

原 著

## 三重県における雨水中の酸性沈着物質の長期変動

国分秀樹, 小河大樹, 松谷知幸, 寺本佳宏, 佐藤邦彦, 小川正彦

### Long-term Fluctuation of the Acid Deposition of Rainwater in Mie Prefecture

Hideki KOKUBU, Daiju OGAWA, Tomoyuki MATSUTANI,  
Yoshihiro TERAMOTO, Kunihiko SATO and Masahiko OGAWA

2003年4月から2016年3月に三重県四日市市桜町で実施した雨水中の酸性沈着物質の調査結果と全国の雨水中の酸性沈着物質の変動を解析することにより, 三重県内の酸性雨の変動の特徴について検討した. 2003年から2016年までの雨水中の酸性沈着物質の解析の結果, 三重県四日市における雨水のpHは上昇傾向に, 非海塩性の硫酸イオンや硝酸イオン濃度は減少傾向にあることが明らかになった. また, 四日市に降下する酸性物質の約40~50%程度が県内から, 50~60%が日本海側からの酸性物質の越境の影響によることが推測された. 双方ともに2003年以降改善傾向にあり, 大気汚染防止法や自動車NOx・PM法をはじめとする, 大気環境施策の効果が現れてきていると考えられた.

キーワード: 三重県, 酸性雨, pH, 非海塩性硫酸イオン, 硝酸イオン

#### はじめに

酸性雨による影響は, 1960年代に欧米において湖沼の酸性化と森林被害で明らかになり, 問題化した<sup>1)</sup>. 1970年代には我が国でも大気汚染に起因する降雨の酸性化が問題になり始めた<sup>2,3)</sup>. 環境省では, 国内の酸性沈着の状況やその影響を把握するため, 1983年から酸性雨調査を開始した<sup>4)</sup>.

当県では, 1970年代に予備的な酸性雨の調査<sup>5)</sup>を実施し, 1987年以降酸性雨調査を継続的に行ってきた<sup>8-10)</sup>. さらに1991年以降は, 全国地方自治体の環境関係試験研究機関で構成されている全国環境研協議会(以下, 全環研)による酸性雨全国調査に参加してきた<sup>11-15)</sup>. 全環研による酸性雨の全国調査は, 第1次から第5次調査まで実施され, 現在は第6次調査が実施されている<sup>16,17)</sup>. これまで, 西山ら<sup>18)</sup>により, 各年代における県内の雨水中の酸性沈着物質の特徴については, いくつかの報告がなされているが, 経時的な変動については, 報告がない.

そこで本調査では, 全国と三重県内の雨水中の酸性沈着物質の変動を解析することにより, 三重県内の酸性雨の特徴について考察したので報告する.

#### 調査方法

##### 1. 調査地点

酸性雨試料の採取は, 三重県保健環境研究所(三重県四日市市桜町)の屋上で実施した.



図1 調査地点と比較対象地点

## 2. 採取方法および分析方法

試料採取は自動雨水採水装置（株式会社小笠原計器製作所 US-330 型）を用いて行った。採取した雨水は、装置内のタンクに冷蔵保存され、1 週間毎に回収した。回収した試料は、湿性沈着モニタリング手引き書<sup>19)</sup>に従って、水素イオン指数 (pH)、電気伝導率 (EC)、イオン濃度 (硫酸イオン (SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>), 硝酸イオン (NO<sub>3</sub><sup>-</sup>), 塩化物イオン (Cl<sup>-</sup>), アンモニウムイオン (NH<sub>4</sub><sup>+</sup>), カルシウムイオン (Ca<sup>2+</sup>), カリウムイオン (K<sup>+</sup>), マグネシウムイオン (Mg<sup>2+</sup>) およびナトリウムイオン (Na<sup>+</sup>)) の 10 項目について測定・分析を実施した。分析手法については以下に示す。

水素イオン指数 (pH) : ガラス電極法  
 電気伝導率 (EC) : 導電率計法  
 イオン成分 : イオンクロマトグラフ法

以上の調査を実施した 2003 年 4 月～2016 年 3 月までのデータを解析対象とした。ただし 2007 年のデータは当研究所が試料採取および分析を実施していないため欠測とした。

なお、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>および Ca<sup>2+</sup>は海水中にも多量に含まれ、海塩粒子として大気中に放出されるため、湿性沈着調査において、降水中に含まれるこれらの海塩に由来する成分を Na<sup>+</sup>を基準として海水中の Na<sup>+</sup>に対する比率から算出し、それぞれ SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>および Ca<sup>2+</sup>の全体から海塩に由来する部分の ss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>および ss-Ca<sup>2+</sup> (ss : sea salt) を差し引くことによって海塩粒子に由来しない部分である nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>および nss-Ca<sup>2+</sup> (nss : non seasalt) を求めた。算出式を以下に示す。

