

# 千葉県北部における酸性雨の地域的特性について（7）

## ——2000年度 観測結果——

中村圭三・立澤誘一

### 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の間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，1993，1994，1995，1996，1997，1998，1999，2000，2001）。今回は、2000年度の観測結果について報告する。

### 2. 観測方法

千葉県内20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、メトラ・トレード社製pHメーター（HM-30V）および東亜電波工業製電気伝導度計（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

て陽イオン（ $\text{Na}^+$ 、 $\text{NH}_4^+$ 、 $\text{K}^+$ 、 $\text{Mg}^{2+}$ 、 $\text{Ca}^{2+}$ ）および陰イオン（ $\text{F}^-$ 、 $\text{Cl}^-$ 、 $\text{NO}_2^-$ 、 $\text{Br}^-$ 、 $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{SO}_4^{2-}$ ）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。

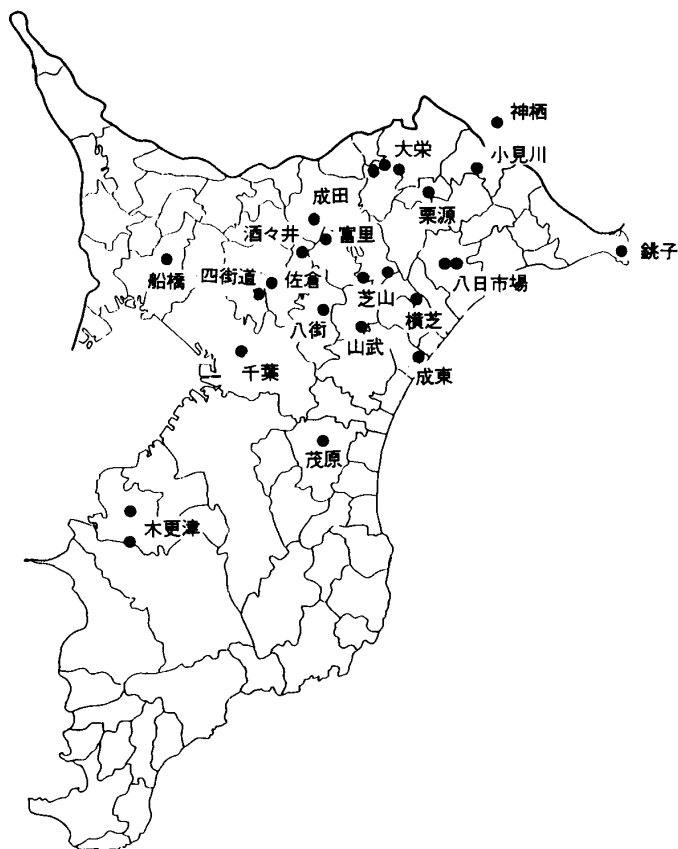


図1 酸性雨観測地域  
●：観測地点

### 3. 酸性雨の観測結果

#### 3.1 気象概況

2000年4月から2001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、春期の多雨・寡照、夏期の高温・少雨、秋期の高温・多雨・寡照、および冬期の多雨・平年並みの気温などがあげられる。5月24日に茨城県南部から当研究対象地域である千葉県北部地域をピンポン玉からみかん大の降雹が襲ったことと、8月下旬からの三宅島火山噴火は、特筆すべき事項であった。

図2に、2000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35mmを超える観測事例は、4月・9月・1月に、いずれも1例ずつあった。これらのうち4月と1月の豪雨は低気圧の南岸通過、9月は台風14号によるものであった。

#### 3.2 pH

##### 3.2.1 pHの時間的推移

2000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pH4.33、pH5.6以下の一般に酸性雨といわれる範囲の値は88.1%で、1999年度の83.8%よりも4.3%高かった。また、pH4.0以下の強い酸性雨は、年間に11回観測された。1999年度には1回観測されたのみであり、1994年度に観測を開始して以来の最高記録であった。

##### 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、栗源・成東を除く地点はすべてpH4台の値であり、前年よりも全般的に低pH化している。特に、茂原

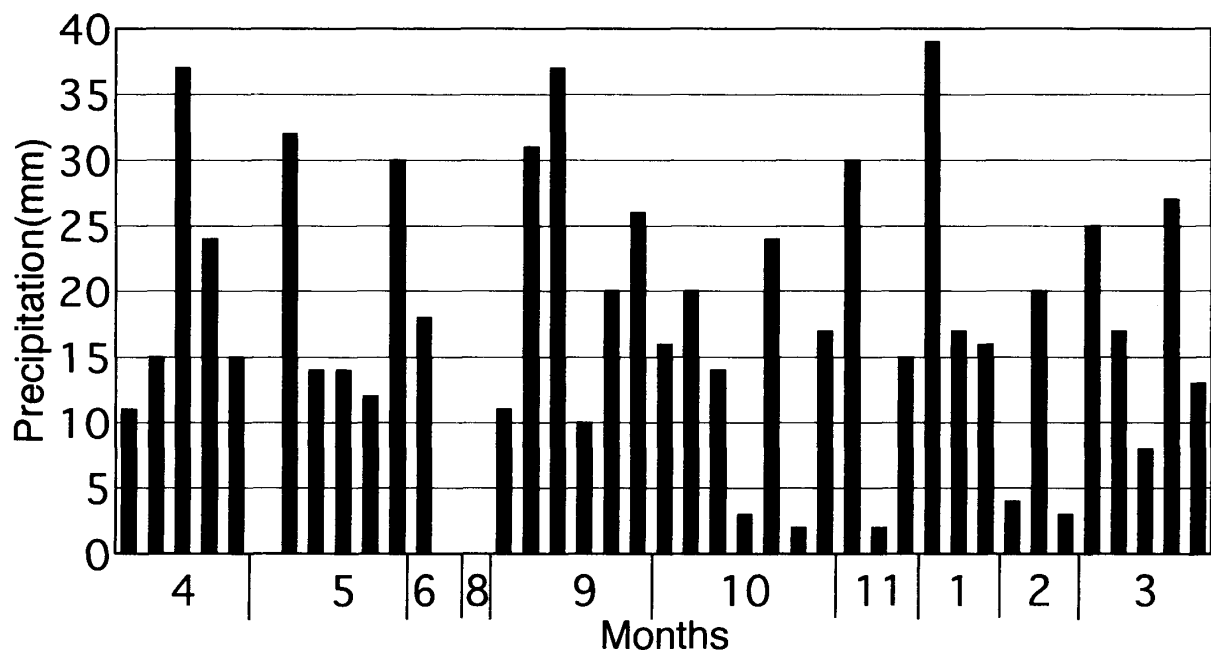


図2 2000年度の佐倉における降水量の時間的推移

# 千葉県北部における酸性雨の地域的特性について（7）

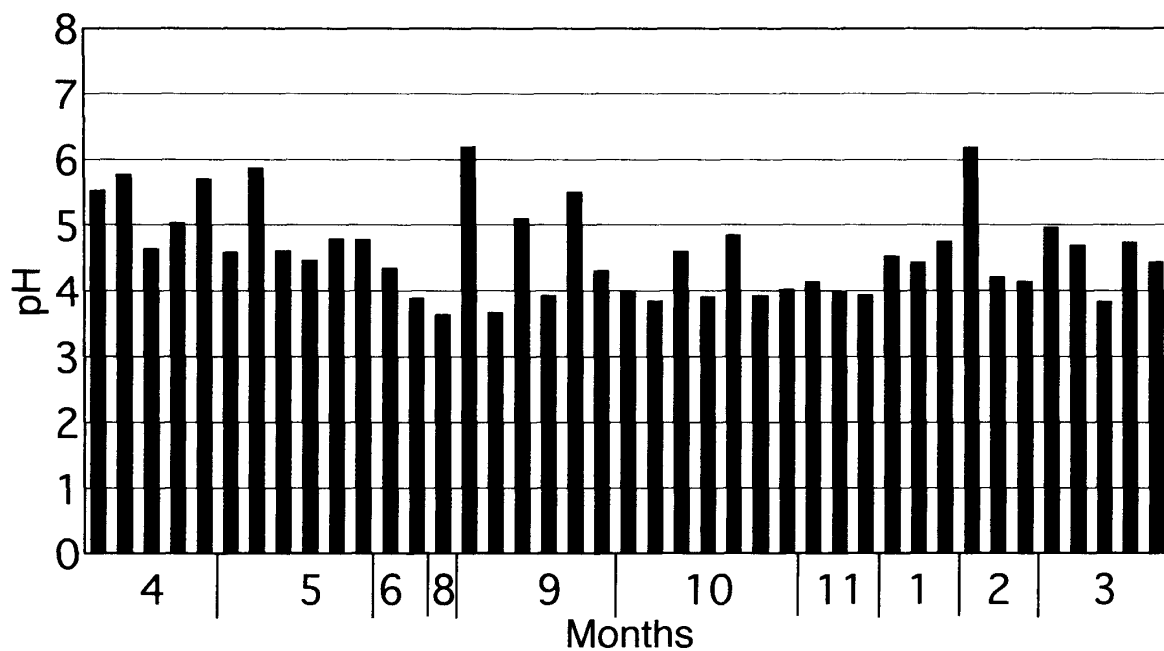


図3 2000年度の佐倉における降水のpHの時間的推移

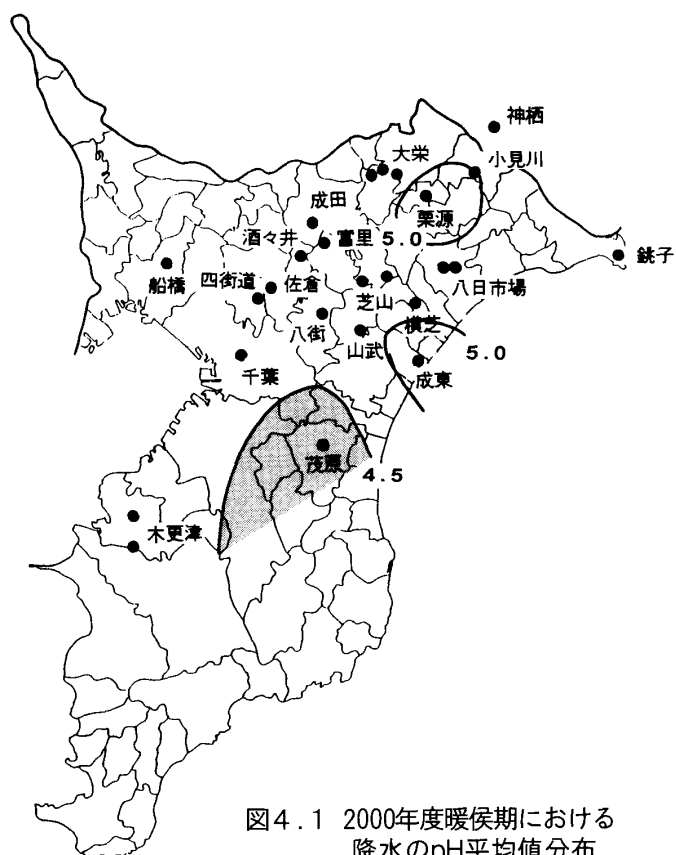


図4.1 2000年度暖侯期における降水のpH平均値分布  
アミ掛けの部分は、pH 4.5以下の領域を示す

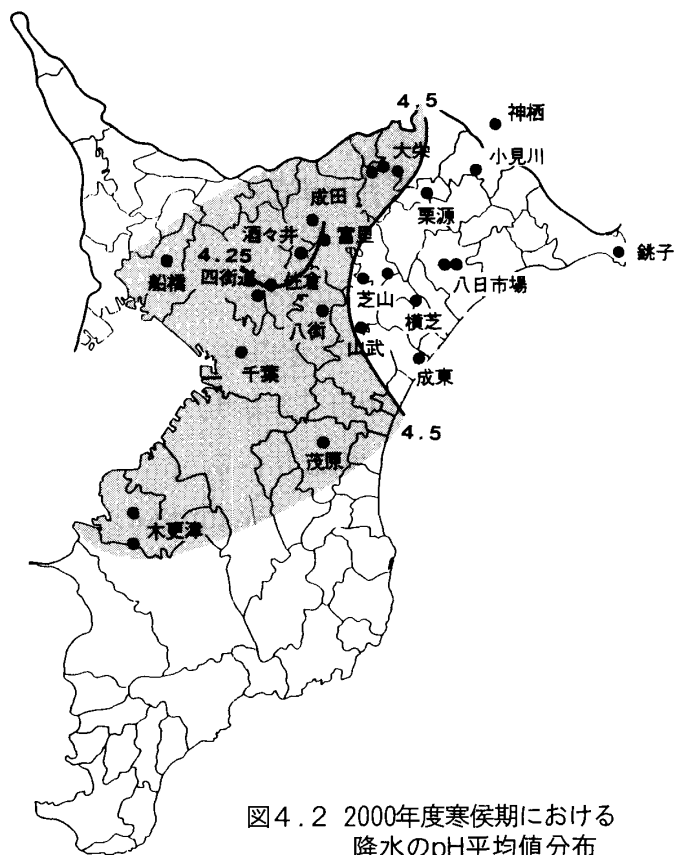


図4.2 2000年度寒侯期における降水のpH平均値分布  
アミ掛けの部分は、pH 4.5以下の領域を示す

周辺では最も低く pH4.5 以下となっている。

寒候期の pH 値平均値はすべての地点で pH 4 台であり、大栄から芝山を経由して南下する pH4.5 の等値線の西側で低く、酒々井・佐倉付近では pH4.25 以下となっている。

これらの暖候期、寒候期における pH の分布には、地域全体として例年よりも低 pH 化していることが認められる。

### 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 4.33  
EC: 年平均値 52.42  $\mu$  S/cm

年間を通じて、イオン濃度が周期的に変動しているが、10月から11月、および3月のイオン濃度は、全体的に低目に推移している。 $H^+$ の濃度は、年間を通じて他の地点よりも高濃度である (図 5.1)。

