降水・霧（雲）の酸性化・汚染機構に関する研究

小川 信明

Studies on the Acidification and Pollution Mechanism of Precipitation and Fog (Cloud)

Nobuaki OGAWA

Received April 23, 2002

In this article, I reviewed the reports on “acid fog or cloud” which have been recently published. Especially, the researches on the acidification and pollution mechanism were discussed, mainly based on our data. First, the sampling and measuring method of fog were mentioned. The diffusion growth model was suggested by analyzing the dependence of ion concentration on fog droplet sizes. The fog chemistry and meteorology were analyzed using a new factor analysis, which has been developed by our research group, and a 72h back trajectory at 850hPa. Finally, some interesting works were reviewed.

1 緒言

地球環境問題のうち、酸性雨は、1972年にストックホルムで国際人間環境会議が開催され、越境汚染が明確になって、各国間の政治・社会問題と考えられるようになり、国際的な課題となってきた。日本では、やはり、このころ、1973-1975年にかけて霧雨で、関東地方を中心に多くの人が目や皮膚に刺激を感じる事件が発生してから、問題視されはじめ、環境庁が1983年から第1, 2, 3次酸性雨対策調査¹⁾を行ってきた。この調査では、全国平均のpHは、4.8前後で推移しており、対策をとった現在の欧米の値とおおよそ同じである。しかし、この値は、純水に空気中の二酸化炭素(約350ppmv)が飽和したときのpH5.6を基準にすると、日本中で酸性雨が降っていることになり、安心はできない。また、酸性雨の直接の原因物質は、主に、雨水中の硫

酸と硝酸であり、さらに言うとその原因物質は、工場や車から排出されるSO₂やNO_xであることはよく知られている。そして、それらの日本での排出量は不況の影響もあってか、頭打ちである。それで、酸性雨や酸性霧の研究²⁾は一段落したような機運も一部にあるが、まだまだ、研究は行われている。というのは、中国や朝鮮半島のSO₂・NO_xの排出量は日本を上回っており、その影響が懸念され、地味な調査を続けることと、酸性化を防ぐ手だてを考えるために、未だに不明な点の多い降水の酸性化の機構に関する基礎研究の重要性が指摘されている。つまり、雨や雪の前段階として重要であり、また、降水より酸性度が高いと言われ、森林の衰退などの生態系に直接影響するとされる、霧（雲）を研究し、降水の酸性化機構を解明し、対策をこうじるための基礎データとして提供することが求められている。そんな中で昨年7月にカナダのセントジョーンズで第2回霧と霧捕集に関する国際会議が開催された。この国際会議の全体の概要の紹介³⁾は別の機会に譲るとして、ここでは、その中でも活発に議論された降水や霧（雲）滴の酸性化や汚染の機構及び、それらに関連する最近の研究を著者

秋田大学工学資源学部環境物質工学科（〒010-8502 秋田市手形学園町1-1） Department of Materials-Process Engineering & Applied Chemistry for Environments, Faculty of Engineering and Resource Science, Akita University (1-1, Tegata Gakuencho, Akita 010-8502, Japan)

Key words: Acid rain; Fog; Cloud; Ionic pollutants; Droplet size; Uptake mechanism

らのグループの研究を中心に紹介する。

2 霧の採集・分析方法

霧には、発生する場所に基づき、山霧、川霧、海霧、盆地霧、また、発生状況から、山肌を昇るように発生している滑昇霧、放射冷却の時に出る放射霧などの呼び名がある。それぞれ、実際発生しているものについて、厳密に区別することはできないが、雲であるのは滑昇霧（山霧のほとんどはこれ）である、また、天気予報などでは、地上（海拔 0m 付近）を基準にして、地上付近に発生するのが霧、上空にあるものを雲と言っている。しかし、山霧や滑昇霧については、学問的には、“fog”と“cloud”のどちらの用語も使われている。ここでは、雲（山霧の場合も）も霧と言うことにする。

