HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	手稲山におけるraint-out効果の観測
Author(s)	木村, 勉; 村上, 正隆; 遠藤, 辰雄
Citation	環境科学 : 北海道大学大学院環境科学研究科紀要, 4(2), 223-232
Issue Date	1982-03-25
Doc URL	http://hdl.handle.net/2115/37113
Type	bulletin (article)
File Information	4(2)_223-232.pdf

Instructions for use

Hokkaido University Collection of Scholarly and Academic Papers : HUSCAP

環境科学 (北海道大学)	4 (2)	223～232	1981・9月

手稲山における raint-out 効果の観測

木村 勉　村上正隆　遠藤辰雄
北海道大学大学院環境科学研究科気象学研究室

Observation of Rain-out effect on Mt. Teine

Tsutomu Kimura, Masataka Murakami
and Tatsuo Endoh
Laboratory of Meteorology, Division of Environmental Structure,
Graduate School of Enviromental Science, Hokkaido
University, Sapporo, Japan, 060

はじめに

降水によるエーロゾル除去の機構は，雲内での除去である rain out と，雲底下で降水粒子により除去される wash out からなる。従来，これらについての報告は物理的手法を用いたものが多く見られる。最近では都市汚染物質の雲内への取り込みと除去について論じた Hane (1978) の報告，捉捕率を論じた Magono *et al.* (1974) の報告がある。一方，降水の化学成分については古くから研究の対象となり，国内では年変化，場所的変化などを論じた三宅 (1939) を初め，数多くの報告が現在までになされている。しかし，これらの大部分は地上で採集した降水に関するものであり，これらを用いて rain out と wash out を論ずることは適当ではない。このような中で最近，Sadasivan (1980) のように山を利用し，両者を分離した研究も報告されている。

ここでは，複雑な雲物理学的過程を含む rain out について論ずるために，雲底高度とほぼ等しい手稲山頂で降水・雲水・エーロゾルの連続採集を行った。また同時に北大構内にも観測点を設け，降水・エーロゾルを採集した。これら一連の降水において，多くの場合その化学成分濃度に変動がみられたが，ここでは rain out の効果により降水の化学成分濃度が決定される条件について，主に秋・冬・夏に得られた試料を用いて議論する。

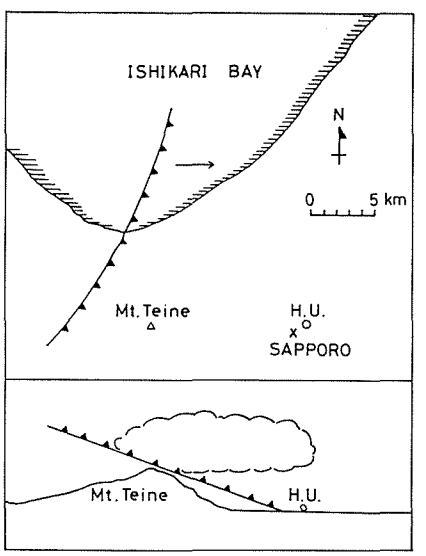

Fig. 1. Location of observation sites and typical direction of progression of cold front. Triangle and open circle are the observation sites of Mt. Teine and the campus of Hokkaido University, respectively. Cross is Sapporo Meteorological Observatory.

1981年8月10日受理
Received 10 Aug. 1981

観測方法

観測は，1979年10月19日～11月6日の秋と1980年2月26日～3月5日の冬，および1980年8月14日～9月12日の夏の三期間に行われた。観測地点は手稲山頂と北大構内理学部三号館屋上であり，Fig. 1 に示すように，その水平距離は東西約12 km である。手稲山頂の高度は1,024 m で，季節により雲底高度は変動するが，ほぼ1,000 m 前後であるので，山頂において採集した降水の化学成分はすべて rain out によってもたらされたものとみなすことができる。Fig. 1 では観測地点と代表的な前線の通過方向が示されている。

1979年秋，1980年冬は降水とエーロゾル，1980年夏にはこれらに加えて雲水を採集している。降水の採集には70 cm×40 cm のポリエチレン容器を用い，化学分析に必要な量が得られた時点で，降水粒子が雨の場合には500 mℓ のポリエチレン容器に移しかえ密閉した。雪の場合は一時ポリエチレン製の袋に入れ，室温で融解させた後，同様にポリエチレン容器に移し，密閉した。雲水の採集は，北大工学部衛生工学科大喜多研究室製作の雲水サンプラーを用いた。このサンプラーは40 cm×40 cm の面上に直径0.05 cm の釣り糸を縦に密に張ったものと，この面を通して雲粒を含んだ空気を後方より吸引するファンよりなる。雲水も降水と同様，化学分析に必要な量が得られた時点で容器に移し，密閉した。エーロゾルは直径5.5 cm のテフロンフィルターをホルダー内に装着し，流量約25 ℓ/min で吸引して採集した。手稲山頂では4時間～6時間，北大構内では2時間～3時間を濃度検出の目安とした。