- 2) 四街道      pH: 年平均値 4.66  
EC: 年平均値 37.00  $\mu$  S/cm

6月から9月頃にかけての夏季のイオン濃度が、全般的に低めに推移している。この濃度は10月以降急増し、 $SO_4^{2-}$ 濃度の増加が認められる (図 5.2)。

- 3) 船橋      pH: 年平均値 4.43  
EC: 年平均値 44.08  $\mu$  S/cm

イオン濃度は、年間を通じてほぼ 0.5 meq/l 以内におさまリ、他地点と比べて変動が少ないが、暖候期のイオン濃度が寒候期よりも高い傾向にある。9月以降  $NO_3^-$  の濃度に対して、 $SO_4^{2-}$  の

濃度の割合が増加している (図 5.3)。

- 4) 木更津      pH: 年平均値 4.53  
EC: 年平均値 35.43  $\mu$  S/cm

年間を通じて  $NO_3^-$  の濃度よりも  $SO_4^{2-}$  の濃度の方が高濃度である傾向が認められる (図 5.4)。

- 5) 茂原      pH: 年平均値 4.19  
EC: 年平均値 44.70  $\mu$  S/cm

6月を中心とした期間のイオン濃度が低い。前年と同様に、暖候期よりも寒候期のイオン濃度が相対的に高くなっている。10月以降は、 $SO_4^{2-}$  の高濃度化が顕著に認められる。また、太平洋側に面しているため、年間を通じて海からの影響と考えられる  $Mg^{2+}$ 、 $Ca^{2+}$ 、 $Na^+$ 、 $Cl^-$  などの濃度が高い (図 5.5)。

- 6) 成東      pH: 年平均値 4.75  
EC: 年平均値 35.17  $\mu$  S/cm

ここでも、9月以降に  $SO_4^{2-}$  の高濃度化が顕著に認められる。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。5月・6月のイオン濃度組成は、前年同様相対的に低濃度である (図 5.6)。

- 7) 八日市場      pH: 年平均値 4.76  
EC: 年平均値 42.32  $\mu$  S/cm

全体的な傾向は、成東に類似している。9月以降  $SO_4^{2-}$  が高濃度である半面、 $NO_3^-$  の濃度が極端に減少している (図 5.7)。

- 8) 銚子      pH: 年平均値 4.63  
EC: 年平均値 66.02  $\mu$  S/cm

前年同様に、 $NO_3^-$  の濃度に比べて  $SO_4^{2-}$  の濃度の高い傾向が顕著に認められる。特に、10月以降に高濃度の  $SO_4^{2-}$  が散見される。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 (図 5.8)。

千葉県北部における酸性雨の地域的特性について（７）

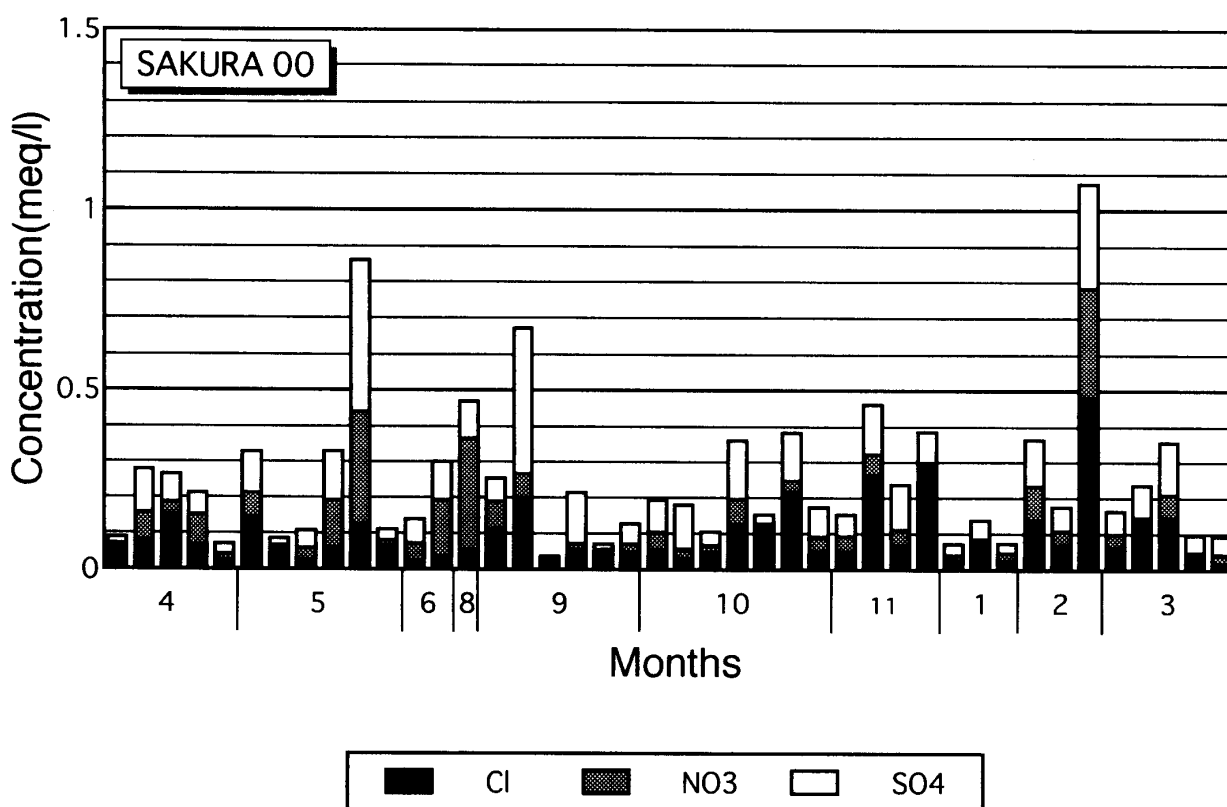
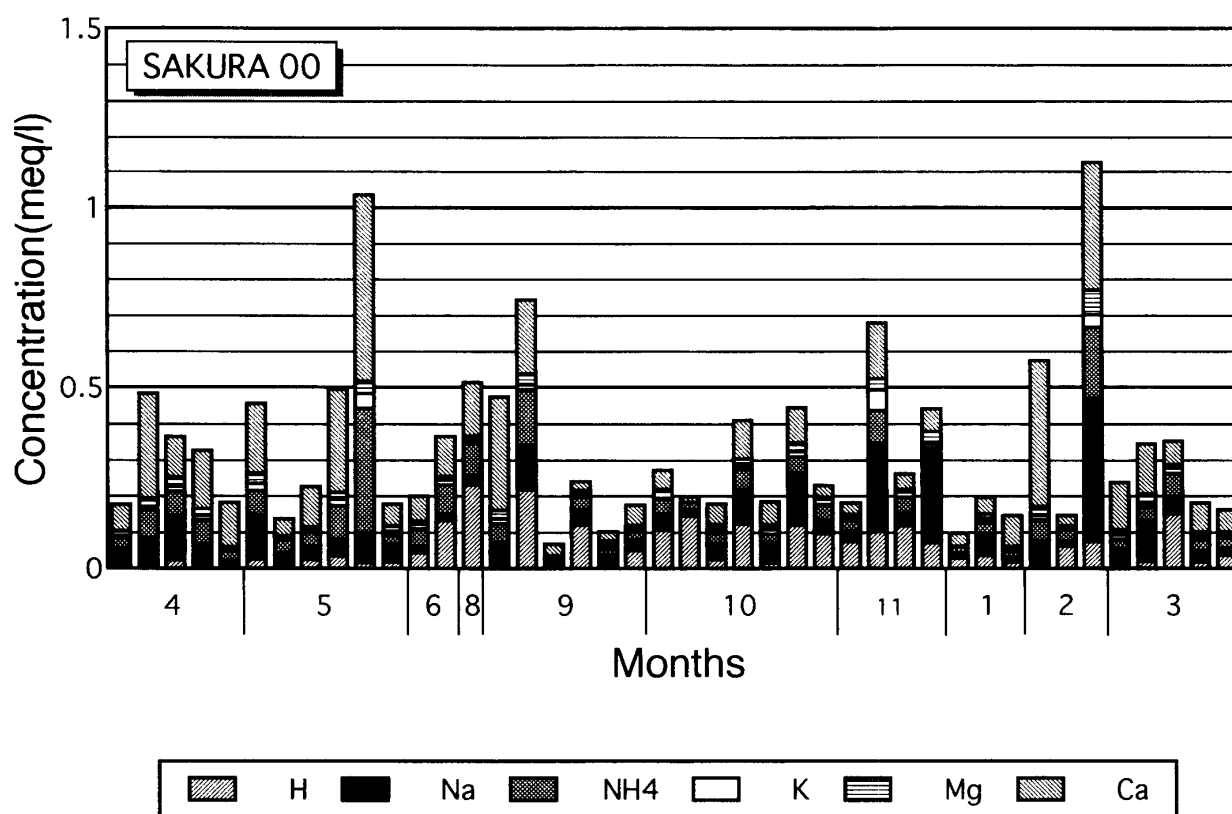


図 5.1 2000年度の佐倉における酸性雨のイオン濃度組成  
 上図：＋イオン 下図：－イオン 単位：meq/l

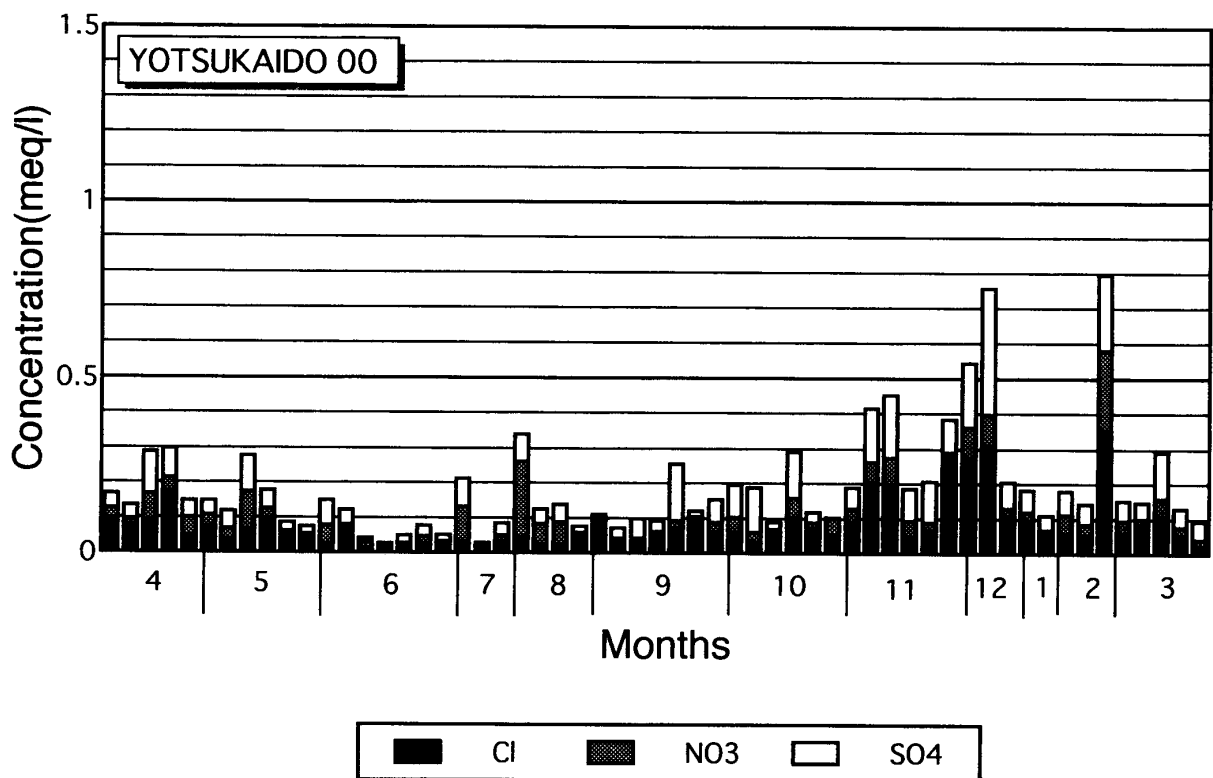
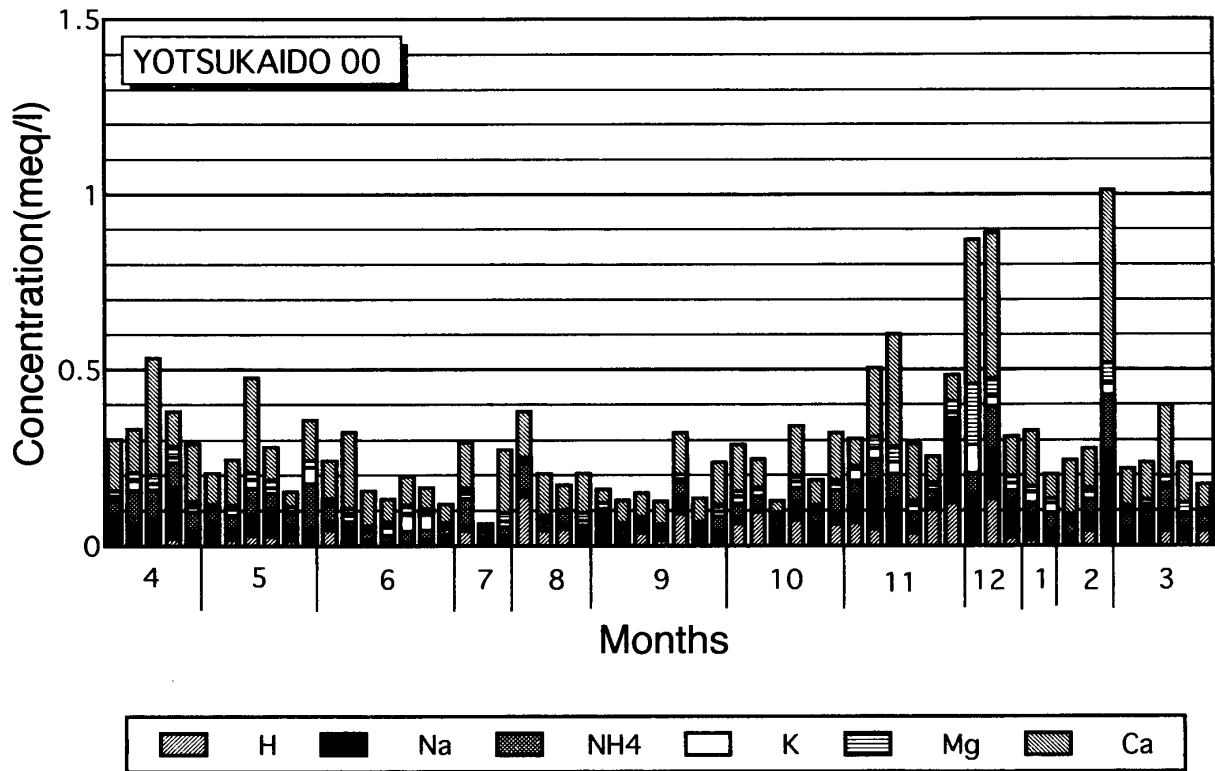


