

# 大気の沈着成分に対する降水洗浄係数の評価

中 村 圭 三\*・三 谷 雅 肆\*\*

## 要 旨

1997年から12年間、千葉県佐倉市において、 $\text{nss-SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{NH}_4^+$ 、 $\text{Na}^+$ 、および、 $\text{nss-Ca}^{2+}$ の降水洗浄係数を、降水開始直後におけるこれらの沈着質濃度の推移を解析することによって得た。これらの推移を時間ではなく、累積降水量と沈着質濃度の関係として求め、降水量の単位を有する洗浄係数 $\lambda$  ( $\text{mm}^{-1}$ )を得たが、これは、沈着質の濃度が急激に低下する降水初期の段階では、降水強度 $P$ に関係しないことが分かった。 $\lambda$ は、単位降水強度当たりの洗浄係数となるが、この $\lambda$ と $P$ から洗浄係数 $\Lambda$  ( $\text{s}^{-1}$ )を評価し、 $P$ の $0.1\sim 50 \text{ mm} \cdot \text{h}^{-1}$ で $10^{-5}\sim 10^{-2} \text{ s}^{-1}$ の値を得た。

$\Lambda$ は、暖候期と寒候期で有意の差を示すことはなかったが、層状雲と対流雲の間で明瞭な差異を示した。 $\Lambda$ は、 $P$ との間でほぼ1次の関係を示したが、このことは、降水初期の段階で特徴的なものと考えられ、その要因について検討した。

## 1. はじめに

土壌粒子や海塩粒子、酸性雨原因物質や放射性物質など、大気中に放出された多くの物質は、エアロゾルや気体として大気中を浮遊する。これらは乾性沈着のほか、降水による洗浄作用によって大気中から除去される(湿性沈着)。

この降水洗浄の速度に関して、速度定数、すなわち洗浄係数 $\Lambda$ が定義されるが、これは降水中において、大気中の沈着成分濃度 $C_g$ の時間 $t$ に関する変化、すなわち、洗浄速度がその成分濃度に比例するとして次式で定義される。

$$\frac{dC_g}{dt} = -\Lambda C_g \quad (1)$$

実測される濃度の変動速度には、その観測系での降

水洗浄のほか、化学反応による生成や消失、その観測系への沈着質の移流や拡散、地上で発生、排出された沈着質のその系への流入等による $C_g$ の変動も含まれる。式(1)の活用は、これらの過程が洗浄速度に比して無視しうることが前提となる。

$\Lambda$ を評価する方法には、雲中、雲下での微物理過程のシミュレーションのほか、実測する方法がある。この実測の方法には、洗浄過程における大気の沈着質濃度 $C_g$ と降水の沈着質濃度 $C_r$ 、ならびに降水強度 $P$ を観測し、例えば、降水試料を生んだ大気柱内の沈着質質量当たりの沈着量を評価して $\Lambda$ を求める方法(以下、方法1と記す)と、降水初期の $C_r$ の時間的変化を観測し、これを式(1)に活用して $\Lambda$ を求める方法(以下、方法2と記す)とがある。方法1では、観測中、沈着質濃度( $C_g$ ,  $C_r$ )の時間的変化が無視できる状態を仮定しているのに対して、方法2では、それらの濃度変動と洗浄速度の変化が観測対象となる。すなわち、両方法の観測条件は大きく異なる。

わが国では、方法1については、Okita *et al.* (1996)による日本海沿岸地域における冬季モンスーン下での硫酸塩に対する $\Lambda$ の測定、藤田・高橋

\* (連絡責著者) 敬愛大学国際学部。  
knakamura@u-keiai.ac.jp

\*\* 道都大学名誉教授。

—2015年4月24日受領—

—2016年8月31日受理—

(1990)の硫酸塩や藤田ほか(2010)の $\text{Na}^+$ に対する洗浄比の観測、福崎ほか(2005)や大原ほか(2013)の降水主要イオンに対する洗浄など、その実測例は比較的多い。方法2については、藤田ほか(1980)による硫酸塩などの大気汚染質に対する降水洗浄過程の観測やMinoura and Iwasaka(1997)による硫酸塩と硝酸塩に対する沈着過程の観測において $\Lambda$ が得られている。

方法1では、降水の沈着質濃度のほか、その大気濃度、そして洗浄過程の観測対象となる大気柱の高さの評価が必要となる。一方、方法2では式(1)の $C_g$ に代えて $C_r$ を採り、観測はこれと降水強度が主要なものとなって、比較的容易となる。また、方法2では、時間に代わって降水量の増加に伴う沈着質濃度の変化を求めれば、時間(s)の単位をもつ $\Lambda$ ( $\text{s}^{-1}$ )に代わって、降水量(mm)の単位をもったもう一つの洗浄係数 $\lambda$ ( $\text{mm}^{-1}$ )(Schumann *et al.* 1988)を評価することとなる。

$\Lambda$ ( $\text{s}^{-1}$ )は、一般に降水強度 $P$ ( $\text{mm} \cdot \text{h}^{-1}$ )に大きく依存し、次式で表されることが多い(Schumann *et al.* 1988; Jylha 1991; Okita *et al.* 1996; Andronache 2004; 藤田ほか 2010)。

$$\Lambda = a \cdot P^b \quad (2)$$

ここで、定数 $a$ や $b$ は経験的に決められることも多く、これらは、沈着質の溶解度や降水雲のタイプ、雨滴サイズの分布状態などに依存し、 $a$ は、 $1.0 \times 10^{-4} \sim 3.6 \times 10^{-4}$ ( $\Lambda$ ( $\text{h}^{-1}$ )で0.36~1.28)、 $b$ は、大略0.5~1.0(特に、後年0.64~0.78)の範囲にある(Andronache 2004)といわれる。

本研究では、酸性雨原因物質などの5種の大気沈着成分について、降水開始直後の沈着質濃度の時系列変化を活用する方法(方法2)により、 $\lambda$ 、あるいは $\Lambda$ を得ることを試みた。そして、その評価の妥当性を確認するために、方法1を用いた先行研究により得られた多くの結果と比較、検討した。併せて、特に $P$ との関係に注目して、得られた $\Lambda$ や $\lambda$ の特性を評価するとともに、 $\Lambda$ に及ぼす降水雲のタイプの影響についても調査した。

## 2. 降水洗浄係数

式(1)によって洗浄速度を表すとき、より直接的には降水の開始から、その初期段階における大気の沈着質濃度の追跡が望まれようが、間接的にはその降水の

沈着質濃度の時系列変化の観察によっても可能であり、それがより簡単といえる。

式(1)を時間 $t$ (s)に関して降水開始時 $t_0$ (=0)から $t$ まで積分すれば、 $C_g$ ( $\text{mg} \cdot \text{m}^{-3}$ )は、降水開始時の大気の沈着質濃度を $C_{g0}$ として次式で表される。

$$C_g = C_{g0} \cdot \exp(-\Lambda t) \quad (3)$$

ここで、 $t_0$ から $t_1$ までの累積降水試料の濃度を $C_{r0,1}$ ( $\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$ )、以下、その時間がすべて均等に $\Delta t$ きざみで増した $t_1$ から $t_2$ 、 $t_2$ から $t_3$ 、 $\dots$  $t_{n-1}$ から $t_n$ の各試料の濃度を、それぞれ、 $C_{r1,2}$ 、 $C_{r2,3}$ 、 $\dots$  $C_{r(n-1),n}$ とし、これらによって $\Lambda$ を表すことにする。

まず、 $\Delta t = (t_1 - t_0) = (t_2 - t_1) = (t_3 - t_2) = \dots = (t_n - t_{n-1})$ 。ここで、 $p$ ( $\text{mm} \cdot \text{s}^{-1}$ )= $P$ ( $\text{mm} \cdot \text{h}^{-1}$ )/3600( $\text{s} \cdot \text{h}^{-1}$ )を用い、これを一定とし、 $t_0$ から $t_1$ までの沈着量は、 $p \Delta t C_{r0,1}$ 、その $\Delta t$ 後の沈着量は、 $p \Delta t C_{r1,2}$ 、更にそれに続く沈着量は、それぞれ、降水の生ずる大気の体積、すなわち、試料採集器上部に想定される大気柱の体積を $V$ ( $\text{m}^3$ )、その断面積を $S$ ( $\text{m}^2$ )として、次式で表される。なお、 $V$ 内は完全混合にあり、 $C_g$ は、ここで一様とする。

$$p \Delta t C_{r0,1} = \frac{V}{S} C_{g0} [1 - \exp(-\Lambda \cdot \Delta t)] \quad (4)$$

$$p \Delta t C_{r1,2} = \frac{V}{S} C_{g0} \exp(-\Lambda \cdot \Delta t) \cdot [1 - \exp(-\Lambda \cdot \Delta t)] \quad (5)$$

$$p \Delta t C_{r2,3} = \frac{V}{S} C_{g0} \exp(-\Lambda \cdot \Delta t) \cdot \exp(-\Lambda \cdot \Delta t) \cdot [1 - \exp(-\Lambda \cdot \Delta t)] \quad (6)$$

.....