降水・雲水に関しては SO_4^{2-}, Cl^-, NO_3^-, NH_4^+, pH, 電気伝導度，エーロゾルに関しては SO_4^{2-}, Cl^-, NO_3^- を分析した。1980年夏の降水，雲水の SO_4^{2-}, NO_3^- はイオンクロマトグラフィーを用いているが，他はいずれも比色分析である。分析は，角皆 (1972)，大喜多・川村 (1976) の方法を参照して行った。

これらの結果の解析において，札幌管区気象台観測課のレーダ観測のエコーのスケッチを用いた。

結　　果

1979年秋と1980年夏についてレーダエコー頂と0°C の高度を Table 1, Table 2 に示す。1979年秋の場合，0°C の高度は1,000 m 前後であり，レーダエコー頂の高度と較べて大きな差がある。一方，1980年夏の0°C 高度はレーダエコー頂の高度よりわずかに低いことが多いが，それらはほぼ等しいとみることができる。このことにより1979年秋の場合，雲内の降水粒子の大部分は雪とみることができ，1980年夏には雨とみることができる。従って，雲内の降水粒子が雪の場合である1979年秋と1980年冬のものと，雨の場合である1980年夏のものに分けてその結果を示す。

Table 1. Heights of radar echo top and 0°C level during the observation period in the fall of 1979 (km)

Time	Date	Max.	Min.	Mean	0°C Level
2100	1 NOV.	4.6	3.0	3.8	1.0
0900	2 NOV.	3.9	3.9	3.9	1.6
1200	2 NOV.	4.8	3.2	4.0	
2100	2 NOV.				0.8
1200	5 NOV.	4.8	3.7	4.3	
0400	6 NOV.	2.5	2.2	2.4	
0900	6 NOV.				0.8

Table 2. Heights of radar echo top and 0°C level during the observation period in the summer of 1980 (km)

Time	Date	Max.	Min.	Mean	0°C Level
0900	14 AUG.	6.0	4.5	5.3	4.0
1200	14 AUG.	5.9	3.9	4.9	
2100	14 AUG.	4.8	4.0	4.4	4.1
0900	15 AUG.	4.2	4.0	4.1	3.9
1200	15 AUG.	4.4	4.1	4.3	
0900	11 SEP.	5.3	5.0	5.2	4.8
1200	11 SEP.	6.0	4.5	5.3	

i) 雲内で降水粒子が雪の場合

1979年10月～11月，1980年2月～3月に手稲山頂で得られた降水について SO_4^{2-}, Cl^- の時間変化を前線通過を伴う場合と伴わない場合に分けて Figs. 2, 3 にそれぞれ示す。図の下方には風向風速・気温・レーダエコーの型・前線の通過時刻が示されており，縦軸には SO_4^{2-}, Cl^- の濃度が左右にそれぞれ目盛ってある。

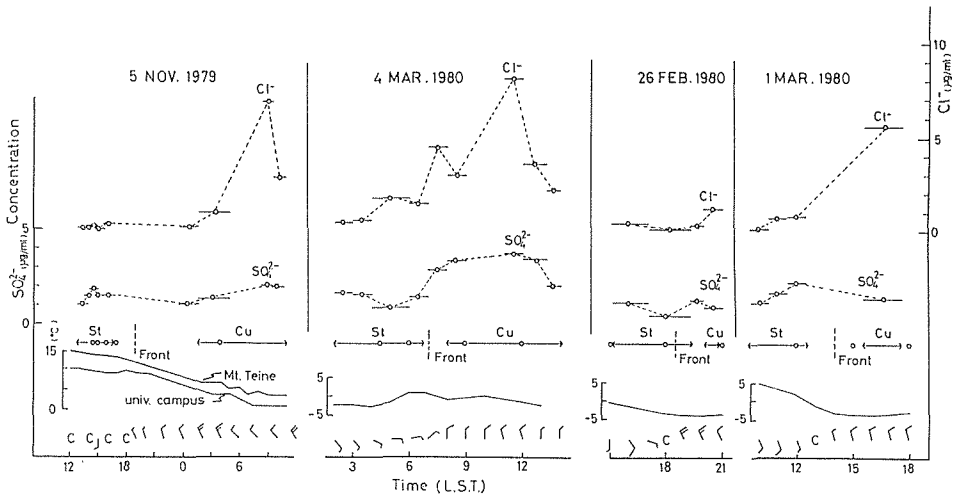

Fig. 2. Time changes in the concentrations of SO_4^{2-} and Cl^- in precipitation with the passage of cold front. Air temperature, wind and the type of radar echo are also shown at the bottom.

