

青森県公害センター所報

NO.7

1985

青森県公害センター

巻 頭 言

大方の公害研は、庁舎、主要設備共々大更新期を迎えている。社会情勢をにらみながらあれこれ思案の向きも多かろう。質的变化をみせている環境問題への対応は、行革ともからんでまことに重要かつ微妙である。

獅師奮迅の活躍で職責を全うされ、後進に道を譲られたこの道のベテラン先輩も多い。新しい時代に適応した環境科学専門家の育成や配置など、人材確保もまた地域環境保全の根本課題である。

かつて身の廻りで起きた様々な公害事象は、鎮静化した、とも受け止められている一方で、これまでの対策は単なる対症療法に過ぎない、との警告も聞かれる。地域公害は、いつの間にか地球ぐるみの問題に姿を変えた。

地域の記録や研究の成果は、地域特性の上に成り立っており、それ故に意味がある。環境問題すべての特効薬にならないかも知れないが、常備薬のイロハである。小さな積み重ねの一つずつが地域を支え、その結集が地球の将来に役立つことを信じて疑わない。

昭和 61 年 3 月

青森県公害センター

所長 原 子 昭

目 次

巻 頭 言

- 疾風型重合汚染における大気汚染濃度の評価に関する検討(4)
— 大気汚染防止法 (K 値規制) でのSO₂算定式の問題点—
吉田 毅・高橋昭則 1
- 疾風型重合汚染における大気汚染濃度の評価に関する検討(5)
— 海風が侵入する時の内陸部における高濃度現象—
吉田 毅・梅原 茂・阿部 征裕 10
- 北国におけるオキシダント濃度の特性(2)
— 八甲田, 田茂菟岳山頂でのオゾンの調査結果—
梅原 茂・吉田 毅・早狩 進 21
- 自動測定機器等の精度に関する研究
— ガスクロマトグラフィーによる炭化水素測定法の検討—
梅原 茂・手代森光仁・吉田 毅・早狩 進・高橋昭則 27
- 汽水小川原湖の水質環境と植物プランクトン
奈良忠明・小山田久美子・野田忠志・庄司博光・野呂幸男
早狩敏男・田中 稔・山崎喜三郎・佐藤信博 46
- 新井田川汚濁機構解析調査 (I)
野呂幸男・佐藤信博・奈良忠明・根岸勝信・小山田久美子
田中 貢・庄司博光・手代森光仁 55
- 大腸菌群に関する調査 (第 4 報)
— 小川原湖関連河川の汚染指標細菌—
小山田久美子・佐藤信博・奈良忠明 62
- (資 料)
- 青森県南地域における道路粉じん調査(II)
阿部征裕・鈴木寿秋 68
- 浮遊粒子状物質 (S P M) の測定方法の検討
— 光散乱法とβ線吸収法の比較—
野田正志・斉藤輝夫・蝦名信明・小山一真 74

○船舶塗装作業におけるペンキ飛散について（苦情処理レポート） 本間秀一・吉田 毅	80
○八戸市における環境大気中のフッ化物濃度 —スプライン法による二次元分布推定— 鈴木寿秋・斎藤輝夫・本間秀一	82
○脱硫剤から発生する硫黄酸化物による局地汚染例 工藤真哉・梅原 茂・鈴木寿秋・斎藤輝夫	87
○十和田湖の水環境 —鉛直構造— 庄司博光・奈良忠明・小山田久美子・野田正志・早狩敏男 野呂幸男・佐藤信博	90
○事業場排水の全リン，総窒素調査 根岸勝信・早狩敏男・山崎喜三郎・坂本正昭・奈良忠明 今 武純・小山田久美子・野田正志・田中 稔	95
○大気降下物の性状と湖沼の富栄養化 手代森光仁・奈良忠明・小山田久美子・野田正志・山崎喜三郎 早狩敏男	101
○新井田川上流部における高 pH 現象 庄司博光・野呂幸男・小山田久美子・野田正志・山崎喜三郎 早狩敏男	105
○いわしの荷揚げに伴う港湾の汚濁 野呂幸男・奈良忠明・庄司博光・小山田久美子・山崎喜三郎	108
○微量砒素の自然環境下における形態変化例 原子 昭・奈良忠明・野呂幸男・小山田久美子・野田正志 庄司博光・山崎喜三郎	110
○学会等研究発表	113

疾風型重合汚染における大気汚染濃度の評価 に関する検討(4)

—大気汚染防止法(K値規制)でのSO₂算定式の問題点—

The Evaluation of Air Quality by Multiple Sources under Gusty Condition (4) — The Characteristic of Diffusion Equation in Air Pollution Control Law (K-Values Control)

吉田 毅・高橋 昭則*

1 はじめに

前報⁽³⁾において、乱れの大きい場では、SO₂のK値規制で期待するほど煙突による拡散効果が少ないことを報告した。

本報では、K値規制に用いられている拡散パラメータの特性と、算定式の適用限界について検討したので報告する。

2 K値規制に用いられる拡散式

大気汚染防止法におけるSO₂の排出基準は、周知のように Sutton 式による地表濃度を一定値以下に押えるよう以下の式で表わされる。²⁾

$$q = 0.584 \times C_{\max} \times He^2 \quad (1)$$

ここでqはSO₂の許容排出量(Nm³/h)、C_{max}は地表での最大濃度(μm)、HeはBosanquett (1)式の補正から求められた有効煙突高さ(m)である。(1)式においてK=0.584 × C_{max} × 10³として地域ごと指定されたK値で個々のSO₂発生施設の規制に用いられている。

(1)式はSuttonの拡散式をxで微分し、σ_z = He/√2のところでのC_{max}をU = 6.0 m/s、気温15℃として1時間平均値に補正したものであるが、当時、K値規制が導入された時には「……こうした考えの基礎となる拡散式に対してはいろいろ意見があり、有効煙突高さの算定を含めて、今後さらに慎重に検討を加え、より合理的なものとする必要がある。」²⁾とされていた。

しかし、その後一向に見直しがなされていない。

むしろ、(1)式はHeの効果をも2乗で評価しているので、脱硫技術の開発や脱硫プラントの義務づけよりも、大気拡散による希釈効果をねらった高煙突化を一方では推進してきた経緯もある。

菱田³⁾によると日本では1953年から1984年までの間に50 m以上の高煙突が約360基造られ、その中でも100 mを超えるものは約210基に及んでいるという。

排ガスの集中処理は、本来、除害設備の設置を可能とするため有効であるが、法律において(1)式でのHe²の拡散効

果を公害対策の1つとして許容していることから、今日でも脱硫装置の設置を逃れ、大量のSO₂を大気中にまき散らして良しとしている高煙突が存在していることもまた事実である。

一方、正規型の大気拡散式において拡散係数σ_y, σ_zを

$$\sigma_y = \alpha \cdot X^m \quad (2)$$

$$\sigma_z = \beta \cdot X^n \quad (3)$$

とおき、 $\frac{\partial C}{\partial x} = 0$ 。なるX_{max}でのC_{max}は、次式のように表わされる。

$$X_{\max}(m) = \left(\frac{He}{\sqrt{p} \times \beta} \right)^{\frac{1}{n}} \quad (4)$$

$$C_{\max}(ppm) = \frac{q'}{\pi U} \times \frac{10^6}{\alpha \cdot \beta} \cdot \exp\left(-\frac{1}{2} p\right) \cdot X_{\max}^{-(m+n)} \quad (5)$$

$$\text{ただし } p = (m+n) / n = 1 + \frac{m}{n}$$

(5)式は(1)式の型と同じように、次のように整理できる。

$$q' = A \times C_{\max} \times He^P \quad (6)$$

$$\text{ただし } A = \frac{\pi \times \alpha \times \beta^{1-P} \times U}{10^6 \times \exp\left(-\frac{1}{2} p\right) \times p^{\frac{P}{2}}} \times 3600$$

(σ_y, σ_zはここでは1時間平均値とし、風速Uはm/sとする。)

さらにAは(1)式と比較するため、U = 6.0 m/sを代入し、気温15℃で補正を行うと次のようにまとめられる。

$$A = 63.3 \times 10^{-3} \times \alpha \times \beta^{1-P} / \exp\left(-\frac{1}{2} p\right) / p^{\frac{P}{2}}$$

従って(1)式は(2), (3)式でのσ_y, σ_zのパラメータα, β, m, nが決れば(6)式と等価となる。

3 A, Pの特性

3.1 Aの物理的な意味

(6)式のAは風速Uとσ_yのαに比例し、さらにpの関数となっている。

* 八戸市庁

○ 風速の項

(1)式と(6)式は風速に対し等価である。ただし、風速は一般に接地気層では1/7乗則で増加する⁴⁾ので、いずれの式においても、Ho又はHe高さでの風速によって、q及びq'は変るものであり、Hoの大小にかかわらずU=6.0m/sと一定値で決めてある(1)のK値規制式では、高度差による評価がなされていない。

○ 希釈係数の項

(1)式では、3分平均値と言われるSutton式での濃度を1時間平均値にするために、Lowryの時間でい減率0.15が使われている²⁾。

しかし、日野の-1/2乗てい減則⁵⁾からは $(60/3)^{-1/2}=0.22$ 、Giffordの-1/5乗てい減則⁶⁾からは $(60/3)^{-1/5}=0.55$ が同様の希釈係数として導かれるので、(1)式でのAの値だけでも、さらに1.5~3.0倍になり得る。

さらに、Gifford⁵⁾は、時間のてい減率は地表と上空では違うことを指摘している。

一方(2)式では σ_y のパラメータ α を1時間平均値として整理してあるが、例えばPasquill-Giffordの σ_y を用いるとすると、当初 σ_y は10分平均値と言われていた⁶⁾が、最近のレポートでは3分平均値と変更されている^{7~9)}。本報では1時間平均値の拡散現象を扱うため、(2)式の α にその特性を保持しておく。

○ 大気安定度の項

(1)式のもとになったSutton式では水平、垂直方向の拡散係数を C_y, C_z とし、Hoの高さで変えて評価しているが(1)式を決めた時には $n=0.25$ (中立)、 $C_y=C_z=0.07$ を用いたため、それは高度100mぐらいでの乱れの少ないところの高煙源を想定していることになる。

(6)式においては、大気が不安定になるとAの $\alpha \beta^{1-p} / \exp(-\frac{1}{2}p) / p^2$ は大きくなる。

接地気層内では、一般に地表面に近いほど乱れは大きい。が気層内では1組の平均した α, β でしか評価しえず、実際のHoの違いによる大気の乱れの評価はなされていない。

3.2 Pの物理的な意味

(1)式においてHeのべき乗pは2であるが、これは(2)式において σ_y, σ_z のxの関数のべき乗m, nが、 $m=n$ の時を意味することに他ならない。

○ 高煙源データでの σ_y, σ_z

横山ら¹⁰⁾は、高煙源データでの拡散実験から σ_y, σ_z をxの1次関数として次のように定義した。

$$\sigma_y = 0.018 \sigma_\theta \cdot x$$

$$\sigma_z = 0.054 k \sigma_e \cdot x$$

σ_θ, σ_e は水平、垂直風向変動の標準偏差(deg)を表

わす。

σ_z を大気安定度kで補正し、 σ_y, σ_z は実測値 σ_θ, σ_e (1時間値)から求められる。これはSutton式で $m=n$ としたK値規制式に用いられている(1)式と類似している。

朝倉ら¹¹⁾は、火力発電所からの排煙の大気拡散予測予法として乱れの少ない上層での拡散現象を表1のように整理した。

ここでの記号は(2)式と同じである。

表1 拡散パラメータの係数(朝倉¹¹⁾)

区分	Pasquill安定度	α	β	m	n
日中	A, AB	0.51	0.25	0.875	0.875
	B, BC		0.17		
	C, CD		0.13		
	D		0.085		
夜間	D, E, F, G		0.049		

ここでは $m=n=0.875$ であり、横山らの値とは異なるが $p=2$ であることには変りはない。

Turner⁶⁾、朝倉¹¹⁾、水野¹²⁾、北林ら¹⁰⁾は、 $\sigma_z=He/\sqrt{2}$ のところCmaxの最大をとるとしているが、それは(4)式での $\sigma_z=He/\sqrt{p}$ が、 $m=n$ のとき $\sqrt{p}=\sqrt{2}$ となっていることに他ならない。

Pasquill⁸⁾は、等方乱流理論の仮定から、 σ_y を次のように定義し、 $f(x)$ を風下距離で定数として与えた。

$$\sigma_y / \sigma_\theta \cdot x = f(x)$$

x, km	f(x)
0.0	1.0
0.1	0.8
0.2	0.7
0.4	0.65
1	0.6
2	0.4
4	0.4
10	0.33
> 10	$0.33 (10/x)^{1/2}$

ここで、 σ_θ はラジアンを表わす。

$x \leq 10$ kmまでは σ_y はxの1次関数であるが、 $x > 10$ kmからはxの1/2乗に比例させている。

Taylor¹³⁾や井上¹⁴⁾は乱流理論からラグランジュ相関係数を積分し、xが近いところでは σ はxに比例し(第1次領域)、遠くなると \sqrt{x} に比例する(第2次領域)を導いているが、ここでは10 km以遠で第2次拡散領域扱いをしていることを意味している。

しかし、これらは地表の乱れの大きいところでの煙源に

はそのまま適用できない。

○ Pasquill-Gifford 線図上での p の値

伊藤¹⁵⁾は、Koch¹⁶⁾の整理した Pasquill の σ_y , σ_z のパラメータ (α , β , m , n) と大気安定度, x との係数を表2のように紹介している。

表2 拡散パラメータの係数 (Koch¹⁶⁾)

安定度	α	m	$x \leq x_1$		$x_1 < x \leq x_2$		$x_2 < x$			
			β	n	$x_1(m)$	β	n	$x_2(m)$	β	n
A	0.40	0.903	0.125	1.03	250	0.0083	1.51	500	0.000226	2.10
B	0.295	0.903	0.119	0.986	1,000	0.0579	1.09	10,000	0.0579	1.09
C	0.20	0.903	0.111	0.911	1,000	0.111	0.911	10,000	0.111	0.911
D	0.13	0.903	0.105	0.827	1,000	0.392	0.636	10,000	0.948	0.540
E	0.098	0.903	0.100	0.778	1,000	0.373	0.587	10,000	2.85	0.366

ここでいう大気安定度の °Cクラス、とは表中 $m = n$ に相当し、不安定では $m < n$, 安定では $m > n$ でそれぞれの強度で P-G線図と対応している。

表2の m , n を用い、K値規制での He のべき乗に使われている p (11式では 2.0) の値を整理すると表3のようになる。

表3 Heのべき乗 p の値

安定度	$x \leq x_1$		$x_1 < x \leq x_2$		$x_2 < x$
	p	$x_1(m)$	p	$x_2(m)$	p
A	1.88	250	1.60	500	1.43
B	1.92	1,000	1.83	10,000	1.77
C	2.00	1,000	2.00	10,000	2.00
D	2.09	1,000	2.42	10,000	2.67
E	2.16	1,000	2.54	10,000	3.47

p は煙源に近いところでは大気安定度にあまり関係なく 2.0 に近いが、煙源から遠くなるにつれて変化し、特に最小値は不安定な A クラスで 1.43, 最大値は安定な E クラスで 3.47 と幅をもっており、K 値規制で定義しているように $p = 2.0$ だけではないことを示している。

○ 低煙源データでの σ_y , σ_z

McElroy と Pooler¹⁷⁾は、乱れの大きい St. Louis の都市部で 3 階のビルの屋上からトレーサーガスを放出し、1963年から2年間で42回の実験を行い σ_y , σ_z を求めた。

風下は 0.8 ~ 16 km で 1 時間平均値である。同時に水平風向変動の標準偏差 $\sigma\theta$ (deg) との対応も調べた。(図1 - 横山¹⁸⁾)

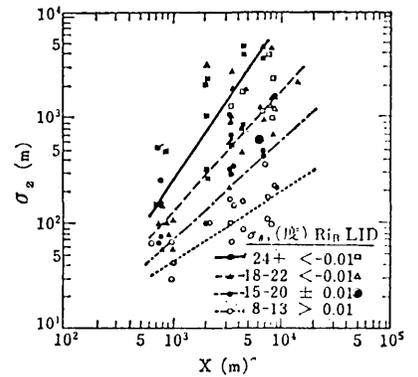
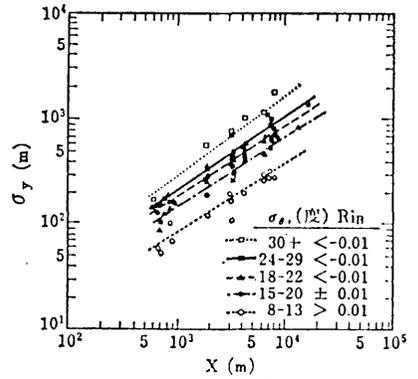


図1 McElroy - Poolerの拡散幅 (横山, 1980より)

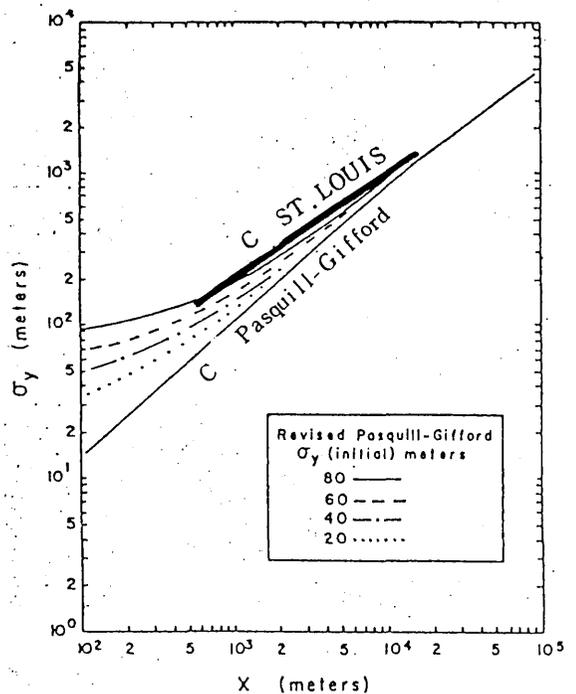


図2-1 Pasquill-Gifford °Cクラスとの比較(σ_y)

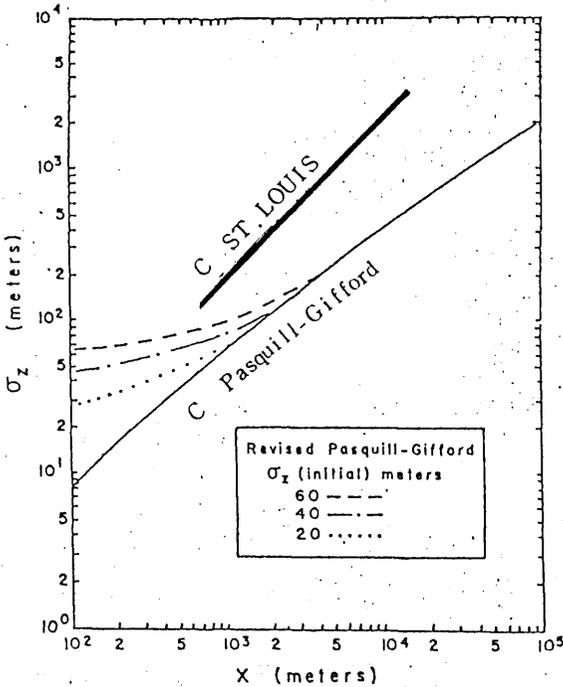


図2-2 Pasquill-Gifford σ_zクラスとの比較(σ_z)

図1は安定の時はもちろん、不安定な時ほど $m < n$ であり、 $p = 1 + m/n < 2$ に位置していることを示している。

図2-1, 2は乱れの少ない平坦な草原Prairie Grassでのトレーサー実験より求めたPasquill-Gifford線図における大気安定度σ_zクラス、とMcElroyのσ_zクラス、との比較をしたものである。

いずれも、St. Louisで得られたσ_y, σ_zの方が大きい、P-G線図に初期拡散幅σ₀を加えるとσ_yはどうやらカバーできるとしても、σ_zの場合に大きな違いがみられる。

以上のように、(6)式における係数A, pは拡散場の特性によって大きく変りうるものであって、本来、K値規制のように煙源の規模に関係なく1本の式でまとめられるものではない。

4 SO₂ 排出許容量 q' への影響

4.1 P < 2 での特徴

前報(2)¹⁹⁾において、疾風重合汚染が問題になっているような建物等からの乱れが非常に大きいところでのσ_y, σ_zは、P-G線図ではあわないこと、さらにσ₀ = 18~22degreesに相当するMcElroy線図での、(2), (3)式でのパラメータはそれぞれ、 $\alpha = 2.251$, $\beta = 0.029$, $m = 0.608$, $n = 1.161$ に対応すること等を報告した。

これらのパラメータの値を(6)式に代入すると、 $A = 1.43$, $p = 1.52$ となり、

$$q' = 1.43 \times C_{max} \times He^{1.52} \quad (7)$$

$$= q \times 2.45 / He^{0.48}$$

となり、(1)式で求めたqよりも(7)式でのq'の方が小さくなる。(なお、前報(3)¹⁾ 23 pageの(7), (8)式中の1.94, 0.88はそれぞれ0.70, 2.45の誤りであったのでここで訂正する)。

これは、C_{max}を同じくするためには、(1)式のqつまりK値規制のqの方が、乱れの大きいところでの(7)式のq'よりもSO₂の排出量を大きく許容していたことに他ならない。

表4にHeとq/q', X_{max}/X'_{max}(ここでダッシュは(7)式での値を表わす)を示す。

表4 Heの効果によるq', X'_{max}への影響

He (m)	q/q' = 0.41 × He ^{0.48}	X _{max} /X' _{max} = 0.64 × He ^{0.28}
10	1.23	1.22
20	1.72	1.48
30	2.10	1.66
40	2.40	1.80
50	2.68	1.91
100	3.74	2.32
200	5.22	2.82
300	6.34	3.16

Heが大きければ大きいほど、q', X'_{max}への影響が大きく表われる。

また、言いかえると、Heの大きい高煙突ほど、現在の許容量を排出しては、乱れの大きいところでは期待したC_{max}を守れなくなり、もしC_{max}を守ろうとすれば、高煙突ほど、SO₂の排出量を今よりも削減しなくてはならないことを意味している。

4.2 フィールドでのPの特徴

実際の大气拡散の場においては、上空数100mでは、大気の鉛直気温減率が1.0℃/100m以上の強い不安定状態になることは少ない²⁰⁾と言われているが、図3のように海風の侵入時等に内部境界層が発達し、地表付近の不安定層は、内陸へ向うほど生成していくケースは、よく見られる現象である²¹⁾。

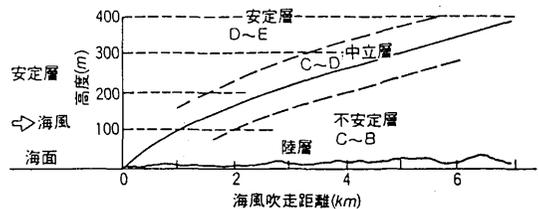


図3 海岸地域でのPasquill安定度(新良²¹⁾)

八戸地区で今まで行われた数少ない気象観測においても、1971年7月22、24日²²⁾、1973年6月28日²³⁾の例などに海風の陸上移流に伴って内陸ほど不安定層の接地境界層が形成されたケースを確認することができる。

図4は1971年7月22日AM9:00での海岸のNo.1地点から内陸へのNo.2地点(2km)、No.3地点(4km)での気温の垂直分布を示しており、低層ほど海風で冷たい風が吹込んでいる。

400~600mにある逆転層は、風向の反転と対応しており、50~400mの層はNo.1地点でほぼ等温、No.2、No.3地点で気温の減率がそれぞれ $-0.8^{\circ}\text{C}/100\text{m}$ 、 $-1.1^{\circ}\text{C}/100\text{m}$ と内陸に入るに従って安定層から不安定層へ発達している。

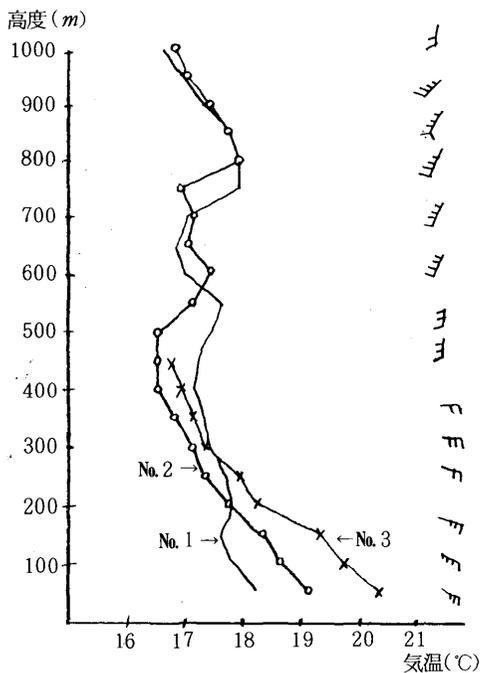


図4 気温の垂直分布(1971.7.22.09:00八戸²²⁾)

同様に図5は1973年6月28日AM12:00での例で、海岸のNo.11地点から内陸へ4kmのNo.22地点、7kmのNo.33地点での気温の垂直分布を示している。

250m以下では海岸で気温が最も低く、内陸へ侵入するにつれて昇温しているが、250~800mの層ではNo.22地点で $-0.9^{\circ}\text{C}/100\text{m}$ 、No.33地点で $-1.2^{\circ}\text{C}/100\text{m}$ と内陸ほど強い不安定層を形成している。

右の新聞コピーはちょうどこの時期、火力発電所のボイラー3、4号の集合煙突からの煙の拡散幅 σ_y 、 σ_z をライダーで観測した時の結果について伝えたもので、内陸部へ海風が吹込んだ時に煙流が落ちた例を報じている。

Lyonsら²⁴⁾は、ミンガン湖で詳細な大気汚染と気象の調

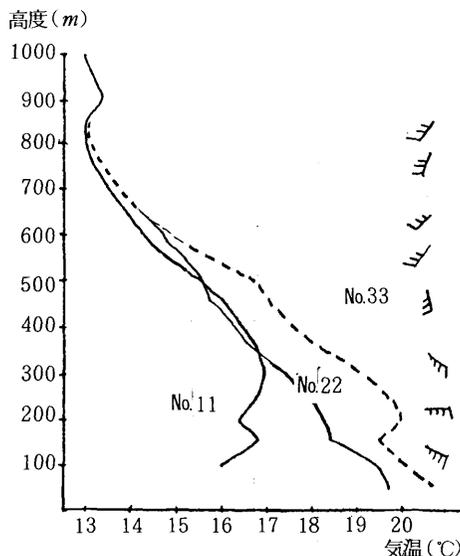


図5 気温の垂直分布(1973.6.28.12:00八戸²³⁾)

1974.9.8(読売新聞)

集合煙突

意外な盲点

川のある地形付近では 排煙、地表へ急降下

レイザー
使い発見

その原因は、川沿いの地形によるもので、川沿いの地形が、煙の拡散を妨げ、地表に急降下させている。レイザーを使い、川沿いの地形を調査したところ、川沿いの地形が、煙の拡散を妨げ、地表に急降下させていることがわかった。

査を行い、湖から陸上に吹送する風での高濃度出現機構を拡散モデルを提案して説明している。

図6はLyonsのレポートから転載したフューミゲーション状態が生じた時の図²⁵⁾であるが、上空の安定層内にあった高煙突からの濃い排煙が、海からの風で新たに生成された内部境界層内で拡散が急速に進行し、地上に高濃度をもたらす様子が示されている。

こうした時には通常推定される地表濃度の数10倍にもなることが報告されており、Lyons自身もフューミゲーションモデルでの数値解を求

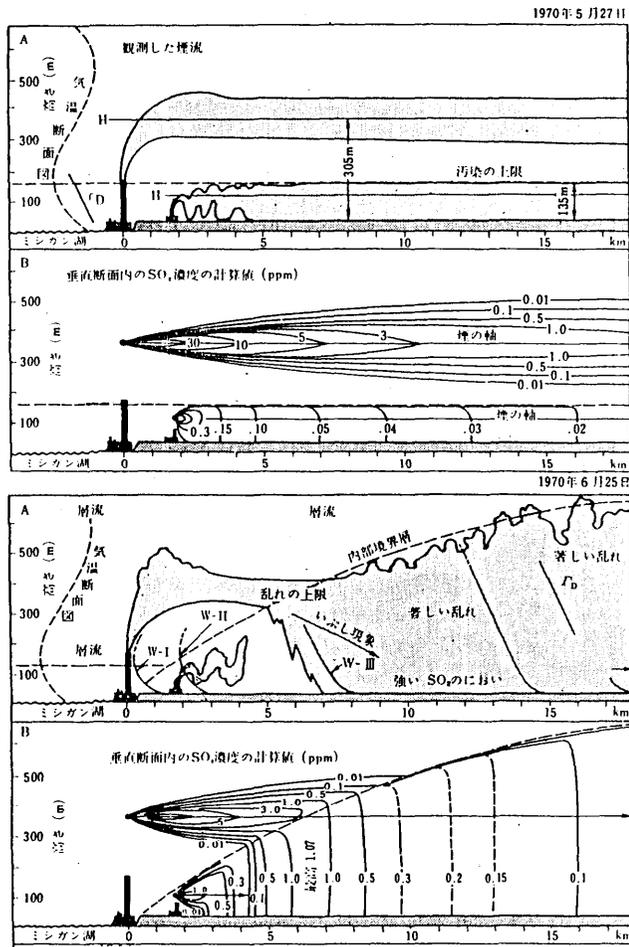


図6 ミシガン湖岸の汚染^{24,25)} (1970.5/27, 1970.6/25)の例

め、蒲生ら²⁶⁾、溝尻ら²⁷⁾もモデル化しているが、この種の高濃度現象は高煙突からの排出量を削減するしか全く手がない。

八戸地区においても、例えば1983年7月23日のように、海風の侵入時にSPM, NO_x, SO₂といずれも内陸でのリセプターで年間での最高値に近い高濃度を示していた例がある。

小川²⁸⁾が指摘したように、この種のフェューミゲーション状態は今後、臨海工業地帯では気象現象として避けられない現象であろうから、やはり、高煙突でも地表の環境濃度を一定値以下に押えることが可能なレベルまで事前に排出量qの削減をしておかなくてはならない。

4.3 建物等の影響

前報¹⁹⁾において、排出熱量が少なく、かつ排出速度の小さい煙突からのHeは、 ΔH の効果を無視してHoとした方がむしろ、推定計算の精度を上げることを報告した。

例えば $QH < 2 \times 10^6 \text{ cal/s}$, かつ $U \geq \frac{1}{2} Vs$ のとき(7)式のHeがHoになり、SO₂の許容量は(7)式よりさらに少なくなり次のようになる。

$$q^* = 1.43 \times C_{\text{max}} \times Ho^{1.52} \quad (8)$$

図7は、煙が建物付近での巻き込み現象によってその境界層内部にとじこめられた様子を示している²⁸⁾が、実際には煙突の直径が大きい場合等、煙突自身の影響で煙流をその風下にひきおろしている例などもあり、煙流はHoよりも地面へ引きおろされていることもあり、計算値ほどHeが大きくないケースが多い²⁹⁾。

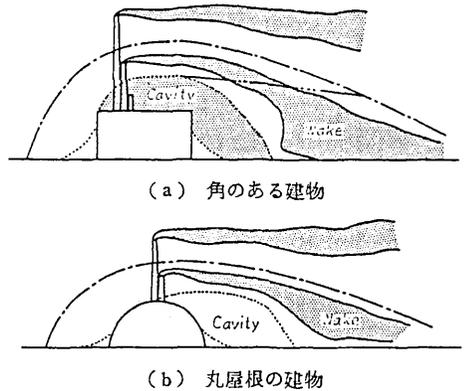


図7 建物付近における煙の巻き込み現象 (西田²⁹⁾)

こうした建物背後の乱れがきわめて大きいところでの地表濃度を推定する場合には、拡散係数 σ_y, σ_z にさらに初期拡散幅 σ_0 を加え、

$$\begin{aligned} \sigma_y' &= \sigma_0 + \alpha \cdot X^m \\ \sigma_z' &= \sigma_0 + \beta \cdot X^m \end{aligned}$$

として、煙源の近くで σ_y, σ_z を大きくしてやるとある程度の近似は可能になる。

しかし、この方法では(5)のようなCmaxの厳密解は解けないのでNewton - Raphsonの近似解で求める³⁰⁾。

例えば表5は、Ho = 25.0 (m)での小型ボイラーからの排煙に対して、P-G線図, McElroy線図, さらに σ_0 を加えた時のXmax, Cmaxを比較したものである。

σ_0 が大きくなるとXmaxが近づき、その地点でのCmaxは急激に大きくなり、ついにはXmax = 0 となって、煙源Hoの拡散効果は全く失われてしまう。

表5 σ_0 のXmax, Cmaxへの影響 Ho: 25.0 (m)

拡散パラメータ	$\sigma_0(m)$	Xmax(m)	Cmax (ppb)
P-G *D、	0	347	31.8
McEloy	0	282	36.9
〃	10	124	45.0
〃	20	≒0	126.3

Gifford³¹⁾ は、建物の影響を強く受けているところで煙突からの拡散は、建物背後に巻込まれ、Hoすらない次の拡散式を提案している。

$$C = \frac{q}{(\pi \sigma y \sigma z + \alpha A) U} \quad (5)$$

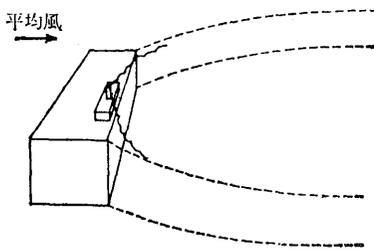


図8 ビルの背後における拡散の様相(Haugen³²⁾)

ここでAは建物の断面積、 $\frac{1}{2} < \alpha < 2$ としてある。この式は、Ho=0つまり地表に排出源があり、それを αA という初期拡散幅に類似の係数で大きくしてやり、煙源に近いところの拡散効果を大きくしたものに相当し、Hoの効果などどこにもない(図-8)。

4.4 モデルケースによるHeとq, Cmaxの比較

図9は大志野³³⁾がSutton式を用いてqとHeとCmaxを比較した図である。

- I : He = H₁, q = q₁ III : He = 2H₁, q = q₁
 II : He = H₁, q = q₁/4 IV : He = 2H₁, q = 4q₁

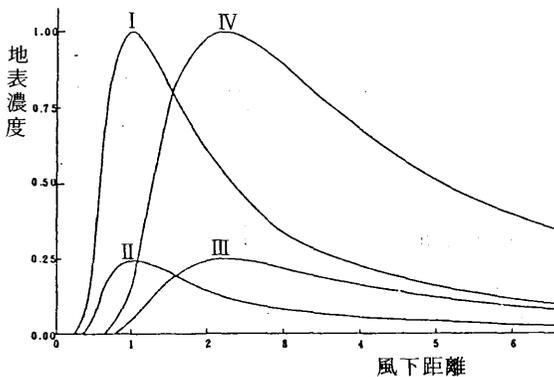


図9 Sutton式による風下線上の地上濃度分布³²⁾

Heを大きくすること(I→III)は確かに有効であるが、qを小さくすること(I→II)の方がより効果的である。

ところがHeを高くし、Cmaxが同一になるまでqを増やすこと(I→IV)を許容している現行のK値規制では明らかに汚染の面積を増大することを意味している。

つまり、同じくK値を守っていても、高煙突ほど広域を汚染することが許容されていることになる。

そこで、排出熱量及びSO₂の排出量等の規模の異なる、CASE 1, 2の煙源での、K値によりCmaxを一定値に抑えようとする場合でのSO₂の排出量を(1), (7), (8)式(ただし(8)式は小規模煙源のみ)で比較した。

煙源に関する諸元は表6に示し、qの算定式及び量を表7, 図10に示す。

なお、ここでは具体的にK=6.0と(八戸地区で昭和51年より適用)した。

表6 CASE 1, 2の煙源での諸元

諸元	CASE 1	CASE 2
QH (cal/s)	0.88×10^5	0.11×10^8
Ho (m)	22.0	120.0
Vs (m/s)	5.3	30.6
He(m) : 法律	23.7	220.0

表7 CASE 1, 2の煙源による算定式とqの関係

qの算定式	qの値(Nm ³ /h)	
	CASE 1	CASE 2
(1) $K \times 10^{-3} \times He^2$	3.4	290.4
(7) $K \times 10^{-3} \times 2.45 \times He^{1.52}$	1.8	53.4
(8) $K \times 10^{-3} \times 2.45 \times Ho^{1.52}$	1.6	(21.3)

K値規制による許容量は(1)式で与えられるが、不安定な気象条件や、フューミゲーション状態を想定すると大規模な煙源でも(7)式での排出量まで低減すべきである。また、ダウン・ウォッシュやダウン・ドラフトの影響を考えると低煙源ではさらに(8)式での排出量まで削減しなくては、当初目的としたCmaxを維持できない。

現在用いられているK値規制では、煙突の高さによる拡散効果を公害対策としてHeの2乗で評価してきた。

そのため、脱硫装置のあとで降温した排ガスを、Heを稼ぐためにC重油バーナーで再び加熱し、新たにSO₂を増やしている施設すらある。

図10は、Heの拡散効果を例えば(7)式で評価しなおした時には、Cmaxを同一にしようとするれば高煙突ほどSO₂を削減しなくてはならないことを示している。

近年、高煙突からのSOx, NOxが原因と考えられる広域に及ぶ酸性雨現象等がけ念される³⁴⁾が、現行の高煙突ほど、排出を許容するK値規制では、基本的にこの問題には対処しきれないはずである。

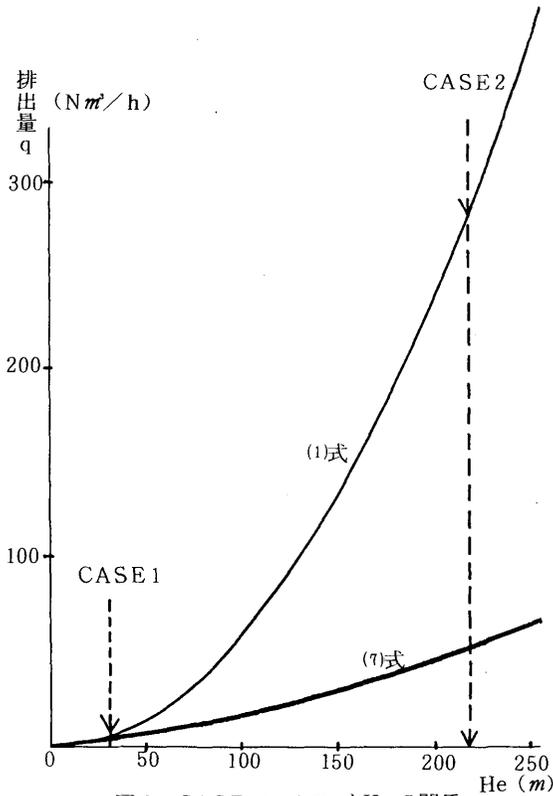


図10 CASE 1, 2の q と He の関係

5 まとめ

5.1 K値規制における SO_2 算定式の特性

正規型の大気拡散式から C_{max} を求める式と、Sutton式を応用したK値規制での許容量を算定する式との物理的なモデルの比較を行ったところ、概ね、次の結果を得た。

- 1) K値規制では SO_2 の算定式に煙突からの拡散効果として He の2乗を用いているが、これは本来、 σ_y , σ_z の x のべき乗 m , n から作られる $p = 1 + m/n$ のものであり、 $p = 2$ は $m = n$ の場合に他ならない。
- 2) 大気が不安定になるほど $p < 2$ となり、煙突による拡散効果は減少し、初めに期待した C_{max} を維持できなくなる。それは高煙突ほど大きい。
- 3) 低煙源で、かつ回りの建物等の影響を受けている乱れの大きい場では、 He の効果はほとんど期待できない。
- 3) 前報(3)¹⁾において、いわゆる「疾風汚染」の場合には、問題にしている発生源とレセプターとの位置関係から、地上に高濃度をもたらす時の排ガス量や風速は決して最大値とはかぎらず、特定の Q_{max} , U_{max} をもつことを大気拡散式を解いて明らかにしたが、このことはK値規制の算定式には全く考慮されていない。
- 5) 安定状態にある海上から、不安定状態になっている陸

上へ風が吹き、内部境界層内で拡散が急速に進行するフューミゲーション状態では、地上に思わぬ高濃度をもたらす危険性があるが、現行のK値規制では対処できない。なお、本報では He の算定式についてはあえてふれなかったが、現行の式($Bosanquett(1) \times 0.65$)をいつまでも用いずに、排出ガス量 Q_p と風速 U とを函数とする実用式に替えるべきであろう。

5.2 今後の問題点

以上のように、現行のK値規制で SO_2 の排出許容量を算定する方式は、煙突による拡散効果を過大視してきたために、大規模煙源ほど有利だったという一面がある。

そもそもこのK値規制方式は、複数の煙源からの重合汚染には歯どめがきかないことが初めから指摘されてきた。

しかしながら、1本の煙源の場合においても、法のもとに許容量を算定している現行の式には種々の問題があるので、次のことからもあわせて検討する必要がある。

- 1) K値規制方式がスタートした時点では、将来、これに用いた拡散パラメータ等の検討を行うことになっていたもので、見直しをすること。
(これと同種の計算式は現行の悪臭防止法における許容排出量の算定にも義務づけられているが、同様に He の効果を過大視しており、実際の悪臭濃度との対応はきわめて悪い。)
- 2) 公害防止計画算定地域等では、せめて新設の発生源に対しては少なくとも現行のK値をそのまま許容せず、数ランク厳しいものを法的に義務づけする等の補完を行うこと。
- 3) 当時まだ脱硫技術や、低いおう燃料の確保が難しかった時には、煙突による拡散効果も公害対策として評価せざるを得なかった背景があった。しかし、今日ではこれらの技術は確立されており特に高煙突化の弊害として表われ始めている広域にわたる酸性雨防止等の意味からも、一部、ばいじんや NO_x がそうであるように煙突での拡散効果を過大評価せずにプラントの規模ごとの排出量規制も取り入れること。

文 献

- 1) 吉田 毅, 早狩 進, 高橋昭則: 疾風型重合汚染における大気汚染濃度の評価に関する検討(3)——拡散モデルでの高濃度出現機構の解析, 青森県公害センター所報, 6, 18-25 (1983)
- 2) 環境庁大気保全局編: 新訂大気汚染防止法の解説, 新日本法規, pp.439 (1972)
- 3) 菱田一雄: 大気汚染防止における発生源対策の15年の沿革, 公害と対策, 19, 7, 631-637 (1985)

- 4) 環境庁大気保全局大規制課編：総量規制マニュアル，pp.138 (1975)
- 5) 日野幹雄，中井真行，通地克三：排煙の時間平均と採取時間との関係，電中研技術研究所報告，6604 (1966)
- 6) Turner, D. B. : Workbook of Atmospheric Dispersion Estimates. U. S. Department of Health, Education, and Welfare (1967)
- 7) Gifford, F. A. : Atmospheric dispersion models for environmental pollution application, Lectures on Air Pollution and Environmental Impact Analyses, AMS, Boston, pp. 35-58 (1975)
- 8) Pasquill, F. : Atmospheric dispersion parameters in GAUSSIAN PLUME MODELING, EPA-600/4-76-0306 Part I (P59), Part II (P44), (1976)
- 9) Hanna, et al. : AMS workshop on stability classification schemes and sigma curves—Summary of recommendations, American Meteorological Society, 58, 12 (1977)
- 10) 横山長之他：大気汚染質の拡散に関する研究，公害資源研報告，15, pp.408 (1979)
- 11) 朝倉一雄，四方 浩：火力発電所排煙の大気拡散予測手法の検討，電力中央研究所報告：211, pp.93 (1982)
- 12) 機械振興協会：大気汚染予測制御システム (APMS) 開発報告，pp.380 (1977)
- 13) Taylor, G. I. : Diffusion by continuous movements, Proc. London Math. Soc. (2), 20, 196-211 (1922)
- 14) 井上栄一：地表風の構造，農業技術研究所報告A第2号，pp.87 (1952)
- 15) 伊藤昭三：環境工学—大気編入門，朝倉書店，pp.177 (1984)
- 16) Koch, R. C. : Validation and Sensitivity Analysis of the Gaussian Plume Multiple-Source Urban Diffusion Model. Geomet. Inc. Rockville, M. D., Glomet. EF-60, FLD/GP, BB. (1971)
- 17) James L. McElroy and Francis Pooler : ST. Louis dispersion study Volume II—Analysis, National Air Pollution Control Administration Publication, No. AP-53 (1968)
- 18) 鈴木武夫編：大気汚染の機構と解析—環境科学特論，産業図書，pp.38-66 (1980)
- 19) 吉田 毅，早狩 進，高橋昭則：疾風型重合汚染における大気汚染濃度の評価に関する検討(2)—拡散パラメータの決定と重合汚染濃度の推定，青森県公害センター所報，6, 7-17 (1983)
- 20) 通商産業省立地公害局編：産業公害総合事前調査におけるSOx, NOxに係る環境濃度予測手法マニュアル，産業公害防止協会，pp.290 (1982)
- 21) 新良宏一郎編：環境大気概説，環境技術研究会，pp.165 (1985)
- 22) 青森県：八戸地区環境大気調査報告書，昭和47年2月，pp.149
- 23) 青森県：昭和48年度八戸地区環境大気調査報告書，昭和49年3月，pp.114
- 24) Lyons, W. A. and Cole H. S. : Fumigation and plume trapping on the shores of Lake Michigan during stable onshore flow, J. Appl. Met. 12, 494-510 (1973)
- 25) 太田久雄，長尾 隆：公害と気象—観測と調査の実際，地人書館，pp.242 (1974)
- 26) 蒲生 稔，横山長之：いぶし現象の拡散モデル，工業技術院公害資源研究所，公害，17, 5, pp.67-74 (1982)
- 27) 溝尻純枝，伊藤昭三：フューミゲーション状態下での大気拡散モデル化，大気汚染学会，17(3), 228-235 (1982)
- 28) 小川 靖：最悪の大気汚染はどんな時，どんな場所で出現するか？—地形障害物と大気安定度の影響，国立公害研究所発表会予稿集，p.45-51 (1983)
- 29) 西田 薫：汚染物質の大気拡散(5)，環境技術，7, 2, pp.149-155 (1978)
- 30) 高橋昭則：大気拡散式を解くプログラムの開発—短時間平均濃度推定計算，青森県公害センター所報，6, 26-38 (1983)
- 31) Gifford, F. A. : The Problem of Forecasting Dispersion in the Lower Atmosphere, booklet published by the AEC Division of Technical Information Extension Oak Ridge, Tenn. (1961)
- 32) Haugen, D. A. : Lectures on air pollution and environmental impact analysis, American Meteorol. Soc., pp.269 (1975)
- 33) 大志野章：広域発生源のコントロールの—方法，大気汚染研究，5, 1, pp.14-19 (1970)
- 34) 第1回全国公害研究所交流シンポジウム—雨水の酸性化の実態とその環境影響〔要旨集〕，環境庁国立公害研究所，pp.31 (1984)

疾風型重合汚染における大気汚染濃度の評価 に関する検討(5)

—海風が侵入する時の内陸部における高濃度現象—

The Evaluation of Air Quality by Multiple Sources under
Gusty Condition(5) —The Analysis of High Concentration
Occurred by Onshore Flow—

吉田 毅・梅原 茂・阿部 征裕

1 はじめに

前報^{1)~3)}では、八戸地区の臨海工業地帯に隣接している第二魚市場局でのSO₂濃度を中心に、高濃度汚染の機構解析を行ってきた。

本報では、特に海からの風で引き起されるフェーミゲーション(いぶし)状態に着目して、臨海部よりは、内陸に位置する市内のリセプターで測定されている高濃度現象について報告する。

2 工場地帯とリセプターとの位置関係

図1に位置関係を示す。

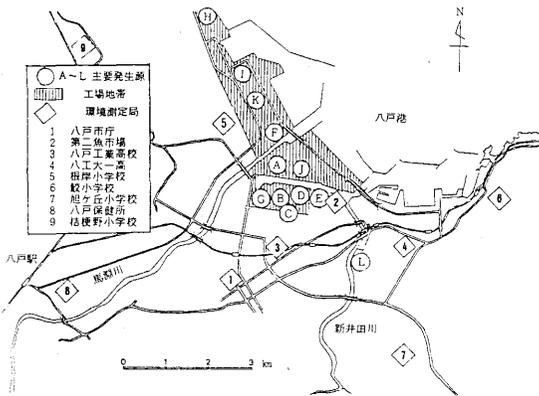


図1 発生源及び測定局位置図

本報においては、No.2, No.3, No.1, No.8のそれぞれ第二魚市場局, 工業高校局, 八戸市庁局, 八戸保健所局について、主に海から内陸にむかって約9 kmの範囲にあるリセプターに関して調べた。

図2には、1983.4~84.3までの1年間における第二魚市場局と、内陸部での八戸保健所局での風向頻度を示した。

一般にWSW等の風が主風向であり、問題にしている風向はNE~E系の場合に限定され、臨海工業地帯からの排煙を内陸部まで運び込む。

この風向は主に6~8月に卓越し、特に本州付近に停滞する梅雨前線の時の天気図分類タイプ⁴⁾の時に多く冷涼

で長期間継続する「ヤマセ」に特有な風向である。

また、南高北低のタイプ7(夏型)には、日射が増えるに従って海風が侵入し、夕方に陸風に交替するまで内陸へ海風が運ばれることにより、同様の現象が観測されるが、前者は海霧をとまうことが多く、日射も防げられるので、風向は類似であっても拡散現象は全く異なっている。

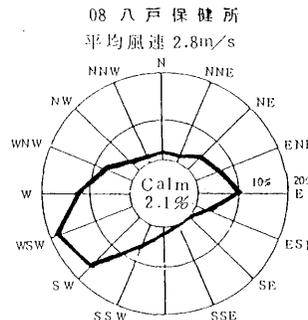
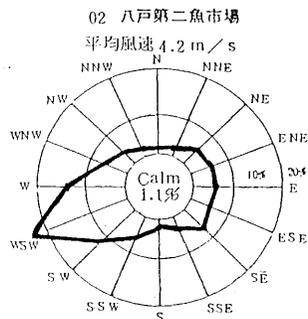


図2 年間での風向頻度(1983.4~84.3)

3 リセプターでの濃度の特徴

3.1 月平均値

図3に、八戸火力発電所の120m煙突で測定している垂直方向の気温差(118m-6m)と、各リセプターでの濃度の月平均値を示した。

△T₁₁₈₋₆: 4月と11月に他の月よりも気温差が少なく、拡散への寄与は少ない安定層が卓越している。

SO₂: リセプター間での大きな差はみられない。

NO₂ : 第二魚市場局が他の局よりも高い。
 SPM : 春(特に4月)にいずれの局もピークを示す。
 これは内陸ほどΔT₁₁₈₋₆の変化と似ている。
 O_x : 5月にいずれのリセプターも極大を示す。
 しかし、月平均値ではリセプター間での差はそれほど明
 らかではない。

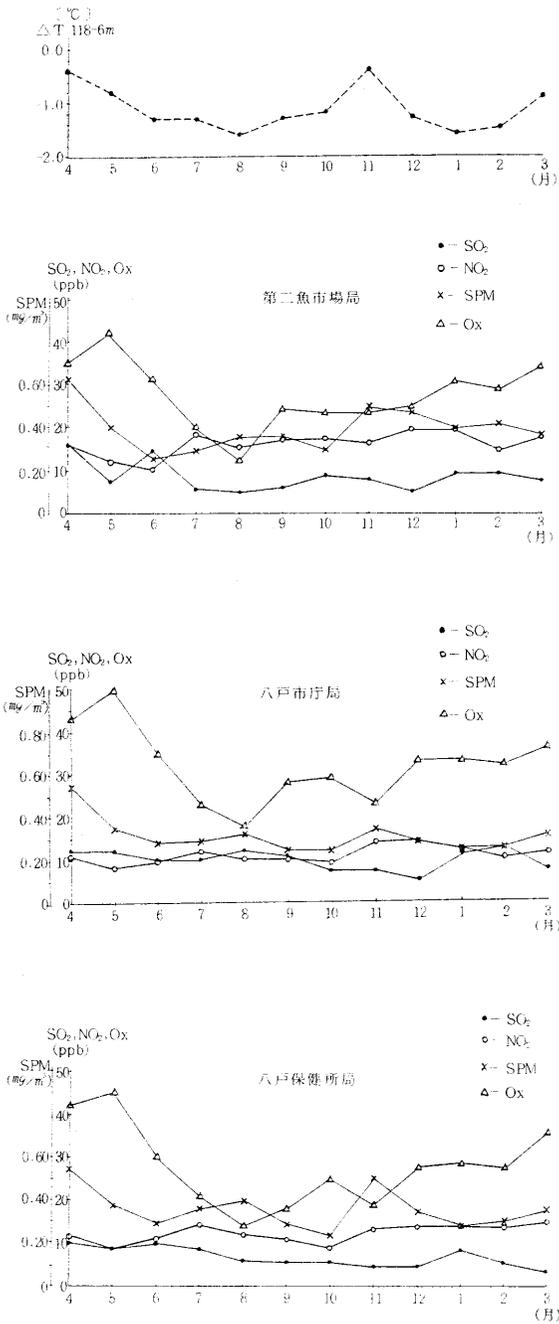


図3 月平均値(1983.4~84.3)

3.2 日平均値

臨海部での第二魚市場局と内陸部に入った八戸市庁局と
 において、日祭日(年間の1/6)と平日の違いをSO₂,
 NO₂, SPMについて、るい積度数分布で比較した(図4)。
 70%タイル値を比較したのが表1である。

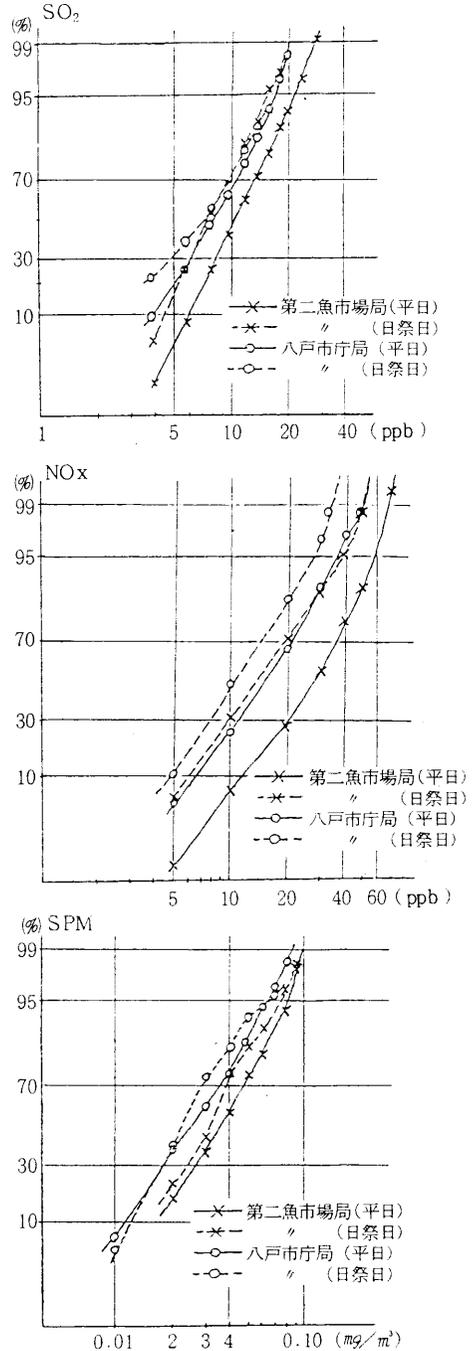


図4 平日と日祭日との濃度比較

表1 平日と日祭日との濃度比較 (70%タイム値)

項目	第二魚市場局		八戸市庁局	
	平日	日祭日	平日	日祭日
SO ₂ (ppb)	14	10	11	10
NO ₂ (ppb)	35	20	20	14
SPM (mg/m ³)	0.046	0.040	0.036	0.028

第二魚市場局では平日と日祭日の濃度差が明確であった。この背景として、A工場のディーゼル発電機が日祭日には停止し、買電すること、D、E工場等の水産加工工場は原料がない時には原則として日祭日は休業していること等から、汚染物質の排出量の減少が近くの測定局に濃度の減少として現れていると考えられる。その結果、第二魚市場局の日祭日のレベルは、八戸市庁局での平日レベルに等しい。

また八戸市庁局は、SO₂濃度は平日と日祭日はほぼ変わらず、NO₂、SPMの濃度はそれぞれ約3割、2割と減少している。

しかし、SPMの汚染レベルの高い方では、地点、曜日での差はほとんど見られない。

これらの結果から、発生源とリセプターとの位置関係によって、汚染の現れ方が違っていることが明らかである。

3.3 大気安定度と濃度の関係

図5に1983年12月20日から1月1日までの垂直方向の気温差(118m-6m)℃、48mでの風速と、SO₂、NO₂、SPMの各リセプターにおける日平均値を示す。

移動性高気圧と冬型の気圧配置が繰り返したこの期間中は、接地気層の大気安定度が不安定状態から安定状態になるに従って、層内の風速は弱まり、汚染物質濃度の増加が見られる⁴⁾。

