

波照間島及び沖縄本島北部の辺野喜における エアロゾル中の $nss-SO_4^{2-}$ と NO_3^- 濃度について

Comparison of $nss-SO_4^{2-}$ and NO_3^- in the Aerosol between Hateruma Island and Benoki in Okinawa

金城義勝・友寄喜貴・与儀和夫・平良淳誠・阿部義則

Yoshikatsu KINJO, Nobutaka TOMOYOSE,
Kazuo YOGI, Junsei TAIRA and Yoshinori ABE

Abstract: Investigation of $nss-SO_4^{2-}$ and NO_3^- in the aerosol was conducted in Hateruma Island from August 1998 to February 1999. Benoki is located in the northern part of Okinawa Island where is considered to clean area, was also monitored for comparison. The concentrations of $nss-SO_4^{2-}$ and NO_3^- at Hateruma Island through observation term demonstrated that these value were higher 1.6 ($nss-SO_4^{2-}$) and 4.2-fold (NO_3^-), respectively than those of Benoki. Meteorological data showed similar the direction of wind both sites, for example oceanic air mass would influence decrease in $nss-SO_4^{2-}$ and NO_3^- in August. On the other hand, migratory anticyclone or continental high pressure was made in September, could be increased in $nss-SO_4^{2-}$ and NO_3^- by long-range transportation of the air-pollutants from the East Asia region. In addition, though Hateruma Island is surrounding ocean indicated slightly high concentrations that may be caused by influence of polluted-air, which was emitted from the Yaeyama Islands.

Key words: Aerosol, $nss-SO_4^{2-}$, NO_3^- , Hateruma, Benoki

I はじめに

国立環境研究所・地球環境研究センターは、平成3年度に沖縄県竹富町（波照間島）に地球温暖化をもたらす温室効果ガス等の観測を目的とした波照間-地球環境モニタリングステーションを建設した。同モニタリングステーションで観測対象としている温室効果ガス（二酸化炭素、メタン及び一酸化二窒素等）は清浄大気中のベースライン濃度の測定を目的としており、観測した大気データへの人為的発生源による寄与の有無を検証しなければならない。人為的発生源による寄与の有無を検証し、観測された大気の起源を推定する方法として、燃焼過程に伴って排出される窒素酸化物や硫黄化合物等のエアロゾル成分分析も一つの方法であり、観測された大気の特解明には重要な役割を果たす。

特に、近年の東アジア地区の経済発展は目覚ましく¹⁾、人為活動に伴って排出される窒素酸化物は対流圏オゾンや温暖化ガス等にも影響を及ぼす事がよく知られており²⁾、観測ステーションにおける観測項目としても重要な観測項目の一つに挙げられる。

この様な波照間ステーションにおける人為的発生源の寄与を推定する事を目的として、エアロゾルに含まれる $nss-SO_4^{2-}$ や NO_3^- 濃度の調査を実施するとともに、比較

対照地区として沖縄本島で清浄と目される北部の辺野喜国設酸性雨局でもエアロゾル中の同調査を実施した。

II 方法

1. 観測地点の地理的条件及び環境条件

(1) 波照間ステーション（以後、波照間Stとする。）

波照間島は沖縄県の最南端に位置し、南北約2.85km、東西約5.85km、面積12.46km²の楕円形の島である³⁾。

図1に示す様に、観測ステーションは島の最東端（北緯24° 03' 14"、東経123° 48' 39"）にあり、発生源の影響が最も少ないと考えられる太平洋側に面している。

