

千葉県北部における酸性雨の地域的特性について(5)

—— 1998年度 観測結果 ——

中 村 圭 三

1. まえがき

東京の東側に位置し、南西部の京葉工業地帯と北東部の鹿島臨海工業地域に挟まれた千葉県北部地域における、一降水ごとの酸性雨に関して、1993年4月から観測を継続している。1993年度には、佐倉市に位置する本学のみで観測していたが、1994年5月からは千葉県北部地域に11名の環境モニターを配置し、また、1995年10月からはさらに11名の環境モニターを増員して、当地域における酸性雨の地域的特性について研究してきた(中村, 1993, 1994, 1995, 1996, 1997, 1998, 1999)。今回は、1998年度の観測結果について報告する。

2. 観測方法

千葉県内23地点(図1)において、毎日一定の時刻または降水直前に、ポリプロピレン製5リットルビーカーを設置し、酸性雨を一降水ごとに採水した。採水した酸性雨は、50mlポリビンに詰めて直ちに本研究所に郵送してもらい、前報(中村, 1997, 1998, 1999)と同様に、東亜電波工業製フローユニット(FAR-201A)付ガラス電極型pHメーター(HM-30V)および電気伝導度計(CM-60S)で、pH、ECについて測定した。また、その成分については、島津製作所製イオンクロマ

トグラフ(LC-10A)によって陽イオン(Na^+ , NH_4^+ , K^+ , Mg^{2+} , Ca^{2+})および陰イオン(F^- , Cl^- , NO_2^- , Br^- , NO_3^- , SO_4^{2-})の11成分について分析した。本研究では、酸性雨の成分分析に関しては、イオンバランスのとれたサンプルのみを研究対象とした。

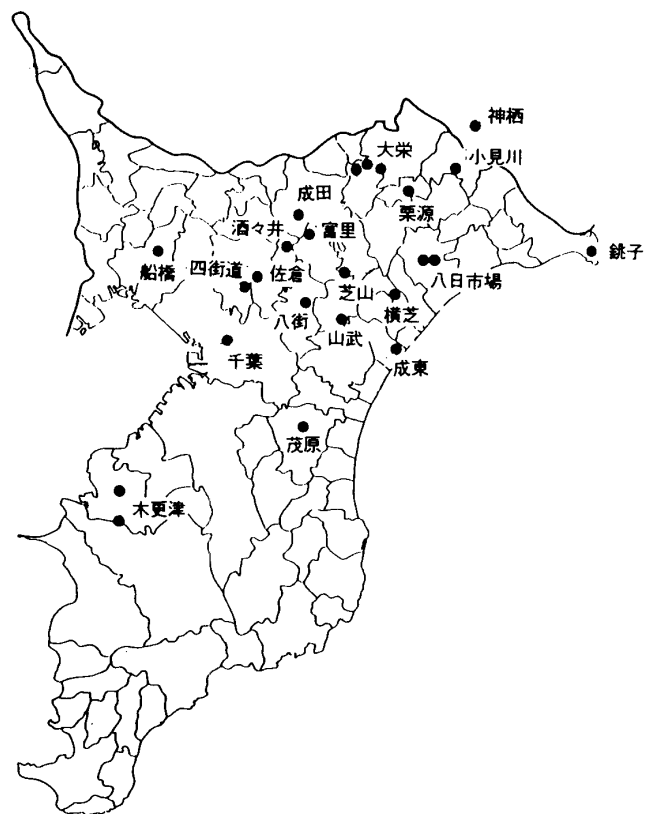


図1 酸性雨観測地域

●：観測地点

3. 酸性雨の観測結果

3.1 気象概況

1998年4月から1999年3月までの1年間における関東地方の天候の特徴としては、春期の顕著な高温、盛夏期の日照不足、秋期の顕著な高温、および冬期の高温多照などがあげられる。

図2に、1998年度の佐倉における降水採水日の降水量の時間的推移を示す。一降水で25mmを超える観測事例は、年間に5例あった。その内の3例は4月の前半に集中し、いずれも前線を伴う発達した低気圧の本州中部付近通過によるものであった。また、6月中旬の2回の豪雨は、前線を伴う低気圧の南岸通過によるものであった。

3.2 pH

3.2.1 pH の時間的推移

1998年度における千葉県北部地域の pH の時間的推移を知るために、佐倉の例を図3に示す。その加重平均値は pH 4.64で、pH 5.6以下の一般に酸性雨といわれる範囲の値は90.9%で1997年度(90.7%)とほとんど変わらなかった。pH 4.0以下の強い酸性雨は、4月・6月に各1回、8月に2回観測された。これらの出現時の降水量は、4月は32mmであったが、他の月は1~4mmであった。

3.2.2 pH の分布

千葉県北部地域における pH 分布の場所的特性を知るために、暖候期(4-9月)および寒候期(10-3月)の加重平均値について、それぞれの分布図(図4)を作成した。暖候期平均値分布図では、銚子・大栄・酒々井から房総半島南部に伸

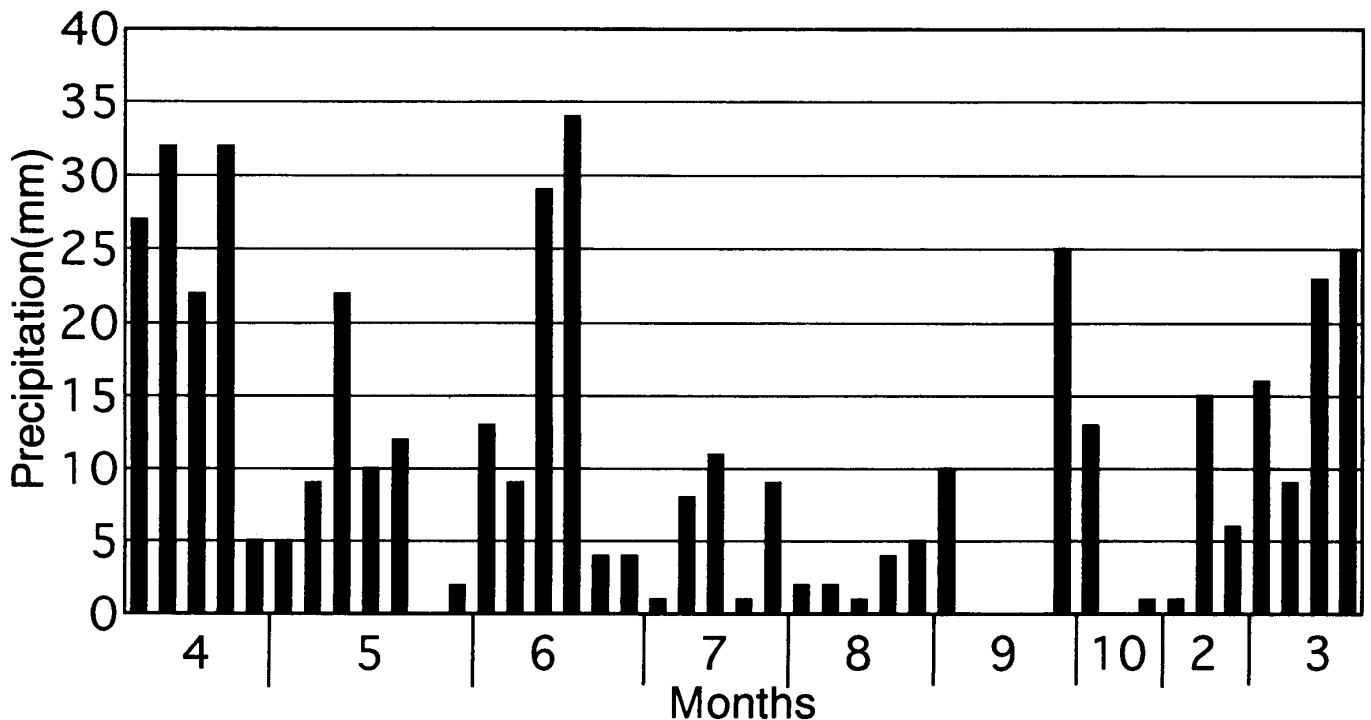


図2 1998年度の佐倉における降水量の時間的推移

千葉県北部における酸性雨の地域的特性について(5)

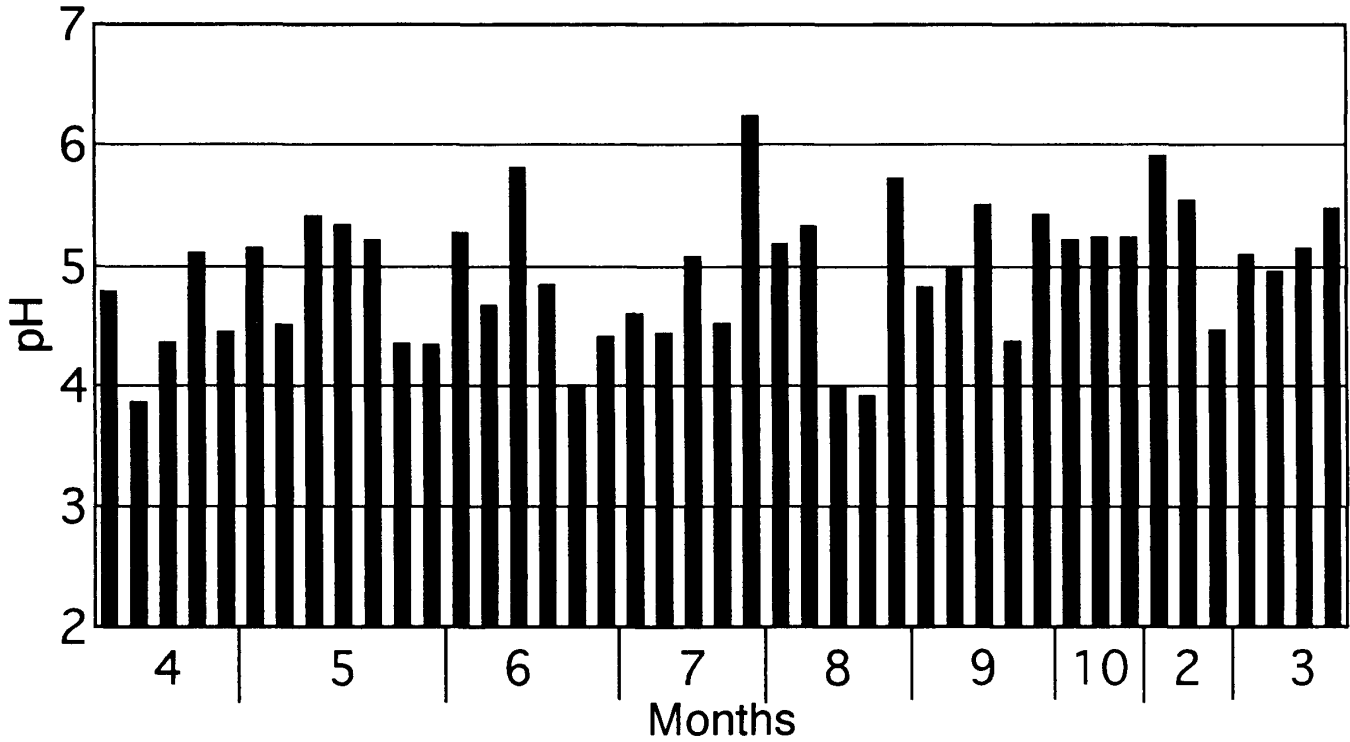


図3 1998年度の佐倉における降水のpHの時間的推移

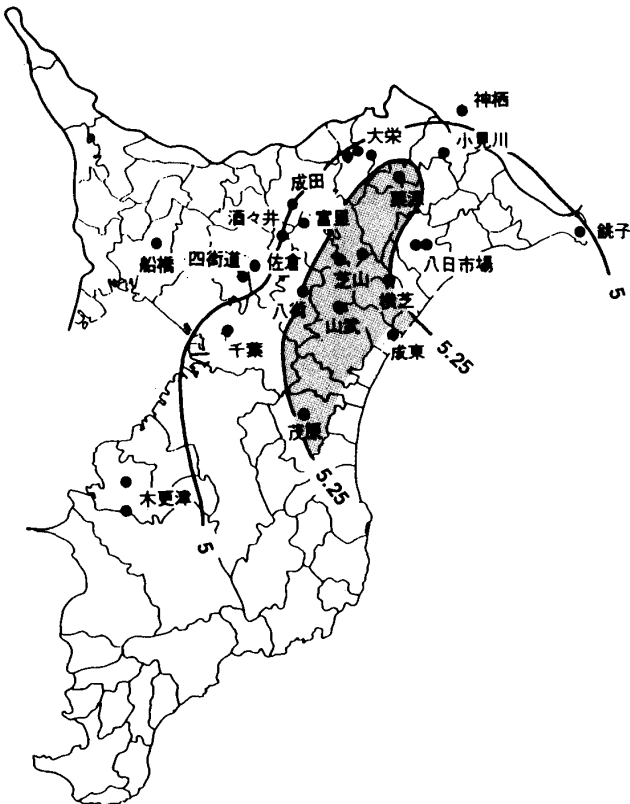


図4.1 1998年度暖候期における降水のpH 平均値分布

アミ掛けの部分は、pH 5.25以上の領域を示す

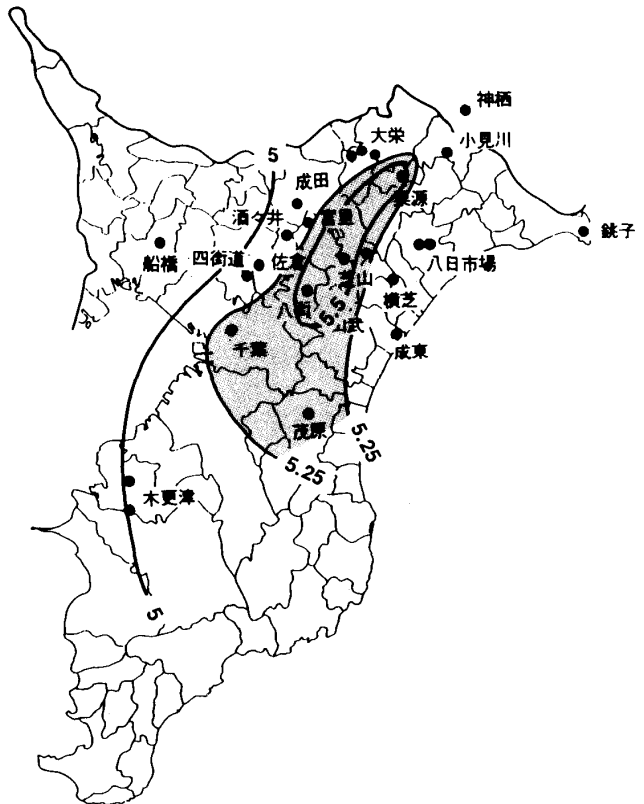


図4.2 1998年度寒候期における降水のpH 平均値分布

アミ掛けの部分は、pH 5.25以上の領域を示す

びる pH 5 の等値線の太平洋側の地域では pH 値が高く、成東・栗本・茂原で囲まれる等値線の内側の地域では、pH 5.25以上の値となっている。一方、この等値線の外側の鹿島臨海工業地域から京葉工業地帯にかけての地域では、pH 5.0以下の値となっている。

寒候期の pH 値は、四街道から木更津にかけて伸びる pH 5.0の等値線の西側では pH 5.0以下、東側では pH 5.0以上となり、暖候期よりもやや西に寄った栗本から千葉・茂原にかけての地域の pH 値は5.25以上となり、同地域内北部では pH 5.5を超えている。

これらの暖候期・寒候期における pH の分布型は1996年度・1997年度と異なる形態を示している。その原因については、今後の研究に待ちたい。

3.3 成分分析結果

3.3.1 イオン濃度組成

観測地域内における酸性雨のイオン濃度組成について、年間を通しての時間的な推移を知るために、おもな観測地点におけるイオン濃度組成 (meq/l) について検討した。

- 1) 佐倉 pH : 年平均値4.64
EC : 年平均値48.59 $\mu\text{S}/\text{cm}$

降水量が高目であった4月から6月頃、および2月下旬以降にかけてのイオン濃度は、全体として各成分共に低目に推移している (図5.1)。

- 2) 四街道 pH : 年平均値4.89
EC : 年平均値34.86 $\mu\text{S}/\text{cm}$

陽イオン濃度0.5meq/lは、5月、9月、10月、1月にそれぞれ出現しているが、いずれも降水量3mm以下の日に出現している (図5.2)。

- 3) 船橋 pH : 年平均値4.78
EC : 年平均値53.51 $\mu\text{S}/\text{cm}$

6月末から8月にかけての H^+ の濃度は、他の期間の濃度と比較して相対的に高い。この間の降水量は7mm以下であった (図5.3)。

- 4) 千葉 pH : 年平均値5.20
EC : 年平均値41.70 $\mu\text{S}/\text{cm}$

京葉工業地帯に位置するため、前年同様に年間を通じて NO_3^- よりも SO_4^{2-} の濃度の方が高い傾向が認められる (図5.4)。

- 5) 木更津 pH : 年平均値4.88
EC : 年平均値35.83 $\mu\text{S}/\text{cm}$

千葉同様、年間を通じて NO_3^- よりも SO_4^{2-} の方が高濃度である傾向が認められる (図5.5)。

- 6) 茂原 pH : 年平均値5.28
EC : 年平均値45.36 $\mu\text{S}/\text{cm}$

太平洋側に面しているため、年間を通じて海塩起源と考えられる Na^+ 、 Mg^{2+} 、 Ca^{2+} 、 Cl^- などの濃度が高い (図5.6)。

- 7) 成東 pH : 年平均値5.24
EC : 年平均値38.65 $\mu\text{S}/\text{cm}$

太平洋沿岸に位置するため、海塩起源の Na^+ 、 Cl^- などが高濃度である。4月から7月頃までのイオン濃度組成は、相対的に低濃度である (図5.7)。

- 8) 八日市場 pH : 年平均値4.81
EC : 年平均値47.93 $\mu\text{S}/\text{cm}$

年間を通じて、 NO_3^- の濃度よりも SO_4^{2-} の濃度の方が高い傾向が認められる (図5.8)。

- 9) 銚子 pH : 年平均値5.06
EC : 年平均値43.43 $\mu\text{S}/\text{cm}$

海洋の影響を強く受けるために、他の地点と比べて Na^+ 、 Cl^- の濃度が極端に高い。 NO_3^-

千葉県北部における酸性雨の地域的特性について(5)

