山口の酸性雨 Ⅱ

大前 貴之*,網屋 洋子,倉元 一美,山内 祐, 米原 実加,今村 主税,伊原 靖二

Acid Rain in Yamaguchi II

Takayuki OHMAE*, Yohko AMIYA, Kazumi KURAMOTO, You YAMAUCHI, Mika YONEHARA, Chikara IMAMURA, Yasuji IHARA

要旨

2002年8月からの10ヶ月間に本学屋上で採取した雨水のpH, 導電率, 溶存イオン濃度をそれぞれ測定し, このデータを解析した. この期間の試料の各測定結果は、平均pH:4.37、平均初期pH:4.1、平均導電率: $30.0\,\mu$ S/cm、平均初期導電率: $65\,\mu$ S/cm、平均SO $_4^2$ -濃度: $91.53\,\mu$ eq/l、平均NO $_5$ -濃度: $51.16\,\mu$ eq/l、であった. 観測期間の前半に、大気汚染物質の越境移入が原因と考えられる測定値の大きな変動が、各測定項目に見られた. 試料中に溶存するイオンの組成が均質である場合に、pHと導電率の値からSO $_4^2$ -とNO $_5$ -の濃度を算出する式を見いだした.

緒 論

環境問題としての「酸性雨」は「温暖化現象」と比較して、その原因が共に人間のエネルギーと物質の消費にあるにも関わらず、一段と地味でしかも既に解決された問題であるかのような印象を受けやすい。しかしながら、さまざまな環境問題が複雑に連関して形成された環境問題の網目はいまだに一つとして破られておらず、酸性雨問題ももちろん解決されてはいない。この状況が何に起因するかは、京都議定書の批准に際しての国際的なエゴのぶつかり合いによってひきおこされた混乱を見ても容易に推測できたう

われわれは、酸性雨という古くて新しい環境問題を糸口として、地球を覆いつくそうとしている環境汚染の問題を打破するための地球市民ネットワークを山口から構築する事を最終目的に、2001年度から山口市の降水の化学的性質の分析を開始した。この調査結果のうち、本報では前報¹¹ 以降に採取した2002年8月から2003年5月までの山口市における降水の化学的特徴について報告する.

試料の採取方法と測定法

前報と同様に、降り止んでから次の降り始めまでの間隔が6時間未満の降雨は同一の降雨とし、本学

(山口市桜畠3-2-1) の屋上においてレインゴーランド AR-8 II ((株) 堀場製作所) を用いて雨水を採取した. レインゴーランドは安価であるにも関わらず,降水量に換算して約1mmずつの試料の分取が可能な優れた装置であり,将来,市民をネットワーク化した酸性雨監視網の標準的な試料採取装置になると考えられる. 試料のpHと導電率は,それぞれTwin pH 計 B-212 ((株) 堀場製作所)とTwin導電率計 B-173 ((株) 堀場製作所)を用いて,採取後3日以内に測定した. さらに,降り始めから1mmに相当する初期降水中に溶存するイオンの分析には,パーソナルイオンアナライザ PIA-1000 ((株) 島津製作所)を用いた. 初期降水中の溶存イオンの分析は試料採取から1月以内に実施し,その間の試料は冷蔵保存した。

測定結果と考察

今回その解析結果を報告する全試料の,主要な測定項目のデータを表1に示した. ただしpH と導電率の平均値の算出には式1と式2を用い,降水量に応じた重みづけを施した.

平均 pH = $-\log[\{\Sigma_i (v_i \times 10^{-pH})\}/ 総採水量]$. (1) 平均導電率 = $\{\Sigma_i (v_i \times EC_i)\}/ 総採水量$. (2)

ただしここで、vi は i 番目のcupの採水量、すなわ ち (降水量×5 ml) を表し、pHiと ECi はそれぞれ i番目のcup のpHと導電率を表す.

