

태안지역 강우의 산성도 중화 및 화학성 평가

이종식^{*} · 김민경 · 박성진 · 최철만 · 정태우¹ · 정임영¹

농촌진흥청 국립농업과학원, ¹태안군농업기술센터

Neutralization of Acidity and Ionic Composition of Rainwater in Taean

Jong-Sik Lee,^{*} Min-Kyeong Kim, Seong-Jin Park, Chul-Mann Choi, Tae-Woo Jung¹, and Im-Young Jung¹

National Academy of Agricultural Science, RDA, Suwon 441-707, Korea

¹Tae-an-gun Agricultural Development & Technology Center, Taean 357-903, Korea

The issue of acid precipitation and related environmental problems in East Asia has been emerging. To evaluate the acidity and chemical characteristics of rainwater in Korea, its chemical properties during cultivation season from April to October were investigated at Taean in 2007. Also, to estimate the contribution of ions on its acidity, ion composition characteristics and neutralization effects by cation ions were determined. The ion balance between cations and anions values showed high correlation. The mean values of pH and EC were 4.9 and 32.9 $\mu\text{S cm}^{-1}$, respectively. The EC of rainwater showed seasonal characteristic, which was 91.4 $\mu\text{S cm}^{-1}$ with relatively low rainfall compared with other monitoring periods. Na^+ was the main cation followed by $\text{NH}_4^+ > \text{Ca}^{2+} > \text{H}^+ > \text{Mg}^{2+} > \text{K}^+$. Among these ions, Na^+ and NH_4^+ covered over 70% of total cations. In the case of anion, the order was $\text{SO}_4^{2-} > \text{NO}_3^- > \text{Cl}^-$. The mean value of sulfate, which is main anion component in the samples was 152.1 $\mu\text{eq L}^{-1}$. Also, 90% of soluble sulfate in rainwater was nss- SO_4^{2-} (non-sea salt sulfate). With fractional acidity and theoretical acidity of rainwater samples, NH_4^+ and Ca^{2+} contributed greatly in neutralizing the rain acidity.

Key words: Rainwater, Taean, Neutralization, Fractional acidity

서 언

강우는 대기로부터 오염물질들을 정화하는 중요한 기작으로 알려져 있으며 (Scorer, 1994), 일반 가정과 자동차 및 산업활동에서 발생되어 대기 중으로 배출되는 여러 대기오염 물질들이 구름 내에서의 세정작용(rainout)과 강우시 흡수와 흡착작용(washout) 등을 통해서 제거된다 (Park et al., 2000). 산성비(Acid Rain)는 이러한 과정에서 대기중에 배출된 이산화황이나 질소산화물 등이 복잡한 화학반응을 거쳐 생성된다. 환경에 대한 대중의 인식이 높아짐에 따라 이러한 산성비의 영향과 그 대책 수립에 많은 관심을 모으고 있다. 산성비의 영향은 풍향과 풍속에 따라 차이는 있으나 장거리 이동으로 오염원으로부터 떨어져 있는 주변국가에도 직접 또는 간접으로 영향을 주는 등 그 피해가 광범위하며 (Charron et al., 2000), 발생원이 제거된 뒤에도 그 영향이 오래 지속되기 때문에 국제적인 환경문제로 대두되었고, 현재 세계 각국은

산성비 피해에 대하여 공동으로 대처하고 있다. 산성비의 영향으로는 산림이나 농작물 (Rinallo, 1992), 토양 (Likens et al., 1979; Johnston and Taylor, 1989), 하천 및 호수 (Cronan and Schofield, 1979), 건축물 (Contardi et al., 2000; Okochi et al., 2000) 그리고 인체에의 피해 (Jakobowicz, 1994; Peart, 2000) 등이 알려져 있다.

지리적으로 북반구의 중위도 극동지역에 위치한 우리나라의 경우, 아직은 뚜렷한 대규모 피해지역이 없고, 기존의 보고 (Lee et al., 1999; 2004)와 같이 그 현상이 같은 중위도에 있는 서유럽의 국가들과 달리 월별 강우량 변화가 크고 대기 중 알칼리 성분들에 의해 빗물의 산성도가 크게 중화되는 특성을 지니고 있다.

