

公害研資料

No. 8

# 横浜市公害研究所報

第 3 号

1978年12月

横浜市公害研究所

## は し が き

窒素酸化物の環境基準や、環境影響評価制度の論議に象徴されるように、公害現象は、経済・社会・生活構造等に深いかわり合いをもつと同時に複雑多岐にわたっている。したがって公害問題の解決は、困難な状況にあるが、人の健康を保護し、生活環境の保全をはかって行くためには、いうまでもなく、科学的究明とその成果の公表が不可欠であり、公害研究所の責任もますます重要なものとなっている。

また、都市環境問題を解決するための研究は、本来、長い年月を要するものであるが、現実的に解決をせまられている問題も少なくない。現実的な問題に対応しながら、基礎的な調査研究の積みかさねが必要であり、かつ急がなければならない。

このため、本研究所においても、この責任を果たすことができるよう、着実に、分析・測定機器や調査研究用機器の整備を含め研究体制等の充実をはかっているが、同時に他の研究機関等との連携をより一層深め、本所の研究が有効に成果をあげよう努力して行きたい。

ここに収録した研究成果は、公害問題の広汎性を反映して多方面にわたっていると同時に、今後一層研究を積みかさねなければならない分野も多い。1976年4月に開所して以来、徐々に研究も軌道にのってきており、その成果の一部を、第3号としてとりまとめることにした。

この発行を機会に、本年7月に退任された前所長の足跡を基礎にして所員一同、今後一層の研鑽を積みかさね、公害行政の進展に寄与したいと念願している。

今後とも各位の御叱正を賜われれば幸いである。

1978年12月

横浜市公害研究所長

菅野明男

# 目 次

## 業務報告編

大 気 部 門	大気汚染に関する分析結果	1
水 質 部 門	水質汚濁に関する分析結果	3

## 調査研究編

### 大 気 部 門

I	自動車排気ガスによる道路周辺での大気汚染に関する研究（第2報）	5
	——窒素酸化物の濃度分布調査——	
II	自動車排気ガスによる道路周辺での大気汚染に関する研究（第3報）	14
	——横浜市三ツ沢地区（国道1号線）におけるガス状物質、浮遊粉じん等の濃度分布調査——	
III	オゾン計の較正のための1%中性ヨウ化カリウム吸収液による測定方法（1%NBKI法）と気相滴定による測定方法（GPT法）との比較検討	25
IV	相模湾・伊豆諸島海域上における大気汚染物質の輸送過程およびバックグラウンド濃度に関する調査（第2次）	35

### 騒音・振動部門

I	三ツ沢地区における幹線道路の自動車騒音レベル	53
---	------------------------	----

### 水 質 部 門

I	重金属分析における溶媒効果と測定結果の安定性について	59
II	横浜市沿岸水域における化学物質汚染状況調査	73
	——TBP, BHT, TP——	
III	環境試料におけるフェニルフェノールの分析法の検討	79
IV	界面活性剤を含む排水処理に関する実態調査(1)	85
V	横浜市沿岸海域における貧酸素水塊の発生と分布に関する調査	89
VI	大岡川源流部の水取沢における付着藻類植生	99

### 地盤沈下部門

I	ボーリングコア分析による鶴見川低地の地質について	107
---	--------------------------	-----

### 社会科学部門

I	自動車公害対策の課題	149
---	------------	-----

## 大気汚染に関する分析結果

### 大気部門

大気部門では、横浜市公害対策局大気課を主とした規制各課からの依頼による行政検体の分析、調査、経常的環境測定及び市民からの苦情等に係る検体の分析を行なっている。

表1は、昭和52年度に分析を実施した各項目ごとの、検体数及び延べ項目数である。

#### 1. 重油中の硫黄分

市内事業所から収去した重油中の硫黄分を、アイントープ法あるいはけい光X線法により分析し、規制値を超える重油については、さらにJIS K 2541（燃焼管一空気法）によって分析し、正確を期した。

昭和52年度は、本市の「硫黄酸化物及びばいじん対策指導要綱」等の規制強化により、ほとんどの事業所が低硫黄重油を使用したため、0.3%以内の重油が多かった。

表一 分析を行なった各項目ごとの検体数及び延べ項目数

(昭和52年4月1日～昭和53年3月31日)

分析項目	検体数	延項目数
重油中の硫黄分	524	524
廃油中の硫黄分	35	35
廃油中の重金属	87	174
煙道中のばいじん	5	10
環境中の重金属	102	408
発生源の窒素酸化物	15	15
発生源の炭化水素	61	88
悪臭	86	86
その他(苦情等)	16	47
計	931	1,387

工場立入数	55件
-------	-----

#### 2. 廃油中の硫黄、鉛、カドミウムの分析結果

本市内の公衆浴場では、木材にガソリンスタンド等からの廃油を混合させ燃料としている例が多い。それらの廃油を抜き取り分析した結果、硫黄分は平均0.89%であり、重金属は鉄、亜鉛、鉛の順に多く、カドミウムは検出されなかったが、鉛で500ppmを超えるものが6検体あった。

#### 3. 煙道中のばいじん調査

これらは大気汚染防止法、あるいは神奈川県公害防止条例に基づいた、立入測定によるものであり、対象施設は骨材乾燥炉、石油工場大型ボイラー、暖房用ボイラーである。

#### 4. 環境中の重金属調査

大気中の浮遊粉じん、重金属の捕集はハイボリュームエアサンプラーによって行ない、そこで捕集された粉じん中の重金属を定量した。

古河電池の工場周辺において、昭和52年3月28日から4月5日まで、又、日本ガラスの工場周辺において、昭和52年8月11日から15日まで、それぞれ10ヶ所に測定点を設け、カドミウム、ニッケル及び鉛について測定した。

#### 5. 発生源の窒素酸化物調査

日本鋼管(株)との公害防止協定に係る固定発生源の窒素酸化物の排出実態調査として、昭和52年6月から8月にかけて、扇島地区を中心に窒素酸化物の測定を行なった。

なお、この調査は、神奈川県、川崎市と共同で実施したものである。

#### 6. 発生源の炭化水素調査

発生源の炭化水素測定は、本市の「炭化水素系物質の蒸発防止設備等設置指導要綱」に基づく、指導、調査の一環として実施したものである。

対象施設としては、自動車塗装、電線被覆塗装、イ

オン交換樹脂製造及び塩素系溶剤使用施設があり、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素が、他の成分と比べて比較的高かった。

#### 7. 悪臭調査

悪臭防止法に定められた8物質を中心に、下水処理場、肥料工場、鶏舎等の調査と市民の苦情にもとづく測定を行なった。

#### 8. その他、苦情等による分析

市民からの苦情による検体は、未知物質が多く、そのため、未知物質の成分分析が主である。この分析には、けい光X線分析、ガスマススペクトル分析、電子顕微鏡分析等の機器分析を用いるが、大部分の物質名が解明された。

## 水質汚濁に関する分析結果

### 水 質 部 門

分析機器類の整備等により、工場排水等の行政検体の分析業務及び調査、研究はほぼ順調に行うことができるようになった。

昭和52年度は、行政検体数1,007検体、試験項目数3,849項目について分析を行った。詳細は表-1及び表-2に示すとおりである。

#### 1. 工場立入調査に伴う検体の分析

特定事業場に対する定期立入調査は昭和52年11月～12月、昭和53年1月～2月の2回にわたって実施し、それに伴って採取した工場排水714検体について、2,286項目の分析を行った。その他一定の行政指導を要する事業場への立入調査に伴う12検体について分析を行った。

#### 2. 環境調査に伴う検体の分析

昭和52年度に実施した環境調査とそれに伴って採取した検体数及び分析項目は次のとおりである。

##### (1) 東京湾水質汚濁調査（環境庁委託）

23検体……COD, 窒素, リン

##### (2) 恵比須, 宝運河汚染調査

底質8検体, 海水5検体, 魚1検体, 日本鋼管(株)肥料部排水1検体……総水銀, ヘキサン抽出物質含有量

##### (3) 東京湾栄養塩類収支挙動調査（環境庁委託）

75検体……COD, 窒素, リン

##### (4) 底質環境調査（環境庁委託）

三菱重工(株)横浜造船所前の底質6検体, その他

2検体……PCB等

##### (5) 化学物質調査（環境庁委託）

底質12検体, 海水12検体, 魚3検体……トリフェニル(o-, m-, p-), ブチルヒドロトルエン, トリブチルリン酸

#### 3. 土壌調査に伴う検体の分析

保土ヶ谷化学(株)の工場跡地に客土して建設した帷子小学校(保土ヶ谷区天王町)の校庭土壌11検体及び三井東圧(株)総合研究所(戸塚区笠間町)敷地からの搬出残土2検体について、PCB, 総水銀, シアン等の分析を行った。

#### 4. 除害施設の維持管理に伴う検体の分析

除害施設の維持管理のため毎月1回、原水, 処理水等を採取し、延べ90検体について、BOD, COD, 重金属類の分析を行った。

#### 5. 苦情処理に伴う検体の分析

(1) 昭和52年4月8日 鶴見川新羽ポンプ場付近で魚類へい死事故

水, 魚各1検体……シアン等

(2) 昭和52年8月9日 扇島沖における魚類へい死事故

海水2検体……DO, プラントトン

(3) 昭和52年9月12日 鶴見川川向橋付近における魚類へい死事故

鯉等の魚類5検体……シアン

表-1 行政検体数

	工場立 入調査	環 境 調 査		土 壌 調 査	除 害 施 設	苦 情 処 理	その他	合 計
		底 質	水・その他					
検 体 数	747	40	123	26	91	9	9	1,045

表-2 試験項目数

	工場立 入調査	環 境 調 査		土 壌 調 査	除 害 施 設	苦 情 処 理	その他	合 計
		底 質	水・その他					
カドミウム含有量 <i>mg/l</i>	25			2	44		9	80
総ツアソ含有量 <i>mg/l</i>	71			5		5		81
鉛含有量 <i>mg/l</i>	107	9		2	44		9	171
六価クロム含有量 <i>mg/l</i>	51	3			44			98
砒素含有量 <i>mg/l</i>	11	11						22
総水銀含有量 <i>mg/l</i>	41	28	7	23	45			144
P C B含有量 <i>mg/l</i>		12		26				38
水素イオン濃度	388		99		45			532
生物学的酸素要求量 <i>mg/l</i>	89		2		38			129
化学的酸素要求量 <i>mg/l</i>	225		40		45			310
浮遊物質 <i>mg/l</i>	350				37			387
N-ヘキサン抽出物質含有量 <i>mg/l</i>	247	8						255
フェノール類含有量 <i>mg/l</i>	18							18
銅含有量 <i>mg/l</i>	81				44			125
亜鉛含有量 <i>mg/l</i>	141				44		9	194
鉄含有量 <i>mg/l</i>	188				44		9	241
マンガン含有量 <i>mg/l</i>	49				44			93
総クロム含有量 <i>mg/l</i>	114	8		2	44		9	177
弗素含有量 <i>mg/l</i>	20							20
ニッケル含有量 <i>mg/l</i>	68				44			112
アンモニア体窒素量 <i>mg/l</i>			100					100
亜硝酸体窒素量 <i>mg/l</i>			100					100
硝酸体窒素量 <i>mg/l</i>			100					100
総窒素量 <i>mg/l</i>			101					101
リン酸体リン量 <i>mg/l</i>			101					101
総リン量 <i>mg/l</i>			101					101
その他	2	60	75	22		4		163
合 計	2,286	139	826	82	606	9	45	3,993

# I 自動車排気ガスによる道路周辺での 大気汚染に関する研究 (第2報)

## — 窒素酸化物の濃度分布調査 —

A Study on Air Pollution caused by Automobile  
Exhaust Gas in Areas along a Road (Rep. 2)

## — Distribution of Nitrogen Oxides Concentration —

中村 貢\*, 平野耕一郎\*, 沖津 正樹\*, 太田 正雄\*,  
鈴木 正雄\*, 米山 悦夫\*  
佐藤 静雄\*\*, 井上 勇\*\*, 石塚 謙一\*\*, 三村美登利\*\*,  
森 久緒\*\*, 鈴木 英世\*\*, 中村 清治\*\*, 市橋 正之\*\*

### 要 旨

道路近傍における窒素酸化物の汚染を把握するため、環境大気、地形等の異なる2つの測定場所を選び、そこを通過する幹線道路を対象に、ザルツマン式 NOx 自動測定器を用いて、昭和52年12月から53年2月まで調査を実施した。

調査の結果、次のようなことが判明した。

- (1) 車道から3~4m離れた歩道付近では、二酸化窒素の新環境基準である1時間値の24時間平均の40ppb, 60ppbをそれぞれ92~95%, 40~44%の割合で超えている。
- (2) NOはNO<sub>2</sub>に比べて歩道付近での濃度が高く、道路から30~40m付近まで減衰が大きい。
- (3) 減衰の認められる距離は、その地域のバックグラウンド濃度によって異なる。
- (4) 道路に対して直角な風よりも、平行な風になるほど窒素酸化物の濃度が高くなる傾向がある。
- (5) 汚染濃度に影響する因子としては、風向よりも風速の方がはるかに大きい。

### 1. はじめに

昭和53年7月の環境基準の改定により、二酸化窒素の基準値が大幅に緩和され、未だにその是非が論じられているところである。窒素酸化物の有害性については、濃度を別にすれば、従来から指摘されていることである。しかしながら、その発生源が多岐にわたっているため、発生源と環境汚染の関係については、必ずしも明確に把握されているとはいえない。

我国においては、幹線道路から50m以内に住む人口が2割を占め、2,000万人を超えている<sup>1)</sup>といわれる。吉田<sup>2)</sup>は、過密地域における移動発生源による環境汚

染の深刻さと、その対策の困難性を指摘しているが、道路周辺を対象とした窒素酸化物の環境汚染について詳細に調査した報告例は少ない。都市主要幹線道路の周辺地域のうち居住人口の多い地区について、移動発生源から排出された大気汚染物質による影響を把握することが必要である。

昭和51年度に、横浜市中区新山下地区において、道路周辺地域への自動車排出ガス影響調査<sup>3)</sup>を実施し、窒素酸化物の距離減衰等について、その汚染実態を把握した。

本調査は、前報<sup>3)</sup>での結果を参考にして、住居地域及び、商業地域を1ヶ所ずつ選定し、ザルツマン式

\* 横浜市公害研究所大気部門, \*\* 川崎市公害研究所大気課



NO<sub>x</sub> 自動測定器を用いて、長期にわたり測定を行ない、道路周辺における窒素酸化物の濃度、距離減衰、気象との関係等について解析したものである。なお、2ヶ所の調査のうち、横浜市神奈川区三ツ沢では、窒素酸化物とあわせて、二酸化硫黄、浮遊粉じん等についても同時に測定したが、この測定結果については別に報告する<sup>4)</sup>。

## 2. 調査内容

### 2-1 調査場所

調査場所の選定にあたっては、対象外の道路及び付近の固定発生源により、測定点がその影響を直接受けぬよう十分に注意した。

選定した2ヶ所の調査場所の概要は次のとおりであるが、地形、家屋の並び、対象道路の影響を受けないこの付近の大気濃度（以下バックグラウンド濃度という）等がそれぞれ異っていると考えられる。

#### 2-1-1 住居地域における測定場所（横浜市神奈川区三ツ沢中町）

図-1は、道路から各測定点への距離と付近の見取図である。この付近は、やや小高い三ツ沢の丘陵となっており、なだらかな丘が平行して東西に延びている。その丘陵の間の低地を調査の対象道路が通っている。この対象道路に面して商店があるが、その後背は住宅地となっている。特に高い建物もなく、樹木も多く環境が良好であり、調査に影響を与えるようなNO<sub>x</sub>の発生源として考えられるものは、付近にない。この調査の対象道路は、国道1号線で、この付近の1日あたりの交通量は40,000台<sup>5)</sup>であり、大型貨物の混入率が高い。

図-1の測定点を選定した理由は、この季節の主風向が北であるため、道路の南側にあたる測定点が風下になるように配慮した。測定点の設置場所は、小学校の校庭4ヶ所と民間の社宅の敷地1ヶ所及び、この付

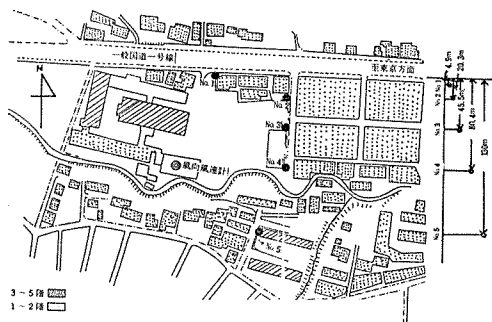


図-1 道路周辺の概要と道路から各測定点までの距離（横浜市神奈川区三ツ沢）

注：No.6のバックグラウンド測定点は道路北側300mの距離にある。

近のバックグラウンド濃度を測定するため、図中には示してないNo.6の測定点の計6地点である。

#### 2-1-2 商業地域における測定場所（川崎市川崎区貝塚）

図-2に示すように、調査場所付近は主要幹線道路として国道15号線（第1京浜国道）が通っているほか、車のほとんど通らない幅員の狭い道路が入り組んでいる商業地域である。この付近は、9階以下の建物や様々の家屋が混在しており、地表面の風向や風速は一樣にならないと思われる。

また、この対象道路は、1日あたり27,000台（神奈川県警察本部交通監視センター交通量調査）の交通量となっており、ほぼ東北東から西南西に延びている。冬季におけるこの付近の主風向は北方向と推定されることから、図-2のようにNO<sub>x</sub>の測定点を道路の南側に設けた。又、図中には示してないが、この付近のバックグラウンド濃度として、東側500mにある川崎市公害監視センターの測定データを参考にした。

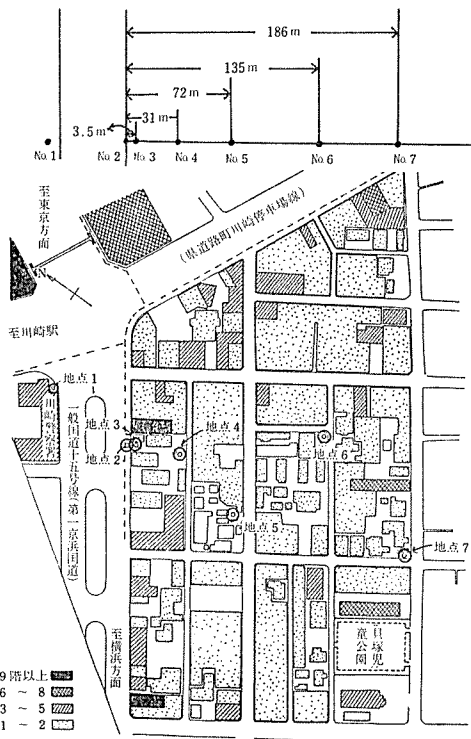


図-2 道路付近の概要と道路から各測定点までの距離（川崎市川崎区貝塚）

### 2-2 調査期間

調査時期は、大気が安定している冬期とし、各調査場所ですべて30~40日の測定を実施した。

ア. 川崎市川崎区貝塚：昭和52年12月1日から昭和

53年1月6日まで。

イ. 横浜市神奈川区三ツ沢：昭和53年1月7日より  
昭和53年2月16日まで。

### 2-3 調査方法

大気汚染防止法では、環境大気中のNOxの測定法として、ザルツマン法を指定しているが、測定機器の器差が大きいため、詳細な解析を行う調査においては、データの比較に問題がある等の欠点がある。このため、本調査では、調査前に、使用するNOx計について、各計測器の指示値が同一評価できるように従来からの等価標準溶液による静的校正のほかに、標準ガスによる動的校正方法により整備、校正し、使用するザルツマン式NOx自動測定器の器差を2%以内にする事ができた。なお、本調査で使用したNOx自動計測器の仕様を表-1に示した。

次に、各測定点は、この季節の風向を考慮し、道路から200m以内の距離に、風上に1ヶ所、風下となる側に5または6ヶ所を選定し、仮設した小屋に、ザルツマンNOx計等を設置した。仮設の小屋は、約1.7㎡の組立式のプレハブである。

大気の採取高の位置は地上1.5mとし、採取管として、PFAテフロン管を用い、5m以上長くならぬように注意した。

測定期間が冬期のため、気温が低下し吸収液の凍結を防止するため、各測定小屋に白熱電球等を用いて、室温の低下を防いだ。

大気の自動測定においては、採取するガス流量の変動が誤差の最も大きい因子となるので、流量をできるだけ所定の値に保つため、測定期間中は、毎日連続して測定器の点検を行った。又、風の観測は、測定小屋に近いビル、学校等の屋上で実施した。

これらの測定により得られたデータは、電子計算機により処理し解析した。

表-1 調査に用いたザルツマン自動計測器及び  
風向風速計

機 種	機器製造メーカー型式	台 数
NOx 計	柳本TGA-200型	3
NOx 計	紀本MODEL-214型	1
NOx 計	紀本MODEL-212型	2
NOx 計	電気化学DKK-1型	1
風向風速計	小笠原製作所型	1

## 3. 調査結果及び考察

### 3-1 測定期間中の気象条件

昭和52年12月は、顕著な西高東低の冬型の気圧配置とはならず、むしろ東シナ海からの移動性高気圧におおわれ、時には、これが東西の帯状に広がって秋のような気圧配置となった。このため、初めに一時寒さが厳しかったほかは暖かな12月下旬となった。翌年1月には、南岸沖の低気圧に寒気が吹きこみ、雨や大雪が降って真冬の寒さになった。1月の後半になると、低気圧が周期的に北進したため、寒い不順な天気が続いた(7)。

図-3、図-4は、両測定場所における測定期間中の風配図である。これらの風配図より、風向は北から西までが大部分を占めていることがわかるが、対象道

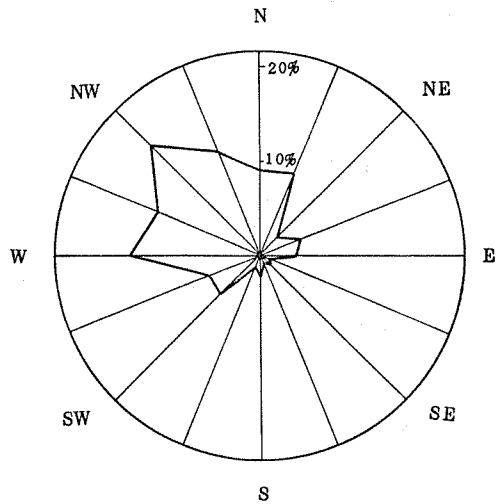


図-3 風配図(横浜市三ツ沢)

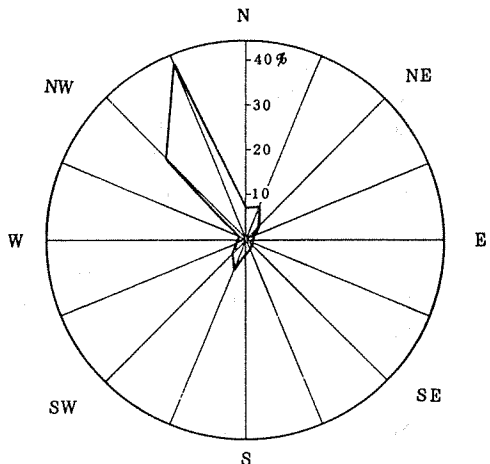


図-4 風配図(川崎市貝塚)

路がいずれもほぼ東から西に通過していることを考えると、測定場所は両方とも90%近くが風下となり、対象道路からの汚染をまともに受けている。又、日中は、東京湾からの海風が5%~10%吹き込んでいた。測定期間中の平均風速は、川崎2.2 m/s、横浜1.8 m/sとやや川崎の測定点が高い値であった。両者の時刻別の風速の傾向として、午後から夕方にかけて強くなり、夜半から明方に弱くなるパターンとなっていた。

### 3-2 NOxの測定結果

表-2、表-3は、両測定場所における測定結果である。測定日数の違いにより測定個数が800~900と異なっているが、測定期間中の欠測はほとんどなかった。この表-2、3から次のようなことがわかる。

ア. 歩道端でのNOx濃度(横浜市No.1、川崎市No.3)は、平均値、最大、最小とも、両市でほぼ類似した値であった。

イ. 道路から等距離の地点では、NO、NO<sub>2</sub>とも川

表-2 窒素酸化物測定結果

(昭和53年1月8日~昭和53年2月15日)

横浜市神奈川区三ツ沢周辺

	N	AVE	MAX	MIN	SD
1. NO (ppb)					
No. 1	920	187	769	1	137
No. 2	950	92	545	1	90
No. 3	948	77	435	3	80
No. 4	932	67	483	1	82
No. 5	905	60	487	1	75
No. 6	917	41	427	1	59
2. NO <sub>2</sub> (ppb)					
No. 1	923	58	152	8	20
No. 2	950	38	131	4	15
No. 3	949	43	132	5	17
No. 4	935	35	108	3	15
No. 5	907	33	106	5	13
No. 6	930	35	146	2	22
3. NOx (ppb)					
No. 1	920	245	841	17	145
No. 2	950	130	600	5	97
No. 3	948	119	515	8	89
No. 4	932	102	540	4	89
No. 5	905	93	536	6	81
No. 6	917	76	504	3	73

(注) Nは試料数、AVEは平均値、MAXは最高値、MINは最低値、SDは標準偏差をあらわす。

表-3 窒素酸化物測定結果

(昭和52年12月1日~昭和53年1月6日)

川崎市川崎区貝塚周辺

	N	AVE	MAX	MIN	SD
1. NO (ppb)					
No. 1	829	142	613	5	99
No. 2	838	195	715	6	122
No. 3	825	163	542	10	105
No. 4	831	98	497	4	83
No. 5	781	89	490	3	83
No. 6	817	78	466	3	71
No. 7	795	82	495	1	81
2. NO <sub>2</sub> (ppb)					
No. 1	852	53	207	10	23
No. 2	814	65	231	12	32
No. 3	826	62	208	10	29
No. 4	848	46	153	9	20
No. 5	789	46	163	7	23
No. 6	853	42	155	6	21
No. 7	808	48	184	8	25
3. NOx (ppb)					
No. 1	829	195	709	15	115
No. 2	837	260	880	18	147
No. 3	824	224	732	21	127
No. 4	831	145	627	13	95
No. 5	781	135	596	10	98
No. 6	847	120	587	10	87
No. 7	795	130	644	11	101

(注) Nは試料数、AVEは平均値、MAXは最高値、MINは最低値、SDは標準偏差をあらわす。

崎市の値が高い。

ウ. NO<sub>2</sub>の新環境基準値との比較

車道から3~4 m離れた歩道では、NO<sub>2</sub>の日平均値40ppb、60ppbを超えている割合が両者とも、それぞれ92~95%、40~44%となっていた。

(注:新環境基準の適用除外地は、工業専用地域、車道他、一般公衆が通常生活していない地域又は場所としている。)

### 3-3 道路からのNOxの距離減衰

図-5、図-6より両者ともNO、NO<sub>2</sub>、NOxの減衰のパターンが類似している。

NOはNO<sub>2</sub>に比べて減衰が大きく、特に、30~40 m付近までの減衰が著しい。これは、昭和51年度に実施した横浜市新山下地区の調査結果と一致している。

バックグラウンド濃度の低い住居地域の横浜市三ツ

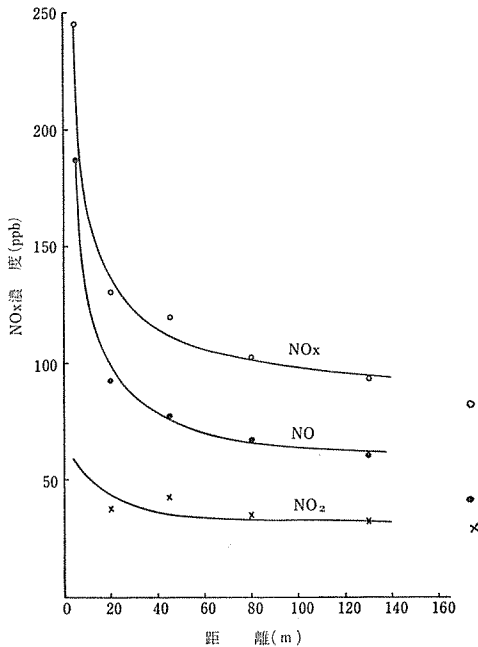
沢では  $\text{NO}_2$  が 60m 付近で減衰が見られなくなっているのに比べて、 $\text{NO}$  は、最遠地点 (No. 5 地点) の 130m まで減衰が認められる。

横浜の最遠地点とバックグラウンド濃度を比較すると  $\text{NO}_2$  は変わらないが  $\text{NO}$  では、バックグラウンド濃度が、さらに低くなっており、減衰が続いていると考えられる。

商業地域の川崎市貝塚においても  $\text{NO}$ 、 $\text{NO}_2$  とも横浜と同程度の距離まで減衰が見られるが、最遠地点 (No. 7 地点) では逆に  $\text{NO}$ 、 $\text{NO}_2$  とも濃度が上昇している。この原因として、この付近にある交通量の少ない他の道路等の影響と考えられる。

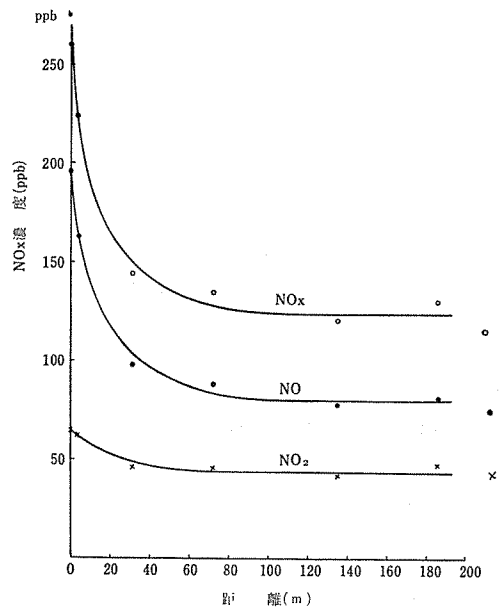
又、本調査と同様の調査例として小林等<sup>8)</sup>により周囲が田園地域の場合の事例があるが、その結果として、道路近傍での減衰の状況は本調査と類似しており、30m 付近までの減衰が著しい。又、バックグラウンド濃度が 10ppb と非常に低いため、その濃度に等しい地点付近まで減衰が続いている。

図一五、六からもわかるように、道路端では両市とも濃度が変らないが、ある程度の距離を越えると一定の濃度に達し、それ以上減衰がみられなくなる。一定になる濃度レベルは、それぞれの地域のバックグラウンド濃度に関係している。特に、 $\text{NO}_2$  ではバックグラウンド濃度の影響が道路からの  $\text{NO}_2$  と比べて相対



図一五 道路端からの窒素酸化物の距離減衰 (横浜市三ツ沢)

(注) 曲線より離れている印はバックグラウンド測定点



図一六 道路端からの窒素酸化物の距離減衰 (川崎市貝塚)

(注) 曲線より離れている印はバックグラウンド測定点

的に高く、道路からの減衰の認められる距離が短くなっている。

### 3-4 風向、風速別による距離減衰

風向別に分類する場合は 16 方位で比較するのがもっとも普通に使われるが、先に示した風配図にみられるように北方向を中心に風向が偏って集中しており、16 方位では、データ数から比較できない。

このため、主風向が道路と直角に交わる横浜では北方向、川崎では北北西の方位を中心軸として図一七のように風向別に 5 段階に分類した。

図一八～図一十一は、両市測定場所における風向別に分類した  $\text{NO}$ 、 $\text{NO}_2$  の距離減衰である。

又、この風向、風速の分類の中では、0.3m/s 以下の風速は、静穏として、考察の対象から除いてある。

川崎に比べて横浜では、風向別の濃度差が明確に表われている。この原因として、横浜では、先の風配図のように川崎に比べて方向が広い範囲にわたっていることが考えられる。

両市における共通な特徴として、道路に対して直角的な風の時、各測定点とも最も低い値を示しており、又、道路に対して平行方向に吹く風になるほど、最遠地点まで、濃度が高くなる傾向がみられた。

Calder<sup>9)</sup> は、道路から一定距離に離れた地域における汚染物質濃度について風向別に拡散式を用いて計

算し、斜めの風の場合、道路に平行になるほど汚染物質の濃度が上昇するが、その上昇する割合は、あまりないと予測している。

また、中村<sup>10)</sup>によれば、東名高速道路における調査において、風向の違いによって距離減衰のパターンはかなり類似していると報告している。これらの報告と本調査の結果とはある程度一致している。図-10及び図-11に示すように NO<sub>2</sub> は、前に述べた NO の結果と比べて風向別の濃度差が、さらに少なくなっている。しかしながら、この理由としては、先に述べたように、この地域のバックグラウンド濃度が大きく寄与しているためと推定される。

図-12および図-13に NO<sub>x</sub> の風速別の距離減衰を示した。

風速が 1 m/s 未満の時には、全測定点で顕著に高濃度となっており、風速が汚染物質の濃度に与える影

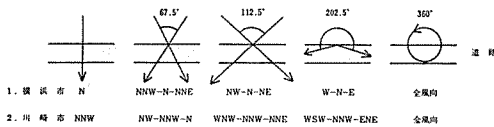


図-7 風向別の分類方法

(注) 道路と直角に交わる風向を中心に、左右へ角度を増やして、5 種に分類してある。

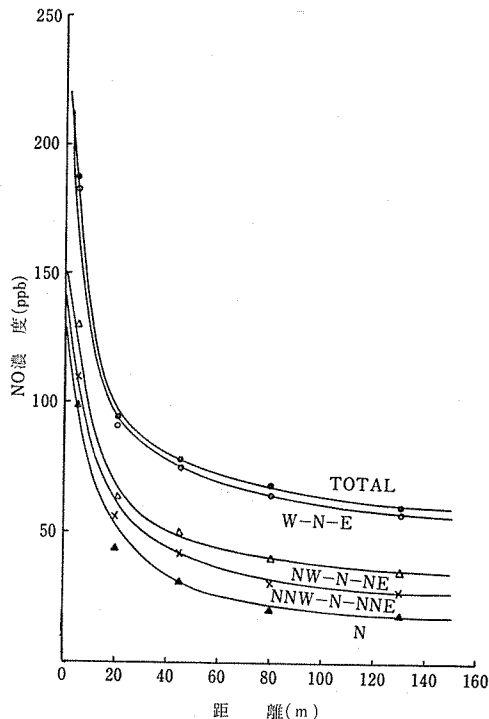


図-8 風向別 NO 距離減衰 (横浜市三ツ沢)

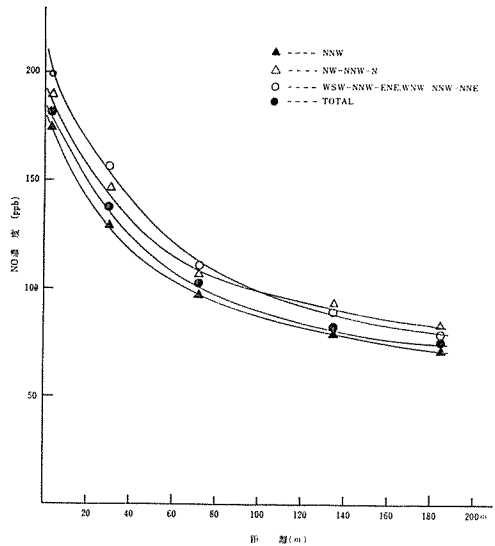


図-9 風向別 NO 距離減衰 (川崎市貝塚)

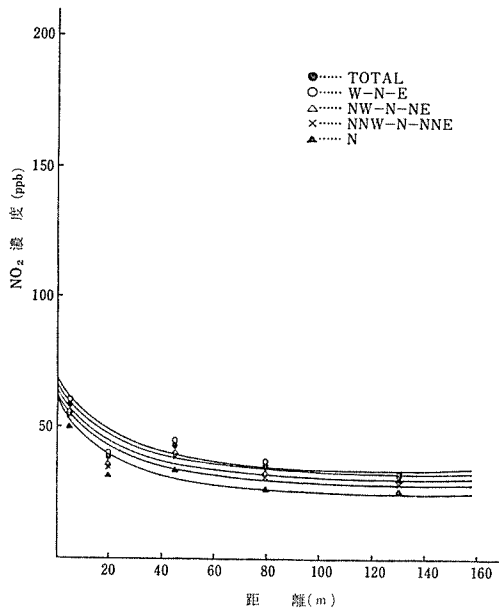


図-10 風向別 NO<sub>2</sub> 距離減衰 (横浜市三ツ沢)

響がはっきりとわかる。

1 m/s未満のときの濃度は、3~5 m/s, 5 m/s以上の風速における濃度の、それぞれ、3~5倍、5~8倍もの高い値となっている。

1 m/s未満の微風においては、NOxは拡散されにくくなり、商業地域では、対象道路による汚染ばかりでなく、その他の道路、暖房等の他の発生源による寄与も相加するため、地域全体がなおよ層高濃度に汚染されるものと推定される。

このため、川崎では、最遠地点でも200ppbに近い濃度となり70m付近で減衰が見られなくなっていた。

これに対して、住居地域では、他の風速と比較してかなりの高濃度であるが、付近に発生源がないため、明確に減衰が見られた。

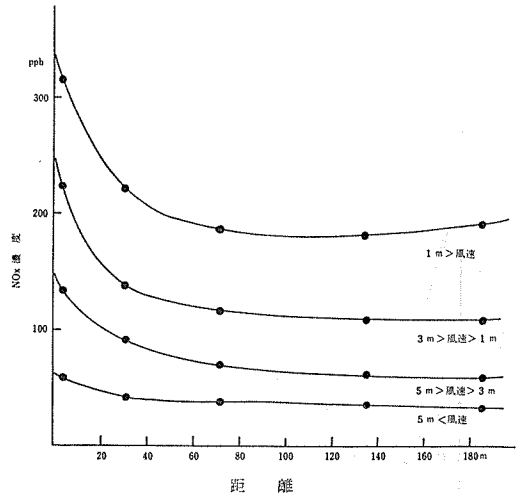


図-13 風速別 NOx 濃度 (川崎市貝塚)

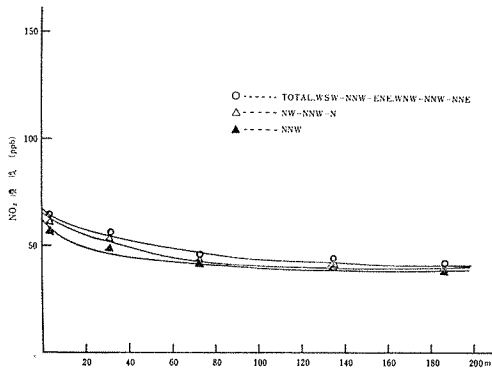


図-11 風向別 NO<sub>2</sub> 距離減衰 (川崎市貝塚)

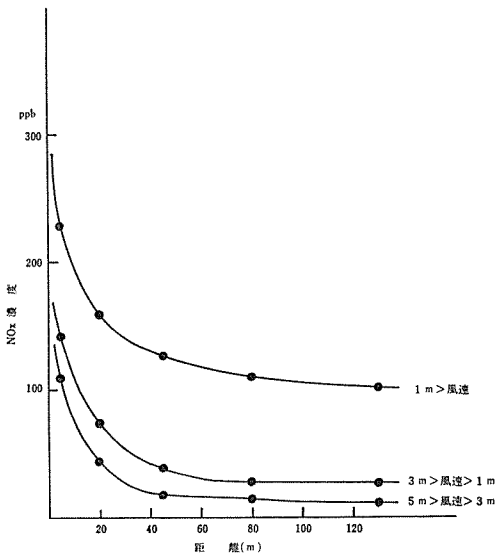


図-12 風速別 NOx 濃度 (横浜市三ツ沢)

5 m/s以上の風速においては、減衰は30m程度で見られなくなっており、又、車道から3~4m離れた歩道においては、風速により、かなりの濃度差を示していた。

米山ら<sup>14)</sup>は、道路周辺における NOx 汚染の予測について、濃度を支配するもっとも大きな因子は、距離、風速であることを指摘しているが、本調査の結果においても、この指摘と一致しているといえよう。

### 3-5 時刻別 NOx の濃度変化

図-14~図-17は、NO 及び NO<sub>2</sub> の時刻変化を示した。あわせて、図中には測定場所に最も近い、常時一般環境大気測定点における値を比較のため示してある。

各測定点ともほぼ同様な変化を示し、道路から離れるにしたがって、濃度が低くなっている。各時刻とも道路端では最も高く、他の地点とかなりの濃度差がある。

NO<sub>2</sub> は、日中に高く一山型に近い時刻変化を示すが、一方、NO は朝と夜半に高くなる二山型を示している。この変化の傾向は、一般の都市における冬期の NOx の濃度変動パターンと一致している。NO の朝のピークは、すべての測定点で同一時間帯となっているが、これは、他の道路も含めて、自動車の走行が多くなる時間帯と一致しており、自動車排気ガスによるものが大きな要因となっているものと考えられる。

更に、夜半、再び濃度の上昇が見られるが、その時間帯には自動車の走行台数は減少していることから考えると冬期に起きやすい接地逆転層などの気象条件によるところが大きいと考えられる。

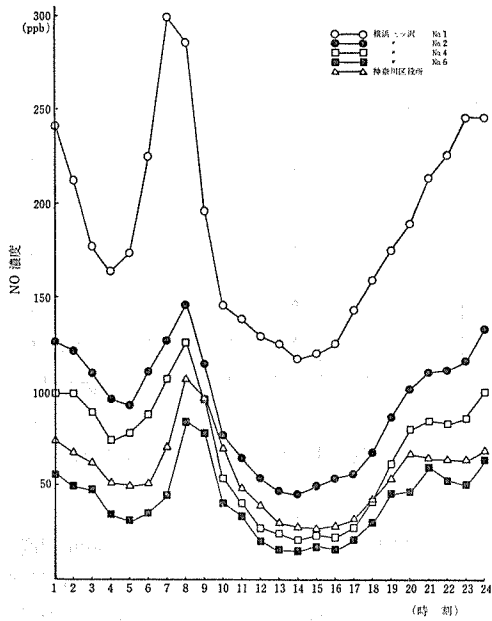


図-14 NOの測定点別経時変化(横浜市三ツ沢)

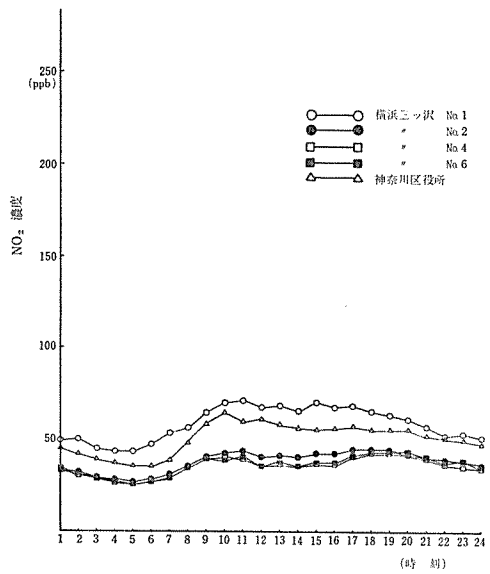


図-16 NO<sub>2</sub>の測定点別経時変化(横浜市三ツ沢)

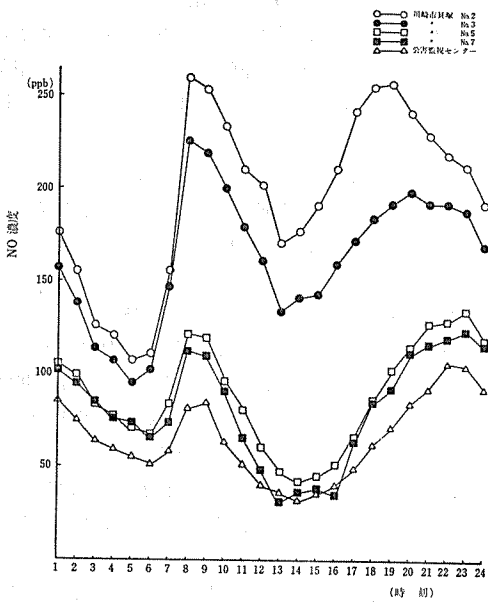


図-15 NOの測定点別経時変化(川崎市貝塚)

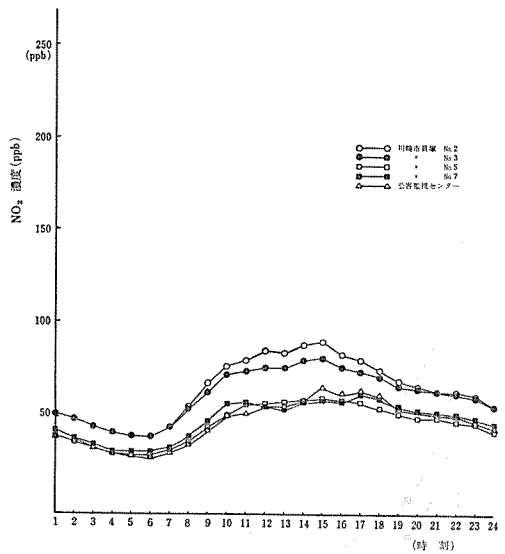


図-17 NO<sub>2</sub>の測定点別経時変化(川崎市貝塚)

#### 4. まとめ

本調査は、バックグラウンド濃度の異なる商業地域および住居地域において、そこを通る幹線道路を対象に NO<sub>x</sub> の汚染影響について調べたものである。

調査に先立ち、使用するザルツマン式 NO<sub>x</sub> 自動測定器を十分に調整し、器差を2%以内におさめた。調査により得られた主要な結果は次のとおりである。

- ア. 交通量、地形等が異っていても車道から3~4m離れた歩道付近では NO、NO<sub>2</sub>ともあまり差がないが、道路から離れると商業地域の値が全般に高い。
- イ. 新環境基準と比較したとき、基準値が適用される歩道では、両地域において、NO<sub>2</sub>の1時間値の日平均値が40ppbを超える割合は92~95%、60ppbを超える割合は、40~44%となっていた。
- ウ. NOの濃度はNO<sub>2</sub>の濃度に比べて歩道付近では3倍程度の濃度を示した。
- エ. NOの濃度はNO<sub>2</sub>の濃度に比べて減衰が大きく、特に、30~40m付近までの減衰が著しい。
- オ. NO<sub>2</sub>に比べてNOは、減衰が遠距離まで続いているが、減衰の見られなくなる濃度は、バックグラウンド濃度によるところが大きい。
- カ. 風向別に減衰を比較すると対象道路に対して直角な角度の風よりも、斜めからの風の場合に道路から離れた地点においても濃度が上昇する傾向が認められた。
- キ. 減衰に影響する因子としては、風向よりも風速がはるかに大きい。
- ク. 都市における局地的な汚染は、その地域を通る交通量の多い道路の影響が大きい。

以上のことから市街地を通る幹線道路から発生するNO<sub>x</sub>の挙動について、ある程度把握できたものと思われる。

両市の測定場所は地形、一般環境大気、交通量等も異っているが、解析の結果として、かなり共通点のあることが判明した。

この結果をもって、市街地の道路にすべて適用できるとは考えられぬが、道路近傍の汚染については、ある程度の推定が可能といえよう。

#### 5. おわりに

両市の調査場所は、いずれも車道端から3~4m離れた歩道際に住居が密集しており、都市の平均的な地域である。

都市における公害の発生源は、道路問題を抜きにし

ては考えられないが、未だに、道路を対象とした科学的な人体影響調査の手法が確立されておらず、その因果関係は不明のままである。

なお、今後は被害に関する研究と同時にその対策に重点が移って行くことが緊急の課題であるといえよう。

この研究は、昭和52年度環境庁委託業務(窒素酸化物の濃度分布)として実施したものである。

#### 参考文献

- 1) 環境庁大気保全局：乗用車に係わる53年度制の必要性について、pp.10 (1976).
- 2) 吉田克己：二酸化窒素環境基準問題をめぐって。ジュリスト、673、38-46 (1978).
- 3) 中村 貢他：道路周辺地域への自動車排出ガス影響調査(中区新山下地域)、横浜市公害研究所報第2号、7~35 (1977).
- 4) 鈴木正雄他：自動車排気ガスによる道路周辺での大気汚染に関する研究、横浜市公害研究所報第3号、14~23 (1978).
- 5) 横浜市都市整備局：昭和52年度交通量調査報告書。
- 6) 日本気象協会：神奈川県気象月報、昭和52年12月号、1 (1977).
- 7) 日本気象協会：神奈川県気象月報、昭和52年12月号、1 (1978).
- 8) 小林以策：トレーサガスによる拡散実験方法(道路)について、第18回大気汚染研究全国協議会大会講演要旨集、408 (1977).
- 9) K. L. Calder: On Estimating Air Pollution Concentration From A Highway In An Oblique Wind. *Atmospheric Environment*, 7, 863-868 (1973).
- 10) 中村 真：高速道路大気質長期定点の概要、公害と対策、14、991-999 (1978).
- 11) 米山悦夫、中村 貢：道路周辺地域の窒素酸化物濃度とその予測、第19回大気汚染学会講演要旨集、432 (1978).



## Ⅱ 自動車排気ガスによる道路周辺での 大気汚染に関する研究 (第3報)

### —横浜市三ツ沢地区(国道1号線)における ガス状物質、浮遊粉じん等の濃度分布調査—

A Study on Air Pollution caused by Automobile  
Exhaust Gas in Areas along a Road (Rep. 3)

### — Concentration of Gases and Suspended Particulates in Mitsuzawa Area along Rout 1 in Yokohama City —

鈴木 正雄\*, 中村 貢\*, 米山 悦夫\*  
平野耕一郎\*, 沖津 正樹\*, 太田 正雄\*

#### 要 旨

昭和53年1月初旬から2月中旬までの40日間、横浜市神奈川区三ツ沢の国道1号線周辺において、大気汚染物質の測定を行ない、道路近傍における汚染物質の水平方向の距離減衰を調査した。ガス状物質の経時変化は、窒素酸化物と一酸化炭素とはよく似ており、それらと二酸化硫黄とは異なっていた。また、これらのガス状物質はいずれも道路端で最も濃度が高く、道路から離れるにしたがって減少した。浮遊粉じんとそれに含まれる重金属、陰イオン、ベンゾ(a)ピレンは、濃度の距離による減衰が著しいもの、ほとんどみられないものなど多様であった。減衰のみられる浮遊粉じん等はガス状物質と異なり、道路から20m付近までの減衰が著しく、それ以上離れると減衰がみられなかった。

#### 1. はじめに

移動発生源からは様々の汚染物質が排出されており、これらがどのように拡散していくかは興味ある問題である。最近、道路周辺において、各種の汚染物質の測定が行なわれており<sup>1)~9)</sup>、水平方向および垂直方向の拡散が次第に明らかになりつつある。本研究所では昭和51年12月、横浜市中区新山下地区で汚染物質の水平方向の距離減衰を調査し、前号で報告<sup>10)</sup>した。道路周辺の汚染物質の拡散は、地形等周辺の状況により大きな影響を受け、地域によって異なることが予想される。そこで昭和53年1月から2月にかけて、横浜市神奈川区三ツ沢の国道1号線を対象として、新山下地区と同様に、道路から排出されている汚染物質を多項目にわたり調査し、新たな知見を得たので報告する。

なお、結果の一部については新山下地区での結果とも比較検討した。

#### 2. 調査方法

2-1 調査場所：横浜市神奈川区三ツ沢中町付近  
調査場所および測定地点は第2報<sup>11)</sup>と同一である。  
図-1は測定地点の概略であり、地点1から地点6で汚染物質の測定を行なった。

#### 2-2 調査項目および調査期間

調査項目は窒素酸化物(NO, NO<sub>2</sub>)、二酸化硫黄(SO<sub>2</sub>)、一酸化炭素(CO)、浮遊粉じん、浮遊粉じん中の重金属、陰イオン、ベンゾ(a)ピレン、風向風速、自動車通行台数である。

調査期間は昭和53年1月7日から2月16日までであるが、すべての期間にわたって測定したものはNOx

\* 横浜市公害研究所大気部門

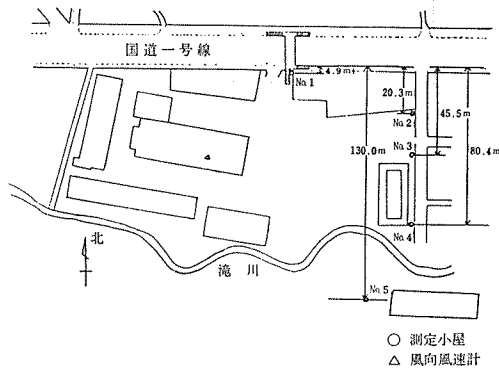


図-1 調査場所

(注) 道路の北側300mの地点に、地点No.6を設けた。

のみで、他の項目については一部の期間、測定を行なった。

測定方法と測定期間は次のとおりである。

(1) 窒素酸化物

測定期間：昭和53年1月7日～2月16日

測定方法：ザルツマン式窒素酸化物自動測定機（紀本電子製）

(2) 二氧化硫黄

測定期間：昭和53年1月19日～2月16日

測定方法：溶液導電率法による高感度型自動測定機（紀本電子製）

(3) 一酸化炭素

測定期間：昭和53年1月19日～1月24日

測定方法：8時から20時までの12時間、1時間ごとにマイラーバッグに採取した大気を非分散型赤外式一酸化炭素分析計（柳本製作所製）で分析した。

(4) 浮遊粉じん

測定期間：昭和53年1月17日～1月24日

測定方法：ハイポリウムエアサンプラー（紀本電子製、10μカットなし）にガラス繊維ろ紙（Gelman-AE）を装着し、8時から20時まで、及び20時から翌日8時までの1日2回、浮遊粉じんの採取を行なった。

採取した浮遊粉じんについて、重金属、陰イオン、ベンゾ(a)ピレンの化学分析を行なった。

(5) 重金属

分析方法：浮遊粉じん試料の一部を分取し、硝酸過酸化水素溶液で重金属を加熱溶出し、溶出液を水浴上乾固後希硝酸で再溶解して試料溶液とした。バナジウムは N-ベンゾイル-N-フェニルヒドロキシルアミン比色法により、鉛、カドミウム、マンガンおよび鉄は直接、原子吸光光度法により定量した。

(6) 陰イオン

分析方法：浮遊粉じん試料の一部に水を加え、水溶性陰イオンを溶出させ試験溶液とした。硫酸イオンは試験溶液をイオン交換樹脂により金属イオン除去後アルセナゾⅢ法で、硝酸イオンはキシレノール法で、塩素イオンはチオン酸第二水銀法で定量した。

(7) ベンゾ(a)ピレン

分析方法：浮遊粉じんの一部を二層一次元の薄層で無限展開し、ベンゾ(a)ピレン(BaP)が存在する部分をかき取ったのち、螢光分光光度計によるナローベースライン法で定量した。

(8) 風向風速

測定期間：昭和53年1月7日～2月16日

測定方法：汚染物質の測定地点に近い小学校の屋上（高さ約15m）に風向風速計（海上電気製）を設置し測定した。

(9) 自動車通行台数

測定期間：昭和53年1月17日8時から18日8時まで、および20日8時から21日8時までの2回、計2日間。

測定方法：30分おきに15分間、上下線両方向の自動車通行台数を大型車、小型車に分けて数えた。30分ごとに15分間数えたものを合計し2倍したものを1時間当りの通行台数とした。

なお、調査に使用した測定機器のうち、窒素酸化物と二氧化硫黄の自動測定機は事前に動的校正を行ない、また、ハイポリウムエアサンプラーは標準オリフ

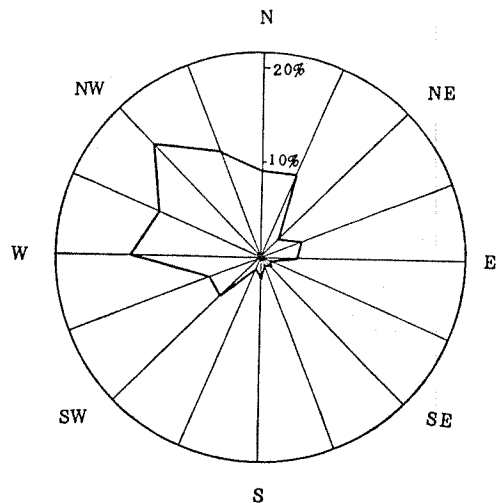


図-2 風配図

イスにより流量計の較正を行なった。

また、一酸化炭素、浮遊粉じんとその成分については、測定期間中の一時期、天候悪化のため欠測した。

### 3. 結果および考察

#### 3-1 調査期間中の風向風速

調査期間中の風配図を図一2に示す。風向は北西が全体の17%を占め、最も多く、西から北までの風が77%を占めた。測定地点は道路から直角に南へ向って設けたので、道路から測定地点に対して斜めに吹く風が多い。

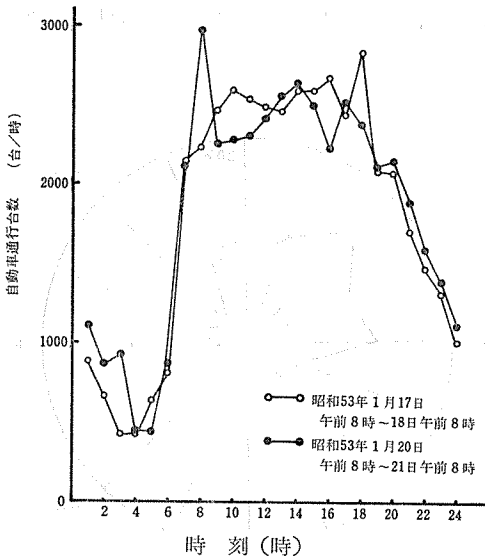
なお、調査期間中の平均風速は1.8m/sであった。

#### 3-2 自動車通行台数

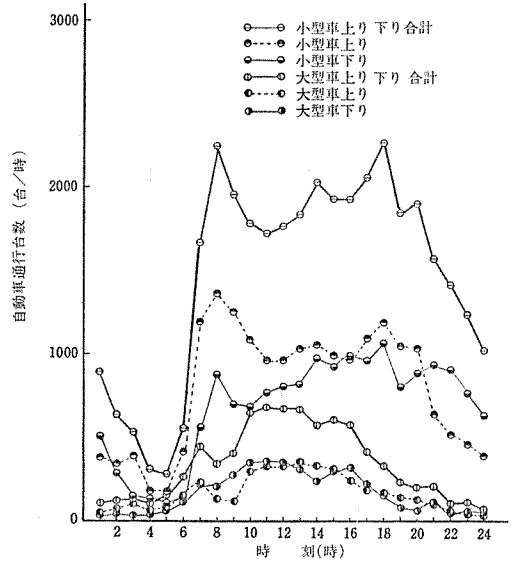
自動車通行台数は、上下線を合計するとそれぞれ1回目は43,380台/日、2回目は44,295台/日とほとんどかわらなかった。また、横浜市都市整備局の交通量調査によれば約40,000台/日であり、平日では常時40,000台/日程度の通行台数があるものと思われる。

図一3は1回目と2回目の自動車通行台数を経時的に示したものである。1時間当りの通行台数も1回目と2回目ではほとんどかわらない。

図一4は上り、下りの方向別に大型車と小型車別の通行台数(1回目と2回目の平均)を経時的に示したものである。大型車の混入率は一日平均で19.0%であるが、これを各時間ごとにみると大きく変化している。たとえば5時は混入率が36.2%と最も高く、22時



図一3 自動車通行台数の経時変化  
(横浜市神奈川区三ツ沢国道1号線)



図一4 車種別通行台数  
(横浜市神奈川区三ツ沢国道1号線)

は6.9%と最も低い。大型車は10時から16時までに多く、22時から4時までは少ない。一方、小型車は8時と18時に多く、0時でも時間当たり1,000台以上の通行があり、これはピーク時の約半分である。大型車は各時間で上下線別の通行台数に差はないが、小型車は午前中に上りが多く、下りは午後が多い。

#### 3-3 ガス状物質の測定結果

表一はNO、NO<sub>2</sub>、SO<sub>2</sub>およびCOの測定結果である。

NO、NO<sub>2</sub>、SO<sub>2</sub>、COはいずれも道路端(地点1)で最も濃度が高く、道路から離れるにしたがって減少している。

NO<sub>2</sub>の1時間値の日平均を新環境基準値(日平均40~60ppb)と比較すると、道路端の歩道ぎわの地点1では40ppb、60ppbを超えている日数はそれぞれ調査期間の95%、45%となっていた。

SO<sub>2</sub>では、環境基準値(日平均40ppb)を超えている日数は、地点1で1日のみ(43ppb)であった。しかしこの調査で使用した高感度型のSO<sub>2</sub>計は従来型と比べ冬期で5~7ppb低めになるといわれており<sup>12)</sup>、従来型に換算すると環境基準を超える日が地点1で測定期間中4日程度(14%)はあったものと思われる。SO<sub>2</sub>はディーゼルエンジン車から排出されており<sup>13)</sup>、最近ディーゼルエンジンの乗用車が増える傾向にあるので今後SO<sub>2</sub>が道路周辺で増加するおそれもある。

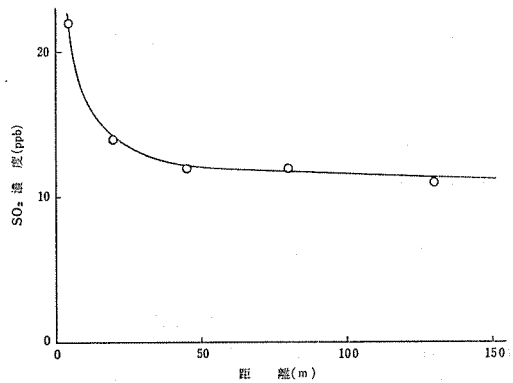
COは1日のうち12時間しか測定していないので環境基準の日平均値(5ppm)との比較はできないが、

表一 ガス状物質の濃度（横浜市神奈川区三ツ沢）

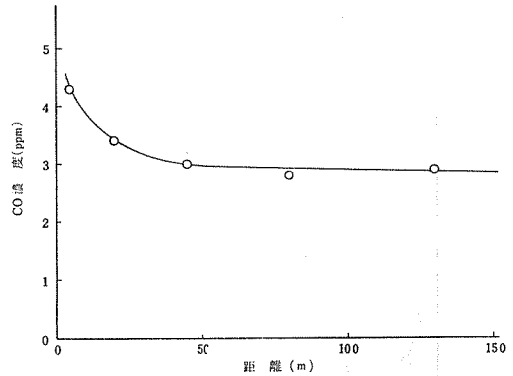
			平均	最大	最小
1	NO (ppb)	地点1	187	769	1
		地点2	92	545	1
		地点3	77	435	3
		地点4	67	483	1
		地点5	60	487	1
		地点6	41	427	1
2	NO <sub>2</sub> (ppb)	地点1	58	152	8
		地点2	38	131	4
		地点3	43	132	5
		地点4	35	108	3
		地点5	33	106	5
		地点6	35	146	2
3	NO <sub>x</sub> (ppb)	地点1	245	841	17
		地点2	130	600	5
		地点3	119	515	8
		地点4	102	540	4
		地点5	93	536	6
		地点6	76	504	3
4	SO <sub>2</sub> (ppb)	地点1	22	89	3
		地点2	14	70	2
		地点3	12	68	1
		地点4	12	63	2
		地点5	11	57	1
		地点6	10	60	1
5	CO (ppm)	地点1	4.3	12.3	1.3
		地点2	3.4	11.8	1.0
		地点3	3.0	11.5	1.0
		地点4	2.8	10.5	1.0
		地点5	2.9	9.0	1.0
		地点6	—	—	—

測定値から単純に計算した8時間平均値では環境基準の8時間値(20ppm)をすべての地点で満足していた。COの測定時間帯は自動車通過台数が多いので、車の少ない夜間を入れた日平均値ではさらに低い値となり、環境基準の日平均値を下回るとと思われる。

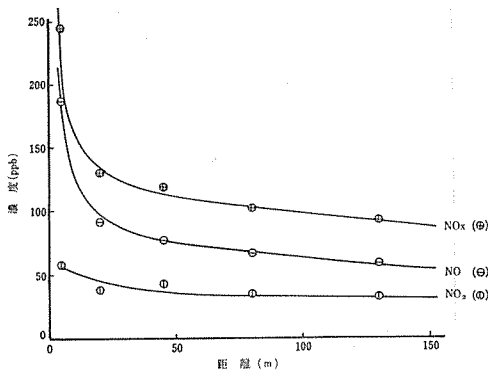
図一5～図一7は測定期間中のNO<sub>x</sub>, SO<sub>2</sub>, COの平



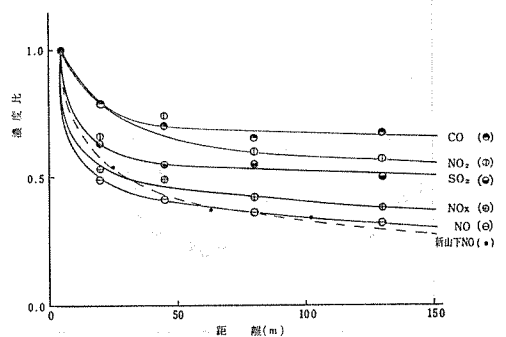
図一6 SO<sub>2</sub>の距離減衰（横浜市神奈川区三ツ沢）



図一7 COの距離減衰（横浜市神奈川区三ツ沢）



図一5 NO<sub>x</sub>の距離減衰（横浜市神奈川区三ツ沢）



図一8 ガス状物質の距離減衰(比)  
(横浜市神奈川区三ツ沢)

均濃度と道路からの距離の関係を示したものである。また、図-8は地点2から地点5の値を地点1に対する比で表わし、距離について示したものである。各ガス状物質とも40m付近まで急激に減衰しており、特にNOの減衰が著しく、新山下での減衰と類似していることがわかる。NO、SO<sub>2</sub>は100mをすぎても徐々に減衰を示しているのに対し、COの減衰はほとんどない。このことから、COの道路から一般環境への寄与はNO<sub>x</sub>より小さいと思われる。またSO<sub>2</sub>も道路からの影響は小さいが、バックグラウンドの濃度が低いため、遠くまで減衰がみられると思われる。

なお、NO<sub>x</sub>の詳細は第2報<sup>1)</sup>を参照されたい。

### 3-4 ガス状物質の経時変化

自動車の通行台数が増加すれば、自動車の排気ガス量も比例して増加し、自動車の通行台数と汚染物質の量は密接な関係にある。そこで1時から24時までの1時間ごとの測定値について測定期間中の平均値を求め自動車通行台数と同様に図示し経時変化を調べた。図-9はNO<sub>x</sub>、図-10はSO<sub>2</sub>、図-11はCOの経時変化を示したものである。

NO<sub>x</sub>は早朝7時から8時までと夜間の濃度が高く、4時から5時と日中の12時から16時までは低い。この

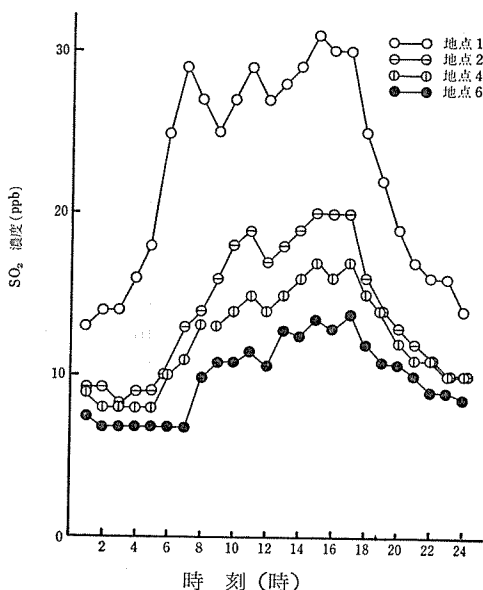


図-10 SO<sub>2</sub>の経時変化 (横浜市神奈川区三ツ沢)

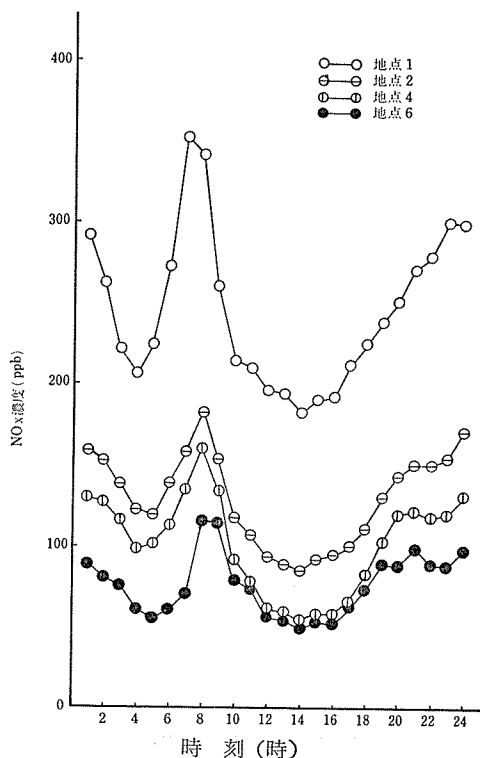


図-9 NO<sub>x</sub>の経時変化 (横浜市神奈川区三ツ沢)

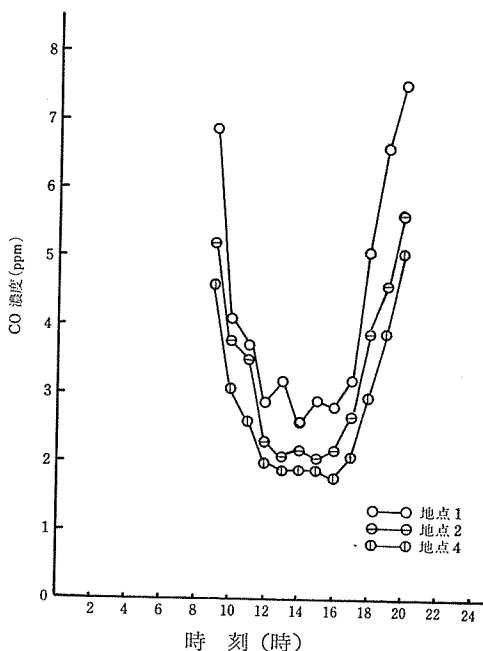


図-11 COの経時変化 (横浜市神奈川区三ツ沢)