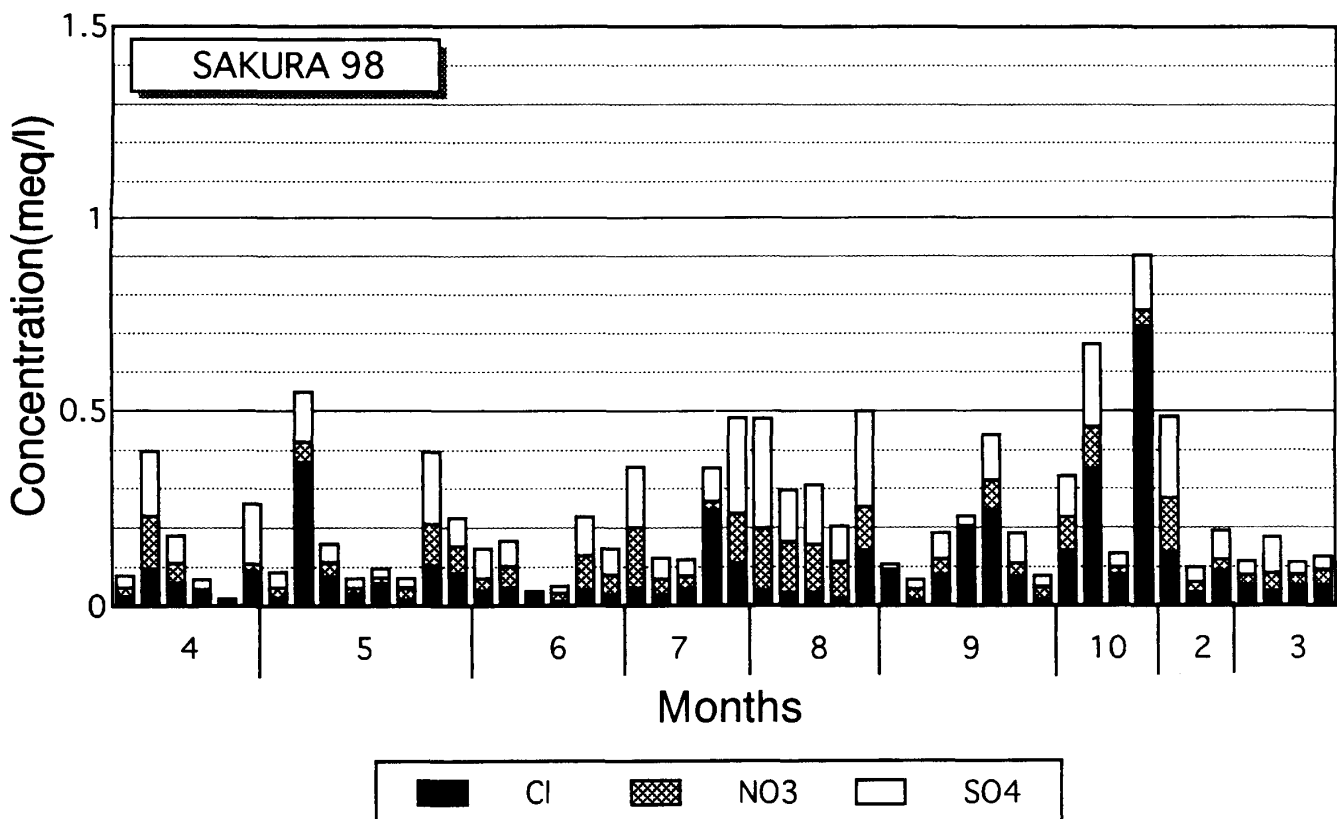
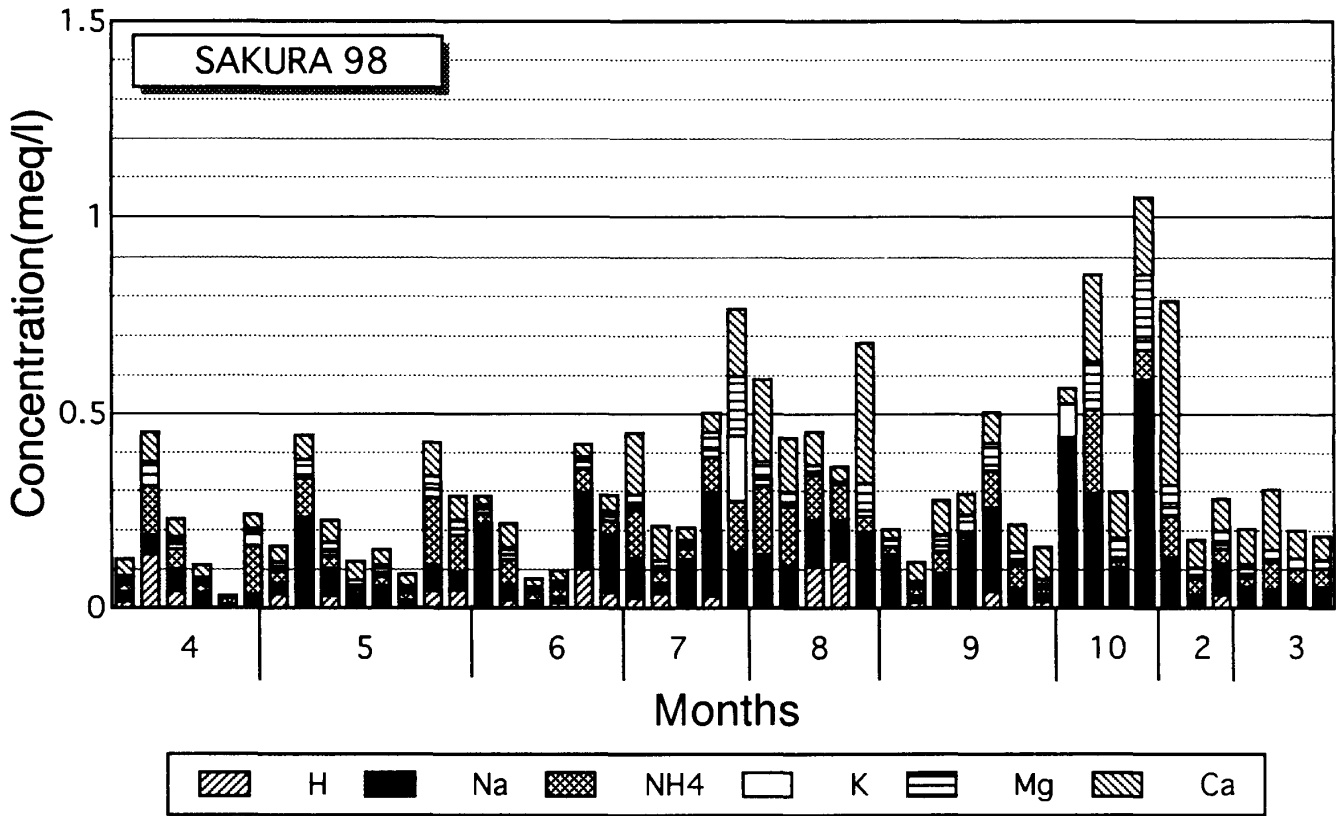


図5.1 1998年度の佐倉における酸性雨のイオン濃度組成

上図：+イオン 下図：-イオン 単位：meq/l

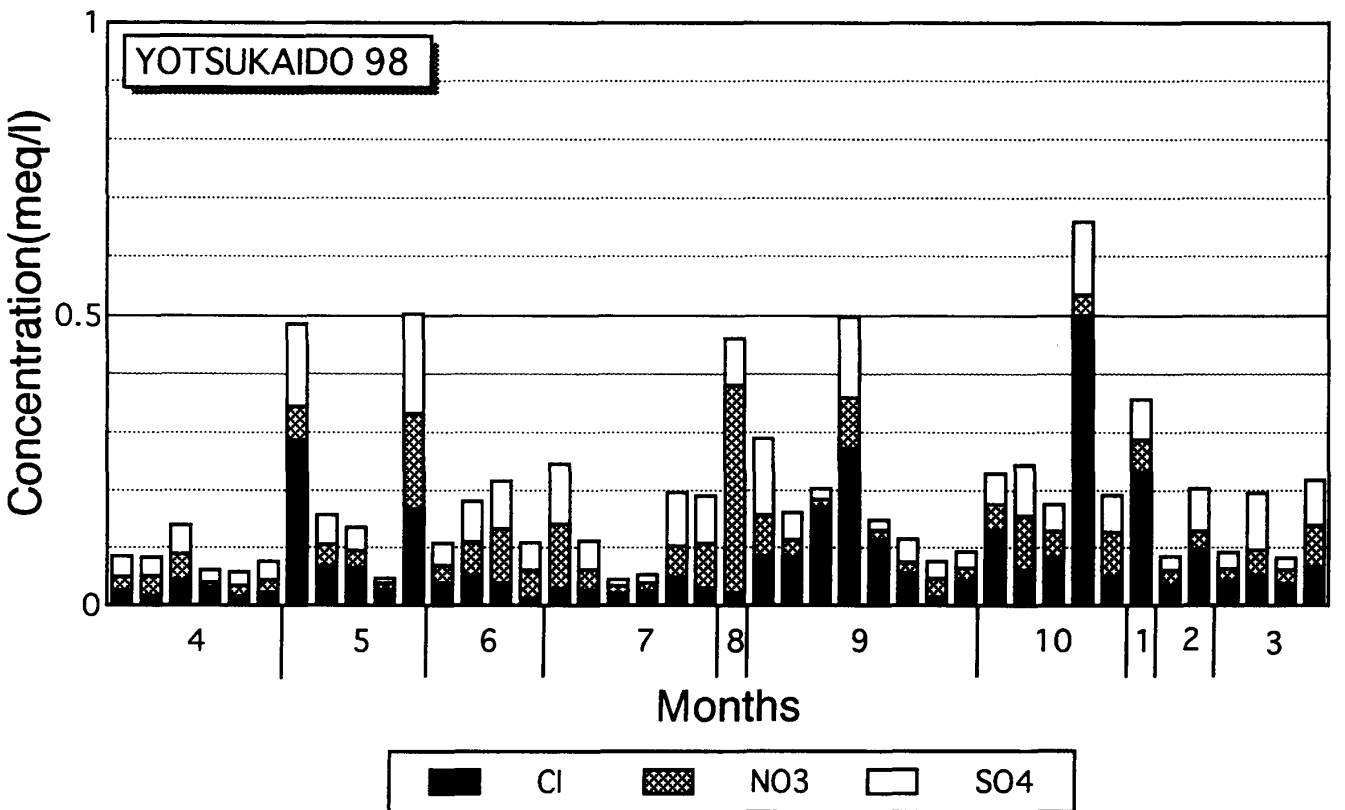
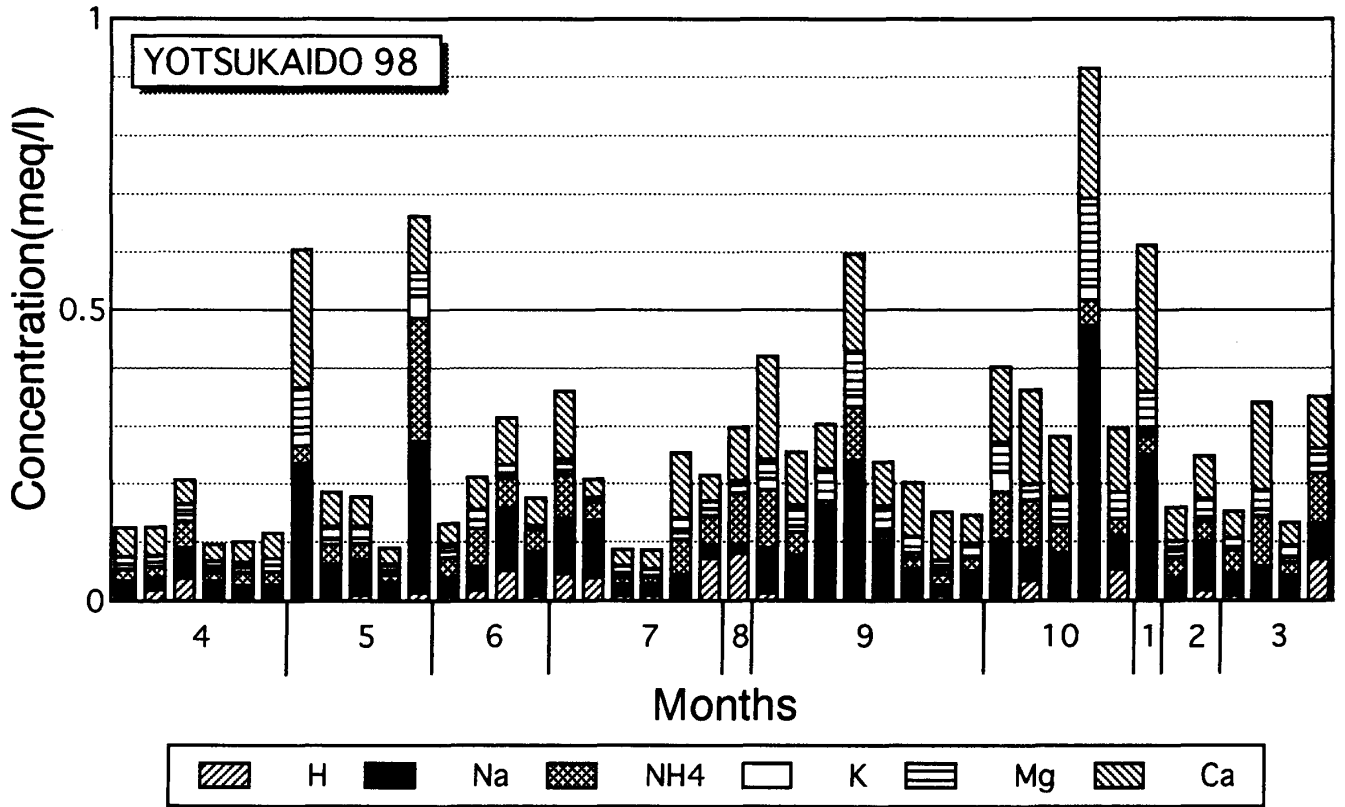


図5.2 1998年度の四街道における酸性雨のイオン濃度組成

上図：+イオン 下図：-イオン 単位：meq/l

千葉県北部における酸性雨の地域的特性について(5)