$[nss-SO_4^{2-}] = [SO_4^{2-}] - 0.06028 \times [Na^+]$  式 1  
 $[nss-Ca^{2+}] = [Ca^{2+}] - 0.02161 \times [Na^+]$  式 2  
 ((単位 : μmol/L) 海水中の濃度を Na<sup>+</sup> : 468.3 mmol/L, SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> : 28.23 mmol/L, Ca<sup>2+</sup> : 10.12 mmol/L とした。)

## 3. 解析に使用した全国データ

比較解析対象データは、地球環境センターが公開している第4次および第5次酸性雨全国調査データ<sup>16,17)</sup>を用いた。

また、三重県との比較対象地点として、図1に示した、全国調査地点の日本海側 (JS), 東部 (EJ), 西部 (WJ) の区分の中から、それぞれ金沢、川崎、

大宰府の観測点を選定した。地点の選定は、期間を通して欠測が少ないことや、立地条件が四日市と比較的類似した状況である等の条件を考慮して行った。

## 結果および考察

### 1. 雨水中の酸性沈着物質の経年変化

降水が酸性を示す主な原因物質は、硫酸イオン (SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>) や硝酸イオン (NO<sub>3</sub><sup>-</sup>) が考えられる。これらの酸性物質が大気中に増加すると雨水の酸性化 (pH の低下) が起こるといわれている<sup>20)</sup>。そこで、雨水中の酸性沈着物質の経時変化について検討を行った。

#### 1.1 pH および水素イオン沈着量

四日市および比較対象とする、金沢、川崎、大宰府における雨水中の pH 及び水素イオン沈着量 (以下[H<sup>+</sup>]沈着量) の 2003 年から 2016 年の月別の経時変化を図 2 に示した。[H<sup>+</sup>]沈着量は、pH から算出した水素イオン濃度 (μmol/L) と降水量 (mm) の積から算出した。

2003 年から 2016 年の pH の変化は年平均値として、四日市で 4.51 から 4.71、金沢で 4.50 から 4.64、川崎で 4.75 から 5.33、大宰府で 4.62 から 4.60 であり、月変動はあるものの、大宰府を除くすべての地点で pH は上昇傾向、[H<sup>+</sup>]沈着量は減少傾向であった。特に関東エリアの川崎では、その傾向がもっと大きかった。また、日本海側の金沢と太平洋側の川崎や四日市では降雨の傾向が逆転し、前者では冬降雨、後者では夏降雨の傾向であった。これは、2003 年以降、四日市、金沢、川崎で大気中の酸性物質の量が減少していることが考えられた。日本海側の北九州地方は特に大陸からの越境大気汚染の影響を受けるといわれており<sup>21)</sup>、その影響により、酸性沈着物質量が減少しないのではないかと考えられた。

表 1 各調査地点における酸性沈着物質濃度

		単位	2003年	2009	2015年
四日市	pH		4.51	4.56	4.71
	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	μmol/L	28.7	24.9	8.9
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	μmol/L	29.0	24.1	18.4
川崎	pH		4.75	4.80	5.33
	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	μmol/L	23.6	19.8	14.2
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	μmol/L	24.8	19.3	14.4
金沢	pH		4.50	4.50	4.64
	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	μmol/L	19.5	17.2	14.8
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	μmol/L	27.3	28.7	20.4
大宰府	pH		4.62	4.61	4.60
	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	μmol/L	22.6	23.9	19.1
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	μmol/L	27.8	27.7	23.4