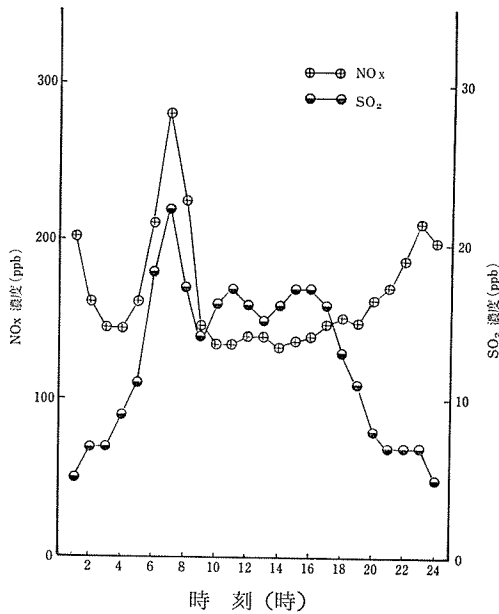


図-12 NOx と SO<sub>2</sub> の地点1と地点6の濃度差  
(横浜市神奈川区三ツ沢)

増減のパターンは冬期に横浜市内でみられる一般的な経時変化のパターンと類似している。SO<sub>2</sub>は7時から18時までの濃度が高い。NOxは昼間に濃度が最も低くなっているのに対しSO<sub>2</sub>は昼間に濃度が高く、NOxとSO<sub>2</sub>では濃度の経時変化のパターンが異なっている。COは、8時から20時までの測定であるが、12時から16時までの濃度が低くなっており、NOxのパターンと類似している。

図-12のようにバックグラウンドと考えられる地点6と道路端の地点1の濃度差を道路からの汚染によるものと仮定すれば次のことが考えられる。NOxは朝の渋滞時の7時から8時に道路からの影響が最も大きくなる。夜間では、大気が安定となり拡散されにくくなることや付近の民家の暖房等の影響により、交通量が減少してもその地域全体の濃度が上昇すると考えられる。また、SO<sub>2</sub>は朝と日中はNOxと同様の変化を示し、夜間はNOxと異った変化をしている。この原因としてSO<sub>2</sub>の発生源である大型車は、夜間交通量が100台/時と大幅に減少するため大気が安定となっても濃度が上昇しなかったものと考えられる。これらの考察については、今後、多角的に検討を行ない、明確

表-2 浮遊粉じん、重金属、陰イオン、ベンゾ(a)ピレン測定結果(横浜市神奈川区三ツ沢)

測定地点	Dust	Pb	Cd	Mn	Fe	V	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Cl <sup>-</sup>	BaP
地点1 (4.9)	301	0.30	0.006	0.25	7.6	0.039	18	7.5	7.6	6.4
地点2 (20.3)	166	0.25	0.005	0.16	3.7	0.025	13	7.0	7.3	5.8
地点3 (45.5)	166	0.24	0.005	0.16	3.8	0.025	13	6.8	7.4	5.7
地点4 (80.4)	144	0.22	0.005	0.14	3.0	0.023	12	6.5	6.7	4.9
地点5 (130.0)	162	0.25	0.005	0.17	3.9	0.027	13	7.3	7.4	5.2
地点6	132	0.21	0.005	0.14	2.8	0.023	12	6.6	6.4	4.6

単位 浮遊粉じん、重金属、陰イオン； $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、BaP； $\mu\text{g}/1000\text{m}^3$  ( )内は道路からの距離(m)

表-3 横浜市内浮遊粉じん、重金属、陰イオン、BaP調査結果(52年2月)

場所	Dust	Pb	Cd	Mn	Fe	V	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Cl <sup>-</sup>	BaP
鶴見	162	0.25	0.005	0.21	4.6	0.029	5.5	6.5	7.9	3.3
港北	164	0.18	0.003	0.17	4.4	0.024	4.8	5.2	5.7	2.5
中	140	0.18	0.002	0.12	3.8	0.021	4.7	5.5	5.4	2.4
保土ヶ谷	147	0.30	0.004	0.12	4.3	0.020	4.5	5.4	4.7	2.9
磯子	132	0.16	0.002	0.11	3.5	0.019	4.1	5.1	5.0	1.5
金沢	120	0.16	0.002	0.12	3.4	0.017	4.1	4.4	4.9	0.9
瀬谷	129	0.11	0.002	0.11	4.0	0.019	4.0	4.7	3.7	1.6
平均	142	0.19	0.003	0.14	4.0	0.021	4.5	5.2	5.3	2.2

単位 浮遊粉じん、重金属、陰イオン； $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、BaP； $\mu\text{g}/1000\text{m}^3$

にしたい。

3-5 浮遊粉じん, 重金属, 陰イオン, ベンゾ(a)ピレンの測定結果

表-2は浮遊粉じん, 重金属, 陰イオン, ベンゾ(a)ピレン(BaP)の測定結果である。

浮遊粉じん, 重金属, 陰イオン, BaPはいずれも道路端の地点1で最も濃度が高い。特に浮遊粉じんは

301 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 。鉄(Fe)は7.6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ と濃度が高い。またこの調査とは別に昭和53年2月に横浜市内7ヶ所で一般環境中の浮遊粉じん, 重金属, 陰イオン, BaPを調査した結果を参考のため表-3に示した。重金属は道路端の地点1を除き, 地点2から地点6まで市内7ヶ所の濃度とほとんどかわらない。陰イオン, BaPについては三ツ沢地区の方がやや高い傾向にあり, 特に硫

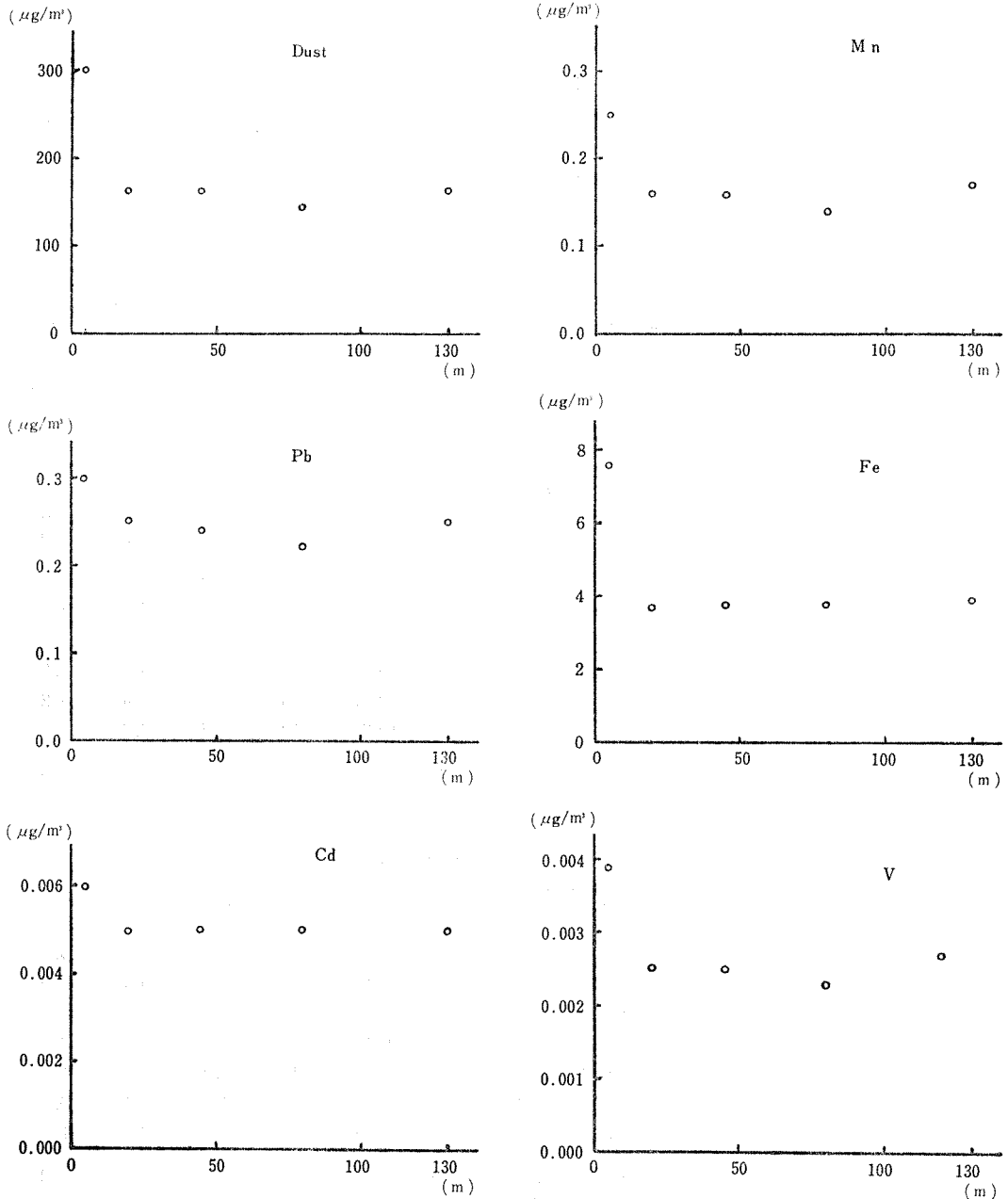


図-13 浮遊粉じん, 重金属の距離減衰(横浜市神奈川区三ツ沢)

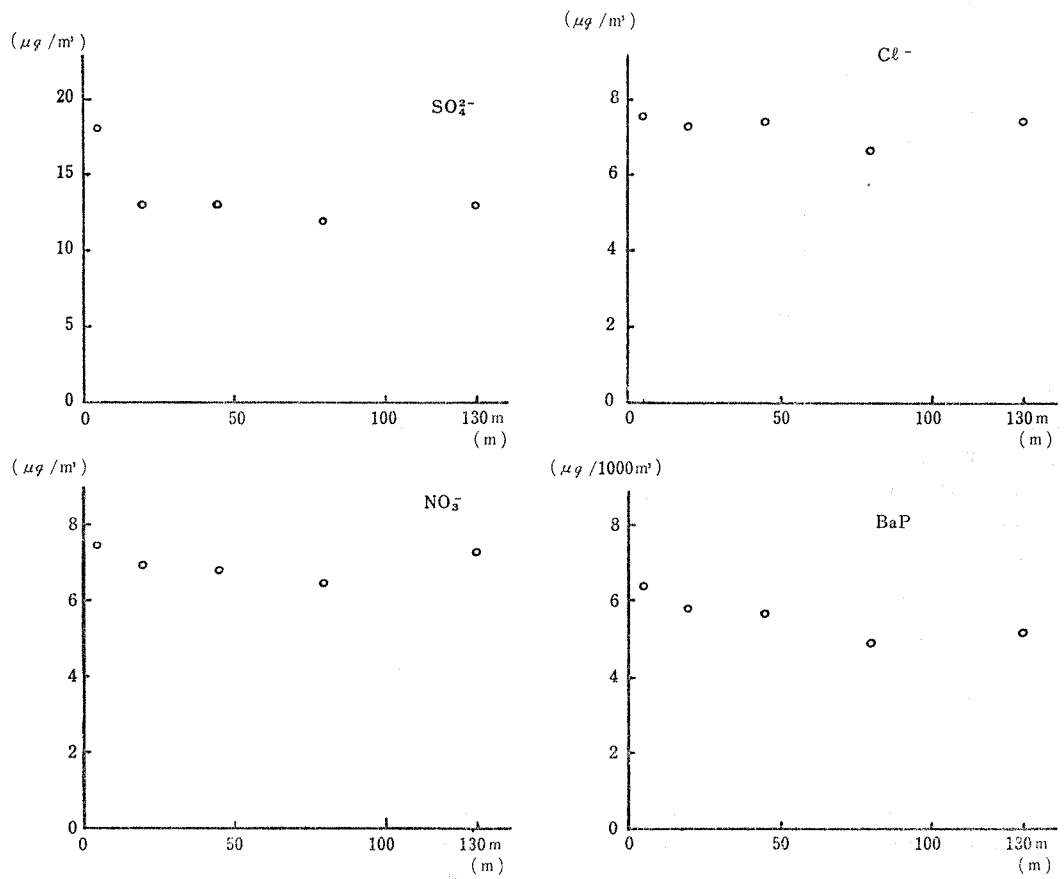


図-14 陰イオン, BaP の距離減衰 (横浜市神奈川区三ツ沢)

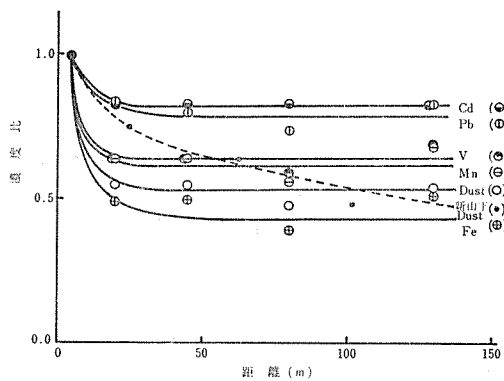


図-15 浮遊粉じん, 重金属の距離減衰 (比)  
(横浜市神奈川区三ツ沢)

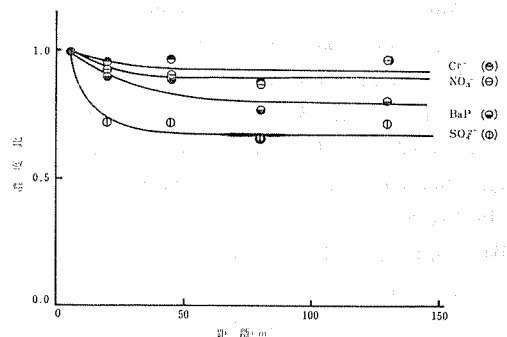


図-16 陰イオン, BaPの距離減衰 (比)  
(横浜市神奈川区三ツ沢)



酸イオン ( $\text{SO}_4^{2-}$ ) はすべての地点で  $10\mu\text{g}/\text{m}^3$  以上の濃度であった。

浮遊粉じんと重金属、陰イオン、BaPの距離による減衰は項目により異なっている。図-13は浮遊粉じんと重金属、図-14は陰イオンとBaPの期間平均濃度と道路からの距離の関係をガス状物質と同様に図示したものである。また、図-15、図-16は、地点2から地点5までの各物質の濃度を、地点1の濃度に対する比で表わし同様に図示したものである。減衰が著しいものは浮遊粉じん、マンガン(Mn)、鉄(Fe)であり、これらは地点2で急激に減衰しており、地点2から地点5までほとんど濃度はかわらない。カドミウム(Cd)、硝酸イオン( $\text{NO}_3^-$ )、塩素イオン( $\text{Cl}^-$ )は距離減衰は小さく、地点1と地点6とで濃度の差も小さいことから、Cd、 $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{Cl}^-$ は道路からの影響は非常に小さいと思われる。

ところで粒径 $10\mu\text{m}$ 、比重1の球形粒子は $10\text{m}/\text{h}$ 程度で沈降し、 $1\mu\text{m}$ 以下のものはガス状物質と似た挙動を示す<sup>14)</sup>といわれている。また、ガソリン車やディーゼル車から排出される粒子は $1\mu\text{m}$ 以下が多く、アイドリング時では $1\mu\text{m}$ 以下の粒子が全体の40%を占め、車速 $50\text{km}/\text{h}$ のガソリン車では70%、 $60\text{km}/\text{h}$ のディーゼル車では90%となる<sup>15)</sup>。したがって車の排気ガス中の粒子の多くは拡散しやすく、ガス状物質のNOと同様、地点5まで濃度減衰を示すことが推定される。しかしながら本調査の方法では浮遊粉じんの粒径別捕集をしておらず、粒径の小さい粒子の拡散は把握できないが、地点2から地点5まで浮遊粉じん濃度はあまりかわらないことから、粒径の小さな粒子は重量的に少ないと思われる。

また、広野らは東京都日比谷交差点で浮遊粉じん、Pb、Cd、Mn、Fe、BaPの粒径別の濃度を測定している<sup>5)</sup>。それによれば、Pb、Cd、BaPの粒径分布はFe、Mnのそれと異なり、粒径 $1.6\mu\text{m}$ 以下のもののしめる割合はPbが55%、Cdが71%、BaPが59%であり、Feの17%、Mnの33%と比較して粒径の小さいものの占める割合が多い。また、粒径が $18\mu\text{m}$ 以上のものはPbが9%、Cdが4%、BaPが3%、Feが43%、Mnが30%と報告している。Pb、Cd、BaPとFe、Mnで粒径分布が異なることは、本調査でPb、Cd、BaPの距離減衰が小さく、Mn、Feの距離減衰が大きいことと対応しており、何らかの関係があることが考えられる。しかしながら、それらの発生要因は、Pb、BaPが車によるものが多いという以外ははっきりせず、今後、粒径分布と距離減衰の関係は、発生要因の究明を含め、明らかにしなければならない。なお本調

査では、比較的拡散しやすいと思われるPb、BaPは重量的に少ないため、各測定点とも一般大気中のPb、BaPの占める割合が大きくなって明らかな距離減衰が見られないものと推定される。

次に、三ツ沢地区の汚染物質の距離減衰を新山下地区のそれと比較するとNOについては同様となったが(図-8)、浮遊粉じんとその成分では大きく異なっている。新山下では浮遊粉じん、Fe、Mnの濃度が道路から100m離れた測定地点でも明らかに減衰していたのに対し(図-15)、三ツ沢では道路から20m離れた地点2で減衰が終っている。これは、新山下では測定地点が対象道路から直角のびる道路上にあり、主風向も道路から測定地点へ直接吹き込む方向であったのに対し、三ツ沢では地点2と道路の間に二階建の家屋があり、粒径の大きな粒子が建て物の影響を受けやすいこと、さらに主風向が北西で道路に対し斜めの風となっており、各測定地点への拡散距離も実際は長いことなどが原因となったためと思われる。

#### 4. まとめ

- (1) 移動発生源からのガス状物質には $\text{NO}_x$ 、 $\text{SO}_2$ 、COがあり、これらはすべて道路から離れるにしたがって減少した。
- (2) 浮遊粉じんは20mまで減衰が著しく、それより離れた測定地点ではほとんど減衰がみられなかった。
- (3)  $\text{NO}_2$ は歩道ぎわで新環境基準と比較してもかなりの割合で超えており、 $\text{SO}_2$ は歩道ぎわで環境基準を超えた日が1日あった。また、COは環境基準8時間値を満足していた。
- (4)  $\text{NO}_x$ と $\text{SO}_2$ の経時変化は異なっており、 $\text{NO}_x$ は横浜市内の一般環境のパターンに類似している。また、 $\text{SO}_2$ の増加は大型車の通行台数の増加と似ていた。
- (5) 浮遊粉じんはガス状物質と比べ、建て物の影響を受けやすい。

今後、人体への影響が大きいといわれる $10\mu\text{m}$ 以下の粒子について粒径別に調査し、道路周辺における浮遊粉じんの実態を詳細に把握する予定である。

#### 参考文献

- 1) 高田亘啓他：大気汚染研究，9，487 (1974)。
- 2) 藤谷義保他：同上，8，497 (1974)。
- 3) 島崎義和他：同上，10，550—552 (1975)。
- 4) 中野道雄他：同上，10，553 (1975)。
- 5) 広野富雄他：同上，12，209—215 (1977)。

- 6) 富田 良他：大気汚染研究全国協議会第17回大会講演要旨集, 280 (1976).
- 7) 富田 良他：同上第18回大会講演要旨集, 460 (1977).
- 8) 富田 良他：大気汚染学会第19回大会講演要旨集, 120 (1978).
- 9) 八木康雄他：大気汚染研究全国協議会第18回大会講演要旨集, 461—465 (1977).
- 10) 中村 貢他：横浜市公害研究所報第2号, 7—35 (1978).
- 11) 中村 貢他：同上第3号, 5—13 (1978).
- 12) 平野耕一郎他：大気汚染研究全国協議会第18回大会講演要旨集, 337 (1977).
- 13) 篠崎 修他：大気汚染学会第19回大会講演要旨集, 451 (1978).
- 14) 浮遊粒子状物質に係る監視測定法に関する検討委員会：大気汚染研究, 8, 58 (1973).
- 15) 篠崎 修他：大気汚染研究全国協議会第18回大会講演要旨集, 466 (1977).

### Ⅲ オゾン計の較正のための1%中性ヨウ化カリウム 吸収液による測定方法(1%NBKI法)と気相滴定 による測定方法(GPT法)との比較検討

Evaluation of 1 Percent Neutral Buffered Potassium Iodide Procedure  
and Gas Phase Titration Procedure for Calibration of Ozone Monitors

平野耕一郎\*, 渡辺 善徳\*, 小林 善雄\*\*, 町山 徹\*\*

#### 要 旨

オキシダント自動計測器の動的較正は現在、既知濃度の O<sub>3</sub> ガスによって感度較正されたオゾン計を標準にして行なわれている。そこで、一次標準に用いられる O<sub>3</sub> ガスの濃度決定法のうち J I S に採用されている 1%NBKI 法の測定法上の問題点を検討し、併せて GPT 法について比較検討した結果、次のようなことが明らかになった。

- (1) 1%NBKI 法において、O<sub>3</sub> ガスを採取後 30 分間の放置では、吸収液がまだ呈色段階であり、測定する吸光度が安定した呈色状態に達するには、60~90 分間の放置が必要である。
- (2) インピンジャの O<sub>3</sub> ガスに対する吸収効率、常温で約 90% 程度である。
- (3) インピンジャが乾燥不十分で、その中のノズル管等に水滴の付着があると O<sub>3</sub> ガスの濃度が低く分析される。
- (4) GPT 法は、1%NBKI 法に比べて、装置がワンタッチ方式で、繁雑さがなく、個人誤差もほとんどなく、正確な O<sub>3</sub> ガスの濃度決定ができる。
- (5) GPT 法では、NO ガスと O<sub>3</sub> ガスをそれぞれ 1 ppm 以上の濃度で、O<sub>3</sub> ガスに対する混合比が 2 : 1 前後で反応させた後、精製空気によって希釈混合して、測定すると良好な結果が得られる。

#### 1. はじめに

環境大気中のオキシダント濃度の測定方法として、中性緩衝ヨウ化カリウム(NBKI)溶液の吸収液を用いる自動計測器が広く使われている。地方自治体等が行なう常時監視も、この測定方法によっている。

昭和52年7月環境庁通達<sup>1)</sup>により、J I S B7957<sup>2)</sup>によるオキシダントの測定方法が採用されることとなり、オキシダント自動計測器に用いる吸収液のヨウ化カリウム濃度が10%から2%に変更され、同時に、既知濃度の O<sub>3</sub> ガスを計測器に導入して行う較正法(以下「動的較正法」という)がとられることとなった。

この動的較正法は、1%NBKI法を用いて濃度決定された O<sub>3</sub> ガスを一次標準とし、その O<sub>3</sub> ガスによって感度較正された紫外線吸光度法、化学発光法のオ

ゾン計等を二次標準として、オゾン発生器からの O<sub>3</sub> ガスを計測器に導入し、この二次標準用オゾン計の指示値によって感度較正を行っている。しかし、J I S に記載されている一次標準用 O<sub>3</sub> ガスの濃度決定の測定方法である 1%NBKI 法には、次のような不明確な点が考えられる。

- (1) O<sub>3</sub> ガスを採取した吸収液の呈色反応時間がはっきりしない。
- (2) O<sub>3</sub> ガスに対するインピンジャの吸収効率が採取温度等の条件やそれ自身のバラツキによっても変わる。

そこで、これらの点について実験し、J I S 法の問題点の指摘とともに、それにかわる測定方法として気相滴定(GPT)法を比較検討した。

\* 横浜市公害研究所大気部門, \*\* 横浜市公害対策局大気課

## 2. 1%NBKI法の検出

### 2-1 実験方法

#### 2-1-1 実験装置

実験装置の構成を図-1に示した。この装置を温度20°C、湿度50%に調節した恒温恒湿室に設置した。この装置に使用した機器の仕様を表-1に示した。

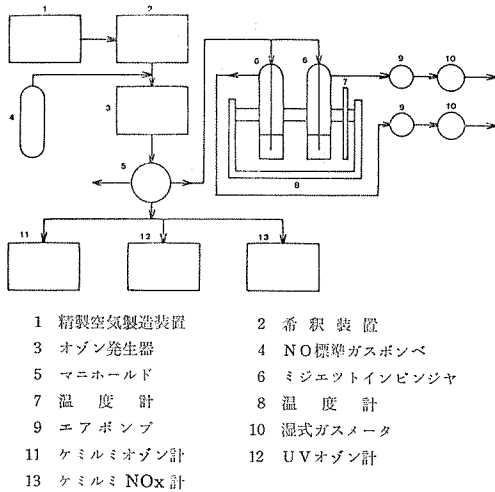


図-1 オゾンガスの発生と1%NBKI法の実験に用いた装置の構成図

表-1 1%NBKI法の使用機器一覧

精製空気製造装置	横浜市公害研究所製、紀本電子工業製 RG-30
標準ガス希釈装置	製鉄化学工業製 SDS-401
オゾン発生器	京都電子工業製 OG-01、紀本電子工業製 SOG-30
電子恒温循環装置	ヤマト科学製 MODEL. CTE-220/CTR-220
エアポンプ	イワキ製 AP-032
湿式ガスメータ	品川製作所製 WE-1A
化学発光式オゾン計	京都電子工業製 OX-21
紫外線吸光度法オゾン計	DASIBI製 MODEL. 1003AH

#### 2-1-2 実験I：オゾンガス採取後の吸収液の放置時間と呈色度の変化

1%NBKI吸収液10mlを入れた褐色ガラス製ミジェットインピンジャ2本をPFAテフロン管(内径4mm、外径6mm)を用いてオゾン発生器のマニホールドに並列に接続し、そのインピンジャを温度20°Cの恒温槽内にセットした。次に、オゾン発生器で調製した

0.1ppmのO<sub>3</sub>ガス20ℓを約1ℓ/minで、それぞれのインピンジャに同時に採取した後、速やかに両方の吸収液を100mlの褐色ガラス製メスフラスコに合わせて移し、混合した吸収液20mlを分析用の試料とした。この一部をとり、分光光度計(日立製作所製139形)を用いて波長352nmにおける吸光度を約15分ごとに計測し、吸光度の経時変化を調べた。なお、個人誤差を避けるため、同一試料については同一人が分析をした。

さらに、O<sub>3</sub>ガスの濃度を0.2、0.4ppmに変化させて、同様な実験を行ない、濃度との関係についても調べた。

#### 2-1-3 実験II：ミジェットインピンジャノズルの先端の形状による定量差

実験に使用したインピンジャの形を図-2、図-3に示し、ノズルの先端の形状が異なるものを6種類用意し、それを図-4に示した。

0.4ppmのO<sub>3</sub>ガスを用い、AとB、CとDというように二本のインピンジャを並列にして、実験Iと同様に測定した。そして一本のインピンジャにつき3~4回実験を繰り返した。なお、このときO<sub>3</sub>ガスを同時に化学発光式オゾン計(京都電子工業製、OX-21)、紫外線吸光度法オゾン計(DASIBI製、1003AH)に導き、濃度を測定した。

#### 2-1-4 実験III：ミジェットインピンジャの吸収効率

図-4に示した同種のノズルをつけたインピンジャを2本用意し、吸収液を入れた後、2本直列に接続し、恒温槽内にセットした。

0.2ppmのO<sub>3</sub>ガスを実験Iと同様に通じた後、吸収液を60分間、20°C、50%の恒温恒湿室に放置してから、一段目と二段目の吸収液の吸光度を測定した。

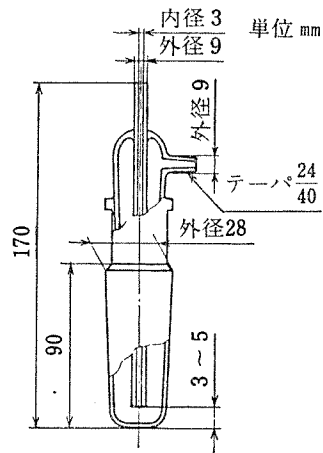


図-2 JIS形のミジェットインピンジャ

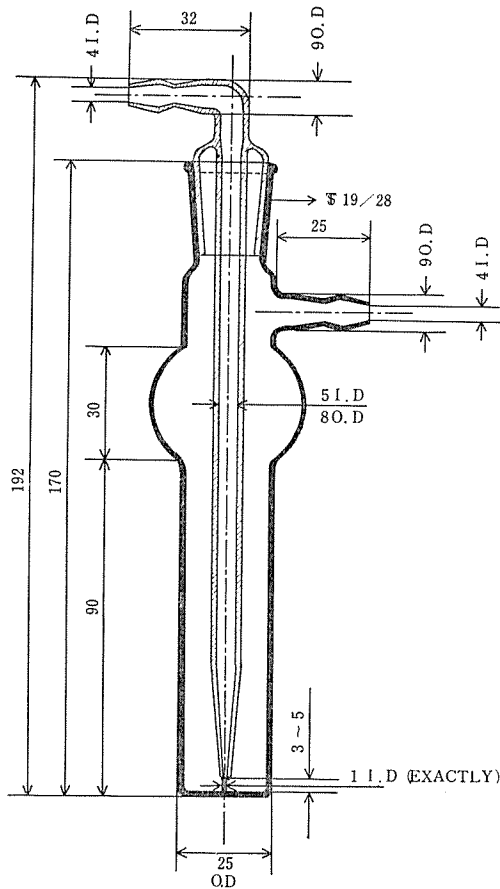
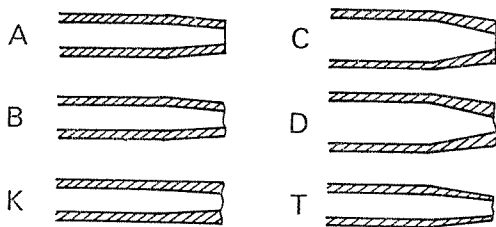


図-3 横浜市公害研究所のミジェットインピンジャ



- A. ノズル管の外径5、内径3mmでテーパーを有し、先端を平らにヤスリで仕上げたもの
- B. ノズル管の外径5、内径3mmでテーパーを有し、先端をナメラカに加熱処理したもの
- C. ノズル管の外径8、内径5mmでテーパーを有し、先端を平らにヤスリで仕上げたもの
- D. ノズル管の外径8、内径5mmでテーパーを有し、先端をナメラカに加熱処理したもの
- K. ノズル管の外径5、内径3mmでテーパーが無く、先端をナメラカに加熱処理したもの
- T. Bと同じ形状で、インピンジャ全体が透明なガラスでできているもの

図-4 ミジェットインピンジャのノズル先端の形状

## 2-2 結果および考察

### 2-2-1 オゾンガス採取後の吸収液の放置時間と呈色の経時変化

図-5に吸収液の呈色による吸光度の経時変化を示した。この図から明らかなように0.1~0.4ppmの $O_3$ ガス濃度では、60~90分で吸光度が最高になった。高濃度になるにしたがって吸光度が一定になるまでの時間が長くなった。

1%NBKI法では呈色時間を30分間と定めている<sup>1),2)</sup>。しかし、30分では、まだ反応が進行している段階であり、正しい濃度に対応する吸光度を測定することは困難である。したがって、この実験から正しいオゾン濃度を知るためには、放置時間が30分では不十分と考えられ、60~90分間は必要と判断できる。

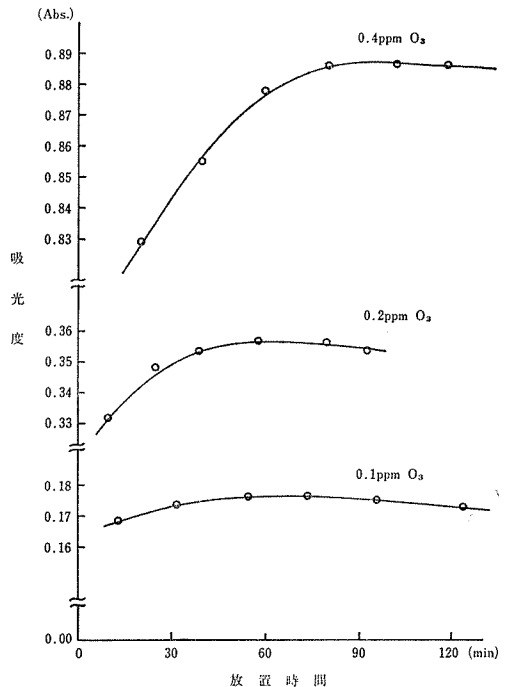


図-5 オゾンガスを採取した吸収液の放置時間と呈色による吸光度の経時変化との関係

### 2-2-2 吸収液の放置方法が異なることによる 呈色の差

図-6にO<sub>3</sub>ガス採取後の吸収液について、一つは分光光度計のセル内に入れ、もう一つは褐色ガラス製フラスコ内で放置したときの吸光度の経時変化を示した。セル内の試料は、密閉遮光保存した試料にくらべて、吸光度が低く、吸光度のピークは早く出現する。

この理由として、溶液中のヨードがセル内から揮散するためであり、呈色反応に起因していない。したがって、O<sub>3</sub>ガス採取後の吸収液は吸光度を測定するときまで密閉遮光保存する必要がある。

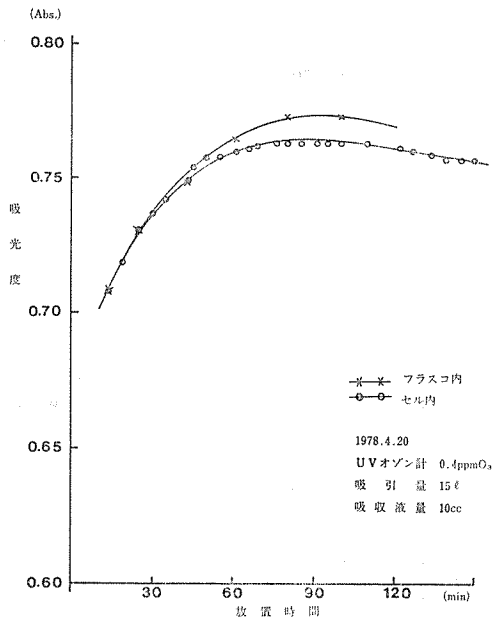


図-6 吸収液を分光光度計のセル内と褐色ガラス製フラスコ内とで放置したときの吸光度の経時変化

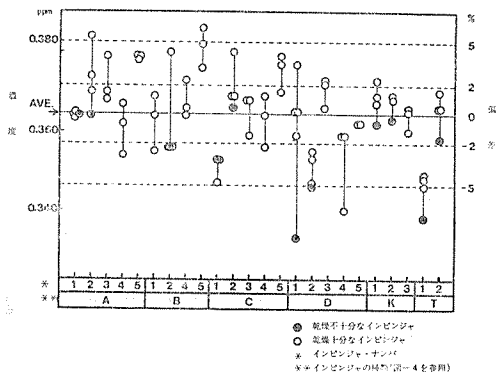


図-7 0.4ppmのオゾンガスを6種24本のミジェットインピンジャによって分析した結果

### 2-2-3 ノズルの先端の形状による定量差

図-4に示した6種24本のミジェットインピンジャによって一定濃度0.4ppmのO<sub>3</sub>ガスを分析した結果を図-7に示した。全インピンジャによる83回の測定データの全平均値は0.364ppm、標準偏差は0.011ppm、変動係数は2.9%、最小値は0.333ppm、最大値は0.386ppmであった。最小値と平均値との差の平均値に対する比は-8.5%であり、最大値と平均値との差の平均値に対する比は+6.0%であった。したがって、インピンジャによる測定値のバラツキが±10%程度であるという他研究機関の実験例<sup>3)</sup>とは異なって、本実験ではインピンジャの形状による違いも含め、測定値に大きな影響を与えないと判断でき、測定の上でインピンジャによる器差は考慮に入れなくてよいと考えられる。

### 2-2-4 インピンジャ内の水滴の付着によるオゾンガスの分解等の影響

図-7のうち、◎印の測定値は、洗浄後十分に乾燥されていないインピンジャを用いたときのデータであり、他の値にくらべて小さく指示された。このように、洗浄後、ガス採取前のインピンジャ内に水滴等の付着物があり、乾燥が十分に行われずにそのまま使用すると、その付着物が原因で、O<sub>3</sub>ガスを分解し、測定値を小さくする誤差要因となる。したがって、インピンジャはよく洗浄し、十分に乾燥して使用することが必要である。

### 2-2-5 オゾンガスに対するミジェットインピンジャの吸収率と周囲温度による吸収効率の変化

インピンジャを二本直列に接続して一段目のO<sub>3</sub>ガスに対する吸収効率を求めた結果について表-2に示した。

JIS形のインピンジャを用いてO<sub>3</sub>ガスの分析を行なうと、一本のインピンジャのとき、常温では吸収効率が91%程度であり、ここで計測されるO<sub>3</sub>ガスの濃度は常に一割程度低くなる。また、他研究機関の実験でも同様な報告<sup>3), 4)</sup>がなされ、さらに、インピンジャの周囲の温度等による影響も大きいことが図-8、表-3から明らかである。それゆえに、二本直列に接続し、両者の測定値の和によって測定する方法が望ましいと考えられる。ただし、一本による測定からでも、吸収効率が正確に判っているものを使えば、吸収効率の補正によって正しい濃度値が算出できる。

表-2 ミジェットインピンジャの吸収効率

実験* シリーズ	一段目のインピンジャ		二段目のインピンジャ		一段目と二段目の吸光度の和	一段目のインピンジャの吸収効率(%)
	吸光度	種類	吸光度	種類		
a-1	0.396	A-2	0.057	A-1	0.453	87.6
a-2	0.380	A-5	0.055	A-3	0.435	87.5
a-3	0.395	B-2	0.047	B-3	0.442	89.5
a-4	0.397	B-5	0.047	B-4	0.444	89.6
a-5	0.392	C-3	0.050	C-1	0.442	88.9
a-6	0.396	C-5	0.048	C-4	0.444	89.4
a-7	0.389	D-1	0.046	D-2	0.435	89.6
a-8	0.388	D-3	0.045	D-4	0.433	89.8
平均						89.0
b-1	0.379	C-3	0.040	C-1	0.419	90.5
b-2	0.379	C-5	0.053	C-4	0.432	87.7
b-3	0.380	B-5	0.043	B-3	0.423	89.8
b-4	0.360	D-3	0.050	D-4	0.410	87.8
b-5	0.377	B-2	0.044	B-4	0.421	89.5
b-6	0.368	D-1	0.052	D-2	0.420	87.6
b-7	0.379	A-2	0.047	A-1	0.426	89.0
b-8	0.338	A-5	0.048	A-3	0.386	87.6
平均						88.7

\* 一日に行なった実験データのシリーズ  
UV オゾンモニタの濃度指示値 ; 0.2 ppm

表-3 ミジェットインピンジャの周囲温度の違いによる吸収効率の実験データ<sup>3)</sup>

周囲温度 °C	一段目の インピンジャ ppb	二段目の インピンジャ ppb	一段目と 二段目の和 ppb	一段目の 吸収効率 %
10±1	477	30	507	93.7
	485	30	515	93.8
20±1	453	46	499	89.9
	454	48	502	89.4
30±1	413	61	474	85.2
	404	64	468	84.2

オゾンモニタの指示値 ; 463±2 ppb

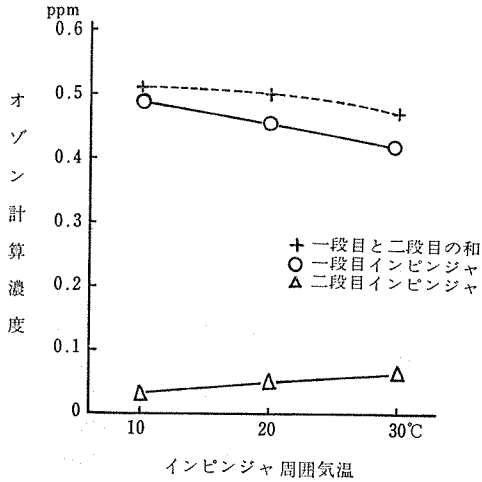


図-8 ミジェットインピンジャの周囲温度とオゾンガスの吸収量との関係<sup>3)</sup>

### 3. GPT法の検討

#### 3-1 実験方法

##### 3-1-1 実験装置

O<sub>3</sub>ガスとNOガスとの反応濃度が0.1~0.4ppmでGPTを行なう実験装置の構成を図-9に、1~10ppmでGPTを行なう実験装置の構成を図-10に示した。この装置を温度20°C、湿度50%に調節した恒温恒湿室に設置した。二つの装置に使用した機器の仕様を表-4に示した。

##### 3-1-2 二つの実験装置の構成の違い

図-9では、オゾン発生器に8~12ℓ/minの精製空気を導入し、0.1~0.4ppmのO<sub>3</sub>ガスを発生させ

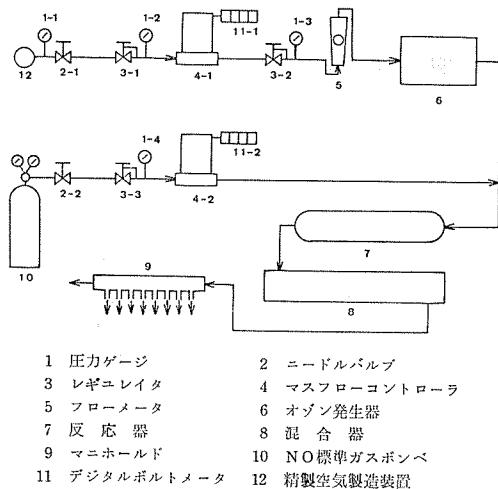


図-9 オゾンとNOガスの反応濃度が0.1~0.4ppmにおけるGPT法の実験に用いた装置の構成図

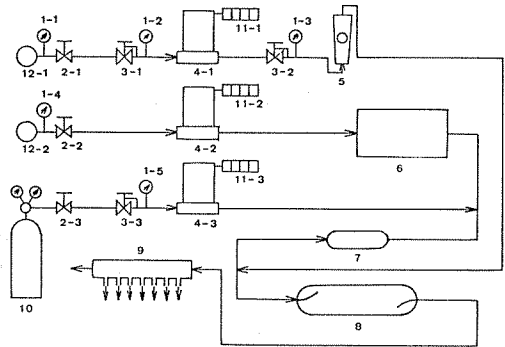


図-10 オゾンとNOガスの反応濃度が1~10ppmにおけるGPT法の実験に用いた装置の構成図 (1~12は図-9に同じ)

表-4 GPT法の使用機器一覧

精製空気製造装置	横浜市公害研究所製
オゾン発生器	京都電子工業製 OG-1
マスフローコントローラ	tylan製
	FS-260 (10cc/min)
	FS-260 (500cc/min)
	FS-261 (20ℓ/min)
レギュレータ	製鉄化学製 YSR-2006
	YSR-2003
化学発光法オゾン計	京都電子工業製 OX-21
紫外線吸光度法オゾン計	DASIBI製
	MODEL 1003AH
化学発光法NO <sub>x</sub> 計	MONITOR LABS製
	MODEL-8440

て、そのガスを反応器に導き、同時に一定量のNOガスを添加した後、混合器内で30~60秒の時間を経た後に、各ガスの濃度の増減をNO<sub>x</sub>計およびオゾン計によって測定した。

図-10では、オゾン発生器に500ml/minの精製空気を導入し、1~10ppmのO<sub>3</sub>ガスを発生させて、そのガスを反応器に導き、同時に既知濃度のNOガスを一定量添加した後、8~12ℓ/minの精製空気によって希釈し、混合器内で10~15秒間の時間を経て、図-9と同様に各ガスの濃度の増減を測定した。

前者と後者との大きな違いは、反応器内のO<sub>3</sub>ガスおよびNOガスの濃度が17~26倍程度違うことと、特に後者では、NO+O<sub>3</sub>の反応を高濃度で行なった後、希釈混合して測定したことである。

##### 3-1-3 精製空気

オイルフリーコンプレッサ (日立製作所製 SK15.3.7KW4P)から導びかれた空気を水冷式オイルミスト除去乾燥装置 (日立製作所製 CAU-80)、モレキュラ



シリーブ等によって処理して、実験に使用した。NOx ガスは 3 ppb 以下で、O<sub>3</sub> ガスは検出されなかった。

### 3-1-4 ガス流量の長時間安定供給

導入する精製空気、NO 標準ガスを長時間精度よく、一定流量に保つためにマスフローコントローラをつぎのように使用した。

図-9、図-10の 4-1 は希釈系およびオゾン発生器系の精製空気の導入用であり、制御できる流量範囲は 0~20 l/min である。図-6 の 4-2 は 0~500 ml/min の流量でオゾン発生器系の精製空気の導入用である。図-9 の 4-2、図-10 の 4-3 は NO 標準ガスの導入用で 0~10ml/min の流量制御が可能である。

なお、使用したマスフローコントローラは、精密膜流量計（スタンダードテクノロジー製、SF-11L、SF-11H）および湿式ガスメータ（品川製作所製、WT-5A）によって校正した後、測定に供した。

### 3-1-5 既知濃度の NO ガスの調製

NO 標準ガスボンベから導びかれた NO ガスと精製空気とを希釈混合し、この質量流量比から濃度を算出した。この質量流量比希釈混合法によって、一定濃度 0~0.5ppm 間の NO ガスを調製し、実験に供した。

なお、用いた NO 標準ガスは化学品検査協会検定の 101ppm NO ガスおよび 414ppm NO ガスである。

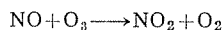
### 3-1-6 オゾンガスの発生

一定流量で流れる精製空気ペンレイランプによって紫外線を照射して O<sub>3</sub> ガスを生成させた。照射管のスリーブの移動調節で、照射光量を変えることにより、発生する O<sub>3</sub> ガスの濃度は連続的に変化させることができる。

### 3-1-7 実験操作

最初に 1%NBKI 法によって標定した O<sub>3</sub> ガスを用いて、化学発光法オゾン計 (CLD-O<sub>3</sub> 計)、紫外線吸光度法オゾン計 (UV-O<sub>3</sub> 計)、2%NBKI 溶液を用いたオキシダント自動計測器の動的較正を行った。また、化学発光法 (CLD) NOx 計に対しても NO 標準ガスによって動的較正を行った。

次に、NO ガスを用いて GPT を行うために、オゾン発生器によって計測器の指示濃度が 0.1, 0.2, 0.3, 0.4ppm になるように 4 段階の O<sub>3</sub> ガスを発生させ、それぞれの濃度ガスに対して 0.1, 0.2, 0.3, 0.4ppm 前後の既知濃度の NO ガスを順に反応器の中に導入し



の式で示される反応をさせた。

この NO+O<sub>3</sub> 系の反応の進行にともない、NO<sub>2</sub> ガスが增加し、NO ガスが減少する状態を CLD-NOx 計にて NO、NO<sub>2</sub>、NOx ガスを測定し、同時に、CLD-O<sub>3</sub> 計 UV-O<sub>3</sub> 計で O<sub>3</sub> ガスの減少量を測定した。

NO ガスの減少量と NO<sub>2</sub> ガスの増加量が反応した O<sub>3</sub> ガス量に等しいという理論から

表-5 NO と O<sub>3</sub> ガスの反応濃度が 0.1~0.4 ppm における GTP の結果

実験*	NO ppb		O <sub>3</sub> ppb		ΔNO ppb	ΔO <sub>3</sub> ppb
	反応前	反応後	反応前	反応後		
a-1	89	38	97	54	51	43
a-2	184	111	97	27	73	70
a-3	279	196	97	15	83	82
a-4	374	286	97	9	88	88
b-1	88	20	192	130	68	62
b-2	184	63	192	78	121	114
b-3	278	129	192	47	149	145
b-4	375	212	192	31	163	161
c-1	90	10	283	208	80	75
c-2	183	38	283	141	145	142
c-3	280	84	283	92	196	191
c-4	375	149	283	60	226	223
d-1	90	7	370	296	83	74
d-2	184	24	370	217	160	153
d-3	279	55	370	157	224	213
d-4	373	103	370	109	260	261

\* 一日に行なった実験データのシリーズ

$$[\Delta \text{NO}] = [\Delta \text{NO}_2] = [\Delta \text{O}_3]$$

の関係が成立する。この式を用いて既知濃度の NO ガスから O<sub>3</sub> ガス濃度を算出した。

### 3-2 結果および考察

#### 3-2-1 O<sub>3</sub> ガスと NO ガスの反応濃度が 0.1~0.4 ppm における GPT……方法 A

(1) 表-5 に 0.1~0.4ppm の O<sub>3</sub> ガスおよび NO ガスによって GPT を行った結果を示した。

NO ガスの濃度が高いと、NO+O<sub>3</sub> 系から NO<sub>2</sub>+O<sub>2</sub> 系への反応がほぼ化学量論的に進むことが確かめられたが 逆に、濃度が低いと  $[\Delta \text{NO}] = [\Delta \text{O}_3]$  の等量反応を呈さない傾向がみられた。この原因については不明であり、今後検討したい。

(2) NO+O<sub>3</sub> の反応率が 100% 進行せず、未反応 NO ガスおよび O<sub>3</sub> ガスの残存がみられた。この原因は、濃度が低いため、反応速度がおそく、反応に要する時間が足りなかったものと推測される。したがって、反応率を高めるには、反応器を十分に大きくするか、反応時間を十分に与えるか、O<sub>3</sub> ガスと NO ガスの混合比率を大きくして GPT を行うかの方法が考えられる。

#### 3-2-2 O<sub>3</sub> ガスと NO ガスの反応濃度が 1~10 ppm における GPT……方法 B

図-11 に 1~10ppm の O<sub>3</sub> ガスおよび NO ガスによって行なった GPT の実測記録の一例を示した。

図に見られるように、NO ガスと O<sub>3</sub> ガスの混合比 (NO/O<sub>3</sub>) が 2 : 1 ぐらいになると NO+O<sub>3</sub> の反応率がほぼ 100% になった。参考のために、柳原が行なった NO ガスの過剰のときの混合比 (NO/O<sub>3</sub>) と O<sub>3</sub> ガスの反応率の関係を図-12 に示したり。

また方法 A の実験のときに等量反応をしない現象が生じたが、この実験では、それがほとんどなく、化学量論的に反応が進むことが確かめられた。

#### 3-2-3 方法 A と方法 B との実験方法による差の原因の検討

方法 A の実験では、反応率が悪く、未反応物質を残し、さらに化学量論的に  $[\Delta \text{NO}] = [\Delta \text{O}_3]$  の等量反応をしない傾向があり、一方、方法 B の実験では、NO+O<sub>3</sub> の反応率が高く、特に O<sub>3</sub> ガスに対する NO ガスの混合比 (NO/O<sub>3</sub>) が 2 : 1 をこすと 100% 反応が進行した。このように、二つの実験方法には、はっきりした差がみられた。

この原因は、反応器内の NO ガスと O<sub>3</sub> ガスの濃度が、両者では 17~26 倍ほど違い、そのために単位時間あたりの反応量が異なったことにあり、特に方法 B の実験では、高濃度で反応させ、反応量を大きくし、その後、一定濃度の比率に希釈混合してから測定するため、みかけ上ほぼ完全に NO+O<sub>3</sub> 系から NO<sub>2</sub>+O<sub>2</sub> 系へに反応が進んだものといえる。

したがって、NO+O<sub>3</sub> の反応率が 100% で、化学量

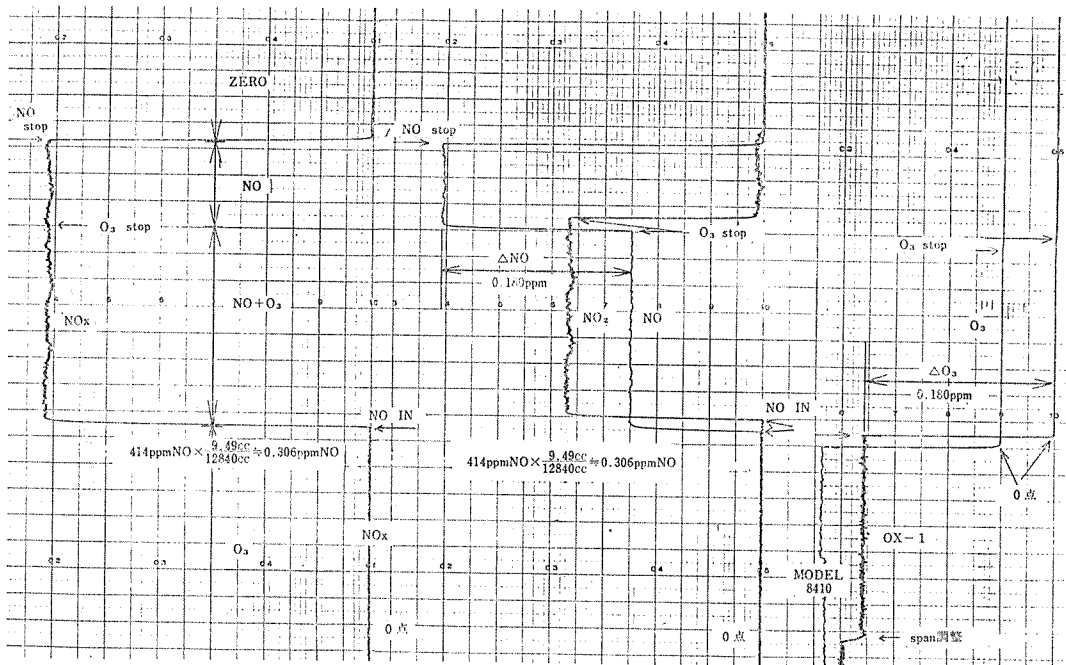


図-11 反応器内のオゾンと NO ガスの反応濃度が 1~10ppm における GPT 法の実験例

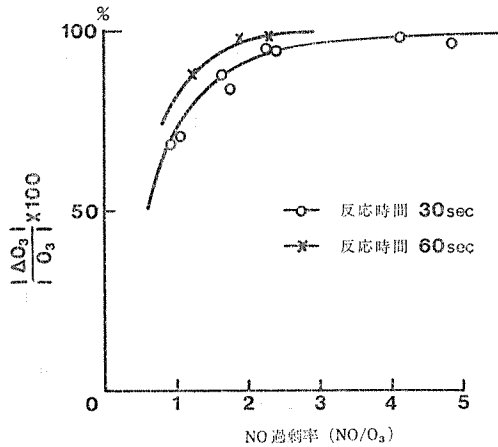


図-12 O<sub>3</sub> 変換率と NO 過剰率<sup>(4)</sup>

論的な反応を進行させるには、方法Bの実験方法によるのがよいと考える。

### 3-2-4 1%NBKI法からGPT法への変更に よる効用

1%NBKI法による一次標準用O<sub>3</sub>ガスの濃度決定法には、3-2-3で指摘した通り、分析上の解決課題が多く残っている。

GPT法は1%NBKI法に比べて、現在、高性能の標準ガス希釈装置が市販され、高精度のNO標準ガスが常時入手可能なことから、この測定に必要な正確でかつ任意濃度のO<sub>3</sub>ガスが得られ、再現精度の高い濃度決定ができる。さらに、使用する装置がワンタッチ方式で操作でき、繁雑さの少ない点から個人誤差がでにくく、迅速かつ正確な分析ができる。

欠点として、分析装置やNO標準ガスの使用等も含めて、較正に要する費用が少々高いことが上げられる。

## 4. 動的較正の評価と問題点

新しいJISでは、オキシダント自動計測器に用いられる吸収液の組成が10%NBKI溶液から2%NBKI溶液に変更された。その結果、大気中に共存する窒素酸化物による妨害、影響が著しく低減される方法となり、オキシダント濃度をより正確に測定できるようになったといえる。さらに、較正方法も従来の等価液を用いた静的較正法に変えて、実際に即した既知濃度のO<sub>3</sub>ガスを用いた動的較正法が採用され、較正精度もかなり改善されたものと推察される。

しかし、JISにしたがい、二次標準のUV-O<sub>3</sub>計を用いて動的較正を実施した結果、設置小屋の温度等の環境条件や配管の仕方などの違いにより、O<sub>3</sub>ガ

ス濃度に対する感度に変動がみられた。さらに、較正装置のセット、電源回路の安定に要する時間、動的較正に要する時間など併せると一日一測定局の計測器しか較正できなかった。したがって、測定箇所が多い地方自治体などを考えると、日数や労力の面で効率的な較正法とはいえない。

また、二次標準O<sub>3</sub>計の較正のため、JISが採用している一次標準用O<sub>3</sub>ガスの濃度決定法には、本実験からもいくつかの問題点が指摘できる。この点については、国内外の多くの研究成果<sup>(5)~(8)</sup>があり、アメリカではEPAやカルフォルニア州のように1%NBKI法から他の原理のオゾン測定法に変更している例が見受けられる。特に、EPAはGPT法<sup>(9)</sup>に、カルフォルニア州はUV法に対して研究がなされ、1975年6月にカルフォルニア州ではUV法の測定を標準として制定している。

このように、現在のJISには多くの問題点が考えられることから早急に再検討がはかられ、正確かつ簡便な較正方法の制定を望みたい。

## 5. 結論

JISの定める1%NBKI法による一次標準用O<sub>3</sub>ガスの濃度決定法は、様々の誤差要因が多くあり、本実験から次の問題点が認められた。

- (1) 試料採取後30分間放置した段階で、吸収液の吸光度を測定することは、まだ吸収液が呈色の段階であり、正確な濃度が測定されていない。
- (2) インピンジャの吸収効率が温度の影響をかなり受けることと、常温で約90%程度であり、それほどよくない。
- (3) インピンジャ内が十分乾燥されず、ノズル管に水滴等の付着物があるとオゾンガスを分解する可能性がある。
- (4) 分析者や分析機関の設備等によっても誤差の大小の有無が考えられる。

このような問題も含めて、正確かつ簡便な、個人差の少ない分析法となるよう現在のJISの再検討を望みたい。

JIS法に変わる方法として、GPT法を検討した結果、装置がワンタッチ方式であり、繁雑さのないことから個人誤差もなく、精度のよい濃度決定ができることがわかった。したがって、一次標準用O<sub>3</sub>ガスの濃度決定法として推奨したい。

なお、GPT法によって較正するには、反応器内の各ガスを1ppm以上で反応させた後、一定量に精製空気に希釈混合した後、測定するのがよい。そし

て  $O_3$  ガスに対して  $NO$  ガスが2倍程度の混合比率で反応させると良好な結果がえられることがわかった。

最後に本実験では  $O_3$  ガスの濃度決定法として、1%NBKI法とGPT法について比較検討したが、今後、紫外線吸光度法、赤外吸光度法等の測定方法も比較検討し、より正確な  $O_3$  ガスの濃度決定法の確立を図りたい。

#### 参考文献

- 1) 環境庁大気保全局企画課：オキシダント自動計測器の動的校正マニュアル，(1977).
- 2) 日本工業標準調査会：大気中のオキシダント自動計測器 J I S B7957，(1976).
- 3) 紀本電子工業株式会社：オゾン計の動的校正に関する諸問題，技術資料，10-11，8-9，(1977).
- 4) 環境庁大気保全局，光化学オキシダント等測定法研究会：光化学オキシダント等測定方法に関する試験研究報告書（昭和50年度環境庁委託調査），12-16，47 (1976).
- 5) W. B. Demore and M. Patapoff : Comparison of ozone determinations by ultraviolet photometry. *Environmental Science & Technology*, 10, 897-899 (1976).
- 6) E. P. Parry and D. H. Hern : Stoichiometry of ozone-iodide reaction : significance of iodate formation, *Environmental Science & Technology*, 7, 65-66 (1973).
- 7) J. A. Hodgeson, E. E. Hughes, W. P. Schmidt and A. M. Bass : Methodology for standardization of atmospheric ozone measurements, EPA Rept. 60013-77-001-a, 3-12 (1977).
- 8) R. J. Paur, R. K. Stevens and D. L. Flamm : Status of calibration methods for ozone monitors, EPA Rept. 60013-77-001-a, 67-72 (1977).
- 9) EPA : Evaluation of 1 percent neutral buffered potassium iodide procedure for calibration of ozone monitors, EPA Rept., 60014-77-005 (1977).

## Ⅳ 相模湾・伊豆諸島海域上における大気汚染物質の輸送過程およびバックグラウンド濃度に関する調査（第2次）

Researches for transport and background concentration of atmospheric pollutants over the Sagami Bay and the Izu Islands Sea (Rep. 2)

鶴田 治雄\*, 前田 裕行\*, 太田 正雄\*

### 要 旨

大気汚染物質の沿岸域における輸送および反応過程の解明とバックグラウンド濃度の把握を目的として、窒素酸化物・オゾン・炭化水素・ベンゾ(a)ピレンに関する第2次調査を、1977年9月上旬に、相模湾および伊豆諸島海域上で実施し、次のような結果を得た。

- (1) 東京湾沿岸地域で排出される大気汚染物質は、日射のない夜間は窒素酸化物に代表される第1次汚染物質を、日射の強い日中はオゾンに代表される光化学反応による生成物質を、それぞれ含んだ汚染気塊として、少なくとも150km風下の海上にまで輸送される。
- (2) 海陸風循環の発生する日に、日中、陸風からなぎの状態になると、湾上は、高濃度のオゾン（を含む汚染大気）の「貯蔵庫」となる。
- (3) 伊豆諸島海域上での清浄大気中のバックグラウンド濃度は、オゾン30~40 ppb、窒素酸化物2 ppb以下、ベンゾ(a)ピレン1 ng/l, 000m<sup>3</sup>、低沸点炭化水素は0.2~1.0 ppbであった。

### 1. はじめに

日本では、大気汚染物質の大発生源である都市や工業地帯の大多数は、湾や内海の沿岸地域に集中しており、また、沿岸地域の地形は非常に複雑である。それ故、沿岸域に固有な局地風系——その代表的なものは海陸風循環である——による陸上および海上間の大気汚染物質の光化学反応を伴う輸送過程を解明することは、大気環境保全の観点より、全国的に共通でしかも我が国特有の課題であるといえよう。

工場および自動車等から排出される窒素酸化物(NOx)の南関東地域における排出量の分布は、図-1<sup>1)</sup>のようである。これらの発生源から排出される大気汚染物質による広域汚染の実態は、陸上だけでなく海上や上空を含めた総合的な立体調査を積み重ねることにより、明らかにしていかなければならない。陸上での立体調査は最近実施されつつあるが、前述の目的による沿岸海域上での大気汚染調査は、これまで全く実施されていなかった。

そこで、1976年5月下旬に、研究船を利用して、相模湾および伊豆諸島海域上での大気汚染に関する第1次調査を実施した。その測定データと、調査期間中の陸上での大気汚染物質と気象要素の資料とを解析した結果を、前号<sup>2)</sup>に報告した。第1次調査で得られた興

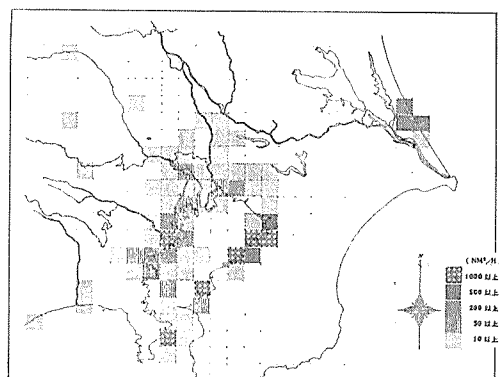


図-1 南関東地域におけるNOxの排出量分布<sup>1)</sup>  
(夏, 正午: 6 kmメッシュ)

\* 横浜市公害研究所大気部門

味深い結果を、参考のために再び次に述べる。

(1) 東京湾沿岸地域で排出される大気汚染物質は、夜間、一般風が北東の時、少なくとも 150 km 風下の海上にまで、あまり拡散されずに高濃度の NOx を含む汚染気塊として輸送される。

(2) 相模湾上へ運ばれて滞留した汚染大気中では、光化学反応により大量のオゾン (O<sub>3</sub>) が生成されており、この汚染気塊は海風により沿岸地域へ運ばれる。

これらより、東京湾沿岸地域で排出される大気汚染物質の影響は、相模湾および伊豆半島南部沖合から大島方面にまでおよんでおり、また気象条件によっては相模湾上は O<sub>3</sub> の「貯蔵庫」であることが推測された。

しかし、わずか 4 日間の調査から一般的な結論を導くにはまだ不十分であり、さらに調査を積み重ねて、これらの現象を総合的に考察すべきである。

それ故、これらの結果を参考に、第 2 次調査を 1977 年 9 月上旬に、次の目的で、実施した。

(1) 沿岸域における大気汚染物質の輸送および反応過程の解明。

(2) 伊豆諸島海域上での清浄大気中の各物質のバックグラウンド濃度の把握。

なお、都市汚染物質の指標として、NOx・O<sub>3</sub>・炭化水素および浮遊粉じん中のベンゾ(a)ピレン(BaP)の濃度を測定した。

特に (2) の目的は、都市汚染大気中の濃度との比較検討だけでなく、清浄大気中の光化学反応の研究に対して重要な情報を与えるものである。

## 2. 調査方法

### 2-1 調査期間

1977 年 8 月 31 日から 9 月 7 日までの 8 日間、東大海洋研究所研究船「淡青丸」(K T-77-12 次研究航海)を利用して、調査を実施した。

### 2-2 調査海域

調査海域は、図-2 に示すように、主に相模湾および伊豆諸島海域である。調査海域を便宜上 Leg 1 から Leg 6 までに区切り、各 Leg のコースと時間の概略を、同時に表-1 に示した。

なお、この研究航海では、同時に、東大海洋研究所海洋物理部門が黒潮の流れについての調査を実施しており、船のコースは主にその調査の目的のために設定されたものである。

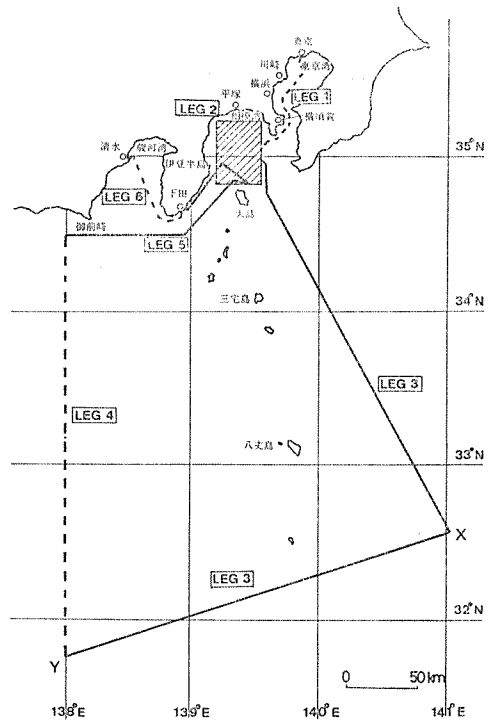


図-2 調査海域および「淡青丸」の Leg 1 から Leg 6 までの概略の航跡図

表-1 各 Leg の調査期間

Leg	期	間
1	8 月 31 日 11 時	~ 8 月 31 日 15 時
2	8 31 15	~ 9 2 17
(伊東港)	9 2 17	~ 9 3 06
3	9 3 06	~ 9 5 04
4	9 5 04	~ 9 6 03
5	9 6 03	~ 9 6 17
(下田港)	9 6 17	~ 9 7 08
6	9 7 08	~ 9 7 12

### 2-3 測定項目

今回の調査では、窒素酸化物・オゾン・炭化水素の各気体の濃度および浮遊粉じん中のベンゾ(a)ピレン濃度を測定した。また、気象要素は、風向風速・日射量および気温を測定した。これらの測定項目・測定機器および測定(および分析)方法の概略を、表-2 にまとめて示した。

なお、気圧・表面海水温および船の位置・進路のデータは、船側から提供していただいたものである。

表-2 測定項目、測定機器および測定方法

測定項目	測定（または分析）機器	測定（または分析）方法
窒素酸化物 (NO-NO <sub>2</sub> -NO <sub>x</sub> )	窒素酸化物測定器 M-8440(MONITOR LABS)	羅針甲板上にテフロン管を取りつけて連続吸引。 ペンレコーダーで連続記録。
オゾン (O <sub>3</sub> )	オゾンメーター Ox-21 (京都電子工業)	同上
炭化水素 (HC)	ガスクロマトグラフ 日立-163FID (日立製作所)	1ℓ真空ビン(パイレックスガラス製)で大気を随時採取、下船後分析。
ベンゾ(a)ピレン (BaP)	蛍光分光光度計 MPF-4 (日立製作所)	ハイボリューム・エア・サンプラーにより浮遊粉じんを採取、下船後分析。
風向風速	超音波式風向風速計 RA-200 (海上電機)	羅針甲板上にポールを立て、その上にプローブをとりつける。ペンレコーダーで連続記録。
日射量	ネオ日射計 MS-41 (英弘精機)	後部甲板ガントリー上に設置。ペンレコーダーで連続記録。
気温	サーミスター温度計 (芝浦電子製作所)	羅針甲板上の小型百葉箱内に受感部を取りつける。 ペンレコーダーで連続記録。

今回は、海上での調査期間中、東京湾沿岸地域の川崎市および横浜市の公害研究所の屋上で、同時に浮遊粉じんを採取し、BaP濃度を測定した。また、横須賀市役所および横浜市公害研究所の屋上で、8月31日から9月3日までの日中、パイロットバルーンにより上層風を測定した。

#### 2-4 測定および分析方法

##### 2-4-1 窒素酸化物・オゾン

NO<sub>x</sub>およびO<sub>3</sub>濃度は、化学発光法による測定器を用いて連続測定した。大気の採取位置は、船橋上部の羅針甲板上であり、PFAテフロン管により研究室内の測定機器へ大気を導入した。

##### 2-4-2 炭化水素

大気採取容器は、十分に加熱脱気した1ℓ真空ビンである。この容器を、大気採取前に更に真空ポンプにより排気した後、毛細管を取り付けて約5分間で大気を吸引した。なお、大気の採取は、自船の排煙および船体の塗布してあるペイント類による汚染を避けるために、船首で行なった。

下船後、真空ビンに採取した試料中の低沸点炭化水素を、ガスクロマトグラフにより成分分析した。試料のガスクロマトグラフへの導入は、ガラス製注射筒を用いて真空ビン中の大気150mlを引き抜き、セライト-22(C-22)を充てんしたステンレスU字管トラップへ流し込み、液体酸素を用いて濃縮し、80°Cに加熱した後、コックの切り換えによって行なった。なお、

分析条件は、前号の「実験ノート」<sup>3)</sup>で述べた通りなので、詳細はそちらを参照していただきたい。

この分析方法で定量した成分は、エタン+エチレン、アセチレン、プロパン、プロピレン、i-ブタン、n-ブタン、i-ペンタンおよびn-ペンタンの8成分である。

検出限界は、試料分析感度(1×2×10<sup>-12</sup>A)で記録紙のフルスケールの1%とすると、エタン+エチレンは0.046ppb、n-ペンタンは0.13ppbであった。

##### 2-4-3 ベンゾ(a)ピレン

浮遊粉じんは、羅針甲板上にハイボリューム・エア・サンプラーを設置し、大気を約10~17時間連続吸引して、ろ紙上に採取した。なお、自船の排煙を吸引するおそれのある風向の時は、採取を中止した。