霧は空気中に微水滴として存在するので、降水や降雪と採集方法は異なる。霧水の採集方法としては、風が強く、霧の流れがあるときには、テフロン細線（0.3mm 程度）を垂直にたくさん張った（テフロン細線式）スクリーンを霧の流れにさらし、慣性

衝突した霧滴を集めるパッシブ型が使い、盆地霧のように霧の流れがほとんど無い場合には、スクリーンの後ろからファンを用いて空気塊を吸引するアクティブ型霧水捕集器が使われる（Fig.1）。

霧の場合、粒径をはかることは、酸性化機構などを考える上で重要であり、これには、オイルを塗ったスライドガラス上に霧をあて、すぐに写真撮影し粒径をはかる方法⁴⁾、または、アクティブ型霧水捕集器の細線の径をかえたスクリーンを多段に並べたもの⁵⁾などが使われる。また、霧の成長過程やイオン濃度などを検討する上で重要な、霧（雲）水量（LWC [liquid water content]/g/m³、単位空気体積あたりの霧の水としての量）は、一本だけ張った風洞内の細線に単位時間霧を吸引しながら当てる方法などの雲水量計で測定される。集めた霧水のイオン組成（主に、H⁺、Na⁺、NH₄⁺、K⁺、Ca²⁺、Mg²⁺、Cl⁻、SO₄²⁻、NO₃⁻）や pH は、降水の場合と同様にイオンクロマトグラフィーと pH メータなどを用いて分析される⁵⁾

Fig.1 Fog water sampling by a passive and an active samplers with Teflon strings.

3 霧の発生

霧の化学を紹介する前に、霧の生成過程^{6,7)}を簡単に述べておく。まず、霧が主に水からできていることを疑う人はいない。しかし、霧ができるときに固体の結晶と同じように核（雲核、雲凝結核、CCN [cloud condensation nuclei]等と言われる）が必要であることは、一般にはあまり知られていない（純水の水蒸気だけしか空気中にない時には、相対湿度約 400% にならないと霧滴にならないのである。しかし、CCN があれば 100.2% 以下でも十分霧ができる^{6,7)}。この CCN として重要なのが成分として NaCl や $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ などを含むイオン性のエアロゾルである。つまり、吸湿性のイオン性 CCN に水蒸気が拡散凝結し雲粒が成長するのである (Fig.2)。これが、霧や降水のイオン組成として、これらのイオンが主になる理由である。

4 霧の粒径とイオン濃度

霧として観測されるのは、直径、数 μm から数十 μm のものであり、これ以上では霧雨や雨といわれ、雨では数 mm に達するものもある。これ以下では、霞やスモッグの部類にはいる。霧の粒径とイオン濃度に

ついては、近年、数多くの研究がなされてきている^{5,7-17)}。Pruppacher と Klett⁶⁾ 及び Ogren ら¹⁴⁾ は霧の成長過程をいくつかの段階に分けて、説明している (Fig. 3)⁹⁾。第一段階では、CCN が活性化（霧水滴ができて始めることを言う）後、水蒸気の拡散により、水滴が大きくなり濃度が下がる。第二段階で、イオンの取り込み速度が水蒸気の拡散速度より速くなり、濃度が上昇することが起きる。さらに第三段階では、霧（雨）粒同士の併合が起き、希釈されるとされている。近年明らかになってきたように、フィールドワークの研究では、霧が成長して粒径が大きくなるほどイオン濃度としては低くなる。つまり、まず CCN となるイオン性物質を取り込んで、成長途中ではあまりイオン性物質を取り込まないので、粒径が大きいほど濃度が低くなっている。一般に、粒径の大きい雨より霧の方が、イオン濃度が高いのはこのためである。これが、雨より霧の方が pH の低い場合が多く、生態系、特に植物に与える影響が大きいとされる理由でもある。著者らが、秋田八幡平 (Fig. 4) で観測した霧は第一段階のものであることが確認できた (Fig. 5)¹⁰⁾。

Fig.2 Diffusion growth model of fog droplet.

