

千葉県北部における酸性雨の地域的特性について（11）

—2004年度 観測結果—

中 村 圭 三・松 本 太

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，1993，1994，1995，1996，1997，1998，1999，2000，2001，2002，2003，2004，2005）。今回は、2004年度の観測結果について報告する。

2. 観測方法

千葉県内11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、pHはメトラー製pHメーター（MP-230）、ECは、東亜電波工業製電気伝導度計（CM-60S）で測定

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。

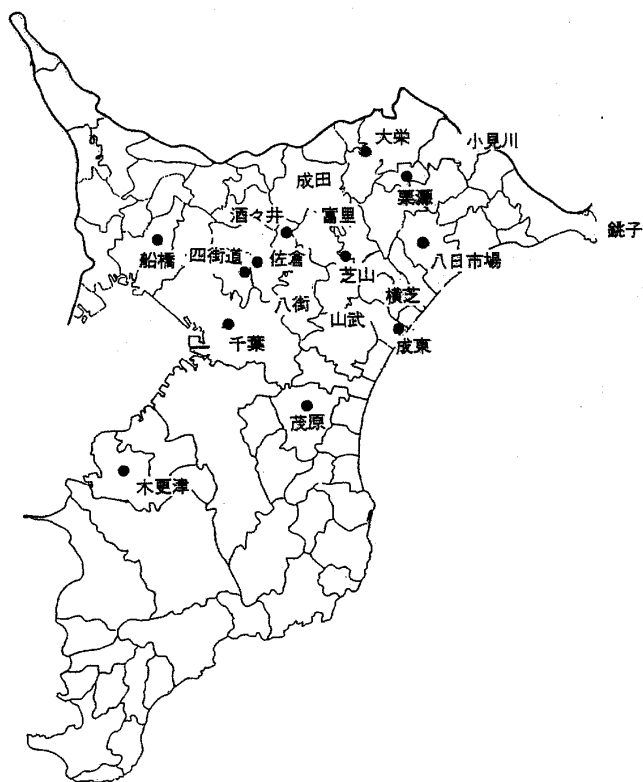


図1 酸性雨観測地域
●：観測地点

3. 酸性雨の観測結果

3.1 気象概況

2004年4月から2005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、春期の高温、夏期の猛暑・少雨・多照、秋期の高温・多雨および冬期のやや高温・やや多雨などがあげられる。図2に、2004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100mmを超える観測事例は2004年度には5例あった。9月上旬から10月上旬にかけての4回の豪雨は、いずれも台風の北上・低気圧の発生などにより、日本の南岸に停滞した秋雨前線の活動が活発化したものである。また、1月の豪雨は、日本の南岸を北東に進んだ発達した低気圧によってもたらされたものである。

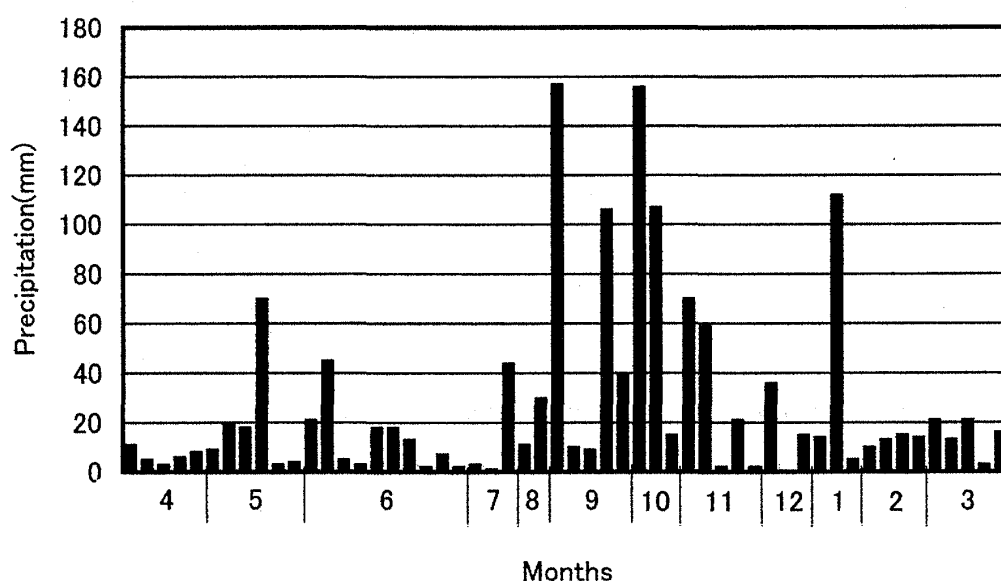


図2 2004年度の佐倉における降水量の時間的推移

3.2 pH

3.2.1 pHの時間的推移

2004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pH4.63で、2001年度(pH4.46)、2002年度(pH4.47)、2003年度(pH4.57)と比べてやや高くなっている。一般に酸性雨といわれるpH5.6以下の範囲の値は96.3%で、2003年度の95.0%よりもわずかに高くなっている。また、pH4.0以下の強い酸性雨は5回観測された。この回数は、1994年度に観測を開始して以来の最高記録であった2000年度、2001年度、2002年度の10回、2003年度の8回

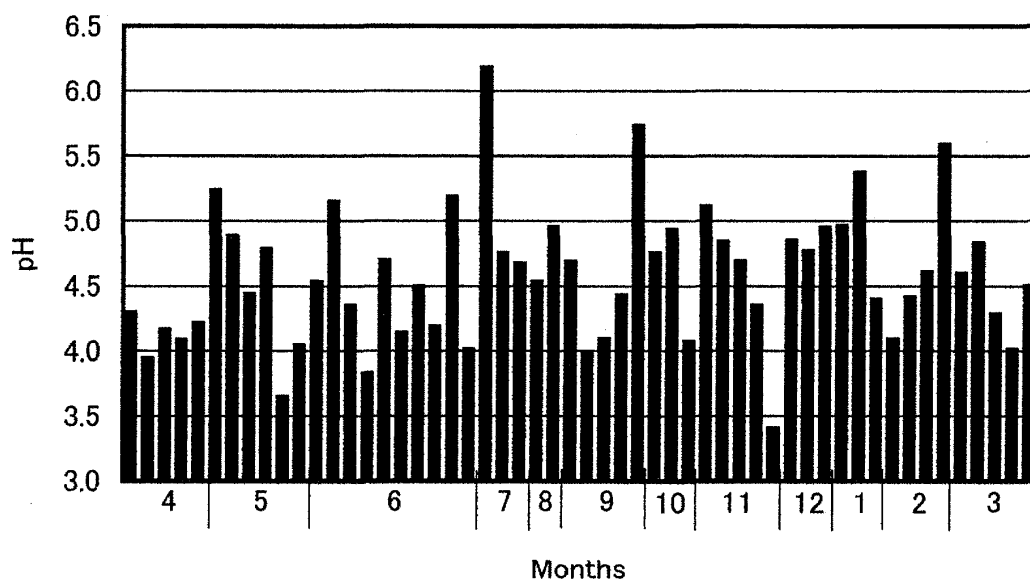
と比べて少なくなっている。これは、2000年8月の三宅島火山噴火による影響が、次第に弱まりつつあることを示唆しているものと推測される。

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、pHは、4.55~5.12の範囲に分布し、北部の栗源および南部の茂原付近では、pH4.75以上の相対的に高い領域を示していた。一方、寒候期のpH値は、4.67~4.99の範囲で場所的な差は非常に小さいが、東部の地域は

千葉県北部における酸性雨の地域的特性について (11)



4.75 以上のやや高目の値を示している。

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 4.63

EC : 年平均値 38.12 μ S/cm

6 月、11 月に 0.8meq/l を超える値が出現したが、それ以外は、0.5meq/l 以下で推移した。特に 7 月から 10 月および 12 月から 2 月にかけては、ほぼ 0.3meq/l 以下で推移した (図 5.1)。

2) 四街道 pH : 年平均値 4.66

EC : 年平均値 38.29 μ S/cm

0.4meq/l を超える値は、暖候期には 5 月に 1 度あるのみであるが、寒候期では 11 月以降に散見される (図 5.2)。

3) 船橋 pH : 年平均値 4.71

EC : 年平均値 35.75 μ S/cm

暖候期のイオン濃度は、0.3meq/l を超える値が 4 回出現し、全体的にやや変動が見られる。一方、寒候期には、10 月から 12 月に毎月 1 回、極めて高い濃度が出現し、12 月には、1meq/l を超えた。しかしその他は 0.3meq/l 以下の低濃度であった (図 5.3)。

4) 千葉 pH : 年平均値 4.70

EC : 年平均値 32.48 μ S/cm

4 月から 7 月までのイオン濃度にはやや変動が見られるが、9 月から 10 月にかけての期間はおおむね 0.2meq/l 以下の低濃度で推移した。例年と同様に、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 5.4)。

5) 木更津 pH : 年平均値 4.65

EC : 年平均値 32.35 μ S/cm

6 月に 0.5meq/l を超える値が 1 度出現したのみで、年間を通じて、比較的安定した濃度で推移した。 NO_3^- に対する SO_4^{2-} の割合は、千葉同様に高い値を示す (図 5.5)。

6) 茂原 pH : 年平均値 4.86

EC : 年平均値 35.68 μ S/cm

イオン濃度が 0.5meq/l 程度に達する事例が、季節に偏りなく年間に数回あり、年間を通じて、小さな変動が見られる。その中において、8 月から 9 月にかけては、0.2meq/l 以下と低濃度の期間であった。前年同様、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 5.6)。

7) 成東 pH : 年平均値 4.78

EC : 年平均値 37.15 μ S/cm

5meq/l 以上の値が、4 月・6 月・12 月・3 月に出現した。これらの日の最大風速は、6m/s ~ 13m/s あり、高いイオン濃度は、海塩起源の Na^+ および Cl^- の濃度増加によるところが大きいと考えられる (図 5.7)。

8) 八日市場 pH : 年平均値 4.77

EC : 年平均値 28.62 μ S/cm

11 月まではほぼ 0.2meq/l 以下の低濃度で推移しているが、12 月以降 0.3meq/l を超える値が出現している。全般的に、 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 5.8)。

9) 栗源 pH : 年平均値 4.97

EC : 年平均値 36.73 μ S/cm

6 月に 1meq/l を超える高濃度が観測された。これは、日本列島を縦断した台風 6 号による降水 (6mm) によって、もたらされたものである。

千葉県北部における酸性雨の地域的特性について (11)

