

環境研資料

No. 114

ISSN 0918-5720

# 横浜市環境科学研究所報

第 19 号

ANNUAL REPORT OF  
YOKOHAMA ENVIRONMENTAL  
RESEARCH INSTITUTE

No.19

1995年3月

横浜市環境科学研究所

YOKOHAMA ENVIRONMENTAL RESEARCH INSTITUTE

## は し が き

環境科学研究所の業務は大気、騒音振動、水質、地盤沈下、社会科学及び事務の6つの部門に分かれて業務を行っています。今回発行する所報第19号は平成5年度のそれぞれの調査研究を中心にまとめたものです。

「業務報告編」は、大気と水質など各部門ごとの調査研究の概要と、行政指導や規制のために工場などに立ち入って採取した検体の分析測定の内容、市内各地に設置されている測定局の各種自動測定器の精度を管理するための校正・検定業務、そして市民とともに公害・環境問題を考えるために開催した第17回環境セミナーの内容を掲載しております。

「調査研究編」は、各部門で取り組んでいる様々な研究テーマのうち、23編を掲載しました。これらの研究テーマは地域性の高いものから地球的規模のものまで多方面に渡っており、基礎的な研究や時代を反映した今日的な研究も含まれております。

今日の公害・環境問題は複雑多様化していますので、研究テーマによっては関連部局や他の研究機関との共同研究などの推進が、ますます必要になってくるものと思っております。

「資料編」は、各学会などで発表した論文や雑誌などに投稿したもの、あるいは、環境科学研究所で発行した資料目録や予算、主要機器の一覧表などを掲載しました。

今後も一層充実したものにしたいと考えていますの、皆様方のご高評とご叱正を賜りたいと存じます。

平成7年3月

横浜市環境科学研究所長

米 山 悦 夫

# 目 次

## I 業務報告編

大 気 部 門	1
騒音・振動部門	2
水 質 部 門	2
地盤沈下部門	3
社会科学部門	3
環境セミナー	3

## II 調査研究編

### 大 気 部 門

・最近の初期降水にみられる pH の経年的な低下傾向 -降水の pH 低下とその原因物質-	5
・0.1mm毎に分画採取した初期降水の性状	11
・都市域における林内雨・樹幹流(2) -樹木汚染と二次生成物質-	19
・都市での植生指標を用いたヒートアイランド現象解析のための NVI モデル(その2) -季節による特性-	27
・都市における地表温度の特性(その1)	31
・非放射線源式 ECD/GC による環境大気中の N <sub>2</sub> O、フロン同時測定	37
・粒子状物質の捕集法に関する比較検討	41

### 騒音・振動部門

・横浜市民の音環境意識	47
・小川から発生する水の流れ音の調査結果について	55

### 水 質 部 門

・揮発性有機塩素化合物による地下水汚染(第6報) -分解反応モデルによるテトラクロロエチレン汚染地下水の評価-	61
・横浜港の化学物質汚染の現況と変遷	67
・ゴミ焼却場飛灰の固化に関する基礎研究	73
・生物による水質モニタリングシステムについての検討	77
・都市河川における汚濁物質の周日変動 -鳥山川-	83
・都市河川における河床汚濁物質の動態調査(第3報) -和泉川-	89

### 地盤沈下部門

・軟弱地盤の沈下に関する調査研究(8) -大岡川低地軟弱地盤における不攪乱連続試料の圧密試験結果とそれに対する解析-	97
・横浜の地下水環境に関する調査研究(4) -相模野帯水層の地下水汚染機構解明調査-	105

### ノ ー ト

### 大 気 部 門

・横浜市における酸性雨調査 -1993年の調査結果-	111
・拡散型長期暴露サンプラーを用いた横浜市内における大気中のフロン及び有機塩素系物質濃度(Ⅲ)	115

### 水 質 部 門

・横浜市内の事業所排水および河川水中の有機塩素系溶剤の濃度	123
・水中に溶解したテトラクロロエチレンのフェルト状活性炭による吸着実験(Ⅱ)	127

・ダイアジノンの密封条件下における分解性について - (1) ダイアジノン水溶液の分解性 - .....	133
・大岡川の水質と大腸菌群について .....	135

### Ⅲ 資 料 編

1. 人員および組織 .....	139
2. 主要機器一覧表 .....	139
3. 予 算 額 .....	141
4. 学会等研究発表 .....	142
5. 雑誌等投稿 .....	145
6. 環境科学研究所発行資料（調査研究等報告書） .....	147
7. 環境科学研究所発行資料目録 .....	148

環境科学研究所では公害・環境行政を科学的に推進するために、大気・騒音・水質・地盤沈下・社会科学の各部門において主に

1. 行政検体の分析・検査業務
2. 自動測定機の性能検査業務
3. 公害・環境問題の調査研究業務
4. 環境セミナー等の市民啓発業務

等を行っています。

## I 大気部門

大気部門では、規制各課が行う工場・事業場に対する立入検査に伴って生じる検体及び市民からの苦情に関する検体について、迅速、正確に対処するため分析・検査業務を実施しています。

また、大気汚染物質の測定結果への信頼性を確保するため、各種自動測定機の性能検査を実施し、さらに、大気汚染の実態・原因解明などの調査・研究を実施しています。

### 1. 検査業務

平成5年度に実施した各項目毎の検体数及び延べ項目数は次のとおりです。

検体項目	検体数	項目数
(1) 重油中の硫黄分	200	200
(2) 重金属類	15	15
(3) 有害物質	30	60
(4) 悪臭	87	129
(5) 炭化水素類	23	72
(6) アスベスト等その他	202	406
合計	557	882

#### (1) 重油中の硫黄分

市内の工場立入検査における使用重油採取検体の分析依頼に対し、燃料中の硫黄分分析を実施しました。

重油中の硫黄分の分析は、JIS-K-2541に基づく蛍光X線法で行いました。

#### (2) 重金属類

一般環境及び道路沿道でローボリウムエアースンプラーを用いて浮遊粉じんを採取し、水銀の測定を行いました。

#### (3) 有害物質

神奈川県公害防止条例に規定される有害物質や未規制有害物質について分析を実施していますが、本年度は、工場から排出されるアルデヒド類や多環芳香族炭化水素類等の調査を行いました。

#### (4) 悪臭

三点比較臭袋法及びガスクロマトグラフ等を用い、牛舎、廃棄物処理場、製造工場、食品工場等から排出される悪臭の臭気指数及び物質濃度を測定しました。

#### (5) 炭化水素類

横浜市炭化水素系物質対策指導要綱に基づく、各種化学工場、

塗装工場から排出される炭化水素類の測定及び悪臭検体中の炭化水素類の測定を行いました。

#### (6) アスベスト等その他

環境中のアスベスト濃度測定や水道原水等に含まれるアスベストの同定等を行いました。

さらに、規定の項目に分類できないもの、たとえば、ばいじん、硫酸イオンの分析、苦情による試料をその他としてまとめました。

### 2. 自動測定機の性能検査業務

平成5年度は窒素酸化物自動測定機やオゾン自動測定機など27台の検査を実施しました。

自動測定機	検査台数
窒素酸化物計	6台
一酸化炭素計	1台
オゾン計	13台
炭化水素計	5台
オキシダント計	2台
合計	27台

### 3. 大気に関する公害・環境問題の調査研究業務

#### (1) 地球規模の大気汚染に関する研究

フロン等によるオゾン層の破壊、炭酸ガス濃度の増加等による地球温暖化、酸性雨による森林の破壊等地球規模での環境問題について、

- ①酸性雨調査
- ②フロンの環境濃度調査
- ③温室効果ガス(メタン、二酸化炭素等)の実態調査
- ④ヒートアイランド現象に関する研究

を実施しました。

#### (2) 大気中の未規制物質に関する研究

発癌性をはじめ人の健康に影響を及ぼす恐れのある物質、ならびに除草剤等の散布による大気中の残存農薬などの、環境濃度の実態把握や分析法の検討を行いました。

#### (3) 粒子状物質に係わる環境モデルに関する研究

浮遊粒子状物質に係る環境濃度は、固定発生源、移動発生源から排出されるばいじんのほか、土壌粒子・海塩粒子・二次生成粒子等多岐にわたる発生源により構成されます。そこで、これらの発生源が環境濃度に与える影響を推定し、環境濃度改善の手法を検討する基礎的研究を実施しました。

#### (4) 測定・分析に関する研究

環境公害行政を科学的に推進するには、環境汚染の状態を適切に把握することが重要であります。

そのため、現在、自動測定機や簡易測定法により環境濃度等の把握に努めておりますが、これらの方法にもいくつかの問題点があり、また、自動測定できないものもあります。このような測定法上の問題点の解決を図りかつ新たな測定法の開発を目指して研究を実施しました。

## II 騒音・振動部門

騒音・振動部門では、騒音・振動に関する実態を調査し、評価方法・対策等の研究を実施しました。

### 1. 環境騒音の音環境の創造に関する基礎的調査

一般家庭の日常生活における騒音の実態とその構成要因を調査し、騒音レベルを低下させ得る要因を探り、また、快適な音環境の創造に関する研究を行いました。

### 2. トンネル騒音振動に関する研究

道路トンネルを対象として、坑口からの放射音(騒音)の影響調査や、トンネル坑口周辺における騒音の減衰効果等を調査しました。

### 3. 都市空間における音環境に関する研究

本市域の地域特性を考慮し、地域ごとに持っている音環境の特色や住民の受け方について、商業地域として特色を持つ地区でアンケートなどにより調査し、研究を行いました。

### 4. 自然環境音に関する研究

都市部の緑地で聞こえる自然音について、自然音が人間に与える心理的効果を把握するため、心理実験手法の検討を行いました。

## III 水質部門

水質部門では、規制各課が行う工場・事業場に対する立入検査に伴って生じる工場排水等の行政検体、市内公共用水域における環境調査に伴う検体、及び市民からの苦情に基づく検体などについて分析を実施しています。

また、水質汚濁の実態、原因説明などのさまざまな調査研究を行っています。

### 1. 検査業務

平成5年度に実施した検体項目の検体数及び項目数は表-3のとおりです。

検体項目	検体数	項目数
(1) 工場立入り調査	1,635	3,918
(2) 環境調査	571	1,495
(3) 除害施設の管理	57	134
(4) 苦情など	108	504
合計	2,371	6,051

#### (1) 工場立入調査

平成5年度には、市内の延べ689事業場を対象に定期立入調査が行われ、これらの工場・事業場の排水などについて、懸濁物質(SS)、生物化学的酸素要求量(BOD)、化学的酸素要求量(COD)、シアン、カドミウムや水銀などの有害金属イオン、フェノールなどの30項目について検体の分析を行いました。

#### (2) 環境調査

平成5年度の環境調査としては、公共用水域測定計画による水質調査のクロスチェック、中小河川水質調査、二河川協議会の調査、地下水汚染調査、土壌汚染要綱に基づく調査などの検体について分析を行いました。

#### (3) 除害施設の管理

法令に基づき除害施設の排水管理のため、処理水等を毎月採取し、COD、重金属イオンなど16項目について分析を行いました。

#### (4) 苦情など

河川における魚の浮上事故の原因調査等に必要の水質分析、魚の検査等を行いました。

### 2. 水質汚濁に関する調査研究業務

#### (1) 東京湾の富栄養化に関する研究

東京湾の富栄養化機構解明のため、人工衛星データによる水質解析手法の検討等を行いました。

#### (2) 水域環境モニタリング手法に関する研究

河川の突発的な水質変化を監視する手法確立のため、生物学的なモニタリング方法の検討等を行いました。

#### (3) 排水の処理技術の研究

廃棄物の固形化・安定化処理技術の検討及び廃油を主原料とした塗料の開発等を行いました。

#### (4) 水域生態系の保全・創造の研究

水辺環境の主体である生態系を保全創造するため、境川・柏尾川水系の水生生物と水質、環境要因等との関連を調査しました。

#### (5) 河川等の水質浄化に関する研究

水生植物を用いた河川・池沼等の水質浄化法についての調査研究を行い、『「キショウブによる水質浄化法」-実験報告書-』を作成しました。

また、降雨が河川中の汚濁物質の挙動に及ぼす影響を検討しました。

#### (6) 水域の未規制化学物質に関する調査研究

農薬、陰イオン界面活性剤などの未規制化学物質による汚染実態調査や汚染機構の解明を行いました。

#### (7) 底質汚染の変遷に関する調査研究

横浜沿岸域底質の堆積年代を調べるとともに、有機スズ化合物、DDT類等の有害物質による環境汚染及び生息生物の年代による変遷等を調査しました。

#### (8) 地下水汚染物質に関する研究

地下水汚染物質の土壌中での消長、分解生成物などの調査及び有機塩素化合物による地下水汚染のモニタリング調査等を行いました。

## IV 地盤沈下部門

地盤沈下部門では、横浜市の地盤構造、帯水層の分布及び地下水の涵養状況を調査し、地盤沈下防止対策のための資料を得るとともに、更に、地盤に関する諸情報を取りまとめた「地盤環境図」を作成するための資料の収集を行いました。

### 1. 地盤環境に関する調査研究

平成5年度は、層別沈下特性調査や地質・土質調査等の地盤環境調査及び、地下水位分布調査等の地下水環境調査を行いました。

## V 社会科学部門

社会科学部門では平成2年度から、エコロジカル・ライフスタイルの研究をおこなっています。エコライフを実現するためには、エコロジカルな都市環境(エコシティ)づくりが必要であります。

その都市環境のエコロジカル化は新しい課題であり、そのための方法論(ネイチャーデザイン)と技術手法(エコアップ・テクノロジー)の研究開発が求められています。

### 1. エコロジカル・ライフスタイルの研究

自然共生型エコライフ・エコシティ実現のための政策について、学識経験者による研究会(「エコライフ・エコシティ研究会」)を組織して学際的な討議を行うとともに、エコシティ形成のための新しい環境デザイン(ネイチャーデザイン)手法についての研究を実施しました。

### 2. エコアップ技術指導

緑政局、下水道局、都市計画局等の環境整備事業において、トンボ、メダカ等を指標としたエコアップ(環境のエコロジカルな改善)の技術指導を行いました(鴨池公園他10件)。

### 3. トンボ環境調査

トンボ環境、トンボ相の現地調査を週1回～月1回本牧市民公園トンボ池他の池について実施しました。

「横浜にとんぼを育てる会」の協力を得て、本牧市民公園トンボ池の自然環境管理(水草補植、外敵駆除)及びプールのヤゴ生息状況調査並びに救出作業を実施しました。

## VI 環境セミナー

### 1. はじめに

当研究所では昭和52年度から「明日の都市環境を考える」を統一テーマに、環境・公害問題を市民とともに考えていく場として、環境セミナー(平成元年度までは公害セミナー)を開催しています。

昭和52年度から昭和60年度までは、一般市民を対象として、講演や研究発表を行っていました。

昭和61年度からは小・中学生、高校生から「調べてみよう、身近な環境—水・みどり、まち—」というテーマで作品を募集し、平成元年度からは更に一般市民の作品も募集して、選定した応募作品の発表を中心に開催しています。

平成5年度は12月11日(土)に横浜市開港記念会館で開催し、参加者は364名でした。

### 2. 作品募集

作品の募集内容は観察記録・調査研究等のレポートやその活動状況、身近な環境とのふれあい体験の感想文などで、小学生以上の横浜市民から募集しました。

その結果、90編の作品が寄せられ、その内訳は小学生10編、中学生71編、高校生1編、一般市民8編でした。

これらの作品を「第17回環境セミナー公募作品集 調べてみよう 身近な環境—水・みどり・まち—」(環境研資料N0108)にまとめ、セミナー参加者に資料として配布しました。

### 3. セミナーの開催

#### (1) 作品発表

渡辺 允氏(元(株)かなしん出版)の司会進行により、応募作品の内21編が発表されました。発表作品、発表者は次のとおりです。

- 『初めての立体折紙作品展』 浅沼 良次
- 『酸性雨のおどろくべき姿』 茅ヶ崎中学校1年 杉山 恭子
- 『久良岐公園のゲンジボタル及び底生動物の生息状況について』 久良岐公園自然友の会
- 『セミの木のかんさつ 三年目』 羽沢小学校4年 小池 有希
- 『つるなしインゲンまめの発芽の実験』 羽沢小学校5年 関根 聡
- 『金沢中学校におけるセミのぬけがら調査』 金沢中学校 生物同好会
- 『ヒメアマツバメの繁殖記録—港南区—』 港南台第一中学校3年 杉本 淳
- 『地球—今、ぼくらができること—』 豊田中学校1年 広瀬 健人
- 『環境問題、あなたはどうか考える?』 豊田中学校3年 奈良 雅子
- 『選択社会科における環境教室の実践—アルミ缶から地球環境をかんがえさせて—』 横浜国大附属横浜中学校教諭 本田 清
- 『酸性雨の降る条件—第2報—』 新田中学校 科学部
- 『大道中ホテル復活プロジェクト』 大道中学校 生徒会
- 『地球環境問題に取り組むブルーアース劇団』 日枝小学校 第6学年
- 『ラブリバー・トリップ大岡川 調査報告—湧水探検—』 (社)カールスカウト日本連盟神奈川県支部 横浜南地区
- 『大道自然広場の生物』 大道ふるりの生き物に親しむ会
- 『帷子小ウォッチングクラブ活動報告』 帷子小学校 ウォッチングクラブ
- 『三保念珠坂公園活用委員会活動報告』 三保念珠坂公園活用委員会

- 18『横浜市金沢区野島海岸における魚類の  
潜水観察』—魚類相の変化から人為的環境  
変化をモニタリングする試み—  
海をつくる会 工藤 孝治
- 19『港北ニュータウンにおける  
タヌキの分布と生態調査』  
自然に学ぶ会代表 関 秀二
- 20『このきれいな川を』  
横浜国大附属横浜中学校1年 駒沢 瑞季
- 21『横浜の海』  
横浜国大附属横浜中学校2年 広瀬 喬平

(2) 講演

岸 由二氏(慶応大学生物学教室教授)により「ナチュラリストのみた横浜の宝石箱」～自然は生き物の大切な住まい～という題で、川辺の生き物について講演が行われました。



# 最近の初期降水にみられる pH の経年的な低下傾向

—— 降水の pH 低下とその原因物質 ——

加藤善徳\*, 矢本てるみ\*

## 要 旨

横浜市磯子で1984～1992年の9年間、自動雨水採取装置により一降水毎、初期降水及び一降水全量を採取し、pH及び成分濃度を分析した。その結果、一降水全量は横ばいだったが、初期1mm降水のpHは1987年以降、明らかに低下傾向を示していることがわかった。

この原因について、初期1mm降水の $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{nssSO}_4^{2-}$ (海塩起源を除いた $\text{SO}_4^{2-}$ )などの酸性成分や $\text{NH}_4^+$ 、 $\text{nssCa}^{2+}$ (海塩起源を除いた $\text{Ca}^{2+}$ )などの中和成分の経年変化を調べたところ、 $\text{NO}_3^-$ だけが唯一明確な上昇傾向を示していることがわかり、初期1mm降水のpH低下の主因はこの $\text{NO}_3^-$ の上昇にあると推測された。

また、市内の常時監視局における大気環境中の $\text{NO}_2$ 濃度を調べた結果、降水採取地点付近の $\text{NO}_2$ 濃度は、1987年以降上昇傾向にあり、初期1mm降水の $\text{NO}_3^-$ 濃度とほぼ対応した変化を示していた。このことから、大気中の $\text{NO}_2$ 濃度の上昇が初期降水の $\text{NO}_3^-$ 濃度を高め、pH低下の原因となっていると推測された。しかし、現在のところ、この経年的なpHの低下も初期降水だけに限られ、降水全体のpH低下までには至っていない。

## 1. はじめに

欧米等では酸性雨によると考えられる湖沼や森林、建造物等の被害が深刻化している<sup>1)~3)</sup>。一方、日本では、1973～1975年の梅雨時に酸性雨が原因ではないかと考えられる目や皮膚の痛みを訴える被害が発生し<sup>4)</sup>、大きな社会問題になったが、その後はこのような被害はほとんどなかった。

しかし、最近になり、我が国でも森林の枯損被害<sup>5)~7)</sup>が報告されるようになり、また、酸性雨の原因の一つである $\text{SO}_x$ は、排出規制の効果によりその濃度が低減したが、 $\text{NO}_x$ は依然改善の兆しがみられず、これらに加えて、急速に工業化を進めている中国、韓国等からの汚染物質の移流なども考えられ、このままいくと、日本でも、酸性雨の影響が顕在化する恐れがでてきた。

そこで、横浜市では、1984年よりその実態の解明に向けて、自動雨水採取装置を用いた酸性雨の本格的な観測を実施している。なお、その採取法として、酸性雨による急性被害、長期的な影響を考慮し、初期降水、一降水全量の二つを採取している。

観測の結果については漸次報告しているが<sup>8)~10)</sup>、最近になり、本市における初期降水のpHがやや低下傾向を示すようになってきたので、ここでは、その原因について、重回帰分析、降水成分の経年的な推移、常時監視局データと降水成分濃度の関係などから検討した。その結果、若干の知見が得られたので報告する。

## 2. 調査内容

### 2-1. 調査地点および調査期間

図-1に示す横浜市環境科学研究所屋上(磯子区滝頭)で1984年5月～1992年12月の約9年間(1986年3～5月の期間は工事のため欠測)調査を実施した。調査地点は東京湾(最も近い海岸線は南東1.3km)に面した住居地域の中にあり、東側0.5kmには国道16号線が走っており、南東2kmには火力発電所や化学工場がある。また、

北東20～30kmには東京、川崎の大都市・工業地帯、南側は三浦半島から相模湾へと続いている。

### 2-2. 採取方法

降水の採取は自動雨水採取装置(図-2、小笠原計器製、R-500型)により行い、初期降水と一降水全量の2種類を降水毎採取した。初期降水は口径354mmのロート(ステンレス製、テフロンコーティング)によりフロート式の採取瓶に降り始めから降水量が1mmになるまで貯水(100ml)され、後はオーバーフローされる方法(以下、これを初期1mm降水という)、一降水全量は口径197mmのロート(ステンレス製、テフロンコーティング)により降り始めから

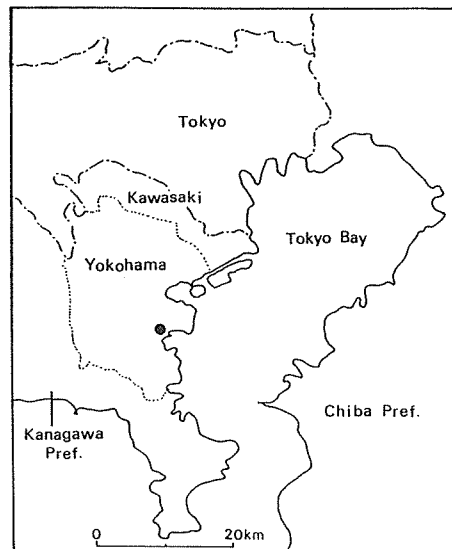


図-1 調査地点  
(●は環境科学研究所)

降り終わりまで一括して10ℓのポリエチレンタンクに貯水される方法で行った。

### 2-3. 分析項目及び分析方法

表-1に示す方法によりpH, EC, 各イオン成分を分析したが、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>についてはインドフェノール法とイオンクロマトグラフ法、K<sup>+</sup>, Ca<sup>2+</sup>, Mg<sup>2+</sup>, Na<sup>+</sup>については原子吸光光度法とイオンクロマトグラフ法を併用した。また、標準試料は市販のもの(和光純薬, 1000ppm標準液)を純水で希釈して用い、確認のため、分析の都度、NIST(National Bureau of Standard Certificate of Analysis)標準でチェックした。

また、測定データの信頼性の確保のため、アニオンとカチオンのイオンバランスならびに導電率の測定値と計算値との比較<sup>11)</sup>をし、バランスのくずれているもの、値の合わないものは再分析する方法をとった。

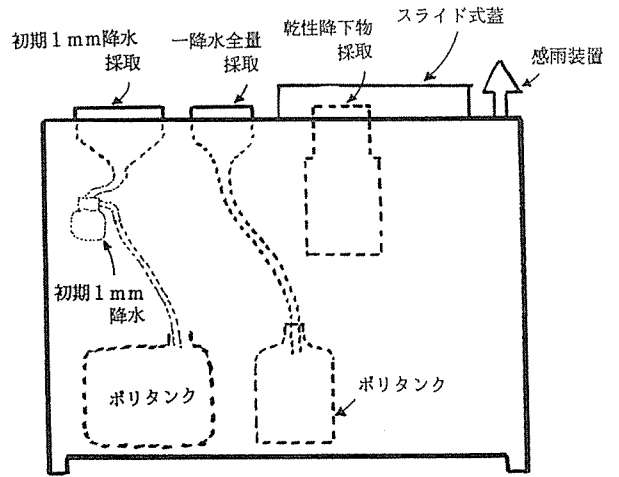


図-2 自動雨水採取装置

## 3. 結果

### 3-1. pH

図-3に9年間における初期1mm降水及び一降水全量の年平均pH, 年最低pHの経年変化を示した。なお、平均値は降水量で重みづけした加重平均値とし、年平均値は暦年でまとめた。また、1984年は測定開始が5月からであり、1986は3~5月が欠測であるので、これらの年は完全な年平均値にはなっていない。一年間完全に測定できた年は、1985年及び1987~1992年の計7年間である。

#### (1) 初期1mm降水

9年間における初期1mm降水の全期間の平均pHは4.27, 最低pHは3.39だった。これを経年的にみると、年平均pHは1984~1986年の間、4.43から4.10とかなり低下し、1987年に4.38といったん高くなったが、それ以降、再び、4.38から4.19と低下している。また、年最低pHも、年平均pHと同様、1987年以降低下傾向を示している。

#### (2) 一降水全量

9年間における一降水全量の全期間の平均pHは4.64, 最低pHは3.57であり、初期1mm降水に比べると、年平均pHは0.4, 年最低pHは0.2ほど高かった。経年的には、年平均pHは、1984~1986年の間、4.77から4.47と低下したが、1987年以降はほぼ横ばいであり、初期1mm降水の傾向とは異なっていた。しかし、年最低pHは初期1mm降水とほぼ同様、1987年以降低下傾向を示している。

このように、一降水全量は平均pHと最低pHとでは異なった傾向を示したが、一般に、低pHは降水量の非常に少ない時に出現する傾向にあり、このような最低pHの挙動は、一降水全量というより、むしろ、初期降水の状況を反映したものと考えられる。したがって、一降水全量の最低pHの挙動からみても、初期降水のpHが1987年以降低下傾向を示していることが窺われる。

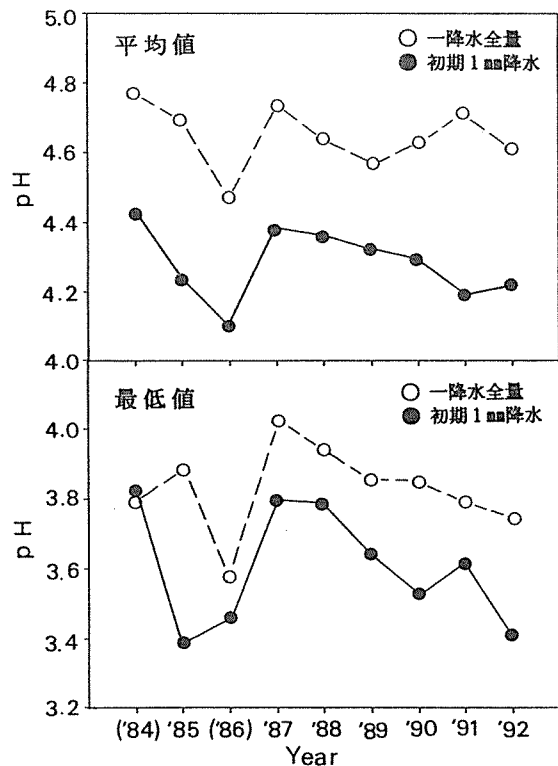


図-3 降水のpHの経年変化

表-1 分析項目及び分析方法

分析項目	分析方法	分析機種
pH	ガラス電極法	TOA HM-60S
導電率(EC)	電気伝導度法	DKK AOC-10
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	インドフェノール法	JAS. CO UVIDEC-610C
K <sup>+</sup> , Na <sup>+</sup> , Ca <sup>2+</sup> , Mg <sup>2+</sup>	原子吸光光度法	HITACHI Z-8000
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> , NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> , Cl <sup>-</sup>	イオンクロマトグラフ法	Dionex 4000i

### 3-2. イオン成分濃度

表-2に9年間における初期1mm降水、一降水全量の降水成分の測定結果を示した。なお、平均値はすべて降水量で重みづけした加重平均とし、後述する非海塩成分の  $nssSO_4^{2-}$ 、 $nssCa^{2+}$ 、 $nssCl^-$  濃度も示した。また、濃度は当量濃度 ( $\mu eq/l$ ) で示した。

#### (1) 初期1mm降水

9年間の平均値でみると、各成分の中で最も濃度が高かったのは  $Cl^-$  で  $147(\mu eq/l)$ 、以下、 $SO_4^{2-}(129) > Na^+(98) > NH_4^+(82) > NO_3^-(72) > Ca^{2+}(71) > Mg^{2+}(34) > K^+(5)$  の順で、 $K^+$  は特に低かった。なお、 $Cl^-$ 、 $Na^+$  は特に濃度順位が高いが、これは測定地点が海岸に近く、海塩粒子の影響がかなり強いためと考えられる。

次に経年的にみると、 $NO_3^-$  は1984~1986年の間(完全な年平均値ではないが)、57から103と上昇、1987年にいったん低下したが、それ以降、65から75と再び上昇している。しかし、その他の成分はばらついており  $NO_3^-$  のような明確な傾向は示さなかった。

なお、1990年は  $Na^+$ 、 $Mg^{2+}$ 、 $Cl^-$  が特に高いが、この年は例年に比べ特に台風の来襲が多かったため<sup>1)</sup>、これがかなり影響したものと考えられる。

#### (2) 一降水全量

一降水全量は各成分とも初期1mm降水に比べ、1/3~1/7倍と低く、初期1mm以降の降水によりかなり希釈されていた。9年間の平均値で各成分を比較すると、最も高かったのは  $Cl^-$  で  $39(\mu eq/l)$ 、以下、 $SO_4^{2-}(38) > NH_4^+(28) > Na^+(25) > NO_3^-(16) > Ca^{2+}(10) > Mg^{2+}(8) > K^+(1)$  の順となり、その濃度順位は初期1mm

降水とほとんど変わらなかった。また、経年変化についてみると、初期1mm降水において明確な上昇傾向を示した  $NO_3^-$  を含め、いずれの成分も明確な傾向は示さなかった。

## 4. 考察

初期1mm降水のpHが1984~1986年の間及び1987年以降、低下傾向を示していることがわかった。そこで、以下はこの原因について検討した。

### 4-1. 海塩、非海塩成分

横浜市の降水は海塩粒子の影響を強く受けているので、各成分とpHとの関係を求める前に、ここでは、まず、海塩の影響について検討した。

海塩の指標としては、 $Mg^{2+}$  との相関が非常に強く ( $r=0.92$ )、その組成比も極めて海塩組成に近い(図-4)  $Na^+$  を使用した。これより各成分の濃縮係数を求め、それぞれの成分の海塩起源を算出した。

その結果、 $Cl^-$  は79%、 $Mg^{2+}$  は72%、 $K^+$  は46%、 $SO_4^{2-}$  は9%、 $Ca^{2+}$  は6%が海塩起源となった。これらの結果を海塩成分(sea salt)と非海塩成分( $nss$ : non sea salt, 海塩を除いた成分)にまとめ、陰イオン、陽イオン別に図-5に示した。これより、全体のイオン成分のうち、37%が海塩成分、残りの63%が非海塩成分となった。また、非海塩成分では、陰イオンは  $nssSO_4^{2-}$  が多く、次いで  $NO_3^-$ 、 $nssCl^-$  の順、陽イオンは、 $H^+$ 、 $NH_4^+$ 、 $nssCa^{2+}$  が多く、 $nssMg^{2+}$ 、 $nssK^+$  は非常に少なかった。

表-2 降水成分濃度測定結果

	降水量 (mm)	試料数 (n)	pH	EC ( $\mu S/cm$ )	$H^+$	$NH_4^+$	$K^+$	$Na^+$	$Ca^{2+}$	$Mg^{2+}$	$SO_4^{2-}$	$NO_3^-$	$Cl^-$	$nssCa^{2+}$	$nssSO_4^{2-}$	$nssCl^-$	
降 水 全 量	(1984年)	853	42	4.77	18	17	29	1	18	7	6	44	13	31	6	42	10
	1985年	1824	67	4.69	17	20	21	1	25	9	8	32	12	37	8	29	8
	(1986年)	1003	49	4.47	25	34	42	3	21	9	5	46	27	42	8	44	18
	1987年	1408	67	4.73	19	19	28	3	18	7	5	38	17	33	6	36	12
	1988年	1694	70	4.64	21	23	29	1	17	7	5	48	18	35	6	46	15
	1989年	2277	78	4.57	25	27	31	1	23	11	8	42	20	38	10	39	11
	1990年	1764	50	4.63	26	24	21	2	54	17	15	38	16	63	14	31	0
	1991年	2196	59	4.71	17	20	27	1	17	10	6	29	12	28	9	27	8
	1992年	1654	62	4.61	21	24	33	1	28	12	8	36	16	45	11	33	11
	9ヶ年(A)	14673	544	4.64	21	23	28	1	25	10	8	38	16	39	9	35	10
初 期 1 mm 降 水	(1984年)	-	42	4.43	54	37	89	4	58	56	23	140	57	121	53	133	52
	1985年	-	66	4.24	67	58	90	5	111	93	41	130	69	165	88	117	35
	(1986年)	-	48	4.10	72	79	116	5	73	60	22	146	103	155	56	138	69
	1987年	-	65	4.38	57	42	64	6	81	65	30	116	65	134	62	106	38
	1988年	-	67	4.36	57	43	76	4	92	54	28	127	67	146	50	116	38
	1989年	-	77	4.32	63	48	66	5	93	65	33	113	66	153	60	102	45
	1990年	-	50	4.29	73	51	62	7	183	98	59	133	71	175	90	111	0
	1991年	-	59	4.19	71	64	96	5	108	74	40	141	75	146	69	128	20
	1992年	-	61	4.22	59	60	86	5	85	72	30	123	75	123	68	113	23
	9ヶ年(B)	-	535	4.27	63	53	82	5	98	71	34	129	72	147	66	117	31
B/A	-	-	-	3.0	2.3	2.9	3.6	3.9	7.0	4.5	3.4	4.4	3.8	7.5	3.3	3.2	

注1)1984年1月~4月、1986年3月~5月は欠測である。

注2)一降水全量の平均値は降水量で重み付けした加重平均値である。

注3)pHの平均は水素イオン濃度に換算したものを平均して求めた。

#### 4-2. 重回帰分析

ここでは、重回帰分析により、初期1mm降水のH<sup>+</sup>(pH)と非海塩成分の関係について検討した。目的変数はH<sup>+</sup>、説明変数はnssSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、nssCl<sup>-</sup>、nssCa<sup>2+</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、nssMg<sup>2+</sup>、nssK<sup>+</sup>とし、変数増加法により相関度の高いものから順次選定してゆき、F値検定(5%)による変数の打ち切りを行った。なお、各成分濃度は当量濃度とし、H<sup>+</sup>濃度に対する寄与の大小をみるため、各説明変数を標準化(各変量を各々平均0、分散1)して行った。重回帰分析により得られた回帰式を以下に示す。

$$[H^+] = 0.88 [NO_3^-] + 0.72 [nssSO_4^{2-}] + 0.15 [nssCl^-] - 0.81 [NH_4^+] - 0.64 [nssCa^{2+}] \quad (R=0.86, n=535)$$

重相関係数Rは0.86であり、nssSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、nssCl<sup>-</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、nssCa<sup>2+</sup>の5つの成分だけでH<sup>+</sup>の変動を74%説明できた。また、nssSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、nssCl<sup>-</sup>がpHを低める成分(酸性成分)、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、nssCa<sup>2+</sup>がpHを高める成分(中和成分)となった。

また、標準偏回帰係数の大きさからみると、pHを低める作用は、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>(0.88) > nssSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(0.72) > nssCl<sup>-</sup>(0.15)の順に大きく、pHを高める作用は、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>の方がnssCa<sup>2+</sup>よりやや大きいことがわかつ

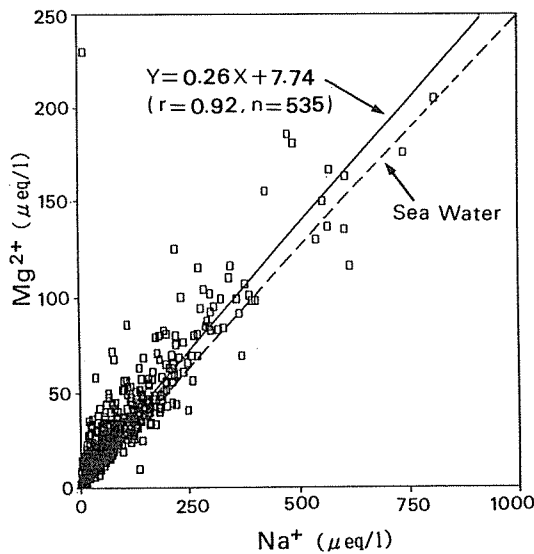


図-4 Na<sup>+</sup>とMg<sup>2+</sup>の関係 (初期1mm降水)

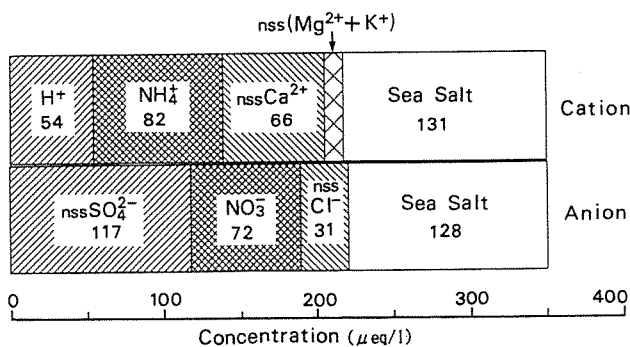


図-5 初期1mm降水の平均濃度 (1984年5月~1992年12月, n=535)

た。

しかし、重回帰分析は降水のpHに寄与する主要な因子を明確にさせるためには有効な方法であるが、これだけですべての因果関係を説明することが不可能であることはいうまでもない。

#### 4-3. pHの経年的な低下傾向と酸性成分、中和成分の関係

pHは酸性成分、中和成分のバランスにより決まる。そこで、ここでは、酸性成分、中和成分の経年的な動向を比較することにより、pHの経年的な低下の原因を検討した。図-6に初期1mm降水のpHおよび酸性成分、中和成分の経年変化を示した。

NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、nssCa<sup>2+</sup>の中和成分は1984~1986年の間及び1987年以降、共に横ばいないしは上昇傾向にあり、少なくとも低下はしていない。したがって、この間のpH低下は中和成分が減少したために生じたわけではない。つまり、この間のpH低下は酸性成分が上昇したために生じたものといえる。

次に、酸性成分についてみると、nssCl<sup>-</sup>は、横ばいないしは低下傾向であるので、この間のpH低下の原因とは考えられない。また、nssCl<sup>-</sup>は、nssSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>に比べ濃度が低く、かつ標準偏回

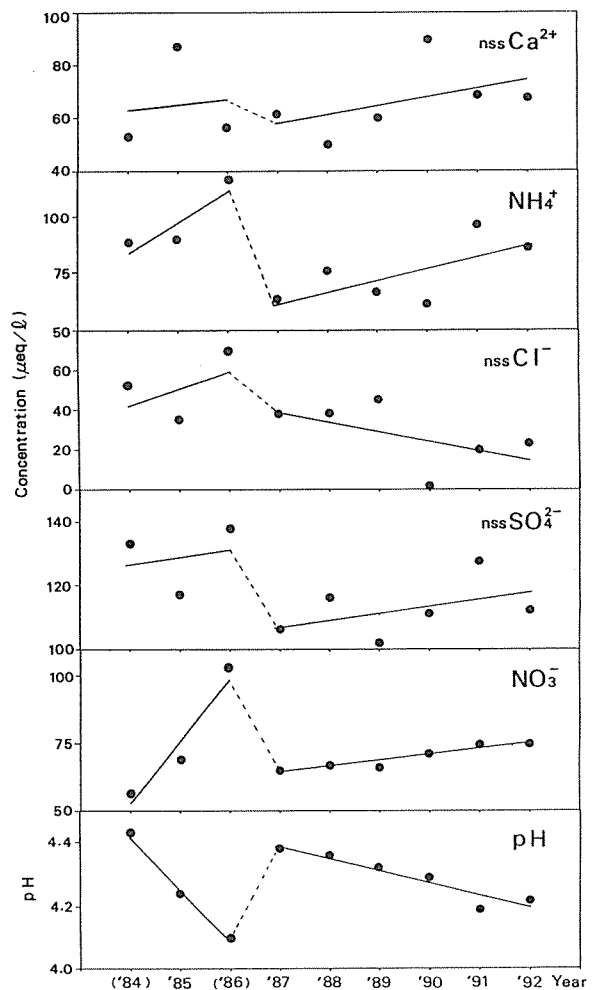


図-6 酸性成分と中和成分の経年変化 (初期1mm降水)

帰係数も非常に小さいので、pH 低下への寄与自体が小さい。したがって、この点からも、 $\text{nssCl}^-$  が原因しているとは考えられない。

これに比べ  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{nssSO}_4^{2-}$  は濃度が高く、標準偏回帰係数も大きいので、pH 低下への寄与が大きい。また、その経年変化は、 $\text{NO}_3^-$  は1984~1986年の間及び1987以降とも明確な上昇傾向を示し、 $\text{nssSO}_4^{2-}$  も1984~1986年の間は横ばいだが、1987年以降やや上昇傾向を示すので、これらが経年的な pH 低下の原因となっている可能性が高い。

これらについては pH との関係さをさらに検討した。図-7に  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{nssSO}_4^{2-}$  と pH との関係を示した。 $\text{NO}_3^-$  と pH は非常に良い負の直線関係 ( $r=0.88$ ) を示し、その傾きは  $-0.007$  だった。一方、 $\text{nssSO}_4^{2-}$  は相関が弱く ( $r=0.37$ )、傾きは  $\text{NO}_3^-$  に比べ  $-0.003$  と小さかった。このことから、 $\text{NO}_3^-$  の方が  $\text{nssSO}_4^{2-}$  より経年的な pH 低下への関与が大きいと考えられる。

以上から、1984~1986年の間及び1987~1992年の間の初期 1 mm 降水の経年的な pH の低下の主因は  $\text{NO}_3^-$  濃度の上昇にあると推測された。

#### 4-4. 降水中の $\text{NO}_3^-$ 濃度上昇の原因

pH 低下の主因は  $\text{NO}_3^-$  濃度の上昇にあると推測されたことから、ここでは、 $\text{NO}_3^-$  濃度が上昇した原因について、その前駆物質である大気中の  $\text{NO}_2$  濃度との関連を検討した。横浜市では、1992年現在、図-8に示す17の常時監視局(A~Qの地点)で環境大気中の  $\text{NO}_2$  濃度を測定している<sup>13)</sup>が、このうち、J局(1992年に開始)を除く16局では、少なくとも1986年以降継続して測定を行っている。これらの1984~1992年の間の経年変化(暦年)を図-9に示す。その経年変化をみると、ほぼ横ばいのもの(図-9a)、やや上昇傾向(図-9b)を示すものの二つのグループがあり、多くは横ばいであるが(16局中10局)、上昇を示すものも6局ほどあった。この上昇傾向を示すもの(A,C,E,F,H,I)についてその市内分布をみると(図-8)、それらはすべて帯状に広がる市内沿岸部(斜線部分)に存在している。なお、酸性雨観測地点はこの地域の中にある。

次に、酸性雨観測地点に特に近い横浜商業高校局(Y-kou, 酸性雨観測地点から北西1.2Km, E)、磯子庁舎局(Isogo, 同南2.3Km, H)の  $\text{NO}_2$  濃度と降水中の  $\text{NO}_3^-$  濃度の挙動を比較した。図-10にこれらの局の  $\text{NO}_2$  濃度と降水中の  $\text{NO}_3^-$  濃度の経年変化を示した。なお、前述のように1984, 1986年は降水成分に欠測値がある

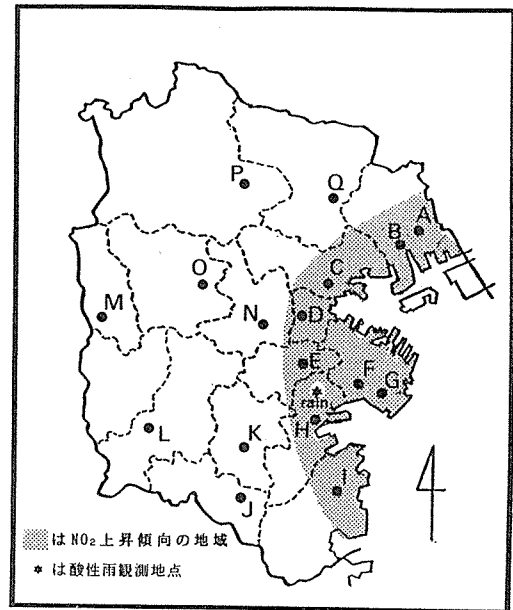


図-8 横浜市内における一般環境大気常時監視測定局

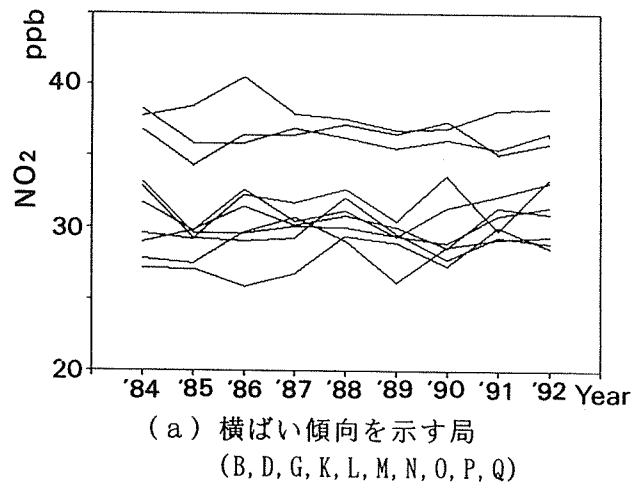
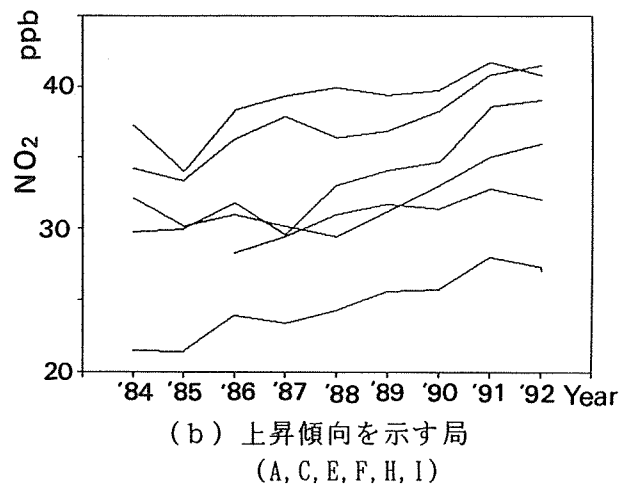


図-9 環境大気中の  $\text{NO}_2$  濃度の経年変化(暦年)

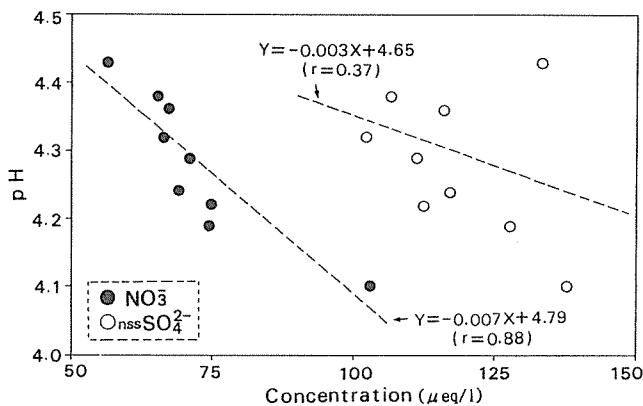


図-7  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{nssSO}_4^{2-}$  の年平均濃度と年平均 pH の関係(初期 1 mm 降水)

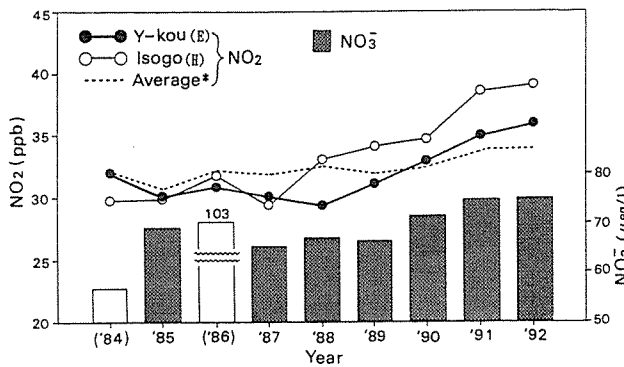


図-10 大気中のNO<sub>2</sub>濃度と初期1mm降水中のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度の経年変化(\*は16局の平均)

(図中、白めきとした)ので、ここでの検討は1987年以降についてのみ行った。その結果、図-10に示すように大気中のNO<sub>2</sub>濃度と降水中のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度とはよく類似した変化を示していた。

降水の酸性化は、その原因物質が雲などに取り込まれ、酸化されながら移流していったり、また、その反応にはO<sub>3</sub>、H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>などの酸化性物質も関与しており、非常に複雑で、必ずしも、降水採取地点付近の酸性雨の原因物質濃度と対応するとは限らない。しかし、本調査の場合、NO<sub>2</sub>の上昇地域がかなり広い带状地域に渡っていること、梅雨時期は北東気流、冬期は北風が卓越し、降水採取地点はちょうどその風下になること等から、このNO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度の上昇は大気中のNO<sub>2</sub>濃度の影響を強く受けていた可能性が強い。すなわち、ここ数年間、大気中のNO<sub>2</sub>濃度が上昇したことによりNO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度が高まり、それが主因となって経年的なpH低下を引き起こしたと考えられる。

しかし、現在のところは、それは初期降水だけに限られ、降水全体(一降水全量)で見ると、その後の降水により希釈されていくため、明確な変化にはなっていない。しかし、今後、NO<sub>2</sub>の状況がさらに悪化していくような場合、初期降水のpHがさらに低下していくだけでなく、降水全体のpH低下に及んでいくことも十分考えられ、今後とも注意深く見守っていく必要がある。

## 5. まとめ

横浜市磯子で1984~1992年の9年間、自動雨水採取装置により一降水毎、初期降水及び一降水全量を採取し、その成分濃度を分析した結果、以下のことがわかった。

(1) 初期1mm降水の平均pHは4.27で一降水全量の平均pH4.64より約0.4ほど低かった。また、その経年変化は初期1mm降水は1984~1986年の間及び1987年以降低下傾向を示したが、一降水全量はほぼ横ばいだった。

(2) 初期1mm降水の平均成分濃度は一降水全量よりいずれも高く、また、その経年変化をみると、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>のみが顕著な上昇傾向を示した。

(3) 重回帰分析により、H<sup>+</sup>(pH)と降水成分の関係について検討した結果、nssSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、nssCl<sup>-</sup>がpHを低め、nssCa<sup>2+</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>がpHを高める作用があること、また、pHを低める作用は、その偏回帰係数の大きさからNO<sub>3</sub><sup>-</sup>>nssSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>>nssCl<sup>-</sup>の順に大きいことがわかった。

(4) 初期1mm降水のpH低下の原因について、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、nssSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(海塩起源を除いたSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>)などの酸性成分やNH<sub>4</sub><sup>+</sup>、nssCa<sup>2+</sup>(海塩起源を除いたCa<sup>2+</sup>)などの中和成分の経年変化を調べたところ、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>だけが唯一明確な上昇傾向を示していることがわかり、初期1mm降水のpH低下の主因はこのNO<sub>3</sub><sup>-</sup>の上昇にあると推測された。

(5) 市内の常時監視局における大気環境中のNO<sub>2</sub>濃度を調べた結果、降水採取付近のNO<sub>2</sub>濃度は、1987年以降上昇傾向にあり、初期1mm降水のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度とほぼ対応した変化を示していた。このことから、これが初期降水のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度を高め、pH低下の原因となっていると推測された。

(6) しかし、現在のところ、この経年的なpHの低下傾向も初期降水だけであり、降水全体の低下までには至っていない。

## 6. 文 献

- 1) 鶴田治雄：大気汚染物質の長距離輸送、変質および除去過程、天気、28(12)、3-22(1981)。
- 2) 藤田八輝：酸性雨対策について、かんきょう、37-41(1983)。
- 3) (株)golferの緑化促進協力会：酸性雨-生態系に与える影響-(1989)。
- 4) 一都三県協議会：湿性大気汚染調査(1975)。
- 5) 関口恭一他：関東地方における酸性降下物とスギ枯れについて、第26回大気汚染学会講演要旨集、349(1985)。
- 6) 杉本龍志、相原啓次、古川昭雄：森林衰退の現状-丹沢大山モミ林の場合-、第30回大気汚染講演要旨集、364(1989)。
- 7) 吉武孝、後藤義明、岡野通明：北関東山岳林における樹木枯損について、103回日林論、249-251(1992)。
- 8) 渡辺善徳、草野一：横浜市における酸性降水、横浜市公害研究所報、第11号、5-17(1988)。
- 9) 横浜市環境科学研究所：酸性雨に関する調査研究報告書(1993)。
- 10) 矢本てるみ、加藤善徳：横浜市における酸性雨調査-1992年の調査結果-、横浜市環境科学研究所報、第18号、133-135(1994)。
- 11) 環境庁大気保全局：酸性雨等調査マニュアル(平成2年3月)。
- 12) 横浜地方気象台：神奈川気象月報、平成2年(1990)。
- 13) 横浜市環境保全局：横浜市大気汚染調査報告書、第24-33報(1983-1992)。

## 0.1mm 毎に分画採取した初期降水の性状

矢本てるみ\*, 加藤善徳\*

### 要 旨

降水開始直後のごく初期の降水の化学的性状を把握するため、1993年11月～1994年10月の一年間、横浜市磯子区において、降り始め直後の降水を降水量0.1mm 毎に1.0mm まで10段階に分画採取し、pH及び主要イオンの分析を行った。

その結果、降水初期の段階にpHが4未満となる降水は69降水中16降水(23%)と、かなりの頻度で出現しており、また、降水のごく初期(0.1mm 目)には $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ の濃度が一降水全量に比べいずれも7倍以上と非常に汚染の強い状況となっていることがわかった。

一方、降水量1mm 未満で降り止む微量降水は年間かなりの頻度で出現しており、また、降水量が少なくpHの低い降水も多く観測されている。これらは、降り止んだ後、水分の蒸発等により濃縮され、pHは更に低くなり、また、成分濃度は更に高くなることから、植物や器物に対し直接的な影響を与えているものと推測された。

### 1. はじめに

日本における酸性雨被害は、昭和48年～50年の梅雨期に目や皮膚への刺激等の人体被害が発生したことによって表面化した<sup>1)</sup>。この際、降り始めの降水が特にpHが低く問題視されたため、環境庁をはじめ、各地の地方自治体等で盛んに初期降水の採取・分析が行われるようになった<sup>2)~7)</sup>。

しかし、その後はこのような人体被害はほとんど報告されず、替わって、欧米で見られるような酸性降下物による湖沼や森林生態系への長期的な影響が我が国でも懸念されるようになった<sup>8)~10)</sup>。このため、現在では、初期降水の性状把握よりも、むしろ、降水による湿性降下量、あるいは、乾性降下物も含めた酸性降下物の総沈着量を把握することが重要と考えられるようになり、一降水全量の採取や、ろか式採取法による酸性降下物の採取が主流となっている<sup>11)</sup>。このような状況においては、降水量の少ない降水は、たとえ成分濃度が高くても、年間降下量に占める割合はそれほど大きくないため、一般には、あまり重要視されない状況となっている。

しかし、実際には、降水量1mm にも満たないで降り止んでしまう微量降水は年間かなりの頻度で出現している。表-1に横浜地方気象台<sup>12)</sup>における日降水量の出現頻度を示したが、これに

よると、1993年11月～1994年10月の一年間に降雨のあった日数は196日で、このうち降水量1mm 未満のものは87日にも及んだ。

雨水中の成分濃度は、一般に、降水初期に高く、降り進むにつれて低くなっていくことがわかっている<sup>13)</sup>、このような微量で降り止んでしまう降水は、後続降水によって洗い流されることがないため、植物や器物の表面に付着した場合、これらに対し直接的な影響を与えている可能性がある。

これまで、初期降水についての調査例は数多くみられるが<sup>2)~7) 14) 15)</sup>、その多くは1mm 毎に分画採取したものであり、降水量1mm に達する前までのごく初期の降水の性状は、必ずしも明らかにされていない状況にある。

そこで、このような微量降水も含め、降り始め直後の降水を細かく0.1mm 毎に分画採取し、降水のごく初期におけるpH及び各成分の濃度変化について、その実態を把握する調査を行ったので報告する。

### 2. 調査内容

#### (1) 調査期間

1993年11月～1994年10月の一年間実施した。

#### (2) 採取地点

横浜市環境科学研究所屋上(横浜市磯子区滝頭)で採取した。

#### (3) 調査方法

初期降水の採取は、自動雨水採取装置(小笠原計器製作所US-400型、図-1)により、降り始めから降水量1mm に達するまで0.1mm 毎に10段階に分画して採取した。なお、採取単位は原則として一降水毎とし、降水量が0.1mm 未満の降水は調査対象から除外した。

降水の採取部は口径354mm のロート(ステンレス製、テフロンコーティング)となっており、これにより試料は、階段状に並べたフロート付きのガラス容器(降水量0.1mm あたり10ml 貯水)に順次貯水される。

表-1 気象台における日降水量の出現頻度  
(1993年11月～1994年10月)

日 降 水 量 (mm)	出現日数
無 降 水	169
0.0以上 0.5未満	76
0.5以上 1.0未満	11
1.0以上 5.0未満	44
5.0以上 10.0未満	29
10.0以上	36

Chemical characteristics of the initial rain fall.

\*Terumi Yamoto, Yoshinori Katou, 横浜市環境科学研究所大気部門

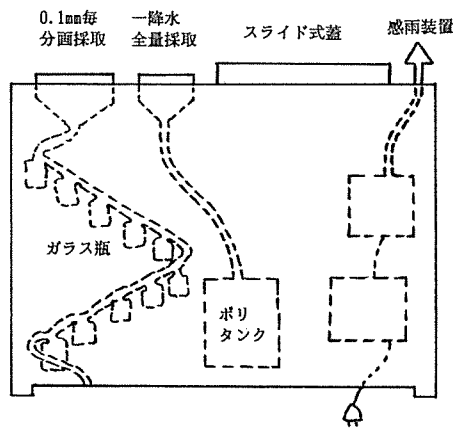


図-1 自動雨水採取装置

表-2 分析項目および分析方法

分析項目	分析方法
pH	ガラス電極法
導電率 (EC)	交流二極法
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> , K <sup>+</sup> , Na <sup>+</sup>	イオンクロマトグラフ法
Ca <sup>2+</sup> , Mg <sup>2+</sup>	イオンクロマトグラフ法
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> , NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> , Cl <sup>-</sup>	イオンクロマトグラフ法

また、これと同タイプの自動雨水採取装置により、一降水全量（降り始めから降り終わりまで一括して採取したもの）の採取も同時に行った。

(4) 分析項目及び分析方法

分析項目及び分析方法は表-2の通りである。

3. 結果

ここでは、まず、降り始めから降水量1mmに達するまでのpH及び成分濃度の挙動を明かにし、次に、個々の降水におけるpHの最低値、成分濃度の最高値の出現状況、季節変化等について述べる。

3-1. 採取状況

表-3に調査期間中の採取試料数、pH、EC及び成分濃度の最高値、最低値、平均値及び0.1mm目~1.0mm目の各分画における平均値を示した。なお、pHの平均値は水素イオン濃度に換算したものを平均して求めた(以下同様)。

調査期間中に69回の降水を採取した。このうち56回は0.1mm~1.0mmまで10試料採取することができたが、13回の降水は、降水量1mmに達する前に降り止むなど10試料すべて採取することができず、調査期間中の採取試料数は合計632となった(表-3)。

3-2. pH

3-2-1. pHの変化パターン

初期降水のpHの変化を0.1mm毎に調べた結果、その変化パターンは、図-2に示すように、概ね3つのタイプに分類することができた。表-4に各タイプの出現回数、平均pH、EC、成分濃度を示した。なお、ここでは、0.1mm~1.0mmまで10試料すべて採取することができた56回の降水を分類の対象とした。以下、各々の特徴を述べる。

I型：このタイプは、降り始め直後の0.1mm目のpHが最も高く、0.2~0.5mm目にかけて低くなり、その後はほぼ一定ないしは漸増するもので、出現回数は34と四季を問わず最も頻繁に出現した。0.1mm目の平均pHは5.4と高かったが、この時(0.1mm目)のEC(μS/cm)は119と高いことから、0.1mm目のpHが高くなった原因は、汚染質が少ないためではなく、中和成分の影響が大きいとわかる。このタイプの平均pHは4.63、平均ECは70で、汚染強度は次に述べるII型とIII型の中間であった。

II型：このタイプは、0.1mm目から1.0mm目までpHが4以下と低く、ほぼ一定で推移するもので、出現回数は13回とI型に次いで多く観測された。また、季節別には春:2回、夏:7回、秋:2回、

表-3 各分画におけるpH及び成分濃度の平均値

	試料数 n	EC μS/cm	pH	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	Na <sup>+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Cl <sup>-</sup>
				μg/ml							
0.1mm目	69	117	4.46	3.59	0.58	6.15	5.80	1.29	12.9	12.8	11.9
0.2mm目	69	96	4.29	3.12	0.45	4.52	3.81	0.90	10.3	10.3	8.73
0.3mm目	68	83	4.27	2.71	0.32	3.53	2.64	0.66	8.23	8.40	6.51
0.4mm目	67	77	4.23	2.47	0.35	2.89	2.23	0.53	7.26	7.46	5.39
0.5mm目	64	71	4.21	2.23	0.26	2.77	1.88	0.51	6.85	6.99	5.25
0.6mm目	62	66	4.27	2.08	0.25	2.79	1.66	0.50	6.00	6.17	5.08
0.7mm目	61	65	4.26	2.07	0.24	2.79	1.43	0.48	5.65	5.94	5.12
0.8mm目	59	62	4.26	2.05	0.31	2.48	1.43	0.45	5.61	5.81	4.60
0.9mm目	57	60	4.28	2.00	0.23	2.05	1.38	0.43	5.67	5.57	4.13
1.0mm目	56	59	4.29	1.81	0.24	2.17	1.27	0.42	5.14	5.32	4.28
全試料平均	632	77	4.28	2.45	0.33	3.28	2.43	0.63	7.50	7.62	6.22
最高	-	490	7.50	44.6	4.64	43.4	20.9	5.00	109	62.2	59.3
最低	-	5	3.30	0.15	<0.01	0.09	<0.01	<0.01	0.27	0.27	0.28

注) pHの平均値は水素イオン濃度に換算したものを平均して求めた。



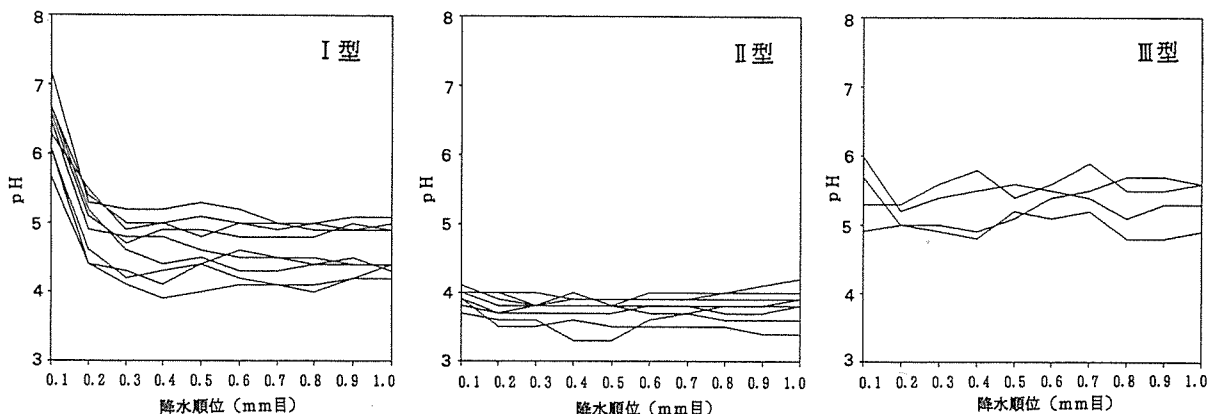


図-2 pHの変化パターン

表-4 タイプ別の平均 pH, EC, 成分濃度

タイプ	出現回数	EC μS/cm	pH	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> μg/ml	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> μg/ml	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> μg/ml	Ca <sup>2+</sup> μg/ml
I	34	70	4.63	7.81	6.24	2.89	2.78
II	13	130	3.80	9.91	15.49	2.77	2.27
III	4	20	5.21	1.41	1.82	0.51	0.87

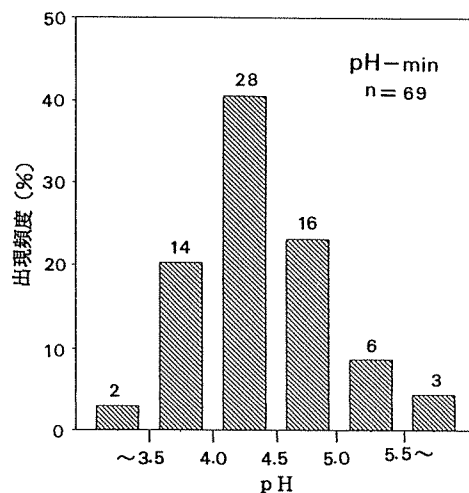


図-3 pH-minの頻度分布

冬: 2回となり, 夏に多く出現する傾向だった。平均 pH は3.80と低く, 平均 EC は130と高く, 非常に汚染の強い降水であった。また, 調査期間中の最低 pH3.3を観測したのもこのタイプであった。

III型: このタイプは, 0.1mm目から1.0mm目まで pH が5~6の間で推移するもので, 出現頻度は4回(冬: 2回, 春: 1回, 秋: 1回)と少なかった。このタイプの平均 pH は5.21, 平均 EC は20で, ごく初期の降水でもこのようになりかなり清浄なものが存在した。

その他, 0.1mm目から1.0mm目まで pH が4~5の間で変動するもの(3降水)や, 0.1mm目が最も低く徐々に高くなっていくもの(2降水)も存在した。

以上, これらを平均すると, その変化パターンは, 表-3に示すように, 0.1mm目が4.46と最も高く, 0.5mm目にかけて徐々に下がり, その後は4.26~4.29の間ではほぼ一定ないしは漸増するパターンとなり, 最も出現頻度の高かったI型に依存したパターンとなった。

### 3-2-2. 低 pH 降水の出現状況

ここでは, 各々の降水について10段階の分画のうち最も pH の低かったもの(以下 pH-min と呼ぶ)を選び出し, 低 pH 降水の出現状況について検討した。図-3に, 採取した全69降水について pH-min の頻度分布を示した。

最も出現頻度の高かった階級は pH4.0以上4.5未満の28降水(全降水の41%)で, 次いで pH4.5以上5.0未満の16降水(23%)だった。

また, pH-min が4.0未満と特に低い降水は16存在し, 全降水の23%が初期の段階で pH 4 を切る状況となっていた。なお, この16降水のうちほとんど(13降水)が, 先の分類でII型に属したものであり, 調査期間中に観測された最低 pH は3.3(6月25日の0.4mm目及び0.5mm目)であった。

### 3-3. 成分濃度

#### 3-3-1. 成分濃度の変化パターン

前項で, pH の変化パターンを3つのタイプに分類したが, ここでは, この分類に従って, 各々のタイプ時における成分濃度の変化パターンについて検討した。図-4に SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>, Ca<sup>2+</sup> の変化パターン(タイプ毎の平均値)を示した。以下, 各タイプの特徴を述べる。

I型(図中■): このタイプの各成分の濃度は, いずれも0.1mm目が最も高く, 降り進むにつれ低下するパターンとなっていた。しかし, 減衰率は成分によりやや異なっており, 0.1mm目/1.0mm目の濃度比で比較すると, Ca<sup>2+</sup>:4.9, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>:3.3, SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>:2.7, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>:2.2となり, 特に Ca<sup>2+</sup>の減衰が著しかった。なお, このタイプの初期の pH は高い値となっていたが, この時の SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度は低くなっていないので, この Ca<sup>2+</sup>の影響により pH が高くなったものと考えられる。

このタイプの平均濃度(表-4)は SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>:7.81, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>:6.24, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>:2.89, Ca<sup>2+</sup>:2.78となり, 後述するII型, III型に比べ Ca<sup>2+</sup>が高い特徴があった。

II型(図中●): このタイプの成分濃度も, I型と同様に降り進むにつれて減衰するパターンだった。しかし, その減衰率はI型に比べいずれも小さく(0.1mm目/1.0mm目の濃度比は Ca<sup>2+</sup>:3.0, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>:1.7, SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>:1.7, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>:1.5), 比較的高濃度のまま推移する傾向となっていた。

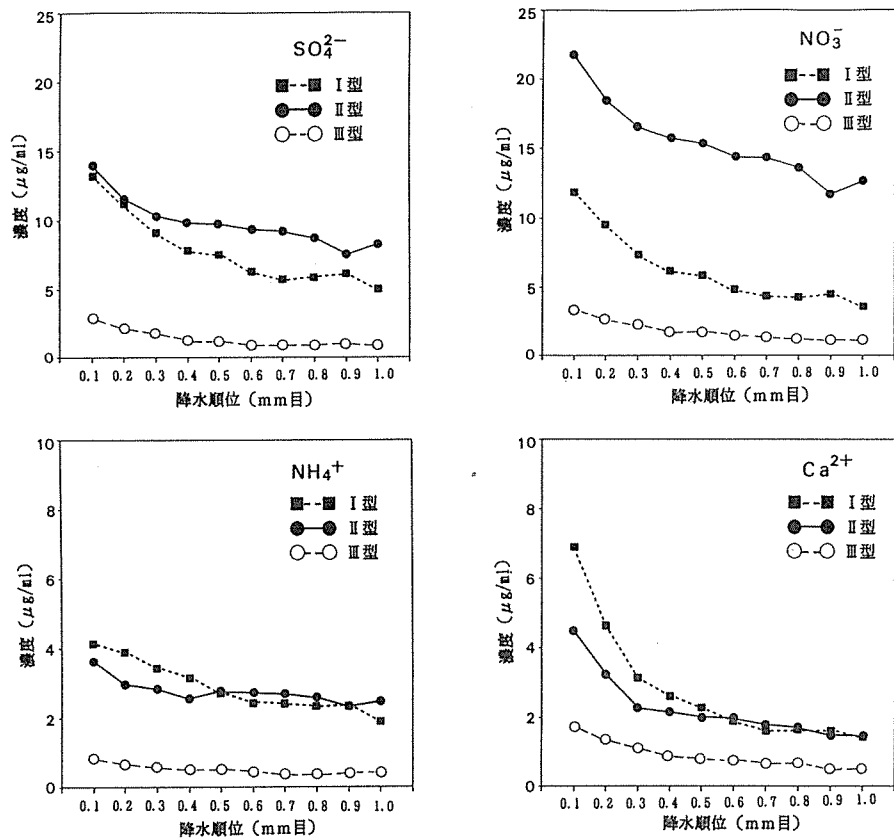


図-4 成分濃度の変化パターン (タイプ毎の平均値)

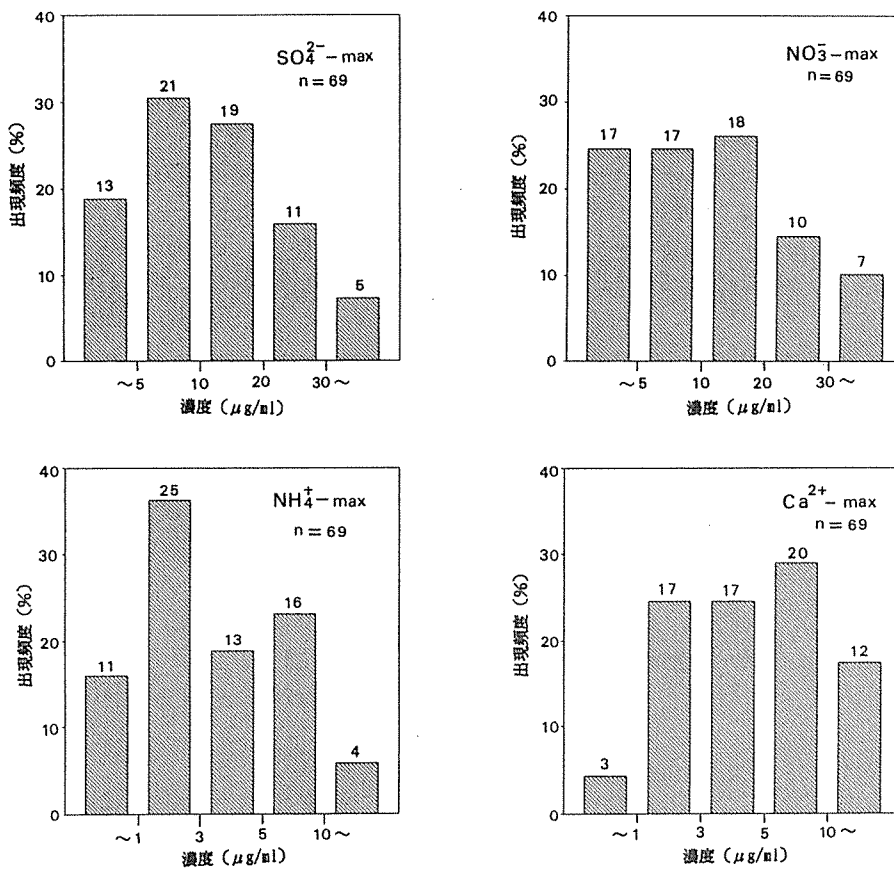


図-5  $\text{SO}_4^{2-}$ -max,  $\text{NO}_3^-$ -max,  $\text{NH}_4^+$ -max,  $\text{Ca}^{2+}$ -max の頻度分布

このタイプの平均濃度は  $\text{SO}_4^{2-}$ :9.91,  $\text{NO}_3^-$ :15.49,  $\text{NH}_4^+$ :2.77,  $\text{Ca}^{2+}$ :2.27 となり、特に  $\text{NO}_3^-$  が高い特徴があり、I型と比べると2.5倍高い値であった。

Ⅲ型(図中○):このタイプもI型、II型と同様、降り進むと次第に減衰していくパターンだったが、その濃度はI型、II型に比べるといずれも非常に低かった。このように、出現頻度は少ないものの、降り始めの段階からかなり清浄な降水も存在した。このタイプの平均濃度は  $\text{SO}_4^{2-}$ :1.41,  $\text{NO}_3^-$ :1.82,  $\text{NH}_4^+$ :0.51,  $\text{Ca}^{2+}$ :0.87 であった。

以上、これらを平均すると、その変化パターンは表-3に示すようになり、いずれの成分とも、降り進むにつれて低下するパターンとなっていた。

### 3-3-2. 高濃度降水の出現状況

ここでは、各々の降水について10段階の分画のうち  $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{NH}_4^+$ ,  $\text{Ca}^{2+}$  の濃度の最も高かったもの(以下  $\text{SO}_4^{2-}$ -max,  $\text{NO}_3^-$ -max,  $\text{NH}_4^+$ -max,  $\text{Ca}^{2+}$ -max と呼ぶ)を各々選び出し、高濃度降水の出現状況について検討した。図-5に、採取した全69降水について  $\text{SO}_4^{2-}$ -max,  $\text{NO}_3^-$ -max,  $\text{NH}_4^+$ -max,  $\text{Ca}^{2+}$ -max の頻度分布を示した。

#### (1) $\text{SO}_4^{2-}$

$\text{SO}_4^{2-}$ -max の濃度( $\mu\text{g}/\text{ml}$ )の最も出現頻度の高かった階級は5以上10未満の階級で、21降水(30%)となっており、次いで10以上20未満の19降水(28%)だった。また、20以上の高濃度のもは16降水(23%)存在し、このうち調査期間中に観測された最高濃度は109( $\mu\text{g}/\text{ml}$ )であった。

#### (2) $\text{NO}_3^-$

$\text{NO}_3^-$ -max の最も出現頻度の高かった階級は、 $\text{SO}_4^{2-}$ -max よりも一階級高い10以上20未満の階級で、18降水(26%)となっており、次いで5以上10未満及び5未満の17降水(25%)だった。また、20以上の高濃度のもは、17降水(25%)存在し、最高値は62.2( $\mu\text{g}/\text{ml}$ )であった。なお、この17降水のうち半数以上(10降水)がII型に属したものであった。

#### (3) $\text{NH}_4^+$

$\text{NH}_4^+$ -max の頻度分布は、1以上3未満の階級が最も頻度が高く25降水(36%)となっており、次いで5以上10未満の16降水(23%)だった。また、5以上の比較的濃度の高いものも20降水(29%)存在し、最高値は44.6( $\mu\text{g}/\text{ml}$ )であった。

#### (4) $\text{Ca}^{2+}$

$\text{Ca}^{2+}$ -max の頻度分布は、 $\text{NH}_4^+$ -max よりも2階級高い5以上10未満の階級が20降水(29%)と最も多く、次いで1以上3未満及び3以上5未満の17降水(25%)だった。また、10以上の高濃度のもは12降水(17%)存在し、最高値は20.9( $\mu\text{g}/\text{ml}$ )であった。なお、この12降水のうち約7割(8降水)がI型に属したものであった。

### 3-4. pH及び成分濃度の季節変化

ここでは、pH4.0未満を低pH降水とし、また、 $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ が20 $\mu\text{g}/\text{ml}$ 以上、 $\text{NH}_4^+$ が5 $\mu\text{g}/\text{ml}$ 以上、 $\text{Ca}^{2+}$ が10 $\mu\text{g}/\text{ml}$ 以上のものを高濃度降水として、これらがどの季節に多く出現するのかを検討した。図-6に、pH-min,  $\text{SO}_4^{2-}$ -max,  $\text{NO}_3^-$ -max,  $\text{NH}_4^+$ -max,  $\text{Ca}^{2+}$ -max の季節変化を示した。なお、季節の区分は春:3~5月、夏:6~8月、秋:9~11月、冬:12~1月とした。

#### (1) pH

採取した69降水のうち、pH-minが4.0未満となった降水は全部で16降水(23%)だった。これらの出現状況をみると、11月~1月

には全く観測されなかったが、2月頃から出現し始め、以降夏にかけて出現回数が多くなっていき、6月25日には全試料の最低値3.3を観測した。これらの季節別の出現回数は春:3, 夏:8, 秋:3, 冬:2となり、特に夏期に多く出現していた。また、夏期に限ってみるとpH-minが4.0未満となった降水は18降水中8降水(44%)となり、夏期に降る降水の約半分が初期の段階でpH4を切る状況となっていた。

#### (2) $\text{SO}_4^{2-}$

$\text{SO}_4^{2-}$ -max が20 $\mu\text{g}/\text{ml}$ 以上の高い値となった降水は69降水中16(23%)存在したが、この季節別の内訳は春:7, 夏:5, 秋:1, 冬:3となり、春から夏に高濃度のもが多く出現する傾向となっていた。また、全試料の最高値(109 $\mu\text{g}/\text{ml}$ )は春(5月4日)に観測されたものだった。春は19降水中7降水(37%)、夏は18降水中6降水(33%)に20 $\mu\text{g}/\text{ml}$ 以上のものが出現していた。

#### (3) $\text{NO}_3^-$

$\text{NO}_3^-$ -max が20 $\mu\text{g}/\text{ml}$ 以上となった降水は69降水中17降水(25%)であったが、この季節別の内訳は春:6, 夏:6, 秋:1, 冬:4となっており、 $\text{SO}_4^{2-}$ と同様に、春から夏に高濃度のもが多く出現する傾向となっていた。また、全試料の最高値(62.2 $\mu\text{g}/\text{ml}$ )は春(5月4日)に観測されたものだった。春は19降水中6降水(32%)、夏は18降水中6降水(33%)に20 $\mu\text{g}/\text{ml}$ 以上のものが出現していた。

#### (4) $\text{NH}_4^+$

$\text{NH}_4^+$ -max が5 $\mu\text{g}/\text{ml}$ 以上となった降水は69降水中20(29%)存在したが、この季節別の内訳は春:7, 夏:7, 秋:2, 冬:4で、 $\text{SO}_4^{2-}$ や $\text{NO}_3^-$ と同様に、春から夏に高濃度のもが多く出現する傾向となっていた。また、全試料の最高値(44.6 $\mu\text{g}/\text{ml}$ )は春(5月4日)に観測されたものだった。春は19降水中7降水(37%)、夏は18降水中7降水(39%)に5 $\mu\text{g}/\text{ml}$ 以上のものが出現していた。

#### (5) $\text{Ca}^{2+}$

$\text{Ca}^{2+}$ -max が10 $\mu\text{g}/\text{ml}$ 以上となった降水は69降水中12(17%)存在したが、この季節別の内訳は春:6, 夏:2, 秋:1, 冬:4で、 $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{NH}_4^+$ とは異なり、冬から春にかけて高濃度のもが多く出現する傾向で、3月2日には全試料の最高値20.9を観測した。春は19降水中6降水(32%)、冬は15降水中4降水(27%)が10 $\mu\text{g}/\text{ml}$ 以上となっていた。

以上のことから、夏期にpHが低いのは、この季節に $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ の濃度が高いためといえる。一方、春期は $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ の濃度が高かったが、低pHのものが少なかった。これは、春には $\text{Ca}^{2+}$ の高濃度試料が多く出現するので、この中和成分の影響によるものと考えられる。

なお、5月4日の降水は $\text{SO}_4^{2-}$ -max,  $\text{NO}_3^-$ -max がともに調査期間中の最高値を示し際だって高かったが、同時に $\text{NH}_4^+$ -max,  $\text{Ca}^{2+}$ -max もまた非常に高いため、pH-minは4.8とそれほど低くならなかったものと思われる。

## 4. 考 察

これまでに、酸性雨によるものと思われる果樹の葉の壊死斑点や花卉の脱色斑点等が各地で観察されている。このような植物の葉面における可視被害は、一般に、pH3.5以下で出現するといわれ、また、アサガオの花弁はpH4.3以下で脱色すると報告されている<sup>16), 17)</sup>。

今回の調査の結果、調査期間中に最低pH3.3が観測された。また、全降水の23%(69降水中16降水)が降り始め初期の段階でpH4

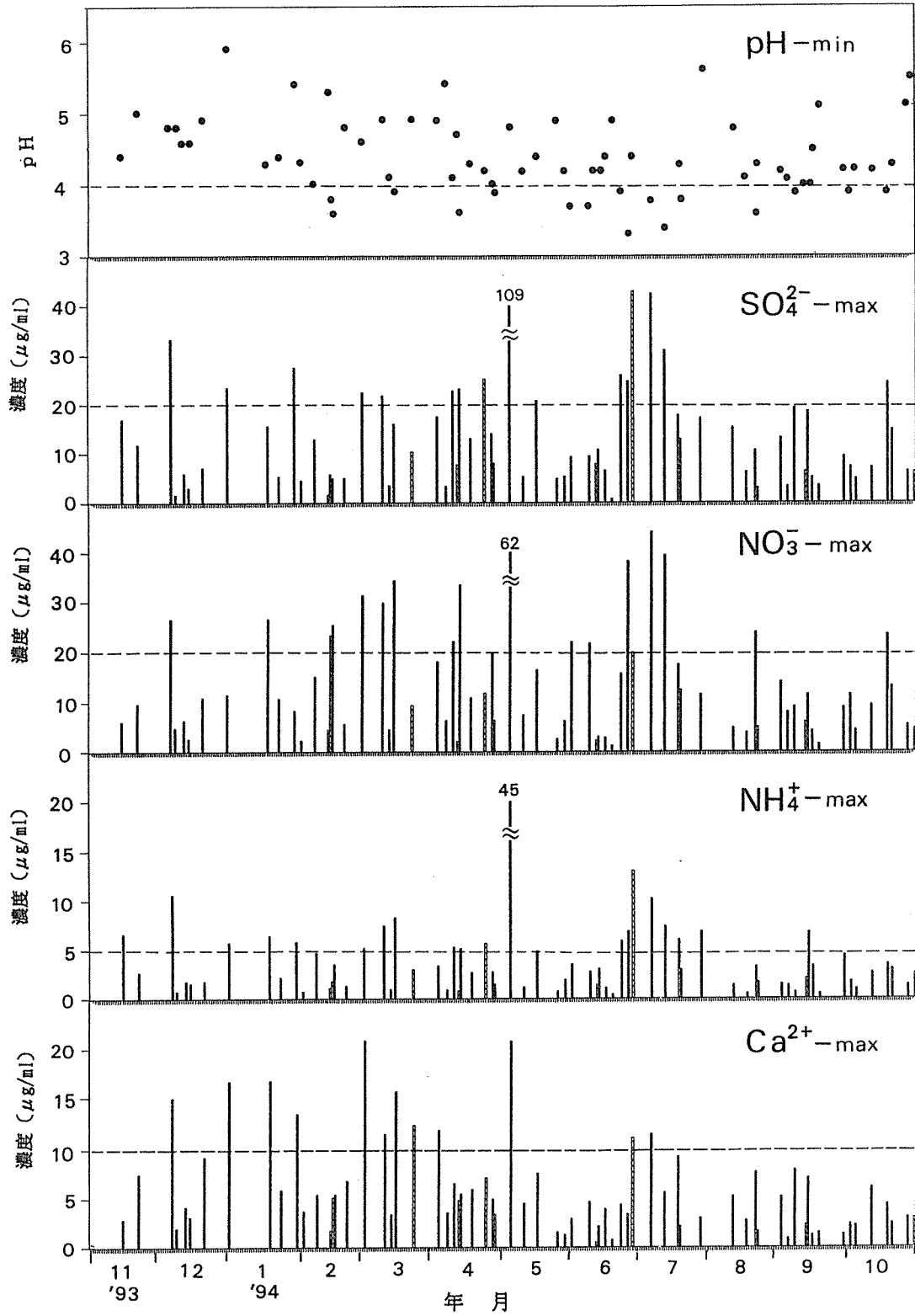


図-6 pH-min, SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>-max, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-max, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-max, Ca<sup>2+</sup>-maxの季節変化

表-5 pH-minが4未満の降水

降水日	初期降水			一降水全量			
	pH-min	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> -max μg/ml	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> -max μg/ml	降水量 mm	pH	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> μg/ml	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> μg/ml
2月15日	3.8	5.74	23.2	1.4	3.9	3.18	13.7
2月16日	3.6	5.00	25.4	1.9	4.0	3.56	12.9
3月15日	3.9	15.9	34.4	4.8	3.9	2.95	11.0
4月13日	3.6	23.2	33.4	4.5	3.9	10.3	13.7
4月28日	3.9	7.99	6.40	1.5	4.1	4.27	2.40
6月1日	3.7	9.27	22.0	5.3	3.7	7.07	13.8
6月9日	3.7	9.30	21.7	16.6	4.1	2.91	3.52
6月24日	3.9	25.8	15.6	0.7	4.0	6.74	6.86
6月25日	3.3	24.6	38.3	1.8	3.7	9.44	12.8
7月6日	3.8	42.5	44.3	16.2	4.2	4.08	4.41
7月12日	3.4	30.9	39.4	31.8	3.9	7.27	8.45
7月19日	3.8	12.7	12.3	3.0	4.0	7.69	6.56
8月20日	3.6	10.5	23.9	169.1	4.7	0.86	0.85
9月8日	3.9	19.2	8.99	0.5	4.1	12.0	5.17
10月1日	3.9	7.28	11.4	15.6	4.2	3.29	3.94
10月19日	3.9	24.4	23.4	2.1	4.3	7.75	6.59

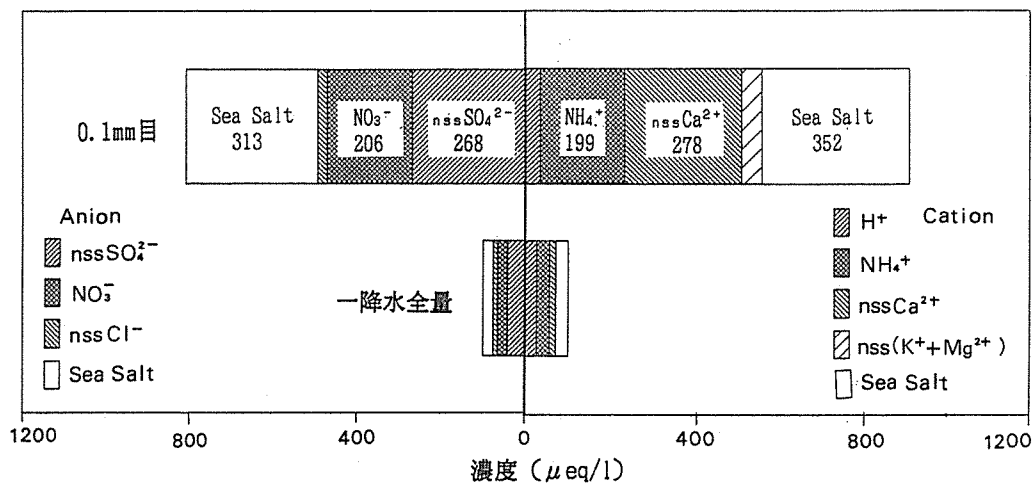


図-7 0.1mm目の降水と一降水全量の比較

( 1993年11月～1994年10月の平均値。  
 図中白抜きは海塩由来成分(sea salt), 斜線は海塩を除いた非海塩由来成分(nss:non sea salt)を示す。 )

未満となっており、特に夏期にはその頻度が44%(18降水中8降水)と高く、pHの低い降水が頻繁に降っていることがわかった。前述のように、葉面の被害はpH3.5以下、花卉の被害はpH4.3以下で出現するといわれているので、この点からみると、初期降水がこれらに何らかの影響を与えているものと考えられる。

しかし、一方では、植物等に汚染強度の強い初期降水が付着したとしても、これらは清浄な後続降水によって洗い流されるため、酸性雨による直接被害は少ないという指摘もある。

そこで、pH-minが4.0未満となった16降水についてその降水量を調べてみた。表-5に、16降水のpH-min、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>-max、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-max及び降り始めから降り終わりまでの降水量、pH、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、

NO<sub>3</sub><sup>-</sup>の濃度を示した。

これによると、降水量5mm未満で降り止んだものが10降水、3mm未満で降り止んだものが7降水となっており、降水量の比較的少ないものが多くみられた。また、一降水全量のpHは、1例が4.7である以外はいずれも4.3以下となっており、16降水のうちほとんどが、後続降水によりあまり希釈されることなく、低pHのまま降り止んだものだった。

例えば、調査期間中の最低pH3.3を観測した6月25日の降水をみると、この日の降水は午前9時から15時頃にかけて降った霧雨であったが、降り始めから降り終わりまでの降水量が1.8mmと少なく、一降水全量としてもpHが3.7と非常にpHの低い降水であっ

た。同様に、2月15日の降水(pH-min:3.8)や4月13日の降水(pH-min:3.6)も降水量が1.4mm, 4.5mmと少なく、一降水全量のpHがいずれも3.9と低い値であった。

屋外の植物は、雨の降っている間、このようなpHの低い雨に曝され続けているのはもとより、降水終了後、植物の表面に付着した雨滴は、蒸発・乾燥する過程で濃縮され、pHは更に低くなるので、これらが植物に対し直接的な影響を与えていると推測される。

また、成分についていえば(図-7)、降り始めは特にその濃度が高く、0.1mm目の降水と一降水全量を比較すると、 $\text{NSSO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ の濃度は、一降水全量に比べいずれも7倍以上と非常に高いので、これら成分による影響も大きいと考えられる。

以上、植物に対する影響について述べてきたが、最近では、ブロンズ像の表面が雨垂れに沿って筋状に溶出するいわゆる涙現象(汗かき現象ともいう)やコンクリート中の石灰分がさらさら状に溶出しその建築物の強度を減少させる『酸性雨つらら』など器物に対する影響も話題になっている。

今後は、引続き初期降水の観測を続けデータの蓄積を図るとともに、植物・器物等の被害と降水との因果関係について、更に検討する必要がある。

## 5. まとめ

降水開始直後のごく初期の降水の化学的性状を把握するため、1993年11月～1994年10月の一年間、横浜市磯子区において、降り始め直後の降水を降水量0.1mm毎に1.0mmまで10段階に分画採取し、pH及び主要イオンの分析を行った。その結果、次のことがわかった。

(1) 0.1mm目から1.0mm目までのpHの変化パターンは、概ね次の3つのタイプに分類できた。

I型: 0.1mm目が最も高く、0.2～0.5mm目にかけて徐々に下がり、その後はほぼ一定ないしは漸増するパターン。

II型: 0.1mm目から1.0mm目までpHが4以下と低く、ほぼ一定で推移するパターン。

III型: 0.1mm目から1.0mm目までpHが5～6の間で推移するパターン。

(2) 調査期間中に採取した全632試料のpHの最低値は3.3であった。

(3) 0.1mm目から1.0mm目までの成分濃度の変化パターンは、I型、II型、III型とも、0.1mm目が最も高く、その後徐々に低下していくパターンとなっていた。

(4) I型は初期の $\text{Ca}^{2+}$ 濃度が高く、II型は降水過程を通じ $\text{NO}_3^-$ の濃度が高い特徴があった。また、III型の成分濃度は非常に低い特徴があった。

(5) 調査期間中に採取した全632試料の成分濃度の最高値( $\mu\text{g}/\text{ml}$ )は、 $\text{SO}_4^{2-}$ :109、 $\text{NO}_3^-$ :62.2、 $\text{NH}_4^+$ :44.6、 $\text{Ca}^{2+}$ :20.9であった。

(6) 1.0mm目まで降り進む間にpH4.0未満となった降水は69降水中16降水(23%)であり、これを夏期に限ってみると18降水中8降水(44%)となり、夏期に降る降水の約半分が初期の段階でpH4を切る状況となっていた。

(7) pHの低い降水は夏期に多く出現し、 $\text{SO}_4^{2-}$ 及び $\text{NO}_3^-$ の濃度

の高い降水は春から夏にかけて多く出現する傾向となっていた。

(8) 降り始め直後(0.1mm目)の $\text{NSSO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ の濃度は、一降水全量に比べ7倍以上と非常に高濃度であった。

(9) 降水初期にはpHが4未満になる頻度が高く、また、酸性成分の濃度も高いので、この段階で降り止んだ場合には、これらが植物や器物に与える影響は大きいと推測された。

## 文 献

- 1) 酸性雨対策検討会:酸性雨に係る情報収集整理結果報告書(1983).
- 2) 牧野宏, 野島秀子, 才木義夫, 水見康二: 雨水成分と大気汚染との関係(第1報)-雨水成分間の相関性-, 大気汚染研究第10巻4号, p133(1975).
- 3) 押尾敏夫, 宇野博美, 水上雅義, 依田彦太郎: 千葉県における雨水の化学的性状について, 第18回大気汚染研究全国協議会大会講演要旨集,96(1977).
- 4) 小山功, 古明地哲人, 渡辺のふ子: 初期降水のpH値, 導電率値の経年的変化からみた地域別汚染特性, 東京都公害研究所年報第12号, 111-119(1981).
- 5) 玉置元則, 平本隆年: 神戸地域における雨水中の陽イオンと陰イオンの関係, 日本化学会誌, 2, 300-306(1981).
- 6) 水上和子: 雨水成分調査について(第4報), 埼玉県公害センター年報第8号, 60-66(1981).
- 7) 松本光弘, 市川博, 市村國俊, 上田英次, 板野龍光: 奈良県における初期降水と後続降水のイオン成分の挙動, 全国公害研会誌, 8, 17-26(1983).
- 8) 環境庁大気保全局, 環境庁水質保全局, 農林水産省林野庁: 昭和60年度関東地域におけるスギ林の衰退と酸性降下物の影響に関する緊急実態調査報告書(1986).
- 9) 関口恭一, 原善彦, 氏家淳雄: 関東地方における酸性降下物とスギ枯れについて, 第26回大気汚染学会講演要旨集, 431(1985).
- 10) 古川昭雄, 井上敏雄: 丹沢山塊に分布するモミの衰退, 第31回大気汚染学会講演要旨集, 176-177(1990).
- 11) 環境庁大気保全局大気規制課監修, 酸性雨調査法研究会編: 酸性雨調査法, 10-23(1993).
- 12) 横浜地方気象台: 神奈川県気象月報 平成5年11月～平成6年10月(1993-1994).
- 13) 渡辺善徳, 矢本てるみ, 草野一, 鶴田治雄: 一降水中の化学成分の経時変化の違いによる都市域の酸性雨の分類, 横浜市公害研究所報第15号, 27-36(1991).
- 14) 根津豊彦, 小沢武次郎, 君島克憲: 浦和における降水の化学成分(その2)-降水初期における成分濃度変動-, 第23回大気汚染学会講演要旨集, 261(1982).
- 15) 北村守次, 桐元俊武: 石川県における降水成分調査-1mm降雨の解析結果について-, 第27回大気汚染学会講演要旨集, 247(1986).
- 16) 野内勇: 酸性雨の農作物および森林木への影響, 大気汚染学会誌, 25(5), 295-306(1990).
- 17) 野内勇, 小山功, 大橋毅, 古明地哲人: 酸性雨水によるアサガオ花弁の脱色について, 東京都公害研究所報, 15, 74-78(1984).

