

公害研資料

No. 14

# 横浜市公害研究所報

第 4 号

1979年12月

横浜市公害研究所

## は し が き

当研究所が発足して以来丸4年を経過し、今回始めて年度を節目とした本来的な所報を第4号として刊行することになったことを心から喜びたい。

昭和52年9月に発刊をみた創刊号は、研究所発足後の1年有余の期間の研究所草創の業務報告編であり、翌年3月には、草創を担う若き研究者の真摯な研究の成果をまとめた実質的な研究報告編を第2号として発刊し、第3号は、同53年12月に52年度後期から53年度前期における業務報告並びに研究報告を一括し、実質的な研究所所報としての形を整えたものである。

横浜市における公害現象は、かつての危機的状況を一応回避することができ、今では「空に青さが」「水辺に魚が」戻りつつあり、一部ではあるが環境基準を満足できている状況もみられてきたことは評価されよう。しかし、ひき続き解決しなければならない問題も多く、また新しい問題も発生している。横浜市における公害の発生原因は、経済低成長期にあるとはいえ、産業公害に加え都市公害が目されるようになってきた。人口の増大、都市規模の拡大などに伴う都市活動のもたらす人間社会のひずみそのものが公害要因として大きくなり、環境管理の理念の確立が重視されなければならない時代に入ったのである。

環境影響評価制度の確立、総量規制方式の導入など、科学的知見に基づく公害行政の進展は時代の要請であり、研究所の目的である社会科学と科学技術に基づく公害事象の調査研究は益々重要性を増していることは明らかである。

ここに収録した研究成果は、公害問題の横浜市における地域に密着したものが中心であるが、研究途次のものもあり、今後の研究にその成果をゆずったものもある。

現実的な問題の解決に対応しながら、基礎的研究を進め、横浜市の明日のより良き環境の保全と創造を目標とした調査研究にさらに一層の研鑽を積みかさねる所存であり、今後とも各位の御叱正を賜われれば幸いである。

1979年12月

横浜市公害研究所長

菅野明男



# 目 次

I 業務報告編	
大気部門	1
騒音・振動部門	3
水質部門	4
地盤沈下部門	7
社会科学部門	8
公害セミナー	10
II 調査研究編	
大気部門	
固定発生源から排出されるばいじんの粒度分布（第1報） —ボイラーからのばいじんの粒度分布—	13
横浜市における大気中の浮遊粒子状物質および重金属濃度の調査結果とその 主成分分析による解析	25
京浜工業地帯より排出される窒素酸化物の輸送および変質過程に関する研究（Ⅰ）	35
蒸気拡散を利用した標準ガス発生方法に関する研究	51
薄層クロマトグラフ—高速液体クロマトグラフによる大気浮遊粉じん中に含まれる 多環芳香族炭化水素分析法の検討	59
オキシダント計の精度に関する研究 —周囲の温度変動による測定値への影響について—	65
我国における沿道公害に関する調査研究の動向（1） —大気汚染—	71
騒音・振動部門	
大型コンプレッサー・ブロアを発生源とする低周波空気振動について	77
市街地の平坦道路から伝搬する道路騒音の高度別測定結果とその予測法	85
水質部門	
塩素処理による有機塩素化合物の生成	95
マスクロマトグラフィ—（GC—MS/MC）の定量分析への応用について	101
リン酸分析における硫酸の影響の検討 —最適測定時間の教学的解析—	109
固定床式活性汚泥法の検討	113
ポリビニルアルコール含有排水の処理方法の検討（第2報）	119
非イオン界面活性剤の凝集処理に及ぼす影響	129
摂餌の飼育水に及ぼす影響	135
酸素欠乏・過多、及び残留塩素曝露時におけるコイ（Cyprinus Carpio）の 鰓の形態学的変化について	143
コイ（Cyprinus Carpio）に及ぼす塩化ナトリウムの急性、亜急性影響	153
地盤沈下部門	
横浜市の地下水利用に関する調査研究 —農業用（畜産事業）井戸の利用実態について—	161
社会科学部門	
幹線道路の公害対策と住民意識 —沿道環境整備対策についての一考察—	167
III 資料編	
1. 沿革	195
2. 施設の概要	195
3. 平面図	197
4. 主要機器一覧表	198
5. 人員及び組織	199
6. 予算	199
7. 学会等研究発表及び雑誌等投稿	200
8. 図書及び雑誌目録	203
9. 横浜市公害研究所発行資料目録	204

## 大 気 部 門

### I 部門紹介

公害が社会的に初めてクローズアップされ、その対策が実施された昭和40年代を公害の第一段階とすると、今や第二段階に入ったと言えよう。大気汚染に限定して考えてみると、第一段階では、SOxのようにその対策の実施が比較的容易であったものについては、ほぼ解決がなされたと言えよう。しかしながら、今日の第二段階においては、公害問題が起きた初期からその問題性が指摘されていたにもかかわらず、その汚染実体の科学的な究明や対策が困難なため、対策が中途のままになっているものや、解決の目途のたっていないものがある。たとえば、NO<sub>2</sub>は、先の環境基準の改正によって、大巾に緩和され、新基準値は、本市の大部分の地域で満足しているのに対し、幹線道路近傍では、超えている。しかも、自動車排出ガスの道路周辺への拡散は、排出源が低いこともあって、地形・建物等の影響を受けやすく、局地的な性格によるところが大きい。このため、その汚染実体がは握されているのはごく一部にすぎない。

さらには、窒素酸化物の次の問題として粒子状物質がある。大規模のばいじん発生施設では、集じん機等により、その防止対策が実施されているにもかかわらず、本市のすべての測定局において、浮遊粉じんは、環境基準を超えている。この原因として、その発生源が、工場等の固定発生源のほか、自動車等の移動発生源、海塩粒子、土砂、花粉等の自然に由来するものと多岐にわたっているためである。このため、個々の発生源からの汚染寄与の程度も、不明のままであり、具体的な対策の目途はたっていない。これらの問題は、行政上の対策実施のための根拠として、第一に、科学的な究明が不可欠であり、公害研究所において、取り組むべき責務として残っていると見えよう。このため、当大気部門においては、これらの問題について開所以来、積極的に取り組んで来たところである。その結果、所期の成果は、徐々にではあるが着実に得られつつあると考える。

昭和53年度に実施した主な事業は、次のとおりである。

① 分析の高精度、時間的制約を要求される依頼検査に対処できるよう、質量分析計等による分析技術の質的向上をはかった。

② 先に述べた粒子状物質については、その総量規制に必要である基礎的研究を系統的に分類し、発生源と環境汚染との関係を究明する手段として、それらの粒度分布及び成分調査を行った。

③ 道路公害に関しては、NO<sub>x</sub>を中心とした、汚染物質と気象との関係等について解析を行った。

④ 大気汚染は、その影響範囲が、広域にわたり、各関係機関での共通した問題が多いため、船舶、航空機等を利用した共同調査を実施した。

以上のように大気部門で実施した主な業務の概要について述べたが、研究としては、まだ、その緒についたばかりであり、必ずしも系統的な整理がなされていない面もあり、今後、更に検討を加え、大気部門の充実をはかって行く考えである。又、当部門で実施可能な調査研究は、大気関係の公害分野で必要とするものの一部にすぎない。特に、汚染と影響の研究は、一体であるべきと考えられるが、人員的な能力の限界もあって影響に関しては、ほとんど実施できない。道路周辺における、健康影響調査は、先に述べたことから最も重要と思われるが、その調査方法が確立されていないこともあって、臨床学的に究明されていない。このように影響については、その研究が、難しいため、不明のままのものが多い。このため、今後、各専門機関との共同調査研究を進めることが重要であろうと考えている。

### II. 昭和53年度 行政検体分析結果

大気汚染に関する分析結果は、表一1のようである。また、これら調査に伴う工場立入数は63件、苦情調査は18回であった。

表一1 分析分類別検体数及び延項目数

昭和53年4月1日～昭和54年3月31日

分 析 分 類	検 体 数	延項目数
重油中の硫黄	15	15
煙道中のばいじん及重金属	14	28
煙道中の塩化水素	27	27
浮遊粉じん及び重金属	58	278
発生源の炭化水素	101	218
悪 臭	68	92
苦情（金属腐食試験等）	129	314
計	412	972



#### 1-1 重油中の硫黄分

重油中の硫黄分の分析は、燃焼管式（空気法）による精密分析法により実施した。

#### 1-2 煙道中のばいじん及び重金属

ガラス工場及び電池工場における煙道中のばいじん及びそれに含まれる重金属の分析を行った。

#### 1-3 煙道中の塩化水素

昭和52年6月16日付大気汚染防止法施行規則の一部改正ともなり、廃棄物焼却炉から発生する塩化水素の排出実態調査を実施した。処理装置を設置してあるものは、基準値  $700\text{mg}/\text{Nm}^3$  の10分の1以下であるが、設置していないものの中には、基準値の3倍程度超えているものもあった。

#### 1-4 浮遊粉じん中の重金属

工場周辺、道路近傍等における大気中の浮遊粉じん及びそれに含まれる重金属についてハイボリウムエアサンプラーを用いて採取し、分析した。

#### 1-5 発生源の炭化水素

昨年度に引き続き、本市の「炭化水素物質の蒸発防止設備等設置指導要綱」に基づく指導、調査の一環として、クリーニング、塗装及び印刷工場等について炭化水素の排出実態調査を実施した。

#### 1-6 悪臭

(4-1参照のこと)

#### 1-7 苦情

苦情の種類としては、大気降下物 悪臭、腐食等の直接市民が感覚的に被害を受けていると理解できるものが多かった。このうち 大気降下物については、鶴見区大黒町を中心に広域な調査を実施した。

#### 1-8 その他

その他の依頼検体として、測定機の精度試験及び酸性雨の分析等がある。

### Ⅲ. 53年度調査研究事業

#### 1. 粒子状物質総量規制のための基礎研究

現在のばいじん規制は、排出ガス中の重量濃度によって行われているが、ばいじんそのものの粒度、含有成分等については、規定がない。しかしながら、人体に悪影響を与えるものは粒径  $10\mu\text{m}$  以下の細かいばいじんといわれている。又、将来、実施されると考えられる粒子状物質の総量規制では、その拡散計算には、ばいじんの粒径分布等の項目の採用が不可欠なものである。これら重要と思われる点について、昭和57年度を目前に、大気部門では、大気課との協力のもとに、発生源から環境までの多方面にわたって研究を開始している。

#### 1-1 発生源別ばいじん調査

煙道中のばいじんを測定する方法について、従来より実施されている方法を検討した結果、アンダーセンサンプラー法が、各種の排出条件の異なる発生源に対して比較的、良好な結果を示した。

この方法を用いて、市内大手工場の大型ボイラー19ヶ所の煙道について測定を実施した。その結果、ボイラーのばいじんの粒度分布は、ほぼ2山、あるいは3山型であり、粒径  $1\mu\text{m}$  以下の微粒子が多く、又、同じボイラーであっても燃焼条件を変化させることにより、ばいじん量、粒径が異なってくる事が判明した。

#### 1-2 浮遊粒子状物質の粒度別調査及びそれに含有される重金属等の成分調査

発生源の調査(1-1)と並行して、大気中の浮遊粒子状物質の粒度別調査を実施している。その結果、季節による粒度分布の偏り、自然界からの発生と推定される現象等について知見が一部得られた。又、用途地域の異なっている市内4地点について浮遊粒子状物質の他、重金属、多環芳香炭化水素等の測定を実施し、物質別による地域汚染の特徴等について解析した。

#### 1-3 ジーゼル自動車からの黒煙排出実態調査

移動発生源から排出されるばいじん量を知るため、大気課と合同し、一部を関東学院大学に委託することにより、その排出実態の調査を実施した。

53年度は、54年度に実施する突走行のための、簡易測定法の開発及び、エンジンダイナモにより走行別の黒煙排出量を測定した。その結果運転条件、特に負荷の増加により、黒煙量が著しく増加する傾向を把握した。

#### 2. 自動車排出ガスによる道路周辺での大気汚染に関する研究

道路近傍における自動車排出ガスによる汚染を解明するため、昭和51年度より窒素酸化物を主とした汚染実態調査を実施している。

53年度は、52年度に実施した、環境大気、地形の異なる2つの調査場所のデータについて、気象等との関係について解析した。その結果、汚染物質は道路から30~40m付近までの減衰が大きく、又、気象条件により、汚染濃度が大きく左右されること等が判明した。

#### 3. 広域汚染に関する調査研究

3-1 京浜工業地帯から排出される窒素酸化物の輸送に関する立体観測（神奈川県臨海地区協議会における調査）

神奈川県、川崎市及び横須賀市と共同により、ヘリ

コプターを使用して、京浜工業地帯から排出される窒素酸化物が、上空でどのように輸送、変質するかについて調査した。

### 3-2 大気汚染物質の輸送過程に関する調査研究

沿岸域に固有な海陸循環風に伴う大気汚染物質の陸上、海上間の輸送及び変質過程を解明するため、東京湾、相模湾上において、東大海洋研究所、国立公害研究所と共同で、秋期に1週間の海上調査を実施した。調査期間中、京浜工業地帯から数10km離れた相模湾上において、NOxがあまり拡散されずに、かなり高濃度のまま輸送されている現象が観測された。又、日射により、海上ではオゾンが大量に生成され、海風によって、陸上へ輸送され、オキシダントの高濃度現象の原因に大きく寄与していることが明らかになった。

## 4. その他

### 4-1 悪臭調査

悪臭は、単一物質で臭うというより、多種類の物質が複合、相乗する場合が多く、苦情が発生した際、悪臭防止法で定める機器分析法では、問題が解決しない場合が多い。

このため、昭和53年度より、人の臭覚を利用した官能法により、大気課と合同で、発生源及びその周辺地域について調査を実施した。又、同時にガスクロマトグラフ、質量分析計による分析法の検討を実施した。

### 4-2 測定機器の精度に関する研究

現在環境測定で使用されている自動測定機のうち、過去にNOx、SOxの精度に関する試験を実施して来たが、53年度は、オキシダント計の温度影響について試験した。

その結果、現在使用されている中性ヨードカリウム法によるオキシダント計は、測定機を設置した室内の気温に影響され、1°Cの温度変化に対し約4ppbの指示値の変動があることがわかった。このため、常時監視測定小屋や、光化学スモッグ調査の際、そのオキシダント計の設置には、室内の温度変化に十分に注意する必要があるという結果が得られた。

## 騒音・振動部門

### I 部門紹介

騒音振動は、日常生活と関係が深く、その発生源も多岐にわたるため、公害に関する苦情の半数近くを占める。

道路騒音に関しては、運輸形態の変化が大型貨物自動車の急激な増加を生み、幹線道路による環境の悪化

が進み、その問題の深刻さを増している。幹線道路沿線に住む人口の割合が多いにもかかわらず、騒音低限のための自動車構造上の改造が困難であるという理由により、騒音規制法上のいわゆる「要請基準」が、環境基準と比較してかなり緩和された値となっていることは、沿線に住む人々にとって腹立たしいことにちがいない。また、行政側にしても緩和された値を安易に是とすることなく、積極的な対応をしてゆく必要がある。このような点も含め、また、その広がり程度や被害の深刻さからしても、自動車騒音は、当騒音振動部門の最大のテーマである。

また、クーラーやピアノ等による近隣騒音が社会問題として生じているが、新たな宅地開発やミニ開発の増加により、今後も減少するとは思われない。

一方、現在、法により規制されている騒音の他に、聴覚に直接感ずることのない、いわゆる低周波空気振動による被害の報告が、このところ全国各地で増えている。実際に生じる被害の現象は、ガラス戸や家具等のガタツキなどによる低周波空気振動を原因とする二次的な騒音によるものが多いとされており、人体への直接的な影響の究明は、ようやくその緒についたという状態にある。騒音規制が、一般にはA特性による聴感補正をし、低周波成分を大幅にカットした上でおこなわれているため、これまでは可聴音のレベルだけを下げることが、即、騒音対策であった。ところが、住宅地の中にも高架道路が建設され、あるいは住工混在地区における工場でも可聴音に対する対策が進み、低周波成分がとり残されるといった状況が生じるようになって、低周波空気振動が新たな問題としてとりあげられるようになってきた。この問題も、いずれは法規制の対象となる可能性が強く、また、その方向にむけて調査研究活動をすすめていくことは、地方自治体の研究所の任務であろう。

以上のように、騒音振動に関しては未解決の公害問題が多く存在するが、前述のうちの道路騒音と低周波空気振動とのふたつに焦点を合わせて51年度以来、調査研究を実施している。

## II 昭和53年度調査研究事業

### 1. 三ツ沢地区における国道1号線の騒音測定調査

一般道路としては、市内でも最大の交通量をもつ国道1号線の三ツ沢地区において、5日間連続で騒音と交通量等の測定をおこなった。騒音測定は、デジタル騒音計を用いるものと、データレコーダにデータを収録するものとの2系統でおこない、市街地での騒音分布を調査した。交通因子としては、車種別交通量と

平均車速を測定した（道路端での測定結果は、所報第3号に既報）。また、この調査では、沿線住民の自動車公害に対する意識を調べるため、標本数約1,000件を対象としたアンケート調査を同時に実施した。アンケート調査の単純集計結果は、公害資料No.10「自動車公害に関する意識調査—国道1号線三ツ沢、松本地区・1978年3月実施—（第1報、単純集計結果）」としてまとめている。

## 2. 横浜市緑区および戸塚区における道路交通騒音と交通量調査

これは、緑、戸塚の両町において、交通量の多い幹線道路だけでなく、一般市道まで含めた総合的な調査である。この調査では、騒音レベル、交通量等の他に、公害対策基本法の騒音に係る環境基準の地域別による沿道住宅戸数や道路延長距離、環境基準等の達成程度を実測と既存のデータとにより調べた。実測は、それぞれ43地点、48地点でおこない、これに既存のデータを追加した。

## 3. 大型コンプレッサ、ブローアの低周波空気振動についての調査

本市においては、低周波空気振動による公害問題が多発するという状況にはないが、すでに数件の苦情が寄せられており、今後、増加することは十分予想されるところである。このため、52年度からこの問題に取り組み、計画的に計測器、分析器の整備をすすめてきた。53年度は、低周波空気振動のさまざまな発生源のうち、工業用の大型コンプレッサ・ブローアについて調査を実施した。機械の種類、回転数、運転状況などと騒音および地盤振動のパワースペクトルとの相関等を調べた。

# 水 質 部 門

## I 部門紹介

横浜市では臨海部の大手事業場と公害防止契約を締結し、環境保全を図っている。この契約事項のうち水質に関係した事項として、魚類飼育による工場排水の安全性確認、有機アミン、有機ハロゲン両化合物の排出禁止及び法令の基準値より厳しい、COD、油分の排出基準値の設定等がある。しかし、これらの契約事項には、その技術的裏付けが不十分であるため具体的内容について提示されておらず、今後の課題としている。水質部門では、この契約の実効性を担保するため魚類指標による工場排水規制の研究及び有機アミン、有機ハロゲン両化合物の分解消長の研究を重点的に実施してきている。また、これらの研究と並行して、COD

及び油分の低濃度分析法や有機アミン、有機ハロゲン両化合物の分析法の検討も行っている。

公害防止契約に係わる研究以外のものとしては、地場産業である捺染染色業の排水処理対策として、難処理物質の処理技術の開発及び、中小企業の排水処理に相応しているかどうかという視点からの排水処理技術の評価を行っている。この処理技術の評価に当っては工場排水処理後の安全性をも評価し、その結果を処理技術にフィードバックするための研究も進めつつある。その他、夏季に頻発する魚類のへい死事故の原因の一つと言われている貧酸素水塊に係わる調査研究、富栄養化の判定方法に係わる研究等を行っている。

以上の多面的な調査研究は個別的なものではなく、我々の究極的な目標である「安全で快適な都市環境の確保」の達成に向けて収斂しており、遅々とした歩みではあるが、確実に成果を挙げつつある。

## II 昭和53年度 行政検体分析結果

昭和53年度に実施した工場排水等の行政検体の分析業務は次のとおりである。なお、行政検体数及び試験項目数は表一1、表一2に示した。

### 1. 工場立入調査に伴う検体の分析

特定事業場に対する定期立入調査は昭和53年7月、11月、昭和54年2月の3回にわたって実施し、それに伴って採取した工場排水452検体について1,387項目の分析を行った。また、公害防止契約の実施状況確認のための締結工場への立入調査に伴って採取した工場排水148検体について276項目の分析を行った。その他若干の立入調査に伴う検体を加えて合計606検体、1,682項目について分析を行った。

### 2. 環境調査に伴う検体の分析

昭和53年度に実施した環境調査とそれに伴って採取した検体数及び分析項目は次のとおりである。

#### (1) 柏尾川流域鉛調査

底質20検体、工場排水6検体……鉛、その他

#### (2) 東京湾栄養塩類収支挙動調査（環境庁委託）

工場排水30検体……窒素、リン

#### (3) 東京湾岸自治体調査

工場排水及び海水192検体……SS、COD、窒素、リン、n-ヘキサン抽出物質含有量等

#### (4) 化学物質調査（環境庁委託）

底質6検体、海水6検体……フェニルフェノール等

#### (5) 川崎市底質調査（クロスチェック）

底質14検体……PCB等

### 3. 恵比須、宝運河浚渫工事に伴う分析

昭和53年9月から昭和54年1月の間、日本鋼管(株)が



表-1 行政検体数

53年度

検体数	工場環境調査			除害施設	NKK浚渫工事に伴う分析		苦情処理	合計
	立入調査	底質	水・その他		底質	水・その他		
606	34	228	86	3	125	16	1,098	

表-2 試験項目数

53年度

	工場環境調査			除害施設	NKK浚渫工事に伴う分析		苦情処理	合計
	立入調査	底質	水・その他		底質	水・その他		
カドミウム含有量	15			47				62
総シアン含有量	34							34
鉛含有量	53	10	6	47				116
六価クロム含有量	41			47				88
砒素含有量								
総水銀含有量	6	4		40	3	64		117
PCB含有量		2						2
水素イオン濃度	272		64	46		18	5	405
生物化学的酸素要求量	99			40			4	143
化学的酸素要求量	200		64	44		16	9	333
浮遊物質	267			38		22	8	335
n-ヘキサン抽出物質含有量	226					31		257
フェノール類含有量	3							3
銅含有量	57			47				104
亜鉛含有量	91			47				138
鉄含有量	128			47				175
マンガン含有量	12			47				59
総クロム含有量	63			47				110
弗素含有量	7							7
ニッケル含有量	50			43				93
アルミニウム含有量	2							2
アンモニア体窒素量			15					15
亜硝酸体窒素量			15					15
硝酸体窒素量			15					15
総窒素量			79					79
リン酸体リン量			79					79
総リン量			79					79
その他の	56	18				12	11	97
合計	1,682	34	416	627	3	163	37	2,962

実施した恵比須，宝両運河の水銀で汚染された底質を除去するための浚渫工事の監視を目的として浚渫工事前後及び工事中における河川水 125検体，底質 3検体について，総水銀，COD等の分析を行った。

4. 除害施設の維持管理に伴う検体の分析

除害施設の維持管理のため毎月1回，原水，処理水等を採用し，延べ86検体について，BOD，COD，重金類の分析を行った。

5. 苦情処理に伴う検体の分析

- (1) 昭和53年5月2日 宮川上流に懸濁水流入事故  
河川水1検体……pH, COD, SS等
- (2) 昭和53年6月23日 鶴見川末吉橋より下流白濁事故  
河川水10検体……pH, COD, 界面活性剤等
- (3) 昭和53年7月11日 中区海岸通り5丁目付近の運河にて魚類へい死事故

海水3検体………DO, プラクトン

- (4) 昭和53年7月25日 港北区R工業排出水の臭気及び白濁に対する苦情  
工場排水1検体………BOD, COD
- (5) 昭和53年7月28日 和泉川, 相沢川, 阿久和川などの汚濁に対する苦情  
河川水3検体………BOD, COD, SS.
- (6) 昭和53年8月3日 横浜港内白濁事故  
海水1検体………DO等
- (7) 昭和53年8月14日 粉じん状物質の性状, 発生原因等の調査  
粉じん状物質1検体………顕微鏡による観察等
- (8) 昭和53年8月18日 大岡川河口でハゼ多数へい死事故  
河川水1検体………DO等
- (9) 昭和53年9月2日 平潟湾の魚類大量へい死事故  
魚体多数………肉眼等による観察

### Ⅲ 昭和53年度調査研究事業

昭和53年度に実施した主要な調査, 研究事業は次のとおりである。

#### 1. 公害防止契約に係る研究

##### 1-1 魚類指標による排水規制の研究

公害防止契約の中で水質関係事項として, 本市独自のものに魚類飼育による排水の安全性の確認がある。これは, 現行の水質汚濁防止法等によっては, イ) 規制項目が, 理化学的項目に限定されている。ロ) 濃度規制である。ハ) 断片的である。などの理由により, かならずしも生物が生息している環境水域の安全性を確保できないおそれのあるためである。このため工場排水による「魚類の正常な生育」を確認し, 環境水域の安全性を確保する必要がある。

昭和52年12月に確立した「工場等の排水に係わる魚類飼育指針」に基づいて, 昭和53年9月より3社において魚類飼育が開始されたが, これら事業場に対する指導, 立入調査を行い, 実施状況を確認した。

今年度から新たに「魚類の正常な生育」を判定するための「試験, 及び判定指針」の確立を目指して, 異常魚の判定に係わる調査, 研究を開始した。このため塩類濃度と鯉の成長に関する室内試験, 鯉の内外部形態の観察, 遊泳行動に関する文献調査を実施した。

その他, 鯉における重金属類のバックグラウンド調査などの基礎的なデータの蓄積を行った。

##### 1-2 公害防止契約締結工場の立入調査

公害防止契約締結工場のうち, 既に達成期限のきている9社14工場について, 水質に関する契約事項の遵

守状況等の確認のため立入調査を実施した。調査内容は次のとおりである。

- (1) 契約項目の遵守状況の把握
- (2) 有機ハロゲン化合物及び有機アミン化合物の使用実態調査
- (3) 排水基準値に対して工場側が実施している分析方法の把握
- (4) 排水処理施設, 処理法の現場調査
- (5) 水質調査

#### 2. 有害未規制物質の分解, 消長に係わる研究

昭和53年度から実施しているもので, 環境中における有機ハロゲン化合物及び有機アミン化合物の分解, 消長過程の把握, 分析方法の確立とともに, 分解生成物の毒性調査, 分析方法の確立などを目的としている。

今年度は有機ハロゲン化合物及び有機アミン化合物の分析法の一部確立により, 横浜港などの環境調査を実施した。また, 文献検索システム(TOOL IR システム)の確立により, PCBに関する文献検索を実施した。

#### 3. 排水処理技術の開発及び評価に係わる研究

##### 3-1 ポリビニルアルコール含有排水の処理法の開発

ポリビニルアルコールなどの水溶性高分子は, 水に対する溶解性が非常に高いため, 従来の排水処理法では処理が困難な物質の一つである。

ところが市内には, スカーフ等を中心とする捺染染色加工業を営む事業場が多数存在しているが, これらの事業場では, 各種の水溶性高分子を使用している。その内特に糊剤として使用されているポリビニルアルコールは精練工程で全て排水中に移行し, 排水基準の遵守を困難にしている。

昭和52年度に開始したポリビニルアルコールの凝析処理法は, 室内実験により排水処理法として利用できる見通しを得たので, 今年度は, 実用化を目指して, 事業場におけるパイロットプラント規模の実験を実施した結果, 総合原水 COD の 50% 強を削減することに成功した。その他, 凝析物の分離法としての減圧乾燥法の開発にも成功し, 現在A事業場において実用化しており, 大きな成果を得ている。

##### 3-2 界面活性剤の処理方法の開発

界面活性剤は各種の産業で使用されており, その使用量も増大する傾向にある。市内でもクリーニング, 捺染染色, 精練, ドラム缶洗浄など多くの事業場において多量に使用されている。これらの事業場では排水処理法として, 大半が凝集沈殿法を採用しているが,

界面活性剤は、それ自身が難処理性物質であるというだけでなく、凝集効果をも阻害してしまうという問題がある。

界面活性剤を含む排水の処理技術を検討するにあたりまずクリーニング事業場排水を対象とし、使用している活性剤の種類、量、排水中のCOD、ノニオン活性剤含有量について実態調査を実施した。

### 3-3 排水処理技術の評価

エマルジョンブレーカーを使用した含油排水処理法と泡沫分離の2件について評価を行なった。

また、処理技術の評価の一環としての処理水の安全性の研究に関する基礎研究として、試験魚のチェック方法、蓄養における飼育方法、エサの種類による水質への影響などについて検討を行った。

## 4. 環境に関する調査、研究

### 4-1 横浜市沿岸海域における貧酸素水塊の発生と分布に関する調査

横浜市沿岸海域では、しばしば貧酸素水が原因と推測される魚類への死事故が頻発している。なかでも昭和53年9月2日に発生した平瀉湾での魚類への死事故ではハゼを中心として数万尾の被害が発生している。

今年度は、貧酸素水塊の形成、分布を把握することを目的として、金沢沖などの10地点、47採水点で、透明度、水温、溶存酸素濃度の測定を行った。

### 4-2 富栄養化の原因及び判定方法の研究

環境水域の富栄養化に及ぼす排水の影響を予測する手法として藻類培養試験方法の開発を行っている。

対象藻類としては、市内に広く分布している *Nitzschia palea* を選定し、予備培養試験を行った。

## 地盤沈下部門

### I 部門紹介

地盤沈下の主要な原因は井戸や建設工事等による地下水の過剰汲みあげであるが、その発生場所および程度はそれぞれの地域の地下構造により決定される。横浜市における地盤沈下現象を把握し、沈下による被害を防止するための対策等行政措置を講ずるには、市内の広域的地下構造、各地域ごとの地質特性、および、地下水の収支の解明等に関する研究が必要である。したがって、市域全体の面的調査および各地点における深層地下構造の立体的調査の両面の研究を総合し、地盤沈下の具体的、動的予測を行おうとしている。

### II 昭和53年度 調査、研究事業

53年度は地層の広がり、連続性を把握するための層

序決定を露頭調査により市北部地区について実施した。また、既存のボーリング資料を用い鶴見川流域の沖積層の分布について立体的調査を行った。

地下水の収支に関する研究の一部としては、浅井戸の地下水（自由地下水）について調査を行った。

#### 1. 帯水層々序確定のための地質調査（北部地域）

本市の地下水採取は主に地下100m前後の上総層群とよばれる地層中より行なわれている。この上総層群は、丘陵、台地の部分で地表に露出している。

帯水層の存在形態を把握するためにはまず帯水層を含む地質構造を明らかにする必要がある。本調査は、その上総層群の構造解明を露頭調査で行なった。昭和53年度は帷子川以北の北部地域について行なった。

その結果地下80mぐらまでの上総層群の地質構造が把握できた。昭和54年度は南部地域について同様な調査を行なう予定である。

#### 2. 鶴見川沖積層の研究

本市の場合、地盤沈下は主に沖積低地でみられ、被害をもたらしている。そのため沖積層の沈下機構を明らかにする必要があるが、昭和53年度はまず鶴見川低地について沖積層の地質構造を調査した。この調査は既存ボーリング柱状図約700本を使い、断面図、基底等深線図等を作成して解析した。

その結果、沖積層はさらにいくつかの層に区分され、その構成が地域により異なることと、沖積層の基底は埋没谷と埋没平坦面より構成されていることがわかった。

今後は、沖積層の構成、厚さと過去の沈下量との相関性を検討する予定である。

#### 3. 横浜市内の地下水位等に関する調査、研究

近年、横浜市内の宅地開発はめざましく、比較的緑の豊富であった丘陵地や台地も住宅地へと変わってきている。

この影響を受け生活のため利用されていた浅井戸の地下水（自由地下水）は枯渇し、自噴は失われ、地下水の収支に変化がもたらされつつある。一方深層部の地下水（被圧地下水）揚水量は年間約二千万トンと試算される。年代推定からこの被圧地下水は20年～30年前の雨水であるとされており、かん養条件が極めて悪い状態の地下水の揚水であると考えられている。かん養量の少ない地下水を過剰に揚水すれば当然地盤沈下を誘発し、被害をもたらすことになる。これを未然に防止し、かつ地下水を保全するためには地下水の現況を正確に把握し、適正な利用をはかることが重要な課題となっている。そこで今年度は地下水の収支を明らかにする基礎的研究として、浅層の地下水位（自由地



下水)を調査した。

## 社会科学部門

過去15年余りの間における公害対策の成果を過度に強調しつつ、低成長の時代をむかえたこともあって現在では公害問題への関心がやや沈静した、とする見解がある。他方これに反して、実際のところ改善が表面的なものに止ってきたことを指摘し、本質的解決のないままに公害・環境行政の後退が民衆を遠ざけつつあると批判する声が聞かれる。いずれにせよ、公害問題が以前より人の目にふれにくく、手の届かぬものとなり、取扱いのむつかしさが増してきたことは否定できない。この事態をどのように捉えるべきであろうか。

公害問題は、まずはじめに一定の地域社会における特定の被害(者)と発生源(原因者)との関係として、原因と結果に関する事実について争われる。通常、被害者は弱者で、発生源は強大な企業(群)である。だが、事実から目を背けない限り、いかにしてもなすべき対策というものはあるにちがいない。したがって、① 四大公害裁判その他の公害事件に象徴される如く、被害と原因とを何らか特定し得る限り実質的な無過失責任の追及(過失責任原則の修正)に近付かざるを後ない、② 同時に、このこととあいまって企業の注意義務を行政上枠付けるため、発生源規制をはじめとして公害行政の領域が形成され、③ 一面被害者に対する行政的救済として、他面では加害者にとっての保険として、被害補償の制度が用意される。

現時点での公害対策を、前進と称し、また後退と批判するのは、人間の生存と健康の保護にあたってこれらの諸点——掃責、公害原因の除去もしくは予防、そして被害補償——につき、いかなる対処を選択するかに関してのことである。だが、公害は一回生起の加害結果ではなく、継続的かつ組織的な加害行為であるのが普通だから、多少の成果だけをあげつらうことは何の役にも立たない。評価が岐れるのは、結局のところ事実の認識を異にするためであろう。したがって、第一の研究課題は、公害の実態を時間的・空間的により広く、より深くとらえて、その因果の連鎖を一層可視的なものとするところである。

二番目に、しかし現代社会において公害の原因と結果とは、ますます構造化し複合的なものとなっている(ビルトインされている)ということがいい得る。つまり、ことはより多数の当事者間の問題となって、公害被害を除去し予防しようとするならば別の否定的影響を避けることができない、と考えられるような事態が生じていることである。他の問題と併せて解決しな

い限り、具体的・個別の被害がいかに深刻であっても、企業の利益だけでなく一般的な利便をも犠牲に供しないとそれは救済できないように見える。そして、加害者の立場と被害者の立場との非代替性ということが見失われ、遂には被害自体も特定しにくいものとして押し隠されてしまう。今日いわれている公害から環境問題への拡大をとらえようとするならば、どうしてもこのようなことを視野に入れつつ、改善の目標と対策の範囲とをより広く持たなければならぬのである。

われわれは、以上のような課題は、たとえば自動車公害問題の内に集中的に見出すことができるように思う。自動車公害問題については、三つの点から考えなければならない。いうまでもなく第一に、それは市民の健康と重大な関係がある。光化学スモッグや都市大気の汚染の原因は、厳密な定量が困難だとしても、間違いなく自動車排出ガスによって大きく影響されている。騒音公害の内では、自動車・道路騒音が最も深刻なものの一つというべきである。幹線道路沿い地域における生活は、さまざまなハンディキャップを背負わされているであろう。第二に、それは都市の交通問題と直接に関わりがある。人間の生活にとって交通の大切さは誰もが否定できない。しかし、自動車の普及によって拓かれた可能性の裏面を、今われわれは見直さなければならない。健康で落ち着いた生活と豊かな利便との整合を、どのようにしてはかるべきであろうか。したがって第三に、それは都市問題そのものにつながっている。都市とは何か、市民とは何か、生活の質とは何か、こうしたことへの展望なしに対処し得ない問題である。

してみれば、ここでは問題の構造をより社会科学的に解明することが一層重要となり、同時にそれを踏まえて事態を打開するための政策提起が必要とせられるはずである。前者においては、主に各種の社会調査と経済諸統計との利用を手がかりとする把握にまで及ぶことになり、後者においては、一定の価値的立場からする概念もしくは理念の定立も必要とされよう。しかも、もちろんこれらは具体的な公害被害の実態を前提とし、その解決を優先課題として構成されなければならない。

かくしてわれわれは、今日その複雑さ故に強く解決が望まれながら、またそれ故わずかな改善すら見られにくいことがらを素材として、公害対策の新たな展開に資せんと期するものである。さしあたり自動車公害のケースを中心として、次のような題目に取組みつつある。

## 1. 自動車公害の解決策に関する研究

1977年6月以来、「横浜市環境政策研究会」（代表者・清水嘉治関東学院大学経済学部長）の協力を得て「自動車公害を中心とした都市政策上の問題点及び対応に関する研究」を行うこととし、2カ年にわたって10名の学者・研究者とともに共同研究をすすめてきた。初年度は、「公害と道路・自動車・交道問題」に関する資料集を含む『中間報告』（公害研資料No.7）を取りまとめ、今年になって「横浜市における自動車公害に関する基礎研究——4つの課題・15の提言——」（公害研資料No.13）と題する報告書を公けにした。

『提言』は、Ⅰ 環境自治権にもとづく自動車公害の防止、Ⅱ 地域に見合った道路機能の創造、Ⅲ 市民の足としての交通体系の開発、Ⅳ 市民参加による問題解決の展望、の4点に関するものである。報告書には、この研究会に参加した各委員が共同作品としての『提言』を敷衍しつつそれぞれ所論を述べたものを付し、また参考文献目録等の資料を加えてある。

この『4つの課題と15の提言』では、自動車公害を含む自動車問題への対処が根本から転換されなければならないことを明らかにした。そしてそのために、あれこれの対策手段の是非や可能性の検討を個別に行なうことだけに止まらず、市民自治とここで確立を提唱した「環境自治権」とを軸として、自治体の環境政策を組み立てるよう求めたものである。そのあらましは次のとおりである。

〈課題1〉 横浜市は環境自治権にもとづいて自動車の低公害化、交通量抑制ならびに被害者対策を押し進め、自動車公害の解決を図る。

提言1 自動車公害防止のガイドラインを作成する。

提言2 自動車の低公害化のために、技術上の調査・研究を行う。

提言3 （大規模交通量発生源の事業所との間で交通量、時間帯、駐車場等についての）自動車公害防止協定を推進する。

提言4 沿道被害調査を実施し、幹線道路環境対策のプログラムを樹立する。

提言5 当面、環境対策費用は（道路内での対策の代替という意味で）道路財源を充当し、公害税の導入を検討する。

提言6 （幹線道路建設が新たに公害を発生させ、しかも既設道路交通量の減少に資さなかつた例がほとんどであり、交通量増加と道路建設の悪循環に最大の問題があるので）道路計画策定の際には、既設道

路を含めたアセスメントを実施する。

〈課題2〉 モール（買物公園）やボンネルフ（生活の庭）など地域に見合った道路の人間化をはかり、その多面的機能を再生する。あわせて既設道路体系の再編成を行う。

提言7 （道路を交通機能と地域との関係を基軸に段階構成し）道路の性格づけを行う。

提言8 地区内にミニ・モールやボンネルフ（など地域に適合した手づくりの新しいコミュニティ道路）をつくる。

提言9 生活道路問題は地域の場で解決する。（生活道路の使い方はそれぞれの居住環境地区に委ねられる必要がある。）

〈課題3〉 オレンジ・バス（バリ市の地域間共通定期券制度）や新しい市電を導入し、また快適な歩行環境をつくり、市民が交通体系を自由に使いこなせるウォーク・アンド・ライド・システムを形成する。

提言10 （一定地域内のすべてのバスや電車を気軽に、安く、自由に乗りかえのできるよう）オレンジ・バスを導入する。

提言11 新しい市電や電気バスを導入する。

提言12 （緑陰道をつくり、グリーン・ウォーク・ウェイ、遊歩橋なども検討して）ウォーク・アンド・ライド・システムを柱とした遊歩道をつくり、拡充する。

〈課題4〉 市民参加により、自動車問題に総合的に取り組む。

提言13 （交通局・道路局・市民局など関連部署が公害対策局を中心に総合的に協力して調査、研究、政策立案などを体系的に行う機能的な）「自動車政策センター」（仮称）を設ける。

提言14 （市民と自治体との不断の連携が重要であるので、自動車問題に自主的・継続的に取り組んでゆく）地域環境会議の土壌をつくる。

提言15 （横浜市公害研究所が中心となり）市民研究員制度を設ける。

われわれは、これまでの研究により大よその政策的見通しを得ることができたように思う。行政の中で可能な限りこの成果が生かされることを希望するとともに、今後さらに実証的な裏付けを積みかさねていく考えである。なお、本年度は、「横浜市自動車問題研究会」（清水嘉治代表他6名）とともに「自動車交通の

発生構造に関する調査研究」をテーマとして、主に経済学及び社会学の角度から、工業とトラック、市民生活とマイカーの関連及びその動向を分析する。

## 2. 自動車公害の実態調査

幹線道路沿い地域における被害実態を把握するため、騒音部門と共同で、国道1号線三ツ沢・松本地区において約1,000世帯を対象とする住民意識調査を実施した。上下4車線、1日の交通量4万台に達する平坦道路で、延長約1kmの区間にわたり道路端から100m以内の全世帯に問うたものである。調査時期は1978年3月、横浜市立大学経済研究所村橋克彦助教授の協力を得て解析を行ない、単純集計結果に基づき「自動車公害に関する意識調査(第1報)——国道1号線三ツ沢・松本地区——」(公害研資料No.10)を取りまとめた。

この調査では、8割以上の人々が自動車公害を受けていると答えており、またかなりの健康影響が意識されていることが明らかとなった。日常生活への影響、営業活動への影響も深刻になっていることがうかがえる。だが、行政に対して何とかしてほしいという要望は満ち満ちているものの、問題解決の展望をたずねあぐねているのが実状のようである。今後、必要に応じて他の調査等も参考にしながらさらに詳細な検討を加えてみたい。

## 3. 横浜方式の展開に関する研究その他

公害対策「横浜方式」という呼称が行なわれるようになって以来15年間の経過を整理し、公害行政の歴史的な総括と現時点での点検を試みようとする意図している。しかし、何分にも膨大な資料の集積があるのみで、見るべき実績をあげるに至っていない。時とともに散逸せんとするその資料を集成し、検討の視角を用意して、より明確な研究課題となすべきところである。もちろん、自動車公害のような問題を行政の中で扱う場合にも、この「方式」が装いを新たにすべきことは明らかで、そのために活用し得る成果を提供していきたい。

また、現在公害対策局水質課の所管となっているが、「都市における河川形態の研究」に関して、水質部門とともに、「横浜市内の河川環境を考える会」の行なう調査研究に参画し、可能な協力をするようにしている。

なお、別に当部門のテーマとして「公害と産業経済に関する研究」を掲げているが、これは当面1で紹介した研究の中に組みこんで、自動車問題との関連で取扱うものとした。

## 公害セミナー

公害問題が拡がり示すにしがって、画一的な解決を許さない状態が生じてくる。まして、都市の環境問題と取りくむ際には、トライアル・アンド・エラー(試行錯誤)の要素を含んだ政策を実行すべきである。しかも、そのようなトライアルが可能なのは、「お上」から与えられただけのものでない場合であること、いうまでもない。自治・分権・参加の発想が必要とされ、公害対策における情報公開の原則が不可欠とされる所以である。しかし、また上から下に流される一方的情報公開によっては、せいぜい啓蒙がなされるのにすぎない。したがって、公害・環境問題の研究は、その解決策まで含むものとするれば、当然市民の主体的参加を求められるのである。

当研究所では、日頃の研究内容と研究成果とを広く市民に伝えその批判を仰ぐため、また市民と共同で公害研究を実践するため、毎年1回程度の「公害セミナー」を開催することになっている。位置づけや開催方法などについては、さらに検討を加え改善していく考えであるが、ここでは、「明日の都市環境を考える」と題して実施した2回のセミナーについて報告する。

### 1. 第1回「クルマ社会をどうするか」(1977年11月26日)

開所以来の準備も整い、第1回目は今日最大の都市問題というべき自動車問題を取りあげて実施した。この会は特に自動車公害の背景を浮き彫りにしたものであった。詳細は、「第1回公害セミナー会議録」(公害研資料No.4)に取りまとめている。

### ア. 論文募集

市民各位の意見をもとに公開討論を行なうセミナーとしての論点を明らかにする目的で、まずテーマに関する論文を公募した。3カ月前から広報紙・ポスター等を使って呼びかけ、報道機関の協力等も得て周知した結果、83篇の論文が寄せられた。17才から77才までの応募者の内訳は、男性62名、女性21名である。論文は、全部を「公募論文集」(公害研資料No.3)に収録し、当日参加者に資料として配布した。

### イ. プログラムの検討

パネル・ディスカッションを中心に組み立てるものとし、パネラーは、事前に論文を寄せられた83名の中から出ていただくこととした。総合司会を清水嘉治(関東学院大学経済学部長(「横浜市環境政策研究会」代表者))に、講演を西村肇(東京大学工学部助教授(「数えられる自動車」の著者))に、パネル・ディスカッションの進行役は中村紀一(千葉大学教育学部助教授(「国道公害白書」3分冊の編著者))に、それぞれお願い



し、これらの方々と相談しながらパネラーを選定した。

#### ウ. 第1回公害セミナーの開催

1977年11月26日（土）午後、横浜市南公会堂において、約200名の参加を得て開催された。開催通知は論文募集とほぼ同様の方法により、他に案内状を出来るだけ多く発送した。参加者の内訳は、ほぼ男性8に対して女性2の割合であった。あいさつ、講演のあと、男性5名、女性3名のパネラー（20才の学生、28才の主婦、49才の著述家、43才の音楽家、46才の主婦、68才の主婦、28才の横浜市職員、54才の会社寮舎監）から意見を求め、これをもとにパネル・ディスカッションを行なった。次いで、他の参加者を交えて全体の自由討議に移った。意見はもとよりきわめて多様であるので、これらを簡単に概括することはできない。道路建設をはじめとして行政に対する批判の声が少なからず出されたことはある意味で当然かも知れないが、さらに特徴的なことは、多数の発言者が具体的な提案を含む意見を發表したことである。はっきり対立する見解もたまたかわせられたが、事態の解決が決して不可能でないことを示唆するところがあった。終了後のアンケートに対して111名の方から寄せられた回答の内には、セミナーの開催方法を含め貴重な指摘を見出すことができた。

#### 2. 第2回「合成洗剤」（1979年1月30日）

川や海の汚濁原因の一つとされ、その安全性にも疑問が投げかけられている合成洗剤の問題は、やはり特有のむずかしさを持っている。第2回セミナーは、合成洗剤の環境に及ぼす影響や安全性について、立場を異にする論者の討議の場を設けることによって問題を提起することとした。詳細は、「第2回公害セミナー会議録」（公害研資料No.9）に取りまとめている。

#### ア. 準備作業

公害研究所の業務として必ずしも十分な対応ができているわけではないが、明確な見解の相違がある問題なので、それらの点を卒直に出しあえるようなパネル・ディスカッションを考えることになった。司会を渡部允氏（神奈川新聞論説委員）にお願いし、パネラーは金子光美（国立公衆衛生院）、近藤邦成（日本石鹼洗剤工業会）、山口泰子（横浜洗剤を考える会）、小林勇（川崎市衛生研究所）の各氏になっていただいた。4氏は、今日における主要な見解をそれぞれ代表し得る方々と考えた。所内の実行委員を中心として2回の勉強会を行ない、パネラーとの事前打合せを経て当日をむかえた。開催の案内は、前回とほぼ同様の方法によった。なお、このセミナーに際しては、準備の都合

から論文公募を行なわなかった。

#### イ. 第2回セミナーの開催

1979年1月30日（火）午後、平日で天候も不順であったが、約200名の参加で開催された。場所は産業貿易センターの大会議室である。前回より女性の参加者が増え、4割程度を占めていた。パネラーの主張は、事前に作成していただいた各自の資料をもとに述べられ、相互のディスカッションを経て全体の自由討議に移った。問題の性格もあってやはり論議は合成洗剤の安全性に集中し、かつフロアとの間ではパネラーへの質疑応答が主であったが、密度の高い意見をそれぞれから示していただき、論点は相当明確になったことと思う。司会者から、「合成洗剤の問題についても、質の問題、量の問題、使い方の問題ということ、改めて私達一人一人が自分達の身のまわりで考えていきたい」とのまとめの発言があって閉会した。参加者にアンケートをお願いしたことも前回と同じ。合成洗剤に対する市民の不安というものがそのままに出されたところである。

#### 3. 今後の課題

これまで参加された方からは種々建設的な意見をいただいたので、公害セミナーのあり方そのものは少しずつ改善していき、徐々に定着した行事としていけるであろう。だが重要なのは、より日常的な市民とのふれあいである。第2回公害セミナーの司会者渡部氏の言葉を引いてこの点の整理に替える。「私は、公害研究所に市民の皆さんがどんどん入って行って、市民の方がむしろ公害研究所を利用するというような形になれば理想的ではないかというふうに考えるわけです。といいますのは、先年ヨーロッパに行ってドイツで学んだことですが、ボンに国立植生学自然保護研究所という国立の研究機関があって、この研究所の中にはなんと、自然保護団体の事務局があるわけです。この自然保護団体の事務局というのは全く民間の団体なのです。その事務局が国立の研究機関の中に入っていて、しかも国立の研究機関の中の先生方と民間団体の代表者達が常に話しあっているということです。今度はこういう問題でやろうじゃないかということまで話しあっているそうです。まあ、横浜市の公害研究所が一足跳びにそこまで進むかどうかかわかりませんが、要するにそういう施設を利用するのは市民の私達ではないかというふうに考えるわけです。」

# 固定発生源から排出されるばいじんの粒度分布

## ——第一報 ボイラーからのばいじんの粒度分布——

佐 侯 満夫\*, 平野耕一郎\*, 渡辺 善徳\*

### 要 旨

大気汚染の規制強化にともない、浮遊粒子状物質の総量規制の検討も最近行われ始めている。浮遊粒子状物質の大気中での汚染予測モデルを策定する場合、浮遊粒子状物質の粒度分布は重要な因子となり、とりわけ固定発生源別の粒度分布のパターン化が必要である。そこで、昭和53年度を初年度として、3年間を目途に固定発生源のばいじんの粒度分布の調査を実施した。まず53年度はボイラーを対象とし、各種ボイラーのうち代表的な19施設から排出されるばいじんの粒度分布を測定した結果次のような知見をえた。

- (1) ボイラーからのばいじんは  $0.5\mu\text{m}$  以下の微小粒子が多く、粒度分布は2山あるいは3山型を示し、それぞれ  $0.1\sim 0.2$ ,  $0.5$ ,  $3\sim 5\mu\text{m}$  付近にピークがみられた。
- (2) 同じ燃料を使用したボイラーにおいても粒度分布はかなり異っているものもあり、燃焼によって生じるばいじんの生成には、燃料、燃焼方法、過剰空気量等の特性や煙道中での2次粒子の生成等の問題が複雑に関与していることがわかった。

### 1. 目 的

近年、大気中の浮遊粒子状物質の粒度分布測定がさかに行なわれている。浮遊粒子状物質の大気中での挙動や生体影響等を研究する上で、浮遊粒子状物質の粒度分布特性を知ることは重要である。また大気中への粒子の排出やその輸送現象に関する研究も行われはじめており<sup>1),2)</sup>、浮遊粒子状物質による大気汚染についてシミュレーションを行おうとする場合、大気中や発生源での粒子の粒度分布を知ることは不可欠となる。そこで、今回発生源用アンダーセンサンプラーを用いて横浜市内の各種の代表的なボイラー19施設について、そのばいじんの粒度分布を測定し、併せて測定機器の検討も行ったのでその結果をここに報告する。

### 2. 調査の方法

#### 2-1 測定期間

測定機器の比較検討

昭和53年11月～12月

ボイラー（19施設）の測定期間

昭和54年2月～5月

#### 2-2 測定方法の検討

発生源用のアンダーセンタイプ及びシエラタイプのカスケードインパクターについての比較検討<sup>3)</sup>

発生源の粒度分布調査は難しく、その測定方法は確立されていない。そのため調査に先だち、粒度分布の測定方法として、代表的な二つのタイプのインパクターについてその性能を検討した。

カスケードインパクターを用いて発生源の粒度分布を測定する場合、煙道中での温度が高く、水分も多く、圧力や流速が変動するためこれらの要因による誤差は無視できない<sup>4)</sup>。そこで、今回の調査を行うにあたり、煙道中への直接挿入式の発生源用アンダーセンサンプラー（高立機器、KA-500）とシエラ製カスケードインパクター（シエラ、モデル 226）について、事前に実際に稼働中のボイラーを用いて比較検討を行った。

測定対象施設は触媒再生塔排ガス燃焼用ボイラー（以下COボイラー）と軽油焼きボイラーについて行

Size Distribution of In-Stack Particulate Matters emitted from various Boilers.