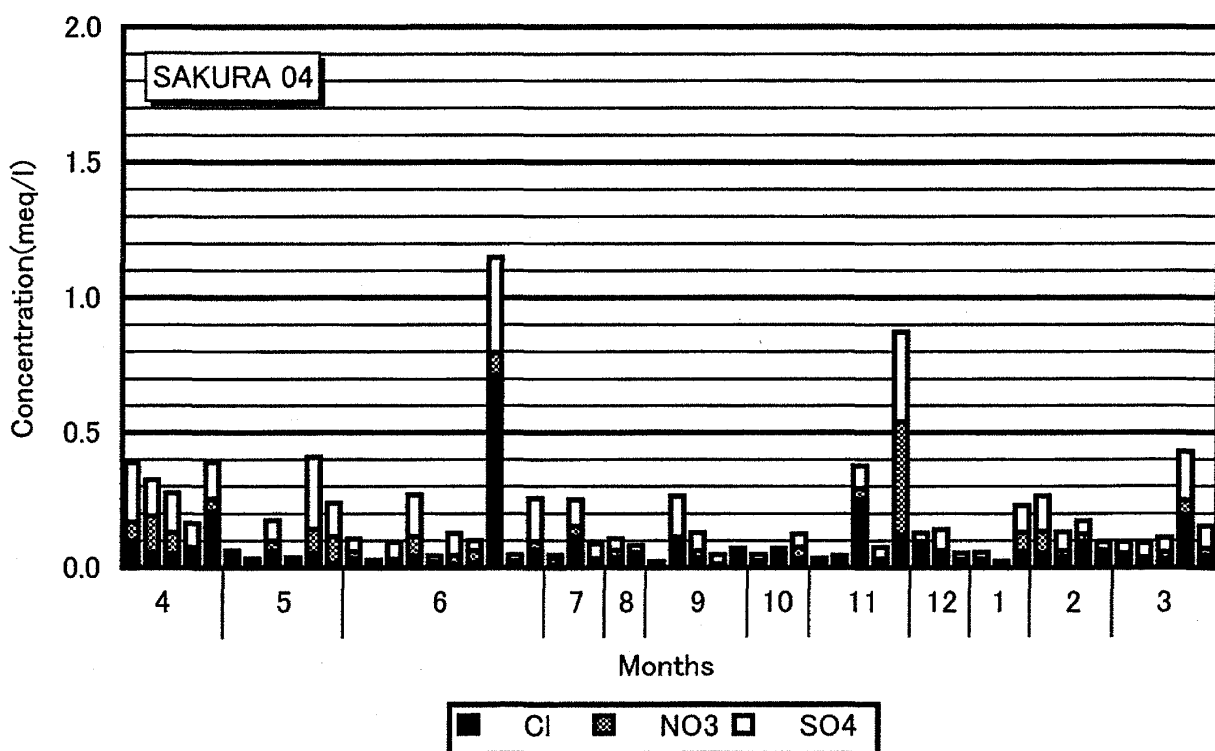
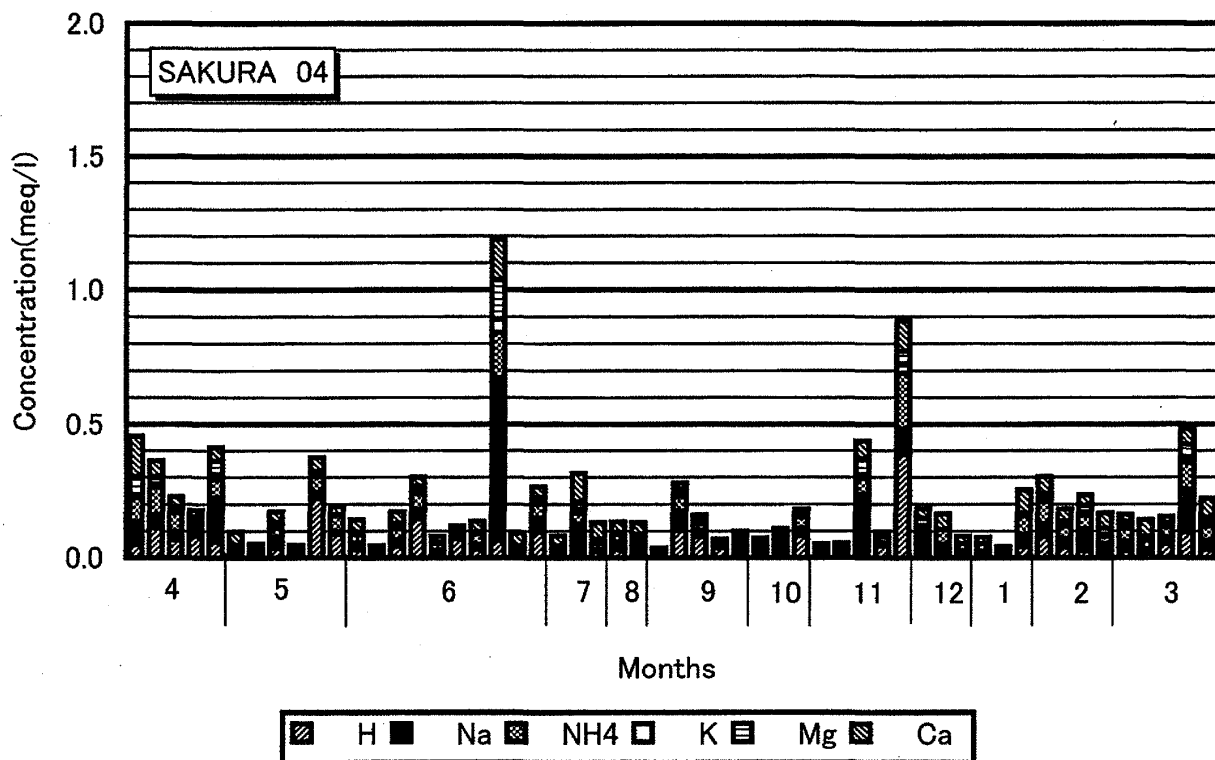


図5.1 2004年度の佐倉における酸性雨のイオン濃度組成
 上図：+イオン 下図：-イオン 単位：meq/l

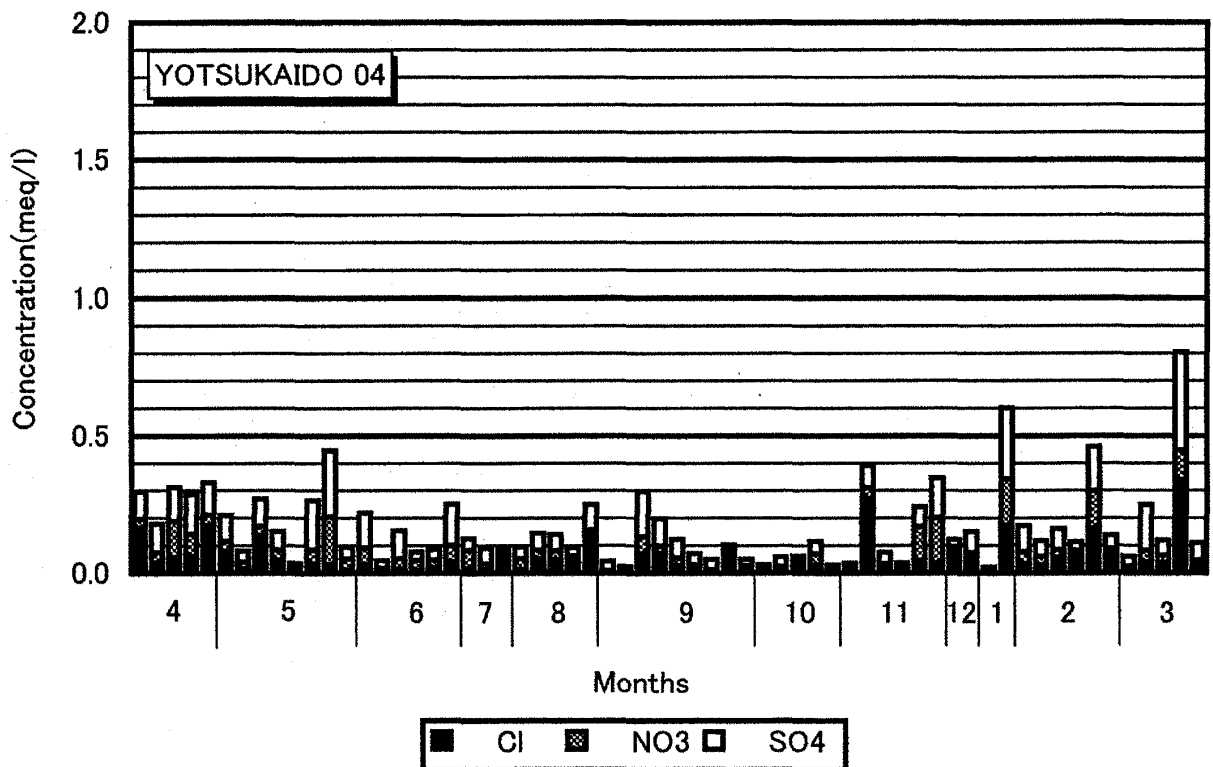
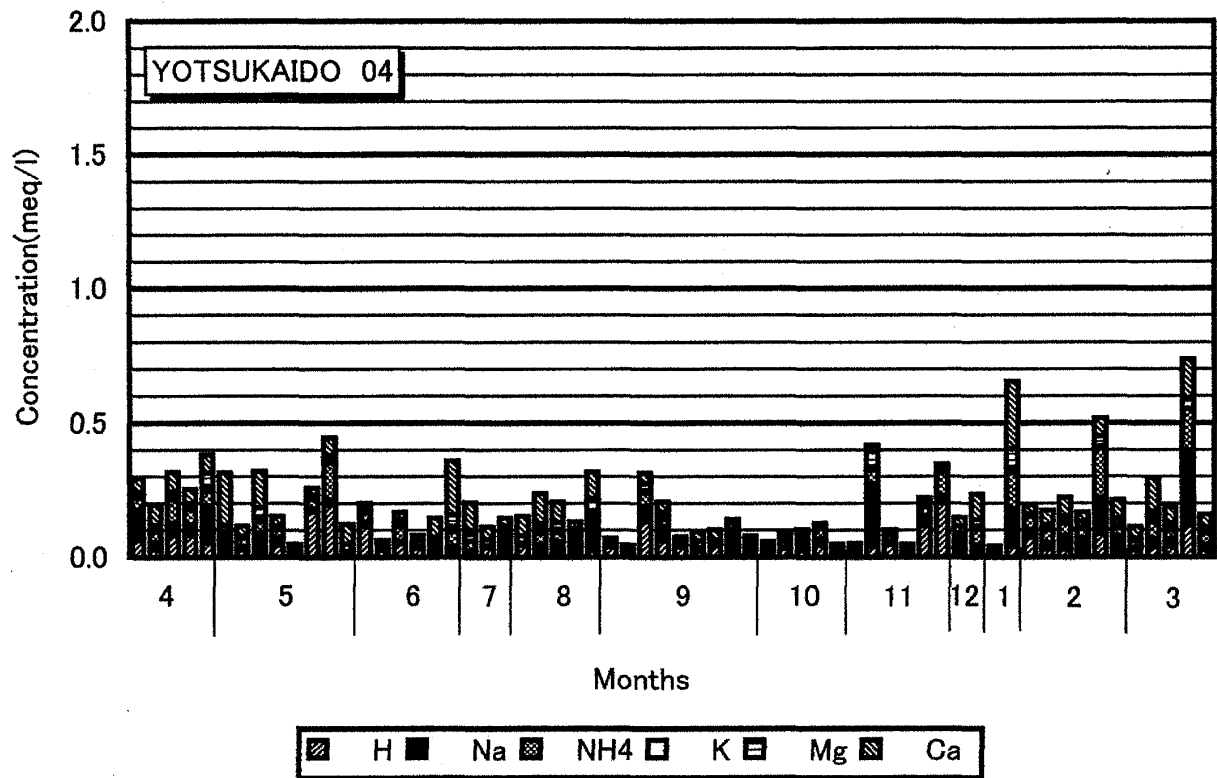


図 5.2 2004 年度の四街道における酸性雨のイオン濃度組成
 上図：＋イオン 下図：－イオン 単位：meq/l

千葉県北部における酸性雨の地域的特性について (11)