以上は、沈着質に関する大気と降水の間の収支式である。式(4)を式(5)で、また、式(5)を式(6)で、以下同様に順次除して次式を得る。

$$\Lambda = -\frac{\ln C_{r1,2} - \ln C_{r0,1}}{\Delta t} = -\frac{\ln C_{r2,3} - \ln C_{r1,2}}{\Delta t} = \dots \quad (7)$$

この各辺を $p$ で除したとき、長さの逆数の次元を持つもう一つの洗浄係数 $\lambda$ (Schumann *et al.* 1988)を得る。

$$\lambda = -\frac{\ln C_{r1,2} - \ln C_{r0,1}}{\Delta m_n} = -\frac{\ln C_{r2,3} - \ln C_{r1,2}}{\Delta m_n} = \dots \quad (8)$$

ここで、 $\Delta m_n$ は、一試料採取時間中の降水量 (=  $p \Delta t$ ) で、 $\Delta m_n = (m_1 - m_0) = (m_2 - m_1) = (m_3 - m_2) = \dots = (m_n - m_{n-1})$  である。 $m_n$ は、 $n$  番目の試料採取時点の累積降水量である。式(8)から、 $\ln C_{r(n-1),n}$  の  $m_n$  への回帰直線のこう配が  $\lambda$  となる。Schumann *et al.* (1988) は、洗浄係数に対して、 $A$  ( $s^{-1}$ ) より  $\lambda$  ( $mm^{-1}$ ) の使用を推奨している。

$\lambda$  は、式(1)の両辺を  $p$  で除したもう一つの速度式、次式で定義されることとなる。

$$\frac{dC_g}{dm} = -\lambda C_g \quad (9)$$

以上により、 $A$  は次式で得られ、これにより  $\lambda$  は単位降水強度当たりの洗浄係数であることがわかる。

$$A = \lambda \cdot p = \lambda \cdot \frac{P}{3600} \quad (10)$$

式(7)や式(8)は、 $\ln C_{r(n-1),n}$  が  $\Delta t$  や  $\Delta m_n$  と 1 次の関係にあることを示すが、Hameed and Sperber (1986) は、降水強度の安定な 1 回の降水について、 $C_{r0,1}$  と  $C_{r1,2}$  を式(7)の最初の項に適用して  $A$  を得ている。本研究では、できるだけ多くの  $C_{r(n-1),n}$  に式(7)、あるいは式(8)を適用することによって、 $A$  や  $\lambda$  を評価するのが観測値の精度の観点からより適当と考えた。

### 3. 観測、およびデータの整理

#### 3.1 観測の方法とデータの取り扱い

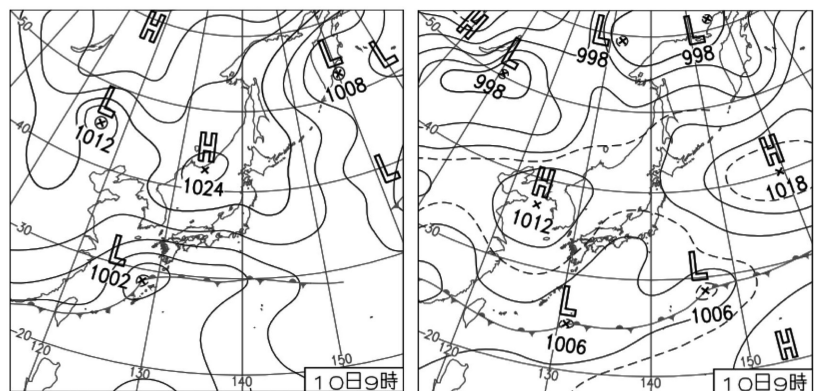
著者らは、先に一降水の開始から終了までの混合試料による降水イオン濃度の観測から、房総半島下総地方における酸性雨の特性を調査し報告した (中村・三谷 2012)。これはいわば、降水の洗浄能力の評価といえる。一方、降水洗浄の理解において、その速度も重要なものとなる。今回は、各降水の開始から降水量 1

mm きざみで 5 mm までの一連の時系列試料の pH、EC (電気伝導度)、および沈着質のイオン濃度 ( $H^+$ ,  $Na^+$ ,  $K^+$ ,  $NH_4^+$ ,  $Ca^{2+}$ ,  $Mg^{2+}$ ,  $Cl^-$ ,  $NO_3^-$ ,  $SO_4^{2-}$ ) を得て、特に、大気エアロゾルの降水洗浄過程における速度定数、すなわち、 $\lambda$  や  $A$  を評価した。観測は、1997年4月から2009年3月まで、千葉県佐倉市で行った。

試料の採取には、降水の有無に応じて自動開閉するサンプラー (小笠原計器製作所製・US300、採水口漏斗直径 350 mm) を使用した。試料の分析方法などは、前報 (中村・三谷 2012) のとおりである。また、口径 200 mm の転倒ます型雨量計 (ます容量 0.5 mm) により、10 分間降水量を観測し、特に、その試料採取中 (採取量 0 から 3 mm まで) の平均値をもって個々の降水試料に対する降水強度とした。この値は、先の式(4)、(5)、(6)、更に式(10)の  $p$  に対して適用できるものとした。

採水試料の分析結果の検証は、陽・陰イオンの当量バランス、および EC の実測値とイオンの分析結果からの計算値との比較によったが、いずれも前回同様の基準 (慶応義塾大学理工学部環境化学研究室 2003; 中村・三谷 2012)、すなわち、それらの比が共に 0.67 未満、あるいは 1.5 以上のものはデータとして採用しないこととした。

前記した沈着イオン種の内、 $Na^+$ ,  $NH_4^+$ ,  $Ca^{2+}$ ,  $NO_3^-$ ,  $SO_4^{2-}$  の 5 種について、洗浄係数の評価の対象としたが、 $Ca^{2+}$  と  $SO_4^{2-}$  については海塩起源と非海塩起源 (nss-を付記) とに分離評価した。ここで



(a)層状雲を推定  
(2008年5月10日9:00am)

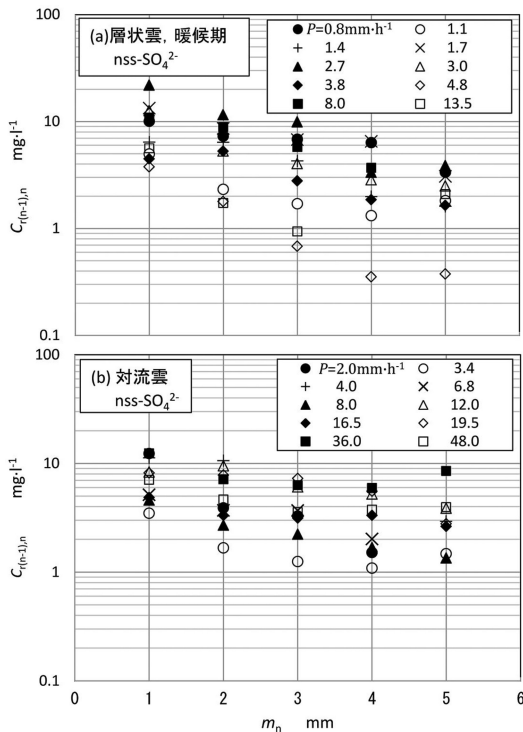
(b)対流雲を推定  
(2007年6月10日9:00am)