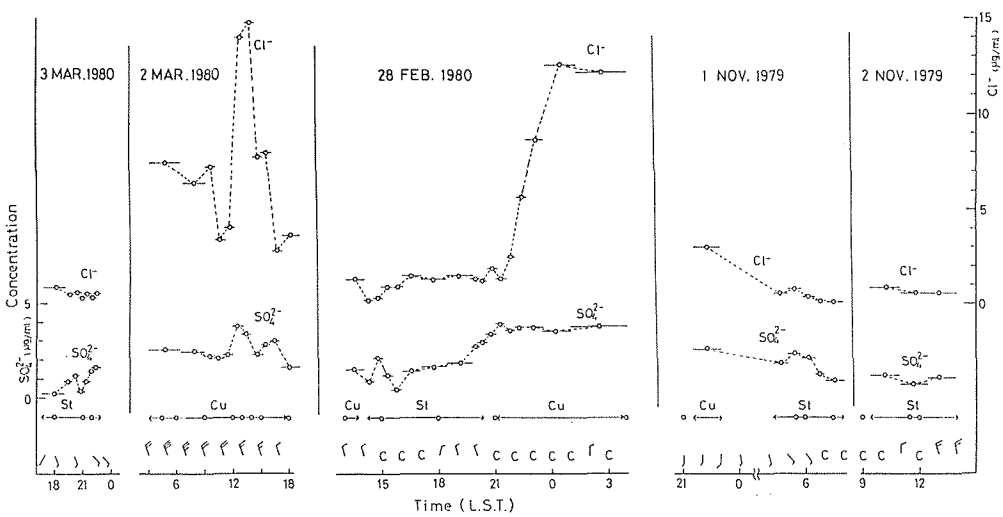

Fig. 3. Same as Fig. 2 except without the passage of cold front.

風向風速は北大構内で測定したものである。これらと上空 1,000 m の測定値を対照すると，一般に 1,000 m 上空では地上に比べ風向に西成分が加わり風速も増加するが南北成分の時間変化の対応は良かった。そこで時間的に連続した値が得られる地上風を高層風の代わりに用いた。

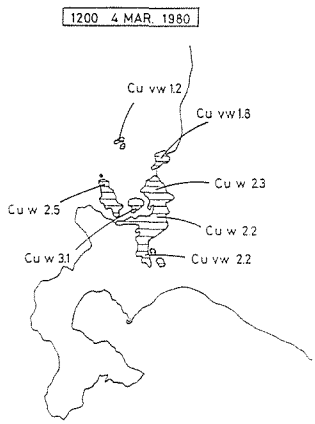

Fig. 4. Schetch of typical radar echo pattern of Cu type with echo intensities and heights of radar echo top in kilometer.

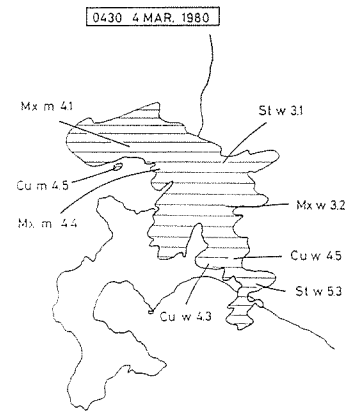

Fig. 5. Same as Fig. 4 except St type.

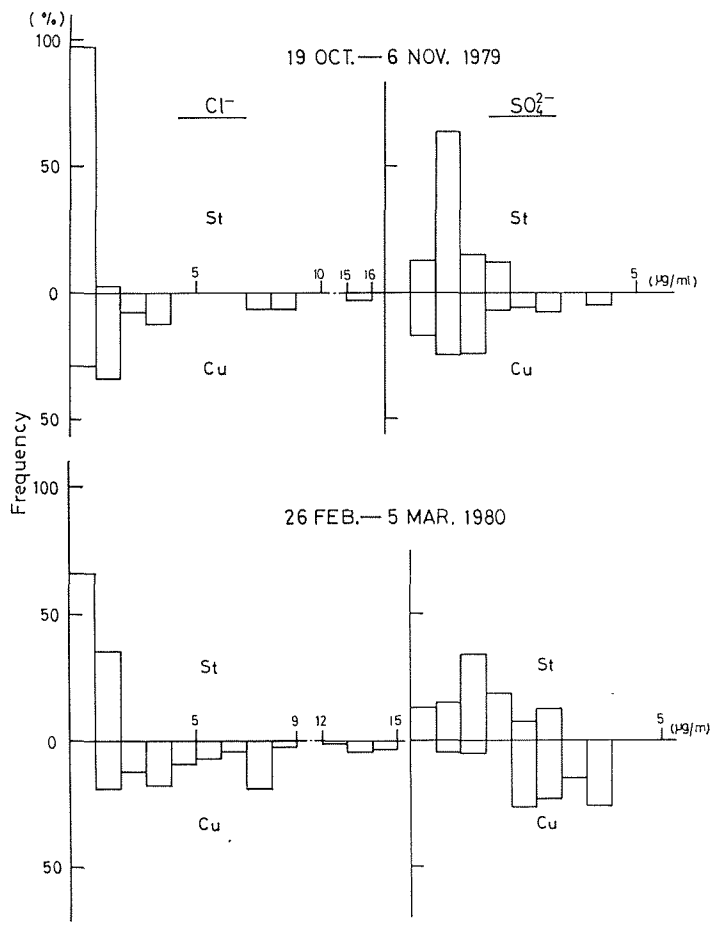

Fig. 6. Frequency distributions of the concentrations of SO_4^{2-} and Cl^- in the precipitations of Cu and St types.