分析は、試料全部を真空昇華し、得られたタール分を二層一次元の薄層クロマトグラフィーにより分離してBaPを分取し、蛍光分光光度計により定量した。なお、分析方法は、第1次調査の時と同様なので、詳細は、前号<sup>2)</sup>を参照していただきたい。

##### 2-4-4 風向風速

風は超音波式風向風速計を用いて測定した。測定器は、周囲に風の流れを乱す障害物がなくしかもなるべく高い羅針甲板上にポールを取り付けて、その上に、船首方向が測定器の北になるように設置した。これにより得られた値は見かけの風向風速なので、船の位置・進行方向・速度よりベクトル計算で真の風向風速を

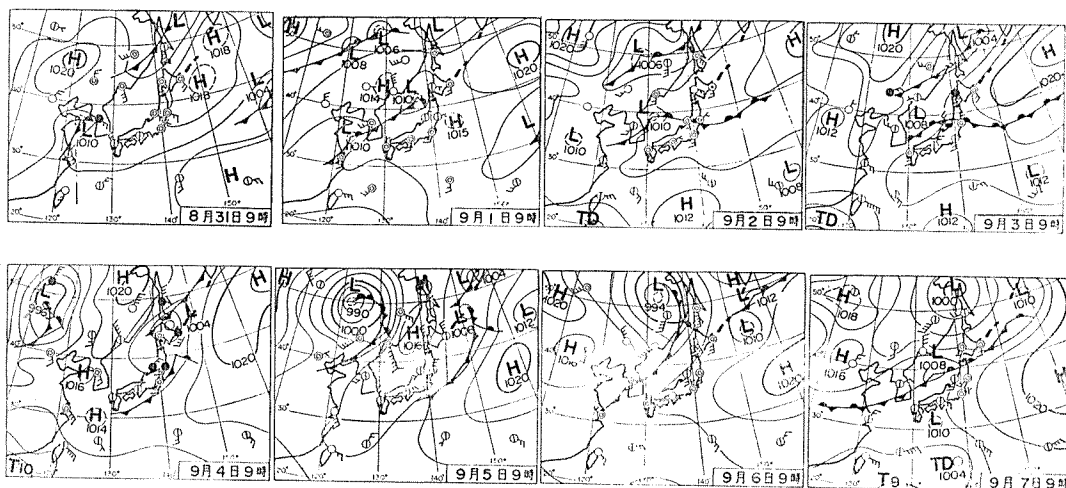


図-3 1977年8月31日から9月7日までの09時における地上天気図（日本気象協会発行の雑誌「気象」より）

求めた。

#### 2-4-5 日射量

波長約  $0.3\mu$  から  $3\mu$  までの日射量を連続測定した。測定器は、周囲に日射をささぎるものがなく、しかも周囲からの散乱光を受けない後部甲板のガントリー上に設置した。

#### 2-4-6 気温

気温は、サーミスター温度計の受感部を、羅針甲板上に設置してある小型百葉箱に入れ、イヤホンコードを用いて研究室内の変換部に導き、連続測定した。なお、随時、アスマン通風乾湿計と比較した。

### 3. 調査期間中の天気概況

調査期間中の地上天気図を、図-3に示す。

1977年8月は、東京で6日から27日まで毎日雨が降るという異常気象であった。その後は次第に夏らしい天気が復活して、9月4日まで続いた。しかし4日の夜には寒冷前線が関東地方を通過したため、風が南から北へ変化した。5日は移動性高気圧におおわれたため全国的によい天気となったが、7日には日本海に前線があり、また土佐沖に弱い低気圧が発生したので、大気は不安定になってきた。

### 4. 調査結果および考察

調査期間中の全測定結果を一括して図-4に示す。

海上での天気は、晴天が続いて、日射量は日中  $1\theta y/min$  前後であったが、2日と5日の日中は雲が多かった。風は、4日の夜まで南寄りの風が吹き続いたが、5日未明には北東の風に変化し、その後6日の

午後まで北東から東寄りの風であった。

つぎに、図-4で特徴的な結果を次に述べる。

(1) 南寄りの風が吹き続けている海上では、伊豆諸島海域だけでなく、相模湾上でも、 $O_3$  濃度は  $30\sim 40$  ppb という一定値を示している。さらに、 $O_3$  濃度は、その一定値より高くなったり低くなったりしているが、その原因については、以下に考察する。

(2)  $NO$  濃度は、期間中ほとんど検出限界の  $2$  ppb 以下であった。

(3) 伊豆諸島海域上で、太平洋高気圧の圏内にあって南寄りの風が吹き続けている時の大気中では、 $O_3$  濃度は一定であり、 $NO \cdot NO_2$  濃度は検出限界の  $2$  ppb 以下、炭化水素および  $BaP$  濃度も非常に低い値であることから、この大気は、清浄大気とみなすことができよう。

つぎに、これらの結果をさらに詳しく、各海域上で各測定項目毎に述べ、また、陸上での測定結果および第1次調査結果との比較検討を行なった。今回初めて行なった炭化水素については、海上でのバックグラウンド濃度の把握を主目的にしたので、 $NO_x \cdot O_3$  との光化学反応についての考察は行っていない。

#### 4-1 窒素酸化物およびオゾン

##### 4-1-1 伊豆諸島海域上での水平分布 (Leg3~4)

伊豆諸島海域上での  $NO_2$  および  $O_3$  濃度の水平分布を図-5に示す（なお、地点X、Yで、海底に設置した流速測定器の回収のため4~8時間停泊しているが、その間の濃度は図-4を参照していただきたい）。図-5にみられるように、前半の Leg 3では、 $O_3$  濃度は  $30\sim 40$  ppb とほぼ一定であり、日変化はない。



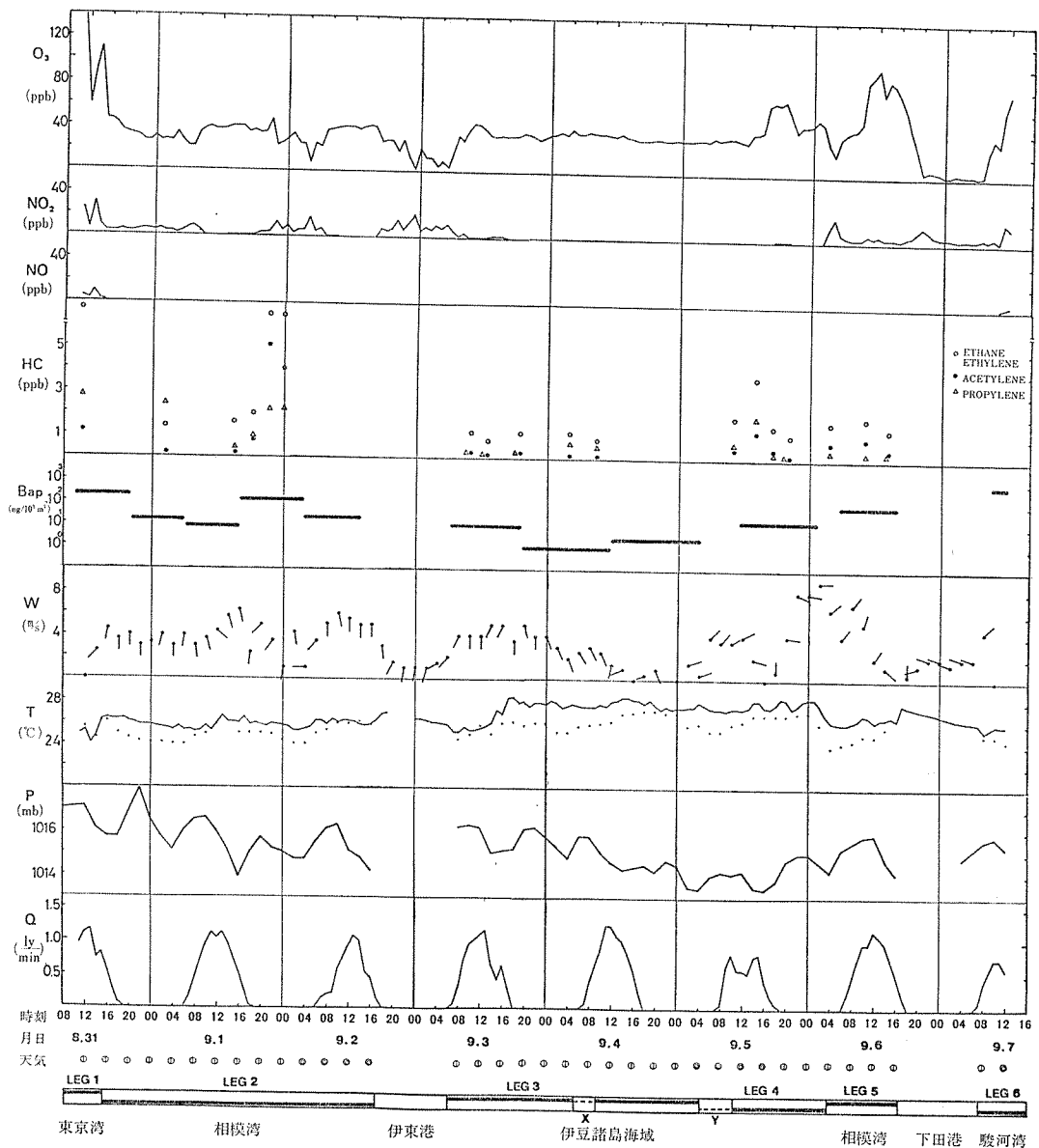


図-4 調査期間中における全測定結果の一覧図 (なお、ここでは低沸点炭化水素は、エタン+エチレン、アセチレン、プロピレンだけを図示した。また、 $\uparrow$ は南風を表わす。)

NO・NO<sub>2</sub>濃度は検出限界の2ppb以下と非常に低い。この期間は太平洋高気圧圏内に入っており、図-6に示すように南寄りの一般風が吹き続き、日射量も日中1 $\theta$ y/minを超えていた。それ故、前述のO<sub>3</sub>濃度は、夏期の太平洋上の大気中のバックグラウンド濃度であり、このような清浄大気中ではO<sub>3</sub>濃度は日変化を示さない、とみなすことができる。

その後、Y点から御前崎沖まで北上したLeg4では、風は北東から東寄りとなり、O<sub>3</sub>濃度の変動はLeg

3に比べて大きかった。特に、5日15時から21時にかけてO<sub>3</sub>濃度が上昇し、最高値は70ppbとLeg3での濃度の2倍にも達した。この間、風は弱くほとんど無風で、NO<sub>2</sub>濃度は3ppbであった。なお陸上での風のデータによれば、東京および平塚では4日の18時から、三浦半島の南端の三浦では20時から、また大島では夜中に、三宅島では5日の未明に、さらに海上のY点では5日の早朝に、南寄りの風から北ないし北東の風に変化している。なお、図-6に、5日12時の、太

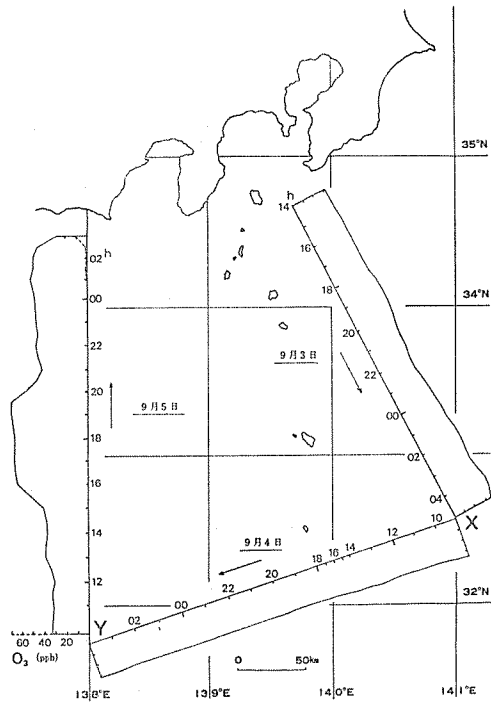


図-5 Leg 3~4におけるNO<sub>2</sub> (……), O<sub>3</sub> (—) 濃度の水平分布

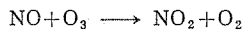
平洋沿岸地域および伊豆諸島付近での風向風速を示した。これらより、前述した高濃度のO<sub>3</sub>を含む大気は、約半日前に東京湾沿岸地域を通過してきたもので、輸送される過程で光化学反応によりO<sub>3</sub>が生成されたと推測される。

#### 4-1-2 相模湾上のNO<sub>x</sub>およびO<sub>3</sub>濃度の水平分布

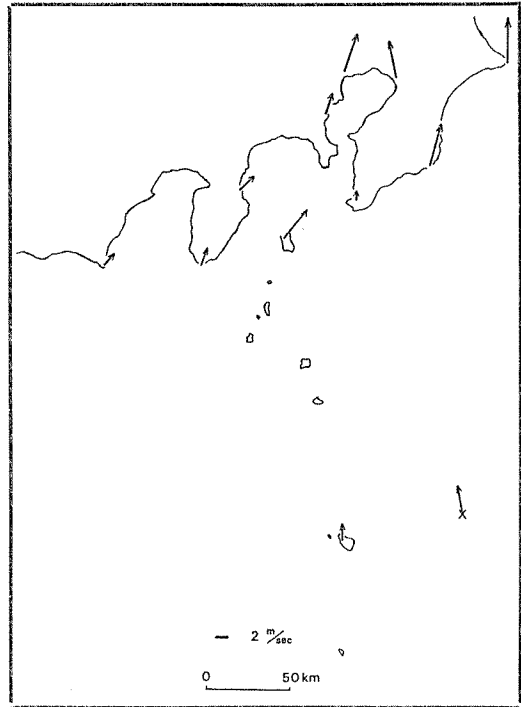
##### 4-1-2-1 Leg 5

Leg 5におけるNO<sub>x</sub>およびO<sub>3</sub>濃度の分布を図-7に示す。この航海は、前述のLeg 4に続くものである。

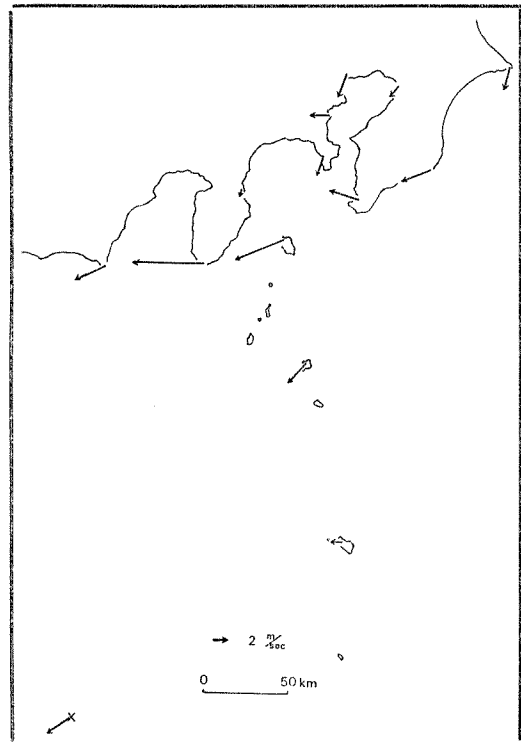
御前崎沖から駿河湾沖へ東進した6日02時30分頃から05時にかけて、NO<sub>2</sub>濃度が増加し、それに逆比例してO<sub>3</sub>濃度が減少した。この現象は主に、



による反応の結果であるが、O<sub>3</sub>の減少量がNO<sub>2</sub>の増加量より1~2割多いことから、O<sub>3</sub>は他の機構によっても分解されていると考えられる。この時、海上では北東の風が5m/s前後吹いているので、この大気は、駿河湾沿岸地域の都市および工業地帯で汚染されて、約2~3時間後に船の位置にまで到達したと推測される。なお、NO濃度は増加していないが、これは、日



(1) 9月4日00時



(2) 9月5日12時

図-6 太平洋沿岸地域および伊豆諸島付近における風向風速 (なお、矢印は風の進む方向を示す)

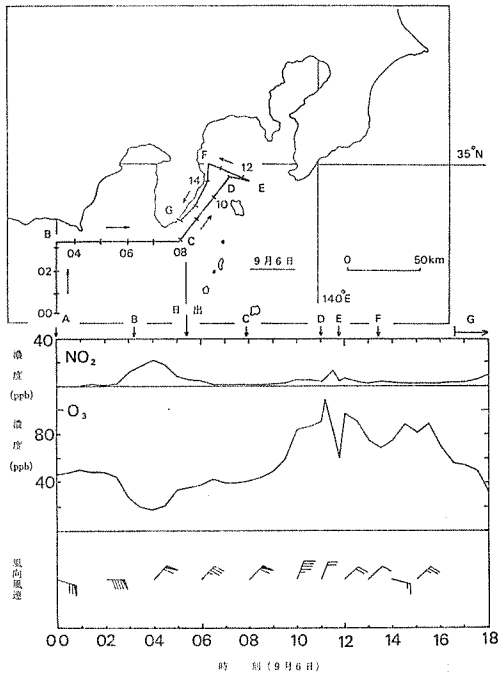


図-7 Leg 5における航跡図と、NO<sub>2</sub>、O<sub>3</sub>濃度と風の時間変化

射のない夜間でありしかも排出されてから数時間経過しているため、NOは全てNO<sub>2</sub>に変換されているためである。

その後、O<sub>3</sub>濃度は、石廊崎沖で40ppbに増加し、08時に図中のC点から進路を北東にとり相模湾へ向かい始めると更に増加し、11時過ぎに大島北方海上で最高値100ppbを測定した。なおNO<sub>2</sub>濃度はこの間4~8ppbと低かった。海上では、北東の風が5m/s前後吹き続けており、09時の沿岸地域の風は、図-8のように北から東寄りであり、横浜では03時から09時まで北から北東の弱い風が吹いていた。これらより、高濃度のO<sub>3</sub>を含む汚染大気は、早朝から午前中にかけて東京湾沿岸地域を通過したものであり、快晴で日射が強かったため、汚染大気中で光化学反応により大量のO<sub>3</sub>が生成されたためである。

つぎに、風向に直角な方向への汚染大気のひろがり調を調べるために、図のD点から東側へ進むとE点付近で60ppbまで減少した。さらにE点より西側へF点まで進むと、一旦上昇して再びゆるやかに減少していった。この間、風は北東であるが、1~2m/sと弱くなった。これより、東京湾沿岸地域を通過してきた汚染大気は、ある巾をもった汚染気塊として風下方向へ輸送されていることが明らかになった。

なお、この日の夕方までの測定によれば、相模湾南部から伊豆半島東部沖合および大島付近の海上にかけて、80~100ppbの高濃度のO<sub>3</sub>を含む汚染大気が滞留していた。この日は図-8に示すように、相模湾沿岸地域では09時過ぎに海風が吹き始めているが、日中のOx濃度は最高50~60ppbと高くない。一方、大島では12時頃まで4~5m/sの東寄りの風が吹き続き、その後も強い南寄りの風は吹いていない。これらより、前述した湾上の汚染大気は、湾内で強い南寄りの風が吹かなかったため、沿岸地域へはほとんど運ばれなかった、と推測される。

#### 4-1-2-2 Leg 2

Leg 2では、相模湾上の水平分布を詳しく調べるために、8月31日の夕方から9月2日の夕方まで、東西および南北に航走した。この期間、三浦半島の南端の三浦では、南寄りの一般風が連続して吹き続け、また、湾の東部の海上では、4~6m/sの南寄りの風が吹き続けていた。

しかし、9月1日夜から9月2日朝にかけて、一般風は南寄りの風なのに、相模湾西部では、図-9に示すように西寄りの風であり、気温も下がり、スモッグ状態となって、NOx濃度が急上昇してO<sub>3</sub>濃度が減少する、という現象がみられた。しかも、南寄りの風の時の大気は、「磯の香り」がしていたが、この西寄りの風の時の大気では、物の燃焼している臭いと同時に、森を散策する時に感じる「芳しい香り」もした。図-9にみられるように、相模湾西部沿岸地域は、海岸近くまで、高さ1,000mを超える箱根および伊豆山塊がせまっている。それ故、この大気は、これらの山塊より吹き下りてきた山風と呼ばれる冷気流で、沿岸都市域を通過中に汚染されて海上へ到達したものと推測される。このように、沿岸域での大気汚染物質の輸送過程を議論する時に、沿岸からすぐに山塊がせまっている地域では山塊の影響をも考慮すべきであり、非常に興味深い現象である。

#### 4-1-3 東京湾および駿河湾上でのNOxおよびO<sub>3</sub>濃度の水平分布 (Leg 1, Leg 6)

Leg 1の東京湾上およびLeg 6の駿河湾上でのNOxおよびO<sub>3</sub>濃度の水平分布を図-10に示す。

東京湾上は、船舶の往来が激しくその排煙の影響をしばしば直接受けるため、測定は必ずしも充分ではなかった。しかし、東京港を出た直後の8月31日11時過ぎにO<sub>3</sub>濃度は最高130ppbとなり、また、浦賀水道上の13時過ぎでも100ppbを超える高い濃度となった。船上での風の測定では、この間、東京湾上はほとんど無風状態か弱い南風であった。沿岸地域では、前夜か

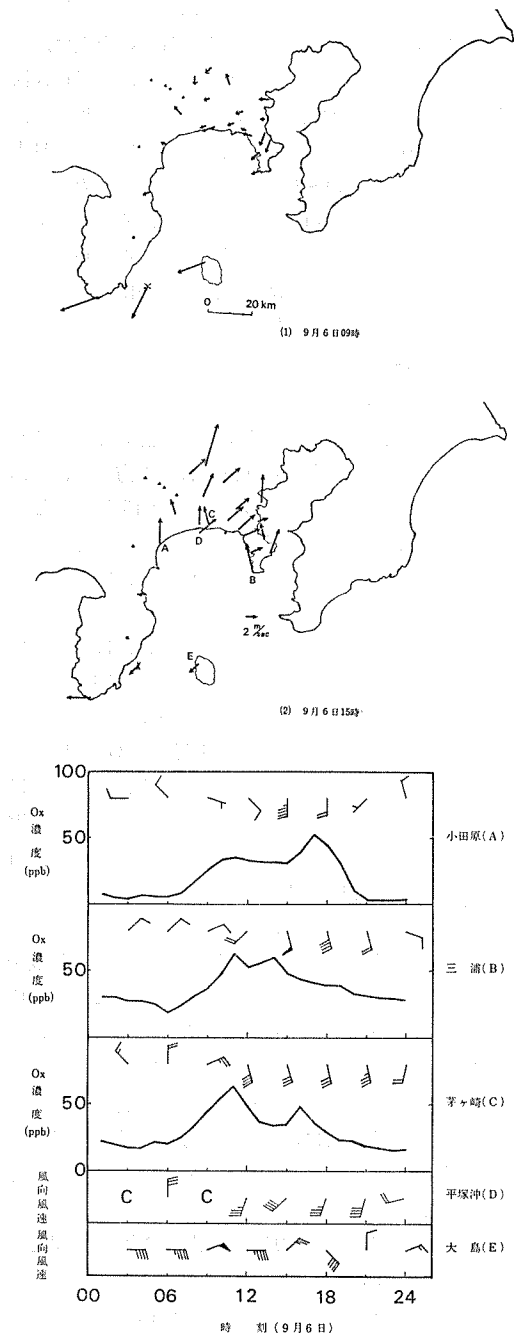


図-8 (1), (2) は、9月6日の相模湾沿岸における風の状況(風の流れる方向をベクトルで表示した)。(3)は、同日のO<sub>3</sub>濃度の日変化。なお、D地点は、平塚沖2kmにある国立防災科学技術センター平塚支所の観測塔で、この地点の風の静穏(C)は、風速2m/s未満の状態を表わす。

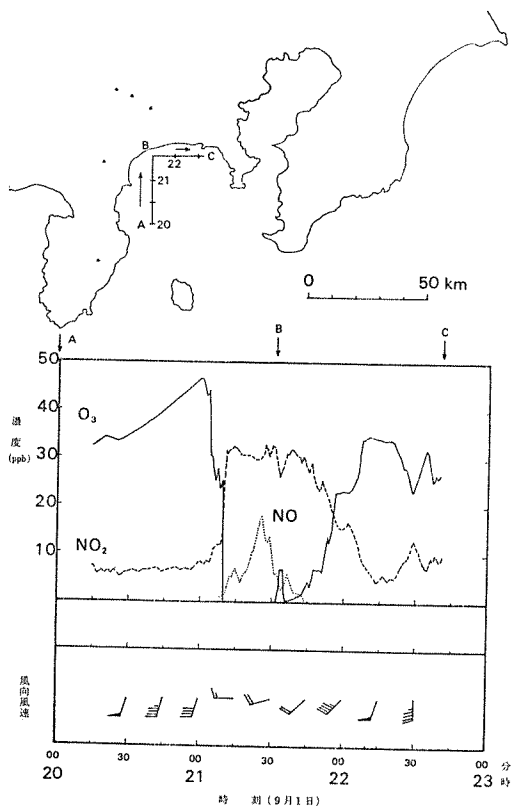


図-9 9月1日夜、相模湾西部海上での、航跡図とNO、NO<sub>2</sub>、O<sub>3</sub>濃度および風の時間変化

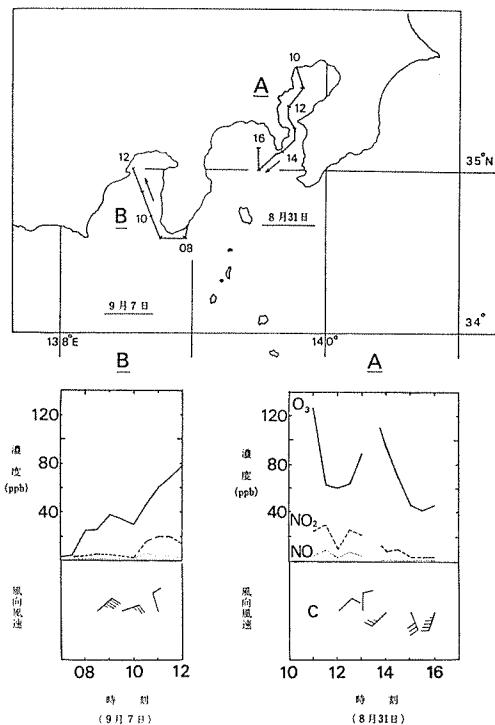
ら31日の09時頃まで弱い北～北東風が吹き続き、このために汚染物質が湾上に運ばれたと推測される。その後13時頃まで、1～2m/sの弱い東京湾海風が沿岸域では吹いていた。

なお、31日に横須賀および横浜で日中実施したパイロットバルーンによる上層風の測定結果を、図-11に示す。これによれば、東京湾海風はたかだか300mの高さであり、この層内に、比較的低い発生源からの汚染物質が閉じこめられていたと推測される。

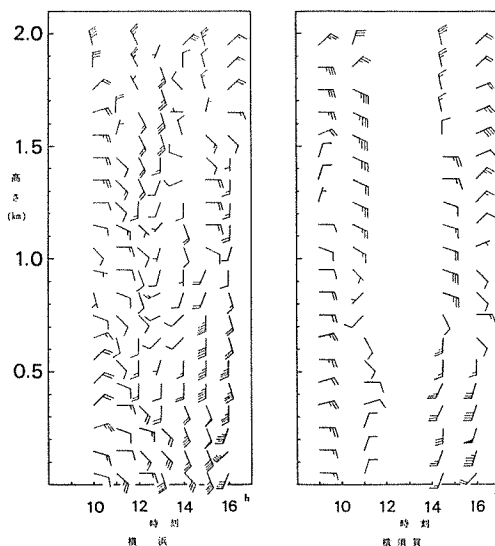
つぎに、今回の調査の最終日のLeg 6での測定結果によれば、駿河湾上でも、午前中風が弱く、O<sub>3</sub>濃度は80ppbと増加していた。この時も、沿岸地域では夜から朝にかけて北寄りの風が吹いており、沿岸地域の汚染物質が湾上に運ばれていることは明らかである。

#### 4-1-4 第1次調査との比較検討

前号で報告した第1次調査でも、今回のLeg 5と同様に、伊豆半島南部沖合から相模湾内へ北東に向けて船が航走しており、両者とも、北東の風が5m/s前後吹き続け、東京湾沿岸地域を通過してきた汚染大気中



図一〇 Leg 1, Leg 6 における航跡図と, NO, NO<sub>2</sub>, O<sub>3</sub> 濃度および風の時間変化



図一一 8月31日の横浜および横須賀における上層風

で測定が行なわれている。しかし、測定された NOx および O<sub>3</sub> 濃度は、両者で大きく異なっている。即ち、第1次では、NOx 濃度が 80ppb (NO<sub>2</sub> 濃度は約 60ppb) にも増加したが O<sub>3</sub> 濃度は 1 ppb 以下と低くなり、第

2次では、O<sub>3</sub> 濃度が 80~100ppb に増加したが、NO<sub>2</sub> 濃度は 5 ppb 前後と低い。この原因は、前者が日射のない夜間だったのに対して、後者は日射の強い午前中だったことにほかならない。

このように、都市域を通過してきた汚染大気は、夜間は NOx に代表される第1次汚染物質を、また日射の強い日中は O<sub>3</sub> に代表される光化学反応による生成物質を、それぞれ含んだ汚染気塊として、少なくとも 150km 風下の海上にまで輸送されることが明らかになった。

つぎに、第1次の時、相模湾上で、風が、陸上から吹いた後に弱くなると、日中、光化学反応により生成された高濃度の O<sub>3</sub> を含んだ汚染大気が滞留していたが、今回の調査でも、やはり同じ気象条件の時、東京湾・相模湾および駿河湾上で、同様な現象がみられた。これらより、前号で推測した、湾上は高濃度の O<sub>3</sub> の「貯蔵庫」であるという仮説は、今回の調査で実証された。

なお、この様な気象条件の時には、海陸風循環が発生しやすく、その後湾から沿岸地域へ向かって海風が吹くことが多いが、湾上の汚染大気が沿岸地域へ運ばれるかどうかは、海風の規模や強さによって異なるようである。

#### 4-1-1-5 非都市域での O<sub>3</sub> 濃度

都市域での O<sub>3</sub> 濃度は、汚染大気中では、一般に日中増加して夜間減少するというよく知られた日変化を示す。また、陸上では非都市域でも、日変化を示すが、これは、対流による上下層大気の混合や、エロゾルや地表面による O<sub>3</sub> の分解等によるものといわれている<sup>4)</sup>。

Fabian and Pruchnicz<sup>5)</sup> は、1969年以降、ヨーロッパおよびアフリカ大陸の非都市域の約20ヶ所で O<sub>3</sub> のバックグラウンド濃度の測定を実施している。それによれば、O<sub>3</sub> 濃度は、測定地点の局地的な地形や気象および緯度によって多少異なるが、北半球の中緯度では、夏期、30ppb 前後である。また、日変化は、その地点に特有な変化を示し、最高濃度の出現時間も、日中・真夜中・朝晩と、前述した地形や気象条件によって異なっている。

川村ら<sup>6)</sup> は、地上付近の影響のほとんどない乗鞍岳山頂と、太平洋上に存在している父島とで、1976年秋に各10日前後、O<sub>3</sub> 濃度を測定している。その結果によれば、O<sub>3</sub> 濃度は、低気圧域で低くなるというように気圧の大きな変化とよく対応しており、高気圏内では 30~40ppb で、日変化は示さない。

これらより、地形等の影響のない海上での清浄大気

中における O<sub>3</sub> 濃度は、一定で日変化はないと推測されるが、これまで海上での測定がなされていなかった。しかし、今回の伊豆諸島海域上での Leg 3 における測定により、海上での夏期の O<sub>3</sub> のバックグラウンド濃度が 30~40ppb と一定で日変化を示さないことが、はじめて明らかになった。

最近、アメリカ大陸では、都市域だけでなく、郊外や田園地域でも、しばしば環境基準値 (80ppb) を超える O<sub>3</sub> 濃度が測定されて、大きな問題となっている。この現象が、成層圏から対流圏へ輸送されてくる O<sub>3</sub> の直接の影響なのか、あるいは、都市域での汚染物質が遠方にまで運ばれていることによるものかは、まだ結論が出ていない (詳しくは文献 (7) を参照していただきたい) なお、Lamb<sup>9)</sup> によれば、1972年11月19日の夜明けにカリフォルニア州で 230ppb という高濃度の O<sub>3</sub> を測定したが、高層気象資料を含めた解析の結果、この O<sub>3</sub> は成層圏から直接やってきたものである、と推論している。

日本においては、伊藤<sup>9)</sup> は、千葉県東京湾沿岸地域で、1971年から1974年の春から夏にかけて、夜間南寄りの風の時に、6回もオキシダント (Ox) 濃度が 100ppb を超えたと報告している。しかし、その報告

に示されている他のデータから判断すると、ほとんどの場合日中も Ox 濃度が高いので、北寄りの風により東京湾やさらに南方海上にまで運ばれた汚染気塊が、再び海風により沿岸地域へ輸送されたもの、と考えられる。

油本<sup>10)</sup>は富山県で、1975年から1976年の2年間で、20時から06時までの夜間に、Ox 濃度が100ppb を超えた回数が20回あり、それは、4月から5月にかけてのフェーン現象がみられた時間と一致している、と報告している。

また四方<sup>11)</sup>は、四国の、太平洋および紀伊水道に面している非都市域の阿南市周辺でも、Ox 濃度が 100ppb をしばしば超える時があり、その時間帯は、午後で海風の吹いている時である、と報告している。さらに、前日から当日の気流を解析した結果、阿南市が京阪神地帯の風下になっている場合と、そうでない場合があり、その頻度は同程度であった、と述べている。

これらの現象を解明するには、海上での O<sub>3</sub> 濃度の測定、気流の径路の詳細な解析、および都市大気指標となる物質の同時測定を、実施していかなければならない。第1次・第2次の海上調査の結果では、350

表—3 相模湾・伊豆諸島海域上での炭化水素濃度 (1977年8月31日~9月6日)

Leg	日	時	分	試料番号	単位 ppb							
					エタン エチレン (C <sub>2</sub> H <sub>6</sub> + C <sub>2</sub> H <sub>4</sub> )	アセチレ ン (C <sub>2</sub> H <sub>2</sub> )	プロパン (C <sub>3</sub> H <sub>8</sub> )	プロピレ ン (C <sub>3</sub> H <sub>6</sub> )	i-ブタン (i-C <sub>4</sub> H <sub>10</sub> )	n-ブタン (n-C <sub>4</sub> H <sub>10</sub> )	i-ペンタ ン (i-C <sub>5</sub> H <sub>12</sub> )	n-ペンタ ン (n-C <sub>5</sub> H <sub>12</sub> )
1	8.31	11:12	1	17.4	1.2	5.2	2.7	1.5	2.7	2.2	0.8	
2	9.01	02:27	2	1.4	0.2	10.7	2.4	2.0	1.9	0.2	0.2	
2	9.01	15:08	3	1.6	0.2	0.2	0.4	0.1	0.3	0.2	0.2	
2	9.01	18:37	4	2.0	0.8	0.7	0.9	0.4	0.9	0.7	0.6	
2	9.01	21:30	5	8.1	5.1	3.9	2.2	1.8	3.5	3.3	2.2	
2	9.02	00:11	6	7.9	4.0	6.0	2.2	3.0	6.2	3.2	2.1	
3	9.03	10:00	7	1.2	0.3	N.D.	0.3	0.3	0.6	0.4	0.4	
3	9.03	13:00	8	0.8	0.2	0.4	0.2	0.3	0.5	0.3	0.3	
3	9.03	19:00	9	1.2	0.3	0.6	0.3	0.3	0.6	0.6	0.4	
3	9.04	04:00	10	1.2	0.2	0.5	0.7	0.3	0.6	0.4	0.4	
3	9.04	08:59	11	0.9	0.2	0.3	0.6	0.3	0.6	0.2	0.3	
4	9.05	10:00	12	1.9	0.5	0.5	0.6	0.4	0.8	0.5	0.3	
4	9.05	14:03	13	3.7	1.3	2.9	1.9	1.5	3.2	2.6	1.6	
4	9.05	17:10	14	1.5	0.5	0.6	0.3	0.3	0.6	0.6	0.4	
4	9.05	20:04	15	1.1	0.2	0.2	0.2	0.2	0.3	0.4	0.3	
5	9.06	03:25	16	1.7	0.8	1.2	0.4	0.8	1.2	0.9	0.7	
5	9.06	10:06	17	1.9	1.0	1.3	0.3	0.7	1.4	0.7	0.6	
5	9.06	14:20	18	1.4	0.5	0.7	0.4	0.3	0.7	0.5	0.4	
				横浜市磯子	2.6	1.9	1.5	1.1	0.8	1.5	1.2	0.8

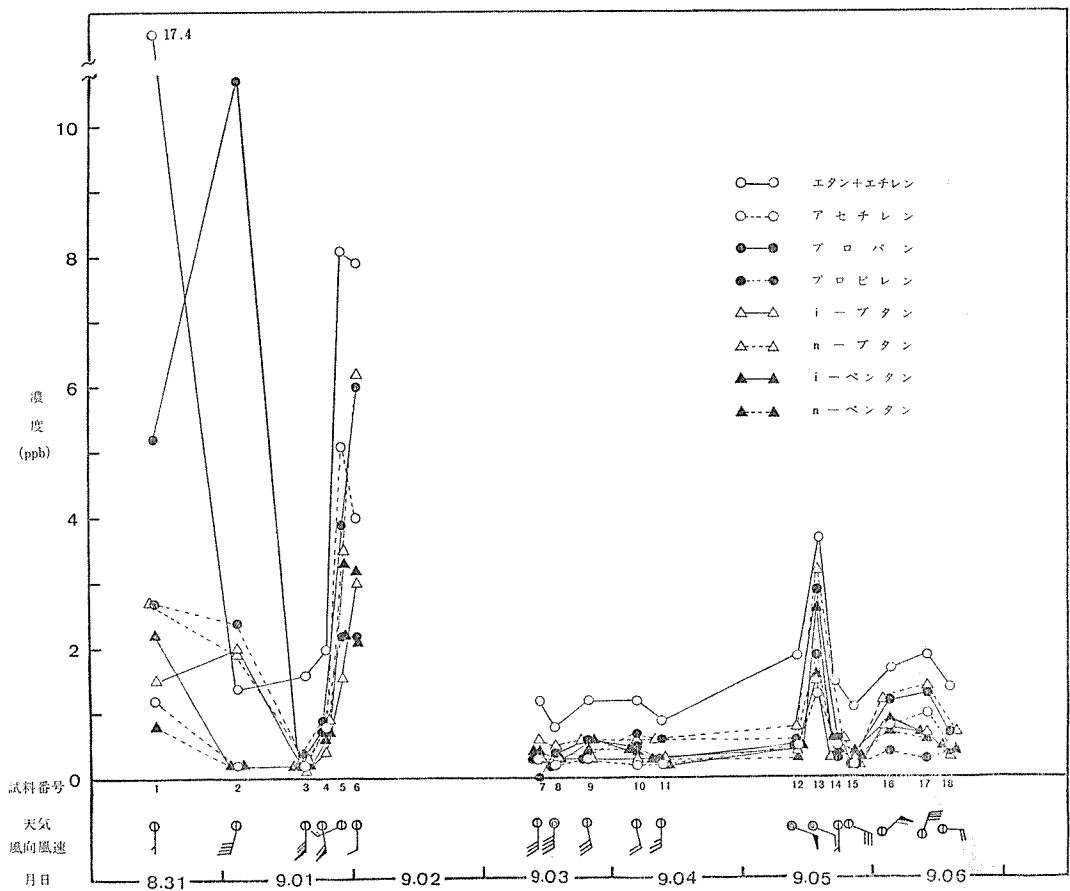


図-12 低沸点炭化水素濃度の全測定結果

km南方の海上にまで高濃度の  $O_3$  を含んだ汚染気塊は運ばれると推測され、また、湾上で滞留している高濃度の  $O_3$  を含む汚染気塊は、海風により再び沿岸地域へ運ばれる場合もあることが明らかになった。

なお、対流圏の清浄大気中での  $O_3$  は、成層圏から輸送されてくるものと、対流圏の清浄大気中で光化学反応により生成されるものがある<sup>12)</sup>が、清浄大気中での光化学反応については、別の機会に詳しく述べる予定である。

#### 4-2 炭化水素

炭化水素は、調査期間中、18回大気を採取し、成分分析を行なった。その結果をまとめて表-3、図-12に示し、また、各試料の採取位置を図-13に示した。

##### 4-2-1 Leg 3 (試料 No. 7~No.11)

Leg 3 の前半、大島東方海上より八丈島東方海上へ南下中。図-12に示すように、約2~5時間毎に大気を採取した。その結果を図-12に示してあるが、各成

分ともほぼ一定値で様に低い濃度であった。この期間中は、2~5 m/sの南寄りの風が吹き続き、晴天であった。前述したように、この時の大気は清浄大気とみられ、この炭化水素濃度は、伊豆諸島海域上でのバックグラウンド濃度と考えられる。次に各成分の平均値を表-4に示した。

これによれば、エタン+エチレンの濃度は、1.06ppbであるが、他の成分の濃度は0.6ppb以下であり、特にアセチレン0.24ppb、i-ブタン0.30ppbと非常に低い値である。

そこで、都市大気の一例として9月8日の横浜市公害研究所での炭化水素濃度と、海上での濃度とを比較すると、アセチレン9.0倍、次いでプロパン4.2倍およびi-ブタン2.7倍である。また、東京港出港直後のNo.1の濃度は、エタン+エチレン約16倍、プロパン約14倍、プロピレン約6倍である。このように  $C_2 \sim C_4$  成分の炭化水素は、都市汚染の寄与の特に大きい成分

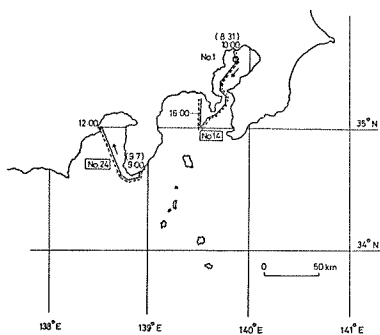


図-12 (1)

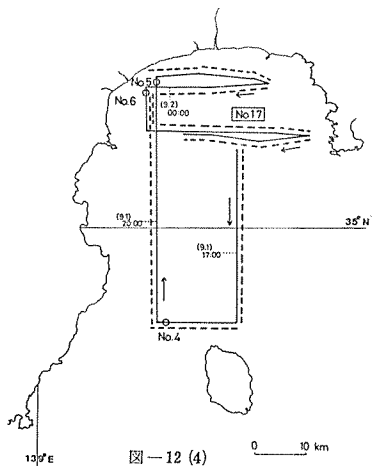


図-12 (4)

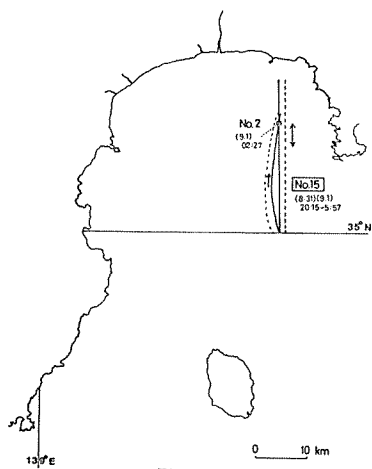


図-12 (2)

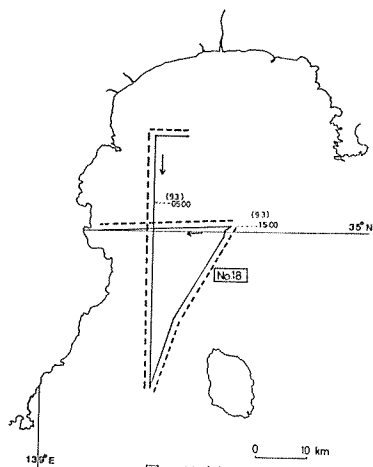


図-12 (5)

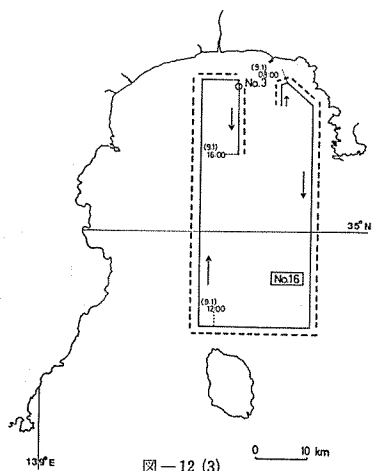


図-12 (3)

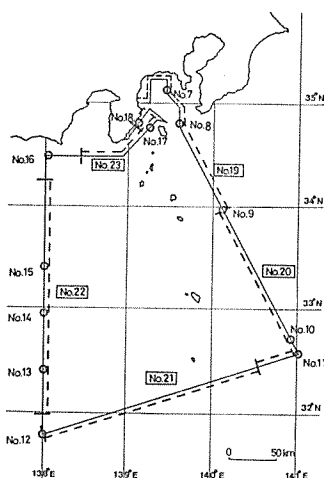


図-12 (6)

図-13 炭化水素および浮遊粉じんの採取位置と試料番号。炭化水素は、○印により採取位置を示し、その試料番号をNo. で示した。また、浮遊粉じんは、-----により採取位置を示し、その試料番号を No. で示した。



表一4 世界各地域における炭化水素のバックグラウンド濃度の測定例

炭化水素成分	(1977) 伊豆諸島 海域上	A		B		C		D	
		(1967) アラスカ ポイントバロー	(1971) 南極大陸 ドライバレー	(1975) アメリカ大陸 ミズリー州	(1976) 大太平洋上 60°S~70°N				
エタン (C <sub>2</sub> H <sub>6</sub> )		0.05	0.7	2.2	アセチレン				
エチレン (C <sub>2</sub> H <sub>4</sub> )			0.7	0.9	(PAC-76)				
エタン+エチレン (C <sub>2</sub> H <sub>6</sub> +C <sub>2</sub> H <sub>4</sub> )	1.06				60°S~20°S 0.07				
アセチレン (C <sub>2</sub> H <sub>2</sub> )	0.24		0.3	0.5	20°S~0° 0.05				
プロパン (C <sub>3</sub> H <sub>8</sub> )	0.36			1.3	0°~20°N 0.06				
プロピレン (C <sub>3</sub> H <sub>6</sub> )	0.42		0.3	0.2	25°N~70°N 0.19				
i-ブタン (i-C <sub>4</sub> H <sub>10</sub> )	0.30		0.1	0.3	エタン				
n-ブタン (n-C <sub>4</sub> H <sub>10</sub> )	0.58	0.07	0.1	0.6	(PAC-76)				
i-ペンタン (i-C <sub>5</sub> H <sub>12</sub> )	0.38				60°S~20°S 0.37				
n-ペンタン (n-C <sub>5</sub> H <sub>12</sub> )	0.36	0.02		0.4	20°S~0° 0.30				
ベンゼン (C <sub>6</sub> H <sub>6</sub> )		0.10			0°~25°N 0.50				
アセトン (C <sub>3</sub> H <sub>6</sub> O)		0.08			25°N~70°N 0.82				

A Cavanagh et al.<sup>14)</sup>

C Chatfield et al.<sup>16)</sup>

B J. V. Behar et al.<sup>15)</sup>

D Rasmussen et al.<sup>17)</sup>

であるといえよう。

#### 4-2-2 世界各地域におけるバックグラウンド濃度の測定結果との比較

世界各地域での炭化水素のバックグラウンド濃度については Robinson<sup>13)</sup> が、最近まとめて、述べている。つぎに、(A) アラスカ、(B) 南極大陸、(C) アメリカ大陸、(D) 太平洋上の4地域での炭化水素濃度の測定例を、表一4に示す。これらを比較すると、最も低い濃度はアラスカで測定され、アメリカ大陸でのプロピレンを除く他の成分の濃度は、他の地域より高く、人為的な汚染や生物系からの影響もあると考えられる。一方、太平洋上の濃度は、アセチレン・エタンとも、北半球では、南半球よりも濃度が高くしかも緯度が高くなるにつれて濃度が上昇する傾向がみられる。

今回の測定結果を、これらの測定例と比較すると、アセチレン濃度は、0.24ppbに対して、太平洋上(25°N~70°N)では0.19ppb、南極では0.3ppbとあまり差は認められない。アメリカ大陸での結果と比較すると、プロピレンを除く他の成分は、伊豆諸島海域上での濃度の方がやや低い傾向を示している。また、南極大陸でのC<sub>2</sub>・C<sub>3</sub>成分と比較すると、伊豆諸島海域上とほぼ同じ濃度であるが、C<sub>4</sub>成分は後者の方が高い。

以上からも、前述したLeg 3での炭化水素濃度は、

伊豆諸島海域上でのバックグラウンド濃度であると推測される。

なお、このようなバックグラウンド濃度の測定例は非常に少なく、また分析成分の濃度範囲も大きい。低濃度の炭化水素の分析においては、試料の保存性、低濃度標準ガスの作成等を含めて、十分な注意を払う必要があり、今後さらに検討を加えていく予定である。

#### 4-2-3 Leg 4 (試料 No.12~No.15)

この期間は、風は北東ないし東寄りの風であった。No.12とNo.14は、エタン+エチレン、アセチレン、プロパンの濃度がLeg 3より1.5~2倍高いが、他の成分は0.3~0.8ppbであり、同程度である。

No.13は、各成分とも1.3~3.7ppbの濃度範囲で、Leg 3よりかなり高い値を示した。この時、風は東南東で1.3m/sと弱く、O<sub>3</sub>濃度は40ppbとわずかに上昇しているがNOx濃度は検出限界以下であり、この時の炭化水素も都市汚染大気の影響を受けていると思われるが、断定は出来ない。

No.14とNo.15は、前述したように、O<sub>3</sub>濃度が清浄大気中の2倍に高くなった時に採取したものであるが、No.14の方がやや濃度が高い。また、No.14は、Leg 3の清浄大気中の濃度より、1.5~2倍高い成分がいくつか存在するが、No.15は、ほとんど同じ濃度である。

以上、No.13を除いてまとめると、風が北東ないし

東寄りの風であった Leg 4 では、Leg 3 の清浄大気中より高い成分がいくつか存在し、都市汚染の影響が表われているとも考えられる。

#### 4-2-4 Leg 5 (試料 No.16~No.18)

Leg 4 の後、船はさらに陸地に近づいて、御前崎沖で No.16 を採取した。この濃度は、プロピレン 0.4ppb の他は、0.7~1.7ppb で、Leg 3 での濃度より 2~4 倍高い。この時、風は北東で 6 m/s 吹いており、同時に NO<sub>2</sub> 濃度が 10ppb 以上に増加していることから、駿河湾沿岸地域で汚染された大気であると考えられる。

No.17 および No.18 は、6 日の日中、大島付近と伊豆半島東部沖合の海上で、東京湾沿岸地域を通過してきた大気を採取したもので、同時に測定している O<sub>3</sub> 濃度は 80~100ppb と高かった。各成分は、Leg 3 での濃度よりもやや高く、特にアセチレン・プロパンは 2~4 倍も高かった。

#### 4-2-5 Leg 1~2 (試料 No.1~No.6)

8 月 31 日に東京湾を出港した直後に採取した No. 1 は、前述したように東京の都市域を通過してきた大気で、特にエタン+エチレン 17.4ppb、プロパン 5.2ppb と Leg 3 より約 15 倍も高い濃度であった。

また No. 5 と No. 6 は、9 月 1 日の夜中に、相模湾西部の海上で採取したもので、各成分とも高く、Leg 3 での濃度より 5~8 倍、特にアセチレン 20 倍、プロパン 15 倍と非常に高かった。この大気は、前述したように、相模湾西部沿岸地域を通過してきており、小田原および熱海等の都市域で排出された汚染物質が直接運ばれてきたものである。

No. 2 は、南寄りの風が 4 m/s の時、江の島沖で採取したものであるが、Leg 3 での濃度に比べてプロパンは約 30 倍、プロピレン・i-ブタンも約 6 倍高い。しかし他の成分は、Leg 3 での濃度と比較してもあまり

表-5 陸上(川崎、横浜)と海上での BaP 濃度測定結果

No.	粉じん採取地域	粉じん採取日		採取時		吸引量			BaP 含有量	
						m <sup>3</sup>	mg	μg/m <sup>3</sup>	ng/10 <sup>3</sup> m <sup>3</sup>	ng/mg, dust
1	川	8.31	10:12~9.1	10:10	2,543	285.5	112	2,800	25	
2		9.1	10:42~9.2	10:02	2,476	256.4	105	890	8.4	
3		9.2	10:05~9.3	10:02	2,601	284.7	114	550	4.8	
4		9.3	10:05~9.4	10:08	2,532	289.4	114	1,000	9.6	
5	崎	9.4	10:13~9.5	10:02	2,507	221.5	89	1,200	13	
6		9.5	10:02~9.6	10:26	2,569	319.5	125	720	5.8	
7		9.6	10:30~9.7	9:32	2,571	229.1	93	3,400	38	
8	横	8.31	15:50~9.1	10:25	1,404	67.7	48	230	4.7	
9		9.2	11:32~9.3	10:35	2,113	92.6	43	310	7.2	
10		9.3	11:36~9.4	11:10	2,176	111.3	51	65	1.2	
11		9.4	11:13~9.5	10:56	2,182	145.3	66	780	11	
12		浜	9.5	10:59~9.6	11:10	2,204	154.9	70	670	9.5
13			9.6	11:52~9.7	14:33	2,433	130.6	53	290	5.4
Leg										
14(1-2)	海	8.31	10:00~20:05		314	17.1	5	220	4.3	
15(2)		8.31	20:15~9.1	5:57	373	7.4	19	17	0.8	
16(2)		9.1	6:01~16:01		389	8.4	21	8	0.3	
17(2)		9.1	16:08~9.2	3:44	420	12.4	29	150	5.1	
18(2)		9.2	3:47~14:18		398	10.1	25	24	0.9	
19(3)		9.3	6:36~19:07		538	8.0	14	12	0.8	
20(3)		9.3	19:15~9.4	11:37	602	4.2	7	1	0.1	
21(3)		上	9.4	11:42~9.5 4:00		775	6.3	8	3	0.3
22(4)			9.5	10:53~9.6	1:20	661	11.0	16	19	1.1
23(5)			9.6	5:20~15:53		454	13.1	28	96	3.4
24(6)			9.7	9:00~12:00		115	7.4	64	270	4.2

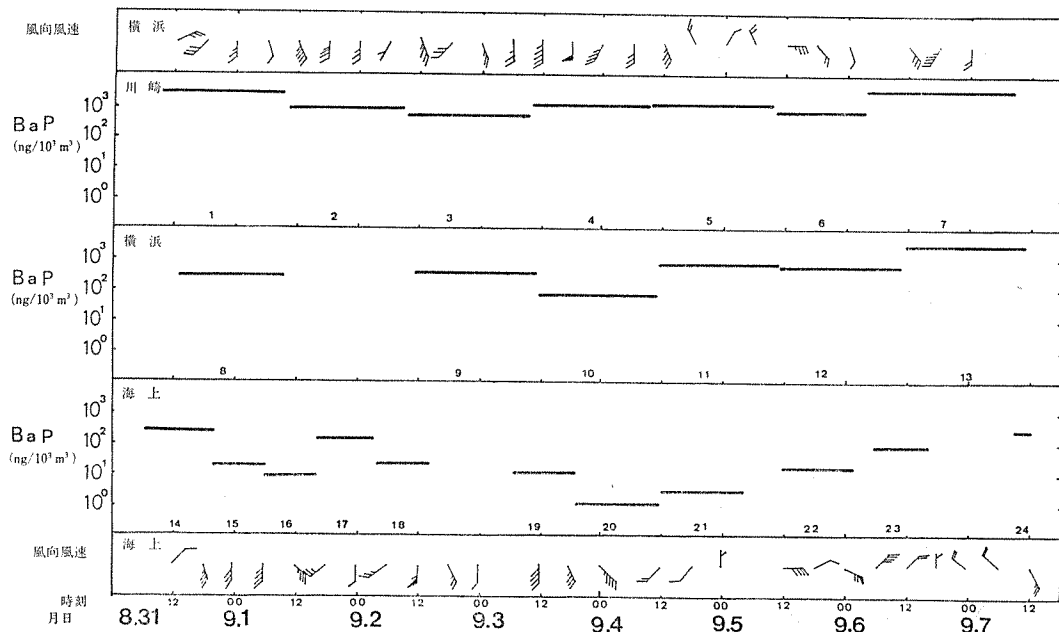


図-14 陸上(川崎・横浜)と海上でのBaP濃度の測定結果(なお、横浜の風向風速は、横浜気象台での観測資料である)。図中の数字は、試料番号である。

差がない。

No. 3は大磯沖で、No. 4は大島の北西の沖合で、南寄りの風の時に採取したもので、前者はエタン+エチレンがやや高いだけで、他の成分はLeg 3と同程度の低い濃度であった。しかしNo. 4は、No. 3よりやや高かった。

以上より、相模湾上でも、南寄りの一般風の時には、伊豆諸島海域上で測定された清浄大気中とほぼ同じ濃度になることもあり、一方、陸上を通過してきた大気中では、沿岸地域の都市域で排出される大量の炭化水素により、バックグラウンド濃度よりも10~20倍も高くなる時もあることが明らかになった。

#### 4-3 ベンゾ(a)ピレン

浮遊粉じんは、調査期間中、海上で11回採取した。同時に、陸上の川崎市公害研究所と横浜市公害研究所の屋上で毎日採取しており、これらの測定結果をまとめて表-5、図-14に示した。また、各採取時間帯の船の位置は、前述した図-13に示してある。採取時間は、海上では、わずか3時間であるNo.24を除いては、10~17時間、陸上では約24時間連続である。

なお、海上で浮遊粉じんを採取したろ紙の写真を、巻頭に示した。これによれば、その時の大気の汚れの程度が一目瞭然である。

#### 4-3-1 海上での測定結果(資料No. 14~No. 24)

No.19~22は、図-12のように、伊豆諸島海域上を3日から5日にかけて南下・西進・北上した時に採取したものである。特にNo.20~21は、南寄りの一般風が吹き続けている時に採取し、各1, 3 ng/1,000 m³と非常に低い濃度であった。前述したように、同時に測定している各気体の濃度から、この時の大気は清浄であり、この濃度は、BaPのバックグラウンド濃度と考えられる。

なお、広野ら<sup>16)</sup>は、小笠原諸島で約2年間BaP濃度の測定を実施しており、その結果を図-15に示す。これによれば、夏期に最低濃度10ng/1,000 m³前後となっているが、今回の海上での濃度より約10倍高い。この原因としては、同島での人間活動による汚染も考えられる。

一方、No.19は、3日の午前中に相模湾西部沿岸海

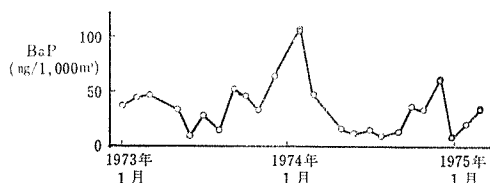


図-15 小笠原でのBaP濃度の経月変化<sup>17)</sup>

域での汚染大気(図一4のNO<sub>2</sub>濃度を参照のこと)を採取しているため、濃度がやや高く、12ng/1,000m<sup>3</sup>であった。

また、No.22は、Y点より北上中に採取したが、風は北東から東寄りの風であり、濃度も19ng/1,000m<sup>3</sup>とさらに高く、明らかに都市汚染大気はるか300~400kmも風下の海上にまでやってきたことを示している。

次に、No.15、No.16、No.18は相模湾内でしかもほとんど南寄りの風が吹いていた時に採取したもので、その濃度は、各17、8、24ng/1,000m<sup>3</sup>と、No.19、No.22とほぼ同程度の低さであった。

このように、夏期の太平洋高気圧におおわれて南寄りの風が吹き続ける時は、伊豆諸島海域から相模湾にかけての広範な海域上で、大気中のBaP濃度はたかだか20ng/1,000m<sup>3</sup>という非常に低いことが明らかになった。

一方、No.17とNo.23は、相模湾西部沿岸地域と東京湾沿岸地域を通過してきた大気中の濃度で、各150、96ng/1,000m<sup>3</sup>と清浄大気中の100倍以上も高かった。また、No.14とNo.24は、それぞれ東京湾および駿河湾上での濃度で、220、270ng/1,000m<sup>3</sup>と第2次調査中、最も高かった。この時も、前述したように、沿岸都市で排出された汚染物質が湾上に滞留していたので、清浄大気中の250倍前後という高濃度になったのである。

#### 4-3-2 陸上および第1次調査の結果との比較検討

海上での調査期間中に、同時に測定された陸上の川崎および横浜では、図一14に示すように、川崎の方が横浜より2~10倍高い濃度であった。特に川崎では、1,000ng/1,000m<sup>3</sup>という高濃度の日が、調査期間の半分を超える4日もあった。また、9月3日から4日にかけては沿岸地域でも強い南寄りの風が吹き続けた。この時、横浜では65ng/1,000m<sup>3</sup>(No.10)と最低濃度であったが、京浜工業地域の風下にあたる川崎では1,100ng/1,000m<sup>3</sup>と高い濃度であった。

一般に、BaP濃度は、季節による変化が大きく、夏期に最低を示し、冬期に最高となる。たとえば、川崎市公害研究所での測定では、冬期は夏期の2~5倍となっている<sup>19)</sup>。これらの測定結果から、冬期、京浜工業地域周辺でのBaP濃度は、夏期の伊豆諸島海域上での清浄大気中の約5,000倍も高いと推測される。

なお、第1次調査では、6回、大気中の浮遊粉じんを採取して、そのBaP濃度は50~700ng/1,000m<sup>3</sup>であり、全体的に今回の方が濃度は低かった。特に、第

1次の相模湾および伊豆半島沖合で、北東風の時の濃度は600~700ng/1,000m<sup>3</sup>と、今回よりも2~7倍も高い。これは、主に季節による気象条件の違いによるものとみられる。

## 5. まとめ

相模湾および伊豆諸島海域上での大気汚染に関する第2次調査を、研究船「淡青丸」を利用して、1977年9月上旬に実施した。

この調査の目的は、次の2点である。

- (1) 沿岸域における大気汚染物質の輸送および反応過程の解明。
- (2) 伊豆諸島海域上でのバックグラウンド濃度の把握。

測定項目は、都市汚染大気の指標となる窒素酸化物・オゾン・炭化水素の各気体および浮遊粉じん中のベンゾ(a)ピレン濃度であり、同時に、風・日射量・気温の気象要素をも測定した。

この第2次調査での測定結果を、同一期間中の陸上でのデータを参考にして解析し、次のような興味深い結論を得た。

(1) 伊豆諸島海域上において、夏期、太平洋高気圧圏内で南寄りの一般風が吹き続けているときの清浄大気中での各物質のバックグラウンド濃度は、O<sub>3</sub>は30~40ppb、NO<sub>x</sub>は2ppb以下、BaPは1ng/1,000m<sup>3</sup>であった。また、低沸点炭化水素は、エタン+エチレン1.06ppb、アセチレン0.24ppb、プロパン0.36ppb、プロピレン0.42ppb、i-ブタン0.30ppb、n-ブタン0.60ppb、i-ペンタン0.48ppb、n-ペンタン0.42ppbであった。

(2) O<sub>3</sub>濃度は、陸上では日変化をすることが知られているが、海上での清浄大気中では、日変化をしないで一定であることが明らかになった。

(3) 陸上を通過してきた大気中の、O<sub>3</sub>を除く物質の濃度は、前述の清浄大気中の濃度に比較して高いが、これは主に都市域での人為的な汚染によるものである。O<sub>3</sub>濃度は、日射のない夜間は、主にNOとの反応によって分解されて清浄大気中の濃度より低くなる。しかし、日射の強い日中は、汚染大気中での光化学反応により清浄大気中での濃度より高くなる。

(4) 東京湾沿岸地域より約350km南西方の海上で、清浄大気中より2倍も高い70ppbのO<sub>3</sub>濃度が測定された。同時に測定した他の物質および陸上の風のデータから判断すると、この大気は、東京湾沿岸地域を通過して汚染されて到達したものと推測される。

(5) 伊豆半島南部沖合から相模湾へ北東に向かって

船が航走している時、80~100ppbの高いO<sub>3</sub>濃度を測定した。この時は、日射の強い午前中で、北東風が5 m/s前後吹き続けていた。第1次調査でも同じコースで、夜間、やはり北東風が5 m/s以上吹いている時に測定しているが、NO<sub>x</sub>濃度が80ppbと非常に高く、逆にO<sub>3</sub>濃度は1 ppb以下と非常に低かった。これより、日射のない夜間は、NO<sub>x</sub>に代表される第1次汚染物質が、また、日射の強い日中はO<sub>3</sub>に代表される光化学反応による生成物質が、東京湾沿岸地域より風下の少なくとも150kmの海上にまで、汚染気塊として輸送されていることが明らかになった。

(6) 東京湾・相模湾および駿河湾上で、日中、風が陸上から湾上へ吹いた後に弱くなると、光化学反応により生成された高濃度のO<sub>3</sub>を含む汚染大気が滞留していた。第1次調査でも相模湾上で同様な現象がみられた。それ故、前号<sup>2)</sup>で推測した、このような気象条件の時には、湾上は高濃度のO<sub>3</sub>(を含む汚染大気)の「貯蔵庫」である、という仮説は、ほぼ実証されたといえよう。

(7) 前述のように、相模湾南部から大島および伊豆半島東部沖合の海上で、日中風の弱い時に、高濃度のO<sub>3</sub>を含む汚染大気が滞留していた。しかし、この時、日中、海風が吹きこんでいる沿岸地域のオキソダント(Ox)濃度は低かったので、この汚染気塊は、沿岸地域へはほとんど輸送されなかったと推測される。第1次調査では、相模湾上に滞留していた汚染気塊は、大島を吹き抜ける強い南寄りの風により、沿岸地域へ輸送されたが、今回は、大島で東寄りの風が午後まで吹き続き、その後も強い南寄りの風が吹かなかったため、と推測される。

(8) 相模湾東部で夜間、南寄りの強い一般風が吹いている時でも、西部沿岸海上では、箱根や伊豆山塊から吹き下りてくる山風とみられる冷気流が観測された。この大気中では、NO<sub>x</sub>、炭化水素、BaP濃度が高く、O<sub>3</sub>濃度が低いことから、沿岸地域の都市域で排出された汚染物質が湾上へ運ばれていることは明らかである。沿岸地域での大気汚染物質の輸送過程を論ずる時に、沿岸からすぐに山塊がせまっている地域では、山塊の影響をも考慮すべきである。

(9) 海上での調査期間中に、同時に川崎と横浜でもBaP濃度を測定した。これによれば、京浜地帯での濃度は、伊豆諸島海域上の清浄大気中より1,000倍も高かった。また、冬期の京浜地帯での濃度はさらに高く、約5,000倍となる。このことは、京浜地帯でのBaPの汚染の激しさを、顕著に示している。

(10) 炭化水素濃度も、東京湾および相模湾西部の縁

上で、エタン+エチレン、アセチレン、プロパン等は、清浄大気中の濃度より、約20倍も高い濃度が測定された。

## 6. おわりに

海上で、南寄りの風が吹き続けている時の大気は、いわゆる「磯の香り」の臭いがして、とても心地良かった。しかし、相模湾西部沿岸海上で西寄りの風の時は、物の燃焼している時の悪臭と同時に、森や山を散策している時に感じるあの芳しい「森の臭い」がした。また、伊豆半島と大島との間の海上を北東に進んでいる時、即ち、北東の風でO<sub>3</sub>濃度が80~100 ppbにも増加した時、大気は何ともいえない臭い——そう、これこそ光化学スモッグが発生している時の都市域での複合汚染大気の臭い——であった。このように、大気の質的な違いは、その臭いにははっきりと表われ、非常に印象深かった。

さて、今回の第2次調査では、第1次調査で推測された仮説が実証され、また、バックグラウンド濃度に関して新たな知見が得られた。しかし、大気境界層での汚染物質の輸送および反応過程を解明するには、海陸風循環時における湾上での日変化を定点で調査すべきであり、また、湾上だけでなく、同時に航空機により上層で測定を実施する必要がある。

それ故、今後も、さらに総合的な調査を実施していく予定である。

## 謝 辞

この調査は、最初に述べたように、東大海洋研究所の「淡青丸」KT-77-12次研究航海として実施されたもので、同船の上之清尚船長はじめ関係者の方々に深く感謝します。

ベンゾ(a)ピレンの分析を御指導いただいた国立公衆衛生院の松下秀鶴先生に感謝します。

また、浮遊粉じんを採取していただいた川崎市公害研究所、および、パイロットバルーンによる上層風の測定を実施して下さった横須賀市役所環境保全部の、関係者の方々の御協力に深く感謝します。

気象資料ならびに大気汚染常時監視測定資料を提供していただいた気象庁、国立防災科学技術センター平塚支所、および、神奈川県、東京都、川崎市、横須賀市の各機関の関係者の御好意に感謝します。

なお、この研究は、文部省科学研究費(特定研究「海洋環境保全」)「大気から海洋への汚染物質の降下に関する研究」の一環としても行なわれたものであり、研究代表者の、東大海洋研究所の浅井富雄教授の

助言に謝意を表します。

### 参 考 文 献

- 1) 環境庁大気保全局：南関東大気環境調査報告書, 141 (1977).
- 2) 鶴田治雄, 前田裕行, 太田正雄, 鈴木英世：相模湾および伊豆諸島海域上での大気汚染物質に関する観測 (第1次), 横浜市公害研究所報第2号, 47—63 (1978).
- 3) 前田裕行：化学結合型充填剤の大気中低沸点炭化水素の分析への適用の検討, 同上, 86—88 (1978).
- 4) 川村 清：窒素酸化物と地上付近のオゾン, 化学の領域, 23, 46—51 (1969).
- 5) P. Fabian and P. G. Pruchnievicz: Meridional distribution of ozone in the troposphere and its seasonal variations, *J. Geophys. Res.*, 82, 2063—2073 (1977).
- 6) 川村 清, 伏見克彦：綾里, 乗鞍岳, 南島島, 父島における大気中の  $\text{SO}_2$ ,  $\text{NO}_2$ ,  $\text{NO}$ ,  $\text{CO}$ ,  $\text{O}_3$  濃度について, 気象研究所技術報告第1号, 117—123 (1978).
- 7) B. Dimitriades and A. P. Altshuler: International conference on oxidant problems: analysis of the evidence/viewpoints presented, Part II. Evidence/viewpoints on key issues. *J. Air Poll. Control Assoc.*, 28, 207—212 (1978).
- 8) R. G. Lamb: A case study of stratospheric ozone affecting ground-level oxidant concentrations, *J. Appl. Meteor.*, 16, 780—794 (1977).
- 9) 伊藤昭治, 伊藤道正, 吉成晴彦, 菊地 立：千葉県における夜間のオキシダント濃度について, 第16回大気汚染研究全国協議会大会講演要旨集, 478 (1975).
- 10) 油本幸夫：富山地区におけるオキシダント汚染について, 第18回大気汚染研究全国協議会大会講演要旨集, 186 (1977).
- 11) 四方 浩, 岡部義信, 大西桃次：非都市域における高濃度オキシダントの解析, 日本気象学会1978年度秋季大会講演予稿集, 95 (1978).
- 12) 鶴田治雄, 小川利紘：対流圏における光化学反応, 第18回大気汚染研究全国協議会大会講演要旨集, 191 (1977).
- 13) E. Robinson: Hydrocarbons in the atmosphere, *Pure appl. Geophys.*, 116, 372—384 (1978).
- 14) L. A. Cavanagh, C. F. Schadt and E. Robinson: Atmospheric hydrocarbon and carbon monoxide measurements at Point Barrow, Alaska, *Environ. Sci. Technol.*, 3, 251—257 (1969).
- 15) J. V. Behar, L. Zafonte, R. E. Cameron and F. A. Morelli: Hydrocarbons in air samples from antarctic dry valley drilling sites, *Antarctic Journal*, 7, 94—96 (1972).
- 16) R. B. Chatfield, R. A. Rasmussen and M. W. Holdren: Hydrocarbon species in rural Missouri air, accepted for publication, *J. Geophys. Res.*
- 17) R. A. Rasmussen and E. Robinson: Atmospheric hydrocarbon concentrations in global background air samples, Report 77—13—48 College of Engineering, Washinton State University to Coordinating Research Council, New York, July 1977. (1977).
- 18) 広野富雄, 朝来野国彦, 石黒辰吉, 松下秀鶴：東京都大気中のベンゾ(a)ピレン濃度, 公害研究報告書 (大気編), 公害研究所資料 1—0—30, 90—98 (1977).
- 19) 松下秀鶴, 嵐谷圭一, 林 久緒, 永田正信, 市橋正之, 佐藤裕司：ベンゾ(a)ピレン等による川崎市の大気汚染状況, 第16回大気汚染研究全国協議会大会講演要旨集, 437 (1975).