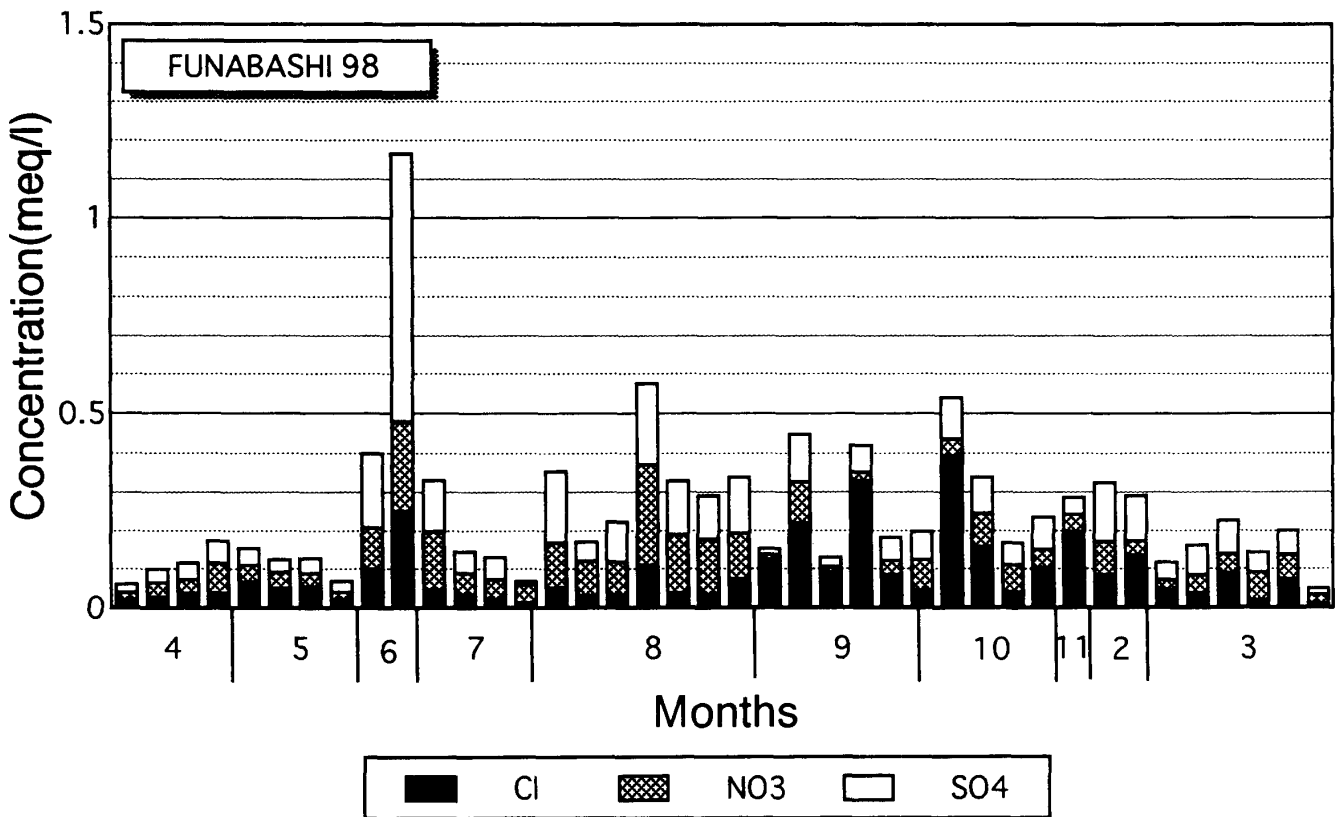
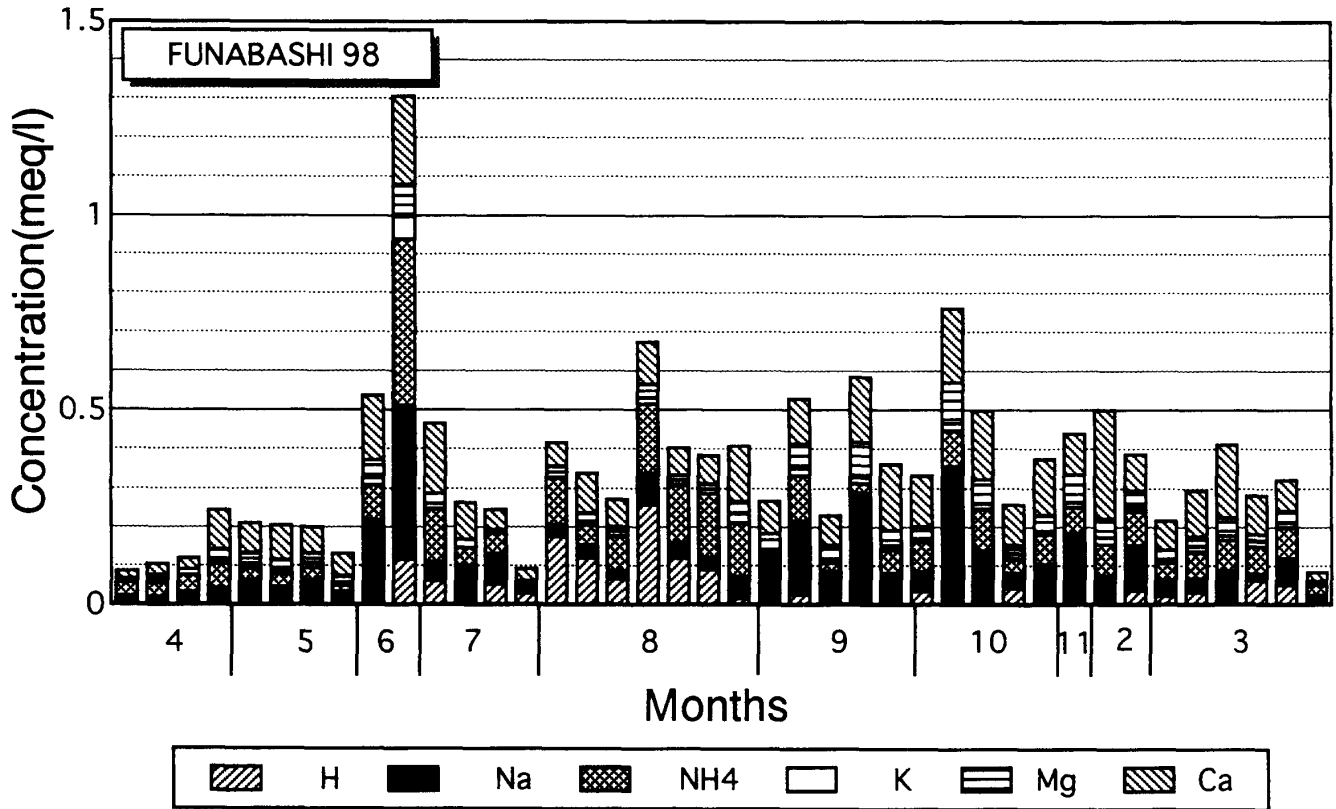


図5.3 1998年度の船橋における酸性雨のイオン濃度組成

上図：+イオン 下図：-イオン 単位：meq/l

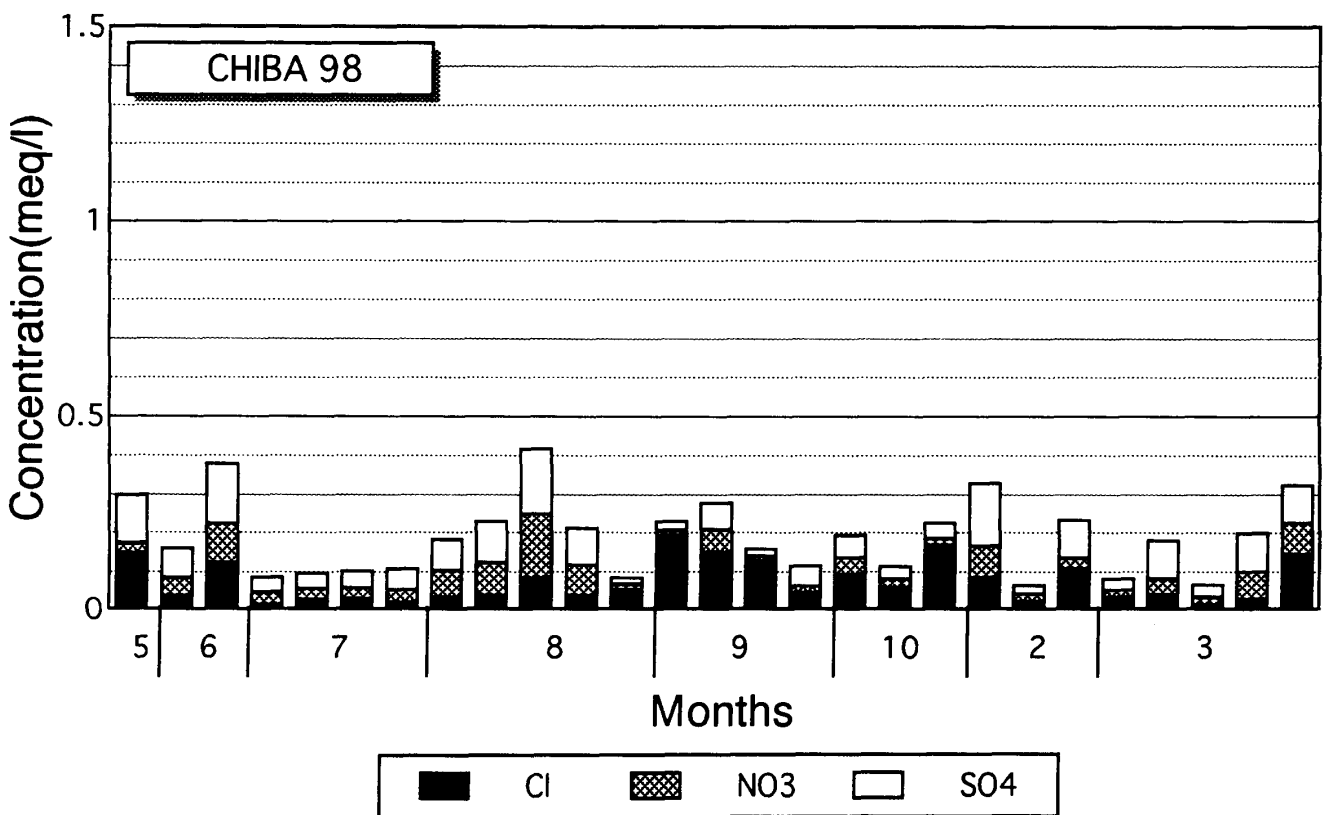
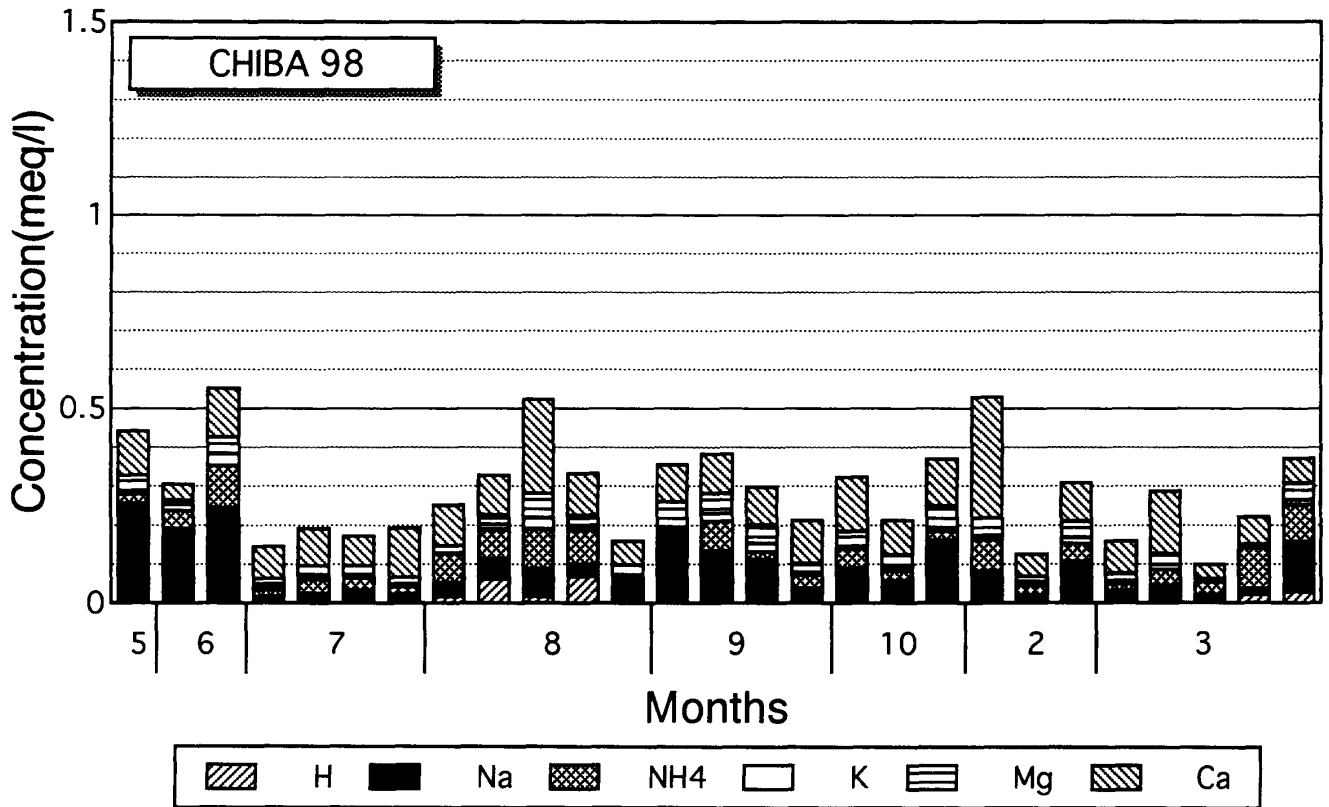


図5.4 1998年度の千葉における酸性雨のイオン濃度組成

上図：+イオン 下図：-イオン 単位：meq/l

千葉県北部における酸性雨の地域的特性について(5)

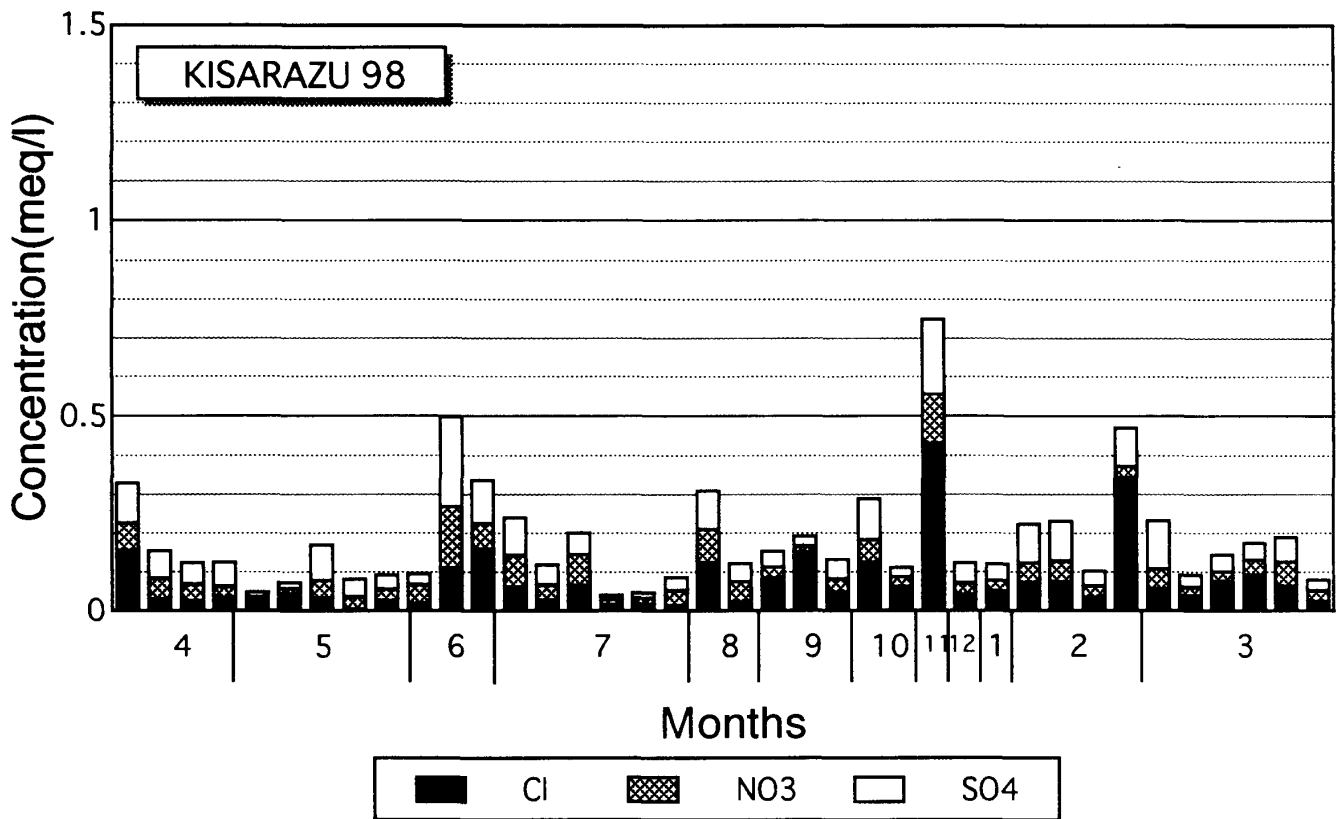
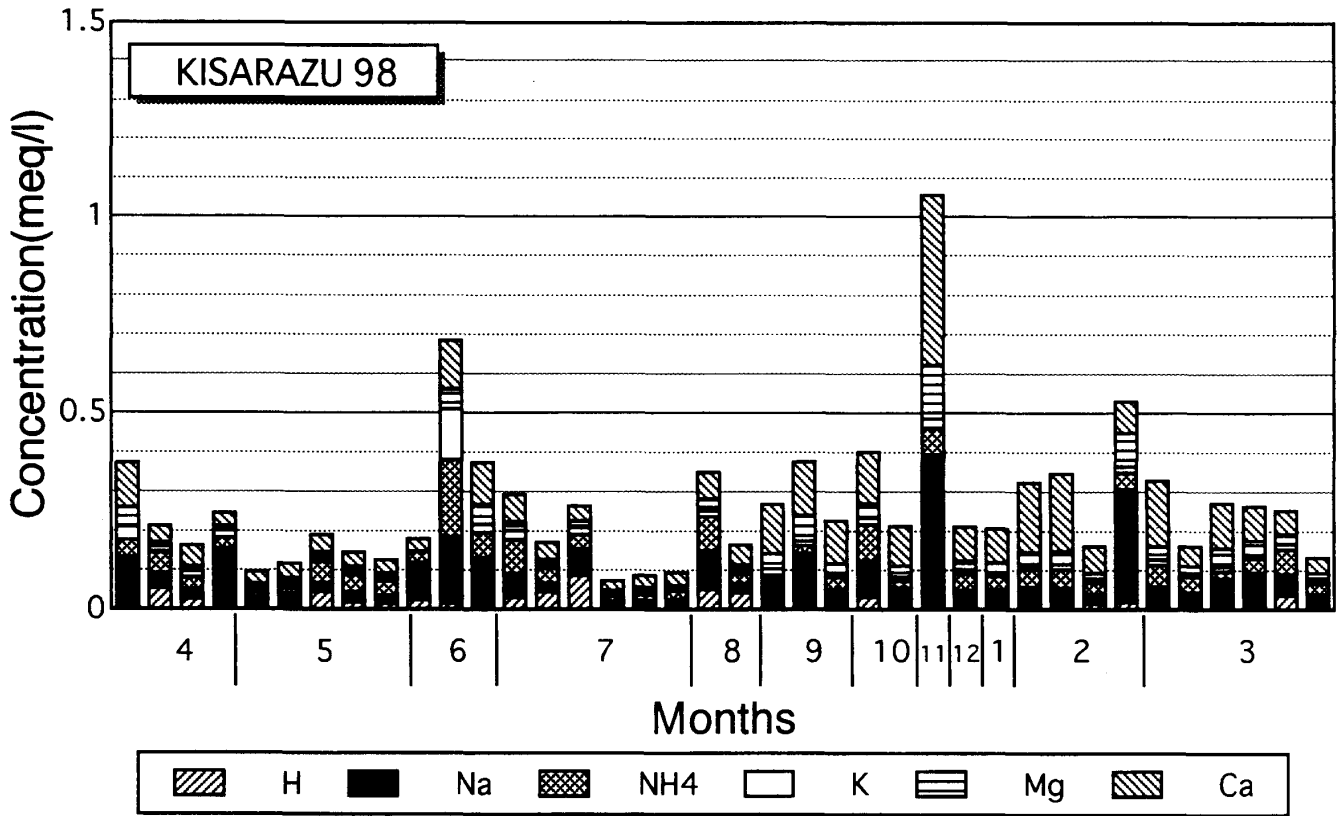


