

硫黄同位体比を利用した酸性降下物の発生源の解明(第15報)

大泉 毅・大高敏裕(新潟県保健環境科学研究所)

(受入教官: 日下部 実)

1 はじめに

大気中の硫黄同位体比が、発生源により範囲が異なることを利用して、大気降下物中硫黄の供給源を推定する研究を継続している。また、大気降下物中酸性成分の陸水系への移動に関して、硫黄同位体比のトレーサーとしての有効性を検証するために湖沼水の硫黄同位体比を測定した。

2 方法

新潟県新潟市(以下、新潟)で1997年度にトスロン製バケツを降水日のみ屋外に設置することにより日単位で捕集した降水の硫黄同位体比を測定した。

新潟市の郊外に位置する臨海工業地域である新潟東港の周辺3地点で、1998年9月から1998年12月の間、ろ過式装置で捕集した大気降下物の硫黄同位体比を測定した。

新潟県長岡市(以下、長岡)での大気降下物の捕集は、ろ過式装置を用い半月ごとに行った。試料調製の都合と季節変動の解析のため、1年を4区分(1~2月、4~6月、7~9月および11~12月)し、各期間内試料を降水量に応じて混合した試料について硫黄同位体比測定を行った。

また、新潟県内の山間部に位置する5湖沼で、降雪期前後の湖沼水を採取し、溶存成分濃度および硫黄同位体比を測定した。

3 結果と考察

3-1 日降水の硫黄同位体比

新潟で1997年5月から1998年2月に採取した日降水試料の硫黄同位体比を表1に示す。これらの試料の硫酸イオンに対する海塩寄与割合(fss)は非常に大きく変動し、また $\delta^{34}\text{S}$ 値と非常に高い相関を示し、fss=1.0で20%程度に収束する(図1)。これは次式による $\delta^{34}\text{Snss}$ の算出の妥当性を強く支持する結果と考えられる。

$$\delta^{34}\text{S}_{\text{nss}} = \delta^{34}\text{S} - 20.3 \cdot \text{fss}$$
$$\text{fss} = (1 - [\text{nss} - \text{SO}_4^{2-}]) / [\text{SO}_4^{2-}]$$

$\delta^{34}\text{Snss}$ 値は一部の試料を除いて冬季に高い値を示す傾向にある。また $\delta^{34}\text{Snss}$ 値は冬季以外の季節はnss- SO_4^{2-} およびF濃度と負の相関を、冬季は正の相関を示し、冬季の大陸由来の石炭燃焼に由来した重い硫黄やフッ素化合物の影響が示唆される(図2, 図2-1)。

3-2 新潟東港周辺地域の秋季から冬季の大気降下物の硫黄同位体比

新潟東港地域は工業地域であり、本研究地域内でもローカルな大気汚染物質の排出量の多い地域である。1998年の秋季から冬季に、同地域周辺の3地点で1週間単位で採取した大気降下物を降水量に応じて混合した試料について、溶存成分濃度および硫黄同位体比を測定した結果を表2に示す。3地点ともに秋季から冬季にかけて非海塩性硫酸イオン濃度は増加し、それと共に $\delta^{34}\text{Snss}$ が高い値を示している(図3)。

これについては、ローカルな大気汚染物質の排出量や気象要因との関係を今後検討する予定である。

3-3 大気降下物の硫黄同位体比

今回の測定値も含めて、長岡での全測定結果を表3に示す。大気降下物の硫黄

同位体比($\delta^{34}\text{S}$)および非海塩由来硫黄の同位体比($\delta^{34}\text{Snss}$)はいずれも冬季に高く夏季に低い変動を示す。

夏季(7~9月)には北東アジア地域からの硫黄酸化物の寄与が無いと仮定し、その他の期間の $\delta^{34}\text{S}$ の増加に対して海塩($\delta^{34}\text{S}=20.3\%$)、石炭燃焼ガス(8.1%)の2つの寄与を想定することにより、各期間の発生源寄与割合を試算した結果を図4に示す。冬季の石炭燃焼による寄与割合は1989年から1998年の平均で全硫酸イオン降下量に対して23%、非海塩性硫酸イオン降下量に対して36%と見積もられる。