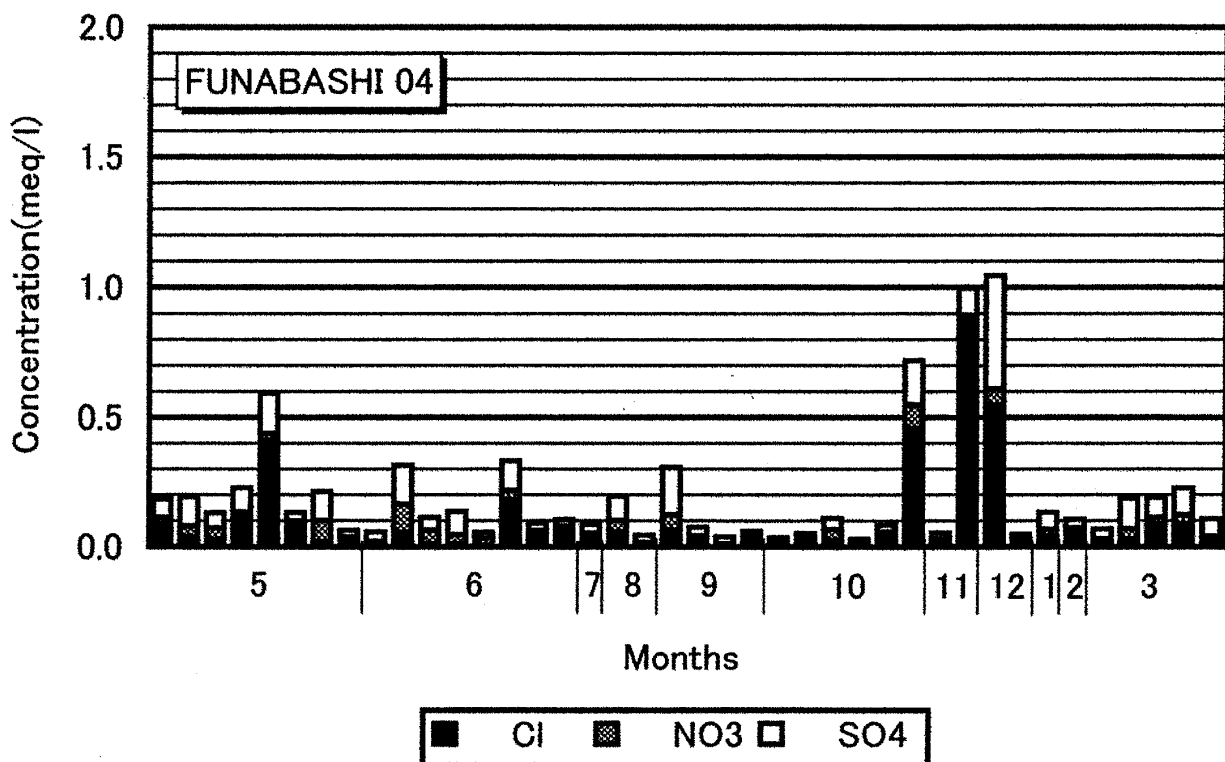
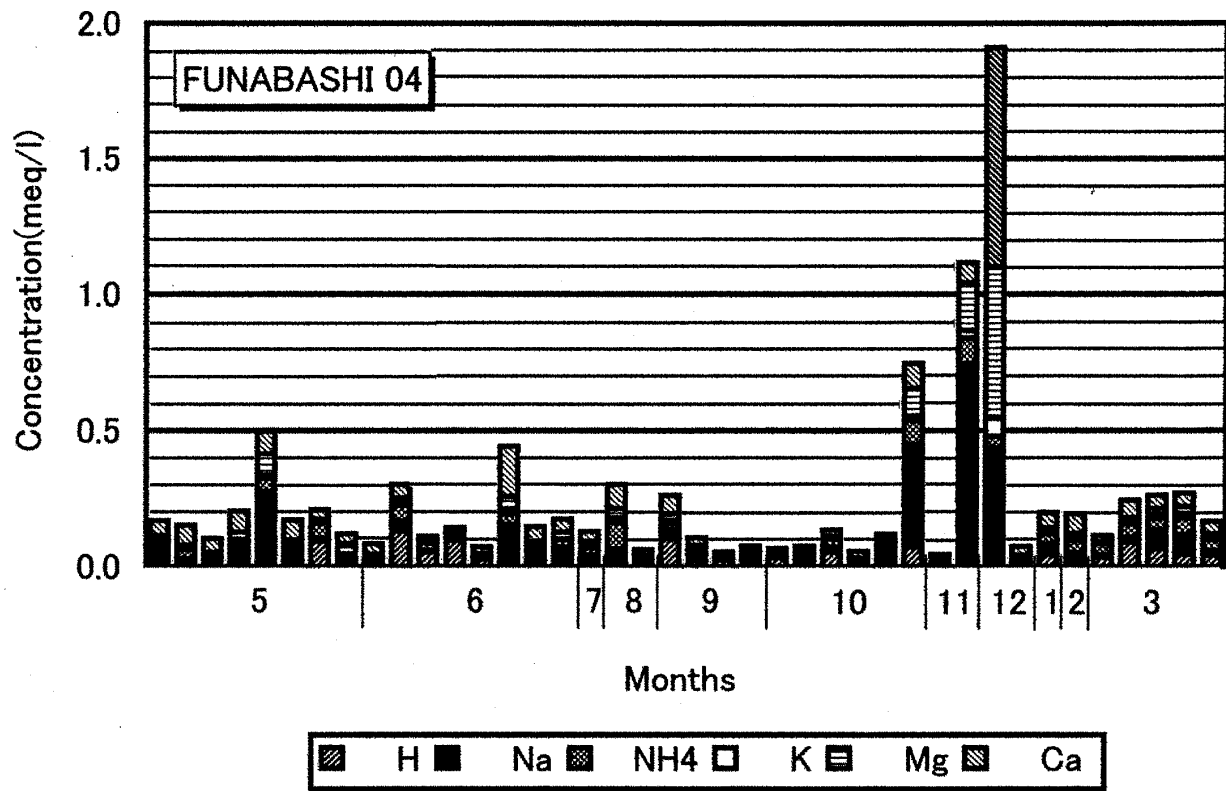


図 5.3 2004 年度の船橋における酸性雨のイオン濃度組成
 上図：+イオン 下図：-イオン 単位：meq/l

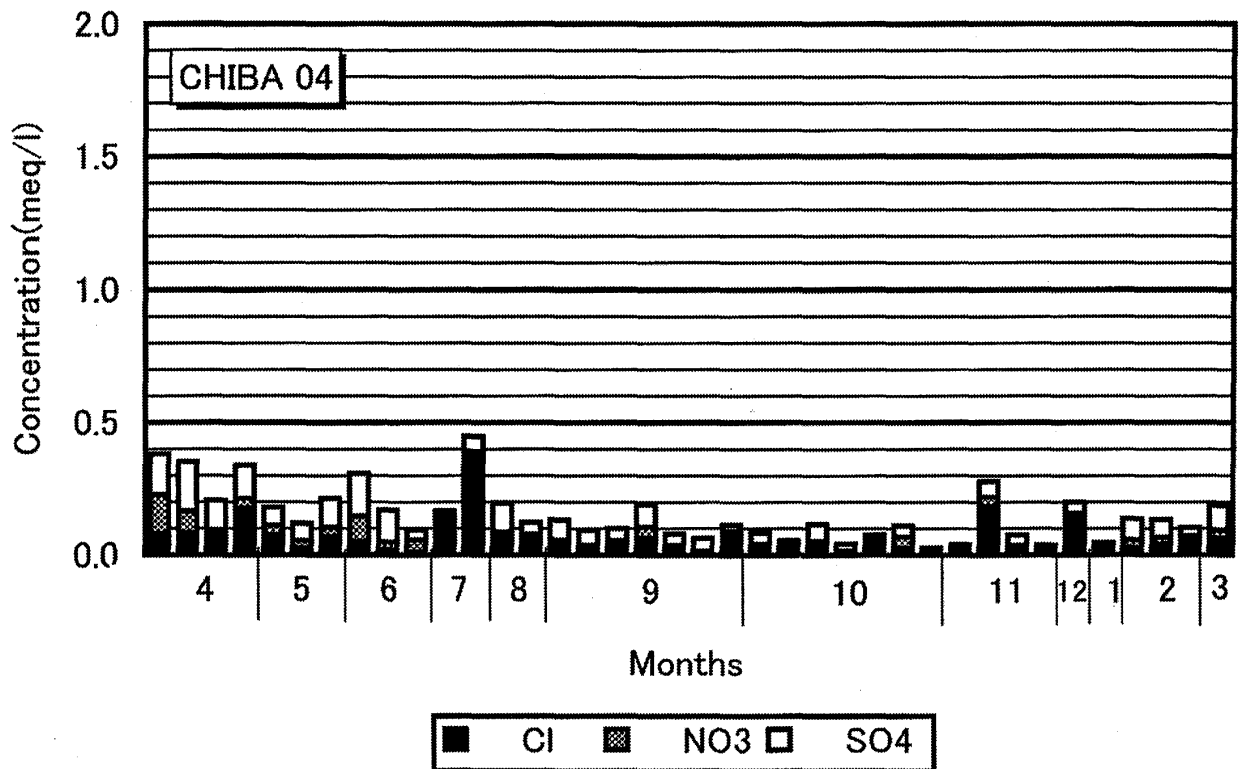
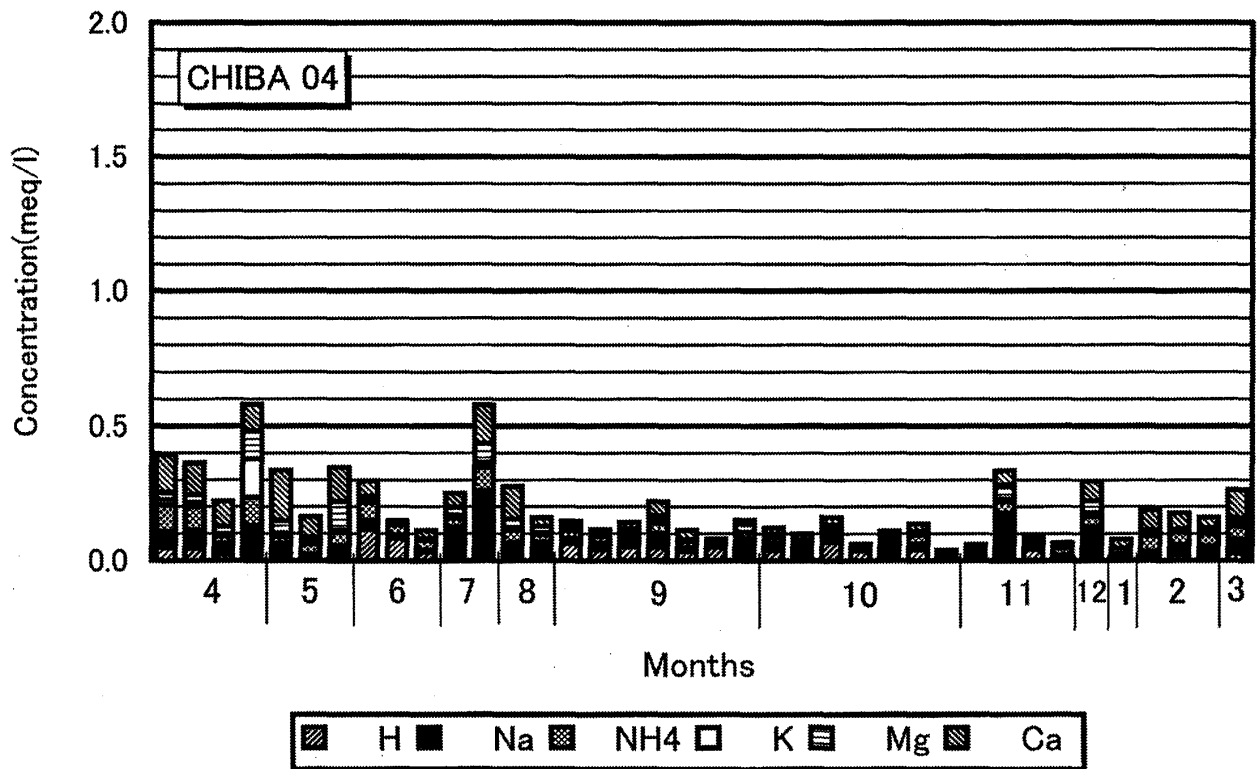


図 5.4 2004 年度の千葉における酸性雨のイオン濃度組成
 上図：＋イオン 下図：－イオン 単位：meq/l

千葉県北部における酸性雨の地域的特性について (11)