図5.5 1998年度の木更津における酸性雨のイオン濃度組成

上図：+イオン 下図：-イオン 単位：meq/l

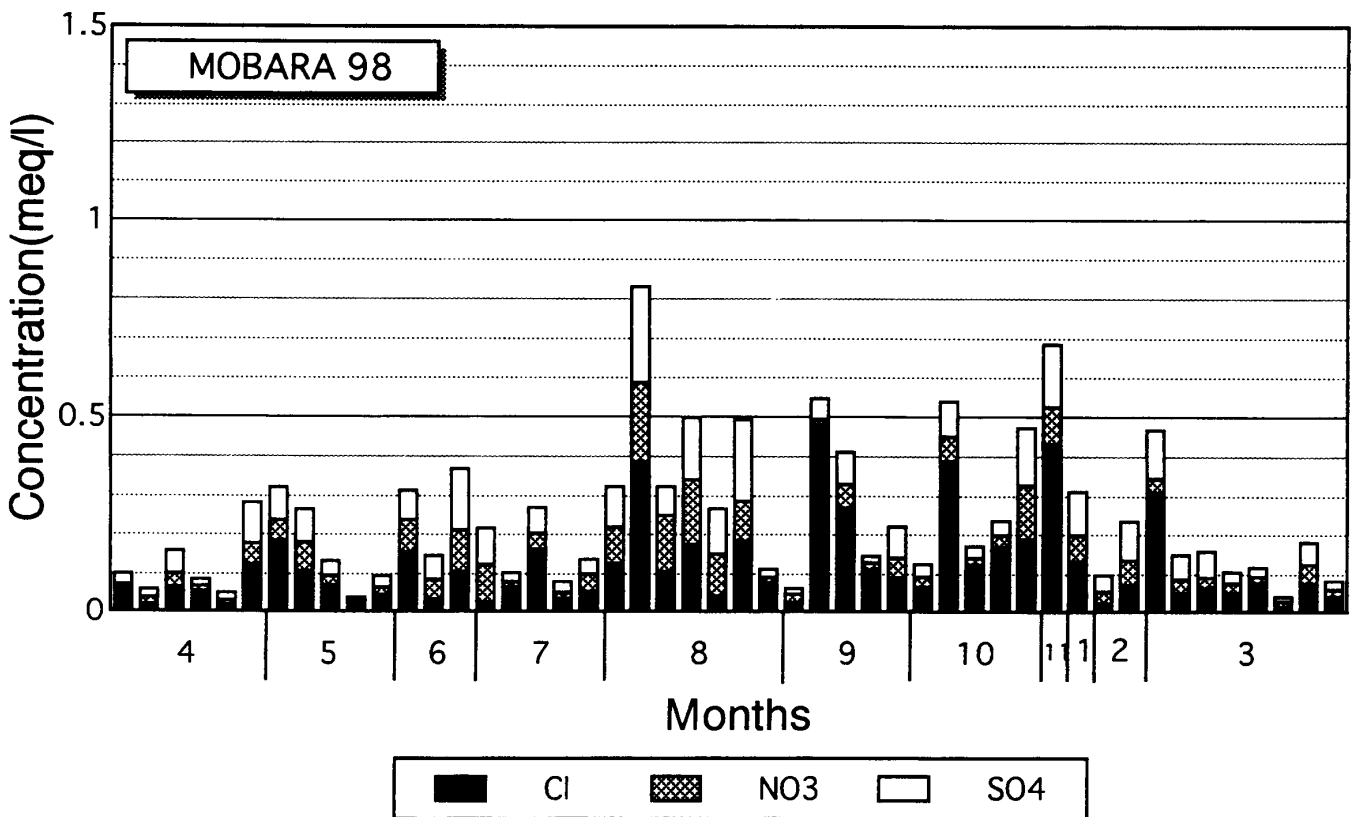
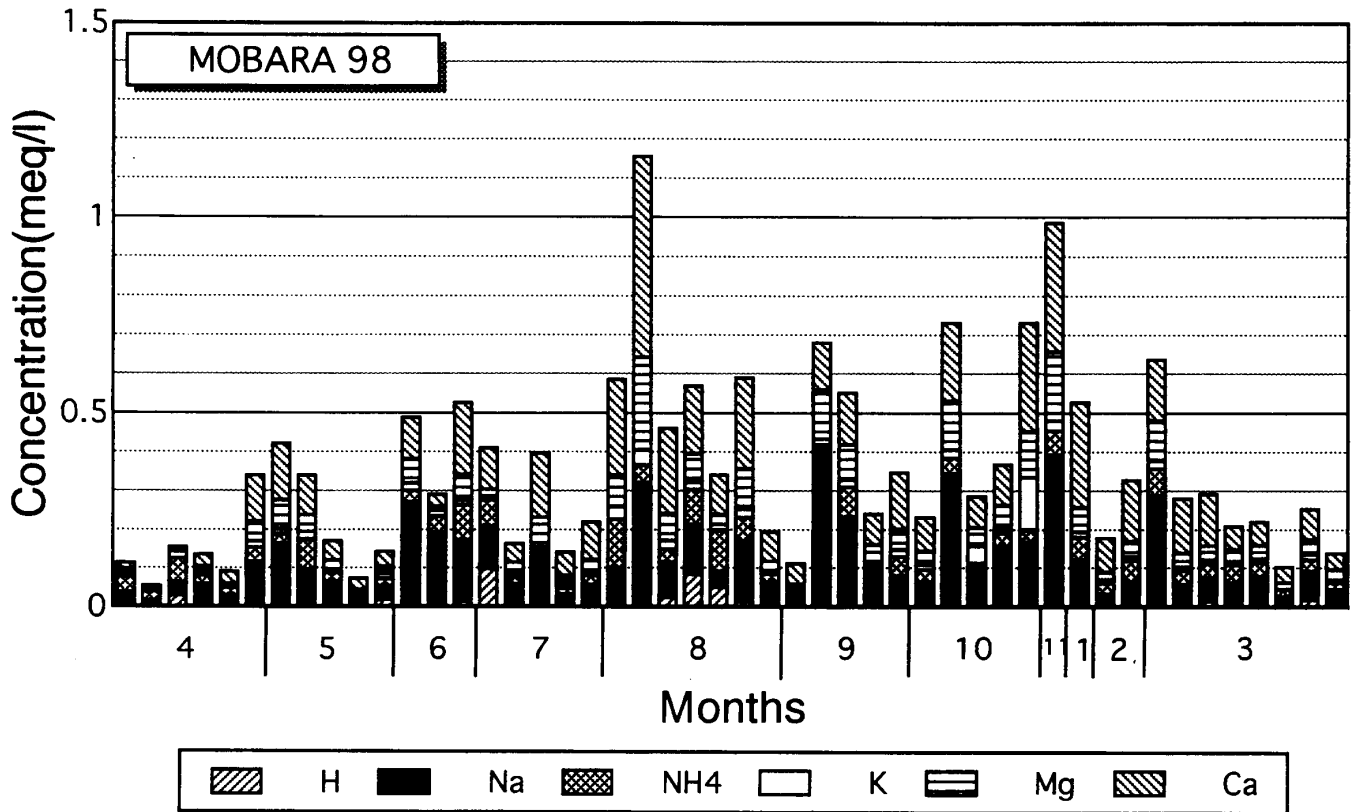


図5.6 1998年度の茂原における酸性雨のイオン濃度組成

上図：+イオン 下図：-イオン 単位：meq/l

千葉県北部における酸性雨の地域的特性について(5)

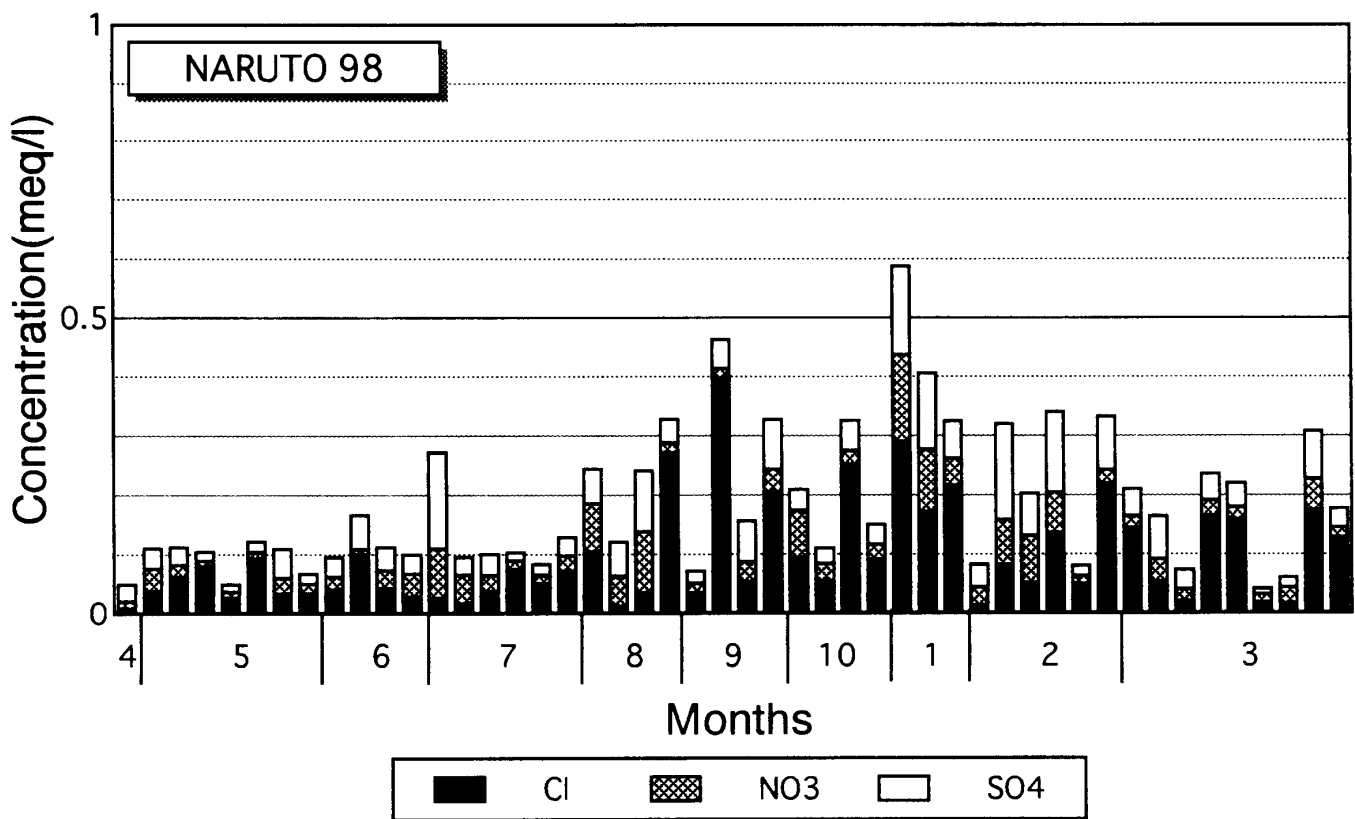
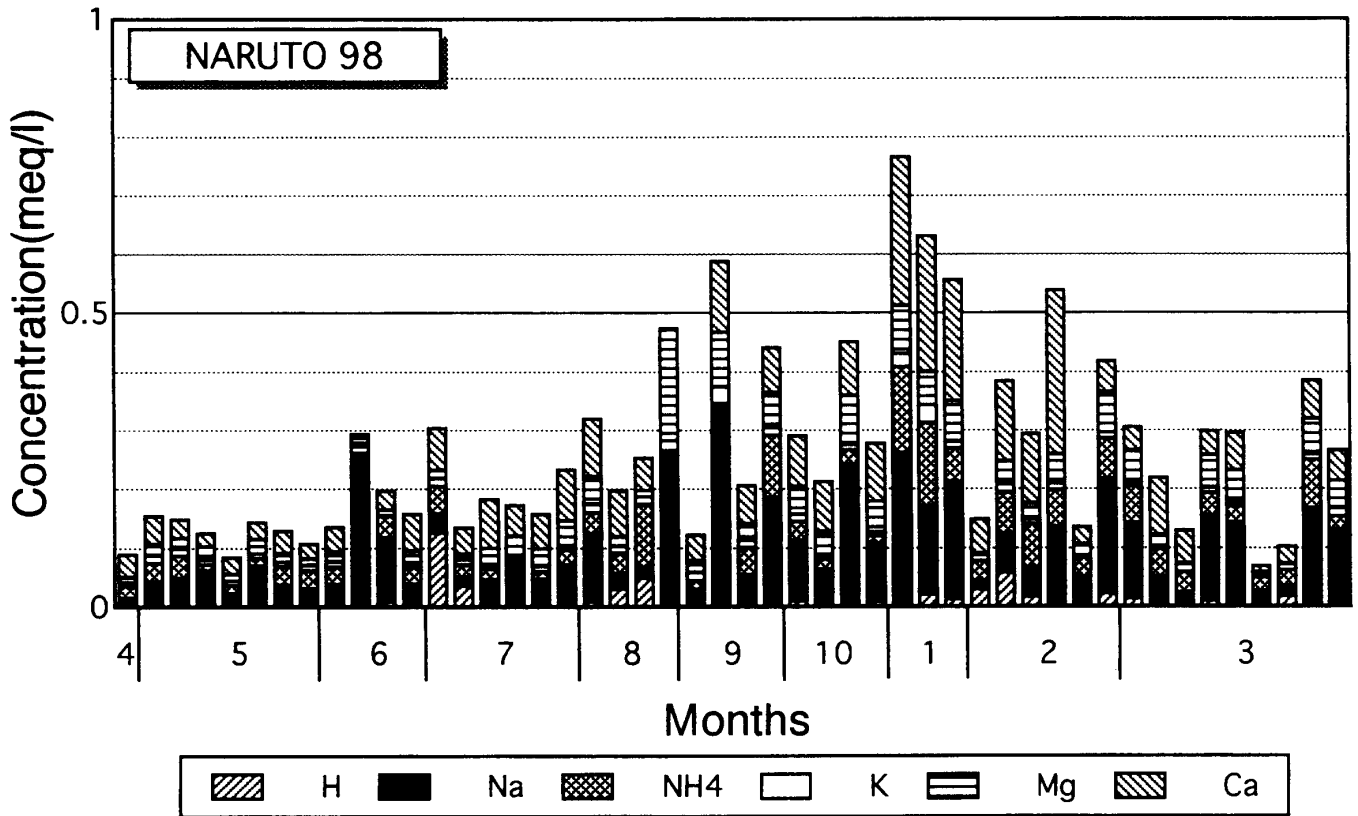


