

# 山梨県下において発生した刺激性雨水について

鷹野 茂夫 沼田 一

## 諸 言

昭和48年6月28日山梨県の東部県境に近い上野原町において上野原中学校の生徒たちが午後6時ごろ霧雨の中で眼の痛み等を訴えた。被害地域は旧上野原町、鶴川町などかなり広範囲にわたり被害ノ数は115人に及んだ。その後49年7月関東一円において広範にわたる同様な被害が発生し、その被害者数は極めて多数にのぼっている。被害者は共通して、「雨が眼に入って痛い」「眼がしょぼしょぼして涙が出てくる」等の症状を訴えている。同日の午後に静岡市内で同様の被害が発生し、その雨水が強酸性を呈したことが、また、酸性雨の問題が顕在化してきた当時の状況から、上野原町の刺激性雨も酸性化によるとの予測で、同年7月18日より翌49年7月22日までの一年間の雨水について原因を究明すべく調査を行ったので報告する。

## 調査方法および調査地点

上野原町(図5)は人口約26,000人、主たる事業場の見当らない田園地域である。この地域は四方を山に囲まれ、春から夏には南東の風が多い山間部に位置している。ちなみに被害当時の気象観測データを、隣接している神奈川県相模湖町のデータでみると、午後3時の風向は東南東、風速1 m/sec., 気温17°C, 湿度75%, 雨量0であり、被害発生時の午後6時は、風向北北西、風速0.5 m/sec., 気温17°C, 湿度85%, 雨量0であった。

調査雨水の採取は同町の中心に近い上野原町役場屋上にて年間を通じて行ない、対照雨水試料として、甲府市内の県立衛生公害研究所屋上で採取した雨水を供した。雨水採取は原則として一雨ごとに降り初めのものをポリエチレン製径30 cmのロート、ならびに1 lのポリ容器を用いて採取した。この場合、雨水700 mlは雨量約10 mmに相当する。降雨ごとにpH、導電率、並びに酸性化の要因として挙げられるCl、SO<sub>4</sub>、NO<sub>3</sub>の各陰イオン成分と共に、これらに対応するK、Na、Ca、Mgの各陽イオン成分について、合計79件(うち対照12件)の測定を行なった。

## 測定方法

K、Ca、Na、Mgの各成分は原子吸光光度法により

測定。

NO<sub>3</sub>イオンは雨水100 mlを試料に供し、フェノールジスルホン酸法により測定<sup>2)</sup>。

Clイオンは雨水5 mlを用い、チオシアン酸第2水銀法により測定<sup>3)</sup>。

SO<sub>4</sub>イオンは雨水40~500 mlを必要に応じ約40 mlに濃縮し、塩化バリウム・ゼラチン法により測定<sup>4)</sup>。この場合50 mmセルを使用し、650 mmの吸光度からSO<sub>4</sub>イオンの濃度を求めた。測定範囲は5~20 ppm。

## 試験結果

pH値は表1に示したごとく、pH4以下を示した上野原町の雨水は9件(13.4%)を占めており、被害発生直後の7月18日に採取した雨水のpHは3.50、導電率216 μS/cmを示し、測定雨水中最低であった昭和49年7月16日の雨水(pH 3.48、導電率241.5 μS/cm、被害発生せず)に次いで低いpH値を示した。なお最高は49年2月20日のpH 7.50、導電率134.5 μS/cmであった。各成分の測定結果を表2、3に示す。