図 5.2 2000年度の四街道における酸性雨のイオン濃度組成  
上図：＋イオン 下図：－イオン 単位：meq/l

千葉県北部における酸性雨の地域的特性について（７）

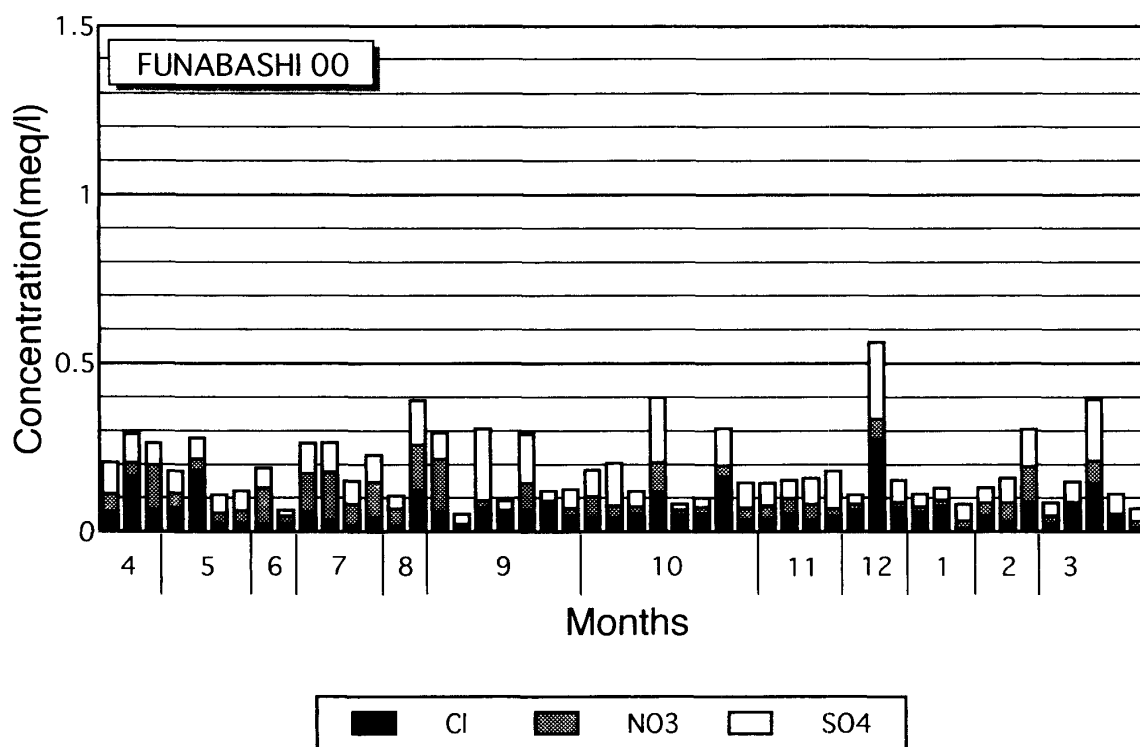
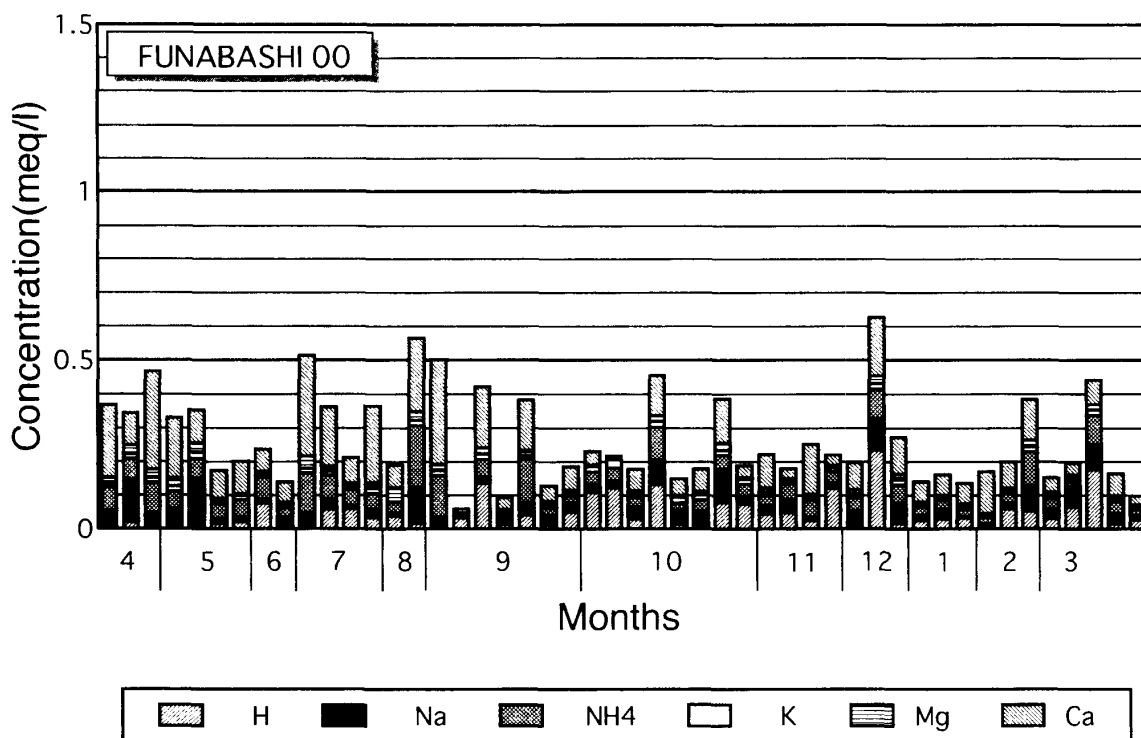


図 5.3 2000年度の船橋における酸性雨のイオン濃度組成  
上図：＋イオン 下図：－イオン 単位：meq/l

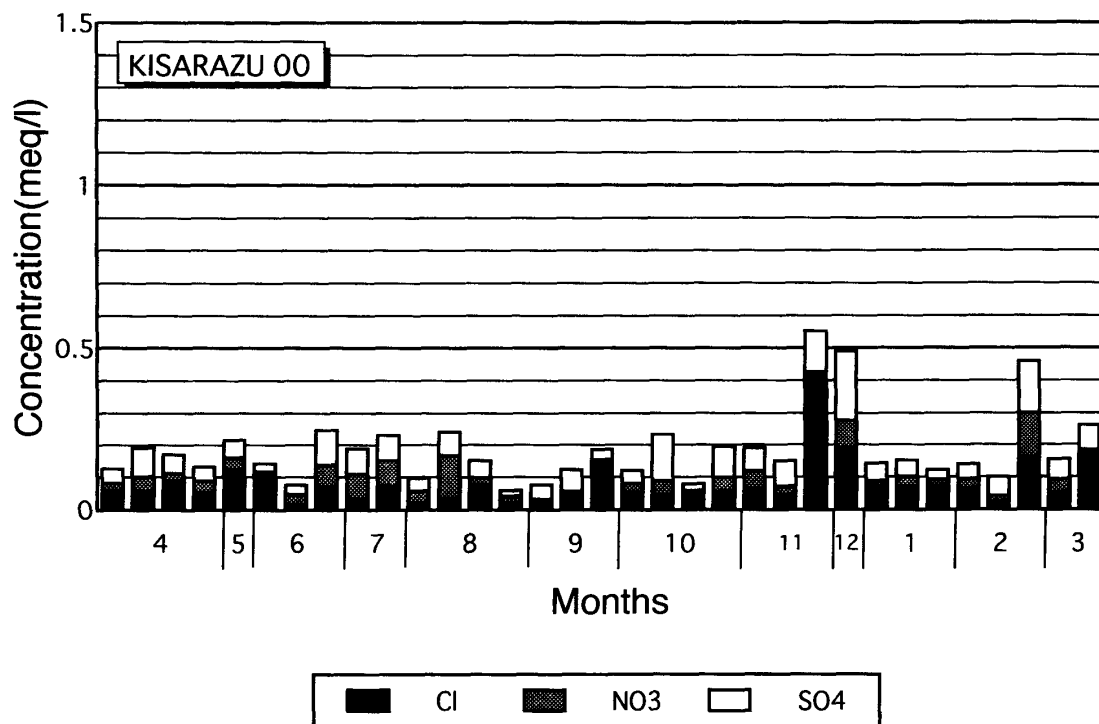
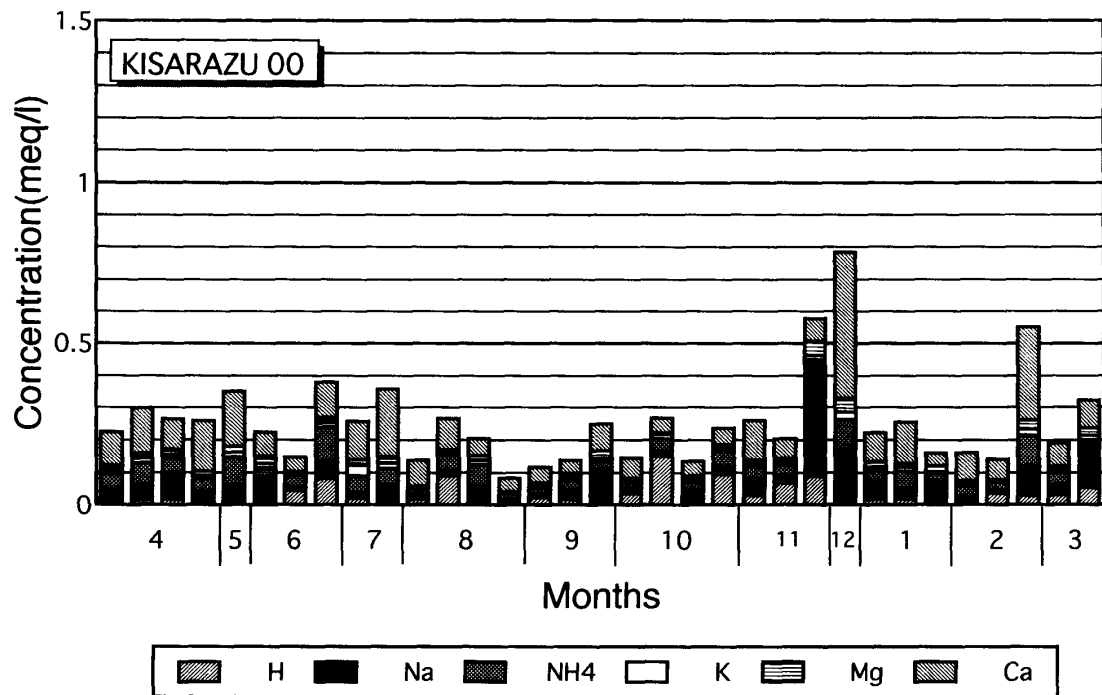