3-4 湖沼水の硫黄同位体比

湖沼水の融雪期前後の測定値を長岡の大気降下物の値と合わせて表4に示した。小海ノ池と阿弥陀寺池以外の3湖沼は SO_4^{2-} 濃度が大気降下物の平均値に比較して低い値を示し、これらの湖沼に対する海塩やローカルな人為活動の影響が小さいことが窺われる。特に白池は酸性成分の負荷に対して緩衝能力が非常に小さい湖沼と考えられる。

湖沼水の硫黄同位体比は広い範囲に分布するが、多くの湖沼水は+5~+15%の範囲にあるとされ、また、湖沼水の硫黄同位体比は降水のそれと相関性があることも報告されている¹⁾。 $\delta^{34}\text{S}$ 値は、硫酸イオン濃度の高い小海ノ池と阿弥陀寺池で小さく、大池と下池で10%を超えて高い値を示している。各湖沼の融雪による $\delta^{34}\text{S}$ 値の変動は明確ではないが、最も清浄と考えられる白池では調査期間を通じて硫酸イオン濃度と $\delta^{34}\text{S}$ 値の低下が同時に観測されている。水系からの硫黄の除去過程として主要な生物活動、特に硫酸還元バクテリアによる還元を考えれば、 ^{34}S が湖沼水中に濃縮されることが考えられる。しかしながら、観測結果はこれとは逆の ^{32}S が濃縮された結果となっており、今後湖沼底質などの観測を行うなどして、このことについて検討したい。

文 献

- 1) J. O. Nriagu, Stable Isotopes. SCOPE 43, pp.198-211, Wiley, New York(1991).

Table 1 Concentration of dissolved components and $\delta^{34}\text{S}$ values of sulfate in the precipitation collected by daily basis sampling at Niigata

No.	Sampling Period	Rainfall mm	pH	SO_4^{2-} mg/l	NO_3^- mg/l	Na^+ mg/l	Ca^{++} mg/l	nss- SO_4 mg/l	nss-Ca mg/l	F $\mu\text{g/l}$	$\delta^{34}\text{S}$ permil	$\delta^{34}\text{Snss}$ permil	
1	97/5/6	97/5/7	2.9	4.98	27.63	11.51	2.76	4.27	26.94	4.16	121	3.3	2.9
2	97/5/8	97/5/9	63.6	5.16	0.43	0.23	0.55	0.05	0.29	0.03	1.4	9.6	4.6
3	97/5/15	97/5/16	18.3	4.78	0.92	0.56	0.02	0.05	0.91	0.05	4.4	2.6	2.5
4	97/5/20	97/5/21	30.3	4.63	1.12	0.82	0.34	0.10	1.03	0.09	4.9	4.3	3.0
5	97/7/8	97/7/9	15.8	4.53	1.19	1.49	0.71	0.18	1.01	0.15	10.5	4.3	1.5
6	97/7/16	97/7/17	62.6	4.94	0.76	0.46	0.48	0.10	0.64	0.08	6.1	5.6	2.8
7	97/8/7	97/8/8	35.6	4.93	0.70	0.42	0.12	0.09	0.67	0.09	4.1	4.1	3.4
8	97/9/3	97/9/4	17.5	4.65	1.44	1.14	0.46	0.16	1.33	0.14	8.1	2.9	1.4
9	97/10/30	97/10/31	17.8	4.30	4.67	1.62	9.06	0.54	2.40	0.20	9.9	12.2	4.5
10	97/11/12	97/11/13	25.3	4.24	2.88	1.38	0.54	0.18	2.74	0.15	8.0	4.7	3.9
11	97/11/17	97/11/18	25.1	4.82	3.96	0.71	11.26	0.68	1.13	0.25	4.3	16.3	6.3
12	97/11/18	97/11/19	13.4	4.63	5.24	0.35	15.07	0.73	1.46	0.16	4.6	16.0	4.8
13	97/12/1	97/12/2	32.8	5.09	1.44	0.23	3.28	0.29	0.62	0.16	3.0	13.7	4.9
14	97/12/2	97/12/3	38.0	5.20	4.67	0.10	17.97	0.76	0.16	0.07	6.0	19.3	-9.0
15	97/12/8	97/12/9	12.6	4.38	2.41	1.46	3.59	0.28	1.51	0.15	5.4	8.9	2.1
16	97/12/11	97/12/12	14.9	4.58	4.91	0.80	16.05	0.74	0.88	0.13	10.0	17.4	4.2
17	97/12/15	97/12/16	23.3	4.33	3.77	0.97	4.86	0.37	2.55	0.19	11.7	10.6	6.0
18	98/1/5	98/1/6	32.1	4.66	2.09	0.33	4.49	0.28	0.96	0.11	4.7	13.4	5.3
19	98/1/6	98/1/7	3.1	4.44	9.22	0.73	26.84	1.36	2.48	0.34	17.7	17.1	8.4
20	98/2/3	98/2/4	6.9	4.33	2.81	1.76	2.72	0.51	2.13	0.41	18.1	9.3	5.8
21	98/2/16	98/2/17	9.0	4.44	3.25	1.68	0.37	0.76	3.03	0.72	20.3	6.5	5.5

