

公害研資料

No. 3 0

横浜市公害研究所報

第 6 号

1981年12月

横浜市公害研究所

は し が き

典型7公害のうちでも顕在化した公害現象は、安定化の傾向を示しているとはいえ、潜在的現象についての究明は緒についたばかりであり、問題は未だ山積している。今後は従来からの公害対策にかわり、総合的かつ長期的視点から、安全で快適な環境の創造のために、先取的环境行政施策の強化が重視されることになるであろう。

とりわけ、本市においては、生活の向上に伴う生活様式の変化とニーズの多様化、都市機能の複雑化と高度化等々による都市型公害が顕著になってきている。この問題は都市における生活環境と自然環境との調和を、市民と行政が一体になって模索する中で解答を見出すべきものと考えている。

そこで本所報には、開所5週ンを機に、特別企画として座談会を実施し、これまでの研究所の足跡をたどると共に、さらに今後の在り方を模索したものを収録した。

また掲載論文等は、所員の日常の努力を、研究成果あるいは中間報告としてまとめたものであり、いずれも環境行政推進の礎になるものと信じている。

関係各位ならびに市民の方々のご批判とご叱正を賜われれば幸いである。

1981年12月

横浜市公害研究所長

菅野明男

目 次

I 特別企画座談会

公害研究所のあゆみと課題 …… 1

II 業務報告編

大気部門 …… 19
水質部門 …… 19
公害セミナー …… 20

III 調査研究編

大気部門

- NO_x, NO₂ 同時測定用個人サンプラーの開発 …… 23
- 生活環境のNO_x, NO₂ と個人暴露量との関係 …… 35
- 固定発生源から排出されるばいじんの粒度分布 第3報—ボイラーからのばいじんの金属成分— …… 45
- 中型燃焼実験炉を用いたばいじんの生成過程に関する研究 …… 51
- 集じん機の集じん特性に関する研究 …… 59
- 横浜市内における大気中の浮遊粒子状物質および重金属の濃度(第2報) …… 65
- 自動車排出ガスによる道路周辺での大気汚染に関する研究(第5報)—道路周辺地域における浮遊ふんじん及びその含有成分— …… 75
- 自動車排出ガスによる道路周辺での大気汚染に関する研究(第6報)—道路近傍における窒素酸化物濃度と逆転層の影響(II) …… 87

- 相模湾岸域における大気汚染物質の輸送および変質過程(第3次海上調査) …… 99

騒音振動部門

- 高架道路及び道路橋から発生する低周波空気振動について …… 113

水質部門

- コイ(*Cyprinus Carpio*)の幼魚における血液性状の研究—血漿蛋白量とセルロースアセテート電気泳動法による血漿蛋白分画の基礎的研究— …… 125
- 擦染排水の鯉を用いた急性毒性試験 …… 135
- *Nitzschia palea*(付着性ケイ藻)を用いたAGP測定法の検討 …… 147
- 排水処理汚泥の資源化に関する基礎研究 163
- 原子吸光度法によるひ素の定量(第2報) …… 169
- 水質及び底質中のニトリロトリ酢酸のGC—MSによる分析法について …… 175

地盤沈下部門

- 新横浜駅周辺の地盤沈下について …… 183

IV 資料編

1. 人員及び組織 …… 201
2. 主要機器一覧表 …… 201
3. 予 算 …… 203
4. 学会等研究発表 …… 203
5. 雑誌等投稿 …… 206
6. 横浜市公害研究所発行資料目録 …… 210

特別企画座談会

公害研究所のあゆみと課題

☒日 時：昭和56年10月19日 午後

☒場 所：公害研究所 会議室



【座談会出席者】

- ・木原啓吉（千葉大学教授）
- ・村橋克彦（横浜市立大学経済研究所助教授）
- ・真柄泰基（国立公衆衛生院衛生工学部施設設計画室長）
- ・千賀義二（建築家、横浜市下水道事業研究会委員）

公害研究所

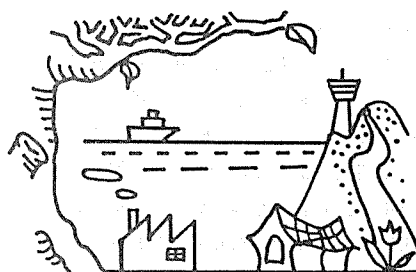
- ・菅野明男（研究所長）
- ・米山悦夫（参事）
- ・野木一男（水質部門）
- ・鈴木正雄（大気部門）
- ・森清和（社会科学部門）

公害対策局

- ・鈴木祥（指導課長）

司 会

- ・佐俣満夫（大気部門）



「公害研究所のあゆみと課題」

1 公害研究所五ヶ年の経過を ふり返って

司会：「本日は、御多忙中のところどうもごろうさまです。私共の公害研究所も今年でようやく5年目を迎えて、所報も今回で第6号にあたるわけです。そこで、この満5年を記念いたしまして、特別企画の座談会を開くことになりました。

昭和51年に横浜市公害研究所が開所された当時からみますと、最近の内外の情勢は大大変わってきていると思います。一方では、環境行政の後退ということがいわれており、又他方では住民の意識自体がいろいろな形で変革されてきている。そうした中で今、「公害から環境へ」ということが言われ、横浜市でも環境管理計画の策定の動きだとか、いろいろと今後の対応策を考えてきているわけです。そうした状況の中で、横浜市公害研究所の役割は、どうあるべきか、あるいは現状の中でいろいろな問題点について皆さんの御提言を受けながら論議をしていきたいと思ひます。

それでは、まずこれまでの経過を少し辿りながら話を進めていきたいと思ひます。

横浜市公害研究所の設立の論議が、昭和48年に公害対策審議会の中で正式に出されて以来、いろいろな検討段階を経て、昭和51年4月に開所されたわけです。スタートの時点からみますと、全国的な自治体の公害センターや公害研究所より少し遅れて開設されたわけです。私共としては、設立構想の中味を深めるということで、例えば、研究施設の充実あるいは社会科学部門のような新たな分野の設置だとか「民主・自主・公開」の原則とか、とにかく、ユニークな公害研究所作りを目指してきたわけです。所報の創刊号でも、こうした座談会を実施しましたが、そこで、その当時のことなど振り返って、鈴木祥さんからお話を伺いたいと思ひます。

〔「ヨコハマ方式」の中で生れたユニーク性〕

鈴木(祥)：私は、昭和50年6月に公害研究所開設準備担当副主幹という、やたらと長い名前をもらいまして仕事をさせていただきました。この公害研究所をつくるに当って、そのきっかけを振り返ってみますと昭和39年に初めて横浜市にもようやく公害に関する組織ができあがり、4月に公害係、12月には公害センターが発足しました。その時期は、ちょうど根岸湾埋立地に火力発電所などが建設され、そこからの公害の発生を恐れる磯子地区等の住民運動の動き等を背景として、横浜市としてもなんらかのかたちで公害対策の手を打たなければならない状況があったわけです。そこで当時公害対策の基本的な考え方を求めて、学識経験者の方々の御意見を伺っています。そうした御意見を参考にしながら公害防止協定といった横浜市独自の施策を進めてきましたが、その中の一項目に公害の基礎的あるいは応用的研究を充実するために、公害研究所を設置すべしという事がありました。しかしながら公害研究所の設置は大分遅れております。その理由としては、とにかく現在ふりかかっている公害問題を除去することが先決で、そのための監視体制を強化する(現在大気汚染の監視システムが22ヶ所ございますが)そうしたシステムの整備を優先させる必要があったこと、その代りといっは何ですが衛生研究所に試験、検査体制を充実することで、対応してきた経緯があります。しかし昭和45年頃から光化学スモッグによる被害発生等が起り、公害に関する科学的調査研究の必要性がたかまってきた。これが昭和49年1月の公害対策審議会の建議となって現れたということが出来ます。

この建議の内容は、常に新しい局面に立たされる公害問題について事前に究明されなければならない。



更には産業活動を含めた全ての市民生活から生ずるあらゆる環境汚染、自然破壊の問題を地球的レベルの資源とエネルギーの有効利用の観点から長期的、総合的に検討する必要があると唱えられております。又研究内容につきましても、自然科学のみならず社会科学等をも包含した調査研究を総合的に体系立てて実施されなければならないという様な主旨だったと思います。

そこで公害研究所の建設が昭和49年度から開始されましたが、私の仕事としては、この建議をうけて研究所の体制や運営方法をどうするかという公害研究所のソフトづくりが主なものでした。又公害研究所をつくるのならユニークなものにしろという注文も出まして、私共も非常に苦勞いたしました。

そこで私共が考えましたのは、第1点目として、当り前のことかも知れませんが、行政と一体となった公害研究所づくりであります。調査研究、分析試験という業務が公害行政に常に結びついていること、そして行政と研究所で調和のとれた分担を行うことを考えました。特に従来からのイメージとして分析、検査的公害研ではなく、なるべく調査研究にウエイトをおきたいと考えたわけです。この考えに基づいて、例えば大気部門では浮遊粉じんの総量規制を前提とした基礎的な調査研究が行われており、又水質部門では工場排水で魚を飼育して排水管理を行う手法や、これにより飼育した魚の判定方法等について研究を進めていることはその例です。つまり公害行政のための調査研究を行政側と分担しながら進めること、これが特色といえること言えることです。

それから組織面で考えたことは、なるべく堅い組織ではなく柔かい組織にして見ようということで、必要に応じてプロジェクト方式を採用して対処していくことにしました。

次に公害研究所の機能という点で、何か特色を持たせられないかということで、市役所内部の研究機関一衛生研究所、緑化センター、廃棄物資源開発室、及び下水道局水質管理課がありますがこれらの機関を統合する機能を果せないかも検討いたしました。つまり、将来的には環境面での総合研究所に発展させることができなだろうかということです。現実にはそれぞれの試験研究機関が、それぞれの設立目的をもって設置されているので、当初からこのような機能を果すことはできませんでしたが、現在ではこれらの機関の方々に集っていただき、関連する研究内容の調整や情報交換を行い、互いに連携を深めております。少し長くなりましたが、設立の際の経過を説明させていただきますし

た。

司会：いろいろな苦勞を経て今日の公害研ができたというお話ですが、そこで5年経った現在、それらの経過を含めて所長から発言していただきたいと思ひます。

菅野：私は昭和53年にここに就任いたしましたので、主にその時期以降の事を中心にお話し申し上げます。今、鈴木さんのいろいろな御説明の中で、公害研究所の理念なり経過につき詳しくふれていただきましたが、やはり横浜市のような大都市における公害研究所はどうあるべきか、又どのよな方向性を持たせるべきかということは、なかなか難しい課題だと思ひます。横浜のような大都市における人間活動に伴って生ずる



いろいろな汚染、汚濁現象は今や巨大都市に生活する我々にとっていわば宿命ともいえるもので、その点では設立当時も今も

大差ない状況だろうと思ひます。そこに公害研究所の果たす役割の重大さがあるわけですが、研究成果をどう具体的に行政に生かしていくか、いろいろ努力してきているわけです。研究とか調査というものは2~3年ではなかなか成果が得にくいという難しさがありますが、5年経ちまして、ようやく発足当時の高邁な理想に燃えた研究者の報告が次々とまとまってきており、その成果について私共としても又行政も大いに期待をかけているわけです。私が前にいた所は、大正時代からの古い組織でしたが、ここは新しくユニークなシステムであり、また職員

の年齢層も若い人が多いということで今後大いに期待をしております。

司会：先程のお話の中でふれられた大気

の粉じんの総量規制のための基礎研究、水質の魚毒試験あるいは生物指標という形でのユニークな研究を実施してきているわけですが、設立に当って公害対策局の中でいろいろ議論がなされて今日に至っているわけでは職員サイドということで森さんから御意見を伺いたいと思ひます。

森：鈴木祥さんから最初設立の経過を述べられましたがそれを補足するような形になるかも知れませんが、私なりの意見を述べさせていただきます。設立経過で忘れてはならないのは、今、鈴木さんの方で行政と一体となった研究とか、あるいは組織面での柔軟な組織作りとか、将来的構想等について、いろいろ述べられましたが、それをどこで論議してきたか

といいますと、単に外部あるいは審議会の建議とかということだけではなく、一番重要なのは、公害対策局と組合が協力し合いながら、あるいは方針上でのことで交渉を行いながら、局内部で一体となって論議を積み上げ、どのような研究所をつくっていくかということ而努力してきたことなのです。残念ながら鈴木さんの方で言われたように最終的にどのような形にするか、どういう運営方式にするのかという事ではっきりきまったものが見つからず、それぞれいろいろな問題、課題をかかえながら発足せざるを得なかったということがありました。しかし、その経過の中で公害対策局の職員全員が参加して論議してきたことは本当に重要な事だったと思います。その後の研究所の5年間の歩みを振り返れば、いろいろな反省すべき点も多いと思いますが、現在でも様々な調査研究を行っている体制があることは、その辺の経過があったからだと思っております。

司会：ありがとうございます。今の森さんの発言は所報第1号でも唱われているように、その設立主旨や「民主・自主・公開」の原則を常に堅持していくための姿勢を自己認識していかなければならないという指摘だったと思います。

2 公害研究所の現状と課題

○ 今、公害研究所に問われているもの ○

司会：次に現状の中で私共公害研究所に問われているものということで、環境行政の激しい情勢の中での公害行政とその研究機関のあり方という点で論議を深めていきたいと思えます。

〔行政の中での研究所の役割〕

司会：横浜市の中においても研究所と名が付いているのは衛生研究所と公害研究所の二つしかないということで、そういう意味でも市全体の中でやはりユニークな行政機関となっています。ではそうした中でその研究機関の役割と特徴、又その必要性について論議していきたいと思えます。所長いかがでしょうか。

菅野：大変難しい問題ですが、先程の環境科学研究所の構想は、当時から既に出ておりまして、現在でもその役割は変わっていないのではないのでしょうか。そして環境問題に対処していくために必要な部門が整備されていないのでそれを重視し、不足している分野についても、広く知識や情報を確保するために、専門家の意見や他の自治体の関係機関や庁内の試験研究機関の動向なども把握しながら研究を進め

ていくことがまず基本だと思います。

司会：今、所長の方から他の試験研究機関との連携の必要性についてお話がありましたが、そこで大学で研究に従事しておられる立場から、又「横浜方式」なり公害研究所の設立経過の中で横浜の公害史を研究していらっしゃる村橋さんから御意見を伺いたいと思えます。

〔「横浜方式」、公害研究所を作った背景に住民の力が〕

村橋：それでは私が横浜方式にかかわる研究チームで横浜市や神奈川県の問題を勉強してきた感想から述べさせていただきます。資料を読めば読むほど各自治体の公害行政が、それぞれ苦しみながらやってきたということを非常に強く感じました。といえますのは、戦後京浜地帯では、早くも昭和25年頃から鶴見、川崎で公害問題が起っています。ところが国の段階では未だ施策や法律が何もなく、自治体としては中央行政の不在のまま、対応策自体をとにかく独自に開拓していかなければならなかったその時の苦勞は我々の想像以上のものと思えます。昭和26年に神奈川県の実業場公害防止条例が出来たときも、すぐさま県の工業試験場や衛生研究所などで調査や対策を研究させたわけです。それに基づいて防止対策を行政の方で誘導していった。当時の研究機関の対応は、今からみれば不十分だったとは思いますが、それ自体は画期的だったと思えます。それを支えたものは横浜や川崎の住民の声だったわけで、住民側の強い要望が市会や県会に反映されて、条例や審議会ができたという気がします。昭和37年に国の方で煤煙規制法が施行されますが、神奈川県でもそれに対応する新条例が昭和39年にでき、横浜ではさきほど言われた横浜方式が出てくる。このときも磯子区や中区の住民側の反対運動や医師会の活発な調査活動が背景にあって市が企業や国に対して行動を開始する。残念ながら国の対応では既に遅すぎるということで、自治体の方で横浜独自の先取り行政を進めてきた。公害研究所の設立が建議されたのもそうした背景があったものと思えます。

司会：はい、わかりました。では次に環境庁に記者としてしばらくおられた木原さんいかがでしょうか。

木原：私は、環境庁発足以来、今年の4月まで朝日新聞の編集委員として環境行政を取材してきましたがこれまでを振り返って感じることは地域の住民がまず問題を提起して、それに応ずる形で自治体が動き

出し、それが全国的に波及して最後に国が重い腰をあげるといったパターンは、公害行政あるいは環境行政のほとんどにいえることです。

その中で地域の公害研究所の果たした役割はかなり大きかったと思います。例えば、自動車排ガスの窒素酸化物の規制に大きな影響力をもった東京都や横浜市を含めての七大都市の自動車排ガスの研究成果は、各都市の公害部局が中心になってまとめたのですが、その中で公害研究所の果たした役割も大きい。そうでなければ国はあれ程強く自動車企業に対して排ガス規制を迫ることはできなかったのではないかと思います。また、四日市の大気汚染に対しても、地元公害研究機関と三重大学の調査研究があり、水俣病については地元の熊本大学の医学部の原因追求の努力がありました。そうした地域に根ざした研究がなければ、日本の公害行政は今日まで動かなかったのではないかと思います。そこで例えば熊本大学の医学部が水俣病と取り組んで有機水銀中毒という原因を究明したり、又各地の自治体でその地域の大気汚染の研究をするわけですが、それはローカルな限られた地域の研究を対象にしているのですが、しかし実は、そういう具体的な地域の公害現象を研究することによって、そのことが普遍的な公害の研究になっていくわけです。例えば水俣病の研究のように世界的なレベルの研究に達するわけです。ですからそういう研究機関で働いている方達は自信と誇りを持ってやってこられたものと私は見ております。これに対して国の方でも対応に迫られ、昭和49年に国立公害研究所が筑波研究学園都市に発足しました。けれどもここはよく行政と官庁的でない大学みたいに専門的な研究機関であるとの批判も聞かれるのですが、最近では霞ヶ浦の水質汚濁の継続的な調査をやっているなど、その結果が今、国で作ろうとしている湖沼水質保全法制定のための有力な資料を提供しているわけです。

司会：今、木原さんから地方のローカルな研究を進めていくことが普遍性を持った公害研究につながるのだというお話が出されたのですが、国の研究機関での立場ということで、その辺のことを少し掘り下げたいと思いますが、真柄さんいかがでしょうか。

真柄：非常に難しい問題だと思います。国の研究機関の場合、そこでの仕事が直ちに法律とか行政指導



に結びつく、そういうような研究体制にはなっていないと思います。で私達に課せられている仕事は恐らく国公研の人も同じだろうと思いますが後10年先に役立つような仕事をしろと、10年先に役立つような研究テーマが見つからなければお前はその研究所に居る資格はないと、恐らくいわれているのだろうと自分自身は認識しています。

そこでそういう問題と横浜市の公害研がしなければならない問題、それから木原先生がおっしゃった地域性の問題とを一緒に考えてみますと私も横浜市の市民ですが横浜市に



住んでいる人間にとって横浜市という環境は恐らくその市の領域の中だけではないという認識が大事じゃないかと思います。横浜市には横浜市という都市が生きて行くために水が必要ですし、エネルギーが必要です。また我々人間が生命を維持するためには食料も必要です。そういういろいろなものが横浜市に流れ込んで来ている。それが横浜市だろうし、それ全体を把握するのが横浜市の行政の仕事であろうと思います。もっと判り易くいえば、例えば水のことをお話ししますと、横浜市の市民が飲んでいる水の何割が横浜市の中で得られたか、で横浜市民が住んでいくために恐らく道志川だとか、相模川の上流の環境を利用してきた。そういう環境を考えて公害研が今まで仕事をしてきたかどうか、あるいはこれから行う考えがあるのだろうか。それを一つ考えていただきたい。そこで公害とか環境とかというものが、やはり都市計画の中の上位にあるべきだという考え方のもとで公害対策局にいらっしゃる方、また研究所で研究されている方は絶えずその事を考えてお仕事をしてもらいたいと思います。

〔研究所の自主性と行政での役割〕

司会：真柄さんから直ちに行政に結びつかないが長い目でみた研究の必要性、また横浜市環境は市域内だけではないということが出されたわけですが、では我々研究機関の成果がいかん行政に反映されなければならないのか、研究機関の自主性、あるいは役割とその特徴点ということで御論議いただきたいと思ひます。

鈴木(祥)：真柄さんのおっしゃられた長期的な研究や横浜以外を含めた広域的調査、これ非常に研究所のあり方の基本的な問題につながっていると思うの

です。行政と研究所の間のあるべきところについては先程お話しましたが我々行政サイドで研究所をみました時に日常どうしても仕事に追われているわけです。例えば最近東京湾ではまたPCB汚染が問題になっているのですが行政上緊急あるいは突発的に問題が生じることがしばしばあります。そういった時にそこで必要となった調査について、これを例えば研究所の方へお願いする時にすぐ受入れていただけるような体制であれば一番良いわけです。ところが研究所は研究所のスケジュールでお仕事なさっておりますし、そういった処でまあぎくしゃくしたところが出て来るのが事実だろうと思うのです。

また公害研究所から例えば何かの提案があったとしても我々の目から見れば非常に理想論に近い御提案もあります。ですから研究所ベースでいろいろ御研究いただいて来たことを研究所の方が実際に行政に持ち帰って自分なりに適用してみるやってみるという考え方も今後必要になって来るのではないでしょう。冒頭に申し上げましたように、公害に関する研究と行政と一体であるべきだといいいながらも、必ずしもうまくいっていいそうもないし、あるいは表面的にはうまくいっているのかも知れませんが、問題が内在している。そういった問題を解決すれば何か充実したものが出来るとはならないかという気もしてくるわけです。

司会：お話しのように研究所の成果を行政に反映するためには大きな問題点があるわけです。それを住民サイドからみてということで、緑区で住民運動等をやられている千賀さんお願いします。

千賀：私は地方自治体が持っている公害研はもう少し住民サイドに立つべきだと思います。専門知識のない住民と、国の高度な研究をしている者との中間にあるのですから高度の技術とか知識をもっと市民に判り易く知らせる面がなければいけないという気がします。私のように建築設計をやっていますと建築の知識のない人に家を作ってあげるわけです。家をもとめている普通の人と大学等の非常に高度な研究をした建築知識や国がそれをみながら決めていった法律との中間にあって、それらの知識を市民のためにかみ砕いて一軒一軒の家を作っているわけです。この公害研もそうした町の建築家がやっている仕事に似た面があっていいんじゃないかと思います。

真柄：千賀さんのお話に関係するのですが横浜市の下水道の普及率は今、恐らく、43%位ですか。そうすると6割位の人が汲取り便所か浄化槽かということです。これらはとにかく尿尿処理場で衛生的に処理しますが、台所や風呂の水のような家庭雑排水はそっくり川に流れましてそういう水をなんとかしなければいけないということでもかなり問題になっているわけです。都道府県の職員で衛生院に研修に来ているものにその問題を話すと、彼等は良く勉強してましてこれは行政の怠慢だというんですが、彼等も行政の人間なんですね。君達問題に思っているなら一年間のうちに何回市民からその問題について質問受けたのかと聞くと、ほとんど受けてないのです。そういうことを知っている人は川の汚れの原因は家庭排水だとわかっている。だけど市民にそれを伝えようとしない。それが今の千賀さんのお話しと全く同じことだと思います。ただそれが公害研の技術者のすべき仕事なのかどうか。つまり公害対策局にも法律事務屋さんだけでなく、工学的なあるいは科学的な知識を持った技術屋さんがある。そういう人がする仕事と公害研のする仕事と、やはり区別して考えておく必要があると思います。

森：真柄さんが言われたこともわかるのですが、現実の問題として10年先を見てやるのがなかなか出来ないし、現状の公害や環境破壊をみるとそんなにのんびりとやれないという気がします。それと鈴木祥さんからも出ましたけれども行政と研究ははっきり区別出来るのか、その辺恐らく区別するのも一つの方法だし、区別せずにある程度ダブらしてやるのもいいのではないかと思います。その前に公害研の性格付けですが、これは公害対策局の中でも全員ある程度一致していると思いますが、地域に根ざした研究所でなければならない。それをどういう形でもって行くかが一つの大きな論議になっていると思うわけです。行政と一体という問題と市民との関係があるんですがその辺に本来矛盾があってはならないと思います。しかし現実には行政と市民の対立があったりしてその間に研究機関があるという関係で、なかなかうまくいかない。そういう処に問題が出てきているのだらうと思います。それから研究所にはやはり自主性と、主体性とかそういうものもなければいけないと思



ますし、又それが保証されなければいけないだろうと思うわけです。ただ独立に研究所が存在するのではなく、あくまで地方の研究所として、その地域で抱えた問題にどのように対応して研究テーマを選んで行くかが大事だと思います。行政なり市民のニーズをよく見ながら、地域に密着したテーマを協議しながら決めて行く必要があると思います。ただどういう研究方法を採るか、どういふ調査をするかについては研究者の自主性に任されていると思います。その場合、研究成果をあげて後は行政でやって下さいじゃすまない。とって今の状況じゃその成果を公害対策局に持って行ってやるということもなかなかできないわけです。でもその成果を行政や市民に返して行く、そういった行政的なことも同時にやって行く必要があると思います。

〔難しいことは知らない 住民にわかる情報を〕

木原：今の問題ですが例えばどういふ研究対象を選ぶかという点でいいますと、東京都の公害研究所が先だって東京都の野良犬の肺を調べることによって大気汚染の状況を調査した例があります。あれなどは非常に良い着眼点だと思いました。身近な感じだし、ああいうのはやはりその地域の研究所でなければ出来ないのではないかと思います。非常に実践的なのです。

例えば横浜市公害研の所報第5号を見ても水道のトリハロメタンの調査結果が出ていますが、これなどは市民生活にとって非常に身近な問題です。戸塚駅周辺の地盤沈下調査は戸塚駅周辺の市民にとっては身近な問題です。それから自動車の沿道の大気汚染の調査もあります。身近な問題の調査に力を入れておられると思います。ところでそういう調査結果を所報に載せることも非常に重要で、これをまた誰かが目にするわけですけども、やはり市民の税金で研究もやっておられるわけですから、さっき千賀さんがおっしゃった通りに市民にそれを還元しなければいけないと思います。今、市民を対象にしたカルチャーセンターが各地で盛んですけれども、そういうものをこの研究所が主催してやる。しかもあまり難しい調査結果を右から左へしゃべるのではなくて、それを報告者が頭の中で一度消化した上で話してもらおう。つまり専門家が一般の人々にわかってもらうように砕いてしかもレベルを落さずに話しをされるのが大事なことだと思います。これは研究者としてはかえって緊張を要求される仕事だと思うのです。

所報に載っただけでは困るわけでそれを市民に還元するという試みを今やってる公害セミナーも含めて、もっとどんどんすべきでしょう。そうすることによって市民と公害研の距離がだんだん近くなってきて、こんどは市民の方で日頃心配な問題などを公害研へ持ってくるようになる。そういう中で研究者もこんな問題があるのかと発見することもあるのではないのでしょうか。

村橋：今のお話しに付け加えますと、公害セミナーをやった場合、公害研は「行政」であるというのが市民の感覚ではないかと思えます。3年ほど前に、私達は横浜市の委託で横浜市環境政策研究会をつくり、公害研を中心に自動車問題の研究をやりました。その成果もなるべく市民に還元すべきだと考えて、私共の研究会の主催という形で「自動車問題と横浜」というシンポジウムを開きました。私達の報告は行政にも市民にも提言したのですが、市民は研究会を「行政」として捉え、施策の実行を要望してきました。だから公害研でやるセミナーなどではこの市民の感覚はもっと強いはずで、公害研が行政の研究所であるということと、市民の研究所であるということとの関連をどうつけるか。公害対策局内部の関係だけでなく、研究所として市民との関係を本来的にはどう位置づけるのか、これから考えなければならぬ点ではないのでしょうか。

司会：公害行政もこの5年間にきびしい情勢にあるわけですが、公害行政とその研究機関について今度はグローバルな意味で、国のレベルでどうなっているのかを少し木原さんをお願いします。

〔公害から環境へ〕

木原：国公研でも霞ヶ浦の環境調査をやっていることはさきほど申しましたが、その調査にあたってきた研究者達が、霞ヶ浦の汚濁問題に取り組んでいる土浦市にある「土浦の自然を守る会」という住民運動の人々に招かれて、専門的なことをわかりやすくその人々に話し、問題の所在を正しく理解させることにつとめているのです。琵琶湖の汚濁についても住民運動がありましたが霞ヶ浦でも運動がかなり前から動き出して行政とも協力しているのです。国公研でもそういう動きがあるということを先ず確認した上で話しを進めたいと思います。

公害行政がオイルショックを受けて以来、かなり厳しい立場に立たされているのは事実です。しかしそういう環境庁にとって最も大切な時に、環境庁は

住民運動と、かつて発足の頃のような協力態勢にな
いわけです。それが結局、その後、環境行政が後退
し、孤立する原因になっているのです。私は環境行
政問題では行政と住民との関係はある時は激しく対
立するけれども、長い目で見たら共に助けあっている
存在だと思うのです。だから発足後の10年の小
さな環境庁が、通産省とか建設省とかの巨大なしか
も長い歴史を持つ「100年官庁」と四つ相撲を取
って、窒素酸化物の環境基準や総量規制、自動車排
ガス規制、あるいは湖沼法、環境アセスメントの法
制化などを進めようという以上は、住民の後盾とい
いますか支援があってはじめて力を発揮できるんじ
ゃないかと思うのです。ですから、国も自治体の環
境行政も現在、厳しい立場にいるのですから、ここ
でもう一度住民が環境行政の原点だという初心に立
ちかえて考える必要があると思います。

一方で70年代の後半から公害対策を更に拡充し
て快適な環境の創造を目指すという問題が要求され
てきたわけです。これもやはり住民の環境観が公害
から自然保護へ、さらに歴史的環境、文化的環境へ
と広がってきたことの反映だろうと思います。です
からこれからは環境を幅広く捉えて、それにどう対
応するかということが研究機関にとっても要求され
はじめたと思います。まだ環境庁は公害対策と自然
保護対策を行政の中心に据えています、それだけ
では現実の要求に対応できなくなってきたわけ
です。快適な環境をいかに創造するかというシンポ
ジウム等もやられているわけですけど、横浜市の公
害研もそんな気持ちがあるのでしょうか。

菅野：市民に還元するためにはやはり住むべき安全な
環境をいかに保全し創造するか、それが基本だと思
います。また都市における自然環境をいかに保全す
るか、これも重要なことだと思います。そのために
は先ず私共が信頼性のある科学的データを作る。こ
れが一番先ではないでしょうか。例えば、横浜とい
うか日本のように緯度がそんなに高くない地域では
自然の復元力が非常に強いわけです。緯度の高い北
欧とかロンドンのデータを日本へ持ってきても使え
ないわけです。やはり日本の特質に合った環境を創
造するためにも、我々としては科学的データで証明
しながら地域に合った公害行政をバックアップして
行く必要があると思います。

司会：次に我々は都市の中での環境問題これをどう扱
っていくのかという話題に移りたいと思います。横
浜というきわめて巨大になった都市の中での自然的、

産業的、社会的、あるいは都市工学的な特質に基づ
くその地域での調査研究とはどのようなものなのか。
米山さんどうでしょうか。

米山：今までを振り返ってみますと、横浜市に公害研
究所ができてから研究が始まったわけではなくて、
ずうと昔からの流れで行政と公害あるいは環境研究
が一体で進んできています。また、先程、木原さん
がおしゃったとおり、やってきたこと自体が地域独
自の問題から端を発して進め
られてきたというふうに考え
ているわけです。

根岸湾埋立の問題につい
てもこれは強い住民感情があっ
たわけです。あるいは、中区
本牧の問題、鶴見地区の大気汚染の問題についても
洗濯物が赤くなったり、穴があくのをなんとかして
くれという住民の声がありそれから研究が始まった
わけです。

横浜だけでなく日本全国をとってみても公害環境
問題に関しては国よりも、むしろ地方から地方独自
の問題からはじまっています。

それで公害訴訟にしてもなんにしてもすべて公害
の名所というのがあったわけで、四日市に然り、富
山、熊本にしても地方から起った問題を発端にして
研究が進み、それから国の段階にいろいろと移され
てきています。自動車排ガスについても同じだと思
います。そこで横浜市の公害研究を考えてみますと
研究所ですから行政検体の調査もやっているわけ
です、まず信頼性のあるデータを得るということ
が大事だと思います。その上に立って地域に根ざし
た問題を掘り下げていけばかならず他にも応用でき
るような立派な結果が生れると思います。

〔国、他の自治体、大学等との交流〕

司会：地方自治体の中の公害研究所ということで、国
立の研究機関あるいは大学、他の自治体の研究機関、
学会などとのつながりというのが当然重要な問題と
なってくるわけです。

そこで、他機関との共同調査・研究での技術的あ
るいは人的面での交流等をどうやっていくのかとい
うことで真柄さんいかがですか。

真柄：非常に難しい問題と思っています。環境あるい
は公害というのは国際的な問題で、実はこの研究所
の中でもいろいろな領域の人が集まって環境だとか
公害の調査・研究を行っている。おそらく行政もそ



うだろうと思います。

公害・環境問題の研究発表に関してですが、例えば土木学会で発表しても、自分の研究していることを知ってほしい人が全部そろっているわけではないし、あるいはこの職員の方が、たとえば化学を出られた方が化学の学会で恐らく発表されてもその化学の学会での評価は低いのではないのでしょうか。そうした意味でその環境のことを研究している人達が一緒になって研究成果を発表するような場を作る。それがいいかえると情報交換だとか、技術のレベルアップにつながるだろうと思います。それが今、大気であれば大気汚染学会あるいは水質であれば水質汚濁研究会がありますけれども、それらをうまく利用していろいろな自治体の人達と研究テーマをディスカッションし合うということになるだろうと思います。

そして国立公害研では諏訪湖や琵琶湖の調査を通じて地方の人達と交流ができてきているとのことでした。

特に、私達研究的な仕事をしているものの立場からすれば、公害研の職員の人たちは研究あるいは調査の成果を発表する場があるんですが、その人達にできるだけ参加できるような便宜を公害対策局はもう少し考えていただきたいと思います。

何うところによると研究成果の発表を1人1年に1回出るのが精いっぱいだというお話ですが、それではいかにも少いと思います。

〔学者の一本釣にはもう限界が ……〕

村橋：大学の研究はいわゆる「象牙の塔」というイメージが強くあって批判を浴びてきたのですが、昭和52年頃ですか、都立大学でこの問題を考えるために教職員組合が主催して、「都民と東京都立大学」というシンポジウムを開いたことがあります。教員側の積極的な発言も数多くあったのですが、報告を読んで私が印象に残った言葉は「大学はアンテナが鈍っている」という住民側の声です。公害研の場合は行政の研究所ですからこの声が出るともっときびしくなる。現時点で早急に対処しなければならない問題が多く、同時に、



続々と出てくることの子想される新しい問題への着実な先取り研究をしなければならないわけです。公害研のイメージが、(1)行政の対応と関連させて研究

する。(2)市民の声を聞きながらやる、こうした立場にあるとすれば、大学や他の研究機関に公害研側から積極的に連携を求めてゆく必要があると思います。この公害研のメリットというのは行政がよく学者に適当な材料を出して委託しその成果を行政が得るといった単純なものではなく、職員が委託した学者と一緒にになって共同作業をし、さらにリードしてきた、これがひとつのメリットなわけですが。職員が先頭に立って学者を引っ張るんで学者もその意気込みでやらざるを得ない。しかし、今までのやり方は公害研のそれぞれのチームが研究者、学者を一本釣りして参加を求めてきた。大学の中で地域の問題に強い関心をもっている人を何とか探してきて釣り上げるわけですが、もうこの方法では限界にきている。公害研が自ら大学との交流を含めて体制的に研究のあり方を考え直す必要があると思います。研究所の研究や職員体制にもかかわることでしょうが……。

市民の声に接している研究所が大学などと交流をきちんとすれば、両者の学問や研究にとって必ずプラスになり、ひいては、目先だけを追っていたのでは得られない成果が、かならず市民に還元されるのであり、長期的視野の研究体制づくりが必要だと思えます。

司会：では研究所の内部で、特に水質部門でいろいろ外部の先生方とつながりがあるようですが、野木さんいかがでしょうか。

〔縦割り行政の中で研究目標がはっきりしない〕

野木：公害研究所のあり方としての基本的考えはどうしても住民サイドに立たねばならないという話は先程から何回も出ていますが、それは、まげることのできない現実です。我々は国と違って行政立入り等で市民に対する接し方というのは非常に現場的に接しているわけで、そういった意味での問題意識はあります。

そこで先程から出ているような住民サイドに立つとか、市民の立場で考えると、市民に還元する環境を作るとかということなんですが、ではそれをどう行うのかというと水質の場合、ないというか難しいわけです。例えば水俣病みたいに海があって魚を食べて、食べたらかおしくなる。その場合、研究所なんとかしてくれという問題になるわけですが、横浜の場合、大気汚染と違って水質では、そういった住民との触れ合いがなかなか少ない。

そこで、いま現実を先取りのような形でどうするかということになってきて、そうすると現実の行政は縦割りでそれは水道局、下水道局でということになる。

水質での住民サイドにたった今後の研究は何かとといったことが整理されないままになっていると思います。

そこで、一つ一つの水質の研究の中味をきちんと整理して行かないと、例えば環境管理計画とか話が出ると先走りのばあとしてかっこはいいんですけど、それでは具体的に何をやるかというところに欠ける。住民サイドに立つ水質の調査・研究とか行政に反映するものはなかなか具体化できず、今非常に苦労しているところです。

司会：大気部門としていままで行ってきた調査研究すなわち広域調査、臨海地区の調査などを含めて鈴木正雄さんお願いします。

〔環境調査では国より地方の方が進んでいるのでは〕

鈴木（正雄）：大気汚染の方での他の自治体とのつながりとして、神奈川県臨海地区大気汚染調査協議会という組織があります。この組織は、神奈川県、横浜市、川崎市、横須賀市の公害担当部局から構成されていて、発足したのは昭和39年頃ですからもう17年間も続いているわけです。大気汚染に関しては広域調査が必要ですから、自治体間の協力も当然重要となってくるわけです。このような協力が長い間続いていることで、この組織は全国的にもユニークなものだと思います。協議会は17年間も続いていますので調査研究の蓄積もかなりありまして、5年前の公害研究所の発足にあたっては、業務や技術の面で協議会から引きついだものがかなりあるわけです。もちろん、公害研究所の発足後は研究所の成果が協議会の方へ生かされています。



次に国立公害研究所との関係ですが、53年から54年にかけて、国公研と自治体の専門家が集まって、首都圏の光化学スモッグの実態調査を行ないました。当然横浜市の方からも参加したわけですが、その際、私共が感じたことは国公研の方が自治体との関係を上下の関係として見ているようだということです。確かに国公研の方は予算も多く、力量もあ

りますが、フィールドのデータやフィールド調査の経験は自治体の方が蓄積があるわけで、実際に協力して調査をする場合は対等だと考えます。やはり、互いに欠けている部分を補完しながら協力する必要があると思います。

千賀：先程水質の話がありましたが、私が鶴見川白書の編集をした時、公害対策局でいろいろと調べたデータをもらったりなんかしたのです。一応緑区民会議防災問題研究会の要求したものはできたのですが、私はもう少し具体的な細かいデータが欲しかったのです。

専門家が見ても充分納得できるデータをそこにのせたかったのですが、如何せん、基礎データが不足していました。

具体的に述べますと例えば、鶴見川に市は汚水を下水処理場から流している。「その処理水が本当にきれいなんでしょうか」という疑問が実際の市民の持っている感情です。

そこで、下水処理場へ行き「大雨の時にどうするのですか」と聞くと、過負荷になる場合もあるということでした。

その辺のところが公害研究所でなければできない水質の検査ではないかと思います。ずいぶん強く行政をつきあげたのですが、なかなか行政がのってくれない方が多いのです。

真柄：今千賀さんがおっしゃったことその通りだと思います。横浜市内の河川、横浜港あるいは東京湾について市の行政担当者はもう少しそれなりのデータを取られて市民に納得してもらうことが必要です。

恐らく日本の都市河川で一番汚れているのは、横浜市内の河川ですね？ ところが横浜市内の人間はそれを知らないのですよ。

この一番汚れた河川を持っている公害対策局あるいは公害研究所は、どんな仕事をして、市民にどう伝えるかといった問題だって非常に重要だと思います。

横浜のような大都市になってきますと、一人の人間が都市で生活するために、150㎡/人の土地が必要で、下水処理場から出る水は完全にきれいになりませんが、その水を川へ流すとすると川の水量が増す。その増水量に対し必要な土地の面積は500㎡ぐらいです。また、下水処理場で処理しますと汚泥がでてくる。浄水場でも汚泥がでできます。その汚泥を山に埋立処分するには、だいたい一人当たり、100㎡の土地がいります。年間ですよ。いいかえりますと、横浜市内の150㎡の土地は横浜市の外の水

源地のような上流部では、おそらく1,000m²の価値になると思います。それはいいかえれば横浜市が利用している土地なわけです。これが、横浜市環境だと思えます。そこで、市外上流部における水の問題、空気の問題をどう考えるのかといった内容も横浜市で同時に考えなければならぬと思えます。

これらは環境管理計画で将来是非、議論していただきたいと思えます。

∞ 横浜市民と公害研究所 ∞

司会：先程来、一方で大学での研究・他機関との調整あるいは学際的協同研究等をやっている片方で住民のニーズにきちんと答えていかなければならぬというお話があったわけですが、その中で行政と公害研究所の一体化は究極的には住民との一体化をはからなければならぬのではないかという論議だったわけですね。そういうことを踏まえて地域住民と地方自治体の研究所は、どうあるべきかというところを木原さんをお願いしたいのですが。

木原：私は先程の真柄さんのお話して国や県の公害研究所は10年先に起こる事をしっかり研究せよ、といわれたのを印象深く聞かせて頂きました。というのは、昭和39年に今の国立公衆衛生院の院長をなさっていた鈴木武夫先生にお会いしたとき「現在ではSO₂が問題だが、今のようなエネルギー消費が続くと将来はNOxが大変な問題になる」といわれた。その後わずか5年で光化学スモッグの問題が大騒ぎになりまして研究者の先見性はすごいなあと感心しました。

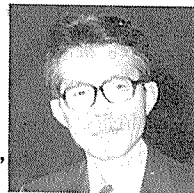
地域の公害研究所のあり方というのは、先見性と、もう一つは幅広く環境を捉えるという、この二つだと思います。これは、また日本の環境行政全体に決定的に欠けた点であり、イギリスなどの環境行政では、この二つの点で優れていると思うわけです。先見性と環境を幅広く捉えるという点では、私は住民の環境観はこの10年間に大いに進展したと思えます。公害から自然破壊、更に歴史的文化的環境というように幅広く捉えるようになってきた。しかしそれに対して中央の行政や地方の自治体の行政はいまだに縦割りの弊害があって環境問題というものをトータルに捉えにくい。しかし、だからといってその地域の公害研究所が、行政の縦割りに引きずられて行ったのでは、住民の幅広く捉えた環境観に基づくさまざまな要求に対して、応じられないわけです。私は公害研究所は行政の一機関ですが、行政の先導役として、そういう縦割りを壊して幅広く環境を研

究する機関になってもらいたいと思えます。横浜市の公害研究所が自然保護やアメニティの問題などについて、また環境管理計画について積極的に取り組んでおられる点は注目しています。

司会：学際的な立場から色々な御意見が出ていますが、中には住民サイドから見て、これはというようなことがあれば御意見をお願いします。

〔行政の壁の中で3年もかかった環境図表づくり〕

千賀：私は横浜市で住民を行政に参加させるという区民会議に長年関わってきて感じたことなんですが、行政と市民の間に接点が無いということです。それから研究機関や学者の研究して来た研究データが住民サイドに全く何も流れてこないのです。たまにマスコミや新聞でちょっと取り上げられると、それがちょっと流れてくる



だけで、それもその時の一時的なもので、こんな縦割りのことではだめだということで自分から行動し縦割り行政の横糸に市民がならなければ布にはならない。糸はあくまで糸にすぎないということをちょっと調査季報にも書いたことがあります。最近、緑区環境図表というのを区役所の若手職員を含めた素人の人達で作った時も行政の縦割りで情報が出てこないのです。ほとんど情報が出て来ない。先程、村橋さんからいろいろな手づるを使って、個人的に学者を一本釣りして行政の仲間になってもらうというふうなお話がありましたが、市民側は逆に行政の職員を一本釣りするわけです。そしてその一本釣りした幾人かの人達から情報もたらされ、それらを総合してきて、行政側にある情報公開を要求すると、すごい抵抗があるのです。実際には何でも何でもないのですが、外部には出したい。それをまたなんとか集めてきて、ささやかですが、緑区環境図集のようなものが出来上がる。それをこう見てみるいろいろなことがわかってくるのです。

そこでその評価をしてみますと、絶対値というものがないのです。環境の評価数値はあくまでそれは相対的な評価、数値、基準という形のものしか出て来ない。横浜市内の他の地域で行った調査を見せてもらってもそのデータをそのままこちらへもってきて使うことが全くできない。この辺をなんとかできないだろうか、評価の方法を学者の先生にお教え願

いたいのですが。

野木：我々行政の研究者の場合も国や県それから市関係部局との情報の連絡調整が組織が多極化しているため、混乱することがあります。そこで、水を扱う部門なら水関係の総合的なデータバンクのようなものがあれば大変役に立つと考えています。

司会：今のお話では、横浜市民は情報に疎外されているということですが、例えば今、神奈川県などでは情報の公開制度を検討しています。また、当公害研究所でも当初より民主・自主・公開の原則を掲げてきたわけですが、この情報の公開の問題について木原さんいかがでしょうか。

木原：私は長年新聞記者として取材をしてきて思うのですが、行政というのは、ものすごく情報を持っています。縦割り行政の各部局がそれぞれ自分の担当分野について実に豊富な情報を持っているわけです。この情報をまとめて横につなげれば、もっと情報量も増えるし、それから情報の質が高まると思います。そして千賀さんがなさっているような、住民の自発的な行動が、行政を横糸的な思考に改めさせるのではないかと思います。環境問題が起って来た70年代の初めは、あまりにも公害がひどかったので、住民運動が先導する形だったんです。そして役所に働いている方達も住民から学ぶという姿勢が一時見えました。しかし最近住民運動が冬の時代を迎え、一方環境行政が孤立化して来る中で住民に学ぶという姿勢が公務員の間に忘れられて来ているような感じがします。環境行政に携わる人、あるいは環境を研究する人は、既成の行政ではなくて、住民の困っている状況とか、不幸な状況を解決するという使命を感じてやっていると思うのです。もう一度原点に立ち返ることを心がけないと、研究も行政も糸の切れたものになって行くのではないかと心配しています。

〔公害セミナーを振り返って〕

司会：横浜市公害研究所では、先程のお話しの住民に学べと同じ主旨で、住民の方々に公害問題をきちんと理解していただき、その中からいろいろな論議を深めていこうということで公害セミナーを5回程開催してきました。今日集っていただいた方の中にも公害セミナーに出席していただいた先生もいらっしゃいますが、公害セミナーを振り返って何か御意見がありましたらお願いします。

村橋：そうですね。やはり公害セミナーは、私の見た限りでは他にないメリットを持っていると思います。

市民の論文を募る、また発言を求める、更に討論して行くということは、公害研究所の活動の中でも高く評価すべきものではないかという気がします。科学的な研究成果を公開し住民の声を聞きながらそれを総合して行こうとする動きがあり、公害だけでなく広い意味での地域環境を自分達が作り上げて行くという声がある、その中に脈々と生きています。

公害セミナーのことではありませんが幹線道路の自動車公害について公害研究所の中で調査をやったことがあります。沿道の人達の反応を見ますと確かに公害があることは認識している。ところが車公害の個々の問題はわかっていても、全体については把握しきれてないのが現状だと思います。住民はどうしたらいいかわからない。また自動車公害は都市文化の問題とも関わっていて行政だけでは、つまり従来の横浜方式だけでは解決できない。地域住民の中の専門家や知識人がリーダーとなってやれば問題をより広く捉えられると思います。ですから行政や行政の研究機関は、そういう人々に適切な援助をする必要があると思います。

〔市民研究員制度をつくらせては〕

村橋：またそこで感じたことですが、横浜市に市民研究員制度を作るべきだと提案したいと思います。それは公害研究所でも、公害対策局でやってもいいのですが、他の部局の行政とも連絡しながらやればおそらく積極的に参加してくる市民も多いと思います。例えば公害研究所が媒介となっていていろいろと交流していく。それが将来の市民運動の目になっていくかも知れないと思います。

司会：村橋さんの方から市民との共同研究ということが出されましたが、そこで市民研究員制度というユニークな提案について真柄さんいかがでしょうか。

真柄：私は大事なことは、行政が市民の意識を高揚するような立場をもう少し積極的にとるべきだということ意味で私は賛成したいと申し上げておきます。それから研究成果を市民にフィードバックするような態度を持つべきではないか、そういう前提に立って公害情報あるいは環境情報の公開をすべきではないかと思います。情報を市民に与えることは容易ですが、市民はそれを全て正しく理解するだけの能力を持っているとは限らない、それを忘れてはならないと思います。たゞやみくもに情報を与えるのではなく必要な情報を与える。そして市民が疑問または問題に思ったことを聞きにきた場合に答えられる体制を作

っておく。それが私は公害情報を公開するやり方だろうと思います。またそのような前提に立って仕事を進めて行くべきだと思います。そしてその問題と公害セミナーの問題とはウラハラの関係にあり、公害セミナーで市民から意見を求めると同時に市の職員が今横浜に課せられている問題を正しく伝える者として市民研究員制度を作ることは賛成です。

それから横浜市公害研究所で今までやられてない仕事として、いわゆる疫学的な調査研究が非常に少ないと思います。これは環境の問題を考えて行く上で必ず必要な仕事になると思います。

〔市民にやさしく公開を〕

野木：私はこれからの公開という問題については我々の公害研究所を沢山の市民によく知ってもらいながら考えたいと思います。

例えば、公害対策局と教育委員会とが話し会って横浜市内の中学校、小学校の子供達に理科の実習等で順番にきてもらう。子供達は公害研でいろいろなことを学んで家に帰りお父さんやお母さんに、横浜市の公害研に見学に行ったら魚の研究やカラオケ騒音の研究やってたよと話され、そこから広く横浜市の公害研のやっていることが住民サイドに伝わっていくと思うのです。やはり公害研の具体的なものを住民サイドに伝えていかなければ、住民は公害研から離れていく一方じゃないかと考えられるのです。このことがこれからは一番大事な問題じゃないかと思



真柄：今野木さんがおっしゃったとおりだと思いますね。水道や下水ではそれを実行しているわけです。小学生が浄水場行ったり、下水処理場行ったり、あるいは環境事業局だとゴミ焼却場見学に行くわけです。公害の所の見学はないわけです。やはり市民がその環境問題について身近に感じられるように、公害研としてもっと積極的にやる必要がある。先程、野木さんがおっしゃった形でやるのも一つの方法だと思います。

木原：そういう点では今出されている公害研の所報は一般の市民には難し過ぎます。私が読んでいてわからないところが沢山あります。もっとわかりやすく書いた普及版を出せばいいと思うのです。それは毎年でなくてもいい、数年間のをまとめて出すとかし、わかりやすい所報を通じて市民との結びつきを

高めていく必要があります。

真柄：一般にはPPm といってもわからないわけです。

子供にPPm を聞かれて、私は横浜市民250万人の中に2人悪いのがいるのが1PPmだと教えるのですが、わかり難いものは何か工夫が必要だと思います。

千賀：そうですね、抵抗なく一般の方が読むには中学生ぐらいが理解できる程度に表現していただくとわかりやすいと思います。

〔やさしい情報づくりが一番難しい〕

森：市民にわかりやすい情報を伝えるということですが、一見容易にみえますが実はこれは大変なことだと思うのです。実際にいざやろうとすると先程の横糸と縦糸の問題や住民の多様な要求や意識をどう捉えられるか。我々の方も事務処理や雑用やら沢山あって、じっくりできるような体制ではないわけです。そういった一見簡単なことが一番でき難いという問題が公害研の体制の根底にあると思うのです。

真柄：そこで私、地方の公害研究所には、行政検体ばかりのいわゆるセンター方式と研究中心の研究方式があると思います。横浜市の公害研は後者の方で、わりと自主的な調査研究ができる体制にあると思うわけです。そこでそういう研究をしないかという市民にわかりやすくそのことを伝えることはできない。私は今の体制をこれからも保持してもらいたいと思います。

3 公害研究所の今後の課題

司会：現在の公害研究所に問われるものということで論議してきたわけですが、やはり住民に公害研究所の成果をどのように還元するのが一番重要であるということが出されています。そこで今までの議論を踏まえて公害研の今後の方向性に移りたいと思います。まず、住民の立場からということで、千賀さんいかがでしょうか。

千賀：今のよう景気が停滞してくると公害といって騒がなくなってくる。問題がなくなったわけではないのです。そこでこれは極めて原則的なことをやるしかないのではないかと思います。しかし、ここで考えなくてはいけないのは、誰のための公害研かということです。市民ですよ。研究所の皆さんが環境問題全般として市民に接していく試み、これが一番大事だと思います。公害セミナーなんかといっても年1回だけでなく、個別課題ごとに何回もやると

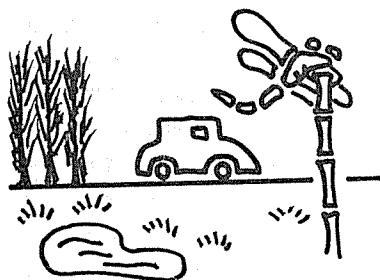
か、あるいは横浜の中央だけでなく、緑区とか戸塚区でもやるとかが考えられるわけです。先程、森さんから大変だと言われたことはよくわかりますが、もっと地域に入っていかなければ公害セミナーなんかも行き詰ると思います。

木原：千賀さんがおっしゃるとおり環境行政は大変な時期にきているわけです。だからその環境行政を、自立させるためには、今までのやり方ではちょっと無理だと思います。相当な危機感を持って新しいことをやってみる必要があります。いろいろ提言が出されましたので、そういうのを一つ一つ検討していただいて、やってもらう以外にないと思います。それはまあ、市民のためでもあり、研究所のためでもあり、研究所のためになることはまた市民のためにもなるわけですから。

〔最近問題になっている変異性物質〕

真柄：これからの都市特有の環境問題でな最近問題になりはじめた変異性物質の問題があると思います。例えばディーゼルエンジン排ガス中の汚染物質が環境中で化学変化を起して生じる物質です。そうした特に都市環境や我々の身の回りに存在している変異性物質の問題にどうやって目を向けていくか、これからの公害研に求められる課題だと思います。それは結局都市だけの問題です。地方の非常にきれいな所ではこのような問題はないわけです。それはまさに都市特有の環境問題で、横浜のような都市型研究所では大いにとり上げていかなければならないと思います。

司会：その点、例えば大気部門のここ5年間の研究課題は大気中の実態調査が中心だったと思いますが、今までみなさんの御意見を総合してみますと、やはり今後は実態調査からその影響調査、防止技術へと進んでいかなければならないように思われます。その点大気の方から一言お願いします。



米山：公害研で取の組んできた大気汚染物質、あるいは水質汚濁というのがどのように人体に影響しているのか、この面の研究がやはり欠けていたというふうに思います。しかし今フィールド調査、実態調査ということが出されましたが、これは今後も続けてゆく必要があると思うのです。国立の各研究機関や大学の研究機関と地方自治体の研究機関とを比べた場合に一番違うのは、何かという地方自治体の研究機関は現場を持っていて実際にいろいろと困難な問題に直面しているということです。ですから、フィールドの状態をやはりつぶさに調べ上げるということは、地方自治体でなければできないことですからやはりこの問題も続けて行かなければならないと思います。

野木：水質部門でも大気部門と同じことがいえると思いますが、その中でも特に我々に直接関わる問題としては、やることが次から次へと沢山でてきて、新しい問題に取り組むためには人員問題、委託の問題、共同研究といった形でしか進めて行く方法が見当たらない。実はこれが大変難しいわけでした、研究所の大きな課題と我々は考えているわけです。

真柄：国立公衆衛生院での私の所属している部でも職員が1.0名いますが、大気も水質もやっています人が足りません。そこで地方自治体の公害研究所の方と一緒に仕事をして行くしかないというように私も思っています。ですからそれはお金の問題もあるでしょうが、職員数や配置の問題等もあるわけです。そこで互いに助け合って二つのものが三つになるような形で仕事を進めて行くことが必要で、それが横浜市民のためにもなり、しいては日本国民のためにもなるだろうと私は思います。

司会：そこで大気関係では例えば住民の手でアルカリ汚紙法等を使っていろいろな窒素酸化物汚染のデータが出されているわけですが、当研究所でも市民の間で役立つ方法の確立ということでアルカリ汚紙法の研究あるいは窒素酸化物の測定法の簡易化等の研究をしてきたと思いますが……………。

〔住民が引く張ってきた簡易測定法〕

鈴木(正雄)：窒素物と住民運動との関係は、健康影響という重要な問題で密接な関係があります。アルカリ汚紙法という窒素酸化物の測定方法は、そもそも住民団体の方が先にやられたものです。公害対策局大気課がアルカリ汚紙の検討をはじめたのは、住民団体の方から大気汚染のモニタリングポストのデ

ータを見せてくれという申し出があったことが発端です。これは行政の方でもきちんと対応していかなければいけないということになったわけです。そこで、アルカリ法についてデータの精度や自動測定機のデータとの整合性について研究をしました。現在でも住民団体の方から「これはどのように使ったらよいのか」といった質問がけっこうありまして、研究所ではできるだけ協力しています。アルカリ法にかぎらず、測定法というのは方法の確立まで大変な時間と労力が必要ですから、測定法を住民団体の方へ提供するような機会がもっとあっていいと思います。

司会：そこで横浜市としても長期計画ということで新総合計画あるいは環境管理計画等が出されているわけですが、その概要について所長の方からお願いします。

〔新総合計画に思う〕

菅野：先程真柄さんから指摘がありましたように、私共が新総合計画を策定するにあたってやはり疫学部門がありませんし、研究所には環境生物部門もありません。そこで環境生物といってもバクテリアから動植物まであるわけです。本来はそれらを全部含めて総合的にやるべきでしょうが、横浜市の現状ではどこまでやるべきか今検討中なわけです。しかし幸いなことに隣りに衛生研究所があります。そうした種々の研究機関といっしょになって学際的な組織作りを目指していくべきだと思っています。もう21世紀になれば公害研究所という名前はいらないうわけで、環境科学研究所というシステムでいくべきです。そこで私は高度な学際的なデータや意義づけを積み重ね先程からいわれているような市民にかえていくデータづくりをやるのが重要だと思います。また先程から市民に対して定期的な公開をやれという意見が出されておりますが、将来的にはそういう方向に向っていかねばならないと思っています。

〔環境管理計画の中で自然保護に期待したい〕

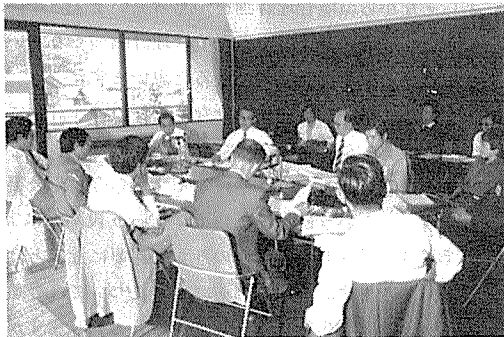
木原：環境管理計画の中で私、注目しているのは、この横浜市公害研究所が特に自然保護の問題に取り組む調査をしていることです。公害研究所というのは国にも地方にもありますけれどやはり今までの公害があまりにもひどかったので公害の解決に取り組むあまりに公害と並んで環境破壊で大きな位置を占め

る自然保護を旨とした研究所がほとんどなかったわけです。ましてその地域の景観とか歴史的環境をいかに再生させるかということを経済問題として取り組むような研究機関もないわけです。国立の自然保護研究所がないのですから。その点でやはり地方の公害研究所がテーマをひろげて調査面で先行していくことは必要だと思います。それに自然保護、歴史的環境、文化的環境の保護にまで研究をひろげていくことは国に対して刺激を与えるという意味からも必要だと思います。特に横浜市の環境行政は公害防止協定や要綱などの点では国に先んじて環境行政をリードしてきたという伝統があるので、横浜市の公害研究所がそういう面での取り組みをもたれていることは良いことです。そこで環境管理計画をみてみますと、今20ぐらいの自治体で作ったり検討したりしています。例えば大阪府の場合は大気汚染にウエイトを置いている。ある県では日照保護にウエイトを置くというように、それぞれの自治体で直面している問題に重点を置いて環境を幅広くとらえながら環境管理計画をつくっています。今後、こういう地域の研究所でも環境管理計画づくりというものが大きな研究対象となると思います。

鈴木（祥）：横浜でも遅ればせながら環境管理計画について検討ははじめたわけですが、現在の段階ではまず基本構想を検討している段階ですから今すぐ公害研究所でこういう研究が必要だという段階ではまだありません。しかし近々のうちに必要になるとは考えております。そこで例えば水質については今魚や底生生物等を生物指標として使用しておりますが大気汚染関係でもそういうものが必要となる。その上大気質あるいは水質等を単に生物だけで表わすのではなく何か一つの指標で全体を表わすような方法がないのかと考えているわけです。WHO等でも検討されているような快適で良好な環境を何か一つの数字で表わすというようなことも今後は検討していく必要があるように思います。そうした検討の中で今まで公害研究所で積み重ねてきた研究結果が有効に利用され得るものと私大いに期待しているわけです。また環境管理計画がいろいろと行き詰っているような話を各地で聞くのですが、要するに最終的に土地利用をどうするのかということです。それは現在の日本のような私有財産を認めた社会の中で土地の開発と環境保全とは対立することが多いわけですから。例えば都市計画を行う場合、開発サイドの意見としては調整区域など廃止してもらいたいというこ

とです。また道路を作る場合その地主は道路だけでなくその囲りの開発もしてもらいたい。そうすれば地価が上がるというわけです。それと緑の保全とはどうしても対立します。そこでどうやって地主の方々に環境保全の考え方を理解してもらおうのかということにぶつかってしまいます。そうした具体的な一つ一つの問題をどう解決していくのが一番必要だと私は思っています。

千賀：今までの話の中で行政と市民というふうにならず分けて話されるのですが、私は行政と市民は決して分れてないと思うんです。行政マンがプロで市民はアマチアだというもおかしいと思います。市民の中にも10年、20年と同じことをやってきた人達がいるわけでその人達が専門家です。行政マン＝プロということではない、行政のプロではあるが家に帰れば一市民です。行政に携わっている人はそういうことをきちんと理解していなければいけないと思います。そうでないと市民の為の行政といっても結局絵に画いたモチにしかならないと思います。



∞ 今後の公害研究所に一言 ∞

司会：今までの議論の中で今後の公害研究所に求めるものというのはだいたい出て来ていると思いますが、最後に各出席の方々に一言あればお願いします。

村橋：研究領域について一言。環境問題をプロパーに進めるといっても、地域経済や地域社会とのかかわりははずせません。社会科学分野になりますが、市の21世紀プランが出されるという機会でもありますし、関連領域を設定した上で、研究体制のあり方を考えないといけない。もちろん、他の部局と交流することは前提になりますが、環境科学研究所であるといっても、都市計画、経済、社会など最低限の分野の研究担当者が必要なわけです。都市型産業を推し進め、ロボット化が進行

するという時代に、京浜地帯の経済や産業構造、社会構造の変化を展望した上での研究の必要性ということになるでしょうか。

それから、先程話した市民研究員制度について補足しておきます。住民というのは自分の目の前にある問題をまず考えます。ともすると自分勝手な意見が出て、住民の中で対立が出てきます。その問題は、本来的に地域住民間で住民自らが解決していくべきことだと思います。その場合に、行政の研究所と連携をもち、情報や研究成果とも接し、広い視野をもつ市民研究員の存在は大きいのではないのでしょうか。例えば、市民研究員の人々を中心として地域の中で環境を守り創造していく場、つまり地域環境会議とでもいいでしょうか、そういうものが出てくるかも知れない。したがって、環境管理計画をつくり、推進する際にも重要な存在になるかも知れません。

真柄：私先程から申し上げておりますが、研究をやる以上専門家になる必要があるわけです。そこで同じ研究を長くでき、知識や経験を積み上げていけるような体制がぜひ必要だろうと思います。そうでないと研究者は伸びないのではないのでしょうか。

森：私の考えは真柄さんと多少違うんですが、確かにひとつのテーマを長期に追いかけていくことも重要だとは思いますが。しかし我々は本来行政の中の研究所ですから行政の人も研究できるような体制が必要だと思えます。公害対策局各課の職員と一緒にあってある時は研究をやり、またその後はその成果と一緒に行政の中へ反映していくということが必要だろうと思います。行政を執行する者と研究のみを行う者とが固定的に分れているということは行政上も研究する上でもマイナスであろうと思います。また公害研究所と市の他の局との関係ですが、こと環境問題に関しては公害研究所が批判的機能を果たせることが重要だろうと思うんですが、批判だけしていても誰も相手にはしてくれないわけです。そこで批判したらそれと同時に具体的にどうすれば解決するのかを相手と一緒に考えていくことが重要です。今の公害研究所ならある程度はできると思います。

千賀：私は地方の公害研究所の職員には二面性が必要だと思えます。一方では学際的研究、他方では基本的なことを全市民に教へ考えさせるようなチャンスを作る仕事がある。市民にも実際はかなりのプロがいるわけですから、要は市民ときちんと手を結んでいけるかどうか一番重要だろうと思います。

木原：私、先程公害対策から環境対策へ快適な環境づ

くり、あるいは環境管理計画へと研究対象をひろげることを提案したわけですが、その場合も決して忘れてならないことは快適な環境を作り出してゆくためには、まず公害対策をきちんとやらなければならないということです。この公害対策と快適環境対策との間は二者択一あるいはトレードオフの関係ではないのであって、公害対策こそは、快適環境づくりの必要不可欠な前提条件です。ですから本来、公害研究所が今までやってきた公害研究を推し進めていくことの前提の上に立って快適な環境作りや環境管理計画の研究に広げて行ってほしいと思います。もう一つは行政と研究の関連の中で一定期間相互に人事交流をしあいながら行政も研究もともに勉強していくことが大事だと思います。そういう意味で公害研修機関としての機能を十分に発揮していただく

とを期待しております。

司会：今までの皆さんの議論の中に非常に重要な問題提起が数多く含まれていたと思います。そこで現状の公害あるいは環境行政はまことにきびしい情勢下にあるわけですが、であるからこそ公害研究所としてやるべきことが山ほどあるではないか、またその一つ一つを自信をもってやらなければならないということで今後の公害研究所の前進に対して叱咤激励をいただいたと思います。この座談会を私共だけでなく広く各自治体、大学、国、さらには住民の方々に読んでいただいて私達の明日の環境をいったいどうして行くのかという論議の一助となれば幸いです。

どうも皆さんありがとうございました。

I 大気部門

大気部門では公害対策局大気課等からの依頼による行政検体の分析調査及び市民からの苦情等による検体の分析を行っており、昭和55年度に実施した各項目ごとの検体数及び延べ項目数は次のとおりである。

表 - 1

種 別	検 体 数	延 べ 項 目 数
重 油 中 の 硫 黄 分	195	195
煙道中のばいじん及び重金属	13	52
廃 油 分 析	9	9
浮遊粉じん及び重金属	53	256
炭 素	92	307
悪 臭	190	615
窒 素 酸 化 物	14	28
そ の 他	43	53
計	609	1,515

1 重油中の硫黄分

重油中の硫黄分の分析にはJ I S K 2541に基づく熱焼管式一空気法とケイ光X線法を用いて実施した。

2 煙道中のばいじん及び重金属分析

大気汚染防止法等に基づく立入測定を実施し、J I S Z 8808によるばいじん量の調査とそれに含まれる重金属の分析を行った。またジーゼル黒煙中のばいじんも調査した。

3 廃油分析

廃油中の硫黄分をJ I S K 2541に準じて分析した。

4 浮遊粉じん及び重金属

工場周辺等でハイボリュームエアサンプラーを用いて浮遊粉じんを採取し、Pb, Cd, Ni等の重金属を分析した。

5 炭火水素

昨年度に引き続き、各種炭化水素使用工場でのアセトン、エタノール、シンナー類等の測定を行った。

6 悪 臭

三点比較式臭袋法及びガスクロマトグラフ等を用

いて食品工場、塗装工場等の調査と市民の苦情による測定を行った。

7 窒素酸化物

煙道中の窒素酸化物について2 P D S法を用いて測定した。

8 その他

今年度も市民からの苦情による検体が主であった。苦情検体は未知物質の解明が多く、ケイ光X線、電子顕微鏡、X線マイクロアナライザー等を用いて定を行った。

II 水質部門

昭和55年度に実施した工場排水等の行政検体の分析業務は次のとおりである。なお、行政検体数及び試験項目数は、表-1、表-2に示した。

1 工場立入調査に伴う検体の分析

昭和55年度に実施した工場立入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) 定期立入調査

工場排水590検体……BOD, COD, 重金属他

(2) 東京湾岸自治体調査

工場排水及び海水計141検体……COD, 窒素, リン

(3) 東京湾栄養塩削減対策調査(環境庁受託)

工場排水207検体……COD, 窒素, リン他

(4) フェノール実態調査

工場排水23検体……フェノール類

(5) その他

工場排水22検体……BOD, COD, 総シアン他

2 環境調査に伴う検体の分析

昭和55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) 化学物質調査(環境庁受託)

底質34検体 海水34検体……塩素化パラフィン他

(2) 川崎市底質調査(クロスチェック)

底質4検体……総水銀他

(3) 公共用水域水質測定(クロスチェック)

河川水及び海水計21検体……COD他

(4) その他

河川水2検体……総水銀他

3 日本鋼管跡地土壌分析

日本鋼管跡地（鶴見区安善町）の土砂の埋立処分に係る調査として、2ヶ所から土壌を採取しカドミウム鉛PCB等の分析を行った。

4 丸善流通サービス(株)浚渫工事に伴う検体の分析

浚渫工事の監視及び完了検査として海水、底質及び魚計53検体についてPCB等の分析を行った。

5 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180検体についてBOD、COD、重金属等の分析を行った。

6 苦情処理及び事故に伴う検体の分析

金沢区及び港北区で発生したシアン流出事故により井戸水等102検体についてシアン等の分析を行った。その他市民からの苦情等による検体について必要な分析を行った。

Ⅲ 公害セミナー

第4回「80年代の環境政策の課題」

当公害研究所では、開所以来、「明日の都市環境を考える」を統一テーマに年1回、公害・環境問題について市民と共に考え議論していくため、又、公害研究所の研究内容の紹介も兼ねて、一般市民を対象に公害セミナーを開催してきている。これまで既に3回実施してきているが、テーマは、第1回「クルマ社会をどうするか」、第2回「合成洗剤」、第3回「川・よこはまに水辺をもとめて」として、その時々々の課題となっている主要なテーマを取り上げ論点を深めてきた。第4回のテーマは、セミナーの運営、構成内容も定着しつつある中で、これまでの公害・環境行政の推移を跡づけ、その成果と反省点の上に立ち、今後の環境政策のあり方を検討するため、やや抽象的ではあるが、幅広く「80年代の環境政策の課題」と題して行うこととした。

1 準備作業

今回は、テーマ自体が幅広いものであるため、論議がまとまりにくいのではないかと懸念もあり、毎年編成される所内セミナー運営委員会で、構成、内容について様々な検討を行った結果、次のような内容で行うこととした。

まず最初に基調講演を木原啓吉氏（朝日新聞編集委員、現千葉大学教授）により行い、この間の実践的立

場から総論的問題提起をしていただいた。次に、行政側からの現況報告、その後で市民からの提言―各分野でそれぞれの課題について取り組んでこられた市民の方4名；千賀義二氏（建築士、横浜市下水道事業研究会委員）、守永マヌエ氏（生活クラブ生活協同組合）、大木正雄氏（日本輸出スカーフ捺染工業組合理事長）、加藤満生氏（弁護士、横浜市公害対策審議会委員）―をうけて、自由討論で論議を深め、今後の80年代に向けた環境政策の道すじを模索することにした。

2 セミナーの開催

昭和56年3月18日（水）午後1時より5時まで、神奈川県民ホール6階会議室で、約100名の参加者をえて開催された。当日は論議の補足資料として「提言要旨集」「調査研究事業のあらまし」を配布した。

(1) 講演「80年代の環境政策の課題」木原啓吉

10数年来、環境問題担当として第一線で取材に取り組んでこられ、又、環境問題に関する著書も多い木原氏はそうした実践の立場から、主に60年代70年代をめぐる公害・環境問題の推移を中心に環境庁をはじめとする行政側の動向、市民運動の発展等にふれつつ論じられた。すなわち、この10数年間を見通して言えることは、行政サイドによる環境政策への取り組みの努力、発展もさることながら、やはり、この間の環境行政を動かしてきたのは住民の力であること。行政と住民との関係は、ある時には対立しつつも、長い目でみると相互に補完しながら発展してきた。その過程で、住民自身の環境を見つめる目がより鍛えられ、まさに「公害から環境へ」という視点が養われてきたこと。今後80年代に向けて取り組むべき課題は、イギリスで発祥した「アメニティ」の思想を、より本来的な意味で日本の環境政策の中にどのように取り込み生かしていくかが問われている。現実的課題として、現在難航しているアセスメント法案や湖沼環境保全法等の法令の整備を図ると共に、今後は北海道知床斜理町の「一坪運動」のような地元市民の地道な取り組み等多様な方法で、自然、環境をトータルに捉えた施策が講ぜられていく必要があると講演された。

(2) 報告「公害の現況と課題」猿田勝美

次に、行政サイドからの現況報告ということで、猿田公害対策局長より横浜市の10年間の行害行政を振り返って、その成果と反省点、又現在抱えている課題等について報告を行った。巨大都市横浜という地域特性から生じる都市、公害・環境問題と取

り組み、その解決を図るには、いわゆる従来からの典型7公害という範疇にとどまらず、それぞれの課題に応じた幅広い対応、解決策を構じていく必要がある。今後は、対症療法的対策からより発展し、快適な環境の創造を目的に環境管理計画の策定等を行っていく予定であると報告。

(3) 提言

① 「緑区の自然を考える」 千賀義二

氏は、建築士として横浜市建築カウンセラーを引き受け、この数年来協力してきた経験から、個人の建物を建てる場合でも“環境との調和”という視点をもってやる必要があることを指摘。又、これまで緑区で「緑を守る」「鶴見川を考える」等の運動を通じて感じたことは、情報不足による総合的見通しが立たない事から生じる住民間（開発による新・旧住民）の対立で、連帯がなかなか難しかったこと。今後は、行政の縦割りからくる情報・資料不足を是正し、情報の公開を行うことにより市民に正しい認識を与えていくと共に、まちづくりを市民と共に行っていく姿勢が行政に望まれると提言。

② 「1人の生活者として責任ある生き方を……」 守永マヌエ

氏は、1人の生活者、主婦の立場から環境、生命を守るためには、従来の数値化による安全性の捉え方には疑問がある。科学的に解明されれば安全といいきれるのだろうか。生命にかかわる事は一つでも危険は要素をはらむものは取り除いていかれるべきである。又、身近な問題として、単に被害者意識にとどまらず、自分が生活の中で使用している合成洗剤の安全性に目を向け、その追放に取り組んできた経過を説明。条例化にむけた直接請求運動の経過や、現在自主的に石けんの共同購入等地域に根ざした地道な運動を展開してきているが、今後は更に合成洗剤追放運動を通じて、環境を守る戦いを勝ちとっていきたいと提言。

③ 「捺染業界の公害防止対策の現状と課題」

大木正雄

かつては横浜の風物詩といわれた地場産業である捺染業も、排水処理による公害防止と中小企業体としての経営との両立を図っていくために、かなり厳しい状況に立たされている。そのため、80年代に向けた具体的提言として、氏は一つには下水道の普及推進を早急に行うこと。現在、処理区

域と区域外では、排水の関係で原材料の差異による生産コストの不公平が生じている。又、2点目としては、市内の中小企業、地場産業の健全な育成のために、低成長時代に見合った処理技術の開発、指導を行政側に要望したいと提言。

④ 「環境政策と下水道について」 加藤満生

氏は、近年公共用水域の水質汚濁を改善するために、下水道整備の必要性が強調されてきている現状に対して、下水道万能主義として警告。下水道が作られた歴史的経過やその目的を説明する中で、現在の下水道事業及び計画が工場排水をも受け入れるものであり、結果として有害物質の規制が困難になり水質汚濁防止法の空洞化を招いてしまうと指摘。こうした見地から現在国や地方公共団体が進めている下水道事業及び計画は、環境保全の観点から又、将来の環境に禍根を残さないために、抜本的に見直しを行う必要があると提言。

(4) 自由討議

今回はテーマ自体がかなり幅広いものであったため、全体的論議として総論的展開は難しかったが、講演、報告、提言をめぐって参加者から熱心な質問意見が出された。論議の詳細は「第4回公害セミナー会議録」（公害研資料№26）を参照していただくこととして、ここではその内容を概括することにする。

出された意見は、一つはテーマに即してこれまでの公害対策から今後の環境政策についてグローバルに捉えたものも多かったが、一方では“身近な生活の安全を守る”という立場から主婦、ボランティア関係者等からの“生活者”として環境を捉えた地道な意見も見立った。

これまでの60年代、70年代は深刻化した公害対策に追われていたが、80年代を迎え、今後はこれまでの成果と反省点の上に立ち、環境をトータルに捉えたいきめ細かな施策を行っていく必要がある。最今「公害から環境へ」ということで、公害対策が一段落したという風潮が強いが、一方では大都市における人口、産業の過度の集中、集積により公害はますます複雑多様化してきている。80年代の環境政策に望まれることは、こうした巨大化した都市における環境のあり方を市民に開かれた環境アセスメントの実施等を含めた計画的、先取りのな環境の安全管理策を実施していくと共に、今後とも引き続き技術開発等により、より実効性のある公害防止に努めていくことである。

又、一方では、これまでの高度成長による経済至

上主義を反省し、真の意味で快適で安全な社会を創っていくために、効率性、利便性を是とする価値観の転換を図り、まず第1に“いのちを守る”という生活理念を確立すること。それを基本にすえた施策が求められねばならない。「アメニティ」という概念も人間らしく生きるということを意味し、そのことは“生活を守る”ひいては“福祉”ということと根本でつながってくる。今後は行政の責任と市民の責任というものを明確にして、それぞれの立場での取り組みを身近なところから一つ一つ解決していく

必要がある。

ともあれ、公害研究所としても、こうしたセミナーの開催を地道につづける中で、ここで出された問題点、提言等をどのように具体的に施策の中に反映させていくのか、その開催方法、運営等の検討も含め、今後の課題となってきたといえよう。

表-1 行政検体数

昭和55年度

検体数	工場		環境調査		日本鋼管跡地		丸善流通サービス(株)		除害施設		苦情処理	
	立入調査	底質、水・その他	底質、水・その他	土壌分析	土壌分析	丸善流通サービス(株)	丸善流通サービス(株)	除害施設	苦情処理	計		
983	38	57	20	53	180	147	1,478					

表-2 試験項目数

試験項目	工場		環境調査		日本鋼管跡地		丸善流通サービス(株)		除害施設		苦情処理	
	立入調査	底質、水・その他	底質、水・その他	土壌分析	土壌分析	丸善流通サービス(株)	丸善流通サービス(株)	除害施設	苦情処理	計		
カドミウム含有量	9		2	2	45	6	62					
鉛含有量	83		2	2	45	105	235					
六価クロム含有量	76		2	2	45	6	129					
砒素含有量	54		2	2	45	1	102					
砒素含有量	4		2	2	45	3	54					
総水銀含有量	54	2	1	4	45	1	107					
PCB含有量				4			28					
水素イオン濃度	72	1		24	45	1	127					
生物学的酸素要求量	141			8	12		153					
化学的酸素要求量	415	15		9	15		454					
浮遊物質含有量	202			11	22		235					
ノーヘキサン抽出物含有量	80		2	3			85					
フェノール含有量	92						92					
銅含有量	51				12	5	68					
亜鉛含有量	86				45	5	136					
鉄含有量	133				12	5	150					
マンガ含有量	27				12	5	44					
クロム含有量	79				45	3	127					
総弗含有量	26						26					
ニッケル含有量	50				12	5	67					
アルミニウム含有量												
アモニウム窒素含有量	69						69					
亜硝酸窒素含有量	69						69					
硝酸窒素含有量	69						69					
総窒素含有量	116						116					
有機体窒素含有量	69					6	75					
リン酸リン含有量	116						116					
その他	69	38	40	6	90	80	338					
合計	2,427	40	57	26	592	243	3,455					

NO, NO₂ 同時測定用個人サンプラーの開発

前田裕行*, 平野耕一郎*

大気中の汚染物質の一つとして、窒素酸化物 (NO_x) が注目され、その汚染の実態調査が多く実施されている。特に、人の健康影響を論ずる上で、個人暴露量を把握することが重要であるが、今までは、二酸化窒素 (NO₂) のみで、一酸化窒素 (NO), NO₂ の両面から調査した例がなかった。その原因は、NO, NO₂ 同時測定用個人サンプラーがなかったことによる。そこで著者らは、NO, NO₂ が同時に測定できる個人サンプラーを開発、検討した。

その結果、開発したNO, NO₂ 同時測定用個人サンプラーは、重量が約10gと小型、軽量であり、NO, NO₂ の生活環境濃度レベルを24時間暴露で測定できる性能のものであり、さらに取り扱いも簡便で、実用性のあることが判った。したがって窒素酸化物の個人暴露についての健康影響調査についても、従来に増して更に詳細なデータが得やすくなったものとする。

1. はじめに

大気汚染物質の人への健康影響を調べるためには、汚染物質の個人暴露量の評価が重要なものとなっている。特に窒素酸化物 (NO_x) は、その発生源が室内 (燃焼器具、喫煙)、その他 (自動車排気ガス等) にも存在するため、人が受ける暴露濃度と大気汚染常時監視局等で測定されている一般環境濃度 (外気濃度) とは異なることが予想される。そこで、外気濃度、室内濃度および個人暴露量との関係を明らかにし、その汚染実態を把握した上で健康影響を評価することが必要となる。そのためには、大気汚染物質の個人暴露量を、多人数を対象として測定でき、個人の日常行動を妨げることのない小型の個人サンプラーが必要となる。近年、生活環境濃度を測定できる二酸化窒素 (NO₂) 個人サンプラーが考案¹⁾されているが、一酸化窒素 (NO), NO₂ を同時に測定できる個人サンプラーはなく、NO_x の暴露量をNO, NO₂ の両面から調査し、評価することができなかつた。一方、産業衛生の分野では、ガスの分子拡散を利用するNO₂ およびNOサンプラーが各

種考案されている^{2)~5)}。しかしこれらのサンプラーは、作業環境濃度の測定を目的としたもので、環境濃度レベルでの測定を行うには捕集量が少なく、分析が困難となるので、これをそのまま用いることはできない。そこで筆者らは、Palmer³⁾等が報告しているNO_xの捕集方法を利用し、生活環境レベルの測定ができるように改良し、更に、一つのサンプラーでNO, NO₂ を同時に測定できるように捕集原理のNO_x個人サンプラーを開発、製作した。このサンプラーについての特性、精度および実用性を試験検討したので報告する。

2. 実験方法

2-1 装置

NO標準ガス：化学品検査協会1級、453ppm (高千穂化学工業製)

NO₂標準ガス：466、及び478ppm (高千穂化学工業製)

希釈装置：マスフローコントローラー (tyran社、FS-261×2, FS-261)、レギュレーター (製鉄化

学, YSR-2003) による質量流量比希釈混合法による希釈装置

標準ガス流量は $0\sim 10\text{ ml}/\text{min}$ の範囲で, 希釈用精製空気流量は, $0\sim 20\text{ l}/\text{min}$ の範囲で制御可能。

暴露チャンバー: バイレックスガラス製, 直径 90 cm , 容量 30 l

NO_x 計: MONITOR LABO社製, モデル 8440, 化学発光法 (モニター用)

2-2 試薬

トリエタノールアミン: 和光特級

アセトン: 試薬特級

亜硝酸ナトリウム: 試薬特級

スルファニルアミド: 試薬特級

リン酸: 試薬特級

N-(1-ナフチル)エチレンジアミン二塩酸塩: 試薬特級

金網洗浄用クロム酸混液: 10% 重クロム酸カリウム水溶液に $3/4$ 容の工業用硫酸を加える。

スルファニル溶液: スルファニルアミド (特級) 20 g を約 700 ml の水に溶かし, リン酸 (特級) 50 ml を加えよく混合し, 更に水を加えて 1 l とする。

NEDA溶液: N-(1-ナフチル)エチレンジアミン二塩酸塩 0.7 g を水 500 ml に溶かす。冷蔵庫保存。

発色試薬: 水 10 容, スルファニル溶液 10 容及び NEDA溶液 1 容を加える。用時調製する。

NO 酸化用クロム酸混液: 2.5% 重クロム酸ナトリウム水溶液と 2.5% 硫酸水溶液の等量混合液。

NO_2 標準原液: 亜硝酸ナトリウムを $105\sim 110^\circ\text{C}$ で 2 時間以上乾燥し, その 1.500 g を精秤し, 水に溶かし 1 l とする。これは, 1 ml 中に NO_2 $1000\text{ }\mu\text{g}$ を含む。

NO_2 標準液: NO_2 標準原液を水で 100 倍に希釈し, 更にその $1, 2, 3, \dots, 10\text{ ml}$ をとり水で 100 ml とし標準液 ($0.1\sim 1.0\text{ }\mu\text{g}/\text{ml}$) を用時調製する。

2-3 NO_x サンプラーの作製

2-3-1

アクリル管: 外筒として用いる内径 15 mm の透明アクリル管, 長さ 60 mm 1 個

テフロンリング: パッキングとして用いる。外径 15 mm の四ふっ化エチレン樹脂 (テフロン) 管を長さ 2 mm に輪状に切ったもの 10 個

金網: ドラフトシールドとして用いる。ステンレス金網 150 メッシュ (JIS 105 μ 相当), 直径 14 mm 円型 4 個

金網: 捕集エレメントとして用いる。ステンレス金網 80 メッシュ (JIS 177 μ 相当), 直径 14 mm 円型

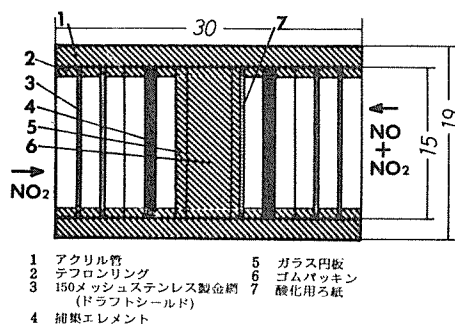


図-1 NO_x 個人サンプラーの構造

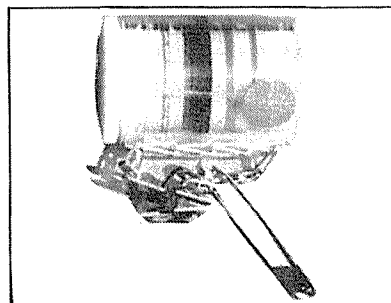


図-2 NO_x 個人サンプラーの外観

10 個

ガラス板: 仕切りとして使う 厚さ約 1 mm のガラスを直径 $14.7\sim 14.8\text{ mm}$ の円型に仕切ったもの 2 個
ゴムパッキング: 仕切として使う, ネオプレンゴム外径 15 mm , 長さ 3 mm , 円板状に加工したもの 1 個
ろ紙: NO 酸化用ろ紙として用いる。東洋濾紙 GB-100 R

スチロールビン: 保存容器, 三進薬剤保存防湿容器 (40 ml)

2-3-2 捕集エレメントの調製

直径 14 mm に打抜かれた円型の 80 メッシュ金網を金網洗浄用クロム酸混液に浸し, 約 2 時間超音波洗浄した後, 更に水で洗いすぎ, 乾燥させる。次に NO_x 捕集液 (トリエタノールアミン・アセトン溶液) 中に浸し, 充分捕集液を含浸させた後, ピンセットで 1 枚ずつ硫酸紙上にとり, アスピレーターを用いて約 30 分間減圧乾燥させる。トリエタノールアミンがコーティングされた金網はガラス製ベトリ皿に入れ, ビニルテープでシールし, デシケーター内に保存する。

2-3-3 酸化用ろ紙の調製

ろ紙 (東洋濾紙 GB-100 R) をガラス板の上に置き, この上に NO 酸化用クロム酸混液を均一に滴下し,

ろ紙に含みきれなくなるまで十分に潤し約20分間放置する。90℃で2時間乾燥したものを、ポンチで直径14mmの円型に打抜き、デンケータ内に保存する。

2-3-4 NO_x サンプラーの用意

NO_x サンプラーを図-1のように組立てる。サンプラーの外筒はアクリル管であり、中央にゴムパッキンを入れ左右に仕切っている。左側でNO₂、右側でNO_x (NO+NO₂) を捕集することができる。左側入口から奥に向かって、テフロンリング、金網(ドラフトシールド)、テフロンリング、金網(ドラフトシールド)、テフロンリング(2個)、金網(トリエタノールアミンをコーティングしたもの、5個)、テフロンリング、一番奥にガラス板を入れる。右側はNOを酸化するための酸化用ろ紙をガラス板の前に入れるほかは左側と同じである。準備のできたNO_x サンプラーをスチロールビンに入れ密栓保存する。このときの外観を図-2に示した。

2-4 捕集係数

2-4-1 既知濃度 NO, NO₂ による暴露

NO及びNO₂ 標準ガスを希釈装置で精製空気により希釈し、100~400ppbの所定の濃度の希釈ガスを15~18ℓ/minで暴露チャンパーに導入する。この暴露チャンパー内にNO_x サンプラーを入れ、20~24時間暴露する。そのときの希釈ガスの濃度をNO_x計で連続モニターしておく。

2-4-2 分析方法

暴露チャンパー内で暴露したNO_x サンプラーのNO₂ 捕集部及びNO_x 捕集部の捕集エレメントをピンセットで取り出し、それぞれ25ml共栓試験管に入れる。水8mlを加え、ときどき軽く振り混ぜながら30分間抽出する。これを2~6℃に冷却後、発色試薬2mlを加え、冷却したまま30分間放置する。後、室温に戻し、波長550nm付近の最大吸収波長で吸光度を測定する。

暴露しなかった捕集エレメントについて同様の操作を行い、空試験値を測定する。NO₂ 標準液の一定量を正確に量り、希釈して0~1.0μg NO₂⁻/mlを含む溶液を段階的に調製したものについて同様の発色操作を行い、検量線を作製する。

2-4-3 捕集係数の算出

$$\alpha_{\text{NO}_2} = \frac{W_{\text{NO}_2}}{T} / C_{\text{NO}_2} \quad (\mu\text{g} \cdot \text{min}^{-1} \cdot \text{ppb}^{-1})$$

$$\alpha_{\text{NO}} = \frac{(W_{\text{NO}_x} - W_{\text{NO}_2})}{T} / C_{\text{NO}} \quad (\mu\text{g} \cdot \text{min}^{-1} \cdot \text{ppb}^{-1})$$

ただし、W_{NO₂} : 検量線に照らして求めたNO₂捕集エレ

メントに捕集されたNO₂量(μg)

W_{NO_x} : 検量線に照らして求めたNO_x捕集エレ

メントに捕集されたNO₂量(μg)

C_{NO₂} : 暴露したNO₂濃度(ppb)

C_{NO} : 暴露したNO濃度(ppb)

T : 暴露時間(min)

2-5 環境濃度

2-5-1 暴露方法

NO_x サンプラーを容器から取り出し、個人暴露量の測定には胸等に装用し、室内、室外等の環境濃度の測定には適当な測定場所に放置して暴露する。適当な時間(通常は24時間)暴露した後、NO_x サンプラーを容器に戻し密栓保存する。

2-5-2 分析方法

上記、捕集係数の算出における分析方法と同じ

2-5-3 濃度の算出

NO₂ 濃度 C_{NO₂} (ppb)、NO濃度 C_{NO} (ppb)

によって求める。

$$C_{\text{NO}_2} = W_{\text{NO}_2} / T / \alpha_{\text{NO}_2} \quad (\text{ppb})$$

$$C_{\text{NO}} = (W_{\text{NO}_x} - W_{\text{NO}_2}) / T / \alpha_{\text{NO}} \quad (\text{ppb})$$

ただし、W_{NO₂} : 検量線に照らして求めたNO₂捕集エレメントに捕集されたNO₂量(μg)

W_{NO_x} : 検量線に照らして求めたNO_x 捕集エレメントに捕集されたNO₂量(μg)

T : 暴露時間(min)

α_{NO₂} : NO₂の捕集係数(μg・min⁻¹・ppb⁻¹)

α_{NO} : NOの捕集係数(μg・min⁻¹・ppb⁻¹)

3. 実験及び実験結果

3-1 トリエタノールアミンに捕集されたNO₂⁻の分析条件の検討

NO₂ 標準液を用いて発色させ、その発色時の温度と30分後の吸光度の関係を図-3に示した。吸光度は2℃に冷却した場合に最も大きな値が得られ、温度が高くなるにしたがって吸光度が小さくなる傾向がみられた。

また、同一標準液を用いて、異なる日に調製した標準液について同様の実験を行ったところ、同一濃度標準液を発色させたときに得られる吸光度は、2~10℃に冷却したときはばらつきが小さく、室温(20~25℃)のときは、大きくばらついた(図-4)。したがって、捕集エレメントの分析の際の発色操作は、冷却したのち行うことにした。

3-2 NO_x 捕集剤のトリエタノールアミン濃度

NO_x 捕集剤として用いるトリエタノールアミン・アセトン溶液のトリエタノールアミン濃度を10、20および50%(v/v)とし、捕集エレメント(それぞれ金

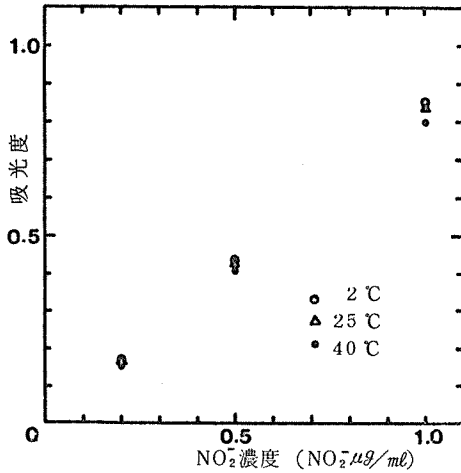


図-3 発色温度と吸光度の関係
発色時間 30分 測定波長 550nm

表-1 トリエタノールアミン濃度とNO₂捕集量

トリエタノールアミン濃度 (%)	NO ₂ 捕集量 (μg)				平均 (μg)
10	0.695	0.686	0.723	0.701	
20	0.667	0.732	0.714	0.714	
50	実験中止				