第1図 推定降水雲のタイプとその天気図。

Na<sup>+</sup>はすべて海塩起源とみなし、海水におけるNa<sup>+</sup>と他のイオン種との濃度の比を参照して評価する方法を採った。

洗浄過程を系統的に評価するため、観測した多数の降水を次のような大気条件をもとに区分することとした。まず、季節的条件として、暖候期（4月～9月）と寒候期（10月～3月）に分けた。また、観測地の気象概況と気象庁（2015a）提供の天気図をもとに、観測地の気象条件を次のように区分し、これをもとに降水雲のタイプを推定することとした。その際、降水日前後の天気図を参照し、気象条件の変化を参考とした。

- (A) 低気圧下、あるいはそれに近い状況にあるが、驟雨や雷雨等の比較的激しい降水が無く、温暖前線、または停滞前線があって、層状雲による降水が支配的と推定される気象環境。
- (B) 寒冷前線、または比較的激しい気象条件（驟雨、雷雨、台風等）のもとにあり、対流雲による降水が支配的と推定される気象環境。

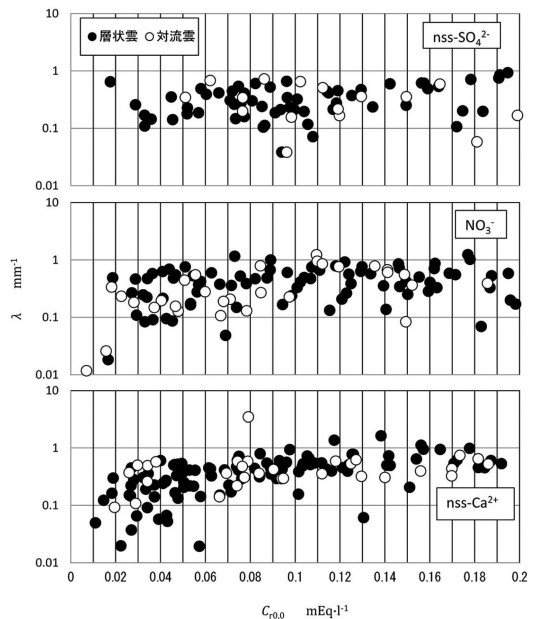


第2図 降水開始から降水1mmごとに採取した試料の成分濃度（種々の降水強度Pの下での推移）。

この(A), (B), 両気象条件に該当する気象庁（2015a）提供の天気図を、それぞれ第1図の(a)と(b)に例示した。(a)は(A), すなわち層状雲を想定した例で、日本海中部に高気圧があり、日本の南には前線が停滞、南関東から西は雨、佐倉では正午過ぎから翌日午前中にかけて、1mm・h<sup>-1</sup>前後の雨が続いた日のものである。一方、(b)は(B)の対流雲を想定した例で、日本列島上空には寒気が残り、大気は不安定となって、東日本の太平洋側は雷雨や激しい雨が有り、佐倉でも正午前後の3時間に18mm、最大降水強度24mm・h<sup>-1</sup>の強い雨をもたらしたものである。

降水試料の沈着質濃度の測定は、観測期間中の降水量が5mmを超える降水のほぼ半数、約300の降水について行った。それらの約56%、169の降水について得られた洗浄係数を洗浄過程に関する解析対象とした。以上の降水の季節毎の割合は、暖候期が65%、寒候期が35%であった。また、層状雲によると推定された降水が79%、対流雲によると推定されたものが21%であった。

以上のように、洗浄係数を得るに当たって多くの降水を対象外としたが、そのほとんどは降水初期段階において、沈着質の異常な流入や降水強度の著しい変動が考えられたことなどにより、一定のλが得られ難



第3図 降水開始時の推定濃度C<sub>0.0</sub>と観測洗浄係数λ（λの一定値に達するC<sub>0.0</sub>の要件）。



い状態, すなわち, 式(7), あるいは式(8)の適用ができない状態にあったと判断されたものである。具体的には, 降水量が3 mmに達するまでの $\ln C_{r(n-1),n}$ の $m_n$ への回帰直線の相関係数 $r$ が,  $-1.0 \leq r \leq -0.5$ を満たすことを条件としたが, この点綴で2点しか得られなかった場合は, この降水量の5 mmまでの関係についても同様の条件として, これを満たさないものを除外した。

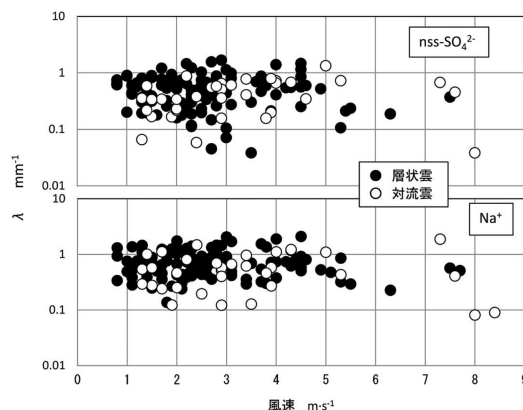
その除外された割合は, 層状雲下の $\text{nss-SO}_4^{2-}$ ,  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{NH}_4^+$ では, 暖候期で20~30%, 寒候期で15%であり,  $\text{Na}^+$ と $\text{Ca}^{2+}$ では季節を問わず10~20%であった。対流雲に関しては寒候期のデータが極度に少なく, この比較はしていない。降水雲のタイプに関しては, 対流雲のデータからはいずれの成分でも約15%が除外され, 層状雲からは $\text{Na}^+$ で11%である以外は20~25%が除外された。

そのほか, 後に記すが, 降水の沈着質初期濃度が低く, 降水洗浄係への沈着質の流入が相対的に無視できなくなったと判断された降水も除外した。

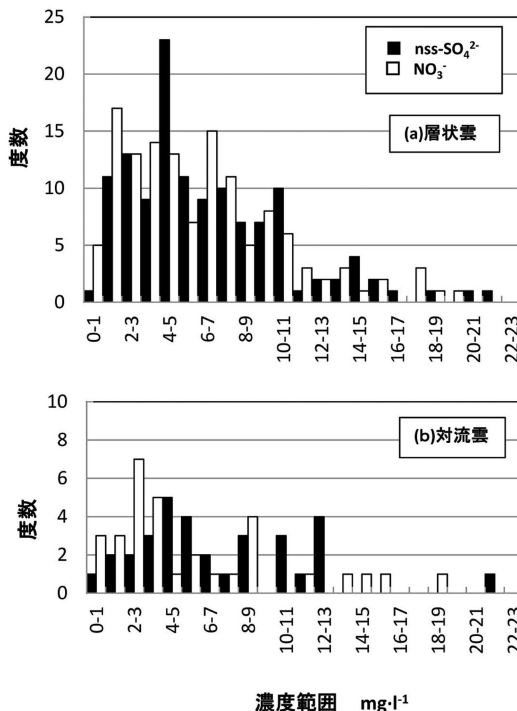
### 3.2 洗浄係数の評価

降水開始から降水量1 mmきざみで5 mmまでの試料を採取したが, 降水量が3 mmに達するまでの $\ln C_{r(n-1),n}$ 対 $m_n$ の直線関係, すなわち,  $\ln C_{r(n-1),n}$ の $m_n$ への回帰直線のこう配から $\lambda$ を得ることとした。第2図には,  $P$ の差異や想定される降水雲の違いを考慮して, 片対数紙上に $C_{r(n-1),n}$ と $m_n$ の関係を例示したが, その直線関係は極めて良好であった。なお,  $\ln C_{r(n-1),n}$ 対 $m_n$ の関係に関して,  $m_n$ を5 mmまで取った時の相関係数 $r$ は, すべての成分にわたり平均 $-0.85$ であり, 3 mmまででは, 3点すべての点綴がなされたものについて,  $-0.90$ であった。