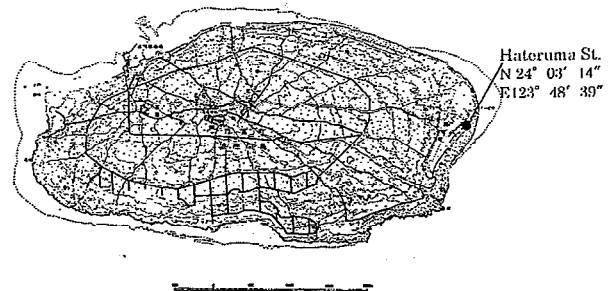


図1. 波照間島における観測ステーションの位置図

観測ステーションの西側には隣接して飛行場があるが、飛行場の利用頻度は午前一回の定期航空便のみである。島の中央部には人口約680人の4字の集落があり、島の大きな大気汚染物質の汚染源としては集落より更に西側にある沖縄電力波照間発電所(500kW)と12月下旬から3月下旬にかけて季節的に稼動する波照間製糖工場がある。島の周辺環境として、波照間島は八重山諸島の中でも最南端に位置し、島の北側約30kmの位置には西表島、北東約58kmの位置には八重山諸島最大の人口を有する石垣島(石垣市:人口約4.4万人)がある。波照間島と西表島及び石垣島を結ぶ内海には7つの有人島(竹富町を形成している。)が点在し、交通機関は石垣市を中心に高速船による観光が盛んである。また、西側約200kmの位置に台湾があり、東側から南側にかけては太平洋に面するとともに海洋性気団の大気観測が出来るような配置がなされている。

(2) 辺野喜国設酸性雨測定局(以後、辺野喜Stとする。)

図2に示す様に、比較対照地区としての同測定所は北緯26°47'8", 東経128°14'55"に位置し、沖縄本島でも最北端の清浄地区と目される国頭村内の北部地域にある。国頭村は沖縄本島最大の面積(194.8km²)を有する村で大部分が山林原野で占められており、中央部には503mから420m級の山々が縦走し、これらの山々を分水嶺として東側は太平洋、西側は東シナ海に面する地形を成している。

辺野喜測定所は分水嶺から東シナ海に注ぐ辺野喜川の

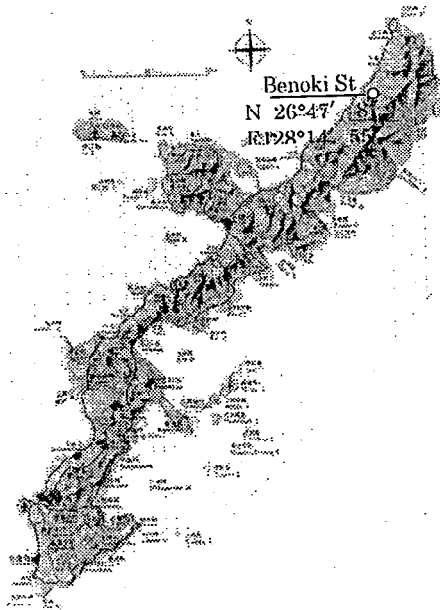


図2. 沖縄本島北部における辺野喜国設酸性雨局の位置図。

中流付近の位置に設置されている。付近の地形的条件として、東シナ海に面した西側の海岸線より約1.6kmほど奥まった山間部の標高約50m地点の谷間にあり、周囲は標高200m級の山々に取り囲まれている。西側の海岸線には国道58号線があり、東側には約1kmの地点に辺野喜ダムがある。最も近い人為的発生源として、尾根伝いに下った西側の国道58号線と約101名の人口を有する辺野喜集落がある。

2 調査方法

波照間Stではタワー上約40m地点にADVANTEC社製KP-47Hフィルターホルダーをセットし、原則的に一月毎のエアロゾルを1998年8月から1999年2月にかけて計6回捕集した。

大気はそれぞれ内径8mmのテフロンチューブをステーションの屋内まで配管し、IWAKI-APN-085HN-1のミニポンプで毎分5リットルの割合で吸引した。期間毎の大気の吸引量は、それぞれのミニポンプに接続した積算流量計及びフローメータ値から計算した。

