する傾向が明確であった。また、都心部のように人間活動量の大きい地点ほどこの傾向は顕著であった。このことから、初期降水の $[H^+]$ 、 EC は発生源付近でとくに大きな影響をうけると考えられる。

ウ H^+ 、電解質の降下量

降水の EC 測定値を KCl 量に換算し電解質量とした。降水による H^+ 電解質の年間降下量を図6、7に示す。図6から H^+ の年間降下量は '78、'79年では千代田が最も高い値を示したが '80年は奥多摩が最高であった。

H^+ 降下量を湿性降下物による降下量として求めた筆者等の以前の結果を示すと千代田 $3.6 [\times 10^{-3} g / m^2 \cdot 30日] > 青梅 2.2 > 奥多摩 1.3$ であり¹¹⁾、80年の奥多摩を除くと本報告で得た結果と地点間の順位値とも近い結果であった。

図7に示した電解質の降下量は地点間の差が明確であり、都心部の千代田が最も高い値を示し、つぎに、青梅、奥多摩の順位であった。これを H^+ の場合と同様に筆者等が求めた湿性降下物による降下量である千代田 $1.8 [g / m^2 \cdot 30日] > 青梅 1.4 > 奥多摩 0.67$ ¹¹⁾ と比較すると電解質量 $[g / m^2 \cdot 30日]$ 単位で千代田 $1.6 > 青梅 1.3 > 奥多摩 0.8$ となりよい対応が得られた。

このように降水中の電解質降下量は地点間差が明確であり、降水の汚染指標として用いることができる

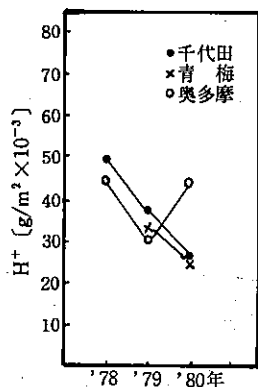


図6 H^+ 年間降水量

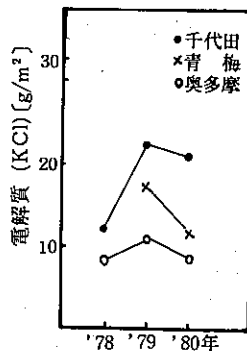


図7 電解質 (KCl) 年間降下量

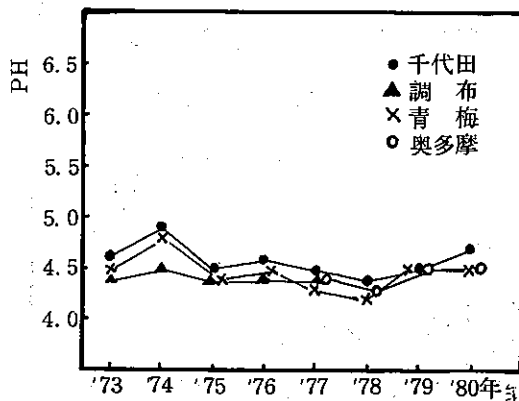


図8 0-5mm降水平均pH

考えられる。

エ 経年変化

pH、 EC の降水量別の経年変化は3. 結果ですでに記したが、ここではとくに傾向が明確である部分についてふれてみる。

図8、9、10、11に(0-5mm)降水のpH、 EC 年平均値の年別推移を示す。図8から(0-5mm)降水pHは各年とも4.5付近の値を示し、最近8年間ほぼ横ばいであったといえる。しかし、図9に示したようにpH最低値の年別推移をみると調布、青梅では'74年

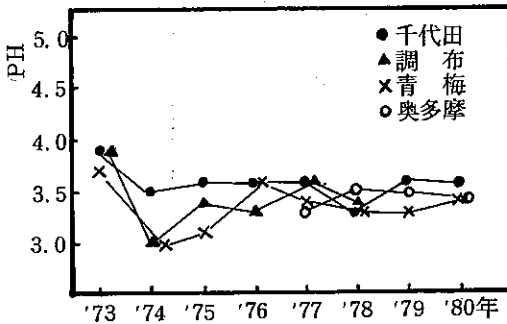


図9 0-5 mm降水 pH最低値

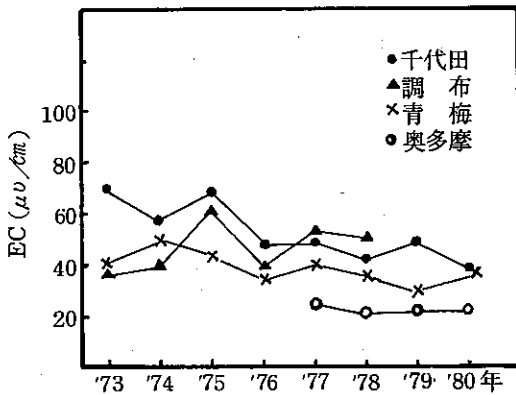


図10 0-5 mm降水平均EC

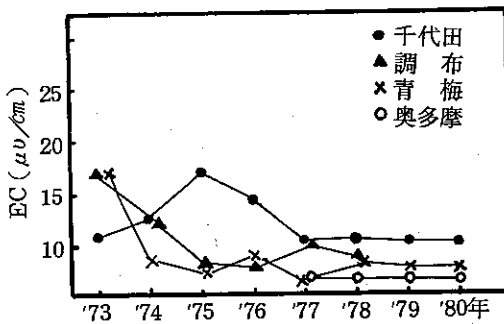


図11 0-5 mm降水EC最低値

から上昇している傾向であり、とくに、'76年以降は pH 3.0 付近の降水の pH の出現はみられなくなった。

図10のECの年別推移のうち、千代田についてみると千代田の(0-5 mm)降水ECは'73年より漸減し、ここ8年間で約2/3に減少した。青梅は千代田ほど明確ではないが漸減傾向であったといえる。