式(1), あるいは式(9)は, その洗浄過程の観測対象となる大気への沈着質の流入速度が, 洗浄速度に比して無視できることが前提となる。しかしながら, 大気での沈着質濃度が低下し, これが相対的に無視できなくなると, その洗浄係数への影響が懸念される。ここで, この影響は, 降水開始時の降水の沈着質濃度 $C_{r0}$ と得られた $\lambda$ との関係を検証することによって確認できるものと考えた。この $C_{r0}$ は,  $\ln C_{r(n-1),n}$ 対 $m_n$ 関係における $m_n = 0$ への外挿値 $C_{r0,0}$ で近似できるとし, これと $\lambda$ との関係から, この $\lambda$ が一定値に収束したとみなせる $C_{r0,0}$ の値を見極め, その濃度以下の降水は,  $\lambda$ の評価の対象から除くこととした。具体的には, いずれの成分に対しても, それらのイオン種濃



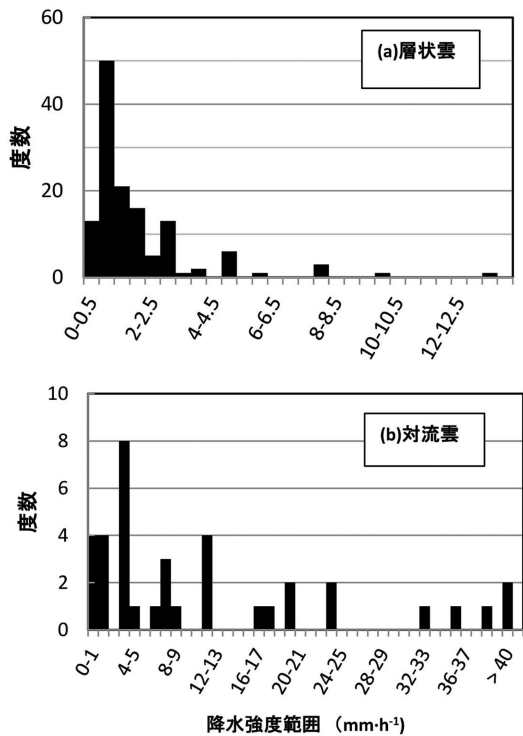
第4図 風速とその風速下で得られた $\lambda$  ( $\lambda$ への風速の影響)。



第5図 降水試料における沈着種濃度のヒストグラム (降水開始から1 mm累積試料について)。

度を等量濃度で表して,  $C_{r0,0} \geq 0.04 \text{ meq} \cdot \text{l}^{-1}$ で $\lambda$ を評価することとした。 $\lambda$ と $C_{r0,0}$ との関係については,  $\text{nss-SO}_4^{2-}$ ,  $\text{NO}_3^-$ , および $\text{nss-Ca}^{2+}$ を例にあげ第3図に示した。

降水過程における大気中の沈着質濃度の減衰が, 式



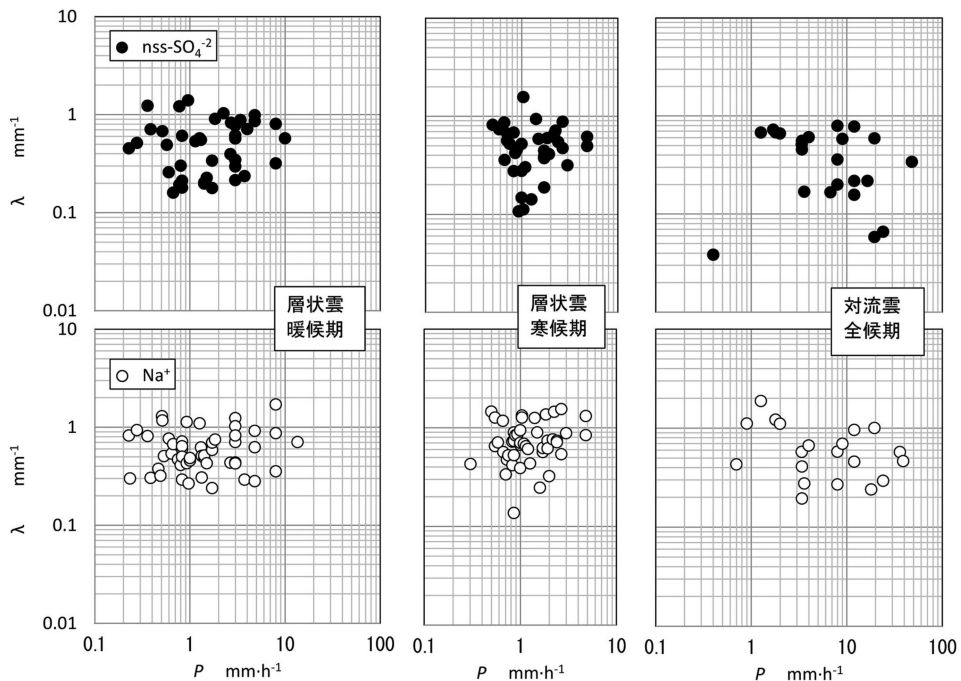
第6図 降水強度のヒストグラム。

(1), あるいは式(9)で表現されるには, その沈着質の大気中での分布がより均一であること, すなわち, 洗浄過程において, サンプラー上部の気柱部に正味の沈着質の出入りが無視できることも前提となるが, このことを確認するため,  $\lambda$  への風速の影響を検証した. その例を第4図に示す. ここで風速は, 気象庁(2015b)提供の地域気象観測所(佐倉)のデータを用いた. 成分によっては,  $\lambda$  の変動に若干の違いはあるが, いずれの成分についても  $\lambda$  の風速に関する傾向的な変化は認められなかった. このことにより,  $\lambda$ , あるいは  $\lambda$  に対する上記した沈着質の観測系への出入りの影響は無視できるものと判断した.

### 3.3 沈着イオン種濃度と降水強度の分布

観測した多数の降水において,  $C_{r(n-1),n}$  と  $P$  は広い範囲に分布した. 降水開始から累積降水量 1 mm きざみの試料の沈着種濃度  $C_{r(n-1),n}$  は, 観測時の気象条件のみならず, その成分の発生状況等によっても著しく影響されるものと推察される. ここで, 多数の試料を降水雲のタイプに分けて, それぞれの試料に関する各沈着質の濃度の広がり, すなわち, 特定濃度の出現頻度の分布を把握することとした.