# I 三ツ沢地区における幹線道路の 自動車騒音レベル

Measurement of Road Traffic Noise at Mitsuzawa Area in Yokohama City

鹿島 教昭\*, 樋高 雄治\*

## 要 旨

道路沿線地域の騒音予測をするために必要な調査資料は、殊に夜間に関してはきわめてとぼしい。そこで、夜間を含む交通状況および騒音レベルの実態を把握し、予測に必要な資料を得るために一幹線道路を選定し、休日と平日の24時間にわたって、交通状況を観察するとともに騒音レベルの測定を実施した。

この地域では、平日の騒音レベルが、休日のそれよりも高く、環境基準に定められているレベルを下回る時間帯は、ごく一部にすぎない。総交通量は、平日が休日の1.1倍であるが、大型車においては5.3倍にも達しており、平日と休日との騒音レベルの差を裏付けるものとなっている。

また、騒音測定によって得られた実測値は、平日の渋滞時を除けば、日本音響学会が提案している予測式による計算値とよく一致していた。

## 1. はじめに

幹線道路を走行する車輛によってひきおこされるさまざまな自動車公害に対処するため、国道1号線沿線の三ツ沢地区を対象として、自動車公害に関するアンケート調査及び騒音測定を実施した。この報告では騒音測定結果の一部について述べる。道路からの距離別等による騒音レベルの差異、及びアンケート調査結果などの詳細については次号に報告する。

## 2. 調査目的

幹線道路沿線地域の騒音レベルと、そこに居住する住民の自動車公害に対する意識、及び反応との関係を明確にすることを目的とした。その一環としてこの調査が実施され、ここでは24時間にわたる交通状況ならびに騒音レベルの実態を把握し、日本音響学会が提案している予測式<sup>1),2)</sup>(以下「音響学会式」と呼ぶ。)による計算値と騒音レベルの実測値との比較をすることとした。その理由は道路沿線地域の騒音レベルを時間推移とともに予測する場合、必要な夜間の交通量及び車速の調査資料が不足しており、とくに車速の資料については皆無に等しいためである。今回一幹線道路を選

定し、休日と平日の24時間にわたって交通状況を観察するとともに、騒音レベルの測定を実施した。

## 3. 音響学会式

道路交通騒音の中央値を予測計算する式は次のものである。

$$L_{50} = Lw - 8 - 20 \log \ell + 10 \log \left( \pi \frac{\ell}{d} \tanh 2\pi \frac{\ell}{d} \right) + \alpha$$

$$Lw = 87 + 0.2V + 10 \log (a_1 + 10a_2)$$

$L_{50}$  : 騒音レベルの中央値 [dB(A)]

$Lw$  : 一台の車から発生する騒音のA特性による平均パワーレベル [dB(A)]

$Q$  : 交通量 [台/時]

$V$  : 速度 [km/h]

$a_1$  : 小型車混入率

$a_2$  : 大型車混入率

$$a_1 + a_2 = 1$$

$d$  : 平均車頭間隔

$$d = 100V/Q$$

$\ell$  : 車線から受音点までの距離 [m]

$\alpha$  : 補正値  $\alpha = \alpha_d + \alpha_i$

$\alpha_d$  : 回折による補正値

$\alpha_i$  : 沿道における地表条件等種々の原因による補正値

\* 公害研究所騒音部門

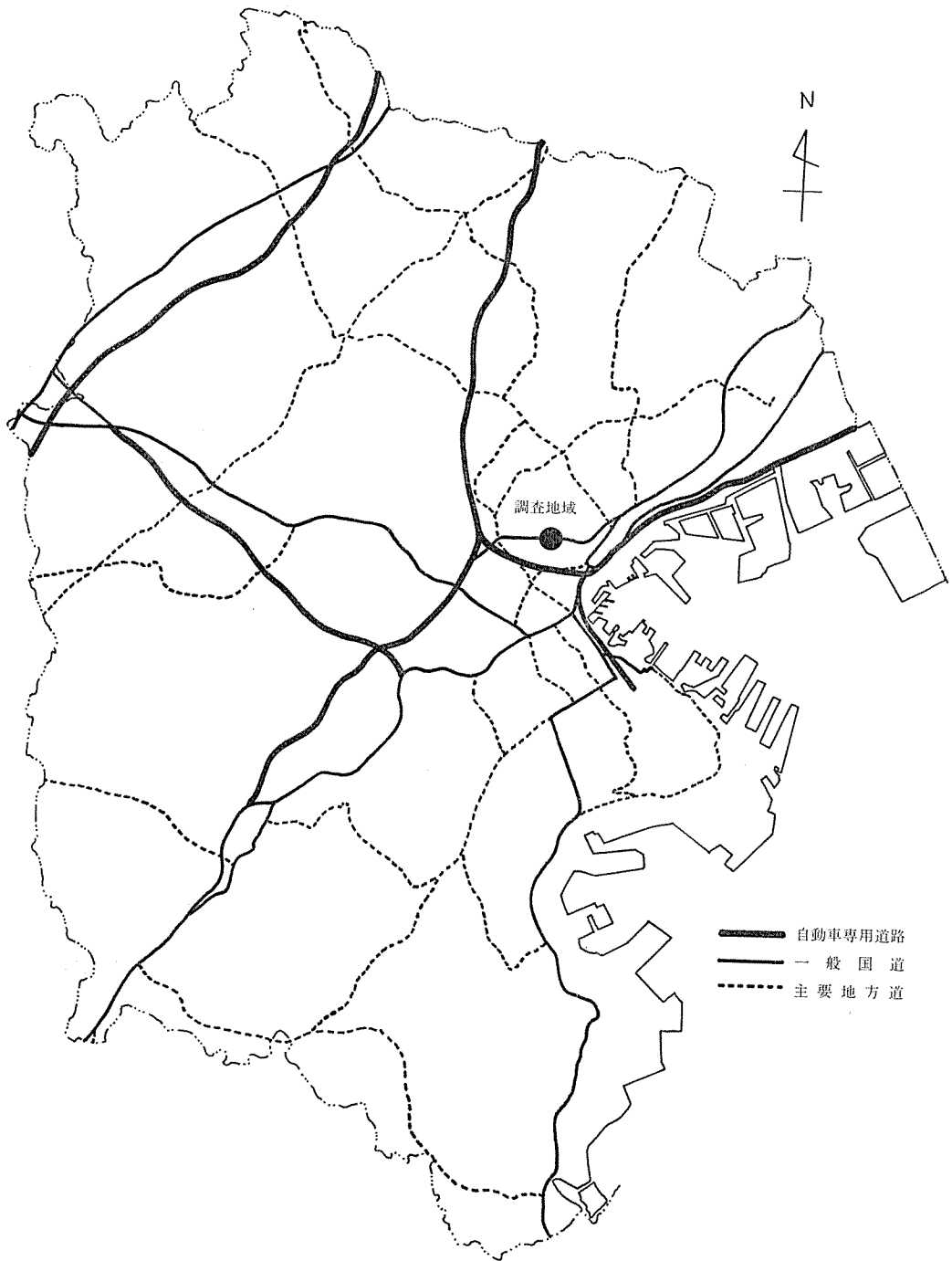


図-1 横浜市内における調査地域の位置



推定計算は“自動車専用道路またはこれに準ずる道路を、毎時約1,000台以上の自動車が、毎時30km~100km程度の速度で定常的に走行しているとき、この道路から約100mまでの地点の騒音レベルの中央値を求めるために用いられるものである。”とされている。<sup>1)</sup>なお本報告での計算値は補正項 $\alpha$ をゼロとした結果である。

#### 4. 調査日時

##### 4-1 騒音測定

昭和53年2月17日から2月22日まで

##### 4-2 交通量調査

昭和53年2月19日 日曜日

昭和53年2月22日 水曜日

#### 5. 調査道路

一般国道1号線 片側2車線

#### 6. 調査地域

横浜市神奈川区三ツ沢下町(近隣商業地域<sup>3)</sup>)

この地域は国道1号線が東の京浜工業地帯から西の横浜新道、保土ヶ谷バイパスを経て東海自動車道に至る、その通過地域である。調査地域の横浜市内における位置を図-1に、また当地域近辺の概況を図-2に示す。

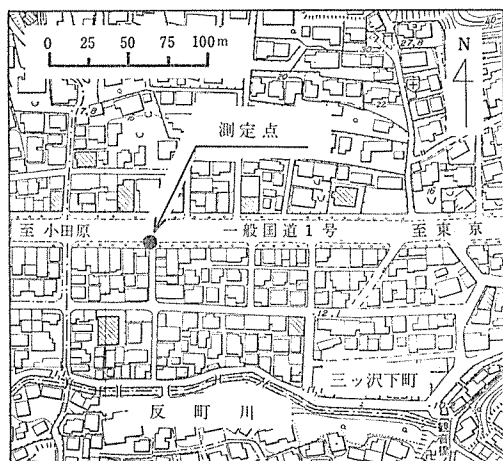


図-2 調査地域近辺の概況

#### 7. 調査方法

##### 7-1 騒音測定

###### 7-1-1 測定機器

騒音計 NA-09 (リオン製)

デジタル処理器 SV-70 (リオン製)

###### 7-1-2 測定方法

国道1号線に対するマイクロホンの位置を図-3に示す。マイクロホンを延長ケーブルによりSV-70に接続し測定結果をプリントさせた。2月17日から2月22日までの5日間連続測定である。測定周期は15分間とした。測定開始時から初めの10分間に0.5秒間隔で1,200個の騒音レベルのサンプルを収録し、残り5分間に統計処理されて得られた90パーセントレンジと80パーセントレンジの上下端値、中央値及び等価騒音レベルをプリントさせた。

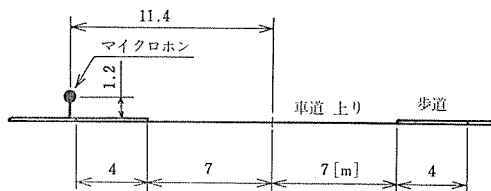


図-3 道路横断とマイクロホン位置

##### 7-2 交通量調査

騒音測定と同じ時間帯に2分類<sup>1)</sup>による大型車数と総交通量を上下線別に計数した。

##### 7-3 車速測定

騒音測定と同じ時間帯に、任意の車輛が100mを通過するに要する時間をストップウォッチで測定し、車速を求めた。

#### 8. 結果

測定結果である騒音レベルの中央値を1時間毎にパワー平均<sup>(注1)</sup>し、その値を当該時間の騒音レベルとした。結果を図-4に示す。ただし19日休日は0時より10時まで欠測である。

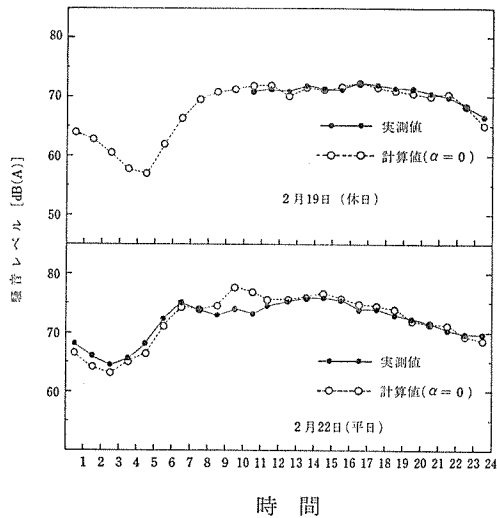
交通量の測定は1時間中40分実施した。従って40分の通過台数を1.5倍して1時間値とした。

車速については、測定した数台の通過時間のうち最

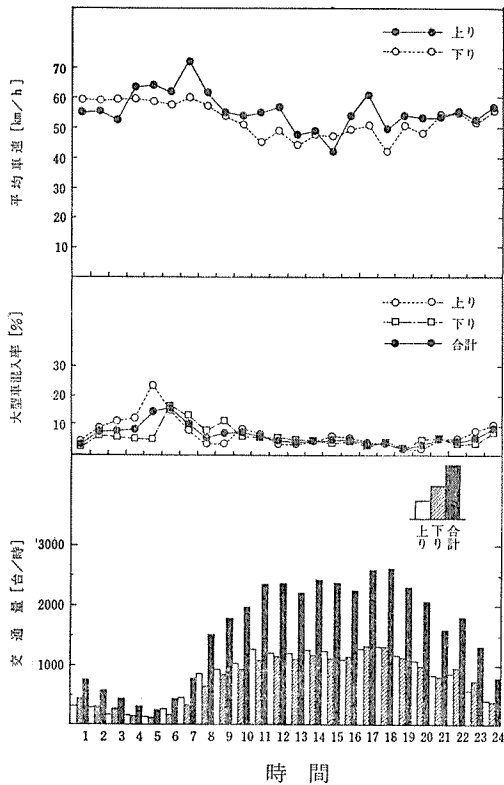
注1) パワー平均,  $\bar{L} = 10 \log \left\{ \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n L_i / 10 \right\}$

$\bar{L}$ : パワー平均 [dB(A)]

$L_i$ : 騒音レベル  $i=1, 2, \dots, n$  [dB(A)]



図一四 騒音レベルの時間変動 (車道端から4.4m)



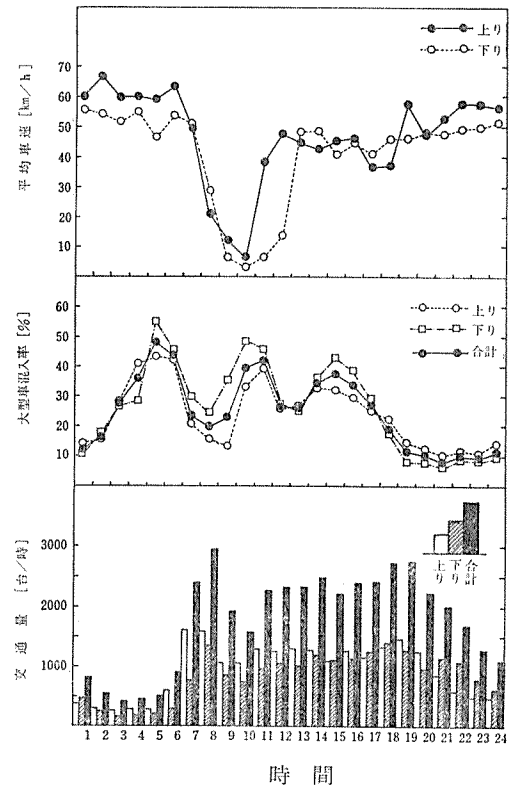
図一五 休日における交通量・車速の時間変動

長時間と最短時間を削除し、残りの通過時間より平均通過時間を求めこの値より平均車速に換算した。19日休日の結果と22日平日の結果をそれぞれ交通量の結果とともに図一五、図一六に示す。

## 9. 考察

### 9-1 騒音レベル

測定して得られた交通量と車速のデータを使用し音響学会式より求めた計算値を図一四に示す。平日の渋滞時を除けば実測値と計算値の差はほぼ±2dB(A)内にあり、前回の報告<sup>4)</sup>に比べ計算値と実測値は良く一致している。そこでこの計算値を用いて朝、昼、夕及び夜の自動車騒音レベルを求め表一、表二に示した。この時間区分は環境基準<sup>5)</sup>で使われる区分に一致させた。休日<sup>注2)</sup>は、平日に比べ朝5.9dB(A)、昼4.3dB(A)、夕1.8dB(A)及び夜5.1dB(A)レベルが低いことが判る。このことは住民の“日曜日は比較的静かである。”という感想を裏付けている。しかし環境基準と比較したとき、わずかに休日の午前3時及び4時台



図一六 平日における交通量・車速の時間変動

注2) 神奈川県内での時間区分は次のとおり。朝；6時～8時，昼；8時～18時，夕；18時～23時，夜；23時～6時。

表一 休日における時間区別騒音レベルと交通量

時間 区分	騒音レ ベル [dB(A)]	交通量 [台/時]			大型車混入率[%]		
		上り	下り	計	上り	下り	合計
朝	68.3	657	494	1151	5.3	10.0	7.3
昼	71.5	1187	1111	2298	5.2	5.4	5.3
夕	70.1	906	926	1832	4.2	4.2	4.2
夜	62.2	248	262	511	11.2	6.5	8.8
一日	69.6	811	773	1584	5.5	5.4	5.5

が基準内の値であり、平日では終日60dB(A)以下のレベルになることはない。

### 9-2 交通量

交通量については平日の場合明らかに朝の通勤時間帯にピークが認められ、午前7時台では2,661 [台/時]であり休日の同時時間帯の1,512 [台/時]に比べ約2倍である。この地域の平日の24時間交通量は43,164台である。横浜市内では、東海自動車道（東名高速）、県道東京野川横浜線（第3京浜）等の自動車専用道路を除けば、最も交通量の多い地点の一つである<sup>6)</sup>。また平日と休日の小型車だけを24時間帯でみると、平日で32,233台であり休日では35,939台である。休日の方が約3,700台多く、この値は休日の総台数の10パーセントに相当している。

平日の大型車混入率は休日のそれよりはるかに高い。表一、表二に既に示したように平日昼は休日昼の6倍であり、平日昼では3台に1台が大型車である。平日と休日の通過車輛数に大きな差が無いにもかかわらず、騒音レベルにおいて大きな差がでるのは、平日の大型車混入率が高いことからくるものである。

大型車混入率のピークは平日では明らかに存在するが休日では存在しないといえる。

### 9-3 平均車速

この地域を通る国道1号線の制限速度は40 [km/h]と指定されている。しかし休日では24時間にわたって平均車速が制限速度を下まわることにはなかった。また平日及び休日とも夜では、平均車速は50~70 [km/h]となっている事実が判明した。

表二 平日における時間区別騒音レベルと交通量

時間 区分	騒音レ ベル [dB(A)]	交通量 [台/時]			大型車混入率[%]		
		上り	下り	計	上り	下り	合計
朝	74.2	1613	1070	2683	18.2	26.6	21.6
昼	75.8	1219	1082	2301	30.2	35.6	32.7
夕	71.9	937	1060	1997	12.4	7.7	9.9
夜	67.3	372	314	686	28.6	22.9	26.0
一日	73.6	946	853	1799	24.7	26.1	25.3

## 10. まとめ

- 1) 騒音レベルの実測値と音響学会式による計算値とは、渋滞時を除けばその差は±2 dB(A)以内で良く一致した。
- 2) 平日における自動車騒音レベルは24時間にわたって60dB(A)を超えていた。
- 3) 1日の総交通量は平日で43,164台、休日では38,019台であり、平日は休日の1.1倍であった。
- 4) そのうちの大型車数は平日で10,931台、休日では2,086台であり、平日は休日の5.3倍であった。
- 5) 小型車数は平日で32,233台、休日では35,939台であり、休日の方が約3,700台多かった。
- 6) 休日の平均車速は24時間にわたって制限速度を超えていた。
- 7) 夜の平均速度は平日、休日とも50~70 [km/h]であった。

## 参 考 文 献

- 1) 音響学会：道路交通騒音の予測方法に関する研究報告書。昭和50年2月。
- 2) 石井聖光：道路交通騒音の予測方法に関する研究。音響学会誌。33, 426-430 (1977)。
- 3) 都市計画法第8条第1項第1号。昭和43年6月15日公布。
- 4) 鹿島教昭他：新山下地区騒音調査結果。横浜市公害研究所報第2号。95-100 (1978)。
- 5) 騒音に係る環境基準について。昭和46年5月25日、閣議決定。
- 6) 横浜市都市整備局：昭和52年度交通量調査報告書。昭和53年3月。

# I 重金属分析における溶媒効果と測定結果の安定性について

Enhancement of Atomic Absorption Sensitivity and Stability for Heavy metals by means of Solvent Extraction

大場 栄次\*

## 要 旨

重金属分析のための溶媒抽出法について検討を行なったところ、APDC-酢酸-n-ブチルにより比較的低いpH域から高いpH域まで安定した抽出を行なうことができ、多数の検体の多成分金属を原子吸光分析するために適した抽出法であることが明らかになった。また全クロム(以下「T-Cr」とする)の分析法に関し、測定濃度範囲および測定精度について検討した結果、ジフェニルカルバジド法が、低濃度試料の分析において安定な方法であることが判明した。

## 1. はじめに

公害関係の環境試料水の重金属定量分析は、微量分析であるため分析値の安定性と精度を高めなければならない。しかし測定方法および測定機器の発達している現在でも、試料の前処理、目的成分の抽出など多くの解決しなければならない問題を抱えている。分析値の精度と正確さの向上、さらにルーチン分析としての操作の簡易化を目的とし、試料の前処理から抽出、測定に至るまで同一器具で行なう方法について、特に前処理操作過程を中心に検討を重ねてきた。そこで重金属分析における有機溶媒抽出法に関して検討を行なった結果を報告する。さらにT-Crの測定精度について、いくつかの測定法間の比較検討を行なったので報告する。

## 2. 実験方法

### 2-1 装置

#### 2-1-1 原子吸光度計

島津製原子吸光度計 AA-630-02型を使用し、バーナー型式は予混合型で空気-アセチレンフレームとして、スリット幅1.9mmの条件で測定した。

#### 2-1-2 分光光度計

日立製分光光度計 200-10型を使用し、10mm 吸収

セルでスリット幅1mmの条件で測定した。

### 2-2 試薬及び調製方法

#### 2-2-1 金属標準試薬(原液)

表-1に示す標準試薬のうちZn, Cd, Pb, Mn, Niは5%硝酸で洗浄後、水洗い、アセトン洗浄後硫酸デシケーター中に入れ24時間以上乾燥し、その約1gを0.1mgまで正確に秤量した。Zn, Cd, Pb, Mnはそれぞれ10N硝酸10mlに溶解し、Niは酸に難溶なため沸騰水浴上で濃硝酸15mlに溶解したのち、それぞれに水を加えて100mlにした。Cu, Fe, Crは $\text{CuCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$  3.68g,  $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  4.84g,  $\text{K}_2\text{Cr}_2\text{O}_7$  2.83gを正確に秤量して10N硝酸10mlに溶解後正確に水で100mlにした。このときの各成分の濃度は約10,000mg/lで、これを標準原液とした。今回の全ての実験では蒸留水をイオン交換した水を使用した。

#### 2-2-2 調製試薬

測定用標準液：それぞれ最終濃度に対応する標準原液をとり水で希釈して各成分濃度を表-2に示す通りに混合調製したもの。

ジエチルジチオカルバミン酸ナトリウム(以下「DDTC」とする。)溶液(1w/v%)：DDTC 1gを水に溶かして100mlにしたもの。

ピロリジンジチオカルバミン酸アンモニウム(以下「APDC」とする。)溶液(1w/v%)：APDC

\* 横浜市公害研究所水質部門

1g を水に溶かして全量 100ml にしたもの。  
 クペロン溶液 (2w/v%) : クペロン 2g を水に溶かして全量 100ml にした。  
 1-(2-ピリジルアゾ) 2-ナフトール (以下「PAN」とする。) 溶液 (0.2w/v%) : PAN 0.2g を使用する各種の有機溶媒に溶かし全量 100ml にしたもの。  
 アンモニア水 (1+1) : 濃アンモニア水 1 と水 1 の割合で混合したもの。  
 クエン酸二アンモニウム 溶液 (10w/v%) : クエン酸二アンモニウム 10g を水 80ml に溶かし、pHメーターで pH 6~7 に希硝酸またはアンモニア水で調整したのち水を加えて全量 100ml にした。これを分液ロートに移し、DDTC 溶液 2ml と酢酸-n-ブチル 10ml を加え激しく振り混ぜ静置後分離する。次に水

層を濾紙で濾過して有機溶媒の微泡を取り除いたもの。  
 トリ-n-オクチルアミン-メチルイソブチルケトン(以下「TOA-MIBK」とする。) 溶液 (3v/v%) : TOA 3ml を MIBK に溶かし全量 100ml にしたものの。  
 ジフェニルカルバジド溶液 (1w/v%) : ジフェニルカルバジド 1g をアセトン 50ml に溶かし水を加えて全量 100ml にした。  
 硫酸アンモニウム溶液 (40w/v%) : 硫酸アンモニウム 40g を水に溶かして全量 100ml にしたもの。  
 過マンガン酸カリウム溶液 (0.3w/v%) : 過マンガン酸カリウム 0.3g を水に溶かして 100ml にしたもの。  
 アジ化ナトリウム溶液 (5w/v%) : アジ化ナトリウム 5g を水に溶かし 100ml にしたもの。

表-1 実験使用薬品

	薬品名	記号	品質	形状	純度 (%)
標準試薬	亜鉛	Zn	特級	粒状	99.975
	カドミウム	Cd		粒状	99.999
	鉛	Pb		粒状	99.999
	塩化第 2 銅	Cu	特級	2 水塩	99
	塩化第 2 鉄	Fe	特級	6 水塩	99
	ニッケル	Ni		粒状	99.5
錯体試薬	マンガン	Mn		粒状	99.99
	重クロム酸カリウム	Cr	特級		99.5
	ジエチルジチオカルバミン酸ナトリウム	DDTC	原子吸光用		
	ピロリジンジチオカルバミン酸アンモニウム	APDC	"		
	クペロン		一級		
有機溶媒	1-(2-ピリジルアゾ)-2-ナフトール	PAN			
	ジフェニルカルバジド		特級		
	トリ-n-オクチルアミン	TOA			
	酢酸-n-ブチル	NBA	原子吸光用		
その他の薬品	酢酸イソアミル	IAA	特級		
	メチルイソブチルケトン	MIBK	原子吸光用		
	プロピオン酸エチル	PEA	特級		
	硝酸		超特級		61
硫酸		"		97	
塩化アンモニア		"		37	
クエン酸二アンモニウム		"		25	
硫酸アンモニウム		原子吸光用			
過マンガン酸カリウム		"			
アジ化ナトリウム		特級			
アセトン		一級			
		残農用			

※上記試薬は全て和光純薬社製

表一 混合標準溶液濃度

成分	濃度 (mg/l)
重鉛	0.3
カドミウム	0.3
鉛	8
銅	2
鉄	2
ニッケル	4
マンガ	4
クロム	1 又は 150

2-2-3 その他の試薬

表一に示す。

2-3 定量分析方法

2-3-1 水溶性重金属の有機溶媒抽出

表一に示す混合成分濃度の標準溶液を希釈調製した検水について金属錯体試薬と有機溶媒を組み合わせ、さらに抽出時点の pH を変えて抽出分離後、有機溶媒層を原子吸光度計により吸光度測定を行なった。なお検討対象の錯体試薬と有機溶媒の組み合わせを表一3に、測定操作過程を図一1に示す。抽出時点の pH は 1.5, 3, 5, 7, 9, 11 の 6 条件について検討した。

表一 抽出系の組み合わせ

錯体試薬 \ 有機溶媒	NBA	IAA	MIBK	PEA
DDTC	○	○	○	○
APDC	○	○	○	○
クペロン	○	○	○	○
PAN	○	—	—	—

※但し DDTC：ジエチルジチオカルバミン酸ナトリウム  
 APDC：ピロリジンジチオカルバミン酸アンモニウム  
 PAN：1-(2-ピリジルアゾ)-2 ナフトール  
 NBA：酢酸-n-ブチル  
 IAA：酢酸イソアミル  
 MIBK：メチルイソブチルケトン  
 PEA：プロピオン酸エチル

検水20ml (混合標準溶液)

ビーカーにとる  
 —クエン酸二アンモニウム溶液10ml  
 —水を加え全量を100mlにする  
 pHメーターで pH調整 (1.5, 3, 5, 7, 9, 11)  
 硝酸またはアンモニア水を用いる  
 抽出瓶に移す  
 —錯体試薬 5 ml (表一3 参照)  
 —有機溶媒20ml (表一3 参照)  
 5分間振とう  
 —水を加え有機溶媒層を移動  
 有機溶媒層を直接噴霧して  
 原子吸光度測定

( Zn 213.9 nm, Cd 228.8 nm, Pb 283.3 nm )  
 ( Cu 324.8 // , Ni 232.0 // , Fe 248.3 // )  
 Mn 279.5 //

図一1 抽出測定操作手順

2-3-2 全クロムの各種測定による定量範囲と測定精度

J I S K 0102 で定めている吸光度法, T O A - M I B K 抽出直接噴霧および 1 N 硝酸溶解直接噴霧の原子吸光度法の 3 方法について検討した。Cr 標準溶液を段階的に水に添加して図一2, 3, 4 の操作手順に従いそれぞれの 3 方法により定量分析を行なった。また実環境試料水を図一5 に示す分析法に従い測定を行なった。

検水18.5ml, Crとして (1, 2.5, 5, 10, 25, 50, 100, 150 μg/ml に標準溶液を水で希釈調製)

共栓試験管にとる  
 —濃硝酸 1.5ml  
 直接噴霧して原子吸光度測定 (357.9nm)

図一2 酸溶解による全クロムの測定操作手順

検水20ml (Crとして絶対量 0, 5, 10, 20, 50, 150  $\mu\text{g}$   
 に標準溶液を希釈調整する)  
 ビーカーにとり水を加え全量 100 ml  
 —pHメーターで pH7 に調整  
 (硝酸またはアンモニア水)  
 —濃硫酸 1 ml  
 加熱沸騰させながら 0.3%  $\text{KMnO}_4$  を滴下  
 (5分間煮沸しても微紅色が残るまで)  
 冷却後水で 100ml として抽出瓶に移す  
 硫酸アンモニウム 20ml  
 TOA-MIBK 20ml  
 5分間振とう後水を加えて TOA-MIBK 層を移動  
 直接噴霧して原子吸光度測定 (357.9nm)

図-3 TOA-MIBK 抽出による全クロムの測定操作手順

検水50ml (Crとして 0, 2, 5, 10, 20, 40, 60, 75, )  
 (100  $\mu\text{g}/50\text{ml}$  に標準溶液を希釈調整)  
 —濃硫酸 0.15ml  
 加熱沸させ 0.3%  $\text{KMnO}_4$  を 5分間煮沸しても微紅色  
 が残るまで滴下する  
 —アジ化ナトリウムを滴下して色を消す  
 数分間煮沸  
 冷却後50ml比色管に移す  
 —ジフェニルカルバジド溶液 1 ml  
 —水で正確に50ml  
 5分後吸収セル10mm に移し吸光度測定  
 (540nm)

図-4 ジフェニルカルバジド法による全クロムの測定操作手順

検水50ml (抽出瓶にとる)

—濃硝酸 2 ml  
 —濃塩酸 6 ml  
 —濃硫酸 0.15ml  
 加熱し硫酸白煙まで煮沸  
 —冷却後水を加え全量約 100 ml  
 再度加熱し 0.3%  $\text{KMnO}_4$  を滴下し 5分間煮沸しても  
 微紅色が残るまで加える  
 —アジ化ナトリウムを色が消えるまで滴下  
 数分間煮沸  
 冷却後50ml比色管に移す  
 —ジフェニルカルバジド溶液 1 ml  
 —水を加え正確に50ml  
 5分後10mm 吸収セルにとり吸光度測定  
 (540nm)

図-5 環境試料中の全クロムのジフェニルカルバジド法による測定操作手順

### 3. 実験結果および考察

#### 3-1 錯体試薬と有機溶媒の重金層抽出条件

混合成分試料溶液20mlを水に添加し、表-3に示す錯体試薬と有機溶媒の組み合わせに従って、それぞれの pH 域で抽出測定した結果を表-4から表-10、図-6から図-12に示す。これらの結果から、感度と安定性の良い測定結果で、かつ抽出 pH 範囲の広い抽出系と測定結果を表-11に示す。また表に示した値の条件は、水溶液による直接噴霧測定とのピーク高さの同等、もしくはそれ以上の感度と測定結果の変動率が 0.5%以下で、最高ピーク高さの2点以上が5%以下の変動の測定結果である。

Mnについては、検討した有機溶媒抽出法では定量的な抽出はできなかった。なお Mnについては酸溶解が現段階では最も適当な方法と思われる。ZnとFeは抽出 pH 範囲が狭く結果の安定性も他成分に比較して多少劣るが、原子吸光測定における有機溶媒効果がみられるため、抽出時点の pH 調整を正確に行なえば酸溶解法より高感度な分析が可能である。Cd, Pb, Cu, Niは変動が少なく抽出 pH 範囲も広いため有機溶媒抽出により、安定した定量分析を行なえることが明らかになった。錯体試薬は今回の検討に使用したものに限り、APDC, DDTcが多くの金属元素と安定な錯体を生成し、抽出有機溶媒は酢酸-n-ブチル、酢酸

イソアミルのエステル系が良い測定結果を示した。中でもAPDCとエステル系の有機溶媒との組み合わせが抽出pH範囲が広く、比較的安定な抽出系と考えられる。さらに各成分ごとに抽出されるpH範囲が多少異なり抽出時点のpHを変える事で目的成分以外の金属を除去でき、クベロン-酢酸-n-ブチル系による抽出においてCuのみが抽出されることなどから、抽出pH域および抽出試薬を変えることにより測定対象以外の金属を除去できる可能性が明らかになった。原子吸光による有機溶媒効果の最も高い溶媒はプロピオン酸エチルであったが、抽出pH範囲が狭く安定した測定は出来ないものと考えられる。

### 3-2 全クロム測定方法別の測定精度と定量範囲について

水にCr標準液を添加した試料を吸光光度法、TOA-MIBK、酸溶解直接法の三種類の測定方法により、測定濃度範囲および測定精度を検討した結果を表-12から表-14、図-13から図-15に示す。これらの結果から吸光光度法と1N硝酸溶解による直接噴霧原子吸光法が変動が少なく安定した結果が得られた。TOA-MIBK抽出原子吸光光度法は測定結果の変動が大きく、測定誤差5%以内での測定は困難で、かつ検量線の直線性にも問題があり定量性に欠けると考えられる。それぞれの測定方法による定量範囲と、測定点の変動を表-15に示す。低濃度試料を精度良く分析するには、ジフェニルカルバジドによる吸光光度法で行なう事が最適な測定方法であると考えられる。しかしジフェニルカルバジド法は、発色段階における硫酸濃度に注意を払う必要がある。それは硫酸濃度の差が発色に影響するためである。測定操作過程で検液の移し代えをしない方法で、実際の環境試料についてジフェニルカルバジド法により測定した結果を表-16に示す。

測定結果からわかるとおり、変動率が0.5%以下の安定した測定結果が得られた。No.1が河川水、No.2が海水、No.3が工場排水でそれぞれにCrを添加し測定した結果である。

## 4. おわりに

水中重金属の定量分析における溶媒抽出法について検討を行なった。環境試料の分析においては、アルカリ金属等の妨害物質の除去のため溶媒抽出法はかかせない方法であり、本報告は最適抽出系をさぐるために行なったものである。検討の結果APDC-酢酸-n-ブチル系による抽出が、抽出pH範囲が広く一定しているため厳密なpH調整の必要がなく、したがって

pH調整による時間の浪費が少なくなり、多数の検体を分析するには適していることが明らかになった。またT-Crの分析については、ジフェニルカルバジドによる測定方法が最も安定した測定結果を与えることが判明した。

なお、今回報告のT-Crの測定法の検討においては麻布公衆衛生短期大学の田口恵理子氏に協力いただいたことを感謝する。

## 参考文献

- 1) 大場栄次：水中重金属の高精度分析，横浜市公害研究所報，2，210-214，(1978)。
- 2) 赤岩英夫：「抽出分離分析法」，1-180，(1975) 講談社。
- 3) JIS K-0102：工場排水試験法。106-145，(1974)。
- 4) 神奈川県公害対策事務局：公害関係の分析法と解説。6-17，(1972)。



表-4 亜鉛 6 $\mu$ g/200ml抽出時の安定性

抽出系	項目	PH 値									
		1.5	3	5	7	9	11				
D	ピーク高 (mm)	3.1	7.0	76.2	73.0	71.3	4.2				
	変動率 (%)	2.6	21	1.4	1.2	1.2	63				
D	ピーク高 (mm)	3.0	2.1	60.5	72.2	61.6	—				
	変動率 (%)	9.7	2.2	1.8	6.8	0.96	—				
D	ピーク高 (mm)	2.0	9.4	70.1	65.0	61.2	0.8				
	変動率 (%)	6.0	69	8.4	1.2	14	16				
D	ピーク高 (mm)	2.1	6.4	52.4	54.1	56.3	—				
	変動率 (%)	34	51	1.5	3.6	4.4	—				
A	ピーク高 (mm)	18.7	75.2	71.6	70.8	60.5	—				
	変動率 (%)	6.6	3.3	0.8	1.1	3.7	—				
A	ピーク高 (mm)	—	66.3	88.1	65.3	54.4	—				
	変動率 (%)	—	1.9	1.6	6.2	6.9	—				
A	ピーク高 (mm)	54.3	66.2	64.6	66.1	55.6	—				
	変動率 (%)	0.83	0.89	0.70	6.5	9.3	—				
A	ピーク高 (mm)	94.9	140	136	132	114	—				
	変動率 (%)	1.7	0.82	2.7	1.0	4.2	—				
C	ピーク高 (mm)	0.5	1.2	43.4	13.8	3.8	—				
	変動率 (%)	77	6.8	6.3	2.7	14	—				
C	ピーク高 (mm)	—	1.5	43.6	21.2	4.4	—				
	変動率 (%)	—	15	3.2	6.8	40	—				
C	ピーク高 (mm)	—	0.5	19.6	6.5	3.2	—				
	変動率 (%)	—	77	3.6	4.4	6.8	—				
C	ピーク高 (mm)	0.5	2.7	18.2	6.6	5.4	0.5				
	変動率 (%)	71	31	8.6	8.6	5.8	75				
P	ピーク高 (mm)	—	—	—	—	62.0	26.6				
	変動率 (%)	—	—	—	—	12	3.7				

注-1: 各々について n=3

注-2: D=DDTC N=酢酸-n-ブチル A=APDC I=酢酸-イソ-アミル  
 C=Cupferron M=メチル-イソ-ブチルケトン P=PAN E=プロピオン酸エチル

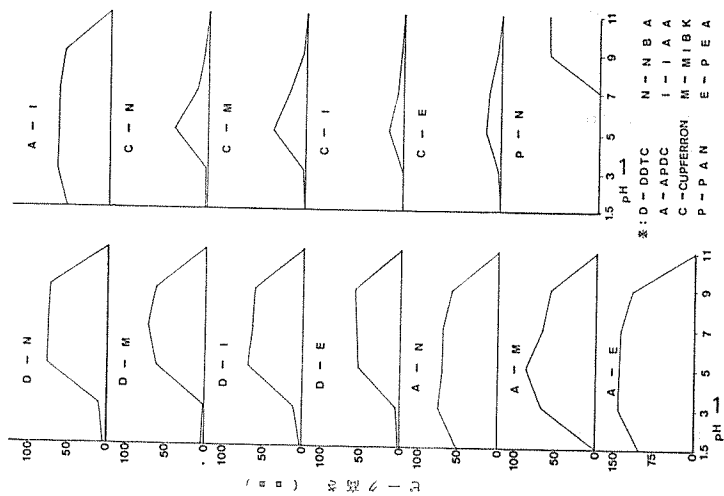


図-6 亜鉛 6 $\mu$ g/200ml抽出時のピーク高さ  
抽出 pH 範囲

表-5 カドミウム $6\mu\text{g}/200\text{ml}$ 抽出時の安定性

抽出系	項	目	PH 値								
			1.5	3	5	7	9	11			
D	ピーク高	(mm)	1.6	39.6	69.8	69.6	69.2	70.5			
	変動率 (%)		8.8	28	0.44	0.60	0	1.5			
D	ピーク高	(mm)	1.9	4.0	74.6	83.0	70.3	77.8			
	変動率 (%)		4.3	9.7	0.66	0.69	1.1	2.7			
D	ピーク高	(mm)	1.2	27.3	58.7	57.5	57.5	57.9			
	変動率 (%)		3.8	18	0.35	0.080	0.43	0.51			
D	ピーク高	(mm)	1.2	34.8	42.0	40.0	43.7	43.9			
	変動率 (%)		4.0	37	3.9	1.9	1.4	1.7			
A	ピーク高	(mm)	64.1	65.3	64.2	63.8	64.5	65.3			
	変動率 (%)		0.22	0.33	0.71	2.0	0.44	2.4			
A	ピーク高	(mm)	41.6	64.5	72.2	45.5	38.5	57.2			
	変動率 (%)		47	6.2	2.2	7.2	9.8	7.6			
A	ピーク高	(mm)	58.2	58.9	56.7	57.7	55.7	56.0			
	変動率 (%)		0.21	0.21	0.35	1.0	2.1	0.090			
A	ピーク高	(mm)	115.6	117.4	111.2	109.5	111.9	108.2			
	変動率 (%)		1.7	1.0	0.70	0.67	2.6	0.87			
C	ピーク高	(mm)	—	53.3	60.9	64.2	64.3	4.8			
	変動率 (%)		—	1.4	1.3	0.55	0.77	15			
C	ピーク高	(mm)	—	26.6	75.6	83.2	74.3	4.9			
	変動率 (%)		—	12	1.9	1.2	0.56	7.1			
C	ピーク高	(mm)	—	—	63.0	63.3	64.0	2.2			
	変動率 (%)		—	—	0.22	0.49	0.20	9.2			
C	ピーク高	(mm)	—	—	82.5	90.3	91.6	3.0			
	変動率 (%)		—	—	2.5	0.90	0.79	7.6			
P	ピーク高	(mm)	—	—	—	—	39.1	10.3			
	変動率 (%)		—	—	—	—	2.2	18			

注-1: 各々について n=3

注-2: D=DDTC N=酢酸-n-ブチル A=A-PDC I=酢酸-イソアミル  
 C=Cupferron M=メチル-イソ-ブチルケトン P=PAN E=プロピオン酸エチル

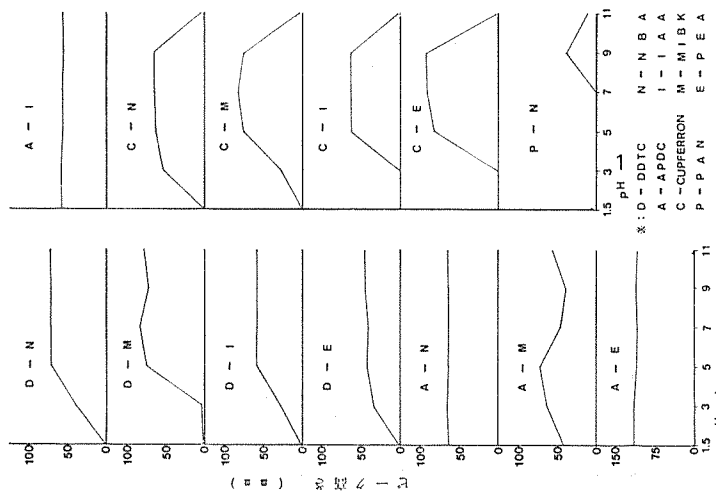


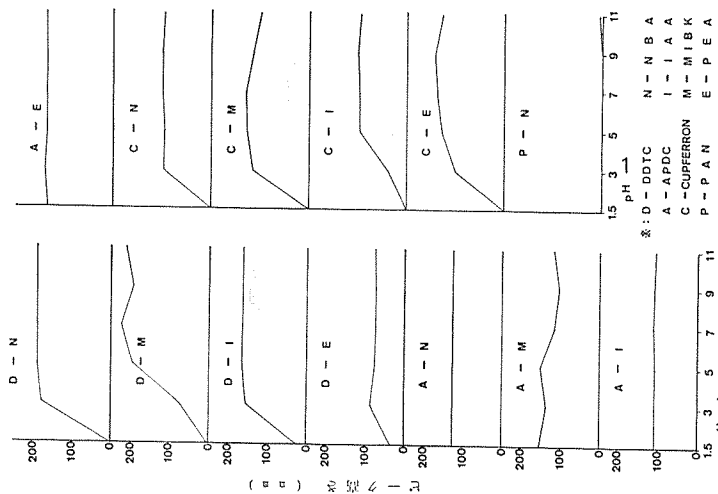
図-7 カドミウム $6\mu\text{g}/200\text{ml}$ 抽出時のピーク高さと抽出 pH 範囲

表一6 鉛 160 $\mu$ g/200ml抽出時の安定性

抽出系	項目	PH 値										
		1.5	3	5	7	9	11					
D • N	ピーク高 (mm)	2.3	177	188.8	188.0	186.5	188.3					
	変動率 (%)	5.4	2.1	0.49	0.46	0.30	3.6					
D • M	ピーク高 (mm)	4.6	74.4	197.8	225.0	193.1	216.4					
	変動率 (%)	13	7.1	2.0	2.1	0.46	2.3					
D • I	ピーク高 (mm)	26.2	153.7	163.1	161.5	161.6	161.7					
	変動率 (%)	25	1.7	0.21	0.23	2.0	2.7					
D • E	ピーク高 (mm)	32.7	84.3	74.3	71.2	71.9	71.7					
	変動率 (%)	39	4.1	2.8	1.1	2.7	2.1					
A • N	ピーク高 (mm)	123.4	124.4	123.5	123.5	123.9	122.7					
	変動率 (%)	0.36	0.45	1.0	2.0	0.57	1.4					
A • M	ピーク高 (mm)	155.1	135.5	151.0	114.1	103.9	119.0					
	変動率 (%)	4.9	3.0	1.9	8.5	7.8	8.9					
A • I	ピーク高 (mm)	111.8	112.1	110.7	113.5	111.8	110.0					
	変動率 (%)	1.2	0.44	0.090	1.6	1.8	0.090					
A • E	ピーク高 (mm)	164.3	170.1	163.2	163.9	163.0	164.4					
	変動率 (%)	2.8	0.21	0.68	1.0	2.1	0.79					
C • N	ピーク高 (mm)	0.8	120.7	119.1	123.2	124.3	119.7					
	変動率 (%)	20	0.52	0.87	0.60	1.5	1.1					
C • M	ピーク高 (mm)	—	143.3	158.5	160.2	141.2	121.8					
	変動率 (%)	—	0.51	3.2	2.0	2.1	3.4					
C • I	ピーク高 (mm)	—	45.1	117.5	118.6	120.6	114.3					
	変動率 (%)	—	2.0	0.30	0.40	0.52	1.33					
C • E	ピーク高 (mm)	—	121.1	157.5	168.6	175.5	156.5					
	変動率 (%)	—	3.4	2.4	0.68	1.1	3.1					
P • N	ピーク高 (mm)	—	—	—	—	—	8.6					
	変動率 (%)	—	—	—	—	—	0.15					

注一1: 各々について n=3

注一2: D=DDTC N=酢酸-n-ブチル A=APDC I=酢酸-イソアミル  
C=Cupferron M=メチル-イソ-ブチルケトン P=PAN E=プロピオン酸エチル



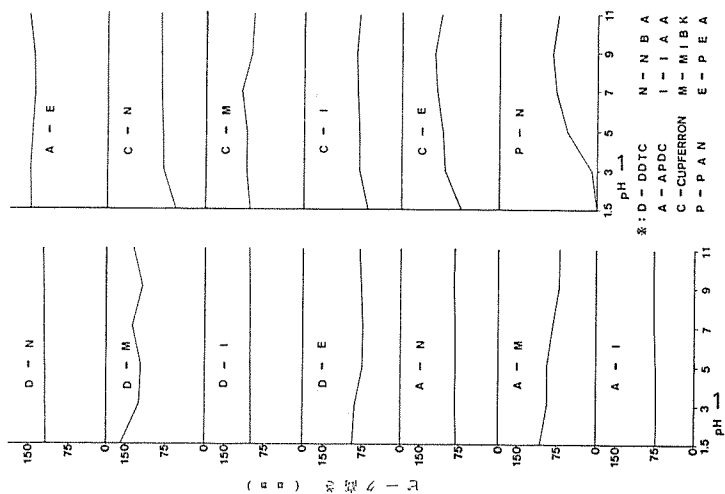
図一8 鉛 160 $\mu$ g/200ml抽出時のピーク高さと抽出 pH 範囲

表一7 銅 40 $\mu$ g/200ml抽出時の安定性

抽出系	項 目	P H 値									
		1.5	3	5	7	9	11				
D	ピーク高 (mm)	118.1	117.7	118.0	119.5	119.4	120.3				
	変動率 (%)	0.24	0.63	0.42	0.53	0.73	0.78				
D	ピーク高 (mm)	162.6	125.8	122.4	137.5	119.6	135.8				
	変動率 (%)	1.1	1.5	1.0	1.3	0.96	2.5				
D	ピーク高 (mm)	97.9	98.2	99.2	99.3	99.8	100.7				
	変動率 (%)	0.55	0.15	0.17	0.21	0.43	0.57				
D	ピーク高 (mm)	91.1	88.2	73.6	72.5	75.5	79.0				
	変動率 (%)	0.61	2.43	4.62	1.27	1.27	1.24				
A	ピーク高 (mm)	81.0	82.6	82.4	82.5	83.7	83.4				
	変動率 (%)	0.44	0.88	0.80	2.1	0.69	0.54				
A	ピーク高 (mm)	106.9	94.0	94.7	83.4	72.6	105.5				
	変動率 (%)	0.23	1.2	1.9	4.6	6.4	2.4				
A	ピーク高 (mm)	74.1	74.5	74.7	77.3	77.9	77.2				
	変動率 (%)	0.33	0.60	0.20	1.6	1.5	0.78				
A	ピーク高 (mm)	143.7	147.1	135.0	136.3	139.3	157.1				
	変動率 (%)	3.0	0.68	1.0	1.4	2.2	0.65				
C	ピーク高 (mm)	55.8	81.1	81.3	83.4	84.4	84.7				
	変動率 (%)	10	0.81	1.4	0.59	0.70	0.48				
C	ピーク高 (mm)	102.4	109.5	108.8	119.6	98.0	95.5				
	変動率 (%)	1.8	0.46	0.85	1.2	2.3	1.4				
C	ピーク高 (mm)	64.6	81.5	82.2	83.9	86.3	81.1				
	変動率 (%)	0.81	0.89	0.26	0.35	0.53	0.96				
C	ピーク高 (mm)	72.9	104.1	108.6	118.9	122.8	111.5				
	変動率 (%)	4.0	1.1	1.5	0.99	1.2	0.63				
P	ピーク高 (mm)	—	9.4	57.6	84.4	83.9	74.1				
	変動率 (%)	—	3.7	1.3	0.76	0.50	3.4				

注一1: 各々について n=3

注一2: D=DDTC N=酢酸-n-ブチル A=APDC I=酢酸-イソ-アミル  
C=Cupferron M=メチル-イソ-ブチルケトン P=PAN E=プロピオン酸エチル



図一9 銅 40 $\mu$ g/200ml抽出時のピーク高さと抽出 pH 範囲

表-8 ニッケル 40 $\mu$ g/200ml抽出時の安定性

抽出系	項 目	pH 値									
		1.5	3	5	7	9	11				
D	ピーク高 (mm)	79.5	99.7	100.6	101.6	100.6	101.3				
	変動率 (%)	3.6	0.21	0.43	0.84	0.37	0.16				
D	ピーク高 (mm)	76.7	107.2	103.3	117.8	99.7	115.4				
	変動率 (%)	6.7	1.5	1.3	1.6	0.74	3.0				
D	ピーク高 (mm)	81.5	83.3	84.4	83.7	84.3	84.1				
	変動率 (%)	0.65	0.57	0.22	0.70	0.35	0.37				
D	ピーク高 (mm)	61.1	64.1	55.3	53.8	55.1	55.4				
	変動率 (%)	17	7.8	2.9	1.9	2.0	3.3				
A	ピーク高 (mm)	92.3	93.4	93.1	92.9	93.9	10.9				
	変動率 (%)	0.44	0.53	0.63	1.9	0.050	7.9				
A	ピーク高 (mm)	111.4	102.2	91.6	78.1	67.1	5.4				
	変動率 (%)	2.5	3.6	6.2	7.9	8.8	37				
A	ピーク高 (mm)	84.5	85.1	85.0	87.4	85.8	7.4				
	変動率 (%)	0.81	1.6	0.060	1.3	1.5	19				
A	ピーク高 (mm)	147.9	151.3	139.1	139.8	142.9	—				
	変動率 (%)	2.9	0.25	1.1	1.6	3.1	—				
C	ピーク高 (mm)	—	88.8	89.5	93.3	93.7	—				
	変動率 (%)	—	0.42	1.7	0.43	1.1	—				
C	ピーク高 (mm)	—	38.9	93.3	113.0	105.8	—				
	変動率 (%)	—	8.6	0.86	1.0	1.3	—				
C	ピーク高 (mm)	—	—	90.1	91.7	90.4	—				
	変動率 (%)	—	—	0.090	0.36	0.39	—				
C	ピーク高 (mm)	—	1.7	105.4	128.7	126.8	—				
	変動率 (%)	—	74	2.1	0.72	0.73	—				
P	ピーク高 (mm)	—	—	—	—	3.7	79.3				
	変動率 (%)	—	—	—	—	59	6.6				

注-1: 各々について n=3

注-2: D=DDTC N=酢酸-n-ブチル A=APDC I=酢酸-イソ-アミル  
 C=Cupferron M=メチル-イソ-ブチルケトン P=PAN E=プロピオン酸エチル

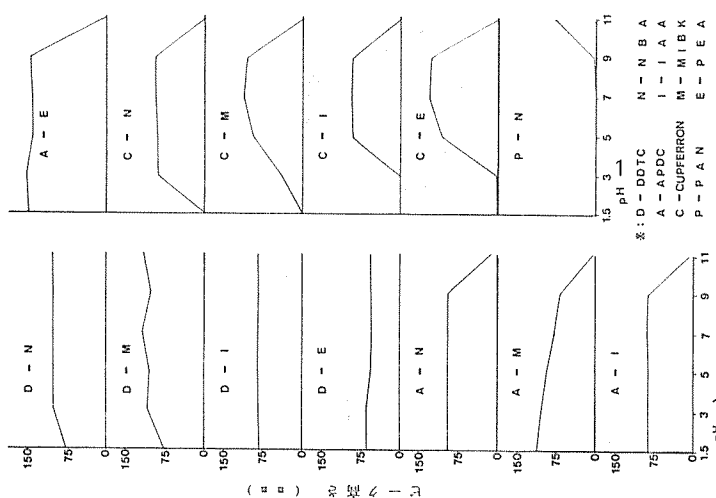


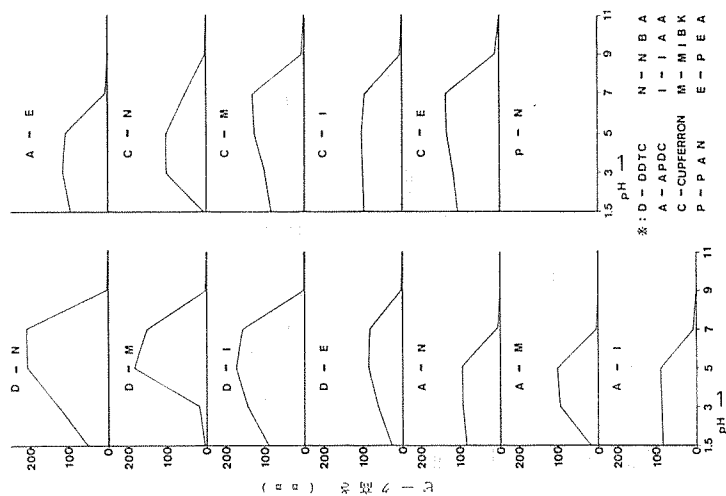
図-10 ニッケル 40 $\mu$ g/200ml抽出時のピーク高さと抽出 pH 範囲

表一9 鉄 80 $\mu$ g/200ml抽出時の安定性

抽出系	項 目	PH 値									
		1.5	3	5	7	9	11				
D • N	ピーク高 (mm)	52.4	138.0	210.0	211.8	—	—				
	変動率 (%)	28	2.5	0.50	1.9	1.1	11				
D • M	ピーク高 (mm)	3.9	17.7	183.1	152.3	—	—				
	変動率 (%)	60	14	2.1	12	4.3	—				
D • I	ピーク高 (mm)	89.7	146.2	174.1	159.0	—	—				
	変動率 (%)	2.2	10	0.49	7.7	5.1	—				
D • E	ピーク高 (mm)	28.5	61.7	84.5	80.8	—	—				
	変動率 (%)	21	18	3.6	2.7	1.2	18				
A • N	ピーク高 (mm)	82.5	92.9	96.6	10.0	—	—				
	変動率 (%)	1.1	0.88	0.21	6.9	—	—				
A • M	ピーク高 (mm)	19.2	97.3	103.9	5.3	—	—				
	変動率 (%)	7.5	4.6	5.0	31	—	—				
A • I	ピーク高 (mm)	84.4	88.7	90.7	8.0	—	—				
	変動率 (%)	0.57	0.37	0.36	0.1	—	—				
A • E	ピーク高 (mm)	95.7	112.8	107.7	5.3	—	—				
	変動率 (%)	6.3	1.4	0.33	14	—	—				
C • N	ピーク高 (mm)	91.0	102.2	102.4	53.1	—	—				
	変動率 (%)	1.4	0.12	0.33	2.2	1.1	11				
C • M	ピーク高 (mm)	82.0	100.7	125.8	130.5	—	—				
	変動率 (%)	1.8	1.2	0.51	1.4	5.9	12				
C • I	ピーク高 (mm)	96.7	100.5	102.8	94.8	—	—				
	変動率 (%)	0.050	0.56	0.57	1.6	2.4	—				
C • E	ピーク高 (mm)	107.1	119.4	132.7	138.6	—	—				
	変動率 (%)	0.50	1.5	1.6	1.9	11.9	2.6				
P • N	ピーク高 (mm)	—	—	—	—	—	—				
	変動率 (%)	—	—	—	—	—	—				

注一1:各々について n=3

注一2: D=DDTC N=酢酸-n-ブチル A=APDC I=酢酸-イソアミル  
C=Cupferron M=メチル-イソ-ブチルケトン P=PAN E=プロピオン酸エチル



図一11 鉄 80 $\mu$ g/200ml抽出時のピーク高さと抽出 pH 範囲



表-11 抽出 pH 範囲と安定性

成分\項目	最良測定結果			抽出 pH 範囲	抽出系
	ピーク比	変動率(%)	pH 域		
亜鉛	2.5	0.82	3	3 ~ 5	AE
カドミウム	1.1	0.00	9	5 ~ 11	DN
	1.0	0.080	7	5 ~ 11	DI
	1.1	0.22	1.5	1.5 ~ 11	AN
	1.0	0.21	3	1.5 ~ 7	AI
	1.0	0.20	9	5 ~ 9	CI
	1.5	0.30	9	5 ~ 11	DN
鉛	1.3	0.21	5	5 ~ 11	DI
	1.3	0.45	3	1.5 ~ 11	AN
	1.1	0.090	3	1.5 ~ 11	AI
	2.3	0.21	3	1.5 ~ 11	AE
	1.2	0.30	5	5 ~ 11	CI
銅	2.0	0.24	1.5	1.5 ~ 11	DN
	1.7	0.15	3	1.5 ~ 11	DI
	1.9	0.44	1.5	1.5 ~ 11	AN
	1.4	0.20	5	1.5 ~ 11	AI
	1.5	0.26	5	3 ~ 11	CI
	1.8	0.50	9	7 ~ 9	PN
ニッケル	1.5	0.16	11	3 ~ 11	DN
	1.3	0.22	5	1.5 ~ 11	DI
	1.4	0.050	9	1.5 ~ 9	AN
	1.1	0.060	5	1.5 ~ 9	AI
	2.7	0.25	3	1.5 ~ 3	AE
	1.3	0.42	3	3 ~ 9	CN
	1.2	0.090	5	5 ~ 9	CI
鉄	2.1	0.50	5	5 ~ 7	DN
	1.9	0.21	5	3 ~ 5	AN
	1.7	0.36	5	3 ~ 5	AI
	1.3	0.33	5	3 ~ 5	AE
	2.0	0.12	3	3 ~ 5	CN
	1.6	0.050	1.5	1.5 ~ 7	CI

注-1：ピーク比=水溶液直接噴霧のピーク高さを1としたときの有機溶媒抽出直接噴霧のピーク高さ



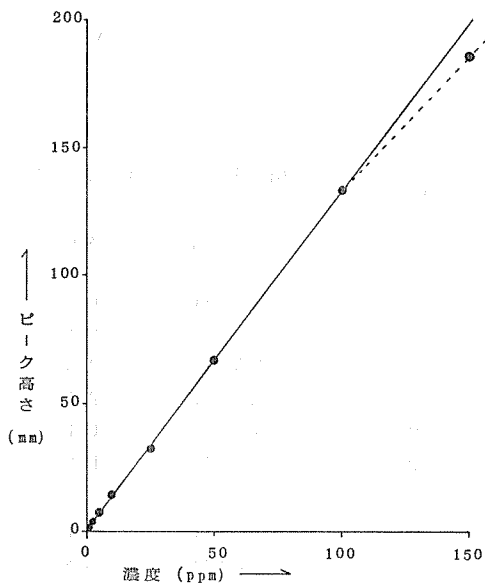


図-13 1N-硝酸溶解の検量線

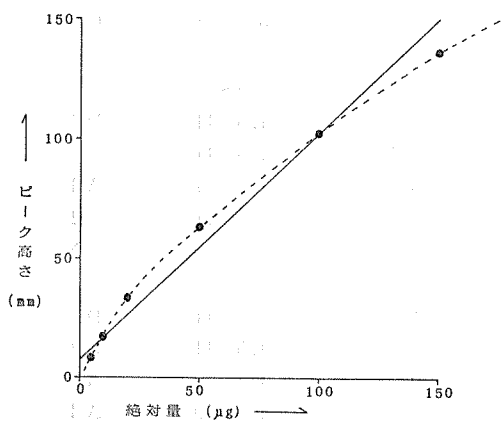


図-14 TOA-MIBK抽出の検量線

表-14 ジフェニルカルバジドによる吸光度測定結果

項目/絶対量 (μg)	B1	2	5	10	20	40	60	75	100
ABS (0-2)	0.002	0.029	0.070	0.138	0.271	0.550	0.843	1.091	1.707
変動率 (%)	53	11	3.0	1.5	0.3	1.7	1.4	0.96	1.5

注-1 : u = 3

表-15 各測定方法の定量範囲

測定法/項目	定量範囲	変動率 (%)
1N 硝酸溶解	2.5ppm~100ppm	0.44~3
TOA-MIBK抽出	40μg~120μg	3~5
ジフェニルカルバジド	5μg~60μg	0.3~3

注-1 : TOA-MIBK 20ml抽出

注-2 : 全量50mlのジフェニルカルバジドによる発色

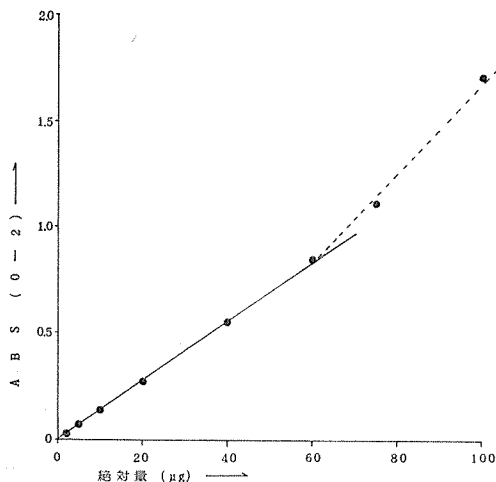


図-15 ジフェニルカルバジド法の検量線

表-12 1N硝酸溶解測定結果

項目/濃度 (ppm)	1	2.5	5	10	25	50	100	150
ピーク高さ (mm)	1.9	3.9	7.2	14.3	32.5	66.7	133.3	186.3
変動率 (%)	6.2	3.0	1.6	1.4	0.62	0.52	0.44	1.3

注-1 : n = 3

表-13 TOA-MIBK抽出測定結果

項目/絶対量 (μg)	5	10	20	50	100	150
ピーク高さ (mm)	8.1	16.9	33.3	64.1	102.1	135.7
変動率 (%)	7.4	5.4	9.7	3.7	3.9	5.0

注-1 : n = 3

表-16 環境試料測定結果

試料名/項目	濃度 (mg/l)	変動率 (%)
河川水	0.61	0.34
海水	0.48	0.44
工場排水	2.1	2.2

注-1 : n = 3

## Ⅱ 横浜市沿岸水域における 化学物質汚染状況調査

— TBP, BHT, TP —

Determination of TBP, BHT and TP in Port of Yokohama

石井 哲夫\*, 大場 栄次\*  
福島 博\*, 二宮 勝幸\*

### 要 旨

横浜市沿岸水域における Tributyl-phosphate (TBP), 2, 6-ditertbutyl-p-cresol (BHT), o-Terphenyl (o-TP), m-Terphenyl (m-TP), 及び p-Terphenyl (p-TP) による汚染状況を, 水質, 底質及び生物質 (魚類) について, 昭和52年11月に調査した。BHT, o-TP, m-TP 及び p-TP は, 調査試料からは, 検出されなかった。(定量限界, 水質:  $0.0004\text{mg}/\ell$ , 底質及び生物質:  $0.06\mu\text{g}/\text{g}$ ), TBP は全ての調査試料から検出された。検出濃度範囲は, 水質:  $0.00003\sim 0.00011\text{mg}/\ell$ , 底質:  $0.0027\sim 0.0074\mu\text{g}/\text{g}$ , 生物質:  $0.006\sim 0.011\mu\text{g}/\text{g}$  であった。

### 1. はじめに

ポリ塩化ビフェニル (PCB) を原因物質とするカネミ油症事件以来, 化学物質による環境汚染を防止するため, 工業生産の段階から規制を加える「化学物質の審査及び製造等の規制に関する法律」が, 昭和49年4月から施行され, それとともに, 既存化学物質による環境汚染状況の調査が環境庁により「ケミカルアセスメント」として, 昭和49年より実施されている。本調査は, 環境庁の委託を受け, 工業地域における化学物質による汚染状況を把握するための, ケミカルアセスメントの一環として実施したものである。

調査対象物質として選んだTBP, BHT及びTPは, 以下の選択基準にもとづき, 化学物質を分類し, その内, 生産量又は原料として多用され, 使用形態が環境に流出する可能性があり, かつ分析方法が検討された化合物である。

#### 選択基準

- 1) 既に毒性物質として知られている。
- 2) 分解性が悪く, 環境上注意すべきであると報告

されている。

- 3) 既に環境汚染上問題となったPCBやBHC等の農薬などと同じような化学形態を持つ化合物, あるいは, 同じような性質と用途を持っている化合物。

表-1に, TBP, BHT及びTPの化学構造, 物性, 生産量, 用途及び毒性 (作用) を示す。

### 2. 調査水域

調査は, 横浜市沿岸水域を中心に, 横浜港から, 多摩川河口までの区間の水質, 底質及び生物質について昭和52年11月に実施した。図-1及び表-2に各々調査水域, 調査試料数を示す。試料の採取にあたっては, 図-1中A, B地点については, 川崎市公害研究所に依頼した。

### 3. 分析法

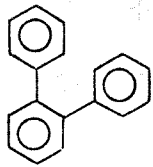
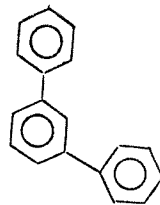
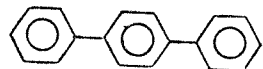
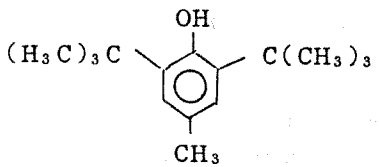
#### 3-1 BHT及びTP

##### 3-1-1 水質

試料水  $3\ell$  を, アセトン・n-ヘキサン (1:2) の

\* 横浜市公害研究所水質部門

表一 調査対象物質の物性、用途、生産量及び作用

<p>o-ターフェニル o-Terphenyl <math>C_{18}H_{14}</math>:230.31</p>  <p>M. P. 57.58 °C B. P. 332 °C</p> <p>(用途) 電気絶縁剤, 熱媒体 (生産) 1000トン (1974年) (ターフェニル全体)</p> <p>(作用) 経口 ラット <math>LD_{50}</math>:1900mg/kg (法規) ACGIH</p>
<p>m-ターフェニル m-Terphenyl <math>C_{18}H_{14}</math>:230.31</p>  <p>M. P. 87 °C B. P. 365 °C</p> <p>(用途) 電気絶縁剤, 熱媒体 (生産) 1000トン (1974年) (ターフェニル全体)</p> <p>(作用) 経口 ラット <math>LD_{50}</math>:2400mg/kg (法規) ACGIH</p>
<p>p-ターフェニル p-Terphenyl <math>C_{18}H_{14}</math>:230.31</p>  <p>M. P. 213 °C B. P. 376. °C</p> <p>(用途) 電気絶縁剤, 熱媒体, (生産) 1000トン (1974年) (ターフェニル全体)</p> <p>(作用) 経口 ラット <math>LD_{50}</math>:10000mg/kg (法規) ACGIH</p>
<p>ジブチルヒドロキントルエン (BHT) 2,6-di-tert-butyl-p-cresol <math>C_{15}H_{24}O</math>:220.36</p>  <p>M. P. 69.5~71.5 °C</p> <p>(用途) 酸化防止剤 (生産) 8,480トン (1974年) (作用) 経口 ラット <math>LD_{50}</math>: &gt;1500mg/kg (法規) ACGIH</p>
<p>トリブチルホスフェート Tributylphosphate <math>C_{12}H_{27}O_4P</math>:266.32</p> <p><math>(C_4H_9O_3) P=O</math> M. P. -80 °C B. P. 289 °C</p> <p>(用途) 溶媒, 触媒, 安定剤, 殺虫剤, 消泡剤, 燃料・潤滑油添加剤, 腐食防止剤, 合成樹脂の可 そ剤 (作用) 経口 ラット <math>LD_{50}</math> 3000mg/kg (法規) ACGIH</p>