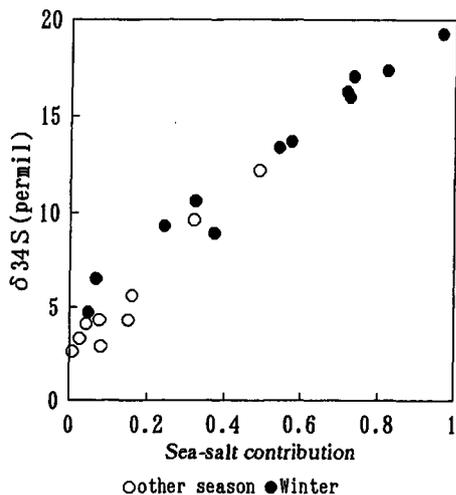


Fig.1 Relationship between sea-salt contribution and sulfur isotopic ratio in the precipitation collected by daily basis sampling at Niigata (1997FY)

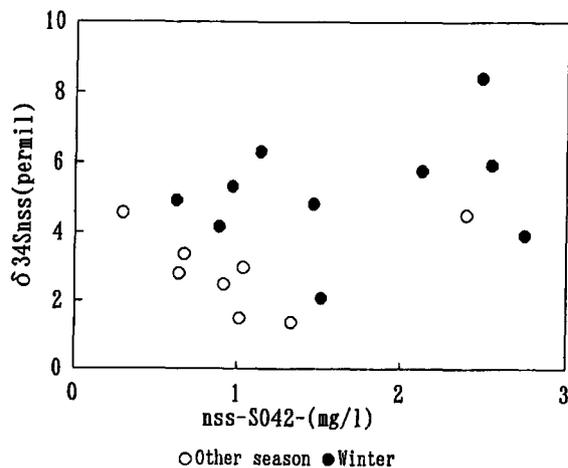


Fig.2 Relationship between nss-SO₄²⁻ concentration and $\delta^{34}\text{Snss}$ values in the precipitation at Niigata (1997FY)

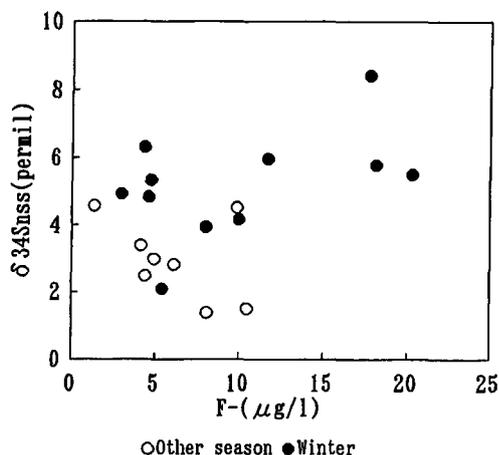


Fig.2-1 Relationship between F concentration and $\delta^{34}\text{Snss}$ values in the precipitation at Niigata (1997FY)

