

妙高山麓地域の降雪及び積雪中に含まれる主要化学成分

福崎 紀夫・大泉 毅・伊藤 保子

Major Chemical Constituents in Snowfall and Snowcover on the Piedmont of Mt. Myoko

Norio Fukuzaki, Tsuyoshi Ohizumi, Yasuko Ito

[Summary]

Snowfall and core samples of snowcover were collected from two different sites on the southeastern slope of Mt. Myoko in southwestern Niigata Prefecture. One sampling site was the top of Suginozawa Ski Grounds and the other, the foot of that Ski Grounds (Suginosawa). Conductivity, pH and major ions in the samples were measured. Precipitation-weighted mean of the concentrations of ions in the snowfall at Suginosawa were higher than that at the top. The total deposition of each ion at Suginosawa exceeded that at the top. The average concentration of each ion in newly fallen snow was lower than that in snowfall, possibly due to the runoff of ions from newly fallen snow by melting. Ion movement from upper to lower layers was confirmed in ion concentration profiles of snowcover collected four times. The nitrate to sulfate ratio, expressed as equivalents, was about 0.3 at both sites. Sulfate may thus possibly be largely responsible for the snow acidity in this region.

1 はじめに

本邦中部山岳地域には年間最大積雪量が3 mを超える地域もあり、世界でも有数の多雪地帯である^{1,2)}。このような地域では、積雪中に大量の化学成分が蓄積され、降雨や気温上昇とともに急激に融け出すと考えられる。その融け出し方は均一ではなく、融け始めの融雪水への成分流出が多い³⁻⁶⁾ため、河川水や湖沼水のpH低下による水生生物への影響が懸念されている⁷⁻⁹⁾。生態系への負荷を考える上で、年間を通じた酸性降下物量の把握は非常に重要なものであり、上述の理由から多雪地帯の積雪中に含まれる化学成分量の把握は特に欠かすことのできないものとなっている。しかし、本邦山岳地帯の多雪地帯における積雪中に含まれる化学成分量に関する報告はこれまでごくわずかであり、特に積雪最大期前後における化学成分量の蓄積過程に関する報告は見あたらない。また、山岳地帯において積雪が増加する時期にあっても、雪粒子が変態する過程や降雨にともない化学成分の上層

から下層への移動、さらにはその一部の流出も考えられる^{3, 10)}。しかし、これらについても試料採取上の困難さなどから本邦山岳地域における調査例は報告されていない。

ここでは、例年年間の最大積雪深が3 mを超える新潟県南西部の妙高山麓地域内の標高の異なる2地点において、積雪最大期に4回にわたって積雪を層別に採取するとともに降雪を採取し、それらの中に含まれる化学成分濃度の違いや含有量の変化・地点差などについて調査した結果を報告する。

2 方 法

2.1 試料採取地点

当調査における試料採取は、新潟県妙高高原町杉野沢地区内の2地点において実施した。試料採取地点をFig. 1に示す。第1の試料採取地点は、妙高山(標高2,446 m)の南東斜面に位置する妙高杉ノ原スキー場のゴンドラ山頂駅から、北西方向に約200 m離れた落葉樹林の開けた