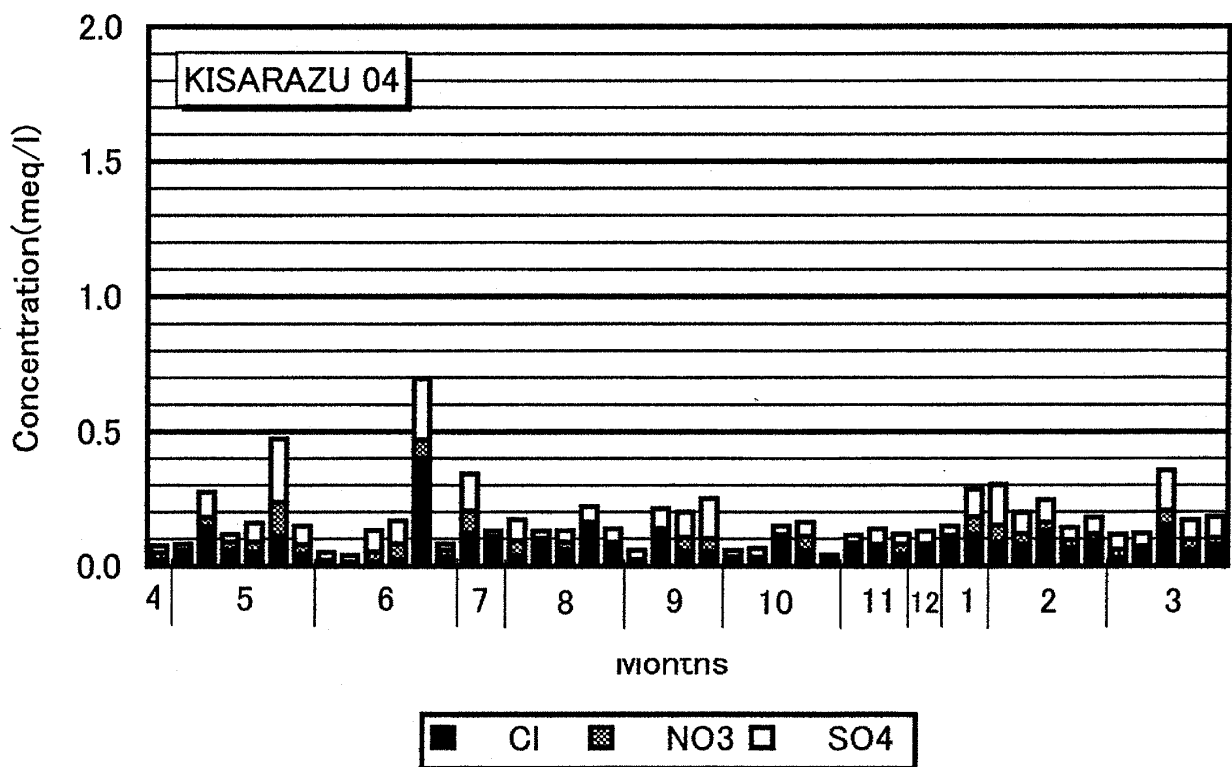
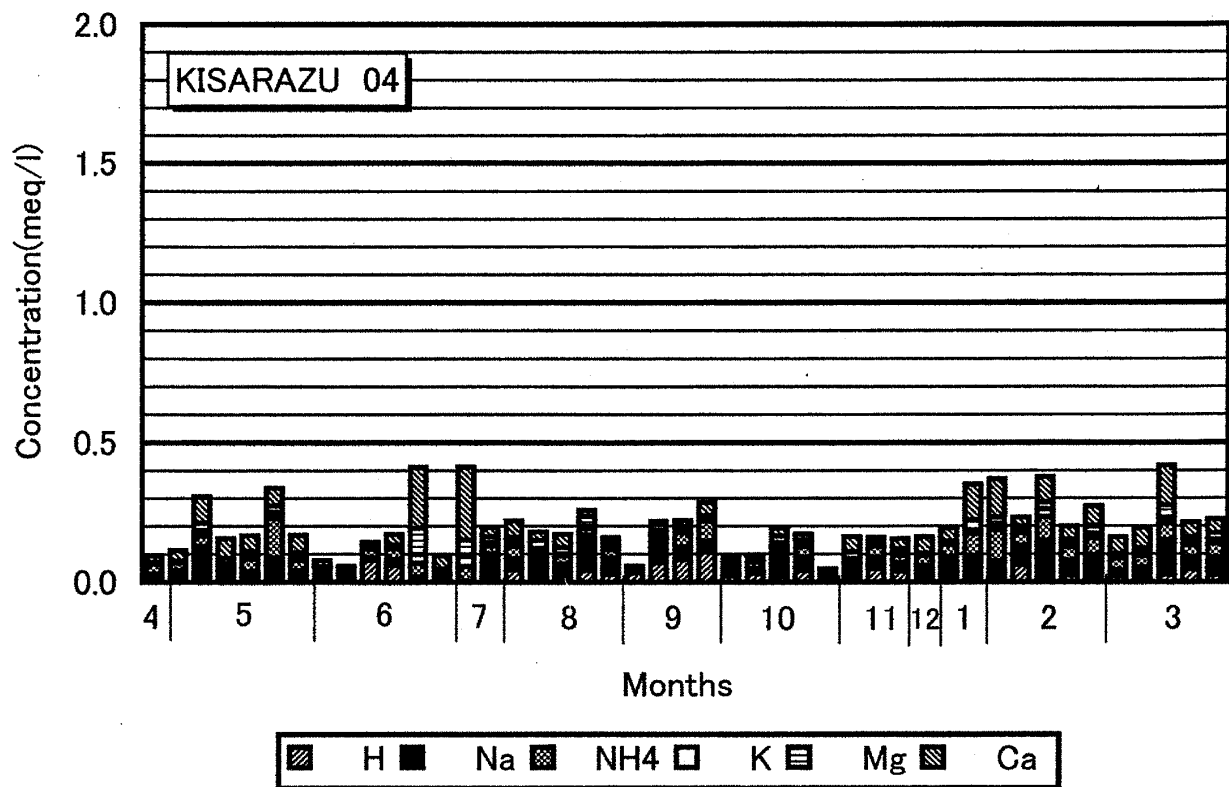


図5.5 2004年度の木更津における酸性雨のイオン濃度組成
 上図：+イオン 下図：-イオン 単位：meq/l

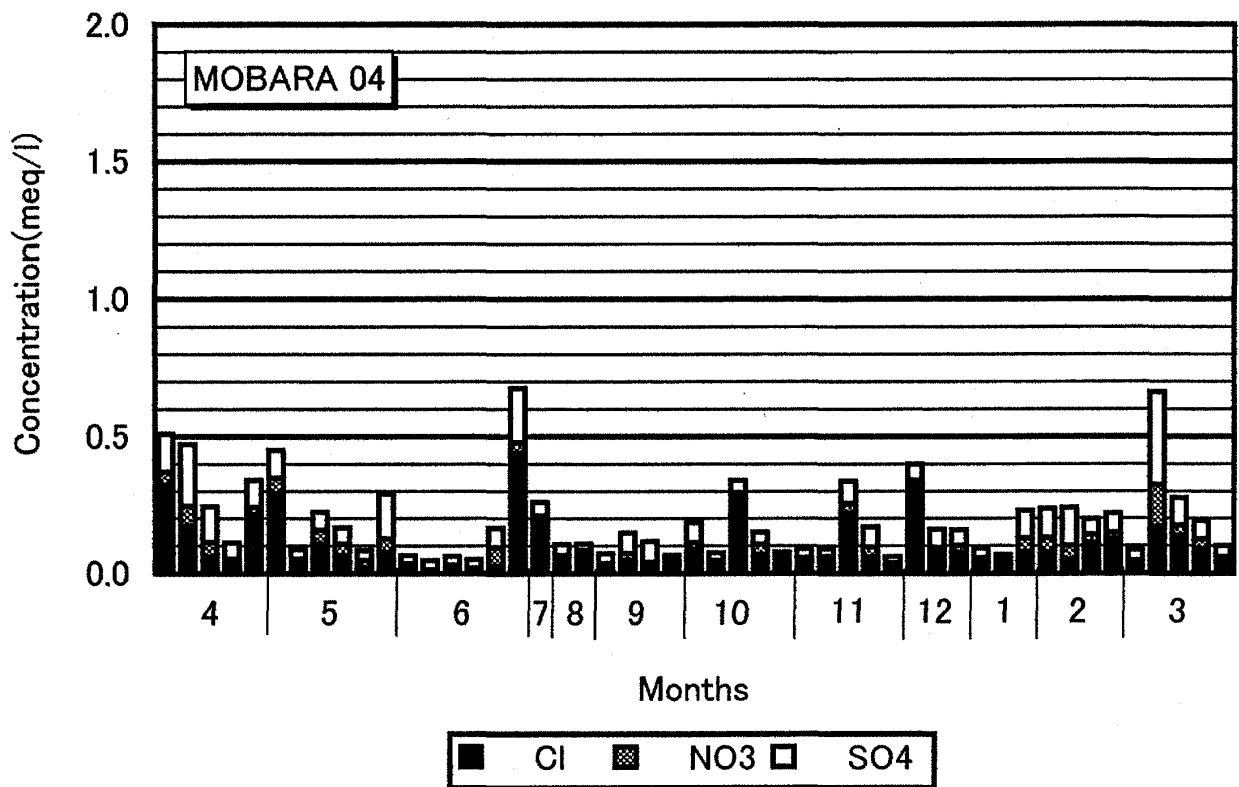
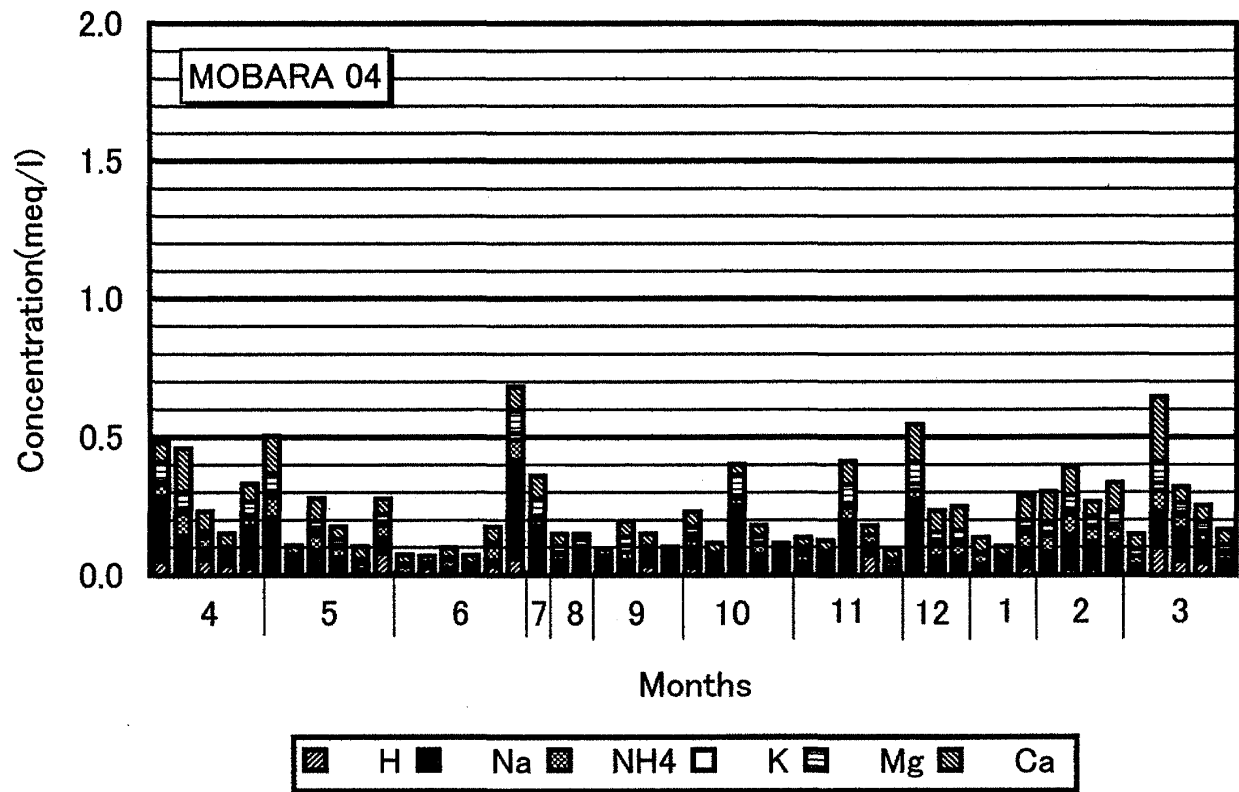


図5.6 2004年度の茂原における酸性雨のイオン濃度組成
 上図：+イオン 下図：-イオン 単位：meq/l

千葉県北部における酸性雨の地域的特性について (11)