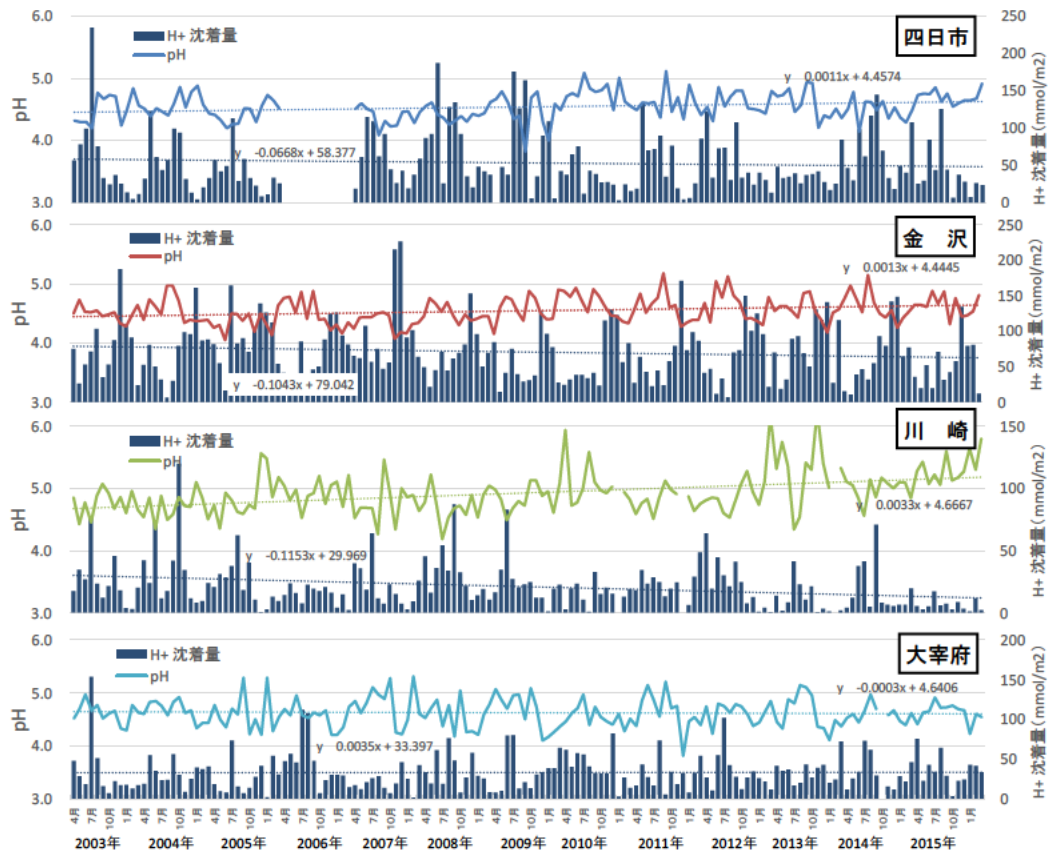


図2 四日市，金沢，川崎，大幸府における雨水中の pH および水素イオン沈着量の経時変化

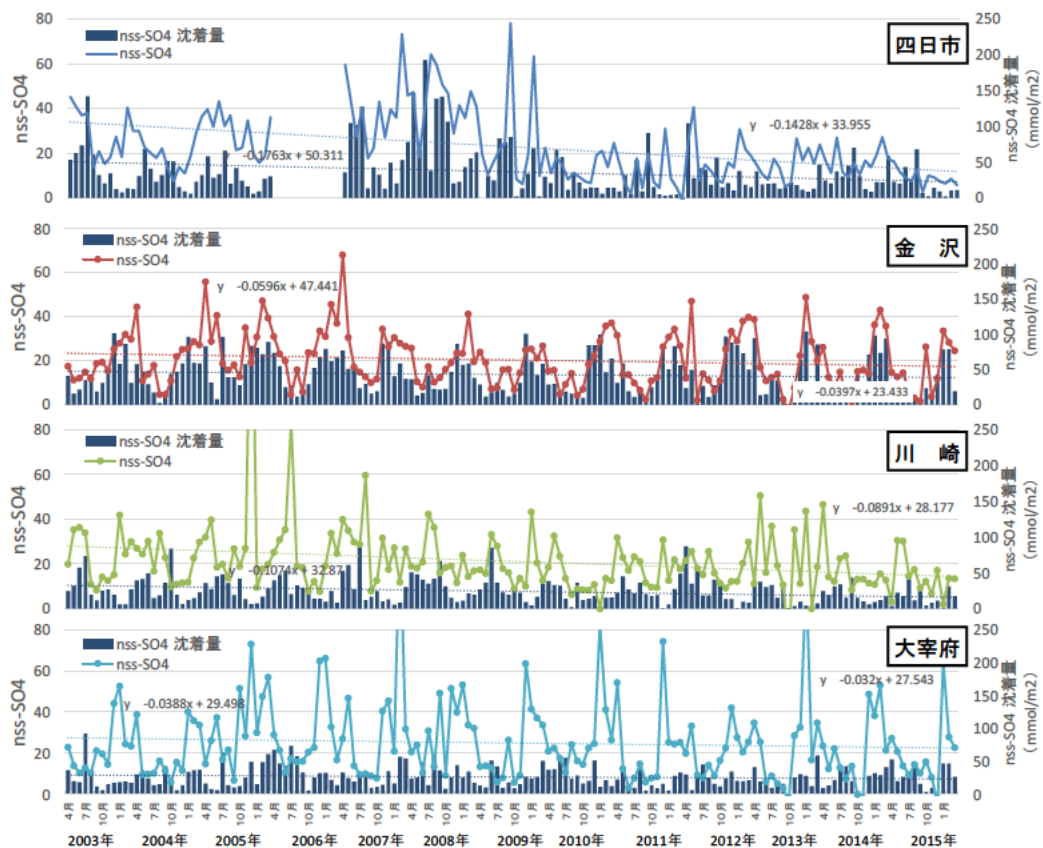


図3 四日市，金沢，川崎，大幸府における雨水中の nss-SO<sub>4</sub> 濃度および nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>沈着量の経時変化