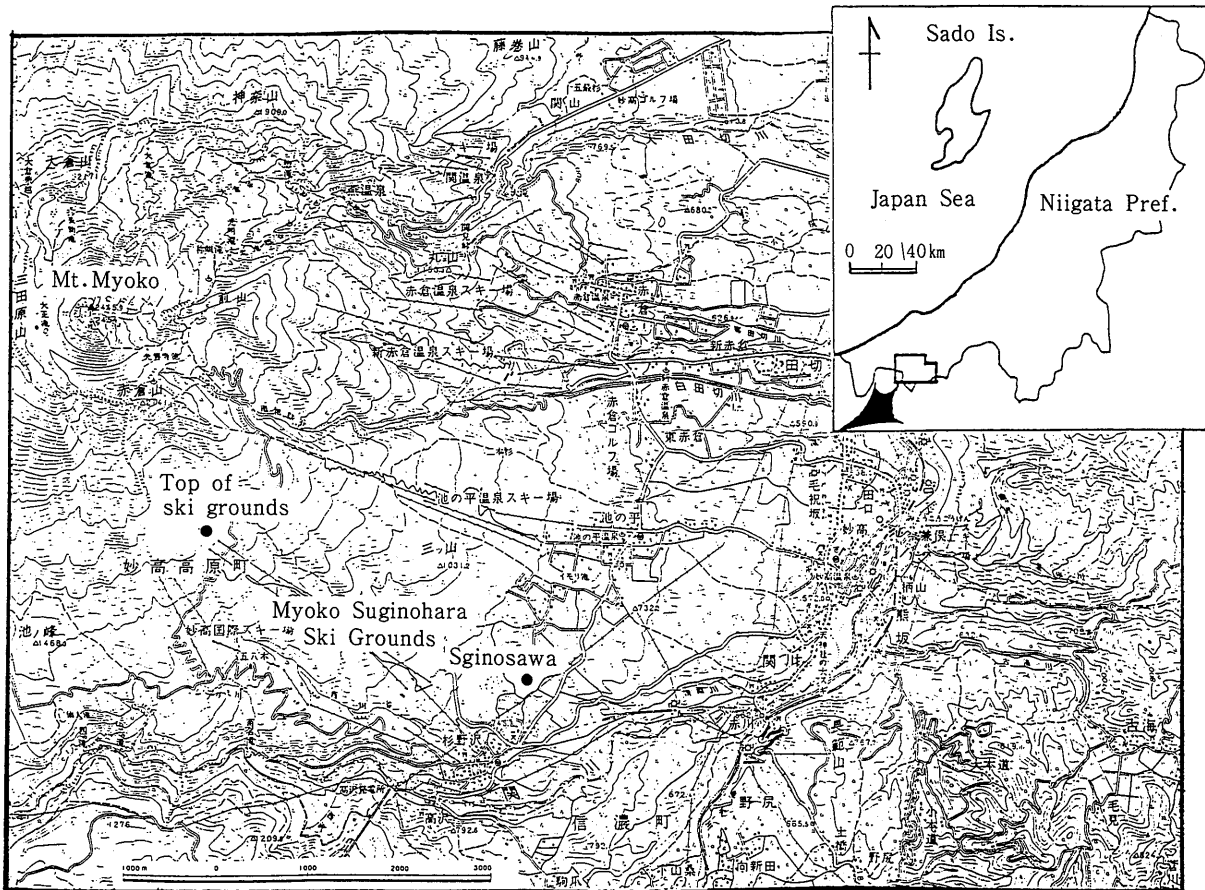


Fig.1 Sampling site location

地点（標高 1,490 m）である。以下、これを「山頂」という。第 2 の試料採取地点は、同ゴンドラ山頂駅から約 3 km 下った山麓駅より、さらに南東方向に約 1 km 下った地点（標高 735 m）であり、杉野沢集落から北西方向に約 500 m 離れた水田地帯である。以下、これを「杉野沢」という。

2.2 試料採取年月日

山頂における積雪試料の採取は、1993年1月30日（1回目）、2月9日（2回目）、2月24日（3回目）、3月9日（4回目）に、杉野沢における試料採取は1993年1月29日（1回目）、2月9日（2回目）、2月23日（3回目）、3月9日（4回目）に行った。降雪の採取は積雪採取の1回目に採取器材を設置し、2回目、3回目、4回目にそれまで貯ったものを採取した。なお、強風によるゴンドラの運休のため必ずしも両地点同一日に採取することはできなかった。

2.3 試料採取方法

2.3.1 降雪採取

片端を同直径の円盤で閉じた直径 20.2 cm、長さ 2 m の塩化ビニル製円筒を閉じた端を下にして、杉野沢では地面に、山頂では積雪中に杭等で固定した。この中に円筒よりもわずかに直径の大きい長さ 2.5 m のポリ袋を二重にして差込み、上端を外側に折り出した装置で降雪を採

取した。この装置を次回の調査日までの降雪で埋もれないように、2回目以降は約 1 m 以上雪面より出して設置した。調査期間中には降雨もあったが、ここでは上に述べた方法で採取した試料を「降雪」という。回収時、ポリ袋を円筒から抜き取り、さらに別のポリ袋に入れて持ち帰った。