第5図には, 降水開始から累積降水量が 1 mm に達



第7図 降水強度  $P$  と洗浄係数  $\lambda$  の関係。

する間の試料について、降水雲に層状雲と対流雲が想定された場合とに分けて、 $nss-SO_4^{2-}$ と $NO_3^-$ の $C_{r0.1}$ に関する分布を示した。他の試料についても概ね同様の分布が示された。また、 $P$ の分布も、想定された降水雲のタイプに分けて第6図に示した。

層状雲が想定されたもとの $C_{r(n-1),n}$ や $P$ の出現頻度の分布は、それらの低い値の段階で出現頻度は大きく、高い段階に入るにつれて徐々にその頻度は低下する傾向を示し、ほぼ対数正規分布の様相を示した。一方、対流雲が想定された場合は、データ数は充分ではなく、層状雲の場合ほど明瞭ではないが、類似の傾向にあるものと推察される。

#### 4. 観測結果と考察

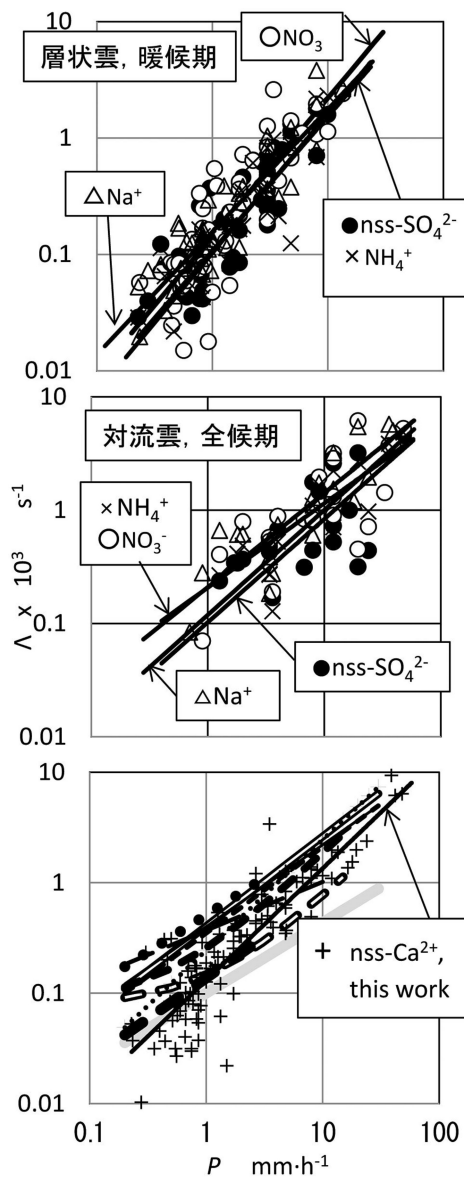
##### 4.1 洗浄係数と降水強度の関係

以上のようにして、想定された降水雲のもとで評価した $\lambda$ を $P$ との関係として第7図に例示した。データのばらつきが大きいものの、 $\lambda$ は、 $P$ とは無関係になることが示唆された。このことは、ここに示した成分以外についても同様であった。また、この関係に暖候期と寒候期の差は認められなかった。

各降水のもとで得た $\lambda$ から式(10)により $A$ を評価し、これを推定された降水雲ごとの $P$ 対 $A$ の関係として、第8図のように両対数紙上に示した。そこに示していないが、層状雲の寒候期についての $P$ 対 $A$ の関係もその暖候期の結果に重なり、対流雲と同様、層状雲についても寒・暖候期の差異は認められなかった。なお、寒候期に対流雲が想定された例が極めて少なかったこと、更に、層状雲のもとでの洗浄係数の寒・暖候期の差が無視できる程度であったことを考慮して、対流雲のもとでの寒・暖候期の区分は行わなかった。また、 $nss-Ca^{2+}$ については、この関係の寒・暖候期の差ばかりでなく、想定される降水雲のタイプの差も認められなかったので、第8図ではこれらの区分はしていない。全体として、 $A$ は、概ね $P$ との間に1次の関係にあり、 $P$ の $0.1 \sim 50 \text{ mm} \cdot \text{h}^{-1}$ で $10^{-5} \sim 10^{-2} \text{ s}^{-1}$ にあることがわかる。

想定された降水雲のもとで、寒・暖候期を問わずに降水全体で観測された $\lambda$ の平均値 $\lambda_{av}$ とその標準偏差 $\sigma$ 、更には第8図の関係を式(2)に適用した際の定数 $a$ と $b$ 、そして、この $\ln A - \ln P$ の相関係数 $r$ を、それぞれ、第1表に示した。

$\lambda_{av}$ は、各成分、各降水雲のタイプにわたって $0.4 \sim 0.7 \text{ mm}^{-1}$ にあり、データのばらつきは大きいも



- Scott(1982), warm cloud, aerosol
- ..... Scott(1982), cold cloud, aerosol
- Chang(1984), nitric acid vapor
- Schumann et al.(1988), aerosol
- Jylha(1991), radio active substance
- Okita et al.(1996), sulfate
- Minoura et al.(1997), sulfate
- Minoura et al.(1997), nitrate
- Andronache(2004), sulfate
- Fujita et al.(2010), sodium

第8図 降水強度 $P$ と洗浄係数 $A$ との関係(文献値を含む)。

第1表 各沈着成分の洗浄係数  $\lambda$ , 想定条件下での洗浄係数  $\Lambda$  に関する(2)の定数  $a$ ,  $b$ , 並びに  $\Lambda$  の  $P$  への回帰式, 式(12)の定数  $a'$ ,  $b'$ .

想定条件	成分	データ数	$\lambda$ (mm <sup>-1</sup> )		$\Lambda = aP^b$ (s <sup>-1</sup> )			$\Lambda = a'P + b'$ (s <sup>-1</sup> )		
			$\lambda_{av}$	$\sigma$	$a \times 10^4$	$b$	$r$	$a' \times 10^4$ (h <sup>-1</sup> mm <sup>-1</sup> s <sup>-1</sup> )	$b' \times 10^4$ (s <sup>-1</sup> )	$r$
層状雲	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	78	0.53	0.31	1.1	1.1	0.71	1.7	-0.3	0.87
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	93	0.67	0.43	1.4	1.2	0.83	1.8	0.3	0.80
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	72	0.53	0.30	1.2	1.2	0.80	1.9	-0.6	0.85
	nss-Ca <sup>2+</sup>	85	0.59	0.46	1.3	1.0	0.77	1.5	0.1	0.90
	Na <sup>+</sup>	98	0.70	0.34	1.7	1.1	0.87	2.3	-0.4	0.85
対流雲	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	23	0.42	0.25	1.0	0.9	0.75	0.8	1.6	0.75
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	22	0.55	0.37	2.1	0.7	0.76	0.8	4.8	0.68
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	19	0.44	0.24	1.2	0.9	0.86	1.0	1.1	0.92
	nss-Ca <sup>2+</sup>	24	0.67	0.66	1.8	0.9	0.91	1.5	0.2	0.88
	Na <sup>+</sup>	20	0.67	0.43	2.1	0.8	0.86	1.4	1.6	0.87

\*  $r$ ; 相関係数,  $\lambda_{av}$ ;  $\lambda$ の全季節での平均,  $\sigma$ ; 標準偏差,  $P$ ; (mm<sup>-1</sup>h<sup>-1</sup>)

の, 対流雲より層状雲のもとでの降水において, nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>では20~30%大きい値を示した. 一方,  $\Lambda$ については, これを  $P$  の累乗式, 式(2)で表したとき, 特にその定数  $b$  に関して, 成分間でも降水雲についてもほぼ1前後と大差はないが, いずれの成分についても対流雲では層状雲に比して, わずかに下回る傾向を示した. また, Minoura and Iwasaka (1997) が行ったように  $\Lambda$  の  $P$  への回帰式, すなわち, 次の式(11)を想定して得られた回帰定数  $a'$  と  $b'$ , および, その相関係数  $r$  を第1表の右側3列にまとめた.

$$\Lambda = a'P + b' \quad (11)$$

第8図には, 先行研究で報告された式(2)の結果も比較のために示した. 本研究で得られた  $\Lambda$  は, いずれの沈着質でも10<sup>-5</sup>~10<sup>-2</sup>s<sup>-1</sup>の範囲にあり, その値は, 概ね多くの先行研究の結果と類似する. しかし, 式(2)の  $b$  については, 必ずしもそうではない.

この  $b$  の値について, Scott (1982) は, 水溶性エアロゾルの洗浄に関してシミュレーションを行い, 雲領域の気温0°Cを境にして, それ以上では0.78, それ以下では1.0と評価し, Chang (1984) は, 硝酸蒸気の雲内洗浄のシミュレーションから, 2種の雨滴サイズの分布モデルに応じて, 0.74, および0.86を算出している.