SO₂濃度にはあまり大きな変化はみられない。

NO₂濃度は垂直方向の気温差の変動とよく対応し、工業高校局が最も高い。

SPM濃度も同様の変化を示すが第二魚市場局が最も高い。

このように、日平均レベルでは大気安定度が不安定状態から安定状態になると、拡散効果が防げられ、市内全域での汚染レベルが増加する傾向がNO₂やSPMに見られる。

実際には、気温の逆転層高度よりも下層に排煙されると、煙はそのまま、層内にとじ込められるが、層の上で排煙されると、上空に拡散されて地表へは影響しなくなる。

Briggs⁵⁾は逆転層を突き抜けるための排出熱量の計算を紹介しているが、ここでは上層118mまでの気温分布しなないために、逆転層高度の推定が不可能である。

しかしながら、SO₂濃度が増加せず、NO₂やSPM濃度だけが増加していることから、この期間は、高煙突からの

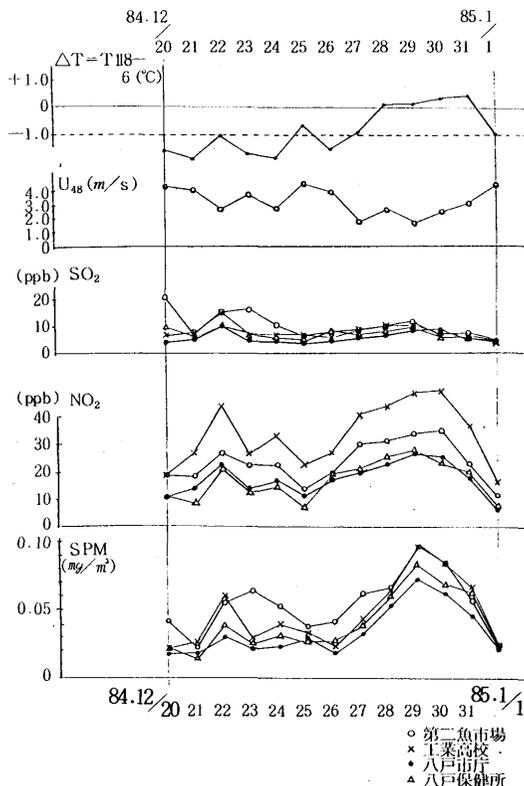


図5 大気安定度と濃度の関係

排煙が逆転層を突き抜けて、低煙源(移動発生源の自動車、船舶を含む)からの排煙は逆転層よりも下層に閉じ込められた可能性も考えられる。

4 八戸市庁局でのSO₂高濃度汚染

八戸市庁局での1983年4月~84年3月までの、風向別SO₂濃度の最高値(1時間値)、平均値を図6に示した。

(期間中、4,5,2,3月がそれぞれ33,20,66,70%欠測した。)

図中の点線は、リセプターのほぼ真東に位置する八戸市庁舎の暖房用ボイラー(x≒32m)からの排煙と考えられたために、すでに濃度評価からは除外してある。

N~NEの風向での平均濃度に幾分の高まりがみられ、この時の風速は2.0~4 m/sの頻度が多い。

風上約4 kmには図1より明らかなように大手工場がある。

4.1 地表濃度の推定

そこで前報⁽²⁾で用いた拡散手法を用いて、大手工場からリセプターへ与える汚染の寄与度を計算した。

なお、前報⁽²⁾とのちがいは、Pasquill-Giffordの線図を用いる時のσyを√6倍から1.8倍にした。

これは、以前線図は10分平均値⁽⁶⁾と言われていたが、3

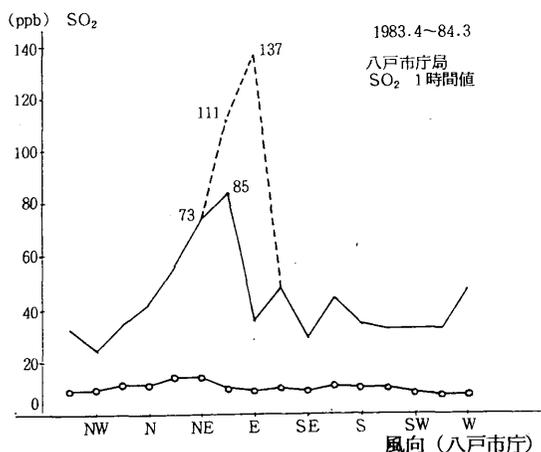


図6 風向別のSO₂濃度 (八戸市庁局1983.4~84.3)

分平均値に訂正されている^{7,8)} ことと、時間てい減率を1/2から1/5乗則⁶⁾に整理しなおしたためである。

なお、発生源をNW~E方向の大手工場に限定したため他の風向や面源とすべき群少の発生源は考慮していない。

図7にP-G *D、モデルと乱れの大きい時のドラフトモデルにおける推定結果を示す。

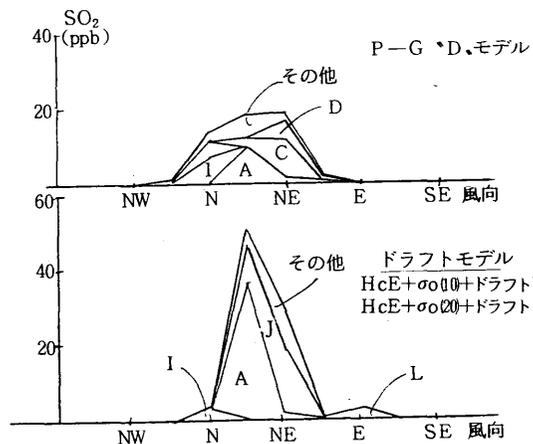


図7 拡散モデルによる濃度の推定

図中の記号は図1の工場と一致し、風速は第二魚市場局における同期間中での風向別平均風速を使用した。

P-G *D、モデルの場合にはNE~ENE方向に約20 ppbの推定値が現われるが、 $U \geq \frac{1}{2}Vs$ で $He = Ho$ とドラフトさせ、 σ_y に σ_0 をプラスしたモデルではNNEの風向で50 ppbと推定値が高くなる。

(ただしここで σ_0 は10 mと20 mとしても、大手工場の煙源が高いので推定値にはほとんど変化が見られない)

しかし、問題にしているNE~E方向での濃度の高まりはこのままでは低すぎて再現できない。

4.2 ボイラーによる影響の推定

図6で評価から外された111や137 ppbのSO₂高濃度の原因を推定するため、八戸市庁舎にある暖房用ボイラーからの排煙が、同じ棟続きの屋上にあるリセプターへ及ぼす影響を計算した。

拡散計算に用いた諸元は表2の通りである。

表2 諸 元

リセプター高さ :	18.5 m (G.L)
煙突高さ (Ho) :	23.0 m (G.L)
リセプターとHoとの距離 :	32 m
(ただしリセプターからHoはE~ESEの方向に位置する)	
SO ₂ 排出量 :	4.0 (Nm ³ /h) (1, 2号同時稼働)
Ts :	200℃
Vs :	6.6 m/s
煙突口径 :	1.18 m (角型のため、相当口径)

図8に計算結果を示す。

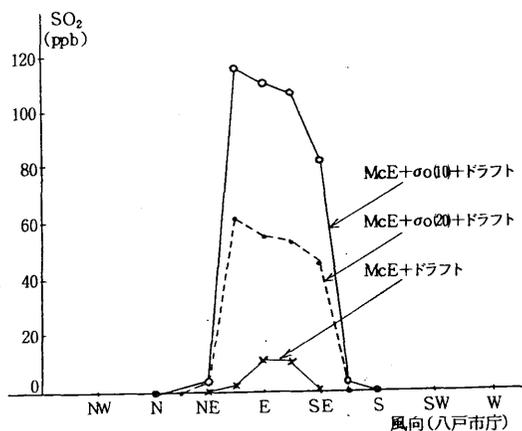


図8 ボイラーのリセプターへ及ぼす影響

P-G *D、モデルでは屋上にあるリセプターでの濃度はゼロであった。これは第二魚市場局に対してもこのモデルでは再現できなかったように、CONCAWE式で計算した He の値が大き過ぎるためである。

煙突の口径が大きく、排ガス量が多いボイラーの割には排出速度が6.6 m/sと小さく、風速と比較すると明らかにダウン・ドラフトの条件 $U \geq \frac{1}{2}Vs$ を満足する。このためにドラフトモデルを用い、かつ σ_0 を0, 10, 20 mと変えた場合の計算結果がそれぞれ異なり、 $\sigma_0 = 10 m$ の時にENEの風向で117 ppbまで計算値が高くなった。

なお、計算に用いた風速は前述した第二魚市場局での風

向別平均風速であり、例えばENE: 3.7 m/s, E: 4.4 m/s, ESE: 4.5 m/s, SE: 4.9 m/s等を用いた。

4.3 評価

図9に、先に計算した図7と図8の結果を重ねた。

実測値を整理した図6と比較すると八戸市庁局でのSO₂高濃度汚染には

- ① 暖房期間中でのE方向からのボイラーの影響
- ② 全期間を通じてのNE方向からの大手工場の影響とに
とに区分される。

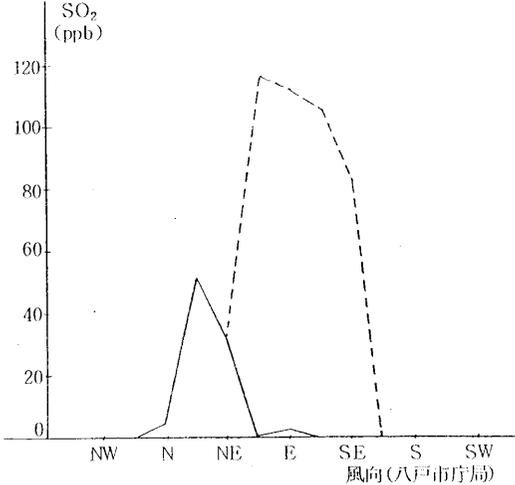


図9 八戸市庁局での推定濃度 (ドラフトモデル)

濃度評価のためのフィルターとしては、①の場合には風が強い場合が多く、NO/NO_xの占める率が大きいし、②の場合には比較的①よりは風速が弱く、かつNO/NO_xの比率は小さいはずである。

図6でのENEでの85ppbは、1984年1月4日、9:00のもので、風速6.0 m/sの時だったので、これは①に妥当し、評価から外すべきものだったと考えられる。

前報⁽³⁾において、特定の発生源とリセプターとの間には

$$U^p_{max} = \frac{K}{Ho} \times \frac{1 + \sqrt{1 + 4a^2}}{2a^2} \quad (1)$$

ここで $He = Ho + \frac{K}{U^p}$, $a = \frac{\sigma z}{\sqrt{p} \times Ho}$

で表わすことのできるU_{max}が存在することを報告した。

このU_{max}はHoが大きく、QH下が小さく、大気安定度が不安定なほど小さくなる傾向をもつ。

いまJ工場の大型ボイラーと、A工場のディーゼル発電の1、2号について、乱れの大きいMcElroyのσ_y, σ_zを用いて計算したU_{max} (ただしリセプターと八戸市庁局では約3,000 m離れている) は、それぞれ2.3 m/s, 2.0 m/sとなり、推定計算に用いた風速よりも低い値のとこ

ろで濃度は最大値をとる。

逆に、これらのU_{max}を用いると、図9の大手工場からの影響はもっと大きくなり、いまU = 2.0 m/sとし、NNEにおいて同様の重合濃度を推定しなおすと、P-G下D、モデルでは1.1倍、ドラフトモデルでは1.5倍、推定値が高くなった。

さらに、最初に述べたように、NE系の風の時には冷湿なヤマセと、朝夕で反転する海陸風の海風の時がある。図6での73ppbは、1983年7月23日の15:00と17:00に出現した時の値でこの時には気圧傾度もゆるんでいたため、これは海風の侵入と見た方がよさそうである。

5 海風によるSO₂, NO_x, SPMの高濃度

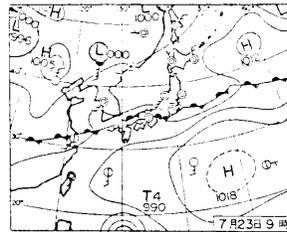
1983年7月23日、15:00と17:00にNE系の風により八戸市庁局でSO₂が73ppbと高濃度を示した。

この時の風速 (八戸市庁局) はいずれも1.5 m/s, 0.8 m/sと微風で、疾風汚染とは異なるものの、市内全域に濃度が高かった特異日であったことから現象を解析する。

5.1 気象現象

○ 天気概況

当日1983年7月23日 AM9:00の天気図を図10に示す。



23日(土) 58年7月豪雨
島根県中心に集中豪雨。県内3時間雨量150~200mmの所頻出。浜田日量330mm。山口との阿蘇で死不明119人、没水1万戸超す。Fゆっくり北上、九州北部は梅雨明け。

図10 1983.7.23AM9:00天気図

関東に梅雨前線が停滞し、つゆ明け1週間前に当たる。日本海にあった低気圧が20日から22日にかけて北海道の北へぬけた。このため、3日間ヤマセが卓越しNE方向の風が継続したが、23日にはようやく気圧傾度もゆるみ、日中には海風が入った。

気圧配置による天気図分類⁽⁴⁾ではタイプ8から11へ変わったケースであり最も海風が入りやすい型であった。図11に当日のリセプターでの気象因子を示す。

○ 風向・風速

朝方はまだW成分の風であったが、6:00からE成分の海からの風になり、日中2 m/sぐらいの弱風で17:00

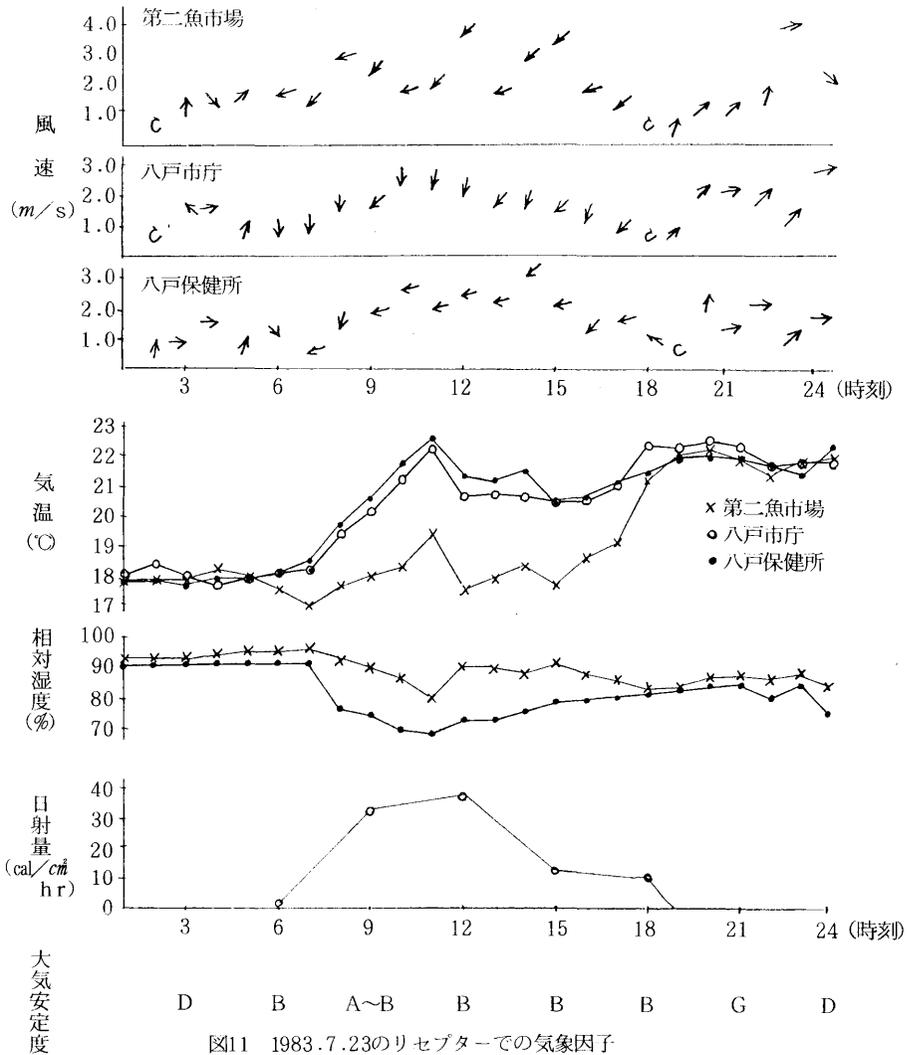


図11 1983.7.23のリセプターでの気象因子

頃まで継続した。18:00には風(なぎ)で風がなく、19:00には風向が反転して海の方へ吹くW成分の風になった。

○ 気温・相対湿度

風向の反転と同時に、海岸では2~3℃冷たい風が入り相対湿度も10~15%高い。

しかし、内陸にある八戸市庁局(約3km)や八戸保健所局(約9km)ではともに日中での昇温が大きく相対湿度も低く乾燥している。

夜には風向がWSWに変わってから全域で昇温し、前日より約4℃も高くなった。

○ 日射量・大気安定度

当日の日射量は、12:00に $37 \text{ cal}/\text{cm}^2 \cdot \text{hr}$ とあまり強い日ではない。

測候所の風速と日射量(夜間は曇量)からPasquillの大気安定度を判別すると、図のように海からの風の時

にA~B, Bと不安定なランクを示している。

○ 気温の垂直分布

図12に八戸火力発電所の120m煙突で測定している気温の垂直分布を示す。

118~76mの層には、気温の等温層(安定層)があり、日中を通じてほとんど変わっていない。

9:00~15:00まで下層へは海からの冷たいNE系の風が侵入したために、相対的に上層とは気温の逆転が生じた。

さらに日中では地面が日射で暖められることから特に下層の45~6mの層では、気温減率が $-1.0 \text{ }^\circ\text{C}/40\text{m} \sim -2.3 \text{ }^\circ\text{C}/40\text{m}$ と強い不安定層が形成された。

18時以降はSW系の風になったため、昇温し、全層が中立に近く、気温減率は $-1.0 \text{ }^\circ\text{C}/100\text{m}$ を示した。

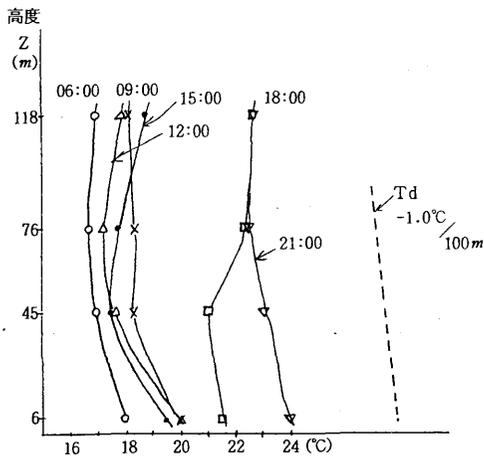


図12 気温の垂直分布

○ 風速の高度差

通常、大気安定度が中立の場合、風速は接地境界層の中では高度が増すごとに増加する。

図13に火力発電所屋上(43m)と、第二魚市場局(24m)での風速を示した。

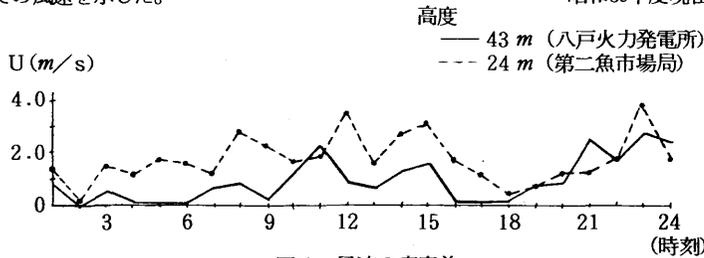


図13 風速の高度差

この場合には、上層ほど逆に風が弱く、図12の大気が安定な状態にあることとよい対応を示している。

ここでは高さ118m以上の気温データや、内陸での気温の垂直分布がないために、推定せざるを得ないが、今まで八戸地区で行われた各種の気象調査^{9~11)}等から類推すると、この海岸では海風により内部境界層が発達したと考えられ、気温の垂直分布は内陸に入るに従って下層から崩れて当日は、前報(4)で述べたフューミゲーション(いぶし)状態をひき起す典型的な気象条件に相当したと考えられる。

図14にLyonsとColeによるミシガン湖で行われた調査結果¹²⁾フューミゲーションの汚染の例¹³⁾を再掲する。

5.2 汚染物質の排出量

当日の大手工場での稼働状況は、施設ごとに記録されており、燃料使用量等から、SO₂排出量の大きい施設のうち、NE系の風で内陸にあるリセプターへ影響を及ぼしそうな主な施設を表3に示す。

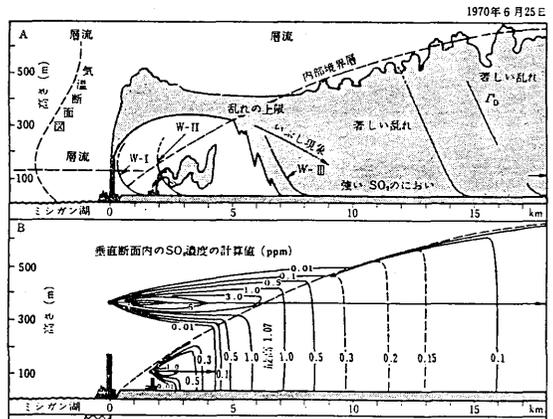


図14 ミシガン湖岸の汚染 (1970.5.27のフューミゲーションの例)

その他の施設等も加えると、当日の固定発生源からのSO₂、NO_xの排出量は各々、約500Nm³/h、800Nm³/hと推定される。

さらに、市内の移動発生源からのSO₂、NO_xの排出量は、昭和59年度現在での市内全域でSO₂が19Nm³/hに対して、

NO_xが211Nm³/hと推定されている¹⁴⁾ので、当日はこれのうちNE系の風によって運ばれる分をさらに加算したものと考えられる。

中でも固定発生源のA-6、7のディーゼル発電機からのNO_x排出量は、2つの施設だけで全体の1/2を占めるほどNO_x排出の原単位が大きい^{15,16)}。

表3 主な発生源のSO₂、NO_x 排出量

Ho (m)	工場施設名	SO ₂ (Nm ³ /h)	NO _x (Nm ³ /h)
120	J-30	120	130
60	A-2	60	10
60	-5	30	11
60	-6	45	200
60	-7	60	250
78	L-1	70	70

5.3 リセプターでの汚染物質濃度

当日のSO₂濃度は、八戸市庁局で73ppb、工業高校局で62ppbと、環境基準濃度の短期評価(1時間値)の100ppbは超えなかったが年間でも高いレベルにあり、かつリセプターも複数であり、汚染地域も拡がりをもっている。

臨海部に位置する第二魚市場局を一方の端として、海から内陸へ約2.5kmの工業高校局、約3kmの八戸市庁局、一番奥の約8kmの八戸保健所局を市内のリセプターから選定し、9:00~15:00まで風が海から内陸へ吹込んでいる時の汚染物質の内陸への拡散の様子を調べた。

なお図中、リセプターでの濃度を内陸にむかって分りやすくするために直線で結んであるが、リセプター間の途中の様子は図からは分らない。

5.3.1 SO₂濃度

図15にSO₂濃度の例を示す。

使用機種はすべてGRH-73型である。

しかしながら、この種の現象の確認には現在のリセプターでは海から内陸への汚染のレベル及び拡がりをも十分に把握しているとは言いがたい。

特に八戸保健所局での18:00の高い値のときは、内陸のどこまでそのピークが達しているかが不明瞭であり、今後、臨時のリセプター等設置での検証も必要である。

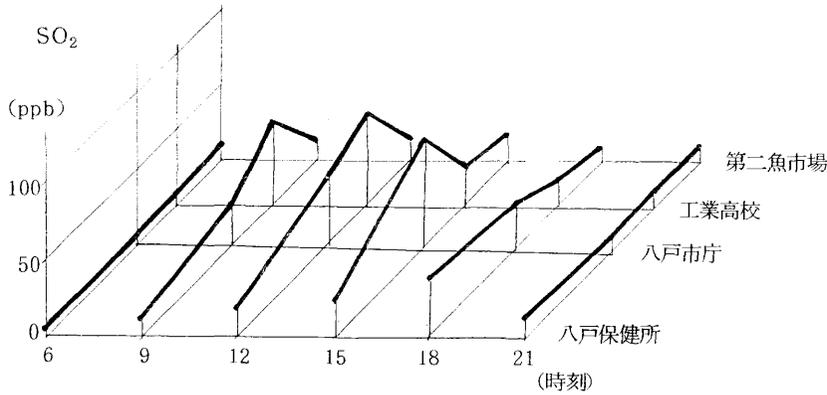


図15 SO₂濃度の時刻変化

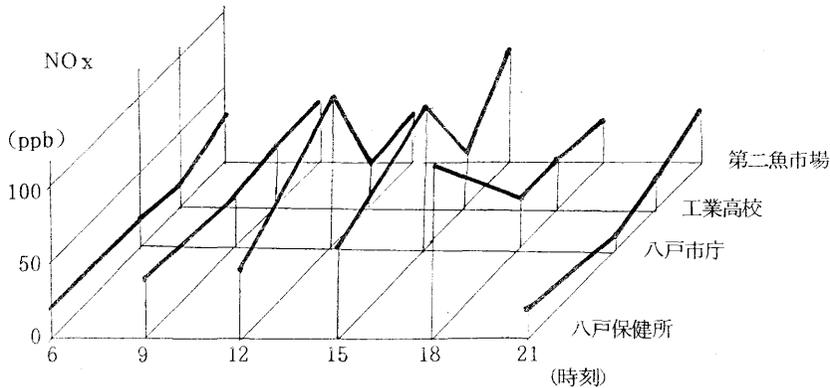


図16 NO_x濃度の時刻変化

NEの風の侵入のため、第二魚市場局は低いが、工業高校局が9:00に37ppb (図にはないが11:00に62ppbで年間2番目の高い値)とピークを示し、15:00には八戸市庁局で73ppb (年間で3番目に高い値)を記録した。

さらに18:00には最も内陸に位置する八戸保健所局で39ppb (年間で3番目に高い値)を示し、その後は風向がSWに反転し、21:00には全局ともB・G値に近い値まで減少した。

この高濃度は、先の気温の垂直分布等から考えると典型的なヒューミゲーション状態が生じたものと考えられ、不安定な下層での上下混合による濃度の高まりと、内部境界層への高煙源からの急激な混合等が考えられる。

さらに、八戸地区ではK値規制により1本の煙源の場合、K=6.0から地表での着地濃度は10ppbより高くならないだろうと想定されているが、この種の現象に対しては現在八戸地区でとられている冬期3ヶ月間の疾風汚染時の対策とは別の、公害防止対策が必要となる。

5.3.2 NO_x濃度

図16にNO_x濃度の例を示す。

使用機種は第二魚市場局がTGA-202型で、あとはGPH-74型を用いた。

NEの風の侵入に伴って、12:00には八戸市庁局で100ppbを示した。

15:00には第二魚市場局でも高く、一部風上の第三魚

港等の船舶からの影響も受けたと考えられる。

18:00の風が止った時刻には、八戸保健所局で113 ppbを示し(図中にはないが19:00に120 ppb)、SO₂濃度が高くなった時刻と一致し、7月での最高値を記録した。

特筆すべきことに、この日は効外にある旭ヶ丘小学校局(標高62m)で11:00に134 ppb、13:00に117 ppbと同時刻での八戸市庁局より高い値を示した。

このことから、NO_x濃度は、広域でかつ変動が大きかったことが分った。

当日の高濃度のランクは工業高校局、八戸市庁局、八戸保健所局とも年間での99.2%タイルに相当するで高いレベルにあったが、市内にある自動車排ガス局では89%タイル値に相当する値(値は17:00に202 ppbと高いが)で、特別に高い日ではなかった。

5.3.3 NO/NO_xの比率

環境庁の窒素酸化物総量規制マニュアル¹⁷⁾によると、

$$\text{NO}/\text{NO}_x = \frac{0.9}{1+0.3} (e^{-K_3 \times O_3 \times x} + 0.3) \quad (2)$$

ここで $K_3 = 0.006$

$O_3 = 0.023(\text{昼})$ (兵庫県の例)

とあって、煙源から風下へ吹送するに従ってNOは大気中のO₃と反応し、NO₂に変質していく例が紹介されている。

いま、八戸地区の臨海部の発生源からも、多量のNO_xが排出されているので、その中のNOの変質を考えると内陸に入るほど風下距離により比率は低くなるはずである。

表4に固定発生源からだけの比率の推定値と、実際に測定された当日のリセプターにおける比率を示す。

表4 NO/NO_xの比率

リセプター	推定値	当日の値
第二魚市場局	(0.8)	0.2~0.5
工業高校局	0.7	0.2~0.4
八戸市庁局	0.6	0.2~0.7
八戸保健所局	0.4	0.3~0.7

推定値と実測値は必ずしも一致していない。

また、当日の自動車排ガス局では0.43~0.76であった。この表から、旭ヶ丘小学校局での最高値の時にはそれぞれ0.27、0.33だったことから、近傍の影響とは異なり、移入されてきたNO₂であると判断される。

同様に、八戸保健所9:00でのENEで0.71、八戸市庁局12:00での0.66等は、近くの車の影響を大きく受けていたと推定される。

5.3.4 NO_x/SO₂の比率

発生源におけるこの比率は、表3からJ-30などのボイラー等ではほぼ1.0に等しい。

A-6,7のディーゼル発電機では約5倍と大きくなる。

さらに移動発生源の自動車は、前出の値や、通産省の資料¹⁸⁾から軽油中の硫黄分を0.4%、ガンリンは0%と推定して計算すると約10倍と、大きな値をとる。

これらを総合した八戸市内での総排出量の比は、約2倍であった。

一方、リセプターでの比率は、工業高校の9:00での1.1倍から前述の旭ヶ丘小学校局でのNO_xの最高値の時の7.3倍まで、大きな幅をもつ。

このことは、各リセプターが固定発生源からの影響以外に、移動発生源から放出されたNO_xの分も加算して評価していることを示している。

5.3.5 SPM濃度

図17にSPM濃度の例を示す。

使用機種はDust計AP-632であり、その値をローボリでF値校正している。

図での濃度のピークは9:00にすべてのリセプターのように見えるが、実際には1時間早い8:00に市内全域がピークになり、中でも工業高校局が0.202 mg/m³と99.6%タイル値に相当する高い値を記録している。

日中には全てのリセプターで減少し、夕方再び19:00~20:00にかけて2つ目の山が見られる。

日中で減少するのは、SO₂やNO_xと大きく違っている。

特に八戸保健所局でのSPMの高まりは、SO₂、NO_x、CO、NMHC等のピークとも一致する。

この日の値は年間を通してすべてのリセプターに共通して98%タイル値以上の高いランクにあった。

5.3.6 Ox濃度

図18にOx濃度の例を示す。

使用機種は八戸保健所局はTGA-300型で、あとはOX-07型である。

前述の図3からも明らかであるが、Oxのピークは5月にあり、7月はあまり高くない。

大気中のNOは、Oxとして測定されているO₃と反応してNO₂を生成する¹⁷⁾と言われており、このことからOxはNO₂の生成には欠かせないもの。

当日は、夜にWSWの風が入ってから全リセプターで濃度があがって24:00には30~40 ppbを記録したが、NOが高いところでは、その時間帯だけOxが低くなる傾向が見られ、特にTGA-300型の測定器の方が比較的敏感なようである。

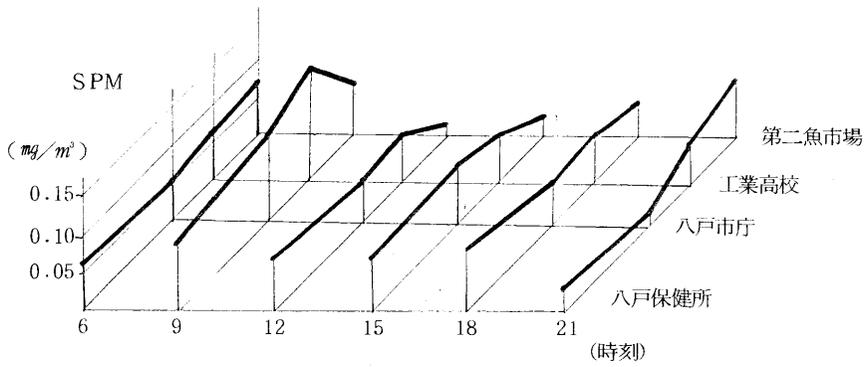


図17 SPM 濃度の時刻変化

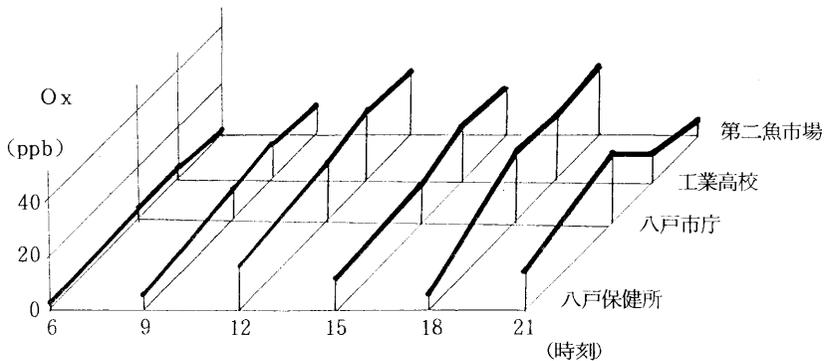


図18 Ox 濃度の時刻変化

5.3.7 CO, NMHC 濃度

COは、移動発生源のみから、しかも地上付近で排出されることから、そのまま、地表付近での拡散現象を物語っている。

年間を通じて、COの最高値は冬期に出現しているが、当日の夕方にはすべてのリセプターでピークを示し、夕方1山の汚染を示した。

この日の自動車排ガス局の7.7ppmは環境局での3～4倍に相当して、99%タイル値を示し、高いレベルであった。

NMHCは、各リセプターとも夕方の18:00～19:00にかけて濃度の高まりを示し、やはりCOと同じように夕方1山の汚染を示した。

ただし、第二魚市場局近くには約100基を超えるオイルタンク群があり、その中の大部分がまだコーンルーフのため、タンクの呼吸や、オイルの積み込み時にHCが放出されており、NEの風での濃度の高まりが見られた。

この日の6:00～9:00までのNMHC濃度は3時間平均値でほぼ0.30ppmCを示した。

このレベルは昭和51年8月13日付けで中央公害対策案議会より出された光化学オキシダントの生成防止のための0.20ppmC～0.31ppmCのランクに該当していたが、Ox濃度の上昇は見られなかった。

今後、同様の現象があって、日射がさらに強くなった場合での、光化学オキシダントの生成等については、注意をはらってしかるべき汚染レベルであった。

6 まとめ

1. 臨海工業地帯から、海風によって内陸へ運ばれる汚染物質は、フューミゲーション(いぶし)状態を伴って内陸に、SO₂, NO_x, SPM等の思わぬ高濃度をもたらす。
2. この場合での汚染物質による特徴は、SO₂の場合には工業高校局、八戸市庁局でそれぞれ62, 73ppb(環境基準の短期評価100ppb)と日中に高かった。NO₂は大きく変動し、広域に汚染され旭ヶ丘小学校局でも120～130ppbを記録した。SPMは8:00頃に市内全域でピークに

なり、さらに夕方にも2型の汚染の特徴をもつ。

3. 夕方の凧(なぎ)の時刻に、内陸約9km入った八戸保健所局で、ほとんど汚染項目がピークを示したが内陸部の最大濃度地点等の確認はいまだなされていない。
4. 八戸市庁局におけるNE系の風での高濃度には大手工場からと、市庁舎の暖房用ボイラーからの影響とがあり、分離して評価する必要がある。

7 今後の課題

先報までは第二魚市場局でのSO₂濃度低減対策に関して解析したが、海風が侵入する場の拡散現象には

- ① 逆転層高度の確認
- ② 排煙の上昇高さ
- ③ 内部境界層の内陸部での変質

等が加わり、より現象を複雑にする。

臨海工業地帯でのフューミゲーション状態は、気象、拡散現象としては避けられないものであり、思わぬ高濃度をもたらす¹⁹⁾ことから、現象のモデル化^{20,21)}を通じて汚染機構を明らかにする必要がある。

また八戸地区では海からの風に、冷湿な海霧をともなうヤマセ(偏東風)があり、海霧侵入時の内陸における酸性雨の問題等にもさらに解析を広げる必要がある。

さらに当地区には、NO_xを大量に排出しているディーゼル発電機、さらにはばいじんの排出量が原単位として多いパルプの黒液回収ボイラー等があり、ばい煙発生施設らの排出規制の均衡を保つ必要性からも、今後、これらの施設では除害設備の設置を必要とする。

文 献

- 1) 吉田 毅, 早狩 進, 松尾 章: 疾風型重合汚染における大気汚染濃度の評価に関する検討(1)——特に気象現象と拡散モデル, 青森県公害センター所報, **5**, 1-9 (1981)
- 2) 吉田 毅, 早狩 進, 松尾 章, 高橋昭則: 疾風型重合汚染における大気汚染濃度の評価に関する検討(2)——拡散パラメータの決定と重合汚染濃度の推定, 青森県公害センター所報, **6**, 7-17 (1983)
- 3) 吉田 毅, 早狩 進, 高橋昭則: 疾風型重合汚染における大気汚染濃度の評価に関する検討(3)——拡散モデルでの高濃度出現機構の解析, 青森県公害センター所報, **6**, 18-25 (1983)
- 4) 吉田 毅, 早狩 進, 差波弘信: 気圧配置による大気汚染ポテンシャルの有意性に関する検討, 青森県公害センター所報, **4**, 1-18 (1979)
- 5) Briggs, G. A.: Plume Rise, U. S. Atomic Energy Commission Office of Information Services, pp81(1969)
- 6) Turner, D. B.: Workbook of Atmospheric Dispersion Estimates, U.S. Department of Health, Education, and Welfare, (1967)
- 7) Gifford, F. A.: Atmospheric dispersion models for environmental pollution application, Lectures on Air Pollution and Environmental Impact Analysis, AMS, Boston, pp. 35-58 (1975)
- 8) Pasquill, F.: Atmospheric dispersion parameters in GAUSSIAN PLUME MODELING, EPA-600/4-76-0306 (1976)
- 9) 千秋鋭夫: 海陸風領域における地表境界層の解析, 大気汚染研究, **1**(1), 46-54 (1966)
- 10) 青森県: 八戸地区環境大気調査報告書, 昭和47年2月, pp149
- 11) 青森県: 昭和48年度八戸地区環境大気調査報告書, 昭和49年3月, pp114
- 12) Lyons, W. A. and Cole, H. S.: Fumigation and plume trapping on the shores of Lake Michigan during stable onshore flow, J. Appl. Met. **12**, 494-510 (1973)
- 13) 太田久雄, 長尾 隆: 公害と気象——観測と調査の実際, 地人書館, pp242 (1974)
- 14) 青森県: 八戸火力発電所(5号機)に係る電源立地環境審査補助事業調査報告書, 昭和58年3月, pp177
- 15) 青森県環境保健部公害課: 窒素酸化物基準設定基礎調査報告書(昭和52年度環境庁委託調査), 昭和53年3月, pp49
- 16) 工藤精一, 石塚伸一, 根岸勝信, 松尾 章, 山田良一, 差波弘信: 煙道から排出される窒素酸化物量の実態, 青森県公害センター所報, **4**, 23-27 (1979)
- 17) 環境庁大気保全局大気規制課編: 窒素酸化物総量規制マニュアル, 公害研究対策センター, p171 (1982)
- 18) 通商産業省立地公害局編: 産業公害総合事前調査におけるSO_x, NO_xに係る環境濃度予測手法マニュアル, 社団法人産業公害防止協会, pp290 (1981)
- 19) 小川 靖: 最悪の大気汚染はどんな時, どんな場所で出現するか? ——地形障害物と大気安定度の影響, 国立公害研究発表会予稿集, p45-51 (1983)
- 20) 蒲生 稔, 横山長之: いぶし現象の拡散モデル, 工業業技術院公害資料研究所, 公害, **17**, **5**, pp67-74 (1982)
- 21) 溝尻純枝, 伊藤昭三: フューミゲーション状態下での大気拡散モデル化, 大気汚染学会, **17**(3), 228-235 (1982)

北国におけるオキシダント濃度の特性(2)

— 八甲田, 田茂菴岳山頂でのオゾンの調査結果 —

The Property of Atmospheric Oxidant Concentration over the North Provinces of Japan

梅原 茂・吉田 毅・早狩 進*

1 はじめに

本州最北端に位置する青森県において、これまでオキシダントの高濃度現象が春季を中心に発生しており、八戸市内の9局及び非汚染地域の六ヶ所村の1局で環境基準値の1時間値60ppbを超える。

オキシダント高濃度現象は広域的、で春季における移動性高気圧の通過時に起る成層圏オゾンの沈降によるといわれる^{1~8)}。この高濃度現象をさらに明らかにするため、1983年から国立公害研究所との共同研究で、一次汚染物質の影響を受けないと思われる山岳地帯(八甲田, 田茂菴岳山頂 1,324 m)にオゾン計を設置し、バックグラウンド調査を行ってきた。

本報では、北国における汚染地域・非汚染地域及びバックグラウンド調査の特性について報告する。

2 調査方法

八甲田, 田茂菴岳山頂でのオゾンの測定は、紫外線吸収法で高濃度補正を行い調査をした。

オゾン測定装置はTUV-1,100型(東京工業株式会社)製を使用した。

3 調査結果

1983年4月から1985年12月までの八甲田, 田茂菴岳山頂でのオゾン調査結果を表1及び図1に示した。

1) 汚染地域及び非汚染地域の測定局すべてに春のオキシダント高濃度現象が現われている。これらの局舎は平地にあるため、一次汚染物質等の影響を受けオゾンが消費されやすく、オゾンのバックグラウンド測定地点として不向きであった。そこで一次汚染物質の影響がないと思われる山岳地帯にオゾン計を設置しオゾンバックグラウンド調査を行ったところ、やはり春に環境基準値(60 ppb)を超える高濃度現象が現われた。

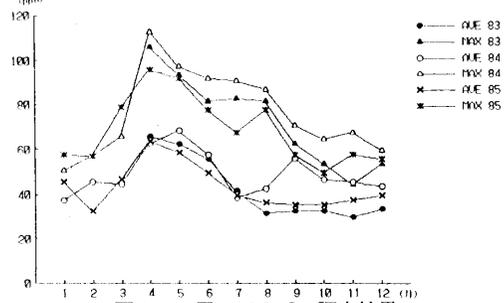


図1 八甲田での O₃ 調査結果

表1 八甲田での O₃ 調査結果

										(単位 ppb)				
年月	AVE	MAX	MIN	備考	年月	AVE	MAX	MIN	備考	年月	AVE	MAX	MIN	備考
83. 4	66	106	26	717	84. 4	63	113	5	716	85. 4	64	96	41	719
5	63	94	38	707	5	69	98	43	729	5	59	92	28	741
6	56	82	33	(491)	6	58	92	24	702	6	50	78	23	716
7	42	83	16	738	7	39	91	11	737	7	40	68	20	742
8	32	82	7	732	8	43	87	20	735	8	37	78	14	741
9	33	63	5	657	9	56	71	27	713	9	36	58	11	716
10	33	54	19	(263)	10	47	65	29	732	10	36	50	24	736
11	30	45	5	563	11	46	68	21	719	11	38	58	24	706
12	34	54	2	731	12	44	60	7	743	12	40	56	4	742
84. 1	38	51	11	658	85. 1	46	58	19	744					
2	46	57	16	698	2	33	57	1	642					
3	45	66	8	742	3	47	79	7	743					

注 備考は測定時間 (単位 h)

* 現公害課

2) 八甲田, 田茂菴岳山頂でのオゾン測定値とオキシダント測定値の相違を明らかにするため, 八戸市内に設置しているオキシダント計を八甲田のオゾン計に併置して測定を行った。その相関を図2に示した。

一次汚染物質の影響を受けない八甲田では, よう化カリウム法によるオゾン濃度の測定値は一致し, 相関は極めて良かった。

3) 汚染地域・非汚染地域のオキシダント測定値及び八甲田のオゾン測定値を比較した結果, 表2に環境基準値(60 ppb)を超えた日数と時間数を, 図3にその時間数との関係を示した(1983, 1984の2年分)。

環境基準を超える高濃度の出現時間数を2年分についてみると, 汚染地域4局と非汚染地域1局及び八甲田共に4月, 5月, 6月に集中し, 夏から秋にかけて低い値を示している。

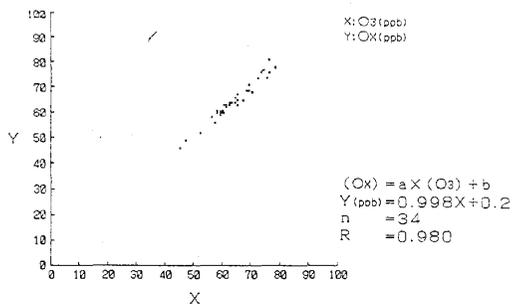


図2 オゾンとオキシダントの関係

表2-1 オキシダント濃度が環境基準を超えた日数と時間数

市町村	測定局		昭和58年										昭和59年		
			4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	1月	2月	3月	
八戸市	八戸市庁	日	9	15	2	0	0	1	0	0	0	0	0	0	0
		時間	49	105	3	0	0	1	0	0	0	0	0	0	0
	第二魚市場	日	1	4	0	0	0	1	0	0	0	0	0	0	0
		時間	6	21	0	0	0	1	0	0	0	0	0	0	0
	八戸工業高校	日	5	12	2	0	0	1	0	0	0	0	0	0	0
		時間	31	89	4	0	0	2	0	0	0	0	0	0	0
工大第一高校	日	9	18	1	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	
	時間	34	150	3	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	
六ヶ所村	尾駁小	日	14	18	2	0	1	0	0	0	0	0	0	0	
		時間	72	115	6	0	1	0	0	0	0	0	0	0	
青森市	八甲田O ₃ 計	日	26	22	10	3	0	0	0	0	0	0	0	0	
		時間	204	183	38	5	0	0	0	0	0	0	0	0	

表2-2 オキシダント濃度が環境基準を超えた日数と時間数

市町村	測定局		昭和59年										昭和60年		
			4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	1月	2月	3月	
八戸市	八戸市庁	日	2	2	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	2
		時間	8	3	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	5
	第二魚市場	日	1	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	1
		時間	3	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	2
	八戸工業高校	日	16	5	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
		時間	35	12	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
八工第一高校	日	4	1	0	0	0	0	0	0	0	0	0	1	12	
	時間	6	3	0	0	0	0	0	0	0	0	0	1	24	
六ヶ所村	尾駁小	日	20	8	2	0	0	0	0	0	0	0	0	0	9
		時間	152	29	3	0	0	0	0	0	0	0	0	0	21
青森市	八甲田O ₃ 計	日	20	29	17	0	2	2	1	0	0	0	0	0	3
		時間	160	243	100	0	7	3	1	0	0	0	0	0	22

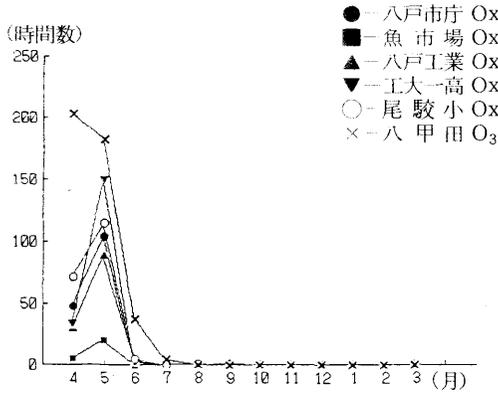


図3-1 環境基準を超える時間数(1983)

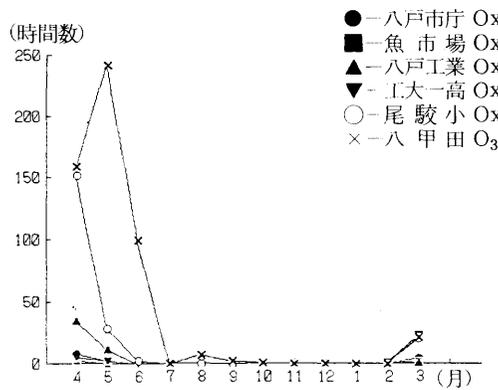


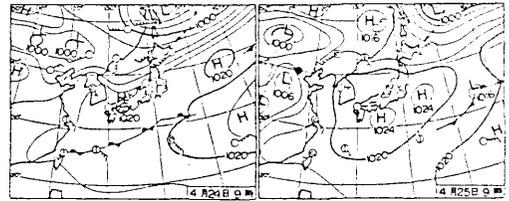
図3-2 環境基準を超えた時間数(1984)

4) 移動性高気圧が通過した時、その後面において生ずるオキシダント及び八甲田山頂でのオゾンの高濃度現象を天気図とともに図4に示した。

移動性高気圧通過時の後面においてオゾンの高濃度現象が発生することが多く、高濃度出現日1983年4月24日・25日と5月11日・12日の朝9時の天気図をみると、汚染地域・非汚染地域及びバックグラウンド地域環境基準を超えている。

5) 1983年及び1984年の汚染地域及び非汚染地域でのオキシダントと一次汚染物質 (NO₂, NO, CH₄, NMHC, SO₂) について図5-1~5に示した。

一次汚染物質は、光化学反応によるオキシダントの生成、消滅に関与する物質である。非汚染地域の六ヶ所村の場合、汚染地域の八戸市内の測定局中でもっとも低い局よりさらに低く、この時のオキシダントの高濃度現象は化学反応に起因する現象ではないと思われる。



24日(日)フェーン吹始める
南方海上にFあるが、大勢としては
南高北低型。ほぼOで南風吹き、全
国的にmax+3~9°。行楽地賑う。
かりがねをかへしもあへず板が
砂干がりとなりつくしけり 赤良

25日(月)東京今年初の夏日
26.8(+6.8)。光化学情報1号(昨
年は5月8日)。東北も軒並み夏日。
沖繩など1部で小雨もあったが、お
おむね①~③。2022宇都宮霞度IV。
東京郊外菜畑花盛り。

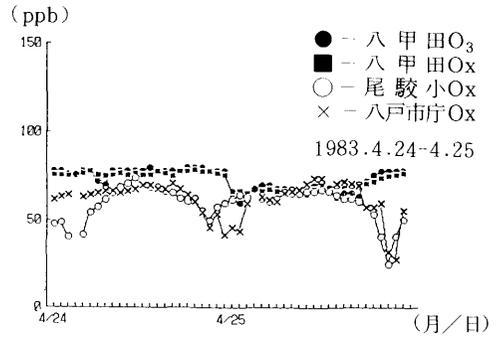
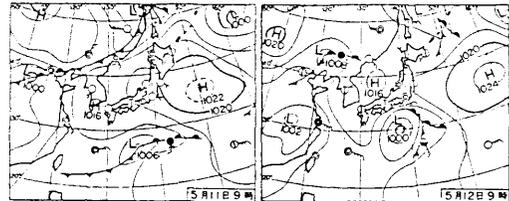


図4-1



11日(水)ソロモン諸島M6,7
帯状Hに掩われOの所多い。北海道
は①~③だが北方谷通過で1部で●
も。ぐずつきの沖風を除き、全国的
に高温。長良川鮎開始まる。疲れ
鶏の叱られてまた入りにけり 一茶

12日(木)Cold L北上
南方海上で停滞気味のL、上空に寒
気入りゆっくり北上。伊豆諸島から
●降り始め、夜は都心でも。東日本
一帯に②だったが、その他は①~③。
沖風も久しぶりに天気回復。

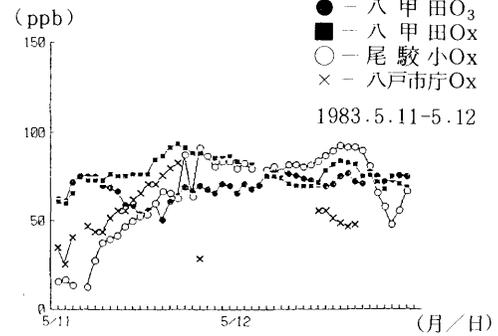


図4-2

図4 移動性高気圧の通過した時の後面でのオキシダント高濃度現象

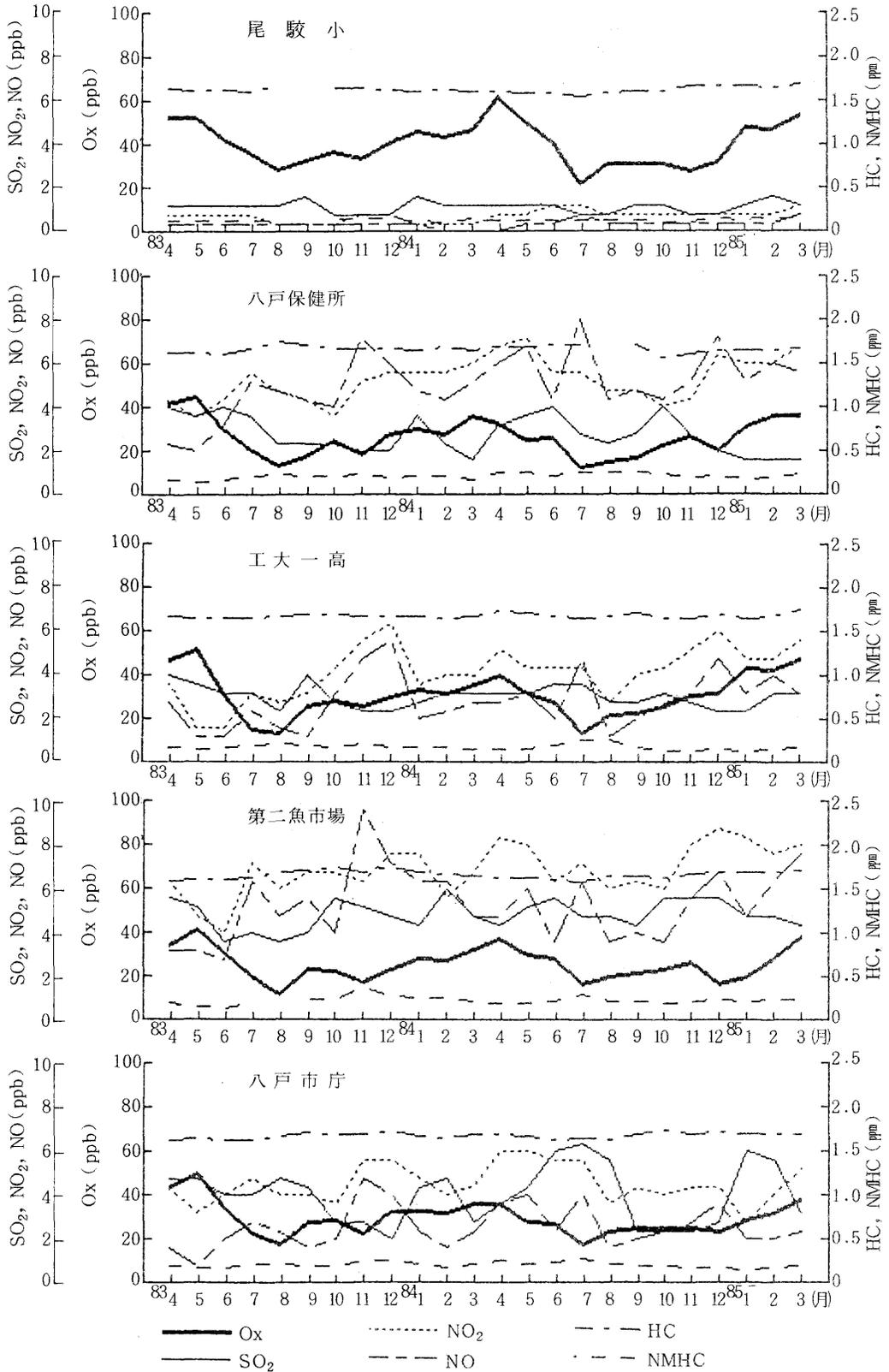


図5 オキシダントと一次汚染物質の比較

6) 1983年及び1984年の汚染地域・非汚染地域及び八甲田の測定局舎間でのオキシダント（オゾン）濃度の相関マトリックスを表3・4に示した。

汚染地域と非汚染地域及びバックグラウンド地域の八甲田での年間の相関マトリックスを比較すると八甲田と非汚染地域の六ヶ所村との相関は良いが汚染地域の八戸市内での相関は劣る。これは八戸市内にオゾンを吸収する一次汚染物質が存在することが考えられる。一方、八戸市内局舎間での相関は非常に高かった。

以上のことから、北国における春のオキシダント高濃度現象は移動性高気圧との関連が極めて強く、成層圏オゾンの沈降現象であることが再確認された。

7) オキシダントの高濃度の解析は、大都市・工業地域の一次汚染物質による光化学反応に起因するものと、汚染物質がその周辺地域に移流することで起るもの及び成層圏オゾンの沈降による場合などが明らかにされ、人為的起源と自然的起源に分られている。

成層圏オゾンは太陽紫外線の作用により生成されるものであり低緯度より多量に生成されるはずである。3月と6月における平均分布を緯度と高さについてみると(図6)⁹⁾、年間を通じて最もオゾンの多いのは北半球の春

の高緯度である。

成層圏オゾンの地表オキシダント濃度に及ぼす影響として、成層圏オゾンの地表オキシダント濃度への寄与が寒冷前線の後面だけでなく寒冷前線を背後にひかえた高気圧の後面でみられることが指摘されている¹⁰⁾(図7)。高気圧の後面でのオゾンはそれまでは、地表面近くでの光化学反応によって生成すると考えられていた。

また、Harthorn¹¹⁾らは、オゾン濃度上昇が寒冷前線通過後の数日間に高気圧後面で起っていることと、前線が広域に長時間存在し、それがオゾンを含む安定な層であることから図の如き模式図を作成した(図-8)。それによると前線は、先端、後端での前線層の厚さを表わすため切断されており、層内を成層圏空気が沈降している様子を示している。また、前線後端では前線図が消滅し高気圧による沈降がみられる。

今後さらに、移動性高気圧の通過した後面のオゾンの高濃度現象の追究ばかりでなく、温帯低気圧の前後でのオゾンの高濃度現象を広域的観点から調査研究を行う必要がある。

表3 測定局舎間でのオキシダント（オゾン）濃度の相関マトリックス

		1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
1	八戸市庁	—	.822	.849	.774	.798	.660	.800	.850	.746	.612	.006
2	八戸第二魚市場	—	—	.839	.745	.783	.747	.717	.745	.745	.617	.146
3	八戸工業高校	—	—	—	.710	.821	.692	.719	.753	.700	.637	.169
4	八工大第一高校	—	—	—	—	.639	.735	.837	.731	.621	.663	.055
5	根岸小学校	—	—	—	—	—	.684	.715	.739	.756	.576	.107
6	鮫小学校	—	—	—	—	—	—	.714	.592	.622	.606	.203
7	旭ヶ丘小学校	—	—	—	—	—	—	—	.762	.659	.617	.068
8	八戸保健所	—	—	—	—	—	—	—	—	.714	.573	-0.004
9	桔梗野小学校	—	—	—	—	—	—	—	—	—	.539	.095
10	尾駸小学校	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	.281
11	八甲田山	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—

表4 Ox (O₃) 1983.4～1984.3

		1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
1	八戸市庁	—	.884	.861	.840	.833	.671	.835	.868	.841	.690	.357
2	八戸第二魚市場	—	—	.851	.854	.812	.714	.810	.805	.794	.707	.361
3	八戸工業高校	—	—	—	.791	.826	.700	.795	.771	.798	.664	.416
4	八工大第一高校	—	—	—	—	.715	.719	.836	.746	.768	.695	.394
5	根岸小学校	—	—	—	—	—	.704	.763	.785	.840	.649	.340
6	鮫小学校	—	—	—	—	—	—	.779	.601	.731	.611	.530
7	旭ヶ丘小学校	—	—	—	—	—	—	—	.763	.826	.678	.513
8	八戸保健所	—	—	—	—	—	—	—	—	.791	.600	.320
9	桔梗野小学校	—	—	—	—	—	—	—	—	—	.695	.495
10	尾駸小学校	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	.456
11	八甲田山	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—

4 総 括

北国におけるオキシダントの高濃度現象解明のため一次汚染物質の影響を受けない山岳地帯でオゾンバックグラウンド調査を行った。また汚染地区、非汚染地区におけるオキシダント濃度との関係を観察し、次の知見を得た。

- 1) 汚染地域・非汚染地域及びバックグラウンドの調査で、春に環境基準を超える高濃度現象がみられ4～6月にオキシダントの高濃度が出現し、夏から秋にかけて低い値を示した。
- 2) 一次汚染物質の影響を受けない山岳地帯におけるバックグラウンド調査で、よう化カリウム法によるオキシダント濃度の測定値と、紫外線吸収法によるオゾン濃度の測定値は一致し相関は極めて高かった。
- 3) 非汚染地域でのオキシダント高濃度現象に一次汚染物質が関与しているとは考えられない。
- 4) 北国における春のオキシダント高濃度現象は、移動性高気圧との関連が極めて高く、成層圏オゾンの沈降現象であろうことがうかがわれた。

今後、温帯低気圧との関連を含め、広域的調査研究が必要と思われる。

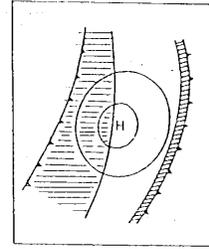


図7 成層圏オゾンの沈降により、地上濃度が高くなる地域—斜線部

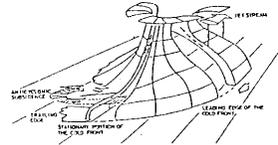


図8 寒冷前線による成層圏オゾンの沈降をあらわす模式図

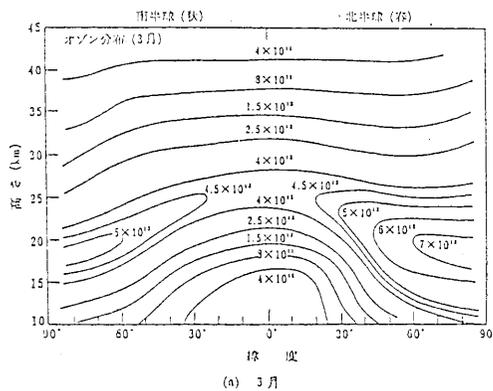


図6-1 オゾンの分布⁹⁾

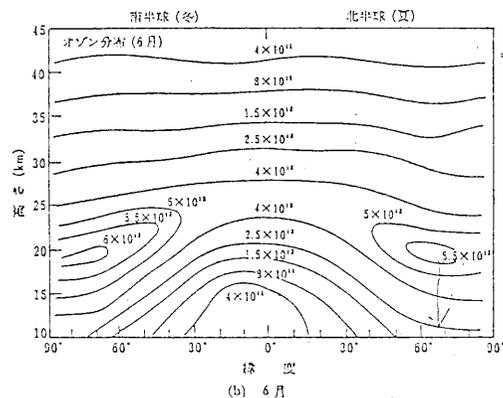


図6-2 オゾンの分布⁹⁾

5 文 献

- 1) 早狩進：北国におけるオキシダント濃度の特性，青森県公害センター所報 6，1～5 (1983)
- 2) 梅原茂：北国におけるオキシダント濃度の特性(2)，第28回全国環境衛生大会講演要旨集，105，(1984)
- 3) 梅原茂，吉田毅，工藤真哉：北国におけるオキシダント濃度の特性(2)，青森県環境保健部あすをひらく，19，65 (1985)
- 4) 梅原茂，早狩進，吉田毅，原子昭：北国におけるオキシダント濃度の特性(八甲田，田茂菴岳山頂でのオゾンバックグラウンド調査)，第26回大気汚染学会誌講演要旨集，353，(1985)
- 5) 鈴木武夫，鶴田治雄：大気汚染の機構と解析，141～201 (1980)
- 6) 安田敏明，根本順吉：大気科学入門，42～45 (1976)
- 7) 島崎達夫：高層の大気圧，9，91～108 (1983)
- 8) 小川利宏，木村富士雄，鶴田治雄，溝口次夫：オゾンバックグラウンド濃度解析調査，日本気象協会編，(1985)
- 9) 木田秀次：成層圏オゾン，39～146 (1983)
- 10) 村尾直人，大喜多敏一，太田幸雄：成層圏オゾンの地表オキシダント濃度に及ぼす影響に関する一考察，天気 29，63～70 (1982)
- 11) Harthorn, J.W. and H.M. Walker, 1976: A "TEXAS SIZE" ozone episode tracked to its source, Proc. Int. Conf. on Photochemical Oxidant Pollution and its control, EPA Report No. EPA-600/3-77-001 a.