한편, 최근 급속한 산업화로 많은 양의 아황산가스를 배출하고 있는 중국의 편서풍 영향 하에 위치한 우리나라의 경우에는 무엇보다도 지속적인 빗물의 산성도 모니터링과 예상되는 피해에 대한 대책 마련이 필요하다. 산성비에 대한 대책 수립을 위해서는 빗물의 산성도 뿐만 아니라 화학적 조성을 평가하는 것이 중요하다. 이를 위하여 강우량과 빗물의 산성도 및 주

접수 : 2009. 8. 5 수리 : 2009. 8. 28
*연락처 : Phone: +82312900314,
E-mail: jongslee@korea.kr

요 화학성분 함량 그리고 빗물 중 주요 이온들에 의한 중화를 고려한 월별 빗물의 산성도 변화 구명이 요구된다.

따라서 본 연구는 우리나라 서해안에 위치한 충남 태안지역의 빗물 특성을 구명하기 위하여 조사기간 동안의 매 강우마다 빗물을 채취하여 pH 및 주요 화학성분들을 분석하였으며, 각 성분에 대한 구성비 및 강우량을 고려한 가중평균치의 월별 변화를 조사하였다. 또한 측정 pH와 기준에 보고 (Galloway et al., 1987)에 의해 구한 이론 pH 값의 차이를 비교하여 월별 빗물 산성도 중화 정도의 변화를 살펴보았다.

재료 및 방법

본 조사는 충청남도 태안군 농업기술센터(36° 43' 47.74"N, 126° 18' 26.18"E)에 설치된 강우 채취기를 이용하여 2007년 영농기간 중 빗물을 채수하였다. 조사된 시료 수는 4월부터 10월까지 7개월간 19점을 채수하였다. 빗물의 채취는 bulk sampling 방식으로 매 강우마다 채수하였으며, 센서에 강우가 감지되면 자동으로 뚜껑이 열려 빗물을 채수하는 wet sampling 방식의 강우 자동채취기 (AQUA Control사, 일본)를 사용하였다. 빗물의 화학성분은 수질오염공정시험법과 Standard Method에 준하여 분석하였다. pH와 EC는 각각 ion analyzer (Orion EA 940, USA)와 conductivity meter(Orion Model 162, USA)를 사용하여 측정하였다. NH₄⁺는 차아염소산 이온의 공존하에서 페놀과 반응하여 생성되는 청색의 Indophenol을 640nm에서 측정하는 Indophenol법, SO₄²⁻는 BaCl₂에 의한 비탁법, NO₃⁻는 1N-HCl로 hydroxide와 carbonate에 의한 영향을 제거하고 흡광도를 측정하는 자외선 흡광광도법, Cl⁻은 치오시안산 제2수은법을 사용하여 비색 정량하였으며, 기타 양이온들은 ICP (GBC Integra XMP, Australia)를 이용하여 측정하였다.

또한, 빗물의 화학성분 분석결과에 대한 신뢰성 검토를 위하여 각 시료에 대한 이온균형(ion balance)를 조사하였다. 이온균형 비는 측정된 빗물의 이온농도를 근거로 양이온들의 합과 음이온들의 합을 당량농도 ($\mu\text{eq L}^{-1}$)로 비교함으로써 빗물에 존재하는 주요 이온들의 분석 여부를 판단하였다.

결과 및 고찰

빗물의 화학성분 분석에는 분석결과에 대한 신뢰성 검토가 이루어져야 한다. Figure 1은 빗물시료에 대한 이온균형을 나타낸 것이다. 이온 균형은 각 빗물 중에 함유되어 있는 수용성 이온성분들의 당량농도를 양이온들의 합과 음이온들의 합에 대한 비로 나타내는 것

으로 전기전도도 수지와 함께 분석의 신뢰성 검토에 사용된다.