採取した雨水の量は合計715.5 mmであった. これ は観測期間中の総降水量の約6割に相当し²⁾ , 前報よ

りも試料採取率が2割程度向上した. しかしながら台 風来襲時に装置の破損などによる欠測が多く. 今後 さらに試料採取法の改善を検討しなければならない 結果となった.

表1. 2002年8月から2003年5月の間に山口市に降った雨の化学的性質

試料番号	降雨日	平均 pH	初期 pH	平均導電率 *)	初期導電率 *)	SO ₄ ^{2-**)}	NO ₃ -**)	S/N 比	総降水量 *	⁾ 初期降 <u>水量</u> *)
02-25	08/07/02	4.06	4.1	36.7	41	74.92	22.50	3.33	14.0	1.2
02-26	08/10/02	4.86	7.0	16.8	35	39.11	19.15	2.04	4.8	1.2
02-27	08/11/02	4.82	4.0	9.5	43	78.72	13.74	5.73	24.8	
02-28	08/23/02	4.1	4.1	55	55	*	*	*		1.0
02-29	09/16/02	4.05	3.6	25.3	89	245.73	58.93	4.17	30.0	
02-30	10/01/02	3.80	3.8	79.3	82	186.50	84.06	2.22	1.8	
02-31	10/05/02	4.58	6.1	18.0	10	67.84	10.27	6.61	29.6	1.2
02-32	10/15/02	4.7	*	26	*	*	*	*	2.8	*
02-33	10/19/02	4.43	4.4	18.4	25	70.96	38.88	1.83	12.8	1.2
02-34	10/26/02	4.0	4.0	66	66	124.24	90.33	1.38	1.2	1.2
02-35	10/28/02	3.76	3.9	129.7	105	234.33	50.31	4.66	3.0	1.0
02-36	10/31/02	4.61	4.3	12.5	28	88.61	33.98	2.61	16.6	
02-37	11/02/02	4.06	4.0	138.4	180	285.27	160.30	1.78	1.6	
02-38	11/07/02	4.24	4.3	37.5	31	13.86	21.51	0.64	2.2	
02-39	11/08/02	4.11	4.2	102.1	146	190.68	61.47	3.10	4.4	
02-40	11/11/02	4.03	4.0	61.1	68	107.44	39.17	2.74	3.2	
02-41	12/03/02	4.52	5.3	14.7	14	*	*	*		
02-42	12/06/02	4.69	5.8	19.7	17	12.53	16.67	0.75	3.0	
02-43	12/08/02	4.67	4.4	15.2	27	14.77	32.86	0.45	5.4	
02-44	12/16/02	4.21	4.5	33.9	20	*	*	*		
02-45	12/21/02	5.26	5.6	3.1	7	*	*	*		
03-01	01/14/03	4.62	5.2	15.0	6	13.00	3.26	3.98	5.0	
03-02	01/18/03	3.86	3.9	66.0	55	101.99	53.86	1.89	3.0	
03-03	01/19/03	6.55	7.2	364.0	550	*	JJ.JJ	*		
03-03	01/13/03	4.6	*	504.0	*	*	*	*		
03-04	01/22/03	4.40	4.1	19.9	41	54.42	38.03	1.43	29.0	
03-05	02/04/03	4.17	3.6	28.9	98	87.10	151.65	0.57	15.0	
03-00	02/04/03	4.17 4.44	4.2	14.8	36	63.91	28.05	2.28	19.2	
03-07	02/06/03	4.44 4.07	4.2	36.1	64	114.58	73.21	1.57	6.2	
03-08	02/19/03	3.79	3.5	107.5	260	583.72	514.22	1.14	19.4	
03-09	02/19/03	3.79 4.14	4.1	35.1	45	81.82	30.09	2.72	21.4	
03-10	02/22/03	4.14	4.1	46	46	*	30.09	Z.1Z *		
03-11	02/24/03	4.5 4.6	4.5	32	32	*	*	*		
03-12	02/26/03		4.6					2.11	9.6	
03-14	03/03/03	4.72 4.45	4.0	15.4 54.7	27 78	58.67	27.80	2.11		
						98.82	39.35	1.88	3.8	
03-16 03-17	03/06/03	4.58	5.1	23.0	11 *	22.72 *	12.10	1.00	29.2	
	03/07/03	4.7	*	68			*			
03-18	03/14/03	4.42	4.5	18.5	24	47.49	19.80	2.40	18.2	
03-19	03/22/03	4.28	4.0	63.6	51	70.98	38.12	1.86	2.2	
03-20	03/24/03	3.50	3.4	115.8	140	*	*	*		
03-21	03/27/03	4.06	4.0	56.7	77	216.25	66.11	3.27	3.0	
03-22	03/31/03	4.35	4.0	33.5	96	214.42	108.14	1.98	15.4	
03-23	04/03/03	4.5	*	18	*	*	*	*		
03-24	04/07/03	4.45	4.5	33.1	37	55.64	45.26	1.23	16.6	
03-25	04/11/03	4.22	4.1	46.9	65	95.84	43.58	2.20	10.0	
03-26	04/19/03	4.47	4.6	21.9	26	46.65	31.62	1.48	29.2	
03-27	04/23/03	4.1	*	55	*	*	*	*		
03-28	04/24/03	4.62	4.5	12.3	28	49.59	26.89	1.84	20.2	
03-29	04/25/03	4.32	3.6	23.3	136	*	*	*		
03-30	05/01/03	4.39	4.1	26.1	76	148.80	65.68	2.27	19.8	
03-31	05/06/03	4.36	4.3	26.7	43	44.83	52.61	0.85	9.6	
03-32	05/07/03	4.51	4.9	20.7	15	24.38	21.16	1.15	29.0	
03-33	05/11/03	4.72	4.8	13.7	19	17.49	16.43	1.06	7.8	
03-34	05/13/03	4.92	4.5	6.9	26	28.02	17.16	1.63	28.9	
03-35	05/15/03	4.52	4.5	20.8	26	25.92	23.74	1.09	4.0	
03-36	05/19/03	3.70	3.8	111.4	125	160.67	101.24	1.59	4.4	
03-37	05/26/03	4.40	4.4	38.1	39	27.41	26.47	1.04	2.8	
03-38	05/31/03	5.15	5.7	7.3	16	19.15	9.64	1.99	23.2	3.0