$\Lambda$ の実測例は比較的多く, Schumann *et al.* (1988) は, 冬期スイス中央部, リギ山でのエアロゾルの降水洗浄の観測において, 得られたデータのかなりのばらつきの中から  $b=0.44$  を得, Jylha (1991) は, チェルノブイリ原子力発電所事故直後, フィンランドで行った放出放射性物質の降水洗浄効果の観測から0.64を, 日本では Okita *et al.* (1996) が, 冬期日本海沿岸域のSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>に対する洗浄比の観測から0.74を得た. また, Andronache (2004) は, 米国東部の9地点における硫酸塩エアロゾルに関する  $\Lambda$  の観測と理論的評価から, それぞれ,  $b=0.81$ , および0.78を, また, 藤田ほか (2010) は, 日本海沿岸地域でのNa<sup>+</sup>の洗浄比の観測から  $b=0.67$  を得ている. 以上のように,  $b$  は1.0に幾分満たない値が多い. これらの観測では, 時間変化を無視した  $C_g$ ,  $C_r$ , および  $P$  から, 大気中に存在する沈着質単位質量当たり, 地上に洗浄沈着される沈着質量から洗浄係数を評価する. それは, 本研究のような降水初期における急激な濃度変化を観測するものではない.

降水初期の  $C_r$  の時間的变化から  $\Lambda$  を求めた例は比較的小さいが, Minoura and Iwasaka (1997) の名古屋市郊外におけるSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>とNO<sub>3</sub><sup>-</sup>の洗浄過程の観測があり, 式(11)のような回帰式を得ている. そこで得られた式の右辺第2項  $b'$  は, 第1項に比して無視できる程度であり, このとき, この回帰式は,  $b=1$  の



ときの式(2)と一致することとなる。この観測方法と本研究のそれとを比較したとき、降水初期の沈着質の濃度変化が観測されている点で同じであり、得られた  $\Lambda$  と  $P$  の関係も類似する。以上のことから、式(2)の  $P$  の指数  $b$  は、降水洗浄の進行とともに変化することが示唆され、降水開始から降水の沈着質濃度が安定化する過程で、洗浄速度過程の変化が考えられる。

以上にもとづき、以後、ここでは  $b=1$  とした式(2)、あるいは、 $b'=0$  とした式(11)をもって  $\Lambda$  対  $P$  の関係を表すこととする。この関係について考察するにあたり、まず、成分ごとに得られた回帰直線、式(11)を第9図に示し、この  $\Lambda$  対  $P$  の1次の関係のこの配  $a'$  に関して、次の点に注目した。

まず、(1) 想定した降水雲に対する  $a'$  は、層状雲の場合、対流雲の場合に比べて約2倍になった。ただし、 $nss-Ca^{2+}$  の場合の  $a'$  には差異はなかった。(2) 対流雲のもとの  $a'$  は、 $nss-SO_4^{2-}$ 、 $NO_3^-$ 、および  $NH_4^+$  に対する場合と  $nss-Ca^{2+}$  と  $Na^+$  に対する場合とに二分され、後者の  $a'$  は、前者のその1.5~2倍であった。(3) 層状雲のもとの  $a'$  は、 $Na^+$  の場合と、その他の全ての成分の場合に二分され、 $Na^+$  の  $a'$  は、他の成分のものより20~60%高くなった。

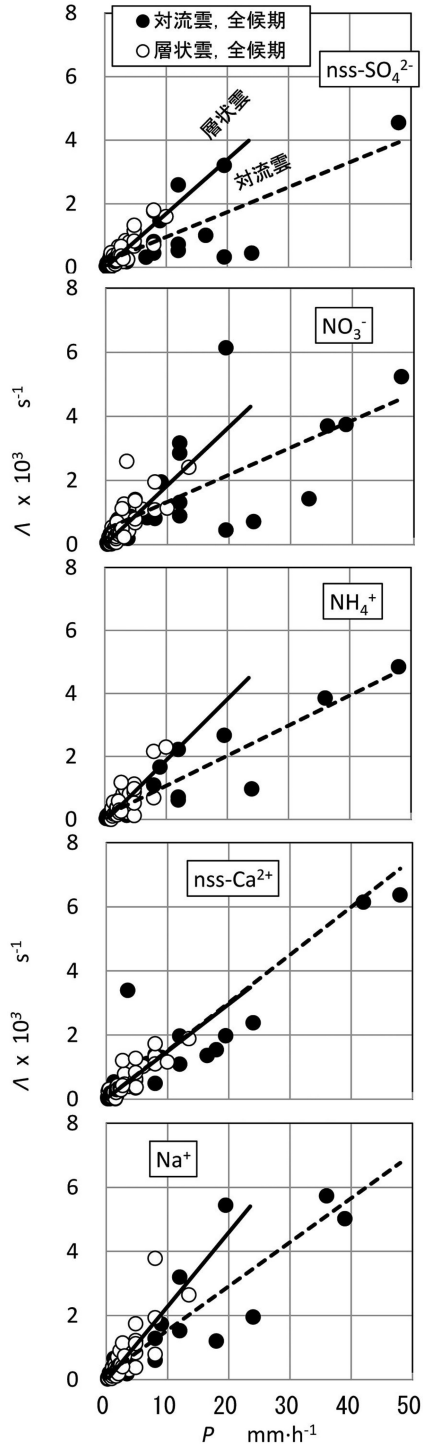
大まかにいって、洗浄速度は降水雲のタイプに依存する一方で、沈着質成分に影響されることは少なかった。ただし、 $nss-Ca^{2+}$  の場合、その沈着速度は降水雲には関係せず、また、 $Na^+$  と  $nss-Ca^{2+}$  については、いずれの降水雲に対しても、他の成分に比して若干大きい沈着速度を示した。

4.2 降水洗浄過程と洗浄係数

以上に記してきた  $\Lambda$  対  $P$  の関係について、まず、それが1次の関係を示した点について考える。沈着質の洗浄過程において、試料採集器上部に想定した大気柱の体積  $V$  における沈着質濃度が、均一な完全混合の状態にあるものと仮定する。このとき、大気  $V$  と降水との間で、沈着質に関する次の収支式が成り立つ。

$$\frac{dC_g}{dt} = -\frac{P}{3600} \frac{S}{V} C_r = -\frac{P}{3600} \frac{S}{V} K C_g \quad (12)$$

$K (=C_r/C_g)$  は洗浄比であり、これを一定と仮定すれば、この式と式(1)との比較から、 $\Lambda$  と  $P$  との1次の関係が成り立つ。しかしながら、沈着質がエアロゾルの場合、洗浄比は降水強度に依存し (Barrie 1985)、降水強度の異なる多くの降水にわたって、こ



第9図 各沈着成分の降水強度  $P$  と洗浄係数  $\Lambda$  との1次の関係。

の仮定は考えにくい。

ここで、本研究の結果が降水初期の  $C_r$  の急激な低下の段階のものであることに注目したい。この段階においては、雲粒は降水開始以前に高濃度の状態で沈着質を取り込んでおり、それは雲中大気（雲粒間隙）にある沈着質粒子数に比して著しく密度は高く、結局この段階では、大気から雲粒や雨滴への沈着質の移動速度は、観測される洗浄速度に比して無視しうる程度と考えられる。

以上により、雲粒や雨滴は新たに沈着質を取り込みながらも、それは無視できる程度であり、その上で、体積が一定の状態にある雲粒全体から沈着質が洗浄される過程を想定した。

いま、 $V$  における雲粒全体の体積を  $V_c$ 、そこでの沈着質濃度を  $C_c$  とすると、 $C_r = C_c$  と考えられるから  $V_c$  と降水との間での沈着質取支から次式が成り立つ。

$$\frac{dC_c}{dt} = \frac{dC_r}{dt} = -\frac{P}{3600} \frac{S}{V_c} C_r \quad (13)$$

これに対しても先の式(3)から式(8)への展開と同様に、観測される  $(\ln C_{r1,2} - \ln C_{r0,1}) / \Delta t$  ( $= \Lambda$ ) は、 $PS/3600 V_c$  となって、 $\Lambda$  と  $P$  の1次の関係が首肯される。以上のことは、降水開始が、他の地点で既に降水をもたらしている雲塊の観測点への移流によるものであっても、その雲粒の沈着質濃度が未だ充分に低下していない状態であれば同様である。