본 조사 결과, 조사기간 중 태안지역 강우의 전체적인 이온 균형의 비는 1에 가까운 0.98로 나타났으며 일부 시료를 제외하고는 높은 상관관을 보였다. 따라서 본 연구에서 분석된 수용성 이온들이 조사기간 중 태안지역에 내린 빗물에 존재하는 주요 이온들임을 확인하였다. 또한, Lee et al. (2007a)이 발표한 기존의 자료에 따르면 2005년도 수원지역 빗물의 이온균형 비가 1.12 이었음이 보고된 바 있다.

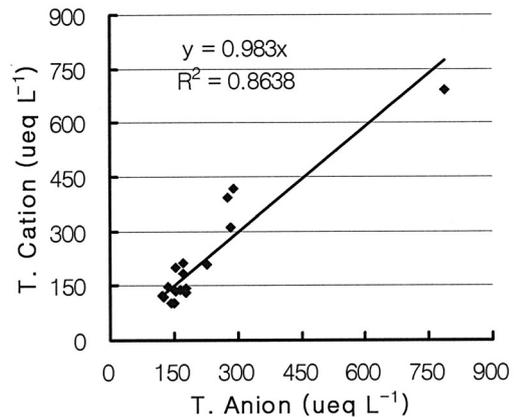


Fig. 1. Linear regression between cations and anions contained in rainwater collected at Taean in 2007.

조사 기간 중 월별 강우량 및 EC 변화를 Fig. 2에 나타내었다. 조사기간 동안 월별 강우량은 8월에 많았으며, 4월과 10월이 각각 20.0 및 32.5 mm로 적었다. 빗물 중에 함유된 이온의 총량을 표시하는 EC는 강우량이 많았던 7~9월에 9.7~21.8 $\mu\text{S cm}^{-1}$ 의 낮은 수치를 보여 집중강우에 의한 세정작용을 나타내는 것과 같이 강우량 분포에 따른 EC의 계절적 특성을 보였다. 전 조사 기간 중 평균 EC는 32.9 $\mu\text{S cm}^{-1}$ 로 2002~2003년 (Lee et al., 2004) 및 2005년도 조사 (Lee et al., 2007b)와 같은 조사기간(4~10월) 동안의 태안지역 빗물의 EC 18.0 및 19.8 $\mu\text{S cm}^{-1}$ 에 비해 점차 증가하는 경향을 보이고 있다.

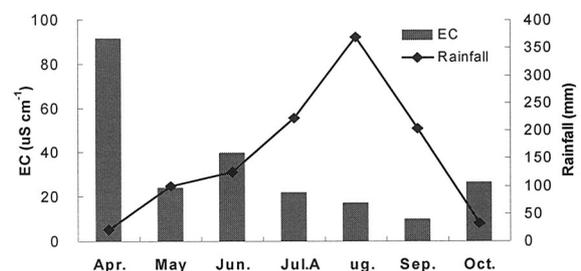


Fig. 2. Monthly changes of rainfall amounts and volume-weighted mean EC of rainwater at Taean in 2007.

빗물의 화학적 조성을 보기 위하여 전체 이온함량에 대한 각 이온의 구성비를 구하여 Fig. 3에 나타내었다. 양이온 구성은 $\text{Na}^+ > \text{NH}_4^+ > \text{Ca}^{2+} > \text{H}^+ > \text{Mg}^{2+} > \text{K}^+$ 의 순이었으며, 음이온은 $\text{SO}_4^{2-} > \text{NO}_3^- > \text{Cl}^-$ 순이었다. 이러한 결과는 기존의 결과 (Lee et al., 2004; 2007)와 비교할 때, 음이온의 구성은 변화가 없었으나 양이온 구성에 있어서는 $\text{Ca}^{2+} > \text{NH}_4^+ > \text{H}^+ > \text{K}^+ > \text{Mg}^{2+}$ 의 순을 보인 2002~2003년의 결과 및 $\text{Na}^+ > \text{H}^+ > \text{Ca}^{2+} > \text{NH}_4^+ > \text{K}^+ > \text{Mg}^{2+}$ 으로 나타났던 2005년 강우성분 구성과는 양이온 구성에 있어서는 차이를 보였다.

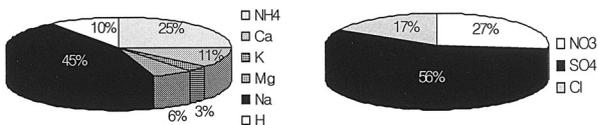


Fig. 3. Ion composition ratio of rainwater collected at Taean in 2007.