図5.7 1998年度の成東における酸性雨のイオン濃度組成

上図：+イオン 下図：-イオン 単位：meq/l

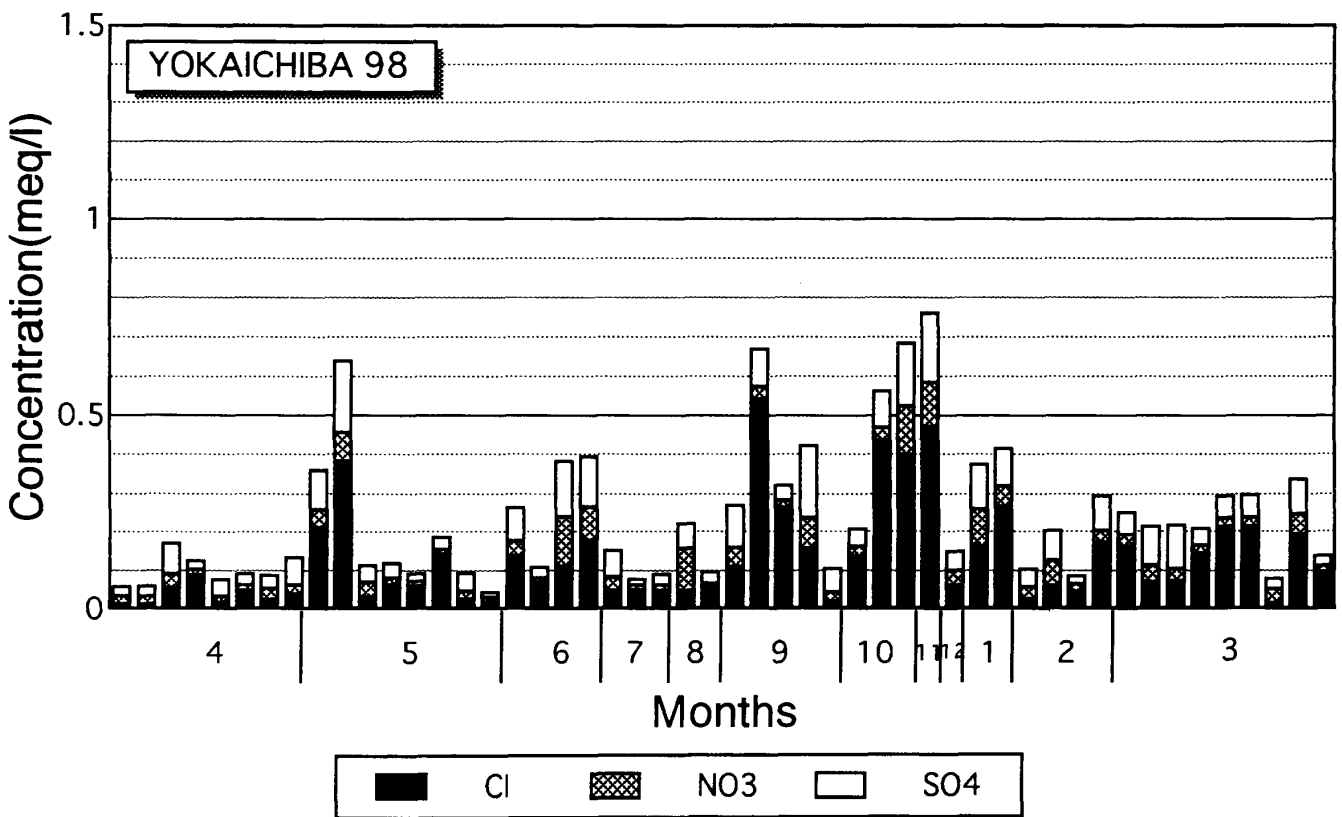
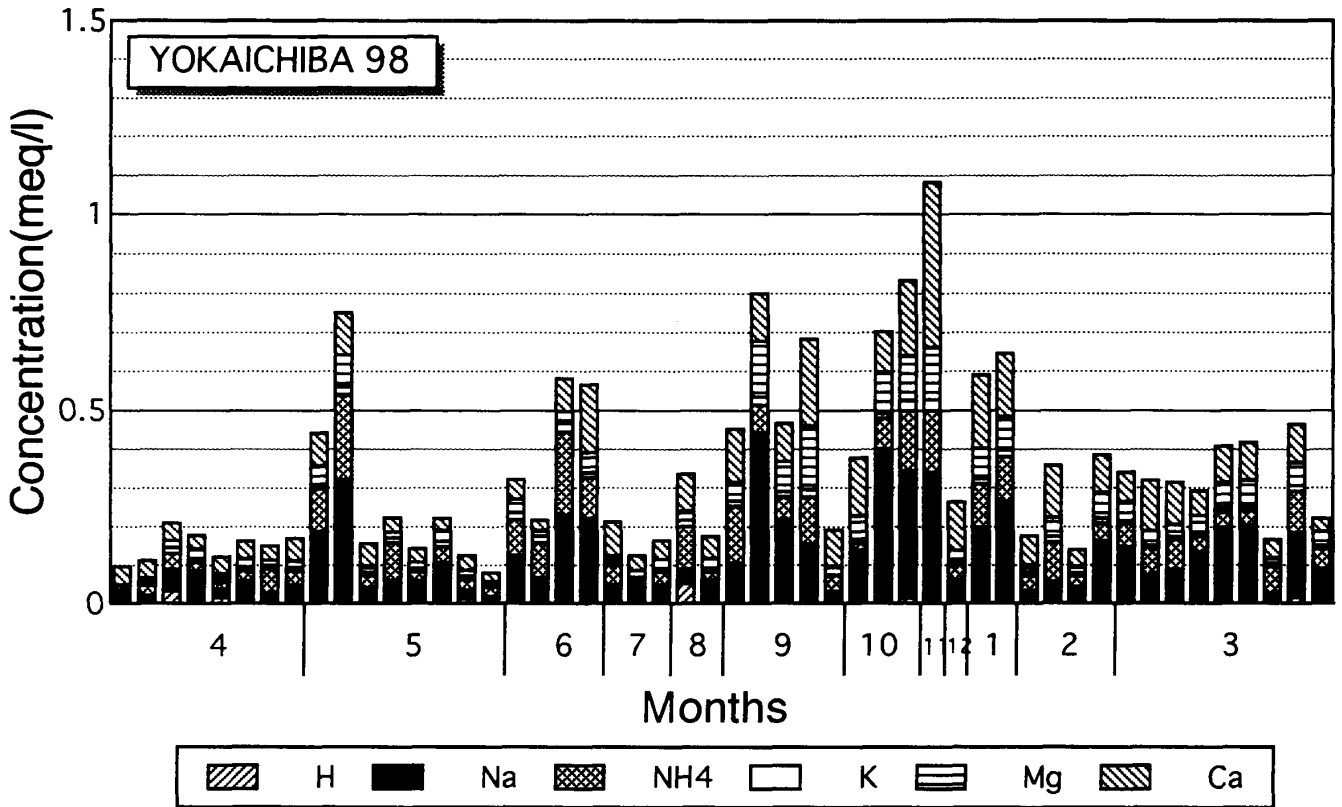


図5.8 1998年度の八日市場における酸性雨のイオン濃度組成

上図：+イオン 下図：-イオン 単位：meq/l

千葉県北部における酸性雨の地域的特性について(5)

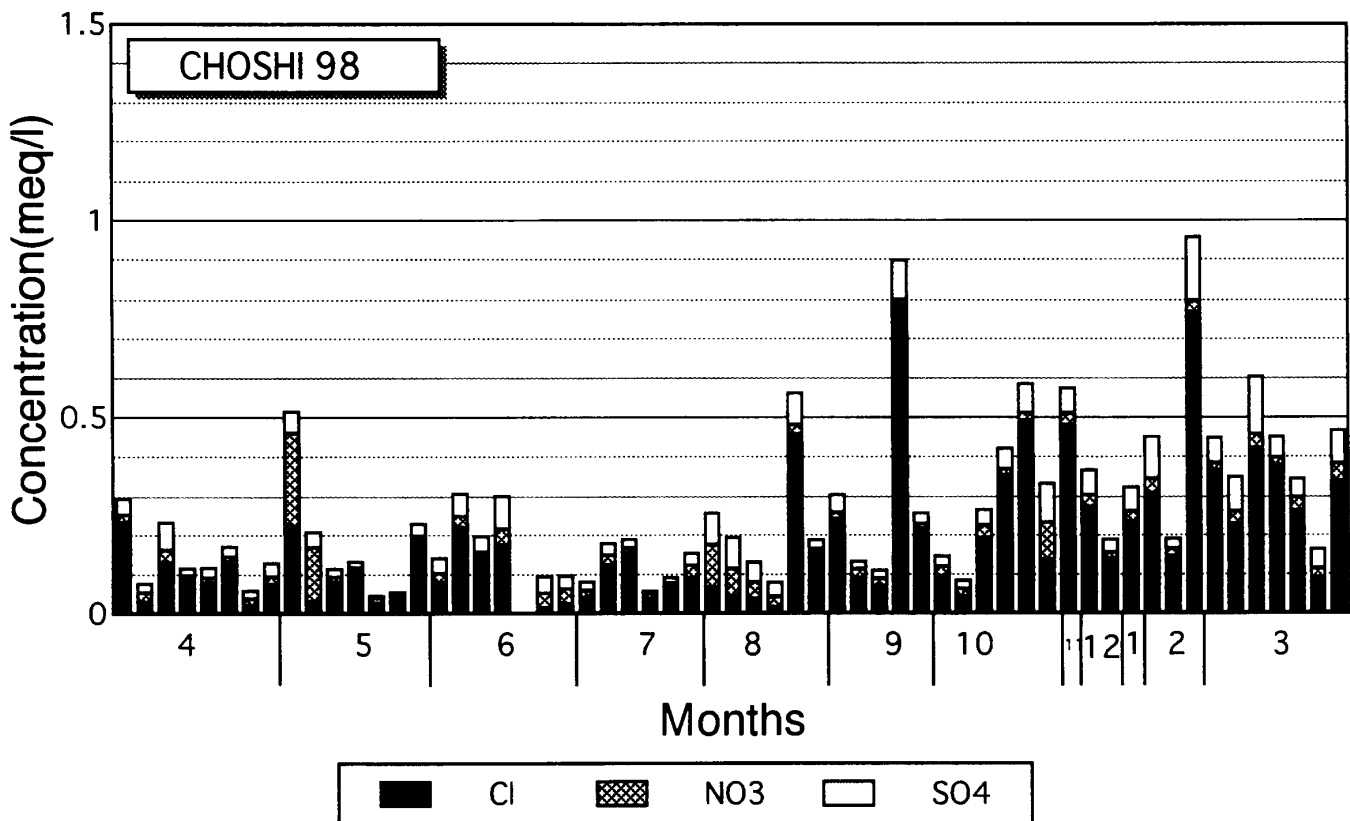
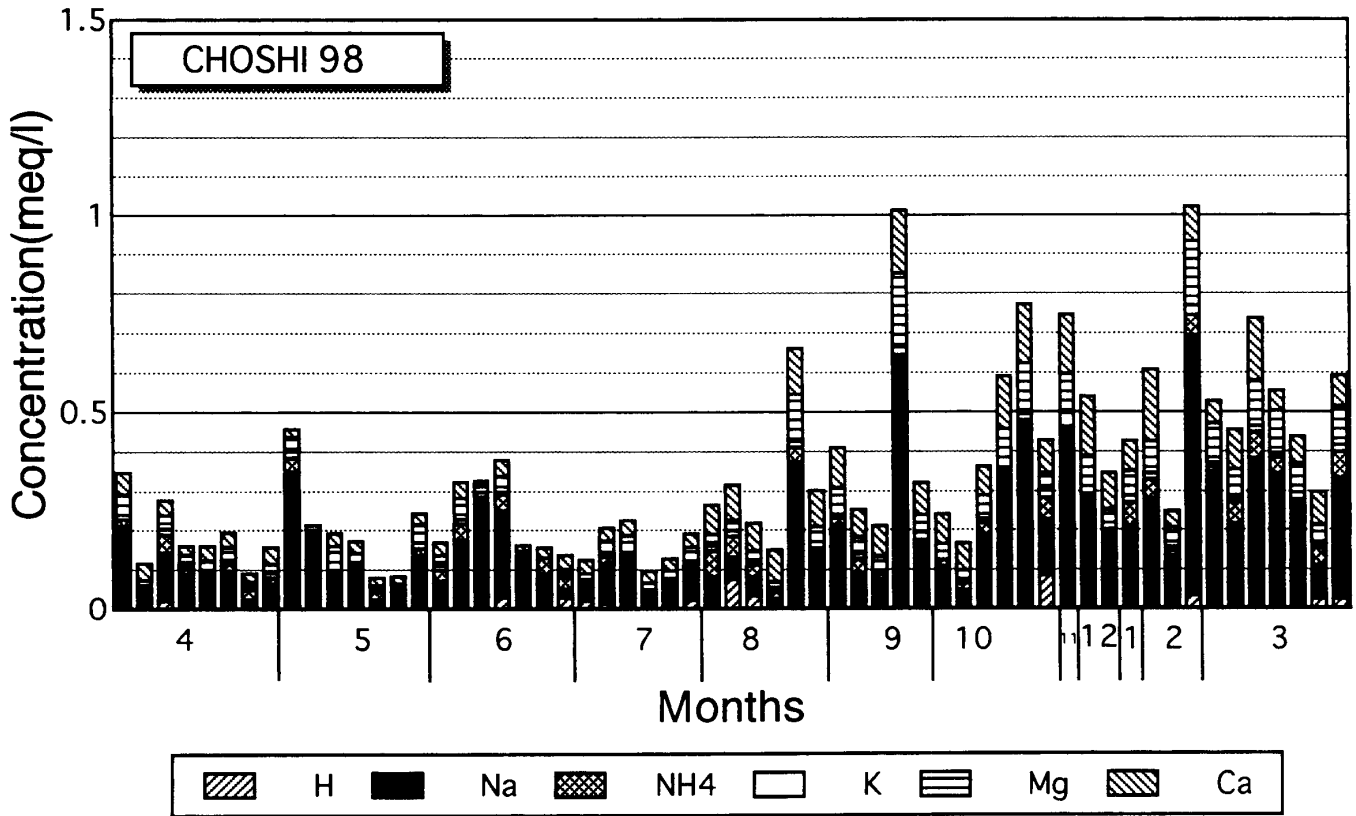