長型サンプラー, NO197ppb, 927分

表-2 捕集エレメント金網各部の捕集量, 長型サンプラー, NO₂243ppb 2456分

実験番号	金網の位置, 外気に接する方から	1~2					1~10 計	捕集係数 (μg・min ⁻¹ ・ppb ⁻¹)
		3~4	5~6	7~8	9~10	1~10		
1	捕集量 μg	0.75	0.54	0.37	0.35	0.31	2.32	3.89×10 ⁻⁶
	積算量 %	32	56	72	87	100		
2	捕集量 μg	0.73	0.44	0.40	0.33	0.29	2.19	3.67×10 ⁻⁶
	積算量 %	33	53	72	87	100		
3	捕集量 μg	0.62	0.50	0.33	0.29	0.31	2.05	3.43×10 ⁻⁶
	積算量 %	30	55	71	85	100		
4	捕集量 μg	0.66	0.39	0.37	0.29	0.32	2.03	3.40×10 ⁻⁶
	積算量 %	33	52	70	84	100		
5	捕集量 μg	0.69	0.46	0.30	0.32	0.33	2.10	3.51×10 ⁻⁶
	積算量 %	33	55	69	84	100		
6	捕集量 μg	0.68	0.44	0.35	0.33	0.26	2.07	3.47×10 ⁻⁶
	積算量 %	33	54	71	87	100		
平均							2.13	3.56×10 ⁻⁶

(SD=0.100, CV=4.7%) (SD=0.17×10⁻⁶)

表-3 捕集エレメント金網の数とNO₂捕集量, 243ppb 1062分

捕集エレメントの 金網の数	捕集されたNO ₂ 量(μg)						平均	標準偏差	変動係数 (%)	捕集係数 (μg・min ⁻¹ ・ppb ⁻¹)
	1	2	3	4	5	6				
3	1.02	1.05	1.05	0.96	1.05	1.02	1.03 ^s	0.04 ^l	3.9	4.02×10 ⁻⁶
	1.14	1.02	1.04	1.02	1.05					
5	1.09	1.20	1.09	1.09	1.17	1.12	1.10 ^o	0.04 ^o	4.1	4.30×10 ⁻⁶
	1.14	1.05	1.12	1.09	1.04					

網5個)にコーティングし, NOに927分暴露した。捕集量の結果を表-1に示す。濃度10及び20% (v/v)のものでは得られたNO₂捕集量に差がみられなかった。この結果から以後の実験ではトリエタノールアミン濃度を10%とした。

捕集エレメントに使う金網(直径14mm, 80メッシュ)120個を10%トリエタノールアミン・アセトン溶液に浸し, 乾燥させた後の重量増加は, 5個当り7mgであった。これを金網にコーティングされたトリエタノールアミンの量とみなすと, これに反応するNO₂量は約2mgとなり, 大過剰の吸収剤がコーティングされていることになる。

3-3 捕集エレメントに使用する金網の個数と捕集量

トリエタノールアミンをコーティングした捕集エレメントとして金網(直径14mm, 80メッシュ)10個をサンプラーに納め, 243ppbのNO₂に2456分暴露した。外気に接する方から順に2個ずつ5組に分け, それぞれに捕集されたNO₂量を表-2に示した。NO₂は外気に接する方の初めの4個で52%以上捕集されるが, 奥に位置する捕集エレメントでも捕集されることがわかった。

次に、捕集エレメント金網3個及び5個を用いて、同様に243ppb NO₂、1062分間暴露した結果を表-3に示した。捕集量は、金網5個を使用した方が3個のものより多く捕集されていた。

表-4 捕集エレメントをスチロールビンに保存したときの吸光度の変化、金網5個

経過日数	1	2	3	4
吸光度	0.007	0.007	0.009	0.009
	0.006	0.006	0.006	0.008

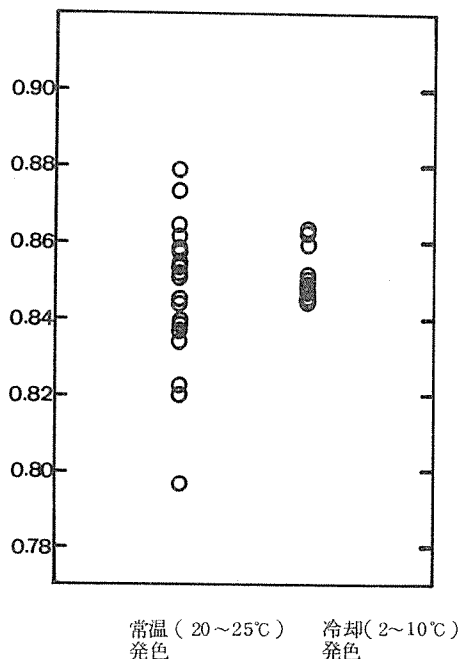


図-4 異なる日に調製した標準溶液を用いて得られた検量線の傾き

3-4 捕集エレメントの保存試験

スチロールビン保存容器(三進薬剤保存防湿容器容量40ml)(以下保存容器と記す)にトリエタノールアミンをコーティングした捕集エレメント金網5個ずつを入れ密栓し、室内に放置し、毎日取出し発色させ吸光度を測定した。その結果、表-4に示すように、4日経過後も吸光度の増加はみられず、スチロールビンでの保存は支障がないことがわかった。

次に、トリエタノールアミンコーティング金網を実際に使う状態でNO_x サンプラーのNO_x 捕集部に5個、NO₂ 捕集部に5個それぞれ装填し、保存容器に入れ、密栓し、室内に3日間放置し、各捕集部の吸光度を求めた結果を表-5に示した。このとき、NO_x 捕集部の吸光度は、平均0.026、NO₂ 捕集部のそれは0.016であり、NO_x サンプラーに装填しないときの吸光度0.006~0.009に比べいずれも増加がみられた。このことはNO_x サンプラーの部品のいずれかが吸光度の増加に関係することを示している。(この点について原因を究明したところその後、仕切として使われているゴムパッキングが原因であることがわかった。)

4. 考察

4-1 NO、NO₂ 同時測定用個人サンプラーの必要性

窒素酸化物による大気汚染の調査において、NO₂ 濃度とともにNO濃度の測定も重要な課題である。人の健康影響との関係について、NO₂ は従来から研究がよくなされているが、NOについては十分とはいえない。人の居住する環境において燃焼に起因する窒素酸化物の発生源の近くでは窒素酸化物に対するNOの比率が高いことは良く知られている事実であり、このことから窒素酸化物の健康影響を知る上でもその基本となるNO、NO₂ の個人被曝量を測定できる簡単な

表-5 捕集エレメントをサンプラーに装填して3日間経過後の吸光度

	捕集エレメントの吸光度						平均	標準偏差	変動係数(%)
NO _x 捕集部	0.031	0.024	0.030	0.027	0.023	0.025	0.026 ¹	0.005 ³	20
	0.027	0.025	0.031	0.035	0.019	0.017			
	0.028	0.017	0.025	0.024	0.036				
NO ₂ 捕集部	0.018	0.015	0.018	0.013	0.018	0.019	0.016 ¹	0.004 ¹	26
	0.017	0.022	0.022	0.024	0.013	0.012			
	0.012	0.009	0.014	0.011	0.017				

測定器の開発が必要とされてきた。

個人被曝量の測定のためのサンプラーは次の条件を兼ね備えることが望ましい。

すなわち、

- (1) 小型、軽量であること
- (2) 体裁良く、安全であること
- (3) 安価であること
- (4) 測定感度が高いこと
- (5) 測定精度が良いこと
- (6) 測定器の作成及び分析が容易であること
- (7) NO, NO₂ が個別に同時に測定できること

4-2 既発表環境濃度測定用 NO_x サンプラーの特徴

NO, NO₂ を同時に捕集する方法としてポンプを使用してトリエタノールアミン(以下 TEA という)をコーティングした固体吸収剤に捕集する原理の報告⁶⁾がある。これは、重量があるので個人サンプラーとしては適さない。

NO₂ のみを測定するサンプラーは、これまでにいくつかが報告されている。たとえば、天谷によるスチロールビンの底に張り付けたろ紙に TEA を含浸させたもの⁷⁾、スチロールビンに TEA 含浸ろ紙を入れるもの⁸⁾などがあり、NO₂ の相対濃度分布調査に使用^{8)~11)}されている。また、これらの精度については検討した結果が報告^{12), 13), 15)}されている。風の影響を受けるという短所がある。

また柳沢らは、風の影響を避けるためポリプロロン紙をドラフトシールドとした NO₂ サンプラーを作成¹⁾し、NO₂ の個人曝露量調査に使用^{16)~18)}されている。これは比較的高価であるのが難点である。

4-3 NO_x サンプラーの特徴

著者らは個人サンプラーとしての条件をできるだけ取り入れたサンプラーの開発に留意した。本報の NO_x サンプラーは次のような特徴を持つ。

- (1) 総重量約 10 g であり、大きさは外径 19 mm, 長さ 30 mm である。
- (2) 材料はいずれも通常市販されているものの組合せであり、反復使用が可能である。
- (3) ドラフトシールド、捕集エレメント及び酸化用ろ紙をテフロンリングで固定しているので組立て、取外しが容易である。捕集エレメントにはステンレス金網を用いているので抽出のとき破損することはない。
- (4) 24 時間曝露のときの測定感度は 6 ppb である。また、100 ppb の濃度に対し測定誤差 4 ppb である。温度 20℃ の変化で 10% の誤差である。

(5) 酸化用ろ紙はもっとも奥に固定してあるので手に触れることはない。

(6) サンプラーは NO₂ 捕集部及び NO_x 捕集部にわかれ、同時に NO₂ 及び NO_x を測定し、NO_x から NO₂ を差し引くことにより NO を求めることができる。

このように、個人曝露量の測定に十分実用になる性能を持つが、反面、小型であるため小さな部品が多いのでサンプラーの組立て及び分析時にやや時間がかかる。

4-4 NO_x の捕集剤

NO₂ の捕集剤として、アルカリ溶液に吸収させる方法、TEA を用いる方法が一般に用いられている。TEA を用いる方法としては、TEA の NO₂ 捕集感度が良い¹¹⁾ことから TEA 溶液に NO₂ を含む空気を吸引し NO₂ 濃度を測定する方法^{19), 20)}がある。このように、NO₂ はそのまま捕集することができ、NO は酸化して NO₂ に変えることにより捕集することからこの実験において NO_x の捕集剤として TEA を用いることとした。

4-5 NO_x の捕集剤の保持材と TEA 濃度

捕集剤としての TEA の保持材として 80 メッシュのステンレス金網を用いた。金網を保持材とする方法は Palmes が 40 メッシュのものを用いている例がある^{2), 3)}。本実験では NO_x との接触面積をより大きくするため 80 メッシュを採用することとした。金網にコーティングするための TEA 濃度を 10, 20, 50 % と変えて捕集量を測定する実験においてみられたように、濃度 50 % では金網の孔に詰まり通気を阻害するので不適當であり、濃度 10 及び 20 % では捕集量にほとんど差がみられなかったので、10 % TEA・アセトン溶液を捕集剤とすることとした。10 % TEA・アセトン溶液を金網にコーティングしたとき金網に保持される TEA 量は金網 5 個当たり約 7 mg であり、通常の大気環境中の NO, NO₂ に比べ大過剰となっており、測定上の支障はない。

4-6 NO の酸化

NO₂ を TEA で捕集することができるが、NO を TEA に直接捕集することはできない。そのため、NO を NO₂ に酸化し、共存する NO₂ と共に定量する方法がとられる。酸化剤の酸化力が強いときには NO₂ が NO₃ まで進む可能性がある。一方、酸化力が弱いと NO₂ まで十分に酸化することができないので、NO を NO₂ に酸化するのに適当な酸化力を持ち、しかも一定の酸化率が得られる酸化剤の選択が必要となる。ザルツマン吸収液を用いた吸引捕集では²¹⁾、一定濃度の硫酸酸性

過マンガン酸カリウム溶液を用い、一定の酸化率が得られたという。また、酸化剤の固体表面での酸化による例があり、Ripley²²⁾は2.5%重クロム酸ナトリウム及び2.5%硫酸混液をガラス繊維ろ紙に含浸し、乾燥させたものを用い、湿度15~75%の範囲で一定の酸化率を得た。そこで、われわれはRipleyの処方による酸化剤を用いることにした。柳沢らは三酸化クロムを酸化剤として用い、酸化剤を外気接触側に置くNO_xサンプラーを報告²³⁾している。著者らの実験結果では、酸化剤を捕集エレメントの奥に置いた場合、前面に置いたときに比べて酸化用ろ紙による吸引ガスの抵抗を受けず、NOの酸化に非常に良好であることが確かめられたので、酸化用ろ紙を奥に置くこととした。このことにより、通常の暴露においても酸化剤に直接手に触れることはなく、サンプラー使用の際の安全性が高まった。

4-7 外気の乱流防止機構

著者らのNO_xサンプラーはガスの分子拡散を利用したものである。分子拡散を利用する個人サンプラーは、主に有害な有機ガスを捕集する目的で各種考案され、産業衛生の分野で使われている。^{2)~6), 24)~32)}この原理によるときは、ガスの捕集面にあたる気流の乱れを防ぐこと(ドラフトシールド)が測定精度を保つ上で必要となっている。そのため乱流防止のためのさまざまな工夫がなされている。

現在用いられているドラフトシールドは大きく2つの方式に分けることができる。1つは大きな拡散長、拡散面積比を持たせるものであり、その例としてDACO社のPalmer型NO₂、NO_xサンプラー⁴⁾、DIFサンプラー、Dupon社のPro-Tekガスモニタリングバッジ³¹⁾や内部を格子状に区切ったAbcor社製のガスバッジ^{5), 24), 25)}、スリーエム社の有機ガスモニター³⁰⁾などがある。他の1つは細孔を持つテフロンフィルターや多孔質の樹脂をサンプラーの前面部に置き乱流防止効果を持たせたものであり、その例として、東洋濾紙社のNO₂フィルターバッジ¹⁾Dupon社Pro-Tekエアモニタリングバッジなどを挙げる事ができる。前者の方式では、理論捕集量をFickの拡散則により求められるが、後者の方式ではドラフトシールド部に拡散抵抗が生じるため理論捕集量の算出は複雑、困難となるので実験的に求めなければならない。われわれもこの2つの方式によりNO_xサンプラーを作り実験した。

すでに述べた本報のNO_xサンプラーは後者の方式に相当する(以下短型サンプラーという)。前者の方

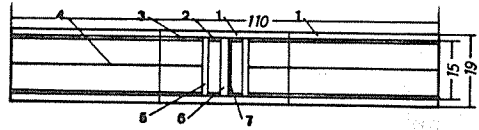


図-5 長型NO_xサンプラーの構造(断面図)

式に相当するものとして図-5に示すようなサンプラーを作製した。これは拡散管を長くしてドラフトシールド効果を持たせているが、構造が単純で扱いやすいという利点があるものの、捕集量が少なくなる(以下長型サンプラーという)。一方、フィルターや短型サンプラーのように金網を前面に置いた場合は、拡散長を短くすることができ、捕集量が多くなり測定感度を上げることができる。反面、ドラフトシールド部の拡散抵抗が大きくなり、ドラフトシールド部のわずかな形状の変化が測定値に大きな変動を与えるのでこの部分の厚さまたは長さを均一にすることが肝要である。

4-8 ドラフトシールド部の形状と捕集係数

図-1(前掲)に示した構造のNO_xサンプラー(短型サンプラー)と図-5(前掲)に示した構造のNO_xサンプラー(長型サンプラー)により比較実験を行った。長型サンプラーが短型サンプラーと異なる部分は、短型サンプラーはドラフトシールドとして2個のステンレス金網(150メッシュ)を用いるのに対して長型サンプラーは内径13mm、長さ60mmのテフロン管の中に十字型に組合せたステンレス板(0.8mm厚)を入れたものをドラフトシールドとして用いている。このように長型サンプラーは拡散部を長くし、さらに管内に整流板を入れることにより乱流防止効果を持たせるようにしたものである。

捕集エレメント金網5個とし、両サンプラーをNO及びNO₂濃度0~400ppbの範囲で暴露した結果、図-4、図-5に示すようにNO及びNO₂の捕集速度が、NO及びNO₂濃度に正比例する結果が得られた。これより、捕集係数を求めると

短型サンプラーでは

$$11.4 \times 10^{-6} \mu\text{g NO} \cdot \text{min}^{-1} \cdot \text{ppb}^{-1}$$

$$11.5 \times 10^{-6} \mu\text{g NO}_2 \cdot \text{min}^{-1} \cdot \text{ppb}^{-1}$$

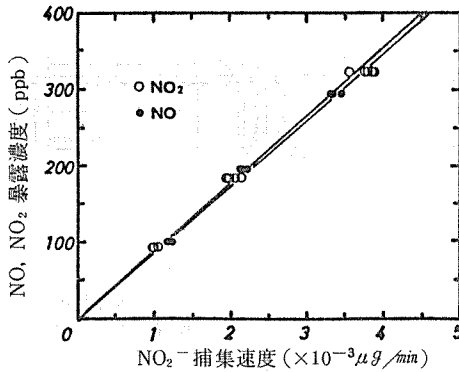


図-6 NO, NO₂濃度と捕集速度の関係 (短型NO_x サンプラー)

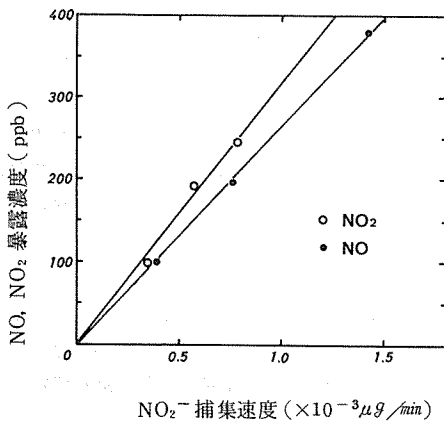


図-7 NO, NO₂濃度と捕集速度の関係 (長型NO_x サンプラー)

長型サンプラーでは

$$3.80 \times 10^{-6} \mu\text{g NO} \cdot \text{min}^{-1} \cdot \text{ppb}^{-1}$$

$$3.40 \times 10^{-6} \mu\text{g NO}_2 \cdot \text{min}^{-1} \cdot \text{ppb}^{-1} \text{ となる。}$$

この結果から短型サンプラーは、長型サンプラーにくらべ、NO, NO₂ いずれについても捕集量が大であり、また短型サンプラーではNO, NO₂ に対する捕集係数がほぼ同一とみなすことができる。

4-9 NO_x サンプラーの捕集特性

NO_x サンプラーを既知濃度NO及びNO₂ に暴露したとき図-6, 図-7に示したように、暴露濃度と捕集速度は明らかに正比例する結果が得られた。このことからNO_x サンプラーは試料ガスが捕集剤に捕集されるとき分子拡散則に従っていると推察できる。

分子拡散則によれば、単位時間 t (sec) 当りの物質移動量 (NO_x サンプラーにおける捕集量) W ($\text{mol} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$) は拡散面積 A (cm^2) 及び濃度勾配 C/L

(ただし C ; 濃度 $\text{mol} \cdot \text{cm}^{-3}$, L ; 拡散長 cm) に比例し次の式が成り立つ。^{33), 34)}

(Fickの拡散第一則)

$$\frac{W}{t} = k \cdot A \cdot \frac{C}{L}$$

(ここに k ; 分子拡散係数 $\text{cm}^2 \cdot \text{sec}^{-1}$)

NO_x サンプラーにおいて、濃度 C (ppb) は捕集速度 W/T ($\mu\text{g} \cdot \text{min}^{-1}$) に比例することから

$$C = \alpha \cdot \frac{W}{T}$$

(ここに α ; 比例定数)

とおくことができる。

ここで理想的な最良の条件として、NO_x サンプラーのドラフトシールド部及び捕集部での拡散抵抗が十分に小さく無視できると仮定し、濃度 C をppb, 時間 T をsec, 捕集量 W を μg で示すとき、比例定数 α は次式で与えられる。

$$\alpha = k \cdot \frac{A}{L} \cdot \frac{M}{24.05} \cdot f \cdot 60 \cdot 10^{-6}$$

ただし、 k ; 分子拡散係数NOのとき $k = 0.199$,

NO₂のとき 0.154 ($\text{cm}^2 \cdot \text{sec}^{-1}$)

f ; NO₂ (gas) からNO₂⁻への転換係数
0.99

A ; 捕集部の断面積(cm^2)

L ; 拡散長(cm)

M ; ガスの分子量, NOのとき30, NO₂のとき46

α の値をNO_x サンプラーについて求めると次のようになる。短型サンプラーでは、NO捕集部では拡散長 $L = 0.9$ cm, 捕集部の有効型1.3 cm, 有効断面積 $A = 1.33 \text{cm}^2$ であるから

$$\alpha_{\text{NO}} = 21.8 \times 10^{-6} (\mu\text{g} \cdot \text{ppb}^{-1} \cdot \text{min}^{-1})$$

NO₂捕集部では、拡散長 $L = 0.6$ cm, 捕集部の有効径1.30 cm, 有効断面積 $A = 1.33 \text{cm}^2$ であるから

$$\alpha_{\text{NO}_2} = 38.8 \times 10^{-6} (\mu\text{g} \cdot \text{ppb}^{-1} \cdot \text{min}^{-1})$$

長型サンプラーのNO捕集部では、拡散長 $L = 5.5$ cm, 捕集部の有効径1.30 cm, 有効断面積 $A = 1.125 \text{cm}^2$ であるから

$$\alpha_{\text{NO}} = 3.02 \times 10^{-6} (\mu\text{g} \cdot \text{ppb}^{-1} \cdot \text{min}^{-1})$$

NO₂捕集部では、拡散長 $L = 5.2$ cm, 捕集部の有効断面積 1.125cm^2 であるから

$$\alpha_{\text{NO}_2} = 3.78 \times 10^{-6} (\mu\text{g} \cdot \text{ppb}^{-1} \cdot \text{min}^{-1})$$

これらを理論捕集値とする。

ところで考察4-8で既に述べたように、実際の捕集係数として、NO及びNO₂に対して、短型サンプラーの場合それぞれ 11.4×10^{-6} , 11.5×10^{-6} , 長型サンプラーの場合それぞれ 3.8×10^{-6} , 3.4×10^{-6} (い

表-6 吸光度と暴露濃度時間積の関係
(短型NOxサンプラー)

吸光度	捕集量 (μg)	NO濃度 時間積 (ppb \cdot min)	NO ₂ 濃度 時間積 (ppb \cdot min)
0.01	0.1	9200	9100
0.05	0.5	46000	46000
0.1	1.1	92000	91000
1.0	10.5	920000	910000

ずれも $\mu g \cdot ppb^{-1} \cdot min^{-1}$)が得られている。これらの値の前記理論捕集量に対する比(捕集率)は、NO及びNO₂に対して短型サンプラーの場合はNO 52%、NO₂ 30%、長型サンプラーの場合はNO 127%、NO₂ 89%となる。短型サンプラーの場合は、長型サンプラーに比べて捕集率が低い。考察4-7でも述べているように短型サンプラーではドラフトシールド部の拡散抵抗があるためである。しかし、捕集量についてみると、捕集係数 α を比較して約3倍となっている。一方、長型サンプラーでは捕集率は高く、NO₂で理論捕集量に近い値が得られている。NOでは100%を超えている値となっているが、この原因は不明である。

4-10 暴露濃度と暴露時間

NOxサンプラーによる捕集量と吸光度の関係は、実験及び実験結果3-1で既に述べたようにNO₂⁻8 μg (1 $\mu g/ml$ ×吸光度測定時の液量8ml)の示す吸光度はおおよそ0.85であり、また空試験値のときの吸光度はおおよそ0.01である。分析のとき測定しやすい最終吸光度0.01~1.0の範囲に納めようとするとき、それに対応するNO₂⁻、NO、NO₂濃度時間積は、短型サンプラーでは表-6のようになる。これより、暴露時間を24時間としたとき、測定可能な濃度範囲は、NO、NO₂濃度6~600ppbとなる。

4-11 温度影響

捕集量は拡散係数に比例する。この拡散係数 k は、温度により変化し、絶対温度の $3/2$ 乗に比例する³³⁾。したがって室温付近での温度差20℃では約10%、10℃では約5%の捕集量の差が生じる。この捕集原理による以上温度による誤差が生じることは避けられないが、注意を払っておく必要がある。

5. まとめ

大気中のNO及びNO₂を1つのサンプラーで同時に測定できるNOx個人サンプラーを開発、製作した。こ

のサンプラーについて暴露実験等を行ってNOxガスの捕集特性、精度及び実用性を検討した。その結果、製作したNOx個人サンプラーは次のような特徴を持ち、窒素酸化物の生活環境濃度の測定に対して十分実用性のあることが判明した。

- (1) 製作したNO、NO₂同時測定用個人サンプラーは、総重量約10gと非常に軽量で、大きさは外径19mm、長さ30mmの亚克力製の短円筒型で小型である。
- (2) サンプラーは、NO₂捕集部とNOx(NO+NO₂)捕集部に分かれ、それぞれの捕集部へ分子拡散の原理によってNO及びNO+NO₂を捕集する。NO量は捕集したNOx量からNO₂量を差し引くことにより求めることができる。
- (3) 捕集エレメントにTEAをコーティングしたステンレス金網を用いることにより、抽出の際の破損がなく、再コーティングすることによりサンプラーの再利用が可能である。
- (4) NO酸化用ろ紙はサンプラーの最も奥に位置しているため、手に触れることはなく安全である。
- (5) サンプラーの測定精度は24時間暴露で測定感度6ppb、100ppbのNO、NO₂濃度に対し測定誤差4ppbである。また、温度20℃の変化で約10%の誤差である。

今後は、サンプラーに使用するドラフトシールドの形状、材質についてさらに検討を加え、風洞実験を行い、捕集特性及び精度についての研究を積み重ねてゆく予定である。

文 献

- 1) 柳沢幸雄, 西村肇: 生活環境中濃度測定用NO₂パーソナルサンプラー. 大気汚染学会誌, 15(8), 316-323(1980).
- 2) E. D. Palmes, A. F. Gunnison, J. Dimattio and C. Tomczyk: Personal sampler for nitrogen dioxide. *Am. Ind. Hyg. Assoc. J.*, 37, 570-577(1976).
- 3) E. D. Palmes and C. Tomczyk: Personal sampler for NOx. *Am. Ind. Hyg. Assoc. J.*, 40, 588-591(1979).
- 4) Daco Products, Inc.: Passive sampler for NOx. *Daco Products, Inc. Technical Data Sheet* (1980).
- 5) Walden Division of Abcor Inc.: GASBADGE Monitoring service for nitrogen

- dioxide. *Abcor Inc. Technical Data Sheet* (1976).
- 6) Maurine A. Willey, Charles S. McCammon, Jr. and Laurence J. Doemeny: A soled sorbent personal sampling method for the simultaneous collection of nitrogen dioxide and nitric oxide in air. *Am. Ind. Hyg. Assoc. J.* 359-363 (1977).
- 7) 天谷和夫: 小型捕集管を用いた種々の大気汚染物質の簡易測定法. 大気汚染学会誌, 9(2), 第16回大気汚染学会講演要旨集 192(1974).
- 8) 佐藤静雄, 井上勇, 石塚謙一, 市橋正之: 大気中のNO₂ 相対濃度測定法について. 公害と対策, 13 (3) 292-297(1976).
- 9) 石塚謙一ほか〔神奈川県臨海地区大気汚染調査協議会(神奈川県, 横浜市, 川崎市, 横須賀市)〕: 神奈川県臨海地区における窒素酸化物の分布について(1)-TEAろ紙法-. 第17回大気汚染学会講演要旨集, 378(1975).
- 10) 神奈川県臨海地区大気汚染調査協議会: 窒素酸化物の汚染分布調査. 神奈川県臨海地区大気汚染調査報告書, 昭和50年度, 9-155(1975).
- 11) 横浜市公害対策局, 横浜市薬剤師会: 横浜市大気汚染平面調査報告書(アルカリろ紙法による二酸化窒素濃度). 昭和49年度, (1974).
- 12) 新田裕史, 前田和甫: 二酸化窒素簡易測定法の個人モニターへ利用の可能性の検討. 大気汚染学会誌, 14 (5), 203-209(1979).
- 13) 後藤隆雄: トリエタノールアミン吸着ろ紙を用いた二酸化窒素測定の見定と測定の見定, 3の応用. 大気汚染学会誌, 15 (8), 334-341(1980).
- 14) 柳沢幸雄, 西村肇: 簡易二酸化窒素測定法の見定. 第17回大気汚染学会講演要旨集, 192(1976).
- 15) 津野正則, 柳沢幸雄, 西村肇: NO₂ アルカリろ紙法-Chamber実験による見定-. 第19回大気汚染学会講演要旨集, 236(1976).
- 16) 柳沢幸雄, 西村肇: バッジ型測定器による生活環境でのNO₂ 個人被曝量の測定. 第20回大気汚染学会講演要旨集, 373(1979).
- 17) 新田裕史, 横山泰彦, 三浦邦彦, 青木繁伸, 前田和甫: 二酸化窒素の個人曝露量に関する研究-都市における主婦を対象とした見定結果-. 大気汚染学会誌, 15 (10), 418-425(1980).
- 18) 広済幸男, 中田義富, 藤木久夫, 豊島邦光, 山口泰正, 杜下治三男, 山田満, 佐藤長四郎: 家庭婦人のNO₂ 個人曝露量に関する見定-バッジ型測定器による冬期の測定-. 第21回大気汚染学会講演要旨集, 545(1980).
- 19) D. A. Levaggi, W. Siu and M. Feldstein: A new Method for Measuring Average 24-hour Nitrogen Dioxide Concentration in the Atmosphere, *J. Air Pollut. Control Assoc.*, 23 (1), 30-33(1973).
- 20) 大塚幸雄, 村上武弘, 金子幹宏, 佐野貞雄, 和田裕: トリエタノールアミンろ紙を用いる大気中の二酸化窒素, 二酸化硫黄およびホルムアルデヒドの大気汚染度測定法. 大気汚染学会誌, 13 (6), 233-238(1978).
- 21) Bernard E. Saltzman: Colorimetric microdetermination of nitrogen dioxide in the atmosphere. *Anal. Chem.*, 26(12), 1949-1955(1954).
- 22) Ripley, D. L., J. M. Clingelpeel and R. W. Hurn: Continuous Determination of nitrogen oxides in air and exhaust gases. *Int. J. Air Water Poll.*, 8 455-463 (1964).
- 23) 柳沢幸雄, 西村肇: 窒素酸化物測定用バッジ型パーソナル・サンプラー. 第21回大気汚染学会講演要旨集, 317(1980).
- 24) R. L. Bamberger, G. G. Esposito, B. W. Jacobs, G. E. Podolak and J. F. Mazur: A new personal Sampler for organic vapors. *Am. Ind. Hyg. Assoc. J.*, 39 (9), 701-708 (1978).
- 25) J. F. Mazur, R. L. Bamberger, G. E. Podolak and G. G. Esposito: Development and evaluation of an ammonia dosimeter. *Am. Ind. Hyg. Assoc. J.*, 39 (9), 749-753 (1978).
- 26) Frederick C. Tompkins, J.R. and Robert L. Goldsmith: A new personal dosimeter for the monitoring of industrial pollutants. *Am. Ind. Hyg. Assoc. J.*, 38 (8), 371-377 (1977).
- 27) Philip W. West and Kenneth D. Reiszner: Field tests of a permeation-type personal monitor for vinyl Chloride. *Am. Ind. Hyg. Assoc. J.*, 39 (8), 645-650(1978).

- 28) 杉本寛治, 青野裕士, 船越伝 : 活性炭管法, およびガスバッジ法による有機溶剤ガスの個人曝露量評価についての研究 (1). 第 52 回日本産業衛生学会講演要旨集, 484-485 (1979).
- 29) 上野浩, 安部雅子, 内藤勝己, 藤木幸雄 : 拡散式捕集法の捕集材に関する比較検討. 第 20 日本労働衛生工学会講演要旨集, 31-32 (1980).
- 30) 高田昂, 門脇武博, 高橋英尚, 鈴木浩一, 小西淑人, 吉川正博 : 有機ガスモニターの実用性の検討. 作業環境, 1(2), 47-53 (1980).
- 31) William J. Lautenberger, Elbert V. Kring and Joseph A. Morello : A new personal badge monitor for organic vapors. *Am. Ind. Hyg. Assoc. J.*, 41 (10), 737-747 (1980).
- 32) Joseph G. Montalvo : Total elemental content Passive personal monitors. *Am. Ind. Hyg. Assoc. J.*, 40 (12), 1046-1054 (1979).
- 33) Walter L. Badger and Julius T. Bancero : *Introduction to chemical engineering*. 374-376 (1955). McGraw-Hill, Kogakusha.
- 34) E. D. Palmes and R. H. Lindenboom : Ohm's law, Fick's law and diffusion samplers for Gases. *Anal. Chem.*, 51 (14), 2400-2401 (1979).

生活環境のNO, NO₂と個人暴露量との関係

平野耕一郎^{*}, 前田裕行^{*}, 中村貢^{*}, 米山悦夫^{*}

要旨

生活環境中のNO_x汚染と個人暴露量との関係について、NO₂及びNOを同時に測定し、NO₂とNOとの両面から個人暴露量を検討した報告例は殆んど見当たらない。今回、本研究においてNO₂とNOを同時かつそれぞれを分別して測定できる個人サンプラーを開発し、このサンプラーを用いて本研究所の職員15人を対象とし、24時間あたりのNO₂及びNOの個人暴露量と各人が居住する室内及び外気についてその濃度を測定し、それぞれの関係を比較検討した。

その結果、1) NO₂及びNOの個人暴露量は個人によって大きな開きがあり、NO₂で2倍(31~59ppb)、NOで5倍(28~136ppb)であった。また、各人の居住室内ではNO₂が4.5倍(21~87ppb)、NOが9.5倍(21~136ppb)と更に大きな差を示し、特に濃度差はNOに顕著であった。2) NO₂及びNOの居住地における外気中の濃度はNO₂が28~53ppb、NOが3~17ppbであった。また、濃度は本市の大気汚染常時監視局の日平均値に近いものであった。3) 室内中のNO濃度は常に外気より高いが、NO₂濃度はNOの高濃度である被検者で高く、低濃度の者で低くなる傾向がみられた。4) NO₂及びNOの高濃度である被検者は室内における濃度が個人暴露量への寄与として大きく、また、低濃度である居住環境に生活している人は室内以外の場所における被曝の影響が大きいことが判った。

1. はじめに

近年、窒素酸化物による大気汚染はNO₂の環境基準が0.02ppmから0.04~0.06ppmに変更されるなど世間で注目を集めることが多い。この窒素酸化物は工場、事業場のボイラー等燃焼施設や自動車のエンジンから排出され、屋外の環境を汚染するものがある一方で、各家庭内にある暖房器具や厨房設備から排出され、屋内の環境を汚染するものがある。その他に喫煙による個人被曝や室内汚染等があり、窒素酸化物による大気汚染は複雑多岐である。

この窒素酸化物並びに他の汚染物質による大気汚染と人の健康との因果関係を論ずるにあたって、汚染物質と個人暴露量との関係を正確に把握することが重要

であり、特に疫学調査において大気汚染物質と人体影響との関係を検討する上で有用なものとなる。

最近になり、特に窒素酸化物の測定のためのNO₂個人サンプラーがPalms[®]や柳沢ら^{1~3)}によって考案されたこともあり、NO₂の個人暴露量の測定例が報告されるようになった^{4~9)}。大気中の窒素酸化物としてはNO₂の他にNOも多量に存在し、またNO₂の供給源となる一次汚染物質であることからNOを無視することはできない。これまでに報告された個人サンプラーはNO₂を測定するものであり、NOとNO₂とを同時に測定できなかったのも、著者らはNO及びNO₂が同時に測定できるサンプラーを新たに開発した¹¹⁾。

本報告は著者らが開発したNO、NO₂同時測定用

Relationship between personal exposure and NO, NO₂ gas concentration in ambient air

* Koichiro Hirano, Hiroyuki Maeda, Mitsugu Nakamura, Etsuo Yoneyama
横浜市公害研究所大気部門

個人サンプラーを使用し、NOとNO₂との両面から個人の暴露量の詳細を検討するための予備調査として本研究所の職員を被検者を選び、各被検者が生活する環境中のNO、NO₂濃度と個人暴露量の実体を明らかにする目的で、個人についての24時間あたりの暴露量と各人が居住する室内及び外気についてNOとNO₂の濃度を測定したものである。

2. 調査方法

2-1 調査期間

昭和56年3月27日～4月23日(内5日間)

2-2 調査概要

当研究所の職員15人(男14人,女1人)を被検者

を選び、各被検者の自宅の居間、外気(ベランダや軒下等)及び職場の室内とその屋外並びに被検者個人について、朝8時から翌朝8時までの24時間測定を5回実施した。

また、測定期間中における被検者の生活行動及びコンロ等の燃焼器具の使用状況並びに喫煙本数などについてもアンケートによる調査を併せて実施した。

2-3 測定方法及び分析方法

図1に示すようにサンプラーをスチロール容器内に密封保存した状態のもの3個を各被検者に毎回測定日の前日に渡し、測定時間開始時にスチロール容器内からサンプラーを取り出して所定の場所にセットし、24時間暴露した後、このサンプラーを元のスチロール容

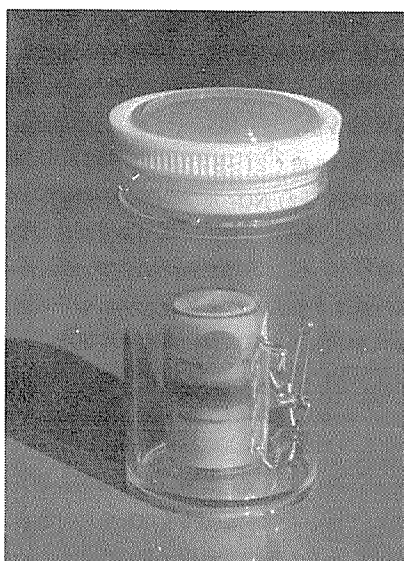


図-1 スチロールビンに密封保存されたNO、NO₂同時測定用個人サンプラー

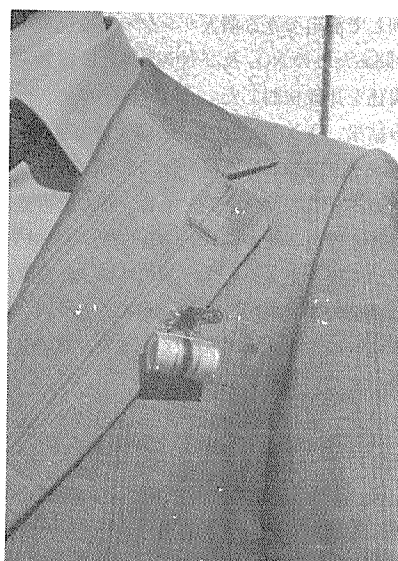


図-2 被検者本人に個人サンプラーをセットした場合の測定例



図-3 室内の居間(電燈用スイッチの紐)に個人サンプラーをセットした場合の測定例

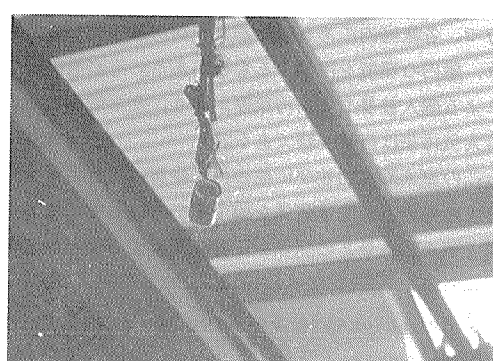


図-4 屋外の軒下に個人サンプラーをセットした場合の測定例

器内に納めて密封保存した。サンプラーがセットされた例を図2～4に示す。

次に、回収されたサンプラーからNO₂捕集エレメント及びNO_x捕集エレメントを取り出して比色管に入れ、蒸留水8mlを加えてNO₂及びNO_xを抽出し、その後、抽出液を低温下(約5℃)の冷蔵庫内で30分間放置した後、カップリング試薬1mlとジアゾ化試薬1mlを加えて再び冷蔵庫内に30分間放置した。続いて抽出液を室温にもどした後、分光光度計を用いて波長550nmにおける吸光度を測り、NO₂及びNO_xの濃度を求めた。NO_xとNO₂との差をNOとした。

3. 調査結果

3-1 単純集計の結果

各被検者に対するNO₂及びNOの測定結果を表1に示した。また、図5に各被検者の個人暴露量と各人の居住室内及び外気についてNO₂とNOの濃度の幾何平均値を棒グラフとして示した。また、同時に行った各被検者についての生活実態(家屋構造、コンロ等の燃焼器具の使用状況及び喫煙本数など)のアンケート調査結果を表2に示した。

NO₂及びNOの個人暴露量についてNO₂の最高濃度は101ppb(モニター13)、最低濃度は27ppb(モニター11)であり、またNOの最高濃度は209

ppb(モニター12)、最低濃度は16ppb(モニター13)であった。更に5回の測定値の平均ではNO₂の最高濃度は59ppb(モニター13)、最低濃度は31ppb(モニター6)であり、各被検者の平均値は31～59ppbの濃度範囲を示し、被検者による差は2倍程度とあまり大きくなかった。これに対して、NOの最高濃度は136ppb(モニター12)、最低濃度は28ppb(モニター4)であり、各被検者の平均値は28～136ppbの濃度範囲を示し、被検者による差は5倍近くあり、各人によってNOに被曝した量が大きく違うことを示していた。

各被検者についての居住室内のNO₂及びNOについて、NO₂の最高濃度は153ppb(モニター6)、最低濃度は17ppb(モニター4)であった。またNOの最高濃度は24ppb(モニター12)、最低濃度は11ppb(モニター3)であった。更に5回の測定値の平均ではNO₂の最高濃度は87ppb(モニター12)、最低濃度は21ppb(モニター2)であった。また、NOの平均値についての最高濃度は199ppb(モニター12)最低濃度は21ppb(モニター3及び5)であった。

各被検者が生活する居住室内のNO₂及びNOについての平均濃度の最高値と最低値との比は4.1倍及び9.5倍程度と大きいことから、被検者となった各人の家庭におけるNO₂とNOの室内汚染の度合は各被検者の家

表-1 生活環境におけるNO、NO₂濃度の測定結果

モニター 番号	暴露量 ppb																			
	個人								室内								外気			
	NO ₂		NO		NO ₂		NO		NO ₂		NO		NO ₂		NO					
最高	最低	平均*	最高	最低	平均*	最高	最低	平均*	最高	最低	平均*	最高	最低	平均*	最高	最低	平均*			
1	49	34	41	48	32	42	50	23	32	86	20	34	69	42	52	20	5	11		
2	44	32	39	97	19	40	25	18	21	51	13	25	52	26	38	10	1	3		
3	51	39	43	71	20	37	26	21	25	52	11	21	53	25	38	10	1	3		
4	38	31	35	54	16	28	32	17	22	47	13	23	52	38	42	6	0	3		
5	45	33	40	87	27	48	43	26	37	28	16	21	51	33	42	14	1	5		
6	44	23	31	104	23	35	53	29	55	51	25	34	41	22	28	13	5	8		
7	52	36	46	93	28	58	68	32	44	116	17	54	80	32	53	27	5	12		
8	53	36	46	87	51	61	79	52	62	80	38	58	66	38	48	22	4	12		
9	59	36	45	80	32	48	47	28	37	115	25	68	67	37	51	30	6	17		
10	58	42	52	124	19	67	86	69	75	218	75	138	55	25	35	16	0	3		
11	55	27	40	66	28	42	51	22	32	58	17	33	58	32	41	10	1	4		
12	53	38	49	209	101	136	140	69	87	240	172	199	52	26	40	24	3	7		
13	101	35	59	101	16	50	136	20	75	146	41	79	58	15	37	10	0	3		
14	69	30	43	123	61	89	64	38	47	110	65	84	58	37	50	20	3	7		
15	66	27	46	165	85	119	44	29	35	105	69	95	54	24	32	14	2	8		
最高	101	42	59	209	101	136	153	69	87	240	172	199	80	42	53	30	6	17		
最低	38	27	31	48	16	28	25	17	21	28	11	21	41	15	28	6	0	3		
5F**	—	—	—	—	—	—	39	14	28	16	9	8	3	7	27	5	1	3		
3F**	—	—	—	—	—	—	49	23	38	18	9	10	—	—	—	—	—	—		

* 平均値：昭和56年3月～4月、5日間の幾何平均値

** 5F, 3F：横浜市公害研究所の5階及び3階

庭環境の違いによって大きく異なってくることが判った。すなわち、単身世帯(モニター2と3)の居住室内におけるNO₂とNOの濃度は他の被検者に比べて低い、既婚者で乳幼児がいる家庭(モニター12と14)や建屋構造の密閉度がよい鉄筋家屋などに居住する被検者(モニター7, 10と15)の室内はNO₂とNOの濃度が高い傾向にあり、特にNO_x中に占めるNOの割合が大きくなり、NOによる汚染が室内に著しいことが認められた。

被検者が居住する場所における外気のNO₂とNO濃度は最高値がNO₂で80 ppb(モニター7)、NOで

30 ppb(モニター9)、最低値がNO₂で15 ppb(モニター13)、NOで0 ppb(モニター4, 10, 13)であった。更に5回の測定値の平均では、最高値がNO₂で13 ppb(モニター7)、NOで17 ppb(モニター9)、最低値がNO₂で28 ppb(モニター6)、NOで3 ppb(モニター4, 10, 13)であった。

職場環境の室内におけるNO₂とNOの濃度は5階及び3階のNO₂が14~39 ppb及び23~49 ppb, NOが9~16 ppb及び9~18 ppbであり、また外気についてのNO₂濃度は7~53 ppb, NO濃度は1~5 ppbであった。更に5回の測定値の平均では5階及び3階

表-2 各モニターの生活実態

モニター番号		1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13*	14	15
家族構成	独身者	○	○	○					○							
	既婚者	乳幼児有り											○		○	
		乳幼児無し				○	○	○	○		○	○	○		○	
家屋構造	鉄筋		○	○				○			○	○				○
	木造	○			○	○	○		○	○			○	○	○	
コンロ、湯沸等の使用時間** hour		0.90	0.80	0.45	2.15	1.90	1.81	3.90	2.65	2.65	3.45	1.80	2.45	1.50	4.65	1.20
暖房器具の使用時間** hour		0.40	0	0.05	0	0	0.94	1.80	0.60	0	0	2.60	0	3.90	3.20	0
喫煙本数** 本/日		0	24	0	0	0	5	0	19	0	30	30	30	0	23	0

* モニター13は女性, その他のモニターは男性

** 昭和56年3月~4月, 5日間平均値

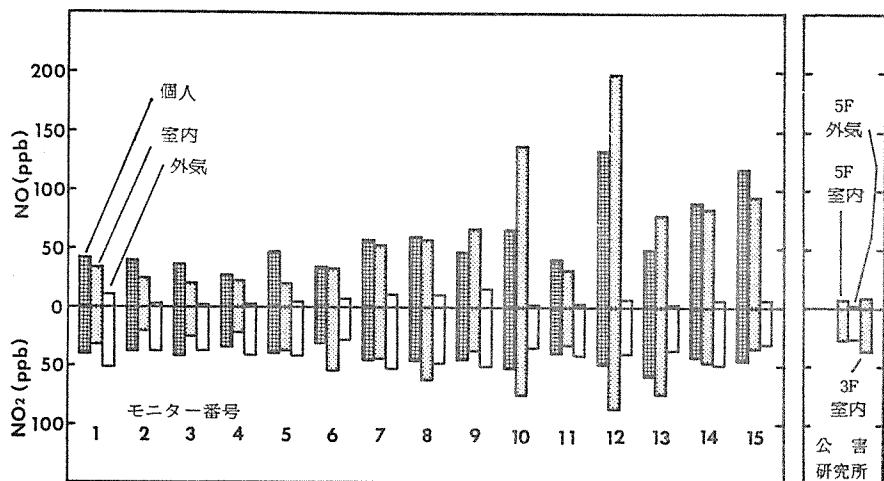


図-5 生活環境中におけるNO₂及びNO濃度
(昭和56年3月~4月, 5日間平均値)

のNO₂濃度は28及び38ppb, NO濃度は8及び10ppbであり, また外気についてのNO₂濃度は27ppb, NO濃度は3ppbであった。

表3に示すように調査期間中の本市の大気汚染常時監視局における測定濃度と本市に居住する被検者についての住宅地における外気のNO₂及びNO濃度をみくらべた場合, 測定場所ごとにNO₂, NOの順で例記すると, 港北に居住する被検者(モニター12)のNO₂濃度は40ppb:39ppb(モニター:常時監視局), NO濃度は7ppb:21ppb, 平沼の被検者(モニター1)のNO₂濃度は52ppb:43ppb, NO濃度は11ppb:32ppb, 戸塚の被検者(モニター2及び3)のNO₂濃度は両者同一で38ppb:35ppb, NO濃度も同様に3ppb:23ppb, 野庭の被検者(モニター10)のNO₂濃度は35ppb:32ppb, NO濃度は3ppb:13ppbであった。これらの被検者のNO₂濃度は測定値がほぼ同じであり, 各人の居住地における外気はその大気汚染常時監視局の日平均濃度に近い値であったが, NO濃度は10~21ppbの差が認められた。

3-2 個人暴露量, 室内濃度及び外気濃度相互の関係

個人暴露量の濃度と室内濃度及び外気濃度の関係を表1よりみると室内のNO_x濃度が特に高かった被検者であるモニター10, 12及び13はNO₂及びNOの両方に対して, またモニター9はNOに対して, 更にモニター6, 8及び14はNO₂に対して個人暴露量の濃度が室内濃度より低い値を示した。一方, NOの個人暴露量の濃度はすべての被検者において外気濃度より高い値を示すとともに, 他方NO₂は室内のNO_x(NO

+NO₂)濃度が特に高いモニター10及び12とモニター15で個人暴露量の濃度が外気濃度より高い値を示したが, その他の被検者では外気濃度より低い値あるいはほぼ等しい値を示した。

各被検者のNO₂及びNO濃度の平均値について, 個人暴露量と室内濃度及び外気濃度並びに室内濃度と外気濃度との関係を散布図として図6~11に示した。また, 各図中に相関係数, 回帰式及びデータ数を併せて記載した。

図6, 7よりNO₂及びNOの個人暴露量と室内濃度との相関関係は統計学的に有意であった。従って, 室内汚染による個人暴露量への寄与が示唆され, 特にNO₂の場合, その相関係数は0.63であり, NOのそれは0.84と値が高いことから, 室内汚染の個人暴露量への寄与はNO₂よりNOの方が大きいことが認められた。

図8~11より, NO₂及びNOの個人暴露量と外気濃度及び室内濃度と外気濃度との相関関係はすべてのケースについて統計学的に有意でなかった。従って, 個人暴露量及び室内濃度に及ぼす外気濃度の影響の程度は今回の調査では明らかにすることができなかった。

4. 考 察

4-1 室内のNO_x濃度

外気に比べて室内におけるNO濃度は著しく高く, このことは新田^{12,13}, 長谷川^{14,15}がNO₂及びNO_x(NO+NO₂)の室内汚染について報告しているように, 各家庭の中には生活必需品としてのコンロや

表-3 横浜市におけるNO, NO₂濃度(昭和56年3月27日~4月23日)

測定場所	NO ₂ 濃 度 ppb			NO 濃 度 ppb		
	平均値 (時間値)	最大値 (日平均)	最小値 (日平均)	平均値 (時間値)	最大値 (日平均)	最小値 (日平均)
鶴見	42	60	25	23	74	5
神奈川	33	54	18	33	98	13
港北	39	70	22	21	68	5
磯子	39	69	19	26	82	5
桜ヶ丘	36	63	21	21	85	5
平沼	43	74	18	32	104	5
長浜	33	67	12	11	64	3
生麦	37	58	26	20	64	7
本牧	33	69	12	15	81	3
戸塚	35	65	17	23	78	6
都田	29	51	13	13	55	3
野庭	32	54	10	13	59	2
鶴ヶ峰	33	61	15	17	68	5
最大値	43	74	—	33	104	—
最小値	29	—	10	11	—	2

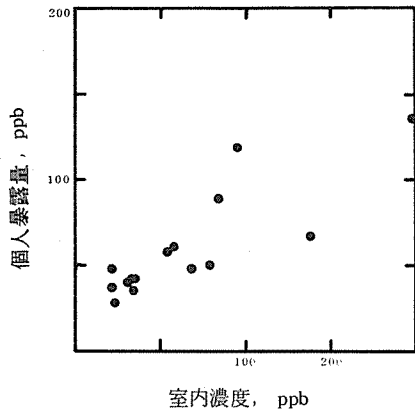


図-6 NOの個人曝露量と室内濃度との測定値に関する散布図

$Y=0.53X+26.2$ $R=0.84$ $N=15$

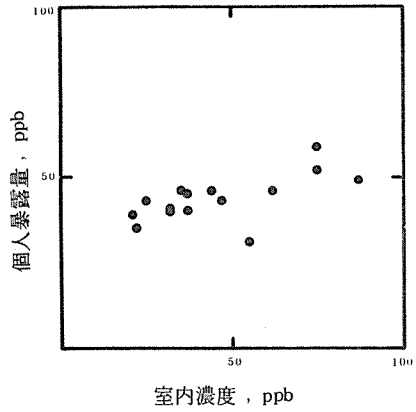


図-7 NO₂の個人曝露量と室内濃度との測定値に関する散布図

$Y=0.21X+34.2$ $R=0.63$ $N=15$

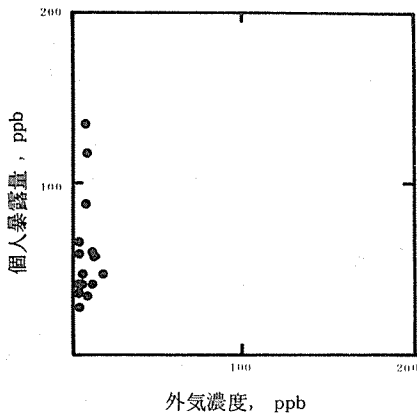


図-8 NOの個人曝露量と外気濃度との測定値に関する散布図

$R=0.12$ $N=15$

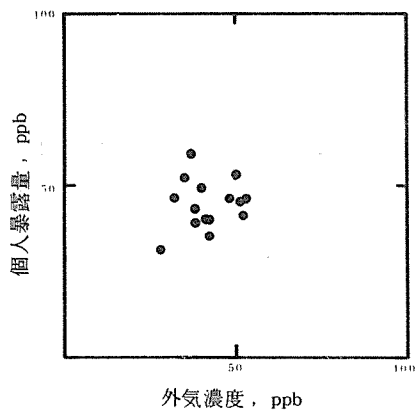


図-9 NO₂の個人曝露量と外気濃度との測定値に関する散布図

$R=0.07$ $N=15$

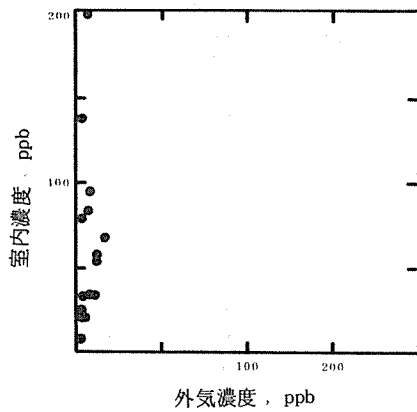


図-10 NOの室内濃度と外気濃度との測定値に関する散布図

$R=0.11$ $N=16$

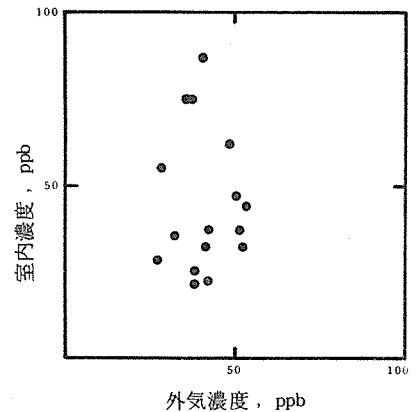


図-11 NO₂の室内濃度と外気濃度との測定値に関する散布図

$R=0.06$ $N=16$

暖房器具などの燃焼器具が多くあり、これを使用することで燃焼排ガス中の窒素酸化物(NO_x)による室内汚染が起るものと思われる。

また、 NO_x の室内汚染に対する各家庭の差違は、新田らの報告^{12,13)}の中に燃焼器具の使用時間と室内濃度が統計的に有意な相関関係にあると云う調査結果から見て、本調査においても燃焼器具の使用状況(時間)、数量及び大きさ並びに建屋構造等によって換気能力が各家庭で異なっていることなどから生じたものと思われる。

4-2 個人、室内及び外気の相互関係

全被検者について、室内の NO 濃度は外気より常に高いが NO_2 濃度は高い家庭と低い家庭とに分かれていた。この原因の一つとして4-1で述べたように、室内には NO_x ($\text{NO}+\text{NO}_2$)を排出する燃焼器具が多くあり、これらの使用に伴って出る NO が室内汚染に大きく寄与しているためと思われる。また、 NO_2 はその化学的性質からして、 NO に比べると室内の畳や壁等に吸着して減少すると云う指摘があり^{16,17)}、従って、この吸着が一つの原因として考えられ、室内の NO_2 濃度が外気濃度より低くなるのが推測されているが、はっきりしたことは今回の調査から判定はできなかった。しかし、 NO 濃度が高い場合は、 NO_2 濃度も相対的に高いので室内の NO_2 濃度は外気より高くなる傾向が認められた。従って、室内の NO_2 濃度は NO_x の高濃度汚染であった被検者の家庭(モニター6, 8, 10, 12, 13, 14及び15)において高くなり、 NO_x の低濃度汚染であった被検者の家庭(モニター1, 2, 3, 4, 5, 7及び11)において低くなったものと推測される。

次に、図-6,7の結果で、室内の NO_2 及び NO 濃度が高かった被検者は個人暴露量の濃度が高くなる傾向にあるのは、室内の NO_2 及び NO 濃度が高いときに、室内汚染による個人暴露量への寄与が大きく影響するためと思われる。一方、 NO_2 及び NO 濃度の低い被検者は表1と図5からみて、在住時間の長い家庭室内や職場内の NO_x 濃度に比べて、個人被曝量の濃度が高いことから、個人が生活行動中に被曝する NO_x のうちで、居住地や職場等の場所で受けた被曝より通勤等によるものが個人暴露量に大きく寄与していたものと思われる。

4-3 生活様式との関係

モニター2, 3は単身世帯で同一敷地の団地に住み、同一勤務先である場合、両者の室内の NO_2 及び NO 濃度は21~25 ppbと既婚者あるいは同居者がいる被検

者より低い値を示していた。また、外気濃度はほぼ同値であり、個人暴露量も差がなかった。更に一方は喫煙者であり、他方は非喫煙者であるが、この差は表われていなかった。

モニター12及び14はいずれも既婚者の中で乳幼児がいる。これら被検者の NO_x に対する個人暴露量と室内濃度は全モニターの中で最高レベルの値を示した。このような乳幼児のいる家庭は柳沢ら⁹⁾が指摘するようにコンロ、湯沸器等を使う機会が比較的に多いので、 NO_x 特に NO による高濃度汚染が室内に発生しやすいと思われる。従って、居住者の NO_x 被曝が大きくなったものと思われる。また、モニター7, 10及び15のように密閉度のよい鉄筋家屋等に住んでいる家庭は室内の換気に気を付けなければ NO_x 汚染が高いレベルになり、居住者の NO_x 被曝が大きくなるものと思われる。

4-4 個人暴露量と喫煙等による被曝

本調査からは喫煙によって被曝した個人暴露量が明確に把握できなかった。また、全被検者の勤務する当研究所(比較的に換気が良い職場)における NO_x 被曝の寄与は職場内の NO_x 濃度が個人暴露量の濃度に比べて低かったことからみて、少かったものと思われる。

4-5 NO_x 濃度と NO_2/NO_x 比との関係

NO_x 濃度と NO_2/NO_x 比との関係は図12に示した。

外気の NO_x 濃度は40~70 ppb、 NO_2/NO_x 比は0.75~0.95のところ集中しており、居住地相互にあまり差がないことを示している。一方、室内の NO_x 濃度は40~290 ppb、 NO_2/NO_x 比は0.25~0.65と被検者の間に非常に大きな差があることを示している。この差は各家庭において燃焼器具の使用状況や家屋構造が違っているためと思われる。他方、 NO_x の個人暴露量の濃度は60~190 ppb、 NO_2/NO_x 比は0.25~0.55の範囲であり、外気と室内の中間値であって、被曝者の間に大きな差があることを示している。これは4-2で述べたように個人が被曝する NO_x は外気プラス室内プラスその他の通勤過程等の異なった種々の場所で被曝した総合的な汚染量を表しているためと思われる。

5. まとめ

本報告は、 NO 、 NO_2 が同時に測定できる個人サンプラーを使用して、生活環境中の NO_x 汚染について、24時間あたりの個人暴露量、外気濃度及び室内

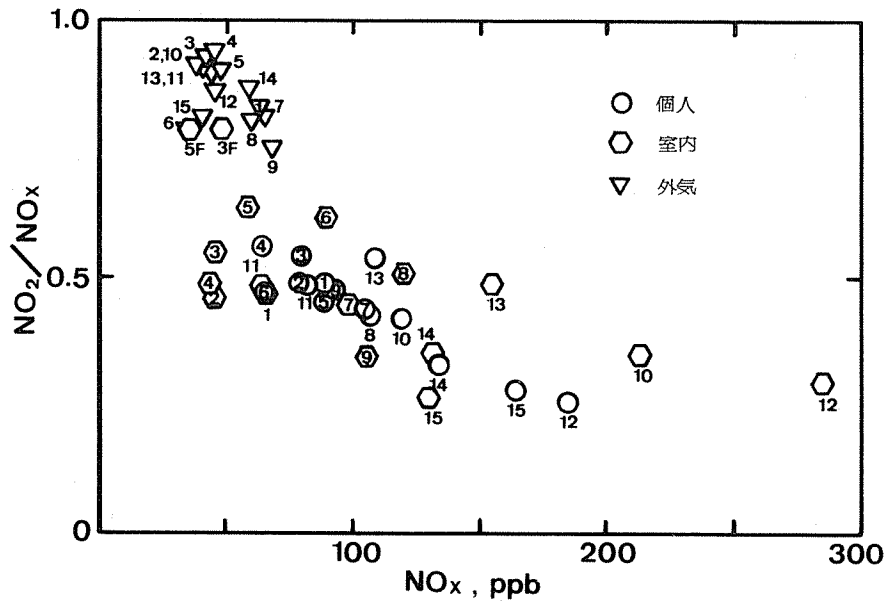


図-12 NOx 濃度とNO₂/NOx 比との関係

濃度を調査した結果、次のようなことが明らかになった。

(1) 個人暴露量は、NO₂ が 31 ~ 59 ppb とモニター間の差が 2 倍程であるのに対して、NO は 28 ~ 136 ppb と濃度差が大きくて 5 倍近くあった。

(2) 室内濃度は、NO₂ が 21 ~ 87 ppb、NO が 21 ~ 199 ppb と各家庭間の差が約 4.5 倍及び 9.5 倍であり、NOx による室内汚染は居住環境、生活様式によって大きく異なっていた。

(3) 単身居住者は室内の NOx 濃度が低いが、既婚者で乳幼児がいる家庭及び密閉度のよい鉄筋家屋などの居住者は室内の NOx 濃度が高く、特に室内の NO 濃度は著しく高まった。

(4) 自宅外気の NO₂ 濃度は 28 ~ 53 ppb、NO 濃度は 3 ~ 17 ppb であり、横浜市内の居住者についてみると NOx 濃度は調査期間中の本市の大気汚染常時監視局における測定値レベル (NO₂ : 29 ~ 43 ppb、NO : 11 ~ 33 ppb) に近い値であった。

(5) 室内の NO 濃度は外気濃度より常に高いが、NO₂ 濃度は高い家庭と低い家庭があり、高濃度の NOx 汚染の家庭で高く、低濃度の NOx 汚染の家庭で低くなる傾向を示した。

(6) NOx 汚染が高濃度レベルである室内環境の家庭は室内汚染からの個人暴露量への寄与が大きいが、低濃度レベルである室内環境の家庭は居住地や職場より、通勤等の場所で被曝する NOx が大きく関与することが認められた。

(7) 居住環境や生活形態が類似している各家庭の個人暴露量、室内濃度及び外気濃度はほぼ同じような NOx 汚染レベルになることが認められた。

(8) 本調査からは喫煙と個人暴露量の関係を明らかにすることができなかった。

(9) 本調査では職場における個人暴露量への寄与はかなり小さいものであった。

(10) NOx 濃度と NO₂/NOx 比との関係をみると、外気では双方の値がほぼ一定であり、居住地によって差がほとんど認められなかったが、室内ではその差が大きく、個人暴露量では室内と外気の間値であった。

6. おわりに

本調査は生活環境中の NOx 汚染と個人暴露量との関係を把握するために、NO、NO₂ 同時測定用個人サンプラーを使用して実験したものである。その結果、NO₂ 及び NO の両面から NOx 汚染と個人暴露量の関係を検討することが可能となり、本報告では予備調査であったために調査対象者の数や調査日数が少なかったため、十分な結果は得られたとはいえないが、今後さらに調査対象者の数や調査日数を増やし、さまざまな環境において NOx の個人暴露の調査を実施する予定である。また、あわせて疫学調査を実施することにより、多くのデータが集積されて、NOx 汚染と人体影響との因果関係が今までよりも一層明らかにされるものと期待している。

文 献

- 1) E. D. Palmes et al : Personal sampler for nitrogen dioxide, *Am. Ind. Hyg. Assoc. J.* , 37, 570-577 (1976).
- 2) E. D. Palmes et al : Personal sampler for NO_x, *Am. Ind. Hyg. Assoc. J.* , 40, 588-591 (1979).
- 3) 柳沢幸雄, 西村肇 : 生活環境中濃度測定用 NO₂ パーソナルサンプラー, 第 20 回大気汚染学会誌, 15, 316-323 (1980).
- 4) 柳沢幸雄, 西村肇 : パッチ型測定器による生活環境での NO₂ 個人被曝量の測定, 第 20 回大気汚染学会講演要旨集, 373 (1979).
- 5) 島岡章 : 日常生活中での NO₂ 暴露の変動, 第 20 回大気汚染学会講演要旨集, 374 (1979).
- 6) 新田裕史, 横山泰彦, 三浦邦彦, 前田和甫 : 二酸化窒素の個人曝露量と室内汚染に関する研究, 第 21 回大気汚染学会講演要旨集, 544 (1980).
- 7) 広済幸男, 他 : 家庭婦人の NO₂ 個人曝露量に関する検討—パッチ型測定器による冬期の測定—, 第 21 回大気汚染学会講演要旨集, 545 (1980).
- 8) 島岡章 : 冬季における高い NO₂ 個人ばくろ濃度について, 第 21 回大気汚染講演要旨集, 546 (1980).
- 9) 柳沢幸雄, 西村肇 : 生活環境中での NO₂ 個人被曝量の季節変動, 第 21 回大気汚染学会講演要旨集, 547 (1980).
- 10) 柳沢幸雄, 西村肇 : 地域の NO₂ 濃度と個人被曝量との関係, 第 21 回大気汚染学会講演要旨集, 548 (1980).
- 11) 前田裕行, 平野耕一郎 : NO, NO₂ の同時測定用パーソナルサンプラーの検討, 横浜市公害研究所報, 6, (1981).
- 12) 新田裕史, 横山泰彦, 三浦邦彦, 青木繁伸, 前田和甫 : 二酸化窒素の個人曝露量に関する研究—都市における主婦を対象とした調査結果—, 大気汚染学会誌, 15, 418-425 (1980).
- 13) 新田裕史, 前田和甫 : 室内におけるガス器具の使用時間と窒素酸化物曝露濃度との関連に関する研究, 大気汚染学会誌, 14, 317-323 (1979).
- 14) 長谷川利雄, 城戸勝義, 小猿和男 : 住居内の空気汚染に関する研究—室内の窒素酸化物を中心に—, 公害と対策, 12, 1192-1202 (1976).
- 15) 日本公衆衛生協会 : 昭和 52 年度環境庁委託業務結果報告書 (窒素酸化物の濃度分布調査), (1977).
- 16) 松村年郎, 村松学 : 室内空気中における窒素酸化物濃度について, 公害と対策, 17, 443-448 (1981).
- 17) 早水輝好, 柳沢幸雄, 門倉昭, 市村雅一, 内丸薫, 西村肇 : 室内空間の自浄作用—身のまわり品の NO₂ 捕集能力について, 環境科学総合研究発表会第 6 回研究発表会予稿集 (1980).

固定発生源から排出されるばいじんの粒度分布

— 第3報 ボイラーからのばいじんの金属成分 —

佐俣 満夫*, 新井 久雄*

要 旨

固定発生源のうちボイラーの占める割合は大きい。そこでボイラーから排出されるばいじんの粒度分布と併せてその金属成分の粒度分布を調べることは固定発生源のばいじんの排出特性を知る上からも意義がある。今回各種のボイラー10施設を選びそのばいじんの金属成分8種類(Fe, Ni, V, Zn, Mn, Cu, Pb, Cd)について粒度別に分析した結果以下のような知見が得られた。

- (1) ばいじんと金属との粒度分布はかならずしも一致せず、灯油、LSC重油焚きのボイラーではほとんど相関がみられなかったが、石炭焚きと排煙脱硫装置をつけたC重油焚きについては比較的どの金属成分もばいじんの粒度分布に近いものが多かった。
- (2) 金属成分では、Fe, Ni, Zn, V等が比較的多くみられ、Mn, Cu, Pb, Cdは少なかったが、粒度別金属分布としては1μ以下の微小粒子径側へ偏ったものが多かった。

1. 目 的

浮遊粒子状物質の総量規制等の検討を行う場合、固定発生源から排出されるばいじんの粒度分布だけでなく、その金属成分の粒度別特性を調べることは重要である。すでに横浜市内の各種の代表的なボイラー19施設について、そのばいじんの粒度分布の調査結果については報告した¹⁾。そこで前回調査したボイラーのうち10施設のばいじんの金属成分8種類(Fe, Ni, V, Zn, Mn, Cu, Pb, Cd)についてそれぞれの粒度別特性を調査したのでここに報告する。

2. 測定施設

今回金属成分の分析を行った施設は前回調査した19施設のうちの代表的なもの10施設であり次のとおりである。

	施設数
灯油焚きボイラー	2
LSC重油焚きボイラー	2

LSC重油焚きボイラー	1
石炭焚きボイラー	2
C重油焚き(排脱)ボイラー	2
COボイラー	1

3. 測定方法

サンプリング方法、粒度分布の求め方の詳細については既報のとおりである¹⁾。発生源用アンダーセンサンプラーで採取したばいじんは以下のような方法で分析試料を作製し、フレームレス原子吸光法により定量した。分析を行った対象の金属はFe, Ni, V, Zn, Mn, Cu, Pb, Cdの8種類である。

ばいじん
ステンレス板
↓
300 mlビーカーに入れる。
アセトン10 ml超音波はく離10分間
(少量のアセトンで洗浄)
↓
20 ml分解用試験管に入れる。

Size distribution of in-stack metals in particulate matters emitted from various boilers.

*Mituo Samata, Hisao Arai. 横浜市公害研究所大気部門

表一 1 ボイラーのばいじん中の金属成分

測定施設	Mn	Fe	Ni	Cu	Cd	Zn	Pb	V	燃料
ボイラー A	0.16	33	6.1	<1	<0.1	1.7	<3	2.5	L S A 重油
" C	0.5	<6	4.6	<0.8	<0.06	2.0	<2	5.0	"
" D	6.5	750	44	<0.4	<0.04	4,000	1.1	3.3	"
" F	0.4	16	3.0	<0.8	<0.06	1.4	<2	7.5	"
" G	0.3	26	2.3	<1	<0.08	1.3	<2	<0.8	"
" H	0.1	3.4	1.1	<0.4	<0.03	0.96	<1	0.5	灯油
" J	0.33	29	1.1	<0.5	<0.04	0.58	<1	<0.4	"
" K	18	2,000	460	46	<0.09	700	<2	2.5	"
" L	4.9	290	25	0.8	<0.07	4.6	<2	5.9	石炭
" M	2.4	120	4.0	<1	<0.09	2.4	<2	8.9	"
" N-1	1.1	8.8	6.3	<0.4	<0.03	2.1	<1	1.1	L S C 重油
" N-2	0.4	3.6	2.5	<0.4	<0.03	1.4	<1	0.9	"
" O-1	15	1,500	300	51	<0.1	9,000	17	1,000	C 重油 (排脱)
" P	17	2,000	130	53	0.2	380	33	420	"
" Q	<0.4	<16	3.0	<2	<0.2	1.8	<4	<2	C O ボイラー

(単位: $\mu\text{g}/\text{Nm}^3$)

↓
 ホットプレート上でアセトン留去
 硝酸 (1→2) 10 ml, 過酸化水素 (30%) 2 ml
 1 時間穏やかに加熱
 濃縮 (蒸発乾固直前まで)
 ↓
 硝酸 (1→50) で 5 ml 洗いし 10 ml にメスアップ
 ↓
 分析試料
 ↓
 フレームレス原子吸光分析

なお、

- (1) 分析試料が少量なため操作過程中の汚染に注意して行った。
- (2) 使用したガラス器具はすべて事前に希硝酸で洗浄した。
- (3) 同一試験管内で全操作が可能となるような分解用試験管に試料を入れホットプレート上で分解した。

4. 結果と考察

まず発生源用アンダーセンサンプラーと同時に採取した JIS Z 8808 の円筒口紙法による総ばいじん中の金属量について 15 施設から採取した試料を分析した結果は表-1 のとおりであり、表中の測定施設名称は既報¹⁾と一致させた (以下同様)。そのうちの代表的 10 施設からのばいじんについて粒度別に金属成分を分析したところ (以下これを粒度別金属分布とい

う)、燃料や金属の種類によって以下に記すような特有な傾向がみられた。今回の測定では、表-2 に示すように粒度別金属分布が、(1) 微小粒子径側へ偏っているもの、(2) ばいじんと同じパターンを示すもの、(3) ひん度分布のピークの数等に着目して大別すると、一定の相関がみられたので以下これに則して述べる。

4-1 灯油及び L S A 重油焚きボイラー

灯油焚き及び L S A 重油焚きの粒度別金属分布を図-1, 2 に示す。ただし V, Cu, Cd は濃度が低いため図には示してない。表-2 より灯油焚き及び L S A 重油焚きの粒度別金属分布はともにばいじんと同じパタ

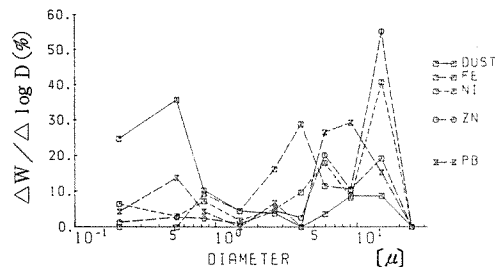


図-1 ボイラー K のばいじんの粒度別金属分布

表一 2 粒度別金属分布の分類

施設	燃料	ばいじん	Fe	Ni	V	Zn	Mn	Cu	Pb	Cd
ボイラー C	L S A重油	△ 3	1	2	△○1	△ 3	2	2	1	—
" D	"	2	△ 2	1	—	△ 1	△ 1	—	1	1
" H	灯油	△ 3	△○3	1	—	△ 1	△○3	—	2	—
" K	"	2	3	1	—	1	—	—	○2	—
" L	石炭	2	○2	△ 2	△ 3	2	○2	○2	○2	○2
" M	"	2	○2	△ 2	3	2	○2	△ 3	○2	△ 2
" N-1	L S C重油	△ 2	1	△○3	—	△○2	△ 1	△○2	—	—
" O-1	C重油排脱	△ 2	△○2	2	△○2	△○2	2	△○2	△○2	△○2
" P	"	△ 1	△○1	△○1	△○1	△○1	△○1	△○1	△○1	△○1
" Q	(COボイラー)	2	3	2	—	1	—	—	—	—

- (1) △：微小粒子径側へ偏っているもの。
- (2) ○：ばいじんと同じパターンを示すもの。
- (3) 数字はピークの数を示す。 —印は不検出

ーンを示すものは少なく、それぞれ異った分布を示しているが、Fe、Ni、Znは微小粒子に多く含まれている傾向を示した。灯油焚きボイラーの例(図-1)ではばいじんと同じパターンを示す金属成分はわずかにPbのみである。L S A重油焚きボイラーの例(図-2)ではばいじんは微小粒子が少ないにもかかわらずZn、Ni、Mn、Fe等の金属成分はむしろ微小粒子に多く含まれている。また同一ボイラーでの各成分の濃度比較のため粒度分布(重量パーセント表示)を濃度表示にしたものを図-3に示すが、ばいじんに対して

Feが最も多くNi、Mn、Pb、Cdの順に少なくなっているのがわかる。

4-2 L S C重油焚きボイラー

L S C重油焚きボイラーの粒度別金属分布の一例を図-4に示すが、ばいじんと各金属成分はともに0.5 μ以下の微小粒子と3 μ付近にピークがみられた。Zn、Ni、Cuについてはばいじんと同じパターンを示し、Feは微小粒子には小なく3 μ付近の粒子に多くみられた。またV、Pb、Cdは少ないため図中には示していない。

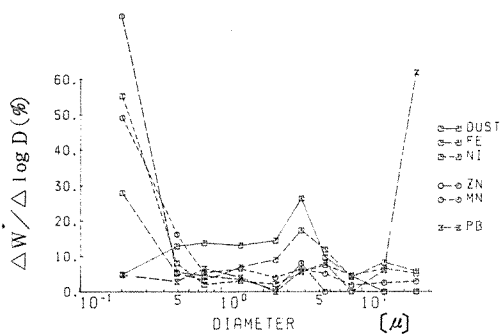


図-2 ボイラーDのばいじんの粒度別金属分布 (その1)

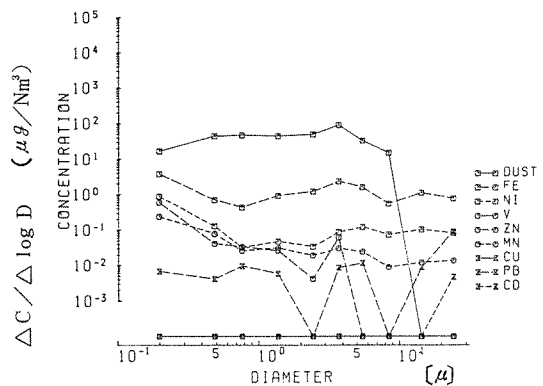


図-3 ボイラーDのばいじんの粒度別金属分布 (その2)

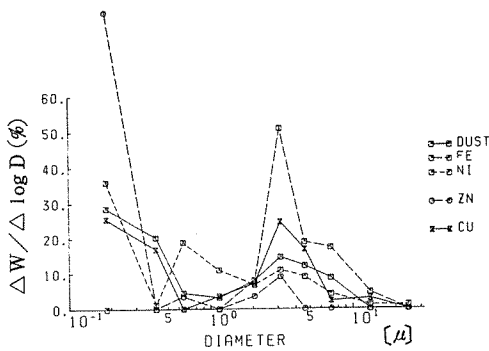


図-4 ボイラー N-1 のばいじんの粒度別金属分布

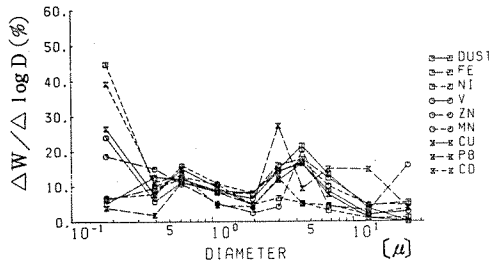


図-5 ボイラー L のばいじんの粒度別金属分布 (その1)

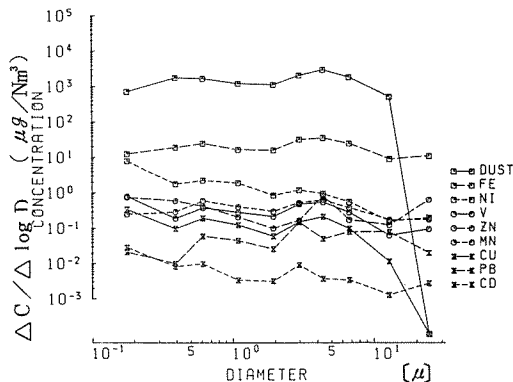


図-6 ボイラー L のばいじんの粒度別金属分布 (その2)

4-3 石炭 焚きボイラー

図-5, 6にそれぞれ石炭 焚きボイラーの重量パーセント表示と濃度表示の粒度別金属分布を示す。各金属成分とも 0.7 μ と 5 μ 付近にピークがみられたが、図5では微小粒子に多く含まれるものとそうでないものとに分れた。微小粒子側にピークのあるものに Ni, V, Cu, Cd がみられ、ばいじんと同じパターンを示すものに Fe, Mn, Pb 等がみられた。Zn はこれらのパターンと異った分布を示し特異的であった。また粗大粒子にはフライアッシュが多く、微小粒子には燃焼にともなうカーボン粒子等が多いことから³⁾、Fe, Mn はフライアッシュ中に Ni, V は未燃カーボン中に多く残留するのではないかと考えられる⁴⁾。

4-4 排煙脱硫装置を使用したC重油 焚きボイラー

結果の一例を図-7に示すが、湿式排煙の場合ばいじんも金属成分もともに著しく微小粒子径側へ偏っており、5 μ 以上の粒子はほとんど排出されない。Ni を除くと今回分析した金属のほとんどがばいじんと同じ分布を示しており、これはばいじんも金属成分も排煙脱硫の際の洗浄作用によって生じた微細なミストの挙動に関係しているものと思われる。

4-5 COボイラー

COボイラーの主燃料は触媒再生塔から排出されるCOガスであり、ばいじんも触媒の破碎されたものとコーキングによるカーボンが多いため他のボイラーに較べ検出された金属の種類は Fe, Ni, Zn と少ないのが特徴である。そしてこれらの元素とばいじんの間には顕著な相関は認められなかった。

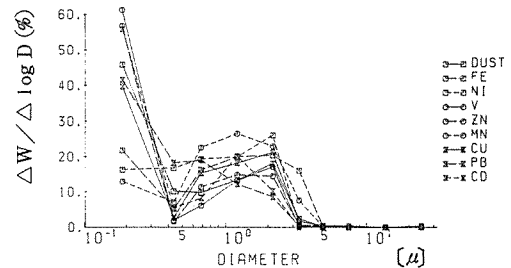


図-7 ボイラー P のばいじんの粒度別金属分布

5. 粒度別金属分布の特徴

今回測定した金属のうちボイラーのばいじん中に比較的多いものはFe, Ni, V, Zn等でありMn, Cu, Pb, Cdは少なかった。大別して、燃料中に多く含まれている金属はばいじん中にも多く検出される結果が出た⁴⁾。そこで各金属別にみると、FeはLSA重油、灯油焚きではばいじんと同様の相関はみられないが、石炭焚きや排脱ではばいじんと同じパターンの粒度分布を示した。Niはほとんどのボイラーで1 μ以下の微小粒子に多く含まれているのがみられた。Vは灯油、LSA重油焚きでは少なく、石炭、C重油焚きのものに多かった。Znは著しく多いものと比較的少ないものがあり、その粒度別金属分布も微小粒子径側に偏ったものが多いが、また特異なパターンを示すものも多い。これはZnの燃料中での含有率も一定でなく、またばいじん中への混入要因も種々に考えられるためと思われる。Mnはどのボイラーのばいじんからも検出されたが石炭焚きの場合ばいじんと同じパターンを示したが、他は微小粒子径側で多くみられた。Cu, Pb, Cdはそれぞれ灯油、LSA重油焚きでは少なく、石炭、C重油焚きで多く検出された。また比較的ばいじんと同じパターンを示すものがあった。

6. まとめ

ボイラーから排出されるばいじんの粒度別金属分布はさまざまであり、かならずしもばいじんの粒度分布と一致しない。また元素によって燃料のみならず施設の材料中に含まれているものなどさまざまな発生源が考えられ粒度分布の相異を一概には論じられない。しかし大別して、燃料別、金属成分別にみた場合、概略的な傾向はつかめた。

文 献

- 1) 佐俣満夫, 平野耕一郎, 渡辺善徳: 固定発生源から排出されるばいじんの粒度分布(第一報, ボイラーからのばいじん粒度分布)。横浜市公害研究所報, 4, 13~23(1979)。
- 2) E. S. Gladney, J. A. Small, G. E. Gordon and W. H. Zollor: Composition and size distribution of in-stack particulate material at a coal-fired plant. *Atmospheric Environment*, 10, 1071-1077(1976)。
- 3) G. L. Fisher, B. A. Prentice, D. Silberman: Physical and morphological studies of sizeclassified coal fly ash. *Environmental science and Technology*, 12, 447-451(1978)。
- 4) R. B. Jacko: Trace metal particulate emission test results from a number of industrial and municipal point sources. *J. Air Pollut. Control Assoc.*, 10, 989-994(1977)。

中型燃焼実験炉を用いたばいじんの生成過程に 関する研究

佐俣満夫*、新井久雄*、鈴木正雄*、渡辺善徳*
前田裕行*、沖津正樹*

要 旨

固定発生源のうち燃焼施設は施設数も種類も多いため、それらのばいじんの生成特性を把握することは浮遊粒子状物質を検討するに当って重要である。そこで当研究所では中型燃焼実験炉（バーナー能力690ℓ/h）を用いて燃料、負荷、空気比を種々に変化させた燃焼実験を行いそれぞれの条件下で、排出されるばいじんの粒度分布を調査したところ以下のような知見が得られた。

- (1) 液体燃料を燃焼した場合、粒度分布は2山型を示し0.5 μ 以下と1~10 μ 付近にピークがみられた。これより気相反応型の微小粒子群と残留炭化型の粗大粒子群からなるばいじん生成モデルと一致した結果を得た。
- (2) 負荷変動によるばいじんの変化はあまりみられず、空気比については重油によってはばいじん生成の最少になる最適空気比があり、それ以外ではばいじん濃度が高くなる傾向がみられた。
- (3) 燃焼によるばいじんの生成には、燃料と空気の混合状態、霧化特性、火炎の安定性、火炎温度等が大きく影響することがわかった。

1. 目 的

固定発生源から排出されるばいじんの生成機構はきわめて複雑であり、その解明は未だ十分でなく特に実プラント規模での調査研究はほとんどない¹⁾。現在、固定発生源のうちボイラーをはじめとする燃焼施設が横浜市内では70%以上を占めていることから、燃焼施設から排出されるばいじんの生成機構の解明と稼働条件との関係を調査することは固定発生源から排出されるばいじんの粒度パターンを把握する上からも重要である。そこで中型燃焼実験炉（バーナー能力690ℓ/h）を用いて、ばいじんの粒度別排出特性を中心に、NO、CO、全炭化水素も併せて調査したので報告する。

2. 測定期間

昭和55年11月12日~27日

3. 測定施設

横浜市内に設置されている中型燃焼実験炉を用いて行ない、以下にその仕様を示し、図-1に施設の概略を示す。

燃 焼 実 験 炉	
型 式	水冷横形
火 炉 寸 法	巾1300、高1680、行3252 (mm)
火 炉 容 積	7.32 m ³
通 風 方 式	平衡通風
燃 焼 容 量	690ℓ/h (灯油ベース)
バーナー型式	高圧気流噴霧式バーナー
バーナー本数	1 本

4. 測定条件

測定にあたってこれまでに行った横浜市内での固定発生源から排出されるばいじんの粒度分布調査^{2) 3)}より、ばいじんの生成には、燃料の種類、負荷条件、空

Formation process of dust used by an experimental burning furnace of middle size.