영농에 있어 질소는 중요한 성분이다. 따라서 강우를 통한 질소 부하량 평가는 농업생태계의 대기침적을 통한 비점오염 평가에도 중요하다. Figure 4는 강우중 월별 $\text{NH}_4\text{-N}$ 및 $\text{NO}_3\text{-N}$ 등 무기태질소의 함량을 나타낸 것으로 조사기간 동안 평균 함량은 각각 57.1과 73.6 $\mu\text{eq L}^{-1}$ 으로 산화상태의 $\text{NO}_3\text{-N}$ 가 높았다. 월별 변화는 4월이 가장 높았으며, 이후 감소하다가 10월부터 다시 증가하는 경향을 나타내었다.

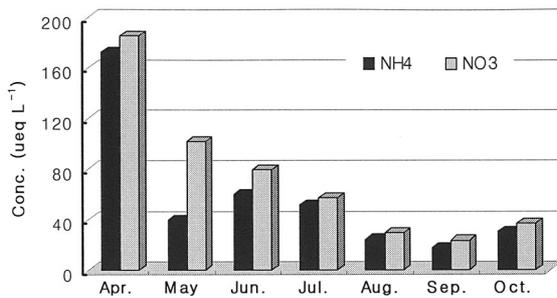


Fig. 4. Monthly changes of inorganic nitrogen of rainwater collected at Taean in 2007.

Figure 5는 조사 기간 중 월별 빗물의 sulfate 함량과 nss-SO_4^{2-} (non-sea salt sulfate) 함량 변화를 나타낸 것으로 인위적인 발생원에서 배출된 nss-SO_4^{2-} 는 sulfate 농도 중 해염에서 기인된 부분을 제외한 농도로 $\text{nss-SO}_4^{2-} = [\text{SO}_4^{2-}] - [\text{Na}^+] \times 0.121$ 로 계산되었다. Na^+ 는 해염 이외의 인위적인 발생원이 없고 해염 입자의 조성이 해수의 조성과 일치한다는 가정 하에 지표물질로 사용하였다 (Christian, 1963; Fujita et al.,

2000). 계수 0.121은 해수의 $[\text{SO}_4^{2-}]/[\text{Na}^+]$ 의 당량비이다. 조사기간 중 빗물 중에 용존하는 sulfate의 전체 평균 함량은 152.1 $\mu\text{eq L}^{-1}$ 이었으며, 월별로는 4월 이후 점차 낮아지는 변이를 보였다. 총 sulfate 함량 중 nss-SO_4^{2-} 함량은 평균 90%로 나타났다. 이러한 결과는 빗물중에 함유된 sulfate의 대부분이 인위적인 발생원에서 기인된 것임을 의미하는 것이다. 기존의 결과와 비교할 때, 본 조사결과는 태안지역 빗물의 nss-SO_4^{2-} 함량비가 88%를 차지했던 2002~2003년도의 강우 (Lee et al., 2004)와 유사하며, 78%를 나타낸 2005년도 강우 (Lee et al., 2007b) 보다는 해염의 영향이 적었음을 보였다.

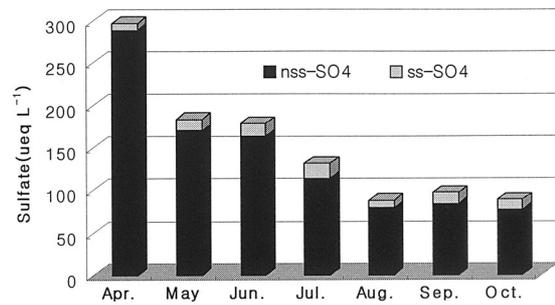


Fig. 5. Monthly change of sulfate contents of rainwater at Taean in 2007.

$$^{\dagger} \text{non-sea salt } \text{SO}_4^{2-} = [\text{SO}_4^{2-}] - [\text{Na}^+] \times 0.121$$