^{*):} 導電率の単位は、μS/cm . **): イオン濃度の単位は、μeq/l . #): 降水量の単位は、mm .

山口市において採取した雨水のpH

表1に示したデータをもとに、重みづけを施して求めた各月ごとの平均pHと平均初期pHを図1に示した。ただしここで初期pHとは、初期降水のpHを意味する。前報で指摘したように、夏期に低下したpHの値が冬期から春期にかけて回復するという季節変動の傾向を図から読みとることができる。しかしながら、厳冬期の12月と1月に見られたpH値の著しい低下は、前報のデータからは予測できなかったお新たな知見であった。この厳冬期のpHの低下現象が異常気象による単年度のものであるのか否かについては、今後さらに詳細な検討を要するものと考えられる。すなわち、雨量の多寡に依存するこれらのデータの平年値を得るためには少なくとも3年から5年間のデータの蓄積が必要であり30、今後、平年値の情報が得られた段階でこのデータをさらに検討することとした。

さらに、pHの値に注目すると、平均pHも平均初 期pHも5を大きく下回っており、環境ストレスによ って一気に環境破壊が顕在化する可能性があると考 えられる水準であった. 現在, 山口市の自然環境が 比較的良好であるように見えるのは、平均pHの値と 平均初期pHの値に大きな差があることから推測でき るように、初期降雨による環境ダメージをそれ以降 の雨水が軽減しているためであると考えられる. す なわち、後に示す導電率の測定値からも予測できる ように,酸性大気汚染物質の絶対量が都市部に比べ てまだ微量であることが、山口市の自然環境をかろ うじて良好に保っているのだと考えられる. しかし ながら、雨水よる土壌の酸性化すなわち塩基成分の 溶脱がpH4を境に急激に進行するというモデル実験 の結果 を考慮すると、図1に示した雨水の酸性度か ら推測できる山口市の大気汚染は直ちに対策を講じ る必要のある水準にあるのではないかと考えられる.