\* Mituo Samata, Koichiro Hirano, Yoshinori Watanabe, 横浜市公害研究所大気部門

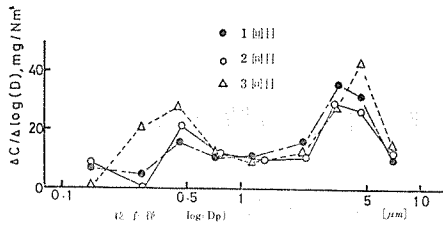


図-1 ボイラー-Qのアンダーセンサンプラーにより捕集したばいじんの粒度分布

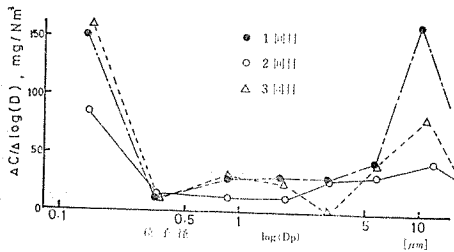


図-2 ボイラー-Qのシエラ製カスケードインパクターにより捕集したばいじんの粒度分布

った。そこで、COボイラーでの測定結果の一例を図-1, 2に、そのときの各インパクターの捕集状態を写真-1, 2に示す。その結果以下のような知見が得られた。

- ① 写真-2より、シエラ製カスケードインパクターでは、捕集板上でのジェットノズル直下以外の部分にも粒子の沈着がみられ、特に捕集板の周辺部に著しい。これは気流がインパクター内で正常に流れず、分級板と捕集板との間で旋回流が生じるために再飛散がおきることに起因するものと思われる。また顕微鏡観察によるとバックアップフィルターにもかなり粗大な粒子が混入しているのがみられた。これより、シエラ製カスケードインパクターでは粒子によっては再飛散が大きいため分級精度に問題があることがわかった。
- ② 捕集板に口紙を使用した場合、測定前後での水分の脱着・吸着による重量変動が大きく、mgオーダーの誤差となる場合もあった。また写真-1に示すように、アンダーセンの場合その構造上ガasketによる口紙の破損が生じやすく、特にシリカ製口紙では、水分による重量変動がみられ、破損も大きかった。
- ③ インパクター方式の場合、捕集効率がかなり低くなること(30%以下)もあるので常にJIS Z 8808によるばいじん測定を同時に行ないチェックする必要がある。

これらの結果より、今回の調査において発生源用アンダーセンサンプラーの方がより広い範囲にわたり使用可

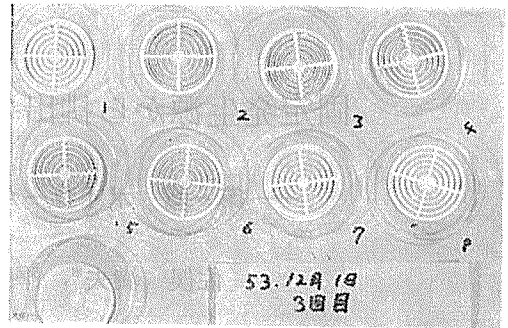


写真-1 アンダーセンサンプラーの採取後の捕集用口紙(ボイラー-Q)

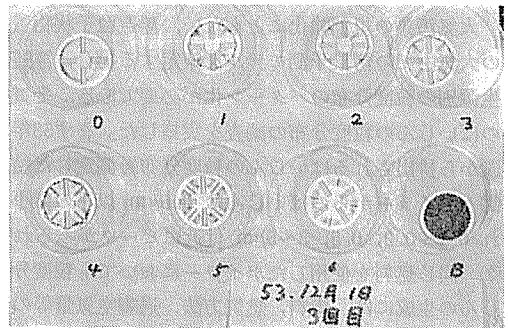


写真-2 シエラ製カスケードインパクターの採取後の捕集用口紙(ボイラー-Q)

能であることを確かめることができたので以下の調査にはこれを用いた。

### 2-3 測定対象施設及び測定条件

横浜市内のばい煙発生施設中ボイラーはその72%をしめている(昭和53年3月末現在)。そこで市内で使用されている代表的な19施設のボイラーについて燃料の種類、規模及び排煙脱硫装置の有無等による粒度分布の特徴を把握する目的で調査を行った。

燃料の種類………灯油, LSA重油, LSC重油, 石炭, C重油, (触媒再生塔)

規模………発電用, 大型(バーナー能力 1,000 l/h 以上)

中型(1,000~100 l/h), 小型(100 l/h 以下)

表-1に測定施設の測定時における稼動状況及び測定条件を、また表-2に各種の処理装置の設置状況を示す。表-1中例えば、ボイラー-N-1, N-2はそれぞれ同じボイラー-Nの1回目, 2回目の測定を示す。なお、今回の調査は、横浜市内のボイラーから大気中に排出されるばいじんの実態を把握することを目的としたため、その測定施設で集じん機等の併設されているものはすべてその出口後で測定した。

表一1 測定対象ボイラーの稼動状況及び測定条件

ボイラー	測定年月日	稼動状況				測定条件				粒子密度 (g/cm <sup>3</sup> )	吸引筒長さ (NI)		
		燃料	能力 (ℓ/h)	燃料使用量 (ℓ/h)	負荷 (%)	処理装置 の有無	水分排ガス 濃度 (%)	温度 (°C)	流速 (m/s)			O <sub>2</sub> 濃度 (%)	CO <sub>2</sub> 濃度 (%)
A	S 54.2.19	L S A 重油	2,500	1,111	44	無	5.8	160	3.0	13.0	6.0	1.55	1,423
B	54.4.4	同上	550	235	43	"	2.4	156	2.5	14.0	5.0	"	3,175
C	54.4.11	同上	331	166	50	"	7.0	300	12.8	12.0	7.0	"	2,595
D	54.3.9	同上	2,300	1,618	70	"	10.9	165	8.1	9.5	8.5	"	2,976
E	54.3.28	同上	270	109	40	"	3.4	81	1.1	13.5	4.5	"	1,756
F	54.5.28	同上	500	80	16	"	6.5	178	2.6	13.0	7.0	"	3,173
G	54.5.29	同上	900	298	33	"	10.6	235	4.9	5.5	12.5	"	2,461
H	54.4.6	灯油	427	213	50	"	6.7	216	3.1	5.0	13.5	"	2,831
I	54.3.30	同上	179	89	50	"	8.1	227	7.4	12.5	6.0	"	3,856
J	54.2.14	同上	1,800	566	31	"	9.6	210	3.2	5.0	13.0	"	3,148
K	54.2.21	同上	1,240	995	80	"	13.3	287	10.1	6.5	13.5	"	1,437
L(発電用)	54.3.2	石炭	93.1ton/h	91.7ton/h	98	有	20.9	97	19.2	5.5	13.5	2.17	1,969
M(同上)	54.3.23	同上	93.1ton/h	90.7ton/h	97	"	12.7	94	22.8	6.5	13.0	2.17	2,676
N-1(同上)	54.3.5	L S C 重油	44,000	40,000	90	"	17.7	123	20.8	6.0	12.5	2.07	3,364
N-2(同上)	54.3.7	同上	44,000	39,000	88	"	10.5	122	20.3	5.0	12.0	2.07	3,616
O-1	54.2.8	C 重油	4,111	441	54	"	16.9	135	8.1	8.0	10.0	1.55	1,314
O-2	54.2.8	同上	4,111	441	54	"	16.9	135	8.1	8.0	10.0	"	1,314
P	54.3.12	同上	3,100	1,078	35	"	12.0	48	11.9	13.5	6.0	"	2,280
Q(COボイラー)	54.2.16	COガス	5,900	2,380	40	"	16.4	193	4.6	4.0	15.0	1.98	1,194

表一2 処理装置の設置状況と測定位置

測定施設	付 属 処 理 装 置 (排ガスの流れを→で示す)
ボイラーL	ボイラー→電気集じん機→排煙脱硫装置(石灰石こう法)→アフターバーナー→測定口
同 上 M	ボイラー→電気集じん機→排煙脱硫装置(石灰石こう法)→アフターバーナー→測定口
同 上 N	ボイラー→電気集じん機→測定口
同 上 O	ボイラー→排煙脱硫装置(亜硫酸ソーダ石こう法)→アフターバーナー→測定口
同 上 P	ボイラー→排煙脱硫装置(亜硫酸ソーダ法)→測定口
同 上 Q	触媒再生塔排ガス→ボイラー→電気集じん機→測定口

2-4 測定方法

2-2項の知見にもとづき、発生源用アンダーセンサンプラー(高立機器, KA-500)とJIS Z 8808によるばいじん測定とを同一煙道中において同一時間同時採取を行った。なお、測定点はJIS Z 8808に定められた測定点をトラバース方式で行い煙道内でアンダーセンサンプラーとばいじん測定とを適宜に交換させ、できる限り同一条件の下で測定するように配慮した。そこでJIS Z 8808に準じて測定を行うにあたり、アンダーセンサンプラーの特性から、等速吸引、吸引時間等の制限を考慮したうえで、著者らは独自に以下のような方法を用いて行った。

2-4-1 発生源用アンダーセンサンプラーによる測定

発生源用アンダーセンサンプラーは8段に分級可能であり、今回は煙道中での吸引流量を常に20.0(ℓ/min)一定とし、JIS Z 8808に準じて測定を行った。ここで煙道中での吸引流量を一定としたのは2-2項の比較調査結果から吸引流量を変えることによって分級特性が変化することが推定されるためである。なお、捕集板には厚さ0.2mmのステンレス板を使用し、バックアップフィルターには、比較的強度の強いゲルマンAタイプのガラス繊維口紙を使用し測定後硫酸分を補正した。

2-4-2 等速吸引に近づけるための吸引ノズルの選定

一般に気流中での非等速吸引による捕集誤差は無視できない場合が多く<sup>5)</sup>、粒子の捕集にはできるだけ等速吸引に近づける必要がある。煙道中での吸引流量をQ=20.0(ℓ/min)と一定にした場合、排ガス流速にともないノズル径が変化しなければ等速吸引はできない。そこで等速吸引を行うための理想ノズル径di(mm)は

$$di = \sqrt{\frac{4 \times 20.0}{\pi \times 0.06 \times V}}$$

V: 煙道中での排ガス流速 (m/s)

となり、このdiに4, 6, 8, 10, (mmφ)のうち最も近い径のノズルを使用した。

2-4-3 吸引時間の選定

アンダーセンサンプラーの場合、捕集板上への最適捕集量があり、それにとまう最適吸引時間を設定することは重要である。

予測吸引時間をT (min) とすると

$$T = \frac{S \times G}{Q \times W}$$

S: 段数

G: 各段の平均捕集量 (mg)

W: 予想ばいじん濃度 (g/m<sup>3</sup>)

Q: 20.0 (ℓ/min)

ここで、Gの値はmgオーダーの量を捕集することが望ましい。

3. 粒度分布の求め方

3-1 粒子径の計算方法

アンダーセンサンプラーの捕集粒子径は慣性理論にもとづく動力学の径としてもとめられる。固定発生源の場合、大気中と異なり、煙道中の温度、粒子密度、ガス組成等測定条件によって、その慣性理論から当然分離粒子径は異ってくる。しかし、粒子径を一率に扱っている報告がしばしばみられ、またメーカー側の補正グラフにも数値の引用のあきらかにされていないものが多い<sup>6)</sup>。そこで、著者らは独自に(1)式のような慣性理論式から直接、以下のような手順によって50%分離粒子径をもとめた。

発生源用アンダーセンサンプラーの分離粒子径は次式によって表わされる<sup>7)</sup>。

$$Dp^2 = \frac{60 \pi N \mu \Psi \times 18 Dc^3}{4 C Q \rho_p} \times 10^2 \dots (1)$$

ここでDp: 動力学の粒子径 (μm)

Ψ: 慣性パラメーター(無次元ストローク数)

N: ジェットノズルの数

$\rho_p$ : 粒子密度 (g/cm<sup>3</sup>)

Q: 吸引流量 (ℓ/min)

C: カミンガム補正係数

$\mu$ : 流体の粘度 (g/cm・sec)

Dc: ジェットノズルの径 (mm)

であり、カミンガム補正係数Cは

$$C = 1 + \frac{0.163}{D_p \times P} + \frac{0.0549}{D_p \times P} \exp(-6.66 D_p \times P)^{7/2} \dots\dots\dots(2)$$

P: 静圧 (atm)

で与えられる。この(2)式の第2項までをとって(1)式に代入すると次式のようになる。

$$D_p^2 + \frac{0.163 D_p}{P} \times 10 - \frac{60 \pi \mu \Psi N \times 18 D_c^3}{4 Q \rho_p} \times 10^2 = 0 \dots\dots\dots(3)$$

(3)式は一見複雑に見えるが、各変数は与えられているので、 $D_p$  についての簡単な2次式となり、そこでこの(3)式について次のような計算を行った。

1)  $\Psi=0.14$  (メーカーで定めた50%カット値)、 $Q=20.0$  (ℓ/min) をそれぞれ代入した。

2)  $\mu$  は一般の燃焼排ガスでは、ほとんど空気の粘性と同等としてもさしつかえないので空気の粘性についてハンドブック等から計算した。

3)  $\rho_p$  は粒子によって異なるため、ここでは $\rho_p=1$ として扱った。また表一1中での粒子密度は、ピクノメーターで測定したものであり、灯油、LSA重油によるものはその平均したものを示した。Pはその測定時の静圧である。

4) N, Dcは各段ごとにアンダーセンサンプラーの構造上定まった数値をそれぞれ代入した。

以上、(3)式について、各段ごとに1)~4)までの計算を行うことによって50%分離粒子径をもとめた。さらに、その段と上段との50%分離粒子径の幅から各段での分級幅を導いた。

### 3-2 粒度分布

粒度分布の表示方法にはいろいろな方法が使用されている8),9)。浮遊粒子状物質やばいじんの粒度分布には累積分布やひん度分布が多く用いられているが、いずれも一長一短がある10)。カスケードインパクトのように分級点が少ない場合、累積分布を数値微分したひん度分布を用いると不要な変化やピークがさらに拡大されてあらわれ、しばしば表示方法として不適当な場合がある。そこで、今回の調査結果は重量パーセントを各段ごとに表わしたひん度分布と対数正規確率紙上にプロットした累積分布で粒度分布を示した。

#### 3-2-1 ひん度分布

測定した分級点は最上段とバックアップフィルターを含めて10点となる。そこで、各段での捕集量あるいは濃度の積算値を縦軸に、そのときの粒子径を横軸にとると累積分布が得られる。このようにして得られた累積分布から各段ごとの分級幅  $\Delta \log D_p$  にそれぞれ対応する重量  $\Delta W$  あるいは濃度変化  $\Delta C$  をもとめ、これについて  $\Delta \log D_p$  で除したもの  $\Delta W / \Delta \log D_p$  を縦軸に、そしてその段での  $\log D_p$  を横軸にプロットすればひん度分布が得られる。ここで、分級幅はその段とその上段との50%分離粒子径の区間幅としてもとめ、 $\log D_p$  はその段での分級幅の中央値をとった。 $\Delta W$  あるいは  $\Delta C$  はそれぞれその段での直接の捕集重量パーセント及び濃度をあらわしている。また今回の調査で使用したバックアップフィルターの最小捕集粒子径は凝縮を考慮してほぼ  $0.1 \mu\text{m}$  とした11)。

#### 3-2-2 累積分布

従来、大気中の粒子などでは対数正規分布に従うものが多いことが報告されている12)。そこで累積分布は各段ごとに累積重量パーセントをもとめ、これと3-2-1項でもとめた  $\log D_p$  とを対数正規確率紙上にプロットした。

## 4. 結果と考察

調査結果について表一3に示すが、各ボイラーによってそのばいじん濃度が著しく異っていた。そのため粒度のひん度分布は濃度表示では比較が困難なので全て捕集量の重量パーセントで示した。また各ボイラーでの  $1 \mu\text{m}$  と  $5 \mu\text{m}$  以下の粒子についてその重量割合を表一3に示したが、ボイラーからの粒子は、 $1 \mu\text{m}$  以下がかなり多く、ほとんどのボイラーで重量中央径(MMAD)がとれなかった。粒度分布はそれぞれ個々のボイラーで異っていたが、燃料種類別に分類した場合、一定の傾向がみられたので以下燃料種類別にまとめた。

#### 4-1 LSA重油焼きボイラー

LSA重油焼きボイラーの測定結果のひん度分布を図一3, 4, 5に、またその累積分布を図一6, 7, 8に示す。これよりLSA重油焼きボイラーの場合、粒度分布は微小粒子径側に偏っており、個々のボイラーの分布は異っているが、すべて2山あるいは3山型であった。しかし、ボイラーD, Eにみられるようになりに異った分布を示すものもみられた。さらに、累積分布については全て曲線でありS字型のものが多くみられた。また  $1 \mu\text{m}$  以下の粒子は44~83%であった。LSA重油焼きボイラーについては負荷が低くなるほど換言すればバーナー能力に対して燃料使用量が少ないほど粒度分布は微小粒径側へ偏る傾向がみられた。



表-3 測定結果

ボイラー	アンダーセンによる 粒子濃度 (mg/Nm <sup>3</sup> )	湿り排ガス量 ×10 <sup>3</sup> (Nm <sup>3</sup> /h)	捕集効率 (%)	<1μm 重量%	<5μm 重量%	粒子の重量 中央径 (MMAD)(μm)
A	1.28	27	62	83	99	0.5
B	0.16	7.3	—	76	99	—
C	1.39	2.9	26	83	99	—
D	0.34	21	16	44	93	1.2
E	0.32	5.8	—	82	100	—
F	1.73	1.7	25	70	83	—
G	2.17	3.9	27	66	83	—
H	0.099	3.5	26	68	90	—
I	0.44	1.2	—	40	74	2.2
J	1.3	5.2	108	62	100	0.7
K	3.7	12.9	47	79	86	—
L	5.4	940	30	64	94	0.5
M	10.1	1,000	28	42	84	1.8
N-1	0.36	750	12	85	100	—
N-2	0.30	730	13	68	95	—
O-1	39.0	63	56	85	96	—
O-2	33.0	63	47	76	86	—
P	109	64	92	87	100	—
Q	14.0	12	67	31	66	1.1

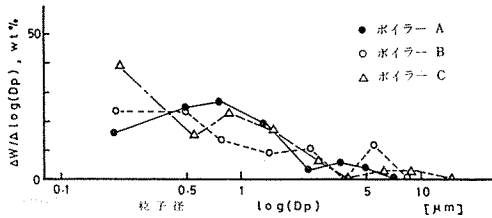


図-3 LSA 重油焚きボイラーのばいじんの粒度分布 (その1)

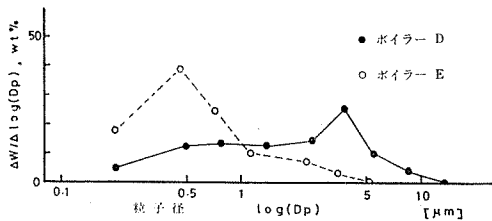


図-4 LSA 重油焚きボイラーのばいじんの粒度分布 (その2)

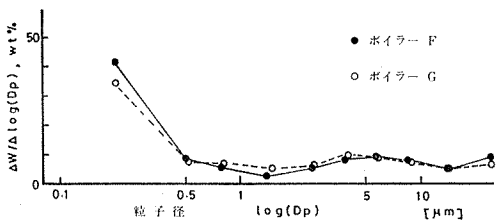


図-5 LSA 重油焚きボイラーのばいじんの粒度分布 (その3)

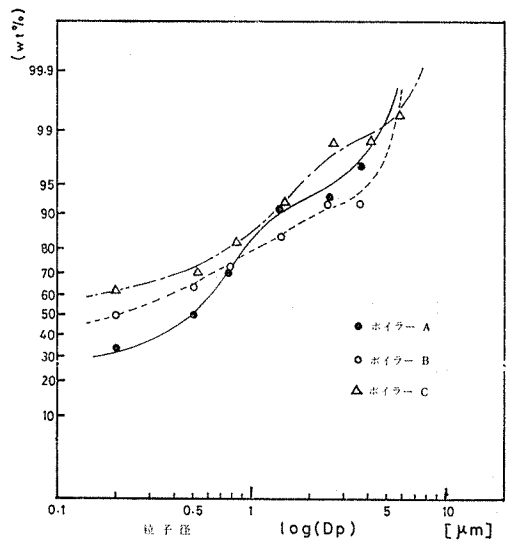


図-6 LSA 重油焚きボイラーのばいじんの累積粒度分布 (その1)

#### 4-2 灯油焚きボイラー

灯油焚きボイラーの測定結果のひん度分布を図-9, 10に示す。これより灯油焚きボイラーの場合も個々の分布は異っているが、2山あるいは3山型の分布であった。今回の調査では灯油焚きボイラーより LSA 重油焚きボイラーの粒度分布の方が微小粒子径側に偏っているものが多くみられた。これは LSA 重油と灯油

程度の燃料種類の差では粒度特性に大きな変化はみられず、むしろ個々のボイラーの燃焼方法や過剰空気量などの因子の方が粒度分布の相異におよぼす影響が大きいものと思われる。また累積分布を図-11, 12に示すが、いずれも曲線であった。1 $\mu$ m以下の粒子は、40~79%であった。

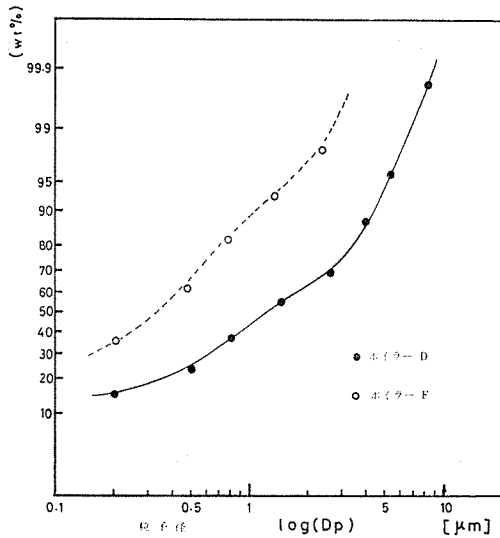


図-7 LSA 重油焚きボイラーのばいじんの累積粒度分布 (その2)

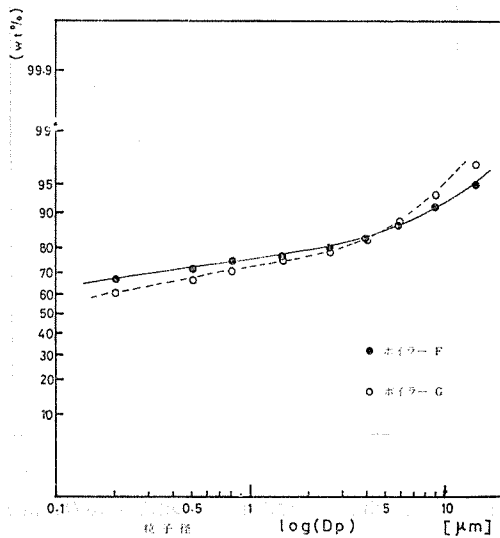


図-8 LSA 重油焚きボイラーのばいじんの累積粒度分布 (その3)

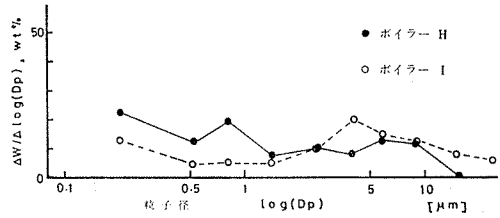


図-9 灯油焚きボイラーのばいじんの粒度分布 (その1)

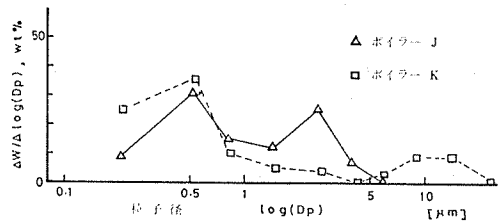


図-10 灯油焚きボイラーのばいじんの粒度分布 (その2)

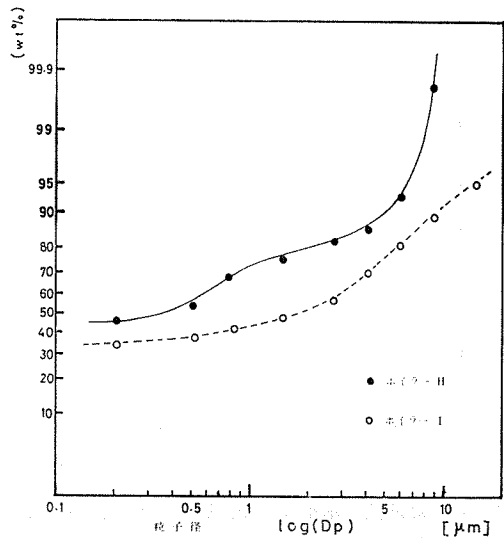


図-11 灯油焚きボイラーのばいじんの累積粒度分布 (その1)

### 4-3 発電用石炭焼きボイラー

従来より、発電用石炭焼きボイラーの排ガス中の粒度分布は2山型であることが知られている<sup>13),14),15)</sup>。今回の調査結果を図-13に、その累積分布を図-14に示すが2山型であり、それぞれ0.5, 4 $\mu$ m付近にピークがみられた。今回測定を行った施設には、すべてボイラーの後に電気集じん機、排煙脱硫装置、アフターバーナーが設置されており、その後での測定なのでボイラーの直接の排ガスではない。しかし、粒径の4 $\mu$ m付近の物質は灰色でありケイ光X線分析によるとSi, Al, Fe等が多く検出され、いわゆるフライアッシュが主成分と思われる、また0.5 $\mu$ m付近の物質は黒色であり、カーボンが主成分と思われる<sup>16)</sup>。さらに1 $\mu$ m以下の粒子の割合は42~64%であり、重量中央径(MMAD)は0.45と1.1 $\mu$ mであった。

### 4-4 発電用LSC重油焼きボイラー

発電用LSC重油焼きボイラーの測定結果を図-15に、その累積分布を図-16に示す。図中ボイラーN-1とN-2は同一施設であり、表-1から排ガス中の酸素濃度がボイラーN-1では6%, N-2では5%であった。図-15よりLSC重油焼きでは微小粒子径側のピークはほぼ同じであるが、稼動条件によっては同一ボイラーでも全体の分布が変化するのがみられた。

一般に、液体燃料を燃焼した場合、過剰空気量の増加にともないばいじん濃度は低くなり、粒度分布は微小粒子径側へ偏ってくるということが報告されている<sup>17)</sup>。しかし、今回、測定数が少ないこと、測定が電気集じん機後であることなどから一概には論じられない。また今回のLSA重油や灯油焼きボイラーの結果からは、排ガス中の酸素濃度が高いからといってかならずしも粒度分布は微小粒子径側へ偏るような傾向はみられなかった。そこで、プラントでの空気の漏れこみ等を含め今後さらに検討する必要がある。ちなみに1 $\mu$ m以下の粒子は68~85%であった。

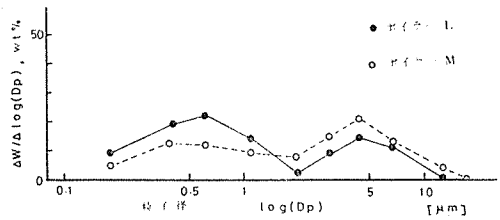


図-13 発電用石炭焼きボイラーのばいじんの粒度分布

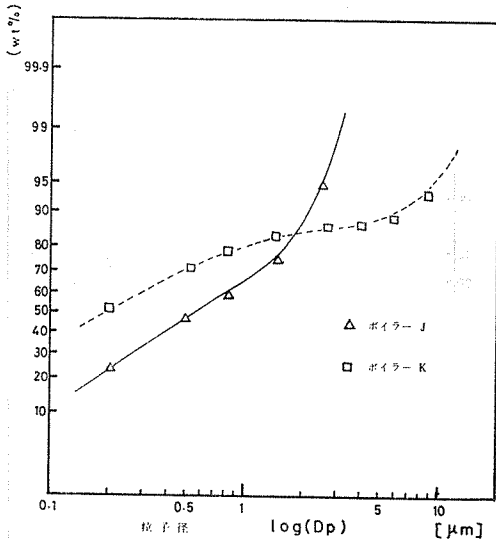


図-12 灯油焼きボイラーのばいじんの累積粒度分布 (その2)

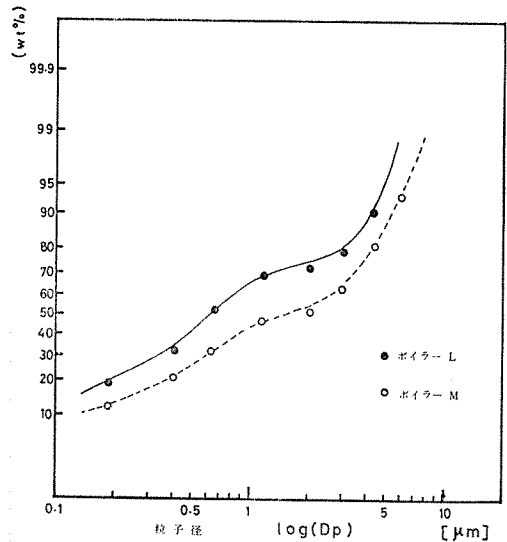


図-14 発電用石炭焼きボイラーのばいじんの累積粒度分布

4-5 排煙脱硫装置を使用したC重油焚きボイラー

C重油焚きボイラーの排煙脱硫装置後で測定した結果を図-17, 18に示す。その累積分布を図-19に示す。排煙脱硫装置は全て湿式のものであり、同一施設の測定結果でも粒度分布は異っていた。個々の粒度分布の結果はバラバラであったが、すべて微小粒子径側に著しく偏っていた。またバックアップフィルターのケイ光X線分析からイオウ、カルシウムなど排煙脱硫の際に生じる副生成物の元素が多く検出された。これはこれらの副生成物が微細な粒子あるいはミスト状になって排出されるためと思われる。ちなみに1 $\mu$ m以下の粒子は76~87%であった。

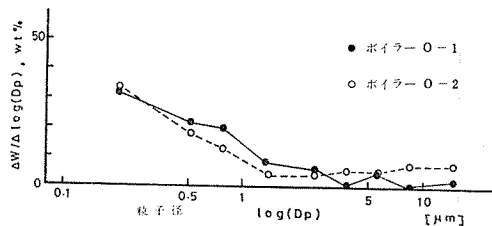


図-17 C重油焚きボイラーの排煙脱硫装置後のばいじんの粒度分布(その1)

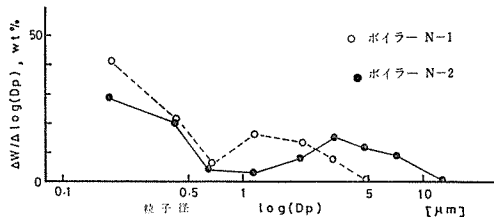


図-15 発電用LSC重油焚きボイラーのばいじんの粒度分布

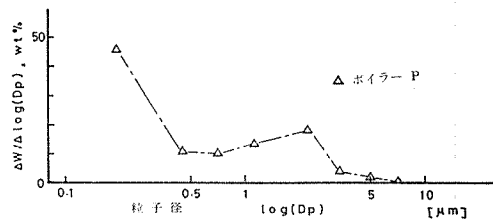


図-18 C重油焚きボイラーの排煙脱硫装置後のばいじんの粒度分布(その2)

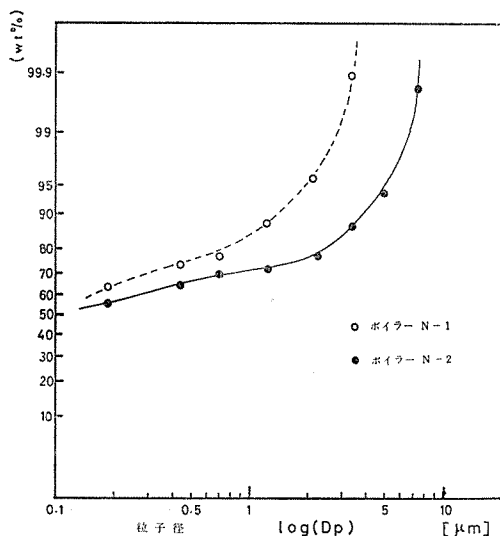


図-16 発電用LSC重油焚きボイラーのばいじんの累積粒度分布

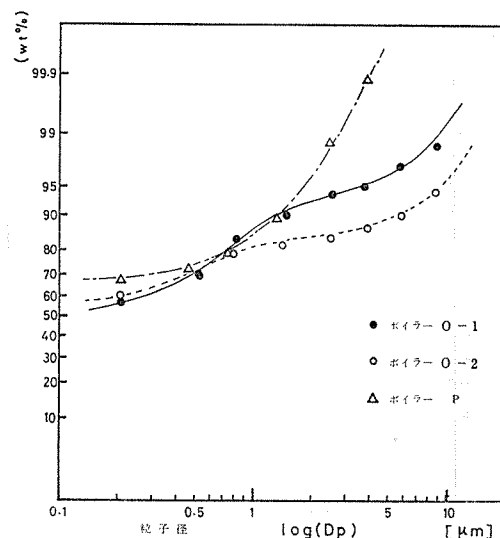


図-19 C重油焚きボイラーの排煙脱硫装置後のばいじんの累積粒度分布

#### 4-6 触媒再生塔排ガス燃焼用ボイラー (CO ボイラー)

CO ボイラーの電気集じん機出口での結果を重量パーセントで表わしたものを図-20に、電気集じん機の

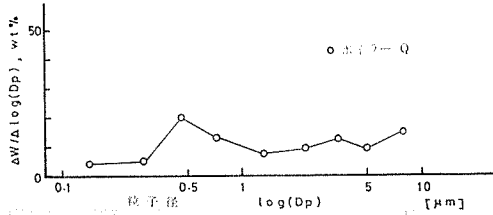


図-20 CO ボイラーの電気集じん機出口後のばいじんの粒度分布

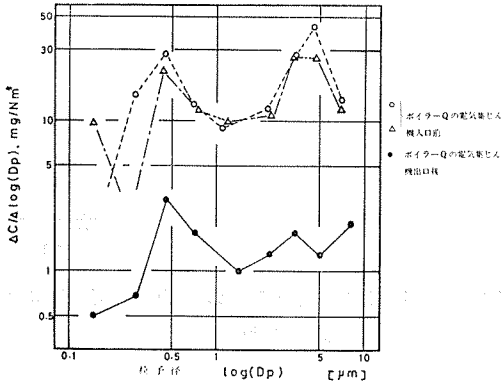


図-21 CO ボイラーの電気集じん機入口前と出口後でのばいじんの粒度分布の比較

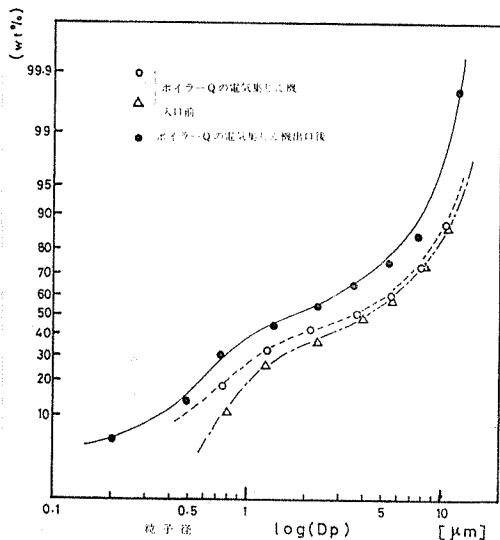


図-22 CO ボイラーの電気集じん機入口前と出口後でのばいじんの累積粒度分布

入口と出口の結果を濃度分布で表わしたものを図-21にそれぞれ示す。またそれらの累積分布を図-22に示す。図-21, 22より電気集じん機の入口と出口での粒度分布を比較した場合、分布にそれほど大きな変化はなく、ともに2山型であり、0.5, 4 $\mu$ m 付近にピークがみられた。この2つのピークはボイラーの燃焼によるものより、触媒再生プロセス中に生成されるコーキングによるカーボンと、触媒の機械的破砕によるものが主成分と思われる。また図-21より、この電気集じん機の効率はほぼ90%以上あり、集じん機の入口と出口で同じような粒度パターンを示すことから、粒子は0.1 $\mu$ m から 10 $\mu$ m までほぼ均一に捕集されているものと思われる。

#### 4-7 捕集効率

発生源用アンダーセンサンプラーの捕集効率は  
捕集効率 (%)

$$= \frac{\text{アンダーセンによる捕集濃度 (g/Nm}^3\text{)}}{\text{ばいじん測定による捕集濃度 (g/Nm}^3\text{)}} \times 100$$

としてもとめ、表-3に示した。固定発生源の場合表-3に示すように大気中と違い個々の施設でばいじん濃度が著しく異っている。粒度分布の精度は、秤量精度に大きく影響され、秤量値が0.1mg以下の場合には誤差が大きくなる。今回の調査では最も秤量誤差の小さかったステンレス板を使用したが生煙道中の条件によっては、かなりばらつくものがみられた。また、粒子濃度の低いものに捕集効率が低くなる傾向がみられた。

### 5. まとめ

#### 5-1 各種ボイラーの粒度分布

これらの結果より、ボイラーのばいじんの粒度分布は2山あるいは3山型であり、それぞれ 0.1~0.2, 0.5, 3~5 $\mu$ m 付近にピークがみられ、液体燃料を使用した場合いずれも微小粒子径側へ偏っており、1 $\mu$ m 以下の粒子が50%以上になっているものがほとんどであった。このことは、0.1 $\mu$ m 以下のさらに微小な粒子についても調査する必要性を示している。この領域の粒子については、まだほとんど調査報告がないが、凝縮核にもとづく2次粒子の生成の問題などととも今後検討課題でもある。また粒度分布と各ボイラーの稼働条件との間で単一の傾向はみられなかった。これよりボイラーからのばいじんの発生機構は単純な要因によって生成するものではなく複雑であり、燃料、燃焼方法、過剰空気量、燃焼負荷等の燃焼工学的特性、あるいは煙道中での2次粒子の生成等の輸送過程での特性<sup>4), 18)</sup> などさらに研究する必要がある。また個々の

粒度分布が同一施設の結果であってもそれぞれ異っているものが多いことについては、今後測定方法の精度及び再現性、測定施設の粒度分布の時間的変化等あわせて検討する必要があると思われる。

## 5-2 粒度分布の表示方法

粒度分布の表示方法は、未だ適切な方法が確立されておらず、多くの報告でもバラバラである。しかし、近年わが国でも累積分布の数値微分によるひん度分布の表示が多くみられるが<sup>19)</sup>、アンダーセンサンプラーの場合、その段数からみて粒度分布は概略的なものとなるのは当然であり、必要以上の精度や分解能を求めるのは適切ではない。そこで、今回の結果はアンダーセンサンプラーの特性を考慮して各段ごとにプロットしたひん度分布と対数正規確率紙上での累積分布で示した。今後、各種の測定方法にみあった定量的な、さらに一般性をもった表示方法を検討していく必要がある。

## 文 献

- 1) 高橋洋志, 老田克幸, 柳井弘: 煙突から排出された粉塵の沈着距離. 化学工学論文集. 4. 465-472 (1978).
- 2) 環境庁, 岡山県: 浮遊粒子状物質汚染予測調査結果報告書. 昭和51~53年.
- 3) 佐俣満夫, 平野耕一郎, 渡辺善徳: 第20回大気汚染学会講演要旨集. 218 (1979).
- 4) 山本英夫, 菅沼彰, 森芳郎: カスケードインパクトによる浮遊粉塵の粒度測定. 化学工学論文集. 1. 638-642 (1975).
- 5) 吉田英人, 井伊谷鋼一: エアロゾルの非等速吸引誤差. 化学工学論文集. 2. 336-340 (1976).
- 6) アンダーセンサンプラー取扱説明書. 高立機器.
- 7) V. A. Marple, K. Willeke: Impactor design. *Atmospheric Environment*. 10. 891-896 (1976).
- 8) 高橋幹二: 基礎エアロゾル工学. 129-163 (1972) 養賢堂.
- 9) O. G. Raabe: Particle size analysis utilizing grouped data and the log-normal distribution. *Journal of Aerosol Science*. 2. 289-303 (1971).
- 10) 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布の解析. 分析化学. 24. 36-40 (1975).
- 11) J. F. Roeler: Size distribution of sulfate aerosols in the ambient air. *Journal of the air pollution control association*. 15. 576-579 (1965).
- 12) F. L. Ludwig: Behavior of numerical analog to a cascade impactor. *Environmental science and technology*. 2. 547-550 (1968).
- 13) E. S. Gladney, J. A. Small, G. E. Gordon and W. H. Zoller: Composition and size distribution of in-stack particulate material at a coal-fired power plant. *Atmospheric Environment*. 10. 1071-1077 (1976).
- 14) E. W. Schmidt, J. A. Gieseke and J. M. Allen: Size distribution of fine particulate emissions from a coal-fired power plant. *Atmospheric Environment*. 10. 1065-1069 (1976).
- 15) E. J. Schulz, R. B. Engdahl and T. T. Franzenberg: Submicron particles from a pulverized coal fired boiler. *Atmospheric Environment*. 9. 111-119 (1975).
- 16) G. L. Fisher, B. A. Prentice, D. Silberman: Physical and morphological studies of size-classified coal fly ash. *Environmental science and Technology*. 12. 447-451 (1978).
- 17) H. L. Goldstein, C. W. Siegmund: Influence of heavy fuel oil composition and boiler combustion conditions on particulate emissions. *Environmental Science and Technology*. 10. 1109-1114 (1976).
- 18) 山本英夫, 菅沼彰, 国井大蔵: 高速気流による凝集微粉体の分散現象. 化学工学論文集. 3. 12-18 (1977).
- 19) 松尾行之, 藤村満, 樋口雅: 固定発生源から排出されるばいじん(粉じん)中の金属成分および粒度分布. 公害と対策. 14. 951-956 (1978).



# 横浜市内における大気中の浮遊粒子状物質および重金属濃度の調査結果とその主成分分析による解析

鈴木 正雄\*

## 要 約

昭和53年1月から12月までの1年間、横浜市内の4ヶ所でローポリウムエアサンプラーを用い、浮遊粒子状物質の濃度を測定した。捕集した浮遊粒子状物質について化学分析を行ない、重金属（鉛、カドミウム、銅、マンガン、ニッケル、鉄、バナジウム）の濃度を求めた。横浜市内の大気中の浮遊粒子状物質、重金属の濃度は、夏季に低く冬季に高くなる傾向がみられた。また4地点のうち、大工業地域に隣接した測定地点では、浮遊粒子状物質、重金属とも高い濃度を示した。

得られた測定結果について主成分分析による解析を行なったところ、第1主成分として汚染物質の濃度を示す因子、第2主成分として化石燃料の燃焼の影響を示す因子が導き出された。

## 1. はじめに

横浜市内の大気中の浮遊粉じんおよび重金属について、著者らは昭和46年から昭和51年にかけて一連の調査をし、これらの調査により、市内の浮遊粉じんと重金属の濃度を把握することができた<sup>1)~4)</sup>。

これらの調査は、ハイポリウムエアサンプラーを用い、浮遊粉じんおよび重金属濃度の経日変化を把握することを目的としたため、調査期間は夏季と冬季の各10日間である。したがって、浮遊粉じんおよび重金属濃度の経月変化は把握できない。そこで、更にきめ細かい情報を得るため、昭和53年からローポリウムエアサンプラーを用い、年間を通じた浮遊粉じんの調査を実施した。本報では昭和53年1月から12月までの調査結果について報告し、さらに、この調査結果について主成分分析を行ない、汚染の要因について解析を試みたので報告する。

なお、ローポリウムエアサンプラーは粒径  $10\mu\text{m}$ 以上の粒子を捕集しない構造（いわゆる10ミクロンカット）となっており、測定値は10ミクロンカットがされていないハイポリウムエアサンプラーより低い濃度となる。大気中に浮遊する粒径  $10\mu\text{m}$ 以下の粉じん粒子は浮遊粒子状物質と呼ばれ、本調査は浮遊粒子状物質

についておこなったものである。

## 2. 調査概要

### 2-1 浮遊粒子状物質の捕集方法

横浜市内の4ヶ所にローポリウムエアサンプラー（新宅機械製作所製、S2型、サイクロン式10ミクロンカット、以下ローポリウムという）を設置し、昭和53年1月から通年にわたり、大気吸引量毎分20ℓで連続稼働させ、浮遊粒子状物質をガラス繊維沓紙（ミリポアAP-20、直径110mm、有効捕集径100mm）上に捕集した。沓紙の交換は毎月初めに行ない、沓紙に付着した浮遊粒子状物質の重量と総大気吸引量から1ヶ月間の平均浮遊粒子状物質濃度を求めた。

なお、ローポリウムの使用に際しては、大気吸引量をロータメータで規定流量（20ℓ/min）に調節してあり、ローポリウムの5台同時運転による測定値のバラツキは、変動係数2.2%（5台の平均浮遊粒子状物質濃度  $89.1\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、標準偏差  $1.9\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）であった。

### 2-2 調査地点

横浜市公害対策局所管の大気汚染常時監視地点のうちから次の4地点を選び調査地点とした。調査地点を図-1に示す。

Evaluation of the Concentrations of Suspended Particulate Matters and Heavy Metals in Yokohama City and Application to Principal Component Analysis.

\* Masao Suzuki, 横浜市公害研究所大気部門

- 横浜市鶴見保健所 (鶴見区本町通り)
- 横浜市立都田中学校 (緑区池辺町)
- 横浜市戸塚区総合庁舎 (戸塚区戸塚町)
- 神奈川県立長浜病院 (金沢区富岡町)

常時監視地点を測定地点とした理由は、横浜市内において、浮遊粒子状物質とそれに含まれる重金属、二酸化硫黄 (SO<sub>2</sub>)、窒素酸化物 (NO<sub>x</sub>)、オキシダント (Ox) の関係が把握されておらず、これらの関係を把握するためである。

横浜市内の工業地域の分布は図-1に示した通りである。鶴見区は旧来からの工場が多く、東京都、川崎市から続く京浜工業地帯の一部をなしている。中区から磯子区にかけて存在する工業地域は、昭和30年代および40年代に形成された比較的新しい大工場が多い。

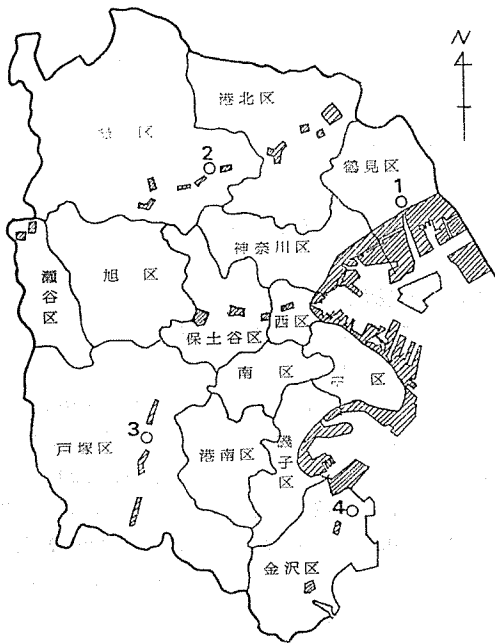


図-1 測定地点 (斜線は工業地域)

- 1. 鶴見保健所
- 2. 都田中学校
- 3. 戸塚区総合庁舎
- 4. 長浜病院

これら以外にも市内には工業地域が点在しているが、それらは中小工場ないし軽工業の工場が多い。

測定地点のうち、鶴見保健所 (以下鶴見という) は工業地域に隣接した商業地域にあり、戸塚区総合庁舎 (以下戸塚) は商業地域、都田中学校 (以下都田)、長浜病院 (以下長浜) は住居地域に位置している。

### 2-3 重金属の分析方法

浮遊粒子状物質の付着したガラス繊維濾紙を試料として化学分析を行ない、鉛 (Pb)、カドミウム (Cd)、銅 (Cu)、マンガン (Mn)、ニッケル (Ni)、鉄 (Fe)、バナジウム (V) の7種の重金属の濃度を求めた。

分析は以下の手順で行なった。

浮遊粒子状物質の付着した濾紙の $\frac{1}{2}$ を切り取り、4規定塩酸30ml、30%過酸化水素水 5mlを加え、沸騰水浴上で5時間還流し重金属を溶出させる。なお還流終了30分前に30%過酸化水素水 5mlをさらに加える。溶出液を濾過し残さを1規定塩酸で洗い、その洗液と濾液をあわせ、水浴上で蒸発乾燥させる。これに1規定硝酸30mlを加え、時計皿でふたをし、10分間加熱して再び溶解させたものを分析試料とした。Pb, Cd, Cu, Mn, Ni, Feについては原子吸光直接法で、VについてはN-ベンゾイルフェニルヒドロキシルアミン (BPHA) 比色定量法<sup>5)</sup>で定量する。

### 3. 結果および考察

昭和53年1月から12月までの浮遊粒子状物質と重金属の濃度を経月的にプロットし図-2~図-9に示す。さらに常時監視地点で自動測定機により測定された二酸化硫黄 (SO<sub>2</sub>)、一酸化窒素 (NO)、二酸化窒素 (NO<sub>2</sub>)、窒素酸化物 (NO<sub>x</sub>)、オキシダント (Ox) の濃度と風速 (WS) の1時間値を1ヶ月間で平均し図-10~図-15に経月的にプロットして示した。

また表-1は浮遊粒子状物質と重金属の濃度とその他のガス状汚染物質の濃度の年平均値である。

表-1 浮遊粒子状物質、重金属、ガス状汚染物質、風速の年平均値

	Dust	Pb	Cd	Cu	Mn	Ni	Fe	V	SO <sub>2</sub>	NO	NO <sub>2</sub>	NO <sub>x</sub>	Ox	WS
鶴見保健所	67.6	0.23	0.0043	0.039	0.098	0.015	1.22	0.023	0.022	0.037	0.039	0.076	0.016	3.1
都田中学校	57.6	0.15	0.0037	0.026	0.061	0.008	0.82	0.014	0.008	0.022	0.024	0.046	0.021	1.0
戸塚区総合庁舎	63.7	0.15	0.0033	0.044	0.052	0.008	1.00	0.012	0.008	0.043	0.035	0.078	0.020	2.6
長浜病院	41.0	0.11	0.0024	0.021	0.051	0.009	0.73	0.017	0.010	0.017	0.024	0.041	0.025	1.8
平均	57.5	0.16	0.0034	0.033	0.066	0.010	0.94	0.017	0.012	0.030	0.030	0.060	0.020	2.1

単位 (浮遊粒子状物質、重金属:  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ , ガス状物質: ppm, 風速: m/s)

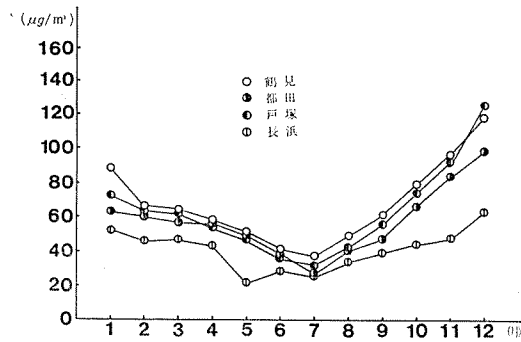


図-2 浮遊粒子状物質の経月変化

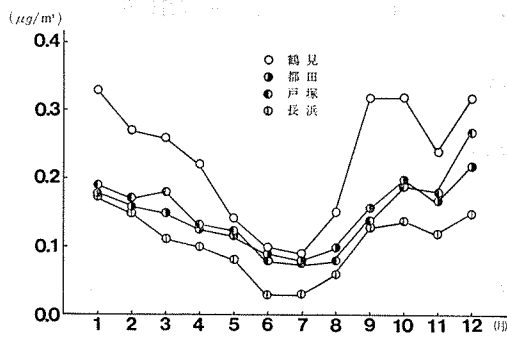


図-3 鉛の経月変化

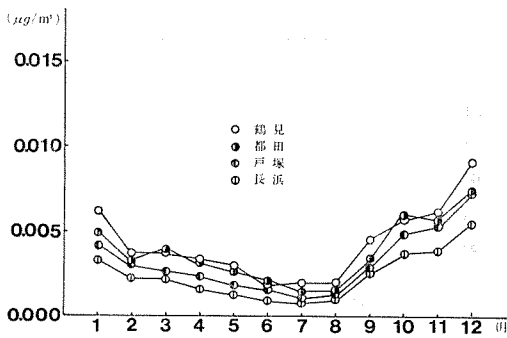


図-4 カドミウムの経月変化

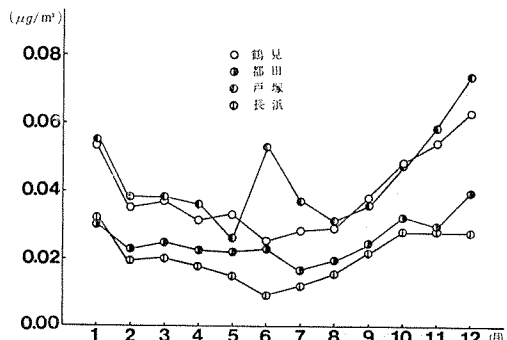


図-5 銅の経月変化

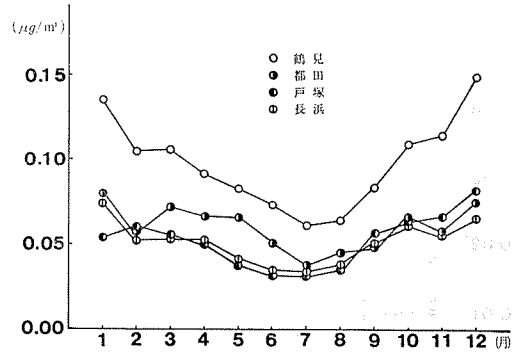


図-6 マンガンの経月変化

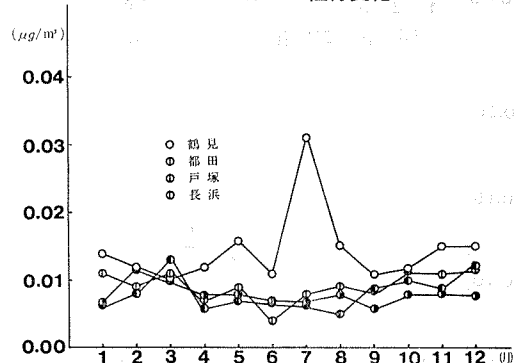


図-7 ニッケルの経月変化

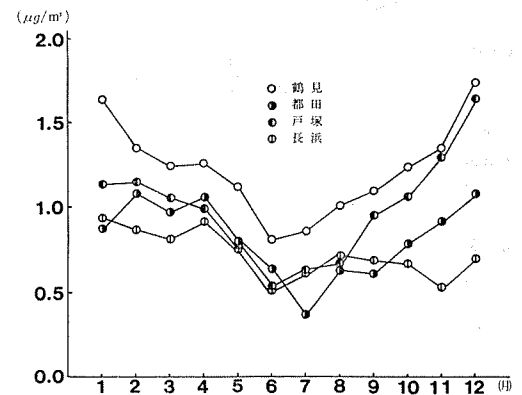


図-8 鉄の経月変化

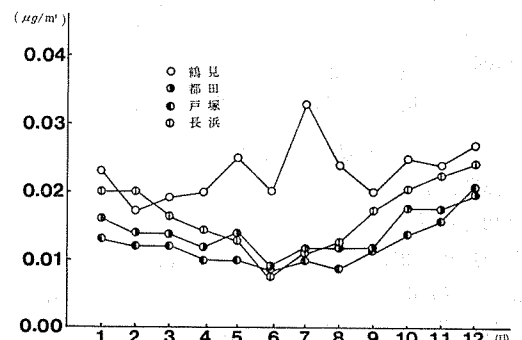


図-9 バナジウムの経月変化

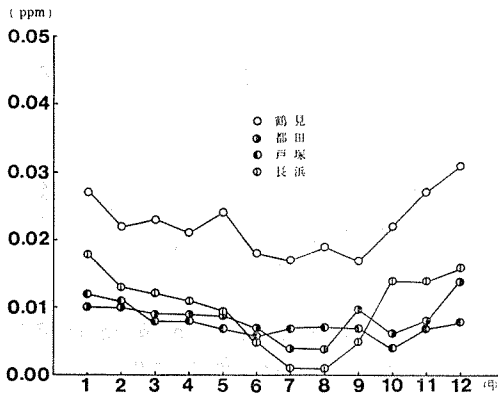


図-10 二酸化硫黄の経月変化

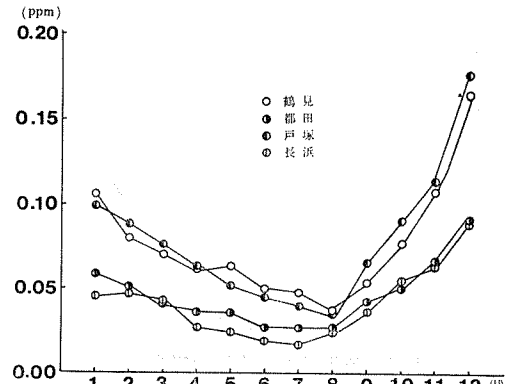


図-13 窒素酸化物の経月変化

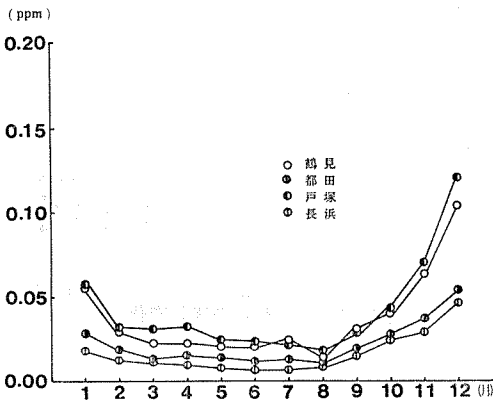


図-11 一酸化窒素の経月変化

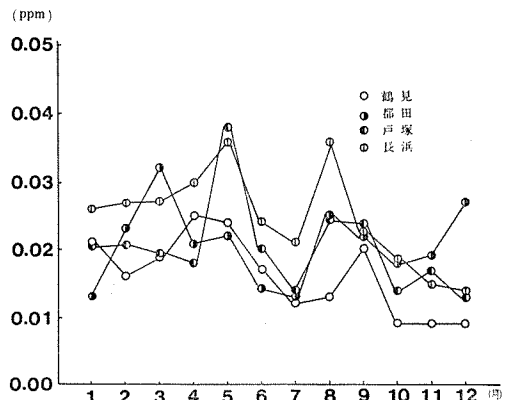


図-14 オキシダントの経月変化

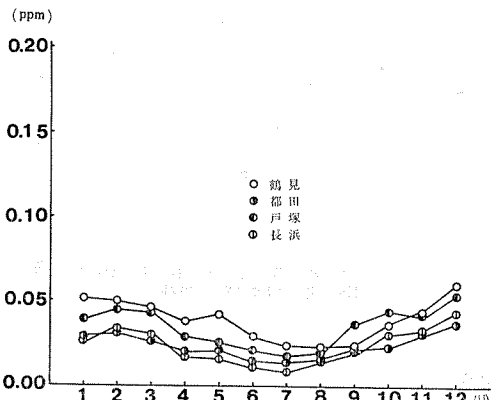


図-12 二酸化窒素の経月変化

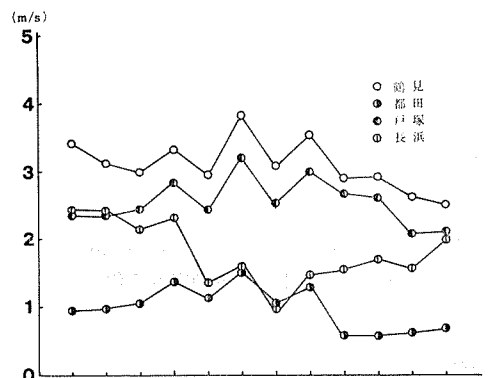


図-15 風速の経月変化

### 3-1 浮遊粒子状物質の濃度

浮遊粒子状物質において最も高い濃度となったものは12月の戸塚で  $126.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、逆に最も低い濃度は5月の長浜で  $21.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$  であった。1年間の平均値では鶴見が  $67.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$  と最も高く、以下、戸塚 ( $63.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ )、都田 ( $57.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ )、長浜 ( $41.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ) の順に低くなった (表-1)。