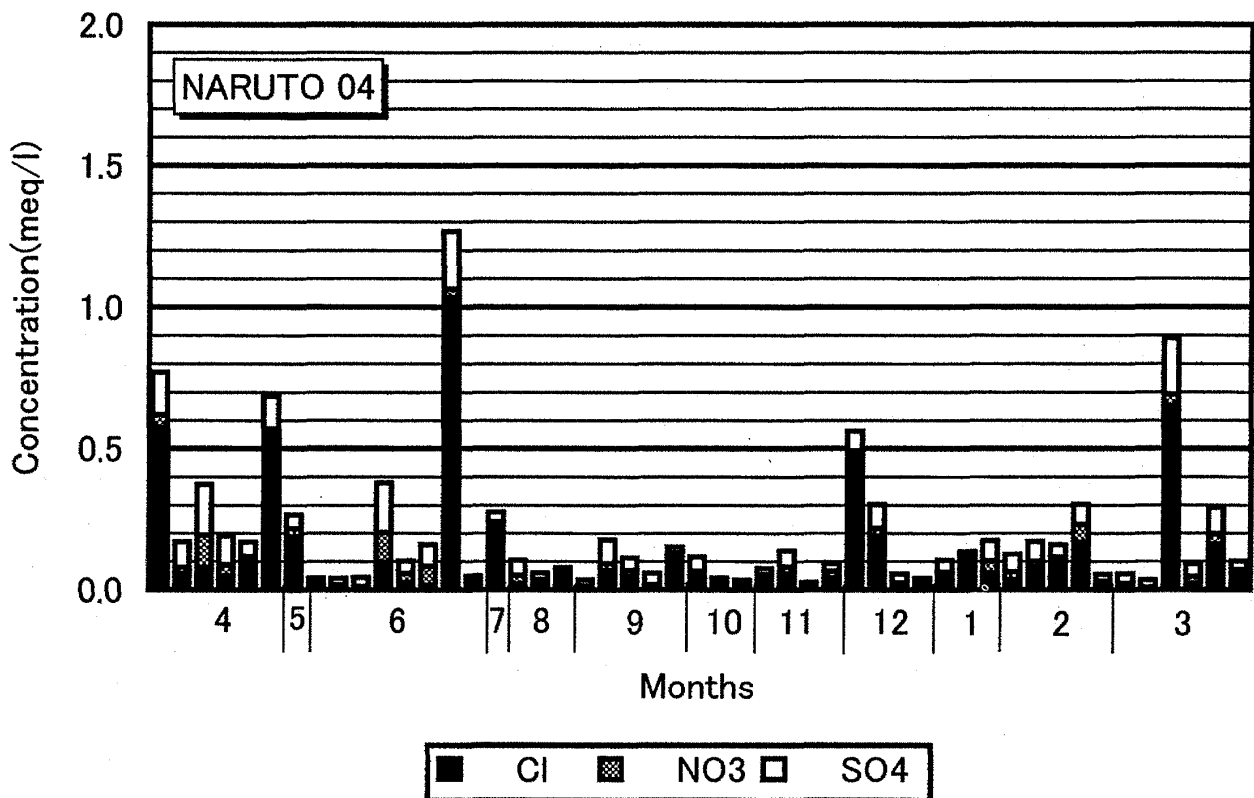
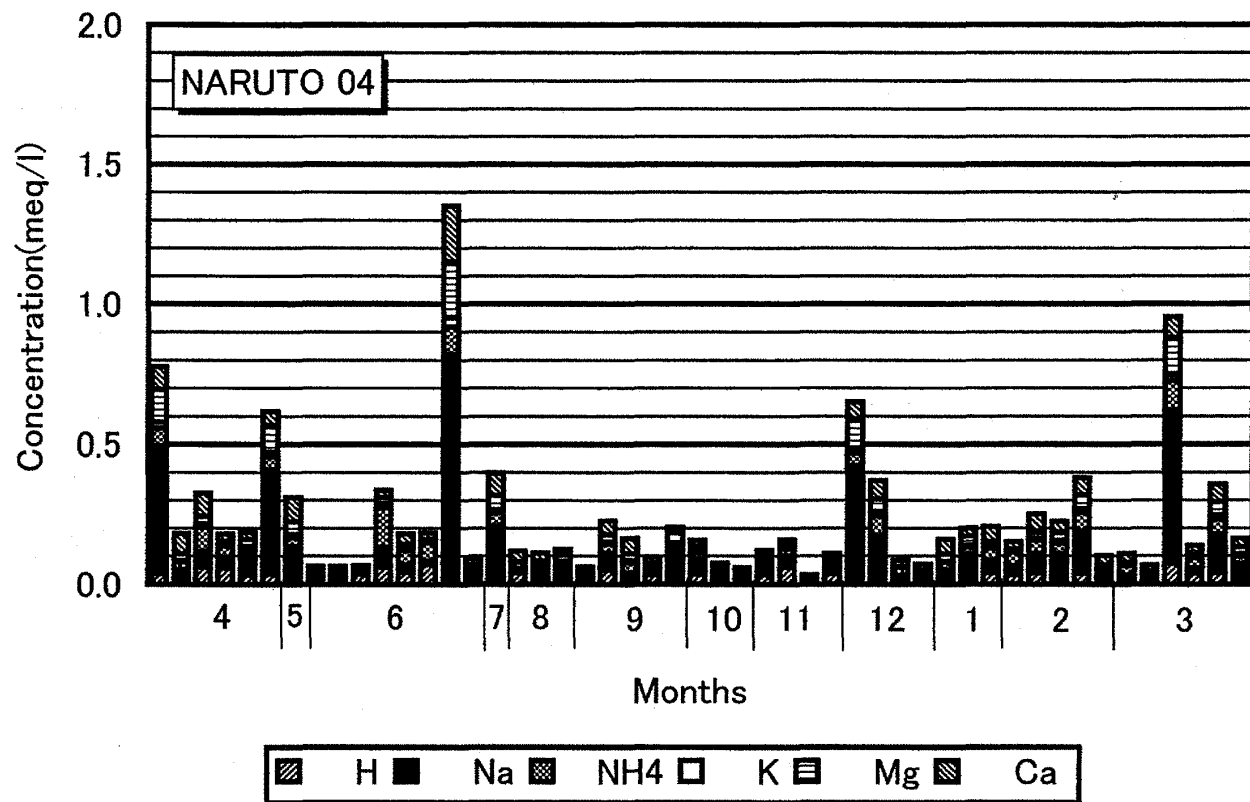


図5.7 2004年度の成東における酸性雨のイオン濃度組成
 上図：＋イオン 下図：－イオン 単位：meq/l

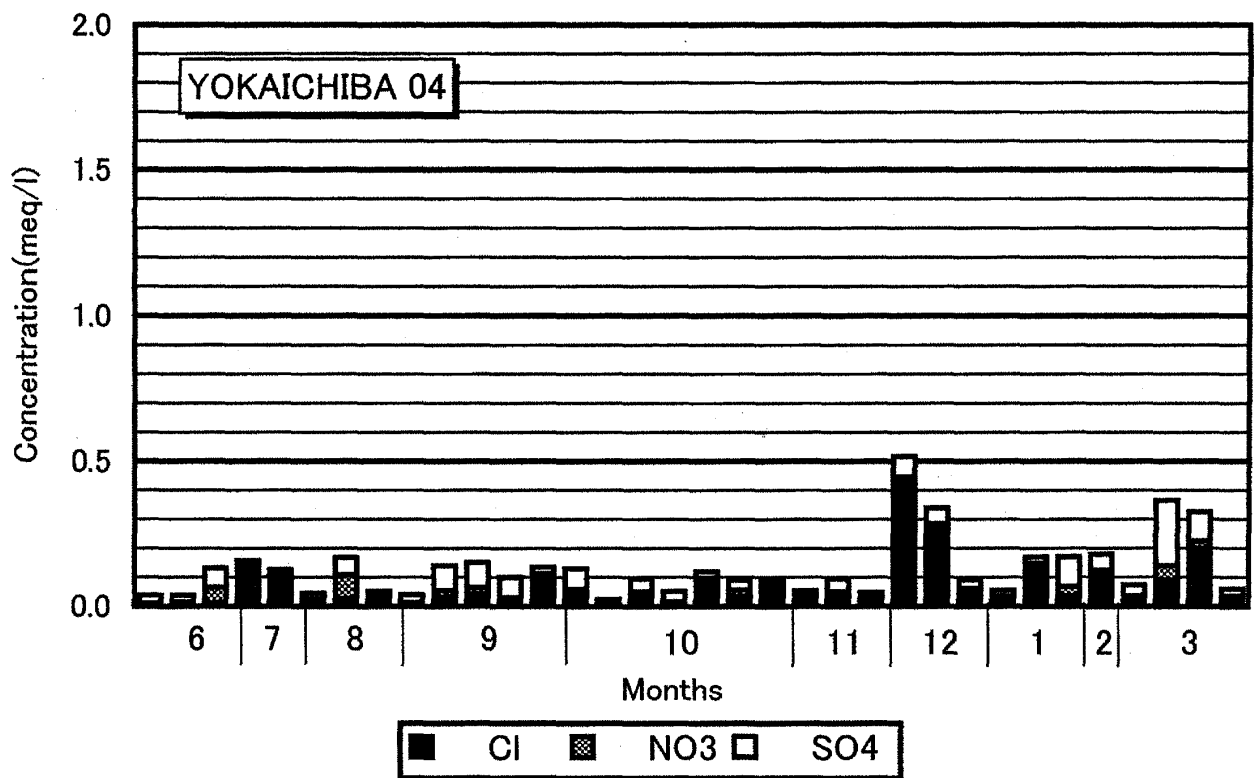
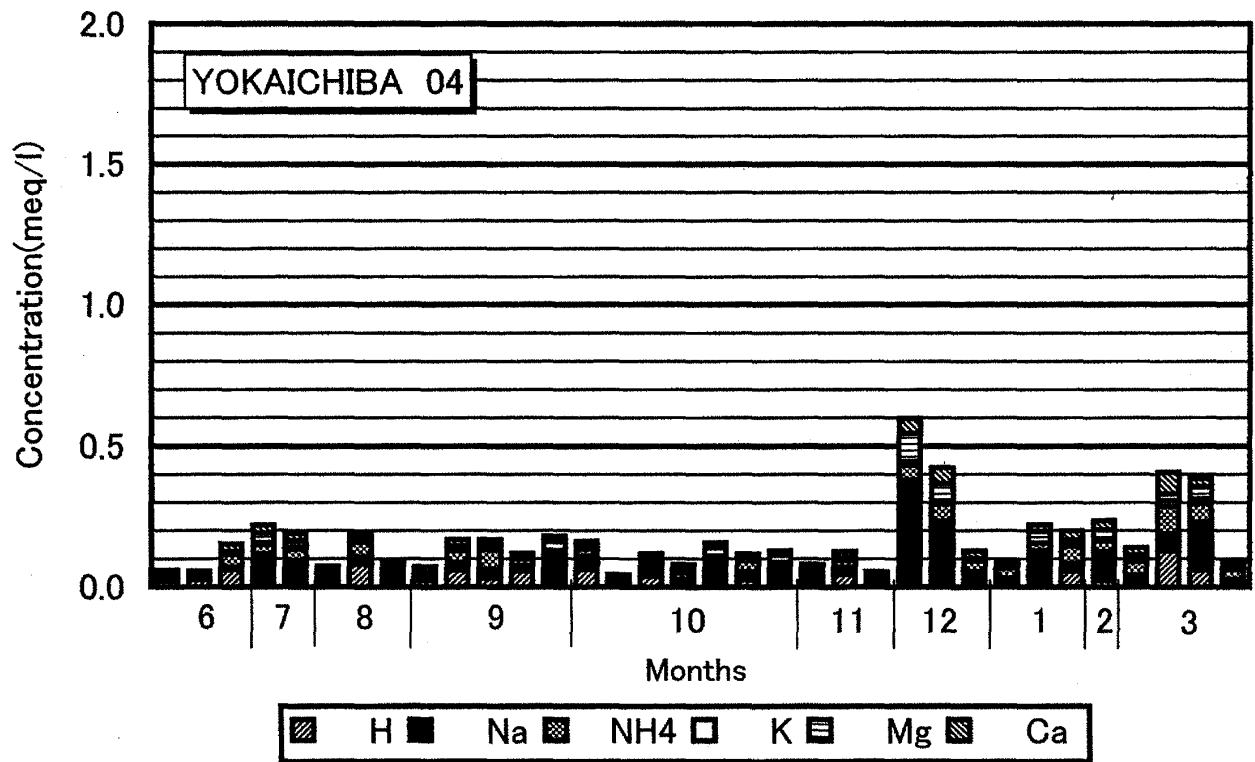