Fig.3 Conceptual model for the variation with droplet size of concentration in cloud/fog drops. Note that the radius scale is approximate and will vary from cloud/fog to cloud/fog.

Fig.4 Sampling sites in northern Japan. Fog samples were collected at the mountainside of Mt. Mokokodake. Rain water was sampled at Akita City, Onumaso Inn, Akita Univ. Snow science lab. and the mountain side of Mt. Mokokodake.

Fig.5 Plots of ion concentrations ($[ion]$) vs. the mean volume size ($\bar{D}$) of cloud droplets in westerly wind (from the Sea of Japan) during September 26-28, 1997. The straight line is the fitted curve obtained by the least squares method ($\log [ion] = a - b \log \bar{D}$) for each type of ion. The values in parentheses in the legend are $\log a$, the slope (b) and the correlation coefficient (r), respectively.

そして、CCN として以外、霧粒成長過程で、まったく、イオン性汚染物質を取り込まない場合、

$$\log[ion] = \log\{(w/M) \cdot N/(4/3\pi(D/2)^3 \cdot N)\} \\ = (-3)\log D + \log(w/M)$$

の式¹³⁾ (ここで、 w は一滴中のイオンの平均含有量、 M はイオンの式量、 N は採集

した霧粒の総数、 D は平均粒径) に従い、CCN としての取り込み以降、取り込みがないとすると、 (w/M) は定数なので、Fig. 5 の $\log$ - $\log$ プロットの傾きは、-3 になることを指摘し、これを、単純水希釈成長機構と名付けた。この図から、総イオン濃度としては、この関係に近い傾きを示しており、八幡平の霧全体としては、主にこの機構で

霧が成長することが示唆された。また、各イオン種で、傾きが異なるのは、成長過程での各イオン種の取り込み量が異なるためであり、 $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ などは、CCNとしての取り込みが主であるが、NaClなどの海塩粒子は、活性化後も盛んに取り込まれることを示すことにはじめて言及した^{10,12,13)}。ところで、八幡平では、前述の第二段階は観測されなかったことになる。しかし、Collet らのグループ⁹⁾は、カリフォルニアのサクラメント渓谷の放射霧について、 NO_2^- だけは、霧の粒径が大きいほど濃度が高くなる事を報告した。これについて、彼らが、霧粒への沈着速度を計算したところ、沈着速度は、 $\text{H}_2\text{O} > \text{NH}_4^+ > \text{SO}_4^{2-} > \text{NO}_3^-$ などの順になり、一般には、イオンより水蒸気の方が沈着速度は速いので、粒径が大きいほどイオン濃度は低くなる。しかし、霧粒への亜硝酸塩の沈着速度は、水蒸気のそれより速い、もしくは同程度であるため、亜硝酸イオンだけ粒径が大きくなるにつれ濃度が高くなったのであると説明された。この研究は、霧成長の第二段階をフィールドワークのデータとしてとらえたもので、今後、霧や雨の酸性化・反応機構を考える上で重要である。