経月変化では夏季の6月、7月に濃度が低く、冬季の12月、1月に濃度が高くなる傾向がみられた。また、鶴見、都田、戸塚は経月変化がよく似ており、夏季と冬季で濃度差が大きい、長浜は濃度差が小さい (図-2)。

### 3-2 重金属の濃度

表-1の重金属 (Pb, Cd, Cu, Mn, Ni, Fe, V)

の年平均値をみると、鶴見の重金属濃度は Cu を除き 4 地点のうちで最も高くなっており、隣接した工業地域の影響を強く受けていることがわかる。

重金属濃度の経月変化では、Pd, Cd, Mn, Fe の濃度が夏季（5月～8月）に低く、冬季（12月、1月）に高くなる傾向がみられる。これは浮遊粒子状物質と同様の傾向である。これらの重金属のうち、特に Pb, Mn, Fe は、1年間を通じて、鶴見が各月とも高い濃度となった。

これに対し、Ni, V の経月変化は他の重金属と異なった傾向を示している。すなわち、鶴見では7月に Ni, V の濃度が高くなっており、これは Pb, Cd, Mn, Fe の濃度が夏季に低くなることとは逆の傾向である。さらに浮遊粒子状物質濃度が年間を通じて4地点中最も低い長浜で、1月から3月、10月から12月にかけて Ni, V の濃度が高くなる傾向がみられる。特に2月は V の濃度が  $0.020\mu\text{g}/\text{m}^3$  と4地点中最も高くなっており、長浜の Ni, V の経月変化の傾向は図-10の  $\text{SO}_2$  の経月変化の傾向と似ており、これらの物質の間には何らかの関係があることを示唆している。

また、Cu は6月、7月に戸塚で濃度が高くなっており、異常値とも思われるが、戸塚は銅の年平均濃度が  $0.044\mu\text{g}/\text{m}^3$  と最も高く、南東側約 200m 離れたところに鉄道があり、架線の影響を受けたのかも知れない。

汚染物質の濃度は夏季の6月、7月を中心として、冬季の12月前後に高くなっており、この傾向は、 $\text{SO}_2$ ,  $\text{NO}_x$  でもみられた（図-10 図-13）。一般に発生源から排出された一次汚染物質の濃度は夏季に低く、冬季に高くなると考えられる。

表一2 各測定項目間の相関係数

	Dust	Pb	Ca	Cu	Mn	Ni	Fe	V	$\text{SO}_2$	NO	$\text{NO}_2$	$\text{NO}_x$	Ox	WV
Dust	1.00	0.80**	0.94**	0.82**	0.72**	0.21	0.84**	0.43**	0.45**	0.91**	0.81**	0.92**	-0.39**	0.08
Pb	0.80**	1.00	0.82**	0.69**	0.88**	0.28	0.83**	0.53**	0.67**	0.65**	0.76**	0.73**	-0.36*	0.28
Cd	0.94**	0.82**	1.00	0.72**	0.76**	0.25	0.72**	0.54**	0.51**	0.83**	0.75**	0.85**	-0.43**	-0.05
Cu	0.82**	0.69**	0.72**	1.00	0.57**	0.22	0.73**	0.32*	0.39**	0.88**	0.75**	0.88**	-0.48**	0.39**
Mn	0.72**	0.88**	0.76**	0.57**	1.00	0.45*	0.82**	0.67**	0.85**	0.57**	0.73**	0.66**	-0.41**	0.35*
Ni	0.21	0.28	0.25	0.22	0.45**	1.00	0.37**	0.81**	0.56**	0.23	0.36*	0.29	-0.34*	0.38**
Fe	0.84**	0.83**	0.72**	0.73**	0.82**	0.37**	1.00	0.46**	0.63**	0.74**	0.82**	0.81**	-0.24	0.39**
V	0.43**	0.53**	0.54**	0.32**	0.67**	0.81**	0.46**	1.00	0.75**	0.39**	0.50**	0.45**	-0.43**	0.31*
$\text{SO}_2$	0.45**	0.67**	0.51**	0.39**	0.85**	0.56**	0.63**	0.75**	1.00	0.36*	0.62**	0.47**	-0.34**	0.54**
NO	0.91**	0.65**	0.83**	0.88**	0.57**	0.23	0.74**	0.39**	0.36*	1.00	0.77**	0.97**	-0.46**	0.16
$\text{NO}_2$	0.81**	0.76**	0.75**	0.75**	0.73**	0.36*	0.82**	0.50**	0.62**	0.77**	1.00	0.90**	-0.36*	0.39**
$\text{NO}_x$	0.92**	0.73**	0.85**	0.88**	0.66**	0.29*	0.81**	0.45**	0.47**	0.97**	0.90**	1.00	-0.45**	0.25
Ox	-0.39**	-0.36*	-0.43**	-0.48**	-0.41**	-0.34*	-0.24	-0.43**	-0.34*	-0.46**	-0.36*	-0.45*	1.00	-0.20
WV	0.08	0.28	-0.05	-0.39**	0.35*	0.38**	0.39**	0.31*	0.54**	0.16	0.39*	0.25	-0.20	1.00

n=48,  $r(46:0.01)=0.368$ ,  $r(46:0.05)=0.285$

\*\* : 有意水準0.01で有意, \* : 有意水準0.05で有意

### 3-3 各物質間の相関

汚染物質相互の関係をj知るため、各汚染物質間の相関係数を求め表一2に示した。

一般に都市のように種々の発生源が混在している地域では、各汚染物質間で正の相関が認められることが多い。表一2に示した通り、本調査でも多くの汚染物質間で相関が認められた。しかし、重金属の中で Ni は浮遊粒子状物質、Pb, Cu,  $\text{NO}$ ,  $\text{NO}_x$  と相関が認められず、7種の重金属の中では特異的である。

また、Ox は他の汚染物質に対し無相関ないし負の相関を示し、これは Ox が一次汚染物質の複合反応により生成した二次汚染物質のためと考えられる。

## 4. 主成分分析による解析

本調査では浮遊粒子状物質と重金属の濃度を測定し、市内4地点の汚染の程度を知ることができた。また、相関係数から汚染物質間相互の関係の特徴をある程度把握することができた。しかし、これらの把握は、平均値や相関係数など多くの代表値からせねばならず、なお不明瞭な点もある。そこで、これらの多くの代表値を数個の総合特性値としてまとめる方法が必要であり、主成分分析はこのために用いられる。

### 4-1 主成分分析の概要①

主成分分析は各項目（本調査では各汚染物質を意味する）間の関係をもとに、特性値（測定値）を構成する要因（主成分）を求め、説明力の大きい二、三の主成分の値をもって特性値（測定値）を説明するという統計解析的手法である。また、主成分分析は各項目（物質）間の関係をより明らかにできるという利点も

ある。

主成分分析の計算手順は次のとおりである。

(1) 相関係数行列の算出

主成分分析は表-2に示した相関係数行列をもとに展開される。すなわち、相関係数行列から各項目(物質)間の関係をつかむわけである。したがって、無意味な項目があると結果に重大な影響を及ぼすことがあり、項目を慎重に選択する必要がある。

(2) 相関係数行列の固有値の算出

固有値は相関係数行列をもとに求める。

相関係数行列から計算される固有値は次のような意味を持つ。固有値は主成分の分散に等しく、固有値が大きいものほど特性値(測定値)の構造をよく説明できる。項目数がn個あれば固有値もn個求められ、各固有値に対応して主成分もn個求められるが、固有値が1より小さい場合は説明力が小さく、結果として固有値(対応する主成分の分散)の大きい二、三の主成分によってかなりの部分が説明される。

(3) 固有ベクトルの算出

固有ベクトルは算出された固有値に対応するベクトルであり、主成分は特性値(測定値)と固有ベクトルの積和で求められる。マトリックスで表わすと次のとおりである。

$$\begin{pmatrix} Z_1 \\ Z_2 \\ \vdots \\ Z_k \\ \vdots \\ Z_m \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} l_{11} & l_{12} & \dots & l_{1p} \\ l_{21} & l_{22} & \dots & l_{2p} \\ \dots & \dots & \dots & \dots \\ l_{k1} & l_{k2} & \dots & l_{kp} \\ \dots & \dots & \dots & \dots \\ l_{m1} & l_{m2} & \dots & l_{mp} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} x_1 \\ x_2 \\ \vdots \\ x_i \\ \vdots \\ x_p \end{pmatrix}$$

ここに  $Z_k$ : 主成分

$\{l_{ki}\}$  ( $k=1, 2, \dots, p$ ): 固有ベクトル

$x_i$ : もとの特性値(測定値)

$x_i$  ( $i=1, 2, \dots, p$ ) はもとの特性値であり、本調査の場合、それぞれ浮遊粒子状物質、Pb、Cd等の濃度に対応する。

以上の手順によって主成分  $Z_k$  ( $k=1, 2, \dots, n$ ) が求められるが、解析の手順として以下のものも求められる。

(4) 累積寄与率

累積寄与率は、得られた主成分のうち大きいものから何番目の主成分まで、もとの特性値をどの程度説明できるかの尺度を与える。

(5) 因子負荷量

因子負荷量は、ある主成分  $Z_k$  と特性値  $x_i$  との間の相関係数であり、ある特性値がどの主成分と関係が深いかの目安となる。

(6) 寄与率

導き出されたn個の主成分について、因子負荷量を2乗し加えたもので、各特性値が主成分としてどの程度とり出されたかの目安となる。

なお、主成分分析の計算は複雑であり、通常は電子計算機を用いて行なう。本調査結果の主成分分析は日本電気提供のACOS-4アプリケーションプログラムSTATPAC-4(倍精度により計算)を用いた。

4-2 本調査結果の主成分分析

4-1で述べたように、主成分分析は項目の選択により結果が大きく異なることがあるため、本調査の主成分分析による解析では、項目を6通りに変えて行った。本報では、調査結果をよく説明できた2例について報告する。

4-2-1 浮遊粒子状物質、Pb、Cd、Cu、Mn、Ni、Fe、Vの8項目を特性値とした場合

表-2の相関係数行列から、浮遊粒子状物質、Pb、Cd、Cu、Mn、Ni、FeおよびVの8項目間の相関係数を選び、主成分分析を行なった。得られた固有値、累積寄与率を表-3に示す。

この表において固有値が1より大きいものは第1主成分(固有値5.44)と第2主成分(1.40)であり、第2主成分までの累積寄与率は0.85であった。したがって、第1主成分と第2主成分でもとの特性値(測定値)の85%が説明できる。第3主成分の固有値0.45は1より小さく、第3主成分までの累積寄与率0.91は第2主成分までの値0.85と大きく変わらないので、第3主成分以下の主成分はあまり重要でないと考えられる。

第1主成分と第2主成分の因子負荷量、および第2主成分までの寄与率を表-4に示す。

第1主成分の因子負荷量は0.48(Ni)~0.92(Pb)であり、すべての特性値と正の相関がある。第2主成分の因子負荷量はNi、Vとは正の相関があり、その他の特性値とは無相関ないし負の相関となっている。図-16は第1主成分の因子負荷量を横軸に、第2主成分の因子負荷量をたて軸にとり、各項目ごとの因子負荷量の値をプロットしたものである。各項目で因子負荷量が同程度のものは関係が深いと考えられ、図-16から、主成分分析をほどこした8項目の大気汚染物質は、{浮遊粒子状物質、Pb、Cd、Cu、Mn、Fe}、および、{Ni、V}の二つの組に分けられる。



表一3 固有値および累積寄与率 (8項目)

主成分	固有値	累積寄与率
1	5.44	0.68
2	1.40	0.85
3	0.45	0.91
4	0.36	0.96
5	0.18	0.98
6	0.09	0.99
7	0.07	1.00
8	0.01	1.00

表一4 各項目の第1主成分, 第2主成分への因子負荷量と第2主成分までの寄与率(8項目)

	因子負荷量		寄与率
	第1主成分	第2主成分	
Dust	0.91	-0.31	0.92
Pb	0.92	-0.14	0.86
Cd	0.90	-0.19	0.85
Cu	0.80	-0.32	0.74
Mn	0.90	0.10	0.83
Ni	0.48	0.82	0.90
Fe	0.90	-0.13	0.82
V	0.69	0.67	0.91

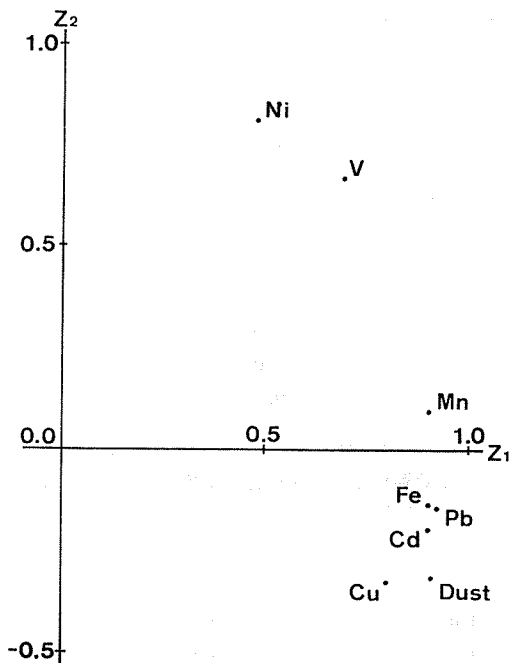
表一4の因子負荷量の値から, 第2主成分は Ni, V と関係が強い。Ni, V は重油, 石炭などの化石燃料中に多く含まれており(7,8), これらは燃焼にともない大気中に排出されることから, 第2主成分は化石燃料の燃焼の影響を表わすものと思われる。第1主成分は8項目の全特性値と正の相関がある。したがって第1主成分は汚染物質の量と関係が強く, 汚染の度合を示すものと考えられる。

しかし, 主成分分析では主成分間の相関は無相関という性質があり, 第1主成分が汚染の度合を示すものとする, 化石燃料の燃焼の影響と解釈した第2主成分も汚染に関係があるため, 主成分間は無相関という性質に反する。したがって, 第1主成分, 第2主成分の解釈にあたっては, 浮遊粒子状物質, 重金属以外の項目をも含めなければならない。

4-2-2 浮遊粒子状物質, 重金属, SO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub> の10項目を特性値とした場合

4-2-1 の浮遊粒子状物質および重金属(7項目)の8項目に, SO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub>を加え, 10項目について主成分分析を行なった。

SO<sub>2</sub>はNi, Vと同様, 化石燃料の燃焼によって大気中に排出されるものであり, SO<sub>2</sub>を項目として加える



図一16 各測定項目の因子負荷量

Z<sub>1</sub>: 第1主成分への因子負荷量

Z<sub>2</sub>: 第2主成分への因子負荷量

Dust: 浮遊粒子状物質

ことにより, 4-2-1 で導かれた第2主成分が化石燃料の燃焼の影響を説明するものであるどうか, 明確になる。

NO<sub>x</sub> は燃焼によって生じるものであり, 燃焼全体の影響の指標となり得る。

浮遊粒子状物質, 重金属, SO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub>の10項目を特性値とした場合の固有値, 累積寄与率を表一5に示す。表一5から, 固有値は第1主成分6.75, 第2主成分1.65となり, 第2主成分までで84%が説明できる。また, 第1主成分, 第2主成分の因子負荷量と第2主成分までの寄与率を表一6に示す。第1主成分, 第2主成分の因子負荷量は前例の8項目の場合と同様であり, 第1主成分はすべての項目と正の相関を示し, 第2主成分はNi, V, SO<sub>2</sub>と正の相関を示した。これら10項目の第1主成分, 第2主成分の因子負荷量を, 図一16と同様に図一17に示す。

NO<sub>x</sub> の因子負荷量(第1主成分0.88, 第2主成分-0.31)は, 浮遊粒子状物質の因子負荷量の値と似ている(図一17)。したがって, NO<sub>x</sub> と浮遊粒子状物質は関係が強いと考えられるが, それらの発生源は必ずしも同一ではない。NO<sub>x</sub> が, そのほとんどを燃焼に起因するのに対し, 浮遊粒子状物質は, 燃焼のほか土

表一5 固有値および累積寄与率 (10項目)

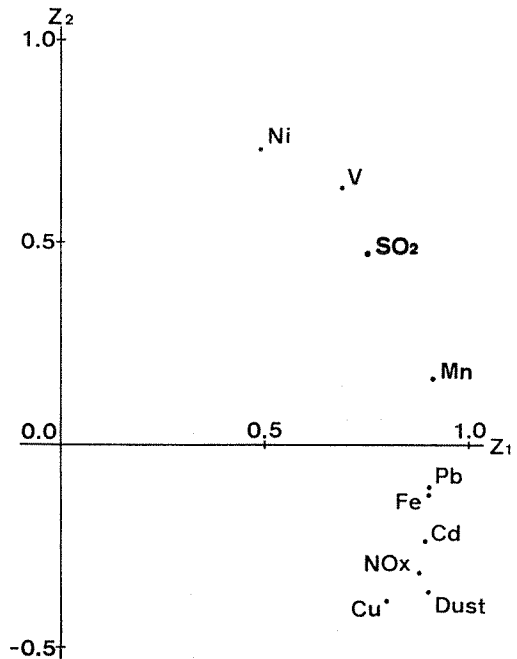
主成分	固有値	累積寄与率
1	6.75	0.68
2	1.65	0.84
3	0.64	0.90
4	0.37	0.94
5	0.23	0.97
6	0.16	0.98
7	0.08	0.99
8	0.05	0.99
9	0.04	1.00
10	0.01	1.00

表一6 各項目の第1主成分, 第2主成分への因子負荷量と第2主成分までの寄与率 (10項目)

	因子負荷量		寄与率
	第1主成分	第2主成分	
Dust	0.90	-0.36	0.94
Pb	0.90	-0.10	0.83
Cd	0.89	-0.23	0.85
Cu	0.80	-0.38	0.78
Mn	0.91	0.17	0.85
Ni	0.49	0.73	0.78
Fe	0.90	-0.12	0.82
V	0.69	0.64	0.88
SO <sub>2</sub>	0.75	0.48	0.80
NOx	0.88	-0.31	0.88

塵由来のものもある程度存在する。したがって、第1主成分は発生源の形態を説明するものとは考えられない。

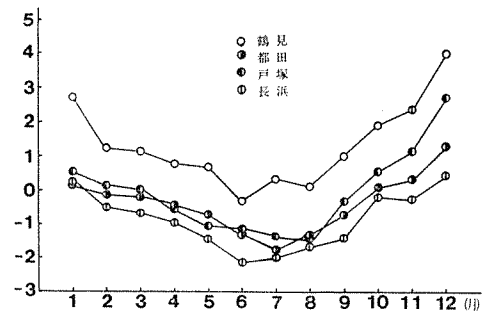
ところで、第1主成分の因子負荷量は、浮遊粒子状物質0.90, Pb 0.90, Cd 0.89, Mn 0.91, Fe 0.90, NOx 0.88のように、これら8物質については高い値を示す。このことは第1主成分の経月変化がこれらの物質と似ていることを示唆している。図一18は第1主成分 ( $Z_1$ ) の値の経月変化を示したものである。図一18から、6月~8月は第1主成分の値が低く、1月, 11月, 12月は高いことがわかる。また、経月変化に特徴のある Ni, V も第1主成分の因子負荷量はそれぞれ 0.49, 0.75 と、値は低いが正の相関が認められ、これは鶴見を除く3地点の経月変化が、わずかながらも夏季に濃度が低く冬季に濃度が高いという傾向を示しているためと思われる。以上のことから、第1主成分は汚染物質の経月変化をよく表わしており、これら10項目の物質を特性値とした場合の汚染の総合指標と考えられる。



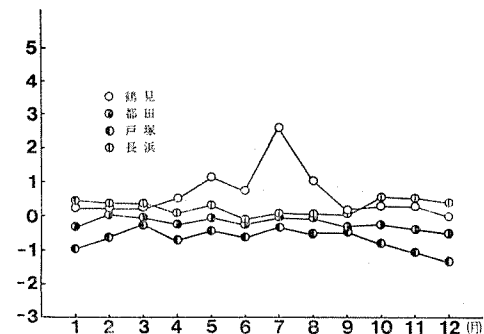
図一17 各測定項目の因子負荷量

$Z_1$  第1主成分への因子負荷量

$Z_2$  第2主成分への因子負荷量



図一18 第1主成分の経月変化



図一19 第2主成分の経月変化

一方、SO<sub>2</sub>の因子負荷量は第1主成分0.75、第2主成分0.48であり、図-17からNi、Vと関係があることがわかる。前述のように、Ni、V、SO<sub>2</sub>は化石燃料の燃焼にともない排出されるので、第2主成分は化石燃料の燃焼の影響を示すものと思われる。

表-6の因子負荷量の値から、Ni、V、SO<sub>2</sub>は第1主成分と第2主成分双方と相関があり、Ni、V、SO<sub>2</sub>の特性値(測定値)は第1主成分と第2主成分と関係がある。すなわち、Ni、V、SO<sub>2</sub>の特性値(測定値)は第2主成分(化石燃料の燃焼の影響)だけでは説明できず、第1主成分(汚染の総合指標)も関係している。したがって、Ni、V、SO<sub>2</sub>の特性値(測定値)は第1主成分によって汚染の総合指標が示され、さらに、第1主成分では説明できない部分を第2主成分(化石燃料の燃焼の影響)として示すものと考えられる。

このような第1主成分、第2主成分の解釈は、4-2-1の8項目を特性値とした場合の主成分の解釈と矛盾せず、さらに第1主成分と第2主成分は無相関(独立)であるという主成分の性質を満足する。図-19は図-18と同様に第2主成分(Z<sub>2</sub>)の値を経月的にプ

ロットしたものである。図-19において、鶴見で7月にZ<sub>2</sub>の値が高いのは、Ni、Vの濃度が同じく7月に高いことに対応しており、Ni、V、SO<sub>2</sub>の濃度が第1主成分(Z<sub>1</sub>)のみでは説明しきれないことを示す。

ところで、主成分分析の目的は多くの特性値(測定値)を説明力の大きい二、三の主成分で表わすことである。そこで、10項目の主成分分析によって得られた第1主成分、第2主成分の値を、第1主成分(Z<sub>1</sub>)を横軸に、第2主成分(Z<sub>2</sub>)をたて軸にプロットし図-20に示す。

前述の如く、第1主成分は汚染の総合指標を示し、第2主成分は化石燃料の燃焼の影響を示すものである。図-18および図-20から、各調査地点とも1月および11月、12月は汚染の度合いが高く(Z<sub>1</sub>が大きい)、5月~8月は低い。これは実際の測定値の経月変化とよく一致している(図-3~図-10、図-13)。

鶴見は5月~8月に化石燃料の燃焼の影響が特に大きくなっている(Z<sub>2</sub>が大きい)。長浜では1月~3月、10月~12月にZ<sub>2</sub>の値がわずかではあるが大きくなっており、これはV、SO<sub>2</sub>の経月変化とよく対応している。長浜で冬季に化石燃料の燃焼の影響が大きくなる

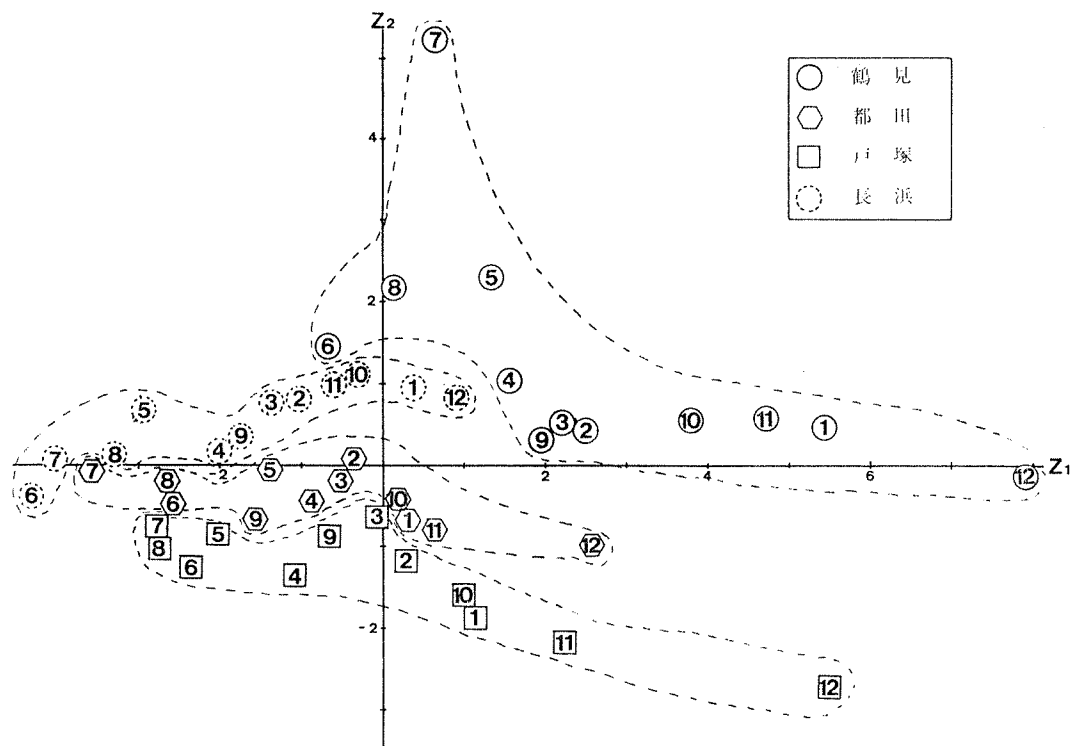


図-20 各測定地点における第1主成分、第2主成分の散布図  
(記号の中の数字は測定月を示す。)

理由としては、鶴見区、磯子区には化石燃料の大規模燃焼施設があり、冬季の北からの季節風により汚染物質が運ばれるためと思われる。

概括的にみると、汚染の度合は鶴見、戸塚、都田、長浜の順に小さくなっており、化石燃料の燃焼の影響は鶴見、長浜、都田、戸塚の順に小さくなっている。

## まとめ

(1) 昭和53年1月から12月までの浮遊粒子状物質と重金属の測定結果から以下のことが明らかとなった。

ア. 浮遊粒子状物質の濃度は夏季の6月前後に低く、冬季の12月前後に高い。

イ. 鶴見のニッケルとバナジウム、および戸塚の銅の値を除けば、重金属濃度の経月変化は浮遊粒子状物質と同様の傾向を示し、夏季に濃度が低く、冬季に濃度が高くなる傾向がみられた。

(2) 測定結果について主成分分析により解析を行ったところ次のことが明らかとなった。

ア. 大気汚染物質の濃度は鶴見、戸塚、都田、長浜の順に低くなる。

イ. 化石燃料の燃焼の影響は鶴見、長浜、都田、戸塚の順に低くなる。

ウ. 大気汚染物質は経月変化の似た二つのグループに分けられる。1つは浮遊粒子状物質、鉛、カドミウム、銅、マンガン、鉄、窒素酸化物であり、他の1つはニッケル、バナジウム、二酸化硫黄である。

本調査の考察は1年間の調査結果にもとづいて行なったものである。これらの考察の妥当性は数年にわたった調査結果において検証しなければならない。本調査は昭和56年12月まで行なう予定である。

## 文献

- 1) 横浜市公害対策局：横浜市大気汚染調査報告書第14報，180（1973）。
- 2) 横浜市公害対策局：同上第15報，221（1974）。
- 3) 横浜市公害対策局：同上第16報，211（1975）。
- 4) 鈴木正雄，太田正雄：横浜市内における大気中の浮遊粉じん，重金属，陰イオンの測定結果と推移，横浜市公害研究所報，2，64（1978）。
- 5) 環境庁大気保全局：大気汚染物質測定法指針（I），8（1979）。
- 6) 奥野忠一他：多変量解析法（日科技連出版），（1971）。
- 7) 及川紀久雄，藤井正美他：化石燃料中の微量元素の分布（第1報），石油系燃料中の重金属含有量，日本公衆衛生雑誌，23（5），317～332（1976）。
- 8) 藤井正美，及川紀久雄他：化石燃料中の微量元素の分布（第2報），石炭，石炭すす，石炭から中の重金属の含有量，同上，23（6），385～388（1976）。

# 京浜工業地帯より排出される窒素酸化物の輸送 および変質過程に関する研究 (I)

鶴田 治雄\*

## 要 旨

京浜工業地帯による汚染気塊の立体調査を解析して、次の結果が明らかになった。

- (1) 逆転層が存在して、しかも海陸風循環の発生する気象条件の時、京浜汚染気塊は、逆転層の下層に閉じ込められたままで、東京湾上へ輸送され、その後東京湾海風により沿岸地域へ輸送された。東京湾上は、汚染気塊の“貯蔵庫”であった。
- (2) この汚染気塊中での NO<sub>x</sub> 濃度は、200~300ppb と非常に高かったが、O<sub>3</sub> 濃度は数 ppb 以下と非常に低かった。
- (3) 北~北東風の時、京浜汚染気塊中では、風下側に輸送されるにつれてその NO<sub>x</sub> 濃度は次第に減少したが、風向に直角な水平方向の濃度分布は、いわゆるガウス型の分布とは異なっており、東京湾上での水平拡散はほとんどなかった。
- (4) NO から NO<sub>2</sub> への変換については、日射量が少なく逆転層が存在した時は、垂直混合も行われず、その風下の東京湾上では  $\frac{[NO]}{[NO_x]}$  はほぼ一定であり、高煙突単一大発生源での測定結果とは異なっていた。

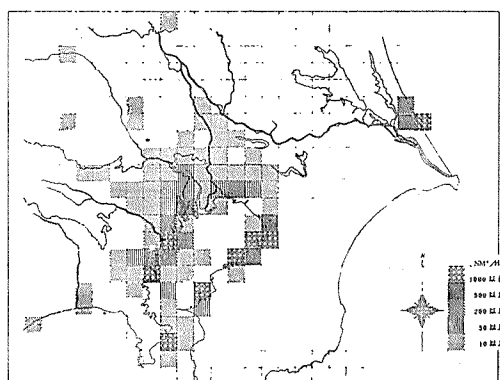
## 1. はじめに

日本では、広域大気汚染をひき起す大発生源の工業地帯および大都市の立地上の最大の特徴は、地形の複雑な湾あるいは内海の沿岸地域に位置していることである。それ故、これらの大気汚染物質は、沿岸域に固有な局地風系である海陸風循環等により、陸上・海上間を輸送されるであろう。この現象を解明するためには、その地域全体を立体的な一大発生源とみなして、その汚染気塊を陸上だけでなく海上でも追跡していかなければならない。この課題は、全国的に共通でしかも日本特有の問題であるにもかかわらず、これまで調査研究が行われずその実態も明らかにされていなかった。

そこで、1976年5月下旬および1977年9月上旬に、東大海洋研究所と共同で研究船を利用して、相模湾および伊豆諸島海域上で、大気汚染物質の輸送および変質過程に関する調査を実施した。その結果の概要はすでに報告<sup>1)~3)</sup>したが、主に京浜臨海工業地帯によるものと推測される汚染気塊の存在が初めて確認され、

気象条件によっては相模湾上は高濃度の O<sub>3</sub> を含む汚染気塊の“貯蔵庫”になることが初めて明らかにされた。

今回の報告では、冬期にヘリコプターを利用して実施された京浜工業地帯による汚染気塊の立体調査をも



図一 南関東地域における窒素酸化物の排出量分布<sup>4)</sup> (冬, 正午, 6 kmメッシュ)

Three-Dimensional Study on Transport and Transformation of Nitrogen Oxides in Keihin Industrial Polluted Air Mass (I).

\* Haruo Tsuruta, 横浜市公害研究所大気部門

とに、その輸送過程を中心に、汚染気塊中でのNOからNO<sub>2</sub>への変換過程に関する現在までの解析結果を述べる。

なお、南関東地域におけるNO<sub>x</sub>の排出量の分布を、図-14)に示した。この地域の発生源の形態は、京浜、京葉および鹿島の臨海工業地帯(立体源)、幹線道路(線源)を中心とした東京の都市域(面源)、および火力発電所に代表される高煙突単一大発生源(点源)とに大別される。京浜工業地帯では、幹線道路も存在するが、主要な発生源は、工場である。

## 2. 解析資料

1978年1月24日と26日に、神奈川県臨海地区大気汚染調査協議会(神奈川県、川崎市、横須賀市、横浜市)は、NO<sub>x</sub>、O<sub>3</sub>および気象要素に関する立体調査を、図-2に示すような地域で実施した。ヘリコプターにNO<sub>x</sub>、O<sub>3</sub>、気温、相対湿度および気圧の測定器を搭載して、京浜工業地帯の南側の東京湾とその沿岸

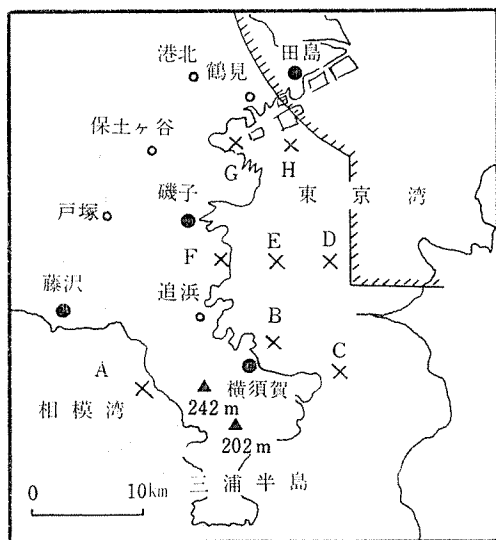


図-2 測定地域

(●印は上層風測定地点、×印は垂直分布測定地点、斜線内は飛行禁止区域を表わす)

地域、相模湾とその沿岸地域、および三浦半島上空を飛行して垂直分布(海上あるいは埋立地上の7~8地点で海拔高度50mから1,000mまで)と水平分布(5~6測線で一定高度150m)を、午前中に各1回ずつ測定した。同時にパイロットバルーンにより高度2kmまでの上層風を、7時から17時まで4地点(川崎、横浜、横須賀、藤沢)で測定した。詳細は報告書5)を参照していただきたい。

地上のNO<sub>x</sub>濃度と気象要素は、東京都、千葉県、埼玉県および神奈川県における大気汚染常時監視測定点と気象台の測定資料を用いた。

なお、24日、26日のうち、東京湾海風の発生した24日を中心に解析を行なった。

## 3. 調査期間中の天気概況

調査期間中の、地上天気図を図-3に、磯子における日射量の日変化を図-4に、また、京浜地帯の鶴見と三浦半島の横須賀におけるNO<sub>x</sub>濃度と風向風速の時間変化を図-5に、示した。

この期間は、真冬にもかかわらず天気の変化が激し

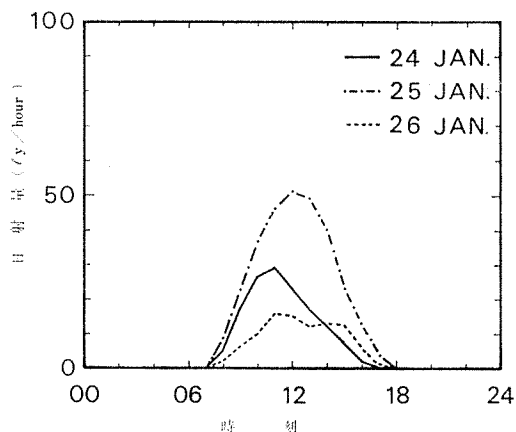


図-4 磯子における1月24日~26日の日射量(波長0.3~3μ)の日変化(測器は、横浜市公害研究所の屋上に設置されている熱電堆式全天日射計, MS-41型, 韓英弘精機製)

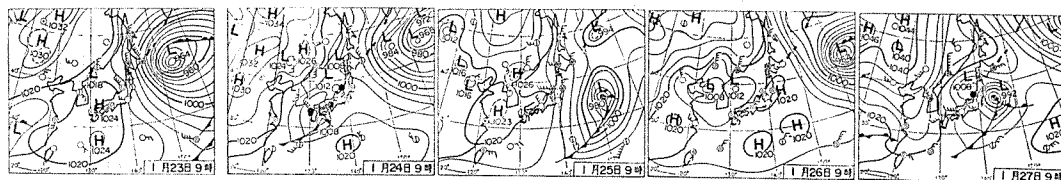
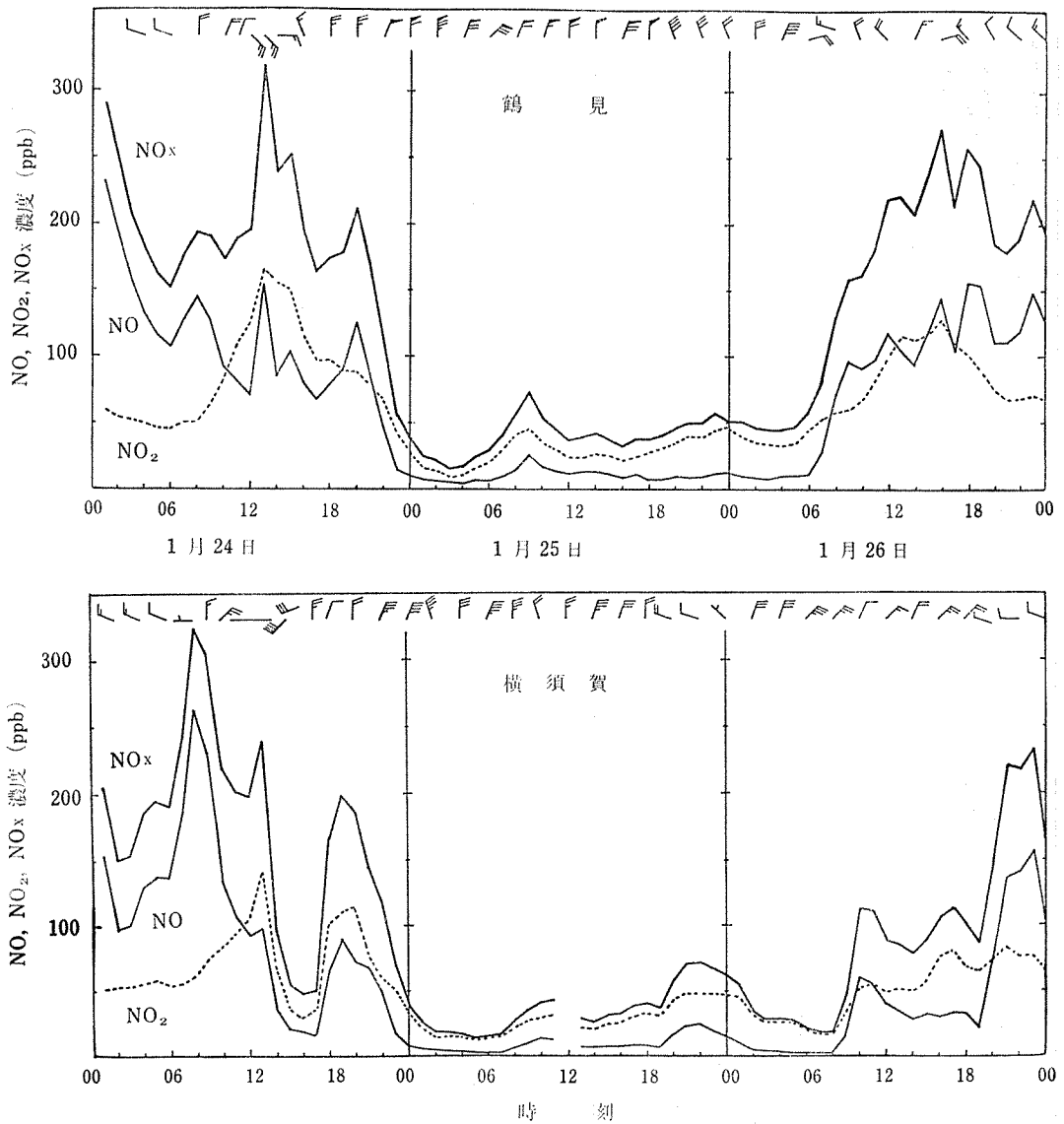


図-3 調査期間中の地上天気図((財)日本気象協会発行の雑誌“気象”より)





図一五 鶴見、横須賀の地上でのNOx濃度と風向風速の日変化（1978年1月24日～1月26日）

かった。23日に移動性高気圧が日本を通過し、24日は、弱い低気圧が本州南方海上を通過したため、晴後曇となった。神奈川県東部では、23日夜から風が弱まるとともにNOx濃度は非常に高くなり、24日は多くの地点でNOx濃度の日平均値が1月中で最高となった。

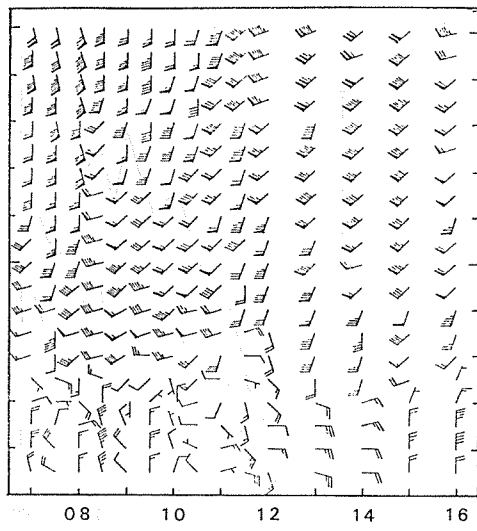
24日の20時頃より北寄りの季節風が吹き出し、25日は一日中吹き続き、快晴であり、地上のNOx濃度は低かった。26日は、はやくも移動性高気圧が日本を通過し、早朝まで晴れていたが、その後は一日中曇であった。地上のNOx濃度は、朝、風が弱まるとともに

急激に高くなり始め、日平均値は、神奈川県東部の数地点では、1月中では24日の次に高い値を示した。

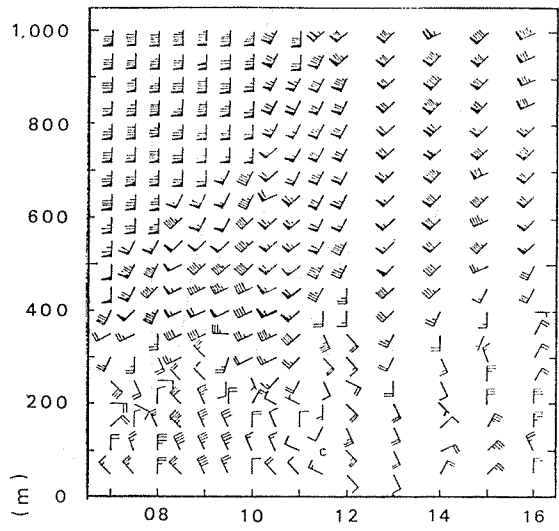
#### 4. 1月24日の結果と考察

##### 4-1 地上風および上層風

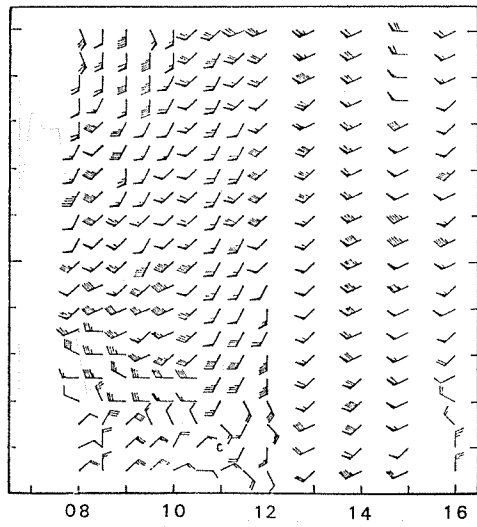
図一六は、各地点での上層風の時間変化である。各地点とも高度300m以上では、1,500mまで5~10m/sの大規模な南~南西風が吹き続けた。しかし、地上より高度200m前後までの下層では、時間変化が激しかった。10~11時頃までは2m/s前後の北寄りの風が吹いており、その後、東京湾沿岸地域では東京湾海風が



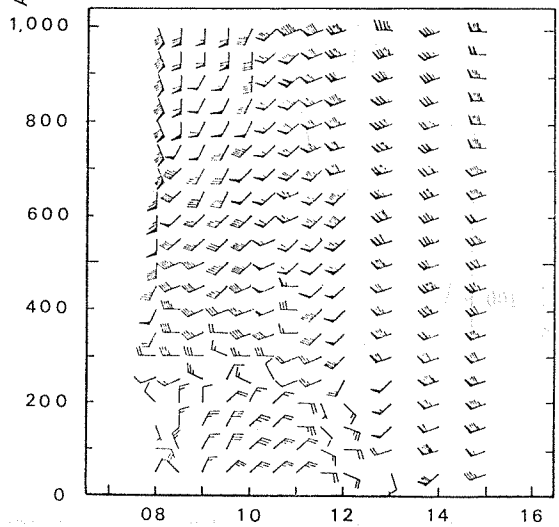
(1) 磯子



(2) 田島



(3) 藤沢 時刻



(4) 横須賀

図-6 4地点における1月24日の上層風

吹き始めたが、その侵入距離はわずか10~15kmであった。一方、相模湾海風も11時過ぎから沿岸地域で吹き始めたが、13時以降は上層の大規模な南西風と一体となって太平洋沿岸地帯に吹き込み、横浜南部まで到達した。しかし、再び北寄りの風が吹き始め、14時には田島で、15時には磯子で、16時には藤沢で、17時には横須賀でも、北寄りの風に変化した。

#### 4-2 垂直分布

図-7は、08時30分から10時までの間に測定された

NO, NO<sub>x</sub>, O<sub>3</sub>, 気温および相対湿度の垂直分布である(8地点のうち、A, B, D, Eの4地点だけの結果を示した)。気温の逆転層は、高度200mから400mの間に存在し、その間の気温差は最大2°Cであった。全ての地点で、逆転層より上層ではNO<sub>x</sub>濃度は10~20ppbでO<sub>3</sub>濃度は30~50ppbであったが、下層では上層よりNO<sub>x</sub>濃度は高くなり逆にO<sub>3</sub>濃度は低かった。特に東京湾沿岸域ではNO<sub>x</sub>濃度は200~300ppbと非常に高く、O<sub>3</sub>濃度は数ppb以下と非常に低かつ

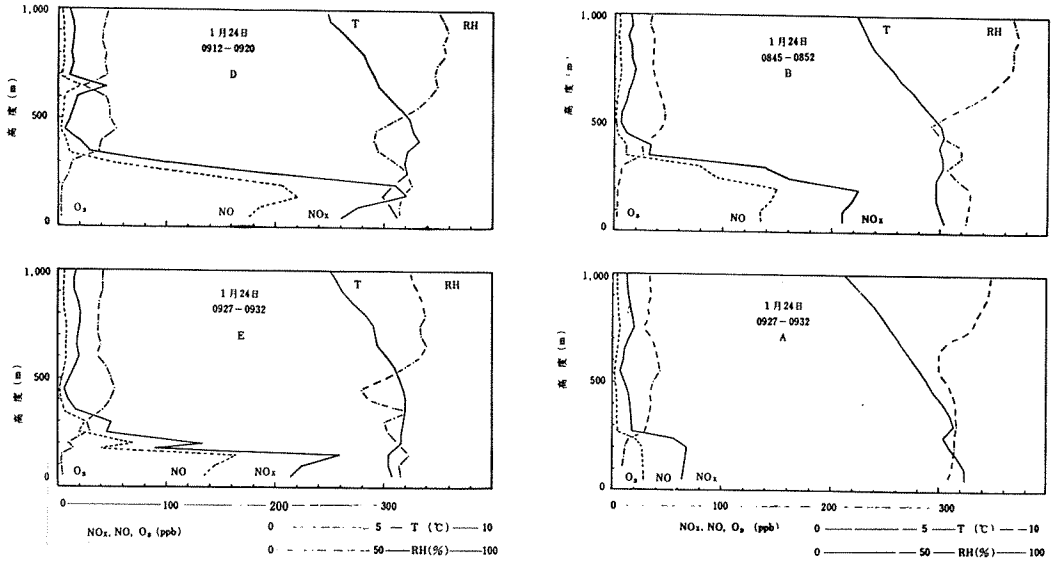


図-7 地点A, B, D, EでのNO<sub>x</sub>, NO, O<sub>3</sub>濃度, 気温(T), 相対湿度(RH)の垂直分布

た。一方、相模湾上の地点Aでの下層のNO<sub>x</sub>濃度は、70ppbと東京湾側よりも低く、O<sub>3</sub>濃度は逆に10ppbと高かった。

#### 4-3 水平分布

図-8は、11時17分から12時15分までの間に測定された、高度150mでの東西方向の5測線上におけるNO<sub>x</sub>

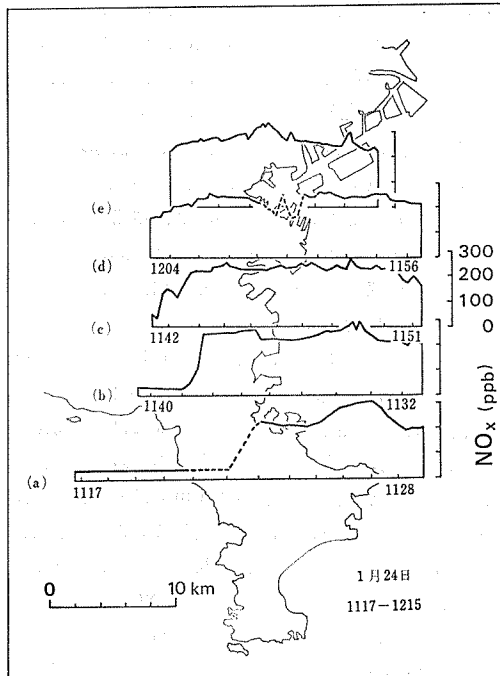


図-8 NO<sub>x</sub>濃度の水平分布(高度150m)  
(数字は時刻を表わす。1117は11時17分)