측정된 빗물의 pH는 대기 중에 존재하는 알칼리성 물질들에 의해 중화된 후의 수소이온 농도이므로 측정된 H^+ 에 NH_4^+ 와 Ca^{2+} 농도를 합한 것이 실제 산성도에 가깝다고 보고된 바 있다 (Galloway et al., 1987). 우리나라 빗물의 특성 중 하나는 높은 SO_4^{2-} 함량에 비해 산성도가 낮게 나타나는 것으로 이는 빗물의 산성도를 중화 시킬 수 있는 물질들이 대기 중에 다량 함유되어 있기 때문으로 생각되며, 이러한 것은 중국 북부의 빗물 특성 (Galloway et al., 1987)과 유사한 것이다. 월별 측정 pH 값과 이온 분석으로 얻어진 Ca^{2+} , NH_4^+ 및 측정 pH 값으로부터 환산한 H^+ 당량 농도를 더해 이의 역수를 대수값으로 구해진 이론 pH값의 변화를 Table 1에 나타내었다. 조사기간 평균 pH는 4.9를 나타내었는데 이는 2005년 결과 (Lee et al., 2007b) 및 1998년도 영농기의 태안지역 평균 빗물 pH 4.6 (Lee and Lee, 2000) 보다 산성도가 낮고 2000년도 평균 pH값 4.8과 유사한 값을 보였다. 이와 같이 빗물의 pH 분포는 조사시기 및 지역의 강우량 등 여러 요인들에 의해 변이가 크게 나타나기 때문에 강우의 산성도 평가를 위해서는 동일지역에 대한 지속적인 평가가 필요하다. 태안지역의 평균 pH 4.9는 작물의 직접적인 피해는 우려되지 않는 수준이

Table 1. Monthly variations of pH of rainwater collected at Taean in 2007.

Month	Apr.	May	Jun.	Jul.	Aug.	Sep.	Oct.
pH _{obs.}	5.5	4.7	4.4	5.4	4.5	5.3	4.3
pH _{the.} [†]	3.7	3.1	3.9	4.2	4.2	4.5	4.0

$$^{\dagger} \text{pH}_{\text{the}} = -\log([\text{H}^+] + [\text{NH}_4^+] + [\text{Ca}^{2+}])$$

다. pH 4.0~5.0 범위의 빗물이 농업생태계에 미치는 영향으로는 토양중 Al의 가용량 증가 (Takuya et al., 1992), 작물의 광합성 저해 (Taniyama and Saito, 1981) 및 작물 잎 표면의 모용(毛茸, trichome)의 피해 (Lee et al., 1993) 등이 알려져 있다. 이론치 (pH_{the.})와 비교한 결과, 조사기간 중 빗물 산성도 증화는 4월과 5월이 다른 기간에 비해 컸음을 보였다.

Figure 6은 태안지역 강우의 산성도 증화를 평가하기 위하여 측정 pH와 기준에 보고(Galloway et al., 1987)에 의해 구한 이론 pH값 (pH_{the.}) 및 fractional acidity (pAi)를 비교한 것이다. pH_{the.}는 $-\log([\text{H}^+] + [\text{NH}_4^+] + [\text{Ca}^{2+}])$ 로 계산되었으며, pAi는 $-\log([\text{nss-SO}_4^{2-}] + [\text{NO}_3^-])$ 값으로 구하였다.

Fractional acidity란 개념은 산성비의 주 원인물질인 SO₄²⁻와 NO₃⁻의 당량농도를 더한 값을 H⁺와의 비로 표현한 것으로 Hara (1996)는 양이온이 강우의 pH에 미치는 영향을 해석하기 위한 방법으로 pAi를 도입하였다. 결국 pAi는 중화가 전혀 일어나지 않았을 경우의 산성도를 의미하므로 pH와의 비교에서 1:1 직선상에 위치하게 된다. 결과적으로 이 직선의 오른쪽으로 치우칠수록 중화가 많이 일어났음을 의미하는 것이다. 그림에서 보듯이 본 조사기간 중 태안지역에 내린 강우는 pH_{the.} 및 pAi와의 비교에 있어 모두 오른쪽으로 위치하여 중화가 일어났음을 보여 주었다.