普通、大気と平衡にある蒸留水のpH値は、炭酸ガスの平均含有量から、1気圧25°Cで5.7と計算されている<sup>5)</sup>。実際、イオンに解離している塩類の目やずとしての導電率の測定結果をみると、pH5から6の範囲における雨水が平均18 μS/cmと最低を示し、酸性またはアルカリ性が強くなるほど、特に酸性化に伴ってその値は上昇することがみとめられる。さらに各溶存成分量とpHの関係についてみた場合、Ca成分を除き各成分は共にほぼ一致して同一傾向が見られた。すなわちSO<sub>4</sub>は図2に示したごとくpH5前後を中心として低い濃度値を示し、その平均濃度はpH4.5から5の降水で2.73 ppmであった。これに対してpH4以下の酸性雨水は、平均12.4 ppm、最高21.5 ppm、pH7.0以上のアルカリ性雨水は、平均10 ppm、最高12.6 ppmとなっている。ClはpH5~6の雨水の場合最低で、その平均濃度は0.73 ppmである。NO<sub>3</sub>はSO<sub>4</sub>と同様pH4.5~5の雨水が最低で、この場合、酸性側よりアルカリ性側において高い濃度値を示していた。

これらのことから、各陰イオン成分の占める割合を当量比、すなわちm.val%からみると、表4、5に示したごとく上野原町の雨水の場合、pH4以下の酸性雨水はCl 17.3%、SO<sub>4</sub> 74.2%、NO<sub>3</sub> 8.6%とSO<sub>4</sub>によって大部分を占められており、一方pH7.0以上のアルカリ性

表1 県内雨水の pH 成績値 (48年7月18日~49年7月22日)

	pH		測定回数		月別測定回数													
	範囲	平均	件	%	48年						49年							
					7	8	9	10	11	12	1	2	3	4	5	6	7	
上野原町	4.00以下	3.74	9	13.4	1	1	2										5	
	4.01~4.50	4.33	18	26.9	2	1	4	1								1	3	6
	4.51~5.00	4.74	16	23.9	2	4		2					1	1			2	4
	5.01~6.00	5.43	14	20.9			1	1					3	2	3	3	1	
	6.01~7.00	6.42	8	11.9	1	1	1	1			1		2	1				
	7.01以上	7.50	2	3.0								2						
	計		67	100.	6	7	8	5			1	2	6	4	4	8	16	
衛生公害研究所	4.01~5.00	4.70	1	8.3									1					
	5.01~6.00	5.90	1	8.3										1				
	6.01~7.00	6.51	4	33.4							1	2	1					
	7.01以上	7.78	6	50.0	3	2		1										
	計		12	100.	3	2		1			1	3	2					

表2 雨水中の各成分濃度 (上野原町) (ppm)

成分	pH	4.00>	4.01	4.51	5.01	6.01	7.01<
		4.00	-4.50	-5.00	-6.00	-7.00	
導電率 μS/cm	ave.	123.6	35.1	20.4	18.0	44.0	96.3
	max.	241.5	89.4	57.4	47.6	113.51	134.5
	min.	55.7	8.84	7.94	2.77	10.35	58.15
K	ave.	0.25	0.17	0.21	0.10	0.23	0.32
	max.	0.44	0.55	1.15	0.27	0.47	0.47
	min.	0.11	0.01	0.	0.	0.03	0.17
Na	ave.	0.31	0.27	0.41	0.24	0.51	0.92
	max.	0.66	0.62	1.07	0.52	1.00	1.08
	min.	0.12	0.01	0.03	0.01	0.20	0.75
Ca	ave.	0.60	0.58	0.67	0.91	6.04	13.00
	max.	1.14	2.67	3.54	3.38	14.62	18.77
	min.	0.25	0.	0.	0.	0.82	7.23
Mg	ave.	0.09	0.07	0.06	0.08	0.28	0.50
	max.	0.18	0.18	0.30	0.29	0.58	0.58
	min.	0.03	0.01	0.01	0.01	0.05	0.41
Cl	ave.	2.37	1.46	0.90	0.73	2.15	3.46
	max.	4.89	5.72	2.82	2.08	6.53	4.51
	min.	0.52	0.21	0.	0.	0.27	2.40
SO <sub>4</sub>	ave.	12.36	4.43	2.73	3.03	5.19	10.03
	max.	21.50	10.30	9.05	8.90	11.45	12.60
	min.	7.00	1.14	0.64	0.34	1.15	7.45
NO <sub>3</sub>	ave.	2.54	0.95	0.70	0.96	3.70	6.18
	max.	6.40	3.78	3.43	6.80	9.48	6.54
	min.	0.18	0.03	0.03	0.02	0.37	5.81

ave. : 平均値    max. : 最高値    min. : 最低値

表3 雨水中の各成分濃度 (甲府市一衛生公害研究所) (ppm)