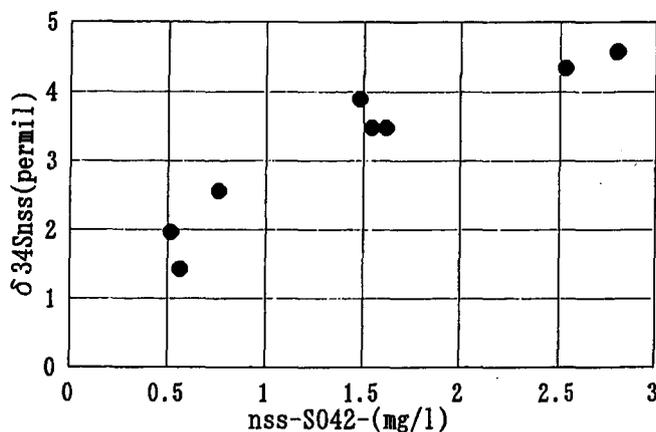


Fig.3 Relationship between nss-SO₄²⁻ concentration and $\delta^{34}\text{Snss}$ values in atmospheric deposition in the area around the Niigata East Bay

Table 2 Concentration of dissolved components and $\delta^{34}\text{S}$ values of sulfate in atmospheric deposition in the area around the Niigata East Bay

Sampling Site	Sampling Period	Rainfall mm	pH	SO ₄ ⁻⁻ mg/l	NO ₃ ⁻ mg/l	Na ⁺ mg/l	Ca ⁺⁺ mg/l	NH ₄ ⁺ mg/l	nss-SO ₄ mg/l	nss-Ca mg/l	$\delta^{34}\text{S}$ permil	$\delta^{34}\text{Snss}$ permil	ss-SO ₄ permil (%)	
Shidaihana	98/9/14	98/10/19	282.6	5.51	1.31	0.51	2.98	0.17	0.58	0.56	0.08	12.2	1.4	57.1
	98/10/26	98/11/24	248.8	4.78	2.86	1.03	5.49	0.40	0.31	1.48	0.19	11.8	3.9	48.2
	98/11/24	98/12/14	147.1	4.53	4.88	1.50	8.32	0.66	0.47	2.79	0.34	11.3	4.6	42.8
Izimino	98/9/14	98/10/19	264.0	5.36	0.86	0.56	1.39	0.13	0.27	0.51	0.08	9.4	2.0	40.6
	98/10/26	98/11/24	223.9	4.84	2.83	1.15	4.84	0.41	0.43	1.62	0.23	10.7	3.5	42.9
	98/11/24	98/12/14	157.9	4.51	3.73	1.33	4.80	0.42	0.46	2.53	0.24	9.5	4.3	32.3
Sasaoka	98/9/14	98/10/19	292.5	5.14	1.02	0.59	1.04	0.13	0.21	0.76	0.09	7.1	2.6	25.6
	98/10/26	98/11/24	234.8	4.71	2.45	1.02	3.61	0.29	0.32	1.54	0.15	9.7	3.5	37.0
	98/11/24	98/12/14	130.3	4.47	3.93	1.49	4.50	0.49	0.47	2.80	0.32	9.1	4.6	28.7

Table 3 Concentration of dissolved components, sulfate deposition and $\delta^{34}\text{S}$ values of sulfate in atmospheric deposition at Nagaoka