図4 四日市、金沢、川崎、大幸府における雨水中のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>イオン濃度およびNO<sub>3</sub><sup>-</sup>沈着量の経時変化

### 1.2 nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度およびnss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>沈着量

海塩粒子の影響を除去した、非海塩性の硫酸イオン(nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>)について、四日市および比較対象とする、金沢、川崎、大幸府における雨水中のnss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度およびnss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>沈着量の2003年から2016年の月別の経時変化を図3に示した。nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>沈着量は、nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度(μmol/L)と降水量(mm)の積から算出した。

2003年から2016年のnss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度の変化は年平均値として、四日市で28.7から8.9μmol/L、金沢で19.5から14.8μmol/L、川崎で23.6から14.2μmol/L、大幸府で22.6から19.1μmol/Lであり、月ごとの変動はあるものの、すべての地点でnss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度、nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>沈着量ともに減少傾向であった。特に太平洋側の四日市で、その傾向がもっとも大きかった。また、西部(WJ)エリアの大幸府では、降水量の低い冬季に高濃度になる事例が頻繁に確認され、これは大陸からの越境大気汚染の影響ではないかと推測された。

雨水中の硫酸イオンのもととなる大気中の硫黄酸化物は、日本では主に石油系燃料、特に重油中の硫黄分の燃焼により生成するため、主要な発生源は、重油を使用するボイラーや加熱炉等を持つ工場であるといわれている<sup>22)</sup>。また、ディーゼルの燃料である軽油に含まれている硫黄分の規制が、1992年(0.5→0.2%)と1997年(0.2→0.05%)2004年(0.05→0.005%)に行われた<sup>23)</sup>。さらに2012年には、航行船舶に使用される重油中の硫黄分についても規制(4.5→3.5%)<sup>23)</sup>が実施された。これらの対策の効果により徐々に大気中の濃度が減少し(図3)、硫酸イオン沈着量は減少傾向を示したと推測できた。

### 1.3 NO<sub>3</sub>濃度およびNO<sub>3</sub>沈着量

硝酸イオン(NO<sub>3</sub>)について、四日市および比較対象とする、金沢、川崎、大幸府における雨水中のNO<sub>3</sub>濃度及びNO<sub>3</sub>沈着量の2003年から2016年の月別の図3に示した。NO<sub>3</sub>沈着量は、NO<sub>3</sub>濃度(μmol/L)と降水量(mm)の積から算出した。

2003年から2016年のNO<sub>3</sub>濃度の変化は年平均値として、四日市で29.0から18.4μmol/L、金沢で

27.3 から 20.4 $\mu\text{mol/L}$ , 川崎で 24.8 から 14.4 $\mu\text{mol/L}$ , 大宰府で 27.8 から 28.4 $\mu\text{mol/L}$  であり, 月ごとの変動はあるものの, 大宰府を除くすべての地点で  $\text{NO}_3$  濃度,  $\text{NO}_3$  沈着量ともに減少傾向であった. また特に太平洋側の四日市, 川崎で減少量が大きかった. 一方西部 (WJ) エリアの大宰府では, 近年増加傾向を示しており, 降水量の低い冬季に高濃度になる事例が頻繁に確認された. これは大陸からの越境大気汚染の影響ではないかと推測された.

雨水中の硝酸イオンの原因となる大気中の窒素酸化物は, 主に物質の燃焼にともなって生成し, 主な発生源は工場などの固定発生源と自動車などの移動発生源といわれている<sup>22)</sup>. 自動車からの排出総量の削減を図るため, 1992 年に自動車  $\text{NO}_x$  法が制定され, 2001 年に自動車  $\text{NO}_x \cdot \text{PM}$  法に改正された. 三重県では, 県北部の四日市市, 桑名市 (多度町を除く), 鈴鹿市, 三重郡朝日町および同郡川越町の区域が対策地域として指定されている. さらに低排出ガス車優遇制度などによる, 低公害車の導入率の増加によって, 自動車から大気中へ排出される窒素酸化物は減少していると考えられる. 図 5 に示す全国の窒素酸化物の大気排出量の変化からも大気中の窒素酸化物濃度は, 2006 年以降減少傾向にあり, 本研究結果と一致した.

## 2. 四日市における雨水中の酸性沈着物質の季節変動と発生源の検討

前段の雨水中の酸性沈着物質の経年変化の解析結果から, 大気中の酸性物質の濃度の低下が確認できた. しかし, 日本海側の大宰府や金沢では, 冬季の大陸からの越境汚染の影響が確認でき, 四日市においても, 冬季に酸性物質の沈着量が増加する事象が確認できた. そこで, 四日市地域における, 雨水中の酸性物質の発生源について, 季節変化を合わせて検討を行った.