成分	pH	4.01	5.01	6.01	7.01<
		-5.00	-6.00	-7.00	
導電率 μS/cm	ave.	32.7	14.3	41.7	63.2
	max.	—	—	91.9	41.7
	min.	—	—	17.9	150.2
K	ave.	0.31	0.12	0.64	0.48
	max.	—	—	1.01	—
	min.	—	—	0.30	—
Na	ave.	0.65	0.34	1.09	3.79
	max.	—	—	1.83	—
	min.	—	—	0.48	—
Ca	ave.	0.82	0.92	3.91	0.42
	max.	—	—	10.46	—
	min.	—	—	1.42	—
Mg	ave.	0.06	0.05	0.17	0.04
	max.	—	—	0.47	—
	min.	—	—	0.06	—
Cl	ave.	1.12	0.32	1.32	1.24
	max.	—	—	3.68	1.93
	min.	—	—	0.08	0.48
SO <sub>4</sub>	ave.	3.34	2.89	5.17	6.28
	max.	—	—	12.30	10.33
	min.	—	—	1.10	3.55
NO <sub>3</sub>	ave.	1.04	0.79	3.77	1.71
	max.	—	—	9.72	4.05
	min.	—	—	0.53	0.45

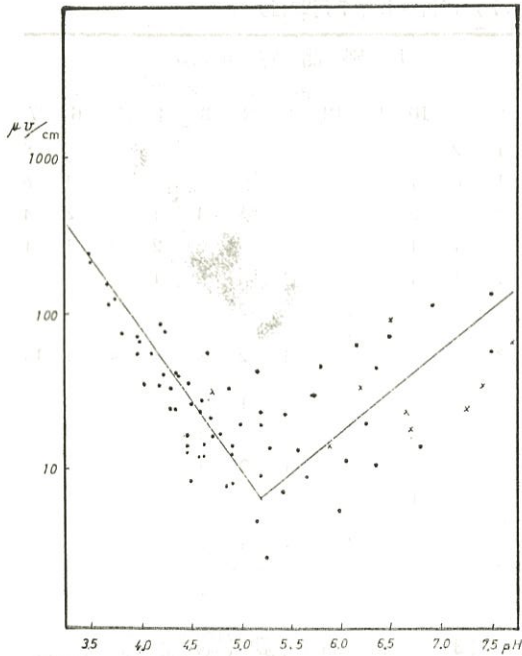


図1 pHと導電率との関係

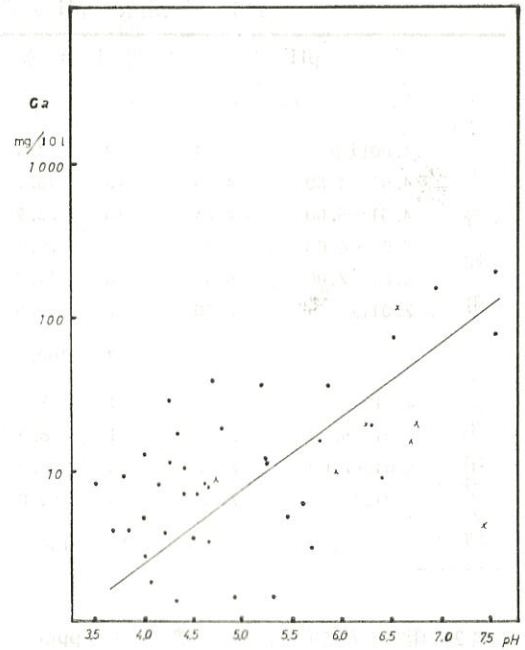


図3 pHとCaイオンとの関係

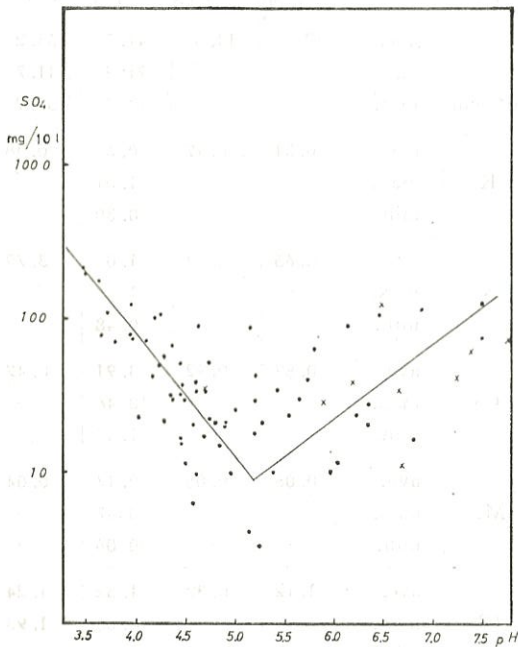


図2 pHとSO<sub>4</sub>イオンとの関係

雨水は、Cl 23.5%、SO<sub>4</sub> 50.8%、NO<sub>3</sub> 25.8%とNO<sub>3</sub>の占める比率が比較的増大している。しかしながら、対照雨水については明らかな傾向は観察されなかった。一方、陽イオン成分についてみると、一般的に酸性側において少く、アルカリ性の強いものほど多くなる傾向がみられ、特にCa成分において明らかであった。(図3)