2.3.2 積雪全層採取

まず 1 辺 1.5 m 程度の雪壕を地面まで掘り、この近くの雪面に、直径 7.7 cm、長さ 2 m の塩化ビニル製円筒を、積雪層に垂直に地面まで打ち込み付近の積雪を雪べらなどで排除して積雪全層を採取した。地面付近の積雪は取り除き、二重のポリ袋中に入れて持ち帰った。積雪が 2 m を超えるときは 2 回に分けて採取した。採取時、積雪深を測定した。

2.3.3 積雪層別採取

積雪全層採取と同様に、直径 20.2 cm、長さ 70 cm の塩化ビニル製円筒を積雪層に垂直に差込み、付近の積雪を雪べらなどで排除して採取し、二重のポリ袋中に入れて持ち帰った。採取時、積雪深を測定するとともに雪質を日本雪氷学会の積雪観測法¹¹⁾に従って観察した。1回目、2回目、3回目の採取の際、長さ約 1.5 m の蛍光色化学繊維テープを風によって吹き飛ばされないように、また設置以降の新雪によってこのテープが自由に沈むよう、

テープの両端を表面が平らな長さ約2 mの2本の棒の間にゆるく結んで積雪表面に置いた。次回の採取の際このテープより上層の積雪を「新規積雪」として区分して採取した。

2.3.4 測定・分析方法

採取した試料は、室温で融解しメスシリンダーで融解水量を測定後、約300 mlの水で洗浄した孔径0.8 μmのメンブランフィルターで速やかにろ過し、直ちに水温25℃でpHと導電率を測定した。このうち、他の項目の測定まで冷蔵保存した。得られた融解水量を採取器の断面積で除することによって降水量と同じ単位で降雪量(mm)を求めた。また同様な方法で、採取した積雪層の水量(以下、これを「積雪水量」¹¹⁾(mm)という。)を算出した。また、積雪水量を積雪深で除し、その積雪層の密度を求めた。測定・分析項目はpH、電導率(EC)及びSO₄²⁻、NO₃⁻、Cl⁻、Na⁺、K⁺、NH₄⁺、Ca²⁺、Mg²⁺である。これらの測定・分析方法及び分析値の信頼性の確保は酸性雨調査マニュアル¹²⁾に従った。なお、Na⁺の分析値を用いて海塩粒子由来分の補正を行った。非海塩粒子由来部分には、nss(non sea salt)の記号を付記して区別した。

3 調査結果及び考察

3.1 降雪

3回の降雪試料の降雪量で重み付けした平均濃度をTable 1に示す。降雪量は山頂で318 mm、杉野沢で292 mmと杉野沢でやや少ないものの大きな違いは見られなかった。しかし、K⁺及びnssCa²⁺を除く他の全ての成分は、山頂よりも杉野沢での濃度が高く、その降水量も多かった。pHは山頂で4.88、杉野沢で4.71と、杉野沢で約0.2低かった。このように、山頂よりも約760 m標高の低い杉野沢で、H⁺をはじめ各成分濃度が高かった原因として次の二つのことが考えられる。①地表面に発生源を持つ大気汚染物質や海面に発生源を持つ海塩粒子は、山頂

よりも標高の低い杉野沢で濃度が高く、降雨・降雪過程で雪の結晶または雨滴による取り込みは山頂よりも杉野沢で大きくなること。②大気汚染物質や海塩粒子の乾性降下の影響は山頂よりも杉野沢で大きくなること。一方nssCa²⁺の濃度及び降水量は山頂及び杉野沢で同程度であり、調査地点の近傍における発生源、例えば道路粉じんの影響¹³⁾などよりも、もっと広域的な影響が大きいと考えられる。後者としては、北西季節風による東アジア大陸の表層土壌などの長距離輸送¹⁴⁻¹⁷⁾が考えられる。またK⁺は杉野沢よりも山頂で高値を示したがこれは試料採取地点付近の樹木の影響¹⁸⁾と考えられる。

Table 1からわかるようにnssSO₄²⁻に対するNO₃⁻の当量濃度比は、両地点ともほぼ0.3程度の値であり酸性化にはnssSO₄²⁻の寄与が大きいものと考えられる。また、nssCa²⁺に対するNH₄⁺の当量濃度比は、両地点とも1以上の値であり、酸性化に寄与するイオン種の中和にはNH₄⁺の寄与が大きいものと推定される。この傾向は杉野沢で著しい。