*Mituo Samata, Hisao Arai, Masao Suzuki, Yoshinori Watanabe, Yoshiyuki Maeda, Masaki Okitsu. 横浜市公害研究所大気部門

表-1 燃焼実験炉の稼動および測定条件

	燃料	負荷 (%)	空気比	燃料使用量 (ℓ/h)	バーナー空気圧力 (Kg/cm ²)	火炉出口温度 (°C)	水分 (%)	O ₂ (%)	排ガス量 × 10 ³ (Nm ³ /h)
1	LSC重油	70	1.3	480	4.8	850	1.83	5.0	3.51
2	"	70	1.2	476	4.8	892	2.20	3.2	3.38
3	"	70	1.9	480	4.2	783	3.79	4.8	1.61
4	"	30	1.3	210	1.9	631	2.29	10.0	5.81
5	LSA重油	88	1.3	606	4.8	939	3.36	4.3	4.67
6	"	88	1.2	606	4.7	955	3.89	3.5	4.69
7	"	70	1.3	480	4.6	880	3.92	4.8	3.69
8	"	30	1.3	206	1.6	690	6.07	5.0	1.57
9	"	88	1.9	606	4.9	826	5.79	9.5	6.59
10	灯油	70	1.3	483	4.7	870	6.23	4.8	3.84
11	"	70	1.2	478	4.7	915	6.46	3.3	3.02
12	"	70	1.9	480	4.4	780	4.04	4.8	1.59
13	"	30	1.3	206	1.8	628	4.30	10.0	5.56

気比等が大きく関与しているものと思われるので、これらの条件をそれぞれ以下のように変えて調査した。

燃料	LSC重油	LSA重油	灯油
負荷	30%	70%	88%
空気比	1.2	1.3	1.9

空気比は

$$\text{空気比} = \frac{21}{21 - (O_2)}$$

O₂ : 排ガス中の酸素濃度 (%)

として求めた。

ここで、空気比1.3は通常の燃焼条件であり、1.2は、空気不足、1.9は空気過剰状態として設定した。また燃焼実験炉はバーナー規模も中型ボイラーに相当するものであり、バーナー型式も高圧気流噴霧式バーナーでありこのクラスのボイラーには一般に使用されているものである。またバーナーは同じものを用いてすべての調査を行った。さらに測定は点火後充分時間をとって燃焼状態が安定した後行った。なお、運転条件及び測定条件を表-1に示す。

5. 測定方法

測定項目はばいじんの粒度分布、NO、CO、全炭化水素について行った。ばいじんの粒度分布については既報同様²⁾に発生源用アンダーセンサンプラー(高

立機器、KA-500)を用い、JIS Z 8808に準じて行った。NOはケミルミ型NO計(掘場製作所、EN OA-C201)を用い、COは連続CO計(柳本、EIR-100S)を用いて測定した。全炭化水素については、排ガスを20ℓマイラーバックに採取し、それを全炭化水素計(柳本、EHF-1006)にて分析した。またそれぞれの測定位置を図-1に示す。

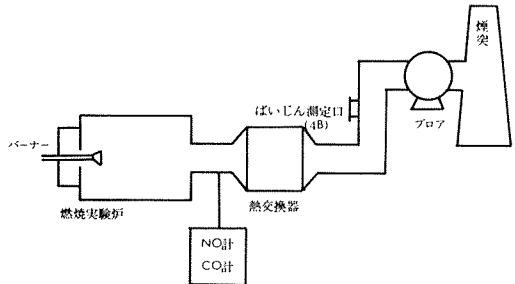


図-1 燃焼実験炉略図

6. 結果と考察

6-1 ばいじん

結果を表-2に示す。燃焼装置から発生するばいじんの生成過程はきわめて複雑であり、特に実際のプラ

表-2 ばいじんの測定結果

燃料	負荷	空気比	ばいじん濃度 (mg/Nm^3)	<1 μ (%)	<5 μ (%)	<10 μ (%)	MMAD (μ)※	NO※※ (ppm)	CO (ppm)	全炭化水素 (ppm)	
1	LSC重油	70	1.3	19.6	22	68	85	4.5	138	10	4.2
2	"	70	1.2	26.7	15	60	85	4.2	115	10	3.1
3	"	70	1.9	39.3	20	50	82	5.0	110	22	2.4
4	"	30	1.3	17.3	30	75	93	3.0	154	15	7.4
5	LSA重油	88	1.3	24.1	20	50	80	5.0	102	8	4.1
6	"	88	1.2	20.3	22	60	87	4.5	95	10	2.4
7	"	70	1.3	6.02	32	82	95	2.7	89	3	2.7
8	"	30	1.3	18.4	60	90	99	-	69	25	1.9
9	"	88	1.9	19.0	22	60	82	4.0	106	5	1.6
10	灯油	70	1.3	1.19	72	90	94	-	79	5	0.9
11	"	70	1.2	3.70	95	99	>99	-	72	8	0.8
12	"	70	1.9	1.04	60	80	90	-	69	3	1.3
13	"	30	1.3	1.02	85	93	96	-	91	12	1.0

※-印のものは微小粒子が多くMMADのとれなかったもの

※※ O₂(4%換算)

ント規模での検討は不十分であるが、今回の調査で同一燃焼装置の下で燃料、負荷、空気比等を変えることによってそれぞれ特有な知見が得られたので以下これについて述べる。

6-1-1 燃料

LSC重油、LSA重油、灯油を燃焼させたときのばいじんの粒度分布をそれぞれ図-2~4に示す。これ

よりLSC重油、LSA重油では2山型を示し、0.5 μ 以下(微小粒子)と1~10 μ 付近(粗大粒子)にピークがみられ、1 μ 付近が谷となる分布が得られた。灯油では0.5 μ 以下に著しく偏っており1~10 μ 付近にわずかにピークがみられた。LSC重油とLSA重油ではほぼ同じパターンであるが、灯油では粗大粒子のピークが極端に減小する傾向がみられた。そこで液体燃料

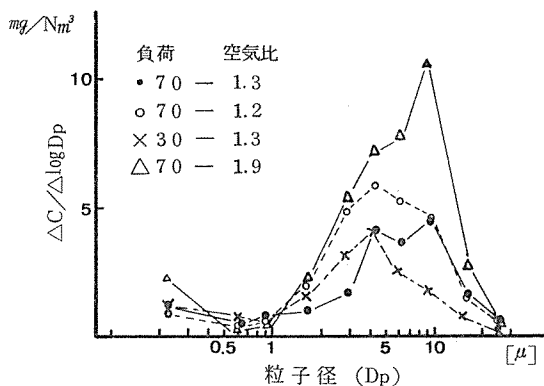


図-2 LSC重油燃焼によるばいじんの粒度分布

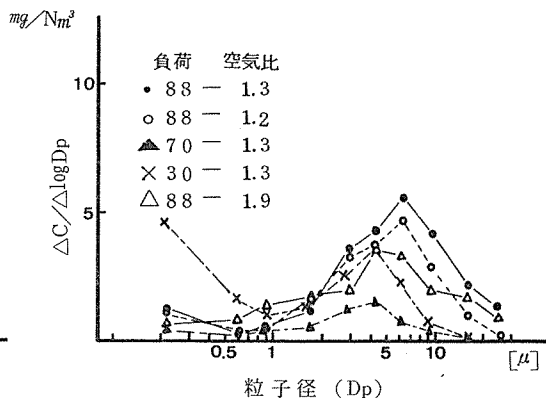


図-3 LSA重油燃焼によるばいじんの粒度分布

を使用した場合、同一燃焼炉の下では図-5に示すような傾向がみられ、重質油から軽質油になるほど粗大粒子のピーク（1～10 μ ）は減少するが、微小粒子側のピークの変化は比較的小さいような結果が得られた。現在、燃焼過程から排出されるばいじんの生成機構には種々のモデルが考えられているが、図-6に示すようなモデルが一般に認められている^{4)~9)}。

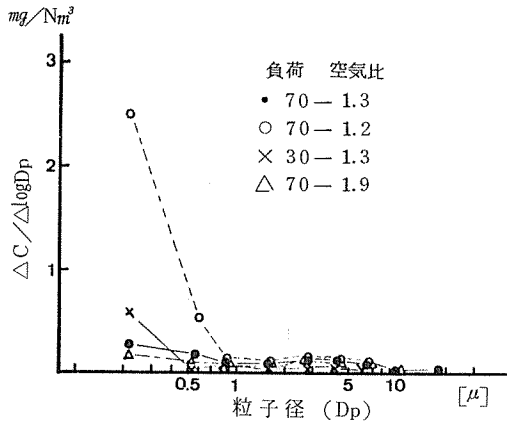


図-4 灯油燃焼によるばいじんの粒度分布

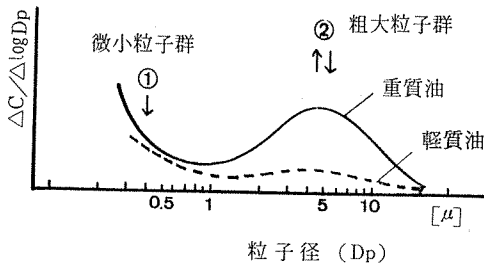


図-5 液体燃料を燃焼した場合のばいじんの粒度分布変化モデル

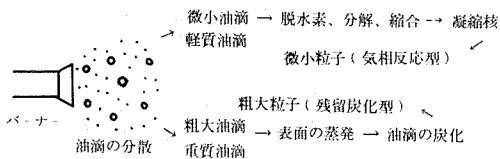


図-6 ばいじん生成機構モデル

これらのモデルからみると、1～10 μ 付近の粗大粒子群は残留炭化型のものであり、0.5 μ 以下の微小粒子群は気相反応型粒子と思われる。また顕微鏡観察からも粗大粒子は球型で多孔質の光沢のある粒子でさらさらした粒子であり、微小粒子は粘性のある球型粒子群の凝縮したものであることが伺える。そこで今回の燃焼炉から排出されるばいじんは大別して2種類の生成機構の異なる粒子群の混合あるいは凝縮したもののから成り立っているものと考えられる。まず霧化された油滴は予混合炎中で核となり、拡散炎中で漸次成長し、固体のばいじんを生成するものと考えられる。

LSC、LSA重油等の重質油では粘性が大きいため霧化が十分でなく、ほぼ50 μ 以上の粗大な油滴ができること、また重油は沸点の異なる成分を多く含むため油滴の蒸発が簡単でないこと⁵⁾⁹⁾等から残留炭化型の粗大粒子が多く生成されるものと思われる。灯油等の軽質油は、逆に油の粘性が小さく霧化しやすく蒸発もしやすいことなどから残留炭化型粒子はほとんどみられず、1 μ 以下の微小粒子がほとんどである。したがって図-2～4にみられるようにLSC重油、LSA重油、灯油の順に残留炭化型粒子の5～10 μ にかけてのピークは減少する。さらに、粗大粒子側のピークは燃料、負荷、空気比等によって大きく変動するが、気相反応型と思われる微小粒子のピークに大きな変動がみられないことは注目すべきことであり、今後0.1 μ 以下のさらに微小な粒子の調査を含めて検討する必要がある。また正規確率紙上にプロットした累積粒度分布を図-7～9に示すが、LSC重油とLSA重油では2 μ 付近を境として2種類の異なった直線が得られた。これは図-2、3のひん度分布図における微小粒子群と粗大粒子群のピークにそれぞれ対応する。このことか

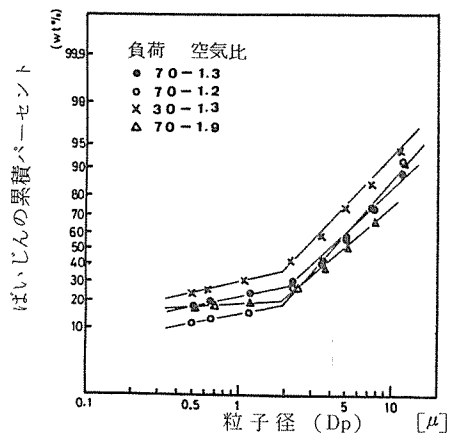


図-7 LSC重油燃焼によるばいじんの累積粒度分布

らも微小粒子群と粗大粒子群は互いに異なった粒径分布（今回の調査では対数正規分布に近似できた）を示し、生成過程の相異が伺われる。

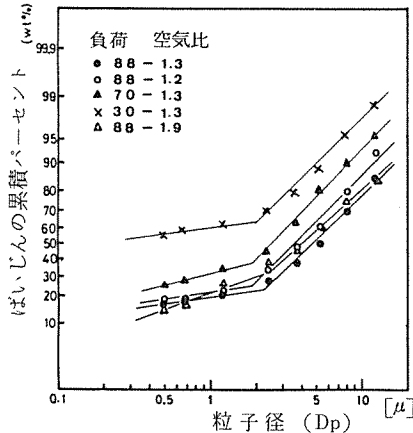


図-8 LSA重油燃焼によるばいじんの累積粒度分布

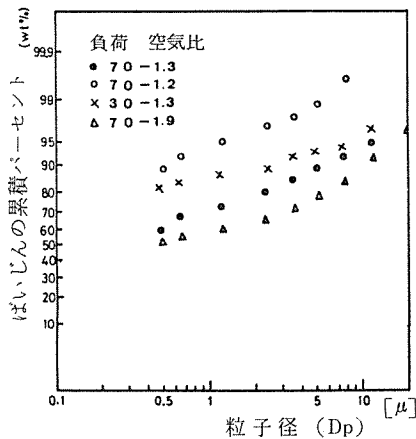


図-9 灯油燃焼によるばいじんの累積粒度分布

6-1-2 空気比

空気比は酸素の供給量、霧化の度合等に影響するのであるが、今回の調査ではLSC重油燃焼の場合、空気比を大きくしたとき、微小粒子も粗大粒子も増大する傾向を示した。これは、本来供給酸素量が多くなれば油滴の燃焼は良好になるのであるが、過剰な空気によって適正な火炎の状態が乱され、炉内に温度の低い部分が生じ、そのため油滴の燃焼が十分に行なわれなかったためと思われる^{4) 9)}。LSA重油では空気比による変化は認められなかった。灯油では空気比を小さくし

た場合微小粒子が多くなる傾向を示した。これは酸素量の供給不足、霧化の不完全等によるものと思われる^{5), 6)}。

6-1-3 負荷

今回の調査では負荷の変動とばいじんの粒度分布変化の間に顕著な相関は認められなかったが、灯油燃焼の場合、負荷が低いほど微小粒子が増える傾向を示した。表-1より高負荷（70%）に対して低負荷（30%）燃焼では、約200℃前後火炉の出口温度は低いにもかかわらず、顕著な変化がみられなかったのは負荷が変動しても霧化と火炎温度にはあまり大きな影響はなかったためと思われる。

6-1-4 ばいじん濃度

ばいじん濃度について燃料別にみると軽質油になるほど濃度は低くなる傾向を示した。負荷による変動はほとんど認められなかったが、負荷が高くなると濃度も若干高くなる傾向がみられた。空気比による影響はLSA重油では認められなかったが、灯油では図-10に示すように空気比が小さくなるほどばいじん濃度は高くなった。これは供給酸素量不足による影響と思われる。また図-11にLSC重油の場合を示すが、ほぼ空気比1.3を境にして空気比が小さくても、大きくてもばいじん濃度は高くなる傾向を示した。これは空気比が小さくなると酸素不足による影響が大となり、また空気比が大になると必要以上の過剰空気が火炎の安定を乱し、部分的温度低下をひきおこすことによってばいじんの生成が増大するものと思われる。総じて、燃焼施設から排出されるばいじんは気相反応型と残留炭化型の粒子群の混合あるいは凝縮したものよりなり立っていることが考えられ、ばいじんの生成には空気と燃料との混合、霧化特性、火炎の安定性、火炎温度等が大きく影響するものと思われる^{4)~9)}。しかし、本市での固定発生源調査での結果^{2), 3)}からもわかる

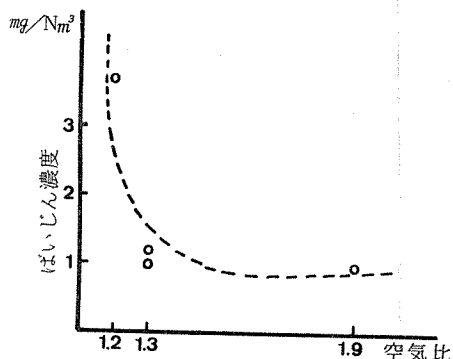


図-10 灯油燃焼での空気比によるばいじん濃度変化

通り、実際のボイラー、加熱炉等ではバーナー、炉の構造、付属施設、ダクトワーク等複雑多岐に関連しており、ばいじんの粒度分布も決して一様でないことがわかる。

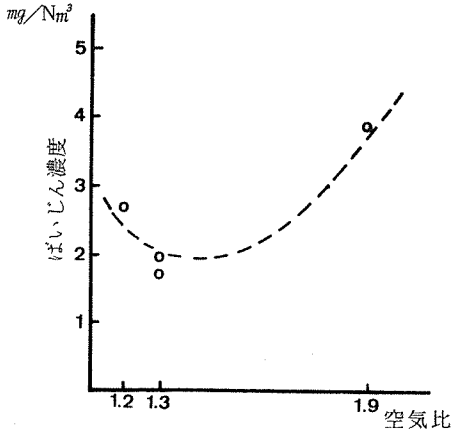


図-11 LSC重油燃焼での空気比によるばいじん濃度変化

6-1-5 NO

NOの測定結果を表-2に示すが、LSC重油で110~150 ppm、LSA重油で90~110 ppm、灯油で70~90 ppmであった。負荷が低くなるほどNOも低くなり、空気比については図-12に示すように空気比が大きくなるほどNOは高くなる傾向を示した。これらより、通常では重質油になるほど、高負荷になるほど、さらに空気比が大きいほどNOは増大する。

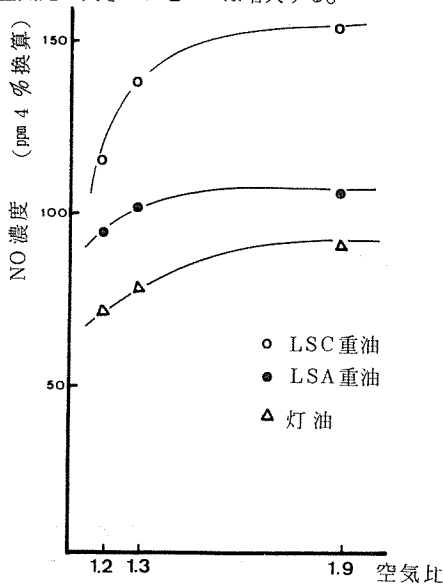


図-12 空気比によるNO変化

6-1-6 CO、全炭化水素

排出されたCO濃度は今回の調査では5~30 ppm程度であり、ばいじんと間に明確な関係は認められなかった。また空気比や負荷との関係も明確ではなかった。全炭化水素も1~11 ppmとかなり濃度は低く、稼働条件や他の測定結果との間にほとんど相関は認められなかったが、LSC重油の場合には、CO、全炭化水素ともに空気比が大きくなると高くなる傾向がみられた。

7. まとめ

今回の調査は燃焼施設から排出されるばいじんの粒度分布を中心に行なったのであるが、その結果実プラント規模の燃焼炉で生成されるばいじんでも図-6に示すようなばいじん生成モデルによく一致することがわかった。そこで今回の調査で得られた知見は以下のとおりである。

- (1) 液体燃料を使用した場合、図-5に示すように0.5 μ以下に微小粒子群のピークが、1~10 μ付近に粗大粒子群のピークがみられ、それぞれ気相反応型と残留炭化型の粒子から成り立っているものと考えられる。
- (2) 軽質油になるほど粗大粒子群(1~10 μ)は減少する。
- (3) 軽質油では空気比を1.3以下に小さくした場合酸素不足によるばいじんの増加がみられ、重質油では空気比を大きくした場合火炎温度の極部的な低下によるものと思われるばいじんの増加がしばしばみられた。
- (4) 負荷によるばいじんへの影響は今回あまりみられなかった。
- (5) ばいじんの生成には、空気と燃料との混合、霧化特性、火炎の安定性、火炎温度等が大きく影響するものと考えられる。
- (6) NOは重質油になるほど、また過剰空気が多くなるほど高くなる。CO、全炭化水素は通常の範囲では稼働条件との相関はみられなかった。

以上今回調査した内容は単一のバーナーであり、測定項目及び回数も決して多いとは言えず、この結果を直ちに実際のボイラーや加熱炉等にあてはめることについては問題がある。しかし、燃料、負荷、空気比等の条件を変えることによって排出されるばいじん量や粒度分布の変化について従来から云われていることの確認や、新しい知見が得られた。今後このような基礎研究を継続しデータを蓄積することが必要である。

謝 辞

この調査にあたってパブコック日立株式会社横浜工場の協力をいただいたことを記し、謝意を表する。

文 献

- 1) H.L. goldstein : Influence of heavy fuel oil composition and boiler combustion conditions on particulate emissions *Environmental Science and Technology* 1109~1114 10, (1976).
- 2) 佐俣満夫、平野耕一郎、渡辺善徳：固定発生源から排出されるばいじんの粒度分布（第1報ボイラーからのばいじんの粒度分布）横浜市公害研究所報，4. 13~23 (1979) .

- 3) 佐俣満夫、渡辺善徳、平野耕一郎、太田正雄：固定発生源から排出されるばいじんの粒度分布（第2報加熱炉等からのばいじんの粒度分布）横浜市公害研究所報，5，11~18 (1980) .
- 4) 辻 正一：公害防止燃焼技術概論，25~46 (1973)，日本熱エネルギー技術協会.
- 5) 化学工学便覧，1126~1133 (1975) 丸善 .
- 6) ボイラー便覧，389~402 (1973) 丸善 .
- 7) 大気汚染ハンドブック(4) 燃焼編，123~129 (1973) コロナ社 .
- 8) 疋田 強，燃焼概論，89~95 (1976) コロナ社 .
- 9) 燃料便覧，513~552 (1973) 燃料協会 .

集じん機の集じん特性に関する研究

佐 俣 満 夫 *

要 旨

ばいじんの規制強化にともない集じん機の普及には目ざましいものがある。しかしその性能特性は未だ理論的にも十分解明されておらず経験によるところが大きい。そこで各種の電気集じん機6施設とバグフィルター4施設についてその部分集じん効率の調査を行ったところ、以下のような知見が得られた。

- (1) 今回の調査で①はば0.1～30 μ の粒子にわたって98%以上の高集じん効率の得られるもの、②微小粒子になるほど集じん効率の低くなるもの、③微小粒子と粗大粒子の集じん効率は比較的高いが、その中間(粒子径1～10 μ)で集じん効率の低下のみられるものの3つのパターンに分かれた。
- (2) 適正な装置を選びメンテナンスが十分ならば99%以上の高集じん率が得られるが、反面若干のメンテナンスの不備で集じん効率は著しく低下する。

1. 目 的

固定発生源から排出されるばいじんの粒度分布についてはすでに報告している¹⁾²⁾。そのうち大型のばい煙発生施設では集じん機が併設されているものが多い。近時、集じん機の普及は著しく、その性能もレベルアップしており、今後ばいじんの規制上集じん機の効率調査は不可欠となってきている。しかしその性能技術はかならずしも理論的には確立されておらず、経験に負うところが多い^{3～5)}。

そこで当研究所では各種のばい煙発生施設に設置されている電気集じん機とバグフィルター計10施設についてその集じん機前後のばいじんの粒度分布を測定することによって各種集じん機の集じん特性を調査したので報告する。

2. 測定期間

昭和56年1月～2月

3. 測定施設

ばいじんの規制強化にともない大型のばい煙発生施設

設やダストの発生の多い施設にはほとんどなんらかの集じん機が設置されており、そのうち電気集じん機とバグフィルターでは高集じん率が得られる点から多くの場所で使用されている。そこで今回電気集じん機(以下E P)の設置されているばい煙発生施設6施設、バグフィルター(以下B F)の設置されているもの4施設を選び、それぞれ集じん機前後のばいじんの粒度分布を測定した。表-1にその施設の稼動状況と測定条件を示す。

4. 調査方法

サンプリングは発生源用アンダーセンサンプラー(高立機器, KA-500)を用いJIS Z 8808に準じて行った。サンプリング方法、粒度分布の求め方は前報に記した¹⁾。集じん機の測定は入口側と出口側にそれぞれアンダーセンサンプラーを用いて同時サンプリングを行ったが、アンダーセンサンプラーの捕集量からみて同一時間のサンプリングは不可能な場合が多いため、出口側1回の測定時間内に入口側では数回の測定を行った。アンダーセンサンプラーの測定結

Characteristics of precipitators

* Mituo Samata, 横浜市公害研究所大気部門

表-1 測定施設の稼働及び測定条件

施設名	燃料 (原材料)	燃料 燃料使用量 L/h	集じん機	測定位置	水分 %	排ガス温度 ℃	流速 m/S	ばいじん濃度 mg/Nm ³	湿り排ガス量 ×10 ³ (Nm ³ /h)	集じん率 (%)
ガラス溶融炉A	LSC重油	1,250	電気集じん機	入口	11.3	455	13.1	241	15	
"	"	"	"	出口	8.9	143	9.0	4.63	31	98.1
"	LSC重油	1,220	"	入口	9.6	178	13.8	4.40	39	
"	"	"	"	出口	4.8	145	12.6	7.93	43	82.0
発電用ボイラーC	LSC重油	39,500	"	入口	15.5	127	15.5	26	550	
"	"	"	"	出口	16.9	124	14.5	3.04	520	88.3
"	石炭	90.2t/h	"	入口	19.0	164	18.1	3,600	980	
"	"	"	"	出口	19.3	164	15.4	67.7	810	98.1
COボイラーE	COガス	71,080m ³ /h	"	入口	13.4	208	6.0	192	150	
"	LSC重油	4,790	"	出口	12.4	202	5.4	3.68	139	98.1
焼却炉F	(一般ゴミ)	15.9t/h	"	入口	16.4	310	8.6	5,505	124	
"	"	"	"	出口	16.7	286	12.4	22.9	80	99.6
キューボラ	G(コークス)	溶解トン数	バグフィルター	入口	7.7	103	14.6	436	12	
"	"	3.15t/h	"	出口	4.9	56	13.7	6.11	18	98.6
コークス炉H	(コークス)	153t/チャージ	"	入口	1.4	45	28.3	177	120	
"	"	"	"	出口	0.5	25	21.7	10.0	110	94.3
アスファルトプラントI	灯油	920	"	入口	13.8	114	21.5	9,740	42	
"	"	"	"	出口	15.4	114	21.4	836	38	91.4
"	灯油	552	"	入口	21.4	164	25.9	7,463	26	
"	"	"	"	出口	12.8	136	16.4	4.71	28	99.9以上

果より以下の式により部分集じん効率を求めた。

$$\text{部分集じん効率} = \frac{W_{ij} - W_{ej}}{W_{ij}} \times 100$$

W_{ij} : 粒子径 x_j での入口側ばいじん量

W_{ej} : // x_j での出口側ばいじん量

なお、部分集じん効率の表示には見やすくするため粒子径 (D_p) を対数目盛とした。

5. 結果と考察

電気集じん機あるいはバグフィルターの部分集じん

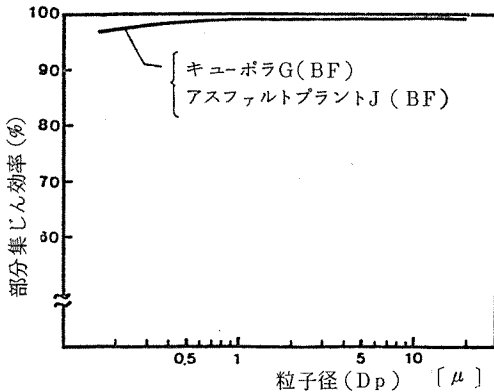


図-1 集じん機の部分集じん効率 (Aタイプ)

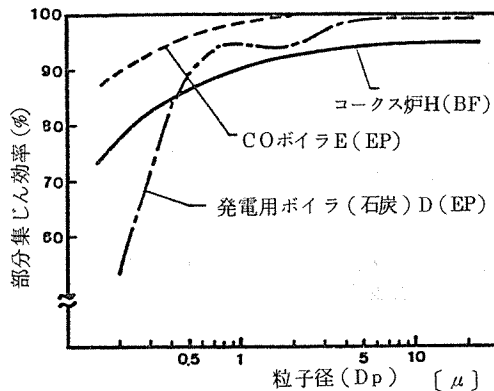


図-2 集じん機の部分集じん効率 (Bタイプ)

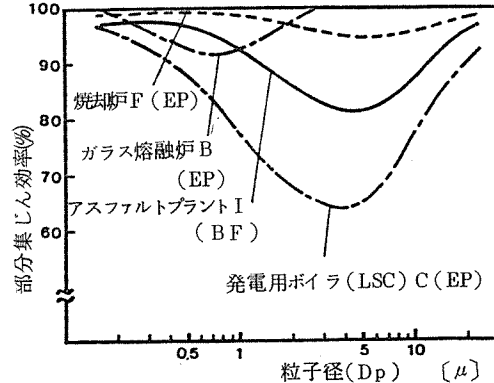


図-3 集じん機の部分集じん効率 (Cタイプ)

効率は従来図-2にみられるような対数型のなめらかな曲線で表わされているものがほとんどであった³⁻⁵⁾。しかし、今回の調査結果ではそのパターンもかなり多岐にわたっており決して単一なものではなかった。そこで今回の結果を部分集じん効率からみると図-1~3に示すような3種類のパターンに分類することができた。①0.1~30 μ にわたってほぼ均一にどの粒子径のものでも98%以上の高集じん率の得られたもの(図-1)、②粗大粒子の集じん効率は高いが微小粒子になるほど効率が漸次低くなるもの(図-2)、③微小粒子や粗大粒子での集じん効率は高いが中間(1~10 μ 前後)で集じん効率が低くなるもの(図-3)に分かれた。以下この分類に従って述べる。

5-1 微小粒子でも均一に高集じん率の得られるケース (Aタイプ)

このタイプは広い粒径範囲で均一に部分集じん効率が高く、微小粒子でも比較的良く捕集されているのが特徴である。その例はキューボラGとアスファルトプラントJであり、いずれもバグフィルターである。図-4にアスファルトプラントJの集じん機前後でのばいじんの粒度分布を示す。このパターンのもものは図-4からもわかる通り集じん機前後の粒度分布が異なっても、どの粒度でも集じん効率が高いので部分集じん効率には影響がみられない。またここで使用されているバグフィルターは、いずれも比較的新しいもので、メンテナンスも良いことから、バグフィルターでは使用方法によって0.1 μ 以上の粒子の集じんにはかなり良い効率が得られることを示している。

5-2 微小粒子になるほど集じん率の低下するケース (Bタイプ)

このタイプのもは、粒子径が小さくなるほど漸次集じん効率も低くなる例であり、発電用ボイラD (EP)、COボイラE (EP)、コークス炉H

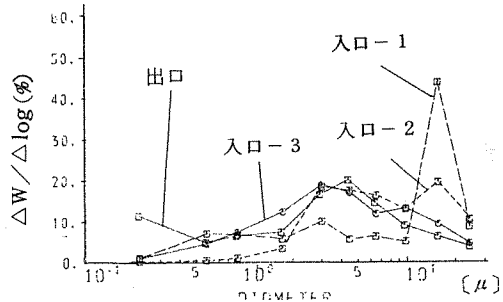


図-4 アスファルトプラントJのBF前後のばいじんの粒度分布

(BF)がその例である。発電用ボイラーDの粒度分布の例を図-5に、またその濃度表示したものを図-6に示す。これらの図より、集じん機入口側の粒度分布は粗大粒子側にピークをもっているものが多いが、出口側の粒度分布は全て微小粒子径にピークをもったものが多く、図-6のように濃度表示で示すと微小粒子になるほど入口と出口との粒度分布の幅が小さくなる傾向を示している。一般に電気集じん機でもバグフィルターでも微小粒子になるほど集じん効率が低下することは良く知られていることであり⁴⁾、石炭焚きについての報告例も多く⁵⁾、集じん機特性としては多いタイプと思われる。

5-3 部分集じん効率が中間(1~10 μ)で低くなるケース(Cタイプ)

このパターンは微小粒子と粗大粒子では集じん効率は比較的高いが、部分集じん効率が中間で低くなるケースである(図-3)。その例にガラス溶融炉B(EP)、発電用ボイラーC(EP)、焼却炉F(EP)、アスファルトプラントI(BF)がある。アスファルトプラ

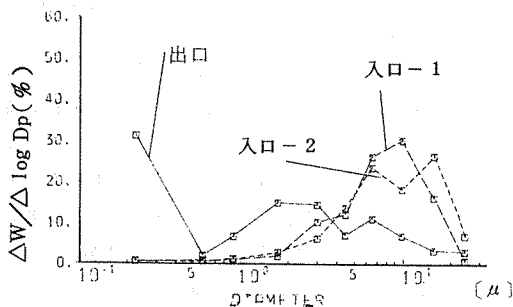


図-5 発電用ボイラーD(石炭)のEP前後の粒度分布(その1)

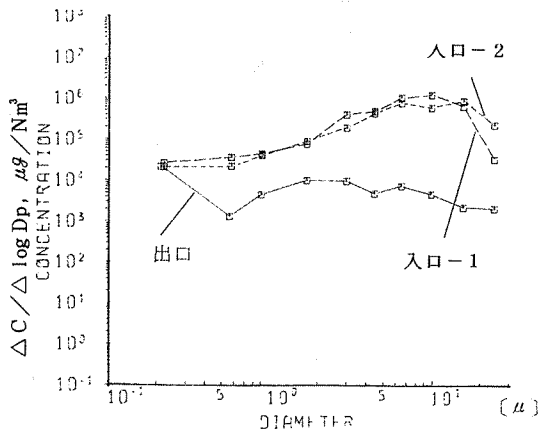


図-6 発電用ボイラーD(石炭)のEP前後の粒度分布(その2)

ントIの粒度分布の重量パーセントと濃度表示の例を図-7,8に示すが、図-8中の入口と出口の粒度分布の縦軸の幅の狭くなった部分(斜線部分)が図-3の凹の部分に対応する。また図-7からわかる通り重量パーセント表示でみるとその部分は出口のピークの方が入口のピークより高くなっていることが多い。そしてこのパターンに属するものには比較的微小粒子の集じん効率の高いのが特徴である。これらのパターンは電気集じん機のみならずバグフィルターにもみられ、粒子の物性、集じん機内での粒子の凝縮、ふるい落とし方法、集じん面での付着と再飛散、入口ダスト濃度や粒度分布の変化、メンテナンスの良否等種々の要因が考えられ、一概には論じられず、今後さらに詳細な検討が必要と思われる。

5-4 一定の粒度範囲で出口濃度が入口濃度より高くなるケース

この例はガラス溶融炉Aにみられ、図-9,10にその粒度分布を示す。このケースは今回の結果の中でも特異的であり、図-9からもわかるように2~20 μ 付

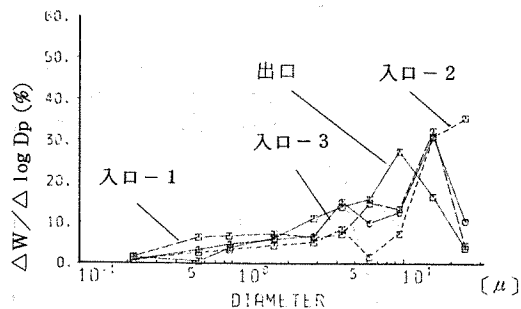


図-7 アスファルトプラントIのBF前後の粒度分布(その1)

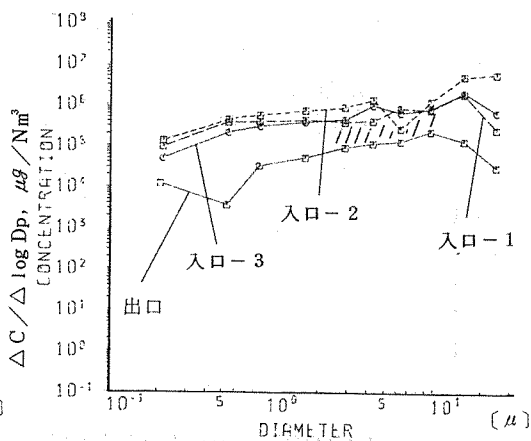


図-8 アスファルトプラントIのBF前後の粒度分布(その2)

近の範囲で入口濃度より出口濃度の方が高くなっている。これは一般的な物質収支からいっても考えられず、特異的な現象である。そこでこの現象については(1)集じん機及び粒子の特性として集じん機内で微小粒子の凝縮が選択的に促進され粗大粒子が生成される、(2)集じん機の構造、メンテナンスの不良等により集じん機内に測定以前に堆積あるいは付着していた粗大粒子が排出されるものか、あるいはホッパー等の不良により再飛散して出てくる、(3)機械的理由(粒子の払い落とし方法、集じん極でのすりぬけと付着等)によって選択的に一部の粒子がすりぬけて排出される等のことが考えられる。しかしこの例の施設とはほぼ同じ型式をもつガラス溶融炉BはCタイプを示していることから、今回の結果はメンテナンスの不良と粒子あるいは集じん機の特徴が相乗して起した現象ではないかと思われる。

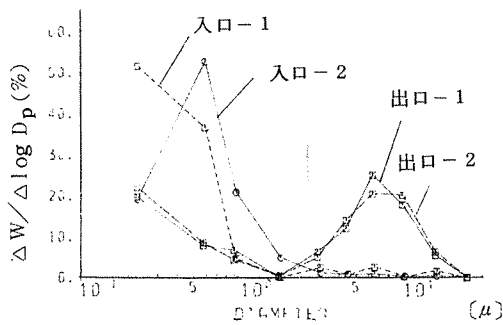


図-9 ガラス溶融炉AのEP前後の粒度分布 (その1)

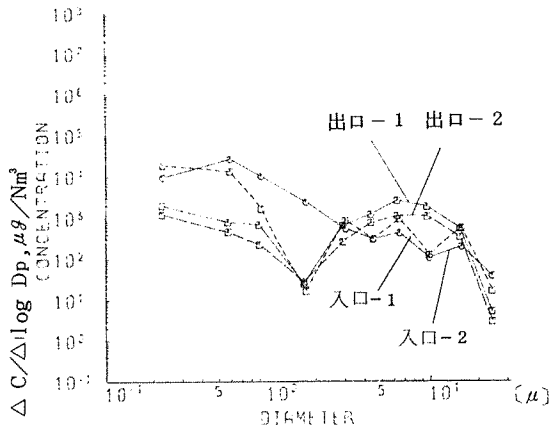


図-10 ガラス溶融炉AのEP前後の粒度分布 (その2)

6. まとめ

集じん機は電気集じん機でもバグフィルターでも、その処理排ガスに対して適切な装置を選びメンテナンスを十分に行うことによって、ほぼ0.1～30 μの範囲にわたって99%以上の集じん効率が期待できることがわかった。今回の調査ではバグフィルターの方が集じん効率の良好なものが多かった⁹⁾。しかし集じん機的设计に無理があったり、メンテナンスの不良なものは著しく集じん効率の低下するものもみられた。また集じん機の部分集じん効率はかならずしも一様ではなく、かなり複雑に変化し、その原因も粒子の物性、メンテナンス等多岐にわたっており、一概には論じられないこともわかった。

文 献

- 1) 佐俣満夫, 平野耕一郎, 渡辺善徳: 固定発生源から排出されるばいじんの粒度分布(第1報, ボイラーからのばいじんの粒度分布). 横浜市公害研究所報, 4, 13~23(1979).
- 2) 佐俣満夫, 渡辺善徳, 平野耕一郎, 太田正雄: 固定発生源から排出されるばいじんの粒度分布(第2報, 加熱炉等からのばいじんの粒度分布). 横浜市公害研究所報, 5, 11~18(1980).
- 3) 井伊谷鋼一: 集塵装置, 223-252(1974) 日刊工業新聞社.
- 4) 井伊谷鋼一: 集塵装置の性能, 51-99(1977) 産業技術センター.
- 5) 日本粉体工業協会編: バグフィルターハンドブック, 181-252(1977). 産業技術センター.
- 6) H. J. White: Electrostatic precipitation of fly ash, Part I. *Journal of the Air Pollution Control Association*, 27, 15-27(1977).
- 7) 同上 Part II. 27, 114-120(1977).
- 8) 同上 Part III. 27, 206-217(1977).
- 9) 森康維他: 集じん用布性能の基礎実験. 化学工学論文集, 5, 506-512(1979).

横浜市内における大気中の浮遊粒子状物質および 重金属の濃度（第2報）

鈴木正雄*

要 旨

横浜市内における浮遊粒子状物質の経月変化を把握するため、ローボリウムサンプラーを用いて浮遊粒子状物質を捕集、測定し、あわせてその成分である重金属（Pb, Cd, Cu, Mn, Ni, Fe, V）の濃度を測定した。

浮遊粒子状物質の濃度は5～7月に増加し、11月～12月に減少する傾向が認められた。重金属の濃度も同様の増減を示すものが多いが、発生源近傍の測定地点では増減の傾向が異なっている。

3年間の年平均値を比較すると、浮遊粒子状物質をはじめ、ほとんどの重金属の濃度が減少しているが、バナジウムは減少後再び増加している。特に長浜、本牧においては、浮遊粒子状物質中のバナジウムの割合が大きい。

1. はじめに

横浜市内の浮遊粉じんおよび重金属の調査は、昭和46年から実施しており、昭和51年まではハイボリウムサンプラーを用いて経日変化、地域差を把握した^{1)～4)}。昭和53年1月からは浮遊粒子状物質と重金属の経月変化を把握するため、市内4ヶ所でローボリウムサンプラーを用いた調査を実施し、1年間の結果について前報⁵⁾で報告した。

本報では前報の結果にその後2年間の結果をあわせ、昭和53年1月から55年12月までのローボリウムサンプラーによる調査結果について報告する。

2. 調査概要

2-1 調査地点

昭和53年1月から昭和54年12月までの2年間は前報⁵⁾と同様、鶴見保健所、都田中学校、戸塚区総合庁舎、長浜病院の計4地点で浮遊粒子状物質の捕集を行なった。昭和55年1月からは平沼小学校（西区）本牧市民公園（中区）の2地点を増設し、さらに昭和55年6月からは鶴ヶ峰小学校（旭区）を加え、計7地点とした。これらの測定地点を図-1に示す。

追加した3地点周囲の状況についてみると、平沼小

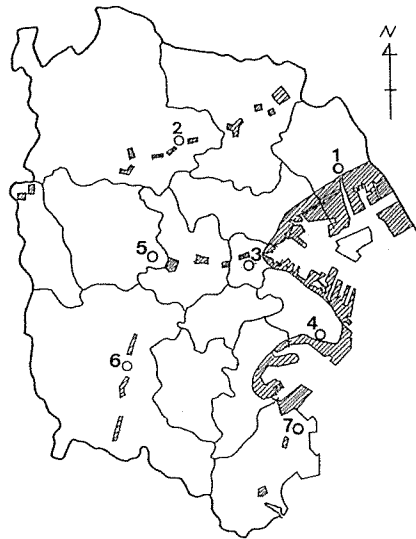


図-1 測定地点（斜線は工業地域）

- | | |
|-----------|------------|
| 1. 鶴見保健所 | 5. 鶴ヶ峰小学校 |
| 2. 都田中学校 | 6. 戸塚区総合庁舎 |
| 3. 平沼小学校 | 7. 長浜病院 |
| 4. 本牧市民公園 | |

Measurement of suspended particulate matters and heavy metals in Yokohama city (Rep.2).

* Masao Suzuki 横浜市公害研究所大気部門

表-1 測定地点の状況

測定地点	用途地域	捕集場所	特記事項
鶴見保健所	商業地域	常時監視局舎上（地上約3 m）	公害病認定地域内に位置
都田中学校	住居地域	地上約1.5 m	
平沼小学校	商業地域	校舎屋上（地上約15 m）	北東約20 mの地点に鉄道（東海道本線）
本牧市民公園	住居地域	常時監視局舎上（地上約3 m）	南側約300 mの地点に石油精製工場
鶴ヶ峰小学校	住居地域	常時監視局舎上（地上約3 m）	
戸塚区総合庁舎	商業地域	庁舎屋上（地上約20 m）	南東約200 mの地点に鉄道（東海道本線）
長浜病院	住居地域	地上約1.5 m	

学校は旧来の市街地に位置しており、測定地点の北東側には鉄道（東海道本線）が通っている。本牧市民公園は昭和30年代から40年代にかけて海岸を埋め立てて形成された比較的新しい工業地帯に隣接しており、南側約300m離れたところに大規模な石油精製工場がある。鶴ヶ峰小学校は戦後宅地造成された住宅地であり、周囲に大規模な汚染物質の発生源はない。

7測定地点は、いずれも横浜市の大気汚染常時監視地点である。これらの測定地点周囲の状況と浮遊粒子状物質捕集位置を表-1に示す。

2-2 浮遊粒子状物質の捕集方法と重金属の分析方法

浮遊粒子状物質の捕集方法は前報と同様、ローボリウムサンプラー（新宅機械製作所製、S2型、サイクロン式10ミクロンカット）を用い、1ヶ月を単位として捕集した。使用した濾紙はミリポアAP-20（直径110mm）である。

分析した重金属は鉛（Pb）、カドミウム（Cd）、銅（Cu）、マンガン（Mn）、ニッケル（Ni）、鉄（Fe）、バナジウム（V）の7種であり、重金属の分析方法も前報と同様である。すなわち、4規定塩酸-30%過酸化水素水溶液により浮遊粒子状物質から重金属を溶出させ、乾固、再溶解後、VはBPHA法、他の6種の重金属は原子吸光直接法で定量した。

3. 結果および考察

3-1 年平均値

昭和53年から昭和55年までの浮遊粒子状物質と重金属の年平均濃度、および同時に常時監視地点で測定されたガス状物質と風速の年平均値を表-2～表-4に示す。

浮遊粒子状物質と重金属の年平均値において、鶴見はCuを除き、3年間とも7測定地点中最も高い濃度

となった。逆に、長浜はNi、Vを除き、最も低い濃度となった。

浮遊粒子状物質濃度は3年間に徐々に減少しており、Pb、Cu、Mnも同様の傾向にある。

Cd、Feも減少傾向にあるが、Cdは54年の長浜の年平均値が $0.0027 \mu\text{g}/\text{m}^3$ で53年の値 $0.0024 \mu\text{g}/\text{m}^3$ より濃度が高く、Feについても都田で54年の値が $0.85 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、53年の値が $0.83 \mu\text{g}/\text{m}^3$ で濃度が若干高くなっている。

3-2 他都市の年平均値との比較

ローボリウムサンプラーを用いた浮遊粒子状物質と重金属の測定は、国内13ヶ所の国設大気汚染測定局（NASN）でも行なわれている。本報での測定結果を他都市の濃度と比較するため、昭和55年4月から昭和56年3月まで、NASNで測定された濃度の平均値⁹⁾の一部を表-5に示した。表-5の測定地点は松江を除き、いずれも政令指定都市である。また、松江はNASN中で浮遊粒子状物質濃度が最も低いため特に記した。

なお、本報の結果との比較においては、NASNの重金属の測定法が放射化分析であることを考慮する必要がある。すなわち、放射化分析は酸に溶解しない重金属化合物をも測定できるため、本報で用いた酸溶解法より高い濃度となる場合も考えられる。

浮遊粒子状物質濃度について表-4と表-5を比較すると横浜市内の平均濃度は $45.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ で他の指定都市より低い。鶴見の濃度（ $52.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ）が名古屋（ $46 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ）、大阪（ $49 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ）より高く、地点によって高濃度を示す場合がある。長浜の濃度（ $300 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ）は松江（ $19 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ）より高いものの他の指定都市の濃度よりかなり低く、長浜は横浜市内でも特に汚染の少ない地点と考えられる。

次に、表-5について重金属の濃度をみると、都市によって濃度に大きな差がみられる。たとえば、札幌と川崎は浮遊粒子状物質の差が $4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ と小さいが、

表-2 浮遊粒子状物質、重金属、ガス状物質、風速の年平均値(53年1月~12月)

	Dust	Pb	Cd	Cu	Mn	Ni	Fe	V	SO ₂	NO	NO ₂	NO _x	Ox	WS
鶴見保健所	67.6	0.23	0.0043	0.039	0.098	0.015	1.22	0.023	0.022	0.037	0.039	0.076	0.016	3.1
都田中学校	57.6	0.15	0.0037	0.026	0.061	0.008	0.82	0.014	0.008	0.022	0.024	0.046	0.021	1.0
戸塚区総合庁舎	63.7	0.15	0.0033	0.044	0.052	0.008	0.99	0.012	0.008	0.043	0.035	0.078	0.020	2.6
長浜病院	41.0	0.11	0.0024	0.021	0.051	0.009	0.73	0.017	0.010	0.017	0.024	0.041	0.025	1.8
平均	57.5	0.16	0.0034	0.033	0.066	0.010	0.94	0.017	0.012	0.030	0.030	0.060	0.020	2.1

単位：浮遊粒子状物質及び重金属 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ，ガス状物質 ppm，風速 m/sec

表-3 浮遊粒子状物質、重金属、ガス状物質、風速の年平均値(54年1月~12月)

	Dust	Pb	Cd	Cu	Mn	Ni	Fe	V	SO ₂	NO	NO ₂	NO _x	Ox	WS
鶴見保健所	63.6	0.16	0.0041	0.037	0.080	0.012	1.14	0.016	0.016	0.034	0.036	0.070	0.011	3.5
都田中学校	56.7	0.11	0.0037	0.022	0.052	0.010	0.85	0.009	0.009	0.023	0.023	0.046	0.020	0.9
戸塚区総合庁舎	59.6	0.10	0.0033	0.040	0.041	0.008	0.99	0.009	0.008	0.036	0.039	0.075	0.025	2.6
長浜病院	39.7	0.07	0.0027	0.020	0.038	0.010	0.67	0.011	0.006	0.016	0.026	0.043	0.019	1.7
平均	54.9	0.11	0.0035	0.030	0.053	0.010	0.91	0.012	0.010	0.027	0.031	0.059	0.019	2.2

単位：浮遊粒子状物質及び重金属 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ，ガス状物質 ppm，風速 m/sec

表-4 浮遊粒子状物質、重金属、ガス状物質、風速の年平均値(55年1月~12月)

	Dust	Pb	Cd	Cu	Mn	Ni	Fe	V	SO ₂	NO	NO ₂	NO _x	Ox	WS
鶴見保健所	52.8	0.13	0.0033	0.030	0.075	0.011	1.06	0.021	0.014	0.030	0.036	0.066	0.015	3.7
都田中学校	46.1	0.09	0.0027	0.020	0.045	0.006	0.62	0.013	0.009	0.022	0.024	0.046	0.025	0.9
平沼小学校	50.3	0.10	0.0025	0.028	0.047	0.007	1.04	0.013	0.014	0.043	0.036	0.079	0.013	2.3
本牧市民公園	42.0	0.08	0.0020	0.023	0.041	0.010	0.75	0.020	0.013	0.022	0.036	0.058	0.020	3.1
鶴ヶ峰小学校	49.7	0.11	0.0027	0.035	0.040	0.006	0.75	0.013	0.010	0.026	0.028	0.054	0.024	3.0
戸塚区総合庁舎	50.0	0.09	0.0025	0.037	0.038	0.006	0.97	0.012	0.009	0.033	0.035	0.068	0.023	2.6
長浜病院	30.0	0.06	0.0018	0.015	0.027	0.006	0.45	0.015	0.008	0.014	0.024	0.038	0.021	1.5
平均	45.6	0.09	0.0025	0.026	0.045	0.007	0.81	0.016	0.011	0.027	0.032	0.059	0.020	2.4

単位：浮遊粒子状物質及び重金属 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ，ガス状物質 ppm，風速 m/sec

表-5 国設大気汚染測定局における浮遊粒子状物質と重金属の年平均濃度(55年4月~56年3月)

	Dust	Pb	Cd	Cu	Mn	Ni	Fe	V
札幌	5.5	0.04	0.0034	0.009	0.019	0.004	0.71	0.007
東京	5.8	0.10	0.0044	0.027	0.056	0.006	0.70	0.012
川崎	5.9	0.14	0.0071	0.160	0.090	0.012	1.70	0.018
名古屋	4.6	0.09	0.0033	0.018	0.040	0.004	0.75	0.011
大阪	4.9	0.25	0.0066	0.044	0.060	0.006	1.30	0.016
松江	1.9	0.02	0.0022	0.008	0.015	0.005	0.43	0.004

単位： $\mu\text{g}/\text{m}^3$

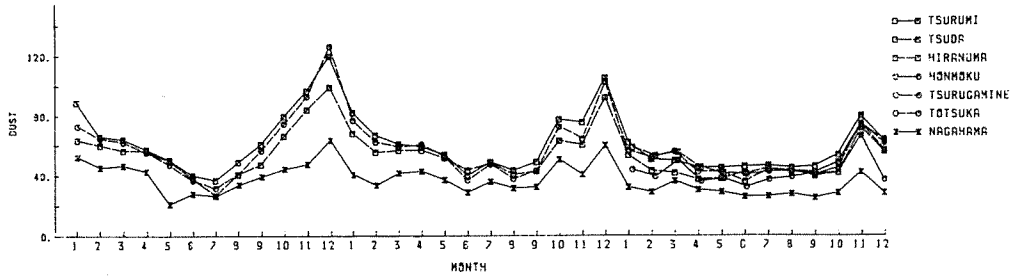


図-2 浮遊粒子状物質濃度の経月変化 (昭和53年~55年、単位 $\mu g/m^3$)

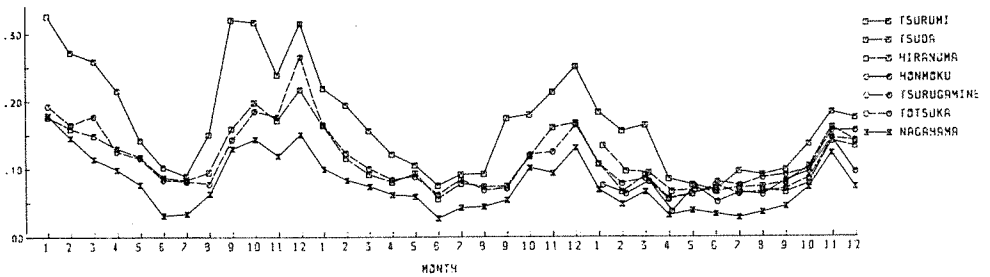


図-3 鉛濃度の経月変化 (昭和53年~55年、単位 $\mu g/m^3$)

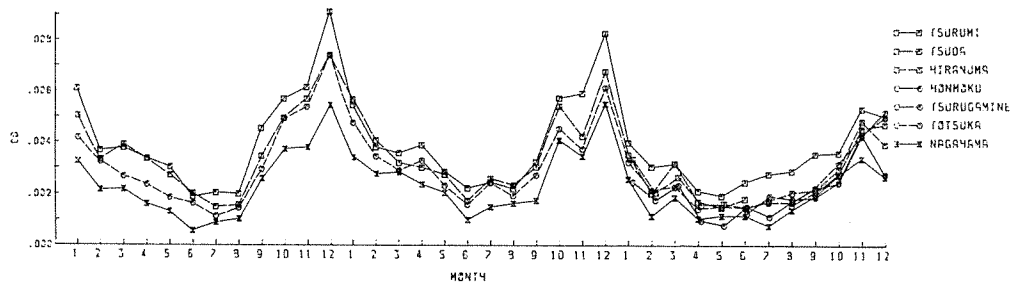


図-4 カドミウム濃度の経月変化 (昭和53年~55年、単位 $\mu g/m^3$)

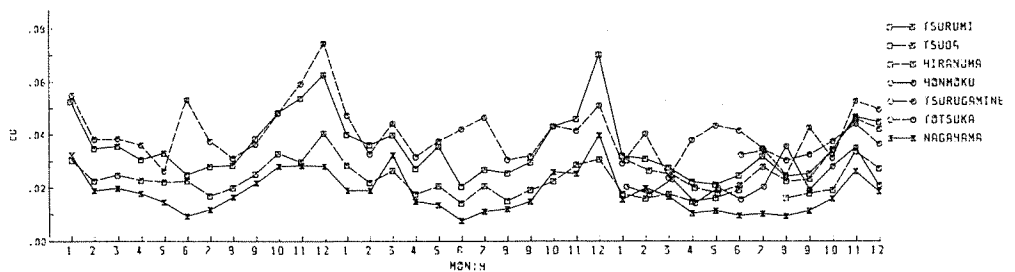


図-5 銅濃度の経月変化 (昭和53年~55年、単位 $\mu g/m^3$)

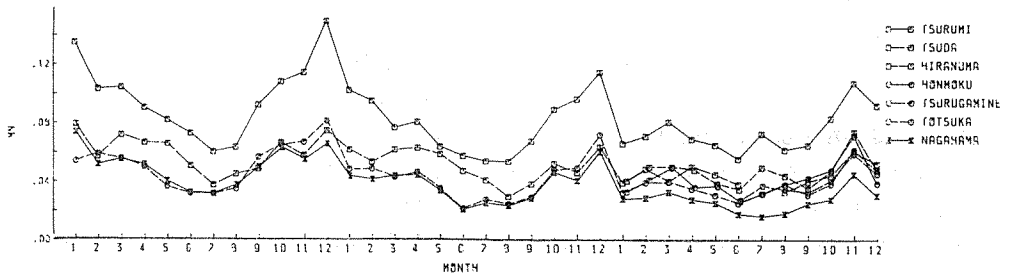


図-6 マンガン濃度の経月変化(昭和53年~55年、単位 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)

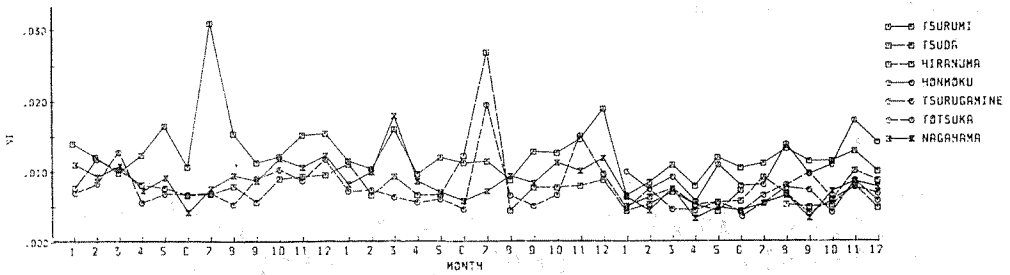


図-7 ニッケル濃度の経月変化(昭和53年~55年、単位 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)

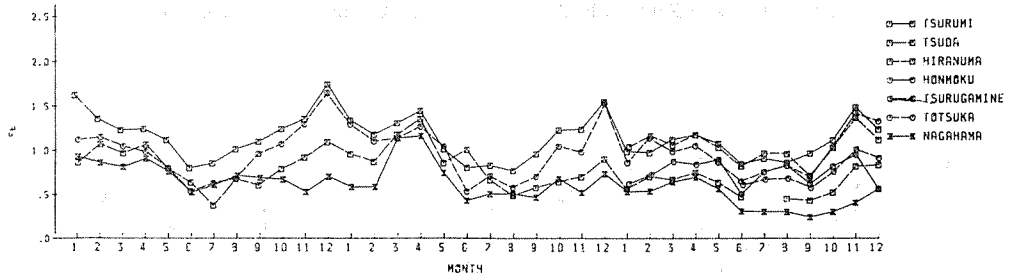


図-8 鉄濃度の経月変化(昭和53年~55年、単位 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)

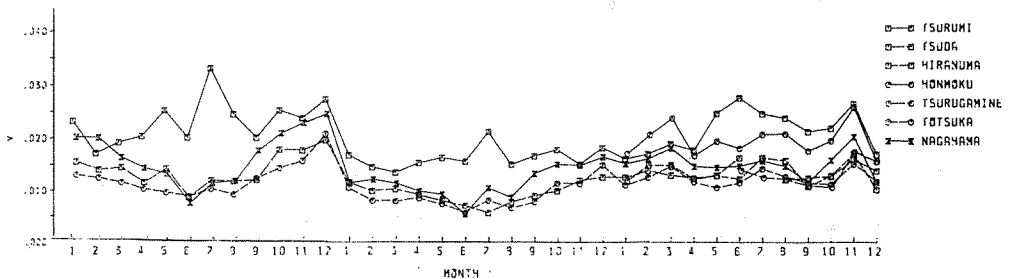


図-9 バナジウム濃度の経月変化(昭和53年~55年、単位 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)

各重金属濃度は川崎が札幌の2倍以上となっている。また、大阪は東京より粒子状物質濃度が低い、重金属濃度は逆に高い。このように、重金属の濃度は地域差が大きく、本報での結果と比較しにくい、横浜市内の重金属濃度はVがやや高いほかは特に高くなく、他都市と同程度の濃度と考えられる。

3-3 浮遊粒子状物質の経月変化

前報において、浮遊粒子状物質の濃度は5~7月に低く、10~12月に高くなる傾向があった。54年55年についてもこの傾向は変わらず同様の傾向がみられた(図-2)。しかし、各年の最高値は徐々に低くなっており、年間を通じた最高値と最低値の差は小さくなっている。

鶴見は旧来からの京浜工業地帯に隣接しており、浮遊粒子状物質の濃度は7測定地点の中でも比較的高濃

度で推移している。反面、長浜は常に7測定地点中最も低い値であった。

3-4 重金属濃度の経月変化

重金属の経月変化を図-3~図-9に示す。

Cd、Mnは経月変化のパターンが5~7月に低く、10~12月に高くなっており、浮遊粒子状物質とよく似ており、さらに、Mnは鶴見の濃度が常に7測定地点中で高いという特徴がある。

Pbも浮遊粒子状物質と似た変化をしているが、53年9月および10月にも高濃度となっており、高濃度のピークは浮遊粒子状物質のピークと必ずしも一致していない。

Cuは戸塚の測定値を除けば濃度のピークが11月~12月にあり、浮遊粒子状物質の傾向と一致する。戸塚のCu濃度は毎年5~7月にも小さなピークを持

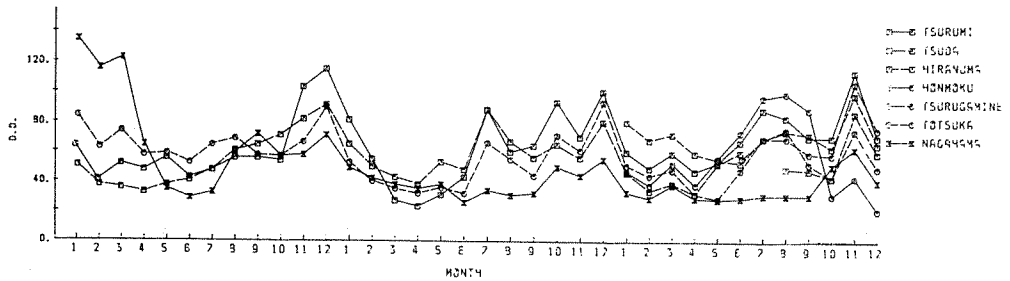


図-10 デジタルダスト濃度の経月変化(昭和53年~55年、単位 $\mu g/m^3$)

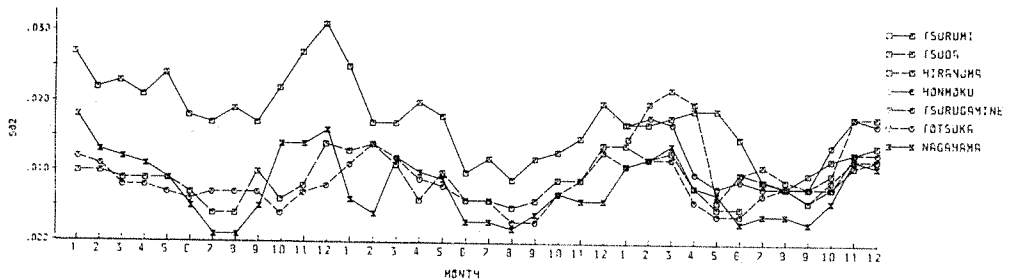


図-11 二酸化硫黄濃度の経月変化(昭和53年~55年、単位 ppm)

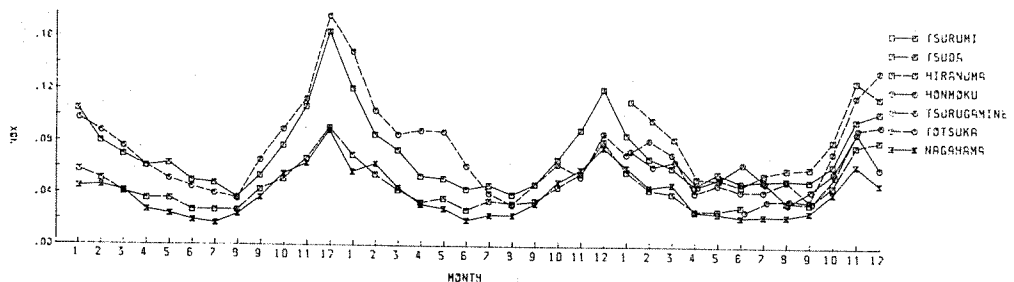


図-12 窒素酸化物濃度の経月変化(昭和53年~55年、単位 ppm)

っている。これは戸塚の測定地点の近傍に銅の発生源があるためと推測され、前報ではこの発生源を近くを通る鉄道の架線であろうと考察した。しかし、戸塚より近くに鉄道が通っており、Cuの濃度が高いと予想された平沼では年間を通じて特に高い濃度は測定されていない。このことから、戸塚の周辺には鉄道以外の銅の発生源が考えられる。

Vは53年、54年に鶴見を除き、浮遊粒子状物質と同様の経月変化をしていたが、55年には5～7月に濃度が下らず、異なった経月変化となった。鶴見は浮遊粒子状物質の濃度が低い5～7月にVの濃度が高く、発生源の影響を受けているものと思われる。55年1月から測定を始めた本牧も浮遊粒子状物質濃度に比べVの濃度が高い。

3-5 自動測定機で測定された汚染物質との比較

ローボリウムサンプラーを設置した大気汚染常時監視局で測定された汚染物質と浮遊粒子状物質、重金属とを比較するため、デジタル粉じん計による粉じん（デジタルダスト）、窒素酸化物（NOx）、二酸化硫黄（SO₂）の月平均濃度をプロットし、図-10から図-12に示した。

デジタルダストは浮遊粒子状物質の1時間値が測定できることから、大気汚染常時監視の公定法として採用されているが、ローボリウムサンプラーによる濃度との一致は必ずしも良くない。たとえば、デジタルダストの経月変化（図-10）は、図-2のローボリウムサンプラーによる結果のように11、12月に濃度が高くなる傾向はあるが、さらに7月、8月にも濃度

表-6 各測定項目間の相関係数

	Dust	Pb	Cd	Cu	Mn	Ni	Fe	V	SO ₂	NO	NO ₂	NOx	Ox	W S
Dust	1.00	0.82	0.90	0.78	0.75	0.32	0.78	0.27	0.50	0.79	0.65	0.80	-0.25	0.07
Pb	0.82	1.00	0.82	0.68	0.86	0.39	0.67	0.41	0.61	0.64	0.57	0.66	-0.30	0.15
Cd	0.90	0.82	1.00	0.67	0.74	0.35	0.61	0.30	0.48	0.75	0.58	0.74	-0.34	-0.05
Cu	0.78	0.68	0.67	1.00	0.56	0.31	0.68	0.19	0.36	0.72	0.65	0.75	-0.24	0.34
Mn	0.75	0.86	0.74	0.56	1.00	0.51	0.76	0.56	0.72	0.51	0.53	0.56	-0.32	0.27
Ni	0.32	0.39	0.35	0.31	0.51	1.00	0.35	0.50	0.39	0.15	0.25	0.20	-0.32	0.23
Fe	0.78	0.67	0.61	0.68	0.76	0.35	1.00	0.28	0.61	0.66	0.66	0.71	-0.13	0.40
V	0.27	0.41	0.30	0.19	0.56	0.50	0.28	1.00	0.57	0.19	0.36	0.27	-0.34	0.35
SO ₂	0.50	0.61	0.48	0.36	0.72	0.39	0.61	0.57	1.00	0.46	0.60	0.54	-0.26	0.41
NO	0.79	0.64	0.75	0.72	0.51	0.15	0.66	0.19	0.46	1.00	0.70	0.97	-0.34	0.10
NO ₂	0.65	0.57	0.58	0.65	0.53	0.25	0.66	0.36	0.60	0.70	1.00	0.86	-0.23	0.43
NOx	0.80	0.66	0.74	0.75	0.56	0.20	0.71	0.27	0.54	0.97	0.86	1.00	-0.32	0.22
Ox	-0.25	-0.30	-0.34	-0.24	-0.32	-0.32	-0.13	-0.34	-0.26	-0.34	-0.23	-0.32	1.00	-0.13
WS	0.07	0.15	0.05	0.34	0.27	0.23	0.40	0.35	0.41	0.10	0.43	0.22	-0.13	1.00

(n=174)

のピークが見られることがある。これはデジタル粉じん計の計測原理が光散乱法であり、湿度等の気象条件や粉じんの粒径分布の違いが原因となっているためであろう。

次にNOxの経月変化は6～8月に濃度が低く、11、12月に濃度が高くなっており、浮遊粒子状物質やCdの傾向ときわめてよく似ている。また、SO₂の経月変化は濃度のピークが冬季にあるものの、鶴見の濃度がやや高いという特徴があり、NOxとはやや傾向が異なる。NOxとSO₂の発生源の違いは、SO₂が重油や石炭の燃焼によるもので、主として大規模な点発生源であるのに対し、NOxは点発生源に加え、車や中小工場、家庭などが線発生源、面発生源として市内全域に広がっている。浮遊粒子状物質も燃焼によって生成するが、土壌からの寄与も考えられ、発生源の分布は市内全域と考えられる。NOxと浮遊粒子状物質の経月変化が似ているのは、発生源が燃焼に関係しているためとも考えられるが、同じく傾向の似ているCdの発生源は燃焼施設とは考えにくい。したがって、NOx、粒子状物質、Cdの経月変化が似ているのは、発生源が市内全域に広がっているためとするのが妥当であろう。

4. 主成分分析による解析

前報では53年の測定値について主成分分析を行ない、その結果第1主成分として汚染の総合指標、第2主成分として化石燃料の燃焼の影響が導き出された。

本報では53年の測定値に54年、55年の測定値をあわせ、3年間の測定値を用いて前報と同様の主成分分析を行なった。また、前報と同様、二酸化イオウ（SO₂）、窒素酸化物の月平均濃度も主成分分析のための特性値として加えた。

4-1 相関係数行列

相関係数行列を表-6に示す。一酸化窒素、二酸化窒素、オキシダント、風速の測定値は主成分分析の対象としなかったが参考のために示した。

前報の相関係数行列を本報のそれと比較した場合、負の相関が正の相関となるような大きな変化はないが若干の変化はみられた。たとえばVは他の重金属との相関が小さくなっている。

浮遊粒子状物質と重金属との関係で相関係数が最も大きいのはCdの0.90であり、これは両者の経月変化のパターンがよく一致していることを示している。

4-2 主成分分析の結果

表-5の10項目を特性値とした相関行列の固有値と固有値に対応する累積寄与率は表-7の通りである。前報では第2主成分までで84%の部分が説明されたが、本報では累積寄与率が0.76と、第2主成分までで76%しか説明できず、測定値の主成分への要約は良

表-7 固有値および累積寄与率

主成分	固有値	累積寄与率
1	6.23	0.62
2	1.39	0.76
3	0.67	0.83
4	0.49	0.88
5	0.45	0.92
6	0.29	0.95
7	0.24	0.98
8	0.12	0.99
9	0.08	1.00
10	0.04	1.00

表-8 各項目の第1主成分、第2主成分への因子負荷量と第2主成分までの寄与率

項目	因子負荷率		寄与率
	第1主成分	第2主成分	
Dust	0.91	-0.29	0.91
Pb	0.90	-0.03	0.82
Cd	0.87	-0.21	0.80
Cu	0.78	-0.36	0.74
Mn	0.90	0.22	0.85
Ni	0.50	0.56	0.57
Fe	0.84	-0.12	0.72
V	0.50	0.71	0.76
SO ₂	0.73	0.38	0.67
NO _x	0.82	-0.32	0.77

くない。しかし、固有値が1.0以上のものは2つであり、第3主成分以下の説明力は小さい。これは前報と同様である。

因子負荷量を表-8に示す。第1主成分は測定項目のすべてのものと正の相関があるが、NiとVはともに0.50であり、最も値が小さい。第2主成分はNi、V、SO₂と正の相関がある。これら第1主成分と第2主成分の因子負荷量の特徴は前報と一致しており、3年間の測定値から導き出された主成分も、第1主成分は汚染の総合指標、第2主成分は化石燃料の燃焼の影響と考えることができる。

各測定値から得られた第1主成分、第2主成分の経月変化を図-13、図-14に示す。

第1主成分への因子負荷量は浮遊粒子状物質が0.91と最も高く、結果として第1主成分の経月変化は浮遊粒子状物質の経月変化に近いものとなっている。しかし、図-2と図-14とを比較した場合、浮遊粒子状物質の濃度は鶴見の濃度が特に高いとは言えないが、第1主成分では明らかに鶴見のスコアが高い。これはMnの濃度をはじめ、鶴見の測定物質の濃度が他の測定地点より若干高いことが累積された結果であろう。

第2主成分の経月変化は第1主成分のような増減パターンはなく推移している。

4-3 主成分分析による経年変化の把握

主成分のスコアは、各観測値と固有ベクトルとの積で得られる。したがって、各測定地点の測定値の年平均値に固有ベクトルを乗ずれば、年平均値に対応する

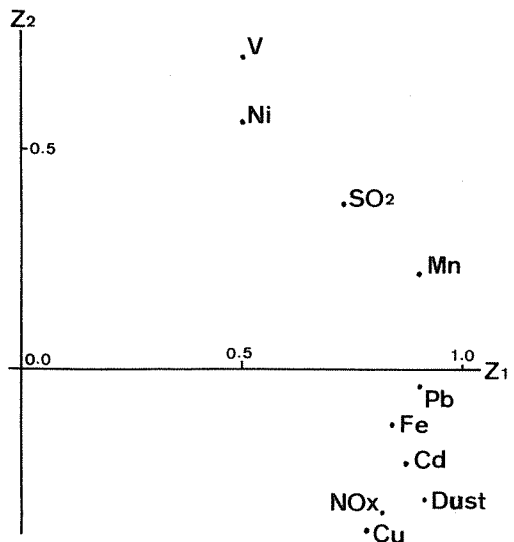


図-13 各測定項目の因子負荷量
(Z₁:第1主成分、Z₂:第2主成分)

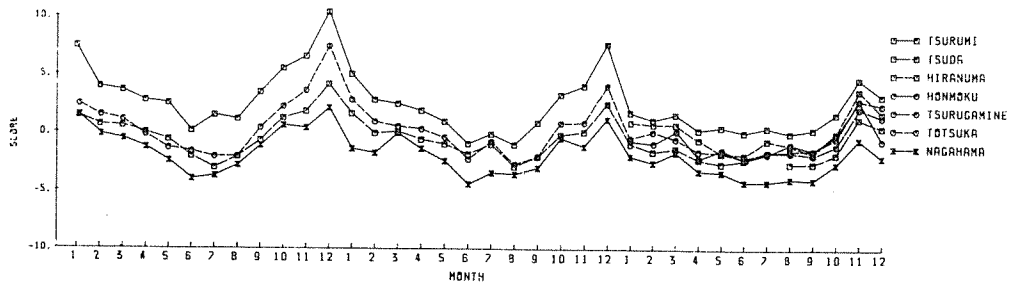


図-14 第1主成分のスコアの経月変化（昭和53年～55年）

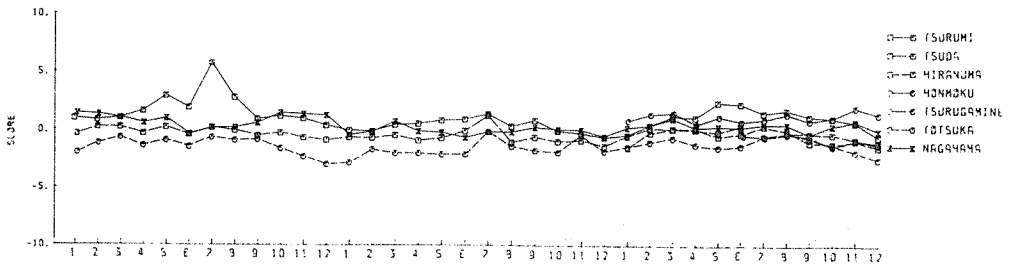


図-15 第2主成分のスコアの経月変化（昭和53年～55年）

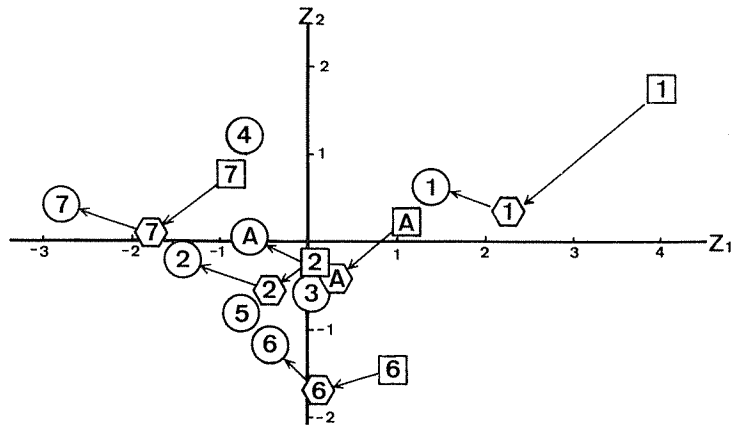


図-16 各測定地点の年平均値から算出された主成分のスコア
 (Z_1 : 第1主成分、 Z_2 : 第2主成分)

□ : 53年

⬡ : 54年

○ : 55年

- | | |
|-----------|------------|
| 1. 鶴見保健所 | 5. 鶴ヶ峰小学校 |
| 2. 都田中学校 | 6. 戸塚区総合庁舎 |
| 3. 平沼小学校 | 7. 長浜病院 |
| 4. 本牧市民公園 | A 年平均値 |

各主成分のスコアが得られ、そのスコアの変化から経年変化の特徴を知ることができる。

図-15は各測定地点の主成分のスコアの経年変化を示したものである。鶴見、都田、戸塚、長浜とも汚染の程度は減少している。しかし、化石燃料の燃焼の影響は54年は減少したものの55年は再び増加している。

55年のスコアから、汚染の程度は鶴見、平沼、戸塚、本牧、鶴ヶ峰、都田、長浜の順に小さくなっており、測定地点の状況、すなわち商業地域と住居地域の違いがあらわれている。これに対し、化石燃料の燃焼の影響は、本牧が最も大きく、以下鶴見、長浜、都田、平沼、鶴ヶ峰、戸塚の順に小さい。本牧の化石燃料の燃焼の影響が大きい原因は、本牧の測定値で浮遊粉じん等第1主成分と強い関係を持つ測定項目の値が小さいにもかかわらずNi、V等の濃度が鶴見と同程度の濃度であったためである。

4-4 主成分分析の適用の際の問題点

前報の主成分分析はデータ数48組で行ない、本報では174組で行なった。本報で導出された主成分は前報とほとんど変わらず、第1主成分として汚染の総合指標、第2主成分として化石燃料の燃焼による影響が導き出された。結果がほとんどかわらなかった原因は各物質間の相関係数が前報とほとんどかわらず安定であったためである。相関係数が安定となった原因は多くの汚染物質の経月変化が1年を周期として変化しているためである。したがって、今後とも同様の測定結果を用いて主成分分析を行なった場合、導き出される主成分はほとんどかわらないことが予想される。しかし、主成分分析の目的は多変量の観測値の要約であり、その意味では今後とも主成分分析は有効な解析法として用いられるべきものである。

次に本調査結果を主成分分析で解析する際の問題点を1つあげておく。それは、本報においては主成分分析の変数として重金属等の浮遊粒子状物質に関するも

の多いことである。したがって、第1主成分としての汚染の総合指標の意味は、あくまでも変数として10項目を用いた場合の汚染の総合指標であり、実際の総合指標とはならない。ある環境の汚染を評価する際は、どの物質を尺度として選択するかが重要であり、それによって評価が大きく変化することもある。本調査の結果から実状にあった汚染の総合指標を求めるには不要な変数を捨てたり、新たにCOなど他の汚染物質を変数として選択することが必要である。

5. まとめ

(1) 市内の浮遊粒子状物質と重金属の濃度はバナジウムを除き、減少している。

(2) 浮遊粒子状物質の経月変化は5～7月に低く、11～12月に高い傾向がある。しかし、11～12月の高濃度のピーク値は次第に減少している。

(3) 浮遊粒子状物質、カドミウムとNO_xは濃度の経月変化がよく似ている。

(4) 長浜、本牧は浮遊粒子状物質、鉛、カドミウムの濃度は低いが、ニッケル、バナジウムの濃度が比較的高い。

文献

1) 横浜市公害対策局：横浜市大気汚染調査報告書第14報，180（1973）

2) 横浜市公害対策局：同上第15報，221（1974）

3) 横浜市公害対策局：同上第16報，211（1975）

4) 鈴木正雄，太田正雄：横浜市内における大気中の浮遊粉じん，重金属，陰イオンの測定結果と推移，横浜市公害研究所報，2，64（1978）。

5) 鈴木正雄：横浜市内における大気中の浮遊粒子状物質および重金属濃度の調査結果とその主成分分析による解析，横浜市公害研究所報，4，25（1979）

6) 環境庁大気保全局大気規制課：昭和55年度一般環境大気測定局測定結果報告（昭和56年12月）

自動車排出ガスによる道路周辺での大気 汚染に関する研究(第5報)

—— 道路周辺地域における浮遊ふんじん —— 及びその含有成分

新井 久雄*, 渡辺 善徳*, 太田 正雄*, 鈴木 正雄*
平野 耕一郎*, 中村 貢*, 米山 悦夫*

要 旨

道路周辺地域における浮遊ふんじん及びその含有成分は、自動車による影響のほか、さまざまな発生源からの寄与により複雑な挙動を示している。今回、それらの実態を把握するため、昭和55年2月27日から4月9日まで国道1号線を対象道路として道路から123mの地点まで浮遊ふんじん調査を実施した。

その結果、浮遊ふんじん濃度は、道路から30m付近まで明らかに高かった。しかし、含有成分別では、道路からの影響範囲が異なり、距離減衰は、①道路から徐々に減衰していく成分(Si, Al, Fe, Ca, 全K, Ti, Mn, P), ②道路端での濃度が特に高い成分(全S, SO_4^{2-} , Zn, ベンゼン抽出物, ベンゾ(a)ピレン), ③各地点間の濃度差がほとんどない成分(全Cl, Na^+ , Mg^{2+} , K^+ , NH_4^+ , NO_3^- , Cl^-)の3つに分類できた。これら成分別の挙動について解析した結果、自動車走行に伴うふんじんの発生源の相異が確認でき、道路近傍では、自動車排出ガスに加えて、自動車走行に伴う土砂の巻上げが浮遊ふんじん濃度を大きく上昇させていることが判明した。道路端(3m)での、その寄与率は、浮遊ふんじん中の約15~20%と試算された。

1. はじめに

道路周辺地域での浮遊ふんじんは、自動車の排出ガス、その走行に伴う土砂の巻上げ及びタイヤの摩耗等により発生するふんじんのほか、固定発生源からのばいじん、風による土砂の舞上り、海塩粒子等により、複雑な挙動をしている。

このように、道路周辺地域での浮遊ふんじんについての濃度把握、汚染実態、挙動及び発生源別寄与の解明は各種発生源からの寄与が複雑多岐にわたっているため、因果関係の究明は難しく、その調査研究は遅れている。過去の調査事例^{1), 2), 3)}についてみても、浮遊ふんじん中の重金属及び多環芳香族等の微量成分の測定に限られ、浮遊ふんじん中のそれら以外の構成成分については、ほとんど手がつけられていないため、

自動車を発生源とする汚染実態及びその汚染寄与の詳細は明らかにされていない。

そこで、今回国道1号線を対象道路として、浮遊ふんじん及び主要構成成分を多項目にわたって調査した。本報告では、その結果から、道路周辺地域における浮遊ふんじん及び主要構成成分の実態、挙動並びに浮遊ふんじんの発生源別寄与の実態を考察した。

2. 調査方法

2-1 調査期間

昭和55年2月27日~4月9日

2-2 調査地点

国道1号線、横浜市戸塚区原宿地区(交通量60,000台/日)

A study on air pollution caused by automobile exhaust gas in areas along a road (Rep. 5)

—— Measurements of suspended particulates in areas along a road ——

*Hisao Arai, Yoshinori Watanabe, Masao Ohta, Masao Suzuki, Koichiro Hirano, Mitsugu Nakamura, Etsuo Yoneyama, 横浜市公害研究所大気部門

2-3 調査内容

調査は、風向を考慮し、図-1に示した5地点及び道路の影響が認められない対照地点（道路端Aの北西約400m）において、アンダーセンハイボリュウムサンプラー（粒径別濃度）、ローボリュウムエアサンプラー（10μカットなし）、ハイボリュウムエアサンプラーを配置し、浮遊ふんじんを48時間ごと延べ18～21回捕集した。表-1にそれぞれの捕集法の使用口紙、吸引流量及び捕集特性を示した。

浮遊ふんじんに含まれる元素等の分析は、表-2に示すとおり、ローボリュウムエアサンプラーで捕集したものを中心に、元素11項目、水溶性成分7項目及び有機成分2項目についておこなった。

なお、調査期間中の風向、風速は地点Eにおいて観測した。

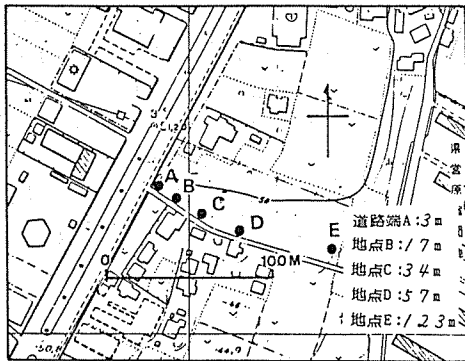


図-1 調査地点

表-1 浮遊ふんじんの捕集方法

	機種・型式	カット特性	使用口紙	吸引流量	流量較正	捕集時間
アンダーセンハイボリュウムサンプラー	ダイレック社 AH-600	シエルター内設置 1.1~7.0μ以上を 4段分級 1.1μ 以下はバックアップ	パーフレックス T 60 A 20 但し、バックアップは パーフレックス石英口紙	566ℓ/分	ルーツメーター 付 属 基 準 オ リ フ ィ ス	48時間 10時~ 翌々日10時
ローボリュウムエアサンプラー (10μカットなし)	—————	シエルター内設置 30μ以下(光学顕 微鏡観察) トータル	東洋TM-80 53φ	20~ 25ℓ/分	ロータメーター 草 野 K G - 4	同 上
ハイボリュウム エアサンプラー	紀本電子 MODEL-120	シエルター内設置 トータル	パーフレックス T 60 A 20 及びゲルマンAE	100~ 600ℓ/分	ルーツメーター	同 上

表-2 測定物質及び分析方法

	測定物質	捕集方法	分析方法
元 素	Si	ローボリュウム エアサンプラー (10μカットなし)	螢 光 X 線 法
	Al	同 上	同 上
	Cl	同 上	同 上
	S	同 上	同 上
	Fe	同 上	同 上
	Ca	同 上	同 上
	K	同 上	同 上
	Ti	同 上	同 上
	Zn	同 上	同 上
	Mn	同 上	同 上
水 溶 性 成 分	P	同 上	同 上
	Na ⁺	同 上	炎 光 光 度 法
	Mg ²⁺	同 上	原 子 吸 光 光 度 法
	K ⁺	同 上	炎 光 光 度 法
	NH ₄ ⁺	同 上	イ ン ド フ ェ ノ ール 法
	SO ₄ ²⁻	ハイボリュウム エアサンプラー	イ オ ン ク ロ マ ト グ ラ フ ィ ー
	NO ₃ ⁻	同 上	同 上
有 機 物	Cl ⁻	同 上	チ オ シ ア ン 酸 第 二 水 銀 法
	ベンゼン抽出物	同 上	重 量 法
	ベンゾ(a)ピレン	同 上	薄 層 - 螢 光 光 度 法

3. 結果及び考察

3-1 調査期間中の風向, 風速

調査期間中の風向は, 図-2のように, 北寄りの風が卓越しており, NとNNEで全体の48%を占めた。その他, SSWが21%と多かった。そのため, 調査対象道路がNNE-SSWに走っている関係上, 測定地点での風向は, 道路に沿った平行風, または道路から測定地点に向かって斜めに吹く風が多かった。

なお, 調査期間中の平均風速は, 2.1 m/sであった。

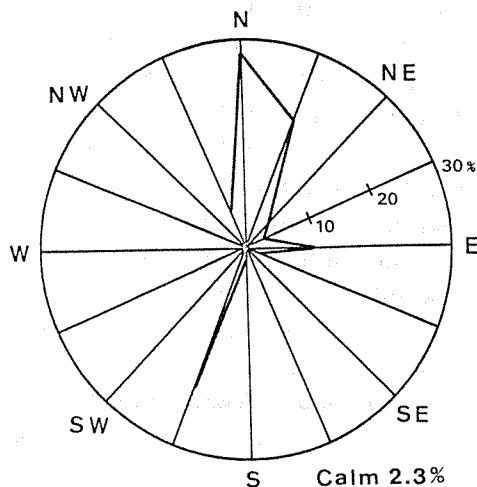


図-2 地点E(地上3m)における風配図

3-2 浮遊ふんじんの測定結果及び距離減衰

浮遊ふんじんの測定は, 表-3に示すように, 3種類の方法により実施した。各地点におけるそれぞれの浮遊ふんじん濃度は, 捕集特性の違いにより一致していないが, 各々の距離減衰パターンは類似していた。それぞれの捕集法による結果は, 以下のようである。

3-2-1 アンダーセンハイボリュウムサンプラーによる浮遊ふんじん濃度

アンダーセンハイボリュウムサンプラー(以下アンダーセンとする)による浮遊ふんじんの粒径別濃度及び粒径別の割合を表-3に示した。

粒径別濃度は, 各粒径とも道路端Aで濃度が高く, 各粒径濃度は道路から離れるに従って減衰している。また, 各地点での粒径別の割合は, 地点ごとの特徴は認められず, 各地点とも7.0 μ 以上と1.1 μ 以下の粒子で, 全体のおよそ70%を占めた。道路端Aでの7.0 μ 以上の粒子は, 59.4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であり, それは対照地点の2.5倍, 地点E(123m)の1.9倍であった。また, 道路端Aでの1.1 μ 以下の粒子は, 71.4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であり, それは対照地点の2.1倍, 地点Eの1.8倍であった。

一般に, 環境大気中の浮遊ふんじんは, 2 μ 付近を谷として, 二山型の粒径分布であることはよく知られている^{4), 5), 6)}。今回の調査結果でも, 2 μ 付近の濃

表-3 浮遊ふんじん濃度及び粒径別濃度の割合

捕集法 測定地点	アンダーセンハイボリュウムエアサンプラー(粒径別濃度)						ローボリュウム エアサンプラー (10 μ カットなし)	ハイボリュウム エアサンプラー
	7.0 μ 以上	7.0~3.3 μ	3.3~2.0 μ	2.0~1.1 μ	1.1 μ 以下	総濃度		
道路端A($\mu\text{g}/\text{m}^3$) 3m(%)	59.4 (33.8)	21.0 (11.9)	10.8 (6.1)	13.6 (7.7)	71.4 (40.6)	176 (100)	149	218
地点B($\mu\text{g}/\text{m}^3$) 17m(%)	47.7 (33.8)	17.0 (12.1)	8.4 (6.0)	10.9 (7.7)	56.8 (40.3)	141 (100)	126	147
地点C($\mu\text{g}/\text{m}^3$) 34m(%)	43.5 (35.1)	16.8 (13.5)	7.9 (6.4)	10.9 (8.8)	44.5 (35.9)	124 (100)	115	150
地点D($\mu\text{g}/\text{m}^3$) 57m(%)	47.3 (36.4)	16.8 (12.9)	8.0 (6.2)	11.1 (8.5)	47.0 (36.2)	130 (100)	97	138
地点E($\mu\text{g}/\text{m}^3$) 123m(%)	31.1 (31.4)	13.3 (13.4)	6.4 (6.5)	10.0 (10.1)	38.7 (39.1)	99 (100)	90	94
対照地点($\mu\text{g}/\text{m}^3$) (%)	23.5 (27.6)	11.8 (13.9)	5.6 (6.6)	4.4 (11.1)	34.8 (40.9)	85 (100)	78	87

(但し, アンダーセンの濃度は21試料, ローボルの濃度は18試料, ハイボルの濃度は36試料の平均値。)

度が低かった。そこで、表-3の粒径別濃度を2 μ を境として微小粒子(2 μ 未満)と粗大粒子(2 μ 以上)に分けると、図-3のような距離減衰が得られた。

微小粒子及び粗大粒子とも道路から離れるに従って減衰がみられた。また、微小粒子と粗大粒子の濃度比は、各地点とも1に近かった。浮遊ふんじんの粒径は、発生形態によって異なり、微小粒子は燃焼に伴って発生し、粗大粒子は土壌由来及び機械的発生といわれている^{5),6)}ことから、道路近傍では、排出ガスに含まれている微小粒子と、自動車走行に伴って発生する粗大粒子の影響を強く受けていることがわかる。

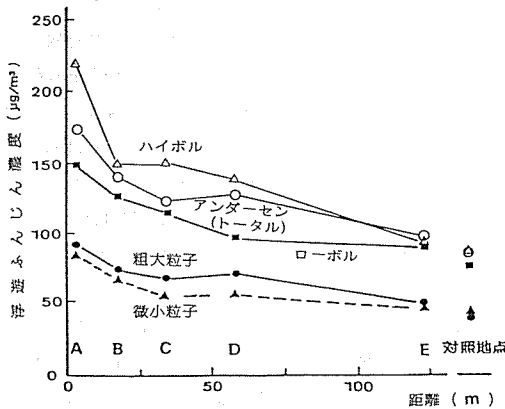


図-3 浮遊ふんじん濃度の距離減衰

3-2-2 ローボリュウムエアサンプラーによる浮遊ふんじん濃度(10 μ カットなし)

ローボリュウムエアサンプラー(以下ローボルとする)による浮遊ふんじん濃度は、表-3、図-3のように、30m付近(地点C)まで対照地点に比べて明らかに高く、濃度は距離とともに徐々に減衰した。道路端Aでの濃度は、対照地点の1.9倍、地点Eの1.7倍であった。

また、この方法による浮遊ふんじん濃度をアンダーセンによる浮遊ふんじん濃度(トータル)と比較すると、後者のほうが各地点とも高く、各地点での濃度差は1.1~1.3倍の範囲であった。

なお、10 μ カットなしによる捕集粒子の大きさは、光学顕微鏡での観察によると、おもに長径が30 μ 以下であった。

3-2-3 ハイボリュウムエアサンプラーによる浮遊ふんじん濃度

ハイボリュウムエアサンプラー(以下ハイボルとする)による浮遊ふんじん濃度は、表-3、図-3のよ

うに、アンダーセン及びローボルによる結果よりも高かった。しかし、捕集法別の濃度差は、道路から離れた地点E及び対照地点では小さく、それぞれの濃度は、ほぼ一致していた。

3-3 浮遊ふんじん中の含有成分の測定結果

各種発生源からの影響を把握するため、浮遊ふんじん中の多量含有成分を分析した。各成分の濃度及び浮遊ふんじん中の含有率を表-4に、また各成分間の相関係数を表-5に示した。

表-4のように、道路端Aでは、Si, Al, 全Cl, SO_4^{2-} , NO_3^- 及びベンゼン抽出物が、それぞれ5 $\mu g/m^3$ 以上で、濃度が高く、そのうち、Si, ベンゼン抽出物の含有率は、各々の11%であり、浮遊ふんじんに占める割合が、特に多かった。また、他の地点でもSi, Al, 全Cl, SO_4^{2-} , NO_3^- 及びベンゼン抽出物の濃度は、道路端Aと同様、それぞれ上位を占めていた。次に、各地点での全Sと SO_4^{2-} 、全ClとCl $^-$ の濃度関係をみると、全Sは、化学組成を硫酸イオンに直すとほぼ SO_4^{2-} の濃度と一致し、全Clは、Cl $^-$ の濃度とほぼ一致した。

3-4 浮遊ふんじん中の各成分の距離減衰

各成分の挙動及び成分間の関係をみるため、対照地

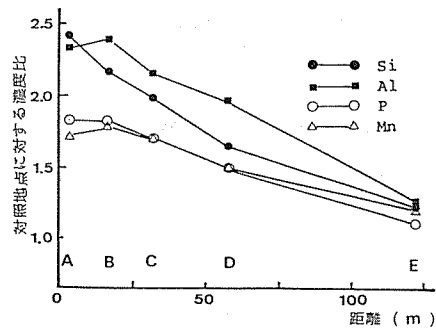


図-4 成分濃度の距離減衰(対照地点=1)

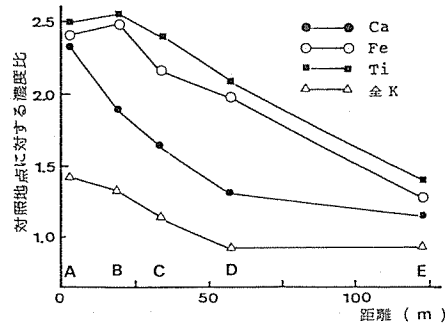


図-5 成分濃度の距離減衰(対照地点=1)

表一4 含有成分の分析結果

測定項目	道路端A 3 m		地点B 17 m		地点C 34 m		地点D 57 m		地点E 123 m		対照地点		表層土壌中の含有率 (測定地点 6ヶ所の平均値) (%)
	濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	含有率 (%)	濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	含有率 (%)	濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	含有率 (%)	濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	含有率 (%)	濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	含有率 (%)	濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	含有率 (%)	
浮遊ふんじん (ローボル)	149	—	126	—	115	—	97	—	90	—	78	—	—
Si	17	1.1	1.6	1.3	1.4	1.2	1.3	1.3	1.0	1.1	7.3	9.4	23.3
Al	5.4	3.6	5.7	4.5	5.2	4.5	4.8	4.9	3.2	3.6	2.4	3.1	10.2
全Cl	5.0	3.4	4.8	3.8	4.9	4.3	4.1	4.2	4.8	5.3	4.9	6.3	0.39
全S	3.1	2.1	2.5	2.0	2.4	2.1	2.0	2.1	2.4	2.7	2.3	2.9	0.20
Fe	3.6	2.4	3.7	2.9	3.3	2.9	3.0	3.1	2.0	2.2	1.5	1.9	5.8
Ca	3.0	2.0	2.4	1.9	2.1	1.8	1.7	1.8	1.6	1.7	1.3	1.7	2.2
全K	1.1	0.74	1.0	0.79	0.91	0.79	0.73	0.75	0.79	0.88	0.79	1.0	0.49
Ti	0.84	0.56	0.89	0.71	0.80	0.70	0.72	0.74	0.46	0.51	0.34	0.44	1.8
Zn	0.36	0.24	0.26	0.21	0.24	0.21	0.20	0.21	0.23	0.26	0.20	0.26	0.038
Mn	0.10	0.07	0.11	0.09	0.10	0.09	0.09	0.09	0.08	0.09	0.06	0.08	0.13
P	0.11	0.07	0.11	0.09	0.10	0.09	0.09	0.09	0.07	0.08	0.06	0.08	0.18
Na ⁺	1.3	0.87	1.3	1.0	1.3	1.1	1.1	1.1	1.4	1.6	1.3	1.7	< 0.1
Mg ²⁺	0.31	0.21	0.26	0.21	0.24	0.21	0.20	0.21	0.24	0.27	0.22	0.28	< 0.02
K ⁺	0.41	0.28	0.41	0.33	0.40	0.35	0.33	0.34	0.40	0.44	0.43	0.55	< 0.1
NH ₄ ⁺	2.5	1.7	2.8	2.2	2.8	2.4	2.4	2.5	2.9	3.2	2.8	3.6	—
SO ₄ ²⁻	9.9	6.6	6.7	5.3	6.8	5.9	6.7	6.9	6.1	6.8	6.9	8.8	—
NO ₃ ⁻	6.5	4.4	5.5	4.4	5.5	4.8	5.6	5.8	5.3	5.9	6.3	8.1	—
Cl ⁻	4.8	3.2	4.2	3.3	4.4	3.8	4.2	4.3	4.1	4.6	4.8	6.2	—
ベンゼン抽出物	1.6	1.1	6.8	5.4	6.9	6.0	6.1	6.3	—	—	5.2	6.7	—
ベンゾ(a)ピレン	0.0032	0.002	0.0019	0.002	0.0020	0.002	0.0018	0.002	—	—	0.0020	0.003	—