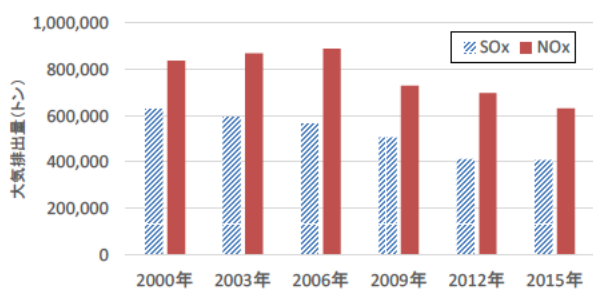


図 5 全国における窒素酸化物と硫黄酸化物の大気排出量の変化

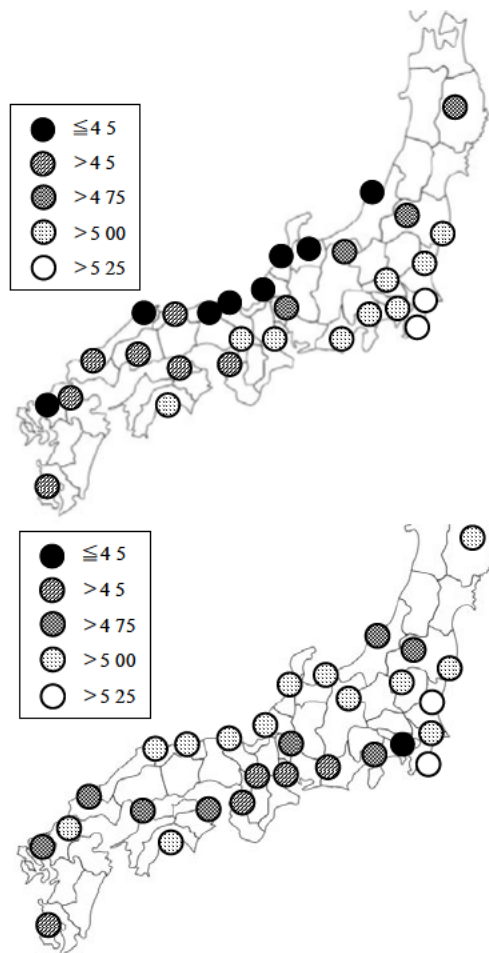


図 6 全国の調査地点における雨水の pH の分布 (上段: 2012 年 1 月, 下段: 2012 年 6 月)

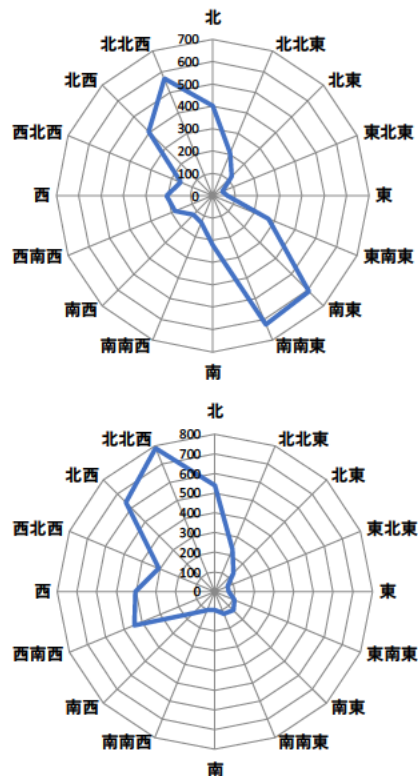


図 7 四日市における暖候期 (4~10 月: 上段) と寒候期 (10~3 月: 下段) の風向分布



## 2.1 pH および水素イオン沈着量の国内の分布

全国の酸性雨観測地点における、月別の pH のデータを用いて、国内の雨水中の pH の分布図を作成した。分布図は、国立環境研究所の「見え見えくん 3.6.2」<sup>24)</sup>を用いて作成した。2012 年 1 月と 6 月における、pH の国内の分布図を図 6 に示した。この分布パターンは、2012 年だけでなく、複数の年度で見られた典型的なパターンである。冬季には、日本海沿岸部と九州北部で低い pH の地点が多く確認でき、太平洋側では、相対的に高くなった。また、夏季においては、太平洋沿岸域の関東や中部の都市部で pH が低くなり、日本海沿岸部では高くなる傾向が得られた。これは、季節風による影響が考えられた。図 7 に四日市における、2003～2016 年の暖候期（4～9 月）と寒候期（10～3 月）の風向の分布図を示す。寒候期には北北西から北西風が卓越し、夏季には南東と北西風が主な方向で吹いていることがわかる。四日市の観測地点は、三重県の北西部の鈴鹿山麓に位置し、

観測地点の北西方向には鈴鹿山脈、南東方向には、伊勢湾沿岸に四日市コンビナートがあり、主要幹線道路のほとんどが存在する。このことから、冬季には日本海側からの影響を大きく受け、また夏季には、日本海側からの影響に加え、地域内の太平洋沿岸のコンビナート地域からの影響を受けることが推測された。