自動測定機器等の精度に関する研究

— ガスクロマトグラフィーによる炭化水素測定法の検討 —

Studies on precision of Air Pollution meters
Investigation of Hydrocarbon Measurement by G.C

梅原 茂・手代森光仁・吉田 毅
早狩 進*・高橋 昭則**

1 はじめに

本報は、昭和59年度において環境庁の委託により、青森県・東京都・横浜市が実施した自動測定機器等に関する研究（非メタン炭化水素自動測定記録計）の中から青森県が担当した、ガスクロマトグラフィーによる各種炭化水素の検討結果である。

2 試験の概要

1.1 試験の目的

昭和51年8月に光化学オキシダント防止を目的とした環境大気中の非メタン炭化水素濃度レベルの指針値が出され、環境大気中の非メタン炭化水素標準測定法として直接法測定方式が採用されている。

この方式による計測器は、現在、全国の測定局のほとんどで使用されており、これまでも各種の精度研究¹⁾がなされ、これらの成果を踏まえて種々の改良等がメーカーによって行われてきた。

したがって、これまでの機器の改良等によって、現在市販されている非メタン炭化水素自動記録計が、どの程度の精度の状況にあるのかを観察し、低濃度域におけるデータの信頼性について、大気汚染防止のための基礎的資料を得ることを目的とした。

1.2 試験期間

昭和59年10月29日から昭和60年3月20日

1.3 試験対象器種

試験に使用した計測器は、現在市販されている直接法による計測器1社1器種で、合計4器種であり、整備済のものを借用したもので表-1に示した。

表1 試験対象器種

計測器記号	試験対象器種名	使用台数
A	島津製作所 HCM-3AS	各 1 台
B	電気化学計器 GHC-75M	各 1 台
C	堀場製作所 APHA-3000	各 1 台
D	柳本製作所 AG-202	各 1 台

1.4 試験項目

- (1) 性能試験
- (2) 実環境大気器種差試験
- (3) ガスクロマトグラフィーによる各種炭化水素の分析の検討

1.5 試験対象器種の概要

試験に使用した4種の計測器の概要を表-2に示す。また、図1-1～4に計測器の流路系統図を示した。

* 青森県環境保健部公害課

** 八戸市公害対策課

表2 計測器の概要

測定器記号	A	B	C
測定原理	ガスクロマトグラフ法	同 左	同 左
検出器	水素炎イオン化検出器	同 左	同 左
測定成分	NMHC, CH ₄ (あるいはTHC, NMHC)	NMHC, CH ₄	同 左
測定レンジ (ppmC)	0~5, 0~10	0~5, 0~10	0~5, 0~10, 0~25
測定サイクル (分)	1周期9分50秒 1時間6回	1周期10分 1時間6回	1周期6分 1時間10回
記録方式	6打点記録, 各成分の 瞬時値及び1時間平均 値トレンド記録	4打点記録, 各成分の 瞬時値トレンド記録, 1 時間平均値鋸歯状記録	同 左
スパン校正	CH ₄ 標準ガス 手動又は0~24時間ごと 連続3回自動導入, 手動スパン設定	CH ₄ 標準ガス, 自動導 入, 自動スパン設定	同 左
ゼロ点(ベースライン)調整	1分析周期1回自動調整	1分析周期2回自動調整	同 左
積分器ゼロ調整	運転開始時調整	調整不要	同 左
記録計	有効記録幅(mm)	180	同 左
	入力電圧	DC 0~10mV	DC 0~100mV
カラム温度 (°C)	60	60	65
カラムの種類, 長さ	プレカラム: ポラパック Q 80/100メッシュ 1m メインカラム: 活性炭 30/60メッシュ 50cm	カラムI: ポラパックQ 50/80メッシュ 1.5m カラムII: ポラパックQ 50/80メッシュ 1.5m	カラムI: 20%-シリ コンDC-550, ポラパ ックQ 1.7m カラムII: モレキュラシ ープ-13X 0.2m
キャリアーガス流量(ml/min)	100~150	45	60
水素ガス流量(ml/min)	40	40	40
助燃ガス流量(l/min)	1	0.5	0.35
試料大気流速(l/min)	1	1	1
試料大気計量管容量	テフロン管 外径3mm 長さ2m 容量10ml	ステンレス管 4.5~5.0ml	ステンレス管 5ml
試料大気導入管	テフロン管 内径6mm	同 左	同 左
所要電源	AC100V \pm 10% 12A	AC100V \pm 10% 7.5A	AC100V \pm 10% 7A
寸法 (mm)	高さ 幅 奥行 520 384 698	高さ 幅 奥行 1580 460 500	高さ 幅 奥行 1650 450 550
重量 (kg)	64	100	150

測定器記号	D	
測定原理	同 左	
検出器	同 左	
測定成分	NMHC, CH ₄ (又はTHC)	
測定レンジ(ppmC)	0~5, 0~10, 0~20, 0~50 いずれか2つの組合せ	
測定サイクル(分)	1周期10分 1時間6回	
記録方式	6打点記録, 各成分の瞬時値及び 1時間平均値トレンド記録	
スパン校正	CH ₄ 標準ガス, 自動導入 手動スパン設定又は自動スパン設定	
ゼロ点(ベースライン)調整	1分析周期1回自動調整	
積分器ゼロ調整	調整不要	
記録計	有効記録幅(mm)	同 左
	入力電圧	DC 0~10mV
カラム温度(℃)	60	
カラムの種類, 長さ	カラムI: 5%OV-17 クロモノ ロブW 60/80メッシュ 2m カラムII: 1%-アピエゾングリー ス-L 活性アルミナ 60/80メ ッシュ 2m カラムIII: 活性炭 60/80メッ シュ 10cm	
キャリアーガス流量(ml/min)	60	
水素ガス流量(ml/min)	30	
助燃ガス流量(l/min)	0.5	
試料大気流速(l/min)	1~2	
試料大気計量管容量(ml)	ステンレス管 5ml	
試料大気導入管	テフロン管 内径6mm	
所要電源	AC100V±10% 4.5A	
寸法(mm)	高さ 幅 奥行 1600 520 510	
重量(kg)	90	

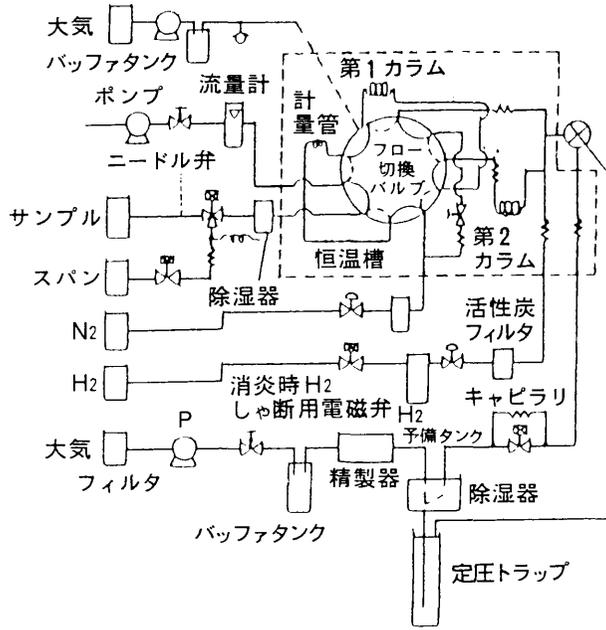


図1-3 計測器(C) 流路図

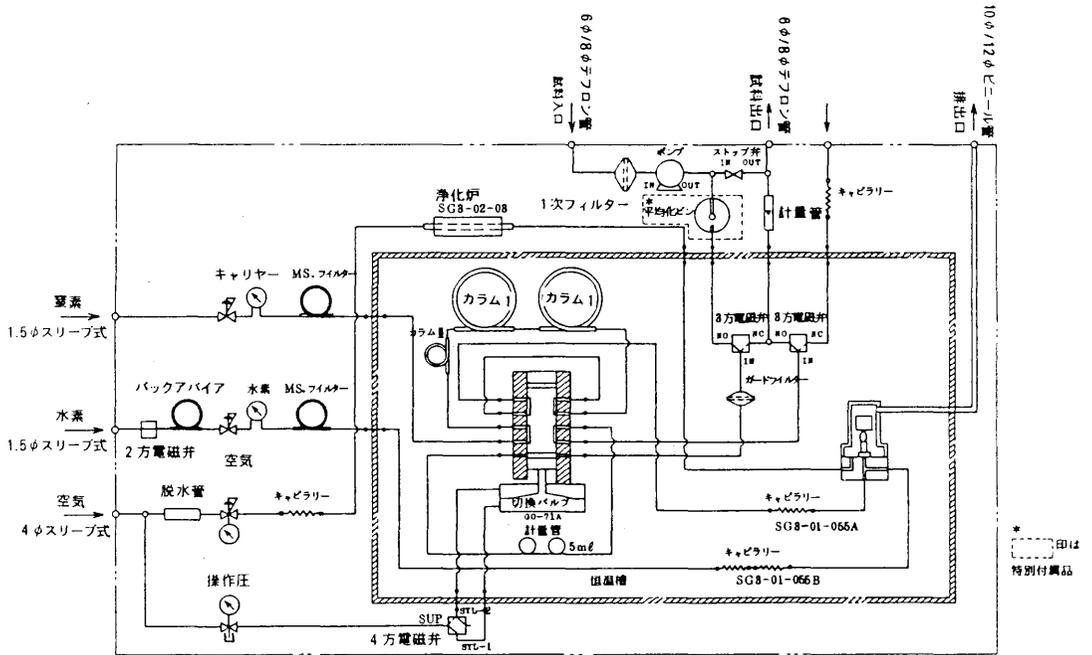


図1-4 計測器(D) 流路図

3 性能試験の結果

3.1 再現性

表-3にそれぞれの測定値, 平均値, 最大偏差のFS (フルスケール) に対する比及び標準偏差を示した。

これによると最大偏差のFSに対する比は, 各測定成分を通じ, 最大のもので1.2%であった。

これは, JIS-B7956の大気中炭化水素自動計測器-非メタン炭化水素測定方法の性能に規定されている再現性(平均値からの偏差がFSの±1%以下)の規定を満たしていなかった。

また, 標準偏差は, 各測定成分を通じ, 最大で0.044ppmC, 最小で0.006ppmCであり再現性は良好であった。

3.2 指示誤差 (直線性)

表4に3種類の濃度の分割標準ガスを導入した場合の指示, 及びその指示値と分割標準ガスとの差を示した。またCH₄及びNMHCの指示値を一致するようにスパン校正が

行われたと仮定し求めた各濃度の補正指示値及び補正指示値と分割標準ガスとの差をカッコ内に示した。

また, 表5に指示値及び補正指示値をY, 分割標準ガスをXとして, 回帰式と相関係数を示した。これらの結果から指示値と分割標準ガス濃度との直線関係はCH₄の場合, 相関係数が0.98~1.00であり, また回帰係数が0.99~1.02と良好である。また分割標準ガスと指示値との差は補正指示値の場合, 1器種を除くと, いずれの濃度段階とも0~0.03ppmCの範囲と小さく, 分割器の精度が高く, 指示誤差も小さいことを示している。次にNMHCの場合, 回帰係数が1.02~1.09と1.00からずれているが相関係数がすべて1.00となっており直線性は良好であることを示している。しかし, 指示誤差は, 分割標準ガス濃度と指示値に差が見られるため大きくなっている。これはNMHCの校正が, CH₄で行われていることや, 標準ガスの精度なども原因となっていることが考えられる。

表3 再現性試験結果

計測器	測定成分	測定回数												平均値	最大偏差	最大偏差 FS (%)	標準偏差
		1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12				
A	CH ₄	3.91	3.92	3.92	3.92	3.88	3.92	3.88	3.88	3.88	3.88	3.88	3.91	3.90	0.02	0.4	0.019
	NMHC	4.09	4.15	4.15	4.12	4.04	4.12	4.08	4.03	4.03	4.07	4.05	4.11	4.09	0.06	1.2	0.044
B	CH ₄	3.84	3.89	3.82	3.85	3.90	3.80	3.86	3.87	3.83	3.88	3.83	3.85	3.85	0.05	1.0	0.030
	NMHC	3.91	3.92	3.92	3.92	3.92	3.90	3.92	3.92	3.90	3.92	3.92	3.90	3.91	0.01	0.2	0.009
C	CH ₄	3.88	3.87	3.87	3.87	3.89	3.88	3.89	3.86	3.90	3.85	3.89	3.87	3.88	0.03	0.6	0.015
	NMHC	4.16	4.17	4.21	4.21	4.16	4.17	4.18	4.14	4.14	4.14	4.16	4.13	4.16	0.05	1.0	0.022
D	CH ₄	3.87	3.86	3.86	3.86	3.86	3.86	3.86	3.86	3.85	3.85	3.85	3.85	3.86	0.01	0.2	0.006
	NMHC	3.97	3.96	3.95	3.95	3.95	3.95	3.93	3.95	3.94	3.95	3.95	3.94	3.95	0.02	0.4	0.010

使用標準ガス CH₄ 3.95 ppm, C₃H₈ 1.39ppm

表4 指示誤差試験結果

測定レンジ	計測器	分段割階	分割標準ガス濃度	測定回数 測定成分	1	2	3	4	5	平均値	指示値と分割標準濃度の差	
5	A	5	CH ₄ 4.39	CH ₄	4.45	4.42	4.45	4.44	4.43	(4.39)	4.44	+0.05 (0)
			C ₃ H ₈ 3.91	NMHC	4.34	4.33	4.31	4.32	4.32	(3.91)	4.32	+0.41 (0)
		3	CH ₄ 2.63	CH ₄	2.69	2.70	2.70	2.69	2.69	(2.66)	2.69	+0.06 (+0.03)
			C ₃ H ₈ 2.35	NMHC	2.66	2.62	2.61	2.63	2.67	(2.39)	2.64	+0.29 (+0.04)
		1	CH ₄ 0.88	CH ₄	0.91	0.89	0.91	0.90	0.91	(0.89)	0.90	+0.02 (+0.01)
			C ₃ H ₈ 0.78	NMHC	0.92	0.90	0.95	0.91	0.88	(0.82)	0.91	+0.13 (+0.04)
	B	5	CH ₄ 4.39	CH ₄	4.43	4.43	4.44	4.42	4.41	(4.39)	4.43	+0.04 (0)
			C ₃ H ₈ 3.91	NMHC	4.28	4.28	4.30	4.32	4.31	(3.91)	4.30	+0.39 (0)
		3	CH ₄ 2.63	CH ₄	2.68	2.68	2.67	2.66	2.69	(2.66)	2.68	+0.05 (+0.03)
			C ₃ H ₈ 2.35	NMHC	2.62	2.61	2.60	2.60	2.59	(2.36)	2.60	+0.25 (+0.01)
		1	CH ₄ 0.88	CH ₄	0.88	0.89	0.89	0.89	0.89	(0.88)	0.89	+0.01 (0)
			C ₃ H ₈ 0.78	NMHC	0.88	0.87	0.88	0.89	0.91	(0.81)	0.89	+0.11 (+0.03)
	C	5	CH ₄ 4.39	CH ₄	4.43	4.43	4.43	4.42	4.42	(4.39)	4.43	+0.04 (0)
			C ₃ H ₈ 3.91	NMHC	4.08	4.03	4.07	3.99	4.04	(3.91)	4.04	+0.13 (0)
		3	CH ₄ 2.63	CH ₄	2.65	2.66	2.65	2.65	2.65	(2.63)	2.65	+0.02 (0)
			C ₃ H ₈ 2.35	NMHC	2.47	2.45	2.45	2.45	2.43	(2.37)	2.45	+0.10 (+0.02)
		1	CH ₄ 0.88	CH ₄	0.85	0.84	0.86	0.86	0.84	(0.84)	0.85	+0.03 (-0.04)
			C ₃ H ₈ 0.78	NMHC	0.86	0.83	0.81	0.85	0.85	(0.81)	0.84	+0.06 (+0.03)
	D	5	CH ₄ 4.39	CH ₄	4.40	4.40	4.40	4.39	4.39	(4.39)	4.40	+0.01 (0)
			C ₃ H ₈ 3.91	NMHC	4.17	4.18	4.21	4.21	4.18	(3.91)	4.19	+0.28 (0)
		3	CH ₄ 2.63	CH ₄	2.18	2.18	1.18	2.18	2.18	(2.18)	2.18	+0.45 (-0.45)
			C ₃ H ₈ 2.35	NMHC	2.53	2.52	2.56	2.57	2.56	(2.38)	2.55	+0.20 (+0.03)
		1	CH ₄ 0.88	CH ₄	0.91	0.91	0.91	0.91	0.91	(0.91)	0.91	+0.03 (+0.03)
			C ₃ H ₈ 0.78	NMHC	0.86	0.84	0.87	0.88	0.88	(0.81)	0.87	+0.09 (+0.03)

使用標準ガス CH₄ 4.39ppm, C₃H₈ 3.91ppmC/Air (単位 ppmC)

表5 指示誤差試験結果(回帰直線と相関係数)

測定レンジ	計測器	測定成分	回帰直線 Y = a + bX		相 関 係 数
			a	b	
5 ppm C	A	CH ₄	0.02 (0.02)	1.01 (1.00)	1.00 (1.00)
		NMHC	0.07 (0.06)	1.09 (0.99)	1.00 (1.00)
	B	CH ₄	0.01 (0.01)	1.01 (1.00)	1.00 (1.00)
		NMHC	0.04 (0.04)	1.09 (0.99)	1.00 (1.00)
	C	CH ₄	-0.04 (-0.04)	1.02 (1.01)	1.00 (1.00)
		NMHC	0.04 (0.04)	1.02 (0.99)	1.00 (1.00)
	D	CH ₄	-0.12 (-0.12)	0.99 (0.99)	0.98 (0.99)
		NMHC	0.05 (0.04)	1.06 (0.99)	1.00 (1.00)

Y : 指示値
 X : 分割標準ガス濃度
 カッコ内は補正指示値から求めた値
 n = 15

4 実環境機種差試験

4.1 低濃度地域

低濃度地域での実環境大気試験は、図-2・3に示すとおり青森県六ヶ所村の二又小学校敷地内に大気汚染移動測定車（おおぞら2号）を仮設、各計測器を測定車内に搬入し行った。

(1) 計測器の保守管理状況及び稼働率

表-6に実環境大気における各計測器のスパン校正や保守などの保守管理状況をもとに求めたスパン変動率を示した。なおスパン変動率(%)は次式から求めた。

$$\text{スパン変動率}(\%) = \frac{\text{スパンチェック時の指示値} - \text{スパン設定値}}{\text{FS}} \times 100$$

これによると各計測器のスパン変動率は0~1.8%でJIS B 7956の24時間におけるスパンドリフトの規定(FS ± 2%以内)を満たしており良好であった。

各計測器の稼働率はスパン校正やボンベ交換などの保守管理による欠測を除くと、計測器(A)(C)に関して100%である。計測器(B)(C)はそれぞれ80%と70%の稼働率である。試験期間中、測定場所が遠隔地にあるため保守管理が充分出来なかったことも稼働率を低下させる原因になった。

(2) 計測器間の比較

各計測器間の統計データを表-7に、散布図は図-

4-1~6に示した。

これによると、計測器(A)(B)(C)(D)ともCH₄指示値についてはほとんど差がないといえる。NMHCについては環境濃度が低いので、各計測器ともバラツキが大きいようである。その中でも計測器(B)は全体に他の計測器より低めの値を示しているが、他の計測器と有意差があるというわけではない。有意な差が認められるのは、計測器(A)-(D)の組み合わせである。計測器(A)のNMHCの指示値は、湿度の影響がみられ、相対湿度80%未満時のデータに限定すると差の検定における計測器(A)-(D)のt₀は5.167(自由度244, t_{0.1}=2.595)となり、高湿度時のデータを除くと計測器(A)-(D)の組み合わせも、とくに問題にはならない。

(3) 温湿度の影響

各計測器とも温湿度の影響を微妙に受けるが、実環境大気測定において濃度も低く、温湿度の影響は明確でなかった。

(4) 気圧変化の影響

図5に校正時のスパン指示値と気圧の関係を示した。このように、スパンの変動は大気圧の変動によるものが大きく、少なからず測定値に影響を与えるが、FSに対し2%未満でありこのレベルの環境濃度では無視できるものである。

図2 二又小学校敷地図

所在：青森県六ヶ所村大字尾敷字二又83-26

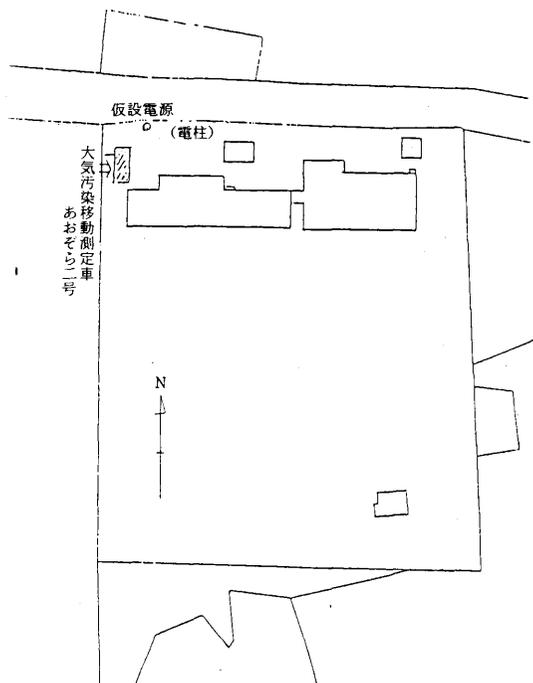


表6 各計測器の保守管理状況

計測器 管理状況 月 日	A			B			C			D		
	保守管理状況	スパン変動率		保守管理状況	スパン変動率		保守管理状況	スパン変動率		保守管理状況	スパン変動率	
		CH ₄	NMHC		CH ₄	NMHC		CH ₄	NMHC		CH ₄	NMHC
11月16日	<ul style="list-style-type: none"> 標準ガス CH₄=3.96 ppm (財化学検査協会検定)による値決め 設定濃度 4.41 ppm 表示濃度 4.43 ppm フィルター交換 各圧の確認 ノイズあり 			<ul style="list-style-type: none"> 同 左 設定濃度 4.48 ppm 表示濃度 4.48 ppm 同 左 同 左 消炎→自動復帰 			<ul style="list-style-type: none"> 同 左 設定濃度 4.82 ppm 表示濃度 4.82 ppm 同 左 同 左 時間表示に狂いあり 			<ul style="list-style-type: none"> 同 左 設定濃度 4.46 ppm 表示濃度 4.46 ppm 同 左 同 左 		
11月21日	<ul style="list-style-type: none"> 校正 (指示値 CH₄=4.41 ppm) 	0		<ul style="list-style-type: none"> 校正 (指示値 CH₄=4.47 ppm) 	0.2		<ul style="list-style-type: none"> 校正 (指示値 CH₄=4.80 ppm) 	0.4		<ul style="list-style-type: none"> 消炎→点火 水素発生器と計測器との接続部よりガス洩れあり 校正 (指示値 CH₄=4.55 ppm) 	1.8	
11月27日	<ul style="list-style-type: none"> 原因不明の異常値示す (計測器Cと同時) フィルター交換 校正 (指示値 CH₄=4.35 ppm) 	1.2		<ul style="list-style-type: none"> 11/26より消炎 助燃用 air 圧上らず。圧力上昇後ようやく点火 同 左 校正 (指示値 CH₄=4.42 ppm) 	1.2		<ul style="list-style-type: none"> 原因不明の異常値示す (計測器Aと同時) 同 左 校正 (指示値 CH₄=4.80 ppm) 	0.4		<ul style="list-style-type: none"> 11/25より消炎→点火 同 左 校正 (指示値 CH₄=4.39 ppm) 	1.4	
11月28日	<ul style="list-style-type: none"> ノイズあり 校正 (指示値 CH₄=4.44 ppm) 	0.6		<ul style="list-style-type: none"> 校正 (指示値 CH₄=4.53 ppm) 	1.0		<ul style="list-style-type: none"> 校正 (指示値 CH₄=4.82 ppm) 	0		<ul style="list-style-type: none"> コンプレッサーと計測器との接続部よりガス洩れあり 校正 (指示値 CH₄=4.50 ppm) 	0.8	
11月30日	<ul style="list-style-type: none"> 電源のチェック及び配置見直し 			<ul style="list-style-type: none"> 11/28より消炎 点火がままならず。やっとのことで点火 同 左 			<ul style="list-style-type: none"> 同 左 			<ul style="list-style-type: none"> 同 左 		
12月1日				<ul style="list-style-type: none"> 校正不能 メーカーによる調整(検量線作成) 消炎→自動復帰 								
12月3日				<ul style="list-style-type: none"> 消炎→自動復帰 						<ul style="list-style-type: none"> 消炎→点火 校正 (指示値 CH₄=4.44 ppm) 	0.4	
12月4日				<ul style="list-style-type: none"> 消炎→自動復帰 								
12月6日	<ul style="list-style-type: none"> 校正 (指示値 CH₄=4.42 ppm) 	0.2		<ul style="list-style-type: none"> 12/5より消炎 水素供給圧なかなか上昇せず。上昇後も点火できず、FID系配管点検後点火 校正 (指示値 CH₄=4.52 ppm) 	0.8		<ul style="list-style-type: none"> 校正 (指示値 CH₄=4.81 ppm) 	0.2		<ul style="list-style-type: none"> 12/4より消炎 水素発生器の供給圧が上昇せず、上昇しても点火後すぐ下降、消炎してしまう。供給圧を規定より上げ、十分水素が発生後、点火 校正 (指示値 CH₄=4.44 ppm) 	0.4	
12月7日	<ul style="list-style-type: none"> フィルター交換 校正 (指示値 CH₄=4.40 ppm) 	0.2		<ul style="list-style-type: none"> 同 左 校正 (指示値 CH₄=4.51 ppm) 	0.6		<ul style="list-style-type: none"> 同 左 校正 (指示値 CH₄=4.85 ppm) 	0.6		<ul style="list-style-type: none"> 水素発生器交換 同 左 校正 (指示値 CH₄=4.50 ppm) 	0.8	
12月13日	<ul style="list-style-type: none"> 実環境大気測定終了 スパン指示値 CH₄=4.37 ppm 	0.8		<ul style="list-style-type: none"> 同 左 スパン指示値 CH₄=4.45 ppm 	0.6		<ul style="list-style-type: none"> 同 左 スパン指示値 CH₄=4.82 ppm 	0		<ul style="list-style-type: none"> 同 左 スパン指示値 CH₄=4.46 ppm 	0.8	

表7 各計測器間のCH₄、NMHCに関する統計データ

○計測器の比較

計測器	測定成分	平均値(ppm C)	最大値(ppm C)	最小値(ppm C)	標準偏差	変動係数(%)
A	CH ₄	1.73	1.85	1.67	0.029	1.7
	NMHC	0.08	0.33	0.03	0.034	44.2
B	CH ₄	1.74	1.86	1.67	1.031	1.8
	NMHC	0.05	0.25	0.00	0.039	81.4
C	CH ₄	1.74	1.87	1.69	0.031	1.8
	NMHC	0.06	0.19	0.02	0.031	48.1
D	CH ₄	1.74	1.86	1.67	0.029	1.7
	NMHC	0.08	0.25	0.00	0.040	53.4

○各計測器の測定値の関係 (CH₄)

		Y			
		A	B	C	D
X	A		0.91 X + 0.17 r = 0.867	0.96 X + 0.07 r = 0.909	0.91 X + 0.17 r = 0.887
	B	0.83 Y + 0.29 n = 507		0.73 X + 0.47 r = 0.704	0.83 X + 0.30 r = 0.861
	C	0.86 Y + 0.24 n = 583	0.68 Y + 0.55 n = 478		0.80 X + 0.35 r = 0.636
	D	0.86 Y + 0.22 n = 448	0.89 Y + 0.18 n = 405	0.87 Y + 0.22 n = 419	

○各計測器の測定値の関係 (NMHC)

		Y			
		A	B	C	D
X	A		0.92 X - 0.03 r = 0.814	0.86 X - 0.00 r = 0.768	0.84 X + 0.02 r = 0.654
	B	0.72 Y + 0.04 n = 507		0.65 X + 0.03 r = 0.788	0.72 X + 0.05 r = 0.627
	C	0.68 Y + 0.03 n = 583	0.96 Y - 0.01 n = 478		0.84 X + 0.02 r = 0.755
	D	0.51 Y + 0.04 n = 448	0.55 Y + 0.00 n = 405	0.68 Y + 0.01 n = 419	

○計測器の差の検定

測定成分	CH ₄				
	計測器	A	B	C	D
NMHC	A		10.78	16.63	25.73
	B	23.90		2.18	10.17
	C	11.35	13.94		4.20
	D	0.36	17.76	7.35	

t 0.05 = 1.96 t 0.01 = 2.58 n = 373 自由度 = 372

図4-1 計測器A・Bの散布図

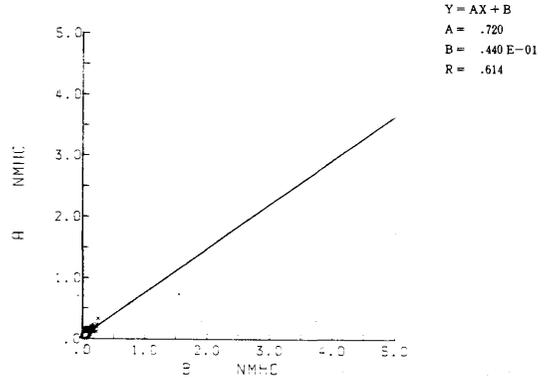
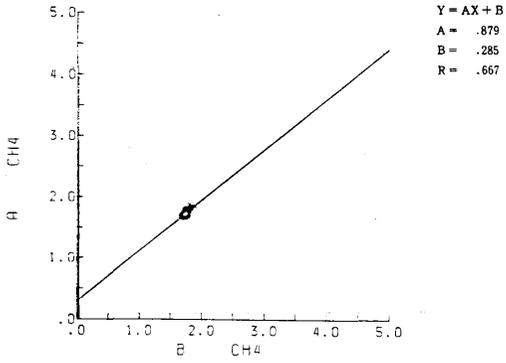


図4-2 計測器A・Cの散布図

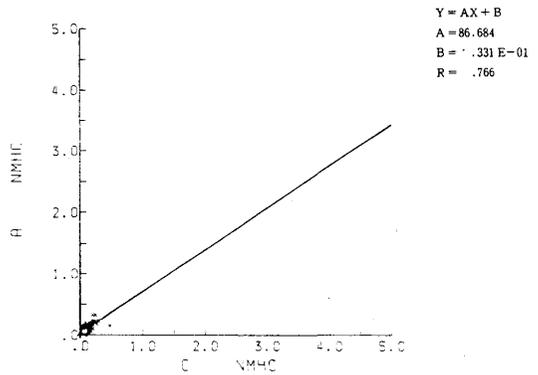
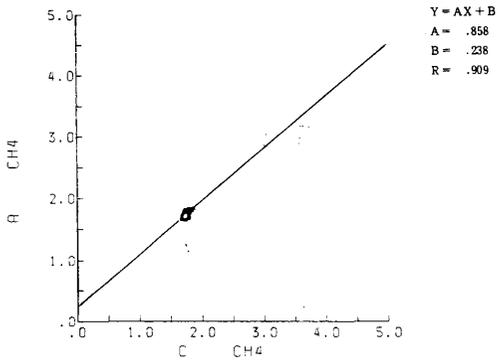


図4-3 計測器A・Dの散布図

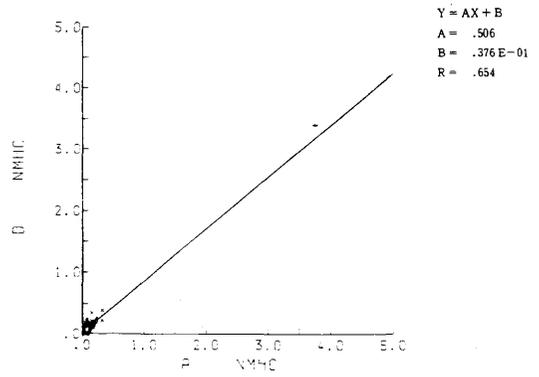
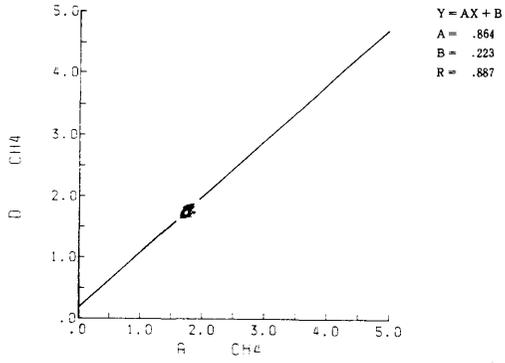


図4-4 計測器B・Cの散布図

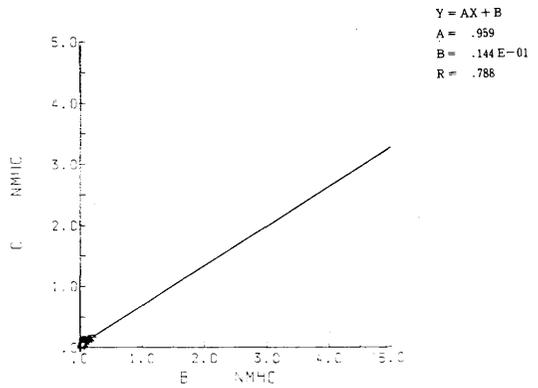
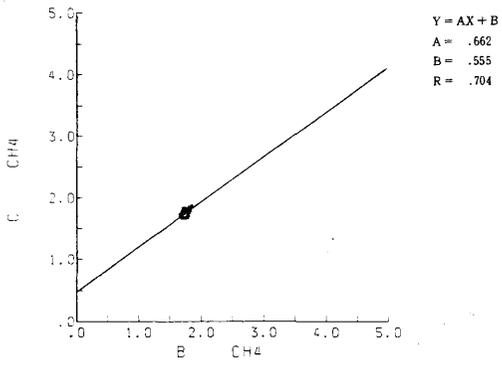


図4-5 計測器B・Dの散布図

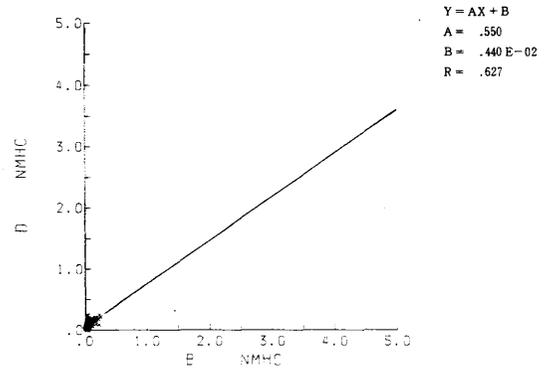
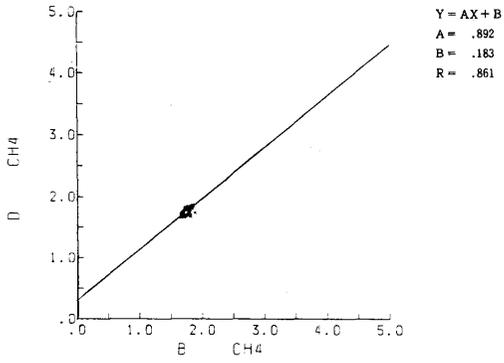


図4-6 計測器C・Dの散布図

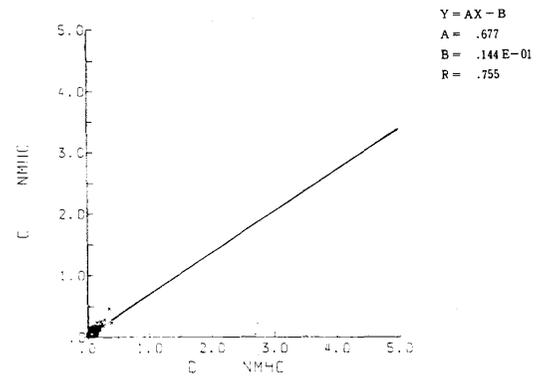
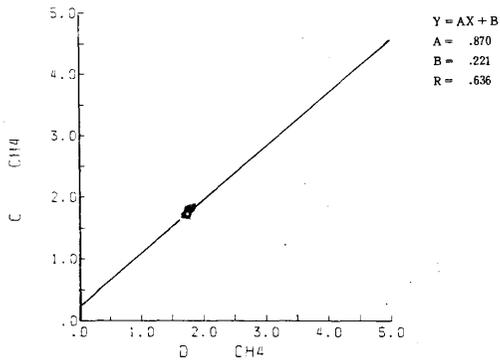
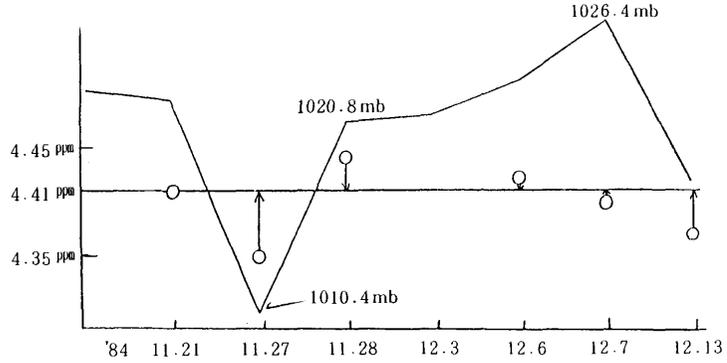
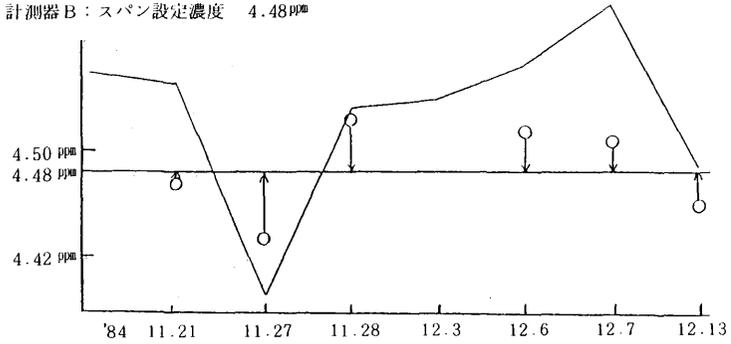


図5 計測器の指示値と大気圧の関係

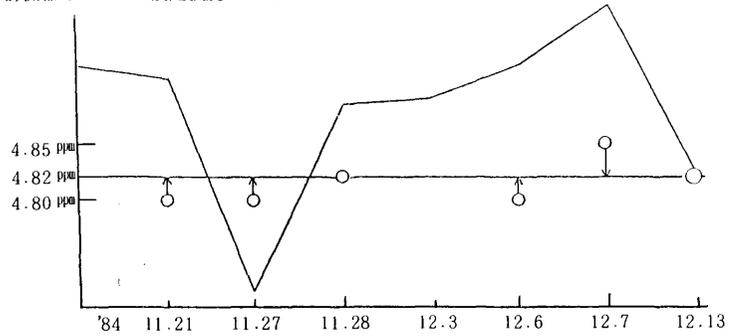
計測器A：スパン設定濃度 4.41ppm



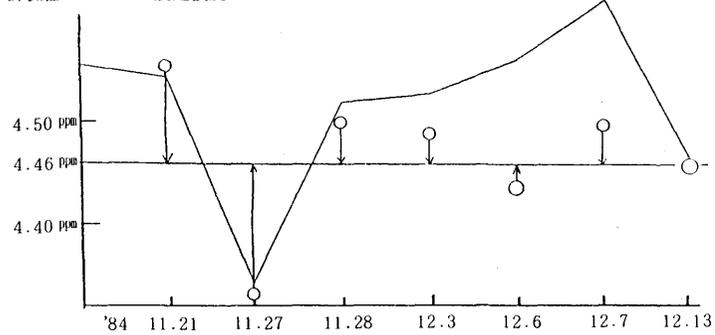
計測器B：スパン設定濃度 4.48ppm



計測器C：スパン設定濃度 4.82ppm



計測器D：スパン設定濃度 4.46ppm



5 ガスクロマトグラフィーによる各種炭化水素の分析の検討

5.1 標準ガス

表8に各計測器の校正と性能試験に使用した標準ガスを示した。標準ガスはすべて高千穂化学工業㈱製である。

5.2 分析方法

ポンベ詰めにされた各標準ガスを一旦テフロンバックにとり、ガスシリンジで定量をガスクロに注入した。試料を液体窒素で冷却した濃縮管に濃縮しガスクロに加熱導入した²⁾。

自動車排ガスは、ポンプを用いてマフラー出口からテフロンバックに採取し直ちに分析した。なお、自動車は1500ccのガソリン車で、十分に暖機運転したあとのアイドリング状態とした。

5.3 分析条件

ガスクロマトグラフ：島津GC4BM

カラム：3mm×3mガラスカラム

15%シリコンDC550-ユニポートB上
(80~100メッシュ)

カラム温度：40℃(標準ガスの検定)

40℃3分間定温後毎分8℃で130℃まで昇温(排ガス分析)

キャリアーガス：N₂ 40ml/min

H₂ 45 " (0.6 kg/cm)

air 900 " (1.28 ")

導入部温度：150℃

濃縮管：内径5mm, ガラスビーズ(40~60メッシュ)を充填

チャートスピード：20mm/min

5.4 標準ガスの検定

各種の試験を行う上で、標準ガスの検定を試みた。表9に分析結果、図6に得られたガスクロマトグラムの例を示す。

絶対的な各成分の定量を実験室的に行うのは難しいので、プロパンを1.00とした相対的な値で検討した。つまり、ガスクロマトグラムによって得られた各成分1ppm当たりの面積を求め、プロパンを1.00とした場合どうなるか比較するもので、ポンベ表示値が正しければ各成分の相対感度はすべて1.00になるはずである。ただし、アセチレンのメタンに対する相対モル感度は、2.20(1ppmC当り1.10)と高い³⁾ことが知られている。

結果は0.95~1.01と理論値に近く、相対的にポンベ表示値は正しいと言える。しかしながら、アセチレンが0.96と理論値の1.10より低く、エチレンも0.95と若干低めである。これは、アセチレン、エチレンの沸点がそれぞれ-84.0℃

表8 標準ガスの種類

標準ガス名	濃度 ppm	CH ₄ 濃度 ppm
CH ₄ -C ₂ H ₂ / 空気	2.08	4.06
CH ₄ -C ₂ H ₄ / 空気	1.99	4.10
CH ₄ -C ₃ H ₆ / 空気	1.33	4.13
CH ₄ -C ₃ H ₈ / 空気	1.31	4.05
CH ₄ -n-C ₆ H ₁₄ / 空気	1.01	4.09
CH ₄ -C ₂ HCl ₂ / 空気	2.01	4.10
CH ₄ -C ₆ H ₆ / 空気	0.92	4.04
CH ₄ -o-C ₈ H ₁₀ / 空気	1.03	3.86

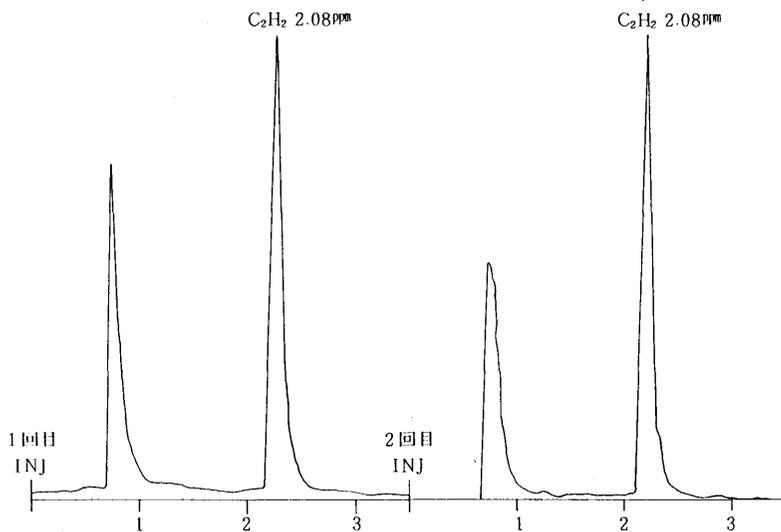


図-6
ポンベ入り、メタン-アセチレン標準ガスのガスクロマトグラフィによる分析例

試料 10 ml
感度 10³ MΩ
レンジ 0.08 V

表9 ガスクロによる標準ガスの検定

成分名	濃 度		チャート面積		1 ppm C 当りの 面積 mm ² /ppm C	相 対 感 度 プロパン=1.00	
	ppm	ppm C	回	平均			
エチレン	1.99	3.98	1	177.4	178.2	44.8	0.95
			2	177.4			
			3	188.1			
			4	169.8			
アセチレン	2.08	4.16	1	189.6	189.3	45.5	0.96
			2	197.3			
			3	182.0			
			4	188.1			
プロパン	1.31	3.93	1	195.8	185.4	47.2	1.00
			2	183.5			
			3	198.8			
			4	163.6			
プロピレン	1.33	3.99	1	186.6	189.7	47.5	1.01
			2	191.2			
			3	182.0			
			4	198.8			
n-ヘキサン	1.01	6.06	1	287.5	272.1	44.9	0.95
			2	261.5			
			3	267.6			
			4	271.7			

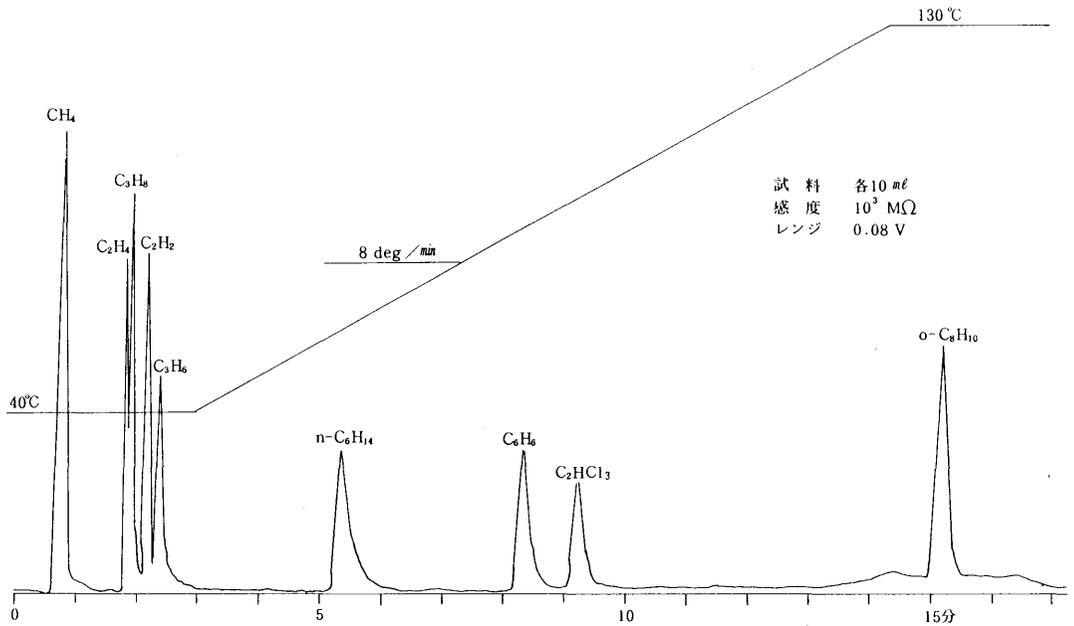


図7 標準ガスの同時分析

-88.6℃で、プロパンの-42.1℃よりかなり低く、濃縮が効果的に行われなかったのかも知れない。また、各ピークの面積は、ピークを切り取って重量を測定し計算したものであり、その誤差も考えられる。

2.5 標準ガスの同時分析

さきの標準ガスの検定では、ベンゼン、トリクロルエチレン、0-キシレンについて触れなかった。これら3種の標準ガスは他の標準ガスとはその性質が大きく異なり、分析条件を変える必要があるので別にしたものである。そこで、8種の標準ガスを同時に打ち込み分析を試みたのが図7である。分析毎に各ピークの大きさと保持時間に違いが見られ、これから標準ガスの検定をすることはできなかった。なお、テフロンバックに採取後多少の時間が経過していることから、0-キシレン分解物とも思われる別のピークもみられた。

2.6 自動車排ガスの分析

図8に自動車排ガスの分析例、表10に各ピークの保持時間と面積比を示す。分析毎に各ピークの保持時間にずれが認められたため、ピークの同定は標準ガスとの同時導入重ね合わせにより行った。しかし、保持時間の一致が必ずしも同一物質とならずこの方法での完全な同定はできないと思われる。また、ピークNo.1~6については分析毎のピークの大きさの変化が大きく、低沸点炭化水素の濃縮不調から、注入途中にある程度抜け出てしまうことが考えられる。よって、排ガス中のピークNo.1~6の物質は、今回の分析値よりも多いと推定される。

いずれにしても、今回のような単一カラムでの分析では限界があり、数種の充填剤の使い分けが必要である。また、メタン・エタン・エチレン等の低沸点炭化水素を対象とする場合、試料導入時における濃縮方法は、さらに検討を要すると思われる。

表10 自動車排ガスの成分

No.	保持時間	面積比	予想成分
1	0.97分	4.45%	CH ₄
2	1.63	5.19	C ₂ ~C ₃ の炭化水素
3	2.13	2.71	
4	2.34	2.32	
5	2.56	2.17	
6	2.88	1.04	
7	3.31	3.33	
8	3.72	2.32	
9	4.31	0.46	
10	4.50	0.39	
11	4.98	2.94	
12	5.38	2.17	
13	5.81	2.63	n-C ₆ H ₁₄
14	6.47	0.54	
15	6.91	0.77	
16	7.59	1.59	
17	7.91	2.75	
18	8.66	1.55	
19	9.09	6.15	C ₆ H ₆
20	10.51	0.66	
21	10.78	0.81	
22	11.59	0.70	
23	12.22	16.45	(C ₆ H ₅ CH ₃)
24	15.19	19.31	(m, p-C ₈ H ₁₀)
25	16.06	6.54	o-C ₈ H ₁₀
26	18.44	5.61	
27	19.47	0.93	
28	20.00	2.32	
他		1.20	
計		100	