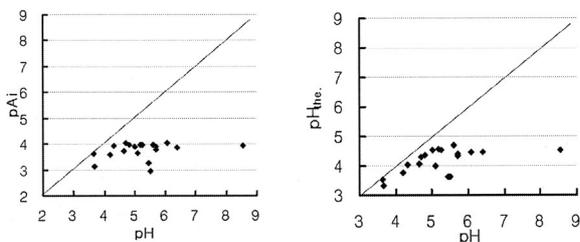


Fig. 6. Correlation between pH and pAi or pH_{the.} of rainwater at Taean in 2007.

$$\text{pAi (fractional acidity): } -\log([\text{nss-SO}_4^{2-}] + [\text{NO}_3^-]),$$

$$\text{pH}_{\text{the.}} \text{ (theoretical acidity): } -\log([\text{H}^+] + [\text{NH}_4^+] + [\text{Ca}^{2+}])$$

적 요

최근 급속한 산업화가 진행되고 있는 중국의 편서풍 영향 하에 위치한 우리나라의 경우에는 장거리 이동에 따른 강우의 산성도 변화 및 예상되는 피해에

대한 대책 마련을 위하여 강우의 화학성에 대한 지속적인 모니터링이 필요하다.

태안지역 강우의 화학적 특성을 알아보기 위하여 2007년 4월부터 10월까지 19점의 빗물을 채수하여 pH 및 화학적 성분조성을 조사하였다. 강우량을 고려한 가중평균(volume-weighted mean) 이온농도 변화와 알칼리성 물질들에 의한 빗물의 산성도 중화를 평가한 결과는 다음과 같다.

조사기간 중 평균 pH값은 4.9를 보였다. 빗물의 EC는 조사기간 평균 32.9 $\mu\text{S cm}^{-1}$ 을 나타냈으며, 월별로는 9월에 9.7 $\mu\text{S cm}^{-1}$ 로 조사기간 중 가장 낮은 값을 보였으며, 강우량이 가장 적었던 4월에 91.4 $\mu\text{S cm}^{-1}$ 의 높은 수치를 나타내어 강우량 분포에 따른 EC의 계절적 특성을 보였다. 빗물의 조성에서 양이온 구성은 $\text{Na}^+ > \text{NH}_4^+ > \text{Ca}^{2+} > \text{H}^+ > \text{Mg}^{2+} > \text{K}^+$ 의 순이었으며, Na^+ 와 NH_4^+ 가 전체 양이온 함량의 70% 이상을 차지하였다. 음이온은 $\text{SO}_4^{2-} > \text{NO}_3^- > \text{Cl}^-$ 순으로 SO_4^{2-} 가 약 56%를 차지하였다. Sulfate의 조사기간 중 평균 함량은 152.1 $\mu\text{eq L}^{-1}$ 이었다. 총 sulfate 함량 중 비해염 sulfate (nss-SO_4^-) 함량은 평균 90%로 빗물 중에 함유된 sulfate의 대부분이 인위적인 발생원에서 기인되었다. 또한, 강우 산성도의 중화 정도를 알아보기 위하여 평가한 fractional acidity (pAi) 및 theoretical acidity (pH_{the.}) pH를 비교한 결과 1:1 직선의 오른쪽으로 분포되어 있음에 따라 본 조사기간 강우의 산성도가 빗물에 포함된 각종 알칼리 물질들에 의해 중화되었음을 보였다.

인 용 문 헌

Charron, A., H. Plaisance, S. Sauvage, P. Coddeville, J. C. Galloo, and R. Guillermin. 2000. A study of the source-receptor relationships influencing the acidity of precipitation collected at a rural site in France. *Atmospheric Environment* 34:3665-3674.

Christian, E.J. 1963. *Air chemistry and radioactivity*. p. 327-330. Academic Press, England.

Contardi, V., E. Franceschi, S. Bosio, G. Zanocchi, D. Palazzi, L. Cortessogno, and L. Gaggero. 2000. On the conservation of architectural artistic handwork of the 'Pietra di Finale'. *J. of Cultural Heritage* 2:83-90.