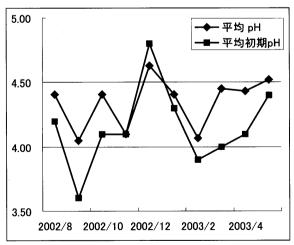


図1. 2002年8月から2003年5月までの期間に 山口市に降った雨の酸性度

山口市において採取した雨水の導電率(EC)

表1に示したデータをもとに、重みづけを施して求 めた平均ECと平均初期ECを図2に示した.ここで初 期ECとは、初期降水のECを意味する、図2からま ず解るように、pHの場合とは異なり、ECの測定値 には明確な季節変動が見られなかった。 ただし、採 水量が他の月に比べて少なかった2002年11月と2003 年1月において、平均ECと平均初期ECの値の顕著な 上昇が見られた. 降水量が減少すれば雨水に溶け込 む汚染物質の濃度は上昇すると考えられるので,こ の現象は季節的なものではなく、降水量に依存した 単年度の現象と考えられる. また平均ECと平均初期 ECの値を比較すると、2002年12月を除いて数10μ S/cmの差が両者の間に見られ、常に平均初期ECの 値が平均ECの値を上回った、この差は、降雨の進行 にともなって、いわゆるウオッシュアウトによる大 気洗浄が山口市上空の大気中でおこった結果である と考えられる.

次にECの値に注目すると、平均ECと平均初期ECの測定値は、それぞれ $20\,\mu$ S/cmと $60\,\mu$ S/cmを中心にした狭い範囲に収まった。都市部において我々と同じ方法で雨水を採取・分析したデー 9^{50} と比較すると、山口市におけるECの値は約半分程度にすぎない。導電率法 50 が雨水の標準的な分析法の一つとして知られることからも解るようにECは溶液中の溶存イオンの種類と量に敏感であることから、今回のECの測定結果は山口市上空の大気汚染の程度が都市部のような深刻な状況には至っていないことを示唆するものであると考えられる。

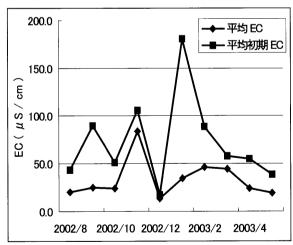


図2.2002年8月から2003年5月までの期間に 山口市に降った雨の導電率

山口市において採取した雨水のSOXとNOXの濃度

表1に示したデータをもとに、重みづけを施して求 めたSOXとNOXの平均濃度を図3に示した.この二 つのイオンは、化石燃料の消費活動に基づく環境の 酸性化現象の主因と考えられておりで、雨水中に溶 存するさまざまな化学種の中でも特に注目する必要 のあるイオンである. 二つのイオンの変化傾向を月 ごとの平均値で見ると、SOX濃度は2002年9月と2003 年2月に鋭いピークを作り、2002年12月に深い谷を作 った、またNOX濃度は2003年2月に急激な上昇を示 した. SOXとNOXの示すこの濃度変動の原因は明ら かではないが、図1と図2にそれぞれ示したpHと ECの値の変化傾向との間に矛盾はないと考えられ た. しかしながら、pHやECのグラフが示すピーク の相対的な大小関係は、SOXまたはNOXどちらか一 方の濃度のグラフにおけるピークの大小関係と必ず しも一致しなかった.