(但し、陰イオン及び有機物は、10 μ 以下の粒径に存在していると考えられることから、それらの含有率は、ローボリュウムサンブラーによる浮遊ふんじん濃度を用いて計算した。なお、濃度は18試料の平均値。)

表-5 各成分間の相関係数 (n=108)

	浮遊ふんじん (ローボル)	全S	全Cl	全K	Ca	Al	Si	Fe	Zn	Mn	Ti	P	Na ⁺	Mg ²⁺	K ⁺	NH ₄ ⁺	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	ベンゼン 抽出物 (a)ピレン	
浮遊ふんじん (ローボル)	***	.56	.36	.78	.86	.81	.85	.87	.56	.88	.85	.86	.33	.55	.40	.09	.48	.16	.31	.43	.23
全S	.56	***	.04	.74	.45	.21	.30	.24	.76	.41	.18	.27	-.03	.23	.64	.63	.78	.59	.06	.46	.44
全Cl	.36	.04	***	.20	.18	.22	.22	.29	-.04	.21	.24	.31	.94	.91	.36	.01	.13	-.08	.87	-.11	-.22
全K	.78	.74	.20	***	.76	.60	.69	.62	.70	.75	.58	.68	.09	.36	.70	.31	.53	.40	.17	.44	.39
Ca	.86	.45	.18	.76	***	.80	.87	.80	.54	.81	.79	.82	.12	.35	.25	-.13	.29	.05	.08	.42	.24
Al	.81	.21	.22	.60	.80	***	.98	.96	.19	.90	.96	.94	.22	.37	.07	-.14	.15	-.17	.09	.09	-.05
Si	.85	.30	.22	.69	.87	.98	***	.94	.33	.90	.93	.93	.20	.39	.14	-.14	.22	-.11	.11	.19	.07
Fe	.87	.24	.29	.62	.80	.96	.94	***	.21	.94	.99	.96	.29	.45	.14	-.12	.18	-.11	.16	.13	-.05
Zn	.56	.76	-.04	.70	.54	.19	.33	.21	***	.41	.19	.23	-.20	.05	.57	.30	.61	.53	.04	.69	.64
Mn	.88	.41	.21	.75	.81	.90	.90	.94	.41	***	.92	.93	.17	.36	.32	-.01	.29	.07	.17	.28	.16
Ti	.85	.18	.24	.58	.79	.96	.93	.99	.19	.92	***	.95	.25	.40	.08	-.15	.13	-.13	.12	.14	-.05
P	.86	.27	.31	.68	.82	.94	.93	.96	.23	.93	.95	***	.29	.45	.16	-.09	.16	-.11	.18	.21	.00
Na ⁺	.33	-.03	.94	.09	.12	.22	.20	.29	-.20	.17	.25	.29	***	.95	.24	.03	.11	-.11	.81	-.22	-.37
Mg ²⁺	.55	.23	.91	.36	.35	.37	.39	.45	.05	.36	.40	.45	.95	***	.41	.11	.30	.04	.78	-.05	-.22
K ⁺	.40	.64	.36	.70	.25	.07	.14	.14	.57	.32	.08	.16	.24	.41	***	.58	.58	.66	.43	.23	.34
NH ₄ ⁺	.09	.63	.01	.31	-.13	-.14	-.14	-.12	.30	-.01	-.15	-.09	.03	.11	.58	***	.54	.57	.02	-.07	-.02
SO ₄ ²⁻	.48	.78	.13	.53	.29	.15	.22	.18	.61	.29	.13	.16	.11	.30	.58	.54	***	.73	.32	.41	.40
NO ₃ ⁻	.16	.59	-.08	.40	.05	-.17	-.11	-.11	.53	.07	-.13	-.11	-.11	.04	.66	.57	.73	***	.15	.33	.43
Cl ⁻	.31	.06	.87	.17	.08	.09	.11	.16	.04	.17	.12	.18	.81	.78	.43	-.02	.32	.15	***	.10	.05
ベンゼン抽出物	.43	.46	-.11	.44	.42	.09	.19	.13	.69	.28	.14	.21	-.22	-.05	.23	-.07	.41	.33	.10	***	.73
ベンゾ(a)ピレン	.23	.44	-.22	.39	.24	-.05	.07	-.05	.64	.16	-.05	.00	-.37	-.22	.34	-.02	.40	.43	.05	.73	***

点の濃度を1として、表-4の分析結果を基準化する
と、各成分の距離減衰がおもに次の3つに分類できた。

(1) 道路端から徐々に減衰していく成分(図-4,
5) Si, Al, Fe, Ca, 全K, Ti, Mn, P

これら成分は、すべて土壌の主成分であることから、
道路近傍におけるこれら成分の濃度上昇は、自動車走
行に伴う土砂の巻き上げによって起こったと考えられる。
また、これら成分間の相関は、表-5に示したように、
高く、特にSi, Al, Fe, Mn, Ti, Pの各々の相
関係数は、0.9以上と極めて高く、これら土壌成分は
浮遊ふんじんと相関係数も0.8以上と高い。

(2) 道路端での濃度が、特に高い成分(図-6)

全S, SO_4^{2-} , Zn, ベンゼン抽出物, ベンゾ(a)ピレン

これら成分は、主要発生源が人為的発生源であり、
かつ焼焼過程を経て排出される成分であることから、
道路端Aでの濃度上昇は、自動車排出ガスの寄与が大
きいためと考えられる。また、この寄与の大きいこと
は、当研究所で実施したディーゼル自動車エンジン台
上試験の黒煙分析の結果⁷⁾からも裏付けられる。

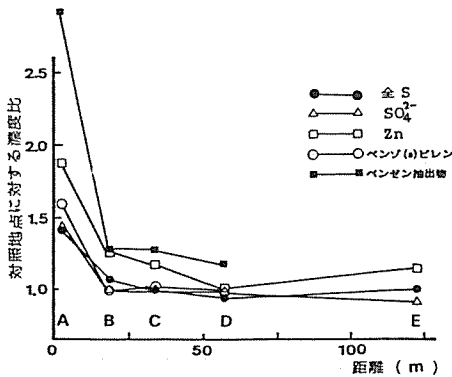


図-6 成分濃度の距離減衰(対照地点=1)

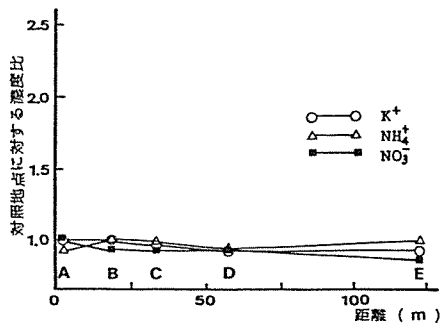


図-7 成分濃度の距離減衰(対照地点=1)

(3) 各地点間の濃度差が、ほとんどない成分

(図-7, 8)

全Cl, Na^+ , Mg^{2+} , K^+ , NH_4^+ , NO_3^- , Cl^-

これら成分は、道路端Aにおいても、濃度上昇が
認められないことから、自動車からの影響がほとん
どないものと考えられる。これら成分のうち、海塩
粒子の主成分である Na^+ , Mg^{2+} , Cl^- 及全Clは、
表-5にみられるように、いずれも相互の相関係数
が0.8以上と高く、また他の成分とは、ほとんど相
関を示さないことから、海塩粒子の影響が強いとい
える。

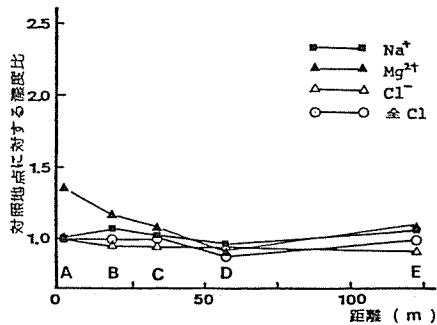


図-8 成分濃度の距離減衰(対照地点=1)

3-5 道路からの影響範囲

浮遊ふんじん及びその含有成分の距離減衰は、図
-3~8に示したように、各種発生源の相異により、
個々の距離減衰パターンに違いがみられた。これら
の距離減衰より、道路からの影響範囲をみると、浮
遊ふんじん及び土壌由来の成分の濃度は、30 m 付
近(地点C)まで明らかに高い。しかし、自動車排
出ガスに含有されているとみられる成分については、
30 m 付近での濃度は低い。そこで、表-6に地点
C(34m)と道路から離れた対照地点及び地点E
(123m)との濃度比を示した。

表-6のように、地点Cでの浮遊ふんじん濃度は、
対照地点の1.5倍、地点Eの1.3倍となっている。
粒度別では、粗大粒子は対照地点の1.7倍、地点E
の1.3倍であり、微小粒子は対照地点の1.3倍、地点
Eの1.1倍となり、粗大粒子のほうが道路の影響が
強くあらわれている。また、自動車の排出ガスの影
響とみられる全S, SO_4^{2-} , Zn, ベンゼン抽出物及
びベンゾ(a)ピレンについては、地点Cでは対照地点
及び地点Eと差がみられず、環境中の濃度に近くな
っている。これは、微小粒子の結果と一致しており、
粗大粒子及び土壌成分の挙動とは異なっている。こ
のように、地点Cでは自動車走行に伴う土砂の巻き

表一六 地点C(34m)における対照地点及び
地点Eとの濃度比較

	対照地点を1	地点Eを1
浮遊ふんじん (ローボル)	1.5	1.3
浮遊ふんじん (アンダーセン:トータル)	1.5	1.3
粗大粒子 (2μ以上)	1.7	1.3
微小粒子 (2μ以下)	1.3	1.1
Si	2.0	1.4
Al	2.2	1.6
Fe	2.2	1.7
Zn	1.2	1.0
全S	1.0	1.0
SO ₄ ²⁻	1.0	1.1
ベンゼン 抽出物	1.3	—

げと推定される土壌成分については、明らかに影響が認められたが、自動車排出ガスの影響とみられる成分については、その寄与が認められなかった。

3-6 浮遊ふんじん中の発生源別寄与の推定

浮遊ふんじん及びその含有成分の測定結果、距離減衰を基に、浮遊ふんじん中への土壌成分、自動車走行に伴う巻上げによるふんじん、自動車排出ガス中の微小粒子、海塩粒子の寄与を試算してみた。

3-6-1 土壌成分の寄与

浮遊ふんじん中への土壌成分の寄与を明確にするため表-4の11元素について、濃縮係数^(4, 5, 8)を求めた。濃縮係数は、土壌からの影響をみるため、よく算出されており、土壌の主成分であるAlを基準として次式で求められる。

$$\text{濃縮係数} = \frac{[X_i/X_{Al}]_{\text{浮遊ふんじん}}}{[X_i/X_{Al}]_{\text{土壌}}}$$

ここで、X_{Al}はAlの濃度、X_iは成分(i)の濃度である。成分の濃縮係数の値が1に近づけば、その成分の土壌寄与率が高いことを表わす。なお、この計算に用いる土壌中の成分の値は、表-4に示した測定地点6ヶ所の表層土壌の平均値を用いた。各元素の濃縮係数は、地点ごとの特徴がみられないため、6地点の最小と最大の範囲を図-9に示した。

図-9のように、Si、Al、Fe、Ca、Ti、Mn及びPの濃縮係数は1に近く、その値も地点間の差が小さ

い。このことは、Si、Al、Fe、Ca、Ti、Mn及びPが土壌由来の成分であることを裏付けている。また、浮遊ふんじん中のこれら土壌由来の成分の含有率の合計は、表-4より、道路端A:20%、地点B:23%、地点C:22%、地点D:24%、地点E:19%、対照地点:16%となる。それぞれの成分の存在形態を考えれば、さらに高い含有率になり、浮遊ふんじんへの土壌寄与が、特に高いことがわかる。一方、全Kの濃縮係数は、1よりかなり高く、土壌以外の発生源の影響が認められ、また全S、全Cl、Znのそれは各地点ですべて10以上と高く、主要発生源が土壌でないことがわかる。

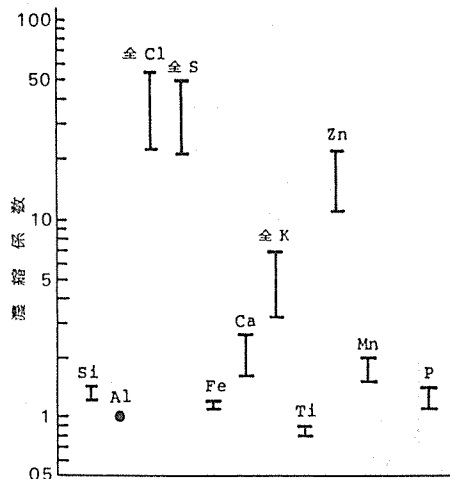


図-9 濃縮係数

3-6-2 自動車走行に伴う土砂の巻上げの推定

浮遊ふんじん中に土壌の占める割合が高いことは判明したが、そのうち、自動車走行に伴う土砂の巻上げによる割合は少くない。道路近傍における自動車走行に伴う土砂の巻上げを推定する場合、風による土砂の舞上がり及び固定発生源からのフライアッシュ等を考慮に入れなければならない。これらは、各地点において、それぞれの影響が等しいとすれば、土壌成分の距離減衰から推定できる。

そこで、道路端Aと道路の影響が認められない地点E(123m)の土壌成分の濃度差が、自動車走行に伴う土砂巻上げと仮定し、これに道路上の土砂中の成分含有率がわかれば、道路端Aにおける土砂の巻上げによる濃度上昇は、次式によって求められる。

$$Y = \{A(i) - E(i)\} \times 100 / X(i)$$

ここで、Y:道路端Aでの自動車走行に伴う土砂の

巻き上げ濃度

- A(i): 道路端Aでの浮遊ふんじん中の成分(i)の濃度
- E(i): 地点Eでの浮遊ふんじん中の成分(i)の濃度
- X(i): 道路上の土砂中の成分(i)の含有率

なお、試算では、濃縮係数が極めて1に近く、かつ含有率の高いSi, Al, Feとローボールによる浮遊ふんじん濃度の結果による。

この試算によると、表-7のように、道路端Aでは、

22~30 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ の濃度上昇となる。これは、道路端Aにおける全濃度上昇が59 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であることから、全濃度上昇の約40~50%を占め、また道路端Aにおける浮遊ふんじん濃度(149 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)の約15~20%にあたる。このことから、自動車走行による土砂の巻き上げが、道路端Aにおける浮遊ふんじんの濃度上昇に大きな寄与を及ぼしていることがわかる。

表-7 自動によって巻き上げられる土砂の濃度

	地点A (道路端) の濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	地点E (123m) の濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	道路上の土砂中の含有率(%)	土砂巻き上げ濃度の計算 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	全濃度上昇への土砂巻き上げの寄与率(%)
浮遊ふんじん (ローボール)	149	90	—	—	—
Si	17	10	28.7	24	41
Al	5.4	3.2	9.9	22	37
Fe	3.6	2.0	5.4	30	51

3-6-3 自動車排出ガス中のふんじんの寄与

自動車排出ガス中のふんじんが道路周辺地域へいかに影響を及ぼしているかを把握する有効な手段は見当らない。Kowalczykらは、Pbをトレーサーとしてケミカルエレメントバランス法^{9),10)}によって、その影響を試算しているが、これもガソリン中のアルキル鉛の規制により、鉛がガソリン中に含有されなくなったことを考えると適切でない。このように、現在のところ最良な手法は、開発されるに至っていない。そこで、著者らは、浮遊ふんじんの粒径が発生形態により異なることに着目し、道路端Aでのその寄与を推定した。すなわち、自動車排出ガス中の粒子が微小であることから、道路端Aにおける2 μ 未満の微小粒子の濃度上昇は、自動車排出ガス中の微小粒子によって起ったと仮定し、道路端Aでの寄与を推定すると、道路の影響がみられない地点Eとの微小粒子の濃度差がその寄与と考えられる。

この仮定によると、表-3、図-3より、微小粒子の濃度差が36 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であることから、自動車排出ガスが主因と考えられる濃度上昇は、36 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ と推定できる。これは、道路端Aにおける全濃度上昇(77 $\mu\text{g}/\text{m}^3$: アンダーセン)の47%の寄与率となり、総浮遊ふんじん濃度(176 $\mu\text{g}/\text{m}^3$: アンダーセン)の20%を占めることになる。このことから自動車排出ガス中の微小粒子が道路端Aにおける浮遊ふんじんの濃度上昇に大きな寄与を及ぼしていることがわかる。

3-6-4 海塩粒子の影響

水溶性のNa, Mg, Cl及びSは、海水中の存在量が多く、浮遊ふんじん中への海塩粒子の影響をみるため、Na, Mg及びClは、その指標元素^{11),12)}として、よく使用されている。

今回の調査結果でも、 Na^+ , Mg^{2+} 及び Cl^- は、図-8で示したように、自動車からの強い影響は認められず、また表-4で示したように、表層土壌中の含

表-8 浮遊ふんじん中の $\text{Mg}^{2+}/\text{Na}^+$, Cl^-/Na^+ 及び全S/ Na^+

	地点A	地点B	地点C	地点D	地点E	対照地点	海水中の比
$\text{Mg}^{2+}/\text{Na}^+$	0.24	0.20	0.18	0.18	0.17	0.17	$\text{Mg}/\text{Na}: 0.129$
Cl^-/Na^+	3.7	3.2	3.2	3.8	2.9	3.7	$\text{Cl}/\text{Na}: 1.81$
全S/ Na^+	2.4	1.9	1.8	1.8	1.7	1.8	全S/ $\text{Na}: 0.043$

有量も少ないことから、海塩粒子が主要発生源として考えられる。仮りに、道路周辺地域における浮遊ふんじん中の Na^+ 、 Mg^{2+} 、 Cl^- 及び全Sがすべて海塩粒子の影響だとすると、それらの成分の関係は、海水中の組成比¹³⁾ $\text{Mg}/\text{Na} : 0.129$ 、 $\text{K}/\text{Na} : 0.0362$ 、 $\text{Cl}/\text{Na} : 1.81$ 、 $\text{S}/\text{Na} : 0.0843$ とよく一致するはずである。

そこで、表-4の Mg^{2+} 、 Cl^- 、全Sと Na^+ の値を、各々の組成比でとったものを表-8に示した。なお、 Na^+ を基準としたのは、海水中の主成分であり、かつ Cl^- よりも固定発生源の影響が少ないと考えられるためである⁴⁾。

表-8のように、 $\text{Mg}^{2+}/\text{Na}^+$ 、 Cl^-/Na^+ の比は、地点間に大きな差はなく、また、それらは海水中の組成比と一致しないことから、 Na^+ 、 Mg^{2+} 及び Cl^- は、海塩粒子のみならず、固定発生源の影響も考慮しなければならない。また、全S/ Na^+ は、海水中の組成比より異常に高いことから、全Sは、海塩粒子の寄与は、少ないと考えられる。

次に海塩粒子の寄与を推定するため海塩粒子の影響の強いと考えられる、 Na^+ 、 Mg^{2+} 、 Cl^- の浮遊ふんじん中(ローボル)の含有率を合計すると、表-4より、道路端A: 4.3%、地点B: 4.5%、地点C: 5.1%、地点D: 5.6%、地点E: 6.5%、対照地点: 8.2%となる。このことは、固定発生源等の影響を加味すれば、各地点での海塩粒子の寄与は、多くとも、これらの合計パーセント以下と見積れる。

4. まとめ

道路周辺地域において浮遊ふんじん調査を実施し、浮遊ふんじん及びその含有成分の挙動から次の知見が得られた。

1) 浮遊ふんじん濃度は、道路端から徐々に減衰し、30 m付近まで明らかに濃度が高かった。30 m付近の浮遊ふんじんの粒径別濃度と対照地点のそれを比較すると、微小粒子(2 μ 未満)より粗大粒子(2 μ 以上)のほうが、濃度差が大きかった。

2) 浮遊ふんじん中の含有成分は、発生源及び発生形態の相異により、次の3つに分類できた。

① 道路端から徐々に減衰していく成分

Si, Al, Fe, Ca, 全K, Ti, Mn, P

② 道路端での濃度が、特に高い成分

全S, SO_4^{2-} , Zn, ベンゼン抽出物, ベンゾ(a)ピレン

③ 各地点間の濃度差が、ほとんどない成分

全Cl, Na^+ , Mg^{2+} , Cl^- ,

3) 浮遊ふんじん中にSi, Al, Fe等の土壌成分の占める割合が大きく、土壌成分の挙動は、浮遊ふんじんのそれとよく対応していた。

4) 道路近傍では、自動車排出ガスの寄与に加えて、自動車走行に伴う土砂の巻上げによって、浮遊ふんじん濃度が大きく上昇することが判明した。道路端(3m)での、自動車走行に伴う土砂の巻上げの寄与をSi, Al, Feで試算すると、全濃度上昇(ローボル)の約40~50%、浮遊ふんじん濃度(ローボル)の約15~20%になった。

5) 浮遊ふんじん濃度への自動車排出ガスの寄与を微小粒子(2 μ 未満)によって推定すると、道路端では、全濃度上昇(アンダーセン)の47%、浮遊ふんじん濃度(アンダーセン:トータル)の20%と試算された。なお、道路端(3m)におけるアンダーセンによる浮遊ふんじん濃度(トータル)は、ローボルのそれより、1.2倍高かった。

6) 海塩粒子の影響が強い Na^+ 、 Mg^{2+} 、 Cl^- の浮遊ふんじん中(ローボル)の含有合計は、各地点において5~8%であることから、浮遊ふんじん中への海塩粒子の寄与率は、これらの値以下と推定できる。

5. おわりに

道路周辺地域における浮遊ふんじん及びその含有成分の挙動は、自動車の通過台数、雨、風向、風速などの気象因子、道路周辺の建屋などの遮蔽物等により、微妙に違って来る。本調査地点では、測定に影響を及ぼす大きな建屋などは、見あたらず、また調査地点の風向も、ほとんど風下に当たっていたことから、浮遊ふんじん及びその含有成分の距離減衰は、ほぼ把握できたと考えられる。しかし、交通量及び気象因子による濃度変動は、捕集時間が48時間と長かったため把握できなかった。これらの解明は、移動発生源が環境中へいかに影響を及ぼしているかを知るうえで、重要な課題であると考えられる。今後、デジタル粉じん計、 β 線吸収式粉じん計などの自動測定器並びに短時間捕集方法によって、調査を継続する予定である。

文 献

- 1) 鳥橋義和他:自動車道周辺における重金属の分布、兵庫県公害研究所研究報告第8号、1(1976)。
- 2) 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(第3報)、横浜市公害研

- 究所報第3号, 14(1978).
- 3) 林久緒他: 幹線道路周辺の粒径別浮遊粒子状物質中の重金属, 多環芳香族炭化水素及び水溶性成分の挙動について, 川崎市公害研究所年報第7号, 54(1979).
 - 4) R. Heindryckx : Comparison of the mass-size functions of the elements in the aerosols of the Gent Industrial District with data from other areas, *Atmos. Environ.*, 10, 65(1976).
 - 5) 藤村満他: 粒度分布測定による大気エアロゾル微量元素の発生源の推定, 日本化学会誌, 1977, (6), 902.
 - 6) 角脇怜: 浮遊粉じんによる都市大気汚染にせめる自然発生源からの負荷, 大気汚染学会誌, 13, 252(1978).
 - 7) ディーゼル自動車排ガス問題研究会: ディーゼル自動車排出黒煙調査報告書(横浜市公害対策局委託調査), (1980).
 - 8) P. Buat-Ménard et al. : The heavy metal chemistry of atmospheric particulate matter emitted by Mount Etna Volcano, *Geophys. Res. Lett.*, 5, 245(1978).
 - 9) G. S. Kowalczyk et al. : Chemical element balances and identification of air pollution sources in Washington, D. C., *Atmos. Environ.* 12, 1143(1978).
 - 10) 溝畑朗他: 界における大気浮遊粒子状物質中の諸元素の発生源の固定(I), 大気汚染学会誌, 15, 198(1980).
 - 11) D. L. Savoie et al. : Water-Soluble potassium, calcium, and magnesium in the aerosols over the tropical North Atlantic, *J. Geophys. Res.*, 85, 385(1980).
 - 12) C. Boutron et al. : Sources of twelve trace metals in Antarctic snows determined by principal component analysis, *J. Geophys. Res.*, 85, 5631(1980).
 - 13) 浜口博編: 超微量成分分析1 地球化学的試料, (1970), 産業図書.

自動車排出ガスによる道路周辺での大気汚染 に関する研究(第6報)

— 道路近傍における窒素酸化物濃度と逆転層の影響(Ⅱ) —

中村 貢*, 新井久雄*, 鈴木正雄*, 太田正雄*
渡辺善徳*, 鶴田治雄*, 平野耕一郎*, 米山悦夫*

要 旨

前報にひき続き、接地逆転層の形成により道路周辺の環境大気が、どの程度に自動車排出ガスの影響を受けているかを把握するため、昭和55年2月から5月にかけて、市内幹線道路周辺で実施した、NO_x、O₃ 調査結果と付近の団地の給水塔を利用して測定した鉛直気温測定結果を用いて種々の解析を行った。又、調査期間中の3月24日から26日にかけてカイツーンを利用して、地上と高度100mまでのNO_x、O₃等の垂直濃度分布について測定した。

解析の結果、次のようなことが判明した。

- (1) 温度勾配にほぼ比例して汚染濃度は上昇し、温度勾配が大きくなるほど、道路から100m以上離れた地点でも高濃度の汚染状態となる。
- (2) 逆転層が形成された時に必ず高濃度の汚染状態になるとは限らず、形成時の風向、風速及び交通量が濃度に大きく影響する。
- (3) カイツーンによる調査によると、いわゆる一次の逆転層は高度40m付近に認められ、その上層と下層とでは、NO、O₃の濃度に大きな差を生じていた。
- (4) 温度勾配別に逆転層の出現頻度を分類すると勾配の小さいほど出現頻度が高く、4℃/100mまでのものが全体の85.4%を占めている。

1. はじめに

前報¹⁾では、横浜市神奈川区三ツ沢地区で測定した大気汚染物質濃度と既存のテレビ塔で観測している鉛直気温の測定結果(高度52mと125mの2カ所)を利用して、逆転層形成時、非形成時における窒素酸化物濃度の変化等について解析した。その結果、形成時には、交通量の減少する夜半であっても窒素酸化物

はかなりの高濃度になり、又、その測定時期が冬期ということもあって、夜間の50%近くが逆転層の出現で占められている等の知見が得られた。

本報では、昭和55年2月から5月にかけて横浜市戸塚区原宿を通る国道1号線を対象にしてNO_x及びO₃の測定を行い、併行して、NO_xの調査場所に近い

A study on air pollution caused by automobile exhaust gas in areas
along a road (Rep. 6)

Influence of surface based inversion on the dispersion of nitrogen oxides from roadway
(Ⅱ)

* Mitsugu Nakamura, Hisao Arai, Masao Suzuki, Masao Ohta, Yoshinori Watanabe
Haruo Tsuruta, Koichiro Hirano, Etsuo Yoneyama, 横浜市公害研究所大気部門

団地の給水塔において、地上とその屋上で気温を観測し温度勾配を求め、汚染物質濃度との関係について解析した。以降では、地形や気温測定高度の異なる前報の三ツ沢地区の結果の比較を含めて解析をおこなった。

又、気温とNO_x、O₃濃度の垂直分布を調べるため、3月24日から26日にかけて、カイツーンを利用して、地上から100mまでの測定を行ったのでその結果も併せて報告する。

2. 調査の内容

2-1 調査場所：横浜市戸塚区原宿地区

この付近は横浜市西南部に位置し、海拔が約50mの比較的平坦な丘陵地帯となっており、東方約13Kmに東京湾、南方約8 Kmに相模湾がある。

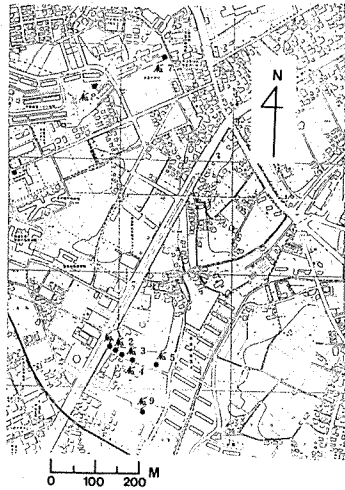


図-1 測定場所付近の概要

調査場所の環境は、図-1のように国道1号線が北北東から南南西へとほぼ直線的に延びている。道路は上下4車線で中央に幅6m程度の分離帯がある。道路に沿って、住宅あるいは、商店等が点在しており、又、道路の周辺は、住宅と畑地が混在し、樹木も多く、測定に影響を与える大気汚染の発生源と考えられる施設はない。

2-2 調査期間 昭和55年2月22日～5月15日

2-3 国道1号線の交通量

調査場所を縦断する国道1号線における測定期間中の交通量は平均5,437.1台/日である。このデータは神奈川県警がこの調査地点より南西300m付近で1時

間あたりの交通量を測定しているもののうち、本調査と同一期間測定したものを時刻ごとの平均値で表したものである。

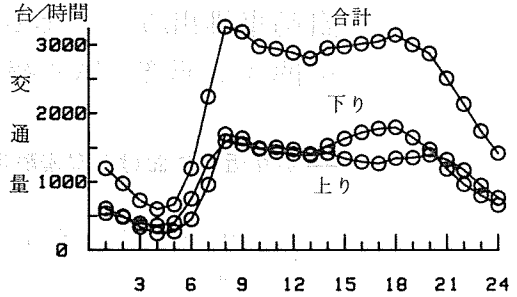


図-2 自動車交通量

注：神奈川県警の資料から作成

図-2から、両方向の交通量は4時が599台/時間で一日のうち最も少なく、6時から急激に増加し8時が一日のピークで3,261台/時間で、4時の5倍以上の台数となっている。日中は8時から20時までが、3,200台/時間～2,900台/時間でほぼ一定しており、21時から急激に交通量が減少している。

2-4 測定機器

調査に使用した測定機器は表-1のとおりである。又、ガス状大気汚染物質自動測定器は調査前後に既報²⁾の方法により機器校正した。又、温度計2台は、公害研究所5階のベランダで同時測定を行いその機差をチェックした。その結果±0.1℃の誤差範囲内にあることを確認した。

表-1 測定機器の種類

測定機器の種類	型式	台数	備考
ザルツマン式窒素酸化物自動測定器	DKK-GPH-74 MODEL-214	4台} 9台*注1 5台}	1時間積算値
化学発光式窒素酸化物自動測定器	MODEL-8840	1台	連続式
化学発光式オゾン自動測定器	MODEL-806	2台	1時間平均値
風向・風速計 *注2	小笠原計器製 海上電機製	1台} 2台 1台}	
サーミスタ隔測温度計	吉野製作所製	1台	1時間平均値

注1：このうち2台は、高度別NO_x濃度調査に使用した。

注2：結果は1時間毎に整理し、風向は最多出現頻度のもの、風速は1時間平均値を用いた。

又、この調査は、粉じんの拡散等の実態究明も調査内容とした総合調査であり、実際に測定した項目数、地点数は、さらに多くなるが、ここでは、この報告に関連する逆転層とNO_xとの関係について解析するのに必要なもののみを記載した。

2-5 機器の配置

各測定点の機器設置の詳細を図-3に示した。ザルツマンNO_x計の設置地点は対象道路からほぼ直角方

向に5カ所 (No.1 ~ No.5) 及び、バックグラウンド地点として、この道路から反対側に約400m離れた地点に1カ所 (No.6)、さらに、上空との濃度比較をするため中学校屋上、高さ22.5mの1カ所 (No.7) の計7カ所である。逆転層観測用の温度計はNo.6とNo.7のほぼ中間にあたる団地の給水塔 (No.8) の屋上 (高さ30m) 及びその直下の地上付近 (高さ1.5m) に設置

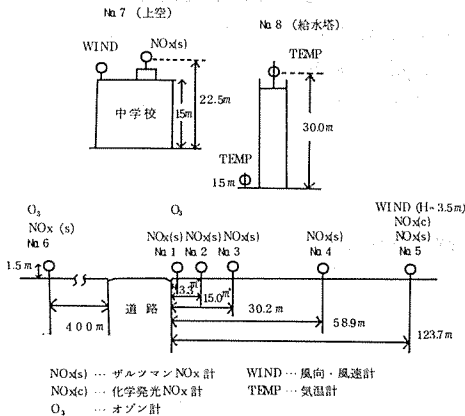


図-3 測定機器の配置図

し、測定位置の高度差は28.5mである。

風向・風速は、No.5とNo.7の地点で測定した。

3. 結果及び考察

3-1 気象条件と逆転層出現頻度

測定を開始した2月下旬から3月初旬にかけて日本付近は大陸の高気圧圏内に入り晴天が続いた。3月中旬以後は、冬型の気圧配置が弱まり季節風も和らぎ気圧配置も冬型から移動性高気圧と気圧の谷が交互に通る春型へと変わってきた。このため、一週に一、二度は、雨が降る不順な天候が続いた。

表-2 気温逆転の発生状況

	逆 転	非 逆 転	合 計
日 数 ^{注1}	51 (73.9%)	18 (26.1%)	69 (100%)
時 間 数 ^{注2}	376 (23.6%)	1218 (76.4%)	1,594 (100%)
静穏時間数 ^{注3}	51 (13.6%)	12 (1.0%)	63 (4.0%)
平均風速	1.2	2.5	2.2
主 風 向	N系	N系	N系

注1：1日のうち1時間以上気温の逆転が認められた日を逆転日とした。

注2：温度計の精度チェックの結果、±0.1℃の誤差が認められるため、気温差0.1℃のものは逆転から除いた。

注3：風速0.4m/s以下を静穏とした。

これらの気象条件下において、表-2のように全測定時間に対して、逆転層の出現割合は、23.6%であり、出現した日数の割合は73.9%となっていた。

これらの割合は、前報¹⁾で報告した、真冬(1月~2月)における出現割合(24.9%)、日数割合(77.5%)と比較していくぶん少い値となっている。しかしながら、久保³⁾の報告のように一般には、冬期に比べて春期の出現頻度は急激に減少することを考えると、今回の逆転層の出現率は、前回に比べて著しく低くなると予想されたにもかかわらず、前回とかわりない逆転層の発生が認められた。この原因として次のことが考えられる。

第一に、地表面に近いところほど放射冷却の効果が強いいため、接地逆転は形成しやすい。このため、今回の調査は、前回と比べて、その測定高度が、地上に近いことが原因していると思われる。

第二に、海岸線からの距離が前回調査の3kmに比べて本調査は約8km内陸部にあることがあげられよう。このことについて千秋ら⁴⁾は、海岸から内陸部に入るほど接地逆転が形成されやすいことを国内各地の測定例をあげて報告している。これは、海岸では海水の影響で昼夜の気温差が小さいのに比べて、内陸部ほど、大陸性気候に近づき、昼夜の気温差が大きくなり、それだけ逆転層を形成しやすくなるためである。

第三にヒートアイランドによる影響が考えられる。前回調査は、横浜市の都心に比較的近いため、ビル暖房、自動車排ガス、工場等に起因するエネルギーの放出により、その地域全体が暖められている、いわゆる、ヒートアイランドになっている、一方、本調査場所は都心から15km以上も離れた郊外で、先にも述べたように、対象道路を除けば、エネルギーの放出源となっているものはほとんど存在していないため、昼夜の気温差が大きく、地表面からの放射冷却も強まるものと思われる。

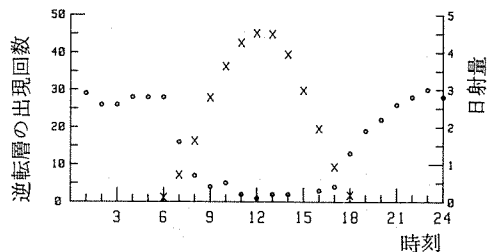


図-4 時刻別逆転層出現頻度及び日射量変化

×…日射量 (cal/sq.cm/hour) 40日の平均

○…逆転層発生回数 測定期間40日

図-4によると、逆転層は、1時から5,6時までは、その出現頻度が26～29回となっており、各時間ごとの測定回数の40%前後となっている。日射量が平均で $1 \text{ cal/cm}^2/\text{時}$ 以上になる時刻は、2月が8時であるのに対して5月では7時と約1時間の差がある。

日射が強くなるにつれて逆転層の出現回数は、急激に減少するが、前報と異なり、日中でも、期間中の各時間に対して15時を除くと数回程度の出現が見られた。

日射量は、13時頃から減少しはじめ、18時には、ほとんど0に近づくが、その時刻より逆転層の出現回数が急激に上昇し、その後、23時まで増加する。

なお、これらのデータは1時間の平均値としてみているため、10分程度の短い時間でみるとさらに $10^\circ\text{C}/100\text{m}$ 以上の強い逆転も何度か観測された。

吉野⁵⁾、久保³⁾らは、接地逆転において、地表面に近づくほど温度勾配が大きくなることを指摘しているが、前報では地上高さが125mと52mにおける気温差によったのに比べ今回の測定高度が30mと1.5mにおける観測結果に基づいたものであり、このように今回は測定位置が地上に近いこと、温度勾配が大きくなったものと思われる。

表-3 逆転時における温度勾配別出現頻度

温度勾配 (ΔT)	0-1.0	1.1-2.0	2.1-3.0	3.1-4.0	4.1-5.0	5.1-6.0	6.1-7.0	7.1-8.0	8.1-9.0	9.0<
頻度	121	106	54	39	33	10	4	4	3	2
%	32.2	28.2	14.4	10.4	8.9	2.7	1.1	1.1	0.8	0.5

注: $\Delta T = (\text{塔屋気温} - \text{地上気温}) / 100 \text{ m}$

ここに見られた日中の逆転層の出現は、夜間から続いているものではなく放射冷却に起因する接地逆転であるとは考えられない。しかしながら、気温差は、明確にあり、一時的ではあるが風速も弱くなっており、逆転層が形成されていたことは容易に推定される。

表-3は、逆転層が形成した時の温度勾配を強度別に10分類したものである。これによると温度勾配の小さいものに出現回数が多く、温度勾配の大きくなるにつれてその出現回数が少なくなることがわかる。 $4^\circ\text{C}/\text{m}$ までのものが全体の85.4%を占めており、 $6^\circ\text{C}/100\text{m}$ 以上の回数は急激に減少し、全体の5.1%にすぎない。又、 $9^\circ\text{C}/100\text{m}$ より強い逆転が2回見

図-5は、No.5地点で観測した平均風速の時刻変化を示したものである。この図によると逆転層が形成されない状態の時（以下「非逆転時」という）では、12時ごろまで風速は2.3m前後であり、13時からいくぶん風が強まり15時には最高の2.9m/sとなるが、この時の風向は相模湾からの海風と思われるSSWの風によるものが主であり、その後夜半にかけて再び弱まる傾向が見られた。逆転層が形成している時（以下「逆転時」という）では、7時までは、 1.0m/s 前後ではほぼ変わらないが8時には、 1.9m/s に強まる。

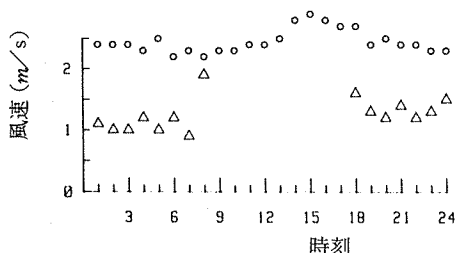


図-5 時刻別逆転時・非逆転時別風速変化
 \triangle 逆転時の平均風速
 \circ 非逆転時の平均風速

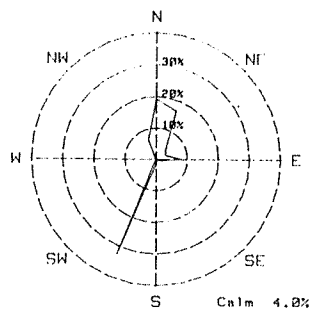


図-6 風配図 (全期間)

これは日射が強まるにつれて逆転層が解消しはじめる逆転時と非逆転時の境界の時間帯になるためと考えられる。

風向は図-6のように、N系の風が多く全体の53%と最も多く次にS系の風が34%となっていた。特にS系においてSSWの風が多くそのうちの94%を占めていた。図からわかるように風はN系及びS系に二つに大別される。

前報では、調査場所が浅い谷間のような地形のため、逆転時には、地形の影響を受けて風向が変化することを指摘したが、今回の調査では、地形が平坦なため、その影響がなく、逆転時、非逆転時における風向の変化は見られなかった。

3-2 逆転時・非逆転時の窒素酸化物濃度変化

表-4より次のことがわかる。NOは、逆転層形成の有無にかかわらず道路から離れるに従って、濃度の減衰が見られる。又、各測定地点ともNO濃度は、非逆転時と比べて、逆転時の方が高く、その比率を逆転時/非逆転時でみると道路から離れるに従って高くなっており、道路端 (No.1地点) が1.20であるのに対して123.7m (No.5地点) では1.95となっている。又、対照地点のNo.6地点では、非逆転時のNO濃度が7ppbと非常に低いため、濃度比は2.57となっている。

ここで興味ある点は、地上22.5mで測定しているNo.7地点の測定結果である。No.7地点はNo.6地点よりも道路に近いので、非逆転時では、9ppbとNo.6地点より濃度がやや高いが、逆転時では、低くなっている。このことについては、さらに、NO_xの高度別の調査結果の考察の際に詳細に述べるが、逆転層の混合層の厚さに影響しているものと思われる。

NO₂については、前回の調査において、逆転時、非逆転時の濃度差がほとんどなかったという結果に比べ、その傾向は異なり、逆転時と非逆転時の濃度に差が見られ、NOの場合と同様に逆転時/非逆転時の濃度比は道路から離れるに従って大きくなるという傾向が見られる。この違いの原因として、前回は谷間のような地形であったのに比べ、今回は平坦な地形のため、逆転時であっても下層大気の混合が行われやすく、NOからNO₂への酸化に必要なO₃の供給がなされていること、又、郊外のため、対照地点のNO濃度からもわかるように地域全体の汚染程度が非常に低く、逆転時になってもO₃が消費されないで残っているため、NOの酸化が行われてNO₂濃度が逆転時に上昇するものと推定される。

表-4 逆転時・非逆転時における窒素酸化物及びオゾン測定結果

	逆転時	非逆転時	全期間	逆転時 非逆転時
NO (ppb)				
No.1 (道路から33 ^m)	194	161	169	1.20
No.2 (15.0m)	77	49	56	1.57
No.3 (30.2m)	56	33	39	1.70
No.4 (58.9m)	41	21	26	1.95
No.5 (123.7m)	37	19	23	1.95
No.6 (BG)	18	7	10	2.57
No.7 (上空22.5m)	14	9	11	1.56
NO ₂ (ppb)				
No.1	58	50	52	1.16
No.2	39	30	33	1.30
No.3	42	30	33	1.40
No.4	40	29	32	1.38
No.5	32	22	25	1.45
No.6	31	20	23	1.55
No.7	39	28	31	1.39
NO _x (ppb)				
No.1	252	211	221	1.19
No.2	116	79	89	1.47
No.3	98	63	72	1.56
No.4	81	50	58	1.62
No.5	69	41	48	1.68
No.6	49	27	33	1.81
No.7	53	37	46	1.43
O ₃ (ppb)				
No.1	11	24	20	0.46
No.6	12	37	32	0.57

Rodes⁹⁾らは、道路周辺へのNO_xの拡散についてO₃との関係を報告しているが、今回調査では、道路端とバックグラウンド地点の2カ所のみでO₃計を設置したため、拡散との関係を説明するには資料が不足である。しかしながら、先にも述べたように、NOとNO₂の関係について解析する場合には、O₃をNO_xと共に測定しておくことが重要であろう。両地点のO₃濃度は、逆転時であっても、ゼロとはならないが、非逆転時の約1/2に減少していることがわかる。ただし、3-4の章で述べるように温度勾配が強まる時などにおいては、O₃濃度がほとんど検出限界(ppb)以下になることがみられた。

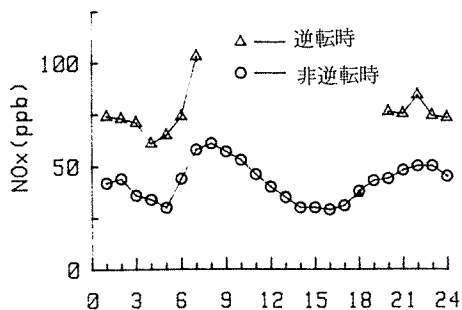


図-7 NO_xの時刻変化
(道路から123.7m地点)

図-7は、No.5地点におけるNO_xの逆転時、非逆転時の時刻別の濃度変化である。逆転時のものは、その出現頻度の多い時間帯、すなわち、20時から翌朝7時までの時刻のものを図示した。この時間帯のNO_xの変化は、逆転時、非逆転時ともに、交通量が最も減少する早朝4時ごろの濃度が最も低いが、交通量の増加とともにNO_x濃度が急激に増加している。又、非逆転時の濃度よりも逆転時の濃度はいずれの時刻でも1.7~2.0倍以上となっている。8時から20時までの交通量は図-2のようにほぼ3000台/時前後で推移しているが、風が12時ごろから強まることもあって、15時前後のNO_x濃度は、一日の最低値となっている。測定期間が、2月末から5月中旬までのため、先にも述べたように、日射は8時頃から強まり、この時間帯は、同時に交通量のピーク時刻に相当する。このため、非逆転時のうちで8時のNO_x濃度が一日の最高となっている。又、逆転時の最高濃度は逆転層が解消する直前の7時の値となっている。しかしながら、日射の強まる時刻の遅い冬期では、交通量のピーク時刻でも、逆転層は形成されているため、今回の結果よりさらに

高濃度現象がみられるものと推定される。

3-3 温度勾配と窒素酸化物の水平分布

表-5は、温度勾配により、非逆転時、及び逆転時とし、逆転時をさらに4つに分け計5分類した時の各測定点におけるNO、NO₂及びNO_xの濃度を示したものであり、また、図-8は、NO_xの距離減衰を温度勾配別に表したものである。

表-5 温度勾配別窒素酸化物濃度

$$\Delta T = (\text{塔屋気温} - \text{地上気温}) / 100 \text{ m}$$

地点	非逆転時	逆転時	逆転時			
	$\Delta T < 0$	$0 < \Delta T \leq 10$	$10 < \Delta T \leq 30$	$30 < \Delta T \leq 60$	$\Delta T > 60$	
NO	1	161	172	212	225	210
	2	49	58	82	108	111
	3	33	40	59	73	99
	4	21	24	43	63	80
	5	19	21	38	58	84
	6	8	10	18	28	85
	7	9	11	16	18	28
NO ₂	1	50	56	61	62	64
	2	31	36	43	44	50
	3	30	37	46	48	53
	4	30	37	43	45	48
	5	23	27	36	37	42
	6	20	25	34	38	59
	7	29	33	42	45	54
NO _x	1	211	228	273	287	274
	2	80	94	105	152	161
	3	63	77	105	121	152
	4	51	61	86	108	128
	5	42	48	74	95	126
	6	28	35	52	66	144
	7	38	44	58	63	82

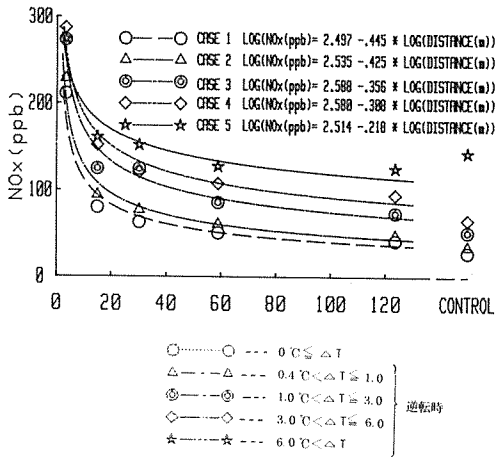


図-8 NOxの温度勾配別距離減衰

表-5より、NO濃度は、各測定点とも非逆転時よりもっとも低く、逆転時では、ほぼ温度勾配が大きくなるに従ってその濃度が上昇していることがわかる。さらに、逆転時において、温度勾配の変動は、道路端Na.1地点におけるNO濃度の変動に関与していない。しかし、道路から離れるにしたがって、温度勾配が大きくなるとNO濃度が増加する傾向が顕著になっている。また、道路端では非逆転時も含めて、温度勾配とNO濃度の増減の関係は、道路から離れた地点ほど明確に現われない。これは道路から3.3mときわめて近いような場所では車の走行風が大きく影響しているため、逆転時・非逆転時も比較的均一に拡散しているためと推定される。

温度勾配が6°C/100m以下の場合には、道路からのNOの距離減衰が明確であるが、さらに逆転が強まり、温度勾配が6°C/100mより大きいときは、道路から60m離れたNa.4地点及び以遠の地点のNO濃度は対照地点のNa.6地点の濃度とほとんど同一レベルになる。それにもかかわらず、このときのNa.6地点と地上から22.5mの高さで測定しているNa.7地点との濃度差はきわめて大きい。このことから次のことが云える。

吉野は静穏になると逆転層の厚さは薄くなり、その厚さは、温度勾配の強さに関係している⁵⁾と述べているように、温度勾配が6°C/100m以上の場合にみられた地上と高さ22.5mにおける大きなNO濃度のちがいは、その濃度の差からみて同一層内とは考えにくく、その逆転層高さが22.5m以下であったことも推定される。いずれにしても、逆転が強くなるにつれてその層の高さが低くなるため、鉛直方向への拡散は、抑

えられて、それだけ地上の濃度が高くなるものと思われる。

ここで一つ懸念されることとして逆転時の地表付近の濃度上昇については他地域からの汚染、特に京浜臨海工業地域の大規模発生源からの寄与について考慮しなければならないが、その程度はきわめてわずかであると考えられる。先にも述べたようにNa.7の学校屋上では、Na.6より道路に近いにもかかわらず28 ppbとNa.6の1/3以下の濃度であり、他地域からの汚染の寄与はあるにしてもきわめて小さいものと云えよう。さらに詳細については、次章以降で述べる。

図-8より、道路からのNOxの減衰は逆転時、非逆転時にかかわらず著者が従来より報告^{1, 2, 7)}してきたようにそのパターンはいずれも $y = axb$ の式で近似できる。

以上のように、この図からもわかるように、非逆転時がどの地点でも濃度が最も低く、温度勾配が大きくなるにつれて、各地点での濃度が高くなるのがわかる。

3-4 逆転層形成・消滅時における窒素酸化物

図-9は逆転層の形成、消滅前後でのNO、NO₂及びO₃の濃度変化、風向、風速の変化の様子を示したものである。NO及びNO₂は化学発光法により道路から123.7m離れたNa.5地点、O₃は道路端Na.1地点でそれぞれ測定された結果である。

又、オゾンのデータは道路端Na.1地点のものを使用し、なお、この瞬時値の連続変化はチャートよりそのまま複写したため、右から左への経時変化となっている。

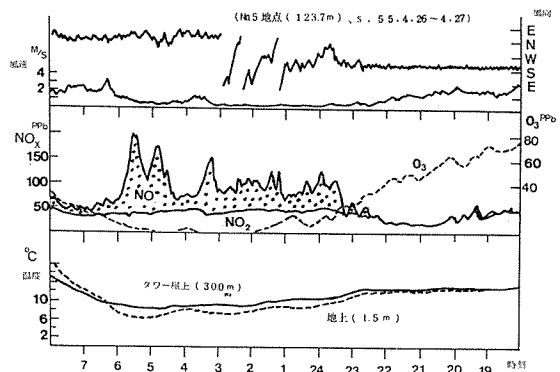


図-9 逆転層形成・消滅時前後におけるNOx、O₃濃度と気象要素の時刻変化

接地逆転は、19時頃から始まり、温度勾配は徐々に大きくなり、一時的に風速が増加する3時から4時頃に小さくなるが、消滅前の5時から6時にかけての温度勾配は最も大きく、その値は高度差100m当り約9℃となっている。

風向は、はじめSSWの風が22時ごろまで続いており、この時の風速も2m/s以上であるが、逆転が強まるにつれて、急激に風速が弱まり、23時から3時頃までは0.4m/s以下の静穏の状態となり、風向も一定でなくなる。3時過ぎから一時風速が増加するが、この頃から道路が測定点に対して風上となるNNEの風が吹きだしている。このような気象条件のもとで、NO_x及びO₃は興味ある変化を示している。まずO₃とNOは、対称的な変化を示し、NOの増加が認められる23時頃には、O₃は急激に減少し、2時過ぎにはほとんど検出限界以下となっている。

この理由として、O₃の測定が道路端のため、NO濃度が高くO₃が消費されることもあるが、この事例のように強い逆転の時には、風は静穏になり、層の厚さは薄くなり上層・下層大気が逆転層により完全に遮断され、上層からのO₃の供給がなくなる。逆に、NO濃度も増加するため、O₃は完全に消費され検出限界以下になるものと思われる。

逆転の強さが増すにつれて層が薄くなり、NO濃度の増加が認められるが、19時から22時のように逆転層が形成していても、道路に対して測定点が風上の場合、NO濃度は、ほとんど検出限界以下であった。

又、無風の状態になるとNO濃度は、ほぼ50～70ppb前後であるが、風速が増すと20～30ppbに減少する。

6時前にはNO_x濃度として200ppb弱と最高濃度を示したがこの要因として、交通量が増加しはじめること、逆転が最も強いこと、及び風速も弱く、風が道路から測定点に向って吹いていることの4点があげられる。

NO₂は、NOと比較してその濃度変化が小さく、逆転層、風向、風速との関係は、明確でない。逆転層形成時であっても、NO₂が増加しない理由については既報¹⁾でも述べたようにO₃の存在によるところが大であり、この事例のように逆転が強い場合には、O₃が検出限界以下になりNOの酸化反応が進まないためNO₂の増加もみられないものと思われる。

3-5 NO_xの垂直分布の経時変化

逆転層の形成・消滅時における地上と上空の濃度変化を知るため、No.5地点の南150mにある広場を利用

し、3月24日から26日までの二昼夜にわたって、二つのカイツーンを使用して測定した。一つは、5m²の小型カイツーンを使用して、高度30m付近とその直下地上1.5mの2地点に高さを固定し、ザルツマンNO_x計により1時間積算値としてのNO_xを54時間連続測定した。他の一つは、50m²の大型カイツーンを使って、1～3時間毎に上昇および下降を繰り返し、地上5mから105mの高度までを20m高度差毎に2～3分停止して、NO_x、O₃、風向風速及び、気温の連続測定を行った。

NO_x及びO₃の採取は、内径6mmのPFAテフロン管をカイツーンにとりつけその一端をペローズポンプに接続して、マニホールドにて分配しNO_x、O₃計にて測定した。又、高度別の気温、風向、風速測定は、カイツーンにゾンデを取りつけ地上で測定した。

(1) 地上および高度30mにおけるNO_x濃度の経時変化

図-10は、その測定結果であるが、気温は、No.8地点の給水塔で測定しているものであり、その他として、対照地点のNo.6地点で測定したNO_xの値を載せた。

図-10より、逆転層が形成されると、地上のNO濃度は急激に上昇し、特に25日の7時のように風が静穏になると高濃度となる。しかしながら、上空においては、同様にある程度上昇がみられたがその濃度は地上の $\frac{1}{2}$ 以下のままである。この期間に逆転層が形成された回数は4回であるが、そのうち地上濃度が100ppbを超えた高濃度が継続した状態は25日朝及び26日夕の2回で、いずれも朝夕の交通量の多く風の弱い時間帯と一致している。それとは逆に24日夕及び26日早晩は逆転層は形成していてもNO_xの濃度は80ppb以下であるが、この時は、風速がいずれも1.5m/s前後であり、地上と上空との濃度差が小さい。いずれにしても、逆転層が形成しているときは、対照地点との濃度差はかなり認められ、道路からの自動車排出ガスの影響が大きいことがわかる。

25日、26日の両日も逆転層が解消しても11時過ぎまでは、道路側からの北寄りの風で地上のNOは50ppb前後の濃度となっているが上空との濃度差は小さくなっている。15時過ぎに南寄りの風が吹きこみ風速も2m/s前後と強くなっているがこの時のNO濃度は、上空、地上、対照地点共濃度が5ppb前後とほとんど同一濃度レベルであり、道路からの自動車排出ガスの影響はほとんどないと云えよう。

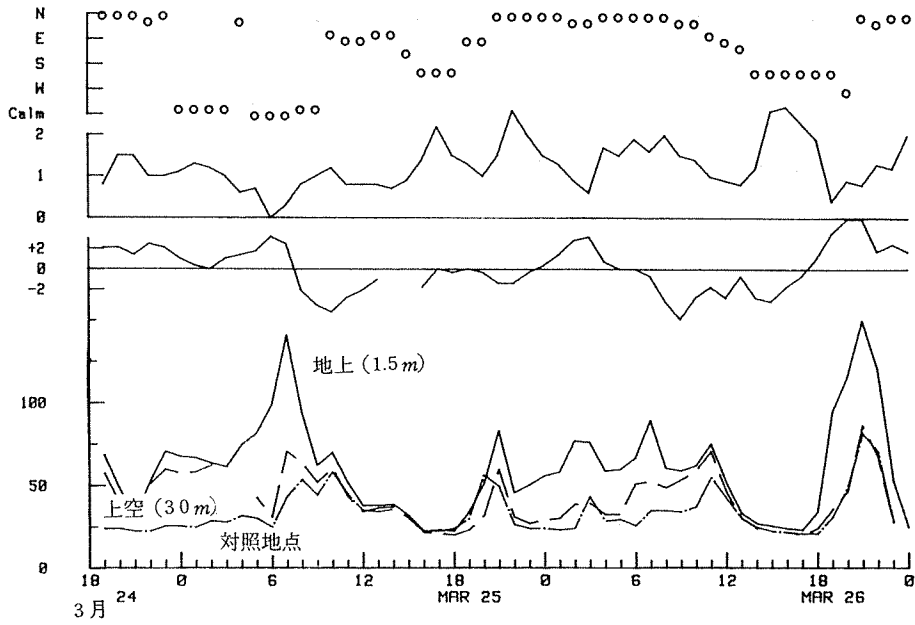
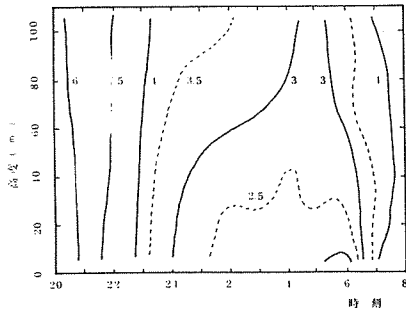
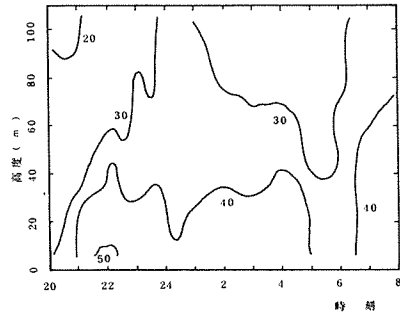


図-10 地上及び高度30mの窒素酸化物濃度と
気象要素の時刻変化 (No.9地点)
(55. 3. 24-3. 26)

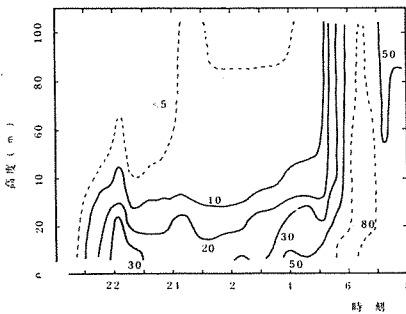
① 気温



③ NO₂ (ppb)



② NO (ppb)



④ O₃ (ppb)

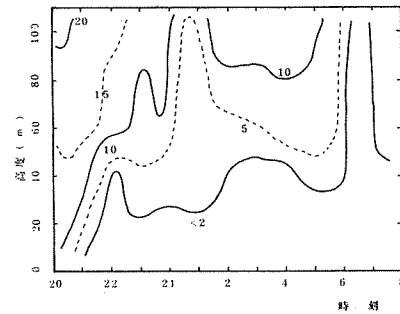


図-11 気温、NO、NO₂及びO₃の垂直分布の経時変化
注: 3月24日20時から25日8時まで

(2) NO_x および O₃ の垂直分布

図-11は、3月24日の夜から25日の朝にかけて NO_x、O₃ 及び気温の垂直分布を測定したものである。

この時間帯では、北寄りの弱い風が吹き続き、風速は高度100m付近では2~3m/sであったが地上付近では1m/s以下であった。23時頃から気温の逆転が観測され、7時頃解消した。逆転層が形成する前は、地上から上空までNO濃度はほとんど5ppb前後でその濃度がほぼ一様であるのに対して、逆転層が形成されると地上付近の濃度の急上昇がみられる。NOの濃度は、高度が上るに従って減少するが、高度40m付近までその濃度が高く、その上層では、ほぼ一定で10ppb以下と低かった。

ただし、6時すぎには、図-10のように100m付近の上空までNOが高濃度となる現象がみられた。この原因として次のことが考えられる。7時頃から風速が増すとそれにつれて逆転層の上面は急速な上昇を起し、一方では地表面から逆転層が解消していく。又この時間帯は交通のラッシュ時のため地表面付近の濃度は非常に高い。このため、一時的ではあるが、地表面の高濃度のものが、急激な気流の上昇と共に、垂直方向へと移送されるため100m付近まで高濃度状態になるものと推定される。NO₂濃度は、NOと同様に下層が上層より高いが、高度による濃度の差はNOに比べてNO₂のほうがはるかに小さい。O₃濃度は、NO濃度の高い下層では2ppb以下と非常に低くその上層では、10ppb前後であった。又、高度40m以上の上層ではNO₂濃度とO₃濃度の和はほぼ一定であった。このようにNO、NO₂及びO₃の濃度は、高度40m付近を境にして変化し、逆転層が形成している間は、この傾向がみられた。

以上の(1)と(2)の結果から、逆転層の形成前では、100m以上道路から離れると、道路周辺での上層100m付近までのNO_xと下層大気との濃度差が小さいのに対して、逆転層が形成されたときのその差はきわめて大きくなる。今回の測定では、久保³⁾、菊地⁸⁾らの報告しているようにいわゆる一次の接地逆転層と思われるものが形成されており、その高さは40m程度であり、その層の上下でNO、O₃の濃度差が明確にあることが確認された。しかしながらこの層の高さについては、先にも述べたように、逆転の強さ等にも関係しており、常に40mという訳ではないが、いずれにしても、接地逆転の形成時には、地上付近が特に高濃度になることが確認された。

4. 結論

本報告は、前報に引き続き、接地逆転層の形成により、道路周辺の大気が、どの程度に自動車排出ガスの影響を受けているかを解析したものである。前報では、気温のデータとして、テレビ塔の高度52mと125mで観測しているものを利用したのに対して本調査では、NO_x等の汚染物質を測定した調査場所の近くにある団地の給水塔を利用して、地上1.5mと高度30mの気温を測定し、その気温差より温度勾配を求めた。本調査は、昭和55年2月から5月までの約3カ月にわたり、道路端から123.7mまでの5地点と対照地点及び地上から高度22.5mの上空の地点の計7地点でNO_xを測定した。その他として、オゾン測定地点2カ所を加えた。又、期間中の3月24日から26日にかけて、カイツーンを使用して、地上100mまでのNO_x、O₃の垂直分布について測定した。これらの測定データを解析した結果、得られた主要な結論は次のとおりである。

- (1) 0.4m/s以下の静穏時間の割合は、非形成時が1.0%であるのに対して、形成時は13.6%となっていた。
- (2) 逆転層の出現する時間の割合は、晩冬から春にかけて調査したにもかかわらず全期間の23.6%であり出現した日数の割合は73.9%となっていた。
- (3) 前回調査と比べて日射の強まる期間は、8時から7時と1時間早くなり、その結果、逆転層の解消時間も同様に早くなっている。
- (4) 温度勾配別の逆転層の出現頻度は、勾配の小さいほど出現回数が多く、4℃/100mまでのものが全体の85.4%、6℃/100mまでのものは97.0%となっていた。
- (5) 平均風速で比較すると、逆転層の形成時の風速は非形成時の約 $\frac{1}{2}$ となっており、前回調査とはほぼ同じ割合である。
- (6) 温度勾配にはほぼ比例して汚染濃度は上昇し、温度勾配が大きくなるほど道路から離れた地点でも高濃度となる。
- (7) 非逆転時に対する逆転時のNOの濃度比は道路端が1.20であるのに対して、道路から離れるに従ってその比は大きくなり124m地点では1.95となっている。
- (8) 逆転層が形成された時に必ず高濃度になるとは限らず、形成時の風向、風速及び交通量が濃度に大きく影響している。
- (9) カイツーンの高度調査によると、いわゆる一次

の逆転層は高度40m付近に認められ、その上層と下層とではNO、O₃の濃度に大きな差が生じていた。

(10) オゾン濃度は、非形成時と比べて形成時では、約 $\frac{1}{2}$ となっており、NOの濃度が上昇すると逆にオゾン濃度の低下が認められた。特に、逆転が強くなり、NOが増加するとO₃濃度は0近くに減少した。

(11) 接地逆転層が形成する時、局地での汚染は、そこを通過する道路からの自動車排ガスによる寄与が非常に大きい。

5. おわりに

この調査場所は、横浜市の中心部から南に15km以上離れた野菜等の畑地と造園用の植木畑がまだ多く残っている市内でも大気環境が良好な所である。特にバックグラウンド地点におけるNOの濃度は数ppb以内であることがたびたび測定され、市内でもこのような清浄空気に近い所があることを再確認することができた。

しかしながら、接地逆転層が形成されて、それが、朝夕の車の渋滞時と重なった時は、道路から100m以上離れた所でもNO_xとして軽く100ppb以上になることが何度か観測された。今回の調査は、粉じんの拡散実態の把握を主体とした調査であったため、逆転層の観測としては必ずしも適当な季節ではなかったと考えられる。しかしながら、もしも冬期に実施していたならば、さらに汚染濃度の高い結果が観測される可能性が強い。このように、道路周辺での大気汚染は、依然として解決されず高濃度であり問題が残されたままとなっている。

文献

- 1) 中村 貢, 米山悦夫: 自動車排出ガスによる道路周辺での大気汚染に関する研究(第4報) 道路近傍における窒素酸化物濃度と逆転層の影響, 横浜市公害研究所報, 5, 27-36 (1980)
- 2) 中村 貢, 米山悦夫, 平野耕一郎, 沖津正樹, 鈴木正雄, 前田裕行, 大田正雄, 高橋 潤: 道路周辺地域への自動車排出ガス影響調査(中区新山地下地域), 横浜市公害研究所報, 2, 7-35 (1978)
- 3) 久保時夫: 下層大気中の逆転層と汚染について, 気象研究ノート, 14, 293-304 (1963)
- 4) 千秋鋭夫, 二宮 昌: 大気下層の気温逆転について(その2) - 接地逆転層の特性解析 -, 電力中央研究所報告276023, (1977)
- 5) 吉野正敏, 小気候, 174-179 (1961) 地人書館。
- 6) Charles E. Rodes, David M. Holland: Variations of NO, NO₂ and O₃ concentrations downwind of a Los Angeles freeway. J. Atmospheric Environment, 15, 243-250 (1978).
- 7) 中村 貢, 平野耕一郎, 沖津正樹, 太田正雄, 鈴木正雄, 米山悦夫 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(第2報) 窒素酸化物の濃度分布調査, 横浜市公害研究所報, 5-13 (1978).
- 8) 菊地 立 他: 小谷に形成される冷気湖と一酸化窒素を中心とする大気汚染の関係-千葉県宮野木における立体調査-千葉県公害研究所報告第X巻, 25-53 (1978).

相模湾岸域における大気汚染物質の輸送 および変質過程* (第3次海上調査)

鶴田治雄, 前田裕行, 太田正雄**

要旨

1978年11月中旬に、相模湾上の定点で、窒素酸化物、オゾン、炭化水素等の大気汚染物質の輸送および変質過程に関する第3次海上調査を実施し、あらたに次の結論を得た。

- (1) 調査期間中、海上ではほとんど北寄りの風が吹き続けたので、風上側の都市域および工業地帯から窒素酸化物、炭化水素等を含む汚染気塊が、陸上から海上へ輸送された。
- (2) 湾上で日中北寄りの風の時、主に京浜工業地帯で形成された汚染気塊は、約3m/sの速さで相模湾上へ輸送された。この汚染気塊中での低沸点炭化水素の成分分析の結果、プロパン、ブタン、ペンタン等のアセチレン濃度に対する比の値が他の成分にくらべて大きかった。それ故、自動車だけでなく工業地帯に存在する石油化学、石油精製のプラントから排出される炭化水素も汚染気塊中に含まれていたことがわかった。
- (3) 都市および工業地帯では夜間接地逆転層の形成時に1次汚染物質濃度が高くなるが、その後、北寄りの風で逆転層が破壊されると、この汚染気塊は相模湾上へ輸送された。一方、逆転層が安定したまま翌朝まで持続する時は、汚染気塊は、工業地帯や都市域に滞留したままであり、汚染気塊の形成や輸送過程には、大気境界層下部の大気の立体構造が大きな影響を与えていることがわかった。

1. はじめに

南関東地域には、図-1¹⁾に示すように、京浜工業地帯、京葉工業地帯、鹿島工業地帯、東京を中心とした都市域、火力発電所等の大気汚染物質の大発生源が存在する。これらから排出される大気汚染物質は、局地風により、その周辺だけでなく、広範な地域へ輸送されるので、広域大気汚染現象をひき起こしている。特に沿岸域では、海陸風循環により汚染物質が輸送されるが、これまで、海上でのデータがなく、その実態がわからなかった。そこで、1976年5月下旬、1977年9月上旬の2回にわたり、海上での大気汚染物質の輸送及び変質過程に関する調査を、東京湾、相模湾及び伊豆諸島海域上で研究船を利用して実施した。その結果、次のことが明らかになった。2), 3)

- (1) 夏期、南寄りの一般風が卓越する時は、伊豆諸島海域上では、 O_3 濃度は約30ppbで日変化を示さず一定であった (NO_x 濃度は2ppb以下)。

- (2) 南関東地域で北東風が吹き続ける時、夜間、約80ppbの NO_x を含む汚染気塊が東京湾岸地域からその風下側の相模湾、伊豆半島南部沖合いの海上

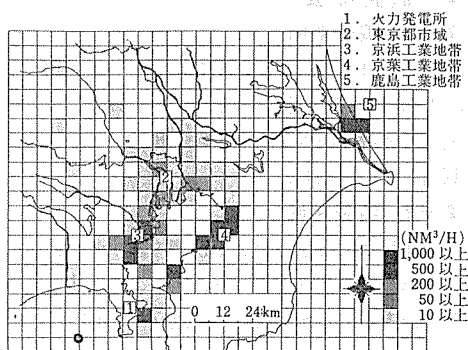


図-1 南関東地域における窒素酸化物 (NO_x) の排出量分布¹⁾

* Transport and transformation of atmospheric pollutants over Sagami Bay.

** Haruo Tsuruta, Hiroyuki Maeda and Masao Ohta, 横浜市公害研究所大気部門

にまで、少なくとも150 km 輸送された。

- (3) 相模湾上で、午前中北東寄りの風が弱くなると、100 ppb 以上のO₃を含む汚染気塊が湾上に滞留した。この汚染気塊は、その後の海風により沿岸地域へ輸送された。

これらの調査は、移動観測のため、汚染物質濃度の水平変動と時間変動とを同時に測定していたので、陸上での日変化と充分比較できるような湾上での日変化を把握することはできなかった。そこで今回の第3次調査は、研究船を湾上の定点に固定して、汚染物質濃度の日変化を測定して、汚染物質の陸上と海上間の輸送および変質過程を把握しようとした。また、今回の観測期間は、11月中旬であり、陸上から海上へ向かって吹く北寄りの風が卓越する期間であった。大気の安定する秋から春にかけては、都市および工業地帯では、NO_x濃度が夜間と午前中に高くなるが、これらの汚染物質がその後どのように輸送されていくかについては、これまでほとんど調査研究がなされていなかった。それ故、今回の第3次調査では、特に陸上から海上への汚染物質の輸送過程の解明に焦点をあてて調査および解析を行なった。

今回の航海では、東大海洋研究所がオメガゾンデによる高層の気象観測を、国立公害研究所がカイツーンによる海上での海陸風の立体構造の観測を、日時をずらして実施しており、また航空機を用いて上空での汚染物質と気象要素の立体調査も行なった。なお、本報告では、海上調査の結果についてだけ述べ、これらの総合的な結果については、別の機会に述べる。

2. 調査概要

2-1 調査期間

1978年11月9日11時に横浜港を出て、11月15日13時に横浜港に入るまでの7日間、東大海洋研究所研究船「淡青丸」(KT-78-17次研究航海)を利用して、観測した。

2-2 調査海域

調査海域は、東京湾及び相模湾であったが、第1次および第2次の調査と異なり、図-2に示すように、辻堂沖南方約24 kmの海上のP点(35°06' N、139°27' E)で船を止め、定点観測を行なった。船が、風や潮流によりP点を中心とした半径1海里(約1.85 km)の円外へ流された時は、常にP点へ戻って調査を行なった。

2-3 測定項目

測定項目は、過去2回に測定した窒素酸化物(NO_x)、

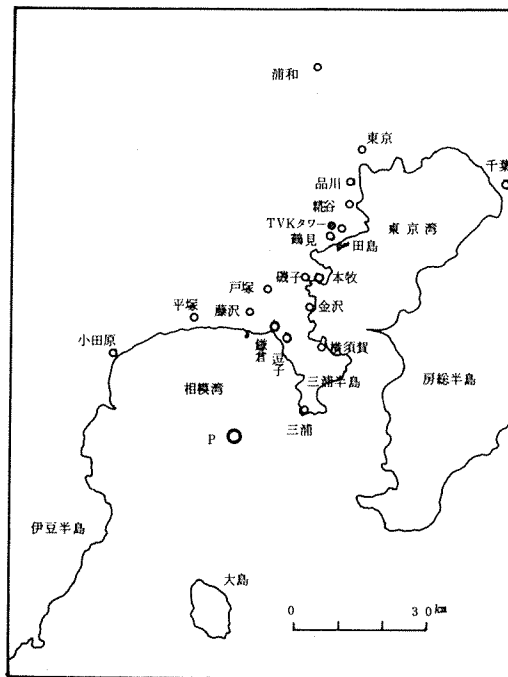


図-2 第3次海上調査時の研究船の位置(定点P)

オゾン(O₃)、浮遊粉じんの重量濃度及びその中に含まれるベンゾ(a)ピレン濃度だけでなく、メタン(CH₄)非メタン炭化水素(NMHC)、低沸点炭化水素(C₂~C₆成分)の濃度も測定した。また、風向風速、気温、海水温、気圧のデータは、船側から提供を受けた。船に搭載した測定機器、測定あるいは分析方法の概要を表-1に示した。なお、浮遊粉じんは、船上だけでなく、同時期にその北側の神奈川県東部の2地点(横浜市磯子と川崎市田島)でも採取した。また、上層風についても、神奈川県東部の4地点で測定した。

表-1 測定項目及び搭載機器

測定項目	測定・分析・採取機器	測定・分析方法
窒素酸化物 (NO-NO ₂ -NO _x)	窒素酸化物測定器 M-8440 (MONITOR LABS社製)	化学発光法
オゾン(O ₃)	オゾン測定器 M-8410 (MONITOR LABS社製)	化学発光法
メタン(CH ₄) 非メタン炭化水素(NMHC)	メタン・非メタン炭化水素測定器 HCM-3AS (御島津製作所)	FID直接法
低沸点炭化水素 (C ₂ ~C ₆ 成分)	ガスクロマトグラフ 日立-163 (日立製作所)	FID法
浮遊粉じん(TSP)	ハイボリューム エア サンプラー (御愛知時計)	
ベンゾ(a)ピレン(Bap)	蛍光分光光度計 MPF-4 (日立製作所)	

2-4 大気採取方法

内径27mmで長さ15mのテフロン管の先端を船首にとりつけて他端を研究室内にひきこみ、ガラスのマニホールド(㈱柴田化学製)に接続してその後にハイボリュームエアサンプラーで用いられているプロアを直結して、外気を約50ℓ/minで導入した。ガスの測定は、このマニホールドから各測定機器へ分配して行なった。一方、浮遊粉じんは船橋上部に設置したハイボリュームエアサンプラーでろ紙上に採取した。

2-5 低沸点炭化水素(C₂~C₆成分)の分析方法

試料大気は、前述のマニホールドから100ml/minの流速でダイヤフラムポンプを用いて吸引してガラス製の注射筒に500ml採取した。その試料大気を、C-22を充てんしたU字管トラップへ液体酸素で冷却しながら濃縮し、その後、加熱脱着してFIDガスクロマトグラフへ導いた。なお、試料大気の除湿のため、内径3mm長さ150mmのガラス管に充てんした炭酸カリウムのトラップを使用した。

C₂からC₆までの14成分の分析は、既報の方法⁴⁾を一部改善して行なった。特に、エタン、エチレンの分離を完全に行なうため、カラム温度を-60℃から昇温して分析した。ガスクロマトグラフの分析条件を、表-2に示した。ガスクロマトグラフからの出力信号

表-2 ガスクロマトグラフの分析条件

項目	条件
検出器	FID(日立-163)
カラム	3mmφ×3m ステンレス製
充てん剤	n-Octane/Porasil C 100/120 mesh
カラム温度	-60℃を4分保持。その後-60℃から+30℃まで10℃/minで昇温
キャリアガス	N ₂ 35ml/min
注入口温度	80℃
検出器温度	80℃
水素	1.1kg/cm ²
空気	1.4kg/cm ²
分析成分	エタン、エチレン、アセチレン、プロパン、プロピレン、イソブタン、n-ブタン、1-ブテン、イソペンタン、n-ペンタン、2-メチルペンタン、3-メチルペンタン、メチルシクロペンタン、n-ヘキサン

は、ペンレコーダーだけでなく、アナログデータレコーダー(㈱TEAC社製、R-250)にも記録した。下船後、データレコーダーのアナログ出力をインテグレーター(㈱パーキンエルマー社製、シグマ10)で処理して、各成分の濃度を求めた。標準ガスは、既知濃度のボンベ入プロパンガス(3.03ppm)を使用して、相対感度⁵⁾によって他の成分の濃度を算出した。試料大気は、定点Pでの観測中は約1時間おきに分析し、全調査期間を通じて総計41の試料大気を分析した。

2-6 ベンゾ(a)ピレン(BaP)の分析方法

浮遊粉じんは、上部船橋上に設置したハイボリュームエアサンプラーで大気を10~28時間連続吸引して直接ろ紙(GB-100R)上に採取した。なお、自船の排煙を吸引するおそれのある時は、採取を中止した。

BaPの分析については、試料全量を真空昇華し、得られたタール分を二層一次元薄層クロマトグラフィーにより分離してBaPを分取し、蛍光分光光度計で定量した。なお、分析方法は第1次調査時と同じ方法を用いた。²⁾

2-7 上層風の測定

神奈川県東部で、パイロットバルーンを放球して上層風を測定した。横浜市磯子では9日10時から15日13時まで、川崎市田島、横浜市戸塚、横須賀市小川町では10日、11日、12日の9時から17時まで、1時間毎に上層風を測定した。(なお、国立公害研究所は、9日から11日にかけて、テザーゾンデを用いて船上で上層気象を観測した)。

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に示した。天気の変化は激しく、9日、11日、13日、15日と気圧の谷が日本を通過した。8日は移動性高気圧が通過して小春日和となったが、9日の午後には、北海道を通過する低気圧に伴う寒冷前線が関東地域を通過したため、北寄りの強い風となり木枯らしが吹き始めた。10日は移動性高気圧が、11日は弱い気圧の谷が日本を通過したため、雲の多い天気であった。13日に低気圧が本州南岸沿いに通過したので、12日の夜から14日の早朝まで雨が降り続いた。14日は低気圧の通過後で北風が強くなり曇りであった。15日は、低気圧が北海道を通過したので、南風で暖かかったが、夜、寒冷前線の通過後強い北風が吹き始めた。

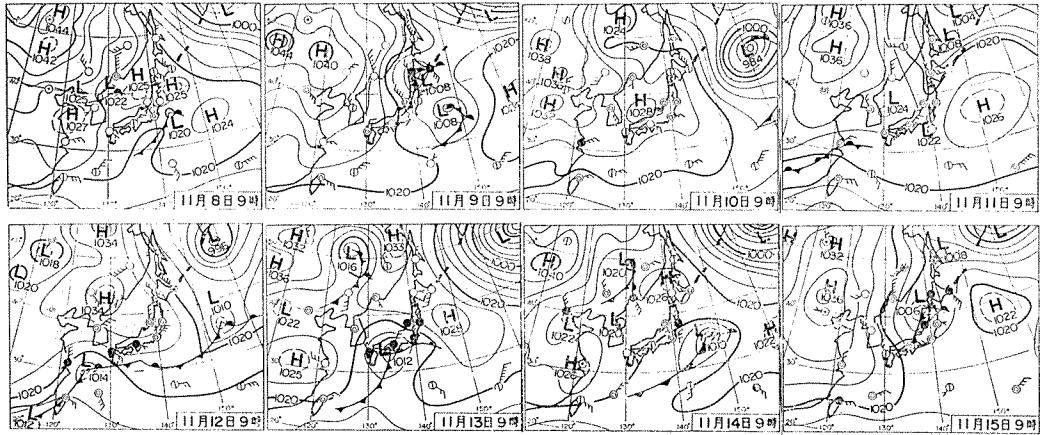


図-3 1978年11月8日から11月15日までの09時における
地上天気図(日本気象協会の雑誌「気象」から転載)

4. 結果および考察

調査期間中、相模湾上では、15日の早朝に南寄りの風が吹いたほかは、すべて陸上から海上へ北寄りの風が吹き続け、定点Pでは海陸風による日変化は起らなかった。定点Pでの連続観測は、10日の夕方から12日の早朝までと、14日の午後から15日の早朝にかけての2回にわたって実施した。次に、それらの結果と、陸上から海上への汚染物質の輸送および変質過程についての考察を述べる。

4-1 11月10日～11月12日の結果と考察

4-1-1 湾上での汚染物質濃度の日変化

図-4は、10日16時から12日04時までの、定点Pでの測定結果である。なお同時に風上側の東京湾岸部の磯子(T点)での測定結果を示した。

- (1) 10日の午後には相模湾上で北東風が弱まり、ほとんど静穏状態になった。その後、18時頃から弱い北風が吹き始め、11日00時頃には風速が5m/sとなった。北北東風はその後吹き続け、11日の日中は3～4m/sとやや弱くなったが、18時以後また5m/s以上と強くなった。
- (2) 1次汚染物質であるNO_x、CH₄、NMHCの濃度は、10日18時～11日04時、11日12時～18時、11日21時～12日03時の間に高くなり、最高はNO_xで120～140 ppb、CH₄で1.8～1.9 ppm、NMHCで0.8～1.0 ppm Cを示した。
- (3) NO/NO_xの値は、夜中の高濃度時は約0.5であったが、午後の高濃度時は、0.2と低くNOからNO₂への変換が夜中よりも進んでいた。

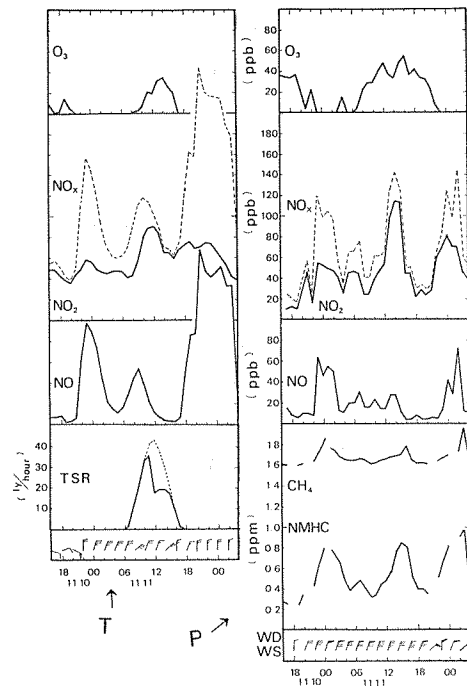


図-4 相模湾上の定点Pと陸上の磯子(T)での
汚染物質濃度の経時変化
(1978年11月10日～11月12日)

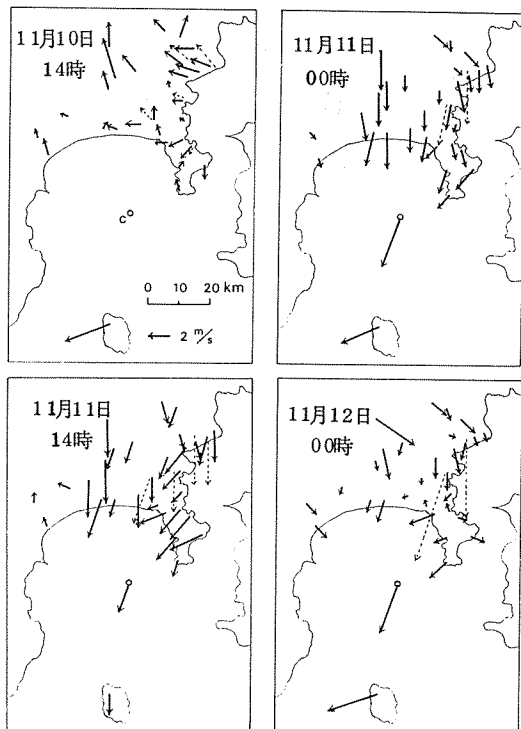


図-5 神奈川県東部、相模湾上および大島での地上風ベクトル(11月10日14時、11日00時、11日14時、12日00時)。なお、点線は高度100mでの上層風ベクトル。

(4) O_3 濃度は、夜間の NO_x の高濃度時には低く、 NO 濃度が高い時には検出限界(2 ppb)以下と低かった。しかし、11日12時から18時にかけての午後には NO_x 、 CH_4 、 $NMHC$ 濃度が高い時には、 O_3 濃度は35~55 ppbとバックグラウンド値(約30 ppb)よりもやや高くなった。

以上のように、陸上から海上へ風が吹き続ける時、湾上での1次汚染物質は、夜中と午後には汚染気塊が通過して高濃度になるという日変化を示した。

それでは風上側の陸上での汚染物質濃度は、どのような日変化を示したか?