図5.9 1998年度の銚子における酸性雨のイオン濃度組成

上図：+イオン 下図：-イオン 単位：meq/l

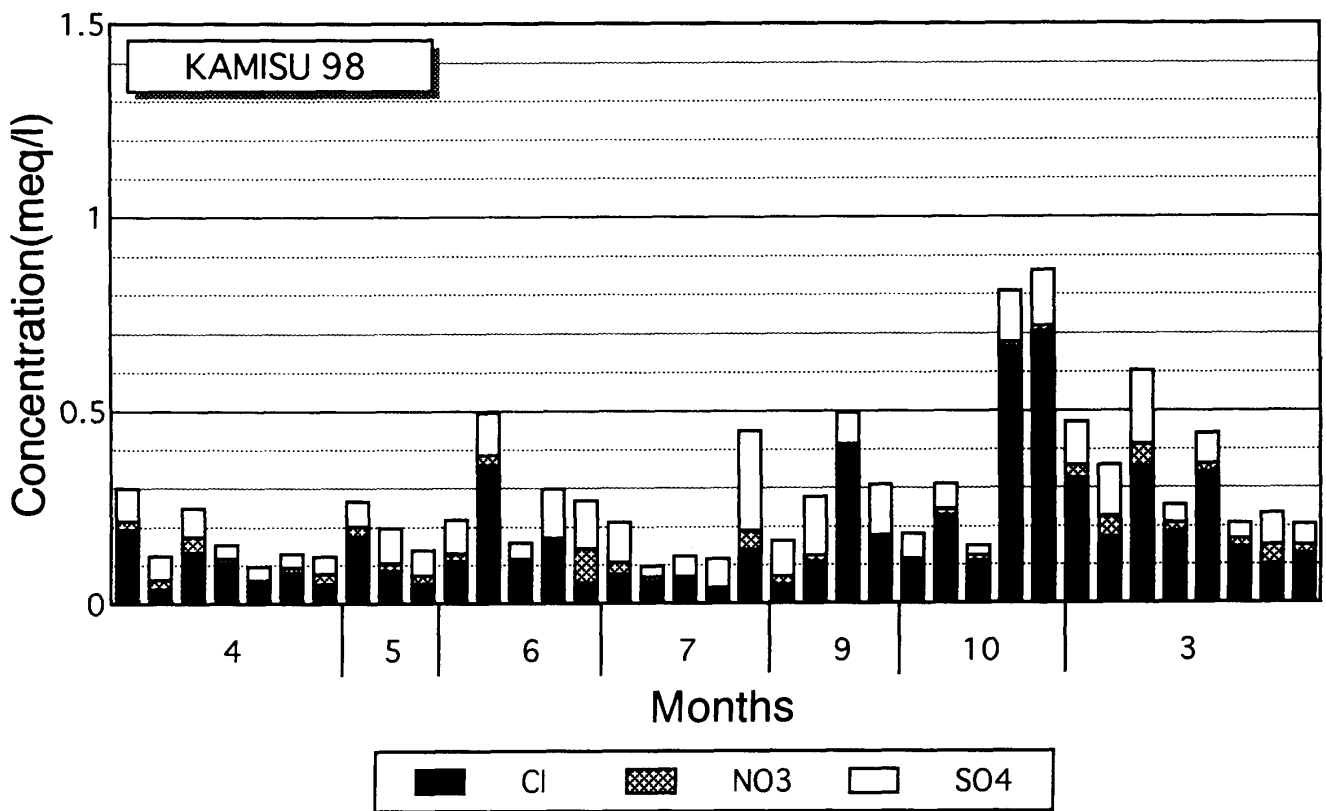
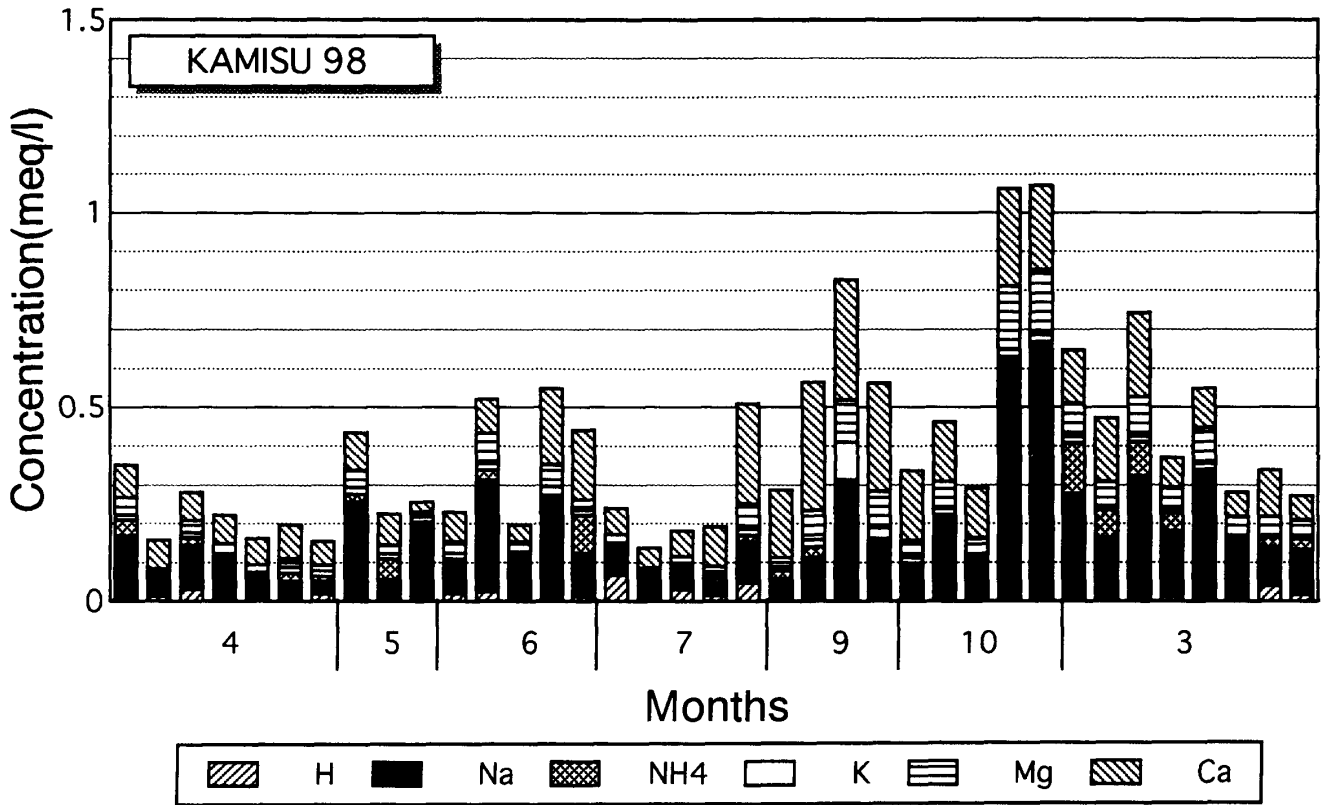


図5.10 1998年度の神栖における酸性雨のイオン濃度組成

上図：+イオン 下図：-イオン 単位：meq/l

千葉県北部における酸性雨の地域的特性について(5)

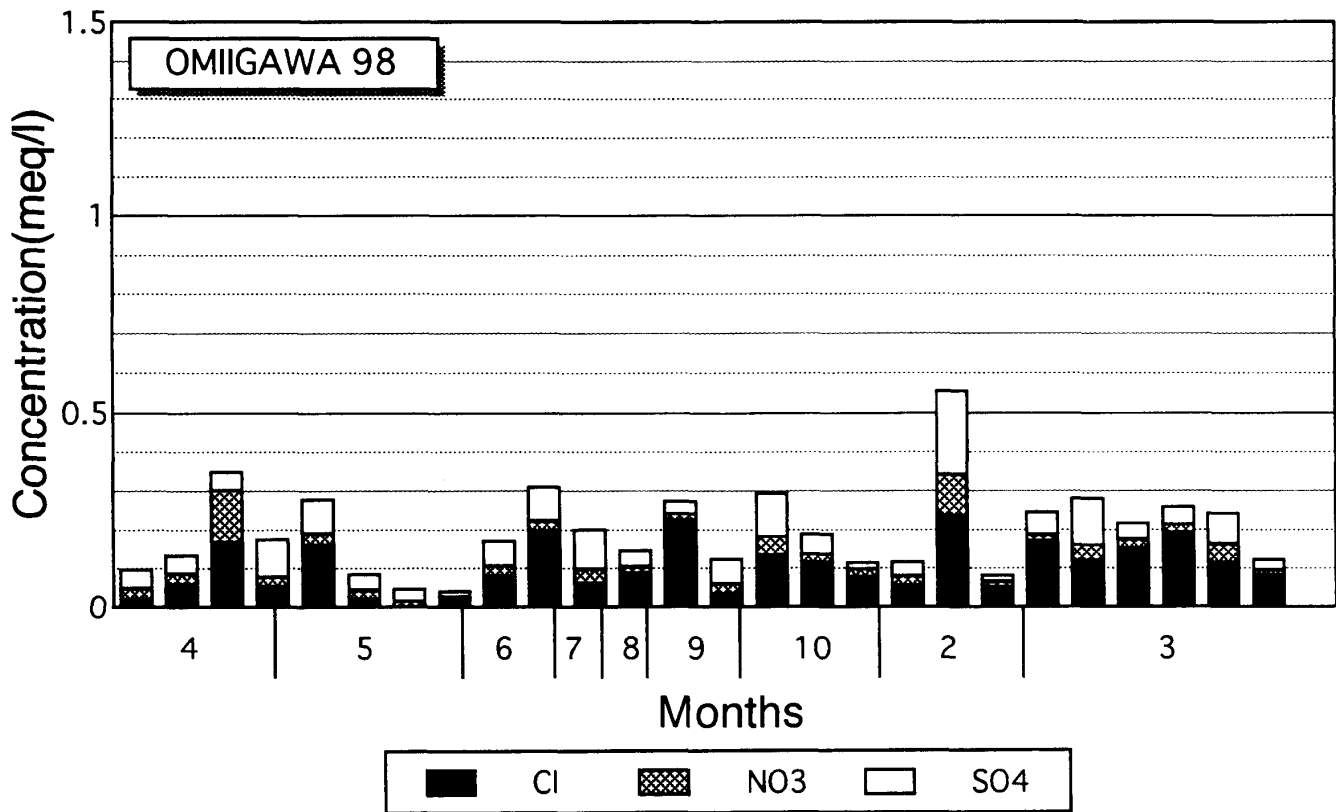
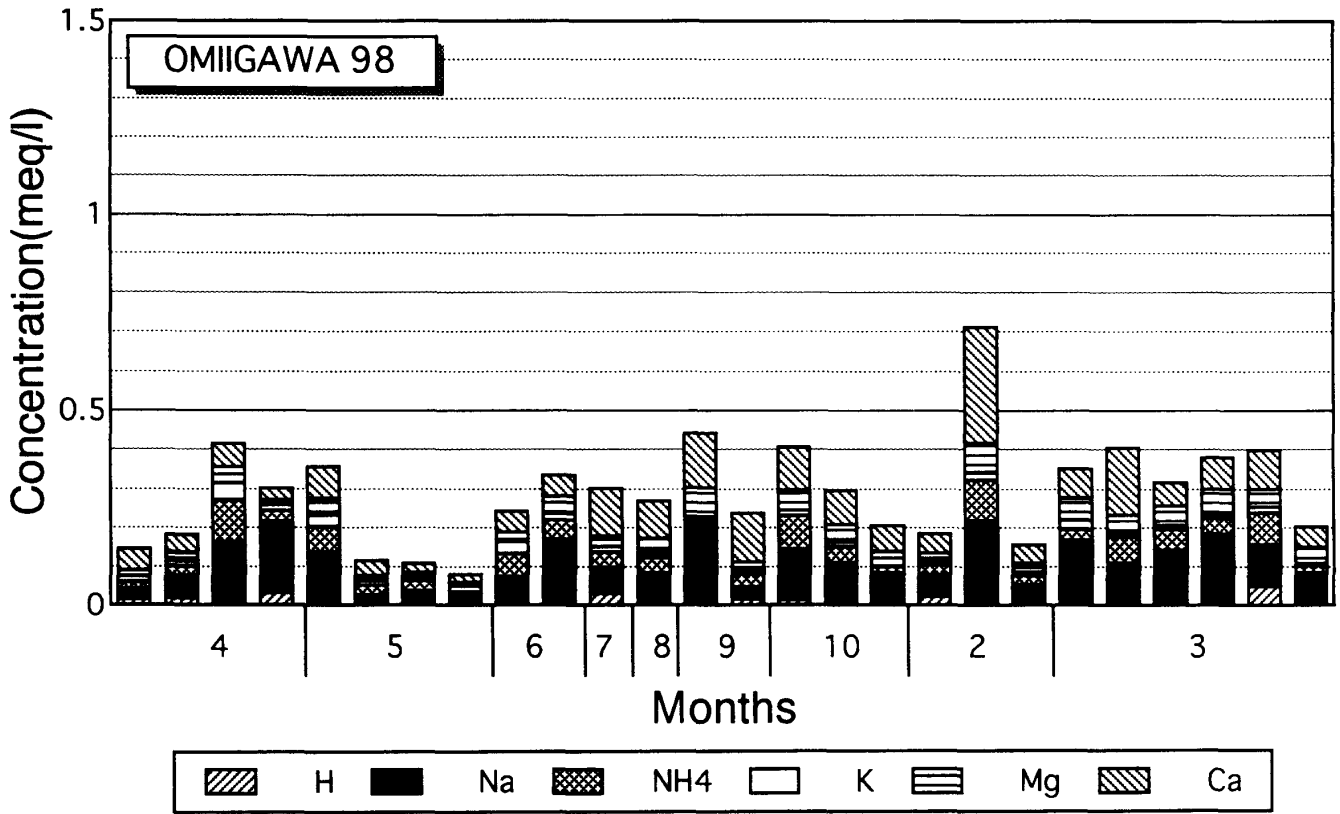


図5.11 1998年度の小見川における酸性雨のイオン濃度組成

上図：+イオン 下図：-イオン 単位：meq/l

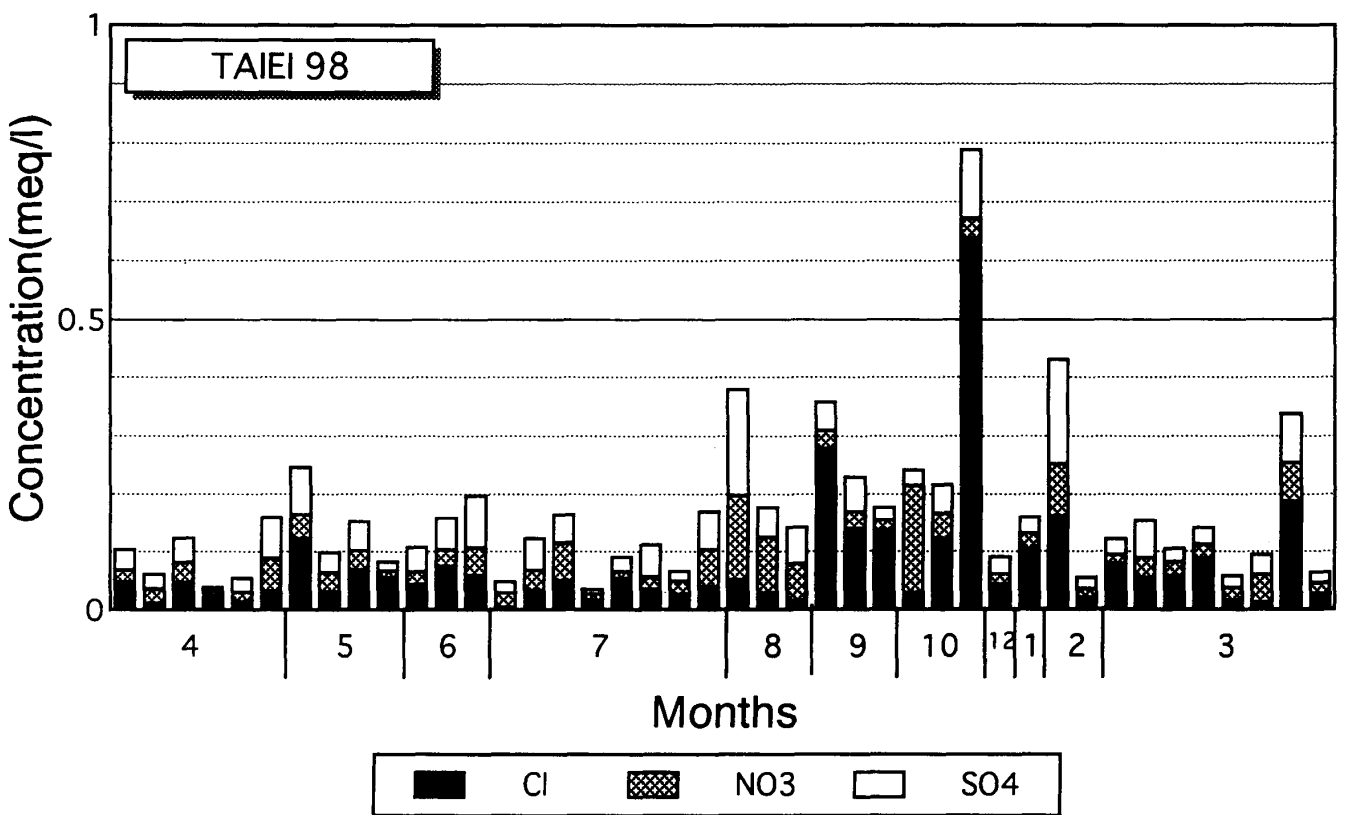
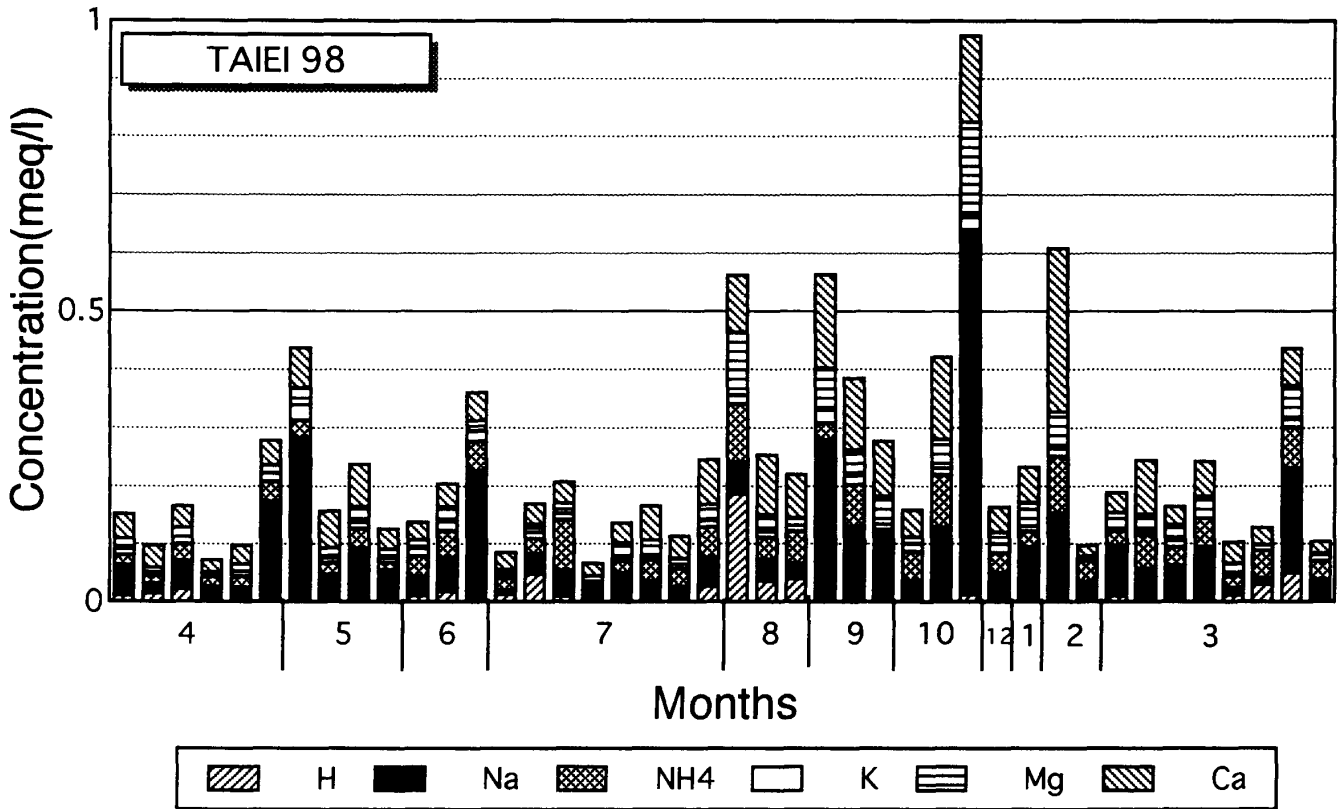