$LD_{50}$ :lethal dose50 percentkill (最数致死量)

ACGIH:American Conference of Governmental Industrial Hygienists

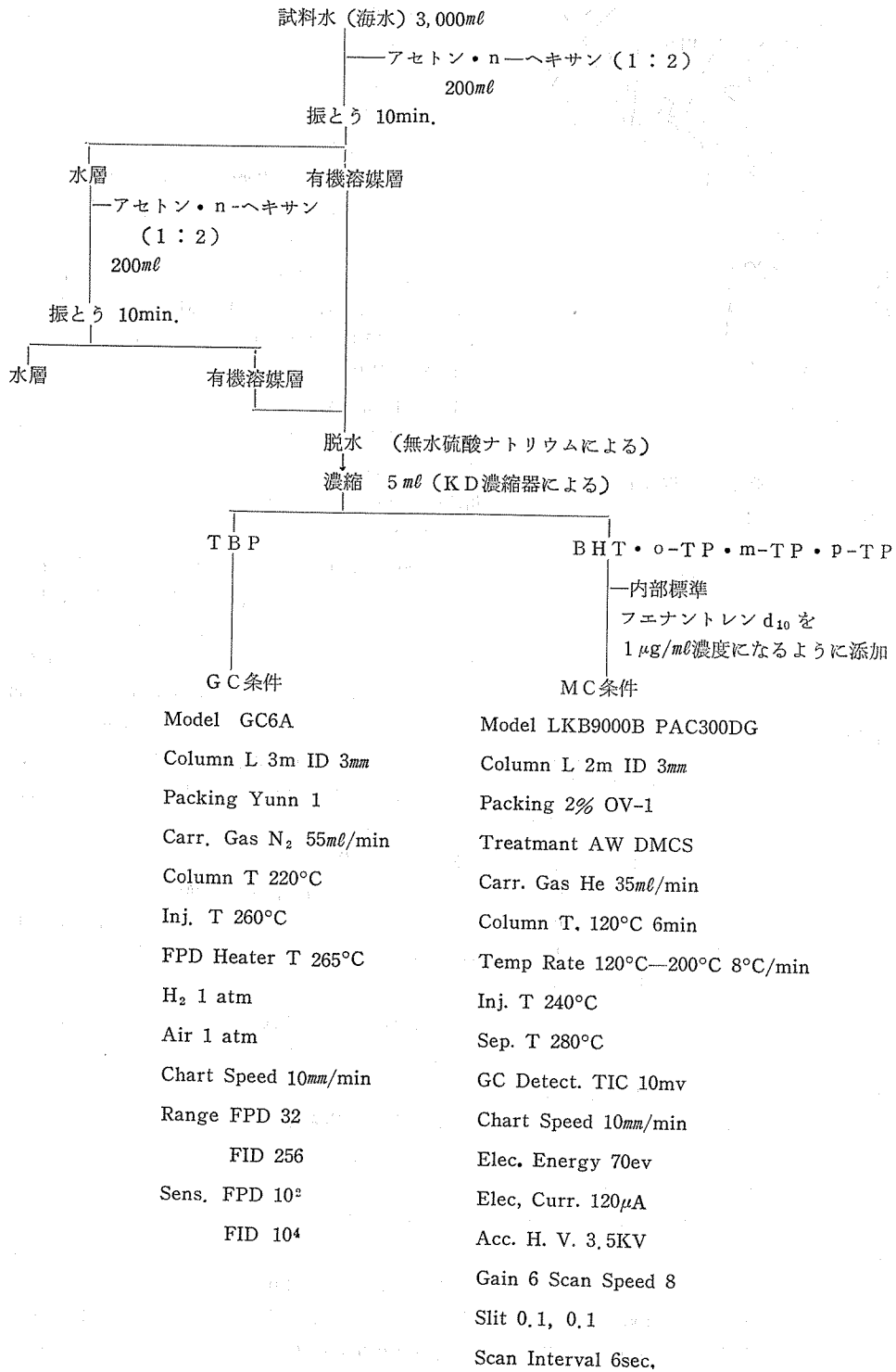
用途としては、開放系への用途を主体として記載した。

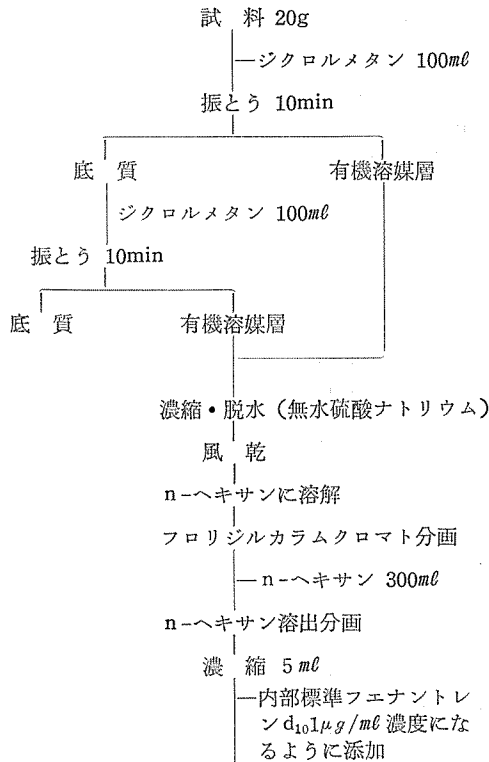
MP:融点 BP:沸点

<環境庁環境保健部「化学性物質と環境」昭和53年版より>



図-2 水質分析法 (BHT, o-TP, m-TP, p-TP, TBP)

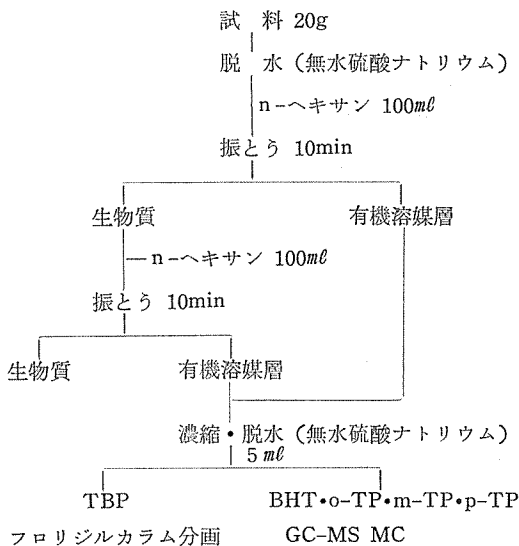




GC-MS MC (分析条件は、水質と同じ)

図-3 底質分析法

(BHT・o-TP・m-TP・p-TP)



以下底質と同じ

分析条件は、水質と同じ

図-4 生物質分析法

(BHT・o-TP・m-TP・p-TP・TBP)

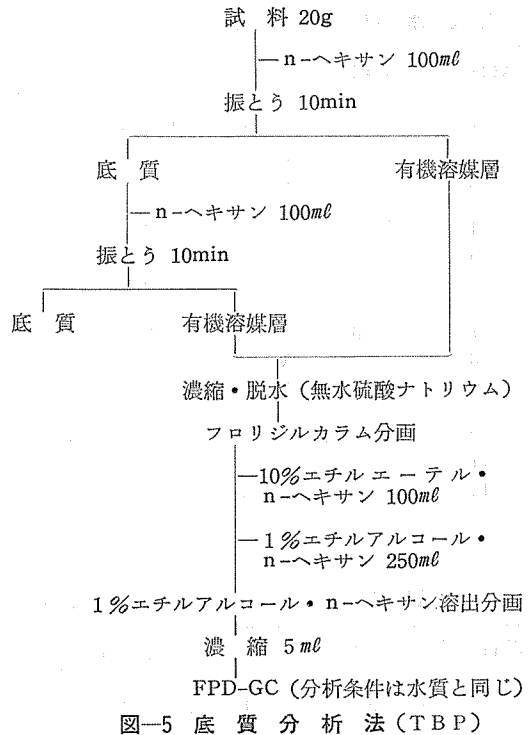


図-5 底質分析法 (TBP)

TBPは、塩化ビニール、ポリスチレン、メタアクリル、セルロースアセテート及び塩化ゴム等の可塑剤として使用されている化合物であり、環境に広く拡散される可能性がある。ラットの経口投与におけるLD<sub>50</sub>は、3g/kgと報告されている。しかし長期毒性についての報告は、現在ない。現在の汚染レベルは、魚類でng/g (ppb)の単位の濃度であり、直接的な人体への悪影響は、考えられないが、少なくとも、生態系への影響及び哺乳動物への濃縮性などについて基礎的な検討を進める必要があると考えられる。

## 5. 謝辞

BHTの分析に関し助言いただいた、三重県環境科学センターの仲 邦熙氏、TPの分析に関し、助言いただいた大阪市環境科学研究所、山本 武氏及び採水等に御協力いただいた川崎市公害研究所研究第二課諸氏に感謝する。



# Ⅲ 環境試料におけるフェニル フェノールの分析法の検討

Determination Methods of Phenyl Phenols for Environmental Water and Mud

石井 哲夫\*, 福島 博\*

## 要 旨

環境中における化学物質の実態調査を行なうにあたり、水質及び底質に含まれるフェニルフェノールの分析方法を検討した。フェノール類が水酸化アルカリの水溶液に溶けてフェノキンドを生成する性質を利用して、妨害物質を除去し溶媒抽出を行なった後、GC充填剤にDEGS+H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>を用いFID-GCで定量したところ、ngレベルの検出が可能となった。またフェニルフェノールのGC-MS/MIDの測定により、高感度分析が可能であることが明らかとなった。

## 1. 目 的

フェニルフェノールはそのオルト異性体が輸入かんきつ類に防カビ剤として使用され、一時社会的に問題となったことがあったが、その他殺菌剤、樹脂製造中間体、ゴム工業用原料として現在も使われており、化学構造からみて難分解かつ蓄積性のある化合物であると考えられる。フェニルフェノールの分析に関しては食品、特にかんきつ類中のオルト異性体の分析が行なわれているが、誘導体作成のため有害なペンタフルオロ化物を用いており、メタ、パラ化合物との分離については、ほとんどふれられていない<sup>1)</sup>。またビフェニルの代謝産物としてフェノールの誘導体が生成される反応<sup>2)</sup>や、微生物やカビ中のビフェノールについての報告<sup>3)</sup>の中ではフェニルフェノールをTMS(トリメチルシリル)化し分析している例があるが、いずれも操作が繁雑である。環境試料の分析にあたっては、使用薬品の無害化及び操作の簡便化が必要であり、また環境中のフェニルフェノールの存在は微量であると思われるので、検出に際しては高感度であることが望ましい。以上の点を考えて分析法の検討を行なった。なお、これはケミカルアセスメント調査研究の一部として実施したものである<sup>4)</sup>。

## 2. 実験方法

### 2-1 試 薬

o-フェニルフェノール(以下o-ppとする)  
m-フェニルフェノール(以下m-ppとする)  
p-フェニルフェノール(以下p-ppとする)

これらは東京化成標準試薬を用い、少量のアセトンを加えたn-ヘキサンに溶かし、各々1,000 $\mu$ g/mlの標準原液を作成した。

n-ヘキサン、アセトン…残留農薬試験用  
硫酸アンモニウム、塩化ナトリウム…特級  
無水硫酸ナトリウム…残留農薬試験用  
硝酸…特級  
水酸化ナトリウム…特級  
チモールブルー…pH指示薬

### 2-2 分析方法

#### 2-2-1 水 質

試料水1 $\ell$ を分液ロートにとり、1NHNO<sub>3</sub> 10mlを加えてpHを2~4としたのち(NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> 200g、n-ヘキサン100mlを加え、5分間振とう後静置し、n-ヘキサン層を250ml用分液ロートに分取する。水層はさらにn-ヘキサン100mlで再度抽出し、n-ヘキサン層を合わせる。n-ヘキサン層に蒸留水20ml、1NNaOH 5mlを加え振とうした後、水層を別の250ml

\* 横浜市公害研究所水質部門



用分液ロートに移す。n-ヘキサンは再度 1N NaOH で洗い、洗液を先の水層に合わせる。次にチモールブルー (T. B) を指示薬として水層が薄い桃色に変わるまで 1N HNO<sub>3</sub> を加える。その後、前と同様に (NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> 約 8 g, n-ヘキサン 50 ml を加え振とう静置後水層を除去し、n-ヘキサン層を無水 Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> で脱水したのち K D 濃縮を行ない 5 ml に定容し、これを G C 測定用試料とする。水質の分析フローを図-1 に示す。

### 2-2-2 底質

適当量の湿泥を 300 ml 共栓三角フラスコに入れ、蒸留水 50 ml, 1N NaOH 10 ml を加え 5 分間振とう後静置し、No. 5 B の濾紙を用いて上澄液を濾過し濾液を 200 ml 用分液ロートに入れる。フラスコ内の残留物に再度蒸留水 50 ml, 1N NaOH 10 ml を加え振とう後遠心分離を行ない同様に濾過する。

次に T. B を指示薬として水層が薄い桃色に変わるまで 1N HNO<sub>3</sub> を加え、(NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> 約 28 g を加えて以下水質の分析方法と同様に操作する。底質の分析フローを図-2 に示す。

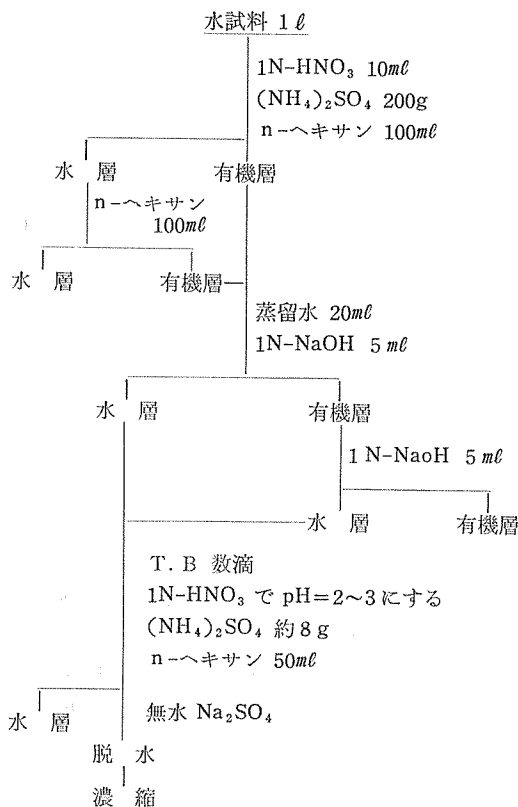


図-1 水質の分析フロー

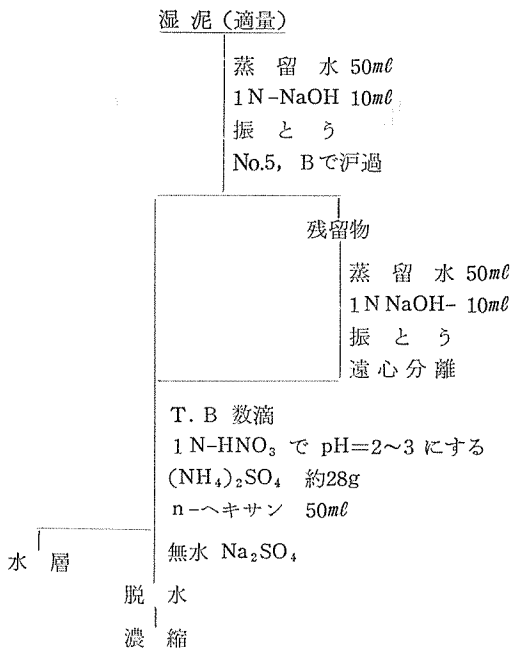


図-2 底質の分析フロー

### 2-3 装置及び設定条件

定量はガスクロマトグラフ島津 6 A (以下 F I D-G C とする) で行なった。

検出器 F I D

充填剤 DEGS+H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> (2+0.5) Gaschrom Q  
60~80メッシュ

カラム 2m×3mm φ ガラスカラム

カラム温度 200°C

導入部温度 220°C

キャリアー N<sub>2</sub> ガス 40 ml/min

また G C のチャート上で標準物質とピークの重なりがあった場合の定性及び確認にはガスクロマトグラフ質量分析計島津 L K B-9000 B (以下 G C-MS とする) を用いた。また G C-MS データの処理には G C-MS P A C-300 D G システムを用いた。次に G C-MS の条件を示す。

G C 条件

充填剤 DEGS+H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> (2+0.5) Gaschrom Q  
60~80メッシュ

カラム 2m×3mm φ ガラスカラム

カラム温度 200°C

導入部温度 220°C

セパレータ温度 250°C

キャリアー He ガス 30 ml/min

MS条件

- イオン源温度 290°C
- イオン化電圧 70eV
- イオン化電流 60 $\mu$ A
- 加速電圧 3.5KV

3. 結果及び考察

3-1 抽出溶媒について

非極性溶媒 n-ヘキサンと極性溶媒アセトンとの混合溶媒数種につき、pHを一定にし o-pp を 100 $\mu$ g 蒸留水に添加した時の抽出率の比較を試料数 n = 2 で行なった。その結果を表一に示す。これより n-ヘキサンが 86.7% と最も高く抽出溶媒として最適であると思われる。その他 m-pp, p-pp も同様な傾向を示すと考えられる。表一において値のバラツキは、ほとんどなかった。

表一 抽出溶媒の比較 (n = 2)

	o-pp (%)
n-ヘキサン	86.7
n-ヘキサン:アセトン (9:1)	85.5
n-ヘキサン:アセトン (1:1)	65.4

3-2 pH の違いによる抽出率の変化

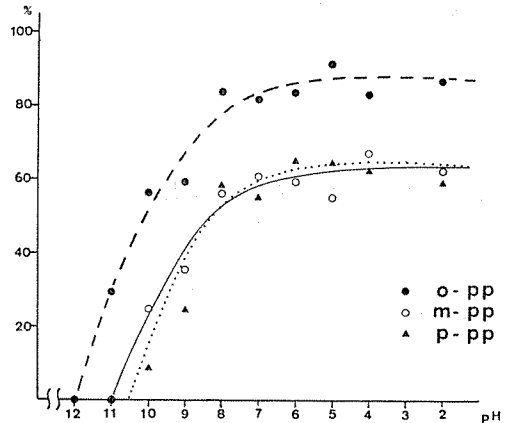
一般に芳香族性の環に結合する水素原子が水酸基で置換された化合物を総称してフェノールと呼ぶが、鎖式炭化水素の水酸基置換体であるアルコールと違って、弱い酸性を示す。多くのフェノールはカルボン酸などの弱酸よりもさらに酸性が弱く、水酸化アルカリの水溶液に溶けてフェノキッドを生成するが、その様子を調べるため以下の検討を行なった。

蒸留水 100ml に o-pp, m-pp, p-pp 各 100 $\mu$ g (アセトン溶液) を添加し、pH を 2 から 12 まで変化させ n-ヘキサン 50ml で抽出を行ない、抽出率を測定してその結果を図一にまとめた。

pH が 12 になると、3 物質ともナトリウム塩を形成して完全に水層に移り、また、pH が 8 以下では値に若干のバラツキはあるが、ほぼ一定の割合で有機層に抽出されていることがわかり、その値は、pH = 8 以下の平均で o-pp 85.2%, m-pp 60.1%, p-pp 60.7% となった。

3-3 塩析効果

3-2 の結果、m-pp, p-pp は約 60% 程度しか抽出されていないことがわかったので、NaCl, (NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> を用いて塩析効果の有無を調べた。蒸留水 100 ml に o-pp, m-pp, p-pp 各 100 $\mu$ g (アセトン溶液) を添加



図一 pH の違いによる抽出率の変化

し 0.5NHNO<sub>3</sub> を約 5 ml 加えて pH 3 前後とした後、各々の塩析剤の量を 5, 10, 20% と変化させた時のフェニルフェノールの抽出率の変化を表二、表三に示す。

表二 NaCl を用いた時の塩析効果 (n = 2)

	o-pp	m-pp	p-pp (%)
無添加	82.0	60.3	62.4
5%	85.2	67.0	75.5
10%	86.8	69.8	79.4
20%	87.2	75.5	88.6

(注) 30%以上では飽和状態となる。

表三 (NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> を用いた時の塩析効果

(n = 2)

	o-pp	m-pp	p-pp (%)
5%	82.9	74.4	76.4
10%	83.8	80.9	85.2
20%	85.6	84.4	92.2

(注) 30%以上では飽和状態となる。

NaCl, (NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> いずれもはっきりした塩析効果を示したが、NaCl に比べ (NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> の場合特に m-pp, p-pp について抽出率が增加しており、水溶液に対し 20% の (NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> を塩析剤として用いることにした。

3-4 添加回収実験

3-4-1 水質における添加回収実験

3-1 ~ 3-3 に記した結果をもとに前述の水質の分析法を採用するに際して種々の検討を加えた。蒸留水 1 l に o-pp, m-pp, p-pp 各 200 $\mu$ g を添加し

1NHNO<sub>3</sub> 10ml, (NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> 200g を加えた後, n-ヘキサン100ml で 1 回抽出する場合と 2 回抽出する場合との抽出率の比較を行ない, その結果を表-4 に示す。

表-4 抽出回数による抽出率の比較 (n = 4)

	o-pp	m-pp	p-pp (%)
1 回抽出	73.5	63.0	62.0
2 回抽出	84.5	82.7	83.2

1 回抽出に比べ 2 回抽出では明らかに抽出率が向上しており, いずれも 80% 以上を示している。またそれ以上抽出回数を増やしても抽出率は, さほど変わらず, 操作も繁雑となるため 2 回抽出を採用した。しかしこの操作だけではガスクロマトグラム上にかなりの妨害ピークを生じる場合があり, その場合にはこれを除くためアルカリによる n-ヘキサン層の洗浄という操作をつけ加えた。その場合全操作過程を通じての回収率は o-pp 66.9%, m-pp 70.8%, p-pp 69.2% (n = 4) となった。また, KD 濃縮操作における回収はいずれも 90% 以上と良好な値を示していた。

### 3-4-2 底質における添加回収実験

水質の場合と同様に分析方法決定にあたって以下の検討を行なった。底質の分析においては, 測定対象物が底質中の吸着質により吸着されおり, かつその吸着は, ねん土鉱物等の細孔内において主になされていると考えられる。このため n-ヘキサンのような非極性溶媒のみでは定量的な抽出ができないと考え, n-ヘキサン:アセトン (1:1) で抽出を行ない, 以下水質の試験法に従った。しかし 2 回抽出の場合でも回収率は o-pp 41.3%, m-pp 45.8%, p-pp 46.4% (n = 2) と低く, またアルカリ洗浄を行なっても濃縮液は黄色に着色しており, カラムクロマトによる精製が必要であるため, 溶媒抽出には限界があると思われた。

そこで方法を変え, アルカリを用いてフェニルフェノールを底質からアルカリ塩として溶出させた後, 溶媒抽出する方法を考えた。

アルカリの量を変えた場合の回収率の変化の様子を表-5 に示す。

アルカリ無添加の場合に比べアルカリの量が増すごとに回収率は増加しているが, さらに NaOH の量を増やしても, 回収率に増加の傾向はみられなかったので実際の分析においては 1N NaOH 10ml を用いて溶出操作を 2 回行なうことにした。

表-5 アルカリ量を変えた時の抽出率の変化

	o-pp	m-pp	p-pp (%)
NaOH 0	29.9	24.0	21.0
NaOH (5 ml × 1)	53.0	51.5	46.7
NaOH (5 ml × 2)	58.7	57.0	58.4
NaOH (10 ml × 2)	65.7	63.6	62.8

## 3-5 GC 及び GC-MS による測定について

### 3-5-1 FID-GC による定量

フェノール類はアルコール, アミン等と同様にピークにテーリングを生じやすいため, 適当な誘導体にして揮発性を大きくし, カラムによる吸着をなくして分離をよくするとともに, 感度を向上させる操作が行なわれている<sup>6)</sup>。特に TMS 誘導体を作成して定量を行なう方法が数多く報告されているが, 操作がやや複雑で反応条件の設定に難しい面がある。そこで DEGS + H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> を充填剤として用いフェニルフェノールの n-ヘキサン標準溶液をそのまま FID-GC に注入したところ, ng (ナノグラム) オーダーまで検出でき, 環境試料に対する感度も充分であると考えられる。充填剤についてはこの他 OV-17, SE-54 等で検討したが, いずれも m-pp, p-pp がほとんど分離せず実際に使用するのは難しいと思われる。2-3 の条件下でのガスクロマトグラムは図-4 の通りで, ここで o-pp が 40ng, m-pp, p-pp が 80ng である。

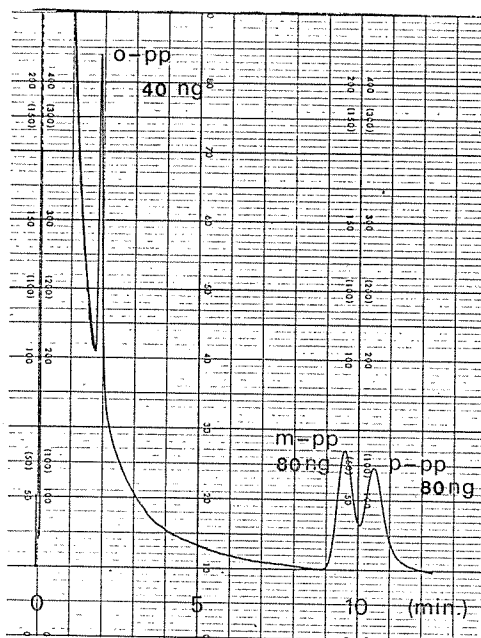


図-4 フェニルフェノールのガスクロマトグラム

### 3-5-2 GC-MSによる定性

GC-MSにおいて試料の質量スペクトルの中の特徴的な質量ピーク(m/e)を選び、連続的に質量分析計の出力信号を記録してガスクロマトグラムを得る方法をマスフラグメンテーション(MF)という。この方法は設定した質量数のイオンをもつ成分のみを検知するので、多成分中の特定成分の検出にすぐれている。また感度面からみてもFIDに比べ高感度であり、GC上でピークの重なりがある場合や微量分析を行なう時に用いられる<sup>7)</sup>。特に2個以上の質量を設定するMFの方式をMID(多重イオン検出)と呼ぶが、この方法をフェニルフェノールの分析に応用するため、o-pp, m-pp, p-ppの質量スペクトルを測定した。

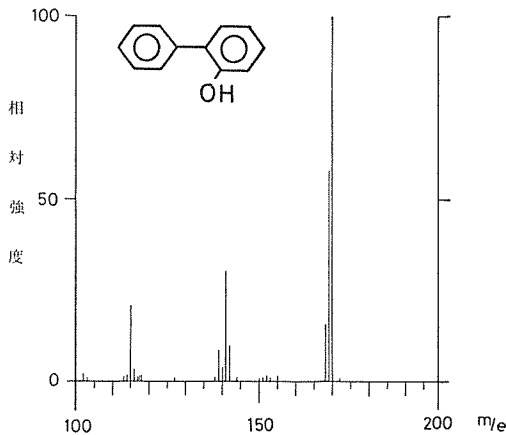


図-5 o-フェニルフェノールの質量スペクトル

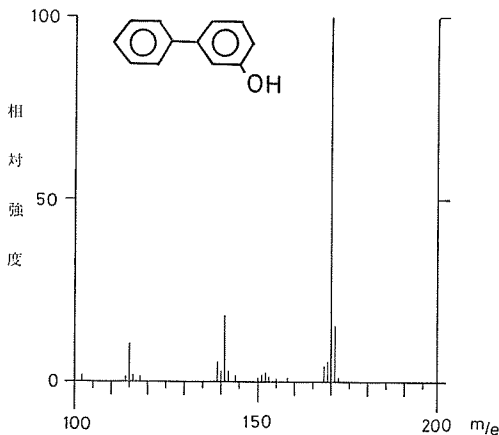


図-6 m-フェニルフェノールの質量スペクトル

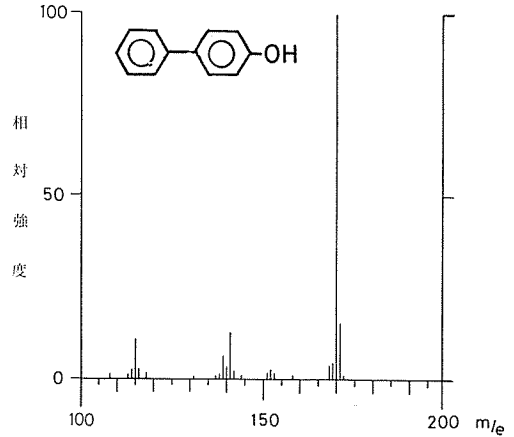


図-7 p-フェニルフェノールの質量スペクトル

いずれも分子イオンがベースピークになっており、o-ppでは脱水素原子の開裂が強くおこっている。またm-ppとp-ppは化学的物物理的性質が極めて似ており、質量スペクトルよりみた開裂様式もほぼ同じである。この中からフェニルフェノールに特徴的なイオンピークであるm/e=169, 170, 171を選び、MIDを測定した。図-8はo-pp, m-pp, p-pp各々5ngのマスフラグメントグラムである。

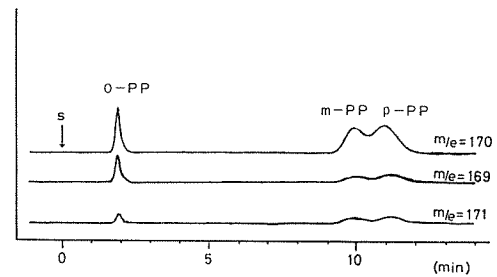


図-8 フェニルフェノールのマスフラグメントグラム (5 ng)

このように同定に関してGCの保持時間という情報に加え、マスフラグメントグラムでは質量数がかかるので、はるかに信頼度が高く、また1成分に対し2個以上の質量を設定すればより信頼できるものとなる。

### 4. まとめ

化学物質の環境における実態調査を行うために環境試料中に含まれる3種のフェニルフェノール異性体の分析方法を検討した。その結果、フェノール類のアルカリに対する性質を利用して妨害物が除去できるこ

と、充填剤として DEGS+H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> を用いれば充分分離定量ができること、およびGC-MS/MIDを用いれば高感度でより信頼できる結果が得られることがわかった。しかし、この分析方法での回収率は70%程度であり、今後検討を重ねたうえ53年度中に東京湾での実態調査を行なう予定である。

#### 参 考 文 献

- 1) 能勢憲英, 小林 進, 田中章男, 菅谷彰子, 渡辺昭宣: かんきつ類中の o-phenyphenol の定量. 日本食品衛生学会第30回学術講演会 A-12(1975).
- 2) T. Meyer and R. R. Scheline: The Metabolism of Biphenyl. II. Phenolic Metabolites in the Rat. *Acta pharmacol. et toxicol.* 39, 419-432 (1976).
- 3) P. J. Davis, L. K. Jamieson and R. V. Smith: Determination of Biphenyl and Eight Biphenols in Microbial Extracts by Gas Chromatography and Thin-Layer Chromatography. *Analytical Chemistry*. 50, 736-740 (1978).
- 4) 環境庁環境保健部保健調査室『環境における化学性物質の存在』 2-5 (1977).
- 5) 環境庁環境保健部保健調査室『化学性物質と環境』. 3-10 (1978).
- 6) 舟阪 渡, 池川信夫:『最新ガスクロマトグラフィーII 応用編』. 746-748 (1975). 広川書店.
- 7) 武田常蔵, 高橋誠二, 村田 武, 滝本まゆみ: 農薬へのマスフラグメントグラフィーの応用. 島津評論, 34, 151-157 (1977).

## IV 界面活性剤を含む排水処理 に関する実態調査(1)

### A Field Survey on the Treatability of Industrial Waste Water Containing Interfacial Active Agents

飯塚 貞 男\*

#### 要 旨

界面活性剤を含む排水の処理技術を検討するにあたり、まず界面活性剤を使用している事業所の排水について調査した。今回は、クリーニング事業所を対象とし、使用している界面活性剤の種類、処理施設の機能について検討した。使用されている界面活性剤は石けんを主体としており、アニオン系のものが多く使われていた。ノニオン系も使用されているが、その量は少なく、また凝集処理では、ノニオン系の界面活性剤は処理されにくいと判明した。

#### 1. はじめに

界面活性剤は各種の産業に使用されており、その使用量も増大する傾向にある。それとともに、界面活性剤による環境汚染や毒性も社会問題となっている。

横浜市内でもクリーニング、捺染、染色、精練など多くの事業所において界面活性剤が多量に使用されており、河川、海域の汚濁が懸念される。これらの事業所は排水処理方法として、ほとんどが凝集沈澱法をとっている。この方法は界面活性剤の処理という面からみた場合、石けん、LAS、AOS等の陰イオン界面活性剤(以下アニオン活性剤という)は、かなり除去される。しかしポリオキシエチレン系の非イオン界面活性剤(以下ノニオン活性剤という)は、この方法では除去されにくく、また界面活性剤特有の性質から凝集を阻害し、処理機能に悪影響を及ぼすとされている<sup>1)2)</sup>。そこで界面活性剤を含む排水の処理技術を検討するにあたり、まずクリーニング事業所排水を対象とし、各事業所で使用されている活性剤の種類、量、処理施設の管理状況及び処理前後の排水中のCOD、ノニオン活性剤含有量について調査を行なった。

#### 2. 調査期間

昭和53年10月～53年11月

#### 3. 調査方法

市内のクリーニング事業所の中で、排水量が1日50m<sup>3</sup>以上の事業所を選び、処理前後の排水について、COD、ノニオン活性剤を、また一部事業所については、LASをあわせて分析した。それと同時に、使用されている活性剤の種類、量及び処理施設の管理等を面接調査した。

#### 4. 分析方法

分析項目は、COD、ノニオン活性剤、LASの3項目である。CODはJIS K0102-13により、ノニオン活性剤、LASは、図-1、2に示す方法で行なった<sup>3)4)</sup>。なお活性剤の測定で、本法での定量が不可能な検水は、欠測と表示した。

#### 5. 結果及び考察

##### 5-1 各事業所で使用されている界面活性剤の種類

市内のクリーニング事業所のうち対象とした10ヶ所で主に使用されている活性剤の種類について調査した結果を表-1に示した。洗濯物の種類としては、ほとんどの事業所で、ホテル、病院などの衣類、シーツカバー、おしぼり、および一般家庭からのワイシャツなどが主であった。使用されている洗剤は、各事業所に

\* 横浜市公害研究所水質部門

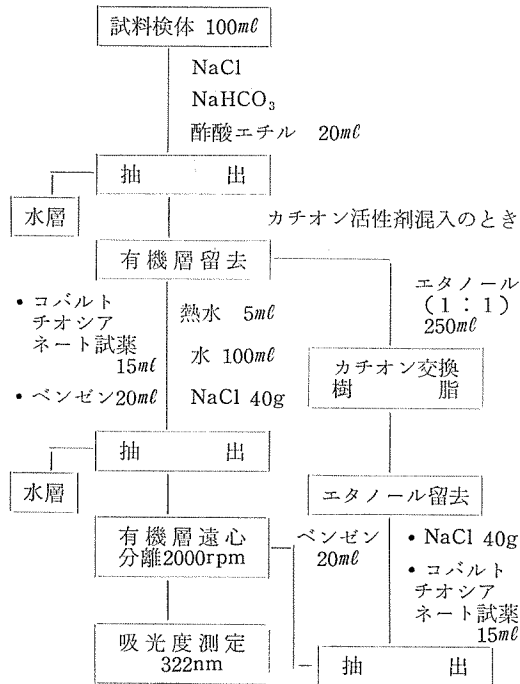


図-1 ノニオン活性剤の分析方法

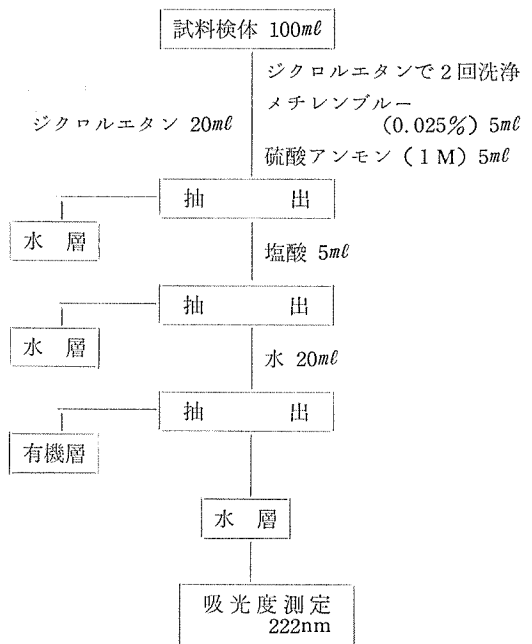


図-2 LASの分析方法

おいて石けんを主体としており、それにAS（アルキル硫酸ナトリウム）、AOS（ $\alpha$ -オレフィンスルホン酸）、LAS（直鎖アルキルベンゼンスルホン酸）といったアニオン系の合成洗剤がノニオン系のものと併用されていた。使用量は、石けんが最も多く、次いでアニオン系の合成洗剤であり、ノニオン系の合成洗剤の使用量は、アニオン系の20%程度であった。また輸入品の洗剤を用いている

事業所もあり、製造元が明確でなく、化学構造がアニオン系としか判断できないものもあった。また各事業所とも仕上剤としてカチオン系の活性剤を使用していた。他に、工場の作業衣を専用に洗濯している事業所もあり、そこでは石けんを用いず、アニオン系及びノニオン系合成洗剤を用いていた。以上の調査から使用されている洗剤は、生分解性のよい、いわゆるソフト型が主流であるといえよう。

### 5-2 各事業所の処理施設

調査した10ヶ所のクリーニング事業所の排水処理施

表-1 使用されているおもな界面活性剤

区分	略号	名前	化学構造	特記
アニオン系	石けん	脂肪酸ナトリウム	R-COONa	9社が使用
	LAS	直鎖アルキルベンゼンスルホン酸ナトリウム	R-C <sub>6</sub> H <sub>5</sub> -SO <sub>3</sub> Na	3社が使用
	AS	アルキル硫酸ナトリウム	R-O-SO <sub>3</sub> Na	7社が使用
	AOS	アルキルオレフィンスルホン酸ナトリウム	R-CH=CH-CH <sub>2</sub> SO <sub>3</sub> Na	7社が使用
ノニオン系	ノニオン	ポリオキシエチレンアルキルエーテル	R-O-(CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> O) <sub>n</sub> H	10社が使用
		ポリオキシエチレンアルキルフェノール	R-C <sub>6</sub> H <sub>5</sub> O-(CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> O) <sub>n</sub> H	

設は図-3に示すような、凝集沈殿処理方法をとっている。凝集剤としては、ポリ塩化アルミニウム、硫酸アルミニウムを用い、フロック生成用に有機高分子凝集剤を加え、沈殿させ放流するが、活性炭を通した後放流しているところもある。さらに各事業所独自に次のような工法がみられた。

- ① 原水槽に合成樹脂製網を媒体とした生物膜をおき、有機質を減少させた後、凝集処理槽に流す方式
- ② 沈殿槽の次に単純ばっ気槽を設ける。
- ③ 凝集反応槽に活性剤処理用の薬品を加えている。

④ 凝集沈殿後の上澄水の後処理としてさらに高分子繊維製の吸着剤を充てんした塔を用いる。

などの方法をとっており、処理水のCOD値はほぼ良好な値を示している。しかし処理施設の管理が十分でない事業所や、処理施設を設置した当時と比べて、事業所の作業工程が変化したため、水質や水量が変化し、処理機能が対応できない事業所もあり、問題を残している。また活性剤の処理については、活性剤が含有されているかどうかの判断の目安である泡立ちも、各事業所の排水で観察したところ、特に目立つものはないが、処理施設の運転管理が十分行なわれていない事業所ほど排水（処理水）の透視度は低く、COD値は高かった。

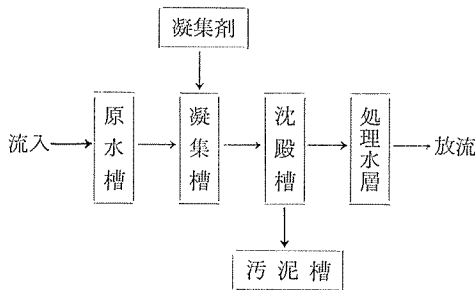


図-3 最も使用されている排水処理工程図

### 5-3 各事業所排水の分析結果

各事業所の処理施設の機能を判断するために処理前後の排水中のCODおよびノニオン活性剤の濃度を測定し、表-2に示した。一般に凝集処理では、CODで85%以上の除去率があれば良好であるとされており、また、ノニオン活性剤が混入すると、凝集処理に悪影響を及ぼし、COD値が高くなるとされている。そのような観点から処理機能をみると、一部の事業所を除き、ノニオン活性剤の処理効果は低く、除去率は平均で20%程度であった。一方CODでは、7事業所が、規制基準値60ppm以下に処理ができてはいるものの、除去率が85%以上のものは1事業所しかなく、必ずしも処理機能がよいとはいえないという結果であった。今回調査した界面活性剤は、ノニオン系を主な対象としたが、LASを使用している2つの事業所についてその処理効果をみたところ、表-3に示すようにいずれも90%以上の除去を示し、アニオン系の界面活性剤は凝集処理でもある程度除去できるといわれているが、それを裏づけていた。またD事業所では、界面活性剤の除去用凝集剤を使用しており、表-2に示すように良好な結果を得ているところから、今後の界面活

性剤を含む排水処理の対策上注目されるが、その機構等については調査が必要である。

以上界面活性剤を含む排水処理の実態把握のため、クリーニング事業所の排水処理について調査したのであるが、使用されている界面活性剤は、石けんを主体としたアニオン系の界面活性剤が多く、ノニオン系も調査した全事業所で使用されているが、量的にはアニオン系の20%程度であった。また処理水のCOD値が高い事業所があったが、ノニオン活性剤の影響により処理機能が低下したとはいきえず、むしろ処理施設の管理面に問題があると考えられる。

表-2 各事業所の分析結果

項目 事業所	COD (ppm)			ノニオン界面活性剤(ppm)			使用水量 t/day
	原水	処理水	除去率 (%)	原水	処理水	除去率 (%)	
A	120	58	51	18.6	14.1	24	200
B	58	26	55	6.7	4.2	37	200
C	140	320	(-)	10.7	8.2	23	190
D	200	46	77	17.2	1.0	94	200
E	56	54	3	2.9	2.6	10	150
F	84	9.5	87	2.4	1.9	21	150
G	160	120	25	8.5	6.0	29	200
H	140	121	14	欠測	3.9	(-)	150
I	86	14.3	83	欠測	1.4	(-)	95
J	200	55	73	4.2	3.5	17	200

(ノニオン活性剤は  $R-C_6H_5O(CH_2CH_2O)_nH$ ,  
n=9, R=12)

表-3 LASの処理効果

事業所	原水	処理水
A	16.6	1.7
B	13.8	0.59

(ppm)

### 6. おわりに

界面活性剤を含む排水の処理技術を検討するにあたり、まず界面活性剤を使用している事業所の排水について調査した。今回はクリーニング事業所を対象としたのであるが次のことがわかった。

(1) 界面活性剤としては、石けん、AOS、LASといったアニオン系のものが多く使用され、ノニオン



系も使用されているが、量的にはアニオン系と比較すると少ない。

- (2) ノニオン系は凝集処理では、除去しにくく、除去率も20%程度であったが、アニオン系であるLASは、除去率が良好であった。
- (3) 排水のCOD値を指標とした除去率は、良好とはいえなかったが、その原因は、界面活性剤の影響と断言できず、処理施設の不十分な管理も大きな要因と思われる。
- (4) 一事業所では、界面活性剤用の処理剤が効果的に使用されており、今後の参考にしたい。

以上の知見を得たのであるが、今後さらに界面活性剤を含む排水で問題となっている捺染、精練事業所に

ついて調査し、現状を把握するとともに、分析方法についてもさらに検討を加えていく方針である。

#### 参 考 文 献

- 1) 横浜市公害対策局編：捺染染色工業の排水処理処分について。公害資料 50, 29—40 (1974).
- 2) 茂利 晃：界面活性剤排水の処理。化学工場。20, 107—109 (1977).
- 3) 飯塚貞男：関東水道衛生協議会研究発表概要集 83—87. (1978).
- 4) Uchiyama : Determination of alkylbenzene-sulfonate in water by U. V. method. *Water Research*, 11, 205—207. (1977).

## V 横浜市沿岸海域における貧酸素水塊の発生と分布に関する調査

Research on Oxygen Depletion in the Coastal Sea of Yokohama City

島中潤一郎\*

### 要旨

横浜市沿岸海域において魚類へい死事故などの原因となる貧酸素水塊の発生と分布について調査を行なった。調査期間は1978年4月から8月までの5ヶ月間で、毎月1回、10地点、47水層で採水を実施し、透明度・水温・溶存酸素濃度の測定を行なった。調査した結果、透明度については、同一時期において東京湾の奥部と出口では異った傾向が見られても全般的に汚濁していることを示している。また、水温については、4月から7月にかけて成層構造が形成されていくが、8月に入ると東京湾出口に近い部分からそれが崩れ始め、深層水と表層水の水温差が小さくなり、均一化する傾向が観測された。また、溶存酸素濃度については3mg/l以下の貧酸素水が夏季に向けて生成されることが、調査地点10点のうち8点で確認された。その最低濃度は0.2mg/lであった。

### 1. はじめに

横浜市の東部は東京湾に面し、そのほとんどが臨海部工場地帯や港湾施設で占められているが、わずかながら自然海岸等の市民が余暇を過ごす地域もある。また、その沿岸付近の海域は未だに底曳き網による漁業や余暇を楽しむ市民を対象とした釣り舟業の活動の場となっている。

東京湾は湾口が狭く、内陸部に向って海域が広がるという地形的な制約から、湾内水の停滞性が強いといわれている<sup>1)2)</sup>。また、湾の沿岸一帯に大臨海工業地帯が立地し、その後背地には3千万に近い人口を有している首都圏が形成されている<sup>3)</sup>。近年、公害等による環境汚染の問題が注目されるようになり、この大規模な工業活動と巨大な都市生活による東京湾の汚濁の深刻さが認識されるようになった。そして、水銀・クロム・鉛・バナジウム等の重金属、あるいはPCB・BHC・界面活性剤等の汚染実態が明らかにされる<sup>4)</sup>と同時に、植物プランクトン増殖を促す栄養塩類の流入増加に伴う有機物汚濁、すなわち富栄養化・過栄養化の問題が指摘<sup>1)2)</sup>されるようになってきている。

富栄養化の進行した湖沼や海域では水中の溶存酸素の変動が大きく、特に成層を形成する停滞水塊の底層

水では欠乏することが知られている。すなわち無酸素水・貧酸素水塊が発生し、しばしば魚類の大量へい死の原因として問題となる<sup>5)</sup>。1978年度を例にとれば、7月に発生し、魚類の大量へい死の被害をもたらした千葉県船橋市沖の青潮が代表的なものとしてあげられよう。また、横浜沿岸海域でも1978年5月から9月までの5ヶ月間に少くとも4回の貧酸素水が原因と推測される魚類へい死事故が発生している。なかでも9月2日に発生した平潟湾での魚類へい死事故ではハゼを中心として数万尾の被害が発生している。

横浜市沿岸海域では、水質汚濁防止法に基づいた「公共用水域測定計画」による水質監視が行われている。海水中の溶存酸素濃度も監視項目の中に入っているが、

- (1) 測定点が少ない、
  - (2) 試料海水を採取する採水層が上・中・下の3層と少なく、採水深度にも制約が加わる、
- 等の理由で貧酸素水塊の形成や分析を把握するに十分な調査計画となっていない。そこで、多くの測定点を設け、採水層の密度を高くし、貧酸素水塊の形成・分布を把握することを目的として今回の調査を実施した。

\* 横浜市公害研究所水質部門

## 2. 調査の方法

### 2-1 調査期間

調査期間は1978年東京湾において上層と下層の水温差が生じそれが増大する時期、すなわち成層が始まり、それが頂点に達すると予想した1978年4月から同年8月までの5ヶ月間とした。調査期日は、潮位変動の影響をなるべく小さくするよう潮汐表から小潮時の2日間を選んで実施した。しかし、4月は中潮の期日に、6月は採水時のトラブルと天候条件のため調査期日が間を置いた2回に分けて実施された。

### 2-2 採水の場所及び方法

採水点は図-1に示す10地点であり、表-1に各点における採水深度を示す。St. A～St. C及び St. 8は扇島南端沖から中の瀬航路北端に向かって南々東に一直線に配列されている。この系列は以下L<sub>1</sub>系と名づける。St. 10, St. D～St. Fは根岸湾内から中の瀬航路に向かってほぼ東に一直線に配列されており、これをL<sub>2</sub>系と名づけた。St. 12は横浜市沿岸海域で水深がもっとも深くなる地点であり、St. Gは市内に残る唯一の自然海岸線を持つ金沢湾内にある。このうち、St. 8, St. 10およびSt. 12は「公共用水域測定計画」に定められた測定点でもある。なお、採水にあたって、潮位・潮流によって生ずる時間的な変化の影響を少なくするため、同一系列に属する採水点については同一調査日のできるだけ短い時間内に採水するよう留意した。

採水はバンドーン採水器によって船上から行った。なお、6月の採水点は通常時の10点に比べ5点と少くなった。

### 2-3 測定方法

#### 2-3-1 透明度の測定方法

直径30cmの白色円板（セッキの円板）を用い海洋観測指針（気象庁編）<sup>6)</sup>に従って各採水点の透明度を測定した。

#### 2-3-2 水温の測定方法

水温は棒状アルコール温度計を用いて採水器中の海水に対して測定した。

#### 2-3-3 溶存酸素濃度の測定方法

採水した海水を採水器からビニールチューブのサイフォン方式で100mlのBODびんに静かにすばやく移し、ウィンクラー試薬でただちに溶存酸素の固定を行った。この一連の操作にあたっては試水に気泡が入らぬよう特に注意した。固定後の試水はなるべく光のあたらないよう留意して運搬し、実験室にもどって定量を行った。ウィンクラー試薬等の処方方は海洋観測指針（気象庁編）<sup>6)</sup>に従った。また、各層のサンプルは2本ずつとした。

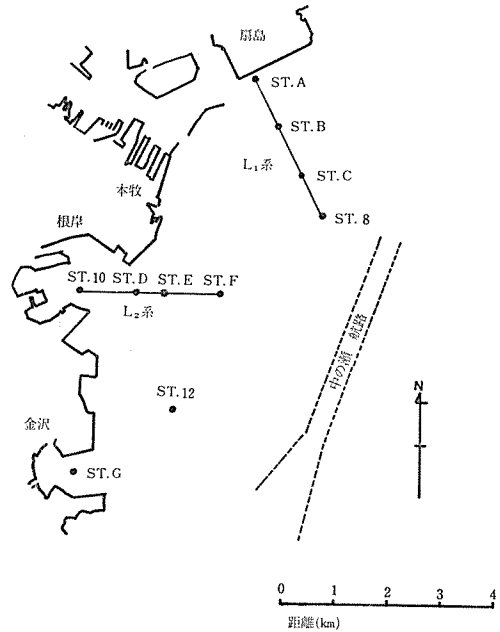


図-1 採水点の位置

表-1 採水の深度

採水点別深度 (m)

L <sub>1</sub> 系		St. A	0.5, 6.0, 10.0, 14.0,
	St. B	0.5, 6.0, 12.0, 18.0, 24.0,	
	St. C	0.5, 7.0, 14.0, 21.0, 28.0,	
	St. 8	0.5, 7.0, 14.0, 21.0, 28.0,	
L <sub>2</sub> 系		St. 10	0.5, 6.0, 13.0,
	St. D	0.5, 6.0, 12.0, 18.0,	
	St. E	0.5, 7.0, 14.0, 21.0, 28.0,	
	St. F	0.5, 7.0, 14.0, 21.0, 28.0, 35.0,	
	St. G	0.5, 6.0, 10.0, 15.0,	
	St. 12	0.5, 6.0, 12.0, 18.0, 32.0, 40.0,	

## 3. 結果と考察

### 3-1 透明度

透明度は海水の清濁を示す一つの指標であり、海中のセストン（溶存物や懸濁物）が増加すると透明度は減少する。測定結果を表-2に示す。結果を見る限りにおいては、5月の測定値が全般的に低く、8月よりは7月の測定値が低くなっている。しかし、5月は赤潮の発生した時期にたまたま調査期日が重っており、また、水中の懸濁物の大きな部分を占めるプランクトンの分布は場所的にも不均一（いわゆるパッチ状）であって、時間的な変動の大きいこと<sup>7)</sup>などにより、

5ヶ月間の5回の差の小さい測定値からは季節的な傾向を云々することは危険である。さらに、地域的な特徴については、東京湾口に近いSt. 12やSt. 10では透明度が2mを下まわる値は出ていないもの、それでも他の地点と大幅に異った数値とはならず、他の海域の測定例などから見ても調査海域の汚濁が全般的なものであることを物語っている。

表一2 採水点の透明度  
透明度 (m)

		4月	5月	6月	7月	8月
L <sub>1</sub> 系	St. A	2.5	0.9		1.5	2.5
	St. B	4.0	0.5	2.0	1.5	2.8
	St. C	4.0	0.5	2.0	1.3	2.0
	St. 8	4.0	0.35		1.0	2.5
L <sub>2</sub> 系	St. 10		0.6		1.2	2.2
	St. D		0.5		1.2	2.0
	St. E		1.0		1.2	2.7
	St. F	3.0	2.0	4.0	1.2	2.5
	St. G	4.0			2.0	2.2
	St. 12		2.5		2.5	2.5

### 3-2 水温

図一2に各採水点における深度別水温を示す。その結果つぎのようなことが言える。

- (1) 5月から7月にかけてはどの採水点においても上層水の温度が高く、下層水との温度差が大きくなり成層化がしだいに顕著となる。
- (2) この成層は比較的、東京湾奥部に近いL<sub>1</sub>系の採水地点では8月になっても維持される。
- (3) 比較的、東京湾口に近いL<sub>2</sub>系の採水地点、およびSt. 12, St. GはSt. Fを除いて、8月になると成層が崩れはじめる。すなわち、St. D, St. E, およびSt. 10では採水量上層水と最下層水の水温差が7月に6.5°C~8.0°Cあったものが、8月には1.6°C~2.0°Cと減少している。また、St. 12では20°Cの水温層が7月に12mの深度にあったものが、8月には32mとなり、水域の表層部から下層部へ向って水温の均一化が進行していることから、先のことが言える。
- (4) 一部には深度の増加に伴う水温の上昇という現象がしばしば現われている。

水温の垂直分布の地域的な特徴を示すためにL<sub>1</sub>系、L<sub>2</sub>系の水溫垂直分布図を図一3に示す。L<sub>2</sub>系に関して7月と8月を比較すれば、St. 10, St. D, St. Eの

部分の水温の均一化すなわち成層の崩壊が進んでいることがよくわかる。

この成層の崩壊は、7月から8月にかけて、この採水点付近の水界で上下層の混合、あるいは下層水の移動といった水の運動があったことを示唆している。

夏季になって成層化が進むと、深度の増加にともなって急激に水温の低下する水温躍層が発達する。この躍層をはさんで表層水と深層水の間には、水の密度のちがいがから、混合による酸素や栄養塩の移動が生じにくくなる<sup>8)</sup>といわれている。

従って、このような水温の成層化とその崩壊を調査することは貧酸素水の生成・分布を把握する上で重要な意味を持つ。

### 3-3 溶存酸素濃度

海水中の溶存酸素は主として大気中からの溶解と、植物プランクトンの光合成によってもたらされる。とりわけ、富栄養化の進んだ海域では夏季は後者の比重が高くなる<sup>11,9)</sup>といわれている。大阪湾や東京湾の表層水で飽和量の200%近くもの溶存酸素濃度が夏季に記録されるのもこのためとされている<sup>11,9)</sup>。一方、溶存酸素は水中での物質の酸化、なかでも有機物の分解により消費され、あるいは大気中へ放出される<sup>10, 11)</sup>。各採水地点の溶存酸素濃度の測定結果は図一2に示されている。塩分濃度のデータがないので飽和度の算出をすることができないが、各時期毎の溶存酸素濃度の垂直分布は時期・場所の特徴をかなり示している。すなわち、

- (1) 水温の成層化が進んだところでは下層に溶存酸素濃度の低い部分が生じる傾向がある。
- (2) 表層水については10mg/ℓという高溶存酸素が5月以降によく出現している。
- (3) 8月に水温の成層構造の崩壊したSt. 10, St. D, St. EのL<sub>2</sub>系各採水点では下層水の水質が溶存酸素濃度が増加しており、水温のところで考察したと同じように水界中の水の運動のあったことを示唆している。
- (4) 水温の分布とちがって、沿岸に近い海域でも表層水に比して低溶存酸素の水が下層に形成されることもある。
- (5) 3mg/ℓ以下の溶存酸素濃度はSt. G, St. 8を除いた8地点で測定された。なお、水棲の生物が正常な生理的諸過程を維持するのに必要な溶存酸素濃度の閾値は5mg/ℓとされ<sup>12)</sup>、3mg/ℓを一日のうち何時間か一時的に下まわるだけで魚類の正常な活動や成長は損われると言われている<sup>13)</sup>。
- (6) しばしば温度の増大に伴って溶存酸素の増大する現象がみられる。

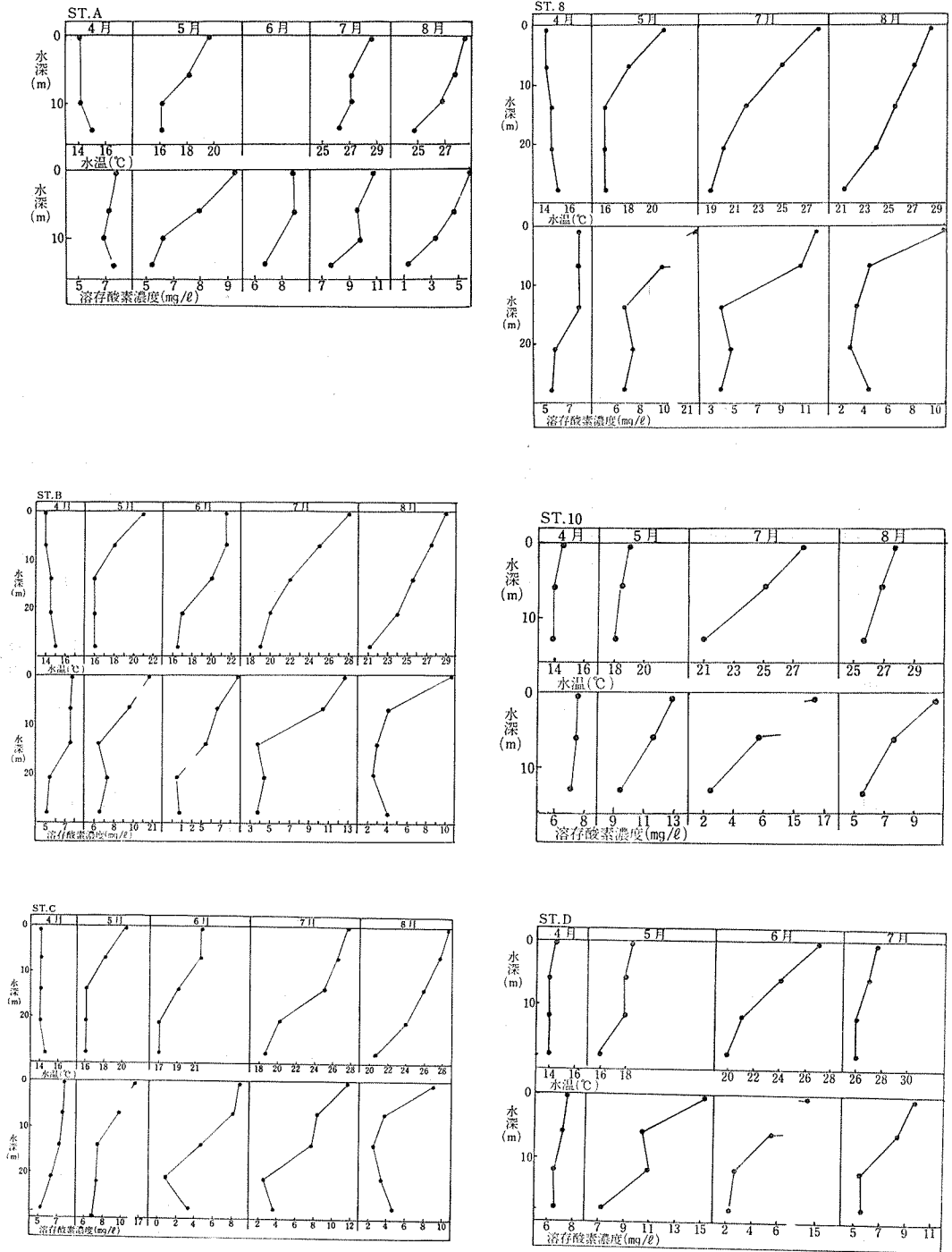


図-2-1 水温と溶存酸素の垂直分布

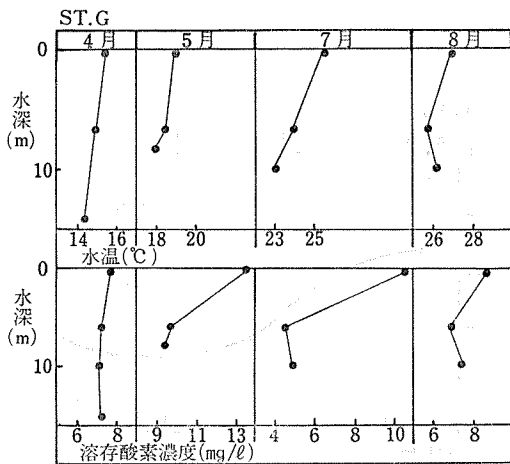
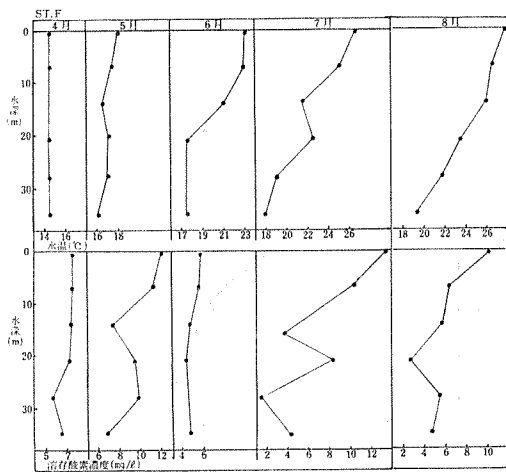
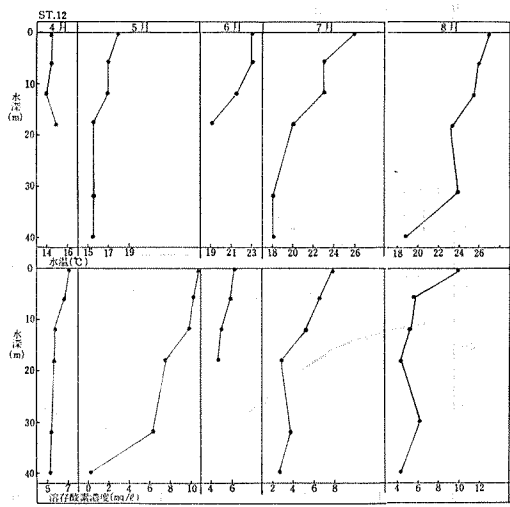
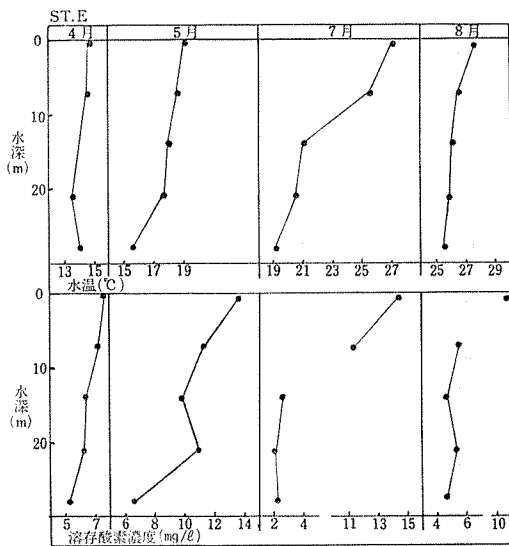


図-2-2 水温と溶存酸素の垂直分布

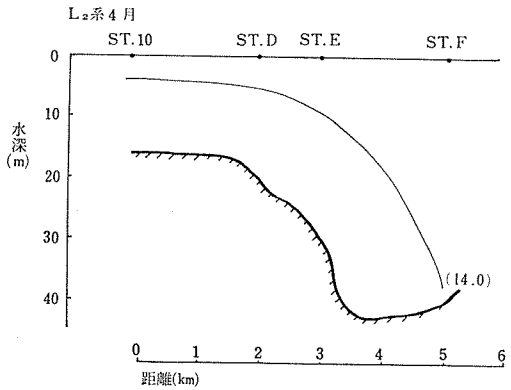
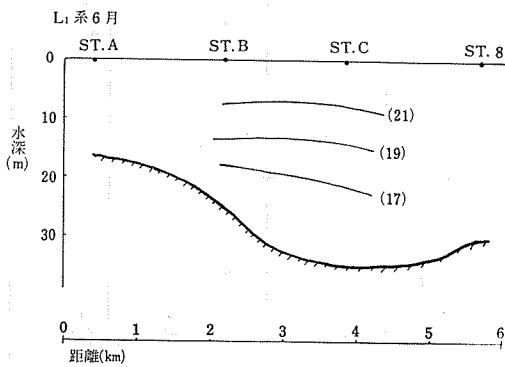
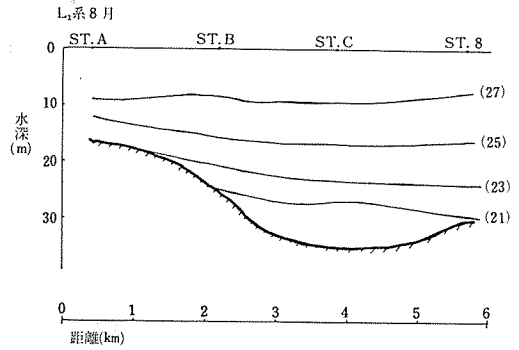
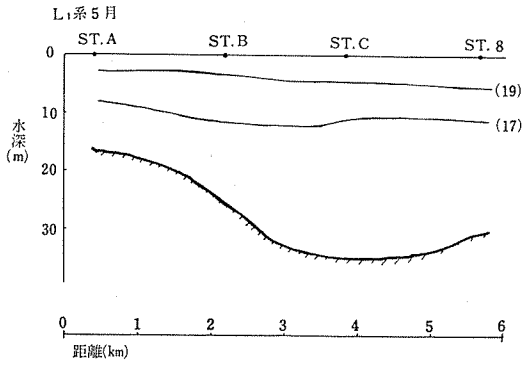
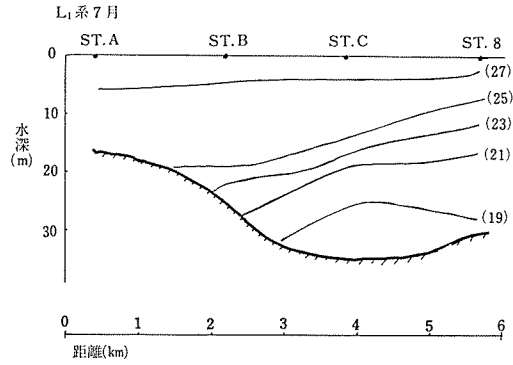
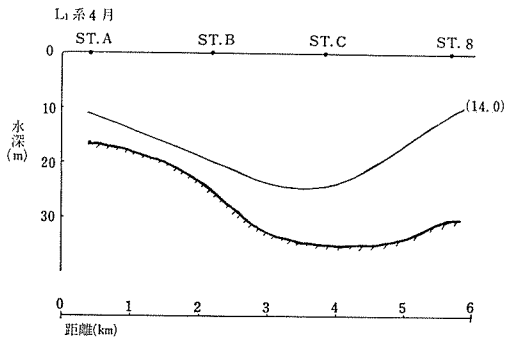
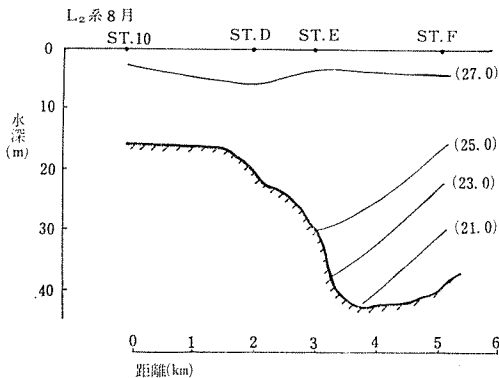
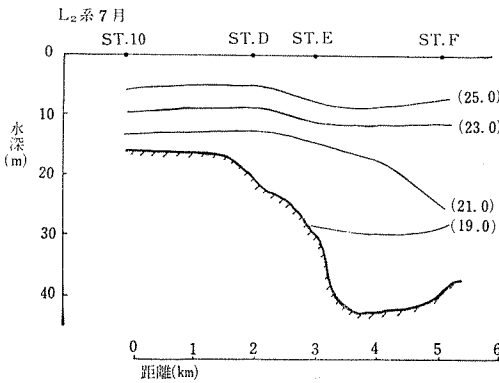
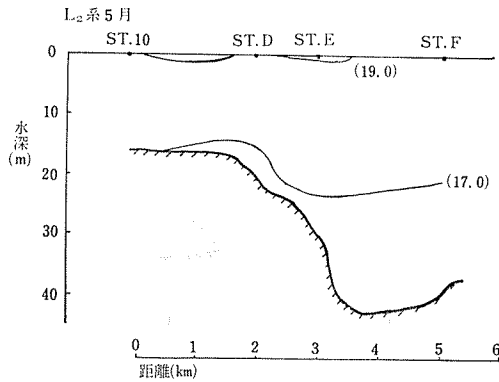