# 都市域における林内雨・樹幹流(2)

—— 樹木汚染と光化学二次生成物質 ——

加藤善徳\*, 矢本てるみ\*

## 要 旨

1991年3月～1992年4月までの約1年間、横浜市磯子区で、ヒノキを対象樹木として、樹木内外の降水物、樹幹流を一降水毎採取し、その成分濃度を分析した。その結果得られた樹幹流初期1ℓの分画データと調査地点付近のSO<sub>2</sub>、NO<sub>2</sub>、SPM、O<sub>x</sub>などの常時監視局データを比較し、樹木汚染と大気汚染物質との関係を検討した。その結果、次の事がわかった。

(1) 樹幹流の成分濃度と降水間隔の関係を検討した結果、ほとんどの成分は有意な正の直線関係を示し、降水間隔が長くなるほど、樹木の汚染が進んでいくことがわかった。

(2) 樹幹流のSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度と大気汚染物質の関係を検討した結果、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>はその前駆物質であるSO<sub>2</sub>の累積濃度及びSPMの累積濃度と有意な関係を示したが、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>はその前駆物質であるNO<sub>2</sub>の累積濃度及びSPMの累積濃度と有意な関係を示さなかった。

(3) O<sub>x</sub>が60ppb以上を示した時間数と樹幹流のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度との関係を検討した結果、これらは共に非常に有意な相関を示した。これより、光化学反応により生成されたHNO<sub>3</sub>ガス、H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>ミストが樹木に多量に沈着していることが推測された。

(4) 非光化学時における樹幹流のSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度と大気汚染物質の関係を検討した結果、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>ともに、NO<sub>2</sub>、SO<sub>2</sub>及びSPMの累積濃度と有意な関係を示した。これより、光化学スモッグの影響があまりない時期(秋、冬及び春、夏でも日射量の少ない時期)のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の樹木汚染は、その前駆物質であるNO<sub>2</sub>、SO<sub>2</sub>が樹木に吸着して、そこで酸化されてNO<sub>3</sub><sup>-</sup>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>になる過程及び、大気中で生成された粒子状のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>が樹木に沈着していく汚染されていく過程が考えられた。

(5) 筑波における樹幹流のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>/SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>比の季節変化を調べた結果、その挙動は光化学スモッグの影響を示す、春から夏に大きくなる特徴を示した。このことから、東京、川崎等の都市・工業地帯から排出された汚染物質が光化学反応でHNO<sub>3</sub>ガス、H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>ミストなどに二次生成されながら内陸部に輸送され、そこでこれらが樹木に沈着されていることが示唆された。

## 1. はじめに

欧米など世界各地で森林の衰退が深刻化している<sup>1)~3)</sup>が、最近になり、日本においても、関東のスギ、日光連山のダケカンバ、シラビソ、大山のモミなど各地でその被害が目だつようになってきた<sup>4)~6)</sup>。筆者らはこのような樹木被害の原因を解明する一環として、1991年3月～1992年4月の約1年間、横浜市磯子で樹幹流、林内雨及び林外雨の成分調査を実施した。

その結果<sup>7)</sup>、(1)樹木の枝、葉などにはNO<sub>3</sub><sup>-</sup>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>などの酸性物質が多量に付着しており、樹木は非常に汚染されていること、(2)これら汚染物質は降水により洗浄されて林内の地表に落下し、土壤に大きな負荷を与えていること、(3)樹木からK<sup>+</sup>が溶脱しており、これら汚染物質の影響を受け樹木が傷んでいる可能性があること等がわかった。

そこで、この第2報では、このような樹木への汚染物質の沈着(以下、樹木汚染という)、特に、樹木への影響を考える上で重要と思われるNO<sub>3</sub><sup>-</sup>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の沈着が主に何に起因しているのか、その季節的な挙動、降水間隔との関係、SO<sub>2</sub>、NO<sub>2</sub>、SPM、O<sub>x</sub>などの大気汚染物質との関係などを調べ、その原因を検討した。その結果、若干の知見が得られたので報告する。

## 2. 解析資料及び解析方法

### 2-1 解析資料

解析資料は、前述の樹幹流などの調査結果とこれら調査地点付近の常時監視局(横浜市商業高校)におけるSO<sub>2</sub>、NO<sub>2</sub>、浮遊粒子状物質(SPM)、オキシダント(O<sub>x</sub>)のデータを用いた。

樹幹流(木の幹を伝って流れてくる雨)などの調査内容は、すでに第1報で詳細に述べているので、ここでは簡単にその概要を述べる。調査は1991年3月～1992年4月の約1年間、横浜市磯子でヒノキの孤立木を対象として行った。樹幹流は、図-1に示すように、樹木に巻いたシリコンチューブを水みちとして採取し、流出初期は特に、1～6ℓまで1ℓごと分画採取できるように工夫し、以降は25ℓのポリタンクに一括採取した。流出量が非常に多い場合は貯水の状況を見ながら、その都度ポリタンクを交換した。林内雨は樹木下5ヶ所に設置した雨水簡易採取装置により採取した。林外雨は林内雨と同一の容器を一ヶ所、樹木外に設置し採取した。これらに含まれる各成分を表-1に示す分析方法で、分析した。

なお、樹幹流、林内雨、林外雨は原則として、同時採取、一降水毎採取とした。

### 2-2 解析方法

前報でも述べたように、樹幹流の各イオン成分濃度は流出始めに高く、流出がすすむにつれ低くなる傾向を示す(図-2)。これは樹

Throughfall and stem flow around urban areas.

-Deposition of photochemical secondary pollutants on forest-

\*Yoshinori Katou, Terumi Yamoto 横浜市環境科学研究所大気部門

木に付着した汚染物質などが降水によって洗い流されていくためと考えられるが、その洗浄効果は降水初期ほど大きい。

ところで、降水には台風や霧雨など様々な種類があり、その降水量は一様でない。これらによって樹木の付着物質は洗い流されていることから、樹幹流を全量でみた場合、降水量の非常に少ない霧雨のような雨では、樹木がそれほど汚染されていないとしても、その濃度は高くなり、逆に、大雨の場合は、例えば樹木がかなり汚染されていたとしても、大量の雨による希釈でその濃度は非常に低くなる。したがって、全量の濃度をそのまま大気汚染物質などと比較しても、樹木汚染と大気汚染物質の正確な関係を求めることはできない。このことは林内雨についても同様である。

しかし、全量ではなく、分画されたデータの場合は、流出始めからの一定量づつの採取であるので、その成分濃度は流出量に左右されない。

そこで、このことに着目し、以下の大気汚染物質の関係などとの検討には樹幹流の初期1ℓの分画データを用いることとした。

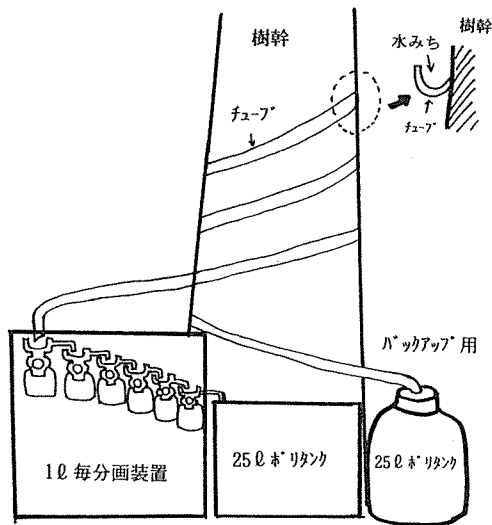


図-1 樹幹流採取装置

### 3. 樹幹流初期1ℓの各成分濃度の季節変化

ここでは、まず、樹幹流初期1ℓの各イオン成分濃度が調査期間中、どのような変動を示すのか調べた。図-3に調査期間中の日降水量、樹幹流の採取日(図中番号で示した。)、樹幹流初期1ℓのpH、EC及び各イオン成分濃度の変化を示した。また、表-2にこれらの相関係数、表-3にこれらの年平均、季節別平均値を示した。なお、ここでの年平均値、季節別平均値は調査期間のうち、1991年3月～1992年2月の1年間をまとめたものである。

図-3にみられるように、降水は春、梅雨期、秋に多く、冬に少なく、特に、11月28日～12月25日(27日間)、2月4日～3月6日(30日間)の期間には雨はほとんど降らなかった。樹幹流の採取は、原則として降水毎行だったが、前報でも述べたように、降水量が非常に少ない雨(5mm以下)は、樹冠に保持されたまま樹幹流として流出されず、また、中には2降水、3降水をまとめて採取したものもあり、調査期間中に採取できた樹幹流は合計34回だった。以下、結果を簡単に述べる。

- (1) pHは春、夏、冬に4.0前後と低く、秋に高い傾向であり、秋は5以上のものがかなりあった。
- (2) ECは1991年の春頃が特に高く(最高、2423 $\mu$ S)、秋に低い傾向だった。また、12月、3月にも、2250、1920 $\mu$ Sと高い試料(樹幹流②、⑥)があったが、これは前述の長期間雨が降らなかった後の雨の試料だった。

表-1 分析項目及び分析方法

分析項目	分析方法
pH	ガラス電極法
導電率(EC)	電気伝導度法
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	イオンクロマトグラフ法
K <sup>+</sup> , Na <sup>+</sup> , Ca <sup>2+</sup> , Mg <sup>2+</sup>	原子吸光度法
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> , NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> , Cl <sup>-</sup>	イオンクロマトグラフ法

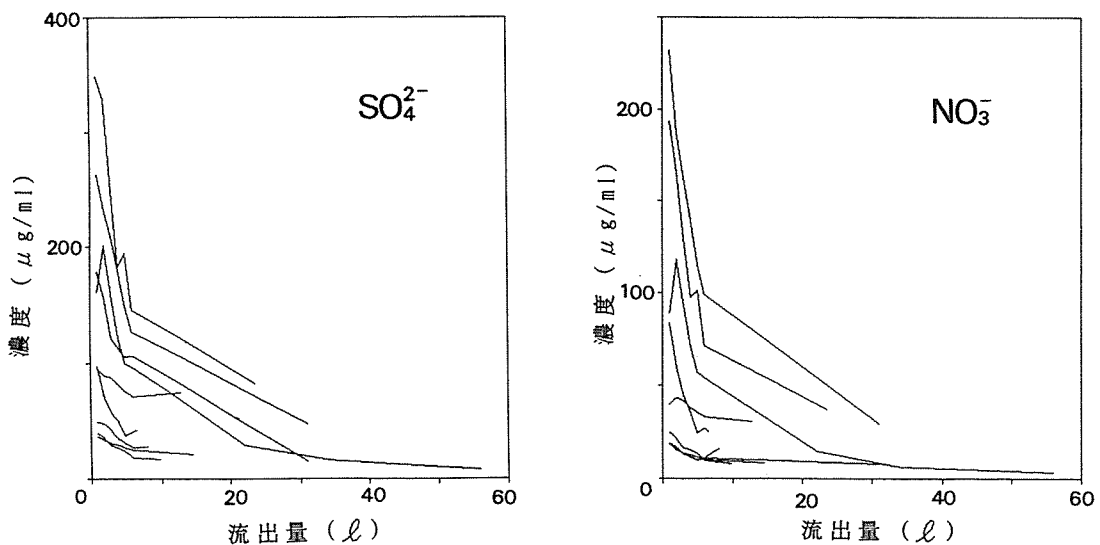


図-2 樹幹流の流出過程におけるSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度の変化の例



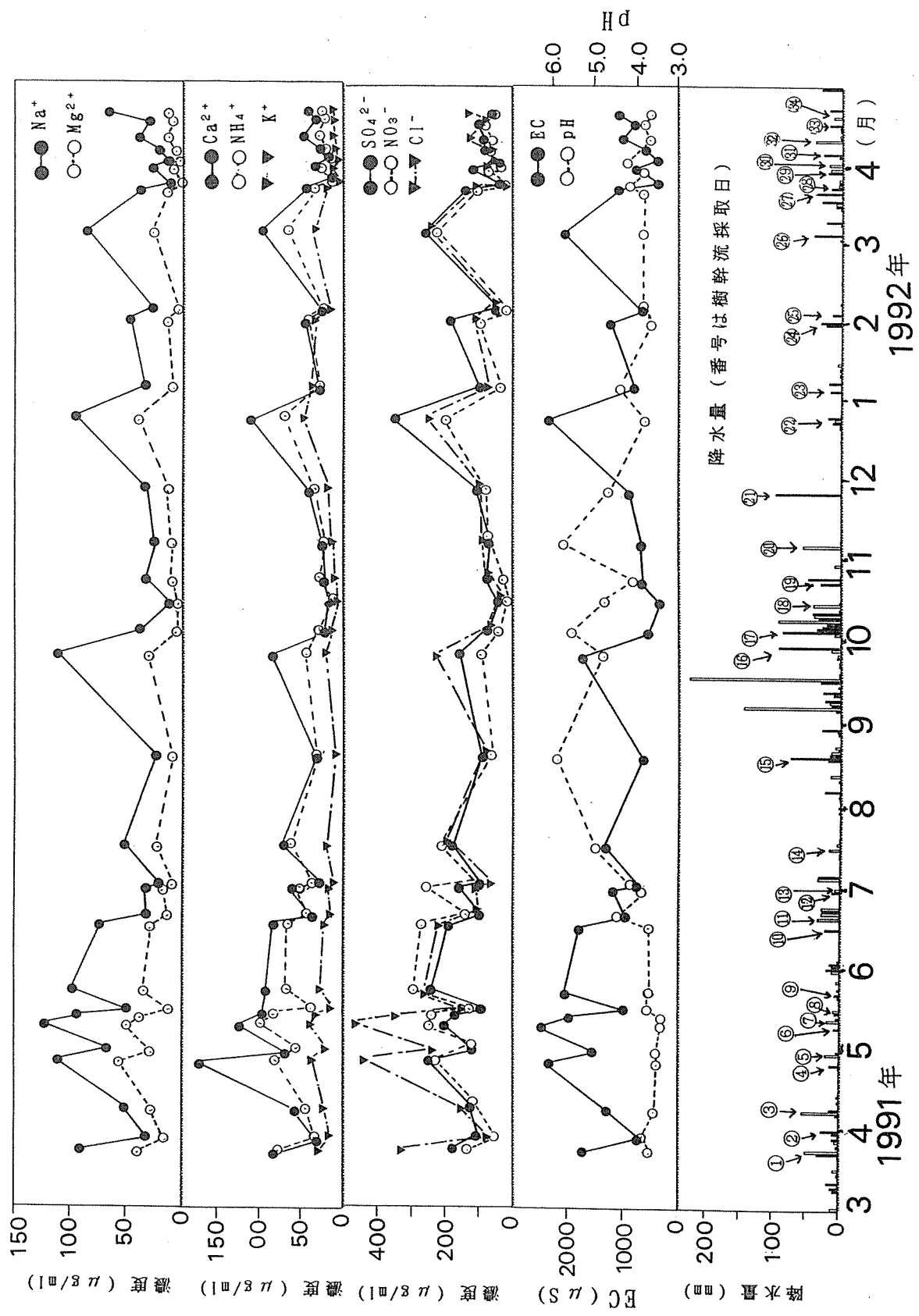


図-3 樹幹流初期1ℓの各成分濃度の季節変化

- (3) 各イオン成分も EC の挙動とよく類似しており、1991年の春頃と長期間雨が降らなかった後の試料が高い傾向だった。
- (4) 各イオン成分の相関は(表-2)、 $K^+-NO_3^-$ (0.61)以外は0.7以上と非常によかった。
- (5) しかし、これを季節別平均濃度でみると(表-3)、成分による特徴がみられ、 $Ca^{2+}$ 、 $Na^+$ 、 $Mg^{2+}$ 、 $Cl^-$ 、 $NH_4^+$  は春だけが特に高い傾向、 $K^+$  は春と冬が高い傾向、 $SO_4^{2-}$  は春、冬に高く、夏もやや高い傾向、 $NO_3^-$  は春と夏が特に高い傾向だった。

#### 4. 降水間隔と樹木汚染との関係

長期間雨が降らなかった後の樹幹流のイオン成分濃度は非常に高くなる傾向を示し、降水間隔と樹幹流のイオン成分濃度には何らかの関係があることが示唆された。そこで、ここでは、まず、降水間隔と樹幹流のイオン成分濃度の関係を検討した。なお、降水間隔とは、前の降水(降水量が5mm以下のものは含まない)が降り止んだ時から次の降水が始まる前までの時間(hr)とした。

図-4に降水間隔と樹幹流初期1ℓの $SO_4^{2-}$ 濃度の関係を示した。降水間隔と樹幹流の $SO_4^{2-}$ 濃度は有意な関係が認められ、降水間隔が大きくなると、その濃度は高くなる正の直線関係を示した。また、表-4にみられるように、その他の成分も、 $Cl^-$ を除きすべて $SO_4^{2-}$ と同様、降水間隔と有意な正の直線関係を示した。

このことから、一般には、降水間隔が長くなるほど、樹幹流の成分濃度は高くなるものと考えられる。すなわち、降水間隔が長くなるほど、大気汚染物質による樹木の汚染が進むものと考えられる。なお、 $K^+$ については、前報<sup>7)</sup>でも述べたように、汚染物質によるものではなく、樹木からの溶脱が主因であり、降水間隔が長いと、その溶脱量が増すためと解釈される。

しかし、全体にその相関はあまり強くなく、さらに詳細に、樹木汚染を解明していくには、汚染の原因とみられる個々の大気汚染物質、例えば、大気中の $SO_x$ 、 $NO_x$ 、SPMなどと樹幹流の各成分濃度との関係を検討する必要がある。

表-2 相関係数表

	EC	$NH_4^+$	$K^+$	$Na^+$	$Ca^{2+}$	$Mg^{2+}$	$SO_4^{2-}$	$NO_3^-$	$Cl^-$
EC	1.00								
$NH_4^+$	0.94	1.00							
$K^+$	0.83	0.79	1.00						
$Na^+$	0.95	0.87	0.75	1.00					
$Ca^{2+}$	0.96	0.92	0.77	0.91	1.00				
$Mg^{2+}$	0.97	0.94	0.80	0.93	0.98	1.00			
$SO_4^{2-}$	0.89	0.82	0.84	0.77	0.86	0.84	1.00		
$NO_3^-$	0.85	0.87	0.61	0.72	0.83	0.80	0.80	1.00	
$Cl^-$	0.93	0.93	0.75	0.93	0.94	0.97	0.72	0.73	1.00

表-3 樹幹流初期1ℓの各成分の季節別平均濃度(μg/ml)

	EC	PH	$NH_4^+$	$K^+$	$Na^+$	$Ca^{2+}$	$Mg^{2+}$	$SO_4^{2-}$	$NO_3^-$	$Cl^-$
	μS/cm		μg/ml							
春	1650	3.68	63	27	81	84	30	162	168	264
夏	1067	4.13	47	15	40	51	16	133	168	116
秋	728	4.60	26	13	42	32	11	86	64	88
冬	1173	3.82	39	34	48	48	17	168	88	121

#### 5. 大気汚染物質と樹木汚染との関係

ここでは、常時監視局のデータ<sup>8)</sup>を用い、大気汚染物質と樹木汚染との関係を検討した。なお、ここからは樹木への影響を考える上で、特に重要と思われる $NO_3^-$ 、 $SO_4^{2-}$ について焦点をあて検討した。使用したデータは $SO_4^{2-}$ 、 $NO_3^-$ の前駆物質である $SO_2$ 、 $NO_2$ 及びSPM、 $O_x$ である。

##### 5-1 大気中の $SO_2$ 、 $NO_2$ 及び浮遊粒子状物質(SPM)との関係

###### (1) $SO_2$ 、SPMと樹幹流の $SO_4^{2-}$ の関係

図-5に樹幹流初期1ℓの $SO_4^{2-}$ 濃度とその前駆物質である $SO_2$ の累積濃度との関係を示した。また、図-6に樹幹流初期1ℓの $SO_4^{2-}$ 濃度とSPMの累積濃度との関係を示した。ここで、累積濃度とは、降水間隔中のその物質の累積濃度(ppm・hr)を示す。

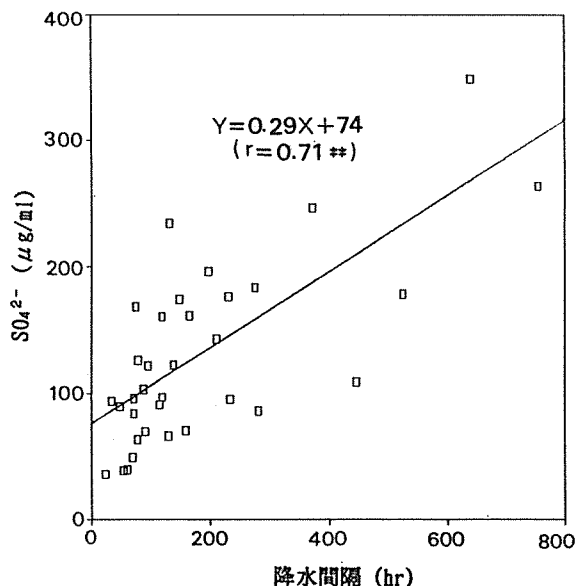


図-4 降水間隔と樹幹流初期1ℓの $SO_4^{2-}$ 濃度の関係

表-4 降水間隔と各成分の関係

変数	相関係数	回帰直線
EC	0.49**	$Y=1.76X+773$
$SO_4^{2-}$	0.71**	$Y=0.29X+74$
$NO_3^-$	0.38*	$Y=0.17X+86$
$Cl^-$	0.32	$Y=0.21X+104$
$NH_4^+$	0.39*	$Y=0.051X+32$
$Ca^{2+}$	0.47**	$Y=0.10X+32$
$Na^+$	0.37*	$Y=0.071X+37$
$Mg^{2+}$	0.43*	$Y=0.032X+12$
$K^+$	0.65**	$Y=0.042X+12$

\*\*、\*はそれぞれ1%、5%有意を示す

図-5にみられるように、樹幹流の  $\text{SO}_4^{2-}$  濃度は  $\text{SO}_2$  の累積濃度と有意な関係が認められ( $r=0.70$ )、 $\text{SO}_2$  の累積濃度が高くなると、樹幹流の  $\text{SO}_4^{2-}$  濃度が高くなる正の直線関係を示した。また、SPM(図-6)についても、同様に有意な関係が認められた( $r=0.69$ )。

このことから、 $\text{SO}_4^{2-}$  に関する樹木汚染の原因として、大気中の  $\text{SO}_2$  がまず樹木の枝、葉などに吸着し、そこで  $\text{SO}_4^{2-}$  に酸化されていくもの、大気中で生成された粒子状の  $\text{SO}_4^{2-}$  が樹木に沈着していくものなどが考えられた。

(2)  $\text{NO}_2$ 、SPMと樹幹流の  $\text{NO}_3^-$  の関係

図-7に樹幹流初期1ℓの  $\text{NO}_3^-$  濃度とその前駆物質である  $\text{NO}_2$  の累積濃度、図-8に樹幹流初期1ℓの  $\text{NO}_3^-$  濃度とSPMの累積濃度との関係を示した。その結果、図-7、8に示すように、樹幹流の  $\text{NO}_3^-$  濃度は  $\text{NO}_2$  の累積濃度、SPMの累積濃度ともに、有意な関係は認められなかった。

これより、 $\text{NO}_3^-$  の樹木汚染に関しては、大気中の  $\text{NO}_2$  が樹木に

吸着して、そこで  $\text{NO}_3^-$  に酸化されていくものや、大気中で生成された粒子状の  $\text{NO}_3^-$  が樹木に沈着していくもの以外に、大きな要因が他にあると考えられた。

5-2 オキシダント( $\text{O}_x$ )との関係

5-2-1 光化学スモッグ発生時における  $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{SO}_4^{2-}$  の沈着

春、夏における樹幹流の  $\text{NO}_3^-$  濃度は他の季節に比べ高かった。特に、5月21日の樹幹流⑨、6月30日の樹幹流⑩(図-3)はともに降水間隔が5日と短いにもかかわらず、その濃度は前者が283  $\mu\text{g}/\text{ml}$ (調査期間中最高)、後者が252  $\mu\text{g}/\text{ml}$ (調査期間中3番目)と非常に高くなっていて、これらの降水前は特に  $\text{O}_x$  の濃度が高い特徴があり、前者は連日80ppbを超え、光化学スモッグ注意報は発令されなかったものの、最高112ppbを示し、後者も降水前5日間に光化学スモッグ注意報が2回も発令され、最高濃度が180ppbになるなど非常に高かった。

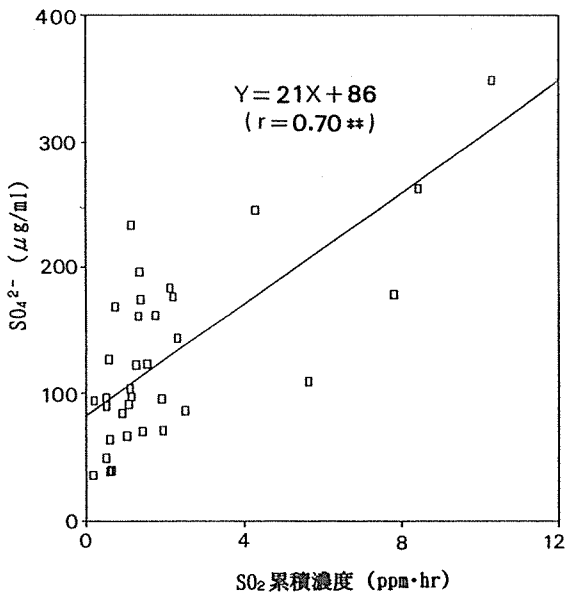


図-5  $\text{SO}_2$  累積濃度と樹幹流初期1ℓの  $\text{SO}_4^{2-}$  濃度の関係

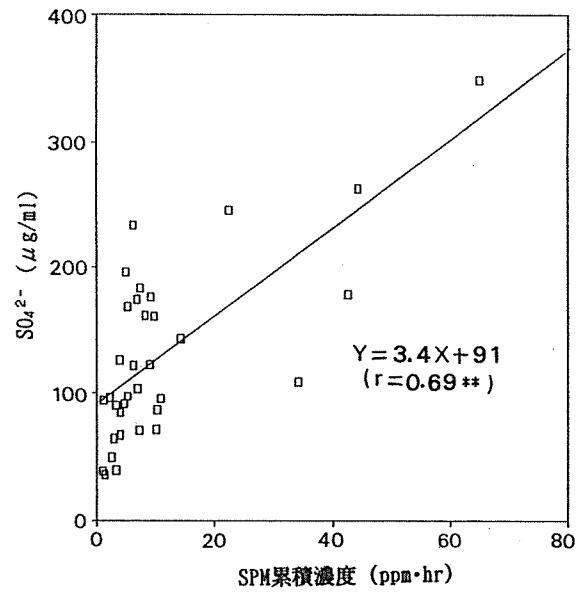


図-6 SPM 累積濃度と樹幹流初期1ℓの  $\text{SO}_4^{2-}$  濃度の関係

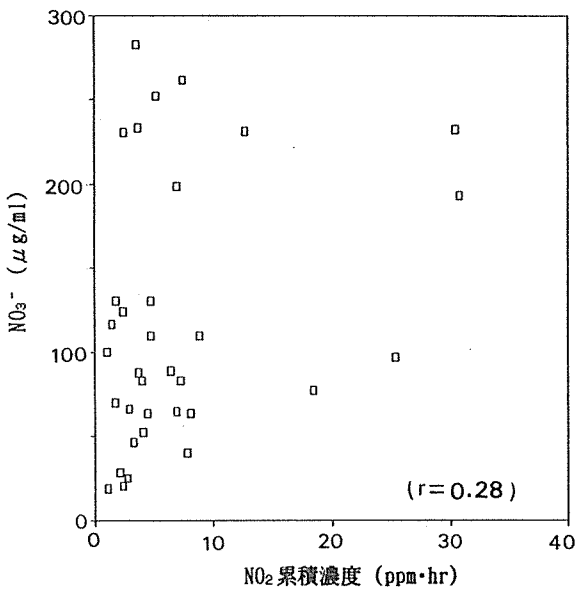


図-7  $\text{NO}_2$  累積濃度と樹幹流初期1ℓの  $\text{NO}_3^-$  濃度の関係

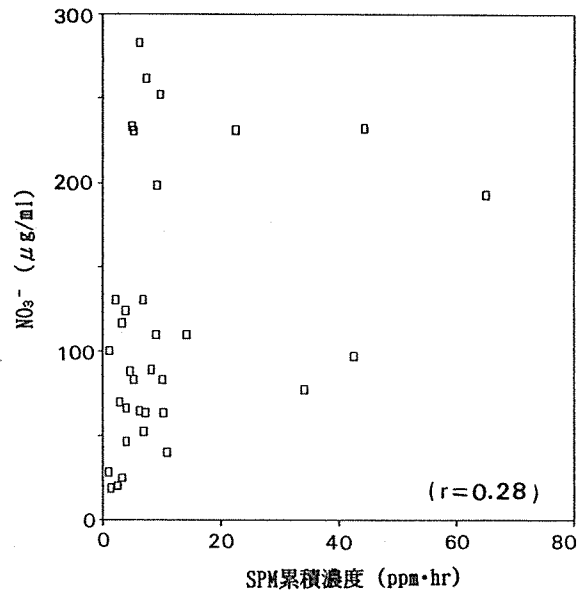


図-8 SPM 累積濃度と樹幹流初期1ℓの  $\text{NO}_3^-$  濃度の関係

筆者らは光化学関連調査として、大気中の  $\text{HNO}_3$  ガス、 $\text{H}_2\text{SO}_4$  ミスト等の二次生成物質の調査を行っている<sup>9)</sup>が、光化学スモッグ発生時は  $\text{HNO}_3$  ガス、 $\text{H}_2\text{SO}_4$  ミストが非常に高濃度になること、 $\text{O}_x$  と  $\text{HNO}_3$  ガスは非常に良い正の直線関係にあること等がわかっている。このことから、樹幹流の  $\text{NO}_3^-$  濃度に与える光化学二次生成物質の影響はかなり大きいことが窺える。

そこで、次に、調査期間中における光化学二次生成物質の影響について検討した。光化学二次生成物質の指標としては、高橋<sup>10)</sup>、梨本<sup>11)</sup>が樹木被害との関係のみるために使用している、 $\text{O}_x$  の昼間の1時間値が60ppbを超えた時間数(以下、 $\text{O}_x\text{I}$  とする)を用いた。

図-9に降水間隔中の  $\text{O}_x\text{I}$  と樹幹流の  $\text{NO}_3^-$  濃度との関係を示した。図中、 $\text{O}_x\text{I}$  が0のものが多いが、これは  $\text{O}_x$  が60ppbを超えたのは、春、夏だけで秋、冬はすべて60ppb以下だったためである。なお、 $\text{O}_x\text{I}$  が0の時も  $\text{NO}_3^-$  が高い場合があるが、この主因は光化学反応以外による生成と判断した。したがって、図中での回帰直線、相関係数はすべて  $\text{O}_x$  が60ppb以上のデータ( $\text{O}_x\text{I} \geq 1$ )を用いて算出している。

図-9に示すように、 $\text{O}_x\text{I}$  と樹幹流の  $\text{NO}_3^-$  濃度は、 $\text{O}_x\text{I}$  が大きくなると、樹幹流の  $\text{NO}_3^-$  濃度が高くなる正のよい直線関係( $r=0.76$ )を示した。また、同様に、 $\text{SO}_4^{2-}$  についても検討したが、 $\text{SO}_4^{2-}$  も(図-10)、 $\text{O}_x\text{I}$  と非常によい正の直線関係( $r=0.85$ )がみられた。

以上から、光化学スモッグ発生時は、二次生成された  $\text{HNO}_3$  ガス、 $\text{H}_2\text{SO}_4$  ミストが樹木の枝、葉などに多量に沈着しているものと推測された。

### 5-2-2 非光化学時における $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{SO}_4^{2-}$ の沈着

前項より、光化学スモッグ発生時(以下、『光化学時( $\text{O}_x\text{I} \geq 1$ )』)というにおける  $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{SO}_4^{2-}$  の沈着状況がある程度推定できた。ここでは、それ以外の時(以下、『非光化学時( $\text{O}_x\text{I} = 0$ )』)というにおける  $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{SO}_4^{2-}$  の沈着について検討した。図-11に光化学スモッグの影響の有無により区分した、 $\text{NO}_2$  の累積濃度と樹幹流の  $\text{NO}_3^-$  濃度の関係を示した。

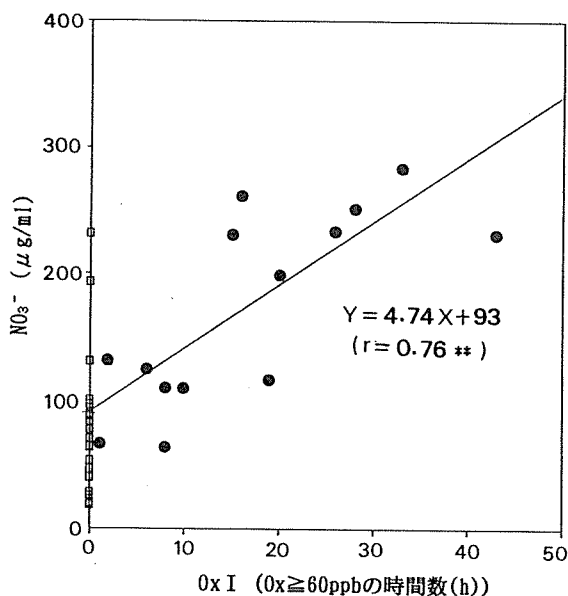


図-9  $\text{O}_x$  60ppb以上の時間数と樹幹流初期1ℓの  $\text{NO}_3^-$  濃度の関係

●は  $\text{O}_x\text{I} > 1$  のデータ、図中の相関係数、  
回帰直線は  $\text{O}_x\text{I} > 1$  のデータより算出

先の全試料を対象とした結果(5-1)では、これらは有意な関係を示さなかったが(図-7, 8)、これを光化学時を除いた関係(非光化学時)だけに限ってみると、それは  $\text{NO}_2$  の累積濃度が高くなると、 $\text{NO}_3^-$  濃度が高くなるというよい直線関係となった( $r=0.77$ )。また、SPMも、図-12に示すように、 $\text{NO}_2$  と同様、非光化学時だけに限ると、 $\text{NO}_3^-$  濃度と有意な正の直線関係を示した( $r=0.73$ )。

$\text{SO}_4^{2-}$  については全試料を対象とした結果でも、 $\text{SO}_2$ 、SPMの累積濃度と比較的良好な関係が得られており(図-5, 6)、光化学二次生成物質の影響は  $\text{NO}_3^-$  に比べると、それほど大きくないと考えられる。しかし、これについても、上記と同様、光化学時を除いた関係についてみると(図-13, 14)、それは全試料を対象とした結果に比べさらにその相関がよくなった( $r=0.86$ ,  $r=0.85$ )。

これらのことから、光化学スモッグの影響があまりない時期(秋、冬、また、春、夏でも日射量の少ない時期)は、主に  $\text{NO}_2$ 、 $\text{SO}_2$  が樹木に吸着してそれぞれ  $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{SO}_4^{2-}$  になる過程や、大気中で生成された粒子状の  $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{SO}_4^{2-}$  が樹木に沈着していく過程などにより樹木が汚染されていくものと考えられる。

### 5-2-3 光化学時と非光化学時における $\text{NO}_3^-$ / $\text{SO}_4^{2-}$ 比

光化学時、非光化学時においてそれぞれの過程により  $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{SO}_4^{2-}$  が沈着していることがわかったが、ここでは、光化学時、非光化学時において  $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{SO}_4^{2-}$  の沈着量に違いがあるかどうか、 $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$  比を比べ検討した。

図-15に、樹幹流、林内雨の  $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$  の比の降水毎の変化を示した。その結果、その比は、秋、冬に小さく、光化学の影響が大きくなる春から夏にかけて大きくなる傾向を示した。このことから、光化学時は非光化学時に比べ、特に  $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$  比が大きくなる、すなわち、光化学時は  $\text{H}_2\text{SO}_4$  ミストに比べ特に  $\text{HNO}_3$  ガスの沈着量が多くなっていることが推察された。

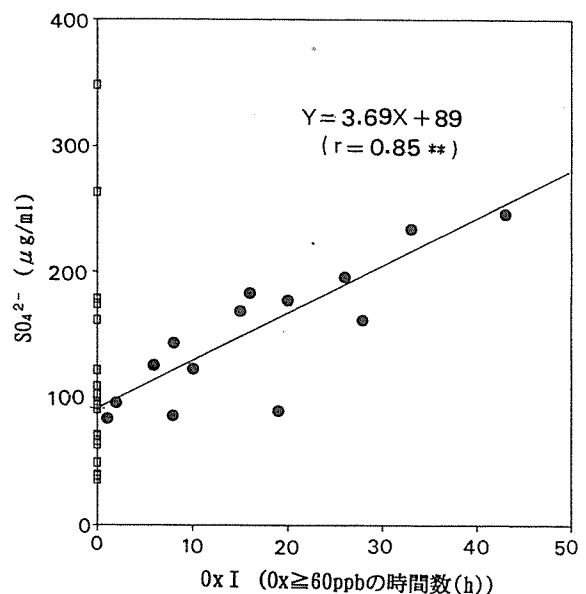


図-10  $\text{O}_x$  60ppb以上の時間数と樹幹流初期1ℓの  $\text{SO}_4^{2-}$  濃度の関係

●は  $\text{O}_x\text{I} > 1$  のデータ、図中の相関係数、  
回帰直線は  $\text{O}_x\text{I} > 1$  のデータより算出

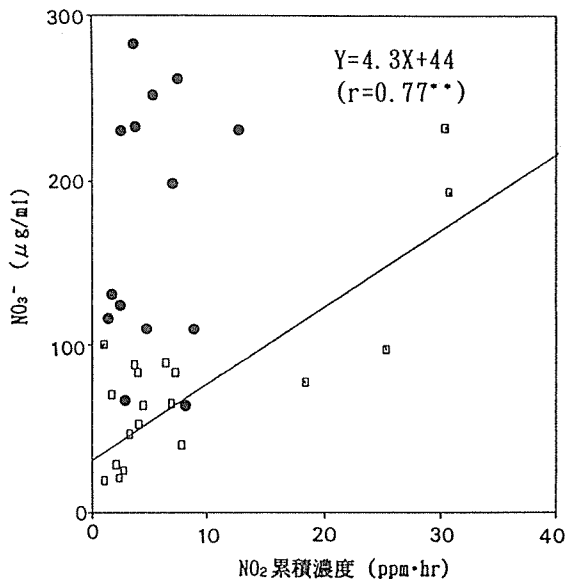


図-11 NO<sub>2</sub> 累積濃度と樹幹流初期 1 ℓ の NO<sub>3</sub><sup>-</sup> 濃度の関係  
(●は O<sub>x</sub> I ≥ 1, □は O<sub>x</sub> I = 0 のデータ)

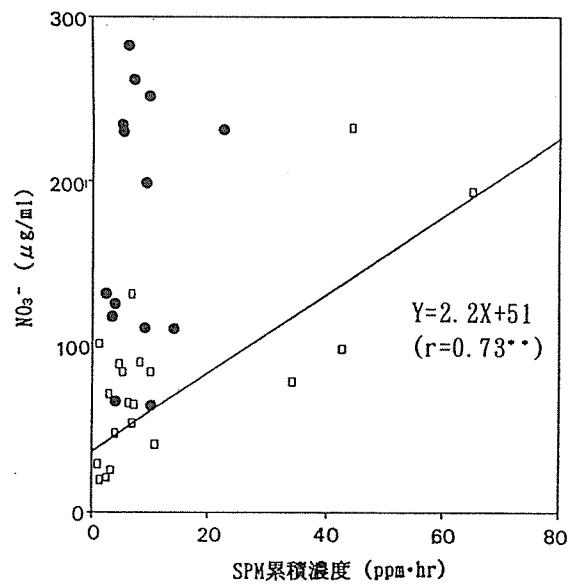


図-12 SPM 累積濃度と樹幹流初期 1 ℓ の NO<sub>3</sub><sup>-</sup> 濃度の関係  
(●は O<sub>x</sub> I ≥ 1, □は O<sub>x</sub> I = 0 のデータ)

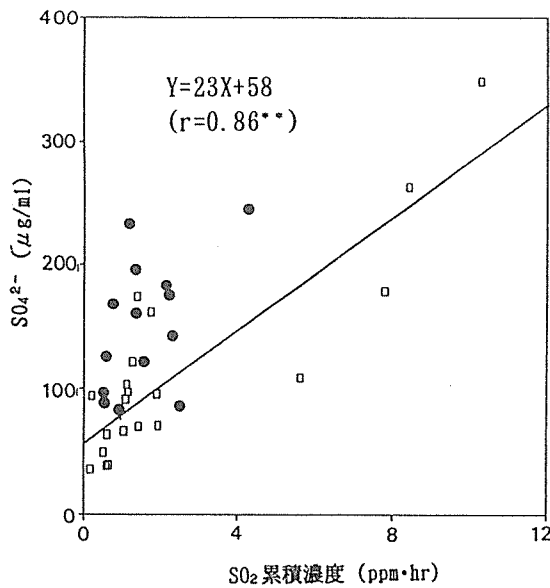


図-13 SO<sub>2</sub> 累積濃度と樹幹流初期 1 ℓ の SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 濃度の関係  
(●は O<sub>x</sub> I ≥ 1, □は O<sub>x</sub> I = 0 のデータ)

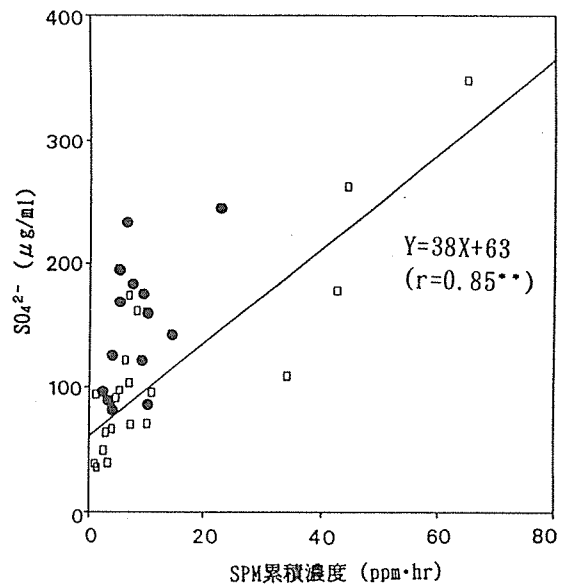


図-14 SPM 累積濃度と樹幹流初期 1 ℓ の SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 濃度の関係  
(●は O<sub>x</sub> I ≥ 1, □は O<sub>x</sub> I = 0 のデータ)

## 6. 内陸部における光化学二次生成物質の影響

光化学スモッグは広域汚染であり、関東地域の場合、東京、川崎等の都市・工業地帯の汚染物質が二次生成されながら内陸部に輸送され、時には長野の方まで輸送される<sup>12), 13)</sup>。したがって、内陸部の森林地帯でも HNO<sub>3</sub> ガスなどの光化学二次生成物質により樹木は非常に汚染されている可能性がある。

そこで、ここでは、岡本等<sup>14)</sup>が筑波において、筆者らと同様、一年を通じ樹幹流、林内雨などの成分濃度を観測しているの、この結果と筆者らの調査を比較することにより、内陸部の森林地帯における光化学二次生成物質の影響について若干検討した。

図-16に筑波におけるヒノキ、スギの樹幹流、林内雨の NO<sub>3</sub><sup>-</sup>/SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の季節変化(岡本らの結果を筆者が計算より求めた)を示した。これより、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>/SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>比は横浜とほぼ同様、秋、冬に比べ、春から夏にかけてその比が大きくなる傾向を示し、春、夏に光化学スモッグの影響があることが窺われた。また、それは、ヒノキ、スギと樹種が異なっても同様だった。

このことから、東京、川崎等の都市・工業地帯から排出された汚染物質が光化学反応により HNO<sub>3</sub> ガス、H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> ミストなどに二次生成されながら内陸部に輸送され、そこでこれらがヒノキ、スギなどの樹木に沈着されていることが推測された。

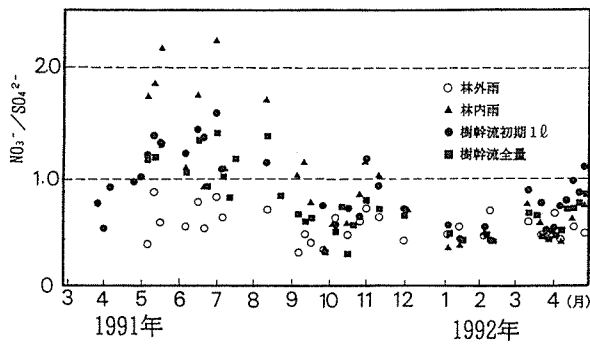


図-15 横浜市における樹幹流, 林内雨の  $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$  比の季節変化

現在, 関東では, スギ, 日光連山のダケカンバ, シラビソ, 大山のモミ等, 樹木の衰退が顕在化しつつあり, 最近になり, その原因調査が多く行われるようになってきているが, このうち, 高橋<sup>10)</sup>, 梨本<sup>11)</sup> はスギ枯れについて総合的な調査を行い, その原因物質は特定できないものの, スギ衰退の主因は光化学二次生成物質の可能性が強いと報告している。

本調査で得られた結果はこのことを指し示しているものと考えられ, 今後, 関東の広い範囲で,  $\text{HNO}_3$  ガス,  $\text{H}_2\text{SO}_4$  ミストの実態調査及び樹幹流, 林内雨の成分調査を行う必要があると考える。

## 7. まとめ

1991年3月~1992年4月までの約1年間, 横浜市磯子区で, ヒノキを対象樹木として, 樹木内外の降水物, 樹幹流を1降水毎採取し, その成分濃度を分析した。その結果得られた樹幹流初期1ℓの分画データと調査地点付近の  $\text{SO}_2$ ,  $\text{NO}_2$ , SPM,  $\text{O}_x$  などの常時監視局データのを比較し, 樹木汚染と大気汚染物質との関係を検討した。その結果, 次の事がわかった。

- (1) 樹幹流の成分濃度と降水間隔の関係を検討した結果, ほとんどの成分は有意な正の直線関係を示し, 降水間隔が長くなるほど, 樹木の汚染が進んでいくことがわかった。
- (2) 樹幹流の  $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{NO}_3^-$  濃度と大気汚染物質の関係を検討した結果,  $\text{SO}_4^{2-}$  はその前駆物質である  $\text{SO}_2$  の累積濃度及び SPM の累積濃度と有意な関係を示したが,  $\text{NO}_3^-$  はその前駆物質である  $\text{NO}_2$  の累積濃度及び SPM の累積濃度と有意な関係を示さなかった。
- (3)  $\text{O}_x$  が 60ppb 以上を示した時間数と樹幹流の  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$  濃度との関係を検討した結果, これらは共に非常に有意な相関を示した。これより, 光化学反応により生成された  $\text{HNO}_3$  ガス,  $\text{H}_2\text{SO}_4$  ミストが樹木に多量に沈着していることが推測された。
- (4) 非光化学時における樹幹流の  $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{NO}_3^-$  濃度と大気汚染物質の関係を検討した結果,  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$  とともに,  $\text{NO}_2$ ,  $\text{SO}_2$  及び SPM の累積濃度と有意な関係を示した。これより, 光化学スモッグの影響があまりない時期(秋, 冬及び春, 夏でも日射量の少ない時期)の  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$  の樹木汚染は, その前駆物質である  $\text{NO}_2$ ,  $\text{SO}_2$  が樹木に吸着して, そこで酸化されて  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$  になる過程及び, 大気中で生成された粒子状の  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$  が樹木に沈着していく汚染されていく過程が考えられた。
- (5) 光化学時と非光化学時の  $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$  比を比較した結果, 光化学時は非光化学時に比べ, その比が大きくなることがわかった。

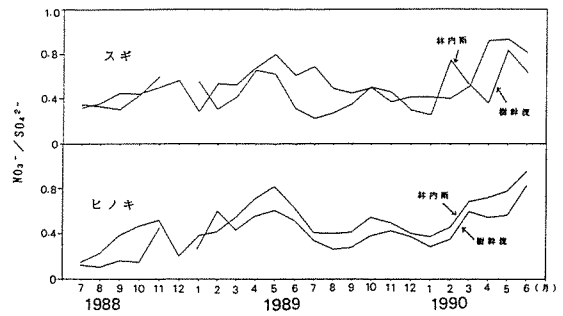


図-16 筑波における樹幹流, 林内雨の  $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$  比の季節変化 (岡本等<sup>14)</sup>の結果を筆者が計算し, 図示した。)

(6) 筑波における樹幹流の  $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$  比の季節変化を調べた結果, その挙動は光化学スモッグの影響を示す, 春から夏に大きくなる特徴を示した。このことから, 東京, 川崎等の都市・工業地帯から排出された汚染物質が光化学反応で  $\text{HNO}_3$  ガス,  $\text{H}_2\text{SO}_4$  ミストなどに二次生成されながら内陸部に輸送され, そこでこれらが樹木に沈着されていることが示唆された。

## 8. 文献

- 1) H. Hulutberg and P. Grennfelt: Water, Air and Soil Pollution, 30, 31-46(1986).
- 2) 紺ゴルフの緑化促進協力会: 酸性雨-生態系に与える影響-(1989).
- 3) 田村 明: 酸性雨, 新曜社(1986).
- 4) 関口恭一他: 関東地方における酸性降水物とスギ枯れについて, 第26回大気汚染学会講演要旨集, 349(1985).
- 5) 杉本龍志, 相原啓次, 古川昭雄: 森林衰退の現状-丹沢大山モミ林の場合-, 第30回大気汚染講演要旨集, 364(1989).
- 6) 吉武孝, 後藤義明, 岡野通明: 北関東山岳林における樹木枯損について, 103回日林論, 249-251(1992).
- 7) 加藤善徳, 矢本てるみ: 都市域における林内雨・樹幹流(1)-樹木内外雨の成分組成と年間降水量-, 横浜市環境科学研究所報第19号, 35-46(1995).
- 8) 横浜市環境保全局資料
- 9) 横浜市環境化学研究所: 酸性雨に関する調査研究報告書(1993).
- 10) 高橋啓二: 日本の杉枯れ現象の実態(野外生態の立場から), 第2回酸性雨問題研究会シンポジウム, 1-4(1994).
- 11) 梨本 真: スギの衰退と大気二次汚染物質との関係, 電力中央研究所報告, U93017(1993).
- 12) 横浜市公害研究所: 南関東地域における光化学大気汚染に関する総合調査報告書(1983).
- 13) 鶴田治雄: 沿岸都市域から内陸域への光化学汚染気塊の輸送と変質過程(I)-1983年夏期調査の事例解析-, 横浜市公害研究所報第9号, 29-37(1984).
- 14) 岡本玲子他: 筑波地区における降雨の化学的性状に関するモニタリングデータ(1985年~1990年), 農業環境技術研究所資料第13号(1992).

# 都市での植生指標を用いたヒートアイランド現象解析のためのNVIモデル(その2)

—季節による特性—

佐俣 満夫\*

## 要 旨

前報<sup>1)</sup>では夏期の都市での温度上昇について人工衛星データを用いて解析したが、今回は季節について解析した。その結果、前報と同様の手法を用いると、季節によっては誤差が大きくなる場合が生じたため、新たにマトリックスモデルを考案し、これによって解析することにより良い結果が得られた。そこで、横浜地域での今後の植生減少による温度上昇を推定した結果、夏期に比べて冬期では植生が減少してもあまり温度上昇はみられないことが推測された。

## 1. はじめに

前報では夏期(1992年6月3日)での横浜地域の温度上昇予測をランドサットデータを用いた解析を報告した<sup>1)</sup>。しかし、年間では、その温度分布が当然異なることが予想され、少なくとも季節別に解析する必要があるため、今回は季節別に解析を試みた。この場合、前報<sup>1)</sup>同様地上温度と植生指標(以下NVI)の直線相関のみの解析では、ランドサットデータによる温度とNVIの一致率が悪くなる(一致しないエリアが多くなる)場合が生じた。そのため温度とNVIの各分類をマトリックス要素として扱い、その中に全データを含むような解析を行うことによって、一致率を高めるモデルを新たに検討したので報告する。なお、解析に使用したランドサットデータは、1993年で横浜地域のデータが得られた5日分と前年の6月分の合わせて6データである。

## 2. 線型モデルとマトリックスモデル

### 2.1 線型モデル(Lモデル)

前報<sup>1)</sup>で用いたランドサットデータから得られる地上温度と植生

指標:  $NVI = (\text{バンド4} - \text{バンド3}) / (\text{バンド4} + \text{バンド3})$  の直線相関より市街域、緑生域、森林域の3つに分類する解析方法をここでは線型モデルと呼ぶ(以下Lモデルと呼ぶ)。このLモデルでの温度とNVIの対象エリアの概念図を図-1に示す。このモデルでは解析要素S(1)~S(3)のエリア内にデータが分布していないと一致率が悪くなり、その分だけ誤差の原因となる欠点がある。例えば1993年の1月29日、4月16日、10月28日のデータをLモデルで解析すると結果は表-1に示すように一致率が50%以下となり、この場合結果にかなりの誤差を含むものと考えられるため、解析不能であると判断した。このような一致率の低い傾向は夏期を除く全季節にみられ、特に温度とNVIの相関図にばらつきがみられる(相関係数が低い)場合や分布に偏りがみられる場合に多くみられた。この原因は主に冬期など地上温度が低くその地域分布の差が小さい場合に相関図がばらつくためと考えられる。

### 2.2 マトリックスモデル(Mモデル)

マトリックスモデル(以下Mモデルと呼ぶ)とはLモデルと同様に、まずNVIより市街域、緑生域、森林域の3分類を作成し、得ら

表-1 横浜地域での線型モデル及びマトリックスモデルによるヒートアイランド解析結果

観測日	線型モデル				マトリックスモデル			
	一致率 (%)	分類数	*:50% 温度上昇 (°C)	*:100% 温度上昇 (°C)	一致率 (%)	分類数	*:50% 温度上昇 (°C)	*:100% 温度上昇 (°C)
1992年6月3日	61	3	0.30	0.60	92	5	0.23	0.45
1993年1月29日	46	3	—	—	100	4	0.02	0.04
1993年3月18日	51	3	0.035	0.07	99	4	0.003	0.007
1993年4月16日	36	3	—	—	89	5	0.2	0.4
1993年5月21日	57	3	0.16	0.32	95	5	0.15	0.29
1993年10月28日	49	3	—	—	84	5	0.12	0.23

\*: 植生減少率 (%)

—: 線型モデルの一致率が50%以下のものは解析不能とする

注: 線型モデルの分類は、すべて市街域、緑生域、森林域の3分類

A model for heat island with Normalized Difference  
Vegetation Index used data of satellite in urban areas (Part. II)

\*Mitsuo Samata, 横浜市環境科学研究所大気部門

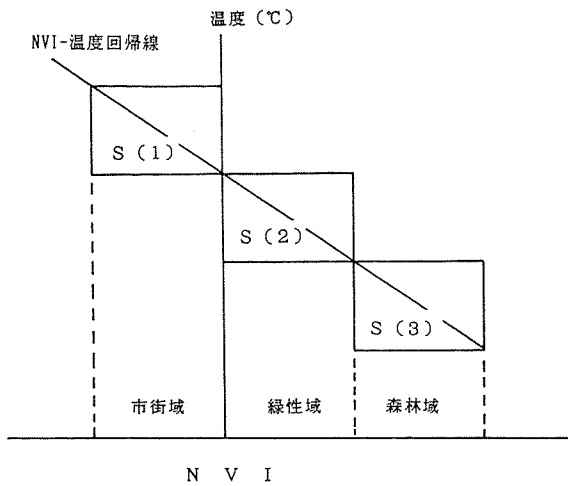


図-1 線型モデル (Lモデル) による基本要素の概念

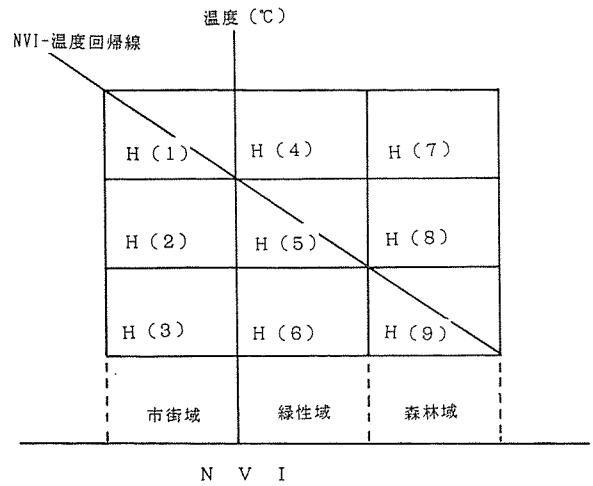


図-2 マトリックスモデル (Mモデル) による基本要素の概念

れる温度と NVI の相関直線から全データを含むように基本要素H(1)~H(9)を設ける。この場合の温度と NVI の要素の概念図を図-2に示す。さらに各要素のなかで、全体に占める割合の少ないもの(5%以下)については他の適当な要素に含め、さらに地上被覆や温度分布特性を考慮して同様な傾向をもつ要素同士をくくり、これを新たな1つの要素とする。このようにして基本要素をそれぞれ独立した特性のある要素にくくり直すことにより、Lモデルより一致率が高く、さらに細かな評価の可能な要素群(分類数)が得られる。

### 2.3 LモデルとMモデルの比較

ランドサットデータの6つの解析結果から、得られたLモデルとMモデルとの分類数と一致率の比較を表-1に示す。Lモデルでは一致率が36~61%程度と低かったが、Mモデルでは84~100%と著しく向上している。また、Lモデルでの分類数は常に3であるが、Mモデルでは4~5と増加する傾向をもつ。この分類数は前報<sup>1)</sup>で述べたマクロモデル構築の上での地上観測点を設定するためには少ない方が望ましいと言える。

Lモデル及びMモデルでの横浜市域の植生が100%減少した(すべて市街地となった)場合の温度上昇予測(人工衛星観測時)をみるとMモデルでの結果の方がすべて低い値を示している。さらに、Mモデルでの温度上昇予測は夏期が最も高くなる傾向を示し、冬期では植生が減少してもあまり温度上昇はみられない。また春期では

温度上昇予測は3月18日で0.1°C以下であるが、4月16日では0.4°Cとなり、春期の気象変動の著しさを窺わせた。

### 2.4 マトリックスモデルによる地域分類

図-3に1993年5月21日(夏期)での横浜市域のMモデルによる温度特性を加味した地域分類を示す。ここでは市街域は温暖と寒冷域に分かれ、温暖域は主に内陸に、寒冷域は臨海部に分布している。これは臨海部は夏期の午前中は低い海水温の影響を受けるためと考えられる。また緑生域も温暖と寒冷域に分かれ、寒冷域は田、畑、公園などであるが、温暖域は主に緑の多い住宅地であると考えられる。森林域は樹木の多い植生活性の大きな地域である。

冬期の例として、1993年1月29日のMモデルでの地域分類を図-4に示す。冬期では落葉等により見かけ上森林域は1%以下に減少するためモデル上では無視した。他の分類は見かけ上夏期と同様となるが、その中味はかなり異なる結果が得られた。温暖市街域は夏期と逆に臨海部に集中するが、これは海水温が高くなっているためと考えられ、一方寒冷市街域は内陸市街と緑生の多い住宅地の一部にみられる。また、温暖緑生域は緑生の多い住宅地の内比較的湿度の高い地域であり、寒冷緑生域は田、畑、公園、森林などである。さらに、冬期の午前中(9時30分頃)は日射の影響がまだ小さいため、横浜市全域にわたり温度差が小さいのが特徴である。

これらの結果を基にMモデルによる温度特性を加味した地域分類

表-2 各人工衛星観測日での分類と年間でもとめた5分類との比較

マトリックスモデルによる分類	'92年6月3日(夏)	'93年1月29日(冬)	'93年3月18日(春)	'93年4月16日(春)	'93年5月21日(夏)	'93年10月28日(秋)	年間でのNVIの分類
臨海市街域	寒冷市街域	温暖市街域	寒冷市街域	寒冷市街域	寒冷市街域	寒冷市街域 温暖市街域	常時市街域
内陸市街域	温暖市街域	寒冷市街域	温暖市街域	温暖市街域	温暖市街域	温暖市街域	常時市街域 緑生変化域
緑生市街域	温暖緑生域(南部)	寒冷市街域 温暖緑生域	温暖市街域 寒冷市街域 温暖緑生域	温暖緑生域(北部)	温暖緑生域(北部)	温暖緑生域(南部)	緑生変化域
緑生域	寒冷緑生域	寒冷緑生域	寒冷緑生域	寒冷緑生域	寒冷緑生域	寒冷緑生域	緑生変化域 常時緑生域
森林域	森林域	寒冷緑生域	寒冷緑生域	森林域	森林域	森林域	森林域



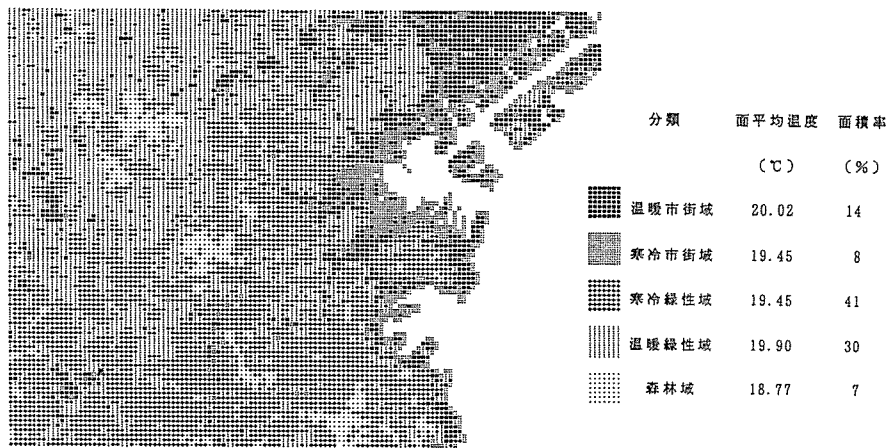


図-3 マトリックスモデルによる横浜市域の夏期での地域分類  
(1993年5月21日午前9時30分観測)

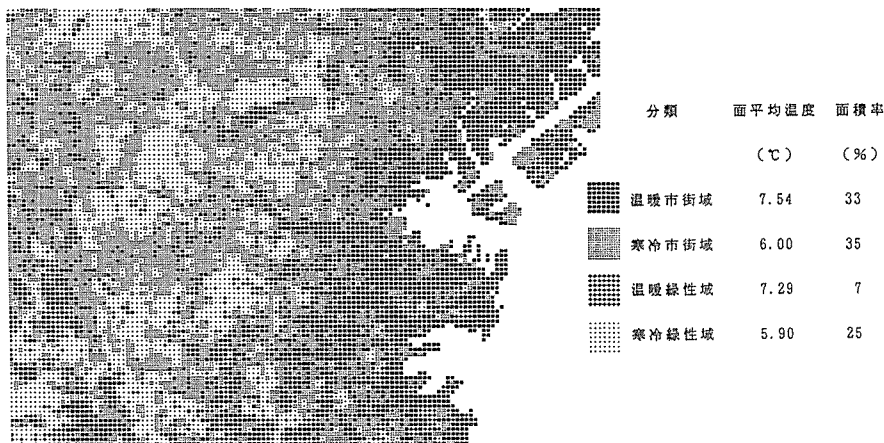


図-4 マトリックスモデルによる横浜市域の冬期での地域分類  
(1993年1月29日午前9時30分観測)

を年間でまとめると、臨海市街域、内陸市街域、緑生市街域(緑の多い住宅地)、緑生域(田、畑、公園)、森林域の5分類としてまとめられる。そしてこれらの分類された地域は季節によって特有な温度特性をもっており、この5分類と各観測日での分類との比較を表-2に示す。ここで、上記5分類での季節毎の特徴的傾向について下記に概説する。

「臨海市街域」

臨海市街域は、主に海水温の影響を受ける臨海部の工場及び商業地域に分布しており、人工衛星観測時の午前中には海水温の影響を受け、海から1~2 Kmの内陸に分布する。この地域は、海水温による影響で夏期は低温となり、冬期は逆に内陸より高温となる現象がみられる。したがってこの現象は、たとえ植生が減少しても変化しないものと考えられる。

「内陸市街域」

内陸市街域は、日射や人工放熱の影響を直接受ける市街域と考えられ、冬期の午前中は、日射の影響がまだ小さいため低温であるが、夏期をはじめ春や秋では比較的高温となる。

「緑生市街域」

緑生市街域は、前報<sup>1)</sup>で述べたような NVI では緑生域であるが、温度分布では市街域と判別される地域であり、主に緑の多い住宅地より成り立っている。概略的には冬期は低温、夏期には高温の傾向

を示すが、後述する年間での NVI の分類では、緑生変化域に相当し、植生の繁茂状況や活性度あるいは「港北ニュータウン」など開発の影響を強く受ける地域と考えられ、特に春及び秋では観測日によってその対象地域や温度分布も変化し、分類中最も判別の難しい地域である。

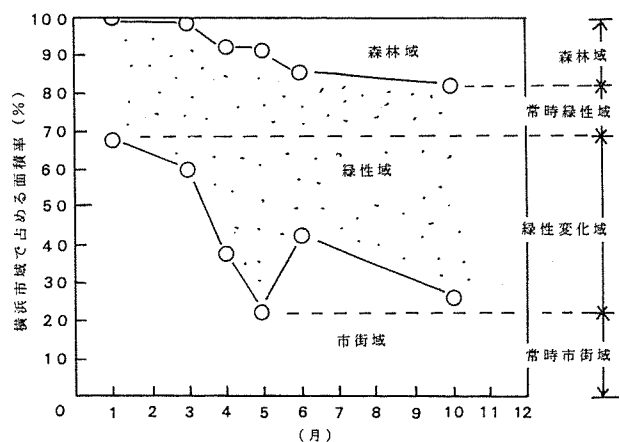


図-5 年間の NVI 変化より得られる3分類による横浜市域の割合の変化 (1993年)

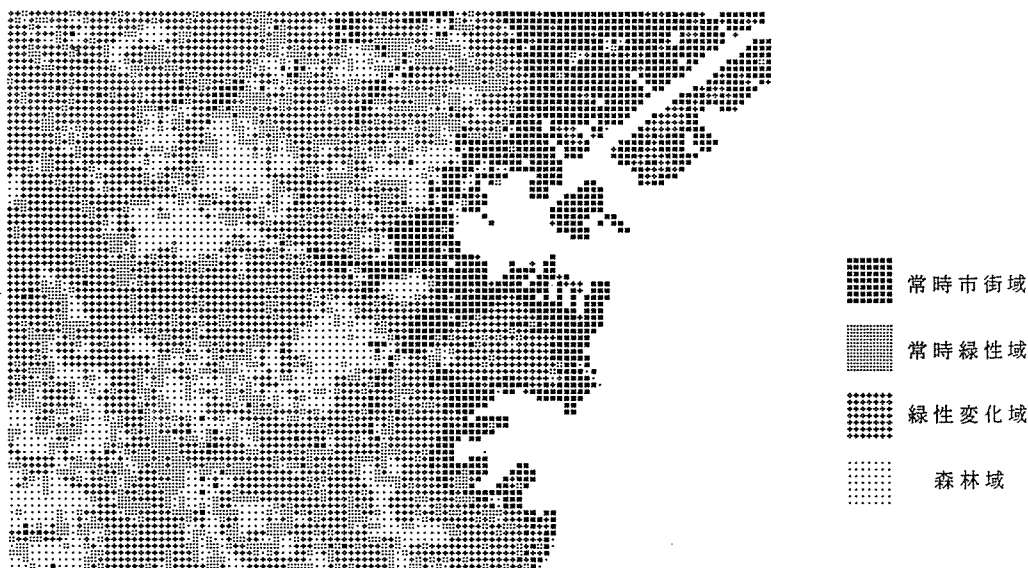


図-6 NVI 変化より得られた年間での横浜市の地域分類

#### 「緑生域」

緑生域は、田、畑、草地などであり、温度分布では年間を通して低温部分に属する。しかし、都市部では、その土地利用や開発のため分布状況はかならずしも一定とはならないことが推測される。

#### 「森林域」

森林域は、日中ではほぼ年間を通して最も低温な地域である。しかし、植生活性度などから、夏期では横浜地域で占める割合が15%以上となるが、冬期では1%以下に見かけ上減少する。そして、現在は横浜市の設定した「緑のトライアングル」上に一応分布しているが、横浜地域北西から南東へのライン上での分布が主であり、鶴見及び港北区での森林部は徐々に消失する傾向がみられる。

### 3. 年間での植生指標による分類

植生指標 (NVI) が植生の活性度や繁茂状況を表す指標とすれば、季節によってその値は変化し、その結果 NVI より得られた各分類の割合も変化するものと考えられる。そこで、年間(四季)を通じて対応できる NVI による分類図を作成しておくことは、今後の解析のために重要である。図-5 に年間(1993年)での NVI より得られた市街域、緑生域、森林域の横浜地域に占める各割合の変化を示す。これより、冬期になるほど森林域、及び緑生域は減少する傾向を示すが、4~5月では市街域が緑性域になるなど緑生域が急激に増加する傾向がみられる。これは、この時期が最も植生の活性が高くなり、繁茂状況も急速に拡大するためと考えられる。この図より計算すると、年間の NVI による分類としては、常時市街域と森林域がそれぞれ20%、そして緑生変化域(緑生が季節により拡大あるいは衰退する地域)が50%、常時緑生域が10%程度となるものと考えられる。これを横浜地域内に分布させた分類図を図-6 に示す。ま

た年間での NVI による分類と M モデルによる各分類との比較を表-2 中に示す。ここで、年間での NVI で分類された緑生変化域を季節での変化の中で注意深く考慮すれば、年間の NVI で分類された地域と M モデルによる年間での5分類地域とは、概ね対応するものと推測された。

### 4. おわりに

ランドサットデータを用いて1993年を中心に季節別にヒートアイランド解析のための NVI モデルにより解析した結果、以下のようない見が得られた。

- (1) 線型モデルとマトリックスモデルの解析の結果、線型モデルでは一致率が36~61%と低く夏期以外では解析不能(50%以下)な場合があった。マトリックスモデルでは一致率が84~100%と高く、線型モデルより精度は向上するが、分類数も増加する。
- (2) 温度上昇を予測すると、夏期より冬期になるほど低くなる傾向があり、植生減少率が100%では、夏期で0.3~0.6℃であり、冬期では0.1℃以下と推測された。また春期は気候の変動に伴い温度上昇もかなり変動するものと考えられた。
- (3) マトリックスモデルによる分類は季節によって4~5に分類され、いずれも臨海市街域、内陸市街域、緑生市街域、緑生域、森林域としてまとめられたが、季節毎によって特有な温度特性があることがわかった。

### 文 献

- 1) 佐佐: 都市での植生指標を用いたヒートアイランド現象解析のための NVI モデル, 横浜市環境科学研究所報, 18, 21-26(1994).

# 都市における地表温度の特性 (その1)

佐俣 満夫\*

## 要 旨

横浜市環境科学研究所周辺の宅地、林、草地、樹木等について、主に晴天日での年間の表面温度を観測した結果、その表面温度は宅地>草地>林及び樹木の順に高くなる傾向を示した。また各表面温度と気温の関係も季節により特有な傾向がみられ、特に夏期では直線相関としてまとめられる場合が多かった。さらに林、樹木などの植生の表面温度と気温の間には、年間を通じて観測値が一致する傾向がみられ、植生の存在が温度を抑制するのに重要な役割を担っていることが推測された。

## 1. はじめに

都市でのヒートアイランド現象を解明するにあたって、地上被覆状況により、特有な表面温度特性があることが推測されている<sup>1)</sup>。そして、その特性も年間を通じて変化することも分かりつつある<sup>2)</sup>。さらに地表温度と気温や日射量を知ることも重要である。そこで、当研究所では1993年6月より研究所周辺の宅地や林を対象として、放射温度計を用いた対象物の表面温度の観測を開始した。雨天や曇天では日射が少ないこともあって各対象物の表面温度同士あるいは気温との差はほとんどみられない。そこで、晴天日を中心とした1993年6月～1994年5月の1年間(ここで、以下に単に年間と言う場合はこの1年間を言う)での宅地、林、樹木等の表面温度を観測し、一定の知見が得られたので報告する。

## 2. 観測装置及び観測対象地域

地上対象物の表面温度の測定は放射温度計(タスコ製 THI-301)を用いた。放射温度計は図-1に示すように主に当研究所屋上に設置し、周辺の宅地、林、草地、樹木、研究所屋上について行った。対象とした林はコナラやくずの葉などによる雑木林であり、草地は研究所に隣接する万治病院跡地である。樹木は当研究所の庭木であるケヤキとニレである。なお、研究所屋上での測定は季節によって日陰が生じるため夏期のみとした。また観測地域周辺の気温及び日射量は当研究所屋上での常時観測結果で代表させた。

放射温度計での温度測定には予め対象物の放射率を設定する必要がある。そこで、放射温度計と精密温度計による対象物の比較測定により簡易的に放射率を求めると、表面温度が0～50℃の範囲では、すべて放射率を1.0とすることでほぼ測定値が一致したのでこの値を用いた。

## 3. 表面温度の特性

夏期の晴天日の例として、1993年6月17日での当研究所屋上及び草地の表面温度及び気温の経時変化を図-2に示す。各温度は研究所屋上の表面温度>草地の表面温度>気温の順に高く、各温度の日変化は気温で20～25℃に対し、草地の表面温度では26～38℃、屋上では30～52℃と日中の屋上(コンクリート)は50℃を越えるのが

みられた。また1994年1月25日(冬期の晴天日)の宅地と林の表面温度の経時変化を図-3に示すが、冬期の日中は日射により宅地は30℃程度に上昇するが、林の表面温度は気温とほぼ同じように変化していた。

そこで、季節別に分けた年間での宅地に対する草地、林、樹木のそれぞれの表面温度の比較を図-4～6に示す。

宅地と草地の表面温度の比較(図-4)では、四季を通じて夜間はほぼ等しい値となるが、日中はいずれも宅地の方が高くなる。季節別の変化の傾向としては、主に夏期とその他の季節によって分かれ、それぞれ宅地と草地の表面温度の間には季節別による直線相関が認められた。

宅地と林の表面温度の比較(図-5)では、その傾向はやはり季節によって分かれ、その相関の直線性は夏期になるほど良い。また夏期では宅地の表面温度が林のそれより低くなることはほとんどみられないが、その他の季節では日中を除く主に夜間で林の表面温度の方が宅地のそれより高くなる現象がみられ、冬期になるほど顕著である。これは主に冬期になるほど夜間での放射冷却が促進され、道路や人工建造物はそれとともに温度が低下するのに対し、植物の葉は、それ自身あまり温度が低下しないように作用するためと考えられる。したがって、冬期では日中は日射によってヒートアイランド化が促進されるのに対し、夜間では放射冷却により逆にクールアイ

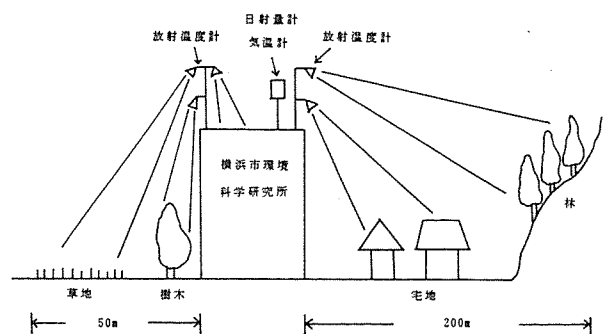


図-1 観測対象地域

The characteristic on temperatures of ground surface in urban areas (Part. I)

\*Mistuo Samata, 横浜市環境科学研究所大気部門

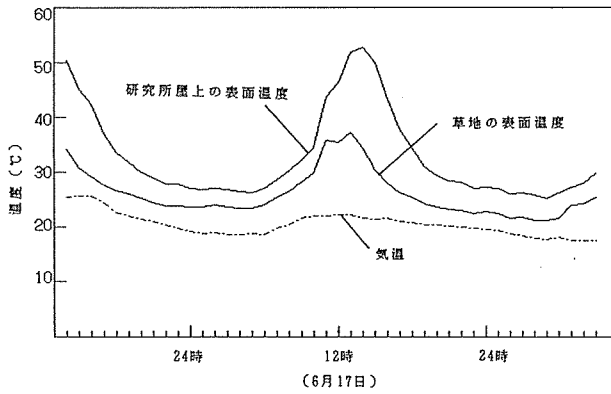


図-2 夏期での研究所屋上及び草地の表面温度と気温の経時変化(1993年6月17日)

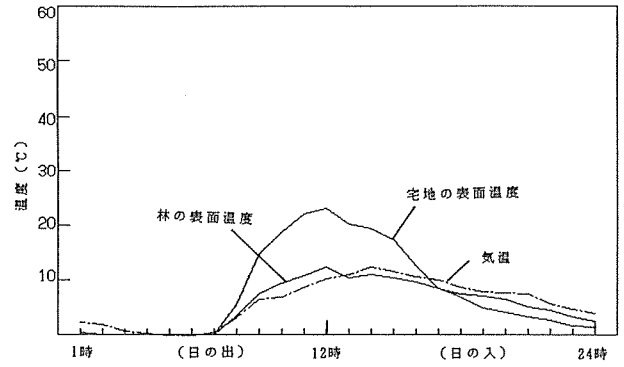


図-3 冬期での宅地及び林の表面温度と気温の経時変化(1994年1月25日)

ランド化が生じるものと推測される。

さらに、宅地と樹木の表面温度の比較(図-6)では、その傾向は図-5の場合とほぼ同様となり、樹木と宅地の表面温度の相違を顕著に示しているものと考えられる。

#### 4. 表面温度と気温の関係

宅地の表面温度と気温の比較を図-7に示す。夏期は他の季節

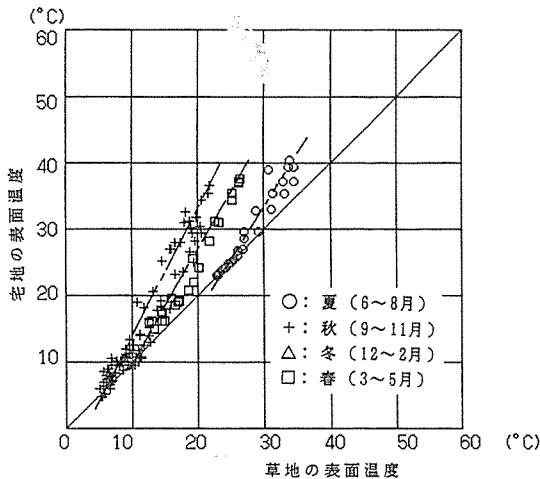


図-4 宅地と草地の表面温度の比較

と比べて最も良い相関がみられるが、冬期になるほど夜間に表面温度より気温の方が高くなる傾向がみられる。そこでこの傾向は図-5と同様なパターンとなるが、これは後述するように樹木は気温とほぼ同じ値をもつ傾向があるためと考えられる。そして、秋と春はその変化幅が大きく、特に春期は短時間の内に最も大きく変化する。

草地の表面温度と気温の比較を図-8に示す。この図では、夏期から冬期になるほど $Y=X$ の直線の下方に分布し、草地の表面温度より気温の方が高くなる時間が増す傾向を示す。これは草地は樹木より直接地表の影響を受け易いので、草地の温度特性はちょうど宅地と林の間になるように変化するためと考えられる。ここで、図-7、8中の1994年5月17日のデータは年間データの中で他に比べて著しく気温が高く、特異的な傾向を示している。これは1994年夏の猛暑の兆しがすでにこの時期には始まっていることを示している。

林の表面温度と気温の比較を図-9に示す。これより林の表面温度は日中では1~2°Cほど気温より高くなり、夜間では逆に1~3°Cほど低くなるが、概ね年間を通して表面温度と気温はほぼ一致する傾向を示した。さらに樹木の表面温度と気温の比較を図-10に示すが、この図では図-9よりその一致度はさらに顕著である。これらの結果はヒートアイランドの解析上きわめて重要な知見である。これは、樹木は日中、気孔での水分の蒸発散作用による蒸発潜

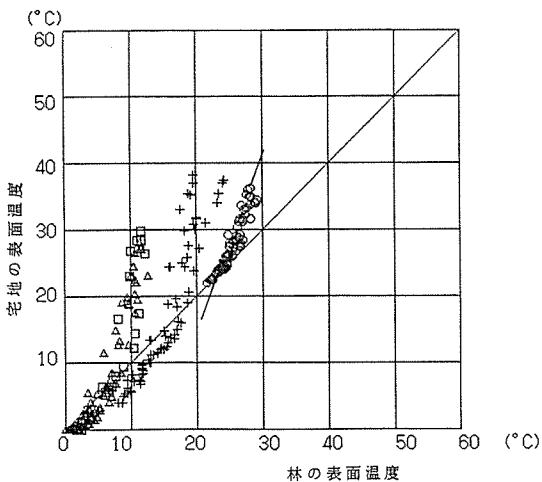


図-5 宅地と林の表面温度の比較

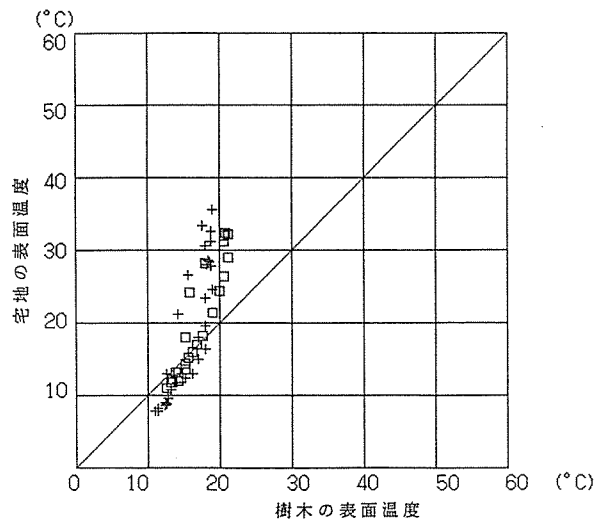


図-6 宅地と樹木の表面温度の比較

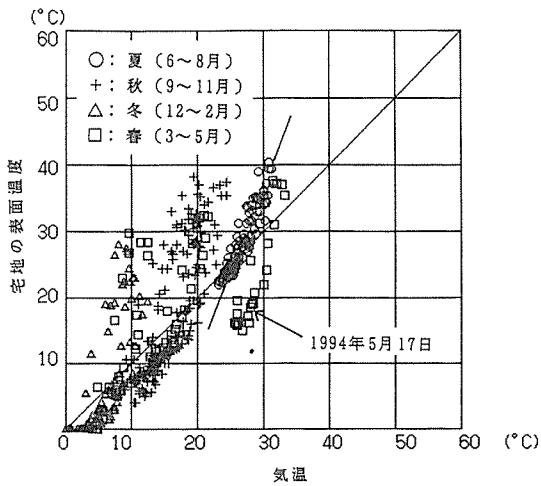


図-7 宅地の表面温度と気温の比較

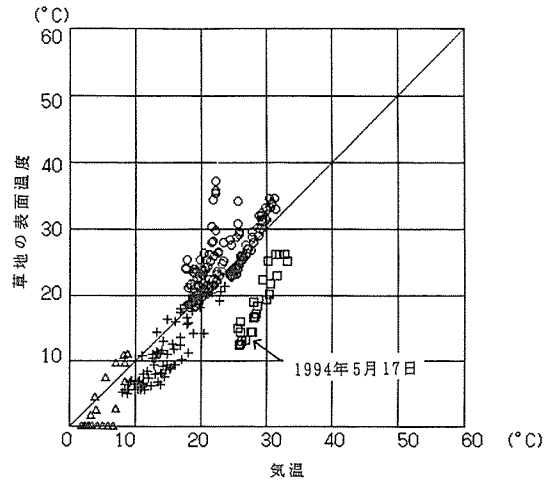


図-8 草地の表面温度と気温の比較

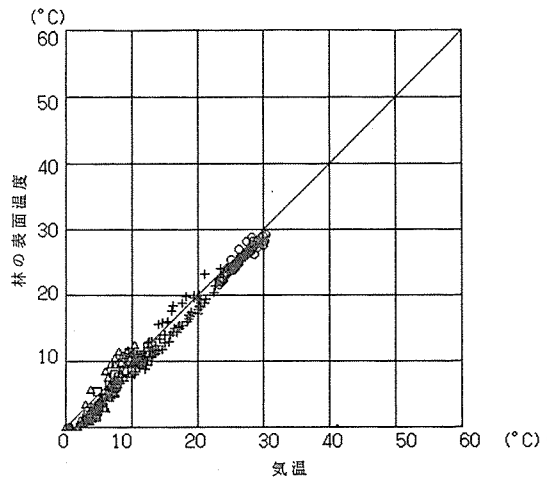


図-9 林の表面温度と気温の比較

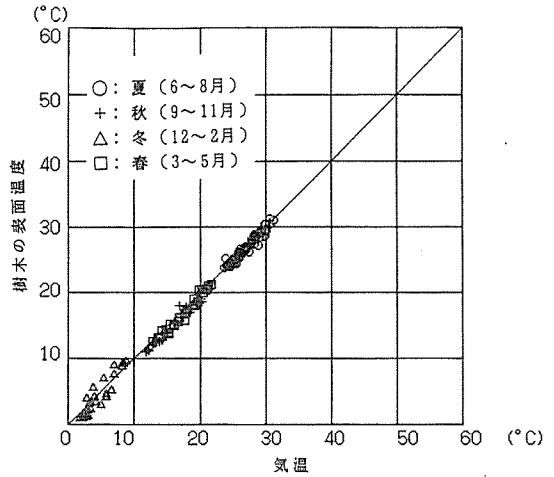


図-10 樹木の表面温度と気温の比較

熱により、葉の表面が高温となるのを抑制するように働くが、葉の表面を大気温度まで下げても少量の樹木の葉の繁茂量ではそれ以下に下げだけの能力がないため、葉の表面温度が大気温度に留まるためと考えられる。また冬期の夜間など地表温度が放射冷却により気温より低下しても、樹木の表面温度は周辺の大気温度の方が大きく影響するものと考えられ、いずれにしても樹木の表面温度は年間を通して気温とほぼ等しくなるように作用するものと考えられる。

したがって、森林などの樹木の多い地域では、夏期には植生全体として気温自体を低下させ得るだけの能力があると考えられ、いわゆる「森は涼しい」という現象が生じるものと考えられる。また逆に街路樹などにみられる人工建造物に囲まれた過酷な環境下では、地表の表面温度の影響を直接受けた外気温の変化に適応できなくなる植生が増えることも予想され、今後都市での生態系が徐々に変化する可能性がある。

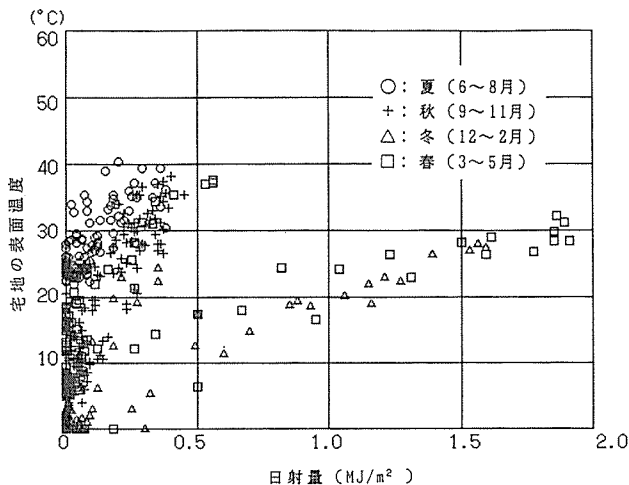


図-11 宅地の表面温度と日射量の比較

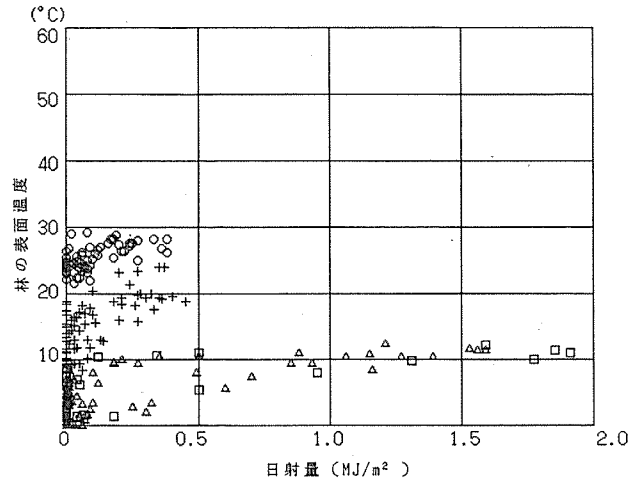


図-12 林の表面温度と日射量の比較

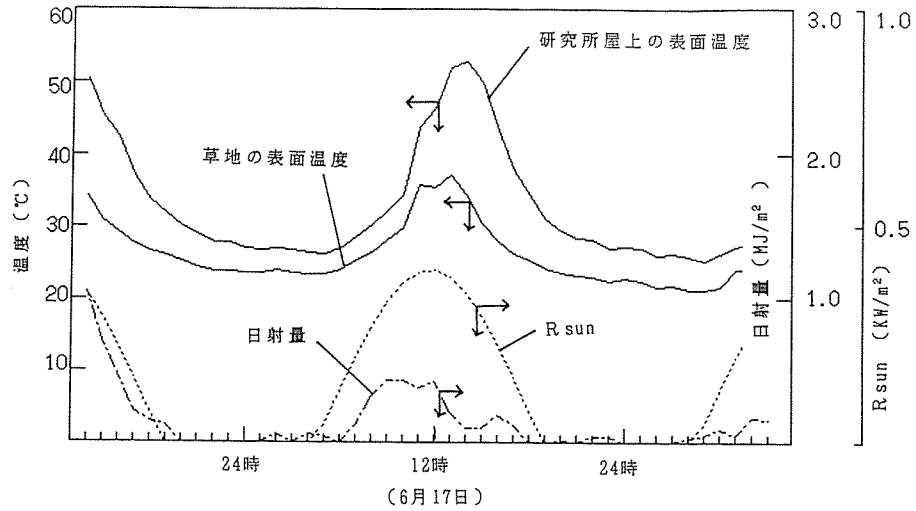


図-13 夏期での研究所屋上及び草地の表面温度とRsun及び日射量の経時変化(1993年6月17日)

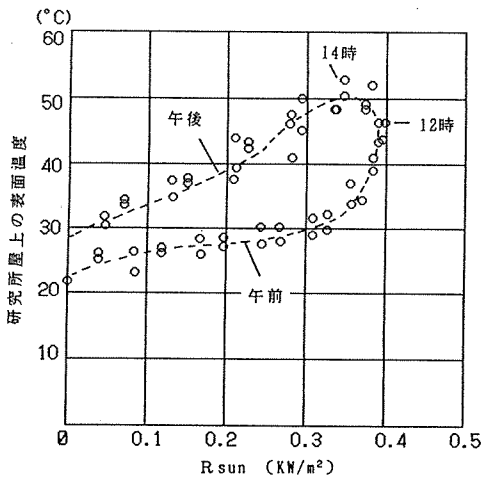


図-14 夏期での研究所屋上の表面温度とRsunの日変化(1993年6月17日)

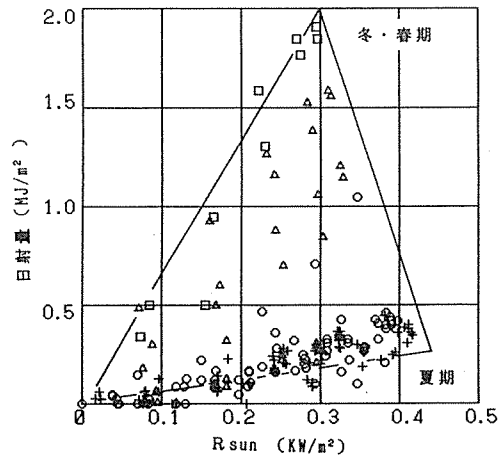


図-15 Rsunと日射量の年間比較

### 5. 表面温度と日射量の関係

対象物の表面温度が太陽の日射の影響を強く受けるものとするれば、表面温度と日射量の関係を知ることは重要である。そこで図-11に年間での宅地の表面温度と日射量の関係を示す。一般に日本などの中緯度地域では太陽の日射は夏至(6月)で最も強く、冬至(12月)で最も弱くなると考えられる。しかし、図に示すように地上で観測された日射量は夏、秋ともに $0.5(\text{MJ}/\text{m}^2)$ 以下と低いが、冬及び春の1~4月の期間では $1.5\sim 2.0(\text{MJ}/\text{m}^2)$ と増加し、この期間の日射量と宅地の表面温度とは一定の直線相関がみられる。この1~4月期に日射量が増加するのは、太陽から地球への日射そのものが增大するのではなく、この時期の季節風や上昇気流等の影響により大気透明度が増す結果、大気中の太陽光の散乱や吸収が少なくなり、地上への単位当りの到達量が増加するためである。次に林の表面温度と日射量の関係を図-12に示すが、気温と日射量の間でも同様の傾向となった。この場合、日射量が増加する1~4月期でも温度は $10^\circ\text{C}$ 前後とあまり変化しない。