## 2.2 雨水中の酸性沈着物質の季節変動

前述した分布図の解析から、夏季と冬季で風向が大きく異なることから、四日市と金沢における暖候期（4～9 月）と寒候期（10～3 月）における、 $\text{nss-SO}_4^{2-}$ と  $\text{NO}_3^-$  総沈着量の年変化をそれぞれ図 8、9 に示した。四日市では、 $\text{nss-SO}_4^{2-}$ と  $\text{NO}_3^-$  双方ともに、暖候期のほうが寒候期よりも高い沈着量を示した。一方日本海側の金沢では、 $\text{nss-SO}_4^{2-}$ と  $\text{NO}_3^-$  双方ともに、寒候期のほうが、暖候期よりも高い沈着量を示した。この結果は四日市では、寒候期の日本海側からの酸性物質の越境の影響よりも暖候期の南東風による地域内の伊勢湾沿岸のコンビ

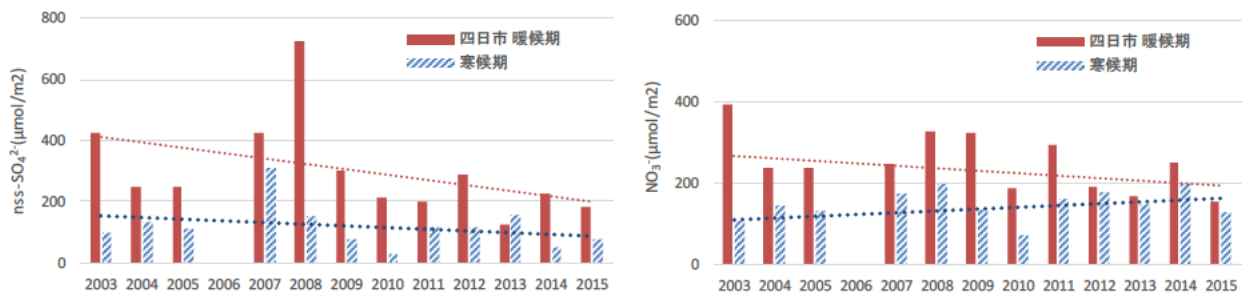


図 8 四日市における暖候期及び寒候期の雨水中の  $\text{nss-SO}_4^{2-}$  と  $\text{NO}_3^-$  沈着量の経時変化

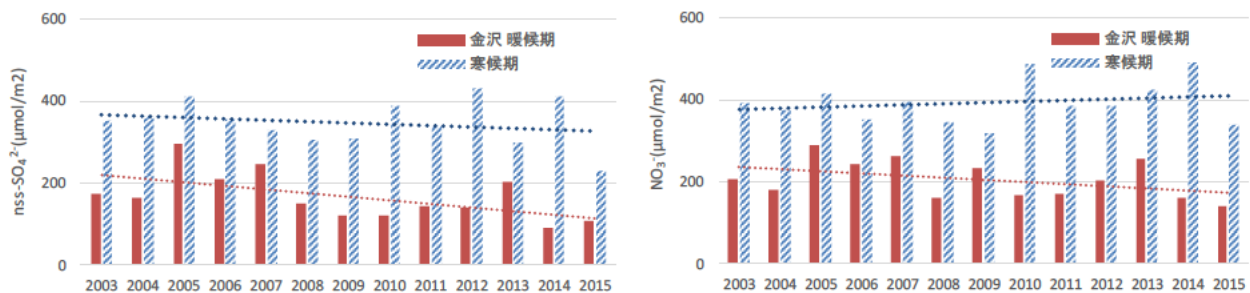


図 9 金沢における暖候期及び寒候期の雨水中の  $\text{nss-SO}_4^{2-}$  と  $\text{NO}_3^-$  沈着量の経時変化

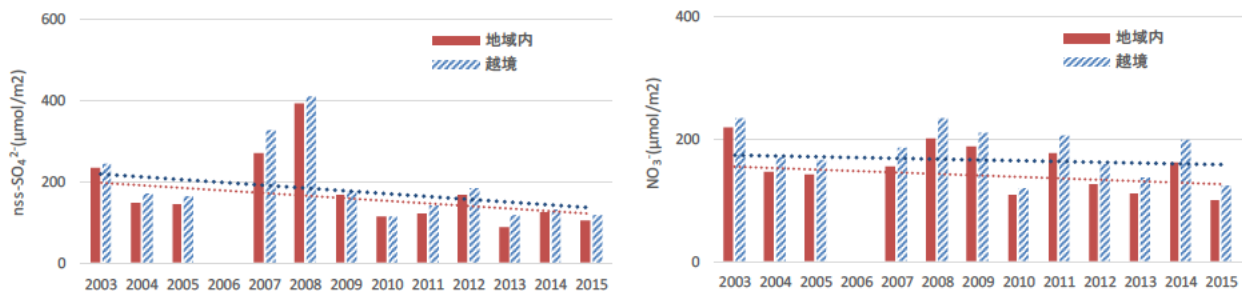


図 10 四日市における雨水中の  $\text{nss-SO}_4^{2-}$  と  $\text{NO}_3^-$  沈着量の越境、地域内汚染の影響割合の試算結果