図-3-1 L<sub>1</sub>系, L<sub>2</sub>系 の水温 垂直 分布

( ) 内の数値は水温を示す。単位 °C



図一3-2 L<sub>1</sub>系, L<sub>2</sub>系の水溫垂直分布

調査時において採水点の表層水には貧酸素の状態が現われていないが、5月15日の横浜港大棧橋付近で $1.9\text{mg}/\ell$ 、8月18日大岡川河口付近で $1.0\text{mg}/\ell$ という溶存酸素濃度の非常に低い貧酸素水が出現していることが確認された。ただし、5月15日の場合は大棧橋付近は透明度が20cmというかなり強度な赤潮状態にあり、下層に生成する貧酸素水とは状況を異にしている。L<sub>1</sub>, L<sub>2</sub>系の溶存酸素濃度の垂直断面を図一4に示す。

#### 4. まとめ

- (1) 横浜市沿岸海域では春から夏にかけて水温による水界の成層化が進行し、海域下層部に貧酸素水が生成されるという一般的な特徴がある。
- (2) 水温の成層のパターンと溶存酸素濃度勾配のパターンは類似していることが多いが、不一致なものもある。また、深度の増大に伴う水温の上昇、溶存酸素濃度の増加ということが部分的に生じていることもある。
- (3) 成層化に伴う貧酸素水の形成の他に赤潮の発生によって表層水が貧酸素水となることもある。
- (4) 水界の成層は東京湾の湾口に近い部分で崩れはじめた、ということが認められた。

貧酸素水塊の生成は海域における汚染現象の一つにすぎないが、単に漁業に対するだけでなく地域住民の生活環境という面からも悪い条件といえる。根本的な解決ということになれば富栄養化への対策に求められるであろう。しかし、富栄養化との係わりを含めて、この貧酸素水塊の生成と分布を理解するために考察すべきいくつかの問題が残されている。

一つは潮流の問題である。東京湾には卓越風に負うところの多い恒流が存在し、湾内水の更新や鉛直循環といった水質に密接な事象も風によるところが多いという<sup>14)</sup>。しかし、潮流は横浜市沿岸海域だけに関しても数学モデルによるシミュレーション値<sup>15)</sup>の他には実測値も限られたもので、貧酸素水塊の生成と分布について説明するために一般化して用いることは困難である。もう一つは水界における輸送速度と酸素消費速度の問題がある。水界の成層化によって酸素輸送速度は減少する。生物生産によって大部分はもたらされる有機物を分解するにあたっては酸素が消費される。この減少と消費の速度に関する変動の関係を明らかにすれば、水域における富栄養化のなかで、貧酸素塊生成が占める問題の大きさがさらにはっきりするであろう。現在はモデル式を使った数値計算が行われ、溶存酸素



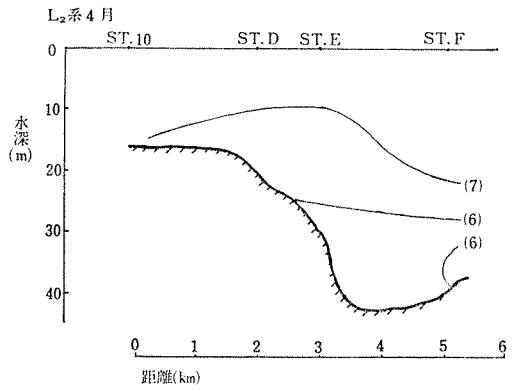
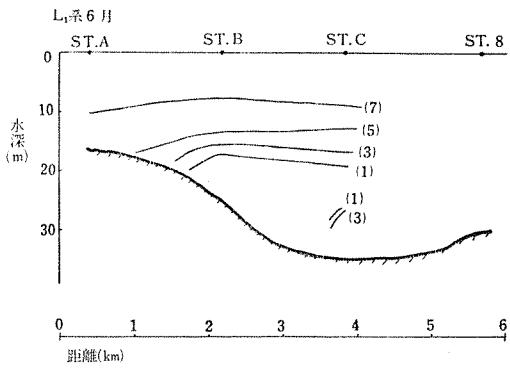
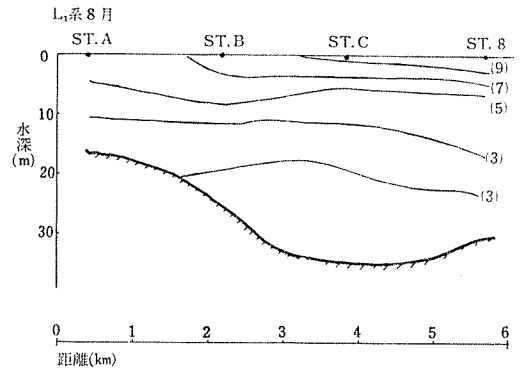
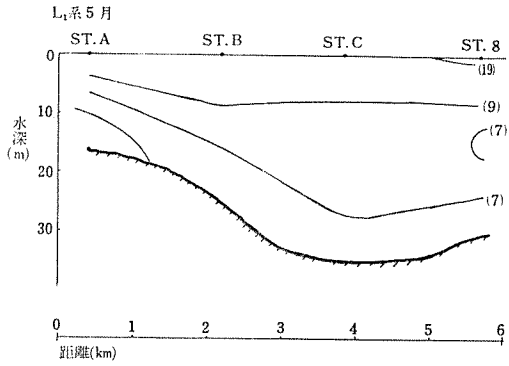
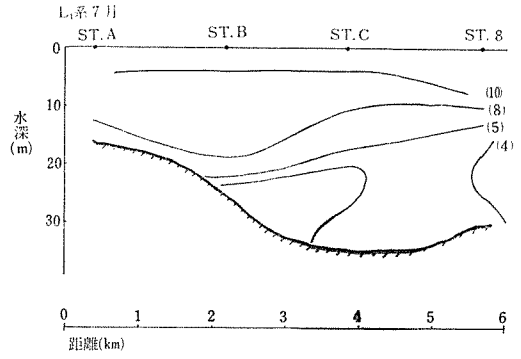
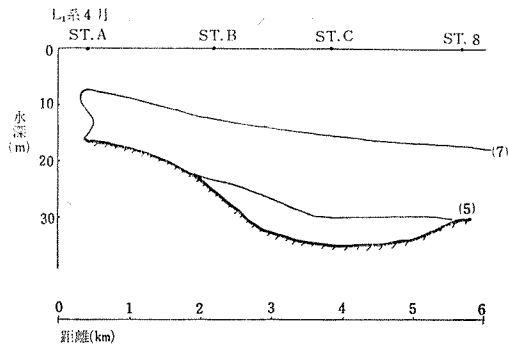


図-4-1 L<sub>1</sub>系, L<sub>2</sub>系の垂直溶存酸素分布

( )内の数値は溶存酸素濃度。単位は mg/ℓ

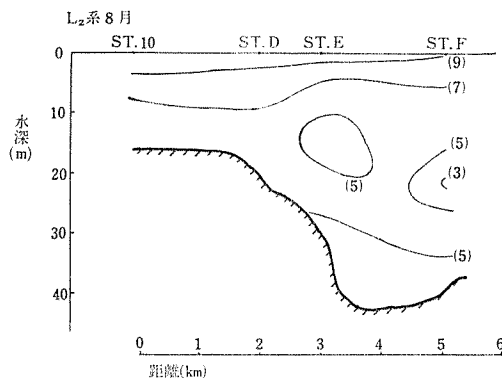
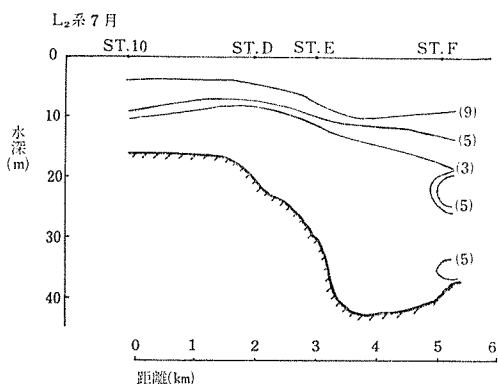
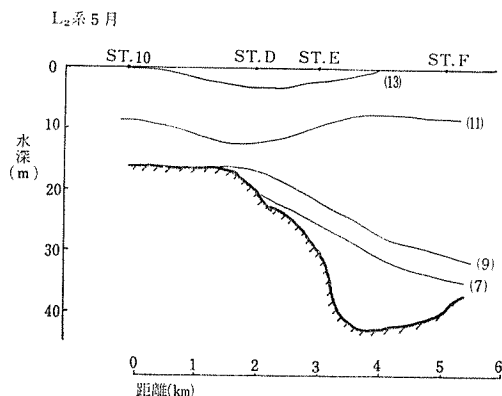


図-4-2 L<sub>1</sub>系, L<sub>2</sub>系の垂直溶存酸素分布

濃度から消費速度を推定するなどされている<sup>11)</sup>。しかし、計算値を検証するためにも、海域における実測データを集積する必要がある。今後は、今回の調査結果をもとに調査地点を選び、実測や他の資料を合わせて酸素消費速度と貧酸素水塊の形成について検討を加えてゆきたい。

今回の調査においては、水温の測定においてサーミスタ温度計を使用しなかったり、塩分測定の数値を欠くなどして、不十分なところがいくつかあった。今後の調査においてはそれらの項目についても適切な方法により、充実したデータを得ることとしたい。なお、調査時の採水については、横浜港湾局船舶「ひばり」、「おおとり」の乗員諸氏の多大な御協力があったことを付記して謝辞に代えたい。

### 参考文献

- 1) 一都三県公害防止協議会：「昭和48年度水質汚濁共同調査報告書（東京湾総合調査）」1～322（1974）。
- 2) 江角比太郎，古井戸良雄，川原 浩，曾田京三：東京湾の水質環境。東京都公害研究所報，6，121～131（1975）。
- 3) 建設省関東地方建設局企画部：「東京湾環境保全調査報告書」（1974）。
- 4) 坪田博行：東京湾における物質の動き。1978年度日本海洋学会春季大会講演要旨集，307（1978）。
- 5) J. Palka & G. D. Hahfner：Oxygen Depletion of Hamilton Harbour. *Water Research*, 12（4）205—215（1978）。
- 6) 気象庁：『海洋観測指針（気象庁編）』1—427（1970）。日本海洋学会。
- 7) T. R. パーソンズ，高橋正征：『生物海洋学』，市村俊英訳，14～44（1974）。三省堂。
- 8) 有賀祐勝：『水界植物群落の物質生産Ⅱ—植物プランクトン—』8—10（1973）。共立出版。
- 9) 城 久，安達六郎，三好礼治：大阪湾に発生する赤潮の生態に関する研究。大阪宇水産試験場研究報告，3，34—34（1971）。
- 10) 関 文威：「水の華」における酸素の動態。1978年度日本海洋学会春季大会講演要旨集，204（1978）。
- 11) 西村 肇：等濃度面解析による鉛直拡散係数と酸素消費速度の推定。1978年度日本海洋学会春季大会講演要旨集，105（1978）。
- 12) ウィルバー：『水質汚染の生物学的研究』。（1972）。恒星社厚生閣。

- 13) 米国内務省水質汚濁規勢局内技術諮問委員会  
(伊藤 侖・新田忠雄訳)：『水生生物水質基準』，  
日本水産資源保護協会編，(1974).
- 14) 蓮沼啓一：東京湾における流動の特徴. 1978年  
度日本海洋学会春季大会講演要旨集, 304 (1978).
- 15) 千葉県・横浜市・川崎市：「東京湾水質シミュ  
レーション報告書」, (1976).

# VI 大岡川源流部の氷取沢 における付着藻類植生

Algal Flora from the Hitorizawa Stream, Source of the Ohokagawa River

福嶋 悟\*

## 要旨

大岡川の源流部の、円海山・北鎌倉近郊緑地保全地区の北部を流れる氷取沢の、付着藻類の調査を、1976年9月より1978年3月までに6回行った。

その結果、藍藻類、緑藻類、紅藻類がそれぞれ1種、ケイ藻類が57種、計60種の藻類が検出された。

紅藻類のペニトモ *Chantransia* sp. が、18地点のうち13地点で検出され、そのうち10地点で最も多い現存量を示した。その原因として、周辺の本々により、そして、地形的に日陰になることが多いことが考えられる。

各地点で最も多い現存量を示した8種のうち、7種は非耐汚濁性種で、氷取沢の水は清浄に保たれていると考えられる。

付着藻現存量は、横浜市内の他の河川のそれに較べ少ない。それは付着藻生産量が少ないためであり、このように清浄で生産量の少ない水域として保たれている背景に、周辺の緑豊かな森林等の役割があることは無視できないものである。

## 1. 目的

大岡川は横浜市、鎌倉市にまたがる円海山・北鎌倉近郊緑地特別保全区域の北部、円海山近郊緑地特別保全地区及びその周辺を源とし、東京湾、横浜港に注ぐ長さ約25km、流域面積約3,500ha、流域人口約413,000人の都市河川である。

源流部にあたる氷取沢周辺に、南横浜バイパスが建設中で、将来は都市計画道路の横浜一小田原線(仮称)の建設も予定され、この地区の自然環境が大きく変わることが予想される。

そこで、現在の自然環境下の氷取沢の魚類、付着藻類の調査を実施し、将来の環境変化に対する基礎資料とすることを目的とした。

調査は既に1976年9月以来、6回実施し、調査結果の一部は既に報告した<sup>1)</sup>。

本報では、1976年9月から1978年3月までの6回の付着藻類の調査結果について報告する。

## 2. 場所及び期日

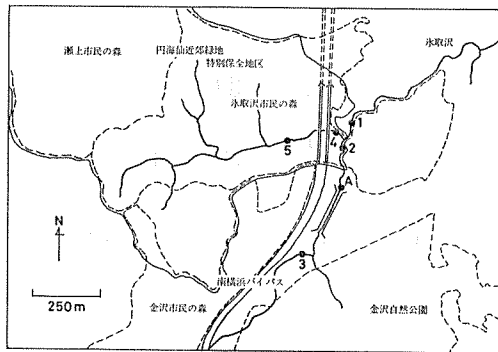
### 2-1 調査地点及びその周辺の概況

調査地点は St. 1 ~ St. 5 と St. A の6地点で、付着藻類は St. 1 ~ St. 5 の5地点で採集し、St. A では環境要因の測定だけ行なった。

St. 1の上流で、左岸より流れ込む St. 4, St. 5のある小水流のほぼ全域は、氷取沢市民の森(約25ha)内にある。St. 2より上流の St. A, St. 3のある流域の一部は金沢自然公園(予定)内に入るが、そのほとんどは南横浜バイパスの東側に沿って存在する(図-1)。

氷取沢市民の森に隣接して瀬上市民の森(約23ha)があり、これら2つの市民の森のほぼ全域は円海上近郊緑地特別保全地区(約100ha)内にあり、金沢市民の森(予定)の一部も当地区内にある。これら自然公園や、市民の森の他に、この周辺には、峰市民の森(約8ha)、釜利谷市民の森(約15ha)があり、氷取沢周辺は横浜市内で広域な自然環境が残された唯一の場所である。

\* 横浜市公害研究所水質部門



図一 調査地点

### 2-2 調査期日

調査は1976年9月3日, 1977年2月24日, 4月18日, 8月4日, 11月8日, 1978年3月14日に行なった。なお調査は, 調査日前の数日間降雨がないことを原則として行なった。

## 3. 方法

付着藻類は, 河床の礫より5×5cmのコアドラートを用いて定量的に採集した。

水温, 気温の測定は棒状水銀温度計を, 水素イオン濃度の測定は比色計を用い, 流速は, 2mのヒモを付けた50mlポリビンに水を入れ, 流水中で2m流し表面流速を測定した。

採集した付着藻類は, 5%ホルマリン液で固定し, スピッツ型沈殿管内で3昼夜放置後, 沈殿量の約10倍に容量を調製し, 検鏡サンプルとした。検鏡サンプルの0.05mlをメスピペットで大型スライドガラス上に取り, 24×32mmのカバーガラスを載せ, 1次プレパラートにし, そこに出現した細胞数を計数し, 現存量を算出した。一般に400~600の細胞を計数して現存量を算出するのが普通であるが, 本調査では出現細胞数が極めて少なく, 400~600の細胞を計数することが困難なため, カバーガラスの短辺に平行にカバーガラスの端から端まで総合倍率600倍で5回検鏡し, 出現した細胞数より現存量を算出した。

ケイ藻類の種の同定は, 酸処理をしたサンプルを, プレウラックスで封入した永久プレパラート内に出現した殻の顕微鏡写真を撮影し, 2,000倍に引き伸した写真により行なった。

## 4. 結果及び考察

### 4-1 環境要因

付着藻類採集時に測定した各項目のうち, 他の河川

の傾向と異なるものとして, 気温と水温の関係と, 流速が挙げられる。一般に冬期には水温が気温より高いが, 氷取沢では調査期間中, 常に気温が水温より高かった。流速は瀬の部分で測定したが, 他の河川の瀬での流速に比べ, かなり小さい値であった(表一)。

表一 付着藻採集地点の環境要因

年. 月	地点番号	気温 (°C)	水温 (°C)	pH	流速 (cm/秒)	水深 (cm)
1976年9月	St.2	23.0	21.0	7.4	44	15
1977年2月	St.2	5.0	2.5	7.8	40	20
8月	St.1	—	21.0	8.2	29	5
	St.2	—	26.0	8.2	33	5
	St.3	—	26.5	8.4	22	5
	St.5	—	25.5	8.0	25	5
11月	St.1	20.5	17.5	7.8	36	5
	St.2	22.0	18.0	8.0	22	5
	St.5	21.0	17.3	7.6	21	5
1978年3月	St.1	6.2	6.0	7.4	—	—
	St.2	7.5	6.0	7.5	—	—
	St.3	12.2	8.5	7.4	—	—
	St.5	7.5	4.5	7.4	—	—

—: 未測定

### 4-2 付着藻類

検出した付着藻類は, 藍藻類, ケイ藻類, 緑藻類および紅藻類である。調査した18地点のうち, 付着藻類がまったく検出されなかった1地点(1977年, St.4)を除く各地点で, 礫表面の1mm<sup>2</sup>の細胞数(以下現存量と記す)に占める割合は, ケイ藻類と紅藻類がともに8地点でもっとも大きく, 緑藻類が1地点でもっとも大きい。他の河川では, 藍藻類とケイ藻類が多い<sup>2)</sup>傾向にあることと比べ, 紅藻類が現存量に占める割合の大きい地点が多い(表二)。

検出した種数は, ラン藻類, 緑藻類として紅藻類はともに1種のみで, ケイ藻類57種の計60種である。これら60種のうちもっとも多くの地点で検出されたのは, マガリケイソウ *Achnanthes lanceolata* とハリケイソウ *Nitzschia dissipata* で, 両種とも17地点のうち15地点で検出された。次いで, ハリケイソウ *Nitzschia linearis* とベニイトモ *Chantransia* sp. が13地点で, コパンケイソウ *Cocconeis placentula*, クサビケイソウ *Gonphonema clevei* v. *javanica*, フネケイソウ *Navicula gregaria* が12地点で, マガリクサビケイソウ *Rhoicosphenia curvata* が10地点で, クチビルケイソウ *Cymbella sinuata*, 同 *Cymbella ventricosa* が9地点で検出された。

表一 付着藻の門別出現率

年 月	地点番号	門 別 出 現 率			
		藍藻	ケイ藻	緑藻	紅藻
1976年 9月	St. 2	0	96.4	0	3.6
1977年 2月	St. 1	0	100.0	0	0
	St. 2	0	20.5	0	79.5
	St. 3	0	100.0	0	0
	St. 5	0	71.7	0	28.3
1977年 4月	St. 2	0	0	0	100.0
1977年 8月	St. 1	0	38.5	0	61.5
	St. 2	0	16.4	0	83.6
	St. 3	0	35.6	0	64.4
	St. 5	0	41.7	0	58.3
1977年 11月	St. 1	0	61.9	0	38.1
	St. 2	0	28.6	71.4	0
	St. 5	0	81.4	0	9.6
1978年 3月	St. 1	2.0	98.0	0	0
	St. 2	0	16.0	0	84.0
	St. 3	0	100.0	0	0
	St. 5	0.9	30.6	0	68.5

単位：%

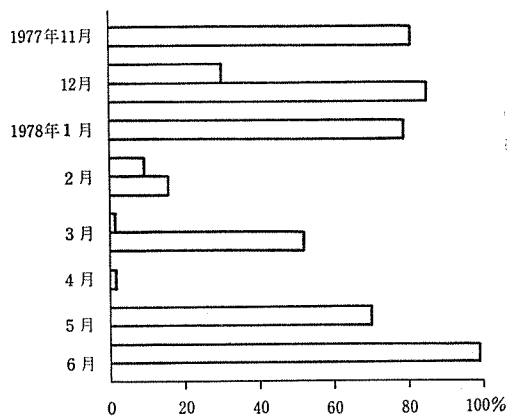
ベニイトモ *Chantransia* sp. が10地点で現存量が最も多く、次いでハリケイソウ *Nitzschia dissipata* が2地点で、マガリケイソウ *Achmanthes lanceolata*、クチビルケイソウ *Cymbella sinuata*、クサビケイソウ *Gonphonema clevei* v. *javanica*、フネケイソウ *Navicula gregaria*、マガリクサビケイソウ *Rhoicosphenia curvata*、ヒビミドロ *Ulothrix zonata* がそれぞれ各1地点で現存量が最も多かった。これら8種のうち、フネケイソウ *Navicula gregaria* を除く7種は、山地の溪流のような清浄な河川で、しばしば多く見られる非耐汚濁性種で、この様な種が多く検出された氷取沢は、貧汚濁水域と考えられる。

ベニイトモ *Chantransia* sp. は17地点のうち13地点で検出され、10地点で現存量がもっとも多く、氷取沢の代表的な藻類といえる。本種は筑波山系の山口川源流部でも多く検出され、山口川源流部で本種の付着藻現存量に占める割合は、11月から6月までの調査期間中、2月から4月までは小さい傾向が認められた<sup>3)</sup>(図一2)。

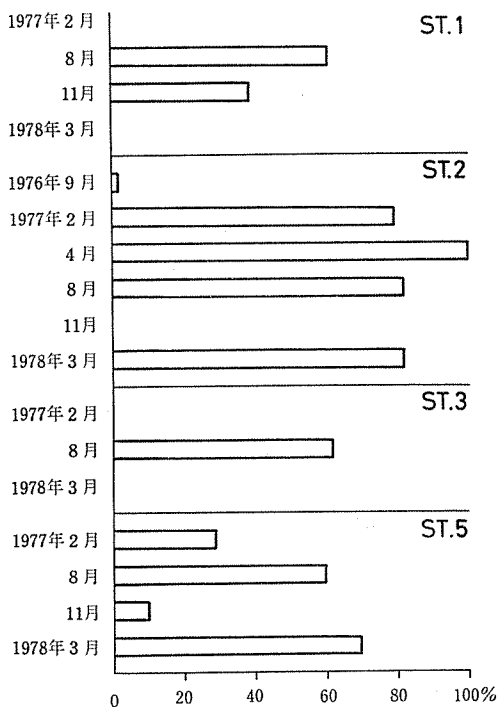
ベニイトモ *Chantransia* と同じ分類群の紅藻類の *Batrachospermum* の耐陰性種<sup>4), 5), 6)</sup> は、落葉樹林の中の河川では、周辺の木々の葉が繁茂して、水面への光の透過が悪い時には、付着藻現存量の多くを占め、落葉により光の透過が良くなった時には減少する。この

様な出現様式と、山口川源流部でのベニイトモ *Chantransia* sp. の出現様式は類似しており、本種も耐陰性種と考えられる。

氷取沢の各調査地点でベニイトモ *Chantransia* sp. が付着藻現存量に占める割合は、St. 1とSt. 3では



図一 山口川源流部(筑波山系)の石礫上の付着藻現存量に *Chantransia* sp. が占める割合



図二 氷取沢の石礫上の付着藻現存量に *Chantransia* sp. が占める割合

1977年8月と11月に大きく、1977年2月と1978年3月には検出されなかった。St. 2とSt. 5ではSt. 1とSt. 3のような傾向とは異なり、1977年2月と1978年3月にも、付着藻現存量に占める割合は大きい傾向が認められた(図一3)。この原因として、St. 1とSt. 3は周辺の木々の葉の繁茂や落葉により、水面への光の透過率が夏期と冬期で異なることにより影響され、St. 2とSt. 5は、そのような要因に加え、地形に影響されていることが考えられる。つまり、氷取沢は周辺の木々により、そして、地形的に日陰になることが多いため、ベニトモ *Chantransia* sp. が代表的な藻類となっていると考えられる。

付着藻現存量が最も多かったのは、1978年3月のSt. 5の2,713細胞で、最も少なかったのは、付着藻類が全く検出されなかった1977年4月のSt. 4であった(表一3)。横浜市内の他の河川の夏期の30地点の平均現存量は7,746細胞で、冬期の31地点の平均現存量は19,280細胞であり<sup>1)</sup>、これら兩者のうち小さい値と較べても、氷取沢の付着藻現存量は調査期間を通じて非常に少なかった。

表一3 付着藻現存量

年月	付着藻現存量				
	St. 1	St. 2	St. 3	St. 4	St. 5
1976年9月	—	2083	—	—	—
1977年2月	420	657	308	—	260
1977年4月	—	10	—	0	—
1977年8月	36	1239	283	—	77
1977年11月	59	24	—	—	644
1978年3月	69	380	4	—	2713

—：未調査

単位：細胞数/mm<sup>2</sup>

一般に付着藻生産量は冬期に較べ、水温が高く、照度の大きい夏期に多いが、付着藻現存量は、水理学的条件にあまり変化がなく、低水位の期間が長く続く冬期に多くなる<sup>2)</sup>。この様な傾向は関東地方を流れる多摩川<sup>7)</sup>、相模川<sup>8)</sup>、その支流の権現沢<sup>9)</sup>等でも見られた。

氷取沢の付着藻現存量が少なかった原因として、都市排水等の汚水の流入がまったくないこと、周辺森林により流域からの栄養塩等の流入がかなり妨げられている<sup>10)</sup>こと、そして日陰になることが多く、水面での照度が小さいこと等が影響し、付着藻生産量を少なくしているためと考えられる。また他の河川のように、

冬期に付着藻現存量が特に多くならなかった原因として、周辺の林の浸透性の大きい土壌が、降雨による急激な河川水の増加をおさ<sup>10)</sup>、付着藻の物理的な剝離をかなり妨げていることが考えられる。

以上ここに述べてきたように、氷取沢が清浄で、付着藻生産量の少ない水域として保たれていることは、周辺の緑豊かな森林と切り離しては考えられない。これは下記の現象からも認められる。St. Aの上流の約200mの間は現在三面コンクリート構築となり、その左岸つまり西側は、まったく大きな樹木のない南横浜バイパスの土手となっている。この様な環境のSt. Aでの水素イオン濃度は8.4(1977年11月)で、その上流のSt. 4では7.6(1977年11月)であった。この様に水素イオン濃度がSt. 4に較べその下流のSt. Aで0.8高くなっている原因として、樹木などにより日光がさまたげられず、他の地点より水面での照度は大きくなり、当然、水温も上昇するため、付着藻生産量が多くなっているためと考えられる。この様に周囲の森林がなくなると、付着藻生産量は増大し、水系の富栄養化の進行も考えられる。

#### 参考文献

- 1) 横浜市公害対策局：横浜の川と海の生物。公害資料，73，34—69(1978)。
- 2) 福島 博：河川の底生藻の生態。横浜市立大学論叢，自然化学編，22(2)，1—37(1971)。
- 3) 福嶋 悟・他：殺虫剤による淡流生物相の破壊とその回復過程(2)藻類相の変化。日本陸水学会第43回大会講演要旨，38(1978)。
- 4) H. B. N. Hynes：『The Ecology of Running Waters』，53—111(1972)。Liverpool University Press. Liverpool。
- 5) B. A. Whitton：『River Ecology』，81—105(1975)。University California Press. Berkeley and Los Angeles。
- 6) 秋山 優・他『日本淡水藻図鑑』，広瀬弘幸・山岸高旺編，174(1977)。内田老鶴園新社。
- 7) 建設省関東地方建設局京浜工事事務所：多摩川の生物相と水質汚濁の現況。29—75(1975)。
- 8) 神奈川県：藻類植生と水質汚濁。第4報，19—47(1974)。
- 9) 福嶋 悟・中村 譲・斉藤一三・高橋正和：日本産ブユ数種の幼虫の消化管より得たケイ藻類。衛生動物，27，373—380(1976)。
- 10) 和田定彦：株林の水質保全機能とその評価(2)。用水と廃水，20，1159—1167(1978)。

表-4 水取沢(大岡川)の付着藻群落組成

採取年月 地点番号	1976年 9月			1977年2月			1977年4月			1977年8月			1977年11月			1978年3月		
	1	2	3	4	5	2	3	4	1	2	3	5	1	2	3	1	2	3
藍藻類																		
<i>Oscillatoria</i> sp.	+															+		
ケイ藻類																		
<i>Achnanthes japonica</i>	+				+											+		
<i>A. lanceolata</i>	46		11		12										10	+		
<i>A. lineariformis</i>		+	+															
<i>A. subhadsonis</i>		+																
<i>Amphora ovalis</i> v. <i>pediculus</i>		+			+													
<i>A.</i> sp.																		
<i>Bacillaria paradoxa</i>																		
<i>Caloneis bacillum</i>																		
<i>C. silicula</i>					+													
<i>Coconeis placentula</i>																		
<i>Cymbella affinis</i>	7		9												10			
<i>C. sinuata</i>		+			+													
<i>C. tunida</i>																		
<i>C. turgidula</i> v. <i>nipponica</i>																		
<i>C. ventricosa</i>		+			+										5			
<i>Diatoma</i> sp.																		
<i>Diplomeis ovalis</i>																		
<i>Eunotia</i> sp.																		
<i>Fragilaria</i> sp.																		
<i>Frustaria rhomboidea</i>																		
<i>F. vulgaris</i>																		
<i>Gomphonema angustatum</i> v. <i>producta</i>																		
<i>G. clevei</i> v. <i>javanica</i>	9	+	7		+										5			
<i>G. gracile</i>																		
<i>G. parvulum</i>			+															



採 取 年 月	1976年 9月					1977年 2月					1977年 4月					1977年 8月					1977年11月					1978年 3月									
	2	1	2	3	5	2	4	1	2	3	5	1	2	3	4	5	1	2	3	4	5	1	2	3	4	5	1	2	3	4	5				
G <i>tetrastigmatum</i>																																			
G. sp.	+																																		
<i>Gyrosigma kützingeri</i>	5																																		
<i>Melosira varians</i>																																			
<i>Meridion circulare</i> v. <i>consticta</i>																																			
<i>Navicula cinctaeformis</i>	11			8	+																														
N. <i>cryptocephala</i>	+																																		
N. <i>cryptocephala</i> v. <i>veneta</i>																																			
N. <i>deccussis</i>																																			
N. <i>gregaria</i>	11	5		5																															
N. <i>menisculus</i>	+																																		
N. <i>minima</i>	+																																		
N. <i>radiosa</i> v. <i>tenella</i>																																			
N. <i>rhyncocephala</i>																																			
N. <i>schroeteri</i>	6																																		
N. <i>ventralis</i>	+																																		
N. <i>viridula</i> f. <i>capitata</i>	6	+																																	
N. <i>viridula</i> v. <i>slesintensis</i>	+																																		
N. sp.																																			
<i>Nitzschia clausii</i>	+																																		
N. <i>dissipata</i>	+																																		
N. <i>fonticora</i>																																			
N. <i>frusturum</i> v. <i>perpusilla</i>	+																																		
N. <i>linearis</i>	8	+		5	+																														
N. <i>palea</i>	+																																		
N. <i>trybrionella</i> v. <i>levidensis</i>	+																																		
N. sp.	+																																		
<i>Rhoicosphenia curvata</i>	+																																		
<i>Surirella angusta</i>	+	17	+	22	12																														



# I ボーリングコア分析による 鶴見川低地の地質について

## Geology of Tsurumi-River Lowland by the Analysis of Drill Cores

高井 健 雄\*

### 要 旨

本市は1977年に、新横浜駅前の観測井設置に伴う試錐を行なった。それによって得られたコアのケイ藻・花粉・貝の化石分析と鉱物分析を行なった。またこの試錐地点を通る鶴見川谷の地質横断面図を作成した。

目的は、化石分析によって堆積環境を復元し、鉱物分析で鍵層となる火砕層の鉱物組成を確定し層相区分及び周辺地域における地層の対比の資料を得ることにある。

結果は以下のとおりであった。

- (1) 試錐地点は鶴見川沖積地にあり、試錐が沖積層基底と接する点は古鶴見川埋没谷の谷斜面にあたる。
- (2) 沖積層は標高+1m以深では内湾性の海水・汽水環境下で、以浅は陸水環境下での堆積である。気候は現在とほぼ同じだが、下部でやや冷涼な気候である。
- (3) 沖積層の下の上総層群は、ほぼ海水・汽水環境で、気候は下部から上部にむけて寒冷化する。年代は約100万年前で、多摩丘陵中部に分布する地層と対比できる。

### 1. はじめに

本市の地盤沈下の代表的なタイプは、沖積低地における地下水水位低下による沖積層の収縮である。その地下水位の低下は、沖積層の下にある上総層群を主とする被圧帯水層からの揚水に起因していると考えられている。当研究室では現在鶴見川低地を対象として沖積層の収縮機構と上総層群中の帯水層の水理地質学関係の研究を行なっている。それらの研究の一環として新横浜駅前で、観測井設置のための深度200mのボーリングが実施されたのを機会にそのコア・サンプルを使い各種の化石分析、鉱物分析を行なった。この地点でのこれらの分析結果は今後行なう周辺地域の露頭調査、ボーリング調査の結果と比較検討することによって地層の対比・区分が可能となる。化石分析結果より堆積環境が復元できる。その結果と周辺地域の他地点の同様な分析結果とを関連づけることによって地層の対比ができる。一方、鍵層となる火砕層の鉱物分析の結果は直接地層の対比に有効である。また、化石分析によって堆積環境を復元することにより、各地層の堆

積過程がつかめ、調査地点間の地質構造の推定をより確かなものにできる。

今後、同様な調査地点を市内にふやしていくことにより、面的に地質構造が把握できるであろう。それによって地下水収支を算出するのに必要な帯水砂層の分布の把握や、地盤の収縮機構の研究の基礎となる地層の区分が可能となる。

### 2. 調査概要

掘削方式は沖積層基底までは、標準貫入試験とシンウォールサンプリングを行なうためロータリー式で行ない、以深についてはワイヤライン工法によりオールコアリングを行なった。コアの回収率は全体で86%である。

掘削期間は1977年8月23日から10月2日の41日間であった。

調査項目は、層相観察、物理力学試験（沖積層のみ）、原位置試験（標準貫入試験、電気・密度・自然放射能の3検層）、化石中の花粉分析・貝化石分析（沖積層のみ）・ケイ藻分析、鉱物分析（上総層群のみ）で

\* 横浜市公害研究所地盤沈下部門

ある。(表-1)

なお、物理力学試験、原位置試験については、すでに報告されているので、本報告では主として化石分析及び鉱物分析について述べる。

表-1 調査項目

項	目	試料数
層相	観察	—
化石	ケイ藻	20
	花粉	20
	貝	12
鉱物	分析	11

### 3. 分析法

#### 3-1 ケイ藻分析

- ① 各試料採取深度より長さ5cmのコアをとり、コア周辺部を取り除き中心部分を試料とする。
- ② 風乾後の試料3gをビーカーにとり、蒸留水200mlを加え一昼夜放置する。
- ③ 上澄液を捨て、30mlの過酸化水素を加え直火で加熱して有機物を分解除去する。
- ④ 冷却後、蒸留水を加え数時間放置後上澄液を捨てる③及び④の操作を5回繰り返す。
- ⑤ 水約300mlを加えてよくかき混ぜて、静置した後、軽くビーカーを振盪して、浮遊しやすい部分50mlをメスシリンダーにとる。
- ⑥ 大きい粒子の沈澱後メスシリンダーの中層より0.1mlの懸濁液をスライドグラス上に塗布する。
- ⑦ 乾燥後、プレウラックスを滴下し、カバーガラスで封入する。
- ⑧ ケイ殻の同定は、2,000倍に拡大した顕微鏡写真によって行なう<sup>9)~16)</sup>。
- ⑨ 計数は15×40倍で、10走査線以内で約100個体計数された時は100個体計数し、100個体に満たない時は最大80走査線まで計数した。

#### 3-2 花粉分析

- ① 試料を乾燥し、粉碎(0.5mm以下)する。
- ② HCl, HF処理をし、水洗する。
- ③ 重液分離をし、浮上物を採取し、水洗する。
- ④ アセトリシス液処理をし、水洗する。
- ⑤ KOH液処理をし、十分に水洗する。
- ⑥ グリセリンゼリーを用いて、プレパラート作成。
- ⑦ 検鏡する。

有機物の非常に多い試料については、HNO<sub>3</sub>, HCl<sub>4</sub>

処理も行なった。

#### 3-3 貝分析

20cmのコアをたてに2分割したサンプルを標準網ふるい2,000 $\mu$ mの篩で水洗後、残った貝殻について同定した。

#### 3-4 鉱物分析

- ① 試料を風乾後、肉眼観察する。
- ② 約30gをとり、水簸により粘土分を除去する。
- ③ 乾燥後、篩分により1/4~1/8mmの粒子をとる。
- ④ 重液(プロモホルム、比重2.8)を用いて、重鉱物、軽鉱物の分離を行なう。
- ⑤ 重鉱物、軽鉱物をそれぞれレーキサイドセメントを用いて、プレパラートに封入する。
- ⑥ 検鏡し、鉱物を鑑定、計数する。

なお、200~400個を計数するのが原則であるが、鉱物量が少ないため、計数が100個未満のものもある。

### 4. 試料採取深度

ケイ藻、花粉の試料は、同じ深度区間で各分析用に5cmのコアを採取した。沖積層では各土質ごとにとり、同一土質の厚い部分はほぼ2m間隔で採取した。上総層群中では、ほぼ20m間隔で、泥岩質の部分より採取した。

貝分析用の試料は、層相観察で、貝殻の認められる深度8~20mの間で、ほぼ1m間隔で採取した。

鉱物分析用の試料は、肉眼観察で、軽石、火山灰が認められ、火山破砕物以外の砂泥の混入が少ない部分より採取した。(表-2)

### 5. 結果および考察

ケイ藻・花粉の分析結果は各試料ごとの検出されたすべての種の構成を百分率にして表にした(表-3, 4)。また主要な花粉・胞子についてはダイアグラムを作成した。(図-1)

各試料の分析の結果及び考察は沖積層部分と上総層群部分に分けて述べた。またケイ藻・花粉用の試料は同一深度区間より採取した関係で、記載は各試料ごとにまとめた。

ただし、表-5はケイ藻の出現頻度第3位までの出現頻度、表-6はケイ藻の淡水、汽水、海洋棲種の割合、表-7はケイ藻の汽水、海洋棲種の割合、図-1は花粉・胞子のダイアグラムを全試料について一覧にしてあるので、沖積層と上総層群の分析結果、考察で共通して参照していただきたい。

表-2 試料採取深度

分析名	サンプルNo.	採取深度 (m)		
ケイ藻・花粉分析	1	3.85	~ 4.00	
	2	4.80	~ 5.00	
	3	5.75	~ 5.90	
	4	6.70	~ 7.00	
	5	9.70	~ 10.00	
	6	11.70	~ 12.00	
	7	13.70	~ 14.00	
	8	15.68	~ 15.78	
	9	17.75	~ 18.00	
	10	20.70	~ 21.00	
	11	21.50	~ 21.70	
	12	24.32	~ 24.68	
貝分	14	43.70	~ 44.00	
	16	64.20	~ 64.45	
	18	84.68	~ 84.95	
	20	105.05	~ 105.25	
	22	125.00	~ 125.27	
	24	144.62	~ 144.90	
	26	164.75	~ 165.00	
	28	184.15	~ 184.37	
	貝分	1	8.38	~ 8.48
		2	9.50	~ 9.70
		3	10.50	~ 10.70
		4	11.50	~ 11.70
5		12.50	~ 12.70	
6		13.50	~ 13.70	
7		14.00	~ 14.50	
8		15.16	~ 15.25	
9		16.80	~ 17.00	
10		17.50	~ 17.70	
11		19.69	~ 17.69	
12		21.00	~ 21.50	
鉍物分	1	54.23	~ 54.53	
	2	56.74	~ 56.91	
	3	72.50	~ 72.65	
	4	72.70	~ 72.76	
	5	76.80	~ 76.85	
	6	77.10	~ 77.15	
	7	110.77	~ 110.87	
	8	113.10	~ 113.13	
	9	132.30	~ 132.40	
	10	135.40	~ 135.50	
	11	139.90	~ 194.30	

5-1 沖積層

5-1-1 概要

試錐地点は、国鉄新横浜駅の北々東約700mで、鶴見川と鳥山川の合流点に近い。現在試錐地点付近は、盛土され公園となっているが、かつては鶴見川の自然堤防にあたり、畑あるいは、水田として利用されていたと思われる。(図-2) また、この付近から、上流の佐江戸町にかけて、ひろく黒泥土がおおっており、鶴見川沖積地の中でも特に低湿な地域である。

今回の試錐の沖積層部分の柱状図は図-3に示した。これと付近のボーリング柱状図を使って南東側の台地から、試錐地点を通り、西の台地が沖積地につきだしたところまでの地質断面図をつくった(図-4)。これは上流側から見た断面である。これをみると、試錐地点付近の沖積層は、上部は氾濫原土と後背湿地堆積物である有機質土からなる最下部陸成層がのる。その下に、シルト、粘土からなる上部泥層が厚く、最下部にうすい基底礫層がある<sup>2)</sup>。最上部陸成層は、右岸で氾濫原土が厚く反対に左岸では後背湿地堆積物が厚くなっている。また、旧河道を示すような、砂層の堆積はない。

埋没地形は、古鶴見川の埋没谷が、試錐地点の北西300mにあるA点で、沖積基底の標高-22.4mを示すので、この断面でも埋没谷底は-22m以深と推定される。今回の試錐地点はこの埋没谷の右岸谷斜面にあると考えられる。平坦面は、右岸の+2mと左岸の-7mにある。+2m面は、縄文海進時の波食台と考えられる。-7m面のひろい面は、立川段丘面と思われるが、T<sub>1</sub>、T<sub>2</sub>のいずれであるかは、はっきりしない。

5-1-2 ケイ藻・花粉の分析結果

No.1 (3.85~4.00m)

〔ケイ藻〕 含有率は普通で、1走査線上に8個体検出した。検出種数は33種である。全検出個体数の内、淡水種が82%を占める。最も検出率が高かったのは、*Navicula mutica* Kützing for. *goeppertiana* (Bleisch) Grunow (16%)で、次いで *Navicula mutica* Kützing (11%)、*Hantzschia amphioxys* (Ehrenberg) Grunow (10%)の順であった。これら3種はいずれも淡水~汽水種である。したがってこの層は海水の影響を受ける陸水環境下での堆積物である。

〔花粉〕 検出された花粉・胞子は非常に少ない。主なものとして、*Monolete spore*, *Gramineae*, *Polypodiaceae*, *Artemisia* 等があげられる。

No.2 (4.80~5.00m)

〔ケイ藻〕 含有率は普通で、1走査線上に3個体検出した。検出種数は15種である。全検出個体数の内淡

表-3 化石ケイ藻分析結果表

M.....海洋棲種 (B).....底生種  
 F.....淡水種 (P).....浮遊種  
 B.....汽水種

単位% + 2%以下の種

種名・生態	試料番号																												
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	14	16	18	20	22	24	26	28									
<i>Achnanthes inflata</i> Agardh		8	6																										
<i>Actinocyclus Ehrenbergii</i> Ralfs	F (B)																												
<i>Actinocyclus ingens</i> Rattray	M (P)					+		4	+																				
<i>Actinoptychus splendens</i> (Shadbolt) Ralfs	M (P)										+	6																	
<i>Actinoptychus undulata</i> (Bailey) Ralfs	M (P)			+		3	+	+	3	+				9															
<i>Amphora angusta</i> Gregory var. <i>ventricosa</i> (Gregory) Cleve	M (B)						+																						
<i>Amphora libica</i> Ehrenberg	F (B)		+																										
<i>Auliscus caelatus</i> Bailey	M (B)			+																									
<i>Caloneis bacillum</i> (Grunow) Mereschkowsky	F (B)	3	3	+																									
<i>Caloneis Schröderi</i> Hustedt	F (B)	5	+																										
<i>Cocconeis placentula</i> Ehrenberg var. <i>lineata</i> (Ehrenberg) Cleve	F (B)	4	+		5				+																				
<i>Coconeis pseudomarginata</i> Gregory	M (B)			+					+																				
<i>Coconeis scuterum</i> Ehrenberg	M (B)			+	4	4	+	5	+	3	+	4																	
<i>Coconeis</i> sp.	(B)			+		+																							
<i>Coccinodiscus africanus</i> Janisch	M (P)	+																											
<i>Coccinodiscus curvatus</i> Grunow	M (P)																												
<i>Coccinodiscus excentricus</i> Ehrenberg	M (P)				3	+	+	+	+	4	11																		
<i>Coccinodiscus lineatus</i> Ehrenberg	M (P)				+	4	4	6	+	+	6		+																
<i>Coccinodiscus marginatus</i> Ehrenberg	M (P)					+		3	+	+	6		6																
<i>Coccinodiscus radiatus</i> Ehrenberg	M (P)							+	+				4																
<i>Coccinodiscus Rothii</i> (Ehrenberg) Grunow	M (P)																												
<i>Coccinodiscus sublineatus</i> Ehrenberg	M (P)				+	+			+																				
<i>Coccinodiscus</i> sp.	(P)																												
<i>Cyclotella kutzingiana</i> Thwaites	F (P)	3			+																								
<i>Cyclotella ocellata</i> Pantcese	F (P)				+	+																							

種名・生態	試料番号																			
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	14	16	18	20	22	24	26	28
<i>Cyclotella stylorum</i> Brightwell				15	15	10	9	15	27	6	35			+			3			
<i>Cyclotella</i> spp.							4				+									
<i>Cymbella aequalis</i> Smith	+																			
<i>Cymbella sinuata</i> Gregory	3																			
<i>Cymbella turgidula</i> Grunow	+																			
<i>Cymbella ventricosa</i> Kützing	9																			
<i>Dimenogramma minor</i> (Gregory) Ralfs								+	+											
<i>Diploneis bombus</i> Ehrenberg						3	4	4	4	6	+						3			
<i>Diploneis fusca</i> (Gregory) Cleve var. <i>pelagica</i> (A. Smith) Cleve					+															
<i>Diploneis nitescens</i> (Gregory) Cleve				5					+											
<i>Diploneis ovalis</i> (Hilse) Cleve	+		+																	
<i>Diploneis ovalis</i> (Hilse) Cleve var. <i>oblongella</i> (Naegeli) Cleve		+	+			+										20				
<i>Diploneis puella</i> (Schumann) Cleve					4	4	3			+										
<i>Diploneis smithii</i> (Brébisson) Cleve				9		+		+	+		+									
<i>Diploneis subovalis</i> Cleve	+		+						+											
<i>Diploneis</i> sp. 1					+															
<i>Diploneis</i> sp. 2						+														
<i>Diploneis</i> sp. 3								+												
<i>Diploneis</i> sp. 4										+										+
<i>Eunotia monodon</i> Ehrenberg var. <i>asiatica</i> Skvorzow																				
<i>Eunotia pectinalis</i> (Kützing) Rahbenhorst																				
<i>Eunotia pectinalis</i> (Kützing) Rahbenhorst var. <i>undulata</i> (Ralfs) Rahbenhorst			+																	
<i>Eunotia praerupta</i> Ehrenberg var. <i>bidens</i> Grunow		28	43																	
<i>Eunotia praerupta</i> Ehrenberg var. <i>inflata</i> Grunow		3	+																	
<i>Eunotia</i> sp. 1			+																	
<i>Eunotia</i> sp. 2					+															

試料番号

種名・生態

	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	14	16	18	20	22	24	26	28
Fragilaria construens (Ehrenberg) Grunow	+																			
Fragilaria pinnata Ehrenberg	+																			
Frustraria vulgaris Thwaites	+																			
Glyphodesmis Willeamsonii (W. Smith) Grunow							+													
Glyphodesmis Willeamsonii (W. Smith) Grunow for. lanceolata (Peragallo et Peragallo) Hustedt	F (B)						+													
Gomphonema acuminatum Ehrenberg	F (B)	+																		
Gomphonema angustatum (Kützing) Rabenhorst	F (B)	+																		
Gomphonema bohemicum Reichelt et Fricke	F (B)		+																	
Gomphonema clevei Frick var. excilis Fukushima, Kimura et Ko-Bayashi	F (B)	+																		
Gomphonema gracille Ehrenberg	F (B)	+																		
Gomphonema lingulatum Hustedt	F (B)																			
Gomphonema Parvulum (Kützing) Grunow	F (B)	3					+													
Gomphonema sp. 1	(B)				+															
Gomphonema sp. 2	(B)					+														
Gomphonema sp. 3	(B)						+													
Grammatophora sp.	M (B)							6	+											
Hantzschia amphioxys Ehrenberg (Grunow)	F - B (B)	10																		
Melosira sulcata (Ehrenberg) Kützing	M (P)		3											35						
Meridion circulare Agardh var. constricta (Ralfs) V. Heurke	F (B)			11	5	9	13	20	9	16	31									
Navicula flauellata Meister	M - B (B)	+																		
Navicula forcipta Greville var. densistriata A. Schmidt	M (B)									+										
Navicula mutica Kützing	F - B (B)	11	8			+														
Navicula mutica Kützing for. goeppertiana (Bleisch) Grunow	F - B (B)	16																		
Navicula mutica Kützing for. intermedia (Hustedt) Hustedt	F - B (B)	7	8																	
Navicula pennata A. Schmidt	M (B)					+					+									



種名・性 態		試料番号																			
		1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	14	16	18	20	22	24	26	28
Navicula placenta Ehrenberg for. obtusa (Meister) Hustedt	F (B)			4												20					
Navicula pupula Kutzing var. rectangularis (Gregory) Grunow	F (B)						+								+						
Navicula sp. 1	(B)	+																			
Navicula sp. 2	(B)					+															
Navicula sp. 3	(B)							+													
Navicula sp. 4	(B)																				
Neidium sp.	F (B)	3																			
Nitzschia amphibia Grunow	F (B)	+																			
Nitzschia apiculata (Gregory) Grunow	F-B (B)					+					+										
Nitzschia clausii Hantzsch	F-B (B)		+	3	+																
Nitzschia cocconeiformis Grunow	M (B)				21		+									20					
Nitzschia constricta (Gregory) Grunow var. subconstricta Grunow	M-B (B)					+		3			+										
Nitzschia denticula Grunow	F (B)	+										+									
Nitzschia gramulata Grunow	M (B)				7	5	4				+										
Nitzschia grosiistriata Hustedt	M (B)						+														
Nitzschia insignis Gregory	M (B)								+												
Nitzschia lanceolata Grunow	M (B)					6	3	6	+	3											
Nitzschia Marginulata Grunow	M (B)					+		+		+											
Nitzschia marina Grunow	M (B)												23		14				8	25	
Nitzschia parvula Lavis	F-B (B)	+																			
Nitzschia punctata (W. Smith) Grunow	B (B)						3			+		+									
Nitzschia punctata (W. Smith) Grunow var. coactata Grunow	B (B)				+				+	+											
Nitzschia panduriformis Gregory	M (B)					3	4	3	5	+		4									
Nitzschia sigma W. Smith	M-B (B)							+		+											
Nitzschia tryfrionella Hantzsch var. victoriae Grunow	F-B (B)					+															

種名・性 態		試料番号																											
		1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	14	16	18	20	22	24	26	28								
Nitzschia sp. 1	(B)							+																					
Nitzschia sp. 2	(B)							+																					
Nitzschia sp. 3	(B)							+																					
Nitzschia sp. 4	(B)							+																					
Nitzschia sp. 5	(B)							+		+																			
Opephora gemmata (Grunow) Hustedt	M (B)				+																								
Opephora martyii Ehrenberg	M (B)				+					+			+																
Pinnularia borealis Ehrenberg	F (B)	5	3																										
Pinnularia borealis Ehrenberg var. brevicostata Hustedt	F (B)	+																											
Pinnularia intermedia (Lagerstedt) P. T. Cleve	F (B)	+																											
Pinnularia sp. 1	(B)			+																									
Pinnularia sp. 2	(B)			+																									
Pinnularia sp. 3	(B)			+																									
Plagiogramma staurophorum (Gregory) Heiberg	M (B)					+			3		+																		
Pleurosigma sp.	(B)																												
Rhaphoneis amphicerous Ehrenberg	M (B)																												
Rhaphoneis surirella (Ehrenberg) Grunow	M (B)				17	7		3					8		+														
Rhopalodia gibba (Ehrenberg) O. Müller	F-B (B)	+																											
Rhopalodia gibberula (Ehrenberg) O. Müller	M-F-B(B)	+		+																									
Stauroneis sp. 1	(B)	+																											
Stauroneis sp. 2	(B)																												
Stauroneis sp. 3	(B)			+																									
Stephanopyxis turris (Greville et Arnott) Ralfs	M (P)												6																
Surirella angusta Kützing	F (B)	+								+																			
Surirella visurgis Hustedt	F (B)					+																							
Surirella sp. 1																													
Surirella sp. 2						+																							
Surirella sp. 3								+				+																	



表一4 花粉分析結果表(%)

試料番号	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	14	16	18	20	22	24	26	28	
花粉・孢子																					
Abies				0.8			0.5	0.9	0.6	0.4	1.6	1.3		4.8	1.1	3.2	0.7	2.5	1.1	2.3	
Picea		1.8		0.4		0.9	0.5	0.5	1.3	0.4	2.0	3.3	1.3	5.6	1.4	1.6	1.4	4.9	1.1	2.3	
Pinus				1.6	0.5	0.9	1.5	2.4	1.0	0.4	2.5	3.7	2.9	23.9	1.8	1.2	2.5	5.9	2.2	2.3	
Larix			0.5								0.8	1.3		1.6				2.5			
Tsuga sieboldii			1.1	4.1	2.8	2.6	2.0	1.4	1.3	0.4	0.8	2.0	1.3	8.4	6.0	5.6	7.9	18.7	5.9	3.7	
T. diversifolia		1.8		1.2		0.4		0.5	0.3	0.4	0.8	8.3	4.2	7.2	4.0	1.6	7.2	5.9	3.3	0.5	
Taxodiaceae	1		2.7	5.3	4.5	3.4	1.0	4.7	6.5		2.5	0.3	0.8	2.0	3.2	2.4	2.2	11.7	2.2	2.8	
Sciadopitys				0.8		1.7		1.4										1.5			
Dacrydium ?																					
針葉樹花粉計 (%)		3.5	4.3	14.2	7.8	9.8	5.6	11.8	11.0	2.0	11.1	20.3	10.4	53.4	17.5	15.6	21.9	61.6	15.9	14.5	
Myrica									0.3			0.7									
Carya				8.1	0.9	1.7	2.0	3.8	1.3	2.0	2.0	1.7	0.8	0.4	0.4		0.7		0.4	1.9	
Juglans			0.5	4.0	2.8		4.1	0.9	1.3	0.4		1.0	2.1	0.4	0.4		1.1		0.4	0.5	
Pterocarya				1.2	0.9				0.3		0.4	0.7	0.4		1.1	2.4	0.7		0.4	0.5	
Salix																					
Alnus	2	1.8	1.1	4.5	1.8	4.3	5.6	6.2	3.5	2.0	2.9	11.0	6.7	2.8	6.0	6.4	12.5	2.0	8.9	7.0	
Betula		1.8		2.0	2.3	0.4	2.0		0.6	0.4		1.3	0.4	1.2	0.7	0.8	2.2	0.5	2.2	2.3	
Carpinus			0.5	2.4	3.7	3.4	2.0	3.8	3.2	5.6	2.9	1.0	1.7	0.8	1.4		0.7	0.5	0.7	4.2	
Corylus	1	3.5		1.6	3.2		1.5	0.9	1.3	1.2	0.8	1.3	2.9	2.0	2.5	0.8	5.4	3.0	5.2	4.7	
Castanea			0.5	0.8	2.3	3.0	3.0	5.2	1.6		2.0					1.2					
Castanopsis			0.5	2.4	0.9	3.0	4.6	0.9	2.9												
Fagus				2.0	0.5	2.1	1.5	0.5	4.0	2.0	3.3	2.3	0.8	3.2	1.4		2.2	0.5	1.9	0.5	
Cyclobalanopsis			4.3	7.3	12.4	5.1	3.0	1.4	4.5	0.4	1.2					0.4			1.1	0.5	
Lepidobalanus			3.8	14.6	22.5	19.7	20.8	16.6	14.6	19.6	23.8	5.7	6.3	2.8	2.1	3.2	6.5	0.5	2.6	7.0	
Aphananthe & Celtis	2		1.6	3.7	5.5	5.6	2.0	4.3	7.1	20.4	12.7	1.7	0.8	0.4					0.4	1.4	
Ulmus	1			0.8	4.1	1.7	2.5	4.7	1.6	1.2	1.6	1.0	1.3	1.2		3.6		0.5	0.7		
Zelkova				4.1	7.8	9.4	6.6	4.7	7.1	12.0	6.6	5.0	2.1	4.0	2.8	1.6	4.7	3.4	4.4	1.3	
Moraceae							0.5			0.4	1.2			0.4							

試料番号	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	14	16	18	20	22	24	26	28
花粉・孢子																				
Corylopsis																	0.4		0.4	0.5
Liquidambar																	0.4		0.4	
Leguminosae									0.3											
Sapium				0.4	0.5						0.4									
Rhus				0.4																
Acer				2.4			0.5						2.8		1.4		0.7		1.1	0.5
Aesculus																			0.4	0.4
Ilex					0.5														0.4	0.4
Buxus																0.4			0.4	0.4
Tilia					0.5					0.4		1.0	0.4	0.8	1.1	0.4				1.9
Elaeagnus														0.4						
Araliaceae								0.5	1.0					0.4						
Ericaceae													4.4		0.4	0.4	1.1	0.5	1.1	0.5
Fraxinus				0.8		0.4	0.5	0.9				2.0	0.4		0.4		1.1		1.5	0.9
Ligustrum				0.4		0.4			0.3	0.4	0.4	0.7	0.4		0.4					
Viburnum ?				0.4					0.3					0.4						
Symplocos																	0.4			
広葉樹花粉計 (%)		7.0		61.4	72.9	60.3	62.4	51.2	57.5	69.2	62.7	38.3	28.8	20.7	23.9	21.6	39.8	11.3	38.5	45.3
樹木花粉計 (%)		10.5	17.2	75.6	80.7	70.1	68.0	63.0	68.5	71.2	73.4	58.3	39.2	74.1	41.4	37.2	61.6	72.9	54.4	59.8
Samguisorba							0.5													
Persicaria												1.3	0.4	1.2	0.4	0.8	0.4		0.4	1.9
Caryophyllaceae			0.5	0.4								0.7			0.7		0.7		0.4	0.4
Chenopodiaceae												0.7			0.7	0.4	0.4		0.7	0.4
Thalictrum				0.4											0.4	0.8	0.4		0.4	0.4
Nymphaeaceae ?																			0.4	0.4
Geranium														0.4	0.4				0.4	0.4
Epilobium ?																				
Haloragis											0.4									0.4
Umbelliferae					0.5		1.0					0.3								0.4

試料番号	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	14	16	18	20	22	24	26	28	
花粉・胞子																					
Menyanthes ?																					
Patrinia								0.5	0.3	0.4		1.0									
Carduoideae	1	1.8	1.6		0.5			0.9		0.4	1.2	1.7	2.5	0.4	2.1	0.4	1.4	0.5	4.1	0.9	
Artemisia	2	7.0	8.1		4.1	2.1	1.5	4.7	3.2	4.4	1.2	3.0	2.9	0.4	6.3	8.0	3.2	0.5	11.9	4.7	
Cichorioideae		1.8							0.3			1.3	0.8		1.4	2.8	2.5	0.5	1.1	2.3	
Gramineae	6	21.1	15.6	8.1	5.0	6.4	7.1	2.4	4.0	7.6	3.7	6.3	20.8	0.8	14.4	15.6	7.5	3.0	6.7	7.5	
Sparganium							1.0	0.9		1.2	1.6	0.7	0.8								
Typha		1.8							0.3		0.4	0.3								0.5	
Cyperaceae				3.7	1.4	4.3	4.1	6.2	4.9	6.0	2.0	11.3	18.3	4.0	13.7	16.4	12.5	3.9	7.0	10.3	
Eriocaulon								0.5													
草本花粉計 (%)	33.3	25.8	25.8	12.6	11.5	12.8	15.2	16.1	13.0	20.0	10.7	28.0	46.7	7.2	40.4	50.8	29.0	8.4	33.3	30.4	
Monoporollenites									0.3												
Tripoporollenites							0.5													0.5	
Monocolpopollenites										0.4	0.7			0.8	0.4	0.8					
Tricolpopollenites				0.4		0.9			1.6	2.8	1.2	1.7	1.3	0.8	3.2	1.2	1.1	1.0	1.5	1.9	
Tricolporollenites			0.5	5.7	2.3	4.7	3.6	6.2	1.9	1.6	2.0	2.3	2.5	2.0	2.1	2.8	3.2	0.5	3.0	2.3	
Inaperturopollenites	1	8.8		0.8		3.0	2.0	6.6	2.6	2.0	2.5	1.7	0.8	0.8	1.4	1.6	1.8	2.5	2.6	0.9	
Stephanocolpites															0.7						
形態分類花粉計 (%)	8.8	0.5	6.9	2.3	2.3	8.5	6.1	12.8	6.5	6.4	6.1	6.3	6.4	4.4	7.7	7.2	6.1	3.9	7.0	5.6	
Lycopodiaceae	2	5.3	3.2		0.5													1.0			
Selaginellaceae							0.5							0.4				0.5	0.4		
Osmundaceae			4.3	0.8	0.5	0.4	1.0		0.6		0.4			0.8							
Polyodiaceae	3	10.6		1.6		1.7		0.5	2.3		1.6	0.3		2.0	0.4			0.5	0.4		
Monolete spore	7	28.1	48.4	1.6	4.1	6.4	7.1	6.2	6.8	2.0	5.7	6.7	9.6	9.6	9.8	3.6	3.2	10.3	4.4	4.2	
Trilete spore		3.5	0.5	0.8	0.5	2.0	2.0	1.4	2.3	0.4	2.0	0.3		1.6	0.4	1.2		2.5			
シダ類胞子計 (%)	47.4	56.5	4.9	5.5	8.5	10.7	8.1	12.0	2.4	9.8	7.3	9.6	14.3	10.5	4.8	4.8	3.2	14.8	5.2	4.2	
花粉・胞子計 (%)	2.9	5.7	18.6	24.6	21.8	23.4	19.7	21.1	30.8	25.0	24.4	30.0	24.0	25.1	28.5	25.0	27.9	20.3	27.0	21.4	
Dinoflagellates				1		2		1		1	2	2	1	2	1	4	10		2	11	
Concentricysts	4	5	114																		

※ 試料 1 及び藻類は検出個体数で表示した。

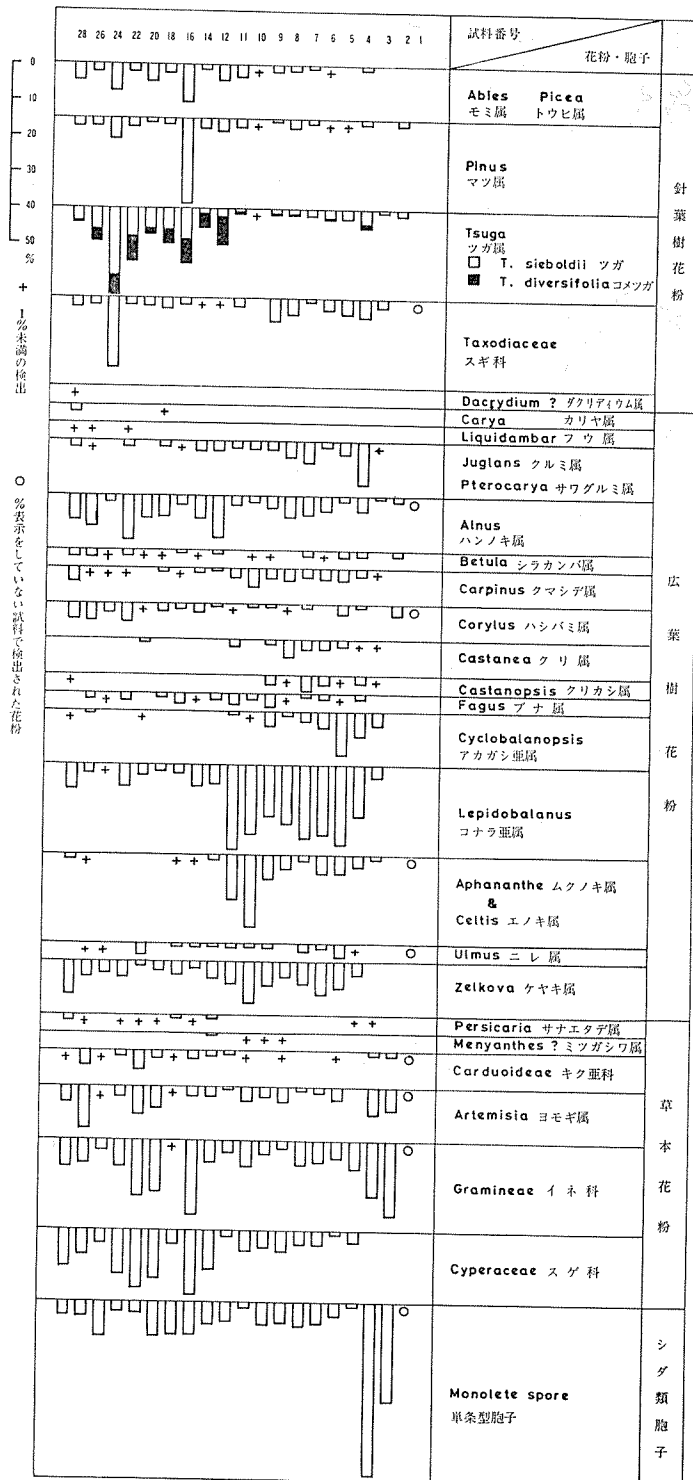


図-1 主要化石花粉・胞子ダイヤグラム

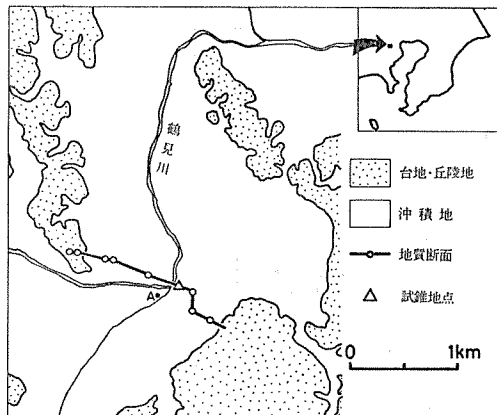


図-2 位置図

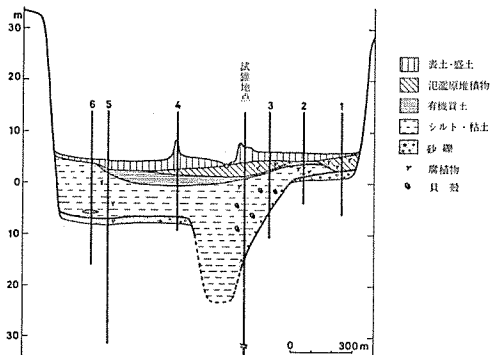
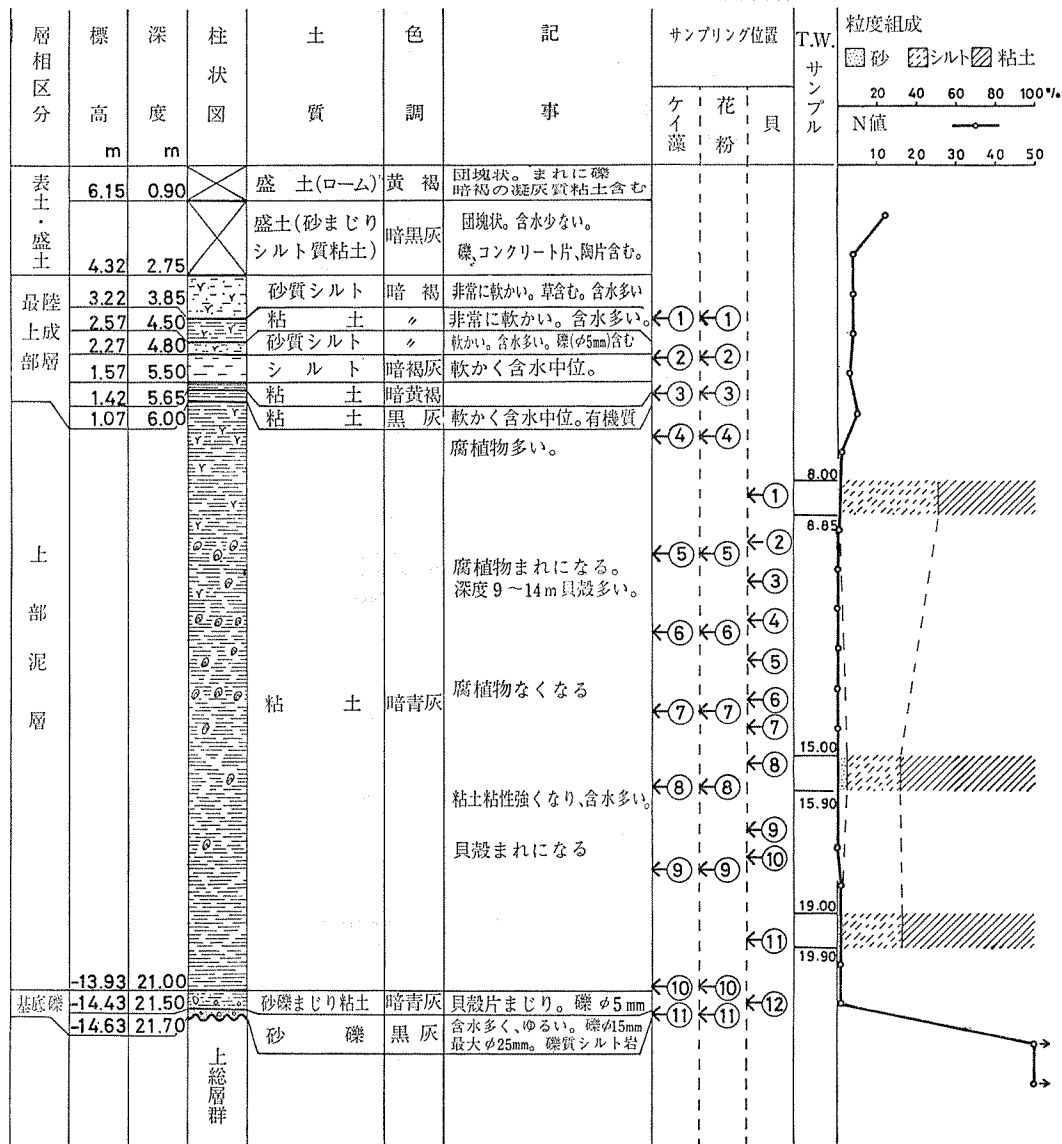