そこで、我々はSOXとNOXの濃度をpHとECの関数として求めることを以下に示すように試みた.これは緒論にも述べたように本研究の目的が市民による環境保全ネットワーク作りにあり、この目的のためには容易に測定することができる間接的環境指数であるpHやECから人間の物質消費やエネルギー消費を直接反映する環境指数であるSOXやNOXの濃度の簡便な算出法の確立が望まれると考えたためである。この結果、SOXとNOXの濃度をpHとECの関数として表す回帰式が以下のように得られた.ただしここで、[X] は μ eq/l単位で表したXの濃度を示す.

 $[SOX] = 0.235647 \times 10^{6-pH} + 1.687564 EC - 13.0963$. (3) $[NOX] = 0.238797 \times 10^{6-pH} + 1.116385 EC - 25.4515$. (4)

こうして得られた、式3と式4の重決定はそれぞれ、 0.752と0.869であった。また分散分析の結果から、式 3と式4が有意な回帰式であることを裏付ける結果 が得られた. ただし、導電率法を用いて雨水の性質 を分析する場合を思い出せばすぐに解るように、pH やECの値はSOXやNOX以外の溶存イオンにも左右 される、従って、式3と式4は雨水中の溶存イオン 組成がほぼ同一と考えられる山口市周辺でのみ適用 可能なものであり、市民レベルでのモニタリングを 全国展開する場合には、各測定地域の代表地点ごと に同様の回帰式を準備する必要がある. これは、回 帰式を用いてSOXやNOXの濃度を求めるという手法 の大きな欠点ではあるが、pHとECの値だけからこ れらのイオン濃度が実用的な水準で算出できる可能 性のあることを初めて指摘したことは、本研究の大 きな成果であると考えられる.

さて再び図3に注目すると,2002年9月から2002年 11月までの3ヶ月間のS/N比だけが1を大きく上回っ ていることが解る。しかしながら,この期間以外の S/N比の値はほぼ1であることと全観測期間中のS/N 比の平均値が2.16であることから,山口市においては都市型の大気汚染が進行していることが推定できた^{1.80} . 上述の期間においてS/N比の値が1を大きく上回る原因として,季節風による汚染物質の越境移入が考えられる。しかしながら,越境移入の当否を議論するためにはCMB法⁹⁰ などによる汚染物質の排出源の推定を実施する必要があるため,CMB法プログラムの開発および測定対象とするイオンの再検討を今後の課題とした。

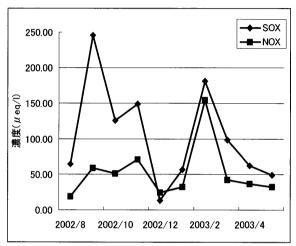


図3.2002年8月から2003年5月までの期間に 山口市に降った雨のSOX及びNOX濃度

山口市における降雨に含まれるイオン種

初期降水中に含まれるさまざまなイオンのうち,多くの先行研究¹⁰⁾ において検出対象となっていた9種のイオン濃度を本調査においても測定し、その測定結果を表2に示した。ただし、イオンバランスが0.67未満あるいは1.5以上のデータは、未検出の化学種が溶存イオンの主要成分となっている可能性があると考えられるので⁶⁾ 、表2には採録せず解析対象としなかった。

イオンバランスの検討の結果、2002年9月から2002年12月までの期間に測定した多くのデータが棄却されることとなった。既に前節でも指摘したように、この期間はSOXとNOXの濃度バランスが大きく崩れた時期と重なった。この事実から、この期間の山口市の雨水中には、今回の測定対象以外の越境移入による大気汚染物質が含まれている可能性の高いことが推定できる。しかしながらこの推定を検証するためには測定法に関するいくつかの改善が必要であり、これについては前節でも述べたように現在検討中である。