5 降水・霧水中のイオン濃度と因子分析
統計学的手法である主成分分析や因子分

析が、酸性雨の解析に利用されてきた¹⁸⁻²²⁾。しかし、これらの研究では、たとえば、「第一主成分は、 Na^+ と Cl^- が主なので、海塩起源の汚染物質が重大に雨を汚染しているであろう」、などの定性的な議論しかできないのが現状であった。そこで、著者らは、酸性雨のイオン成分について定量的な解析ができるよう因子分析法を改良した²³⁻²⁶⁾。それは、制限斜交回転因子分析法といわれ、特徴は、1) 一つの因子は一つの汚染起源物質に対応する、2) 濃度に関する非負値条件を課した、3) ただし、 $[\text{H}^+]$ に関してだけ、負値を認め、 $\text{pH}7=0$ とし、負の値は $[\text{OH}^-]$ と考える、4) 寄与も全てゼロまたは、正の値をとる、5) 因子は、お互い数学的ベクトルとして、直交しているとは限らない、6) 因子の数は、個々の因子内のイオンバランスがとれていることを基準に考える、である。そして、定量的解析ができることを示したのが、Table1である²⁵⁾。つまり、秋田の降水に関して、第一因子は、そのイオン組成から見て海塩起源であるが、そのイオンごとの組成比を海塩自身の比と比べると、海塩そのものが降水に取り込まれていたことが定量的にわかる。また、内陸の湯沢市では、やや、変質して取り込まれていることも伺わせた。

Table 1 The relative major ion composition to chloride ion of the first factor for each data set compared with that for sea-salt $\{([ion] \text{ eq/L})/([\text{Cl}^-] \text{ eq/L})\}$

Data-set		Na^+	K^+	Mg^{2+}	Ca^{2+}	SO_4^{2-}
(I) Akita	1993/4~1995/3 (2years)	0.855	0.022	0.201	0.048	0.140
(II) Akita	1993,1994/4~12 (without winter)	0.858	0.023	0.206	0.052	0.138
(III) Akita	1994,1995/1~3 (winter)	0.849	0.019	0.196	0.046	0.111
(IV) Yuzawa	1994,1995/1~3 (winter)	0.824	0.019	0.195	0.050	0.080
Sea-salt*		0.858	0.019	0.194	0.038	0.103

*R. F. McAllister, E. F. Corcoran : “Chemical Oceanography”, in “Hand Book of Ocean and Underwater Engineering”, Ed. by J. J. Myers, p1~17 (1969), (McGraw-Hill, New York).

6 雲凝結核(CCN)の種類と霧の粒径

著者らのグループでは、前項で紹介した、因子分析法を用いて、八幡平の霧水のイオン組成について解析した^{11-13,27,28)} その結果、Fig. 6-a にあるように、主に、因子 A は、 $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ で、因子 B は海塩、因子 C は NH_4NO_3 のイオン組成を示している。また、サンプルごとの各因子の寄与率を時系列で並べたものが、Fig. 6-b であり、海塩因子は、秋田で北西の風が卓越するときに高くなることからわかる。さらに、同じデータで横軸に霧の粒径をとると(Fig. 6-c)、因子 A $\{(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4\}$ は、比較的小さい粒径で高い寄与を示し、一方、因子 B {海塩}では、比較的大きな粒径のところで寄与が高くなっている。このことは、「 $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ のよう

な比較的小さなエアロゾルが CCN になった場合は、比較的小さな霧粒を生成し、海塩のような大きな粒子は大きな霧粒を生成する。」という、教科書にも出てくる記述⁷⁾が、フィールドワークのデータから、はじめて明らかになった。さらに、この因子分析の結果と、850hPa 面（高層天気図）での 72h 後退流跡線（空気塊の移動経路）の解析結果を組み合わせたものが Fig.7 である。Fig. 7-a,b,c では、各因子 A,B,C で寄与の高かったイベントの後退流跡線を、実線で表し、寄与の低かったものを点線で表している。因子 A $\{(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4\}$ は、主に朝鮮半島や中国大陸からの空気塊が秋田に来るときに寄与が高く、因子 B {海塩}では、主に日本海からの時に寄与が高くなっている。

Fig.6 (a) Ion composition of each factor (A, B, C) obtained by the results of factor analysis; (b) The contribution of the factors of fog event; (c) Re-sorted (b) in the order of mean volume diameter of fog droplets. Horizontal broken lines (c) show the arithmetic mean value of contribution for three ranges ($10 \leq \bar{D} \leq 15 \mu\text{m}$, $15 \leq \bar{D} < 20 \mu\text{m}$ and $20 \leq \bar{D} < 25 \mu\text{m}$) of the mean volume diameter.