捕集に使用したフィルターはWhatmanの石英ろ紙(QM-A, 47mm)で、捕集前後のフィルター重量から浮遊じん濃度を算出した。エアロゾルの成分分析は捕集したフィルターの1/4を200mlポリエチレン容器に入れ、50mlのイオン交換水を加えた後15分間超音波洗浄器で洗浄抽出した。得られた可溶性成分は0.45μmのメンブランフィルターで濾過した後、イオンクロマトグラフ法で定量した。

一方、沖縄本島北部の辺野喜Stでは1998年4月から1999年3月までの間、4週間毎に計13回のエアロゾル調査を行った。エアロゾルは地上高約3mの位置から大気を導入し採取した。分析等は波照間Stの試料と同様に行った。

III 調査結果及び考察

表1, 2に両地点におけるエアロゾル中のイオン組成成分の調査結果及び採取期間毎の主風向分布を示した。

1. 浮遊じん濃度

エアロゾル採取前及び採取後のフィルター重量から算出した波照間St及び辺野喜Stにおける月毎並びに4週毎の浮遊じん濃度の変化を図3に示す。

なお、波照間Stと辺野喜Stではそれぞれ採取開始日や採取期間が異なることから、図では波照間Stでの採取期間と辺野喜Stでの採取期間が出来るだけオーバーラップするような月に統一してプロットした。

全調査期間の浮遊じん濃度は、波照間Stが平均21±14

表1. 波照間ステーションにおけるエアロゾル中のイオン組成成分濃度及び採取期間中の主風向分布。

サンプル No.	採取開始 年月日	採取終了 年月日	サンプル 高度	採取 日数	SO ₄ ²⁻ ug/m ³	NO ₃ ⁻ ug/m ³	Cl ⁻ ug/m ³	NH ₄ ⁺ ug/m ³	Ca ⁺⁺ ug/m ³	Mg ⁺⁺ ug/m ³	K ⁺ ug/m ³	Na ⁺ ug/m ³	nss-SO ₄ ²⁻ ug/m ³	nss-Ca ⁺⁺ ug/m ³	エアロゾル ug/m ³	主風向 (16方位)
40-1	98 8 3	98 9 8	40m	36	2.46	0.72	1.88	0.06	1.10	0.20	0.05	1.70	2.03	0.03	8.86	S
40-2	98 9 8	98 10 6	40m	28	4.21	1.23	2.67	0.07	0.16	0.36	0.11	2.82	3.51	0.05	9.36	NNE-EN
40-3	98 10 6	98 11 16	40m	41	5.68	1.32	13.5	0.13	0.55	1.01	0.34	8.01	3.67	0.24	31.0	NNE
40-4	98 11 16	98 12 14	40m	28	3.44	0.81	2.58	0.10	0.16	0.29	0.07	2.20	2.89	0.07	17.6	NNE
40-5	98 12 14	99 1 12	40m	29	2.92	0.50	1.99	0.13	0.22	0.23	0.05	1.59	2.52	0.16	14.2	NNE
40-6	99 1 12	99 2 15	40m	34	8.30	1.99	8.05	0.60	0.57	0.79	0.32	6.06	6.78	0.34	45.3	NE