気温については，1979年11月5日のみ北大構内と手稲山頂の気温変化を示してあるが，他は北大構内における測定値である。

レーダエコーのスケッチでは，Cu（対流性エコー）・St（層状性エコー）・Mx（両者が混在）の3つに分類されている。図では Cu だけが存在する場合を Cu 型，大部分が St または Mx の場合を St 型と表示した。Figs. 2, 3 の○印がデータの得られた時刻であり，これらより Cu 型・St 型の継続時間を推定し，矢印で時間幅を示した。Figs. 4, 5 に，それぞれ Cu 型と St 型のエコースケッチの例を示してある。

手稲山頂での前線通過時刻は以下の理由より地上の風向から求めた。手稲山頂と北大構内の前線通過の時間差は少く最大でも10分前後と見積られる。その理由は Fig. 1 の下半分の図のように寒冷前面がほぼ2点を同時に通過するからである。降水採集の時間間隔に対してこれらの差は無視できるものであり，地上の風向の急変をもって手稲山頂での前線通過時刻とみた。Fig. 2 の1979年11月5日における手稲山頂と北大構内の気温変化がほぼ平行して起きていることは，このみかたの可能なことを示している。

化学成分については，他成分に比べて濃度レベルの高い SO_4^{2-}, Cl^- を示した。Fig. 2 の前線通過を伴った場合についてみると，いずれの場合も前線通過前の低濃度に比べ，通過後の高濃度への移行が認められる。下方に示されているデータと比べてみると，風向とレーダエコーと降水の化学成分濃度との間に次のような関係が認められる。すなわち南よりの風で St 型のときは低濃度であるのに対し，北よりの風で Cu 型のときは高濃度である。Fig. 3 は前線通過を伴わない場合の5例であり，かつ一連の降水中に南北方向に風向が変化しない場合でもある。1980年3月2日，3月3日の例は風向・レーダエコーとも前線通過を伴った場合と同様の対応をみせている。残りの三例については，これまでと異なっている。1980年2月28日の例では，前半は北よりの風であるが低濃度であり，1979年11月2日も同様である。1979年11月1日の例では南よりの風で

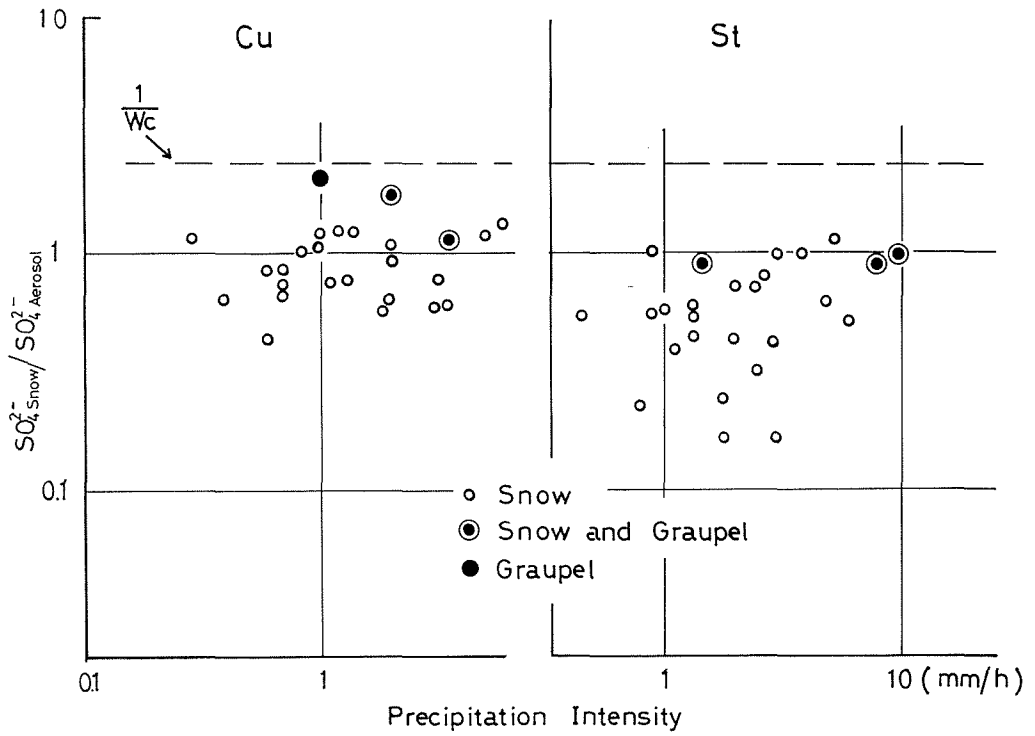

Fig. 7. Rain out ratio versus precipitation intensity. (○) snow; (●) graupel; (⊙) snow and graupel.