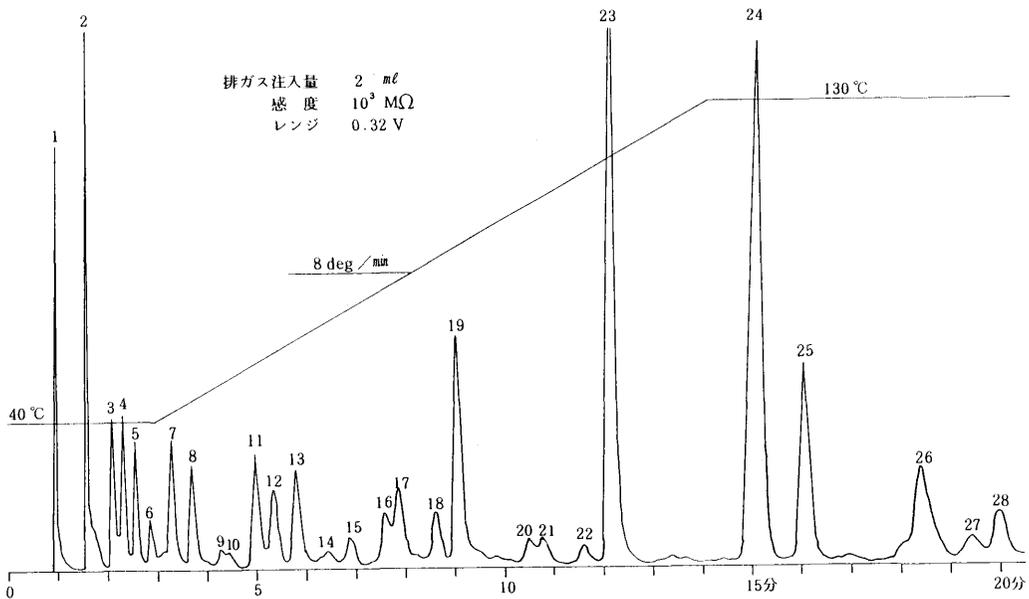


図8 自動車排ガスの分析

6 まとめ

6.1 性能試験結果について

- 1) 再現性 (JISFSの±1%以内)は規定を満たしていないものは1器種で、あとはすべて規定を満たしている。満たしていない1器種は、1時間に1回だけ異常値が出るもので、点検ミスが考えられ、構造上問題はないものと考えられる。
- 2) 指示誤差 (直線性)は、回帰係数が1.02~1.09と1.00からずれているが、相関係数がすべて1.00となっており直線性は良好である。回帰係数が1.00からずれるのは、分割標準ガス濃度と指示値に差がみられたため大きくっており、これは、標準ガスの表示値の精度が原因であると考えられる。

6.2 実環境大気器種差試験について

試験が冬期間にかかりトラブルが目立つ結果となったが、通常の使用では問題ないと考えられる。各計測器の差異については、環境濃度が低くバラツキが大きくなるため比較しにくい、問題にする程差異がない。試験期間内のスパン変動率はJISの規定を満たし、実際の運転においてもスパンの校正は月に2・3回で十分であると考えられる。

6.3 ガスクロマトグラフィーによる各種炭化水素の分析の検討について

試験期間内に、今回使用した標準ガスの表示値について検討した結果、プロパンを用いた相対感度上正しいという

結果が得られた。自動車排ガスの分析も同時に試みたが、単一カラムでの分析には問題があり、試料の濃縮方法も含めた検討が必要である。

6.4 計測器の故障について

- 1) 実環境大気器種差試験期間中の計測器(B)・(D)に故障がみられた。
 - 2) 試験期間中計測器(A)には計測器本体の故障はなかった。しかし、計測器本体からノイズが周期的にあった。
 - 3) 水素発生器の故障が計測器(A)・(D)にみられた。
 - 4) 計測器(B)にクーラー動作の不調がみられた。
- このようなトラブルが原因で環境大気の測定では、発見の遅れ等長時間の欠測につながる事が多いので、整備及び装置の点検を充分に行う必要がある。

7 文 献

- 1) 東京都：自動測定機器等の精度に関する研究 (非メタン炭化水素自動測定機総合解析) 昭和53年度環境庁委託業務結果報告書 (1978)
- 2) 青山大器, 酒井哲男, 宮本哲司, 伊藤英一：炭化水素による環境汚染第1報, 名古屋市公害研究所報, 6 11~18 (1977)
- 3) 舟阪渡, 池川信夫：最新ガスクロマトグラフィー(II) 廣川書店 349~353 (1971)

汽水小川原湖の水質環境と植物プランクトン

Characterization of Water Quality and Pytoplanktons in the Brackish Water of Lake Ogawara

奈良 忠明・小山田久美子・野田 正志・庄司 博光
 野呂 幸男・早狩 敏男*・田中 稔**・山崎喜三郎***
 佐藤 信博

1 緒 言

湖沼の汚濁が植物プランクトンの異常増殖によって一層助長されている。

植物プランクトンの増殖には栄養塩類¹⁾のほかに気象²⁾、水文³⁾など多様な因子が関与しているため、発生メカニズムの解明や防ぎよを難しくしており、小川原湖も例外ではない。

著者らは、先に汽水湖で比較的水深の浅い同湖において、春から夏にかけて植物プランクトンの増殖により水質が変化することを認めた⁴⁾。

ここでは、植物プランクトンの種構成と塩分躍層下における水質環境を明らかにするとともに、植物プランクトンが湖底に沈降、堆積する過程を調べた。

2 小川原湖の概要⁵⁾

小川原湖は青森県上北郡のほぼ中央に位置する。八甲田山系より発する七戸川、坪川等大小6河川が流入し、北隅の高瀬川から太平洋に注いでいる汽水湖である。

同湖はワカサギ、シラウオなどの内水面漁業が盛んで農業用水、湖水浴場等にも利用されている。

表1 小川原湖の湖盆概要

項 目	小 川 原 湖
面 積 (km ²)	63.2
周 囲 (km)	67.4
最 大 深 度 (m)	25
平 均 深 度 (m)	11.2
湖 水 量 (m ³)	714 × 10 ⁶

3 調査方法

試水及び植物プランクトンは1982年から1985年8月までの間、表層、中層(水面下10m)及び底層水(底泥上1m)を採取し、午前中に終了するようにした。

底質は1978年7及び10月と1983年8月に採取し、有機炭素は土壌養分分析法、有機態磷は改良Mehta法⁶⁾、クロ

* 現むつ保健所 ** 現八戸市公害対策課 *** 現五所川原保健所

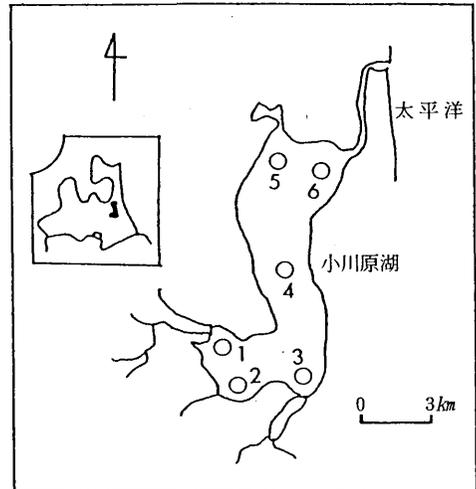


図1 調査地点

表2 調査方法

項 目	方 法
pH	ガラス電極法
DO	ウインクラージ化ナトリウム変法
BOD	JIS K 0102
COD	酸性KMnO ₄
SS	GFPフィルター(1.0μ)による重量法
アンモニア性窒素	インドフェノール法
亜硝酸性窒素	N-ナフチルエチレンジアミン・スルファニルアミド発色法
硝酸性窒素	カドミウム・銅カラム還元法。発色は亜硝酸性窒素に準ずる
有機態窒素	ケルダール窒素とアンモニア性窒素の差
全 窒 素	総和法
磷酸性磷	GFPフィルターによるろ液をアスコルビン酸還元法
全 リ 磷	酸性過硫酸カリウム分解後アスコルビン酸還元法
溶解性 鉄	GFPフィルターによるろ液を酸分解後
〃 マンガン	溶媒抽出・原子吸光法
塩 分	塩化物イオン測定後Knudsenの式から算出
クロロフィル a	アセトン抽出・三波長による吸光光度法
植物プランクトン	ホルマリン固定による沈澱法(海洋観測指針)

ロフィル分解物は環境測定分析参考資料、粒度分布は衛生化学の湿式篩によった。

4 結果と考察

4.1 水温と塩分の垂直分布

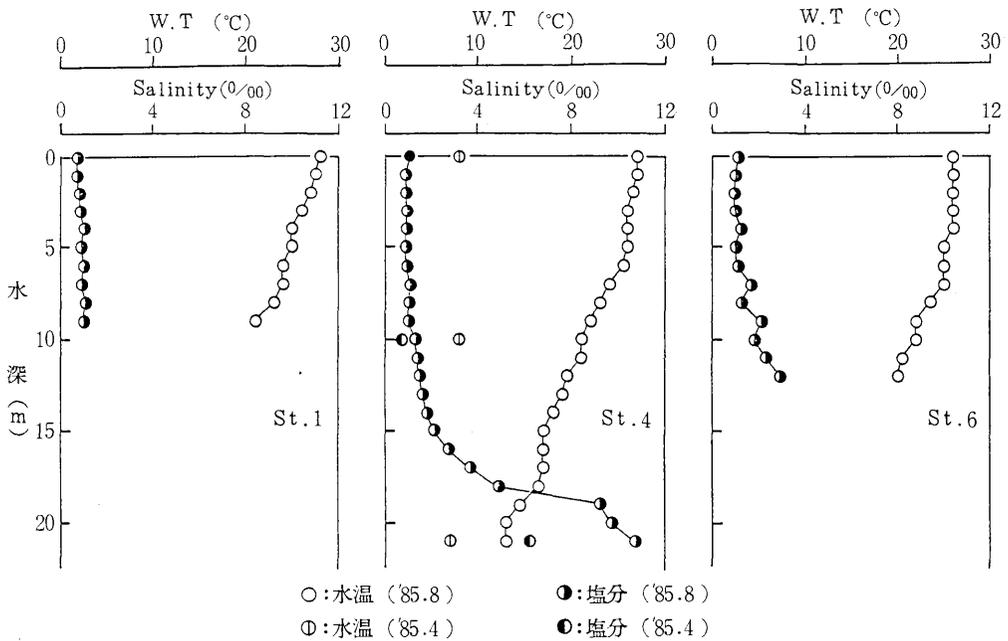


図2 水温と塩分の垂直分布

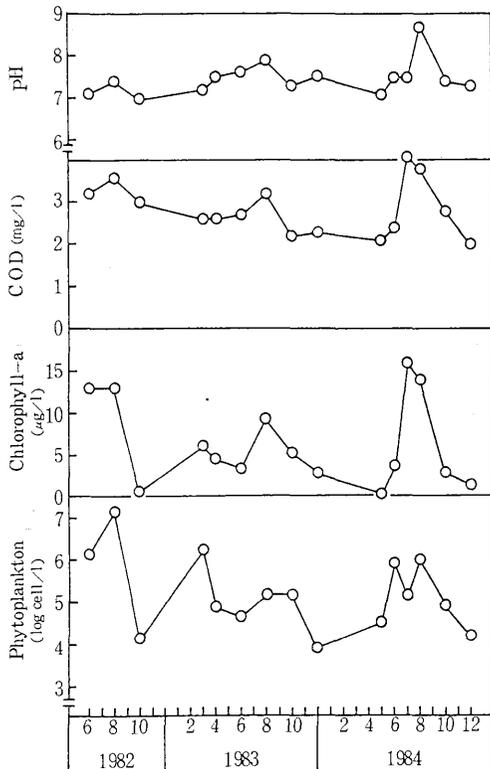


図3 地点1の水質経月変化(表層)

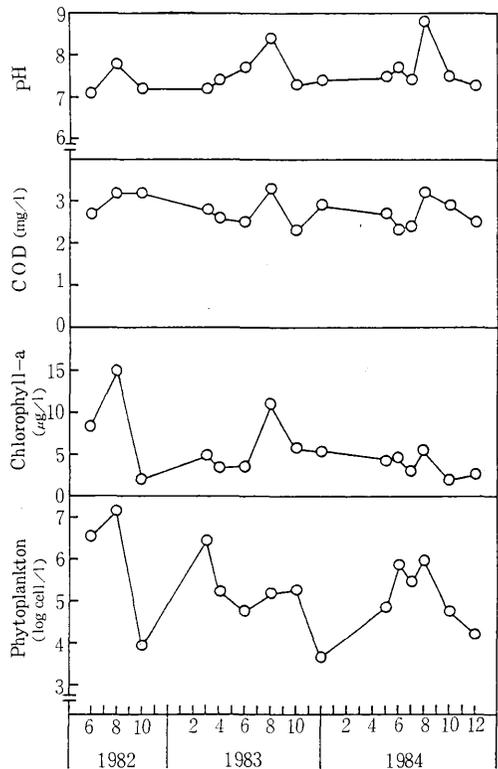


図4 地点4の水質経月変化(表層)

水温と塩分の垂直分布から水質環境の把握を試みた。夏期の湖心における分布をみると、水温及び塩分とも

に明瞭な躍層を形成したが、その位置は異なっていた。前者は透明度の約2倍に相当する6m付近から15mにか

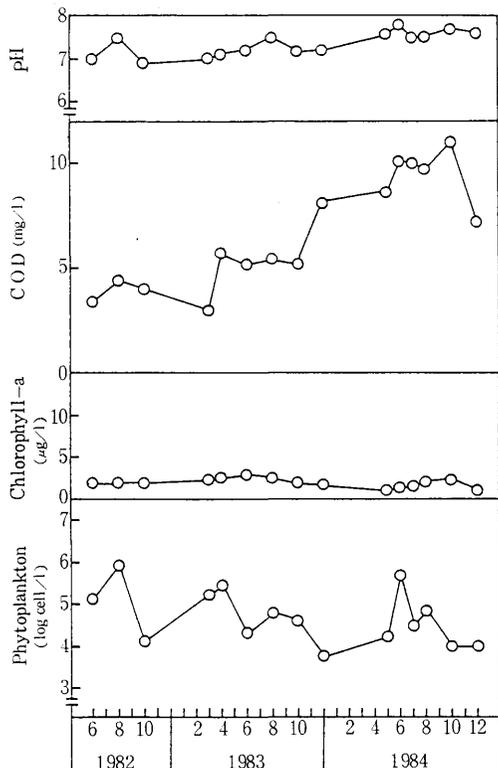


図5 地点4の水質経月変化(底泥上1m)

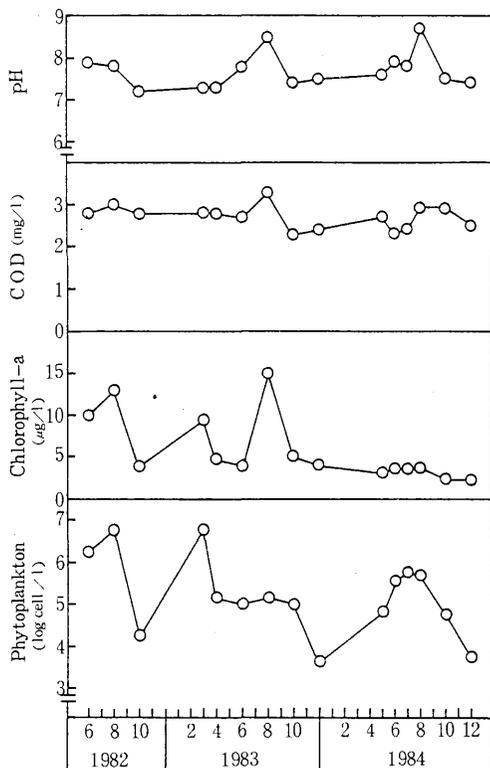


図6 地点6の水質経月変化(表層)

けての長い垂直方向と、湖底に近い18~20m付近の2箇所で見られた。後者の塩分躍層は18~20m付近の1箇所だけであった(図2)。

また、底層の塩分躍層は湖面の結氷が溶ける春の循環期においてもあまりくずれることなく存在しているようである。

河川流入部の地点1は、水深が10m以浅である上に河川水の供給があるためか塩分躍層はみられなかった。流出部の地点6は垂直方向に不規則な変化がみられ、干満による海水の流出入の影響と思われた。

4.2 水質の経月変化

水質の経月変化をみると、各地点とも表層のpH, COD及びクロロフィルaに周期性があり、水温が高くなる夏期に最大となった(図3, 4及び6)。

植物プランクトンの個体数又は細胞数(以下数とする)は上記水質と同じような挙動を示すが、融雪で河川流量が増大し、豊富な栄養塩類が供給される春にも多くなることがあった。

底層の水質は表層と大きく異なり、植物プランクトンの増殖に伴って変化するクロロフィルaやpHは低く、ほぼ一定していた。また、CODは変動幅が大きく、底泥や底層水の有機物分解に伴う好気及び嫌気状態の発達過

程が関与していると考えられる(図5)。

植物プランクトンは底層においても多く存在しており、表層で増殖した細胞が湖底に沈降、堆積する過程を示していると思われる。

4.3 表層の水質環境

4.3.1 植物プランクトンの季節変化

水質の経月変化から、夏期に植物プランクトンの増殖

Phytoplankters	1982			1983				1984							
	6	8	10	3	4	6	8	10	12	5	6	7	8	10	12
Stephanodiscus	●					●	●	●		●	●	●	●	●	
Melosira		○													
Rhabdonema															
Tabellaria				●											
Diatoma				○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
Cyclotella															
Synedra			○												
Achnanthes								●	●						
Nitzschia															
Fragilaria															
Navicula															
Gomphonema															
Chroococcus				●				○							
Merismopedia															
Microcystis															○
Dictyosphaerium								○							○
Ankistrodesmus															○
Scenedesmus								○							○

●:優先種 ○:1000cell/l以上の出現種

図7 地点4における植物プランクトンの季節変化(表層)

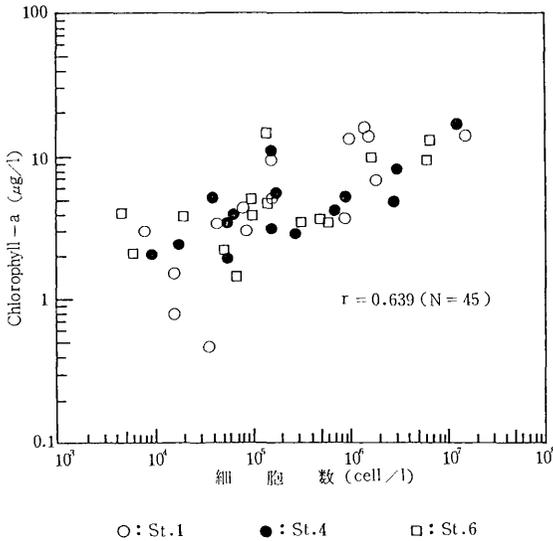


図8 植物プランクトン数とクロロフィルaの関係

によって水質が変化することが分かったので、植物プランクトンの種構成がどのように推移しているかをみた。

同定された種は珪藻65、藍藻5及び緑藻9で、優先種の大半は季節を通して珪藻で占められていた(図7)。

しかし、植物プランクトン数が少ない10月には藍藻が優先種になることもあるが、アオコや水道水の異臭味⁷⁾の原因となるMicrocystisやOscillatoriaは非常に少なかった。また、近年ダム湖などでみられる淡水赤湖⁸⁾の原因種であるPeridinumも少なかった。

今後、淡水化と併せて植物プランクトン叢の変遷に注目する必要がある。

4.3.2 植物プランクトンとクロロフィルaの関係

植物プランクトンの現存量や種構成を知るためには時間と経験を要する。これに対し、クロロフィルaの濃度は簡便で迅速に植物プランクトン量を知ることができることから、他の理化学的項目と同時に測定されることが多い。

小川原湖の植物プランクトン数とクロロフィルaの濃度は定量的関係になく、細胞数の少ない領域でばらついた(図8)。植物プランクトンとクロロフィルaの平均値はそれぞれ 1.9×10^5 (cell/l)、 5.4 (µg/l) で、同じ汽水湖として知られる宍道湖⁹⁾と比較し、細胞数当たりのクロロフィルa濃度は高い値であった。

4.3.3 磷及び窒素とクロロフィルaの関係

湖沼の栄養塩類が植物プランクトン(ここではクロロフィルaで評価)とどのようにかわり合っているかを知る方法としてAGP試験、無機栄養塩類濃度の把握、N/Pから推定する方法がある。N/Pは、窒素と磷の比

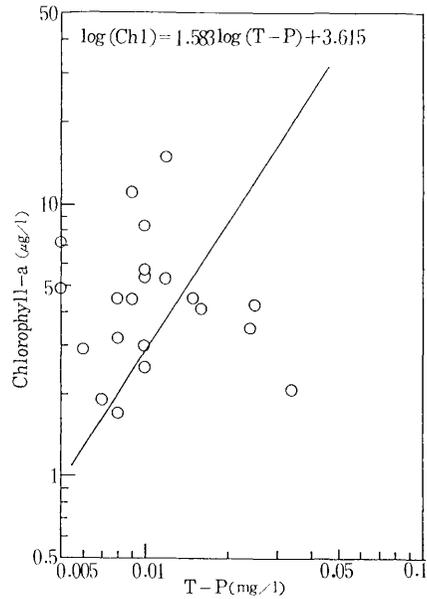


図9 全磷とクロロフィルaの関係

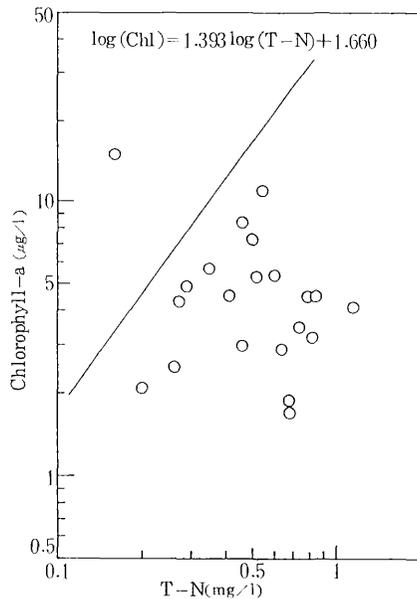


図10 全窒素とクロロフィルaの関係

が一定の範囲内であればクロロフィルaと比例関係にあることに基づいており、OECD報告を始めとしていくつかの式が提唱されている。

ここでは、日本の湖沼調査から導びかれた坂本の式¹⁰⁾と比較した結果、窒素及び磷ともに同式に一致しなかった。

磷とクロロフィルaの関係は坂本の式より上方に分布し、現存磷から推定されるクロロフィルaよりも高い結果となった(図9)。このことは磷が制限因子となって

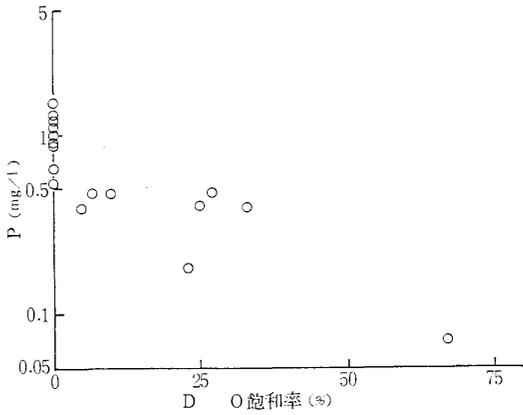


図11 溶存酸素飽和率と磷の関係

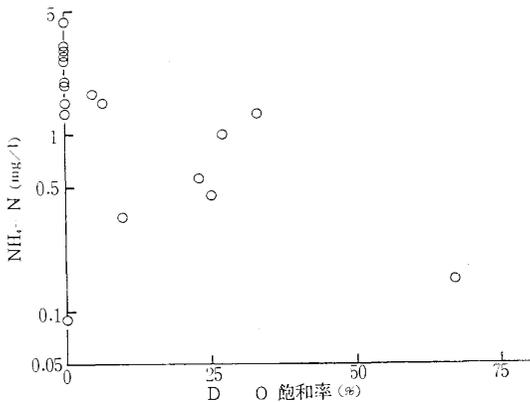


図12 溶存酸素飽和率とアンモニア性窒素の関係

いることが予想され、わずかの磷に対しても非常に増殖しやすい植物プランクトンが多いといえる。

今後、優先種として出現率の高い *Stephanodiscus hantzschii* の栄養塩要求濃度を把握する必要がある。一方、窒素は過剰に存在していた (図10)。

4.4 底層の水質環境

4.4.1 低酸素水塊におけるCOD, 磷, アンモニア性窒素及びマンガンの挙動

水温と塩分躍層が形成されると表層から底層へ溶存酸素の供給が阻害されるため、有機物の分解に必要な酸素

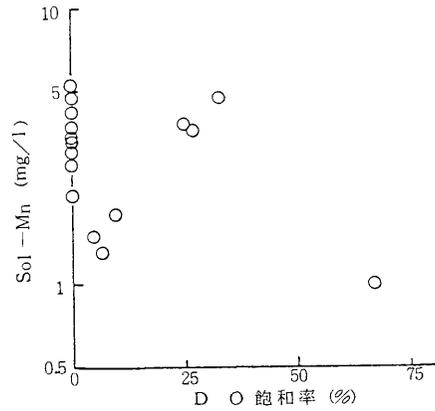


図14 溶存酸素飽和率と溶解性マンガンの関係

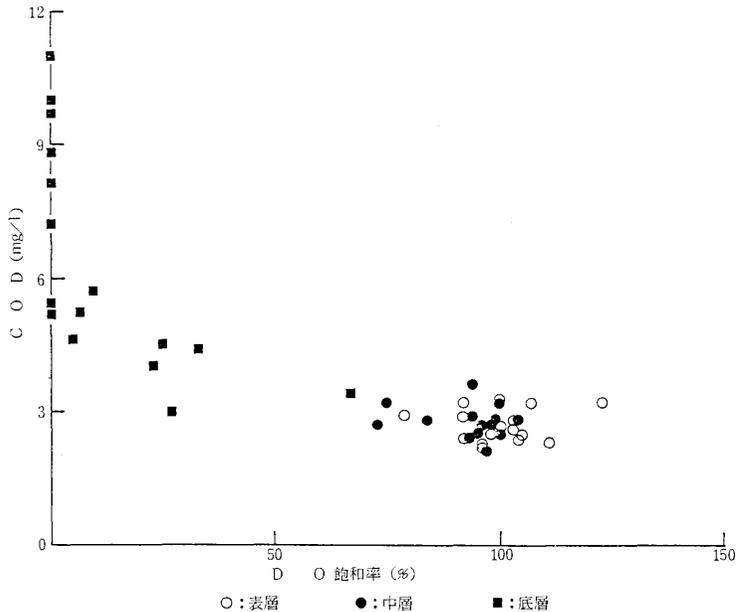


図13 溶存酸素飽和率とCODの関係

が不足して嫌気状態となる。その結果、底泥から栄養塩類の溶出が起こることが中海¹¹⁾などで確認されている。

ここでは、溶存酸素飽和率を嫌気状態の指標とし、燐アンモニア性窒素、溶解性マンガン及びCODの挙動をみた結果、溶存酸素が消失し、無酸素状態になるにつれて各項目とも指数関数的に高い値を示した(図11~14)。

鉄は、淡水湖が嫌気状態になるとマンガンとともにしばしば高濃度に観測されているが、小川原湖ではほとんど検出されなかった。同様の現象は水月湖¹⁴⁾でもみられ、MATSUYAMA¹⁵⁾は、底泥の表面で硫酸塩が硫酸還元菌によって還元され、硫化物が生成されるとしている。

これまでに、著者らも小川原湖の硫化物イオンを測定しており、その値は100 mg-S/l前後であった。

4.4.2 底層水のCOD改善の試み

底層水の溶存酸素消失がCODを高めている原因と考えられたので、溶存酸素の回復がCOD低減にどの程度有効であるかを検討した。

溶存酸素飽和率は、無酸素状態の底層水を5分間通気(5l/分)することによって76%に回復したが、それ以後わずかに上昇がみられただけで、2時間経過しても91%にとどまっていた。

一方、CODは5分間の通気で2割ほど低下したが、以後溶存酸素飽和率と同様大きな変化がみられず、2時間の通気でも3割程度の効果しか期待できなかった。しかし、通気をしないで室温に放置すると、一日で6割ほど低下した(図15)。

以上のことから、小川原湖の底層水は酸素を短時間で補ってもCODの低減効果となり得ず、好気条件下で日ないしは週単位の長時間を要するようである。

4.4.3 植物プランクトンと底質のかかわり

植物プランクトンと底質のかかわりは、湖底堆積物(底泥)にどの程度関与しているかを知る上で重要である。

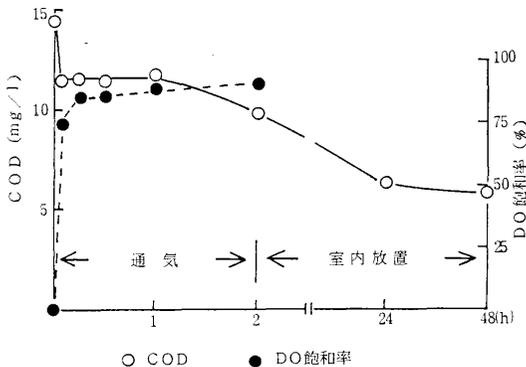


図15 通気によるCOD及び溶存酸素飽和率の変化

底層に存在している植物プランクトンがすべて表層で増殖したものと仮定すると、約5割が湖底に沈降、堆積する結果となり、小川原湖においても有機物起源としての植物プランクトンは無視できないといえる。

次に、湖心底泥にどのような植物プランクトンが堆積しているかを知るため、53μの篩を通過した画分を沈降法で20~53μ, 2~20μ及び2μ以下に区分して顕鏡し

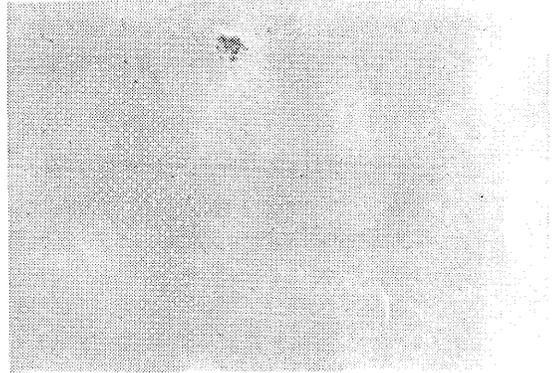


写真1 2μ以下の湖底堆積物中の植物プランクトン

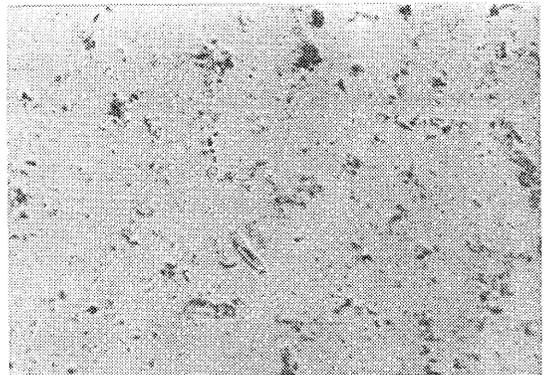


写真2 2~20μの湖底堆積物中の植物プランクトン

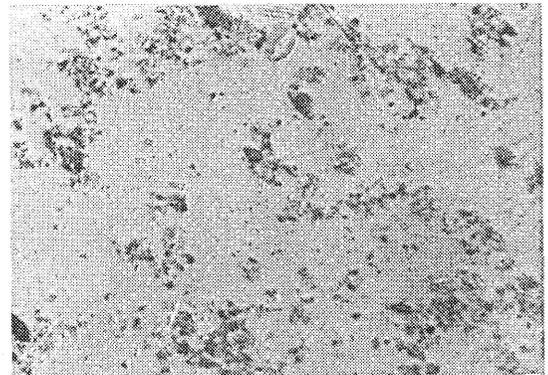


写真3 20~53μの湖底堆積物中の植物プランクトン

た。53 μ 以下とした理由は、同湖に出現する植物プランクトンの大半が50 μ 以下であることによる。

定性的ではあるが、植物プランクトンは粒径の大きい方により多くみられたが、2 μ 以下の粘土区分にはほとんど存在しなかった。また、顕微鏡で観察された種(属)はMelosira, Navicula, Nitzschiaなどの珪藻であり、緑藻や藍藻類はみられなかった(写真1~3)。

さらに、クロロフィル分解物と有機態リン及び有機炭素と有機態リンの関係から(図16, 17)、湖心においては、植物プランクトンが有機物供給源として重要な位置にあるといえる。

5 主成分分析法を用いた水質の総合評価

主成分分析は、多数の項目の測定値を持つ情報を少数個の総合特性に要約する多変量解析法の一つとして利用され、¹⁷⁾、¹⁸⁻²¹⁾、単独の項目では得ることのできない有益な情報が提供されている。

ここでは湖心の表、中及び底層水がどのように変化しているかを知ることを目的とし、使用項目は水温を始めとする18項目で、植物プランクトン数を除いては対数変換をしなかった。

第一主成分(Z₁)に高い因子負荷量の変量は溶存酸素飽和率、COD、溶解性マンガ、塩素イオン、全窒素、磷酸性リン及び全リンで、溶存酸素飽和率を除いていずれも負の相関を示し、その寄与率は51.3%と大きい値であった。Z₁は4.4.1の底層水の結果と合せると底泥からの溶

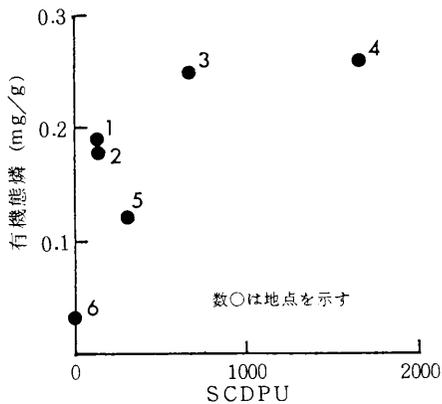


図16 クロロフィル分解物と有機態リンの関係

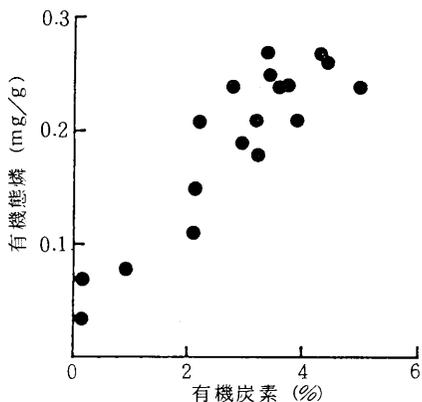


図17 有機炭素と有機態リンの関係

表3 主成分分析の結果

成分	固有値	Z ₁		Z ₂		Z ₃	
		9.53	51.3	2.02	62.2	1.50	70.3
1 W-T	*	0.099	0.308	* 0.493	** 0.702	* -0.142	** -0.175
2 pH		0.032	0.099	0.569	0.810	-0.217	-0.266
3 DO (%)		0.307	0.947	0.056	0.080	-0.031	-0.039
4 BOD		-0.264	-0.815	0.047	0.067	-0.165	-0.203
5 COD		-0.307	-0.948	0.134	0.191	-0.007	-0.009
6 SS		-0.201	-0.620	0.246	0.350	0.422	0.518
7 S-Fe		-0.101	-0.313	0.036	0.052	0.466	0.572
8 S-Mn		-0.296	-0.915	0.042	0.061	-0.001	-0.002
9 Cl ⁻		-0.313	-0.966	0.017	0.024	-0.009	-0.011
10 NH ₄ -N		-0.286	-0.885	0.141	0.200	0.023	0.028
11 NO ₃ -N		0.215	0.665	-0.049	-0.071	-0.070	-0.086
12 NO ₂ -N		0.076	0.235	0.133	0.189	-0.521	-0.640
13 Org-N		-0.145	-0.449	-0.171	-0.244	-0.293	-0.360
14 T-N		-0.308	-0.950	0.036	0.051	-0.147	-0.181
15 PO ₄ -P		-0.309	-0.955	0.079	0.113	-0.112	-0.138
16 T-P		-0.317	-0.980	0.052	0.074	-0.048	-0.059
17 Chlorophyll-a		0.171	0.529	0.342	0.487	-0.033	-0.040
18 Phytoplankton		0.131	0.404	0.382	0.543	0.326	0.400

*: 固有ベクトル **: 因子負荷量

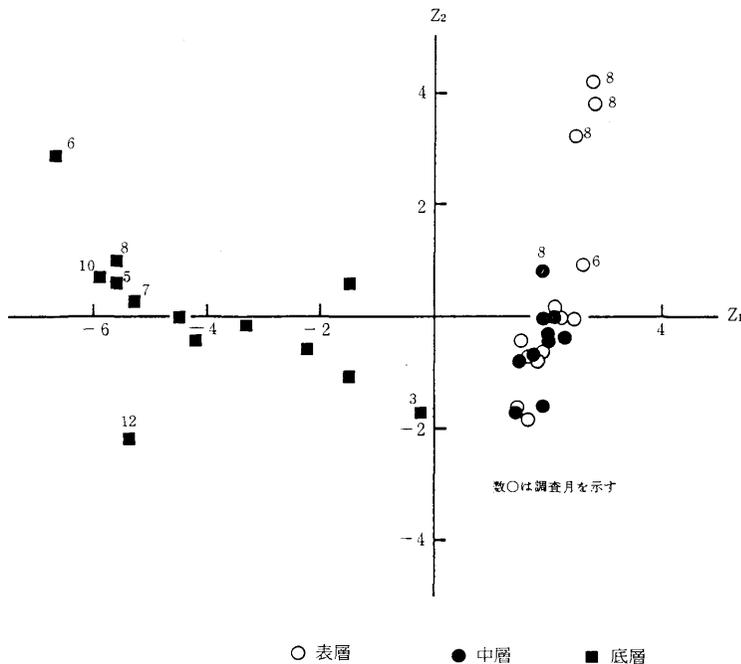


図18 Z₁とZ₂のスコア

出量を表わす成分と考えられ、測定値が大きいほど負方向へ増加する。

第二主成分 (Z₂) に高い因子負荷量の変量は pH、水温及び植物プランクトン数の順で、いずれも Z₂ に対して正の相関を示した。4.2 の水質経月変化と合せると、植物プランクトンの増殖に伴う水質の変化 (富栄養化現象) を表わす成分と考えられる。

第三主成分 (Z₃) の因子負荷量は全般に低く、亜硝酸性窒素のみが抽出された。Z₃ は好気及び嫌気の状態における窒素の変化を表わす成分と考えられる (表3)。

次に、主成分の特徴を把握するため Z₁ と Z₂ のスコアを求めた結果、以下の三グループに区分された (図18)。

第一グループ：植物プランクトンの増殖により水質が高くなる8月の表層水。

第二グループ：植物プランクトンの増殖があまりみられない中層と8月を除いた表層水。

第三グループ：底泥からの溶出量の大小を表わしている底層水。

以上のことから、小川原湖における湖心の水質は8月の植物プランクトンの増殖によって高くなる表層水と、年間を通じて底泥から栄養塩などが溶出している底層水で構成されているといえる。

底層水は塩分躍層の形成により表層及び中層水と独立した水塊を形成していると思われるが、湖面の結氷が溶

ける3月は表及び中層と比較的近い箇所に分布しているのが注目される。

淡水化に伴って塩分躍層が変化するにつれ、栄養塩類やマンガンを多く含む底層水が表及び中層へどのように影響するかを知ることが重要な課題と思われる。

6 総 括

汽水小川原湖の植物プランクトンの種構成と塩分躍層下における水質環境を明らかにするとともに、増殖した植物プランクトンが湖底に沈降、堆積する過程を調べた結果、次の知見を得た。

- 1 夏期、湖心において水温と塩分躍層が形成された。後者は結氷が溶ける春の循環期においても維持されているようである。
- 2 春層水の pH、COD 及びクロロフィル a には周期性がみられ、水温が高くなる夏期に最高となった。
- 3 植物プランクトンは夏期のほかに、春にも多くなることがあった。その種構成は季節を通じて珪藻類で占められており、アオコや水道の異臭味及び淡水赤潮などの原因種は少なかった。
- 4 磷及び窒素とクロロフィル a の関係を検討した結果、磷は制限因子となっていることが予想された。一方、窒素は過剰に存在していた。
- 5 塩分躍層下の底層水は溶存酸素が消失し、無酸素状

態になるにつれて、COD、磷、アンモニア性窒素及び溶解性マンガン濃度が高くなった。溶解性鉄はほとんど検出されなかった。

6 底層水のCOD改善の試みとして、通気法により短時間で溶存酸素を回復する方法を検討した結果、良い改善策とはならなかった。好気条件下で長時間にわたる検討が必要である。

7 植物プランクトンと底泥のかかわりから、表層で増殖した植物プランクトンの約5割が湖底に沈降、堆積すると推定された。

また、底泥のクロロフィル分解物と有機態磷及び有機炭素と有機態磷の関係から、植物プランクトンが底泥への有機物供給源として重要な位置にあった。

8 主成分分析の結果、小川原湖の水質は、8月の植物プランクトンの増殖で水質の悪化する表層水と、年間を通じて底泥から栄養塩類などが溶出している底層水で構成されていた。また、後者は塩分躍層により表及び中層とは独立した水塊を形成していた。

本調査は小川原湖水質保全対策調査の一環として実施したものであり、青森県環境保健部公害課の協力を得た。記して感謝の意を表する。

引用文献

- 1) 吉田陽一, 三田村緒佐武, 田中信彦, 門田元: びわ湖の“淡水赤潮”に関する研究—I 植物プランクトンおよび栄養塩類の分布変化, 陸水学雑誌, **44**, 1, 21-27 (1983)
- 2) TSUCIDA, A., HARA, Y., SEKI, H.: Spring bloom in a hypereutrophic lake, Lake Kasumigaura, Japan—V. Factors controlling natural population of Phytoplankters, Water Research, **18**, 7, 877-883 (1983)
- 3) TEZUKA, Y.: Rainfall as a Factor Regulating the Appearance of Anabaena Bloom in the South Basin of Lake Biwa, Jpn. J. Limnol., **46**, 1, 8-14 (1985)
- 4) 奈良忠明, 小山田久美子, 今武純, 西沢睦雄: 富栄養に関する調査(その1) 小川原湖・姉沼について 青森県公害センター所報, **4**, 128-134 (1979)
- 5) 青森県: むつ小川原開発第二次基本計画に係る環境影響評価報告書, 62 (1977)
- 6) G. Anderson: Factors Affecting the Estimation of phosphate Esters in Soil, J. Sci. Food Agric., **11**, September, 497-503 (1960)
- 7) MCGUIRE, M.J., JONES, R.M., MEANS, E.G., IZAGUIRRE, E.G., PRESTON, A.E.: Controlling attached blue green algae with copper sulfate, J. Am. Water Works Assoc., **76**, 5, 60-65 (1984)
- 8) 門田治幸, 岡和昭, 渡辺賢介, 河淵雅恵, 松村浩明, 鎮西正道, 浜田康行: 永瀬ダム湖における淡水赤潮の研究(I) 赤潮の発生と環境要因との関係, 全国公害研会誌, **8**, 2, 97-102 (1983)
- 9) 石原純子, 安田幸伸, 川上誠一, 山崎美紀雄: 宍道湖のプランクトン相について, 島根県衛生公害研究所所報, **23**, 121-127 (1981)
- 10) 窒素, 磷等水質目標検討会: 湖沼の磷に係る水質目標についての検討結果—窒素, 磷等水質目標検討会報告, 1-82 (1980)
- 11) 門司正三, 高井康雄編: 陸水と人間活動, 167-208, 東京大学出版会 (1984)
- 12) 吉村信吉: 湖沼学(増補版), 175-176, 生産技術センター (1976)
- 13) 中田英昭, 桑原連: 震生湖における水質の季節的変動と鉄, マンガンの底泥からの溶出について, 陸水学雑誌, **38**, 3, 75-89 (1977)
- 14) 青木啓子, 磯松幸貞: 三方五湖の富栄養に関する研究(第6報) 水月湖, 日向湖の鉄, マンガンの挙動 福井県公害センター年報, **12**, 191-195 (1982)
- 15) MATSUYAMA, M., SAIJO, Y.: Studies on Biological Metabolism in a Mermictic Lake Suigetsu, J. Oceanog. Soc. Japan, **27**, 5, 197-206 (1971)
- 16) 田中稔, 奈良忠明: 公共用水域における全磷測定 の検討, 青森県公害センター所報, **6**, 105-108 (1983)
- 17) 奥野忠一, 久米均, 芳賀芳郎, 吉沢正: 多変量解析法, 日科技連出版社 (1971)
- 18) 中島淳, 鎗田功, 小林節子, 小倉久子: 底質の重金属汚染に対する主成分分析法の適用, 水処理技術 **17**, 8, 721-727 (1976)
- 19) 南部祥一, 金子光美, 真柄泰基, 橋爪健一郎, 国包章一, 田畑日出男: 水質変化解析, 水質変化予測基本報告書, 土木学会, 1-53 (1977)
- 20) 吉見洋, 岡敬一, 井口潔, 関野廣子: 相模川水系の水質解析について, 水質汚濁研究, **5**, 4, 193-200 (1982)
- 21) 近藤邦男, 清家泰, 伊達善夫: 主成分分析法を用いた汽水湖中海下層の水質解析, 水質汚濁研究, **8**, 12, 808-815 (1985)
- 22) WODKA, M.C., EFFLER, S.W., DRISCOLL, C.T., FIELD, S.D., DEVAN, S.P.: Diffusivity-Based Flux of Phosphorus in Onondaga Lake, J. Environ. Eng., **109**, 6, 1043-1415 (1983)

新井田川汚濁機構解析調査(Ⅰ)

Investigation on Water Quality Analysis of the Niida River(I)

野呂 幸男・佐藤 信博・奈良 忠明・根岸 勝信・
 小山田久美子・田中 貢・庄司 博光・手代森光仁

1 はじめに

新井田川は、流域に多くの水産加工場、大規模セメント工場、住宅団地を擁し、八戸港に注ぐ感潮河川であり、本県では汚濁の進行した河川として知られている。

近年はサケの遡上が認められるなど、その水質は良化の傾向にあるものの、環境基準(B類型)を達成するまでには至っていない。

新井田川の汚濁機構については、関野ら¹⁾により解析が行われているが、その後の汚濁の動向を把握するため、汚濁機構解析調査を実施した。

今回は、調査の結果及び前回との比較について報告し、汚濁機構の解析等については次の機会に報告したい。

なお、この調査は公害課及び八戸市公害対策課の協力を得て実施したものである。

2 調査方法

2.1 調査期間

1985年6月26日10時～6月27日9時

2.2 調査地点

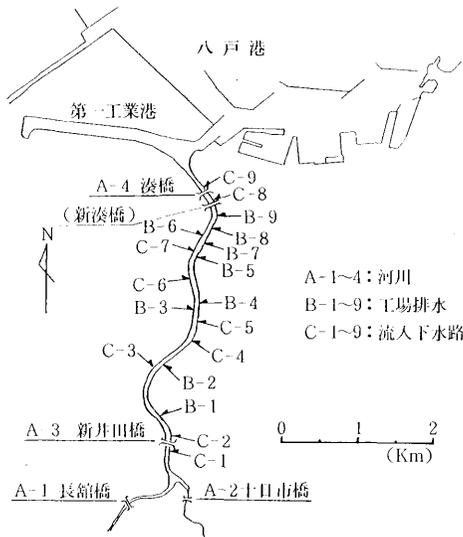


図1 調査地点図

2.3 調査内容

1時間ごとの通日調査を行った地点は、感潮域にある湊橋(図4)と新井田橋(図5)である。

湊橋では、流れの変化を詳しく調べるため、流向流速計により、水平方向(表層, 下層)と流心部における鉛直方向の流向流速を測定した。また、工場排水の流量は一部聞き取りによった。

なお、流入下水路のうち暗渠になった下水路は測定が不可能なため、今回の調査対象から除いた。

表1 調査内容

調査地点	番号	項目	回数
新井田川 長館橋	A-1	流量	2
	A-2		
新井田川 新井田橋	A-3	BOD	24
新井田川 湊橋	表層 下層	COD	24
		SS	
工場排水	B-1 B-9	T-N	2
		T-P	
流入下水路	C-1 C-9	Cl ⁻	4

3 調査結果及び考察

3.1 水深

湊橋では、潮汐と水深の変化が一致しているが、3.8 km 上流の新井田橋では満潮時に変化がみられ、潮汐が複雑に影響していると考えられる(図2, 表2)。

なお、新井田橋は1973年の調査¹⁾でも複雑な変化を示していた(図3, 表3)。

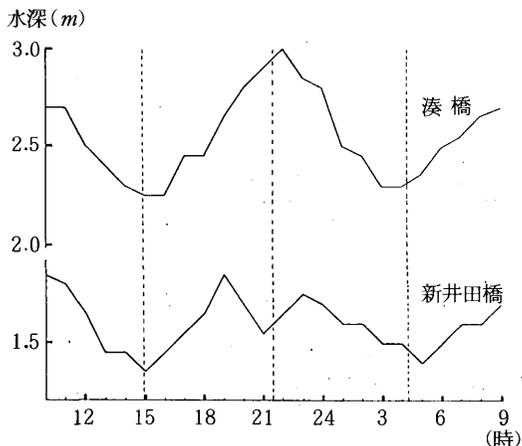


図2 水深の経時変化 (1985)

表2 八戸港の潮汐 (1985)

6月26日	14 : 56	干潮
6月26日	21 : 32	満潮
6月27日	4 : 17	干潮

表3 八戸港の潮汐 (1973)

5月21日	11 : 36	干潮
5月21日	18 : 56	満潮
5月21日	23 : 44	干潮
5月22日	4 : 19	満潮

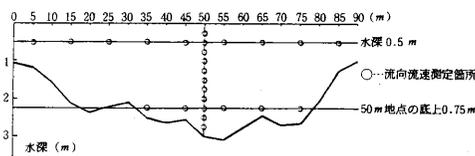


図4 断面図 (湊橋)

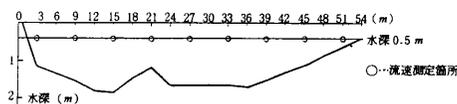


図5 断面図 (新井田橋)

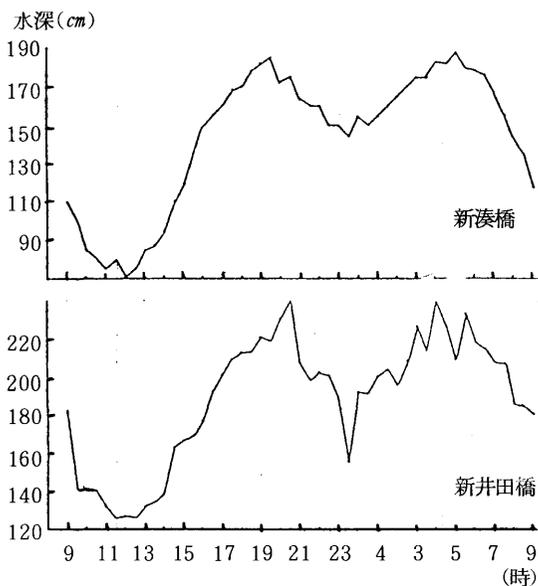


図3 水深の経時変化¹⁾ (1973)

3.2 湊橋の流速

湊橋の水平方向（表層，下層）の流向流速測定結果をもとに，流向の角度補正を行い，中間点を直線的に近似する方法で，全体の流速を求めた（図6）。

また，鉛直方向の流向流速測定結果は，角度補正を行って，経時変化図（図7）とした。

これらの結果から，次のことが確認された。

- ① 下げ潮時（10～15時，22～4時）はおおむね順流，上げ潮時（16～21時，5～9時）はおおむね逆流を示すこと（図6，図7）。
 - ② 下げ潮時で流速が小さいときには表層が順流，下層が逆流する「くさび型モデル」の現象がみられること（図7）。
 - ③ 流速が小さいときには，右岸寄りと左岸寄りの流向が反転する現象がみられること（図6）。
- なお，③の原因としては，次のことが考えられる。
- ④ 湊橋では流向流速測定に要する時間が長く（30分）測定中に流向が変化したこと。
 - ⑤ 河川構造あるいは風などの影響により，右岸寄りと左岸寄りでは逆流の推進力に差が生じたこと。

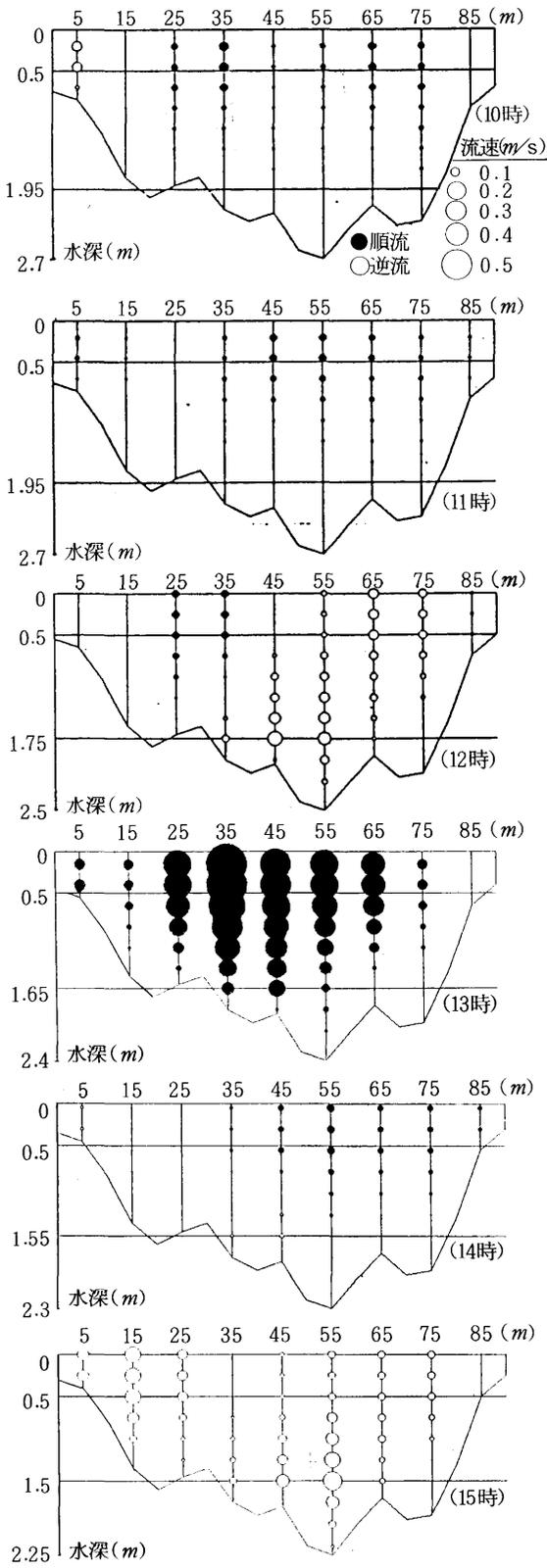


図7-1 流速の経時変化(湊橋10~15時)

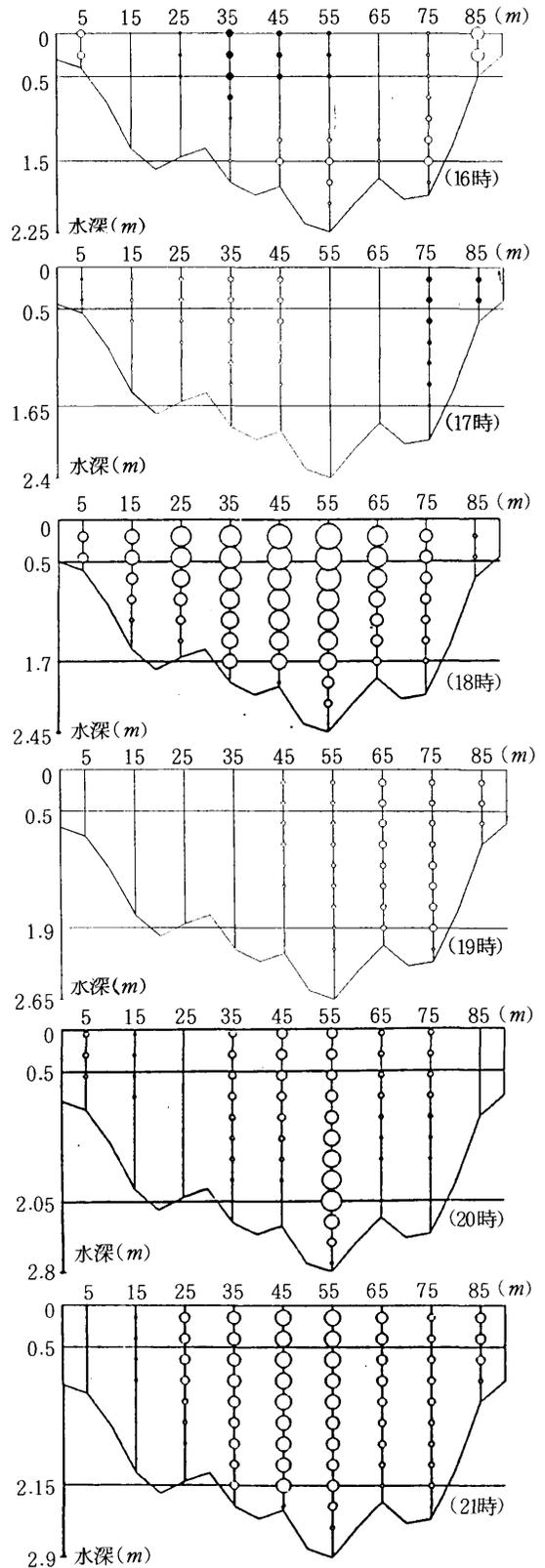


図7-2 流速の経時変化(湊橋16~21時)