表2. 辺野喜国設酸性雨観測所におけるエアロゾル中のイオン組成成分濃度及び採取期間中の主風向分布。

サンプル No.	採取開始 年月日	採取終了 年月日	サンプル 高度	採取 日数	SO ₄ ²⁻ ug/m ³	NO ₃ ⁻ ug/m ³	Cl ⁻ ug/m ³	NH ₄ ⁺ ug/m ³	Ca ⁺⁺ ug/m ³	Mg ⁺⁺ ug/m ³	K ⁺ ug/m ³	Na ⁺ ug/m ³	nss-SO ₄ ²⁻ ug/m ³	nss-Ca ⁺⁺ ug/m ³	エアロゾル ug/m ³	主風向 (16方位)
1	98 3 30	98 4 27	3m	28	2.80	0.46	0.91	0.15	0.58	0.13	0.06	0.65	2.64	0.56	19.4	SSE-SSW
2	98 4 27	98 5 25	3m	28	1.26	0.26	0.53	0.03	0.04	0.07	0.03	0.54	1.13	0.02	8.93	S-SSE
3	98 5 25	98 6 22	3m	28	1.84	0.22	0.41	0.19	0.08	0.08	0.04	0.60	1.69	0.06	9.74	SW
4	98 6 22	98 7 21	3m	29	0.64	0.14	0.40	0.00	0.02	0.05	0.02	0.40	0.54	0.00	4.78	SSE
5	98 7 21	98 8 17	3m	27	1.00	0.13	0.16	0.03	0.03	0.04	0.03	0.37	0.91	0.02	11.3	WSW
6	98 8 17	98 9 14	3m	28	2.25	0.17	0.17	0.35	0.07	0.06	0.04	0.42	2.15	0.05	10.4	NNS
7	98 9 14	98 10 12	3m	28	1.94	0.25	0.37	0.16	0.06	0.09	0.03	0.65	1.78	0.03	9.92	NNE
8	98 10 12	98 11 9	3m	28	2.96	0.59	1.32	0.07	0.13	0.11	0.13	1.89	2.48	0.06	9.93	NNE
9	98 11 9	98 12 7	3m	28	3.21	0.30	0.37	0.59	0.11	0.08	0.04	0.54	3.07	0.09	10.9	NNE
10	98 12 7	99 1 5	3m	29	3.53	0.23	0.35	0.84	0.10	0.06	0.06	0.41	3.43	0.08	10.6	NNE
11	99 1 5	99 2 1	3m	27	3.72	0.27	0.77	0.72	0.18	0.10	0.05	0.72	3.54	0.16	13.9	NNE
12	99 2 1	99 3 1	3m	28	3.37	0.14	0.36	0.73	0.07	0.07	0.11	0.50	3.24	0.05	12.9	N-NE
13	99 3 1	99 3 29	3m	28	2.59	0.37	0.58	0.25	0.09	0.11	0.09	0.81	2.38	0.06	9.45	NNE-SE

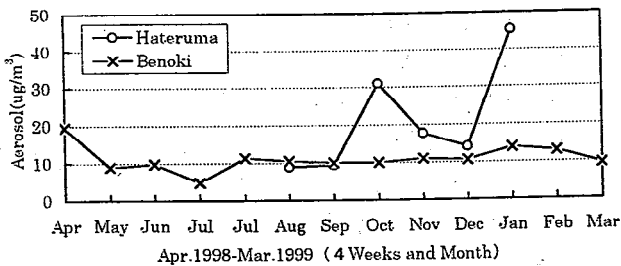


図3. 波照間St及び辺野喜Stにおける浮遊じん濃度の月変化。

μg/m³ (濃度範囲: 8.9 μg/m³~45 μg/m³) に対し、辺野喜Stは平均11±3.3 μg/m³ (濃度範囲: 4.8 μg/m³~19 μg/m³) で、波照間Stに比べ辺野喜Stは約1/2ほど低い濃度傾向がみられた。

月毎の濃度変化は波照間Stが8月、9月に低く、10月及び1月に高い傾向を示したのに対し、辺野喜Stは年間を通して安定した推移がみられ、僅かながら7月に低く、4月に高い濃度がみられた。しかし、10月から1月にかけての浮遊じん濃度は、波照間Stが14 μg/m³~45 μg/m³の範囲で大きな濃度変化を示したのに対し、辺野喜Stは11 μg/m³~14 μg/m³の範囲での濃度変化で、両観測地点に大きな相違点がみられた。

このような浮遊じん濃度の大きな変動差は観測地点の立地条件に伴う気象等による海塩成分の影響が考えられることから両観測地点の風向分布及び海塩成分の影響について検討してみた。