図 5.8 2004 年度の八日市場における酸性雨のイオン濃度組成
 上図：+イオン 下図：-イオン 単位：meq/l

千葉県北部における酸性雨の地域的特性について (11)

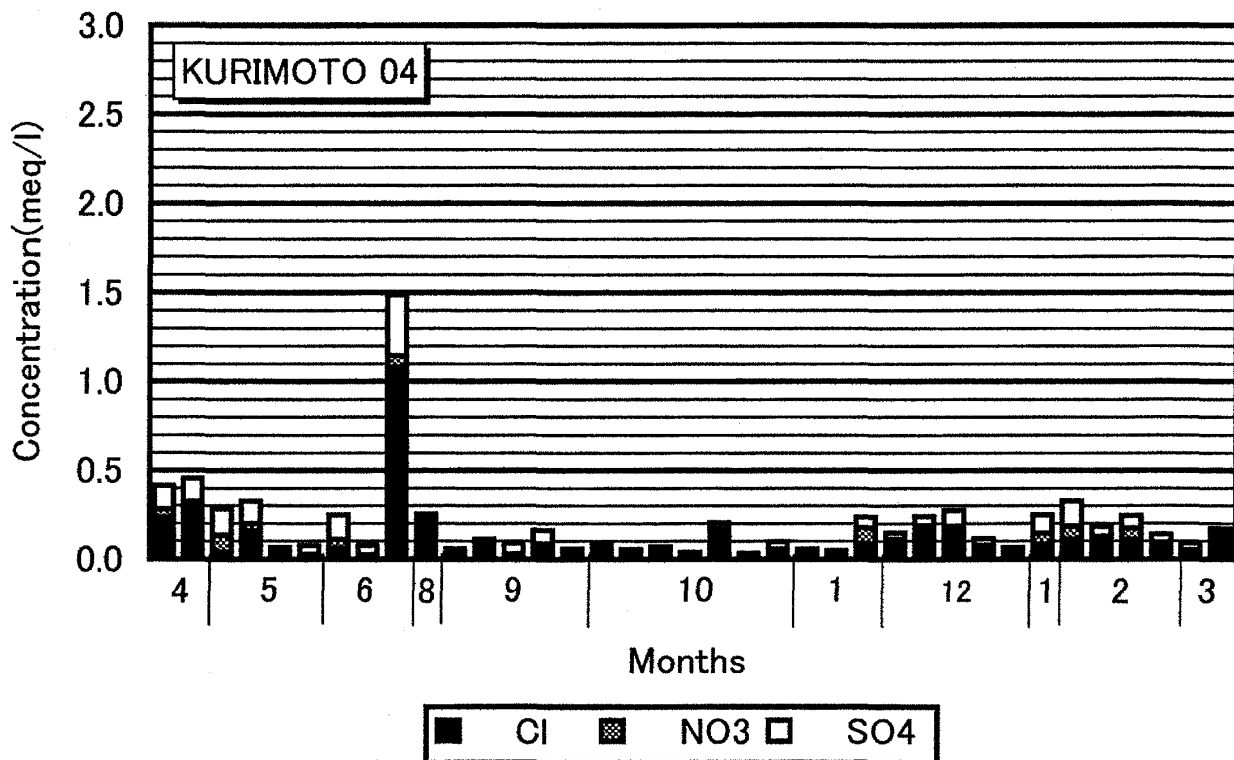
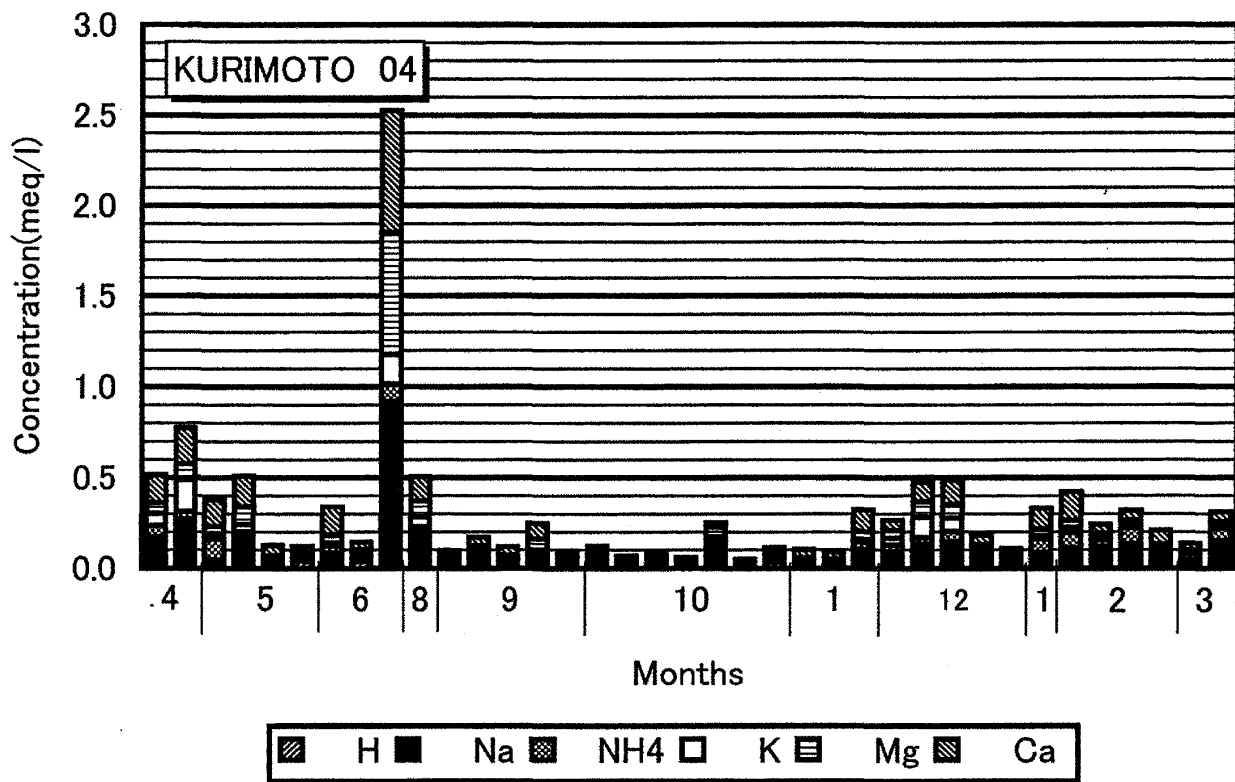


図5.9 2004年度の栗源における酸性雨のイオン濃度組成
 上図：＋イオン 下図：－イオン 単位：meq/l

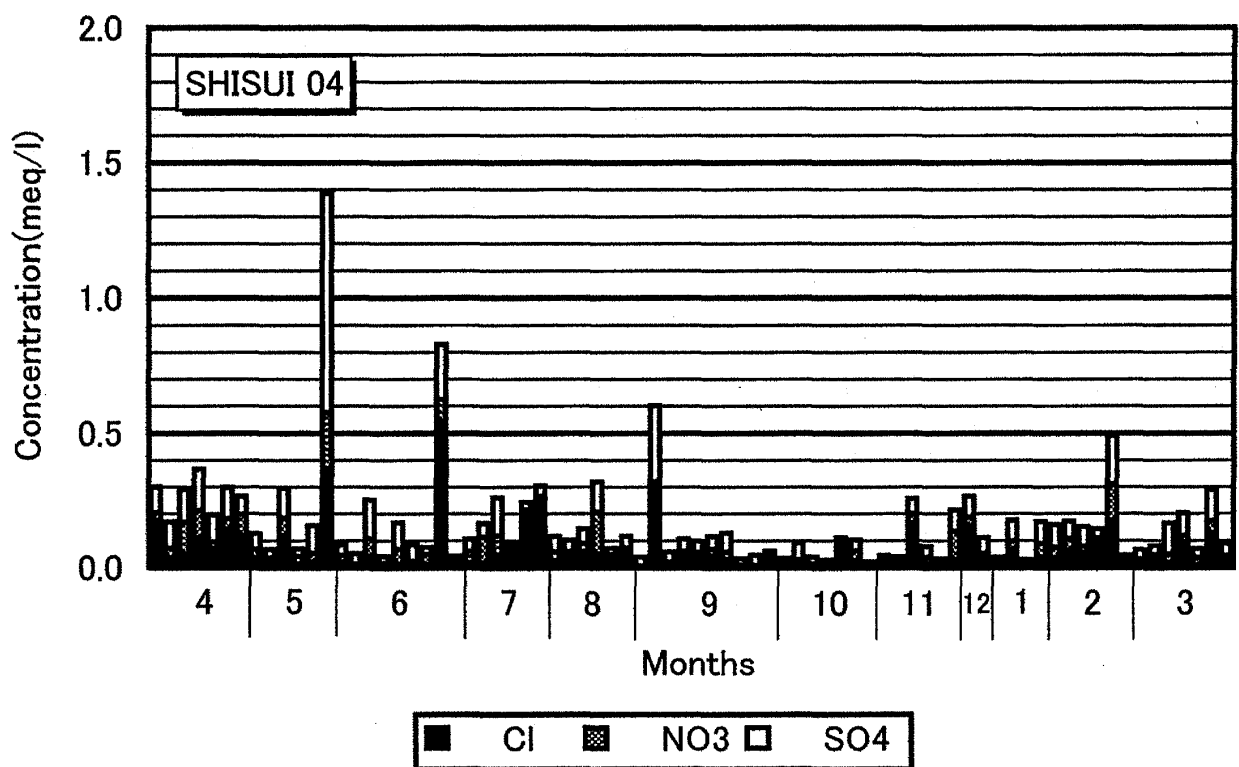
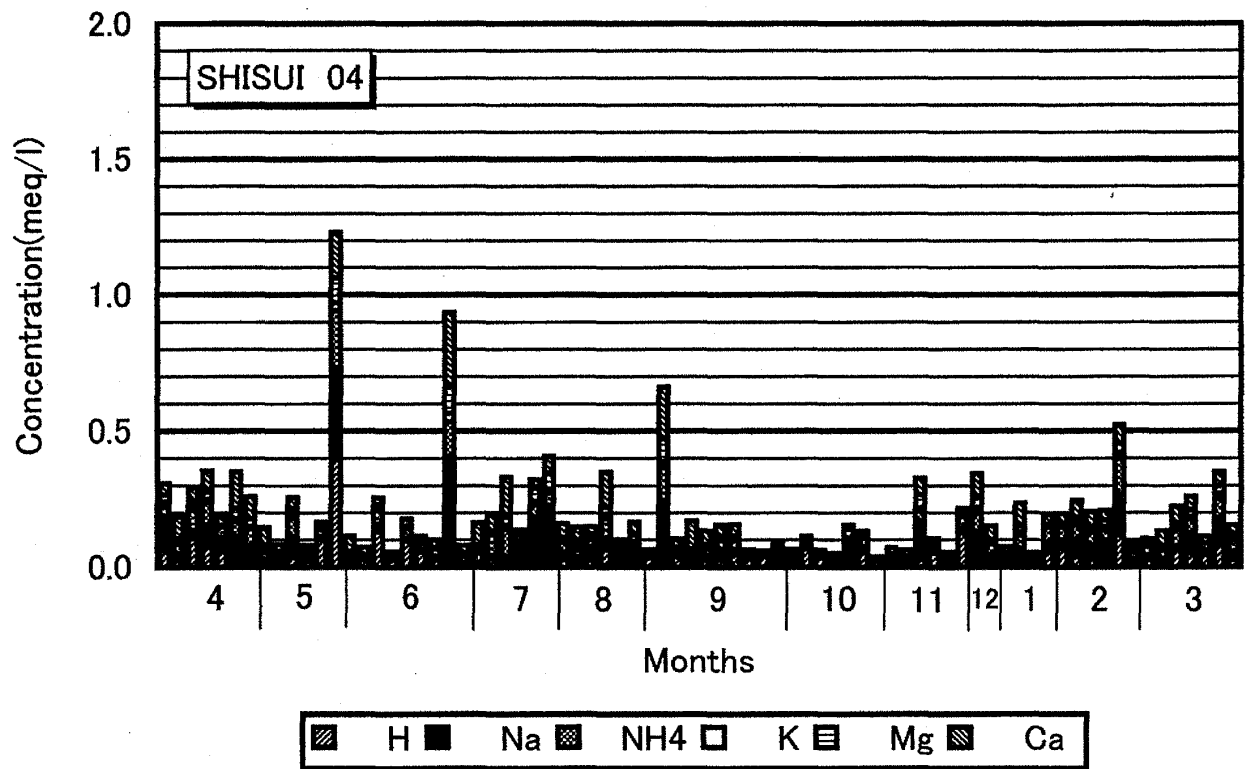