表4 雨水中の成分濃度比率(上野原町)  
(millival %)

成分	pH	pH					
		4.00>	4.01-4.50	4.51-5.00	5.01-6.00	6.01-7.00	7.01<
K	ave.	12.38	11.21	9.42	5.83	1.63	1.03
	max.	24.84	26.52	25.65	20.76	2.05	1.15
	min.	3.32	2.63	0.	0.	1.41	1.01
Na	ave.	23.14	33.36	41.98	23.39	9.02	6.03
	max.	34.81	68.92	95.57	67.88	15.96	7.56
	min.	14.21	8.83	9.47	6.54	5.22	4.50
Ca	ave.	51.16	39.11	38.15	54.13	82.10	86.70
	max.	67.02	74.50	74.25	78.21	87.61	89.78
	min.	41.61	0.	0.	0.	75.09	83.62
Mg	ave.	13.32	16.32	10.45	16.64	7.26	6.19
	max.	18.64	54.33	38.65	65.39	8.17	7.81
	min.	8.23	5.62	3.38	5.13	5.73	4.57
Cl	ave.	17.26	25.89	26.54	19.67	25.69	23.48
	max.	23.07	39.66	73.07	34.98	32.01	26.33
	min.	8.44	6.94	0.	0.	13.80	20.63
SO <sub>4</sub>	ave.	74.17	66.95	62.90	70.56	51.20	50.78
	max.	89.89	90.29	98.85	93.04	65.56	54.29
	min.	64.46	48.09	22.56	45.82	39.41	47.26
NO <sub>3</sub>	ave.	8.57	7.16	10.56	9.77	23.11	25.75
	max.	15.35	28.69	32.23	36.77	30.08	32.12
	min.	1.50	0.41	1.15	1.19	11.25	19.38

表5 雨水中の成分濃度比率(甲府市衛生  
公害研究所)  
(millival %)