図-4には、同時に風上側の東京湾岸部の磯子(T点)での測定結果を示してある。これによれば、 NO_x 等の1次汚染物質濃度の日変化は海上での測定結果とよく似たパターンを示しており、湾上よりやや早い時間帯に高濃度を示していた。また、磯子での O_3 濃度は、11日の午後には約30 ppbとなったが、湾上より低かった。これらから、京浜工業地帯や東京都市域からの汚染気塊が湾上のP点を通過したことが推測された。また、日中は、 NO_x や HC を含む汚染気塊が輸送される過

程で、日射は弱かったが、 O_3 がわずかではあるが光化学反応により生成されたことが、推測された。それ故、次に陸上の気象および汚染物質のデータを用いて、輸送および変質過程について詳しく考察した。

4-1-2 下層大気の立体構造と日変化

- (1) 湾上で1次汚染物質濃度が高くなった午後と夜中における陸上での地上風を、図-5に示した。神奈川県東部では、10日の日中は東京湾および相模湾から海風が吹いたが、湾上のP点では静穏状態で海風は吹かなかった。また、11日は一日中北ないし北東風で、海風は吹かなかった。
- (2) この期間の上層風を図-6に示した。上層風は、10日の21時までは地上から約500mまで3~4 m/sの東寄りの風で、その上層は高さ2 km以上まで強い南西風であった。22時以後、500 m以下の下層では、北寄りの風が11日13時頃まで吹き続けた。14日以後、北寄りの風は急に強

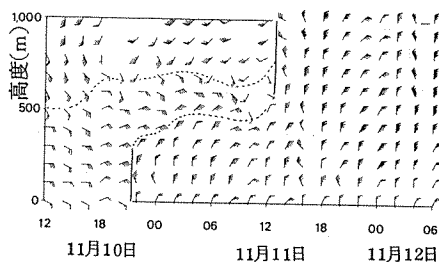


図-6 磯子での上層風の経時変化(11月10日12時~11月12日06時)

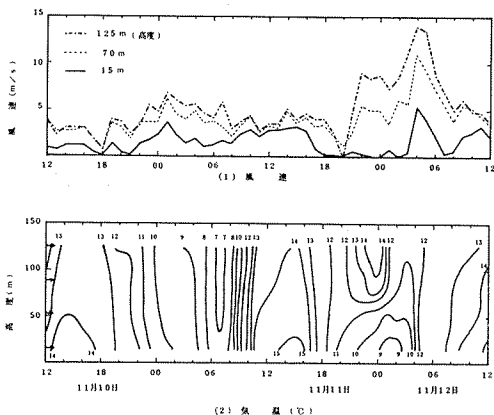


図-7 鶴見のTVKタワーでの(1)風速、(2)気温の垂直分布の日変化(11月10日12時~11月12日12時)

くなり始めて高さ1 km以上にも達して風速は高度300 m以上で10 m/sを超えており、12日の朝まで吹き続いた。

- (3) 地上の汚染物質の濃度は、大気境界層下部の大気の安定度に強く依存しているの、図-7に、鶴見のタワーでの地上15 mから125 mまでの気温と風向風速の垂直分布の時間変化を示した。

10日の夜間から11日の朝にかけては、高度125 mまでは気温の逆転は形成されず、また、地上と高さ125 mの風速の差(ΔV)は、18時以降に2~4 m/sとやや大きくなったただけであった。11日の午後は、大気はほぼ中立で ΔV も1 m/s前後であった。11日の夜間は、19時以後、放射冷却による接地逆転が発達し、12日00時頃には3.5°C/100 mと逆転の度合いが非常に強くなった。地上風は、18時から03時頃まで1 m/s以下の弱い北寄りの風であった。しかし125 mの高さでは22時以後8 m/s以上の強風となり、地上付近の安定した大気との間の風速の変化が激しかった。03時過ぎには地上付近の風速も5 m/sとなって垂直方向の大気の混合が激しく行われたために接地逆転層は破壊されて等温となった。

- (4) ところで一般に、海上では、夜間の陸風時、暖かい海面上に冷たい陸上の大気が吹いてくるので、海岸地帯から沖合いに向かって混合層が発達していくといわれている。11日の18時から相模湾沿岸地域では風も弱く気温も10~11°Cと低くなったが、湾上のP点では表面海水温は21°Cで気温は16°Cであり、5 m/sの北北東風が吹いていた。また、22時前後での船上のカイツーン⁶⁾のデータ⁶⁾によれば、少なくとも高度200 mまでの大気は中立(気温減率が1°C/100 m)であったので、非常に良く大気の垂直混合が起こっていることを示していた。

4-1-3 陸上から海上への汚染物質の輸送過程

- (1) 図-8は、東京および神奈川での、11月11日のNO_x濃度の水平分布の経時変化を示したものである。これらの地域全体で、夜中と午前中に、NO_x濃度が高くなっており、午前中よりも夜中の方がNO_x濃度は高かった。

- (2) 11日14時頃にP点に到達した大気の流跡線を求めると、09時前後に京浜工業地帯を通過していたことがわかった。そこで、流跡線付近の常時監視測定局のNO_x濃度の時間変化を、図-9に示した。なお、京浜工業地帯のさらに風上側の

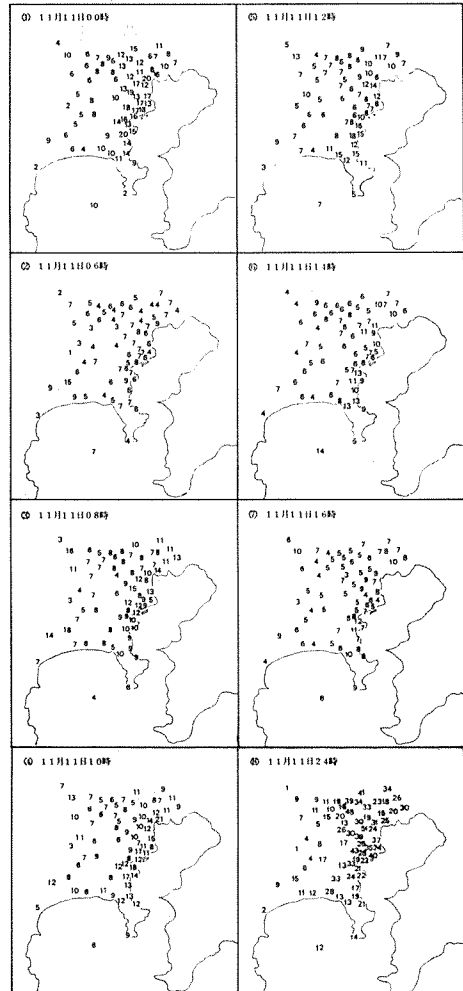


図-8 東京および神奈川における11月11日のNO_x濃度の水平分布の経時変化(単位pphm)

東京都市域の南部の品川のデータも図-9に示したが、11日午前中のNO_xの高濃度の形成された時間帯は、品川が鶴見より遅かった。図-9によれば鶴見で08時から11時頃まで高濃度だったNO_xのピークが次第に風下側へ移っていったことが示されている。それ故、午前中に京浜工業地帯周辺で形成された汚染気塊が、約3 m/sの速さで北寄りの風により輸送されて午後約50 km 風下側の相模湾上のP点に到達したことが明らかになった。この汚染気塊は、午前中の産業活動が激しくなった時に、自動車や工場等から排出された汚染物質が、図-7にみられるように気温は急上昇しているが

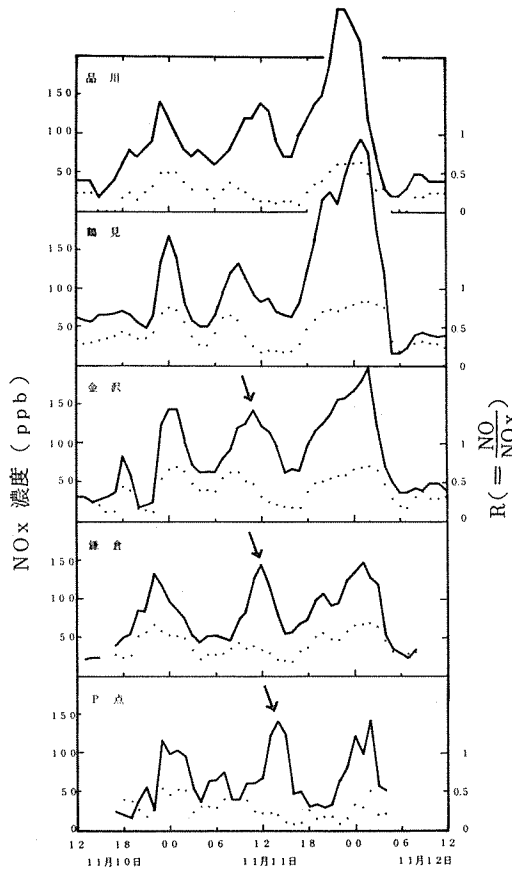


図-9 流跡線に沿った5地点でのNO_x濃度(—)とR(=NO/NO_x, …)の日変化 (矢印は汚染気塊の移動を表わす)

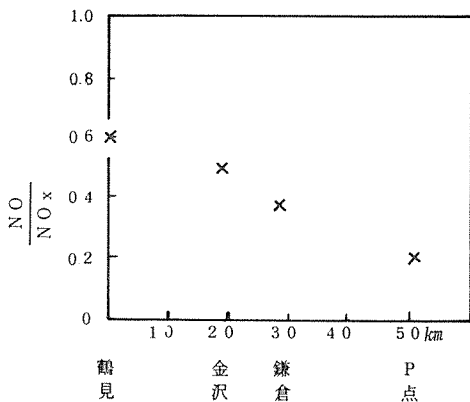


図-10 汚染気塊の移流中でのNO/NO_xの変化

大気は安定なために、地上付近で濃度が高くなって形成されたものである。なお、この汚染気塊の輸送過程でのNO/NO_xの値は、図-10に示すように約5時間で0.6から0.2へ減少しており、NOからNO₂の変換はゆっくりと進行した。しかし、NO₂濃度は風下側約50kmのP点でも100ppb以上存在しており、NO₂の化学反応による減少はほとんどなかったと推測される。この汚染気塊中ではNMHC濃度も高く、NO₂やNMHCが減少しなかった原因は、紫外線量が少なかったために光化学反応がわずかしこ進行しなかったためである。それ故、O₃濃度も最高55ppbとあまり高くならなかった。

(3) 次に11日の17~18時には、陸上では接地逆転層の形成とともに広範囲にNO_x濃度が高くなりはじめたが、海上のP点では、21時頃からNO_xが高くなり始めており、NO濃度の上昇はさらに遅く23時以後に高くなってきている。これは、まず沿岸地域の汚染大気が北寄りの風で約2~3時間後にP点に到達したこと、NOは陸上から海上へ輸送される間に垂直混合で上空のO₃と反応してNO₂へ変換したために濃度が上昇しなかったことを示している。そして23時過ぎにさらに高濃度の汚染物質が到達した。この汚染気塊中ではNO濃度が40ppb以上もあり、O₃濃度は完全にNOで分解されて検出限界以下と低くなっていた。

図-5の12日00時の地上風によれば、東京湾岸地域の地上付近では、東京湾に向かって弱い陸風が吹いていたが、鶴見のタワーの125mでは10m/sの北北東の風が吹いており、23時以後の高濃度の汚染物質も工業地帯や都市域から輸送されたものであった。なお、放射冷却による接地大気安定層の上層部には垂直方向に大きな風のシアが存在しており、工業地帯の地上付近で排出された汚染物質は陸風により東京湾へ輸送されて滞留したが、上空へいくにつれて北風が強くなるとともに次第に東京湾から相模湾方面に輸送された。そして高さ100m前後の発生源から排出された汚染物質は相模湾上へ輸送された。このような現象は今回初めて明らかになったもので、今後もさらに調査を進める必要がある。図-9によれば、都市域では02時過ぎにNO_x濃度が急激に減少した。これは、図-7からわかるように地上でも風が強まって垂直混合がおこり気温の逆転層が破壊されたためである。

(4) 10日の夜は、相模湾沿岸地帯は17時頃から1~2m/sの弱い陸風が吹き始めたので、この陸風によ

り沿岸地帯の汚染物質は湾上に輸送され、P点には19時過ぎに到着した。しかし、11日の夜間と同様にNOはO₃との反応でNO₂に変化したので、その濃度は上昇しなかった。そして、工業地帯や都市の汚染気塊は22時以後にP点に到達した。この汚染気塊中のNO濃度は高かったので、垂直混合で上空のO₃と反応してもなお過剰のNOが残っていることを示している。なお、夜間、都市及び工業地帯ではNO/NO_xの値は約0.7であるが海上では0.5となっており、O₃との反応でNOがNO₂に変化したためである。

- (5) ところで、前述したように、第1次調査において南関東地域で北東風の時、伊豆半島南部沖合いで夜中に約80 ppbのNO_x濃度を測定し、東京湾岸地域の汚染物質が輸送されたことを推測した。この現象は、今まで述べてきた汚染物質の輸送過程によって引き起こされたと考えられる。それ故、これらの現象は、北寄りの風の時の一般的な現象であると考えられる。

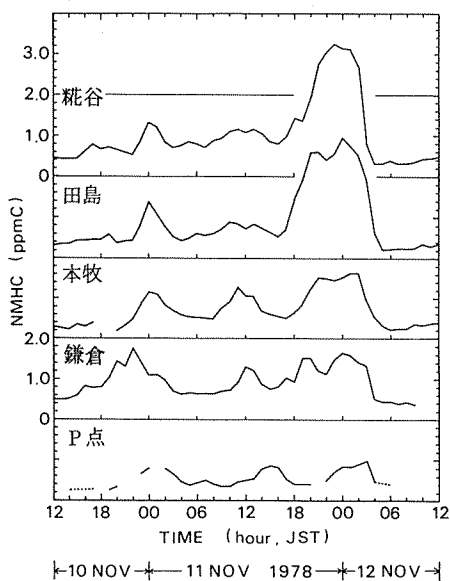
4-1-4 汚染大気中のCH₄及びNMHC濃度

大気汚染常時監視測定網でCH₄、NMHC濃度を測定している地点数は、NO_xと比べてはるかに少ないので、前述のような詳しい解析は出来なかった。図-11はP点の風上側の4地点のCH₄、NMHC濃度の時間変化である。図-11にみられるように、都市及び工業

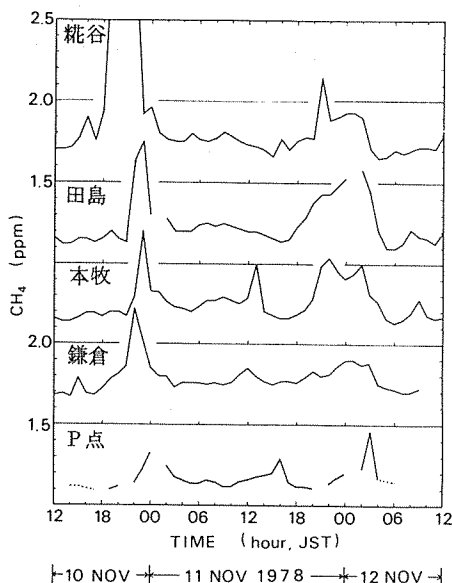
地帯でも、日中と夜中にCH₄、NMHC濃度は高くなっている。それ故、高濃度のNO_xを含む汚染気塊中では同時にCH₄、NMHC濃度も高いことがわかった。CH₄のバックグラウンド濃度は約1.5 ppmであり、また、NMHCは0.1 ppm以下と考えられている。それ故、NMHCの方がCH₄よりも変動が大きいのは、バックグラウンド濃度に対する人為的な排出量の比が、NMHCの方が大きいからである。

図-12は、定点Pでの、10日18時から12日03時までのCH₄とNMHC濃度の散布図である。CH₄とNMHC濃度とは一定の関係にあると考えられるが、高濃度になるにつれてバラツキが大きくなっている。これは、CH₄とNMHCの局地的な発生源が偏在しているためと推測される。

CH₄の人為的な発生源としては、自動車、都市ガスを使用する家庭、都市ガス製造工場等が考えられる（その他に地下資源の天然ガスのもれも、人為的ではないが局地的な発生源である）。環境中のCH₄濃度は、図-11の糍谷でみられるように、3 ppm以上の高濃度を示すときがしばしばあり⁷⁾、周辺に局地的な発生源が存在すると考えられるが、その発生源が何であるかは、まだ不確定である。一方、NMHCの人為的な発生源は、自動車だけでなく、工業地帯等に存在する石油化学、石油精製のプラント、石油備蓄タンク、塗装工場、ガソリンスタンド等である。図-11でNMHCの方が、CH₄



(1) NMHC濃度



(2) CH₄濃度

図-11 5地点でのNMHC, CH₄濃度の日変化(11月10日12時~11月12日12時)

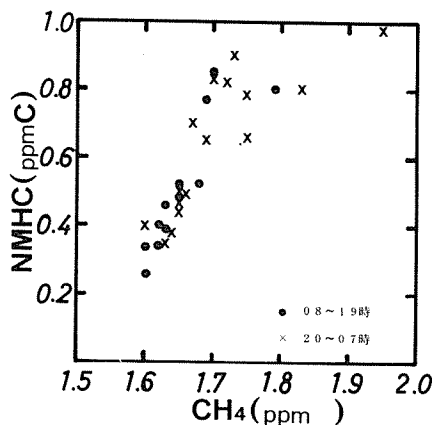


図-12 P点での CH_4 濃度とNMHC濃度との散布図(11月10日18時~11月12日03時)

よりも相対的に高い時の大気は前述したように午前中に工業地帯を通過した大気であることがわかっており、工業地帯にNMHCの局地的な発生源があることを示唆している。

4-1-5 汚染大気中の低沸点炭化水素(C_2 ~ C_6)濃度の時間変化

この期間中、船上で、約1時間毎に大気を採取して、船に搭載したガスクロマトグラフで低沸点炭化水素成分を直接分析した。これらの結果を図-13に示したが、汚染大気中では、エタン、アセチレン、プロパン、ブタン、ペンタン等がプロピレンやブテンに比べて特に高かった(エチレンは欠測)。しかし、それらの濃度の増加割合は、成分によって異なっていた。そこで、光化学反応性が低く発生源が自動車だけといわれているアセチレン濃度に対する各成分の比の値の経時変化を図-14に示した。図-14によれば、成分によって、高濃度を示した午後と夜中でもアセチレンに対する比の値が大きく異なっていることがわかる。プロピレンおよび1-ブテンは日中小さく夜間大きくなっており、日中は光化学反応等で早く減少してしまうためである。一方、アルカン類であるプロパン、イソブタン、*n*-ブタン、ペンタン等は、日中の汚染大気の方が、夜中の汚染大気中より、アセチレンに対する比が大きくなっている。自動車排出ガスの成分比は、日中と夜間とで変化しないと考えられる。それ故、日中の汚染大気中に含まれる炭化水素については、自動車だけでなく他の発生源からの排出が加わっていた。とこ

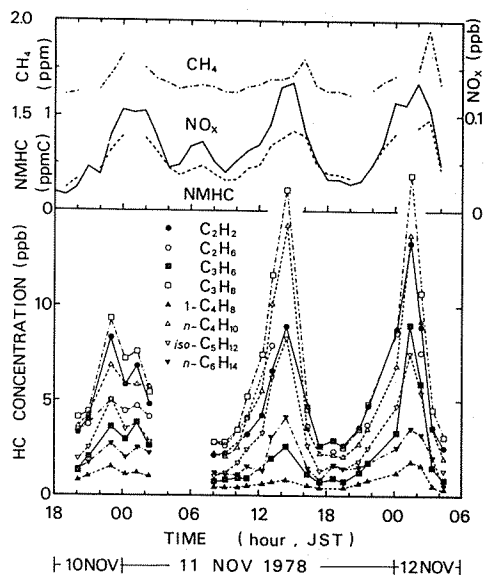


図-13 P点での低沸点炭化水素の8成分の濃度の経時変化(11月10日18時~11月12日06時)

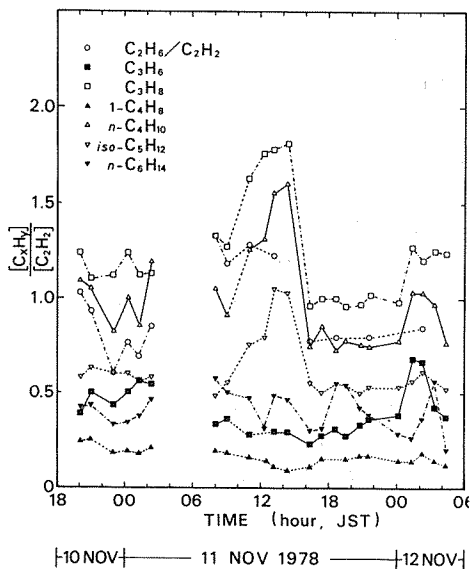


図-14 P点での7成分(C_2H_6 、 C_3H_6 、 C_3H_8 、 $1-\text{C}_4\text{H}_8$ 、 $n-\text{C}_4\text{H}_{10}$ 、 $i-\text{C}_5\text{H}_{12}$ 、 $n-\text{C}_6\text{H}_{14}$)の C_2H_2 に対する濃度比の経時変化

ろで前述したように、午後にP点に到達した汚染気塊は、主に京浜工業地帯で形成された。京浜工業地帯には、石油化学、石油精製等のプラントが存在し特にプロパン、ブタン、プロピレン、エチレン等が大量に排出されていることが過去の調査により明らかになっている⁹⁾、¹⁰⁾。それ故、これらの発生源から排出された炭化水素が、日中の汚染大気中に加わっていたために、P点での日中の成分比が変化したと考えられる。このように、工業地帯のプラントやタンク等から排出される炭化水素も、汚染大気中に含まれて輸送されるので、自動車から排出される炭化水素とともに光化学大気汚染の前駆物質として今後取り扱っていくべきである。

なお、今回は、芳香族炭化水素成分の分析は行なわなかったが、京浜工業地帯では、芳香族炭化水素成分よりも低沸点炭化水素成分の濃度が高いという結果⁹⁾がすでに得られている。それ故、日中にNMHC濃度が高くなった原因は主に低沸点炭化水素成分の増加によると思われる。なお、今後、芳香族炭化水素も同時に測定していきたい。

4-2 11月14日～11月15日の結果と考察

定点Pにおいて14日の12時から15日の08時まで、再び連続観測を行なった結果を図-15に示した。

- (1) 14日は、低気圧の通過後で北東寄りの風が強かったが、15日02時頃から風が弱くなり、06時頃から強い南西風が吹き始めた。
- (2) 14日の13時から16～17時まで、1次汚染物質のNO_x、CH₄、NMHCが高くなり、最高値は各、60 ppb、1.68 ppm、0.56 ppmCであった。この汚染大気は、11日の午後測定された汚染大気と同様に、工業地帯や都市域を通過したものであった。
- (3) 夜間、NO_xは20時及び23時に35～40 ppbとやや高くなっただけでその他は20 ppb以下で、15日の朝の南西風時には約10 ppbとさらに低くなった。また、CH₄、NMHCは、約1.60 ppm、0.3 ppmCであり、南西風時には1.55 ppm、0.24 ppmCとさらに低くなった。O₃濃度は、14日の午後は約30 ppbであったが、夜間は低くなって15～20 ppbであった。
- (4) 風上側の陸上の磯子では、図-16にみられるように、14日22時頃から弱い北寄りの風となり、NO_x濃度は急激に高くなり始め、15日09時に最高316 ppbとなり、その後強い南西風が吹き始めたので急激に減少した。これは、図-17にみられるように放射冷却による接地逆転層が形成されたためである。そして、10日や11日の夜中と異なり、

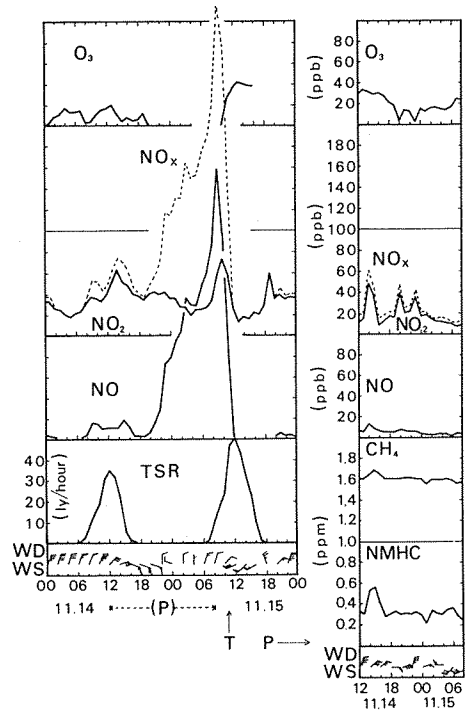


図-15 P点および磯子(T)での11月14日、15日の各測定項目の時間変化

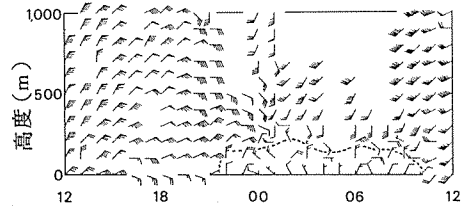
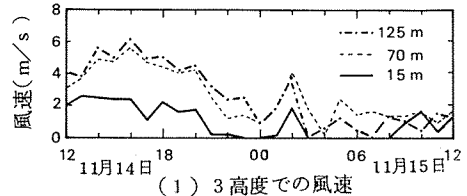
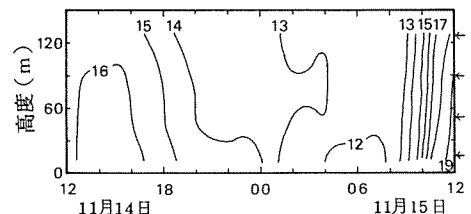


図-16 磯子での上層風



(1) 3高度での風速



(2) 気温の垂直分布

図-17 鶴見のタワーでの測定による(1)風速および(2)気温垂直分布の日変化 (11月14日12時～11月15日12時)

地上は約1m/sの弱い北寄りの風なのに、磯子での上層風は、100m以上で暖かな強い南西風が吹いており、冷たい北風が強く吹かなかった。それ故、逆転層は破壊されることなく15日08時で安定して存在していたので、NOxの高濃度は午前中まで持続した。これらの理由で、海上では夜中に1次汚染物質濃度は高くなり、汚染気塊は輸送されなかった。

なお、夜間のNOxの高濃度現象は、8日の夜間から9日の朝にかけても、陸上の広範囲な地域で測定されていた。鶴見のタワーでの測定によれば、8日の夜間に形成された接地逆転層は、9日の08時まで安定して存在しており、その強さは最大3℃/100mであった。それ故、9日の出発時の午前中の東京湾上での測定によれば、NOx濃度は200ppb以上と非常に高く、東京湾上に汚染物質が滞留していた。これらの結果は、10日から12日にかけての結果と異なっているが、これは下層大気の立体構造が異なっていたためである。

4-3 浮遊粉じん及びBaP濃度

浮遊粉じんは、調査期間中、船上で8回採取した。同時に、陸上の田島（川崎市）、磯子（横浜市）でも採取しており、これらの測定結果をまとめて、表-3、図-18に示した。

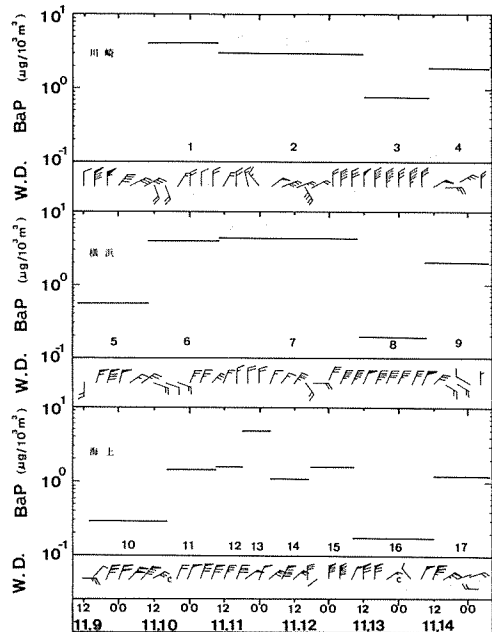


図-18 調査期間中の海上、横浜（磯子）、川崎（田島）でのBaP濃度と風向風速(W.D.)

表-3 浮遊粉じんおよびBaP濃度の採取時刻および重量濃度

No	粉じん採取地	粉じん採取日時	吸引量 m ³	粉じん量		BaP含有量	
				mg	μg/m ³	μg/10 ³ m ³	ng/mg,dust
1	川崎	11.10 10:12~11.11 10:05	2413	238.4	98	4.1	42
2		11.11 10:07~11.13 11:56	3425	720.3	210	3.0	14
3		11.13 12:03~11.14 9:58	2289	181.6	79	0.78	9.9
4		11.14 10:01~11.15 10:00	2464	309.3	125	1.9	15
5	横浜	11.9 10:00~11.10 10:00	2363	358.2	151	0.55	3.6
6		11.10 11:10~11.11 10:02	2330	349.0	149	4.0	27
7		11.11 10:05~11.13 10:10	4265	607.0	142	4.2	30
8		11.13 10:15~11.14 9:05	2397	63.7	26	0.19	7.3
9		11.14 9:08~11.15 9:02	2363	228.7	96	2.1	22
10	海上	11.9 14:10~11.10 15:28	532	42.5	79	0.29	3.7
11		11.10 15:32~11.11 9:07	626	54.3	86	1.5	17
12		11.11 9:11~11.11 18:43	300	50.4	168	1.6	9.5
13		11.11 18:43~11.12 4:07	288	45.0	156	4.9	31
14		11.12 4:08~11.12 16:57	316	18.4	58	1.1	19
15		11.12 7:50~11.13 8:29	514	21.9	42	1.6	38
16		11.13 8:30~11.14 11:52	1084	18.2	16	0.17	11
17	11.14 11:53~11.15 9:27	795	26.9	33	1.2	36	

9日の午後から10日にかけては、強い北寄りの風が吹き続けたので、磯子(試料No.5)でも海上(No.10)でも粉じん量は多かったが、粉じん中のBaP濃度は低かった。次に10日から11日にかけては、田島(No.1)、磯子(No.6)、海上(No.11)とも、BaP濃度は高く、BaPの粉じん中に占める割合も他の日より大きかった。しかし、その値は、田島、磯子、海上の順に小さくなっており、発生源からの減衰の様子を示している。11日の夜から12日の早朝にかけて、汚染大気中のBaP濃度は、海上で $4.9\mu\text{g}/10^3\text{m}^3$ と、調査期間中の最高値を示した。この時間帯はNO_x、CH₄、MNHCとも最高濃度であり、工業地帯や都市大気中の汚染物質があまり拡散されず輸送されてきたものである。13日から14日にかけて雨が降ったので、粗大粒子はウォッシュアウトで沈着し、各地点とも粉じん量は少なくなった。しかし浮遊粉じん中に占めるBaP濃度の割合は質量比にして約 $(7\sim 10)\times 10^{-6}$ とあまり地点による差がみられなかった。BaPは、粒径 2μ 以下の微小粒径中に主に含まれており¹¹⁾、この期間は北風も強かったので、比較的平均化されていたと考えられる。

BaP濃度は、都市域では冬に高く夏に低い季節変動を示すが、今回の第3次調査は11月中旬であったので、第1次(5月下旬)、第2次(9月上旬)調査時よりも高い値を示しており、湾上でも季節変動があると考えられる。

なお、今後は、採取時間を短くして時間変動を把握すること、および、浮遊粉じんの成分分析をも行なって、海塩粒子、土壌粒子、人為的な発生源からの粒子の挙動を把握する必要がある。

5. おわりに

都市域でのNO_x濃度の平均的な日変化によれば、NO_x濃度は、夜中と午前中に高くなる。これは、発生源の排出量の日変化と大気安定度の日変化が重なった結果である。排出量の日変化は日によってほとんど変化しないので、NO_x濃度の日変化は気象条件によって大きく変動を受けることになる。

今回の海上調査の期間は11月中旬であったので、海風は出現せず、北寄りの風が吹き続いた。それ故、都市及び工業地帯の汚染物質の陸上から海上への輸送過程についての実態を次のように把握することができた。

- (1) 11月11日の午後に海上で測定されたNO_x、CH₄、NMHC濃度の高い汚染気塊は、主に京浜工業地帯

で形成されて、約 $3\text{m}/\text{s}$ の速さで相模湾上へ輸送されたものである。

- (2) この汚染気塊中には、自動車から排出される炭化水素だけでなく、工業地帯に存在する石油化学や石油精製のプラントから排出される低沸点炭化水素も存在していた。
- (3) 11日の午後にもし日射が強く海風が吹いたならば、この汚染気塊中で光化学O₃が生成されて沿岸地域へ輸送されたと考えられる。それ故、工業地帯の石油化学や石油精製のプラントから排出される炭化水素も、自動車排出ガスと同様光化学大気汚染の前駆物質とみられるので、その排出量及び成分、また、光化学O₃生成能力を今後把握する必要がある。なお、芳香族炭化水素の挙動についても把握する必要がある。
- (4) 10日及び11日の夜中にも、湾上では、都市及び工業地帯で形成された汚染気塊が湾上へ輸送された。しかし、14日の夜間から15日の早朝にかけて、都市及び京浜工業地帯では汚染気塊が形成されたにもかかわらず、この汚染気塊は湾上へ輸送されなかった。この違いは、下層大気立体構造が質的に異なっていたためである。即ち前者の場合は、夜中過ぎに強い北寄りの風が接地逆転層を破壊したので都市域の濃度は低くなり汚染気塊が風下側の湾上へ輸送された。しかし後者の場合は、上層に大規模な南寄りの暖気流が存在したので、接地逆転層は破壊されず安定なまま長時間持続した。それ故、都市及び工業地帯及びその周辺に滞留したままで、湾上へは輸送されなかった。

このように、陸上での夜間の1次汚染物質による広域にわたる高濃度現象とその汚染気塊の輸送過程は、大気境界層下部の大気立体構造に強く依存していることがわかった。しかし、これらの調査研究はまだ始まったばかりであり、今後は、汚染物質と気象要素の陸上と海上とにおける日変化を立体的に把握して、汚染物質の輸送と変質過程の全体像を明らかにしていきたい。

謝 辞

この海上調査は、東大海洋研究所の研究船「淡青丸」のKT-78-17次研究航海として実施したものであり、同船の五十嵐船長以下関係者の方々に深く感謝致します。

また、浮遊粉じんを採取して下さっ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環境衛生部の、関係者の方々の御協力に深く感謝します。

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。

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) 鶴田治雄、前田裕行、太田正雄：相模湾・伊豆諸島海域上における大気汚染物質の輸送およびバックグラウンド濃度に関する調査（第2次）、横浜市公害研究所報第3号, 35-52 (1979).
- (4) 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、横浜市公害研究所報第2号, 86-88 (1978).

(5) 日本化学会編：化学便覧基礎編Ⅱ, 丸善, 1604-1605 (1975).

(6) 植田・光本：発表予定

(7) 増田恵子、中野欣嗣：大気中メタン濃度の挙動について、東京都公害研究所報, 7, 54-59 (1977).

(8) Calvert, J.G. : Hydrocarbon involvement in photochemical smog formation in Los Angeles atmosphere, Environ. Sci. Technol., 10, 256-262 (1976).

(9) 前田裕行、沖津正樹、鶴田治雄、安藤保、松田啓吾：製油所周辺の炭化水素(1)、横浜市公害研究所報第2号, 71-86 (1978).

(10) 神奈川県臨海地区大気汚染調査協議会：環境大気中における炭化水素の発生源別の汚染特性、神奈川県臨海地区大気汚染調査報告書（昭和52年度）, 98-117 (1978).

(11) Miguel, A.H. and S.K. Friedlander : Distribution of benzo[a]pyrene and coronene with respect to particle size in Pasadena aerosols in the submicron range, Atmos. Environ., 12, 2407-2413 (1978).

高架道路及び道路橋から発生する 低周波空気振動について

鹿島教昭^{*}, 中村俊亮^{*}, 樋高雄治^{**}

要旨

道路橋梁から発生する低周波空気振動が一部地域で社会問題となっているが、これらの橋は主に山間部に架けられた支間の長い長大橋であり、その発生機構は各種調査で明らかにされつつある。しかし長大橋に限らず橋梁は車両通過時に低周波空気振動を原的に発生すると考え、支間が短い2カ所の高架道路(支間長17,25m)と2カ所の道路橋(同28,52m)で低周波空気振動を調査した。その結果次のことが判明した。

4橋梁すべてが低周波空気振動を発生していた。その1/3オクターブ卓越周波数は各橋梁で異なるが、3.15~12.5 Hzの極めて低い範囲にあり、卓越周波数の最大レベルは90 dB(2カ所)、100 dB(2カ所)であった。また床版振動加速度と低周波空気振動の両卓越周波数は各橋梁で殆んど等しいが、卓越周波数の振動加速度レベルは過去に調査された長大橋のレベルより総じて低かった。即ち各橋梁における最大レベルは57, 69, 64, 72 dBであった。しかし4橋梁の床版振動加速度と低周波空気振動をFFT分析し、両者の卓越周波数におけるコヒーレンスを求めると0.7以上であり両者の相関は強い。従って短支間長の橋梁から発生する低周波空気振動の原因は橋梁振動であることが明らかになった。また振動エネルギーから音響エネルギーへの変換効率はい概ね3.15 Hz以下で高く、それ以上では低いと考えられたがその変換機構は複雑であると思われる。

1. はじめに

昭和50年頃、中央自動車道が通る長野県阿智川橋や山梨県葛野川橋付近において、民家の雨戸や窓がビリビリ振動する事態が生じ大きな社会問題となった。そこで各種機関が調査したところ、その原因は橋梁から発生する低周波空気振動ではないかと指摘された¹⁾²⁾³⁾。その後特に日本道路公団が精力的に供用または未供用の橋梁を利用し、低周波空気振動を調査した結果その実態及び発生機構が徐々に解明されてきた⁴⁾。

従来低周波空気振動を発生しやすい橋は支間の長い長大橋であると云われている。事実、公害問題を起している橋は山間部に架かる長大橋であり、阿智川橋の支間長には60m以上のものがある。そして低周波空気振動調査も長大橋を対象としたものが多い。しかし

橋梁振動が原因で低周波空気振動が発生するならば、長大橋に限らず都市内に存在する短支間の橋梁からも発生すると考えられる。そこでこれらの橋梁を対象に低周波空気振動の実態及び橋梁振動との関係を明らかにする目的で本調査を実施した。

なお我国では、音圧の一部である低周波空気振動の周波数範囲が限定されておらず、63 Hz以下、125 Hz以下等と個々の研究者が定義している。本報告ではその範囲を63 Hz以下とするが、煩雑さを避けるため“音圧”は使用せずすべて“低周波空気振動”で統一し表現する。

2. 調査対象橋梁

調査対象は、自動車専用道路の高架道路2カ所と一

Infrasound Induced from Elevated Highways and Highway Bridges

Noriaki Kashima^{*}, Toshiaki Nakamura^{*}, Yuji Hidaka^{**}

^{*}横浜市公害研究所騒音振動部門

^{**}現在横浜市都市整備局事業指導部開発課

表-1 調査対象道路橋梁

橋梁名	道路名	構造	支間長 m	所在地
新石川高架橋	東名高速	コンクリート中空床版	17	横浜市緑区
川向高架橋	第3京浜	合成桁	25	同 港北区
新川向橋	横浜上麻生線	合成桁	52	同 港北区
多摩川大橋	国道1号線	合成桁	28	川崎市幸区

般道路の道路橋2カ所である。なお以下では高架道路も道路橋も橋梁として表現する。表-1に調査橋梁の一覧を示す。高架道路は東名高速道路の新石川高架橋と県道東京野川横浜線(第3京浜)の川向高架橋であり、道路橋は主要地方道横浜上麻生線の新川向橋と国道1号線の多摩川大橋である。

3. 調査方法

調査は、橋梁上を車両が連続走行する間に、インパルス精密騒音計で低周波空気振動を測定し、同時に振動ピックアップを床版裏面に接着して振動計で床版振動加速度を、また公害用振動ピックアップを接地して公害用振動レベル計で地盤振動加速度を測定し、各々1台のデータレコーダに収録して実施した。

3-1 測定系列と測定機器

調査に使用した測定系列を図-1に示す。また測定機器は次の通りである。

インパルス精密騒音計	ブリュエル・ケアー 2209	3
振動ピックアップ	リオン PV-95	3
同上用プリアンプ	リオン VP-26A	3
振動計	リオン VM-20A	3
公害用振動ピックアップ	リオン PV-83A	3
3ch公害用振動レベル計	リオン VM-16	1

レベルレコーダ	リオン	LR-04	2
		LR-03	2
1/3オクターブ実時間分析器	リオン	SA-23	1
データレコーダ	ソニー	UN61430W	1
デジタル信号分析器(FFT)	YHP	5420A	1
XYプロッタ	YHP	9872A	1

3-2 測定位置

図-2~図-5に4橋梁周辺の状況と各測定位置を示す。新石川高架橋(図-2)の一部には幅員約4mの道路を隔てて民家が密集しているが、他の橋梁(図-3~5)周辺は開放(更地)である。なお新川向橋だけに約6%の縦断勾配がある。

低周波空気振動の測定位置は地上1.2mで、原則として橋軸方向の支間中央($l/2$ 点、但し支間長= l)直下であるが、不可能な場合は $l/4$ 点(または $3l/4$ 点)直下である。また低周波空気振動の距離減衰を知るために橋梁より適当に離れた場所に測定位置を設けた。

床版振動加速度の測定位置は床版裏面で、原則として低周波空気振動測定位置の直上である。

地盤振動加速度の測定位置は橋脚付近の地上である。

4. 調査結果と考察

測定時、大型車両等がマイクロホンや振動ピックアップの設置位置を通過する際に、低周波空気振動や振

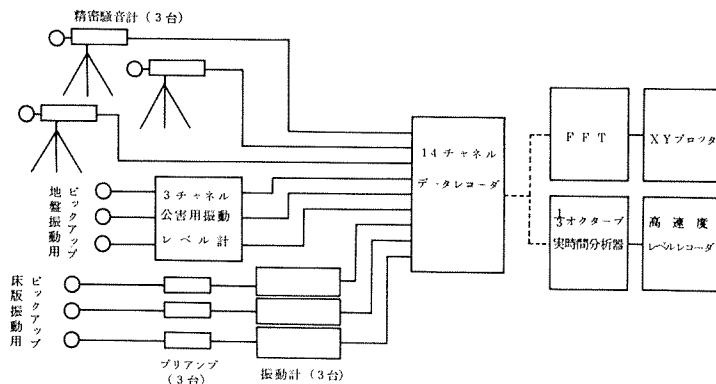
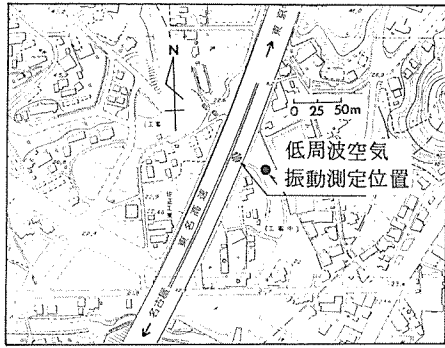
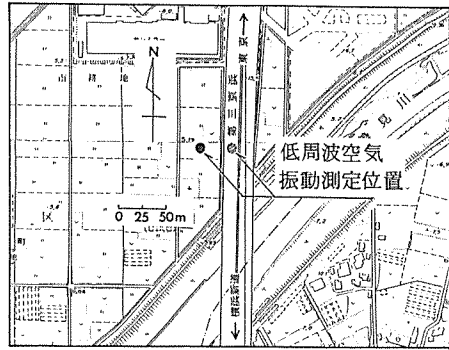


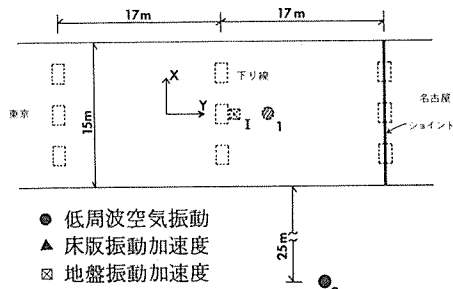
図-1 低周波空気振動調査測定系列



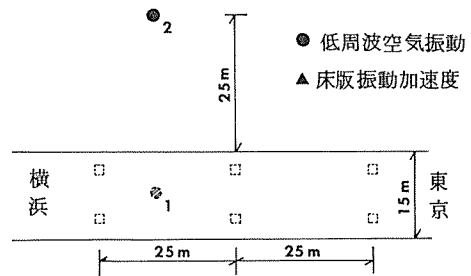
周辺状況



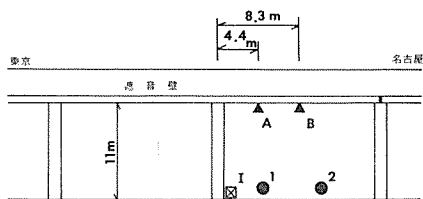
周辺状況



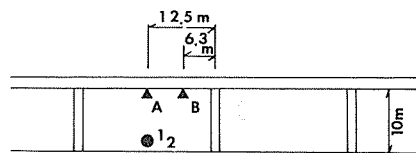
測定位置平面図



測定位置平面図



測定位置立面図

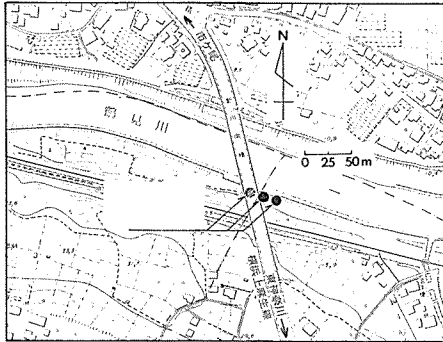


測定位置立面図

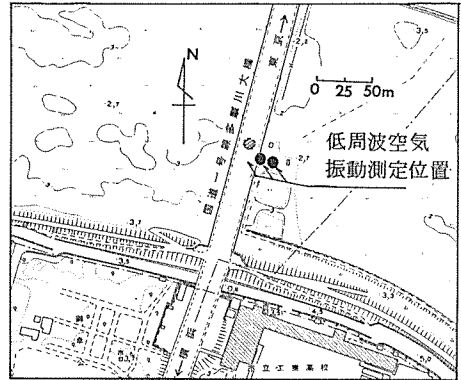
図-2 新石川高架橋の周辺状況と測定位置

図-3 川向高架橋の周辺状況と測定位置

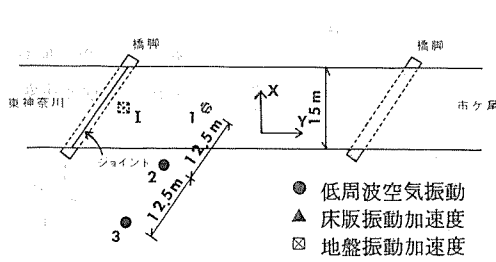
注) 平面図のX, Yは地盤振動の水平方向で垂直はZ。



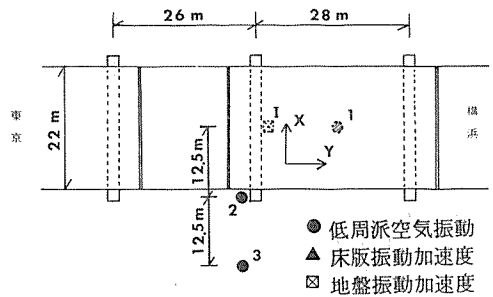
周辺状況



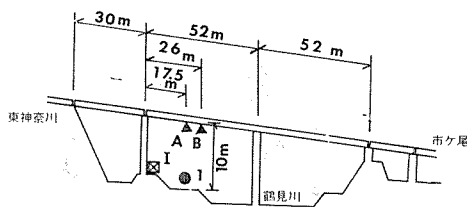
周辺状況



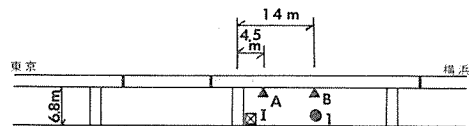
測定位置平面図



測定位置平面図



測定位置立面図



測定位置立面図

図-4 新川向橋の周辺状況と測定位置

注) 平面図のX, Yは地盤振動の水平方向で垂直はZ。

図-5 多摩川大橋の周辺状況と測定位置

注) 平面図のX, Yは地盤振動の水平方向で垂直はZ。

動加速度のオールパスレベル（以下APレベルとする）は、モニター記録紙上に明白なピークレベルとして出現する。従って収録したデータを研究室で再生しながら、このピークを各橋梁ごとに適宜1から10まで10個選んで、1/3オクターブ実時間分析器（時定数fast）で瞬時に周波数分析し、低周波空気振動と振動加速度のスペクトルを求めた。また低周波空気振動と床版振動加速度の相関についてはFFT分析の手法を用いた。なお以下では各調査橋梁における測定位置1の低周波空気振動、同Aの床版振動加速度、同Iの地盤振動加速度について検討し考察する。

4-1 1/3オクターブ分析

4-1-1 低周波空気振動

図-6～図-9に4橋梁直下の低周波空気振動スペクトルを示す。これらの図から各橋梁ごとにスペクトルパターンは異なるが、橋梁特有のパターンが存在す

ると判断できる。低周波空気振動の卓越周波数レベルは新石川高架橋では4～6.3Hzに76～90dB、川向高架橋では5Hzに86～100dB、新川向橋では3.15～4Hzに67～90dB、多摩川大橋では10～12.5Hzに91～100dBの範囲で出現している。単純な比較は難しいが、西脇等²⁾が低周波公害差止め訴訟中の奈良県香芝地区の西名阪自動車道路直下で得た卓越周波数5Hz、9.15dBと比べると、4橋梁共最大レベルは同程度かそれ以上である。また他の報告³⁾によると障子や木製サッシ、雨戸等の2次音（ガタツキ）は75dB程度から始まるとされているから、民家が接近している新石川高架橋では同様の問題が十分発生するレベルにあると云える。

4-1-2 床版振動加速度

橋梁床版の振動には、車両が床版のジョイント部を通過する際に床版端部を叩く衝撃的な振動と、車両が

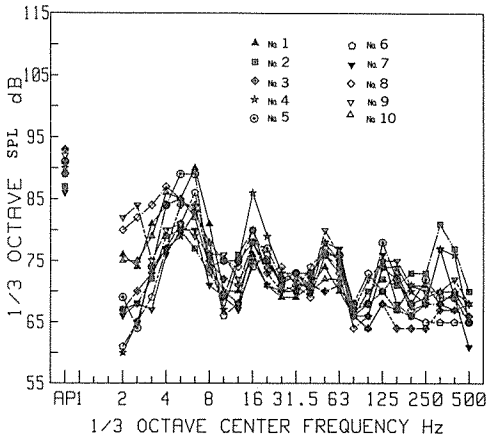


図-6 低周波空気振動のスペクトル
新石川高架橋 測定位置1

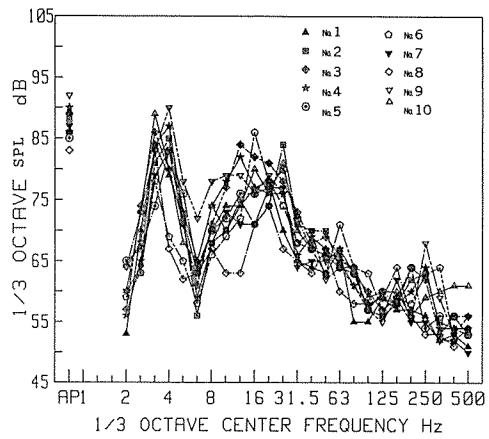


図-8 低周波空気振動のスペクトル
新川向橋 測定位置1

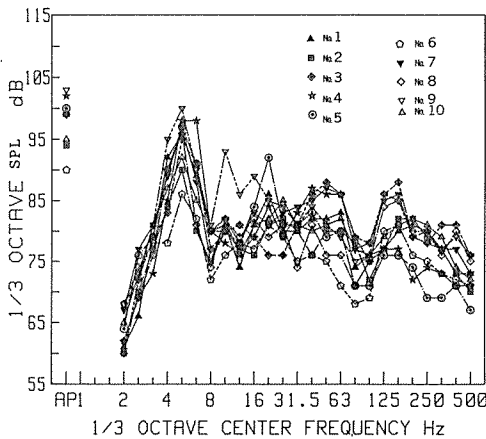


図-7 低周波空気振動のスペクトル
川向高架橋 測定位置1

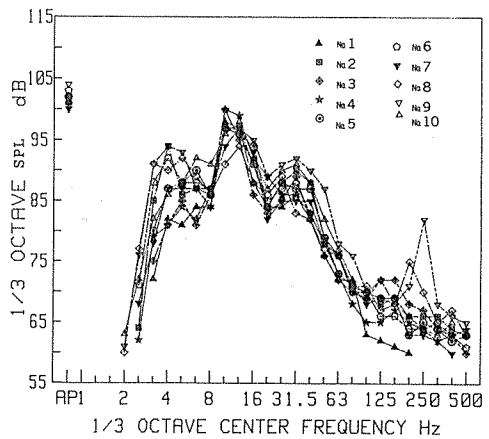


図-9 低周波空気振動のスペクトル
多摩川大橋 測定位置1

床版上を移動する際に生じる床版の撓み振動の2種類が主にある⁷⁾。今回の測定データは多数車両が橋梁上を連続走行している場合のものであるため、撓み振動と衝撃振動は分離されずに一つの振動データとして得られている。従って周波数分析結果には両者の振動が含まれていると考えられる。

図-10~図-13に4橋梁の床版裏面で測定した床版振動加速度のスペクトルを示す。図中の番号は先の低周波空気振動スペクトルの図に示した同一番号と時刻的に一致する。各橋梁における床版振動加速度のAPレベルは50 Hz以上のレベルで殆んど決定されており、低周波領域のレベルはAPレベルに余り寄与しない。しかし各スペクトルの低周波領域において、多摩川大橋(図-13)ではやや不明瞭であるものの、他の例(図-10~12)では低周波空気振動と同一の卓越周波数

が存在する。そして床版振動加速度の場合もそのスペクトルパターンは各橋梁特有なものである。

各橋梁において、低周波空気振動の卓越周波数と同一周波数における床版振動加速度の最大レベルは、新石川高架橋では(この橋梁だけは低周波空気振動の卓越周波数は6.3 Hzであるが)4 Hzの57 dB、川向高架橋では5 Hzの69 dB、新川向橋では3.15 Hzの64 dB、多摩川大橋では1.25 Hzの72 dBである。新石川高架橋が最小レベルであるのは、唯一のコンクリート中空床版であり振動に対して大きな剛性を持つためである。

道路公団が阿智川橋で実施した調査例⁷⁾をみると、床版振動加速度の卓越周波数レベルは80 dB(10 Hz)以上、なかには90 dB(10 Hz)を超えており、それらの値と比較すると今回の調査結果はかなり低レベルであると云える。これは阿智川橋が支間長50~60 mの鋼

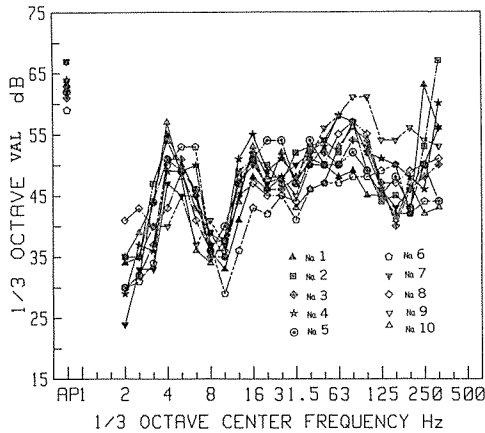


図-10 床版振動加速度スペクトル
新石川高架橋 測定位置 A

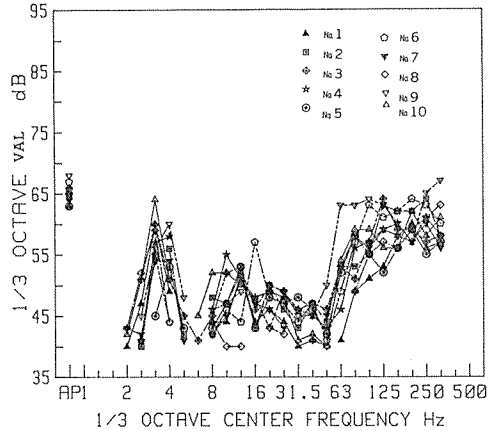


図-12 床版振動加速度のスペクトル
新川向橋 測定位置 A

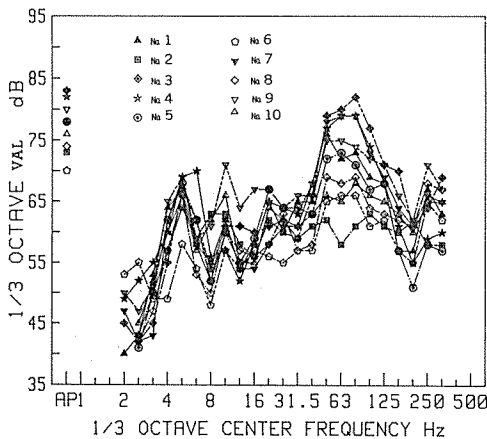


図-11 床版振動加速度のスペクトル
川向高架橋 測定位置 A

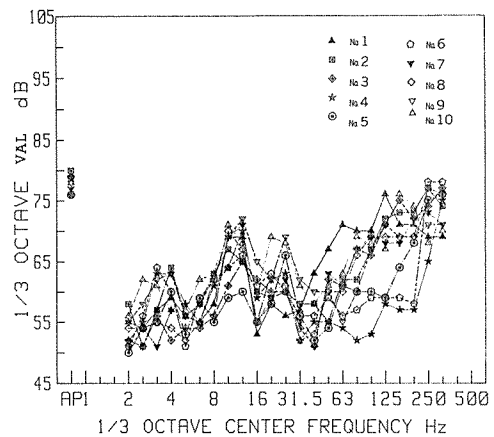


図-13 床版振動加速度のスペクトル
多摩川大橋 測定位置 A

トラス橋で振動しやすいのに対して、今回の調査対象は合成桁橋で振動しにくいためである。

4-1-3 低周波空気振動と床版振動加速度の関係

(1) 周波数分析

既に記述したように低周波空気振動と床版振動加速度のスペクトルには、低周波領域で橋梁ごとに同一卓越周波数が認められる。また他の調査^{8), 9)}でもこの事実は報告されている。そこで先に各橋梁ごとに求めた低周波空気振動のスペクトル10コと床版振動加速度スペクトル10コを各々橋梁ごとにパワー平均し、両者のスペクトルを対比して示したものが図-14～図-17である。各図共に概ね3.15 Hz以下の領域で両者のスペクトルパターンに強い相似性がある。このことから橋梁から発生する低周波空気振動の原因は、橋梁床版が振動することによりそれが線(面)音源と

なり音響エネルギーを放射するためであると考えられる。そして特に3.15 Hz以下の低周波領域における振動エネルギーは、前述のごとく他の調査結果に比べ低いレベルであるが、効率よく音響エネルギーに変換され、高レベルの低周波空気振動となって出現していると考えられる。

また3.15 Hz以下で橋梁ごとに特有のスペクトルパターンを示す原因は、主として支間長等橋梁構造の差異によると考えられるが、他にも車両のばねの振動特性や車両重量等により床版振動の周波数特性が変化するためであることも考えられる。

なお、新石川高架橋におけるスペクトル(前出、図-14)だけは低周波空気振動と床版振動加速度の卓越周波数がずれている。このことについては次の(2)に記述する。

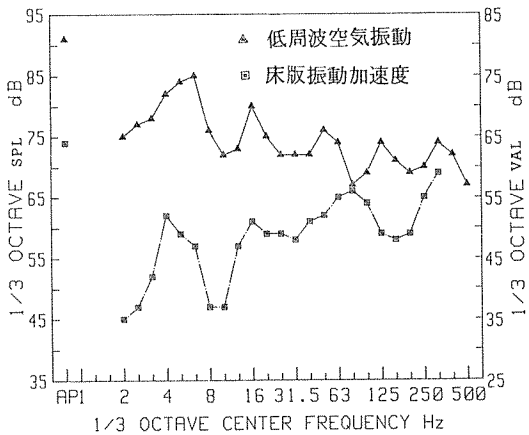


図-14 低周波空気振動と床版振動加速度の平均スペクトル(10コのパワー平均) 新石川高架橋

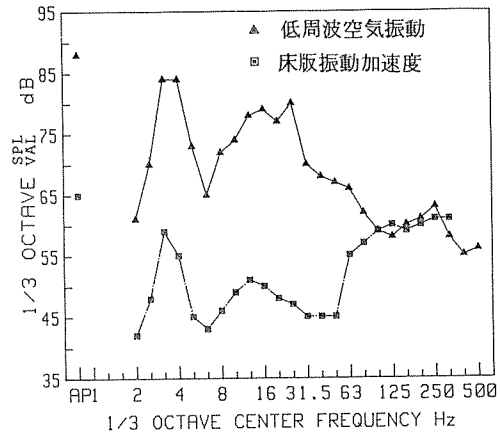


図-16 低周波空気振動と床版振動加速度の平均スペクトル(10コのパワー平均) 新川向橋

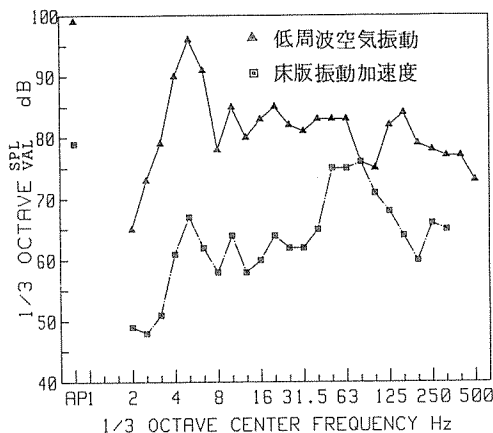


図-15 低周波空気振動と床版振動加速度の平均スペクトル(10コのパワー平均) 川向高架橋

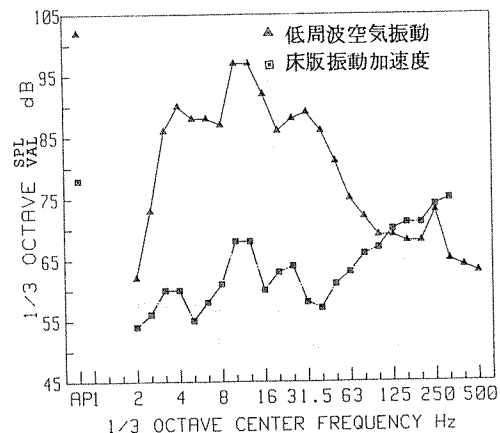


図-17 低周波空気振動と床版振動加速度の平均スペクトル(10コのパワー平均) 多摩川大橋

(2) 時間記録

図-18に1例として、新石川高架橋における低周波空気振動と、床版振動加速度の時間記録を示す。分析の中心周波数は4、5及び6.3 Hzである。図中に丸印で示した同一時刻に数台の車両が通過しており、通過に従い床版振動加速度と低周波空気振動のレベルはピークとして出現している。この時に、床版振動加速度の4 Hz・55 dB、5 Hz・56 dB及び6.3 Hz・53 dBは、各々低周波空気振動の83、88及び89 dBに相当する。単純に低周波空気振動と床版振動加速度のデシベル値の差をとると、4 Hzが28 dB、5 Hzが32 dB、6.3 Hzが36 dBであるから、振動エネルギーが音響エネルギーに変換する効率 η は6.3、5、4 Hzの順に高いと云える。この新石川高架橋の場合、低周波空気振動のAPレベルが90 dB程度に急激に上昇する時は先の変換効率の順になることが多い。従ってこの上昇したピークを分析した結果として6.3 Hzの低周波空気振動が卓越し、先の図-14にみられるように低周波空気振動と床版振動加速度の卓越周波数にずれが生じたと云える。

4-1-4 地盤振動加速度

川向高架橋では公害用振動レベル計の不調により測定はできなかった。

個々の測定結果であるAPレベルは、各橋梁共Z（垂直）方向がY（水平橋軸）方向より多少高く、X（水平橋軸に直角）方向が最低を示す。通過車両による起振力は主にZとY方向に作用するから上記のことは当然の結果である。スペクトルは橋梁ごとに特有なパターンを示すが、これは橋梁ごとに床版、橋脚及び地盤の振動伝達特性が異なるためと考えられる。しかし個々の橋梁においては、X、Y、Z方向のスペクトルパターンは三者共ほぼ同一である。そこで橋梁ごとにX、Y、Z方向のスペクトル各10コをパワー平均して図-19～図-21に示す。新石川高架橋では各方向共右りのパターン(図-19)であり、新川向橋では3山型(図-20)である。また多摩川大橋では概ね1山型(図-21)である。これらのスペクトルと先の低周波空気振動のスペクトルを比較すると、地盤振動加速度と低周波空気振動は無関係であると云える。

4-2 FFT分析による低周波空気振動と床版振動加速度の相関

低周波空気振動と床版振動加速度との相関を知る目的で、両者の平均スペクトル及び両者間のコヒーレンス関数を求めた。分析条件は次の通りである。

平均化回数	300
中心周波数	0 Hz

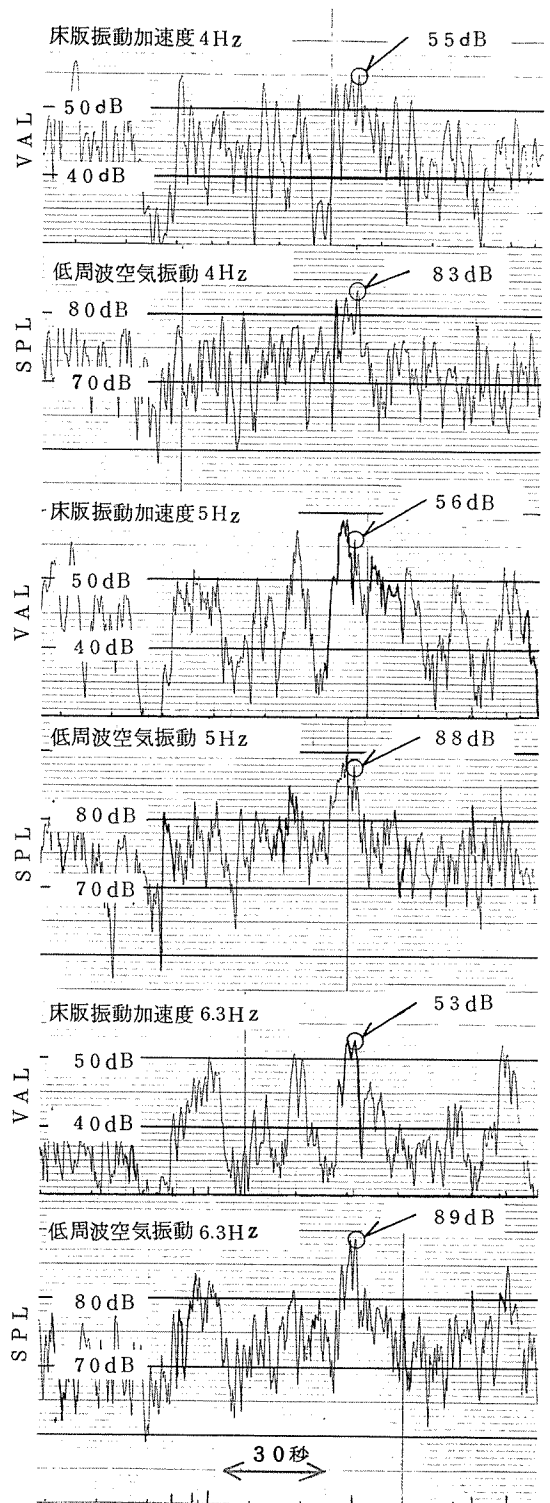
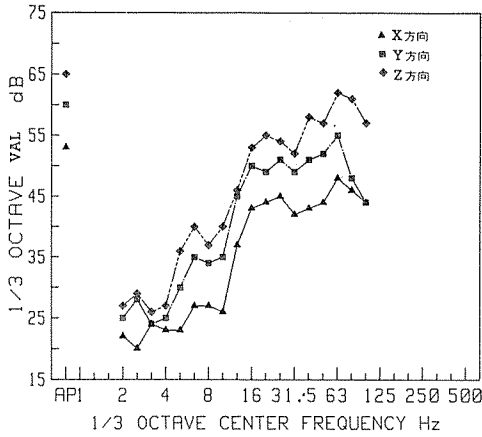
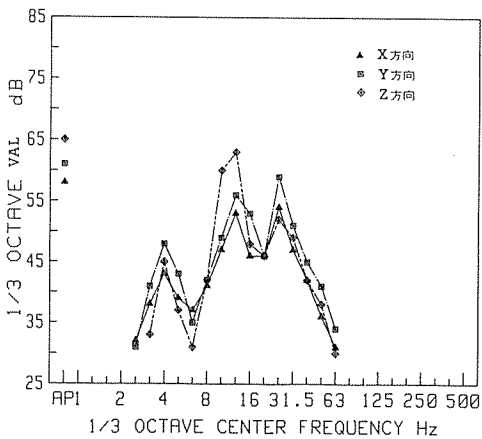


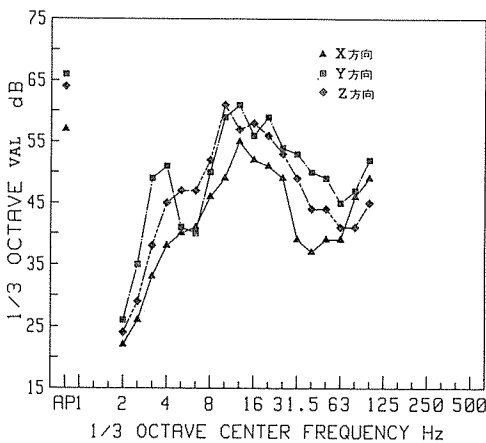
図-18 床版振動加速度レベルと低周波空気振動レベルの時間記録
(新石川高架橋)



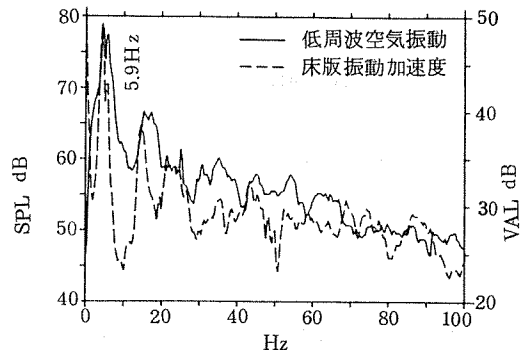
図一 19 地盤振動加速度の平均スペクトル (10コの
パワー平均) 新石川高架橋 測定位置 I



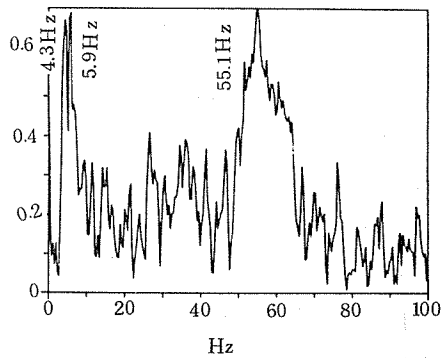
図一 20 地盤振動加速度の平均スペクトル (10コの
パワー平均) 新石川高架橋 測定位置 I



図一 21 地盤振動加速度の平均スペクトル (10コの
パワー平均) 多摩川大橋 測定位置 I



図一 2 2 低周波空気振動と床版振動加速度の
平均スペクトル 新石川高架橋



図一 2 3 低周波空気振動と床版振動加速度の
コヒーレンス関数 新石川高架橋

バンド幅	100	Hz
サンプリング間隔	2.5	ms
周波数分解能	3.90625	m Hz

各橋梁における分析結果を図一 22~図一 29 に示す。

4-2-1 新石川高架橋

平均化されたスペクトル (図一 22) における低周波空気振動の卓越周波数は 4.3 Hz と 5.9 Hz である。床版振動加速度の卓越周波数は主として 4.3 Hz であるが、5.9 Hz にも認められる。そして低周波空気振動と床版振動加速度のコヒーレンスは 4.3 Hz で 0.69、5.9 Hz で 0.79 (図一 23) と高い。従って床版が主に 4.3 Hz で、また 5.9 Hz でも振動し、それが原因で両周波数の低周波空気振動が発生していることは明らかである。しかしまた、床版は 14.5 Hz で振動していることがスペクトルから判るが、同周波数におけるコヒーレンスは 0.27 と低い。即ち 14.5 Hz の低周波空気振動の発生に関して、同周波数の床版振動の影響は小さいと云え

る。なお5.5 Hz付近のコヒーレンスが高いが、低周波空気振動と床版振動加速度両者のレベルが低くスペクトルでは卓越していない。

4-2-2 川向高架橋

スペクトル(図-24)に明白なように床版は基本周波数4.7 Hzで振動しており、なお2次(9.4 Hz)と3次の高調波で振動している。そして低周波空気振動は基本周波数と2次周波数に明瞭なピークとして出現している。両周波数におけるコヒーレンスは前者で0.81、後者で0.84(図-25)と高く、床版振動加速度と低周波空気振動の相関は強い。なお5.1 Hzの床版振動加速度レベルは5.4 dB程度で2次周波数のレベルに近いが、2次とは異なり低周波空気振動は高レベルのピークとして出現していない。

4-2-3 新川向橋

この場合も図-26で明らかなように床版が3.1 Hzで振動し、同一周波数の低周波空気振動が卓越している。そして3.1 Hzにおけるコヒーレンスは0.98(図-27)と非常に高く、床版振動が低周波空気振動の原因であることが判る。

4-2-4 多摩川大橋

スペクトル(図-28)から、床版が主として3.5 Hzと11.3 Hzで振動しており、その2つの周波数に低周波空気振動のピークが認められる。そして3.5 Hzのコヒーレンスは0.70と高いが11.3 Hzのコヒーレンスは0.1程度で非常に低い(図-29)。また低周波空気振動のスペクトルにみられる他のピークは4.7, 6.3, 14.5 Hzであるが、6.3 Hzのコヒーレンスが0.64でやや高いが、他は0.4以下で低い。

以上のことから推定すると、多摩川大橋は平均する

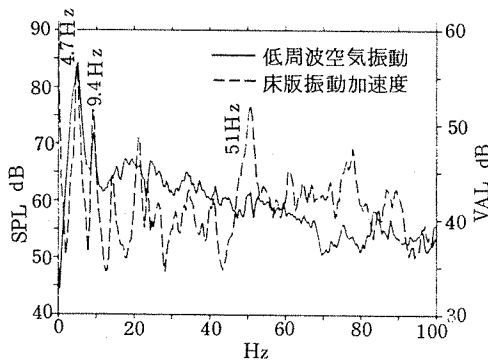


図-24 低周波空気振動と床版振動加速度の平均スペクトル 川向高架橋

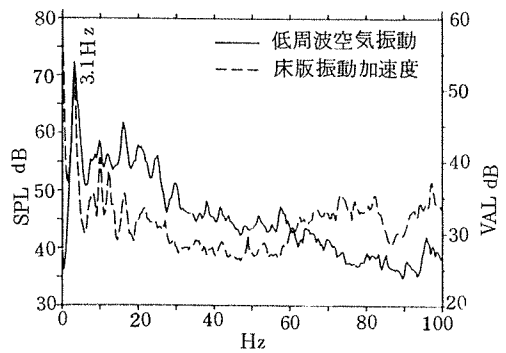


図-26 低周波空気振動と床版振動加速度の平均スペクトル 新川向橋

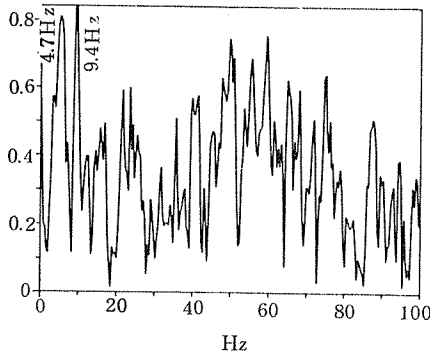


図-25 低周波空気振動と床版振動加速度のコヒーレンス関数 川向高架橋

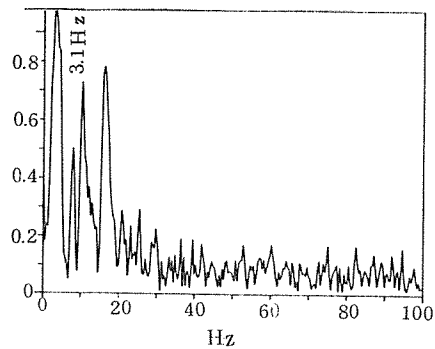


図-27 低周波空気振動と床版振動加速度のコヒーレンス関数 新川向橋

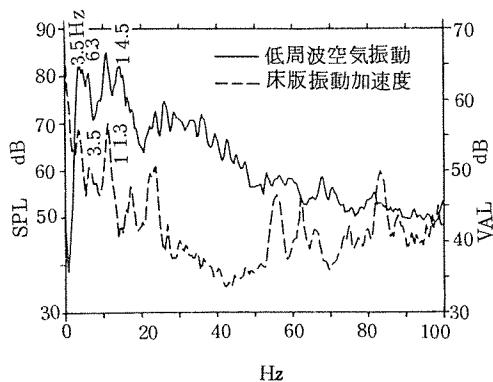


図-28 低周波空気振動と床版振動加速度の平均スペクトル 多摩川大橋

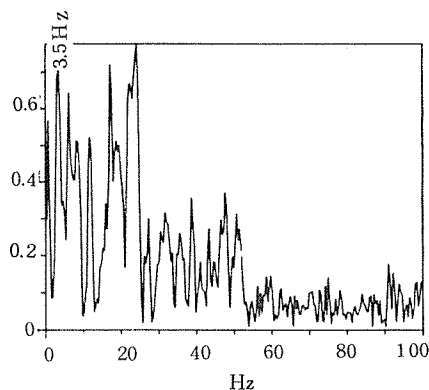


図-29 低周波空気振動と床版振動加速度のコヒーレンス関数 多摩川大橋

と 3.5 Hz と 11.3 Hz で振動しているが、瞬間的には非常に複雑な周波数で振動していると考えられる。またある周波数でコヒーレンスが低いにも関わらず、低周波空気振動が発生している原因としては、床版から発生した低周波空気振動が、マイクロホンに到達するまでに地形による反射等の影響を受け、その周波数が変化(ゆらぎ)することも考えられる。

5. まとめ

車両が連続走行している高架道路 2カ所と道路橋 2カ所を対象に低周波空気振動、床版振動加速度及び地盤振動加速度を調査した。結果を要約すると次の通りである。

(1) 短支間長の 3 橋梁を含む 4 橋梁すべてで低周波空気振動が発生していることが認められた。このことから類似の一般の高架道路と道路橋においても、車両通

過時に低周波空気振動を発生するものと考えられる。

(2) 低周波空気振動の卓越周波数とそのレベルは、新石川高架橋(支間長 17 m)で 4 ~ 6.3 Hz・76 ~ 90 dB、川向高架橋(同 25 m)で 5 Hz・86 ~ 100 dB、新川向橋(同 52 m)で 3.15 ~ 4 Hz・67 ~ 90 dB、多摩川大橋(同 28 m)で 10 ~ 12.5 Hz・91 ~ 100 dB である。各橋梁における最大レベルは長大橋の調査結果に相当する値である。

(3) 床版振動加速度の周波数とレベルは、新石川高架橋で 4 Hz・40 ~ 57 dB、川向高架橋で 5 Hz・58 ~ 69 dB、新川向橋で 3.15 Hz・45 ~ 64 dB、多摩川大橋で 10 ~ 12.5 Hz・59 ~ 72 dB であり、レベルは公害発生地域の値に比べ総じて低い。

(4) 1/3 オクターブ分析結果では、3.15 Hz 以下の低周波数空気振動と床版振動加速度のスペクトル間に強い相似性が認められる。

(5) FFT 分析結果から、卓越周波数における、低周波空気振動と床版振動加速度のコヒーレンスは 0.7 以上であり、低周波空気振動の発生原因は橋梁の振動である。

(6) 3.15 Hz 以下の領域では、床版の振動エネルギーが効率よく音響エネルギーに変換されるが、3.15 Hz 以上では変換効率が低下する傾向がある。

6. おわりに

今回調査した高架道路橋は、普通、低周波空気振動を発生しやすいと云われる山間部に架けるような長大橋ではなく、どこにでもある橋梁であるが低周波空気振動を発生していた。このように橋梁は車両通過時に普遍的に低周波空気振動を発生するのであれば、住宅地を通過する高架道路計画は問題を生ずる可能性がある。しかし今回調査した 1 つの橋梁付近には民家が集中していたが公害問題は生じていないようであり、低周波空気振動が人間も含めた環境へ与える複雑さが窺える。従って住宅地を通過する供用中の橋梁で低周波空気振動を調査し、その波及範囲と公害(被害)の有無等との関係を明確にする必要があると思われる。なお本調査では低周波空気振動の距離減衰に関して一様な距離減衰が得られなかった。上記波及範囲も含め今後の課題としたい。

最後に調査に御協力頂いた日本道路公団東京第一管理局の方々に深く感謝の意を表します。

文献

1) 西脇仁一、森卓支：中央高速道路葛野川橋の超低

- 周波現象，日本音響学会講演論文集，309-310
(May. 1976) .
- 2) 清水進，田矢晃一，時田保夫：道路より発生する
低周波音，日本騒音制御工学会技術発表会講演論
文集，109-112 (1976) .
 - 3) 山田伸志，古谷毅，柳沢信次：高速道路橋下の超
低周波音発生メカニズム (第4報) ，日本音響
学会講演論文集，635-636 (May. 1978) .
 - 4) 例えば，小川清，小野正二：橋梁振動に伴う低周
波空気振動に関する試験研究の概要，日本道路公
団技術情報，(39) ，49-64 (1977) .
 - 5) 西脇仁一，森卓支，藤尾昇：高速道路 (香芝地区)
での低周波騒音とその対策のモデルテスト，日本
騒音制御工学会技術発表会講演論文集，237-240
(1979) .
 - 6) 小林理学研究所：環境庁委託業務結果報告書，昭
和53年3月.
 - 7) 山根徹，遠藤武平：橋梁による低周波空気振動の
測定結果について，日本道路公団技術情報，(39) ，
65-79 (1977) .
 - 8) 足立義雄：低周波空気振動の知見，土木技術資料，
22 (1) ，26-31 (1980) .
 - 9) 小林理学研究所：低周波空気振動等実態調査報告
書，9-42，昭和52年3月.

コイ (*Cyprinus Carpio*) の幼魚における血液性状の研究 (第2報)

— 血漿蛋白量とセルローズアセテート電気泳動法による血漿蛋白分画の基礎的研究 —

樋口 文夫*

要旨

本研究は、魚類の集団の健康状態を血液化学的観点から評価する手法を確立するために行った。

供試魚は健康なマゴイ(1才魚)を用い、尾数は91尾であった。体重は 88.1 ± 30.9 (g)、体長は 14.5 ± 3.7 (cm)、肥満度は 24.8 ± 2.2 であった。

血漿総蛋白量の定量法において屈折計法とビュレット法との関係を検討した結果、相互に有意な相関($r = 0.744$, $p < 0.01$)を示した。その回帰直線式は $y = 0.592x + 0.299$ (g/dl, y :ビュレット法による値, x :屈折計法による値)であった。

セルローズアセテート電気泳動法を用い標準的な泳動条件、緩衝液のイオン強度0.06M、通電量0.6~0.7mA/cmとして血漿蛋白分画を検討した。その結果、血漿蛋白分画はおよそ6型に分類されたが、それぞれの分画値は変動が大きかった。しかしながら基本的にはA・Bの2型が存在し、両者の分画及び分画値(%)はA型がI, II, III, IV, V, VIの6分画, 5.6.6.9, 4.7.6, 6.4.0, 1.2.2.8, 1.0.8.2の値を示し、B型ではI, II, III, IV, VIの5分画, 57.68, 5.9.1, 5.2.7, 2.1.0.1, 9.7.9の値を示した。

以上の結果、セルローズアセテート電気泳動法から得られた血漿蛋白分画像をもとに魚類の生理状態を評価する場合、A・B型のパターン別に比較診断していく必要があると考えた。

1. はじめに

前報¹⁾では、血液性状の中で、ヘモグロビン、ヘマトクリット、赤血球数等の正常値について検討した。本研究では血漿蛋白に注目して、2種類の測定法の比較検討とセルローズアセテート電気泳動法²⁾を用いて血漿蛋白分画の検討を行った。

血漿蛋白量及びその分画像は栄養失調、肝障害、感染症等^{3, 4, 5, 6)}で変化することが知られており、この種の検査の有用性が指摘されている。しかしながら魚類では生理状態を評価するための検査法として十分検討されていない。そこで筆者はコイの正常な血漿蛋白分画像を検討し、生体の病態変化をより詳細に把

握するための基礎的な研究を行なったので報告する。

2. 材料及び方法

2-1 供試魚

供試魚は健康なマゴイ(*Cyprinus carpio*)の1才魚(未成熟魚)を用いた。その尾数は91尾であった。これら供試魚の体重は 88.1 ± 30.9 (g)、体長が 14.5 ± 3.7 (cm)、肥満度は 24.8 ± 2.2 であった。飼育条件は恒温室内に設置した流水式の水槽(容量200ℓ)で行ない、給餌はコイ用の配合飼料を体重当り1~2%/日の割合で与えた。なお検査前1日は無給餌とした。水温は $19 \pm 1^\circ\text{C}$ 、室温は $22.3 \pm 0.5^\circ\text{C}$ であった。

Studies of the hematological characteristics in the young of the carp
(*Cyprinus carpio*) (II)

— Basic studies on the quantity of plasma protein and the fraction of plasma protein by means of cellulose acetate electrophoresis —

* Fumio Higuchi 横浜市公害研究所水質部門

2-2 採血方法

採血用具はヘパリン処置したツベルクリン用注射筒（容量2 ml）、静脈針を用いた。

試料は尾部血管から採血した血液を3,000回転、30分間遠心沈澱した血漿を用いた。なお一部の魚でヘパリン処置していない採血用具を用い、同一個体の同一採血部位より血液を採血し、血清を得た。

2-3 分析方法

血漿蛋白量の定量には屈折計、エルマ蛋白屈折計を用い、ビューレット法、市販の臨床検査用キット（和光純薬工業製）を用いてそれぞれ測定した。このとき540 μmの吸光度を測定して蛋白量を測定した。

電気泳動法はセルローズアセテート電気泳動装置（PAV 50、常光社製）を用いた。セルローズアセテート膜はSeparax（22×6 cm、富士フィルム社製）を、緩衝液はペロナール緩衝液を用いた。

コイにおける標準的な泳動条件を設定するために、緩衝液のpHを8.6、イオン強度（モル濃度）が0.05、0.06、0.07M、通電量が0.4、0.6、0.8 mA/cmの各3段階を設け一定の泳動距離に致る時間と分画値（濃度比、%）の差を検討した。血漿塗布量は膜幅1 cm当り0.8～1.0 μlで泳動距離は3 cmとした。なお泳動距離の決定はトルエンで抽出したヘモグロビンを目安として行なった。

染色は0.8%ボンソー 3 R、6%三塩化酢酸溶液を用いた。

定量はデンスイトロン（PAN-FV、常光社製）を用い、セルローズアセテート膜をデカリンで透明化した後500 nmの干渉フィルターを用いて行なった。

以上の測定操作は恒温室内（22.3±0.5°C）で行なった。

3. 結果及び考察

3-1 血漿総蛋白量の測定法の比較検討

総蛋白定量法には、比重法、屈折計法、ビューレット法（比色法）等が用いられている。しかしながら、魚類の血漿総蛋白量は測定法によって異なる値を示す

表-1 血漿総蛋白量

項目	屈折計法	ビューレット法
\bar{x}	3.88	2.60
u	0.49	0.40
変動係数(%)	12.7	15.4

注 \bar{x} は平均値、 u は不偏分散からの標準偏差を示し表2, 3, 4, 5も同様である。

ことが知られている。そこでここでは屈折計法とビューレット法の2つを比較検討し、両者の関係をみた。

供試尾数は42尾、その体重は131.6±61.9(g)、体長は17.3±2.9(cm)、肥満度が23.6±2.0であった。血漿総蛋白量は表1に示すごとく、屈折計が3.88(g/dl)、ビューレット法が2.60(g/dl)で屈折計が高い値を示した。

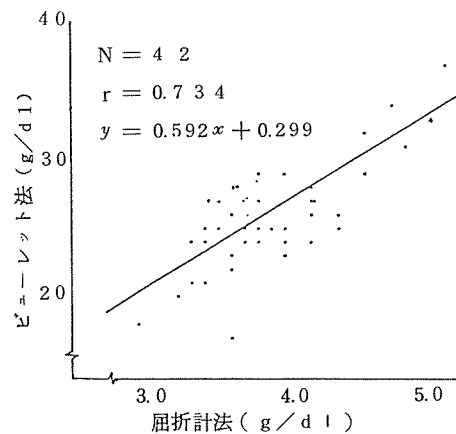


図-1 屈折計法とビューレット法との関係

また2つの方法からの値と体重、体長、肥満度との関係をみると、屈折計法ではいずれの項目とも相関がなかったが、ビューレット法は体重と有意の相関($r = 0.309$, $p < 0.05$)を示した。先の報告¹⁾では屈折計法の値と肥満度が相関々係があることを示したが、今回はそれと異なる結果となった。

次に屈折計法とビューレット法との関係をみると、図1に示した様に両者で高い有意の相関々係($r = 0.734$, $p < 0.01$)があった。その回帰直線式は、

$$y = 0.592x + 0.299$$

y : ビューレット法による血漿総蛋白量(g/dl)

x : 屈折計法による血漿総蛋白量(g/dl)

であった。池田⁷⁾はマイクロ・キエルダール法を標準法として種々の測定方法と比較検討し、魚類においてビューレット法が最適な定量法であることを示した。またビューレット法は水産学分野⁸⁾で広く用いられていることから、血漿総蛋白量はこの方法より得られた値を基準として検討していった差支えないと考える。屈折計法は操作が簡単であり多検体を処理する場合に有用な検査法である。しかしながらビューレット法に比較して測定値が高く出ることから、屈折計からの値を先の換算式をもとに補正を加えていく必要があると考える。

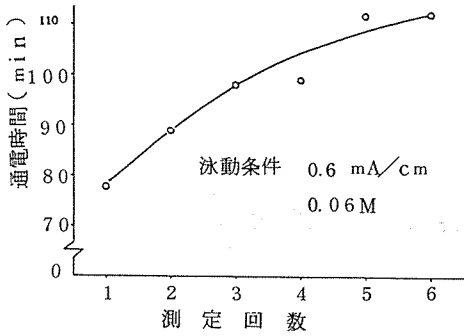


図-2 測定回数と通電時間との関係

3-2 電気泳動条件の検討

同一緩衝液のイオン強度と通電量の違いによる通電時間、血漿蛋白分画値の差を検討した。このとき同一検体を用い3回繰り返し測定した。

その結果を表2、表3に示した。これによれば緩衝液のイオン濃度が高くなれば通電時間は逆に短縮される。これはイオン強度を上げると蛋白粒子のまわりの電気二重相のために泳動速度は遅くなり、イオン強度を下げると泳動速度は大となることを示している⁹⁾。

次に同一検体の血漿蛋白分画値をイオン強度と通電量の要因間で比較検討した。このときの蛋白分画は陽極よりI, III, IV, V, VIの5分画に分離したものであった。これら各分画値について2元配置法(繰り返しのある

表-2 緩衝液のモル濃度、通電量別の通電時間 (min)

M mA/cm	0.05		0.06		0.07	
	\bar{x}	<i>u</i>	\bar{x}	<i>u</i>	\bar{x}	<i>u</i>
0.4	107.7	12.7	115.3	6.5	132.0	11.0
0.6	84.3	5.5	99.7	8.5	107.7	16.2
0.8	68.0	2.6	82.7	7.5	95.7	11.9

表-3 モル濃度、通電量別の血漿蛋白分画値 (%)

M mA/cm		0.05					0.06					0.07				
		I	III	IV	V	VI	I	III	IV	V	VI	I	III	IV	V	VI
0.4	\bar{x}	65.13	6.81	11.27	8.96	7.79	64.76	7.84	10.73	8.56	8.09	65.12	6.33	11.22	8.50	8.80
	<i>u</i>	0.80	1.23	0.75	0.41	1.38	1.57	1.00	0.42	0.26	1.74	4.04	0.43	1.81	1.02	1.79
0.6	\bar{x}	64.50	8.23	10.12	8.33	8.75	65.41	6.66	11.02	9.41	7.31	64.14	7.39	11.51	9.43	7.50
	<i>u</i>	2.55	0.96	1.00	0.53	0.18	1.80	1.95	1.07	1.23	1.58	1.99	4.45	1.49	1.47	2.62
0.8	\bar{x}	64.97	7.78	10.12	9.30	7.77	63.01	7.71	11.09	9.54	8.62	64.45	6.31	11.59	9.01	8.61
	<i>u</i>	0.74	0.56	0.23	0.36	1.12	2.25	0.87	0.92	0.74	0.53	0.76	2.80	0.92	0.61	2.56

注 I, III, IV, V, VIは分画の名称を示す。

乱塊法)¹⁰⁾による統計学的解析を行なった結果、いずれの分画値もイオン強度、通電量による差を示さなかった。

以上のことから温度が一定で、緩衝液のPHが8.6のとき、イオン強度が低く、通電量が高ければ泳動時間が短くなり多検体を処理する場合の適切な泳動条件と思われる¹¹⁾。しかしながら通電量が高すぎると、ジュール熱が発生し膜が乾燥し泳動像が乱れることが指摘されており¹²⁾、今回も同様なことがみられたので、今後、泳動条件としてイオン強度0.06 M、通電量を0.6~0.7 mA/cmを用いることとした。

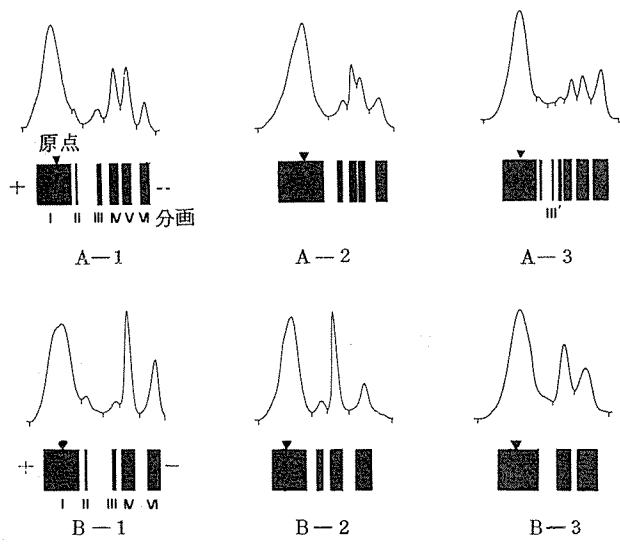
3-3 血漿蛋白分画の検討

1) 分画パターン及び分画値

健康なマゴイ、91尾の血漿蛋白分画像は種々のパターンがあることを示した。これらをパターン別に分類すると6型に分けることができた。それを図3に示した。これによると陽極側からI, II, III, IV, V, VIの計6分画に分離したパターン、I, III, IV, V, VIのII分画が明瞭に出現しないパターン、I, II, III, III, IV, V, VIの計7分画、これはIIとIII分画の間にIII'分画が出現するパターン等であった。以後、これらの分画パターンをA-1, A-2, A-3とした。次に、陽極側からI, II, III, IV, VIの計5分画に分離したものを、これはA型に比較してV分画が出現する位置に分画が出現していないのが特徴である。以下の分画パターンも同様であった。すなわちI, III, IV, VIの計4分画でII分画が明瞭に出現しにくいパターン等であった。以後、これらのパターンをB-1, 2, 3とした。

しかしながらA型のなかで、IV, V分画に注目してみると、両分画が明瞭に分離するもの、分離が不明瞭なもの等、B型との中間型とおもわれる分画パターンもみられた[図-4-(1, 2, 3, 4)]。

以上の分画パターンの出現数及び頻度、分画値(%)



図一三 血漿蛋白分画パターン

表一四 分画パターン別の分画値

分類	N		分 画 値 (%)						A/G	
			I	II	III'	III	IV	V		VI
A	1	\bar{x}	56.69	4.76		6.40	12.28	10.82	9.00	1.38
		(20.9)	u	7.80	2.07		4.76	3.53	3.35	3.42
	2	\bar{x}	59.18			7.20	12.82	10.52	10.22	1.39
		(13.2)	u	5.29			2.32	2.80	2.12	3.72
	3	\bar{x}	53.57	5.54	2.66	4.55	12.86	13.84	6.92	1.16
		(5.5)	u	4.77	1.60	0.32	1.63	2.80	3.06	3.83
計	36	\bar{x}	57.10	4.92	2.66	6.41	12.54	11.15	9.12	1.36
		u	6.79	1.98	0.32	3.79	3.14	3.08	3.63	0.41
B	1	\bar{x}	57.68	5.91		5.27	21.01		9.79	1.40
		(33.0)	u	5.62	2.81		2.75	3.31		4.66
	2	\bar{x}	57.82			6.77	22.87		12.50	1.81
		(25.3)	u	5.29			2.28	3.79		3.72
	3	\bar{x}	59.11				28.16		12.71	1.49
		(2.2)	u	7.49				8.40		0.91
計	55	\bar{x}	57.80			5.92	22.05		11.03	1.40
		u	5.43			2.65	3.92		4.39	0.26

注 1) Nは例数を示す。表5, 6も同様である。
 2) ()内の数字は全体の%を示す。
 3) A/Gは、AがI分画、GはII~VI分画の値の比を示す。表5, 6, 7も同様である。

を表4に示した。まずA, B型のパターン別に出現数及び頻度をみると、B-1が30, 33.0%と最も高く、ついでB-2の23, 25.3%, A-1の19, 20.9%, A-2の12, 13.2%の順であった。これらのことから基本的な分画パターンはA型では、A-1, B型ではB-1として差支えないものと思われた。

次に分画パターン別に分画値をみると、A, B型ともI分画が他の分画値と比較して最も高い値を示し、50%以上、60%近い値であった。ついで高い値を示したのはIV分画であり、A型の12%, B型の20%代の値であった。B型はA型に比べて高い値であった。A型ではさらにV分画がIV分画について10%代の高い値

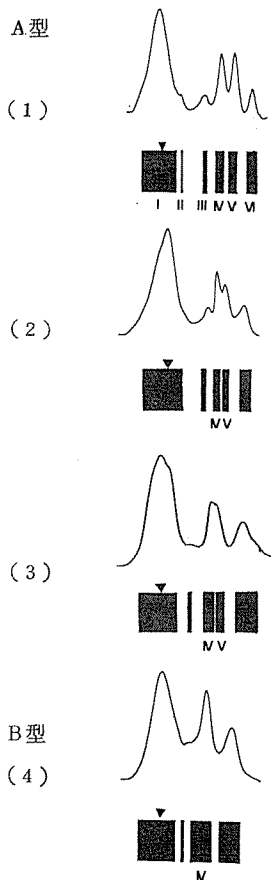


図-4 分画パターンの変動(中間型)

を示した。他にVI分画はA, B型とも10%前後の値を示し、IV, Vについて高かった。II, III, III'分画値はいずれも10%以下の低い値を示した。

アルブミンとグロブリンの比, A/Gは、ここではI分画とII~IV分画値の比として算出した。この値を見るとB型がA型より若干高い値を示す傾向にあった。

2) 分画パターン別の体重, 体長, 肥満度, 血漿総蛋白量

分画パターン別に体重, 体長, 肥満度, 血漿総蛋白量をみたのが表5である。体重, 体長は各分画パターンで一定の傾向がみられなかった。肥満度はA-1, B-3で若干高い傾向にあったが, 他はそれほど差がなかった。

総蛋白量はビューレット法による値で, A-3, B-3が低い値を示したが, 他は大差ないものであった。

次にA型, B型の計について比較すると, 体重, 体長, 肥満度もA型がB型に比べて高い値を示した。また血漿総蛋白量においても同様であった。統計学的に2つの平均値の比較のt検定で解析すると屈折計による血漿総蛋白量が有意水準5%で差を示した。

3) 分画値の変動

分画パターン別, 分画別の変動係数を表6に示した。

各分画値の変動係数が低かったのはA, B型ともI分画の10%前後の値, ついでA型のIV, V分画及びB型のIV分画の20%代の値であった。他のII, III, IV分画は高い変動係数を示し, 特にII, III分画は高い値を示した。この理由としては測定誤差がこれらの低い分画値に反映したかあるいは個体の生理状態の差異がこれらの分画に影響を及ぼしたのか等のことが考えられる。とにかく血漿蛋白分画像は変動が大きく, その要因の解析は今後の研究課題であると思われた。

4) 血漿蛋白分画の検討

セルローズアセテート電気泳動法は操作が比較的簡単で, 微量の血漿量で多数の検体を測定することができ, また分離能にすぐれている点等, 他の血液化学的検査に比較して種々の利点をもっている。しかしながらこの方法は, 泳動条件, 支持体の種類によって分画値が異なるために標準的な測定方法を設定していく必要がある。本研究では泳動条件を, 緩衝液のイオン強

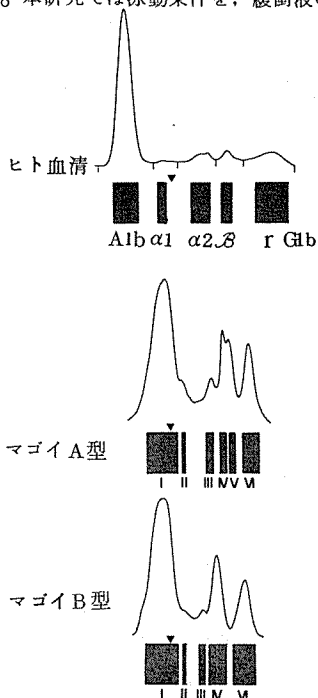


図-5 ヒト血清とマゴイ血漿蛋白分画パターンの変動度の比較

表一五 分画パターン別体重，体長，肥満度，血漿総蛋白量

分類	N	体重 (g)		体長 (cm)		肥満度		屈折計		総蛋白量 (g/dl) ビュレット		
		\bar{x}	<i>u</i>	\bar{x}	<i>u</i>	\bar{x}	<i>u</i>	\bar{x}	<i>u</i>	\bar{x}	<i>u</i>	
A	1	19	93.6	41.1	15.3	2.7	24.6	2.2	3.72	0.69	2.49	0.50
	2	12	157.1	92.1	18.0	3.8	22.4	7.0	3.84	0.27	2.63	0.27
	3	5	50.0	24.5	12.7	2.1	23.0	1.0	3.40	0.63	1.80	0.68
	計	36	112.6	73.9	16.0	3.5	23.5	4.6	3.72	0.56	2.46	0.51
B	1	30	80.5	44.2	14.4	2.8	23.9	4.3	3.36	0.78	2.09	0.73
	2	23	109.9	46.5	14.7	4.9	22.8	7.0	3.14	1.27	2.46	0.41
	3	2	130.2	9.6	17.3	0.4	25.5	3.5	3.20	0.85	2.10	0.42
	計	55	96.5	46.7	14.7	3.9	23.4	5.6	3.26	1.01	2.25	0.62