濃度の水平分布である。東京湾沿岸域では海上および陸上ともに、NO<sub>x</sub>濃度は200~300ppbと非常に高かった。しかし測線a, b上の西側の相模湾沿岸域では、NO<sub>x</sub>濃度は30~40ppbと東京湾側より $\frac{1}{2}$ ~ $\frac{1}{10}$ も低かった。O<sub>3</sub>濃度は、逆に東京湾沿岸域では10ppb以下と低く、相模湾沿岸域では約30ppbであった(図-9参照)。

#### 4-4 京浜汚染気塊の輸送過程

図-10は、鶴見のTVKタワーでの気温の垂直分布であるが、23日の夜に生成され始めた放射冷却による接地逆転層は、夜中から早朝まで持続し、その気温差は約5°C/100mと大きかった。このため、道路等の低煙源からのNO<sub>x</sub>は上方に拡散されず、地上の濃度は非常に高くなった。

09時の地上でのNO<sub>x</sub>濃度は、図-11にみられるように、東京から京浜地帯さらには三浦半島付近で200ppb以上と非常に高かった。図-12は、09時における東京湾沿岸地域での地上風であるが、約2m/sの弱い北寄りの風が吹いていた。横須賀では、夜中から早朝にかけて弱い西寄りの風であったが、地上および上層風によれば、8時半頃に北寄りの風に変化した。この高さ200mの北寄りの風は、京浜地帯を通過してきたものであり、京浜地帯(およびその風上側の東京地域)で排出されたNO<sub>x</sub>は、東京湾上へ輸送され、さらに三浦半島にまで到達したことが明らかになった。また、図-7に示すように垂直方向のNO<sub>x</sub>濃度は、逆転層下面の高度で最大であった。これは、一定高度の煙突より排出されたNO<sub>x</sub>が、逆転層のために上方

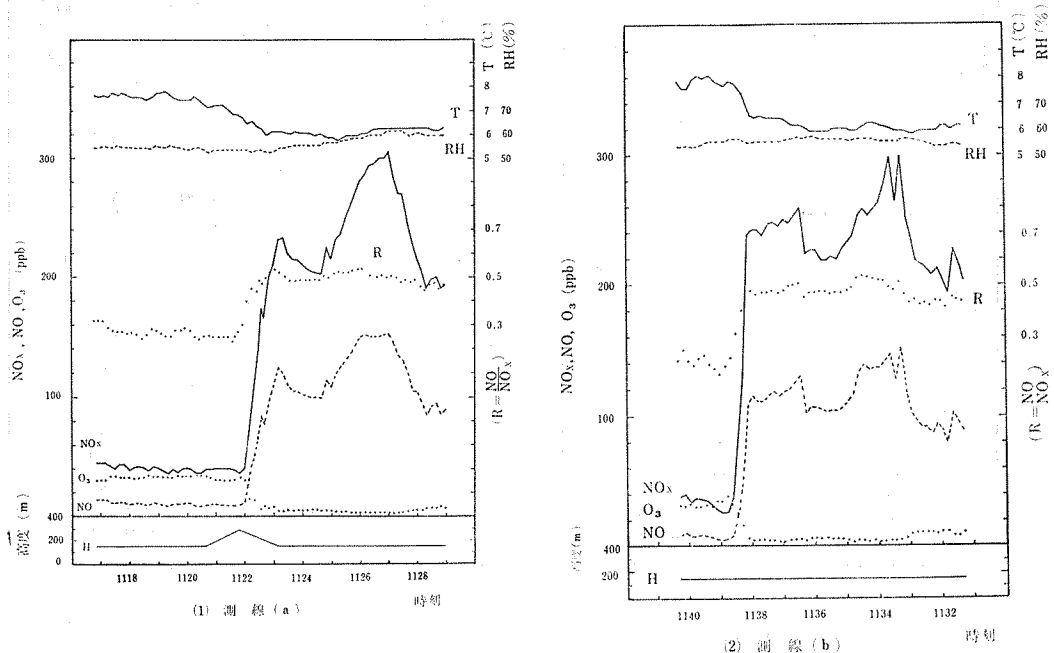


図-9 測線 (a), (b) 上の水平分布 (1978年1月24日, 高度 150m)

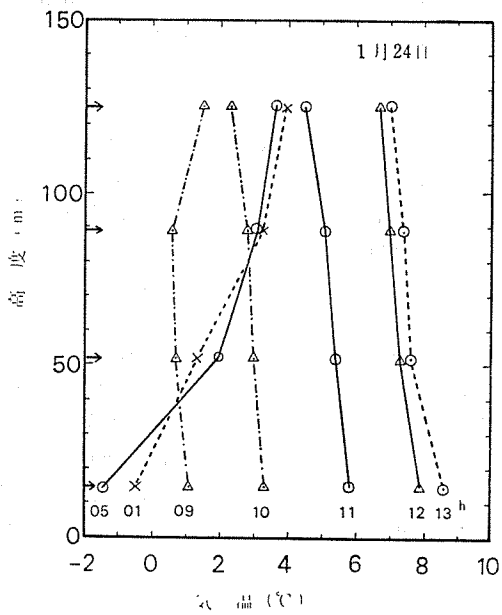


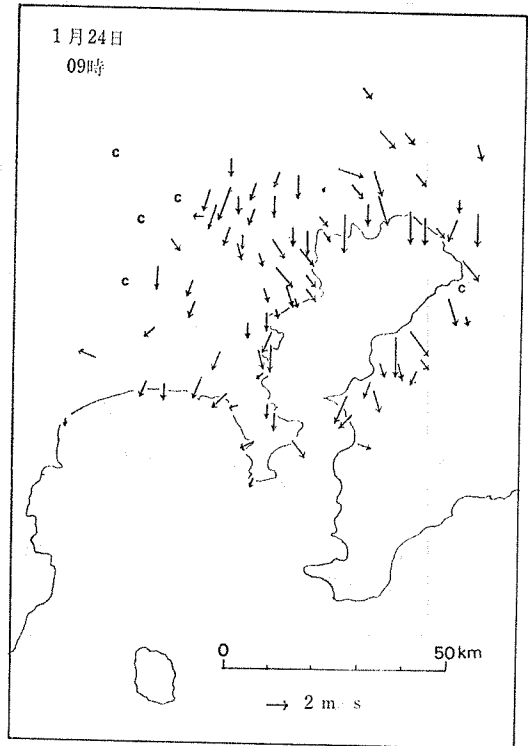
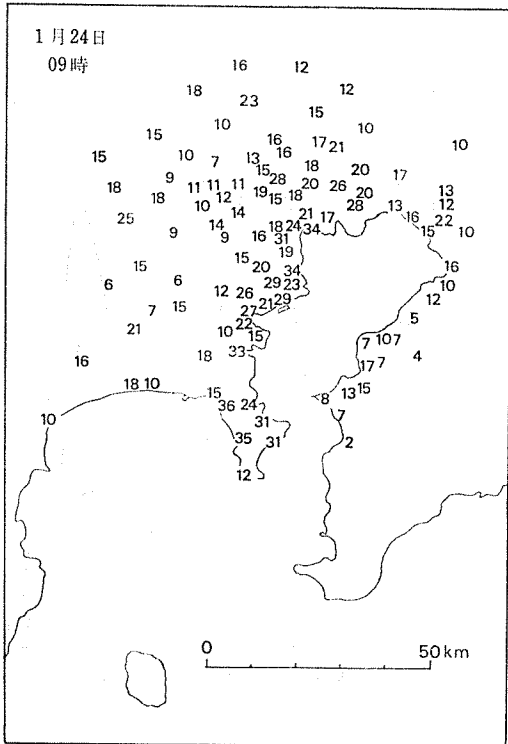
図-10 TVKタワー(鶴見)の4高度(15, 52, 88, 125m)での気温の垂直分布(06時から08時まででは欠測)

へ拡散できずに逆転層下面に沿って輸送されたからである。なお、いくつかの高煙突大発生源の煙流は、逆

転層を突き抜けて上層の南～南西風により北方へ輸送されていたことが、ヘリコプターから直視された。垂直分布における逆転層より上層での NOx 濃度のピークは、この煙流を表わしている。一方、相模湾上の点 A の下層で NOx 濃度が東京湾側比べて低かった原因は、地上風から明らかなように、京浜地帯の汚染気塊が相模湾上へ輸送されなかったためである。

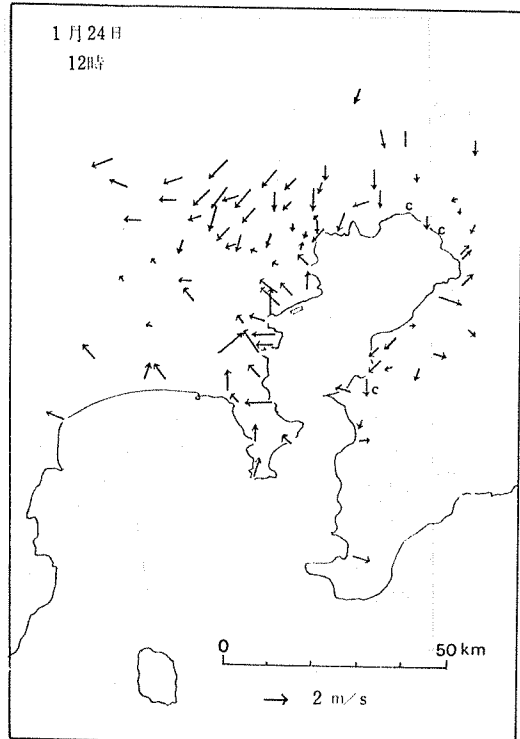
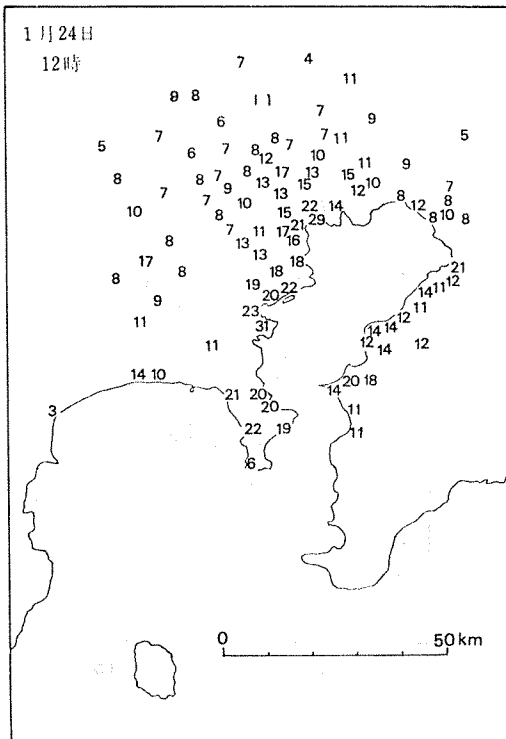
東京湾海風は、11時頃から横浜南部の沿岸地域で吹き始めたが、京浜地帯ではまだ北寄りの風であった。図-13は12時の地上風であるが、京浜地帯でも南東の東京湾海風が吹き始めており、北風との間に東京南部で収束帯が形成されていた。一方、相模湾沿岸地域でも、11時から12時の間に、相模湾海風が吹き始めた。図-9にみられるように、測線 a, b 上の西側の NOx 濃度の低かった地域は、東側より気温が 2°C も高く、相模湾海風の領域内であった。測線 a では、東京湾および相模湾海風の境界は、三浦半島の稜線と一致していた。この稜線の高さは最高 240m であり、逆転層、北風および海風の高さとはほぼ一致していたので、三浦半島が下層大気構造に影響を及ぼしていたと考えられる。測線 b では、両海風の境界で NOx 濃度が著しく異なっていた。これらは、濃度分布が大気境界層の構造の手がかりを与えてくれた典型的な例である。

図-8の水平分布に示すように、東京湾上は 200～300ppb の NOx を含む汚染大気におおわれていた。京



図一11 地上のNO<sub>x</sub>濃度 (単位はpphm, 1pphm=10ppb)

図一12 地上風 (1月24日09時)



(1) 地上のNO<sub>x</sub>濃度

(2) 地上風

(単位pphm, 1pphm=10ppb)

図一13 1月24日12時における地上のNO<sub>x</sub>濃度と地上風のベクトル

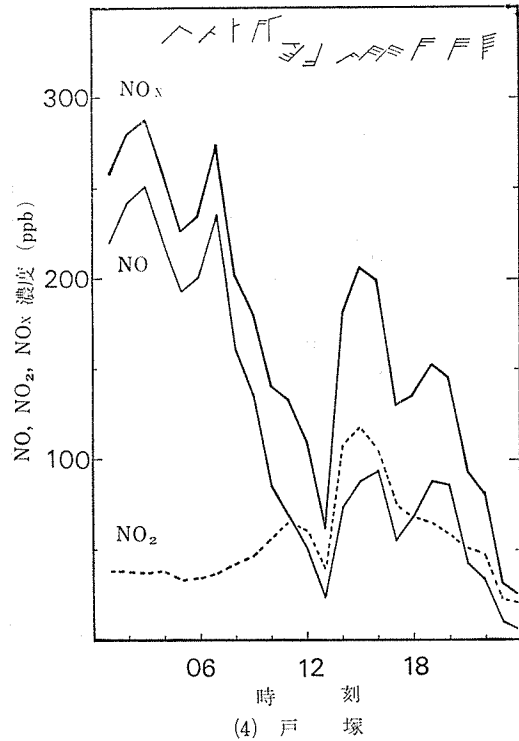
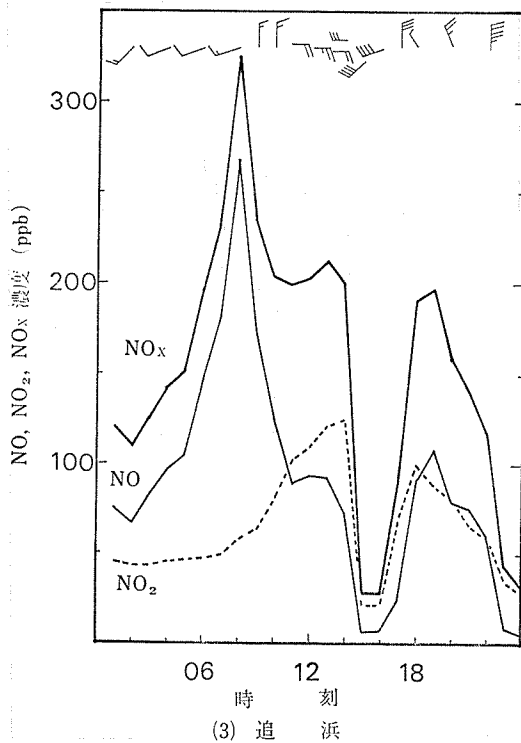
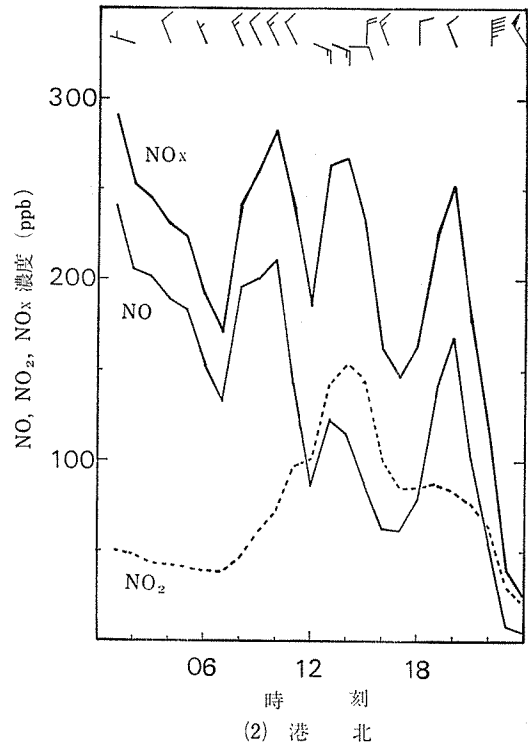
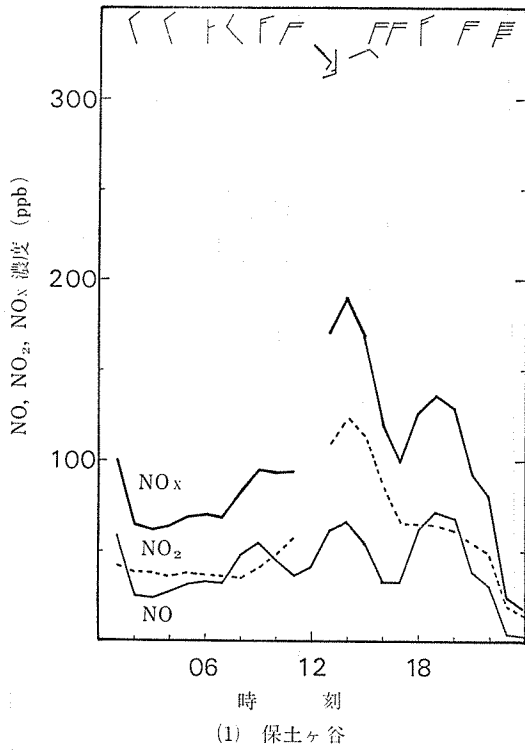


図-14 4地点（保土ヶ谷、港北、追浜、戸塚）におけるNO<sub>x</sub>濃度と風向風速の日変化  
 （地点の位置は図-2を参照のこと）

浜地帯では11時頃まで北寄りの風が吹いていたので、それまでに東京湾上へ輸送された京浜汚染気塊が、湾上に滞留していたのである。湾上の NOx 濃度は、200~300ppb で垂直分布で測定された濃度とほぼ等しかった。これは、逆転層により上方への拡散がほとんどなかったためである。測線c, d, e では、東京湾沿岸から西側へ10km前後まで NOx 濃度は湾上と同じ濃度であった。このことは、東京湾海風により湾上の京浜汚染塊が沿岸地域へ輸送されつつあったことを示している。なお、地上の4地点での NOx 濃度および風向風速の時間変化を、図-14に示した。東京湾海風が吹き始めた地点では NOx 濃度は高くなっており、相模湾および太平洋からの海風が吹き始めた地点では NOx 濃度は低くなっていた。

以上より、京浜汚染気塊が、逆転層下層の東京湾上に閉じこめられており、東京湾海風により沿岸地域へ輸送されたことが、明らかになった。

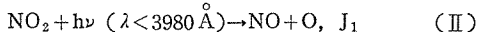
#### 4-5 NO から NO<sub>2</sub> への変換過程

大気中に排出された NOx 中での NO から NO<sub>2</sub> への変換過程に影響を与える要素は、

- (1) 排出時の NOx 中に占める NO の割合
- (2) 大気の輸送(拡散および移流)機構、安定度
- (3) 紫外線量、大気中の O<sub>3</sub>、NOx、NMHC 濃度である。(1)は初期条件であり、実際の大気中では、(2)と(3)とが、変換過程に同時に影響を与えている。(3)については、次の反応が重要である。



$$k_1 = 9.0 \times 10^{13} \exp(-1200/T) \text{cm}^3 \cdot \text{molecule}^{-1} \cdot \text{s}^{-1} \quad (6)$$



IVとVの反応が無視出来る時は、(I)~(III)の反応だけを考えればよく、その大気中で光化学平衡が成り立つ時には、次式が得られる。

$$\frac{[\text{NO}]}{[\text{NO}_2]} = \frac{J_1}{k_1[\text{O}_3]} \quad (\text{VI})$$

Stedman and Jackson<sup>7)</sup>は、局地的な汚染の影響のない郊外で、NO、NO<sub>2</sub>、O<sub>3</sub>、J<sub>1</sub>を実測して、(VI)が成立したと報告している。

垂直分布によれば、京浜汚染気塊中では、 $\frac{[\text{NO}]}{[\text{NO}_x]}$  (以下Rと記す)は、どの地点でも0.65~0.7であり、高度による違いもなく、一方、O<sub>3</sub>濃度はほとんど検出限界以下であった。このことは、(II)による光分解反応および反応(IV)、(V)が起こっていなかったためであり、紫外線量が少なかったた

めに光化学反応が進行していなかったのである。京浜地帯の風上側での O<sub>3</sub>濃度は実測されていないが、上層や相模湾上の濃度から推測すると、30ppb以下であろう。京浜地帯で排出されたNOx濃度が平均して250ppb、風上側での O<sub>3</sub>濃度を30ppbと仮定すると、風下側で NOx濃度は保存されておりR=0.65~0.7であるから、大気の垂直混合がない単純なbox modelを考えると、排出時のRは0.78~0.82となる。京浜地帯という立体発生源での排出時の NOx 中では約8割がNOであったと推測される。それ故、風下側0.5km以内で反応(I)により O<sub>3</sub>は分解されてしまうことになり、その後はRは一定のまま汚染気塊は輸送されたと考えられる。

次に、水平分布によれば、東京湾上の汚染気塊中では、R=0.4~0.5と、垂直分布の測定結果の値よりRは小さくなり、O<sub>3</sub>濃度は10ppb前後と増加していた。相模湾海風の領域内の測線a上では、NO、NO<sub>2</sub>、O<sub>3</sub>ともほぼ一定値でしかも陸上を離れてからの時間も長かったので、この大気中では光化学平衡に達していたと考えられ、J<sub>1</sub>=0.2~0.25であった。しかし、東京湾側の京浜汚染気塊中では J<sub>1</sub>の値は0.04~0.15と低く、変動も激しかったので、光化学平衡に関する議論は不可能である。

測線a上の汚染気塊は、京浜地帯を通過してから2~3時間経過したものである。垂直分布より、京浜地帯を通過した後にR=0.7で O<sub>3</sub>濃度は検出限界以下であった汚染気塊は、約2~3時間にR=0.5とNOからNO<sub>2</sub>の変換が非常にゆっくり進み、O<sub>3</sub>濃度は約10ppb増加したことが明らかになった。この原因については現在検討中であるが、この汚染気塊中では炭化水素濃度も非常に高かった<sup>5)</sup>ので、炭化水素が関与していたことも考えられる。

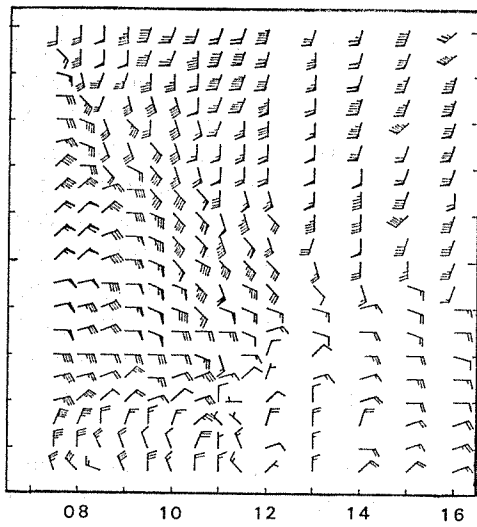
## 5. 1月26日の結果と考察

### 5-1 地上風および上層風

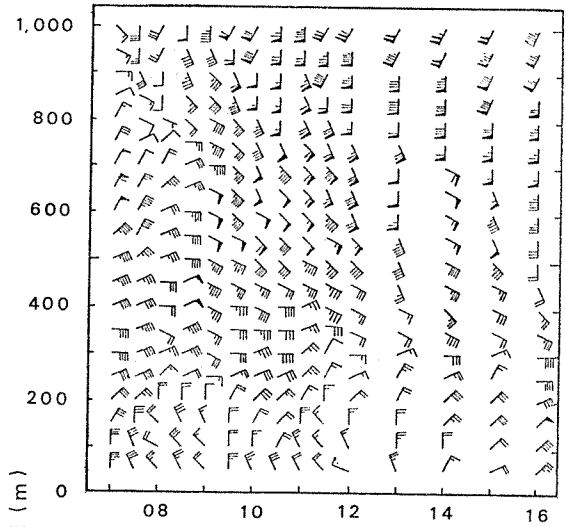
図-15は、各地点での上層風の時間変化である。高度300m以上では、東ないし南寄りの強い風が吹き続けた。その下層では、午前中は、横須賀で北東風だったが、他の3地点では北寄りの風であった。午後になって、全地点とも北東寄りの風となった。東京湾海風は発生せず、相模湾海風は、茅ヶ崎以西の沿岸地域で、午後1~2時間吹いただけであった。

### 5-2 NOx、O<sub>3</sub>濃度の垂直分布

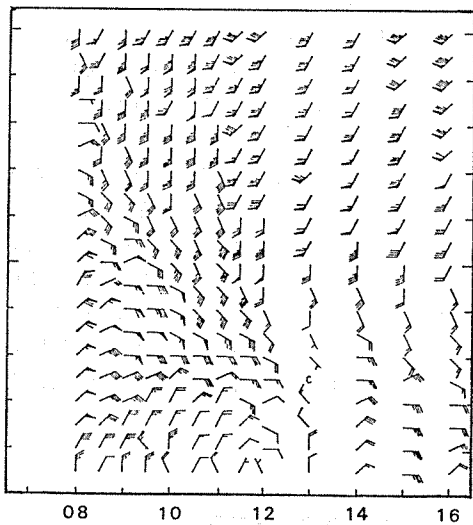
図-16は、08時40分から09時40分までの間に8地点で測定されたNO、NOx、O<sub>3</sub>、気温および相対湿度の垂直分布のうちの、地点B、Gでの結果である。気



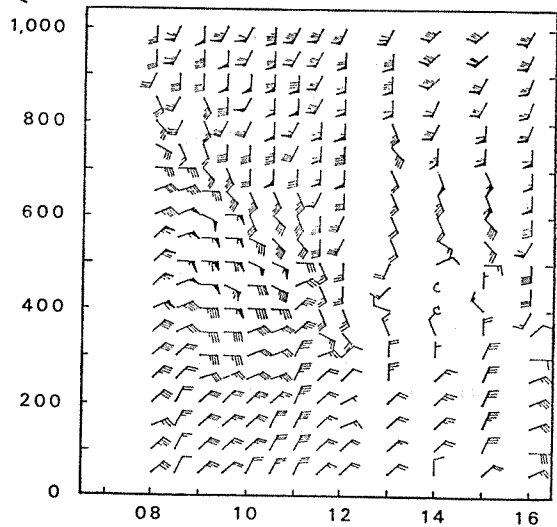
(1) 磯子



(2) 田島



(3) 藤沢



(4) 横須賀

図一15 4地点における1月26日の上層風

温の等温層および逆転層は東京湾南部では存在しなかったが、地点Fでは高度250~300m、地点Gで150~300m、地点Hで300~450mに弱い逆転層が存在した。全ての地点で、300mより上層ではNO<sub>x</sub>濃度は10~20ppbでO<sub>3</sub>濃度は40ppb前後であった。下層では、上層よりNO<sub>x</sub>濃度は高くなり、O<sub>3</sub>濃度は低かった。特に、京浜地帯に近いG、H地点ではNO<sub>x</sub>濃度は100ppbと高くO<sub>3</sub>濃度は10ppb以下と低かった。相模湾沿岸域のA地点や東京湾南部のB、C地点ではNO<sub>x</sub>濃

度は100ppb以下でO<sub>3</sub>濃度は5~20ppbであった。26日は、早朝まで北寄りの風が強く、地上のNO<sub>x</sub>濃度は図一5に示すように低かったが、その後風が弱まるとともにNO<sub>x</sub>濃度は急激に増加した。それ故、京浜汚染気塊が形成され始めて次第に風下側へ輸送されつつある時に垂直分布を測定したと考えられる。

#### 5-3 NO<sub>x</sub>、O<sub>3</sub>濃度の水平分布

図一17は、10時55分から11時45分までの間に測定された、高度150mでの東西方向の6測線上における



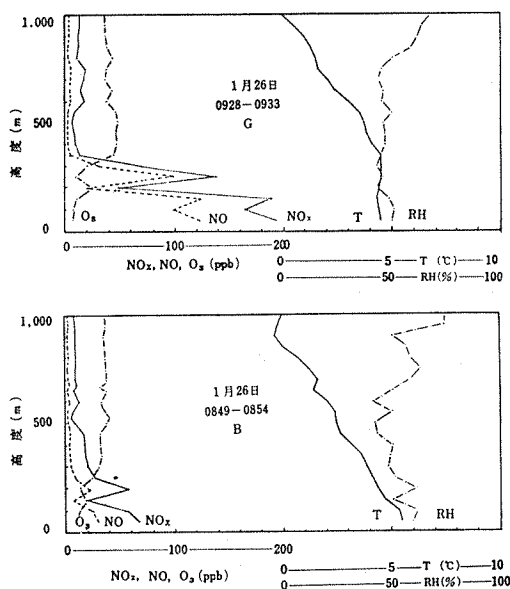


図-16 地点 B, G での  $\text{NO}_x$ , NO,  $\text{O}_3$  濃度, 気温 (T), 相対湿度 (RH) の垂直分布

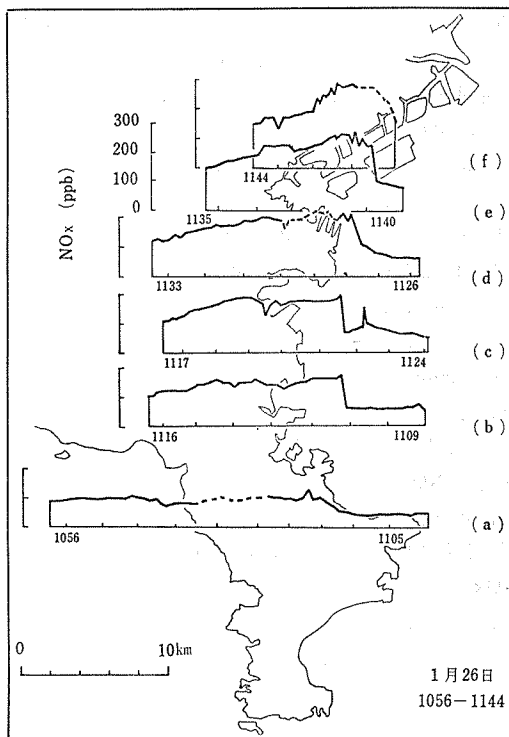
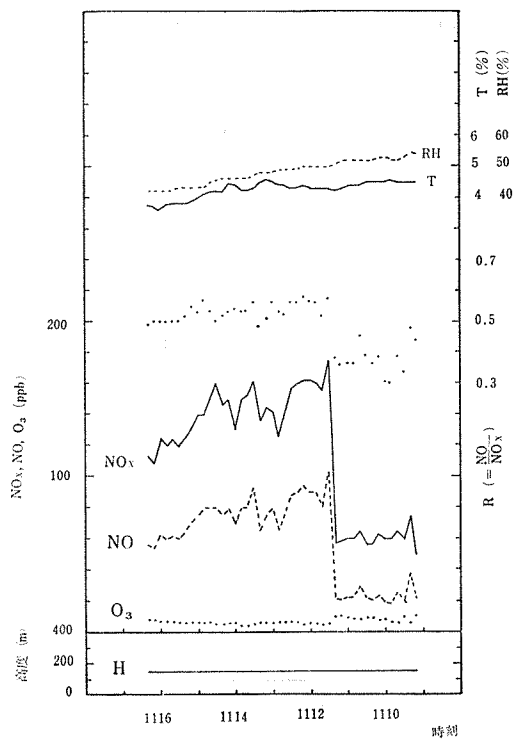
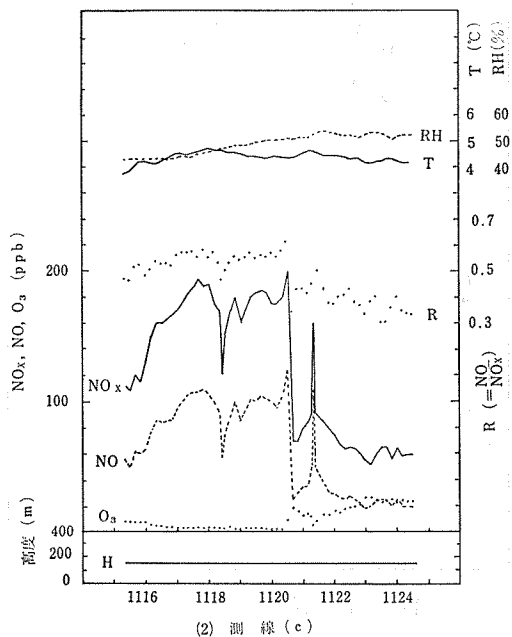


図-17  $\text{NO}_x$ 濃度の水平分布 (高度 150m)



(1) 測線 (b)



(2) 測線 (c)

図-18 測線 (b), (c) 上の水平分布 (1978年1月26日, 高度 150m)

NO<sub>x</sub> 濃度の水平分布である。京浜地帯から南側へ風下距離が増加するにつれて、NO<sub>x</sub>濃度は 270ppbから 100ppb へと減少した。なお、測線 b, c 上の東京湾側で、NO<sub>x</sub> 濃度が急激に変化する地点が存在した。図-18に示すように、その西側は京浜汚染気塊であり O<sub>3</sub> 濃度は 10ppb 以下と低く、東側では NO<sub>x</sub> 濃度は 40~60ppb, O<sub>3</sub> 濃度は 10~15ppb であった。

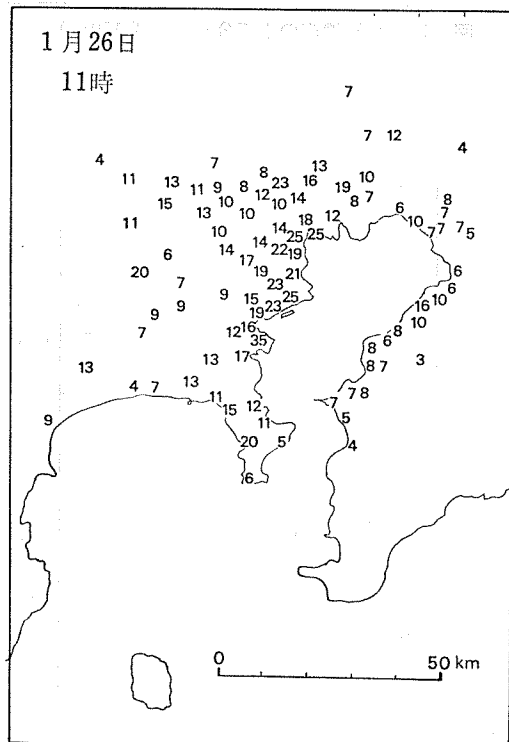
#### 5-4 京浜汚染気塊の輸送過程

図-19は、11時における地上の流線図である。東京湾沿岸域は、北～北東風であり、その高さは地上より 200~300m であった。京浜汚染気塊は、24日と異なり、煙流として輸送されていった。この“京浜煙流”中では、風下側へ輸送されるにつれて乱流拡散により次第に NO<sub>x</sub> 濃度は減少していった。しかし、測線 b, c の東京湾上では、NO<sub>x</sub> の水平拡散がほとんど行われていなかった。風向と垂直な水平方向では、NO<sub>x</sub> 濃度はいわゆるガウス型の濃度分布と異なっていたことが、明らかになった。図-18に示すように、この境界の東西で気温は急激には変化していなかつ

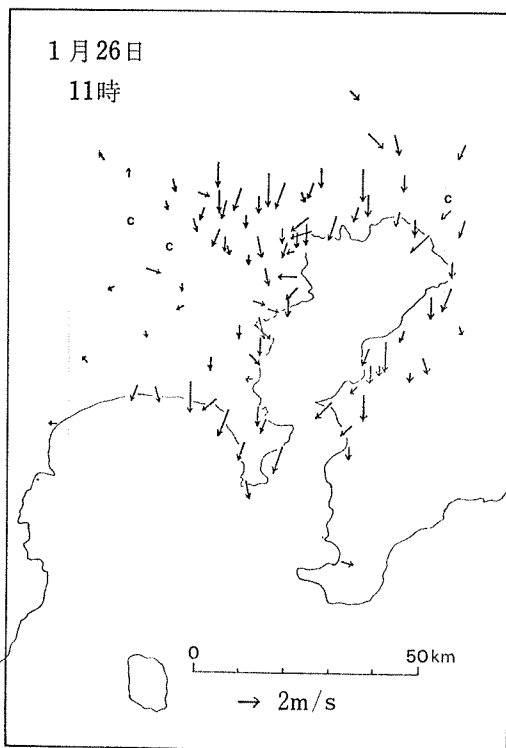
た。京浜地帯およびその風下側の沿岸地域では、風向が北から西寄りの成分をもっていて比較的乱れており、横須賀では東京湾上を吹走してきた 2~4m/s の北東寄りの風が吹いていた。東京湾上はまさが少ないために風速は大きく乱れは小さく、一方、京浜地帯の風下側の沿岸域では、都市や京浜工業地帯の存在による乱れが大きく風速は小さく、これらが、東西方向の水平拡散を妨げたのではないかと考えられる。なお、この境界は、三浦半島上空では、破壊されていた。

#### 5-5 NO から NO<sub>2</sub> への変換過程

水平飛行の時間帯で気象条件が一定であったと仮定すると、図-20に示すように、京浜工業地帯の風下側で、汚染気塊中での R は 0.6 から 0.5 へとやや減少した。O<sub>3</sub> 濃度は 10ppb 以下で、日射量は、図-4 から明らかなように少なく、反応(II)による光解離現象は無視出来るので、NO から NO<sub>2</sub> への変換は、反応(I)と乱流拡散とが同時に影響を及ぼした結果と考えられる。



(1) 地上の NO<sub>x</sub> 濃度  
(単位pphm, 1pphm = 10ppb)



(2) 地上風

図-19 1月26日11時における地上の NO<sub>x</sub> 濃度と地上風のベクトル

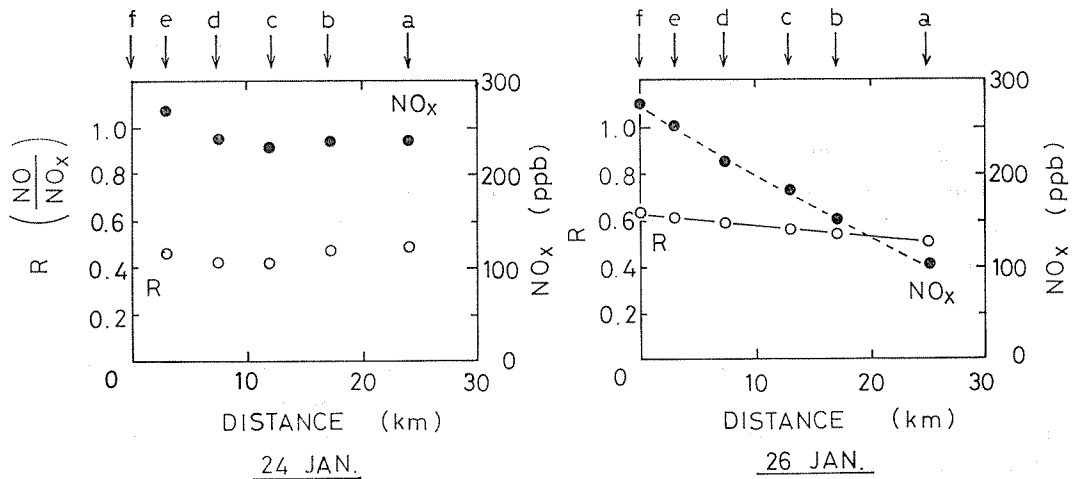


図-20 水平分布で得られた、各測線上の NOx 濃度と R (NO/NOx)

横軸は、測線 f から、京浜工業地帯の南側への距離である。1月26日は京浜工業地帯の風下側での距離減衰を示してあるが、1月24日は、東京湾海風時の東京湾上での値である。

## 6. 総合考察

### 6-1 沿岸域における大気汚染物質の輸送過程

24日と26日では、大気境界層の構造が異なっており、24日は海陸風循環が発生したが、26日は北寄りの風が吹き続け、海陸風は東京湾上で発生しなかった。

東京湾沿岸地域では、冬期、東京湾海風時にしばしば、SOx や NOx 濃度が高くなる。この原因が24日のように海陸風循環によって、陸上→海上→陸上へと大気汚染物質が輸送されることによるものであったことが、初めて実証された。東京湾上は、このような気象条件の時には、京浜汚染気塊の“貯蔵庫”になるのである。東京湾や相模湾だけでなく、伊勢湾、大阪湾、瀬戸内海でも、特に夏期、海風時に光化学オキシダント濃度が高くなること、報告されている<sup>8)</sup>。過去2回にわたる相模湾上での汚染物質の輸送過程に関する調査<sup>1)~3)</sup>によれば、相模湾上でも高濃度の O<sub>3</sub> 濃度を含む汚染気塊が滞留し、その後海風により次第に沿岸地域へ輸送されることが明らかになっている（なお、この汚染気塊は、主として京浜地帯によるものと推測された）。これらより、一般風が弱く海陸風循環が発生する気象条件の時は、湾上は、汚染物質の“貯蔵庫”となり、陸上→海上→陸上へと化学反応を伴いながら輸送される、という現象が共通に起こっていると考えられる。

また 気温の逆転層が存在する時は、地表付近で排出された大気汚染物質は、逆転層の下層に閉じこめられてその濃度が高くなることは、よく知られた事実で

ある。しかし、冬期に気象要素と汚染物質濃度とを同時に測定し、その立体構造を明らかにした調査は、ほとんどない。菊地等<sup>9)</sup>は、冬期、県道が通っている小谷で、気温、NOx 等の立体調査を実施した。それによれば、夜間の NO による大気汚染のスケールは水平方向に200~300m、鉛直方向には20~30m程度の小さなもので、この小谷に形成される放射冷却による接地逆転層の存在が、NO の高濃度発生の主要因である、と報告している。京浜工業地帯による汚染気塊のスケールは、24日の例では、垂直方向に200m、東西方向に10~20km、南北方向に25kmという空間に0.2~0.3ppm もの高濃度の NOx を含む京浜汚染気塊が閉じこめられていたことが、明らかになった。

Wilson<sup>10)</sup>によれば、米国のセントルイス市の都市煙流を数百km風下側まで飛行機により追跡した結果、その水平方向の拡散現象は、数十kmまではガウス型の煙流モデルとよく一致するが、その後は、主に風のシアが拡散を支配している、と推論している。しかし、26日の測定では、京浜汚染気塊が煙流として風下方向へ輸送され、その濃度は次第に減少していったが、風の軸に垂直な水平方向の濃度分布は、風下側わずか5km位から、いわゆるガウス型の正規分布を示さなかった。

この原因は 前述したように、推測の域を脱しないが、都市および工業地帯そして湾という自然および人為的な地形が、乱流状態に大きく影響を及ぼしていたためであろう。

また、稜線の高さがわずか240mである三浦半島も、東京湾および相模湾海風の境界や高さ、逆転層等の大気境界層の構造に与える影響は無視出来ないと推測される。

## 6-2 NO から NO<sub>2</sub> への変換過程

汚染大気中での NO から NO<sub>2</sub> への変換過程の調査研究は、最近始められたばかりである。Davis ら<sup>11)</sup>、Hegg ら<sup>12)</sup>、White<sup>13)</sup>は、火力発電所の煙流中の NO、NO<sub>2</sub>、O<sub>3</sub> 濃度等を航空機を利用して測定し、その変換過程を議論している。日本でも NO<sub>x</sub> の総量規制のための予測手法の開発の一環として、環境庁<sup>14)</sup>および通産省<sup>15)</sup>が測定を実施している。

Davis ら<sup>11)</sup>によれば、日中の11回の測定で、NO から NO<sub>2</sub> へ 50% 変換するために要した時間は 12~60 分であったが、夜間では、約 12 分であり最終的には  $R < 0.05$  とほとんど変換された、と報告している。Hegg ら<sup>12)</sup>は、18 回の測定例より排出してから少なくとも 4 時間 (約 90km) までは、式 (VI) で決定される NO<sub>2</sub> 濃度より測定値の方が小さく、それ故、周辺大気との混合による効果が変換過程を支配している、と述べている。さらに、Shu ら<sup>16)</sup>は、乱流中での 2 次反応モデルを開発し、乱れによる濃度変動が、NO の変換を抑制していると述べ、そのモデルと Davis らの測定結果と一致した、と報告している。

しかし、Coal と Summerhays<sup>17)</sup>も述べているように、これまでの研究対象は、全て孤立した高煙突発生源の煙流であり、発生源の形態の異なる工業地帯等の汚染気塊中での調査研究は、これまで実施されていなかった。24日の測定では、逆転層が存在していたために垂直混合がおこらず、また、日射が比較的弱かったために、主に発生源の NO と風上側の O<sub>3</sub> とで (I) の反応が進行しただけであったと推測された。しかし、26日では、反応 (I) だけでなく、乱流拡散も大きく寄与していたと考えられる。どちらの場合も、排出してから短時間に変換過程が進行し、その後は R は一定で比較的大きな値であったが、これは、工業地帯での乱れが非常に大きかったためと考えられる。

前述した高煙突単一発生源の調査は夏から秋にかけて実施され、今回の調査は冬期であったので、単純に比較はできないが、次のような点が、変換過程に異なった影響を与えると推測される。

(1) 発生源が立体で有限の大きさをもっているため、汚染気塊の中心では、周辺の大気との混合が、短時間では比較的進まない。

(2) 発生源が立体であるため、発生源付近での乱れが大きく、その乱流混合の効果が大きい。

(3) 大気下層では、一般に O<sub>3</sub> 濃度が上層に比較して低く、また、大気の安定度も、冬期は大きい (逆に夏期の日中は小さい)。

なお今後さらに検討をしていきたい。

## 7. まとめ

京浜地帯による汚染気塊を、冬期にヘリコプターで追跡し、輸送過程とその気塊中での変質過程に関して、次のような結果が、初めて得られた。

(1) 逆転層が存在し、海陸風循環の発生する気象条件の時、京浜汚染気塊は、逆転層の下層に閉じ込められて東京湾上へ輸送されたが、その濃度はほとんど減少しなかった。また、東京湾海風により、その汚染気塊は沿岸地域へ輸送された。

(2) 北~北東風の時、京浜汚染気塊は、風下側に輸送されるにつれて NO<sub>x</sub> 濃度は次第に減少していったが、水平方向の濃度分布は、ガウス型の煙流モデルと異なり、東京湾上での水平拡散がほとんどなかった。

(3) NO から NO<sub>2</sub> への変換は、日射量が少なく逆転層が存在した時は、垂直混合がおこなわれず、京浜地帯の近傍だけで乱流混合により変換されるだけで、汚染気塊中の O<sub>3</sub> 濃度は非常に少なかった。

今回の調査では、羽田空港周辺で飛行禁止区域のため測定できず、また、京浜地帯の風上側の NO<sub>x</sub>、O<sub>3</sub> 濃度や J<sub>1</sub> の値や乱流強度等を測定していなかったが、京浜汚染気塊の輸送過程および変質過程に関し、充分有益な情報が得られたものと考えられる。

なお、日本では、沿岸域の開発は、これまでに数多く実施され、さらに、東京湾岸道路、本州四国連絡架橋、関西新国際空港等、湾や内海上での開発計画が進行中である。しかし、今回の調査、あるいは海上調査の結果から少しづつ明らかになったように、それらの発生源による大気汚染現象は、広域で複雑であり、しかも、汚染の度合いも激しいことが、充分に考えられる。慎重な調査および検討を強く要望したい。

## 文献

- 1) 竹田厚, 三沢信彦, 石川浩治, 鶴田治雄, 前田裕行, 鈴木英世, 遠藤辰雄, 長利富勝: 相模湾および伊豆諸島近海における大気中の汚染物質と「その輸送過程」に関する観測. 天気, 25, 33-42 (1978).
- 2) 鶴田治雄, 前田裕行, 太田正雄, 鈴木英世: 相模湾および伊豆諸島海域上での大気汚染物質に関する観測 (第1次). 横浜公害研究所報, 2, 47-63 (1978).

- 3) 鶴田治雄, 前田裕行, 太田正雄: 相模湾・伊豆諸島海域上における大気汚染物質の輸送過程およびバックグラウンド濃度に関する調査(第2次). 横浜市公害研究所報, 3, 35-52 (1979).
- 4) 環境庁: 南関東大気環境調査報告書, 141 (1977).
- 5) 神奈川県臨海地区大気汚染調査協会: 神奈川県臨海地区大気汚染調査報告書, 昭和52年度(1978).
- 6) Hampson, R. F., Jr and D. Garvin (Editors): Chemical kinetic and photochemical data for modelling atmospheric chemistry. NBS Technical Note 866, National Bureau of Standards, Washington, D. C. (1975).
- 7) Stedman, D. H. and J. O. Jackson: The photostationary state in photochemical smog. International Journal of Chemical Kinetics, Symposium No. 1, 493-501 (1975).
- 8) 大気汚染学会予稿集(1976~1979).
- 9) 菊地立, 鈴木将夫, 伊藤道生, 太田久雄, 宇野博美, 中西基晴, 岡部真一, 秋葉佐智子, 伊藤昭治: 小谷に形成される冷気湖と一酸化窒素を中心とする大気汚染の関係——千葉県宮野木における立体調査——. 千葉県公害研究所報告, 10, 29-53 (1978).
- 10) Wilson, W. E.: Sulfates in the atmosphere: A progress report on project MISTT. Atmos. Environ., 12, 537-547 (1978).
- 11) Davis, D. D., G. Smith and G. Klauber: Trace gas analysis of power plant plumes via aircraft measurement: O<sub>3</sub>, NO<sub>x</sub> and SO<sub>2</sub> chemistry. Science, 186, 733-736 (1974).
- 12) Hegg, D., P. V. Hobbs and L. F. Radke: Reactions of ozone and nitrogen oxides in power plant plumes. Atmos. Environ., 11, 521-526 (1977).
- 13) White, W. H.: NO<sub>x</sub>-O<sub>3</sub> photochemistry in power plant plumes: Comparison of theory with observation. Environ. Sci. Technol., 11, 995-1000 (1977).
- 14) 久保次郎: 大気汚染気象に関する環境アセスメント手法の開発の研究. 環境保全研究成果集(昭和51年度, 環境庁), 8 (1977).
- 15) 山本晋, 横山長之: 大気中での NO<sub>x</sub> 拡散シミュレーションについて. 公害, 11, 15-37(1976).
- 16) Shu, W. R., R. G. Lamb and J. H. Seinfeld: A model of second-order chemical reactions in turbulent fluid-part II. Application to atmospheric plumes. Atmos. Environ., 12, 1695-1704 (1978).
- 17) Cole, H. S. and J. E. Summerhays: A review of techniques available for estimating short-term NO<sub>2</sub> concentration. J. Air Pollut. Cont. Assoc., 29, 812-817 (1979).

## 蒸気拡散を利用した標準ガス発生方法に関する研究

前田 裕行\* 平野耕一郎\*

## 要 旨

任意の種類的气体を一定の濃度で、しかも連続して大容量に標準ガスを安価に得ることができるという利点を持っている蒸気拡散を利用した標準ガスの発生方法について、トルエンを用いて10ppmC以下の低濃度域で質量比混合法による発生実験を行い、発生条件および発生特性を検討し、次の結果が得られた。

- (1) 発生ガス流量(キャリアーガス流量+希釈ガス流量)を一定にすれば、拡散セルを流れるキャリアーガス流量に関係なく一定濃度のガスを発生できる。
- (2) 蒸発速度が、時間と共に減少する場合には、蒸発量と時間との関係のべき乗回帰式を微分することにより、蒸発速度を時間の関数として算出することができる。
- (3) 発生濃度は、拡散セルの拡散長および拡散面積を変えることによって変化させることができる。
- (4) 蒸発速度から決定した発生ガス濃度は、市販の濃度検定標準ガスと相対誤差7%以内で一致した。
- (5) 拡散係数の推算値を用いて発生ガス濃度を求めるときには、最大20%程度の相対誤差を生ずる可能性があるが、あらかじめ発生条件を検討し、設計するための試算には十分利用できる。

これらのことから、蒸気拡散を利用した標準ガスの発生方法は、大容量の標準ガスを発生させる方法として、その実用的見地から十分利用できると思われる。

## 1. はじめに

近年、公害計測機器についての精度の検討あるいは正確な目盛較正が、従来に増して更に重要となってきている。そこでガス計測器についても信頼性の高い各種標準ガスが必要となってきている。

現在、標準ガスを調製する方法として、定容器内でガスを混合し、常圧又は高圧下に容器詰めにする方法と、発生装置を用いて希釈混合する方法がある。前者の方法では、ガスの活性度により、容器への吸着あるいは反応などが問題となるため安定性の良いガスに限定されるが、取出し操作が容易であるため、高圧容器入り標準ガスとして使用されることが多い。後者の方法では、活性があり、蒸気圧の低いガスについて、種類と発生濃度を任意に選択できるという特徴を持っている。この発生方法については、現在二種類に大別できる。その一つは、液化ガスをテフロンのような不活性樹脂管に封入し、恒温下で一定速度で管壁を浸透してくるガスを一定流量の希釈ガスで流して標準ガスを得るパーミュエーションチューブ法であり、他の一つは、恒温下で、液状化合物が一定の内径の細管を拡散する

速度が細管の断面積および長さにより決定されることを利用して、連続的に発生するガスを一定流量の希釈ガスで希釈して標準ガスを得る蒸気拡散法である。

これら二種類の動的標準ガス発生方法のうち、発生ガスをメーカーによることなく、研究機関において容易に調製することが可能であるという利点を持っているが、今まで使用例の少なかった蒸気拡散を利用した標準ガス発生方法について、その実用的見地から十分利用できるものと考えられるため、発生濃度を10ppmC以下に調節した質量比混合法による発生実験を行い発生条件および特性を検討した。

## 2. 実験方法

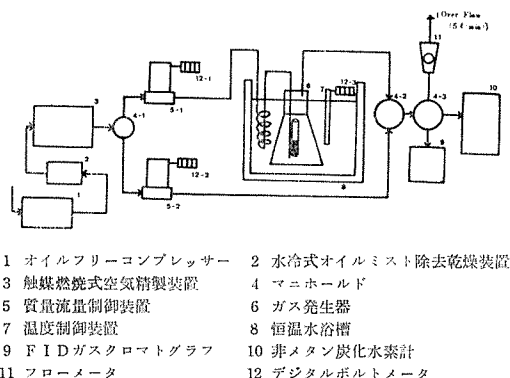
## 2-1 発生器および拡散セル

図-1に示すように、キャリアーガス出入口を有する300ml容量の共栓付三角フラスコを発生器とした。発生器の内部には、内径約3~6mmの一端を溶封したガラス管を拡散セルとし、これにトルエンを入れ、拡散セルを垂直に立てて固定した。発生器を恒温水浴に浸し、キャリアーガスを送り込みガスを発生させた。

Studies on Producing Technique of Standard Gases for Diffusion Dilution Cell.