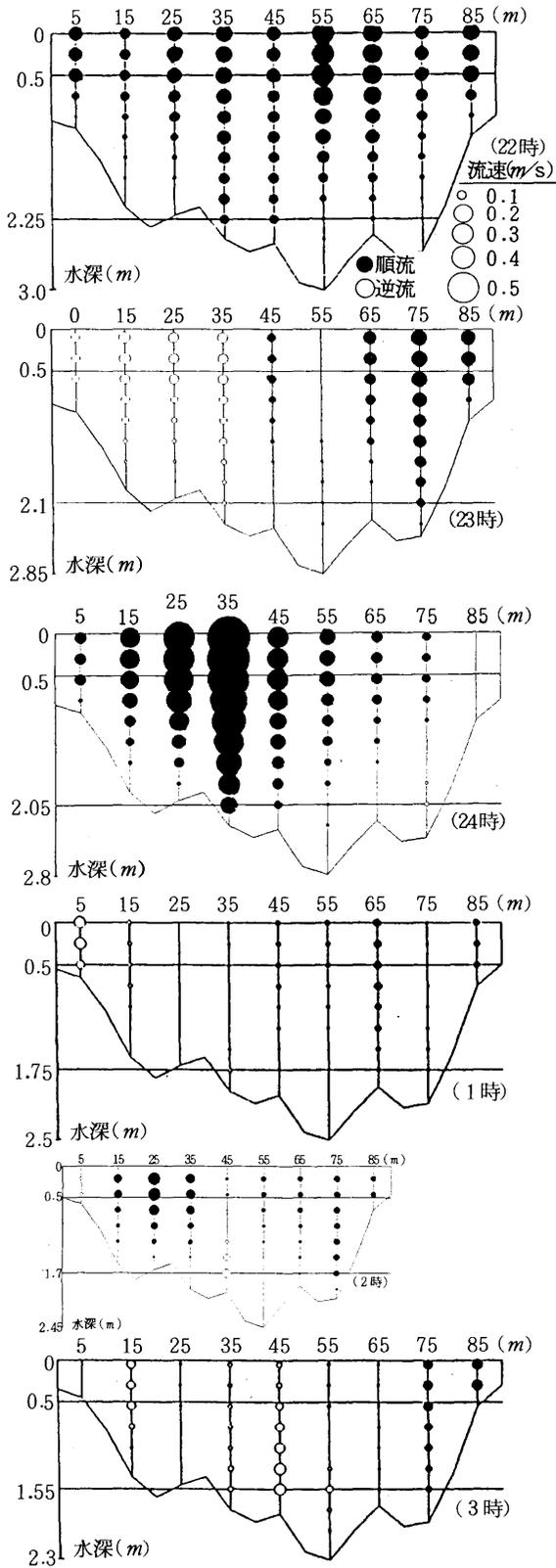


図7-3 流速の経時変化 (湊橋22~3時)

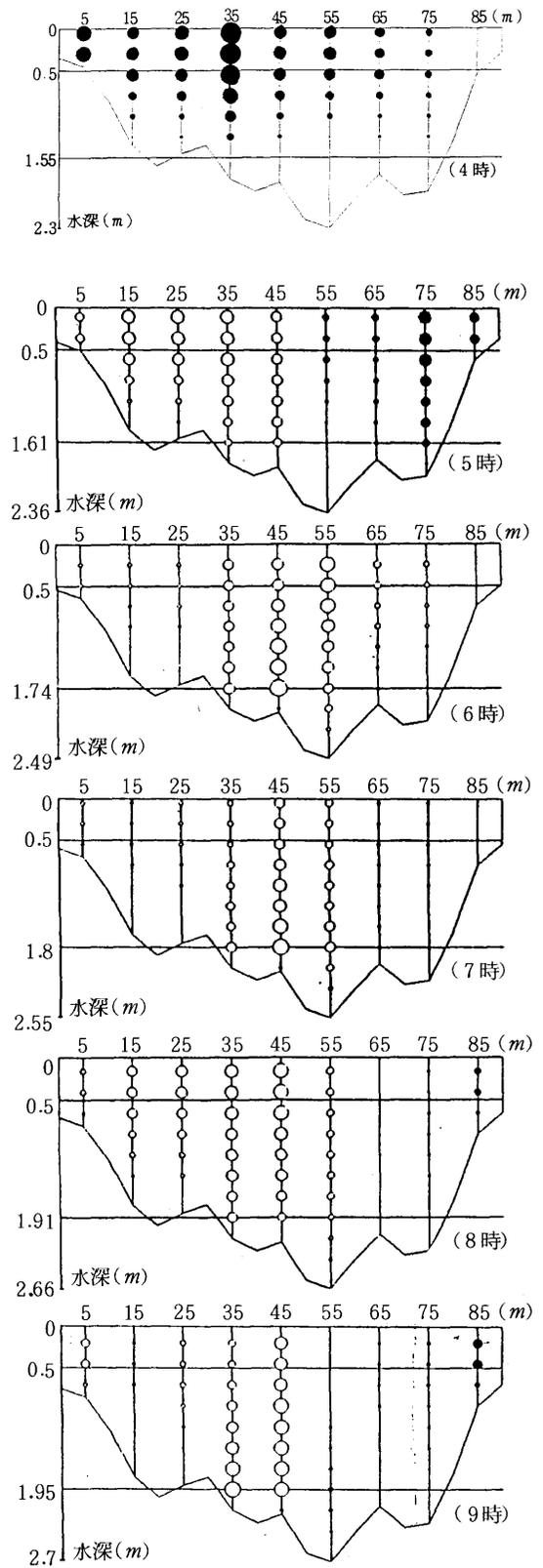


図7-4 流速の経時変化 (湊橋4~9時)

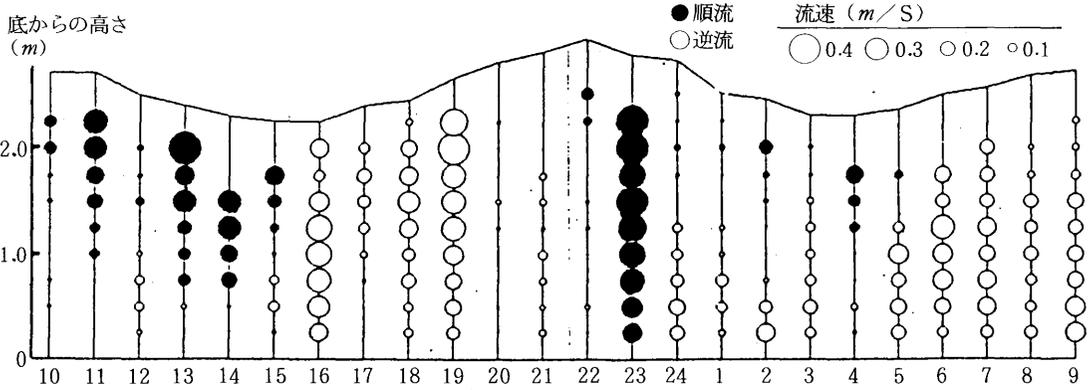


図7 流速(鉛直方向)の経時変化(湊橋)

3.3 流量

湊橋の流量は、3.2で述べた全体の流速(図6)をもとに、表層・下層ごとに算出した(図8, 図9)。なお、各測点における水深の1/2の位置を上・下層の境界とすることにより断面を表層・下層に等分した。

湊橋では、表層が下層よりも大きく変化していた(図8)。新井田橋でも潮汐の影響がみられた(図10)。

なお、前回¹⁾の調査結果(図11, 図12)と同様に時間の推移に伴い流量の変化が非常に大きいことが特徴である。

即ち、新井田川の感潮域では上げ潮下げ潮にかかわらず、風の影響と海水の断続的な押し上げなどにより、1~2時間程度のかかなり短い周期で、絶えず順流と逆流をくりかえしているものと考えられる。

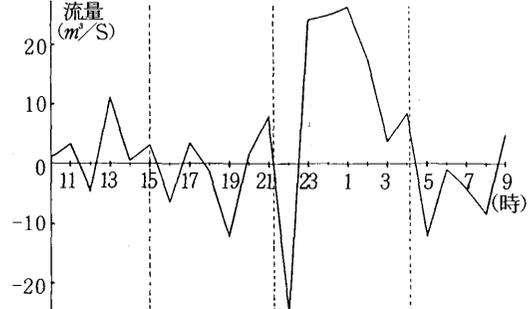


図10 流量の経時変化(新井田橋〔1985〕)

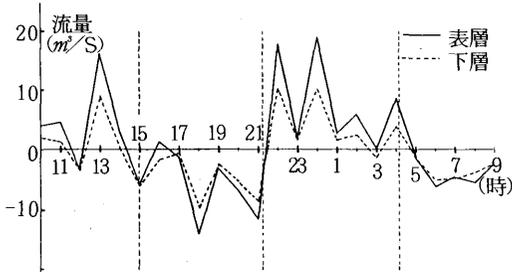


図8 流量の経時変化(湊橋:表層,下層〔1985〕)

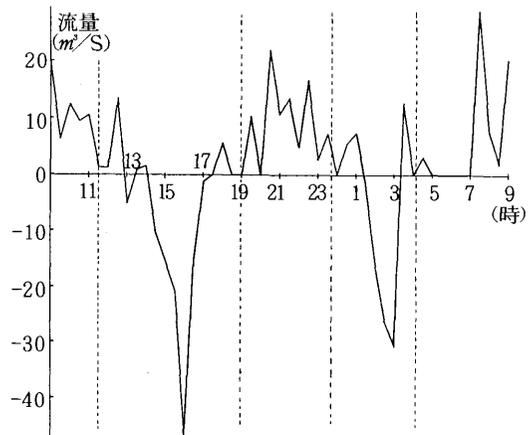


図11 流量の経時変化(新湊橋〔1973〕)

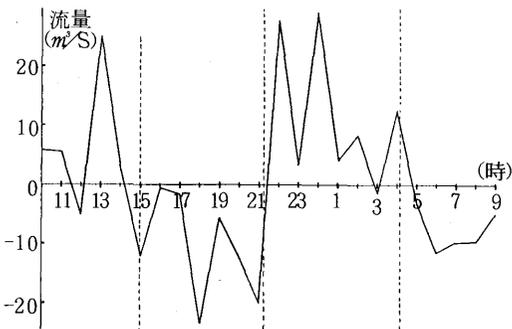


図9 流量の経時変化(湊橋:全層〔1985〕)

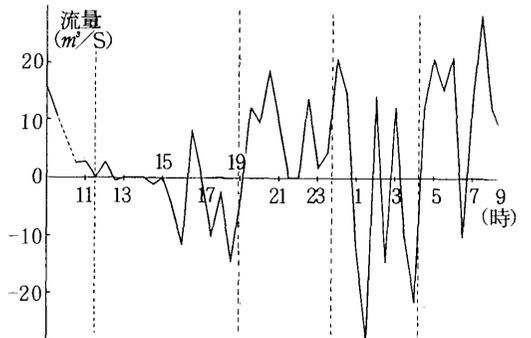


図12 流量の経時変化(新井田橋〔1973〕)

3.4 塩素イオン

海水の侵入の程度を塩素イオンでみると、湊橋の表層では潮汐の変化と一致していたが、下層では大きな変化がなく常に海水（塩素イオン約18,000 mg/l）に近い状態を保っていた（図13）。

新井田橋では、下層についても測定を実施した。表層では大きな変化はないものの、下層では干潮から満潮までの時間帯が約5,000 mg/l と低く満潮から干潮までの時間帯が10,000 mg/l と高く、海水は下層から侵入していると思われた。

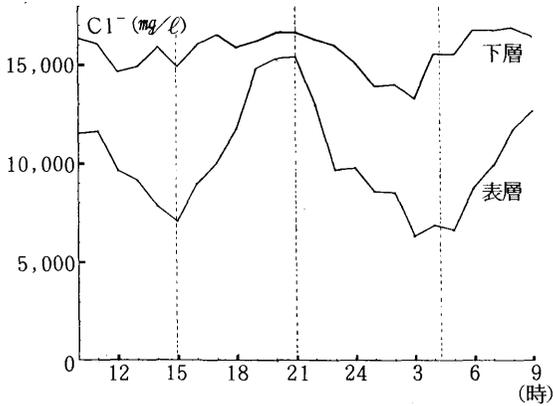


図13 塩素イオンの経時変化（湊橋）

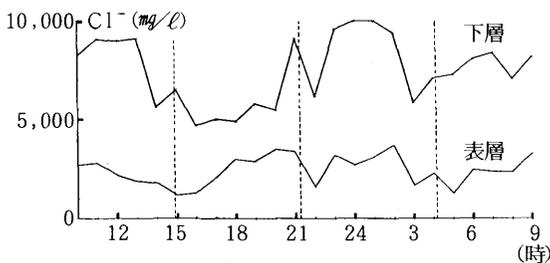


図14 塩素イオンの経時変化（新井田橋）

3.5 水質の経時変化

BOD, COD 等の経時変化では、湊橋表層の15時と新井田橋の9時にピークがみられた（図15～19）。この時間に採取した検体からは藻類の発生が認められたことから、河川においても富栄養化現象が存在することがうかがえる。

なお、前回の調査¹⁾でも18時から20時にかけて同様のピークが認められたが、その直接原因は汚水の流入によるものであった。

したがって、今回のピークを前回¹⁾と単純に比較するわけにはいかないが、いずれにしても新井田川は依然として突発的に高濃度の水質を生じ得る状況にあると考えられる。

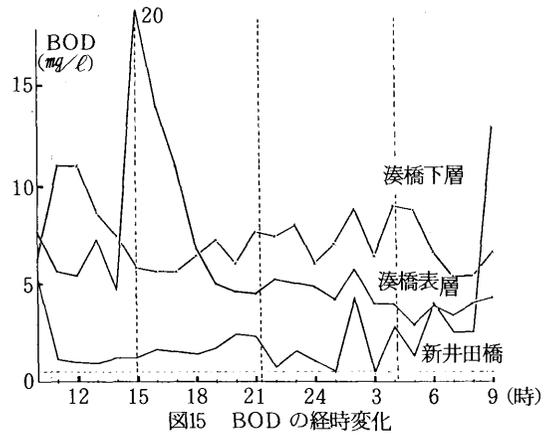


図15 BODの経時変化

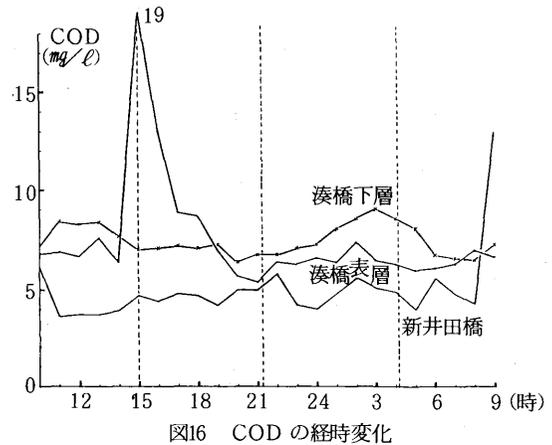


図16 CODの経時変化

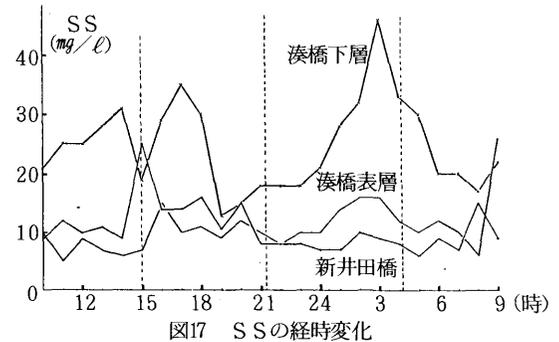


図17 SSの経時変化

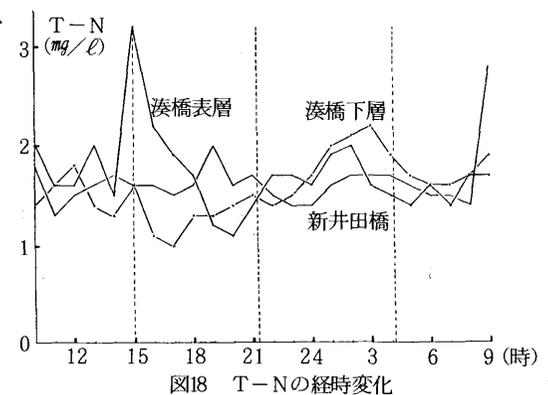


図18 T-Nの経時変化

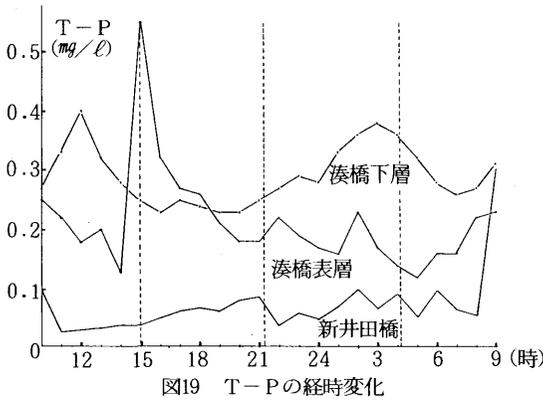


図19 T-Pの経時変化

3.6 流入負荷量

工場排水及び流入下水路の調査結果から、1日あたりの総流入負荷量は、BOD 2,363 kg, COD 1,894 kg, SS 3,994 kg, T-N 596 kg, T-P 33 kgと試算された。BODについては、前回調査¹⁾時(6,180 kg)の1/2以下に減少した。

負荷の発生箇所別割合(図20)を見ると、項目により差はあるが、おおむね工場排水が3~4割、流入下水路が5~6割であった。

なお、BODとT-Pは上流からの負荷割合が少ないこと、水質の経時変化(図15, 図19)では新井田橋と湊橋との差が明瞭であることから、BODとT-Pの負荷はそのほとんどが下流域に集中していると思われる。

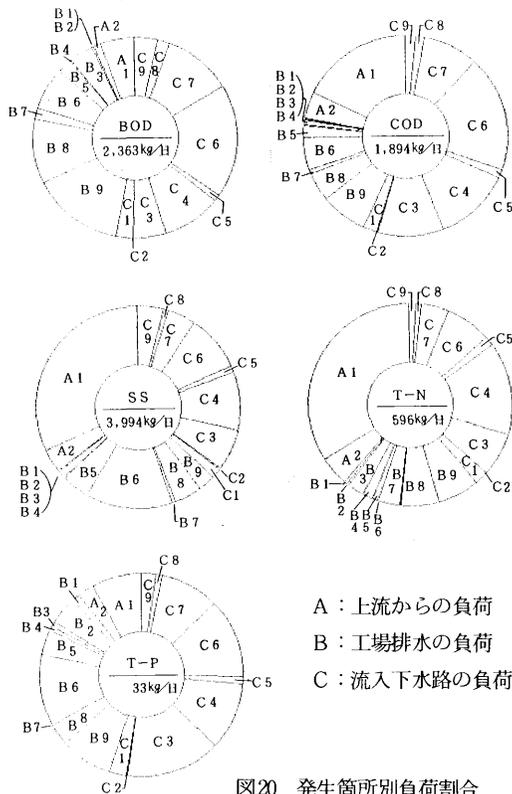


図20 発生箇所別負荷割合

A : 上流からの負荷
B : 工場排水の負荷
C : 流入下水路の負荷

これに対し、CODとT-Nでは上流からの負荷割合が大きく、水質の経時変化(図16, 図18)でも地点間の差は明瞭ではない。

4 まとめ

新井田川の感潮域における流動は、潮汐により生じる主振動と、風あるいは海域からの断続的な押し上げ等により生じる副振動から成り立っている。

副振動の周期は必ずしも一定ではない。

湊橋は複雑な流動を示したが、水深と塩素イオンの経時変化は、湊橋の流動を主振動だけで近似しうることを示唆している。

湊橋を通過した「波」は必ずしも完全な形で新井田橋まで伝ばしていない。なお、「波」の伝ばに要する時間は2~3時間である。

新井田橋では海水が下層より侵入するが、湊橋ではむしろ表層を遡上し、下層は海水に近い状態を保ちながら停滞気味である。

工場排水と流入下水路からの流入負荷量は前回¹⁾の1/2以下に減少しており、近年の新井田川における水質良化を裏付けた。

一方、河川においても富栄養化現象の存在が確認されたが、もとより感潮河川は底泥の蓄積及びその溶出が懸念されること、即ち閉鎖性水域の一種とみなし得ることから、今後はこれら二次的汚濁についても検討する必要がある。

文 献

- 1) 関野正義, 内山日出夫, 高橋克雄, 和泉四郎, 細川可興: 新井田川精密調査, 青森県公害センター所報, 1, 95-102 (1975)

大腸菌群に関する調査 (第4報)

— 小川原湖関連河川の汚染指標細菌 —

A Survey on the Coliform Bacteria (Part IV) — Fecal Indicator Bacteria in Rivers inflowing to Lake Ogawara. —

小山田久美子・佐藤 信博・奈良 忠明

1 はじめに

湖沼の富栄養化対策が大きな話題となり、窒素及びリンの排水基準も設定施行されてきているなかで、流入負荷量と富栄養化現象との関連が重要視されている。

特に、水質評価については、従前の化学的調査に加えて生物学的な検討も必要となってきた。著者らは、先に河川や閉鎖性水域において、大腸菌群をはじめとする汚染指標細菌の検索が生活排水とのかかわりを知る有効な手段であることを認め^{1,2)}。

ここでは、漁業・農業・レクリエーションなど地域住民とかかわりの深い小川原湖及び関連河川における大腸菌群や腸球菌等の実態調査を行ったので報告する。

2 調査方法

2.1 調査資料

小川原湖に流入する7河川及び流出河川(高瀬川)の表層水について、1984年4月から1985年3月まで13回調査を行った(図1)。

2.2 調査方法

表1に示す。

図1 調査地点

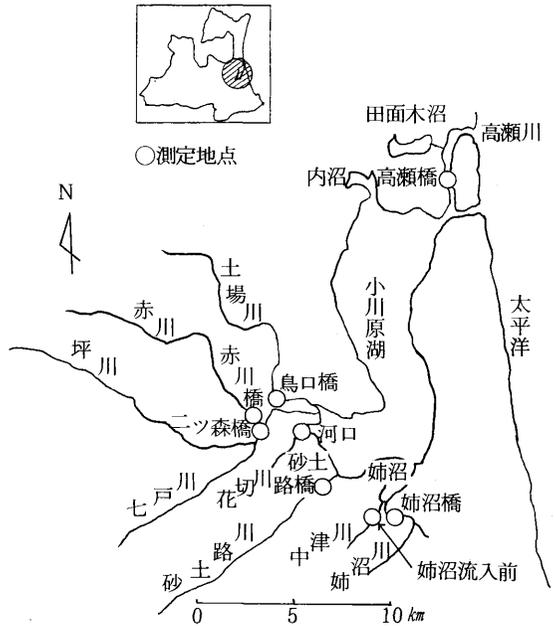


表1 調査項目及び測定方法

項 目	測 定 方 法
大 腸 菌 群	BGLB培地-36±1℃で48±3時間培養
ふん便性大腸菌群	BGLB培地陽性-1白金耳-E C培地-44.5±0.2℃で24±2時間培養
腸 球 菌	AC培地-36±1℃で48±3時間培養-陽性-1白金耳-A C培地-45±1℃で48±3時間培養
海水性従属栄養細菌	Zobe11の2216培地-ろ過海水でpH 7.6~7.8に調整
(低濃度) "	1/20 " - 1/20に希釈し "
淡水性 "	Zobe11の2216培地-蒸留水でpH 7.0に調整
(低濃度) "	1/20 " - 1/20に希釈し "

3 結果と考察

3.1 普通濃度培地と低濃度培地の比較検討

表2 大腸菌群数及び各従属栄養細菌の普通濃度培地数に対する低濃度培地数の比率

調査地点	区分	月日	4月23日	5月15日	5月25日	6月14日	7月4日	8月6日	9月11日	10月3日	11月12日	12月10日	1月16日	2月25日	3月4日
姉沼橋	大腸菌群数		13,000	54,000	33,000	7,900	92,000	49,000	18,000	220,000	160,000	160,000	240,000	9,200	160,000
	海水性比率		0.14	0.00	0.93	0.04	0.89	0.11	0.34	0.01	0.06	0.59	0.17	0.00	0.11
	淡水性比率		0.47	0.39	1.13	0.65	0.49	0.88	0.88	1.30	0.62	0.82	0.73	0.75	1.16
中津川	大腸菌群数		460	920	790	540	54,000	17,000	24,000	160,000	5,400	490	490	920	110
	海水性比率		0.24	0.00	0.79	0.48	1.07	0.20	0.43	0.01	0.13	0.09	0.22	0.00	0.18
	淡水性比率		0.85	0.28	1.26	0.68	0.60	1.17	1.14	0.97	0.63	1.04	1.00	0.89	1.37
花切川河口	大腸菌群数		18,000	92,000	49,000	160,000	24,000	920,000	350,000	130,000	54,000	24,000	54,000	24,000	17,000
	海水性比率		0.22	0.01	0.95	0.26	5.23	0.11	0.18	0.01	0.03	0.24	0.09	0.03	0.18
	淡水性比率		1.81	0.38	0.84	0.95	0.20	0.86	0.79	1.00	0.74	0.88	0.93	0.77	0.92
砂土路橋	大腸菌群数		2,200	3,500	7,900	4,300	35,000	54,000	54,000	35,000	24,000	790	1,700	2,200	790
	海水性比率		0.01	0.04	0.28	0.19	1.57	0.26	0.31	0.03	0.08	0.52	0.15	0.08	0.07
	淡水性比率		0.21	0.31	0.65	0.15	0.35	0.66	0.88	1.15	10.00	0.82	0.60	0.70	0.92
鳥口橋	大腸菌群数		330	490	460	5,400	24,000	160,000	16,000	24,000	3,500	2,400	1,100	16,000	330
	海水性比率		0.51	0.02	1.53	0.40	0.00	0.18	0.38	0.05	0.18	1.00	0.30	—	0.41
	淡水性比率		0.34	0.51	0.78	1.25	0.58	0.71	1.00	1.26	0.62	0.84	0.77	1.25	1.42
赤川橋	大腸菌群数		5,400	5,400	3,500	11,000	54,000	35,000	54,000	22,000	13,000	2,400	5,400	9,500	4,600
	海水性比率		0.22	0.01	0.44	0.48	0.79	0.11	0.27	0.01	0.09	0.53	0.18	0.06	0.13
	淡水性比率		0.43	0.45	1.18	0.95	0.11	0.55	0.91	1.15	0.84	0.52	0.82	0.70	1.54
二ツ森橋	大腸菌群数		700	2,800	790	2,800	9,200	92,000	24,000	9,200	5,400	2,200	3,500	16,000	2,400
	海水性比率		0.17	0.00	0.43	0.16	0.00	0.03	0.27	0.01	0.07	0.48	0.21	0.06	0.07
	淡水性比率		0.45	0.39	1.24	0.25	0.15	0.92	0.75	1.01	0.73	7.91	0.47	0.91	1.47
高瀬橋	大腸菌群数		7.8	2	2	26	240	240	33	130	1,600	13	23	120	13
	海水性比率		0.04	—	0.25	0.05	0.04	0.00	0.05	0.00	0.03	0.92	0.01	0.05	0.06
	淡水性比率		0.81	0.09	1.43	0.54	0.02	0.24	0.01	0.15	0.23	0.52	0.54	0.51	1.39

環境汚染、特に有機汚濁とのかわりから、低濃度培地の有効性が指摘されており^{3,4)}ここでは、普通濃度培地としてZobellの2216培地と、1/20に希釈した低濃度培地について比較検討した(表2)。

その結果、普通濃度培地の細菌数に対する低濃度培地の比率は、概して低い値となった。海水性従属栄養細菌においては、その比率が1.0を超えたのは、中津川、花切川河口、砂土路橋で各1回、鳥口橋で2回だけであった。一方、淡水性従属栄養細菌の場合、比率が1.0以上となるのは、各地点で2~6回であり、海水性従属栄養細菌より優れているものの、いずれも測定回数半以下であった。

今回の調査から、小川原湖流入河川における低濃度培地の有効性は見出せなかったことから、今後更に検討する必要がある。

3.2 各地点における細菌の汚染状況

各地点の細菌数(図2)をみると、大腸菌群数は2~ 9.1×10^5 MPN/100 mlで変動幅が大きく、河川間の差が比較的明瞭である。最小値を示したのは高瀬橋の5月で、最大値は花切川の8月に出現している。

ふん便性大腸菌群数は、0~ 9.3×10^4 MPN/100 mlで、大腸菌群数に比較し最大値で約1/10、平均値で約1/20となっている。月別変化では、大腸菌群と同様に夏場に多くなる傾向がみられる。

次に人畜由来で、水中では増殖しないとされている^{2,5)}腸球菌は、0~ 2.3×10^4 MPN/100 mlで、9月の花切川河口で最大値を示した。

一方、従属栄養細菌については、淡水性従属栄養細菌数が、 $5 \times 10^3 \sim 1.3 \times 10^8$ 個/100 ml (平均 5.8×10^6 個/100 ml)、海水性従属栄養細菌数は、 $2 \times 10^3 \sim 6.8 \times 10^7$ 個/100 ml (平均 1.2×10^6 個/100 ml)で、両者にほとんど差はないが、全地点を通じて、わずかに淡水性従属栄養細菌が優位であった。

又、地点別では、砂土路橋、花切川河口、赤川橋及び高瀬橋において、時に海水性従属栄養細菌が優位となることがあり、特に夏期で顕著であった。高瀬橋は、感潮河川であるため海水の流入が考えられるが、他の地点で海水性従属栄養細菌が優位を占める理由は不明であることから、今後更に調査が必要である。

姉沼橋と花切川河口は、各種細菌数が多い上に、変動係数が小さい。これらの河川は年間を通じて負荷量の変動が少ないと思われる生活排水が流入している河川である。

中津川及び鳥口橋では、腸球菌数がふん便性大腸菌群数を上回ることがある。これは、河川の流域に大規模な糞尿施設が存在していることも一因と考えられるので、ふん尿の適切な管理・指導が必要であろう。

一方、高瀬橋では、大腸菌群、ふん便性大腸菌群及び腸球菌が他の地点に比べ極端に少ない。小川原湖は滞流時間が約288日と長いことから死滅したためと思われる。

しかし、従属栄養細菌は、他の地点との差が少なく、鳥口橋より上回ることもあって興味深い。

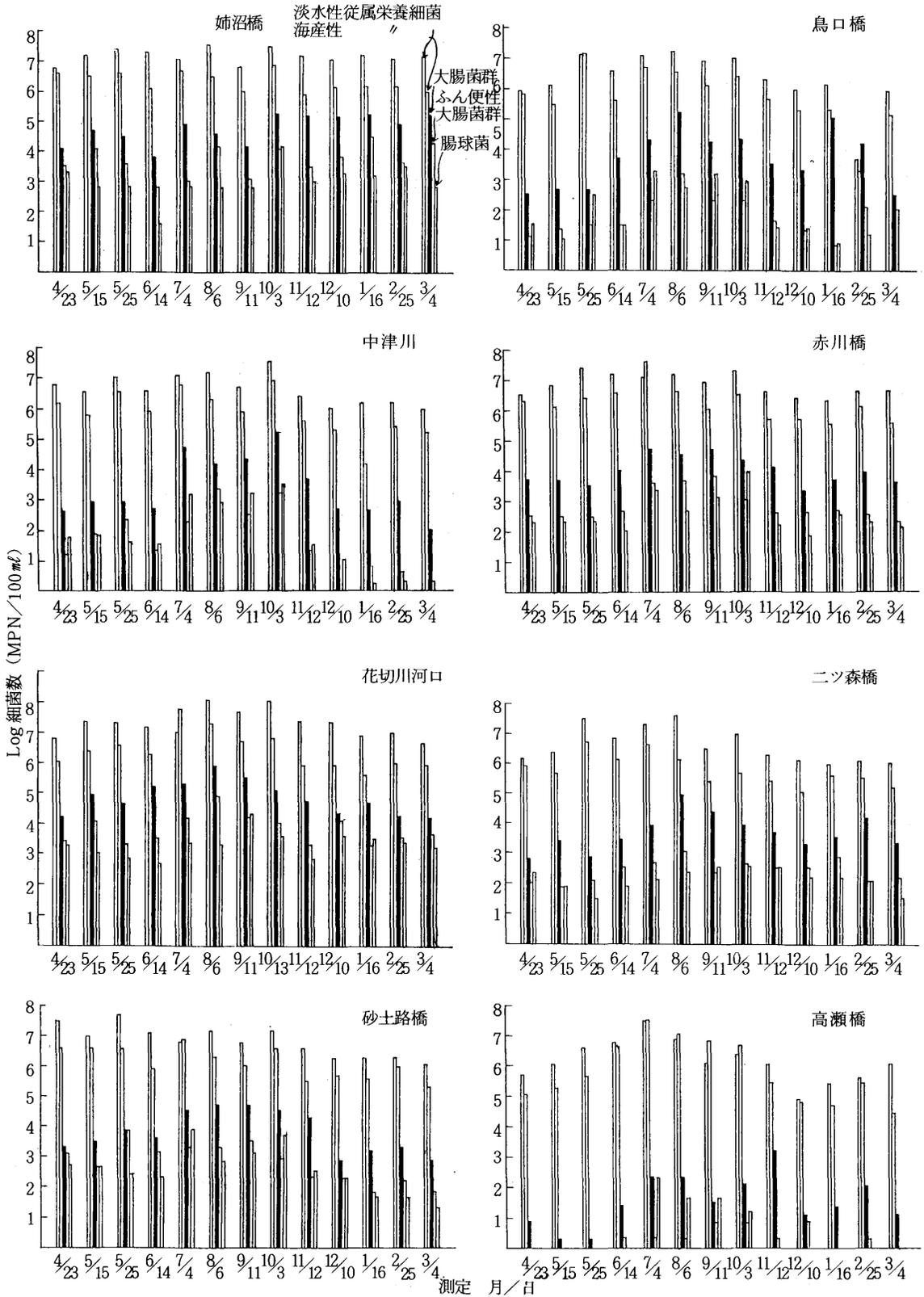


図2 各地点の細菌数

表3 大腸菌群に対するふん便性大腸菌群及び腸球菌の比率

地点名	区分	ふん便性大腸菌群	腸球菌
姉沼橋		0.2 ~ 0.01	0.1 ~ 0.01
中津川		0.2 ~ 0.01	0.1 ~ 0.006
花切川河口		1 ~ 0.1	0.1 ~ 0.001
砂土路橋		1 ~ 0.01	0.2 ~ 0.01
鳥口橋		0.2 ~ 0.0001	1 ~ 0.0001
赤川橋		1 ~ 0.1	1 ~ 0.01
ニッ森橋		0.1 ~ 0.01	0.2 ~ 0.006
高瀬橋		1 ~ 0.001	1 ~ 0.1

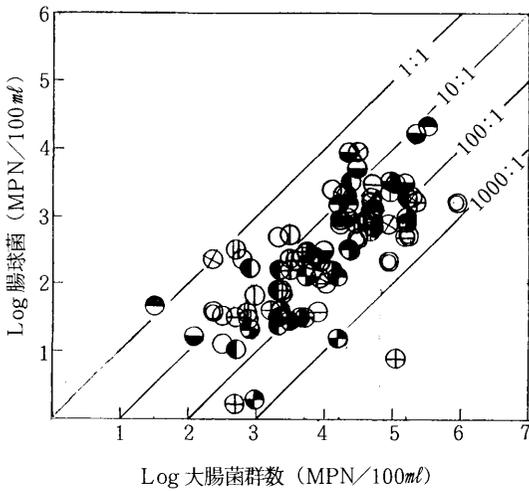
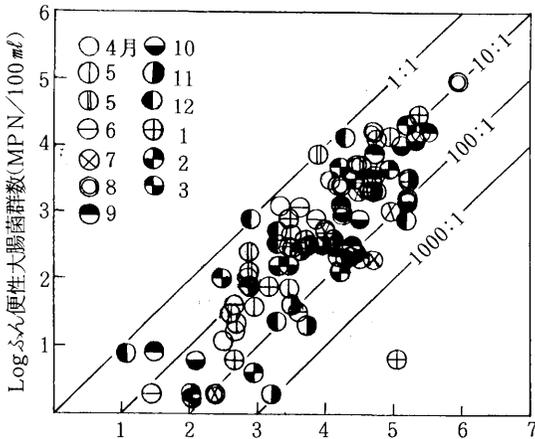


図3 大腸菌群とふん便性大腸菌群及び腸球菌の関係

3.3 大腸菌群に対するふん便性大腸菌群及び腸球菌の比率

大腸菌群に対するふん便性大腸菌群の比は、全体では0.0001~1で(表3及び図3)、これまでに調査した新井田川(0.01~0.4)及び八戸港(0.01~1)に比べ変動が大きい。地点別では、鳥口橋と高瀬橋で大きく変動し、花切川河口と赤川橋では変動幅が小さい。

一方、腸球菌についてみると、全体ではふん便性大腸菌群と同じ0.0001~1である(表3及び図3)。ほとんどの地点でふん便性大腸菌群より大きく変動するが、砂土路橋と高瀬橋では、腸球菌の変動が小さい。鳥口橋はふん便性大腸菌群、腸球菌ともに最も大きく変動した。

3.4 大腸菌群と従属栄養細菌との関係

有機物を栄養源としている従属栄養細菌が、汚染指標細菌として有効であるかを知るため、大腸菌群との関係をみた(図4)。

前報²⁾の八戸港においては、淡水性従属栄養細菌と大腸菌群の相関が良く、汚染指標細菌として有効であると報告したが、比較的良好な関係を示した河川は、中津川と花切川河口だけであった。また、淡水性と海水性を比較すると、前回同様淡水性従属栄養細菌が良好な関係にあった。

一方、三沢市及び北上町の生活排水が流入する姉沼橋や花切川河口など、生活排水が比較的一定した汚濁源と考えられる河川においては、大腸菌群同様、従属栄養細菌も多い上に変動幅が小さい。

今後、窒素やリン等の栄養塩類との関係についても調査し、従属栄養細菌の有効性について検討していきたい。

4 まとめ

小川原湖関連河川の汚染指標細菌の有効性を知るため、大腸菌群、ふん便性大腸菌群、腸球菌及び従属栄養細菌について検討した結果、以下の知見を得た。

- 1) 海水性と淡水性の従属栄養細菌について、Zobellの2216培地の濃度を変えて(普通濃度と1/20希釈濃度)検討した結果、両者ともに、普通濃度培地でより強い感受性を示した。
- 2) 関連河川の細菌汚染状況は、生活排水が流入し、下水路的役割をしている姉沼橋と花切川河口で、年間を通じて細菌数が高い。流域に養豚施設がある中津川や鳥口橋では、腸球菌数が大腸菌群数やふん便性大腸菌群数を上回ることがある。
- 3) 大腸菌群に対するふん便性大腸菌群の比率は、花切川河口と赤川橋が0.1~1と小さく、鳥口橋では0.0001~0.2と大きく変動した。

腸球菌の比率は、姉沼橋で0.01~0.1、高瀬橋で0.1

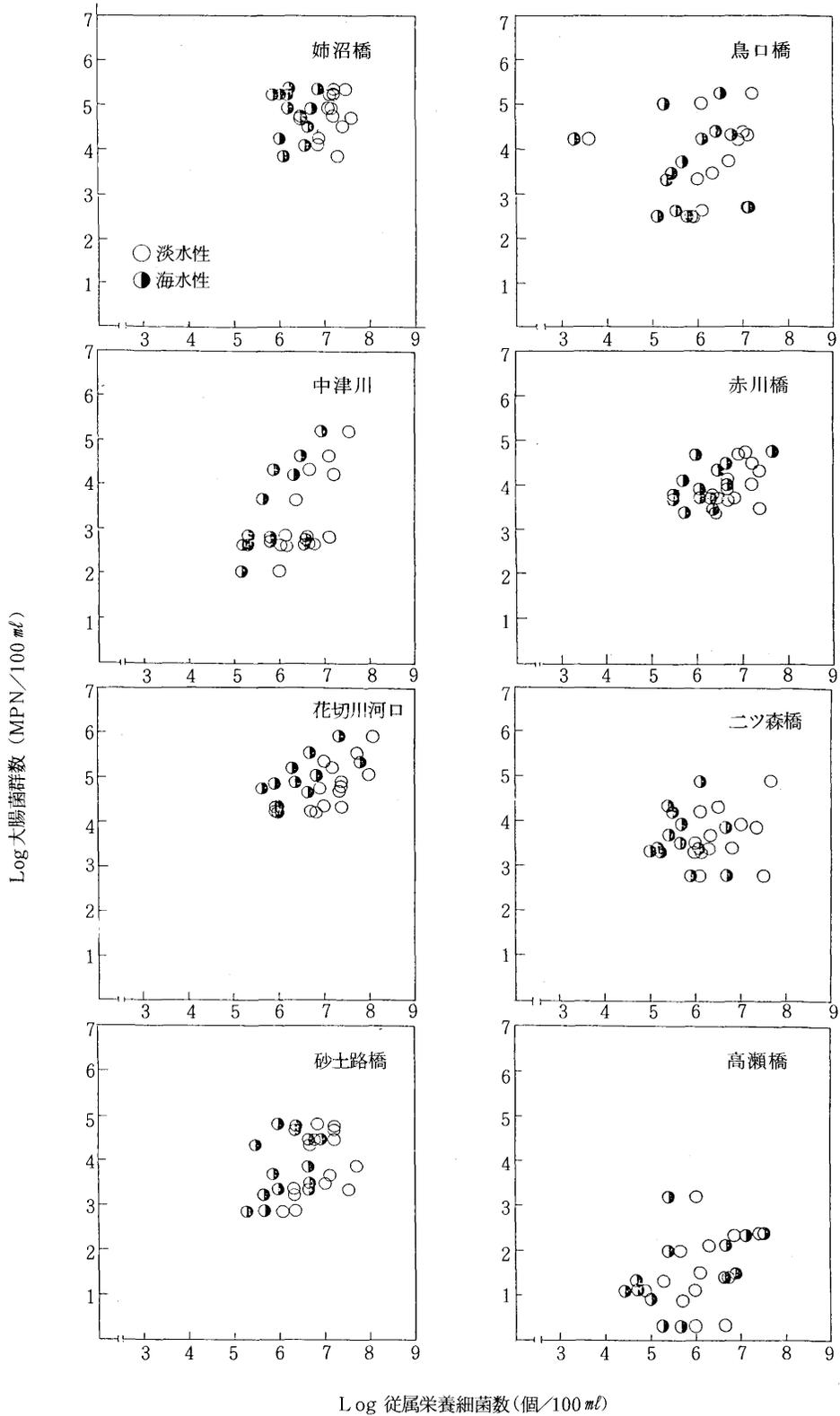


図4 大腸菌群と従属栄養細菌

～1と小さく、鳥口橋では0.0001～1と、ふん便性大腸菌群同様大きく変動した。

- 4) 有機汚濁が進んでいると思われる花切川河口と中津川においては、大腸菌群と従属栄養細菌は比較的良好な関係にあるが、他の河川では有効性が見られなかった。

文 献

- 1) 奈良忠明, 小山田久美子, 田中稔, 早狩敏男, 野田正志, 山崎喜三郎, 今武純, 石田平四郎: 生活雑排水の汚濁負荷と汚染指標細菌, 青森県公害センター所報, **6**, 39-49 (1983)
- 2) 小山田久美子, 奈良忠明, 石田平四郎: 大腸菌群に関する調査(第3報) 八戸港の汚染指標細菌について, 青森県公害センター所報, **6**, 50-56 (1983)
- 3) 芳倉太郎, 小田国雄, 飯田才一: 低濃度有機物培地による河川水中の従属栄養細菌の計数, 日本水産学会誌, **47**, 2, 183-189 (1981)
- 4) 川添正幸: 好気性従属栄養細菌の培養条件の検討, 滋賀県立衛生環センター所報, **18**, 79-82 (1983)
- 5) 上野英世: 大腸菌群の周辺, 用水と廃水, **19**, 5, 33-43 (1977)

青森県南地域における道路粉じん調査(Ⅱ)

阿部 征裕・鈴木 寿秋

1 はじめに

冬季間に装着するスパイクタイヤによってアスファルト舗装道路の粉じんが削り取られ、道路端ではかなり高濃度が認められている¹⁾。

そのため、昭和58年度から調査地点、調査方法を吟味しながら継続実施し、浮遊粉じんに含まれるアスファルト舗装材・土壌の割合(寄与率)について算出することも併せて検討したので、その結果を報告する。

2 調査方法

2.1 調査地点の概要

表1 調査地点の概要

地域	地点名	路線名	走行台数 ²⁾ (台/日)	採取位置(m)		用途地域	備考
				X	H		
十和田市	十和田	国道4号線	11,501	0.7	1.2	商業	
八戸市	ロータリー	県道本八戸停線	12,744 (6,372)	1	1.2	商業	測定場所は車道の中
	合同庁舎	県道八戸・百石線	(10,000)	3	1.2	近隣商業	()内は推定
	根城	-			1.2	第1種住専	対照地点
	市庁屋上	-			19	商業	〃
	三日町	国道340号線	26,839	4	4	商業	59年10月まで
青葉町	国道45号線	25,431	4	1	住居	59年11月より	

X:車道からの距離 H:地上からの高さ

2.2 スパイクタイヤ装着率調査

58年度に駐車場の車両と信号待ちの車両の両方について装着率を調べ、59年度は信号待ちの車両調査だけを行った。

信号待ちの車両調査は、八戸市公害対策課が担当した。装着率の評価は、台数比とした。

2.3 降下ばいじん

デポジットゲージ(30cmφ)による1ヶ月捕集。

2.4 浮遊粉じん調査

使用機器:ハイボリウムサンプラー(紀本製HV-121 A型, HV-MV型)ローボリウムサンプラー(新宅機械S-2型)アンダーセンサンプ

ラー(ダイレックAN-200型, 柴田製AH-600型)

捕集ろ紙:ろ紙は全て石英繊維製(QAST-2500)を使用した。

実施時間:スパイクタイヤ装着期として3月及び、12月(58年のみ)を選んだ。

対象時期は10月とした。

2.5 距離減衰調査

道路から粉じんが飛散する状況を明らかにするため、ハイボリウムサンプラーを使用して距離減衰調査を行った。

調査地点は、道路端から(Ⅰ)2m, (Ⅱ)13m,

(Ⅲ)25m, (Ⅳ)50mの4地点であり、NNW-N系の風向で道路と直角風下になる位置関係である。(図1)

2.6 アスファルト舗装材

土木事務所に依頼し、アスファルト舗装をコア採取後、メノウ製の自動粉砕機で処理の上、74μm以下を供試した。

2.7 土壌

人為的汚染が少ないと思われる地点の10~50cm地下から採取後、風乾し、74μm以下を供試した。

2.8 分析方法

試料は、フッ化水素酸-硝酸-過塩素酸を用いて全分解し、Ca, Mn, Feは空気-アセチレンフレイムを、Al, Tiは

亜酸化窒素-アセチレンフレイムを用いた測定法によった³⁾。干渉抑制剤として、Alについては10%La溶液,Tiについては10%Fe溶液を用いた。

またアスファルト分抽出溶媒として、58年度までは四塩化炭素を、59年度からはベンゼンを使用し、ソックスレー抽出をしたものである。

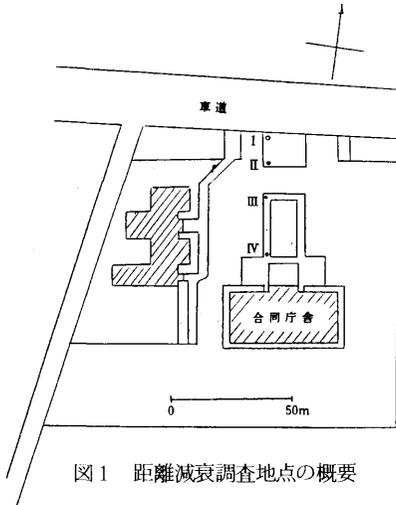


図1 距離減衰調査地点の概要

3 調査結果と考察

3.1 スパイクタイヤ装着率

58年度は、八戸市でも珍しく大雪で、積雪期間も59年度と比べて長かった^{4,5)}。

スパイクタイヤ装着期間は、積雪期に行われるのが原則であるけれど積雪がなくても11月になると初雪と日最低気温の氷点下以下を目途として装着しはじめる傾向がある。装着率は58年度で98.8%, 59年度で97.4%が最高であった。

また59年度は、積雪がなくても冬季間の装着率は変わらなかった。

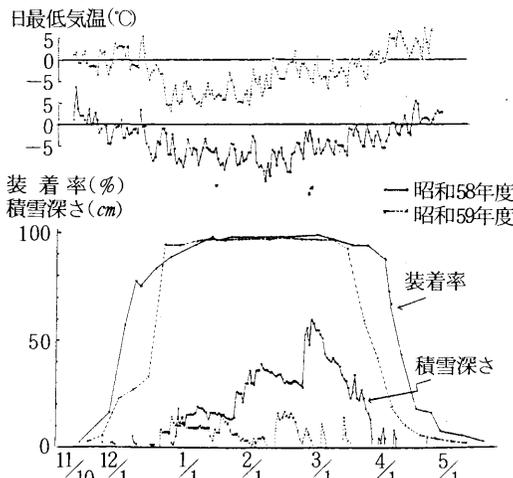


図2 スパイクタイヤ装着率と積雪深さ、装着率の関係

脱スパイクは、3月に入って、日最低気温が氷点下を上回る時点や積雪がなくなった時点から行う傾向がある。ただし、装着率が10%以下になるのは、積雪がなくなってから20日前後経過後である(図2)。

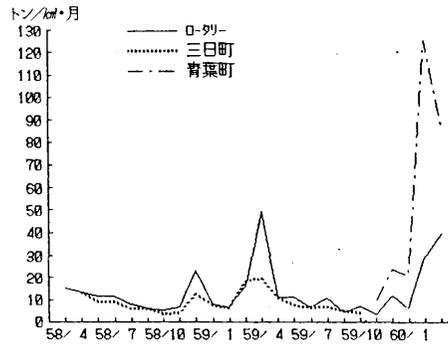


図3 降雪ばいじん

3.2 降雪ばいじん

58年度は、積雪が3月末まで続いたため、59年4月に最大となり、ロータリー:50トン(t/km²・月,以下単位は略す)、三日町:20トンであった。

2地点とも同様な経月変化をしているが、設置場所はロータリーが地上、三日町は、アーケードの上で設置したため測定値に大小が生じたと思われる。

そこで、三日町から交通量も比較的多く、主風向の風下で、地上に設置できる等の利点がある青葉町へ移設したところ、60年2月に126トン、3月に88トンと非常に高い値を示した(図3)。

3.3 距離減衰

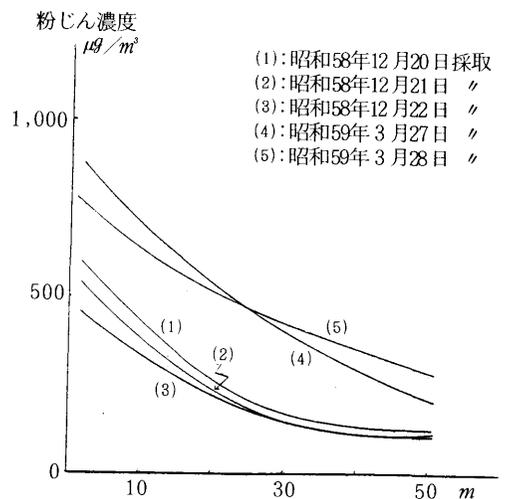


図4 距離減衰調査結果

12月期、3月期とも、最小二乗法により $C = Coe \cdot x^B$ (A x^B なる回帰式を求めた⁶⁾(表2)。

表2 距離減衰調査結果

ケース	回帰式*			距離**	風向	風速 (m)	温位傾度 ($^{\circ}\text{C}/\text{m}$) $\times 10^{-2}$
	A	B	C o				
(1)	-0.14	0.68	680	36	WSW	2.8	-0.44
(2)	-0.14	0.68	760	36	WSW	3.0	-0.54
(3)	-0.18	0.59	590	41	SW	1.9	-0.14
(4)	-0.008	1.3	850	59	WSW	3.3	0.00
(5)	-0.012	1.1	770	89	NNW	2.0	-0.04

* ; $C = \text{Coexp}(A x^B)$

** ; $C = 1/5 C_0$ となる距離

表中、温位傾度は次式のとおり定義した⁷⁾。

$$\frac{d\theta}{dZ} = r d + \frac{dT}{dZ}$$

$$\frac{d\theta}{dZ} : \text{温位傾度 } (^{\circ}\text{C}/\text{m})$$

$r d$: 乾燥断熱減率 ($0.98^{\circ}\text{C}/100\text{m}$)

$$\frac{dT}{dZ} : \text{気温傾度 } (^{\circ}\text{C}/\text{m})$$

ここで、 $d\theta/dZ$ の値は、0を境界として、不安定、中立、安定と分類されるパラメータとなる。

(不安定) $< d\theta/dZ = 0$ (中立) $<$ (安定)

12月調査の(1)~(3)のケースは、粉じん濃度が道路端の1/5に減衰する距離(D)が36m~41mと測定地点内に挿できたが、3月調査は、(4):59m, (5):86mと挿できなかった。

(4)のケースは、調査時の風向(表2の風向は最多頻度のもので、WSW系は道路とほぼ平行状態である)が(1),(2),(3)とほぼ同じであるが、温位傾度が、0.00と中立のため、不安定の(1),(2),(3)より拡散しにくい状況にあったと思われる。

(5)のケースは、最位傾度が-0.04と中位に近く、そのうえ、風向がNNW系で道路から最も影響をうける方向のため、減衰しにくかった。

粉じん濃度と気象因子としての温位傾度の関係は、正の相関があるといわれており⁸⁾、今回の距離減衰調査では平面的にも確認された。

また、天気図タイプ⁸⁾ごとに温位傾度をみると、天気図タイプ4のケースが温位傾度が最大となり、天気図タイプ6で最小となる。

したがって、天気図タイプ4の高気圧後面下では、地域全体で最も道路粉じんの影響があると思われ、降下ばいじ

んのような1ヶ月ごとの捕集では把握できない汚染の拡がりがあり、天気図タイプで示される数日間という短期間の気圧変化のなかで出現する恐れもある。

今後の調査の実施に際し、客観的な評価をする上にも天気図分類を組み入れた分析も必要であろう。

3.4 浮遊粉じん

道路端の10月では、5日間の平均値で、58・59年度とも80~170 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)の範囲内であった。

12月には、330~840 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)と10月の3倍~5倍になった。

3月は、58年度で、570~1,200 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)と全地点で10月のほぼ7倍、59年度で、1,100~1,300 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)と10月の10~13倍も高くなっている(図5)。

58・59年度の3月の粉じん調査で違いが生じた原因として、58年度は、3月末まで積雪が続き、粉じんの飛散しやすい状況が4月にズレ込んだこと、逆に59年度は、冬季間の積雪期間が短く、2・3月でも粉じんが飛散しやすい状況にあったと思われる。

このため、59年度の粉じん濃度が高かったのではなく、58年度が低かったと判断される。

対照地点と比較すると、八戸市は10月では3倍、3月では8倍(平均値)である。60年3月の対照地点の平均値($180 \mu\text{g}/\text{m}^3$)と59年10月の道路端の平均値($97 \mu\text{g}/\text{m}^3$)と比較すると、10月の道路端より3月の対照地点の粉じん濃度が高い。

浮遊粉じん濃度 $\mu\text{g}/\text{m}^3$

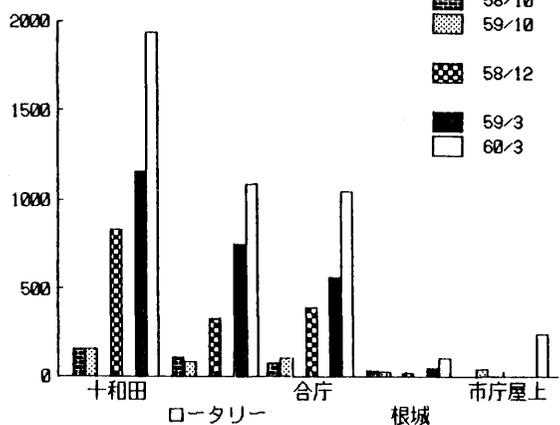


図5 浮遊粉じん

3.5 浮遊粉子状物質 (SPM)

道路端においても、対照時期は環境基準のレベルである $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えていないが、58年12月は十和田で、59年60年3月は、測定全地点で環境基準のレベルを超えた。

SPMは、粒径 $10\mu\text{m}$ 以下の浮遊粉じんで、微細になるにつれて気管・気管支・肺胞と奥深くまで侵入し、長い間に正常な肺機能に影響を与えるとされており⁹⁾、測定結果は、3月の道路端が、良好な環境ではないことを示している(図6)。

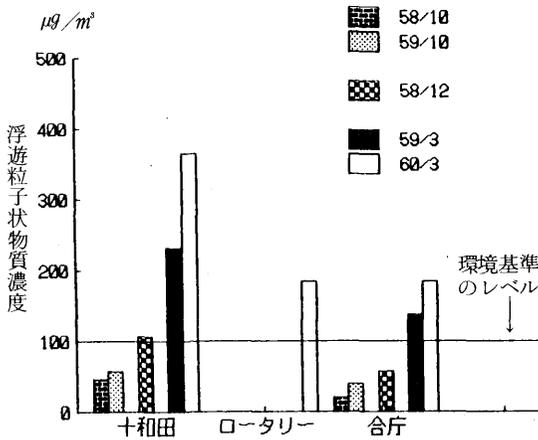


図6 浮遊粒子状物質

3.6 浮遊粉じんの粒径分布

今回使用したローボリウムアンダーセンは、 $0.43\sim 11\mu\text{m}$ までの粒径の粉じん($0.43\mu\text{m}$ 以下、 $11\mu\text{m}$ 以上を含め9段階)を捕集できるタイプで、この粒径範囲の粉じんは図7に示すように、ヒトの呼吸器のうち、主として気管支奥での沈着率が高いといわれている¹⁰⁾。