### 6. 地上到達太陽放射エネルギーと日射量

上述したように地上で観測した日射量が増加しても、かならずしも表面温度や気温が年間では上昇するわけではないことがわかった。

地上で観測された日射量では、太陽日射が地上に到達するまでには、成層圏や対流圏中でエアロゾル、気流、水蒸気、ガス状物質などの影響を受け、さらに日射量計の機器誤差や地上の人工光や反射光などの影響も受ける。そこで太陽光が直接地上に到達する放射エネルギーと地上で観測した日射量との比較が必要となる。

ここで、地上到達太陽放射エネルギーをRsunとすれば、以下のよう表される<sup>3)</sup>。

$$R_{\text{sun}} = S \cdot V \cdot (1 - \alpha) (\sin \omega \cdot \sin \delta + \cos \omega \cdot \cos \delta \cdot \cos H) \quad (1)$$

ここで、

Rsun : 地上到達太陽放射エネルギー( $\text{KW}/\text{m}^2$ )

S : 太陽定数= $1.382(\text{KW}/\text{m}^2)$

V : 大気透過率 (-)

$\alpha$  : 太陽の地上反射強度(=0.53)

$\omega$  : 横浜の緯度( $35^\circ 25'$ )

$\delta$  : 太陽の赤緯

H : 太陽の時角

である。

そこで、図-2で示した1993年6月17日のデータを用いて求めたRsunと日射量の経時変化を図-13に示す。Rsun( $\text{KW}/\text{m}^2$ )と日射量( $\text{MJ}/\text{m}^2$ )とは単位が異なるので簡単には比較できないが、日中での変化パターンが異なっているのがわかる。これは日中は

太陽放射が点線で示すように降り注いでいたにもかかわらず、大気エアロゾルや雲などによる吸収・散乱により日射量は一点鎖線のように変化していることを示している。そして  $R_{sun}$  は12時で最大となるが、研究所屋上の表面温度の最大は14時と遅れて出現している。当日の研究所屋上の表面温度と  $R_{sun}$  をプロットしたものを図-14に示す。この日の屋上表面温度と  $R_{sun}$  の日変化は図のようにループ状の曲線として変化し、午前中は  $R_{sun}$  の上昇とともに、曲線の下半分のように表面温度も上昇し、12時頃に  $R_{sun}$  は  $0.4\text{KW}/\text{m}^2$  と最高に達する。しかし、表面温度はなお上昇を続け、14時頃最高値となるが、 $R_{sun}$  はすでに  $0.35\text{KW}/\text{m}^2$  に下がっている。さらに午後の表面温度の減衰は曲線の上半分のように推移し、同じ  $R_{sun}$  即ち日射量に対して午前より午後の方が温度が高い。これは午前中に受けた熱が建物等に蓄積されているためである。つまり例えば  $R_{sun}$  が同じ  $0.2\text{KW}/\text{m}^2$  である午前7時と午後5時を考えた場合、この10時間の間に太陽放射等による熱の蓄積と建物から大気への放熱の差として約  $10^\circ\text{C}$  分に相当する熱が屋上に蓄積されているものと考えられる。

次に、年間での  $R_{sun}$  と日射量との関係を図-15に示す。 $R_{sun}$  と日射量はほぼ図中の三角形の内側の範囲で変化するものと考えられ、夏及び秋の変化は三角形の右下端のように変化し、冬及び春では三角形の上端のように変わるものと考えられる。

## 7. おわりに

当研究所の周辺の宅地、林、草地、樹木及び屋上の表面温度及び気温、日射量等を1993年6月から1994年5月までの1年間について測定した結果以下のような知見が得られた。

(1) 各観測対象地域における表面温度の間には、季節別に分類すると直線相関を示すものが多くみられた。特に夏期での相関が高かった。また夜間での表面温度同士の比較では、冬期になるほど宅地より林、樹木の方が表面温度は高くなる傾向がみられた。

(2) 表面温度と気温との関係では、林や樹木などは年間を通して表面温度と気温はほぼ一致して変化することがわかった。また宅地の表面温度は日中は気温より高くなるが、夜間になると気温より低くなるのがみられ、この傾向は冬期になるほど大きくなることがわかった。

(3) 日射量と表面温度及び気温との相関はあまり認められなかったが、当研究所屋上での表面温度と計算で求めた地上到達太陽放射エネルギーとの関係より、日中に蓄積される熱の変化が温度差として推測された。

以上、今回は観測初年度での知見であるが、今後はここ数年の冷夏や猛暑の影響などさらに経年的に観測を続けるとともに、横浜市内の代表的な市街地や森林域等に常時観測点を設けて面的な観測を行い、その結果と人工衛星データによる解析を結合していく必要がある。

## 文 献

- 1) 佐俣：都市での植生指標を用いたヒートアイランド現象解析のための NVI モデル，横浜市環境科学研究所報，18，21-26(1994)。
- 2) 佐俣：都市での植生指標を用いたヒートアイランド現象解析のための NVI モデル(その2) -季節による特性-，横浜市環境科学研究所報，19，27-30(1995)。
- 3) Price.J.C: *Remote Sensing Environ.*，18，59-73(1985)。

# 非放射線源式 ECD/GC による環境大気中の N<sub>2</sub>O, フロン同時測定

平野 耕一郎\*

## 要 旨

N<sub>2</sub>O 及びフロンの測定は一般に放射線源式の ECD/GC 法で行われている。今回、非放射線源式の ECD/GC を用い、少量の分析試料量(75ml 以下)により、大気中の N<sub>2</sub>O 及びフロンを高分解能の濃度(目標値: 1ppb 以下)で精度よく同時連続分析する装置について検討し、更に多数地点の試料採取に適するグラブサンプリング法についても検討した。その結果、放電ガス(He), ディスチャージガス(CO<sub>2</sub>)及びキャリアーガス(He)に純度99.9999%のものをを用い、さらにマスフローコントローラーを使用し、これらのガス流量変動を小さくしたことにより、変動率1%以下で測定感度をほぼ一定にすることが可能になった。そこで、大気中の N<sub>2</sub>O 及びフロンを同時に測定する場合、従来、2台の ECD/GC が必要であったが、改良した非放射線源式 ECD/GC では1台で N<sub>2</sub>O, フロンを同時に連続測定することが可能となった。

## 1. はじめに

大気中の亜酸化窒素(N<sub>2</sub>O)は二酸化炭素(CO<sub>2</sub>)と同様に温室効果をもたらす物質であり、フロン(CFC-11, CFC-12, CFC-113)は成層圏のオゾンを増加させる物質である。環境大気中の N<sub>2</sub>O やフロンの測定はそれぞれ一般に電子捕獲型検出器・ガスクロマトグラフ(ECD/GC)法で行われている。現在使用されている多くの ECD/GC はキャリアーガスのイオン化源に <sup>63</sup>Ni などの放射線源物質が用いられているため、使用する場合、放射線取扱主任者の資格を必要とするばかりでなく、さらに科学技術庁に届出及び許可申請を行う必要がある。したがって、放射線源式 ECD/GC (以下、R-ECD/GC と略す)の使用には放射線源の増減量、設置場所の変更や管理など多くの法的規制があり、種々の場所での測定や調査に使用することができない。このようなことから、移動調査が可能な測定機器の開発が求められている。

そこで、法的規制がなく移動が可能で、しかも N<sub>2</sub>O, フロンの同時に分析できる装置を開発するため、放射線源の代りに希ガス雰囲気

気中のグロー放電現象を利用した非放射線源式 ECD/GC (以下、NONR-ECD/GC と略す)を用い、かつ、少量の分析試料量(75ml 以下)で、大気中の N<sub>2</sub>O やフロンを高分解能の濃度(目標値: 1ppb 以下)で精度よく同時に連続測定する方法について検討した。また、発生源周辺地域の環境汚染を調査する目的から、分布調査等の多数地点の試料採取に適するグラブサンプリングによる試料の分析法についても検討したので報告する。

## 2. 測定方法

### 2-1 分析装置

N<sub>2</sub>O, フロン同時分析装置のシステム構成は非放射線源式 ECD/GC (柳本製作所製 AG-1), 自動ガスサンプラ(柳本製作所製 GSL-330A)及びデータ処理装置(日本エクスラン工業製 EGC-10)から構成され、そのシステム構成を図1に示した。また、図2に自動ガスサンプラ付 ECD-GC の流路構成図を示した。

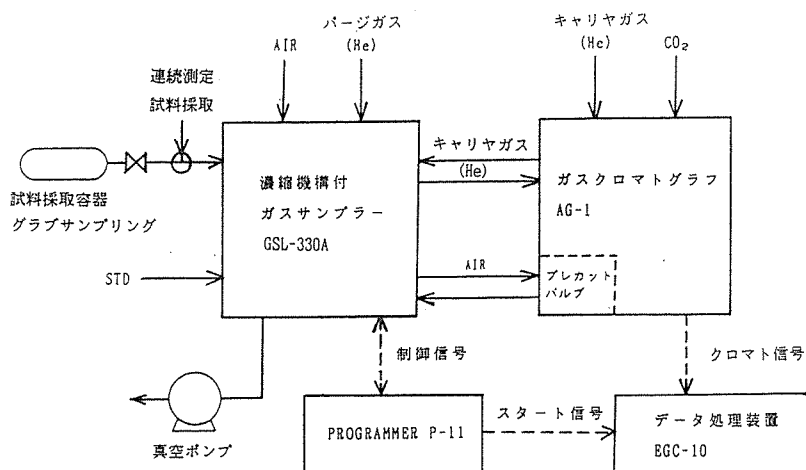


図-1 N<sub>2</sub>O, フロン分析装置の構成図



## 2-2 自動連続分析法

### 2-2-1 試料採取

分析装置の試料採取口に除湿管(除湿剤: 過塩素酸マグネシウム  $Mg(ClO_4)_2$  充填)及び炭酸ガス除去管( $CO_2$  除去剤: ソーダアスベスト)を取付け試料導入した。

### 2-2-2 分析手順

ガスサンプラーの計量管内を真空排気後、試料空気を計量管内にペロースポンプを用いて加圧導入(約 $1.2Kg/cm^2$ )し、大気圧平衡にした。バルブを切換え、 $5^\circ C$ 以下に冷却されたトラップ(吸着剤: ポラパックQ+MX-13X)に試料空気中の $N_2O$ 及びフロンをヘリウムキャリアガスを用いて濃縮後、トラップを加熱( $165^\circ C$ )し、脱着させた試料ガスをECD-GCに導入して、 $N_2O$ 及びフロンを同時分析した。1回の分析に75mlの試料ガスを供し、測定周期は45分間とした。自動ガスサンプラー及びECD/GCの測定条件を表1に示した。

### 2-3 グラブサンプリング法

#### 2-3-1 試料採取容器(図3)

容器本体は長さ288mm、直径126mm、内容積約3L、材質SUS316Lで、内面を電界研磨処理し、空気圧駆動によるバルブと除湿管(除湿剤: 過塩素酸マグネシウム  $Mg(ClO_4)_2$  充填)を容器の片側に装着したものである。

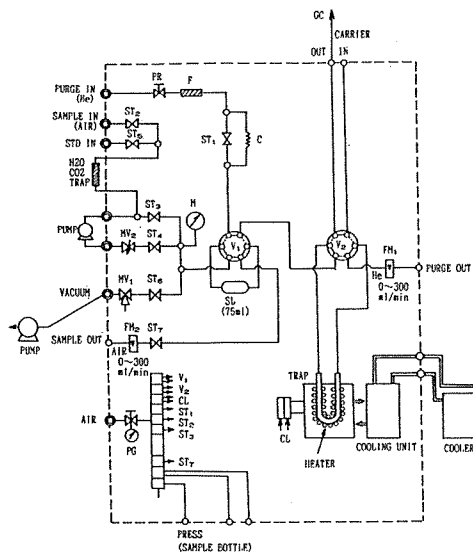
#### 2-3-2 試料採取

測定前に試料容器内を1 torr以下に真空排気後、試料採取口をパラフィルムで密栓した。測定時、バルブを開く直前にパラフィルムを取除き、試料採取後、再度パラフィルムで試料採取口を密栓した。測定の際、試料採取口に除湿管(除湿剤: 過塩素酸マグネシウム  $Mg(ClO_4)_2$  充填)を取付けた。

空気圧駆動バルブの開閉には、卓上用プロパンガスボンベに窒素ガスを圧力約 $5Kg/cm^2$ に充填したものをを用いて行った。

#### 2-3-3 分析手順

試料容器を自動ガスサンプラーの試料導入口に接続し、ガスサンプラーの系内と接続部の管内を真空排気した。次に試料容器のバルブを開き、ガスサンプラーの計量管内にペロースポンプによって試料空気を加圧導入(約 $1.2Kg/cm^2$ )後、計量管内を大気圧平衡に



- $V_1$  : サンプルバルブ
- $V_2$  : 濃縮管切換バルブ
- PR : 定圧弁
- PG : 圧力計
- ST1~7 : ストップバルブ
- N : ニードルバルブ
- SL : 計量管 (75ml)
- F : フィルタ (MS-5A, シリカゲル等量混合 1mステンレスパイプ)
- C : キャビラリ
- FM1 : 流量計 (He 30~300ml/min)
- FM2 : 流量計 (Air 30~300ml/min)
- M : 連成計 ( $-760mmHg \sim 3Kg/cm^2$ )
- MV1 : 3方電磁弁
- MV2 : 4方電磁弁
- CL : シリンダー

図-2  $N_2O$ , フロン自動ガスサンプラーの流路構成図

した。

分析装置へ試料導入した後の分析操作及び測定条件は、自動連続分析法と同じである。

## 3. 結果及び考察

本システムによって試料空気を分析したガスクロマトグラムの例を図4に示した。試料濃縮時にトラップされた微量の空気等によ

表-1 非放射線源式ECD/GC及び自動ガスサンプラーの分析条件

ガスクロマトグラフィ	柳本製作所製 AG-1
カラム:	カラム I (3 mmφ × 8 m SUS, Silicone DC 550 60~80 mesh)
	カラム II (3 mmφ × 20 cm SUS, Porapak QS 80 mesh)
カラム温度:	63 °C
検出器温度:	334 °C
キャリアーガス I:	99.9999%He (3.1 Kg/cm <sup>2</sup> )
キャリアーガス II:	99.9999%He (3.1 Kg/cm <sup>2</sup> )
ディスチャージガス I:	99.9999%He (1.2 Kg/cm <sup>2</sup> , 92 ml/min)
ディスチャージガス II:	99.99%CO <sub>2</sub> (1.2 Kg/cm <sup>2</sup> , 9 cc/min)
自動ガスサンプラー	柳本製作所製 GSL-330A
計量管容量:	75 ml
トラップ冷却温度:	0 °C
トラップ脱着温度:	165 °C
ページガス:	99.9999%He (0.4 Kg/cm <sup>2</sup> , 80 ml/min)

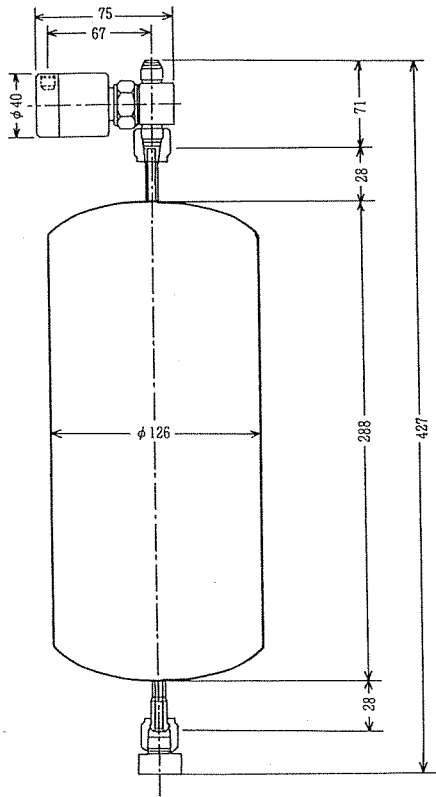


図-3 試料採取容器

最初のピークが試料導入後3分過ぎに、続いてN<sub>2</sub>O、CFC-11、CFC-12、CFC-113の順にピークが確認され、分離性及び分析感度共に良好であった。

前回報告したN<sub>2</sub>O分析システムでは、グラブサンプリング法に用いた試料採取容器からの分析の際、採取容器とガスサンプラーの計量管を圧平衡とした後に、NONR-ECD/GCに試料ガスを導入した。そのために計量管内の試料ガス圧と大気圧換算分析値との関係を予め求めることが必要であった。しかし、今回のシステムでは、試料採取容器から試料導入する際、ベローズポンプにより計量管内に試料を加圧導入することで、大気圧で平衡となる。その結果、試料導入時の計量管内圧に対する補正が不要となった。

また、NONR-ECD/GCの分析値の再現性について、前報では、測定感度が分析する度に变化し、変動が大きかった。図5に示すようにN<sub>2</sub>O、フロンを20回連続分析した結果からみると、今回、放電ガス(He)、ディスチャージガス(CO<sub>2</sub>)及びキャリアーガス(He)に純度99.9999%のものをを用い、さらにマスフローコントローラーを使用し流量変動を小さくすると、変動率1%以下で測定感度をほぼ一定にすることが可能となった。

このように改良したNONR-ECD/GCによるN<sub>2</sub>O、フロン同時分析装置は、気象庁が岩手県綾里で行っているN<sub>2</sub>O用及びフロン用の2台のNONR-ECD/GCを用いた観測データ(濃度レベル)と比べて感度において遜色のないことが確認された。

そこで、非放射線源式ECD/GCを用いた測定例として、清浄地域におけるN<sub>2</sub>O、フロン濃度分布調査の結果の一部を表2に示した。N<sub>2</sub>O濃度は約310ppb、フロン濃度はCFC-11が0.3ppb、CFC-12が0.5ppb、CFC-113が0.16ppbであり、気象庁などが観測している現在のバックグラウンド値(表3)とほぼ同じ濃度レベルといえる。

分析結果  
測定日時 : 1994/01/26 16:47:07  
データ名 : CFCNA876.DAT

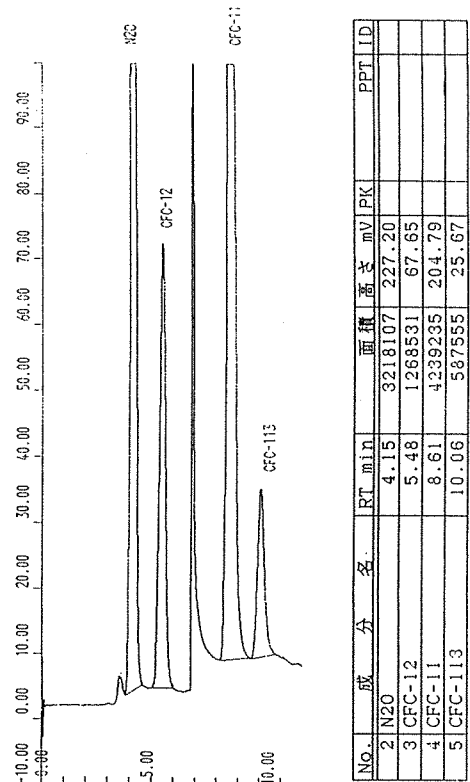


図-4 非放射線源式ガスクロマトグラフィ (NON-ECD/GC)によるN<sub>2</sub>O、フロン分析例

本試験結果から、NONR-ECD/GCを用いた自動連続分析装置は前報までのNONR-ECD/GCより測定感度が安定したことから、一般環境中のN<sub>2</sub>Oやフロンの汚染濃度の測定精度が高まり、環境汚染濃度を連続監視することが可能となった。また、今回開発した分析システムを用いれば、試料採取容器によるグラブサンプリング法に際して、測定感度や再現性の良いデータが得られることから、発生源周辺の汚染分布濃度調査などが使用可能であることが示唆された。

更にECD/GCが非放射線源であることから、放射線源式と違って科学技術庁に届出及び許可申請などの煩雑な作業から開放され、測定者にとって有用な面が多いと推測された。

#### 4. まとめ

NONR-ECD/GCを使用すれば、R-ECD/GCの使用時に必要な種々の煩雑さから開放され、測定者にとっては大変都合となった。このNONR-ECD/GCを用いた分析法は感度、再現性の試験結果や環境大気の測定結果からも、従来から用いられているR-ECD/GCと比べても遜色のない結果が得られた。特に、放電ガス(ヘリウム)、ディスチャージガス(二酸化炭素)などのそれらの流量調整にマスフローコントローラーを用いた結果、測定感度が前報より安定し、測定感度も向上した。

#### 文献

- 1) 玉置元則, 平木隆年, 溝口次夫, N<sub>2</sub>Oによる地球の温度上昇と成層圏オゾン層の破壊 - その化学的特性と温度上昇の将来予測 -, 公害と対策, Vol.25, No.8 775-787(1989).
- 2) 皆川直人, 小林 啓, 加藤誠一, 三好洋之: 都市大気中のN<sub>2</sub>O濃度について, 第30回大気汚染学会講演要旨集, 449(1989).

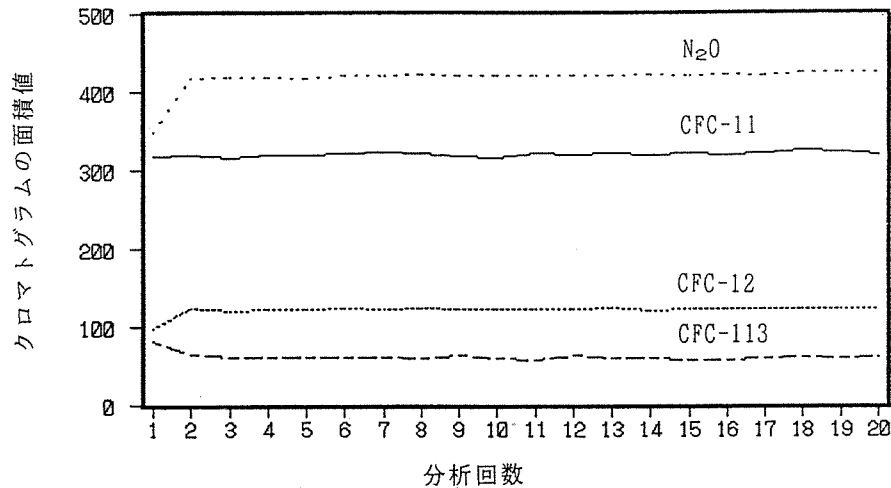


図-5 N<sub>2</sub>O, フロンの繰返し分析結果

表-2 環境大気中の N<sub>2</sub>O 及びフロン濃度測定結果

試料採取場所 波照間  
試料採取日 平成5年8月12日

試料番号	試料採取時間	N <sub>2</sub> O ppb	CFC-12 ppb	CFC-11 ppb	CFC-113 ppb
1	11:10~11:13	314	0.503	0.271	0.170
2	11:25~11:27	311	0.500	0.270	0.160
平均	---	313	0.502	0.271	0.165

表-3 綾里における N<sub>2</sub>O 及びフロン濃度観測値 (1993年)

(N<sub>2</sub>O : ppb, フロン : ppt)

測定物質	1月	2月	3月	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	年平均
N <sub>2</sub> O	304	304	303	304	305	304	301	303	303	306	304	305	304
CFC-12	***	540	536	542	541	544	537	525	524	533	530	532	535
CFC-11	297	300	299	301	303	301	309	304	304	300	302	301	302
CFC-113	88	88	87	89	85	89	89	88	80	***	87	95	88

- 3) 藤井敏昭: ガスクロマトグラフィーによる排ガス中亜酸化窒素の分析, 大気汚染学会誌, 15(2) 53-55(1980).
- 4) 岩崎好陽, 辰市祐久, 福岡三郎, 飯田靖雄, 舟島正直, 横田久司, 竹永裕司: 自動車から排出される N<sub>2</sub>O 測定結果, 第31回大気汚染学会講演要旨集, 183(1990).
- 5) 平野耕一郎: 非放射線源式 ECD-GC による環境大気中の N<sub>2</sub>O 分析, 第32回大気汚染学会講演要旨集, 455(1992).
- 6) 八木一行, 鶴田治雄, 陽 捷行: CH<sub>4</sub>・NO<sub>2</sub> フラックス測定マニュアル, 資源・生態管理科学研究収録, 第7号 143-158(1991).
- 7) 辻井弘次: ガスクロマトグラフの最新検出器/クリーン ECD・

- 非放射線源式 ECD および HID について, The Yanaco news, Vol.9 No.1 1-6(1980).
- 8) Ray F. Weiss: Determinations of Carbene Dioxide and Methane by Dual Catalyst Flame Ionization Chromatography and Nitrous Oxide by Electron Capture Chromatography, Journal of Chromatographic Science, Vol. 19 611-616(1981).
- 9) 平野耕一郎: 非放射線源式 ECD-GC による環境大気中の N<sub>2</sub>O 分析, 横浜市環境科学研究所報 第16号 119-122(1992).

# 粒子状物質の捕集法に関する比較検討

新井久雄\*, 白砂裕一郎\*

## 要 旨

環境中における人為起源粒子の実態把握および影響の評価をする上で、人為起源粒子の捕集に関する検討のひとつとして、試験的にβ線式自動計測器で使用されている2μm50%カットオフ径の分粒装置(柴田科学製:以下F-CLV)による測定値と、浮遊粒子状物質測定標準法となっている10μm100%カットオフ径の分粒装置、アンダーセンローボリウムエアサンプラ(50%カットオフ径)による測定値を比較検討した。

標準法とF-CLVによる測定値を粒子状物質および2μm以下の粒径に偏在している成分(炭素成分、二次粒子成分)で比較すると、標準法とF-CLVの測定値は直線関係にあり、F-CLVのそれぞれの測定値は標準法のおよそ0.9前後の値となった。一方、2μm以上の粒径に偏在している成分(Si, Al, Ca, Mg<sup>2+</sup>)をみると、F-CLVの測定値は標準法のおよそ0.2前後の値となった。また、F-CLVとアンダーセンローボリウムエアサンプラによる2μm以下の測定値は、粒子状物質、主要構成成分ともほぼ一致した。これらのことは、試験的に使用したF-CLVが2μm以上の粗大粒子を選択的にカットし、2μm以下の微小粒子を捕集することのできる分粒装置であることを示している。

## 1. はじめに

都市大気中で観測される粒子状物質の粒径分布(粒径別濃度)は2μmを谷とした二山型を示し、それぞれの山は、2μm以上が5~6μmに、2μm以下が0.5μmに粒子状物質の濃度ピークが現れる<sup>1)</sup>。これは、各種発生源から排出または発生した粒子の粒径別濃度が反映されたものであることから、粒径は発生源を解明する上で、重要な情報となっており、この二山型の粒径分布を発生源別に割り当てると、2μm以上の粗大粒子が主に自然起源(土壌、海塩)に、2μm以下の微小粒子が主に人為起源(燃焼、二次生成)に帰属することができる。

一方、環境基準に定められている浮遊粒子状物質の粒径は健康影響の観点から気道、肺胞に沈着しやすい10μm以下の粒子を対象としている。しかし、浮遊粒子状物質の削減対策上からは、人間のコントロールが可能な人為起源を対象とした粒径、すなわち自然起源粒子を除き2μm以下の微小粒子に絞った方が評価しやすい。

そこで、人為起源粒子を対象とした連続測定法を開発するために、従来の分粒装置(10μm100%カットオフ径)に代わり、2μm50%カットオフ径の分粒装置を装着した粒子状物質自動計測器の検討がなされている<sup>2),3)</sup>。それによると、10μm100%カットオフ径の分粒装置による測定値よりも、2μm50%カットオフ径の分粒装置による測定値の方が高くなるという、粒子の分粒特性からみれば、矛盾した測定結果が得られている<sup>3)</sup>。

今回、環境中における人為起源粒子の実態把握および影響の評価をする上で、人為起源粒子の捕集に関する検討のひとつとして、試験的にβ線式自動計測器で使用されている2μm50%カットオフ径の分粒装置による測定値と、浮遊粒子状物質測定標準法となっている10μm100%カットオフ径の分粒装置、アンダーセンローボリウムエアサンプラ(50%カットオフ径)による測定値を比較検討したので報告する。

表-1 試験に用いたローボリウムエアサンプラの分粒装置

分粒装置名	型 式	分粒特性	設定流量	備 考
多段式	柴田科学製C-20型(SLV)	10μm100%カット	20L/min	標準法
サイクロン式	新宅製S2型(CLV)	10μm100%カット	20L/min	標準法
サイクロン式	柴田科学製(F-CLV)	2μm50%カット	15L/min	試作品 <sup>2)</sup>
アンダーセン	ダイレック製AN-200(ALV)	各粒径50%カット	28.3L/min	3段分粒

注) ALVは2μm以下、2μm~11μm、11μm以上の3段分粒

## 2. 試験方法

表-1に試験に用いた各ローポリウムエアサンプラの分粒装置の方式、分粒特性および設定流量を示した。

粒子状物質の捕集はJIS Z 8814に準拠した方法により行った。すなわち、分粒装置→ろ紙ホルダ→流量計→吸引ポンプで構成したローポリウムエアサンプラにより大気を一定流量で吸引し、粒子状物質を石英ろ紙(PALLFLEX 2500QAT-UP)およびニトロセルロースメンブランろ紙(ADVANTEC)に捕集した。石英ろ紙で捕集した粒子状物質は炭素成分(元素炭素、有機炭素：分離温度He気流中600°C)およびイオン成分を、メンブランろ紙で捕集した粒子状物質はSi, Al, Caを分析した。

## 3. 粒子状物質の捕集時期と捕集地点

粒子状物質の捕集は、微小粒子濃度が高くなる晩秋から冬期と梅雨時期に行った。すなわち、1993年11月から翌年1月、1994年6月に横浜市環境科学研究所の5階屋上(一般環境)と横浜市磯子区内を通る国道16号の道路近傍において、粒子状物質を24時間～72時間捕集した。

## 4. 結果および考察

### 4-1 標準法(SLV)と2μmカットサイクロン式ローポリウムエアサンプラとの比較

#### 4-1-1 粒子状物質測定値の比較

各ローポリウムエアサンプラによる粒子状物質の測定値を表-2に、また相互の関係を図-1に示した。

今回の検討にあたり、標準法の信頼性をみるため、一般環境では、標準法(10μm100%カットオフ径)に指定されている多段式ローポリウムエアサンプラ(以下SLV)とサイクロン式ローポリウムエアサンプラ(以下CLV)の測定を同時に行った。2つの標準法の測定値を比較すると、表-2に示すように、SLVの方がCLVより数μg/m<sup>3</sup>高くなっているが、測定値の差は最大でも6μg/m<sup>3</sup>と小さく、両者の関係は回帰式が $Y=1.01X+2.1(X:SLV, Y:CLV, n=40, r=1.00)$ で、 $Y=X$ に近似し、測定値はほぼ一致した。このことから、本検討で比較する標準法には、SLVを用いた。以下に、SLVと2μm50%カットオフ径のサイクロン式ローポリウムエアサンプラ(以下F-CLV)の測定値を比較する。

一般環境および道路近傍におけるSLVとF-CLVの測定値は、図-1に示すように、直線関係にあり、F-CLVは回帰式からSLVのおよそ0.9程度の比となった。この比を都市大気中で測定されている粒子状物質の粒径分布と比較すると、10μm以下に占める2μm以下の割合が都市大気中で測定されている粒径別濃度(アンダーセンローポリウムエアサンプラ測定)より大きい値となっている<sup>1)</sup>。これは使用した分粒装置が、100%カットオフ径の分粒特性をもっているものか、あるいは50%カットオフ径の分粒特性をもっているものかによって測定値が大きく異なってくる。井上らによると<sup>2)</sup>、10μm100%カットオフ径である標準法(SLVとCLV)の測定値がアンダーセンローポリウムエアサンプラ(50%カットオフ径)による4.7μm以下あるいは7.0μm以下の粒径別濃度累積値とよく一致したと報告している。このように、一見して10μmカットの標準法による測定値が低い数値になっているように解釈できるが、これは分粒装置の分粒特性の相違に起因しているためと考えられる。つまり、JIS Z 8814に指定されている標準法の10μm100%カットオフ径とは、10μm以上の粒子はすべて分粒装置でカットされる設

表-2 標準法と2μmカットサイクロンによる粒子状物質測定値の比較(単位: μg/m<sup>3</sup>)

回数	一般環境			道路近傍		
	SLV	CLV	F-CLV	回数	SLV	F-CLV
1	30	30	25	1	132	128
2	48	50	41	2	78	64
3	115	113	104	3	54	46
4	70	75	57	4	94	81
5	39	41	38	5	147	135
6	27	30	20	6*	32	32
7	59	65	49	7	95	79
8	123	128	114	8	83	70
9*	17	19	20	9	176	150
10	47	51	42	10*	18	20
11	63	66	52	11	61	52
12	56	61	44	12	100	86
13	141	143	122	13	56	47
14*	15	15	15	14	93	80
15*	27	33	27	15	51	40
16	76	79	68	16	62	49
17	48	48	42	17	55	53
18	54	58	48	18	94	86
19	67	72	60	19	83	79
20	29	30	23	20	75	60
21	35	38	24	21	46	38
22	43	44	37	22	73	62
23	70	75	64	23	45	39
24	63	69	56	24	72	63
25	67	69	64	25	66	62
26	40	43	34	26	60	58
27	34	35	30	27	49	41
28	46	46	42	28	87	75
29*	15	16	15	29	62	52
30	40	43	37	30	43	35
31	57	59	51			
32*	43	46	44			
33	29	32	28			
34	75	76	71			
35	41	44	36			
36	48	49	42			
37	33	34	29			
38	54	56	47			
39	57	60	50			
40	56	57	47			

注1) \*印はF-CLVの方がSLVより高い、あるいは両者が等しい場合

注2) SLVは多段式、CLVは10μmカットサイクロン、F-CLVは2μmカットサイクロン

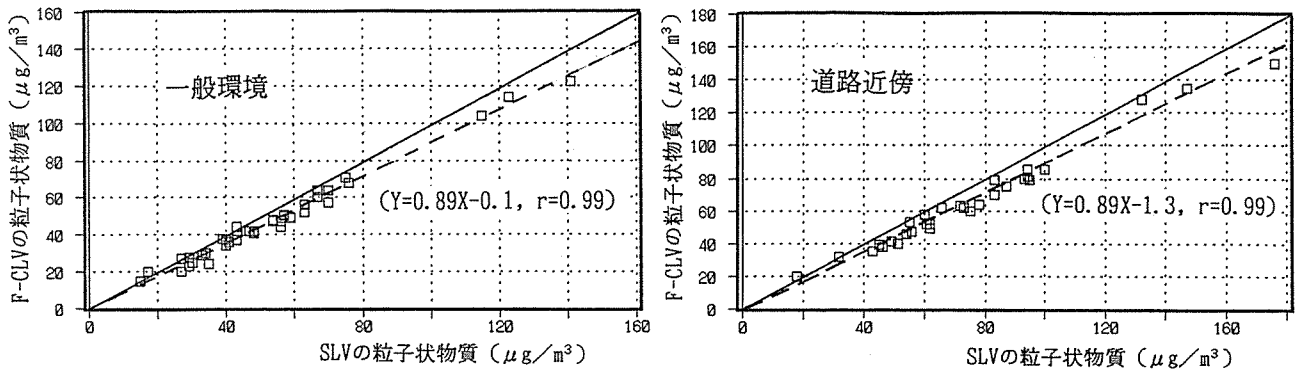


図-1 SLV と F-CLV による粒子状物質測定値の関係

計になっている。それに対して、F-CLV の  $2\mu\text{m}$ 50%カットオフ径やアンダーセンローボリウムエアサンプラの  $2\mu\text{m}$ 、 $4.7\mu\text{m}$  および  $7.0\mu\text{m}$  の50%カットオフ径とは、それぞれの粒径で50%の粒子は分粒装置でカットされるが、50%の粒子は分粒装置を透過する設計になっており、標準法のカット率と異なっている。

次に、SLV と F-CLV との各測定ごとにおける測定値の差を仔細にみると、表-2 に示すように、一般環境における SLV と F-CLV の40回の測定では、F-CLV の方が SLV より高い、あるいは両者が等しい回数は12.5%(5回)であった。また、道路近傍における SLV と F-CLV の30回の測定では、F-CLV の方が SLV より高い、あるいは両者が等しい回数は6.7%(2回)であった。今回のこのような結果は、いずれも粒子状物質濃度が低く、しかもサンプリング時間の短い24時間測定の場合であらわれ、F-CLV の方が SLV より高い場合の測定値の差はいずれも  $3\mu\text{g}/\text{m}^3$  以内であった。

この結果を分粒装置の分粒特性並びに大気中における粒子状物質の粒径別存在量から判断すると、たとえ  $2\mu\text{m}$  の分粒装置が50%カットオフ径で、 $10\mu\text{m}$  の分粒装置が100%カットオフ径であったとしても、 $2\mu\text{m}$  カットの分粒装置の方が  $10\mu\text{m}$  カットの分粒装置より測定値が数  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  と小さい値であれ高い、あるいは両者の測定値

が等しくなることは、測定原理上ありえないと考える。

この要因としては、いくつかの測定誤差が考えられるが、粒子状物質測定での最も大きな誤差要因をあげると、測定中における設定流量の変動と捕集された粒子状物質の秤量誤差の二つが考えられる。そこで、この二つの要因がどの程度の誤差を生じさせるかを検討した。

①測定中における設定流量は、測定開始から測定停止までの間、粒子状物質がろ材に捕集され続けると、圧力損失が生じるため低下したり、あるいは何等かの影響により、変動する。そのため、特にフローメータ式の流量計では、いつの時点で流量が変動したかを把握できず、正確な吸引空気量を求めることができない場合がある。今回の測定では測定開始時と測定停止時における流量計の読みから、その変動幅は概ね5%以内であったと考えられる。仮に、求められた粒子状物質濃度が  $20\mu\text{g}/\text{m}^3$  で、測定中における吸引空気量の誤差が5%ならば、この濃度は  $1\mu\text{g}/\text{m}^3$  の誤差を含んでいることになる。

②粒子状物質の秤量誤差は秤量時におけるろ紙の静電気とろ紙を恒量にするための恒温恒湿( $20^\circ\text{C}$ 、50%)雰囲気との維持管理によって決まると考えられる。今回使用した石英ろ紙( $55\phi$  および  $47\phi$ ) と同じロットの未使用の石英ろ紙をコントロールとして、粒子状物質

表-3 標準法と  $2\mu\text{m}$  カットサイクロンによる測定値の比較 (単位:  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )

回数	SLV ( $10\mu\text{m}$ 100%カット)				F-CLV ( $2\mu\text{m}$ 50%カット)				[F-CLV/SLV]比			
	SPM	Si	Al	Ca	SPM	Si	Al	Ca	SPM	Si	Al	Ca
No. 1	26	0.17	0.08	0.14	24	0.04	0.01	0.02	0.92	0.24	0.13	0.14
No. 2	29	0.35	0.15	0.22	24	0.08	0.03	0.04	0.83	0.23	0.20	0.18
No. 3	15	0.20	0.10	0.09	13	0.05	0.02	0.01	0.87	0.25	0.20	0.11
No. 4	40	0.36	0.17	0.22	35	0.08	0.03	0.03	0.88	0.22	0.18	0.14
No. 5	36	0.32	0.12	0.17	30	0.07	0.02	0.03	0.83	0.22	0.17	0.18
No. 6	36	0.26	0.12	0.12	33	0.06	0.03	0.03	0.92	0.23	0.25	0.25
No. 7	60	0.72	0.33	0.37	48	0.18	0.07	0.06	0.80	0.25	0.21	0.16
No. 8	35	0.31	0.13	0.24	29	0.08	0.03	0.03	0.83	0.26	0.23	0.13
No. 9	52	0.65	0.27	0.29	46	0.16	0.07	0.05	0.88	0.25	0.26	0.17
No. 10	56	0.72	0.30	0.29	50	0.17	0.07	0.05	0.89	0.24	0.23	0.17
平均値	39	0.41	0.18	0.22	33	0.10	0.04	0.04	0.85	0.24	0.22	0.18

注) SLVは多段式、F-CLVは  $2\mu\text{m}$  カットサイクロン、SPMは粒子状物質

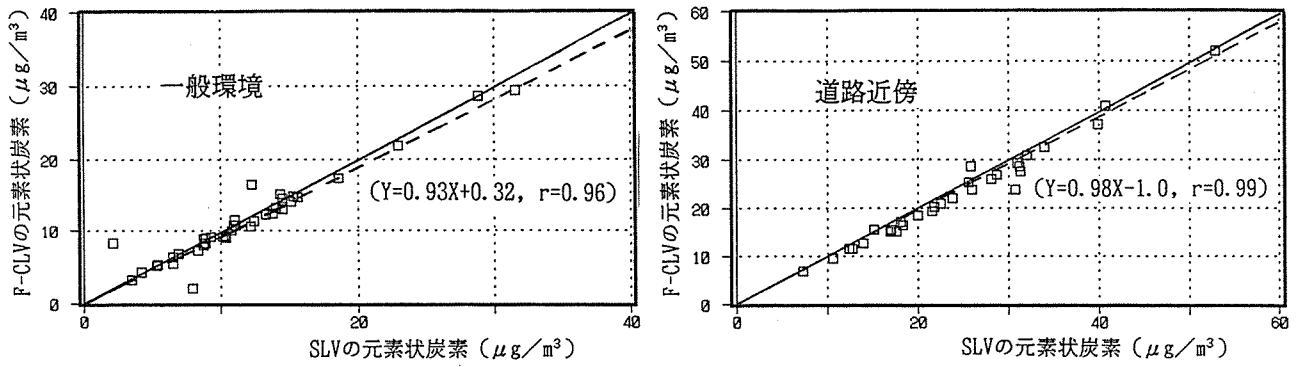


図-2 SLVとF-CLVによる元素状炭素測定値の関係

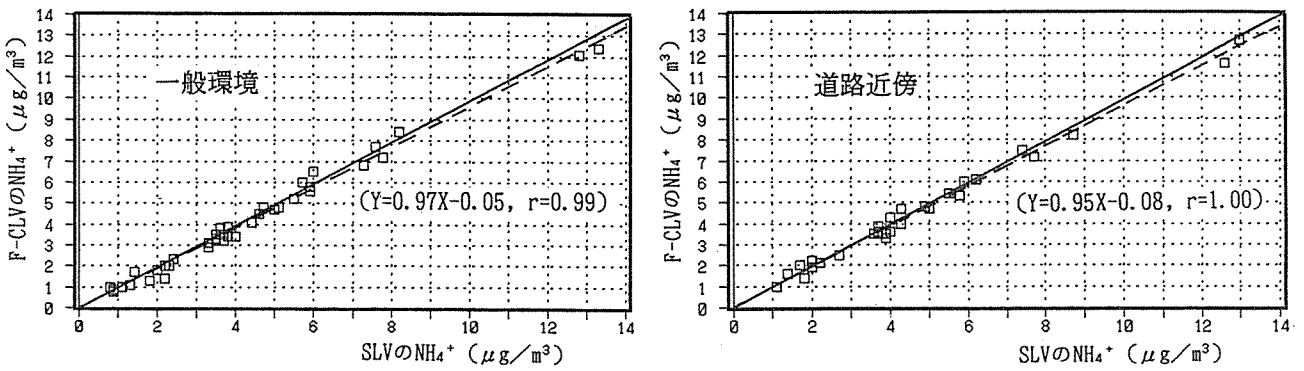


図-3 SLVとF-CLVによるNH<sub>4</sub><sup>+</sup>測定値の関係

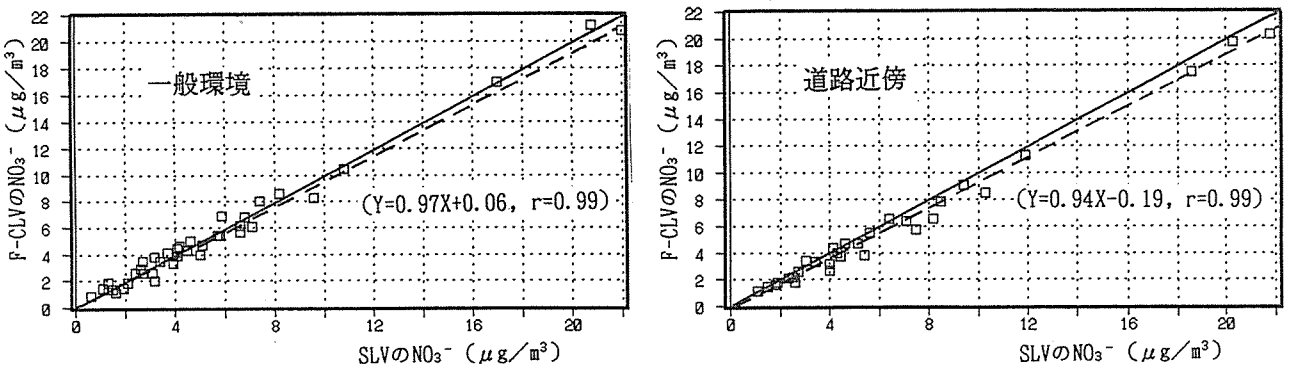


図-4 SLVとF-CLVによるNO<sub>3</sub><sup>-</sup>測定値の関係

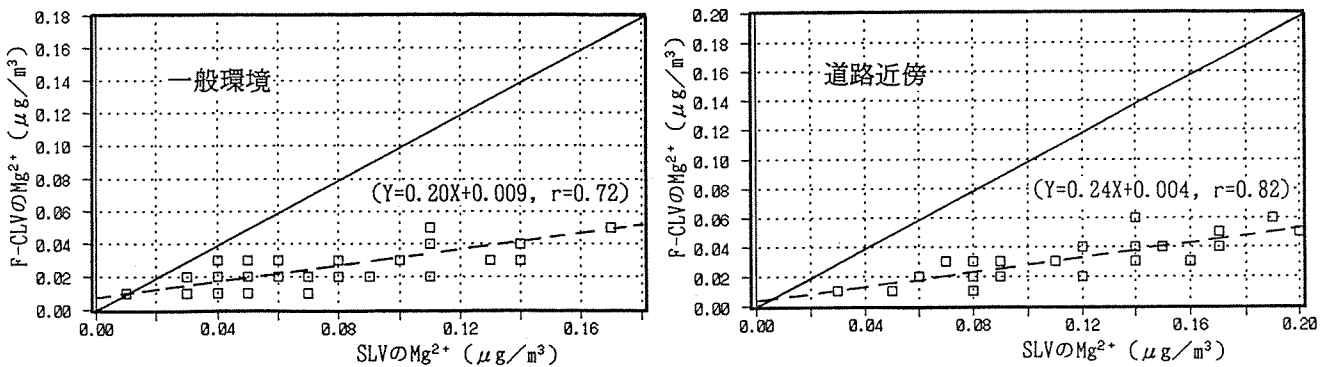


図-5 SLVとF-CLVによるMg<sup>2+</sup>測定値の関係

質の捕集前後における石英ろ紙だけの重量変動(5枚)をみると、55φが最大0.09mg、47φが最大0.04mgであった。仮に、24時間測定の場合、吸引空気量が28.8m<sup>3</sup>(設定流量:20L/min)で、ろ紙の秤量誤差が0.09mgならば、測定値は3μg/m<sup>3</sup>の誤差を含んでいることになる。

したがって、粒子状物質濃度が低く、しかも2~10μmの粒子の存在割合が少ない状況での短時間測定ならば、流量変動および秤量誤差によって、数μg/m<sup>3</sup>程度の誤差を生じ、測定原理上ありえない結果となることも考えられる。

#### 4-1-2 粒子状物質中の成分測定値の比較

一般環境および道路近傍におけるSLVとF-CLVの粒子状物質測定値をその主要構成成分から比較するため、二つの分粒装置から得られた主要構成成分測定値(元素状炭素、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、Mg<sup>2+</sup>)を図-2~5の散布図に、また2μm以上の粒径に偏在しているSi、Al、Caの測定値を表-3に示した。ここで、図に示した成分のうち、元素状炭素、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>およびNO<sub>3</sub><sup>-</sup>は2μm以下の粒径に偏在している代表的な成分であり、またMg<sup>2+</sup>は2μm以上に偏在している代表的な成分である。

SLVとF-CLVを2μm以下の粒径に偏在している元素状炭素、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>の測定値でみると、図-2~4に示すように、これらの成分は、一般環境および道路近傍ともに直線関係を示しており、測定値を[F-CLV/SLV]比で比較すると、その比は回帰式からおよそ0.9前後となった。また、同じく2μm以下の粒径に偏在している有機炭素、Cl<sup>-</sup>およびSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の[F-CLV/SLV]比もおよそ0.9前後と同様な関係となっていた。

次に、SLVとF-CLVを2μm以上の粒径に偏在しているMg<sup>2+</sup>の測定値でみると、図-5に示すように、Mg<sup>2+</sup>は、一般環境および道路近傍ともに、相関関係は認められるが、2μm以下の粒径に偏在している成分より回帰式の傾きが小さくなり、測定値を

[F-CLV/SLV]比で比較すると、その比は回帰式からおよそ0.2前後となった。また、同じく2μm以上の粒径に偏在しているSi、Al、Caについても表-3に示すように[F-CLV/SLV]比は0.2前後となった。

以上のように、SLVとF-CLVによる粒子状物質測定値をその主要構成成分から比較すると、2μm以下の粒径に偏在している成分の[F-CLV/SLV]比が0.9前後と1に近く、また2μm以上の粒径に偏在している成分の[F-CLV/SLV]比が0.2前後と小さくなったことは、主要構成成分からみても、F-CLVの分粒特性は2μm以上の粗大粒子を選択的にカットしていることを示している。

#### 4-2 2μmカットサイクロン式ローボリウムエアサンプラ(F-CLV)とアンダーセンローボリウムエアサンプラによる測定値の比較

今回使用したF-CLVと同じ分粒特性(50%カットオフ径)を持つアンダーセンローボリウムエアサンプラによる2μm以下(以下F-ALV)の測定値を粒子状物質、主要構成成分で比較した。

F-CLVとF-ALVによる粒子状物質測定値は、表-4に示すように、数μg/m<sup>3</sup>の差の範囲で一致した。また、主要構成成分の測定値でみると、Cl<sup>-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>およびNH<sub>4</sub><sup>+</sup>はほぼ一致していたが、一部の成分の測定値で一致していないものが見られた。これは、使用した石英ろ紙中の成分ブランク値が高く、かつ一定でないため、分析誤差が生じたと考えられる。一例として、有機炭素の石英ろ紙ブランク値をみると、F-CLVとF-ALVで使用した石英ろ紙(47φ、80φ)の有機炭素ブランク値は、平均的な濃度の分析試料の1~2割程度も含有していたため、分析誤差が生じ、F-CLVとF-ALVの有機炭素測定値に一致しないものがあつたと考えられる。

以上のように、F-CLVとF-ALVの2μmにおける分粒特性は、それぞれの粒子状物質測定値、主要構成成分測定値がほぼ一致したことから、大きな差はないと判断できる。

表-4 2μmカットサイクロンとアンダーセンによる測定値の比較(単位:μg/m<sup>3</sup>)

2μmカットサイクロン(F-CLV:50%カットオフ径)											
	SPM	OC	EC	Cl <sup>-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	K <sup>+</sup>	Na <sup>+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>
No.1	42	4.7	8.2	6.0	3.9	3.2	0.35	0.42	0.11	0.02	4.8
No.2	29	2.8	5.4	2.7	4.3	2.7	0.16	0.26	0.05	0.02	3.3
No.3	47	4.6	16.4	6.5	5.4	3.6	0.32	0.38	0.11	0.02	5.6
No.4	50	4.8	9.3	7.4	6.8	3.9	0.33	0.45	0.09	0.02	6.5
No.5	47	3.7	9.0	6.4	5.4	4.6	0.37	0.33	0.10	0.02	5.2
アンダーセン2μm以下(F-ALV:50%カットオフ径)											
	SPM	OC	EC	Cl <sup>-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	K <sup>+</sup>	Na <sup>+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>
No.1	42	3.9	8.9	5.9	3.6	3.4	0.29	0.27	0.09	0.02	4.6
No.2	31	2.3	6.3	2.9	4.6	2.6	0.17	0.19	0.08	0.01	3.4
No.3	50	4.0	12.3	7.1	5.6	3.7	0.30	0.29	0.11	0.02	6.0
No.4	55	4.2	10.3	8.0	6.9	4.1	0.39	0.35	0.19	0.03	6.7
No.5	48	3.1	10.1	6.0	5.4	5.0	0.37	0.31	0.09	0.02	6.0

注) SPMは粒子状物質、OCは有機炭素、ECは元素状炭素



## 5. ま と め

試験的にβ線式自動計測器で使用されている2μm50%カットオフ径の分粒装置(以下F-CLV)による測定値と、浮遊粒子状物質測定の方法となっている10μm100%カットオフ径の分粒装置、アンダーセンローボリウムエアサンプラ(50%カットオフ径)による測定値を比較した結果、次の知見が得られた。

1) 一般環境および道路近傍における標準法の多段式ローボリウムエアサンプラ(以下SLV)とF-CLVの粒子状物質測定値は直線関係にあり、F-CLVの測定値は回帰式からSLVのおよそ0.9程度の値となった。

2) SLVとF-CLVとの各測定ごとにおける粒子状物質測定値の差を子細にみると、一般環境と道路近傍でのSLVとF-CLVの70回の測定中、F-CLVの方がSLVより高い、あるいは両者が等しい回数は7回であった。このような測定原理上ありえない結果は、いずれも粒子状物質濃度が低く、しかもサンプリング時間の短い24時間測定の場合であられた。この理由としては、測定中の流量変動および秤量誤差が誤差要因として考えられた。

3) SLVとF-CLVによる粒子状物質測定値を主要構成成分から比較すると、2μm以下の粒径に偏在している成分(炭素成分、二次粒子成分)は、一般環境および道路近傍ともに、直線関係を示し、これらの成分の[F-CLV/SLV]比はおよそ0.9前後となった。また、2μm以上の粒径に偏在している成分(Si, Al, Ca, Mg<sup>2+</sup>)を比較すると、[F-CLV/SLV]比はおよそ0.2前後となった。このことより、F-CLVの分粒特性は2μm以上の粗大粒子を選択的にカットしていることを示している。

4) F-CLVとアンダーセンローボリウムエアサンプラによる2μm以下の粒子状物質測定値および主要構成成分測定値(NH<sub>4</sub><sup>+</sup>, Cl<sup>-</sup>, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>)はほぼ一致した。

## 6. おわりに

今回使用した分粒装置の比較試験では2μm50%カットオフ径の分粒装置による測定値が一部に10μm100%カットオフ径のその測定値より高くなることはあったが、その要因は成分測定からも分粒装置によるものでなく粒子状物質測定に係る一連の誤差(流量変動、秤量誤差等)と判断された。したがって、報告されている標準法(10μm100%カットオフ径)と2μm50%カットオフ径の分粒装置による測定値の逆転<sup>3)</sup>は分粒装置の分粒特性ではなく、すでに指摘されているβ線式自動計測器の問題点<sup>5), 6)</sup>や低濃度時におけるデータの信頼性によるものと考えられる。

また、今回使用した試作品は、アンダーセンローボリウムエアサンプラによる2μm以下の測定値とほぼ一致したこと、加えて2μm以上の主要構成成分をカットしていることから、この分粒装置は人為起源粒子(2μm以下)を選択的に捕集でき、短時間の測定にも適用できることが確認された。

## 文 献

- 1) 新井久雄, 白砂裕一郎, 佐俣満夫: 道路周辺地域における浮遊粉じん及び含有成分の粒径分布に関する調査, 横浜市公害研究所資料 No.89(浮遊粉じんの発生源推定に関する調査研究報告書), 71-84(1989).
- 2) 日本環境衛生センター: 浮遊粒子状物質に係る新測定法調査研究, 環境庁業務結果報告書(1989).
- 3) 日本環境衛生センター: 浮遊粒子状物質に係る新測定法調査研究, 環境庁業務結果報告書(1991).
- 4) 井上康明, 林 久緒, 早坂孝夫, 黒沢芳則, 石田哲夫, 岩瀬義男: 種々の浮遊粒子状物質自動計測器の比較検討, 川崎市公害研究所, 11, 29-41(1984).
- 5) 白砂裕一郎, 新井久雄: β線式浮遊粒子状物質自動測定器の測定精度に関する研究, 第31回大気汚染学会講演要旨集(1990).
- 6) 白砂裕一郎, 新井久雄: β線式浮遊粒子状物質自動測定器の測定精度について(2), 第34回大気汚染学会講演要旨集(1993).

# 横浜市民の音環境意識

鹿島教昭\*, 田村明弘\*\*, 澤田淳也\*\*\*

## 要 旨

横浜市内16区の各々から12歳以上の男女100人をランダムに住民台帳から抽出し、音環境に関する意識調査を行った。身近な環境の中では静けさ、空気に対する不満を持つ住民が各々17%、16%であり、やや不満を加えると共に40%弱となる。また悪化している環境の第一位は地域の静けさ(41%)である。家で聞こえる音で好ましい音は、その多くが自然音であり中でも小鳥の鳴き声は日常しばしば聞かれ非常に好まれる。これに対し、住民を悩ます音種は地域ごとに存在する日常の静けさを破る突発音で、主に自動車に起因している。バイクの走行音は91%の人に聞こえ、その人達の66%が悩まされており、共に最高の率である。車の警笛、大型車の走行、宣伝カーの拡声器、空ぶかし等の音も多くの人を悩ませている。静かな地域では低レベルの突発音がそれ等に加わる。住民を悩ます主な音は自動車関係のものであるが、行政に訴えられる苦情の多くは工場・事業場や建設・土木工事に偏っており、苦情件数は住民の悩みを反映しているとは言い難い。特に幹線道路沿道の住民は、悩まされつつも我慢し諦観している様子が窺える。

## 1. はじめに

都市の快適音環境は何を満足すれば実現され得るものなのか、いまだに明らかにされてはいない。言葉は存在しても、その目的に向かう手段は開発されていない。やむを得ず騒音苦情に対処しているのが実状ではなかろうか。現状の音環境を表現している一つと考えられ、それ故に測定も実行されている環境騒音と言えども、実は明白な環境指標とはいえない面がある。なぜならば、各地の自治体が調査した音環境調査<sup>1)</sup>によると、ある測定点での一日の騒音レベルを決定するものは明らかに道路交通騒音であり、時間率で50%以上、エネルギー率では60~80%となっているが、例えば本市の騒音苦情の割合では、道路交通騒音を含めた交通騒音の苦情は20%にも達しないからである<sup>2)</sup>。もちろん、苦情と高レベルの音を短絡するのは早計だが、音環境の中には苦情を惹起する何か嫌われる音があるようであり、一方で好かれる音もまた存在すると考えられる。

従来、いわゆる騒音調査は環境基準や規制基準との比較で実施され、騒音対策では、基準を超えた音を音種に無関係に基準値まで低レベル化する措置が採られてきた。しかし、都市の音環境を改善する場合、音に対する個人の好悪、歴史的・文化的背景を通して地域が許容する音種・レベルまで把握しないとそれは困難と考えられる。更に環境改善のためには、好かれる音を、あるいは好かれないまでも気にならない音を積極的に活用する方策、好かれる音を潜在化してしまう騒音から護る等の方策も必要となろう。当然その前提は、周囲の静けさであるが。

本調査は、快適音環境とは何かを把握し、その実現に近づく手段を模索する第一段階として、日本音響学会の社会調査委員会報告<sup>3)</sup>、及びサウンドスケープ調査の報告<sup>4)</sup>を参考にし、横浜市民に身近な音に対する概括的住民反応をアンケートで調査したものである。但し、本報では結果の集計、及び解析結果の一部を嫌われる音に主

眼を置いて報告する。

## 2. 調査方法

### 2-1 調査期日

平成3年10月~12月。

### 2-2 アンケート対象者

平成3年9月4日現在、満12歳以上の男女100人を各区から無作為に抽出した計1600人である。抽出には本市民局の協力を得て電算化住民台帳を用いた。

### 2-3 調査票の配布と回収

郵送による配布・回収法とした。平成3年10月23日に第一回目の配布を行い、12月までに回収した。回収状況を表-1に示す。回答拒否等の無効票を除き1240部を有効回収数とした。回収率は77.5%と、郵送法としては極めて高かった。その理由としては次のことが考えられる。

- 1) 原本がコンピュータ故、調査直前にサンプルが得られ、宛先人が在宅する確率が高かった。
- 2) 配布時を含め計3次にわたって調査の依頼を繰り返した。
- 3) 横浜市と大学が協力して行った。
- 4) 市民の興味を引いた。
- 5) 回答の量が適当で過度の負担とならなかった。
- 6) 低廉ではあるが筆記具を謝品として依頼時に同封した。

## 3. 質問項目

表-2に調査票の質問構成を示す。騒音関係者はこれまでに「気になる音」や「悩まされる音」の調査を多く行ってきているが、本調査ではそれらに加えて、将来のサウンドスケープ概念に基づいた施策に重要と思われる「好ましい音」、「好きだった音」の指摘を

Q3, Q4で求めた。近年関心が高まっているサウンドスケープの概念に関してQ8で質問したが、この様な質問は恐らく我国で初めてと思われるので聞き方に困難が伴った。更に、住んでみたいと思う音環境、地域を音でイメージする事が可能か否か、また視覚や聴覚障害者にとっての音環境はいかにあるべきかを回答者が健常者である事を前提として問うた。

#### 4. 回答者の属性

12歳以上の回答者の男女構成では女性が55%と、横浜市の女性比率49%<sup>3)</sup>に比しやや多めであり、図-1に示した回答者の年代構成では、本市のそれに比べ30歳未満で少なめで、50歳以上で多めであ

表-1 回収状況

区名	1次	2次	3次	計
1 鶴見	49	13	14	76
2 神奈川	51	12	14	77
3 西	54	9	8	71
4 中	46	13	10	69
5 南	48	16	11	75
6 港南	51	23	10	84
7 保土ヶ谷	51	16	13	80
8 旭	59	16	7	82
9 磯子	50	17	9	76
10 金沢	54	15	10	79
11 港北	46	19	19	84
12 緑	54	9	14	77
13 戸塚	54	14	11	79
14 栄	57	12	10	79
15 泉	53	17	11	81
16 瀬谷	49	11	11	71
合計	826	232	182	1240
回収率%	51.6	14.5	11.4	77.5

1991.10.23: 1次, 11.8: 2次 催促状  
11.18: 3次 再催促状と調査票

表-2 調査票の質問構成

Q1. 地域や住居の12種の環境 4段階満足度: 択一
Q2. 上記環境変化 [良い方へ][無変化][悪化]: 択一
Q3. 家で聞こえる[39種の音][好ましい][気にならない][悩まされる]: 択一
Q3S1. 聞こえて[最も好ましい音]: 択一
Q3S2. [最も好ましい音]を聞いた感じ: 複数
Q3S3. 聞こえて[最も悩まされる音]: 択一
Q3S4. [最も悩まされる音]で受ける迷惑: 複数
Q4. 地域で好きだった音 何年頃, 場所: 自由
Q5. 地域で嫌いだった音 何年頃, 場所: 自由
Q6. [横浜市]と聞いて思い浮かぶ音: 自由
Q7. 住んでいる[区]から思い浮かぶ音: 自由
Q8. 地域の音環境を見直す為に, 新たに音を創り出す [音づくり]の概念に関して
Q8S1. [知っている][知らない]: 択一
Q8S2. [音づくり]の考え方 [良い]等10項目: 択一
Q8S3. 音づくりの事例 [知っている][知らない]: 択一
Q9. 住みたい音環境: 択一
Q10. 地域類型, 家屋形態, 居住年数: 択一
Q11. 近所の音源 バス通り, 商店等11項目: 択一
Q12. 性別, 年齢, 居住時間, 家族人数: 択一
Q13. ・身近にある気に入った音環境: 自由意見 ・目や耳の不自由な方の音環境: 自由意見

る。抽出時のサンプルでは男女半々であったが、この結果は、子供や男性への配布に対して母親あるいは奥さんが代わりに回答したことと、若い人が回答を面倒くさがったためと思われる。しかし、回答者全体の構成はほぼ横浜市の構成に等しく、横浜市民を正確に反映していると言える。

同図に用途地域の略語を用いて用途地域別年代構成も示したが、本稿では市街化調整区域(調整)を一つの用途地域と見なしている。用途地域別年代構成は横浜市との正確な比較が可能か否か不明だが、12~19歳を見ると商業地域で一人、準工業地域では他地域より比較的多めとなっている。また商業では高齢者が多い。全体に対する用途地域別の人数比では1種が40%、2種と住居がそれぞれ20%であるから、全体の意見にはこれら住居系の影響が大きい。工業地域と工業専用地域の人数は各々9人及び1人と少なかったため、用途地域で結果を検討する場合に考察の対象外とした。また表-3に3階以上の建築物を中高層住宅と分類した家屋形態を、表-4に居住年数を示す。

#### 5. 調査結果及び解析

##### 5-1 回答者の環境意識

##### 5-1-1 地域環境の評価

図-2に12の地域環境に関して「満足」~「不満」までの4段階で答えさせたQ1の結果を示す。「周辺道路の安全性」を除けば、60%以上が「満足」か「どちらかと言えば満足」で現状肯定的回答である(以下では、調査票に用いた「どちらかと言えば」を「やや」と略記する)。これは自分の生活環境を悪いと思いたくない感情の表れとも言える。「満足」が30%を超える項目は個人の住宅事情に関する「家の日当たり」、「家の中の静けさ」、「家の中の風通し」と、都市の利便性を示す「ゴミの回収」、「買い物への便」、「交通の便」とである。

最も不満な項目は「周辺道路の安全性」で不満19%、やや不満37%と50%以上が不満側である。他で「不満」が高い項目は「静けさ」17%(やや不満20%)、「空気」16%(同22%)となっている。

用途地域別に不満とやや不満の和を昇順に並べると、傾向として調整・1種・2種、住居、近商、準工、商業の順になるのは、「散歩」

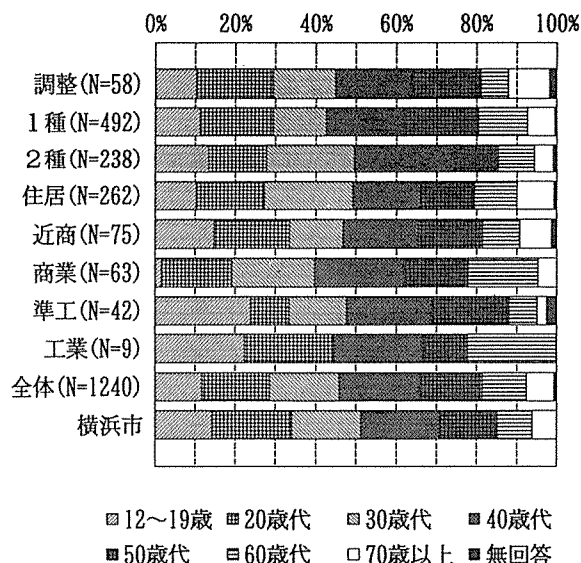


図-1 年代構成(用途地域別)

表-3 家屋形態

種類	人数	%
一戸建て	673	54.2
低層集合住宅	141	11.4
中高層集合住宅	397	32.0
無回答	29	2.3

表-4 居住年数

年数	人数	%
1年未満	72	5.8
5年未満	242	19.5
10年未満	237	19.1
20年未満	322	26.0
20年以上	346	27.9
無回答	21	1.7

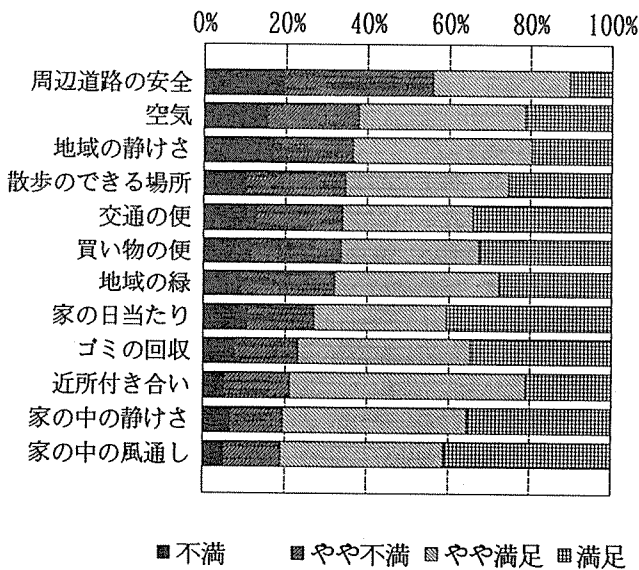


図-2 地域環境に対する満足度

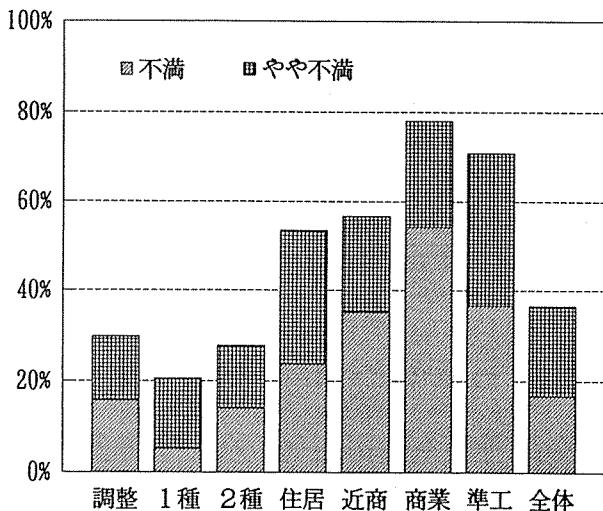


図-3 地域の静けさに対する不満度(用途地域別)

「空気」、「緑」、「静けさ」(図-3)、「家の日当たり」、「家の中の静けさ」であり、それが降順となるのは「交通の便」、「買い物の便」である。つまり、生活の便が良く人が集中した地域では自然環境への不満が高まっている。不満と満足において、常に中間的位置を占める住居地域の人々は、他地域に比べ十分に満足する環境要素が少ない状態で生活しており、言わば、フラストレーションが溜まる環境に居るようである。

### 5-1-2 地域環境の変化

Q1と同一の環境要素を用いた地域環境の変化(Q2)では、どの要素も変化無しが最も多く(図-4)、悪化が目立つのは「静けさ」41%、「周辺の道路の安全性」37%、「緑」36%及び「空気」35%である。また、「静けさ」が「良くなっている」とする回答は4.7%で12項目中最低である。

### 5-1-3 住みたい音環境

どのような音環境に住みたいか(Q9)では、図-5に示すように、全体の約70%の人が「自然の音に包まれた所」と回答しているが、「音がなく静かな所」(7.3%)に比し、生活に付随した何らかの音(生活音、適当な交通音、賑やかな音)が存在する場所を望む人々が19%存在する。用途地域別では、常識的に騒がしいと想像できる商業系と準工が音の存在に寛容的であり注目される。

以上のように音環境に関しては、横浜市民の約40%が地域の静けさに対して不満を抱きそれも悪化していると考えている。そして約70%の市民が自然の音に囲まれて生活したいと望んでいる。

### 5-2 家で聞こえる音に対する反応

#### 5-2-1 聞こえ率と好悪度

Q3では家で聞こえる音の例として39種の音を挙げ、「好ましい音」、「気にならない音」、「悩まされる音」の3項から択一で回答を得た。家で聞こえぬ音の場合には記入せぬように指示した。表-5は、例示音について、上記3項の何れかに記入した者の全回答者数(N=1240)に対する比を「聞こえ率」とし、I群:聞こえ率75%以上、II群:75~50%、III群:50~25%、IV群:25~10%、V群:10%以下に分類した結果である。更に、ある音を聞こえるとした回答者を100%とし、「好ましい率」(A)、「気にならない率」(B)、「悩まされる率」(C)を算出し表中に示してある。また好ましい率から悩まされる率を引いて「好悪度」(A-C)とし、その大小で各群を並べ換えてある。

#### 5-2-2 好ましい音

No.1「小鳥の声」は75.5%もの人々に聞こえており、聞こえれば好まれる(好悪度71.6%)。II群のNo.5「秋の虫・蛙・蟬」にも多くの人は好意的であるのに対し、人為的なNo.6「祭・花火大会・盆踊り」では約30%が好ましいとする反面10%弱は悩まされている。III~V群で好かれる音はI、II群同様やはり自然な、あるいは自然が醸し出すNo.15「風鈴」、No.16「草木のざわめき」、No.27「せせらぎ」、それに、稀に遠くに聞こえるのであろうNo.28「お寺や教会の鐘」、No.29「船」、No.35「波」となっている。一般的に、自然音や自然的な音は人に嫌な感じを起させないと言える。

#### 5-2-3 悩まされる音

聞こえ率91%のNo.4「バイクの走行」音を最高として、聞こえ率の高いものの多くは自動車の走行に関係する音であり、そのほとんどで人々は悩まされている。バイクの場合、聞こえる人々の66%が悩まされており、バイクと暴走族の連想があるとしても音環境を悪化する代表である。「小鳥の声」とは逆に聞こえれば嫌われる存在(好悪度-64.4)であり、精神的にも音環境を悪化していると言

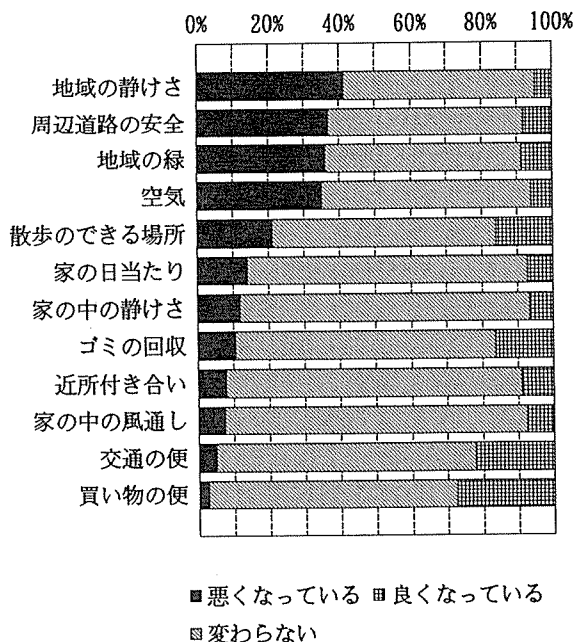


図-4 地域環境の変化

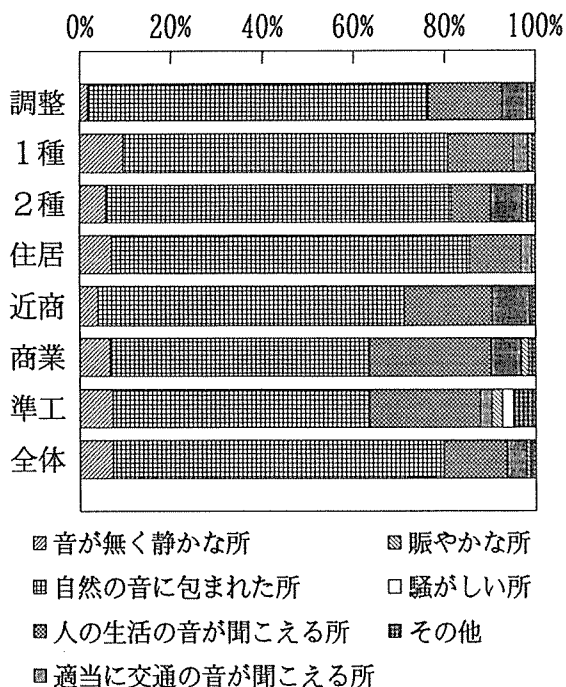


図-5 住みたい音環境(用途地域別)

得る。

Ⅱ群においては、No.12、13の自動車等の「警笛」、No.10「大型車の走行」音等が人々を悩ませている。

他に悩まされる率が高いのは、No.26「車の空ぶかし」、No.34「建設・土木工事」、No.14「宣伝カー等の拡声器」、No.11「飛行機・ヘリコプタ」で、これらは上記の音同様に日常生活に突然進入し静けさを破る音である。

自動車関係で唯一好悪度がプラスとなるのはNo.7「ゴミ収集車」で、90%の人が気にならないとしている。これは日常生活に必要なためであろうし、限定された予想できる時間内だけの問題だからでもあろう。

#### 5-2-4 生活音

自動車関係の音を除いた生活音は聞こえ率が30~40%であり、Ⅲ群に集中している。好悪度はほとんどマイナスを示し、都市の居住形態における音環境改善の必要性を示す一示唆となっている。

#### 5-3 悩まされる音の検討

ここでは39音種の中で、全回答者の10%以上が「悩まされる音」と指摘した12種について検討する。10%以上とした理由は、「悩まされる音」と他の回答項目とのクロス集計を行う際に、ある程度の人数を必要とするからである。

##### 5-3-1 悩まされる音と用途地域

悩まされる音の上位12種、即ちNo.4「バイクの走行」音からNo.34「建設・土木工事」音までを、指摘率の大きさの順に図-6に示す。選出された音種はほとんどが突発音的特徴を持ち、恒常音的なものは、No.3「普通車の走行」音程度である。同図において、各音種ごとに用途地域別の指摘率が比較されている。なお、用途地域の並びは上から下へ進むほど、つまり調整から準工へと一般に騒がしさが増すように配置してある(準工の配置には問題があるが)。

バイクの走行音は別格として、一見して人間の活動が活発な地域ほど自動車関係の音と建設・土木工事に対する指摘率が上昇して行き、納得できる結果である。これに対して、No.11「飛行機・ヘリコプタ」、No.9「カラスの声」は一般的に静かな地域ほど指摘率が高い。これらは静かであるからこそ聞こえ、その地域で際立つが故

に悩まされるとする反応が出たと解釈できる。No.25「ペットの声」にもそのような傾向が認められる。

##### 5-3-2 悩まされる音と地域の静けさ

悩まされる音と住んでいる地域の静けさ(Q1)とのクロス集計結果が図-7である。

興味深い点は、突発音であるバイクの走行音で悩まされている人の50%強が地域の静けさに満足側(満足+やや満足)であるのに対して、恒常音である普通自動車の走行音で悩まされる人の80%が不満側(不満+やや不満)にある事実である。既出の表-5によると、普通自動車の走行音は82%もの人々に聞こえており、彼等の実に97%は気にならないとしている。従って、ここでこの音種で悩まされている人々は特殊な状況にある事が容易に想像できる。即ち、幹線的な道路沿いの住人が道路交通騒音に大いなる不満を持って生活している姿である。だが、これらの人々はあまり苦情も言わずに我慢している可能性が高い。

他の音種からは、多くの人が普段の地域環境騒音レベルを突き破る様な突発音で悩まされている事実が窺える。殊に「ペットの声」、「カラスの声」、「飛行機・ヘリコプタ」の音で悩まされるとした人々のそれぞれ53%、65%、68%は自分達の地域の静けさに対して「満足」か「やや満足」している。これからも先に述べたごとく、地域が静かであるからこそ、その種の音で悩まされている様が浮かんで来る。

以上の考察から、悩まされ方が次の3タイプに分けられる。

- 1)常に騒がしい道路交通騒音で悩まされる。
- 2)普段騒がしいと感じていて、かつ大きな突発音で悩まされる。
- 3)普段静かであると感じていて、かつ突発音で悩まされる。

##### 5-3-3 悩まされる音と苦情

横浜市の平成3年度の騒音苦情分類とその割合<sup>2)</sup>を表-6に、またその分類に該当する本調査での「悩まされる音」(厳密な分類は困難だが)の上位12種を同表に示す。苦情では約48%を占め圧倒的に第1位の事業場騒音に含まれる悩まされる音は「宣伝カーの拡声器」が該当するのみであり、同3位の工場騒音では該当する音

表-5 聞こえ率(好ましい, 気にならない, 悩まされる)

群 No.	音種	聞こえ率	A	B	C	好悪度
I	1 小鳥の声	75.5	72.6	26.4	1.0	71.6
	2 バトカー・救急車のサイレン	83.1	1.0	81.9	17.1	-16.1
	3 普通自動車の走行	81.9	1.1	79.1	19.8	-18.7
	4 バイクの走行音	90.9	1.2	33.2	65.6	-64.4
II	5 秋の虫・蛙・蟬	72.9	59.6	37.8	2.6	57.0
	6 祭・花火大会・盆踊り	52.6	29.4	63.1	7.5	21.9
	7 ゴミ収集車	70.2	6.4	89.9	3.7	2.7
	8 子供の声	58.4	5.7	79.9	14.4	-8.7
	9 カラスの声	59.7	5.7	68.3	26.0	-20.3
	10 大型自動車の走行	66.0	0.6	65.3	34.1	-33.5
	11 飛行機・ヘリコプタ	62.0	0.8	61.9	37.3	-36.5
	12 大型自動車の警笛	51.9	0.3	57.9	41.8	-41.5
	13 普通自動車・バイクの警笛	61.8	0.4	54.8	44.8	-44.4
	14 宣伝カー等の拡声器	55.6	0.6	50.0	49.4	-48.8
	15 風鈴	29.9	55.0	41.2	3.8	51.2
	16 草木のざわめき	41.3	43.6	55.6	0.8	42.8
	17 ピアノ等の楽器	34.8	9.3	79.1	11.6	-2.3
	18 学校・幼稚園	28.5	6.8	82.2	11.0	-4.2
III	19 赤ちゃんの泣き声	32.0	4.3	84.6	11.1	-6.8
	20 テレビ・ステレオ	25.7	6.3	75.8	17.9	-11.6
	21 トイレ・風呂等の給排水	35.2	0.9	83.5	15.6	-14.7
	22 人の立ち話	42.8	0.9	82.9	16.2	-15.3
	23 駐車場の車の出入り	35.8	0.0	80.6	19.4	-19.4
	24 階上の床	29.8	0.5	73.3	26.2	-25.7
	25 ペットの声	39.4	1.6	65.4	33.0	-31.4
	26 車の空ぶかし	40.6	0.4	37.9	61.7	-61.3
	27 せせらぎ	10.6	62.9	36.3	0.8	62.1
	28 お寺・教会の鐘	17.7	46.4	51.3	2.3	44.1
IV	29 船	12.1	47.3	48.7	4.0	43.3
	30 鉄道	21.9	4.4	76.1	19.5	-15.1
	31 冷暖房機・ボイラ	21.6	0.4	80.9	18.7	-18.3
	32 商店の拡声器等の営業	15.2	2.1	66.5	31.4	-29.3
	33 工場・作業場	12.9	1.9	57.4	40.7	-38.8
	34 建設・土木工事	22.3	0.4	42.2	57.4	-57.0
	35 波	6.9	57.0	39.5	3.5	53.5
	36 横断歩道の信号	6.6	3.7	91.4	4.9	-1.2
V	37 踏切の警報機	6.9	2.3	85.1	12.6	-10.3
	38 新幹線	8.3	3.9	78.6	17.5	-13.6
	39 飲食店のカラオケ	8.2	1.0	51.9	47.1	-46.1
	40 その他	4.2	13.5	7.6	78.9	-65.4

聞こえ率：回答者(N=1240)の中で例示音が聞こえる人数の割合 %

A + B + C = 100

A 好ましい率 : 聞こえる人の中で好ましい人数の割合 %

B 気にならない率 : 聞こえる人の中で気にならない人数の割合 %

C 悩まされる率 : 聞こえる人の中で悩まされる人数の割合 %

A - C 好悪度

が無い。鉄道騒音等を含む交通騒音苦情は11%に過ぎないが、本調査では、それに該当するバイクや自動車の「走行音」で多数が悩まされている。これらから、加害者が特定でき行政が対応可の苦情が多く、悩まされる人数は多くとも突発的で対応困難な苦情は少ないと言える。しかしこの突発音は自動車に付属した日常茶飯の音でもある。従って、住民が納得する良い音環境を創造するには従前の苦情対応だけでは実現困難と想像される。

## 6. まとめ

横浜市内16区の各々から12歳以上の男女100人をランダムに住民台帳から抽出し、音環境に関する意識調査を行った。結果の一部をまとめると次の様になる。

1) 身近な12種の環境の中では周辺道路の安全に対する住民の不満が最も高い。次いで地域の静けさ、地域の空気に対する不満を持つ住民が各々17%、16%であり、やや不満を加えると共に40%弱となる。

2) 住民の41%が地域の静けさは悪化していると見なしており、この値は12種の環境の中で最高である。

3) 普段、家に居て聞こえる音で好ましい音は、そのほとんどがなぜか自然音である。中でも小鳥の鳴き声は日常しばしば聞かれ非常に好まれる。人工音でも寺や教会の鐘、風鈴等の音は時に騒音問題として報道メディアに登場するが、一般的には好かれている。

4) これに対し、住民を悩ます音種は地域ごとに存在する日常の静けさレベルを突然破る突発音で、主に自動車に起因している。バイクの走行音は91%の人に聞こえ、その人達の66%が悩まされており、聞こえ率、悩まされる率共に最高である。他には、車の警笛、大型車の走行、宣伝カーの拡声器、空ぶかし等の音で悩まされている。静かな地域ではそれ故に聞こえる低レベルの音でも悩まされ、それは人工音に限らない。

5) 悩まされる音の主要部は自動車関係の音である事が明白になったが、行政に訴えられる苦情の多くは工場・事業場や建設・土木工事に偏っており、苦情件数は住民の悩みを反映しているとは言い難

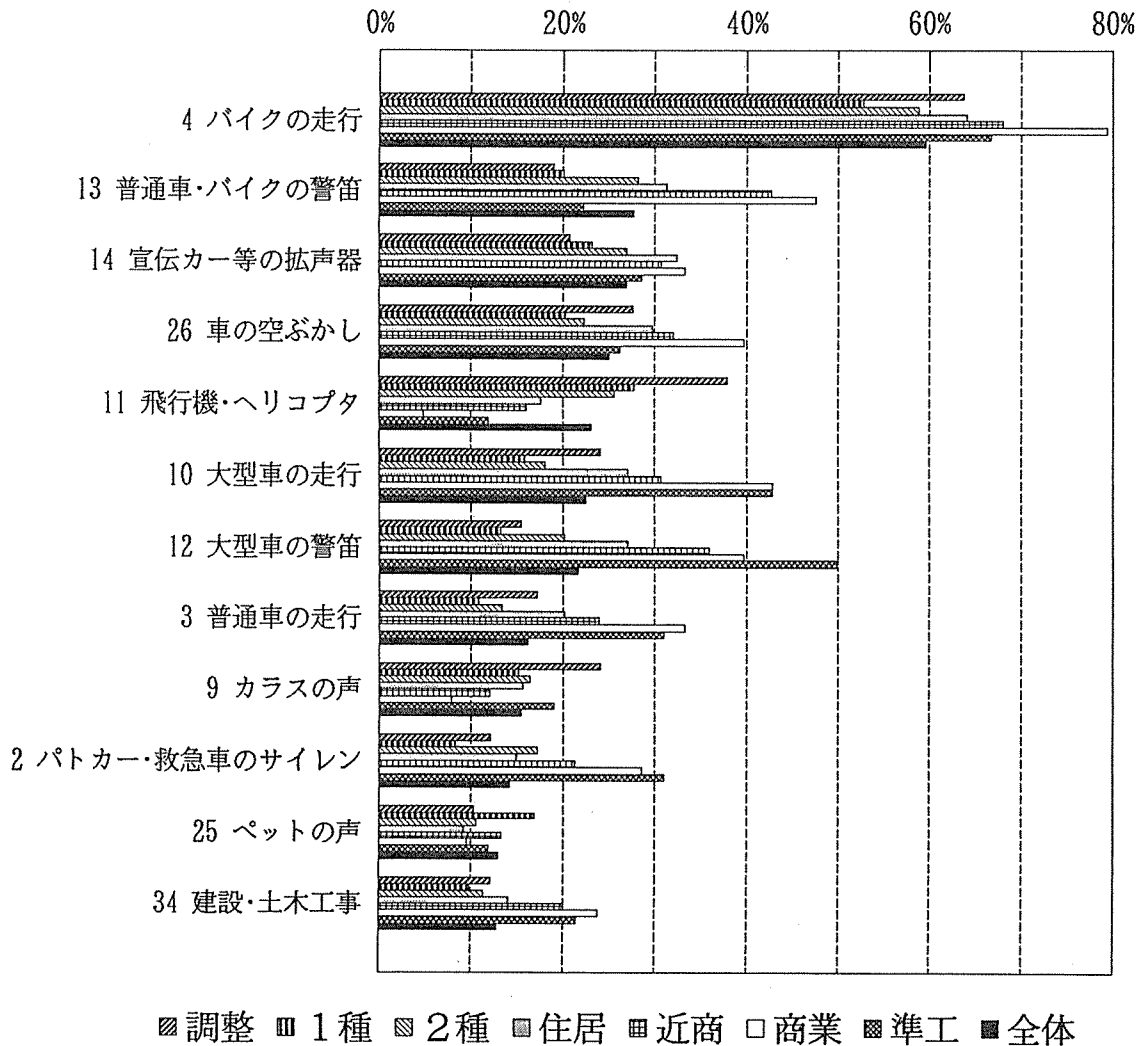


図-6 悩まされる音の指摘率とその用途地域別比較

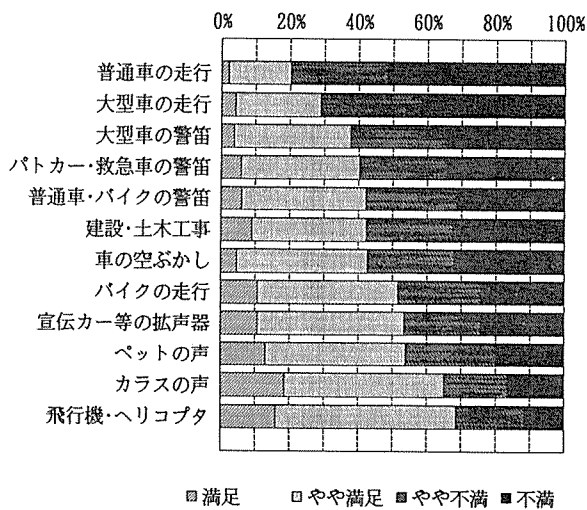


図-7 悩まされる音と地域の静けさに対する満足度

表-6 横浜市への苦情と悩まされる音の上位12種の分類

分類	%	悩まされる音種
工場	15.5	無し
事業場	47.8	宣伝カー等の拡声器
建設作業	16.2	建設・土木工事
生活騒音	5.8	車の空ぶかし, ペットの声
交通	11.1	バイクの走行, 飛行機・ヘリコプタ 大型車の走行, 普通車の走行
その他	3.6	普通車・バイクの警笛, 大型車の警笛 カラスの声, パトカー, 救急車のサイレン

事業場の17.6ポイントはカラオケ

い。特に幹線道路沿道の住民は、悩まされつつも我慢し諦観している様子が窺える。

## 7. おわりに

アンケート調査から、現在行政が把握している苦情件数は必ずしも市民が生活する音環境を正確に表現していないことが明らかになった。音環境ばかりではないが、今後、環境を改善していく上で、現在の環境の実体を正確に把握する指標を模索していく必要があると思われる。そこで当面は、1)被害者を救済する対症療法としての従前の苦情対策を行いつつ、2)道路交通騒音対策を中心に据えた都市全体を対象とした公衆衛生的概念を導入すべきであろう。

最後になりましたが、本調査に御協力下さいました市民の方々に厚く感謝致します。

## 参考文献

- 1) 例えば、横浜市公害対策局:騒音振動実態調査報告書(解析), 平成2年3月.
- 2) 横浜市環境保全局:横浜環境白書-平成4年版-, 52-59(平成4年10月).
- 3) 「騒音問題に関する社会調査・調査委員会報告」横浜市神奈川区生活環境調査の分析:田村明弘, 日本音響学会騒音研究会資料N-91-15,(1991, 3).
- 4) 嶋理恵子, 田村明弘:小田原市中心部における音環境調査, 日本建築学会関東支部研究報告集, 5-8(1991, 1).
- 5) 横浜市総務局事務管理部統計課編:第69回 横浜市統計書, 横浜市(平成3年3月).