3.2 積雪全層

積雪全層の積雪深、積雪水量、pH、EC及び各成分濃度の測定結果をTable 2に示す。

この地域では、例年2月20日前後に最大積雪深を示すが、今冬は調査期間内に最大積雪を示さず、少なくとも3月11日まで増加傾向を示した。山頂の積雪深は杉野沢の1.9~2.8倍、積雪水量は1.9~2.3倍程度の値を示した。前述したように降雪量には大きな違いは見られないことから、杉野沢では降雨もしくは気温の上昇にともなう融雪が多かったため、積雪深及び積雪水量が少なくなったものと考えられる。

pHは山頂で4.88~4.93、杉野沢で4.73~4.96と両地点ほぼ同程度であったが降雪と同様、杉野沢でやや低い傾向が見られた。採取試料毎のpHの変動は、杉野沢でやや大きい傾向が見られた。各成分の濃度は、山頂ではほぼ一定していたが、2月9日採取時の試料ではやや濃度

Table 1 Averaged ion concentrations in snowfall and total deposition

Site	Water eq. ¹⁾ mm	pH	EC μS/cm	Concentrations, mg/l												
				H ⁺	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	Na ⁺	K ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	NH ₄ ⁺	nssSO ₄	nssCa	NO ₃ ²⁾ nssSO ₄	NH ₄ ²⁾ nssCa
Top*	318	4.88	11.3	0.013	0.92	0.33	0.98	0.56	0.10	0.09	0.11	0.11	0.78	0.07	0.32	1.7
Suginosawa	292	4.71	15.8	0.019	1.46	0.49	1.30	0.77	0.06	0.10	0.17	0.20	1.27	0.07	0.30	3.1
				Depositions, mg/m ²												
Top*				4.2	291	103	312	177	31	30	36	34	248	22		
Suginosawa				5.6	428	142	380	226	18	29	51	58	371	20		

1) Total amount during the period, 2) Ratio of equivalent concentration

*: Top of ski grounds

Table 2 Snow depth, water equivalent, ion concentrations and stored amounts in total snow cover

Site	Date	Snow depth cm	Water Eq. mm	pH	EC $\mu\text{S/cm}$	H ⁺	SO ₄ ²⁻ -NO ₃ ⁻	Cl ⁻	Na ⁺	K ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	NH ₄ ⁺	nssSO ₄	nssCa	
Concentrations, mg/l																
Top of ski grounds																
	Jan. 30	170	443	4.89	12.9	0.013	0.88	0.30	1.31	0.73	0.05	0.08	0.15	0.08	0.70	0.05
	Feb. 9	189	528	4.88	12.0	0.013	0.84	0.29	1.09	0.63	0.05	0.06	0.13	0.08	0.68	0.04
	Feb. 24	224	677	4.93	11.2	0.012	0.90	0.29	1.33	0.73	0.06	0.07	0.14	0.10	0.72	0.04
	Mar. 11	238	761	4.91	11.7	0.012	0.96	0.30	1.21	0.67	0.05	0.07	0.19	0.10	0.79	0.04
Suginosawa																
	Jan. 29	87	193	4.80	14.5	0.016	1.00	0.44	1.53	0.83	0.05	0.07	0.17	0.12	0.79	0.04
	Feb. 9	101	258	4.85	15.0	0.014	1.07	0.33	1.56	0.85	0.08	0.07	0.17	0.13	0.86	0.04
	Feb. 23	81	314	4.73	13.0	0.019	0.87	0.34	1.24	0.69	0.04	0.05	0.13	0.13	0.70	0.02
	Mar. 11	108	400	4.96	9.5	0.011	0.74	0.25	0.91	0.49	0.03	0.04	0.11	0.10	0.62	0.02
Stored amounts, mg/m ²																
Top of ski grounds																
	Jan. 30	170	443	5.7	390	133	580	323	22	35	66	35	309	23		
	Feb. 9	189	528	7.0	443	153	575	333	26	32	69	42	360	19		
	Feb. 24	224	677	8.0	610	196	901	495	41	47	95	68	486	29		
	Mar. 11	238	761	9.4	731	228	921	510	38	53	145	76	603	34		
Suginosawa																
	Jan. 29	87	193	3.1	192	85	294	160	10	13	33	23	152	7		
	Feb. 9	101	258	3.6	276	85	403	219	21	18	44	34	221	10		
	Feb. 23	81	314	5.8	273	107	389	217	13	16	41	41	219	7		
	Mar. 11	108	400	4.4	296	100	364	196	12	16	44	40	247	9		