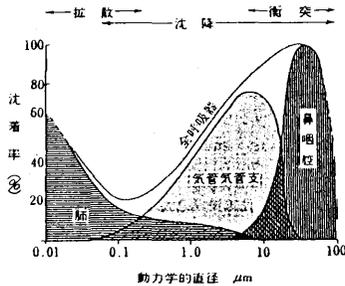


図7 粒子状物質の呼吸器内沈着率¹¹⁾

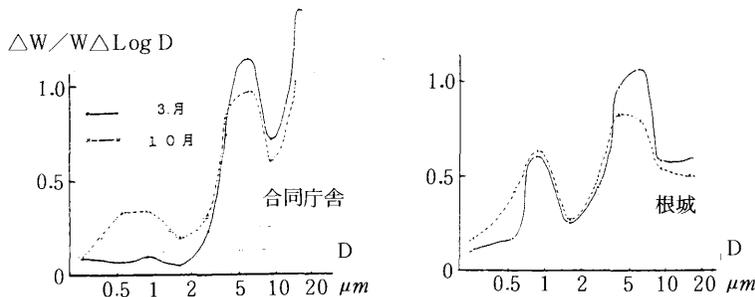


図9 粒径分布曲線

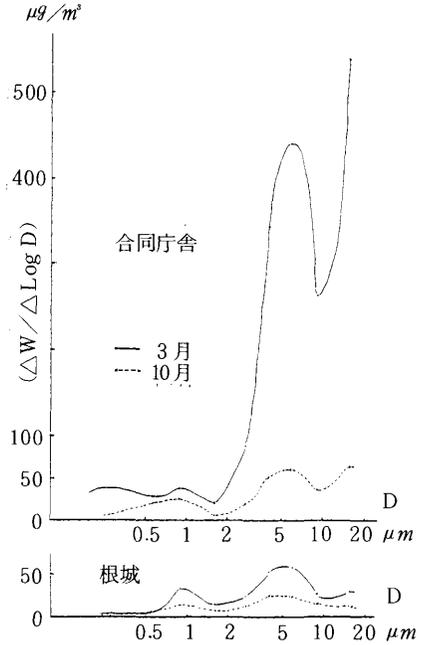


図8 粒径分布

浮遊粉じんの粒径分布は、道路端(合同庁舎)の3月が $11\mu\text{m}$ 以上がかなり多いが、ほぼ $0.9\mu\text{m}$ と $5\mu\text{m}$ 前後にピークがある二山型である。その生成由来は、 $0.9\mu\text{m}$ を中心とする微小粒子は燃焼などの化学反応、 $5\mu\text{m}$ を中心とする粗大粒子は機械的摩擦や土壌の舞い上がりといわれている^{12,13)}。

合同庁舎における3月の浮遊粉じんの増加は、10月と比較して粗大粒子($11\mu\text{m}$ 以上を含む)の増加に起因する。

対照地点である根城浄水場の3月は、合同庁舎の10月と粒径分布が似ているが、図8を変換した図9の粒径分布曲線¹⁴⁾をみると、合同庁舎より微小粒子の分布が多いこと、 $11\mu\text{m}$ 以上の分布が少ないことなど粒子の分布に違いがある。ただし、道路から離れていることにより $11\mu\text{m}$ 以上の粒子の沈降が大きい¹⁰⁾と思われる粗大粒子は増加していた。

3.7 アスファルト舗装材等の寄与率

ある測定点での元素 i の大気中濃度 Ci は次式で計算³⁾される。

$$C_i = \sum_j m_j X_{ij} \alpha_{ij} \quad (1)$$

ここで、mj は発生源 j の大気浮遊粒子への質量濃度としての寄与、Xij は、発生源 j に由来する粒子中の元素 i の含有率、 α_{ij} は、フラクシヨネーション係数と呼ばれ、発生源 j からの元素 i が測定点に到達する割合である。

mj を求めるため、測定された種々の元素の大気中濃度 (Ci) に対して、主要発生源を p 個、指標元素を q 個仮定し、次式で計算され x^2 の値を最小にすることによった。

$$x^2 = \sum_{i=1}^q \left(\frac{C_i - \sum_{j=1}^p m_j \cdot X_{ij}}{C_i} \right)^2 \quad (2)$$

今回は、浮遊粒子の主要発生源をアスファルト舗装材と土壌に由来するとし、大気浮遊粒子はアンダーセン・ハイボリウム・エアサンブラによる粒径 1.1 μm 以上の粒子を対象とした。指標元素として、Al, Ca, Ti, Mn, Fe 及びベンゼン抽出物を加えて検討したものである。

また、土質の違いが土壌の寄与率にどのくらい影響するのか、黒土(腐食土) と他の土壌を含む平均値で算出してみた。

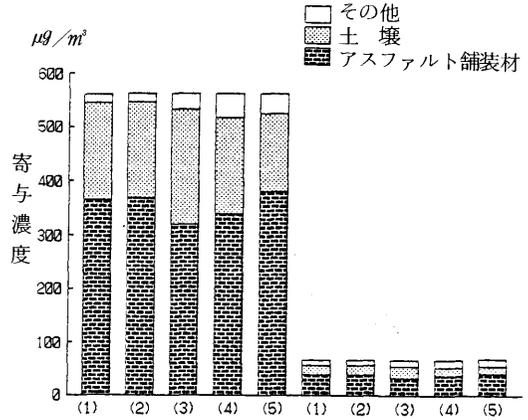


図10 指標成分等の違いによるアスファルト舗装材及び土壌の寄与濃度推計(八戸市)

図7の(1), (2)は、土質の違いによるアスファルト舗装材、土壌の寄与率であるが、寄与率に差異は認められなかった。

(1), (2)と(3)から、ベンゼン抽出物を指標成分として追加すると、アスファルト舗装材の寄与率は増加する。

ただし、ベンゼンは、浮遊粉じん中のアスファルト分以外も溶解していることもあり、このことは、土壌とアスファルト舗装材のベンゼン抽出物の含有量の違いから、みかけ上、アスファルト舗装材の寄与を高くしている恐れがある。

(4)は、(3)からMnを除いたもので、(4)は、(3)に比較して、

表3 基礎データ

成分	発 生 源 (μg/g)			環 境 (μg/m³)	
	アスファルト舗装材	土 壤		粒径 1.1 μm 以上の粒子	
		黒 土	平均値	60年3月	59年10月
1. Al	67, 200	90, 900	92, 600	32	3.5
2. Ca	61, 400	12, 400	11, 500	23	2.5
3. Ti	4, 020	5, 580	5, 310	2.6	0.22
4. Mn	510	992	1, 000	0.45	0.05
5. Fe	27, 500	42, 800	41, 400	21	2.5
6. ベンゼン抽出物	62, 000	500	450	26	2.8
総 量				562	67.1

表4 指標成分等組合せ

	土壌の種類	指 標 成 分
(1)	黒 土	Al, Ca, Ti, Mn, Fe, ベンゼン抽出物
(2)	平 均 値	Al, Ca, Ti, Mn, Fe, ベンゼン抽出物
(3)	〃	Al, Ca, Ti, Mn, Fe
(4)	〃	Al, Ca, Ti, Fe
(5)	〃	Al, Ca, Ti, Fe, ベンゼン抽出物

アスファルト舗装材の寄与が高くなり、逆に土壌の寄与が減少するが、その原因は不明である。あるいはMnはアスファルト舗装材、土壌以外の他の発生源の影響を受けている可能性がある。

これから、スパイクタイヤ装着期におけるアスファルト舗装材の寄与率は、ケース(3)の57%～ケース(5)の66%と推定されるが、前述の理由により、ケース(4)の60%が妥当かもしれない。この時の土壌の寄与率は31%で両者で粉じん中の91%を占めることになる。

10月の場合も同様に、ケース(4)でアスファルト舗装材の寄与率が55%、土壌の寄与率が24%、両者で79%となる。

4 ま と め

積雪量が少ない八戸市において、冬季間のスパイクタイヤ装着率は98%と高く、積雪量の多寡にかかわらず装着率は変わらない。

このため、雪のない地点で125トン/km²・月、という高濃度の降下ばいじんが観測されたり、3月の粉じん調査が10月調査より10～13倍も高い例があった。

距離減衰では風向とともに、温位傾度が大きな気象因子となり、温位傾度が大きいほど粉じんが減衰しにくい。

道路端における浮遊粒子状物質は、3月調査で全地点が環境基準のレベルを超え、良好な環境ではなかった。

粒径別に浮遊粉じんをみると、道路端は対照地点と比較して、粗大粒子が多い特徴がある。また、スパイクタイヤ装着期には、どちらも非装着期より粗大粒子の分布割合が増加していた。

粒径1.1μm以上の粒子について、CEB法でアスファルト舗装材の寄与率を求めたところ、3月粉じんでは56%～66%の範囲であることが推定された。

調査にあたり多大な御協力をいただいた八戸土木事務所、八戸市公害対策課、十和田市社会課に深く感謝いたします。

文 献

- 1) 阿部征裕, 工藤精一: 青森県南地方における道路粉じん調査(I), 青森県公害センター所報6, 63-67 (1983)
- 2) 青森県土木部編: 道路交通センサス (1980)
- 3) 環境庁大気保全局編: スパイクタイヤによる浮遊粉じん中の各成分濃度等測定指針 (1983)
- 4) 八戸測候所: 地上気象日原簿 (1984)
- 5) 八戸測候所: 地上気象日原簿 (1985)
- 6) 石川栄助編: 回帰線, 新統計学, 72-93 (1967)
- 7) 吉田毅, 早狩進, 松尾章: 疾風型重合汚染における大気汚染濃度の評価に関する検討(I), 青森県公害センター所報5, 1-9 (1981)
- 8) 吉田毅, 早狩進, 差波弘信: 気圧配置による大気汚染ポテンシャルの有意性に関する検討, 青森県公害センター所報4, 1-18 (1979)
- 9) 環境庁, 財団法人環境衛生センター編: 浮遊粒子状物質等に係る測定法基準設定調査研究報告書 (1973)
- 10) 新潟県公害研究所編: 道路粉じんによる大気汚染実態調査報告書 (1984)
- 11) 河合清文, 横山栄二編: 環境大気汚染研究のための吸入実験, 176 (1979)
- 12) 藤村満, 橋本芳一: 粒度分布測定による大気エアロゾル中微量元素の発生源の推定, 日本化学会誌6, 902-906 (1977)
- 13) 橋本芳一: 粒度分布からみた大気エアロゾル, 大気汚染の機構と解析, 126-139 (1980)
- 14) 藤村満, 橋本芳一: アンダーセン・サンプラーによるエアロゾルの粒度分析の解析, 分析化学, 24, 36-41 (1975)

浮遊粒子状物質 (SPM) の測定方法の検討

— 光散乱法とβ線吸収法の比較 —

野田 正志・斉藤 輝夫
蝦名 信明*・小山 一真**

1 はじめに

当所における浮遊粒子状物質 (SPM) の測定は、従来の光散乱法に加えて、昭和59年1月から、八戸市内の3地点において、β線吸収法を並行して行っている。

今回、昭和59年度の測定結果をもとに、光散乱法とβ線吸収法の比較検討を行ったので報告する。

2 調査方法

2.1 調査期間

昭和59年4月～昭和60年3月

2.2 調査地点

八戸市内の3地点で(図1)、用途区分は、次のとおりである。

1. 第二魚市場：工業地域
2. 工業高校：住宅地域
3. 保健所：住宅地域

2.3 使用機種

光散乱法：ダスト計AP-632(柴田化学器機工業)。
サイクロン式ローボリウムエアサンプラー
S-2型(新宅機械製作所)。

β線吸収法：DUB-11型(電気化学計器株式会社)。

2.4 測定方法

ローボリウムエアサンプラーの吸引量は、20 l/minで、濾紙(Pallflex2500 QAST47mmφ)は、約5日単位で

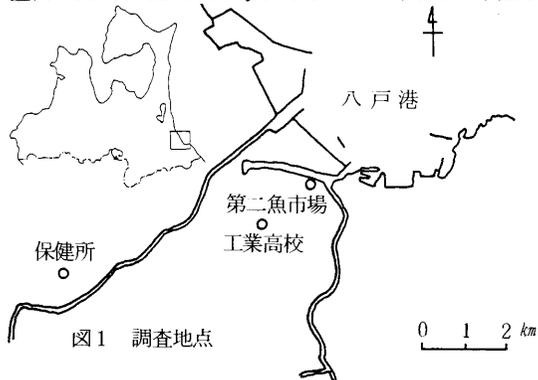


図1 調査地点

* 現商工労働部商工課 ** 日本電気興業(株)八戸出張所

交換し、50% - CaCl₂ デシケーター中に、48時間以上放置後、秤量した。

光散乱法における、重量濃度への換算係数F値は、各月のFt値(ローボリの重量濃度/光散乱ダスト計指示値)が、偶数個の場合、その月を含めた、前後20個のFt値の幾何平均で求め、奇数個の場合、その月を含めた、前後21個のFt値の幾何平均で求めた。

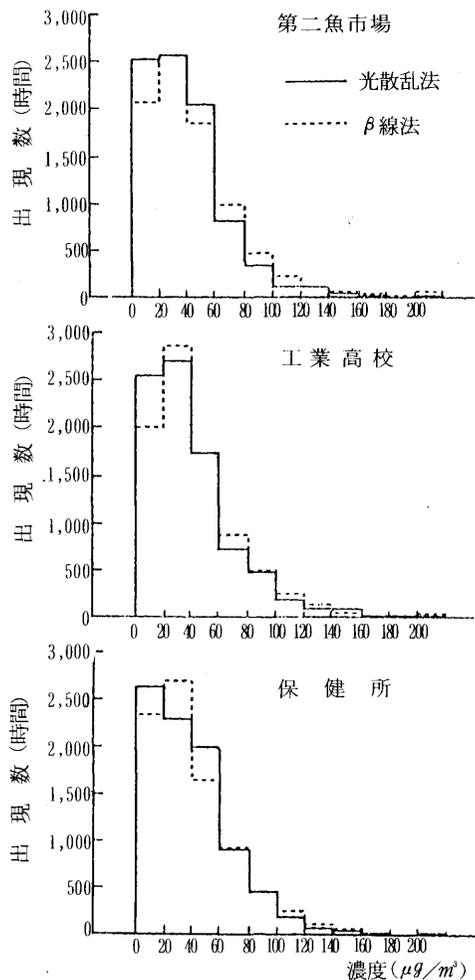


図2 SPM出現頻度

表1 光散乱法とβ線吸収法の相関関係

調査年月	第二魚市場				工業高校				保健所			
	n	r	a	b	n	r	a	b	n	r	a	b
59.4	715	0.848	0.908	5.2	678	0.852	0.933	3.8	715	0.768	0.801	11.6
5	741	0.863	1.066	7.1	741	0.891	0.942	0.9	714	0.826	0.839	8.7
6	714	0.946	1.287	3.3	715	0.939	1.110	1.9	716	0.961	0.949	3.6
7	736	0.970	1.426	5.4	731	0.981	1.192	4.3	742	0.953	1.094	4.5
8	737	0.914	1.499	4.4	712	0.858	1.347	1.5	733	0.972	1.087	3.7
9	718	0.971	1.313	3.7	716	0.956	1.265	4.2	717	0.958	1.106	4.6
10	740	0.975	1.068	3.7	739	0.964	1.166	3.4	738	0.957	1.014	4.2
11	716	0.972	0.843	3.2	717	0.860	1.096	4.8	715	0.833	0.856	4.1
12	690	0.680	0.800	13.5	740	0.920	1.040	0.9	737	0.863	0.969	2.9
60.1	703	0.517	0.613	9.4	741	0.765	0.878	-0.6	741	0.733	0.893	2.2
2	669	0.801	0.922	0.7	662	0.821	0.758	1.2	665	0.977	0.634	-2.3
3	725	0.545	0.924	5.4	709	0.776	0.786	5.3	712	0.745	0.997	-0.1
年間	8,604	0.826	1.092	2.8	8,601	0.867	0.964	4.6	8,645	0.854	0.894	5.3

n : 有効測定時間 r : 相関係数 回帰直線 $Y = a \cdot X + b$
 Y : SPM (β線法) X : SPM (光散乱法) a : 傾き b : 切片 ($\mu g/m^3$)

3 結果及び考察

3.1 測定値の出現頻度

測定3地点における、測定値の出現頻度は(図2)、光散乱法では、0~20, 20~40 $\mu g/m^3$ に出現時のピークがあり、60 $\mu g/m^3$ までは、β線吸収法に比べ、出現数が多い。

β線吸収法は、20~40 $\mu g/m^3$ にピークがあり、60 $\mu g/m^3$ を超える出現数は、光散乱法に比べ多くなっている。

3.2 月平均値

光散乱法とβ線吸収法の月平均値を比較すると(図3)、6月から10月にかけて、β線吸収法が高く、その傾向は、第二魚市場>工業高校>保健所の順になっており、1月から3月にかけては、光散乱法が、やや高くなっている。

3.3 相関関係

二測定法間の相関を求めたところ、年間では、3地点とも $r = 0.85$ 前後となり、高い相関がみられた(表1)。

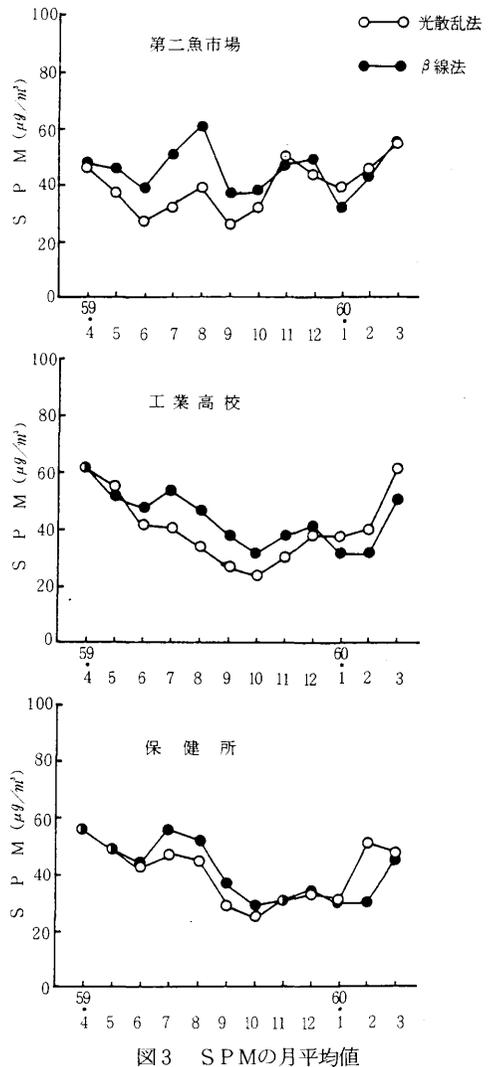
各月では、6~10月が、0.9以上と高く、ほとんどが、0.8以上であった。一部に、0.5程度と、やや低い月もあったが、すべて、危険率1%で、有意であった。

回帰直線の傾きは、夏に高く、冬に低い傾向があり、切片は、ほとんどが正で、一部に10 $\mu g/m^3$ 以上の月があった。

3.4 測定値の差の検定

二測定法間には、夏にβ線吸収法が、冬に光散乱法が高くなる傾向があったところから、両者の測定値の差(β線吸収法-光散乱法= $A \mu g/m^3$)を、次のような区分でみた(図4)。

- I : $A < -10$ (又は、 -10% ^{注)})
- II : $-10 \leq A < 0$
- III : $A = 0$
- IV : $0 < A \leq 10$



V : 10 < A (又は, 10%^{注)})

注) 光散乱法が, 100 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超える場合には, β 線吸収法/光散乱法である。

その結果, 4月は, I, II, M, Vの割合が, ほぼ同じであるが, 5月ごろから, I, IIの割合が減り, 8月では, ほとんどが, M, Vとなり, 中でも, Vの割合が大きくなっており, その傾向は, 第二魚市場 > 工業高校 > 保健所となっている。そして, 7~9月には, 第二魚市場, 工業高校では, 有効測定時間のほとんどで, β 線吸収法が高い測定値

を示している。その後, M, Vが減り, 12月になると, 再び, I, II, M, Vの割合が同じになり, その後, I, IIの割合が大きく, 2月にピークとなる。この傾向は, 特に, 保健所において大きい。第二魚市場, 工業高校では, 夏ほど顕著ではなかった。

そこで, t検定を行ったところ, 4月を除く, ほとんどの月で, 光散乱法と β 線吸収法の間に差があることが分かった(表2)。

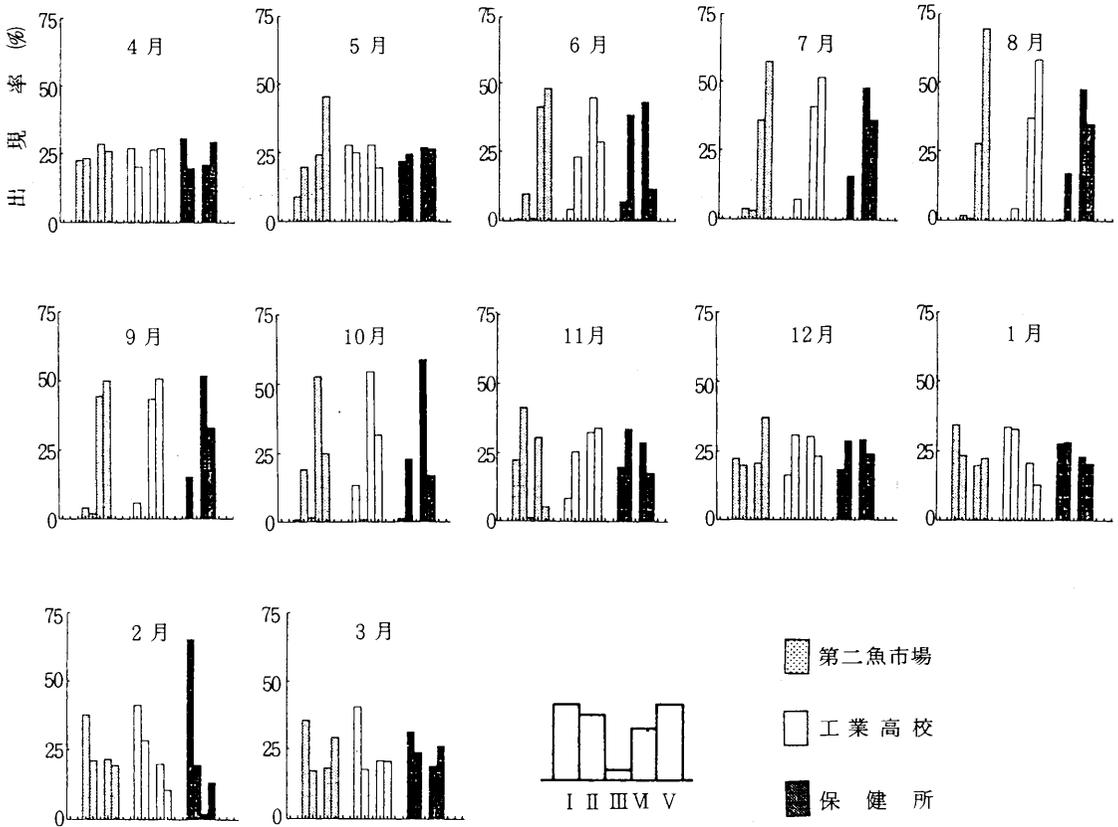


図4 光散乱法と β 線吸収法との差

表2 t 検定表

測定地点	S59					60							
	4	5	6	7	8	9	10	11	12	1	2	3	
第二魚市場	1.282*	14.734	23.995	19.337	14.841	31.269	22.171	13.552	3.846	5.053	3.912	0.837*	
工業高校	0.408	3.406	14.404	31.855	19.945	30.984	25.437	12.052	4.065	9.001	13.742	9.055	
保健所	0.431	1.424*	4.881	19.579	26.171	27.333	16.243	0.530	3.043	1.907*	34.323	0.331*	

*危険率5%で有意

3.5 標準測定法との差

以上のように、光散乱法とβ線吸収法には、季節により、測定値に差があった。

また、両者の測定値を、ローポリウムエアサンプラーによる重量法の測定値と比較してみた。

野外における標準測定法との同時測定に準じて¹⁾、重量法による測定値との差が、 $\pm 10 \mu g/m^3$ 又は10%以内に入っている割合を調べたところ(図5)、第二魚市場では、光散乱法88%、β線吸収法72%、工業高校では、光散乱法87%、β線吸収法66%、保健所では、光散乱法72%、β線吸収法76%となった。8、2、3月の一部に、標準測定法との測定値の差が大きな時期があったことを除くと、光散乱法が、やや優れているが、両者とも、ほぼ、満足できる結果となっている。

当地方は、6~7月にかけて、ヤマセといわれる、偏東風にのった濃霧が頻繁に襲い、その影響と思われるFt値の低下がみられる。また、冬になると、西風が卓越した季節風の影響により(図6)、土壌等や道路粉じん²⁾の影響と思われる粗大粒子が増大し(図7)、その影響と思われるFt値の増加がみられる。その結果、F値は、夏に低く、冬に高くなっているが(図8)、F値換算された、光散乱法は、一般に、湿度や粒径による影響を受けるとされている^{3~7)}けれども、標準測定法と、よく対応していた。

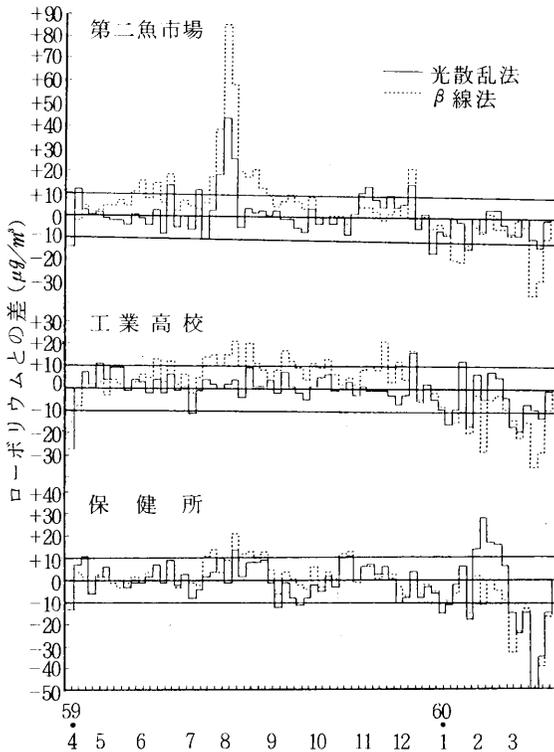
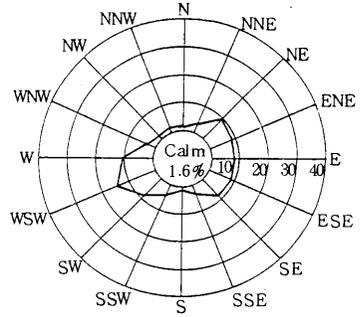
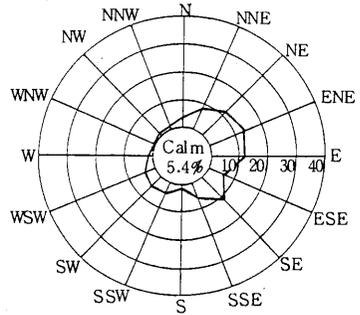


図5 標準測定法との差

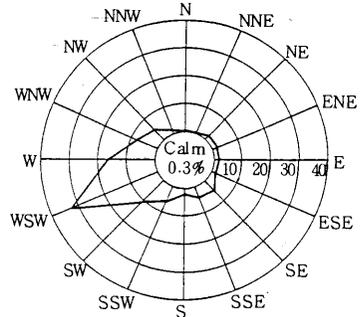
59. 4 (平均風速3.8 m/S)



59. 7 (平均風速2.7 m/S)



59.10 (平均風速4.3 m/S)



60. 1 (平均風速4.7 m/S)

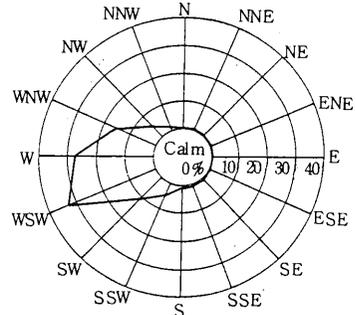


図6 第二魚市場における風向頻度(%)

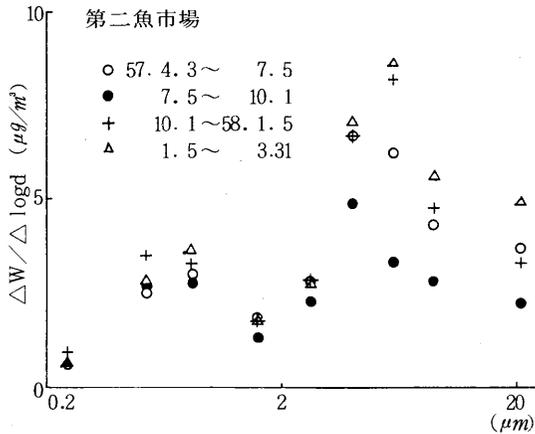


図7 浮遊粉じんの粒径分布

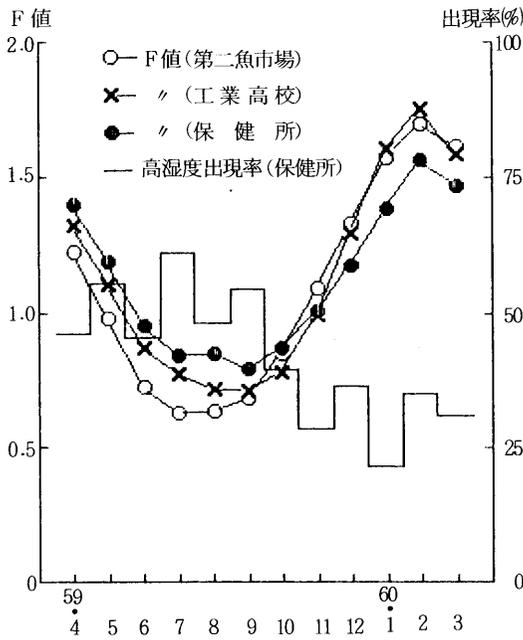


図8 高湿度(85%)出現率とF値の経月変化

次に、β線吸収法は、その測定原理から、組成に関係なくSPMを測定できることから、光散乱法に比べ、良好な結果が得られると思われたが、あまり、優位な点はなかった。

また、β線吸収法は、標準測定法との差が、6~10月にかけて、プラスになり、1~3月にかけて、マイナスになる傾向がみられた。

この点については、β線吸収法の誤差要因の一つとして、湿度があげられており^{8~10)}、ローボリウム^{11,12)}の保守、点検を含めて、今後、検討を続けていくとともに、8、3月の異常値についても、原因の究明を続けたい。

3.6 環境基準の評価

以上のように、SPM測定の公定法^{11,12)}である光散乱法とβ線吸収法は、標準測定法のローボリウムによる重量法の測定値と比較して、ほぼ、満足のできる結果であるものの、両者の間には、差がみられた。

そこで、環境基準の評価に際して、両者の測定値の差が、評価の判定に影響があるかをみた(表3)。

その結果、第二魚市場、工業高校では、判定資料の一部に変更はあったが、評価の判定は変わらなかった。

しかし、保健所においては、環境基準が、光散乱法では、達成、β線吸収法では、未達成となり、相反する結果となる。

今後、F値換算のため、測定期間を長く要する光散乱法から、直接、一時間値の測定ができ、迅速な対応の可能なβ線吸収法への切り換えが進むと思われるが、その際、測定方法の変更だけで、環境基準の判定が変わることも考えられるので、測定機器及び地域の特性について、十分な検討が必要であると思われる。

表3 浮遊粒子状物質測定結果(昭和59年度)

測定局	測定方法	有効測定日数 (日)	測定時間 (時間)	年平均値 (mg/m³)	1時間値が0.20 mg/m³を超えた割合		日平均値が0.10 mg/m³を超えた割合		1時間値の最高値 (mg/m³)	日平均値の2%除外値 (mg/m³)	日平均値0.10 mg/m³を超えた日が2日以上連続したことの有無 (有×・無○)	環境基準の長期的評価による日平均値0.10 mg/m³を超えた日数 (日)
					(時間)	(%)	(日)	(%)				
第二魚市場	A	365	8,741	0.040	40	0.5	6	1.6	0.691	0.093	×	2
	B	356	8,614	0.046	87	1.0	10	2.7	0.868	0.106	×	8
工業高校	A	362	8,703	0.041	33	0.4	7	1.9	0.386	0.098	×	4
	B	358	8,606	0.044	55	0.6	6	1.6	0.565	0.096	×	2
保健所	A	365	8,737	0.040	21	0.2	5	1.4	0.435	0.091	○	0
	B	360	8,653	0.041	17	0.2	4	1.1	0.314	0.088	×	2

A : 光散乱法

B : β線法

4 ま と め

八戸市内3地点において、昭和59年4月から昭和60年3月まで、光散乱法及び β 線吸収法により、SPM並行測定を行ったところ、次のことが判明した。

- 1) 測定値の出現頻度は、 $60 \mu\text{g}/\text{m}^3$ までは、光散乱法が多く、 $60 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えると、 β 線吸収法が多い。
- 2) 月平均値は、6～10月にかけて、 β 線吸収法が高く、その傾向は、第二魚市場>工業高校>保健所となっており、1～3月では、逆に、光散乱法が高い。
- 3) 二測定法間の相関係数は、年間では、0.85前後で、月別では、6～10月が特に高く、ほとんどの月で0.8以上である。
- 4) 標準測定法との測定値の差が、 $\pm 10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ に入った割合は、光散乱法が約80%、 β 線吸収法が約70%であった。
- 5) SPMの環境基準の評価を行ったところ、光散乱法と β 線吸収法では、判定が分かれることもあるため、測定法の切り換えに際しては、機器及び地域の特性を十分検討する必要がある。
- 6) β 線吸収法は、標準測定法に比べ、6～10月には高く、1～3月には低くなる傾向があるため、湿度などを含め、今後、検討を行いたい。

5 文 献

- 1) 大気保全局企画課：浮遊粒子状物質自動測定機の校正方法について（1982）
- 2) 阿部征裕，鈴木寿秋：青森県南地域における道路粉じん調査，青森県公害センター所報7，70-75（1985）
- 3) 寺部本次，村瀬 暁，松本文秀，岩瀬義男：浮遊粒子状物質の環境基準にともなう測定方法の検討，第14回大気汚染学会講演要旨集，P 248（1973）

- 4) 吉野正美，田島隆俊：光散乱粒子測定器によるSP測定での相対濃度の問題とその検討，第15回大気汚染学会講演要旨集，P 256（1974）
- 5) 平野耕一郎：浮遊粒子状物質の粒度分布と季節変動-デジタル粉じん計のF値と粒度分布および季節変動との関係について-，横浜市公害研究所報，2，169-175（1978）
- 6) 佐藤民雄，中沢雄平，佐々木一雄：長野県におけるデジタル粉じん計のF値について，全国公害研会誌，4，2，106-110（1979）
- 7) 北瀬 勝，酒井哲男：浮遊粒子状物質測定法の検討(I)，デジタル粉じん計のFt値について，名古屋市公害研究所報，9，27-30（1979）
- 8) 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測定器の比較検討，川崎市公害研究所年報，11，29-41（1984）
- 9) 伊瀬洋昭，渡辺武春，小野塚春吉，朝来野国彦：環境ダスト計の並行試験，東京都公害研究所年報，73-77（1974）
- 10) 小川和雄，石井達三：新大宮バイパス戸田沿道局における浮遊粉じん調査，埼玉県公害センター年報，67-71（1984）
- 11) 環境庁大気保全局：浮遊粒子状物質に係る測定方法について（1972）
- 12) 環境庁大気保全局：浮遊粒子状物質に係る測定方法の改正について（1981）

船舶塗装作業におけるペンキ飛散について

(苦情処理レポート)

本間 秀一・吉田 毅

1 はじめに

八戸市の臨海部における工業地域と住居地域の境界周辺で、ペンキ状の物質が飛散ってきて自動車等に付着してとれない、という苦情が昭和55年頃から数回寄せられている。

調査の結果、付近の造船所における小型船舶の塗装作業（スプレーガン）からのペンキ飛散であることが判明した。これまで、数々の防止対策等を行ってきたので経緯と検討事項等について報告する。

2 経 緯

年 月	項 目	内 容
昭.55. 4	苦 情	自動車に白いペンキ状の物質が付着してとれない
. 5	苦 情	
. 5	苦 情	
. 8	苦 情	
8~10	付着物調査	プレートを付近11地点に設置調査
.11	苦 情	
56. 2	協議会を開催	関係者を参集し対策について協議
4~6	付着物調査	プレートを付近13地点に設置調査
57. 4	協議会を開催	関係者を参集し前回の協議事項を再確認
. 7	苦 情	
. 7	速乾性ペイントの吹付実験	メーカーによるテスト
58. 9	苦 情	
59. 4	苦 情	
. 8	苦 情(K氏)	新車にペンキが付着してとれない補償してほしい
. 9	協 議	K氏の件でG造船所、県、市協議
.10	K氏とG造船所の間で示談	

3 内 容

54, 55年頃から八戸市の沼館地区周辺で降下物による苦情が時々あったが、降下物が赤サビ状のものであったり、白い粉体であったり現象が一定しなかった。

事象を区別するため、55・56年にプレートを沼館地区周辺に設置し調査した。その結果、顕微鏡（写真撮影）、付着物分析などから、沼館地区三丁目付近における降下物は、道路東側に位置する造船所等からのペンキ飛散であることが確認された。

これにより、数社の造船所（特にG造船所）に対し作業の改善・管理・監視等指導をしてきたが、その後も、年に1~2回程度苦情が寄せられている。

とくに、59年8月に苦情の申し立てをしたK氏は強固に補償を要求、数回の話し合いの結果、G造船所と示談が成立した。

しかし、その造船所は今後の苦情の補償の窓口にはならない旨、申し立てている。

なお、G造船所は主として場所のみを提供する貸しドックである。

塗装作業の形態として、

- (1) 船主が直接塗装を行う。
- (2) 船主から請負い、塗装業者が行う。
- (3) G造船所が請負って行う。

場合があり、直接の原因者はいつの苦情の場合も不明に終る。

このため、責任所在の点で行政側の考えとG造船所側ではかなりの隔りがある。

4 調 査 方 法

4.1 プレート法

プレートを設置し付着物について顕微鏡で観察、写真撮影した。また、付着物について原子吸光による分析を行い、使用されているペイントとの比較を行った。

4.2 気象調査

苦情処理にあたっては、苦情発生日の前後における風向、

風速、風向頻度等について調査した。

4.3 聞きとり調査

付近の住民、事業所等から聞き取りを行った。

4.4 事情聴取

造船所に立入り事情聴取を行った。

5 改善対策

5.1 作業の改善

次の点について指導した。

- (1) 木造船はハケ塗りとする。
- (2) マスト、ブリッジ周りにはハケ塗りとする。
- (3) 風のある時はネット、シートでカバーして行う。
- (4) 強風時（特に東風）には自粛する。
- (5) 速乾性ペイントを使用する。

5.2 作業の管理

次の点について指導した。

- (1) 塗装作業における台帳（業者名、作業者名、作業日時、場所）の作成の指示。
- (2) 監視員による作業状況の監視、指導。

5.3 会議等

- (1) 造船所、塗装業者を集めて作業改善、管理、苦情者への対応等について協議。
- (2) 啓蒙のためのチラシを作成、配布。
- (3) 速乾性ペイント（ビニール系）の吹付実験。
（速乾性ペイントは油性のものと異なり乾燥が速く飛散中に固まり、降下付着してもすぐとれることが判明した。）

6 法令等その他の問題点についての検討

6.1 土地利用状況

もともと、G造船所は行政の指導のもとに現地へ移転してきた経緯があった。当時周辺には民家はなかったが、開発にとめない密集してきている。都市計画上の問題とも思われる。

また、同地は、県・市有地（計2万坪）であり、今後払下げをうけようとしており、移転は望めない。

6.2 法令等からのアプローチ

この種の事象については公害の関連法規は適用されない。したがって、典型7公害以外の公害である。（地方自治法

第2条の解釈によると市町村が窓口となるようである。）

また、同じような事象でもその影響の範囲が狭く、かつ、一時的なものについては事故であって公害の範疇ではないと思われる。

刑法としては、器物破損罪が適用されるが、現行犯によるものの他は難しいものと思われる。

また、賃貸契約に基づいて作業場所を提供しているのだから、G造船所は民法上の管理責任を負わなければならないものと思われる。

たとえば、駐車場、コインランドリー、コイン洗車場等から発生する苦情等も同様と思われる。

6.3 管理官庁からの指導

G造船所は小型船舶造船法における登録事業所ではなく、海運局からの塗装作業に対する直接の指導等は期待できない。

7 今後の苦情に対する対応

7.1 発生源側

- (1) 自分のところからのみのものと指摘されては困る。他の造船所からのものもあるはずである。
- (2) 苦情の窓口とはならない。発生原因者への直接対応を願いたい。

7.2 行政側

- (1) あくまで管理責任という点でG造船所に対し指導を続ける。
- (2) 苦情があった時点で、G造船所に対し対応を申し入れる。
- (3) 上部苦情処理機関における対応を考慮する。

8 今後の防止対策

8.1 発生源側

- (1) ネットを設置して作業する。
- (2) 風向、風速計を購入し、作業について監視を強化する。
- (3) 境界付近に植樹を行う。
- (4) 将来的には上屋を検討する。

8.2 行政側

- (1) 今後も監視、指導を行う。
- (2) 黒色瀟紙による監視を行い、記録として残す。

八戸市における環境大気中のフッ化物濃度

— スプライン法による二次元分布推定 —

鈴木 寿秋・斎藤 輝夫・本間 秀一

1 はじめに

八戸地区において、アルカリろ紙法によるフッ化物調査が継続して行なわれている。

汚染分布パターンの視覚的把握のために、木村ら¹⁾と同じようにしてスプライン法を用い、昭和59年度のフッ化物濃度の二次元分布を推定した。

2 スプライン法による計算

メッシュは格子間隔0.5 kmの正方形格子とし、測定地点のデータには、図1にみられるような高濃度値の6月、10月、2月及び昭和59年度と昭和58年度の年間平均値を用いた。

補間計算の収束条件は次のとおりである。

$$\max |Z_{\alpha,\beta}^i - Z_{\alpha,\beta}^{i+1}| < 1 + 10^{-3}$$

($Z_{\alpha,\beta}^i$ は計算のくり返し回数 i 回目
のときの格子点 (X_{α}, Y_{β}) の値)

スプライン係数 (σ) を決定するために、17の測定局 (表1) から1局ずつを取り除いて補間計算を行い、補間による計算値 (Z_i) と測定値 (Z_i) との差の2乗の17地点の総和とスプライン係数の関係をプロットしたのが図2である。

6月では測定値の最大、最小の差が大きく、1つの σ の数値を用いて広範な計算領域に適用させようとするればこのような場合の補間による推定値の誤差はかなり大きくなる。

表1 フッ化物測定値

No.	地 点 名	S 59年 6 月	S 59年 10月	S 60年 2 月	S 59 年 度 平 均 値	S 58 年 度 平 均 値
①	県八戸合同庁舎	1.0	N.D	0.1	0.3	0.5
②	桔梗野小学校	0.5	0.5	0.1	0.2	0.2
③	司法センター	0.3	0.1	0.2	0.3	0.3
④	下長農協	0.8	N.D	0.2	0.2	0.1
⑤	第二中学校	1.6	0.4	N.D	0.5	0.8
⑥	根岸小学校	2.2	0.3	0.1	0.5	1.0
⑦	第二千葉幼稚園	0.9	0.4	0.5	0.4	0.6
⑧	八戸市庁	0.7	0.7	0.1	0.4	0.4
⑨	県機械金属試験所	3.7	N.D	0.2	1.2	1.1
⑩	八戸工業高校	2.5	0.3	0.2	0.6	0.5
⑪	八戸衛生センター	0.6	N.D	0.1	0.2	0.6
⑫	第三中学校	1.9	0.7	0.2	0.3	0.2
⑬	㊦ 第二冷蔵部	1.3	0.3	0.1	0.4	0.4
⑭	第二魚市場	1.5	6.3	4.5	2.8	2.9
⑮	旭ヶ丘小学校	0.4	N.D	0.2	0.1	0.1
⑯	八戸工大一高	7.2	0.3	0.1	0.7	0.2
⑰	鮫小学校	0.8	0.6	N.D	0.3	0.3

(F μ g/日/100 cm³)

6月、10月、2月の場合、誤差の総和がほぼ一定になり始める値の $\sigma = 10$ を用い、さらに6月では $\sigma = 100$ 、10月では $\sigma = 30$ の補間分布図と比較してみた。

年間平均値の場合には、昭和59年度、昭和58年度共に同じ曲線を示すので、 $\sigma = 5$ を採用した。

(F μ g H \cdot 100cm 2)

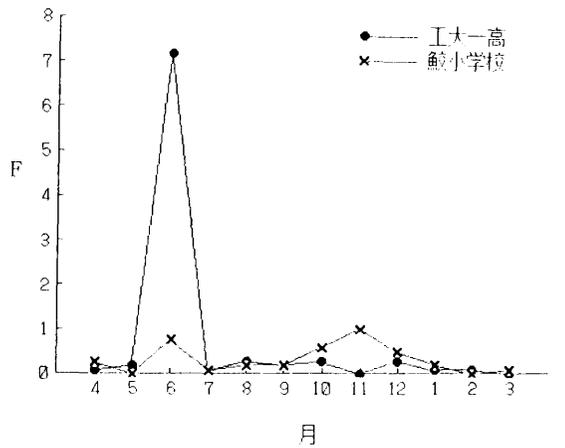
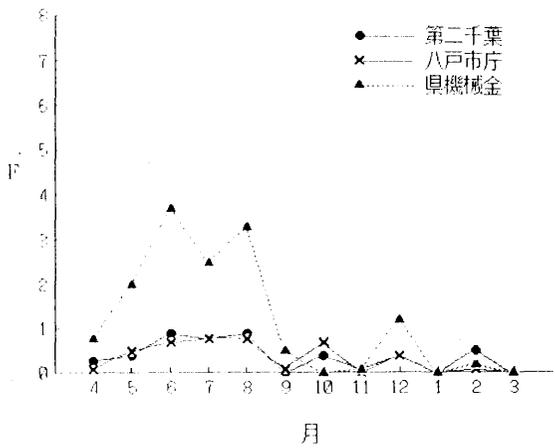
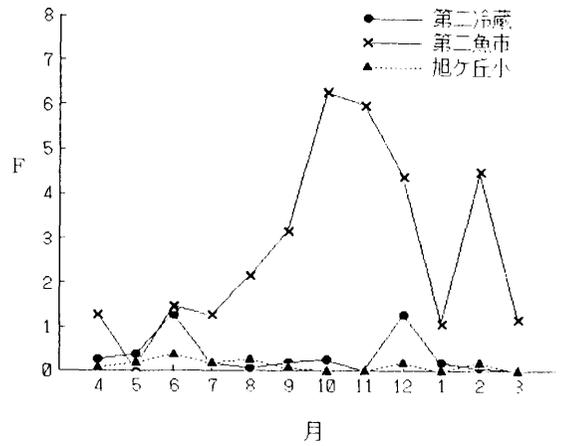
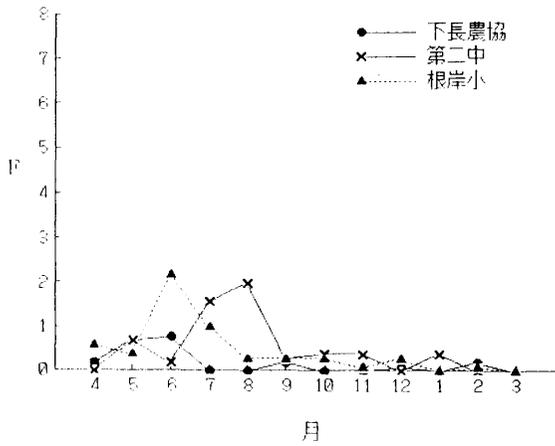
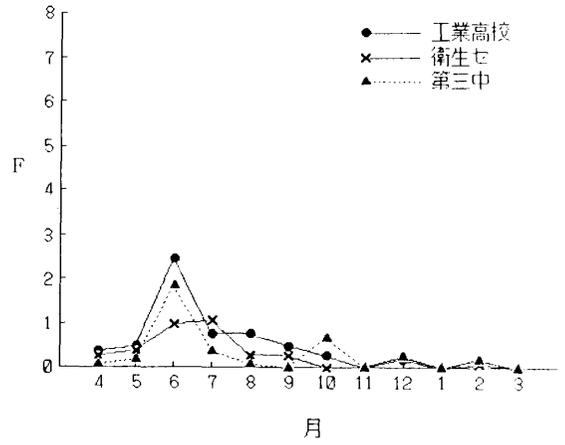
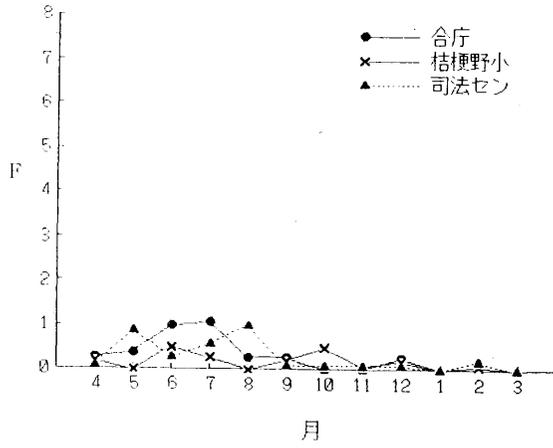


図1 フッ化物測定値の経月変化 (昭和59年度)

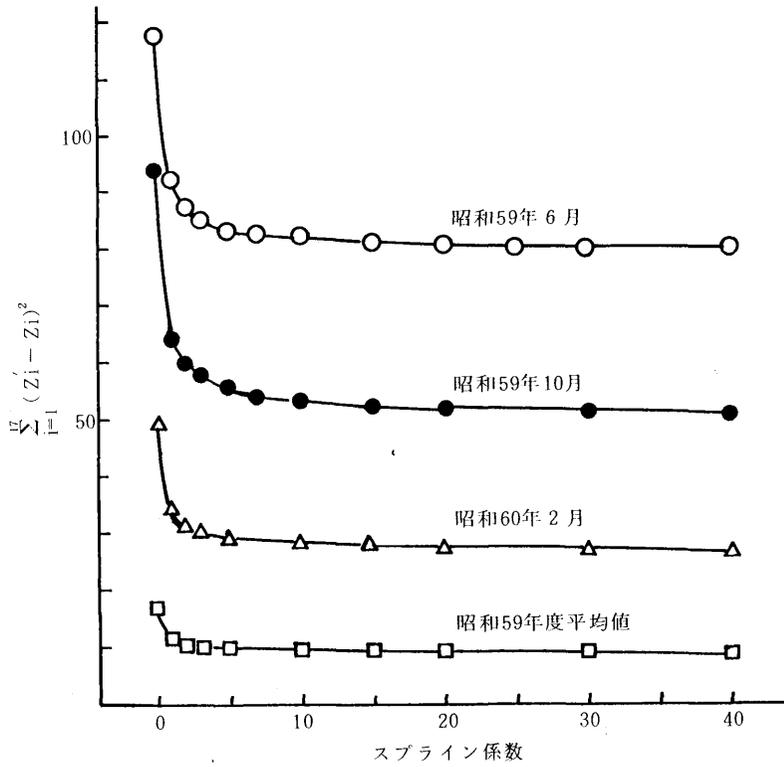


図2 スプライン係数と補間による推定値の誤差との関係

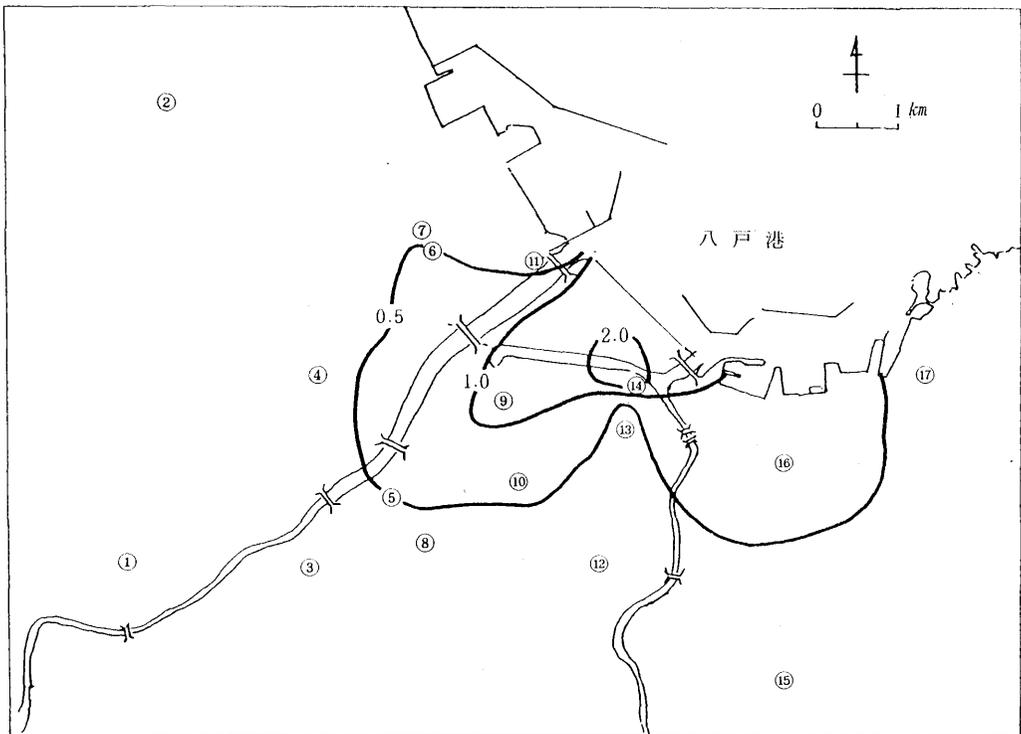
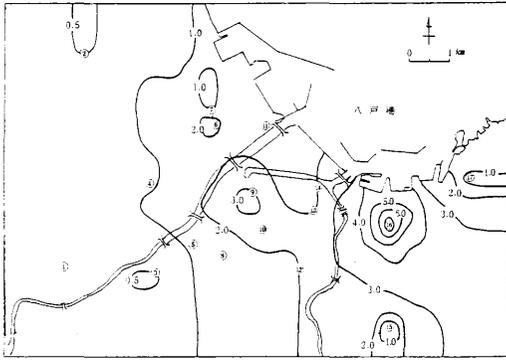
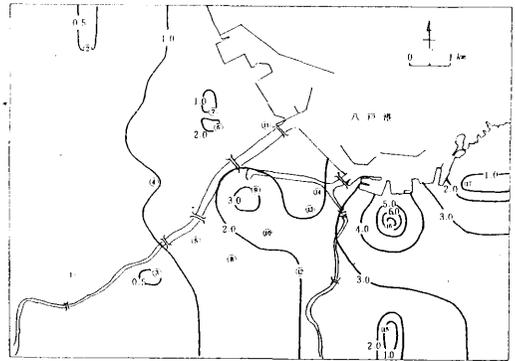


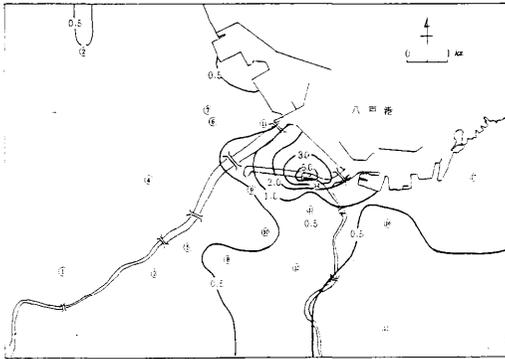
図3 測定地点と昭和59年度平均値 ($\sigma = 5$) での二次元分布図



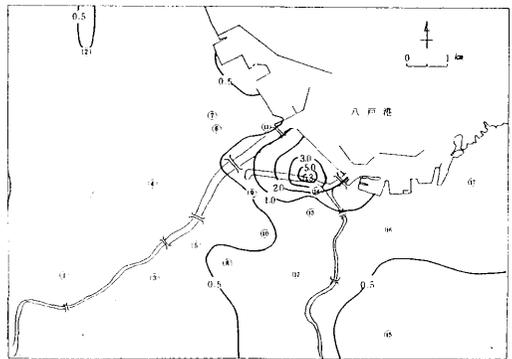
昭和59年6月 ($\sigma = 10$)



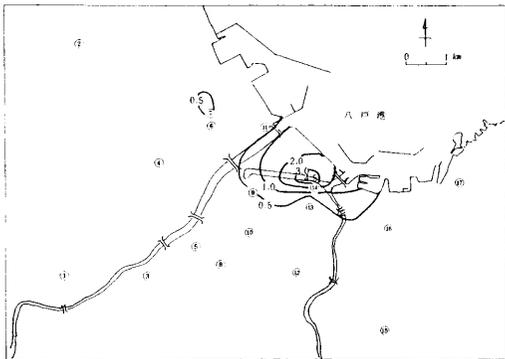
昭和59年6月 ($\sigma = 100$)