表一六 分画パターン別の分画値の変動係数 (%)

分類	N	I	II	III'	III	IV	V	VI	A/G	
A	1	19	13.77	43.66		74.36	28.77	30.98	38.07	34.56
	2	12	8.95			32.22	21.88	20.22	36.43	24.77
	3	5	8.91	28.99		6.53	21.79	22.15	55.37	18.34
	計	36	11.89	40.24	12.33	59.13	25.04	27.62	39.80	30.15
B	1	30	9.74	47.63		52.32	15.75		47.65	24.28
	2	23	9.16			33.75	16.59		29.80	20.53
	3	2	12.68				29.85		7.23	30.95
	計	55	9.39	47.63		44.76	17.78		39.80	18.57

度 0.06 M, 通電量を 6 ~ 7 mA/cm として, 支持体はセバラックスとした。マゴイの血漿蛋白分画においてこれと同様な方法を用いて検討した報告は少ない^{13,14)}。Nakagawa ら^{13, 14)}, 山口¹⁵⁾はセルローズアセテート電気泳動法を用いマゴイの血清蛋白分画像を検討した結果, 6分画に分離したことを報告した。これらは筆者の A-1 と一致した分画パターンであった。また斉藤^{16, 17)}は Tiserius 法及び濾紙泳動法を用いてコイの血清蛋白分画を検討し, 4分画, 5分画に分離したことを報告している。その分画像は本研究のもの

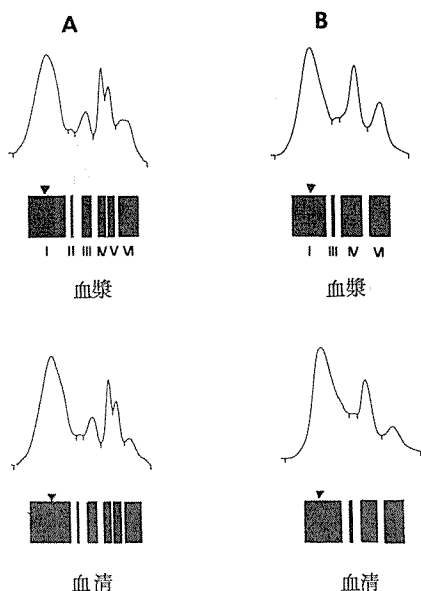
一概に比較することはできないが, A型に近似した分画パターンを示していた。

以上の様にいずれの報告も本研究の A型に該当する分画パターンであり, B型についての報告は見あたらない。

ここでヒト血清とマゴイの A, B型の各分画の易動度を同一泳動条件のもとで比較したのが図5である。ヒト血清のアルブミン分画は原点より陽極側へ易動するの比ベコイの I分画は原点にとどまった。またヒト血清のグロブリン領域の α_1 と α_2 位の間に II分画,

α_2 位にⅢ分画、 β 位にはA、B型のⅣ分画が、そして β 、 γ 位の間にA型のⅤ分画、 γ 位よりA、B型のⅥ分画が易動した。各分画の成分についてNakagawaraらは、Ⅰ分画をアルブミン分画とし、さらにYanagisawaraら¹⁸⁾はアルブミンの多成分現象を認めた。その他の分画については、一部アルブミンが混在しているが、多くはグロブリンとしている。またハマチの例では最も陰極より出現する分画は免疫機構に関係しているものと推定されており¹⁹⁾、健康状態を評価するとき注目すべき分画であると思われる。しかしいまだその詳細については不明の点が多く今後の検討にまちたい。

Hara²⁰⁾は、セルローズアセテート電気泳動法でニジマス、サケマス魚血清中に β グロブリン位に強く染色されるバンドが出現し、それがマスに特異的に存在する蛋白であることを報告した。また会田²¹⁾は、成熟期のコイにおいても同様な蛋白が存在することを明らかにしている。この様なことからA、B型の分画パターンの差異は、性差によるものともとれるが、筆者の用いたコイは未成熟魚であり性別による分画パターン(未発表)をみても性とは関係なくA、B型が存在することからそれが要因とは考えられない。むしろ分画パターン別の血漿総蛋白量の比較で示したようなA型とB型との差違あるいは他の血漿成分の差違等の因子が関与しているのではないかと推測される。



図一六 血漿と血清蛋白分画の差異

またB型の分画パターンはA型より出現頻度が高く泳動条件を変えて行っても同一の分画パターンを示すことからコイにおいて一般的に出現するものであると示唆された。

以上のことからマゴイの血漿蛋白分画像は基本的にA、Bの2型が存在し、比較診断学的にはパターン別に検討していく必要があると思われた。

3-4 血漿と血清蛋白分画の比較

供試尾数は12尾、その体重は 136.8 ± 5.43 、体長は 17.7 ± 2.2 、肥満度は 24.0 ± 2.4 であった。

血漿と血清の分画パターンを示したのが図6である。ここではA-1、B-2のパターンを図示した。これを分画ごとにみると、Ⅰ分画は血清が血漿より高いピークを示し、他にⅥ分画は血漿が血清より高いピークを示す傾向にあった。次に双方の分画値を平均値の比較(対応のある場合)で統計学的に解析したのが表7である。

Ⅱ、Ⅳ、Ⅴ、Ⅵ分画の値は血漿が血清より高い値を示した。統計学的にはⅥ分画で高い有意水準で差があった。その差の平均値は4.9%であった。またⅠ分画は逆に血清が高い値を示し、統計学的にも有意差を示した。これらの分画値はA/Gの値に反映し血清が血漿より高い値を示した。

次に総蛋白量はビューレット法からの値では血漿が血清より高い値、差の平均値が $0.1 (g/dl)$ を示した。屈折計からの値は差がほとんどみられなかった。統計学的にはいずれも差を示さなかった。

試料として血漿あるいは血清のどちらを用いるかによって総蛋白量、分画値に影響を及ぼす。ヒトの場合血漿には血清と比べて、フィブリノーゲンは量的に多く含まれており、他は問題とならない。その量は $0.3 \sim 0.5 (g/dl)$ であると言われている²²⁾。また分画像では β と γ 分画の間に ϕ 分画が認められることが知られている²³⁾。コイの場合、フィブリノーゲンと思われるその量はビューレット法による血漿、血清総蛋白量の差 $0.1 (g/dl)$ の値であると示唆された。また分画像においては先の結果からも明らかのようにⅥ分画の帯に泳動される。このことから血漿を用いる場合には特にⅥ分画の血清との差を認識して解析していく必要があると思われた。

4. 結論

健康なマゴイを用いて、血漿総蛋白量の測定方法とセルローズアセテート電気泳動による測定条件の検討を行ない、それを基に正常な血漿蛋白分画パターンの

解析を行なった。また血漿と血清との差違も検討した。

1) 供試尾数は91尾, 体重は $88.1 \pm 30.9(g)$, 体長は $14.5 \pm 3.7(cm)$, 肥満度は 24.2 ± 2.2 であった。

2) 総蛋白量の測定法では, 屈折計法がビューレット法より高い値を示した。コイの総蛋白定量法としてはビューレット法が適当であった。双方の関係は高い相関々係がみられ, その回帰直線式は $y(g/dl) = 0.592x + 0.299$ であった。

3) 泳動条件の検討では緩衝液のイオン強度が増加すると泳動時間が増加し, 通電量が増加すると逆に短縮した。他の諸条件を考慮して, 以後の条件をイオン強度 $0.06M$, 通電量を $0.6 \sim 0.7 mA/cm$ とした。

4) 蛋白分画パターンは6型に分類した。基本的な分画パターンをAとB型にした。その分画はA-1がI, II, III, IV, V, VIの6分画, B-1がI, II, III, IV, VIの5分画であった。

5) 分画値(%)はA-1のIが56.69, IIが4.76, IIIが6.40, IVが12.28, Vが10.82, VIが9.00であった。またB-1ではIが57.68, IIが5.91, IIIが5.27, IVが21.01, VIが9.79であった。

6) 各分画値の変動係数はIが最も低く, ついでIV, Vの順であった。他は高い変動を示した。

7) 血漿と血清の総蛋白量と分画値の差違は, ビューレット法では血漿の総蛋白量が血清より $0.1(g/dl)$ の高い値を示した。分画値はA, B型ともVI分画で血漿が高い値を示した。

以上の結果から血漿総蛋白量はビューレット法からの値を基準として検討し, また血漿蛋白分画像をもとにして生理状態を評価する場合, パターン別にその変動を考慮して診断していく必要があると思われた。

参考文献

- 1) 樋口文夫, 水尾寛己, 畠中潤一郎, 福嶋悟: コイ(Cyprinus carpio)の幼魚における血液性状の研究(第1報), 正常値の検討, 横浜市公害研究所報, 第5号, 115~121(1980)
- 2) 小川恕人: セルローズアセテート電気泳動法, 電気泳動実験法, 電気泳動学会編, 45~77, 文光堂, 東京(1981)
- 3) 尾崎久雄: 血液の生理, 魚類生理学講座I, 緑書房, 東京(1975)
- 4) 池田弥生: 魚類の薬理学的研究における基本的問題と検査法〔II〕, 生態化学, 1, 33~38(1978)
- 5) 村越康一, 小藤田和郎, 野沢陽一郎, 鈴木つね:

肝疾患における血清蛋白像, 最新医学, 19, 861~889(1964)

6) 門間和夫: セルローズアセテート膜電気泳動と血清蛋白質, 最新医学, 19, 815~820(1964)

7) 池田和夫: 養殖魚における病害の予防に関する研究, 農林水産技術会議事務局, 128, 41~46(1980)

8) 梅本滋: ビューレット反応による魚肉蛋白定量法の改良, 日本誌, 32, 427~435(1966)

9) 菅野剛史: 電気泳動の原理, 電気泳動法のすべて, 医歯薬出版(株), 5~9(1981)

10) 杉田暉道: 例解医学統計入門, 中央医書出版社, 81~93(1968)

11) 小川恕人: セルローズアセテート電気泳動法に関する基礎的研究, 7. 通電条件, 医学と生物, 73, 228~231(1966)

12) 橋本寿美子: セルローズアセテート膜電気泳動法, 医歯薬出版(株), 41~48(1981)

13) 中川平介, 鹿山光, 生田薫: コイ血漿アルブミンの季節的変動, *J. Fac. Fish. Anim. Husb.*, Hiroshima Univ, 16, 99~106(1977)

14) H. Nakagawa, M. Kayama and S. Asakawa: Biochemical Studies on Carp Plasma Protein-1, Isolation and Nature of an Albumin, *Bull. Jap. Soc. Fish.* 42, 677~680(1976)

15) 山口敏和: マゴイの血清蛋白質組成に関する研究, 東京水産大学卒業論文(1981)

16) 齊藤要: 魚類血液の生化学的研究-K, 血清蛋白質の濾紙電気泳動法による分析について, 日本誌, 22, 760~767(1957)

17) 齊藤要: 魚類血液の生化学的研究-X, 血清蛋白質組成の時期的変化について, 日本誌, 22, 768~772(1957)

18) T. Yanagisawa, K. Hashimoto, F. Matsuura: Occurrence of Multiple Albumins in Carp Blood Plasma, *Bull. Jap. Soc. Fish.*, 43, 1219~1228(1977)

19) 楠田理一, 福田稜: *Pasteurella piscicida*で免疫したハマチの凝集抗体価と血清タンパクの変化, 日本誌, 46, 801~807(1980)

20) A. Hara: Iron-Binding Activity of Female-Specific Serum Proteins of Rainbow Trout (*Salmo gairdneri*) and Chum Salmon (*Oncorhynchus ueta*), *Biochim. Biophys. Acta*, 427, 549~557(1976)

21) 会田勝美: 魚類の成熟と産卵-その基礎と応用-水産学シリーズ6, 日本水産学会編, 恒星社厚生閣, 東京(1974)

捺染排水の鯉を用いた急性毒性試験

広田勝彦*, 斉藤治子*

要旨

排水処理における凝集処理効果を生物学的に評価する試みとして、捺染業を選択し、現場実験を行った。捺染工程の手捺染、自動捺染、水洗の各排水およびこれらの総合排水について、鯉に対する75時間急性毒性試験を行った結果、凝集処理によって死亡率および外部、内部、鰓観察結果の異状出現率にかなりの改善が認められた。又、工程排水のうち、自動捺染排水で鯉が死亡した主因物質はアゾ系酸性染料であることがわかり、水洗排水中の界面活性剤は、鯉に対して横転遊泳等の強い症状を与えることが判明した。排水のCOD値と急性毒性とは必ずしも相関せず、同じ捺染排水でもCOD値の高い手捺染排水では死亡せず、COD値の低い自動捺染排水で死亡することがわかり、今後のCOD規制への配慮の必要性が判明した。

1. はじめに

横浜市内の事業所、特に中小企業においては、食品加工業を除いて、敷地面積等の理由から、工業排水の処理方法として、凝集処理法を導入している所が多い。凝集処理法は排水中の汚濁物質を無機及び有機系の凝集剤を用いてフロック化し、固液分離する方法である。そして、その処理効果の判定には、一般に化学的酸素要求量および生物学的酸素要求量等の理化学的方法が用いられている。

筆者等は、その方法として、生物学的方法を用い、理化学的方法ではなし得ない生体影響という視点から、鯉を用いた評価法の検討を試みた。

その第一回目として、横浜市内中央部に流れをもつ帷子川、大岡川沿に存在する、横浜の地場産業として知られている捺染業に注目し、その工場排水についての急性毒性実験を現場で行い、若干の知見を得たので報告する。

2. 作業と原材料

2-1 作業工程

現場実験を行った事業場の作業工程は図1に示す通りであり、排水は主として3種の作業工程から排出される。その第一は手捺染作業であり、生地を捺染台に固定し、その上に柄型を置き、色糊をスケージにより手で捺染する作業である。使用した台、スケージ、柄型の洗滌水がこの工程の排水となる。又、こゝでは主としてポリエステル系生地の捺染がおこなわれる。

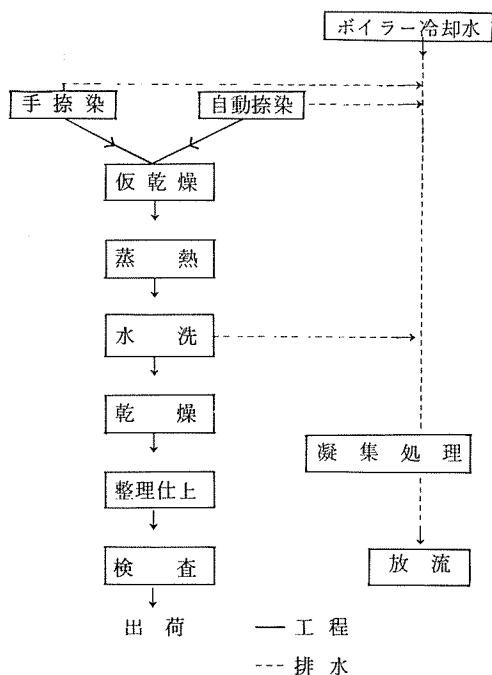
第二の作業は自動捺染であり、生地が自動的にベルト台に固定され、ラインで流れて行く間に幾つかの柄型が自動的にセットされ、自動スケージで捺染される作業である。捺染後、生地は自動的にベルト台から剥れて自動水洗によりベルト台が洗滌される。従って、この洗滌水および柄型、スケージの洗滌水が排水となる。又、ベルト台の洗滌水は、機械作業中全く停止しないため、排水量は手捺染に比較して多くなる。こゝでは主としてナイロン、ポリエステル系生地の捺染がおこなわれる。

第三の作業は、手捺染、自動捺染後の生地を自動水洗機で水洗する工程である。水洗は弱アルカリ性で、

Acute toxicity of textile printing effluent to carp (*Cyprinus carpio*).

*Katsuhiko Hirota, Haruko Saito

横浜市公害研究所水質部門



図一 作業工程および排水系統図

洗剤を用い、印捺糊および未染色染料を落とすために洗い、製品の色落をなくすために流水式で充分に行われる。

以上のことから、工程別の主たる汚濁原因物質をまとめると表1に示すようになる。即ち、手捺染、自動捺染工程の排水では、染料、糊剤、助剤および少量の洗剤があげられ、水洗工程では、染料、糊剤、アルカリおよび洗剤があげられる。

表一 捺染工程別の主因汚濁物質

工程	作業内容	汚濁物質
手捺染	柄型捺染台、スケージの洗滌	染料、糊剤、助剤
自動捺染	柄型、スケージの洗滌 ベルト台の自動洗滌	染料、糊剤、助剤
水洗	捺染生地洗滌	染料、糊剤、洗剤 アルカリ

2-2 使用原材料

2-2-1 生地の素材と染料

生地の素材と使用染料の関係は表2に示す通りであり、ポリエステル系生地には主として分散染料、即ち、疎水染料を分散剤によって均一溶解して使用する染料が用いられる。ナイロン系生地には主として、酸性染料およびクロム又はニッケルを主とする含金属錯塩染料

料が使用される。これは、酸性染料のスルホン酸基あるいは含金属染料のクロム又はニッケルイオンと繊維のアミノ基とのイオン結合により染着する¹⁾。

ポリアクリル・ニトリル系生地には、繊維中のスルホン酸基とイオン結合して染着する塩基性染料が用いられ、綿、麻、レーヨン等には繊維の水酸基と反応して染まる反応染料が用いられている。

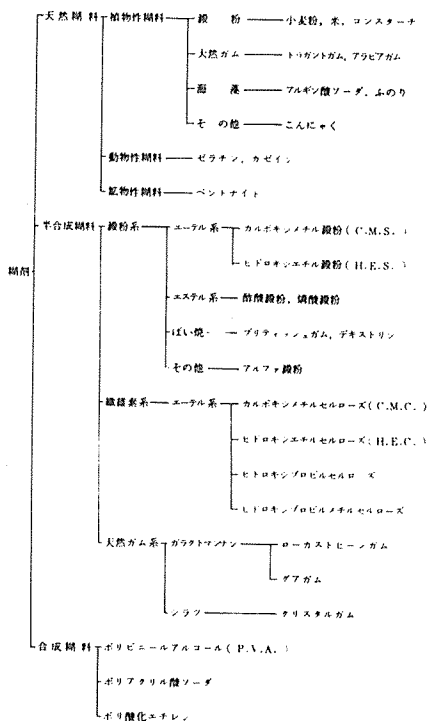
分散染料には主として、アゾ系およびキノロン系の二種の構造を基本とした染料が含まれ、その他、アントラキノン、トリフェニルメタン、キサントレン系などがある。塩基性染料にはモノアゾ、トリアリルメタン、キサントレン、アクリジン、アジン、チアゾール系の基本構造をもつ染料が含まれ、反応性染料にはアゾ、アントラキノンなどの基本構造をもつ染料が含まれる¹⁾。

2-2-2 捺染用糊剤

捺染に用いられる糊剤は図2に示すように分類される。現在最も多く使用されている糊剤は、天然糊料の澱粉、アルギン酸ソーダおよび半合成糊料のカルボキシメチル澱粉(C.M.S.)、カルボキシメチルセルローズ(C.M.C.)とヒドロキシエチルセルローズ(H.E.C.)であり、次いで半合成糊料のグアガムの順となっている。

表一 2 生地の素材と染料

素材	染料名	染料の基本構造	
ポリエステル	分散染料	アゾ系	
		キノロン系	
	ナイロン	酸性染料	アゾ系
		トリフェニルメタン系	
ポリアクリル・ニトリル	塩基性染料	アゾ系	
		トリアリルメタン系 $HC(CH_2CH=CH_2)_3$	
		キサントレン系	
		アクリジン系	
		アジン系	
		チアゾール系	
	綿、麻、レーヨン	反応性染料	アゾ系
			キノロン系



図一 2 捺染用糊剤の分類

水質汚濁の点からみると澱粉および澱粉系の半合成糊剤は BOD 負荷が高く、天然ガム系の半合成糊剤は非イオン性のため、排水処理技術上、凝集困難な物質とされている。従って、今回実験を行った現場においても同様であったが、通常の捺染には、C.M.C., H.E.C., アルギン酸ソーダを高比率で用いており、C.M.S. および澱粉系糊剤はその使用比を低くしているのが現状である。

生地素材との関係では、今回の場合、ポリエステル系生地では C.M.C. 90%、澱粉 10% の糊材を用い、ナイロン系生地では 100% C.M.C. を用いており、ポリエステルの防抜染にはガム系糊剤 80% に澱粉 20% の混合糊剤を用いている。

2-2-3 捺染用助剤

捺染用の助剤としては、染料溶解分散剤、帯電防止剤、浸透均染剤、フィックス剤、消泡剤等が用いられ、これらには主として各種の界面活性剤が用いられる。これらの使用量は僅かであるため、汚染源としての負荷は小さい。

2-2-4 水洗剤

水洗剤としては、大きく分けて、界面活性剤とアル

カリ剤および助剤の 3 種類がある。

界面活性剤としては陰イオン、陽イオン、非イオン、両面活性剤の 4 種類があり、主として、陰イオン、非イオン、両性活性剤が用いられている。アルカリ剤としては専ら苛性ソーダが用いられ、助剤には還元剤等が用いられている。

使用量も多く、排水処理の面からみると界面活性剤が凝集処理困難物質として大きな問題となっている。即ち、陰イオン界面活性剤は比較的凝集処理されやすいが、非イオン界面活性剤は凝集処理が困難な物質である²⁾。この為、現在、その洗滌力の点から、各々約 50% ずつ用いられている。

又、陽イオン界面活性剤はナイロン系生地の柔軟仕上げ剤として、両性活性剤はナイロン系生地の水洗剤として使用されている。

2-3 排水処理

排水処理方法は図 3 に示すように、凝集加圧浮上法であり、各工程からの排水を汚水槽に貯溜し、ポンプにより反応槽へ送り、そこでポリ塩化アルミニウム (PAC) を 1,000~3,000 mg/l の濃度になるように添加する。高分子凝集剤を 3~5 mg/l とするよう添加し、加圧水と混合して浮上分離槽に入れて固液分離し、清澄水を放流している。

処理能力は 70 t/hr を有し、化学的酸素要求量を指標として見る時、250 mg/l ~ 300 mg/g の水を 60 mg/l に処理している。

3. 実験方法

3-1 供試魚

神奈川県淡水魚増殖試験場において孵化 2 ヶ月後の稚魚を購入、選別後 7 ヶ月間蓄養した鯉を 20.0 ± 1.0°C で 2 週間馴化した後、異状のないもの 200 尾を用いた。平均体重は 3.17 ± 0.53 g、平均体長は 3.40 ± 0.96 cm であった。試験前 3 日間は無給餌とし、試験期間中も無給餌とした。

3-2 試験装置

本実験に用いた試験装置は図 4 に示した通りである。実験槽では、貯溜槽に貯溜した試験水を 75 ml/min の流速で交換率が約 1 回/日となるようにポンプで 200 l 実験水槽に移送した。槽の水容量は 100 l とし、オーバーフローは水量メーターを通して排水される。貯水槽は外気温 5.0 ± 3.4°C に放置し、更に腐敗を防ぐために曝気した。

対照水槽では市水道水を脱塩素塔へ導き、残留塩素のみを除去した後、直接槽内に流入した。流量および水容量は実験水槽と同条件になるように調整した。

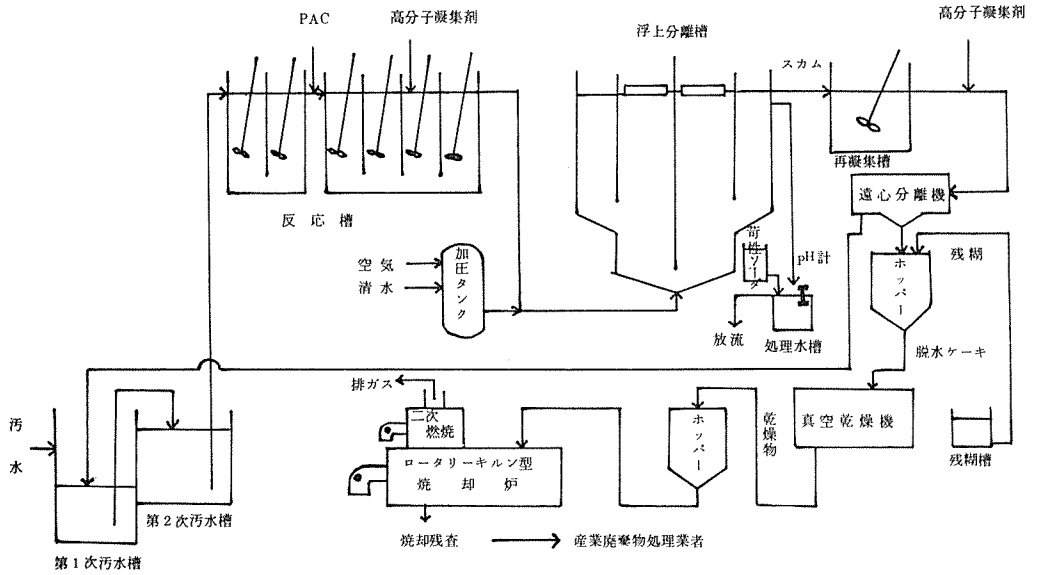


図-3 排水処理フローシート

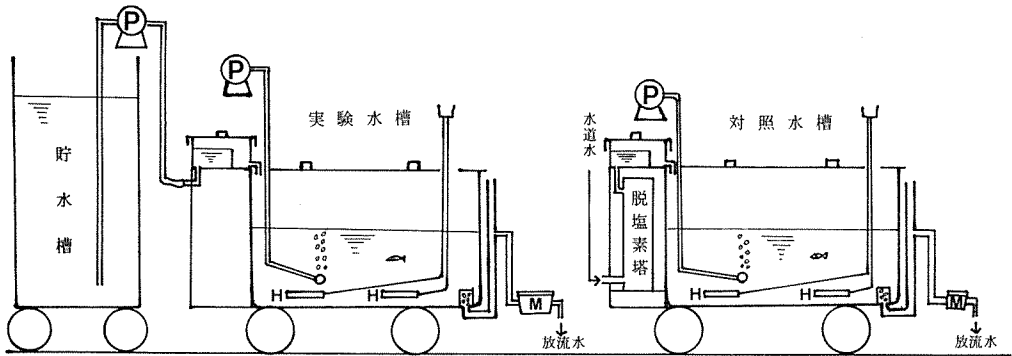


図-4 試験装置

P: ポンプ, M: 水量メーター, H: ヒーター

試験水の状況から、溶存酸素量を鯉にとって良好な状態とされている⁴⁾⁵⁾6 mg/l以上とするために、各槽共に散気をした。又、野外実験のための水温が外気温と共に変動するため、各槽に500Wサーモヒーターを2本設置し、水温を20℃になるように設定した。更にpHによる影響を抑えるために、各試験水のpHは7になるように調整した。

3-3 試験水

試験に用いた水は、総合排水の凝集処理前、および後の水並びに各工程排水、即ち手捺染、自動捺染、水

洗の三工程の排水の処理前および後の水とした。一部模擬排水も用いた。

総合排水の処理前水は、汚水槽から反応槽に上げる途中から採水し、処理後水は排水処理施設通過後の放流水を採取した。各工程別の排水は、工程系から汚水槽に流入する前で、しかも他の工程排水と合流する前の地点で採水した。工程別の処理水は、各々の排水を500ℓ水槽でバッチ的に凝集沈澱処理した上澄水を用いた。この時の凝集沈澱処理は、加圧浮上を沈澱に変えた他は、排水処理施設の移動方法に準じて行った。

即ち、排水400ℓに20%苛性ソーダ液を加えてpHを約10とし、ポリ塩化アルミニウム溶液(酸化アルミニウムとして10%保障の市販溶液)を約480ml攪拌しながら加え、pH7以下とし、0.18%弱アニオン系高分子凝集剤を600ml、ゆっくり攪拌しながら徐々に加え、20分間沈降させた。

3-4 試験方法および測定

試験は流水方式による75時間暴露急性毒性試験方法により行った。試験期間は昭和56年1月20日より4月3日であった。

試験期間中、自記温度計により気温と各槽の水温を測定し、毎日一回流量チェックおよび溶存酸素量をウィンクラージ化ナトリウム法によって測定した。pH測定には実験槽のみ自記pH計を設置し、対照槽は実験開始時と終了時にpH計により測定した。又、実験槽のみに自記電気伝導度計を設置した。

試験開始前、開始時および終了時に試験水について、以下に示す項目の理化学分析を行った。

- ①水素イオン濃度(pH) JIS K0102-12-ガラス電極法
- ②化学的酸素要求量(COD) JIS K0102-17, 100°Cにおける過マンガン酸カリウムによる酸素消費量
- ③アンモニア性窒素(NH₄-N) 水蒸気蒸溜-イ

ンドフェノール法

- ④有機体窒素(Org-N) ケルダール窒素をインドフェノール法によって求め、NH₄-Nとの差によって算出
- ⑤非イオン界面活性剤(POE_n) 飯塚による方法⁶⁾
- ⑥残留塩素 JIS K0102-33-1, オートリジン比色法

鯉の状態観察は毎日7回、約1時間毎に行った。実験終了後、鯉を槽より取り上げ、遊泳状態、鱗、体表面等の外部形態を観察し、延髄刺殺の後、鰓の形態観察を顕微鏡により行った。その後、体重、体長を測定し、解剖して、肝臓、消化管、脾臓、腎臓、胆のう等の色、形、大きさについて内部形態観察を行った。

4. 結果

4-1 槽内条件

各実験における槽内条件は表3に示す通りである。工程別、処理前後、対照の各槽における水温は18.2±0.7~21.5±0.7°C、平均交換率は1.04~1.12^{回/日}、pHは7.02±0.07~8.07±0.05の範囲にあり、差は認められなかった。溶存酸素量は総合排水の処理前を除いては8.5±0.7~9.1±0.5mg/ℓであり、差は少なく、ほぼ飽和の状態にあった。しかし、総合排水の処理前では6.3±0.3mg/ℓであり、飽和度も低かったが、鯉に

表-3 各実験における槽内条件測定結果

試験水	水温°C	交換率 回/日	水素イオン濃度	溶存酸素量mg/ℓ
総合排水				
処理前	20.6±0.8 ^{a)}	1.08	7.87±0.07 ^{a)}	6.3±0.3 ^{a)}
処理後	21.4±0.4	1.07	7.02±0.07	8.5±0.7
手捺染排水				
処理前	20.1±0.9	1.07	7.26±0.62	9.1±0.5
処理後	21.5±0.7	1.04	7.42±0.12	8.9±0.6
自動捺染排水				
処理前	18.6±0.3	1.09	8.07±0.05	8.8±0.3
処理後	19.5±0.6	1.08	7.91±0.05	9.0±0.0
水洗排水				
処理前	19.8±0.6	1.10	7.12±0.10	8.1±0.4
処理後	20.4±0.7	1.11	7.50±0.07	8.7±0.3
模擬自動捺染排水	18.2±0.7	1.12	7.60±0.00	8.6
対照水 ^{b)}	21.2±0.8	1.09	7.56±0.13	8.9±0.3

a) 平均値±標準偏差

b) 繰返し数9実験の平均

おける良好な溶存酸素量とされている 6.0 mg/l を上回っており、溶存酸素量による影響はない⁵⁾ と考えた。

4-2 総合排水

総合排水における水質の測定結果は表4に示す通りである。処理前後の水質を比較すると、CODでは $290 \pm 30 \text{ mg/l}$ が $64 \pm 6 \text{ mg/l}$ となり、約80%の除去率が示めされた。又、Org-Nでは 15.75 ± 2.50 から $7.58 \pm 0.27 \text{ mg/l}$ となり、約50%の除去率が示めされた。しかし、 $\text{NH}_4\text{-N}$ は 1.15 が 1.17 mg/l に、POEn は 12.6 が 13.8 mg/l とほとんど変化せず、電気伝導度はわずかに上昇した。 $\text{NH}_4\text{-N}$ は低濃度であり、POEn も低濃度のためこの濃度では処理されにくいものと考えられる。又、電気伝導度の上昇は無機系凝集処理剤の影響によるものと考えた。

対照槽の水質は各項目共に非常に低値であった。

総合排水実験における鯉の死亡率および異常出現率を表5に示した。対照群については表に示さなかったが異常は全く認められなかった。

処理前では、全魚が75時間待たず、24時間以内に死亡したが、処理後では75時間生存した。

表-4 総合排水実験における水質測定結果

項 目	実 験 槽		対 照 槽
	処理前	処理後	
化学的酸素要求量 mg/l	290 ± 30 ^{a)}	64 ± 6 ^{a)}	1 ± 0 ^{a)}
アンモニア性窒素 mg/l	1.15 ± 0.16	1.17 ± 0.14	0.22 ± 0.01
有機体窒素 mg/l	15.70 ± 2.5	7.58 ± 0.27	0.25 ± 0.06
非イオン界面活性剤 mg/l	12.6 ± 0.2	13.8 ± 0.2	不検出
電気伝導度 $\mu\text{S/cm}$	790	890	-

a) 平均値±標準偏差

内部形態の結果では、処理前には、死亡要因との係りが注目される腹腔内出血が10尾中9尾に確認されたが、処理後では全く確認されなかった。

鰓においても、処理前で鰓弁、二次鰓弁の浮腫、二次鰓弁のよじれ、鰓弁、二次鰓弁の壊死崩壊が各々10尾中8尾、4尾、3尾に確認されたが、処理後では、

表-5 総合排水実験における鯉の死亡率及び異常出現率

症 状	処理前	処理後
死 亡	10 ^{a)}	0
外部形態	1	0
鰓の出血	1	0
内部形態	10	10
肝臓の微暗赤褐色化	5	10
消化管の黒色化	0	10
消化管の微黒色化	1	0
腹腔内出血	9	0
鰓 形 態	10	5
鰓弁、二次鰓弁の浮腫	8	5
二次鰓弁のよじれ	4	0
鰓弁、二次鰓弁の先端部壊死崩壊	3	0

a) 10尾中の異常出現頻度

10尾中5尾に鰓弁、二次鰓弁の浮腫が認められただけであった。

以上のことから、総合排水において、凝集処理が正常になされていれば、鯉に対する75時間急性致死毒凝集処理可能な、Org-NあるいはCODに含まれる物質であろうと考えた。

4-3 手捺染排水

手捺染排水における水質の測定結果は表6に示した通りである。処理前後の水質を比較すると、CODでは $130 \pm 5 \text{ mg/l}$ が $53 \pm 3 \text{ mg/l}$ となり、約60%の除去効果が認められ、Org-Nでは 6.68 ± 0.30 から 4.67 ± 0.32 となり約30%の除去が認められた。 $\text{NH}_4\text{-N}$ は 0.25 mg/l から 0.20 mg/l に、POEn は 1.0 mg/l から 0.7 mg/l にとほとんど差は認められなかった。低濃度であるために凝集に関与しなかったとも考えられる。電気伝導度は $346 \mu\text{S/cm}$ が $678 \mu\text{S/cm}$ となったが、これは無機系凝集剤による影響と考える。

手捺染排水実験における鯉の死亡率および異常出現率は表7に示す通りである。処理の前および後において死亡は認められず、処理前において体表面の粘液異常分泌が10尾中9尾に認められた。内部形態では、肝

表一 6 手捺染排水実験における水質測定結果

項 目	実 験 槽		対照槽
	処理前	処理後	
化学的酸素要求量 mg/l	13.0 \pm 5 ^{a)}	5.3 \pm 3 ^{a)}	1 \pm 0 ^{a)}
アンモニア性窒素 mg/l	0.25 \pm 0.33	0.20 \pm 0.23	0.16 \pm 0.04
有機体窒素 mg/l	6.68 \pm 0.30	4.67 \pm 0.32	0.29 \pm 0.11
非イオン界面活性剤 mg/l	1.0 \pm 0.0	0.7 \pm 0.0	不検出
電気伝導度 $\mu S/cm$	346 \pm 8	678 \pm 7	-

a) 平均値 \pm 標準偏差

表一 7 手捺染排水実験における鯉の死亡率および異常出現率

症 状	処理前	処理後
死 亡	0 ^{a)}	0
外部形態	9	0
体表面の粘液異常分布	9	0
内部形態	10	5
肝臓の微暗赤褐色化	10	5
消化管の黒色化	10	0
消化管の微黒色化	0	1
形 態	10	6
鰓弁, 二次鰓弁の浮腫	10	6

a) 10尾中の異常出現頻度

肝臓の微暗赤褐色化および染料によると考えられる消化管の黒色化が各々10尾に認められた。又、鰓形態では、鰓弁, 二次鰓弁の浮腫が10尾に認められた。処理後においても、内部形態, 鰓形態において同様の症状が認められたが、その出現率は処理によって半減することが認められた。又、対照において異常は全く認められなかった。

以上のことから手捺染排水の場合、75時間致死毒性は認められず、凝集処理によって形態異常の低下することが認められた。

4-4 自動捺染排水

自動捺染排水における水質の測定結果は表8に示す通りである。処理前後の水質を比較するとCODは90 \pm 5 mg/l から21 \pm 3 mg/l になり、約75%の除去率が得られ、Org-Nは3.07 \pm 0.75 mg/l が2.24 \pm 0.61 mg/l になり、約30%の除去率が得られた。NH₄-N 1.60 mg/l が1.42 mg/l に、POEnは処理前後共に0.2 mg/l と変化せず、処理による影響は認められなかった。電気伝導度は67 $\mu S/cm$ が826 $\mu S/cm$ となり、凝集処理による無機塩の濃度影響が顕著に現われたものと考えた。

表一 8 自動捺染排水実験における水質測定結果

項 目	実 験 槽		対照槽
	処理前	処理後	
化学的酸素要求量 mg/l	90 \pm 5 ^{a)}	21 \pm 3 ^{a)}	10 \pm 0 ^{a)}
アンモニア性窒素 mg/l	1.60 \pm 0.12	1.42 \pm 0.10	0.10 \pm 0.01
有機体窒素 mg/l	3.07 \pm 0.75	2.24 \pm 0.61	0.32 \pm 0.09
非イオン界面活性剤 mg/l	0.2 \pm 0.00	0.2 \pm 0.1	不検出
電気伝導度 $\mu S/cm$	67 \pm 3	826 \pm 47	-

a) 平均値 \pm 標準偏差

自動捺染における鯉の死亡率と異常出現率は表9に示す通りである。処理前では、全魚の10尾が75時間を待たず、23時間以内に死亡した。しかし、処理後で、死亡は認められなかった。処理前の外部形態では胸部各所の出血を中心に5尾の鯉に異常が認められた。又、内部形態においても、総合排水実験時と同様に、腹腔内出血が全魚に認められた。鰓においても二次鰓弁のよじれ、二次鰓弁の萎縮、鰓弁先端部の曲化、鰓弁、二次鰓弁の壊死、崩壊および出血が10尾中各々、9、10、8、9、3尾の出現頻度で認められた。しかし、処理後では5尾に二次鰓弁のよじれが確認されたのみであった。又、対照において異常は全く認められなかった。以上のことから、自動捺染排水には75時間急性致死毒性は認められたが、凝集処理によってそれは消失し、その原因物質はCODあるいはOrg-Nに含まれる物質であろうと考えられた。

4-5 水洗排水

水洗排水の水質測定結果は表10に示した通りである。処理前後の水質を比較すると、CODは240 \pm 9 mg/l が36 \pm 2 mg/l となり、85%の除去率が得られ、

表一 9 自動捺染排水実験における鯉の死亡率および異常出現率

症 状	処理前	処理後
死 亡	10 ^{a)}	0
外部形態	5	0
眼球突出	1	0
胸部出血	3	0
胸鰭出血	4	0
胸鰭付根出血	3	0
肛門出血	2	0
内部形態	10	0
肝臓の微暗赤褐色化	0	1
腹腔内出血	10	0
鰓 形 態	10	5
二次鰓弁のよじれ	9	5
二次鰓弁の萎縮	10	0
鰓弁先端部曲化	8	0
鰓弁, 二次鰓弁の先端部壊死崩壊	9	0
鰓弁, 二次鰓弁の出血	3	0

a) 10尾中での出現頻度

Or_g-Nでは2.58±0.21mg/ℓが1.54±0.31mg/ℓとなり、約40%の除去率が得られた。アンモニア性窒素では0.08±0.06mg/ℓから0.47±0.19mg/ℓとやゝ上昇した。この工程排水の特徴である洗剤含有量をPOE_nを指標としてみると、処理前には28.0±2.0mg/ℓであったものが、凝集処理により、1.0±0.3mg/ℓとなり、約95%の除去率が得られた。電気伝導度は149±4μΩ/cmが1100±5μΩ/cmとなり、凝集処理による無機塩の顕著な影響と考えた。

水洗排水実験における鯉の死亡率および異常出現率は表11に示す通りである。処理前後において死亡魚は認められなかった。しかし、処理前では外部形態の結果では、24時間後に横転して遊泳した鯉が3尾、その後増加し、75時間までに10尾中5尾が横転遊泳した。同時に体表面も黒化し、呼吸の乱れは8尾に認められ、鰭の出血、口先の出血は各々5尾ずつ認められた。内部形態では肝臓の微暗赤褐色化が7尾に認め

表一 10 水洗排水実験における水質測定結果

項 目	実 験 槽		対照槽
	処理前	処理後	
化学的酸素要求量mg/ℓ	240±9 ^{a)}	36±2 ^{a)}	1±0 ^{a)}
アンモニア性窒素mg/ℓ	0.08±0.06	0.47±0.19	0.22±0.01
有機体窒素mg/ℓ	2.58±0.21	1.54±0.31	0.25±0.06
非イオン界面活性剤mg/ℓ	28.0±2.0	1.0±0.3	不検出
電気伝導度μΩ/cm	149±4	1100±5	—

a) 平均値±標準偏差

表一 11 水洗排水実験における鯉の死亡率および異常出現率

症 状	処理前	処理後
死 亡	0 ^{a)}	0
外部形態	10	0
横臥遊泳	5	0
体表面黒色化	5	0
呼吸の乱れ	8	0
鰭の出血	5	0
口先の出血	5	0
内部形態	7	2
肝臓の微暗赤褐色化	7	2
鰓 形 態	9	8
鰓弁上皮の収縮	0	6
二次鰓弁のよじれ	6	3
鰓弁, 二次鰓弁の萎縮	6	0
鰓弁, 二次鰓弁の浮腫	4	0

a) 10尾中での出現頻度

られた。鰓形態では二次鰓弁のよじれ、鰓弁、二次鰓弁の萎縮、浮腫が各々6、6、4尾に認められた。処理後では、外部形態に異常は認められず、肝臓の微暗赤褐色化、鰓弁上皮の収縮、二次鰓弁のよじれが各々2、6、3尾に認められたのみである。対照においては常は全く認められなかった。

以上、水洗排水では斃死には到らなかったが、横転遊泳等、強度の障害が認められた。しかし、それらは

処理によって軽減されることが認められた。

4-6 模擬自動捺染排水

前述の4排水の実験結果から、自動捺染排水に着眼し、その使用原材料および使用量、用水使用量、排水量から、模擬排水を調整し、実験を行った。模擬自動捺染排水は表12に示すようにC.M.C.系糊剤が全成分の約66%を占め、染料が19%、その他助剤等が14%を示める汚水となった。各成分を400ℓの水道水に溶解し、試験に供した。

水質の測定結果は表13に示す通り、CODは100±0mg/ℓ、Org-Nは2.46±0.63mg/ℓであった。こ

表-12 模擬排水成分表

物 質 名	添加量 ^{a)}
染 料	
アシュートイエローMR	0.60 ^(g)
カヤノールイエローN-3R	1.44
アシッドオレンジSG	0.72
アリザリンレッドN-FBL	1.80
カヤノールミーリングレッドGRA	1.32
ミーリングスカイブルーG	1.20
チューガノールブラウン5R	0.72
アリザリンサイアニンググリーン5G	0.96
ラナパールネイビーブルーR	0.84
ナイロンブラックGL	2.04
オパールブラックBNリキッド	6.72
カヤノールミーリングバイオレットFBW	0.36
糊 剤	
C.M.C系糊剤NG2000	64.80
助 剤	
ヘキサメタリン酸ソーダ	7.56
カラリンSF	6.48

a) 水道中400ℓに溶解した量

表-13 模擬自動捺染排水実験における水質測定結果

項 目	実験槽	対照槽
化学的酸素要求量mg/ℓ	100±0 ^{a)}	1±0 ^{a)}
アンモニア性窒素mg/ℓ	0.01±0.01	0.00±0.00
有機体窒素mg/ℓ	2.46±0.63	0.50

a) 平均値±標準偏差

これらの値は、自動捺染の工程実排水とよく一致した。NH₄-Nは0.01±0.01mg/ℓであり、実排水に比較するとかなり低い値となったが、これは、作業を通過しないためにNH₄-Nが増加しなかったものと考えた。対照槽では、前述の各排水実験時と同様に、各測定値共に低値を示した。

模擬自動捺染排水実験における鯉の死亡率および異常出現率は表14に示す通りであり、10尾全魚が75時間待たず、24時間以内に死亡した。外部形態では、胸部の出血が10尾中5尾に認められたのを始め、各所に出血が認められた。又、内部形態では腔内出血が全10尾に認められ、鰓においても、二次鰓弁の萎縮、鰓弁先端部の曲化、および鰓弁、二次鰓弁の先端部壊死崩壊が各々7、8、6尾と高い出現率で認められた。そしてこれらの症状は、自動捺染の実排水実験結果でも認められた。

表-14 模擬自動捺染排水実験における鯉の死亡率および異常出現率

症 状	出現率 ^{a)}
死 亡	10
外部形態	6
胸部出血	5
鰓蓋内出血	1
胸鱗出血	1
肛門部出血	2
内部形態	10
消化管黒色化	1
腹腔内出血	10
鰓 形 態	10
二次鰓弁のよじれ	3
二次鰓弁の萎縮	7
鰓弁先端部の曲化	8
鰓弁、二次鰓弁の先端部壊死崩壊	6
鰓弁、二次鰓弁の出血	10

a) 10尾中の出現頻度

4-7 染料および糊助剤液

模擬自動捺染排水の実験結果が自動捺染の実排水実験結果と類似した結果が得られたことから、成分を染料とそれ以外の糊・助剤の2群に分けて、同一濃度で室内急性毒性実験を行った。試験条件は、24時間換水方式で、試験水量20ℓとし、使用尾数を5尾とし、水温、DO等他の試験条件は同一となるよう調整し、75時間試験を2回繰返し行った。

水温等の測定結果は、水温は両液共 $22\pm 0^{\circ}\text{C}$ 、DOは $8.5\pm 0.2\text{mg}/\ell$ pHは染料で 7.30 ± 0.0 、糊、助剤液で 7.72 ± 0.10 であり、平均交換率を除いて表3の模擬自動捺染排水における結果とよく一致した。

水質測定結果は表15に示した通りであり、染料液、糊助剤液において、各々CODは 32 ± 0 、 $100\pm 0\text{mg}/\ell$ 、Org-Nは 2.05 ± 0.20 、 $0.71\pm 0.10\text{mg}/\ell$ を示した。

表-15 室内実験における水質測定結果

項目	染料液	糊・助剤液
化学的酸素要求量 mg/ℓ	$32\pm 0^a)$	$100\pm 0^a)$
アンモニア性窒素 mg/ℓ	0.02 ± 0.01	0.05 ± 0.02
有機体窒素 mg/ℓ	2.05 ± 0.20	0.71 ± 0.10

a) 平均値土標準偏差

鯉の死亡率および異常出現率は表16に示すように染料群では10尾全魚が24時間以内に死亡し、外部形態においても、全10尾に胸部出血が認められたのをはじめ各部の出血が認められた。内部形態においても9尾に腹腔内出血が認められ、鰓においても、二次鰓弁の萎縮、鰓弁先端部の曲化、および鰓弁、次鰓弁の先端部の壊死崩壊が各々9、9、10尾に認められた。これらの症状は、自動捺染の実排水および模擬排水における結果とよく一致していることが認められた。又、糊・助剤液では表16に示したように死亡も認められず、各部の異常も全く認められなかった。

5. 考察

凝集処理効果を生物学的に評価する試みの第一回目として、捺染業排水を選択し、移動式魚類試験装置を用いて現場実験を行った。各工程別排水について、凝集処理を行い、その前後の水について、鯉を用いた75時間急性毒性試験方法によって評価した。その結果、各工程排水ともCODおよびOrg-Nの除去と同時に、鯉に対する急性毒性にもかなりの改善が認められた。

表-16 室内実験における鯉の死亡率および異常出現率

症 状	染料液	糊・助剤液
死 亡	10	0
外部形態	10	0
胸部出血	9	0
鰓付根出血	1	0
下噴部出血	1	0
肛門部出血	1	0
内部形態	9	0
腹腔内出血	9	0
鰓 形 態	10	0
二次鰓弁萎縮	9	0
鰓弁、二次鰓弁の先端部曲化	9	0
鰓弁、二次鰓弁の先端部壊死崩壊	10	0

a) 10尾中の出現頻度

処理前のCOD値を工程別に比較すると、総合排水が最も高く $290\text{mg}/\ell$ であり、次が水洗排水の $240\text{mg}/\ell$ と続いている。更に手捺染排水が $130\text{mg}/\ell$ 、自動捺染排水が $90\text{mg}/\ell$ と最も低い値を示している。しかし、鯉の死亡率および異常出現率と対比すると、全魚死亡したのは総合排水と、CODの値の最も低い自動捺染排水であった。又、異常の度合いをみると水洗排水がこれに続き、手捺染排水が最も障害が少なかった。これはCODの成分物質に起因するものと考えられる。

CODの成分物質は総合排水では主として糊剤、染料界面活性剤が考えられ、捺染排水では糊剤、染料が、模擬排水、室内実験の結果からも考えられる。水洗排水では、その使用量からも、界面活性剤が第一になるであろうし、水洗の目的から、糊剤が次にあげられ、未染色染料もCOD成分物質になると考えられる。

手捺染と自動捺染を比較すると、手捺染ではポリエステル系生地の捺染が主であり、自動捺染ではポリエステル系とナイロン系生地が約半量ずつの作業となっており、防抜染も一部含まれていた。従って、手捺染排水のCOD成分はその使用量から糊剤としてはC.M.C.が最も多く、約50%以上を占め、次いでグアガム、澱粉の順となる。染料では分散染料がそのほとんどを占

めるため、アゾ系およびキノン系の分散染料が構成成分となる。一方、自動捺染では、糊剤としてはC.M.C.が最も多く、その80%近くを占め、次いでグアガム、澱粉となる。染料ではアゾ系の酸性染料が最も多く、次いでアゾ系、キノン系の分散染料と続く。室内実験の水質測定結果によると、糊・助剤では178.2mg/lの薬剤濃度がCOD測定値では100mg/lであり、染料では48mg/lが32mg/lとなり、そのCOD値に与える負荷率は少し異なっており、COD値に占める糊剤の比率はむしろ染料より実際には低く表れる。又、染料中のN量を示すと考えられる、Org-Nの測定結果でも、手捺染よりも自動捺染排水の方が低く、他の試験水と比較しても高い値とはいえない。これは自動捺染の作業上、使用水量が多いため、濃度が低くなったものと考えられる。しかし、それでもCOD値の低い自動捺染排水で鯉が死亡し、手捺染排水で死亡しなかったことから、模擬排水および室内実験の結果と合わせて考えると、アゾ系の酸性染料が鯉の死亡の主因物質であると考えた。

水洗排水において、鯉に横転遊泳等の強度の障害が認められたが、本排水では洗剤としての界面活性剤および糊剤がCOD負荷物質として考えられる。室内実験の結果から、糊剤等には毒性がほとんど認められないことから、界面活性剤の影響が大きいと考える。界面活性剤のCOD値は飯塚によるとPOEnでは100mg/l溶液が70mg/lとなることが知られている⁴⁾。本工程での洗剤の使用量は使用水量濃度にして、約220mg/lであるが、全てが非イオン系であるとするCOD値150mg/lとなり、染料、糊剤等の1日平均使用量から水洗時排水への計算上の汚濁量を求めると239mg/lとなり、模擬排水実験でのCOD測定値が溶解量の約38%であったことから水洗排水中の染料、糊剤等のCOD値を算出すると約90mg/lとなり、合計すると240mg/lとなり、実測値とよく一致する。そして、水洗排水中のPOEnは28mg/lであり、他の排水に比較して最も高い値を示した。又、界面活性剤の魚類に対する影響についての報告の中で、富山⁷⁾は、魚の鰓に短時間に吸着し、呼吸機能低下がおこり、酸素欠乏状態となって死に至るとしており、本実験の結果でも、呼吸機能の低下が10尾中8尾に確認され、鰓形態の異常も、他の排水実験とは異なった症状が確認された。そして、この症状はLemke, A. E. 他⁸⁾の報告とも一致した。

塩濃度が毒性に与える影響については、いくつかの報告があり^{9) 11)}、それらはいずれも、塩濃度と毒性が

比例すると述べている。しかし、今回の実験結果では、各排水共に処理後の方が処理前に比較して電気伝導度において高値を示したが、その毒性においては、すべてにおいてむしろ低減された。凝集処理により、その主因物質が除去されたことがその大きな理由である。しかし、P.W.A. Tovel¹²⁾他のようにその逆の報告もあることから、今後、このような実験において電気伝導度を測定することは意義のあることであると考えられる。

NH₄-N値は最高値が自動捺染排水の1.6mg/lであり、pHが8.07であったことから換算するとNH₃としては59.2μV/lとなり、Robinette, H. R.¹³⁾の報告にある影響濃度を下回っており、NH₄-Nによる直接の影響は本実験においては、ないものと考えられる。

以上工場排水の凝集処理効果を生物学的な見地から、鯉を用いて行った結果、処理後では明らかな水質改善が認められ、今後の排水処理の評価に当って、有効なことが判明した。又、処理前において急性毒性が認められた点では今後の下水道普及後の工場排水取り込みの問題についても一定の示唆が与えられるものと考えられる。

6. まとめ

凝集処理を生物学的に評価する試みの始めとして、捺染薬を選択し、移動式魚類試験装置を用いて現場実験を行った結果次のことが判明した。

- 1) 捺染工程の総合、手捺染、自動捺染、水洗の各排水において、鯉に対する75時間急性毒性試験を行った結果、凝集処理によって、死亡率および異常出現率にかなりの改善が認められた。
- 2) 自動捺染排水における鯉の死亡主因物質は、アゾ系酸性染料であることがわかった。
- 3) 水洗排水中の界面活性剤は、鯉に対して横転遊泳等強度の障害を与えることがわかった。

又、排水のCOD値と鯉の急性毒性とは必ずしも相関しなかったことから、今後のCOD規制への配慮が望まれる。

文 献

- 1) 高岡 昭, 萩原理一: 浸染・捺染, 15, (1971) 地人書館
- 2) 横浜市公害対策局編: 捺染染色加工業の排水処理処分について(1974)
- 3) 飯塚貞男: 非イオン界面活性剤の凝集処理に及ぼす影響, 横浜市公害研究所報, 4, 129-133, (1979)

- 4) A.P.H.A., A.W.W.A. and W.P.C.F.:
*Standard Methods the Examination of Water
 and Wastewater*. 14th. (1975). American Public
 Health Association.
- 5) 水尾寛己: 酸素欠乏・過多, 及び残留塩素暴露時
 におけるコイ (*Cyprinus carpio*) の鰓の形態学的変
 化について, 横浜市公害研究所報, 4, 143-152,
 (1979).
- 6) 飯島貞男: 排水中の非イオン界面活性剤の定量法,
 横浜市公害研究所報, 5, 79-83, (1980).
- 7) 富山新一: 界面活性剤の魚に対する作用について,
 日本試, 40, 1291-1296, (1974).
- 8) Lemke, A.E. and Mount, D.I.: Some
 Effects of Alkyl Benzene Sulfonate on the
 Bluegill, *Lepomis macrochirus*. *Trans. Amer.
 Fish. Soc.*, 92, 372-378, (1963).
- 9) R. Eisler : Some Effects of a Synthetic
 Detergent on Estuarine, *Fishes. Trans. Amer.
 Fish. Soc.*, 94, 26-31, (1965).
- 10) P.W.A. Tovell, et al: Effects of water
 hardness on the toxicity of an anionic detergent
 to fish. *Water Res.*, 8, 291-296, (1974).
- 11) R.S. Howarth and J.B. Sprague: Copper
 lethality to rainbow trout in waters of various
 hardness and pH. *Water Res.*, 12, 455-462,
 (1978).
- 12) P.W.A. Tovell, et al: Effects of water
 hardness on the toxicity of a nonionic detergent
 to fish. *Water Res.*, 9, 31-36, (1975).
- 13) Robineff, H.R.: Effect of selected
 sublethal levels of ammonia on the growth of
 channel catfish (*Ictalurus punctatus*). *Prog.
 Fish - Cult.*, 38, 26-29. (1976).

Nitzschia palea (付着性ケイ藻) を用いた AGP 測定法の検討

福 嶋 悟*

要 旨

河川に広く分布し、有機汚濁の著しい都市河川で代表的な付着藻である *Nitzschia palea* を用いた AGP 測定法を確立するため、Gorham No. 11 改変培地を用い培養試験を行った結果、増殖特性ならびに増殖量測定法に関して以下に示すことが明らかになった。

- (1) 藻体の培養管壁への付着の防止は、培地については全成分を混合後、高圧蒸気滅菌し、水酸化鉄を主体とした沈澱物を多く生成させたものを用い、培養は藻体の付着基物となる沈澱物を懸濁状態に保つため、振とう法を用いることにより可能である。
- (2) 増殖量測定法の精度は、クロロフィル法がもっとも高く、同法により測定した増殖量の変動率は極めて小さい。
- (3) Gorham No. 11 改変培地で前培養した藻体を、窒素・リンを除いた培地で培養したときの最大増殖量は極めて小さい。
- (4) 接種濃度の相違が増殖へ及ぼす影響は小さいが、培養方法、前培養藻の増殖期そして培養条件(温度、照度)の相違の影響は大きい。

1. はじめに

近年、藻類増殖の潜在能力 (AGP) を測定する藻類培養試験がさかんに行なわれるようになってきた。

AGP の測定は、水域の藻類増殖潜在能力のみならず、藻類増殖の制限栄養物質・阻害物質、処理排水の放流水域の藻類生産に与える影響、および高度処理排水の処理効率を評価するのに有効な手段とされている。

米国環境保護庁は、緑藻類の *Selenastrum capricornatum* を用いた陸水用の AGP 測定方法を制定し¹⁾、国立公害研究所でも、同種を標準藻とし、藍藻類の *Microcystis aeruginosa* と *Anabaena flos-aquae* を標準藻とした方法を発表している²⁾。

陸水域を対象とした AGP の測定は、主に湖沼を中心に行なわれ、供試藻もほとんど浮遊性種である。

河川を対象とした AGP 測定方法は確立されておらず河川の AGP 測定は、多摩川³⁾、南浅川⁴⁾、日原川⁵⁾、印旛沼流入河川⁶⁾、阿武隈川⁷⁾、奥入瀬川⁸⁾、鴨川⁹⁾、島根県内河川¹⁰⁾、宍道湖流入河川¹¹⁾等で行なわれているが、その供試藻は緑藻類の *Selenastrum capricornatum*, *Selenastrum minutum*, *Chlorella ellipsoides*, *Chlorella* sp., *Scenedesmus* sp., *Chlamydomonas* sp., *Stigeoclonium* sp. で、多くの場合湖沼の AGP 測定に用いられている浮遊性種を供試藻としている。

日本の河川は行程が短かく、浮遊性種が発生することは少ない。また、用いる種の相違により制限栄養物質が異なる報告例もあり⁹⁾河川の AGP 測定には、本

A Study on Algal Growth Potential Measurement method with Periphytic Diatom, *Nitzschia palea*

* Satoshi Fukushima 横浜市公害研究所水質部門

この報文の一部は日本陸水学会第 46 回大会 (東京・1981) において発表したものである。

来調査対象となる河川で代表的な付着藻を用いる必要があることはいうまでもない。しかし、付着藻類植生調査の結果より、代表的種を選び、それを供試藻とすることは純粋分離、培養にかなり時間が必要で困難な場合が多い。

本報では、河川を対象としてA G Pの測定をすることを目的として、一般に河川に広く分布し、有機汚濁の著しい都市河川で代表的な付着藻であるケイ藻類の *Nitzschia palea* の培養試験を培地を用いて行ない増殖量測定法、増殖特性に関する実験を行ない、その結果より本種を用いたA G P測定法についての検討を行なった。

2. 横浜市内河川の付着藻類相

横浜市内を流れる河川は、いずれも有機汚濁が著しく進行し、汚濁都市河川の代表的なものである。

横浜市内河川の付着藻類植生については、横浜市公害対策局発行の公害資料に示したように^{12, 13, 14)}、各河川とも、出現種数は少なく、汚濁に耐性の強い数種の出現頻度が高い傾向があり、単純な群落組成を示している。その群落は夏期に *Nitzschia palea*、冬期に *Navicula minima* に代表される¹⁴⁾。

これらのうち *Nitzschia palea* は1973年から78年まで経年的調査が実施されている鶴見川、帷子川、大岡川、そして境川の各水系の源流部と汽水域を除くべ73地点中、21地点で50%以上の出現頻度を示している。また、34地点で1位の出現順位を示し、60地点で3位より上位の順位を示し、もっとも代表的な種である(表-1)。

Nitzschia palea の生態は、付着性、PH不定性、貧塩・不定性、流水不定性、広温性、富栄養性、中〜強汚濁性で、その生育環境は広い^{15, 16)}。

3. 供試藻

供試藻のハリケイトウ *Nitzschia palea* は Hustedt の分類法にしたがえば、ケイ藻植物門、ケイ藻綱、羽状目、両背線亜目、ハリケイトウ科、ハリケイトウ属に位置づけられる¹⁷⁾。

Hustedt の記載によれば、その形態は、殻は線形から線状披針形で、多くの場合、短楔状の細くなった両極を持ち、まれに殻の中央部から両極に向けてだいに殻幅が細くなり、殻長は20~65 μ m、殻幅は2.5~5 μ m、10 μ m間中の龍骨点数は10~15個、横条線は非常に細かく35~40本数えられるとされている。

表-1 横浜市内河川の付着藻群落に *Nitzschia palea* が占める割合と出現順位

河川・地点名	付着藻採取年月						
	'73.8	'74.2	'74.4	'76.8	'77.2	'79.8	'80.1
鶴見川・亀の子橋	61(1)	3(4)	8(3)	47(1)	2(8)	54(1)	6(6)
落合橋	-	-	-	33(1)	23(1)	17(3)	17(1)
千代橋	30(1)	22(2)	3(4)	51(1)	4(4)	48(1)	2(5)
都橋	61(1)	6(2)	40(1)	50(1)	3(5)	48(1)	16(2)
堀の内橋	57(1)	12(3)	9(3)	23(2)	2(6)	18(2)	25(3)
鎧橋	84(1)	9(4)	2(3)	14(3)	2(6)	92(1)	18(3)
帷子川・日下橋	94(1)	51(1)	8(3)	51(1)	1(6)	61(1)	23(2)
大岡川・高鎌橋	43(2)	-	100(1)	12(2)	22(1)	3(5)	9(4)
境川・目黒橋	94(1)	-	18(2)	59(1)	2(4)	75(1)	36(1)
鷹匠橋	59(1)	-	36(1)	42(1)	2(2)	41(1)	17(2)
T下水処理場上	-	-	-	60(1)	2(3)	72(1)	66(1)
大橋	9(2)	-	25(2)	53(1)	8(2)	82(1)	20(3)

単位：%, () : 出現順位

形態の記載によればその分類は容易なようであるが、Hustedt^{17, 18)}, Cholnoky¹⁹⁾, Foged²⁰⁾, Werff・Huls²¹⁾により書かれた図からわかるように、その形態の変異は大きい(図-1)。

横浜市内河川より採取した本種の光学顕微鏡写真(図-2)では、殻長、殻幅、龍骨点数、そして形態はHustedtの記載によく一致している(表-2)。

また、本報の実験に先だち、東京大学応用微生物研

究所より分株を受けた微細藻類系統保存株B-18の *Nitzschia palea* の形態および龍骨点数は *Nitzschia fonticola* と類似している(図-3)。そして、本報の実験に用いるため、B-18株の培地を有機培地から、無機培地(Gorham No 11 改変培地)に変え、約6ヶ月間保存培養した時の形態は、殻長は長く、殻幅は狭くなり、かなりの変化が認められる(図-4)。このような形態と龍骨点数からは、*Nitzschia palea*

表-2 *Nitzschia palea* の計測値の比較

試料・記載	殻長	殻幅	龍骨点数	横条線数	計測個体数
Hustedt (1930年)	20 ~ 65 μm	2.5 ~ 5 μm	10 ~ 15 / 10 μm	30 ~ 40 / 10 μm	-
横浜市内 河川	18.0 ~ 40.5 (27.3 ± 5.9)	3.5 ~ 5.5 (4.6 ± 0.5)	10 ~ 16 (13.4 ± 1.4)	48 ~ 52 ※ (50.2 ± 1.8)	56
東大応微研 B-18株	11.5 ~ 17.3 (14.1 ± 1.4)	3.5 ~ 4.2 (3.8 ± 0.2)	13 ~ 17 (14.7 ± 1.1)	43 ~ 52 ※ (47.0 ± 3.9)	43
Gorham No 11 改変培 地培養藻	21.5 ~ 25.5 (23.9 ± 1.0)	2.7 ~ 3.7 (3.3 ± 0.3)	12 ~ 17 (14.6 ± 1.4)	45 ~ 53 ※ (48.4 ± 3.8)	35

(平均値 ± 標準偏差), ※ 走査型電子顕微鏡で5個体計測した値

とも *Nitzschia paleacea* と判断が付きにくい。

走査型電子顕微鏡写真(図-5)により、微細構造の観察の結果、横浜市内河川で得られたもの、B-18株、そしてそれを無機培地で培養して得られたものの三者において、*Nitzschia paleacea* に見られる背線の中央部が分離した中心節は認められなかった。また横条線数はHustedtの記載より全ての個体で多いが、(表-2)、L-Bertalotの *Nitzschia palea* の電子顕微鏡写真²²⁾における数に類似し、*Nitzschia fonticola* の28 ~ 30本 / 10 μm に比べ大きな相違が認められる。

光学顕微鏡と電子顕微鏡の解像力には明らかな差があり、走査型電子顕微鏡(日立S-550)を用いた観察結果から、*Nitzschia palea* の横条線数は、Hustedtの記載より多い例があると判断できる。

4. 培地

供試藻の *Nitzschia palea* の保存培養、前培養そして培養試験に用いた培地はGorham No 11 改変培地²³⁾である(表-3)。

本培地は国立公害研究所が藍藻類の *Microcystis aeruginosa* の培養に用いたものである。

本来、培地の作成はリン酸と鉄との沈澱物の生成を

防ぐため、 $\text{Na}_2\text{SiO}_4 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$, Na_2CO_3 , K_2HPO_4 と他の成分とはそれぞれ別に高圧蒸気滅菌後、室温で放冷し、無菌的に混合して行なう²³⁾。

しかし、実験結果で明らかなように、上記の方法で作成した培地は *Nitzschia palea* の培養試験には適さず、全成分を混合した後、高圧蒸気滅菌して作成した培地を用いて培養試験を行なった。

表-3 Gorham No, 11 改変培地

成分	濃度
NaNO_3	496 mg/l
K_2HPO_4	30 mg/l
$\text{MgSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$	75 mg/l
$\text{CaCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$	36 mg/l
Na_2CO_3	20 mg/l
$\text{Na}_2\text{SiO}_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$	58 mg/l
PW Metal	3 ml/l
$\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$	194 mg/l
$\text{MnCl}_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$	82 mg/l
ZnCl_2	10 mg/l
$\text{CoCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$	4 mg/l
Na_2MoO_4	8 mg/l
$\text{Na}_2\text{EDTA} \cdot 2\text{H}_2\text{O}$	1000 mg/l

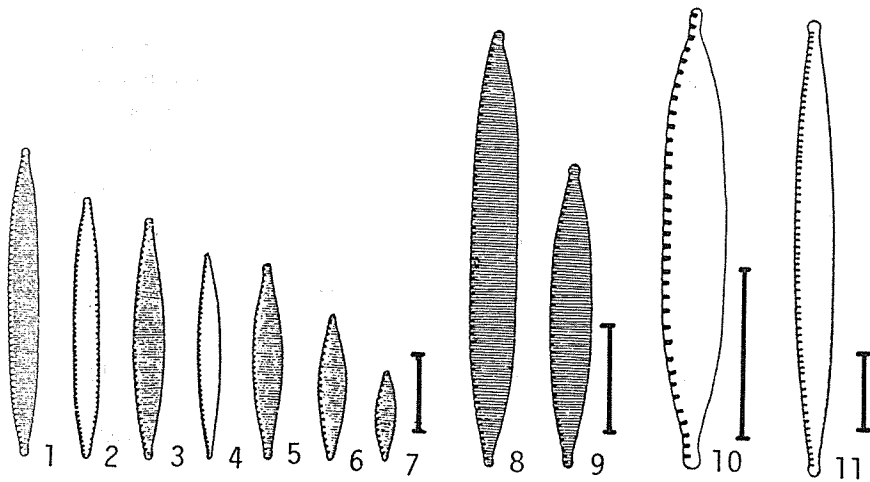


図-1 Hustedt, Cholnoky, Foged, Werff・Hulsにより描かれた *Nitzschia palea* の図

1 : Hustedt (文献・17), 2~7 : Hustedt (文献・18),

8・9 : Cholnoky (文献・19),

10 : Foged (文献・20), 11 : Werff・Huls (文献・21)。

※スケール：10 μ m (※1 : 1~7, ※2 : 8・9, ※3 : 10, ※4 : 11)

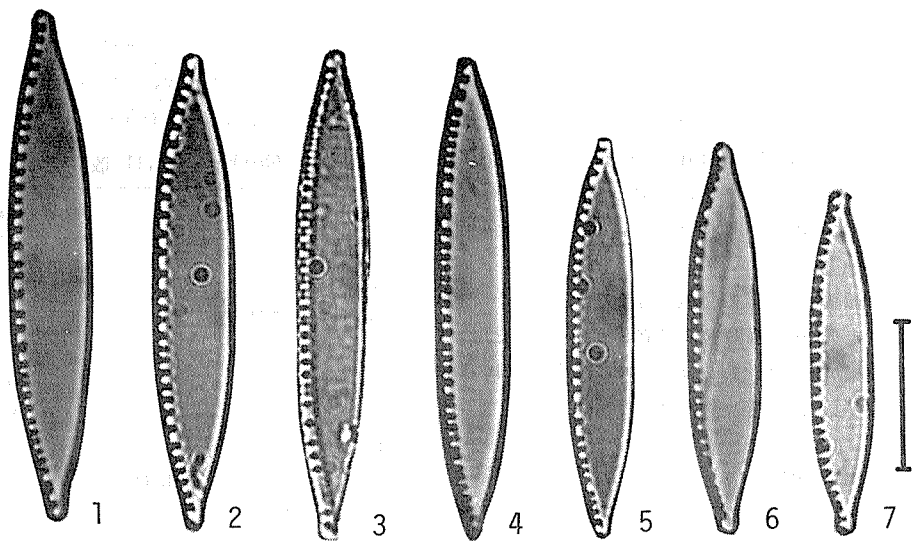


図-2 横浜市内河川より得た *Nitzschia palea* の光学顕微鏡写真

※スケール：10 μ m (1~7)

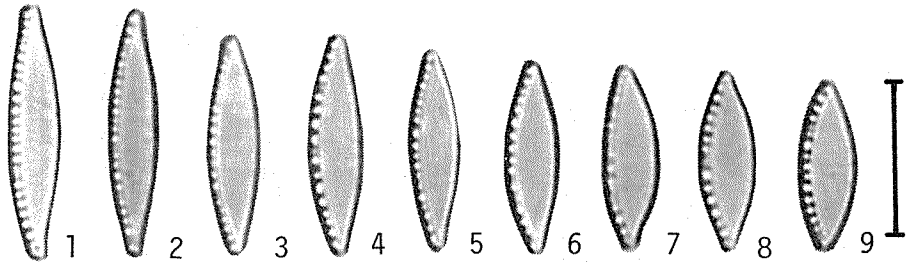


図-3 有機培地で培養した *Nitzschia palea* (B-18) の光学顕微鏡写真
 ※ スケール：10 μ m (1~9)

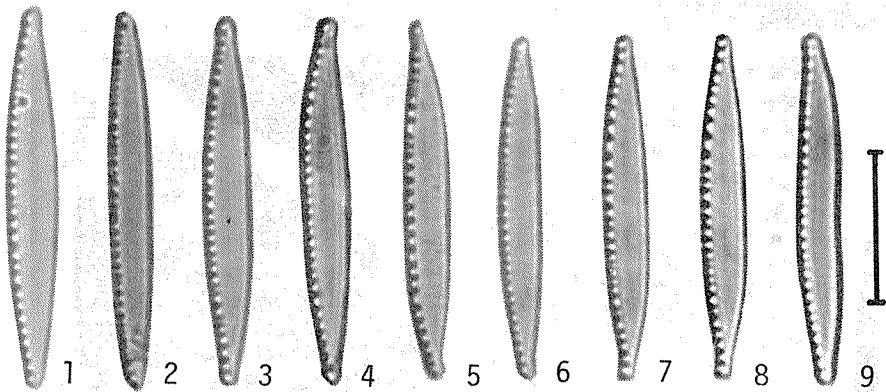


図-4 無機培地で培養した *Nitzschia palea* (B-18) の光学顕微鏡写真
 ※ スケール：10 μ m (1~9)

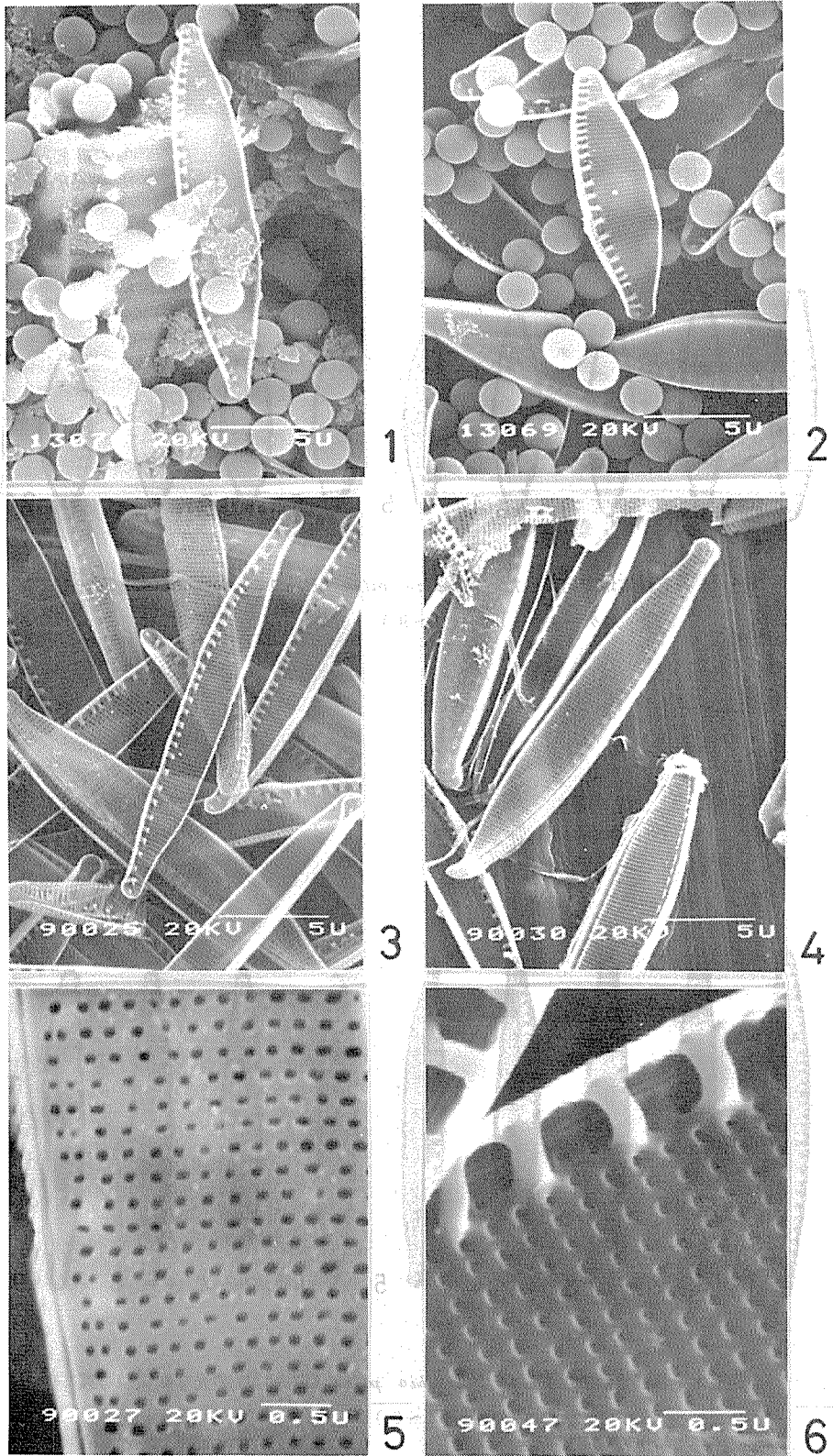


図-5 *Nitzschia palea* の走査電子顕微鏡写真

5. 滅菌および無菌作業

培地および接種藻の洗滌・希釈に用いる蒸留水、そしてスポイト、培養管の栓として用いるシリコンフォーム栓はオートクレーブで $1\text{Kg}/\text{cm}^2$ 、 121°C で20分間高圧蒸気滅菌した。

L型培養管、三角フラスコ、メスピペット、共栓メスシリンダー等の接種および培養に用いるガラス器具は全て乾熱滅菌器で 180°C 、2時間乾熱滅菌した。

藻体の接種、培養管からの試料の採取等の無菌状態で行なう必要のある作業は全てクリーンベンチ（日科ミクロン社1300型）内で行なった。

6. 接種

接種した藻体は全て静置法で保存培養されている藻体を、あらかじめ実験条件と同じ条件で培養を行なった前培養藻である。

接種の手順は、前培養藻を50ml共栓遠心沈澱管に入れ、RCF1,500で5分間遠心分離した後、上澄液を捨て、滅菌蒸留水を加え、再度遠心分離する。この操作を2回くり返した後、上澄液を捨てた試料を共栓メスシリンダーに入れ、滅菌蒸留水で希釈する。

希釈した試料の一部をただちにメンブランフィルター（ミリポアHAタイプ）でろ過し、クロロフィルa濃度を測定する。

培地に接種後のクロロフィルa濃度が、10mlの藻体懸濁液を接種することにより、予定濃度となるよう再度濃度を調節し、スポイトを付けた10mlメスピペット（先端目盛付）で接種する。

なお、保存培養藻は定期的にチオグリコール酸塩培地により、無菌状態に保たれていることを確認した。

7. 培養方法

振とう培養は、30回/分のモノ型振とうの振とう培養機（伊藤製作所39CL型）を用い、1,000mlL型培養管に500mlの培地を入れ、シリコンフォーム栓をし、14時間明・10時間暗条件で行なった。光は下方より培養管底面に向けて、無段階調節装置付白色ケイ光灯を光源として照射した。

静置培養は、300ml三角フラスコに200mlの培地を入れ、シリコンフォーム栓をし、14時間明・10時間暗条件で行なった。光は三角フラスコの上面より、白色ケイ光灯を光源として照射した。なお静置培養は原則として、1日1回振とう攪拌して行なった。

培養はいずれの場合も、 21°C の恒温実験室に設置した小型恒温室（三洋社製）内で行なった。

本報文中の実験は、温度 10°C ～ 30°C の範囲で、照度4Klux～12Kluxの範囲で行なった。なお、照度の測定は、振とう培養の場合、光源からL型培養管底面までの距離のところで行ない、静置培養の場合、三角フラスコの外側の培地表面までの距離のところで行なった。

結果および考察の章で培養条件を特に記さない限り、実験は温度 20°C 、照度4Kluxで14時間明・10時間暗の条件下で行なったものである。

8. 増殖量測定法

増殖量測定法として、もっとも測定法の変動が小さく、少量の試料で測定可能な方法を採用するため、以下に示す1)～3)の方法について検討した。

1) クロロフィル法：Strickland and Parsons²⁴⁾の方法で行なった。クロロフィルa濃度は、SCOR-U NESCO²⁵⁾の勧告した吸光度に関する式(C)を用い

図-5の説明

- 1：横浜市内河川より得られた個体（裏面を観察）
- 2：有機培地で培養したB-18株の個体（裏面を観察）
- 3：無機培地で培養したB-18株の個体（裏面を観察）
- 4：無機培地で培養したB-18株の個体（裏面を観察）
- 5：3・4の背線と横条線を構成する点紋（表面を観察）
- 6：3・4の龍骨点と横条線を構成する点紋（裏面を観察）

※：1・2の写真中の球形の粒子はラテックス・パーティクルス2.020 μm （Dow Chemical, USA）。

※：1, 2, 3, 4のスケールは5 μm 、5, 6のスケールは0.5 μm 。

※：日立S-550型走査型電子顕微鏡使用。

次式により算出した。

$$\text{クロロフィル } a \text{ } \mu\text{g}/\ell = C \cdot A / V$$

$C = 11.64 (E_{663} - E_{750}) - 2.16 (E_{645} - E_{750}) + 0.10 (E_{630} - E_{750})$, A: アセトン抽出液の体積 (ml)、V: ろ過試水の体積 (ℓ)、E: 各波長の吸光度、(ただしこれは 10 mm 吸収セルを用いた時の計算式である。)

2) 重量法: JIS-K0102 のグラスファイバーフィルターペーパー法²⁶⁾により、懸濁物質量をもとめた。

3) 細胞数計数法: 試料 0.05 ml をメスピペットで界線入り大型スライドガラス上に取り、24 × 32 mm のカバーガラスを載せ、カバーガラスの短辺の一端から一端までの間を合計 5 回、顕微鏡下で総合倍率 600 倍で数えた。計数生細胞数はいずれも 800 以上で、計数生細胞数より試料 1 ml に含まれる細胞数を算出した。

9. 結果および考察

9-1 培地の作成法

Gorham No. 11 改変培地を沈澱物ができないよう「4. 培地」の章で示した方法で作成し、これを用い予備的に *Nitzschia palea* の振とう培養を行なった結果、藻体のほとんどは L 型培養管の底部と、頸部の曲った部分に付着し、分取試料による増殖量の測定は不可能であることがわかった。

培地の作成法を変えることにより藻体の付着率が減少可能か否かを知るため、以下の 4 つの方法で作成した培地を用い振とう培養を行なった。

表-4 作成法の相違による培地の特性の変化

培地作成法	PH	SS	PO ₄ ³⁻	Fe
A1	8.9	8.0	14.5 (12.7)	1.3 (0.8)
A2	7.7	5.0>	14.7 (14.7)	1.3 (1.2)
B1	8.9	2.2.7	14.8 (6.1)	1.3 (0.5>)
B2	7.3	11.7	14.2 (9.0)	1.3 (0.5>)

SS, PO₄³⁻, Fe: mg/ℓ

() 内の値はミリポア HA タイプフィルターろ過後の測定値

注) PW Metal は 100 倍の濃度で加えた。

A1 : K₂HPO₄、Na₂CO₃、Na₂SiO₄ の混合液と NaNO₃、MgSO₄ · 7H₂O、CaCl₂ · 2H₂O、P IV Metal の混合液を高圧蒸気滅菌後、室温で放冷し無菌的に混合し作成したもの。

A2 : A1 に HC1 を加え PH をやや下げたもの。

B1 : 全成分の混合液を、高圧蒸気滅菌して作成

したもの。

B2 : B1 に HC1 を加え PH をやや下げたもの。

このようにして作成した培地の特性は表に示すように、懸濁物質は A2、A1、B2、B1 の順に多くなり、メンブランフィルター (ミリポア HA タイプ) ろ過前とろ過後のリン酸と鉄の濃度差も懸濁物質量が多いほど大きくなる傾向が認められる (表-4)。

つまり、ここで生じた懸濁物質は水酸化鉄を主体とした沈澱物にリン酸が吸着したものである。

このような特性を持つそれぞれの方法で作成した培地で培養した結果、5 日目では、培地の懸濁物質の多い順にクロロフィル a 濃度が大きくなっている。19 日目では A2 は静止期となり、他に比べもっとクロロフィル a 濃度が大きく、他は死滅期となり、クロロフィル a 濃度は小さくなっている。

また藻体の付着率は 3 回の測定時とも、A1、A2 に比べ B1、B2 はかなり低く、特に B1 の付着率はもっとも小さい傾向を示している (表-5)。

培養管壁に付着した培養藻のクロロフィル a の測定は、培地を全て他の容器に移した後、蒸留水で 2 回培養管内を洗滌後、水を捨て、培養管に 9.5% アセトンを少量入れ、培養管を振とうし、色素が抽出されなくなるまでアセトンを交換して行なった。

この結果より、*Nitzschia palea* のような附着性種 (*Gomphonema* 属のような固着性種については除く) の培養を行なう場合、沈澱物が多く生成するように培地を作成し、培地を入れた培養管を振とうすることにより、藻体の附着基物となる沈澱物を、懸濁状態に保つ必要がある。

このような方法を用いることにより、培養藻の培養管壁への付着はほとんどなくなり、分取試料を用い、増殖量を正確に測定できることが明らかになった。

沈澱物が附着基物となっていることは、光学顕微鏡観察でも明らかで、藻体が不定形の沈澱物中にささ

表-5 異なる方法で作成した Gorham No. 11 改変培地での *Nitzschia palea* の増殖量と付着率

培地作成法	培養日数		
	5日	12日	19日
A1	168.5 (21.0%)	882.8 (22.3%)	768.9 (38.4%)
A1	160.1 (37.5)	787.1 (3.8)	681.1 (18.2)
A2	108.9 (49.2)	895.4 (75.5)	1172.3 (15.2)
A2	133.4 (37.2)	898.4 (75.5)	1130.0 (17.5)
B1	307.1 (4.1)	709.0 (1.1)	695.2 (2.4)
B1	310.7 (5.3)	732.3 (2.6)	619.8 (1.7)
B2	187.5 (2.1)	840.0 (3.2)	773.5 (1.4)
B2	216.4 (13.6)	823.4 (8.4)	803.9 (1.6)

単位: chl. a $\mu\text{g}/\ell$

(): 付着率

測定法	測定値					平均値	標準偏差	変動率
クロロフィル法	761	760	753	763	758	759	3.8 ($\mu\text{g}/\ell$)	0.5%
重量法	44	44	50	38	44	44	4.2 ($\mu\text{g}/\text{ml}$)	9.6%
細胞数計数法	496	351	512	365	496	444	79 ($\times 10^3/\text{ml}$)	17.8%

標準偏差は不偏分散から算出

表-7 最大クロロフィルa濃度の変動

最大クロロフィル濃度	平均値	標準偏差	変動率
1270, 1270, 1280, 1340, 1360,	1300	44.4($\mu\text{g}/\ell$)	3.4%

標準偏差は不偏分散から算出

たり、その表面に付着した状態で、数十から数百集まった群体となった状態で観察される。

9-2 増殖量測定法の精度

培養藻の増殖量測定法として、もっとも広く利用されているのは重量法である。また、現存量が少ない場合はコールターカウンターにより細胞数を測定し、重量に換算する方法が用いられている。

ここでは、増殖量を容易に測定できるクロロフィル法、重量法そして細胞数計数法を用い、振とう培養で対数増殖期となった藻体を各方法で繰り返し5回ずつ測定し、精度を検討した。

クロロフィルa濃度の5回の測定の平均値は755 $\mu\text{g}/\ell$ 、不偏分散からもとめた標準偏差は3.8 $\mu\text{g}/\ell$ 、変動率は0.5%である。これに比べ、懸濁物質と細胞数の変動率はそれぞれ9.6%、17.8%と大きく(表-6)、三者のうちでクロロフィル法の精度がもっとも高い。

また、増殖量測定用の試料を50 mlとした時のクロロフィルaと懸濁物質の両者の定量限界は、前者が100 $\mu\text{g}/\ell$ で後者が100 mg/ℓ で、クロロフィルaに比べ、懸濁物質の測定不能の範囲は極めて大きい。

以上のことより、本報における増殖量の測定はクロロフィル法で行なった。

9-3 最大増殖量の変動

5本の培養管に培地を入れ振とう培養を行ない、最大増殖量を測定した。

最大増殖量はクロロフィルa濃度の最大値であり、クロロフィルaの測定は1日1回行なった。全ての培養管とも同一日に最大値に達した。最大値は1270~1360 chl. a $\mu\text{g}/\ell$ 、変動率は3.4%と極めて小さい

(表-7)。

培地を用いた場合の最大増殖量の変動は、培養条件を同一にすることにより極めて小さくできる。環境水を用いた場合も同様な結果が得られている(福島・未発表資料)。

9-4 クロロフィルaと懸濁物質の関係

*Nitzschia palea*に含まれるクロロフィルaと懸濁物質の関係を検討するため、振とう培養をした同一試料を用い死滅期まで経日的にクロロフィルa濃度と懸濁物質量の測定を行なった。

接種後、対数増殖期から静止期(クロロフィルa濃度より決めた)までのクロロフィルa濃度と懸濁物質量の増加率はほぼ同じである。しかし、静止期をすぎ死滅期に入るとクロロフィルa濃度は急激に減少するのに対し、懸濁物質量は静止期の値とほぼ同じ値を維持している。これは、死滅期において活性の低下もしくは死滅した細胞が多くを占め、そのためクロロフィルa濃度は急激に減少するのに対し、細胞の重量はあまり変化しないためと考えられる(図-6)。

以上のことより、クロロフィルの測定により増殖量をもとめる場合、懸濁物質量の測定による場合に比べ、測定頻度を高くする必要がある。

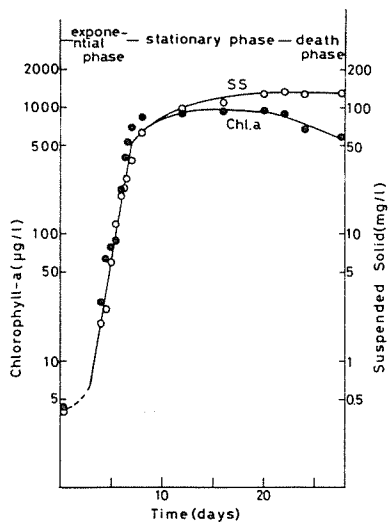


図-6 クロロフィルa と懸濁物質の関係

9-5 クロロフィルa と細胞数の関係

静止期まで振とう培養した *Nitzschia palea* に含まれるクロロフィルa と、細胞数の間に、相関係数 $r = 0.974$ で、 $Y = 0.00113X + 11.8$ の回帰直線が得られ有意水準 0.01 で有意な正の相関関係が認められる (図-7)。

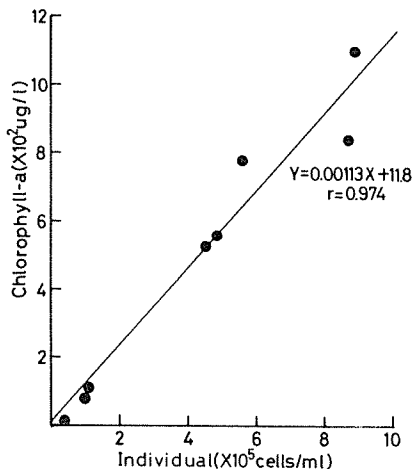


図-7 クロロフィルa と細胞数の関係

試水中での増殖量が極めて少なく、クロロフィルa の測定が困難な場合、細胞数よりクロロフィルa 濃度に換算できる。しかし、先に記したように細胞数計数法の精度はクロロフィル法に比べかなり低いため、細胞数より換算してもとめた増殖量は正確さに欠くので、その値の取り扱いについては注意が必要である。

9-6 窒素・リンを除いた培地での増殖

前培養で細胞内に取り込まれた栄養塩の増殖に与える影響を明らかにするため、Gorham No 11 改変培地で前培養した *Nitzschia palea* を環境中で制限栄養物質となることが多い窒素・リンを除いた培地を用い連続照明下で振とう培養した。

培地は Gorham No 11 改変培地より、 NaNO_3 と K_2HPO_4 を除き、主要栄養分の Na と K はもとの濃度になるように Na_2CO_3 と KHCO_3 でおぎない作成した。

このようにして作成した培地の PH は高いので Gorham No 11 改変培地 (B 1 作成法) とほぼ同様な値に HCl で調製した。

接種した藻体は、前培養で対数増殖期 (560 chl, a $\mu\text{g}/\text{l}$) 静止期 (990 chl, a $\mu\text{g}/\text{l}$) そして死滅期 (830 chl, a $\mu\text{g}/\text{l}$ と 760 chl, a $\mu\text{g}/\text{l}$ の 2 つ) のものである。

各増殖期の藻体を 50 chl, a $\mu\text{g}/\text{l}$ となるように接種した。接種後 6~8 時間で各増殖期のものとも最大増殖量を示した。