上述の越境移入の可能性が低いと考えられる期間

について求めた各種イオン濃度の平均値を, 図4に レーダーチャートで示した. ただし、レーダーチャ ートの各種イオンの濃度は μ eg/lで示した. この図 から山口市の雨水の化学的な特徴として, Mg2+ とK+ の濃度が低いこととCa2+ とNa+ の濃度が高いこと, の二点を直ちに読みとることができる. イオン濃度 についてのこの特徴によって、初期降水中のSOXや NOXの濃度が首都圏並の値を示している¹¹⁾ にもか かわらず山口市における雨水のpHが極端に低下して いないという観測結果が合理的に説明できる. すな わち、SOXやNOXによって低下したpHの値を、土 壌由来成分と考えられるCa²⁺ が回復していると考 えることが可能である. このような現象は, 環境省 によって実施された雨水の全国調査12)で飛び抜けて 良好なpHの値が報告されている宇部市においても発 生している可能性が高く, 現在, 調査協力者ととも にデータを収集中である.

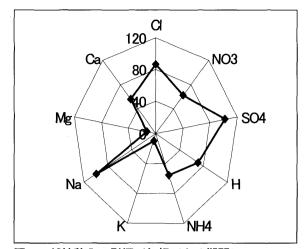


図4. 越境移入の影響が無視できる期間に 山口市に降った雨の中に含まれていた 各種イオンの平均濃度

表 2. 2002年8月から2003年5月の間に山口市に降った雨に含まれていたイオンの濃度

試料番号	CI	NO ₃	SO ₄ ²⁻	nss-SO ₄ 2-	H⁺	NH ₄ ⁺	K⁺	Na [†]	Mg ²⁺	Ca ²⁺	nss-Ca ²⁺
02-25(8月)	46.98	22.50	74.92	67.81	79.43	20.20	0.00	59.13	7.05	32.19	29.61
02-27(8月)	13.37	13.74	78.72	75.86	100.00	21.93	0.00	23.80	0.00	0.00	0.00
02-39(11月)	644.96	61.47	190.68	95.40	63.10	132.07	23.54	793.15	0.00	199.65	165.07
02-40(11月)	136.97	39.17	107.44	104.90	100.00	39.67	9.24	211.83	0.00	18.16	8.92
02-42(12月)	22.33	16.67	12.53	6.70	1.58	20.16	0.00	48.54	0.00	0.00	0.00
03-05(1月)	63.65	38.03	54.42	46.34	79.43	10.23	6.55	37.31	8.41	39.11	36.18
03-06(2月)	111.51	151.65	87.11	78.83	251.19	65.52	9.18	102.15	21.03	57.48	53.02
03-07(2月)	30.85	28.05	63.91	59.60	63.10	24.21	3.18	35.92	7.27	34.74	33.17
03-08(2月)	75.64	73.21	114.59	101.17	100.00	35.73	10.49	111.68	19.99	83.91	79.04
03-09(2月)	111.64	514.22	583.72	568.79	316.23	483.29	57.76	124.28	57.31	287.85	282.43
03-13(3月)	32.30	22.32	40.32	34.76	19.95	13.86	4.54	46.31	5.96	30.23	28.21
03-14(3月)	32.64	27.80	58.67	51.54	25.12	27.17	2.85	59.32	7.87	21.97	19.39
03-15(3月)	320.83	39.35	98.82	60.95	39.81	39.08	11.33	315.24	63.86	52.10	38.36
03-16(3月)	10.13	12.10	22.72	19.40	7.94	6.36	0.00	27.62	0.00	11.12	9.91
03-18(3月)	10.52	19.80	47.49	45.03	31.62	13.02	3.80	20.49	0.00	29.66	28.77
03-21(3月)	24.18	66.11	216.25	211.98	100.00	136.83	9.25	35.52	9.70	68.55	67.00
03-22(3月)	44.87	108.14	214.42	208.75	100.00	90.33	11.37	47.20	20.74	117.59	115.53
03-24(4月)	77.53	45.26	55.64	48.78	31.62	30.05	6.48	57.07	17.78	37.70	35.21
03-25(4月)	113.16	43.58	95.85	84.13	79.43	37.56	5.32	97.51	20.43	32.82	28.56
03-26(4月)	30.96	31.62	46.65	42.82	25.12	16.71	7.83	31.83	9.64	41.32	39.93
03-28(4月)	14.63	26.89	49.59	47.74	31.62	36.76	5.60	15.38	2.90	16.66	15.99
03-30(5月)	128.50	65.68	148.80	136.02	79.43	61.55	33.01	106.40	30.64	85.39	80.76
03-31(5月)	31.96	52.61	44.83	39.42	50.12	21.01	6.70	45.02	7.97	46.11	44.15
03-32(5月)	15.95	21.16	24.38	22.91	12.59	9.45	2.52	12.21	1.09	17.07	16.53
03-33(5月)	28.89	16.43	17.49	13.96	15.85	9.96	3.37	29.45	5.23	21.66	20.38
平均值	87.00	62.30	102.00	90.94	72.17	56.11	9.36	99.77	12.99	55.32	51.05