高濃度が認められる。しかし，これら三例についても Cu 型のときは高濃度であり St 型のときは低濃度であるという関係は常に保たれている。

最終的に常に対応関係が認められたエコーの型と濃度について，SO_4^{2-} と Cl^- の濃度の頻度分布を示したのが Fig. 6 である。Cu 型と St 型に分けて示されているが，Cu 型の場合は低濃度から高濃度に渡って幅広く分布しているのに対し，St 型の場合は低濃度に集中して分布しているのが注目される。

1980年2月～3月の SO_4^{2-} について，降水の化学成分濃度を C_p (μg/mℓ)，エーロゾルのそれを C_a (μg/m^3) とし，C_p/C_a (これを rain out ratio と呼ぶことにする) を Cu 型と St 型に分類して Fig. 7 に示した。横軸は降水強度である。試料の降水が雪であるものを○，あられを●，両者が混在したものを⊙の記号で表わした。この図から，あられの rain out ratio は最も値が大きく，この値と雪についての Cu 型と St 型の場合を比べると，Cu 型ではあられの値に近いが，St 型では Cu 型のものより下方に分布し，あられの値からは離れていることがわかる。降水強度に関しては特に傾向はみられない。

ii) 雲内で降水粒子が雨の場合

1980年8月14日～8月15日における手稲山頂の降水と雲水の化学成分濃度を Fig. 8 に示す。横軸は時間，縦軸の左右はそれぞれ SO_4^{2-} と Cl^- の濃度である。風向は全体として南よりであり，レーダエコーは大部分が St 型で，降水の終り頃には Cu 型がみられた。雲水と降水の化学成分濃度の変化をみると，SO_4^{2-}，Cl^- とも非常に良い相関がみられる。同時に降水の化学成分は全体を通して雲水のそれより低い濃度であることがわかる。一方，Fig. 9 には北大構内で採集した降水と手稲山頂で採集した雲水の化学成分濃度を示してあるが，wash out や蒸発の効果によって対応がくずれていることがわかる。

Fig. 10 に雲水量の時間変化を示す。雲水量は，雲粒の粒径を 10 μm，流速を 5 m/sec，円柱直径を 0.05 cm とし，Ranz and Wong (1952)，Friedlander (1977) の捕捉率 0.8 を用いて雲水サンプラーで得た雲水の量より逆算した。降水期間の長い場合には，雲水量はほぼ一定であることがわかる。これらの値から雲粒の

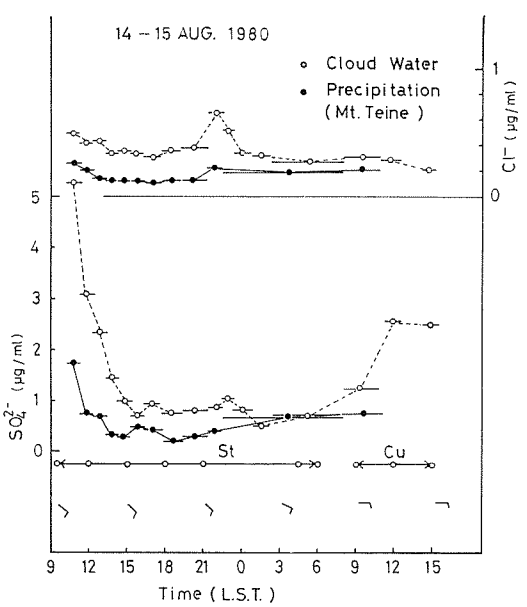

Fig. 8. Time changes in the concentrations of SO_4^{2-} and Cl^- in the precipitation and cloud water at Mt. Teine.

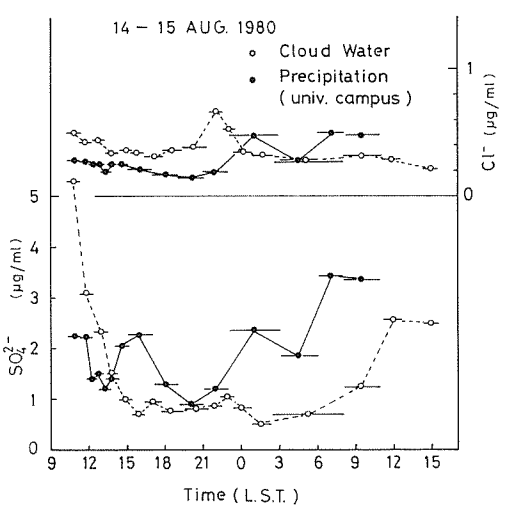

Fig. 9. Time changes in the concentrations of SO_4^{2-} and Cl^- in precipitation at the University campus and cloud water at Mt. Teine.