Fig.7 Comparison of the 72h back trajectory at 850hPa level with the results of the factor analysis for events under a westerly wind, (a): trajectories with higher and lower contributions for the Factor A, (b): for factor B, and (c): for Factor C, respectively. Thick solid lines: trajectories with higher contributions for each factor. Dotted lines: trajectories with lower contributions for each factor.

つまり、海塩の寄与は当然、日本海から空気塊が輸送されるときに高くなるが、硫酸塩の起源は、中国大陸または朝鮮半島にあることを示すもので、これまでの研究^{2,3)}

とよく一致する。そしてこの結果は、空気塊が、どの様な経路をとるかで、秋田の霧の汚染や酸性化の程度が予測できることを示したことになる。

7 その他の興味ある報告

霧に有機物が取り込まれていることはよく知られていることであるが、バクテリアや菌類も取り込まれている。霧や雪中の有機炭素(organic carbon, OC)または、全炭素(total carbon, TC)のうち 0.9-1.6%が、バクテリアや菌類であったという報告があり²⁹⁾、また別の研究によると過冷却雲粒 (0℃以下でも水滴の状態) 中でバクテリアは増殖し³⁰⁾、氷晶核 (極低温の雪の核) にもなれるとされている³¹⁾。このことを考えると、世界では、霧水を飲み水にしているところもあるので、その殺菌対策などが必要である。

著者らのグループでは、霧採集時に霧水に含まれていた不溶性成分を、荷電粒子励起 X 線発光(PIXE)分光分析法を用いて元素分析し、“黄砂”成分が含まれていることを明らかにした³²⁻³⁴⁾。

Kasahara らは、落下してくる霧の一粒のレプリカを、11-12%のニトロセルロースの collodion フィルムに作製し、走査型電子顕微鏡(SEM)をエネルギー分散型 X 線マイクロアナライザー(EDX), 荷電粒子励起 X 線発光(PIXE)分光分析法及びマイクロ-PIXE を一体化した装置で、霧 1 滴中の S, Ti, Ca, K について、2 次元元素マップを測定した研究を報告した^{35,26)}。その中で、硫黄の元素 (たぶん SO_4^{2-}) が、Ti, Ca, K などの土壤成分と一緒に霧粒に取り込まれている様子が、はっきりとらえられた。軽元素の水素、窒素、酸素が分析できないのが欠点ではあるが、今後、霧の生成・汚染機構を解明する上で、将来のこの分野の研究の発展が期待できる。

また、著者らは、降雪中の海塩濃度が、採集地点での地上風速の 2 乗に比例して増大することを明らかにし、降雪の海塩汚染度を、地上風速から予測できることを示した^{37,38)}。

著者が、今まで、電気化学をベースにして研究を続けてきた事に関連があるが、ここに記してきたように、霧粒は、一粒ずつが電解質溶液であり、当然、電気化学的系

である。その関連で、著者らのグループでは、酸性降水や霧水の正しい pH をはかる方法についても提案してきた^{39,40)}。電気化学の大きな一分野が、水銀滴電極、液滴電極、固体電極を用いて液・液また固・液界面での酸化還元やイオン移動反応を考える学問であるとする、霧の成長や汚染機構の研究は、気・液界面反応を知ることであり、霧化学は、気・液界面の汚染物質の移動や反応を考える学問といっても良いと思う。

8 まとめと今後の方向

本総説で述べたことは、1) 霧の捕集・分析方法、2) 霧の粒径が大きくなるとイオン濃度が下がるデータから単純水希釈成長機構の提案、3) 著者らの改良した因子分析法や後退流跡線解析を使うと、どのような気象条件で、どの程度霧や降水が汚染されるかが定量的に予測できる可能性がある、である。