# 小川から発生する水の流れ音の調査結果について

中村俊亮\*, 泉山中三\*\*, 小谷野哲朗\*\*

## 要 旨

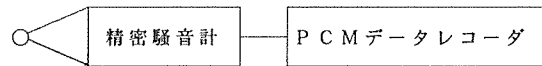
自然及び人工の小川において水の流れ音の調査を行い、水の流れを形態別に解析をした結果から、以下のことがわかった。

- 1) せせらぎは騒音レベル(Leq値)が0.5mの距離で53~73dB(A)となり、流速が増すほど騒音レベルが上昇する傾向が見られた。せせらぎの音の周波数のピークは1 kHz~2 kHzの範囲となることが多く、比較的限られた周波数範囲にパワーがあった。せせらぎの騒音レベルは時間的に大きく変動しており、流速が遅いほど変動が大きくなる傾向がみられた。また、騒音レベルの変動が大きいせせらぎはそのスペクトルも大きく変動していた。
- 2) 落ち込み流れは騒音レベル(Leq値)が0.5mの距離で63~79dB(A)となり、流れの落差が増すほど騒音レベルが上昇する傾向が見られた。落ち込み流れは流れの落下先(水, 岩等)によりピーク及びパワーを持つ周波数の分布が異なっていた。落ち込み流れの騒音レベルの時間的な変動は、落差の少ない一部の流れを除いて、小さかった。また、スペクトルの時間的な変動も小さかった。
- 3) 滝の騒音レベル(Leq値)は76~81dB(A)であったが、距離が離れていることを考慮すると、せせらぎ、落ち込み流れより発生する音がかなり大きいと考えられた。周波数分析の結果では、滝は低域から高域の周波数にかけて広くパワーをもっていた。滝の騒音レベルの時間的な変動、及び、スペクトルの時間的な変動は小さかった。

## 1. はじめに

近年、開発が進み都市化された社会では自然志向が高まり、身近で触れることのできる自然が求められている。自然に触れる一つの方法として自然音を聴くということがあげられる<sup>1)</sup>。一般に人間は自然音を好ましいものと感じ、せせらぎ等、小川から発生する水の流れ音も好ましい自然音の一つとしてアンケート調査結果<sup>2)</sup>等であげられている。一方、各地で進められている公園整備、河川改修においても最近では親水公園、親水河川が多く作られるようになり、水の流れ音が身近となり聴取する機会が増えている。このような状況において水の流れ音は人に心地よさを感じさせる環境の要素として重要な役割を担うと考えられる。しかし、せせらぎ等、水の流れ音に関する調査としては都市公園の滝の調査事例<sup>3)</sup>の他にはあま

## 測定系



## 分析系

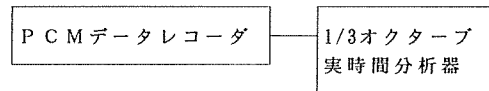


図-1 測定系と分析系

表-1 測定対象とした流れ

種類	NO.	河川名	流れの幅 (m)	流れ深さ (m)	流速 (m/s)	種類	NO.	形態	流れの幅 (m)	落差 (m)	流れの落下先
せせらぎ	1	自然河川1	0.30	0.09	0.25	落ち込み流れ	1	自然河川1	0.20	0.05	水
せせらぎ	3	自然河川2	0.17	0.06	0.33	落ち込み流れ	3	自然河川2	0.15	0.16	水
せせらぎ	4	自然河川1	0.30	0.05	0.34	落ち込み流れ	4	自然河川1	0.40	0.17	水
せせらぎ	5	自然河川1	0.10	0.04	0.34	落ち込み流れ	5	人工河川1	0.80	0.18	水
せせらぎ	6	自然河川1	0.06	0.06	0.46	落ち込み流れ	6	人工河川2	0.70	0.25	水
せせらぎ	7	自然河川1	0.12	0.07	0.47	落ち込み流れ	7	人工河川2	0.50	0.50	水
せせらぎ	8	自然河川1	0.17	0.09	0.49	落ち込み流れ	8	人工河川2	0.45	0.55	水
せせらぎ	9	人工河川1	1.20	0.03	0.51	落ち込み流れ	9	自然河川2	0.25	0.20	岩, 石
せせらぎ	10	人工河川1	0.30	0.07	0.51	落ち込み流れ	10	自然河川1	0.80	0.40	岩, 石
せせらぎ	11	自然河川1	0.16	0.05	0.53	落ち込み流れ	11	人工河川1	0.90	0.47	岩, 石
せせらぎ	12	人工河川1	0.29	0.07	0.56	落ち込み流れ	12	人工河川1	1.30	0.55	岩, 石
せせらぎ	13	人工河川1	1.10	0.04	0.58	落ち込み流れ	13	人工河川2	0.40	0.55	岩, 石
せせらぎ	14	人工河川1	0.70	0.04	0.61	滝	1	自然河川3	6.00	3.00	水
せせらぎ	15	自然河川2	0.17	0.05	0.63	滝	2	自然河川2	0.15	2.70	水深浅い (0.08m)
せせらぎ	16	自然河川2	0.18	0.04	0.65						
せせらぎ	17	人工河川1	1.00	0.06	0.75						

A Study for Water Sound caused by Streams

\*Toshiaki Nakamura, 横浜市環境科学研究所騒音部門

\*\*Masami Izumiyama, Teturou Koyano, 東海大学

り見られず、音響的解析が充分行われているとはいえない。今回、自然及び人工の小川について水の流れ音を調査する機会を得たので調査結果を報告する。

## 2. 調査方法

調査を行った小川は自然河川3、人工河川2の5河川である。本調査においては川の流れを「せせらぎ」「落ち込み流れ」「滝」の3つに分類し、「せせらぎ」は石、等により川幅が狭くなるか傾斜がきつくなることで流れが速くなって音を発生している場所、「落ち込み流れ」は明確に川底に段差がつき水が落下している場所、「滝」は水が1m以上の落差を有して落下している場所とした。

表-1に各測定場所の川のデータを示す。川幅の値は音を測定した地点で最も狭くなっている部分の値を用いたが、調査を行った河川は滝の場合を除いて川幅0.06~1.3mの小川であった。また、せせらぎの流れの深さは0.02~0.09mであった。流速は川の流れ音が発生している場所において流れの最も速い地点で浮きを流し、浮きが0.5m流れる時間から算出した。本調査におけるせせらぎの流速は0.25~0.75m/sであった。

音の測定方法はマイクロホンの流れ音の発生源から0.5m離れたところに設置し(滝の場合は2~3m)、精密騒音計からPCMデータレコーダに収録した。解析方法はPCMデータレコーダで流れ音を30秒間再生し、この時の騒音レベル及び1/3オクターブバンドレベルのLeq値を求めた。また、Leq値以外にサンプリング間隔0.1秒で30秒間の時間率騒音レベルL<sub>5</sub>とL<sub>95</sub>も求めた。本調査の測定系と分析系を図-1に示す。また、本調査に用いた測定器を以下に示す。

精密騒音計	B&K	2 2 3 1	1台
精密騒音計	小野測器	LA-500	1台
1/3オクターブ実時間分析器	リオン	SA-27	1台
PCMデータレコーダ	ソニー	PC204	1台

## 3. 結果及び考察

### 3-1 流れ音の大きさ

表-2に各測定場所の騒音レベル(Leq値)を示す。せせらぎの騒音レベルは0.5mの距離で53~73dB(A)と20dBの幅で広く分布したが、全体的にレベルは低く暗騒音が高いところではせせらぎの音をクリアーに聴取するのは難しいと考えられる。次に、せせらぎの

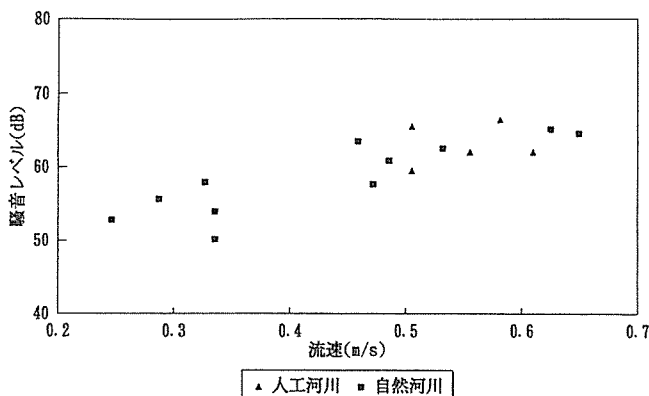


図-2 流速と騒音レベル

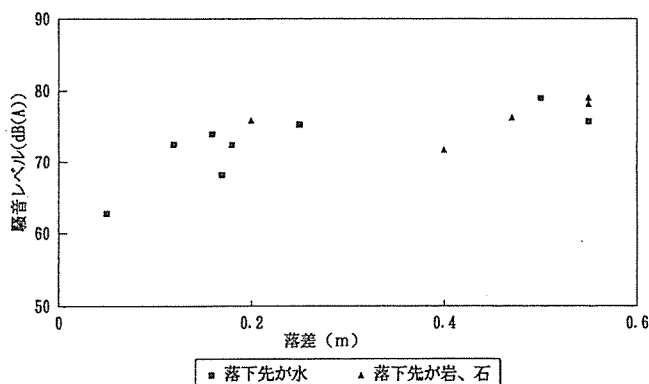


図-3 落差と騒音レベル(落ち込み流れ)

流速と騒音レベルの関係を図-2に示す。せせらぎの流速と騒音レベルの間にはかなり明確に相関関係がみられ、流速が速くなるほど騒音レベルが大きくなる傾向がみられる。ここで、せせらぎの流速(X)と騒音レベル(Y)の回帰式を求めると $Y=36.0 \cdot X+43.3$ (相関係数0.885)の式が得られた。また、人工河川と自然河川を比べると、人工河川は騒音レベルの高い場合が多いが流速も早い場合が多く、両者に明確な違いは見られなかった。

落ち込み流れの騒音レベルは表-2より、0.5mの距離で63~79dB(A)となり全体的にせせらぎより大きなレベルとなり、ある程度、暗騒音が高くても落ち込み流れの音は聴取できるといえる。落ち

表-2 騒音レベル測定結果

種類	NO.	河川名	騒音レベル (dB(A))	マイク 距離(m)
せせらぎ	1	自然河川1	53	0.5
せせらぎ	3	自然河川2	58	0.5
せせらぎ	4	自然河川1	54	0.5
せせらぎ	5	自然河川1	50	0.5
せせらぎ	6	自然河川1	64	0.5
せせらぎ	7	自然河川1	58	0.5
せせらぎ	8	自然河川1	61	0.5
せせらぎ	9	人工河川1	66	0.5
せせらぎ	10	人工河川1	60	0.5
せせらぎ	11	自然河川1	63	0.5
せせらぎ	12	人工河川1	62	0.5
せせらぎ	13	人工河川1	66	0.5
せせらぎ	14	人工河川1	62	0.5
せせらぎ	15	自然河川2	65	0.5
せせらぎ	16	自然河川2	65	0.5
せせらぎ	17	人工河川1	73	0.5

種類	NO.	形態	騒音レベル (dB(A))	マイク 距離(m)
落ち込み流れ	1	自然河川1	63	0.5
落ち込み流れ	3	自然河川2	74	0.5
落ち込み流れ	4	自然河川1	68	0.5
落ち込み流れ	5	人工河川1	72	0.5
落ち込み流れ	6	人工河川2	75	0.5
落ち込み流れ	7	人工河川2	79	0.5
落ち込み流れ	8	人工河川2	76	0.5
落ち込み流れ	9	自然河川2	76	0.5
落ち込み流れ	10	自然河川1	72	0.5
落ち込み流れ	11	人工河川1	76	0.5
落ち込み流れ	12	人工河川1	79	0.5
落ち込み流れ	13	人工河川2	78	0.5
滝	1	自然河川3	81	3
滝	2	自然河川2	76	2

込み流れの落差と騒音レベルの関係を図-3に示す。落ち込み流れは落差が大きくなるほど騒音レベルが大きくなる傾向がみられる。また、流れの落下地点に水がたまっている場合、落下地点が岩、石の場合等、落下先の違いによる騒音レベルの影響は明確にはみられていない。ここで、落ち込み流れの落差(X)と騒音レベル(Y)の回帰式を求めると $Y=18.3 \cdot X+68.0$ (相関係数0.749)の式が得られた。

滝の騒音レベルは表-2より、マイクロホンまでの距離が2~3mと離れているため76~81dB(A)であるが、距離を考慮すればせせらぎ、落ち込み流れより発生する音がかなり大きいと考えられる。

### 3-2 周波数分析の結果

水の流れ音の音色的な特徴を調べるため、測定した流れ音を1/3オクターブ周波数分析(Leq値)をした。周波数分析結果の一例を図-4に示す。

流れ音の特徴を見るため周波数分析でピークとなる周波数を調べてみる。図-5はせせらぎの流れ音でピークとなった周波数である。せせらぎのピークは特定の周波数だけに集中してはいないが、その分布範囲は限られており、ほとんどのピークは1k~2kHzの周波数の間にある。図-6は落ち込み流れの流れ音でピークとなった周波数である。落ち込み流れはせせらぎと異なりピークは200Hzから6.3kHzまで広く分布している。また、水の落下先別に見ると、落下先が水の場合は低い周波数でピークとなることが多く、落下先が岩、石の場合は高い周波数がピークとなる傾向がみられる。図には示していないが、滝は2つの滝とも6.3kHzの高い周波数でピークとなった。

つぎに、ピーク以外でどの周波数がパワーを持っているかを調べてみる。表-3はピークのレベルから3dB以内のパワーを持った周波数の分布を各流れ毎に表したものである。せせらぎはほとんどが630~3.15kHzの比較的限られた周波数にパワーがあり、ピークの周波数の場合とほぼ同様の傾向を示している。落ち込み流れは落下先が水の場合、落差の最も少ない落差0.05mの流れを除いて、いずれも400Hz以下の低い周波数にパワーがあり、中高域の周波数もせせらぎより広くパワーが分布している。落ち込み流れで落下先が岩、石の場合、いずれも630Hz以上の周波数にパワーがあり5kHz以上の高域の周波数にかけて広く分布している。滝は広くパワーが分布しており、特に滝1は50Hz~12.5kHzにかけて広く分布している。

### 3-3 流れ音の時系列の変化

自然界において時系列の変化はゆらぎとしていろいろなものに多く存在し、音の時系列の変化も心地よさに影響を与えている<sup>9)</sup>。本調査ではゆらぎは測定できなかったが、心地よさに関係があるといわれる時系列の変化を時間率騒音レベルの $L_5$ と $L_{95}$ のレベル差で測定し検討することとした。

表-4に各流れの $L_5$ と $L_{95}$ のレベル差を示す。せせらぎは2カ所を除いてレベル差が5dB以上あり音のレベルが大きく変動していることがわかる。次に、せせらぎの流速とレベル差の関係を図-7に示す。流速が遅くなるとレベル差が大きくなる傾向がみられ、せせらぎは流速が遅いほど音の変動が大きくなる傾向があることがわかる。また、自然河川と人工河川を比べると、自然河川の方がレベル差が大きく音の変動が大きいことを示しているが、自然河川は流速の遅い場所が多く、明確な違いがあるとはいえない。

落ち込み流れの場合は表-4より、落差0.05mの場合を除いて、レ

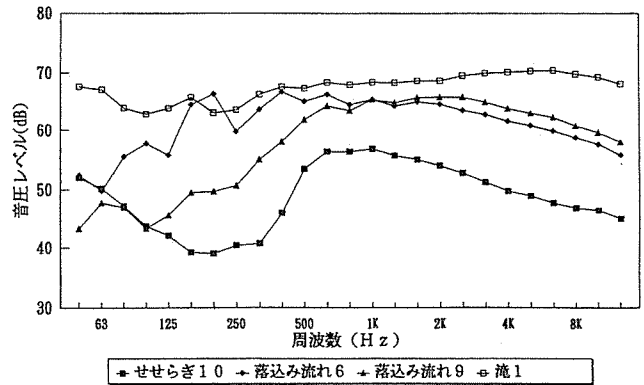


図-4 1/3オクターブ周波数分析結果

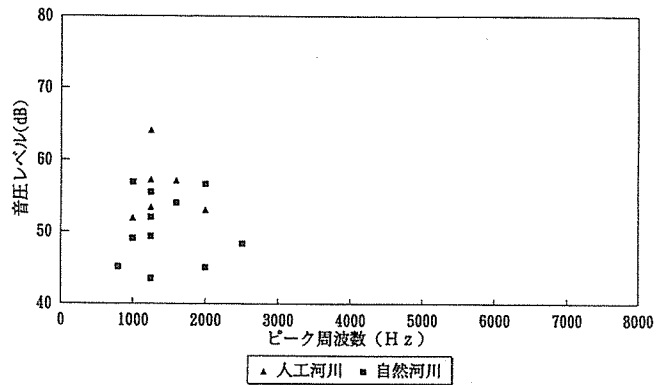


図-5 ピーク周波数と音圧レベル(せせらぎ)

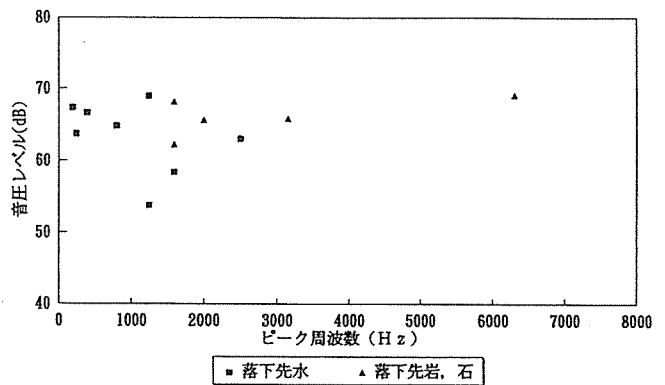


図-6 ピーク周波数と音圧レベル(落ち込み流れ)

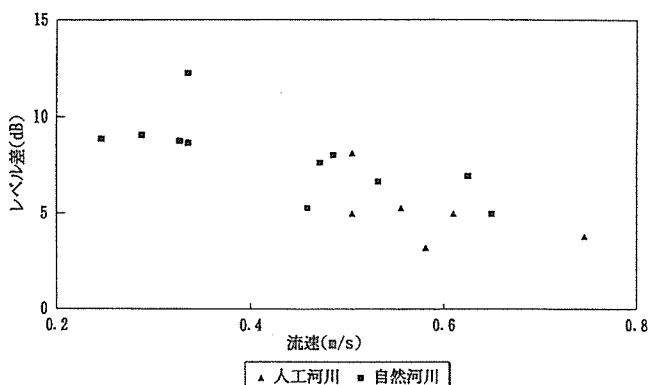


図-7 流速と $L_5-L_{95}$ レベル差(せせらぎ)

ベル差が3.6dB以下となり全体的にせせらぎよりレベルの変動が小さいといえる。落ち込み流れの落差とレベル差の関係を図-8に示す。落差0.2m以下の流れでは落差が小さいほどレベル差が大き

くなる傾向も若干みられるが、落差0.2m以上では落差が変化してもレベル差はあまり変化していない。

滝の場合は表-4より、レベル差は小さな値となり音のレベルの変動が少ないことを示している。

騒音レベルの時系列の変動とともにゆらぎに関与すると考えられるのがスペクトルの時系列の変化である<sup>9)</sup>。そこで、流れ音のスペクトルの時系列の変化を調べてみた。図-9は表-4においてL<sub>s</sub>とL<sub>95</sub>のレベル差が最大の12.2dBとなったせせらぎ5のスペクトルの変化である。図-10はレベル差が6.7dBとなったせせらぎ11のスペクトルの変化、図-11はレベル差がせせらぎで最小の3.2dBとなったせせらぎ13のスペクトル変化である。図-9、図-10、図-11より、L<sub>s</sub>とL<sub>95</sub>のレベル差が大きい場合はスペクトルの変化も大きくなる傾向がみられる。せせらぎは全体的にレベル差が大きくなることが多いことから、スペクトルの時系列の変化も大きいといえる。

落ち込み流れのスペクトルについても時系列の変化を調べてみた。表-4において落ち込み流れはレベル差が小さな値となることが多いことから予測できるように、スペクトルの時系列の変化も小さかった。図-12、図-13に落ち込み流れのスペクトルの時系列の変化の測定例を示すが、スペクトルはあまり大きな変化をみせていない。

滝のスペクトルの時系列の変化も、表-4のレベル差が小さいことに対応して小さかった。図-14は滝1のスペクトルの変化である。50Hz付近の低周波域はある程度の変化が見られるが、それ以上の周波数ではほとんど変化が見られない。

以上の検討により、水の流れ音の騒音レベル及びスペクトルの時

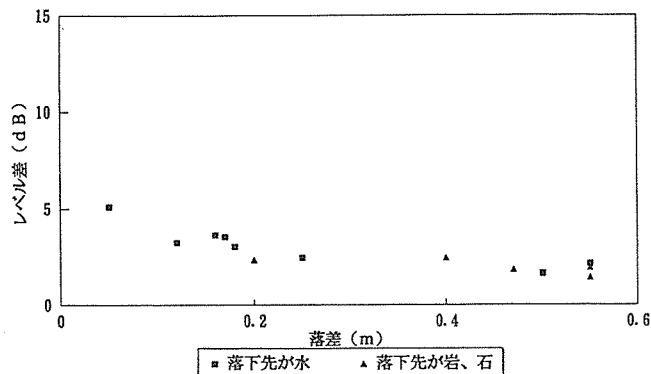


図-8 落差とL<sub>s</sub>-L<sub>95</sub>のレベル差(落ち込み流れ)

系列での変動は、せせらぎの流速の遅い場所で大きくなり、落ち込み流れ、滝では小さくなるということがわかった。

#### 4. まとめ

今回の調査結果から小川の流れ音の特徴を流れの形態別にまとめると以下ようになる。

1) せせらぎは騒音レベル(Leq値)が0.5mの距離で53~73dB(A)となり、流速が増すほど騒音レベルが上昇する傾向が見られた。周波数分析(Leq値)の結果、せせらぎの音のピークは1kHz~2kHzの範囲、ピークから3dB以内のパワーを持つのは630Hz~3.15kHzの範囲となることが多く、比較的限られた周波数の範囲にパワーがあった。せせらぎの音を時系列で調べると、騒音レベルは時間的

表-3 1/3オクターブ分析結果 (◎ピーク周波数 ○ピークから3dB以内の周波数)

種類	流速(m/S)	周波数 (50~12.5kHz)																								
		**	63	**	**	125	**	**	250	**	**	500	**	**	1K	**	**	2K	**	**	4K	**	**	8K	**	**
せせらぎ 1	0.24													◎	○	○										
せせらぎ 2	0.29													○	○	○		○	◎							
せせらぎ 3	0.33													○	○	○		○	○							
せせらぎ 4	0.34														○	○	○	◎	○				○			
せせらぎ 5	0.34														○	◎	○									
せせらぎ 6	0.46																◎	○								
せせらぎ 7	0.47													○	○	◎	○	○	○							
せせらぎ 8	0.49													○	○	◎	○	○	○							
せせらぎ 9	0.51													○	○	◎	○	○	○							
せせらぎ 10	0.51													○	◎	○	○	○	○							
せせらぎ 11	0.53														○	○	◎	○	○							
せせらぎ 12	0.56														○	○	◎	○	○				○			
せせらぎ 13	0.58														○	○	◎	○	○				○			
せせらぎ 14	0.61															○	○	◎	○			○				
せせらぎ 15	0.63													○	○	◎	○	○	○				○			
せせらぎ 16	0.65														○	○	◎	○	○				○			
せせらぎ 17	0.75													○	○	◎	○	○	○				○			

種類	落差(m)	落下先	周波数 (50~12.5kHz)																							
			**	63	**	**	125	**	**	250	**	**	500	**	**	1K	**	**	2K	**	**	4K	**	**	8K	**
落ち込み流れ 1	0.05	水													○	○	◎	○								
落ち込み流れ 2	0.12	水													○	○	◎	○	○							
落ち込み流れ 3	0.16	水													○	○	◎	○	○							
落ち込み流れ 4	0.17	水													○	○	◎	○	○							
落ち込み流れ 5	0.18	水													○	○	◎	○	○				○			
落ち込み流れ 6	0.25	水													○	○	◎	○	○				○			
落ち込み流れ 7	0.50	水													○	○	◎	○	○				○			
落ち込み流れ 8	0.55	水													○	○	◎	○	○				○			
落ち込み流れ 9	0.20	岩、石													○	○	◎	○	○				○			
落ち込み流れ 10	0.40	岩、石													○	○	◎	○	○				○			
落ち込み流れ 11	0.47	岩、石													○	○	◎	○	○				○			
落ち込み流れ 12	0.55	岩、石													○	○	◎	○	○				○			
落ち込み流れ 13	0.55	岩、石													○	○	◎	○	○				○			
滝 1	3.00	水	○												○	○	◎	○	○				○			
滝 2	2.70	浅い水													○	○	◎	○	○				○			

1 / 3 octave Real-Time Analyzer SA-27

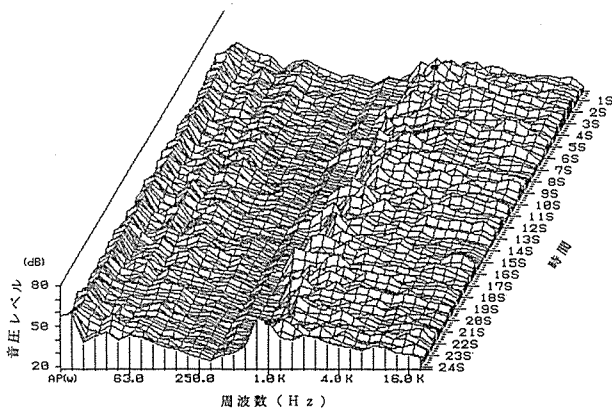


図-9 スペクトルの時系列変化 (せせらぎ 5)

1 / 3 octave Real-Time Analyzer SA-27

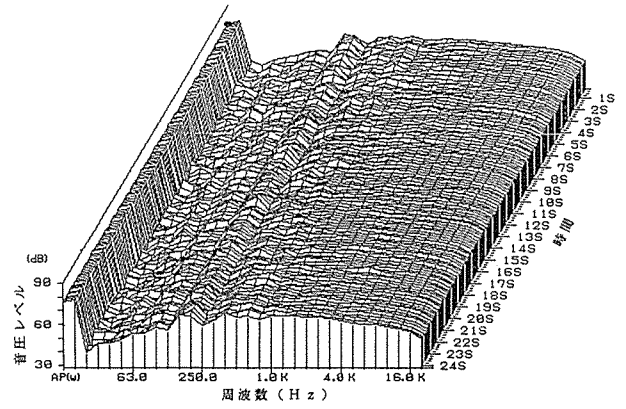


図-12 スペクトルの時系列変化 (落込み流れ 6)

1 / 3 octave Real-Time Analyzer SA-27

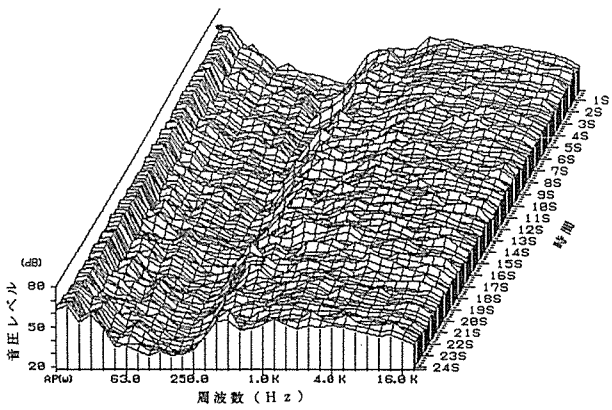


図-10 スペクトルの時系列変化 (せせらぎ 11)

1 / 3 octave Real-Time Analyzer SA-27

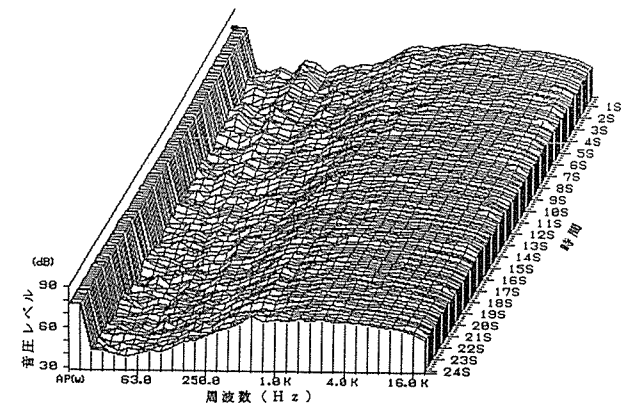


図-13 スペクトルの時系列変化 (落込み流れ 9)

1 / 3 octave Real-Time Analyzer SA-27

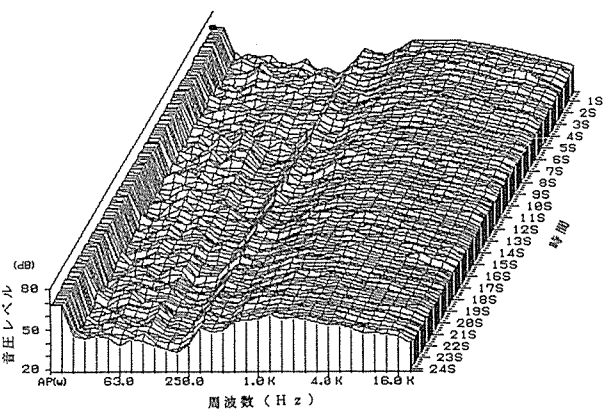


図-11 スペクトルの時系列変化 (せせらぎ 13)

1 / 3 octave Real-Time Analyzer SA-27

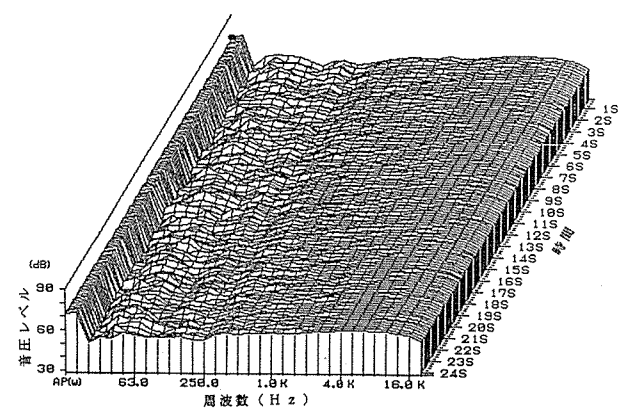


図-14 スペクトルの時系列変化 (滝 1)

に大きく変動しており、流速が遅いと変動が大きくなる傾向がみられた。騒音レベルの変動が大きいせせらぎはスペクトルも大きく変動していた。

2) 落ち込み流れは騒音レベル(Leq値)が0.5mの距離で63~79dB(A)となりせせらぎより全体的に大きいレベルとなった。また、落ち込み流れの落差が増すほど騒音レベルが上昇する傾向が見られた。周波数分析(Leq値)の結果、落ち込み流れは流れの落下先によりピーク及びパワーを持つ周波数の分布が異なっていた。ピークは流れが水に落下する場合は低い周波数となることが多く、岩、石に落下する場合は高い周波数となることが多かった。パワーを持つ範囲は、流れが水に落下する場合は400Hz以下の低い周波数と中高域の周波数に広く分布していた。また、流れが岩、石に落下する場合は630Hz以上の周波数からパワーがあり5kHz以上の高域の周波数にかけて広くパワーを持っていた。落ち込み流れの騒音レベルの時間的な変動は、落差の少ない一部の流れを除いて、小さかった。また、スペクトルの時間的な変動も小さかった。

3) 滝の騒音レベル(Leq値)は76~81dB(A)であったが、距離が2~3mと離れているため距離のことを考慮すると、せせらぎ、落ち込み流れより発生する音がかなり大きいと考えられた。また、周波数分析の結果では、滝は低域から高域の周波数かけて広くパワーをもっていた。滝の騒音レベルの時間的な変動、及び、スペクトルの時間的な変動は小さかった。

## 5. おわりに

今回の調査により、今まであまり調査されていなかったせせらぎ等の水の流れ音の音響的性質をある程度把握する事ができた。今回の調査では人間の快適性と関係が深いと言われるゆらぎについては測定できなかったが、ゆらぎに影響を与えると考えられる騒音レベル及びスペクトルの時系列の変動については測定した。その結果、水の流れ方により騒音レベル及びスペクトルの時系列の変動性

表-4 時間率騒音レベルのレベル差

種類	NO.	騒音レベル(dB(A))		
		L5	L95	レベル差(L5-L95)
せせらぎ	1	57.0	48.1	8.9
せせらぎ	2	59.9	50.8	9.1
せせらぎ	3	61.9	53.1	8.8
せせらぎ	4	58.3	49.6	8.7
せせらぎ	5	54.8	42.6	12.2
せせらぎ	6	66.2	60.9	5.3
せせらぎ	7	61.3	53.6	7.7
せせらぎ	8	64.5	56.4	8.1
せせらぎ	9	68.3	63.3	5.0
せせらぎ	10	63.4	55.2	8.2
せせらぎ	11	65.6	58.9	6.7
せせらぎ	12	64.6	59.3	5.3
せせらぎ	13	67.9	64.7	3.2
せせらぎ	14	64.1	59.1	5.0
せせらぎ	15	70.0	63.0	7.0
せせらぎ	16	67.0	62.0	5.0
せせらぎ	17	75.6	71.8	3.8

種類	NO.	騒音レベル(dB(A))		
		L5	L95	レベル差(L5-L95)
落ち込み流れ	1	65.2	60.1	5.1
落ち込み流れ	2	73.8	70.6	3.2
落ち込み流れ	3	75.5	71.9	3.6
落ち込み流れ	4	69.7	66.2	3.5
落ち込み流れ	5	73.7	70.7	3.0
落ち込み流れ	6	76.5	74.1	2.4
落ち込み流れ	7	79.7	78.1	1.6
落ち込み流れ	8	76.8	74.7	2.1
落ち込み流れ	9	76.8	74.5	2.3
落ち込み流れ	10	72.8	70.4	2.4
落ち込み流れ	11	77.1	75.3	1.8
落ち込み流れ	12	79.7	78.3	1.4
落ち込み流れ	13	79.1	77.2	1.9
滝	1	71.3	70.0	1.3
滝	2	67.4	65.0	2.4

は大きく異なることがわかった。今後は、時系列の変動の大きさがどのくらいの時に人間が心地よいと感じるのか、時系列の変動性がゆらぎにどれくらい関係しているか等を検討課題としていきたい。

## 文 献

- 1) 高山光弘：サウンドスケープ・デザイン（とくに生物音）による地域づくり、環境情報科学, 23(1), 30-31(1994).
- 2) 鹿島教昭, 田村明弘, 嶋理恵子, 澤田淳也：音環境に関する横浜市民の意識、日本騒音制御工学会講演論文集, 165-168(1992).
- 3) 吉村道彦, 塩田正純：水によって発生する環境音についての検討、日本騒音制御工学会講演論文集, 133-136(1992).
- 4) 武者利光：1/fゆらぎ、応用物理, 46(12), 1144-1155(1977).
- 5) 渡辺茂夫：音とゆらぎの世界、騒音制御, 11(3), 10-14(1987).
- 6) 宮島徹, 田原靖彦：音響付加による音環境制御のための基礎検討 -音響信号ゆらぎ特性の計測手法と実測例-, 日本音響学会秋季講演論文集, 697-698(1988).

## 揮発性有機塩素化合物による地下水汚染（第6報）

— 分解反応モデルによるテトラクロロエチレン汚染地下水の評価 —

二宮勝幸\*, 大場栄次\*, 酒井 学\*, 若林信夫\*\*, 悪七由美子\*\*

## 要 旨

テトラクロロエチレン(PCE)は嫌氣的条件下で微生物によりトリクロロエチレン(TCE)を経てシス-1,2-ジクロロエチレン(cis-DCE)まで分解する。この分解反応は連続一次反応式でよく表現できること、そして、この理論から導かれる化学量論的關係と速度論を応用した地下水汚染解析方法を既に報告した。本報告では、地下水がPCEによって汚染された市内M地区について年4回の調査を行い、その調査結果にこの分解反応モデルを用いた解析方法を適用し、解析を行った。その結果、この解析方法は、汚染源の位置や汚染地下水の流下方向の推定などに有効であった。また、汚染物質の分解特性を調べたところ、この調査地区のほとんどの地点では、PCEからTCEへの分解とTCEからcis-DCEへの分解がほぼ一定の速度比で行われており、後者の方が前者より19~25倍程大きいことがわかった。さらに、汚染物質の将来における濃度推移の予測が可能と考えられた。

## 1. はじめに

著者らは、土壌を用いた生分解実験からテトラクロロエチレン(PCE)は嫌氣的条件下で微生物によりTCEを経て主としてcis-DCEまで分解し、この分解反応は連続一次反応式でよく表現できることを明らかにした<sup>1)</sup>。また、この分解反応モデルの理論から、化学量論的關係と速度論に関する法則が導かれ、それらの法則は、地下水における汚染物質の挙動を評価・解析するために応用できることを明らかにし、地下水汚染解析方法としてまとめた<sup>2,3)</sup>。さらに、市内の汚染井戸の調査結果に、この分解反応モデルを用いた地下水汚染解析方法を適用して検討したところ、この解析方法の有用性が認められた<sup>4)</sup>。

本報告では、PCEが汚染原因物質と考えられる市内M地区の井戸調査を行い、その調査結果にこの分解反応モデルを用いた地下水汚染解析方法を適用して、PCEおよびその分解生成物質(TCEとcis-DCE)の汚染状況や分解特性などについて検討した。以下、モル濃度のことを単に濃度という。

## 2. 方 法

## 2-1 調査地区

調査は、市内M地区のSt.1~St.9の計9地点(図-1)の井戸について、1989年の5月(May), 8月(Aug.), 11月(Nov.)および1990年の2月(Febr.)の計4回実施した。M地区は南斜面となっており、井戸は東西に走る道路より北側に存在している。井戸のほとんどは深さ数m前後の浅井戸だが、St.2の水位は10m程度である。M地区内の井戸では、PCEのほか、その分解生成物質と考えられるTCEとcis-DCEが検出されているが、汚染源の場所については明確にはわかっていない。

## 2-2 分析方法

PCE, TCEおよびcis-DCEについては、次の分析方法を用い

て測定した。

PCE, TCE: 溶媒抽出・ECD-GC法(JIS-K0125)

cis-DCE: ヘッドスペース・GC/MS法<sup>2)</sup>

また、陽イオンについては原子吸光法、陰イオンについてはイオンクロマトグラフ法により測定した。

## 2-3 速度定数の計算方法

この地下水汚染解析方法では、最小二乗法を用いて速度定数を求める場合がある<sup>4)</sup>。その計算方法を簡便にするため、スプレッドシート「LOTUS123」のマクロプログラムを作成し、それを用いてスプレッドシート上の表データより速度定数等を求めた。

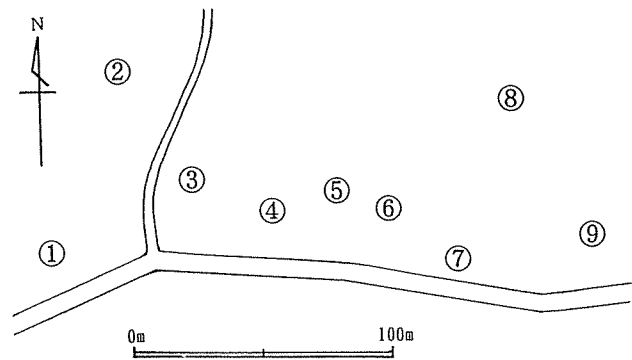


図-1 調査地点

Groundwater Contamination with Volatile Chlorinated Hydrocarbons(VI) - Evaluation on Behavior and Fate of ChlorinatedHydrocarbons in Groundwater Using Kinetic Model -

\*Katsuyuki Ninomiya, Eiji Ohba, Manabu Sakai, 横浜市環境科学研究所水質部門

\*\*Nobuo Wakabayashi, Yumiko Akushichi, 横浜市環境保全局水質地盤課

### 3. 結果と考察

#### 3-1 地下水汚染解析方法

ここでは、PCEの分解反応モデルを用いた地下水汚染解析方法の概要について述べる<sup>2,3)</sup>。

PCEがTCEを経てcis-DCEまで分解する反応は、次の連続一次反応式で近似できる。



ここで、 $k_1$ 、 $k_2$ は速度定数である。この分解反応モデルは、①PCE、TCEおよびcis-DCE(以下、これら3物質を総称してPTCという)のモル濃度和は反応の全期間を通して不変でPCEの初期モル濃度に相当する、②時間の経過とともにPCEは分解消失しその減少分に相当する量のTCEやcis-DCEを生成する、という2つの一般則をもつ。

これらの一般則から、地下水の汚染状態や分解状態を解析するための2つの指標①総汚染度(PTC濃度和)、②分解度(PTC濃度和に対するTCEとcis-DCEの濃度和の百分率)を定義した。総汚染度は、①の法則に基づいており、総汚染度を用いることによってPCE汚染をその分解生成物質を含むトータルな汚染として評価することが可能となる。分解度は、②の法則を応用したものであり、PCEがTCEやcis-DCEに分解された割合すなわちPCEの分解の程度を表す。

一方、汚染地下水中で実際の分解速度定数を知ることはむずかしいが、分解反応モデルの理論<sup>3)</sup>によると、ある地点のPTC濃度和に対するTCE濃度とcis-DCE濃度の百分率の関係から、その地点ではどのような速度定数の比 $k_2/k_1 (=r)$ で分解が行われているのかを知ることができる。そして、PCEがほぼ完全にcis-DCEまで分解するに要する時間(分解終了時間)を例えば10日間と仮定すると、その仮定条件下における速度定数 $k_1$ 、 $k_2$ や、PCEが分解を始めてから経過した時間(分解経過時間) $t$ が求められる。

この速度定数 $k_1$ 、 $k_2$ から、各PTCの経時濃度変化図が得られ、その図と分解経過時間 $t$ を対比させることによって、測定した時点における汚染物質の分解のステージや今後の濃度推移を推定することができる。

以下、この分解反応モデルを用いた解析方法を、M地区の調査結果に適用し検討した結果について述べる。

#### 3-2 地下水の特性と汚染物質の存在状態

##### 3-2-1 イオン成分

地下水系の推定や地下水質の特徴の把握のために、イオン成分のグラフを用いる場合が多い。ここでは、 $\text{Na}^+ + \text{K}^+$ 、 $\text{Ca}^{2+}$ 、 $\text{Mg}^{2+}$ 、 $\text{Cl}^-$ 、 $\text{NO}_3^-$ および $\text{SO}_4^{2-}$ の各イオン成分の最大モル濃度を100%とした放射線状グラフを作成し、パターンの比較を行った。図-2に各地点の季節毎の放射線状グラフを示す。

各地点の放射線状グラフのパターンは季節によって変化しているが、St.1とSt.9はいずれの季節とも明らかに他地点とは異なるパターンを示すことから、それぞれ他地点とは異なる水系に属しているものと思われる。同様に、St.2とSt.8についてもそれぞれ他地点とは少し異なる水系に属すると推察される。一方、St.3~St.7の5地点はいずれの季節でもほぼ同じパターンを示した。したがって、St.3~St.7は同じ水系に属しているものと考えられる。

##### 3-2-2 総汚染度

各地点の汚染物質濃度を測定した結果、St.1、St.8およびSt.9では不検出あるいはほとんど不検出で、PTC 3物質とも検出された地点はSt.2からSt.7までの計6地点であった。したがって、以後は、主としてこれらの6地点のデータを対象に解析を行った。なお、3-2-1イオン成分の項で述べたように、これら6地点のうちSt.2だけが他地点とは少し異なる水系に属している。

図-3に各地点の季節毎の総汚染度(PTC濃度和)を示す。図-3をみると、総汚染度は他地点と水系の少し異なるSt.2で最も低く $1 \sim 4 \mu\text{mol/l}$ の値を示し、地点番号が大きくなるにつれて高

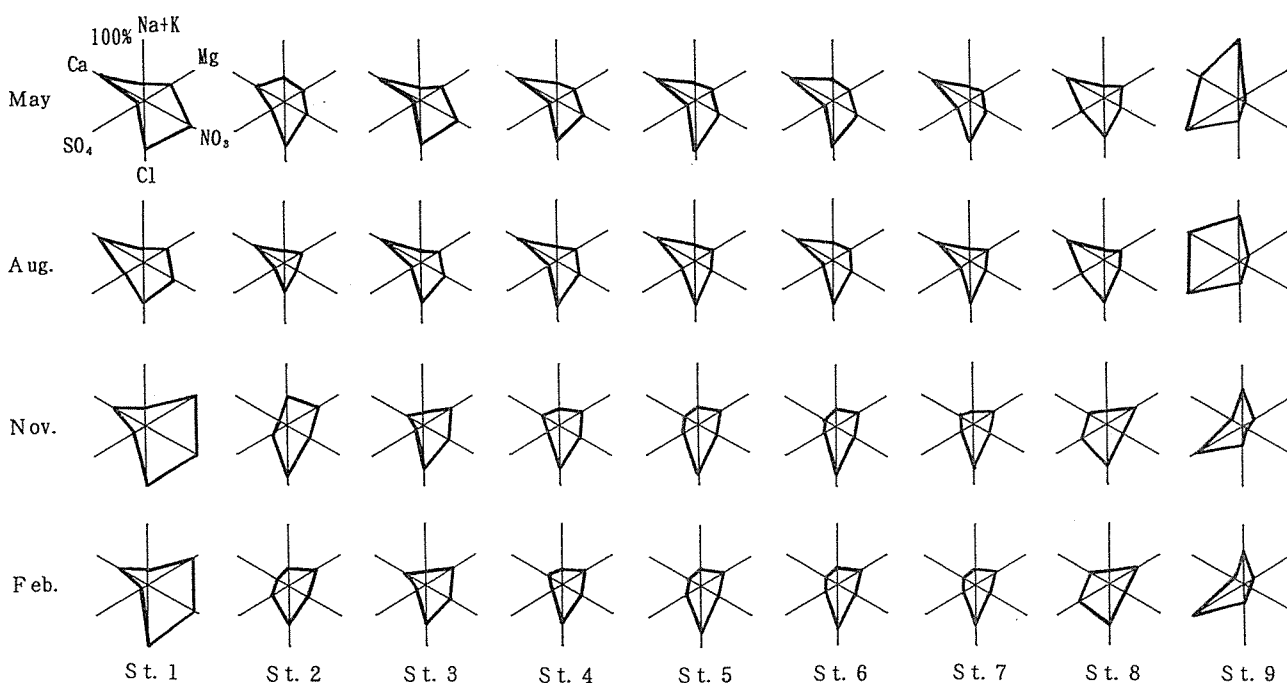


図-2 地下水イオン成分の放射状グラフ



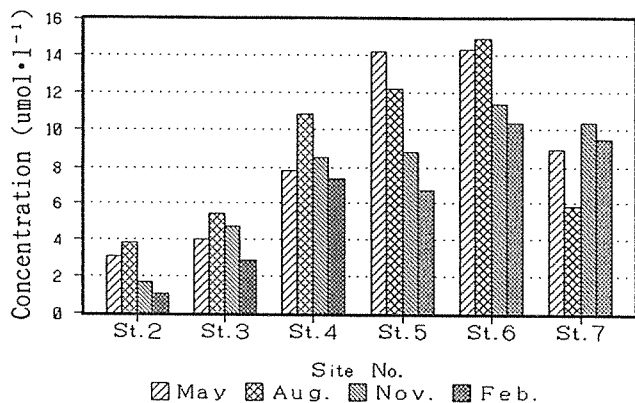


図-3 季節毎の各地点における総汚染度

くなり、St.6 で10~15  $\mu\text{mol/l}$  と最も高い値を示した。しかし、St.7 の総汚染度は St.6 より低くなった。これらのことと St.1, St.8 および St.9 では汚染物質が認められないことから、汚染源を通る地下水の流れは St.2 と St.7 を結ぶ線上にあると推察される。ただし、その線の南北側には調査地点がないので、地下水の南北の流れを把握できないが、地形が北に高く南に低いことを考えあわせると(図-1)、汚染物質を含む地下水の流れは St.2 から St.7 へのベクトル方向より更に南側に向かっている可能性がある。

総汚染度を季節別にみると、St.7 を除く地点では総汚染度は8月に高く2月に低い傾向を示した。これまでの地下水汚染の機構解明調査によると、土壌に侵入した汚染物質は滞水層付近に溜まり、少しずつ地下水に溶け出して移動・拡散していくと考えられている。したがって、8月に総汚染度が高くなる理由として、降雨量の多い8月には 地下水位の上昇に伴う汚染土壌からの新たな溶出があったことなどが考えられる。また、St.7 が他地点と異なる季節変動を示したのは、St.7 では井戸水を洗車に使用するなど地下水の使用形態が他地点と異なっていたためと考えられる。

### 3-2-3 分解度

分解度から、各地点の特徴について考察した。

図-4に、各地点の季節毎の分解度(PTC濃度和对するTCEとcis-DCEの濃度対の百分率)を示す。分解度の最も低い地点はSt.3で、その値は13~21%の範囲にあった。分解度の最も高い地点はSt.2で、その値は30~46%の範囲にあった。その他の地点の分解度はおおよそ30%前後の値を示した。このように地点によって分解度が異なる理由として、2つの原因が考えられる。1つは、地点によって微生物の種類や存在量が異なるため微生物分解の程度が各地点で異なることであるが、このことを把握するのは困難である。もう1つは、汚染源からの距離を反映していること、すなわち汚染源から遠い地点は汚染物質が地下水流によって汚染源から移動するのに要する時間分だけ分解作用を多く受けるため、汚染源からの距離に応じて、分解度は大きくなることが考えられる。したがって、分解度の最も低い値を示すSt.3が汚染源に最も近い位置にあると推察される。そして、汚染源から溶出した汚染物質を含む主要な地下水の流れは、St.4からSt.7の方向に行っているものと考えられる。また、St.4からSt.7までの分解度はあまり変わらないことから、これらの地点間では微生物による汚染物質の分解がほとんど進行していないと推察される。これらのことは、3-2-2総汚染度の項で述べたことと一致する。一方、St.2の分解度はSt.3のそれより高い値を示した。この理由として、汚染源はSt.2とSt.3の間

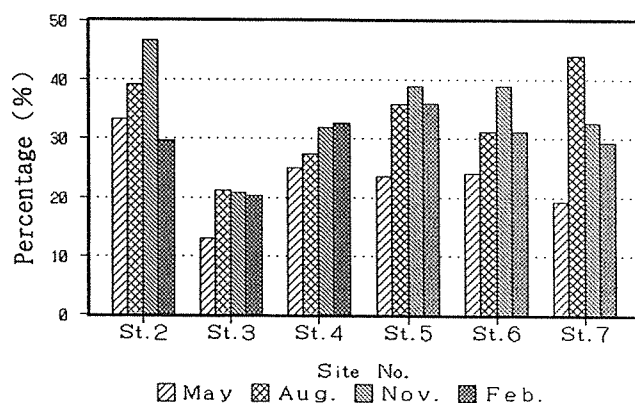


図-4 季節毎の各地点における分解度

あるいはそより北側に存在し、その汚染源から地下水の流れはSt.2の方向とSt.3の方向に分かれていることが考えられる。このことは、3-2-1イオン成分の項で述べたように、汚染物質が検出されたSt.2~St.7の6地点のうち、St.2だけが他地点と少し異なる水系に属していることから支持されよう。

分解度の季節変動についてみると、8月と11月に分解度が大きくなる地点が多かった。これらの地点では、5月と2月より8月と11月の方がPCEの分解が進んでいたと推察され、その要因として分解速度に影響を及ぼす温度の変動などが考えられる。平均水温は、8月に17.3℃、11月に15.1℃、5月に14.7℃、そして2月に14.2℃であった。一方、St.4の分解度は他地点とは異なり単調な増加傾向を示したことから、St.4では季節的な要因とは別に分解が進んでいる可能性もある。しかし、いずれの地点も年4回の調査から、その原因を推定あるいは確認することには無理がある。そのためには、数年間にわたる調査が必要であろう。

### 3-3 汚染物質の分解特性

ここでは、分解反応モデルの速度論を応用した、地下水における汚染物質の分解特性と濃度推移について述べる<sup>3)</sup>。

#### 3-3-1 速度定数の比

各地点におけるおおよその速度定数の比  $r$  を知るため、TCE と cis-DCE の濃度百分率の関係を調べた。図-5に、季節毎の各地点のTCEとcis-DCEの濃度百分率の分布、および  $r=25$  の理論曲線を示す。

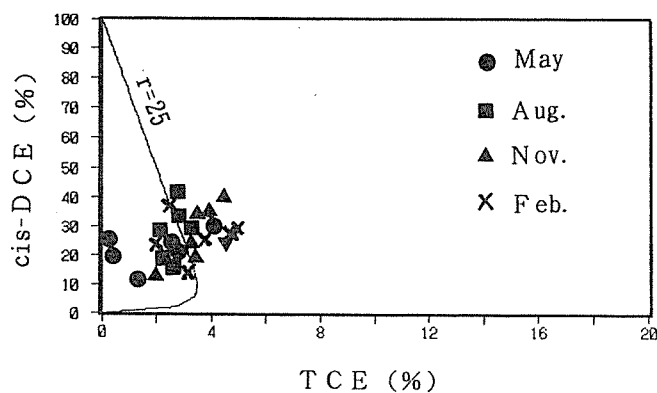


図-5 季節毎の各地点におけるTCEとcis-DCEのモル濃度百分率の分布および  $r=25$  の理論曲線

5月の2地点の測定値を除くほとんどの測定値は、ほぼ  $r=25$  の理論曲線付近に分布していた。このことは、季節が違ってもまた地点が異なっても PCE から TCE への分解速度( $k_1$ )と TCE から cis-DCE への分解速度( $k_2$ )が一定の比率で行われていることを意味している。この原因として、これらの地点では分解速度に関わる条件が類似していること、例えば同じ種類の分解細菌がほぼ同じ密度で存在していることなどが考えられるが、今後の検討課題である。

### 3-3-2 速度定数と分解経過時間

図-5より、St.2~St.7における速度定数の比  $r$  はほぼ  $r=25$  であることがわかった。ここでは、季節によって  $r$  値や各地点の分解経過時間はどのような値をとるのかを最小自乗法を用いて詳細に検討した。その方法は、分解反応モデルの理論<sup>3)</sup>に従い、分解終了時間を10日間と仮定した条件下における、季節毎の代表的な速度定数  $k_1$ 、 $k_2$  および各地点の分解経過時間  $t$  を求めた。表-1に、季節毎に最小自乗法により求めた速度定数、TCE の極大値、その極大値を示す時間、および各地点の分解経過時間を示す。

まず、速度定数  $k_2$  についてみると、5月に  $k_2=21.8$  で最も大きく、その他の季節は  $k_2=9.7\sim 12.3$  で比較的近い範囲にあった。5月に最も大きな値を示したのは、図-5において5月の2つの測定値(St.5とSt.7)が  $r=25$  の理論曲線より大きく左に偏っていたため、すなわち  $r$  値の大きい方に分布していたためである。このことは、3-2-2総汚染度の項で述べたように、5月における St.5 と St.7 は地下水の使用形態などが他地点と異なっていたことが原因していたと考えられる。この2つの地点の測定値を除いて計算してみると、5月の速度定数は  $k_2=12.4$  となり、そのほかの季節の値とほとんど変わらなくなった。したがって、速度定数の比  $r(=k_2/k_1)$  は季節によって大きな変化を示さず、それらの値は19~25の範囲にあったことを示している。このことから、M地区ではPCEからTCEへの分解よりもTCEからcis-DCEへの分解の方が19~25倍ほど速やかに進んでいたことがわかった。また、この値は市内T地区の調査結果<sup>9)</sup>の値( $r=3.6$ )より大きいことから、TCEの分解はT地区に比べM地区の方が相対的に5.3~6.9倍ほど速やかに行われていると推察された。

速度定数の比  $r$  は他の報告<sup>5,6)</sup>でも求められており、その比  $r$  は4~30、あるいは2~8の範囲にあった。これらはいずれも  $r > 1$  であることから、多くの場合は地下水中でPCEの分解よりTCEの分解の方が速く行われているようである。さらに多くの様々な環境条件の場所について  $r$  値が求められれば、 $r$  値のとり方に関して何らかの傾向が見いだされる可能性もあろう。

TCEの極大値およびその極大を示す時間については、各季節とも大きな差はなく、それぞれ3.5~4.4%および0.3日となった。この詳細な検討は次項で述べる。

### 3-3-3 経時濃度変化

この項では、St.2~St.7における汚染物質の分解特性を検討した。表-1からわかるように、 $r$  値が小さくなるに従いTCEの極大値は大きくなるという性質を示すが、 $r=19\sim 25$  の範囲ではTCEの極大値やその極大を示す時間はほとんど変わらない。そこで、一例として、図-6に速度定数が  $r=20$  すなわち  $k_1=0.5$ 、 $k_2=10$  の場合の経時濃度変化図を示す。

図-6において、PCEは指数関数的に漸減し、逆にcis-DCEは指数関数的に漸増するが、この分解反応モデルにおいて特徴的な変化を示すTCEは全期間を通して低濃度のまま推移している。具体的には、TCEは0.3日目に最大値4.4%に達したのち減少してい

表-1 季節毎に最小自乗法により求めた速度定数、TCEの極大値、その極大値を示す時間、および各地点の分解経過時間

	May	Aug.	Nov.	Feb.
$k_1$	0.5	0.5	0.5	0.5
$k_2$	21.8 (12.4)	12.3	11.0	9.7
VAR.	26.1 (12.1)	5.0	14.7	10.2
$[TCE]_{max}$ (mol%)	2.1 (3.5)	3.5	3.9	4.4
time <sub>max</sub> (day)	0.2 (0.3)	0.3	0.3	0.3
	elapsed times (day)			
St.2	0.8 (1.2)	1.0	1.3	0.7
St.3	0.3 (0.4)	0.5	0.5	0.5
St.4	0.6 (0.9)	0.6	0.8	0.8
St.5	0.5	0.9	1.0	0.9
St.6	0.6 (0.9)	0.7	1.0	0.8
St.7	0.4	1.2	0.8	0.7

VAR.: Variance of observations

( )内は St.5 と St.7 を除いて計算した時の数値

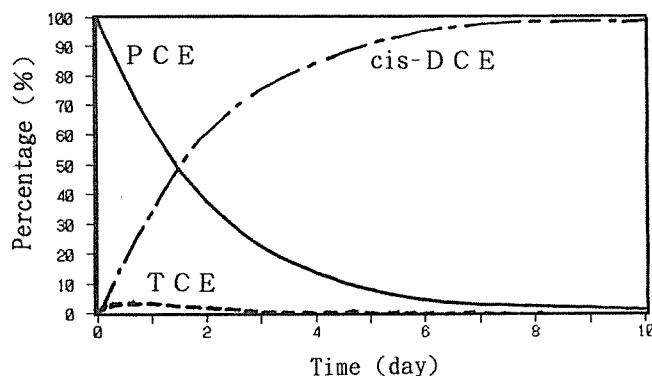


図-6  $r=20(k_1=0.5, k_2=10)$ の分解反応モデルにおけるPCEとTCEとcis-DCEの経時濃度変化

く。したがって、これらの地点では、いつの時点でもTCEの濃度百分率は5%を超えることはないと推察される。この経時濃度変化図と各地点の分解経過時間(表-1)を対比させると、いずれの地点も分解の初期段階にあるが、各地点の分解経過時間は0.4日以上であることからTCEの極大値を示す時間を過ぎたステージにあるといえる。もし、各地点において今後も同じ速度定数で分解が行われるとすると、PCEやTCEはいずれも減少して0%に近づいていくが、TCEは低濃度のまま推移しPCEを上回ることはないこと、逆にcis-DCEは増加して100%に近づいていくことが予測される。

地下水汚染状況を調べるためには、土壌ガスモニタリング<sup>7)</sup>やボーリング調査などいろいろな手法がある。今回、既存の井戸の濃度データだけを用いて、解析を行った。汚染源の位置を確定するまでには至らなかったが、地点毎の汚染物質の存在状態や分解特性についての情報が得られた。特に、今回の調査地区では PCE より TCE の分解の方がかなり速く行われていることがわかった。地域によって分解条件は異なるが、広域的な地下水汚染が環境庁の調査<sup>8)</sup>により1982年に確認されてから既に10年が経過していることから、比較的多くの地域においても分解は進んでいると推察される。したがって、地下水汚染調査では、汚染原因物質だけではなく、その分解生成物質の測定も行い、それら汚染物質の汚染状況や分解特性について、本報告で述べたように、分解反応モデルを用いて解析することが重要である。そうすることによって、汚染対策を実施するための貴重な資料が得られ、また、その後の処理効果をより正確に評価するのに役立つと考える。

#### 4. まとめ

PCE の分解反応モデルを用いた地下水汚染解析方法の有効性を検討するため、市内の PCE 汚染井戸の調査をもとに、汚染物質の存在状態と分解特性について調べた。その結果、以下のことが明らかとなった。

- 1) 総汚染度から、PCE とその分解生成物質を高濃度に含む地下水の位置について把握できた。分解度は、地点毎の分解程度の違いをよく表すとともに、分解度は汚染源からの距離に応じて大きくなると推察された。
- 2) 総汚染度と分解度を組み合わせることによって、汚染源の絞り込みや汚染地下水の流下方向の推定が可能であった。イオン成分の放射状グラフの特徴を調べれば、その推定をさらに確実なものにできた。
- 3) 速度定数の比 $r$ は地点毎の汚染物質の分解特性をよく表し、今回の調査地区では、19~25の範囲にあった。この値から、PCE の

分解よりTCEの分解の方がかなり速く行われていると推察された。

- 4) 今回の調査では、ほとんどの地点で速度定数の比 $r$ が同じであった。この理由として、これらの地点では、分解速度に関わる因子や条件が同じであったことが考えられる。

- 5) 経時濃度変化図から、調査した時点における分解のステージを把握し、汚染物質の今後の濃度推移を予測できた。しかし、その確認のためには、さらに調査を継続していく必要がある。

#### 文 献

- 1) 二宮勝幸, 酒井学: 揮発性有機塩素化合物による地下水汚染(第2報) - テトラクロロエチレンの分解反応モデル -, 横浜市公害研究所報, 15, 151-156(1991).
- 2) 二宮勝幸, 酒井学, 柏木宣久: テトラクロロエチレンの分解反応モデルを用いた地下水汚染解析方法, 水環境学会誌, 15, 822-827(1992).
- 3) 二宮勝幸, 酒井学: 分解反応モデルによるテトラクロロエチレンおよびその分解物質の挙動解析, 水環境学会誌, 16, 742-746(1993).
- 4) 二宮勝幸, 大場栄次, 酒井学, 若林信夫, 悪七由美子: 分解反応モデルを用いたテトラクロロエチレンによる汚染地下水の評価, 水環境学会誌, 17, 383-389(1994).
- 5) 二宮勝幸, 大場栄次, 酒井学: 揮発性有機塩素化合物による地下水汚染(第4報) - 分解反応モデルからみた地下水における汚染物質の挙動 -, 横浜市環境科学研究所報, 16, 111-117(1992).
- 6) 市橋啓子, 辻英高, 磯村公郎, 寺西清: 兵庫県下飲用井戸水中のトリクロロエチレン等による汚染状況, 35, 496-502(1993).
- 7) 吉岡昌徳, 山崎富夫, 奥野年秀, 平田健正, 中杉修身: 土壌ガスモニタリングを用いた揮発性有機塩素化合物による地下水汚染調査, 水環境学会誌, 15, 719-725(1992).
- 8) 川崎哲久: 地下水汚染の現状と対策, 水質汚濁研究, 8(5), 264-268(1985).

# 横浜港の化学物質汚染の現況と変遷

白柳 康夫\*

## 要 旨

横浜港港奥部から横浜市沿岸域の7地点において、PCB、DDT、TBTO及びTPTによる底質汚染の現況及び変遷について調査を行った。底質汚染の変遷に関しては、堆積年代が明らかな底質柱状試料を用いて解析を行った。その結果、PCB、DDT、TBTO及びTPTによる底質汚染は、横浜港港奥部から横浜市沿岸域全域で確認され、横浜港内港地区での汚染が著しく、最大値としてPCBが540ng/g、DDTが860ng/g、TBTOが1200ng/g、TPTが340ng/gであった。

底質柱状試料の堆積年代からの解析の結果、PCBによる汚染は、1960年頃から始まり1970年代の後半から1980年頃に最大値を示し、1980年以降は減少傾向を示した。しかし、表層部でやや増加傾向を示す地点もあった。DDTは、急激な濃度の増加を示す年代が1960年頃～1970年頃であった。そして、1970年頃をピークにその後は急激に減少していた。DDTは、規制前後の多量な使用が推測された。TBTOは、1960年頃から濃度が上昇し始め、その後も上昇傾向が続いている。

## 1. はじめに

「化学物質の審査及び製造等の規制に関する法律」でポリ塩化ビフェニル(PCB)、1,1,1-トリクロロ-2,2-ビス(4-クロロフェニル)エタン(DDT)、ビス(トリブチルスズ)オキシド(TBTO)等9物質が第一種特定化学物質に指定され、使用・製造が厳しく規制されている。PCBやDDT等の有害化学物質による環境汚染は、北極での汚染が確認されるなど<sup>1)</sup>地球規模での環境問題に発展している。この事実を裏付けるように、岩田らはDDT等の地球規模での汚染源が、日本等の中緯度工業国から熱帯の発展途上国に移行しつつあり、排出されたDDT等が極域周辺の寒帯域にたまりやすいと報告している<sup>2)</sup>。また、1988年には、北海でアザランの大量死亡事件が発生しているが、この原因としてはPCBやDDT等の化学物質の体内への蓄積が有力視されている。日本においても環境庁の調査結果<sup>3)</sup>から、魚介類へのPCB・DDTの蓄積が確認されている。PCBは使用が禁止されてから20年以上の年月が経過しており、規制時に使用済みPCBの保管が義務づけられた。近年、使用済みPCBの保管状況の調査結果が公表されたが、かなりの量のPCBが紛失していることが明らかとなり、環境中のPCB濃度が低下しない一因ともみられる。

また、近年は有機スズ化合物による魚介類の汚染が問題となっている。有機スズ化合物は、漁網や船底の防汚塗料として昭和30年代から使用されていたとされる<sup>4)</sup>。そして、昭和57年に環境庁の調査により有機スズ化合物による環境汚染が確認され<sup>5)</sup>、社会問題化した。その後の調査により、汚染は全国的規模で広がっていることが確認され<sup>6)</sup>、横浜港もその船舶航行量の多さから高濃度の有機スズ化合物が検出された。有機スズ化合物の環境におけるデータは、問題が顕在化した昭和57年以降のものがほとんどであり、それ以前のデータは見あたらない。

そこで、今回はPCB、DDT、有機スズ化合物という第一種特定

化学物質に指定されている有害化学物質について、底質における汚染の現況及び変遷について調査を行った。汚染の変遷については、堆積年代が明らかな底質柱状試料を用いて解析を行った。

## 2. 調査地点及び分析方法

### 2-1 調査地点

調査地点は、横浜港港奥部の内港地区で2地点及び横浜市沿岸域の5地点、合計7地点とした。St.1は大岡川の河口部で水深10m、St.2は内防波堤の西側に位置し、水深15m、St.1とは約1500m離れた地点である。St.3は本牧埠頭の東側に位置し、前面には海づり公園施設が設置されており、護岸からは、約800m離れた場所で、水深は24.5mであった。St.4は護岸から約500m離れており、水深は14.5mであった。St.5は根岸湾内で、湾岸には石油化学工場、火力発電所等が立地している。水深は12mであった。St.6は護岸からの距離200m、水深14.5mであり、富岡川河口の前面にあたる。富岡地区は、1974年から1975年にかけて造成された埋立地である。St.7は護岸からの距離200m、水深18.5mであった。

### 2-2 分析方法

底質柱状試料は、内径100mm、全長2mのポリカーボネイト製パイプを用いて、潜水して採取した。底質柱状試料は、表層から10cmごとに分取して分析に供した。

分析項目は、PCB、DDT、TBTO及びトリフェニルスズ化合物(TPT)とした。PCBは環境庁編「底質調査方法」により、DDTは立川の方法<sup>7)</sup>により、TBTOとTPTは昭和63年度化学物質分析法開発調査報告書<sup>8)</sup>の方法により分析した。

## 3. 結果及び考察

採取した底質柱状試料の性状、重金属類の分析結果等については既報<sup>9-11)</sup>で報告したので参照されたい。ここでは、PCB、DDT、

TBTO及びTPTの調査結果について報告する

### 3-1 化学物質の濃度分布状況

#### 3-1-1 PCBの濃度分布

図-1に底質柱状試料の深度別のPCB濃度分布を示した。まず、表層部の濃度を比較してみると、内港地区のSt.1で400ng/g、St.2で190ng/gと高濃度を示した。St.3からSt.7の沿岸域の地点では、St.5の32ng/gが最高で内港地区と比較して低濃度であった。内港地区には、PCBを規制以前に使用していた工場等が存在し、主に運河部であるが、1972年から1980年にかけてPCBで汚染された底質の浚渫が実施されている<sup>12)</sup>。PCBの問題が顕在化した昭和48年の調査結果<sup>13)</sup>と比較すると、内港地区のSt.1の付近では2000ng/g、St.2の付近で630ng/gと今回の調査結果の数倍の濃度であった。また、沿岸域のSt.3の付近で320ng/g、St.4からSt.7で40~70ng/gと、やはり今回の調査結果よりかなり高い濃度を示していたことがわかる。

次に、深度分布についてみると、St.1とSt.3は、表層から100cmの深度までPCBが検出され、特にSt.3では120cm付近で最大値を示している。St.3は、既報<sup>10)</sup>で報告したが100cm前後の層に覆砂による砂層が存在し、濃度が低くなっていると考えられる。覆砂が実施されたのは1977年であり、最大値を示しているのはそれ以前であり、PCBの使用状況と一致する。また、覆砂によりキャッピングの効果が予想されるが、砂層より上層でもPCBが検出されている。この要因としては、運河部等に堆積していた汚染底質の移動による再堆積、PCBの水系への新たな放出が要因として考えられる。また、St.5、St.6、St.7の深度分布において表層部での濃度上昇が認められ、極低濃度ではあるが、今後とも監視を要すると考えられる。

#### 3-1-2 DDTの濃度分布

図-2にDDTの濃度分布を示した。まず、表層部での濃度を比較してみると、内港地区のSt.1で最大値99ng/gを示し、St.2でも38ng/gという値を示した。沿岸域のSt.3からSt.7にかけては、0.9~3.9ng/gと内港地区と比較すると1桁低い値となっていた。

次に、深度分布についてみると、St.1とSt.2においてそれぞれ30cmと20cmの層で最大値863ng/g、340ng/gという濃度を示し、表層部と比較して約10倍もの高濃度であった。一時的にかなり多量のDDTが放出されたことが推測される。沿岸域のSt.3からSt.7はそれほど大きな変化は見られないが、St.3においてはPCBに見られたような砂層を境とした濃度の減少が見られなかった。しかし、St.5、St.6、St.7においては、PCBと同様に表層部での濃度上昇が認められた。DDTは、農薬としての使用は1971年に中止されており、現在の汚染源については定かではない。

#### 3-1-3 TBTOの濃度分布

図-3にTBTOの濃度分布を示した。まず、表層部における濃度分布を比較してみると、内港地区のSt.1で最大値1200ng/gを示し、St.2でも340ng/gと高濃度であった。沿岸域においては、St.3が360ng/gと内港地区のSt.2よりも高濃度を示したが、St.4からSt.7は20~150ng/gと低濃度であった。St.1が高濃度を示したのは、St.1の水域は船舶の航行、停泊が多いためであろう。St.3は沿岸域で閉鎖性が低いにもかかわらず高濃度を示した。TBTOの底質への堆積は潮流、特に下降流に規定されるという報告<sup>14)</sup>がある。そして、St.3付近における潮流としては、下降流が大きいという結果<sup>15)</sup>もみられる。つまり、TBTOの下降流依存性とSt.3における下降流の大きさが要因と考えられる。

次に、深度分布についてみると、St.1では表層から50cmの層で急激に増加し、30cm以浅では横ばい状態である。St.2はSt.1ほど急激ではないが、20cmあたりから増加し始めている。St.3は比較的高濃度であり、最大値は表層から10cmの層で970ng/gを示した。また、約100cmに存在する砂層より下層では非常に低濃度であり、PCBやDDTの分布とは異なっていた。

#### 3-1-4 TPTの濃度分布

図-4にTPTの濃度分布を示した。まず、表層部における濃度分布を比較してみると、内港地区のSt.1で310ng/gと最大値を示し、次いでSt.2の160ng/gであった。沿岸域においては、St.3で63ng/g、St.5で74ng/gとやや高かった。

次に、深度分布についてみると、St.1では表層から30cmの層から急激に増加し始め、20cm以浅ではほぼ横ばいであった。St.2では20cmの層から急激な増加傾向を、St.3でも80cmの層から急激な増加傾向を示したが、20cm以浅では急激に減少していた。同じ有機スズ化合物であるTBTOとは分布の特徴がかなり異なっていた。

### 3-2 化学物質汚染の歴史の変遷

底質柱状試料中には、難分解・蓄積性のある人工化学物質や、貝類・花粉等の生物遺骸など過去の水域環境の情報が保存されている。底質柱状試料の堆積年代がわかれば、過去の時代の水域環境の状況を把握することも可能である。St.1とSt.2の底質柱状試料は、既に鉛210法<sup>16)</sup>を用いて堆積年代の測定を行っている<sup>9)</sup>。そこで、St.1とSt.2の底質柱状試料について化学物質による環境汚染の変遷についての解析を行った。図-5にPCB、DDT、TBTO及びTPTの深度分布と堆積年代を合わせた結果を示した。

#### 3-2-1 PCBによる汚染の変遷

PCBによる汚染は、1960年頃から始まり1970年代の後半から1980年頃に最大値を示し、その後は減少傾向を示している。St.1とSt.2を比較すると、全体的にSt.1の方が高濃度であり、河川流域から流入したPCBが河口に近い地点で堆積していることが推測される。PCB濃度は1980年以降、減少傾向にあるが、St.1では、表層部でやや増加していた。図-6にPCBの生産量を示す。伏見<sup>17)</sup>は、PCBの環境への放出は1954年に始まり、1970~1974年の間に最高となり、1976年に急激に減少すると報告している。最大値を示した年代は、St.1が1972年頃であり伏見らの報告と一致する。St.2は、最大値を示したのが1980年頃であり、やはずれはあるが、汚染が始まる年代はほぼ一致していた。

#### 3-2-2 DDTによる汚染の変遷

DDTは、急激な濃度の増加を示す年代が地点により異なり、St.1が1970年頃、St.2が1960年頃であった。そして、St.1及びSt.2とも1970年頃に最大値を示し、その後は急激に減少している。St.1とSt.2を比較すると、PCBと同様にSt.1の方がSt.2より高濃度であった。DDTの生産量に関するデータが得られなかったため、生産量との比較は出来なかった。DDTは、農薬としての使用が禁止されたのが1971年であり、急激な増加を示したのは、禁止される前後に多量に使用されたためではないかと推測される。PCBのような絶縁材等での使用形態では、使用禁止以前にかけ込み使用が不可能であるが、DDT等の農薬類は使用禁止前後にかけての在庫調整等により多量に消費されたのではないかと推測される。そして、現在は数10ng/g程度で推移している。

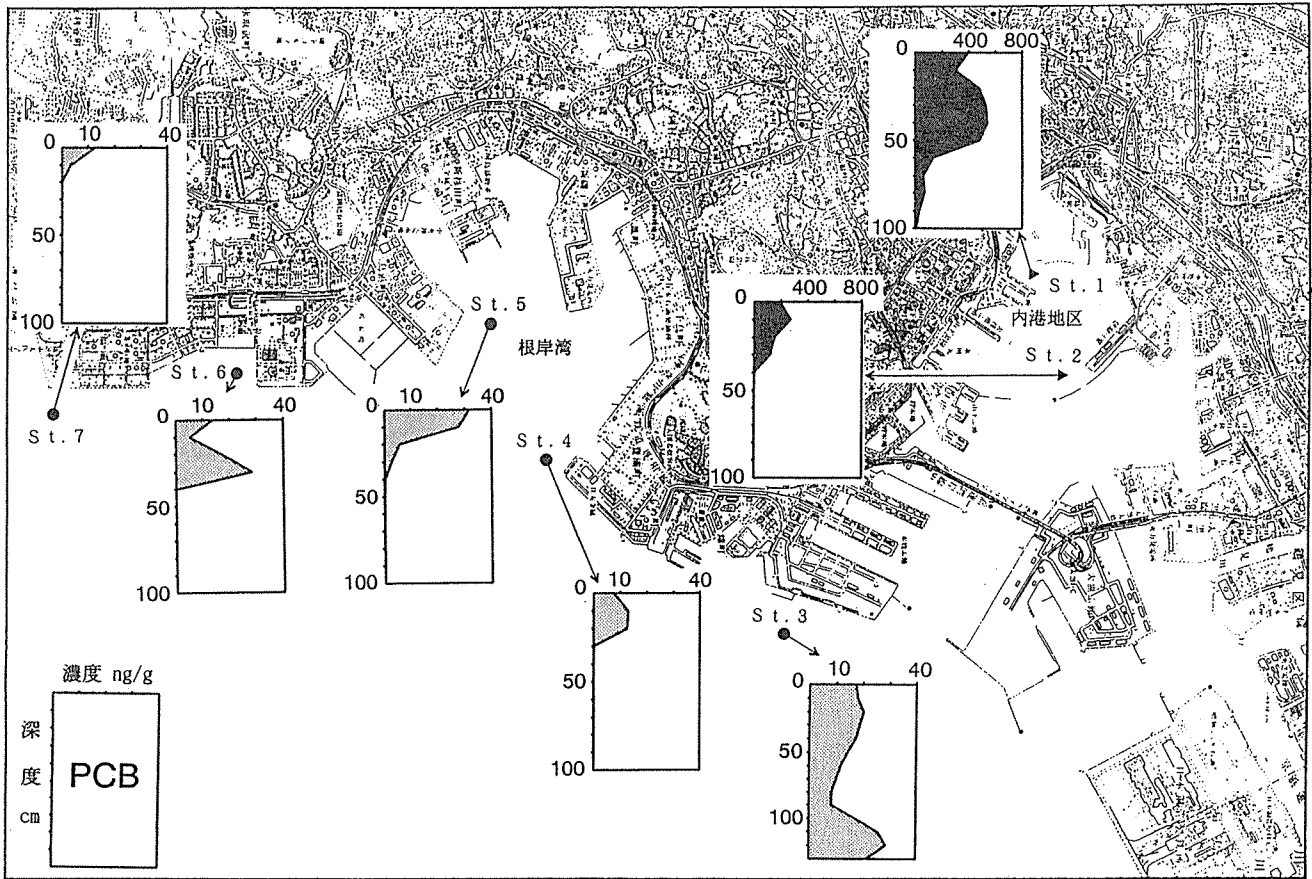


図-1 PCBの濃度分布

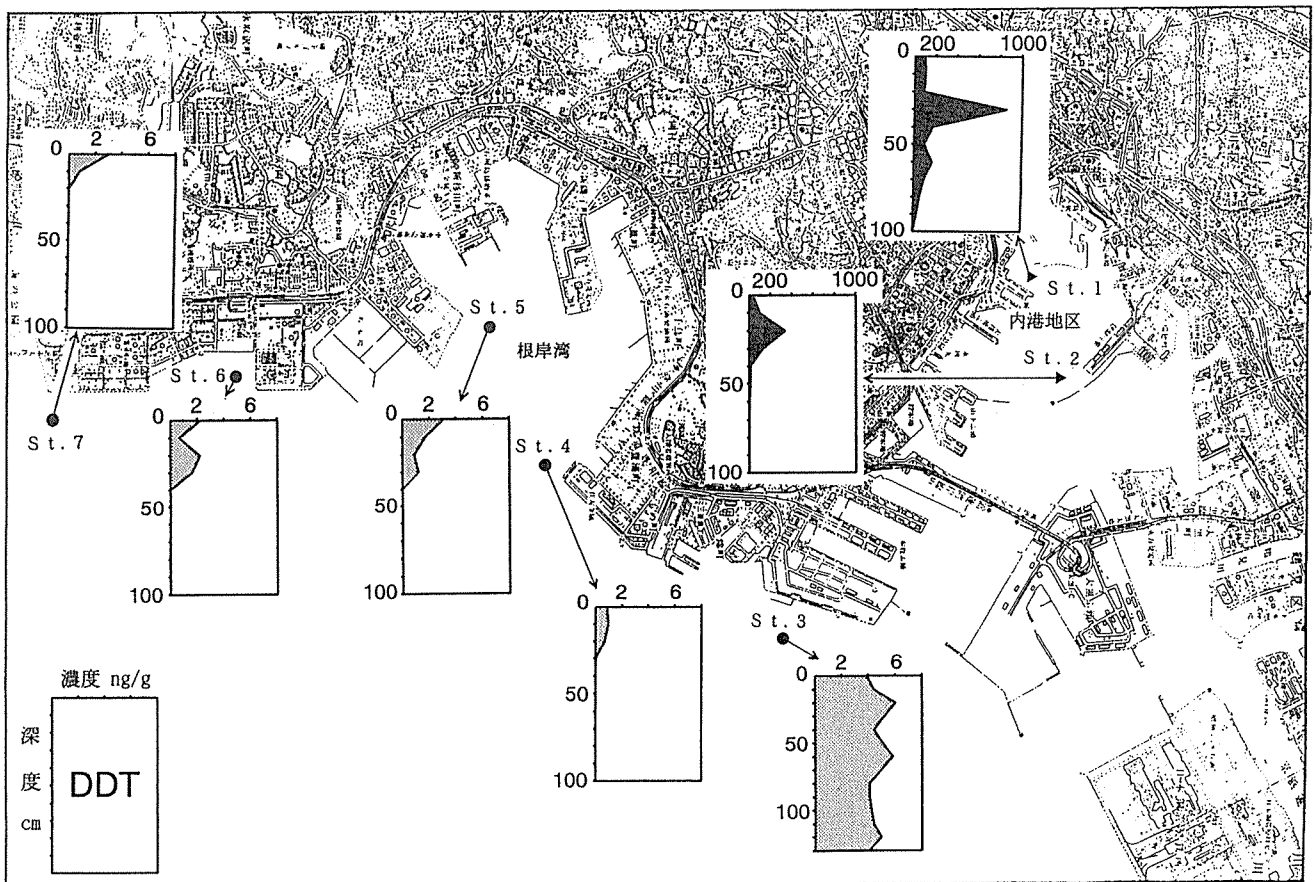


図-2 DDTの濃度分布

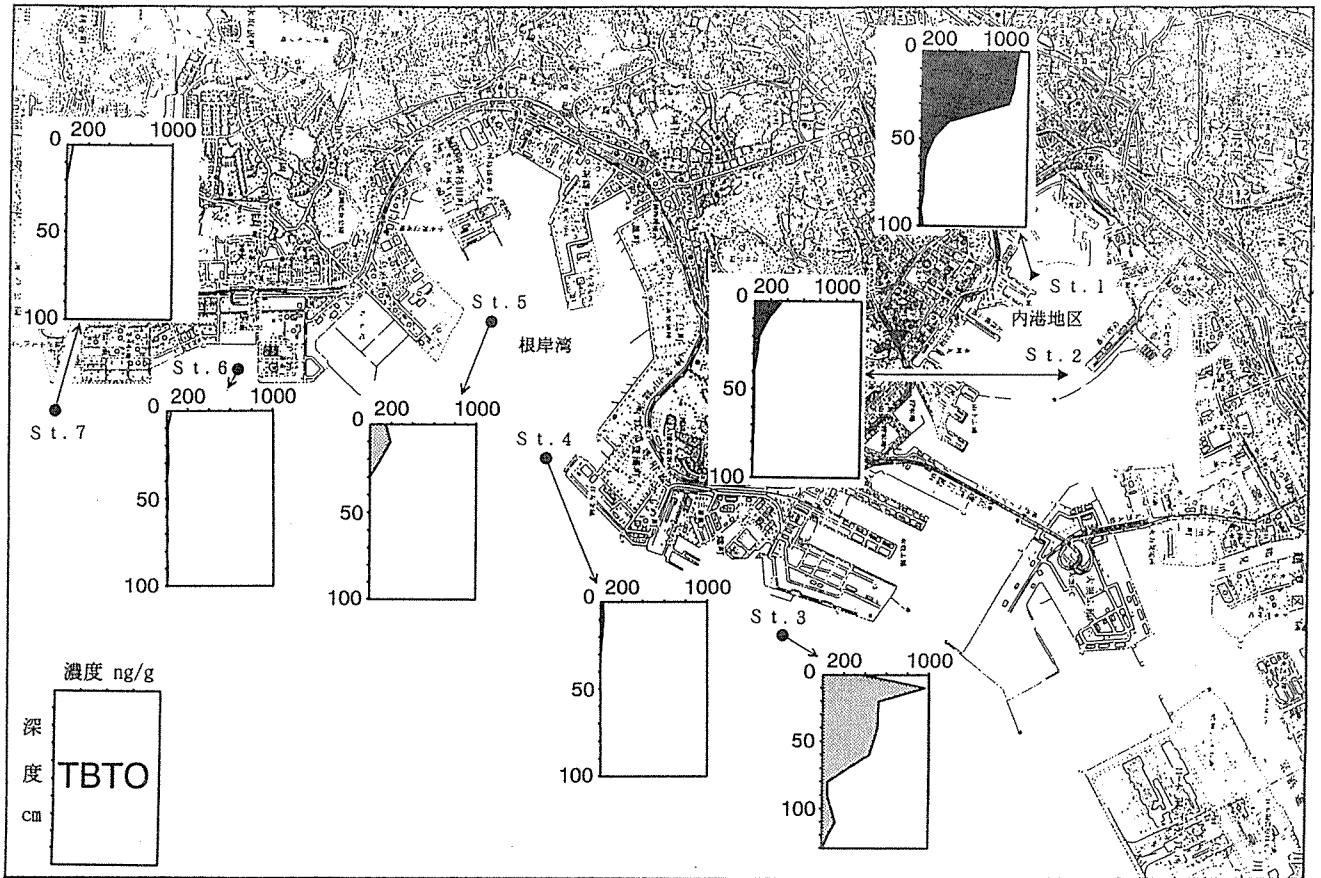


図-3 TBTOの濃度分布

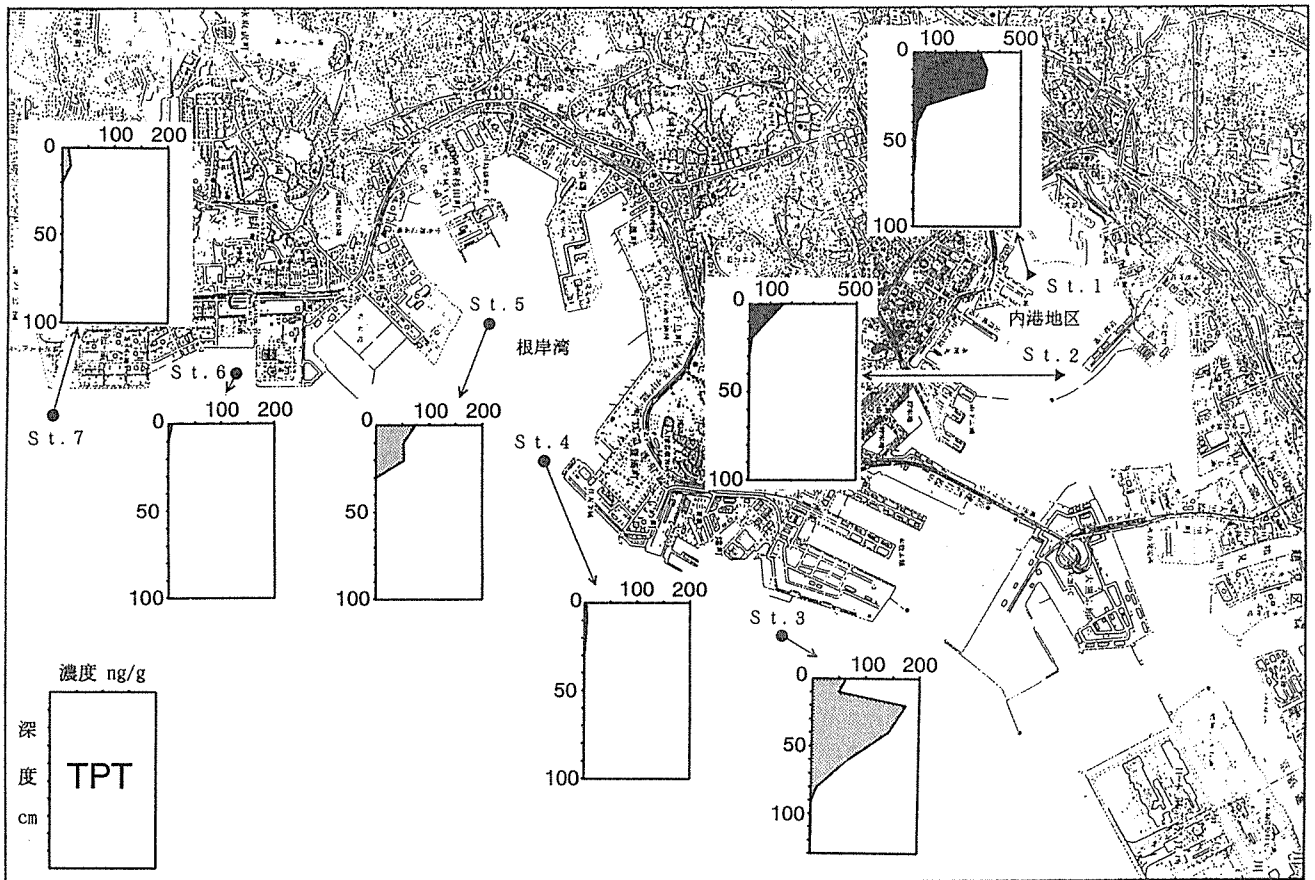


図-4 TPTの濃度分布

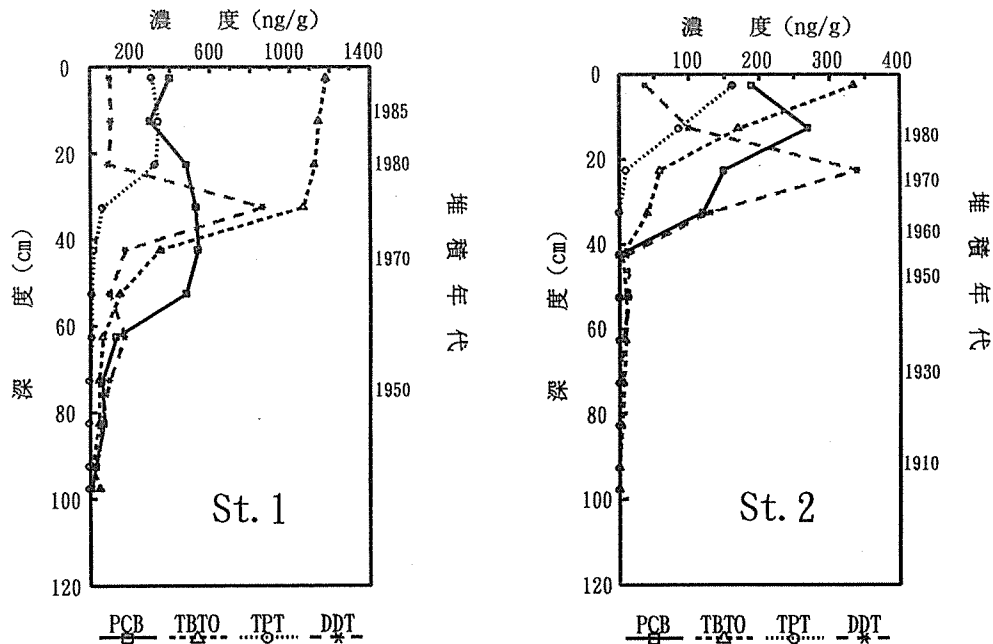


図-5 PCB, DDT, TBTO, TPT の底質汚染の変遷

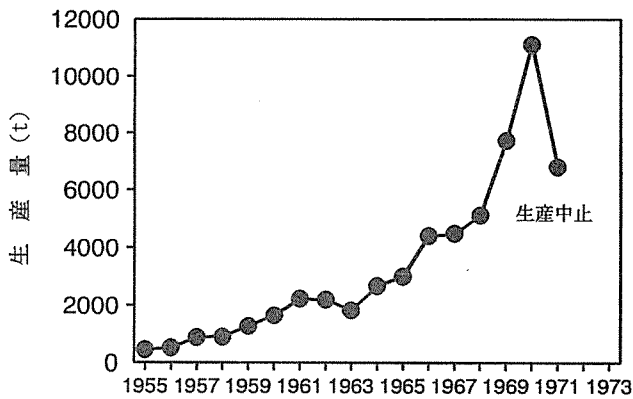


図-6 PCB の生産量の推移

### 3-2-3 有機スズ化合物(TBTO, TPT)による汚染の変遷

TBTO は、1960年頃から濃度が上昇し始め、その後も上昇傾向が続いている。TPT は、1970年頃から濃度が上昇する傾向が見られる。しかし、TPT は TBTO に比較して分解性が高いため、下層における分解を考慮する必要がある。TBTO 等の有機スズ化合物の日本における使用は、1960年頃からとされており、その年代と一致する。その後の使用量に関する詳しいデータは入手できなかったため、使用量との比較は出来ないが、St.1, 特に St.2 では増加傾向が著しいので今後とも監視を要すると思われる。TBTO は、1990年に第一種特定化学物質に、その他の有機スズ化合物も1991年に第二種特定化学物質に指定されて規制されており、今後は環境中の濃度が低下すると推測される。

### 4. まとめ

横浜港港奥部の内港地区の2地点及び横浜市沿岸域の5地点、合計7地点において、PCB, DDT, TBTO 及び TPT について、その底質汚染の現況及び変遷について調査を行った。汚染の変遷については、堆積年代が明らかな底質柱状試料を用いて行った。その結果、次のことが明らかとなった。

- 1) PCB, DDT, TBTO 及び TPT による底質汚染は、横浜港港奥部から横浜市沿岸域全域で確認された。特に、横浜港内港地区での汚染が著しく、最大値として PCB が 540ng/g, DDT が 860ng/g, TBTO が 1200ng/g, TPT が 340ng/g であった。
- 2) 深度分布の結果から、PCB, DDT は深度の深い層で最大値を示したが、TBTO と TPT は表層で濃度が高かった。
- 3) PCB による汚染は、1960年頃から始まり1970年代の後半から1980年頃に最大値を示した。1980年以降は、減少傾向にあるが、表層部でやや増加傾向を示す地点もあった。
- 4) DDT は、急激な濃度の増加を示す年代が地点により異なり、St.1 が1970年頃、St.2 が1960年頃であった。そして、1970年頃をピークにその後は急激に減少していた。DDT は、規制前後の多量な使用が推測された。
- 5) TBTO は、1960年頃から濃度が上昇し始め、その後も上昇傾向が続いている。TPT は、1970年頃から濃度が上昇する傾向に見える。しかし、TPT は TBTO に比較して分解性が高いため、下層における分解を考慮する必要がある。

### 参考文献

- 1) 立川涼：地球規模の海洋汚染とその課題－生物蓄積性環境化学物質を中心に－，平成3年度日本水産学会春季大会講演要旨集，54(1991)。
- 2) 岩田久人，田辺信介，立川涼：難分解性有機塩素化合物の地球規模でのゆくえ，第3回環境化学討論会講演要旨，466-467(1994)。
- 3) 環境庁保健調査室：平成4年版化学物質と環境，193-236(1992)。
- 4) 日本水産学会：有機スズ汚染と水生生物影響，恒星社厚生閣(東京)，9(1992)。
- 5) 環境庁保健調査室：昭和59年版化学物質と環境，88-90(1984)。
- 6) 環境庁保健調査室：昭和60年版化学物質と環境，69-70(1985)。
- 7) 日本海洋学会編：海洋環境調査法，恒星社厚生閣(東京)，240-255(1974)。



- 8) 環境庁保健調査室：昭和63年度化学物質分析法開発調査報告書, 80-100(1989).
- 9) 白柳康夫：堆積年代を推定した底質柱状試料の作成, 横浜港における水質・底質汚濁に関する調査報告書, 129-132(1992).
- 10) 白柳康夫, 上原明：横浜市沿岸海域における底質環境, 横浜市環境科学研究所報, 18, 75-79(1994).
- 11) 白柳康夫：横浜港における底質汚染—水銀, カドミウムによる汚染状況—, 横浜市環境科学研究所報, 18, 81-85(1994).
- 12) 横浜市公害対策局：公害との戦い, 昭和56年版, (1981).
- 13) 横浜市 PCB 問題連絡協議会：横浜市における PCB 対策と調査結果第 2 報, 22(1973).
- 14) 資源環境研究所：伊勢湾表層堆積物における TBT の分布— TBT の堆積物への蓄積と湾内潮流の影響—
- 15) 横浜市港湾局：昭和62年度横浜港水質浄化調査(その 2), 110 (1988).
- 16) 日本海洋学会編：沿岸環境調査マニュアル「底質・生物編」, 恒星社厚生閣(東京), 38-42(1986).
- 17) 伏見洋子, 杉浦圭, 松本英二, 後藤幹保：東京湾の堆積物に記録されている PCB 汚染の歴史, THE HITACHI SCIENTIFIC INSTRUMENT NEWS, 30(2), 6-10(1987).