\* Hiroyuki Maeda, Koichiro Hirano, 横浜市公害研究所大気部門

口径の異なる4種の拡散セルの規格を表一に示す。



- 1 オイルフリーコンプレッサー
- 2 水冷式オイルミスト除去乾燥装置
- 3 触媒燃焼式空気精製装置
- 4 マニホールド
- 5 質量流量制御装置
- 6 ガス発生器
- 7 温度制御装置
- 8 恒温水浴槽
- 9 FIDガスクロマトグラフ
- 10 非メタン炭化水素計
- 11 フローメータ
- 12 デジタルボルトメータ

図一 蒸気拡散を利用した標準ガス発生装置の構成

表一 使用した拡散セルの規格

拡散セルNo.	内径(mmφ)	拡散面積(cm <sup>2</sup> )	長さ(cm)
1	5.9	0.273	11.0
2	4.7	0.173	11.0
3	3.8	0.113	11.0
4	2.9	0.066	11.0

### 2-2 実験装置

実験装置の構成を図一に示した。すなわち、オイルレスコンプレッサーから送られた空気を触媒燃焼装置により炭化水素を除去・精製し、キャリアーガス系と希釈ガス系に二分した後、それぞれ質量流量制御装置へ導いた。キャリアーガス系を流れる精製空気は、恒温槽内の発生器へ入り、拡散セルから蒸発してくる一定濃度のガスを拡散させる。更にこのキャリアーガスを希釈ガス系を流れる精製空気と質量流量比混合法によって所定の濃度に希釈した。このように調製した試料ガスを非メタン炭化水素計およびFIDガスクロ

マトグラフへ導いてその濃度を測定した。なお、配管に使用する材質は、発生ガスの吸着を少なくするため、PFAテフロン管を使用した。この実験装置に使用した機器の仕様および操作条件を表二に示した。

発生ガスの発生特性についての実験は次の条件で行った。すなわち、

- ① 発生ガスの濃度範囲は、非メタン炭化水素計の校正ガスおよびガスクロマトグラフ分析の標準ガスとしての実用性を考慮して、10ppmC以下の低濃度域とした。
- ② 発生ガスは、都市大気中に比較的多く含まれる炭化水素のうち、常温で液状であるトルエンを用いた。
- ③ 発生ガス流量は、同時に数台の機器を校正可能なように6~11 l/minに調節した。

### 2-3 実験I キャリヤーガス流量と発生ガス濃度

拡散セル(No.4)に、トルエン(特級試薬、和光純薬)を入れ、発生器に固定した。これを30°Cの恒温槽に浸し、その発生器にキャリアーガスを通して一定量の蒸発したトルエンガスを混合させ、ガス流量を0.75~5.00 l/minとした。さらに、このガスを希釈ガス(10.00~5.75 l/min)で希釈し、ガス量が10.75 l/minとなるように調製し、一定濃度のトルエンガスを得た。ただし、発生ガス濃度は、約0.6ppmとなるように拡散セル内の液面とセル上端までの長さ(拡散長)を約10cmに調節した。

### 2-4 実験II 発生ガス濃度の安定に要する時間

実験Iと同じ拡散セルを用いて、キャリアーガス流量0.75 l/min、希釈ガス流量10.00 l/minでトルエンガスを発生させ、6分間隔でFIDガスクロマトグラフにより60分まで分析した。また同時に非メタン炭化水素計により非メタン濃度も併せて測定し、濃度の安定に要する時間を調べた。

表二 実験装置に使用した機器の仕様および操作条件

オイルフリーコンプレッサー	日立製	SK15.37KW4P
水冷式オイルミスト除去装置	日立製	CAU-80
触媒燃焼式空気精製装置	紀本製	RG-70(白金系触媒, 温度480°C)
質量流量制御装置	紀本-Tylan製	AFC-202(最大5 l/min, キャリヤーガス系2,00 l/min, 希釈ガス系4.00 l/min, 目盛較正; S-TEC製精密膜流量計SF-11使用)
恒温水浴槽	紀本製	TWB-80
FIDガスクロマトグラフ	島津製	GC-6A(カラム; 5+5% Bentone 34+DIDP/Chromosorb W-AW 3mmφ×3m ステンレス, カラム温度; 110°C, キャリヤーガス; 窒素45ml/min, 2mlガスサンプラー接続)
非メタン炭化水素計	柳本製	AG-202(直接方式, 目盛較正; 4.01ppm CH <sub>4</sub> /Air 標準ガス使用)

## 2-5 実験Ⅲ 拡散セル内での試料物質の蒸発量の経時変化

拡散セル (No. 3) を使用し、初期拡散長を3.96cmとした。キャリアーガス流量 2 ℓ/min, 希釈ガス流量 4 ℓ/min, 恒温槽温度30°Cでトルエンガスを発生させた。試料ガスを発生させてから 116時間までの蒸発量の変化を直示天秤により測定し、蒸発速度と濃度の安定性について検討した。

### 2-6 実験Ⅳ 拡散長と発生ガス濃度

拡散セル (No. 3) を使用し、流量および温度条件は実験Ⅲと同じである。拡散セルへ注入するトルエンの量を変えて液面の高さを調節し、拡散長を 4.00~10.00cm まで変化させ、発生するトルエンガスの濃度を非メタン炭化水素計により測定した。

### 2-7 実験Ⅴ 拡散面積と発生ガス濃度

拡散面積の異なる拡散セル (No. 1~4) の4種を使用し、流量および温度条件は実験Ⅲと同じである。拡散長を 9.00cm に設定し、恒温槽温度を 30°C とし発生するトルエンガスの濃度を非メタン炭化水素計により測定した。

### 2-8 実験Ⅵ 拡散セル温度と発生濃度

拡散セル (No. 4) を使用し、流量条件は実験Ⅲと同じである。拡散長を 9.00cm に設定し、恒温槽温度を 30°C~50°C に変化させ、発生するトルエンガス濃度を非メタン炭化水素計により測定した。

## 3. 実験結果および考察

### 3-1 実験Ⅰ キャリヤーガス流量と発生ガス濃度

本実験に先だって、オイルフリーコンプレッサーから触媒燃焼装置を通過した空気非メタン炭化水素計による測定値は、非メタン0.05ppm, メタン0.20ppm

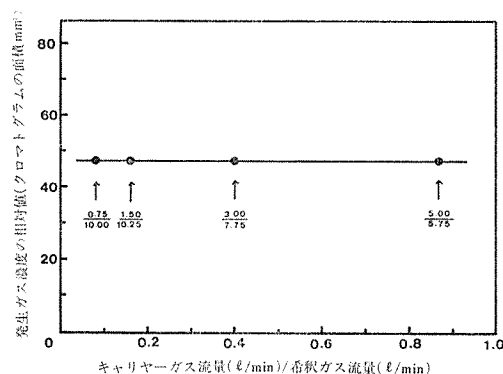


図-2 キャリヤーガス流量を変化させ発生ガス濃度(キャリアーガス流量+希釈ガス流量)を一定とした場合の発生ガス濃度

の一定値を示した。したがって、キャリアーガスおよび希釈ガスは、このレベルのブランク濃度を持つことが認められた。以下の実験結果の非メタン濃度は、このブランク濃度を差し引いた値で考察することにする。

それぞれのキャリアーガス流量および希釈ガス流量に対するトルエンの発生濃度をクロマトグラムの面積値で表わしたものが図-2である。図から明らかなように、キャリアーガス流量を 0.75~5.00 ℓ/min まで変化させ、発生ガス流量を 10.75 ℓ/min の一定値にした場合、発生ガス濃度は、キャリアーガス流量の変化によらず一定濃度を示すことが判った。このことは、拡散セルから蒸発してくるトルエンの量が、恒温下で常に一定量であることも示している。

### 3-2 実験Ⅱ 発生ガス濃度の安定性に要する時間

キャリアーガスを流し始めてからの発生濃度の変化をガスクロマトグラフおよび非メタン炭化水素計により測定した。その結果を図-3に示す。これによると約30分で十分安定な発生濃度が得られると判断できる。

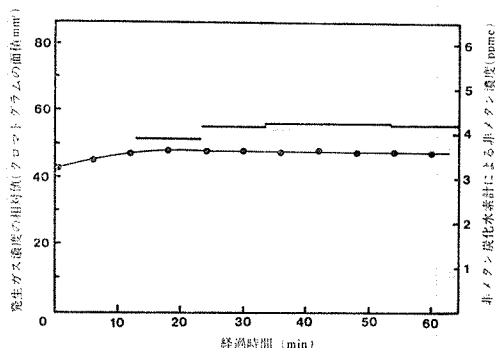


図-3 発生ガス濃度の安定性

### 3-3 実験Ⅲ 拡散セル内での試料物質の蒸発量の経時変化

#### 3-3-1 蒸発速度の検討

拡散セル (No. 3) を使用して数時間から20数時間の適当な時間を置いて経時的にトルエンの蒸発重量、そのときのセルの拡散長を求めて表-3に、蒸発重量と経過時間の関係を図-4に示した。図から判るようにゆるやかな曲線となっている。拡散面積の比較的大きいセル(内径約 50~100mm)を使用した場合には、蒸発重量-時間の関係がほぼ直線的であるが、本実験で使用した拡散面積の小さいセル(内径約3~6mm)では、蒸発に伴ってセル内の液面の下降すなわち拡散長の増加があり、蒸発速度が時間とともに減少することになる。そこで、経過時間  $t$  (sec) と蒸発重量  $W$



( $\mu\text{g}$ )の回帰曲線は、べき乗回帰式で良く適合し、次式で表わされる。

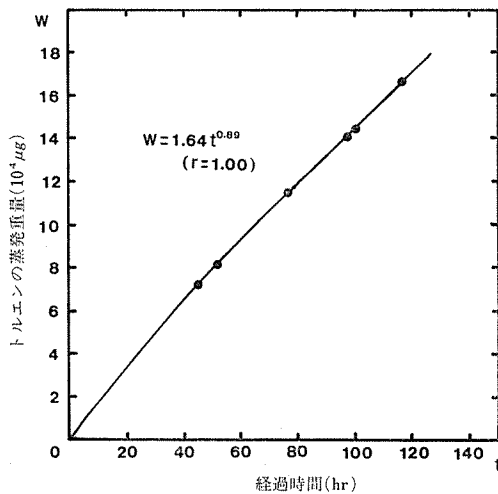
$$W=1.64 t^{0.89} \quad (R=1.00) \quad (3-1)$$

蒸発速度は単位時間当りの蒸発重量であるので時間  $t$  で微分すると蒸発速度 ( $N=dW/dt$ ) が求められる。従って (3-1) 式から次式が求められた。

$$N=1.46 t^{-0.11} \quad (3-2)$$

表—3 蒸発重量および拡散長と経過時間

経過時間 (hr)	蒸発重量 ( $10^4 \mu\text{g}$ )	拡散長 (cm)
0	0	3.96
45.17	7.19	4.63
53.25	8.12	4.79
76.92	11.46	5.05
97.33	14.03	5.32
100.25	14.46	5.38
116.75	16.62	5.58



図—4 蒸発重量と経過時間

表—4 発生ガス濃度と非メタン炭化水素計による測定値

経過時間 (hr)	(3-2)式および(3-3)式を用いて算出した発生ガス濃度 (トルエン ppm) A	非メタン炭化水素計による測定値 (ppm) B	非メタン炭化水素計による測定値のトルエン換算濃度 (ppm) (B/6.23) C	Cを基準としたときのCとAの差 (%) $\{(A-C)/C\} \times 100$
45.17	1.05	6.6	1.06	-0.94
53.25	1.03	6.5	1.04	-0.96
76.92	0.99	6.1	0.98	1.02
97.33	0.97	5.8	0.93	4.30
100.25	0.96	5.7	0.91	5.49
116.75	0.96	5.6	0.90	6.67

### 3-3-2 発生ガス濃度の計算

発生ガス濃度は、次の (3-3) 式により計算した。

$$C=N \times 60 \times k/f \quad (3-3)$$

ここに、 C ; 発生ガス濃度 [ppm]

N ; 蒸発速度 [ $\mu\text{g}/\text{sec}$ ]

f ; 発生ガス流量 [ $\ell/\text{min}$ ]

k ; 拡散セルの温度  $\theta$  °C, セル内の物質の分子量Mによって決まる定数

$$k = (22.4/M) \times \{(273+\theta)/273\}$$

#### 3-3-2-1 発生ガス濃度と非メタン炭化水素計による測定値との比較

(3-2) 式および (3-3) 式を用いて、それぞれの経過時間における発生ガス濃度を算出し、そのときの非メタン炭化水素計の測定値と比較したものが表—4である。非メタン炭化水素計はメタン標準ガスで較正し、濃度はメタン換算値である。これに対し、発生濃度はトルエンガスの ppm 数で算出している。したがってトルエンの応答係数を調べ、非メタン濃度値をトルエン換算値に換算して比較する必要がある。そのために、まず、トルエン標準ガス (高千穂化学工業製) 0.99ppm  $\text{C}_7\text{H}_8/\text{Air}$  によって本実験で使用した非メタン炭化水素計の応答係数 6.19ppm を求め、C 原子 1 当りの応答係数  $6.19/(0.99 \times 7) = 0.89$  から  $\text{C}_7$  相当の応答係数  $0.89 \times 7 = 6.23$  を算出した。すなわち、1ppm トルエンはメタン換算値で 6.23ppm に相当することを意味する。以上のように求めた応答係数 6.23 を用いて比較した場合、蒸気拡散を利用して発生させたトルエンガス濃度と非メタン炭化水素計による測定値の差は、-0.94% ~ +6.67% の範囲内であった。

この結果より、市販の濃度検定済標準ガスの濃度と、本実験で発生させたトルエンガス濃度は、約 7% 以内で一致をみたといえる。

### 3-3-2-2 発生ガス濃度の安定性

前述のように、蒸発速度が経時的に減少するため発生ガス濃度は、経時的に減少する。発生ガス濃度と時間の関係を図-5に示す。発生ガス濃度C (ppm)と経過時間(t)との関係は、ほぼ直線となり、その直線回帰式は次式となる。

$$C = 7.55 - 5.01 \times 10^{-6} t \quad (R = 0.99) \quad (3-4)$$

発生ガス濃度6 ppmを例として、その2%変化する時間を求めると

$\{6.00 - 6.00(1 - 0.02)\} / 3600 \times 5.01 \times 10^{-6} = 5.6(\text{hr})$ となる。したがって、拡散セル(No. 3)を使用した場合、セルを装着してから約5時間は、濃度変動2%以内で一定濃度の発生ガスを得ることができる。

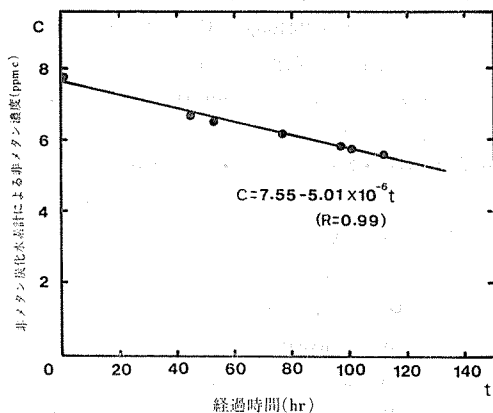


図-5 発生ガス濃度と経過時間

### 3-3-2-3 蒸発重量の秤量可能な時間

本実験で使用した直示天秤の最小目盛は0.0001 gである。秤量誤差を考慮して秤量限界を0.0002 gとすると1%誤差で秤量可能な重量は0.0200 g ( $= 2 \times 10^4 \mu\text{g}$ )となる。経過時間と蒸発重量の関係を示す(3-1)式から  $2 \times 10^4 \mu\text{g}$ の量が蒸発するに要する時間を求めると10.8 (hr)となる。したがって、拡散セル(No. 3)を使用した場合、秤量誤差を小さくするためには約11時間以上の時間間隔で蒸発重量を秤量するのが適当であると判断できる。

### 3-4 実験IV 拡散長と発生ガス濃度

拡散セル(No. 3)を用いた場合、その拡散長と発生ガス濃度の関係を図-6に示す。図から明らかなように拡散長 $l$  (cm)と発生ガス濃度C (ppm)とは逆比例の関係が認められる。その回帰式は次式で表わされる。

$$C = 34.1 / l \quad (R = 1.00) \quad (4-1)$$

この結果より、拡散セルの拡散長を変えることにより発生濃度を変化させることが可能であることを示す

と判断される。

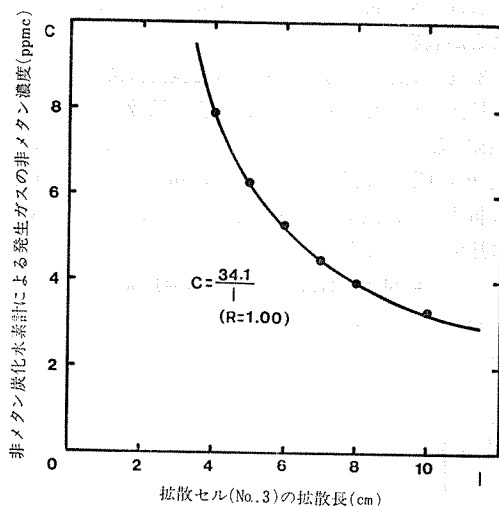


図-6 拡散長と発生ガス濃度

(拡散セルNo. 3; 3.8mmφ)

### 3-5 実験V 拡散面積と発生ガス濃度

4種のそれぞれ拡散面積の異なる拡散セルを用いて、同一条件でトルエンガスを発生させた場合、拡散面積と発生ガス濃度の関係は図-7に示すとおりである。同一の拡散セルに対し、3回の繰返し実験を行い、その結果を図中にプロットしたものである。図から明らかなように、原点を通る直線関係のあることが判る。拡散セル面積S (cm<sup>2</sup>)と発生ガス濃度C (ppm)との関係は 次のような回帰式が成立する。

$$C = 29.2 S \quad (5-1)$$

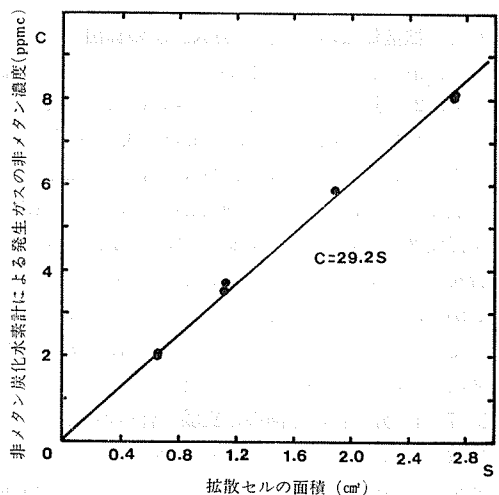


図-7 拡散面積と発生ガス濃度

(拡散セルNo. 1; 5.9mmφ, No. 2; 4.7mmφ, No. 3; 3.8mmφ, No. 4; 2.9mmφ)

この実験結果より、拡散面積の異なる拡散セルを用いればセルの面積に応じて発生ガス濃度を変えられることが判る。

### 3-6 実験Ⅵ 拡散セル温度と発生ガス濃度

拡散セル (No. 4) を用いた場合の拡散セル温度と発生ガス濃度の関係を図-8 に示す。この場合では、温度  $\theta$  ( $^{\circ}\text{C}$ ) と発生ガス濃度  $C$  (ppm) との関係を図-8 に示す。この場合では、温度  $\theta$  ( $^{\circ}\text{C}$ ) と発生ガス濃度  $C$  (ppm) との関係を図-8 に示す。この場合では、温度  $\theta$  ( $^{\circ}\text{C}$ ) と発生ガス濃度  $C$  (ppm) との関係を図-8 に示す。

$$C = 14.0 + 47.9 \log \theta \quad (R=1.00) \quad (6-1)$$

このことにより、セル温度を変えることによっても発生ガス濃度を変えることができるといえる。

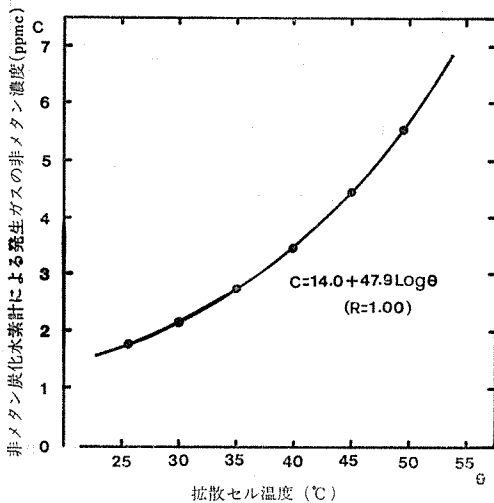


図-8 拡散セル温度と発生ガス濃度

### 3-7 拡散係数からの発生ガス濃度の算出

蒸気拡散を利用して発生させるガスの濃度は、通常、3-3-2 で述べたように拡散セルに固有の蒸発速度  $N$  をあらかじめ実測し、これを用いて (3-3) 式によって決定される。しかし、実験Ⅳ, V, Ⅵの結果をみても判るように、拡散長  $\ell$ 、拡散面積  $S$ 、および拡散セル温度  $\theta$  と発生ガス濃度の間には、分子拡散理論の適合を示唆するような明確な関数関係が成立していることから、蒸発速度の実測値によらずに発生ガス濃度を決定することができる。そこで、拡散係数から発生ガス濃度を決定する方法について検討を行った。

#### 3-7-1 分子拡散理論の本実験条件への適用

拡散セル内の試料物質蒸気が、セル上端に流れるキャリアーガスへ移動する現象は、拡散セル内での Fick の拡散法則によって説明される。すなわち、A, B 2 成分より成る混合ガスが  $Z$  なる方向に濃度差があるとき、それに直角な単位断面積について、単位時間当り

に A 成分の拡散する速度  $N_A$  ( $\text{g}/\text{cm}^2 \cdot \text{sec}$ ) は、断面における濃度勾配  $dC_A/dZ$  に比例する。<sup>2), 3)</sup>

$$N_A = -D_G \cdot (dC_A/dZ) \quad (7-1)$$

微分形で示してあるのは時間的に  $C_A$  が次第に減少するにつれて速度も変化するという非定常の場合に適用させるためであって、定常状態すなわち時間的に  $C_A$  が変化しなければ、 $dC_A/dZ = C_A'/\ell$  である。

ここに比例定数  $D_G$  ( $\text{cm}/\text{sec}$ ) は、分子拡散係数である。試料物質の移動量 (蒸発重量) を  $W$  ( $\text{g}$ )、拡散面積を  $S$  ( $\text{cm}^2$ )、時間を  $t$  ( $\text{sec}$ ) とすると  $N_A = dW/dt \cdot S$  であるから次のように表わせる。

$$dW/dt = -D_G \cdot S \cdot (C_A'/\ell) \quad (7-2)$$

ここで  $C_A'$  ( $\text{g}/\text{cm}^3$ ) と ppm 濃度  $C_A''$  (ppm) との関係は、試料物質の分子量を  $M$  として次式で表わせる。

$$C_A' = (M/22400) \cdot C_A'' \cdot 10^{-6} \quad (7-3)$$

また、濃度勾配の方向性を示す負の付号を無視し、さらに試料物質の蒸気圧を  $P$  ( $\text{mmHg}$ ) とすれば、(7-2) 式は、次式に変形される。

$$dW/dt = D_G \cdot S \cdot (1/\ell) \cdot (M/22400) \cdot (P/760) \quad (7-4)$$

ここに、 $W$  ; 試料物質の蒸発重量 [ $\text{g}$ ]

$t$  ; 時間 [ $\text{sec}$ ]

$D_G$  ; 分子拡散係数 [ $\text{cm}^2/\text{sec}$ ]

$S$  ; 拡散面積 [ $\text{cm}^2$ ]

$M$  ; 試料物質の分子量

$P$  ; 試料物質の飽和蒸気圧 [ $\text{mmHg}$ ]

$\ell$  ; 拡散長 [ $\text{cm}$ ]

#### 3-7-2 希釈ガス流量と発生ガス濃度の関係

(7-4) 式において  $t = 60\text{sec}$  とすると  $W$  は 1 分間当りの蒸発重量であるから、試料物質のガスの占める体積  $v$  ( $\ell$ ) は、次式で表わされる。

$$v = 22.4W/M \quad (7-5)$$

次に、(7-4) 式および (7-5) 式より、 $v$  について次式を得る。

$$u = 10^{-3} \cdot D_G \cdot S \cdot t \cdot (1/\ell) \cdot (P/760) \quad (7-6)$$

一方、希釈ガス総流量 (発生ガス流量) を  $f$  ( $\ell/\text{min}$ ) とすれば、発生ガス濃度  $C_A''$  (ppm) は、

$$C_A'' = (v/f) \times 10^6 \quad (7-7)$$

(7-5), (7-6), (7-7) 式より

$$C_A'' = 6 \times 10^4 \cdot D_G \cdot S \cdot (1/\ell) \cdot (P/760) \cdot (1/f) \quad (7-8)$$

したがって、試料物質の拡散係数  $D_G$  をあらかじめ求めておけば (7-8) 式によって、発生ガス濃度を算出することができる。なお、温度  $\theta = 30^{\circ}\text{C}$  におけるトルエンの蒸気圧  $P$  は次式の Antoine 式より求めると  $36.7\text{mmHg}$  である。<sup>4)</sup>

$$\log P = A - B / (C + \theta) \quad (7-9)$$

ここに, A, B, C; Antoine 定数

### 3-7-3 拡散係数の推算値と実測値の比較および 拡散係数からの濃度決定方法の評価

実際に使用する拡散係数は, 実験によって求めるべきであるが, Gilliland, 藤田等の半理論式があり, 計算によって推算できる。<sup>5), 6)</sup> 次式で示される Gilliland の式を用いると,  $D_G$  (Gilliland,  $\theta=30^\circ\text{C}$ ) = 0.0870 ( $\text{cm}^2/\text{sec}$ ) となる。

$$D_G = \frac{0.043T^{1.5}}{P(V_a^{1/3} + V_b^{1/3})} \sqrt{\frac{1}{M_a} + \frac{1}{M_b}} \quad (7-10)$$

ここに, T; 絶対温度 [ $^\circ\text{K}$ ]

P; 全圧 [atm]

$M_a$ ; 拡散ガスの分子量

$M_b$ ; 媒体ガスの分子量

$V_a$ ; 拡散ガスの標準沸点における分子容  
[ $\text{cm}^3/\text{mol}$ ]

$V_b$ ; 媒体ガスの標準沸点における分子容  
[ $\text{cm}^3/\text{mol}$ ]

また, 次式で示される 藤田 の式を用いると,  $D_G$  (藤田,  $\theta=30^\circ\text{C}$ ) = 0.0861 ( $\text{cm}^2/\text{sec}$ ) となる。

$$D_G = \frac{0.00070T^{1.833}}{\left\{ \left( \frac{T_c}{P_c} \right)_a^{1/3} + \left( \frac{T_c}{P_c} \right)_b^{1/3} \right\}^3} \sqrt{\frac{1}{M_a} + \frac{1}{M_b}} \quad (7-11)$$

ここに, T; 絶対温度 [ $^\circ\text{K}$ ]

$T_c$ ; 臨海温度 [ $^\circ\text{K}$ ]

$P_c$ ; 臨海圧 [atm]

M; 分子量

次に, 実験 V の発生条件および結果より拡散係数を求める。(7-8) 式へ実験 V の発生条件 ( $C_A''=C/6.23\text{ppm}$ ,  $P=36.7\text{mmHg}$ ,  $l=9.00\text{cm}$ ,  $f=6.00\text{ l/min}$ ) を入れて変形すると次式となる。

$$C = 334D_G \cdot S \quad (7-12)$$

実験式と理論式は, 面積と濃度との同一の関係を示すものであるから (5-1) 式と (7-12) 式は, 等しいとみなされるので次の関係が成り立つ。

$$334D_G = 29.2$$

故に,  $D_G$  (実験 V,  $\theta=30^\circ\text{C}$ ) = 0.0874 が算出される。また, 実験 IV より拡散係数  $D_G$  を求める。(7-8) 式へ実験 IV の発生条件 ( $C_A''=C/6.23\text{ppm}$ ,  $S=0.113\text{ cm}^2$ ,  $P=36.7\text{mmHg}$ ,  $f=6.00\text{ l/min}$ ) を入れて変形すると次式となる。

$$C = 341D_G / \theta \quad (7-13)$$

同様に, (4-1) 式と (7-13) 式について次の関係が成り立つ。

$$341D_G = 34.1$$

故に,  $D_G$  (実験 IV,  $\theta=30^\circ\text{C}$ ) = 0.100 が算出される。

また, 実験 III より拡散係数  $D_G$  を求める。実験 III の結果から求めた蒸発速度は, 理論式 (7-4) 式の左辺に相当する。実験 III の発生条件および結果 ( $dW/dt = \text{蒸発速度} \times 10^{-6} \mu\text{g/sec}$ ,  $S=0.113\text{ cm}^2$ ,  $M=92.1$ ,  $P=36.7\text{mmHg}$ ) を入れて計算すると表-5 に示すような拡散係数  $D_G$  (実験 III,  $\theta=30^\circ\text{C}$ ) が算出される。

表-5 実験 III の発生条件および結果から算出した拡散係数

番号	経過時間 (hr)	拡散係数 $D_G$ ( $\text{cm}^2/\text{sec}$ )
1	45.17	0.0802
2	53.25	0.0815
3	76.92	0.0826
4	97.33	0.0846
5	100.25	0.0853
6	116.75	0.0870

これら 3 種の発生実験結果から算出された拡散係数  $D_G$  を推算法からの値と比較する。拡散面積を変えて発生実験を行った実験 V からの算出値が, 約 2% 以下の差で非常に一致しているものの, その他は明らかな差が認められる。特に, セルの拡散長を変えて発生させた実験 IV の結果から算出した値は, 推算法からの値よりも約 15% も高い。また, 実験 III の結果からの値は, 経過時間が増加するに従い, しだいに推算法からの値に近くなる傾向が見られるが, 一定値を示していない。以上のことから, 実測値から算出した拡散係数は, 実験条件により, 約 20% 範囲内で異なる数値が得られている。したがって, 拡散係数から発生ガス濃度を決定する場合には, 20% 程度の相対誤差を生ずる可能性があるといえる。しかしながら, 拡散係数の推算値等を利用するとあらかじめ発生ガス濃度を試算することができるので, 各種試料物質について, 発生条件の検討や拡散セルの設計には十分利用できると思われる。

## 4. まとめ

多数の自動計測器の応答試験や同時較正, あるいはチャンバー等を使用した暴露・反応等の実験には, 大量の各種標準ガスを必要とする。そこで今回, その種類と濃度が任意に選べるという利点を持つ蒸気拡散を利用した標準ガスの発生方法について, トルエンを用いて 10ppm C 以下の低濃度域で発生実験を行い, その発生条件および発生特性を検討し, 以下に要約する結果を得た。

(1) 今回試作した発生器および拡散セルを用いた場合、キャリアーガス流量を 0.75~5.00 l/min まで変化させても発生ガス流量（キャリアーガス流量+希釈ガス流量）を一定にすれば、発生ガス濃度に影響はなく、11 l/min までの流量で一定濃度のトルエンガスを発生させることができた。

(2) 発生ガス濃度は、拡散セルを発生器へ固定してから約30分で十分安定する。

(3) 今回作成した直径数 mmφ の比較的小さな拡散面積を持つ拡散セルを用いた場合では、時間の経過と共に液面の降下があり、蒸発速度および発生ガス濃度は減少したが、蒸発速度は、蒸発重量と時間とのべき乗回帰式を微分して時間の関数として求めることができた。

(4) 蒸発速度から決定した発生ガス濃度は、市販の濃度検定済標準ガスの濃度と7%以内で一致した。

(5) 蒸発重量の秤量は、約11時間以上の時間間隔で行えば精度良く計測できる。

(6) 拡散長と発生ガス濃度との間には、逆比例の関係が認められ、拡散長を変えることにより発生ガス濃度を変えることができる。

(7) 拡散面積と発生ガス濃度の間には、正比例の関係が認められ、拡散面積の異なる拡散セルを用いることによっても発生ガス濃度を変えることができる。

(8) 拡散係数の推算値等を用いて発生ガス濃度を決定

する場合には、最大20%程度の相対誤差を生ずる可能性があるが、各種試料物質についての発生条件の設定には十分利用できると思われる。

今後は、拡散セルについて改良を行い、長時間で同一濃度が得られるようにし、更には、有機塩素系および含酸素系有機ガスの大容量標準ガスの発生について実験を積み重ねてゆきたいと考えている。

## 文 献

- 1) 財団法人 化学品検査協会 化学標準物質標準化委員会大気関係分科会：公害計測用等化学標準物質の標準化のための調査研究報告書. 大—94 (1978).
- 2) Walter L. Badger and Julius T. Banchemo : Introduction to Chemical Engineering. 374—376 (1955). McGraw-Hill, Kogakusha.
- 3) 光武量：例題演習化学工学. 177—181 (1972). 産業図書.
- 4) 日本化学会：化学便覧基礎編. 708—731. (1975).
- 5) E. R. Gilliland : Diffusion Coefficients in Gaseous Systems. *Industrial and Engineering Chemistry*, 26. (6), 681—685 (1934).
- 6) 佐藤一雄：物性定数推算法. 125—138 (1972). 丸善.

# 薄層クロマトグラフ—高速液体クロマトグラフによる大気中の浮遊粉じんに含まれる多環芳香族炭化水素分析法の検討

太田 正雄\*

## 要 旨

一般に大気中の浮遊粉じんはハイボリュームエアサンプラーによってろ紙上で捕集されている。この方法によって捕集される多環芳香族炭化水素のうち比較的分子量が大きく、蒸気圧の低い9種類の物質について薄層クロマトグラフ—高速液体クロマトグラフの組合せにより一斉分析を試み次の様な結論が得られた。

- (1) ペリレンとベンゾ (e) ピレン, ベンゾ (b) フルオランテンとベンゾ (k) フルオランテン, ベンゾ (a) アントラセンとクリセンの3組6物質の分離が可能となった。
- (2) ペリレンとベンゾ (k) フルオランテンについてはケイ光検出器の波長の選択とケイ光強度比により定量が可能となった。
- (3) 9種類のPAHのうち8種類がng以下まで測定可能となった(コローネンは2ng)。

## 1. はじめに

大気中の浮遊粉じんには、数十種の多環芳香族炭化水素(以下PAH)が吸着されているといわれている。これらPAHの中には、ベンゾ(a)ピレンの様な強力な発癌性物質や、ベンゾ(ghi)ペリレンの様な発癌促進物質等人体に有害な物質が数多く含まれている。PAHの分析の歴史は、1933年Cookらによって、ベンゾ(a)ピレンがはじめてタールから単離され、それ以後、PAHの分析法<sup>1)~3)</sup>として、ペーパークロマトグラフ、ガスクロマトグラフ(以下GC)、薄層クロマトグラフ(以下TLC)、ガスクロマトグラフ—質量分析(以下GC-Mass)、高速液体クロマトグラフ法<sup>4)~8)</sup>(以下HPLC)等が検討されてきた。しかし、従来から使用されてきた各測定法には次のような問題点がある。

### 1. GC及びGC-Mass法

一斉分析は可能であるが、蒸気圧の<sup>11)~13), 15)</sup>低いPAH(C<sub>16</sub>以上で4員環以上のもの)は分析しにくい事、分析時間が長い事、定量限界がng程度とそれほど感度が良くない事等問題点が多い。しかし、最近使

用されるようになったマスフラグメント法は定量限界がpgとかなり感度が良くなっている。しかしこれについても、一斉分析ができないという問題点が残る。

### 2. HPLC法

比較的分析時間が短かくてすむ点や定量限界がpg程度とかなり感度が良い反面、C<sub>18</sub>以上の異性体間での分離が悪いという問題がある。

### 3. TLC法

現在では、従来使用されてきたTLC法を改良したTLC-ケイ光分光法が一般的である。この方法は簡易性、迅速性の点ですぐれているが、定量限界がngである事、Rf値の高い物質については分離が悪い事等問題点もまだ残されている。

そこで著者は、HPLC法の精度のよさ、TLC法の簡易、迅速、分離のよさに注目し、2つの測定法を合わせたTLC-HPLC系測定法の検討を行なった。すなわち、HPLC法では4員環のクリセンとベンゾ(a)アントラセン、5員環のペリレンとベンゾ(e)ピレン、ベンゾ(k)フルオランテンとベンゾ(b)フルオランテンの3組6物質の異性体が分離できない。そ

Thin-Layer High Pressure Liquid Chromatographic Method for The Determination of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Airborne Particulates Matters.

\* Masao Ohta, 横浜市公害研究所大気部門

ここで極性差を利用した二層一次元の TLC によりあらかじめ分画処理を行い、各異性体同士が分離される様な3つのグループに分け、再び HPLC によって分離する方法をとった。検出器としてはケイ光分光光度計を用い、そのケイ光特性より、液体クロマトグラフによっては分離できない混合成分（ペリレンとベンゾ（k）フルオランテン）のピークを、最適の励起ケイ光波長を選択することによって、両物質の定量を行うことができた。またフローセルの容量（12 $\mu$ l）が小さいため各 PAH を感度（pg程度まで）良く定量することができた。

## 2. 実験方法

### 2-1 試薬

ジメチルスルホキシド（DMSO）；スペクトル級試薬（同仁薬化学）

展開剤；メタノール-エーテル-水（4：4：1, v/v）  
メタノール，エーテルは市販特級

吸着剤；キーゼルゲールG（E. Merck）

26%-アセチル化セルロース（国産化学）

多環芳香族炭化水素標準液（標準 PAH 液）

ベンゾ（a）ピレン，ベンゾ（b）フルオランテン，クリセソ，ベンゾ（k）フルオランテン，ペリレン，ベンゾ（a）アントラセン，ベンゾ（e）ピレン，ベンゾ（ghi）ペリレン，コローネン。以上9物質がそれぞれ 1 $\mu$ g/mlの濃度であるベンゼン混合液。

### 2-2 器具及び装置

超音波洗浄器（ヤマト科学）

遠心分離器（国産遠心機）

ロータリーエバポレーター（柴田化学器械）

真空昇華装置（三田村理研）

展開そう（ヤマト科学）

液体クロマトグラフ（島津LC-1）

分光器（島津FLD-1, RF-500）

### 2-3 分析方法

大気中の浮遊粉じんを実際に捕集するグラスファイバーろ紙（GB-100R）に標準 PAH を 200 $\mu$ l 添加し、溶媒をとばした後にこれを真空昇華用フラスコに入れ、真空昇華<sup>11)</sup>（0.02mmHg以下、305 $\pm$ 5 $^{\circ}$ C、40分間）を行なった。真空昇華管に析出した PAH はベンゼン-アセトニトリル（1：1）混合溶液 250 $\mu$ l によって完全に溶解させ、その 200 $\mu$ l を分取する。この溶解液を二層一次元薄層クロマトグラフ（上層；26%-アセチル化セルロース，下層；キーゼルゲールG）上にスポットし、展開溶媒〔メタノール-エーテル-水（4：4：1, v/v）〕によってチャンバー内で上層上10cm

展開を行なった。展開時間は約90分であった。展開後はプレートを風乾し、溶媒をとばした後に紫外線照射下で各スポットを3つのグループに分け、手早くスプチュラでかき取り、共栓付遠沈管（5ml）に入れる。これにベンゼン 6mlを加えてよく振り、超音波洗浄器内で約30分間超音波抽出後、遠心分離（3000rpm、15分間）を行い、その上澄液を 4ml 分取し遠沈管に入れ、30 $^{\circ}$ C 以下で減圧乾固をして溶媒をとばす。器壁についている PAH は DMSO 100 $\mu$ l によって完全に溶解させ、その 10 $\mu$ l を分取し HPLC に注入する。HPLC の分析条件は、カラム圧力 100気圧，カラム温度 50 $^{\circ}$ C，液流量 1.0ml/min，検出器はフィルター型ケイ光検出器，分光型ケイ光検出器を用い、各グループごとに最適な励起，ケイ光波長を選び、各 PAH の定量を行なった。PAH の分析フローチャートは図-1に示す。

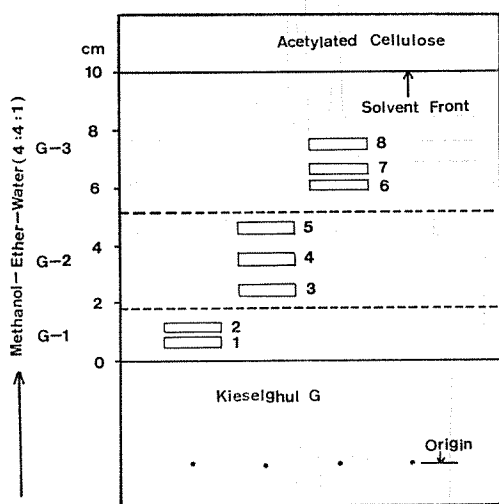
試料	
—真空昇華	40分 (0.02mmHg以下, 305 $\pm$ 5 $^{\circ}$ C)
—二層一次元薄層クロマトグラフ	(MeOH: EtOEt: H <sub>2</sub> O = 4:4:1, v/v)
遠沈管にかき取り	
	3つのグループに分画
—ベンゼン	6ml
—超音波抽出	30分 (30 $^{\circ}$ C以下)
—遠心分離	15分 (3000rpm)
ベンゼン	4ml分取
—減圧乾固	(30 $^{\circ}$ C以下)
DMSO 100 $\mu$ l により PAH を溶解	
HPLC 条件	
カラム	"Zorbax" ODS 25cm $\times$ 4.6mm $\phi$
カラム温度	50 $^{\circ}$ C
カラム圧力	100atm
液流量	1.0ml/min
グラジエント	90%—MeOH/H <sub>2</sub> O (8min) 1%/min GE 100%—MeOH (12min)
分光器	
グループNo.	E (nm) F (nm)
G-1	305 410
G-2	295 388
G-3	305 410

図-1 PAH の分析フローチャート

### 3. 結果及び考察

#### 3-1 TLC による PAH の分離

真空昇華後の PAH の二層一次元薄層クロマトグラムを図-2に、その時の各 PAH の R<sub>f</sub> 値、及び PAH のベンゾ (a) ピレンに対する R<sub>f</sub> 値の比を表-1に示す。G-1のグループ (R<sub>f</sub> ≒ 0.07~0.12) にはベンゾ (a) ピレン、ベンゾ (b) フルオランテン、クリセソ、G-2 のグループ (R<sub>f</sub> ≒ 0.25~0.47) にはベンゾ (k) フルオランテン、ベンゾ (a) アントラセン、ペリレン、G-3のグループ (R<sub>f</sub> ≒ 0.58~0.76) にはベ



- 1 ベンゾ(a)ピレン
- 2 ベンゾ(b)フルオランテン + クリセソ
- 3 ベンゾ(k)フルオランテン
- 4 ベンゾ(a)アントラセン
- 5 ペリレン
- 6 ベンゾ(e)ピレン
- 7 ベンゾ(ghi)ペリレン
- 8 コローネン

図-2 PAH の TLC クロマトグラム

表-1 PAH の R<sub>f</sub> 値, R<sub>B</sub> 値

グループ No.	PAH No.	物質名	R <sub>f</sub> 値 (×100)	R <sub>B</sub> 値
G-1	1	ベンゾ(a)ピレン	7	1.0
	2	ベンゾ(b)フルオランテン	12	1.7
	3	クリセソ	12	1.7
G-2	4	ベンゾ(k)フルオランテン	25	3.5
	5	ベンゾ(a)アントラセン	36	5.1
	6	ペリレン	47	6.7
G-3	7	ベンゾ(e)ピレン	61	8.7
	8	ベンゾ (ghi) ペリレン	67	9.5
	9	コローネン	76	10.8

(注) R<sub>B</sub> 値は各PAHのベンゾ(a)ピレンに対する R<sub>f</sub> 値の比

ンゾ (e) ピレン、ベンゾ (ghi) ペリレン、コローネンが含まれている。実際の粉じん中の PAH のクロマトグラムでは G-1とG-2, G-2 と G-3 の間にインデノ (1, 2, 3, cd) ピレン、ピレンとフルオランテンが存在する。インデノ (1, 2, 3, cd) ピレンの場合、G-1, G-2 両グループに掲げた PAH を分離するためのケイ光波長では、ケイ光強度が弱く、感度が低いので境界線のマーカーとして用い、定量は行なわなかった。また、現在のハイボリウムエアサンプラーによる紙の捕集法では、蒸気圧の比較的高い C<sub>10</sub> 以下で4員環以下のピレンとフルオランテンは捕集率が低くなる傾向があるため、この2物質についても境界線のマーカーとした。

#### 3-2 TLC-HPLC による PAH 異性体の分離定量方法

図-3に TLC 分画処理を行なわない時の PAH 混合物の HPLC クロマトグラムを示す。TLCによる分画処理を行なわない場合、9物質中3組6物質の異性体は、分離されず図中の1, 2の2つのピークに共存している。1のピークにはクリセソ、ベンゾ (a) アントラセンの4員環の異性体が2のピークにはベンゾ (e) ピレン、ペリレン、ベンゾ (b) フルオランテン及びベンゾ (k) フルオランテンの4つの5員環異性体が共存している。これら同一ピーク内に共存する異性体を分離定量するため、9種の PAH について極性差を利用した2層一次元の TLC 分画処理を行い、

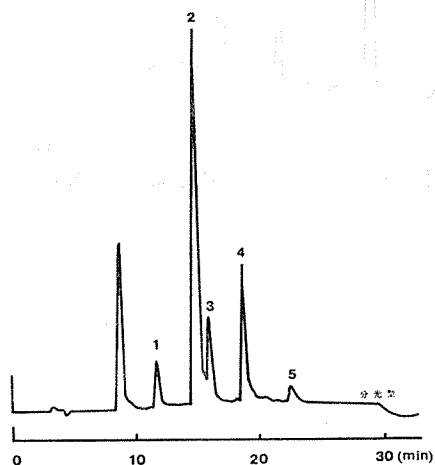


図-3 混合 PAH の HPLC クロマトグラム

- 1 : ベンゾ(a)アントラセン+クリセソ
- 2 : ベンゾ(e)ピレン+ペリレン + ベンゾ(k)フルオランテン+ベンゾ(b)フルオランテン
- 3 : ベンゾ(a)ピレン
- 4 : ベンゾ(ghi)ペリレン
- 5 : コローネン



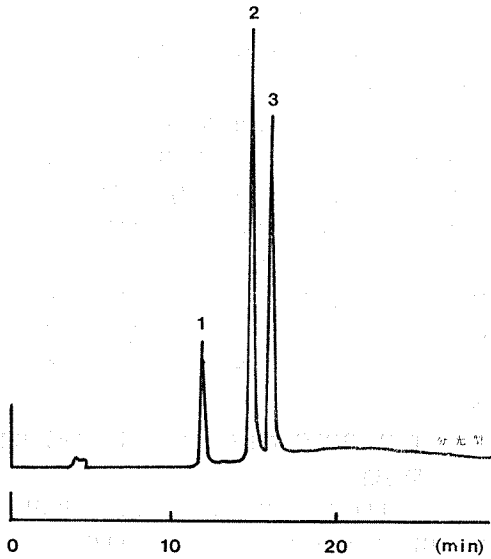


図-4 G-1 の HPLC クロマトグラム

- 1 : クリセン
- 2 : ベンゾ(b)フルオランテン
- 3 : ベンゾ(a)ピレン

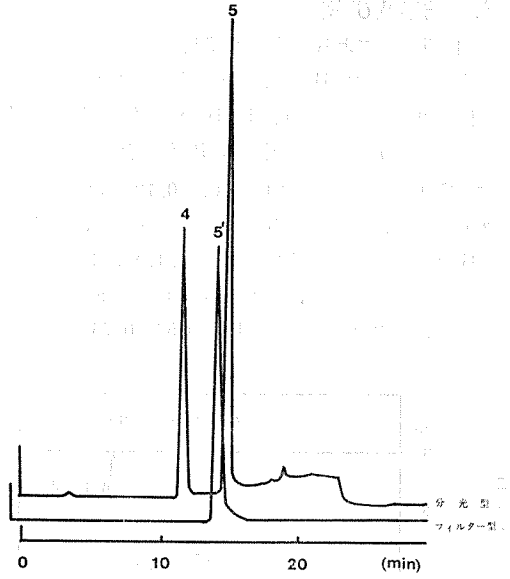


図-5 G-2 の HPLC クロマトグラム

- 4 : ベンゾ(a)アントラセン
- 5 : ベンゾ(k)フルオランテン
- 5' : ベンゾ(k)フルオランテン+ペリレン

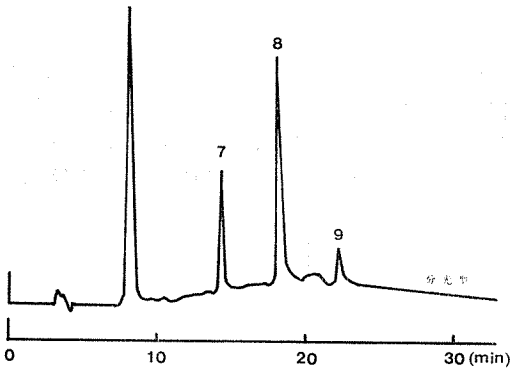


図-6 G-3 の HPLC クロマトグラム

- 7 : ベンゾ(e)ピレン
- 8 : ベンゾ(ghi)ペリレン
- 9 : コローネン

3つのグループに分けた。分画後再び HPLC により PAH を分離し、その時のクロマトグラムを図-4, 5, 6 に示す。HPLC の単独処理では分離できない異性体をあらかじめ TLC で分画処理するため、クリセン、ベンゾ (a) アントラセン、ベンゾ (e) ピレン、ベンゾ (b) フルオランテンの 4 物質が HPLC で定量可能となった。

### 3-3 ケイ光特性による PAH の定量方法

ベンゾ (k) フルオランテン、ペリレンの 2 物質は HPLC では図-5 のように分離できなかったため、検出器のケイ光分光光度計のケイ光特性によって定量を

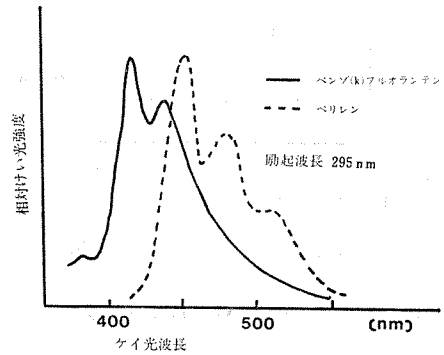


図-7 ベンゾ (k) フルオランテンとペリレンのケイ光スペクトル

行なった。図-7 にベンゾ (k) フルオランテンとペリレンのケイ光スペクトルを示す。400nm 以下ではペリレンにはケイ光はなく、ベンゾ (k) フルオランテンのみがケイ光スペクトルを持つ。したがって検出器のケイ光波長を 388nm にセットすれば、図-5 の 5 ピークはベンゾ (k) フルオランテンのケイ光ピークとなる。またフィルター型ケイ光検出器は 430nm 以上の波長を検知する性質を持つことから、5' ピークはベンゾ (k) フルオランテン+ペリレンの両物質を検知している。したがってベンゾ (k) フルオランテンの分光型対フィルター型ケイ光検出器のケイ光強度比を求

めておけば、ベンゾ(k)フルオランテンの濃度が決定した時、フィルター型のケイ光強度からベンゾ(k)フルオランテンを差し引くことにより、ペリレンの濃度も求めることができる。

### 3-4 PAHの回収率と定量限界

表一に9種類のPAHの回収率とその変動係数、定量限界を示す。9物質の平均回収率は各々80~90%程度であり、その変動係数はベンゾ(a)ピレン、クリセン、ペリレンの3物質を除けば小さかった。また

表一 PAHの回収率, 変動係数, 定量限界

グループ No.	物質名	平均回収率(%)	変動係数(%)	定量限界(ng)
G-1	ベンゾ(a)ピレン	85	14	150
(n=14)	ベンゾ(h)フルオランテン	86	7.2	120
	クリセン	83	13	400
G-2	ベンゾ(k)フルオランテン	84	8.0	130
(n=13)	ベンゾ(a)アントラセン	87	10	230
	ペリレン	84	13	270
G-3	ベンゾ(e)ピレン	89	7.1	960
(n=15)	ベンゾ(ghi)ペリレン	81	8.6	400
	コローネン	75	8.3	2000

(注) n: 試料数

定量限界はコローネンは2ng, それ以外の8物質はng以下までの定量が可能となった。従来から行なわれている一斉分析法として, GC, GC-Mass, TLC-ケイ光分光法がある。それらの方法による定量限界はいずれも数ng程度であり, またGC-Massのマスフラグメント法ではng以下まで定量ができるものの, 一斉分析ができなかったことから, 本法は一斉分析ができ, かつng以下まで定量できる良好な方法であることがわかった。

### おわりに

大気中の浮遊粉じん中に吸着されているPAH 9物質について, TLC-HPLC系で分析法の検討を行ない, 8物質までがng以下まで(コローネンは2ng)定量可能となった。本実験法は一斉分析ながらGC-Massのマスフラグメント法に対応できる感度をもち, 分析時間も比較的短かく, 操作も簡単なことからルーチン分析法にも用いることができると思われる。

### 文献

1) 松下秀鶴, 嵐谷奎一, 半田隆: 超音波抽出法を用いた大気浮遊粉じん中のベンゾ(a)ピレンの簡易微量分析法. 分析化学, 25, 263-268 (1976).

2) M. L. Lee and M. Novotny: Gas Chromatography/Mass Spectrometric and Nuclear Magnetic Resonance Determination of Polynuclear Aromatic Hydrocarbons in Airborne Particulates. *Analytical Chemistry*, 48 (11), 1566-1572 (1976).

3) 松下秀鶴, 江角凱夫, 半田隆: 大気汚染物質中のベンゾ(a)ピレンの迅速分析法. 分析化学, 21, 772-779 (1972).

4) Michael Dong and David C. Locke: High Pressure Liquid Chromatographic Method for Routine Analysis of Major Parent Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Suspended Particulate Matter. *Analytical Chemistry*, 48 (2), 368-372 (1976).

5) Marye Anne Fox and Stuart W. Staley: Determination of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Atmospheric Particulate Matter by High Pressure Liquid Chromatography coupled with Fluorescence Techniques, *Analytical Chemistry*, 48 (7), 992-998(1976).

6) Anté M. Krstulovic, Douglas M. Rosie, and Phyllis R. Brown: Selective Monitoring of Polynuclear Aromatic Hydrocarbons by High Pressure Liquid Chromatography with a Variable Wavelength Detector. *Analytical Chemistry*, 48 (9), 1383-1386 (1976).