式(13)には、 $K$  などの沈着質の種類に関わる因子のないことから、この式は先に記した  $\text{nss-SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ 、および  $\text{NH}_4^+$  の間で洗浄速度に差異のないことと合致する。しかし、その一方で、これらの成分と  $\text{nss-Ca}^{2+}$  や  $\text{Na}^+$  との間での速度の差を説明できない。これについては次節で説明する。

以上の降水初期の洗浄過程において、降水濃度の低下がある程度、あるいは十分進んだ段階に入ると、降水の濃度低下は緩慢となり、このとき、沈着質の取り込みは相対的に無視できないものとなり、むしろ観測される洗浄速度の決定に直接関係することになると考えられる。すなわち、この段階に入ると、式(12)の  $K$  が  $\Lambda$  の決定に直接関係することとなる。なお、 $K$  は  $P$  の大略  $1/3$  乗に逆比例し (Barrie 1985)、このことと式(1)と式(12)から、式(2)の  $b$  は  $2/3$  となり、先に掲げた先行研究の値 (Andronache 2004) にほぼ一致することとなる。

以上のように降水の初期からその後の降水沈着質濃

度の安定な段階等、降水過程の段階によって洗浄速度の決定過程は変化し、それが  $\Lambda$  と  $P$  との関係に影響するものと考えられた。

#### 4.3 洗浄係数と降水雲の関係

洗浄速度が層状雲のもとで大きく、対流雲のもとでより小さくなった点は、Makhon'ko (1967) の示すこれらの降水雲のもとでの洗浄機構を考慮して説明を試みた。

降水の初期段階での沈着質濃度の低下に対して、二つの機構が考えられている。一つは、雲粒や雨滴に供給される水分によって沈着質が希釈されることによるもの、いま一つは、雲粒や雨滴が取り込んだ沈着質を降水として大気から排出する効果に加えて、大気への沈着質の補給の効果、両者が重なった結果によるものが考えられている (Makhon'ko 1967)。

対流雲のもとでは、雲粒は急速に上昇して成長し、落下速度の大きい降水となるため、その雲粒や雨滴による沈着質の取り込みは減少し、降水初期段階では雲中大気沈着質濃度はほぼ一定のレベルを保つ (Makhon'ko 1967)。この場合の沈着質濃度の低下は、主として上記の希釈の機構が主要なものとなり、この場合、先の式(13)が有効である。

他方、雲粒の広がりが大きく、その上昇が遅い層状雲のもとでは、特に降水初期の段階でこの雲粒に取り込まれた沈着質の大気からの排出が主なものとなり、その後の段階に入って、雲中大気への沈着質の新たな供給が無視できない形で降水洗浄が行われるという (Makhon'ko 1967)。すなわち、この場合もその初期段階では、式(13)が有効となる。

以上により、対流雲や層状雲のもとでの降水において、その初期段階では式(13)が有効となり、このことによって、第9図の  $\Lambda$  と  $P$  との1次の関係は前節のとおりである。しかし、この式中の  $V_c$  は、両降水雲の間で大きく異なり、その値は、雲領域の高さから推して、対流雲においてより大きいといえる。式(13)左辺の  $C_r$  の係数が  $\Lambda$  に関係することから、両降水雲の  $V_c$  の差によって、それらの洗浄速度の差が生じ、第9図の結果に合致することとなる。

先に  $\ln C_{r(n-1),n}$  対  $m_n$  の関係から  $\lambda$  を求める際、その相関係数  $r$  が、 $-1.0 \leq r \leq -0.5$  を満たしていない降水データを除外し、その除外の割合が対流雲の場合より層状雲の下で若干高かったことを示した。雲中大気への沈着質の流入が洗浄速度の決定に関して無視できなければ、 $\lambda$  の決定に式(1)の適用は出来ない。層

状雲のもとでの降水で、そのようなことがその初期に続く段階で生ずれば、そのことがデータ除外の原因になりかねない。両降水雲の間でデータ除外の差が著しいものであったわけではなく、この点の原因に関しては明らかではない。

#### 4.4 洗浄係数と沈着質成分の関係

nss-Ca<sup>2+</sup>の $\Lambda$ に降水雲のタイプの違いの効果が認められなかった点は、層状雲の雲中大気での雲粒によるこの成分の取り込みが緩速であったことを推測させる。すなわち、nss-Ca<sup>2+</sup>の原因物質として、土壌粒子や道路粉塵などが考えられるが、それらが粗大粒子であり(鶴田 1991)、また、比較的水に溶けにくいことから、これを核とする雲粒の生成は、他の沈着質に比して低かったことが推察される。一方、粗大粒子をなす海塩起源のNa<sup>+</sup>は、逆にその高い水溶性と、以下に記す雲下洗浄の効果によって、第9図にみられる高い洗浄速度が首肯される。

nss-Ca<sup>2+</sup>とNa<sup>+</sup>、およびnss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、それぞれのグループ内で、それらの成分間で洗浄速度に大差が無かった点を先に記した。すなわち、降水開始段階においては、式(13)にあるように、雲粒からの各成分の沈着が洗浄速度を決定していると考えられた。そして、降水濃度が低下し、安定な状態になると、式(12)が沈着過程を説明することとなり、その式中の $K$ への沈着質成分や粒子サイズの効果が反映されて、成分間に沈着速度の差異を生むことになると推察される。

一方、以上の両グループ間における速度の差は、本観測の降水初期の段階でも明らかに存在する。nss-Ca<sup>2+</sup>とNa<sup>+</sup>は、それぞれ、土壌粒子や海塩粒子が起源とされ、大気中で主に粗大粒子をなしているのに対して、nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、およびNH<sub>4</sub><sup>+</sup>の起源は、主として大気での反応の結果生じた二次粒子で、微小粒子として存在するとされる(植田 1990)。NO<sub>3</sub><sup>-</sup>やNH<sub>4</sub><sup>+</sup>は、硝酸ガスやアンモニアとしても存在するが、これらは発生後比較的早い段階で乾性沈着したり、二次粒子に変換される(植田 1990)ものと考えられる。例えば、粗大粒子の洗浄が雲下洗浄の形で降水初期に集中し、その成分の雲粒からの洗浄と重なって洗浄速度がより大きくなるのに対して、微小粒子での洗浄にはその効果はなく、その結果として両者間に洗浄速度の差が生じたものと推定される。

$\ln C_{r(n-1),n}$ 対 $m_n$ の関係から $\lambda$ を得る際、不適当として除外した降水データの割合に関して、nss-Ca<sup>2+</sup>

とNa<sup>+</sup>については、暖候期と寒候期の間でその割合に差異は無く、nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>については、暖候期で若干高くなったことを先に記した。このことに関しても沈着質のグループは二分されたが、そのデータ除外の要因を含め、その理由を明らかにすることはできなかった。

NO<sub>3</sub><sup>-</sup>は、環境要因によって硝酸ガスや硝酸塩の微小粒子、さらには粗大粒子に分配され、沈着機構はそれだけ複雑化しようが、その分配の比率は、気相や微小粒子状態の側に大きくなり(速水・藤田 2004)、nss-Ca<sup>2+</sup>やNa<sup>+</sup>とは異なる沈着過程をとるものと考えられる。また、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>が粗大粒子をとるとき、それは硝酸が粗大粒子上へ沈着することによるといわれる(植田 1990)。第9図のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>に関するデータのばらつきを考えると、このような特性をも考慮すべきであるといえる。