注:溶存イオン濃度の単位は、μ eq/l

結 論

2002年8月から2003年5月までの山口市における降水の分析から、山口市における大気汚染に関して次のことが明らかになった.

- 1) 初期ECと平均ECの比較から、山口市における 大気汚染の程度は首都圏に比べればまだ軽微な ものであること.
- 2) S/N比の値から、山口市における大気汚染が都 市型であること.
- 3) pHと溶存イオンの分析から、降水のpHの値が 極端に低下していないのは土壌由来成分である Ca²⁺の作用によるものであり、山口市の大気汚 染は雨水のpHから考えられるよりも確実に進 行していると考えられること.

謝辞

本調査を実施するに当たり、イオングループ環境 財団と本学研究創作活動助成事業の助成を受けまし たことをここに記して感謝いたします.

参考文献

- 1) 大前貴之,今村主税,伊原靖二,山口県立大学生活科学部研究報告,28,41-46(2003).
- 2) http://www.data.kishou.go.jp.
- 3) (社)日本化学会·酸性雨問題研究会編, 高橋 章, 藤田慎一,

"続 身近な環境問題", コロナ社 (2002), pp. 5-12.

- 4) (社)日本化学会編, 佐藤幸夫,
 - "季刊 化学総説 土の化学", 学会出版センター(1989), pp. 162-167.
- 5) 酸性雨調査プロジェクト研究会編,山下雅文, "みんなでためす酸性雨調査大作戦",合同出版(2002),pp. 50-68.
- 6) 慶應義塾大学理工学部化学研究室編,"首都圏 の酸性雨",

慶應義塾大学出版会(2003), pp. 25-28.

7) (社)日本化学会・酸性雨問題研究会編,原 宏, "身近な環境問題".

コロナ社 (1997), pp. 2-12.

- 8) 片岡正光, 竹内浩士, "酸性雨と大気汚染", 三共 出版(1998), pp. 48-53.
- 9) 慶應義塾大学理工学部化学研究室編, "首都圏 の酸性雨",

慶應義塾大学出版会 (2003), pp. 98-105.

10) 例えば, 玉置元則, 加藤拓紀, 関口恭一, 北村守次, 田口圭介, 大原真由美, 森 淳子, 若松伸司, 野村健太郎, 大喜多敏一, 山中芳夫, 原 宏, 日化, 1991, 667-674; 鳥山成一, 島田博之, 荒川久雄, 高田忠幸, 藤平蔵芳光, 日化, 1991, 682-

689; 志田淳一, 小沢正宣, 内海孝裕, 日化, 1992, 862-867; 志田淳一, 坂本 潤, 持木一夫, 日化, 1994, 156-161; 今井昭二, 神谷直子, 田中俊行, 林 康久, 日化, 1995, 929-933; 志田淳一, 広瀬慎悟, 吉川 律, 日化, 1999, 425-429, など.

11) 慶應義塾大学理工学部化学研究室編, "首都圏 の酸性雨",

慶應義塾大学出版会(2003), pp. 37-59.

12) http://www.env.go.jp/press/press.php3?serial=3623.