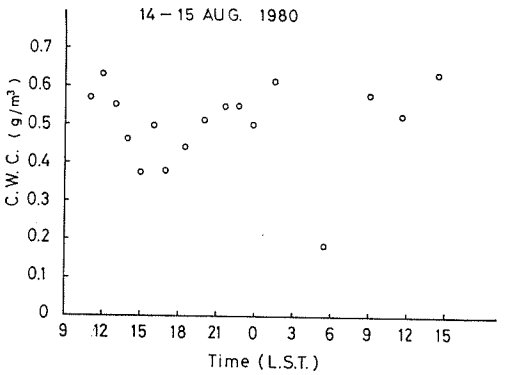

Fig. 10. Time changes in cloud water content at Mt. Teine.

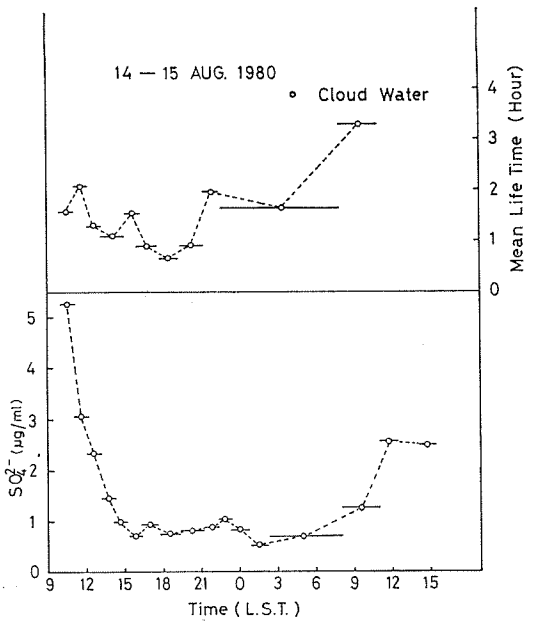

Fig. 11. Time changes in the mean lifetime ofcloud droplets and the concentration of SO_4^{2-} in the cloud water at Mt. Teine.

平均 lifetime を算出し，Fig. 11 に示す。算出は次の式による。

$$\text{平均 lifetime} = \frac{W_c \cdot H}{P} \qquad (1)$$

ここで，W_c は雲水量，H は雲底からレーダエコー頂までの距離，P は単位時間当りの降水量を示す。

雲水の SO_4^{2-} と雲粒の平均 lifetime を比較したのが Fig. 11 である。1980年8月14日～15日について雲水の化学成分濃度は初期に減少し，中期に一定となり，後期に増加するという傾向であるのに対し，平均 lifetime は降水初期から中期にかけてほぼ一定で，後期になって増加する傾向にある。

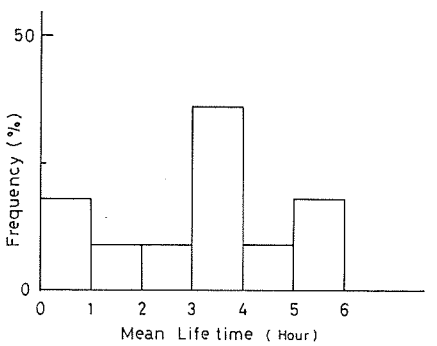

Fig. 12. Frequency distribution of the mean lifetime of sulfate aerosols in cloud.

Fig. 12 は雲内における SO_4^{2-} エーロゾルの平均 lifetime の頻度分布を示したものである。レーダエコー頂でエーロゾル濃度を0とし，雲底より直線的に濃度が減少しているものと仮定して雲内のエーロゾル量を見積った。計算方法は雲粒の平均 lifetime のそれと同様である。平均 lifetime は0～6時間の間に分布しているが，3～4時間の頻度が最も多い。手稲山頂でエーロゾル濃度が欠測の時は，北大構内での測定値より見積った。

考　　察

i) 雲内で降水粒子が雪の場合

一連の降水において，前線通過前後に顕著な濃度変化がみられた。この場合，レーダエコーの型と風向の二つの要素が濃度変化に対応する。一方，前線通過を伴わない場合，風向が一定であったが濃度変化がみられた。この場合にもレーダエコーの型との対応は常に成り立っている。Fig. 6 の化学成分濃度の頻度分布も

合せて考えると，降水の化学成分に高濃度が現われるのは，主にレーダエコーが Cu 型の場合である。レーダエコーが Cu 型の場合には，雲内の対流も活発なことが多いと考えると，降水の化学成分における高濃度の出現は雲内の活発な対流活動に起因するとみることができる。Khemani (1968) の報告は地上降水についてであるが，対流性の場合は層状性の場合に比べて降水の化学成分濃度は高いことが示されている。