2. 両測定地点の主風向分布

表1及び表2で示す様に、波照間島の地上風は8月から9月にかけて南から北北東に変化し、10月以降は北北東から北東の風が主風向となる。同様な地上風の風向変化は辺野喜でもみられ、8月が西南西に対し9月以降は北北東の主風向分布への変化を示す。

このような主風向分布の変化は東アジア地区特有の季節風^{4, 5)}によってもたらされており、夏季の8月は主として太平洋高気圧の影響を受けた移流気塊がみられ、秋季の9月から春季の5月にかけては大陸からの移動性高気圧や大陸性高気圧の影響を受けた移流気塊による季節変化の影響が考えられた。

ちなみに、採取月毎の濃度変化をみると、波照間Stでは8月から9月にかけて低く、10月及び1月に濃度が高くなる傾向を示しており、辺野喜Stでも7月後半から8月前半にかけて採取した浮遊じん濃度が低く、4月に高い濃度が観測された。

なお、1998年4月15日から25日にかけて中国大陸で大規模な黄砂現象が起きており、辺野喜Stで観測された4月の浮遊じん濃度は同現象を反映しているものと推察された。

3. エアロゾル中の海塩粒子含量

エアロゾル中に含まれるNa⁺イオンを全て海塩起源とみなし、Na⁺イオンを基準として求めた非海塩性硫酸イ

オン濃度(non sea salt)と硫酸イオン濃度の割合から両観測所における海塩粒子の寄与を推定してみた。

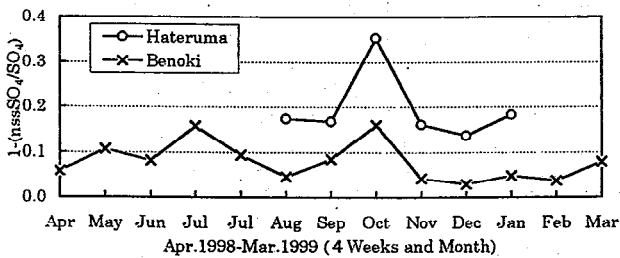


図4. Aerosol中に含まれる海塩粒子の月変化.

図4に示す様に、 $1 - (nss-SO_4^{2-} / SO_4^{2-})$ 比から推定されるエアロゾル成分への海塩の寄与率は波照間Stのタワー高度40m地点で約14~35% (平均20%) であった。一方、辺野喜Stは約4~16% (平均8%) で、海岸線に隣接した波照間Stは辺野喜Stに比べ約2.5倍ほど海塩粒子の影響を受けていることが明らかになった。

また、両観測地点とも10月に類似のピーク現象がみられるが、同ピークは14日頃から16日頃にかけて台風10号が台湾南海上から波照間島に接近し、その後東シナ海に通り抜け、17日には沖縄本島の西側を九州方面に通過したことによる海塩の影響とみなされた。

なお、辺野喜Stで7月の前半に観測されたピークは、16日から18日にかけて中国大陸と鹿児島南海上に2個の低気圧が発生するとともに相乗的に作用しており、その影響による海塩の寄与が考えられた。

4. nss-SO₄²⁻イオン濃度

両調査地点におけるエアロゾル中の非海塩成分nss-SO₄²⁻濃度の月変化を図5に示す。

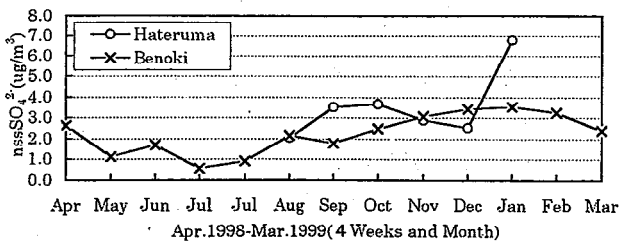


図5. Aerosol中に含まれるnss-SO₄²⁻濃度の月変化.