図 5.10 2003 年度の酒々井における酸性雨のイオン濃度組成
 上図：+イオン 下図：-イオン 単位：meq/l

千葉県北部における酸性雨の地域的特性について (11)

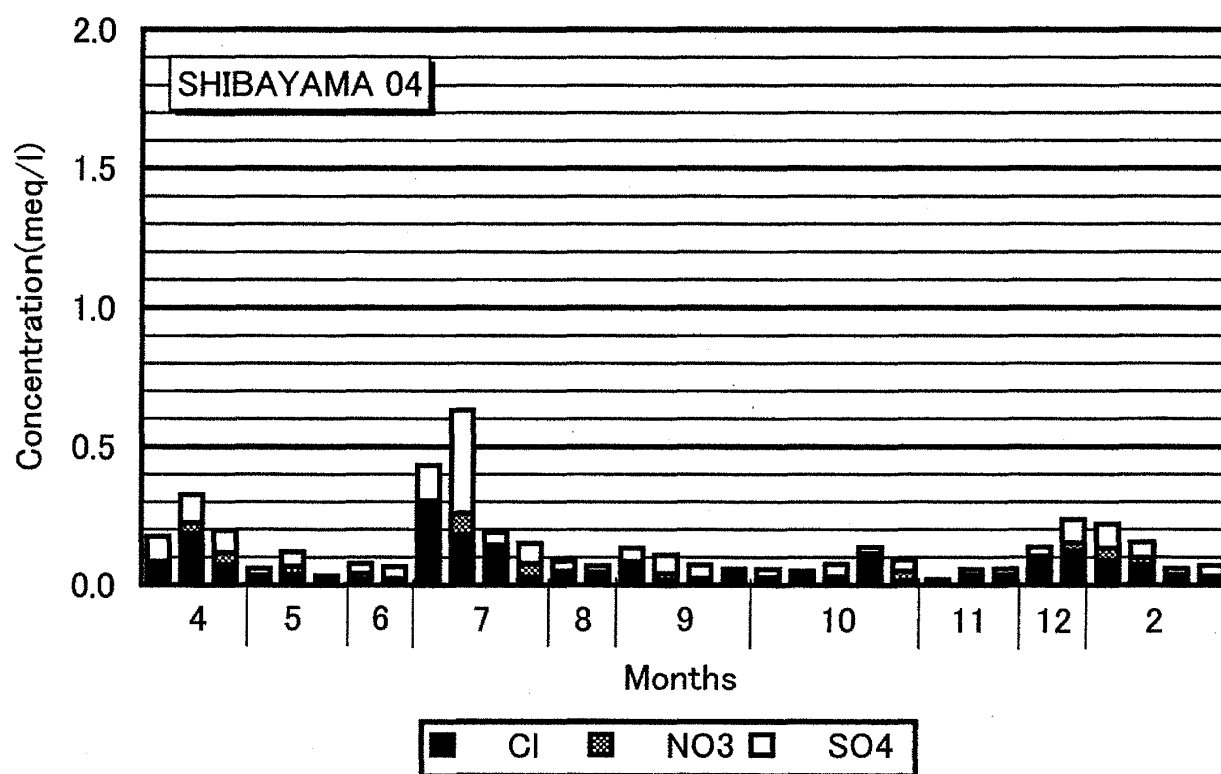
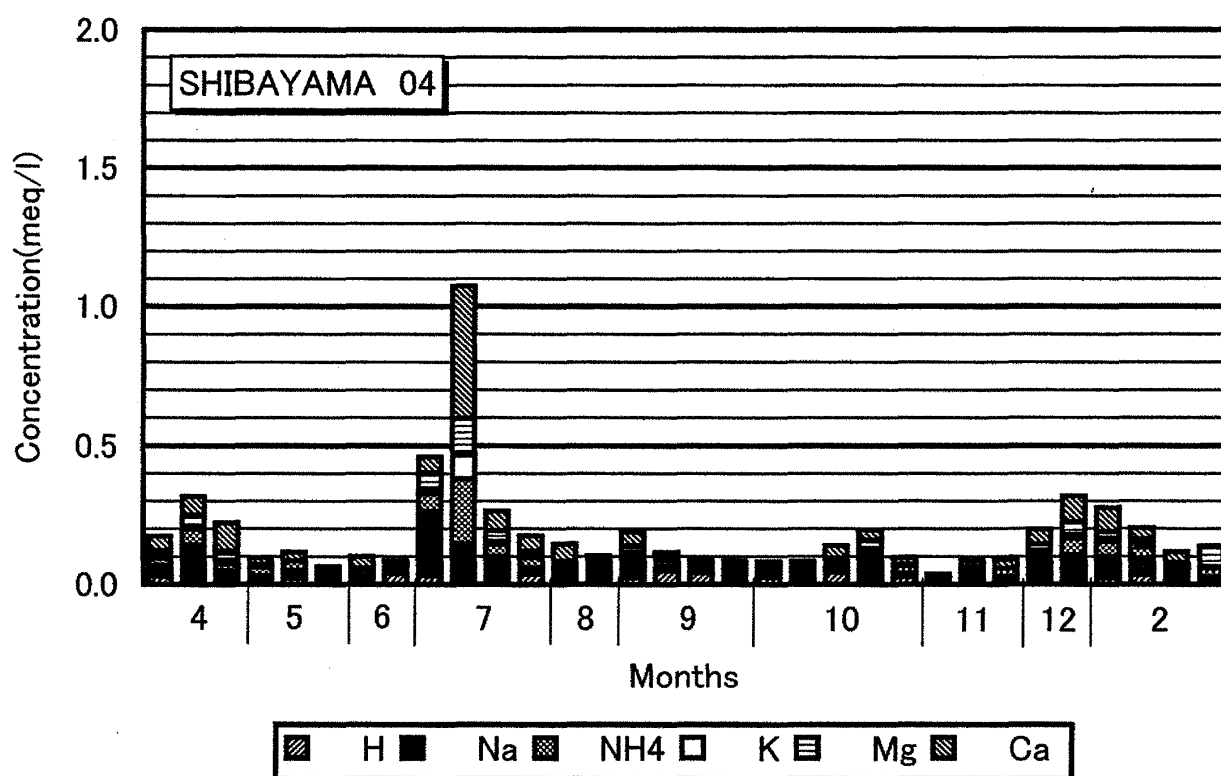


図5.11 2003年度の芝山における酸性雨のイオン濃度組成
 上図：＋イオン 下図：－イオン 単位：meq/l

10) 酒々井 pH : 年平均値 4.60

EC : 年平均値 38.55 $\mu\text{S}/\text{cm}$

0.5 meq/l を超えるイオン濃度は、5月、6月、9月、および2月に出現している。これらはいずれも、降水量2mm以下の時に出現している。また、他の地域に比較して、イオン濃度の変動が、年間を通じてやや大きい傾向が見られる（図5.10）。

11) 芝山 pH : 年平均値 4.80

EC : 年平均値 27.55 $\mu\text{S}/\text{cm}$

7月に0.5 meq/l を超えるイオン濃度が出現した。この時の降水量は、2mmであった。5月、6月および8月から11月までの期間は、その多くが0.1 meq/l 以下の極めて低い濃度で推移した。年間を通じて、 SO_4^{2-} が NO_3^- よりも高濃度の傾向が認められる（図5.11）。

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、値は前年と比較して暖候期、寒候期ともに小さくなっている。暖候期には0.4以上の値が南部および西部に現れ、最も高い0.5以上の値が船橋から四街道にかけての地域に分布する。一方、0.3以下の領域は北部の栗源から八日市場にいたる地域に分布する。このことは、この地域が鹿島臨海工業地域に近く同工業地域からの SO_x 放出の影響を強く受けていることによるものと考えられる。

また、寒候期には、0.4以上の領域が酒々井から千葉を経て木更津に至る地域に分布し、木更津

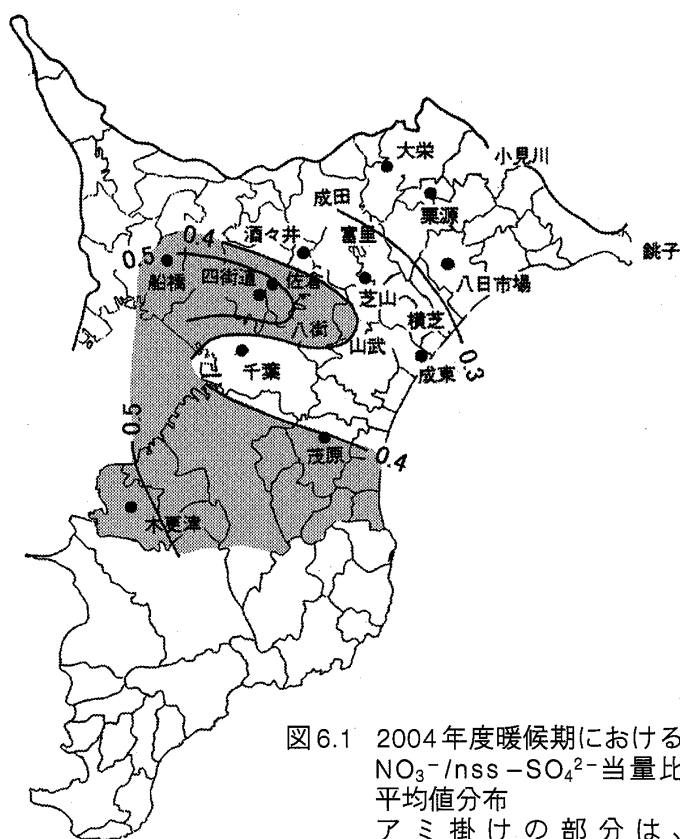


図6.1 2004年度暖候期における $\text{NO}_3^-/\text{nss}-\text{SO}_4^{2-}$ 当量比平均値分布
アミ掛けの部分は、0.4以上の領域を示す

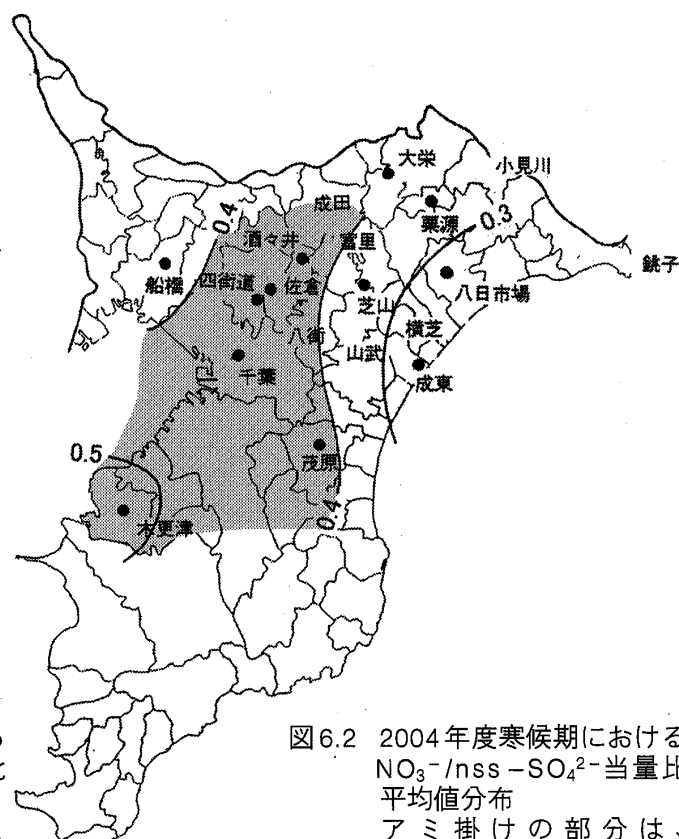


図6.2 2004年度寒候期における $\text{NO}_3^-/\text{nss}-\text{SO}_4^{2-}$ 当量比平均値分布
アミ掛けの部分は、0.4以上の領域を示す