図 5. 4 2000年度の木更津における酸性雨のイオン濃度組成  
 上図：＋イオン 下図：－イオン 単位：meq/l



千葉県北部における酸性雨の地域的特性について（7）

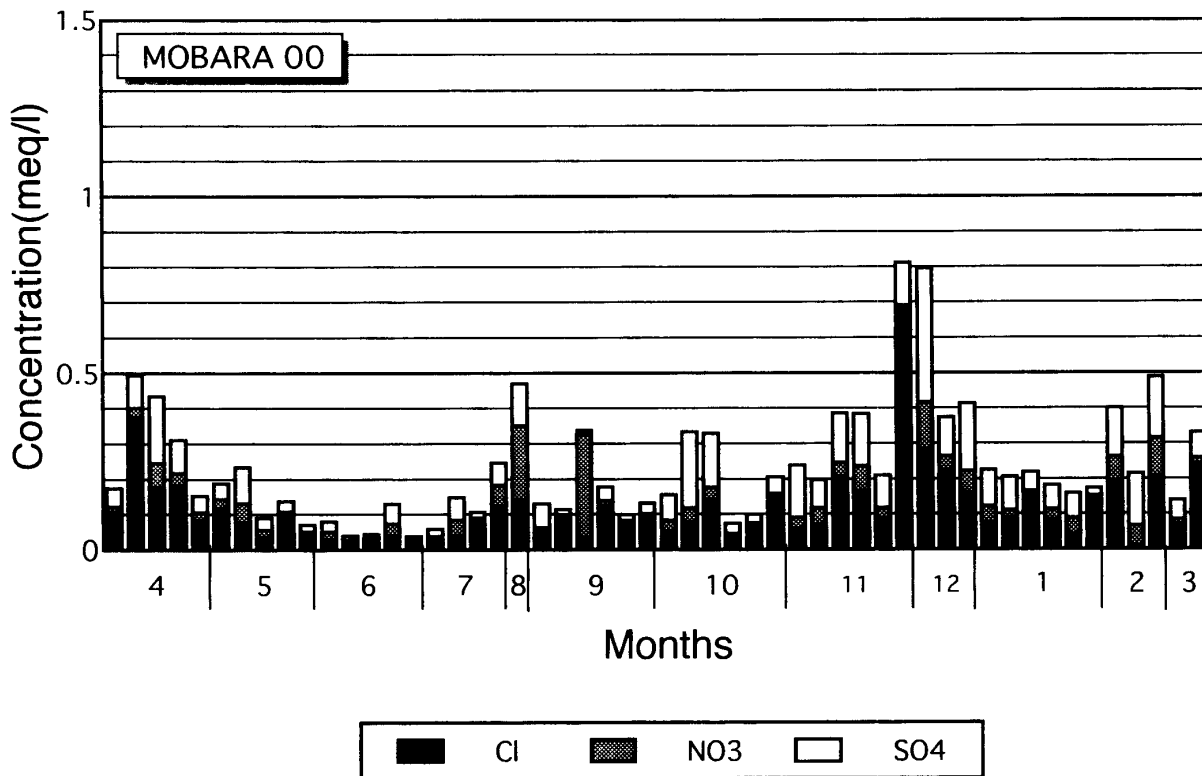
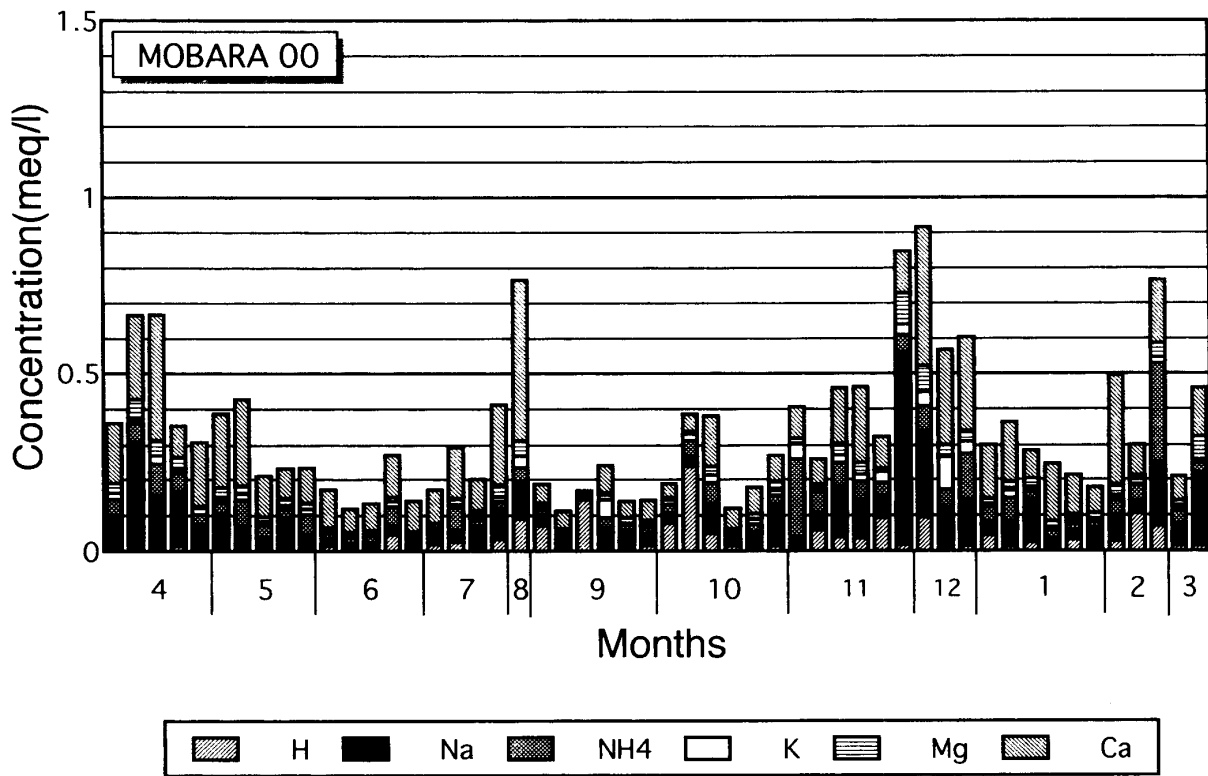


図5.5 2000年度の茂原における酸性雨のイオン濃度組成  
上図：＋イオン 下図：－イオン 単位：meq/l

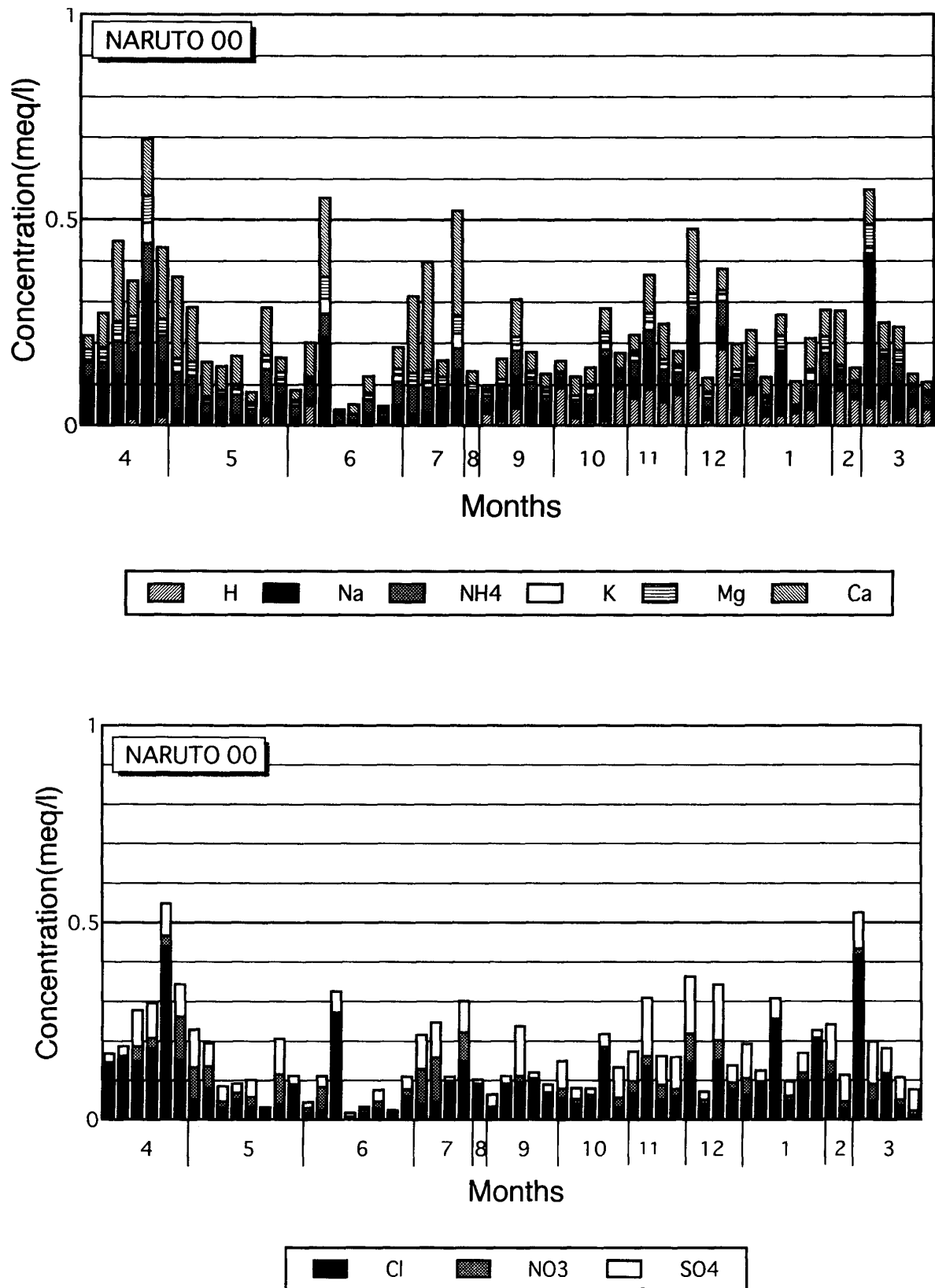


図 5.6 2000年度の成東における酸性雨のイオン濃度組成  
 上図：＋イオン 下図：－イオン 単位：meq/l

千葉県北部における酸性雨の地域的特性について（7）

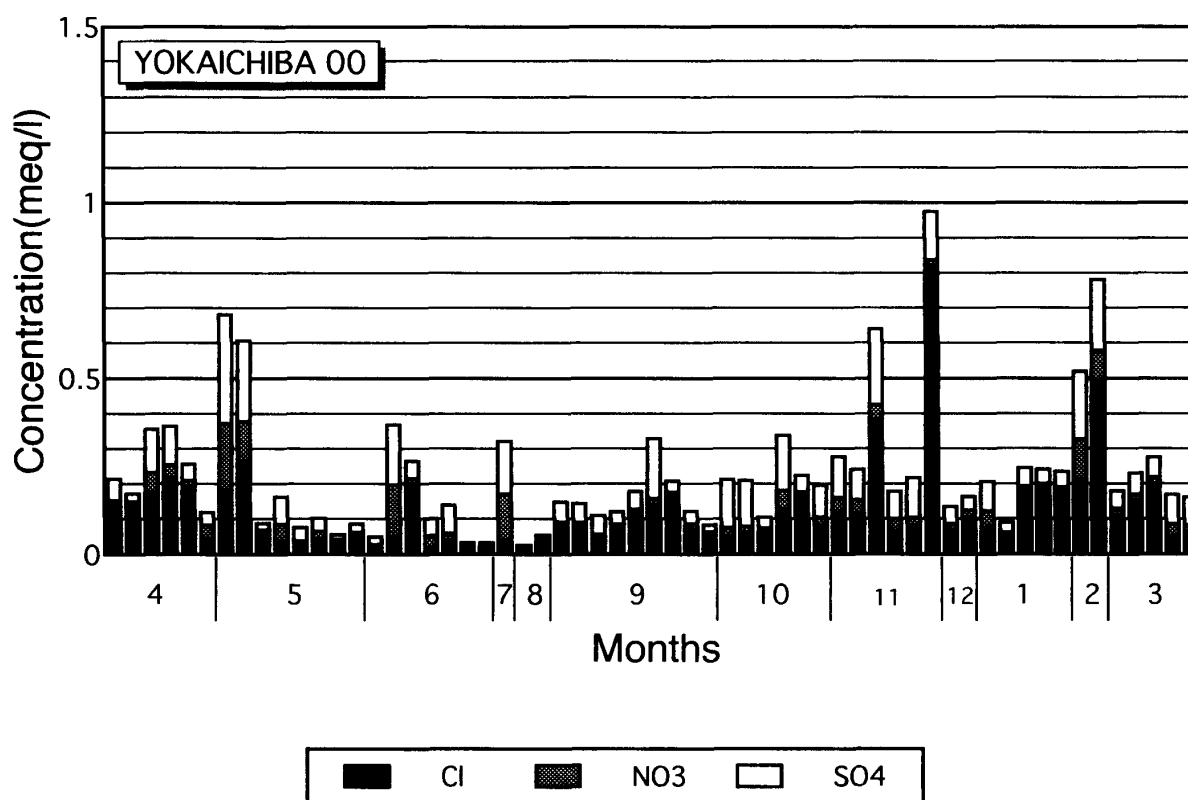
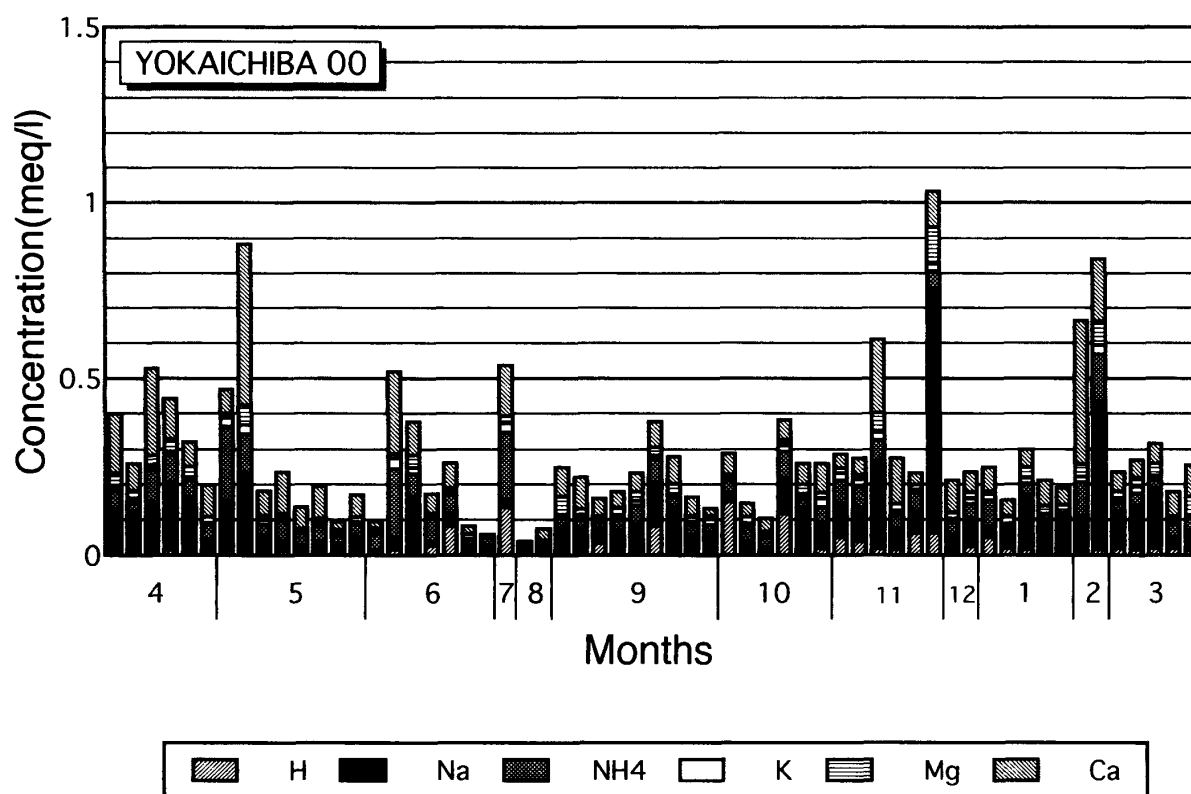