図5.12 1998年度の大栄町における酸性雨のイオン濃度組成

上図：+イオン 下図：-イオン 単位：meq/l

千葉県北部における酸性雨の地域的特性について(5)

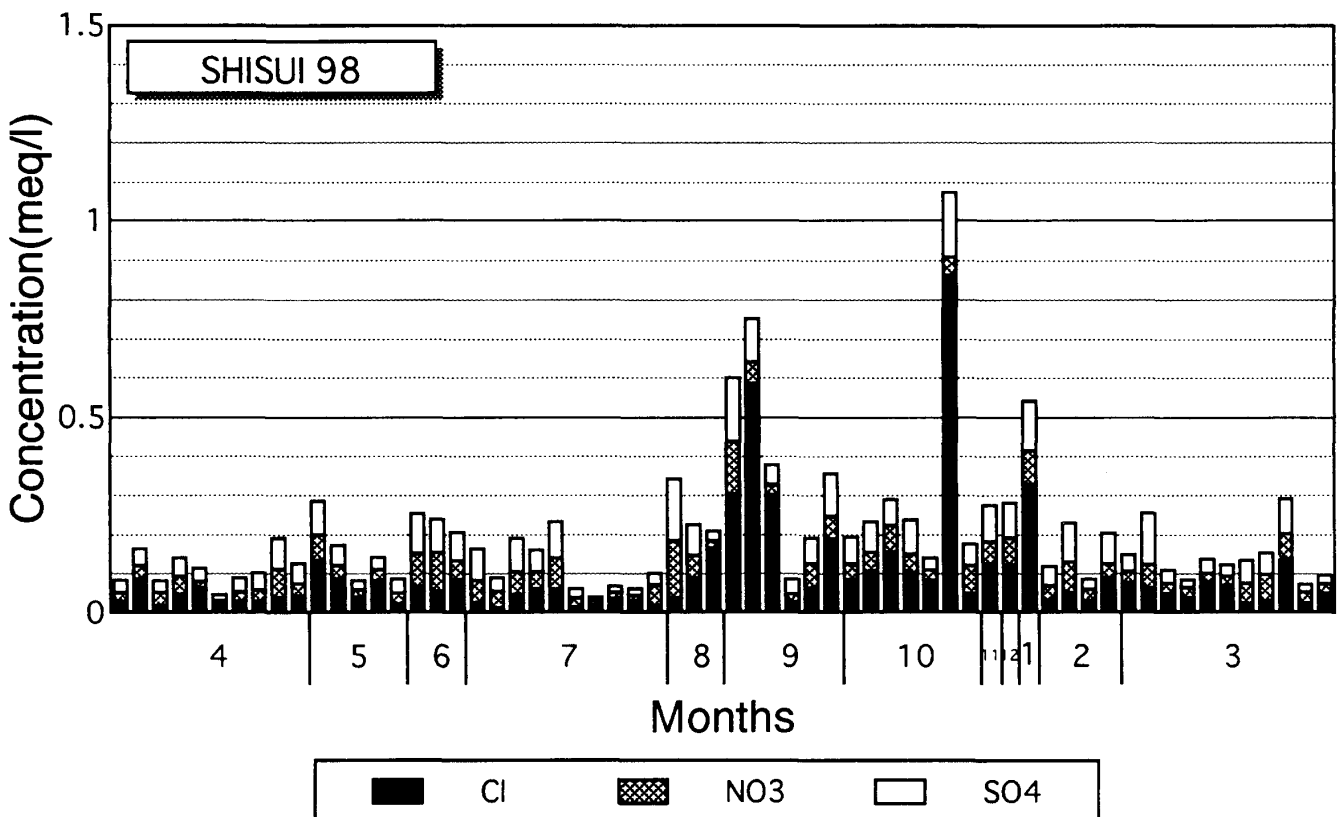
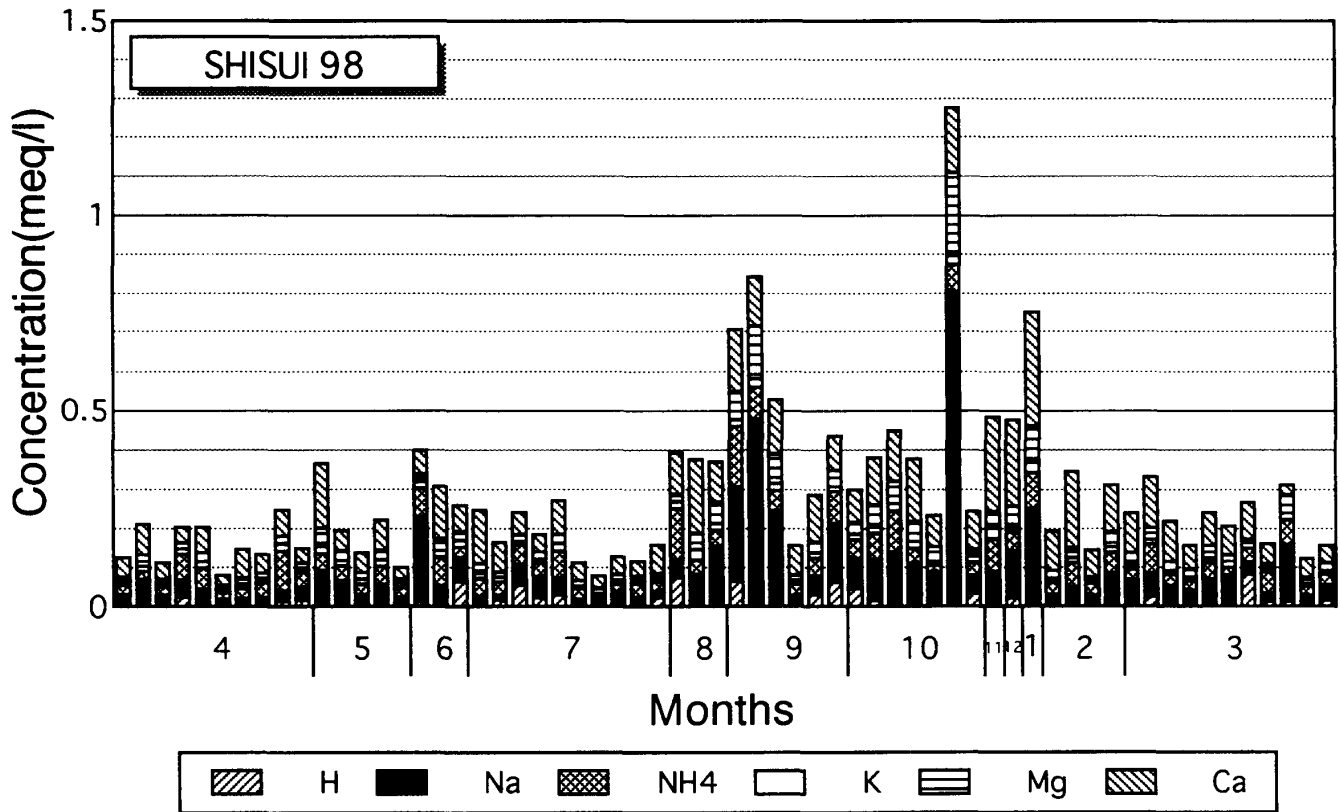


図5.13 1998年度の酒々井における酸性雨のイオン濃度組成

上図：+イオン 下図：-イオン 単位：meq/l

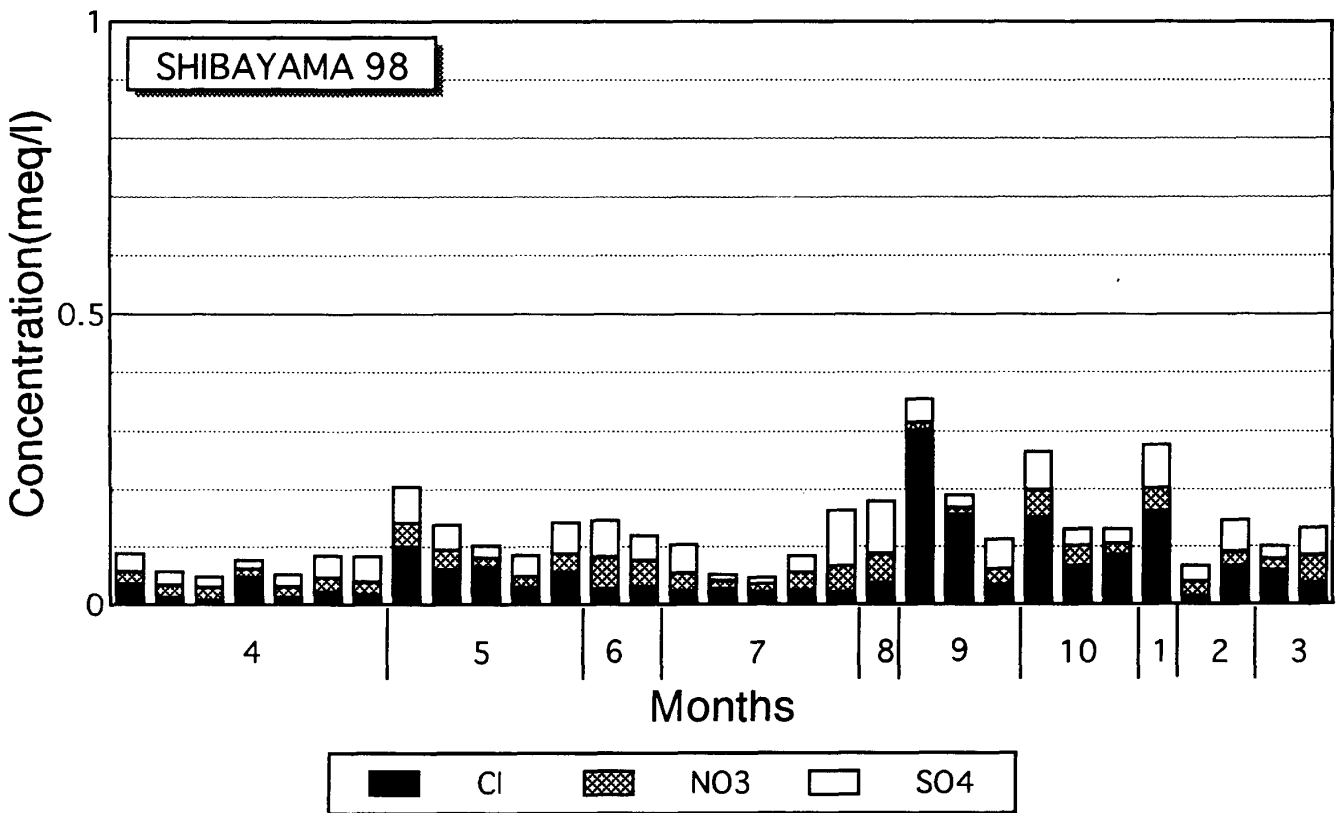
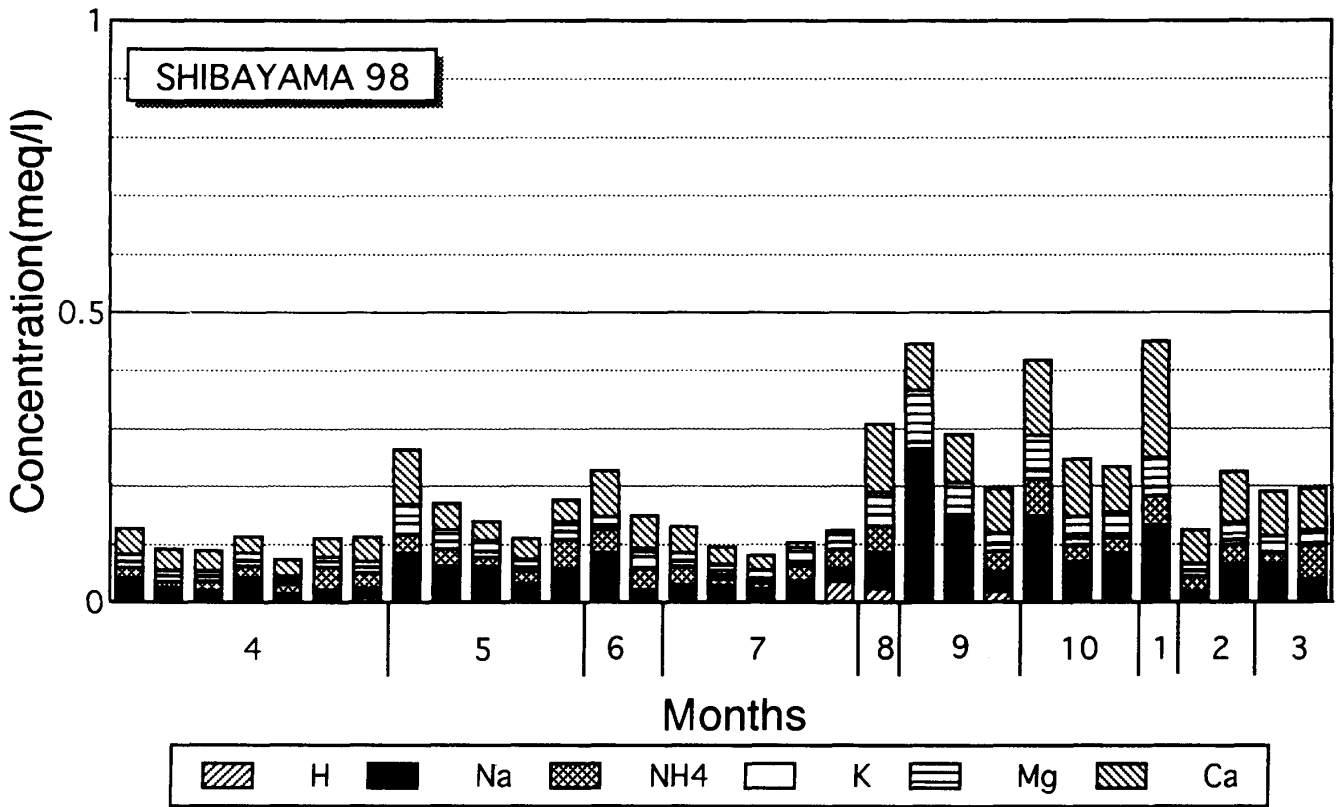


図5.14 1998年度の芝山における酸性雨のイオン濃度組成

上図：+イオン 下図：-イオン 単位：meq/l

千葉県北部における酸性雨の地域的特性について(5)

に比べて SO_4^{2-} の方が高濃度である頻度が高い (図5.9)。

- 10) 神栖 pH : 年平均値5.01
 EC : 年平均値51.83 $\mu\text{S}/\text{cm}$

銚子と同様に、 Na^+ 、 Mg^{2+} 、 Ca^{2+} 、 Cl^- などの海塩起源と考えられるイオンの濃度が高い。鹿島臨海工業地域に近接しているため、年間を通じて SO_4^{2-} の濃度が NO_3^- の濃度を上回っている (図5.10)。

- 11) 小見川 pH : 年平均値5.14
 EC : 年平均値34.63 $\mu\text{S}/\text{cm}$

NO_3^- に比べて SO_4^{2-} の濃度が高いのは、神栖や銚子と類似している (図5.11)。

- 12) 大栄町 pH : 年平均値5.05
 EC : 年平均値31.27 $\mu\text{S}/\text{cm}$

4月から7月頃にかけては、イオン濃度は比較的安定して低い (図5.12)。

- 13) 栗源 pH : 年平均値5.91
 EC : 年平均値39.25 $\mu\text{S}/\text{cm}$

NO_3^- に比べて SO_4^{2-} の濃度が相対的に高い傾向があり、その傾向は小見川と類似している。

- 14) 酒々井 pH : 年平均値5.05
 EC : 年平均値38.35 $\mu\text{S}/\text{cm}$

9月・10月・1月に0.5meq/lを超えるイオン濃度が出現しているが、これらの降水量は、いずれも3mm以下であった (図5.13)。

- 15) 芝山 pH : 年平均値5.48
 EC : 年平均値28.86 $\mu\text{S}/\text{cm}$

4月から7月までのイオン濃度は、相対的に低濃度であった (図5.14)。

3.3.2 $\text{NO}_3^-/\text{nss}-\text{SO}_4^{2-}$ 当量比

低pH化に寄与する NO_3^- と $\text{nss}-\text{SO}_4^{2-}$ の実態

を知るために、 $\text{NO}_3^-/\text{nss}-\text{SO}_4^{2-}$ 当量比 (以下N/S比と称する) の暖候期と寒候期のそれぞれの平均値分布図 (図6) を作成した。この図によると、暖候期に神栖・八日市場から佐倉に至る地域のN/S比は1.0以下であり、最も低い値は鹿島臨海工業地域に隣接した神栖の0.34であった。一方N/S比1.5以上の地域は東京湾沿岸の船橋から千葉にかけての地域および銚子付近に分布した。