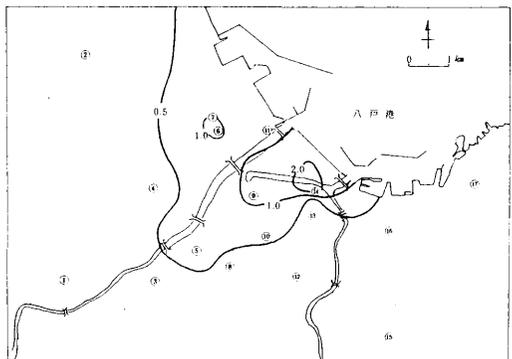
昭和59年10月 ($\sigma = 10$)



昭和59年10月 ($\sigma = 30$)



昭和60年2月 ($\sigma = 10$)



昭和58年度平均値 ($\sigma = 5$)

図4 アルカリろ紙法によるフッ化物濃度二次元分布図

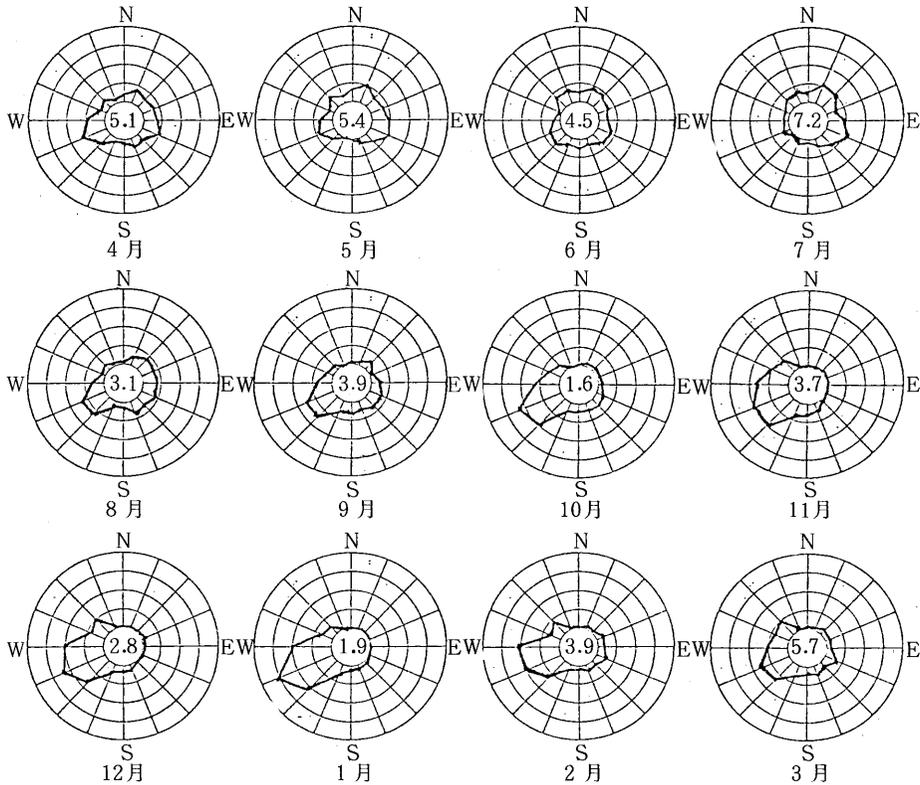


図5 八戸工業高校局における風配図 (昭和59年度)

3 補間分布図

図4の昭和59年6月では、スプライン係数を変えても大きな違いはみられない。10月の場合も同じであり、スプライン係数が10のとき等濃度線の間隔がゆるやかである。

図5に、測定地点のほぼ中央部に位置する八戸工業高校局舎の月別風配図を示した。この図から、6月では風向に大きな偏りはみられず、5月～7月でS Eの成分が若干多かった。分布図では⑥と⑬の地点にこの結果が現われている。⑬の地点での極大値の存在が分布図に大きな影響を与えており、⑬と⑰の地域にさらに測定地点が必要であると思われる。

昭和59年10月と昭和60年2月の場合には、図5にみられるようにW～S Wが卓越風となっており、等濃度線は発生源付近に集中している。

年間平均値では昭和59年度で地点⑬の要因により二次元分布図に変化がみられた。

4 ま と め

濃度分布図に異常値等が出現することを考慮すれば、測定地点をさらに適切に配置することによって、汚染状況の二次元分布をスプライン法により推定することが有効である。

また、フッ化物の分布状況の簡易調査方法としてはアルカリろ紙法によっていたが、百葉箱の内外の状態の違いや、アルカリろ紙に対するNOx, SOx, 水蒸気, Dust細菌等の反応性の問題などを含めフッ化物の質的検討も必要であると思われる。

文 献

- 1) 木村秀樹, 今武純: 青森市における硫黄酸化物濃度の推定, スプライン法を用いて, 青森県公害調査事務所所報, 5, 47～50 (1983)

脱硫剤から発生する硫黄酸化物による局地汚染例

工藤 真哉・梅原 茂
鈴木 寿秋・斉藤 輝夫

1. はじめに

現在、八戸地区16地点において、大気汚染物質の監視のために、 PbO_2 法による硫黄酸化物濃度の測定を行っている。そのなかのAし尿処理場(図1)で、昭和58年12月, 59年1月, 5月の測定値が $1.0(mg SO_3/day/100cm^2)$ (以下単位を略す)を超える高濃度を示した。八戸地区で最も SO_2 高濃度地点である八戸第二魚市場でさえ、ここ数年1.0を超えたことがなかった。この高濃度現象の原因について検討した結果、し尿処理工程から発生する悪臭源の硫化水素を除去するための脱硫剤が主な原因であることがわかった。以下、この事例について報告する。

2. 経過と背景

昭和57年度~59年度のAし尿処理場における、 PbO_2 法による測定値の経月変化(図2)をみると、昭和58年12月, 59年1月, 5月の値が1.0を超え、特に12月は1.99で非常に高かった。当初、この原因として次のことが考えられた。1つは、Aし尿処理場から排出が予想される高濃度の SO_2 ガスで、廃棄物焼却炉の煙突の高さの変更(昭和58年10月に煙突の高さを22m笠なしから13.5m笠つきに変更している)があげられる。廃棄物焼却炉のばい煙の自主測定結果、A重油使用量, 硫黄分, 廃棄物焼却量等をインプットして大気拡散¹⁾による百葉箱地点での

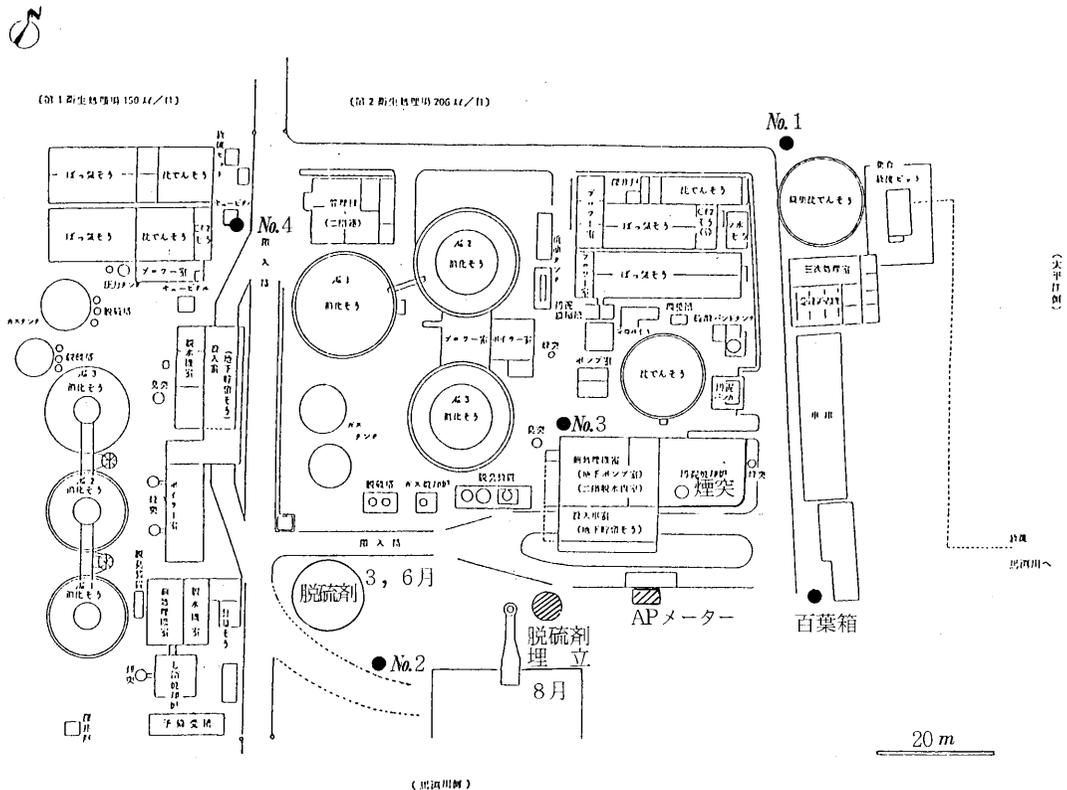


図1 Aし尿処理場平面図

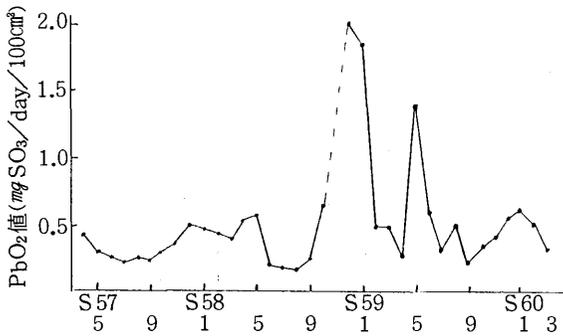


図2 昭和57年度～59年度の測定値の経月変化

SO₂濃度を求めたところ、昭和58年10月以前の煙突が22m笠なしの時は、0ppb、10月以後の13.5m笠つきの時は、最大負荷運転で、40ppb、通常運転で28ppbであった。この値は風向、風速等を限定した場合なので実際の一般大気中ではもっと低くなる。当所でPbO₂法の値と自動測定機の月平均値との比較を行ったところ、自動測定機のSO₂濃度が40ppbのとき、PbO₂値が約1.1、28ppbのとき約0.8で、この影響だけではとうてい1.99という高い値は得られない。他の原因として、周辺大手工場の燃料使用量およびその硫黄分の急激な増加が考えられたが、調査した結果、大きな変動はみられなかった。

そこで、60年3月にAし尿処理場に立入りした結果、硫化水素を除去するための脱硫剤のせいではないかと推察し、以後、これに焦点をしばって調査を始めた。

3. 調査内容と結果

3.1 脱硫剤の交換と処理

最近の脱硫剤交換日は、

昭和60年3月20日、6月20日、8月21日、

脱硫剤の交換量は約2トンであった。使用済脱硫剤の処理方法は、3月と6月は、1、2か月程、覆土放置後、郊外の処理場で埋立処分、8月は、し尿処理場内に取り出した後すぐ埋立している。

3.2 自動測定機による測定

脱硫剤覆土地点から約40m離れた所に、4月末から7月初めまでSO₂計とNO_x計を設置して、その経時変化を観察、脱硫剤交換日との関係(図3)をみた。19日と21日の両日は、SO₂濃度はそれほど高くなかったが、20日の脱硫剤交換日は、11時頃から16時頃まで25ppb以上と高かった。この測定結果からは脱硫剤の影響と断定できないが、その影響で昼間時にSO₂濃度が高かったと推察できる。また、近くの河原で、廃船の焼却処理を行っているため、それに伴って発生するNO_xの影響を調べたが、測定期間中は100ppbを超える高濃度がなく、この影響

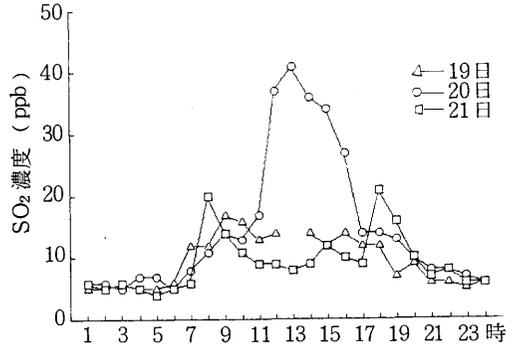


図3 脱硫剤交換日およびその前後日のSO₂濃度の経時変化

はないと考えられる。

3.3 H.VエアースAMPLER、自動測定機(SO₂計)および溶液吸収法(JISK0103)による測定

使用済脱硫剤の埋立地に採取管をセットし、SO₂濃度の測定を8月の脱硫剤交換日に実施した。(土砂をかけて埋立てる前に測定)H.Vの吸引時間は、1.5(m³/分)の吸引量で、2時間、溶液吸収法のバブリング時間も同様に2時間であった。その結果(表1)、H.VによるNO₂⁻、NO₃⁻濃度は一般環境と同レベルであったが、SO₂²⁻濃度は、その50～100倍と非常に高かった。自動測定機はフルスケールオーバーで測定不能、溶液吸収法の結果は、3.8ppmと一般大気中の100倍以上高かった。これは脱硫剤に起因する硫黄の酸化によって発生するSO₂ガスの影響だと考えられる。

表1 各測定法による結果

	SO ₂	NO ₂ ⁻	NO ₃ ⁻
自動測定機	>1.0ppm ^{*1}	—	—
溶液吸収法	3.8ppm	—	—
H.V ^{*2}	390μg/m ³	0.2μg/m ³	1.2μg/m ³

*1：フルスケール オーバー

*2：H.VエアースAMPLER

3.3 PbO₂法によるSO_x濃度の測定

場内に百葉箱の外、簡易シェルターを4か所に設置(図1参照)して、PbO₂値の経月変化と、場内のSO_x濃度の広がり調べた(図4)。なお、測定値を比較しやすいように、シェルターの値を百葉箱の値に換算³⁾している。百葉箱と脱硫剤覆土地点から最も遠いNo.1の値は比較的だったが、その他の地点、特に脱硫剤覆土地点に近いNo.2では6、7月の値が高く、これは6月の脱硫剤交換によるものと考えられる。

3.5 SO₂ガス生成の原理

し尿処理場の消化ガス中には多量の硫化水素が含有さ

発生する。

4 現状と今後の課題

し尿処理工程から発生する硫化水素除去のための脱硫法には、乾式と湿式の2方法がある⁴⁾。水またはアルカリで洗浄する湿式は十分な除去率が得られない上に、洗浄液の再処理が必要となり、工程が複雑となることから現在では酸化鉄を使用した乾式法が主流となっている。しかし、使用済脱硫剤の処理方法が不十分であるとSO₂ガスが発生して大気汚染の原因となる。そこで、適切な処理方法、たとえば、脱硫剤を取り出した後、直ちに、引き取り業者へ渡すとか、空気としゃ断してSO₂ガスを発生しないよう配慮する必要がある。

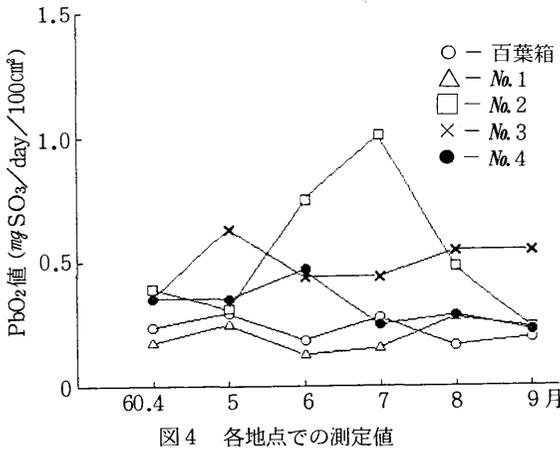
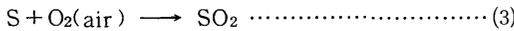
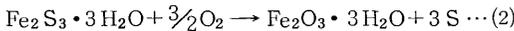
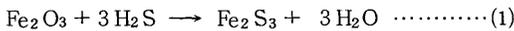


図4 各地点での測定値

れており、強い悪臭源であったり機器の腐蝕の原因となったりすることから、大気汚染の重要成分と考えられている。このし尿処理場では、硫化水素除去のために、酸化鉄を主成分とする脱硫剤を使用して乾式脱硫を行っている。そのサイズ・形状は、11~12mm φ × 15~20mm Lで円柱状で茶かっ色である。硫化水素除去からSO₂ガス生成までの過程⁴⁾⁵⁾を以下に示す。



(1)の反応によって茶かっ色のFe₂O₃が黒色のFe₂O₃になり、湿った状態で空気中において(2)の反応によって硫黄を析出する。この硫黄の酸化により刺激性のSO₂ガスを

文 献

- 1) 高橋昭則：大気拡散式を解くプログラムの開発—短時間平均濃度推定計算—, 青森県公害センター所報 6, 26—31 (1983)
- 2) 山田良一, 鹿原正志, 吉田毅, 早狩進, 工藤清一, 石塚伸一：気象因子を考慮した場合のPbO₂法と、溶液導電率法によるいおう酸化物濃度の再評価(1), 青森県公害センター所報 4, 69—76 (1979)
- 3) 工藤真哉, 山田良一：二酸化鉛法における百葉箱とシェルターを用いたときの測定値の相違, 青森県公害センター所報No.5, 77—79 (1981)
- 4) し尿処理施設維持管理の知識, (財)日本環境衛生センター, 225—227 (1983)
- 5) し尿処理ガイドブック, 環境技術研究会, 466—468 (1981)

十和田湖の水環境

一鉛直構造一

庄司 博光・奈良 忠明・小山田久美子・野田 正志
早狩 敏男*・野呂 幸男・佐藤 信博

1 はじめに

十和田湖は、奥入瀬溪流はじめ多くの景勝地を抱える十和田八幡平国立公園の中心をなし、青森・秋田両県にまたがる面積59km²、最大水深334m、平均水深71m、貯水量4.2km³のカルデラ湖である。また、海拔高度401mと比較的高位に位置し、我が国有数の清澄さを誇っている。しかし、数年来、ワカサギ等の異常繁殖がみられ、生態系変化の徴候が危ぐされている。

ここでは、十和田湖の水環境を把握することを目的に、最深部における水質の鉛直分布調査を行ったので報告する。

2 調査方法

2.1 調査時期

昭和58年59年の5, 7, 8, 10, 11月

2.2 調査地点

旧火口部にあたる十和田湖最深部（中湖中央部）において、水深0, 5, 20, 50, 70, 100, 150, 200, 250及び310m層を転倒式採水器で採取した（図1）。

2.3 調査項目

水温, pH, 溶存酸素, 溶存酸素飽和率, COD, 全リ

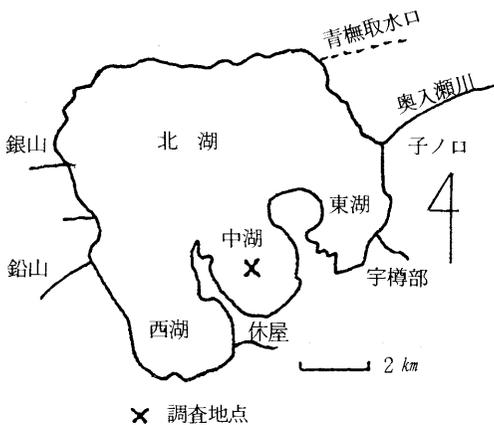


図1 十和田湖の概観

* 現むつ保健所

ン, 全窒素, 尿素態窒素, アンモニア態窒素, 亜硝酸態窒素, 硝酸態窒素, クロロフィルa, ナトリウム, カリウム, マグネシウム, カルシウム, 塩素イオン, 硫酸イオン, アルカリ度, 蒸発残留物及び電気伝導度。

3 結 果

1) 水温：今回の調査は、降雪や結氷のため通年調査はできなかったが、水温躍層の形成の始まりから躍層解消へ移行するまでの期間をとらえることができ、7, 8及び10月には20m層付近に水温躍層が形成されている。

50m層以深の鉛直変化はほぼ一定しており、50-100m層では約5℃の最低値を示し、それ以深では徐々に水温が上昇し、湖底では7.5℃前後となる（図2）。

温帯湖に属する深い湖沼における夏期の水温鉛直変化は、約100m以深に4℃台、200m以深に約3.6~3.8℃を示すのが普通とされ、実際、田沢湖、支笏湖等ではこの様な水温の鉛直変化が観測されている^{1,2)}。しかし、十和田湖は深い温帯湖でありながら、深水層に4℃以下の水温を持たず、湖底に向かい徐々に水温が上昇するという特徴的な鉛直変化を示している。

2) pH：時期的変化がなく、0-70m層は約7.8、その後徐々に低下し、150m以深では約6.8となる。

3) 溶存酸素及び溶存酸素飽和率：5, 11月の循環期では0-100m層ではほぼ一定値を示した。夏期成層期では、表層部の溶存酸素層が水温の上昇に伴い低下し、過飽和状態となることはほとんどない。

各時期、全層を通じて溶存酸素は豊富であり、湖底部においても81~95%の高い飽和率を有している。

4) COD：概ね1.0mg/l前後で、明瞭な季節変化や深度による差は認められなかった。

5) 全リン：0.005mg/l前後の低値であるが、100m以深で濃度が高くなる傾向があった。

6) 全窒素及び尿素態窒素：全窒素と尿素態窒素は類似した変化を示し（相関係数0.89）、夏期に高くなるが、鉛直変化に一定の傾向はみられない（図3）。

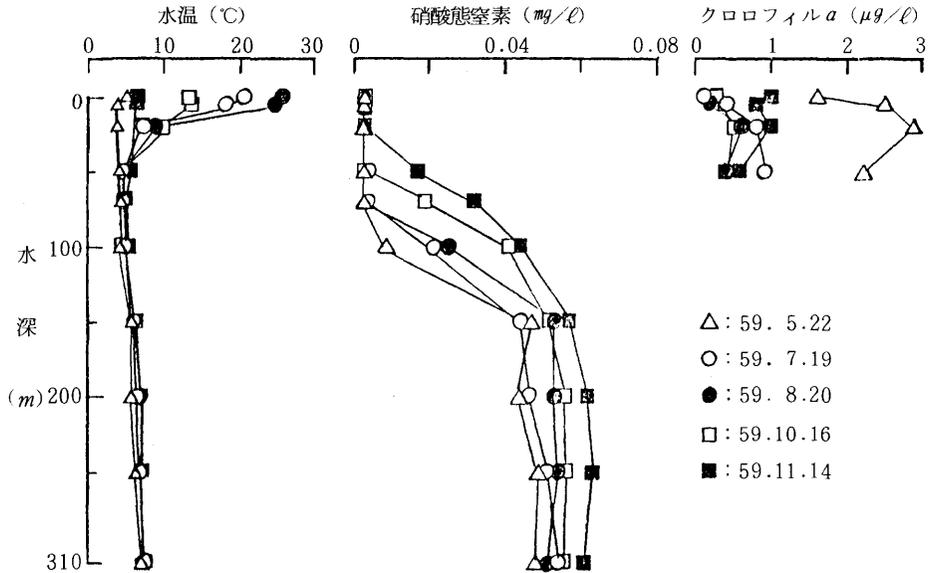


図2 水温、硝酸態窒素及びクロロフィルaの時期別鉛直変化

7) アンモニア態窒素及び亜硝酸態窒素: 定量下限値 ($\text{NH}_4\text{-N}$: 0.01, $\text{NO}_2\text{-N}$: 0.001 mg/ℓ) 以下, または極めて低い値であった。

8) 硝酸態窒素, ナトリウム, カリウム等の無機成分: 各時期を通じて, 70m層付近から深度の増加に伴い徐々に濃度が高くなり, 200m以深ではほぼ一定となる鉛直変化を示した。

特に, 硝酸態窒素は特徴ある挙動を示し, 水質の鉛直構造を知る上ですぐれた指標となっている。5月には, 100m以深から検出され, 春の循環期にも湖水の循環は100m層以浅部に限られるようである。11月には, 50m以深で検出されていることから, それまで100m層付近にあった水塊が上昇して秋の循環期に移行しつつあると考えることができる(図2)。

9) クロロフィルa: 春に1~3 $\mu\text{g}/\ell$ を示すが, 他の時期は1 $\mu\text{g}/\ell$ 以下で, 全体的に低値である(図2)。

(以上, 表1及び図4)

4 考 察

4.1 逆列恒温層と湖水循環

これまでにも, 十和田湖の中湖深層部では, 年間を通じてほとんど水温の変化がなく, 深度の増加につれ水温が徐々に上昇するという報告があり, 従来, 湧水説で説明されてきた¹⁻³⁾。

今回の調査においても, 同様の水温鉛直変化が確認された。この事実は, 湖底部に比較的暖かい湧泉が存在するか,

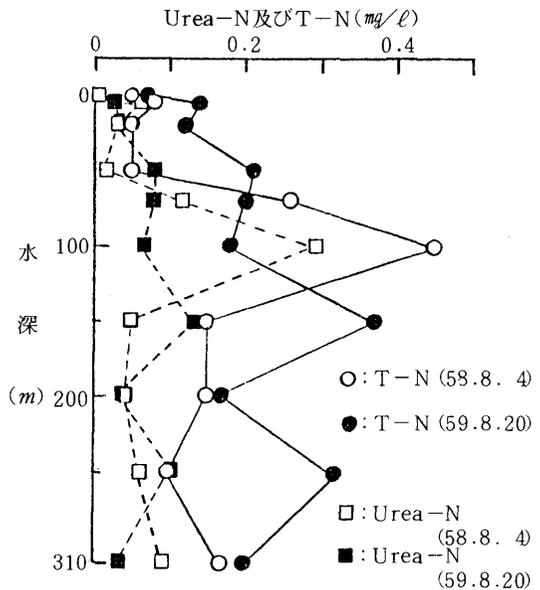


図3 全窒素と尿素態窒素の鉛直変化

表1 調査結果

水深 (m)	水温 (°C)	pH	DO (mg/l)	DO 飽和率 (%)	COD (mg/l)	T-P (mg/l)	T-N (mg/l)	Urea -N (mg/l)	NH ₄ -N (mg/l)	NO ₂ -N (mg/l)	NO ₃ -N (mg/l)	クロロ フィル (μg/l)	Na (mg/l)	K (mg/l)	Mg (mg/l)	Ca (mg/l)	Cl ⁻ (mg/l)	SO ₄ ²⁻ (mg/l)	アルカ リ度 (mg/l)	蒸発 残留物 (mg/l)	電気 伝導度 (μS/cm)
0	25.5	8.1	12.4	104	1.3	0.005	0.08	0.023	<0.01	0.001	0.004	1.6	29.4	1.40	3.8	8.6	18.4	25.6	46.0	151	213
	13.4	7.9	9.9	95	0.9	0.004	0.06	0.010		0.001	0.003	0.6	27.7	1.24	3.6	8.3	17.6	23.7	43.8	139	202
	5.0	7.6	8.0	73	0.5	<0.003	<0.05	<0.008		<0.001	<0.003	0.1	27.0	1.10	3.4	7.9	16.8	21.6	42.0	126	189
5	24.5	8.0	12.2	104	1.4	0.006	0.16	0.061	<0.01	0.001	0.007	2.5	29.6	1.45	3.7	9.0	19.6	26.4	46.0	148	214
	12.8	7.8	10.2	96	1.1	0.004	0.07	0.021		0.001	0.004	0.9	28.0	1.23	3.6	8.3	18.1	23.8	43.8	137	208
	4.0	7.6	7.6	86	0.9	<0.003	<0.05	<0.008		<0.001	<0.003	0.2	27.2	1.10	3.5	7.9	17.3	21.6	42.5	126	201
20	13.0	8.0	12.4	104	1.5	0.008	0.12	0.088	<0.01	0.002	0.007	2.9	29.6	1.45	3.7	8.8	18.6	28.6	46.0	150	220
	8.5	7.8	11.1	98	1.2	0.005	0.08	0.037		0.001	0.004	1.2	28.5	1.27	3.6	8.4	18.0	24.6	44.4	139	212
	4.0	7.6	9.7	93	0.8	<0.003	<0.05	<0.008		<0.001	<0.003	0.5	27.2	1.16	3.5	8.1	17.4	22.4	42.0	128	202
50	6.5	7.9	12.3	99	1.3	0.008	0.21	0.081	0.01	0.001	0.032	2.2	30.2	1.42	3.7	8.8	19.2	29.2	46.0	151	221
	5.4	7.8	11.4	93	1.0	0.005	0.08	0.025	0.01	0.001	0.010	0.9	29.0	1.27	3.7	8.5	18.3	24.6	45.2	140	215
	4.2	7.6	10.0	83	0.6	0.003	<0.05	<0.008	<0.01	<0.001	<0.003	0.4	28.4	1.10	3.6	8.2	17.7	22.0	43.5	129	212
70	6.1	7.9	12.3	98	1.6	0.006	0.26	0.118	0.02	0.004	0.059		31.2	1.55	3.8	8.8	19.8	26.2	47.0	166	243
	5.3	7.6	11.5	94	1.1	0.005	0.12	0.040	0.01	0.001	0.017	-	29.4	1.33	3.7	8.6	18.7	24.8	45.8	140	220
	4.4	7.4	10.6	88	0.5	<0.003	<0.05	<0.008	<0.01	<0.001	<0.003		28.8	1.22	3.5	8.3	17.9	23.2	44.5	129	214
100	6.1	7.6	12.2	98	1.6	0.008	0.45	0.293	0.02	<0.001	0.046		32.6	1.60	4.0	8.9	20.4	28.8	49.0	164	232
	5.4	7.4	11.4	93	1.2	0.006	0.14	0.065	0.01		0.026	-	30.6	1.39	3.8	8.7	19.1	26.2	47.5	147	224
	4.3	6.9	10.4	87	0.7	<0.003	<0.05	<0.008	<0.01		<0.003		29.2	1.26	3.6	8.5	18.0	23.6	45.0	141	215
150	7.1	7.4	11.0	91	2.1	0.009	0.36	0.133	0.01	0.001	0.061		36.6	1.90	4.2	9.4	22.1	29.6	55.5	181	262
	6.2	7.0	10.5	88	1.1	0.007	0.14	0.036	0.01	0.001	0.051	-	34.9	1.61	4.1	9.1	21.1	28.4	53.5	163	248
	5.6	6.7	9.7	81	0.6	0.004	<0.05	<0.008	<0.01	<0.001	0.044		33.2	1.44	4.0	8.6	19.8	26.0	52.5	145	232
200	7.4	7.1	11.4	96	1.4	0.010	0.19	0.046	<0.01	<0.001	0.069		39.0	1.95	4.2	9.8	23.2	32.8	58.5	205	269
	6.8	6.8	10.1	85	0.9	0.007	0.11	0.028			0.059	-	36.7	1.71	4.2	9.3	22.0	30.0	56.1	171	260
	5.8	6.6	7.6	64	0.5	0.004	0.05	<0.008			0.044		33.8	1.52	4.1	8.9	19.8	28.4	53.5	157	244
250	7.6	7.1	11.2	96	1.4	0.014	0.32	0.115	0.01	0.001	0.075		37.8	1.90	4.3	9.8	24.1	32.4	57.5	190	275
	7.1	6.7	10.4	89	1.0	0.008	0.15	0.049	0.01	0.001	0.061	-	36.4	1.70	4.2	9.3	22.2	30.4	55.7	172	262
	6.6	6.6	8.6	74	0.6	0.004	0.05	<0.008	<0.01	<0.001	0.049		34.0	1.54	4.1	8.9	19.6	28.0	53.5	158	246
310	7.9	7.0	11.0	95	1.4	0.008	0.23	0.093	0.01	0.003	0.075		37.2	1.95	4.2	9.6	22.6	34.4	57.0	184	266
	7.6	6.8	10.2	88	1.1	0.006	0.12	0.033	0.01	0.001	0.061	-	36.1	1.68	4.1	9.3	21.7	29.9	55.4	168	259
	7.2	6.6	9.4	81	0.8	0.004	<0.05	<0.008	<0.01	<0.001	0.048		34.4	1.54	4.0	9.0	20.2	28.1	54.0	155	248

上段：最大値 中段：平均値 下段：最小値

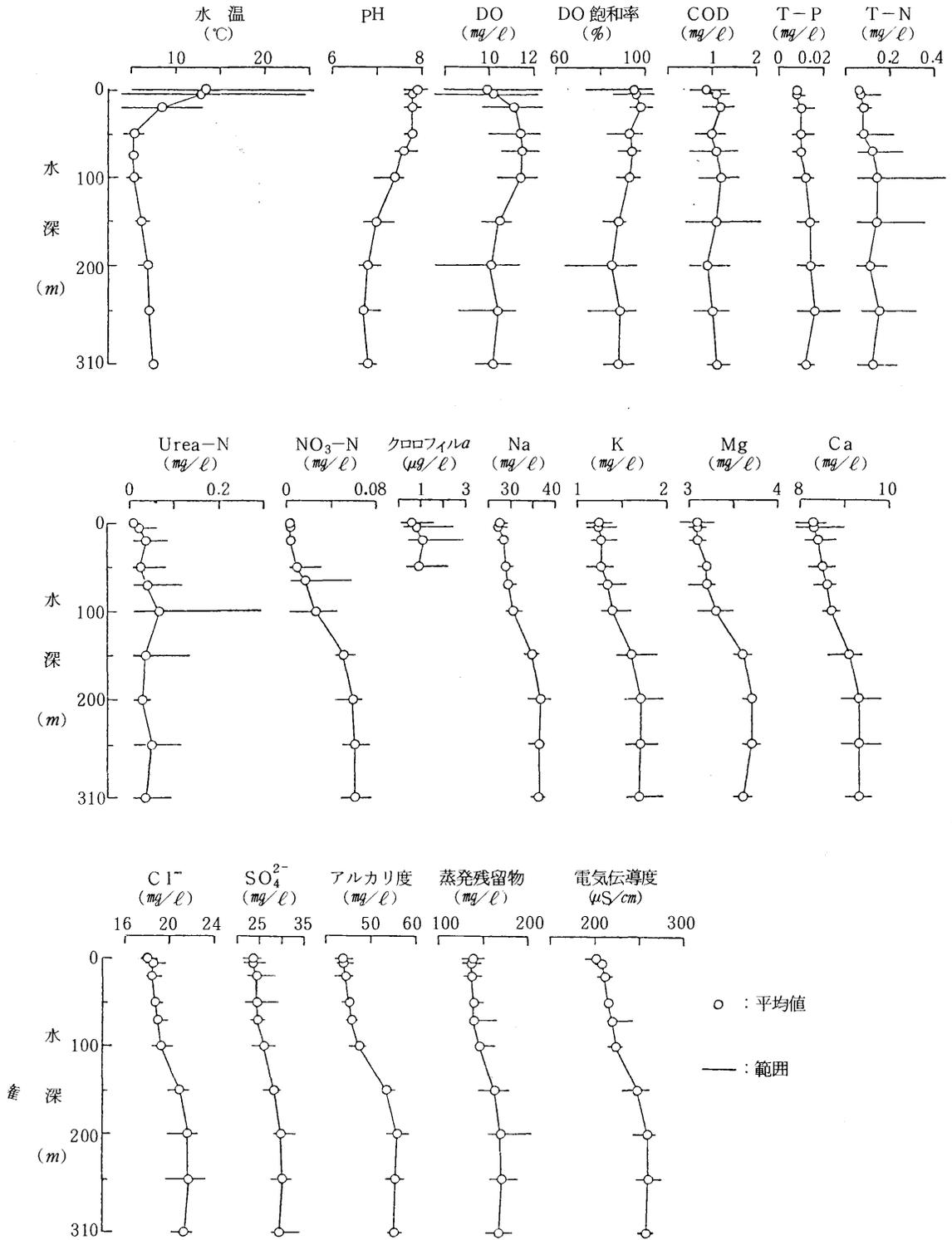


図4 水質の鉛直分布

もしくは、湖底部がある程度の熱を持っていることを示唆している。また、硝酸態窒素やナトリウム、カリウム等の多くの無機成分も、水温の鉛直変化同様70m以深で漸増していることから、「湖底部に比較的暖かい湧泉が存在する」と考えることができる。この湧水は、蒸発残留物等の鉛直変化からみて比較的密度が大きいと思われるが、水温変化による密度勾配と考え合わせると、100m以深では年間を通じて逆列成層をなしていると考えられる。

また、今回の10回の調査中、70m層の蒸発残留物が上下の層より小さい値を数回示したこと、更に70m以深で多くの無機成分が漸増していることを考え合わせると、この付近にも、溶解性成分等の少ない、冷たい湧泉の存在が考えられる。

以上のことから、2つの湧泉によって、100m以深部の逆列状態が維持され、湖水循環が100m層までに止まっているとの推定も可能であり、今後の成果が待たれる。

4.2 尿素態窒素の分布と意義

今回の調査で、窒素の分布を形態別にみると、アンモニア態窒素、亜硝酸態窒素は全層でほとんど不検出で、硝酸態窒素は100m以深で水温と同様の鉛直変化を示している。全窒素は鉛直変化に一定の傾向はみられず、唯一尿素態窒素と高い相関が得られていることから、尿素態窒素の分布について若干の考察を試みた。

湖水中の尿素の供給源としては、有機窒素化合物のバクテリアによる分解、水棲生物による排泄、さらには人間活動由来のものが考えられるが、尿素態窒素及び全窒素は、湖水循環の影響を受けない夏期の深層水に不規則なピークを示していることから、陸上由来のものではないと考えられる。

植物プランクトンは、有光層において窒素源として尿素を消費する一方で、死後沈降したものが分解して尿素を放出し、夏期の100m層付近のピークを形成している要因のひとつとも考えられる。しかし、クロロフィル*a*の値から植物プランクトンの量は少ないと考えられ、分解によって生成する尿素がどの程度の量になるのか現在のところ不明である。

鯉等の魚類の蛋白質代謝による尿素生成や、その餌食となる動物プランクトンによる排泄も考えなければならないが、深層部における分布状態はわかっていない。更に尿素よりもアンモニウム塩の形態で排泄する方が量的に多い⁴⁾と言われているが、アンモニア態窒素に明瞭な変化がみられないことから、尿素態窒素の分布を魚類や動物プランクトンの排泄だけで説明することは難しく、今後の課題としたい。

5 ま と め

- 1) 溶存酸素の分布状態やクロロフィル*a*及び栄養塩類の値から、十和田湖は典型的な貧栄養湖であることが裏付けられた。
- 2) 十和田湖は中湖中央部において、100m以深で徐々に水温が上昇するという特徴的な変化を示し、硝酸態窒素等の多くの無機成分も同様の変化を示すことから、70m層付近と湖底に湧泉の存在が考えられる。
- 3) 硝酸態窒素の挙動に、湖水の循環状況が現われており、水質の鉛直構造を知る上ですぐれた指標となり得る。
- 4) 窒素の鉛直分布において、尿素態窒素の挙動が特徴的であったことから、水棲生物による尿素的放出や消費との関連をうかがわせた。

文 献

- 1) 津田松苗：日本湖沼の診断，共立出版，29-63 (1975)
- 2) 小久保清治，川村輝良：十和田湖の湖沼学的研究，青森県水産資源調査報告 (1951)
- 3) 青森県：十和田湖環境調査研究報告書 (1958)
- 4) 田中庸央，大沼淳一：三河湾における尿素の存在量と季節変化，水質汚濁研究，8，1，47-52 (1985)

事業場排水の全リン，総窒素調査

根岸 勝信*・早狩 敏男*・山崎喜三郎**
 坂本 正昭***・奈良 忠明・今 武純****
 小山田久美子・野田 正志・田中 稔*****

1. はじめに

湖沼及び沿岸海域で藻類の異常増殖に係る富栄養化が問題となり、その制限因子とされる栄養塩類として、窒素及びリンが注目されて久しい。しかし、本県における事業場の排水処理の現状は、BOD、CODなどの有機物の除去を目的として整備されてきたため、活性汚泥、加圧浮上、凝集沈殿などが広く普及しているものの、窒素及びリンの実態については十分に把握されていない。

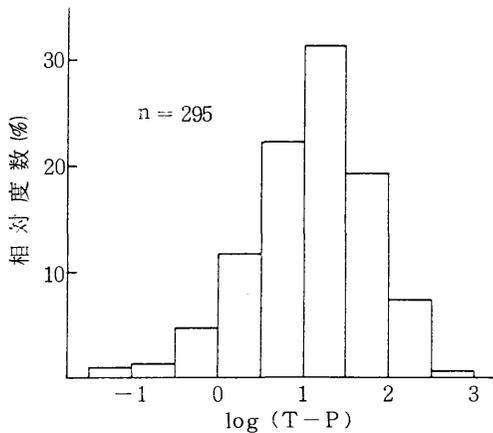
本報は、当所で実施している事業場排水調査の結果をもとに、窒素及びリンの実態を明らかにしながら、いくつかの検討を試みたものである。

2. 調査方法

県南に立地し、かつ水質汚濁防止法に基づく特定事業場あるいは公害防止協定締結工場で、日間平均排水量が50 m^3 以上のものを対象とし、放流水と共に、一部事業場では排水処理施設の機能調査のため、原水も調査した。

調査期間は昭和53年度から昭和58年度までで、事業場数129、検体数は延べ349検体であった。

分析方法はT-P（全リン）が過硫酸カリウム分解法、T-N（総窒素）がJISK0102の形態別窒素の総和法による。



3. 結果及び考察

3.1 相対度数分布

T-P、T-Nそれぞれについて、全データ(濃度:mg/l)の常用対数を求めて横軸とし、相対度数を縦軸にとり、相対度数分布を図1に示した。

T-P、T-N共に対数正規分布を示しており、前者は $\log(T-P) = 0 \sim 1$ (1~10 mg/l)に、後者は $\log(T-N) = 0.5 \sim 1.5$ (3.2~32 mg/l)に50%以上が集中している。

3.2 特定施設別の濃度

特定施設の種類のごとにT-PとT-Nの濃度範囲及び幾何平均値を表1に示した。

なお、処理原水の違いにより、特定施設番号72のし尿処理施設は合併処理と生し尿専用処理に分け、74の事業場排水処理施設は水産食料品製造業排水用と化製場冷却排水用に分けた。

3.2.1 T-P濃度

濃度範囲が広く、最高値は生し尿処理業の120mg/l、最低値は一般廃棄物焼却業の0.02mg/l未満であった。

幾何平均で最も高いのは生し尿処理業の11.3mg/lで、以下製あん業、と畜・へい獣取扱業、洗たく業が比較的高く5mg/lを超えた。逆に非鉄金属製造業の0.05mg/lを

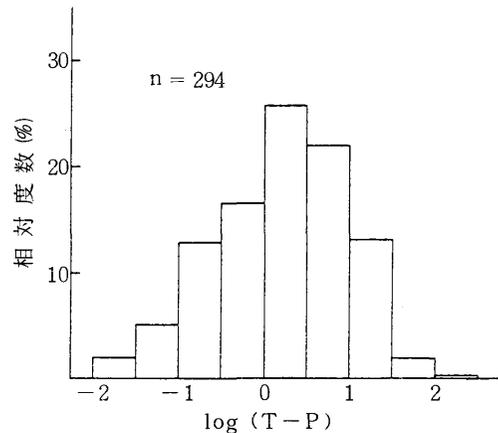


図1 T-P、T-Nの相対度数分布

*現むつ保健所 **現五所川原保健所 ***現青森家畜保健衛生所 ****現青森県公害調査事務所 *****現八戸市公害対策課

表1 事業場排水のT-P, T-N

単位: mg/l

特定施設番号	業種	T-P			T-N		
		検体数	濃度範囲	幾何平均	検体数	濃度範囲	幾何平均
2	畜産食料品製造業	14	0.34 ~ 11	3.50	14	1.29 ~ 84.2	22.5
3	水産食料品製造業	64	0.03 ~ 74	4.61	69	2.35 ~ 220.34	26.0
4	農産保存食料品製造業	5	0.46 ~ 8.9	1.71	5	0.30 ~ 5.83	2.22
5	みそ, しょう油, ソース製造業	4	0.41 ~ 2.7	1.43	4	3.34 ~ 80.7	18.7
8	製あん業	1		6.1	1		2.15
10	飲料製造業	7	<0.07 ~ 3.1	0.42	6	0.3 ~ 6.48	1.95
11	化製場	8	0.08 ~ 1.1	0.30	8	4.3 ~ 124.8	30.7
16	めん類製造業	1		0.23	1		2.23
17	豆腐, 煮豆製造業	6	0.32 ~ 3.2	0.74	6	0.19 ~ 5.42	2.16
23	紙・パルプ製造業	7	0.089 ~ 0.44	0.18	7	<0.5 ~ 5.44	2.26
24	化学肥料製造業	14	0.15 ~ 40	3.81	12	1.51 ~ 46.45	7.86
47	医薬品製造業	17	0.03 ~ 7.3	0.11	18	2.46 ~ 47	11
61	鉄鋼業	20	0.07 ~ 0.97	0.21	19	0.1 ~ 16.13	1.39
62	非鉄金属製造業	3	0.031 ~ 0.08	0.05	3	1.35 ~ 7.65	3.02
64	ガス供給業	4	0.14 ~ 0.33	0.19	3	0.49 ~ 2.76	0.89
66-2	旅館業	17	0.27 ~ 4.8	1.08	17	0.66 ~ 24.46	4.28
67	洗たく業	2	3.0 ~ 10	5.48	2	4.3 ~ 6.32	5.21
68-2	病院	4	1.8 ~ 5.3	2.72	4	2.08 ~ 66	11.8
69	と畜, へい獣取扱業	14	1.4 ~ 23	5.61	14	3.09 ~ 181	26.8
71-2	試験, 研究機関(大学)	1		1.6	1		4.71
71-3	一般廃棄物焼却場	5	<0.02 ~ 2.1	0.34	4	1.2 ~ 65.69	10.8
72(合)	し尿処理場(合併)	41	0.4 ~ 28	3.02	40	0.39 ~ 75.8	14.6
72(生)	”(生し尿)	9	2.5 ~ 120	11.3	9	26.5 ~ 630.31	159
73	下水道終末処理場	11	0.52 ~ 5.3	1.23	11	3.166 ~ 22.5	8.08
74(水)	排水処理業(水産加工)	8	1.7 ~ 16	4.24	8	65.6 ~ 290	115
74(化)	”(化製場)	3	0.23 ~ 1.5	0.65	3	6.36 ~ 22.9	14.1
協(セ)	セメント製造業	2	0.12 ~ 0.24	0.17	2	0.71 ~ 0.94	0.82
協(電)	電力供給業	3	1.1 ~ 11	3.93	3	90.4 ~ 186.13	117

最低に, 医薬品, セメント, 紙・パルプ製造業及びガス供給業が0.2mg/l未満の低い値を示した。

3.2.2 T-N濃度

濃度範囲が広く, 最高値はT-P同様生し尿処理業で630.31mg/l, 最低値は鉄鋼業の0.1mg/lであった。

幾何平均で最も高いのは, これもT-P同様生し尿処理業で, 以下電力供給業, 水産加工排水共同処理施設の順に高く100mg/l以上を示し, 逆にセメント製造業, ガス供給業が1mg/l未満の低い値を示した。

3.3 特定施設別の特徴

3.3.1 T-PとT-Nの関係

表2及び表3より, 全データによるT-PとT-Nの相関はr=0.356, 特定施設の種別幾何平均値による相

関はr=0.490と, いずれも相関性は低かった。

図2は, 特定施設の種別幾何平均値について, 横軸をlog(T-P), 縦軸をlog(T-N)として表わしたものである。

点はかなり散乱しているが, これを業種あるいは排水の質が近似していると思われるものをグルーピングした結果,

- A. 重化学工業系(金属, セメント, 医薬品製造業等)
- B. 生活排水系(旅館業, 合併し尿処理, 終末処理等)
- C. 畜・水産加工系(畜産加工, 水産加工, と畜業等)
- D. 農産加工系(農産保存食品, 飲料, 豆腐製造業等)

の4グループに分けることができた。AはT-Pの低いグループであり, T-Nが中程度のB, 主に動物性の原

料を処理するためT-Nの高いC,そして植物性の原料を処理するため比較的T-Nの低いDである。ただ、化学工業のうちリンも原料とする肥料製造業、洗剤を使用する洗たく業及び生し尿のみの処理施設は例外としてグループからはみ出した。

3.3.2 主成分分析

BOD, COD, SS との関係を見ると(表2,表3),全データによる相関でT-PがSS, CODと比較的高い相関性を示したが, T-Nはいずれとも相関性が低く,また特定施設別幾何平均値による相関性はT-P, T-N共に低かった。

そこで, T-P, T-N, BOD, COD及びSSの特定施設別幾何平均値の常用対数を用いて主成分分析を行なったところ,表4に示すように,第1主成分は因子負荷量がすべて正で,特にBOD, CODが大きく有機物を示す因子と考えられる。第2主成分はT-N, T-Pが正でBOD, COD, SSが負と分かれており,特にT-Nの因子負荷量が大いことから消化の目安ともなる因子と考えられる。第3主成分以下は固有値が小さい。

そこで,特定施設別の合成変数Z₁, Z₂を座標上に示すと(図3),T-PとT-Nの関係でグループ分けしたA, B, C, Dと同様の4グループに分けることができた。これによると,

- A. 重化学工業系;有機物及びT-N成分が小さい。
- B. 生活排水系;有機物成分が小さい割にT-Nが大きく,比較的消化された水質である。
- C. 畜・水産加工系;有機物, T-N成分共に大きい。
- D. 農産加工系;有機物成分が大きい割にT-Nが小さい,炭水化物的水質である。

以上のことから, T-P及びT-Nは事業場排水を特徴付けるには有効な項目と考えられる。特にT-Nは重

表2 全データによる相関係数 (n = 294)

区分	T-P	T-N	BOD	COD	SS
T-P	—	0.356	0.413	0.599	0.611
T-N		—	0.172	0.329	0.252

表3 特定施設別幾何平均値による相関係数 (n = 28)

区分	T-P	T-N	BOD	COD	SS
T-P	—	0.490	0.005	0.135	0.091
T-N		—	-0.037	0.063	-0.088

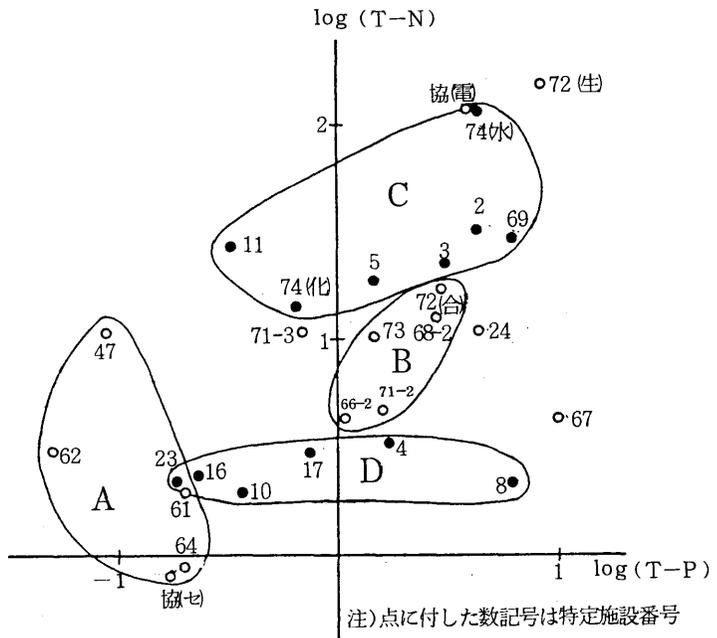


図2 T-PとT-Nの関係

要で,例えば排水処理などの課程で窒素はその形態を変えていくことから興味深い成分である。

3.4 排水処理施設の機能調査²⁾⁻⁴⁾

調査対象事業場の内K火力発電所が凝集沈殿一濾過法であったほかは,方式の違いはあるが,いわゆる活性汚泥法をメイン処理法としており,一部水産加工関係では加圧浮上処理と,W化学工業では活性炭処理との組合わ

せで処理されていた。(表5)

3.4.1 T-Pの除去率

除去率は0以下から99.9%の範囲に及んだ。

活性汚泥法ではBODの除去率がほとんど90%以上であるのに対し，T-Pで除去率90%以上は3施設だけであった。また，比較的原水濃度の高い場合に除去率がよい傾向はあるもののバラツキがみられる。事業場の作業内

容等により，当然原水の時間的水質変があるものと考えられ，そのことが除去率のバラツキ及び0%以下の一要因となっているものと思われる。業種別では，加圧浮上を併用している水産加工関係で除去率80%以上が多く，他はほとんど70%以下の除去率である。

K火力発電所の凝集沈殿-濾過法での除去率は，CODとほぼ同じ58%，W化学工業の活性炭処理のみについて

みると，処理目的が微量化学物質であるためか，ほとんど期待できない除去率であった。

3.4.2 T-Nの除去率

除去率は0以下から99%の範囲であった。

活性汚泥法で除去率90%以上は9施設あるが，その内7施設が農産加工関係である。逆に汚水処理場ではほとんどが50%以下と除去率が低かった。

T-Pと同様，原水の濃度が高い場合に除去率が高くなる傾向はあるが，業種別での違いも見られ

表4 主成分分析表

区分	Z ₁		Z ₂		Z ₃	
固有率	2.682		1.322		0.583	
累積寄与率	0.536		0.800		0.917	
区分	A	B	A	B	A	B
T-P	0.436	0.714	0.402	0.462	0.560	0.428
T-N	0.282	0.462	0.710	0.817	-0.077	-0.059
BOD	0.534	0.875	-0.198	-0.228	-0.450	-0.344
COD	0.554	0.908	-0.137	-0.158	-0.359	-0.274
SS	0.369	0.605	-0.523	-0.602	0.589	0.450

Z_i: 合成変数 A: 固有ベクトル B: 因子負荷量

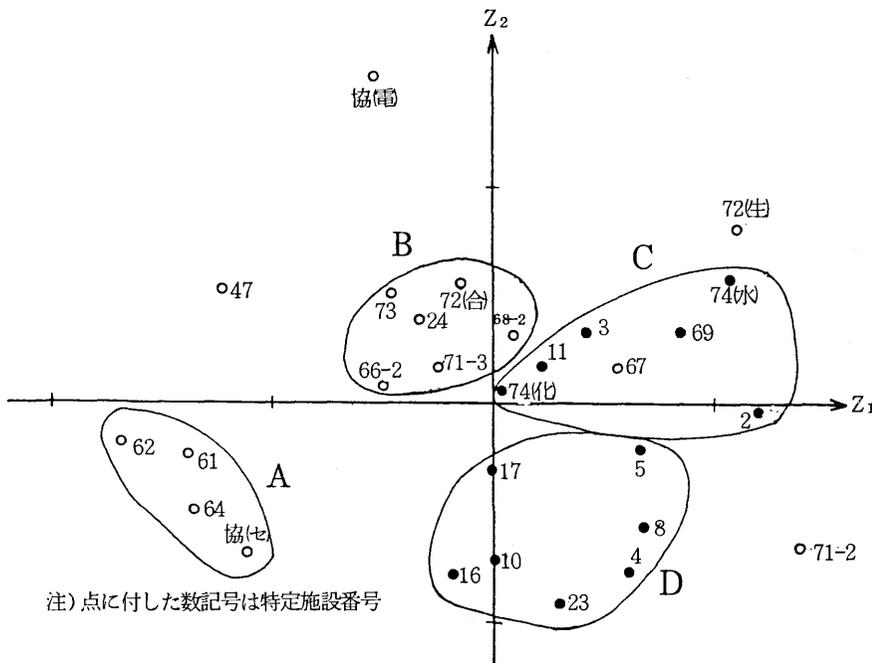


図3 合成変数Z₁-Z₂の関係

表5 T-PとT-Nの除去率

特定 施設 番号	事業場	処理方法	T-P			T-N			BOD		
			原水 (mg/ℓ)	処理水 (mg/ℓ)	除去率 (%)	原水 (mg/ℓ)	処理水 (mg/ℓ)	除去率 (%)	原水 (mg/ℓ)	処理水 (mg/ℓ)	除去率 (%)
2	A食鶏処理場	活性汚泥	4.6	1.9	79	28.35	9.95	65	210	23	89
"	B食鶏処理場	"	9.9	6.0	37	104.15	72.09	31	630	78	88
3	C水産	"	20	3.5	82	61.25	42.43	31	650	100	85
"	"	"	77	25	68	463.85	138.8	70	3,400	25	99
"	D水産加工場	"	4.0	3.6	10	25.62	16.3	36	250	62	75
"	"	"	3.6	3.7	< 0	27.97	15.09	46	220	50	77
"	E缶詰	"	11	8	27	67.29	39.4	31	1,100	42	96
"	"	"	6.7	2.1	69	57.3	12.7	77	480	17	96
"	F冷凍加工場	"	24	10	58	180.49	65.24	64	1,300	50	96
"	G水産	"	14	3.1	78	60.55	13.89	77	880	22	98
"	H水産加工場	"	17	6.9	59	132.48	5.62	96	780	10	99
"	I産業	"	17	11	35	139.66	109.25	22	1,600	42	97
"	"	加圧浮上-活性汚泥	62	14	77	380.66	105.12	72	2,900	35	99
"	J水産加工場	"	13	7.1	45	94.4	19.86	79	590	13	98
"	K水産	"	100	12	88	260.1	48	82	10,000	7	99.9
"	L水産	"	44	15	66	231.15	79.4	66	2,800	110	96
"	M水産	"	22	3.2	85	153.13	31.19	80	1,300	48	96
"	"	"	5.5	0.99	82	44.55	19.48	56	120	14	88
"	N水産	"	105	21	80	579.41	57.7	90	6,300	150	98
"	"	"	78	13	83	436.98	67.5	85	4,700	170	96
"	O漁業水産加工場	加圧浮上-活性汚泥	8.2	8.1	1	84.16	62.1	26	900	24	97
"	P水産	活性汚泥(回分型)	13	6.6	49	61.04	22.4	63	470	9	98
4	Q食品	活性汚泥	1.4	1.2	14	5.94	5.96	< 0	>300	67	>78
5	R食料工業	"	0.05	0.41	< 0	46.06	3.44	93	400	24	94
8	S食品	活性汚泥(回分型)	36	6.1	83	124.16	2.15	98	2,300	24	99
10	T酒類	活性汚泥	0.56	0.28	50	23.87	0.3	99	110	6	95
"	U酒類	"	3.7	0.46	88	16.8	1.2	93	870	16	98
17	V食品	"	6.3	0.6	90	64.21	5.42	92	1,400	28	98
47	W化学工業	活性汚泥-活性炭処理	22	0.03	99.9	150.19	3.21	98	5,000	< 5	>99.9
"	"	活性炭処理	0.058	0.058	0	15.81	16.31	< 0	25*	22*	12
"	"	"	< 0.01	0.03	< 0	15.21	8.34	45	17*	16*	6
"	"	"	0.15	0.06	60	54.8	47	14	33*	29*	12
67	Xクリーニング	活性汚泥	26	10	62	6.34	4.44	32	540	39	93
"	"	"	7.0	3.0	57	17.8	6.45	64	180	76	58
69	Y食肉処理場	"	0.95	1.4	< 0	215.34	181.46	16	1,200	78	94
72	A団地污水处理場	"	3.8	0.66	83	30.79	30.61	2	170	6	96
"	B団地污水处理場	"	3.9	4.8	< 0	85.18	75.8	11	320	10	97
"	C団地污水处理場	"	5.0	8.1	< 0	24.04	16.55	33	200	< 5	>98
"	D団地污水处理場	"	8.0	3.1	61	79.32	65.08	18	440	39	91
"	E団地污水处理場	"	2.8	1.2	57	64.62	42.92	34	380	5	99
"	F団地污水处理場	"	4.3	1.8	58	28.05	2.13	92	140	< 5	>96
"	G団地污水处理場	"	20	28	< 0	33.04	17.81	46	260	19	93
73	H終末処理場	"	3.5	0.61	83	24.37	6.71	73	170	5	97
"	"	"	2.4	0.80	67	13.54	4.45	71	210	< 5	>98
"	I下水処理場	"	7.7	3.0	61	62.21	15.55	75	460	< 5	>99
74	J共同污水处理施設	加圧浮上-活性汚泥	66	2.4	96	486	65.7	87	5,400	15	99.7
"	"	"	49	2.1	96	485.86	120.6	75	4,500	59	99
協定	K火力発電所	凝集沈殿-濾過	2.6	1.1	58	113.07	94.75	16	29*	13*	55