最大増殖量は対数増殖期の藻体を接種した時にもつ

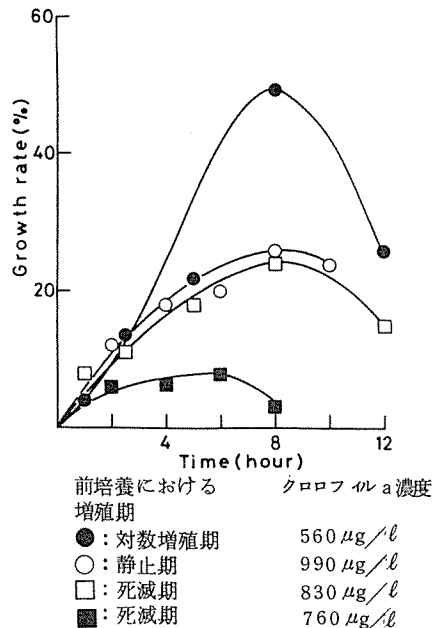


図-8 窒素・リンを除いた培地で前培養期間の異なる *Nitzschia palea* を培養した時の増殖率

とも大きくなり、接種量に対し49%の増加率を示し、次いで静止期のもので26%、静止期をすぎ、死滅期に入って2日目目でクロロフィルa濃度が830 $\mu\text{g}/\text{l}$ のものでは24%、また、死滅期でクロロフィルa濃度が760 $\mu\text{g}/\text{l}$ のものでは8%を示した(図-8)。

以上のことより、Gorham No. 11 改変培地を用いた前培養期間が長い藻体を接種することにより、栄養塩がない試水中での最大増殖量はより小さくおさえることができることが認められた。また誘導期を生じさせないように静止期もしくは死滅期に入った直後の藻体を接種した場合、最大増殖量の誤差は接種量の26%以内、つまり、クロロフィルa濃度を10 $\mu\text{g}/\text{l}$ となるよう接種した時生じる誤差は3 $\mu\text{g}/\text{l}$ 以内におさえることができることが明らかになった。

9-7 実験方法・条件が増殖へ及ぼす影響

9-7-1 培養方法

培養藻の増殖期、接種量そして実験条件を同一にし、振とう法と静置法でそれぞれ培養し、培養方法の影響について検討した。

振とう法の場合、表-5に示したB1の実験結果、さらには振とう培養における付着率の測定を1~2日間隔で行なった実験(福島・未発表資料)でも3%以上の付着率を示したことはなく、藻体の培養管壁への付着はほとんど認められない。

しかし、静置法の場合、培養開始直後の対数増殖期の付着率は大きく、全体の約65%を占め、その後増殖が進むにつれ、付着率は減少し静止期には付着が認められなくなる(図-9)。

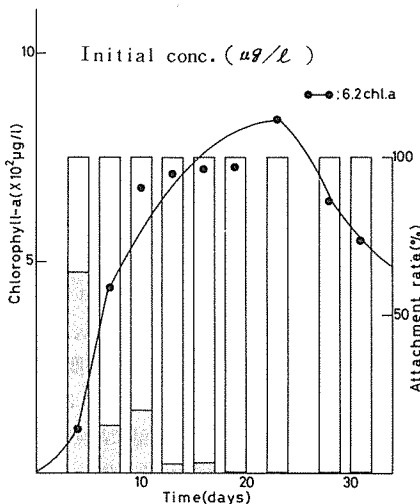


図-9 静置培養における *Nitzschia palea* の増殖量と培養管壁面付着率
付着率, $n=3$ の平均値

また、培養法の相違は比増殖速度、最大増殖量、そして最大増殖量までの日数にも影響を及ぼしている。振とう法に比べ静置法では増殖速度は小さく、最大増殖量も小さく、最大増殖量までの日数は長くなっている(表-8)。

表-8 培養法の相違が増殖に与える影響

培養法	比増殖速度	最大増殖量	日数
静置培養	0.46 day ⁻¹	840 chl.a $\mu\text{g}/\text{l}$	23
振とう培養	0.71	1080	16

日数：最大増殖量を示した時までの日数

比増殖速度(μ)は、対数増殖期の各測定時のクロロフィルa濃度より、複数の回帰直線を最小2乗法でもとめ、もっとも大きい傾きを示す測定区間の値より以下の式を用いて算出した。

$$\mu = 1 / (t_2 - t_1) \cdot \ln N_2 / N_1 \quad (\text{day}^{-1})$$

t：日数、N：藻体量(クロロフィルa濃度)

9-7-2 増殖期と接種量

前培養で増殖期の異なる藻体を異なる2段階の濃度で接種し、同一条件下で振とう培養を行ない、増殖へ与える影響について検討した。なお、死滅期の藻体を用いた実験では接種濃度は1段階のみである。

対数増殖期と静止期のそれぞれの藻体の接種濃度はともに4倍異なるが、比増殖速度と最大増殖量には大きな相違は認められず、最大増殖量までの日数は同じである。つまり接種後のクロロフィルaの濃度が6から25 $\mu\text{g}/\text{l}$ 位の間では、接種量が増殖に及ぼす影響は小さいと言える。

また前培養において増殖期の異なる藻体を用いた場合、最大増殖量は接種量の相違の場合と同様、大きな相違は認められない。しかし、比増殖速度と最大増殖量までの日数はかなり異なる(表-9)。

表-9 接種藻の増殖期と接種濃度の相違が増殖に与える影響

接種藻の増殖期	初期濃度	比増殖速度	最大増殖量	日数
対数増殖期	chl.a $\mu\text{g}/\text{l}$	day ⁻¹	chl.a $\mu\text{g}/\text{l}$	
	6.3	0.49	980	12
	25.2	0.40	1100	12
静止期	6.4	0.71	1080	16
	25.5	0.66	1160	16
死滅期	7.4	1.20	1000	17

日数：最大増殖量を示した時までの日数

対数増殖期と静止期の藻体を接種した場合、誘導期は認められないが、死滅期の藻体を接種した場合は、かなり長期間増殖量は小さく、誘導期が明らかに認め

られる(図-10、図-11、図-12)。

以上のことより、前培養藻の増殖期の相違が増殖へ及ぼす影響は大きいと言える。

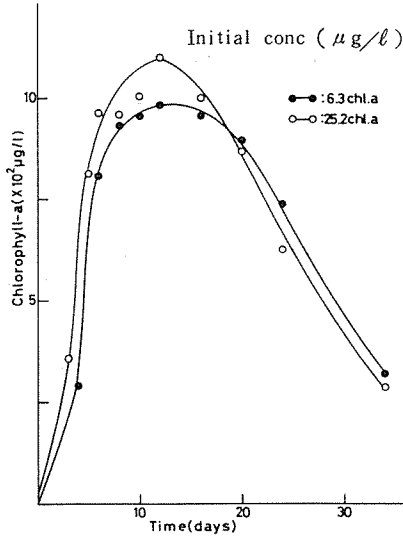


図-10 対数増殖期の藻体を接種して振とう培養した *Nitzschia palea* の増殖
n = 3 の平均値

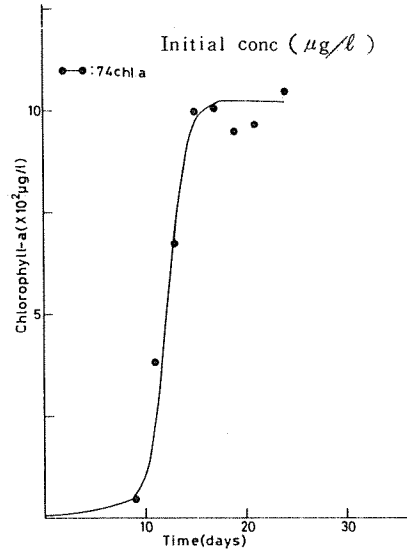


図-12 死滅期の藻体を接種して振とう培養した *Nitzschia palea* との増殖
n = 3 の平均値

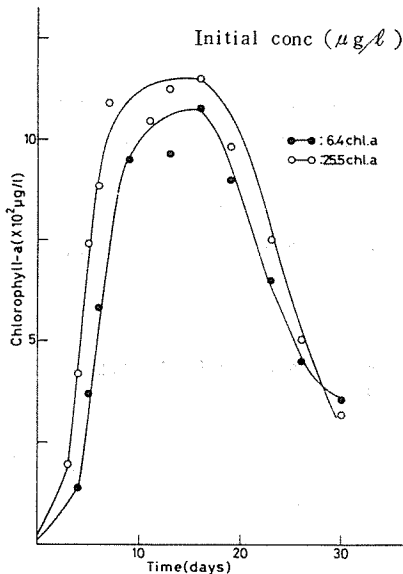


図-11 静止期の藻体を接種して振とう培養した *Nitzschia palea* の増殖
n = 3 の平均値

9-7-3 温度と光

温度条件が10、20、30℃の時に照度を4、8、12 Klux に設定し、振とう培養を行ない、温度と光の影響について検討した。

最大増殖量までの日数は、各温度において照度が大きいほど少ない傾向が認められる。

最大増殖量は、各温度において、照度が4 Klux の時に最大となり、12 Klux の時に最小となる。

また、死滅期におけるクロロフィル a 濃度の減少率は温度が高いほど大きい(図-13、図-14、図-15)。

比増殖速度は10℃で0.45~0.60 day⁻¹、20℃で0.64~0.90 day⁻¹、そして30℃で0.78~1.22 day⁻¹を示しており、同一照度条件下では温度が高いほど比増殖速度は大きい。また同一温度条件下では、20℃と30℃の場合は照度が大きいほど比増殖速度は大きくなる。しかし、10℃では8 Klux に比べ12 Klux の時の比増殖速度は小さく、一般に低温で高照度の時に見られる細胞の褪色²⁷⁾が起っている(図-16)。

以上のことより温度と光条件の相違が増殖へ及ぼす影響は極めて大きいと言える。

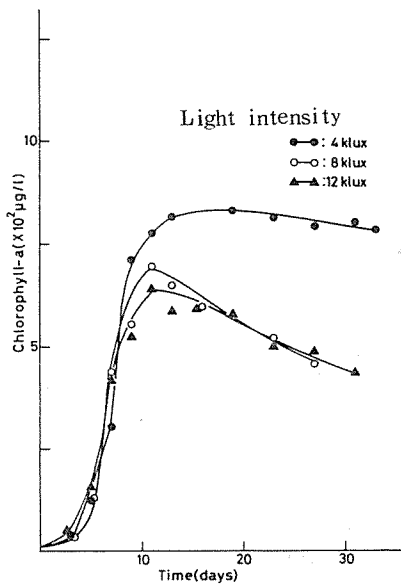


図-13 温度10°Cで振とう培養した
Nitzschia palea の増殖
n = 3 の平均値

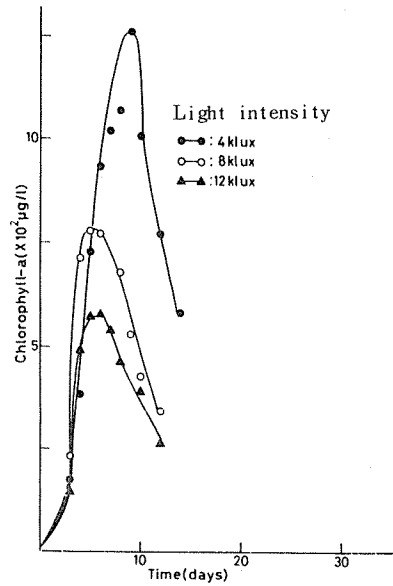


図-15 温度30°Cで振とう培養した
Nitzschia palea の増殖
n = 3 の平均値

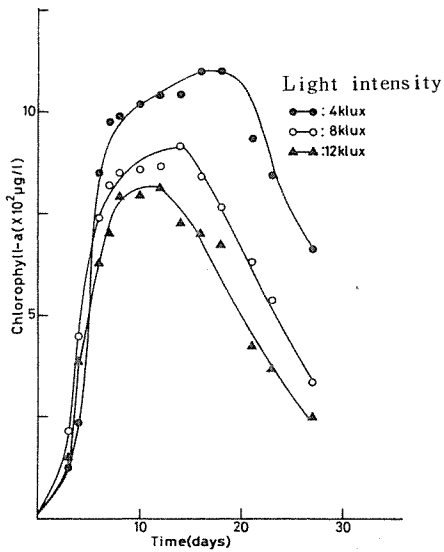


図-14 温度20°Cで振とう培養した
Nitzschia palea の増殖

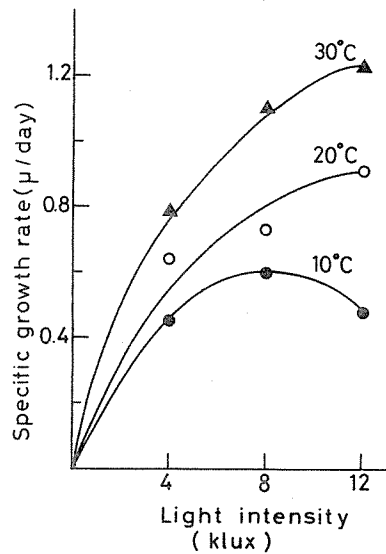


図-16 比増殖速度(μ)におよぼす温度と
照度の影響

1.0. まとめおよび今後の課題

Gorham No. 11 改変培地を用いた *Nitzschia palea* の培養実験により、以下のことが明らかになった。

- 1) 附着性種の *Nitzschia palea* の培養管壁への附着の防止は、培地に含まれる全成分を混合した後、高圧蒸気滅菌して作成し、水酸化鉄を主体とした沈澱物を多く生成させ、藻体の附着基物となる沈澱物を懸濁状態に保つため、振とう培養することにより可能である。
- 2) 静置培養では、1)と同じ方法で作成した培地を用いても、培養初期の対数増殖期に藻体の多くが培養管壁に附着する。
- 3) 分取試料により増殖量の測定をするためには、振とう培養をする必要がある。
- 4) 増殖量測定法の精度は、クロロフィル法がもっとも高く、以下、重量法そして細胞数計数法の順である。
- 5) クロロフィル *a* 濃度でもとめた最大増殖量の変動率は極めて小さい。
- 6) Gorham No. 11 改変培地で前培養した藻体を、窒素・リンを除いた培地で培養した時の最大増殖量は極めて小さい。
- 7) 接種濃度の相違が増殖へ及ぼす影響は小さいが、培養方法、前培養における増殖期、そして培養条件(温度・照度)の影響は大きい。

また、*Nitzschia palea* を供試藻とした AGP 測定のための留意点として以下のことが明らかになった。

- 1) 保存培養と前培養の培地は、Gorham No. 11 改変培地を用いる。その作成は、沈澱物を多く生成させるため、全成分を混合した後、高圧蒸気滅菌して行なう。
- 2) 前培養は藻体の培養管壁への附着を防ぎ、増殖量の正確な測定を可能にするため、振とう培養法を用いる。また、AGP の測定においても、水中に附着基物となるものがあれば、振とう培養することにより、藻体の附着は防げ、分取試料による増殖量の測定が可能となると考えられる。
- 3) 培養条件は、AGP のより高い再現性、また値の比較をする上でも一定とする必要がある。適当な培養期間を保つため、さらに条件のコントロールの容易さから、温度 20℃、照度 4Klux で 14 時間・10 時間暗条件とする。
- 4) 接種による最大増殖量の誤差を小さくするとともに、正常な増殖を可能にするため、前培養で静止期もしくはそれをすぎた直後の死滅期の藻体を用い、接種後のクロロフィル *a* 濃度が約 10μg/l となるように接種する。
- 5) 増殖量の測定は、精度が高いクロロフィル法によ

り、クロロフィル *a* 濃度として測定し、AGP は最大クロロフィル *a* 濃度とする。クロロフィル *a* は最大値を示した後すぐ減少し始めるので、測定頻度はかなり高くする必要がある。

AGP の測定を行なうためには、さらに試水の前処理と希釈、藻体の培養管壁への附着の防止、そして増殖量測定頻度等の環境水を用いた検討を加える必要がある。

文 献

- 1) National Eutrophication Research Program
EPA: Algal Assay Procedure Bottle Test, 82PP. (1971).
- 2) 須藤隆一・他 5 名: 陸水域の富栄養化に関する総合研究(X), 藻類の培養試験法による AGP の測定, 国立公害研究所研究報告・第 26 号<R-26-81>, 53PP. (1981).
- 3) 須藤隆一・他 4 名: 都市下水の 2 次処理水が示す藻類生産の潜在能力, 下水道協会誌 Vol. 12, No. 133, 34-42 (1975).
- 4) 大月敏弘・小倉紀雄: 藻類培養試験 (AGP の測定) による南浅川の富栄養化の評価, 用水と廃水 Vol. 22, No. 3, 49-54 (1980).
- 5) 須藤隆一・森忠洋・岡田光正: 藻類培養試験による富栄養化の評価, 用水と廃水 Vol. 15, No. 1, 107-115 (1978).
- 6) 岡田光正・須藤隆一: AGP をめぐる諸問題、用水と廃水 Vol. 27, No. 7, 5-19 (1978).
- 7) 大庭和彦・他 6 名: 藻類培養試験を用いた阿武隈川の富栄養化調査, 宮城県公害技術センター報 6, 40-48 (1977).
- 8) 森忠洋・須藤隆一・岡田光正: 下水 3 次処理水の藻類培養試験, 日本水処理生物誌 Vol. 14, No. 2, 22-29 (1978).
- 9) 竺文彦・北尾高領・岩井重久: 藻類培養試験法に関する基礎的研究, 用水と廃水 Vol. 19, No. 3, 53-62 (1977).
- 10) 川上誠一・他 4 名: 藻類生産の潜在能力 (Algal Growth Potential) 試験による水質の富栄養化と水質浄化に関する研究 (第 1 報), 島根県公害衛生研究所報 20, 53-60 (1978).
- 11) 川上誠一・他 3 名: 藻類生産の潜在能力 (Algal Growth Potential) 試験による水質の富栄養化と水質浄化に関する研究 (第 2 報), 島根県公害衛生研究所報 21, 48-51 (1979).

- 12) 横浜市公害対策局：横浜市内河川・海域の水質汚濁と生物，公害資料No 53，25-64 (1974).
- 13) 横浜市公害対策局：横浜の川と海の生物，公害資料No 73，34-89 (1978).
- 14) 横浜市公害対策局：横浜の川と海の生物(第3報)，公害資料 No 92，109-179 (1981).
- 15) 福島博・小林艶子：生物指標としての珪藻，環境と生物指標2(水界編)，45-60(1975)，東京.
- 16) R. W. Lowe : Environmental Requirements and Pollution Tolerance of Freshwater Diatoms EPA-670/4-74-005 333 PP. (1974).
- 17) F. Hustedt : Bacillariophyta (Diatomeae) ; in A. Paschers, *Die Süßwasser-Flora Mitteleuropas*, Heft 10, 466 PP. (1930) Jena.
- 18) A. Schmidt : Atlas der Diatomaceen-Kunde, Fortgesetzt von M. Schmidt, F. Frick, O. Müller, H. Heiden und F. Hustedt, Ser 1-10 Pl. 1-420, 433-480 (1827-1959), Leipzig und Berlin.
- 19) B. J. Cholnoky : Die Diatomeen im Unterlaufe des Okavango - Flusses, Beiheft Nova Hedwigia 21, 102 PP. + Tafel 8 (1966).
- 20) N. Foged : Freshwater Diatoms from Ghana, Biologiske Skrifter Det Kongelige Danske Videnskabernes Selskab Bind 15, nr. 1, 169 PP. + Pl XXV (1966).
- 21) A. Van der Werff · H. Huls : Diatomeenflora van Nederland, Aflevering 2, (1958).
- 22) H. Lange - Bertalot · R. Simonsen : A Taxonomic Revision of the Nitzschiae lanceolatae Grunow 2. European and Related Extra - European Fresh Water and Brackish Water Taxa, Bacillaria 1, 11-111 (1978).
- 23) 国立公害研究所水質土壌環境部陸水環境研究室：Microcystis aeruginosa (アオコ)による水の華の生成とその発生防止のための基礎的研究，陸水環境研究室研究資料 FRL/80-1, 114 PP (1980).
- 24) J. D. H. Strickland · T. R. Parsons : A Practical Handbook of Seawater Analysis, Bull, Fish, Res. Bd. Can. 167, 185-192 (1972).
- 25) 有賀祐勝・市村俊：光合成色素の測定 (SCOR - UNESCO作業委員会報告翻訳)，Inform. Bull. Planktol. Japan No 12, 79-84 (1965).
- 26) 日本規格協会：工場排水試験 JIS K 0102, 19-20 (1974).
- 27) 田宮博・渡辺篤：藻類実験法，46-104 (1977)，東京.

排水処理汚泥の資源化に関する基礎研究

野木一男^{*}, 杉本 実^{*}, 遠田和雄^{*}, 下村 光一郎^{*}

要 旨

本報では、ポリビニルアルコール（以下PVAと呼ぶ）を含有する繊維精練排液の凝析反応生成物をはじめ捺染排水処理汚泥焼却灰、下水処理汚泥焼却灰、使用済みもの砂等の有効利用について、セメントとの配合による固型化のための基礎実験を行った。その結果、セメントとの親和性のよいもの砂と下水汚泥焼却灰は、標準砂と比較してモルタル化した場合に強度発現が期待出来ることがわかった。しかし、吸水性の強いPVA凝析物と粒子の微細な捺染排水処理汚泥焼却灰は強度発現に問題点が残された。

1. はじめに

排水処理を行うと多量の排出泥があり、その処理処分は大都市における埋立地等、処分地の確保が困難となるにしたがい、今後の排水処理技術の研究を進める上で排泥量の低減化あるいは排泥の再資源化などが重要な課題となってきている。

そこで今回は、筆者らが、先にPVAを含有する濃厚な排液の処理方法と成果^{1,2,3)}の中で生成したPVA凝析物をはじめ数種の産業廃棄物について省資源、再利用の見地から有効な利用方法を検討するものとし、その基礎研究として、セメントによる固型化を行った。

その結果細骨材としての再利用における強度特性について若干の知見を得たので報告する。

2. 実験方法

2-1 使用材料

材料は普通ポルトランドセメント（表-1）、豊浦標準砂、PVA凝析生成物、水ガラス系浜砂（以下W・Sと呼ぶ）、フラン樹脂系砂（以下F・Sと呼ぶ）、捺染排水処理汚泥焼却灰（以下N・Aと呼ぶ）、下水処理汚泥焼却灰（以下W・Aと呼ぶ）などを使用し、また練り混ぜに使用する水は水道水とした。

2-2 モルタルの配合

モルタルの配合は、JIS R5201-1964のセメントの物理試験方法（供試体の作り方⁴⁾に従って行うものとした。各種モルタルの配合は表-2に示す。これらの配合条件は、水、セメント比（W/C）が65%、セメント：砂の比が1：2である。なおPVAの粒子は最大10mm～最小5mm程度であり、このため粒度の分

表-1 セメントの試験成績表

種 類	比重	比表面積 クレーン方法 cm ² /Kg	凝 結				安定性 (煮沸 方法)	フロー値 (mm)	曲 げ 強 さ (Kg/cm ²)				圧 縮 強 さ (Kg/cm ²)				
			室温 (°C)	湿度 %	水量 %	始発 時分			終結 時分	1日	3日	7日	28日	1日	3日	7日	28日
普通セメント	3.15	3320	20.0	91	28.7	3-01	4-31	良	264		34	49	66		147	229	402
種 類	化 学 成 分 (%)										比 率 係 数					水 和 熱 Kg/cm ²	
	強熱 減量	不溶 残分	二酸化 ケイ素	酸化アル ミニウム	酸化鉄 第二鉄	酸化カル シウム	酸化マグ ネシウム	酸化三 ネウム	酸化 いおう	合計	水硬率	活動 係数	けい 酸率	アルミナ 比	石灰 灰和度		
普通セメント	0.4	0.3	22.2	5.3	3.1	64.4	1.4	2.2	99.3	2.0	4.1	2.6	1.7	0.89			

An Experimental Research on the Utilization of Industrial Waster and Sludges from Wastewater Treatment.

* Kazuo Nogi, Minoru Sugimoto, Kazuo Enda, Kohichiro Shimomura,
横浜市公害研究所水質部門

布状態がかたよってしまうので、粒子が0.3~2.5mmの細骨材料として標準砂を混合して使用するものとした。その配合比は、セメント+標準砂+PVA、セメント+産廃材+PVAとも1:1:1とした。

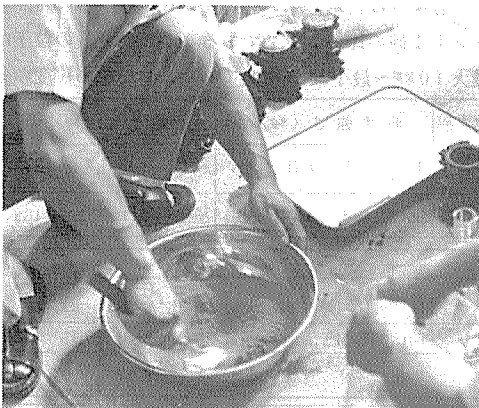
表一 各種モルタルの配合表

種類	記号	水(g)	セメント(g)	(mℓ) 混合材料	(cm) フロー値(耐用)	(回) 突き数
豊浦標準砂	SS	338	520	(1040g) 700	170~209	15
水ガラス系浜砂	WS	338	520	700	170~209	15
フッ樹脂系珪砂	FS	338	520	700	170~209	15
ナッセン焼却灰	NA	360	554	700	170~209	15
下水焼却灰	WA	350	538	700	170~209	15
ポリビニール アルコール樹脂	PVA	338	520	SS 350 PVA 350	170~209	15

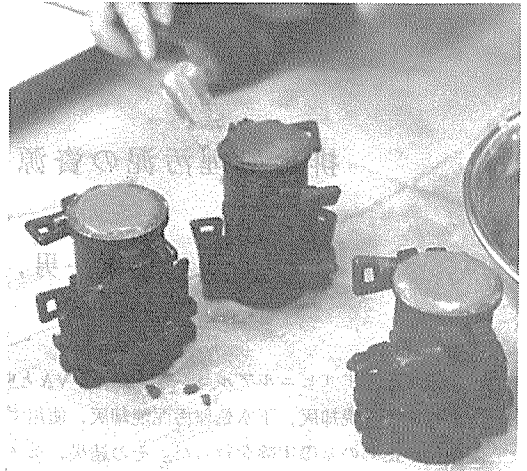
3 供試体の作成方法

供試体の形状は、三連型枠(4×4×16cm)、円柱型枠(φ5×10cm)とし、それぞれJISに従って作成するものとした。またモルタルの練り混ぜは手練りで入念に行い、それぞれの型枠に打設した。打設直後に、型枠の周りを軽くたたいて上面を平らにし、24時間静置した後、供試体上面のレイタンスを取りのぞいて入念に洗浄し、セメントペーストでキャッピングし24時間再び室内養生してから離型して水中養生を行った。

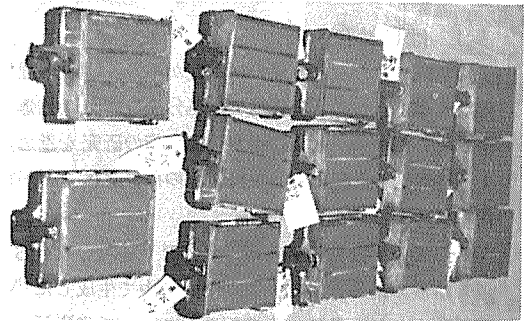
写真1~4にその状況を示す。



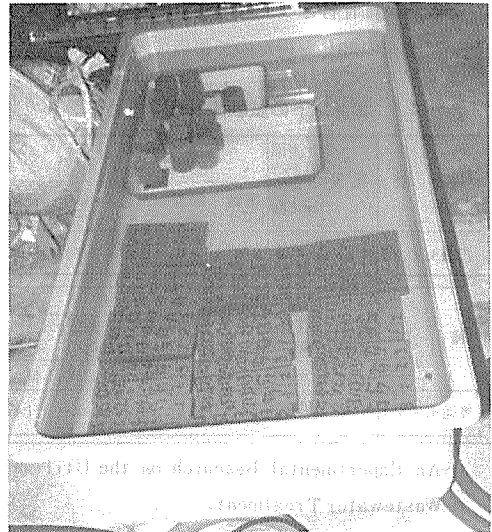
写真一 標準モルタルの練りませ状況



写真二 円柱型枠(φ5cm x 10cm)への各種モルタル打設状況



写真三 三連型枠(4x4x16cm)への各種モルタル打設状況



写真四 各種モルタルの水中養生

4 実験結果および考察

同一の配合条件の下に行った各種材料を固化化したモルタルの曲げ強度、圧縮強度特性を、表-3、4 図-1、2に示す。

4-1 各種モルタルの曲げ強度特性

図-1から明らかなようにPVA材の曲げ強度は材令7日で $14.9\text{ kg/cm}^2 \sim 18.3\text{ kg/cm}^2$ とかなり低い値となった。またNA材もPVA材と同様低い値であり、建材に必要な強度が得難いことが把握された。

表-3 各種モルタルの曲げ・圧縮強度表

材令7日

モルタルの種類 供試体	豊浦標準砂	水ガラス系浜砂	フラン樹脂系珪砂	標準砂系 ポリビニール アルコール樹脂 (PVA+SS)	浜砂系 ポリビニール アルコール樹脂 (PVA+WS)	珪砂系 ポリビニール アルコール樹脂 (PVA+FS)	フラン樹脂 系珪砂 +豊浦標準砂	下水焼却灰	ナッセン 焼却灰	
	SS (kg)	WS	FS	PVA1	PVA2	PVA3	FS+SS	WA	NA	
重量 kg (養生後)	1	5400	5205	5435	4070	4290	4290	5400	4240	4580
	2	5410	5205	5470	4340	4235	4425	5420	4245	4570
	3	5420	5200	5475	4150	4225	4350	5430	4230	4600
平均 断面積 (cm^2)	1	16605	16159	16483	16926	16727	16805	16159	16160	15983
	2	16354	16646	16361	17056	16602	16747	16136	16307	16068
	3	16441	16558	16686	16605	17222	16781	16039	16120	16224
曲げ強度 (kg/cm^2)	1	45.8	25.3	29.8	19.4	16.1	14.8	42.3	26.7	13.7
	2	48.8	28.2	33.0	18.0	13.9	18.5	42.5	26.4	11.9
	3	47.1	28.5	39.8	17.7	14.7	15.3	43.4	27.5	12.1
	平均値	47.2	27.3	34.2	18.3	14.9	16.2	42.7	26.8	12.5
圧縮強度 (kg/cm^2)	1	177.2	125.1	151.1	61.2	48.6	42.2	156.3	89.6	31.2
	2	182.4	119.8	140.7	68.5	42.1	52.8	156.3	90.6	38.5
	3	172.0	117.8	148.0	59.8	39.0	59.5	169.9	87.5	35.4
	4	182.4	118.8	133.4	63.1	42.3	60.8	177.2	93.8	27.1
	5	177.2	119.8	156.3	57.9	51.7	50.7	145.9	99.0	38.5
	6	178.6	121.9	137.6	60.5	44.8	57.4	158.4	84.4	37.5
	平均値	180	121	145	62	45	54	161	91	35

表-4 各種モルタルの圧縮強度表

$\phi 5 \times 10\text{ cm}$

モルタルの種類	記号	材令	供試体重量(養生後) (kg)			供試体平均直径 (cm)			モルタルの圧縮強度(kg/cm^2)				備考
			1	2	3	1	2	3	1	2	3	平均値	
豊浦標準砂	SS	3日	411.5	413.5	413.5	5.007	4.980	4.997	102.2	107.2	115.0	108	
		7日	416.0	410.0	416.0	5.010	4.965	5.000	182.7	137.4	166.6	162	
		28日	418.0	417.0	416.0	4.997	4.925	5.000	225.2	191.2	233.7	217	
水ガラス系浜砂	WS	3日	404.5	402.5	405.0	5.001	5.000	5.001	90.5	80.3	80.5	88.4	
		7日	407.5	399.0	399.5	5.040	5.015	5.015	116.4	109.6	135.1	120	
		28日	404.5	402.5	405.0	5.015	4.995	5.020	133.9	146.7	123.5	135	
フラン樹脂系珪砂	FS	3日	411.0	413.0	413.0	5.000	5.001	5.000	114.4	130.7	109.8	118	
		7日	414.0	412.0	414.0	5.001	5.000	5.001	192.9	158.0	195.5	182	
		28日	411.0	413.0	413.0	4.995	5.015	5.010	/	/	/	/	
ナッセン焼却灰	NA	3日	366.3	361.5	362.8	5.003	5.010	4.998	31.5	26.8	30.4	30	
		7日	364.0	362.0	363.0	5.001	4.999	5.010	44.2	50.0	44.7	46	
		28日	365.5	367.1	364.6	5.010	5.001	5.007	54.4	65.9	60.3	60	
下水焼却灰	WA	3日	324.0	330.0	326.5	4.987	5.010	4.995	86.9	86.2	86.6	87	
		7日	329.0	327.5	325.0	5.010	4.990	4.990	128.8	133.3	131.5	131	
		28日	337.5	329.5	332.5	5.030	4.990	4.997	176.4	159.4	170.5	169	
ポリビニール アルコール樹脂	PVA	3日	343.0	349.0	356.5	4.994	4.975	4.980	36.6	35.6	44.0	39	
		7日	353.5	352.5	358.0	4.990	4.980	5.015	72.2	50.9	61.1	61	
		28日	353.5	357.0	353.0	4.980	5.010	4.980	84.9	72.2	92.6	83	

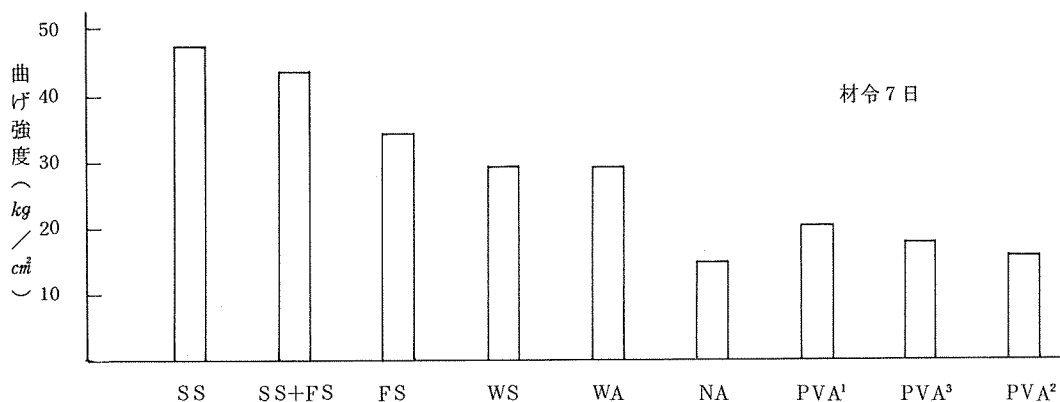


図-1 各種モルタルの曲げ強度比較図

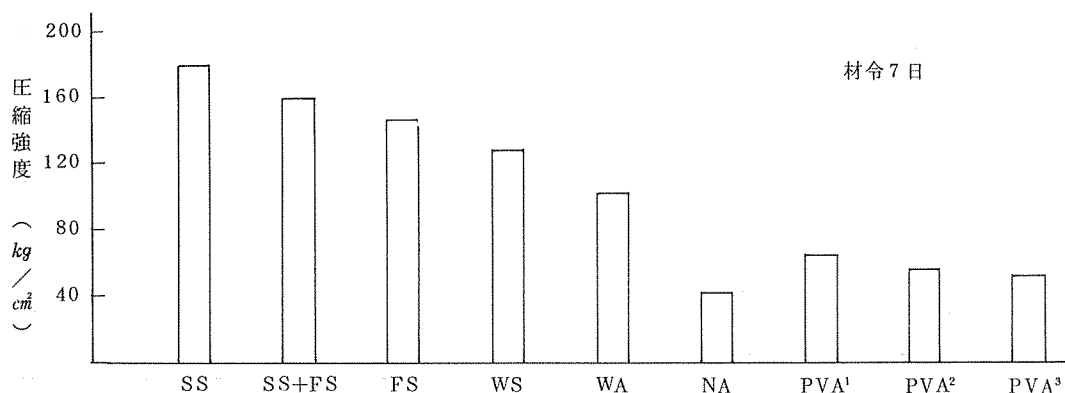


図-2 各種モルタルの圧縮強度比較図

これらの強度が低かった理由は、①PVA材は乾燥状態においてかなりの強度を発揮するが、水分を吸収して湿潤状態になると強度が著しく低下する。②セメントとの結合力が弱く、破断面は全てセメントペーストがPVA材から剝離している。③NA材は粒子構造がかなり小さいため粒子間の接着が悪い。④NA材そのものの強度が低い。などが考えられる。したがって、これらの材料の再利用については、あまり曲げ強度を要求しない他の方面への利用を検討していく必要がある。

一方FS・WS・WA材の曲げ強度は、材令7日で25kg/cm²以上の値が得られた。このことから今後、材令28日強度についても考察する必要があるが、低、中強度を有するコンクリート固化物として検討するのに十分値するものであり、コンクリート強度等の実験を重ねて行く必要がある。特にFS材の強度特性については極めて良い値が得られており、有効な資源化利用の一つになるものと思われる。

写真5, 6は供試体の載荷試験状況を示し、写真7

~10はその破断面の形況を示す。

4-2 各種モルタルの圧縮強度特性

図-2は各種モルタルの圧縮強度特性を示したものである。図からも明らかのように、図-1の曲げ強度特性と同様の傾向を示し、PVA材、NA材の圧縮強度は、材令7日で35kg/cm²~62kg/cm²と、かなり低い値である。またFS、WS、WA材については材令7日の強度は、90kg/cm²、材令28日の強度(表-4, 図-3参照)は、120kg/cm²以上の値が得られた。これらの材料については今後配合条件等を変え、コンクリート強度特性についてさらに考察を進め、強度的に安全度の高い経済性に富んだコンクリートの製作を試みたい。

4-3 各種モルタルの圧縮強度と材令との関係

図-3は各種モルタルの圧縮強度と材令との関係を表わしたものであり、PVA、NA材の強度は短期材令時から極端に低い値を示し、長期材令に至っても著しい強度発現は認められなかった。これはセメントが

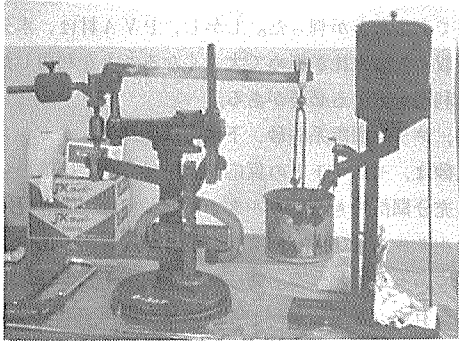


写真-5 曲げ試験用供試体の載荷状況

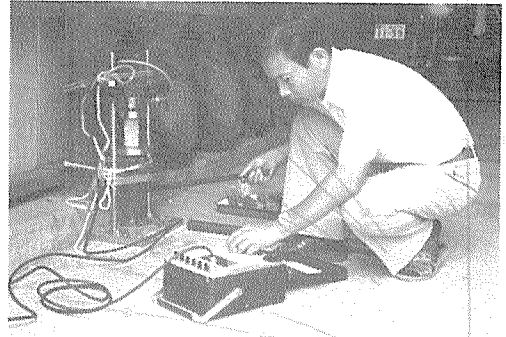


写真-6 円柱供試体の圧縮載荷状況

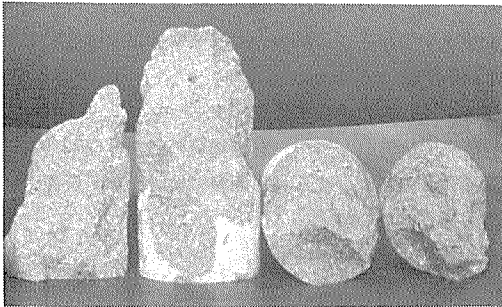


写真-7
フラン樹脂入り浜砂の
破断面の形況

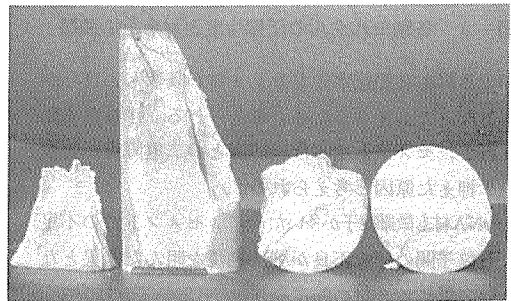


写真-8
標準モルタルの
破断面の形況

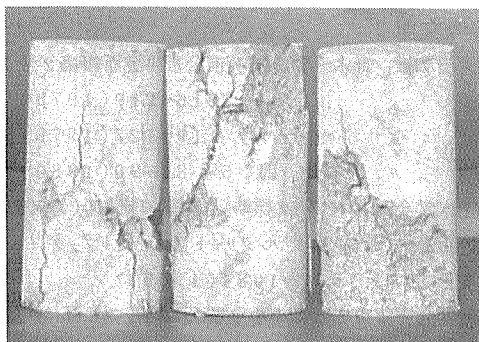


写真-9
捺染汚泥焼却灰の破断面の形況

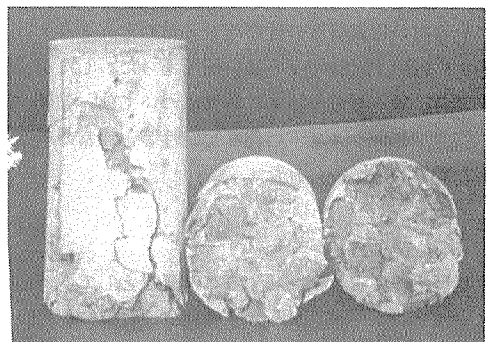


写真-10
PVA凝析物の破断面の形況

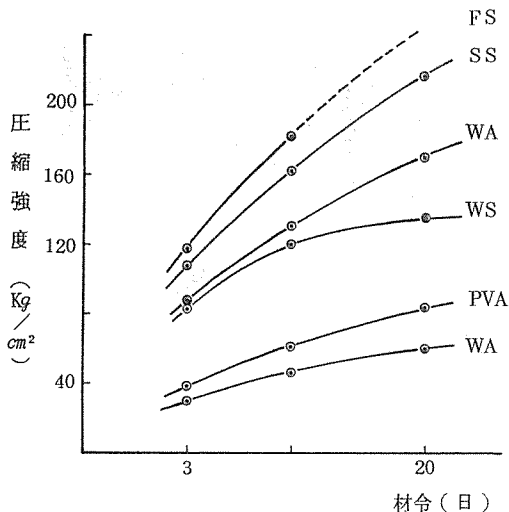


図-3 各種モルタルの圧縮強度と材令との関係

水和する際に必要な水分をPVA材が吸収し、自らが脆弱となってしまったためと考えられる。すなわち脆弱材料と、セメント水和作用妨害との二重障害が強度発現を押えた原因と考えられる。

またNA材も微細粒子が多いため、セメント量の不足による粒子間の付着不良が強度発現を阻んだ結果となった⁵⁾。更にWS材の強度発現は、圧縮強度が $120\text{kg/cm}^2 \sim 130\text{kg/cm}^2$ と増加率が低くなっていることから材料の強度に限界があるものと思われる。これはモルタルの破断面によっても確認された。

一方、WA、FS材のモルタルの強度の発現はSS材(標準砂)の強度発現の増加率とほぼ同率で伸びており、圧縮強度の特性として良い傾向を示している。

特にFS材の圧縮強度の伸びはSS材のそれより大きく約1.13倍(材令7日)と高い値であった。したがってFS材、WA材のモルタル強度については、強度発現、強度増加、セメントの強度安定性等、通常のもルタルと同等の値が得られた。

5. まとめ

排水処理汚泥の資源化に関する基礎研究として、ポリビニールアルコール(PVA)凝析処理物質や他の産業廃棄物(捺染排水処理汚泥焼却灰、水ガラス系浜砂、下水処理汚泥焼却灰、フラン樹脂系珪砂)を用いてセメントとの混合による固型化実験結果を要約すると次のようになる。

(1), PVA凝析生成物および捺染排水処理汚泥焼却

灰は、セメントとの混合による固型化において、曲げ、圧縮についての強度発現は期待できない。したがってモルタルおよびコンクリート用骨材としては不適当な材料であることが判った。しかし、PVA材は、水分を吸収し、含水比が極めて大きくなることを利用した他の利用を考える必要がある。

(2), フラン樹脂系珪砂、下水汚泥焼却灰、水ガラス系浜砂は、セメントとの反応が良好で曲げ、圧縮の強度も充分期待できる。モルタル材としては、吹き付け用モルタルおよびブロック等の練り積み材への使用が可能であると思われる。特にフラン樹脂系珪砂は高い強度を有するコンクリート等に効果を発揮するものと思われる。

(3), 同一条件で製作した材令28日の各種モルタルの圧縮強度は、下水汚泥焼却灰で 169kg/cm^2 、水ガラス系浜砂で 135kg/cm^2 の値が得られたが、これらは標準砂より低く、標準砂の62%~78%であった。

なおフラン樹脂系珪砂については標準砂より強度が高く113%以上であった。

今後は、これらの研究成果を踏まえコンクリート強度の特性を実験考察しつつ、有害物質の封鎖性^{6),7)}等溶出試験、低強度における利用面等の検討を加え資源化を図って行きたい。

謝 辞

本研究を進めるに当たり、種々の産業廃棄物の調達に御協力いただいた環境事業局施設部産業廃棄物指導課三橋係長ならびに良質のセメントを提供して下さった日本セメント(株)研究所、圧縮試験に協力下さった神奈川県工業試験所環境部に深く感謝いたします。

参考文献

- 1) 遠田和雄, 野木一男.: 横浜市公害研究所報第2号, 215~219(1978)
- 2) " " 4号, 119~127(1979)
- 3) " " , 下村光一郎: 5号, 85~90(1980)
- 4) 土木学会: コンクリート標準示方書, 377~390(1969)
- 5) 近藤泰夫, 坂静雄: コンクリート工学ハンドブック, 3~108, 1067~1081(1965)
- 6) 産業公害防止協会: 中小企業公害防止対策研究報告書-有害廃棄物の無害化処理について, 1~24(1981)
- 7) 横浜市環境事業局施設部産業廃棄物指導課: 汚泥等の処理処分について, 10~22(1978)

原子吸光光度法によるひ素の定量(第2報)

大場 栄次*

要旨

蒸留水にひ素を添加した試料を、硝酸と過塩素酸で前処理後、過マンガン酸カリウム溶液を添加し煮沸して酸化処理を行ない、ひ素を水酸化鉄のフロックに吸着させ、吸引濾過により濃縮を行ない水溶液中での共存元素と分離する。濃縮操作で得た沈澱物を溶解してひ化水素の発生操作を行ないながら、原子吸光装置の水素-アルゴン炎のフレイムに導き、原子吸光度を測定する方法で回収率と安定性の良い結果を得ることができた。

1. はじめに

河川水や工場排水中等の分析を行なうには、前もって妨害物となりやすい有機物などを分解する操作が必要な場合が多い。そこで種々の前処理操作の中で、比較的簡単な方法で行なえる湿式分解についていえば、硫酸、硝酸、塩酸、過塩素酸などを、単独または組合わせて試料に添加し、加熱沸騰して有機物等の分解を行なう操作がある^{1,2,3}。この一般的と考えられる、酸を利用する前処理過程を経てひ素の定量を行なうには、前処理用酸の種類に制限がある。たとえば塩酸を使用すると、ひ素の多くが低沸点の塩化物になり加熱分解時に揮散する⁴。また硫酸を使用すると、塩化第二鉄とアンモニア水によりアルカリ性側(pH 9~10)で生成する水酸化第二鉄に、ひ素を吸着させ共沈操作を行なう場合、試料のpH調整時にアンモニア水を多量に消費し、扱い難い点がある。以上の理由から、酸の中では加熱時に比較的揮散の早い硝酸と、使用する量が少量でも有機物が分解する過塩素酸の使用が考えられるが、過塩素酸のみを使用すると有機物の多い試料では有機物と激しく反応して危険を伴うため、硝酸を添加して過激な反応を防止する必要がある^{1,2,3,5}。また前回(第1報-所報第5号)の結果では、前処理過程で使用した硝酸が残存することがあり、このような状態でひ化水素を発生し測定を行なうと、測定値の変動が大きく、実用に適さなかった⁴。今回は硝酸を使用することを前提に、過塩素酸を併用して前処理を行な

てこれに伴う測定操作過程の改良を行ない、かつひ素の回収率と測定値の安定性を向上させる要因を調査した。

2. 実験方法

2-1 装置及び器具

2-1-1 原子吸光光度計

島津製A A 630-02型を使用して表-1に示す条件により測定した。

2-1-2 ひ化水素発生装置

装置を図-1に示し、測定条件を表-1に示す。

2-2 試薬及び調製試薬

2-2-1 試薬

主な使用薬品を表-2に示す。

2-2-2 調製試薬

試薬の調製は、ひ化水素発生に関しては主にJISK-0101に、またその他はK-0102に準じて行なった^{1,3}。なお調製に使用した水は蒸留水をイオン交換したものである。

2-3 定量操作

ひ素標準溶液を0, 0.2, 0.4, 0.6, 0.8 μ g/100 mlの濃度に希釈調製して200 mlのコニカルビーカーにとり硝酸10 mlと過塩素酸2 mlを加えサンドバス上で加熱する。過塩素酸の白煙が発生しはじめたら直ちに冷却し、水を50 ml加え、1N-H₂SO₄10 mlと0.3w/v% KMnO₄2~3滴点加して、再度加熱し沸騰させる。5

A Determination of Arsenic Atomic Absorption Spectrophotometry,

* Eizi Ohba 横浜市公害研究所水質部門

分経過してから2 v/v % H₂O₂を煮沸させながら一滴づつ滴下し、KMnO₄の色を消す。その後80℃まで冷却し、5w/v % FeCl₃・6H₂O 1 ml加え、50 v/v %のNH₄OHをpH 9前後まで加え、No. 5 Cの濾紙で吸引濾過する。濾紙上の沈澱物を濾紙ごとコニカルビーカーに移し、1N-H₂SO₄ 10 ml, 60 v/v % HCl 10 ml, 20 w/v % KI 20 ml, 5 w/v % SnCl₂ 4 ml, 5 w/v % FeCl₃・6H₂O 1 mlを順に加え、最後に水で正確に全量を60 mlにする。次にあらかじめ原子吸光装置とひ化水素発生装置の連結してある、ひ化水素発生装置の反応フラスコに試料と亜鉛末1 gを包んだオブラートを入れて密栓する。スターラーを回転させ亜鉛末と試料水の接触を行いひ化水素を発生させる。圧力計の指針が0.5 kg/cm²の目盛を示したら、直ちに四方コックを回し原子吸光装置の水素-アルゴン炎のフレームに発生したひ化水素を導き、193.7 nmにおける吸光度を測定する。また同一の試料について酸分解、鉄共沈処理を行わずに測定し(図-2 ※印以下)、分解、鉄共沈処理との比較対象とした。

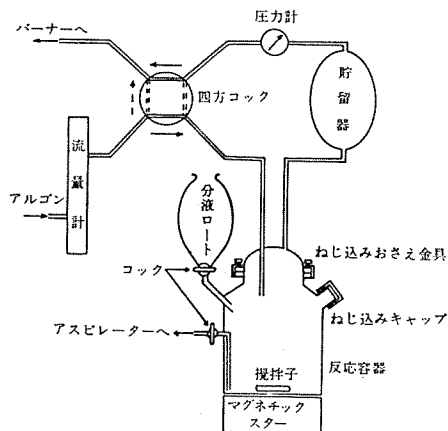


図-1 ひ化水素発生装置改良例
(原子吸光度法)

表-1 原子吸光度法の測定器機条件

原子吸光装置	ランプ	ひ素中空陰極ランプ(浜松テレビ) 使用電流 8 mA
	バーナー	予混合型 100 mm スロット 角度 0° 高さ 9 mm (光軸下)
分析フレーム	スリット幅	3.8 A°
	分析波長	193.7 nm
ひ化水素発生装置	導入ガス	Ar 2ℓ/min
	フレーム導入条件	圧力 0.5 kg/cm ² = 四方コック開放 (原子吸光装置へAsH ₃ およびH ₂ とArの導入)

注-1: 今回の原子吸光度法による測定は全てこの条件で行なった。

検水(ひ素1 μg以下を含む)をコニカルビーカー200 mlにとる

- HNO₃ (conc) 10 mlを加える
- HClO₄ (conc) 2 mlを加える

加熱沸騰・過塩素酸白煙まで(要注意)

放冷

- 水を加えて約50 mlにする
- 1N-H₂SO₄ (0.3 w/v%) 2-3 滴滴下

加熱(煮沸) 2-5分(KMnO₄の色が消えたら、さらにKMnO₄ 2-3滴加え2-5分間

- 煮沸する)空の操作は色が消えてなくなるまで繰り返す
- H₂O₂ (2 v/v%) を徐々に一滴ずつ滴下して無色透明にする

煮沸停止

- 80-90℃まで放冷
- HCl (5 v/v%) のFeCl₃・6H₂O (5 w/v%) 1 ml加える
- 水酸化鉄のフロックが充分に生成する様にNH₄OH (50 v/v%) を加える

小形濾紙No. 5 Cで吸引濾過

濾紙と沈澱物をコニカルビーカーにもどす

- ※ 1N-H₂SO₄ 10 ml加える
- HCl (60 v/v%) 2 ml加える
- KI (20 w/v%) 4 ml加える
- FeCl₃ (5 w/v%) 1 ml加える

水で正確に全量60 mlにする

- あらかじめ原子吸光装置とひ化水素発生装置の連結してある、ひ化水素発生装置の反応フラスコに試料を入れる
- 亜鉛末1 gを包んだオブラートを反応フラスコに入れ密栓
- スターラーを回転し、AsH₃とH₂を発生させ原子吸光装置の水素-アルゴンフレームに導きAA測定(193.7 nm)

図-2 ひ素の測定操作過程

注: ひ化水素発生装置の詳細な扱いについては、所報第5号を参照

表-2 実験使用薬品

三酸化ひ素	化学用
硝酸	精密分析用
過塩素酸	精密分析用
亜鉛末	最純
オブラート	

その他の薬品はJIS-KOIOI改正に準じて全て特級にした。

表-3 標準操作と処理操作の測定結果

項目 \ As 量		空試験	0.2 μg	0.4 μg	0.6 μg	0.8 μg
標準操作	ピーク高 (mm)	34.2	48.7	66.3	86.1	101
	標準偏差	1.9	0.38	2.4	2.6	2.5
	変動率 (mm)	5.5	0.77	3.6	3.0	2.5
処理操作	ピーク高 (mm)	36.2	49.7	66.9	89.0	106
	標準偏差	0.6	6.9	2.5	2.5	1.4
	変動率 (%)	1.7	14	3.7	2.8	1.3
	回収率 (%)	-	102	101	103	105

注. 標準の相関係数 $r = 0.999$
 処理の " $r = 0.997$

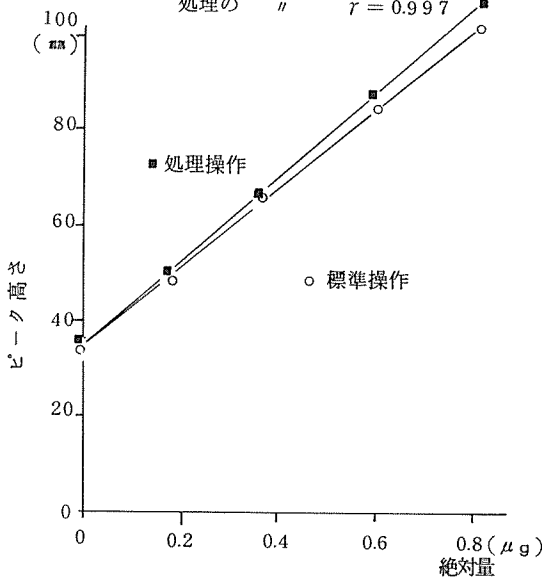


図-3 図-2に基づく標準操作と処理操作の各測定点での結果

注-1 処理操作とは図-2における全操作
 注-2 標準操作とは図-2における※以下の操作

3. 結果及び考察

3-1 硝酸一過塩素酸処理の測定結果

硝酸 10 ml と過塩素酸 2 ml で前処理後、ひ素を水酸化第二鉄と共沈濃縮（以下鉄共沈操作とする）させ測定した。図-2の全操作過程を経た（以下処理操作とする）測定結果と、前処理と鉄共沈操作を除いて図-2の※印以下に従った（以下標準操作とする）測定結果を比較すると図-3のようになる。また表-3によると、処理操作の方が全ての測定点で標準操作よりわずかに高い値を示しているが、実際上問題はない回収率と考える。したがって使用する薬品の質と量、さらに使用器具等によるコンタミネーションに充分な注意を払って分析を実施する必要がある。また各測定点における変動率は殆んどが5%以内に入り、安定した値を得たといえる。

n = 3

つぎに回収率が良く、かつ安定した分析結果を得るために種々の基礎的な実験を行ない分析条件を検討した。

3-2 回収率について

3-2-1 水酸化第二鉄へのひ素の吸着性（鉄共沈）

ひ素として 1 μg の含有量となるように水 50 ml にひ素標準溶液を希釈調整して、直接、鉄共沈操作を行なったもの（未処理）と、1N硫酸 10 ml を加え 0.3 w/v % 過マンガン酸カリウム溶液 2~3 滴加えて 5 分間煮沸後、鉄共沈操作を行なったもの（酸化処理）について、所定の操作で測定し比較した。その結果表-4に示すように、ひ素が酸化された状態（5価）にある酸化処理した場合の方が、その回収率は 100% を示しており、未処理（3価）のものより水酸化第二鉄には吸着性の良いことがわかる。

3-2-2 水酸化第二鉄生成時の pH とひ素の吸着性

ひ素 1 $\mu\text{g}/50 \text{ ml}$ に調整した試料を過マンガン酸カリウム溶液で酸化処理した後、水酸化第二鉄を生成させ

表-4 水酸化第二鉄とひ素の吸着

項目 \ 試料	標準	酸化処理	未処理
ピーク高 (mm)	102	102	73.0
標準偏差	1.1	0.45	3.5
変動率 (%)	1.0	0.44	4.8
回収率 (%)	-	100	71.6

n = 3

注-1 ひ素 1 μg について行なった。
 -2 0.3% KMnO_4 溶液で酸化処理した。

表一五 水酸化鉄とひ素の吸着に及ぼす pH の影響

項目 \ pH	8	9	10	11
ピーク高 (mm)	76.9	82.2	83.9	81.2
標準偏差	1.5	2.6	2.3	0.76
変動率 (%)	1.9	3.2	2.7	0.94

注. ひ素 1 μg について行なった。 n = 5

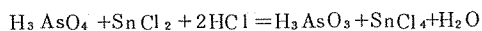
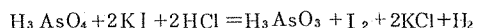
る場合、アンモニア水で pH を 8, 9, 10, 11 の 4 通りに調整してひ素の吸着性をみたところ、表一五の通り水酸化鉄のフロックが生成する pH 域であればひ素の吸着は良好といえる。pH 9~10 にすればまず問題はない。なおこの時、水酸化鉄のフロック生成のために添加した鉄溶液は、塩化第二鉄 6 水和物 5w/v% 溶液 1 ml とした。

3-3 ひ化水素発生について

3-3-1 試料溶液の調製

試料水中のひ素を環元気化法により、ひ化水素として分離するためには次に示す反応過程を経ている。

水中のひ素をひ酸 (H_3AsO_4) に酸化したのち、ヨウ化カリウムと塩化第一錫によって亜ひ酸に還元する。



つぎに塩酸と硫酸酸性中で金属亜鉛などにより発生する水素で、さらに亜ひ酸を還元してひ化水素とする⁵⁾。



このひ化水素を効率よく、最大限に発生させるためには数々の発生条件が必要となる⁴⁾。まず原子吸光光度計による測定では、ひ化水素を 60 秒間位の短時間に発生させ、原子吸光装置の、光の透過率の良い水素-アルゴン炎のフレームに導き、原子吸光度を測定するものである。以上のひ化水素を短時間のうちに最大量の発生を導くには、金属亜鉛などの性状はできる限り微粉末にし、試料溶液との接触面積を大きくすること。またひ素が還元されひ化水素となるまでの、反応時間を延長させたり反応を停止するような物質(例、多量の 3 価の鉄や硝酸イオンなど)が混入していないことである。特に硝酸イオンが微量でも混入があると、ひ化水素の発生は著しく低下する⁴⁾。今回の検討により、鉄共沈後濾過することで硝酸イオンとひ素は分離している。

つぎに安定した測定結果を得るための要因の一つに、反応フラスコ中の液量を常に一定に保つことがあげられる。その結果を表一六に示す。反応に寄与する試薬

表一六 反応液量の不均一による影響

項目 \ 試料	60 ml に統一	40~80 ml
ピーク高 (mm)	50.7	51.7
標準偏差	1.2	4.8
変動率 (%)	2.3	9.2

注一. ひ素 0.5 μg について行なった。 n = 5
 - 2. 液量以外は全て同じ。

は全て一定量添加しても、液量が不均一であると測定結果も変動することがわかる。

3-3-2 鉄塩溶液添加による触媒作用について

塩化第二鉄溶液の添加は、ひ化水素の発生の触媒として作用するが、この 3 価の鉄が試料中に多量に共存するとひ化水素の発生が悪くなる⁵⁾。このときは、塩化第一錫とヨウ化カリウムの添加量を多くして、還元力を増大させる必要がある⁵⁾。

ここで図一の操作過程を振り返ってみると、塩化第二鉄溶液を、鉄共沈操作時とひ化水素発生時に 2 回添加している。ひ素 1 μg 含有試料について、ひ化水素発生のために塩化第二鉄を添加したものと無添加のものとの測定結果を表一七に示す。表から明らかなように、ひ化水素発生のために塩化第二鉄溶液を、さらに添加した方の測定結果は安定性があり回収率も良くなっている。鉄の水酸化物と塩化物が、それぞれひ化水素発生のための触媒作用に違いがあるものと考えるが、これについては今後さらに検討する予定である。

表一七 塩化第二鉄の触媒作用

項目 \ 試料	標準	塩化第二鉄添加	未添加
ピーク高 (mm)	99.6	95.8	76.8
標準偏差	1.5	3.1	5.6
変動率 (%)	1.6	3.2	7.3
回収率 (%)	-	96.2	77.1

n = 5

4. おわりに

ひ素定量の際、硝酸が混入した試料溶液を用いて、ひ化水素を発生させて分析を行なうと、ひ化水素の発生が著しく低下して実際のひ素濃度より低い値になる⁴⁾

このため前処理後ひ素を鉄と共洗させ、硝酸等から分離しこれを濾過濃縮して、ひ化水素発生操作する前に塩化第二鉄溶液をさらに添加し、検出感度が高いひ化水素発生原子吸光光度法により、微量で安定かつ回収率の良い、ひ素の定量を行なうことをできた。また硝酸と過酸素酸による前処理は、特に有機物の多い試料中のひ素の定量分析に適しているものと考えらる。

参考文献

- 1) 日本規格協会：工場排水試験法，JIS-K0102，136-142(1974)
- 2) 日本規格協会：工場排水試験法解説，JIS-K0102，199(1971)
- 3) 日本規格協会：工業用水試験法(ひ素)，JIS-K0101,改正(1975)
- 4) 大場栄次：排水中のひ素定量方法の検討，横浜市公害研究所報第5号，179-185(1980)
- 5) 山懸登，大喜多敏一編，岩島清，葛原由章著：環境汚染分析法4，重金属(水，土壌，食品)，93-106(1975)，南江堂

水質及び底質中のニトリロトリ酢酸の GC-MSによる分析法について

石井 哲夫*

要 旨

家庭用洗剤の低リン化又は無リン化に伴ない、リン化合物に代わるビルダーの一種にニトリロトリ酢酸ナトリウム (NTA) がある。今回、NTAの分析法に関して、イオン交換クロマトグラフィによる吸着分離、DMF-ジブチルアセタールによるエステル化及びGC-MS/SIM検出法により、 $\mu\text{g}/\ell$ レベルの定量分析が可能となった。また同方法により横浜沿岸水域のNTA汚染調査を実施したところ、沿岸水域は、NTAによりほとんど汚染されていないことが明らかとなった。

1. はじめに

閉鎖系水域における富栄養化現象の進行とともに、富栄養化の制限要因と考えられるリン化合物の水域への流入防止策の一つとして、家庭用洗剤の低リン化又は無リン化が行なわれている。従来洗剤中のリン化合物は、トリポリリン酸ナトリウム (STPP) が使用されており、これに代わる物質として、同様の作用をもつ化合物、たとえば、ニトリロトリ酢酸ナトリウム (NTANa₃、以下NTAと略す。)・ゼオライト等へ転換が図られている。NTAを主に使用しているカナダ・スウェーデン等では、NTAによる水道水の汚染が問題となっている。NTAによる環境汚染の問題は、つぎの3つの見地から議論されている。

1. 毒性 2. 生分解性 3. 重金属の可溶性能力
Woodiwiss等¹⁾の調査によれば、カナダにおける家庭用洗剤中のNTA含有量は、1973年以前は6%、以後は15%であると報告されている。その他、NTAは、パルプ・紙製造工程及びボイラー用水処理等にも使用されている。環境中における汚染濃度については水道用水及び下水中濃度について報告されている。水道水中のNTA濃度は、Murugan等²⁾のカナダにおける1976年12月から1977年2月までの調査で、水道原水中平均濃度、 $3.88 \mu\text{g}/\ell$ 、水道水中 $2.82 \mu\text{g}/\ell$ であると報告されている。また、都市下水中のNTA

濃度は、Woodiwiss等¹⁾のカナダにおける1973年4月から1975年3月までの調査で流入水平平均濃度、 $3.62 \text{mg}/\ell$ 活性汚泥処理水 $0.60 \text{mg}/\ell$ であると報告されている。

現在、日本においては、洗剤のビルダーとしてNTAは使用されていないが、将来ビルダーとしての使用が検討される可能性を否定することができない。また、前述のような用途があるので、NTAについての分析法の検討をはじめ、環境中のバックグラウンドとしての濃度を知っておく必要があるものとする。本報告は、NTAの分析法の検討を中心に、環境中の濃度について横浜沿岸水域における汚染状況調査を実施した結果を示したものである。

2. 分析法

分析法フローシートを図-1に示す

2-1 試料の処理

水質試料：検水 50ml を三角フラスコにとり、 60°C の水浴中で30分間窒素ガスによる散気を行なった後、室温まで冷却する。検水採取後ただちに分析が出来ない場合には、30%のホルムアルデヒドを 2ml 添加し生物活性を抑制すれば保存が可能である。⁴⁾

底質試料：試料 10g に脱イオン水 50ml を加え、

GC-MS methods for the Determination of Nitrilotriacetic Acid in Water and Sediment

* Tetsuo Ishii 横浜市公害研究所水質部門

水酸化ナトリウム溶液を添加し pH9 に液性を調整する。つぎに 85°C の水溶液中で 30 分間加熱後数分間振トウし、振とうした溶液を 3000 rpm で 10 分間遠心分離した後の上澄水を検水とし、水質試料の前処理と同様の処理を行なう。

2-2 試料の分離精製

径 10mm のカラムにアンバーライト IR 45 を 150mm 充填し、4 M のギ酸により PH2.5 に調整した検水を流下させる。つぎに 0.1 M のギ酸 10 ml を流下させ金属等のエステル化反応の妨害物を分離し、最後に 16 M ギ酸 20 ml で NTA を溶離させる。

Pre-treatment

Water 50 ml Sediment 10 g
 | |
 | | adds 50 ml de-ionized
 | | water (pH 9)
 | | Water-bath 85°C 30 min.
 | | Stirring a few min.
 | | Centrifugate 3000 rpm 5 min.
 | |
 | | Supernatant

| | — adds 30% HCHO 2 ml
 | | Water-bath 60°C 30 min.
 | | under stream of Nitrogen
 | | Cooling to room temp.
 | | Sample solution
 | | (Sample pH 2.5 by addition of 4 M HCOOH)

Separation

| | Amberlite IR 45 column
 | | Column: 150mm, 10mm I.D.
 | | Elusion speed: 3 ml/min.
 | | — 0.1 M HCOOH 10 ml
 | | — 16 M HCOOH 20 ml
 | | 16 M HCOOH fraction
 | | Water-bath 85 °C 2 hr. under stream of Nitrogen
 | | Cooling to room temp.
 | | Stream of Nitrogen was continued overnight
 | | NTA contained dry sample

Esteration

| | — adds DMF-buthylacetal 300 µl
 | | Heating in water-bath: Boiling water 20 min.
 | | GC-MS/SIM sample

GC-MS condition

| | Column: 2 % OV-17 Chromosorb W AWD MCS 60/80 mesh
 | | 2 m, 3 mm I.D.
 | | Inj. temp.: 270°C Col. temp.: 220 °C
 | | Carryer gas: He 40 ml/min.
 | | Electro-energy: 70 eV Emission Curr.: 240 µA
 | | SIM m/z : 258

図-1 NTA分析法フローシート

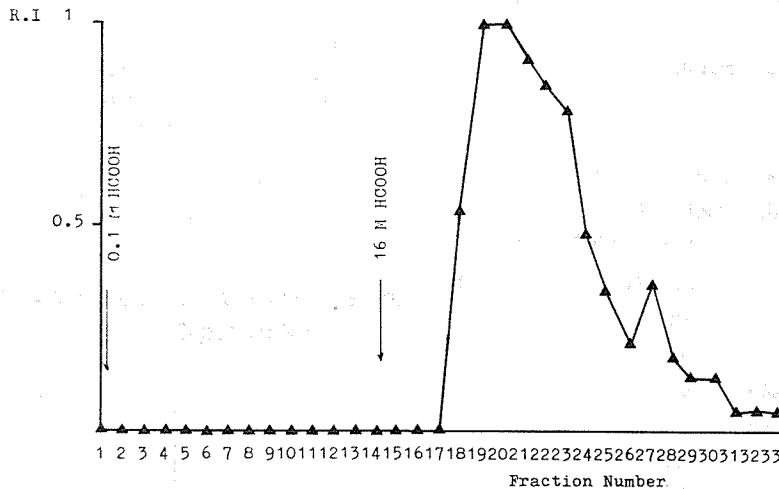


図-2 IR 45 カラムにおけるNTAの流出パターン 分画容量; 1分画 1.4 ml

イオン交換クロマトグラフィー (IR45カラム) における流出パターンを図-2に示す。NTAは、16Mギ酸により溶離するが、イオン交換樹脂 (アンバーライトIR45) により流出パターンは変化することが考えられるため、測定の前にカラムの流出パターンを調べておく必要がある。流出パターンを調べる場合にはmgオーダーのNTAナトリウムを使用し、図-3に示すKalus L.E.Kaiser³⁾の変法により測定するのが簡便である。図-4に、Kalus L.E.Kaiser変法により作られるNTA-コバルト複合体の吸収スペクトル

Fraction
 |—adds 1N-NaOH till pH 10
 Make a isochoric sample
 |—adds 10^{-2} M CoCl_2 1 ml
 |—adds 20 w/v% NaNO_2 1 ml
 |—adds 6 v/v% HCl 2 ml
 Stirring a few min.
 |—adds 6% H_2O_2 2 ml
 Stirring a few min.
 |—Absorption photometry (OD_{520})

図-3 Klaus L.E Kaiser変法によるNTA比色法

を示す。

16 Mギ酸により溶離させた分画をスクリウキャップ付の試験管にとり、85°Cの水溶液中で窒素ガスでバブリングしながら2時間乾燥し、さらに室温に冷却後16時間窒素ガスによる乾燥を続ける。

なお使用するアンバーライトIR45は、ソクスレー抽出器により8時間エタノールによる洗浄を行ない、つぎに2N-塩酸で処理し鉄などの不純物を溶かしたのち、2N-塩酸の10倍量の2N-水酸化ナトリウム

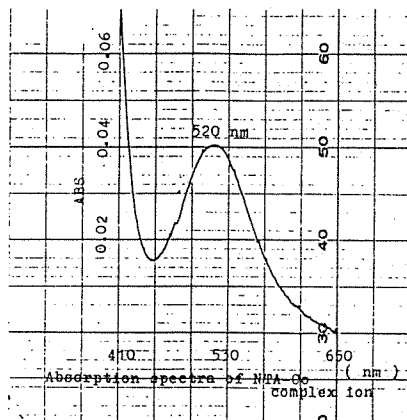


図-4 NTA-Co 複合体の吸収スペクトル

で処理し、樹脂をヒドロキシル形に変化させたのち、2 N-硫酸ナトリウムで洗浄する。この操作を2回くりかえした後、16N 硝酸で処理したのち、さらに脱イオン水を用いて pH が5から6になるまで水洗したものを使用する。

2-3 試料のエステル化

スクリュ-キャップ付のバイアルビン中で乾燥させた試料に、DMF-ジブチルアセタール 300 μL を添加し、密封後、沸騰水浴中で20分間加熱し冷却後 GC-MS/SIM 測定の試料とする。

NTA のエステル化は、Walter A 等⁴⁾ により無水3 N-ブタノールによる方法が報告されているが無水3 N-塩酸ブタノールは、調整に時間がかかり⁵⁾、又保存が容易ではない。本報告において使用したエステル化剤は、市販の試薬であり、保存の上でも特別な条件は不要である。図-5 に NTA の DMF-ジブチルアセタールによるエステル化反応機構を示す。

2-4 検量線の作成操作及び検量

NTA の 0.5, 1.0, 5.0, 10, 50, 及び 100 μg/L の各々の溶液について、分析操作にしたがい NTA トリブチルエステルを合成し、GC-MS/SIM で各濃度におけるピーク面積を求め検量線を作成し絶対検量線法により検量する。

GC-MS/SIM による m/z 258 のマスフラグメントグラフィーを図-6 に示すとともに検量線を図-7 に示す。

2-5 定量範囲

GC-MS : LKB 9000B による定量限界は、以下のとおりである。(定量限界濃度における CV% : 1.51, SN : 3)

水質試料 1 μg/L

底質試料 5 μg/g

2-6 回収率

本測定法による回収率を検討するため、図-8 に示す合成法により NTA-トリブチルエステルを合成後精製し、純品を得た。合成物質の質量スペクトル及び赤外吸収スペクトルは図-9 及び 10 に示したとおりである。

表-1 に、河川水、海水及び底質における添加実験より求めた回収率を示す。

試料からの NTA 分離法として、陰イオン交換樹脂による吸着法を用いたため底質についての回収率には、問題があるが、回収率の変動は少ない。したがって本測定法により NTA の定量的な分析が可能であると考えられる。

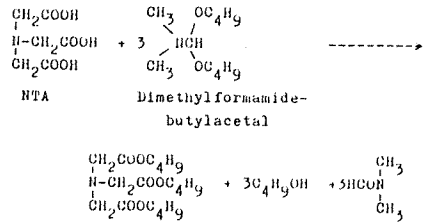


図-5 DMFジブチルアセタールによるNTAのエステル化反応

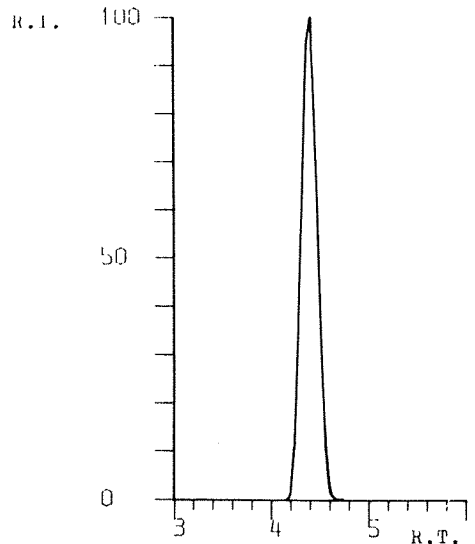


図-6 NTA-トリブチルエステルのSIMクロマトグラム
NTA-トリブチルエステル5 ngを添加

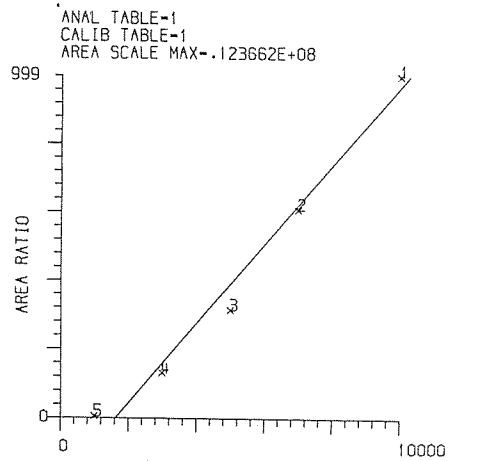


図-7 NTAトリブチルエステルの検量線

NTA (1 g)
 | add 200 ml dry 3N HCl-ButOH
 Reflux in water bath (2 hr)
 | — adds 500 ml de-ionized water
 | — adds 100 ml n-Hexane
 Organic layer
 | — adds 500 ml de-ionized water
 Shake 5 min.
 Organic layer
 | — adds 500 ml de-ionized water
 Shake 5 min.
 Organic layer
 | — adds Na₂SO₄ anhydride
 Condensation with K.D. Condenser till a few ml
 Cooling to room temp.
 Bubbling with N₂ gas overnight
 Recovery : about 60 %

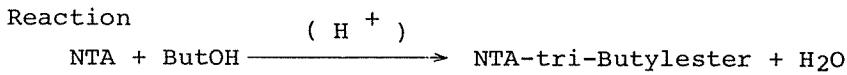


図-8 NTA-トリブチルエステル標準品の合成法

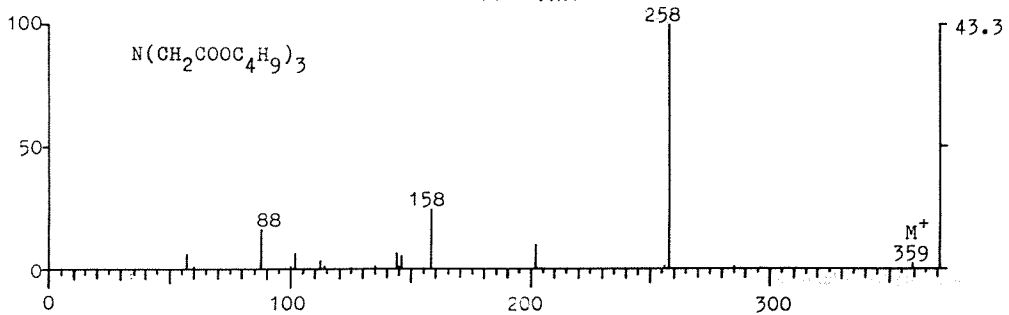


図-9 合成したNTA-トリブチルエステルのマススペクトル

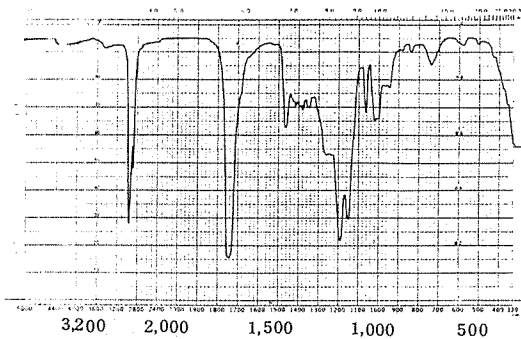


図-10 合成したNTAトリブチルエステルの赤外吸収スペクトル

表-1 水質及び底質からの回収率

試料名	NTA添加量	回収率%			平均値	CV%
河川水	0.05 μg	110	108	106	108	1.51
	0.25	93	101	96	97	3.41
	0.50	92	90	87	90	2.29
	2.5	90	94	92	92	1.78
	5.0	90	89	92	90	1.38
海水	5.0	88	79	92	86	6.30
底質	10	74	72	76	74	2.21

2-7 考察

NTAの分析法については、1968年より多くの報告がなされている^{3,4,5,6,7})。Klans L. E. Kaiserの報告を除き、NTA測定法は、分離精製法はWalter A.等⁴⁾の手法を用いエステル化法は、Craig B. Warren等⁵⁾のdry 3N-塩酸アルコールによるエステル化手法を用いている。本報告は分離精製法はWalter A.等⁴⁾の手法を用い、エステル化法はDMF化合物による手法としたものである。エステル化法としては酸性アルコールを用いるより、DMF化合物を用いる手法の方が簡易な方法ではあるが、GC-FID又は、GC-NPDにより測定を行なうためには、未反応のDMFジブチルアセタールのピークのテーリングにより、ngオーダーの測定が不可能となっていた。本報告は最終検出方法としてGC-MS/SIM法を用いることにより簡単なエステル化法を用い、ngオーダーの定量分析が可能であることを示したものである。

3. 横浜沿岸水域における調査結果

調査水域を横浜港内及び鶴見川河口とし、各水域において、3地点で採水と採泥を行い、NTAの含有量測定を行なった。調査水域を図-1に、測定結果を表-2に示す。測定したいずれの地点においてもNTAは検出されなかった。調査水域は、多量の都市排水工場排水が流入する水域であり、これらの水域においてNTAが検出されなかったことは、現在わが国では洗剤のビルダーとしてNTAは使用されていないことから当然のことである。また「はじめに」記載した用途に使用されているとしても、NTAの影響は全く認められないことが明らかである。

表-2 横浜市沿岸水域におけるNTA汚染濃度調査結果

調査水域名	水質($\mu\text{g/l}$) 低質(ng/g)	
鶴見川河口	1	1以下 5以下
	2	1以下 5以下
	3	1以下 5以下
横浜港	1	1以下 5以下
	2	1以下 5以下
	3	1以下 5以下

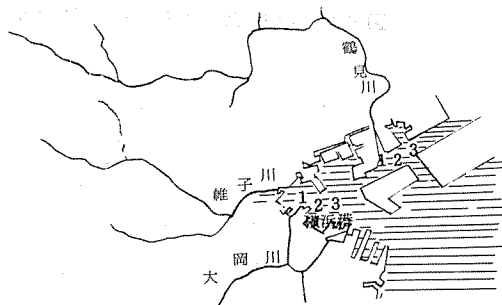


図-11 調査地点略図

4. あとがき

NTA及びその分解物質の水生動物に対する毒性は、硬水と軟水とでは差があり⁸⁾、また影響濃度範囲が、実験方法により異なることなどからその評価は一定していない。分解性については、化学分解、生分解の両面から検討がなされオゾン処理により容易にCO₂まで分解するという報告があり⁹⁾また活性汚泥を用いた生分解試験においては、軟水中ではほとんど分解しないという報告もある。¹⁰⁾また重金属の可溶化能力については、下水処理場における金属濃度と、NTA濃度の相関は、ほとんど認められないという報告もあるが¹⁾活性汚泥実験装置における検討においては、活性汚泥処理における金属の除去効果を低下させるのみでなく、汚泥から金属を溶離させるという報告もある。¹¹⁾このようにNTAによる環境汚染問題についての論議は、NTAの汚染質としての評価が一定していないことによると思われる。しかし、このような開放系で使用される化学物質の使用に際しては、安全性を重視した検討が必要であり、今後多くの議論が展開されると思われる。

文 献

- 1) C. R. Woodiwiss & R. D. Walker : Concentration of nitrilotriacetate and certain metal in Canadian waste waters and streams , 1971-1975 . *Water Res*, **13**, 599-612 (1979)
- 2) Murugan Malaiyandi, David T, Williams & Ronald O' Grady : A national Survey of nitrilotriacetic acid in Canadian Drinking Water, *Environ Sci Technol*, **13**, 59-62 (1979)
- 3) Klaus L. E. Kaiser : Determination and differentiation of ethylenediaminetetraacetic acid (EDTA) and nitrilotriacetic acid (NTA) in Freshwater , *Water Res* **7**, 1465-1473 (1973)
- 4) Walter A. Aue, Corazon R. Hastings, Klaus O. Gerhardt, James O. Pierce, Herbert Hill & Robert F. Moseman : The Determination of part - per - billion levels of citric and nitrilotriacetic acid in tap water and sewage effluents , *J. Chromatogr*, **72**, 259-267 (1972)
- 5) Craig B. Warren & Edward J. Malec : Quantitative determination of nitrilotriacetic acid and related aminopolycarboxylic acid in inland waters , *J. Chromatogr*, **64**, 219-237 (1972)
- 6) David T. Williams, Frank Benoit, Karel Muzik & Ronald Ogrady : Determination of nitrilotriacetic acid Using a nitrogen-selective detector *J. Chromatogr.* **136**, 423-427 (1977)
- 7) Y. K. Chau & M. E. Fox : A GC method for the determination of nitrilotriacetic acid in lake water , *J. Chromatogr. Sci*, **9**, 271-275 (1971)
- 8) Biesinger, K. E., R. W. Andew and J. W. Arthur : Chronic toxicity of NTA (Nitrilotriacetate) and metal-NTA complexes to *Daphnia magna* , *J. Fish Res. Board Can.*, **31**, 486-490 (1974)
- 9) Larry M. Games and Jean A. Staubach : Reaction of nitrilotriacetate with ozone in made and natural waters , *Environ Sci. Technol* **14**, 571-676 (1980)
- 10) S. Stoveland, J. N. Lester and R Perry : The influence of nitrilotriacetic acid on heavy metal transfer in the activated sludge process - I AT constant loading , *Water Res*, **13**, 945-965 (1979)
- 11) S. Stoveland, R. Perry and J. N. Lester : The influence of nitrilotriacetic acid on heavy metal transfer in the activated sludge process - II AT varying and shock loadings , *Water Res*, **13**, 1043-1054 (1979)

新横浜駅周辺の地盤沈下について

杉 本 実

要 旨

本市の地盤沈下は全般的にみると鈍化の傾向にあるが河川低地の軟弱地盤地帯では依然として沈下現象が続いており、その中でも再開発計画地区である戸塚駅及び新横浜駅周辺では顕著に表れている。本文はこのうちの一つである新横浜駅前周辺について、ボーリング資料、土質試験資料、地下水揚水井資料、地盤沈下観測所資料等から軟弱地盤層の構造を解析し、沈下の特性を圧密理論等を適用して試算し、実測値との比較を試みたものである。

解析結果からは次のことが把握された。

調査地域の地盤沈下は当初、新羽公園観測所付近で発生していたが、最近に至って鎮静化している。ところがその一方では新横浜駅前付近が新しい地盤沈下地帯となりつつある。当地区の地盤沈下の状況は現在の沈下量が10 cmから20 cmで年間約4 cmずつ進行し、地下水頭も40 cm/年低下している。また地盤構成は標高-30 m前後が最も深い谷で、地質層序は海成粘性土が全体を占め、その層厚は10 mから35 mであり、腐植土は上部と下部に薄く挟在している。また地下水の帯水層は標高-40 m付近に存在しているものと考えられ、間ゲキ水圧は標高-100 m付近まで減少がみられ、その値は0.6~1.6 kg/cm²である。そして軟弱地盤層の土は過圧密状態となっている。以上の状況から推察すると新横浜駅前公園観測所付近の圧密沈下の実測値は推定した累計沈下量(66.7 cm)の約57%まで進んでおり、今後も沈下はさらに進むことが予測された。また新羽公園観測所付近の実測値は推定した累計沈下量(64.5 cm)に近い値を示し、圧密が完了しつつあることを示した。したがって今後の沈下は鎮静化するものと思われる。軟弱地盤層の層厚から推定した地盤沈下量は理論値より20%から40%低い値となった。すなわち層厚25 mの場合の沈下量は約40 cm、層厚30 mでは約50 cm、層厚35 mでは約64 cmとなることが推定される。

1. はじめに

本市における地盤沈下は臨海部心部の河口地域(鶴見、横浜、関内周辺)と河川低地(鶴見川、柏尾川流域)の沖積層からなる軟弱地盤地域に多くみられ、地下水揚水、大規模地下掘削工事による地下水排除等が圧密沈下の主因であると考えられている。この圧密沈下の特徴は沈下量が著しく大きく、広範囲にわたる地域と一定の範囲で小さく落ち着く地域とに大別される。前者は比較的軟弱層が厚く分布する地域で大規模地下掘削工事による排水量及び地下水揚水量の多い地域にみられる。^{1)~6)}ところで過去20年間の地盤沈下の推移は昭和35年から39年までの5年間には鶴見・横浜・

関内周辺の河口地域で発生していたものが昭和40年から44年までの5年間には根岸周辺の河口地域と鶴見川低地の河口~中流域にみられている。いずれも沖積層の軟弱地盤地域である。昭和45年から49年までの5年間は昭和40年から44年までの5年間と同様の地域で沈下領域が拡大して行く傾向がみられている。昭和50年から54年までの5年間は鶴見川、帷子川、大岡川、柏尾川、境川流域の河川低地全域で沈下がみられている。これら全域で認められる沈下量は比較的少ない値の所が多いが、昭和54年度の地盤沈下調査結果によると年間3 cm以上沈下した地点は柏尾川流域の戸塚区上矢部町(M&T-14)、上倉田町(M&T-23)

同区銀治ヶ谷町(№T-61)の3点, 鶴見川中流域の港北区新横浜駅周辺(新横浜観測所1BM, №973, №974)の6点, 早淵川流域の勝田町(№967)と旭区今宿南町(№A-5)の合計11地点で, そのうち最大沈下量は前年度と同様の戸塚区上矢部町(№T-14)で年間4.8cmである。このうち戸塚区の戸塚駅周辺(№T-21・22・23付近)と港北区の新横浜駅周辺(№973・974付近)はいずれも再開発が予定され大小の掘削工事と周辺での事業所等による地下水揚水が行われている地域である。したがって今後の揚水量と大規模地下掘削工事による地下水排水量の増大に伴う地下水位の低下は十分考えられる地域であり, 地盤沈下対策を図るための調査が必要である。このため, 先に戸塚駅周辺の地盤沈下について考察結果を報告⁷⁾したが, 今回は沈下現象が顕著に表れてきた新横浜駅周辺(新羽公園観測所付近も含む)について考察を進め, 地盤沈下防止対策の基礎資料を得ることを目的とした。なお沖積層(以下軟弱地盤と呼ぶ)における沈下は地下水の揚水に伴って地下水頭が低下し, 軟弱地盤の地下水が絞り出されて圧密する現象であることから, 地下水の帯水層構造, 間ゲキ水圧変化, 軟弱地盤構造, 地質・土質特性等多面的な調査解析が必要である。ここでは新横浜駅周辺のボーリング資料, 土質試験資料, 地下水揚水井資料, 新横浜駅前公園観測所(以下新横浜観測井と呼ぶ)資料, 新羽公園観測所(以下新羽観測井と呼ぶ)資料等を基に当該地域の地盤沈下特性について圧密理論等を適用して試算し, 解析した。

2. 調査地域の地形と地質概要

本市の地質・地形概要と調査地域は図-1に示すとおりである。この地域は多摩丘陵を開折して流れる鶴見川の中流域に当り国鉄新幹線と横浜線が交差する新横浜駅周辺(以下新横浜周辺と呼ぶ)であり, 調査範囲は約12km²の軟弱地盤層が対象である。当地域の地形は丘陵地, 台地, 沖積低地で形成されている。丘陵地は関東山地南麓から恩田川支流の合流付近まで張り出した多摩丘陵であり, 標高(以下T・Pと呼ぶ)は約60mから100mのゆるやかな起伏を持っている。台地は下末吉ローム層と下末吉層が主体で当地域から海測に向かって発達している。T・Pは約30mから50mで比較的平坦な地形を成している。また両者は明らかな段丘地形を示し, 侵食基準面の変化を示している。^{8)~10)} 両者の下部には更新世前期の上総層群が堆積している。沖積低地はT・P20m以下であり, 縄文海進(5,000年から6,000年前), 海退によってできた溺れ谷に氾濫原堆積物が堆積したもので, 対象となる沖積低地

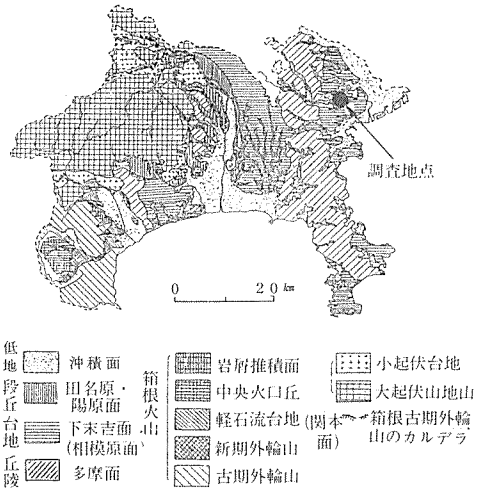


図-1 神奈川県地形地質概要と調査位置図

(軟弱地盤層)の幅は約1kmであり, 河川にそって軟弱地盤層が広く分布している。鶴見川の流路は上流で恩田川の支流と合流して東流し, 新横浜観測井付近で急激に湾曲して北流し, 早淵川支流の合流点付近で再び東流する。本流はさらに矢吹川支流と合流してからは南に方向を転じ, 大きく蛇行しつつ東京湾に注いでいる。一方丘陵地を構成する地質は大部分が上総層群の鶴川互層であり¹¹⁾, 固結シルトと固結砂から構成され, 層厚は全体で200m以上と推定されている。上総層群は第四紀前期更新世(100万年から200万年前)の海成層である。当地域の軟弱地盤層の基盤はこの上総層群鶴川互層と思われ, 地下水揚水井群の帯水層でもあると考えられている。台地を構成する地質は主として上総層群を不整合におおう相模層群の下末吉層(第四紀後期更新世の海成層, 12万年から15万年前)であり, この上を関東ローム層がおおっている。相模層群の下末吉層は比較的軟らかい固結シルト及び固結砂から成り, 厚さ約3mから10mである。基底の不整合面は起伏を持ち, 特に注目すべき分布を示す地層ではない。

3. 地盤沈下地域の推移と経年変化

新横浜周辺の沈下推移を面的に把握するため, 累計沈下の等量線分布図を作成した。昭和37年から46年までの累計沈下等量線分布図は図-2に示し, 昭和37

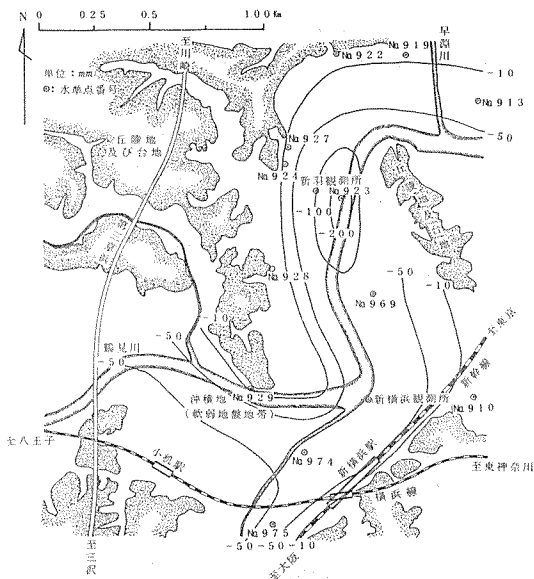


図-2 新横浜駅周辺の累計沈下等量線分布図 (S 37年~46年)