図11から(0-5 mm)降水のEC最低値の年別推移をみると、千代田、調布、青梅は明確に減少傾向を示した。奥多摩の最低値は他地点より非常に低い値であった。

以上みたように(0-5 mm)降水ECは、千代田、青梅で年平均値、最低値ともここ8年間では減少傾向を示したといえる。この減少傾向が気象によるか、発生源排出量の減少によるかについては検討を要する。

降水のpHはECの減少にもかかわらずほとんど変化はみとめられない。pHは降水中のECが低下したとしても酸性物質質量があまり変化しなければ、pHも変化しないように降水中のイオン物質のバランスによってきまるためとくに初期降水ではECの変化に対応した変化を示さないと考えられる。

5 ま と め

1973年から1980年の8年間の降水調査結果のうちpH、ECについて検討し、つぎのことが明らかになった。

降水全量の年平均pHは都内では明確な地点間の差はみとめられずpH 4.3~4.8の値を示した。ECは明確な地点間差を示し、千代田>青梅>奥多摩の順位であった。このようにECは付近の人間活動の影響が大きいと考えられる。

(0-5 mm)降水のpHの経年変化はほとんどみとめられず横ばい傾向であった。ECは千代田で減少傾向が大きく、青梅もまた減少傾向を示した。

降水量の増加と降水pHの関係は千代田では、降水初期(0-1 mm)に高い値を示し、降水中期(0-5 mm)に低下し、さらに降水量が増加すると上昇する傾向であった。青梅、奥多摩では降水量の増加にともない上昇し、降水初期に最も低い値を示した。

ECは降水初期に高く、降水量の増加にともない減少する傾向であった。

降水中の電解質量にしろるH⁺濃度の比率は初期降水よりも中-後期降水において高い傾向がみとめられた。また電解質量に対するH⁺量の比率は千代田<青梅<奥多摩であった。

降水によるH⁺降下量は0.024-0.049 g/m²・年であり、地点間の差異はみとめられず、都内全域に同程度のH⁺量の降下がみられた。

電解質(KClとして)の降下量は8-22 g/m²・年

あり、降水量の順位は千代田>青梅>奥多摩であった。

6 おわりに

降水中の他の成分については今後検討したい。本調査の降水採取に協力して頂いた沢田容子、木村アサ、坂村康国の各氏に謝意を表する。

参考文献

- 1) 吉田克己：酸性雨と朝顔，大気汚染ニュース，66 (1976)
- 2) 西禎二：雨水のpHよりみた大気汚染，大気汚染ニュース，64 (1971)
- 3) Likens, G. E., Butler, T. J. :Recent acidification of precipitation in North America. *Atmospheric Environment* 15, 1103 - 1109 (1981)
- 4) Mc Naughton, D. J. : Relationships between sulfate and nitrate ion concentrations and rainfall pH for use in modeling applications. *Atmospheric Environment* 15, 1075 - 1079 (1981)
- 5) Mc Fee, W. W., Kelly, J. M., Beck, R. H. : Acid precipitation effects on soil pH and base saturations of exchange sites. *Water, Air and Soil Pollution* 7, 401 - 408 (1977)
- 6) Dochinger, L. S., Seliga, T. A. : Acid precipitation and the forest ecosystem. *J. Air Poll. Controll Assoc.*, 25, 1103 - 1105 (1975)
- 7) Tamm, C. O. : Acid precipitation : Biological effects in soil and forest vegetation. *Ambio* 5, 235 - 238 (1976)
- 8) 古明地哲人, 沢田正, 大平俊男, 広沢和嘉, 門井守夫 : 雨水成分調査について 東京都公害研究所年報, 6, 104 - 112 (1975)
- 9) 古明地哲人, 福岡三郎, 中野欣嗣, 朝来野国彦, 大平俊男 : 雨水の汚染とそのメカニズムに関する研究 東京都公害研究所年報, 7, 27 - 37 (1976)
- 10) 関東地方公害対策推進本部大気汚染部会一都三県公害防止協議会 : 関東地方における“いわゆる酸性雨(湿性大気汚染)について”(1975)
- 11) 古明地哲人, 小山功, 渡辺のぶ子, 石黒辰吉 : 降水等降下物の地点別汚染特性 東京都公害研究所年報, 81 - 88 (1982)
- 12) Wilson J. W., Mohnen, V. A., Kadlecck, J. A. : Wet deposition variability as observed by MAP3S. *Atmospheric Environment* 16, 1667 - 1676 (1982)
- 13) The MAP 3 S / RAINE Research Community : The MAP 3 S / RAINE precipitation chemistry network : statistical overview for the period 1976 - 1980 *Atmospheric Environment* 16, 1603 - 1631 (1982)
- 14) 三宅泰雄 : 雨水の化学, 気象集誌II, 17, 20 - 37 (1939)
- 15) 玉置元則, 平木降年 : 神戸地域における雨水中の硝酸イオンと亜硝酸イオンの挙動, 日本化学会誌, 1169 - 1177 (1980)