図5.7 2000年度の八日市場における酸性雨のイオン濃度組成  
 上図：＋イオン 下図：－イオン 単位：meq/l

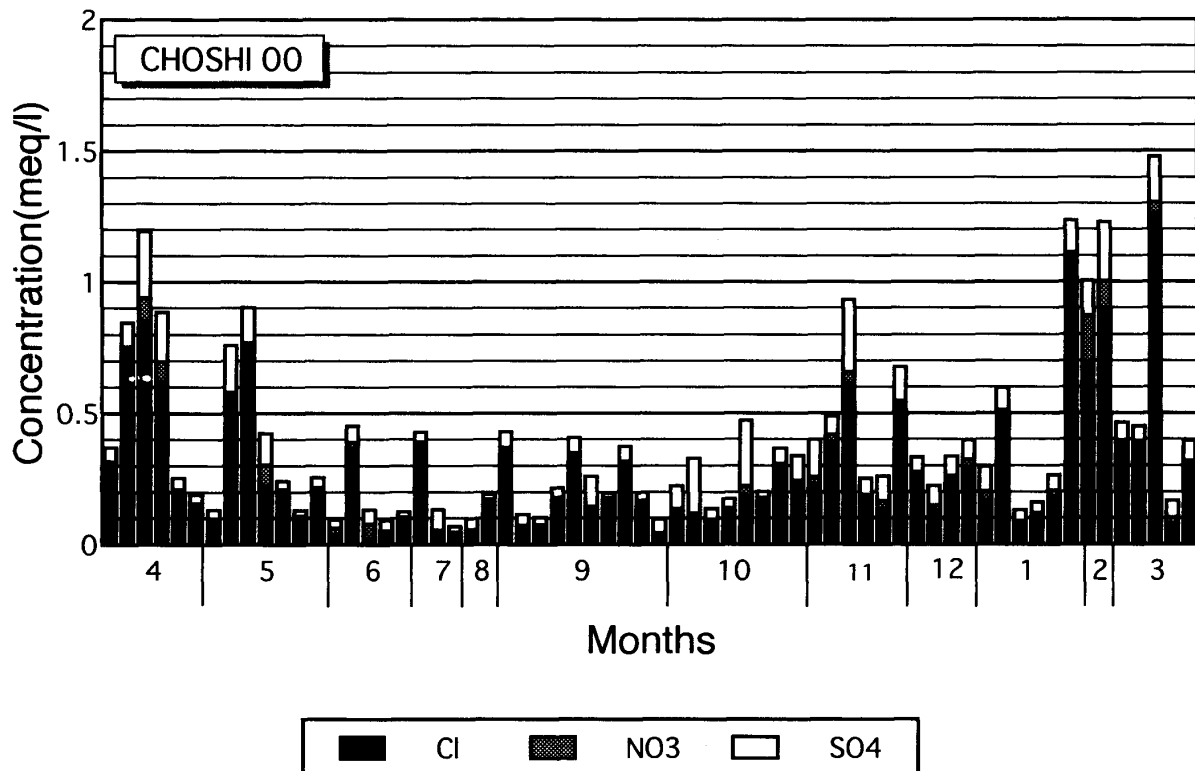
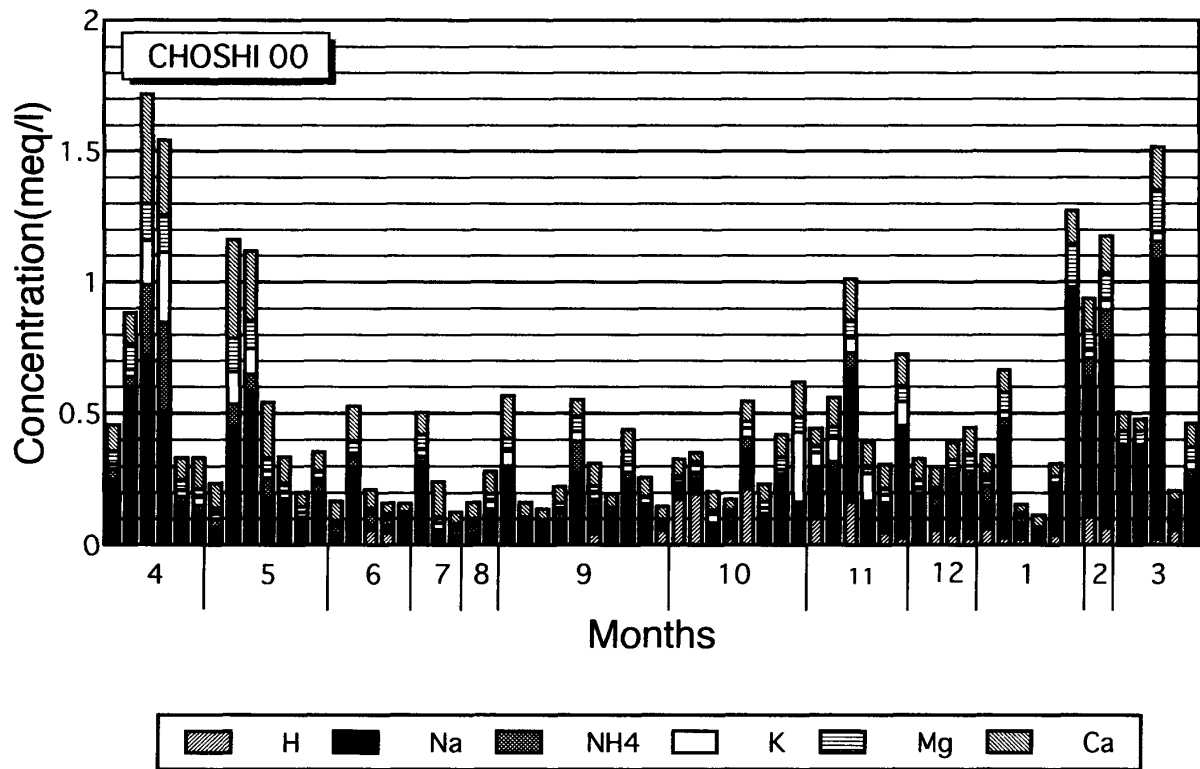


図 5.8 2000年度の銚子における酸性雨のイオン濃度組成  
上図：＋イオン 下図：－イオン 単位：meq/l

千葉県北部における酸性雨の地域的特性について (7)

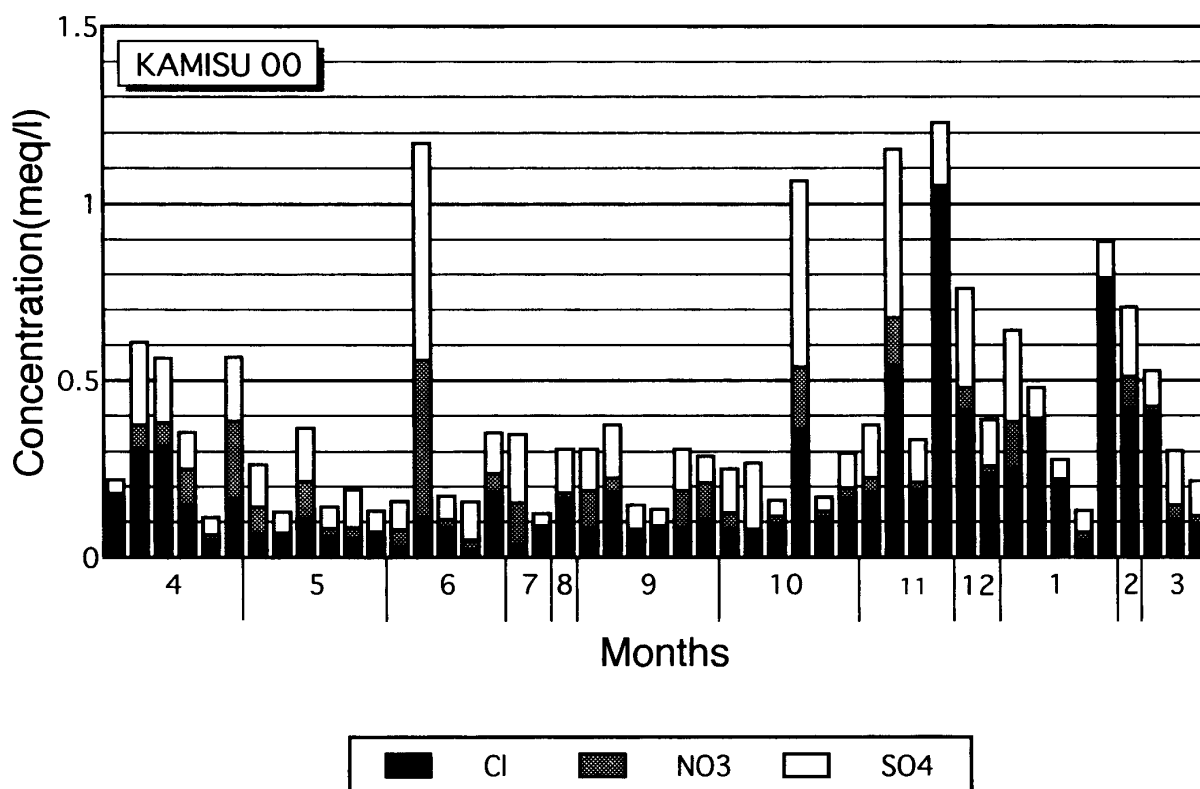
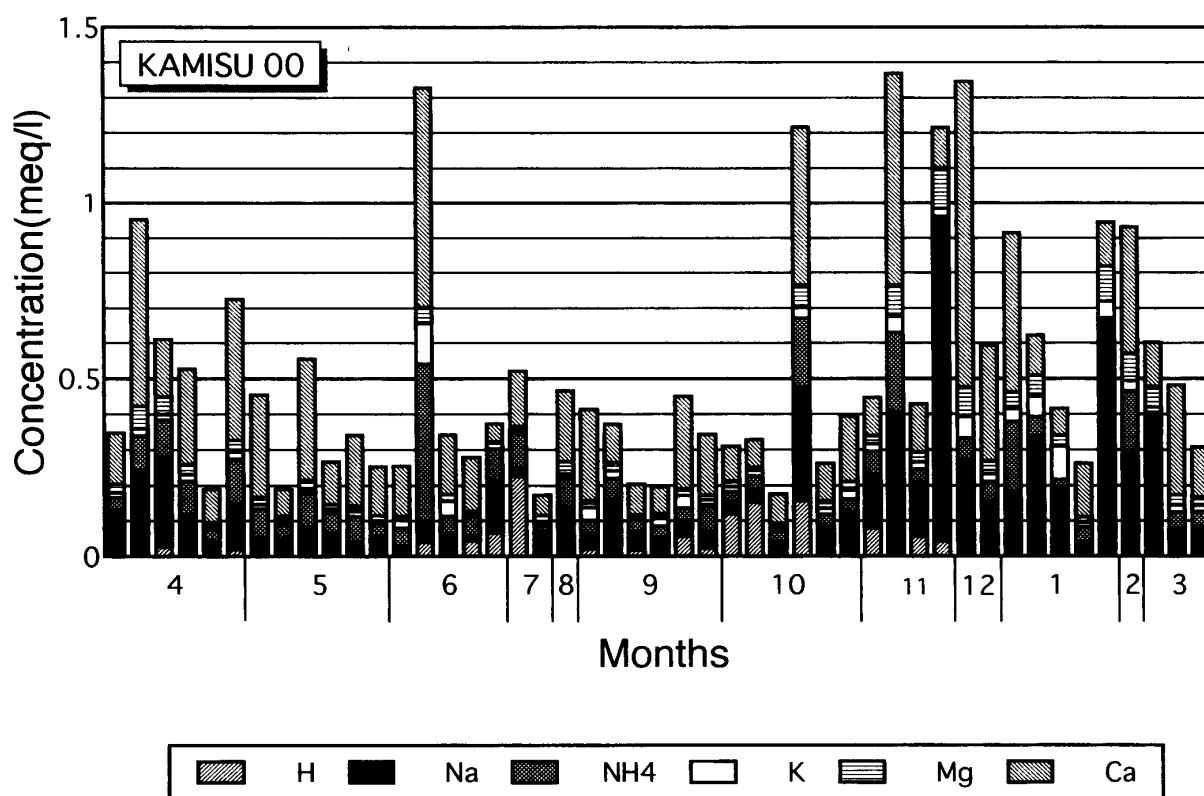