# ゴミ焼却場飛灰の固化に関する基礎研究

野木一男\*, 下村光一郎\*, 坂井 清\*\*, 寺岡康浩\*\*

## 要 旨

下水汚泥焼却灰に黒曜石粉末あるいは発泡体、ポルトランドセメントを混合し、水を加えて固化する方法は、固化物の強度発現に効果があることを報告した<sup>1), 2), 3), 4), 5)</sup>。そこで、今回は、その固化方法を用いて、ゴミ焼却工場の飛灰(以下 EP 灰と呼ぶ)の各種セメントによる固化実験を行った。その結果、一軸圧縮強度は、保土ヶ谷工場EP灰で50~130kgf/cm<sup>2</sup>(28日材令)、北部工場EP灰で33~100kgf/cm<sup>2</sup>(28日材令)であった。また、灰中に含有量が多く安定化処理が難しいと言われている鉛の固化後の溶出試験結果は、両灰の固化物ともに0.5mg/l以下であった。

## 1. はじめに

平成4年7月4日に、「廃棄物の処理及び清掃に関する法律」の一部が改正され施行された。この中に於て都市ゴミ焼却施設から排出されるEP灰が特別管理一般廃棄物(ばいじん)として指定され、適正な中間処理が義務づけられた。

近年、各種の処理技術(プラスチックによる固化、熔融固化、キレート化)が開発され、一部実用化もされているが、長期間の安全性や経済性、さらに資源の再利用を考慮すると、セメントによる固化法は検討に値する処理技術と考えられる。

今回の実験は、本市環境事業局のゴミ焼却工場で発生するEP灰の安全化処理に向けて、環境科学研究所が開発した下水汚泥焼却灰固化技術(黒曜石粉末を固化助材として用い、ポルトランドセメントと水で常温で固化する方法)のEP灰への適用性について、普通ポルトランドセメント、早強ポルトランドセメント、超早強ポルトランドセメントを用いて検討した。なお、固化物の強度発現の判定は一軸圧縮強度試験で行ったが、この強度試験については、神奈川県工業試験所に依頼した。

## 2 使用原材料の成分と特徴

表-1に、保土ヶ谷、北部両工場EP灰、黒曜石粉末、普通、早強、超早強ポルトランドセメントの主成分組成を示した。

表-1にも示したように、保土ヶ谷工場EP灰中の石灰分が少ないのは、ごみの焼却時の排ガス中SO<sub>x</sub>の除去対策として、湿式ア

ルカリ洗浄方式(消石灰の添加なし)により焼却したことによるものである。また、北部工場EP灰中石灰分が多いのは、ゴミ焼却時の排ガス中SO<sub>x</sub>の除去対策として、半乾式アルカリ剤噴射方式により、炭酸カルシウム等のアルカリ剤を噴霧添加し、焼却したからである。

黒曜石は、無水ケイ酸に富む黒緑色のガラス質の化成岩であり、貝がら状断面を呈し、容易に粉末化することが出来る。ポルトランドセメントは、諸成分によって性質が若干異なるがJIS R 5210(市販品)を使用した。また、表-2から表-4に示した水酸化カルシウム、酸化カルシウム、炭酸カルシウムは、JIS 1級試薬を使用した。

### 2-2 供試体の試作方法

#### 2-2-1 固化予備試験

予備試験は、EP灰と各種セメント(普通・早強・超早強)の固化物が強度を発現するための、最適条件を見つけるために、EP灰とセメントと水を加えた、混練り物を紙コップに注入し、常温で固化養生を行い、24時間後の固化状態を千枚通しの刺さり具合によって判断するという方法で行った。検討の対象として、保土ヶ谷、北部両工場のEP灰を用いた。

#### 2-2-2 本試験

EP灰(保土ヶ谷工場・北部工場)、セメント(普通・早強・超早強)、黒曜石粉末、カルシウム化合物を種々の混合比の必要量を計量し、よく混合した後、ホバート型ソイルミキサーの容器に入れ、

表-1 使用原材料の主成分

	(単位: %)					
	CaO	SiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	K <sub>2</sub> O	Na <sub>2</sub> O
保土ヶ谷工場EP灰	16.1	36.1	20.7	2.7	8.0	7.5
北部工場EP灰	43.7	21.6	13.0	1.8	4.8	6.2
黒曜石粉末	1.4	74.0	13.0	---	4.0	4.0
普通 PC	63.8	22.1	5.0	3.0	0.54	0.35
早強 PC	64.9	20.8	4.5	2.8	0.35	0.29
超早強 PC	64.5	20.5	5.2	2.7	---	---

Experimental solidification of fly ash generated in incineration plants of trash

\*Kazuo Nogi, \*Koichiro Shimomura, \*\*Kiyosi Sakai, \*\*Yasuhiro Teraoka

\*横浜市環境科学研究所水質部門, \*\*横浜市環境事業局資源開発室

表-2 EP灰の固形化予備試験結果(保土ヶ谷工場)

(単位:g)

試料 No	1	2	3	4	5	6	7	8
EP 灰	70	70	70	70	70	70	70	70
普通 PC	30	25	25	25	25	20	20	20
黒曜石粉末	-	5	-	-	-	5	5	5
Ca(OH) <sub>2</sub>	-	-	5	-	-	5	-	-
CaO	-	-	-	5	-	-	5	-
CaCO <sub>3</sub>	-	-	-	-	5	-	-	5
水	70	70	70	70	70	70	70	70
固化強度	×	×	×	×	×	×	×	×

試料 No	9	10	11	12	13	14	15	16
EP 灰	70	70	70	70	70	70	70	70
早強 PC	30	25	25	25	25	20	20	20
黒曜石粉末	-	5	-	-	-	5	5	5
Ca(OH) <sub>2</sub>	-	-	5	-	-	5	-	-
CaO	-	-	-	5	-	-	5	-
CaCO <sub>3</sub>	-	-	-	-	5	-	-	5
水	70	70	70	70	70	70	70	70
固化強度	×	×	×	×	×	×	×	×

試料 No	17	18	19	20	21	22	23	24
EP 灰	70	70	70	70	70	70	70	70
超早強 PC	30	25	25	25	25	20	20	20
黒曜石粉末	-	5	-	-	-	5	5	5
Ca(OH) <sub>2</sub>	-	-	5	-	-	5	-	-
CaO	-	-	-	5	-	-	5	-
CaCO <sub>3</sub>	-	-	-	-	5	-	-	5
水	70	70	70	70	70	70	70	70
固化強度	◎	○	△	×	○	×	×	○

表-3 EP灰の固形化予備試験結果(北部工場)

(単位:g)

試料 No	25	26	27	28	29	30	31	32
EP 灰	70	70	70	70	70	70	70	70
普通 PC	30	25	25	25	25	20	20	20
黒曜石粉末	-	5	-	-	-	5	5	5
Ca(OH) <sub>2</sub>	-	-	5	-	-	5	-	-
CaO	-	-	-	5	-	-	5	-
CaCO <sub>3</sub>	-	-	-	-	5	-	-	5
水	70	70	70	70	70	70	70	70
固化強度	○	○	○	○	○	○	○	○

試料 No	33	34	35	36	37	38	39	40
EP 灰	70	70	70	70	70	70	70	70
早強 PC	30	25	25	25	25	20	20	20
黒曜石粉末	-	5	-	-	-	5	5	5
Ca(OH) <sub>2</sub>	-	-	5	-	-	5	-	-
CaO	-	-	-	5	-	-	5	-
CaCO <sub>3</sub>	-	-	-	-	5	-	-	5
水	70	70	70	70	70	70	70	70
固化強度	○	○	○	○	○	○	○	○

試料 No	41	42	43	44	45	46	47	48
EP 灰	70	70	70	70	70	70	70	70
超早強 PC	30	25	25	25	25	20	20	20
黒曜石粉末	-	5	-	-	-	5	5	5
Ca(OH) <sub>2</sub>	-	-	5	-	-	5	-	-
CaO	-	-	-	5	-	-	5	-
CaCO <sub>3</sub>	-	-	-	-	5	-	-	5
水	70	70	70	70	70	70	70	70
固化強度	◎	○	○	○	○	○	○	○

固化強度 ◎ 千枚通しが、力を入れないと刺さらない  
 ○ 千枚通しが、普通の力で刺さる  
 △ 千枚通しが、刺さりやすい  
 × 千枚通しが、簡単に刺さる

定量の水を加えて1分間低速回転で混練りをし、次いで3分間の高速回転で混練りの仕上げを行う。練り上がった混合物を円柱型枠(直径5cm,高さ10cm)に均一に充填後、ステンレス製骨材の上に、50cmの高さから50回ずつ落下させて脱気し、締め固めを行った。締め固め後24時間放置し、脱型を行い、強度試験の供試体とした。供試体の養生は、常温でそのまま行う自然法とポリ塩化ビニリデンフィルムを供試体にまいて行うラップ法の2方法で行い、強度の測定は、一軸圧縮強度とし、材令7日及び28日の試料について行った。表-4に各配合比別(No.1~28)一軸圧縮強度(材令7日,材令28日)試験結果を示した。

### 2-2-3 溶出試験用供試体の調整

溶出試験用試料は、保土ヶ谷・北部 EP 灰(原灰)と、表-4のNo.1とNo.9の配合の両固形化物を、28日材令一軸圧縮強度試験後の試料を2mm以上~5mm以下に破碎して、それぞれ100gを試料とした。

## 3 試験結果

### 3-1 予備試験の結果

保土ヶ谷工場EP灰と各種セメントによる固化強度発現の予備試験結果を表-2に、北部工場 EP 灰の結果を表-3に示した。強度発現の判定の表示として、◎印は、千枚通しが力を入れないと刺さらない。○印は、普通の力で刺さる。△印は、刺さり易い。×印は、簡単に刺さるの4段階とし、表に示した。表-2の試料No.17,表-3の試料No.41に示したように、紙コップを用いた簡単な固化予備試験において、EP灰の固化強度発現には、保土ヶ谷・北部の両工場 EP 灰とも超早強ポルトランドセメントが、最も適しており、また、カルシウム化合物の添加は、強度発現に効果的でないことが判った。

### 3-2 一軸圧縮強度試験結果

一軸圧縮強度は、表-4に示したように保土ヶ谷工場 EP 灰(No.1~8)は材令28日で50~130kgf/cm<sup>2</sup>,北部工場 EP 灰(No.9~

表-4 EP 灰の固形化試験結果

		(単位: g)							
試料 No		1	2	3	4	5	6	7	8
保土ヶ谷工場 EP 灰		70	70	70	70	70	70	70	70
超早強 PC		30	30	25	25	25	25	20	20
黒曜石粉末		-	-	5	5	-	-	5	5
CaCO <sub>3</sub>		-	-	-	-	5	5	5	5
水		70	70	70	70	70	70	70	70
養生方法		ラップ	自然	ラップ	自然	ラップ	自然	ラップ	自然
強度 (7日材令)		77	74	57	64	56	61	46	48
強度 (28日材令)		130	81	110	61	98	62	80	50

試料 No		9	10	11	12	13	14	15	16	17	18
北部工場 EP 灰		70	70	70	70	70	70	70	70	70	70
超早強 PC		30	30	25	25	20	20	20	20	20	20
黒曜石粉末		-	-	5	5	5	5	5	5	5	5
Ca(OH) <sub>2</sub>		-	-	-	-	5	5	-	-	-	-
CaO		-	-	-	-	-	-	5	5	-	-
CaCO <sub>3</sub>		-	-	-	-	-	-	-	-	5	5
水		60	60	60	60	60	60	60	60	60	60
養生方法		ラップ	自然	ラップ	自然	ラップ	自然	ラップ	自然	ラップ	自然
強度 (7日材令)		55	83	46	71	33	47	42	73	20	44
強度 (28日材令)		70	100	66	92	48	86	38	81	33	68

試料 No		19	20	21	22	23	24
北部工場 EP 灰		70	70	70	70	70	70
普通ポルト PC		30	30	25	25	-	-
早強 PC		-	-	-	-	30	30
黒曜石粉末		-	-	5	5	-	-
水		60	60	60	60	60	60
養生方法		ラップ	自然	ラップ	自然	ラップ	自然
強度 (7日材令)		24	32	19	26	33	43
強度 (28日材令)		60	52	47	52	64	67

試料 No		25	26	27	28
保土ヶ谷工場 EP 灰		50	-	-	-
北部工場 EP 灰		-	50	50	50
普通ポルト PC		-	45	-	-
早強 PC		-	-	45	-
超早強 PC		45	-	-	45
黒曜石粉末		5	5	5	5
水		70	50	50	55
養生方法		ラップ	ラップ	ラップ	ラップ
強度 (7日材令)		81	71	100	110
強度 (28日材令)		160	140	160	190

★.一軸圧縮強度 (kgf/cm<sup>2</sup>)

24)は33~100kgf/cm<sup>2</sup>であった。この強度は、環境事業局において過去にEP灰に対して普通ポルトランドセメントを30~40%添加して固形化した時の強度の20~50kgf/cm<sup>2</sup>と比較してやや良い結果となった。No.9とNo.19は北部工場EP灰を用いて超早強ポルトランドセメントと普通ポルトランドセメントの強度発現の差を検討した結果であるが、一軸圧縮強度試験結果に関する限り超早強セメントがやや良かった。養生方法別による強度発現は、保土ヶ谷工場EP灰はラップ法が、北部工場EP灰は自然法が強度発現することが判った。また、No.25~28には高強度発現を期待してセメントの配合割合を45%まで増量した場合の強度を示した。普通ポルトランドセメントを使用してもセメント量が45%になると強度が140kgf/cm<sup>2</sup>まで増大した。

### 3-3 鉛溶出試験結果

固形化物の安定性を調べる目的で、鉛について溶出試験を行った。試験方法は、昭和48年総理府令第5号に従い行った。

試験結果を表-5に示した。原灰については、48mg/ℓ溶出したのに対して、固形化したものは全て0.5mg/ℓ以下であった。

表-5 鉛溶出試験結果

(単位: mg/ℓ)

検 体	鉛 濃 度
保土ヶ谷工場EP灰 セメント固化物	0.5 以下
北部工場EP灰 セメント固化物	0.5 以下
保土ヶ谷工場 EP灰	0.5 以下
北部工場 EP灰	48

## 4 考 察

環境事業局における過去の調査では、EP灰に対して普通ポルトランドセメントを30~40%添加して固形化した強度は20~50kgf/cm<sup>2</sup>となっている。今回の試験では、これに比べ25%添加で平均50kgf/cm<sup>2</sup>、30%で平均56kgf/cm<sup>2</sup>と高い強度が得られた。

しかし、下水污泥焼却灰と比較すると、それ以上の高強度は得られなかった。このことは、EP灰には、固形化物の強度発現の阻害要因物質(鉛、亜鉛、銅の酸化物及び塩素、硫酸塩等)が高濃度で含有するためと考えられる。

また、溶出試験においては、検体数が限られているが、鉛については充分安定化されていると思われる。

## 文 献

- 1) 杉本 実, 下村光一郎, 野木一男: 排水処理污泥の資源化に関する基礎研究(第2報) — 下水污泥の固化に関する研究 —, 横浜市公害研究所報第10号, 147-156(1985).
- 2) 野木一男, 下村光一郎: 排水処理污泥の資源化に関する基礎研究(第3報) — 流動媒体の製造及び外部循環式三相流動床による排水処理実験 —, 横浜市公害研究所報第12号, 115-120(1987).
- 3) 野木一男, 下村光一郎, 石井哲夫, 米山悦夫: 下水污泥焼却灰を利用した流動媒体の製造方法, 第22回水質汚濁学会講演集, 289-290(1988).
- 4) 野木一男, 下村光一郎: 排水処理污泥の資源化に関する基礎研究(第4報), — 下水污泥焼却灰の固化実験 —, 横浜市公害研究所報第14号, 169-174(1990).
- 5) 野木一男, 下村光一郎: 排水処理污泥の資源化に関する基礎研究(第5報), — 下水污泥焼却灰固形物の有効利用 —, 横浜市公害研究所報第15号, 127-133(1991).
- 6) フライアッシュ固形化処理技術の総合調査報告書 横浜市環境事業局, 昭和59年3月.

# 生物による水質モニタリングシステムについての検討

水尾寛己\*, 樋口文夫\*, 福嶋 悟\*, 高橋 章\*

## 要 旨

生物を用いた水質のモニタリングは、理化学分析のような汚濁物質の数量化は困難であるが、汚濁物質の影響の連続的かつ総合的な把握が可能である。河川などの水域の水質異常を把握するうえで生物は重要な指標となる。ここでは生物(魚類)による水質の一般的なモニタリング法の特徴について述べるとともに、急激な水質の異常時における魚の水槽中の行動を監視用ビデオカメラを用いて画像解析するモニタリング手法について検討した。

## はじめに

河川水質のモニタリングの種類としては、短時間の水質変化をとらえるもの、長期間の水質の変化や影響をとらえるものなどがある。具体的には、環境監視項目、蓄積性化学物質などの測定・分析による方法などその時点で把握できるものと、水域の魚や昆虫など生物相の分布調査のように総合的に汚染の状況を判断できるものや、水を連続的に流し生物の異常行動をとらえるなどの方法がある。

筆者らはモニタリング方法の一つとして特に魚類(コイ)を用いた工場排水の長期間、または短期間での変化をとらえるための監視システムについて調査研究し、実用化を図った。また、最近ではゴルフ場排水の監視法として5ヶ所のゴルフ場でこの手法を採用している。

生物を指標とした水質のモニタリングは、理化学分析のように汚濁物質を数量化することは困難であるが、汚濁物質の影響を連続的かつ総合的な把握が可能である。しかし、河川などの魚類の死亡事故に見られるような水質の突発的な異常時の水質モニタリングについては、上水源の水域をかかえる部局を除いてはほとんど検討されてきていないし、また技術的に様々な課題があり、いまだに確立されたものはない。そこで、ここではまず水質の生物によるモニタリングの特徴と役割について本市の事例等も含めてまとめた。さらに水質の異常時における水質モニタリングについて、監視用ビデオカメラを用いた4分割画像による実験検討を試み、一つの方向性を見出せたので報告する。

## 1. 生物による水質モニタリングの特徴

### 1-1 経年的水質把握のためのモニタリング

水域の生物を経年的に調査することによって、水質環境の変化を生物を通して明らかにすることができる。例えば、今までドジョウしかいなかった水域にコイやフナが見られ、特に、アユの遡上やウグイなど生物の種類数が増加するなどの変化が見られると水質の改善が進んでいることを知ることができる(図-1)。生息している生物の種類や数などから水質の状況を推測できるといえるが、魚の生息制限因子として大きいと思われるものとして、一つに護岸構造のような生息環境が、また図-2に示したように水中の溶存酸素量

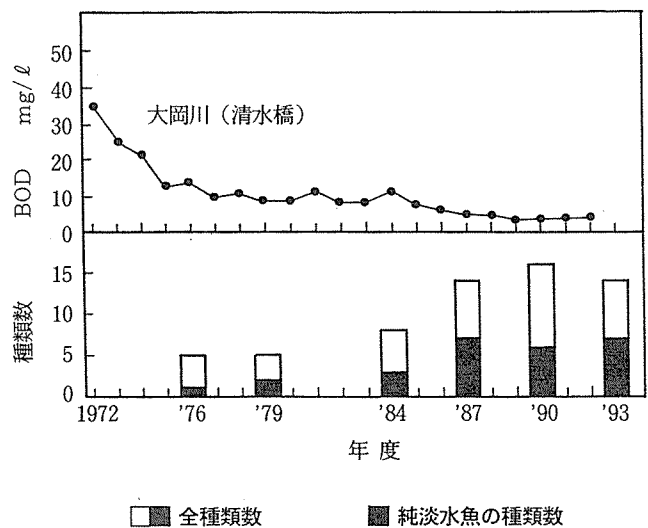


図-1 水質と魚の種類数との関係

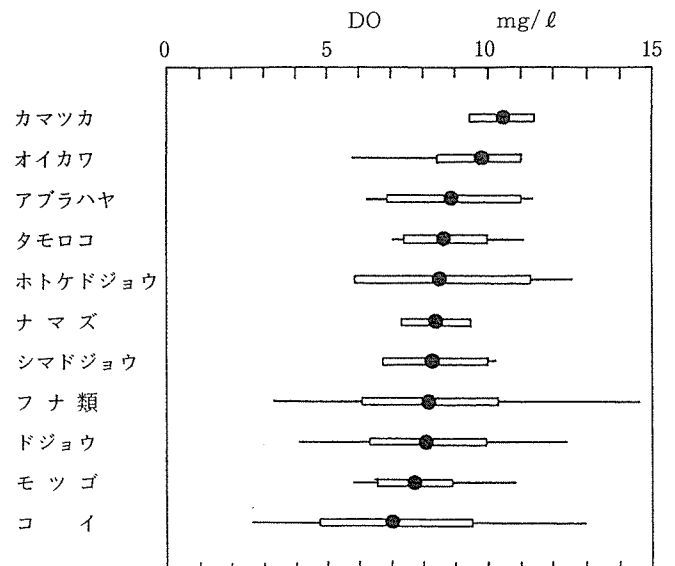


図-2 DOと魚種別出現範囲<sup>1)</sup>

や毒性としてのアンモニアのような水質が考えられる<sup>1)</sup>。同様に、魚の餌となる水生昆虫や藻類においても、水の流速等生息環境や水質により分布する生物の種類は変化する。畠山らの調査<sup>2)</sup>によれば、除草剤のような薬品が一時的に河川に流入した場合には、藻類が急激に減少するが、その後、数週間で回復する。藻類が少なくなれば、その捕食動物である水生昆虫の生息にも影響を及ぼし、さらに魚類にも影響する。水質の経年的変化を生物調査により把握する場合には、水域の特徴などを配慮して、調査時期、調査期間及び調査地点を厳密に選定して行う必要がある。

その他のモニタリング方法として、魚の外観及び生理学的検査や、蓄積性の検査などが考えられる。例えば、横浜市内でも各河川にアユが戻ってきたが、どのような成分がどの程度蓄積しているかなどを調べるような方法も有効である。

### 1-2 水域の突発的水質異常を把握するモニタリング

水質が常時悪化しているような場合には、生息する生物はイトミミズや糸状細菌のようなものしか見られないが、反対に水質が良好な場合には、藻類、水生昆虫や魚類が多種類見られる。このような生物が多い水域で例えば、事業場などから高濃度の毒性物質が水域へ流入した場合、急性毒性による魚の死亡事故として発見され、通報される。

このような事故は、年に1回でも発生するとその水域の生物に及ぼす影響は大きく、原因究明と対策が重要となってくる。こうした場合、主要河川に設置している水質連続自動測定モニタリングについては、測定できる項目は限定されており、この測定項目以外の原因による場合は、当然把握されないケースも出てくる。

本市で明らかになった事故例で興味深いものとしては、合成洗剤やトイレなどの駆虫に利用される物質による事故<sup>3)</sup>、滅菌剤を入れたプール水の流出による事故、最近では、農業による事故などがある。これらの毒性物質の流入は以前にもあったものと思われるが、事故の発見の遅れや、技術上の問題から原因究明が困難だったものと思われる。

事故原因の究明においては、被害生物の観察・測定による究明技術の向上が必要な一方、事故を早期に発見し、原因物質を含有する水を採取することも必要条件である。採水ができなかった場合として、宮城らは、被害生物の鰓から原因物質を抽出することに成功している<sup>4)</sup>。

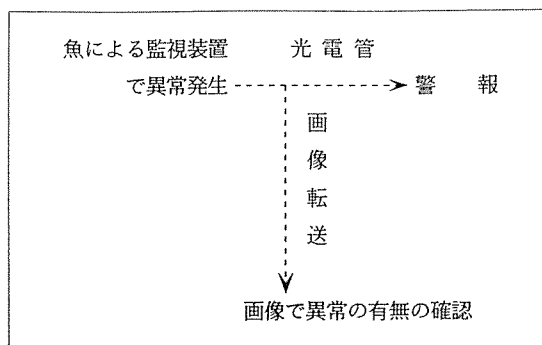
また、事故の早期発見法として、水質監視協力員に定時監視を依頼する方法や常時監視測定局などに魚など生物による水質監視システムを導入し電気的な手法によるテレメータで監視する方法が考えられる。

### 1-3 発生源（事業場）の排水監視のためのモニタリング

本市では、1978年より、排水の発生源である工場の排水監視に生物(魚類)を用いたモニタリングを導入し、現在4工場で継続実施している。当初は、生死、成長、外観検査、内観検査、血液学検査、組織学的検査、蓄積性検査を対照魚と比較実施してきたが<sup>5)</sup>、現在は、突発的異常及び長期間における異常の監視ということで、生死、及び外観検査の2項目について実施している。

また、1992年からは、市内のゴルフ場の池水で、コイによる農業監視を開始している。200ℓの監視用イケース水槽を設けて、体長約10cmのコイを10尾入れ、1日1～2回の給餌及び観察で一年間飼育し、終了時には工場と同一内容の検査を実施している。ゴルフ場での水質監視は、予備試験もいれ3年目になるが、問題となるこ

表-1 監視システム



とはおきていない。また、工場排水の試験では、粘液胞子虫寄生による病魚が発生するが、特に問題となることはなかった。

## 2 水質の突発的異常時におけるモニタリングシステムについて

### 2-1 4分割画像による魚の異常行動把握手法の検討

水質の突発的異常時に、魚の遊泳行動等に異常が現れることはよく知られている。この遊泳行動の異常を利用した水質モニタリングとして、大久保ら<sup>6)</sup>は光電管による浮上魚の検知方式を紹介している。馬場<sup>7)</sup>は、検知方式を(a)呼吸器系<sup>8)</sup>や循環系の活動状態など魚類の生理的特性を化学的または電気的に検出する方式<sup>9)</sup>と、(b)行動パターンの特徴を電気的に検出する方式にまとめ、(b)の中の光電管で検知する方式は検出感度は劣るが簡便であると報告している。

筆者らは、今回の実験において光電管による方法と画像転送による方法の併用について検討した。魚の水中における鼻上げ行動、狂奔行動、忌避行動などを検知するには、光電管を用いる方法が一般的であるされている。この方法は簡便に実施でき、魚類のおおまかな動きをとらえることができるが、検出感度は酸素量測定法などに比べて劣るという欠点がある。しかし、水域における魚の死亡浮上監視対策を目的とする場合には有効な部分が多いものと考えられる。ここでは、硫酸銅、残留塩素、シアン化カリウムの3物質を用いて遊泳行動の異常の特徴を、4分割静止画像を観察し、光電管検知方法による監視システムについて検討した。

### 2-1 実験方法

実験条件を表-1に示した。硫酸銅、残留塩素及びシアン化カリウムの3物質を用いて、画像転送による水質監視方法について検討

表-2 実験条件

指標生物	アカヒレ
監視項目	遊泳行動
確認方法	4分割画像
試料	原水
試験生物の数	5
水槽の大きさ	120×90×40 (mm)
光量	蛍光灯 (30w)
水温	室温 (約25℃)
流量	1回/分

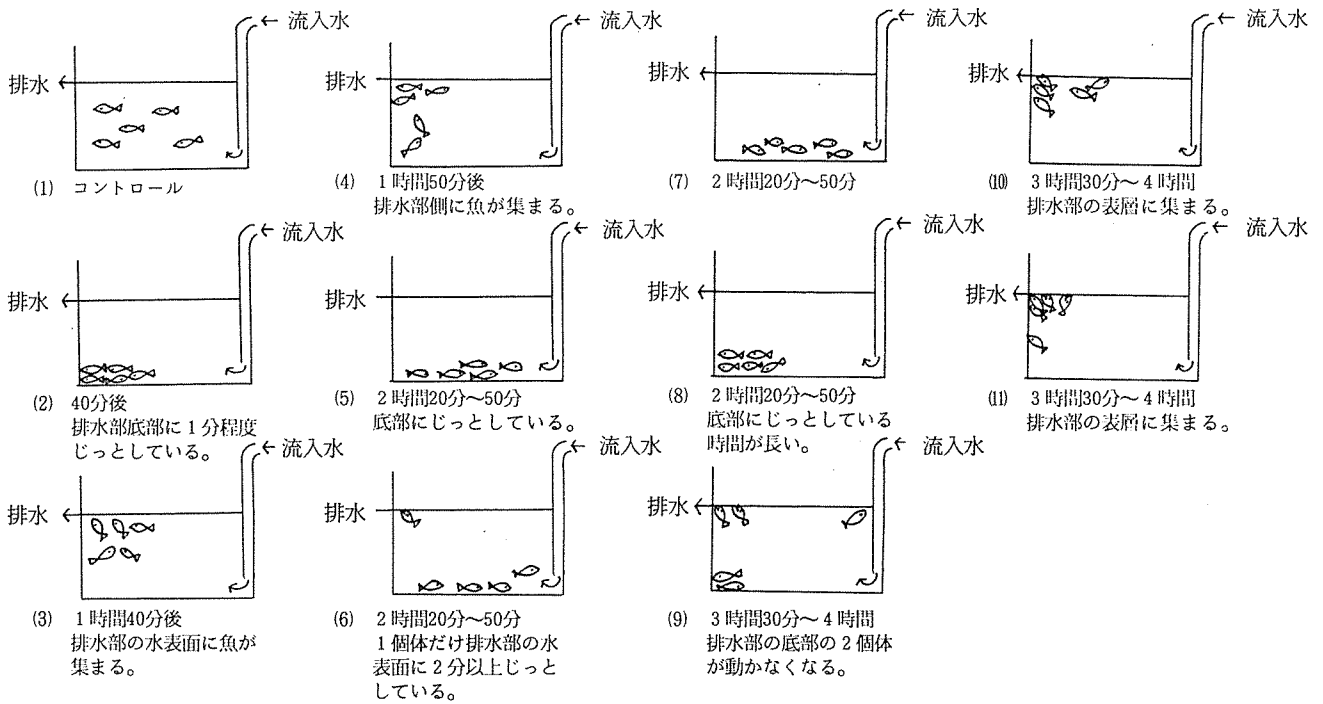


図-3 硫酸銅に曝露された時の魚の遊泳行動  
(Cuとして20mg/l)

した。画像転送システムはソニーのポータブル静止画伝送機 SFU-115 を用い、4 分割静止画像で観察した。4 分割静止画像では、25 秒間隔の画像比較が可能である。

供試魚は研究所で半年以上飼育していたコイ科のアカヒレ、体長約 23±3mm、体重約 0.22±0.05g の成魚を使用した。

試験尾数は、再現性と画像観察の容易性を考慮して 5 尾とした。

試験水槽は、透明塩ビ板を加工して作り、側面及び裏面は防水シリコン塗料で不透明にした。水槽の大きさは、供試魚の大きさ、水の濃縮及び換水率を考慮して 250ml とした。水槽の奥行きは、アカヒレの体長とビデオの被写階深度を考慮して 40mm とした。薬液は 40 l 容器に所定の濃度のものを作り、流量は 10m l /分で薬注ポンプで水槽へ連続注入する形で実施した。

その時の水温は約 20℃で、照明は 20w の蛍光灯を使用した。

ビデオカメラは SONY の 8mm ハンディカムを使用した。

## 2-2 実験結果

### 2-2-1 硫酸銅での結果

硫酸銅は Cu として 20mg/l の条件で試験を行った。その結果、図-3 に示すように 11 のパターンが観察できた。試験開始後(1)、40分において排水部側の底部に 1 分程度じっとしている(2)。1 時間 40分では、排水部の水表面側に魚が集まりだし(3, 4)、2 時間 20分から 50分までは、底部にじっとしているが一時的に 1 個体排水部表層に 2 分以上じっとしていた(5, 6, 7, 8)。3 時 30分から 4 時頃には、排水部の表層に魚が集まってじっとしていた(9, 10, 11)。

### 2-2-2 残留塩素での結果

ClO<sup>-</sup>として 0.2mg/l の条件で試験を行った。その結果、図-4 に示すように 3 つのパターンが見られた。40分後では、魚が排水部側へ集まり動きが鈍くなる(1)。1 時間 40分では、魚は排水部側に集中し、1 個体は水表面に棒立ちになり、2 個体は底部にじっとしている(2)。2 時間 40分には、1 個体は底部にじっとしているが、3 個体は水表面に向かって棒立ちになっており、1 個体は水表

面に浮上している(3)。

### 2-2-3 シアン化カリウムでの結果

CN として 2mg/l の条件で実験した。その結果、図-5 に示すように、6 つのパターンが見られた。試験開始後 3 分で表層へ近寄る遊泳行動を示し(2)、5 分経過すると水表面に鼻上げ症状を示し(3)、12 分経過すると魚は排水部に集まり、横転魚も出現する(4)。19 分経過すると、排水部の表層にじっとしている個体と底層でじっとしている個体に分かれた(5)。その状態は 1 時間 10 分過ぎてもあまり変化が見られなかった(6)。

### 2-3 結果の特徴

硫酸銅、残留塩素、シアン化カリウムの 3 物質についての実験結果から、遊泳行動は、物質により異常の現れ方が異なるとともに、個体により異常の現れ方および発現時間が異なっていた。また、曝露時間の経過により遊泳行動は変化し、初期の段階より後期の方が

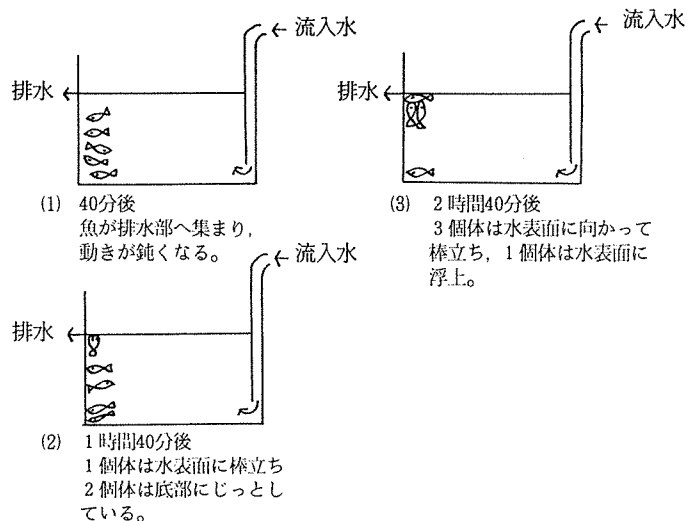


図-4 残留塩素に曝露された時の魚の遊泳行動  
(ClO<sup>-</sup>として0.2mg/l)



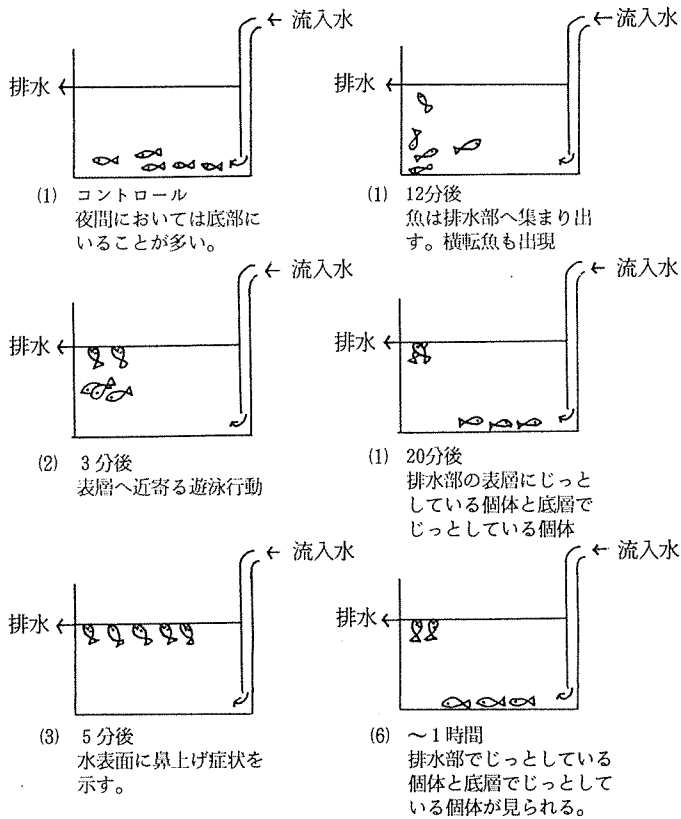


図-5 シアン化カリウムに曝露された時の魚の遊泳行動 (CN<sup>-</sup>として2mg/l)

異常行動の識別が容易である。しかし、魚の異常行動の初期段階で物質別の特徴ある異常行動として検知することが要求される。実験結果では、銅では40分経過時に排水側底部に1分程度停止が見られ、残留塩素では40分後排水部側へ集まり動きが鈍くなっている。シアンでは、5分経過時に鼻上げ症状が見られ、12分後には排水部へ集まり動きは鈍いなど、時間の経過や排水部での行動などに多少の違いが見られた。

### 3. 考 察

魚が薬物の影響を受けた場合に、初期には鼻上げ症状などの異常行動を示すが、その後行動が鈍くなる。この行動が鈍くなった時点での特徴を光電管検知により監視し、異常を確認できるようにする

ためには、それらの魚が特定の場所に同時刻に集まることが望ましい。そのためには、試験水槽の構造と薬物試験水の導入方法の検討が必要であることから、今回試験水槽は長方体とし、排水部を左上端に設け、右下端に試験水を注入する構造にし、魚が弱まった時にできるだけ排水部側に集まるように工夫した。

3物質の試験結果から、薬物の影響が魚に発現すると先ず初期段階で魚の動きが鈍り、ついで排水部側に集まる傾向を示した。

この結果から、光電管を排水部側に設置したり、また、鼻上げ症状は水表面で見られることから水表面への設置も必要となる。

また、魚の動きの鈍くなるのに要する時間は、薬物の種類によって異なり、シアンでは5分経過時に魚の鼻上げが観察され、12分で行動が鈍くなっており、残留塩素においても、濃度が1.0mg/lの場合には同様な鼻上げが見られ、10数分で動きが鈍くなった。

また、同一薬物に対する個体差による異常の発現時間は異なっていたが、水質異常を早期に発見する上からは、早期に異常行動を発現するような敏感な個体の行動を捉えることが望ましい。

今回、4分割静止画像で検討したために、25秒間隔での画像比較となり、2画像で同一の場合に、25秒から50秒未満で変化がないことを示し、3画像で同一の場合には、50秒から1分15秒未満で変化がないことを示している。4分割静止画像のため、魚の行動観察は比較的容易である。また、この機器によれば、電話回線または無線を用いて画像を遠隔転送できるようになっており、画像も比較的鮮明でモニターとして有効である。

また、この行動のパターンを解析して、どのような画像の時に、警報を発するなどのシステムを検討することにより実用化に結びつけられるものとする。また、このモニター装置を設置した常時監視測定局の事故に対しては対応できると考えられるが、数多い他の河川全てに設けることは、費用などから難しい。そこで、この方式を補充するものの一つとして、河川に隣接している市民を水質環境監視モニターに依頼することを前提にした魚による簡易監視装置の導入、例えば、小容量のポンプによる河川水をポンプアップし、水槽に導入し、市民の身近で毎日観察できる方法をとるなども考えられる。

一方、上水源の水質監視を目的とする場合には、低濃度の毒性でも異常として検知する必要であり、そのため、感受性の強い生物の使用、試料の濃縮や監視項目などが検討課題となる。魚類の反応によって水質異常を監視する方法は、ほとんどの水道事業で行われているが、魚類の反応は魚種及び個体により異なるとともに、薬物

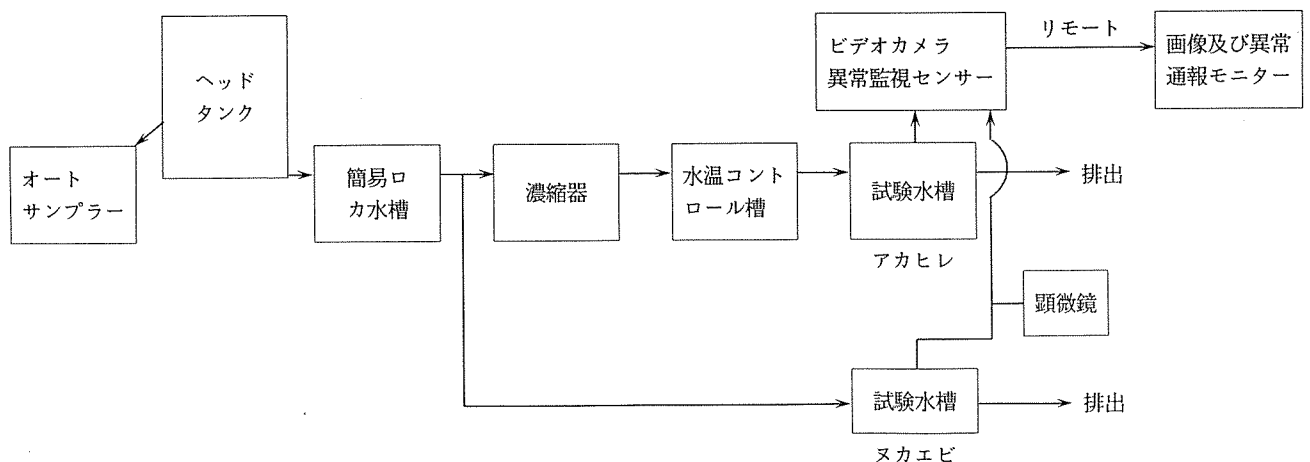


図-6 モニタリングシステム概念図

の種類と濃度、薬物の曝露時間、水温、試験装置の構造などによって異なることから、かなり限定的なものにならざるを得ない。

今回検討を行った方式を導入するにあたっては、特に留意すべき項目として供試生物、試験水の濃縮、供試尾数、試験水槽の構造、給餌条件などの検討が必要であり、それらの問題点をまとめた。

また、検討した光電管と画像併用による水質モニタリングの概念図を図-6に示した。

#### (供試生物)

監視の対象水により、供試生物は絞られてくる。水道水源の水質監視を目的とする場合であれば、感受性の強い生物を選択し、しかも監視が簡単であることが要求される。感受性の強い生物としては、魚類の中で、アユ、アブラハヤやタナゴの稚魚などが考えられるが、魚の入手しやすさや年間を通しての維持管理をしていくためには容易ではない。

甲殻類のヌカエビは、比較的容易に入手でき、飼育も容易で年間を通しての保持管理も可能であり、農薬などに対する感受性も魚類に比べて10から100倍程度鋭敏と言われている。筆者らは魚の死亡事故の原因究明に際して、アカヒレとヌカエビを用いた急性毒性試験を行い、アカヒレでは異常が見られないがヌカエビには見られ、その違いなどから原因究明ができたケースもある。

今回試験に使用したアカヒレは、感受性はコイと同程度であるが、飼育の容易性や魚の大きさの点から、モニターとして有効と思われる。

#### (河川水の濃縮)

河川水を変質することなく濃縮する手法としては、凍結濃縮法がある。-20℃の冷媒エタノール中に試料の入ったナスフラスコを試料の水位まで沈め回転させることによって、ナスフラスコの表面に氷ができて試料が濃縮される。この方法は回収率もきわめて良い。しかし、この方法で連続濃縮するには、ロボット化が必要であり操作、経費及び安全面からも難しいと思われる。他の方法としては、回収率は悪くても製水器や冷蔵庫の手法を取り入れて濃縮する手法であるが、実用化にはかなりの検討が必要である。

#### (供試尾数)

適性な供試尾数については、中村<sup>10,11)</sup>がアブラハヤの活動量から検討を行っている。その結果からは活動量は24時間の周期があり個体差も大きいけれども、供試尾数を多くすると夜間と昼間の活動量差が少なくなることから尾数を多くした方が良いことを明らかにしている。また、個体数が少ない場合には、個体差が大きく影響するために毒性に対する感度の再現性が悪くなるとしている。しかし、今回の検討を行うにあたって個体数が多い場合には、感度の再現性は良くなるけれども、画像による遊泳行動の観察には、魚体の行動が重なる確率が増加し、監視が難しくなるという問題点があげられる。

以上のことから、今回は5尾で実験をおこなったが、5尾でも魚が重なるケースが見られ、この実験のケースではこれ以上尾数を増やすのは難しいと思われた。

#### (水槽の構造等)

水槽の大きさは、遊泳行動との関係、画像等の検出器との関係、水温調整や水の濃縮、清掃等管理のしやすさなどから、水槽はできるだけ小規模なものがよい。そのためには、試験生物も小型のものにする必要がある。換水率は突発的薬物注入事故との関連を監視する上ではできるだけ率を高める必要がある。また、水の流入方式も魚の遊泳行動との関わりが強いこと、ビデオカメラで監視するた

め水槽面への藻類の成長を防止できる程度の照明(昼夜)とする。今回の試験結果からは、30ワットの蛍光灯の条件で対応できることがわかった。

#### (水温調整)

河川での魚の死亡浮上事故の多くは、冬期よりも水温の高い夏期に集中している。この原因として、水温が高い時期には、毒物の生体への作用が強くなること、魚の行動が活発となり、呼吸量が多くなるために毒物の影響を受けやすい状態になっていることが関係していると考えられる。夏期のモニタリングには、河川水の水温調整は必要ないものとする。しかし、冬期のモニタリングの場合、毒物の作用を高めて感知したりアカヒレの生息適温範囲から、水温を25℃程度に調整すればよいのではないかと考える。

#### (給餌条件)

供試魚としてアカヒレを使用する場合には、5個体の総体重は約1gであることから、一日当りの給餌量は体重の約3%の0.03g程度でよいと考える。河川水の監視の場合には、水中に餌も流入するなどの条件もあり、週に2回程度の給餌で対応できると思われる。給餌の方法としては、無人監視の場合には、自動給餌器により対応することも可能である。

## 4. まとめ

水質の異常時における水質モニタリングについて、監視用ビデオカメラを用いた4分割画像による監視方法の検討を行った。

銅、残留塩素及びシアン<sup>3)</sup>の3物質について試験を行った結果、毒物の影響の初期の段階には魚の動きが鈍り、排水部側に集まる傾向を示すことから、光電管を排水部側に設置することにより、異常を検知できる可能性が明らかになった。

また、魚の動きが鈍くなるのに要する時間は毒物の種類によって異なったが、これは、毒物の魚への影響濃度の違いによるものであり、また、個体別にも異常の発現時間が異なっていたが、これは個体差によるもので、水質異常を早期に発見する上からは、早期に現れる異常個体を捉えることが望ましいと考えられる。

今回検討を行った4分割静止画像は、電話回線または無線を用いて画像を遠隔転送できるもので、画像も比較的鮮明であることからそれぞれの薬物に対する異常行動パターンの画像解析を行い、警報等を加えた水質モニターとして発展させることによって有効な活用も可能となるものと思われる。

最後に、今回結果をまとめるにあたって貴重な資料を提供してくださった日立製作所の馬場研二博士に厚く感謝申しあげる。

## 文 献

- 樋口文夫, 水尾寛己: 淡水魚類による水域環境評価法の検討, 水域生物指標に関する研究報告, 公研資 88, 43-74(1989).
- 島山成久, 福嶋 悟, 笠井文絵, 白石寛明: 河川の藻類生産に及ぼす除草剤の影響評価, 陸水学雑誌 No.53(4), 327-340(1992).
- 二宮勝幸, 水尾寛己, 樋口文夫: 過去に発生した魚の死亡事故事例, 魚の死亡事故の原因究明に関する研究報告書, 公害研資料 No.91, 93-108(1991).
- 沖縄県環境保健部: 沖縄県のへい死魚事例, 水質関係事務取扱要領集, 40-45.
- 水尾寛己, 樋口文夫, 島中潤一郎, 福嶋悟, 斉藤治子, 山口一成, 阿久津卓, 佐野定雄, 宗像美代子: 横浜市における魚類を指標とした工場排水の規制手法に関する研究(2), 横浜市公害研究

- 所報 No.11, 149-159(1986).
- 6) 大久保 勉, 榎本善光: 水道事業の原水管理計器, 水道協会雑誌, 523号 58-64(1978).
- 7) 馬場研二: 魚類行動パターンによる水質監視, 用水と廃水, 35(4), 46-50(1993)
- 8) 松尾雄三, 山田 要, 淡路和夫: 魚類を用いた原水有毒物質監視装置及びその実験, 用水と廃水, 23(12), 14-23(1981).
- 9) 田中正次, 山本正視: 水質異常の常時監視に関する研究(1) —コイを利用した監視装置—, 水道協会雑誌, 704号, 33-42(1993).
- 10) 中村文雄: 魚類の行動変化に基づく水質の常時監視方法に関する基礎研究(1)—平常時の行動特性とそのモデル化—, 水道協会雑誌, 604号, 17-26(1985).
- 11) 中村文雄: 魚類の行動変化に基づく水質の常時監視方法に関する基礎研究(2)—忌避行動及び活動量変化に基づく異常水質の検出—, 水道協会雑誌, 611号, 12-23(1985).

# 都市河川における汚濁物質の周日変動

— 鳥 山 川 —

初貝留美\*, 福嶋 悟\*, 小市佳延\*

## 要 旨

都市河川における晴天時の水質変動は、懸濁態が主に生活排水の流入による影響を受けているのに対し、溶存態は水中の生物活動による影響をうけていた。水温が低下し、日照時間の減少する秋期には、溶存態の周日変動はほとんどみられず、また、懸濁態の変動率も秋期に減少する傾向があったが、溶存態ほどではなかった。

懸濁態の濃度は降雨と共に急速に増加し、その後減少した。晴天が続いた後の降雨時は特に増加が著しく、急激に水質を悪化させていた。溶存態は懸濁態とは反対に降雨により減少していたが、その変動は小さかった。

## 1. はじめに

河川の水質汚濁について考える場合、その変動特性を把握しておくことが重要である。河川水質の変動には、周日変動や季節変動のように周期的な変動と、降雨等の気象変化に伴う数時間から数日間程度の変動もある<sup>1)</sup>。

降雨によって路上堆積物や土壌等が河川に流入し、これらは新たな河川汚濁物質となる。同時に、河川の増水による流速の増加は、河床堆積物の移動や付着物の剥離をもたらす。その変化は晴天時に比較して一般に大きいと考えられ、鳥山川での過去の水質調査でも降雨による影響がみられた<sup>2)</sup>。

今回は、降雨が河川汚濁物質に及ぼす影響を検討することとし、降雨継続時間や降水量の違いが河川水中の汚濁物質の挙動にどのような変化をもたらすかを、鳥山川において調査した。さらに晴天時データとの比較も行った。また、季節による晴天時の周日変動がどのように変化するかを、夏期と秋期について比較した。

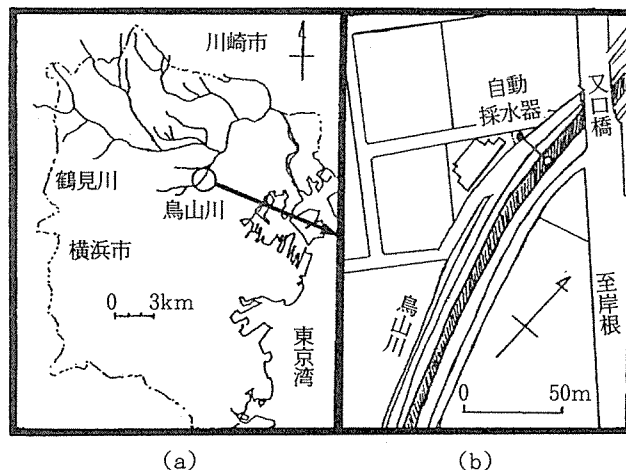


図-1 調査地点

## 2. 調査方法

### 2-1 調査地域の概況と調査地点

図-1(a)に示すように、鳥山川は本市北部を流れる鶴見川水系の支流の一つで、総延長は4.2km、流域面積は12.4km<sup>2</sup>である。調査地点は図-1(b)の又口橋付近で、主に住宅、事業所に囲まれている。川幅は約10mで両岸はコンクリートで護岸されており、調査地点付近の河床にもコンクリートが打ってあった。

### 2-2 調査期日

夏期調査は1993年7月4日8時から9日の8時までと、11日8時から16日の8時までを4時間おきに行い、その間の14日0時から20時までは晴天時とした。同様に秋期調査として、11月9日12時から12日8時までの晴天時に行った。

### 2-3 調査項目及び分析方法

水質調査のための採水はすべて自動採水器を用いて行い、4時間間隔で各21採取した。試料の回収は調査期間中毎日午前中に行い、回収後直ちに分析を行った。調査項目と分析方法については表-1に示した。なお水質分析方法は原則としてJIS-K-0102(1986)に

準拠した。

## 3. 結果と考察

### 3-1 調査期間中の気象状況

#### 3-1-1 夏 期

調査を始める前の6月29日頃から雨が降り続き、調査を開始する前日には1日の総降水量が35.5mmとなる<sup>3)</sup>。測定開始日の7月4日には晴れるが、5日に再び雨となり、1日の降水量が57.5mmと調査期間中最高の値になった。翌6日は晴天で、日照時間は7月中最も長い12.8時間、日射量も最高値を示していた。8日から11日まで降水量0mmの日が続くが、日照時間は短く、曇りがちであった。その後、少量の雨が降る日があり、14日にはほぼ1日晴れていた。

#### 3-1-2 秋 期

測定開始日の前日に少量の降雨があった。測定日である11月9日から12日までは霧雨も見られたが、降水量としては0mmではほぼ晴れの日が続いていた。

### 3-2 晴天時の水質の周日変動

Studies on diurnal variation of water quality. -Toriyama River-

\*Rumi Hatsugai, Satoshi Fukushima, Yoshinobu Koichi, 横浜市環境科学研究所水質部門

表-1 測定項目及び分析方法

測定項目	分析方法
濁度	濁度計
電気伝導度(EC)	電気伝導度計
pH	pH計
懸濁物質(SS)	石英繊維ろ紙法
強熱減量(IL)	石英繊維ろ紙でろ過した後、600±25℃で加熱した減量
全生物化学的酸素要求量(TBOD)、溶存態生物化学的酸素要求量(DBOD)	ウインクラー・アジ化ナトリウム変法による20℃、5日間の溶存酸素消費量
懸濁態BOD(PBOD)	(TBOD)-(DBOD)
全窒素(T-N)、溶存態全窒素(TDN)	アルカリ性過硫酸カリウム分解、紫外線吸光度法
懸濁態全窒素(TPN)	(T-N)-(TDN)
亜硝酸性窒素(NO <sub>2</sub> -N)	ナフチルエチレンジアミン吸光度法
アンモニア性窒素(NH <sub>3</sub> -N)	インドフェノール吸光度法
硝酸性窒素(NO <sub>3</sub> -N)	イオンクロマトグラフ法
イオン性全窒素(TIN)	(NO <sub>2</sub> -N)+(NH <sub>3</sub> -N)+(NO <sub>3</sub> -N)
全リン(T-P)、溶存態全リン(TDP)	過硫酸カリウム分解、アスコルビン酸・モリブデン青吸光度法
懸濁態全リン(TPP)	(T-P)-(TDP)
リン酸性リン(PO <sub>4</sub> -P)	アスコルビン酸・モリブデン青吸光度法
硫酸性硫黄(SO <sub>4</sub> -S)	イオンクロマトグラフ法
塩素イオン(Cl)	イオンクロマトグラフ法

3-2-1 夏 期

晴天時における1日の水質変動を把握するため、降雨の影響等が認められない日時として、7月14日の0時から20時までを選び、この時の調査結果を中心に考察した。(図-2)

懸濁態としてSS、ILが20時にそれぞれ10.8mg/l、8.4mg/lと最高値を示しており、この時のSS中のILの値は73.3%と高くなっている。PBOD、TPNは16時に最高値5.3mg/l、0.76mg/lを示し、共に朝方は0mg/lに近い最低値となっている。16時におけるTBOD中のDBODは80.5%、T-N中のTPNは10.3%と、懸濁態が占める割合も1日のうちでもっとも高くなった。TPPは12時に最高値0.072(mg/l)となっている。表-3より変動率はSS16.1%、IL30.6%、PBOD64.0%、TPN63.9%、TPP26.3%と、SS全体にくらべて有機懸濁態物質の値の方が高くなっていることから、

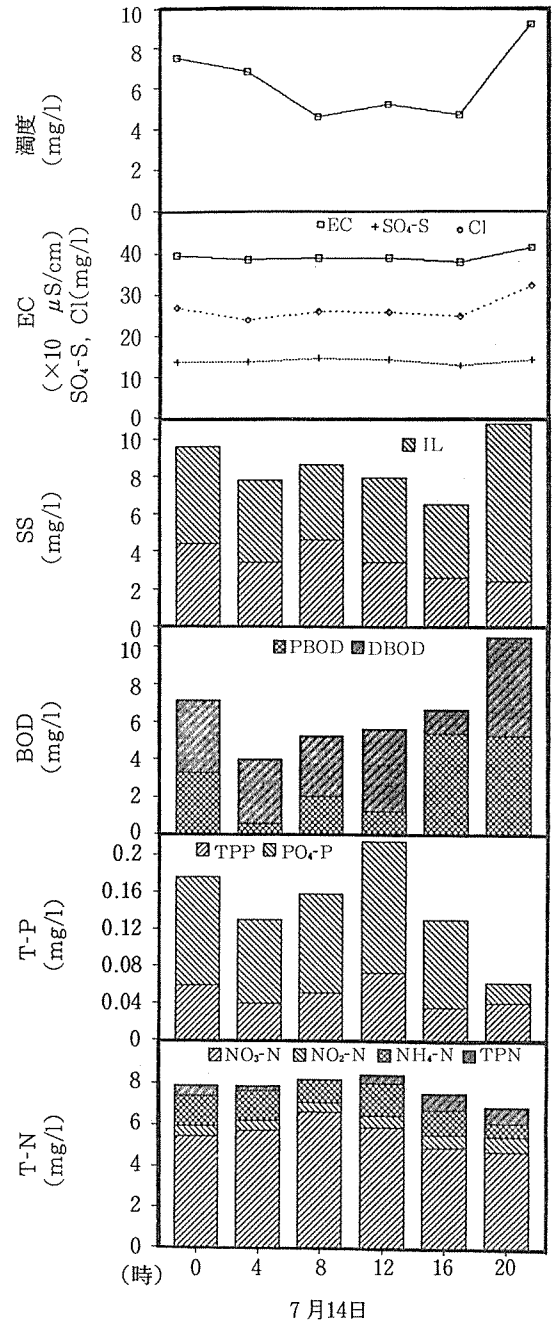


図-2 晴天時の水質の周日変動(夏期)

これらは生活系排水の影響を大きく受けていることがわかる。

溶存態ではPO<sub>4</sub>-PとTINの変動が人間の生活パターンと異なっている。PO<sub>4</sub>-PがTPNと同様に12時に0.141mg/l、そしてTINが8時に8.17mg/lと最大となり、20時にPO<sub>4</sub>-Pが0.022mg/l、

表-2 秋期における晴天時の変動率(%)

年月日	pH	濁度	EC	SO <sub>4</sub> -S	Cl	SS	IL	DBOD	PBOD	TBOD
1993/11/10	1.0	37.6	1.7	0.8	6.4	22.3	19.9	26.7	43.1	31.0
1993/11/11	2.0	21.5	2.6	1.0	10.7	18.3	14.8	15.9	30.6	19.1

表-3 晴天時の平均変動率(%)

時 期	pH	濁度	EC	SO <sub>4</sub> -S	Cl	SS	IL	DBOD	PBOD	TBOD
夏 期	1.1	26.4	2.8	4.2	10.4	16.1	30.6	34.1	64.0	31.6
秋 期	1.5	29.5	2.2	0.9	8.6	20.3	17.4	21.3	36.8	25.1

TIN が 6.11mg/l と最小になっている。これらは日射量の多い時間帯に濃度が下がっていることから、光合成や硝化菌の作用など生物活動の影響といえる。TIN を成分ごとに見てみると、NH<sub>4</sub>-N の濃度は12時には最高値 1.54mg/l、20時に最低値 0.45mg/l となっており、この変動の仕方は PO<sub>4</sub>-P とほぼ等しくなっている。TIN の多くをしめる NO<sub>3</sub>-N も当然これらと同じ傾向を示しているが、変動率は 11.2% と小さい。NO<sub>2</sub>-N のみが 8時に最低値 0.45mg/l、20時に最高値 0.74(mg/l) と、人間の生活パターンに準じている。SO<sub>4</sub>-S、Cl は変動率がそれぞれ 4.21%、10.4% と低く、晴天時にはあまり変動がないといえる。溶存態は懸濁態にくらべて生活系排水の流入による濃度変化よりも、日射量の変化による生物活動の影響を多く受けていることがわかる。

### 3-2-2 秋 期

夏期と同様に、降雨の影響等が認められない11月10日0時から11日20時までの調査結果を考察した。(図-3、表-2)

懸濁態としてSSは11月10、11日とも8時に 9.6mg/l、7.6mg/l、IL は両日とも16時が 6.4mg/l、5.0mg/l と最も高い値を示していた。最低値はSSが10日は4時に 5.5mg/l、11日は12時に 4.1mg/l、ILも10日は4時に 3.6mg/l、11日は12時に 3.2mg/l となっている。PBOD は両日とも20時に最も高い値を示しており、10日 8mg/l、11日 5.4mg/l。この時、TBOD 中のPBOD の値は高く10日 37.6%、11日 43.6%。TPN は10日0時に 0.64mg/l、11日20時に 0.43mg/l と最高値を示し、10日4時に 0.24mg/l、11日12時に 0.15mg/l と最低値を示した。これらの変動の仕方は人間の生活パターンとほぼ一致している。また変動率がSSは10日 22.3%、11日 18.3%、ILは10日 19.9%、11日 14.8%、PBODは10日 43.1%、11日 30.6%、TPNは10日 35.0%、11日 41.8%といずれも高くなっており、これらの懸濁態は生活排水の影響を受けていることがわかる。TPPの変動率だけが10日 18.1%、11日 4.6%と低く、その影響を受けていないといえる。表-3より、SSを除くすべての懸濁態の平均変動率は夏期よりも低くなっている。

溶存態ではDBODが11月10日20時に 13.7mg/l と最高値を示し、10日8時に 5.9mg/l、11日12時に 5.8mg/l と最低値を示した。NO<sub>3</sub>-Nは10、11日とも12時が最も高く、3.45mg/l、3.16mg/l、20時が最も低く 1.47mg/l、1.83mg/l となっており、T-N に占める NO<sub>3</sub>-N の割合も同じような傾向を示した。その他の溶存態は変動率が、PO<sub>4</sub>-P は10日 10.1%、11日 7.5%、NH<sub>4</sub>-P は10日 4.9%、11日 4.0%、NO<sub>2</sub>-N は10日 5.8%、11日 6.4%、SO<sub>4</sub>-S は10日 0.8%、11日 1.0%、Cl は10日 6.4%、11日 10.7%といずれも低くなっていることから、これらは生活系排水や生物活動の影響をほとんど受けていないことがわかる。夏期にくらべると溶存態の平均変動率が大きく減少しており、特にPO<sub>4</sub>-P が 38.4から 8.7%、NH<sub>4</sub>-N が 24.6から 4.5%へと著しく減少している。これらは水温の低下や日照時間の減少などにより、光合成や硝化菌などの生物活動が弱まったためといえる。

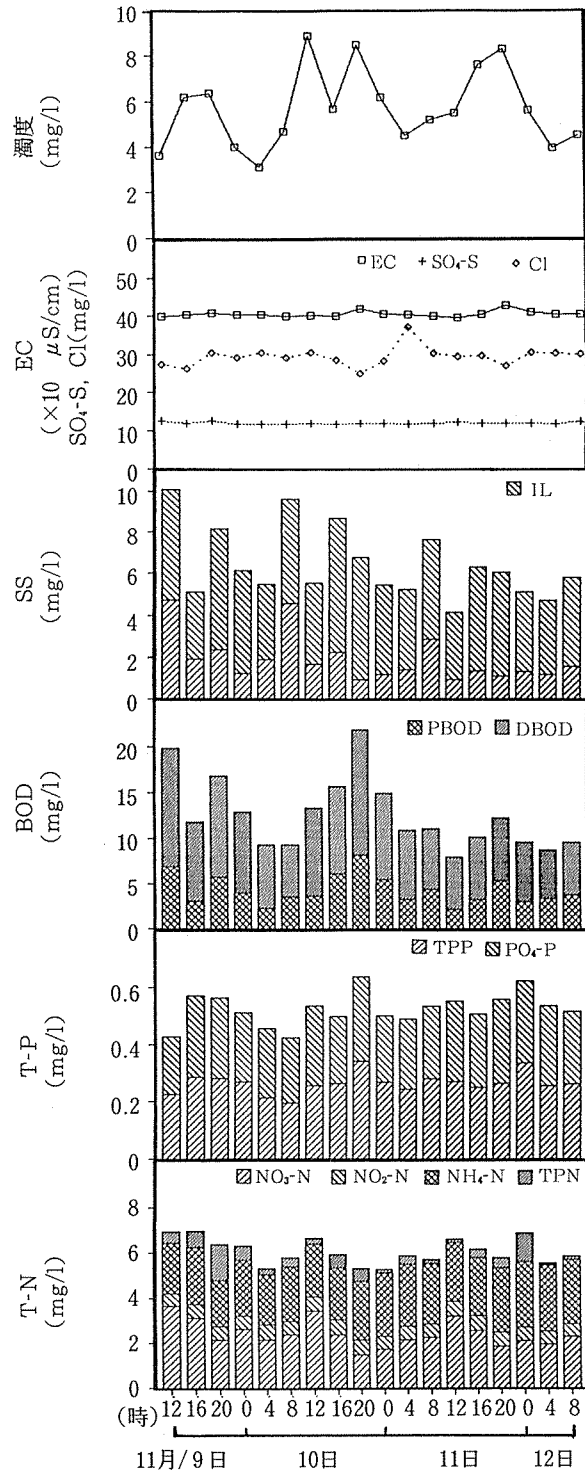


図-3 晴天時の水質の周日変動(秋期)

PO <sub>4</sub>	TDP	TPP	T-P	NH <sub>4</sub> -N	NO <sub>2</sub> -N	NO <sub>3</sub> -N	TIN	TDN	TPN	T-N
10.1	16.5	18.1	16.2	4.9	5.8	24.5	9.5	6.1	35.0	5.8
7.4	6.1	4.6	3.7	4.0	6.4	21.0	7.5	5.5	41.0	4.2

PO <sub>4</sub>	TDP	TPP	T-P	NH <sub>4</sub> -N	NO <sub>2</sub> -N	NO <sub>3</sub> -N	TIN	TDN	TPN	T-N
38.4	12.2	26.3	13.1	24.6	18.3	11.2	9.7	9.0	63.9	5.3
8.7	11.3	11.4	9.9	4.5	6.1	22.7	8.5	5.8	38.0	5.0

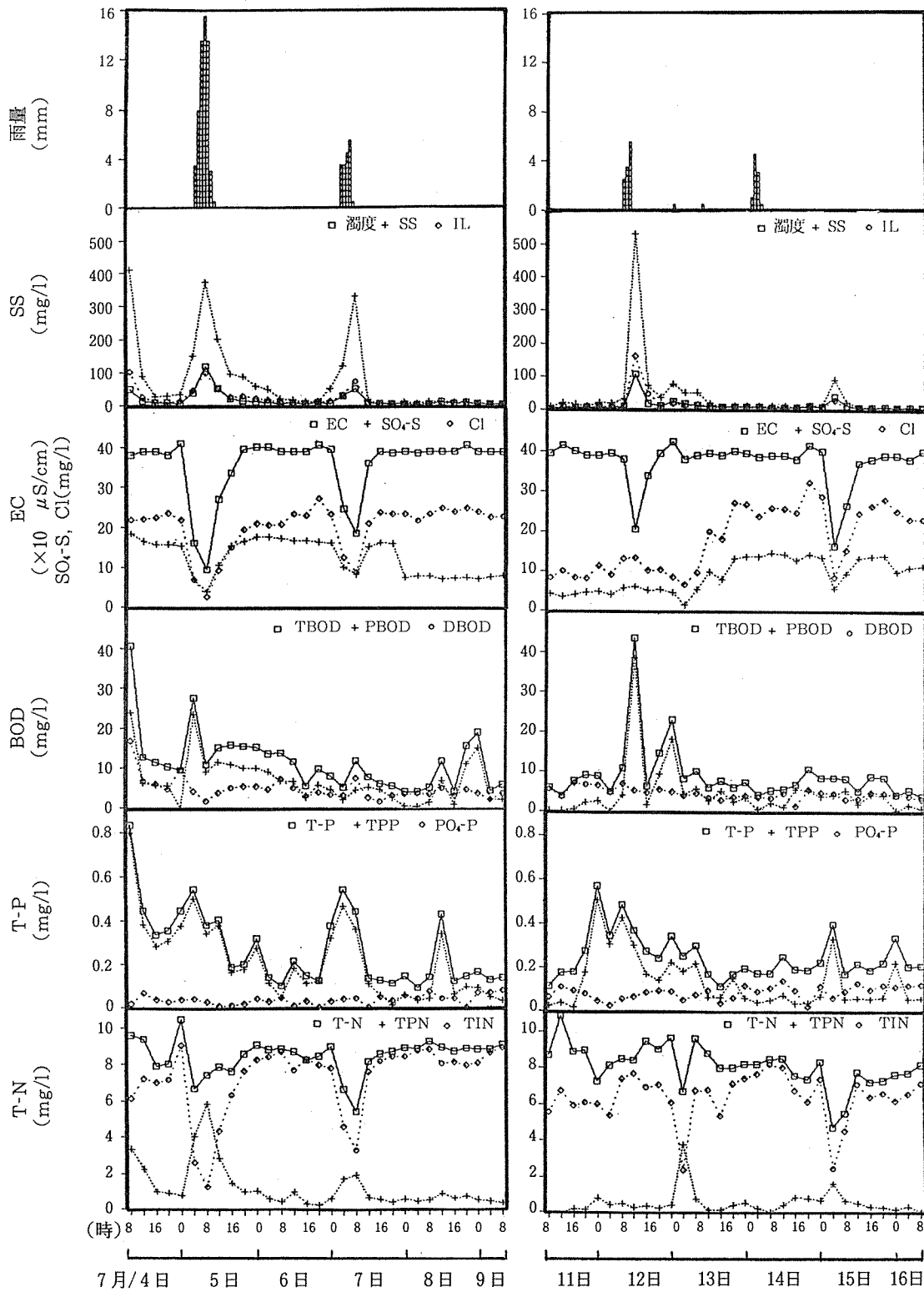


図-4 降雨による水質変動

表-4 夏期における1日の変動率(%)

年月日	pH	濁度	EC	SO <sub>4</sub> -S	Cl	SS	IL	DBOD	PBOD	TBOD
1993/7/5	0.7	91.6	42.1	42.0	55.1	70.1	63.7	47.5	63.2	37.2
1993/7/6	2.3	20.2	1.5	3.1	10.4	66.3	49.6	27.0	34.9	27.8
1993/7/7	1.0	97.7	25.0	23.7	31.8	130.4	108.1	51.6	30.1	30.0
1993/7/8	1.5	43.2	1.6	3.7	4.7	16.3	29.9	15.8	113.1	60.9
1993/7/12	0.8	141.5	19.4	12.6	13.7	157.7	132.1	14.9	143.6	89.3
1993/7/13	0.6	43.4	3.5	53.3	49.0	73.3	47.1	18.7	85.8	59.0
1993/7/14	1.1	26.4	2.8	4.2	10.4	16.1	30.6	34.1	64.0	31.6
1993/7/15	0.5	94.2	26.1	26.3	34.2	130.3	87.8	13.8	24.0	16.7
全日程	1.8	144.7	18.8	44.2	37.7	184.3	158.1	47.3	116.4	73.6

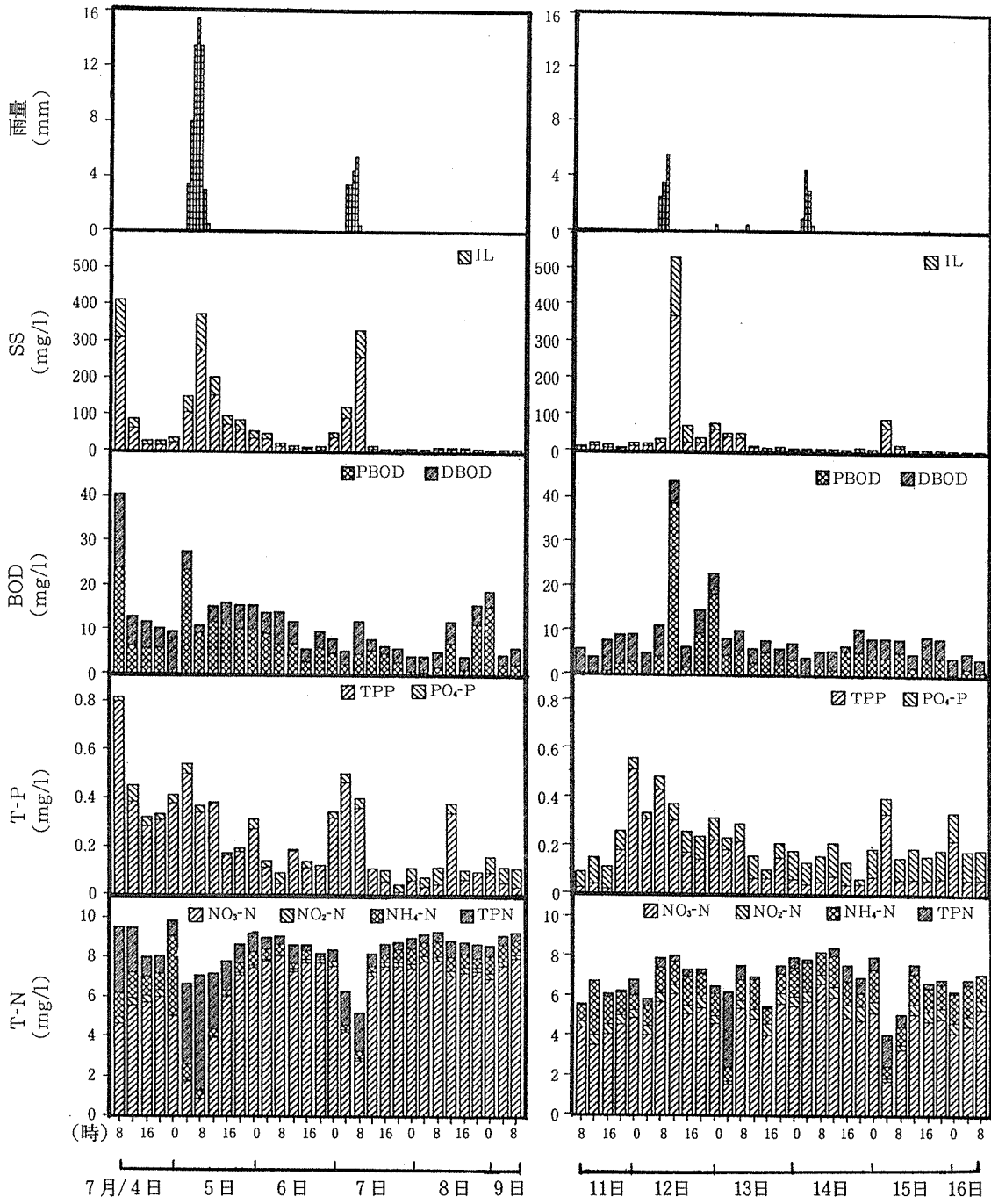


図-5 降雨による各項目の形態別構成比の変化

PO <sub>4</sub>	TDP	TPP	T-P	NH <sub>4</sub> -N	NO <sub>2</sub> -N	NO <sub>3</sub> -N	TIN	TDN	TPN	T-N
52.7	43.4	36.7	35.8	127.8	58.7	54.2	52.6	50.8	68.4	14.7
66.2	50.0	50.8	41.7	44.6	20.8	3.2	3.9	2.9	54.6	3.0
50.3	32.6	78.1	59.8	59.4	25.3	31.0	29.6	27.5	64.0	16.5
53.1	24.4	103.9	63.6	16.9	17.4	3.7	4.0	2.9	25.6	1.8
37.5	31.9	41.8	30.1	20.1	4.1	12.6	11.7	10.3	40.1	8.2
31.1	44.8	43.9	35.9	25.9	30.6	31.3	28.1	28.2	139.7	12.0
38.4	12.2	26.3	13.1	24.6	18.3	11.2	9.7	9.0	63.9	5.3
20.9	24.4	93.9	31.5	29.4	38.5	30.2	30.2	26.2	68.1	18.7
61.2	52.4	90.2	55.4	64.1	53.9	31.5	25.1	23.3	125.6	12.9



### 3-3 降雨による水質変動

図-4のグラフが示すように、ほとんどの懸濁態は降雨流出時に急速に増加している。SS, ILがこれを顕著に示しており、表-4より変動率もSS185%, IL157%と高くなっている。PBODは降りはじめに希釈による低下があった。TPNの濃度はほぼ降水量と比例しており、最も雨量の多かった5日8時に5.85(mg/l)と最高値を示している。またT-Nに占めるTPNの割合も78.8%と最も高くなっていることから、これは降雨による土砂の流入によるものといえる。しかし、他の懸濁態の濃度は必ずしも降水量とは比例せず、7月12日12時のSS530mg/l, IL161mg/l, PBOD38.5mg/lのように晴天の続いた後の降雨時の方が、最も降水量の多い5日の最高値SS371mg/l, IL96.1mg/l, PBOD23.5mg/lよりも高い値を示している。これは晴天時に道路や河床に堆積した有機懸濁物質および河川附着性生物群が、掃流や剥離により流出したものと考えられる。TPPも降雨時に値の上昇が認められるが、他の懸濁態のようにはっきりとしたピークが出ておらず、雨がやんだ後にも何度かピークが現れ、晴天時の値にもどるまでに時間がかかっている。

溶存態のグラフは懸濁態とちょうど対称となっており、降雨と共に急速に下降し、その後上昇している。Cl, SO<sub>4</sub>-Sはいずれも雨量に反比例して濃度が減少しており、ECの値がこれを示している。DBODも降雨によりやや減少するが、PBODにくらべると変動はかなり小さい。PO<sub>4</sub>-PはTPPと同様に、他の溶存態よりも減少する速度が遅く、減少した値がもとにもどるまでにかなりの時間がかかっている。TINはCl, SO<sub>4</sub>-Sと同様に降水量に逆比例して濃度が減少しており、変動率も雨量が最も多かった7月5日にNH<sub>4</sub>-N127.8%, NO<sub>2</sub>-N58.7%, NO<sub>3</sub>-N54.2%と最高値を示している。

図-5より、晴天時と雨天時の値を比較すると、懸濁態の濃度は雨天時が高く、溶存態の濃度は晴天時の方が高くなっている。T-N, T-P, BODについては懸濁態が全体に占める割合が雨天時に高い。これは雨により懸濁態が掃流や攪はんにより流出するのに対し、溶存態は水量の増加のために薄められるためといえる。またSS中のILの割合が少なくなることから、多量の土砂が流れ込んだとも考えられる。変動率でも懸濁態は晴天時と降雨時の値の上昇が著しく、晴天時7月14日の変動率がSS16.1%, IL30.6%なのに対し、降雨時を主とした全日程の変動率はSS184.3%, IL158.1%となっている。

## 4. まとめ

河川の水質汚濁の変動特性を検討するため、夏期の晴天時と雨天

時、そして秋期の晴天時における河川水中の汚濁物質の挙動を鳥山川において調査した。

1) 日周変動については、夏期、秋期とも懸濁態の変動が人間の生活パターンと一致しており、生活系排水の流入による影響を受けていることがわかった。それに対してPO<sub>4</sub>-P, TIN, DBODなどの溶存態は、夏期には日射量の変化にともなった変動をしていた。これは光合成や硝化菌の作用など、水中生物の活動によるためと考えられる。生物活動の弱まる秋期にはこのような傾向はみられなかった。平均変動率では懸濁態、溶存態のほとんどが夏期に高い値を示している。SO<sub>4</sub>-S, Clは、晴天時にほとんど変化がみられなかった。2) 降雨による水質変動では、懸濁態の濃度は降雨と共に急速に増加し、その後減少していった。溶存態は変動率は小さいが、懸濁態のグラフと対称になっており、降雨と共に減少し、その後増加していく傾向がみられた。リンは懸濁態、溶存態ともピークがはっきりせず、晴天時の値にもどるまで時間がかかった。

懸濁態の濃度の増加は降水量と必ずしも比例せず、晴天が続いた後の降雨時のほうが、少ない降水量でも高い値を示しているものがあった。晴天が続いた後の降雨の際に、川魚の死亡事故が多く発生するのはこのことも一因といえる<sup>9)</sup>。本市では和泉川のように、大きな石などによる堰を多数設置して沈降作用を強化し、浄化を促進させる試みがある<sup>9)</sup>。しかし、これらの点に注意をしないと、沈降していた懸濁態が降雨によって一挙に流出し、かえって水質を悪化させることがあるので注意を要する。

## 参考文献

- 1) 日本地球科学会編：水汚染の機構と解析—環境科学特論—, 産業図書(1978).
- 2) 初貝 留美, 福嶋 悟, 小市 佳延, 酒井 学：都市河川における水質調査—鶴見川, 鳥山川—, 横浜市環境科学研究所報, 17, 123-132(1993).
- 3) 日本気象協会横浜支部：神奈川県気象月報平成5年6月～11月(1993).
- 4) 横浜市環境科学研究所内部資料(1993)
- 5) 二宮 勝幸：魚の死亡事故と水質変動特性との関連, 魚の死亡事故の原因究明に関する研究報告書, 横浜市公害研究所, 13-32(1991).
- 6) 小市 佳延, 福嶋 悟：都市河川における自浄作用(第4報)—和泉川—, 横浜市環境科学研究所報, 14, 97-103(1990).

# 都市河川における河床汚濁物質の動態調査（第3報）

— 和 泉 川 —

小市佳延\*, 福嶋 悟\*, 初貝留美\*

## 要 旨

横浜市内の中小河川である和泉川の淵および瀬において、沈降物、堆積物、付着物および底質の動態をそれぞれの上・下流で四季毎に調査した。その結果、淵では流下の方に密度の高い土壌成分が選択的に沈降するため、下流側で蓄積速度が小さく、有機物濃度の高い傾向にあった。また、沈降物、堆積物および底質中の有機物濃度は降雨の多かった春・秋季には低いのにに対し、降雨の少なかった夏・冬季は高くなる傾向があった。一方、瀬では、河床底質の巻き上げにより下流側の沈降物の蓄積量が多く、堆積物は藻類の堆積や繁殖で下流側の有機物濃度が高くなる傾向があった。また、降雨の少ない夏・冬季に有機物濃度が高いのは沈降物だけで、堆積物や付着物は降雨に関係なく付着藻類の増殖が活発な春・夏季に有機物濃度が高くなる傾向があった。有機物分解の進行度を示す C/N 値は淵・瀬ともに堆積物や付着物では低いのにに対し、沈降物や底質では高かった。有機汚濁物質に対する付着藻類の寄与率は、瀬では付着物、堆積物が16~200%、23~130%と高いのにに対し、淵ではそれぞれ0.5~25%、0.3~26%と低く、淵ではミズワタ等が優占していると思われた。

## 1. はじめに

著者らはかつて河川形態が水質の自浄作用に及ぼす影響について調査を行った<sup>1-3)</sup>。そのうち淵ではSS等の沈降作用が顕著で、溶存成分についても減少が認められた。瀬では流下に伴う浄化は全体的にみられるものの淵ほど大きくはなく、クロロフィルa(Chl.a)については河床からの剥離が増加する傾向がみられた。このような河川形態による水質浄化の違いは河床への汚濁物質の移行の多寡によると思われるが、これらの調査は日中の河川水について水塊の流下に伴う水質変化を追ったものであり、1日単位等の負荷量的な検討は行っていない。このため、はたして河床へどの程度汚濁物質が蓄積しているかは確認していない。

したがって今回、これを確かめるために市西部にある和泉川の淵および瀬を調査地点に選び、河床における汚濁物質の四季および流下過程での挙動を検討することにした。本報では河床の汚濁物質を沈降物、堆積物、付着物および底質の各状態に分け、それらの性状や相互関係について検討したところ、河川形態の影響に関する若干の知見が得られたので報告する。

## 2. 調査方法

### 2-1 調査地点

調査地点の和泉川の淵および瀬の概略図を図-1に示す。和泉川の概況については既報<sup>3)</sup>を参照されたい。

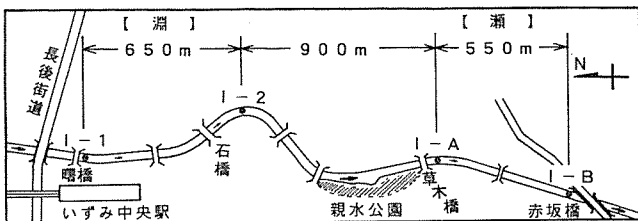


図-1 調査地点概略図

淵の区間には数十mおきに大石でできた堰が連続し、その間の河床は泥質である。上流端にあたるI-1の水深は約20cmあり、水面流速は約20cm/secであるが、河床付近では約8cm/secとなる。下流端のI-2は水深約30cm、水面流速は約14cm/sec、河床付近では約5cm/secである。

調査対象の瀬は淵より約900m下流に位置しており、その河床は砂礫で構成されている。上流端のI-Aは日中の水深が約7cm、流速は約41cm/secである。下流端のI-Bは日中の水深が約11cm、流速は約52cm/secである。

### 2-2 調査期日および項目

調査は淵・瀬ともに四季毎に行い、それぞれ1週間程度捕集用トラップおよびレンガを設置し、これを3~4回繰り返した。詳細な期日を以下に示す。

#### 【淵の調査期間】

- [夏] 1991年7月24日~31日, 7月31日~ 8月8日, 8月8日~ 8月14日
- [秋] 1991年11月7日~13日, 11月13日~20日, 11月20日~27日, 11月27日~12月4日
- [冬] 1992年2月12日~19日, 2月19日~26日, 2月26日~3月4日
- [春] 1992年5月8日~13日, 5月13日~21日, 5月21日~27日, 5月27日~6月10日

#### 【瀬の調査期間】

- [春] 1992年5月8日~13日, 5月13日~21日, 5月21日~27日, 5月27日~6月10日
- [夏] 1992年7月24日~29日, 7月29日~8月6日, 8月6日~14日, 8月14日~19日
- [秋] 1992年11月4日~11日, 11月11日~19日, 11月19日~25日,

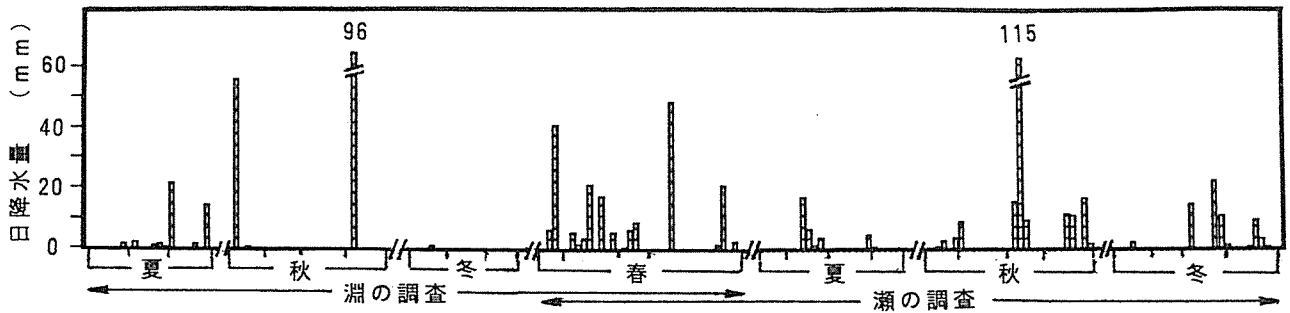


図-2 調査期間中の日降水量 (1991.7.24~1993.3.4)

11月25日~12月2日

[冬] 1993年2月3日~10日, 2月10日~17日, 2月17日~24日,  
2月24日~3月4日

調査期間中の横浜地区の降水量<sup>4)</sup>を図-2に示す。なお、底質は原則として各季節毎の初期と終期に採取した。試料の採取方法や、測定項目および分析方法については前報<sup>5)</sup>のとおりである。

### 3. 結果と考察

#### 3-1 汚濁状態の特徴

淵および瀬における沈降物、堆積物、付着物および底質の測定結果を表-1, 2に示す。

##### 3-1-1 淵

沈降物の蓄積速度のうち秋・春季では図-2に示すように降雨の日が多く、これによる増水で流下物が増し、捕捉しきれなかった期間が多かった。これらの季節の沈降物密度は平均で2.5g/ml前後と高く、逆に強熱減量(IL), 有機態炭素(Org-C)等の濃度は低くなっている。これは降雨に伴う河川増水により、土壌成分が多量にトラップに捕捉されたためと考えられる。夏季は少量の降雨があり、その影響もあってか、蓄積速度は600g/m<sup>2</sup>・day前後と降雨の

表-1 和泉川【淵】における測定結果 (平均値±標準偏差)

(a) 沈降物								
季節	地点	蓄積速度 (g/m <sup>2</sup> ・day)	密度 (g/ml)	IL (%)	Org-C (mg/g)	Org-N (mg/g)	T-P (mg/g)	Chl. a (mg/g)
夏	I-1	751±545	1.88±0.24	41.4±9.3	193 ±61	25.0 ±8.8	9.89±2.46	0.239±0.100
	I-2	568±560	1.73±0.30	49.6±11.7	249 ±71.5	34.9 ±11.6	12.1 ±2.9	0.363±0.098
秋	I-1	(>7350)	2.54±0.17	14.5±6.8	42.4±27.8	4.70±3.58	2.04±1.06	0.011±0.005
	I-2	(>3520)	2.45±0.09	17.5±4.3	51.8±23.3	5.62±3.25	1.98±0.45	0.016±0.005
冬	I-1	294±19	1.60±0.06	63.0±4.4	297 ±15	41.1 ±2.3	13.3 ±0.9	0.233±0.037
	I-2	233±16	1.70±0.07	58.0±6.7	270 ±43	41.9 ±4.7	14.1 ±3.5	0.217±0.020
春	I-1	(>8630)	2.59±0.02	11.4±2.0	32.9±4.1	3.39±0.63	2.24±0.42	0.026±0.011
	I-2	(>6930)	2.49±0.07	15.0±2.4	43.8±13.0	4.48±1.59	2.75±0.39	0.028±0.018
(b) 堆積物								
季節	地点	蓄積速度 (g/m <sup>2</sup> ・day)	密度 (g/ml)	IL (%)	Org-C (mg/g)	Org-N (mg/g)	T-P (mg/g)	Chl. a (mg/g)
夏	I-1	51.0±27.6	2.15±0.20	29.4±8.5	125 ±51	18.3 ±9.0	7.77±2.23	0.363±0.249
	I-2	25.2±13.3	1.83±0.19	46.3±10.5	228 ±72	33.6 ±11.9	12.5 ±1.6	1.17 ±0.63
秋	I-1	66.7±31.8	2.77±0.02	5.0±0.9	11.5±4.5	1.59±0.82	0.63±0.05	0.005±0.002
	I-2	46.4±19.0	2.51±0.21	14.2±7.7	49.9±40.5	7.74±7.03	2.40±1.85	0.006±0.002
冬	I-1	25.7±3.9	1.98±0.12	40.0±10.2	162 ±48	24.3 ±8.6	9.66±3.46	0.269±0.151
	I-2	14.0±2.9	1.93±0.16	43.5±12.3	175 ±49	27.4 ±9.0	10.6 ±2.3	0.430±0.282
春	I-1	23.8±17.0	2.38±0.10	18.7±3.6	69.9±18.3	10.0 ±3.7	3.54±0.91	0.701±0.335
	I-2	13.3±6.3	2.18±0.14	26.0±8.1	113 ±41	15.9 ±6.4	5.57±1.90	1.07 ±0.63
(c) 付着物								
季節	地点	蓄積速度 (g/m <sup>2</sup> ・day)	密度 (g/ml)	IL (%)	Org-C (mg/g)	Org-N (mg/g)	T-P (mg/g)	Chl. a (mg/g)
夏	I-1	10.2 ±5.2	1.76±0.11	51.7±4.9	254±35	38.3±4.2	11.5 ±1.0	0.436±0.136
	I-2	7.32±2.52	1.68±0.05	55.8±0.6	283±14	44.3±2.7	12.3 ±1.5	0.890±0.307
秋	I-1	15.7 ±5.9	2.20±0.16	28.9±12.0	106±48	17.4±7.2	5.78±2.58	0.028±0.018
	I-2	33.2 ±17.1	2.08±0.28	31.1±12.8	105±47	16.0±7.7	5.78±2.18	0.023±0.019
冬	I-1	12.6 ±3.9	1.65±0.06	64.4±7.1	272±40	41.0±7.6	15.5 ±1.1	0.397±0.104
	I-2	7.39±0.55	1.60±0.05	67.5±9.6	281±21	45.2±5.8	16.6 ±1.5	0.439±0.110
春	I-1	5.24±2.07	1.79±0.09	52.8±9.9	239±17	33.9±3.8	14.0 ±3.8	2.04 ±1.48
	I-2	3.12±0.41	2.13±0.23	38.4±17.3	177±82	26.5±13.4	10.0 ±4.6	1.76 ±1.40
(d) 底質								
季節	地点	Eh (mV)	密度 (g/ml)	IL (%)	Org-C (mg/g)	Org-N (mg/g)	T-P (mg/g)	Chl. a (mg/g)
夏	I-1	-109±18	2.59±0.00	10.9±0.2	42.8±1.1	6.48±0.20	2.35±0.31	0.057±0.007
	I-2	-24±73	2.61±0.01	9.5±0.4	30.9±1.0	3.84±0.26	2.10±0.45	0.029±0.004
秋	I-1	364±15	2.77±0.08	5.7±1.3	16.7±5.2	2.37±1.00	1.02±0.31	0.008
	I-2	309±0	2.71±0.03	6.9±0.5	21.1±3.4	2.08±0.27	0.83±0.14	0.001
冬	I-1	169±55	2.48±0.16	19.1±9.5	75.7±31.6	10.8 ±4.4	3.11±2.09	0.037±0.019
	I-2	109±65	2.34±0.15	21.8±7.0	89.6±21.5	13.6 ±3.1	4.10±2.09	0.037±0.009
春	I-1	294±35	2.78±0.02	5.3±0.8	16.1±3.4	2.18±0.45	1.32±0.13	0.038
	I-2	149±40	2.66±0.07	8.1±3.6	26.5±14.4	3.30±1.84	2.20±1.07	0.049

ほとんどない冬季の 250g/m<sup>2</sup>・day 前後を上回っている。夏・冬季は秋・春季にくらべ密度は 1.7g/ml 前後と低かったが、IL, Org-C 等は 3~20 倍ほど高かった。

堆積物の蓄積速度は大雨のあった秋季が最大となった。これに対し、IL 等は秋季が最も低く、特に Chl.a はきわめて低濃度であった。これは沈降物と同様に土壌成分が多かったためと考えられる。降雨の少なかった夏季は蓄積速度が秋季について大きく、濃度項目のうち IL, Org-C, 有機態窒素(Org-N), 全リン(T-P)は冬季について高いのが認められる。冬季は蓄積速度が夏・秋季の半分以下と小さく、一方 IL 等が高くなるのが認められる。これは降雨のなかったことで水況が安定したために、沈降物も少なくなったことが原因していると思われる。春季は蓄積速度、IL, Org-C 等が比較的低い。沈降物とは異なり、春季の蓄積速度が小さいのは調査期間中降雨が連続してあり、増水による流速増加で堆積しにくい状態が続いたためと思われる。一方で Chl.a の濃度は高く、これは付着藻類がレンガ上で増殖したものである。

付着物は沈降物や堆積物同様、秋季に蓄積速度が大きく、逆に IL 等の濃度が低いことが認められる。冬季は Chl.a を除いて濃度が高くなる傾向がみられ、蓄積速度も夏季と同じくらいある。冬季に蓄積速度が大きくなる現象は沈降物や堆積物にはみられなかった現

象で、ミズワタ等の付着微生物が増殖した結果と思われる。春季は蓄積速度が小さい反面、Chl.a が 1.9mg/g 前後と高く、付着藻類が優占的に増殖したものである。ただ、鶴見川<sup>9)</sup>や鳥山川<sup>10)</sup>では 2.58~6.09mg/g だったのにくらべると低い値である。