全調査期間中の平均濃度は、波照間Stで $3.6 \pm 1.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (濃度範囲: $2.0 \mu\text{g}/\text{m}^3 \sim 6.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$)、辺野喜Stは $2.2 \pm 1.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (濃度範囲: $0.54 \mu\text{g}/\text{m}^3 \sim 3.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$) であった。両観測地点の平均濃度を単純に比較してみると、波照間Stで観測されるnss-SO₄²⁻濃度は辺野喜Stに比べ約1.6倍ほど高い傾向がみられた。

月毎の濃度変化は、浮遊じん濃度と同様に波照間Stでは主風向分布が北~北北東の範囲を示す9月から10月及

び1月に高い濃度が観測された。辺野喜Stでは波照間Stに比べ急激な濃度変化はみられないものの、10月から1月にかけて次第に増加し、その後減少する傾向を示したことから季節風に対応した東アジア地区からの移流気塊による影響が考えられた^{6, 7)}。

5. NO₃イオン濃度について

両調査地点におけるエアロゾル中のNO₃濃度の月変動を図6に示す。

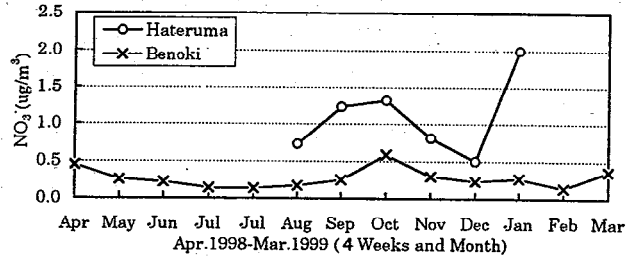


図6. Aerosol中に含まれるNO₃濃度の月変化.

全調査期間中の平均濃度は、波照間Stで $1.1 \pm 0.54 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (濃度範囲: $0.50 \mu\text{g}/\text{m}^3 \sim 2.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$)、辺野喜Stで $0.26 \pm 0.14 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (濃度範囲: $0.13 \mu\text{g}/\text{m}^3 \sim 0.59 \mu\text{g}/\text{m}^3$) であった。両観測地点の平均濃度を単純に比較してみると、波照間Stで観測されるNO₃濃度は辺野喜Stに比べ約4倍ほど高い傾向を示した。

月毎の濃度変化は、nss-SO₄²⁻濃度と同様に波照間Stでは8月に低く、主風向分布が北~北北東の範囲を示す9月から10月及び1月に高い濃度が観測された。一方、辺野喜Stでも7月、8月は濃度が低く、10月には台風10号が東シナ海側を通過したのに伴い、沖縄本島の南部域からのローカルの影響を受けたと思われるピークがみられた。

また、主として北北東方向からの風向の影響を受ける11月から3月の間は、南南西から西南西方向の風向の影響を受ける7月、8月に比べ僅かながら濃度増加がみられた。

6. 波照間St及び辺野喜Stにおけるnss-SO₄²⁻濃度とNO₃濃度の関係

図7, 8に波照間St及び辺野喜Stにおけるnss-SO₄²⁻濃度とNO₃濃度の相関関係を示す。

波照間Stにおいてはnss-SO₄²⁻濃度とNO₃濃度間に $r=0.944$ (図7) と有意な相関関係が得られる。しかし、辺野喜では $r=0.360$ (図8) となり、両イオン濃度間に相関関係は認められない。両観測地点における相関係数の相違は、発生源からの距離による光化学反応時間差が考えられ、波照間Stにおいて9月から1月にかけて観測されるnss-SO₄²⁻濃度とNO₃濃度は東アジア地区からの移流

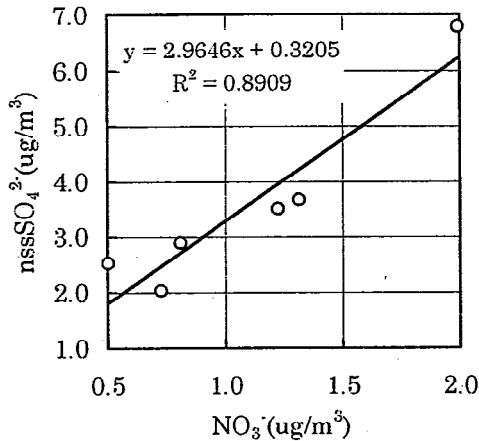


図7. 波照間Stのタワー高度40m地点で採取したAerosol中のNO₃とnss-SO₄²⁻の相関関係.