No.	Sampling period	Rainfall mm	pH	SO42- mg/l	NO3- mg/l	Cl- mg/l	Na+ mg/l	nssSO42- mg/l	S042- mg/m ² /d	nssSO42- mg/m ² /d	d34S permil	d34Snss permil
1	86/04/01 87/04/01	1929	4.71	4.42	0.96	6.91	3.18	3.62	23.40	19.10	7.4	4.5
2	87/04/01 87/12/01	743	5.08	3.37	1.19	4.67	2.76	2.68	10.30	8.10	5.5	1.7
3	87/12/01 88/01/06	313	5.05	4.30	0.91	8.27	5.05	3.03	37.40	26.30	8.7	3.8
4	88/01/06 88/02/03	343	5.35	4.52	0.81	12.00	6.82	2.81	55.40	34.30	10.5	4.5
5	88/02/03 88/03/01	212	5.45	4.45	1.01	9.12	4.37	3.35	34.90	26.30	8.7	4.9
6	88/03/01 88/04/01	178	5.38	5.26	1.38	6.61	3.32	4.43	30.20	25.40	6.0	3.3
7	88/04/01 88/06/01	188	4.83	3.81	1.88	1.97	1.31	3.48	11.70	10.70	3.7	2.1
8	88/06/01 88/08/01	424	4.61	2.15	0.74	0.27	0.22	2.09	14.90	14.60	2.5	2.0
9	88/08/01 88/09/16	193	4.97	2.00	0.80	0.42	0.29	1.93	8.39	8.08	0.9	0.2
10	88/09/16 88/10/01	76	4.55	2.43	1.08	0.68	0.47	2.31	12.30	11.70		
11	88/10/01 88/12/01	623	4.67	3.57	0.72	7.87	4.59	2.42	36.50	24.70	8.9	3.4
12	88/12/01 88/12/28	262	4.27	5.61	0.92	14.70	7.81	3.65	54.40	35.30	10.7	5.5
13	88/12/28 89/03/01	204	4.53	5.55	1.56	10.50	5.48	4.17	18.00	13.50	7.2	2.9
14	89/03/01 89/04/01	68	5.16	7.18	2.62	7.71	4.18	6.13	15.80	13.40		
15	89/04/01 89/07/01	303	5.25	2.98	1.51	1.27	0.81	2.78	9.92	9.24	2.5	1.2
16	89/07/01 89/10/02	536	4.93	1.69	0.88	0.62	0.36	1.60	9.74	9.22	1.4	0.3
17	89/10/02 89/11/01	161	4.67	2.58	0.72	4.12	2.22	2.02	13.90	10.80		
18	89/11/01 89/12/28	504	4.97	4.84	1.81	11.60	6.57	3.19	42.80	28.20	8.7	2.7
19	89/12/28 90/02/27	568	4.73	3.59	0.59	8.72	4.95	2.35	33.40	21.80	9.3	3.4
20	90/02/27 90/03/21	116	5.10	5.65	1.72	8.03	4.60	4.50	19.90	15.80		
21	90/03/21 90/07/02	301	5.28	3.11	1.30	2.33	1.50	2.73	10.10	8.84	3.6	1.3
22	90/07/02 90/10/01	274	4.72	2.40	0.94	1.72	1.07	2.13	7.23	6.41	3.5	1.4
23	90/10/01 90/11/01	195	4.74	1.76	0.55	3.24	1.88	1.29	11.10	8.09		
24	90/11/01 90/12/28	425	4.93	4.45	0.76	17.90	9.56	2.05	33.20	15.20	12.2	2.6
25	90/12/28 91/02/27	680	4.73	3.69	0.67	10.50	6.16	2.14	41.10	23.80	10.3	3.0