底質の Eh は夏季には負の値となっている。これは鶴見川や鳥山川ではみられなかったことであり、微生物の活発な活動で嫌気状態になったものと考えられる。冬季は IL が 20%前後と高く、有機汚濁物質が分解されずに蓄積したと思われる。

### 3-1-2 瀬

瀬においても沈降物の蓄積速度については、増水によるオーバーフローや、水草が捕集口に絡まることによる捕集効率の低下があり、不正確となるが多かった。沈降物では夏・冬季に IL が 26%前後、Org-N が 13mg/g 前後になるなど Chl.a を除いて各測定項目で濃度が高くなるのが認められる。図-2 に示すように、夏季や冬季の調査期間中は降水量が少ないことから、流下物が土壌粒子よりも有機汚濁物質に富んでいたと考えられる。夏季の Chl.a は 1 mg/g 前後と四季中最も高いのが認められる。これは同季節の鶴見川の約 2 倍、鳥山川の約 1/3 倍である。

堆積物の IL は春季に 50%前後と最も濃度が高く、夏季がそれに次ぐ。秋・冬季はそれらの半分程度の濃度になっている。Org-C

表-2 和泉川【瀬】における測定結果(平均値±標準偏差)

(a) 沈降物								
季節	地点	蓄積速度 (g/m <sup>2</sup> ・day)	密度 (g/ml)	IL (%)	Org-C (mg/g)	Org-N (mg/g)	T-P (mg/g)	Chl. a (mg/g)
春	I-A	(>2720)	2.46±0.06	18.0±3.3	58.2±22.4	5.86±2.12	3.54±0.52	0.128±0.054
	I-B	2150±510	2.41±0.03	18.9±1.7	63.0±8.7	6.42±0.56	3.87±0.17	0.188±0.000
夏	I-A	(>955)	2.18±0.14	27.7±6.1	113±38	13.7±6.2	6.87±2.17	0.870±0.485
	I-B	(>876)	2.21±0.16	25.8±6.5	104±34	13.0±5.1	6.55±2.17	1.30±0.70
秋	I-A	(>5280)	2.36±0.27	17.9±10.6	80.2±62.1	8.54±6.02	4.10±2.83	0.177±0.177
	I-B	(>5840)	2.44±0.26	14.7±10.1	59.9±56.0	6.26±5.64	3.53±2.65	0.240±0.265
冬	I-A	1740±1680	2.28±0.18	23.3±8.3	95.9±34.1	11.3±3.9	3.94±1.32	0.100±0.047
	I-B	787±502	2.15±0.11	30.2±5.6	123±35	14.7±5.0	5.29±0.86	0.231±0.079
(b) 堆積物								
季節	地点	蓄積速度 (g/m <sup>2</sup> ・day)	密度 (g/ml)	IL (%)	Org-C (mg/g)	Org-N (mg/g)	T-P (mg/g)	Chl. a (mg/g)
春	I-A	5.35±3.04	1.95±0.18	52.2±6.0	224±28	36.7±6.3	12.2±2.4	7.75±4.05
	I-B	4.86±1.30	1.79±0.08	47.1±11.9	212±52	32.6±6.8	9.17±1.42	9.96±5.31
夏	I-A	4.82±3.81	1.99±0.24	36.6±13.0	174±44	28.6±7.1	8.57±2.29	6.57±5.69
	I-B	7.02±3.84	1.85±0.05	41.8±5.5	204±26	31.9±6.5	9.55±0.71	7.88±1.48
秋	I-A	6.25±3.43	2.28±0.23	21.9±7.8	96.1±45.6	14.7±6.1	6.10±2.36	1.20±1.33
	I-B	4.76±2.99	2.15±0.12	24.3±8.2	108±39	18.2±7.6	5.80±0.89	2.85±1.83
冬	I-A	6.51±4.24	2.36±0.07	19.5±4.2	84.4±19.3	13.4±3.1	5.49±2.36	0.628±0.198
	I-B	3.86±1.98	2.17±0.18	26.0±12.4	113±45	19.3±9.0	6.51±2.27	1.85±1.71
(c) 付着物								
季節	地点	蓄積速度 (g/m <sup>2</sup> ・day)	密度 (g/ml)	IL (%)	Org-C (mg/g)	Org-N (mg/g)	T-P (mg/g)	Chl. a (mg/g)
春	I-A	2.52±1.45	1.77	65.5±9.0	261±20	45.0±4.7	22.7±11.4	5.84±3.56
	I-B	2.39±1.03	1.72±0.12	52.9±12.4	224±38	38.3±6.9	13.3±1.8	8.67±4.36
夏	I-A	1.84±1.12	1.69±0.12	38.3±19.6	191±68	32.2±12.6	9.07±3.22	6.40±5.14
	I-B	2.02±1.07	1.86±0.17	42.2±14.0	216±61	36.3±10.8	12.0±1.2	13.5±10.9
秋	I-A	1.73±0.72	1.87±0.12	40.2±5.3	182±45	27.6±2.6	11.8±2.5	1.79±1.07
	I-B	1.57±0.66	2.08±0.17	24.0±6.6	120±52	19.3±7.9	6.92±2.98	1.89±1.14
冬	I-A	2.83±1.45	1.95±0.14	38.5±6.4	179±22	30.0±4.9	11.0±2.5	0.94±0.67
	I-B	2.48±1.33	1.99±0.08	38.7±2.2	179±33	31.2±7.2	10.5±1.8	1.84±1.81
(d) 底質								
季節	地点	Eh (mV)	密度 (g/ml)	IL (%)	Org-C (mg/g)	Org-N (mg/g)	T-P (mg/g)	Chl. a (mg/g)
春	I-A	289	2.66±0.06	8.0±1.4	28.0±5.7	3.43±0.91	2.19±0.32	0.061
	I-B	329	2.72±0.05	6.3±2.5	21.1±5.4	2.75±0.56	1.52±0.61	0.052
夏	I-A	218±41	2.68±0.06	5.5±1.4	16.3±5.4	1.89±0.72	1.25±0.25	0.050±0.036
	I-B	317±39	2.70±0.07	4.6±2.3	20.9±15.9	2.90±2.32	0.75±0.33	0.150±0.140
秋	I-A	334±35	2.78±0.18	5.0±3.4	12.1±9.5	1.18±0.86	1.07±0.60	0.010±0.006
	I-B	364±25	2.61±0.01	6.8±0.6	26.0±3.1	2.82±0.55	1.57±0.07	0.019±0.007
冬	I-A	(欠測)	2.59±0.04	9.6±1.5	42.6±3.6	5.68±0.55	2.67±0.35	(欠測)
	I-B	(欠測)	2.66±0.03	5.6±1.3	25.1±7.9	3.35±1.07	1.46±0.55	(欠測)

や Org-N も同様の傾向がみられる。Chl.a はこの季節差が著しく、春・夏季は 6.57~9.96mg/g であるのに対し、秋・冬季は 0.63~2.85mg/g と10倍以上の差になることもある。

付着物の蓄積速度は春季および冬季に大きくなる傾向がみられる。このうち春季については Chl.a を除いて IL 等の濃度が最も高い。堆積物と異なり、冬季も IL, Org-C, Org-N は高く、春季の 7 割程度の値となっている。それに比べて Chl.a は冬季には春季の 1/5 以下となり、細菌性の付着生物が占めていると思われる。この Chl.a は夏季には下流側の I-B において 13.5mg/g にまでなるなど、春・夏季に高く、この季節には付着藻類が活発に増殖したと考えられる。

底質の Eh は微生物活動の活発な夏季に若干低くなるものの、春季から秋季にかけて 200mV 以上と高いのが認められる。これは調査地点が流れの速い瀬であるために酸素が充分供給されるためと思われる。

### 3-1-3 淵と瀬の比較

沈降物について淵と瀬を比較すると、降雨による増水のあった秋・春季は Chl.a を除いて 2 倍弱程度まで瀬の方が IL 等の濃度が高いが、降雨の影響の少ない夏・冬季は Chl.a を除いて逆に淵の方が 2~3 倍高い濃度になる傾向がみられる。また、淵の方が季節変化が大きい。平水時に近い夏・冬季には、流下物は上流にあたる淵のところで流速が遅いために汚濁物質はまず沈降し、下流の瀬へは有機汚濁物質の少なくなった流下物が流れていくと考えられる。こうして淵には多量の蓄積物が溜まるが、増水時の秋・春季ではそれらが再浮上し、密度の高い土壌成分はすぐに沈降するものの、密度の低い有機汚濁成分は下流の瀬の方にまで運ばれるため、前述のような結果になったものと考えられる。一方、Chl.a は冬季以外は瀬の方が高い傾向にある。これは付着藻類は水深が浅く、流れのある瀬で生長しやすく、それが剥離してトラップに捕集されたためと考えられる。

堆積物の蓄積速度は淵の方が瀬の 3~10 倍大きい。淵の方が流速が遅いことから、いったん沈降したものは瀬にくらべてその場所に残留しやすいと思われる。IL 等の濃度は瀬の方が高めで分布範囲も狭い傾向がある。特に差がはっきりしているのは Chl.a で、淵が 0.005~1.17mg/g であるのに対し、瀬は 0.63~9.96mg/g となっている。

付着物の蓄積速度は淵が 3.12~33.2g/m<sup>2</sup>・day と季節差や地点差があるのに対し、瀬は 1.57~2.83g/m<sup>2</sup>・day と小さく、季節差や地点差も小さい。IL, Org-C, Org-N は季節によって差はあるものの、濃度レベルはほぼ同じである。Chl.a は瀬が 0.94~13.5mg/g に対し、淵では 0.028~2.04mg/g と瀬の方が格段に高いのが認められる。このような、瀬のように流速の大きい場所において付着藻の増殖速度が大きいことはいくつかの研究で明らかにされている<sup>7)</sup>。

底質の Eh は夏季に差がみられる。瀬では流速があるために 218, 364mV と他の季節と同程度だが、淵では水が滞留するために溶存酸素が消費されて -109, -24mV と負の値になったと思われる。Chl.a 以外の IL 等の濃度は夏・冬季に淵の方が 2 倍程度まで高くなる傾向がみられる。

### 3-2 流下過程での変化

淵および瀬における流下過程での汚濁物質の変化をみるために、それぞれの上流端の汚濁物質の状態を基準に下流端での比率を求めた。結果の一部を図-3, 4 に示す。

### 3-2-1 淵

夏季は、沈降物、堆積物、付着物の蓄積速度比が 1 より小さく、上流側にくらべて下流側の蓄積量が少ないことが認められる。一方、IL, Org-N, Chl.a の比は 1 より大きく、各濃度は下流側で高くなる。このうち堆積物の各濃度比は大きく、地点差がはっきり出ている。底質の各濃度比は 1 より小さく、上流側の方が有機汚濁度が高いと考えられる。

秋季は、沈降物の蓄積速度が下流側で少なくなっているが、堆積物や付着物は下流側でやや多くなっている。IL や Org-N の比は、濃度は低いのであるが、夏季以上に下流側の方が高い傾向にある。上流では密度の高い無機の土壌粒子が多くを占めていたため、流下の際に選択的に沈降し、下流へは有機汚濁物質が到達したものである。底質は IL 比等が 1 より大きくなっており、下流の方が有機汚濁度が高い。もっとも、両地点の各濃度は夏季より低い。これは夏季と秋季の調査期間の間に降水量 50mm/日以上の日が 5 日間観測される等、平年の約 3 倍もの降雨があったために、河床に溜まった有機汚濁物質が下流へと掃流されたためと思われる。

冬季は、沈降物、堆積物、付着物の蓄積速度比が夏季と同様下流側で小さいものの、IL, Org-N 等の比は 1 に近く、地点差が小さいことが認められる。底質については Org-N や Chl.a の比が秋季よりも高くなっており、剥離した藻類が下流側に移行して蓄積したものである。

春季は、再び沈降物や堆積物の IL 等の濃度比が 1 以上となり、秋季と同様に、降水による増水時には有機汚濁物質や剥離した藻類が選択的に下流に蓄積したと考えられる。一方、付着物は IL 等の濃度比が 1 以下と下流の方で濃度が低くなることが認められる。期間中の連続降雨によって流速が速くなり、付着生物が容易に剥離される状態が続いたと思われるが、この現象が下流側で強かったと考えられる。底質は IL 等の濃度は低くなるものの、下流側の方が IL 等の比が高い傾向は変わらない。

### 3-2-2 瀬

春季は沈降物、堆積物、付着物の蓄積速度比がわずかながら 1 を上回っており、両地点間の瀬において巻き上げによって下流へと河床の汚濁物質が移動していると考えられる。IL, Org-N の比は沈降物では 1 より大きく、有機汚濁物質に富んだ構成へと変化している。一方、堆積物や付着物では 1 より小さく、無機の土壌成分が増えたことによると思われる。Chl.a 比は堆積物や付着物では IL 比とは逆に 1 より大きくなっており、下流側が付着藻類の増殖に適しているものと思われる。底質は IL 比等が 1 より小さく、下流側の方が有機汚濁度が低い。

夏季はいずれの蓄積速度比も 1 を上回っており、春季同様下流側へ汚濁物質が流されていると考えられる。しかし、沈降物の IL 等の濃度比は春季より小さくなっており、下流側の沈降物は土壌成分が多くなっているものと思われる。これに対して堆積物・付着物は IL 等の比が 1 より大きくなっており、有機汚濁物質に富んだものに変化している。これは Chl.a の比が春季にくらべてかなり大きくなっており、付着藻類が下流側の I-B で繁殖したためと思われる。底質でも Chl.a 比が 2.02 と 1 以上になっており、下流側で、剥離した藻類が蓄積したものに変わったと考えられる。

秋季は沈降物の蓄積速度比が 4 を越えており、四季中最も大きいのが認められる。その IL や Org-N の比は 1 以下であることから、下流側で有機汚濁物質の割合が少なく、一方無機の土壌成分が増えていると考えられる。この瀬では河床底質の巻き上げが生じたも

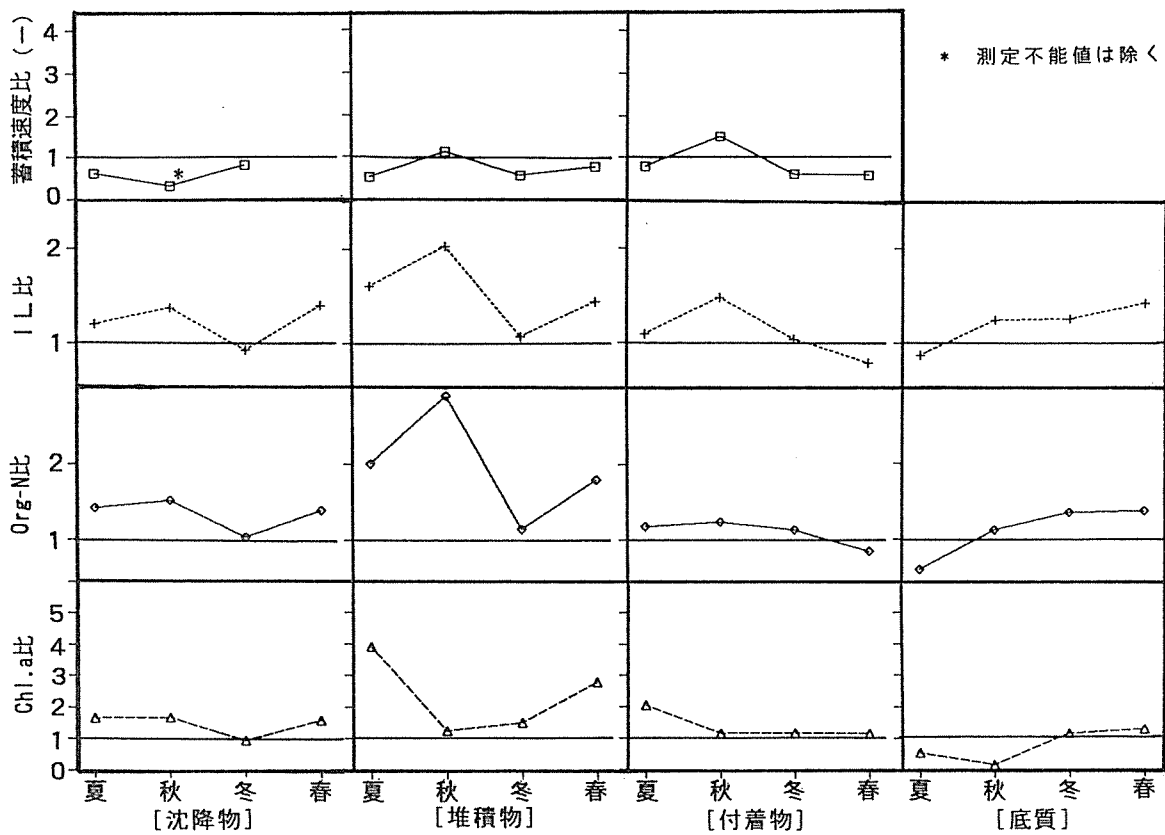


図-3 上流に対する下流の濃度等比率【淵】(平均値)

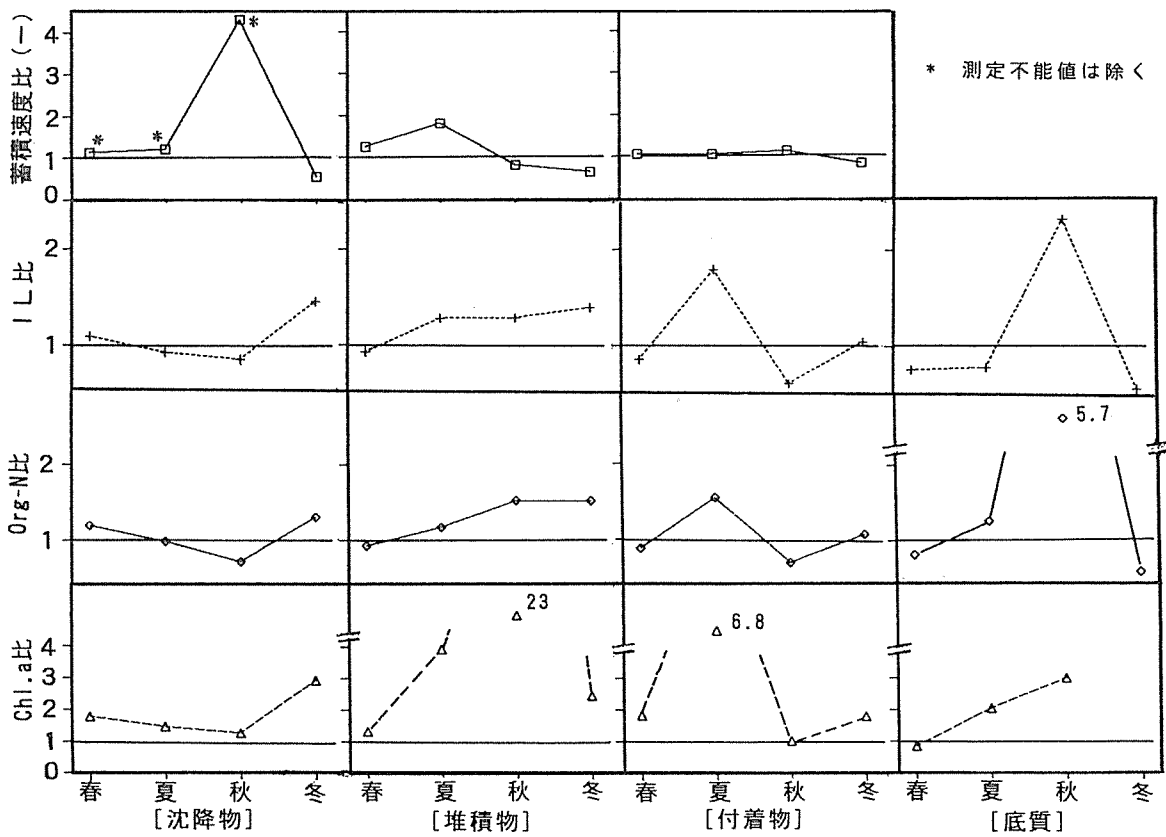


図-4 上流に対する下流の濃度等比率【瀬】(平均値)

のと思われる。堆積物の蓄積速度比は0.82と1より小さく、沈降物とは逆に下流側の方が蓄積量は少ない。その構成物はIL比等が1より大きく、特にChl.a比は23もあることから、瀬の河床から剥離した藻類が大部分を占めているのではないと思われる。付着物の蓄積速度比は春・夏季と同様にわずかに1を上回る程度であるが、IL比等は沈降物と同様の傾向がみられる。これは付着生物が現場における水中の流下物を取り込んで増殖するため、沈降物すなわち沈降性流下物の影響を受けたものと思われる。底質のIL等の比は四季の中で最も大きいのが認められる。これは調査初期に上流側の濃度が極端に低くなっていたためで、この地点も次の調査の時には濃度は元に戻っている。瀬の底質は降雨による増水によって容易に移動すると考えられる。

冬季はいずれの蓄積速度比も1より小さいのが認められる。沈降物のIL等の濃度比は再び1より大きい方に転じ、下流側の濃度が高くなっている。堆積物のIL等の比は秋季と同程度に1より大きいもののChl.a比だけは秋季の高い値から2.44へと小さくなっている。沈降物、堆積物ともに土壌粒子が区間内で選択的に沈降し、有機汚濁物質の比率が増したと考えられる。Chl.aの蓄積量は下流側で増えており、河床から剥離した藻類が含まれていると思われる。付着物のILやOrg-Nの比は1に近く、上・下流の2地点に差はみられない。Chl.a比だけは1.80と下流側の濃度が高くなっており、付着藻類の比率が上流よりも高くなっている。底質の濃度比はいずれも再び1以下となっている。これは上流側の濃度が高くなったことによるもので、新たに上流の淵から汚濁物質が流下してきて蓄積したことも考えられる。

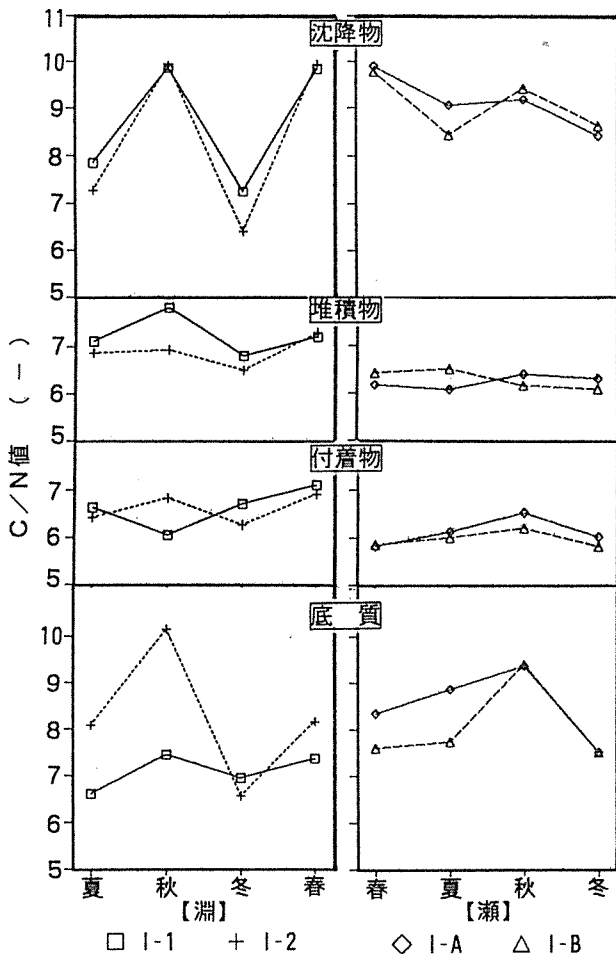


図-5 各汚濁状態におけるC/N値(平均値)

### 3-3 C/N値

有機物分解の進行度の指標としてのC/N値<sup>9)</sup>を図-5に示す。ただしC=Org-C, N=Org-Nとして計算した。

#### 3-3-1 淵

付着物のC/N値は6.0~7.1と4つの汚濁状態中最も低く、これは付着物中の有機物のほとんどが生育中の生物で占められているためと考えられる。堆積物のC/N値は6.5~7.8で付着物よりわずかに高い傾向がみられる。沈降物のC/N値の平均値は6.4~9.9と幅広くくなっている。秋・春季が高くなっているのは降雨による増水で再浮上した分解の進んだ河床底質が沈降物として捕らえられたものと考えられる。一方、冬季は7前後と他の季節より低く、低温のために微生物による分解活動が進んでいないと思われる。これら3汚濁状態については下流側のI-2の方が上流側のI-1よりC/N値がやや低い程度であり差がみられない。これに対して底質のC/N値はI-1では6.6~7.4と低い値であるのに対し、I-2では6.6~10.1と高く、また大きく季節変動するのが認められる。下流側のI-2の方が冬季を除いて底質中の有機物の分解は進んでいると考えられる。

#### 3-3-2 瀬

沈降物のC/N値は8.4~9.9と他の汚濁状態にくらべて大きい傾向がみられる。堆積物および付着物のC/N値は6.1~6.5, 5.8~6.5であり、季節差が小さい。淵と比較するとやや低い値となっており、流れの早いところでは分解の進んだ汚濁物質は蓄積されにくいと考えられる。また、付着物は淵と同様に4つの汚濁状態中最も低い値となっているのが認められる。底質のC/N値は7.5~9.4であり、

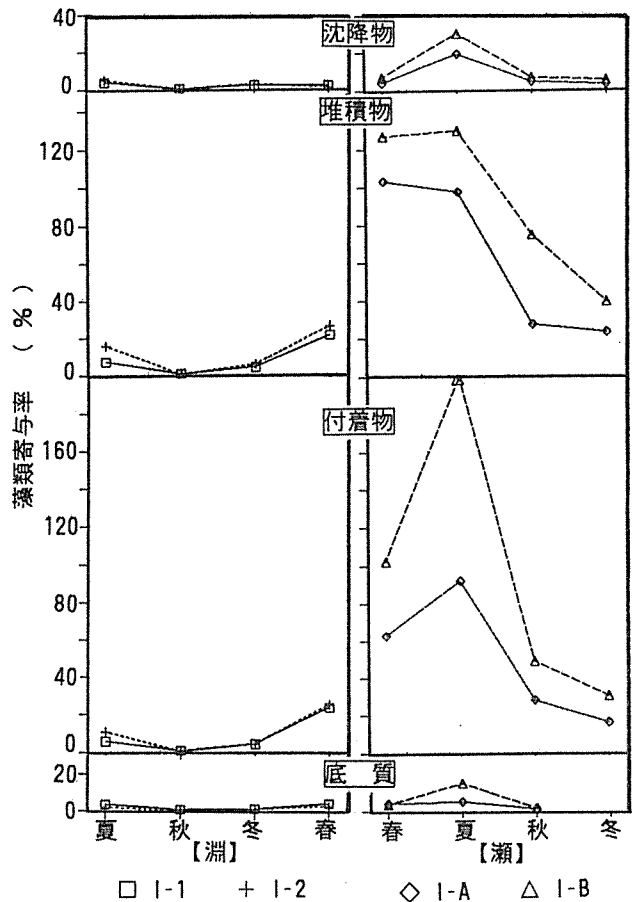


図-6 各汚濁状態における藻類寄与率(平均値)

これは沈降物と同等かやや低い値である。

季節的には冬季が低くなる傾向があり、温度の低下による分解活動の鈍化が原因と思われる。

### 3-4 付着藻類の汚濁状態への寄与

2次汚濁をもたらす恐れのある付着藻類が各汚濁状態においてどの程度の割合を占めているのかをみるために、前報同様、藻類のILに対するChl.aの割合を1.5%と仮定して計算した<sup>5)</sup>。その結果を図-6に示す。

#### 3-4-1 淵

沈降物、堆積物、付着物および底質に対する藻類寄与率の平均はそれぞれ0.4~4.8%、0.3~26%、0.5~25%、0.1~4.2%であり、堆積物および付着物がこの中では高く、沈降物および底質が低い傾向がみられる。季節的にはいずれの汚濁状態も秋季が低く、春季に高い傾向がみられる。

前報の鶴見川や鳥山川では夏季が最も高く、付着物では寄与率が100%を越えることもあったのに対し、和泉川の淵では測定値の最高でも58%であり、全体的に低くなっている。このことから、淵では有機汚濁物質としてはミズワタ等が優占していると考えられる。

#### 3-4-2 瀬

沈降物、堆積物、付着物および底質に対する藻類寄与率の平均はそれぞれ2.6~30%、23~130%、16~200%、0.38~13%であり、付着物、堆積物、沈降物、底質の順に高いのが認められる。季節的な特徴として、いずれも夏季が高い傾向にあり、このうち堆積物は春季も同程度に高くなっている。また、四季を通じて下流側のI-Bの方が上流側のI-Aより寄与率が高い傾向にある。このことから、区間内において河床の付着藻類が増殖・剥離したものが下流側のI-Bに蓄積したか、あるいは下流側が付着藻類の増殖により適した環境になっているものと思われる。

瀬では淵にくらべていずれの状態も藻類寄与率が高くなっているが、値としては前報の鶴見川や鳥山川と同程度である。

### 3-5 汚濁状態間の比較

沈降物、堆積物、付着物および底質の4つの汚濁状態間の相互関係ないしは類似度をみるために、密度、IL等の項目について、同一地点・同一期間の値の比を堆積物を基準にして求めてみた。その比が1に近いほど堆積物と類似していることになる。結果の一部を図-7に示す。

#### 3-5-1 淵

密度の比はいずれの地点も底質が最も大きく、以下堆積物、沈降物、付着物の順であり、その範囲は全体として0.7~1.7と広がっている。これは鳥山川の0.6~1.5と同程度である。このうち、I-2では付着物が0.7~1.2と幅広く、また1より大きい値が3点みられる。これは鶴見川や鳥山川ではみられなかった現象である。3点のうち2点は降水量が多い期間にあたり、増水時期に付着生物が土壌粒子を取り込んだ結果、堆積物より付着物の方が密度が高くなったものと思われる。ILやT-Pの比は付着物が大きく、次に沈降物、堆積物、底質の順に小さくなる傾向がみられる。鳥山川と同様、付着物と沈降物の値は接近しており、両状態間の差は明確ではない。Chl.aの比の分布は他の項目にくらべて幅広く、沈降物や底質では値が小さい方まで分布しているのが認められる。

蓄積速度やILの蓄積速度( $\Delta IL$ )、Chl.aの蓄積速度( $\Delta Chl.a$ )の比は沈降物で100倍以上の値が数点みられる。付着物はほとんどが1/10までの値となっており、堆積物との類似性が高いと思われる。

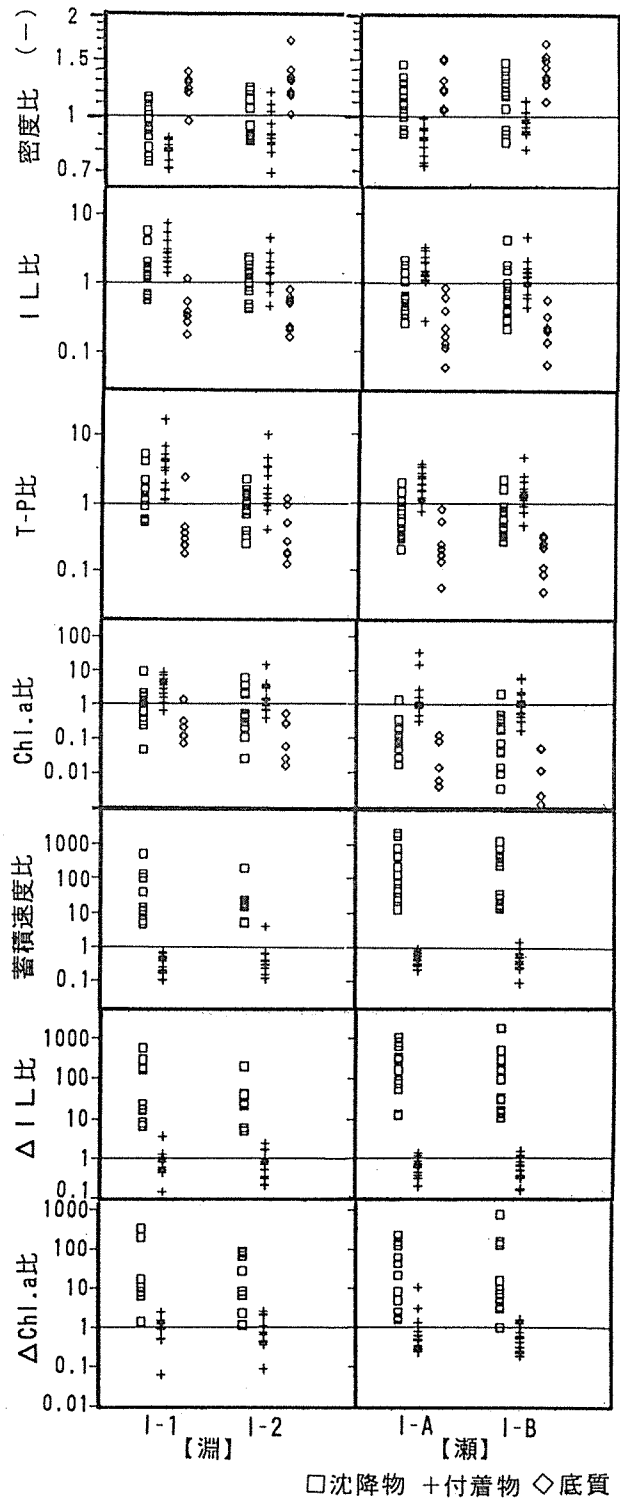


図-7 堆積物と各汚濁状態との比

#### 3-5-2 瀬

密度比は底質、沈降物、堆積物、付着物の順に小さくなる傾向にある。このうち沈降物は0.8~1.4と底質の1.1~1.6の分布に近い。これは鶴見川や鳥山川あるいは和泉川の淵ではみられなかったことである。ILの比は沈降物では0.2~4.3であるが、下流側のI-Bでは1以下の値が多い。付着物では0.3~4.7のうち1付近の値が多くなっており、堆積物との類似性が高いと考えられる。底質については0.06~0.8といずれの地点も淵よりも分布が低い方へ移動している。T-Pの比やChl.aの比についても同様である。

つぎに各種蓄積速度を比較すると、蓄積速度の比では沈降物が



12~2200倍と淵以上に範囲が広がっている。それに対して付着物は0.1~1.4倍と分布が狭く、1付近に集中する傾向にあり、これは淵と同様である。ΔILの比も同様の傾向にある。ΔChl.aの比については沈降物が1~820と他の蓄積速度にくらべて幅広く分布しているのが認められる。

#### 4. まとめ

市内中小河川である和泉川の淵および瀬において、河床の沈降物、堆積物、付着物および底質の性状を調査した結果、以下のような見が得られた。

- 1) 淵では、沈降物、堆積物、底質について春・秋季は降雨の影響で有機物濃度は低くなったが、降雨の少なかった夏・冬季は有機物濃度が高い傾向にあった。春季の付着物については他の汚濁状態とは逆に、付着藻類の増殖により有機物濃度が高くなった。
- 2) 瀬では、降雨の少ない夏・冬季に有機物濃度が高いのは沈降物だけで、堆積物や付着物は降雨に関係なく付着藻類の増殖が活発な春・夏季に有機物濃度が高い傾向にあった。
- 3) 淵では下流側がそれぞれの蓄積速度が小さく、濃度の高い傾向にあり、汚濁物質のうち密度の高い土壌成分が選択的に沈降したためと思われた。
- 4) 瀬では、河床底質の巻き上げにより下流側の沈降物の蓄積量が多く、堆積物は付着藻類の蓄積や繁殖で下流側で有機物濃度が高い傾向があった。付着物は上・下流で蓄積量はほぼ同じだが、夏季は下流側で付着藻類が繁殖する傾向があった。
- 5) 有機物分解の進行度を示すC/N値は淵・瀬ともに堆積物や付着物では低いのにに対し、沈降物や底質では高く、降雨のあった季節には沈降物が底質を上回ることもあった。
- 6) 堆積物および付着物のC/N値は淵より瀬の方がやや低い傾向があり、瀬の方が付着生物の増殖活動が活発であると思われた。
- 7) 有機汚濁物質に対する付着藻類の寄与率は、瀬では付着物、堆積物が16~200%、23~130%と高いのにに対し、淵ではそれぞれ0.5

~25%、0.3~26%と低く、淵ではミズワタ等が優占していると思われた。

8) 瀬ではいずれの汚濁状態でも藻類寄与率が下流側で高く、河床で剥離した藻類が下流へ蓄積され、繁殖したものと思われた。

9) 各汚濁状態間の類似度は淵・瀬ともに付着物と堆積物の各種蓄積速度が高い傾向にあった。瀬では沈降物の密度比や各種濃度比が底質に近い分布を示しており、両者の類似度は高いと思われた。

#### 文 献

- 1) 小市佳延, 福嶋 悟, 福島 博: 都市河川における自浄作用 (第3報) - 舞岡川・阿久和川・鳥山川 -, 横浜市公害研究所報, 14, 85-95(1990).
- 2) 小市佳延, 福嶋 悟, 福島 博: 都市河川における自浄作用 (第4報) - 和泉川 -, 横浜市公害研究所報, 14, 97-103(1990).
- 3) 初貝留美, 福嶋 悟, 小市佳延: 都市河川における水質調査 - 和泉川 -, 横浜市環境科学研究所報, 18, 53-62(1994).
- 4) 横浜地方気象台: 神奈川県気象月報平成3年7月 - 平成5年3月, 日本気象協会(1991,1992,1993).
- 5) 小市佳延, 福嶋 悟, 初貝留美, 酒井 学: 都市河川における河床汚濁物質の動態調査 (第1報) - 鶴見川 -, 横浜市環境科学研究所報, 17, 113-121(1993).
- 6) 小市佳延, 福嶋 悟, 初貝留美, 酒井 学: 都市河川における河床汚濁物質の動態調査 (第2報) - 鳥山川 -, 横浜市環境科学研究所報, 18, 43-51(1994).
- 7) J. H. Rodgers Jr., K. L. Dickson, J. Cairns Jr.: A chamber for in situ evaluations of periphyton productivity in lotic systems, *Arch. Hydrobiol.*, 84(3), 389-398(1978).
- 8) 対馬和浩, 工藤精一, 千代森光仁: 県南公共用水域における底質の特性, 青森県公害センター所報, 9, 82-86(1989).

# 軟弱地盤の沈下に関する調査研究 (8)

## — 大岡川低地軟弱地盤における不攪乱連続 試料の圧密試験結果とそれに対する解析 —

杉本 実\*

### 要 旨

大岡川低地軟弱地盤の地盤沈下機構を解明するため、2地点でコアサンプリングを行い、堆積環境と土質工学的性質および地下水位変動と地盤沈下のデータを取りまとめて検討した結果、次のような知見が得られた。

- 1) 大岡川低地軟弱地盤は横浜沖積層の横浜七号地層と横浜地層に区分され、一部に横浜陸成層が堆積されている。また、横浜地層は土性図および圧密特性等から更に横浜地層上部(YAu), 横浜地層中部(YAm), 横浜地層下部(YAl)の3層に細区分される。
- 2) 横浜地層中部(YAm)の含水比, 圧縮指数は全体で最も大きく, 湿潤密度は小さい値を示す。過圧密比は1に近く, 単位当り沈下速度が大きい位置と一致している。また, 堆積速度は年間1.0cmで横浜七号地層の約25倍, YAu層の約2倍の速さで堆積しており, この相違が土性, 圧密特性および層別沈下特性に影響を及ぼし, 圧縮性の高いYAm層が形成されたものとおもわれる。
- 3) YAm層は以上のことから推察して, 正規圧密状態に近い軟弱地盤であり, 今後も大岡川低地の地盤沈下は継続されるものと考えられる。

### 1. はじめに

地盤環境調査の一環として横浜市内に分布する5低地(鶴見川低地, 帷子川低地, 大岡川低地, 柏尾川低地, 金沢低地)の軟弱地盤について堆積環境, 土質工学的性質, 層別沈下, 間隙水圧, 地下水位変動等の調査を進めている<sup>1)~14)</sup>。

本論は, 既存資料で得られない大岡川低地軟弱地盤の堆積環境と土質工学的性質を調査し, 層別沈下沈下特性との関係を検討したので報告する。

### 2. 調査地域の地質構造と地盤沈下

#### 2-1 調査位置と軟弱地盤の特徴

図-1に調査位置を示す。図中は大岡川低地の軟弱地盤地帯で, Ohdは大通り公園層別沈下装置の地点であり, JR 関内駅から南西に約300mの場所にある。Ykは横浜公園地盤沈下観測所の地点であり, JR 関内駅から北東に約400mの場所にある。

図-2は調査地周辺の上流から Ohd 地点, Yk 地点を通り下流の横浜港に至る路線を縦断面で示した地質断面図である。当地域の軟弱地盤は第三紀後期鮮新世から第四紀前期更新世にかけての上総層群上星川層を不整合に覆い, 最下位層は基底礫層(BG層)から成っている。主に海成堆積物で構成されており, 下位と上位地層は陸成堆積物である。海成堆積物は主に均一な軟らかい粘土で, 貝殻片を混入している。特に Yk 地点の下流側では貝殻片の混入が多く見られ, 細砂が介在している。陸成堆積物はシルトと砂の互層から成っている。これらの海成堆積物と上位陸成堆積物は横浜地層(YA層)とし, 下位陸成堆積物は横浜七号地層(YN層)として層序区分している<sup>14)</sup>。

#### 2-2 地盤沈下と層別沈下の特徴

図-3にYK 観測所の地下水位変動と地盤沈下を示す。

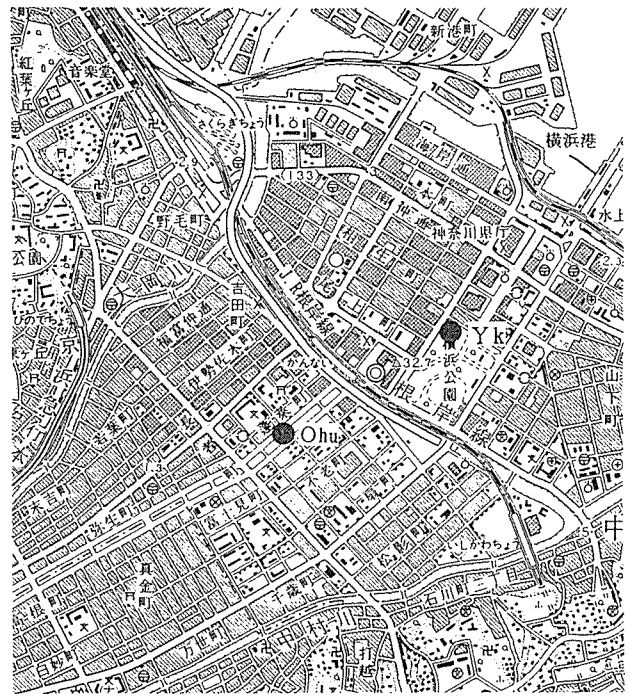


図-1 調査位置図

地盤沈下は1960~1994年間に一定速度で, 約30cm沈下している。地下水位は1960年~1970年頃まで TP 約-1.5~3.2mの範囲で変動し, そこから急激に低下して1973年頃には TP 約-6.4mまで低下している。1975年頃には TP-2.5mまで回復し, 再び低下して1978年頃には TP 約-4.4mとなっている。その後は徐々に上昇して TP 約-2.0mまで回復したが, 1988年に一旦 TP 約-3.2mまで下

Study on Ground Subsidence of Soft Layers (Part8)

-Study on Consolidation of Soft Layers in the Lowland of Ohooka Rivers, Yokohama City-

\*Minoru Sugimoto, 横浜市環境科学研究所地盤沈下部門

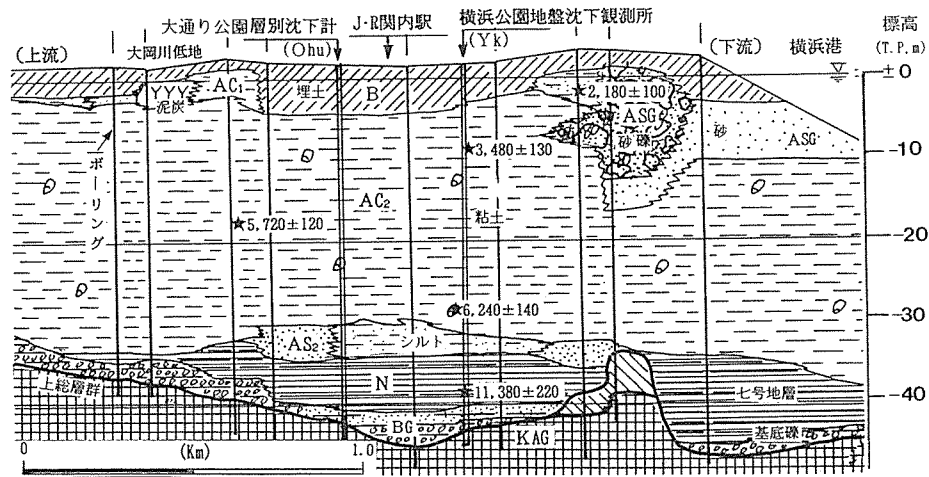


図-2 大岡川低地軟弱地盤の地質縦断面図

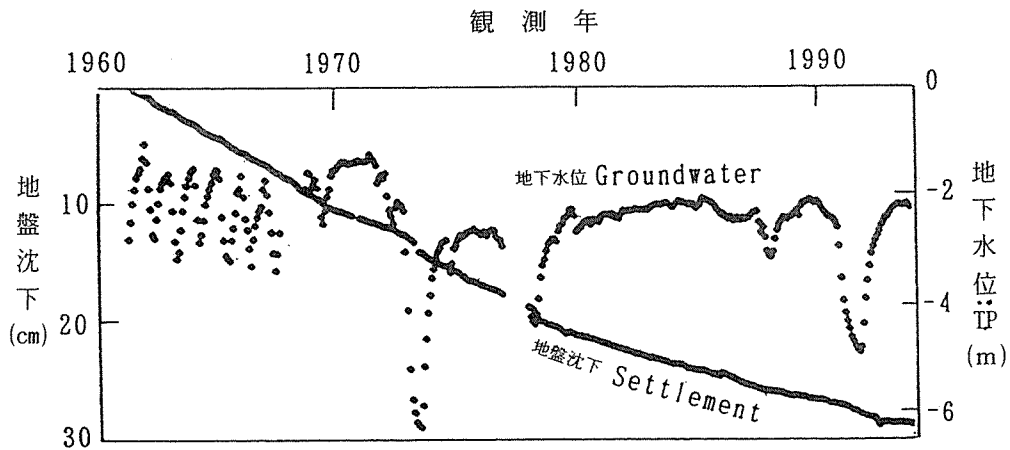


図-3 横浜公園地盤沈下観測所 (Yk) の地下水位変動と地盤沈下図

がり、1992年頃にはTP約-5.0mまで低下している。1994年には回復したが、再度低下しつつある。当地域は1970年代に大規模な地下掘削工事が盛んに行われた所であり、特にBG層の地下水が多量に排除された可能性があると考えられている<sup>9)</sup>。そのためYk観測所のBG層の地下水位は一時的に急激に低下し、それに伴って沈下も加速されて発生している。

地表面に現れた地盤沈下現象と軟弱地盤基底礫層(BG層)の地下水位変動が地層の内部でどのように挙動しているかを大通り公園層別沈下装置で検討した。図-4は1986~1994年の8年間における層別沈下量と間隙水圧・地下水位の経年変化を示したものである。沈下計と間隙水圧計および地下水位計は各々の深度に設置されている(詳細は所報第17号を参照)。

測定は1985年4月から開始しているが、1994年8月までの累積沈下量は約14cmである。

BG層の水位は1991~1992年頃に約1.0m低下している。その後は徐々に上昇したが、最近(1994年4月から)再び低下しつつある。この傾向はYk観測所の地下水位変動と似ており、両地点を結ぶ周辺で地下水が大量に排除されている可能性が考えられる。

前報<sup>7)</sup>において、地下水位の変動がその上位層の間隙水圧に影響を及ぼしていることを示したが、この傾向は図-4においても同様であり、Ohd-W2の地下水位とOhd-P4の間隙水圧は変動傾向が類似しており、地下水位の低下に伴って間隙水圧の減少が認められる。これは地下水位の低下でその上位層の有効増加応力が発生していることを示しており、正規圧密状態の地層であれば沈下が発生する。

しかしながら、当地層は過圧密比(OCR)が1.3~2.0の範囲で、過圧密状態が考えられ、沈下等の影響は認められない。これに対してOhd-P2の間隙水圧は若干ながら減少しており、OCRも1.0に近く正規圧密状態に近い地層と考えられ、沈下量も他の値より大きく現れている。

### 3. 調査方法と使用機器

#### 3-1 試料採取と分析・試験方法

大岡川低地の臨海都心部では、現在も沈下が継続しているが、この軟弱地盤の不攪乱連続試料を採取するため、大通り公園層別沈下装置設置地点で調査を実施した。採取試料は当研究所において圧

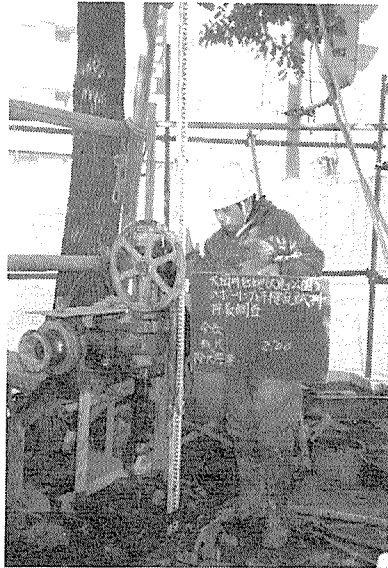


写真-1 大通り公園層別沈下装置地点の不攪乱連続試料採取状況

密試験と貝類群集などの分析を実施した。また、横浜公園地盤沈下観測所の軟弱地盤は1985年に調査し、その一部は報告<sup>15)</sup>しているが、未整理分は今回の調査と併せて検討した。

採取地点はOhd装置の位置から約5m離れた場所にボーリング機械を設置し、埋土層の3箇所から密度試験用の土を採取し、埋土層から下位はシンウォールサンプラーで採取した(写真-1参照)。

試料の採取方法は土質工学会編の土質調査法<sup>16)</sup>により行い、水圧式固定サンプリングを行った。1回のサンプリングで得られる試料は80cmであり、削孔底の土の乱れとスライム除去を目的として約10cmの空掘りを行い、2本目の試料を採取するように計画した。また、試料採取後は速やかにサンプラー先端部の土を約1cm削り取り、試料の鑑定を行うと共にサンプラー両端部内側の周面を良く洗浄し、乾いた布で拭き取ってからパラフィンを流し込み、完全密閉した。試料の運搬は毎日の作業終了後に行い、サンプラーから抜取機で試料を抜き取り、土の細部を鑑定すると共に速やかに圧密試験のための試料成形を行った。圧密試験方法は土質工学会基準(JSF T 411-1990)「土の圧密試験方法」<sup>17)</sup>に従って行った。

### 3-2 圧密試験機および圧密自動収録装置の構造

図-5は圧密試験機と圧密自動収録装置の概要図であり、その全景を写真-2に示す。

圧密試験機は10連で構成されている。載荷方法は7連が空圧式(誠研舎製)と残り3連は分銅式(丸東製作所製)である。載荷の最大容量は機械No.1~No.3が七号地層粘土用で空圧式(最大応力25.6Kgf/cm<sup>2</sup>)、No.4~No.6が洪積粘土用で空圧式(最大応力51.2Kgf/cm<sup>2</sup>)、No.7~No.9が超軟弱粘土用で分銅式(最大応力12.8Kgf/cm<sup>2</sup>)、No.10が軟岩用で空圧式(最大応力102.4Kgf/cm<sup>2</sup>)である。

自動収録装置はPC98シリーズのパソコンとプリンターおよびXYプロッターと接続し、マニュアルとオートの切り替えが可能である。変位計はデジタルリニアゲージで1/1,000mmを計測し、データ収録総数は1段階24時間で78データが記録される。このデータをプリンター出力すると同時にXYプロットで $\sqrt{t}$ 、 $\log t$ を作図するように設計されている。また、これらのデータは全てパソコンでデスクに収録し、データ処理を行うと同時に、 $e$ - $\log P$ 曲線、 $mv$ ・ $cv$

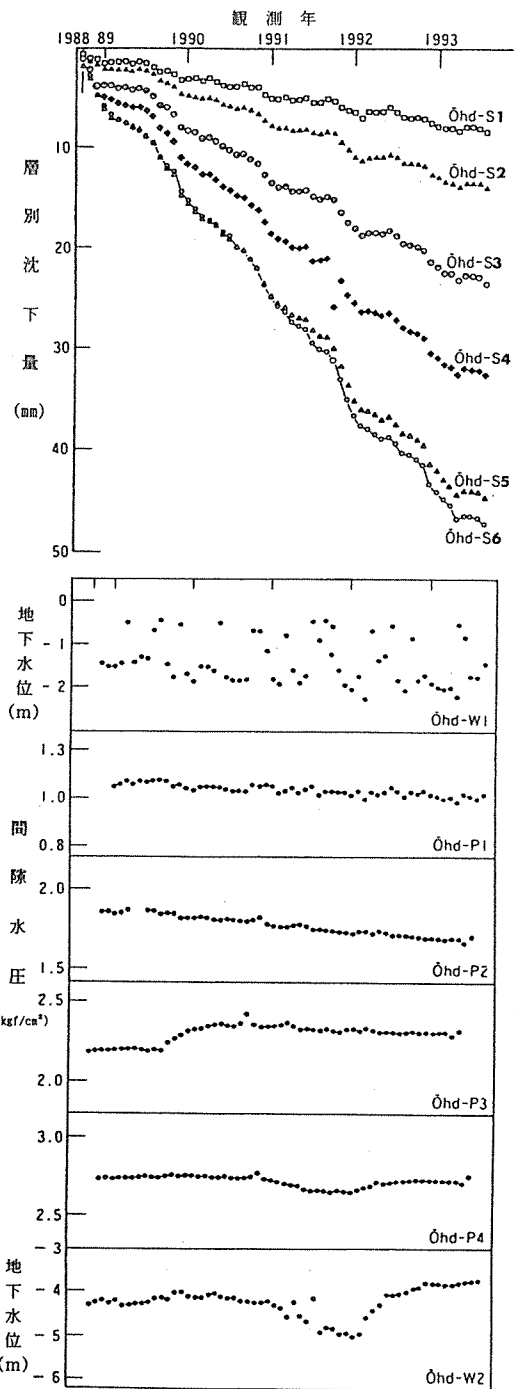


図-4 大通り公園層別沈下装置(Ohd)の地下水位、間隙水圧、層別沈下図

曲線を自動作図し、 $P_c$ 、 $mv$ 、 $cv$ が求められるようにプログラムされている。

## 4. 調査結果および考察

### 4-1 地質層序の対比

軟弱地盤の層序は東京の軟弱地盤(沖積層)<sup>15, 16, 17)</sup>と対比している。前報<sup>10)</sup>においては帷子川低地の沖積層について層序区分を行っているが、これによると軟弱地盤は上総層群を不整合に覆う横浜沖積層で下位地層は横浜七号地層(YN)、中位地層は横浜地層(YA)、上位地層は横浜陸成層(YE)にそれぞれ区分されている。YN層は淡水域と淡水域~汽水域にかけての堆積物で最下位層は基底礫層

空圧式層別圧密試験機

標準分銅式圧密試験機

空圧式高圧圧密試験機

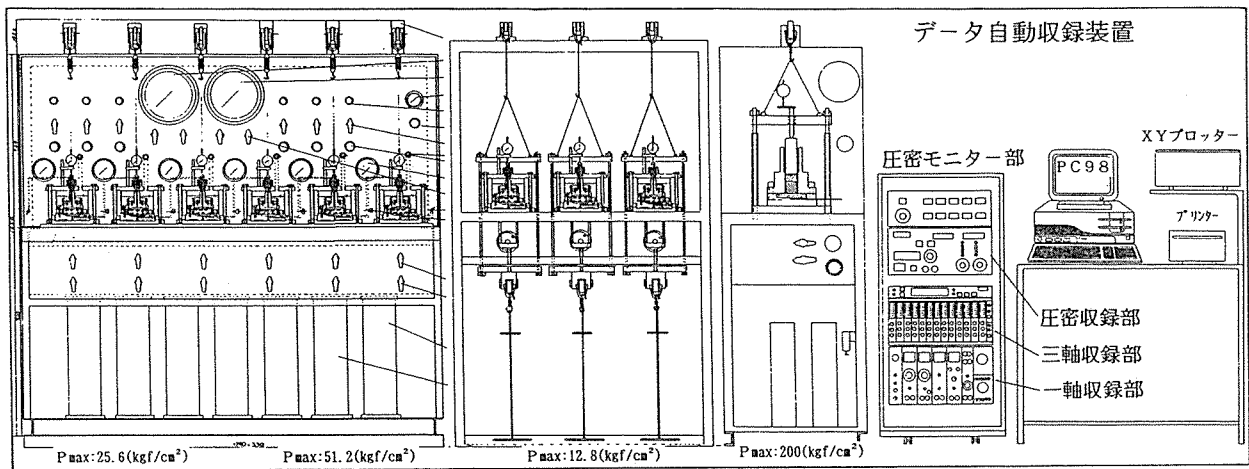


図-5 圧密試験機と圧密自動収録装置の概要図

(BG)で形成され、砂質土層、粘性土層、泥炭土層の互層で構成されている。

YA層は汽水域、海水域の堆積物で主に均一な粘土が厚く堆積されており、下位と上位は泥炭質土層および砂質シルトが比較的多く堆積され、粘土質は少なくなる傾向がある。

YE層は最も新しい陸成の堆積物で河床礫層、泥層、砂泥層、から成る。これらを構成する地層は全体的に薄く、Yk地点で層厚が約1.4mである。

以上の層序対比に基づいて、OhdとYk地点の地質柱状図を対比すると図-6に示す通り、軟弱地盤はYN層とYA層の両者が主体で構成されている。この両者は古大岡湾の湾口に当り、側方と下方侵食が最も深く刻まれた位置に当たる。

Ohdコアの特徴は地表(GL)から5.5mが埋土層でその下位層は約12.3mまで砂、有機物、貝殻片を混入するシルト主体の堆積物、さらにその下は29.6mまで貝殻片を混入する粘土主体の堆積物で、YA層に相当する。YA層の下は41.6mまで砂、シルト、腐食物を互層状に挟み、貝殻片を若干混入する堆積物でYN層に対比される。軟弱地盤の最下位層はGL41.6m～42.6mまでが、砂礫を主体とする堆積物でBG層であり、その下位層は上総層群上星川層である。

Ykコアの特徴はGLから3.1mが埋土層でその下位層は約9.5mまで砂、有機物、貝殻片を混入するシルト主体の堆積物である。その下位層は29.3mまで貝殻片を混入する粘土主体の堆積物で、YA層に相当する。YA層の下は43.8mまで砂、シルト、有機物を互層状に挟み、貝殻片を混入する堆積物でYN層に対比される。軟弱地盤の最下位層は43.8～45.0mまで砂礫を主体とする堆積物でBG層であり、その下位層は上総層群上星川層である。

#### 4-2 土質工学的性質の特徴

図-7にYK地点の土質工学的性質(土性図)、図-8にOhd地点の土性図をそれぞれ示す。両者の図は垂直方向の深度に対して、それぞれの土質試験結果を詳細に整理している。図中の右から含水比(w)、湿潤密度( $\rho$ )、圧縮指数(Cc)、圧密降伏応力( $P_c$ )、過圧密比(OCR)、軟弱地盤応力図、堆積速度、地質柱状図の関係をそれぞれ示している。w、 $\rho$ 、Cc、 $P_c$ 、OCRからは層中央部のYA層に当たる位置が特徴的に表れており、Ohdの単位当り沈下速度の大きい位置と対応している。また、その位置の堆積速度は1年間に約1.0cmの早さで堆積物が堆積されている。

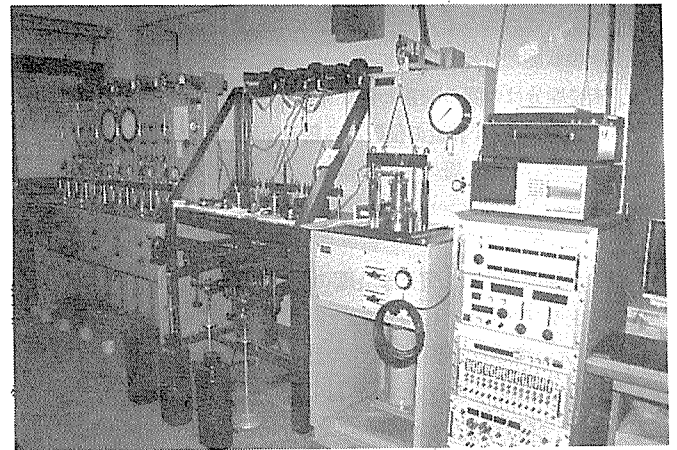


写真-2 圧密試験機と圧密自動収録装置の全景写真

図-7のそれぞれを検討するとwは深度10mまで大小の幅が大きい。地質層相からは、この位置がシルト層、泥炭層、砂質土層の互層で構成されており、泥炭層の部分ではWが大きい値を示しているものと考えられる。深度10～30mではwがS曲線を示し、深度約12～13mで約60%、深度約23～25mで最大約120%と大きくなっている。また、深度約30mからはwが急激に小さくなり、深度35～40mでは40～50%と最も小さくなっている。この傾向はCcにおいても同様であり、 $\rho$ ではその向きがCcやwと反対の向きを示している。すなわちwやCcが大きい値を示す位置では $\rho$ が小さくなっている。また、w、Ccが大きく、 $\rho$ が小さい位置ではOCRが1に近く、それ以外のOCRは1より大きく、その変動幅も大きい傾向が示されている。OCRが1に近づけば、その土は正規圧密状態の地盤であることが知られている<sup>21,22)</sup>。半沢ら<sup>23)</sup>や阿部ら<sup>24)</sup>は標準圧密試験で得られた $P_c$ とひずみ制御式圧密試験で得られた $P_c'$ では $P_c'$ の方が大きな値を示すことを報告している。また、阿部らはこの関係が $P_c'/P_c = 1 \sim 1.3$ 倍と報告している。これらの報告を考慮すれば、今回行った標準圧密試験の $P_c$ は小さい値が示されていることになるが、全体の土性図から判断してYA層の層中央付近では正規圧密状態の地盤で構成されているものと考えられる。したがって、この区間は有効増加応力(上載荷重の増加、地下水位

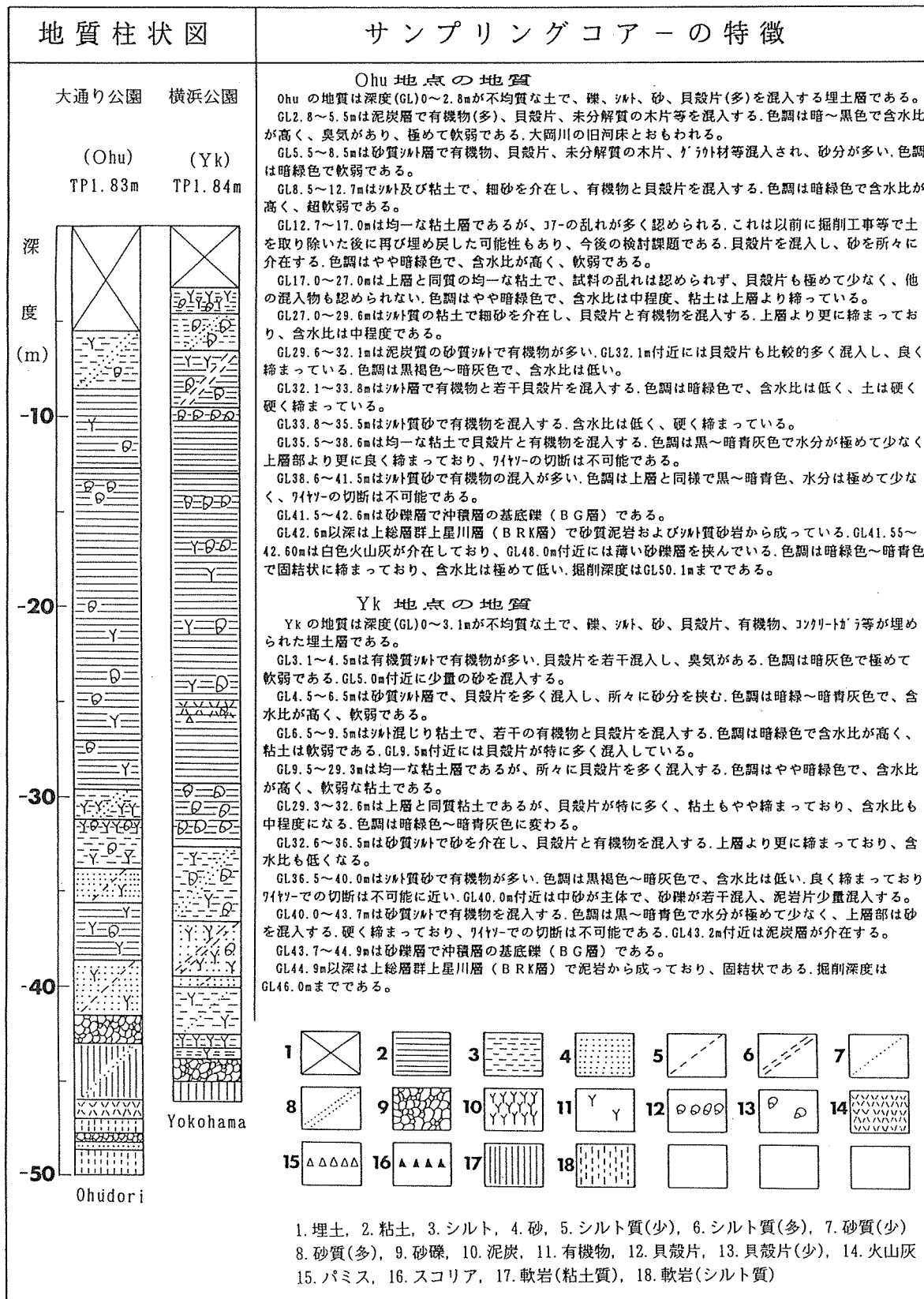


図-6 横浜公園地盤沈下観測所地点および大通り公園層別沈下装置地点の地質柱状図と層序対比図

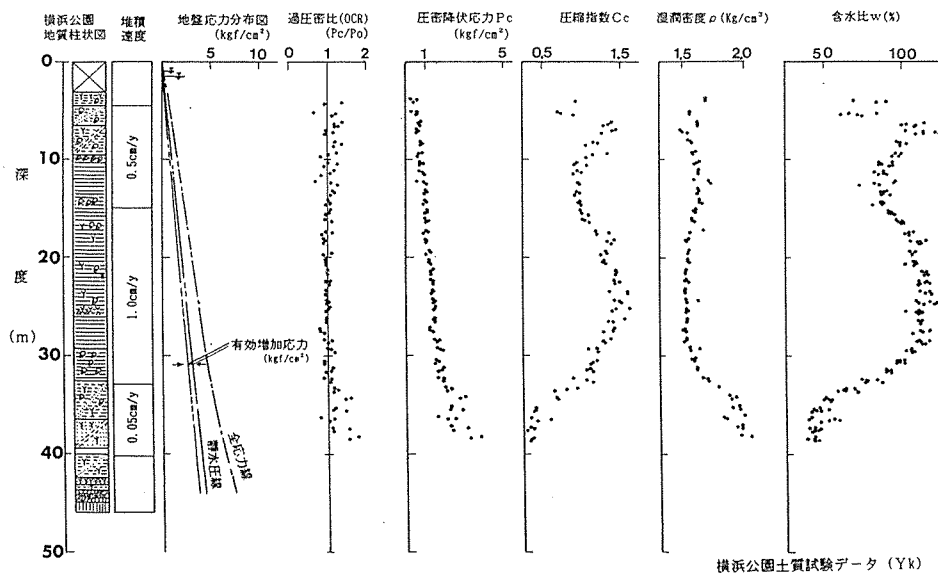


図-7 横浜公園地盤沈下観測所地点の土性図  
(大岡川低地軟弱地盤土性図Ⅰ)

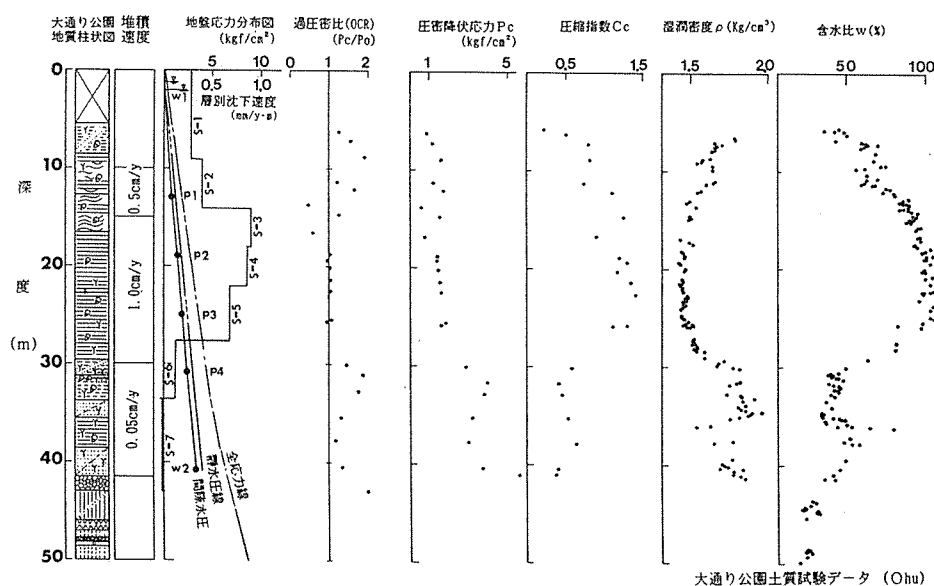


図-8 大通り公園層別沈下装置地点の土性図  
(大岡川低地軟弱地盤土性図Ⅱ)

低下等)が現在も加わっており圧密沈下が発生している。その結果として、単位当り沈下速度が他より大きく現れているものと考えられる。

図-8においては深度の関係で前者の位置と多少異なっているが、 $w$ 、 $\rho$ 、 $C_c$ 、OCR、 $P_c$ とも同様の傾向を示しており、堆積物の種類や土性が両者の間で特に異なっていない。

これらの関係から検討して、大岡川低地の軟弱地盤は4-1で層序区分したのものより更に細分化が可能と考えられる。すなわち、4-1においては下位よりYN層、YA層、YE層と区分したが、YA層の下部は汽水域から海水域に移り変わる過程のもので、変化に富む環境と考えられる。これは、図-7、8の土性図で $w$ や $C_c$ の曲線部分に相当するものとおもわれ、堆積物も砂質シルト層およびシルト層が多い。また、YA層の上部は海水域から汽水域に前者と同様に变化する過程のもので、これらが土性図に反映されているものとおもわれる。したがって、 $w$ 、 $C_c$ 、 $\rho$ 、OCR等の变化している

部分を3区分し、YA層を横浜地層上部(YAu)、横浜地層中部(YAm)、横浜地層下部(YAl)の3層に細区分するのが軟弱地盤の特性を判定する上で妥当と考える。

#### 4-3 層別圧密特性

##### 4-3-1 間隙比と圧密圧力との関係

間隙比( $e$ )と圧密圧力( $P$ )との関係は $e-\log P$ 曲線で表し、これから圧密降伏応力( $P_c$ )を求めている。 $P$ が段階的に増加すれば $e$ の値が小さくなるが、この値は過去に受けた応力の大小や土粒子の種類によってそれぞれ異なるといわれている<sup>21, 22, 23</sup>。

図-9はOhdとYk地点の試料から得られた $e-\log P$ 関係を曲線群で示したものである。Ohd、Yk両者の図からは深度約17m~29.5m区間のYA層の $e$ が高い曲線群を示し、荷重増加に対する減少量も大きく、高い圧縮性を示すと共に圧密降伏応力( $P_c$ )は小さい位置を占めている。高い圧縮性を示す $e-\log P$ 曲線群は層別沈下の単位当り沈下速度(mm/m・y)の大きい層中央部(GL約

15~28m)の位置と一致しており、沈下が現在でも継続している。

一方、上位地層のYA層と下位地層のYN層に相当するe-logP曲線群はeが低く、荷重増加に対するeの減少量も小さく、低い圧縮性が示されていると共に単位当たり沈下速度も小さい値が示されている。

#### 4-3-2 圧縮指数と含水比との関係

過圧密比(OCR)は圧密降伏応力( $P_c$ )と原位置有効上載荷重(存在位置での有効土被り圧ともいうが、ここでは原位置有効上載荷重( $P_o$ )と呼ぶ)との比( $P_c/P_o$ )で、 $P_c=P_o$ であればOCRは1.0となり、その土は正規圧密状態である。 $P_o$ の算出方法は湿潤密度( $\rho$ )と深度( $Z$ )の関係から地下水面を考慮して次式で求めている。

$$P_o = \rho_{to} \cdot Z_o \text{----- (1)}$$

$$P_i = P_o + \sum_{i=1}^n (\rho_{ti} - \rho_w) Z_i \text{----- (2)}$$

ここに

$P_o$ : 地下水面より上の原位置有効上載荷重 (kgf/cm<sup>2</sup>)

$P_i$ : 地下水面より下の原位置有効上載荷重 (kgf/cm<sup>2</sup>)

$\rho_{to}$ : 地下水面より上の湿潤密度 (g/cm<sup>3</sup>)

$Z_o$ : 地下水面より上の深度 (m)

$\rho_{ti}$ : 地下水面より下の湿潤密度 (g/cm<sup>3</sup>)

$\rho_w$ : 水の密度 (g/cm<sup>3</sup>)

$Z_i$ : 地下水面より下の深度 (m)

$C_c$ は正規圧密状態における傾きの量を表したものである。傾きの量が大きいものほど圧縮性が高く、 $w$ や液性限界(WL)と密接な関係にある。WLとの関係においてはスケンプトンの提案式

$$C_c = 0.009 (WL - 100) \text{----- (3)}$$

が一般に使用されているが、今回はWLの値が得られていないため  $w$  との相関性を検討するものとする。

図-10はOhdとYk地点の試料から得られた  $C_c$  と  $w$  との関係を示したものである。この関係図からはYN層は  $C_c$  が約0.2~0.6、 $w$  が約35~50%の範囲にあることが分かる。沈下量が他より大きいYAm層は  $C_c$  が約1.1~1.6、 $w$  が約80~120%の範囲にあり、前者よりも大きい値が示されている。YAu層は  $C_c$  が約0.7~1.2、 $w$  が約70~100%、YAl層は  $C_c$  が0.6~1.0、 $w$  が50~80%の範囲にそれぞれある。

#### 4-3-3 堆積速度が土性および圧密特性に及ぼす影響

YAm層の含水比、圧縮指数はYA層の中で最も大きく、湿潤密度はこれと反対に小さい値を示す。過圧密比は1に近く、正規圧密状態に近い軟弱地盤であると考えられる。また、YAm層は単位当たり沈下速度が大きい位置と一致している。これを堆積速度で検討すると、YAm層は年間1.0cm、YAu層は年間0.5cmの速さでそれぞれ堆積されている。また、YN層の堆積速度は年間0.04cmであり、1万年で約4mの堆積物が形成されている。これらの各々を比較すると、YAm層はYN層の約25倍、YAu層の約2倍の速さで堆積されていることになる。この相違は土性、圧密特性および層別沈下特性に影響を及ぼしていると考えられる。土が水深の深い海水に沈澱堆積する場合は、密度の大きい物(粗粒分)ほど速く海底面に到達するが、密度の小さい微細の土粒子(シルト、粘土)はその後、海水中を浮遊し、凝集して綿毛状のフロックを作り、水底に緩やかに沈降するとされている<sup>21)</sup>。当堆積物は以上のような現象で堆積されているものと考えられるため、圧縮性の高いYAm層が形成されたものとおもわれる。

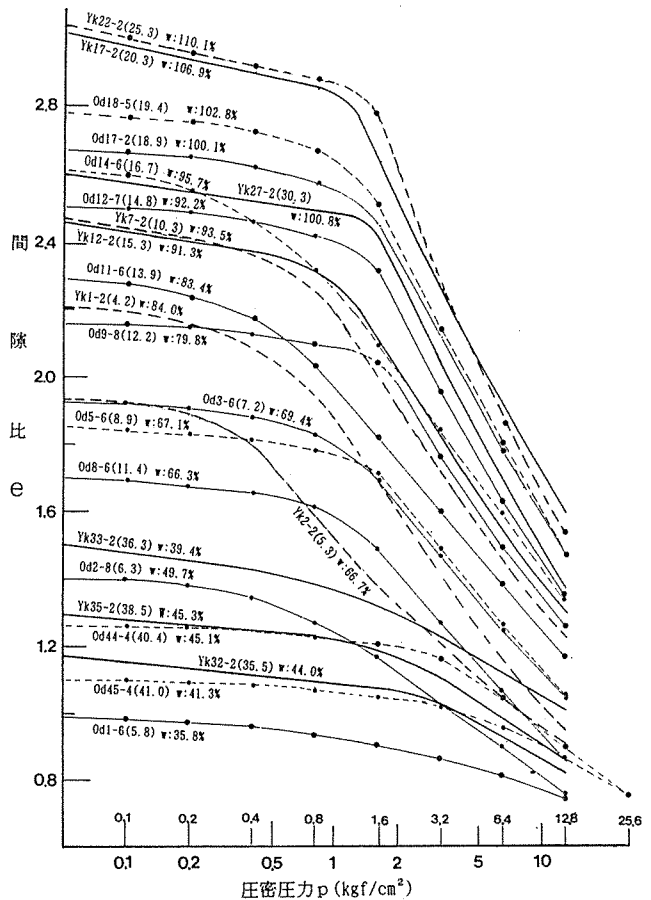


図-9 圧縮指数と含水比との関係図

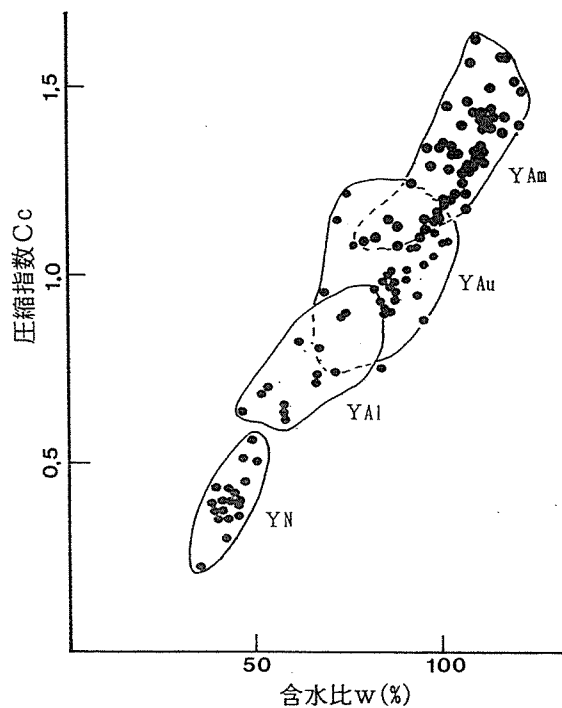


図-10 圧縮指数と含水比との関係図



## 5. ま と め

地盤沈下が継続している大岡川低地の軟弱地盤の圧密特性を調査するため、大通り公園層別沈下装置の設置位置において不攪乱連続試料を採取し、当研究所において圧密試験を実施すると共に1985年に実施した横浜公園地盤沈下観測所の圧密試験結果と合わせて軟弱地盤の土性および圧密特性から層別沈下特性を検討した。その結果、次のような知見が得られた。

1) 両地点における軟弱地盤は横浜沖積層の横浜七号地層と横浜地層に区分され、横浜公園地盤沈下観測所地点の最上位層の一部に横浜陸成層が堆積されている。また、横浜地層は土性図および圧密特性等から更に横浜地層上部(YAu)、横浜地層中部(YAm)、横浜地層下部(YAl)の3層に細区分される。

2) 横浜地層中部(YAm)の含水比、圧縮指数は弓状で最も大きく、湿潤密度は小さい値を示す。過圧密比は1.0に近く、単位当り沈下速度が大きい位置と一致している。また、堆積速度は年間1.0cmで横浜七号地層の約25倍、YAu層の約2倍の速さで堆積している。

土が水深の深い海水に沈澱堆積する場合は粗粒分は速く海底面に到達するが、微細の土粒子(シルト、粘土)は、海水中で凝集し、綿毛状のフロックを作り、水底に緩やかに沈降するものと考えられ、この相違が土性、圧密特性および層別沈下特性に影響を及ぼし、圧縮性の高いYAm層が形成されたものとおもわれる。

3) YAm層は以上のことから推察して、正規圧密状態に近い軟弱地盤であり、今後大岡川低地の地盤沈下は継続されるものと考えられる。これを防止して行くためには、当低地を指導要綱の特定地域に指定するなどして、地下掘削工事で排除される地下水や掘削変形を極力生じさせないよう事前に行政指導を図る必要がある。

## 謝 辞

圧密試験を実施するに当り、東海大学工学部土木工学科の赤石勝博士に御指導頂いた。また、試験データの整理やその解釈に当たっては基礎地盤リサーチ(株)社長の齊藤隆夫博士に御指導頂いた。ここに記して厚く御礼申し上げます。

## 参考文献

- 1) 杉本実・梅原順造:軟弱地盤の沈下に関する調査研究(1)-戸塚地域内の地盤沈下、間隙水圧に関する調査-横浜市公害研究所報, 10, (1985).
- 2) 杉本実・梅原順造:軟弱地盤の沈下に関する調査研究(2)-軟弱地盤層の沈下予測に関する一考察-横浜市公害研究所報, 11, (1986).
- 3) 杉本実・梅原順造:軟弱地盤の沈下に関する調査研究(3)-帷子川低地の軟弱地盤構造と地盤沈下特性-横浜市公害研究所報, 12, (1987).
- 4) 横浜市公害研究所:横浜市軟弱地盤層調査報告書(軟弱地盤

構造と地盤沈下特性), 公害研資料No.83, 52~56, (1988).

- 5) 杉本実・梅原順造:軟弱地盤の沈下に関する調査研究(5)-地盤沈下地帯における層別沈下測定とそれに対する解析-横浜市公害研究所, 15, (1991).
- 6) 杉本実・梅原順造:軟弱地盤の沈下に関する調査研究(6)-地盤沈下地帯の層別沈下特性解析-横浜市環境科学研究所, 17, (1993).
- 7) 杉本実・梅原順造:軟弱地盤の沈下に関する調査研究(7)-大岡川低地と帷子川低地の層別沈下特性-横浜市環境科学研究所, 18, (1994).
- 8) 杉本実・梅原順造:横浜沖積層の堆積環境と地盤沈下(2)日本地質学会第3回環境地質学シンポジウム講演集, 83~88, (1993).
- 9) 杉本実・梅原順造:横浜沖積層の層別沈下調査とそれに対する解析日本地質学会第2回環境地質学シンポジウム講演集, 135~140, (1992).
- 10) 杉本実・梅原順造:横浜の地盤沈下地帯における層別沈下と間隙水圧の測定, 第25回土質工学研究発表会講演集, 257~258, (1990).
- 11) 杉本実・梅原順造:横浜の地盤沈下地帯における層別沈下と間隙水圧の変動, 第28回土質工学研究発表会講演集, 155~156, (1993).
- 12) 杉本実・梅原順造:横浜軟弱地盤の地盤沈下について(大岡川低地と帷子川低地の層別沈下特性), 第29回土質工学研究発表会講演集, 88~92, (1994).
- 13) M.Sugimoto・M.Akaishi・K.Gokudan:Land Subsidence due to Change of Groundwater Level:THE ENVIRONMENT AND GEOTECHNICS, International Conference (PARIS), (1993).
- 14) 杉本実・梅原順造:ボーリング資料と産出貝類群集から求められた帷子川沖積層の堆積環境, 横浜市環境科学研究所, 18, (1994).
- 15) 杉本実・赤石勝:横浜の地盤沈下に関する一考察, 第21回土質工学研究発表会, 70~71(1986).
- 16) 土質工学会:土質調査法
- 17) 土質工学会:土質試験の方法と解説, 289~315, (199)
- 18) 遠藤邦彦ほか4名:関東平野の<沖積層>, URBAN. KUBOTA, No.21, 26~46(1983).
- 19) 青木滋・柴崎達雄:"海成沖積層"の層相と細分について, 第四紀研究, Vol.5, No.3, 113~120(1966).
- 20) 東京都土木技術研究所:東京都地盤地質図・東京都地質図集, (1969).
- 21) 土質工学会:土の圧密入門, 入門シリーズ18, 145~151(1993).
- 22) 木花島孝・油田敬吾:有明粘土における圧密特性値の相関性について, 土と基礎, VOL.17, No.1, 39~42, (1967).
- 23) 半沢秀郎・岸田隆夫:年代効果を受けた粘土の非排水強度特性, 土と基礎, VOL.30, No.12, 5~9(1982).
- 24) 阿部知之ほか2名:大阪湾東部地域における上部洪積粘土(Ma12)の圧密特性, 応用地質年報, No.14, 15~29, (1992).