低下が見られた。杉野沢では融雪による影響と考えられる濃度減少傾向が2月23日、3月11日採取試料で見られた。

山頂と杉野沢における積雪全層中に含まれる化学成分量を比較すると、各成分とも、いずれの採取日でも積雪水量の多い山頂で多くなっていた。山頂では全成分とも積雪水量の増加にほぼ対応した含有量の増加が見られたのに対し、杉野沢では2月23日～3月11日で積雪水量は増加しているにもかかわらず、Na⁺、Cl⁻、NO₃⁻などでは上述の濃度低下に伴う含有量の低下が見られた。この時、nssSO₄²⁻では減少は見られないことから、融雪

に伴う成分の流出には成分差も考えられる。この点については今後の検討課題である。

3.3 新規積雪

新規積雪の積雪水量及び積雪水量で重み付けした各成分の平均濃度をpH、ECなどとともにTable 3に示す。

積雪水量は山頂で406mm、杉野沢で269mmと約1.5倍山頂で多かった。山頂の降雪量はTable 1に示すように318mmであり、新規積雪の積雪水量との差が大きい。この原因は明確ではないが、地吹雪などによる積雪の増加、もしくは山頂での風速は大きいことから今回用いた円筒型降雪採取器の捕集効率の低下¹⁾によるものではないかと

Table 3 Averaged concentrations and deposition of newly fallen snow

Site	Water eq. ¹⁾ (mm)	pH	EC ($\mu\text{S/cm}$)	H ⁺	SO ₄ ²⁻ -NO ₃ ⁻	Cl ⁻	Na ⁺	K ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	NH ₄ ⁺	nssSO ₄	nssCa	NO ₃ ²⁾	NH ₄ ²⁾	
Concentrations, mg/l																
Top*	406	5.00	9.6	0.010	0.71	0.22	0.95	0.52	0.03	0.06	0.10	0.08	0.58	0.04	0.29	2.2
Suginosawa	269	4.95	9.9	0.011	0.78	0.23	0.76	0.42	0.03	0.05	0.08	0.10	0.67	0.03	0.27	3.7
Depositions, mg/m ²																
Top*				4.1	290	89	386	210	14	24	33	237	16			
Suginosawa				3.0	210	63	205	113	9	12	23	28	181	8		

1) Total amount during the period, 2) Ratio of equivalent concentration

* : Top of ski grounds

考えられる。杉野沢の新規積雪は、降雪量（292 mm）よりも少なく、杉野沢では新規積雪においても融雪があったものと考えられる。

SO₄²⁻、NO₃⁻、NH₄⁺及びCa²⁺濃度を降雪の平均濃度（Table 1）と比較すると、山頂、杉野沢とも積雪の濃度が低く、かつその濃度差は杉野沢で大きい。両地点とも新雪からの化学成分の流出があったものと考えられるが、これは山頂よりも杉野沢の方が大きかったものと考えられる。なお、pHは両地点ともほぼ5.0で、降雪よりやや高い値であった。

nssSO₄²⁻に対するNO₃⁻の当量濃度比は、山頂、杉野沢でそれぞれ、0.29、0.27と降雪（山頂：0.32、杉野沢：0.30）よりやや低く、SO₄²⁻に対してNO₃⁻がやや流出しやすいようであるがその差は小さく、大きな違いはないものと考えられる。またnssCa²⁺に対するNH₄⁺の当量濃度比は、山頂、杉野沢、それぞれ、2.2及び3.7と降雪（それぞれ、1.7、3.1）よりやや高く、nssCa²⁺がNH₄⁺よりも相対的にやや流出しやすい成分のようであるがその差は小さく、流出に極端な差があるとはいえないものと考えられる。