ナート地域からの影響が大きいと考えられる。また、金沢については、寒候期の大陸からの酸性物質の越境の影響が大きいことが推測された。

さらに、年間の風向によって、その風上方向から酸性物質が移送されていると仮定し、式3, 4を用いて風向の頻度分布の割合と、各月の沈着量の積から、四日市における、日本海側からの越境とコンビナートからの影響を算出し、図10に示した。

$$C_{se} = \sum_{m=1}^{12} D \times \frac{F_{se}}{F_a} \quad \text{式3}$$

$$C_n = \sum_{m=1}^{12} D \times \frac{F_{nw}}{F_a} \quad \text{式4}$$

ここで、 $C_{se}$  と  $C_n$  はそれぞれ、南東、北西風によって移送される酸性沈着物質量 ( $\mu\text{mol}/\text{m}^2$ ) を、 $D$  は四日市における各月の酸性物質量 ( $\mu\text{mol}/\text{m}^2$ )、 $F_{se}$ 、 $F_{nw}$  はそれぞれ四日市における各月の南東、北西風が主方向で吹いた日数を、 $F_a$  は、各月の風向観測日数を示す。

その結果全体の沈着量に対するコンビナートからの影響は、 $\text{nss-SO}_4^{2-}$  で約 43~50%、 $\text{NO}_3^-$  で約 44~48% となり、北西風の越境による酸性物質とほぼ同等となった。また、2003 年から 2015 年の間では、両方とも減少傾向を示した。以上の結果は、越境酸性物質の移流については、近年の大陸からの越境汚染の減少とも傾向が一致した。また、コンビナート地域からの影響についても、燃料規制と自動車排ガス規制等の我が国の大気規制の効果が現れていることが推測された。

### まとめ

本研究では、全国と三重県内の雨水中の酸性沈着物質の変動を解析することにより、三重県内の酸性雨の変動の特徴について考察した。以下に得られた主な知見を示す。

- 1) 2003 年から 2016 年までの雨水中の酸性沈着物質の解析の結果、 $\text{pH}$ 、 $\text{nss-SO}_4^{2-}$  と  $\text{NO}_3^-$  とともに改善傾向にあることが明らかになった。
- 2) 風向の解析の結果、四日市では、冬季には北西風が卓越し、夏季には、北西風と南東風が主な方向で吹いており、冬季には日本海側からの影響を

、夏季には、日本海側からの影響に加え、太平洋沿岸のコンビナート地域からの影響を大きく受けることが推測された。

3) 三重県四日市における雨水中の酸性沈着物質は、40~50%程度が県内から、50~60%が日本海側からの影響によることが推算され、双方ともに 2003 年以降減少傾向にあることが明らかになった。

以上より、三重県内の雨水中の酸性物質量は、近年改善傾向にあり、大気汚染防止法や自動車  $\text{NO}_x$ ・ $\text{PM}$  法をはじめとする、大気環境施策、燃料規制の効果が現れてきていることが推測された。

### 文献

- 1) US Environmental Protection Agency : The Acidic Deposition Phenomenon and Its Effects. Critical Assessment Review, Vol.II, ed. A. P. Altshuller and R. Linthurst, EPA 600/8.83/016 BF. (1984).
- 2) 関東地方公害策推進本部 : 関東地方におけるいわゆる酸性雨(湿性大汚染)について,76 (1975).
- 3) Japan Meteorological Agency : Annual Report of Background Air Pollution Observation 1976. 55, (1977).
- 4) 酸性雨対策検討大気分科会 : 酸性雨対策調査中間報告書, 121pp (1987).
- 5) 高塚美和 : 四日市地域における大気汚染の推移—主として降下ばいじん  $\text{SO}_2$  ( $\text{PbO}_2$  法) を中心に, 三重県公害センター年報, 3, 1-17, (1975).
- 6) 高芝芳裕, 貝川弘毅, 藤本久博, 村田 穰, 中谷博行, 森 薫, 三木正尚, 上村隼右, 森本啓之, 島 洋久 : 雨水調査に関する研究—雨採取の場合 (第 1 報) —, 三重県公害センター年報, 4, 34-37(1976).
- 7) 高塚美和, 山田幸延 : 降雨水の酸性化について, 三重県環境科学センター研究報告, 1, 64 -66 (1977).
- 8) 塚田 進, 内田郁夫, 渡辺将隆, 中川喜明, 山本晃道, 松井孝悦, 広部 宏, 上田俊夫 : (資料) 県内の酸性降雨の現況について (第 1 報), 三重県環境科学センター研究報告, 7, 57 -61 (1987).
- 9) 塚田 進, 山本晃道, 渡辺将隆, 岩崎誠二, 高橋正昭, 長井喜久 : (研究報告) 県内の酸性雨について (第 2 報), 三重県環境科学センター研究報告, 9, 21-33 (1989).
- 10) 塚田 進, 岩崎誠二, 吉岡 理, 仲 邦熙, 長井喜久, 山本晃道, 地主照博, 松井孝悦, 高橋