26	91/02/27 91/03/30	151	4.58	4.98	1.91	5.14	3.22	4.17	23.50	19.70		
27	91/03/30 91/07/01	237	4.80	3.27	1.88	1.24	0.82	3.06	8.33	7.81	2.8	1.6
28	91/07/01 91/10/01	476	4.81	1.55	0.86	0.83	0.49	1.43	8.02	7.38	2.0	0.4
29	91/10/01 91/11/01	97	4.88	2.48	0.84	2.76	1.47	2.11	7.76	6.60		
30	91/11/01 91/12/27	398	4.84	3.09	0.91	5.66	3.09	2.31	22.00	16.40	7.2	2.8
31	91/12/27 92/02/24	492	4.45	4.66	1.36	11.50	6.22	3.10	38.90	25.80	9.6	4.2
32	92/02/24 92/03/30	196	4.55	3.94	1.90	2.36	1.31	3.61	22.10	20.20		
33	92/03/30 92/06/29	358	4.54	2.99	1.61	1.37	0.90	2.76	11.80	10.90	3.2	1.8
34	92/06/29 92/09/30	495	4.67	1.60	1.06	1.08	0.68	1.43	8.52	7.60	3.0	0.9
35	92/09/30 92/10/30	161	4.79	1.79	0.64	4.08	2.35	1.20	9.61	6.43		
36	92/10/30 92/12/25	566	4.59	3.92	1.03	12.42	7.55	2.02	39.60	20.40	11.3	2.8
37	92/12/25 93/02/22	502	4.55	4.09	1.25	10.10	6.05	2.57	34.80	21.80	9.2	2.6
38	93/02/22 93/03/30	194	4.51	4.48	3.79	9.97	5.59	3.08	23.50	16.10		
39	93/03/30 93/06/30	441	4.81	2.48	1.73	1.35	0.81	2.28	11.90	10.90	3.4	1.9
40	93/06/30 93/09/29	605	4.87	1.00	0.75	0.42	0.28	0.93	6.64	6.17	1.4	0.0
41	93/09/29 93/10/29	198	4.48	6.40	4.06	6.61	4.10	5.37	42.30	35.50		
42	93/10/29 93/12/27	562	4.50	3.36	0.96	10.89	6.27	1.79	32.00	17.00	10.9	2.6
43	93/12/27 94/01/24	252	4.60	4.02	1.14	9.23	5.56	2.62	36.20	23.60	9.8	4.2
44	94/01/24 94/02/21	154	4.71	5.25	1.47	17.46	9.89	2.77	28.90	15.20	11.3	3.2
45	94/02/21 94/03/28	187	4.46	5.69	2.02	12.98	7.15	3.90	30.50	20.80	9.5	4.5
46	94/03/28 94/04/27	22	4.87	7.87	5.55	6.39	4.50	6.74	5.69	4.88	6.0	3.6
47	94/04/27 94/05/30	43	5.37	5.87	4.55	3.95	2.92	5.14	7.65	6.68	4.8	2.6
48	94/05/30 94/06/13	0										
49	94/06/13 94/06/27	54	6.31	3.36	2.52	1.60	0.85	3.15	12.90	12.10	2.2	1.0
50	94/06/27 94/07/13	83	4.61	3.40	1.63	0.61	0.43	3.29	17.60	17.00	2.8	2.2
51	94/07/13 94/08/31	16	5.31	3.03	3.47	1.04	0.59	2.88	1.01	0.96		
52	94/08/31 94/09/28	211	4.43	2.41	1.69	1.23	0.67	2.24	18.20	16.90	3.3	2.0
53	94/09/28 94/10/31	117	5.52	2.77	1.34	2.38	1.55	2.38	9.79	8.40		