3.4 積雪層別試料

3.4.1 密度

山頂及び杉野沢において採取した各積雪層の密度を積雪深及び雪質とともにFig.2に示す。長方形の面積がその積雪層内の降雪量を表し、鎖線で結んだ層はマーカーによる同一積雪層と考えられる積雪層を示す。

山頂における新雪の密度は0.1 g/cm³程度であるが、積雪が深くなるにしたがってしまり雪となり、密度は新雪よりも次第に大きくなり、積雪深が1 m以下では0.3~0.4 g/cm³、杉野沢のザラメ化した積雪では0.5 g/cm³前後となっている。なお、積雪の下層部のみでなく中間層にもザラメ雪が見られ、降雨などにもなう融雪があったものと考えられる。

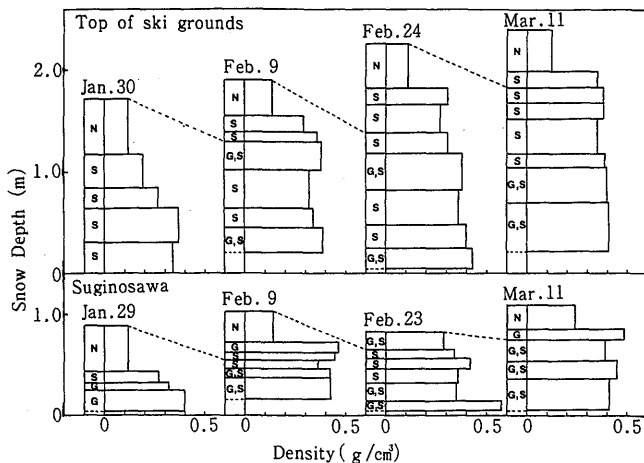


Fig.2 Densities of each snow layer
N : Newly fallen snow
S : Settled snow
G : Granulated snow

3.4.2 積雪層中のEC及び成分濃度の変化

各積雪層中のEC、SO₄²⁻及びNa⁺濃度を積雪水量及びその雪質とともにFig.3~Fig.5に示す。長方形の面積はその積雪層内の含有量などを表す。積雪水量は山頂では調査回数とともに増加が見られたのに対し、杉野沢では2回目と3回目ではほぼ同じ積雪水量となっており、この間の融雪量は大きかったものと考えられる。各試料採取時必ずしも同一層を採取していないことから、濃度変化過程の追跡にはやや明確さを欠くが、図示した各成分の濃度及びECの深さ別分布から、積雪表面などに見られた高値は次第に積雪層の下部に移行しているか、あるいは杉野沢では消失していることがわかる。このような含有成分の上層から下層への動きは、Colbekによる食塩微粒子を積雪コアの表面に散布したときの融雪実験²⁰やBalesらによるフィールドにおけるNaBr、HNO₃、KCl、K₂SO₄の添加実験²¹などでも報告されている。当調査における山頂のように、積雪深が増加しつつあって、本格的な融雪を迎える以前においても積雪層各で各

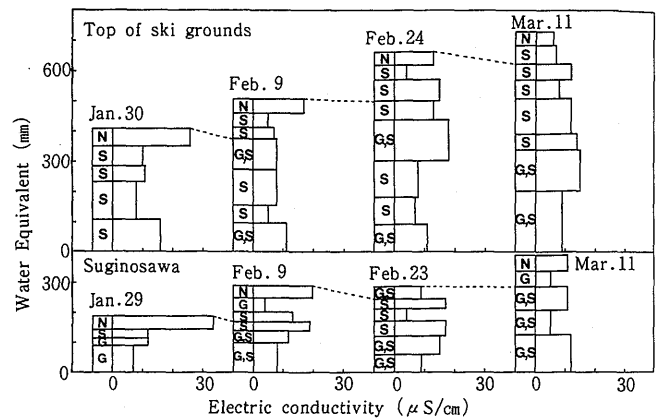


Fig.3 Electric conductivity of each snow layer
N : Newly fallen snow
S : Settled snow
G : Granulated snow