7) David M. Ordeman and Harold F. Walton: Liquid Chromatography of Aromatic Hydrocarbons on Ion-Exchange Resins. *Analytical Chemistry*, 48 (12), 1728-1731 (1976).

8) 田村善蔵, 石橋修彦, 大倉洋甫, 谷村恵徳, 辻章夫: LC-けい光分析 107-123 (1978) 講談社.

9) 松下秀鶴, 嵐谷奎一: 超音波抽出-薄層クロマト-分光分析法による浮遊粉じん中ベンゾ(a)ピレンのルーチン分析法. 第16回大気汚染研究全国協議会大会講演集, 347 (1975).

10) 松下秀鶴, 大塚富士雄, 前田康二: 二層薄層プレートを用いた直接抽出, 分離定量法による大気浮遊粉じん中の多環芳香族炭化水素の簡易分析法. 第17回大気汚染研究全国協議会大会講演集, 112 (1976).

11) 松下秀鶴, 嵐谷奎一, 林久雄: 多連型真空昇華法による大気浮遊粉じん中の多環芳香族炭化水素の抽出. 分析化学, 25, 412-415 (1976).

12) 山崎裕康, 桑田一弘, 松尾鎌: ポリウレタンフ

フォームプラグによる大気中多環芳香族炭化水素の捕集—1. 第17回大気汚染研究全国協議会大会講演集, 111 (1976).

- 13) 山崎裕康, 桑田一弘, 宮本弘子, 松尾鎌: ポリウレタンフォームプラグによる大気中の多環芳香族炭化水素の捕集—2. 第18回大気汚染研究全国協議会大会講演集, 287 (1977).
- 14) 山崎裕康, 宮本弘子, 桑田一弘, 松尾鎌: ポリウレタンフォームプラグによる大気中の多環芳香

族炭化水素の捕集—3. 第19回大気汚染研究全国協議会大会講演集, 152 (1978).

- 15) Christian Pupp and Robert C. Lao :  
Equilibrium Vapour Concentrations of Some Polycyclic Aromatic Hydrocarbons,  $As_4O_6$  and  $SeO_2$  and The Collection Efficiencies of These Air Pollutants. *Atmospheric Environment*, 8, 915—925 (1974).

# オキシダント計の精度に関する研究

## 一周間の温度変動による測定値への影響について

平野 耕一郎\*, 町山 徹\*\*, 小林 善雄\*\*

### 要 旨

現在、オキシダント (Ox) ガスを測定するのに 2%NBKI-Ox計を使用している。この計測器はOxガスとKIとの酸化反応で、遊離された I<sub>2</sub> 量とOxガス濃度とが比例するという原理によっている。しかし、溶液中に遊離した I<sub>2</sub> の溶存量は、温度条件によって変化することから、当然、測定原理上 2%NBKI-Ox計も温度影響による誤差が考えられる。そこで、2%NBKI-Ox計を中心に、UV-O<sub>3</sub>計、CLD-O<sub>3</sub>計に対する周囲温度の影響性について比較検討した結果、次のようなことが明らかとなった。

- (1) 2%NBKI-Ox計は周囲の温度影響を強く受け、温度と高い負相関を示す。そして、温度変化 1°Cに対し、O<sub>3</sub>ガス濃度155ppbで、約 4ppbの測定誤差を生じる。
- (2) 各計測器に対する周囲温度の影響度は、UV-O<sub>3</sub>計<CLD-O<sub>3</sub>計<2%NBKI-Ox計の順で、特に UV-O<sub>3</sub>計には温度影響がほとんどみられない。
- (3) 2%NBKI法によってOxガスを精度よく自動計測するには、計測器が設置される室内の温度を確実に制御するか、計測器自身を恒温にする必要がある。

### 1. はじめに

現在、環境大気中の汚染物質を常時監視するための多くの測定局が設置されている。しかし、計測器の計測特性を考慮して、室内の温度調節まで十分に配慮されているとはいえない。従って、温度影響の受けやすい計測器を温度調節がなされないとところに設置すれば、昼夜あるいは季節による温度変化の影響を受けて高精度で信頼性の高い測定値を得ることは困難となる。故えに、オキシダント (Ox) のモニタ用として広く使われている 2%中性緩衝ヨウ化カリウム溶液を反応として用いる自動計測器 (2%NBKI-Ox計) は、反応液中に遊離した I<sub>2</sub> の溶存安定度が温度条件により異なるので、当然、周囲温度が変動する設置環境の中では、測定値に誤差を与える。従って、2%NBKI-Ox計に対する温度影響は測定精度の上で重要な問題となる。

そこで、周囲温度に変動がある場合の 2%NBKI-

Ox計の測定値に対する影響を知ることを目的として、周囲の温度変化と測定値との関係を検討した。比較のために、化学発光法 (CLD法)、紫外線吸収光度法 (UV法) 等、他の計測原理によるオキシダント計測器 (Ox計) についても同時に試験を行い、各計測器の較正方法の検討も含めた測定方法上の問題を指摘し、更に温度影響を低減するための設置条件ならびに改善策について検討を加えた。

### 2. 実験方法

#### 2-1 実験装置

表-1に実験で使用した Ox計および主要な機器類の仕様を示した。図-1には、Ox計の温度影響に関する実験に必要な装置の構成フローならびにこの実験で使用した Ox計の動的較正を行うための装置の構成フローを併せて示した。

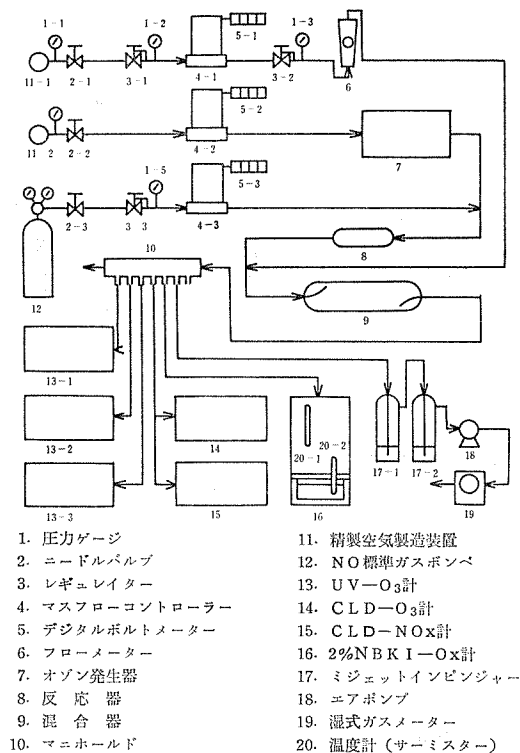
#### Effects of Room Temperature Variation in Ozone Monitors

\* Koichiro Hirano, 横浜市公害研究所大気部門

\*\* Tohru Machiyama, Yoshio Kobayashi, 横浜市公害対策局大気課

表一 実験に使用した計測器と機器類

精製空気製造装置	横浜市公害研究所製 最大供給量：300ℓ/min
オゾン発生器	京都電子工業製 OG-1
マスフロー コントローラー	tylan製 FS-260 (10ml/min) FS-260 (500ml/min) FS-261 (20ℓ/min)
レギュレーター	製鉄化学製 YSR-2009 YSR-2003
2%NBKI-Ox計	電気化学工業製 GX-7
CLD-O <sub>3</sub> 計	京都電子工業製 OX-21
UV-O <sub>3</sub> 計	DASIBI製 MODEL 1003 AH 東京工業製 TUV 1100
CLD-NOx計	MONITOR LABS製 MODEL-8440
電子恒温循環式装置	ヤマト科学製 MODEL CTE-220/CTR-220
エアポンプ	イワキ製 AP-032
湿式ガスメーター	品川製作所 WE-1A
サーミスター温度計	山武ハネウエル製 SSPN 133A 芝浦電子製作所製 MR-11



図一 2%NBKI-Ox計、CLD-O<sub>3</sub>計、UV-O<sub>3</sub>計の  
温度影響に関する実験に用いた装置の構成

## 2-2 Ox計の動的較正

実験に使用した2%NBKI-Ox計1台、CLD-O<sub>3</sub>計1台については、著者らが所報第3号<sup>2)</sup>において報告した気相滴定(GPT)法によって動的較正を行い、UV-O<sub>3</sub>計3台については、JIS B 7957<sup>1)</sup>によって3機関(横浜市公害研究所、川崎市公害監視センター、神奈川県公害センター京浜支所)において別々に動的較正を行った。

なお、GPT法に用いたNO標準ガスは化学品検査協会検定の468ppm NOガスである。

## 2-3 O<sub>3</sub>ガスの発生

一定流量(500ml/min)の精製空気にペンレイランプによって紫外線照射してO<sub>3</sub>ガスを生成後、一定流量(12.3ℓ/min)の精製空気によって希釈混合し、実験に供した。発生させるO<sub>3</sub>ガスの濃度は照射管のスリーブの移動調節によって照射光量を変え、連続的に変化させた。

## 2-4 実験室の温度調節

実験室内の温度を5~35°Cに調節できる冷暖房装置(三洋電気製 SP-K75D)によって、実験時の室内温度を調節した。

## 2-5 実験：周囲温度の変化によるOx計の測定値への温度影響

2%NBKI-Ox計、CLD-O<sub>3</sub>計各1台とUV-O<sub>3</sub>計3台を実験室に並列に設置後、UV-O<sub>3</sub>計の指示値が300および150ppb近辺を示すようにO<sub>3</sub>発生器で調製したO<sub>3</sub>ガスを表一に示した測定条件によって、それぞれの計測器にマニホールドより同時に採取する方法をとり、O<sub>3</sub>ガスの一定濃度について測定を継続し、その測定中に冷暖房装置によって室内温度を20°Cより徐々に下げた後、続いて上昇させた。その温度制御範囲は300ppb O<sub>3</sub>ガスのときは17.8~21.5°C、150ppbのときは10.6~31.3°Cである。室内温度ならびに2%NBKI-Ox計の反応液の温度はサーミスターで測定した。ただし、反応液の温度は熔封したガラス管(内径4mm、外径6mm)の中にサーミスターを入れて測定した。

なお、当実験に先だち、UV-O<sub>3</sub>計3台の測定感度を同一にするために、GPT法によって感度較正したCLD-O<sub>3</sub>計とUV-O<sub>3</sub>計3台とを一緒に併設して、O<sub>3</sub>発生器で調製した約400ppbのO<sub>3</sub>ガスをそれぞれの計測器にマニホールドより同時に採取し、その指示値がCLD-O<sub>3</sub>計の指示値に一番近いUV-O<sub>3</sub>計(B)の指示値を基準として、他のUV-O<sub>3</sub>計2台を同一の指示値になるように再較正して実験に供した。

表一2 各 O<sub>x</sub> 計のガス吸引流量と測定時間

計測器	吸引流量 ℓ/min	測定時間 hour		計測器の製造メーカー
		300ppbO <sub>3</sub> ガス*	150ppbO <sub>3</sub> ガス**	
2%NBKI-O <sub>x</sub>	3.0	22	49	電気化学工業 GX-7
CLD-O <sub>3</sub>	1.2	22	49	京都電子工業 OX-31
UV-O <sub>3</sub> A	2.0	22	49	DASIBI MODEL 1003 AH
UV-O <sub>3</sub> B	1.0	22	49	東京工業 TUV 1100
UV-O <sub>3</sub> C	1.0	22	49	東京工業 TUV 1100

\* , \*\* : 室内温度 20°Cでの UV-O<sub>3</sub> 計の概略的な指示値を表わす。

表一3 室内温度が変化した場合の 2%NBKI-O<sub>x</sub> 計, CLD-O<sub>3</sub> 計, UV-O<sub>3</sub> 計によるオゾンガスの測定結果

測定器	データの数	O <sub>3</sub> 濃度 ppb			データの数	O <sub>3</sub> 濃度 ppb		
		平均値 (±σ)	最大値	最小値		平均値 (±σ)	最大値	最小値
2%NBKI-O <sub>x</sub>	41	318±8.2	330	306	68*	159±34.1	214	118
CLD-O <sub>3</sub>	44	317±1.2	320	315	98	157±1.9	164	154
UV-O <sub>3</sub> A	44	306±0.9	308	305	98	155±1.4	159	153
UV-O <sub>3</sub> B	44	306±1.3	310	305	98	155±1.7	159	152
UV-O <sub>3</sub> C	44	306±2.2	310	300	98	155±3.5	161	150

\* 反応溶液の温度: T=19.9~31.7°C, T̄=27.4°C

### 3. 結果および考察

室内温度 17.8~21.5°Cならびに 10.6~31.5°C に変化をさせ、2%NBKI-O<sub>x</sub>計, CLD-O<sub>3</sub>計, UV-O<sub>3</sub>計で 306ppb および 155ppb の一定濃度の O<sub>3</sub> ガスを測定した結果の平均値, 標準偏差, 最大値, 最小値を表一3に示した。表一4には濃度が 155ppb の O<sub>3</sub> ガスの測定を室内温度 10.6~31.5°C に変化させた時の測定値について室内温度との回帰係数, F 分布値, 相関係数, 寄与率を示したものである。図一2は表一4に示した 2%NBKI-O<sub>x</sub>計, CLD-O<sub>3</sub>計, UV-O<sub>3</sub>計 (A) の測定値を各温度に対してプロットしたもので温度と測定値との関係を示したものである。

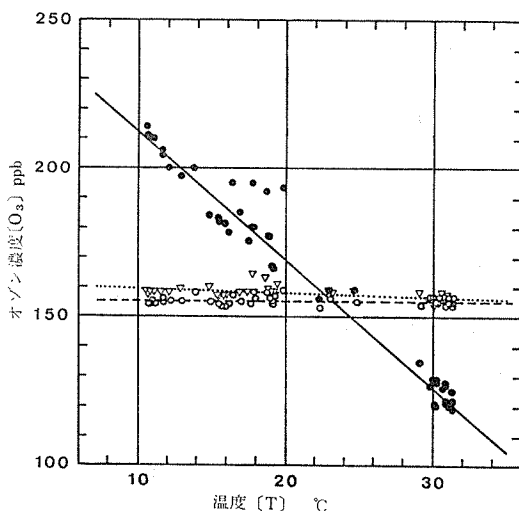
表一4 2%NBKI-O<sub>x</sub>計, CLD-O<sub>3</sub>計, UV-O<sub>3</sub>計による測定値と室内温度との重回帰係数  
[O<sub>3</sub>] = a [T] + b

測定器	a	b	F 分布値*	相関係数 R	寄与率 R <sup>2</sup>
2%NBKI-O <sub>x</sub>	-4.30	255.2	1285.0	-0.98	0.96
CLD-O <sub>3</sub>	-0.15	160.8	25.4	-0.59	0.35
UV-O <sub>3</sub> A	0.03	154.4	1.7	0.19	0.04
UV-O <sub>3</sub> B	-0.10	156.8	11.8	-0.45	0.20
UV-O <sub>3</sub> C	-0.39	163.5	142.4	-0.87	0.76

\* F<sub>1,47</sub> (α=0.01) = 7.2

#### 3-1 UV-O<sub>3</sub>計, CLD-O<sub>3</sub>計に対する温度影響

表一4の回帰分析の結果より, CLD-O<sub>3</sub>計, UV-O<sub>3</sub>計は UV-O<sub>3</sub>計 (C) をのぞけば, F 分布値 1.7~2.54, 相関係数 -0.45~0.19, 寄与率 0.04~0.35 と小さく,



図一2 一定濃度 (155ppb) の O<sub>3</sub> ガス条件下での各計測器に対する室内温度と指示値との関係  
2%NBKI-O<sub>x</sub> (●)  
CLD-O<sub>3</sub> (▽)  
UV-O<sub>3</sub> (○)

温度と測定値との回帰式はほとんど統計学的に意味を有しないと判断できることから、温度による影響がそれほどないといえる。特に、AのUV-O<sub>3</sub>計はF分布値1.7、相関係数0.19、寄与率0.04と各値がかなり小さいことから、温度影響をほとんど受けないものと判断できる。3台のUV-O<sub>3</sub>計のうち、UV-O<sub>3</sub>計(C)はF分布値142.4、相関係数-0.87、寄与率0.76の各値が他の2台よりもかなり大きいことから温度と測定値の関係を示す回帰式に有意性が認められ、多少の温度影響を受けているものと考えられる。この原因については、計測器の製造上での不良とメーカーの違い等に起因したものと推測される。

### 3-2 2%NBKI-Ox計に対する温度影響

2%NBKI-O<sub>3</sub>計はCLD-Ox計およびUV-O<sub>3</sub>計に比較して、温度影響を強く受けていることが表-3と図-2から判断される。特に、温度変化が10.6~31.3°Cの範囲で変化するとき、各計測器による測定値の標準偏差(σ)は、2%NBKI-Ox計では34.1、CLD-O<sub>3</sub>計およびUV-O<sub>3</sub>計では1.4~3.5と両者の間に非常に大きな差がある。また図-2から判断されるとおり、2%NBKI-Ox計の測定値は温度と高い負の相関を示し、O<sub>3</sub>ガス濃度が150ppbのとき、1°Cの温度変化に対して、指示値への温度影響は約4ppbである。加えて、F分布値1285.0、相関係数-0.98、寄与率0.96と各値がCLD-O<sub>3</sub>計、UV-O<sub>3</sub>計に比べてかなり大きい。また、温度と測定値との関係を示す回帰式は次のとおりである。

$$[O_3] = -4.30 [T] + 255.2$$

この式は統計学的に有意なものと判断できる。従って、2%NBKI-Ox計に対する温度影響は強く温度補正の必要性を明らかにしているものと考えられる。この原因は、向流吸気管が恒温状態にないため、外気温の変化が反応液とOxガスとの気液接触による反応の際の溶存I<sub>2</sub>量を変化させ、すなわち、I<sub>2</sub>の揮散量を変化させるため、高温度で指示値が低下し、逆に低温度で指示値が増加することに基づくものと考えられる。

図-2の中で、各計測器の指示値が温度21.5°Cの近辺で一致している。しかし、本来、温度20.0°Cで各計測器の指示値が一致するものが、2%NBKI-Ox計の指示値が高めにずれている。このことは、感度校正の時点で室内温度が21.5°Cであったため、2%NBKI-Ox計への温度影響が考えられることから、高めに感度校正されたためと推測される。

以上の結果より、各計測器に対する温度による影響の度合を大きな順に並べると次のような関係になる。

$$2\%NBKI-Ox計 > CLD-O_3計 \geq UV-O_3計$$

## 4. 2%NBKI-Ox計によるオキシダント測定の評価と今後の課題

昭和52年7月環境庁通達<sup>9)</sup>により、Ox計に用いられる吸収液の組成が10%NBKI溶液から2%NBKI溶液に変更された。その結果、大気中に共存する窒素酸化物の影響が低減される方法となり、Ox濃度をより正確に測定できるようになったといえる。さらに、校正方法も従来<sup>10)</sup>の等価液を用いた静的校正方法に変えて、実際に即した既知濃度のO<sub>3</sub>ガスを用いた動的校正方法が採用され、校正精度もかなり改善された。

しかし、現状でのOx測定には、著者らが所報第3号によって報告し、加えて本実験に先だち、二次標準として用いているUV-O<sub>3</sub>計各3台を3機関において動的校正を実施した結果、表-5に示されるように3台の測定値の間にはかなりの差が生じ、機関によってUV-O<sub>3</sub>計の動的校正の間に大きなバラツキ要因のともなうことが推測され、これらの校正方法の問題点も含め、まだまだ多くの解決を必要とする課題がある。特に、計測器の設置環境など十分に配慮せずに測定が実施されると、本実験の結果より2%NBKI-Ox計は温度影響を強く受けることから、設置場所に温度制御装置がなければ昼夜、季節による温度環境の変化が生じることで、高精度で信頼性の高い測定値を得ることは困難といえる。

従って、これらの問題点への対応策として、測定局舎内の温度制御を確実にするなど、設置環境の改善を

表-5 UV-O<sub>3</sub>計によるO<sub>3</sub>ガスの測定結果(室内温度:20±1°C)

計測器	データの数	O <sub>3</sub> 濃度 ppb			データの数	O <sub>3</sub> 濃度 ppb			データの数	O <sub>3</sub> 濃度 ppb		
		平均値(±σ)	最大値	最小値		平均値(±σ)	最大値	最小値		平均値(±σ)	最大値	最小値
UV-O <sub>3</sub> A	46	379(±2.5)	383	374	71	292(±3.7)	299	286	48	192(±1.3)	196	190
UV-O <sub>3</sub> B	46	402(±2.4)	405	396	71	311(±4.3)	319	305	48	205(±1.1)	207	201
UV-O <sub>3</sub> C	46	456(±3.8)	459	448	71	351(±5.3)	360	344	48	230(±1.6)	235	227

注；1 測定値は30分間の平均値

図る一方、2%NBKI-Ox計自身を恒温に保つ必要がある。さらに、2%NBKI-Ox計に代えて温度影響の小さいCLD-O<sub>3</sub>計、UV-O<sub>3</sub>計による測定原理の違う方法に変更するなどの点について早急に検討する必要がある。

## 5. 結論

現在、地方自治体等はOxガスを測定するのに2%NBKI-Ox計を使用しているが、この計測器には様々な誤差要因があり、本実験によって得た知見は次のとおりである。

(1) 2%NBKI-Ox計は周囲の温度影響を強く受け、1°Cの温度変化に対し、O<sub>3</sub>ガス濃度155ppbで、約4ppbの変動が生じる。

(2) 周囲温度による影響度は、UV-O<sub>3</sub>計<CLD-O<sub>3</sub>計<2%NBKI-Ox計の順であり、UV-O<sub>3</sub>計は温度の影響をほとんど受けない。

(3) Oxガスを精度よく測定するには、計測器を設置する局舎内の温度制御を確実にし、特に、2%NBKI-Ox計はそれ自身を恒温に保つ必要がある。ま

た、2%NBKI-Ox計にかえて温度影響の小さいCLD-O<sub>3</sub>計、UV-O<sub>3</sub>計による測定が考えられる。

最後に、本実験でOxガスを測定する計測器として、2%NBKI-Ox計を中心にUV-O<sub>3</sub>計、CLD-O<sub>3</sub>計の周囲温度による影響性について実験室で比較検討したが、今後は実際の常時監視測定局において、2%NBKI-Ox計の温度変化に対する影響性について検討し、より正確なOxガスの測定方法の確立を図りたい。

## 文献

- 1) 日本工業標準調査会：大気中のオキシダント自動計測器 JIS B 7957.
- 2) 平野耕一郎，渡辺善徳，小林善雄，町山徹：オゾン計の較正のための1%中性ヨウ化カリウム吸収液による測定方法（1%NBKI法）と気相滴定による測定方法（GPT法）との比較検討。横浜市公害研究所報，3，25～34（1978）.
- 3) 環境庁大気保全局企画課：オキシダント自動計測器の動的較正マニュアル，（1977）.



# 我国における沿道公害に関する調査研究の動向 (1)

## — 大 気 汚 染 —

中 村 貢\*

### 要 旨

都市における環境を考える時、道路問題を抜きにしては、語れない。特に幹線道路の沿道における公害は、深刻な問題を抱えているにもかかわらず、環境改善の目途はたっていない。本研究所では、これらの道路公害に関する種々の研究を進めているが、その一環として、国内で過去に発表された文献を調査した。その結果、この問題に関するかなりの量の文献について収集することができた。そのうち特に、大気汚染に主題をしぼり、環境汚染の実態、拡散・予測、人体・動植物への影響及び対策の4種類に整理し、文献にあらわれた共通的な特徴又は、特に重要と思われる点について考察した。

これらの文献から全体的な特徴として次のことが云える。

- (1) 沿道公害に関する文献数は、非常に多いが、そのなかでは、環境汚染実態調査に関するものが圧倒的に多く、その他のものは少ない。
- (2) 大気汚染の影響及び被害の調査手法に問題があって、その実態は正確に把握されておらず、特に人体影響の調査手法の開発が重要であろう。
- (3) 対策として結実している調査研究が非常に少ない。

### 1. はじめに

自動車の原因となる公害のもたらす被害は、次第に深刻化・多様化、広域化の様相を帯びているが、対策の緊急度からすれば、自動車専用道路及び交通量の多い幹線道路沿いの居住者の被害解消の問題を第一に取りあげるべきであろう。特に、幹線道路の沿道公害について今日までほとんど効果的な対策がなされていないことに注目すべきである。このため、本研究所では、実情に即した対策の速やかな実施に必要な資料を得るため、かねてから、種々の調査及び研究を実施している。一方、国内諸機関で調査研究された既存の成果を広く取り入れるべく、大気部門、及び社会科学部門の共同により文献調査を実施した。調査は、一部を三菱総合研究所に委託し、日本科学技術情報センター等の文献検索システム及び各種公害関連定期刊行物を調べることにより、かなりの資料を収集した<sup>1)</sup>。又、

並行して、国立公害研究所、自動車研究所等の官民の研究機関、及び日本道路公団等を訪ねて、調査、研究の報告書入手した。

本稿は、その作業の過程で得たものを中心に、本研究所所蔵の資料を含めて、自動車排出ガスによる沿道大気汚染に関する調査研究の動向について考察を試みたものである。又、今回の文献の調査対象は、国外ではこのような文献例が少ないことや、収集と内容の把握に時間を要することもあって、国内のものに限定した。

今回の調査は、先にも述べたように、最も問題点の多いと思われる、幹線道路の沿道に焦点を合わせており、自動車構造面からの排出ガス低減に関する研究、新設道路の公害対策等の関係文献は除いてある。収集した文献のうち、大気関係については、環境汚染の実態、拡散・予測、人体・動植物への影響及び対策の各

Review of the Survey concerning the Environmental Pollution near Roadway in Japan (1)

— Air Pollution —

\* Mitsugu Nakamura, 横浜市公害研究所大気部門

調査、研究を4種類に分け、各分類における、共通的な特徴又は、特に重要と思われる点についてまとめたものである。

## 2. 環境汚染の実態調査

道路公害に係わる各関係機関の対応の手順として、まず最初を実施するのは、他の公害問題と同様に、環境汚染の実態調査である。調査の内容は、問題点の変遷もあって、年代によって、測定物質、調査方法が異っている。昭和40年代の後半までは、COを汚染物質とした調査が多く、その他として、浮遊粉じんに含まれる鉛の報告が見られる。COは安定物質であるため、採取から分析までに時間を要しても、吸着、分解による誤差が少なく、自動車排出ガスの汚染指標として用いやすいため、この調査が多く実施された。

COを汚染物質とした調査であっても、その調査目的の違いによりその方法が異っている。小規模なCO調査としては、環境基準との対比や、時刻別、場所別による濃度比較が多く<sup>2)</sup>、大規模調査としては、交差点を中心に放射線状に数十地点を選び、交差点付近のCOの水平濃度分布、垂直分布、減衰状態、建物影響<sup>3),4),5)</sup>について解析し、拡散モデル、人体影響調査の際の汚染指標としている。

昭和50年以後では、COに代ってNO<sub>x</sub>による調査が主流となっているが、これには二つの理由が考えられる。一つは、NO<sub>2</sub>の環境基準の改正、NO<sub>x</sub>の総量規制の実施に関連し、その環境汚染実態把握のための調査の一環として実施されたことであり、もう一つの理由は、NO<sub>x</sub>の測定機であるザルツマン計、ケミルミ計の測定精度が向上し、これらのNO<sub>x</sub>計を用いた各種の詳細な調査が可能になったことがあげられよう。NO<sub>x</sub>の大規模な調査としては、当研究所が昭和51年度に行った横浜市中区新山下町におけるNO<sub>x</sub>の道路からの減衰調査<sup>6)</sup>のように道路周辺にNO<sub>x</sub>計を分散、設置し、1ヶ月以上の長期にわたり、測定を行ない、交通量、気象、距離とNO<sub>x</sub>の関係、NOからNO<sub>2</sub>への転換率等の解析<sup>6),7),8)</sup>を詳細に行ったものがある。

その他の調査例として、浮遊粉じん、重金属、及び炭化水素に関するものがあるが、CO、NO<sub>x</sub>に比べると、数も少なく、調査規模も小さい。浮遊粉じん、重金属の調査方法としては、ハイポリウムエアサンプラー又はアンダーセンサンプラーを用いて、浮遊粉じんを採取し、それに含まれる重金属の分析を行ない、粒径別又は道路からの距離減衰、路肩土壌中の含有量等について検討している<sup>9),10),11)</sup>。しかしながら、重金属は、NO<sub>x</sub>、COと異なり、発生源が自動車排出ガス

に限定されず、タイヤ、ブレーキ、アスファルト等の磨耗、走行に伴う砂じんの舞上がり等と多岐にわたっており、調査方法も統一性がなく、発生源と汚染との因果関係について、明確に解析したものはない。

炭化水素の調査は、拡散、挙動に関するものはなく、道路近傍における炭化水素の低沸点成分から高沸点成分までの成分別の濃度調査、もしくは、発ガン性物質と云われるベンゾ(a)ピレン等についての汚染調査が一部で実施されている<sup>12)</sup>。

## 3. 拡散・予測調査

NO<sub>x</sub>の総量規制、環境アセスメント等においては、道路周辺におけるNO<sub>x</sub>の汚染濃度を数値として決定する必要があり、このための予測式、拡散式が、従来より各機関で研究されてきている。しかしながら、市街地における自動車排出ガスの拡散は、道路の両側に高い建物があると、その影響で乱流が起り、建物より上の上層風と道路内の風向が逆となり、道路端では、風下側よりも風上側の方が汚染物質の濃度が高くなる場合がある。又、高い建物がない平坦な道路においても、排出口が地上1m以下と低く、自動車走行に伴ない気流が乱れること、風通しが悪いため、風速が1m/s以下のことがよくあり、拡散式を適用しにくいのが現状である。又、さらに本市のように丘陵の多い地域では、その拡散も一様でなく、地形により大きな影響を受ける。以上述べたような問題点を多く含んでいるため、一般の道路で用いる拡散式は固定発生源で用いられているものと、同一レベルで論議できず、一部の提案されているものを除けば、未だに完成していないと云えよう。

一般の市街地における道路からの排出ガスの代表的な拡散式として使用されているものに日本機械学会で開発した「大気汚染拡散予測システム」(TAPPS)がある<sup>13)</sup>。これは、市街地走行パターンを計算した交通モデル(TM)、排出ガス量を計算する排出特性モデル(EM)、道路内拡散モデル(RDM)、道路周辺拡散モデル(LDM)及び広域モデル(ADM)からなり、COのフィールド調査とのシミュレーションにより、その精度の確認を行っているが、比較的地表濃度との一致性が良いと報告されている。

しかしながら、このモデルは、入力データの多いこと、計算が複雑なこともあって、大型電算機を必要とし、計算時間が長く一般に使用しにくいという欠点がある。このため、この式を基本にした改良型の式が各方面で発表されている。<sup>14)</sup>

一般に広く用いられている拡散式には、有風時には

ブルームモデル、無風時にはパフモデルと云われるものが用いられている。ブルームモデルを簡易化すると次のような式で表わされる。

$$C(X) = \sqrt{\frac{2}{\pi}} \frac{q_e}{\delta z(X) U \cdot \cos r}$$

r : 風向と道路との角度

U : 風速 (m/秒)

$q_e$  : 単位m当りの汚染物質排出量 (g/m・秒)

$\delta z(X)$  : 道路からXm地点での直角方向の拡散巾(m)

C(X) : 道路からXm地点での濃度 (g/m<sup>3</sup>)

ここで、r、U、 $q_e$  は実測により求められるが、道路からの垂直方向の拡散巾である  $\delta z$  は、実測又は、推定により求めねばならない。この  $\delta z$  は、地形、気象の影響を大きく受けるため、一般に共通なものとして広く使用に可能なものは、確立されておらず、この  $\delta z$  を気象の安定度との関係により推定可能にするためのトレーサ実験や、NO<sub>x</sub>の実測が数多く試みられている<sup>15),16)</sup>。

NO<sub>x</sub>の環境基準はNO<sub>2</sub>で決められているため、行政上は、NO<sub>2</sub>の拡散が必要となっている。しかしながら、自動車からは、95%以上がNOとして排出され、オゾン等の酸化性物質によりNO<sub>2</sub>に変換されていくが、その過程についても解明されていない。このため、実測により、NO<sub>2</sub>/NO<sub>x</sub>を統計的に求めたり、光化学反応実験により、その反応係数を求めることにより、拡散モデルの修正項として導入する調査を行っている<sup>17)</sup>。

その他に、建設省、日本道路公団等により、風洞実験が行なわれているが、これらは、ほとんどが、道路延設計画における対象地域への汚染推定のシミュレーションとして実施されているものが多い。

#### 4. 影響調査

道路沿道における自動車排出ガスの影響を知るために、人体及び動植物に対する調査が行われている。

人体影響は、昭和40年頃から行われているが、年代により、影響を与えると考えられる汚染物質がCO、鉛、NO<sub>x</sub>と変遷している。調査方法としては、先の環境調査と同様な方法により、道路周辺の汚染物質を測定し、一方でその地域の住民についての各種調査を行なっている。その調査内容は、汚染対象物質により多少異なるが、面接又は、アンケートによる自覚症状調査と、肺機能、呼吸器系、循環器系、血液検査等の臨床的な調査に分れ、それらを同時に行ない、汚染濃度との相関について検討している。

人体影響を調べる大規模調査として、昭和50年度に

環境庁では、川崎市と芦屋・西宮市を通過する幹線道路周辺の二地区において各800人余を対象にした疫学調査を実施しているが<sup>17)</sup>、いずれも調査地域が道路から離れた地点まで含まれていることもあって、臨床的にも、又、BMRC方式を改良した面接方法のいずれによっても明確に自動車排出ガスの影響を受けているという有意の差は得られなかった。たとえば、川崎市の場合は、東名高速道路の料金所付近で調査を実施しており、道路から50m地点までを高濃度地域として設定している。しかしながら、料金所付近のため、車線も多く道路巾が広いこと、風通しが良く、路肩も広いこともあって、同時に調査したバックグラウンド地域の測定結果と比較しても、濃度差があまりない状態であった。

これらの収集した調査結果の中で、人体影響が有意の差として表われたものは、アンケート調査の中である程度見られたが<sup>19),20)</sup>、臨床的調査においては、一つもなかった。被害の実体を究明し、その対策の根拠とするためには、自然科学的な証明が必要であり、アンケート調査では限界があり、やはり、臨床的に被害が証明されることが必要と考えられる。しかしながら、現在実施されている臨床的検査は、肺機能検査が中心であり、この方法は、従来のSO<sub>2</sub>を対象とした上気道の検査に適しているものであり、現在、自動車排気ガスによる汚染物質として問題とされているNO<sub>x</sub>のような下気道に障害を及ぼすには適用が難しい。

このように人体影響については、調査方法にも問題点があり、現段階では、把握されていないと云えよう。

市街地幹線道路の環境汚染調査によると、道路から30m付近までは、NO<sub>x</sub>は高濃度となる地域であり、そこでの人口も都市ではかなり高い割合になる(環境庁の調査によると幹線道路から50m以内に住む人口は、全国で2割を占め2000万人を超えている)。これらの地域は、浮遊粉じんも含めて、環境基準と照合しても、基準値を完全に満足することはきわめて少ないため、健康に悪影響を及ぼすことが充分に考えられるため、今後、NO<sub>x</sub>の臨床学的検査の方法を確立し、その地域での人体影響調査の実施が重要である。

動植物影響に関しては、チャンバー実験及び野外調査が実施されている。チャンバー実験では、実際の道路近傍のように汚染物質が混合された状態での暴露実験は不可能であり、多くの実験例では、NO<sub>2</sub>のような単一物質による実験が多い。実験で用いる濃度は、NO<sub>2</sub>で0.5ppmが一、二例あるだけで、大部分は5~20ppm以上であり、実際の道路近傍のNO<sub>2</sub>濃度より

もはるかに高く、道路近傍を仮定した影響試験というよりもむしろ急性毒性試験に近いと云えよう。

野外調査として実施されているもののうち、動物影響に関するものは、マウスを用いた長期暴露実験として研究途中のものが一例あるにすぎない<sup>21)</sup>。植物影響に関するものは、高速道路沿道の被害調査を行っているものがあり、みかん、茶等の樹木に対して被害が及んでいるという報告がある。しかしながら、植物被害に関しては、光化学スモッグのような広域的な被害に関する調査研究が大部分であり、道路を対象とした調査は少なく、人体、動植物ともにさらに調査研究の必要があると思われる。

### 5. 汚染低減対策

道路からの大気汚染の低減対策は、自動車の内燃機関の改善に関するものを除けば、道路計画、道路構造、交通制御及び輸送システムの転換等が考えられる。

道路計画に関しては、ケーススタディとしてある地方都市における大気汚染の将来予測や対策の面から検討を行っているものや、環状または半環状に交通配分を行ない、局部的に自動車の集中を避けることにより、その地域の汚染濃度の低減予測等の研究がある<sup>22), 23)</sup>。

道路構造に関するものは、高架、掘割、盛土、遮音壁によるものと、直接道路構造ではないが、道路周辺の建物を主とした都市改造により汚染の希釈効果を図るもの等がある。これらは、いずれもかなり大がかりな、風洞実験によりその効果を予測している。

具体的な例として、兵庫県では国道43号線について道路の両側に高層のビルを建設しビルは倉庫等に使用し、住宅地、商店をその外側に移転させるという計画を策定中である<sup>24)</sup>。

交通制御に関するものは、交通管制システムの設置により、走行状態の改善に伴う自動車排出ガスの減少効果と、さらに交通流、気象条件による汚染の低減等に関する研究がある。<sup>25)</sup>

全体的には、現実の問題になっている市街地の幹線道路の周辺の汚染低減対策を目的にした研究は少なく、むしろ、将来の建設計画や建設中に伴うものが圧倒的に多い。しかし実際には、その緊急性を問われる現在の市街地の道路についてその対策が重要であり、そのためにも、さらにその調査研究が実施されるべきである。

### まとめ

以上のように道路沿道の大気汚染に関する文献について分類し、現在までの行なわれている研究の内容及び、問題点等について評価した。全体を通して云えることは、調査の目的の違いにより、4つの分類ごとの数量にかなりの差があることであろう。そのうちで、大気汚染の環境実態調査に関するものは非常に多く、NO<sub>x</sub>、COの道路近傍での汚染実態は、かなり把握されている。しかしながら、同じ大気汚染調査であっても浮遊粉じん、ミストについての調査は少なく、今後、必要な研究課題であろう。予測、影響及び対策については、その調査研究の方法が難しいこともあって、いずれもその報告例は少ない。予測・拡散式に関しては、道路からの汚染を完全に把握する方法は完成されていない。特に道路問題は局地的な性格が強いため、地形、建物による影響が大きく、これらに共通して使用可能な拡散式及び、それに用いる拡散巾の研究が今後必要である。影響調査のうち、人体に関するものは、それに適した調査方法が完成されていないこともあって、臨床的にその被害を受けているという調査結果はない。しかしながら、環境汚染調査によると、道路近傍では、NO<sub>x</sub>等は高濃度汚染の状態であることが実証されており、周辺住民はその被害を受けている可能性も十分に考えられる。このため、臨床的な方法を確立し、人体影響についての調査が急務であると考えられる。対策についても、計画道路に関するものが大部分であり、既存の道路沿線に関するものが少ない。

都市の環境を考えると、道路問題をぬきにしては語れないことは周知の事実であり、自動車排出ガスによる大気汚染も、道路問題の重要な課題の一つである。これまでに述べてきたように、沿道に関する公害問題は、重要な点について明らかにされていない部分が多く、これらの解明が急務である。

### 文献

- 1) 横浜市公害研究所：道路近傍における自動車に起因する大気汚染・騒音等の影響と対策に関する文献調査（1979）。
- 2) 横浜市公害対策局：自動車排出ガス汚染について街路調査結果—3（1975）。
- 3) 永田倫子他：都内11交差点における鉛濃度と一酸化炭素濃度、東京都公害研究所年報第2巻，44—61（1971）。
- 4) 自動車排出ガスの調査研究委員会：自動車排出ガスの調査研究報告書（1975）。

- 5) 日本自動車研究所：風速の影響を考慮した交差点付近の自動車排出ガス拡散モデル（1972）.
- 6) 中村 貢他：道路周辺地域への自動車排出ガス影響調査（中区新山下町），横浜市公害研究所報第2号，7—35（1978）.
- 7) 埼玉県環境部：沿道地域における窒素酸化物拡散調査資料（1978）.
- 8) 小林以策：トレーサガスによる拡散実験方法について，第18回大気汚染研究全国協議会大会講演要旨集，408（1977）.
- 9) 藤村 満：高速道路における微量元素の粒度分布と発生機構の検討，第18回大気汚染研究全国協議会大会講演要旨集，294（1977）.
- 10) 中村 貢他：自動車排気ガスによる道路周辺での大気汚染に関する研究，横浜市公害研究所報第3号，5—13（1978）.
- 11) 日本道路公団：高速道路沿線における土壌調査（1977）.
- 12) 日本公衆衛生協会：環境庁委託業務結果報告書窒素酸化物の濃度分布調査（1977）.
- 13) 日本機械学会：自動車排出ガスによる大気汚染（1971）.
- 14) 環境庁：自動車排出ガスによる大気汚染の実態調査と汚染予測（1972）.
- 15) 大阪府：低煙源拡散実態調査報告書（1977）.
- 16) 日本道路公団：トレーサガスによる野外大気拡散実験（その2）（1977）.
- 17) 森寛昭，秋山清：沿道地域における二酸化窒素と窒素酸化物の相関，土木研究所土木技術資料20—6，301—307（1978）.
- 18) 環境庁：自動車沿道住民健康影響調査（1977）.
- 19) 広島県地域保健対策協議会・都市保健委員会：海田地区における自動車排出ガスの人体に及ぼす影響結果の概要，広島医学，30，1210—1223（1977）.
- 20) 佐々木武史他：自動車排出ガス等による環境汚染影響調査報告（京都市東山区東山線周辺地区），京都医学会雑誌，26，107—121（1977）.
- 21) 山岡茂夫他：自動車排ガスの影響に関する長期野外暴露実験第二報，第19回大気汚染学会講演要旨集，335（1978）.
- 22) 交通工学：道路計画上の大気汚染に関する評価モデル，VOL13増刊号（1978）.
- 23) 環境庁：低汚染型都市活動の誘動に関する調査2（自動車交通による大気汚染防止対策）（1976）.
- 24) 兵庫県生活部環境局：国道43号沿道整備対策調査報告書（1978）.
- 25) 計測と制御：特集，社会と計測制御交通管制と公害防止，16，（1977）.

# 大型コンプレッサ・ブローアを発生源とする 低周波空気振動について

樋高 雄治\* 鹿島 教昭\*

## 要 旨

工業用の大型コンプレッサやブローアは、低周波空気振動の発生源として公害問題を生じるようになってきた。これらの空気機械について調査を実施したところ、実際に多かれ少かれ低周波空気振動を生じていた。往復動型コンプレッサは、回転数に起因する周波数の低周波空気振動を発生している。これは原理的に発生するものなので新たにこのような機械を設置するに際しては、十分な対策を講じる必要がある。また、2台のコンプレッサが、わずかな回転数の差で同時運転されている場合に、うなりによる大レベルの低周波空気振動を生じていることが観測された。ブローアでは、回転数と関係のない低い周波数成分に大きなレベルが出現していた。この発生原因は、旋回失速によるものと、系の振動によるものとが考えられるが、そのどちらであるのかを特定することはできなかった。

## 1. 目 的

昭和40年ごろから、全国各地でいわゆる低周波空気振動を原因とする新たな公害問題が生じるようになってきた<sup>1)</sup>。しかし、低周波空気振動の実態、また、それが人体に与える影響等については十分に究明されているわけではなく、その報告例も少い<sup>2)</sup>。法律による規制も今のところまったくおこなわれていないのが実情である。

低周波空気振動の発生源は、自然現象によるものも含めてさまざまなものがあるが、たとえば、ボイラやコンプレッサ、ブローア、ディーゼル発電機などの大型の工業用機械を発生源とする低周波空気振動の公害問題が生じている<sup>3)</sup>。本市においては今までのところ、低周波空気振動による公害問題が多発するといった状態にはないが、すでに何件かの問題を生じており、今後増加することは充分予想されるところである。

本調査は、低周波空気振動の実態とその発生機構を解明し、防止対策のための基礎資料を得ることを目的とする調査の一環として大型のコンプレッサ、ブローアを調査対象として実施したものである。

## 2. 調 査 方 法

### 2-1 調査対象とした機械

測定条件の良好なものを選定するため、市内の工場で所有している所要動力37KW以上の比較的大型のコンプレッサ、ブローアを騒音規制法および神奈川県公害防止条例による届出書類から抽出し、コンプレッサについては往復動型、ブローアについては遠心型のものを対象とした。

### 2-2 調査期間

現場での測定は、1978年10月から翌年2月の間に実施した。

### 2-3 測定項目および測定機器

本調査では低周波空気振動、地盤振動および一般の騒音の3項目について測定した。また、測定対象機械の性能や運転状況、設置の状況等についてその概略を調査した。これらの測定に使用した測定機器は、次のとおりである。

インパルス精密騒音計	B&K TYPE2209	1台
3チャンネル公害用振動計	リオン VM-16	1台
7チャンネルデータレコーダ	タイアック R-81	1台
2チャンネルデータレコーダ	NAGRA IV-SJ	1台
レベルレコーダ	リオン LR-03	2台
	リオン LR-04	2台

Infrasound Induced by Air Compressor and Blower.

\* Yuji Hidaka, Noriaki Kashima, 横浜市公害研究所騒音振動部門

## 2-4 測定および分析方法

測定機器を図-1に示すブロックダイアグラムのよう  
に設置し、現場ですべてのデータをデータレコーダ  
に収録、後にそれを再生して分析した。マイクロホ

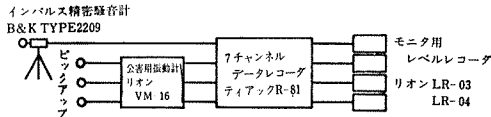


図-1 低周波空気振動および地盤振動測定ブロック

ン、ピックアップは、それぞれ測定対象機械の近傍  
(おおむね1m位)に設置した。低周波空気振動およ  
び地盤振動のデータ収録に用いたデータレコーダのテ  
ープスピードは、3.75インチ/秒で、このときの収録  
可能な周波数範囲は、FM方式でDC~2.5KHz、また、  
インパルス精密騒音計に使用されているマイクロホ  
ンの測定可能な周波数範囲は、2Hz~70KHzであ  
る。したがって最終的に収録されたデータの周波数範  
囲は2Hz~2.5KHzとなる。騒音計の動特性はFAST  
とし、リアモードでデータを収録した。公害用振動

表-1 表測定対象機械の概要

	コンプレッサ ①	コンプレッサ ②	ブ ロ ア
型 式	たて型単気筒単動式	半星型4気筒 複動2段水冷式	両吸込ターボ
所要動力 KW	37	180	470
回転数 rpm	520	580	950~740(可変)
シリンダ数	1	4	—

表-2 測定結果

	コンプレッサ ①	コンプレッサ ②	ブ ロ ア
低周波空気振動			
最大ピーク周波数 Hz	59.8	50.0	14.1
最大ピークレベル dB	100.8	103.5	91.4
100Hzまでの音圧レベルdB	105.0	104.6	99.7
騒音レベル dB(A)	85	90	75
地 盤 振 動			
加速度レベル dB	X 58.9 Y 57.4 Z 67.4	77.6 75.0 67.0	58.1 69.5 56.1

注) ステープルアベレージ (Stable Average)

Znをデジタル化されたひとつの信号とするとn番目までの信号について、次の式によるAnをステ  
ープルアベレージという。

$$A_n = A_{n-1} + \frac{Z_n - A_{n-1}}{n}$$

Anは相加平均と同じ値となるが、相加平均と異なり平均化が連続的にこなされるため、リアルタイムでの処理が可能である。

計によるデータはX, Y, Z各方向についてすべて振  
動加速度レベルモードで収録した。一般の騒音は、騒  
音計内蔵のデータレコーダ (NAGRA IV-SJ) にリニ  
アモードで収録した。

振動と騒音のキャリブレーションは、それぞれの機  
器に内蔵された発信器により、インパルス精密騒音計  
による低周波空気振動のそれについては、250 Hz,  
114 dBのピストンホン (リオン NC-72) を用いてお  
こなった。

分析は、低周波空気振動と地盤振動とについては、  
データレコーダからデジタルシグナルアナライザ  
(YHP 5420A) にインプットし、原則として50回の  
ステープルアベレージ(注)の結果をX-Yプロッタ (YHP  
9872A) で記録した。一般の騒音については、A特性  
による補正を加えた信号をデータレコーダから直接レ  
ベルレコーダに記録させることにより分析した。

## 3. 調査結果および考察

表-1に測定対象とした機械の概要を、表-2に測  
定結果をそれぞれまとめて示す。

### 3-1 往復動型コンプレッサ

往復動型のコンプレッサでは、空気の吸入、排出を周期的に繰り返す。低周波空気振動を発生するのは、この空気を吸入する際に生じるものである。一般に往復動型コンプレッサは、吐出圧力が大きく、また、圧縮行程が不連続で空気圧に脈動を生じるため、圧縮された空気は一旦タンクにたくわえられ、所要圧力の空気をタンクから適宜供給する。このため、圧縮された空気は直接大気中に放出されることはなく、また、ピストンの往復動による圧力変化も排出の際には、大気中に大きな影響を与えない。これに対し、吸入口では直接大気中から空気を吸入し、ピストンの往復動による圧力変化がそのまま大気中に影響し、大きな音圧となって低周波空気振動を生じているものである。したがって、原理的にはピストンの回転数に起因する周波数とその高調波成分が卓越して生じることは容易に予想できる。以下に記す測定結果はおおむねこの予想を裏付けるものとなっている。

#### 3-1-1 たて型単気筒コンプレッサ

工業用としては、比較的小型のコンプレッサで、表-3にその仕様の概略を示す。このコンプレッサは、

表-3 たて型コンプレッサの仕様

型 式	たて型単気筒単動式
シリンダ径×数×ストローク	250φ×1×160mm
所 用 動 力	37KW
回 転 数	520rpm
ピストン押し除け量	8.05 m <sup>3</sup> /min
吐 出 圧 力	7.0kg/cm <sup>2</sup>
実吐出量(吸込状態)	4.7 m <sup>3</sup> /min
電 動 機	AC400V×50Hz×6P×37KW

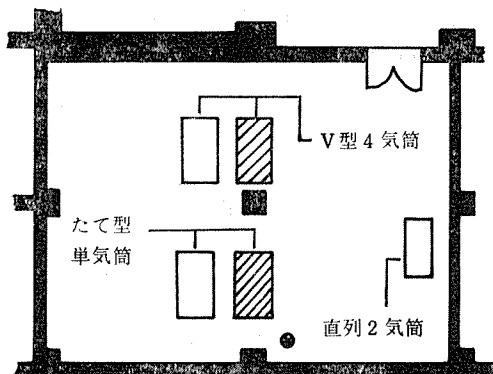


図-2 コンプレッサの配置とマイクロホンピックアップの位置(●印)

面積約 150m<sup>2</sup>の地下室に設置され、同室内には更に予備として同型式のものが1台と、別の用途に用いられる少し小さ目のV型4気筒コンプレッサ(所要動力30KW)2台、直列2気筒コンプレッサ(同11KW)1台が設置されている(図-2)。測定中は、対象としたたて型コンプレッサ1台と、V型4気筒コンプレッサ1台が稼動しており、後者は、測定中の大部分の時間で無負荷運転されていた。稼動中のコンプレッサは、図-2で斜線を付した位置のものである。稼動しているコンプレッサは、2台ともタンクの内圧により負荷が自動的に制御され、一定時間負荷がかかり、タンク内が所定の圧力になると無負荷となる状態を繰り返す。

図-3は、負荷のかかった状態における音圧レベルの100Hzまでのパワースペクトルである。このコンプ

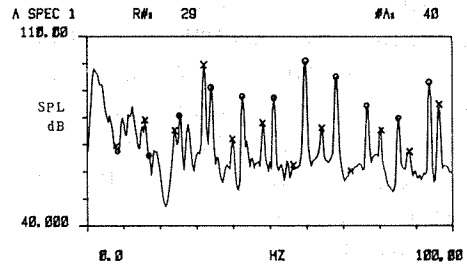


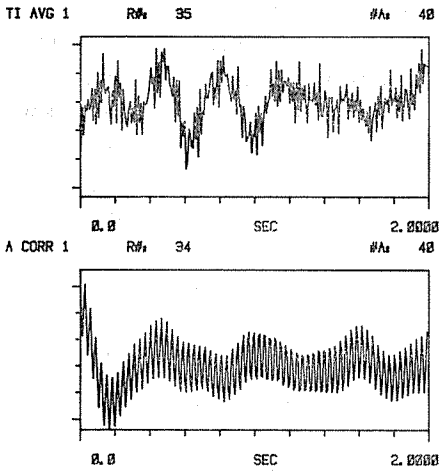
図-3 たて型コンプレッサによる低周波空気振動のパワースペクトル

- 8.5Hzを基本周波数とする高調波
- × 8.0Hz //

レッサの回転数は、520rpmで毎秒当り約8.7回の往復動をしているので、回転数に起因すると思われる8.5Hzを基本周波数とする高調波成分の存在が見られる。しかし、基本周波数それ自体と第2次の高調波は、その存在が明瞭ではない。また、この図では8Hzを基本波周数とするもう一つの高調波成分が見られる。この発生源は、となりで無負荷運転されているV型4気筒コンプレッサであると考えられる(このコンプレッサの回転数は毎秒7.8回である)。

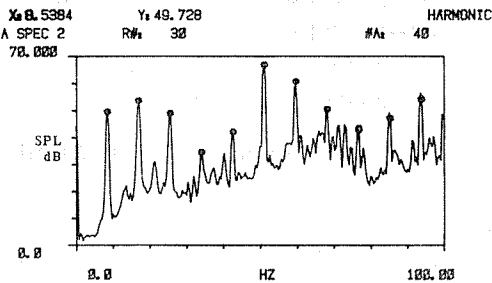
同図中には、これら2台のコンプレッサの回転数とは関係しない2Hzのところにも大きなピーク(約98dB)がある。この原因として、2台が同時運転しているために生じるうなりではないかと考え、次のような検討を行なった。時間領域における自己相関関数を求めてみると図-4のような結果が得られた。同図の上側は時間記録、下側がその自己相関である。共に40回の平均である。自己相関では、多少の乱れはあるものの、包絡線により2秒間に4周期、すなわち2Hzの周期変