- 正昭：(資料) 県内の酸性雨の現状について (第3報)，三重県環境科学センター研究報告，**10**，57-62(1990).
- 11) 全国公害研協議会・酸性雨調査研究部会：酸性雨全国調査結果報告書(平成3年度から平成5年度)，季刊全国公害研会誌，**20**，58-130(1995).
- 12) 全国環境研協議会・酸性雨調査研究部会事務局：第3次酸性雨全国調査報告書(平成11～13年度のまとめ)，季刊全国環境研会誌，**28**，126-196(2003).
- 13) 全国環境研協議会・酸性雨調査研究部会事務局：第4次酸性雨全国調査報告書(平成15年度)，季刊全国環境研会誌，**30**，58-135(2005).
- 14) 全国環境研協議会・酸性雨調査研究部会事務局：第4次酸性雨全国調査報告書(平成16年度)，季刊全国環境研会誌，**31**，118-186(2006).
- 15) 全国環境研協議会・酸性雨調査研究部会事務局：第4次酸性雨全国調査報告書(平成17年度)，季刊全国環境研会誌，**32**，78-152(2007).
- 16) 岩崎 綾，久恒邦裕，堀江洋佑，西山亨，宮野高光，北岡宏道，木戸瑞佳，濱村研吾，三田村徳子，山口高志，横山新紀，佐藤由美，松本利恵，山添良太，家合浩明，仲井哲也，宇野克之，紺田明宏：第5次酸性雨全国調査報告書，全国環境研会誌，**42**，No.3 79-118(2016).
- 17) 岩崎 綾，久恒邦裕，堀江洋佑，西山亨，宮野高光，北岡宏道，木戸瑞佳，濱村研吾，三田村徳子，山口高志，横山新紀，佐藤由美，松本利恵，山添良太，家合浩明，仲井哲也，宇野克之，紺田明宏：第6次酸性雨全国調査報告書，全国環境研会誌，**43**，(3) 79-118(2018).
- 18) 西山 亨，佐来栄治，小山善丸，寺本佳宏，吉岡 理，大熊和行：三重県における2007-2009年度の酸性雨の状況，三重保環研年報，**12**号，72-79(2010).
- 19) 環境省水・大気環境局大気環境課：湿性沈着モニタリング手引書，(2001).
- 20) 玉置元則・平木隆年・渡辺 弘：大気中の窒素酸化物による雨水の質的变化，大気汚染学会誌(2) 71-81(1985).
- 21) 村岡俊彦・豊永悟史・古澤尚英・今村 修・北岡宏道：九州・山口地域における有害大気汚染物質濃度の経年変化への越境大気汚染の影響，全国環境研会誌，**38**，(4) (2013).
- 22) 森 淳子，大原真由美，若松伸司，村野健太郎，田口圭介，関口恭一，玉置元則，加藤拓紀，北村守次，大喜多敏一，山中芳夫，原 宏：酸性沈着物における硝酸イオンと硫酸イオンの当量比に関する考察，日本化学会誌**6**，920-929(1991).
- 23) 公害防止の技術と法規編集委員会編：公害防止の技術と法規大気編，56-68(2013).
- 24) 曾我 稔：環境系データ解析支援ソフト見えくんマニュアル，(2016).



## Long-term Fluctuation of the Acid Deposition of Rainwater in Mie Prefecture

Hideki KOKUBU, Daiju OGAWA, Tomoyuki MATSUTANI,  
Yoshihiro TERAMOTO, Kunihiko SATO and Masahiko OGAWA

**Keywords:** Mie prefecture, acid rain, pH,  $\text{nss-SO}_4^{2-}$ ,  $\text{NO}_3^-$

Long-term fluctuations of the acid deposition of rainwater from April 2003 to March 2016 in Yokkaichi Mie prefecture were reviewed. The pH in rainwater was increased, and the concentration of the  $\text{nss-SO}_4^{2-}$  and  $\text{NO}_3^-$  in rainwater were decreased from 2003 to 2016 in Yokkaichi measuring station. It is estimated that 40~50% of acid deposition were fell from Mie prefecture, and 50~60% of them were trans-boundary movement from Japan sea side. These results indicated that measures to improve air quality such as Automotive NOx · PM method and Air Pollution Control Law works effectively.