成分	pH	4.01	5.01	6.01	7.01 <
		-5.00	-6.00	-7.00	
K	ave.	9.66	4.52	7.67	6.10
	max.	—	—	12.67	—
	min.	—	—	3.88	—
Na	ave.	34.45	21.78	22.26	81.86
	max.	—	—	33.51	—
	min.	—	—	11.95	—
Ca	ave.	49.87	67.64	65.61	10.41
	max.	—	—	78.37	—
	min.	—	—	54.61	—
Mg	ave.	6.01	6.06	4.47	1.63
	max.	—	—	5.80	—
	min.	—	—	3.80	—
Cl	ave.	26.80	11.02	13.84	17.55
	max.	—	—	20.09	22.13
	min.	—	—	6.69	13.22
SO <sub>4</sub>	ave.	58.99	73.44	58.14	68.90
	max.	—	—	67.96	76.13
	min.	—	—	48.90	55.00
NO <sub>3</sub>	ave.	14.22	15.54	28.04	13.55
	max.	—	—	30.33	27.81
	min.	—	—	25.35	6.55

アルカリ性雨水の Ca 成分は酸性雨水の約10倍以上の高い濃度となっている。

これらの陽イオン成分の濃度比率は表4に示した如く、上野原町で採集した pH 4.0 以下の酸性雨水の場合、K : 12.4 m. val %, Na : 23.1 m. val %, Ca : 51.2 m. val %, Mg : 13.3 m. val % で、pH 7.01 以上のアルカリ性雨水の場合、K : 1.03 m. val %, Na : 6.03 m. val %, Ca : 86.7 m. val %, Mg : 6.19 m. val % と圧倒的に Ca 成分によって占められている。ただし、対照雨水は Na 成分が比較的高い割合を占めており、Ca 成分の影響は比較的少ない傾向がみられた。

これらのことは、雨水の酸性化を論ずる場合、陰イオン成分以外に陽イオン成分についても十分考慮する必要が感じられた。すなわち、両イオンの当量差を上野原町の雨水で見ると(図4)、雨水の酸性化に伴ない陰イオン成分は増大し、最高は pH 3.48 の雨水で陰イオンと陽イオンとの差は 0.62 m. val % であり、SO<sub>4</sub> として 29.8 ppm に相当している。一方 H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> の標準溶液を調製して測定した場合、1 m. val, 50 ppm の溶液は pH 2.78, 導電率 427 μS/cm, 100 ppm の溶液では pH 2.42, 導電