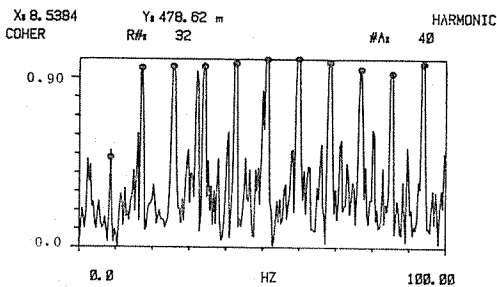


図一四 音圧の時間記録とその自己相関

動が示されている。包絡線を形成している成分は、1周期が31.25ミリ秒、つまり32Hzである。したがって、このことより、2Hzの成分は測定対象としたたて型のコンプッサ（基本周波数8.5Hz）と、となりのV型コンプレッサ（同8.0Hz）とによるそれぞれの回転数を基本周波数とする第4次の高調波34Hzと32Hzとにより生じているうなりであることがわかった。測定中は、どちらか1台を停止させることができなかった。



図一五 地盤の振動加速度レベル（垂直方向）の  
パワースペクトル（・印は8.5Hzの高調波）

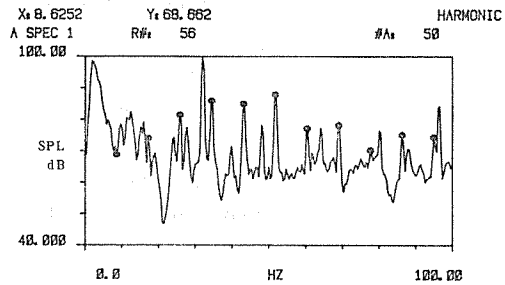


図一六 垂直方向地盤振動と低周波空気振動の  
コヒーレンス

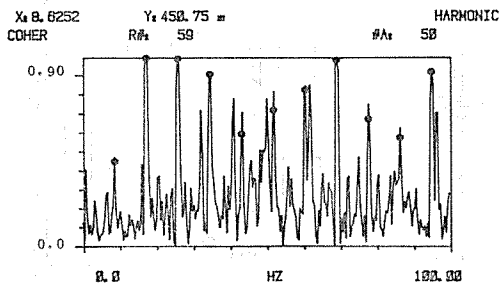
たが、仮にV型コンプレッサの運転を止めれば、この2Hz成分は消去できるものと考えられる。

また、このときの地盤振動（垂直方向）をみると、そのパワースペクトルは図一5に示すとおりである。振動では、8.5Hzを基本周波数とする高調波が明瞭に現われている。低周波空気振動と垂直方向の地盤振動との相関をコヒーレンス関数でみると図一6のようになる。8.5Hzを基本周波数とする高調波成分では、いずれもコヒーレンスが0.9を上回り、高い相関を示す。水平方向の振動についても、全般にコヒーレンスは高い値を示したが、低次の高調波になるに従い、その値は低くなっていく傾向がみられた。

以上の結果は、無負荷運転されているときにも同様に観測することができるが、低周波空気振動のパワースペクトルは、50Hzを超える部分が小さくなり、可聴音のレベル減少となる傾向がみられた。これに対し、50Hz以下の周波数帯では、それほど顕著なレベル変化はみられない。これは、単動型のコンプレッサの場合、無負荷運転時には吸入弁が開放されたままとなり、圧縮仕事は行なわれないが、シリンダ内を空気が吸入口を通じて出入するため圧力変動を生じさせ、低周波空気振動となって発生するものと思われる。また、垂直方向地盤振動とのコヒーレンスも負荷のかかっているときに比べると、その様子に大きな乱れが



図一七 無負荷状態における低周波空気振動の  
パワースペクトル



図一八 無負荷状態における垂直方向地盤振動と  
低周波のコヒーレンス

出てくる。参考までに、無負荷時の低周波空気振動のパワースペクトルと、そのときの地盤振動（垂直方向）とのコヒーレンスをそれぞれ図-7、図-8に示す。また、騒音レベルは、負荷のかかっているとき85 dB(A)、無負荷のとき81dB(A)であった。騒音レベルの記録を図-9に示す。

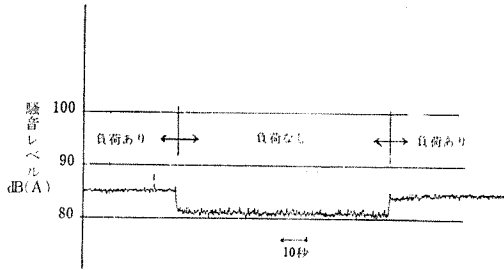


図-9 たて型コンプレッサの騒音レベル

### 3-1-2 半星型4気筒コンプレッサ

建屋内に設置された複動2段式コンプレッサで、ボイラの制御空気を圧送するためのものである。仕様の概略を表-4に示す。このコンプレッサ周辺には多く

表-4 半星型コンプレッサの仕様

型式	半星型2段水冷式(複動型)
シリンダ数	4
所用動力	180KW
回転数	580rpm
吐出圧力	7 kg/cm <sup>2</sup>
容量	29.5N <sup>3</sup> /min

の配管がはりめぐらされ、暗騒音が高く、測定条件はかならずしも良好ではなかったが、結果では一応このコンプレッサを発生源とする低周波空気振動の存在が見られた。

図-10に、コンプレッサの配置とマイクロホン、ピックアップの設置位置を示す。測定対象としたのは、半星型4気筒コンプレッサであるが、となりに設置された2台のたて型単気筒コンプレッサのうち斜線を付

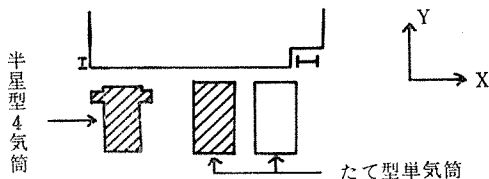


図-10 半星型コンプレッサの配置とマイクロホンピックアップの位置(●印)

した方のコンプレッサが無負荷運転されている状態にあった。このたて型コンプレッサは、所要動力45KW回転数400rpmであるが、低周波空気振動では図-11に示すごとく、この回転数に起因する周波数(6.7Hz)は、その高調波成分も含めてほとんど見られず、半星型コンプレッサの回転数によるもの(9.7Hz)が、高調波成分も含めて顕著に見られる。

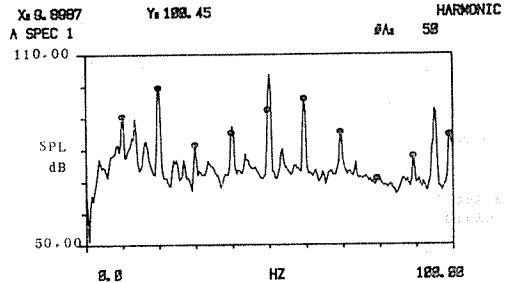


図-11 半星型4気筒コンプレッサによる低周波空気振動のパワースペクトル(●印は9.7Hzを基本周波数とする高調波)

複動型のコンプレッサでは、ピストン1往復につき2個の圧力パルスを生じることから、発生する低周波空気振動の基本周波数は、

$$\text{回転数 (rpm)} \times \frac{1}{60} \times 2$$

の式により求められる値となることが予想される<sup>4)</sup>。今回測定対象としたコンプレッサについて、この式により基本周波数を計算すると19.3Hzとなる。これに相当する鋭いピークが、図-11で第2次の高調波となって現われている。同図では、回転数× $\frac{1}{60}$ の成分(9.7Hz)にも若干小さ目ながらピークが観測され、またその奇数倍の高調波も明瞭に見られる。これは、ピストンの往復動によって励起される管壁、床、壁等の振動によるものではないかと考えられる。また、4気筒であることから予想される9.7Hzを基本周波数とする第4次および第8次の高調波は、それほど顕著にはみられず、特に8次の成分はほとんど出ていない。何次の高調波成分が卓越するかを詳しく論じた報告があるが、それによると、圧力パルスの発生間隔や伝達時間等により決まるとされている。

100Hzまでの音圧レベルは、前項で述べた比較的小型のコンプレッサ(所要動力37KW)とくらべて、ほとんど差はなく、機械の大きさそのまま音圧レベルの大きさに反映されるものではないようである。

また、図-12は、地盤の振動加速度レベルのパワースペクトルである。X、Y、Zの各方向は、それぞれモータ回転軸と水平面内で直角の方向、回転軸と一致した方向、地盤に垂直の方向である。ピストンの運動方向はX方向と一致し、したがって、Y方向とくらべ

とわずかではあるがレベルはX方向の方が高くなっている。垂直方向よりも水平方向の振動が10dB前後高いレベルを示しているが、高調波に乱れの少いのは垂直方向の振動であり、水平方向では暗振動の影響が強いものと考えられる。

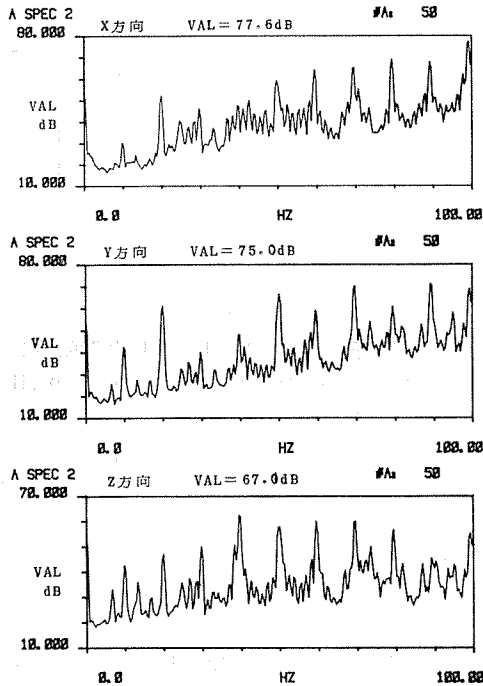


図-12 半星型コンプレッサによる地盤の振動加速度レベルのワースペクトル (上よりX, Y, Z方向)

### 3-2 遠心型ブロア

ブロアによる低周波空気振動の発生原因としてよく言われることは、サージングおよび旋回失速によるものである<sup>6)</sup>。サージングは、風量の調整具合により風圧が振動し、風量がいきをつき騒音、振動を起す現象であり<sup>7)</sup>、サージングを生じた場合、機械の破損にまで及ぶことがあって、最近では十分な防止策を講じている場合が多い。これに対し、旋回失速は、流量をしばったり、回転速度を設計値よりも下げたりして運転した際に、回転翼の一部に失速領域を生じる現象であって<sup>7)</sup>、機械を外から眺めているだけでは、この現象が生じていることに気付かないことが多いと言われている。低周波空気振動は、この失速領域がある周波数で回転することにより生じる<sup>8)</sup>。他の低周波空気振動の発生原因としては、大型の通風ダクトに送風する場合、大流量の変動流がダクト壁を振動させて生じる場合もある<sup>4)</sup>。

### 3-2-1 両吸込型ターボブロア

ここで測定対象としたブロアは、焼却炉での燃焼ガスを排出するための誘引用のもので地下室に設置されている。その仕様の一部を表-5に示す。測定中の運転状況は、風量、回転数ともに設計値どおりの正常運転であった。

表-5 ターボブロアの仕様

型式	両吸込型ターボ
所用動力	470KW
回転数	950rpm~740rpm (可変)
風量	6600m <sup>3</sup> /min
風圧	250mmAq
取扱気体	燃焼排ガス

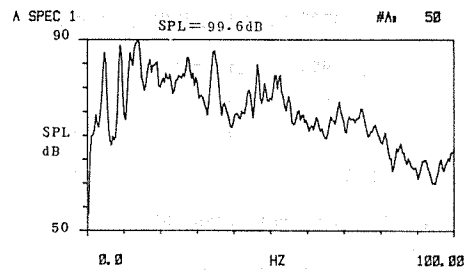


図-13 ターボブロアによる音圧のワースペクトル

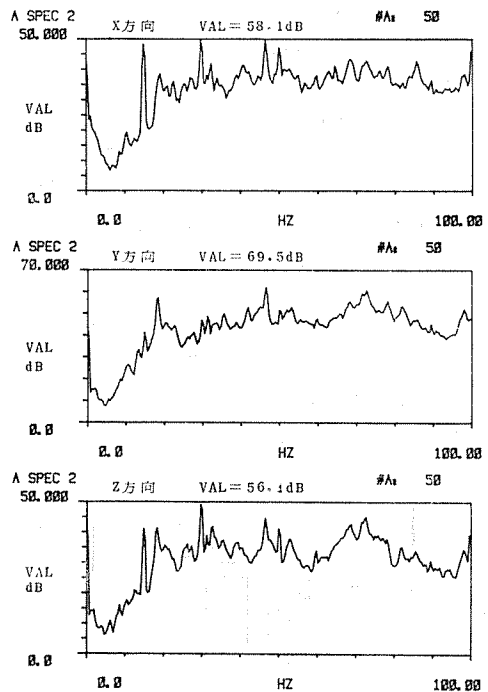


図-14 地盤の振動加速度レベルのワースペクトル (上よりX, Y, Z方向)

図一13に測定結果を示す。4.7Hz, 9.0Hz, 14.1Hz, 34.8Hzに卓越成分が認められる。周波数が高くなるほどレベルは低くなり、約80Hzまででオールパスのレベルは決定されてしまう。騒音レベルは75dB(A)で一定しており、変動はほとんどなかった。

測定中は、正常運転されていたのでサージングによる低周波空気振動を生じているとは考えられず、これらの卓越成分は、旋回失速によるものか、あるいは、管壁、ケーシングの振動によるものどちらかが原因であると思われる。そのどちらであるかを特定することは、今回の調査ではできなかった。

また、地盤振動では、往復動型の機械とちがってそれほどレベルは高くないと予想されたが、特にプロアの回転軸と水平面内で直角方向の振動加速度レベルは69.5dBと高い値を示した。図一14に各方向の振動加速度レベルのパワースペクトルを示す。X, Y, Zの各方向は、それぞれ回転軸の方向、それと水平面内で直交する方向、垂直方向である。XおよびZ方向の振動では、回転数と一致する15Hzが顕著であるが、Y方向では19Hzの成分にピークが見られ、床の方向による剛性の相違を推察することができる。また、床振動と低周波空気振動との相関をコヒーレンス関数で表わすと、図一15のようになる。46.5Hzでの高い相関

を除いては、水平方向、垂直方向ともそれほど強い相関はないようである。

#### 4. まとめ

(1) 往復動型コンプレッサでは、回転数に起因する低周波空気振動を生じ、その高調波はかなりの高次に至るまで明瞭に現われるが、シリンダ数による直接の影響はみられなかった。多気筒コンプレッサの場合、圧縮を数段に分けて所要圧力を得る方式のものが多く、この場合すべてのシリンダが直接大気から空気を吸入するわけではない。低周波空気振動に強い影響を与えるのは、直接大気から空気を吸入するシリンダ数だけであると考えられる。これに対し、地盤振動では、シリンダ数が直接パワースペクトル上にその影響を現わしている。

(2) コンプレッサの大小がそのまま音圧レベルの大小に反映するものではかならずしもない。この要因としては、シリンダ容積、吐出圧力、回転数等が考えられる。

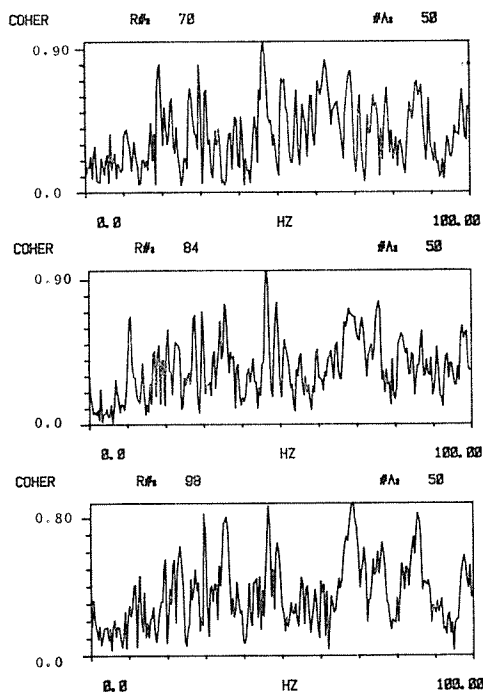
(3) 複数のコンプレッサが同時運転されている場合、回転数のわずかな差により、うなりとして低周波空気振動を生じることがあり、注意を要することはこれまでもよく言われていることである。今回、比較的小型のコンプレッサについて2台が同時運転されているときに大レベルのうなりを生じていることが観測された。この場合のうなりは、基本周波数でのものではなく、第4次の高調波成分同士によるものであった。

(4) 単動型コンプレッサの場合、無負荷運転時にも低周波空気振動を生じ、負荷の有無にかかわらず、50Hz以下の低周波領域ではレベルに大きな変動はなかったが、無負荷の場合は負荷のある場合にくらべ50Hzを超える可聴域では最大24dBのレベル低下が観測された。

(5) 復動型のコンプレッサでは、1秒につき、毎秒回転数の2倍に相当する回数だけ大気中から空気を吸入しているので、この回数が基本周波数となるが、回転数そのものを周波数とする成分もピークとして観測された。これは、ピストンの往復動による系の振動が空気中に伝搬したものであると考えられる。

(6) ターボプロアでは、回転数と無関係な周波数にピークが見られた。この発生原因は、翼の旋回失速によるものと、系の振動によるものが考えられるが、そのどちらであるかを特定することはできなかった。

(7) また、プロアによる地盤振動は、回転軸と水平面内で直角をなす方向の振動加速度レベルが他にくら



図一15 床振動と低周波空気振動とのコヒーレンス関数(上よりX, Y, Z各方向)

べてはるかに高く、振動防止策に有効と思われる示唆を与えている。低周波空気振動との相関は、それほど高くなかった。

## 5. おわりに

以上みてきたように、大型の空気機械は、多かれ少かれ低周波空気振動を発生している。コンプレッサの回転数に起因する低周波空気振動の場合のように、その発生が原理的に不可避なものに対しては、発生源そのものの対策を講じることが最も効果的であることは言うまでもない。

低周波空気振動に対し、さまざまな防止策が考えられ、実施されているが<sup>9)</sup>、既設の機械に対する低周波空気振動低減のための対策には、高額な費用を要する工事をともなう場合が多い。したがって、これからの対策のあり方としては、機械設置にあたって事前に充分の調査検討を行ない、予防するという観点に立って対策を講じることが、経済的にも、またその効果の面でも対症療法よりは、はるかに合理的である。

今回調査対象とした大型機械は、すべて広大な工場敷地内に設置されたもので、公害問題を惹き起こすおそれは少いものであったが、今後、住宅地の近隣にこれらの機械を設置するような場合には、何らかの対策を指導していくことが必要であろう。

## 文 献

- 1) 清水和男, 時田保夫: 超低周波音公害の実態. 音響技術, 第6巻1号, 2—8 (1977).
- 2) 最近のものでは, たとえば環境庁による「低周波空気振動等実態調査」(昭和53年)の報告がある。
- 3) 豊田栄次: 低周波空気振動公害の現状と今後の課題. 公害と対策, 第14巻2号, 6—14 (1978).
- 4) 中野有朋: 機械から発生する超低周波音とその対策. 公害と対策, 第14巻2号, 20—23 (1978).
- 5) 池上雄二, 中野有朋: 機械から発生する超低周波音とその対策——ディーゼル機関・空気圧縮機. 音響技術, 第6巻1号, 17—24 (1977).
- 6) (社) 日本産業機械工業会: 産業機械超低周波音調査報告書. 41—51 (昭和53年3月).
- 7) 機械工学便覧改訂第5版 日本機械学会編修, 第10編 26—33 (1968).
- 8) 鶴飼義雄, 鈴木昭次: 送風機から発生する超低周波騒音, 日本騒音制御工学会技術発表会講演論文集, 135—138 (Nov. 1978).
- 9) 鈴木昭次, 工藤信之, 岡野勝夫: サイドブランチ形サイレンサによる超低周波音の低減, 音響技術, 第6巻1号, 25—27 (1977).

# 市街地の平坦道路から伝搬する道路騒音の高度別測定結果とその予測法

鹿島 教昭\* 樋高 雄治\*

## 要旨

道路騒音が市街地に伝搬するときの騒音分布は、測定の困難さもあり、現在のところ十分に把握されていない。そこで、市街地平坦道路に直交する路地で、道路端から約70mの距離、および地上高さ11.2mまでの範囲で、平坦道路からの騒音をフィールド調査した。調査結果によると、道路端では地上高さが変化しても、騒音レベルはあまり変化しない。また路地で、道路から離れるに従い、高度方向の騒音レベルから、地上1.2mの騒音レベルを引いた差は大きくなる。これらの結果を整理し、市街地を平坦道路が通る場合に、平坦道路から、それに直交する路地へ騒音が伝搬する際の騒音レベル予測式を求めた。

## 1. はじめに

近年道路交通騒音を予測する手法が多くの機関で研究検討され、主として音響学会式が一般に使用されるようになってきた。しかしこの予測式の適用条件の一つとして、道路周辺は開放(更地)であることが要求されており、実際の市街地に適用することはできない。市街地での騒音予測は非常に難しい。各地域の地形、建物の高さや大きさ、また住居密度等が各々に異なり、予測のための諸条件を一般化することが困難なためである。しかし最近では市街地騒音を予測するため、住居密度をパラメータとした模型実験<sup>1),2),3)</sup>がなされており、また散乱理論を適用した研究<sup>4)</sup>や障害物による騒音伝搬の遅延時間を考慮した研究<sup>5)</sup>等の理論

的考察が行われている。しかし市街地における高度方向別の騒音伝搬に関する実測例は極めて少ない。我々は市街地において、道路交通に起因する騒音レベルの状況を測定し、その結果を用いて騒音レベル予測式を導くこととした。そこで平坦な道路周辺に住居が密集している三ツ沢地域を対象にして、フィールド調査を実施するとともに、既に著者らが調査した他の地域の結果も加え評価を試みた。

## 2. 調査方法

### 2-1 調査地域

調査地域の選定にあたっては下記の条件を満たすことに留意し、表-1に示す三ツ沢を調査地域とし、ま

表-1 調査地域の一例

調査地域名	対象道路名	騒音レベル dB(A) (中央値の最大値)	12時間交通量注1) 台
神奈川区三ツ沢下町	一般国道1号	77	28000
鶴見区上末吉3丁目	一般市道杉田汐入線	75	1700 台/時注2)
戸塚区原宿町	一般国道1号	79	39000
中区新山下2丁目	主要地方道山下本牧磯子線	78	17000

注1) 横浜市都市整備局：昭和52年度交通量調査報告書による。

注2) 騒音測定時の1時間当り交通量

Measurement on the Road Traffic Noise Propagation in City Area varying Receiver Height and a Noise Prediction Method.

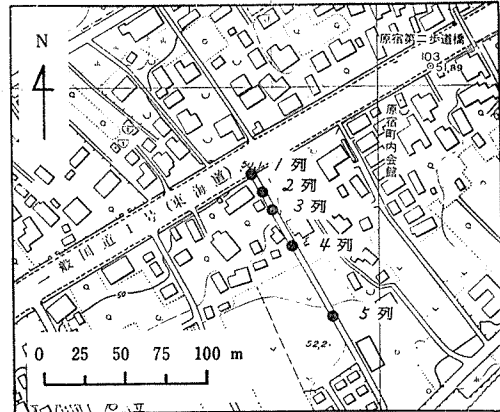
\* Noriaki Kashima, Yuji Hidaka, 横浜市公害研究所騒音振動部門

た、これら諸条件を満たす、上末吉、原宿および新山下における資料を利用することとしこの4地域を調査地域とした。この4地域で地上1.2mにおける騒音測定を実施し、三ツ沢地域では更に高度方向の騒音レベルも測定した。

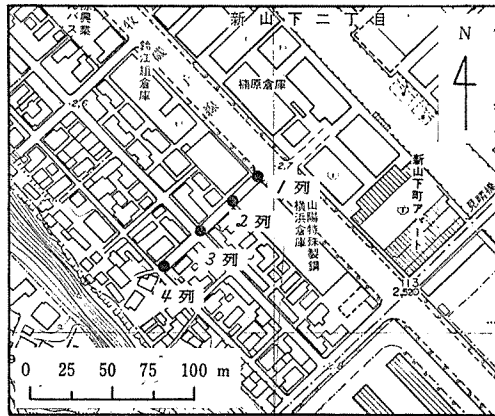
- (1) 測定対象とする道路周辺に、1階から3階建ての建屋がかなりの程度で密集している注3)。
- (2) 測定対象とする道路騒音以外の音は極力小さい。
- (3) 測定対象とする道路に直交する路地（以下「直交路地」と呼ぶ。）が存在し、道路端から100m程度離れた直交路地上から対象道路が見通せる。
- (4) 測定対象とする道路は平坦道路で縦断勾配はゼロに近い。

### 2-2 騒音レベルの測定点

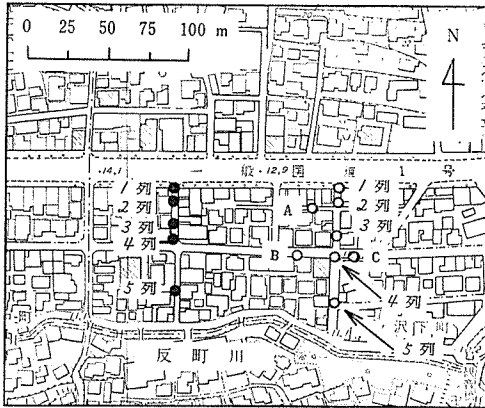
各調査地域における測定点を図一1-1から図一1-



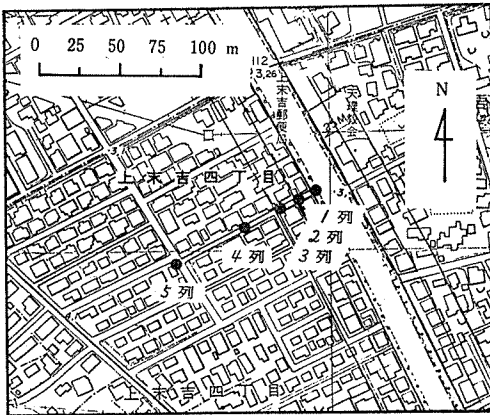
図一1-3 原宿地域の平面図と測定点



図一1-4 新山下地域の平面図と測定点



図一1-1 三ツ沢地域の平面図と測定点



図一1-2 上末吉の平面図と測定点

一4に示す。測定点は道路端（道路とは歩道も含む。）を“第1列”とし、直交路地上に順次“第5列”まで設けた。ただし図一1-4新山下の場合は第4列までである。図中黒丸印は地上1.2mの測定点であり、三ツ沢地域の白丸印は高度別の測定を実施した点である。各地域における道路端から直交路地上測定点まで

各調査地域における道路端から  
表-2 直交路地上測定点までの距離 単位:m

調査地域	第1列	第2列	第3列	第4列	第5列	
三ツ沢	地上1.2m	0	7.8	21.9	30.9	63.2
	高度方向	0	8.1	28.6	42.6	69.9
上末吉	0	8.5	21	46	96	
原宿	0	8.5	21	46	96	
新山下	0	21	46	76		

注3). 道路対面に2~3階の建屋が連坦していても、受音側への反射音の影響は無視されうるとの報告がある6)。

の距離を表-2に示す。なお図-1-1のA, BおよびCの3測定点は特に建屋裏の騒音レベルを高度別に求めるための測定点である。A, BおよびC測定点の配置を図-2に略図で示す。

高度別騒音レベルは図-3に示すように2.5m間隔でポールに5つのマイクロホンを取付け、このポールを繰返し移動させて測定した。

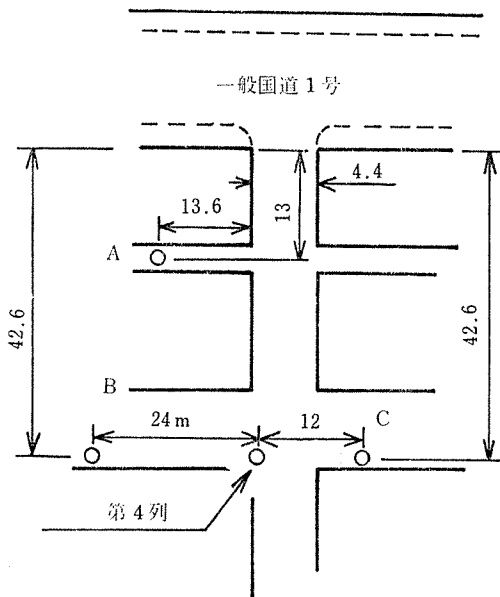


図-2 Mitsuzawa地域における建屋裏測定点A, B, Cの配置

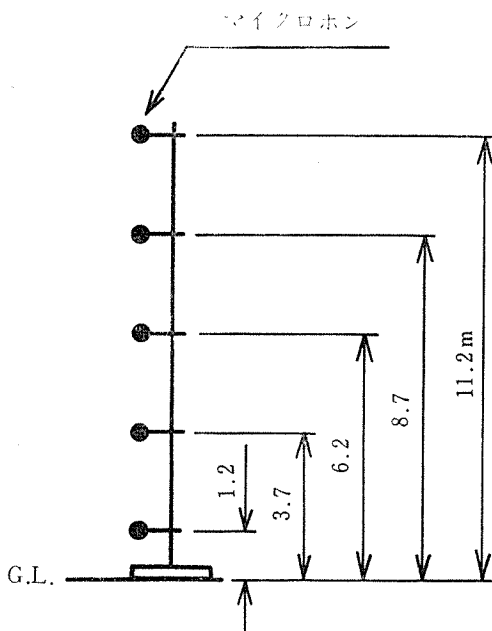


図-3 ポールの概略

### 3. 調査結果 地上1.2mについて

三ツ沢地域の直交路地上1.2mの騒音レベルと時間との関係を図-4に示す。この図より明らかに騒音レベルは道路端からの距離が大きくなるに従って減少し、ごく一部の例外を除き、道路端と各列との騒音レベル差は時間帯に関係なくほぼ等しく、また第1列と第5列との騒音レベル差をみると、約25dB(A)から30dB(A)とほぼ一定のレベル差である。

上末吉, 原宿および新山地域で測定して得られた、地上1.2mの距離減衰<sup>7)</sup>の状況は三ツ沢での減衰結果に近い。従ってこの3つの地域の測定結果は三ツ沢での測定結果とともに、直交路地上1.2mの距離減衰特性を検討する際に、データとして使用可能であると判断した。

なお三ツ沢地域で高度別に測定した騒音レベルについては後述する。

### 4. 測定結果の整理と検討

#### 4-1 直交路地における道路騒音レベル

##### 4-1-1 直交路地上1.2mにおける道路騒音レベルと道路端からの距離との関係

4つの調査地域の測定結果をもとに、道路端騒音レベルと各列での騒音レベルとの差を減衰量として求め、道路端からの距離別にその平均、標準偏差および範囲で表-3に示す。なお同表に計算に使用したデータ数を示す。減衰量を求めるにあたって、各列間で1dB(A)以上減衰が認められるデータを採用した。ただし新山地域での第4列(道路端から76m)のデータは全て使用しなかったが、その理由は昼間は測定点の近くの作業場から発生する騒音の影響を受けていることが明らかであり、夜間では第3列で騒音レベルが暗騒音に達したためである。

図-5に直交路地上1.2mにおける騒音レベルの減衰量と道路端からの距離との関係を示す。図中黒丸印は減衰量の平均値であり直線は減衰量の範囲である。この減衰傾向を平均値から判断すると、騒音レベルは道路端から約60mの位置で、暗騒音に達すると考えられる。

##### 4-1-2 直交路地における道路騒音レベルと地上高さとの関係

三ツ沢地域で測定し、得られた高度方向別騒音レベルは、測定した地上高さの範囲内では、高さが増すにつれ、地上1.2mの騒音レベルに比し、レベルが増加する傾向がある。そこで地上1.2mの騒音レベルを基準にして、11.2mまで高度別に騒音レベルの増加量を求め、道路端からの距離別に整理した結果が表-4、



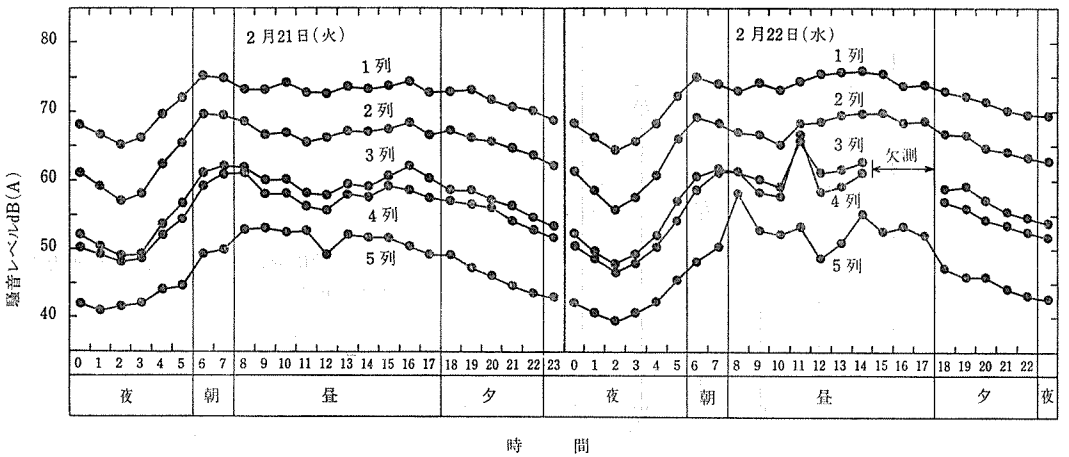
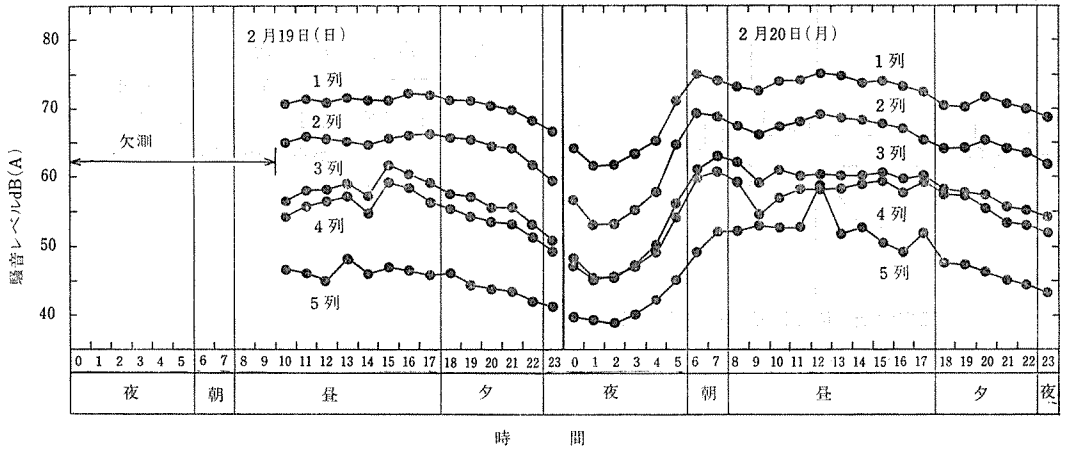
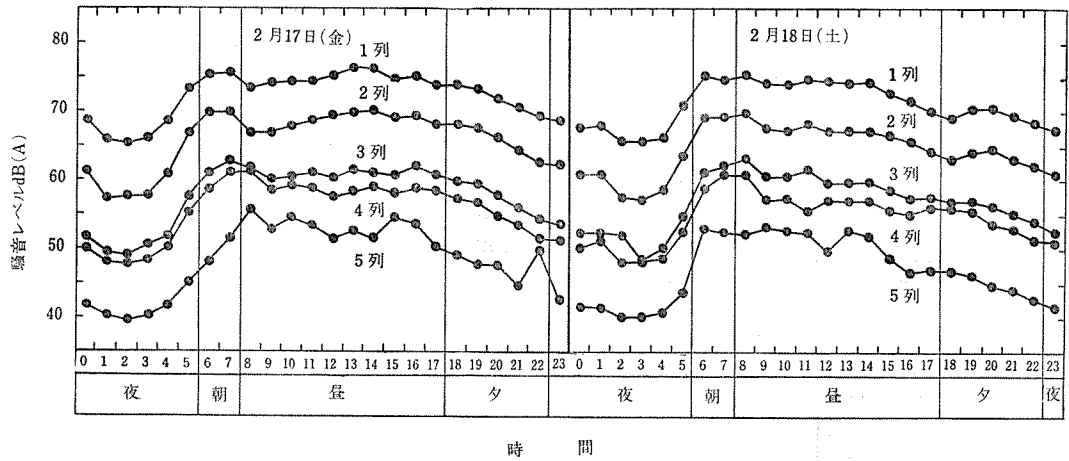


図-4 三ツ沢地域の直交路地上1.2mにおける道路騒音レベルの時間変動

表-3 直交路地上1.2mにおける騒音レベルの道路端のレベルに対する減衰量

道路端からの距離 m	7.8	8.1	8.5	21	21.9	28.6	30.9	42.6	46	63.2	69.9	96
平均 dB(A)	6.5	6.3	6.5	11.2	14.3	15.8	16.3	18.6	20.3	24.3	24	23.3
標準偏差 dB(A)	1.0	1.5	0.8	2.4	1.5	1.8	1.6	2.4	2.7	2.4	1.2	2.3
範囲 dB(A)	3~10	5~10	5~8	8~15	10~17	14~19	10~19	15~23	13~24	17~29	22~26	20~27
データ数	507	16	12	38	511	9	511	10	38	509	8	12

表-4 直交路地における高度方向別騒音レベルの地上 1.2mのレベルに対する増加量

道路端からの距離	計算諸量	地上高さ m			
		3.7	6.2	8.7	11.2
0 m	平均 dB(A)	-0.4	0.4	-0.1	-0.2
	標準偏差 dB(A)	0.6	0.7	0.7	0.9
	範囲 dB(A)	-1~1	-1~2	-1~1	-1~2
	データ数	15	15	14	14
8.1 m	平均 dB(A)	-2	1	2.2	3.3
	標準偏差 dB(A)	0.8	0.8	0.9	1
	範囲 dB(A)	-3~-1	1~2	1~3	2~6
	データ数	16	14	16	16
28.6 m	平均 dB(A)	0.2	2	3.7	6.5
	標準偏差 dB(A)	0.4	0.6	1.7	1.5
	範囲 dB(A)	0~1	1~3	2~7	5~9
	データ数	13	13	13	13
42.6 m	平均 dB(A)	0.8	2.7	3.9	6.6
	標準偏差 dB(A)	0.9	1.2	1.5	1.2
	範囲 dB(A)	-1~2	1~5	2~7	6~9
	データ数	12	12	11	11
69.9 m	平均 dB(A)	0.8	2.9	6	8
	標準偏差 dB(A)	0.9	1.0	1.5	1.3
	範囲 dB(A)	-1~2	2~4	5~8	6~10
	データ数	8	8	8	8

図-6である。この結果から地上 1.2mの騒音レベル

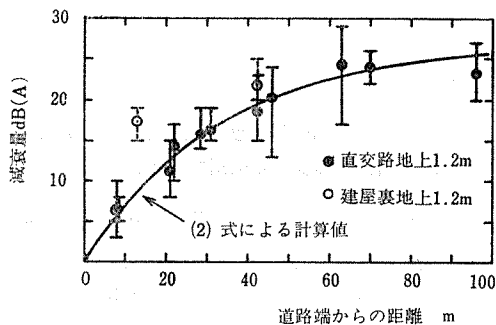


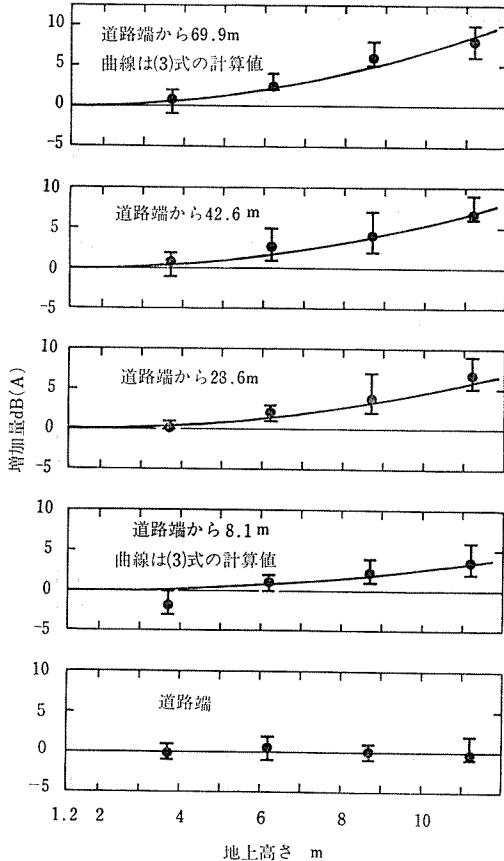
図-5 地上1.2mにおける道路騒音レベルの道路端レベルに対する減衰量(平均と範囲)

に対する地上11.2mの騒音レベルの増加量は、道路端からの距離が増すに従い大きくなる傾向が判る。そこで道路端からの距離に対してこの地上11.2mでの騒音レベルの増加量をプロットしたものが図-7である。これらの結果より判ることをまとめると次のようになる。

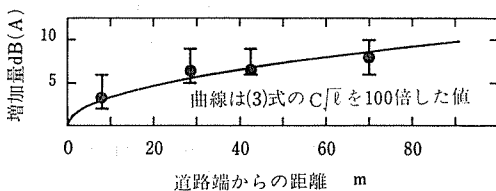
- (1) 道路端では地上高さが 1.2mから11.2mまで変化しても騒音レベルはほぼ一様である。
- (2) 道路端からの距離がゼロでないある一定の値をとる場合は、地上高さが増すに従い高度方向の騒音レベルも増加する。
- (3) 地上 1.2mの騒音レベルに対する地上11.2mのレベルの増加量は、道路端からの距離が増すに従

い大きくなる。他の地上高さについても同様なことが言える。

ところで図一6で道路端からの距離 8.1m, 地上高さ 3.7mの結果は上記(2)と相反するが, その原因は判明しない。しかし図一6において, 道路端からの距離が 8.1mの場合を除いて, 地上 3.7mでの増加量を考慮すると, 上記(2)は騒音レベルの状況をマクロ的に説明し得ると考えられる。



図一6 直交路地における高度方向別道路騒音レベルの地上1.2mのレベルに対する増加量(平均と範囲)



図一7 直交道路地上11.2mにおける騒音レベルの地上1.2mのレベルに対する増加量(平均と範囲)

#### 4-2 建屋裏における道路騒音レベル

##### 4-2-1 建屋裏地上1.2mにおける道路騒音レベルと道路端からの距離との関係

図一1-1に示すA, B, Cの3測定点で得られた地上 1.2mの騒音レベルと, 道路端での騒音レベルとの比較よりレベルの減衰量を求め表一5に示し, あわ

表一5 建屋裏地上 1.2mにおける騒音レベルの道路端のレベルに対する減衰量

道路端からの距離m	13	42.6
平均 dB(A)	17.3	21.8
標準偏差 dB(A)	1.7	1.7
範囲 dB(A)	15~19	20~25
データ数	4	6

せて図一5(前出)に示した。模型実験<sup>3)</sup>によると建屋裏地上 1.2mの騒音レベルは, 道路端からほぼ等距離にある直交路地上のレベルに比べ, 2~3dB(A)程度低くなる傾向があるとされている。しかし我々の測定結果では図一5に示したように, 等距離にある直交路地上 1.2mでの減衰量と比較し, 建屋裏での減衰量は道路端に近い位置で大きく, 道路端から遠ざかった位置で直交路地上での減衰量に近づく結果であった。この差異は, フィールドでは道路から離れるに従い, 暗騒音の影響を受けるためと考えられるが, 道路端からの距離が先に図一2に示したように, 13mと42.6mの2点だけであることから, 詳しい検討は困難であり今後の課題である。

##### 4-2-2 建屋裏における道路騒音レベルと地上高さとの関係

建屋裏地上 1.2mの騒音レベルに対する高度別騒音レベルの増加量と道路端からの距離との関係, または直交路地からの距離との関係を把握することは調査例が少ないため難しい。しかし得られた結果だけから判断すると, 地上 1.2mの騒音レベルに対する高度方向へのレベル増加量は地上高さだけに関係しているように考えられる(表一6)。また地上高さとの増加量との関係を図一8に示したが, 高度が増せば増加量も大きくなる傾向は, 図一6に示した直交路地上の高度別変化に類似している。

表一6 建屋裏における高度方向別騒音レベルの地上 1.2mのレベルに対する増加量

地上高さ m	3.7	6.2	8.7	11.2
平均 dB(A)	1.5	3.9	7.3	9.8
標準偏差 dB(A)	0.8	1.1	1.3	1.2
範囲 dB(A)	0~3	3~6	5~10	8~12
データ数	10	10	10	10

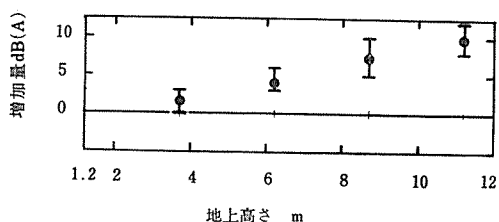


図-8 建屋裏における高度方向別騒音レベルの地上1.2mのレベルに対する増加量(平均と範囲)

### 5. 市街地の直交路地騒音を予測するための実験式

4-1で行った直交路地騒音の検討結果から、市街地直交路地騒音の予測式を導くことを試みた。予測式導出にあたって必要な部分を再掲すると次のようになる。

- (1) 対象道路に直交する路地では、地上1.2mの騒音レベルはある範囲内では道路端からの距離が増すにつれ減衰していく(図-5黒丸印参照)。
- (2) 対象道路に直交する路地において道路端からの距離を一定にした場合、直交路地の騒音レベルはある範囲内で高度が増すにつれ、地上1.2mのレベルより増加し(図-6参照)、また地上高さを一定にした場合、その高さの騒音レベルと地上1.2mのレベルとの差は、ある範囲内で道路端からの距離が増すにつれ大きくなる(図-6、図-7参照)。

上記2つの結果を前提とし直交路地の騒音を予測する式として次の式を考える。

- (1)  $L(\ell, h) = L_R - \text{ATT} + \text{AMP}$ . 単位dB(A)  
 $L(\ell, h)$ : 道路端からの距離 $\ell$ (m)、地上高さ $h$ (m)での騒音レベル 単位dB(A)  
 $L_R$ : 道路端で地上1.2mにおける騒音レベル 単位dB(A)  
 $\text{ATT}$ : 地上1.2mにおける騒音レベルの道路端レベルに対する減衰量 単位dB(A)  
 $\text{AMP}$ : 高度方向別騒音レベルの地上1.2mのレベルに対する増加量 単位dB(A)

#### 5-1 地上1.2mにおける騒音レベルの道路端レベルに対する減衰量 ATT.

ATT.の実測値は図-5に示したが、図中の平均値(黒丸印)を近似的式として次の曲線を求めた。

$$(2) \text{ATT} = A(1 - \exp(-B\ell))$$

$$A = 27$$

$$B = -3 \times 10^{-2}$$

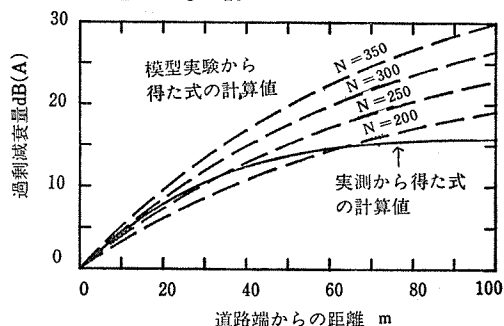


図-9 過剰減衰量の距離変化

上記ATT.の計算結果を前出の図-5に曲線で示した。ATT.から線音源による距離減衰量(-3dB/倍距離)を引いた過剰減衰量と、加来ら<sup>2)</sup>が模型実験より求めた式<sup>4)</sup>による過剰減衰量の比較(図-9)をみると、道路端からの距離が30m位まではATT.より求めた過剰減衰と模型実験での値は、家屋密度の条件は必ずしも一致しないが似た傾向を示す。しかし実測から得た式では距離が大きくなると、過剰減衰量はほぼ一定の値となり、ある距離(約101.6m)で最大値をとり、それ以後は小さい値となってしまう。これは求めたATT.の実験式では27dB(A)より大きな減衰量を示さないためである。

#### 5-2 高度方向別騒音レベルの地上1.2mのレベルに対する増加量 AMP.

AMP.は図-6に示した結果より、道路端からの距離が一定であれば、地上高さ $h$ に関する2次曲線で近似可能である。またAMP.は図-6及び図-7に示した結果より、地上高さ $h$ が一定であれば、道路端からの距離 $\ell$ に関する放物線で近似可能である。

これらの設定のもとに曲線回帰を行い次のAMP.の式を得た。

$$(3) \text{AMP} = C\sqrt{\ell}(h-1.2)^2$$

$$C = 1.03 \times 10^{-2}$$

図-6にAMP.の計算結果を道路端からの距離別

注4).  $\Delta L_p = \frac{7.6 \times N^{1/5}}{H+20} (1 - \exp(-R/75))$

$\Delta L_p$ : 過剰減衰量 単位dB(A)

N: 家屋密度 単位 戸/200m×200m

H: 音源の地上高さ 単位m 計算ではH=0.3

R: 道路端からの距離 単位m

に示した。また  $C\sqrt{\ell}$  の計算値を 100 倍して図-7 に示した。

### 5-3 直交路地の騒音レベル予測式の適用とその範囲

求めた予測式をまとめると次のようになる。

$$L(\ell, h) = L_R - \text{ATT} + \text{AMP} \quad \text{単位dB(A)}$$

$$\text{ATT} = 27(1 - \exp(-0.03\ell))$$

$$\text{AMP} = 1.03 \times 10^{-2} \sqrt{\ell} (h - 1.2)^2$$

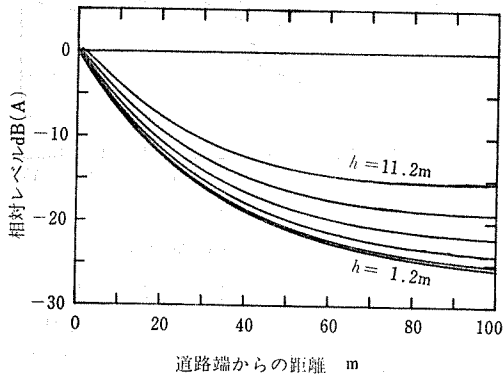


図-10 直交路地における高度方向別道路騒音レベルの距離減衰特性

上記予測式で  $L_R = 0 \text{ dB(A)}$  として地上 1.2m から 11.2m まで 2m 間隔で、高度別に騒音レベルの距離減衰特性を計算し図-10に示した。この図より道路端から 100m 離れた位置での減衰量は、地上 1.2m で 25dB(A)、また地上 11.2m では約 15dB(A) でその差が 10dB(A) あることが判る。また  $L_R = 0 \text{ dB(A)}$  とし、 $L(\ell, h)$  に 0, -5, …, -25dB(A) を代入し道路端からの距離と地上高さの関係を求め、これより直交路地における騒音レベルのコンタラインを図-11に示した。この図は騒音の分布を視覚的に示しているため、その様子が良く判る。

減衰特性の図(図-10)で地上高さ  $h = 11.2\text{m}$  の場合、道路端からの距離が 0m から 1.5m 位まで変化するとき、減衰特性はプラス側となり、騒音レベルは増加することになる。このことは騒音の持つ距離減衰特性と整合しない。このプラス側となる範囲は、図-11では地上高さを示す  $h$  軸と、0dB(A) のコンタラインとで挟まれる斜線部である。

しかし地上高さを 12m として減衰特性を計算すると、道路端からの距離  $\ell = 1\text{m}$  のときプラス 0.4dB(A)、また  $\ell = 2\text{m}$  のときプラス 0.1dB(A) であり、その値は十分小さい。従って求めた予測式は、地上高さを 12m 以内に限定すれば使用可能である。

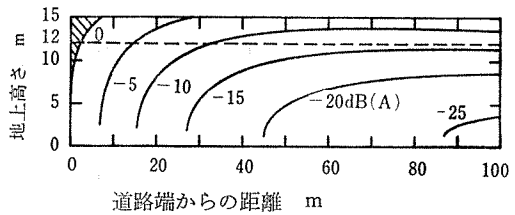


図-11 直交路地における道路騒音レベルのコンタライン

ここに導いた予測式はどこの地域でも適用できる式とはいえないが、道路端で地上 1.2m の騒音レベル  $L_R$  は簡単な測定で得られること、また  $L_R$  は音響学会式でかなり良く近似できることから、限られた範囲においては、平坦道路が通る市街地の直交路地で、騒音分布をマクロ的に予測するとき十分有効と考える。

## 7. まとめ

(1) 平坦道路周辺市街地の直交路地で、平坦道路の端から約 70m の距離、および地上高さ 11.2m までの範囲で、騒音レベルをフィールド調査し、その結果より、市街地直交路地の騒音分布を予測するため、近似式として一つの予測式を導出した。予測式のパラメータは、道路端における騒音レベル ( $L_R$ ) と道路端からの距離 ( $\ell$ )、および地上高さ ( $h$ ) であり、式を示すと次のようになる。

$$L(\ell, h) = L_R - 27(1 - \exp(-0.03\ell)) + 1.03 \times 10^{-2} \sqrt{\ell} (h - 1.2)^2$$

(2) 直交路地上 1.2m の騒音レベルは、四方の見通しが可能な開放地と異なり、大きな距離減衰を示す。減衰量の平均は、道路端から 30m の位置で約 15dB(A) であり、60m の位置では 25dB(A) 近くとなる。また距離減衰量は、地上高さが高いほど少ない。

(3) 建屋裏地上 1.2m の騒音レベルは、等距離にある直交路地上 1.2m の騒音レベルより、低い傾向がある。調査例は少ないが、その差は道路近くで大きく、道路から離れるに従い小さくなる結果であった。

## 8. おわりに

フィールド調査より実験式を求める方法は、例えば家屋密度といったパラメータを変化させるわけにもゆかず、実験室に比べあまり有効とは考えられない。しかし平坦道路沿いに住居が密集している地域は数多く存在し、多分に騒音公害を被っていることを考えると、ここに示した予測式は、この種地域の騒音分布をマクロ的に推定するに有効であろう。今後は予測精度

の向上を図るため、また建屋裏騒音レベルの予測のため、データを蓄積することが必要と考える。

## 文 献

- 1) 加来治郎, 吉村純一, 伊藤光泰, 山下充康: 騒音の市街地への浸透, 日本音響学会講演論文集, 119—120 (Oct. 1977).
- 2) 加来治郎, 山下充康: 市街地における騒音予測のひとつのこころみ, 日本音響学会講演論文集, 11—12 (May, 1978).
- 3) 小林理学研究所: 首都高速道路公団都市内高速道路の騒音特性に関する調査研究 (その3) 報告書, 昭和53年3月.
- 4) 山田一郎, 石井 泰: 市街地における騒音伝搬の過剰減衰の予測の試み, 日本音響学会講演論文集, 507—508 (Oct. 1978).
- 5) 久野和宏, 池谷和夫: 障害物が散在する空間内を伝搬する騒音の減衰特性について, 日本音響学会講演論文集, 121—122 (Oct. 1977).
- 6) 首都高速道路公団, 阪神高速道路公団, 小林理学研究所: 都市高速道路の騒音特性に関する調査研究報告書—自動車交通騒音予測式の運用に関する調査研究一, 昭和52年3月.
- 7) 鹿島教昭: 新山下地区騒音調査結果, 横浜市公害研究所報告第2号, 95—100 (1978).