図 5.9 2000年度の神栖における酸性雨のイオン濃度組成  
 上図：＋イオン 下図：－イオン 単位：meq/l

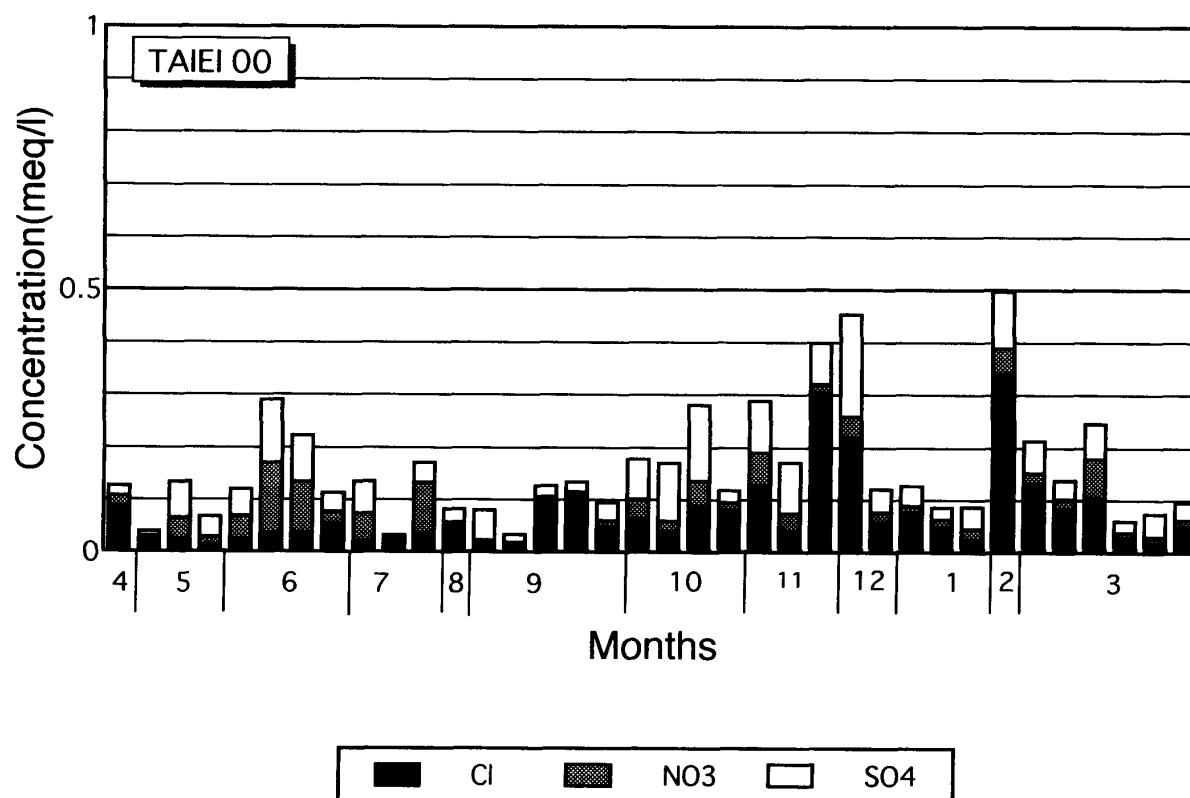
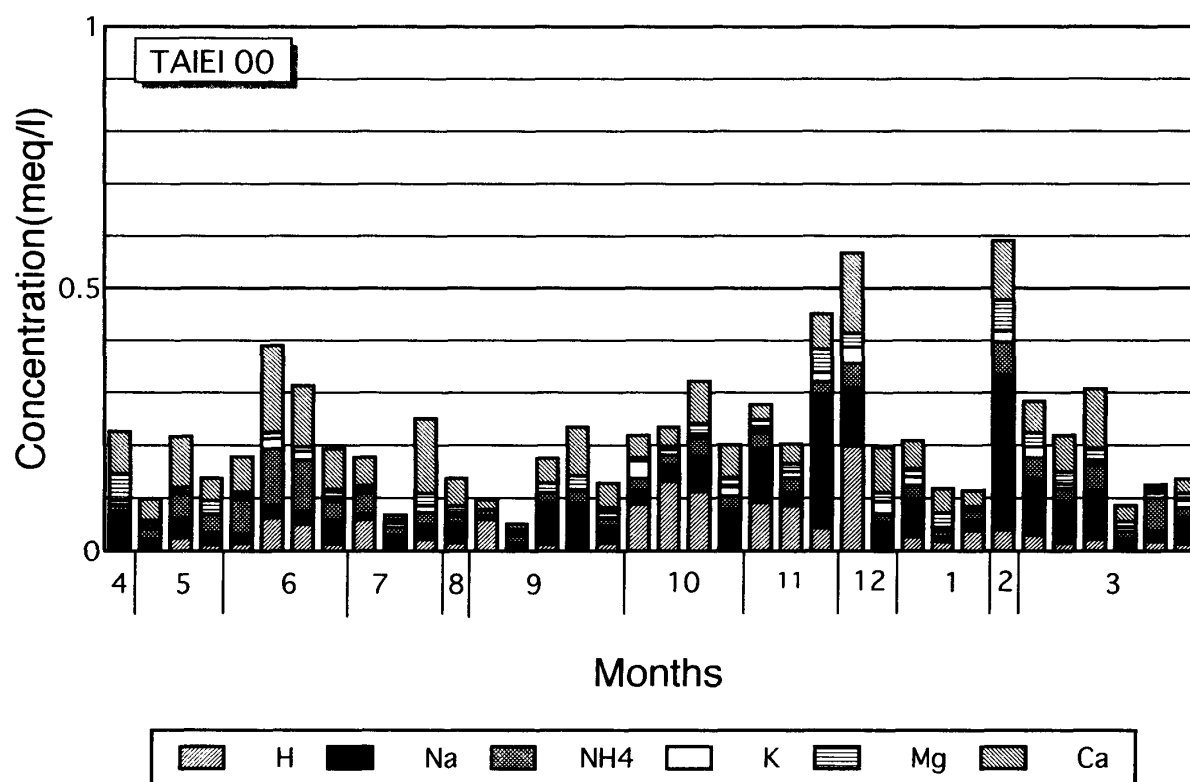


図 5.10 2000年度の大栄町における酸性雨のイオン濃度組成  
 上図：＋イオン 下図：－イオン 単位：meq/l

千葉県北部における酸性雨の地域的特性について (7)

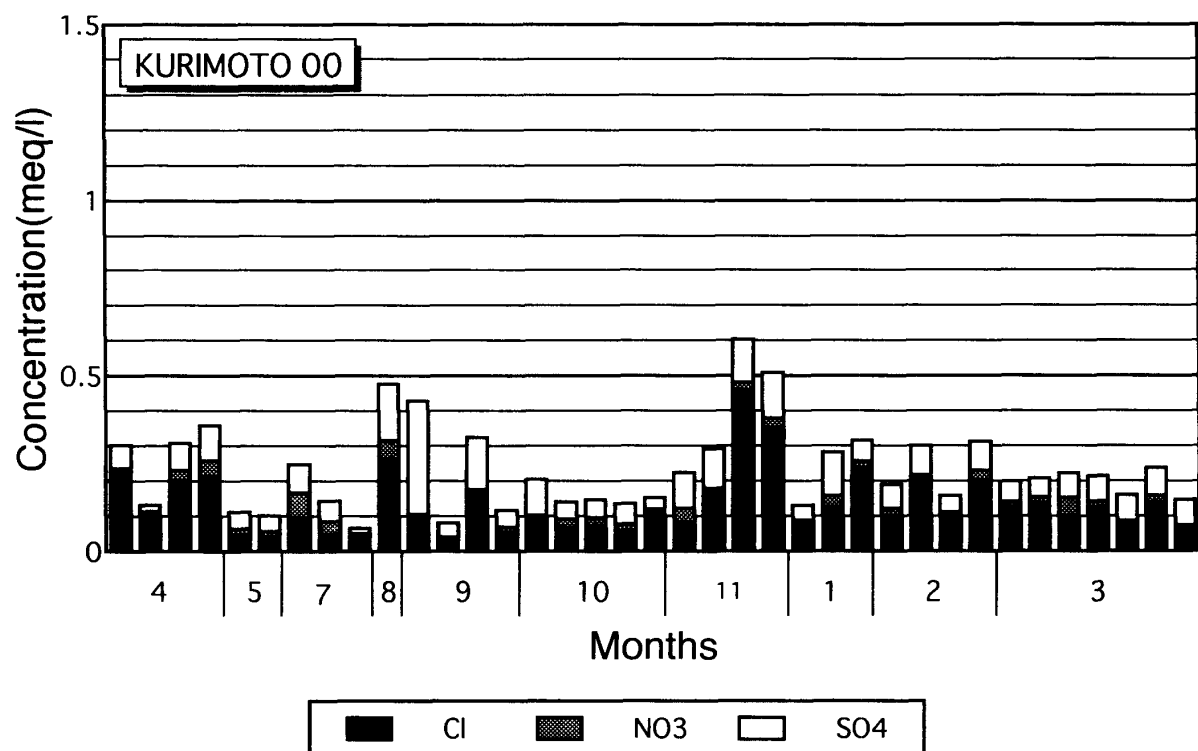
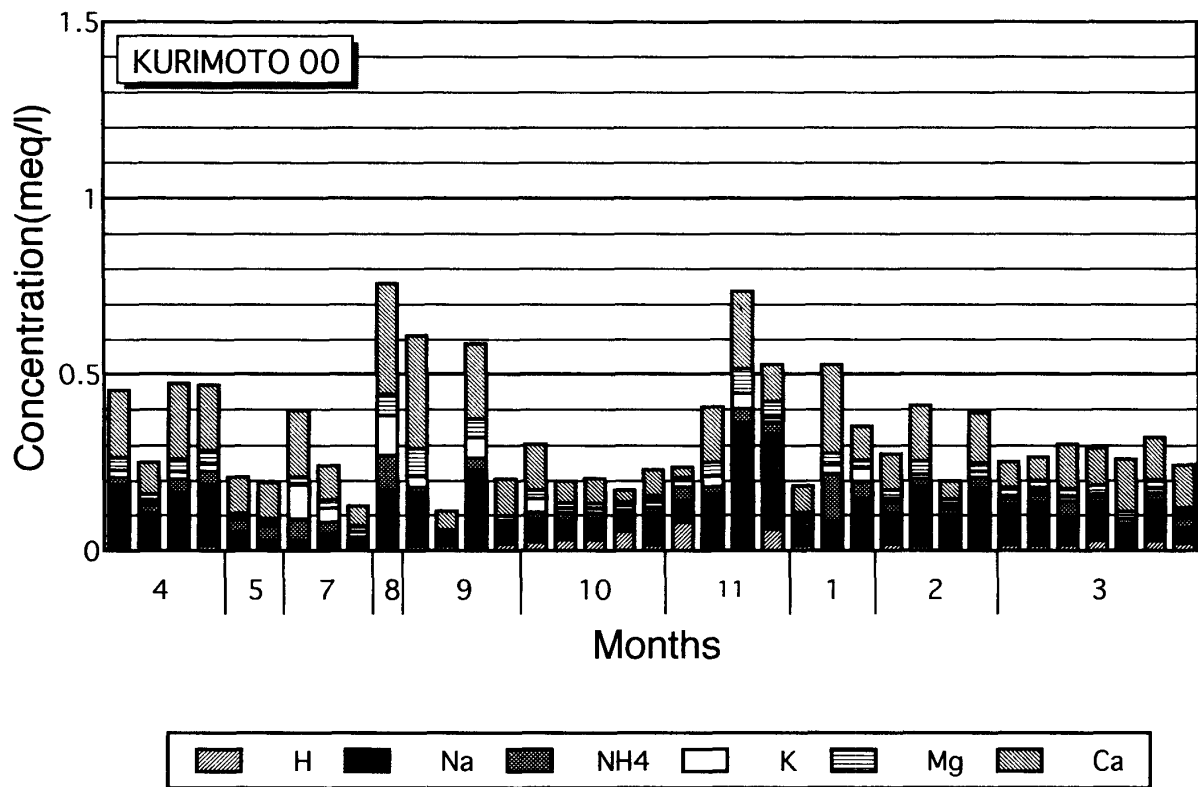