#### 5. おわりに

1997年から12年間、千葉県佐倉市において、大気沈着質、nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、Na<sup>+</sup>、nss-Ca<sup>2+</sup>の降水による洗浄速度を観測した。本研究では、降水開始から降水量1 mmごとの、連続3 mmまでの降水量に対する沈着質濃度 $C_{rn}$ の推移から、時間ではなく降水量の単位をもった洗浄係数 $\lambda$  (mm<sup>-1</sup>)を評価した。 $\lambda$ は、沈着質の濃度が急激に低下する降水初期の段階では、降水強度 $P$ に関係なく一定の値をとる傾向を示した。また、 $\lambda$ は、単位降水強度当たりの洗浄係数となることから、これより、一般的な速度定数としての洗浄係数 $\Lambda$  (s<sup>-1</sup>)を得た。

沈着質成分や推定された降水雲の条件により、多数の降水から得られた $\Lambda$ と $P$ の関係は、その良く知られた経験式、 $\Lambda = aP^b$ において、沈着質のいずれの成分についても、 $b$ はほぼ1となった。 $\Lambda$ は、 $P$ の0.1~50 mm・h<sup>-1</sup>で10<sup>-5</sup>~10<sup>-2</sup>s<sup>-1</sup>の範囲にあった。

寒候期と暖候期に分けた季節の違い、天気図から推測された降水雲のタイプ(層状雲と対流雲)の違い、それぞれによる $\Lambda$ への影響を検討した。 $\Lambda$ は、季節差に関して有意の差を示すことはなかったが、降水雲のタイプに関しては、nss-Ca<sup>2+</sup>の場合を除き明瞭な差異を示した。

$\Lambda$ が $P$ の1次の関係にあったことについては、沈着質の濃度が急激に低下する降水初期の段階で特徴的なものと考えられた。すなわち、この段階において、洗浄過程は、降水開始以前に既に沈着質の比較的高い

濃度にある雲粒が、水分をさらに獲得して雨滴となる過程と考えられた。そして、その降水濃度が低下し、安定化した段階になると、洗浄速度の決定過程は変化し、雲粒による雲中大気の沈着質の取り込みが無視できないものとなり、そのことが $\Lambda$ と $P$ との関係に影響することが推測された。

#### 参考文献

- Andronache, C., 2004: Estimates of sulfate aerosol wet scavenging coefficient for locations in the Eastern United States. *Atmos. Environ.*, **38**, 795-804.
- Barrie, L.A., 1985: Scavenging ratios, wet deposition, and in-cloud oxidation: An application to the oxides of sulphur and nitrogen. *J. Geophys. Res.*, **90**, 5789-5799.
- Chang, T.Y., 1984: Rain and snow scavenging of  $\text{HNO}_3$  vapor in the atmosphere. *Atmos. Environ.*, **18**, 191-197.
- 藤田慎一, 高橋 章, 1990: 九州北西海域における硫酸塩の洗浄比とその季節変化. *大気汚染学会誌*, **25**, 227-231.
- 藤田慎一, 寺田信之, 千秋鋭夫, 1980: 降雨による大気汚染質の洗浄作用(Ⅰ)—前線性降雨に伴う雨水組成の変動について—. *大気汚染学会誌*, **15**, 359-366.
- 藤田慎一, 岡村和幸, 三浦和彦, 高橋 章, 2010: ナトリウムの洗浄比—日本海の沿岸地域における観測データの解析. *エアロゾル研究*, **25**, 349-354.
- 福崎紀夫, 近藤聡美, 前田正人, 戸塚 績, 2005: 新潟県弥彦角田地域における降水中主要イオン種の洗浄比観測. *大気環境学会誌*, **40**, 250-259.
- Hameed, S. and K.R. Sperber, 1986: Estimates of the sulfate scavenging coefficient from sequential precipitation samples on Long Island. *Tellus*, **38B**, 118-126.
- 速水 洋, 藤田慎一, 2004: ディニューダ・フィルタバック法により測定した半揮発性無機イオン成分の濃度の実態とガス・粒子分配. *大気環境学会誌*, **39**, 77-88.
- Jylha, K., 1991: Empirical scavenging coefficients of radioactive substances released from Chernobyl. *Atmos. Environ.*, **25A**, 263-270.
- 慶應義塾大学理工学部環境化学研究室, 2003: 首都圏の酸性雨. 慶應義塾大学出版会, 東京, 25-28.
- 気象庁, 2015a: 各種データ資料. 日々の天気図, <http://www.data.jma.go.jp/fcd/yoho/hibiten/index.html> (2015.10.10閲覧).
- 気象庁, 2015b: 各種データ資料. 過去の気象データ検索, <http://www.data.jma.go.jp/obd/stats/etrn/index.php> (2015.10.10閲覧).
- Makhon'ko, K.P., 1967: Simplified theoretical notion of contaminant removal by precipitation from the atmosphere. *Tellus*, **19**, 467-476.
- Minoura, H. and Y. Iwasaka, 1997: Ion concentration changes observed in drizzling rains. *Atmos. Res.*, **45**, 165-182.
- 中村圭三, 三谷雅肆, 2012: 房総半島下総地方における酸性雨について—沈着の物理的・化学的過程, ならびに気象条件からの考察—. *天気*, **59**, 1053-1064.
- 大原 信, 藤田慎一, 杉本聡一郎, 高橋 章, 2013: 冬季の日本海沿岸地域における降水による粒子状物質の取り込み. *大気環境学会誌*, **48**, 74-81.
- Okita, T., H. Hara and N. Fukuzaki, 1996: Measurements of atmospheric  $\text{SO}_2$  and  $\text{SO}_4^{2-}$  and determination of the wet scavenging coefficient of sulfate aerosols for the winter monsoon season over the Sea of Japan. *Atmos. Environ.*, **30**, 3733-3739.
- Schumann, T., B. Zinder and A. Waldvogel, 1988: Aerosol and hydrometeor concentrations and their chemical composition during winter precipitation along a mountain slope - 1. Temporal evolution of the aerosol, microphysical and meteorological conditions. *Atmos. Environ.*, **22**, 1443-1459.
- Scott, B. C., 1982: Theoretical estimates of the scavenging coefficient for soluble aerosol particles as a function of precipitation type, rate and altitude. *Atmos. Environ.*, **16**, 1753-1762.
- 鶴田治雄, 1991: 黄砂と降水の化学組成. 大気水圏の科学—黄砂, 名古屋大学水圏科学研究所編, 古今書院, 268-279.
- 植田洋匡, 1990: 浮遊粒子状物質中の二次粒子の生成と大気中での挙動. *公害と対策*, **26**, 157-162.



## Estimates of Wet Scavenging Coefficients of Atmospheric Contaminants

Keizo NAKAMURA\* and Masashi MITANI\*\*

\* Faculty of International Studies, Keiai University, Anagawa 1-5-21, Inage-ku, Chiba, 263-8588, Japan.

\*\* Hiraoka 9-1-14-1, Kiyota-ku, Sapporo, 004-0879, Japan.

(Received 24 April 2015; Accepted 31 August 2016)

## Abstract

The wet scavenging coefficients of atmospheric contaminants,  $\text{nss-SO}_4^{2-}$ ,  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{NH}_4^+$ ,  $\text{Na}^+$  and  $\text{nss-Ca}^{2+}$ , are estimated from the temporal variations of the contaminant concentration of the precipitations observed for twelve years from 1997 at Sakura, Chiba Prefecture, Japan. These scavenging coefficients were obtained with respect to the cumulative amount of precipitation so that the scavenging coefficients  $\lambda$  have the unit of  $\text{mm}^{-1}$ .  $\lambda$  is observed to be independent of precipitation intensity  $P$  right after the onset of the precipitation. Investigating the scavenging coefficients  $\Lambda (\text{s}^{-1})$  estimated from  $\lambda$  and  $P$ , it is found that  $\Lambda$  for each component are of the order of  $10^{-5}$  to  $10^{-2} \text{ s}^{-1}$  under  $P$  of  $0.1$  to  $50 \text{ mm} \cdot \text{h}^{-1}$ .

Although  $\Lambda$  is expressed in first-order expression of  $P$  for each contaminant without respect to the seasons, the expression is explicitly affected by cloud types. The relation between  $\Lambda$  and  $P$  is interpreted with a simple model of the scavenging process.