雪結晶は昇華凝結 (deposition) により成長するので，その化学成分濃度はかなり低いと考えられる。これらが観測された濃度レベルになるためには，雲粒捕捉が主に効くことが期待される。簡単のために，雲水量が一定として，エーロゾルは大部分が下方より進入し，しかもすべて雲粒になると仮定する。さらに雪結晶の化学成分濃度を0とし，ガスの吸収も無視する。そうすると，降水の化学成分濃度 C_p は

$$C_p = \frac{C_c N\pi r^2 H V_c}{V + N\pi r^2 H V_c} \tag{2}$$

で表わされる。ここで，r は雪結晶の半径，H は雪結晶の雲粒に対する相対的な落下距離 (有効掃引距離)，N は雲粒の空間濃度，V, V_c はそれぞれ雪結晶と雲粒の体積である。雲粒の化学成分濃度 C_c は

$$C_c = \frac{C_a}{W_c} \tag{3}$$

で表わされる。C_p/C_a は Eqs. (2), (3) を用いて次のように表わすことができる。

$$\begin{aligned}\frac{C_p}{C_a} &= \frac{1}{W_c}\left(\frac{N\pi r^2 H V_c}{V + N\pi r^2 H V_c}\right) \\ &= \frac{1}{W_c}\left(\frac{1}{\dfrac{K}{H}+1}\right)\end{aligned} \tag{4}$$

ただし，

$$K = \frac{V}{N\pi r^2 V_c} \tag{5}$$

である。

Eqs. (2), (4) の中の変数 H は対流が活発であると大きくなり，不活発であると小さくなる。従って Cu 型・St 型の双方に対して次のような結果が期待される。すなわち，(1) rain out ratio は Cu 型のときの方が St 型のときに比べて大きい値となる。(2) Cu 型の値は H の増加によって $1/W_c$ に漸近し，その変動は小さくなる。(3) これに比べ St 型の値は低く，しかもより大きく分散する。

以上のことを実際の観測値である Fig. 7 と比較する。先の仮定を満足させるために雲内の降水粒子はすべて雪結晶であり，かつ空間分布が比較的均一な SO_4^{2-} エーロゾルについてみることにする。

1980年2月～3月の SO_4^{2-} について Fig. 7 に示してある，対流が活発な時にあられが観測された。それは大部分が雲粒より成るため，rain out ratio の分布では Cu 型，St 型の雪の場合よりも上方に位置すると考えられるが，Fig. 7 では予想される位置にプロットされている。あられの rain out ratio は $1/W_c$ に非常に近いと考えられるので，あられの値より幾分上方に予想線 $1/W_c$ を仮に示す。この線と Cu 型，St 型の分布を比べると，Cu 型は $1/W_c$ に近く，St 型は Cu 型より下方に分散して分布し，$1/W_c$ からも離れている。これらの事は先に予想した傾向と一致する結果である。これらの結果は降水粒子が雪の場合，その化学成分濃度に対して雲粒捕捉の効果が大きいことを意味する。すなわち，雲内の対流が激しくなると対流不活発な時に比べて雪結晶が雲粒を捕捉する割合が大きくなり，高濃度が現われる。あられの場合，rain out ratio は最も高い値を示しているが，その成長において強い対流が関与し大部分が雲粒であることを考え合せると上記の考察と一致する。

Fig. 7 で，ratio out ratio と降水強度の間には，Scott (1978) が予想したような負の相関はみられなかった。これは，降水の化学成分濃度を支配する要素としては，降水強度より雲粒の捕捉度合の方が有効であるためと考えられる。

ii) 雲内で降水粒子が雨の場合

1980年8月14日～15日の降水と雲水の関係は Fig. 8 でみられるように相関が良い。この降水粒子の成長は雲粒の併合が主であると考えられる。その場合には，降水と雲水の間に大きな濃度差は生じない筈である。しかるに，観測結果からは明らかな差が認められる。Scott and Laulainen (1979) は雲底付近の雲水は十分内部の雲水に比べて，その化学成分濃度は高いと報告している。我々が測定した雲水は雲底付近のものであり，これと同様のことが期待される。従って，測定された雲水の化学成分濃度は降水粒子を形成する大部分の雲粒のそれよりも高いために，降水と雲水に濃度差が生じたものと考えられる。

雲水の化学成分濃度によって降水のそれが決まると考えられるので，次に雲水の化学成分濃度についてみる。Fig. 11 の雲水の化学成分濃度は初期に減じて，中期にほぼ一定に保たれ，後期に増加するという変化傾向を示している。一方，雲粒の平均 lifetime は降水初期・中期ともほぼ一定であるが，後期に増加するという変化傾向である。降水が始まる前の雲粒の平均 lifetime は降水がないため非常に長いと考えてよい。従って，これを考慮すると雲粒の平均 lifetime は初期に減少し，中期に一定に保たれ，後期に増加するという変化をし，雲水の化学成分濃度変化と同じ傾向となる。以上のことより降水期間が長い場合，雲水の成分濃度は主に雲粒の lifetime によって決まり，これが長くなると高濃度となる。そしてその変化は rain out から成る降水の化学成分濃度に受け継がれる。これらのことは，降水粒子が雲内で雨の場合に成り立つものと考えられる。