図-4 地質断面図

図-3 柱状図 (沖積層)





水種が99%を占める。最も検出率が高いのは湿原によく見られる *Eunotia praerupta* Ehrenberg var. *bidens* Grunow (28%) で、次いで、淡水～汽水種の *Nabucula mutia* Kützing (16%), *Nabucula mutica* Kützing for. *intermedia* (Hustedt) Hustedt (9%) の順である。従ってこの層は湿原状の海水の影響を受ける陸水環境下での堆積層である。

〔花粉〕 針葉樹・広葉樹花粉とも非常に少ない。草本花粉は Gramineae 21%, *Artemisia* 7% 等が多く検出された。またシダ類胞子は *Monolete spore* 28%, *Polypodiaceae* 11%, *Lycopodiaceae* 5% 等多量に検出された。全体として、草本花粉、シダ類胞子が優勢である。

#### No. 3 (5.75~5.90m)

〔ケイ藻〕 含有率は普通で、1走査線上に4個体検出した。検出種数は23種である。全検出個体数の内、淡水種が87%を占め検出率の高い3種はNo.2と同じである。この層もNo.2と同様な環境下での堆積物である。

〔花粉〕 シダ類胞子、広葉樹・針葉樹花粉が増加し、草本花粉が減少しているが、No.2と殆ど同じである。なおNo.1, 2にも検出された *Concentricystes* (おそらく淡水生藻類) が非常に多量に検出された。

#### No. 4 (6.70~7.00m)

〔ケイ藻〕 含有率は普通で、1走査線上に4個体検出した。検出種数は18種である。全検出個体数の内、海棲種71%, 淡水種3%である。最も検出率が高かったのは海産底棲種の *Nitzschia cocconeiformis* Grunow (21%) で、次いで海産底棲種の *Rhaphoneis surirella* (Ehrenberg) Grunow (17%), 沿岸浮游種の *Cyclotella stylorum* Brightwell (15%) の順である。これら3種はいずれも沿岸性種である。従ってこの試料は、沿岸要素の強い堆積物である。

〔花粉〕 針葉樹花粉は *Tsuga*, *Toxodiaceae* が良好に検出された。広葉樹花粉は *Lepidobalanus*, *Cyclobanopsis*, *Alnus*, *Zelkova*, *Juglans* 等が良好に検出されるとともに種類も豊富であり、合計で61%の検出率である。草本花粉は Gramineae と *Cyperaceae* が良好に検出された。シダ類胞子は少ない。

#### No. 5 (9.70~10.00m)

〔ケイ藻〕 含有率は高く、1走査線上に14個体検出した。検出種数は35種で、20試料中もっとも多くの種を検出した。全検出個体数の内、海棲種が65%, 淡水種が11%である。最も検出率が高かったのは *Cyclotella stylorum* Brightwell (15%) で、次いで沿岸浮游種の *Thalassionema nitzschioides* Grunow (9%),

*Rhaphoneis surirella* (Ehrenberg) Grunow (7%) の順である。これら3種はいずれも沿岸性種である。この試料も沿岸要素の強い海成堆積物である。

〔花粉〕 針葉樹・草本花粉、シダ類胞子にはあまり変化はない。広葉樹花粉は *Lepidobalanus*, *Cyclobalanopsis*, *Ulmus*, *Zelkova* 等がNo.4より増加し、*Juglans* が減少した。広葉樹花粉は73%に増加する。

#### No. 6 (11.70~12.00m)

〔ケイ藻〕 含有率は高く、1走査線上に34個体検出した。検出種数は31種である。全個体数の内、海棲種が64%, 淡水種が8%である。検出率が高かったのは沿岸性浮游種の *Thalassiosira decipiens* (Grunow) Jörgensen (14%) で、ついで *Thalassionema nitzschioides* Grunow (13%), *Cyclotella stylorum* Brightwell (10%) の順である。これら3種はいずれも沿岸性種である。この試料も沿岸要素の強い海成堆積物である。

〔花粉〕 広葉樹花粉の *Cyclobalanopsis* がNo.5より減少し *Zelkova* が増加しているものの、全体の構成は、No.5とあまりかわらない。

#### No. 7 (13.70~12.00m)

含有率は20試料中、最も高く1走査線上に41個体検出した。検出種数は29種である。全検出個体数の内、海棲種が62%, 淡水種が3%である。最も検出率が高かったのは *Thalassiosira decipiens* (Grunow) Jörgensen (23%) で、次いで沿岸性浮游種の *Melosira sulcata* (Ehrenberg) Kützing (13%), *Cyclotella stylorum* Brightwell (9%) の順である。これら3種はいずれも沿岸性種である。したがってこの試料も沿岸要素の強い海成堆積物である。

〔花粉〕 針葉樹花粉は *Tsuga sieboldii*, *Pinus*, *Taxodiaceae* 等が検出されるものの低率である。広葉樹花粉は *Lepidobalanus* が21%と多量に検出される。その他、*Zelkova*, *Castanopsis*, *Alnus*, *Pterocarya* 等が良好に検出される。草本花粉は Gramineae, *Cyperaceae* が、シダ類胞子は *Monolete spore* が良好に検出される。

#### No. 8 (15.68~15.78m)

〔ケイ藻〕 含有率は高く、1走査線上に15個体検出した。検出種数は27種である。全検出個体数のうち海棲種が72%で、淡水種は検出されなかった。最も検出率が高かったのは、*Melosira sulcata* (Ehrenberg) Kützing (27%) で、次いで *Cyclotella stylorum* Brightwell (15%), *Thalassiosira decipiens* (Grunow) Jörgensen (9%) の順である。これら3種はいずれも沿岸性種である。従ってこの試料も沿岸要素

の強い海成堆積物である。

〔花粉〕 針葉樹花粉は *Taxodiaceae* が良好に検出される。広葉樹花粉は *Lepidobalanus* が若干減少するものの17%と多い。ほかに *Zelkova*, *Aphananthe* & *Celtis*, *Castanoa*, *Carpinus*, *Alnus*, *Juglans* 等が良好に検出される。草本花粉は *Gramineae* が減少し, *Cyperaceae*, *Artemisia* が良好に検出される。

#### No. 9 (17.75~18.00m)

含有率は高く、1走査線上に20個体検出した。検出種数は26種である。全検出個体数の内、海棲種が62%、淡水種は1%である。最も検出率が高かったのは *Cyclotella stylorum* Brightwell (27%) で、次いで *Thalassiosira decipiens* (Grunow) Jörgensen (16%)、*Thalasionema nitzschoides* Grunow (9%) の順である。これら3種はいずれも沿岸性種である。従ってこの試料も沿岸要素の強い海成堆積物である。

〔花粉〕 広葉樹花粉の *Aphananthe* & *Celtis* と *Zelkova* が増加するが、No. 8 とあまり変わらない。

#### No. 10 (20.70~21.00m)

〔ケイ藻〕 含有率は高く、1走査線上に22個体検出した。検出種数は32種である。全検出個体数のうち海棲種が63%、淡水種が6%である。最も検出率が高かったのは *Melosira sulcata* (Ehrenberg) Kützing (16%) で、次いで *Thalassiosira decipiens* (Grunow) Jörgensen (8%)、*Thalassiosira* spp. (8%) の順である。これらの種はいずれも沿岸性種である。したがってこの試料も沿岸要素の強い海成堆積物である。

〔花粉〕 広葉樹花粉の *Aphananthe* が増加し、*Lepidobalanus* と同様に約20%の検出率を示す。*Zelkova* も12%と多い。草本花粉は *Gramineae*, *Cyperaceae*, *Artemisia* が良好に検出される。針葉樹花粉。シダ類胞子は非常に少ない。

#### No. 11 (21.50~21.70m)

〔ケイ藻〕 含有率は低く、1走査線上に2個体検出した。検出種数は16種である。全検出個体数の内、海棲種が65%、淡水種が1%である。最も検出率が高かったのは *Cyclotella sylorum* Brightwell (35%)、次いで *Melosira sulcata* (Ehrenberg) Kützing (31%)、*Thalassiosira decipiens* (Grunow) Jörgensen (4%)。外洋浮游種の *Coscinodiscus excentricus* Ehrenberg (4%)、沿岸底棲種の *nitzschia panduriformis* Gregory (4%) の順である。これらの種の中で、*Coscinodiscus excentricus* Ehrenberg を除く4種はいずれも沿岸性種である。この試料も沿岸要素の強い海成堆積物である。

〔花粉〕 針葉樹花粉は若干増加するも、いずれも低

率である。広葉樹花粉は *Aphananthe* & *Celtis*, *Zelkova* に減少が認められる。草本花粉は *Artemisia*, *Gramineae*, *Cyperaceae*, が約1~3%検出される。シダ類胞子は *Monolete spore* が良好に検出される。

#### 5-1-3 貝化石の分析結果

全試料で計27種の貝類を検出した(表-8)。そのすべてが内湾性種である。最も種数が多いのはNo. 2, 3で11種で、次いでNo. 4の10種, No. 9の9種である。

#### 5-1-4 各項目の考察

ケイ藻・花粉の分析結果をまとめて図-5に示す。

##### (1) ケイ藻

含有率はNo. 1~4, 11で低く、No. 5~10で高い。No. 1~3では淡水種が80%以上を占めている。反対にNo. 4~11では海洋棲種が60%以上で、淡水種が11%以下である。このことから、No. 1~3は陸水環境下での堆積物で、No. 4~11は海成堆積物である。また、No. 1~3では *Navicula mutica* Kützing が共通して検出率が高く、No. 4~11では、*Cyclotella sylorum* Brightwell, *Melosira sulcata* (Ehrenberg) Kützing, *Thalassiosira decipiens* (Grunow) の3種が共通して検出率が高かった。

また、No. 4~11までの海洋棲種の生態をみると、外洋性浮游種は14%以下で、大部分は底生種と沿岸性浮游種であることから、この地点が沿岸要素の強い海域であったことがうかがえる。

##### (2) 花粉

花粉構成から見ると、No. 1~3とNo. 4~11の2つに分けられる。No. 1~3の特徴はシダ類胞子と草本花粉が非常に高い検出率を示し、針葉樹・広葉樹花粉の検出率が低いことである。古環境は、*Gramineae*, *Artemisia* 等の草本類と *Monolete spore* のシダ類が多く繁茂し、樹木は、ほとんどなかったといえよう。また淡水生の藻類の *Concentricystes* の検出から陸水堆積物であろう。

No. 4~11の特徴は *Lepidobalanus* で代表される広葉樹花粉が優占して検出されることである。広葉樹花粉の主なものは、*Lepidobalanus*, *Alnus*, *Juglans*, *Pterocarya*, *Carpinus*, *Castanea*, *Castanopsis*, *Cyclobanopsis*, *Aphananthe* & *Celtis*, *Zelkova* 等である。このうち *Cyclobanopsis* は上部で多く、*Aphananthe* & *Celtis* は下部で多く検出される。草本花粉は *Gramineae*, *Cyperaceae* 等が良く検出されるがNo. 1~3ほど多くはない。また、寒冷な気候を示す *Menyanthes*? が当花粉帯の下部から若干検出される。

表-5 ケイ藻の出現頻度第3位までの種とその出現頻度 (%)

出現頻度 試料番号	1	2	3
1	<i>Navicula mutica</i> f. <i>goeppertiana</i> (16)	<i>Navicula mutica</i> (11)	<i>Hantzschia</i> <i>amphioxys</i> (10)
2	<i>Eunotia praerupta</i> v. <i>bidens</i> (28)	<i>Navicula mutica</i> (16)	<i>Navicula mutica</i> f. <i>intermedia</i> (9)
3	<i>Eunotia praerupta</i> v. <i>bidens</i> (43)	<i>Navicula mutica</i> (8) <i>Navicula mutica</i> f. <i>intermedia</i> (8)	
4	<i>Nitzschia</i> <i>cocconeiformis</i> (21)	<i>Rhaphoneis</i> <i>surirella</i> (17)	<i>Cyclotella</i> <i>stylorum</i> (15)
5	<i>Cyclotella</i> <i>stylorum</i> (15)	<i>Thalasionema</i> <i>nitzschioides</i> (9)	<i>Rhaphoneis</i> <i>surirella</i> (7)
6	<i>Thalassiosira</i> <i>decipiens</i> (14)	<i>Thalasionema</i> <i>nitzschioides</i> (13)	<i>Cyclotella</i> <i>stylorum</i> (10)
7	<i>Thalassiosira</i> <i>decipiens</i> (23)	<i>Melosira</i> <i>sulcata</i> (13)	<i>Cyclotella</i> <i>stylorum</i> (9)
8	<i>Melosira</i> <i>sulcata</i> (20)	<i>Cyclotella</i> <i>stylorum</i> (15)	<i>Thalassiosira</i> <i>decipiens</i> (9)
9	<i>Cyclotella</i> <i>stylorum</i> (27)	<i>Thalassiosira</i> <i>decipiens</i> (16)	<i>Thalasionema</i> <i>nitzschioides</i> (9)
10	<i>Melosira</i> <i>sulcata</i> (16)	<i>Thalassiosira</i> <i>decipiens</i> (8) <i>Thalassiosira</i> spp. (8)	
11	<i>Cyclotella</i> <i>stylorum</i> (35)	<i>Melosira</i> <i>sulcata</i> (31)	<i>Thalassiosira</i> <i>decipiens</i> (4) <i>Nitzschia</i> <i>panduriformis</i> (4) <i>Coscinodiscus</i> <i>excentricus</i> (4)
12	<i>Thalassiosira</i> <i>decipiens</i> (30)	<i>Nitzschia</i> <i>marine</i> (12)	<i>Coscinodiscus</i> <i>excentricus</i> (6) <i>Actinocyclus</i> <i>ingens</i> (6)
16	<i>Melosira</i> <i>sulcata</i> (35)	<i>Nitzschia</i> <i>marine</i> (14) <i>Thalassiosira</i> <i>decipiens</i> (14)	
22	<i>Rhaphoneis</i> <i>surirella</i> (44)	<i>Nitzschia</i> <i>marine</i> (8) <i>Thalasionema</i> <i>nitzschioides</i> (8) <i>Coscinodiscus</i> <i>excentricus</i> (8)	
24	<i>Thalassiosira</i> <i>decipiens</i> (38)	<i>Thalasionema</i> <i>nitzschioides</i> (29)	<i>Coscinodiscus</i> <i>marginatus</i> (8)

表一六 ケイ藻の淡水, 汽水, 海洋棲種の割合  
(単位 %)

試料番号	淡水種	汽水種	海棲種
1	82	15	3
2	99	1	0
3	87	10	3
4	3	26	71
5	11	24	65
6	8	39	64
7	3	46	62
8	0	28	72
9	1	36	62
10	6	31	63
11	1	34	65
12	3	43	54
14	—	—	—
16	1	24	75
18	50	17	33
20	—	—	—
22	4	16	80
24	2	44	54
26	0	40	60
28	—	—	—

表一七 ケイ藻の汽水, 海洋棲種の生態 (単位 %)

試料番号	底生種	浮 游 種	
		沿岸性	外洋性
1	86	0	14
2	100	0	0
3	100	0	0
4	71	29	0
5	66	27	7
6	54	43	3
7	37	56	7
8	32	58	10
9	27	63	10
10	23	63	14
11	15	78	7
12	39	39	22*
14	—	—	—
16	16	72	12
18	100*	0	0
20	—	—	—
22	58	16	26
24	2	87	11
26	25	75	0
28	—	—	—

— ケイ藻殻の見出されなかった試料  
\* 検討個体の少ない試料

古環境は *Lepidobalanus*, *Cyclobalanopsis*, *Aphananthe* & *Celtis*, *Zelkova* 等の広葉樹が良く繁茂した森林が形成されていたものと考えられる。そして *Cyclobalanopsis* の増減から上部の No. 4, 5 では温暖な気候が, 下部の No. 9, 11 では冷涼な気候が推定される。このことは下部における *Menyanthes*? の出現もそのことを示しているといえよう。

なお, No. 4~11 では海水生藻類である *Dinoflagellates* (*Hystrichosphaeridium*, *Micrhystridium*) 等が検出されることから海成堆積物であるといえよう。

### (3) 貝化石

貝化石は, すべて内湾性種で占められる。しかも, それらは強内湾性種で特徴づけられる。古環境は湾奥部潮間帯から -5~-10m の水深の泥底の環境が長期にわたり存在したことを示している。化石群集は下位から上位まで, *Paphia*-*Dosinella* 群集で特徴づけられるが, No. 2~4 にはこれに *Raeta*-*Theora* 群集が加わり, ここに湾奥部の潮間帯下泥底の環境が最もよく記録されている。この堆積時が海進最高期にあたるものと推測される<sup>25)~28)</sup>。

### 5-1-5 総合考察

ケイ藻, 花粉, 孢子, 貝の分析結果から, 同試錐地点の堆積環境の変せんをみると (図-5, 表-9), ヴィルム氷期最盛期に, 古鶴見川が, 深く谷を刻んで, 同地点は陸化していた。そして氷期がおわるとともに, 急激に海進がおこり, 同地点は試料 No. 4~11 の間は海域となった。それは海洋棲種のケイ藻が60%以上で, 海水生藻類, 貝類が含まれることで証明される。しかもケイ藻の大部分が, 沿岸要素の強い底生種と沿岸性浮游種であること, 貝は潮間帯下-5~-10m の泥底にすむ強内湾性種であることから, 常に-5~-10m の水深の湾奥部~湾央部であったと思われる。しかし, 試料 No. 11 から No. 4 にかけて底生種のケイ藻が徐々に増えていくことから水深もわずかずつ浅くなっていったと考えられる。周辺の台地ではこの時期には, コナラ, アカガシ, ムクノキ, エノキ, ケヤキなどの広葉樹を主体とした森林が繁茂していたであろう。海進のピークは, 花粉分析から温暖な気候と推定される試料 No. 4~5 を堆積した時期であろう。

その後, わずかに海退し, 試料 No. 1~3 では, 淡水種のケイソウが80%以上をしめること, 淡水生藻類の *Concentricystes* が検出されることから陸水環境になったと推定される。また, 湿原によくみられるケイ藻の *Eunotia praeurupta* Ehrenberg var. *bidens*

表-8 産出貝化石一覧表

環 境	種 名	試料番号											
		1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12
湾奥部	潮間帯 <i>Anadara cf. granosa</i> ハイガイ			+									
湾奥部 潮間帯下 10m以浅	<i>Paphia undulata</i> イヨスダレ	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+
	<i>Dosinella penicillata</i> ウラカガミ		+	+	+	+				+			+
	<i>Musculus senhausia</i> ホトトギス		+	+	+				+	+			
	<i>Raeta pulchella</i> チヨノハナガイ		+	+	+					+			+
	<i>Theora lata</i> シズクガイ		+	+	+	+			+	+	+		
	<i>Veremolpa micra</i> ヒメカノコアサリ				+			+					
	<i>Anodontia stearnsiana</i> イセンラガイ											+	
内湾性種	潮間帯 10m以浅 <i>Maconia sp.</i>			+								+	
	<i>Cryptomya cf. busoensis</i> ヒメマスオガイ							+					
	<i>Hiatella flaccida</i> キヌマイトガイ												+
	<i>Borniopsis tsurumaru</i> ツルマルケボリ							+					
湾奥部 潮間帯	<i>Batillaria zonalis</i> イボタミニナ				+								
	<i>Niotha livescens</i> ムシロガイ				+	+	+		+	+	+		+
	<i>Hinia festiva</i> アラムシロガイ				+								
	<i>Nassarius sp.</i>			+					+				
湾奥部 潮間帯下 10m以浅	<i>Reticunassa beata</i> ヒメムシロガイ		+			+				+			
	<i>Reticunassa japonica</i> キヌボラ			+									
	<i>Rapana thomasiana</i> アカニシ		+										
	<i>Ringicula dorialis</i> マメウラシマ		+	+	+				+	+			
内湾ノ浅海	潮間帯 潮間帯下 20m以浅 <i>Picteneritina oualaniensis</i> ヒメカノコガイ		+										
	<i>Tiberia ebarana</i> エバラクチキレ									+			+
	<i>Ehala sp.</i>		+										
	<i>Acteopyramis exmia</i> マキキヌガイ		+										
	<i>Acteon sp.</i>								+				
	<i>Philine argentata</i> キセワタ									+			
	<i>Bedevena sp.</i>								+				

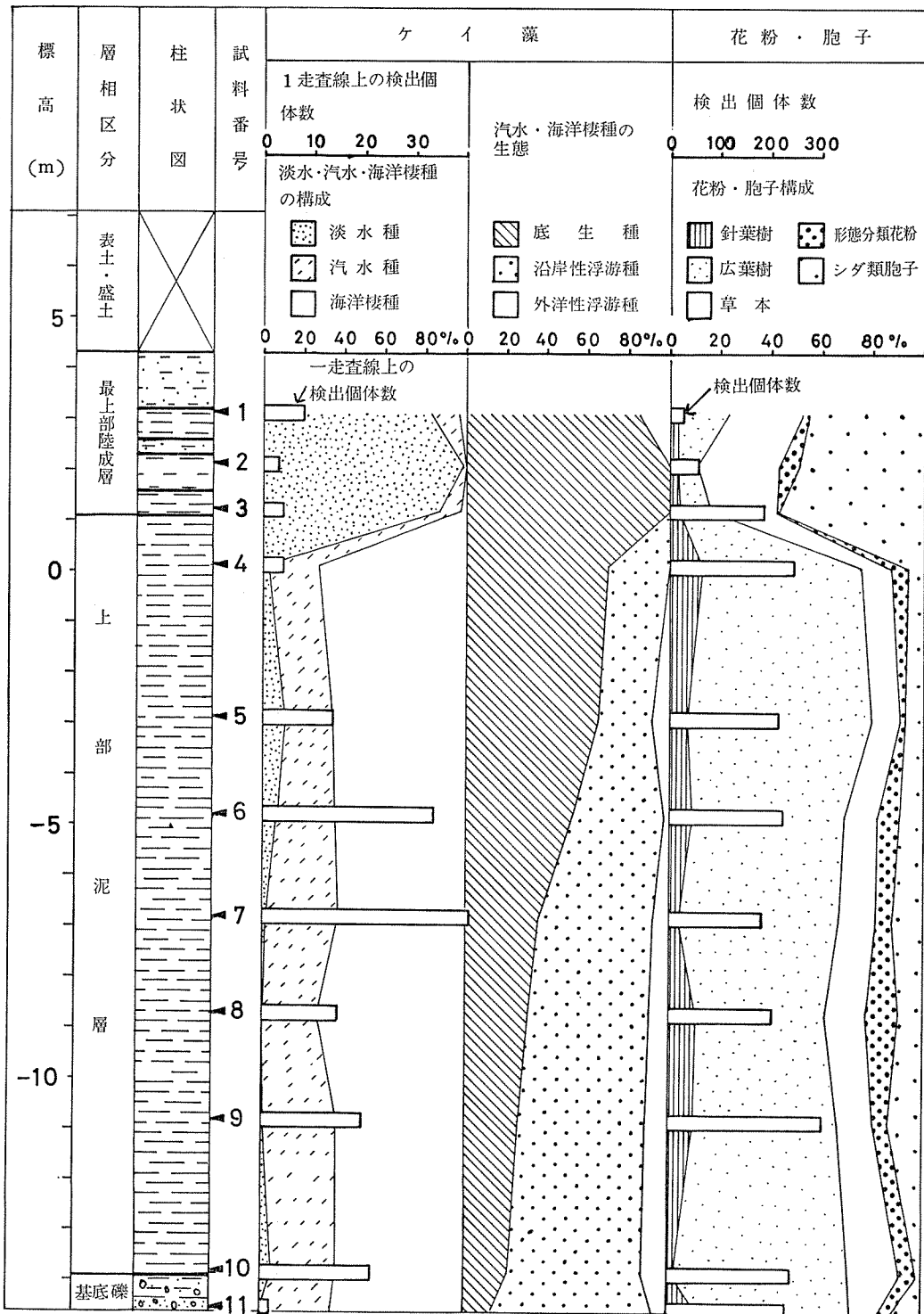


図-5 ケイ藻・花粉・孢子による古環境の変せん（沖積層）

表-7 主要および重要検出種と古環境

試料番号		ケイ藻	花粉		古気候	貝	区分
ケイ藻・花粉	貝						
1		<ul style="list-style-type: none"> <li>● <i>Navicula mutica</i> Kützing</li> <li>● <i>Eunotia praeurpta Ehrenberg</i> var. <i>bidens</i> Grunow</li> </ul> ★ 海水の影響をうける陸水環境	草本類 ● Gramineae ● Artemisia シダ類 ● Monolete spore ● Polypodiaceae		温帯	[斜線]	沖積層
2							
3							
4	1	<ul style="list-style-type: none"> <li>● <i>Cyclotella sylorum</i> Brightwell</li> </ul> ● <i>Melosira sulcata</i> (Ehrenberg) Kützing ● <i>Thalassiosira decipiens</i> (Grunow) ★ 沿岸要素の強い海域	上部： ● <i>Lepidobalanus</i> ● <i>Cyclobalanopsis</i> ● <i>Pterocarya</i> ● <i>Juglans</i> ● <i>Zelkova</i> 等広葉樹 下部： 広葉樹 ● <i>Lepidobalanus</i> ● <i>Zelkova</i> ● <i>Aphananthe</i> & <i>Celtis</i>		温暖帯	Reeta-Theora 群集 ● <i>Paphia-Dosirella</i> 群集 ★ 湾奥部の潮間帯から-5~-10mの水深の泥底	
5	2						
6	3						
7	4						
8	5						
9	6						
10	7						
11	8						
12	9						
14	10						
16	11						
18	12						
20		外洋性浮遊種 ● <i>Coscinodiscus marginatus</i> Ehrenberg 沿岸性浮遊種 ● <i>Thalassiosira becipiens</i> (Grunew) Jørgensen 海棲底生種 ● <i>Nitzschia marina</i> Grunow ● <i>Thalasionema nitzschioides</i> Grunow ● <i>Liquidamber</i> ★ 沿岸要素の強い海域	● <i>Menyanthes</i> ?	草本類 ● Gramineae ● Cyperaceae ● Artemisia シダ類 ● Monolete spore 樹木 ● <i>Tsuga</i> ● <i>Alnus</i> ● <i>Carya</i>	亜寒帯	[斜線]	
22							
24							
26							
28							

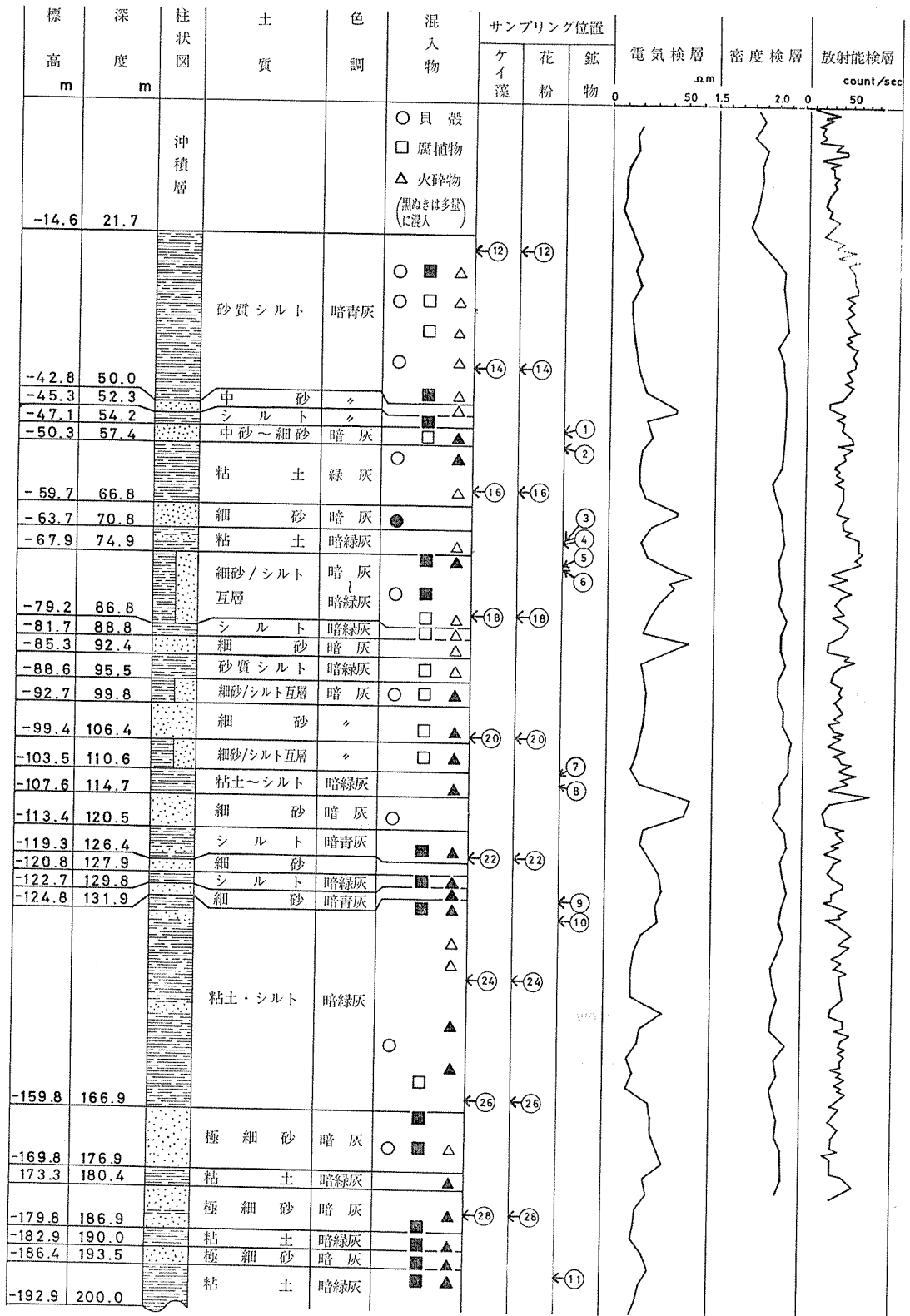


図-6 柱状図 (上総層群)



Grunow が検出され、わずかに海洋棲種がみられることから海水の影響の残る湿原であったと思われる。そして周辺には、イネ、ヨモギ、シダ類が繁茂していたであろう。

## 5-2 上総層群

### 5-2-1 概要

岩質は、粘土・シルトの泥層と極細砂～中砂の砂層で礫はみられなかった。全体にみると泥勝ちの砂泥互層である。特に T. P. -15～-60m, -125～-160m の間が泥質で、T. P. -60～-125m, -160m 以深が砂泥半々ぐらゐの互層となる。(図-6)

生物遺骸は、全体に含まれているが、T. P. -50～-60m, -125～-160m の泥層は少ない。T. P. -120m 付近と -180m 付近は腐植物が多い。

火砕物も全体に含まれている。特に泥岩のマトリックスの中に粗粒の軽石が含まれていることが多い。ただし細粒の軽石、タフが少ないのは、スライムとして流れてしまった可能性もある。

### 5-2-2 ケイ藻・花粉の分析結果

#### No.12 (24.32～24.68m)

〔ケイ藻〕 含有率は低く、1走査線上に1個体検出した。検出種数は11種である。全検出個体数の内、海棲種が54%を占め、淡水種は1%検出された。最も検出率が高かったのは *Thalassiosira decipiens* (Grunow) Jörgensen (30%) で、ついで、*Nitzschia marina* Grunow (12%)、*Coscinodiscus excentricus* Ehrenberg (6%) の順である。これらの種のうちで *Coscinodiscus excentricus* Ehrenberg を除く2種は沿岸性種である。汽水・海洋棲種のうちで、外洋性種が22%を占めていることから、この試料は沿岸要素が強いが外洋水の影響をかなり受けている海成堆積物である。

〔花粉〕 広葉樹花粉が38%と多く、良好に検出されるものは *Alnus*, *Lepidobalanus*, *Zelkova* 等がある。針葉樹花粉は20%で、*Picea*, *Abies*, *Pinus*, *Tsuga* が良好に検出される。特に *Tsuga* は10.3%検出されその内 *T. diversifolia* が8%を占める。草本花粉は *Gramineae* 6%, *Cyperaceae* 11%と多い。

#### No.14 (43.70～44.00m)

〔ケイ藻〕 まったく検出されなかった。

〔花粉〕 針葉樹・広葉樹花粉とも減少し、*Tsuga*, *Alnus*, *Lepidobalanus* が数%検出される以外は低率である。草本花粉は *Gramineae* が21%, *Cyperaceae* が18%と高い検出率を示す。草本花粉の合計は47%と非常に多い。

#### No.16 (64.20～64.45m)

〔ケイ藻〕 含有率は低く、1走査線上に3個体検出した。検出種数は12種である。全検出個体数の内、海洋棲種が75%を占め、淡水種は1%である。最も検出率が高かったのは、*Melosira sulcata* (Ehrenberg) Kützing (35%) で、次いで *Nitzschia marina* Grunow (14%)、*Thalassiosira decipiens* (Grunow) Jörgensen (14%) の順である。これらの種はいずれも沿岸性種であり、この試料は沿岸要素の強い海成堆積物である。

〔花粉〕 針葉樹花粉は *Pinus* 24%, *Tsuga* 16%, *Abies*+*Picea* 10%と高い検出率を示し、合計で54%である。広葉樹花粉は *Zelkova*, *Lepidobalanus*, *Fagus*, *Corylus*, *Alnus* 等が2～4%検出され、その他のものは非常に少ない。

#### No.18 (84.68～84.95m)

〔ケイ藻〕 含有率は低く、10走査線上に1個体検出した。検出種数は5種である。全検出個体の内、淡水種が50%を占め、海棲種は33%検出された。したがってこの試料は陸水の影響を非常に強く受けていた海成堆積物と考えられる。ただし、検出個体数が非常に少ないので、古環境の推定には問題が残る。

〔花粉〕 針葉樹花粉は *Tsuga* が10%検出されるものの、他のものは1～3%にすぎない。広葉樹花粉は *Alnus*, *Lepidobalanus*, *Corylus* 等が2～6%検出されるが、*Juglans*, *Pterocarya*, *Betula*, *Carpinus* その他はわずかに検出されるにすぎない。また暖帯性の *Carya* が検出された。草本花粉は *Gramineae* 14%, *Cyperaceae* 14%, *Artemisia* 6% と多量に検出される。

#### No.20 (105.05～105.25m)

〔ケイ藻〕 まったく検出されなかった。

〔花粉〕 No.18と比べ、全体に若干の増減があるが、No.18と大差ない。

#### No.22 (125.00～125.27m)

〔ケイ藻〕 含有率は低く、2走査線上に1個体検出した。検出種数は14種である。全検出個体数の内、海棲種が80%を占め、淡水種は4%検出された。もっとも検出率が高かったのは *Rhaphoneis surirella* (Ehrenberg) Grunow (44%) で、ついで *Nitzschia marina* Grunow (8%)、*Thalassiosira nitzschiodes* Grunow (8%)、*Coscinodiscus excentricus* Ehrenberg (8%) の順であった。これらの種のうちで、*Coscinodiscus excentricus* を除く3種はいずれも沿岸性種である。汽水、海棲種のうちで、外洋種が26%を占めていることから、この試料は沿岸要素は強いが、外洋水の影響をかなり受けていた海成堆積物であ

る。

〔花粉〕 針葉樹花粉は、Tsuga が15%に増加する。広葉樹花粉は Alnus 13%, Corylus 5%, Lepidobalanus 7%, Zelkova 5% 検出され、増加している。草本花粉 Cyperaceae 13%, Gramineae 8% 検出され、全体として No.20 よりも減少している。なお当該試料には暖帯性の Liquidambar が検出された。

No.24 (144.62~144.90m)

〔ケイ藻〕 含有率は低く、1走査線上に2個体検出した。検出種数は11種である。全検出個体数の内、海棲種が54%を占め、淡水種は2%検出された。もっとも検出率が高かったのは Thalassiosira decipiens (Grunow) Jörgensen (38%) で、ついで Thalasionema nitzschoides Grunow (29%)、外洋浮游種の Coxinodiscus marginatus Ehrenberg (8%) の順であった。これらの種のうちで Coscinodiscus marginatus Ehrenberg を除く2種は沿岸性種である。したがってこの試料は沿岸要素の強い海成層である。

〔花粉〕 針葉樹花粉では Tsuga が25%と高い検出率を示し、そのうち T. sieboldii が20%と高い検出率を示すとともに、Pinus, Picea も良く検出される。針葉樹花粉の合計は62%と多い。広葉樹花粉は Zelkova, Corylus, Alnus 等が、草本花粉は Gramineae Cyperaceae がわずかに検出される。シダ類胞子は Monolet spore が10%検出される。

No.26 (164.75~165.00m)

〔ケイ藻〕 含有率は低く、25走査線上に1個体検出した。検出種数は4種である。全検出個体の内、海棲種が60%を占め、淡水種は検出されなかった。この試料は沿岸要素の強い海成層と考えられるが、検出個体が非常に少ないため確かなことではない。

〔花粉〕 No.22と同様な花粉構成である。

No.28 (184.15~184.37m)

〔ケイ藻〕 まったく検出されなかった。

〔花粉〕 針葉樹花粉は Tsuga, Abies, Picea, Pinus Taxodiaceae が2%前後検出される。広葉樹花粉は Alnus, Carpinus, Corylus, Lepidobalanus, Zelkova が良好に検出され、暖帯性の Carya, Liquidambar がそろって検出される。草本花粉は Cyperaceae 10%, Gramineae 8%, Artemisia 5% と良く検出される。

### 5-2-3 ケイ藻・花粉の考察

#### (1) ケイ藻

含有率は1走査線上に0~3個体で、沖積層と比べると非常に低く、No.14, 20, 28 試料では全く検出されなかった。

最も多くの試料より検出された種は Coscinodiscus marginatus Ehrenberg と Nitzschia marina Grunow で9試料中、4試料で検出された。ついで Thalasionema nitzschoides Grunow と Thalassiosira decipiens (Grunow) Jörgensen が3試料で検出された。Thalassiosira decipiens (Grunow) Jörgensen と Nitzschia marina Grunow が3試料で検出率第3位までにはいり最も多くの試料に入っていた。

淡水種、汽水種、海洋棲種の構成は、海洋棲種が30~80%、淡水種がNo.18を除いて数%であることから、No.12~26は海成堆積物である。さらに汽水種、海洋棲種の生態をみると、外洋性浮游種は30%未満であり、沿岸要素の強い海域であったと推定できる。特に No.18は検出個体が少ないので確かではないが、淡水種が50%、底生浮游種が50%で、内湾的な海域であろう。(図-7)

#### (2) 花粉

上総層群での特徴は、針葉樹花粉の Tsuga, 広葉樹花粉の Alnus, 草本花粉の Gramineae, Cyperaceae, シダ類胞子の Monolet spore によって代表されることである。なお No.16では、Abies+Picea, Pinus, Tsuga, No.24では Abies+Picea, Tsuga, Taxodiaceae によって代表される。また、上部では、寒冷な気候を示す Menyanthes? が検出され、下部では暖帯性の Carya, Liquidambar が検出される。

古環境は Gramineae, Cyperaceae, Artemisia, Carduoideae 等の草本類が良く繁茂していたものと考えられる。樹木は Tsuga, Alnus の繁茂が認められる。また、No.16では Abies+Picea, Tsuga, Pinus, No.24では Abies+Picea, Tsuga, Pinus, No.24では Abies+Picea, Tsuga, Taxodiaceae からなる森林が形成されていたであろう。

古気候としては、上部の No.12~20 でかなり寒い気候を示し、下部の No.22~28 で温暖化している様である。特に No.28では暖帯性植物の Carya, Liquidambar がそろって検出され、かなり暖かであったことを示している。

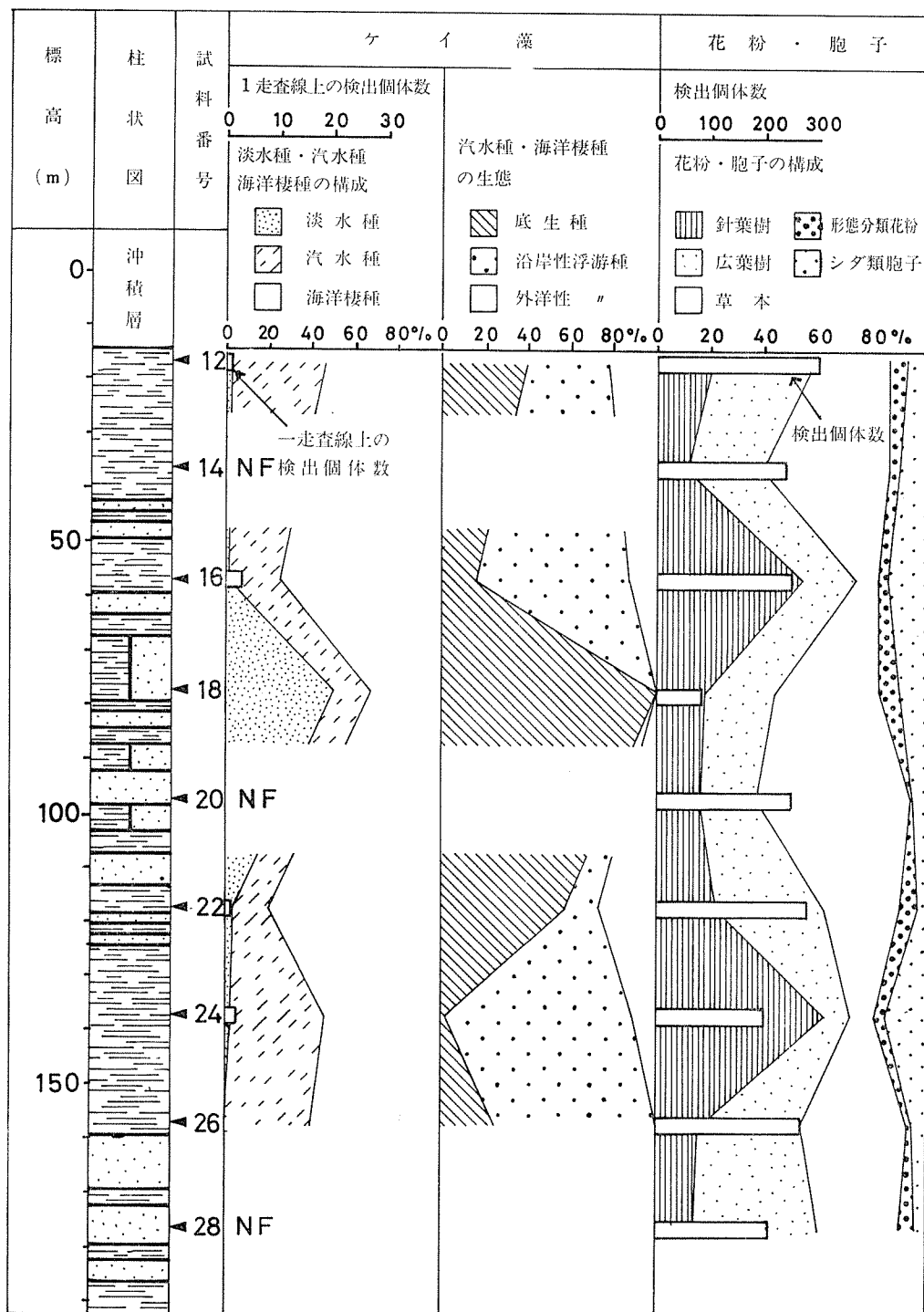
また、Dinoflagellate が検出されることから海成層であろう。

### 5-2-4 鉱物分析の結果

#### (1) 概要

鉱物分析用の試料は11試料をすべて上総層群より採取した。採取試料及び未採取の凝灰岩層の肉眼観察の結果は表-10, 11にまとめた。鉱物分析の結果は、表-12ならびに図-8のダイアグラムにまとめた。

鑑定された有色鉱物(重鉱物)は、ほぼ次のような



図一 ケイ藻・花粉・胞子による古環境の変せん（上総層群）

表-10 分析試料の肉眼的特徴

試料番号	上限深度	厚さ	岩相の肉眼的特徴
1	54.23m	30cm	中粒砂層中の軽石密集帯、軽石は白色で、最大粒径2mm、平均0.5mm。
2	56.74	17	泥層にはさまれる灰白色ガラス質タフおよび軽石。軽石は最大1mm、平均0.5mm。タフはシルト大。角閃石斑晶をふくみ、ゴマシオ状。
3	72.50	15	泥質砂層にはさまれる灰白色軽石。軽石は白色で最大粒径3mm。平均1mm。有色鉱物の斑晶をふくむ。黒雲母あり。
4	72.7 付近	6	泥質砂層にはさまれる白色タフ。タフはシルト大。
5	76.8 付近	5	砂層中の軽石密集帯。軽石は灰白色で最大粒径5mm。平均2mm。
6	77.1 付近	5	泥層にはさまれる灰白色ガラス質タフ。タフはシルト大で、黒雲母目立つ。
7	110.77	10	泥質層にはさまれる。下位から上位に層相変化がみとめられる。下半部はゴマシオ状細粒砂大のタフで、黒雲母をふくむ。上半部は白色および灰白色タフの互層。ガラス質。
8	113.1 付近	3	泥質層はさまれるゴマシオ状軽石。軽石は灰白色で、最大1.5mm、平均1mm。有色鉱物の斑晶目立つ。
9	132.3 付近	10	泥質砂層にはさまれる灰色軽石。軽石は最大2mm、平均1mmで、黒色火山砂をとまなう。
10	135.40	10	泥層中にはさまれる灰白色タフ。タフはシルト大で、細粒ゴマシオ状の砂をはさむ部分がある。
11	193.90	40	泥層中にはさまれる灰色～灰白色タフ。タフはシルト大。下底部に中粒～細粒大のゴマシオ状タフをとまなう。

表-11 その他の未採取凝灰岩層の肉眼的特徴

仮番号	上限深度	厚さ	岩相の肉眼的特徴
12	49.65m	1cm	灰色の凝灰質粘土層。
13	64.5 付近	1?	白色軽石、最大粒径1mm 平均0.5mm。
14	76.15	10	粒径1mm±のゴマシオ状軽石密集。
15	99.02	8	白色軽石。最大8mm、平均3mm。その他岩片(最大5mm、平均2mm)をふくむ。
16	107.5 付近	5?	粒径2～10mmの軽石に富む。
17	180.0 付近	15	白色軽石、最大8mm、平均3mm。

ものである。

Biotite (黒雲母), Hornblende (角閃石), Orthopyroxene (斜方輝石), Clinopyroxene (単斜輝石), Zircon (ジルコン), その他に Opaque minerals (不透明鉱物), Wethered materials (風化鉱物)

このうち、Orthopyroxene は Hyperthene (紫蘇輝石), Clinopyroxene は Augite (普通輝石) である可能性が高いが、明らかにそうでないものも若干含まれている。これらは本来重液の中で沈殿しないはずの岩片などがふくまれている疑いがある。また Wethered materials には、鑑定不能の若干の鉱物粒も含まれている。これらは特に試料No.1やNo.5に多いが、これは本来火山灰起源でない砂質堆積物中の重鉱物がとりこまれている可能性がある。従って、後に各試料の記述でも述べられているように、鉱物組成としては火山灰そのものの性質を示していない疑いもたれる。

また、各々の鉱物組成から、岩石学的な特性を整理すると表-13のようにまとめられる。

表-12 鉱物組成表

試料番号	深度 (m)	黒雲母 (%)	角閃石 (%)	斜方輝石 (%)	単斜輝石 (%)	不透明鉱物 (%)	ジルコン (%)	風化物 (%)	総数 (個)
1	54.5	28.6	26.6	16.9	14.3	5.2	0	8.4	154
2	56.9	14.4	58.2	1.6	2.7	22.5	0.5	0	368
3	72.5	7.8	10.4	54.3	26.1	0.7	0.7	0	153
4	72.5	23.3	10.7	29.1	14.5	15.5	0	6.8	103
5	76.8	10.1	13.0	41.6	23.1	1.3	0	10.9	238
6	77.1	(49.3)	(9.0)	(22.4)	(0)	(11.9)	(0)	(7.5)	67
7	110.8	98.0	0	0.5	0.3	1.3	0	0	400
8	113.1	0	29.4	55.7	10.2	4.6	0	0	323
9	132.3	0	0.3	37.3	58.0	1.0	0	3.3	300
10	135.4	0	0	31.7	60.8	0.7	0	6.8	293
11	194.3	0.8	1.2	72.4	11.1	13.0	0	1.5	261

表-13 鉱物組成から整理した各試料の岩石学的特徴

試料番号	重鉱物組成	碎屑物のタイプ	岩石学的性質
1*	Bi≒Ho>Opx≒Cpx	軽石	流紋岩質
2	Ho>Opq>Bi	ガラス質細粒火山灰	魚閃石流紋岩質
3*	Opx>Cpx>Ho>Bi	軽石	複輝石安山岩質
4	Opx≒Bi>Opq≒Cpx>Ho	細粒火山灰	黒雲母流紋岩質
5*	Opx>Cpx>Ho≒Bi	軽石	複輝石安山岩質
6	Bi>Opx>Opq≒Ho	ガラス質細粒火山灰	黒雲母流紋岩質
7	Bi>>>Opq≒Opx≒Cpx	ガラス質中粒火山灰	黒雲母流紋岩質
8	Opx>Ho>Cpx	粗粒火山灰	紫蘇輝石安山岩質
9	Cpx>Opx	粗粒火山灰	複輝石安山岩質
10	Cpx>Opx	細粒火山灰	複輝石安山岩質
11	Opx>>Opq≒Cpx	細粒火山灰	紫蘇輝石安山岩質

(注) \* 印を付したものは砂粒中の鉱物が含まれている疑いがあり、岩石学的性質はやや不正確である。

(2) 各試料の特徴

No. 1

黒雲母には褐色の半自形を示すものと、緑褐色の周囲が磨耗したような形を示すものがある。後者は火山灰起源ではなく、砂粒中のものの可能性がある。角閃石は一般に緑褐色で消光角が5°以内のもの、11°前後のものなどがある。斜方輝石は、短柱状で新鮮なものと磨耗したものがあり、また単斜輝石では磨耗したものが多い。全体として岩片などの不純物が多く、風化鉱物も少なくないことから、砂層中の鉱物をかなり多量にふくみ、本来の火山性の鉱物は少ないように思われる。

No. 2

褐色の自形～半自形を示す。消光角10°以内の角閃石が非常に特徴的で、その他褐色の大型の黒雲母をともなう。角閃石が50～60%を占めるのは本試料のみ

で、有効な鍵層となる。軽鉱物では長石が多く、火山ガラスにはせんい状のものと、微細なバブルをもつものがある。

No. 3

全体に磨耗した鉱物粒が多く、No. 1と同じように砂粒中の鉱物がとりこまれている疑いがある。斜方輝石が50%を占めるが、この中には磨耗したものも多い。新鮮なものは長柱状、短柱状を示すものがある。軽鉱物では石英、長石の他、せんい状の火山ガラス、バブルウォール型（泡壁）の火山ガラスも多い。まれにやや褐色味をおびた火山ガラスもある。

No. 5

全体として磨耗した鉱物粒が多い。斜方輝石、普通輝石が多く、いずれも短柱状。角閃石は褐色角閃石で、黒雲母は緑褐色のものが多い。周囲の砂からふくまれた鉱物粒が多い疑いがある。軽鉱物には風化のす

すんだ長石が目立つ。火山ガラスにはひきのばされたせんい状のもの、バブルウォール型のものなどがある。

No. 6

重鉱物比が小さく、1プレパラート中の重鉱物数が100個にも満たないため、数の信頼度は高くない。重鉱物では黒雲母が最も多く、斜方輝石がこれに次ぐ。黒雲母は大型の自形ないし半自形のものが多い。また軽鉱物では長石が目立つ。火山ガラスは繊維状のもの、またひきのばされたバブルウォール型のものが多い。

No. 7

黒雲母が圧倒的に多い。褐色で六角形をした自形のものも目立つ。その他の鉱物では短柱状の斜方輝石、単斜輝石がわずかにともなわれる。軽鉱物では長石、石英はまれで、火山ガラスは繊維状のものが圧倒的に多い。鉱物からみて、きわめて特徴的な鍵層である。

No. 8

長柱状の美しい斜方輝石が50%を占める。ついで消光角10~13°の緑褐色、長柱状の角閃石が30%近くを占める。軽鉱物では長石が大部分で不透明な物質でよごれた小さいバブルをもつ火山ガラスをとまなう。斜方輝石と角閃石、長石が多いという点で、特徴的である。

No. 9

半自型の大型の単斜輝石が多いのが特徴で60%近くを占める。斜方輝石は短柱状又は粒状で、40%近くある。軽鉱物では表面が不透明の細粒物質でコーティングされた長石が多く、砂粒中に含まれる鉱物粒の疑いもある。またスコリア粒と思われるものも多いが、鏡下では判然としなない。

No.10

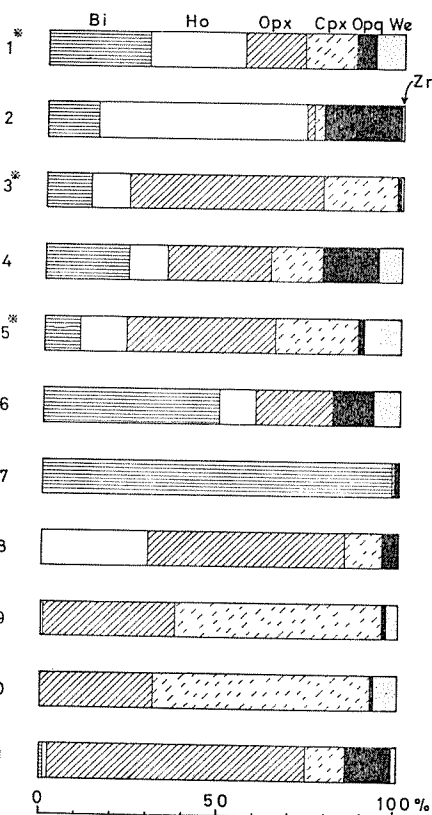
自形ないし半自形の大型の単斜輝石が60%を占める。また斜方輝石も30%を占め、組成の上からはNo.9に似ている。軽鉱物では長石、コーティングされた長石が多い。No.9とともに、単斜輝石がきわめて多い点で特徴的である。

No.11

自形の長柱状、斜方輝石が多く70%以上を占める。軽鉱物では大粒の長石がめだち、また火山ガラスにはバブルウォール型のもの、ひきのばされたバブルをもつものなどがある。斜方輝石が多い点で特徴があるといえる。

(3) 考察

本地域の地質に関する従来の報告はあまりなく、参考となるのは神奈川県<sup>21)</sup>、関東第四紀研究会<sup>22)</sup>、増



※印を付したものは、砂粒中の鉱物が含まれている疑いがある。

図-8 重鉱物組成ダイアグラム

田<sup>23)</sup>、徳永ほか<sup>24)</sup>などがある。このうち、火山灰については特に取扱っているのは神奈川県(1955)の報告で、記述も多い。

神奈川県(1955)の報告の中で、特に横浜市北部から川崎市にかけての多摩丘陵東縁部の地質を記載した柱状図が示されている。また火砕質鍵層の肉眼的特徴も記述されており、これを参考として当試錐との対比を試みた。結論は図-9に示した。その根拠は以下のような理由による。

① 地表地質の「宮田タフ」(MT)は保土谷宮田町を模式として、厚さ最大100cmで、ゴマシオ状。有色鉱物はほとんど角閃石からなる。鶴見区上末吉、港北区綱島等に露出。ほぼ東西方向にはしる断層のため、くりかえし露出しているが、全体として北に傾斜している。川崎市高津区末長の試錐では、地下86mに存在が確認されている。この鉱物学的な特徴は、本試錐のNo.2とまったく一致する。No.2は厚さが17cmと薄い「MT」の場合もところによりポケット状をなしたり消失することもあるので、No.2と「MT」を対比す

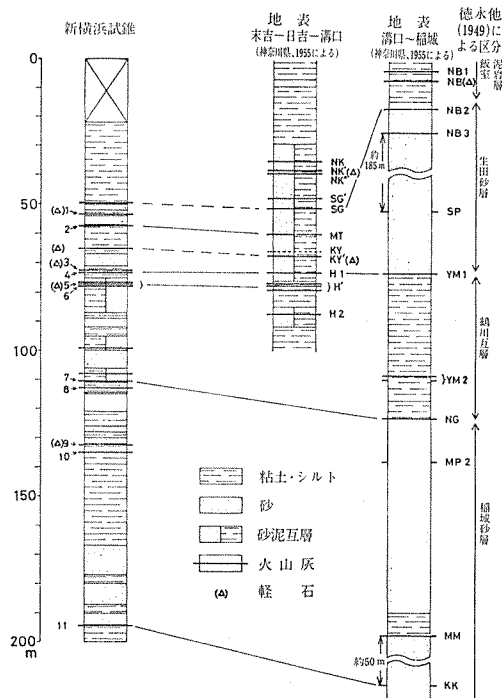


図-9 地表地質との対比

ること大きな矛盾はない。

② 地表の地質では「MT」の下位約12mに「第1星川タフ」(H<sub>1</sub>)がある。これは保土谷区星川を模式地とし厚さ50~150cm、白色の細粒の火山灰、載石質の中粒砂大火山灰、白色シルト大の火山灰などからなり、2枚の凝灰質シルト、1枚の凝灰質砂をはさむ。上末吉、大倉山などに分布が確認されているようである。本試錐ではNo.2の下位約15mにNo.3, No.4があり、この2層を合わせたものが「H<sub>1</sub>」に対比される可能性がある。とくにNo.3, 4は鉱物組成からみても、本質的なちがいはない(No.3の場合、鉱物組成はやや不確実)といつてよい。

③ 「H<sub>1</sub>」の下位5m前後には「H<sub>1</sub>'α」, 「H<sub>1</sub>'β」, 「H<sub>1</sub>'γ」と名づけられた、いずれも10cm程度かそれ以下の細粒の白色タフがある。本試錐ではNo.4の下位5m前後に細粒の載石層や白色タフの層が相接近して存在し、これらのいずれかが「H<sub>1</sub>'α~γ」に対比される可能性はたかい。

④ 地表地質では川崎市の溝ノ口、稲城などの多摩川沿岸地域の柱状図が示され、「H<sub>1</sub>」に対比されている「第1山口タフ」(YM<sub>1</sub>)が柿生の北方で確認されている。この「YM<sub>1</sub>」の下位約49mには「根方タフ」(NG)がある。これは厚さ100cm以下(ところにより消失する)で、上部は白色タフ、下部は載石層、軽石質

タフなどからなり、また縞状の構造がみられる。本試錐では「H<sub>1</sub>」に対比されるNo.3, 4の下位約38mにNo.7があって、層相の特徴がきわめてよく一致する。  
⑤ 溝ノ口～稲城の柱状図では、「NG」の約125m下位に「黒川タフ」(KK)がある。これは厚さ40~100cmで、白色のタフを主とする。本試錐では「NG」に対比されるNo.7の下位約83mにNo.11があり、これが「KK」に相当する可能性が高い。なお、試錐の場合と地表地質の溝ノ口～稲城地域の柱状図とでは、厚さの点でかなりちがいがあのようにみえる。これは多摩川沿岸など多摩丘陵北部地域で、地層が砂質、礫質となることから明らかのように、浅海の堆積物で、供給量も多かったためとみなされる。

以上にみたように地表地質と本試錐との対比が可能であろう。なお、地表地質で鶴見付近では「H<sub>1</sub>」「H<sub>1</sub>'」の下位に「第2星川タフ」(H<sub>2</sub>)があることになっており、模式地の星川では厚さ170~230cmもあるという。しかし、これは鶴見区駒岡付近では所により消失することになっており、本試錐中にこれが確認されなくても矛盾しない。

地表に露出する地層は、下部更新統の「上総層群」(従来、多摩丘陵においては、三浦層群と呼ばれていた)に属し、横浜南部「小柴層」および「中里層」、多摩川沿いの「稲城層」, 「鶴川層」, 「生田層」, 「飯室層」などに相当する地層である。年代としては、およそ100万年前といつてよい。

#### 5-2-5 総合考察

当試錐地点で得られたコアの上総層群は全体に海成の泥勝ち砂泥互層である。特に中部でこまかい互層をなす。

花粉分析結果からみると沖積層部分に比べ草本花粉が多くなっている。また分析結果より推定される古気候は下部で温暖で上部で寒冷な気候となっている。

水域環境はケイ藻分析の結果から、全体ほぼ同じに沿岸要素の強い海域であったと推定される。ただし中部の標高-80~-120mで陸水の影響が強くなった時期があったと思われる。

鉱物分析の結果からは、本試錐のコアは、多摩丘陵中部に分布する「飯室泥岩層」, 「生田砂層」, 「鶴川互層」, 「稲城互層」等に対比できるであろう。年代としては約100万年前である。

#### 6. おわりに

沖積層は化石群集の分析結果より海成層と陸成層に区分できた。これは地質学的区分および土質による区分と一致する。しかし最も軟弱である海成の上部泥層

では化石群集による差はみられなかった。そのため、今後の化石群集の調査により、堆積時の海況変動をはっきりさせる必要がある。その結果と土の物理・力学的性質との相関がつかめれば、沖積層の土質工学的性質を知る上で、一つの手がかりとなる。

上総層群の微化石分析結果では、対比に有効な特に顕著な種構成を示す層はない。ただ標高-80~-120 m間の砂勝ち砂泥互層の部分は、ケイ藻、花粉ともに特徴的な構成を示す。ただし、鉱物分析の考察でのべたように、上総層群は、西にいくにつれて、より浅海の堆積環境になる。そのため、この砂勝ち砂泥互層のケイ藻の構成は地域によって変化する可能性があるもので、対比につかえるのは限られた地域であろう。このような堆積環境の水平方向への変化も、今後の調査で追求していく必要がある。

### 謝 辞

この研究を進めるについては、鉱物分析を東京都立大学地理学教室菊地隆男先生、貝殻分析を神奈川県立博物館松島義章先生ならびに法政大学大学院長田敏明氏、ケイ藻分析を横浜市公害研究所福嶋悟氏、花粉分析を日本肥糧㈱の諸氏、機関にお願いした。また、地質断面図を作成するにあたり多くの機関よりボーリング柱状図を提供していただいた。以上の方々や諸機関に厚くお礼申し上げます。

### 参 考 文 献

- 1) 横浜市公害対策局：『地盤沈下対策新横浜駅前地質土質調査報告書』, (1977).
- 2) 松田盤余：多摩川低地の沖積層と埋没地形, 地理評, 46, 339-355 (1973).
- 3) 阿久津純：千葉県市川市地盤沈下観測井の珪藻群集について, 宇都宮大学教養部研究報告, 2(2) 51-58 (1969).
- 4) ————：武蔵野台地北部(埼玉県新座市)の試錐井の層序と化石珪藻, 地質調査月報, 22(7), 391-396, plate 28-31 (1971).
- 5) A. Cleve-Eular : Die Deatomeen von Schweden und Finland, Kongl. Svensk. Vet. Akad. Handle, 2(1), 1-151, 3(3), 1-143, 4(1), 1-149, 4(5), 1-240, 5(4), 1-217 (1951-1955), Stockholm.
- 6) F. Foged : Diatoms in Water-Courses in Funen, Dansk Botanisk Arkiv, 12, 1-110 (1948).
- 7) 福島 博, 福島 悟, 小林艶子：相模川よりえ

たケイ藻類, 藻類植生と水質汚濁, 5, pl. 1-56 (1975), 神奈川県.

- 8) ————：相模川よりえたケイ藻類 2, 藻類植生と水質汚濁, 6, pl. 57-99 (1977), 神奈川県.
- 9) 福島 博, 木村 務, 小林艶子：木曾川のケイ藻, 横浜市立大学紀要(生物学編), 3(2), 1-155 (1973).
- 10) F. Hustedt : Die Kieselalgen Deutschlands, Osterreichs und der Schweiz unter Berucksichtigung der Schweiz Lander Europas sowie der angrenzenden Meeresgebiete. in Dr L. Rabenhorsts Kryptogamen-Flora von Deutschland, Osterreich und der Schweiz, 7, Teil. Lief. 1-5, 1-920 (1927-1930); Teil. 2, Lief. 1-6, 1-845 (1959-1962); Teil 3, Lief. 1-3, 1-556 (1961-1964), Leipzig.
- 11) ———— : Bacillariophyta (Diatomeae); Heft 10 in Pascher, A. Die Süsswasser-Flora Mitteleuropas, 1-466 (1930), Jena.
- 12) ———— : Marine Littoral Diatoms of Beaufort, North Carolina, Duke Univ. Press, Bulletin 6, 1-67 (1955).
- 13) ———— : Die Diatomeenflora des Fl $\beta$ -systems der Weser im Gebiete der Hansestadt Bremen. Abh. Noturw. Ven Bremen 34, 181-440 (1957).
- 14) 加藤君雄, 小林 弘, 南雲 保：八郎瀉調整池のケイ藻類, 八郎瀉調整池の生物相調査報告, 63-137 (1976), 秋田県.
- 15) R. Patrick & C. W. Reimer : The diatoms of the United States (Exclusive of Alaska and Hawaii), 1, 1-688 (1966), Philadelphia.
- 16) ———— : The datoms of the United States (Exclusive of Alaska and Hawaii), 2(1), 1-213 (1975), Philadelphia.
- 17) 島崎己三郎：本邦新生代層の花粉層序学的研究 V 東京, 横浜付近の第四系, 奈良学芸大学紀要自然科学, 10(1), 23-35.
- 18) 遠藤 毅, 川島真一：東京の洪積層について, 都土木技研年報, 83-107 (1971).
- 19) ———— : 武蔵野台地北部の深層地質について, 都土木技研年報, 101-115 (1972).
- 20) ———— : 東京の第四系, 都土木技研年報, 101-137 (1974).
- 21) 神奈川県：神奈川県下の天然瓦斯地下資源, 総



合計画資料, 8 (1955).

- 22) 関東第四紀研究会: 南関東の下部更新統——多摩丘陵の三浦層群について, 第四紀研究, 9 (3—4), 93—100 (1970).
- 23) 増田富士雄: 多摩丘陵の地質について, 地質学雑誌, 77 (3), 153—164 (1971).
- 24) 徳永重元・郷原保真・桑野幸夫: 多摩丘陵の地質, 資源研彙報, 14, 43—60 (1949).
- 25) 波部忠重: 内湾の貝類遺骸の研究, 京大生理生態学研究業績, 77, 1—31 (1956).
- 26) 松島義章: 横浜市内沖積層の貝化石について, 神奈川県博研報, 1 (2), 80—95 (1969).
- 27) ———: 横浜市内の沖積層の貝化石群集 (予報), 神奈川県博研報, 6, 8—19 (1973).
- 28) ———: 細文海進に伴う相模湾周辺にみられる内海の貝化石群集, 海洋科学, 10 32—38. (1978).