今後、酸性雨の問題を理解し、その対策を立てるためには、降水や霧の酸性化・汚染機構をさらに詳細に議論することが必要であり、その為には、霧や降水のサンプリングと同時にエアロゾルや気体成分の取り込みをトータルに研究することが必要である。

本稿で紹介した著者らの論文は、梶川正弘教授 (秋田大学)、菊地良栄技官 (秋田大学)、尾関徹教授 (兵庫教育大学) や両大学の多くの学生との共同研究で生まれたものであり、ここに、諸氏に深く感謝する次第である。

文 献

- 1) 環境庁編, “平成 11 年度環境白書” (総説), 大蔵省印刷局, (1999).
- 2) 村野健太郎, “酸性雨と酸性霧”, 裳華房, (1993): 原宏, 気象研究ノート, **182**, 3 (1994).
- 3) 阿部康一, 小川信明, 大河内博, 梶川正

- 弘, 山本哲, 天気, **49**, 45 (2002).
- 4) T. Okita, *Tellus*, **13**, 509 (1961).
- 5) B. Demoz, J.L. Collett, Jr. and B.C. Daube, Jr., *Atmos. Res.*, **42**, 47 (1996).
- 6) 環境庁編, "酸性雨等調査マニュアル「改訂版」", 大蔵省印刷局, (1990).
- 7) H.R. Pruppacher and J.D. Klett, *Microphysics of Clouds and Precipitation*, Kluwer Academic Publisher, Dordrecht (1997).
- 8) J.H. Seinfeld and S.N. Pandis, *Atmospheric Chemistry and Physics - From Air Pollution to Climate Change*, Wiley, New York (1998).
- 9) K.F. Moore, D.E. Sherman, J.E. Reilly, M.P. Hannigan, T. Lee and J.L. Collet Jr., *Proceeding of 2nd International Conference on Fog and Fog Collection*, St. John's, Canada, pp.21-22 (2001).
- 10) N. Ogawa, R. Kikuchi, T. Okamura, T. Adzuhata, M. Kajikawa and T. Ozeki, *Atmos. Res.*, **51**, 77 (1999).
- 11) T. Adzuhata, T. Okamura, J. Inotsume, R. Kikuchi, T. Ozeki, M. Kajikawa and N. Ogawa, *Water, Air, and Soil Pollution*, **130**, 337 (2001).
- 12) T. Adzuhata, T. Okamura, J. Inotsume, R. Kikuchi, T. Ozeki, M. Kajikawa and N. Ogawa, *Anal. Sci.*, **56**, 71 (2001).
- 13) T. Adzuhata, T. Okamura, J. Inotsume, R. Kikuchi, T. Ozeki, M. Kajikawa and N. Ogawa, *Int. J. of The Soc. Mat. Eng. for Resources*, **9**, 23 (1999).
- 14) J.A. Ogren, K.J. Noone, A. Hallberg, J. Heitzenberg, D. Schell, A. Berner, I. Solly, C. Kruisz, G. Reishl, B.G. Arends and W. Worbrock, *Tellus*, **B44**, 570 (1992).
- 15) J.W. Munger, J. Collet Jr., B. Daube and M.R. Hoffmann, *Atmos. Environ.*, **23**, 2305 (1989).
- 16) F. Muller and G. Mauersberger, *Atmos. Res.*, **32**, 273 (1994).
- 17) C.S. Gurciullo and S.N. Pandis, *J. Geophys. Res.*, **102**(D8), 9375 (1997).
- 18) M. Matsumoto, N. Ueda and T. Itano, *J. Jpn. Soc. Air Pollut.*, **20**, 218 (1985).
- 19) R.J. Vong, H.-C. Hansson, H.B. Ross, D.S. Covert and R.J. Charlson, *J. Geophys. Res.*, **93**, 1625 (1988).
- 20) P. Zhang, N. Dudley, A.M. Ure and D. Littlejohn, *Anal. Chim. Acta*, **258**, 1 (1992).
- 21) D.F. Gatz, *Atmos. Environ.*, **18**, 1895 (1984).
- 22) C.J. Kessler, T.H. Porter, D. Firth, T.W. Sagera and M.W. Hemphill, *Atmos. Environ.*, **26A**, 1137 (1992).
- 23) T. Ozeki, K. Koide and T. Kimoto, *Environ. Sci. Technol.*, **29**, 1638 (1995).
- 24) T. Ozeki, K. Koide, N. Ogawa, T. Adzuhata, M. Kajikawa and T. Kimoto, *Anal. Sci.*, **13**, 169 (1997).
- 25) 小川信明, 菊地良栄, 後藤洋, 梶川正弘, 尾関徹, 分析化学, **47**, 503 (1998).
- 26) T. Ozeki, T. Okada, N. Ogawa and M. Kajikawa, *Anal. Sci.*, **17**(Suppl.), i457 (2001).
- 27) N. Ogawa, R. Kikuchi, T. Okamura, J. Inotsume, T. Adzuhata and T. Ozeki, M. Kajikawa, *Atmos. Res.*, **54**, 279 (2000).
- 28) T. Adzuhata, T. Okamura, J. Inotsume, R. Kikuchi, T. Ozeki, M. Kajikawa and N. Ogawa, *Proceeding of 2nd International Conference on Fog and Fog Collection*, St. John's, Canada, pp.25-28(2001).
- 29) H. Bauer, H. Giebl, A. Kasper-Giebl, M. Loflund, B. Schuster, F. Zibuschka, R.H. Hitzenberger, G. Reschl and H. Puxbaum: *Proceeding of 2nd International Conference on Fog and Fog Collection*, St. John's, Canada, pp.5-6 (2001).
- 30) B. Sattler, H. Puxbaum and R. Psenner, *Geophys. Res. Lett.*, **28**, 243 (2001).