最後に示した SO_4^{2-} エーロゾルの雲内での平均 lifetime は3～4時間が最も多い。大喜多 (1978) の報告によると対流圏での SO_4^{2-} エーロゾルの平均寿命は22.7日となっており，この両者を比べると降水による除去は他の除去過程より時間的に非常に有効であるといえる。

結　　論

手稲山頂において，rain out 過程のみで異物質をとり込んだと考えられる降水の化学成分分析を行った。

得られた結果のうち，降水粒子が雲内で雪やあられであった場合についてみると，対流の活発な雲からの降水の化学成分濃度が高いという観測結果を得た。この説明として，まず昇華凝結のみによって成長した雪結晶の化学成分濃度が非常に低いのに対して，雲粒はエーロゾルを核として形成され，その後の成長中にもエーロゾルやガスをとり込むため，その化学成分濃度は比較的高いと考えられる。このように化学成分濃度の比較的高い雲粒が，対流の活発な雲では雪結晶などの降水粒子の有効な掃引距離が長いため，数多く捕捉されるようになり，結果的にこのような時の降水の化学成分濃度が高くなると考えられる。

一方，降水粒子が雲内で雨の場合についてみると，降水の化学成分濃度の時間変化は雲水のそれとよい相関関係にあることがわかった。この降水の成長としては雲粒との併合過程が支配的であると考えられ，かつ雲水の化学成分濃度は雲粒の lifetime によって決まると考えられた。従って，これの長かった降水初期と終期に高濃度になることが説明された。

SO_4^{2-} エーロゾルの雲内での平均 lifetime は3～4時間のものが多かった。これは対流圏での SO_4^{2-} エーロゾルの平均寿命とされている値に比べ極めて短かい値である。従って，rain out のみでも降水によるエーロゾルの除去作用が有効であることが示された。

謝　　辞

本研究を行うにあたり，北海道大学理学部地球物理学科気象学講座の菊地勝弘教授の御指導をいただいた。また同工学部衛生工学科大気汚染制御学講座の大喜多敏一教授，太田幸雄助手，同理学部地球物理学科陸水学講座の中尾欣四郎教授，北海道開発局土木試験所土壌保全研究室の矢野義治室長の方々から観測と分析のための測器類を快く提供していただき，さらに多くの御助言をいただいた。これらの事に対し著者らは心からの謝意を表す。

文　　献

大喜多敏一・川村　清 (1976): 大気汚染質の測定. 気象研究ノート, **130**, 53–74.

大喜多敏一 (1978): 大気汚染物質の自然浄化作用. 燃料協会誌, **57**, 871–883.

Friedlander, S. K. (1977): Smoke, Dust and Haze. A Wiley Interscience Publication, 317 pp.

Hane, C. H. (1978): Scavenging of urban pollutants by thunderstorm rainfall. J. Appl. Meteor., **17**, 699–710.

Khemani, L. T. (1968): Chemical components of rain water and rain characteristics at Delhi. Tellus, **20**, 284–292.

Magono, C., T. Endoh, T. Harimaya and S. Kubota (1974): A measurement of scavenging effect of falling snow crystals on the aerosol concentration. J. Meteor. Soc. Japan, **52**, 407–416.

三宅泰雄 (1939): 雨水の化学. 気象集誌 II, **17**, 20–37.

Ranz, W. E. and J. B. Wong (1952): Impaction of dust and smoke particles. Ind. Eng. Chem., **44**, 1371–1381.

Sadasivan, S. (1980): Trace constituents in cloud water, rain water and aerosol samples collected near the west coast of India during the southwest monsoon. Atmospheric Environment, **14**, 33–38.

Scott, B. C. (1978): Parameterization of sulfate removal by precipitation. J. Appl. Meteor., **17**, 1375–1389.

Scott, B. C. and N. S. Laulainen (1979): On the concentration of sulfate in precipitation. J. Appl. Meteor., **18**, 138–147.

角皆静男 (1972): 雨水の分析. 講談社, 121 pp.

Summary

Precipitation water, cloud water and aerosols were sampled near the cloud base and analyzed for some chemical constituents with a view of studying the rain-out which is the removal process of aerosols within the cloud. In the most cases, the concentration of the chemical constituents in the precipitation changed over a wide range even during a series of precipitation.

When the precipitation was in the form of snow in the cloud, the concentrations of the chemical constituents in the precipitation were mainly governed by the mass ratio of the rimed clould droplets to the snow crystals. They became high when the convection in clouds were active and as a result many cloud droplets were collected by the snow crystals. On the other hand, when the precipitation was in the form of rain in the most parts of the cloud, the concentration of chemical constituents in the precipitation were governed by those in the clould water.

The concentrations of the chemical constituents in the cloud water were strongly dependent on the mean lifetime of cloud droplets and became high when the mean lifetime of cloud droplets was long.

The mean lifetime of sulfate aerosols in the cloud was several hours and was very short in the contrast to that in the troposphere. Thus the precipitation scavenging is considered to be a highly effective mechanism for the removal of aerosols.