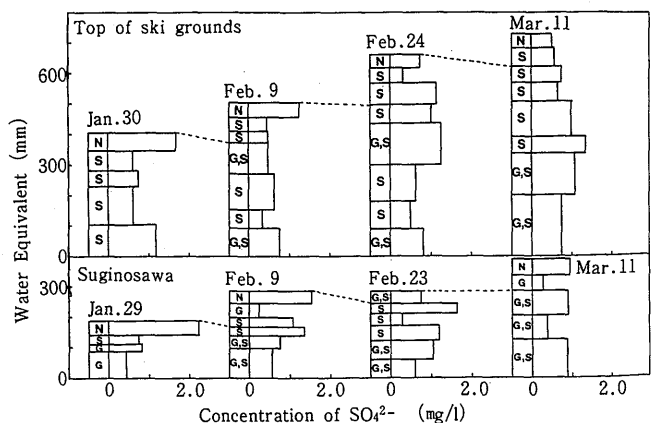


Fig.4 Concentration of SO₄²⁻ in each snow layer
N : Newly fallen snow
S : Settled snow
G : Granulated snow

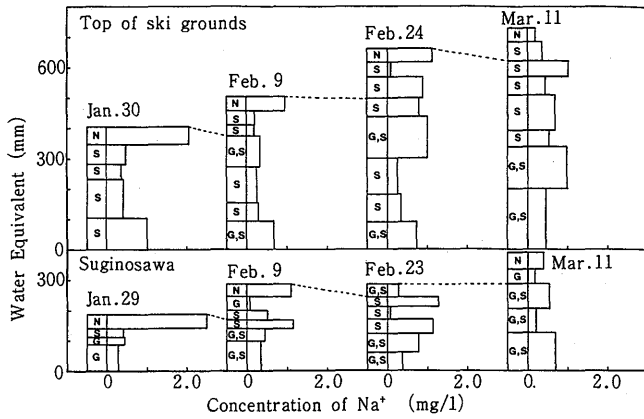


Fig.5 Concentration of Na⁺ in each snow layer
 N: Newly fallen snow
 S: Settled snow
 G: Granulated snow

イオン成分は降雨や積雪層内の雪粒子の変態等にもなる再結晶過程によって上層から下層に移行している^{3, 10, 20}ものと考えられる。

Table 4 にはマーカーで特定した新規積雪層より下の積雪層と前回調査した積雪全層中に含まれる成分量の差(2回目-1回目, 3回目-2回目, 4回目-3回目)を示した。

山頂では、積雪水量の減少の小さかった2月9日~2月24日(3回目-2回目)の期間におけるNa⁺, Cl⁻, SO₄²⁻等で増加が見られたが、他の期間では多くの場合

Table 4 Differences in observed ion amounts for two sampling times

	2nd-1st	3rd-2nd	4th-3rd
Top of the ski ground			
Water eq. (mm)	-27	-14	-41
SO ₄ ²⁻ (mg/m ²)	-160	106	2
NO ₃ ⁻ (mg/m ²)	-39	30	-22
Cl ⁻ (mg/m ²)	-358	215	-33
H ⁺ (mg/m ²)	-1	1	0
Na ⁺ (mg/m ²)	-183	103	-16
K ⁺ (mg/m ²)	-12	6	0
Ca ²⁺ (mg/m ²)	-16	11	-3
NH ₄ ⁺ (mg/m ²)	-19	11	0
Suginosawa			
Water eq. (mm)	-19	-43	-2
SO ₄ ²⁻ (mg/m ²)	-57	-15	-42
NO ₃ ⁻ (mg/m ²)	-24	-2	-23
Cl ⁻ (mg/m ²)	-143	39	-69
H ⁺ (mg/m ²)	-1	-1	0
Na ⁺ (mg/m ²)	-82	18	-37
K ⁺ (mg/m ²)	4	-7	-5
Ca ²⁺ (mg/m ²)	-3	-1	-5
NH ₄ ⁺ (mg/m ²)	-7	-1	-4

含有成分量の減少が見られた。2月9日~2月24日には新規降雪量が多く、前述したように新雪からも成分の流出が考えられることから、新規積雪からの流入が流出を上回ったためと考えられる。杉野沢ではほぼ全項目で減少がみられたが、2月9日~2月24日のNa⁺及びCl⁻では増加が見られた。この原因として2月9日以降、多量の新雪が降るまでの間での海塩粒子の乾性降下が考えられる。1月30日~2月9日のK⁺の増加は植物葉の混入の影響と考えられる。