- 31) H. Yanai, H. Tsumuki, H. Konno and T. Maeda, *Biosci. Biotech. Biochem.*, **60**, 1516 (1996).
- 32) N. Ogawa, R. Kikuchi, T. Okamura, M. Kajikawa, T. Adzuhata, Y. Iwata and T. Ozeki, *Int. J. of The Soc. Mat. Eng. for Resources*, **7**, 282 (1999).
- 33) R. Kikuchi, T. Adzuhata, T. Okamura, T. Ozeki, M. Kajikawa and N. Ogawa, *Int. J. of The Soc. Mat. Eng. for Resources*, **9**, 28 (1999).
- 34) R. Kikuchi, T. Adzuhata, T. Okamura, T. Ozeki, M. Kajikawa and N. Ogawa, *Proceeding of 2nd International Conference on Fog and Fog Collection*, St. John's, Canada, pp.105-108(2001).
- 35) C.-J. Ma, M. Kasahara, S. Tohno, T. Kamiya and T. Sakai, *Proceeding of 2nd International Conference on Fog and Fog Collection*, St. John's, Canada, pp.45-46 (2001).
- 36) C.-J. Ma, M. Kasahara, R. Holler and T. Kamiya, *Atmos. Environ.*, **35**, 2707 (2001).
- 37) T. Adzuhata, *Doctoral Dissertation*, Akita University, 130pp. (2002).
- 38) T. Adzuhata, S. Ishizuka, R. Kikuchi, T. Ozeki, M. Kajikawa and N. Ogawa, *Atmos. Environ.*, in submitted.
- 39) T. Ozeki, Y. Tsubosaka, S. Nakayama, N. Ogawa and T. Kimoto, *Anal. Sci.*, **14**, 749 (1998).
- 40) T. Ozeki, Y. Tanaka, M. Fukamizu and N. Ogawa, *Anal. Sci.*, **15**, 1159 (1999).