54	94/10/31 94/12/26	530	4.81	3.54	0.93	9.90	5.59	2.14	33.52	20.24		
55	94/12/26 95/01/11	180	4.68	3.43	0.86	9.90	5.37	2.08	38.57	23.41		
56	95/01/11 95/01/25	158	4.61	2.63	0.87	7.23	4.16	1.59	29.70	17.80	10.8	4.5
57	95/01/25 95/02/08											
58	95/02/08 95/02/22	70	4.54	4.25	1.73	5.81	3.46	3.38	21.27	16.91	7.7	4.4
59	95/02/22 95/03/28	152	4.69	4.15	2.51	3.89	2.51	3.52	18.59	15.77		
60	95/03/28 95/06/26	242	4.77	3.65	2.53	5.14	2.98	2.90	9.81	7.79	5.5	1.7
61	95/06/26 95/09/27	315	4.64	1.80	1.38	0.90	0.55	1.66	6.10	5.63	3.4	2.0
62	95/09/27 95/10/30	68	6.04	4.81	2.19	12.26	6.70	3.13	9.94	6.45		
63	95/10/30 95/12/27	519	4.79	4.11	1.24	12.75	7.07	2.34	36.85	20.88	11.2	4.2
64	95/12/27 96/02/28	528	4.57	4.21	1.30	12.86	7.12	2.42	35.23	20.20	11.2	4.4
65	96/02/28 96/03/28	136	4.81	5.02	2.44	8.41	4.71	3.83	23.52	17.96		
66	96/03/28 96/06/24	270	4.79	3.96	3.00	4.93	2.95	3.22	12.15	9.87	5.3	1.8
67	96/06/24 96/09/27	434	4.67	1.72	1.54	1.11	0.64	1.56	7.85	7.11	2.2	0.3
68	96/09/27 96/10/28	138	4.67	2.89	1.43	6.25	3.04	2.12	12.86	9.45		
69	96/10/28 96/12/25	457	4.86	3.69	1.34	8.04	4.23	2.63	29.08	20.69	8.5	3.7
70	96/12/25 97/02/26	393	4.59	5.81	1.85	15.73	8.45	3.69	36.24	23.01	10.4	4.7
71	97/02/26 97/03/27	104	4.68	5.57	3.97	6.52	3.65	4.65	19.98	16.69		
72	97/03/27 97/06/30	525	4.81	2.56	1.76	1.86	0.96	2.32	14.15	12.82	3.6	1.9
73	97/06/30 97/09/30	797	5.03	1.06	0.93	0.81	0.48	0.94	9.18	8.14	2.9	0.7
74	97/09/30 97/10/30	282	4.85	2.39	0.96	6.91	3.88	1.42	22.47	13.32		
75	97/10/30 97/12/25	478	4.58	3.44	1.52	7.94	4.18	2.39	29.32	20.36	8.9	3.9
76	97/12/25 98/02/26	432	4.78	3.29	1.18	7.41	4.15	2.25	22.57	15.42	8.5	3.0
77	98/02/26 98/03/30	118	5.09	5.19	3.03	6.16	3.57	4.29	19.11	15.81		
78	98/03/30 98/06/30	412	5.01	1.22	1.10	0.50	0.26	1.15	5.46	5.17	1.5	0.4
79	98/06/30 98/09/30	521	5.04	1.23	0.95	0.61	0.40	1.13	6.97	6.40	2.6	1.0
80	98/09/30 98/10/29	100	5.04	1.57	1.00	3.49	2.48	0.95	5.43	3.28		
81	98/10/29 98/12/24	492	4.49	3.37	1.41	8.47	4.84	2.16	29.63	18.95	9.5	3.4