#### ケ イ 藻

##### 図版 1

- 1) *Achnanthes inflata* Agardth
- 2) *Achtinocyclus Ehrenbergii* Ralfs
- 3) *A. ingens* Rattray
- 4) *Achtinoptychus solendens* (Shadbolt) Ralfs
- 5, 6) *A. undulata* (Bailey) Ralfs
- 7) *Amphora libica* Ehrenberg
- 8) *Auliscus caelatus* Bailey

##### 図版 2

- 9) *Amphora angusta* Gregory var. *ventricosa* (Gregory) Cleve
- 10) *Caloneis bacillum* (Grunow) Mereschkowsky
- 11) *Caloneis Schröderi* Hustedt
- 12) *Cocconneis placentula* Ehrenberg var. *lineata* (Ehrenberg) Cleve
- 13) *C. pseudomarginata* Gregory
- 14) *C. scuterum* Ehrenberg
- 15) *Coscinodiscus africanus* Janisch
- 16) *C. excentricus* Ehrenberg
- 17) *C. lineatus* Ehrenberg
- 18) *C. marginatus* Ehrenberg
- 19) *C. radiatus* Ehrenberg
- 20) *C. sublineatus* Ehrenberg

##### 図版 3

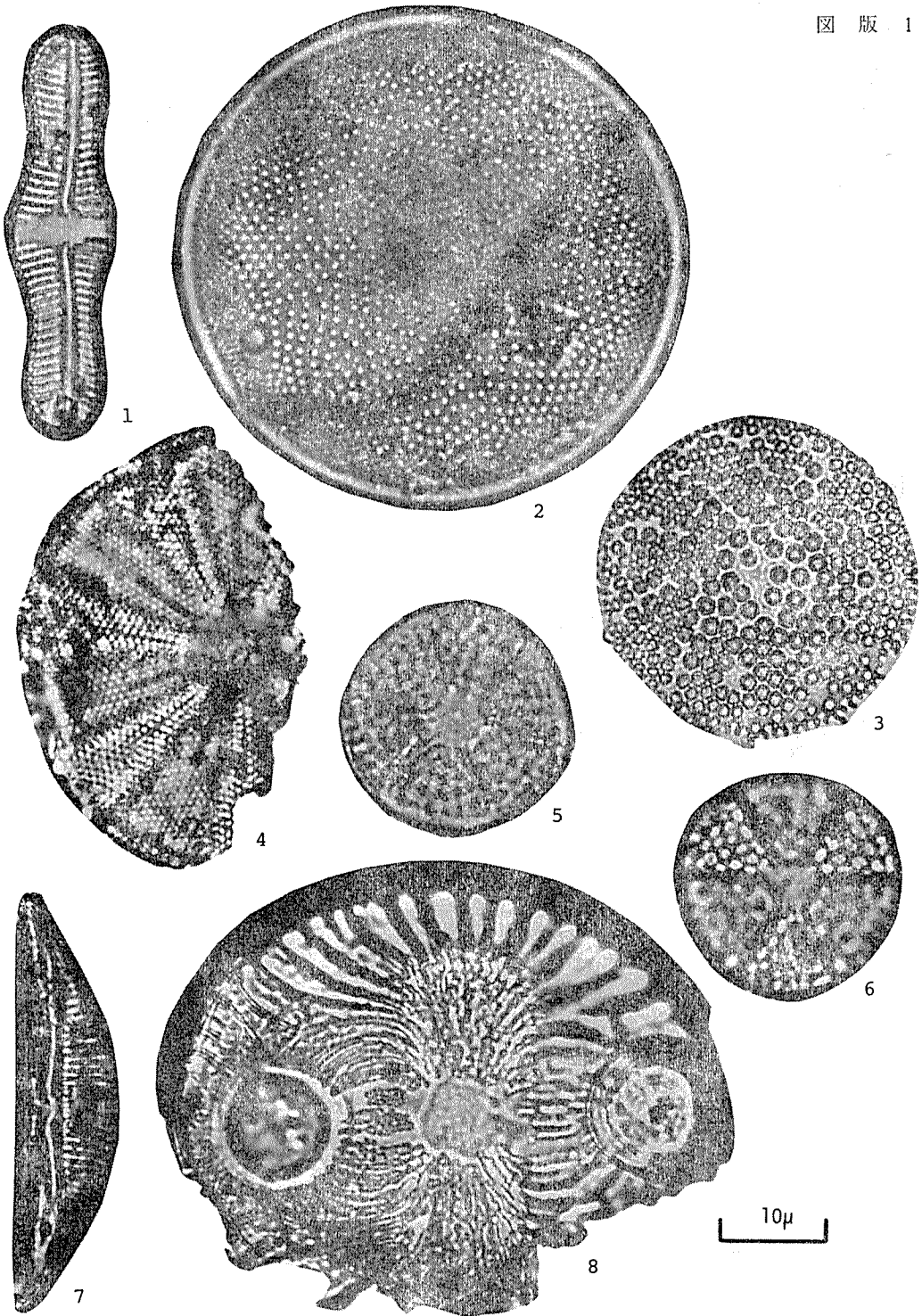
- 21) *Cyclotella stylorum* Brightwell

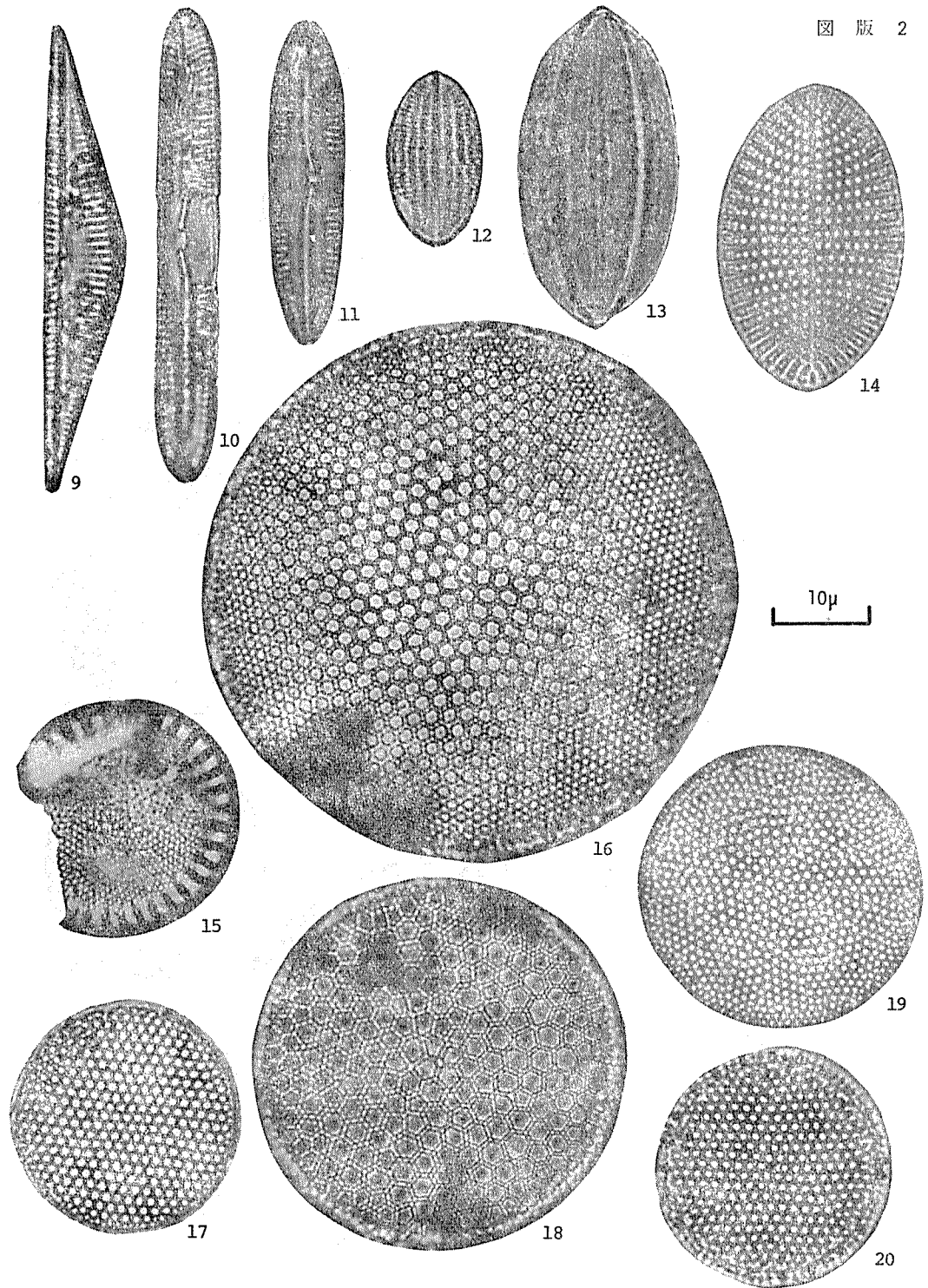
- 22) *Cymbella aequalis* Smith
- 23) *C. sinueta* Gregory
- 24) *C. ventricosa* Kützing
- 25) *Dimerogramma minor* (Gregory) Ralfs
- 26) *Diploneis bombus* Ehrenberg
- 27) *D. fusca* (Gregory) Cleve var. *pelagica* (A. Smith) Cleve
- 28) *D. nitens* (Gregory) Cleve
- 29) *D. ovalis* (Hilse) Cleve var. *oblongella* (Naegeli) Cleve
- 30) *D. puella* (Schumann) Cleve
- 31) *D. subovalis* Cleve
- 32) *Eunotia monodon* Ehrenberg var. *asiatica* Skvorzow
- 33) *E. praerupta* Ehrenberg var. *inflata* Grunow
- 34) *E. praerupta* Ehrenberg var. *bidens* Grunow
- 35) *E. pectinalis* (Kützing) Rahbenhorst var. *undulata* (Ralfs) Rahbenhorst

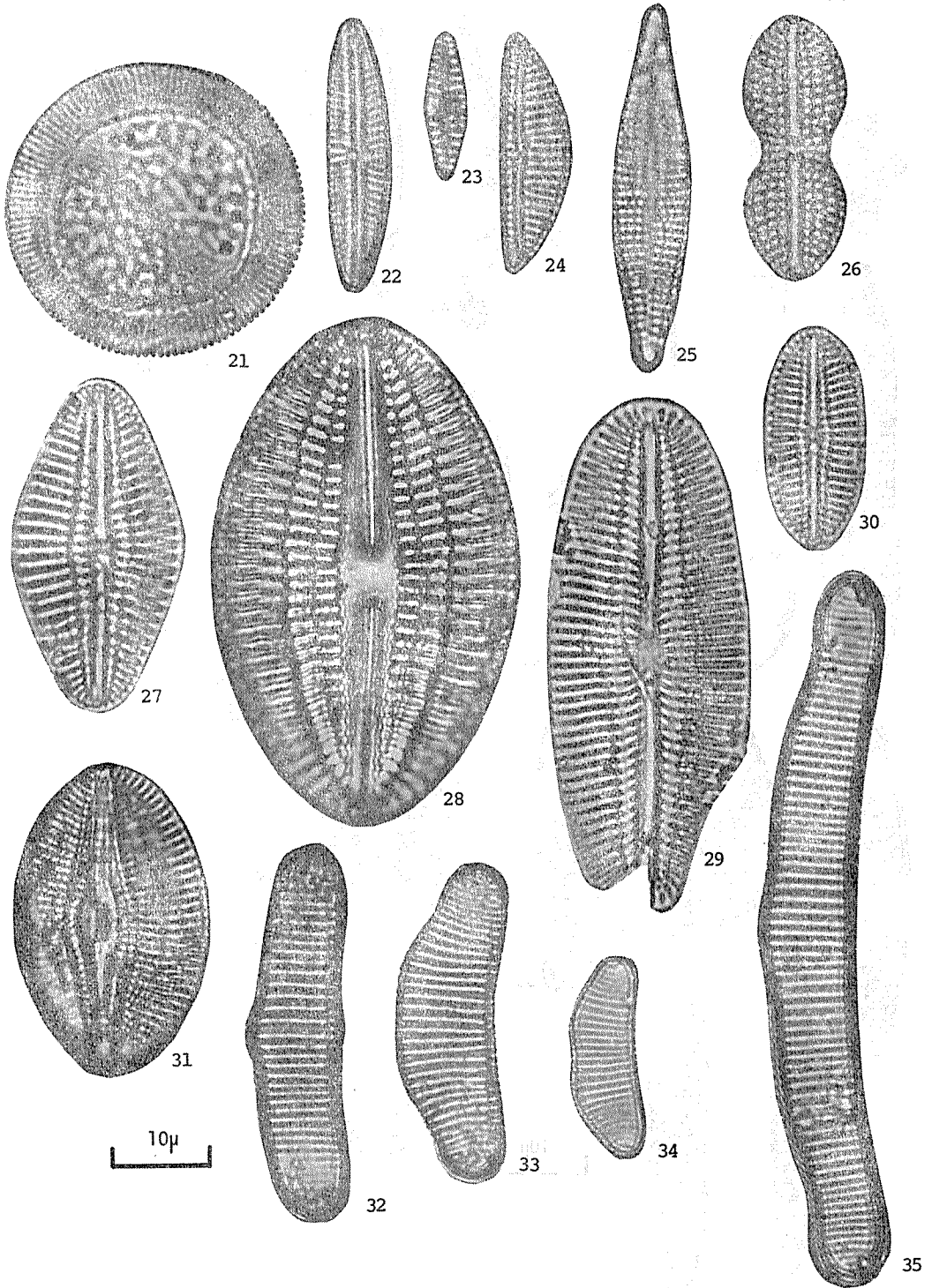
##### 図版 4

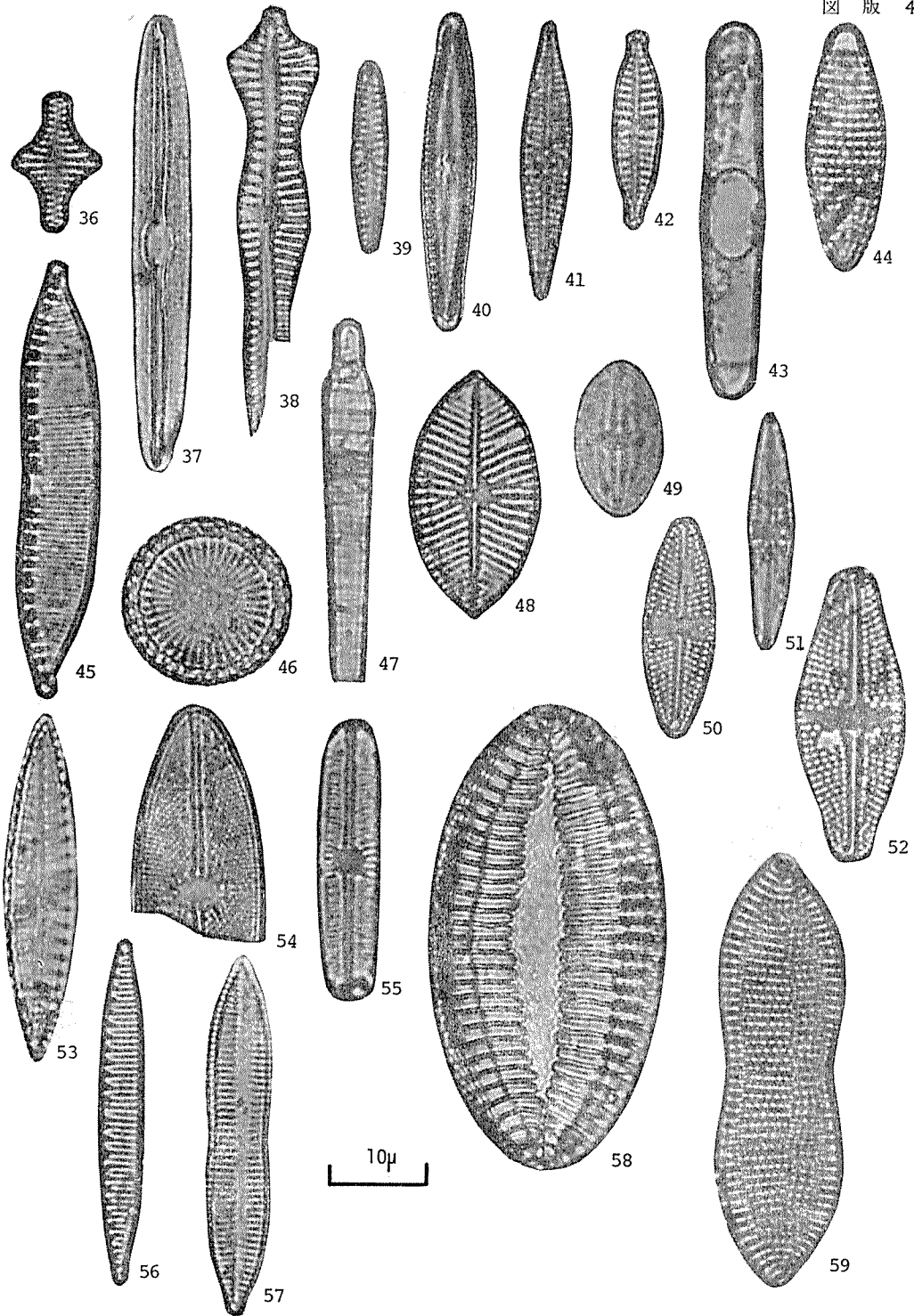
- 36) *Fragilaria construens* (Ehrenberg) Grunow
- 37) *Frustria vulgaris* Thwaites
- 38) *Gomphonema acuminatum* Ehrenberg
- 39) *G. bohemicum* Reichelt et Fricke
- 40) *G. clevei* Frick var. *excilis* Eukushima, Kimura et Ko-Bayashi
- 41) *G. gracile* Ehrenberg
- 42) *G. parvulum* (Kützing) Grunow
- 43) *Grammatophora* sp.
- 44) *Glyphodesmis Willeamsonii* (W. Smith) Grunow for. *lanceolata* (Peragallo et Peragallo) Hustedt
- 45) *Hantzschia amphioys* (Ehrenberg) Grunow
- 46) *Melosira sulcata* (Ehrenberg) Kützing
- 47) *Meridion circulare* Agardh var. *constricta* (Ralfs) V. Heurck
- 48) *Navicula flavellata* Meister
- 49) *N. forcipata* Greville var. *densistriata* A. Schmidt
- 50) *N. mutica* Kützing
- 51) *N. mutica* Kützing for. *goeppertiana* (Bleisch) Grunow
- 52) *N. mutica* Kützing for. *intermedia* (Hustedt) Hustedt

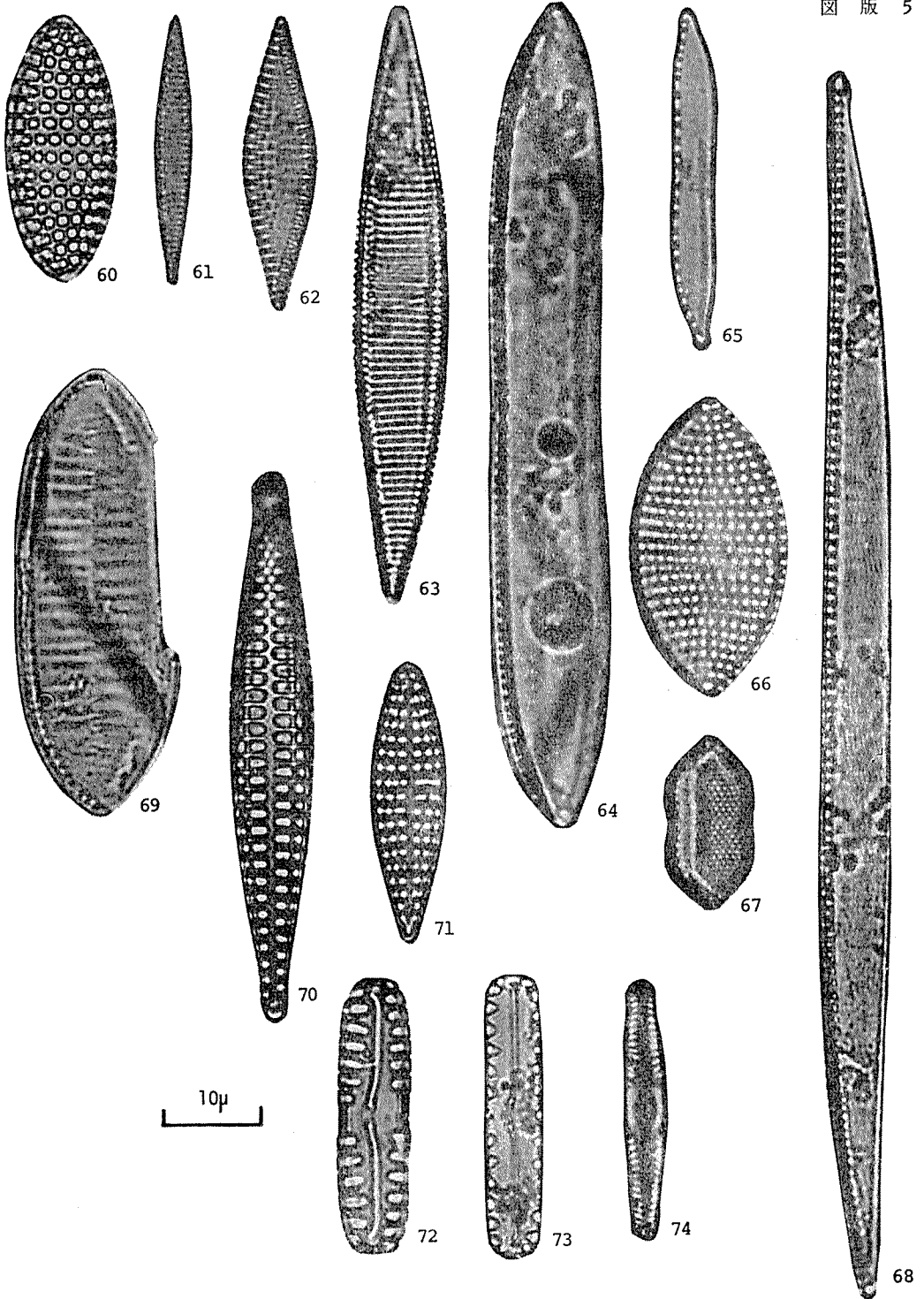
- 53) *N. pennata* A. Schmidt  
 54) *N. placenta* Ehrenberg for. *obtusa* (Meister) Hustedt  
 55) *N. pupula* Kützing var. *rectangularis* (Gregory) Grunow  
 56) *Nitzschia amphibia* Grunow  
 57) *N. apiculata* (Gregory) Grunow  
 58) *N. cocconeiformis* Grunow  
 59) *Nitzschia constricta* (Gregory) Grunow var. *subconstricta* Grunow
- 図版 5
- 60) *Nitzschia gramulata* Grunow  
 61) *N. grosiistriata* Hustedt  
 62) *N. lanceolata* Grunow  
 63) *N. marina* Grunow  
 64) *N. Marginulata* Grunow  
 65) *N. parvula levis*  
 66) *Nitzschia punctata* (W. Smith) Grunow  
 67) *N. pancuriformis* Gregory  
 68) *N. sigma* W. Smith  
 69) *N. trybrionella* Hantzsch var. *victoriae* Grunow  
 70) *Opephora gemmata* (Grunow) Hustedt  
 71) *O. marthii* Héribaud  
 72) *Pinnularia borealis* Ehrenberg  
 73) *Pinnularia borealis* Ehrenberg v. *brevicostata* Hustedt  
 74) *Pinnularia intermedia* (Lagerstedt) P. T. Cleve
- 図版 6
- 75) *Pinnularia* sp. 3  
 76) *Plagiogramma staurophorum* (Gregory) Heiberg  
 77) *Rhaponeis amphicerus* Ehrenberg  
 78) *R. surirella* (Ehrenberg) Grunow  
 79) *Rhopalodia gibberula* (Ehrenberg) O. Müller  
 80) *Stephanopyxis turris* (Greville et Arnott) Ralfs  
 81) *Surirella angusta* Kützing  
 82) *Surirella visurgis* Hustedt  
 83) *Synedra ulna* (Nitzsch) Ehrenberg  
 84) *Thalassiosira decipiens* (Grunow) Jörgensen  
 85) *T. oestrupi* (Ostenfald) Proskina Lavrenko
- 86) *Thalasionema nitzschoides* Grunow  
 87) *Trachynies aspera* (Ehrenberg) Cleve
- 花粉・孢子  
 図版 7
- 1) *Picea*  
 2) *Tsuga diversifolia*  
 3) *T. sieboldii*  
 4) *T. s.*  
 5) *Pinus*  
 6) *Taxodiaceae*
- 図版 8
- 7) *Juglans*  
 8) *J.*  
 9) *Alnus*  
 10) *A.*  
 11) *Aphananthe*  
 12) *Corylus*  
 13) *C.*  
 14) *Zelkova*  
 15) *Z.*  
 16) *Carpinus*  
 17) *Tilia*  
 18) *Lepidobalanus*  
 19) *L.*  
 20) *L.*  
 21) *Gyclobalanopsis*  
 22) *Castanopsis*  
 23) *C.*  
 24) *Castanea*  
 25) *Artemisia*  
 26) *Persicaria*  
 27) *Carduoideae*  
 28) *C.*
- 図版 9
- 29) *Gramineae*  
 30) *G.*  
 31) *Cyperaceae*  
 32) *C.*  
 33) *Monolete spore*  
 34) *M. s.*  
 35) *Hystrichosphaeridium* (Dinoflagellates)  
 36) *Micrhystridium* (Dinoflagellates)

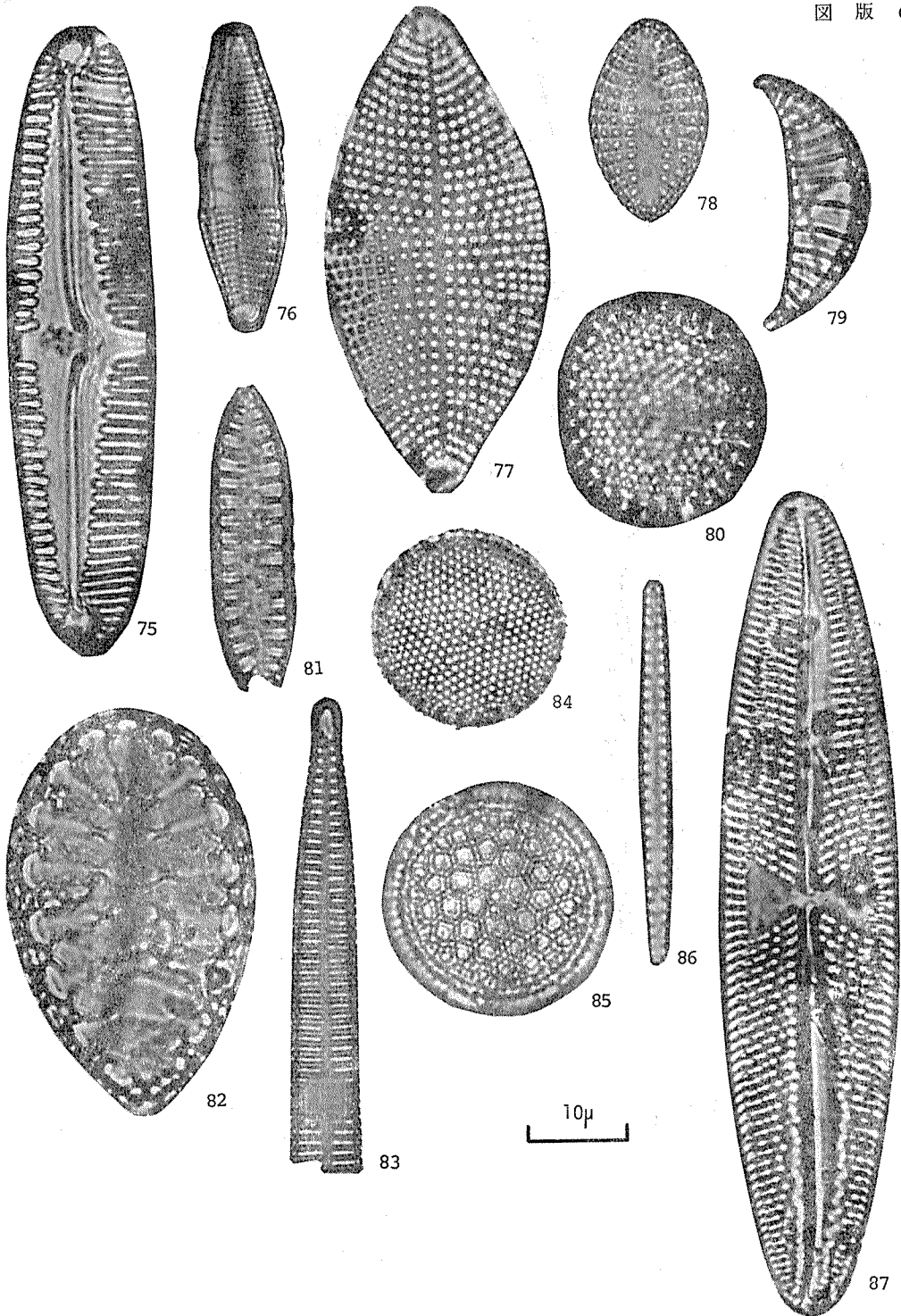




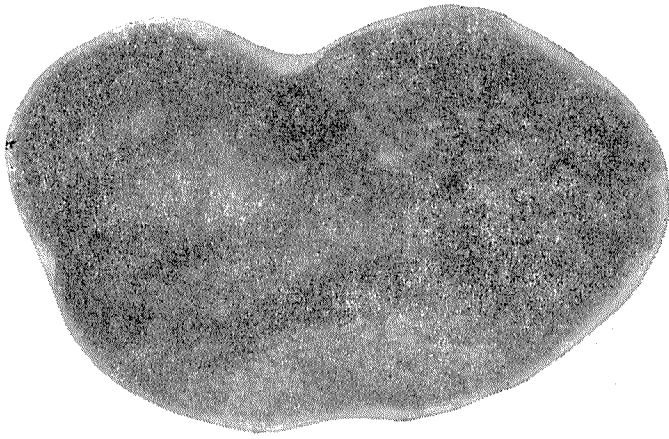




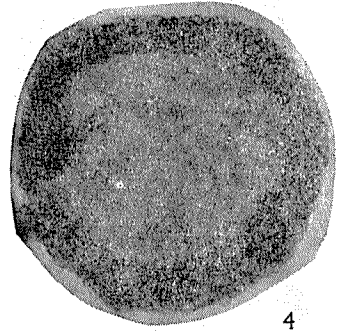
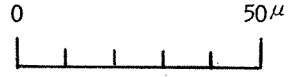








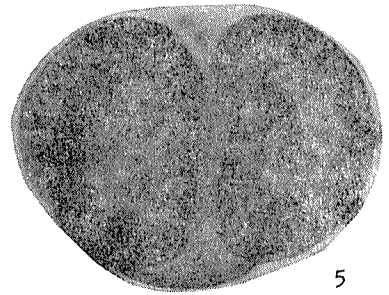
1



4



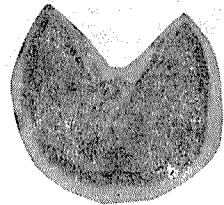
2



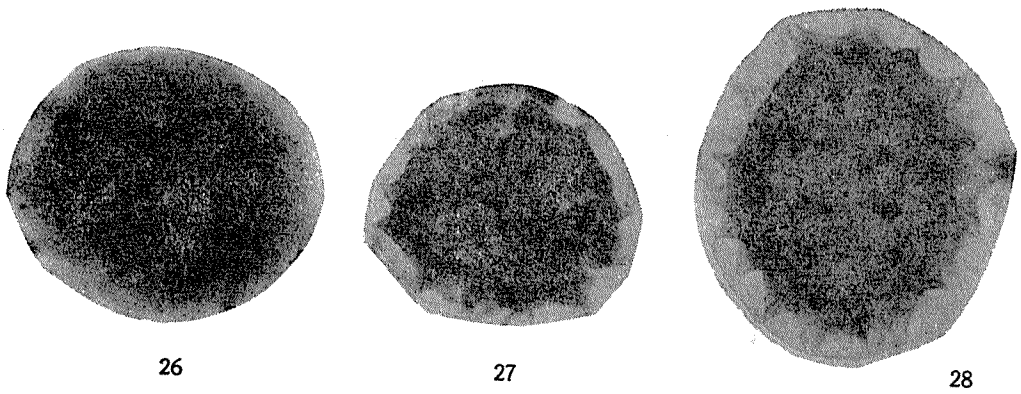
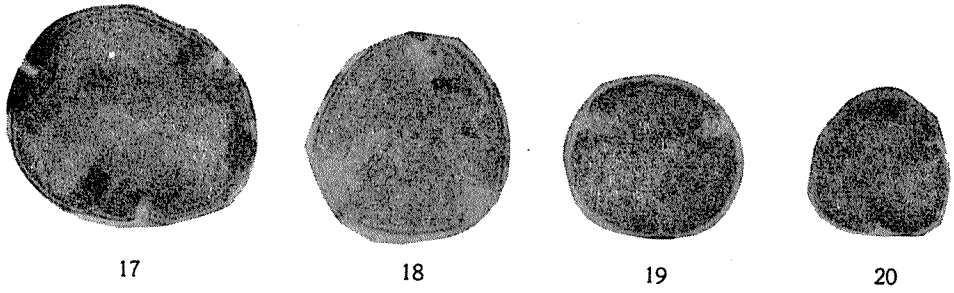
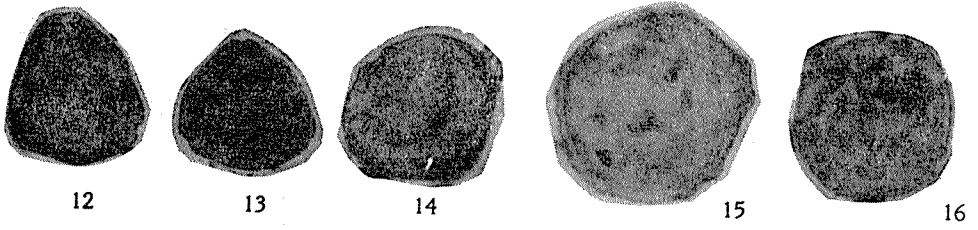
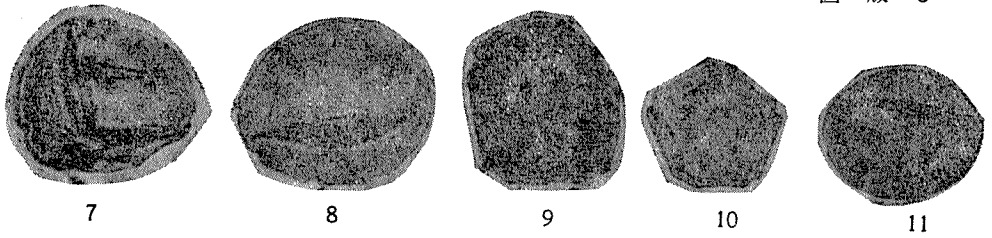
5

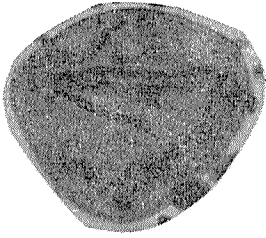


3

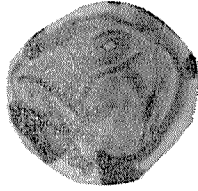


6





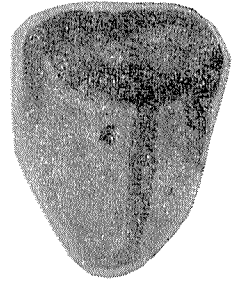
29



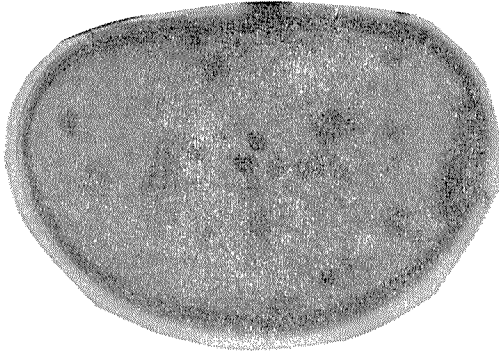
30



31



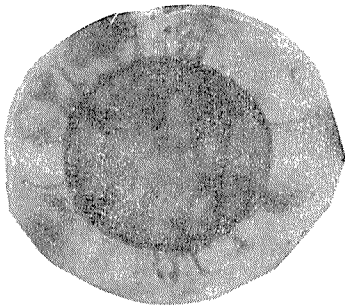
32



33



34



35



36

# I 自動車公害対策の課題

## Problems for Self-Government to Solve Automobile Pollution

### 戒能通敏\*

#### はじめに

自動車公害に関して、大気汚染や騒音・振動の測定をし、またアンケート調査などに従事したことがある者なら、大抵一度くらいはその意味を疑ってみるものである。「一体この調査が何かの役に立つのだろうか」と。排出ガス規制や防音壁などの「対策」に若干の進展があることを知り、他方、「自動車公害については市民自身が加害者でもあるのだから」といわれてみても、余り慰めにはならない。幹線道路沿いの深刻な被害に効果的な手が打たれていないし、交通量の増大とともに公害はひろがり続けているのだ。まして、「オイル・ショック」の時には望外の転換への期待が囁かれたりもしたモータリゼーションは、相も変らぬ強力な展開を示している。無力感に襲われたことがなければ嘘というものである。

自動車を何とかしなくてはならない。都市における自動車問題について、様々なことが少なくとも語られるようにはなってきた。我々が着目したのは、公害・環境行政の分野からも、最早放置しておくことができないためである。直接には、窒素酸化物対策に象徴される「移動発生源」としての行きづまりを克服することであった。前年（1977年）来、「自動車公害の解決策」に関する社会科学的研究をすすめているのである。その中間報告として整理したところをもとに、以下およその問題提起をしておきたい。なお、この研究は、「横浜市環境政策研究会」の協力を得て、共同で実施しつつあるものである。

#### 1. 「中間報告・横浜市における自動車公害に関する基礎研究」<sup>1)</sup>の概要

##### 1-1 現状の把握

“自動車公害問題は、自動車台数の増加と道路の延長に伴って、「点」から「線」、 「線」から「面」へと拡大してきている。”

自動車公害の現状をどのようにとらえるかは、問題である。中間報告は、まず“横浜市における自動車公害問題の系譜と現状”を分析し、自動車利用が“道路という社会的資源の使用を媒介にして一般市民に甚大な影響を及ぼすようになってきた”経過を述べ、“自動車の排出ガス、騒音、振動の問題は、「自動車・道路公害問題」として、緊急に対処すべき都市政策の課題となった”とする。

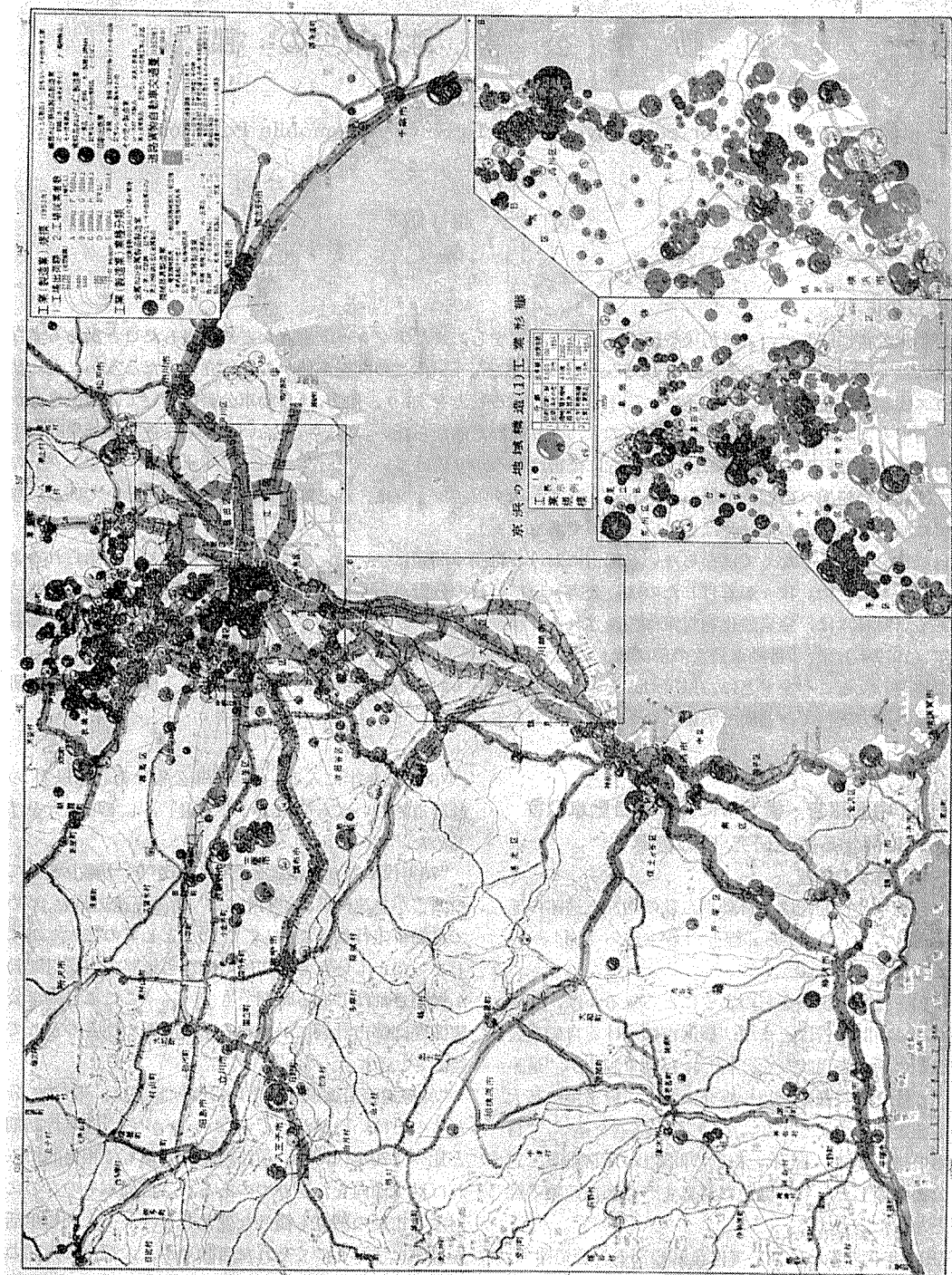
“1960年代の始めにおいては、都心部の幹線道路で、一酸化炭素等排出ガス汚染が問題となった”のであるが、“関係地域のあいでの問題に限定されていた。”

“60年代後半に入ると、自動車公害は都心部以外の幹線道路沿いにもひろがり、「線」としての拡大をはじめた。”

“70年代に入り、沿道公害がひろがり、「線」としての公害が急速に拡大進行した。”新設高速道路を含めて自動車走行量は増加し、“「面」としての拡大”がはじまったともいえる。住民の間から道路公害反対運動が展開されはじめる時期でもある。“ここに自動車公害問題は都市計画にかかわる主要問題のひとつとして認識されるに至った。”

“幹線道路沿線以外の市民の問題認識は、未だ充分なものとはいえない。”しかしながら、60年代初期と比べて70年代には、道路建設の要望も“相対的にみれば減少傾向をたどりつつある。”“自動車そのものに対する市民の感覚も微妙な変化をとげ……人間の生活を豊かにすべくつくられた自動車が、大都市で人間の対立物に化しつつあるという市民感覚も芽生えてきている。”

\* 横浜市公害研究所社会科学部門



貨物自動車の日中12時間交通量図(33年6月・10月の平均、世界大百科辞典9—平凡社、'56年—から)  
 (都心から出る太い線がそれぞれ約5千台をあらわしている。)



このように展開してきた自動車公害問題は、次のごとき特徴と性格を持っているものとしてとらえられる。

第一に、“自動車公害による被害は、深刻性、多様性、広域性をもっている。”

第二に、“自動車公害の原因は複合的であるが、とりわけ次の者を原因者として把握することができる。”すなわち、“自動車メーカー、自動車の利用者（保有者）、政府のモータリゼーション政策・道路の管理者”である。

第三に、“自動車公害は都市問題としての性格を持っている。”“したがって、自動車公害問題は他の自動車問題をあわせた総体のなかで検討し、都市の、そして自治体のあり方を考えるなかで解決の方向を見出すべき性格のものである。”

### 1-2 問題を解決するための基本的考え方

ここでは、いくつかの視点が提供される。

まず、“市民の基本的権利である生存権、環境権、営業権を回復しなければならない”し、“自動車をもたない市民や老人、身体障害者、子ども……こうした社会的弱者を優先する自動車対策、交通対策を積極的に進める必要がある。”

同時に、“市民が地域環境を自ら向上させてゆくという意識の発展を促し、市民の運動を行政が保障し、その過程で行政自体も変革をとげることが重要である。両者があいまって、市民自治を通じた合意ある解決の方向を見出す必要がある。”

“自動車公害対策手段の選択基準”としては、“モータリゼーション政策の抑制による人間中心の交通体系を整備すること”、“モータリゼーションがもたらしたデメリットをいかに抑制するかを系統的対策を短期、中期、長期計画のもとで展開すべき”であるとする。

さらに、“社会的費用の負担”、“原因者負担の考え方を中心として、さまざまな施策を講ずべきであろう。”

### 1-3 7項目の提起

中間報告は、“市民自治の原理”に立って問題の解決にあたるべきことを強調したうえで、“現時点で追求すべき課題”として次の7項目を掲げている。

第一は、やはり“自動車の総量抑制”である。“自動車の総量を、1970年頃の水準を用途に削減すべき”であり、また“汚染地域の走行台数を大幅に減らすことが必要である。”“もちろん総量抑制は、自動車の生産、販売、保有、使用のそれぞれについて直接、間接の手段を行使して追求する必要がある”が、“当面は市民的合意をえられる可能な段階での市内における総

量抑制を検討すべきであろう。”

第二に、“沿道被害について、まず費用をいわず総合的な調査を行い、被害の実態と住民の要望を詳しく知る必要がある”と述べ、神戸市における「自動車公害防止計画」の例を引いて、“横浜市もこのような検討を開始すべき段階に来ている”というのである。

第三に、“生活道路優先主義の原則にそった交通・道路政策の展開”を求め、“道路通行の優先順位は原則として人間を最優先にし、つぎに公共交通手段、私的交通手段とすべき”であるとしている。そして、“道路の用途については、道路を大きく2種類に分けて、生活道路と幹線道路の各々に基準を設けるべきで”、“生活道路については、市民自治の原則にたつて、道路管理・使用運営に地域住民が参加する方法を考慮する必要がある”あり、“幹線道路は、都市自治体が管理の責任を果たす必要がある”と主張する。“なお、道路の交通容量設定も考慮する必要がある。”

第四に、“歩行者空間の確保と公共交通の拡充整備”についてヨーロッパの諸都市での事例をあげながら、“歩行権の回復・拡大は先進国の趨勢”、“市民が気軽に、安全に、楽しく歩けるための都市計画が必要であり、そのためのまちづくりにむけて、市民が参加するための制度も検討すべき課題”、また“利便性・快適性・経済性・安全性の高い公共交通の在り方を考えなければならない”という。

第五に、“自動車の社会的費用の科学的モデルの確立”、第六に、“原因者負担原理の明確化”を強調している。

そして第七に、“「自動車政策センター」（仮称）の設置”を提案する。市当局が“総合的交通政策についての調査、研究、政策立案などを体系的に行う”もので、“市民の快適な生活環境の保全を含めた総合対策を解明すべき”だというのである。このセンターが当面取り組むべき仕事としては、“①交通、自動車問題に関する正確な知識を市民に伝える、②市民と専門家からなる自動車対策協議会を設ける、③道路使用の基準、市民本位の交通権、自動車・道路など費用負担のあり方などを明らかにし、市当局全体の行政施策を展開する、④関係機関との協力体制をつくる”などのことが指摘されている。

### 1-4 付論並びに資料集

今回の中間報告では、主要な論点の整理がなされたわけである。付論として、“1 自動車産業の動向”が、“これまでのような高い成長（わが国の）自動車産業がこんども続けることは、種々の条件から困難とみられている”ことを、“2 なぜ「住民参加」が必要

か”が、“「システムをつくるシステム」としての市民参加，地域自治・市民自治としての市民参加，その新しい統合の原理としての連帯の模索”ということ，そして，“3 自動車公害原因者負担論”が，“具体的に，いかなる費用負担の原理に基礎を置くかは，自動車公害対策事業との関係で決まってくる”ことをそれぞれ要約して述べている<sup>2)</sup>。また，この研究の基礎となっている資料集が，“公害と道路・自動車・交通問題”と題して添付されている。

## 2. 自治体行政の課題

2年間の研究成果として結論めいたことは，別にあらためてとりまとめ公表する予定である。ともかく都市自治体において苦慮するのは，“こうすべきだ”とされることをいかに実現するのかという点である。これまでの議論よりも高いリアリティを具えた提案が求められるのにちがいない。ただその影響や効果について，どの程度のところまで予測しておかねばならないかは疑問だ。いずれにせよ事態の変化はおそらく緩慢にしか始まらないのであって，少々の試行錯誤はその展開の中に吸収していけるはずだからである。変化の過程に点火するものは何であろうか，そしてその過程を進行させずにおかない「触媒作用」は何が果たすのか。これこそ発見しなければならぬものである。以下，とりあえずの私見を述べておくことにする。

### 2-1 自動車交通の起点・終点における対策を導入することがポイント

従来，自動車問題へのアプローチは，手段たる自動車の構造と道路の施設とについての対策，及び路上での交通流コントロールにほぼ限定されており，しかもそれらがバラバラに扱われてきた。権限の所在を問う場合も，そうした枠内での論議でしかなかった。一方，代替手段に関する検討などは，いわば問題の外側で行なわれていたにすぎない。

ここでは，交通調査の用語をかりて，自動車交通の起・終点(trip-ends)における対策の導入が不可欠であること，そして自治体行政のみがよくこれをなし得るものであること，を強調したいと考える。公害の発生源，というよりその発生場所をつかまずに対策を考えるのは，ナンセンスというものであろう。自動車公害の場合には，trip-ends は文字通り「端末」で，交通量の集中した道路上が焦点であるように見える。だが，いくら目を凝らしても，そこには没個性的な物理力の奔流があるだけである。自治体の行政は，自動車交通が発生し，または到達する場所をとらえて，対策を組み立てるべきであろう。もちろん trip-ends は，

潜在的なものまで含めれば無数であるが，そのつかみ方次第では自治体行政のなし得ることが鮮明に浮きあがってくることと思う。

第一に，“市民にとっての自動車問題”がもつ矛盾をそっくり体现しているところの，居住地域における対処である。個々の地域の規模や範囲をどうとったら良いかがまず問題になるが，一応日常的交通の発生単位，共通の顔をもった生活圏としてつかみ，自動車・道路・交通の処理，取扱いを，それぞれ定める必要がある。その場合，交通需要の構造と市民意識とを把握することから始めることになるだろうが，対処の仕方を自主的に決定するプロセスが創り出されることは，より重要である。今までのところ一人一人の市民は，別々の交通需要をかかえてその実現可能な参入を許されるだけで，まさに「反射的利益」の主体としてしか扱われていない。せいぜい，例えば生活道路への大型車乗入れ規制を「要請」する道があるくらいのものである。自治体当局は，道路管理者としての，また一定の権威及び専門的能力を有する行政担当者としての立場などを駆使して，地域における対策の検討・実施に踏み出すべきである。それは，名古屋市における研究<sup>3)</sup>の例に倣って，“市民交通計画”と名付けても良い。「中間報告」にいわゆる「市民自治の原理」は，その不可欠の要素となるであろう。特に，当該地域から手がとどくところまで，市役所の調整力や権限を「下ろす」こと，換言すれば「分権化」ということが併せ試みられなければならない。そのうえで，先に当研究所が行なった公開セミナー「クルマ社会をどうするか」<sup>4)</sup>のようなものを，いくつかの地域単位で開催する必要があるかも知れない。

第二に，自動車交通を大量に発生させ，誘引し，集中させるところの，大工場，港灣，大型店舗，高層ビル，すなわち大規模交通発生源を規制することである。これまでも，個別公害発生源の汚染物質排出量を測り，その大きなものに格別きびしく対処することは，自治体の公害対策行政において中心的課題をなしてきた。蓄積ある行政指導の経験を生かし，その及ぶ領域を相当程度拡張することによって，人と物との移動に伴う汚染物質や騒音・振動，及びそれらによる被害の発生を極小化しよう指導することは，可能であると思われる。発生源における自動車総量，すなわちその使用及び集中を抑制することが必要である。さしあたり自動車の出入台数，または台・キロで表示されるころのものを削減すべきだが，トン・キロ，人・キロによって表示される移動需要そのものについても，実態を知り何らかの手がかりを得る必要があろ



う注)。大規模交通発生源との間で、自治体は「自動車交通削減協定」を締結したら良い。削減の方法に関しては、発生源の側で第一義的に検討すべきであり、また「協定」のための話し合いの中から見通しが開けることもあるにちがいない。いずれにせよ、自動車や交通の問題だからといって企業内の「合理化」に基づく選択に任せる理由はないのであり、過密都市における事業活動のあり方を規定するものとして、自治体行政のイニシアティブを確立する方向を追求しなければならない。ただし、ことが産業組織の構造に関わってくるようになり、またはずっと身近な例で、百貨店などの付置義務駐車場を取り扱うというような話になったりすれば、一体自治体が自動車交通や企業内のことについてどれだけの事実をつかむことができ、そしてどの程度の支持を集められるものか、その見通しをたてておく必要はあるであろう。なお、ごく当面の問題としては、例えばある路線での大型車夜間走行といくつかの発生源 (trip-ends) との関係が明らかであるような場合に、これを抑えて人々の安眠を守ることなど、比較的容易になし得ることもあるはずである。

## 2-2 道路管理者として果たすべき役割の意味

有名な「環七(都道環状7号線)公害」や「国道43号線(及び阪神高速道路)公害」の対策として、道路の外側車線を縮減してしまうことが実施されつつある。前者については、今なお警視庁が強力な発言権を主張し、都に対する要請なども行なっているものであり、後者については、騒音・排気ガスの規制に関して係争中の訴訟等に影響されて、関係諸機関が一斉にそれなりの対策を打出したものであって、都道と国道とのちがひ(阪神高速は県道)以外にも、それぞれ多少異なった背景がある。また、計画された対策の是非、評価についても、いろいろ論議があるのは当然のことである<sup>5)</sup>。だが特に注目すべきことは、車線縮減の実施が道路管理者によって決定された一事ではなからうか。現行の道路法が「自動車・道路公害」を全く想定していない欠陥を有し、道路管理者は何らの処置をなし得ないように考えられてきたにもかかわらずである。神戸市などは、「道路環境管理権」なる概念を構成し、「道路環境管理体制」の確立を訴えざるを得なかった<sup>6)</sup>にもかかわらずである。

自動車公害を理由として既存の道路の供用形態を変更する、それが道路管理者の権限に属するということが、東西どちらの場合にも異論なく前提されてき

た。筆者は、今ただちにすべての道路の自動車通行部分を縮減すべし、と主張するつもりではない。むしろ、環七や43号線よりもずっと小さな道路について、自動車中心からの転換をはかる、あるいは自動車が平常は通れないようにすることは、現行法のもとでも道路管理者が充分実行できる、というのである。これを先述の地域での対策にあてはめてみれば、一つの有力な手段を自治体行政がもっていることに気付くのである。生活道路での交通規制を要請したり、車両制限令に基づく車幅規制の実効いかんを考えたりする前に、道路の機能を変化させるようにした方が良い。構造上自動車による利用を優先した道路は、少なくとも居住地域内では廃棄されるべきである。緊急の場合を除いて、歩行者の10倍ものスピードで自動車が走れるようにしておかなければいけない理由は余り無い。地域にとって最低限必要な自動車のみを受容しつつ他を拒絶するような道路、その基準とデザインとが市民の中から生まれてくるようにしたい。市役所は、交通標識と異なる「道路管理者の案内板」を掲示して、その道路の供用形態を知らせることにするのである。

従来は、道路の自動車受容力を増すのが良いとされてきた。歩道を整備するとしても、地域を自動車公害の原因が集中した trip-ends ととらえて対処したうえではないから、沿道家屋等への乗入れ箇所(開口部)がやたら多いものとなる。道路容量がまだ足りない、と考えて道路整備をすすめるのが役所の仕事とされてきた。その転換を果たすため、道路管理者のもう一つの役割に注目することが必要である。それは、もちろん恣意的な強権発動としてできるものではない。ただ、地域における転換が計画され合意が得られるなら、その実現手段はある、道路管理者のなし得ることは少なくないということである。

## 2-3 交通計画をリードするため獲得すべき手段

自治体当局が交通サービスの供給主体として、特に経営上の困難を云々されることは多い。しかし、それ以前に自治体行政がつかまなくてはならないものは、全体の計画である。都市の交通計画が、中央管理のもとにおかれた陸運行政上の問題であるわけもなく、その調整し得るところでもないのは、見易いところであろう。自治体当局が新規の交通手段の建設に奔走するだけでは、宿命的な需給のアンバランスをかこつことになるのではなからうか。自治体行政は交通を計画すべきであり、それは権限の問題ばかりではない。旅客

注) 「台・キロ」は、自動車1台が1km走行する量を示し、「トン・キロ」は1tonの貨物を1km, 「人・キロ」は1人の旅客を1km輸送する量を示す単位である。

及び貨物の両部門について、ひろく運送業者を結集し、既存のもの組合せ方をアレンジするため、協議体制を確立すべきである。乗合いタクシーや路線タクシー、共同配送トラックなどのシステムは、許認可権限の所在とは別に、自治体当局がイニシアティブをとって計画したら良いのである。ピーク時の交通需要にあわせた体制が、別々の主体によってバラバラに用意されているのは、余り賢明なことだと思われぬ。渋滞した道路の上で過酷な競争が行なわれており、それはまた、公共的な性格の強いものから順に衰退させていくものとなっている。何らかのかたちで、共同化なり計画化の方向を追求することが必要である。一例をあげれば、通勤時間帯の輸送をまるごと引受けようとするバス・ダイヤは、もともと無理があるのであって、一方でバス通勤を苦投としか考えられない現状を残しつつ、他方充たされぬ交通需要が増加することになる。このような畸形的交通サービスの矛盾を打開するため、「パラ・トランジット」<sup>7)</sup>として提案されている補助的交通システムの導入についてなど、もっと高い評価が与えられるべきであろう。

ここでは、これ以上付け加えることは余りない。一般に交通手段はもっと多様で優しく楽しいものであったら良い、それは、むやみな高速化の要求より優先する、「中間技術」と称するものの適用されるべき分野もある、などとは思いますが、自動車交通の起・終点における対処の中からこそ、交通機関の調整として実現されていくことにちがいない。

#### 2-4 交通警察に必要なチェック

現行道路交通法の説明として、第4条第1項「都道府県公安委員会は……道路における交通の規制をすることができる。」とは、「公安委員会のみが権限を有するということである。」<sup>8)</sup>といわれる。法文の解釈としては通り易い論理であるが、ごく抽象的な目的の制限があるだけの、かくも広範囲なチェックされざる行政警察作用を、法は容認するものであろうか。実際上も、都・道・府及び「指定県」では5人、その他の県では3人をもって構成される公安委員会が、交通規制の詳細な計画をなし得るはずもなく、すべては警察の判断に委ねられているとあって良い。それは、交通警察に従事したことがある人からも、「道路交通の分野における警察の権限範囲があまりにも広い」<sup>9)</sup>とされるほどのことである。現状では、交通警察の分野が在るという事実は一概に否定できないであろう。交通規制の実施を警察力に頼らざるを得ない局面も全然無いとはいえない。しかし、その計画まで警察のヴェールに包まれた中で行なわれて良いものであろうか。実は

行政法学上も、警察権の制限に関連して、「警察公開の原則」といったことは論じられたことがないのである<sup>10)</sup>。神奈川県の場合で見ると、警察活動の報告書、「警察年鑑」すら3～4年前から「部内資料」の扱いとなっており、また、警察官の人員配置や予算の配分なども公開されておられない。この場で警察制度のあり方を論ずる用意は無いのであるが、交通規制権限について、「近代の法制度からすれば、道路の所有権・維持管理者の権利から切り離して、国家統治権、警察権から道路利用のあり方及び交通秩序維持作用がとらえられている」<sup>11)</sup>とし、国家警察権の本性に由来せしめる見解には、反論せざるを得ない。都市交通のコントロールは、第一義的に自治体から計画されるべきものである。問題は、法律による以上に事実がそれを制約していることだ。1974年以降、人口10万人以上の168都市で警察が実施しようとしてきた「都市総合交通規制」<sup>12)</sup>、特に10大都市における「交通総量削減対策」などは、物流合理化等の行政指導まで含めて計画されている。そのねらいはともかく、自治体の計画よりも警察の対策が先行する状態を望ましいものとするのはできないであろう。

これまで述べてきた対策を導入するとしたら、何らかの強力な、あるいは定型的な交通規制と併行した方がさしあたり実施し易い面もあるはずである。ただし、その場合の交通警察作用は、公開の場で討議を経たところの計画に基づいて発動される必要がある。計画は、警察強制を主軸に組み立てるべきでなく、また警察が行政指導にまで踏み込むべきではない。自治体において決定したところにより、道路交通容量なり環境容量なりが、例えば環境基準と連動して担保されること、道路上における優先順位が、私的な自動車交通や強い物理力をもつものを従とするように転換されること、その他夜間の通行制限など、それらの中で警察作用は多少とも適切な位置づけを見出すことになろう。これらは、もとより道路交通法が規定するところではない。だが、単純な交通整理に留まらぬ規制や統制、つまり市民や企業の行為規範に関わる問題である以上、地方自治の本旨に由来する「計画に基づく調整」ということは、違法どころか現憲法秩序の要請するところだと考える。便宜的な見方をすれば、警察のいわゆる都市総合交通規制は、その立場からする準備がすでに整っている、という意味にも受けとることができるのである。「交通警察をチェックする」とは強い表現だが、自動車交通の起・終点における対処に着目した都市自治体の行政が、その本来の責務を果たそうとすることの一環にすぎない。

## 2-5 残された課題

およその輪郭だけを示したが、これらが一挙に全部実行できるものとは考えていない。まず構造的なモータリゼーションに対処し自動車・道路問題の解決を志向する立場を、明瞭に一致させる努力が必要である。そのうえで一步を踏み出すことの意義が大きい。具体的なモデル・ケースがつくられるべきであろう。自治体行政における一連の試みが、やがて国や自動車メーカーを動かすこともあるはずである。自動車・道路・交通関係の時代遅れな法制度も、いずれは改めなければならないこととなろう。当面、例えば「社会的費用」の問題などを糸口として、環境庁の姿勢なりが示されたら良い。自動車メーカーにしても、「日本の自動車保有台数は現在の3,000万台から将来4,500万台まで増やすことができる」(トヨタ自工会長談)といった態度をいつまで続けていけるものであろうか。

筆者らは、今後 trip-ends における対策について、その論理と現実的可能性とを含む分析的な研究を手がけてみようと考えている。相変らず「リアリティの高さ」という次元で循環している傾向はあるが、問題が日々再生産されている場所においてこそ、自治体行政の始動が「市民自治の原理」の洗礼を受け、次の本質的な転換に向うのではないかと思うのである。

## 参 考 文 献

1) 横浜市環境政策研究会・横浜市公害研究所：『中間報告・横浜市における自動車公害に関する基礎研究』(1978)。以下、単に「中間報告」と称する。

“ ” 内はすべて中間報告からの引用である。

横浜市環境政策研究会の構成は、次のとおり。

代表者 清水 嘉治

(関東学院大学経済学部部長)

富山 和夫

(関東学院大学経済学部教授)

緒形 昭義

(横浜国立大学工学部講師)

梶 幸雄

(横浜市立大学文学部教授)

淡路 剛久

(立教大学法学部教授)

久保 新一

(関東学院大学経済学部助教授)

村橋 克彦

(横浜市立大学経済研究所助教授)

中 島 清

(横浜市立大学経済研究所助手)

利根川 治夫

(早稲田大学法学部講師)

宮 島 泉

(関東学院大学文学部講師)

- 2) 付論“1”は富山委員，“2”は緒形委員，“3”は淡路委員によるものである。
- 3) 名古屋市：『市民交通計画の確立に関する基礎的研究』(1973)。名古屋大学河上省吾氏らによるもので、「自動車を使わなくても良い交通計画」、すなわち「歩行者空間、自転車道、公共輸送システム、緊急避難路、公園・緑地等オープンスペースの配置」などを対象として、「住民の発意によって計画され、住民の同意によって実施される交通計画」を市町村が独自に策定することを提唱し、これを「市民交通計画」と名付けている。
- 4) 横浜市公害研究所：『第1回公害セミナー会議録—明日の都市環境を考える—クルマ社会をどうするか』(1978)。
- 5) 道路公害問題研究会編：『道路公害と住民運動—住民による交通政策づくり』(1977)。自治体研究社。警察庁交通局編：月刊交通—特集・交通公害対策』(1977)。東京法令出版。
- 6) 野中 明：自動車公害防止条例の意義と役割。都市政策，第4号(1976)。
- 7) (財)運輸経済研究センター：『これからの交通バラ・トランジット—新しい公共交通の方向—』(1977)。
- 8) 木宮 高彦・岩井 重一：『詳解道路交通法』(1977)。有斐閣。
- 9) 竹岡勝美：都市の自動車交通量抑制—OECD会議に出席して。警察研究，第46巻第8号，(1975)。
- 10) T. Bowden: Beyond the Limits of the Law, (1978). Penguin Books.
- 11) 保良光彦：『交通警察の基礎的考え方』(1978)警察時報社。

## 所報原稿執筆要領

1. 原稿は和文とし、所定の原稿用紙を使用し、当用漢字・現代かなづかいにより執筆する。なお、調査研究編に掲載される原稿は刷り上り10頁以内とする。

2. 原稿の1枚目には次の項目のみを順に記載する。

(1) 右上肩に、“横浜市公害研究所報第〇号”と書く。

(2) 表題は内容を具体的に表現するものとし、原則として副題はつけない。

(3) 執筆者・共同執筆者名を、1名毎に1字あけて連記し、氏名の右肩に「\*・\*\*」の記号をつける。

(4) 横線を書いて、その下に、英字タイトル、英字執筆者名・英字共同執筆者名とそれぞれの所属機関名を記載する。

3. 本文の小見出しは通し番号を付ける。要旨は400字以内とし、要旨・参考文献には番号を付けない。

小見出し例 要旨

1 目的

2 方法

3 結果

4 考察

5 結論

参考文献

4. 本文中の小見出しに使用する番号は次の順位とする。

「1. 2. 3. ……………」

「2-1. 2-2. 2-3. ……………」

「3-1-1. 3-1-2. 3-1-3. ……………」

5. 句読点は「，」および「。」、括弧は「（ ）」を用い、それぞれ1字に数える。行を改めるときは1字あけて書きはじめる。

6. 数字は算用数字、単位はS I系を原則とし、それらとアルファベットは1マスに2字の割合で入れる。

7. ゴシックにする場合、その文字の下に波線（~~~~）をつける。ゴシックにするものは小見出し、図・表の表題、参考文献の雑誌の巻番号等。

8. イタリックにする場合、その文字の下に横線（——）をつける。イタリックにするものは、動植物の属・種名、参考文献の英字等で記された雑誌・単行本名。

9. 一般に通用している物質名・術語等は和名を用いる。

10. 本文中の人名は姓のみとし、この場合の英字等のつづりは頭文字のみを大文字とする。

11. 本文中等に説明を要する語には、右肩に「\*、\*\*」の記号を付けて、その頁（原稿用紙）の最下段に記号別に説明を付ける。

12. 図は1図で1枚とし、そのまま印刷にまわせるものとする。用紙は白紙または青色方眼紙を用いる。図の下には「図-1」などの番号と表題をつけ、必要に応じ、簡単な説明をつける。図の大きさは縮尺倍率を考慮して決めること。
13. 表は1表で1枚とし、横線のみを用いることを原則とする。表の上には「表-1」などの番号と表題をつけ、必要に応じ、簡単な説明をつける。
14. 図・表は本文の最後に綴り、原稿の本文の右側の余白部分に、挿入場所を赤字で明示する。
15. 参考文献は、本文中引用箇所右肩に順次小さく番号を付け（例 1) 2) ），番号順に以下の例に従って記載する。
- (1) 雑誌・資料の場合（発行機関は資料などで必要な場合のみ）  
著者名：表題、雑誌名，巻（号），始頁—終頁（年号）。
- 1) 助川信彦：“環境計画”と都市自治体の試験研究体制の検討。横浜市公害研究所報，2，1—5（1977）。
- 2) Grunesich, G. S. and I. W. Deuedall：The decomposition of sewage sludge in seawater.  
Water Research，12，535—564（1978）。
- (2) 単行本の場合  
著者名：書名、編者名、始頁—終頁（年号）、出版社。
- 1) 赤岩英夫：抽出分離分析法。50—68（1972）。講談社。
- 2) Chaston, I.：Mathematics for Ecologists。81—89（1971）。London Butterwarths。

# 横浜市公害研究所発行資料目録

1978年12月末日現在

資料番号	件名	発行年月	体裁等
	明日の都市環境を照らす	1977. 3	A4, 16頁 (パンフレット)
No. 1	窒素酸化物特殊発生源調査報告書 (環境庁大気保全局委託調査)	1977. 3	B5, 49頁
2	横浜市公害研究所報 (創刊号)	1977.11	B5, 56頁
3	公募論文集・クルマ社会をどうするか ——明日の都市環境を考える——	1977.11	B5, 136頁
4	第1回公害セミナー会議録・クルマ社会をどうするか ——明日の都市環境を考える——	1978. 3	B5, 96頁
5	昭和52年度環境庁委託業務結果報告書 非特定重大障害物質発生源等対策調査 (アスベスト発生施設)	1978. 3	B5, 36頁
6	横浜市公害研究所報 (第2号)	1978. 3	B5, 236頁
7	中間報告・横浜市における自動車公害に関する基礎研究	1978. 8	B5, 195頁
8	横浜市公害研究所報 (第3号)	1978.12	B5, 156頁

正 誤 表

頁	誤	正
28, 右下から9行目	<u>91%</u>	<u>90%</u>
46,	図- <u>12</u> (1) , 図- <u>12</u> (2) 図- <u>12</u> (3) , 図- <u>12</u> (4) 図- <u>12</u> (5) , 図- <u>12</u> (6)	図- <u>13</u> (1) , 図- <u>13</u> (2) 図- <u>13</u> (3) , 図- <u>13</u> (4) 図- <u>13</u> (5) , 図- <u>13</u> (6)
52, 左・上から23行目	A. P. Altsh <u>e</u> ler	A. P. Altsh <u>u</u> ller
52, 右・上から19行目	Washinton	Washington
72, 表-14	注-1: <u>u</u> = 3	注-1: <u>n</u> = 3
87, 図-3	処理水層	処理水槽
89, 英文タイトル	Coa <u>o</u> tal	Coa <u>s</u> tal
// 右・下から5行目	質酸素水塊	質酸素水塊
91, 左・下から12行目	量上層水	最上層水
101, 左・下から20行目	<u>clevei</u>	<u>clevei</u>
131,	図- <u>1</u> ケイ藻・花粉・孢子	図- <u>7</u> ケイ藻・花粉・孢子
134, 左・上から5行目	1 プレバ <u>ラ</u> ート	1 プレバ <u>ラ</u> ート
135, 左・下から9行目	載石層	軽石層
135, 左・下から1行目	載石層	軽石層

## ▷ 編集後記 ◁

当研究所も、1976年発足以来、3年目を迎え、「創刊号」「第2号」にひきつづき、ここに所報第3号をとりまとめました。

本号は、内容的には前号と同じ性格をもち、構成も「業務報告編」と「調査研究編」とから成っています。次号以降は、年間業務報告の年度区切りや、所報作成時期の便宜を考え、秋頃発行を目指しています。

本号は、その“つなぎ”号的性格をおびてしまい、不十分な点も多いと思いますが、皆様のキタンのないご批判をいただきたいと思えます。

1978年の年の瀬もおし迫り、身辺が急にあわただしくなった昨今、来たるべき新たな年に充実を求めつつ。

所報第3号編集委員会

身二つとなり、なれない子育てにおわれている間に、やがて春。ほぼ予定どおり本号ができると聞き、今さらながら時間の経過を感じます。

子供と角突き合わせひとりだけ、別時限の世界の中を這いまわっているような思いにとらわれている毎日。でも、生みの苦しみではないけれど、何か、新たなものを生み出すということの過程は、労多けれど、活力が湧いてきて、一歩前へふみ出すという気がします。いずれにしても、これをもどくようにはぐくみ育てていくかが課題です。(M. I.)

いそがしさの中で原稿を書き、またいそがしさの中で校正をし、またまたいそがしさの中で他の原稿を書き、またまたまたいそがしさの中を流れてゆく。(S. F.)

今回の編集委員は、皆、こわいオジサン・オネエサンでした(ひかえ目な私を除いて)。コーガイサキニタズ。願わくば、一粒の麦たらむことを！(H. T.)

出来あがった印刷物は、いつも大変立派に見える。だが、その中味について批判にさらされる機会が少なくなり、民衆の手にふれにくくなってはいないだろうか。(M. K.)