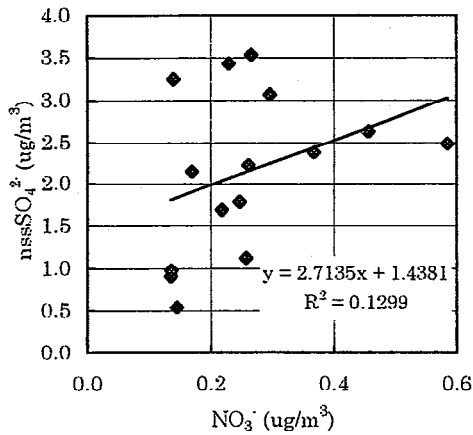


図8. 辺野喜Stで採取したAerosol中のNO₃とnss-SO₄²⁻の相関関係.

気塊とともに八重山諸島のローカルな発生源の影響も受けていることが考えられた。

7. 波照間St及び辺野喜Stにおけるnss-SO₄²⁻/NO₃比について

一般的にローカルの発生源の影響を受けているエアロゾル中のnss-SO₄²⁻/NO₃比は一定になる事が予想される。ちなみに、降水中の全国平均⁵⁾はnss-SO₄²⁻/NO₃比が約2.4で、夏季に比冬季に小さくなる傾向がみられる。

図9に波照間St及び辺野喜Stにおけるnss-SO₄²⁻/NO₃

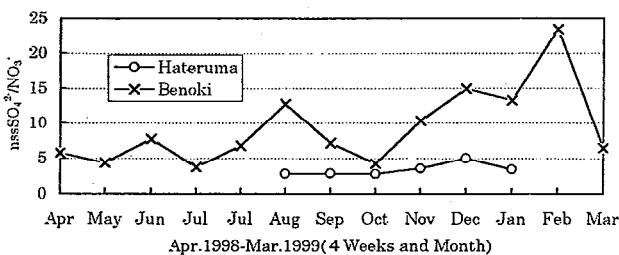


図9. Aerosol中に含まれるnss-SO₄²⁻/NO₃濃度比の月変動推移

比の月変化を示した。

両観測地点におけるnss-SO₄²⁻/NO₃比は、波照間Stで平均3.4±0.86、辺野喜Stで平均9.3±5.6の濃度比がみられた。このようなnss-SO₄²⁻/NO₃比の濃度比は、波照間Stで観測される気塊が比較的一定した濃度比で飛来していることを示唆しているのに対し、辺野喜Stは月毎に大きく変動しており、観測されるエアロゾル成分は比較的遠距離から輸送された気塊が考えられた。

IV まとめ

波照間ステーションにおいて人為起源の気を取捨選択するために1998年8月から1999年2月にかけてのエアロゾル中のnss-SO₄²⁻濃度、NO₃濃度を調べるとともに、比較対象地区として沖縄本島で清浄と目される辺野喜でも1998年4月から1999年3月までエアロゾル中のnss-SO₄²⁻、NO₃濃度も検討してみた。

1. 浮遊じん濃度について

辺野喜Stの平均濃度が11±3.3 μg/m³に対し、波照間Stの平均濃度は21±14 μg/m³と約1.9倍ほど高い傾向がみられた。

2. エアロゾル成分への海塩粒子の寄与率について

1-(nss-SO₄²⁻/SO₄²⁻)から推察される海塩粒子の寄与率は、辺野喜Stで約3~16%(平均7.9±4.4%)に対し、波照間Stは14~35%(平均20±7.9%)と約2.5倍ほど多くみられた。