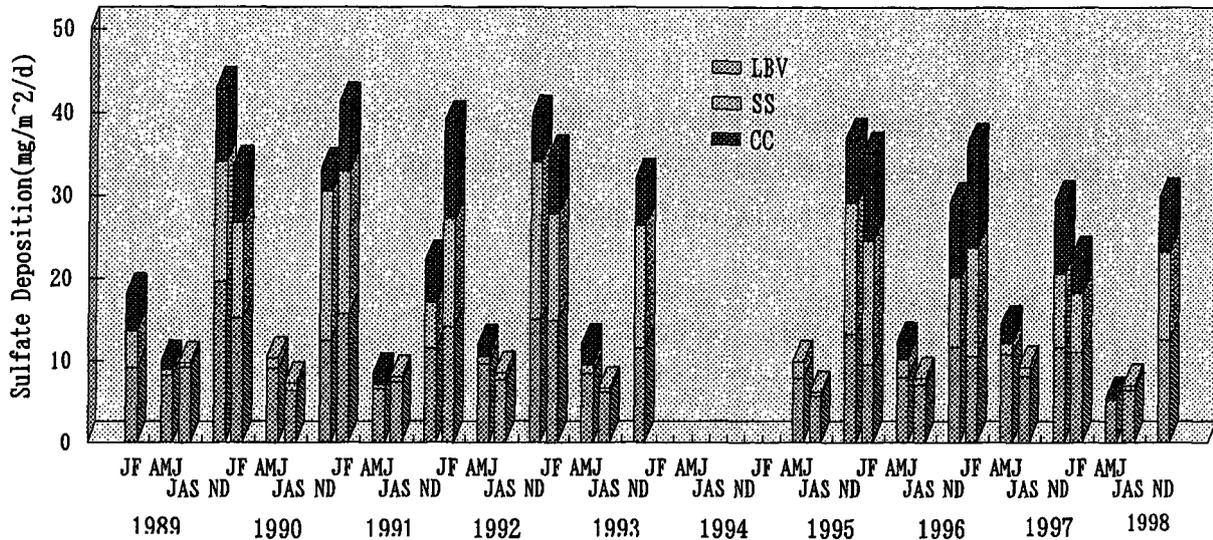


Fig. 4 Contribution of various sulfur sources to atmospheric sulfate deposition at Nagaoka. Assuming that coal combustion do not contribute to the deposition during summer season.

LBV: Local anthropogenic-Biogenic-Volcanic activity, SS: Seasalt, CC: Coal combustion

Table 4 Concentration of dissolved components and $\delta^{34}\text{S}$ values of sulfate in lake water and atmospheric deposition at Nagaoka

Sample	Sampling date or period	pH	EC $\mu\text{S/cm}$	SO ₄ ²⁻ mg/l	NO ₃ ⁻ mg/l	Cl ⁻ mg/l	Na ⁺ mg/l	K ⁺ mg/l	Ca ²⁺ mg/l	Mg ²⁺ mg/l	NH ₄ ⁺ mg/l	$\delta^{34}\text{S}$ ‰	$\delta^{34}\text{S}_{\text{SS}}$ ‰
Shiroike lake water	97/09/04	6.04	5.6	0.50	<0.01	0.52	0.39	0.03	0.20	0.07	0.01	5.1	
	98/06/19	6.22	4.5	0.27	<0.01	0.70	0.50	0.03	0.13	0.07	<0.01	4.4	
	98/10/29	6.40	7.6	0.17	0.06	0.92	0.76	0.17	0.31	0.14	0.03	3.6	
Oike lake water	97/10/24	6.23	15.9	0.47	<0.01	3.14	1.87	0.14	0.37	0.26	0.03	13.0	
	98/06/01	6.47	15.1	0.81	<0.01	2.88	1.80	0.30	0.29	0.31	0.03	10.4	
	98/11/06	6.57	25.2	1.47	0.43	3.90	2.95	0.40	0.87	0.47	0.08	10.8	
Shimoike lake water	97/10/24	6.74	25.7	1.28	0.61	4.25	2.31	0.31	0.65	0.38	0.02	11.2	
	98/06/01	6.64	23.5	1.24	0.54	3.79	2.64	0.31	0.88	0.44	<0.01	10.9	
	98/11/06	6.46	22.5	0.68	0.05	3.20	2.61	0.34	0.65	0.40	0.07	10.0	
Kouminoike lake water	97/11/6	7.04	65.8	3.97	0.34	6.90	5.56	1.24	2.97	1.48	0.34	3.1	
	98/06/02	7.16	54.4	4.24	<0.01	6.52	5.42	0.96	2.84	1.33	<0.01	1.2	
	98/10/30	7.25	60.9	3.25	0.12	5.23	6.02	1.68	3.82	1.79	0.14	1.7	
Amidajiike lake water	97/11/6	6.83	60.0	4.33	0.21	10.08	6.44	0.71	1.53	1.36	0.08	6.4	
	98/06/02	7.10	54.2	4.90	<0.01	10.01	6.28	0.59	1.59	1.22	<0.01	5.4	
	98/10/30	7.16	53.4	3.90	0.15	8.74	5.79	0.79	1.64	1.25	0.11	5.7	
Nagaoka atmospheric deposition	86/04/01 to 97/09/30	4.73	40.5	3.44	1.26	6.56	3.65	0.22	0.50	0.52	0.68	(6.7)	(2.6)