4 ま と め

新潟県南西部・妙高山麓の南東斜面で標高の異なる2地点(杉ノ原スキー場の「山頂」及び山麓の「杉野沢」)において、4回にわたって積雪を全層及び層別に採取すると共に降雪を採取し主要化学成分を分析した結果、以下のことが判明した。

- 1) 降雪量で重み付けした降雪中の各種化学成分の平均濃度は、山頂より杉野沢での濃度が高く、それらの降水量も多かった。pHは、山頂で4.88, 杉野沢で4.71と、約0.2杉野沢で低かった。
- 2) 降雪及び積雪全層での、nssSO₄²⁻に対するNO₃⁻の当量濃度比は両地点ともほぼ0.3で、この地域における雪の酸性化にはSO₄²⁻の寄与が大きいものと考えられる。また、nssCa²⁺に対するNH₄⁺の当量濃度比は両地点とも1以上であり、中和にはNH₄⁺の寄与が大きいものと考えられる。
- 3) 積雪全層中に含まれる化学成分量は、山頂では時間の経過とともに含有量が増加したのに対し、杉野沢では融雪により含有量の低下が見られた。
- 4) 新規積雪中の各成分濃度は、両地点とも降雪よりも低く、その濃度差は杉野沢で大きいことから、新規積雪においても両地点とも化学成分の流出があったものと考えられる。
- 5) 積雪を層別に採取し、化学成分の分布を時間を追って調べたところ、積雪層内でイオン成分は上層から下層へ移行することが確認された。

本研究は、1992年度国立環境研究所委託業務「東アジアにおける酸性、酸化性物質の動態解明に関する研究」の一環として実施されたものである。

調査にあたりご協力いただきました妙高杉ノ原スキー場の方々に深謝致します。

文 献

- 1) 村松郁栄, 佐藤 滋, 梅林 正, 武田 徹, 加藤 明: 雪氷, 52, 1(1990).
- 2) 気象ハンドブック編集委員会: 気象ハンドブック, p.104(1984).
- 3) Suzuki K.: Jap. J. Limnol.: 43, 102(1982).

- 4) Cadle S. H., Dash J. M., Grossnickle N. E.,
Water Air Soil Pollut., **22**, 303 (1984).
- 5) Semkin G., Jeffries D.: Water Air Soil Pollut.,
31, 215 (1986).
- 6) Cadle S. H., Dasch J. M., Kopple R. V.: Envi-
ron. Sci. Technol., **21**, 295 (1987).
- 7) Hultberg H.: Water Air Soil Pollut., **7**, 279 (1977).
- 8) Johannessen M., Henriksen A.: Water Resour.
Res., **14**, 615 (1978).
- 9) ロス・ハワード, マイケル・パーレイ; 田村 明 (監
訳): “酸性雨”, p.20, (1987), 新躍社.
- 10) Tranter M., Brimblecombe P., Davies T. D.,
Vincent C. E., Abrahams P. W., Blackwood I.
: Atmos. Environ., **20**, 517 (1986).
- 11) 日本雪氷学会: 積雪観測法, 昭和40年1月.
- 12) 環境庁大気保全局: 酸性雨等調査マニュアル, 平成
2年3月.
- 13) 森山 登: 第33回大気汚染学会講演要旨集, p.238
(1992).
- 14) Tsunogai S., Fukuda K., Nakaya S.: J.
Meteor. Soc. Japan, **53**, 203 (1975).
- 15) Fukuda K., Tsunogai S.: Tellus, **XXVII**,
514 (1975).
- 16) 角皆静男, 品川高儀: 地球化学, **11**, 1 (1977).
- 17) Ichikuni M.: J. Geophys. Res., **83**(C12), 6249
(1978).
- 18) 竹内丑雄: 地球化学, **14**, 30 (1980).
- 19) Larson L. W., Peck E. L.: Water Resour.
Res., **10**, 857 (1974).
- 20) Colbeck S. C.: Water Resour. Res., **17**, 1383 (1981).
- 21) Bales R. C., Sommerfeld R. A., Kebler D. G.
: Atmos. Environ., **24**A, 2749 (1990).