(注)* 印はCOD

ることから、窒素の存在形態も除去率に関係しているものと推定される。

凝集沈殿-濾過法及び活性炭処理による窒素の除去はほとんど期待できないようである。

以上、現在普及している排水処理施設では、窒素及びリンの除去について、あまり多くは望めないようである。

昭和60年7月、一部湖沼を対象としてT-P, T-Nの排水規制がスタートした。その規制値(T-P; $16\text{mg}/\ell$, T-N; $120\text{mg}/\ell$)に今回調査した129事業場の成績を対比したところ、T-Pで約15%, T-Nで約10%が適合していなかった。また、八戸市を流れる新井田川では、既に毎年夏に、藻類の異常増殖が確認されており、本県でも、法規制にかかわらず、早急な富栄養化対策が望まれる。

4. ま と め

1. 事業場排水におけるT-P, T-Nの相対度数分布は、共に対数正規分布を示した。
2. T-P, T-Nとも濃度範囲が広く、また業種間で違いがあり、生し尿処理施設がT-P, T-Nとも最高濃度を示した。
3. T-PとT-Nの相関性は低い。

4. T-P, T-Nは事業場排水の特徴を見る上で有効な項目で、特に窒素は重要と思われる。
5. 活性汚泥処理は農産加工排水の窒素除去に有効性が見られ、また高濃度排水には窒素、リンとも除去率がよくなる傾向がある。しかし、総じて現在普及している排水処理施設での、効率的な窒素、リンの除去は期待できない。

文 献

- 1) 青森県公害センター：工場・事業場排水水質調査結果, (1978 - 1983)
- 2) 関野正義, 奈良忠明, 原子 昭：水産加工場の排水 - 八戸市における排水処理状況, 水, **22**, 297, 79 - 88 (1980)
- 3) 梅本 諭, 深田哲右, 赤壁哲朗, 北村弘行：リン排出量削減のための排水実態調査, 兵庫県公害研究所研究報告, **12**, 31 - 37 (1980)
- 4) 佐野昌之, 佐藤正光, 原田文男, 長鎌文明, 河崎忠雄, 仙田好行, 石田晴子, 水野 勝, 荒川幸夫：各種事業場廃水における処理方法と窒素及びリンの除去に関する調査, 愛知県公害センター所報, **9**, 123 - 138, (1981)

大気降水物の性状と湖沼の富栄養化

手代森光仁・奈良 忠明・小山田久美子
野田 正志・山崎喜三郎*・早狩 敏男**

1 はじめに

人為活動に伴って大気中に排水される種々の汚染物質が、自然降下若しくは降雨により大気圏から地上へ移行し、地上生態系への影響が懸念されている¹⁾。また、最近は雨水の酸性化が大きな社会問題となっている。しかし、湖沼等の富栄養化に関する報告は少なく²⁾、古くは農業生産とのかわりから議論されてきたようである^{3,4)}。

ここでは、小川原湖流域における大気降水物の栄養塩の性状を把握するとともに、同湖の富栄養化に及ぼす負荷量の推定を試みたので報告する。

2 調査方法

2.1 調査期間

昭和57年6月～昭和58年12月

2.2 調査地点

調査地点は湖岸東部にある谷地頭小学校（二階屋上）、その対岸の舟ヶ沢小中学校（二階屋上）及び湖心より20 kmほど離れた山中にある作田ダムサイトの3地点とした（図1）。前2者は湖面への直接の影響をみるため、後者は集水域への影響を知るため選定した。

2.3 捕集方法

- 1) 大気降水物の捕集は、デポジットゲージ（内径29.6cm ガラス製ロート）を用いて約1ヶ月ごとに実施した（図3）。
- 2) 昆虫や大型固型物の混入を防ぐため、ロート捕集部に目開き1.5 mmのナイロン製網を使用した。
- 3) 藻の発生を防ぐため、20ℓ捕集びんに0.08 N硫酸銅溶液10mlを添加した（予備実験の結果、大気降下ばいじん測定マニュアルに記載されている0.02 N硫酸銅溶液⁵⁾では藻の発生がみられたため）。
- 4) あらかじめ450℃で2時間焼成したワットマンGF/Bで濾過、溶解性と不溶解性に区分し、窒素・リン等の分析に供した。
- 5) 雪捕集量比較試験では、図2に示すブリキ製の円筒形

雪採取装置⁶⁾、デポジットゲージ及びポリバケツを使用した。

小川原湖の湖盆概要

面積 (km ²)	63.2
周囲 (km)	67.4
最大深度 (m)	25
平均深度 (m)	11.2
湖水量 (m ³)	714 × 10 ⁶

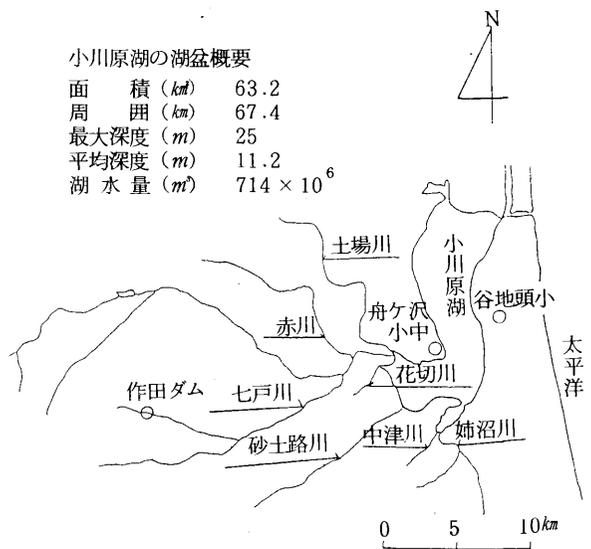


図1 調査地点

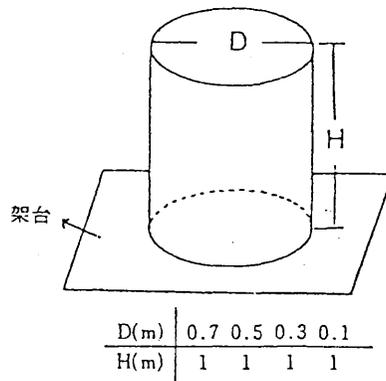


図2 雪採取装置

* 現五所川原保健所 ** 現むつ保健所

3 結果と考察

3.1 降水量及び雪捕集量の比較試験

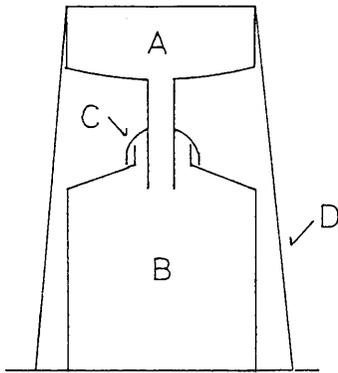
降水を含む大気降水物の性状は、装置の形状や試料の調整方法によって大きく異なることが予想される。ここでは、デポジットゲージによる降水及び降雪の捕集が、どの程度の妥当性があるかを検討した。

降水量の比較試験は、調査地点の中で最も降水量が多くダムサイトに転倒式雨量計が設置されている作田ダムで実施した結果、12月を除いて両者に大きな差はみられなかった(表1)。デポジットゲージによる捕集法は、大気マニュアルで規格化されている上に操作が簡便であることから再考されてよい。一方、降雪が始まる12月に入ると雨量計のデータが極端に低くなることから、降雪地帯においては雨量計による冬期の測定は不可能と思われる。そこで、雪の捕集量を比較するため谷地頭小学校に形状の異なる三種の捕集器を設置し、昭和57年1月21日～2月21日の1ヶ月間捕集した。その結果、dを除く円筒形雪採取装置とポリバケツはほぼ同じ値を示し、デポジットゲージはこれらより若干低い値となった。デポジットゲージの捕集ロート部の高さが14cmと低いことから、一度捕集された雪が風で飛散されたためと考えられる。また、調査期間の最大降雪は24cmであったが降雪の多い地域で使用した場合は、その差はさらに大きくなると推定される。雪採取装置はある一定の口径と深さが必要と思われる、測定データの比較・検討に当たっては、装置の形状や条件を詳細に把握して行う必要がある。

3.2 大気降水物の栄養塩類濃度

降水及び乾性降水物を含めた3地点の栄養塩類濃度は、窒素0.2～7mg/l、リン0.005～1.5mg/l、COD0.5～10mg/lの範囲であった。この値は小川原湖や同湖に流入する河川の水質を超えているものが多く⁷⁾、降雨そのものが湖の富栄養化の一因となり得ることを示している。20km離れた山間部の作田ダムの栄養塩濃度は雨量が多いためか、他の2地点よりも総じて低い値であった。

次に窒素濃度を形態別にみると、作田ダムではNH₄-N > Org-N > NO₃-Nであるのに対し、湖岸の2地点は



- A: 捕集漏斗
- B: 捕集びん (20l)
- C: 逆立漏斗付ポリエチレン製パイプ
- D: 鉄製スタンド

図3 デポジットゲージ

表1 降水量の比較試験 (作田ダム)

調査期間	デポジットゲージmm	転倒式雨量計mm
'82.6.14～7.14	52	55
～8.17	157	142
～9.16	282	266
～10.12	20	20
～11.10	103	96
～12.15	165	130
'83.5.11～6.10	153	157
～7.5	280	239
～8.10	248	236
～9.13	345	321
～10.26	204	196
～11.24	69	61
～12.20	180	65

表2 雪捕集量の比較試験 (谷地頭小学校 '82.1.21～2.21)

装置	デポジットゲージ	100ℓポリバケツ	円筒形雪採取装置 (ブリキ製)			
			a	b	c	d
内径 cm	29.6	51.8	70	50	30	10
高さ cm	14	70	100	100	100	100
貯水量 ml	3,340	12,300	21,350	11,450	4,095	337
降水量 mm	48.6	58.4	55.4	58.3	57.9	42.9

Org-N>NH₄-N>NO₃-Nの順となった。湖岸部の2地点でOrg-Nが高い原因として、同地区一帯が畑作地帯であることから、風による土壌の舞い上がりや農作物等の枯死による大気中への回帰などが考えられよう。Org-NはNO₃-N、NH₄-N等に比較し操作が繁雑であるため分析例の少ない項目であるが、今後大いに検討されてよいと思われる。

次にリンを溶解性と不溶解性に区分してみると、3地点とも後者のほうが高く、その割合は谷地頭小>舟ヶ沢小中>作田ダムの順となり、有機態窒素と同じ挙動を示した。

次に降水量と窒素及びリン濃度の関係を見ると、両者とも降水量が少ないほど高濃度でその関係は双曲線に近いことから、降水による窒素及びリンの降下量はほぼ一定であると推定される(図4・5)。

3.3 窒素及びリンの降下量

降雪の関係から小川原湖流域の3地点の中で年間調査が実施できたのは、谷地頭小学校だけであった。同地点における単位面積当たりの降下量は、窒素77.1kg/km²・月、リン6.95kg/km²・月となり、小川原湖に直接負荷される窒素及びリンは、それぞれ58.5t/年、5.27t/年と見積られた(図6・7)。

降雪のため冬期間欠測となった作田ダム及び舟ヶ沢小中学校と谷地頭小学校の降下量が、ほぼ同じ値となっていることが注目される。特に降下量が山間部の作田ダムにおいて、降水中の窒素及びリン濃度が低いにもかかわらず、他の2地点と同じ程度となったことは興味深く、今後の広範囲な調査に期待したい。

表3 大気降下物の分析結果

		作田ダム	舟ヶ沢小中	谷地頭小
溶解性 COD	平均 mg/l	1.3	1.7	3.0
	最大 "	2.4	4.2	10
	最小 "	0.5	0.6	1.4
	降下量 kg/km ² ・月	275	151	199
窒素	平均 mg/l	0.472	0.813	1.38
	最大 "	1.71	6.98	4.39
	最小 "	0.21	0.21	0.59
	降下量 kg/km ² ・月	78.5	66.6	80.1
形態別	NH ₄ -N mg/l	0.201	0.311	0.415
	NO ₃ -N "	0.128	0.183	0.246
	溶解性Org-N "	0.073	0.157	0.308
	不溶解性Org-N "	0.070	0.161	0.413
リン	平均 mg/l	0.039	0.073	0.234
	最大 "	0.198	1.16	1.46
	最小 "	0.005	0.014	0.032
	降下量 kg/km ² ・月	5.9	6.2	6.5
形態別	溶解性 mg/l	0.016	0.010	0.033
	不溶解性 "	0.023	0.063	0.201
降水量	平均 ℓ/月	11.97	5.67	4.33
	最大 ℓ/期間	23.75	14.78	10.67
	最小 "	1.43	0.11	0.43

水質は加重平均値である。

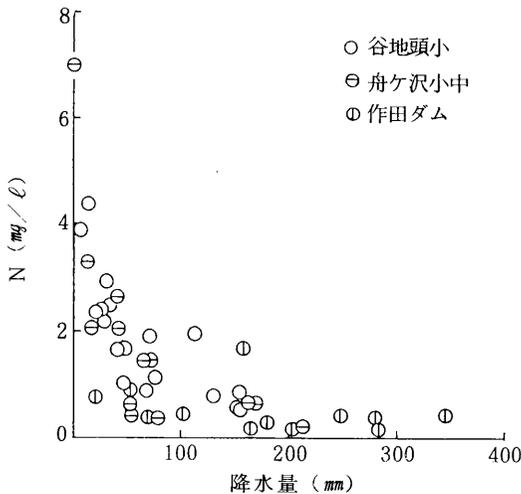


図4 降水量と窒素の関係

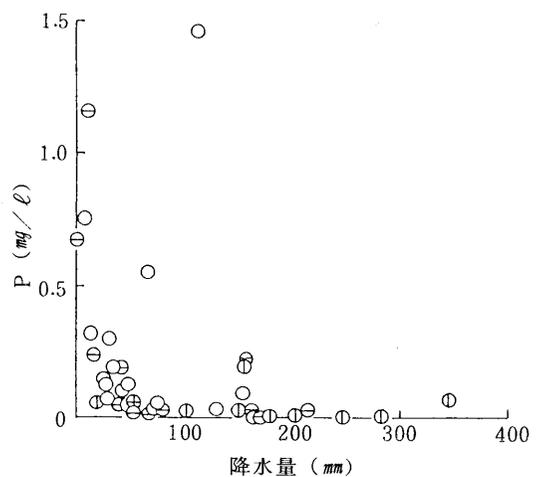


図5 降水量とリンの関係

表4 小川原湖流入河川の負荷量

	COD g/s	T-N g/s	T-P g/s
七戸川	43.65	17.44	0.389
砂土路川	24.68	11.32	0.347
土場川	8.88	2.44	0.076
姉沼川	8.10	3.78	0.122
赤川	5.41	3.38	0.075
花切川	2.54	1.25	0.052
中津川	2.00	0.75	0.021
計	95.26	40.36	1.082

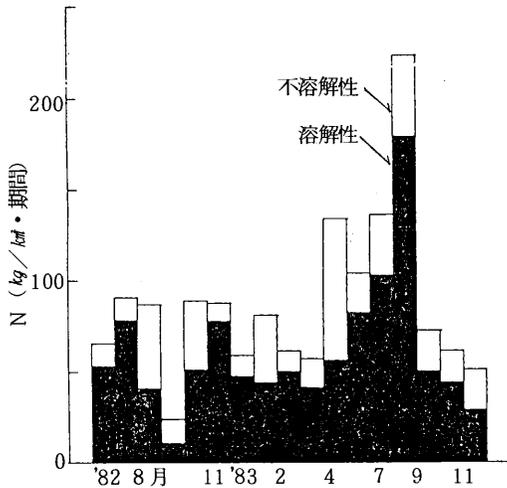


図6 期間ごとの窒素降水量

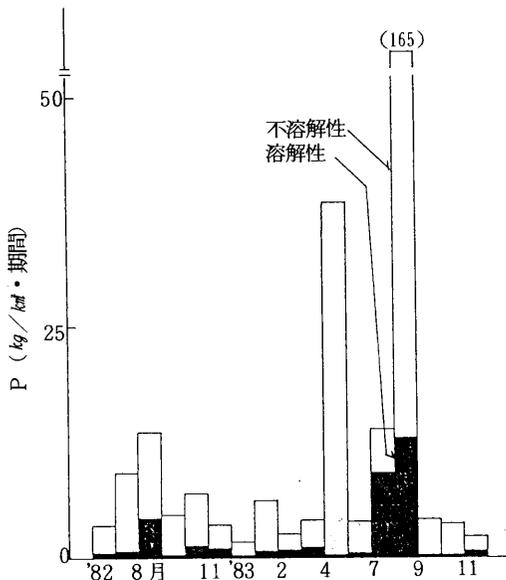


図7 期間ごとのリン降水量

3.4 小川原湖の総流入負荷に対する大気降下物の意義

湖沼の富栄養化の進行と大きくかかわるものとして流入負荷がある。59年度に行った小川原湖流入河川の負荷量調査で得られた値は、窒素1260 t/年、リン33.6 t/年であった(表4)。同湖の総流入負荷量に対する大気降下物として直接同湖に負荷される窒素及びリンの割合は、それぞれ4.4%、13.5%と算定された。

湖沼の富栄養化に及ぼす大気降下物の影響は、流域面積が大きく人為汚染の比較的小さい小川原湖においては重要な意義を持つ。今後集水域での大気降下物の挙動を明らかにすることが必要と思われる。

文 献

- 1) 吉村賢一郎, 西河昌昭: 大気降下物負荷量調査(第1報) 長崎県衛生公害研究所報25 97~101 (1983)
- 2) 安部喜也, 横内陽子, 大槻晃: 大気降下物中の栄養塩量について国立公害研究所研究報告6 79~83 (1979)
- 3) 小林隆: 降水の富栄養化に関する考察(I), 公害と対策 12, 11, 1-8 (1976)
- 4) 小林隆: 降水の富栄養化に関する考察(II), 公害と対策 13, 1, 30-36 (1977)
- 5) 寺部本次: 大気汚染測定法の実際 - 化学分析を中心とした - 技報堂 (1969)
- 6) 環境庁編: 分析の自動化に関する研究(酸性雨測定方法) 昭和57年度環境庁委託業務結果報告書, 1~132 (1983)
- 7) 青森県環境保健部編: 公共用水域水質測定結果 (1983)

新井田川上流部における高 pH 現象

庄司 博光・野呂 幸男・小山田久美子
野田 正志・山崎喜三郎*・早狩 敏男**

1 はじめに

新井田川は、河口からおよそ2 kmの流域に約80の水産加工工場を始め、セメント工場、住宅団地が立地している上に、河口部には第一工業港を抱き、干満の影響を強く受けるため、河口部での水質変動が大きく、本県では、汚濁の進んだ河川として位置づけられている。

昭和59年6月7日、これらの人為汚濁が少なく、比較的良好な水質が維持されていると思われた上流部において、pHが上昇する現象が認められた。河川のpHを上昇させる因子として、工場・事業所からの高アルカリ液の排出、植物プランクトン類による生物作用の影響等が考えられたので、原因究明のための細密調査を行った。

2 調査内容

2.1 経緯

昭和59年6月7日、公共用水域の測定計画に基づき新井田川の水質調査を行ったところ、上流部の鷹ノ巣橋において、午前・午後の調査とも高 pH 値を示し、翌日未明には平常値となっていることが確認された。

この pH 上昇現象は、鷹ノ巣橋から県境付近の上流部まで観察されたので、岩手県二戸保健所が県境以南の上流部の調査を行う6月13日に合わせて、原因究明の調査を実施した(図1及び表1)。

2.2 採水日時

昭和59年6月13日午前5時から午後10時まで1時間ごとに採水した。

2.3 採水地点

新井田川巻橋(図1)

2.4 調査項目

水温、溶存酸素(DO)、pH、フェノールフタレインアルカリ度(P-アルカリ度)、総アルカリ度(T-アルカリ度)、導電率(E.C)、全窒素(T-N)、全リン(T-P)、リン酸態リン(PO₄-P)、クロロフィルa(Chl. a)

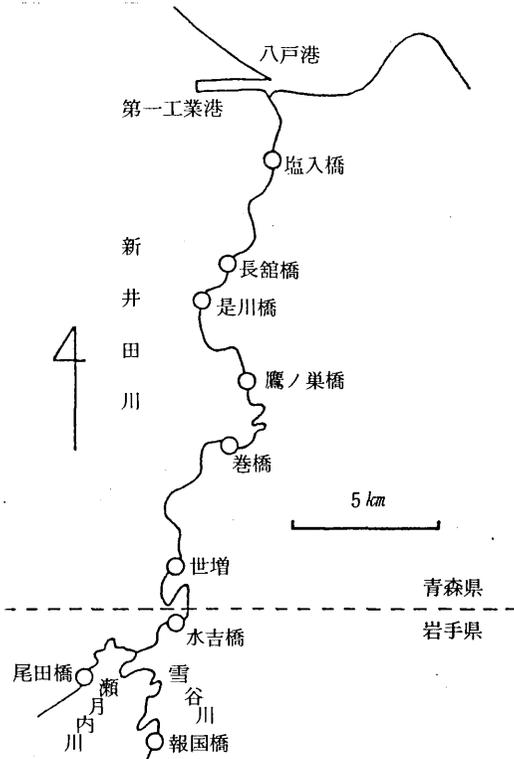


図1 調査地点

* 現五所川原保健所 ** 現むつ保健所

表1 地点ごとの水質概況

地点	日時	水温 (°C)	pH	DO (mg/ℓ)	DO飽和率(%)
塩入橋	6.7 10:45	19.5	7.6	7.3	82
長館橋	〃 10:20	19.5	7.9	8.8	99
是川橋	〃 10:10	19.0	8.3	10.4	115
鷹ノ巣橋	〃 10:00	18.5	8.7	10.6	116
〃	〃 16:30	22.0	9.7	—	—
〃	6.8 4:50	19.0	7.8	—	—
巻橋	〃 10:45	19.0	9.4	12.2	135
〃	〃 20:45	18.5	8.1	8.0	88
世増	〃 11:00	18.5	9.0	11.2	123
水吉橋*	6.13 10:46	19.6	9.2	10.0	112
尾田橋*	〃 10:20	19.8	9.4	11.0	124
報国橋*	〃 11:15	20.2	7.9	9.2	104

* 岩手県二戸保健所による測定値

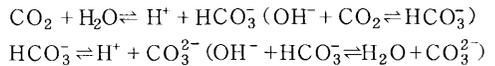
3 結 果

- 1) DOは水温の上昇にもかかわらず11時頃まで上昇を続けた後、ほぼ一定値を保っていたが、16時から低下した。
- 2) DO飽和率はDOと同様な挙動を示し、早朝から夕方まで過飽和状態となった。
- 3) pHはDO及びDO飽和率より少し遅れた経時変化を示し、正午から午後にかけて最高値に達した。
- 4) 試料を5分間煮沸し、溶存している炭酸ガスを揮散させた時と、15時間暗所に放置し大気と平衡状態にした時のpHは、それぞれ9及び8前後でほぼ一定値を示した。
- 5) E.C及びT-Nの経時変化は認められず、ほぼ一定していた。
- 6) T-アルカリ度に経時変化はないが、P-アルカリ度はDO、pHに類似した経時変化を示し夜間で0 mg/l、日中には7.0 mg/lになった。
- 7) T-PとChl. aは比較的類似した変化を示した。PO₄-Pは低濃度であった。

(以上、表2及び図2)

4 考 察

- 1) 直接的なアルカリ分流入の影響を知ることができるT-アルカリ度とE.Cに経時変化がみられないことから、日中のpH上昇現象は、人為汚濁によるものではないと考えられる。
- 2) 自然水のpHは、含まれている各種の塩類、遊離炭酸やまれには鉱酸、有機酸などによって左右されるが、一般には遊離炭酸と炭酸塩の割合によって決まり、水中では次のような平衡が成立している。



つまり、溶存している炭酸ガスが増加すれば平衡が右に移行し酸性に傾いてpHが低くなり、逆に、水中の遊離炭酸が消費、揮散されるとpHが上昇する。

今回のpHとDOの経時変化は、日中に、水中の遊離炭酸が消費されたためpHが上昇し、同時に酸素が供給されて過飽和状態になったものと推定される。

以上のことから、今回の現象は、藻類の増殖に伴う炭酸同化作用による現象と考えることができる。このことは、5分間煮沸し溶存している炭酸ガスを揮散させた時

表2 調 査 結 果

採水時間(時)	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	16	17	18	19	20	21	22	
気 温(°C)	13.0	16.0	19.2	22.0	24.5	25.5	29.0	29.2	28.7	26.0	25.0	24.0	22.0	21.0	19.0	18.0	16.0	
水 温(°C)	17.5	17.5	17.8	18.2	19.0	20.0	20.8	21.3	22.3	23.0	23.0	22.2	21.5	20.5	20.0	19.5	19.2	
流 量(m ³ /秒)	2.88	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	3.18	-	-	
DO (mg/l)	7.8	8.3	9.6	10.0	10.3	10.6	10.8	10.8	10.6	10.6	10.6	9.4	9.1	9.0	8.3	7.8	7.8	
DO飽和率(%)	84	89	104	109	114	120	124	125	125	126	126	111	106	103	9.4	87	87	
pH		7.7	7.8	7.8	8.1	8.5	8.8	9.0	9.3	9.2	9.3	9.3	9.3	9.2	9.1	8.5	7.9	7.6
pH*		9.1	9.3	9.2	8.9	9.0	9.3	9.2	9.2	9.1	9.2	9.3	9.3	9.3	9.2	9.1	9.0	
pH**		7.9	7.9	7.9	7.9	7.9	7.9	7.9	8.0	8.0	8.2	8.3	8.2	8.1	8.1	8.0	7.9	
P-アルカリ度(mg/l)	0	0	0.5	1.0	2.0	2.0	2.5	3.0	4.0	5.0	7.0	7.0	4.5	4.0	2.0	0	0	
T-アルカリ度(mg/l)	32.5	34.0	34.0	33.0	34.0	34.5	33.5	34.0	33.5	34.0	34.0	34.5	33.5	35.0	36.0	35.5	35.5	
E.C (µS/cm)	157	157	157	157	158	159	159	158	156	157	156	155	155	157	160	161	161	
T-N (mg/l)	1.9	1.9	2.0	1.9	1.9	2.1	2.2	2.1	2.0	2.0	1.8	1.8	1.8	1.9	2.0	1.9	2.0	
PO ₄ -P (µg/l)	5	5	<5	5	5	5	<5	9	7	<5	5	10	13	9	6	6		
T-P (µg/l)	26	30	29	120	23	27	37	52	50	35	29	29	36	50	27	24	30	
Chl. a (µg/l)	12	27	11	12	15	10	13	10	9.2	7.6	5.6	4.5	7.4	3.1	2.8	5.5	16	

日出：4時30分

日没：18時20分

pH*：5分間煮沸後のpH

pH**：15時間暗所に放置した後のpH

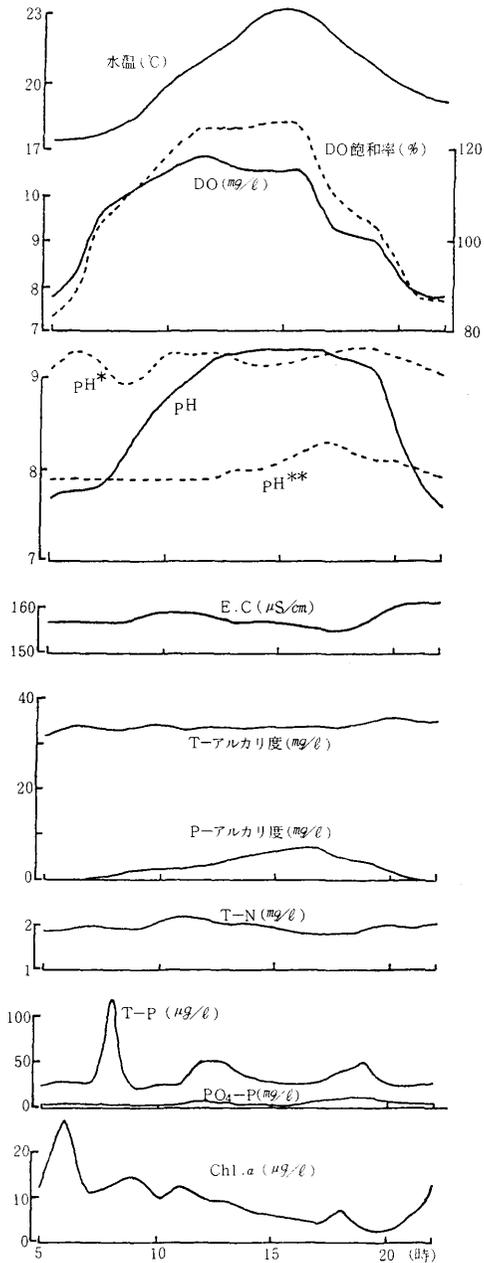


図2 巻橋における水質の経時変化

の pH 値が、正午から午後にかけて観察された最高値とほぼ等しくなったことから裏付けられる。夜間には、藻類の呼吸作用により、DO が消費され遊離炭酸が増加して pH が低下したと考えられる。

3) pH が DO 及び DO 飽和率より少し遅れた経時変化を示しているのは、河川水中の溶解物質による緩衝能力のためと推定される。また、日没後においても高 pH 値が観測され、21 時以降に平常値に戻っているのは、上流域における藻類の活発な活動で高 pH となった水が流達したものと考えられる。

4) 川床の石の表面から採取した付着藻類のクロロフィル *a* は 470 mg/m^2 であり、日本の河川における付着藻類のクロロフィル現存量 $100 \sim 200 \text{ mg/m}^2$ より大きい値であった。

5 ま と め

昭和59年6月、比較的良好な水質が維持されていると思われた新井田川上流部において、pH、DOが上昇する現象が確認された。

原因究明の調査を行った結果、本河川上流部は、河床に岩盤や礫が多く、藻類が付着しやすい環境にあったことに加え、数日来降雨がなく晴天、高水温が続いたために、河床に付着藻類が繁茂し、その日中の活発な炭酸同化作用により、pHが上昇しDOの過飽和を招いたものと考えられる。

文 献

- 1) 有賀有勝：水界植物群落の物質生産Ⅱ，共立出版，30-38（1973）

いわしの荷揚げに伴う港湾の汚濁

野呂 幸男・奈良 忠明・庄司 博光
 小山田久美子・山崎喜三郎*

1 はじめに

八戸港は、全国でも有数の漁港であり、盛漁期には1日に1万トンに達する魚が水揚げされる。水揚げの大半は多獲性のサバとイワシであるが、近年後者の占める割合が多くなり、昭和58年は全水揚げ量の約5割となった(図2)。

イワシから出る血水は、原魚の約1割であるが、水揚げ時にその大半が魚市場一帯に流入し、海が赤褐色を呈するようになる。

ここでは、イワシを始めとする魚の荷揚げに伴う港湾の汚濁状況と環境保全上の対策について報告する。

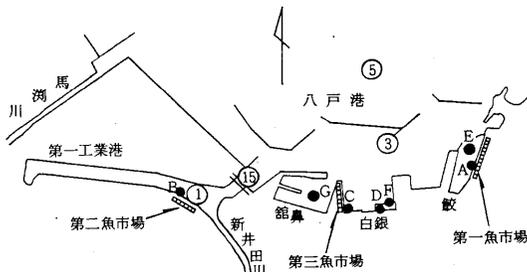


図1 八戸港略図

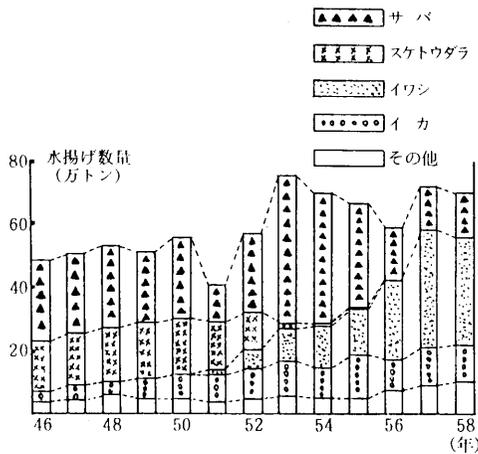


図2 八戸港の水揚げ数量の推移

2 経過

水揚げされたイワシはトラックで市内の水産加工場や化学工場などへ運ばれるが、

- (1) 血水による道路の汚れや悪臭などの苦情が発生したため、昭和56年に血水流出等の防止を図る目的から八戸市生活環境保全条例が制定された。
- (2) 原魚受入れ工場では、付加価値の少ない血水は処理が難しいことから、魚市場での水切りを十分行った後にトラックで搬入するよう義務づけた。
- (3) 水質汚濁防止法では、中央及び地方卸売市場は特定施設になっているが、産地市場は除くとされているため血水発生箇所である魚市場は規制がかからない。ことなどから、荷揚げ時には集中的に血水が港湾に流入することになる。

3 港湾の汚濁状況

昭和59年7月末、市内昭和町(鮫魚港に隣接)の住民から海の汚れと悪臭に関する苦情がよせられた。

現地調査の結果、第一第二及び第三魚市場前(岩壁から採水)のCODは33~84 mg/lと非常に高く、水面は赤褐色を呈していた。また、港内の環境基準点(③地点)のCODは基準値の3 mg/lを越える10 mg/lであった。

表1 八戸港水質測定結果

採水箇所	月日	PH	COD (mg/l)	SS (mg/l)
① 第一工業港	7/30	7.8	33	54
② 第二魚市場前	〃	7.3	53	400
③ 第三魚市場前	〃	7.5	84	130
④ 白銀都市下水路前	〃	8.1	33	—
⑤ 鮫魚港	8/1	8.1	19	64
⑥ 白銀漁港	〃	8.2	10	44
⑦ 館鼻漁港	〃	8.4	9.0	39
⑧ 第一魚市場前	〃	7.5	8.8	22
⑨ 白銀前面	〃	8.6	10	30
⑩ 西防波堤沖	〃	8.5	9.2	21
⑪ 八戸大橋下	〃	7.8	6.6	24

* 現五所川原保健所

一方、陸上では、魚は魚市場の定められた場所で水切りをした後トラック輸送が行われる。水切りが十分でない場合、路上に血水がこぼれ市の条例に抵触する。そのため、残っている血水を一時的にアスファルト舗装していない砂地などに自然浸透させるので、夏期には腐敗し悪臭の発生要因となっている。

4 血水の海域へ与える影響

環境水質へ及ぼす血水の影響度を推定するため、八戸前面海域に流入する総負荷量に対する血水の割合を試算した(表2)。算定にあたっては以下の3点を条件とした。

- (1) 範囲を相坂川河口右岸から蕪島北端に至る陸岸の地先海域とする。
- (2) 1日あたりの水揚げ数量を2,517トンとし、血水の発生率を10%とする。
- (3) 血水のCOD濃度を5,000mg/lとする。

その結果、血水は全負荷量の3.5%となった。

血水の影響範囲を八戸大橋左岸から蕪島北端に限定した場合、その割合は相当大きくなることが予想される。

表2 COD負荷量

区 分	負 荷 量 (トン/日)	割 合(%)
血 水	1.3	3.5
生 活 排 水	1.3	3.5
産 業 排 水	22.0	58.6
河川からの負荷量	12.8	34.1
そ の 他	0.1	0.3

5 関係機関の取組み状況

- (1) 八戸市衛生課

昭和56年9月に八戸市生活環境保全条例を制定し、道路における血水流出等の防止(第7条)を図っている。

同条例は昭和57年1月に施行された。

- (2) 八戸海上保安部

- ① 水切り(30秒程度)は必ず魚倉内で行い、岩壁を伝って血水が港内に流れ込むことのないようにすること。

- ② 魚倉内に残った血水や魚倉内浄水を港内で排出しないこと。

などについて定め、港内の監視及び指導にあっている。

- (3) 八戸市魚市場管理事務所

毎年、9月からの盛漁期を前に、市・八戸警察署・八戸海上保安部を始め生産者・卸売・仲買い・トラック業者などを集めて盛漁期対策対合せ会議を開いている。

昭和59年は、次のことについて申し合わせた。

- ① イワシを水揚げする際は30秒以上水切りを徹底する。
- ② 運搬車輛の荷台には完全にシートをかけること。
サバ・イワシの積載車は第一魚市場の指定場所以外に止め置きしないこと。

6 おわりに

関係機関の取組みは、路上での血水による汚れや悪臭の発生を減少させた。しかし、一方では血水を荷揚げ箇所に集中させることになったため、港湾の汚濁が恒常的なものになりつつある。

根本対策として

- (1) 排水処理施設を導入して血水を処理すること。
- (2) 血水を船倉に一時貯留し、荷揚げ終了後沖合いに投棄すること。

などの方法について関係機関で検討を行っているが、経費負担等の問題から実現に至っていない。

現状のままでは、昭和57年新井田川で発生したハゼの大量へい死のような事態を再び招くことも想定されるので、魚市場を青森県公害防止条例に定める汚水関係施設に追加し規制指導することが検討されてよい。

微量砒素の自然環境下における形態変化例

原子 昭・奈良 忠明・野呂 幸男・小山田久美子
野田 正志・庄司 博光・山崎喜三郎*

1 緒 言

生物の源は自然環境である。地球の領域に賦存する諸元素は、様々の形で生物に取り入れられ、地質時代的な進化の過程で利用されてきた筈である。

砒素に対するこれまでの一般的な評価は、そのたどってきた歴史的な背景から必須金属としてとらえておらず、有害性の側から検討されることが多かった。砒素の毒性が化学形態によって差のあろうことは前々からいわれてきたが、微量砒素の形態分別や検討が行われ始めたのはここ数年來である。

ヒトは、飲料水中1ppm前後の無機砒素を継続的に摂取することにより慢性中毒になるが、砒素がより高濃度である海産物を日常的に食用に供しても健康被害を起こすことはない。このことは、砒素を単に総砒素として扱うべきでないことを示している。

技術的進歩は、自然界における微量元素の動態がこれまで考えられていたよりも桁違いに複雑であることを教え、有害性金属のいくつかを必須のものに変えている。自然環境中の微量砒素は、環境との均衡を保ちながら形態を変え、絶えることなく循環を繰り返すのであろう。

以下は、形態別微量砒素の動態を示すいくつかの身近な例である。

2 試料と方法

2.1 試料

湖水；十和田湖の公共用水域採取地点No.8について採取した深度別試料である。個々に凍結保存し、用に際して解凍、東洋No.5濾紙で濾過する。濾液の50mlに、特級水酸化ナトリウム粒を0.5Nの濃度になるよう加え、85～95℃湯浴しながら3時間加熱分解。冷後、金属分析用塩酸溶液で中性近くまで中和、適宜メスアップした。

河川水；新井田川巻橋地点の表層水で、6月の晴天が続いた一日について、6:00～22:00の間経過時間毎に採取した。処理方法は前湖水試料と同様である。

ヒト尿；海産食品を3日間摂取せず、ホンダワラ

* 現五所川原保健所

(*Sargassum enerve*, 青森県深浦産)の抽出液を経口摂取(総砒素量550 μ g)し、経過時間毎の尿を全量採取した。ホンダワラの抽出液は、40℃の温水中に6時間放置、時々振とうして得た。抽出液中総砒素濃度は、5.5 μ gAs/ml無機態砒素79%、メチル態砒素21%である。

2.2 分析方法

試料中の砒素を反応槽内で還元気化し、得られた水素化砒素を一旦コールドラップで捕捉する。常温に戻すことによって加熱石英管に導き、沸点差で分別された砒素を原子吸光法で定量^{1,2)}した。還元剤には水素化ホウ素ナトリウムを用い、その10%溶液2mlを反応槽に注入した。コールドラップは、石英綿を充填したU字管を液体窒素槽に入れた。加熱石英管は、径9mm、長120mmの円筒形で、カンタル線を巻き、測定時950℃前後に加熱する。キャリアガスとして、ヘリウムの0.5 ℓ /minを流す。原子吸光装置はジャーレルアッシュAA-1型である。

砒素のピークは、無機態砒素、メチルアルソン酸(MAA)、ジメチルアシン酸(DMAA)、トリメチルアルシン化合物(TMA)に分別される。無機態砒素の分別は、反応槽内のpH値を1.0～2.0にすることによって無機態砒素が、3.5～4.0にすることでAs(V)がそれぞれ第1ピークに出現する。As(III)は、無機態砒素からAs(V)を減ずることによって得られる³⁾。

3 結果と考察

3.1 湖水における無機態砒素の動態

鉛直分布において、As(III)が100～200mの深度で比較的高濃度を示した。5、8、11月の各月に共通した態度である。As(III)の総砒素に対する割合は、同様に100～200mの深度で高い傾向があった(図1)。250mの深度になると、As(III)は100m以浅の濃度と近い値を示す。

十和田湖内のどこかにゆう水があろうことは、これまでしばしば話題になっていたけれども、ゆう出個所について限定されたことはなかった。本調査地点は湖内でもっとも深く、湖岸に比較的近い急崖である。化学成分についていくつかの項目を観察したが、濃度の上で深度別に顕著な変

化はみられなかった。生活環境的にはともかく、地球化学的にゆう水と湖水の関連を検討する上で、こうした微量無機砒素の動態は興味深い。

一般に、天然湖における湖水中砒素は低濃度で、総砒素として $1 \times 10^0 \mu\text{g}/\ell$ オーダーが普通である。貧栄養湖では無機態砒素が殆んどを占めるが、微量の上に形態別を行うことは、分析技術上の問題から最近まで取り上げられたことはなかった。

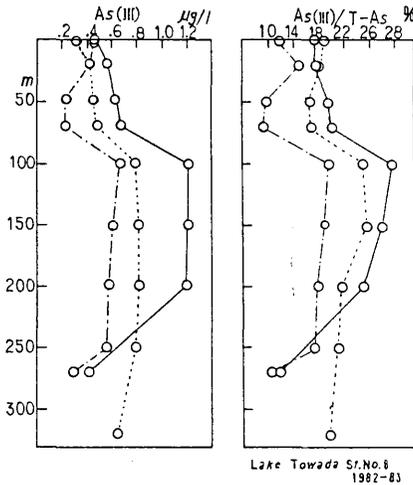


図1 湖水中砒素の鉛直分布における動態

地表水は As (V) の割合が高く、地下水ではそれが処女水的である程 As (III) が高濃度である場合が多い。無機態砒素の鉛直分布において、100~200mの深度に As (III) の比較的高濃度部分がみられ、類似の傾向が月別に認められることは、地下ゆう水の存在と箇所をうかがう資料として有効であろう。

3.2 河川水におけるメチル態砒素、特にジメチル砒素の産生

河川水の pH 値が異常を示すことは、人為汚染による直接被害を含めて、生活環境上憂慮すべき事態と受けとめられるおそれがある。それが公共用水域である場合は特に注意が向けられてよい。本例は、植物プランクトンの発生により pH 値がアルカリ側に傾いた現象である。

pH 値の異常は、晴天が続いて水量が減少ぎみのところに、農業用水の需要があり、天候、水質の諸要素の一致によって植物プランクトンの増殖がうながされたとみられる。優占種として、ナガケイソウ (S. ulna)、チャヅツケイソウ (Melosira varians) の外、数種の珪藻類が河床の石や河岸に付着した。

河川水の pH 値は、日が昇り時間の経過と共に高く推移し、日没には平常値に戻る。pH 値と共通の動きをみせたのは水温と DO で、プランクトンの繁殖活動を裏付けた。

メチル態砒素の DMA A は、pH 値の動きと殆んど平衡関係を保って、日照を起点とするゆるやかな放物線を描き、日没と共に終結した。DMA A を含むメチル態砒素の対総砒素割合は、経過時間と共に高比率で終始した。プランクトンの生活活動が終った日没後もメチル態砒素の比率は高く、産生されたメチル態砒素が河川水中に残留することを示している (図2)。

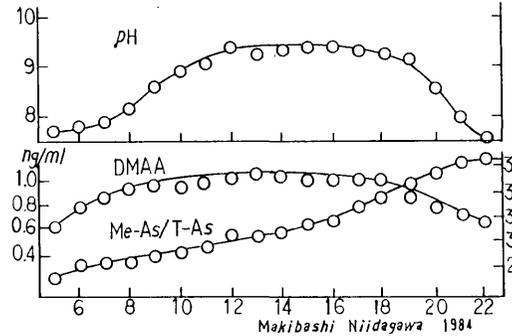


図2 プランクトン発生に伴う河川水中メチル態砒素の変化

植物プランクトンや動物プランクトンが、無機態砒素をメチル化するであろうことは、海洋生物における食物連鎖関連研究の中で主張^{4~7)}されている。淡水植物プランクトンが、繁殖活動の中で DMA A を産出する事例は、海性のみならず、陸性のプランクトンにおいても自然環境下で砒素のメチル化が行われることを示唆した。

3.3 尿中砒素代謝物、特にトリメチル砒素の動態

経口摂取に用いたホンダワラ抽出液中砒素は、無機態砒素79%とメチル態の DMA A 21%であり、摂取量は550μgになる。尿にみられる排泄砒素は、摂取後1時間目に出現し、ピークは、無機態砒素で2~4時間目に、TMAで8~10時間目に現われる。20時間を経過した頃、無機態砒素は摂取前の状態に近づき、TMAはそれより遅れて48時間後に元のレベルになった。経口摂取に対する対応は速やかにして鋭敏である。

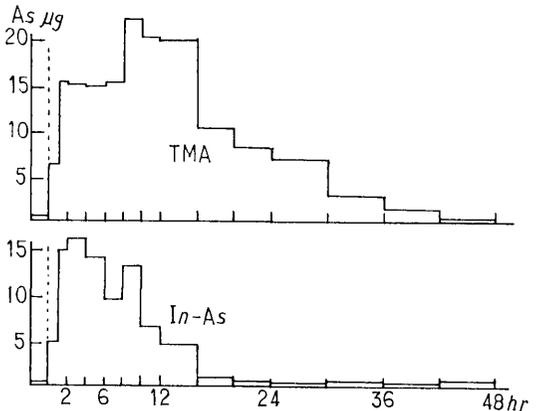


図3 海藻経口摂取後(550μg As)における尿中砒素の動態

無機態砒素が低レベルになった後も、TMAの排泄が24時間或いはそれ以上に亘って続いていることは、無機態砒素の体内代謝が継続して行われていることを示す。また、摂取材料中メチル態砒素が、DMAAのみであるにもかかわらず、尿中にTMAが検出されることは、無機態、メチル態の両砒素の代謝が行われていることを示唆する。

ウンやイヌに無機態砒素を経口的に与え、尿中にメチル化した砒素を見出した報告⁸⁾は、哺乳動物における砒素の代謝が日常的に行われていることを示している。生体内での砒素の代謝が短時間でされることは、無機態砒素の解毒化が速やかであると同時に、体内に砒素を低抗なく、或いは積極的に受け入れて利用していることも考えられる。臓器に対する直接的な作用か、酵素の一部に組み入れられるのか、触媒として働くかなどは今後に待たれる。いずれにしても、微量砒素が形態別にヒトを含む生物の生理に關与していることは疑いない。

4 総 括

- 1 生活環境における微量砒素について、形態別の動態例を観察した。
- 2 湖水の、鉛直分布におけるAs(III)とAs(V)濃度が深度によって変化することから、地下ゆう水の存在と個所を考える上で因子となり得ることを示唆した。
- 3 河川における植物プランクトンの繁殖過程で、メチル態砒素のDMAAが産生され、海性プランクトンのみならず、淡水性でも砒素のメチル化が起きることを明らかにした。
- 4 海藻抽出液を経口摂取することによって、尿中にメチル態砒素のTMAを経時的に検出した。尿にみられる砒素への対応は鋭敏かつ速やかで、ヒトの体内において無機態やメチル態砒素が代謝されるとの主張を支持する。
- 5 自然環境における砒素の動態や生物とのかかわり合いは、これまで考えられていたよりも一層高度かつ複雑である。砒素を単に総砒素としてとらえ評価することは、見直されてよい。

文 献

- 1) Braman, R.S. and Foreback, C.C.: Methylated forms of arsenic in the environment, *Sciencs*, **182**, 1247-1249 (1973)
- 2) Braman, R.S.: Separation and determination of nanogram amounts of inorganic arsenic and methylarenic compounds, *Anal. Chem.*, **49**, 621-625 (1977)
- 3) 原子 昭: 恐山火山地域を中心とした自然環境における砒素の挙動, 弘前医学, 投稿中, (1985)
- 4) Lunde, G.: The synthesis of fat and water soluble arseno organic compounds in marine and limnetic algae, *Acta Chem. Scand.*, **27**, 1586-1594 (1973)
- 5) Bottino, N. R., Cox, E. R., Irgolic, K. G., Maeda, S., McShane, W. J., Stockton, R. A. and Zingano, R. A.: Arsenic uptake and metabolism by the alga *tetraselmis cbui*, *ACS Symp, Ser.*, **82**, 116-129 (1978)
- 6) Wrench, J., Fowler, S. W. and Unlu, M. Y.: Arsenic metabolism in a marine food chain, *Mar. Pollut. Bull.*, **10**, 18-20 (1979)
- 7) Irgolic, K. J., Woolson, E. A., Stockton, R. A., Newman, R. D., Bottion, N. R., Zingaro, R. A., Kearney, R. C., Pyles, R. A., Maeda, S., McShane, W. J. and Cox, E. R.: Characterization of arsenic compounds formed by *daphenia magna* and *tetraselmis chuil* from inorganic arsenate, *Environ, Health Perspect.*, **19**, 61-66 (1977)
- 8) Lasco J. U. and Peoples S. A.: Methylation of inorganic arsenic by mammals, *J. Agric. Food Chem.*, **23**, 4, 674-676 (1975)

学 会 等 研 究 発 表

名 称	年 月	題 名	共同研究者 (○印発表者)
第18回水質汚濁学会	59. 3	生活雑排水の汚濁負荷と大腸菌	○奈良忠明・小山田久美子・原子 昭
日公衛誌	59. 8	陸水中砒素の化学形態	○山内 博・山村行夫(聖マリアナ医大)・原子 昭
第10回北海道・東北ブロック公害研究連絡会議	59. 9	大気降下物の性状と湖沼の富栄養化	○奈良忠明・小山田久美子・野田正志・早狩敏男
	〃	紫外線吸光光度法による海水の全窒素測定(共通課題討論)	○庄司博光
	〃	スパイクタイヤによる環境問題について(共通課題討論)	○阿部征裕
	〃	湖沼の富栄養化問題について	○奈良忠明
第28回全国環境衛生大会	59.10	北国におけるオキシダント濃度の特性	○梅原 茂
	〃	北海道・東北におけるスパイクタイヤ公害調査方法の現状と今後の課題	○阿部征裕
	〃	道路粉じん調査結果について	○今 武純(青森県公害調査事務所) 阿部征裕
	〃	水産加工場における回分型活性汚泥処理と現況	○山崎喜三郎・奈良忠明・野田正志・小山田久美子・早狩敏男・田中 稔
	〃	汚染指標細菌について —八戸港を例として—	○小山田久美子・奈良忠明・石田平四郎
	〃	(講演) 環境中の有害物質(ひ素の挙動について)	○原子 昭
	〃	疾病型重合汚染における大気汚染濃度の評価に関する検討 —拡散パラメータの決定と重合汚染濃度の推定—	○吉田 毅・早狩 進・松尾 章・高橋昭則・原子 昭
第20回青森県環境保健部職員研究発表会	60. 1	北国におけるオキシダント濃度の特性(その2)	○梅原 茂・吉田 毅・工藤真哉
	〃	大気汚染観測網 —八戸市内における測定局の関係—	○高橋昭則・吉田 毅・梅原 茂
	〃	有害物質を含まない試薬を用いる分析方法の検討(その1) —降水中のCl ⁻ イオンの測定—	○鈴木寿秋・成田忠義・工藤真哉
	〃	いわしの荷揚げに伴う港湾の汚濁	○野呂幸男・奈良忠明・庄司博光・小山田久美子・山崎喜三郎
	〃	化製工場排水の水質と汚濁負荷	○早狩敏男・奈良忠明・小山田久美子・野田正志・山崎喜三郎
	〃	新井田川上流部における異常 pH 現象	○庄司博光・山崎喜三郎・野呂幸男・野田正志・小山田久美子・早狩敏男
	〃	大気降下物の性状と湖沼の富栄養化	○奈良忠明・早狩敏男・小山田久美子・野田正志・山崎喜三郎・原子 昭
	〃	これからの地公研の役割	○原子 昭

名 称	年 月	題 名	共同研究者 (発表者)
第11回北海道東北ブロック公害研究連絡会議	60.10	(共通課題討論) スパイクタイヤによる環境問題	○阿部征裕
	〃	(共通課題討論) 湖沼の富栄養化問題	○奈良忠明
第26回大気汚染学会	60.11	北国におけるオキシダント濃度の特性 —八甲田田茂嶺岳山頂でのO ₃ 測定結果—	○梅原 茂・早狩 進・吉田 毅・原子昭・溝口次夫 (国立公害研究所)
弘前医学	〃	恐山火山地域を中心とする自然環境における砒素の挙動(その3) 土壌中の砒素	○原子 昭
第12回環境保全公害防止研究発表会	60.12	道路粉じんにおけるアスファルト舗装材等の寄与率算出の検討	○阿部征裕・鈴木寿秋・原子 昭・高橋昭則
	〃	十和田湖の水環境 —鉛直構造—	○庄司博光・佐藤信博・奈良忠明・野呂幸男・小山田久美子・野田正志・原子昭
弘前医学	〃	自然環境における砒素の賦存形態と挙動	○原子 昭
第21回青森県環境保健部職員研究発表会	61. 1	県南における道路粉じん実態調査結果	○阿部征裕・鈴木寿秋
	〃	脱硫剤から発生する硫黄酸化物による局地汚染について	○工藤真哉・梅原 茂・鈴木寿秋・斉藤輝夫
	〃	船舶塗装作業におけるペンキ飛散について(苦情処理事例)	○本間秀一・吉田 毅・工藤精一・大野晴治 (八戸市公害対策課)
	〃	新井田川の水質汚濁機構について	○野呂幸男・佐藤信博・奈良忠明・根岸勝信・小山田久美子・田中 貢・庄司博光・手代森光仁
	〃	小川原湖流入河川の水質と汚濁負荷量	○手代森光仁・佐藤信博・奈良忠明・野呂幸男・根岸勝信・小山田久美子・田中 貢・庄司博光

編集委員 阿 部 征 裕
 鈴久名 昭
 庄 司 博 光
 手代森 光 仁

青森県公害センター所報

第 7 号

昭和 61 年 3 月 発行

編 集 所
発 行 所
〒031 八戸市大字河原木字北沼1の131
青 森 県 公 害 セ ン タ ー
電話 八戸(0178)28-6700

印 刷 所
〒031 八戸市大字町組町12
青 森 毎 日 新 聞 社 印 刷 局
電話 八戸(0178)43-1621