# 横浜の地下水環境に関する調査研究（４）

## ——相模野帯水層の地下水汚染機構解明調査——

杉本 実\*

### 要 旨

横浜市西部内陸部の帯水層から有機塩素系化合物による地下水汚染が認められたため、当地域の地下水汚染対策が重要な課題と考え、帯水層の調査と地下水汚染機構解明調査を行った。その結果、つぎのような知見が得られた。

- 1) 地質柱状図から層序区分された横浜市西部内陸部の帯水層は凝灰質粘土層を挟んで上層と下層に2分され、下層は約18万年前の土層礫層、上層は約6万年前に堆積された相模野礫層と考えられる。
- 2) 帯水層は横浜西部帯水層(WA層)として位置づけられ、地下水は本層の上位面まで達して貯溜され、豊富であることが認められた。また、地下水断面では帯水層の勾配に沿って地下水は流動しているものと考えられる。
- 3) 本帯水層の地下水質は水質管理目標値以下ではあるが、有機塩素系化合物による汚染が全体的に認められる。これについては今後、汚染の変動を検討する必要がある、調査を継続して行く予定である。

### 1. はじめに

横浜市の西部内陸部地域は今から約46万年前から約1.8万年前に形成されたと考えられる第四紀地質の下部～上部更新世の相模層群が堆積されている。これらの地質は地下水を豊富に貯溜し、涵養性に富んだ堆積物から構成されている。相模原平野の豊富な地下水資源として、多くの都市で利用している。

筆者はこれらの地下水資源を地盤環境における地下水環境保全に位置づけ、開所以来一環して調査研究を進めている。

その中で、地下水環境の長期的な動向を把握するため、1988年～1989年に全市的な地下水調査を行い、21地点の井戸水から有機塩素系化合物(TCE)による汚染物質が検出された<sup>2)</sup>。

また、環境庁の地下水汚染実態調査<sup>3)</sup>や神奈川県内の地下水質測定結果<sup>4)</sup>等から神奈川県内の地下水汚染の実態が明らかとなり、これらの結果に基づいて、1992年<sup>5)</sup>、1993年<sup>6)</sup>に本市の西部内陸部地域の地下地質構造と地下水汚染調査を実施してきている。当地域の地下水帯水層は相模野礫層が厚く堆積され、豊富な地下水の揚水井戸から有機塩素系化合物による汚染物質が北～南にかけて数箇所で見認められている。

以上のことから、筆者は当地域の地下水汚染対策が重要な課題と考え、帯水層の詳細な地質構造の解明と地下水汚染機構を明らかにすることを目的に、ボーリング地質調査を実施し、帯水層の地質構造を解明するとともに、調査孔を利用した簡易な地下水測定用の井戸を設置し、水位変動と水質を定期的に測定している。

本論はこれらの調査結果をとりまとめ、帯水層構造図と地下水断面図および地下水の分析結果等を検討した結果、若干の知見が得られたので報告する。

### 2. 調査位置と相模層群の地質概要

図-1に調査地域を示す。横浜市の西部内陸部地域は東側は東

京湾、南側は相模湾、西側は相模川に囲まれた相模原台地に位置している。

当地域の地質概要を堆積年代の古い物から述べると、基盤岩の下部更新統の上総層群を中部更新統の相模層群が不整合に覆い、これを、上部更新統の河岸段丘堆積物が不整合に覆っている。このうち、本報の調査に関係する堆積物は中部更新統の相模層群であり、その地質層序は図-2に示すとおりである。

すなわち、当地域は上総層群を基盤として、長沼層・屏風カ<sup>7)</sup>浦層・大庭砂礫層・下庭層・早田層・七国峠層・土屋層・下末吉層・善行礫層・相模野礫層等が堆積し、最上位は武蔵野ローム層中部が覆っている。

### 3. 調査方法

調査は1991年から1993年までの期間に機械ボーリングによって瀬谷区目黒公園(Loc.1)、瀬谷区大門公園(Loc.2)、泉区クローバ公園(Loc.3)の3地点を地質調査した。この結果と既存の井戸資料(概略柱状図、井戸構造)6本を用いて帯水層の構造を検討するものとした。また、機械ボーリングの削孔を利用して内径50mmの井戸をLoc.1, 2, 3に3本設置し、揚水井戸の観測井1本(Loc.4)を用いて計4本から成る帯水層の地下水位測定と地下水を採水して分析した。分析項目は有機塩素系化合物が1,1,1-トリクロロエタン(MC)、テトラクロロエチレン(TCE)、トリクロロエチレン(PCE)である。その他の水質測定は水温、pH、電気伝導度であるが、ここでは帯水層の構造と地下水汚染を中心に検討するため、水温、pH、電気伝導度の測定結果は別の機会に考察するものとした。

### 4. 地下水汚染調査における井戸水汚染の問題点

現状の井戸水汚染調査は既存の井戸から地下水を採水して分析し

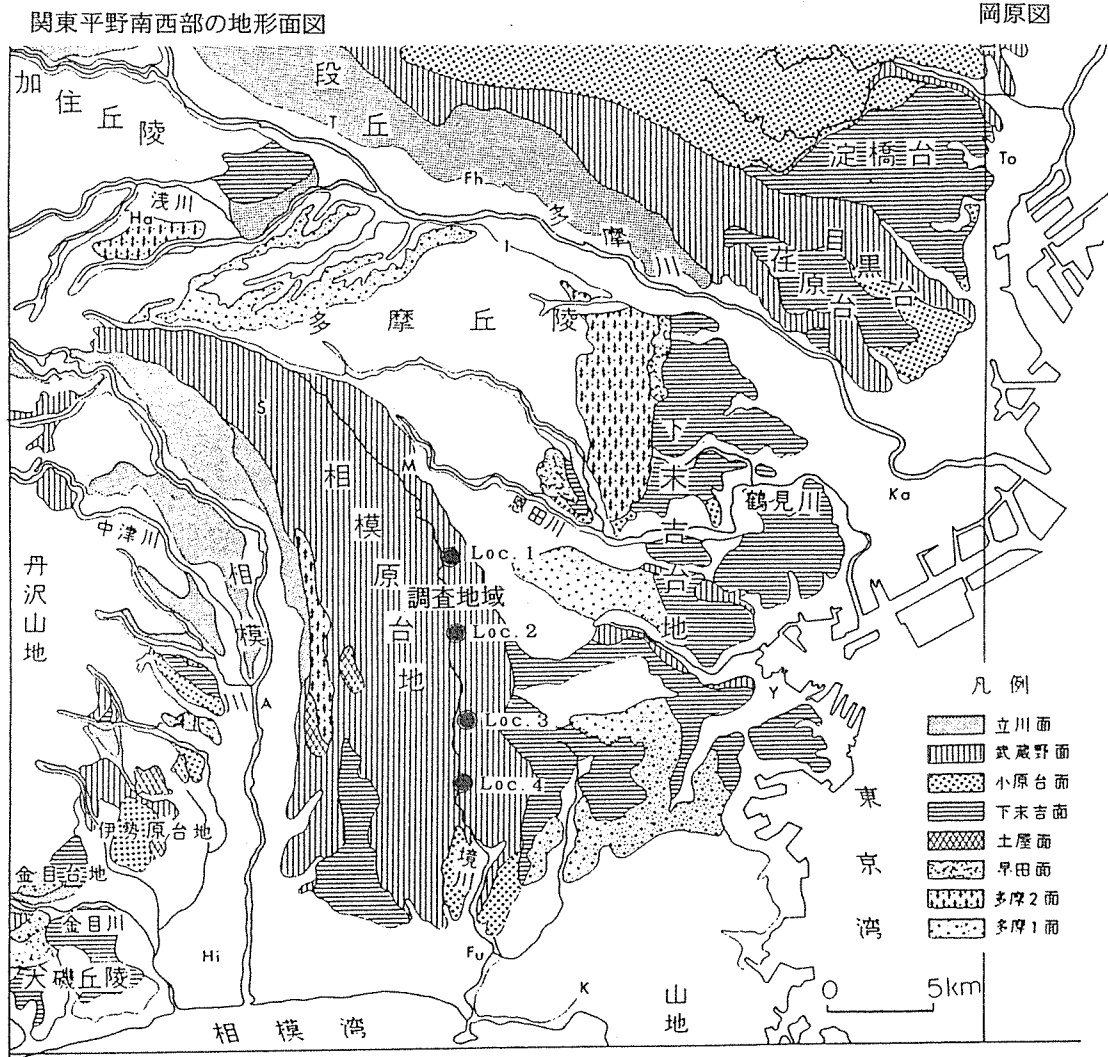


図-1 関東平野南西部の地形面と境川流域の調査地域図

ているのが一般的である。しかしながら、既存井戸は構造が不明瞭であったり、地質層序も明かでないものが多い。浅井戸(地表面から約2~約3m)は宙水や連続性のない地下水などが考えられ、深井戸(約100~約200m)では全ての砂層部を対象にして地下水を取り込む構造となっているものが多いように見受けられる。これは主に上総層群の場合であるが、当層群は砂と泥の互層状から成っているものが多く、地下水は豊富でない。水質は暗青~暗緑色でフミン酸等を多く含有する化石水であると考えられる。これらの井戸に汚染物質が浸透する場合、井戸水の汚染は認められたとしても、帯水層の構造が不明であり、流動的な地下水の汚染機構解明はできない。特に揮発性化学物質による地下水汚染は、地層その物の汚染と地層内部で揮発した地下空気汚染との相乗作用で構成されていることは、すでに多くの報告<sup>7)・8)</sup>で述べられている。このように滞留性の強い井戸水の汚染と流動的な地下水の汚染を同一にして地下水汚染と呼ぶことは問題解決の混乱を招く結果となる。眞の地下水汚染を解明する上では、帯水層構造が明らかな井戸の地下水や汚染井戸が確認されたら、速やかに井戸周辺の地質を調査し、層序が明らかに成った物に限り地下水汚染と定義し、それ以外の不明な井戸水の汚染は井戸水汚染として論じる必要があると考える。

## 5. 調査結果および考察

### 5-1 地質構造

図-3は横浜西部帯水層(WA層)の地質柱状図とその対比図である。

Loc. 1は調査地域の北側に位置し、深度(GL)0.5mまで盛土、GL0.5~1.5mまで有機質シルト、GL1.5~9.4mまで武蔵野ローム層、GL9.4~14.9mがシルト質砂層、GL14.9~22.5mが礫層である。

Loc. 2はGL2.4mまで盛土、GL2.4~4.1mが有機質シルト層、GL4.1~6.5mが粘土混じり礫層、GL6.5~22.1mが固結状の粘土層、GL22.1~25.2mが礫混じり粗砂、GL25.2~32.1mが礫層、GL32.1~38.2mが砂礫層、GL38.2~40.1mが中砂層、GL40.1~44.6mまでが砂質泥岩、GL44.6~52.0mが未固結砂岩、GL52.0~53.7mが礫混じり粘土、GL53.7~56.9mが中砂である。

Loc. 3はGL1.6mまで盛土、GL1.6~2.7mがシルト、GL2.7~14.6mが礫層、GL14.6~15.9mが細砂、GL15.9~17.4mが礫混じり中砂、GL17.4~18.9mが粘土、GL18.9~19.7mがシルト質細砂、GL19.7~25.5mが細砂、GL25.5~39.8mが礫層、GL39.8~41.5mが礫混じり中砂、GL41.5~50.6mが粘土層である。

Loc. 4はGL3.0mまで盛土、GL3.0~15.0mが礫層、GL15.0~17.0mが粘土層、GL17.0~24.0mが中砂、GL24.0~38.0mが礫混

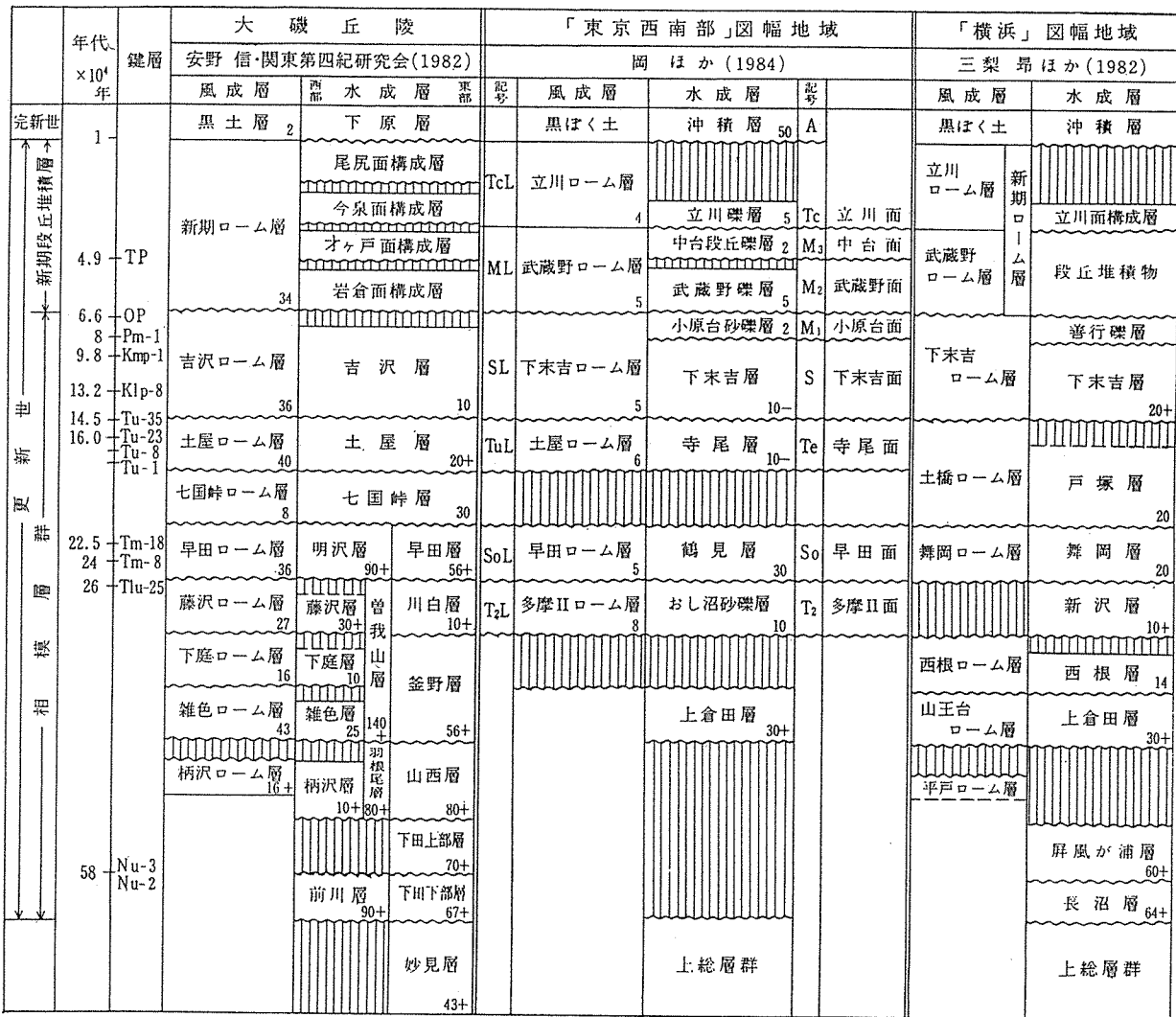


図-2 関東平野南西部の第四系対比図

じり中砂, GL38.0~42.5mが礫層, GL42.5~50.0mが粘土層である。

Loc. 2~Loc. 4の地質は層の中央に約2~3mの粘土層が介在されており, 土屋粘土層と考えられる。すなわち, 当地層の上位層は相模野礫層, 下位層は土屋礫層の層相区分が可能と考えられる。

5-2 観測井の地下水位

図-4に各々の地下水位変動図を示す。Loc. 1とLoc. 2の地下水位は変動が少なく, 一定している。これに対し, Loc. 3とLoc. 4は水位変動が約2~3mあり, 静水位ではGLから約6m前後の位置にある。揚水水位ではGLから約8m前後の位置にあり, 地下水の揚水が停止すると水位は急速に回復している。これは地下水が豊富であることの証拠であり, 地下水の収支バランスが充分に満たされているものと考えられる。しかしながら, その反面では地下水の涵養が活発となり, 汚染物質も同時に運ばれてくる可能性も考えられる。

5-3 帯水層の地下水汚染状況

図-5はLoc. 1, Loc. 2, Loc. 3, Loc. 4および既存資料を使って作成した南北を結ぶ帯水層断面図である。前報で作成した横浜西部帯水層(WA層)より西側の断面図であるが, 本報においてもWA層の名称で呼ぶことにする。本帯水層は北側において, 上面が標高(TP)約55m, 下面がTP約25mであり, 層厚は約30mで

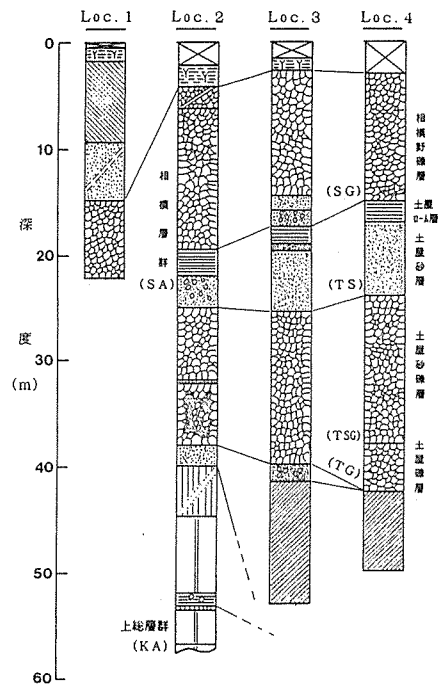


図-3 境川流域の地質柱状図と対比図

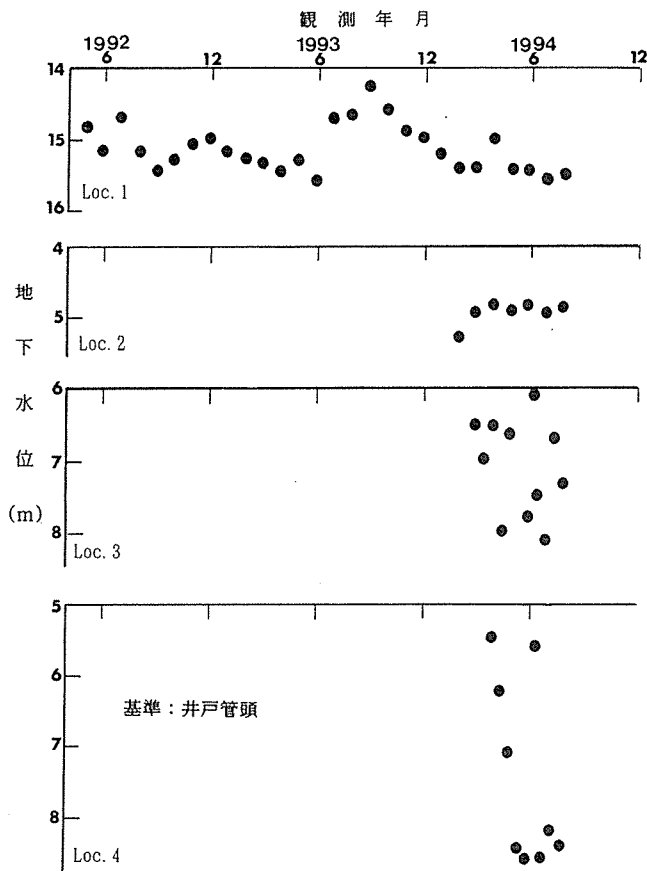


図-4 横浜西部帯水層の地下水位変動図

ある。Loc. 3付近の上面はTP約33mで、下面はTP約-5mで全体の層厚は約40mである。南側の上面はTP約37m、下面はTP約-20mと深くなり、全層厚は約57mと最も厚く堆積されている。Loc. 2, Loc. 3, Loc. 4では帯水層のほぼ中間に上下を分断する凝灰質の粘土が約3~5mの層厚で堆積されており、WA層が全体的に二重構造を形成していることが分かる。しかしながら、Loc. 1の地質調査が深度22.5mで終わっているため、ここまで帯水層が2分されているかは不明である。粘土層は一般に難透水性のため、難透水層として区分されている。地下水の密度より重い汚染物質はこの難透水層によって妨げられるとされているが、後述する1,1,1-トリクロロエタン(MC)等は上下の帯水層の地下水から検出されているため、難透水層の防止効果が期待できるか不明である。今後、当帯水層の地下水汚染浄化対策においては難透水層の存在が重要な要素となることは明白であり、その連続性は詳細に調査して行く必要がある。

一方、WA層断面図には地下水位の平均的な地下水断面と有機塩素系化合物{1,1,1-トリクロロエタン(MC)、テトラクロロエチレン(TCE)、トリクロロエチレン(PCE)}の検出濃度を示した。Loc. 1ではMCが1.5ppb、TCEが1.3ppbが検出されている。Loc. 2ではMCが1.9ppb、Loc. 3ではMCが7.4ppb、TCEが1.4ppb検出され、Loc. 4ではMCが3.8ppbそれぞれ検出されている。検出値は何れも地下水質評価基準(MC:0.3mg/l、TCE:0.01mg/l、PCE:0.03mg/l)<sup>9)</sup>以下であるが、1988年~1989年の地下水調査においては当基準を上回る値が検出されており、更に上流域においても高濃度の汚染物質が検出されている<sup>3)</sup>。これらの状況から検討してWA層の汚染物質は帯水層全体に拡散されている可能性が考

えられる。

また、地下水断面では上流の北側でTP約58m、Loc. 3, Loc. 4付近でTP約29mと低くなり、帯水層の勾配に沿って高度が下がっている。このことから、地下水の流れは北から南に移動していることが明白であり、汚染物質の発生源が北側の上流域であれば地下水と同様の移動が考えられる。

また、上流域は地下水の涵養地域であると共に汚染井戸が多数点在していることは前報<sup>9)</sup>で触れたが、安全な地下水を確保するためにも、涵養地域の保全対策がより重要な課題であると考えられる。

## 6. まとめ

横浜地域における地下の環境保全を図るため、地盤沈下や地下水等の地盤環境調査を進めている。

ここでは横浜市西部内陸部の帯水層から有機塩素系化合物による地下水汚染が認められたため、当地域の地下水汚染対策が重要な課題と考え、帯水層の詳細な地質調査と地下水汚染機構解明調査を行った。その結果、つぎのような知見が得られた。

1) 地質柱状図から層序区分された帯水層は凝灰質粘土層を挟んで上層と下層に2分され、下層は約18万年前の土屋礫層、上層は約6万年前に堆積された相模野礫層と考えられる。

2) 帯水層は横浜西部帯水層(WA層)として位置づけられ、地下水は本層の上位面まで達して貯溜され、豊富であることが認められた。また、地下水断面では帯水層の勾配に沿って地下水は流動しているものと考えられる。

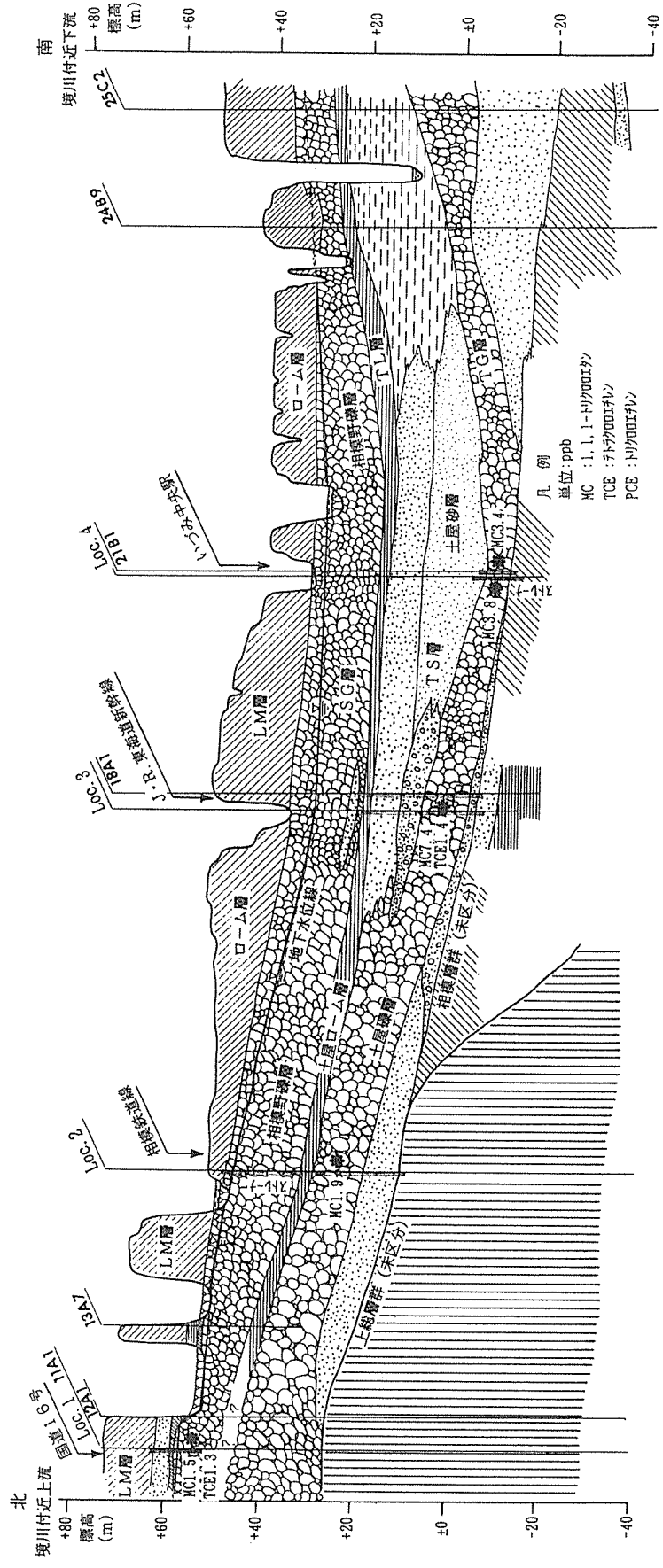
3) 本帯水層の地下水質は水質管理目標値以下ではあるが、有機塩素系化合物による汚染が全体的に認められる。これについては今後、汚染の変動を検討する必要がある、調査を継続して行く予定である。

## 今後の課題

筆者はこれまで、沖積層の地盤沈下特性や洪積層(相模群)の帯水層および上総層群の帯水層に関する調査を進め、地下水の水質を調査してきた。その結果、一部の沖積層では地盤沈下が継続されること、帯水層の一部で塩水化や化学物質による地下水汚染が認められることなどを明かにしてきた。有機塩素系化合物などが地上から浸透して地質汚染(地下空気汚染、地層汚染、地下水汚染)を引き起こし、帯水層の地下水を汚染していることは既に多くの報告で明かにされている。帯水層は広範囲に広がるため、どこからその汚染物質が浸透したのか、その発生源を捜し当てることは極めて困難であり、どこまで拡散して行くのか予測できない。これらの問題を解決して行くためには、正確な帯水層構造を調査し、汚染源の追跡調査を行う必要がある。

大規模な地下水資源は安全に保全管理する必要がある。そのためには地下水の貯溜状況や流動が全体から把握できるような地盤環境図を作成し、これに基づいて地下水環境の管理目標を設定し、その目標値以上の地域については浄化対策を速やかに行う必要があると考える。特に地下水汚染等では、その処理が早ければ早いほど拡散を防ぎ、対策費も安く上がると言われている。

本報では西部内陸部の本市唯一の主要な帯水層を中心に地下水環境を検討してきた。この帯水層の環境は決して楽観できる状態ではないことが読み取られる。他都市の地下水汚染問題の例でも見られるとおり、都市のかかえる共通問題であるが、特に地下水を水道源としている熊本市や秦野市、座間市、埼玉県等は深刻な問題



図一5 横浜西部帯水層の地質断面図

である。最近の市民ニーズは地下水を利用するか、利用しないに関わらず、地下水は貴重な水資源として保全すべき方向が見られ、地下水環境に関するシンポジウムや討論においても同様の論議が繰り返されている。

今後はこれらの論議も踏まえて調査を進め、地盤環境対策における地下水環境保全の効率的な運用を図れる基礎資料を作成して行きたい。

## 謝 辞

本論をまとめるにあたり、地質層序の解明では岡重文博士にご指導頂いた。ここに記して厚くお礼申し上げます。

## 文 献

- 1) 岡重文：関東地方南西部における中・上部更新統の地質，地質調査月報，Vol.42 (11) P.553-653(1991).
- 2) 飯塚貞男・杉本実・梅原順造：横浜の地下水に関する調査研究(2)―地盤沈下地帯における地下水汚染の一考察―，横浜市公害研究所報，No15，(1991).

- 3) 渡部春樹：地下水汚染の実態と対策の動向，公害と対策，Vol.23，No.10，927-932(1987).
- 4) 神奈川県：平成2年度神奈川県地下水質測定結果，平成3年9月(1991).
- 5) 杉本実・他4名：境川・帷子川流域に分布する礫層の追跡調査と地下水環境の一考察，日本地質学会環境地質研究委員会第2回環境地質学シンポジウム，(1992).
- 6) 杉本実・梅原順造：横浜の地下水に関する調査研究(3)―境川・帷子川流域に分布する帯水層と地下水環境―，横浜市環境科学研究所報，No17，(1993).
- 7) 楡井久・佐藤賢司：最近の地下水汚染問題，土壌の物性，No.49，(1984).
- 8) 鈴木喜計・他3名：久留里市場地区地質汚染現場における機構解明と浄化対策―有機塩素化合物による千葉県君津市の第2現場の例―，日本地質学会環境地質研究委員会第3回環境地質学シンポジウム，(1993).
- 9) 環境保全局：横浜市公共用水域及び地下水の水質測定結果報告書，平成4年

# 横浜市における酸性雨調査

— 1993年の調査結果 —

矢本てるみ\*, 加藤善徳\*

## 1. はじめに

降水の化学的性状を長期的に把握するため、本市では1984年5月より一降水全量及び初期1mm降水を年間を通じ採取し、pH、導電率(EC)及び各イオン成分濃度の測定を実施している。ここでは、1993年の調査結果について報告する。

## 2. 調査内容

採取期間：1993年1月～1993年12月

採取地点：横浜市環境科学研究所屋上(横浜市磯子区滝頭)

採取方法：自動雨水採取装置(小笠原計器製作所 US-400 型)により一降水全量及び初期1mm降水を各降水毎に採取した。

分析項目及び分析方法：表-1に示す。

## 3. 結果

### 3-1 気象状況及び採取状況

1993年1月～12月の1年間に一降水全量及び初期1mm降水を各69試料ずつ採取した。なお、降水量1mm未満の降水は調査対象から除外した。

1993年の年間降水量(採取した降水の貯水量より算出)は1952mmとなり、この値は、採取地点から約4km離れた横浜地方気象台における年間降水量<sup>1)</sup>(1870mm)の104%で、両者は概ね一致していた。

また、月間降水量で見ると、3月～5月が平年に比べ少なく、1月、7月、8月はかなり多かった。その他の月は平年並みかやや多くなっており、年間降水量としては平年<sup>2)</sup>(1569mm)に比べやや多めとなった。

### 3-2 pH

図-1、2に一降水全量及び初期1mm降水のpHの最高、最低、平均値を示す。

#### (1) 一降水全量

1993年の一降水全量の最高pHは6.29(2月7日、降水量1.6mm)、最低pHは3.78(3月4日、降水量2.2mm)、降水量で重み付けした平均pHは4.75であり、この値は前年までの9ヶ年の平均値4.64(表-2)と比べやや高い値であった。

また、酸性雨とされるpH5.65以下の降水は67試料(97.1%)で、採取した降水のほとんどが酸性雨であった。このうち、pH4.0未満の低pH降水は、3月、4月、6月に合計4回観測された。一方、pH5.65を超えるものは2試料(2.9%)であり、2月と8月に観測された。

次に、経年変化についてみると(欠測期間のある年は除く)、加重

表-1 分析項目及び分析方法

分析項目	分析方法
pH	ガラス電極法
導電率(EC)	電気伝導度法
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> , K <sup>+</sup> , Na <sup>+</sup>	イオンクロマトグラフ法
Ca <sup>2+</sup> , Mg <sup>2+</sup>	イオンクロマトグラフ法
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> , NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> , Cl <sup>-</sup>	イオンクロマトグラフ法

平均値は4.57～4.75の範囲内にあり、ほぼ横ばい状況であるが、最低値については1987年以降、やや低下する傾向となっている。

#### (2) 初期1mm降水

1993年の初期1mm降水の最高pHは7.10(2月7日)、最低pHは3.73(6月5日)、加重平均pHは4.31であり、この値は前年までの9ヶ年の平均値4.27(表-2)に比べやや高い値であった。

また、酸性雨とされるpH5.65以下の降水は58試料(84.1%)あり、このうちpH4.0未満の低pH降水は13回観測され、1月、3月、4月、6月、9月～11月に出現した。一方、pH5.65を超えるものは11試料(15.9%)であり、4月、6月、9月、11月を除くすべての月に観測された。

次に、経年変化についてみると、加重平均値及び最低値が1987年～1992年にかけてやや低下の傾向であったが、1993年はやや上昇している。

### 3-3 イオン成分濃度

表-2に一降水全量及び初期1mm降水の各イオン成分の年平均濃度を示す。

#### (1) 一降水全量

1993年のSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>の年平均値(μg/ml)は、それぞれ1.56、1.05であり、前年までの9ヶ年の平均(1.83、1.02)と比較し、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>は同程度、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>はやや低い値であったが、経年的に見て大きな変化は見られなかった。

また、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>及びCa<sup>2+</sup>は9ヶ年の平均に比べ同程度ないしはやや高く、海塩が主と考えられるNa<sup>+</sup>、Mg<sup>2+</sup>、Cl<sup>-</sup>はやや低い値であった。

#### (2) 初期1mm降水

1993年のSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>の年平均値(μg/ml)は、それぞれ8.76、8.00であり、前年までの9ヶ年の平均(6.17、4.44)と比較し、各々1.4倍、1.8倍高い値であった。



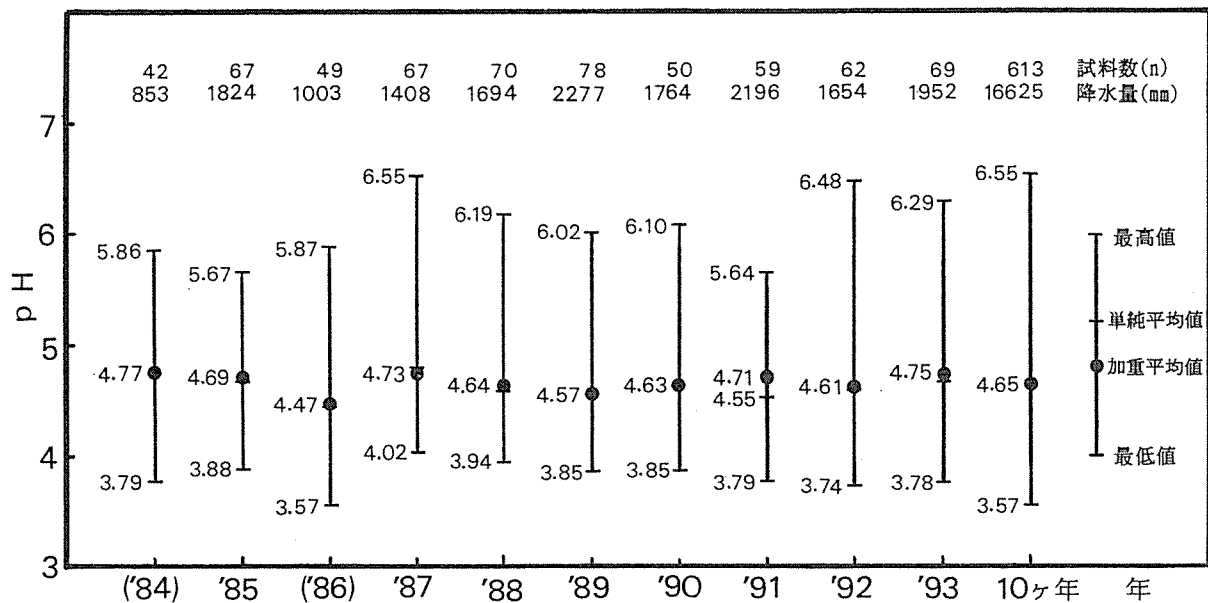


図-1 pHの経年変化(一降水全量)

〔単純平均値は各降水のpH値の算術平均値，加重平均値は各降水のpHを水素イオン濃度に換算し，降水量で重み付けした平均値をpHに再変換した値である。1984年1月～4月及び1986年3月～5月は欠測である。〕

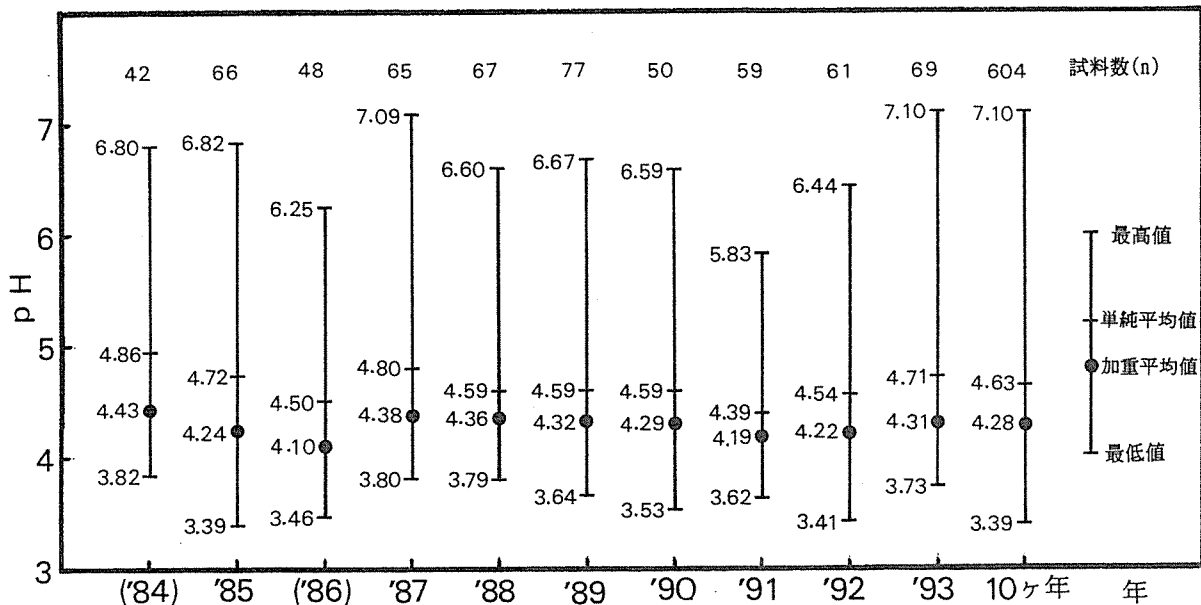


図-2 pHの経年変化(初期1mm降水)

〔単純平均値は各降水のpH値の算術平均値，加重平均値は各降水のpHを水素イオン濃度に換算し，降水量で重み付けした平均値をpHに再変換した値である。1984年1月～4月及び1986年3月～5月は欠測である。〕

表-2 降水成分の年平均濃度

	降水量 mm	試料数 n	pH	EC μS/cm	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	Na <sup>+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Cl <sup>-</sup>	
					μg/ml								
一 降 水 全 量	(1984年)	853	42	4.77	17.5	0.51	0.05	0.42	0.14	0.07	2.12	0.78	1.11
	1985年	1824	67	4.69	17.4	0.38	0.04	0.57	0.18	0.09	1.53	0.76	1.32
	(1986年)	1003	49	4.47	24.5	0.75	0.12	0.47	0.18	0.06	2.21	1.70	1.50
	1987年	1408	67	4.73	19.2	0.51	0.12	0.42	0.14	0.06	1.81	1.07	1.16
	1988年	1694	70	4.64	21.0	0.51	0.04	0.40	0.14	0.06	2.29	1.12	1.24
	1989年	2277	78	4.57	25.3	0.56	0.05	0.53	0.22	0.10	2.01	1.23	1.34
	1990年	1764	50	4.63	25.7	0.38	0.06	1.24	0.33	0.18	1.80	0.99	2.23
	1991年	2196	59	4.71	16.7	0.49	0.03	0.40	0.20	0.08	1.40	0.73	1.00
	1992年	1654	62	4.61	20.6	0.59	0.04	0.65	0.24	0.09	1.73	0.97	1.58
	1993年	1952	69	4.75	17.4	0.57	0.04	0.40	0.27	0.07	1.56	1.05	1.26
	9ヶ年	14673	544	4.64	21.0	0.51	0.06	0.58	0.20	0.09	1.83	1.02	1.39
	10ヶ年	16625	613	4.65	20.6	0.52	0.05	0.56	0.21	0.09	1.80	1.02	1.37
初 期 1 mm 降 水	(1984年)	-	42	4.43	53.6	1.63	0.14	1.41	1.11	0.28	6.73	3.52	4.38
	1985年	-	66	4.24	66.8	1.62	0.20	2.56	1.86	0.49	6.26	4.28	5.87
	(1986年)	-	48	4.10	71.9	2.09	0.20	1.68	1.20	0.27	7.03	6.41	5.49
	1987年	-	65	4.38	56.9	1.15	0.23	1.90	1.31	0.36	5.57	4.04	4.82
	1988年	-	67	4.36	57.0	1.37	0.16	2.15	1.08	0.34	6.10	4.15	5.20
	1989年	-	77	4.32	63.0	1.31	0.20	2.13	1.29	0.39	5.44	4.11	5.44
	1990年	-	50	4.29	73.4	1.26	0.28	4.22	1.97	0.71	6.39	4.42	6.20
	1991年	-	59	4.19	70.7	1.73	0.20	2.48	1.47	0.48	6.75	4.62	5.20
	1992年	-	61	4.22	59.0	1.55	0.19	1.96	1.43	0.36	5.89	4.63	4.35
	1993年	-	69	4.31	77.8	2.56	0.31	2.95	2.51	0.55	8.76	8.00	7.16
	9ヶ年	-	535	4.27	63.4	1.51	0.20	2.28	1.41	0.41	6.17	4.44	5.23
	10ヶ年	-	604	4.28	65.0	1.63	0.21	2.36	1.54	0.43	6.47	4.84	5.45

注1)一降水全量の平均値は降水量で重み付けした加重平均値である。

注2) pHの平均は水素イオン濃度に換算したものを平均して求めた。

注3) 1984年1月~4月及び1986年3月~5月は欠測である。

注4) 9ヶ年の欄には1984年~1992年の平均値, 10ヶ年の欄には1984年~1993年の平均値を示した。

一方, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>, Ca<sup>2+</sup>についても9ヶ年の平均に比べ高く, 各々1.7倍, 1.8倍となった。また, 海塩が主と考えられる Na<sup>+</sup>, Mg<sup>2+</sup>, Cl<sup>-</sup>も9ヶ年の平均に比べ1.3~1.4倍高い値であった。

このように, 1993年の初期1mm降水の濃度はいずれの成分とも高い値を示したが, 一般に, 初期1mm降水は局地的な大気汚染状態を反映しやすいといわれており<sup>3), 4)</sup>, 採取地点に隣接している病院施設の大規模な解体作業が行われたことにより, このような高濃度になったものと思われる。

次に, 経年変化をみると, SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>, Ca<sup>2+</sup> は明確な増減傾向がみられないが, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>については1987年以降, やや上昇する傾向となっている。

#### 4. まとめ

1993年の酸性雨調査の結果は次のとおりであった。

(1) 一降水全量(69試料)の平均 pH は4.75, 初期1mm降水(69試料)の平均 pH は4.31であった。

(2) 年平均 pH は, 一降水全量, 初期1mm降水とも, 前年までの平均値と比較しやや高い値であった。

(3) SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>の平均濃度(μg/ml)は一降水全量が各々1.56, 1.05, 初期1mm降水が8.76, 8.00であった。

(4) 初期1mm降水の年平均濃度は, いずれの成分とも, 前年までの平均値に比べ高い値であった。

(5) 初期1mm降水の NO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度は, 1987年以降, やや上昇する傾向となっていた。

#### 文 献

- 1) 横浜地方気象台: 神奈川県気象年報, 平成5年(1993).
- 2) 横浜地方気象台: 神奈川県気象月報, 平成5年1月~12月(1993).
- 3) 横浜市環境科学研究所: 酸性雨に関する調査研究報告書, 24 (1993).
- 4) 加藤善徳, 矢本てるみ: 最近の初期降水にみられる pH の経年的な低下傾向, 横浜市環境科学研究所報第19号, 5-10(1995).

# 拡散型長期暴露サンプラーを用いた横浜市内における 大気中のフロン及び有機塩素系物質濃度（Ⅲ）

前田裕行\*, 平野耕一郎\*, 松田啓吾\*\*

## 要 旨

本市では、環境大気中のフロン類や有機塩素系物質について、拡散型サンプラーを用い、平成2年度から市内4地点で、また、平成4年度からは清浄地域での比較測定も加え継続調査を行っている。

そこで、平成2年8月から平成6年7月までの4年間の結果を取りまとめ次のことが分かった。

- (1) 都市域の調査地点では、各調査物質の濃度は、各地点について類似した経月変化を示していた。しかし濃度の季節変化については、フロン類では見られなかったが、有機塩素系物質では、秋冬期に濃度が上昇する季節変動が、年度ごとに繰り返し現れていた。
- (2) 平成5年度は、都市域において依然として汚染濃度が高い物質は、トリクロロエチレンであり、清浄地域と比較して約7.2～3.3倍となっており、ついで1, 1, 1-トリクロロエタンの4.3～2.0倍、テトラクロロエチレンの4.4～3.1倍であった。

一方、都市大気において清浄地域濃度に近づいていると思われる物質は、フロン-11であり、清浄地域の約1.3倍であった。このことは、1995年末の生産全廃に向けての排出規制の効果が現れているものと考えられた。

## 1. はじめに

地球の成層圏に存在するオゾン層は、生物に対して有害な太陽光中に含まれる紫外線を吸収し、地球上の生物や生態を守っている。

近年になり、このオゾン層は、人為的に造りだされたクロロフルオロカーボン類(いわゆるフロン類)等の化学物質により破壊されていることが判明してきた。このことにより、人に対し皮膚ガン等の健康被害を引き起こすだけでなく植物等の成育にも影響を与えることが懸念されている。

一方、直接人に対して発ガン性の問題がある有機塩素系物質であるトリクロロエチレンおよびテトラクロロエチレンについては、平成5年3月に国の中央公害対策審議会により、人の健康を保護する上で維持することが望ましい指針として、大気環境指針値の暫定値が提案されている。

これらフロン類や有機塩素系物質など低沸点クロロフルオロカーボン類は、金属等の脱脂洗浄剤として用いられる他、噴射剤、発泡剤および冷媒にも広く用いられてきた。

これらは、大気中に放出された場合、環境大気中に一定の期間残存し、オゾン層を破壊するばかりでなく、温室効果が持続し地球規模の環境問題を引き起こすと考えられている。このため、オゾン層の保護のための国際条約等が採択され、国では「特定物質の規制等によるオゾン層の保護に関する法律」(いわゆるオゾン層保護法)により、現在規制措置がとられている。<sup>1)</sup>

そこで、これらの物質の環境中の挙動と存在量分布を把握し、排出削減効果をモニターする必要がある。

本市では、環境大気中のこれらの物質濃度の推移を把握するため、平成2年度から市内の4地点で長期暴露型サンプラーを用いて環境濃度調査を継続して実施してきた。平成3年度までの結果は、前回

に報告した。<sup>2)</sup>

今回は、市内の濃度推移について、まとめる意味で調査初年度の平成2年8月から平成6年7月までの過去4年間の濃度測定結果を中心に報告する。

## 2. 調査対象物質、調査地点及び期間

### 2-1 調査対象物質

フロン：フロン11、フロン113

有機塩素系物質：1, 1, 1-トリクロロエタン、四塩化炭素、トリクロロエチレン、テトラクロロエチレン

### 2-2 調査地点

調査地点は、横浜市内の大気汚染常時監視測定局を設置している次の4地点である。

- ①工業地域として、鶴見区調査地点(常時監視局の移設により平成4年2月まで鶴見保健所、それ以後は下野谷小学校、さらに平成6年7月からは潮田交流プラザに移動している。移動距離はそれぞれ300m以内である。以下鶴見と称す。)
- ②北部住居地域として緑区都田中学校(都田)
- ③南部住居地域として港南区野庭中学校(野庭)
- ④風致地区として中区本牧(本牧)の都市域4地点である。

また、清浄地域での比較調査として、山梨県道志村を、平成4年4月から調査地点として加え、総計5地点とした。

### 2-3 調査期間

前報<sup>3)</sup>で報告したように初期のサンプラーでは、フロン-11の捕集が不十分であったが、捕集エレメントの改良(ヤシガラ活性炭と活性炭フェルトの併用)の結果、平成2年8月から気温差のある年間を通じた捕集が可能となった。<sup>4)</sup>

そこで解析に使用するデータは、平成2年8月から平成6年7月

Measurement of atmospheric chlorinated hydrocarbons in Yokohama by passive sampling device for long-term(Ⅲ)

\*Hiroyuki Maeda, \*Koichiro Hirano 横浜市環境科学研究所大気部門

\*\*Keigo Matsuda 横浜市環境保全局公害対策部大気課

までの4年間にわたる期間の月平均濃度値とし、これを調査期間として解析した。

### 3. 採取および分析方法

調査場所に拡散型サンプラーを設置するシェルターを取り付け、その中に、活性炭捕集エレメントを用いる拡散暴露型サンプラー<sup>3)</sup>を1ヶ月間毎に交換し、環境大気中のフロン・有機塩素系物質を吸着捕集した。

フロン11およびフロン113はヤシガラ活性炭、また、その他の有機塩素系物質は活性炭フェルトで捕集し、それぞれn-ヘキサン8mlで抽出した。その抽出液の1~2μlをキャピラリーカラムを装着したECD-GCへ注入し分析した。GCの分析条件及び環境濃度の算出法は前報<sup>2),3)</sup>の通りである。

### 4. 平成2年度から平成6年7月までの調査結果および考察

測定した各物質濃度結果について、経月変化および年度平均値推移を図-1~5および図-8~14に、またフロン類および有機塩素系物質の年度平均値を表-1, 2に示した。

なお、平成2年度平均値は8~3月までの9ヶ月間の平均であるため参考値として示した。

#### 4-1 フロン類の経月変化及び濃度レベル

##### (1) フロン-11

##### ア. 経月変化

フロン-11は、図-1に示すように、都市域の各調査地点とも概ね類似した濃度変化であった。濃度のピークとなる月は、平成2年度では10月に、平成3年度では2月に、平成4年度では7月に見られており、季節による濃度ピークの共通の傾向はなかった。

また、鶴見では、他の地点に比べ特異的に高くなる月もみられ、局地的な汚染の影響を受けていることも推察された。特に平成6年の6、7月に他の地点のパターンと異なって濃度が高くなっており、この原因として調査地点の移動(それまでの下野谷小学校から新築間もない潮田交流センターに地点を変更した。)により建材や塗装剤からの局地的な汚染を受けた可能性も考えられた。

##### イ. 都市域での濃度範囲

都市域において、平成5年度の平均値が最も高い地点は鶴見であり、平成2年度(参考値)0.82ppb、3年度0.50ppb、4年度0.44ppb、5年度0.47ppbと推移していた。

平成5年度の平均値が最も低い地点は都田であり、平成2年度

(参考値)0.63ppb、3年度0.39ppb、4年度0.36ppb、5年度0.40ppbと推移していた。

平成5年度の都市域地点の濃度範囲で見ると、鶴見の0.47ppbから都田の0.40ppbの間にあり、比較的濃度差が少ない物質であると言える。

##### ウ. 清浄地域との比較および年度平均値推移

清浄地域の道志村は、平成4年度0.32ppb、5年度0.36ppbと都市域と比較して低い濃度レベルであり、また、都市域濃度との差は

表-1 横浜市内4地点および清浄地域1地点における環境大気中のフロン類濃度の年度推移

物質名 フロン11	横浜市内調査地点				清浄地域
	鶴見	都田	野庭	本牧	道志村
2年度(1990)	0.82	0.63	0.75	0.73	
3年度(1991)	0.50	0.39	0.43	0.40	
4年度(1992)	0.44	0.36	0.40	0.37	0.32
5年度(1993)	0.47	0.40	0.41	0.45	0.36
濃度比率					
(5年度/道志)	1.28	1.09	1.13	1.23	1.00
物質名 フロン113	横浜市内調査地点				清浄地域
2年度(1990)	0.67	0.45	0.34	0.36	
3年度(1991)	0.70	0.43	0.38	0.37	
4年度(1992)	0.34	0.25	0.23	0.21	0.15
5年度(1993)	0.28	0.20	0.19	0.19	0.13
濃度比率					
(5年度/道志)	2.18	1.67	1.53	1.49	1.00

表-2 横浜市内4地点および清浄地域1地点における環境大気中の有機塩素系物質濃度の年度推移

物質名 1,1,1-トリクロロエタン	横浜市内調査地点				清浄地域
	鶴見	都田	野庭	本牧	道志村
2年度(1990)	1.78	1.18	0.83	1.01	
3年度(1991)	1.49	0.89	0.80	0.83	
4年度(1992)	1.07	0.76	0.59	0.58	0.28
5年度(1993)	0.83	0.50	0.38	0.39	0.19
濃度比率					
(5年度/道志)	4.32	2.60	2.00	2.02	1.00
物質名 四塩化炭素	横浜市内調査地点				清浄地域
2年度(1990)	0.14	0.11	0.11	0.14	
3年度(1991)	0.12	0.09	0.10	0.12	
4年度(1992)	0.13	0.11	0.13	0.13	0.12
5年度(1993)	0.14	0.11	0.12	0.14	0.13
濃度比率					
(5年度/道志)	1.14	0.91	0.97	1.11	1.00
物質名 トリクロロエレン	横浜市内調査地点				清浄地域
2年度(1990)	0.45	0.33	0.22	0.33	
3年度(1991)	0.34	0.23	0.16	0.25	
4年度(1992)	0.38	0.28	0.21	0.23	0.07
5年度(1993)	0.38	0.30	0.17	0.23	0.05
濃度比率					
(5年度/道志)	7.16	5.75	3.32	4.43	1.00
物質名 テトラクロロエレン	横浜市内調査地点				清浄地域
2年度(1990)	0.46	0.34	0.29	0.29	
3年度(1991)	0.35	0.28	0.25	0.23	
4年度(1992)	0.27	0.24	0.23	0.21	0.07
5年度(1993)	0.29	0.26	0.28	0.20	0.07
濃度比率					
(5年度/道志)	4.35	3.83	4.23	3.05	1.00

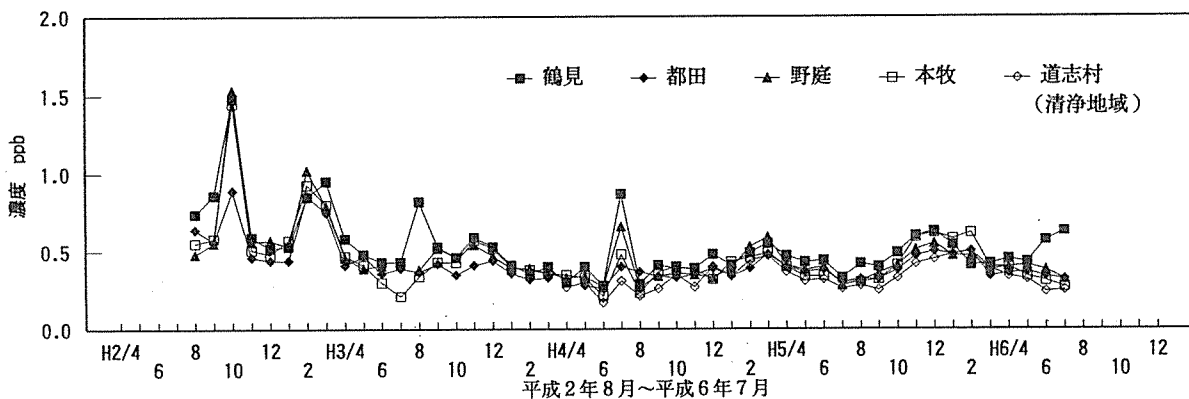


図-1 フロン-11の経月変化  
(横浜市内4地点及び清浄地域1地点)

少なく、濃度の高い鶴見でも清浄地域に対し、約1.3倍程度の濃度であった。

図-2に示す年度平均値推移を見ると、平成2年(参考値)から5年にかけてゆるやかな減少傾向が見られた。

(2) フロン-113

ア. 経月変化

フロン-113は、図-3に示すように、都市域の各調査地点とも概ね類似した濃度変化であった。濃度のピークとなる月は、平成2年度では10月に、平成3年度では4月から6月にかけてと11月に、それ以後は顕著なピークは見られていなかった。フロン-11と同様に季節の違いによる濃度ピークの共通の傾向はなかった。

イ. 都市域での濃度範囲

都市域において、平均値が最も高い地点は鶴見であり、平成2年度(参考値)0.67ppb、3年度0.70ppb、4年度0.34ppb、5年度0.28ppbと推移していた。

平均値が低い地点は本牧と野庭であり、本牧では、平成2年度(参考値)0.36ppb、3年度0.37ppb、4年度0.21ppb、5年度0.19ppbであり、野庭では、平成2年度(参考値)0.34ppb、3年度0.38ppb、4年度0.23ppb、5年度0.19ppbと推移していた。

平成5年度の都市域地点の濃度範囲で見ると、鶴見の0.28ppbから本牧および野庭の0.19ppbの間にあり、地点間の濃度差は約1.5倍であった。

ウ. 清浄地域との比較および年度平均値推移

清浄地域の道志村は、平成4年度0.15ppb、5年度0.13ppbとなっており、濃度の高い鶴見で、清浄地域に対し約2.2倍の濃度であった。

図-4に示す年度平均値推移を見ると、平成2年(参考値)から5年にかけて減少傾向を示しており、3年度から4年度にかけて大きく減少していた。特に鶴見の減少傾向は著しく、工業地域での使用規制の効果が表れているものと考えられた。

4-2 有機塩素系物質の経月変化及び濃度レベル

(1) 1, 1, 1-トリクロロエタン

ア. 経月変化

1, 1, 1-トリクロロエタンは、図-5に示すように、フロン類と同様に都市域の各地点とも類似した濃度変化であった。濃度のピークとなる月は、平成2年度(参考値)では10, 11月に、平成3年度から5年度にかけては、共通して11, 12月であり、季節変動の特徴が明確に現れていた。この傾向は、図-6, 7に示す各調査地点の常時監視局でのNOx(窒素酸化物NO+NO<sub>2</sub>)およびNMHC(非メタン炭化水素)濃度の経月変化とも類似した傾向があった。このことは、1, 1, 1-トリクロロエタンは調査物質中で最も濃度が高く都市域での顕著な汚染物質であるため、一般の大気汚染物質と同様な挙動をするものと考えられた。すなわち、大気が安定する日が多くなり北よりの風が卓越してくる秋冬期には、NOxをは

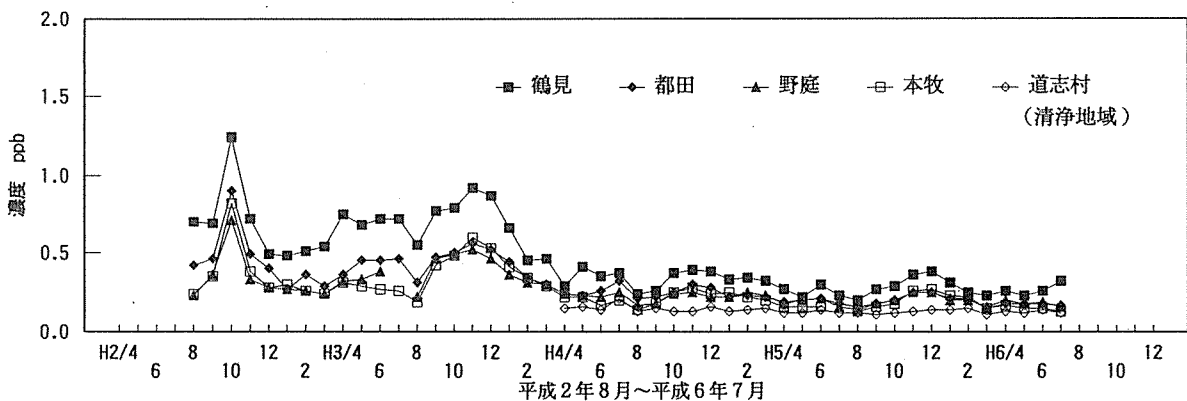


図-3 フロン-113の経月変化  
(横浜市内4地点及び清浄地域1地点)

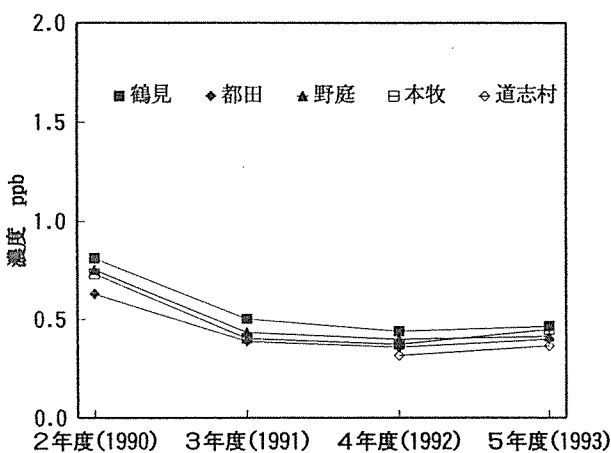


図-2 フロン-11の年度平均値推移  
(横浜市内4地点及び清浄地域1地点)

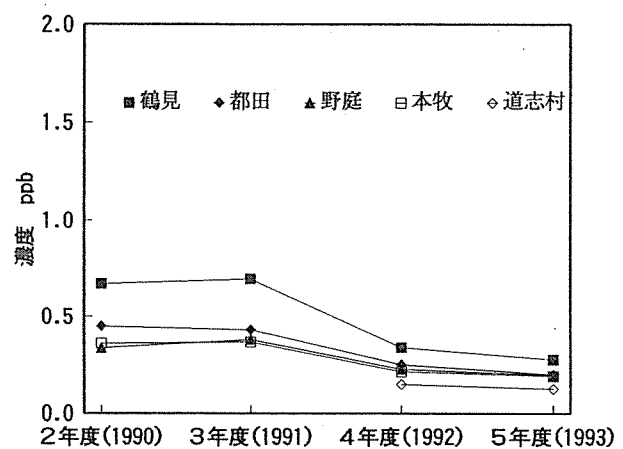


図-4 フロン-113の年度平均値推移  
(横浜市内4地点及び清浄地域1地点)

はじめとする一般的な大気汚染物質濃度が高くなる。また、夏期には太平洋高気圧の影響で海風が顕著となり、南よりの比較的汚染の少ない強い風が吹き大気不安定となり、拡散などにより都市域内に排出された大気汚染物質とともに濃度は低下する<sup>5)</sup>と考えられた。

イ. 都市域での濃度範囲

都市域において、平均値が最も高い地点は鶴見であり、平成2年度(参考値)1.78ppb、3年度1.49ppb、4年度1.07ppb、5年度0.83ppbと推移していた。

平均値が最も低い地点は野庭であり、平成2年度(参考値)0.83ppb、3年度0.80ppb、4年度0.59ppb、5年度0.38ppbと推移していた。

平成5年度の都市域地点の濃度範囲で見ると、鶴見の0.83ppbか

ら野庭の0.38ppbの間にあり、地点間の濃度差は約2.2倍であった。ウ. 清浄地域との比較および年度平均値推移

清浄地域の道志村は、平成4年度0.28ppb、5年度0.19ppbとなっており、濃度の高い鶴見では、清浄地域に対し約4.4倍の濃度と、依然として都市域での濃度が高い傾向であった。

図-8に示す年度平均値推移を見ると、都市域では平成2年度(参考値)から5年度にかけてほぼ直線的な減少傾向を示しており、その年間の減少割合は約20~30%程度となっていた。これはフロン-113と同様に都市域での洗浄剤としての使用規制の効果によるものと考えられた。

(2) 四塩化炭素

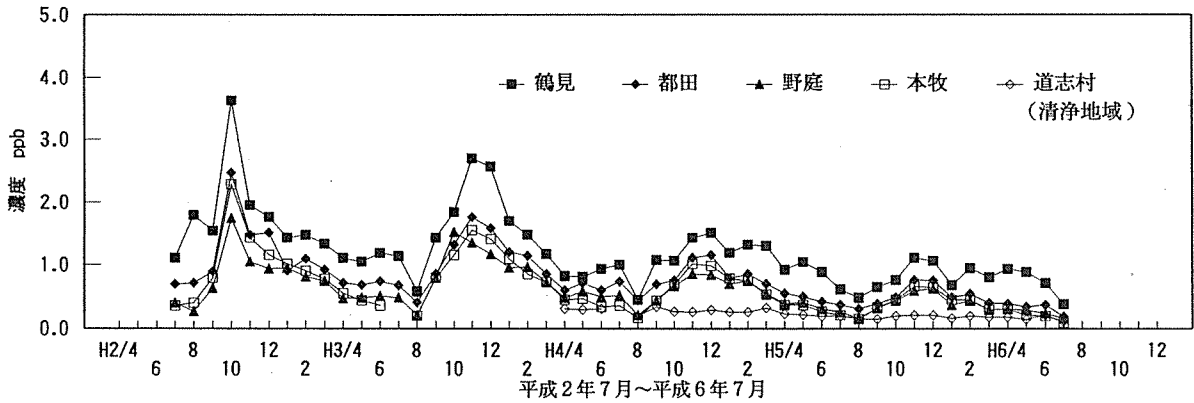


図-5 1,1,1-トリクロロエタンの経月変化  
(横浜市内4地点及び清浄地域1地点)

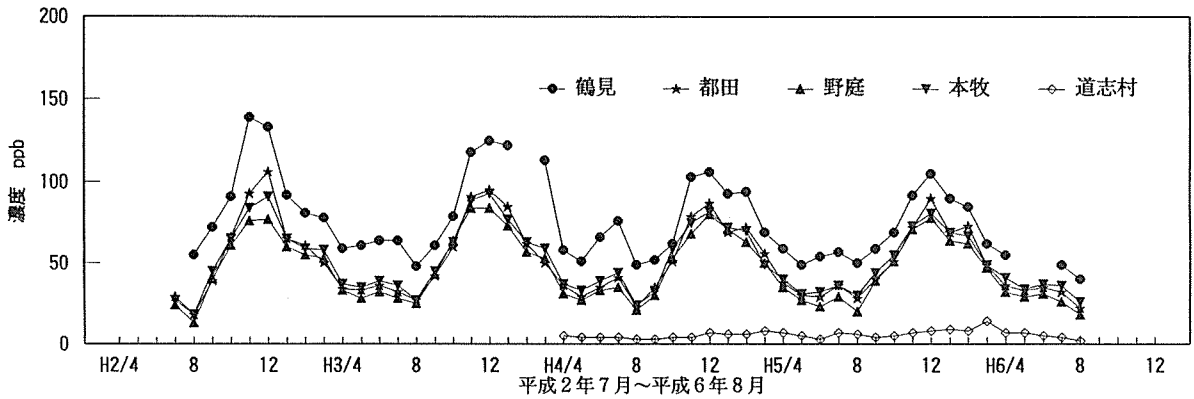


図-6 常時監視局におけるNOxの経月変化  
(横浜市内4地点及び清浄地域1地点)

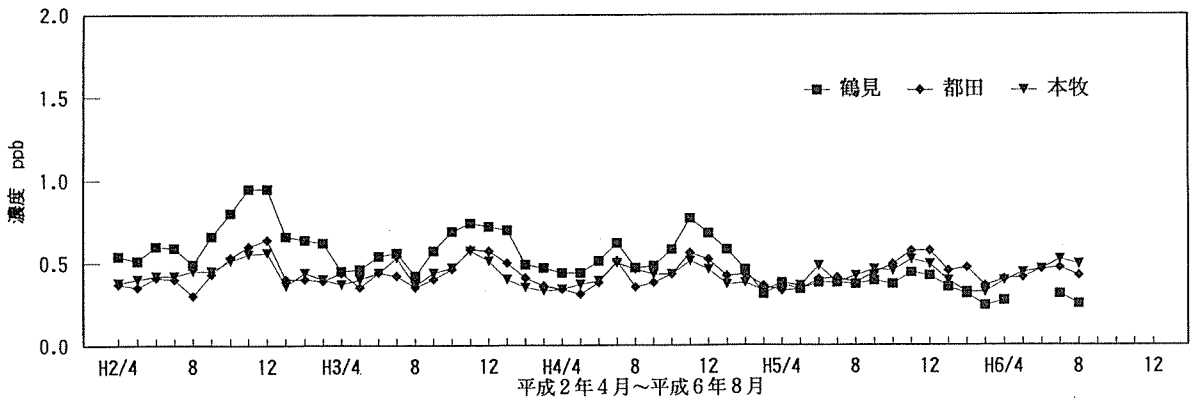


図-7 常時監視局におけるNMHCの経月変化  
(横浜市内3地点)

ア. 経月変化

四塩化炭素は、図-9に示すように、都市域および清浄地域ともに、調査期間中の濃度変動が非常に少なく、また季節変動もなく、ほぼ一定の濃度であった。これは、調査物質中で最も濃度の低いものであった。

イ. 都市域での濃度範囲

都市域において、平均値が最も高い地点は鶴見および本牧であり、鶴見では、平成2年度(参考値)0.14ppb、3年度0.12ppb、4年度0.13ppb、5年度0.14ppbであり、本牧も同様な濃度推移となっていた。

平成5年度の都市域地点の濃度範囲で見ると、鶴見の0.14ppbから都田の0.11ppbの間にあり、地点の濃度差も少なかった。

ウ. 清浄地域との比較および年度平均値推移

清浄地域の道志村は、平成4年度0.12ppb、5年度0.13ppbとなっており、濃度の高い鶴見および本牧において、清浄地域とほぼ同程度の濃度であり、また、都田のように清浄地域よりも濃度が低い結果もあった。このように四塩化炭素の都市域の汚染は非常に少ないと言える。

図-10に示す年度平均値推移を見ると、全体的な濃度の経年傾向は、ほぼ一定値を示していた。

(3) トリクロロエチレン

ア. 経月変化

トリクロロエチレンは、図-11に示すように、都市域の各地点と

も類似した濃度変化であった。濃度のピークとなる月は、平成2年度(参考値)では10、11月に、平成3年度から5年度にかけては、共通して11、12月であり、1, 1, 1-トリクロロエタンと同様に季節変動の特徴が明確であった。

イ. 都市域での濃度範囲

都市域において、平均値が最も高い地点は鶴見であり、平成2年度(参考値)0.45ppb、3年度0.34ppb、4年度0.36ppb、5年度0.38ppbと推移していた。

平均値が最も低い地点は野庭であり、平成2年度(参考値)0.22ppb、3年度0.16ppb、4年度0.21ppb、5年度0.17ppbと推移していた。

平成5年度の都市域地点の濃度範囲で見ると、鶴見の0.38ppbから野庭の0.17ppbの間であった。地点間の濃度差は約2.2倍であり、1, 1, 1-トリクロロエタンと同程度であった。

また、大気環境指針の暫定値(トリクロロエチレンの年間平均値として250  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ または47ppb)と比較すると、横浜市内は、指針値の約0.3~0.8%程度と低い濃度であった。

ウ. 清浄地域との比較および年度平均値推移

清浄地域の道志村は、平成4年度0.07ppb、5年度0.05ppbとなっており、濃度の高い鶴見では、清浄地域に対し約7.6倍の濃度と都市域での汚染が大きいことを示していた。

図-12に示す年度平均値推移を見ると、都市域では平成2年度(参考値)から3年度にかけて、減少はしているものの3年度以降は

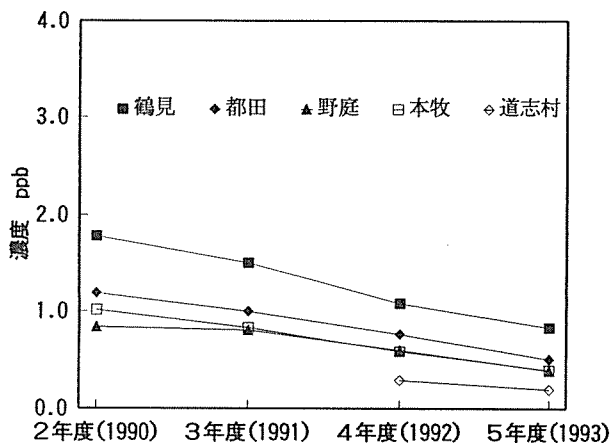


図-8 1,1,1-トリクロロエタンの年度平均値推移  
(横浜市内4地点及び清浄地域1地点)

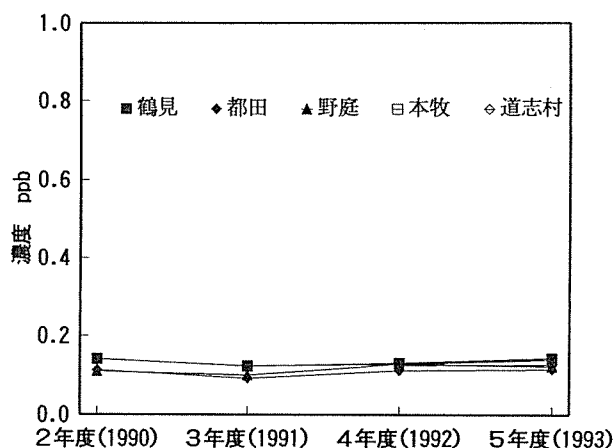


図-10 四塩化炭素の年度平均値推移  
(横浜市内4地点及び清浄地域1地点)

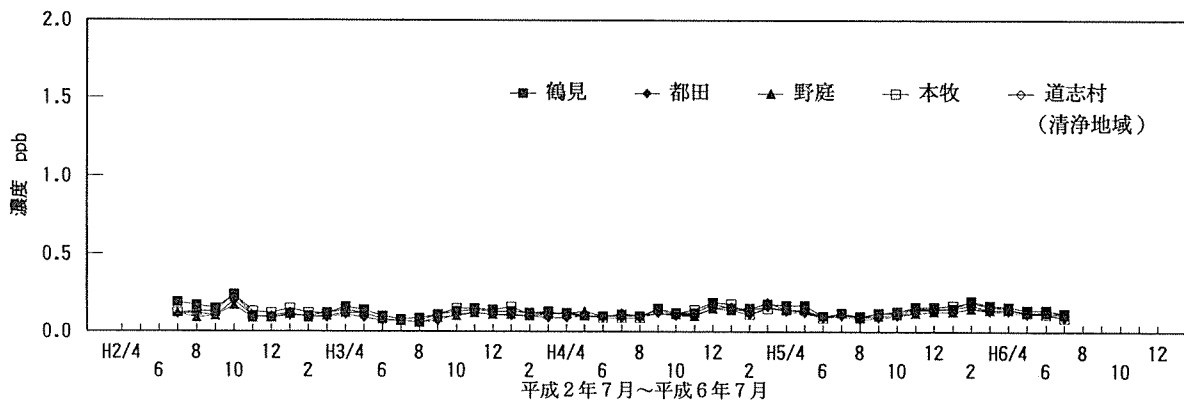


図-9 四塩化炭素の経月変化  
(横浜市内4地点及び清浄地域1地点)

漸増ないし横ばいの傾向であった。

(4) テトラクロロエチレン

ア. 経月変化

テトラクロロエチレンは、図-13に示すように、都市域の各地点とも類似した濃度変化であった。濃度のピークとなる月は、他の有機塩素系物質と同様、平成2年度(参考値)では10、11月に、平成3年度から5年度にかけては共通して11、12月であった。また、4月から6月にかけてやや濃度が高くなる傾向も見られている。このように共通した季節変動の特徴が明確であった。

イ. 都市域での濃度範囲

都市域において、平均値が最も高い地点は鶴見であり、平成2年度(参考値)0.46ppb、3年度0.35ppb、4年度0.27ppb、5年度0.29ppb

と推移していた。

平均値が最も低い地点は本牧であり、平成2年度(参考値)0.29ppb、3年度0.23ppb、4年度0.21ppb、5年度0.20ppbと推移していた。平成5年度の都市域地点の濃度範囲で見ると、鶴見の0.29ppbから野庭の0.20ppbの間にあり、地点間の濃度差は約1.5倍程度であった。

また、大気環境指針の暫定値(テトラクロロエチレンの年間平均値として $230 \mu\text{g}/\text{m}^3$ または34ppb)と比較すると、横浜市内は、指針値の約0.6~0.9%程度と低い濃度であった。

ウ. 清浄地域との比較および年度平均値推移

清浄地域の道志村は、平成4、5年度とも0.07ppbとなっており、濃度の高い鶴見で、清浄地域に対し約4.1倍の濃度であった。

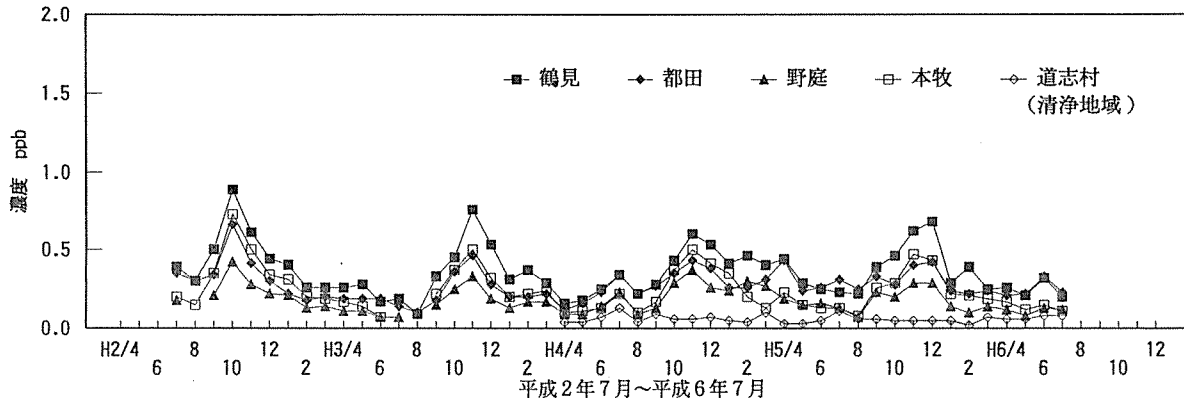


図-11 トリクロロエチレンの経月変化  
(横浜市内4地点及び清浄地域1地点)

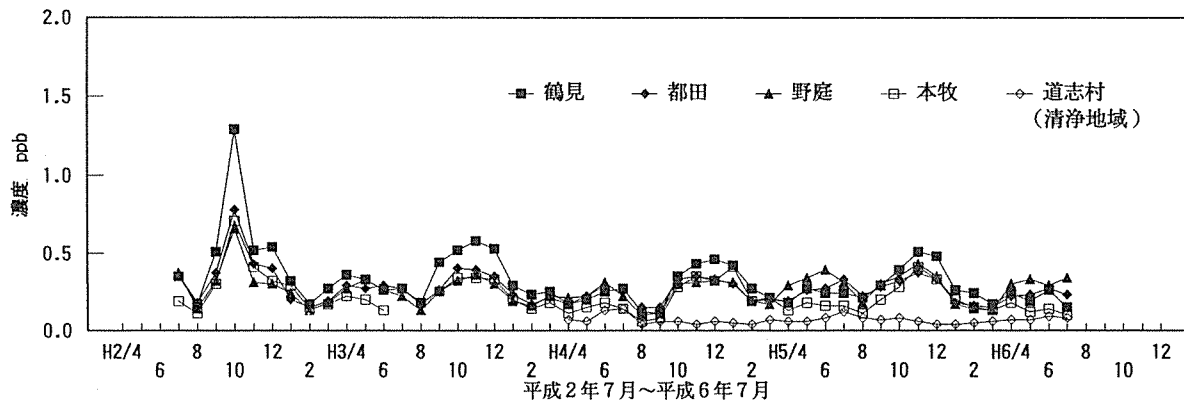


図-13 テトラクロロエチレンの経月変化  
(横浜市内4地点及び清浄地域1地点)

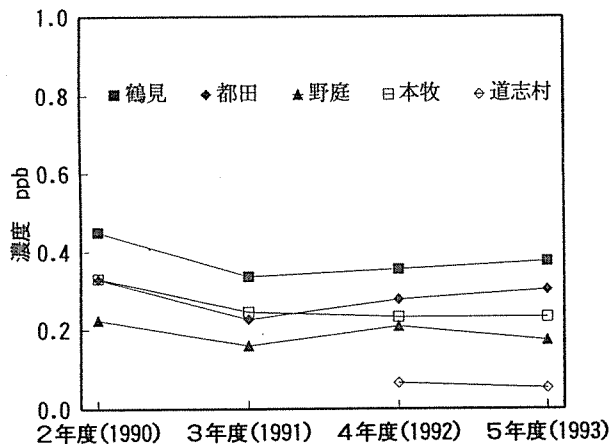


図-12 トリクロロエチレンの年度平均値推移  
(横浜市内4地点及び清浄地域1地点)

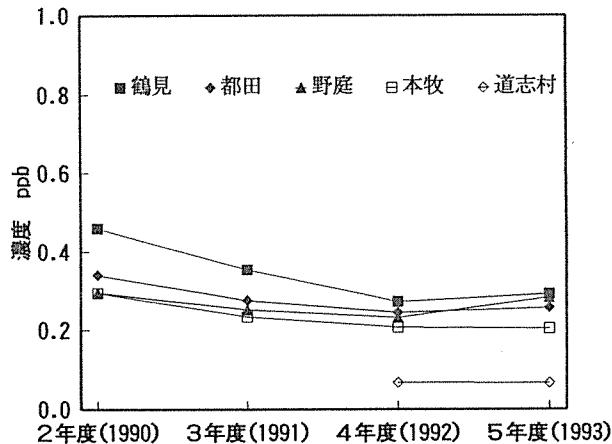


図-14 テトラクロロエチレンの年度平均値推移  
(横浜市内4地点及び清浄地域1地点)



図-14に示す年度平均値推移を見ると、都市域では平成2年度(参考値)から4年度にかけて、減少しているが、4年度以降は横ばいの傾向であった。

### 4-3 横浜市内の排出量データとの比較

図-15に環境保全局大気騒音課で把握している昭和63年度から平成4年度までの横浜市内におけるフロン・有機塩素系物質の排出量の推移を示した。これによると、最も排出量が多い物質はテトラクロロエチレンで年間排出量が約1100トンの一定値で推移していた。

次に排出量の多いものは、1, 1, 1-トリクロロエタンであり、平成4年度において約600トンであった。これらの物質は、平成4年度までほぼ横ばいの排出量となっていた。

一方、フロン-11の排出量は平成元年度から、ほぼ直線的に減少しており、平成4年度に約200トンとなっていた。フロン-113は平成2年度からしだいに減少する傾向となっており平成4年度には約200トンであった。

これらの傾向を今回の環境濃度調査結果と比較すると、1, 1, 1-トリクロロエタンについて、その環境濃度は、年間20~30%も減少しているにもかかわらず、排出量データは減少になっておらず、環境濃度との一致性があまりなかった。排出量データは平成5年度が未集計であるので一概には言えないが、環境濃度調査結果から考えると、現在では1995年末の生産全廃に向け代替溶剤などへの転換が進んできていると考えられた。

また、クリーニング溶剤として使用され、最も市内排出量が大きかったテトラクロロエチレンは、その大気中濃度がそれほど高くはなく、この原因として、前報<sup>9)</sup>にも報告したように大気中の寿命が短いことや雨水による環境大気中でのウォッシュアウトによるものとも考えられるが、明確にはいえなかった。

フロン類は、排出量データと環境濃度の推移が比較的一致しており、特に、フロン-11の減少傾向は、95年末の特定フロン全廃に向けた対策が進んでいると考えられた。

## 5. まとめ

本市では、成層圏オゾン層の破壊や地球温暖化など地球規模の環境問題を引き起こしているフロン等のクロロフルオロカーボン類の環境大気中濃度を横浜市内4地点において、平成2年度から継続調査している。

また、平成4年度より清浄地域での比較測定も行い、環境濃度の客観的評価を加えられるようになった。そこで、調査初年度の平成2年度(参考値)から5年度までの4年間の結果を取りまとめ、以下に示すことが分かった。

(1) 都市域の調査地点では、フロン類および有機塩素系物質の濃度は各地点とも類似した経月変化を示していた。また、季節の濃度変動については、1, 1, 1-トリクロロエタンなどの有機塩素系物質では、秋冬期に濃度が上昇する季節変動が明確に現れていた。しかし、フロン-11およびフロン-113では季節変動が見られなかった。

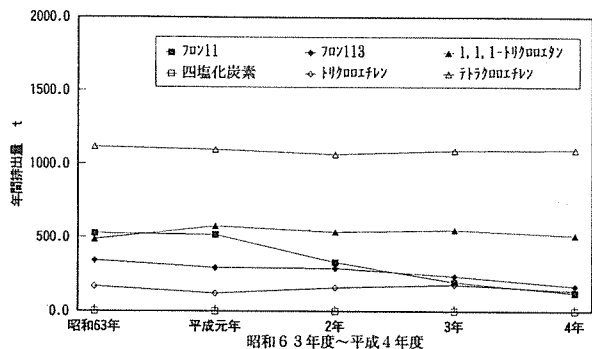


図-15 フロン・有機塩素系物質排出量の年度推移 (横浜市内の排出量集計)

(2) 都市域調査地点のなかで工業地域の鶴見は、全ての成分において最高濃度を示していた。

(3) 平成5年度は、都市域において依然として汚染濃度が高い物質は、トリクロロエチレンであり、清浄地域と比較して約7.2~3.3倍となっており、ついで1, 1, 1-トリクロロエタンの4.3~2.0倍、テトラクロロエチレンの4.4~3.1倍であった。

一方、都市大気において清浄地域濃度に近づいていると思われる物質は、フロン類であり、フロン-11は約1.3倍、フロン-113は約2.2倍と比較的低い濃度レベルとなっていた。

(4) 環境濃度の年度間の減少についてみると、特に1, 1, 1-トリクロロエタンおよびフロン-113は比較的顕著な減少を示しており、1995年末の生産全廃に向けての排出規制の効果が表れていると考えられた。

## 文 献

- 1) 環境庁編：平成6年版環境白書，256-260(1994)。
- 2) 前田裕行，平野耕一郎，松田啓吾：拡散型長期暴露サンプラーを用いた横浜市内における大気中のフロン・有機塩素系物質濃度(Ⅱ)，横浜市公害研究所報，17，(1993)。
- 3) 前田裕行，平野耕一郎，松田啓吾：拡散型長期暴露サンプラーによるフロン類・有機塩素化合物の測定法(第1報)，横浜市公害研究所報，15，(1991)。
- 4) 神奈川県臨海地区大気汚染調査協議会：神奈川県臨海地区大気汚染調査報告書(平成元年度)，12-31(1990)。  
前田裕行ほか 神奈川県臨海地区大気汚染調査協議会：神奈川県臨海地区におけるフロン及び有機塩素系物質の環境濃度調査(Ⅲ)－拡散型サンプラーによる月平均値の測定－，第31回大気汚染学会要旨集 2319 P269，(1990)。
- 5) 前田裕行，高橋 篤ほか 神奈川県臨海地区大気汚染調査協議会：神奈川県臨海地区におけるフロン及び有機塩素系物質の環境濃度調査(Ⅳ)－拡散型サンプラー法による経月変化，真空びん法による経時変化－，第33回大気汚染学会要旨集 2303 P261，(1992)。

# 横浜市内の事業所排水および河川水中の有機塩素系溶剤の濃度

飯塚貞男\*, 下村光一郎\*, 江口憲治\*\*, 篠原俊夫\*\*

## 要 旨

有機塩素系溶剤を使用している事業所の排水及び河川水中の1, 1, 1-トリクロロエタン, トリクロロエチレン, テトラクロロエチレンの状況について調査した。事業所の排水の濃度は83事業所のうち2箇所のドライクリーニング事業所で法の定める排出基準値を超えていた。一方, 市内河川水中の濃度は, 30箇所の調査地点で測定した結果, すべて環境基準値を満足していた。

## 1. はじめに

各種の産業分野で使用されている1, 1, 1-トリクロロエタン(以下MC), トリクロロエチレン(以下TCE), テトラクロロエチレン(以下PCE)等の有機塩素系溶剤による環境の汚染が問題になっている。これらの有機塩素系溶剤の生産量は, 平成4年度では, 年間20万トンを超えている<sup>1)</sup>。

本市内には, 機械, 金属, 電気, 表面処理, メッキ, 化学, ドライクリーニング, 印刷業等の有機塩素系溶剤を使用する事業所が多くまた市内の地下水からも検出されている<sup>2)</sup>。このような事業所に対して横浜市では適正な使用方法やその処理・処分方法等の行政指導を行ってきている。筆者らは平成2年と3年に, 有機塩素系溶剤を使用している事業所排水の実態調査結果について報告したが<sup>3)</sup>その後の状況を把握するために各事業所の排水中に含まれるMC, TCE, PCEの濃度を測定するとともに処理・処分方法についても調査した。また同時に市内河川の30地点で濃度を測定したので報告する。

## 2. 調査方法及び分析方法

### 2-1 調査方法

#### ①事業所排水

平成6年5月から7月までの期間に, 横浜市内の有機塩素系溶剤を使用している事業所の中から83の事業所を選び, 排水中のMC, TCE, PCEの濃度を測定した。また各事業所の有機塩素系溶剤の使用実態や処理・処分方法についても調査した。

#### ②河川水

平成6年3月から7月までの期間に市内河川の30地点で採水し, MC, TCE, PCEの濃度を測定した。

### 2-2 分析方法

MC等3物質の分析は, JIS K0125が定める溶媒抽出法で行った。ガスクロマトグラフはHP5890を使用した。

## 3. 結果及び考察

### 3-1 有機塩素系溶剤の使用実態

MC, TCE, PCEは脱脂洗浄剤及びドライクリーニング洗浄剤

として使用されていた。MCは主として金属の表面処理工程で脱脂洗浄剤として使用されており, 他にドライクリーニング洗浄剤としても使用されていた。TCEはMCと同様に金属, 電子基盤の洗浄剤として広く使用されていた。またPCEは主にドライクリーニング洗浄剤として使用されていた他, レンズの洗浄等にも使用されていた。一部の事業所では, 法でまだ規制されていない炭化水素系溶剤やアルコール系溶剤に転換していた。

### 3-2 事業所排水中に含まれる有機塩素系溶剤の濃度

調査した事業所を有機塩素系溶剤の使用方法により次の4種類に分類した。まず機械, 金属, 電気, 表面処理, メッキ, 化学, 印刷関連の事業所を表面処理事業所とし, 以下ドライクリーニング事業所, 産業廃棄物処理事業所, 研究所とした。事業所排水中に含まれる有機塩素系溶剤の測定結果を表-1に示した。

#### 3-2-1 表面処理事業所

表面処理事業所では脱脂洗浄剤として主にMC, TCEを用いており, 脱脂洗浄方法には, 洗浄物をそのままMC, TCEなどの溶剤の槽に漬けて脱脂する浸漬洗浄法と溶剤を加熱して気化させて, その蒸気で脱脂する蒸気洗浄法が用いられていた。また印刷事業所では直接溶媒をしみ込ませた布でふき取る方法が行われていた。各事業所とも脱脂工程では有機塩素系溶剤は環境中に排出されないように設計されているが, 200~1000g/m<sup>2</sup>・hの量が蒸発などで損失し, 一部は冷却され工程排水に混入してくる<sup>3)</sup>。工程排水は, ばき処理, 凝集沈殿処理, 生物処理, 吸着処理等の方法で処理されていた。また, 脱脂工程で水分離器から出る排水に含まれる溶剤をバッキ処理した後, 放流している事業所もあった。表-1に示したようにMC等3物質のうち最も検出頻度の高かったのはMCで, 調査した49事業所のうち19事業所の排水中から検出された。次いでTCE, PCEの順であった。また15事業所の排水中からは, いずれの物質も検出されなかった。それぞれの物質の最高濃度は, MCが960µg/l, TCEが35.2µg/l, PCEは0.93µg/lであったが, 調査した排水はすべて排水基準値を満足していた。各事業所とも脱脂洗浄に使用し汚れた有機塩素系溶剤や蒸留残渣などは産業廃棄物処理業者に委託処分していた。

The concentration of the chlorinated hydrocarbons in the industrial waste water and river water in Yokohama

\*Sadao Iizuka, \*Kouichirou Shimomura 横浜市環境科学研究所水質部門

\*\*Kenji Eguchi, \*\*Toshio Shinohara 横浜市環境保全局水質地盤課

### 3-2-2 ドライクリーニング事業所

ドライクリーニングの方法として石油系溶剤等を用いるコールドマシンワッシャーとMCやPCEを用いるホットマシンワッシャーがあったが、今回はホットマシンワッシャーを使用している事業所を調査した。ホットマシンでは、ワッシャー内でPCE等の溶剤により衣類を洗濯する。衣類等から出る水分は水分離器で溶剤と水に分離され、溶剤は蒸留して再使用し、水は排水として排出される。しかし洗浄工程や脱臭工程でPCEなどの溶剤がかなり損失する。ちなみに衣類100Kgを洗濯するとPCEが約4.5Kg失われる。このうち一部は、水分離器から出る約6ℓの排水に200mg/ℓ程度の濃度で含有し、残りの大部分は脱臭工程で活性炭などの回収装置に吸着されたり大気中に蒸発するという報告がある<sup>6)</sup>。溶剤を含有した排水には水分離器から出たものと回収装置の活性炭を再生したときに出てくる2つがある。これらの排水はMCやPCEなどが高濃度に含むため除去した後でなければ放流できない。各事業所では排水の種類や量に応じた排水処理装置が設けられていたが、パッキ処理、活性炭処理がよく用いられていた。表-1に示すように、PCEは調査した14の事業所のうち9事業所の排水から検出された。最高濃度は850μg/ℓであった。またMC、TCEも検出されておりそれぞれの最高濃度はMCで180μg/ℓ、TCEで83.7μg/ℓとなっていた。調査した事業所のうち2事業所排水中でPCEの濃度が排水基準値を超えていた。前回調査したドライクリーニング事業所の結果によると基準値を超えた事業所では排水処理施設を運転していなかったり活性炭等を定期的に交換していないなどの排水処理施設の維持、管理の方法に問題点があったが、今回の調査で排水基準値を超えた2つの事業所についても同様なことが言えた。またPCEの蒸留残渣、使用済みの活性炭、吸着樹脂等は、産業廃棄物処理業者に委託処分されていた。

あったが、今回の調査で排水基準値を超えた2つの事業所についても同様なことが言えた。またPCEの蒸留残渣、使用済みの活性炭、吸着樹脂等は、産業廃棄物処理業者に委託処分されていた。

### 3-2-3 その他の事業所

企業の研究所、大学の研究室、分析機関など13箇所の排水、さらに市内5か所の埋立処分地からの浸出液の処理後の排水について調査した。それらの結果を表-1に示したように研究所では使用している有機塩素系溶剤の量は少く、I. C基盤の洗浄、超音波洗浄器用の洗浄液、抽出溶媒、分析の標準等に使用されていた。13箇所のうち1箇所からTCEが1.2μg/ℓ検出されただけで、他からはMC、TCE、PCEのいずれも検出されなかった。また埋立処分地の排水では、TCEが1.4μg/ℓ検出された所が1箇所あっただけで、他の排水からは検出されなかった。調査した研究所および埋立処分地の排水はともに排水基準値を満たしていた。

### 3-3 河川水中の有機塩素系溶剤の濃度

河川水中のMC、TCE、PCEの濃度を調査した。鶴見川、帷子川などの主要5河川では公共用水域水質測定計画で同様な調査を行っているため、調査地点が重複しないように、それぞれの地点を選んだ。図-1に調査した河川及び調査地点とその番号を、またその測定結果を表-3に示した。表-3に示すように最も検出頻度の高かったのはTCEであり、30の調査地点のうち5地点から検出された。次いで、MCが3地点、PCEが1地点であった。MCで最も濃度の高い地点は、鴨居川の鴨居橋で0.68μg/ℓ、TCEでは大場川の市ケ尾橋で3.3μg/ℓ、PCEでは早淵川の茅ヶ崎橋で0.6μg/ℓであった。MC、TCE、PCEのすべてが検出された調査地点は

表-1 事業所排水中の有機塩素系溶剤の濃度

溶剤の種類		1,1,1-トリクロロエタン (MC)			トリクロロエチレン (TCE)			テトラクロロエチレン (PCE)		
項目		検出された事業所の数	濃度の範囲 (μg/ℓ)	基準値を超えた事業所の数	検出された事業所の数	濃度の範囲 (μg/ℓ)	基準値を超えた事業所の数	検出された事業所の数	濃度の範囲 (μg/ℓ)	基準値を超えた事業所の数
表面処理	49	19	0～960	0	5	0～35.2	0	3	0～0.93	0
ドライクリーニング	14	5	0～180	0	6	0～83.7	0	9	0～850	2
産業廃棄物処理	7	0	N. D	0	1	0～1.4	0	0	N. D	0
研究所	13	0	N. D	0	1	0～1.2	0	0	N. D	0

表-2 各有機塩素系溶剤の排水および環境基準値

溶剤の種類	濃度	排水基準値	環境基準値	定量限界値
1,1,1-トリクロロエタン (MC)		3000 μg/ℓ以下	1000 μg/ℓ以下	0.5 μg/ℓ
トリクロロエチレン (TCE)		300 μg/ℓ以下	30 μg/ℓ以下	1.0 μg/ℓ
テトラクロロエチレン (PCE)		100 μg/ℓ以下	10 μg/ℓ以下	0.5 μg/ℓ

なかったが、2物質が検出されたのは、早淵川の茅ヶ崎橋、帷子川の大貫橋であった。またMC、TCE、PCEのいずれも定量限界値以下であった地点は25箇所であった。一方平成4年度の横浜市公共用水域水質測定計画の測定結果<sup>2)</sup>を見てみると検出頻度はMCが最も高く、25の調査地点のうち15地点から検出されており、次いでTEC、PCEの順であった。また最高濃度ではMCが $14.2\mu\text{g}/\text{l}$ 、TCEが $2.0\mu\text{g}/\text{l}$ 、PCEが $3.2\mu\text{g}/\text{l}$ であり、MC、PCEが本調査結果より高かった。しかし両調査結果ともそれぞれの調査地点でのMC、TCE、PCEの濃度はすべて水質環境基準値以下であった。

## まとめ

有機塩素系溶剤を使用している事業所の排水及び河川水中のMC、TCE、PCEの濃度を測定して次のような結果を得た。

- 1 調査した83の事業所のうちドライクリーニングの2事業所の排水中のPCEが水質基準値を超えていた。
- 2 河川水中の濃度はすべての調査地点で、MC、TCE、PCEともに環境基準値を下回っていた。

有機塩素系溶剤を含む事業所排水の処理に関しては、当局の指導により一部のクリーニング事業所を除いて問題はなかったが、今後地下水を汚染することのないように適正な溶剤使用施設の設置や溶

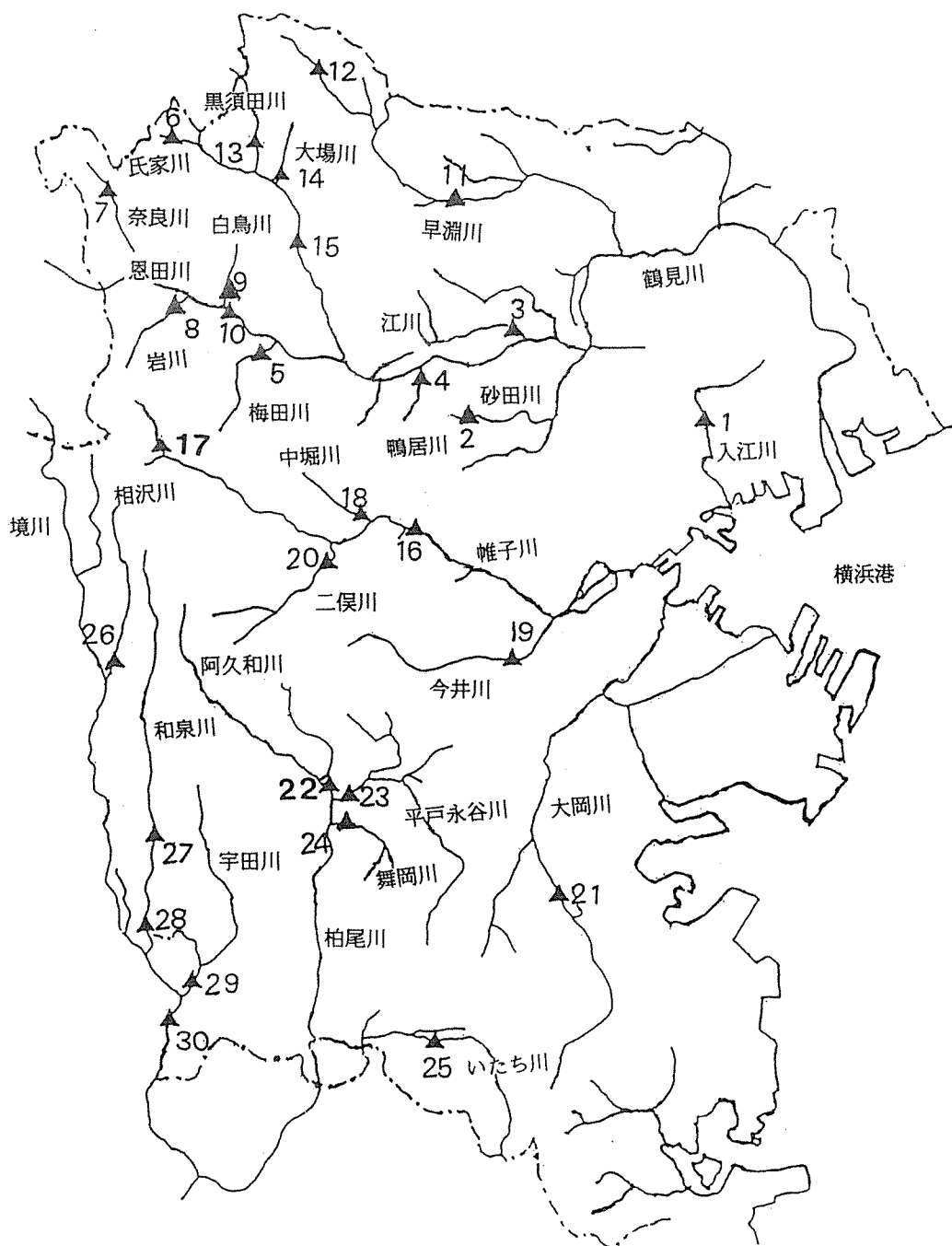


図-1 市内河川の調査地点

剤を含んだ汚泥、活性炭、吸着樹脂などの適正な処理・処分の徹底が重要となってくると思われる。

参考文献

- 1) 横浜市環境保全局：排水処理技術講演集，環境保全資料No. 169, (1993).
- 2) 横浜市環境保全局：平成4年度横浜市公共用水域及び地下水の水質測定結果報告書
- 3) 飯塚貞男：クリーニング事業所のテトラクロロエチレンの処理の実態調査，横浜市環境科学研究所報16号，79～82(1992).
- 4) 飯塚貞男：横浜市内事業所の有機塩素化合物の実態調査，横浜市環境科学研究所報15号，205～207(1991).
- 5) 浦野紘平：有機塩素溶剤の除去・回収技術，公害と対策，Vol. 26, No. 12, 25～28(1990).
- 6) 浦野紘平：有機塩素化合物の使用状況と排出防止技術，水質汚濁研究，Vol. 8, No. 5, 269～273(1985).
- 7) 日本クリーニング公害予防センター：テトラクロロエチレン，及び1, 1, 1-トリクロロエタンの適正管理，(1989).