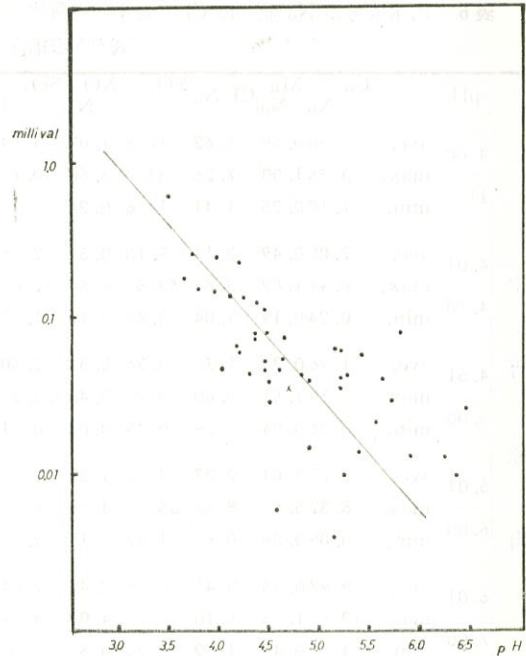


図4 陽イオン成分に対する陰イオン成分量

率 812 μS/cm を示していた。

## 考 察

降水中の成分は海洋起源の海塩粒子、大陸起源の土壌粒子、並びに人類活動によるエアロゾルに因るものと考えられる<sup>67)</sup>。この点に関して三宅等<sup>5)8)9)</sup>は雨水中の諸成分に関する検討より、凝結心核になる海塩粒子の塩化物は一般的に海岸から内陸に進むほど減少するが、硫酸イオン濃度は海岸から内陸に進むほど次第に大きくなること、また (Na/Cl)雨/(Na/Cl)海 の比からも考察して、雨水における各元素の濃縮はアルカリよりアルカリ土類において著しく、Ca 成分は岩石や土壌からの寄与が大きいことを推測している。内陸における上野原町(東京湾より約 54 km)の雨水に含まれる諸成分の濃度関係をみるため Na 又は Cl に対する各成分比について検討すると、pH 7.00 以下の雨水は Cl/Na が最高 13.6, 平均 2.86, SO<sub>4</sub>/Na が最高 54.6, 平均 8.99 となっている。他の地点における雨水の Cl/Na 値は、甲府市(対照雨水) : 0.65, 八丈島 : 1.25, 海水 : 1.17 で、SO<sub>4</sub>/Na 値は、甲府市 : 3.91, 八丈島 : 0.22, 海水 : 0.12 であり、これらのものと比較すると著しく高値を示している。また Ca/Na 値についてアルカリ性雨水では最高 21.1, 平均 15.4 であるが、甲府市 : 1.79, 八丈島 : 0.22, 海水 : 0.05 に比べると極めて高いことが認められた。(表6参照)

表6 雨水成分の Na 並びに Cl に対する当量比  
(幾何平均値)

pH		Ca	Mg	Cl/Na	SO <sub>4</sub>	NO <sub>3</sub>	SO <sub>4</sub>
		/Na	/Na		/Na	/Na	/Cl
4.00 以下	ave.	2.30	0.59	3.62	17.8	1.07	4.54
	max.	3.35	1.00	7.25	31.7	3.60	10.7
	min.	1.19	0.25	1.41	14.6	0.28	3.19
4.01 — 4.50	ave.	2.00	0.49	3.14	9.15	0.54	2.78
	max.	8.41	1.89	13.6	54.6	4.50	12.8
	min.	0.24	0.19	1.04	3.48	0.10	1.33
4.51 — 5.00	ave.	1.96	0.25	1.75	4.26	0.34	2.50
	max.	7.34	1.51	8.00	32.2	2.48	22.2
	min.	0.26	0.04	0.29	0.45	0.08	0.31
5.01 — 6.00	ave.	2.77	0.64	2.37	7.85	1.32	2.98
	max.	8.32	5.67	8.43	35.9	4.85	6.25
	min.	0.09	0.08	0.67	1.92	0.19	1.57
6.01 — 7.00	ave.	9.97	0.85	3.41	5.89	2.47	2.04
	max.	12.6	1.13	5.10	8.27	4.09	4.51
	min.	4.71	0.47	1.72	4.86	0.83	1.05
7.01 以上	ave.	15.4	1.03	2.37	5.17	2.54	2.17
	max.	21.1	1.04	2.72	5.59	3.23	2.29
	min.	11.1	1.02	2.08	4.75	1.99	2.06
甲府市		1.79	0.08	0.65	3.91	1.99	4.22
八丈島		0.22	0.25	1.25	0.22	—	名古屋 0.33
吉祥寺		1.89	0.42	1.30	2.59	—	東京 2.33
海水		0.05	0.23	1.17	0.12	—	0.10

硫酸イオンの起源としていおうの環境循環が検討されているが、天谷<sup>10)</sup>は、産業活動より SO<sub>2</sub> として 33% (70×100万 t/年)、大陸中の H<sub>2</sub>S として 32%、海洋中の H<sub>2</sub>S として 14%、海水飛沫より SO<sub>4</sub> として 21% が大気中に放出されるとのべている。また竹内<sup>11)12)</sup>は SO<sub>4</sub> 成分中の放射性 S を測定して、人工汚染の指標である <sup>32</sup>S が 1960年から 1973年の 13年間に、東京で SO<sub>4</sub> として 42% から 71% に増加し、名古屋で 53% から 75% に増えたことを報告している。