寒候期には、鹿島臨海工業地域および京葉工業地帯にN/S比0.8以下の値が分布し、最小値は暖候期同様に、神栖付近に出現した。これらの両地域を結ぶ地域のN/S比は1.0以下であった。銚子付近には、寒候期にもN/S比の最も高い値が出現した。

3.3.3 分率酸性度

千葉県北部地域における降水の酸性化に対して、アルカリによる中和がどの程度働いているのかを知るために、Daumほか(1984)のいう分率酸性度 (fractional acidity、 $[\text{H}^+] / ([\text{nss}-\text{SO}_4^{2-}] + [\text{NO}_3^-])$) 比、全く中和されていない場合が1、すべて中和された場合が0を示す) を計算し、暖候期と寒候期の平均値分布を図7に示した。暖候期の分率酸性度0.15の等値線は、北部の神栖・大栄から佐倉、さらには茂原と木更津の中間付近にまで伸びる。この線の西方では値が高く船橋付近で0.2に、逆に東方では低く栗源から千葉に至る地域では0.1以下となっている。これらの分布は、1996年度・1997年度と同様に暖候期のpH分布に対応しているが、分布パターンは異なる形態を示している。

寒候期における分率酸性度の値は、全般的に暖候期の分率酸性度よりも低目である。0.1の等値線は、京葉工業地帯の木更津から四街道・小見川

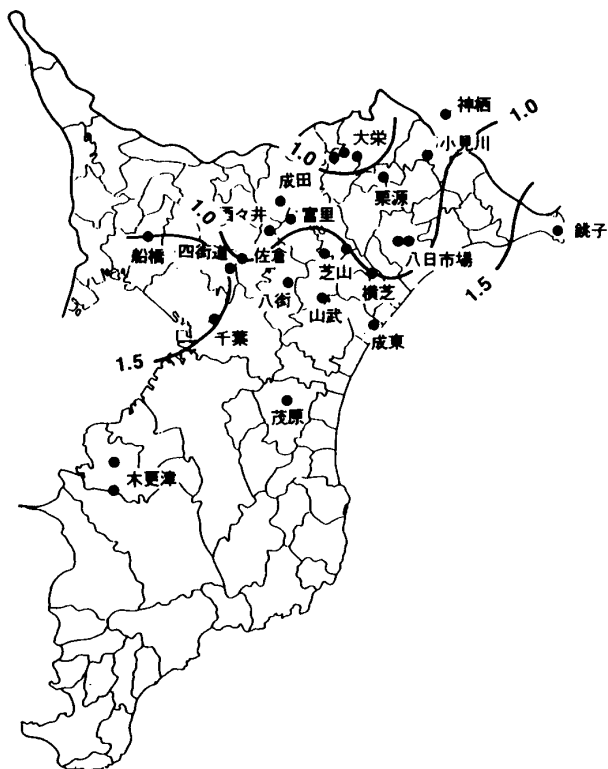


図6.1 1998年度暖候期における
NO₃⁻/nss-SO₄²⁻ 当量比平均値分布

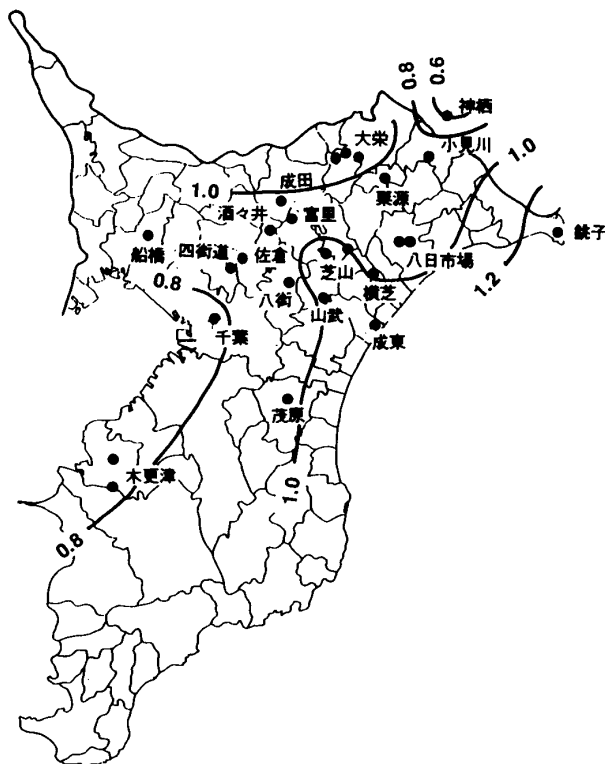


図6.2 1998年度寒候期における
NO₃⁻/nss-SO₄²⁻ 当量比平均値分布

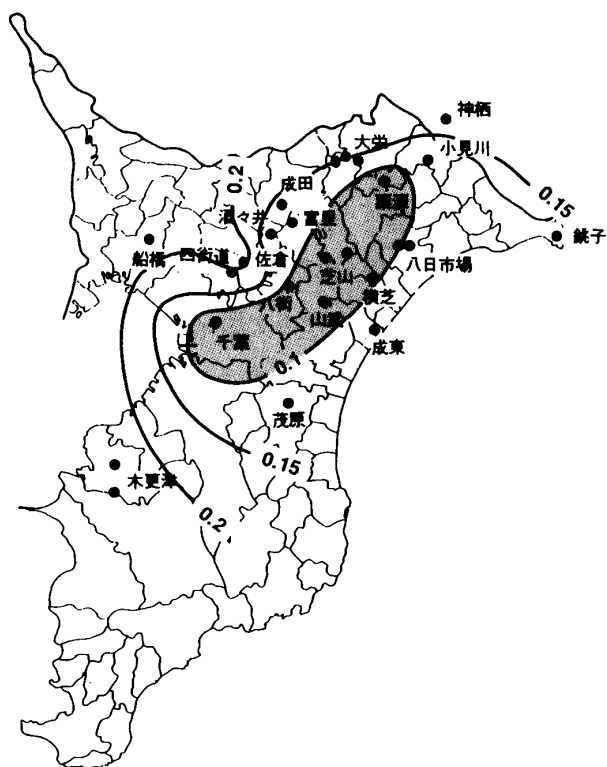


図7.1 1998年度暖候期における分率酸性度の
平均値分布
アミ掛けの部分は、分率酸性度0.1以下の
領域を示す

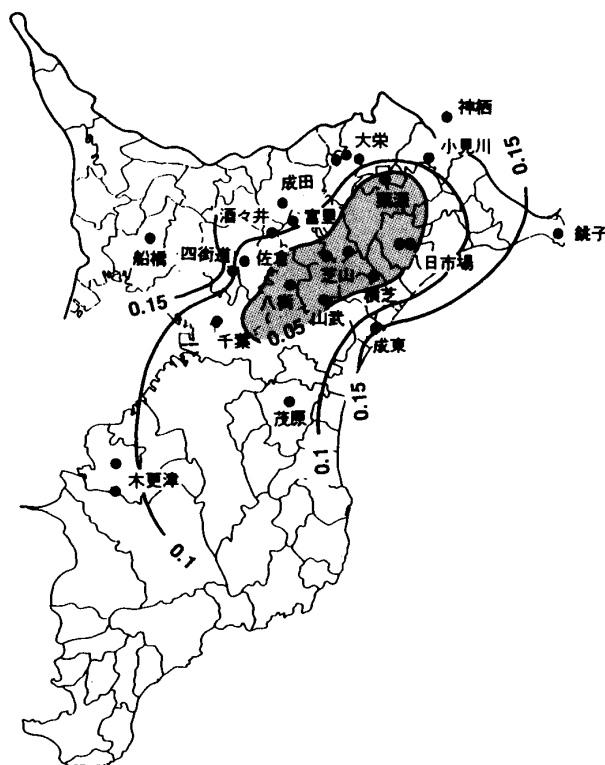


図7.2 1998年度寒候期における分率酸性度の
平均値分布
アミ掛けの部分は、分率酸性度0.05以下の
領域を示す

千葉県北部における酸性雨の地域的特性について(5)

さらに太平洋側に伸び、この等値線の外側の地域では0.1以上、特に船橋および太平洋側の銚子・成東付近では0.15を超えている。一方内陸部には暖候期同様に相対的に低い値の地域が分布している。

次に、pHと分率酸性度(A)との関係をさらに詳しく調べるために、分率酸性度が暖候期・寒候期ともに相対的に高い地域に位置する銚子の例を図8に示した。図8.1によれば、暖候期における両者間には高い負相関(相関係数-0.83)が認められ、その関係は次式で示される。

$$\text{pH} = -3.18A + 5.90$$

この式によれば、暖候期には分率酸性度0.1の時にpH 5.58、同0.5の時にpH 4.31となる。

一方、寒候期の両者間の関係についても、図8.2に示すような高い負相関(相関係数 -0.93)が得られ、その関係は次式で示される。

$$\text{pH} = -3.57A + 5.82$$

これらの関係から、図4のpH分布と図7の分率酸性度分布との両者間の関係がより明確に理解できる。

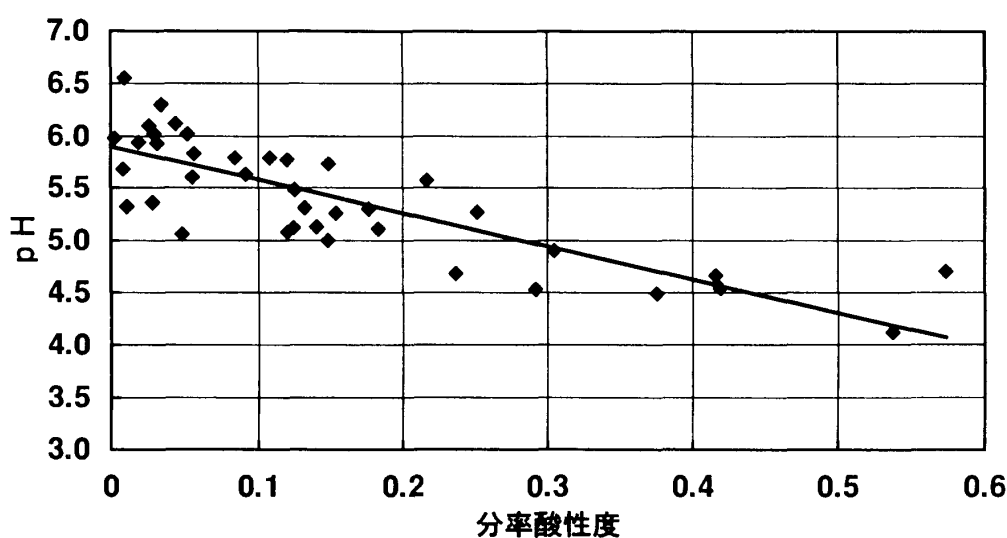


図8.1 1998年度暖候期における銚子のpHと分率酸性度 $[H^+]/([NO_3^-] + [nss-SO_4^{2-}])$ との関係

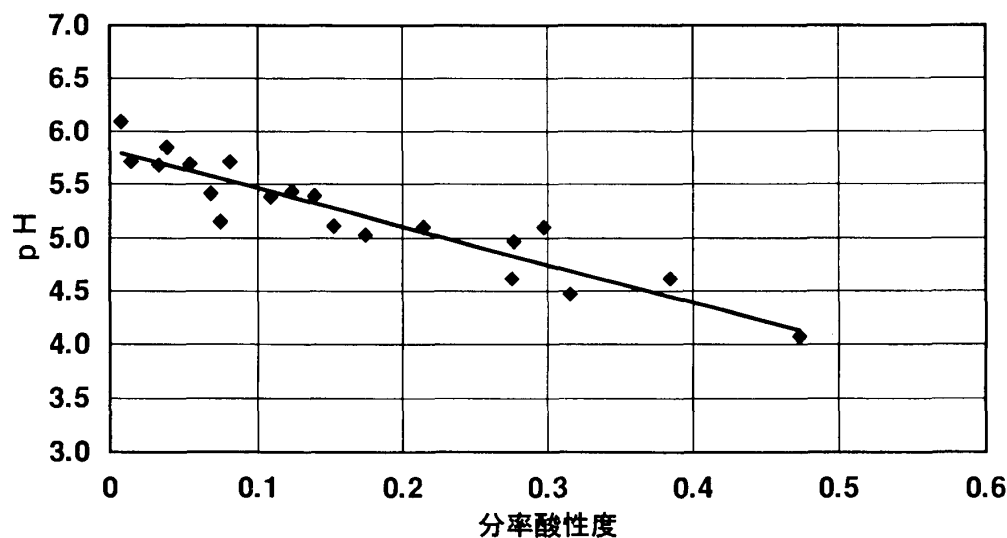


図8.2 1998年度寒候期における銚子のpHと分率酸性度 $[H^+]/([NO_3^-] + [nss-SO_4^{2-}])$ との関係

4 まとめ

1998年度に千葉県北部地域の23地点において、一降水毎の酸性雨観測を実施した。その結果から得られたおもな知見は、次の通りである。

1. 1998年度暖候期における pH 平均値分布図においては、成東・栗本・茂原付近で pH 5.25以上と最も高く、その周辺に向かって pH 値は低下している。また寒候期における pH 平均値分布図においても、栗源から八街にかけての内陸部に pH 5.5以上の最も高い値が分布し、西部の船橋付近では pH 5.0以下になっている。
2. 千葉県北部地域の $\text{NO}_3^-/\text{nss}-\text{SO}_4^{2-}$ 当量比 (N/S 比) は、前年と比較して全体的に高目であり、暖候期には北部の地域で1.0以下、寒候期には鹿島臨海工業地域と京葉工業地帯付近に、ともに0.8以下の値が分布している。
3. 暖候期の pH 分布と分率酸性度 $[\text{H}^+]/([\text{nss}-\text{SO}_4^{2-}] + [\text{NO}_3^-])$ 分布とは非常に良い相関を示す。銚子の暖候期の pH と分率酸性度 (A) との関係は、次式で示される。

$$\text{pH} = -3.18A + 5.90 \quad r = -0.83$$

また、寒候期の pH と分率酸性度 (A) との関係は、次式で示される。

$$\text{pH} = -3.57A + 5.82 \quad r = -0.93$$

謝 辞

酸性雨観測に当たり、ご協力頂いた本研究所環境モニター・地域研究員の方々、ならびに本学学生諸君に対し、深く感謝申し上げます。

参考文献

- Daum, P. H., Kelly, T. J., Schwartz, S. E. and Newman, L. (1984) : Measurements of the chemical composition of stratiform clouds. *Atmospheric Environment*, 18, 2671-2684.
- 中村圭三 (1993) : 大学周辺の環境を題材とした教育システムの検討. *環境情報研究*, No. 1, 1~13.
- 中村圭三 (1994) : 1993年暖候期における佐倉およびその周辺の酸性雨について. *環境情報研究*, No. 2, 5~24.
- 中村圭三 (1995) : 千葉県北部における酸性雨の地域的特性について -1994年度観測結果-. *環境情報研究*, No. 3, 1~19.
- 中村圭三 (1996) : 千葉県北部の酸性降水に見られる地域的特性について. 第37回大気環境学会年会講演要旨集, pp318.
- 中村圭三 (1997) : 千葉県北部における酸性雨の地域的特性について(2) -1995年度観測結果-. *環境情報研究*, No. 5, 23~41.
- 中村圭三 (1998) : 千葉県北部における酸性雨の地域的特性について(3) -1996年度観測結果-. *環境情報研究*, No. 6, 25~51.
- 中村圭三 (1999) : 千葉県北部における酸性雨の地域的特性について(4) -1997年度観測結果-. *環境情報研究*, No. 7, 1~26.

ABSTRACT

Regional Characteristics of Acid Rain in the Northern Part of Chiba Prefecture : Part 5

Results of the observation from April 1998 to March 1999

Keizo NAKAMURA

In order to clarify the regional characteristics of acid rain in Chiba Prefecture, data of precipitation obtained during the period from April 1998 to March 1999 with the aid of the environmental monitoring volunteers of the Institute of Environmental Studies of Keiai University were analyzed.

The results of the analyses are summarized as follows :

- 1) For pH mean value distribution diagram in the warm period in fiscal 1998, the highest with over pH5.25 was in Kurimoto and near Mobara, and the pH value decreased for the circumference.
- 2) The highest value for pH mean value distribution diagram in the cool season was over pH5.5 in the inland from Kurimoto to Yachimata is distributed, and pH5.0 or less near Funabasi in the West.
- 3) $\text{NO}_3^-/\text{nss}-\text{SO}_4^{2-}$ ratio (N/S ratio) of the Northern Region in Chiba Prefecture was generally higher than the preceding year. N/S ratio of the region in the north was under 1.0 in the warm period. A value under 0.8 was together distributed near Kashima marime industrial district and Keiyo industrial area in the cool season.
- 4) The pH distribution and fractional acidity $[\text{H}^+]/([\text{nss}-\text{SO}_4^{2-}] + [\text{NO}_3^-])$ distribution in the warm period showed very good correlation. The relationship between pH and fractional acidity (A) in the warm period in Choshi is shown in the following equation.

$$\text{pH} = -3.18A + 5.90 \quad r = -0.83$$

And, the relationship between pH and fractional acidity (A) in cool season is shown in the following equation.

$$\text{pH} = -3.57A + 5.82 \quad r = -0.93$$