表-3 市内河川中の有機塩素化合物の濃度

	調査地点		有機塩素系溶剤名		
	番号	調査地点名	1,1,1-トリクロロエタン (MC)	トリクロロエチレン (TCE)	テトラクロロエチレン (PCE)
鶴見川水系	1	入江川 (久保下橋)	N. D	N. D	N. D
	2	砂田川 (団地入口)	N. D	N. D	N. D
	3	江川 (半助橋)	N. D	N. D	N. D
	4	鴨居川 (鴨居橋)	0.68	N. D	N. D
	5	梅田川 (信治橋)	N. D	N. D	N. D
	6	寺家川 (村中央橋)	N. D	N. D	N. D
	7	奈良川 (神前橋)	N. D	N. D	N. D
	8	岩川 (屋敷橋)	N. D	N. D	N. D
	9	白鳥川 (真橋)	N. D	N. D	N. D
	10	恩田川 (恩田大橋)	N. D	N. D	N. D
	11	早淵川 (茅ヶ崎橋)	N. D	2.6	0.60
	12	早淵川 (平原橋)	N. D	N. D	N. D
	13	黒須田川 (黒須田橋)	N. D	N. D	N. D
	14	大場川 (市ヶ尾橋)	N. D	3.3	N. D
	15	鶴見川 (学校橋)	N. D	N. D	N. D
帷子川水系	16	帷子川 (学校橋)	0.51	N. D	N. D
	17	帷子川 (大貫橋)	0.62	1.2	N. D
	18	中堀川 (浜串橋)	N. D	N. D	N. D
	19	今井川 (八幡橋)	N. D	1.2	N. D
	20	二俣川 (四季美橋)	N. D	N. D	N. D
柏尾川水系	21	大岡川 (日下橋)	N. D	N. D	N. D
	22	阿久和川 (ト-ヨ橋)	N. D	N. D	N. D
	23	平戸永谷川 (渡戸橋)	N. D	1.2	N. D
	24	舞岡川 (元舞橋)	N. D	N. D	N. D
	25	いたち川 (本郷橋)	N. D	N. D	N. D
境川水系	26	相沢川 (童橋)	N. D	N. D	N. D
	27	和泉川 (中村橋)	N. D	N. D	N. D
	28	和泉川 (鍋屋橋)	N. D	N. D	N. D
	29	宇田川 (宇田川橋)	N. D	N. D	N. D
	30	境川 (東西橋)	N. D	N. D	N. D

N. D : 定量限界値以下  
 1,1,1-テトラクロロエタン 0.5 μg/ℓ  
 トリクロロエチレン 1.0 μg/ℓ  
 テトラクロロエチレン 0.5 μg/ℓ

# 水中に溶解したテトラクロロエチレンの フェルト状活性炭による吸着実験 (II)

大場 栄次\*

## 要 旨

テトラクロロエチレン(PCE)が1.0mg/l溶解する模擬試験水を調製して、フェルト状活性炭繊維の吸着力の変化を分画実験で調べたところ、96mgの活性炭繊維で1.5lの通水まで80%以上、3lの通水までは40%以上吸着することがわかった。また、PCE等による汚染地下水の湧出池(容積=4.6m<sup>3</sup>, 湧水量=340 l/時間)で、23gのフェルト状活性炭繊維を詰めた簡易浄化器で吸着処理実験を行ったところ、初期濃度が0.17mg/lであった池水のPCEが5時間後には0.11mg/lまで減少した。

## 1. はじめに

本市では、平成元年度から特定の地域について詳細な井戸水のモニタリング調査を行っているが、その結果をみるとPCEの検出率が高く、またその濃度も比較的高い状況が続いている<sup>(3), (4), (6)</sup>。一方、PCE等で汚染された井戸水などの浄化方法には曝気法や微生物分解法などがあるが、汚染物質等が大気中に揮散したり処理水量が少ないなどの問題があり、多くの検討課題がある。

このような中で、特に、汚染対策として設備費や維持管理費が少なくてすむ処理方法について早急に研究開発する必要がある。

前報では、主に気体中の有機ハロゲン物質の吸着に用いられているフェルト状活性炭繊維(以下ACフェルトで表す)に着目して、水溶液中のPCE等を吸着除去する実験を行い、ACフェルトはPCEを迅速に吸着するとともに、特定の濃度範囲であれば実験に用いた原水の濃度の高低にかかわらず一定時間で一定濃度まで吸着する特長があることを報告した。<sup>(1)</sup>

今回は、前回に引き続き、ACフェルトのPCE吸着量に伴う吸着力の変化を模擬試験水で実験し、更にACフェルトを使用した簡易浄化器の実用化に向けて実際のPCE汚染地下水の湧出池で吸着処理実験を行った。

なお、実験に用いたACフェルトは、前回と同じT社製KF1500とした。<sup>(1), (2)</sup>

## 2. 実験方法

### 2-1 PCEの分析方法

#### (1) 検量線用標準溶液

PCEにはトリクロロエチレン(TCE)が混在し、同時に検出されることが多いのでPCE、TCE混合標準とした。

PCEとTCEの1,000mg/lヘキサン溶解(アンプル封入の市販品)の水質試験用標準原液を適宜n-ヘキサン(水質試験用、以下同じ)で希釈して、ECD検出器付ガスクロマトグラフ(ECD-GC)に注入できる濃度に混合調製した。このときのPCEは0.020mg/l、TCEは0.075mg/lの濃度である。

この溶液2μlをECD-GCに注入して、得られた成分ピーク情報から絶対検量線法で試験水の濃度を求めた。

#### (2) ECD-GCの分析条件

ECD-GC分析の諸条件を以下に示す。

ECD-GC型式 : GC-14A

使用カラム : CPSIL8CB/50m キャピラリーカラム

キャリアーガス : ヘリウムN60 超高純度 99.99996%以上

メークアップガス : 窒素N60超高純度 99.99996%以上

ガス流量 : ヘリウム3 ml/分, 窒素45 ml/分

試料注入方式 : スプリット方式(スプリット比=15:1)

試料注入口温度 : 150°C

試料注入量 : 2 μl

カラム温度 : 100°C

検出器温度 : 150°C

昇温 : なし(一定温度条件)

### 2-2 ACフェルトのを用いた吸着実験

#### 2-2-1 試験溶液の調製とACフェルトクロマト管の作製

##### (1) PCE原液の調製

蒸留水500mlとPCE(試薬特級)20mlを分液ロート(1,000ml)に取り、15分間連続振とうして静置分離した水層をPCE原液とした。このときのPCE濃度が41mg/lで不純物としてTCEが0.28mg/l混入していた。

##### (2) 試験水の調製

PCE原液を蒸留水で40倍に希釈し1.0mg/lの濃度に調製して試験水とした。このときのTCE濃度は0.0069mg/lであった。

##### (3) ACフェルトクロマト管と実験装置の作製

内径1cm×長さ30cmのクロマト管に約5mlの蒸留水を入れ、先に計量しておいたACフェルト(T社製KF1500)96mgを気泡が残らないようにして約1cmの高さに湿式充填した。

試験水を連続供給するための容器はクロマト管と密閉連結できる容器を用い、ACフェルト通過液の受け器も試験水と空気の接触が少ない構造に作製した。調圧用通気孔もできるだけ小さくした。

また、空試験として、並行実験するためのACフェルトを充填していない同一装置のもの(以下空試験で表す)を別に用意した。

試験水の供給部(A)と吸着部(B)、液受け部(C)を示した装置の略図を図-1に示す。

## 2-2-2 PCEの吸着実験

### (1) ACフェルトクロマト管による分画実験

クロマト管内部の蒸留水をACフェルト上限まで余剰分を流下させた後、先に調製した試験水500mlを供給部(A)にできるだけ気泡を発生させないように静かに入れ、約0.7ml/分の流下速度になるように吸着部(B)のコックを開き試験水を通水した。

通過液は液受け部(C)のメスシリンダー(100ml)に採取した。

採取容量が100mlに達したら、別のメスシリンダーに切り替えて分画操作を連続的に行った。供給部への試験水も適宜補充した。

分画した試験水は、速やかに5mlを共栓試験管(25ml)に分取し、n-ヘキサン20mlを加えて2分間振とうして静置分離した。分離したn-ヘキサン層の約1mlをオートサンプラー用バイアル瓶に分取し、分取したn-ヘキサンをECD-GCに注入してPCE等を分析した。

空試験の操作も(1)の操作と同様に同じ時間帯の同分量で並行して行った。

## 2-3 汚染地下水の湧出池における吸着処理実験

### 2-3-1 簡易浄化器と実験方法

#### (1) 簡易浄化器の作製

鑑賞魚用のフィルターポンプ一式を用い、その濾材入れにACフェルト(23g)を詰めて、水中のPCEを吸着するための浄化器とした。揚水ポンプの仕様は、10l分・AC100V-50Hz-12Wである。この浄化器を発泡スチロールで作製したフロートに乗せ、浄化器が水面に浮上するように工夫した。<sup>(1)</sup>

揚水ポンプ作動の電源は、携帯用発電機を使用した。発電機の仕様は、動力源がガソリンエンジンでAC100V-50Hz-100Wの

ものである。

#### (2) 湧出池の状態と実験方法

今回実験した池は、緑区1町の池で、涵養帯が渠道沿いに尾根状に形成され、段丘壁が道路側に連続したところの裾に位置する。

この池は、3m×4m、水深0.38m、容積4.6m<sup>3</sup>で、地下水の湧出量は排水口での測定で毎時340lであった。

この池の北東2mの位置に、毎月当所でモニタリング調査している井戸がある。この井戸水から、平成5年1月から6年9月までの間に、TCEが0.0034~0.0077mg/l、PCEが0.19~0.36mg/lの範囲で検出されている。

浄化器の設置場所は、湧出水の流入位置の近くで排水口の反対側にあたることを最も吸着効果が得られる位置と判断して決めた。また、浄化器の吐出パイプの形状では処理水が直下に吐出され底泥を拡散するため、30cmのビニールホースで延長して吐出方向が水平になるように調整した。これによって池全体の水の対流も良く行われる。発電機のエンジン始動後の吐出量は毎分12lであった。

採水位置は、浄化器の吐出パイプの近く(A)と吐出方向の池の縁(B)、それと排水口の近く(C)の3箇所、それぞれの中層部一箇所に選定した。

浄化器の設置と採水位置等の略図を図-2に示す。

#### (3) 採水方法

図-2に示したA、B、Cの位置で、吸着前、後において各々1時間毎にプラスチック製のヒシヤクで池の水を汲み上げ、それを褐色のガラス瓶(100ml)に気泡が発生しないように口いっぱいまで満たした後、密栓し保冷剤を入れたクーラーボックスに収納した。

収納した試料は、作業終了後実験室に搬入して2~4℃の冷蔵庫に保管し、翌日にECD-GCでPCE等を分析した。

表-1 ACフェルトのPCE吸着能力

濃度単位=mg/l

通水量(ml)	0	100	200	300	400	500	600	700	800	900
空試験	1.0	0.67	0.72	0.74	0.74	0.74	0.73	0.70	0.70	0.70
ACフェルト通過	1.0	0.0062	0.0090	0.016	0.034	0.071	0.042	0.044	0.044	0.054
減少濃度	-	0.66	0.71	0.72	0.71	0.67	0.69	0.65	0.66	0.64
減少率(%)	-	99	99	98	95	90	94	94	94	92
通水量(ml)	1,000	1,100	1,200	1,300	1,400	1,500	1,600	1,700	1,800	1,900
空試験	0.68	0.68	0.66	0.73	0.78	0.77	0.79	0.68	0.70	0.68
ACフェルト通過	0.11	0.090	0.13	0.11	0.15	0.12	0.18	0.19	0.24	0.26
減少濃度	0.57	0.59	0.52	0.62	0.63	0.65	0.61	0.50	0.45	0.41
減少率(%)	83	87	80	85	81	85	77	73	65	61
通水量(ml)	2,000	2,100	2,200	2,300	2,400	2,500	2,600	2,700	2,800	2,900
空試験	0.69	0.71	0.69	0.70	0.70	0.71	0.70	0.69	0.72	0.70
ACフェルト通過	0.25	0.29	0.30	0.31	0.35	0.37	0.39	0.39	0.39	0.41
減少濃度	0.44	0.42	0.39	0.39	0.36	0.34	0.31	0.30	0.33	0.29
減少率(%)	64	59	57	56	51	48	44	43	46	41
通水量(ml)	3,000	3,100	3,200	3,300	3,400	3,500	3,600	3,700	3,800	3,900
空試験	0.70	0.69	0.68	0.70	0.68	0.68	0.69	0.66	0.67	0.67
ACフェルト通過	0.41	0.45	0.52	0.51	0.53	0.58	0.61	0.62	0.62	0.63
減少濃度	0.28	0.24	0.17	0.19	0.15	0.094	0.083	0.045	0.052	0.038
減少率(%)	41	35	24	27	22	14	12	6.7	7.7	5.6
通水量(ml)	4,000	4,100	4,200	4,300	4,400	4,500				
空試験	0.67	0.67	0.67	0.66	0.66	0.65				
ACフェルト通過	0.64	0.65	0.66	0.65	0.65	0.64				
減少濃度	0.029	0.018	0.0080	0.013	0.0090	0.010				
減少率(%)	4.3	2.7	1.1	2.0	1.4	1.5				

表-2 湧出池での吸着実験 濃度単位 (mg/l)

		0分	60分	120分	180分	240分	300分
A位置	TCE濃度	0.0047	0.0045	0.0042	0.0042	0.0040	0.0034
	変化率 (%)	-	-4.7	-11	-11	-14	-28
	累計 (%)	-	-4.7	-6.6	0	-3.0	-14
B位置	TCE濃度	0.0044	0.0044	0.0041	0.0039	0.0038	0.0035
	変化率 (%)	-	-1.8	-7.9	-12	-14	-21
	累計 (%)	-	-1.8	-6.1	-3.8	-2.3	-7.4
C位置	TCE濃度	0.0043	0.0043	0.0044	0.0039	0.0043	0.0036
	変化率 (%)	-	-0.5	3.0	-8.2	-0.2	-16
	累計 (%)	-	-0.5	3.5	-11	7.9	-16
	PCE濃度	0.16	0.17	0.15	0.14	0.13	0.12
	変化率 (%)	-	1.9	-11	-15	-26	-36
	累計 (%)	-	1.9	-13	-4.6	-10	-9.9
	PCE濃度	0.16	0.17	0.15	0.14	0.13	0.12
	変化率 (%)	-	2.9	-10	-13	-20	-26
	累計 (%)	-	2.9	-13	-2.2	-7.4	-6.3
	PCE濃度	0.16	0.17	0.15	0.14	0.13	0.12
	変化率 (%)	-	3.6	-5.5	-10	-18	-26
	累計 (%)	-	3.6	-9.1	-4.6	-7.7	-8.0

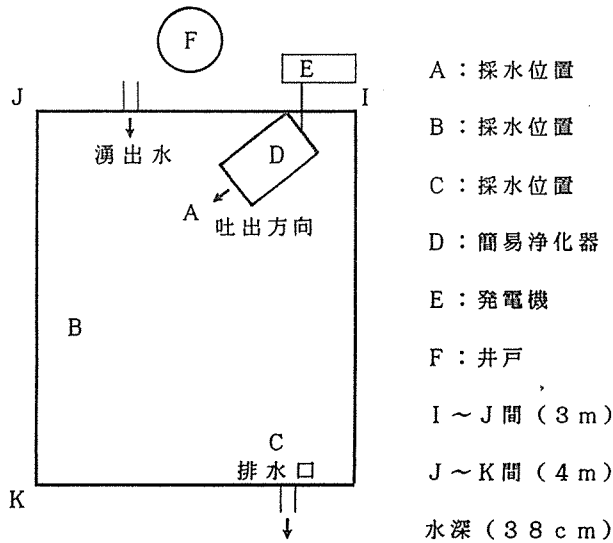


図-2 実験池の模式図

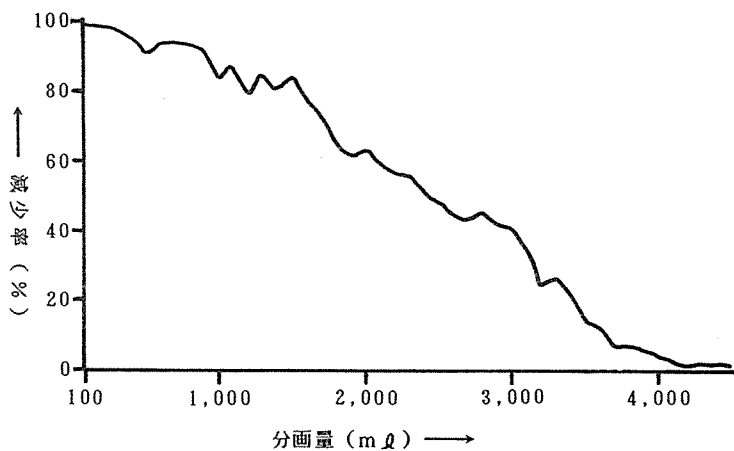


図-3 ACフェルトのPCE吸着能力

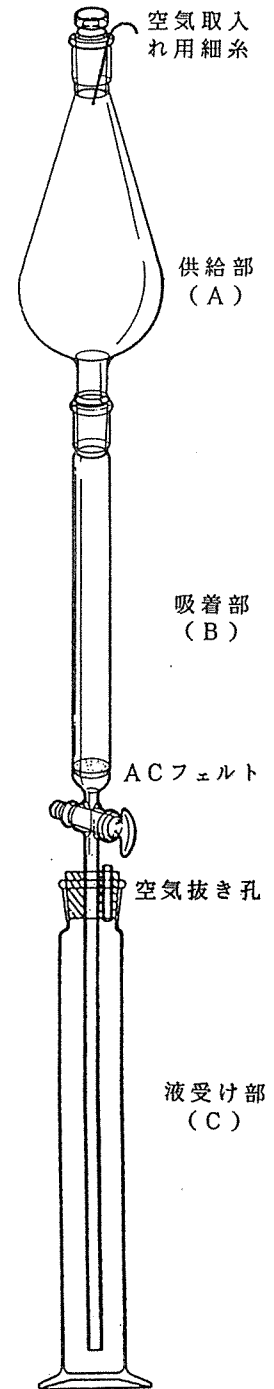


図-1 吸着実験装置



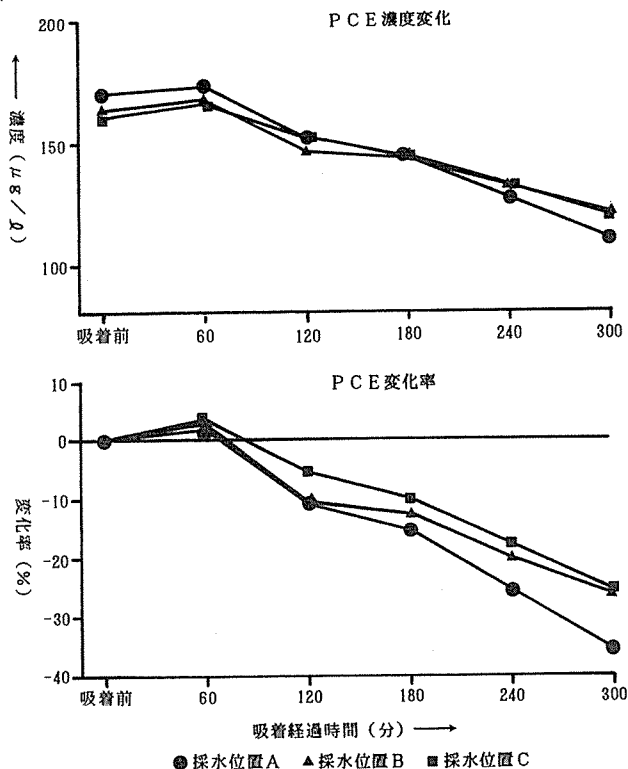


図-4 吸着時間経過による PCE の濃度変化と変化率

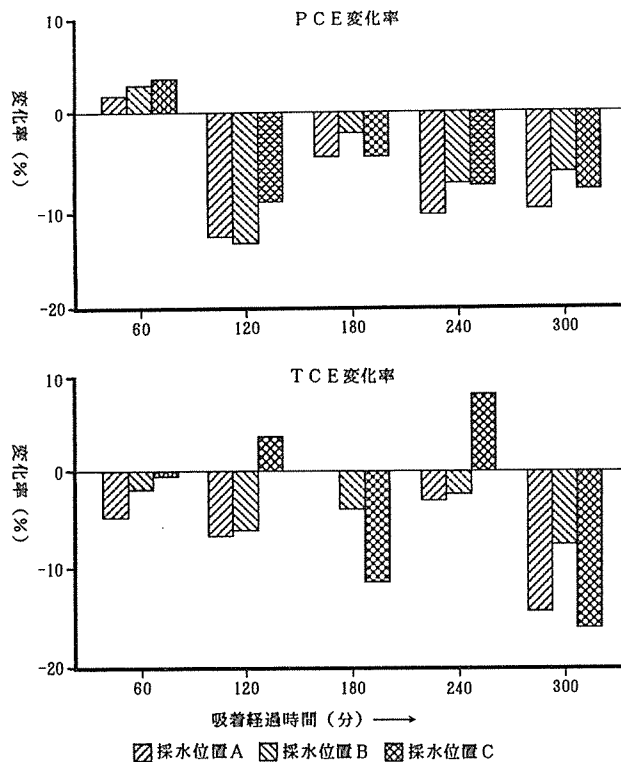


図-6 吸着時間単位の PCE と TCE の累計別変化

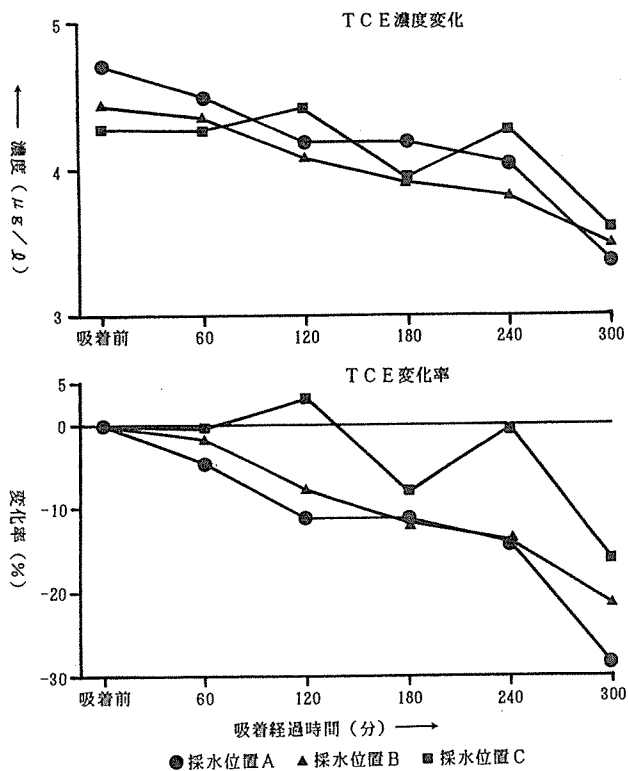


図-5 吸着時間経過による TCE の濃度変化と変化率

### 3. 結果と考察

#### 3-1 ACフェルトの吸着能力

##### 3-1-1 分画実験と考察

2-2-2の実験結果を表-1, 図-3に示す。試験水の PCE 濃度は 1.0mg/l であったが、空試験操作で平均 0.69mg/l に低下した。しかし、変動値は 4.5% と安定しているため、0.69mg/l を基準として吸着率を判断した。

実験結果を表-1 及び図-3 に示した。PCE 濃度の減少率は 900 ml の分画分までは 90% 以上の高い値となった。1,000~1,500ml までは 80~87%, 1,600~1,700ml までは 73~77% と PCE 濃度の減少率は、通水量の増加に従い徐々に漸減したが、3,000ml の通水量までは 40% 以上の吸着能力が示された。その後も徐々に吸着能力が低下し、4,200ml からは吸着平衡状態になった。この時点で AC フェルトは PCE で飽和されたことになる。

この結果から単純に計算すると、10g 程度の AC フェルトで 1.0 mg/l の PCE 含有水 300l を 0.1mg/l (排水基準値) 程度に吸着処理することが可能となる。また、この水を平衡濃度の 0.008mg/l 程度まで減少させるには、単独の装置で毎分 10l 程度の通水で循環吸着すれば達成できるものと考えられる。<sup>(1)</sup>

### 3-2 汚染地下水の湧水池におけるの吸着処理実験

#### 3-2-1 吸着時間と濃度変化

結果を表-2と図-4, -5, -6に示す。

実験開始時のA, B, C各位置でのPCE濃度は0.17mg/l, 0.16mg/l, 0.16mg/l, TCE濃度は0.0047mg/l, 0.0044mg/l, 0.0043mg/lであった。

湧水池におけるPCEおよびTCEの吸着処理実験結果を図-4と図-5に、各採水時毎のPCEとTCEの時間当たりの変化率を図-6に示した。

##### (1) PCEについて

PCEの濃度は、実験開始60分後においてA, B, Cの各採水位置でそれぞれ1.9%, 2.9%, 3.6%実験開始時の濃度より増加した。120分後からは実験開始時の濃度より減少し、実験終了時ではA位置で36%, BおよびC位置で26%減少した。

実験中全体では3時間吸着まで各採水位置で濃度減少傾向に変動があったが、その後はいずれの位置でも直線的に減少した。

##### (2) TCEについて

全体の傾向をみると、A位置では実験開始2時間後までは直線的に濃度が減少したが、その後4時間までは横ばいとなり、5時間後には大きく減少した。B位置では直線的な濃度の減少傾向を示し、C位置では2時間後に実験開始時の濃度より高くなるなど、大きく濃度変動しながら減少した。

実験終了時では、A位置で28%, B位置で21%, C位置で16%の濃度減少を示した。

今回は、浄化器の構造や携帯用発電機と作業時間等の制約から、PCEとTCEの最終の相平衡濃度までは確認できなかった。

## 4. おわりに

今回の実験では、池のため浮遊物質が多くACフェルトへの目詰まりが生じて作業効率が悪かったが、少量のACフェルトでPCE等による汚染地下水の浄化対策の一助に利用できることがわかった。

## 参考文献

- (1) 大場 栄次, 悪七 由美子: 水中に溶解したテトラクロロエチレンのフェルト状活性炭による吸着実験, 横浜市環境科学研究所報, 18, 87-90(1994).
- (2) 東洋紡績株式会社: KF装置技術資料, Kフィルター溶剤回収装置の特徴と実際例.
- (3) 大場 栄次, 二宮 勝幸, 酒井 学, 若林 信夫, 悪七 由美子: 穿孔採水による低沸点有機塩素化合物の地下水調査方法, 横浜市環境科学研究所報, 16, 99-104(1992).
- (4) 大場 栄次, 二宮 勝幸, 酒井 学, 若林 信夫, 悪七 由美子: 横浜市における低沸点有機塩素化合物の地下水調査, 横浜市環境科学研究所報, 16, 87-97(1992).
- (5) 大場 栄次, 若林 信夫, 成田 政義: エンジン付オーガーの開発, 横浜市環境科学研究所報, 17, 163-165(1993).

# ダイアジノンの密封条件下における分解性について

## —(I) ダイアジノン水溶液の分解性—

酒井 学\*

### 1. はじめに

ダイアジノン(図-1)は、有機リン系の殺虫剤として現在一般に使用されており、平成2年度の横浜市内河川中の農薬モニタリング調査においても、鶴見川より痕跡レベル(0.001mg/l以下)で確認された<sup>1)</sup>。この濃度は環境基準(要監視項目, 0.005mg/l)や水道水の基準(監視項目, 0.005mg/l)と比較するとかなり低い値であるが、ダイアジノンの分解性によっては、使用後も環境中や農作物に残存したりするという残留性や生物濃縮による生体への蓄積性が問題となるおそれがある。実際にダイアジノンの分解性に関しては、いくつかの研究機関で研究されており、塩素やオゾンで処理した場合、分解が確認されているが、塩素やオゾンで処理しない場合についても、分解性が認められるとしたもの、ほとんど認められないとしたものなど、さまざまな結論となっている<sup>2-11)</sup>。そこで今回ダイアジノンの水溶液に河川微生物を接種した系と接種しない系の2系列を調製し、微生物的分解性に関する実験、検討を行ったのでここに報告する。なお、分解性実験中の水やダイアジノンの大気への拡散による濃度変化を防ぐために、分解性実験にはアンプルで密封したものを用いた。

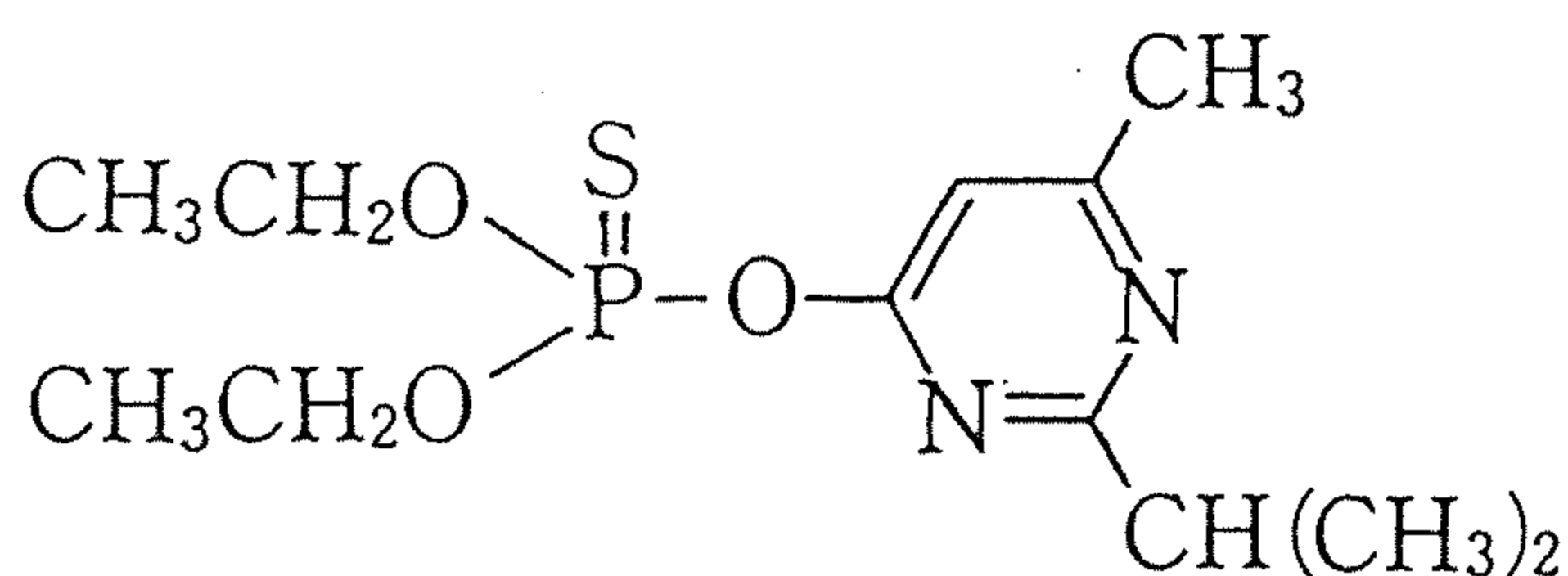


図-1 ダイアジノン

分子量 304, 沸点 83~84°C  
比重(d<sup>20</sup>) 1.12, 溶解度 40mg/l

### 2. 実験

#### 2-1 GC条件

ダイアジノンの測定にはGC(FPD検出器, HP5890 II)を用いた。カラムはDB1701(J&W社, 内径0.53mm, 長さ30m), 注入量2μl, オープン温度は200°Cとした。

#### 2-2 pH4, 7, 10のダイアジノン水溶液の調製及び添加回収実験

ペプトン(Difco社)及び酵母エキス(Difco社)を各々濃度が0.1g/lになるように蒸留水に溶解し、水酸化ナトリウム及び塩酸を用いてpH4, 7, 10の水溶液を調製した。このpHを調製した水溶液10mlにダイアジノン(和光純薬, 農薬標準品)のn-ヘキサン溶

液(ダイアジノン濃度0.051mg/l, 10ml)を加え、数分間手で振とう後、ヘキサン層を分取して濃縮管に移した。水溶液からのn-ヘキサン抽出を2~3回繰り返した後、窒素ガスパージにより定容(10ml)とし、GC分析を行った。

#### 2-3 分解性実験のためのダイアジノン水溶液の調製

ダイアジノンのn-ヘキサン溶液(51mg/l)2mlをとり、軽く窒素ガスをあてて、n-ヘキサンをとばした後、ペプトン及び酵母エキスを各々0.2g, 蒸留水2lを加えた。次にこの溶液を加圧ろ過滅菌(メンブランフィルター, ミリポア社, 孔径0.10μm)し、分解性実験のためのダイアジノン水溶液とした。

#### 2-4 ダイアジノン水溶液の分解性実験

容量10mlの褐色アンプルに2-3で調製したダイアジノン水溶液を無菌的に5.5ml入れて封入した系、及びダイアジノン水溶液に研究所近くの河川水(横浜市港南区上大岡の大岡川)を2μl/mlの割合で添加した後、封入した系の2系列を調製し、20°C, 暗所に保存した(図-2)。一週間ごとにアンプル(n=3, 35日後のみn=2)を開封してからn-ヘキサンによりダイアジノンを抽出し、GC分析を行った。

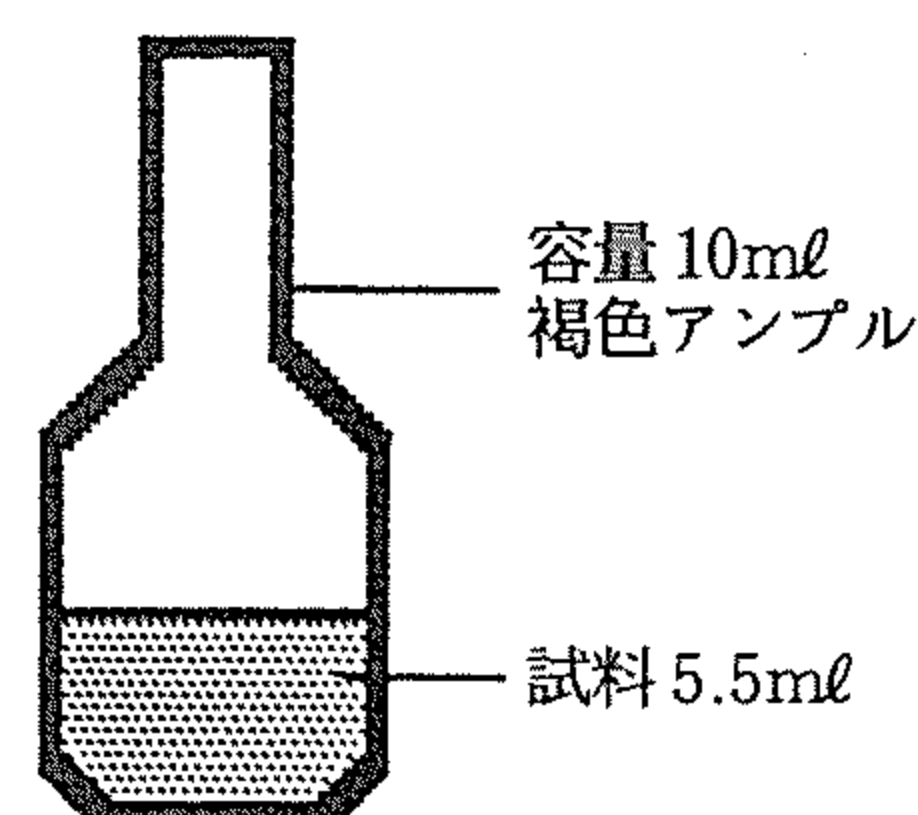


図-2 分解実験用アンプル

#### 2-5 ダイアジノン水溶液の加熱実験

容量10mlの褐色アンプルに2-3の順にて調製したダイアジノン水溶液(ただし加圧ろ過滅菌操作は省く)を5.5ml入れて封入し、80°Cの恒温槽(GC用, HP5890 II)に保存した。所定の時間が経過した後、アンプル(n=2)を開封してから、n-ヘキサンにより抽出し、GC分析を行った。

### 3. 結果及び考察

#### 3-1 pH4, 7, 10のダイアジノン水溶液からの添加回収実験

各pHにつき3回実験を行い、その結果を表-1に示した。いず

れの pH においてもダイアジノンは n-ヘキサンによりほぼ100%近く水溶液から回収され、変動係数(CV)も小さかった。今回の分析方法は、抽出に使用する n-ヘキサンの量が少ないために、無水硫酸ナトリウムによる脱水や KD 濃縮などの実験操作を省いており、通常の方法<sup>12,13)</sup>と比べて CV が小さく、高い回収率となったものと思われる。

なお、ダイアジノンの抽出方法としては他に固相抽出法<sup>12)</sup>も考えられるが、n-ヘキサンを用いた液液抽出でよい結果が得られたので、今回は検討しなかった。

表-1 ダイアジノン水溶液からの添加回収率

	1	2	3	平均	変動係数
pH-4	0.97	1.02	0.98	0.99	2.5
pH-7	0.98	1.01	1.01	1.00	1.3
pH-10	1.00	1.02	1.02	1.01	1.2

添加回収率 = (測定濃度) / (添加濃度)

### 3-2 ダイアジノン水溶液の密封条件下の分解性

2-3 で調製した直後のダイアジノン水溶液の濃度は 0.038mg/l であり、pH は 6.4 であった。添加量から計算すると濃度は 0.051 mg/l となるはずであるが、メンブランフィルターなどへの吸着により、減少したと思われる。

次に 0.038mg/l を初期量(100%)として、ダイアジノンの残存率を求めた。表-2 は n=3 の場合(35日後のみ n=2)の残存率の平均値であり、図-3 a), b) はその時の GC チャートである。無菌的に密封した系はダイアジノンの化学的安定性を示しており、35日後においても、87%が残存していた。ダイアジノンは塩素などが共存するとかなり速くオキソン体に変化したり<sup>2,4)</sup>、酸性条件下では分解が速い<sup>9)</sup> といった報告があるが、今回の条件(20°C, 暗所, pH6.4)ではあまり分解していなかった。

また、河川水を添加した系は、時間が経過するに従いアンプル中の溶液の混濁が見られ、アンプル中での微生物の増殖が認められた。今回の実験では測定しなかったが、後日、河川水を調べたところ BOD 6.5mg/l, 従属栄養細菌数  $4.2 \times 10^5$ /ml であり、今回の実験で従属栄養細菌は十分接種されたものと思われる。にもかかわらず、ダイアジノン残存率は無菌系とほとんど変わらなかったことから(表-2, 図-3 c), ダイアジノンは通常の河川水中の従属栄養細菌では分解しにくいものと思われる。なお実験終了後アンプルの pH を測定したところ pH 6.7 であり、開始時とほとんど同じであった。これは、培地成分として加えたペプトン及び酵母エキスの濃度が低かったために、微生物が増殖しても pH の変動が少なかったものと思われる。

表-2 ダイアジノン水溶液の残存率 (%)

	7日後	14日後	21日後	28日後	35日後
無菌系	96	97	95	92	87
河川微生物添加系	98	96	96	92	87

n = 3 (35日後のみ n = 2) の平均値

### 3-3 ダイアジノン水溶液の加熱分解実験

3-2 の結果よりダイアジノンの水溶液中での分解は、化学的反応が主であると考えられたので、ダイアジノン水溶液をアンプルに密封して 80°C に保存した。その結果、分解反応は促進され、10時間後にほぼ初期量の半分となり、72時間後には、ダイアジノンは消失していた(表-3)。なお、この時の GC チャート(図-3 d)には、ピークが認められないことから、オキソン体<sup>2,4)</sup>のような有機リンではなく、別の化合物に分解したものと推定される。

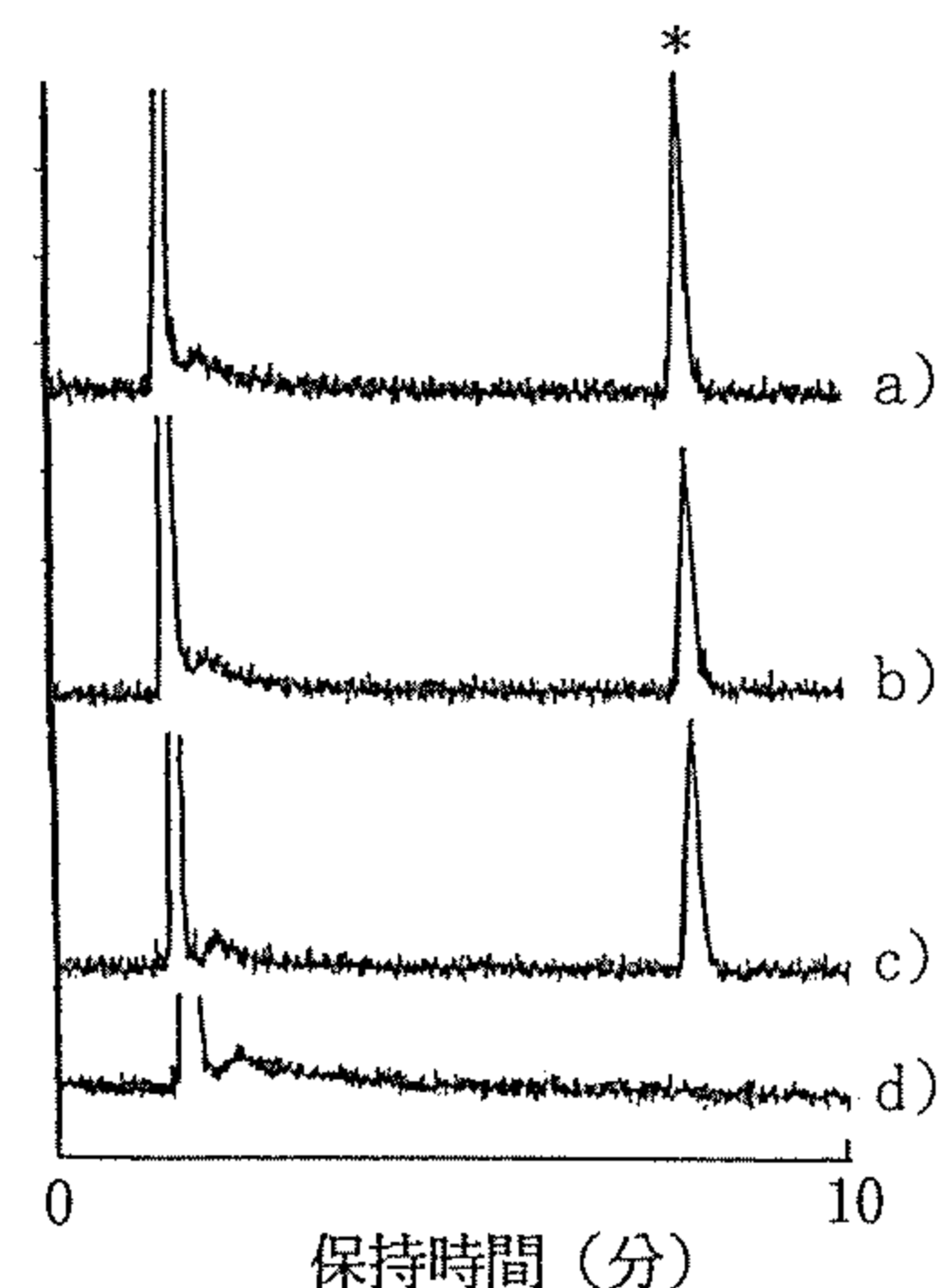


図-3 GC チャート

a) 実験開始直後, b) 35日後(無菌系),  
c) 35日後(河川微生物添加系), d) 80°C 72時間後  
\*がダイアジノンのピーク

表-3 ダイアジノン水溶液の加熱後の残存率 (%)

	2時間後	5時間後	10時間後	24時間後	72時間後
残存率	91	75	49	14	0

n = 2 の平均値

## 文 献

- 1) 酒井 学, 二宮勝幸: 横浜市内河川の農薬モニタリング, 横浜市公害研究所報, 15,135-141(1991).
- 2) 小野寺祐夫, 石倉俊治, 香川容子, 田中恵子: 塩素処理による水中有機物の化学変化(第1報) P=S型有機リン系農薬からP=O型の生成, 衛生化学, 22,196-205(1976).
- 3) 奥村為男: 水中農薬の塩素およびオゾンによる分解について: 水環境学会誌, 15,62-69(1992).
- 4) 森口泰男, 梅谷友康, 竹中勝信: 塩素処理による各種農薬の分解に関する室内実験, 大阪市水道局水質試験所調査研究ならびに試験成績, 44,48-57(1992).
- 5) 北森成治, 石黒靖尚, 大野健治, 鳥羽峰樹, 田中義人, 近藤絃之: 農薬の水環境における分解に及ぼす物理化学的・生物学的因子の影響, 用水と廃水, 34,477-484(1992).
- 6) 奥村為男, 西川嘉範, 第10回環境科学セミナー講演要旨集, 12-18(1993).
- 7) 早川修二, 佐来栄治, 加藤 進, 金丸 豪: 農薬の分解性について-蒸留水, 河川水, 海水での分解性の比較, 三重県環境科学センター研究報告, 12,26-30(1992).
- 8) 佐来栄治, 早川修二, 荒木恵一: 農薬の分解性について(第2報)-河川水, 滅菌河川水中での分解性の比較-, 三重県環境科学センター研究報告, 13,65-72(1993).
- 9) 山田 豊, 北野隆一, 長澤武夫, 森本温威: 農薬の分解性に関する検討(I)-有機りん殺虫剤の水中における分解-, 京都府衛公研年報, 36,136-143(1991).
- 10) 千葉いせ子, 齊藤 茂, 山田光一, 佐藤弘子, 嶋田美奈子, 渡辺 稔: ゴルフ場排水中の農薬の検出状況および検体保存による分解性について, 福島県衛生公害研究所年報, 9,40-48(1992).
- 11) 杉崎三男, 倉田泰人: 河川環境におけるゴルフ場関連農薬の挙動, 埼玉県公害センター研究報告, 19,64-75(1992).
- 12) 日本水道協会: 上水試験方法 1993年版, 363-425(1993).
- 13) 神奈川県環境部: ゴルフ場農薬環境調査測定法, 3-7(1990).

# 大岡川の水質と大腸菌群について

酒井 学\*

## 1. はじめに

大岡川は横浜市南部の円海山付近を水源として、横浜港と根岸湾に注いでいる(図-1)。源流部には、氷取沢や金沢といった市民の森及び農業専用地域(畑)が広がっており、上流から下流にかけては、住宅地や商業地(一部緑地)となっている。一方、支流の日野川では、源流付近から住宅地となっており、港南橋の500m下流で、本流に合流している。源流部の氷取沢市民の森及び中流部の上大岡周辺(青木橋～大久保橋)においては、階段を設けたり、自然石を利用した護岸(親水プロムナード)とし、市民にとっていこいの場所となっている。

しかし、平成2年に河川水の水質の細菌に関して調査を行ったところ、源流の氷取沢を除く水域で、従属栄養細菌や大腸菌群、糞便性大腸菌といった細菌による汚濁が認められたり。そこで今回測定地点を13地点と増やし、大岡川源流から流下するにつれて、大腸菌群及び水質一般項目がどのように変化するのか、下水道整備状況を参考にしながら検討を行った。

## 2. 実験

調査は平成5年8月の3日間に13ヶ所の測定地点で行った(図-1、表-1)。pH、電気伝導率(EC)、気温、水温は現地で測定し、それ以外の項目は研究所へ試料を持ち帰り分析を行った(表-2)。大腸菌群数はデスオキシコール酸塩寒天培地を用い36℃、20時

間培養後、0.5mm以上の大きさの紅色コロニーから算出した。また3地点各5個のコロニーについては、BGLB培地(36℃、48時間)を用いて大腸菌群の確認を行った。さらに2株については、EMB

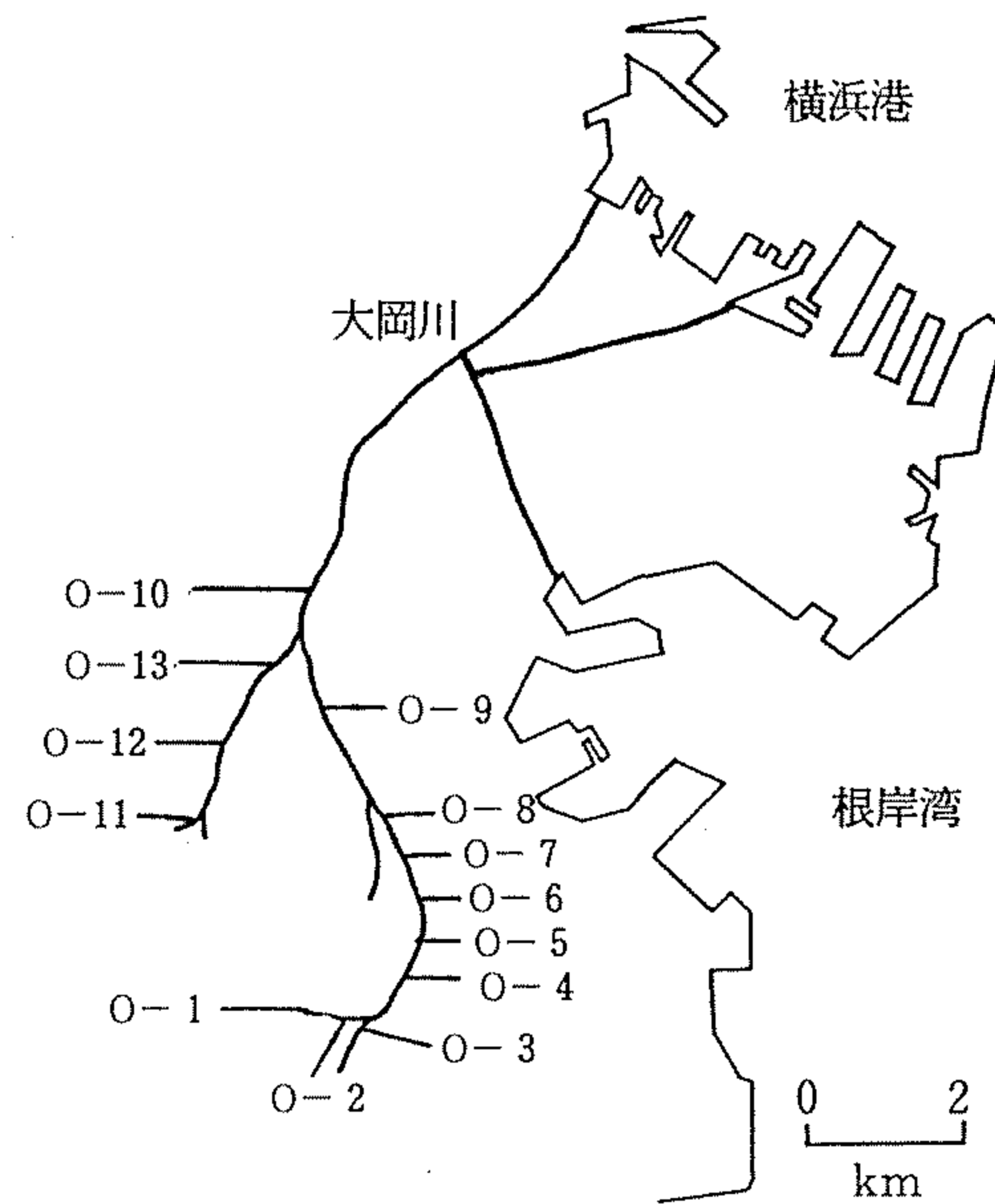


図-1 調査地点

表-1 測定地点及び河川形態

記号	調査地点	河川形態
O-1	氷取沢市民の森(源流)	自然状態
O-2	氷取沢市民の森(清戸川との合流直前の本流側)	自然状態及び一部三面コンクリート
O-3	氷取沢市民の森(清戸川、本流合流直前の清戸川側)	三面コンクリート
O-4	上之橋(氷取沢農業地域と集落との境界付近)	自然状態及び二面コンクリート
O-5	遠向橋(バス停下ヶ谷脇)	二面及び三面コンクリート
O-6	神戸橋(笹下釜利谷道路上中里交差点脇)	二面及び三面コンクリート
O-7	陣屋橋(笹下釜利谷道路杉田台入口交差点脇)	二面コンクリート
O-8	塩木戸橋(バス停栗木町脇)	二面コンクリート
O-9	日下橋(バス停打越脇)	二面コンクリート
O-10	大久保橋(上大岡、鎌倉街道慰霊堂交差点脇)	二面コンクリート(自然石を利用した親水護岸)
O-11	鎌倉街道金井付近(日野川、バス停金井脇)	三面コンクリート
O-12	日野橋(日野川、鎌倉街道野庭団地入口交差点脇)	二面及び三面コンクリート
O-13	港南橋(日野川、港南中学校横)	二面及び三面コンクリート

寒天培地で分離後、純粋培養を行い、バイオテスト(硫化水素、ONPG、VP、インドール、オキシダーゼ、糖からの酸生成を組み合わせた市販の同定キット)により同定した。

表-2 分析項目と分析方法

BOD	JIS法 <sup>2)</sup>
COD	JIS法(100℃、過マンガン酸カリウム法) <sup>3)</sup>
NH <sub>4</sub> -N	上水試験法(インドフェノール吸光光度法) <sup>4)</sup>
NO <sub>2</sub> -N	JIS法(ナフチルエチレンジアミン吸光光度法) <sup>5)</sup>
NO <sub>3</sub> -N	JIS法(イオンクロマト法) <sup>6)</sup>
PO <sub>4</sub> -P	JIS法(モリブデンブルー吸光光度法) <sup>7)</sup>
SO <sub>4</sub> -S	JIS法(イオンクロマト法) <sup>8)</sup>
大腸菌群	JIS法(デスオキシコール酸塩寒天培地法) <sup>9)</sup>

### 3. 結果及び考察

#### 3-1 大岡川の水質測定結果

水質測定結果を表-3に示した。河川の有機性汚濁の指標であるBODはいずれの地点においても環境基準の10mg/l以下を満足しており、特に源流(O-1)から上之橋(O-4)まではBOD0.5mg/l以下と極めて良好であった。遠向橋(O-5)、神戸橋(O-6)と流下するにつれて、流域のほぼ100%に下水道が整備されているにもかかわらず、BODがわずかながら増大した。陣屋橋(O-7)より下流においては、未だ下水道の未整備の場所がわずかに残っており、家庭雑排水の流入により、BODが増えたものと思われる。なお、横浜市の測定地点である日下橋(O-9)では、以前はBODが10mg/lを越えることもしばしばあったが、大岡川流域の下水道普及率が97%(横浜市環境保全局水質地盤課平成4年度推計値)と下水道整備が進むにつれて良好化し、平成5年度の平均値は3.9mg/l<sup>10)</sup>であった。今回の調査では、日下橋は2.9mg/lであり、平均値よりも低かった。一方支流の日野川では、BODの値は、4.0~4.6mg/lと大岡川本流と比べて高い値であった。これは、流域の下水道普及率が96%(横浜市環境保全局水質地盤課平成4年度推計値)と本流に比べてやや低く、日野橋(O-12)、港南橋(O-13)の周辺には数地点下水道未整備の場所が残っているためと思われる。

NH<sub>4</sub>-Nに関しては、源流部から陣屋橋(O-1~7)までは、

0.10mg/l以下で、塩木戸橋(O-8)と日下橋(O-9)で0.14mg/lであった。一方支流の日野川では上流の金井付近(O-11)においても0.10mg/lであり、日野橋(O-12, 0.29mg/l)、港南橋(O-13, 0.40mg/l)と他と比較して高濃度であった。これは両地点の周辺に比較的多くの下水道未整備の場所が残っていたためと思われる。

NO<sub>3</sub>-Nは源流部(O-1)においても1.0mg/lを超えており、NH<sub>4</sub>-Nと比べて上流~中流の差が少なかった。

PO<sub>4</sub>-Pは上大岡(O-10, 0.094mg/l)、港南橋(O-13, 0.115mg/l)において高かった。PO<sub>4</sub>-Pは地質中に広く存在するために自然水中にも微量存在するといわれるが<sup>11)</sup>、大岡川中流以降でPO<sub>4</sub>-Pが高いのは、排水や底質からの溶出による影響が大きいものと思われる。

#### 3-2 大岡川の大腸菌群について

大腸菌群の測定結果を表-3に示した。測定地点O-1は円海山(標高153m)のふもとで、氷取沢市民の森となっており、建築物や田畑は存在しない。ここでの大腸菌群は9/mlとなり、測定方法に多少の違い(デソ法とMPN法)はあるものの、水道2級(沈殿ろ過等による通常の浄水操作を行うもの)原水の基準(大腸菌群1000MPN/100ml以下)にほぼ適合している。清戸川(O-3)の上流には金沢市民の森以外に自動車専用道路や自然公園などの施設があり、大腸菌群は56/mlと源流域にしてはやや多かった。上之橋(O-4)周辺は森及び畑であり、この上流には人家がないが、ここより下流には人家が認められる地点であり、この大腸菌群は45/mlであった。上之橋(O-4)~遠向橋(O-5)~神戸橋(O-6)の流域ではほぼ100%下水道(分流式)が整備されているにもかかわらず、流下するにつれて大腸菌群数は増大し、神戸橋では、200/mlとO-1の10倍以上であった。なお、陣屋橋(O-7)では、調査時にアズラハヤシマドジョウといった指標種<sup>12)</sup>が認められたので、水生生物的には「きれい」と分類されるにもかかわらず、大腸菌群は100/mlであった。陣屋橋より下流には下水道未整備の場所が残っており、大腸菌群は、塩木戸橋(O-8)で290/ml、日下橋(O-9)で530/mlと流下するに従い増大した。

一方、日野川は付近がほとんど下水道整備地域である上流部の金井付近(O-11)においても大腸菌群170/mlと氷取沢に比べて多く

表-3 大岡川水質測定結果

調査地点	調査期日	気温(℃)	水温(℃)	pH	EC*(μS/cm)	BOD(mg/l)	COD(mg/l)	NH <sub>4</sub> -N(mg/l)	NO <sub>3</sub> -N(mg/l)	NO <sub>2</sub> -N(mg/l)	PO <sub>4</sub> -P(mg/l)	SO <sub>4</sub> -S(mg/l)	大腸菌群(/ml)
O-1	5.8.12	23.2	17.5	8.0	210	0.2	3.0	0.02	1.14	0.00	0.011	7.2	9
O-2	5.8.12	24.5	19.4	8.1	280	0.2	2.4	0.02	1.40	0.00	0.020	11.0	26
O-3	5.8.12	24.5	19.9	8.5	690	0.4	3.0	0.09	0.95	0.01	0.013	57.3	56
O-4	5.8.12	28.2	19.6	8.1	720	0.2	3.1	0.05	1.61	0.00	0.010	61.1	45
O-5	5.8.12	29.3	22.2	8.4	680	1.0	3.5	0.05	1.71	0.00	0.008	59.7	97
O-6	5.8.12	27.7	24.1	8.5	620	0.8	3.9	0.01	1.71	0.01	0.011	55.3	200
O-7	5.8.19	26.2	22.2	8.7	770	1.0	3.8	0.08	0.74	0.01	0.010	64.7	100
O-8	5.8.19	25.6	22.6	8.6	750	2.9	4.9	0.14	0.79	0.01	0.019	64.2	290
O-9	5.8.19	27.1	22.3	8.6	570	2.8	3.9	0.14	1.32	0.04	0.034	33.4	530
O-10	5.8.19	27.4	23.5	8.4	540	3.0	5.4	0.36	1.47	0.08	0.094	42.4	350
O-11	5.8.26	25.0	21.9	7.9	480	4.1	3.2	0.10	1.45	0.02	0.043	34.9	170
O-12	5.8.26	26.8	22.3	8.4	730	4.0	5.9	0.29	1.08	0.13	0.044	64.0	880
O-13	5.8.26	27.0	23.0	8.2	710	4.6	6.3	0.40	1.51	0.21	0.115	56.2	210

\*25℃換算値

の大腸菌群を認めた。これは周囲が住宅地であるといった水辺環境の違いによるものと思われる。また日野橋(0-12)～港南橋(0-13)周辺には大岡川の流域の中で比較的多くの下水道未整備地域が残っており、日野橋では880/mlと今回の調査で最も多くの大腸菌群が河川水中に存在していた。そして合流後の大久保橋(0-10)においては、大腸菌群350/mlと、前回の測定値(1100/ml)より減少が認められたものの、依然として高い数値を示した。

### 3-3 大腸菌群の確認および検討

最後にデソキシコール酸塩寒天培地に生じたコロニーが大腸菌群に属する細菌であるかについて確認を行った。陣屋橋(0-7)、大久保橋(0-10)、港南橋(0-13)について各5個ずつ白金針を用いて釣菌し、BGLB培地に植えて培養したところ、表-4の結果となり、ほとんどのコロニーがBGLB培地においても陽性を示した。更に港南橋(0-13)のBGLBで陽性を示した試験管の中から2株をEMB培地を用いて分離し、純粋培養した後、バイオテストにより同定を行ったところ、大腸菌群に属する *Klebsiella oxytoca* 及び *K.pneumoniae* であった。なお人の糞便中の大腸菌群は、*Escherichia coli* が優占種で、*K.pneumoniae* がそれに次ぐとされていること<sup>13)</sup>、また、*K. oxytoca* は糞便性大腸菌群の中から

表-4 デソ寒天培地上のコロニーのBGLBでの確認試験

	陣屋橋(0-7)					大久保橋(0-10)					港南橋(0-13)				
	1	2	3	4	5	1	2	3	4	5	1	2	3	4	5
陽性率	+	+	+	+	-	+	+	-	+	+	+	+	+	+	+
	4/5					4/5					5/5				

+ 陽性, - 陰性

分離された例が少ないこと<sup>14)</sup>を考慮に入れると、今回の河川水中の大腸菌群の多くは直接人の糞便より由来したものよりも、有機性汚濁に付随して底質や懸濁物質中で増殖したものと思われる。

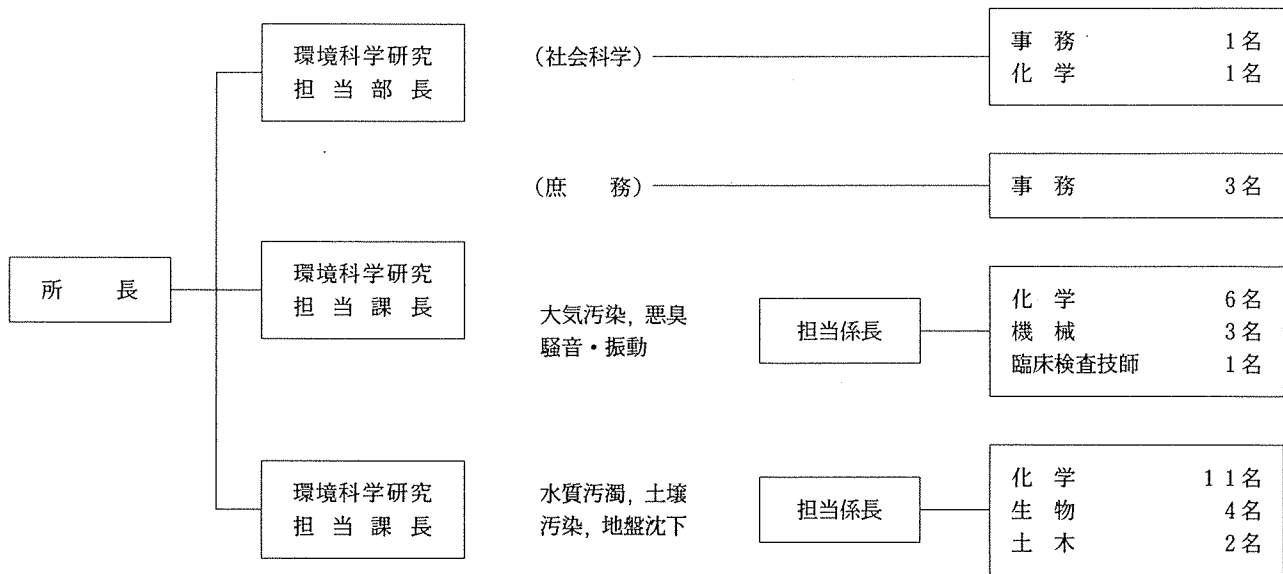
### 謝 辞

横浜市内の下水処理区域及び下水道普及率に関してご教示いただきました、横浜市下水道局業務課及び環境保全局水質地盤課に感謝いたします。

### 文 献

- 1) 酒井 学：横浜市内親水河川の各種細菌数について，横浜市環境科学研究所報，16,141-142(1992).
- 2) 日本規格協会：JIS K 0102，48-53(1993).
- 3) 日本規格協会：JIS K 0102，41-43(1993).
- 4) 日本水道協会：上水試験方法，188-189(1993).
- 5) 日本規格協会：JIS K 0102，156-157(1993).
- 6) 日本規格協会：JIS K 0102，164-165(1993).
- 7) 日本規格協会：JIS K 0102，178-180(1993).
- 8) 日本規格協会：JIS K 0102，145-146(1993).
- 9) 日本規格協会：JIS K 0102，297-298(1993).
- 10) 横浜市環境保全局：横浜環境白書平成6年版，150(1994).
- 11) 日本水道協会：上水試験方法解説編，237-239(1993).
- 12) 横浜市環境保全局：横浜の川と海の生物(第6報)，1-40(1992).
- 13) 古畑勝則，松本淳彦：糞便汚染指標細菌としての大腸菌群に関する検討(第2報)，東京衛研年報，36,326-334(1985).
- 14) 水上依乃，芹川俊彦，本庄峰夫，木村晋亮：河川水中の糞便性大腸菌群に関する研究(第2報)－石川県内の10河川の調査結果－，石川保環年報，30，305-310(1993).

1. 人員及び組織



(平成6年12月1日現在)

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	VG アナリティカル Auto Spec	1式	第二機器分析室
走査型電子顕微鏡	日立 S-4500	1式	電子顕微鏡室
同上用 X 線分析装置	The Kevex DELTA レベル3	1式	電子顕微鏡室
蛍光 X 線分析装置	理学電機システム 3270	1式	第二機器分析室
原子吸光光度計	日立 Z-8000外	2式	第一機器分析室
ガスクロマトグラフ装置	島津 GC-14AEC外	14式	第三機器分析室
液体クロマトグラフ	島津 LC-4A, LC-6A	2式	第二機器分析室
赤外分光光度計	日本分光 3A	1式	恒温室
光化学反応実験装置	600A スモークチャンバー	1式	恒温室
分光光度計	ダブルビーム自記 日立200-10型 外	4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	柳本 AMD	1式	第一機器分析室
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
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
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 外	3台	第二大気実験室
オキシダント自動記録計	電気化学	1台	第二大気実験室
オゾンメータ	京都電子工業 OX-21	1台	第二大気実験室
風向風速計	海上電機 WA-200 外	2台	第二大気実験室
イオン濃度測定装置	オリオン 801A型	1台	第二大気実験室
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	NAGRAIV-SJ型	1台	騒音研究室



品名	規格	数量	配置
騒音振動解析装置	ONO CF-360	1式	騒音研究室
騒音振動データ処理装置	YHP 310 AJ	1式	騒音研究室
慢性毒性試験装置(魚用)	関東工機製作所製 外	2式	生物研究室
波高分析機	東芝 USC-1 MODEL 10	1式	元素分析室
電子計算機	ACOS3300(賃借)	1式	電子計算機室
微粒子自動計測器	ロイコ社 MODEL226	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 S43-3 UL-1	1台	地盤沈下研究室
ソイルミキサー	丸東 SE-27	1台	地盤沈下研究室
一軸圧縮試験装置	丸東 SG-2033	1式	地盤沈下研究室
核磁気共鳴装置	日立製作所 R-600型	1式	第二機器分析室
凝縮核モニター	日本化学工業 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 UN61430W	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 4500i	1台	第二大気実験室
全有機炭素分析計	ベックマン MODEL 915-B	1台	第一機器分析室
高精度 NOx	ダイレック社 DY8400型	1台	第二大気実験室
高精度オゾン計	紀本電子工業製	1台	第二大気実験室
高精度弾性波速度測定装置	丸東製作所製	1台	地盤沈下実験室
炭素・水素・窒素(CHN)分析計	柳本 CHNコーダー MT-3型	1台	第二大気実験室
クロロフィルメータ	ターナーデザイン社 MODEL10-00OR	1台	生物研究室
電気炉	西村工業製	1台	第一水質実験室
三軸圧密試験記録装置	理研電子製	1台	地盤沈下実験室
1/3オクターブ実時間自動分析装置	リオン SA-25	1式	騒音研究室
凍結濃縮装置	大洋科学工業 FC-6	1式	第二水質実験室
水生植物による水処理実験装置	当研究所設計	1台	処理実験室
煙道用水銀連結分析計	日本インスツルメンツ DM-C1	1式	工学実験室
圧密自動記録装置	理研電子 MODEL DACT-6	1式	地盤沈下実験室
風向別制御装置	日本公害防止技術センター WDP-100	1式	屋上
パーソナル・ダストモニタリングシステム	柴田科学 PDS-1	1式	恒温室
コンポジット・サンプラー	日科機 S-4081	1式	第一機器分析室
データ収録分析装置	理研電子製	1式	地盤沈下実験室
粒度分布測定装置	島津 SA-CP3L	1式	第三水質実験室
パン型製粒機		1台	屋外
超低温マイクローム	共栄オリンパス クライオトーム	1個	恒温室
液体クロマトグラフ用蛍光モニター	日立 F-1150	1式	第二機器分析室
揮発性分混合ガス発生装置	紀本電子製 SS-1002	1式	第二大気実験室
特殊材料ガス環境用試料採取装置	三紳工業製	1式	標準ガス調整室
高精度自動体積計	エステック VM-100	1式	処理実験室
環境物理測定装置	RM-5220	1式	生物研究室

3. 平成5年度 予算額

(単位：千円)

科目	金額	付記
共済費	1,539	社会保険料
賃金	10,263	
報償費	566	
旅費	1,922	普通旅費
需用費	70,259	消耗品費 24,965
		燃料費 280
		食糧費 555
		印刷製本費 4,652
		光熱水費 29,622
		修繕料 10,185
役務費	3,040	通信運搬費 1,538
		手数料 1,340
		筆耕翻訳料 162
委託料	51,037	調査委託料 15,222
		清掃その他委託料 35,815
使用料及び賃借料	80,871	
工事請負費	3,708	
備品購入費	15,750	
負担金補助及び交付金	300	会費及び負担金
公課費	0	
計	239,255	

管理運営費	93,391
試験検査費	11,042
主要機器維持管理運営費	11,086
調査研究事業費	33,300
機器等整備事業費	14,400
施設改修工事費	3,708
環境教育啓発等その他事業費	4,340
大型機器更新整備事業費	31,762
ガスクロマトグラフ質量計更新事業	23,962
農薬分析装置導入	8,185
原子吸光分析装置導入	4,079
計	239,255

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
日本地質学会第100年学術大会	1993. 4	横浜市における帯水層の地質環境	○杉本 実
		古多摩川流域に分布する礫層の追跡調査と地盤沈下の一考察	○杉本 実・梅原順造, 島村雅英 (横浜環保局)
International Conference (The Environment and Geotechnics. PARIS)	1993. 4	Land Subsidence due to Change of Groundwater Level	M.Sugimoto, M.Akaishi and ○ K. Gokudan (Tokai University)
日本リモートセンシング学会 第15回学術講演会	1993. 5	リモートセンシングによる水質情報把握のための基礎的検討(1)ーランドサットTMバンド間の関係ー	○水尾寛己・二宮勝幸・前川 渡, 岡 敬一・吉見 洋 (神奈川県環科セ)
		リモートセンシングによる水質情報把握のための基礎的検討(2)ーランドサットTM各バンドと水質との関係ー	○岡 敬一・吉見 洋 (神奈川県環科セ), 水尾寛己・二宮勝幸・前川 渡
神奈川県公害研究機関協議会 公害研究合同発表会	1993. 6	エンジン付オーガの開発	○大場栄次, 若林信夫・悪七由美子 (横浜環保局), 成田政義 (離合社)
		横浜の淡水魚類相の現状と変遷	○樋口文夫・水尾寛己・福嶋 悟・梅田 孝, 島中潤一郎・阿久津卓 (横浜環保局)
		都市域における林内雨・樹幹流ー樹木内外雨の成分組成と年間降水量ー	○矢本てるみ・加藤善徳
		横浜市民の音環境意識	○鹿島教昭
第28回土質工学研究発表会	1993. 6	横浜の地盤沈下地帯における層別沈下と間隙水圧の変動	○杉本 実・梅原順造, 赤石 勝 (東海大)
全公研関東甲信静支部騒音振動専門部会	1993. 7	横浜市における環境騒音調査 (第2報)ー幹線道路からの距離及び隣接道路の車線数で分けた屋外と屋内の騒音ー	○鹿島教昭
日本第四紀学会	1993. 8	貝類群集からみた横浜港内の現生堆積物における環境変遷	○松島義章 (神奈川県立博物館), 白柳康夫
全国公害研協議会関東甲信静支部水質専門部会	1993. 8	横浜港の水質・底質汚濁に関する調査について	○白柳康夫
日本騒音制御工学会技術発表会	1993. 9	家屋内外の24時間LAeq測定ー横浜市の現状ー	○鹿島教昭
		音環境に関する横浜市民の意識ーその2. 車の音と自然の音の聞こえのランクによる分析ー	○澤田淳也 (ニチアス), 田村明弘 (横浜国大), 鹿島教昭

学会大会名	年月	題名	発表者・共同研究者
日本音響学会秋季講演発表会	1993.10	音環境に関する地域住民の意識 -その1. 横浜市内の5住宅地における調査-	○嶋理恵子(旭ガラスアメニテック), 田村明弘(横浜国大), 鹿島教昭
		視覚障害者と地域音環境のあり方についての 基礎的考察	○太田篤史・田村明弘(横浜国大), 鹿島教昭
		音環境に関する横浜市民の意識 -その2. 悩まされる音について-	○鹿島教昭, 田村明弘(横浜国大)
		音環境に関する横浜市民の意識 -その3. 静けさの因子“車の音・自然の音”-	○大熊輝之・田村明弘(横浜国大), 鹿島教昭
		視覚障害者と地域音環境のあり方についての 基礎的考察	○太田篤史・田村明弘(横浜国大), 鹿島教昭
廃棄物学会第4回研究発表会	1993.10	鉱油系廃油の資源化利用	○野木一男, 青柳博英(大進熱機)
日本陸水学会第58回大会	1993.11	丘陵地源流部の藻類群集構造に影響を及ぼす 要因	○福嶋 悟
日本地質学会環境地質研究委員会 第3回環境地質シンポジウム	1993.11	横浜沖積層の堆積環境と地盤沈下(2) -帷子川流域の調査結果-	○杉本 実・梅原順造
		横浜地域の震央集中の地質構造と浅発地震の 発生について	○三梨 昂(元 島根大), 杉本 実
大気汚染学会	1993.12	光化学スモッグ注意報発令直後の降水の成分 濃度 -降水とHNO <sub>3</sub> ガスの同時採取-	○加藤善徳, 矢本てるみ
		石炭燃焼に伴う煙道内凝縮性粒子について	○佐俣満夫
		ランドサットデータによる横浜市域の夏期温 度分布と植生の影響	○佐俣満夫
		ヒートアイランド解析のためのNVIモデル -人工衛星データによるモデル化-	○佐俣満夫
		横浜市内における浮遊粒子状物質の平日およ び休日の挙動	○新井久雄, 白砂裕一郎
		南関東地域での年末年始時における浮遊粒子 状物質の高濃度事例	○新井久雄, 太田正雄, 白砂裕一郎, 一都三県二市南関東SPM検討会
		β線式浮遊粒子状物質自動測定器の測定精度 について(2)	○白砂裕一郎, 新井久雄
		神奈川県臨海地区におけるフロン及び有機塩 素系物質の環境濃度調査(Ⅲ) 拡散型サンプラー法による濃度分布	○前田裕行 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)

学会大会名	年月	題名	発表者・共同研究者
大気汚染研究協会国際セミナー		拡散型 NO, NO <sub>2</sub> サンプラーの温度影響とその補正方法について	○平野耕一郎, 前田裕行・松田啓吾 (横浜市環境監視センター)
		紫外線吸収法高精度オゾン計の検討	○平野耕一郎
1994年国際公害鑑定技術検討会	1994. 2	Monitoring methods of NO <sub>x</sub> using diffusional sampling devices	○Koichiro HIRANO
1994年国際公害鑑定技術検討会	1994. 2	Technique to identify the cause of accidental fish's death, and Assessing waterquality by biological indicator	○水尾寛己
日本薬学会第114年会	1994. 3	ダイアジノン水溶液の密封系における分解性について	○酒井 学
第28回日本水環境学会年会	1994. 3	テトラクロロエチレンの分解反応モデルを用いた地下水汚染の解析方法(第4報)	○二宮勝幸
		ランドサットデータと東京湾水質との関係	○水尾寛己・二宮勝幸・前川 渡, 岡 敬一・吉見 洋(神奈川県環科セ)
		都市河川の水質回復に伴う藻類群集の変化	○福嶋 悟
大気汚染研究協会測定基本問題分科会, 関東支部測定方法部会講演会	1994. 3	湿式自動測定器の現状	○平野耕一郎

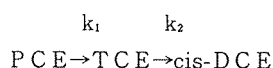
## 5. 雑誌等投稿

雑誌名	発行年月	執筆者	題名
環境とリモートセンシング（第1回）テキスト（日本リモートセンシング学会）	1993.9	水尾寛己	クロロフィルのリモートセンシング

（要旨） ランドサットTMデータによるクロロフィル濃度の推定をおこなう上での問題点及び推定法について、今までの研究成果をもとにまとめた。エアロゾルの影響の弱い場合と強い場合、及び無機懸濁物質の影響が強い場合それぞれについて、TMデータとクロロフィル量との関係の特徴から検討した。

雑誌名	発行年月	執筆者	題名
水環境学会誌	1993.10	二宮勝幸・酒井 学	分解反応モデルによるテトラクロロエチレンおよびその分解物質の挙動

（要旨） テトラクロロエチレン（PCE）の微生物分解実験によると、PCEはトリクロロエチレン（TCE）を経てシス-1,2-ジクロロエチレン（cis-DCE）まで分解し、その分解反応は次の連続一次反応式でよく近似できる。



この分解反応モデルの理論によると、速度定数の比  $k_2/k_1$  が同じモデル間では時間軸のスケールが異なるだけで各化合物の経時濃度変化は同一のパターンを示すという特徴がある。この速度論的特徴を応用することによって、実際の汚染地下水について現在の分解状況の把握や今後の濃度推移の予測が可能であることを明らかにした。

雑誌名	発行年月	執筆者	題名
日本音響学会誌	1993.10	鹿島教昭, 田村明弘（横浜国大）	植樹帯による減音効果（第2報） — 幼木を用いた縮尺模型実験 —

（要旨） 無響室内において、幼木から成る縮尺1/10の植樹帯模型を完全反射性の模型地表面上に設け、樹高（0.11, 0.22, 0.33m）、幅（0.15, 0.3, 0.6m）及び植栽密度（1,2,4本/0.01m<sup>2</sup>）を変え、挿入損失を20~100kHzにわたり詳細に求めた。挿入損失は周波数の低域では大略ゼロ、中域で負となるが、高域では周波数と共に増大する。この結果は第1報に報告した実際の植樹帯を用いた実験結果の再現であり、この種の研究における模型実験の有効性を明らかにした。中域での負の挿入損失は、模型地表面による過剰減衰が植樹帯の設置により妨げられた結果生じる音の見かけの増幅である。挿入損失は、単位体積当りの葉面積（葉面積密度）Fと音が通過する植樹体内部での距離Lとの積から成る“葉面積数”FLに比例し、比例係数は樹種毎に周波数の増加と共に大きくなるが、特に高周波数域ではほとんど樹種に無関係となることも明らかにした。

雑誌名	発行年月	執筆者	題名
用水と廃水	1994.2	二宮勝幸	河川水質データの時系列解析 — 気象および社会因子による過去15年間の水質変化 —

（要旨） 有機汚濁程度の比較的高い都市河川について、過去15年間の公共用水域水質測定結果を用いた時系列解析を行った結果、水質時系列の変動成分には、季節変動のほかに、3年程度の周期変動や減少および増加のトレンドが認められた。3年程度の周期変動は、地球規模の気象変動に伴う年々の降雨量の増減に起因するもので、降雨量の多い年にBODなどの有機汚濁物質は希釈効果により低濃度を示し、NO<sub>3</sub>-Nは中間流出の影響が高まるため高濃度を示した。減少のトレンドはBODやPO<sub>4</sub>-Pなどに現れ、その要因は下水道の普及や無リン洗剤への転換などであった。NO<sub>3</sub>-Nに関しては増加のトレンドを示し、それはNH<sub>4</sub>-Nの硝化反応の促進や地下水の窒素汚染の影響によるためと考えられた。また、NH<sub>4</sub>-Nについても、少し増加のトレンドが認められた。NO<sub>3</sub>-NとNH<sub>4</sub>-Nは増加しPO<sub>4</sub>-Pは減少してきているので、N/P比は増加し、富栄養化の制限因子はNからPに変わった。

雑 誌 名	発行年月	執 筆 者	題 名
神奈川自然誌資料	1994.3	松島義章（神奈川県立博物館），白柳康夫	貝類群集からみた横浜港最奥の現生堆積物における環境変遷

（要 旨） 横浜港の水域環境変遷を港内に沈積している現生堆積物中の貝類に焦点を絞り，その生態的特徴と貝類遺骸群集の消長から，環境悪化の様子を探った。その結果，確認できた貝類遺骸群集はシズクガイを優占種とする内湾停滞域群集へ内湾泥底群集構成種が加わる混合群集であった。その産出層準が深度51cm以深であり，年代では1965年以前を示す。この混合群集の産状からみて湾内環境は，1965年頃までは多くの貝類が生息できる状態にあったが，それ以降はシズクガイだけの分布する環境に急変した。この環境悪化には，重金属汚染等の他に，港を取り巻く地域の1960年から1970年にかけての急激な都市化が大きく関与していることが明らかとなった。

6. 環境科学研究所発行資料（調査研究等報告書）

環境研資料	報 告 書 名	発 行 年 月
No. 108	第17回環境セミナー公募作品集 調べてみよう身近な環境－水・みどり・まち－	1993. 12

（要 旨） 第17回環境セミナーの開催にあたり、小学生以上の市民の作品、調査研究等を公募した。小学生10編、中学生71編、高校生1編、一般市民8編、合計90編の応募作品を収録した。

環境研資料	報 告 書 名	発 行 年 月
No. 110	エコロジカル・ライフスタイルの政策科学的研究	1994. 3

（要 旨） 当研究所では都市自然と共生したエコライフ・エコシテイの実現という視点から「エコロジカル・ライフスタイルの政策科学的研究」に取り組んでいる。有識者による「エコライフ・エコシテイ研究会」において、横浜におけるエコライフ・エコシテイを一体的に実現する方向性を検討するとともに、それを推進するための手法である、ネイチャーデザインに関する基礎的調査研究を行った。本報告書は、それらの調査研究の中から、I部は「研究会」の報告、II部は参考資料として池環境のエコアップ調査資料をとりまとめた。

環境研資料	報 告 書 名	発 行 年 月
No. 111	キショウブによる水質浄化法 ー実験報告書ー	1994. 3

（要 旨） 市民が水に親しめる場所として、公園の池や河川などの水辺があるが、市民や子供達が水の中に入って安心して遊べるような水質にするため、水生植物を用いた水質浄化実験を行った。水質浄化に適した植物としては、生長力、耐寒性、昆虫食害に対する抵抗力等を考慮するとキショウブが最適であった。本報告書には、実験結果及び実際の水辺への応用例などをまとめ記載した。



## 7. 環境科学研究所発行資料目録

1994年12月現在

資料番号	件名	発行年月	体裁等
	明日の都市を照らす	1977. 3	A4. 16頁 (パンフレット)
No. 1	窒素酸化物特殊発生源調査報告書(環境庁大気保全局委託調査)	1977. 3	B5. 49頁
2	横浜市公害研究所報創刊号	1977. 11	B5. 56頁
3	公募論文・クルマ社会をどうするか -明日の都市環境を考える-	1977. 11	B5. 136頁
4	第1回公害セミナー会議録・クルマ社会をどうするか -明日の都市環境を考える-	1978. 3	B5. 96頁
5	昭和52年度環境庁委託業務結果報告書 非特定重大障害物質発生源等対策調査(アスベスト発生施設)	1978. 3	B5. 36頁
6	横浜市公害研究所報第2号	1978. 8	B5. 236頁
7	中間報告横浜市における自動車公害に関する基礎研究	1978. 8	B5. 195頁
8	横浜市公害研究所報第3号	1978. 12	B5. 156頁
9	第2回公害セミナー会議録・合成洗剤	1979. 3	B5. 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	B5. 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	B5. 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	B5. 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	B5. 201頁
14	横浜市公害研究所報第4号	1980. 3	B5. 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	B5. 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	B5. 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	B5. 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	B5. 84頁
18	魚類の健康評価に関する研究(1)(昭和53年度)	1981. 2	B5. 20頁
19	魚類の健康評価に関する研究(2)(昭和54年度)	1981. 2	B5. 51頁
20	横浜市公害研究所報第5号	1980. 12	B5. 236頁
21	帯水層層序確定のための地質調査	1981. 3	B5. 32頁 付図4枚
22	第4回公害セミナー資料提言要旨	1981. 3	B5. 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	B5. 41頁
24	——		
25	地域交通環境に関する意識調査 -金沢4区, 1980年11月実施-	1981. 3	B5. 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	B5. 115頁
27	低周波空気振動実態調査報告書	1981. 3	B5. 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	B5. 98頁

資料番号	件名	発行年月	体裁等
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	B5. 150頁
30	横浜市公害研究所報第6号	1981. 12	B5. 211頁
31	横浜市自動車問題研究会第二報告書 －横浜の物流と自動車公害に対する調査研究－	1981. 12	B5. 227頁
32	排水処理技術維持管理マニュアル－凝集処理編－	1982. 3	B5. 116頁
33	固定発生源から排出されるばいじん（粒度分布）調査報告書	1982. 3	B5. 133頁
34	第5回公害セミナー会議録・よこはまに自然をもとめて	1982. 3	B5. 123頁
35	魚類の健康評価に関する研究(3)	1982. 3	B5. 34頁
36	魚類指標による排水評価のための技術要領	1982. 3	B5. 30頁
37	横浜市深層地下水調査中間報告書	1982. 3	B5. 44頁
			付図2枚
38	横浜市自動車問題研究会第一報告書 －地域交通環境とまちづくり－	1982. 3	B5. 124頁
39	横浜市緑区及び戸塚区における道路交通騒音と交通量調査報告書	1982. 3	B5. 440頁
40	会下谷の雑木林の生物相とその季節変化 （横浜の旧市街に残る小雑木林）	1982. 3	B5. 11頁
41	自動車騒音公害対策模型実験－車線内遮音壁－	1982. 7	B5. 87頁
42	第6回公害セミナー資料 大気汚染－青空はよみがえったか、この横浜に－	1982. 8	B5. 31頁
43	会下谷の雑木林の生物相とその季節変化 （横浜の旧市外に残る小雑木林）	1982. 11	B5. 143頁
44	横浜市公害研究所報第7号	1982. 11	B5. 105頁
45	第6回公害セミナー会議録 大気汚染－青空はよみがえったか、この横浜に－	1983. 1	B5. 99頁
46	浮遊粉じん・ばいじんに関する総合調査報告書	1983. 1	B5. 187頁
47	南関東地域での光化学大気汚染に関する総合調査報告書	1983. 2	B5. 177頁
48	こども自然公園環境調査報告書	1983. 2	B5. 155頁
			付図4枚
49	道路周辺の植樹帯による物理的及び心理的騒音効果に関する研究 －中間報告－	1983. 3	B5. 106頁
50	横浜市南部沿岸地域の軟弱地盤調査図 付図1－5	1983. 3	B2.
51	調査研究事業のあらまし	1983. 3	B5. 34頁
52	都市自然に関する社会科学研究	1983. 11	B5. 226頁
53	第7回公害セミナー公募論文集 身近な水辺とまちづくり－「よこはまの川と池」再発見－	1983. 11	B5. 149頁
54	横浜市公害研究所報第8号	1983. 12	B5. 157頁
55	排水処理技術維持管理マニュアル－生物処理編－	1983. 12	B5. 132頁
56	魚類の健康評価に関する研究(4)	1984. 1	B5. 67頁
57	円海山・港北ニュータウン地区生態調査報告書	1984. 2	B5. 183頁

資料番号	件名	発行年月	体裁等
58	第7回公害セミナー会議録 身近な水辺とまちづくり-「よこはまの川と池」再発見-	1984. 2	B5. 135頁
59	横浜市南部沿岸地域軟弱地盤調査報告書	1984. 2	B5. 付図6 枚
60	横浜のホタル生息地(1983年度版)	1984. 3	B5. 49頁
61	第8回公害セミナー公募論文集 いま 横浜の海は -水質, 生物, 水ぎわ……-	1984. 11	B5. 105頁
62	横浜市公害研究所報第9号	1984. 12	B5. 193頁
63	横浜市南部丘陵 舞岡川源流域の水文調査	1984. 12	B5. 120頁
64	排水処理施設維持管理マニュアル-イオン交換処理編-	1985. 3	B5. 134頁
65	第8回公害セミナー会議録 いま 横浜の海は -水質, 生物, 水ぎわ……-	1985. 1	B5. 133頁
66	道路周辺の植樹帯による物理的及び心理的減音効果に関する研究 -総合報告-	1985. 3	B5. 173頁
67	横浜市公害研究所報第10号	1985. 12	B5. 190頁
68	平潟湾・金沢湾周辺水域環境調査報告	1986. 3	B5. 149頁
69	魚類指標による工場排水規制手法に関する研究	1986. 2	B5. 192頁
70	第9回公害セミナー会議録 静かなまちづくりをめざして-道路緑化と騒音	1986. 2	B5. 179頁
71	ホタルの生息環境づくり~技術マニュアル試案~	1986. 2	B5. 121頁
72	第10回公害セミナー公募作品集 調べてみよう, 身近な環境-水, みどり, まち……-	1986. 11	B5. 174頁
73	横浜市公害研究所報第11号	1987. 3	B5. 216頁
74	円海山・港北ニュータウン地区生態調査報告書・第2報	1987. 3	B5. 275頁
75	排水処理施設維持管理マニュアル-汚泥処理編-	1987. 3	B5. 132頁
76	10年のあゆみ・横浜市公害研究所設立10周年記念誌	1987. 3	B5. 203頁
77	第10回公害セミナー会議録 調べてみよう・身近な環境-水, みどり, まち……-	1987. 3	B5. 127頁
78	横浜市軟弱地盤層調査報告書 土質試験データ図案 付図1~4	1987. 3 1987. 3 1987. 3	B5. 217頁 B2. (付図1) A O
79	横浜市公害研究所資料室図書目録	1987. 3	B5. 328頁
80	第11回公害セミナー公募作品集 調べてみよう, 身近な環境-水, みどり, まち……-	1987. 11	B5. 89頁
81	横浜市公害研究所報第12号	1988. 3	B5. 161頁
82	第11回公害セミナー会議録 調べてみよう・身近な環境-水, みどり, まち……-	1988. 3	B5. 139頁
83	横浜市軟弱地盤層調査報告書 (軟弱地盤構造と地盤沈下特性)	1988. 3	B5. 103頁

資料番号	件名	発行年月	体裁等
84	横浜市軟弱地盤層調査報告書 (縦断面地質柱状図, 水準点変動図集)	1988. 3	B5. 162頁
86	第12回公害セミナー公募作品集 調べてみよう, 身近な環境-水, みどり, まち……-	1988. 11	B5. 133頁
87	横浜市公害研究所報第13号	1989. 3	B5. 210頁
88	水域生物指標に関する研究報告	1989. 3	B5. 348頁
89	浮遊粉じんの発生源推定に関する調査報告書	1989. 3	B5. 195頁
90	第12回公害セミナー会議録 調べてみよう・身近な環境-水, みどり, まち……-	1989. 3	B5. 39頁
91	魚の死亡事故の原因究明に関する研究報告書	1989. 3	B5. 125頁
92	第13回公害セミナー公募作品集 調べてみよう, 身近な環境-水, みどり, まち……-	1989. 12	B5. 137頁
93	横浜市公害研究所報第14号	1990. 3	B5. 212頁
94	円海山・港北ニュータウン地区生態調査報告書・第3報	1990. 3	B5. 166頁
95	第14回環境セミナー公募作品集 調べてみよう, 身近な環境-水, みどり, まち……-	1990. 11	B5. 102頁
96	横浜市公害研究所報第15号	1991. 3	B5. 226頁
97	自然観察ワークシート～横浜の都市自然を調べる～	1991. 3	B5. 115頁
98	トンボ生息環境づくり調査報告書	1991. 3	B5. 210頁
99	第15回環境セミナー公募作品集 調べてみよう, 身近な環境-水, みどり, まち……-	1991. 11	B5. 174頁
100	横浜市環境科学研究所報第16号	1992. 3	B5. 164頁
101	環境科学研究所業務案内リーフレット	1992. 2	B5. 4頁
102	横浜港の水質・底質汚濁に関する調査報告書	1992. 3	B5. 133頁
103	第16回環境セミナー公募作品集 調べてみよう, 身近な環境-水, みどり, まち……-	1992. 12	B5. 108頁
104	横浜市環境科学研究所報第17号	1993. 3	B5. 232頁
105	横浜市の陸域生物による環境モニタリング調査報告書	1993. 3	B5. 77頁
106	鶴見川・帷子川水系生態調査報告書	1993. 3	B5. 268頁
107	酸性雨に関する調査研究報告書	1993. 3	B5. 218頁
108	第17回環境セミナー公募作品集 調べてみよう, 身近な環境-水, みどり, まち……-	1993. 12	A4. 105頁
109	横浜市環境科学研究所報第18号	1994. 3	A4. 164頁
110	エコロジカル・ライフスタイルの政策科学的研究	1994. 3	A4. 118頁
111	キショウブによる水質浄化法-実験報告書-	1994. 3	A4. 121頁
112	第17回環境セミナー公募作品集 調べてみよう, 身近な環境-水, みどり, まち……-	1994. 12	A4. 71頁
113	エコロジカル・ライフスタイルの政策科学的研究 パートII	1994. 12	A4. 175頁

1. 投稿論文は、報文、ノートの2種とする。報文は、論文形式とする。ノートは、資料性のあるものや速報性のあるものなどで、執筆は論文形式にとらわれないものとする。

原稿は、和文とし、原則としてワープロを使用する。ワープロの印刷書式は、A4版縦、1行30文字、1頁20行とする。また、上下マージンは各30mm、左マージンは30mm、右マージンは50mmとする。なお、所定の原稿用紙を用いた執筆も可能である。

原稿は原則として刷り上がり8頁以内とする。さらに、できれば偶数頁が望ましい。

2. 原稿の1枚目には次の項目のみを順に記載する。

- (1) 右肩上に「横浜市環境科学研究所報第 号」と書く。
- (2) 表題は内容を具体的に表現するものとし、原則として副題をつけない。
- (3) 執筆者・共同執筆者名を、1名毎に1字あけて連記し、氏名の右肩に「・・・」の記号を付ける。
- (4) 横線を書いて、その下に、英字タイトル、英字執筆者名、とそれぞれの所属機関名を記載する。

3. 本文の小見出しは通し番号を付ける。要旨は400字以内とし、要旨、参考文献には番号を付けない。

見出し例

要 旨  
1. はじめに  
2. 方 法  
3. 結 果  
4. 考 察  
5. ま と め  
文 献

4. 本文の小見出しに使用する番号は次の順位とする。

「1. 2. 3. ……」  
「2-1 2-2 2-3 ……」  
「3-1-1 3-1-2 3-1-3 ……」

5. 句読点は「,」及び「。」、括弧は「( )」を用い、それぞれ1字に数える。行を改めるときは1字あけて書きはじめる。

6. 数字は算用数字、単位はS I系を原則とし、文字は原則として立体(ローマン体)とする。

## ◇ 編 集 後 記 ◇

研究所発足以来、毎年刊行してまいりました所報もここに「第19号」をとりまとめることができました。内容は前号に引き続き、「業務報告」、「調査研究編」および「資料編」を柱として構成されています。

限られた経費の中で、より多くの投稿を目指すため編集委員会で議論をし、知恵を出し合ったすえようやく本号をとりまとめるに至りました。しかし、その中で今回も、いくつかの反省点を残しました。それらは次期編集委員会に引き継ぎ今後に生かしていこうと思います。

次号は「第20号」ということで、一つの区切りとして何か企画を検討していきたいと考えています。

皆様の遠慮のないご意見をいただければ幸いです。

所報第19号編集委員会

藤 井 毅

平 野 耕一郎

小 市 佳 延

杉 本 実

梅 田 孝

駒 形 聡