から55年までの累計沈下等量線分布図は図-3に示した。図-2によると昭和45・46年頃までの沈下は比較的小さく、新横浜観測井付近で-2.0 cmから-3.0 cmの沈下量であり、最大沈下量を示す地点は新羽観測井付近で約-3.7 cm (No. 923)である。また図-3によれば最大沈下量を示す地点は図-2と同位置にあり、沈下量は最大約-5.2 cmとなっている。そして沈下の範囲は徐々に拡大しており新横浜観測井付近では-1.5 cmから-2.0 cmに達していることが推定される。この地点は最近特に沈下の進行が著しく、水準点による沈下量(1)を年間単位で考察しても昭和53年頃から急激な沈下が発生している。一方図-4は昭和37年以降の鶴見川低地における水準測量成果の代表値を沈下曲線図で示したものである。水準点番号(以下Noで記述する)904は綱島中学付近の沈下曲線であるが昭和53年頃までは大きくかつ急激な沈下を示したが、その後は停止または隆起現象の傾向である。新羽観測井付近のNo. 923はNo. 904とほぼ同様の曲線を示しているが、この地点では昭和49年頃からやや沈下は鈍ったものいぜんとして沈下は進行している傾向が見られる。また綱島東6丁目付近のNo. 905の沈下も昭和49年以降鈍化はしているが新羽観測井付近と同様の進行状況である。大曾根町付近にあるNo. 908の沈下は昭和43年以降急激な沈下曲線となり現在に至っているが、今後もこのまま沈下は継続していくことが予想され

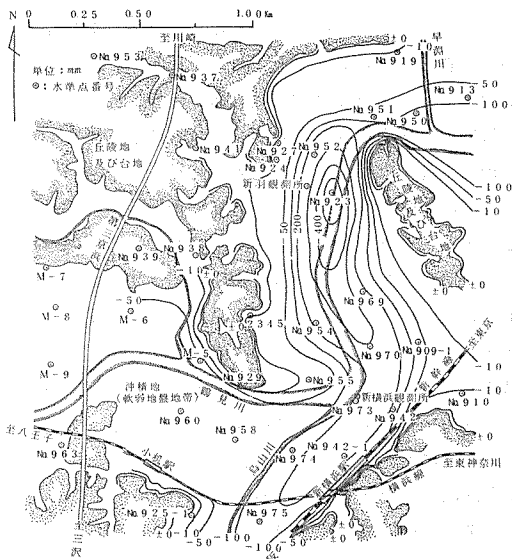


図-3 新横浜駅周辺の累計沈下等量線分布図 (S 37年~55年)

る。新横浜観測井付近にあるNo. 942の沈下は昭和50年から51年頃に著しい沈下を示し、その後鈍化して現在に至っている。これらはいずれも昭和37年から55年

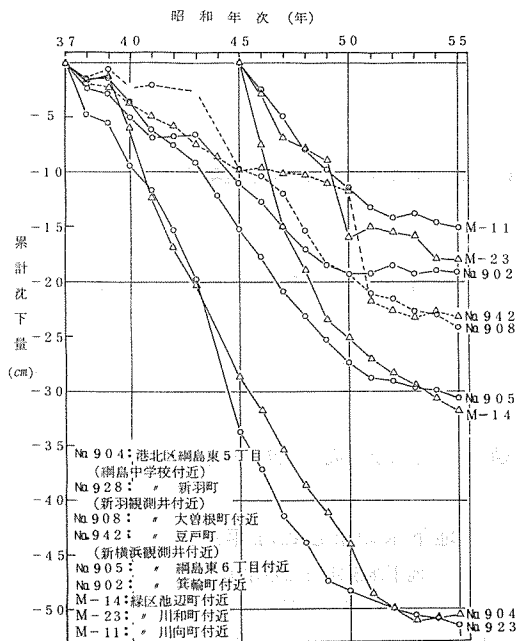


図-4 軟弱地盤地帯の沈下経年変化図

までの比較的欠測が少ないデータを解析したものであるが、これより当地域の沈下現象はさらに継続するものと推察される。図-5・6は調査地域の測量開始から現在までの地盤沈下を累計して経年的に図示したものである。図-5は軟弱地盤層が比較的厚いと思われる地点の沈下曲線を示し図-6は洪積層に極めて近い地点の沈下曲線である。両者の比較からも明らかのように図-5の沈下が著しく、軟弱地盤層の収縮が極端に大きいことを証明している。なお戸塚駅周辺の地盤沈下解析⁷⁾で沈下の特徴を①継続的な沈下を示すタイプ、②ゆるやかな沈下から急激な沈下に変化して加速していくタイプ、③一時的に大きな沈下を示し、以後わずかの沈下を示すタイプと大別したが、本論の図-5では①と②のタイプは同様の傾向を示すが、③のタイプは若干異った傾向を持つ。すなわち、測定開始と同時に沈下が急激に進むタイプである。これは沈下の進行途中で水準点を設置したためであると思われるが、沈下曲線の傾向からみて、付近には沈下を加速する大きな要因があるためと思われる。

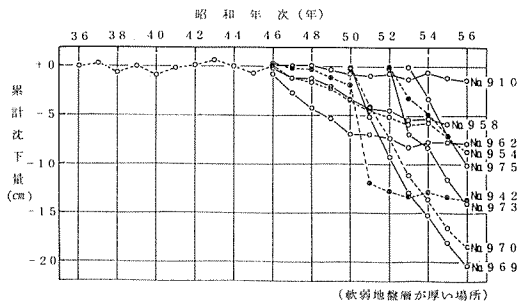


図-5 新横浜駅周辺の沈下経年変化図

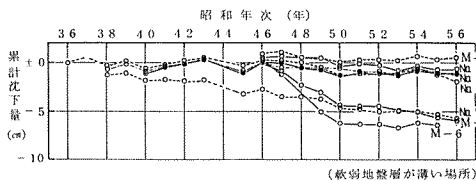


図-6 新横浜駅周辺の沈下経年変化図

4. 地下水の推移と経年変化

4-1 地下水揚水井と帯水層深度

図-7は本市の地下水頭(ここではT・P-30 mから-150 mの被圧地下水を対象とする)を面的に把握するために代表的な揚水井戸の静止水頭を測定し、T・P標示による等深線分布を図示したものである。これ

によると現在当地域の地下水頭は海面以下及び海面と同等の水頭を示し、軟弱地盤層の地表面から深さ約5 mから6 mの水頭であることがわかる。また昭和49年頃の地下水頭¹⁾は新横観測井付近でT・P±0 mから-10 m、新羽観測井付近でT・P-10 mから-20 mの水頭であり、現在の水頭に比較して、昭和49年頃の水頭は約10 mから20 m低下していたことがわかる。一方当地域の地下水帯水層を把握するため、井戸さく泉時の資料を使って^{12)~15)}深層部の地下水帯水層構造を解析した。図-8はこれらの井戸の揚水部(ス

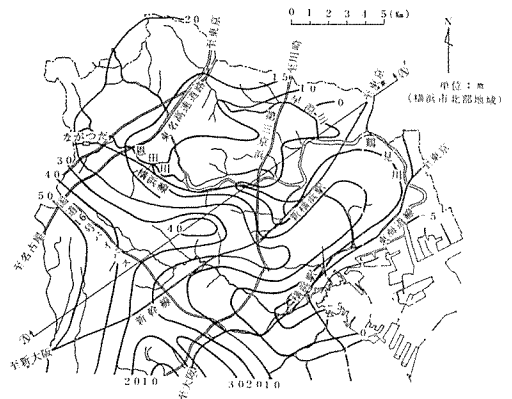


図-7 地下水頭等深線分布図

トレーナー)の深度分布図である。揚水が最も多い井戸の深度はT・P-40 m付近であり、この付近に大きな帯水層があるものと推定される。これは図-9の電気検層図からも明らかである。すなわち、図-9は電気検層器を使用して地層の見掛比抵抗を測定し、地質状況、特に挟在する砂層の分布を明らかにすることを目的としているが、砂層部分の地下水が多ければ見掛比抵抗は大きくなる。したがって電気検層図からは見掛比抵抗値が大きくなった部分を帯水層と判断してよいことになる。図-9からはT・P-30 mから-40 m

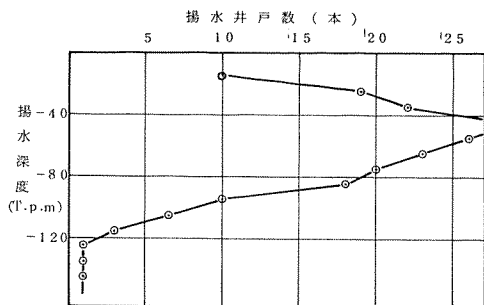


図-8 地下水の揚水深度と揚水井戸数の関係図

深度の見掛比抵抗値が大きくなっている。

また図-10はこれらの条件を配慮して作成した帯水層構造の代表推定断面(図-7参照)である。これによると深度-150mから-200m間は上総層群鶴川互層の固結砂と固結シルトであり、地下水はこの固結砂から揚水しているものと思われる。ここでは便宜的に上総層群鶴川互層の固結砂を第二帯水層と定義し、相模層群下末吉層有び多摩丘陵上のローム層は第一帯水層として取り扱うことにした。なお本層の深度60m付近の固結砂は戸塚区上倉田町の深度約130m付近の固結砂及び金沢区小柴町の小柴砂層とテフラ、有孔虫等において対比¹⁶⁾~¹⁸⁾され、帯水層の連続性について検討しているが、本論では結論をみていない。

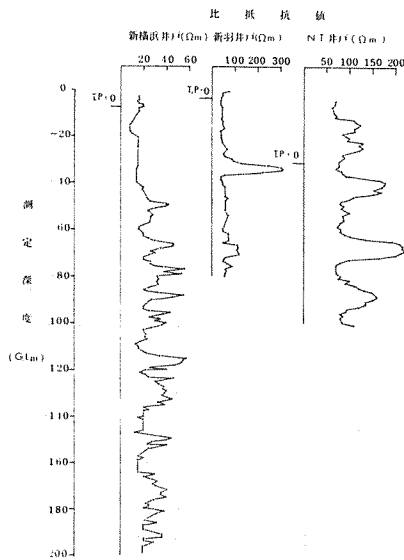


図-9 帯水層の電気検層図(新横浜・新羽付近)

4-2 揚水井地下水頭の経年変化

調査地域の帯水層は図-8で推察したとおり、T・P -4.0m付近であることがわかった。ここではこの帯水層(第二帯水層)の地下水頭をみるため、揚水井戸のさく井時静止水頭と最近調査¹⁾、¹⁴⁾~¹⁵⁾した静止水頭の測定結果¹²⁾~¹³⁾を基に静止地下水頭の経年的変化をみることにした。図-11はその解析結果である。これによると昭和36年から47年頃の新横観測井付近(No973, No974)の地下水頭はT・P 2.5mからT・P 1.0mと推定でき昭和48年から50年まではT・P 1.0mから土 0.0m、昭和52年から53年頃は水頭が著しく低下してT・P 約-4.0mと変化しており、その後水頭は回復して昭和53年頃に

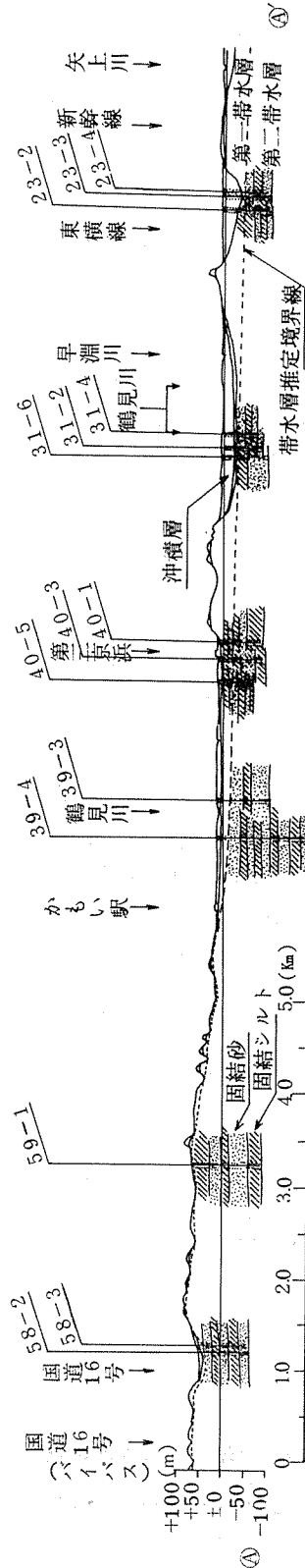
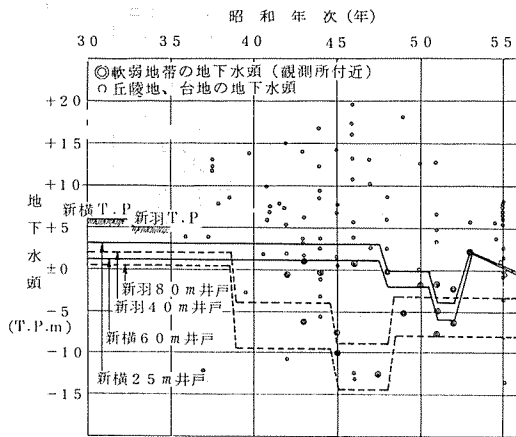


図-10 推定帯水層構造図

は下・P 2.0mが推定される。また同様にして昭和36年から39年頃の新羽観測井付近(No.923, No.927)の地下水頭をみると、昭和36年頃にT・P 2.5mだった水頭が急激に低下し、昭和40年にはT・P -4.0mから-9.5mが推定される。水頭はさらに昭和46年から48年頃でT・P -9.0から-12.5mに低下し、その後回復して昭和49年にはT・P -4.0mから-9.0mが推定される。なおこれらの推定はかなり大胆ではあるが揚水量の経年変化図⁵⁾等からみて昭和40年頃から揚水量が増加しているの、ほぼ近い値と思われる。また推定に使用した水頭値は調査付近の井戸でT・P 5.0mから7.0mの軟弱地盤層の地表面に分布している井戸の値であり、T・P 15.0m以上の丘陵地及び台地に分布する井戸の地下水頭はT・P値の増大に伴って水頭が高くなる傾向があり、T・P 1.0mから15.0mの範囲にある。一方本帯水層の地下水頭と揚水量の関係について考察を進めると、本調査地域を含む本市北東内陸部の昭和40年頃の揚水量は約5,000m³/日であったものが、昭和48年頃には約28,000m³/日と大きく増加している。その後揚水量は減少し、現在約18,000m³/日で落ち着いているがこの揚水量の減少に伴って同時期から地下水頭も回復していることからみて、本帯水層の地下水収支は揚水量約28,000m³/日から18,000m³/日で検討してみる必要がある。このためには今後地下水利用実態調査及び現場揚水試験等を実施して、地下水のかん養量、貯留量等を求め、地下水収支を明らかにして行く必要がある。なお浅層部の自由地下水は地表面より0.5mから1.5mの深さが最っとも多い。

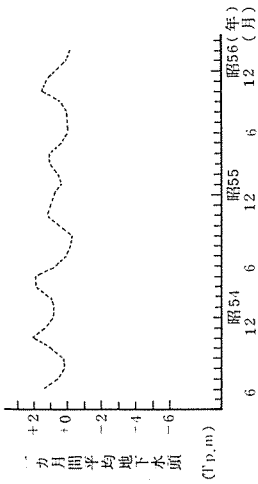


図一 11 事業所井戸の地下水頭経年変化図

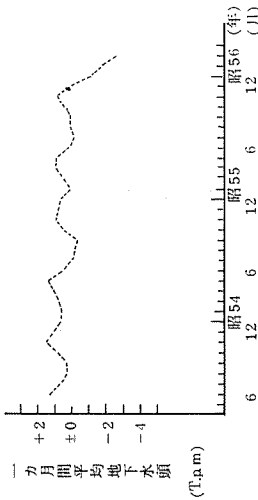
4-3 観測井地下水頭の経年変化

調査地域には新横観測井と新羽観測井(図-3 参照)

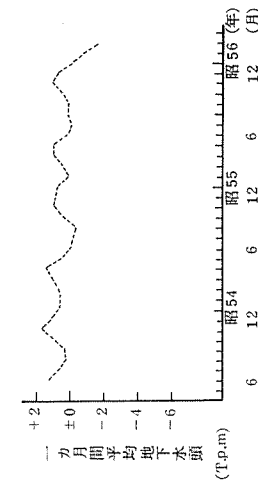
があり、両者とも軟弱地盤層の厚い(25mから30m)地点に設置され、地盤沈下量及び被圧地下水頭を常時測定している。新横観測井はボーリング調査結果¹⁹⁾から帯水層を3層に区分(25m井戸、T・P -15m付近)、(60m井戸、T・P -54m付近)、(117m井戸、T・P -100m付近)して昭和53年からそれぞれの深度における地下水頭を観測している。このうち、25m井戸と60m井戸は揚水井戸(図-8 参照)から推定した帯水層の部分となる深度である。また新羽観測所はボーリング調査結果²⁰⁾から帯水層を2層に区分(40m井戸、T・P -26m付近)、(80m井戸、T・P -7m付近)し、昭和46年から各深度の地下水頭を観測している。40m井戸、80m井戸とも揚水井からみた帯水層の部分になる。これらの観測結果は図-12から図-16にそれぞれ示す。図-12から図-14は新横観測井で、そのうち図-12は25m井、図-13は60m井、図-14は117m井の地下水頭を観測したものである。これらは昭和53年以前のデータが無いため、以前の水頭は判明しない。しかし揚水井群(図-11 参照)から推定した昭和53・54年頃の水頭と新横観測井水頭(平均T・P 0.3mから1.5m)とは水頭低下の傾向からみてはほぼ近い値で結ぶことが可能と思われる。また昭和54年から56年の水頭は低下傾向にあり、今後の動向を注目する必要がある。図-15・16は新羽観測井の地下水頭をみたものである。図-16は80m井の水頭変化をみたものであるが昭和48・49年頃の水頭は平均T・P -13.0mから-16.0mであったものが、その後水頭は平均T・P -10.0mから-8.0mに回復していることがわかる。また図-15は40m井の水頭を測定したものであり、昭和48・49年頃の水頭は不明であるが昭和49年の半ば以後の水頭は平均T・P -5.0mから-3.0mである。この水頭を80m井と比較すると差は約5.0mとなる。水頭が経年的に変化する形は両者とも同様の傾向を示しており、帯水層が一体であることを裏付けるものと考えられる。またこのことから40m井の昭和48・49年頃の水頭を推定すると水頭差5.0mを減じてT・P -10.0mから-8.0mの値が得られる。したがって昭和45年頃の揚水井群の水頭(図-11 参照)とはほぼ一致する値であり、昭和40年頃の40m井水頭の推定には揚水井群水頭を活用することが可能である。なお図-12から図-16の一般的な水頭変化の傾向としては月間及び年間の水頭変動の振幅がはげしく、揚水井群の揚水量の影響(事業所の稼働率に係るものと思われる)が大であることを物語っている。特に水頭低下が顕著に認められる時期は毎年8月前後の夏



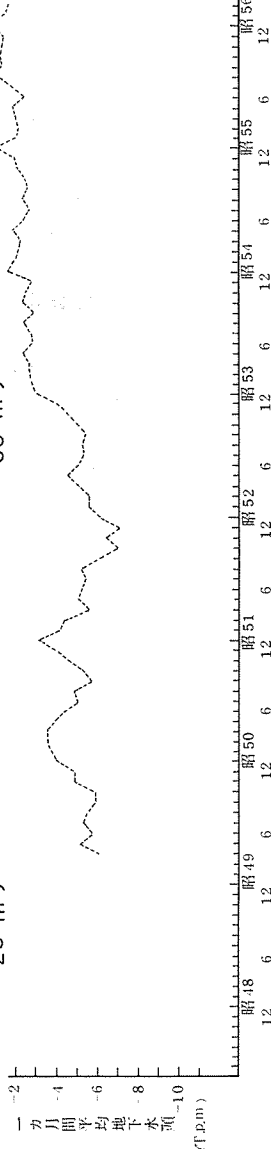
図一14 地下水頭経年変化図 (新横観測井 117 m)



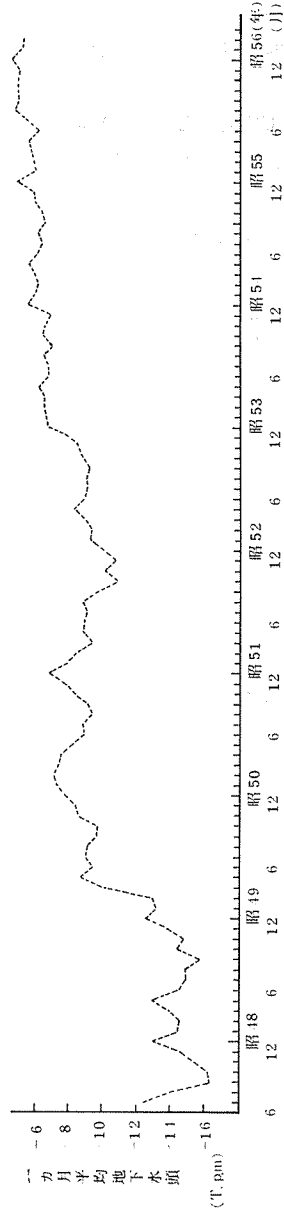
図一13 地下水頭経年変化図 (新横観測井 60 m)



図一12 地下水頭経年変化図 (新横観測井 25 m)



図一15 地下水頭経年変化図 (新羽観測井40 m)



図一16 地下水頭経年変化図 (新羽観測井80 m)

期である。農業用井戸、家庭用井戸(クーラー使用等)事業所井戸(夏休み前後の生産増大等)がその原因として考えられるが、地下水の保全対策面からも今後の地下水利用実態調査で明らかにして行く必要がある。

4-4 掘削工事における水頭変動

大規模な地下掘削工事による影響については国鉄横浜駅西口周辺²⁾⁴⁾⁴⁾の場合を例にとると、当地域の沈下は昭和35年から昭和54年までの20年間で約85.0cmの値を示し、現在沈下は鈍化したものの圧密は進行中である。主因は掘削による地下水頭の低下とおもわれ

ているが、この地点は昭和45年頃から沈下が急激に発生し、開発が最も盛んな時期であった。一般に地盤沈下は軟弱地盤層の圧密沈下により発生するもので、地中の間ゲキ水圧減少が原因となっている。また掘削直後の間ゲキ水圧は掘削直前より40から50%減少⁷⁾することが把握されている。これは岡野公園観測所及び横浜公園観測所の地下水頭の観測結果⁵⁾からも証明される。しかるに調査地域は再開発途上にあり、周辺では大規模地下掘削工事がここ数年前から行われている。当地域は年間約4.0cmずつ沈下しているが残念ながら掘削周辺での地質・土質調査及び軟弱地盤層部の間ゲキ水圧測定の実施例が無いため、掘削工事と揚水井との影響の度合は考察できなかった。しかし今後の開発が開始される前に地盤沈下対策を図る事が必要であろう。

4-5 間ゲキ水圧分布の経年変化

調査地域における地層内部の間ゲキ水圧分布と経年変化をみるため図示したものが図-17, 18である。図-17は新横観測井の間ゲキ水圧分布であり昭和45

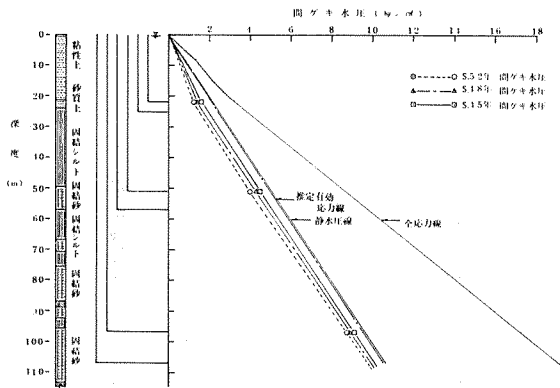


図-17 新横浜駅前公園観測所間ゲキ水圧分布図

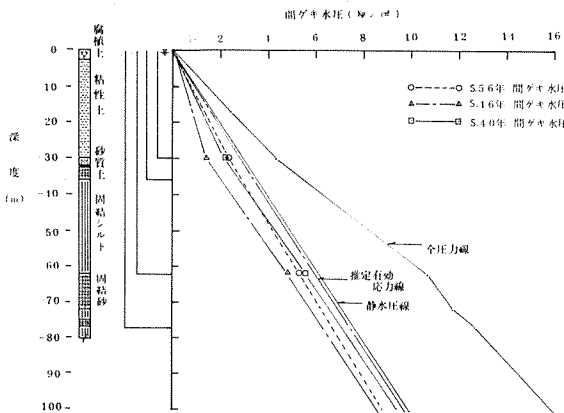


図-18 新羽公園観測所間ゲキ水圧分布図

年、48年、52年頃の間ゲキ水圧変化を示したものである。図からも明らかのように深度-2.2m付近の間ゲキ水圧は静水圧より約0.96kg/cm²から0.60kg/cm²の範囲で減少している。深度-5.08m付近の間ゲキ水圧は静水圧より約1.06kg/cm²から0.60kg/cm²の範囲で減少し、深度-9.55m付近は約0.80kg/cm²前後の間ゲキ水圧減少であり、地層内部の有効応力が增大していることを示している。また図-18は新羽観測井の間ゲキ水圧分布図であり、昭和40年、46年、52年頃の間ゲキ水圧変化をみたものである。この図から当観測所周辺地盤の間ゲキ水圧を深度別にみると深度-30m付近は静水圧より約1.60kg/cm²から0.70kg/cm²の範囲で減少しており、深度-6.28m付近は静水圧より約1.43kg/cm²から0.72kg/cm²の範囲で減少していることがわかる。いずれも新横付近の間ゲキ水圧より当観測井付近の間ゲキ水圧が大きな減少を示している。したがって後者の地層内部の有効応力は前者より大きな値であり、沈下要因が大であることがわかる。これは図-3の地盤沈下等量線分布図の最大沈下地点が後者付近で発生していることから証明されている。

5. 地盤構造の解析と土質特性

5-1 地盤構造の推定

調査地域の地盤構造を解析するため、ボーリング資料(柱状図約600本)を使って1/5,000平面図に記載し、軟弱地盤層の層厚分布状態及び代表的な地質断

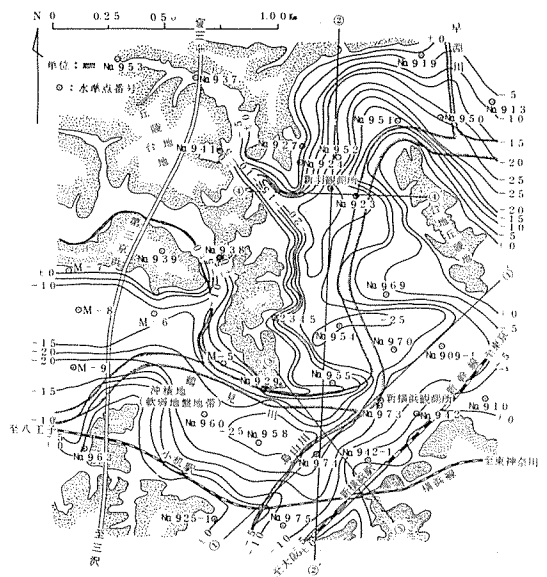
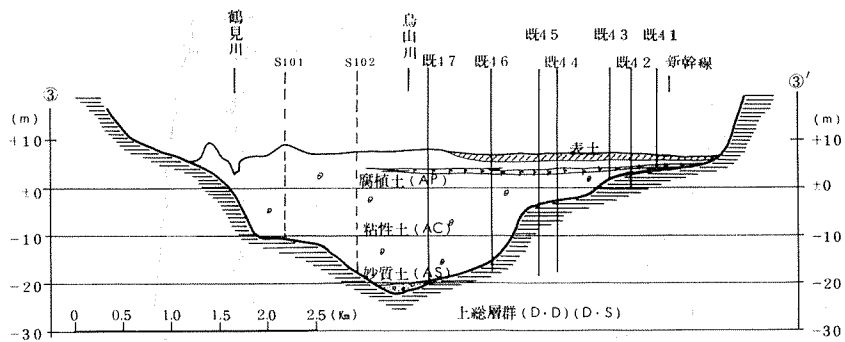
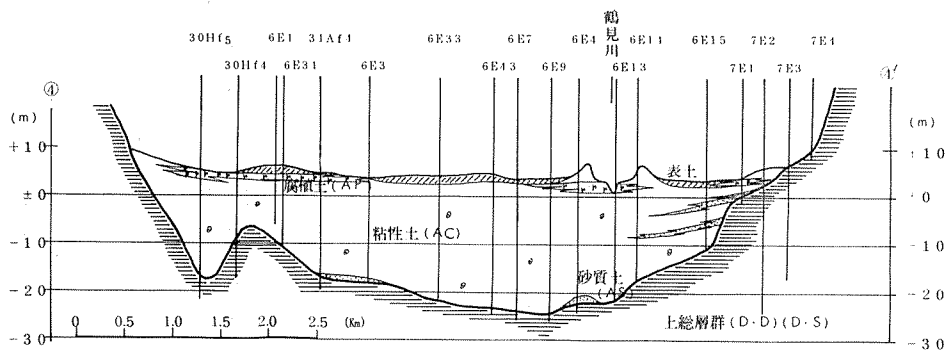


図-19 新横浜駅周辺の軟弱地盤層等深線分布図



図一 22 ③～③' 地質断面図



図一 23 ④～④' 地質断面図

面図(縦1/500,横1/5,000)を作成した。図-19は軟弱地盤層の等量線分布図,図-20は新横観測井付近を通り新幹線と平行して走る南西~北東断面(①~①'断面,図-19参照),図-21は新横駅前付近から新吉田町付近までの南~北断面(②~②'断面,図-19参照),図-22は新横駅前付近から新羽町南部会館方面に向う南東~北西断面(③~③',図-19参照)図-23は菊名ポンプ場付近から新羽観測井付近を通る東~西断面(④~④',図-19参照)をそれぞれ解析して図示したものである。これらの解析結果からも明らかのように,軟弱地盤層の層厚分布が著しく変化に富み,多摩丘陵や下末吉台地が開析されて谷部を形成した溺れ谷になっていることがうかがわれる。この溺れ谷の谷底はT・P-25mから-30mで下流域が若干深くなる傾向にある。また開発が予想されている新横観測井付近の軟弱地盤層は丘陵地が現河川に向かって張り

出してゆるやかな傾斜を持つ波食台の上に堆積した層であり,層厚は10mから25mと推定され,新横観測井付近で25m前後,新羽観測井付近で35m前後である。この地域の特長は層厚が25m以下が軟弱地盤層全体の70%を占め,25m以上の層厚が比較的少ないことである。地層構成は基底より概ね砂(AS)~シルト・粘土(AC)~腐植土(AP)~埋土(F)の順に堆積し,かつ貝殻片,腐植物等を含んだ地層である。しかし局部的には砂,腐植土が欠損し,シルト,粘土の単一地層で形成されている部分もある。またこれらの堆積環境について考察すると砂層は谷底が河川であった時期の河成堆積物であり,シルト・粘土層は貝殻片等の混入物があることから海面の上昇による内湾を呈していた時期であり,腐植土層は後背湿地の生成物から成る時期である。それぞれ異った成因を有していることからみて,海進,海退,河川氾濫等によって長期間

にわたって堆積したものであることがわかる。これらの堆積環境のうちでも調査地域の地層は特に海成層が主体であるものと思われる。

5-2 地質、土質特性

図-24から図-29までは新横周辺の土質試験結果の資料を使って土の物理・力学特性を解析したものである。このうち図-24は土の安定性をみるため液性限界(WL)と自然含水比(W_n)との関係を図示したものである。土の「安定」「不安定」は図中のA線(WL=W_n)を界にしてその上限の値と下限の値で区分され、安定な土はA線より上限領域、不安定な土はA線より下限領域を占める。図-24によると土はA線を中心にほぼ上限と下限の領域に分布しており、調査地域は安定な土と不安定な土で構成されているものと思われる。図-25はCasagrande²⁾による塑性図であるが、IP=0.73(WL-20)の線より上限値は粘土、下限値はシルトで区分される。大半の土がIP=0.73(WL-20)の線上に集中していることからみて、調査地域の土は高圧縮性のシルト~粘土領域になっているが若干下限値が多くみられるので、シルト分の多い土であると思われる。図-26は単位体積重量(γ_t)と間ゲキ比(e)との関係を図示したものである。 γ_t が大きな値を持つ土は密実堅硬であり、 γ_t が小さな値を示す場合は間ゲキの大きい軟らかい土であることが考えられる。したがって間ゲキ比や含水比(W_n)との相関性が極めてよいものと思われる。図にはその傾向がよく表われている。すなわち、第二帯水層(上総層群)の γ_t と e の関係は γ_t が1.75g/cm³から1.90g/cm³において e が0.50から1.00の値を示し、地盤はN値が50以上で極めて硬い。これに比し、土が軟らかい軟弱地盤層の γ_t と e は反比例の関係にあり、 e が大きくなれば γ_t が小さな値を示す。調査地域の軟弱地盤層は e が小さくて γ_t が大きい値がみられることから、密に締った土が部分的に存在するものと思われる。図-27は有効土被圧(P_o)と相関の高い圧密降伏応力(P_y)と e との関係をみたものであるが、全体の傾向としては e が小さければP_yt大きな値を示し、 e が大きければP_yは小さい関係が認められる。図-28はP_yとP_oとの関係を示したものであり、P_y=P_oであれば正規圧密、P_y>P_oであれば過圧密、P_y<P_oであれば自然圧密として把握される。図-28からは大半が過圧密を示し、現地盤が過去に大きな圧密応力を受けた土であることがわかる。図-29は有効土被圧と一軸圧縮強度(q_u)との関係をみたものである。データにバラツキがみられるが、全体的にはP_oと q_u は正の比例関係がある。以上図-24から

図-29までの土質についてそれぞれの特徴をまとめみたが、これらはいずれも本市域に分布する土の一般的な性質(東京湾周辺地帯の地盤解説編¹⁰⁾、戸塚駅・横浜駅周辺の地盤)と大差ないことがわかった。しかし先に報告した戸塚駅周辺の軟弱地盤層は含水比が極めて大きい土(40%から400%)であるのに対し、新横浜駅周辺の土は含水比が30%から120%と小さく腐植土層が少ない。また東京湾周辺地帯の地盤における本牧、横浜東部ではP_yは一般に正規圧密を示す値が多くみられるが新横浜駅周辺や戸塚駅周辺地盤のP_oは過圧密状態が多く示されている。圧密試験は土の試料に荷重をかけて排水し、沈下させ、沈下量の変化からP_oを計算するため、土の粒度組成や $e-\log P$ 曲線の変曲点の求めかた等で、値が低かったり高かったりしてバラツキが多い。そのため一概に本牧・横浜東部のP_oと新横浜駅周辺のP_oとは比較できないが、P_oの特徴に若干の相違がみられるようである。今後はこの点に着目して地盤沈下の経年変化と土質試験時期の土の特性を相対的に考察してみる必要がある。

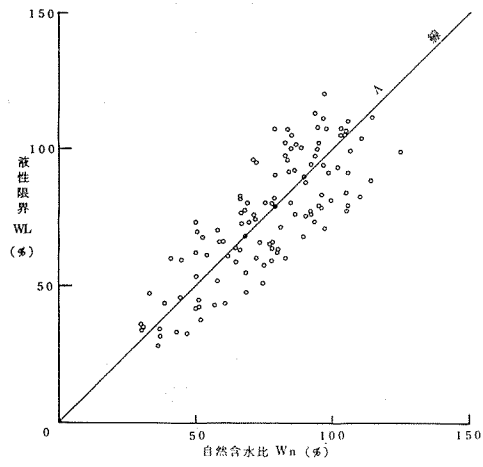
つぎに新横浜駅周辺の軟弱地盤層について区分したそれぞれの地質層序と土質特性について地層の上部から記述する。

5-2-1 埋土(F)

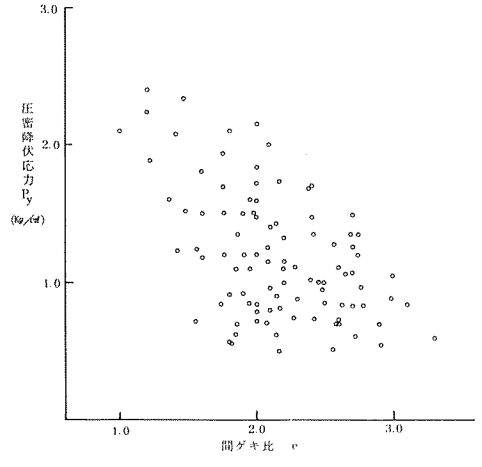
ローム、腐植物、砂質土を所々に薄く挟在するが、大部分が粘性度の高い土で構成されているものの、極めて不均質な地層である。層厚は0.5mから2.5mで場所によっては欠如部分もみられる。また(F)層での土質試験は実施例が少ないため、ここでは考察を省く。

5-2-2 腐植土層(AP)

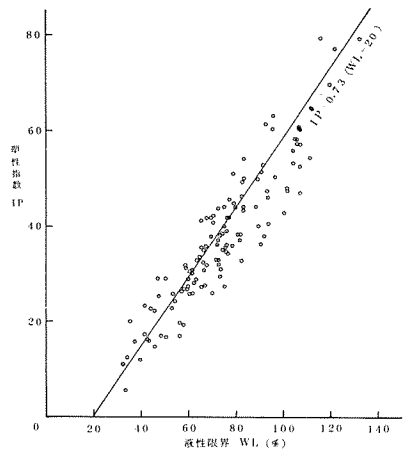
(AP)層は層全体に占める割合は少なく、所によっては基底面上の砂質土の上に堆積しているものもみられる。全体に有機質粘土が主で場所によって炭化作用のあまり進んでいない植物繊維からなる物もある。主に上層部の埋土の下に比較的広範囲に分布しているものと思われるが、(F)層が消滅して直接表面に(AP)層が表われる所もある。層厚は約1.0mから3.0mでこの中に薄い砂を挟んでいる場合もある。(AP)層に対する土質試験例は数が少なく、したがって土質特性は把握できないものもある。物理試験結果資料の代表的な値はW_nが30%から150%、 e が1.3から7.8、 γ_t が1.1g/cm³から1.5g/cm³、土の比重(GS)が1.45から2.32とかなりバラツキがあった。また(AP)層における力学試験結果の値はみあたらなかったが、この層は圧密層としてしばしば問題になると思われるので今後は現地から不攪乱試料等を採取して室内で試験を重ね



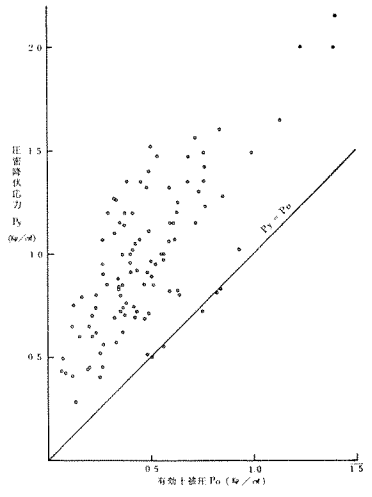
図一 24 液性限界と自然含水比との関係図



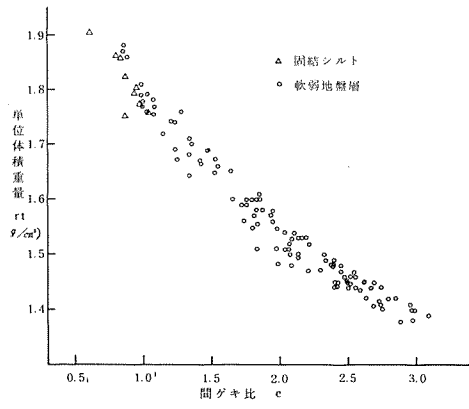
図一 27 圧密降伏応力と間ゲキ比との関係図



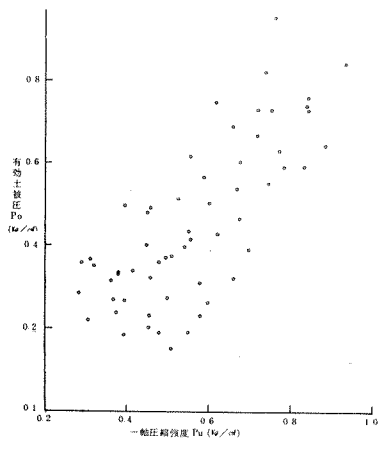
図一 25 塑性指数と液性限界との関係図



図一 28 圧密降伏応力と有効土被圧との関係図



図一 26 単位体積重量と間ゲキ比との関係図



図一 29 有効土被圧と一軸圧縮強度との関係図

代表値を得る必要がある。

5-2-3 粘性土層 (AC)

(AC)層は全体に貝殻片と腐植物を混入した海成のシルト・粘土層で、ほぼ全域にわたって厚く分布し、軟弱地盤層の主体を成している。またこの層は均質でかつ粘性に富んでいることが特徴的であるが、場所によっては砂がちの粘性土や薄い砂を局部的に挟在している。層厚は10mから30mとかなり厚い。土質特性は砂分が1.9%から8.23%の範囲にあり、砂質土に分類されるものもある。コンシステンシー指数(Ic)は1.73から0.07であり、不安定で流動性の高い性質であることがわかる。Gsは2.6から2.7で一般的な値である。Wnは31%から105%の範囲にある。軟弱地盤層における粘性土のWnは60%前後は一般的な値を持つことから(AC)層のWn31%付近はやや砂分が多い層、Wn105%付近は有機性に富む層構成であることが考えられる。rtは1.45g/cm³から1.70g/cm³(大きな値は砂、スコリア等の影響と思われる)quは0.28kg/cm²から1.00kg/cm²、粘着力(C)は0.05kg/cm²から0.40kg/cm²、せん断抵抗角(ϕ)は3°から23°の範囲にあり、いずれも砂がちのものはqu、Cが小さく ϕ が大きくなっている。Pyは0.5kg/cm²から1.3kg/cm²の値であり、透水係数は10⁻⁷cm/secから10⁻⁶cm/secの範囲で難透水層である。

5-2-4 砂質土 (AS)

(AS)層は(AP)層と同様、地層全体からみた場合は極めて薄く、かつ全体の広がりはない、基底面上に約1.0mから2.5mの厚さで堆積した場所と(AC)層の間に薄く挟在している。また(AS)層は軟弱地盤層の最下部になり透水性の良い層であることから第二帯水層との連絡が考えられ、事業所井戸の地下水揚水と軟弱地盤層との係わりに深い関係があるものと思われる。なお(AS)層の土質試験の値も(AP)層と同様に得られていない。

5-2-5 固結シルト(D・D)及び固結砂(D・S)

(D・D)層及び(D・S)層は軟弱地盤地帯の基盤層であり、地質層序は上総層群鶴川互層と思われる。この層は(D・D)と(D・S)が互層に構成され、N値が30回から50回、全体に砂分が比較的多く透水性が良好なため、軟弱地盤層の排水層と考えられる地層である。これは先に報告した戸塚駅周辺軟弱地盤地帯の基盤層とも類似しており、相模層群下末吉層または屏風ヶ浦層が基底面に薄く堆積しているものか、あるいは上総層群が風化した物と考えられる。この問題は今後、微化石分析等を実施して堆積環境を詳細に調べた上で地層

対比を試みたいが、ここでは解析の都合上N値が30回から50回の範囲の物でも第二帯水層として解析を進めるものとする。(D・S)層の土質特性はGsが2.37から2.71、砂分が39%から97%、Wnが24%から40%、rtが1.75g/cm³から1.90g/cm³である。(D・D)層はGsが2.5から2.7、砂分が20%から40%、Wnが18%から35%、rtが1.80g/cm³から1.95g/cm³、quが14kg/cm²から34kg/cm²、Cが1.2kg/cm²から2.4kg/cm²、 ϕ が15°から24°等である。また透水係数は(D・S)層の試験値が主であり、その値は1.48×10⁻⁴cm/secから6.42×10⁻⁴cm/secで一般に透水性の良い層である。

6. 密圧沈下の予測

地盤沈下の予測解析については種々条件の異なった解析方法がある。いくつかをあげてみると①地下水収支から求めるシュミレーション^{23)~24)}、②軟弱地盤層の応力増加による圧密理論^{22), 25)}、③層厚と沈下量との相関性から推定する方法^{26)~27)}、④地下水位、地下水揚水量と沈下量との相関性から推定する方法²⁸⁾等がある。このうち、①は地下水の収支や地層の水理常数等が解明されなければ解析が不可能である。②については軟弱地盤層の沈下を主体とした解析であり、地盤構造、土質常数、荷重条件等が明らかになれば予測値は得られる。③は最終的な沈下量が把握されれば、ある程度の予測値は得られるが現時点ではほとんどの軟弱地盤層は沈下進行中であり、相関性は得難い。④は沈下地帯の精度の高い揚水量や地下水頭が把握されなければ③と同様に相関性は得難い。

本論では以上の点を鑑みた場合、いずれも解析に足る十分な資料は得られなかった。しかしその中でも②の資料が比較的多く得られたことからここでは②の一次元圧密理論による軟弱地盤層の沈下予測について試み、③の方法による考察を進めつつ理論値と実測値の比較を行って最終的な沈下予測値を推定することにした。

6-1 圧密沈下計算方法

6-1-1 圧密沈下量と沈下時間

圧密沈下量と沈下時間の算出はTerzaghiの一次元圧密理論²⁹⁾によって求めるものとし、次式によって示される。

$$\Delta H = f_0^{2H} m_v \cdot \Delta U \cdot dz \dots\dots(1) \text{ (両面排水)}$$

ここに ΔH : 全沈下量 (cm)

m_v : 体積圧縮係数 (cm³/kg)

dz : 層厚 (cm)

ΔU : 増加有効応力 (kg/cm²)

また圧密の沈下時間(t)と圧密度(u)の関係は次式によって示される。

$$U = 1 - \sum \frac{2}{M^2} \exp^{-M^2 \cdot Tv} \dots\dots\dots(2)$$

$$M = \frac{\pi(2m+1)}{2} \dots\dots\dots(3)$$

$$Tv = \frac{1}{H^2} Cv \cdot t \dots\dots\dots(4)$$

$$t = \frac{1}{Cv} \cdot H^2 \cdot Tv \dots\dots\dots(5)$$

ここに U : 圧密度 (%)

m : 整数

Tv : 圧密度(u)に相当する時間係数

H : 圧密層の排水距離 (cm)

t : 圧密所要時間 (日・年)

Cv : 圧密係数 (cm²/min)

6-1-2 層厚と土質常数の決定

圧密沈下計算に必要な層厚及び土質常数はこれまでの解析結果を使用するものとし、その値は表-1, 2にまとめて示す。

6-1-3 増加有効応力の決定

増加有効応力の決定に当っては地中の応力状態を把握することが難しく、解析が困難である。ここでは地下水の静水圧から減少した分の水圧を増加応力と考えて計算するものとした。そのため地下水頭の低下がなかった時期の沈下は考慮せず、図-11の地下水頭経年変化図から水頭低下時期を求めた。図-11によると水頭低下は第一次低下、第二次低下、第三次低下に分類される。それぞれの水頭低下時期から求めた増加有効応力図は図-17・18に示される値になる。ここではこの値を新横浜駅周辺地帯の代表値として計算することにする。また第一次水頭低下から第三次水頭低下までの地盤沈下量はそれぞれの値を加算した累計値とした。以上の仮定によって求めた増加有効応力は表-1・2に示されている。

6-1-4 圧密沈下量の計算結果

圧密沈下量について試算した結果と実測値の関係図は図-30・31に示す。図-30は新横観測井付近(No 973, 974, 図-20・22)の層厚が約25mから30mの沈下曲線を図示したものである。またNo 973, 974付近の層厚は約20mから25mであることが推定されるので、図-30のA曲線を採用し、測定開始時期の圧密時間と沈下量との関係を考察してみた。これによるとNo 973, 974付近の圧密量は測定開始時で全推定沈下量(66.7cm)の約40%を示し、現在(昭和55年)約57%の圧密が進んでいる結果が得られた。また今後の沈下傾向としては実測値が計算値より大きな値(Uで約7%大)を示しており、今後沈下はなお継続して行くことを示している。なお、図-30でNo 970の沈

表-1 新横浜観測井数値表

層別	深度(m)	層厚(m)	Δu_1 (kg/cm ²)	Δu_2 (kg/cm ²)	Δu_3 (kg/cm ²)	m ^v (cm ² /kg)	C _v (cm ² /min)
A層	0~12.5	12.5	0.05	0.035	0.025	8.0×10 ⁻²	6.0×10 ⁻²
B層	12.5~17.5	5.0	"	0.205	0.160	6.7×10 ⁻²	8.2×10 ⁻²
C層	17.5~25.0	7.5	"	0.260	0.230	1.4×10 ⁻¹	7.0×10 ⁻²
D層	25.0~30.0	5.0	"	0.260	0.260	1.4×10 ⁻¹	7.0×10 ⁻²

表-2 新羽観測井数値表

層別	深度(m)	層厚(m)	Δu_1 (kg/cm ²)	Δu_2 (kg/cm ²)	Δu_3 (kg/cm ²)	m ^v (cm ² /kg)	C _v (cm ² /min)
A層	0~7.0	7.0	0.05	0.015	0.040	9.8×10 ⁻²	1.5×10 ⁻¹
B層	7.0~12.5	5.5	"	0.100	0.090	8.7×10 ⁻²	"
C層	12.5~30.0	17.5	"	0.220	0.180	"	1.9×10 ⁻¹
D層	30.0~35.0	5.0	"	0.350	0.260	"	"

下量は他の実測値より若干大きな値を示すが、この原因は、No 970付近の層厚が約5m程厚くなっていることが考えられる。図-31は新羽観測井付近(No 923, 925, 図-21, 23)の層厚が約30mから35mの沈下曲線を図示したものである。No 923, 952付近の層厚は約30mから35mと推定されるのでC曲線を採用し、それぞれの圧密時間と沈下量との関係を考察することにした。これによると新羽観測井で実測している圧密量は測定開始時で全推定沈下量(64.5m)の約68%を示し、現在約80%の圧密が進行しており、今後の傾向は鈍化しつつあることが示された。またNo 923実測値の圧密量は測定開始時で全推定沈下量の約11%を示し、現在約96%でほぼ終局に近い値である。No 952実測値の圧密量は測定開始時で全推定沈下量の約70%を占める。現在は全推定沈下量を約13%も上回る値であり、今後の傾向は前者と同様鎮静化しつつある。なお、No 952実測値はC曲線の計算値よりかなり大きな値を示し、D曲線の計算値に近い値である。この理由としては層厚が35m近くあること及び土質常数值(m^v, C_v)の仮定が当地層に適合していなかったことが考えられる。またNo 923実測値と計算値の差も前者と同様の理由が考えられる。しかし両者とも今後の地盤沈下を予測する上でおよその傾向を把握することができる。

6-2 層厚と沈下量の関係

地盤沈下地帯の軟弱地盤層厚と実測累計沈下量との間には正の相関性が一般に認められていることから、この方法を採用して新横浜駅周辺地帯の沈下予測を試みることにした。しかし現状の実測累計沈下量は圧密が進行中であったり、実測開始時期が測点によって各

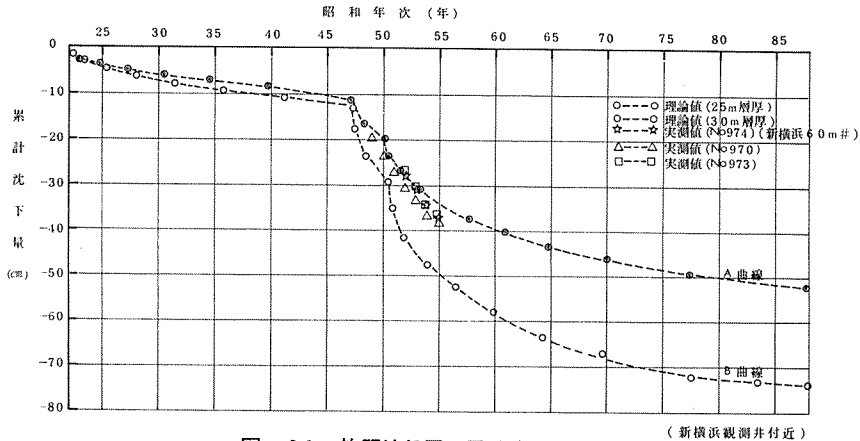


図-30 軟弱地盤層の累計沈下予測図

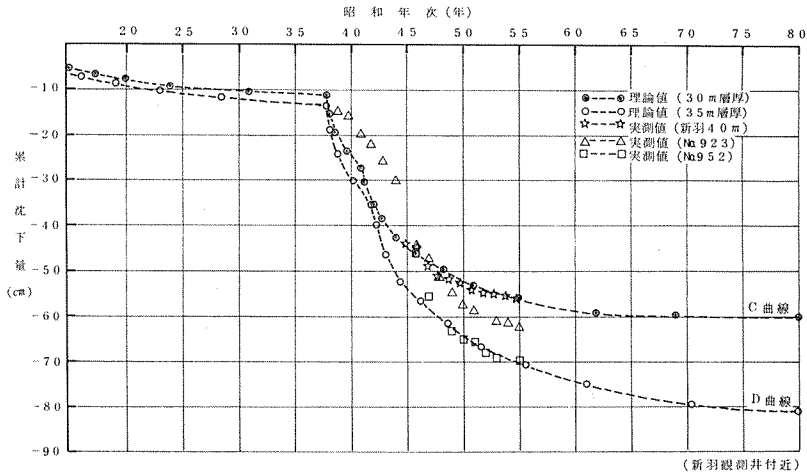


図-31 軟弱地盤層の累計沈下予測図

々異なるため、これらの条件を一定の基準にする必要がある。ここでは比較的实际値が古く沈下がかかなり進んでいると思われる値(図-4・5)⁵⁾を使用してまとめるものとした。図-32はその解析結果である。図からは層厚が25mで約40.0cmの推定沈下量が示され、層厚が30mで推定沈下量は約50.0cm、層厚が、35mで推定沈下量は約64.0cmの値がそれぞれ得られる。これらの値は圧密沈下計算結果(図-30・31)より若干低い値で示された。すなわち25m層厚の推定沈下量は圧密計算値より約40%低く、30m層厚の推定沈下量は圧密計算値より約22%から33%低く、35m層厚の推定沈下量は圧密計算値より約20%低い値である。また図-32を大阪地盤の報告⁶⁾と比較してみると層厚30mで図-32の推定沈下量が約50%高い値を示す。同様にして本市の横浜駅周辺地盤²⁾を比較すると層厚30mで約14%と図-32による推定沈下

量が高い。以上のことから考察して層厚と沈下量との相関性は地域によってかなりバラツキがあり、圧密計算値との大差が大きい。この理由として考えられることは、それぞれの地域において沈下開始から沈下終了までの実測値の求め方が異なったこと。層厚推定誤差

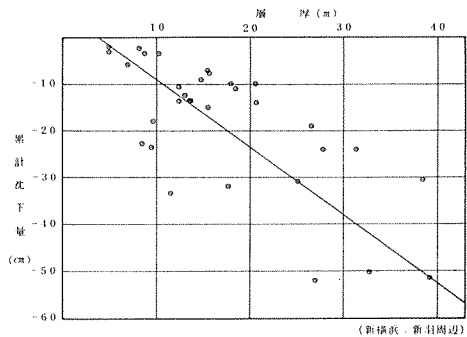


図-32 軟弱地盤層と累計沈下量との関係図

が考えられることなどである。今後の問題点は土質を詳細に分析した上で沈下速度との関係を導き、地盤特性に応じた沈下推定を試みることにしたい。

7. ま と め

新横浜駅周辺における地盤沈下の解析を試みるために①沈下の推移と経年変化、② 地下水揚水井群の帯水層深度、③ 揚水井群の地下水頭と経年変化、④ 観測井地下水頭の経年変化、⑤ 掘削工事における水頭変動、⑥ 間ゲキ水圧分布の経年変化、⑦ 地盤構造の解析、⑧ 地質・土質特性の解析、⑨ 圧密沈下の予測等から沈下現象について考察を加えてきた。ここではこれらを総合的に判断して新横浜駅周辺地帯の地盤沈下について次のとおり推定した。

1) 沈下の推移と経年変化

新横浜駅周辺地帯の沈下は昭和33年以後の記録からみて新羽観測井付近の $\text{M}923$ 地点で発達し、全体に拡大して行った。その後南に沈下領域は広がり、新横観測井付近で新たに沈下が発生しつつある。現在この付近の沈下は進行中であり、今後沈下はさらに進みその値は約 1.0 cm から 2.0 cm になるものと推定される。また現地盤の沈下等量線分布は図-3のとおり推定した。

2) 地下水揚水井群の帯水層深度

新横浜駅周辺地帯の事業所井戸が揚水している地下水帯水層深度は図-8に示したとおりである。これによるとこの地域の地下水は $\text{T}\cdot\text{P}-4.0\text{ m}$ 付近に多く帯水していることが推定される。

3) 揚水井群の地下水頭と経年変化

事業所井戸のさく井時地下水頭と最近の地下水調査結果から推定した地下水頭の経年変化は図-11に示すとおりとなる。これによると新横観測井付近の地下水頭は昭和30年から45年頃で $\text{T}\cdot\text{P}+2\text{ m}$ 、昭和45年から50年頃では約 $\text{T}\cdot\text{P}\pm 0\text{ m}$ 、昭和50年から52年頃は約 $\text{T}\cdot\text{P}-4\text{ m}$ の水頭変化が認められる。新羽観測井付近の地下水頭は昭和30年から45年で約 $\text{T}\cdot\text{P}-3\text{ m}$ であることが推定される。

なお、地盤高が $\text{T}\cdot\text{P}+15\text{ m}$ 以上の台地及び丘陵地の地下水頭は $\text{T}\cdot\text{P}+10\text{ m}$ から $\text{T}\cdot\text{P}+15\text{ m}$ の範囲に分布している。また現在事業所井戸で揚水している帯水層の地下水収支は揚水量約 $28,000\text{ m}^3/\text{日}$ から $18,000\text{ m}^3/\text{日}$ がバランスの範囲であろうと考えられるが、この点については今後詳細に検討する必要がある。

4) 観測井地下水頭の経年変化

新横観測井における帯水層は3層に区分されているが、 $\text{T}\cdot\text{P}-2.5\text{ m}$ 付近帯水層の地下水頭は昭和54年頃

で $\text{T}\cdot\text{P}+1.8\text{ m}$ から $\text{T}\cdot\text{P}+0.2\text{ m}$ である。 $\text{T}\cdot\text{P}-5.4\text{ m}$ 付近帯水層の地下水頭は昭和54年頃で $\text{T}\cdot\text{P}+2.2\text{ m}$ から $\text{T}\cdot\text{P}+0.2\text{ m}$ である。 $\text{T}\cdot\text{P}-10.0\text{ m}$ 付近帯水層の地下水頭は昭和54年頃で $\text{T}\cdot\text{P}+1.6\text{ m}$ から $\text{T}\cdot\text{P}+0.2\text{ m}$ にある。また新羽観測井における帯水層は2層に区分されているが、 $\text{T}\cdot\text{P}-2.6\text{ m}$ 付近帯水層の地下水頭は昭和48・49年頃で $\text{T}\cdot\text{P}-8.0\text{ m}$ から $\text{T}\cdot\text{P}-10.0\text{ m}$ であったことが推定され、昭和49年以後は $\text{T}\cdot\text{P}-2.0\text{ m}$ から $\text{T}\cdot\text{P}-7.0\text{ m}$ に水頭は回復している。 $\text{T}\cdot\text{P}-7.2\text{ m}$ 付近帯水層の地下水頭は昭和48・49年頃で $\text{T}\cdot\text{P}-13.0\text{ m}$ から $\text{T}\cdot\text{P}-16.0\text{ m}$ のものが昭和49年以後は $\text{T}\cdot\text{P}-8.0\text{ m}$ から $\text{T}\cdot\text{P}-10.0\text{ m}$ に水頭は回復している。一方これらの水頭はいずれも毎年8月頃の夏期に著しい低下を示している。

5) 掘削工事における地下水頭の変動

軟弱地盤層での掘削は施行期間中40%から50%の間ゲキ水圧減少が知られているが、新横観測井でも周辺工事の影響と思われる地下水頭の低下がみられ、その値は約 $40\text{ cm}/\text{年}$ である。しかし、これについては今後地下水観測孔等を設置して詳細に調べる必要がある。

6) 間ゲキ水圧の経年変化

新横浜駅周辺地帯の代表的な間ゲキ水圧分布を求め図-17・18に示した。これによると新横観測井付近の間ゲキ水圧は昭和36年以降から現在までに深度 -2.20 m 付近で $0.60\text{ kg}/\text{cm}^2$ から $0.96\text{ kg}/\text{cm}^2$ 減少し、深度 -5.08 m 付近では $0.60\text{ kg}/\text{cm}^2$ から $1.06\text{ kg}/\text{cm}^2$ 減少している。また深度 -9.55 m 付近では $0.80\text{ kg}/\text{cm}^2$ 前後に間ゲキ水圧が減少している。新羽観測井付近の間ゲキ水圧は昭和36年以降から現在までに深度 -3.0 m 付近で $0.70\text{ kg}/\text{cm}^2$ から $1.60\text{ kg}/\text{cm}^2$ 減少し、深度 -6.28 m 付近で $0.72\text{ kg}/\text{cm}^2$ から $1.43\text{ kg}/\text{cm}^2$ 減少している。したがってこれらのことから軟弱地盤層の有効応力が増加していることが把握される。特に新羽観測井付近の有効応力が増大しており、沈下の目がこの付近から発達していることが明らかである。

7) 地盤構造の解析

新横浜駅周辺の軟弱地盤構造を4断面解析し、軟弱地盤層の基底等深線分布を推定した。これらの解析結果によると地質層序は表層より埋土～腐植土～粘性土～砂質土～固結砂・固結シルト層の各々に大別される。このうち埋土、腐植土、砂質土は連続性がなくかつ薄い地層である。全層厚は 10 m から 35 m で海成層が主体である。また軟弱地盤層の基底面は砂層部分があり、地下水は上総層群(第二帯水層)と連続するものと考えられる。

8) 土質特性

新横浜駅周辺の土は過去に有効応力の増加があったものと推定され、過圧密状態を示している。土質特性は砂分が1.9%から8.23%、コンシステンシー指数が1.73から0.07、比重が2.6から2.7、含水比が31%から105%、単位体積重量が1.45g/cm³から1.70g/cm³、一軸圧縮強度が0.28kg/cm²から1.00kg/cm²、粘着力が0.05kg/cm²から0.40kg/cm²、せん断抵抗角が3°から23°、圧密降伏応力が0.5kg/cm²から1.3kg/cm²、透水係数が10⁻⁷cm/secから10⁻⁸cm/secの範囲等の数値であることが把握される。

9) 圧密沈下量の予測

Terzaghiの一次元圧密理論式によって得た沈下予測値と実測値や層厚と推定累計沈下量との関係から得た沈下予測値との間には若干の相違があったが、新横観測井付近の全沈下量は、概ね66.7cmから85.5cmと予測され、昭和55年頃の沈下量は、全沈下量の57%前後であることから今後もこの地域の沈下は当分続くものと思われる。また新羽観測井付近の全沈下量は概ね64.5cmから79.8cmと推定され、昭和55年頃の沈下量は80%から113%にも達しているのではほぼ最終的な沈下に達していると考えられ、今後の沈下は鎮静化するものと思われる。しかしこれらの値にはかなりバラツキがみられる。この原因は土質試験結果のバラツキや地下水の回復を考慮した解析ができなかったことにあるものと思われる。今後はこの周辺の土を詳細に調査した上で再度地下水の回復等を考慮した解析を試み、地盤沈下の精度を上げた予測値を得るように心掛けたいが、これらの問題については別の機会に述べたい。

8. おわりに

新横浜駅周辺の地盤沈下解析について、ボーリング資料、土質試験資料、さく井時揚水井資料、地盤沈下観測所資料等を活用して地下水、地盤構造、沈下予測等の解析に必要な基礎資料を一つ一つ作成した。幸にして調査地域には新横観測井を新羽観測井が設置されており、貴重な資料を多く利用することができた。しかしながら沈下解析に最も重要な地下水頭及び間ゲキ水圧等の古い記録が入手した資料に乏しく、意図した解析はできなかった。今後はこれらの古い記録資料を入手するとともに詳細な地質・土質調査を実施し、地盤沈下や地下水の動向を慎重に監視して行く必要がある。そのためには軟弱地盤層の内部に間ゲキ水圧計や沈下計等を設置し、沈下原因を速やかに把握して行く

ことが重要である。さらにここにこれらの資料が新横浜駅周辺の地盤沈下防止対策に少しでも役立てば幸いである。

9. 謝辞

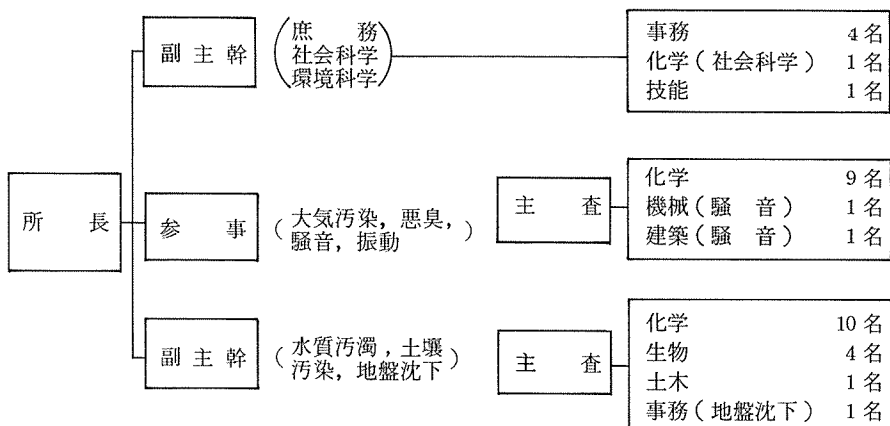
この解析を進めるに当り多数の資料を使用させていただいた関係機関に深く感謝いたします。

参考文献

- 1) 横浜市公害対策局：横浜市地下水総合調査報告書資料，1～147(1973,1974)
- 2) 横浜市公害対策局：横浜駅周辺地盤沈下解析報告書資料，52(1974)
- 3) 横浜市公害対策局：戸塚駅周辺地盤沈下解析業務報告書資料：109(1980)
- 4) 横浜市公害対策局：横浜市水準測量作成表，No.52～No.78(1974～1979)
- 5) 横浜市公害対策局：横浜市地盤沈下報告書，No.51～No.96(1973～1980)
- 6) 横浜市公害対策局：公害との戦い，55年版104～123(1980)
- 7) 杉本実：戸塚駅周辺の地盤沈下について，横浜市公害研究所報第5号，199～218(1980)
- 8) 太田・当間・須磨：横浜市付近の下末吉層基底面の地形，地理学評論，43巻11号(1970)
- 9) 関東第四紀研究会：下末吉台地およびその周辺地域の地質学的諸問題，地球科学，24巻5号(1970)
- 10) 当間唯弘：横浜付近の下末吉面の陸化過程，第四紀研究，13巻4号(1974)
- 11) 寿円晋吾：多摩丘陵の地形と地質，波丘地農業研究所報，第1号(1958)
- 12) 横浜市公害研究所：横浜市被圧地下水調査報告書資料，136(1981)
- 13) 杉本・安藤：横浜市の地下水利用に関する調査研究(農業用井戸の利用実態について)，横浜市公害研究所報第4号，161～165(1979)
- 14) 横浜市公害対策局：横浜市地下水位測定井戸台帳資料，276(1980)
- 15) " : 地下水利用実態調査報告書資料74(1978)
- 16) 横浜市公害研究所：横浜市北部地域地質調査報告書資料，26(1979)
- 17) " : 横浜市南部地域地質調査報告書資料，36(1980)

- 18) 横浜市公害研究所：ボーリングコアによる有虫化石群集の対比報告資料，9(1981)
- 19) 建設省計画局東京湾総合開発協議会：東京湾周辺地帯の地盤(解説編)88~118(1969)
- 20) 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資料，59(1977)
- 21) " "：地盤沈下用土質土性試験総括報告書資料(新羽公園)，23(1971)
- 22) 小野・星・加藤・三木共訳：土質力学(テルツァギ・ベック)基礎編，丸善，225(1966)
- 23) 柴崎達雄：地下水盆の管理，東海大学出版会，145~224(1976)
- 24) 新藤静夫：南関東地域の地下水利用と地盤沈下，地学雑誌，Vo185, Noz(812), 15~44(1976)
- 25) 三笠正人：軟弱粘土の圧密，鹿島研究所出版会，126(1965)
- 26) 土質工学会：大阪地盤，337~369(1977)
- 27) 藤井昭二：“沖積層”と地盤変動，第四紀研究，第5巻第3~4号，103~112(1966)
- 28) 遠藤・小笠原：沖積低地における間ゲキ水圧変化と地盤沈下の関係について，東京都土木技術研究所報告，165~181(1975)
- 29) 山内豊総：土質力学，理工図書，77(1965)

1 人員・組織



2 主要機器一覧表

品名	規格	数量	配置
ガスクロマトグラフ質量分析計	島津LKB, GC-MS-9000 B	1 式	第二機器分析室
同上用データ処理装置	島津GC-MS-PAC 3000型	1 式	"
走査型電子顕微鏡	日立S-500型	1 式	電子顕微鏡室
同上用X線分析装置	The nevex 5100	1 式	"
蛍光X線分析装置	理学電機MODEL 4053 A3	1 式	第二機器分析室
原子吸光光度計	日電バリオンAA-1150 A	1 式	第一機器分析室
"	島津AA-620	1 式	"
"	島津AA-630-02	1 式	"
ガスクロマトグラフFID他	島津GC-6AMPTF他	9 式	第三機器分析室
液体クロマトグラフ	島津FRC-1A	1 式	第二機器分析室
赤外分光光度計	日本分光A-3	1 式	恒温室
光化学反応実験装置	600 A スモークチャンパー	1 式	"
分光光度計	日立139-0018	2 式	
"	ダブルビーム自記 日立200-10型	1 式	第二水質実験室
分光蛍光光度計	日立MPF-4	1 式	放射能研究室
水銀分析計	島津UV-201	1 式	第一機器分析室
低温灰化装置	ヤマト科学PR-503	1 式	"
二次導函数微量ガス分析装置	LEAR SIEGLER MODEL 400	1 式	恒温室
超軟X線発生装置	SOFTEX-CSM-2	1 式	第二機器分析室
重油中S分析装置	東芝	1 式	放射能研究室
標準粒子発生装置	東京高周波電気炉SRF-305W	1 式	工学実験室

品 名	規 格	数 量	配 置
標準ガス精密希釈装置	製鉄化学工業 SDS-401	1 式	恒 温 室
窒素酸化物自動記録計	MONTIOR RABS MODEL-8440	1 台	第二大気実験室
〃	紀本電子工業 MODEL-214	1 台	〃
〃	〃	1 台	〃
オキシダント自動記録計	電 気 化 学	1 台	〃
オゾンメータ	京都電子工業 OX-21	1 台	〃
風向風速計	海上電機 SA-200	1 台	〃
〃	〃 RA-211 S	1 台	〃
イオン濃度測定装置	オリオン 801 A 型	1 台	〃
多チャンネルデジタル騒音計	リオン SV-70 型の改良型	1 台	騒音研究室
データレコーダ	NAGRA-IV-SJ 型	1 台	〃
騒音振動解析装置	YHP 5420 型	1 式	〃
〃 データ処理装置	YHP 9845 S	1 式	〃
シアンイオン蒸留装置	桐山製作所製	1 式	第一水質実験室
アンモニアイオン	〃	1 式	〃
ふっ素ネオン	〃	1 式	〃
水銀分解装置	〃	1 式	〃
グデルナーダーニッシュ濃縮装置	〃	2 式	第二及び第三水質実験室
流動電位測定装置	島津 ZP-10 B	1 式	4 階予備室
魚に対する慢性毒性試験装置	関東工機製作所製	1 式	生物研究室
魚に対する慢性毒性試験装置	〃	1 式	〃
波高分析機	東芝 USC-1 MODEL 10	1 式	放射能研究室
電子計算機	NEAC 3100	1 式	電子計算機室
微粒子自動計測器	ロイコ社 MODEL 226	1 式	第二大気実験室
攪拌実験装置	佐竹化学機械工業製	1 式	処理実験室
標準圧密試験器(3連型)	丸東 S 43-3UL-1	1 台	地盤沈下研究室
ソイルミキサ	〃 SE-27	1 台	〃
一軸圧縮試験装置	〃 SG-2033	1 式	〃
核磁気共鳴装置	日立製作所 R-600 形	1 式	第二機器分析室
凝縮核モニター	日本科学工業 MODEL 3020	1 台	第二大気実験室
14チャンネルデータレコーダ	ソニー UN 61430	1 台	騒音研究室
イオンクロマトグラフ	ダイオネックス社 MODEL 10	1 台	第三水質実験室

3. 昭和55年度 予算額

(単位：千円)

科目	金額	付記
賃金	4,410	
報償費	405	
旅費	1,838	普通旅費
需用費	63,229	消耗品費 23,512
		燃料費 299
		食料費 486
		印刷製本費 5,334
		光熱水費 27,488
		修繕料 6,110
役務費	3,322	通信運搬費 1,559
		手数料 1,763
委託料	38,615	清掃その他委託料
使用料及び賃借料	7,388	
工事請負費	2,321	雑工事費
備品購入費	50,000	
負担金補助及び交付金	180	会費及び負担金
公課費	38	
計	171,746	

管理運営費	61,811
試験検査費	7,847
主要機器維持管理運営費	18,088
調査研究事業費	34,000
施設整備事業費	50,000
計	171,746

4 学会等研究発表

学会大会名	年月	題名	発表者・共同研究者
第15回日本水質汚濁研究会 年次学術講演会	56. 3	藻類によるトリハロメタン前駆物質の生成	○福島 博, 真柄泰基・相沢貴子 (国立公衆衛生院)
第17回下水道研究発表会	55. 4	ポリビニルアルコール含有排水の処理方法の検討	○遠田和雄・野木一男・下村光一郎
第35回関東水道衛生協議会研究発表会	55. 10	全シアン分析法における蒸留効率	小市佳延
日本陸水学会第45回大会	55. 6	河川底質中における底生動物の垂直分布(2), コアサンプラーおよびショベルカーによる採集	福島 悟 ○金田彰二(日本工学院専門学校)
第15回衛生局公害対策局研究発表会	55. 8	化石ケイ藻より見た鶴見川下流域の環境変化	福島 悟
第31回有機反応機構討論会	55. 10	スピントラップ法により捕捉された遊離基のGC-MSによる確認	○未沢寛典・安部和久・広田 穰 (横浜国大) 石井哲夫

学会大会名	年月	題名	発表者・共同研究所
日本気象学会	55. 5	京浜工業地帯から排出される窒素酸化物の輸送及び変質過程に関する夏期立体調査（その1）	鶴田治雄
	"	"（その2）	"
日本気象学会	55.10	対流圏における光化学反応（I）	鶴田治雄
	"	相模湾上における大気汚染物質の輸送及び変質過程に関する観測（第3次）	鶴田治雄・前田裕行・太田正雄
第15回横浜市衛生局・公害対策局研究発表会	55. 8	横浜市地域環境大気調査について	新井久雄
"	"	化石ケイ藻より見た鶴見川下流域の環境変化	○福島 悟・高井健雄
第21回大気汚染学会	55.11	逆転層形成・消滅時における道路近傍の窒素酸化物の濃度変化（第2報） -水平分布-	○中村貢・鶴田治雄・平野耕一郎・鈴木正雄・新井久雄・太田正雄・渡辺善徳・前田裕行・米山悦夫（横浜市公害研究所）
"	"	逆転層形成・消滅時における道路近傍の窒素酸化物およびオゾン濃度の変化（第3報） -垂直分布-	○鶴田治雄・中村貢・平野耕一郎・佐保満夫・新井久雄・沖津正樹・太田正雄・渡辺善徳・前田裕行・鈴木正雄・米山悦夫（横浜市公害研究所）
"	"	航空機による高速大気測定システムに関する問題点	○五井邦宏（埼玉県公害センター）・鶴田治雄（横浜市公害研究所）・奥田典夫・小川靖・若松伸司（国立公害研究所）
"	"	関東地方の風系と汚染物濃度の関連性について（1）	奥田典夫・小川靖・若松伸司（国立公害研究所）・油本幸夫（富山県公害センター）・五井邦宏（埼玉県公害センター）・菊地立（千葉県公害研究所）・鶴田治雄（横浜市公害研究所） ○島野昌治（日本科学技術総合研究所）
"	"	関東地方の風系と汚染物濃度の関連性について（2）	奥田典夫・小川靖・若松伸司（国立公害研究所）・油本幸夫（富山県公害センター）・五井邦宏（埼玉県公害センター）・菊地立（千葉県公害研究所）・鶴田治雄（横浜市公害研究所） 島野昌治（日本科学技術総合研究所）
"	"	南関東地域上空における光化学汚染気塊の輸送および変質過程	○鶴田治雄・平野耕一郎（横浜市公害研究所）・五井邦宏・昆野信也（埼玉県公害センター） 鈴木英世（川崎市公害研究所） 油本幸夫（富山県公害センター） 栗田秀実（長野県衛生公害研究所） 若松伸司・村野健太郎・小川靖・奥田典夫（国立公害研究所）

学会大会名	年月	題名	発表者・共同研究所
第21回大気汚染学会	55.11	航空機を用いた光化学汚染気塊の観測について — 1979年の観測概要と7月31日の事例解析 —	奥田典夫・小川靖・若松伸司 (国立公害研究所)・鶴田治雄 (横浜市公害研究所)・五井邦宏 (埼玉県公害センター)
"	"	航空機を用いた光化学汚染気塊の観測について — 1979年8月2日の事例解析 —	奥田典夫・小川靖・若松伸司 (国立公害研究所)・鶴田治雄 (横浜市公害研究所)・五井邦宏 (埼玉県公害センター)
"	"	オキシダント計の指示値に及ぼす温度影響について	○町山徹(横浜市公害対策局大気課)・平野耕一郎(横浜市公害研究所)
"	"	風の影響を考慮したNO ₂ プレート法の検討	○高橋潤(横浜市公害対策局大気課)・前田裕行(同公害研究所)
"	"	蒸気拡散を利用した低濃度炭化水素標準ガスの発生方法について	○前田裕行・平野耕一郎(横浜市公害研究所)
"	"	ハイボリュームアンダーセンサンプラを用いた神奈川県臨海地区における浮遊粉じんの粒度分布調査 (第2報)	○石田哲夫・林久緒・平野耕一郎・小山恒人ほか 神奈川県臨海地区大気汚染調査協議会 (神奈川県, 横浜市, 川崎市, 横須賀市)
"	"	大気境界層の構造と汚染物質の輸送および変質過程	○鶴田治雄ほか, 神奈川県臨海地区大気汚染調査協議会(神奈川県・横浜市・川崎市・横須賀市)
"	"	高速液体クロマトグラフィーと薄層クロマトグラフィーによるPAHの分離分析	○太田正雄(横浜市公害研究所)
"	"	上空におけるエアロゾルの観測結果についてXMA-SEMによるエアロゾルの形態分析	○平野耕一郎(横浜市公害研究所)
"	"	固定発生源から排出されるばいじんの粒度分布(第2報) — 加熱炉等からのばいじんの粒度分布 —	○佐俣満夫・渡辺善徳・平野耕一郎・太田正雄(横浜市公害研究所)
"	"	三点比較式臭袋法による悪臭測定事例(1) — コーヒー焙煎施設からの悪臭 —	○沖津正樹(横浜市公害研究所)
"	"	ダスト計の精度に関する研究 — フィールド試験結果 —	○石塚謙一・石田哲夫・永田正信(川崎市公害研究所)・平野耕一郎・渡辺善徳(横浜市公害研究所)
"	"	アンダーセンサンプラー用捕集プレートの材質による粒度分布の差異について	○石田哲夫・林久緒(川崎市公害研究所)・平野耕一郎(横浜市公害研究所)・小山恒人(神奈川県公害センター)

5 雑誌等投稿

報 告 書 名	執 筆 者	発 行 機 関
低周波空気振動実験調査報告書	鹿島教昭，中村俊亮 樋高雄治（都市整備局）	横浜市公害研究所

（要旨）

昭和52年より55年にかけて低周波空気振動の実態調査をした。

- (1) 大型プロアから発生する原因はその回転数であり、小型では翼の旋回失速であった。
- (2) コンプレッサはその原理上全て発生していた。プロアも含め100dB（卓越周波数レベル，以下同じ）を超えるものが多かった。
- (3) ボイラから発生するものは4～63Hz（卓越周波数，以下同じ）に分散しており，80～100dBが大部分であった。それらは家庭用も含めボイラの種類には無関係であり，発生機構は複雑であると考えられた。
- (4) 道路橋梁は支間長が比較的短くとも橋梁の振動が原因で発生することが判った。それらは3.15～12.5 Hz の極めて低い範囲にあり最大100dBに達していた。また振動エネルギーから音響エネルギーへの変換効率は概ね3.15 Hz以下で高く，それ以上で低いと考えられた。
- (5) 新幹線橋梁は有道床，無道床の別なく列車速度が増大する程発生しやすいことが判った。これらは20～63 Hz，86～108 dBであった。また有道床の場合，列車速度の増大に伴ない卓越周波数が低周波側へ移行する傾向があった。

雑 誌 名	巻 ・ 号	執 筆 者	題 名
騒音制御	Vol. 4 No. 2 1980	鹿島教昭	自動車公害に関する意識調査

（要旨）

都市内幹線道路からの公害は多種多様であり住民への影響は深刻な問題である。そこで国道1号沿いの三ツ沢下町，同中町，松本町を国道に平行にA（車道端～12.5m），B（12.5～25m），C（25～50m），D（50～100m）のゾーンに分けアンケート調査を実施し次の事が判った。

- (1) 地域の大きな自動車公害は，騒音，排気ガス汚染，振動及び電波障害である。特に騒音は圧倒的で66%，Aでは92%に達する。
- (2) Aでは自動車騒音は一日中うるさく，「とてもうるさい」が83%である。
- (3) 自動車公害による健康影響を受けていると考える人は44%ある。
- (4) 自動車騒音が睡眠に及ぼす影響は大きく，就寝中に「自覚めることがある」はDでも36%ある。
- (5) 沿道の住民は窓を閉めきって生活している。
- (6) 自動車公害は営業活動に物的経済的損害を与えている。
- (7) 住民は自動車の低公害化が必要でその責任は国にあると考えている。公害解決のため行動する人は少数であり，それも警察へ交通規制を要望するぐらいであるが自治体への期待は強い。

雑 誌 名	巻 ・ 号	執 筆 者	題 名
川崎市公害研究所年報	No. 7 1979	松尾清孝，平山南見子，黒沢芳則，山田 茂（川崎市公害研究所）福島 悟	多摩川の付着藻類発生による水質の調査研究（第3報）

(要旨)

- (1) 昭和53年度では4回目の多摩川の付着藻類植生を調査した。
- (2) 優占種、亜優占種をもとめ、昭和52年度に得られた結果とあわせて検討したところ、多摩川本川では *Nitzschia amphibia* が優占種になることが多かったが、支川では *Nitzschia palea* などが優占種になることが多かった。
- (3) 同一地点の52年度、53年度の各季節の類似性は5月と11月に宿河原(st.5)、平瀬川末端(st.6)、宮内排水路末端(st.8)、丸子橋(st.9)で類似性がみられたが、2月と8月は矢の口(st.3)と宮内排水路末端(st.8)だけであった。
- (4) サプロビ指数を求め各地点の汚濁状況をみると52年度、53年度とも羽村(st.1)では貧汚濁域に近い弱・中汚濁域、日野橋(st.2)では弱・中汚濁域～強・中汚濁域、矢の口(st.3)、から丸子橋(st.9)までの多摩川本川ではほとんど強・中汚濁域、三沢川末端(st.4)、平瀬川末端(st.6)、宮内排水路末端(st.8)の各支川では強・中汚濁域～強汚濁域であった。

雑 誌 名	巻・号	執 筆 者	
川崎市公害研究 所 年 報	No. 7 1979	松尾清孝・平山南見子・黒沢芳則・ 山田茂(川崎市公害研究所)、福 嶋 悟	多摩川及び鶴見川水系の 付着藻類植生と底生動物 相による水質の調査研究

- (1) 54年8・9月に川崎市内河川を重点的に多摩川水系22地点、鶴見川水系12地点の計34点について付着藻類植生、底生動物相を調べた。
- (2) 各地点について付着藻類と底生動物の優占種、亜優占種をまとめた。付着藻類では多摩川上流で *Chamaesiphon polymorphum*、*Homoeothrix janthina* が、中流～下流で *Nitzschia amphibia* が、鶴見川の支川で *Nitzschia palea* が優占種となる地点が多かった。底生動物では多摩川上流でカゲロウ、トビケラ類が、中流～下流ではイトミミズ、ユスリカなどが、多摩川系支川ではイトミミズが、鶴見川系支川ではユスリカが優占種となる傾向が見られた。
- (3) 全体的に汚濁状況をみみると多摩川上流では貧汚濁域～弱中汚濁域でややきれいであるが、日野橋から汚濁が進行し、下流に至るまでかなり汚れている。一方支川をみみると、三沢川上流～中流で、強中汚濁水域がみられる他はいずれの地点もひどく汚濁されていることがわかる。

書 名	執 筆 者	発 行 機 関
淡水植物プランクトン (グリーンブックス66)	福 嶋 悟 他7名	ニュー・サイエンス社

淡水植物プランクトンの観察の手引書としてまとめた。内容は、野外調査法、室内研究法(定量法)、プレバートのつくり方、主要分類群のわけ方(ラン藻類、緑虫類、炎藻類、黄色ペン毛藻類、ケイ藻類、緑藻類)、研究のまとめ、培養方法である。

報 告 書 名	執 筆 者	発 行 機 関
水質管理計画調査報告書 (水生生物相調査法検討)	福島悟, 田中正明(愛知県公害調査センター), 渡辺直(兵庫県公害研究所) 小田泰史(熊本県衛生公害研究所)	(社) 日本の水を きれいにする会

河川の付着藻類, 河川の底生動物, 湖沼のプランクトン, 湖沼の底生動物に関する調査法は種々あるが地方自治体等で用いられている方法を検討し, 環境庁として調査法(案)を統一した。

雑 誌 名	巻・号	執 筆 者	題 名
Chemistry Letters	1981	未沢寛典・安部和久・ 広田稷(横浜国大) 石井哲夫	Mass Spectrometric Determination of Spin Adducts in Spin Trapping Technique

(要旨)

ヒドロキシルラジカルの同定に際し, ラジカルの発生条件により, ESR上の超微細分裂定数の値が異なることから, 超微細分裂定数の値からだけでは, 同定確認が困難であると考えられている。そこで新たな情報を得る手段として, GC-MMSを用い, スピンアダクトの質量スペクトルから捕捉されたラジカル種を同定する手法を明らかにした。スピンアダクトは, GC-MMSの測定条件下では, 不安定であるため, ニトロキソオキシジェン原子をトリメチルシリル化することにより測定が可能となる。

雑 誌 名	巻・号	執 筆 者	題 名
水 質 汚 濁 研 究	Vol No 1 1981	福 島 博	塩素処理による有機塩素化合物の生成と反応過程

(要旨)

自然水中の色度成分のひとつであるフミン酸を塩素処理したところ, クロロホルムの他に新たに未知の物質の生成が認められ, これらはいずれもフミン酸および有効塩素濃度の増加にともない, その生成量も増加することが明らかになった。そこでGC-MMSおよびその他の手法により同定を行なった結果, この未知物質はクロロピクリンと判明した。クロロホルムはpH 10前後で最も生成されやすく酸性では生成が少ないのに対し, クロロピクリンは逆に酸性領域で生成反応Hがおこりやすいことから, 反応様式の異なることが推定され, クロロピクリンはフミン酸中の窒素原子が反応に関与していると思われた。

単 行 本 名	巻・号	執 筆 者	題 名
大気汚染の機構と解析 産業図書	140-202 (1980)	鶴 田 治 雄	大気汚染物質の輸送および変質過程に関する調査研究

(要旨)

京浜工業地帯を中心とする東京湾岸地域から排出される大気汚染物質の輸送および変質過程に関して, 昭和51年度から昭和53年度まで実施した調査研究の結果の概略を紹介した。

- (1) 相模湾上では、陸風時に京浜工業地帯からの汚染物質が輸送され、陸風が弱くなる午前中に湾上に汚染気塊が滞留した。その汚染気塊中では光化学反応により光化学オゾンが生成され、この汚染気塊はその後の海風により沿岸地域へ輸送された。
- (2) 冬期接地逆転層が形成されると、京浜工業地帯から排出された汚染物質は、逆転層内に閉じこめられたまま東京湾上へ輸送され、その後の海風で再び沿岸地域へ輸送された。
- (3) 京浜工業地帯および都市域の汚染物質は、夏期の日中、光化学汚染気塊を形成して東京および埼玉の上空に輸送され、夜間から翌朝にかけて北寄りの風が弱い時は、首都圏上空に滞留する場合のあることがわかった。

雑 誌 名	巻 ・ 号	執 筆 者	題 名
空 気 清 浄	Vol. 18 No. 2 16-31 (1980)	鶴 田 治 雄 米 山 悦 夫	横浜市における大気汚染の現状

(要旨)

横浜市の大気汚染の現状と浮遊粉じんの調査結果の概略を次の様に紹介した。

- (1) 一般環境の常時監視地点における昭和49年度から昭和53年度までの測定結果によれば、二酸化硫黄濃度はほぼ一定あるいはわずかに減少していたが、窒素酸化物濃度は逆にほぼ一定あるいはわずかに増加していた。
- (2) 昭和53年度の測定値の環境基準に対する適合度については、二酸化硫黄濃度はほとんどすべての地点で満足していたが、窒素酸化物および光化学オキシダント濃度は、逆にほとんどすべての地点で満足していなかった。
- (3) ボイラーから排出されるばいじんの粒度分布はほとんど、 $2\mu m$ 以上の粗大粒子と $2\mu m$ 以下の微粒子に大別されることがわかった。また $1\mu m$ 以下の微粒子の重量パーセントが50%以上のものが多く、さらに、 $0.1\mu m$ 以下の微粒子についても測定する必要がある。

6 横浜市公害研究所発行資料目録

1981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	A 4. 16頁 (パンフレット)
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	B 5. 49頁
2	横浜市公害研究所報(創刊号)	1977.11	B 5. 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	B 5. 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	B 5. 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	B 5. 36頁
6	横浜市公害研究所報(第2号)	1978. 8	B 5. 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	B 5. 195頁
8	横浜市公害研究所報(第3号)	1978.12	B 5. 156頁
9	第2回公害セミナー会議録・合成洗剤	1979. 3	B 5. 89頁
10	自動車公害に関する意識調査 — 国道一号線三ツ沢・松本地区, 1978年3月実施 — 単純集計結果(第1報)	1979. 3	B 5. 112頁
11	大気中の炭化水素濃度調査及び各種発生源施設からの排出実態 調査結果	1979. 3	B 5. 66頁
12	第3回公害セミナー論文集・川 よこはまに水辺をもとめて	1979. 8	B 5. 85頁
13	横浜市における自動車公害に関する基礎研究	1979. 9	B 5. 201頁
14	横浜市公害研究所報(第4号)	1980. 3	B 5. 204頁
14	第3回公害セミナー会議録・川, よこはまに水辺をもとめて	1980. 5	B 5. 72頁
15	横浜市地域環境大気調査報告書 (昭和54年度環境庁委託調査)	1980. 3	B 5. 72頁
16	非特定重大障害物質発生源等対策調査 (ベンゼン取扱施設)	1980. 3	B 5. 31頁
17	沿道環境整備対策のための基礎調査報告書 — 三ツ沢地区対象 —	1980.12	B 5. 84頁
18	魚類の健康評価に関する研究 I (昭和53年度)	1981. 2	B 5. 20頁

資料番号	件名	発行年月	体裁等
16 19	魚類の健康評価に関する研究Ⅱ（昭和54年度）	1981. 2	B 5. 51頁
20	横浜市公害研究所報（第5号）	1980.12	B 5. 236頁
21	帯水層々序確定のための地質調査	1981. 3	B 5. 32頁 付図4枚別添
22	第4回公害セミナー資料提言要旨	1981. 3	B 5 18頁
23	第4回公害セミナー資料・調査研究事業のあらまし	1981. 3	B 5 41頁
24	—————		
25	地域交通環境に関する意識調査 —金沢4地区、1980年11月実施—	1981. 3	B 5. 46頁
26	第4回公害セミナー会議録・80年代の環境政策の課題	1981. 3	B 5. 115頁
27	低周波空気振動に関する報告書	1981. 3	B 5. 163頁
28	有機ハロゲン化合物の分解と消長 —有機塩素化合物特にPCBの環境中における動態について—	1981. 3	B 5 98頁
29	第5回公害セミナー公募論文集・よこはまに自然をもとめて	1981. 8	B 5. 150頁

◇ 編 集 後 記 ◇

当研究所の発足以来、毎年刊行してまいりました所報も、ここに「第6号」を発刊することになりました。

内容は前号に引き続き、「業務報告編」「調査研究編」及び「資料編」を柱として構成されておりますが、今回は特別企画として座談会「公害研究所のあゆみと課題」を特集致しました。

こうした企画の実施の是非や、どのような内容で行うべきかについて、所内の幾多の論議を経て、あえてこの「試み」に一步踏み込んでみました。限られた時間の中で、テーマに即した論議が必ずしも十分に展開したとはいえませんが、内容について、皆さんの忌憚ない御意見をいただきたいと思えます。

また、座談会に協力していただきました先生諸氏の方々には、ここに改めて感謝の意を表したいと思えます。

編集、校正等、今回はとりわけ膨大な作業量となり、“難産”ではありましたが、これで時間との長い格闘に一応終止符を打つことになりました。

今後とも、より充実した所報を生み出していくために今回の反省点を生かし、更に努力を続けていきたいと念じております。

所報第6号編集委員会

五十嵐 浩

鹿 島 教 昭

笠 原 美 枝 子

佐 俣 満 夫

杉 本 実

水 尾 寛 己