Cronan, C.S., and C.L. Schofield. 1979. Aluminum leaching response to acid precipitation: Effects on high-elevation watersheds in the Northeast. *Science* 204(20):304-306.

- Fujita, S.I., A. Takahashi, J.H. Weng, L.F. Huang, H.K. Kim, C.K. Li, F.T. Huang, and F.T. Jeng. 2000. Precipitation chemistry in East Asia. *Atmospheric Environment* 34:525-537.
- Galloway, J.N., D. Zhao, J. Xiong, and G.E. Likens. 1987. Acid rain: China, United States, and a remote area. *Science* 236:1559-1562.
- Hara, H., 1996: Acid deposition chemistry in Japan. p. 7-17. Strategy for air pollution control in east asia, Japan.
- Jakobowicz, J.M., 1994: Acid rain-An issue for regional cooperation. p. 129-156. Gordon & Breach Science Publishers, USA.
- Johnston, D.W. and G.E. Taylor. 1989. Role of air pollution in forest decline in eastern north America. *Water, Air, and Soil Pollution* 48:21-43.
- Lee, J.S., B.Y. Kim, K.D. Woo, and G.B. Jung. 1993. Study on histological perturbations of leaves of sesame after exposure to simulated acid rain. *Korean J. of Soil Sci. and Fert.* 26(4):308-313. (in Korean with English abstract)
- Lee, J.S., G.B. Jung, J.D. Shin, and J.H. Kim. 2004. Chemical properties of rainwater in Suwon and Taean area during farming season. *Korean Journal of Agricultural and Forest Meteorology* 6(4):250-255. (in Korean with English abstract)
- Lee, J.S., G.B. Jung, J.H. Kim, W.I. Kim, and J.T. Lee. 2007a. Characteristics of ionic composition of rainwater in Suwon. *Korean J. of Soil Sci. and Fert.* 40(2):151-155. (in Korean with English abstract)
- Lee, J.S., G.Y. Kim, J.T. Lee, K.Y. Lee and B.Y. Park. 2007b. Characteristics of ionic composition of rainwater in Taean. *Korean Journal of Agricultural and Forest Meteorology* 9(1):49-54. (in Korean with English abstract)
- Lee, J.S., and K.S. Lee. 2000. Neutralization Assessment of NH_4^+ and Ca^{2+} on Acidity of Rainwater in Korea. *Korean Journal of Environmental Agriculture* 19(1):72-74. (in Korean with English abstract)
- Lee, J.S., Y.K. Jung, and K.S. Lee. 1999. Chemical composition of rainwater in Taean area. *Korean Journal of Environmental Agriculture* 18(3):204-208. (in Korean with English abstract)
- Likens, G.E., J.N. Galloway, and T.J. Butler. 1979. Acid rain. *Scientific American* 241(4):39-47.
- Okochi, H., H. Kameda, S. Hasegawa, N. Saito, K. Kubota, and M. Igawa. 2000. Determination of concrete structures by acid deposition - An assessment of the role of rainwater on deterioration by laboratory and field exposure experiments using mortar specimens. *Atmospheric Environment* 34:2937-2945.
- Park, S.U., Y.H. Lee, and H.J. In. 2000. Estimation of wet deposition of sulfate using routinely available meteorological data and air-monitored data in Korea. *Atmospheric Environment* 34:3249-3258.
- Pearl, M.R. 2000. Acid rain, storm period chemistry and their potential impact on stream communities in Hong Kong. *Chemosphere* 41, 25-31.
- Rinallo, C. 1992. Effects of acidity of simulated rain on the fruiting of 'summered' apple trees. *Journal of Environmental Quality* 21, 61-68.
- Scorer, R.S. 1994. Long distance transport. Acid rain, p. 1-34. Gordon & Breach Science Publishers, USA.
- Taniyama T. and H. Saito. 1981. Effects of acid rain on apparent photosynthesis and grain yield of wheat, barley and rice plant. *Report of Environmental Science Mie University* 6:87-101.
- Takuya, K., K. Yoshishisa, and N. Keiichi. 1992. The effects of simulated acid rain on the uptake of mineral elements in soybean plants. *Journal of Agricultural Meteorology* 48(1):11-18.