一方、Ca 成分の大部分は陸起源によるものと考えられており、これらのことから見ると上野原町の場合 SO<sub>4</sub>、Ca 等の増大から大陸の影響を受けていることが推測される。陸上の汚染物質は雨のレインアウト、或いはウォッシュアウトの機構の中に取り込まれて、所謂湿性大気汚染の要因として生物に影響しているものと考えられる。雨水による物質除去の機構から考えると、当然降りはじめの雨水中には汚染成分が高濃度に取り込まれることは明らかであり、この点に関して古明地<sup>13)</sup>らは、



図5 降下ばいじん観測地点

表7 降下ばいじん量並びに PbO<sub>2</sub> 法によるいおう酸化物量  
(48年7月より49年7月までの成績値) (幾何平均値)

観測地点	降下ばいじん量 ton/km <sup>2</sup> /月				いおう酸化物量 mgSO <sub>3</sub> /day/100cm <sup>2</sup>		
	不溶性成分	溶解性成分	平均	最高値	平均	最高値	
甲府市	1	1.87	1.79	3.66	5.35	0.18	0.32
	2	1.41	1.79	3.20	4.66	0.15	0.24
	3	1.66	1.13	2.79	4.76	0.18	0.42
	4	1.53	1.02	2.55	3.91	0.15	0.23
	5	1.33	1.05	2.38	4.75	0.19	0.36
	6	2.12	2.17	4.29	7.78	0.17	0.28
	7	1.38	1.37	2.75	6.45	0.29	0.44
8	1.52	0.92	2.44	5.10	0.14	0.30	
9	2.46	1.26	3.72	6.24	0.26	0.87	
10	1.86	1.13	2.99	5.71	0.21	0.52	
11	1.49	1.79	3.28	8.94	0.14	0.32	
12	2.08	1.72	3.80	7.11	0.28	0.41	
13(上野原町)	1.65	1.70	3.35	9.69	0.11	0.23	

都内 5カ所の測定結果から、pH は降水の増加とともに高くなる傾向があり、その他の溶存成分は降水の増加とともに濃度が低下することを報告している。

上野原地域のいおう酸化物量並びに降下ばいじん量を見ると(表7)、いおう酸化物量は県内最低であり、また降下ばいじん量は、48年度は平均 4.6 t/km<sup>2</sup>/月、また 48年7月以降、49年7月までの降下ばいじん量の平均は 3.35 t/km<sup>2</sup>/月 をみとめたが、48年7月 (4.31 t/km<sup>2</sup>/月)、8月 (9.69 t/km<sup>2</sup>/月)、49年6月 (8.00 t/km<sup>2</sup>/月)、7月 (3.15 t/km<sup>2</sup>/月) と田園地域にもかかわらず夏期に多い降下ばいじん量を示したことは興味深く感じられる。

今回の調査結果より、雨水の刺激作用と溶存成分との

相関を明らかにすることは出来なかったが、粘膜刺激が酸性雨水に起因するものと仮定すると、pH 3 以下になる場合の酸濃度は少なくとも遊離酸として 1 m. val, 約 50 ppm に近いものと思われる。この様なミスト等に起因する高濃度の酸性成分の出現には他の汚染物質の増加も関連することが予想され、それらの汚染物質との複合作用についても考慮する必要がある。

すなわち西山<sup>14)</sup>は通常の降雨もかなり酸性であることを指摘し、pH と SO<sub>4</sub> イオン又は NO<sub>3</sub> イオン含量との相関はみられなかったこと、酸単独溶液における微量のホルムアルデヒド (3 ppm) とアクリルアルデヒド (0.1 ppm) の添加実験から、眼刺激作用は pH よりもむしろ酸性物質とアルデヒド類の複合影響ではないかと報告している。