図5.11 2000年度の栗源における酸性雨のイオン濃度組成  
 上図：＋イオン 下図：－イオン 単位：meq/l

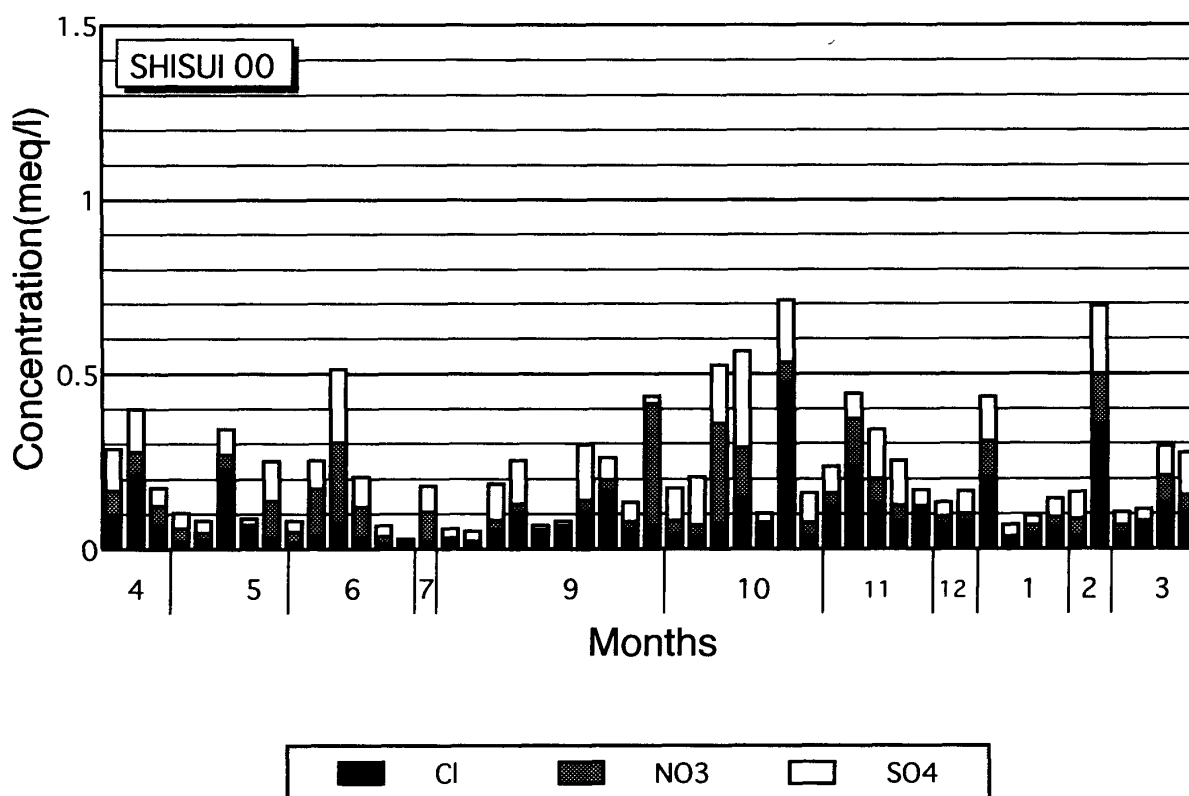
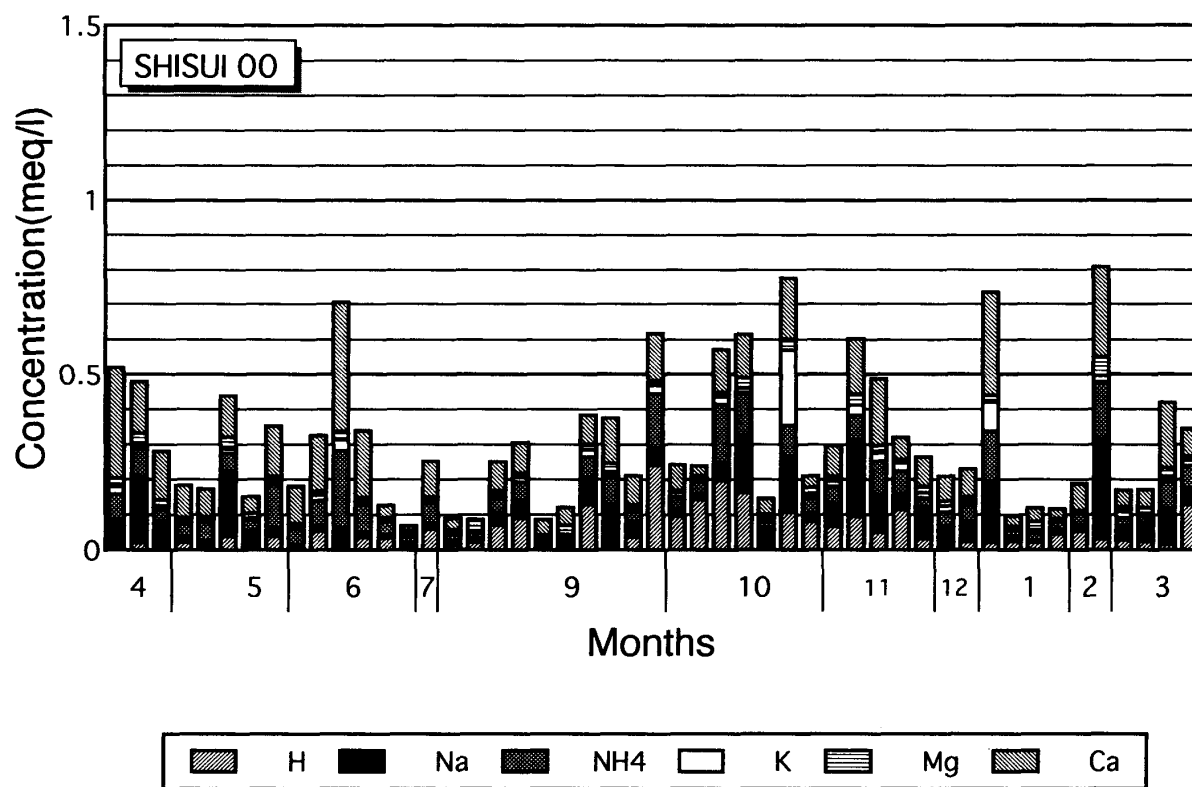


図 5.12 2000年度の酒々井における酸性雨のイオン濃度組成  
上図：＋イオン 下図：－イオン 単位：meq/l



千葉県北部における酸性雨の地域的特性について（7）

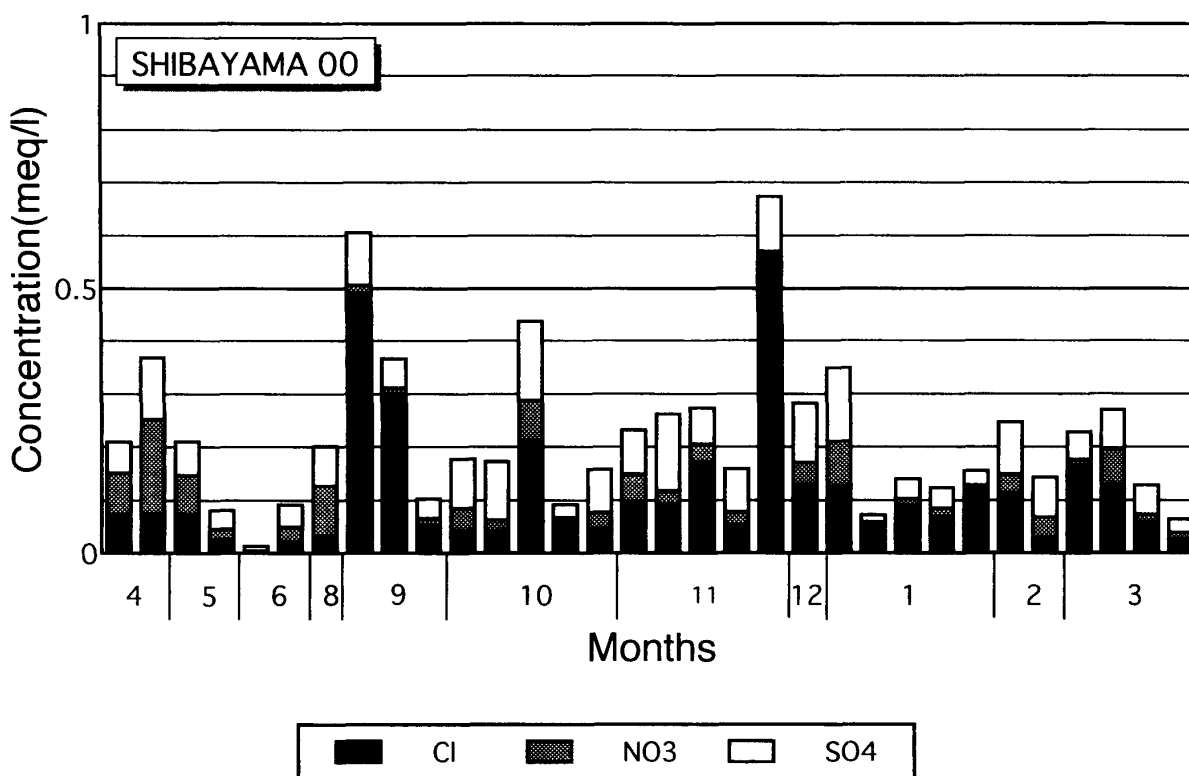
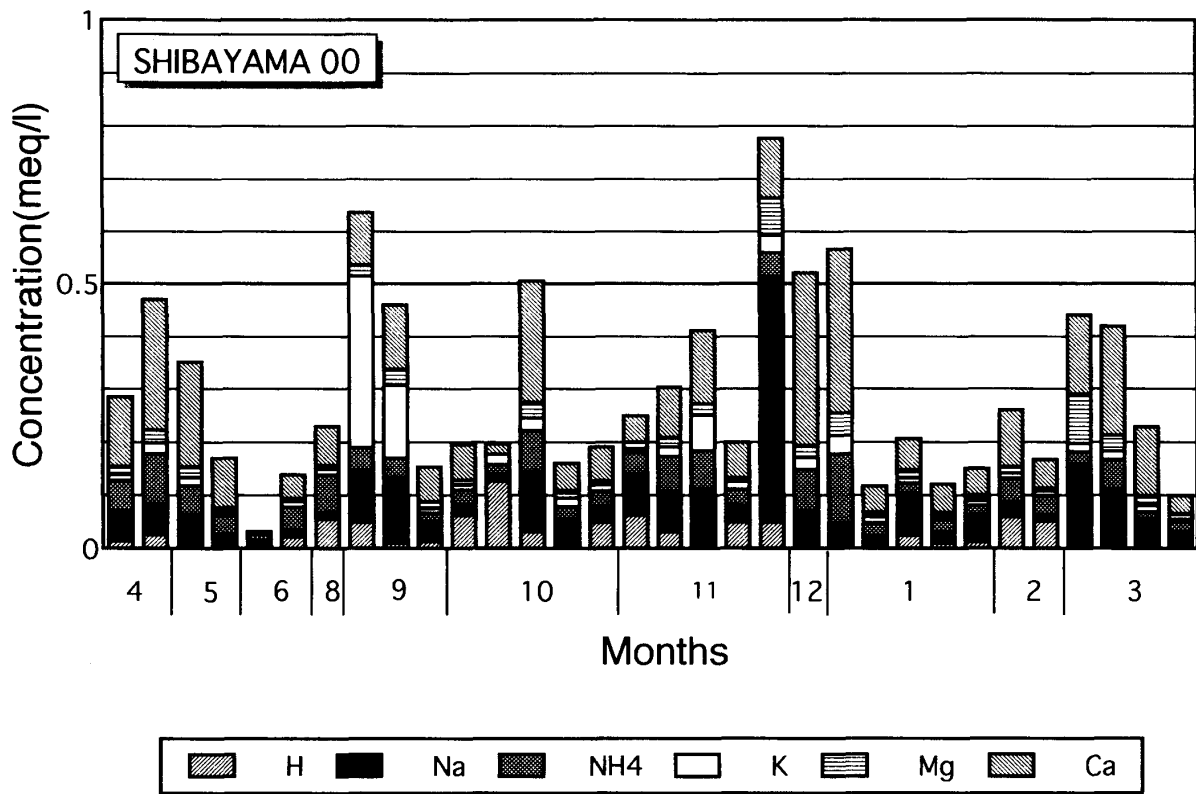


図5.13 2000年度の芝山における酸性雨のイオン濃度組成  
 上図：＋イオン 下図：－イオン 単位：meq/l

- 9) 神栖      pH: 年平均値4.79  
EC: 年平均値64.92  $\mu$  S/cm

鹿島臨海工業地域に近接しているため、前年同様年間を通じて $\text{SO}_4^{2-}$ の濃度が、 $\text{NO}_3^-$ の濃度を上回っている。6月・10月・11月には、0.5meq/l程度に達する $\text{SO}_4^{2-}$ の濃度が記録された。銚子と同様に $\text{Na}^+$ 、 $\text{Cl}^-$ 、 $\text{Mg}^{2+}$ 、 $\text{Ca}^{2+}$ 、などの海塩起源と考えられるイオン濃度が高い（図5.9）。

- 10) 大栄町      pH: 年平均値4.61  
EC: 年平均値34.96  $\mu$  S/cm

10月から12月にかけての期間に、 $\text{H}^+$ の濃度が高くなっている。また、この期間の $\text{SO}_4^{2-}$ の濃度も、他の期間と比べて高濃度の頻度が高くなっている（図5.10）。

- 11) 栗源      pH: 年平均値4.84  
EC: 年平均値39.18  $\mu$  S/cm

$\text{NO}_3^-$ に比べて $\text{SO}_4^{2-}$ の濃度が相対的に高い傾向があり、その傾向は神栖と類似している（図5.11）。

- 12) 酒々井      pH: 年平均値4.45  
EC: 年平均値47.49  $\mu$  S/cm

9月から11月にかけての期間の $\text{H}^+$ の濃度は、他の期間よりも高濃度になっている（図5.12）。

- 13) 芝山      pH: 年平均値4.70  
EC: 年平均値42.89  $\mu$  S/cm

9月以降 $\text{SO}_4^{2-}$ の濃度が、 $\text{NO}_3^-$ の濃度を上回っている（図5.15）。

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

低pH化に寄与する $\text{NO}_3^-$ と $\text{nss-SO}_4^{2-}$ の実態を知るために、 $\text{NO}_3^-/\text{nss-SO}_4^{2-}$ 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