千葉県北部における酸性雨の地域的特性について (11)

では0.5に達した。

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、 $[H^+]/([nss-SO_4^{2-}] + [NO_3^-])$ 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0.4以上の値は、酒々井・佐倉・四街道を含む地域、および東部の八日市場から成東にかけての地域に分布する。一方、分率酸性度0.3以下の値は北部の栗源、南部の茂原、西部の船橋付近に分布し、栗源、茂原付近はpH4.75以上の地域とほぼ対応している。寒候期の分率酸性度は、南部では暖候期とほぼ同じ値であったが、

中部以北では、暖候期よりも高めの値を示した。

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、暖候期において、両者間には負の相関(相関係数-0.486)が認められ、その関係は次式で示される。

$$pH = -1.086 A + 5.032$$

一方、寒候期の両者間の関係では、図8.2に示すようにあまり良い相関は見られなかった(相関係数-0.215)が、その関係は次式で示される。

$$pH = -0.450 A + 4.848$$

この式によると、暖候期には分率酸性度0.1の時にpH 5.190、同0.5の時にpH 4.489 となっている。

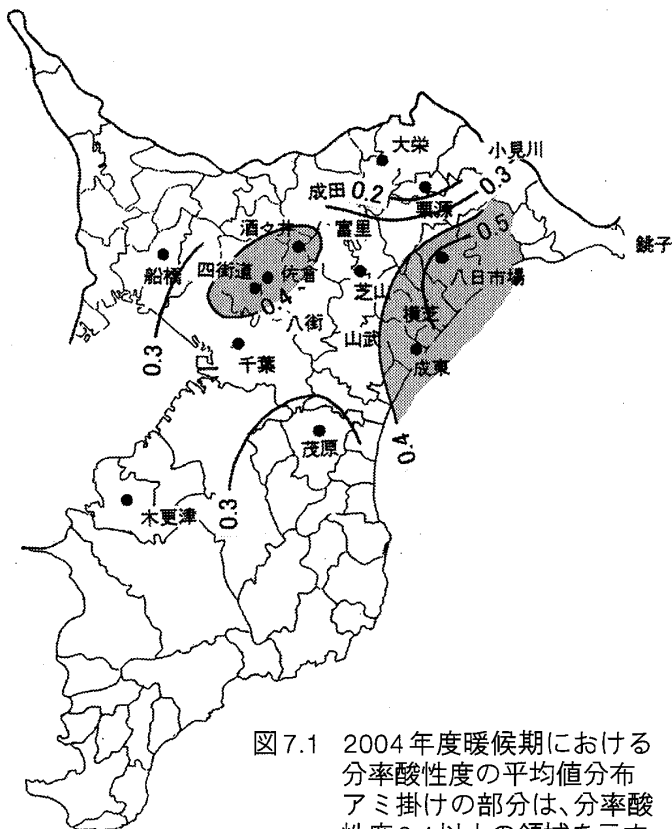


図7.1 2004年度暖候期における分率酸性度の平均値分布
アミ掛けの部分は、分率酸性度0.4以上の領域を示す

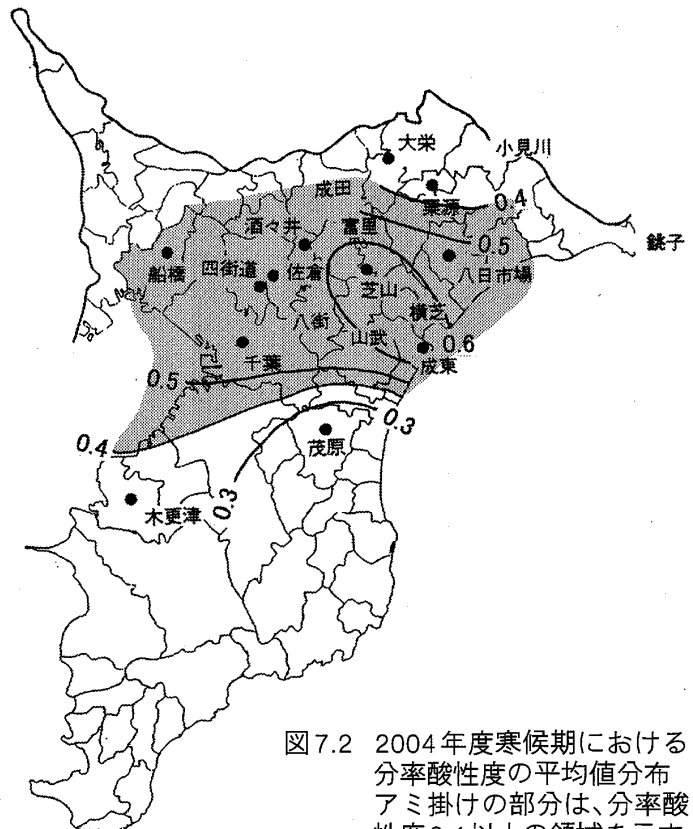


図7.2 2004年度寒候期における分率酸性度の平均値分布
アミ掛けの部分は、分率酸性度0.4以上の領域を示す

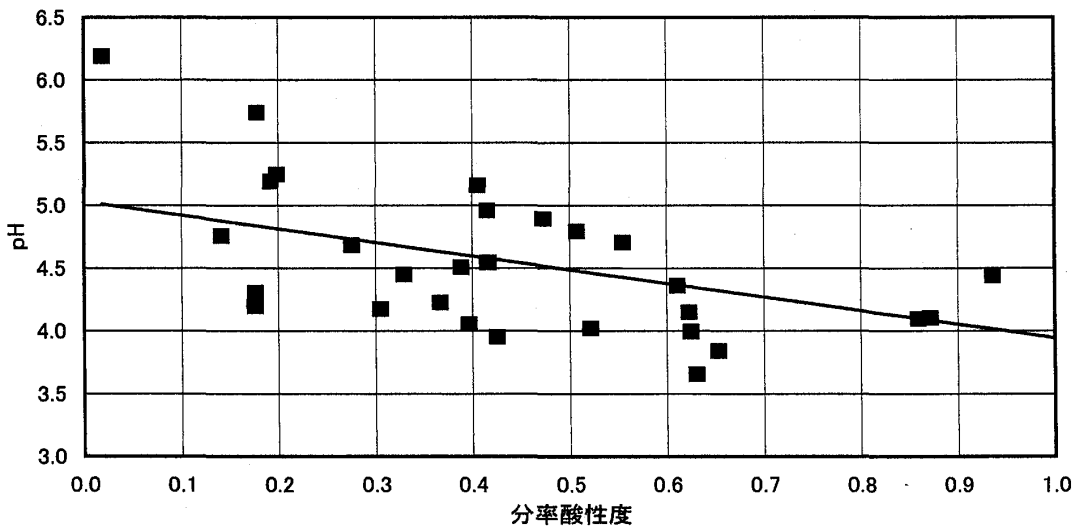


図 8.1 2004 年度暖候期における pH と分率酸性度
 $([H^+] / ([nss-SO_4^{2-}] + [NO_3^-]))$ との関係

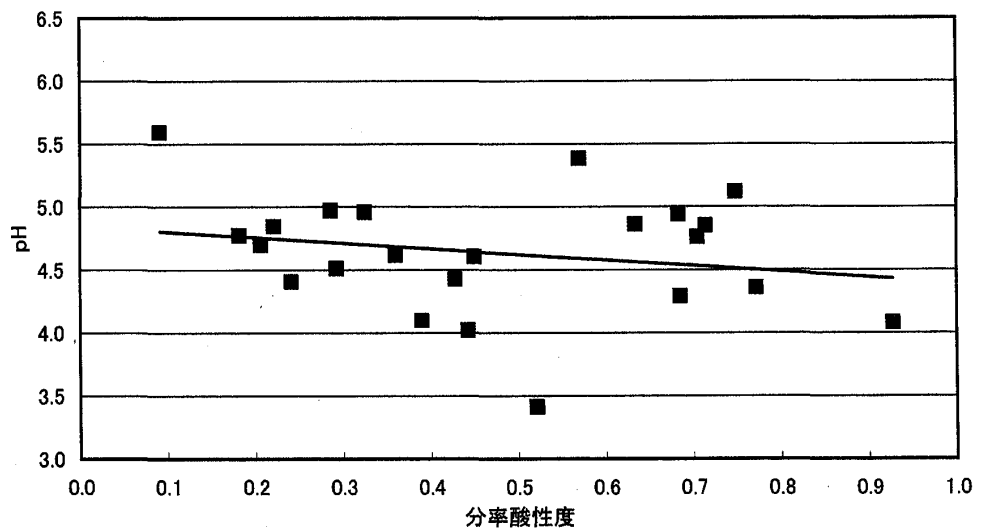


図 8.2 2004 年度寒候期における pH と分率酸性度
 $([H^+] / ([nss-SO_4^{2-}] + [NO_3^-]))$ との関係

4. まとめ

2004 年度に千葉県北部地域の 11 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 $NO_3^-/nss-SO_4^{2-}$ 当量比 (N/S 比) は、暖候期・寒候期ともに全地点で前年度を下回る数値を示した。

2. 三宅島火山からの大量の SO_2 放出の影響により、2000 年度から続いた pH および N/S 比が低目の値、逆に分率酸性度は高目の値を示す傾向は、ほとんど認められなかった。

3. 暖候期の pH 分布と分率酸性度 $([H^+] / ([nss-SO_4^{2-}] + [NO_3^-]))$ との間には負の相関が見られる。佐倉の暖候期の pH と分率酸性度 (A) との関係は、次式で示された。

$$pH = -1.086 A + 5.032 \quad r = -0.486$$

千葉県北部における酸性雨の地域的特性について (11)

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.

中村圭三・立澤誘一 (2002) : 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 -. 環境情報研究, No.10, 25~46.

中村圭三・立澤誘一 (2003) : 千葉県北部における酸性雨の地域的特性について (8)

- 2001年度観測結果 -. 環境情報研究, No.11, 23~45.

中村圭三・狩野真規 (2004) : 千葉県北部における酸性雨の地域的特性について (9)

- 2002年度観測結果 -. 環境情報研究, No.12, 45~67.

中村圭三・狩野真規 (2005) : 千葉県北部における酸性雨の地域的特性について (10)

- 2003年度観測結果 -. 環境情報研究, No.13, 25~46.

ABSTRACT

Regional Characteristics of Acid Rain in the Northern Part of Chiba Prefecture: Part 11

On the Results of the observation from April 2004 to March 2005

Keizo NAKAMURA · Futoshi Matsumoto

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 2004 to March 2005 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) $\text{NO}_3^-/\text{nss} - \text{SO}_4^{2-}$ ratio (N/S ratio) of the Northern Region in Chiba Prefecture showed The value which fell below preceding fiscal year in all sites in both warm period and cooling season.
- 2) It began to discharge large SO_2 from fiscal 2000 from the Miyakejima Island volcano. By the effect, pH and N/S ratio keep showing the value which is lower than the average year. Reversely, the fractional acidity $[\text{H}^+] / ([\text{nss} - \text{SO}_4^{2-}] + [\text{NO}_3^-])$ showed the high value. However, this situation hardly could be recognized in this fiscal year.
- 3) The pH distribution and fractional acidity 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.

$$\text{pH} = - 1.086 A + 5.032 \quad r = - 0.486$$