酸性雨の発生機構<sup>15)</sup>として、暖かい空気と冷たい空気との境目が非常にゆるやかな傾斜の度合をもって接触、移動するとき、この空気の境に転移層という汚染物質がたまりやすい気層を形成するためと見られている。栃木県では被害時の天候を調査して、湿度、風向、風速、視程、逆転層の有無などを考慮する条件を発表しているが、本県でも気象状況と雨滴の pH 値によって注意報発令基準を設け、気象については霧雨、濃霧時、pH 4.0 未満の時予報、同じく霧雨、濃霧時、pH 3.0 未満の時は注意報、何れも気象が雨又は晴れ、pH はそれぞれ 4.0、3.0 以上の時は解除発令をすることになっている。

最近、大気中のふんじん或いは亜硫酸ガスは減少の傾向にあることが報告<sup>16)</sup>されているが、事業所の排ガス、自動車の排ガス等の発生源のみならず都市化現象による集中的大気汚染発生も考えられ、それらの大気汚染と酸性雨水の発生との関係及び酸性雨水の刺激作用が pH 以外の他の汚染物質の関与によるものか否かについて検討中である。

## おわりに

48年6月上野原町における刺激性雨水について検討するため以後採取した雨水ごとに、pH、導電率、K、Na、Ca、Mg、Cl、SO<sub>4</sub>、NO<sub>3</sub>の各イオンを測定し、

1) 雨水が酸性化を示す条件として、ミスト等に起因する硫酸成分の著しい増加並びに陽イオン成分、主としてカルシウム成分の相対的低下が影響しているものと推

定される。

2) 雨水による眼粘膜の刺激が、酸性条件に因るものと仮定した場合、雨水のPH値、硫酸水の測定結果、また眼粘膜による緩衝作用等を考慮し、pHは2.00~3.00硫酸濃度として50ppm(SO<sub>4</sub>:1ミリパール)、導電率400μσ/cm付近の特殊条件の発生が予想される。

3) 前項の特殊条件が上野原町において発生する理由を考えるに、酸性雨水が夏期に集中した現象であり、また、PbO<sub>2</sub>法による亜硫酸ガス濃度は県内最低値(48年度:0.16mg SO<sub>3</sub>/日/100cm<sup>2</sup>)であるのに反し、降下ばいじん量(48年:4.60トン/km<sup>2</sup>/月)は、甲府市中央部(3.89トン/km<sup>2</sup>/月)より高く、県内最高であること等から、高度の都市化現象等に起因する大気汚染の広域的影響を受けているものと推定される。

この調査を進めるにあたり、試料の収集等に御援助いただいた上野原町、並びに大月保健所関係職員に厚くお礼申し上げます。

## 参 考 文 献

- 1) 甲府地方気象台:山梨県の気象 気象75年報(1970)
- 2), 3) 三宅泰雄:空気試験法
- 4) 日本分析化学会北海道支部:水の分析 153 化学同人(1969)
- 5) 三宅泰雄, 杉浦吉雄:降水の化学 地人書館(1957)
- 6) 原田朗:大気のバックグランド汚染, 1973, 共立出版
- 7) 角皆静男:雨水の分析, 講談社(1972)
- 8) 三宅泰雄:気象集誌 第二集 17(1) 20
- 9) 竹内:地球化学 5, 1—12(1972)
- 10) 大屋文彦:PPM, 1974—12, 2
- 11) 中井信之, 高橋直子, 竹内忍雄:1974年度地球化学討論会 A21
- 12) Nobuyuki Nakai, M. L. Jensen: Geochemical Journal. 1, 199(1967)
- 13) 古明地哲人ほか:大気汚染研究 9, 2(1974)
- 14) 館稔, 鈴木武夫, 音田正己:公害, 環境の科学 374(1973) 毎日新聞社より引用
- 15) 西山信一:第1回環境保全公害防止研究発表会報告(1974)
- 16) 環境庁大気保全局:日本の大気汚染状況(48年度版)