3. nss-SO₄²⁻濃度について

辺野喜Stの平均濃度が2.2±1.0 μg/m³(濃度範囲: 0.54 μg/m³~3.5 μg/m³)に対し、波照間Stの平均濃度は3.6±1.7 μg/m³(濃度範囲: 2.0 μg/m³~6.8 μg/m³)と約1.6倍ほど高い傾向がみられた。

4. NO₃濃度について

辺野喜Stの平均濃度が0.26±0.14 μg/m³(濃度範囲: 0.13 μg/m³~0.59 μg/m³)に対し、波照間Stの平均濃度は1.1±0.54 μg/m³(濃度範囲: 0.50 μg/m³~2.0 μg/m³)と約4.2倍ほど高い傾向がみられた。

5. nss-SO₄²⁻/NO₃濃度比について

辺野喜Stの平均濃度比が9.3±5.6(濃度比範囲: 3.8~23)に対し、波照間Stの平均濃度比は3.4±0.86(濃度比範囲: 2.8~5.0)と約1/3ほど低い傾向がみられた。

6. nss-SO₄²⁻とNO₃の相関関係について

波照間Stのエアロゾル中の両イオン間ではr=0.944の有為な相関関係が得られたが、辺野喜Stで観測される両イオン間ではr=0.297と相関関係はみられなかった。

7. 波照間Stにおける地上風向分布について

波照間Stも辺野喜Stと同様に8月は南系の風向分布を示し、9月から北北東の風向分布に変化する季節風と関連した風向変化がみられた。

8. 上記の種々の観測結果から8月は海洋性気団の移流に伴ってエアロゾル中の nss-SO_4^{2-} と NO_3^- は低くなり、9月以降は移動性高気圧や大陸性高気圧によって長距離輸送される移流気塊とともに八重山諸島に起因するローカルの発生源寄与の影響を受けてエアロゾル中の nss-SO_4^{2-} と NO_3^- は高くなることが推察された。

V 謝辞

同調査研究の一部は環境庁国立環境研究所・地球環境研究センターからの環境庁地球環境総合研究推進費による受託研究によってなされた。関係各位にお礼申し上げます。

VI 参考文献

1. 科学技術庁科学技術政策研究所編；アジアのエネルギー利用と地球環境，大蔵省印刷局，(1992)。
2. Atmospheric Chemistry: Fundamentals and Experimental Techniques, Barbara J. Finlayson-Pitts,

James N. Pitts, Jr, John Wiley & Sons.

3. 竹富町発行；竹富町の概要，平成9年度版

4. 金城義勝，比嘉尚哉，村野健太郎，畠山史郎，秋元肇；

IGAC(13) 沖縄・辺戸岬における地上オゾン観測オゾンについて，第36回大気環境学会年会講演要旨集，p297,1995.

5. 金城義勝，比嘉尚哉，村野健太郎，畠山史郎；沖縄・辺戸岬の降水特性について，第36回大気環境学会年会講演要旨集，p227,1995.

6. 金城義勝，友寄喜貴，村野健太郎，畠山史郎；IGAC調査(11)ー辺戸岬のオゾン濃度とエアロゾル組成成分についてー，第38回大気環境学会年会講演要旨集，p589,1997.

7. 金城義勝，比嘉尚哉，村野健太郎，畠山史郎；辺戸岬における降水物の nss-SO_4^{2-} ， NO_3^- ， nss-Ca^{2+} ， NH_4^+ イオンの季節変動及びトレンドについて，第38回大気環境学会年会講演要旨集，p281,1997.

8. 全国公害研協議会・酸性雨調査研究部会編；酸性雨全国調査結果報告書，全国公害研会誌，Vol.20, No.20, 1995.1.1