候期には西部の船橋・酒々井付近の1.0から東部に向かって減少し、大栄・芝山で0.8、最東端の銚子では0.4まで減少している。

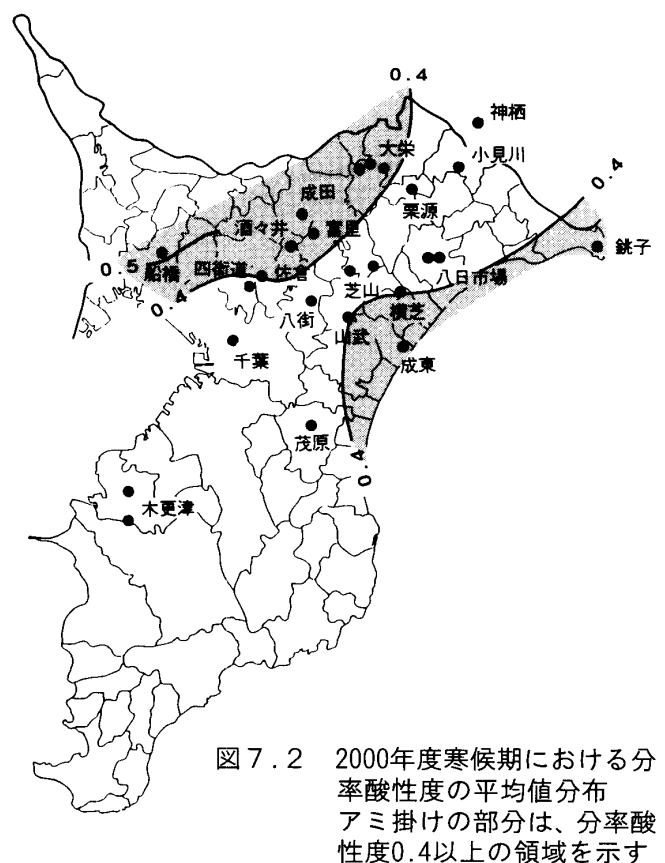
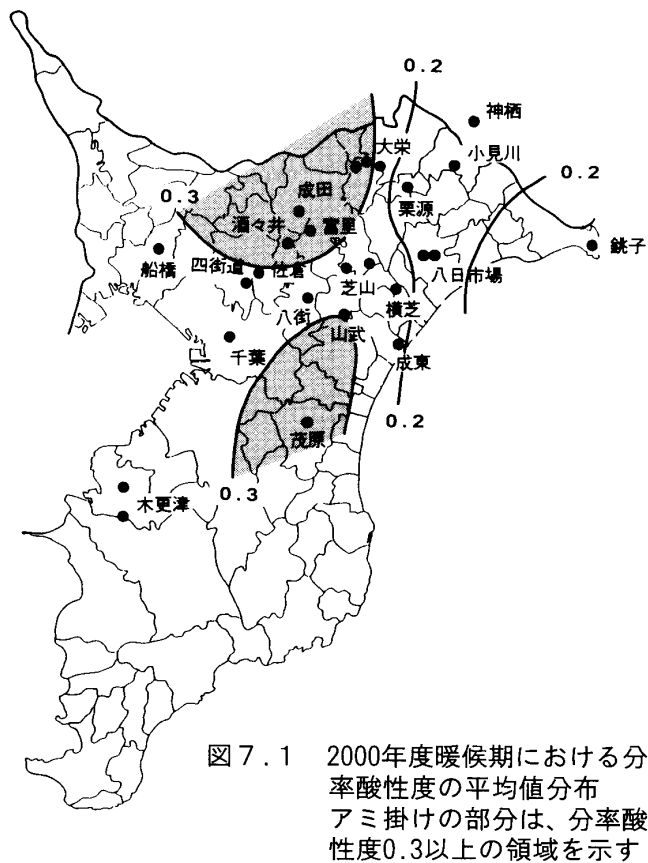
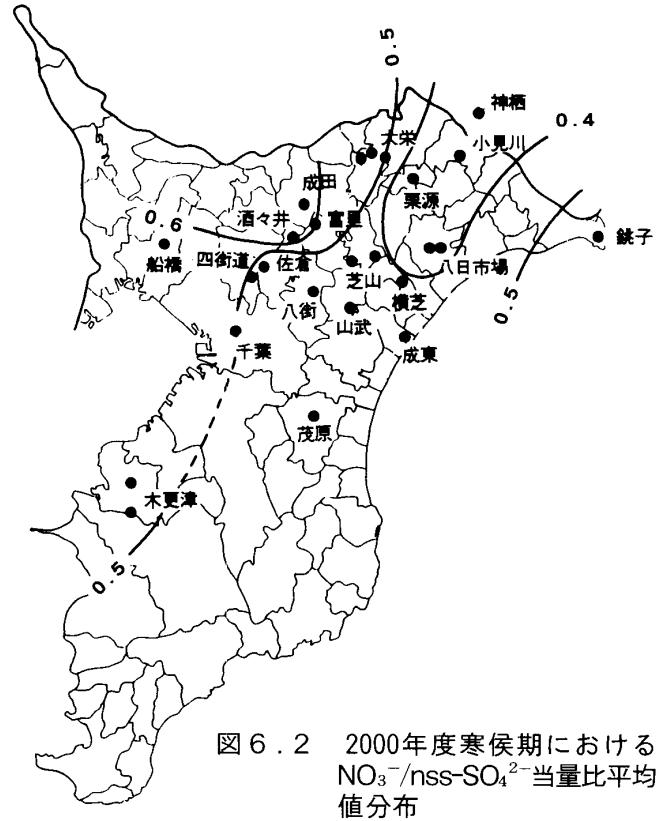
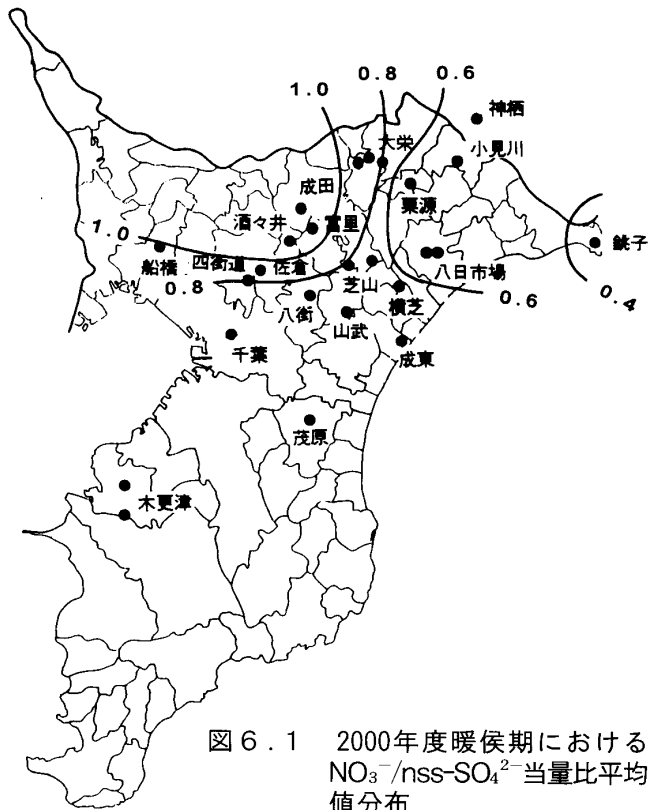
寒候期のN/S比は、銚子で0.5以上の値が出現していることを除くと、全体としては西部の0.6（酒々井付近）から東に向かって減少し神栖・栗源・八日市場で0.4以下となっている。

2000年度のN/S比の値は、暖候期・寒候期、地点の別を問わず、例年よりも低い値となっている。たとえば、1999年度と比較すると、1999年度暖候期のN/S比の値は0.8~1.8、2000年度暖候期は0.4~1.0、また寒候期は1999年度が0.8~2.0、2000年度が0.4~0.6であり、2000年度のN/S比は、1999年度と比較して1/2程度となっている。これは、イオン濃度組成について見てきたように、ほとんどの地点で $\text{SO}_4^{2-}$ の濃度が、 $\text{NO}_3^-$ の濃度を大きく上回っていることによる。その原因としては、2000年8月末から始まった三宅島火山からの $\text{SO}_2$ ガスの大量放出が考えられる。この点の詳細については、別稿（中村、2002）で論じた。

### 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）のいう分立率酸性度（fractional acidity、 $[\text{H}^+] / ([\text{nss-SO}_4^{2-}] + [\text{NO}_3^-])$ ）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0.2以下の値は、北部の神栖・栗源・八日市場に至る地域に分布している。一方、分率酸性度0.3以上の地域は、北部の酒々井を中心とした地域および、南部の茂原を中心とした地域に分布

# 千葉県北部における酸性雨の地域的特性について（7）



している。

寒候期には分率酸性度0.4以上の地域は、大栄・酒々井・船橋にかけての西部の地域および太平洋岸の銚子から成東にいたる地域に分布している。

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、佐倉の例を図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-0.72）が認められ、その関係は次式で示される。

$$\text{pH} = -2.04 A + 5.43$$

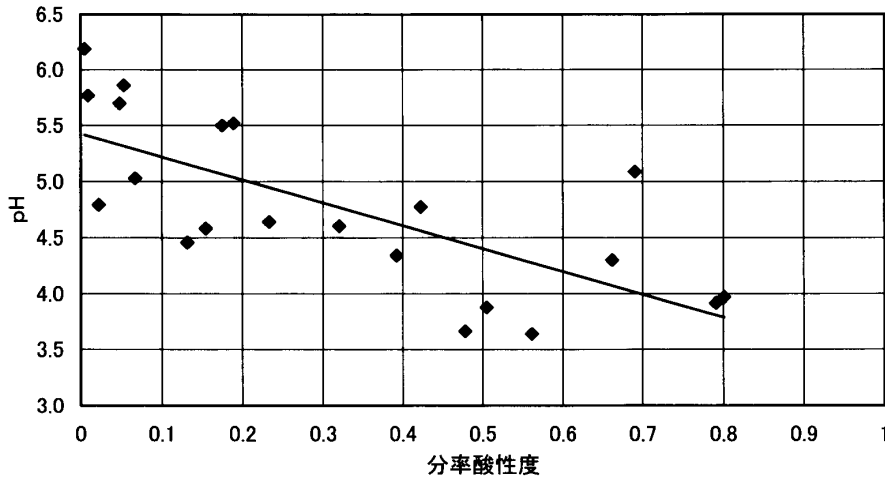


図8.1 2000年度暖候期におけるpHと分率酸性度  
 $([\text{H}^+]/([\text{NO}_3^-] + [\text{nss-SO}_4^{2-}]))$  との関係

この式によると、暖候期には分率酸性度0.1の時にpH 5.221、同0.5の時にpH4.403となっている。

一方、寒候期の両者間についても、図8.2に示すような高い負相関（相関係数 -0.733）が得られ、その関係は次式で示される。

$$\text{pH} = -1.55 A + 5.23$$

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。

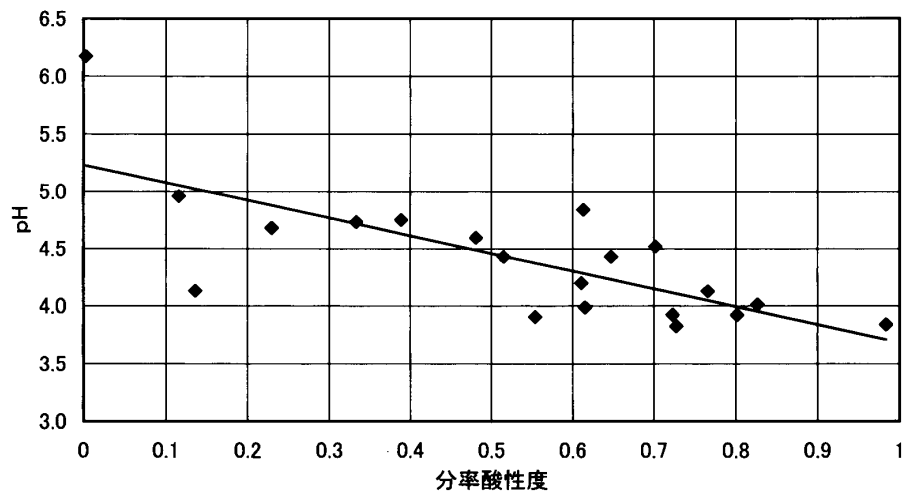


図8.2 2000年度寒候期におけるpHと分率酸性度  
 $([\text{H}^+]/([\text{NO}_3^-] + [\text{nss-SO}_4^{2-}]))$  との関係

## 千葉県北部における酸性雨の地域的特性について（7）

### 4 まとめ

2000年度に千葉県北部地域の20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. 千葉県北部地域の $\text{NO}_3^-/\text{nss-SO}_4^{2-}$ 当量比（N/S比）は、暖候期・寒候期ともに西部から東部に向かって減少する傾向を示す。
2. N/S比の値は、三宅島火山からの大量の $\text{SO}_2$ 放出の影響を受け、例年よりも全地域で暖候期・寒候期ともに低い値となった。
3. 暖候期のpH分布と分率酸性度（ $[\text{H}^+] / ([\text{nss-SO}_4^{2-}] + [\text{NO}_3^-])$ ）分布とは非常に良い相関を示す。佐倉の暖候期のpHと分率酸性度（A）との関係は、次式で示される。

$$\text{pH} = -2.04 A + 5.43 \quad r = -0.72$$

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。

$$\text{pH} = -1.55 A + 5.23 \quad r = -0.73$$

### 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.
- 中村圭三(2000) : 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—. 環境情報研究, No.8, 37~59.
- 中村圭三・立澤誘一(2001) : 千葉県北部における酸性雨の地域的特性について(6) —1999年度観測結果—. 環境情報研究, No.9, 55~78.
- 中村圭三(2002) : 三宅島火山ガスの佐倉の酸性降水におよぼす影響について. 環境情報研究, No.10, 9~23.

## ABSTRACT

### Regional Characteristics of Acid Rain

### in the Northern Part of Chiba Prefecture: Part 7

### On the Results of the observation from April 2000 to March 2001

Keizo NAKAMURA and Yuichi TATSUZAWA

In order to clarify the regional characteristics of acid rain in Chiba Prefecture, the data of precipitation which were obtained during the period from April 2000 to March 2001 with the aid of the environmental monitoring volunteers of the Institute of Environmental Studies of Keiai University have been analyzed.

The results of the analyses are summarized as follows:

- 1)  $\text{NO}_3^-/\text{nss-SO}_4^{2-}$  ratio ( N/S ratio ) of the Northern Region in Chiba Prefecture shows the tendency which decreases for the east from the west in both warm period and cooling season.
- 2) The value of N/S ratio recived the effect of the large  $\text{SO}_2$  emission from the Miyakejima volcano.
- 3) The pH distribution and fractional acidity  $[\text{H}^+]/([\text{nss-SO}_4^{2-}] + [\text{NO}_3^-])$  distribution in the warm period show the very good correlation. The relationship between pH and fractional acidity (A) in warm period in Sakura is shown in the following equation.

$$\text{pH} = -2.04 A + 5.43 \quad r = -0.72$$

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

$$\text{pH} = -1.55 A + 5.23 \quad r = -0.73$$