# 塩素処理による有機塩素化合物の生成

福島 博\*

## 要 旨

河川水等の着色成分の一つであるフミン酸を次亜塩素酸ソーダに反応させたところクロロホルム ( $\text{CHCl}_3$ ) と、未知物質が生成された。生成された未知物質について、GC-MSを用いて同定を行なった結果、その物質はクロルピクリン ( $\text{Cl}_3\text{CNO}_2$ ) であることが判明した。なおクロルピリンが反応により生成されたことは、他の方法によっても確認できた。この化合物は殺虫力を持っているので、主に米穀用のくん蒸剤として用いられている。クロロホルム、クロルピクリンはいずれも一次反応により生成されるが、その後揮散・分解により減少する。一方、アンモニア性窒素が存在していると、塩素との反応によりクロラミンを生成するためクロロホルム等塩素化合物の生成が抑えられることがわかった。その他、生成反応過程についても検討を行なったところ、着色成分の1種であるレゾルソンのようにメタの位置に水酸基を持つ物質からクロロホルムが生成されやすいこと、及びクロルピクリンはフミン酸中に存在するアミノ基が酸化された結果、生成されることが推定できた。

## 1. 目 的

1974年以来、環境庁は既存化学物質による環境汚染実態調査を実施しているが、最近それと並行して今までの調査で検出率の高かった物質について全国的に精密環境調査を行なっている。この中で有機塩素系溶剤に代表される低級有機ハロゲン化合物は、生産量も多く、また広汎な分野で使用されているため、過去の調査ではクロロホルム、四塩化炭素を中心に、特に大都市や工業都市の河川や海域から検出される割合が高い。<sup>1)</sup>

一方、米国では水道水からクロロホルム等のトリハロメタンが検出されると発表されているが、一般にこれらの化合物は塩素処理に起因しているのではないかと推測されている。その後、EPA (米環境保護庁) が水道水の全国的な調査を行なったところ、かなり高濃度のクロロホルムが検出され、1978年になって飲料水中に生成するトリハロメタンの総量 (TTHMs) の最大許容濃度を  $100\mu\text{g}/\ell$  に定める措置を発表している。<sup>2)</sup> 塩素と反応してこれらトリハロメタンを生成する主な物質は、色度成分であるフミン質及び低分子量のメチルケトンといわれており、特にフミン質は自然界にフミン酸、フルボン酸、ハイマトメラニン酸として多量に存在している。従って、環境から検出される塩素化合物の中には実際に使用された後、流出された

ものの他に、環境中で生成反応を起こし、その結果として検出されるものも一部あると考えられる。そこで、今回フミン酸の塩素処理により生成される塩素化合物及び生成反応過程について検討を行ない知見を得たので報告する。

## 2. 実験方法

### 2-1 分析法

水中の低級有機ハロゲンの分析では、これらが低沸点であること、及び水中濃度が極めて微量であることを考慮して、溶媒抽出法<sup>3),4)</sup>密べい容器での気液平衡を利用したヘッドスペース法<sup>5),6)</sup>吸着剤にトラップし、その後、加温して追い出したガスを測定するページトラップ法<sup>4)</sup>イオン交換樹脂法等、種々の方法が用いられている。今回はこのうち最も簡易で迅速な溶媒抽出法を用い、検水  $50\text{ml}$  をトリハロメタン分析用 n-ペンタン  $10\text{ml}$  で抽出して分析した。定量は電子捕獲型検出器付ガスクロマトグラフ (以下ECD-GCとする) で行ない、条件はカラム充填剤 20% DC-200 クロモゾルプ W, キャリアーガス窒素  $30\text{ml}/\text{min}$ , カラム温度  $40^\circ\text{C}$ , 注入口温度  $70^\circ\text{C}$  とした。

### 2-2 試 薬

#### 2-2-1 フミン酸溶液 ( $1000\mu\text{g}/\text{ml}$ )

フミン酸は不溶性であるため、和光純薬製フミン

Formation of Organic Chlorinated Compounds by Chlorination.

\* Hiroshi Fukushima, 横浜市公害研究所水質部門

酸 1g を蒸留後イオン交換した水（以下精製水という）に 1N-NaOH 10ml を加えたものに溶かし、1ℓ とした。

### 2-2-2 次亜塩素酸ソーダ (NaOCl)

市販食品添加物用 NaOCl 中の有効塩素量を衛生試験法によるヨウ素滴定法を用いて求め、それを 5500 μg/ml に希釈した、なお、実験中は褐色ビンに入れ暗所に保存し、2週間ごとに濃度をチェックした。

## 3. 結果及び考察

### 3-1 添加回収実験

表-1 有機塩素系溶剤の添加回収実験結果

(%)

	クロロホルム	1,1,1-トリ クロルエタン	四塩化炭素	トリ クロルエチレン	テトラ クロルエチレン
40μg/ℓ (8μg/ℓ)	87.5	88.4	92.9	78.9	87.2
8μg/ℓ (1.6μg/ℓ)	90.4	80.8	86.2	99.2	99.2

注)-1 n = 5 回の平均値

-2 ( ) 内は四塩化炭素の濃度

### 3-2 フミン酸による塩素化合物の生成

フミン酸濃度が 0 から 20μg/ml までの溶液の中に、有効塩素濃度が 10μg/ml になるように各々 NaOCl 溶液を添加した。次に一定時間後の生成量を測定するため、1, 3, 5 時間後に各々  $N/100 Na_2S_2O_8$  を加えて残留遊離塩素を除去し反応を停止させた。精製水中にはクロロホルム ( $CHCl_3$ )、ジクロロプロモメタン ( $CHCl_2Br$ ) その他、ジブロモクロルメタン ( $CHClBr_2$ ) が微量含まれていたが、これらの成分は、フミン酸が存在しなければ NaOCl によって影響は受けなかった。NaOCl の存在下でフミン酸濃度が増加すると生成される  $CHCl_3$  の量も増加し、その値は時間の経過とともに大きくなること確かめられた (図-1)。反応初期ではフミン酸濃度に比例して  $CHCl_3$  が生成され

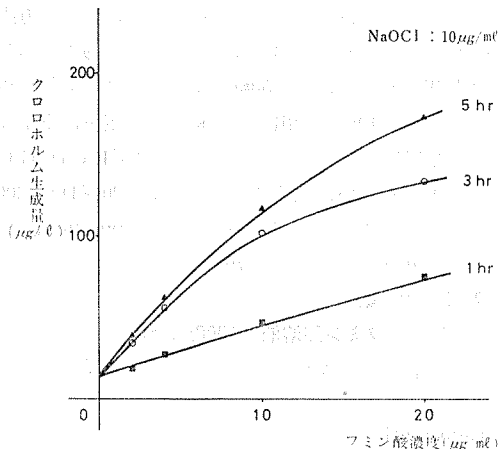


図-1 フミン酸とクロロホルム生成量

2-1 に示した分析法がトリハロメタンの分析に有効であることを確認するため添加回収実験を行なった。なお精製水には極微量であるがクロロホルム等の塩素化合物が含まれているので、以下の実験では精製水を10分間煮沸後、冷却したものをを用いた。5種類の有機塩素系標準物質のアセトン溶液を水に溶かして 40 μg/ℓ, 8μg/ℓ (但し、四塩化炭素は 8μg/ℓ, 1.6 μg/ml) に調整した後、分析を行ない回収率を求めたところ、表-1 のとおり各物質ともほぼ良好な結果を示し、分析法として使用可能であることがわかった。

るが、NaOCl 濃度は一定であるため、時間が経つにつれ生成速度は減少する。また  $CHCl_3$  以外の  $CHCl_2Br$ ,  $CHClBr_2$  の濃度を測定したところほとんど変化がなく、図-2 に示すように、GC のチャート上に反応前には存在しなかったピークが現われた。

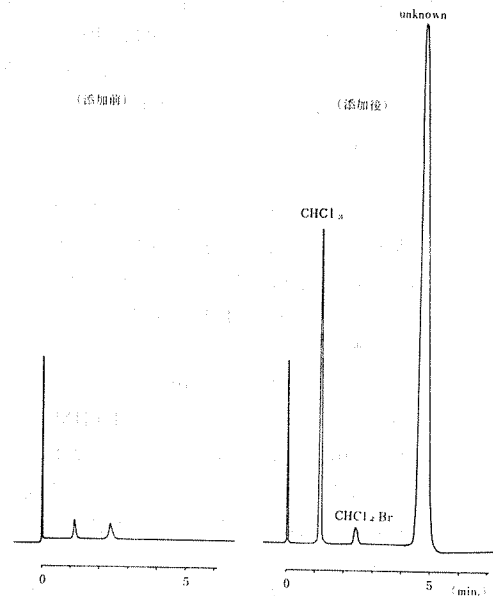


図-2 NaOCl 添加前後のガスクロマトグラム

次にフミン酸濃度が一定 (10μg/ml) の溶液に有効塩素濃度が 0 から 20μg/ml になるように NaOCl 溶液を添加し、前と同様に 1, 3, 5 時間後に反応を停止させて生成量を測定した。その結果、フミン酸濃度を



変えて、一定量の NaOCl 溶液を添加した場合と同様に、NaOCl 濃度が増加するに従い生成される  $\text{CHCl}_3$  の量も増加した。(図-3)

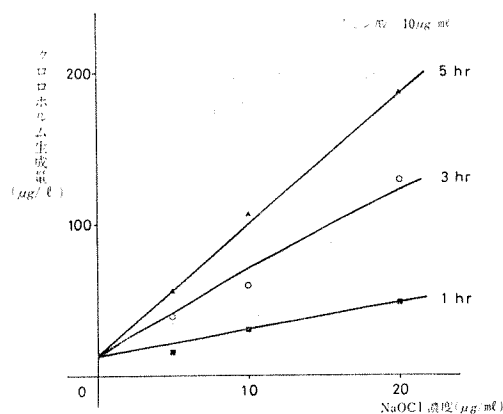


図-3 NaOCl 濃度とクロロホルム生成量

以上のことからフミン酸は、NaOCl が共存した時に図-2 に示すように  $\text{CHCl}_3$  と未知の物質に変化することが明らかになった。そこで次にその未知物質につき数種の方法を用いて同定を行なった。

### 3-3 生成された未知物質の同定

#### 3-3-1 GC-MS による同定

反応後の試料を濃縮して GC-MS へ導入し マスクロマトグラフィーによる測定を行なった後、 $\text{CHCl}_3$ 、 $\text{CHCl}_2\text{Br}$ 、及び未知物質の質量スペクトルを測定した。このうち  $\text{CHCl}_3$  の場合、分子イオンは強度が弱くほとんど観察できないが、脱クロルした  $\text{CHCl}_2^+$  ( $m/e=83$ ) がベースピークになっており、また  $\text{CHCl}_2\text{Br}$  では脱ブロムした  $\text{CHCl}_2^+$  ( $m/e=83$ ) がベースピークで、脱クロルした  $\text{CHClBr}^+$  ( $m/e=129$ ) のフラグメントイオンも検出された(図-4, 5)。これらはいずれも既存のマスデータと一致しており、質量

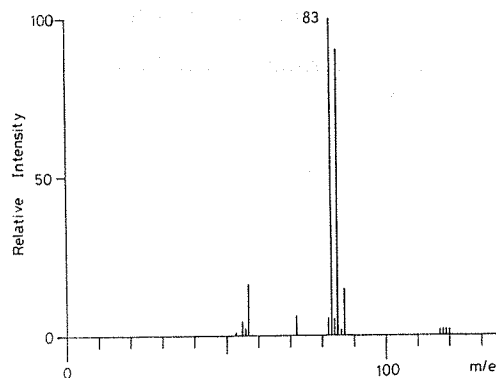


図-4 クロロホルムの質量スペクトル

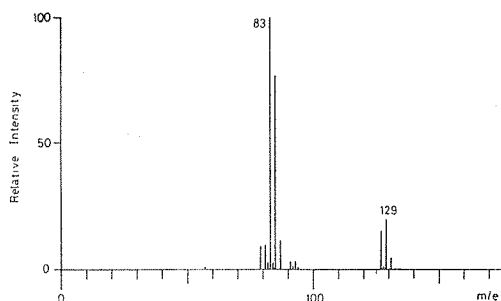


図-5 ジクロロブROMOMETANの質量スペクトル

スペクトルからも2つの物質の存在が確認された。未知物質については測定の結果、 $m/e=121, 119, 117$  に強いピークがあること、及びその強度比から塩素原子が3つ存在していることがわかる。また  $m/e=82, 47$  にピークが現われているのは炭素と結合していた塩素原子が1つずつ脱離していく様子を示している。これらのことを考慮し、マスデータ集と照合した結果、この物質は  $\text{Cl}_3\text{CNO}_2$  (クロルピクリン) である可能性が大きいと判断した。反応生成物中にはクロルピクリンが微量にしか存在していないため、IR による確認には無理があり、その他の確認試験を行なった。

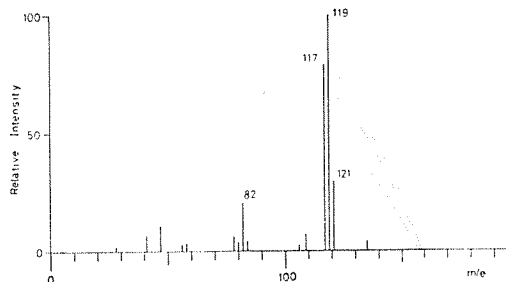


図-6 未知物質の質量スペクトル

#### 3-3-2 クロルシアン生成による確認

一般にクロルピクリンは塩化第二スズ、塩酸と反応してクロルシアン ( $\text{ClCN}$ ) を生成することが知られている。そこで、フミン酸と NaOCl との反応液中のクロルピクリンの存在を確認するため、反応液をロータリーエボレータで濃縮したものを上記の通り反応させ、ヘッドスペース法で分析を行ない、Tenax-GC を充填剤として用いた ECD-GC で検知した。その結果は、クロルピクリン純品を同様に反応させて得られたクロルシアンの保持時間と一致していた。このことからフミン酸と NaOCl との反応液中にはクロルピクリンが存在していたと思われる。

#### 3-3-3 ガスクロマトグラフィーの保持時間による確認

他の同定法として、充填剤を変えて確認する方法が一般に行われている。そこでクロルピクリン純品をn-ペンタンで希釈し、充填剤としてDC-200及びPEG-6000<sup>7)</sup>の2種を用い、確認したところ、各々の充填剤における保持時間はフミン酸とNaOClにより生成された未知物質の保持時間と一致していた。

これらの実験より、フミン酸の塩素処理によりクロロホルムとともにクロルピクリンが生成されることが明らかになった。

なおこの化合物は殺虫力、殺菌力を持っているので、我国では古くから主に米穀用のくん蒸剤として用いられてきた。また乾燥果実、新鮮果実、種子のくん蒸、土壌くん蒸剤としても使われる。この他、一部は有機合成物の原料、染料原料にも用いられている。

### 3-4 フミン酸からのクロルピクリンの生成量

3-2の条件下でクロルピクリンがどの程度生成されるかを調べるため、フミン酸とNaOClを共存させて反応を起こし、図-7、8に示すように一定時間後

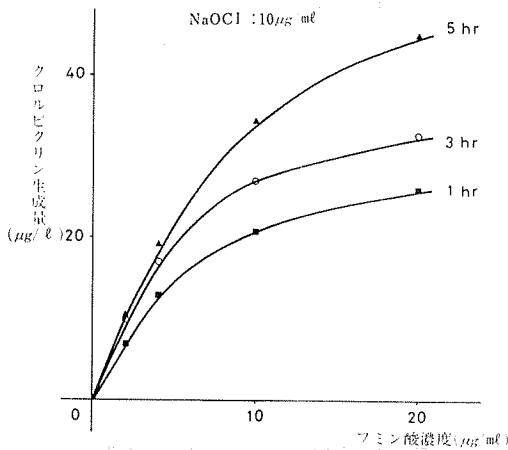


図-7 フミン酸とクロルピクリン生成量

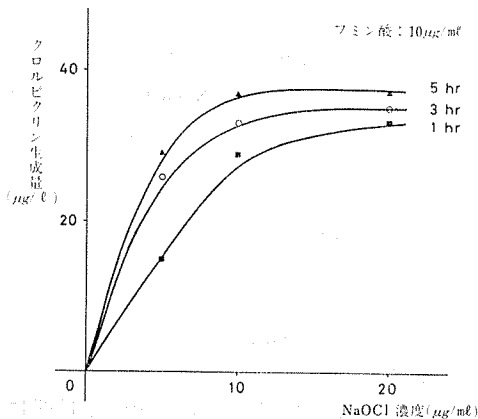


図-8 NaOCl 濃度とクロルピクリン生成量

の生成量を測定した。その結果、フミン酸  $20\mu\text{g}/\text{ml}$ 、NaOCl  $10\mu\text{g}/\text{ml}$ の反応によりクロルピクリンが  $40\mu\text{g}/\ell$ 以上生成されていることがわかった。

次に3-5~3-7において、その生成反応過程について考察を行なった。

### 3-5 反応時間及び生成の状況

フミン酸とNaOClとの反応生成物の濃度の経時変化をみるため、フミン酸  $10\mu\text{g}/\text{ml}$ 、NaOCl  $10\mu\text{g}/\text{ml}$ の初期濃度で反応させ、一定時間ごとのクロロホルム、クロルピクリンの生成量を測定し、その結果を図-9に示した。図-9は縦軸に塩素化合物の生成量、横軸には時間(分)を対数化して示してある。系には攪拌などの運動がなく静置しているため、初期段階での反応は遅く、生成量の増加はほとんどみられない。しかし反応がすすみ、クロロホルム、クロルピクリンいずれの場合も生成過程でほぼ直線的な増加を示すことから、フミン酸とNaOClが一次反応を起こし、これらの物質が生成されていることが推定できる。<sup>8)</sup>その後反応が完了すると揮散、分解がおり、生成物は徐々に減少していくと考えられる。しかし、実際にはアンモニア性窒素のように生成に影響を与える因子も考えられるので、それについて以下検討を加えた。

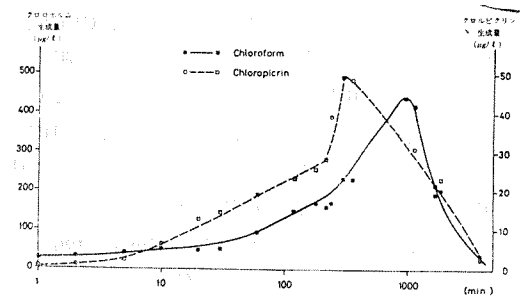
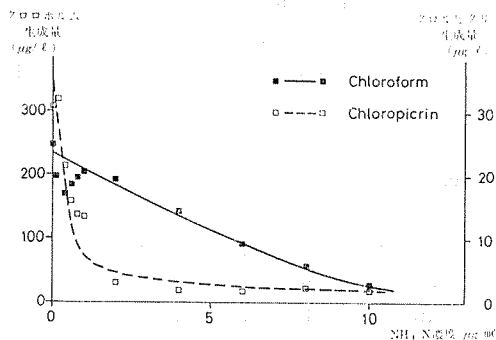


図-9 塩素化合物生成の経時変化

(フミン酸  $10\mu\text{g}/\text{ml}$ 、NaOCl  $10\mu\text{g}/\text{ml}$ )

### 3-6 有機塩素化合物生成におけるアンモニア性窒素の影響

一般に次亜塩素酸は水中のアンモニア性窒素と結合してクロラミンを生成することが知られており、さらにこの反応は下水中に含まれるアンモニア性窒素を窒素ガスに変えて除去する方法にも利用されている。しかしこの場合、添加される塩素量は消毒に用いられる量に比べかなり多量であり、それによって生成される塩素化合物の量及び種類は相当増加するともいわれている。<sup>9)</sup>そのような観点から図-10ではアンモニア性窒素の存在により生成される塩素化合物の量がどのよ



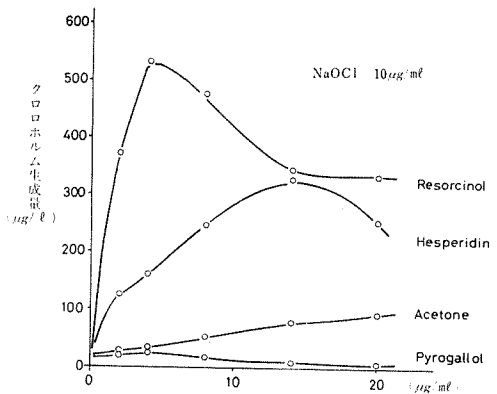
図一〇 塩素化合物生成におけるアンモニア性窒素の影響 (フミン酸 20 $\mu\text{g}/\text{ml}$ , NaOCl 30 $\mu\text{g}/\text{ml}$ )

うに変化するかを示した。アンモニア性窒素濃度の異なる溶液中で、フミン酸20 $\mu\text{g}/\text{ml}$ , NaOCl 30 $\mu\text{g}/\text{ml}$ を共存させて反応をおこし、80分後に生成したクロロホルム、クロルピクリンの量を測定した。図一〇に示す通り、水中のアンモニア性窒素が増加すると生成される塩素化合物の量は減少する。これは遊離塩素とアンモニア性窒素がクロラミンを生成する反応が、クロロホルム、クロルピクリンを生成する反応よりもはやく、残った遊離塩素がフミン酸と反応しているためと推定される。市内河川では1~5 $\mu\text{g}/\text{ml}$ のアンモニア性窒素が存在しているが、塩素処理によりどの程度の塩素化合物が生成されるかは明らかにされていないので、この点は今後の検討課題と考えられる。

### 3-7 フミン酸以外の先駆物質と生成の反応過程

天然の水の中には多くの有機物が存在しており、それらと塩素との反応については数多くの研究がなされてきた。有機物のうち低分子の炭化水素や脂肪酸はほとんどハロホルムを生成しないが、フェノール化合物やアミノ酸からクロロホルムの生成することが報告されており、これら物質は環境中に存在する量は少なく有機塩素化合物生成の先駆物質とは考えにくいといわれている。<sup>10)</sup>ハロホルム反応をおこすアセトンについてもクロロホルムを生成するに足るだけの濃度は環境中に存在しない。Rook らの述べているようにハロホルムの先駆物質としてはフミン質が最も重要で、彼らはフルボン酸の塩素処理を例にあげて、フミン質を構成している芳香族化合物のうちメタの位置に水酸基を持つ物質が塩素化によりクロロホルムを生成すると推定している。<sup>11)</sup>河川水の着色はおおむねフミン質によるものであり、このことから着色成分が有機塩素化合物生成の原因であると考えられる。そこで今回、天然の着色分子の構成物質であるポリヒドロキシベンゼンのうちレゾルシン、ピロガロール、天然のポリフェノ

ールのうちヘスペリジン、およびアセトンを選び、各々濃度を2~20 $\mu\text{g}/\text{ml}$ まで変化させ、有効塩素量が10 $\mu\text{g}/\text{ml}$ になるようにNaOClを添加して3時間後に生成されたクロロホルムの量を測定した(図一〇)。



図一〇 各種先駆物質によるクロロホルムの生成

ルシンは水酸基をメタ(1, 3)の位置に持っている芳香族化合物で、これがケト型に変わる時 $\beta$ 位の炭素が活性化され、その後、塩素原子が付加して反応がすすみ開裂をおこしてクロロホルムを生成したものと思われる。一方、ピロガロールには1, 2, 3の位置に水酸基があってケト型への転移がおこりにくいため、ほとんどクロロホルムを生成しない。この他、レゾルシンと化学構造の似ている2, 4-ジヒドロキノン安息香酸からはクロロホルムが生成することが報告されている。<sup>12)</sup>また本実験で、アセトンからも少量ではあるがクロロホルムの生成が認められた。従って、クロロホルムの主要な先駆物質はポリヒドロキシベンゼン、キノン等の縮合生成物で、またアミノ基のついた巨大分子を含むフミン質であり、特にフミン酸はその代表的なものと考えられる。

また、クロルピクリンの先駆物質については検討の余地が数多く残っているが、フミン酸抽出物を自動分析計にかけたところ、ケルダール窒素として2.1%含まれていたという報告があることや、<sup>13)</sup>多くの研究者により提案されている実験的構造式の中に $-\text{NH}_2$ (アミノ)基をもつキノンが存在することから、このアミノ基が生成反応に関与しているようである。ニトロベンゼンを還元することによりアニリンがたやすく得られるように、ニトロ基がアミノ基に変わる反応は比較おこりやすい。それに比べ、逆にアミノ基がニトロ基に変わる反応は一般的でない。しかし、何らかの酸化作用によりフミン酸の中に存在するアミノ基がヒドロキシルアミン、ニトロソと順次酸化され、最後にニトロ基になり、ニトロ基と結合している炭素原子に塩

素が付加して反応がすすむことが考えられるが、詳細については今後検討する予定である。なお、フミン酸はその含有成分において、試薬ロット間のばらつきがあるといわれているため、今回は2種の異なるロットのフミン酸試薬を用いたが、いずれからの生成物も同じであった。今後は実際の土壌抽出物からの有機塩素化合物の生成及びその除去方法、さらに生成された物質の分解性についても検討していく予定である。

#### 4. まとめ

フミン酸の塩素処理により生成される有機塩素化合物及びその生成反応過程について検討したところ、次の結果が得られた。

- (1) フミン酸溶液の中に NaOCl 溶液を添加したところ、クロロホルム ( $\text{CHCl}_3$ ) の他に、新たに未知物質の生成が認められた。
- (2) 生成された未知物質を同定するため GC-MS/MC (マスクロマトグラフィー) による測定を行なった結果、クロルピクリン ( $\text{Cl}_3\text{CNO}_2$ ) と判断した。
- (3) これらの物質は、いずれもフミン酸溶液及び NaOCl 溶液の濃度が増加するにつれ、また反応時間が 1, 3, 5 時間と経過するにつれ、その生成量が増すことがわかった。
- (4) クロルピクリンが化学反応をおこしクロルシアン (ClCN) を生成すること、および GC の保持時間から(2)の結果の確認を行なった。
- (5) クロロホルム、クロルピクリンはいずれも 1 次反応により生成され、反応完了後は揮散、分解をおこした。
- (6) 生成時にアンモニア性窒素が存在すると、塩素化合物の生成が妨害された。
- (7) フミン酸以外の先駆物質と NaOCl 溶液との反応により生成されるクロロホルムの量を調べることにより、生成の反応過程が明らかになった。またクロルピクリンがどのようにして生成されるかについても推定した。

#### 文 献

- 1) 昭和52年版『ケミカルアセスメント—環境における化学性物質の存在』。
- 2) Lower Mississippi River Facility, & Surveillance and Analysis Division—EPA, Region VI, "Draft Analytical Report—New Orleans Area Water Supply Study" (1974).
- 3) J. J. Richard and G. A. Junk : Liquid Extraction for the Rapid Determination of Halomethanes in Water. *Jour. AWWA*, 69 (1), 62—69 (1977).
- 4) Environmental Research in Japan vol I : 9. 水道における有機塩素化合物の指標に関する研究 (1976).
- 5) J. P. Mieure : A Rapid and Sensitive Method for Determining Volatile Organohalides in Water. *Jour. AWWA*, 69 (1), 60—62 (1977).
- 6) Environmental Research in Japan vol I : 9. 水道における有機塩素化合物の指標に関する研究 (1977).
- 7) 昭和53年度化学物質環境調査分析方法報告書 P. 222—226.
- 8) 梶野勝司 : 塩素処理におけるトリハロメタンの形成. *水道協会誌*. 第514号. 17—36 (1977).
- 9) 村上健 渡部春樹 : 下水中の塩素処理と有機塩素化合物とその除去について, 第13回日本水質汚濁研究会年次学術講演会講演集 85—90 (1979).
- 10) B. G. Oliver and J. Lawrence : Haloforms in Drinking Water—A Study of Precursors and Precursor Removal. *Jour. AWWA*, 71 (3), 161—163 (1979).
- 11) J. J. Rook : Chlorination Reactions of Fulvic Acids in Natural Waters. *Env. Sci. & Tech.*, 11 (5), 479—482 (1977).
- 12) R. A. Larson and A. L. Rockwell : Chloroform and Chlorophenol Production by Decarboxylation of Natural Acids during Aqueous Chlorination. *Env. Sci. & Tech.*, 13 (3), 325—329 (1979).
- 13) D. B. Babcock and P. C. Singer : Chlorination and Coagulation of Humic and Fulvic Acids. *Jour. AWWA*, 71 (3), 149—152 (1979).

# マスクロマトグラフィー (GC-MS/MC) の定量分析 への応用について

石井 哲夫

## 要 旨

Phenanthrene を測定対象とし GC-MS/MC 測定の定量性について検討を行い、ng オーダーの測定においては、GC-MS による定量分析の標準的手法である GC-MS/SIM 測定と同等の定量性があることが明らかとなった。又、内部標準物質として、測定対象物質の重水素多重標識体を用いず、GC 測定における内部標準と同様の物質を GC-MS/MC の内部標準として用いても、重水素多重標識体を用いた場合と同等の定量性があることが明らかとなった。

この結果から、GC-MS/MC 測定は、定性及び定量分析が同時に行うことが可能であることを示すものであり、未知物質の定量分析のうえで有効な知見を得たので報告する。

## 1. はじめに

ガスクロマトグラム質量分析計 (GC-MS) の普及とともに、測定対象物質に特徴的な質量イオンを測定する Selective Ion monitor (SIM) による測定が、定量分析に広く利用されるようになってきている。

GC-MS/SIM による分析は、同一測定時における測定可能質量範囲が限定されるため、測定対象物によっては、定性的な正確さを検討することが困難な場合がある。また、定量分析においては、重水素多重標識体を内部標準物質 (IS) として用いる方法が最適とされている。しかし、安定な重水素多重標識体の合成には、特殊技術を要し、さらに高純度の標識体を高収率で得ることは、困難な場合が多い。このため、測定対象物質の CD<sub>3</sub> 化物を内部標準物質として用いる定量分析法の検討も進められている。<sup>1)</sup>

現在 GC-MS のデータ処理を電算化する手法が確立されつつあり、電算機と GC-MS の一体化したシステムによるマスクロマトグラム (MC) 測定手法の定量分析への応用が検討されている。<sup>2)</sup>

MC 測定は、GC-MS/SIM 測定と異なり、測定質量範囲が限定されないため、定性分析と定量分析を同時に行なえる可能性を有している。しかし、磁場走査形の質量分析計の場合 MC 測定は、時系列的に間隔

(秒単位) をおいた連続走査で測定するため、走査ごとの測定感度の変動及び、間隔走査により、GC からの流出ピークの正確な把握の可否等が定量分析に用いる際の問題とされている。

本報告は、測定対象物質として Phenanthrene を選び、MC 測定の定量分析への応用を検討するとともに、内部標準物質として重水素多重標識体を用いず、GC における内部標準物質と同様の内部標準物質を用いた場合における定量性についての検討を行なったので報告する。

## 2. 実験方法

Phenanthrene を測定対象とし GC-MS/MC 測定における GC ピークの把握状況及び測定結果の再現性につき検討した後、下記の三種類の定量分析手法について、検討を行なった。

- 1) 内部標準物質として Phenanthrene d<sub>10</sub> を使用する GC-MS/SIM による内部標準法
- 2) 内部標準物質として Phenanthrene d<sub>10</sub> を使用する GC-MS/MC による内部標準法
- 3) 内部標準物質として o-Terphenyl を使用する GC-MS/MC による内部標準法

測定は、Phenanthrene と内部標準物質として用いた、Phenanthrene-d<sub>10</sub> 及び o-Terphenyl を一定の

Quantitative Determination Technique for Mass Chromatography.

\* Tetsuo Ishii, 横浜市公害研究所水質部門

比率で加えた n-Hexane 溶液を用い、下記の GC-M S 条件において行なった。

GC-MS condition :

Model LKB 9000B

Column Temp. 180°C Packing 2 wt% OV-1

Support Chromosorb w Mesh 60/80

Treatment AW DMCS

Carrier Gas He Flow Rate 30ml/min.

Injection Temp. 260°C

Separator Temp. 200°C Ion Box Temp. 290°C

Elec. Energy 70eV Emit. Curr. 240 μA

Acc. H. V. 3.4KV

### 3. 実験装置

島津 LKB 9000B ガスクロマトグラム質量分析計  
PAC 300DG データ処理装置

### 4. 試薬

Phenanthrene : 和光純薬

Phenanthrene d<sub>10</sub> : メルク

o-Terphenyl : ガスクロ工業

n-Hexane : 和光純薬 (残農用)

### 5. 実験結果及び考察

#### 5-1 MC 測定条件の設定

図-1, 2 及び 3 に、測定対象物質及び内部標準物質である Phenanthrene, Phenanthrene-d<sub>10</sub> 及び o-Terphenyl のマススペクトルを示す。3 物質とも、分子イオンが Base mass となる化合物であり、MC による定量分析における設定 m/e としては、分子イオンである

phenanthrene : m/e 178

phenanthrene-d<sub>10</sub> : m/e 188

o-Terphenyl : m/e 230

を用いることとした。

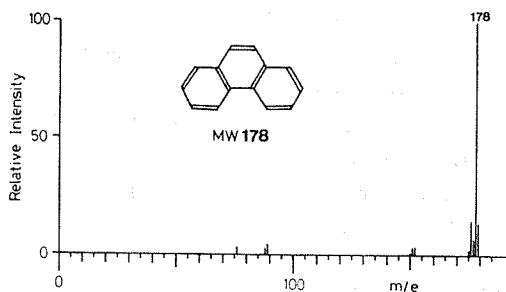


図-1 Phenanthrene の質量スペクトル

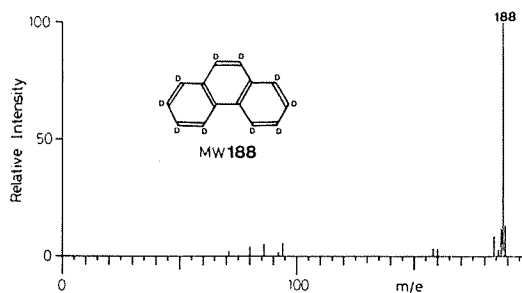


図-2 Octodeuterophenanthrene の質量スペクトル

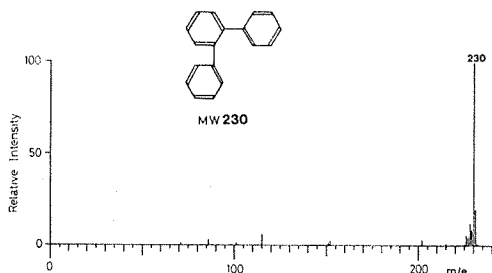


図-3 o-Terphenyl の質量スペクトル

Phenanthrene の測定条件下における GC-MS / SIM ピークは、図-4 に示すように、Retention time : 3'55" 相対ピーク強度 0.90 以上を示す時間間隔が 6 秒のピークである。

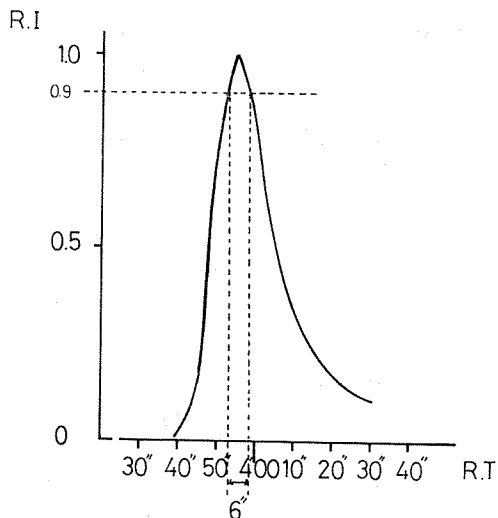


図-4 MC 測定における最大走査間隔

GC-MS Condition :

Model LKB 9000B

Column Temp. 180°C 2 wt. % OV-1

Support Chromosorb W Mesh 60/80

Treatment AW DMCS

Carrier Gas He Flow Rete 30ml/min .  
 Injection Temp. 260°C  
 Separater Temp. 200°C Ion Box Temp. 290°C  
 Elec. Energy 70eV Emit. Curr. 120  $\mu$ A  
 Acc. H. V. 3.4KV Elec. Multi. H. V. 2.3 KV  
 Slit 0.1 0.9 0.1  
 Determinated m/e ; 178

MSの間隔走査において、6秒以内の走査間隔で測定を行なえば、最大ピーク強度を指標として、定量分析を行なったとしても、測定誤差を理論上は10%以内におさえることが可能である。走査間隔は、短いほど測定精度は向上すると考えられるが、磁場走査型の質量分析計においては、一回の走査において秒単位の時間が必要であり (maximum Scan speed : 1~1200m/e /2sec.) SIM測定のような連続測定は不可能である。測定に使用したGC-MS電算システムにおける、測定m/e範囲内走査の設定走査間隔と測定データ数の関係を、図-5に示す。

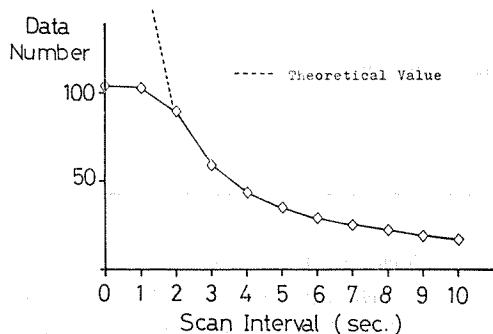


図-5 MC測定における3分間の測定DATA数  
 Model : GC-MS LKB 9000B  
 CPU PAC 300DG  
 Scan Area 90-260u/e  
 Scan Speed 1-1200m/e/10 sec.

図-5に示したように、測定システムにおいては、2秒未満の走査間隔においては、計算上求められる測定を行うことは不可能であり、最小走査間隔は、2秒であった。

間隔をおいた連続走査により測定されるMC測定におけるピーク形状と、SIM測定におけるピーク形状の比較を図-6に示す。

図-6に示すように測定した走査間隔内(2秒~5秒)では、SIMピークと近似しており、MC測定により、GCからの流出ピークを形態的にも観測が可能であると考えられる。

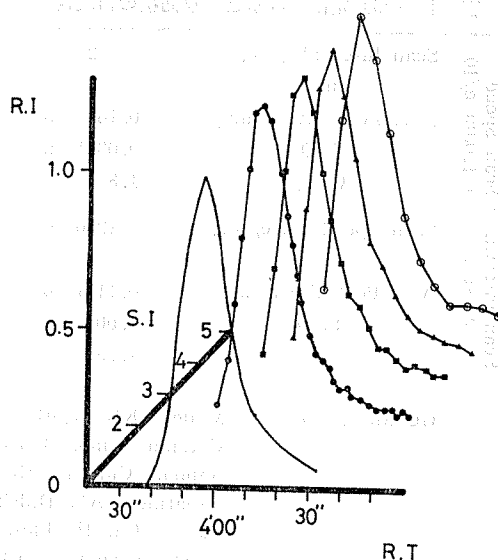


図-6 MC測定におけるピーク形状

R. I : Relative Intensity

S. I : Scan Interval (sec.)

R. T : Retention Time

\* : Maximal intensity was regarded as R. I=1

S. I=0 was determined by GC-MS/SIM

GC-MS condition :

Model ; LKB 9000B

Column Temp. ; 180°C Packing : 2 wt% OV-1

Support ; Chromosorb W Mesh ; 60/80

Treatment ; AW DMCS

Carrier Gas ; He Flow Rate ; 30ml/mln.

Injection Temp. ; 260°C

Separater Temp. ; 200°C Ionbox Temp. ; 290°C

Elec. Energy ; 70eV Emit. Curr. ; 120 $\mu$ A

Acc. H. V. ; 3.4KV Elec. Multi. H. V. ; 2.3KV

Slit ; 0.9, 0.1 Scan Interval 4 sec.

Scan Area ; 90-260m/e Scan Speed

1-1200m/e/10 sec.

Sample :

Phenanthrene 10 $\mu$ g/ml Solvent ; n-Hexane

Injection Volume ; 11 $\mu$ l

Determinated m/e : 178

走査間隔及び走査速度の変化に共なる、ピーク面積の再現性について、平行測定の変動から見た結果を、表-1に示す。

ピーク面積の変動率%は、設定した走査間隔及び走査速度においては、全て5%以下であり、定量分析における充分な再現性を有していると考えられる。図-

表一 MC測定におけるピーク面積の再現性

Scan Speed 1-1200m/e/10	Scan Interval (sec.)	2	3	4	5
	n	5	5	5	5
	Ave. Peak Area (mv)	0.1679E6	0.1144E6	0.9006E5	0.7211E5
	S. D	0.0031E6	0.0051E6	0.0222E5	0.0217E5
CV%	1.847	4.496	2.460	3.013	
Scan Interval 4 sec.	Scan Speed (m/e/sec.)	1-1200/20	1-1200/10	1-1200/5	1-1200/2
	n	3	3	3	3
	Ave. Peak Area (mv)	0.1161E6	0.8739E5	0.6396E5	0.2968E5
	S. D	0.0023E6	0.0372E5	0.0103E5	0.0006E5
CV%	1.989	4.253	1.604	0.189	

GC-MS Condition : Model LKB 9000B

Column Temp. 180°C Packing 2 wt% OV-1

Support Chromosorb W Mesh 60/80

Treatment AW DMCS

Carrier Gas He Flow Rate 30 ml/min

Injection Temp. 260°C

Separator Temp. 200°C

Elec. Energy 70ev Emit. Curr. 240μA

Acc. H. V. 3.4KW Elec. Multi. H. V. 3.04KV

Slit 0.1 0.9 0.1

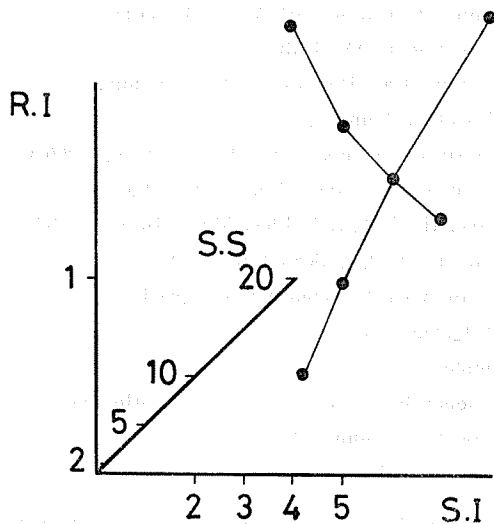
MC Scan Area 90 -260 m/e

Sample : Phenanthrene 10μg/ml Solvent ; n-Hexane

Injection Volume ; 11μℓ

Determined m/e : 178

Ex : ×10x



図一七 ピーク強度に対する走査間隔と走査速度の関係

R. I : Relative Intensity\*

S. S : Scan Speed S. I : Scan Interval

\* Peak Intensity of S. I=4 and S. S=10 was regard as R. I=1.

7に、走査間隔及び走査速度の変化にともなう、ピーク面積の相対的な変化を示す。ピーク面積は、走査間隔が長くなるにしたがい、又走査速度が速くなるにしたがい縮小してゆく、このことから、高感度測定には、可能なかぎり走査間隔をみじかく、かつ走査速度を遅くすることが必要とされるが、MC測定の最大の利点は、広範囲の質量スペクトルが測定出来ることにあるため、測定感度及び測定質量範囲を考慮し、走査間隔4秒、及び走査速度1-1200m/e/10sec.を、定量性の検討のためのMC設定条件とした。

#### 5-2 測定濃度範囲

Phenanthreneを段階的に添加し、測定されるピーク面積の増加率が一定である範囲、すなわち一次加成性がなりたつ物質添加量の範囲を測定範囲とした。

表一2及び図一8にphenanthreneを2.6ngから90ngまで添加した場合のピーク面積の変化を示す。イオンマルチプライヤーの印加電圧を変化させることにより一次加成性がなりたつ測定範囲は異なるが、検出下限域における測定範囲は、2.6ngから30.5ngの間であった、この区間内におけるピーク面積と添加量の間



相関係数は、 $r=0.999$ であり変動は、 $Vy.x=4.062$ であり、非常に良い直線性を示している。MC測定における定量性の検討は、この測定範囲で行うこととした。

表-2 PhenanthreneのMC測定における定量範囲

Standard (ng)	Peak Area ( $10^4$ mv) m/e=178
2.6	8.1798
3.6	12.166
5.6	13.754
10.4	32.403
15.5	49.235
20.4	65.070
25.5	80.119
30.5	40.908
40.0	110.03
50.0	121.29
60.0	139.32
70.0	147.75
80.0	156.70
90.0	165.13

Regression Line Standard 2.6ng.....30.5ng  
 $y = -0.65 + 3.16x$   
 $n=8, Vy.x=4.062, r=0.999$

Back ground level  $2.2302 \times 10^4$  mv

95% confidence interval of y

- 8.1798 ± 2.7718
- 12.166 ± 2.6383
- 13.754 ± 2.6383
- 32.403 ± 1.8967
- 49.235 ± 1.6854
- 65.070 ± 1.8812
- 80.119 ± 2.3979
- 94.908 ± 3.0638

GC-MS conditon :

- Model; LKB 9000B
- Column Temp.; 180°C Packing; 2wt. % OV-1
- Support; Chromosorb W Mesh; 60/80
- Treatment; AW DMCS
- Carrier Gas; He Flow Rate; 30ml/mln.
- Injection Temp.; 260°C
- Separater Temp.; 260°C
- Elec. Energy; 70eV Elec. Curr.; 240μA
- Acc. H. V.; 3.4KV Elec. Multi. H.; 3.5KV
- Slit; 0.9, 0.1 Scan Speed; 1-1200m/e/10sec.
- Scan Area; 90-260m/e Scan Intervai 4 sec.

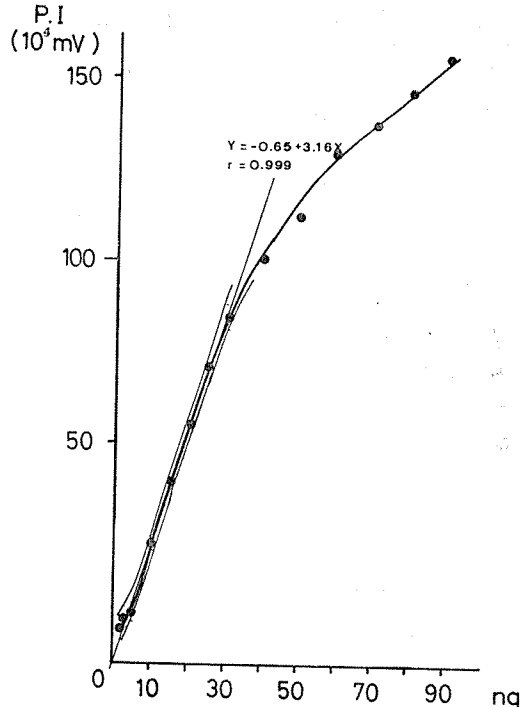


図-8 PhenanthreneのMC測定における定量範囲

P. I : Peak Intensity

### 5-3 MC測定による定量分析の信頼性について

GC-MS/SIMによる定量分析においては、イオン化室内における測定物質の分圧により、開裂パターンが変化することが考えられるため、測定対象物質と同一の保持時間(RT)をもち、同一化学構造をもつ、重水素多重標識化合物を内部標準として用いる必要があるとされているが、限定された測定範囲内においては、開裂パターンの変化は無視でき、絶対検量線法による定量も行なわれている。MC測定による定量分析において、絶対検量線法を使用する場合、一回のMC測定単位(電算の指示による測定開始より測定終了まで)内で測定を行えば、表-1に示すような再現性を示すが、複数のMC測定間では、変動率は10%をこえることがあるため(表-3)MC測定においては、絶対検量線法による定量分析は、不適当と考えられる。

この結果、MC測定による定量分析には、内部標準法を用いる必要がある。又内部標準物質としては、重水素多重標識体が最適と考えられるが、同一のMC測定単位内では、測定値の変動は少なく、かつMC測定は、SIM測定と異なり、広範囲のm/eの測定が可能であることから、分子量も大きく異なり、かつR、T

表—3 MC測定間のピーク面積の再現性について

No.	Phenanthrene ng	P. T. 10 <sup>4</sup> mV	SA/ISA ISm/e188	SA/ISA ISm/e230
1	24.6	20.665	1.15	1.79
2	24.6	16.022	1.12	1.64
3	24.6	20.254	1.09	1.65
	ave.	18.98	1.12	1.69
	S.D	2.10	0.0245	0.0695
	CV%	11.0566	2.187	4.044

も異なる化合物を内部標準として用いる定量分析法について、検量線の95%信頼区間の測定値に対する百分率(z/y%)を指標に、その信頼性の検討を行なった結果を表—4に示す。又検討対象とした定量分析法

- 1) GC-MS/MIDによる内部標準法  
内部標準: Phenanthrene-d<sub>10</sub>
- 2) GC-MS/MC物質による内部標準法

表—4 測定法間の有意差検定(z/y%を指標とする)

Concentration	Methods		
i/j	1	2	3
1	4	4	4
2	3	4	4
3	3	4	3
4	3	4	3
5	4	4	4
6	4	5	4
7	5	8	7
8	10	11	10
9	18	19	18
10	29	47	52

ANOVA table (j=2, 4, 5)

	SS	df	F ratio
Concentration	4142.53	9	32.56*
Methods	46.87	2	1.66
Error	254.47	18	
Total	4443.87		

- Methods 1 : SIM Internal Standard Methods  
(Phenanthrene-d<sub>10</sub>)
- 2 : MC Internal Standard Methods  
(Phenanthrene-d<sub>10</sub>)
- 3 : MC Internal Standard Methods  
(o-Terphenyl)

Concentration 1 : 41, 2 : 36.9, 3 : 28.7, 5 : 24.6  
6 : 20.5, 7 : 16.4, 8 : 12.3, 9 : 8.2,  
10 : 4.1

\* 2元配置分散分析は相互作用がないとして計算した

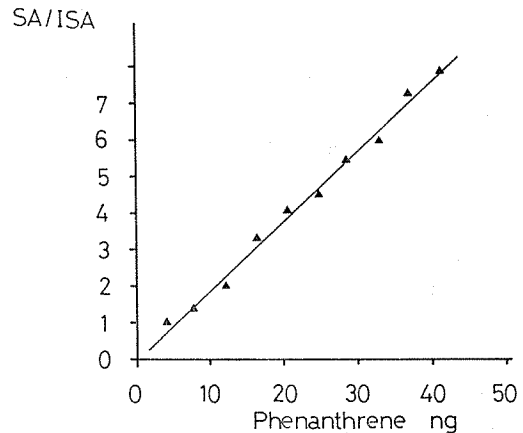
内部標準物質: Phenanthrene-d<sub>10</sub>

- 3) GC-MS/MCによる内部標準法

内部標準物質: o-Terphenyl

による4.1ngから41ngまでの検量線及び検量線の信頼区間を、各々図—9, 10及び11, 表—5, 6及び7に示す。

表—4は、定量分析法と、濃度を因子とし、相互作用を考えず、二元配置の分散分析の結果である。誤差分散に対し、分析方法間には、有意水準5%で有意ではなく分析方法により、差はないといえる。GC-M



図—9 SIM 内部標準法における検量線

GC-MS Condition :

Model LKB 9000B  
Column Temp. 180°C Packing 2wt% OV-1  
Support Chromsord W Mesh 60/80  
Treatment AW DMCS  
Carrier Gas He Flow Rate 30ml/min.  
Injection Temp. 260°C  
Separator Temp. 200°C Ion Box Temp. 290°C  
Elec Energy 70eV Emit. Curr. 240μA  
Acc H. V. 3.4KV Elec. Multi H. V. 2.35KV  
Slit 0.1 0.9 0.1  
Determined m/e; 178 188

Sによる最適定量分析法である重水素多重標識体を内部標準とするSIM測定による定量による定量分析と、MC測定による内部標準法は、検量線の信頼区間

から見ると、同等の精度を有しており、MC法は定量分析法として用いることが可能であると考えられる。

表-5 SIM内部標準法の検量線

I. S : Phenanthrene-d<sub>10</sub> m/e=188 20ng

No.	Phenanthrene ng (x)	SA/ISA (y) 95%	Confidence Interval of y (z)	Z/y %
1	41	7.84	0.29	4
2	36.9	7.27	0.25	3
3	32.8	5.98	0.21	3
4	28.7	5.42	0.18	3
5	24.6	4.47	0.16	4
6	20.5	4.09	0.16	4
7	16.4	3.36	0.18	5
8	12.3	2.00	0.21	10
9	8.2	1.40	0.25	18
10	4.1	1.00	0.29	29

Regression Line  $y=0.191x-0.021$   $r=0.995$   $V_{yx}=0.047$

表-6 MC内部標準法の検量線 I. S: Phenanthrene-d<sub>10</sub> m/e=188 20ng

I. S : Phenanthrene-d<sub>10</sub> m/e=188 20ng

No.	Phenanthrene ng (x)	SA/ISA (y) 95%	Confidence Interval of y (z)	z/y %
1	41	2.01	0.09	4
2	36.9	1.69	0.07	4
3	32.8	1.60	0.06	4
4	28.7	1.44	0.05	4
5	24.6	1.21	0.05	4
6	20.5	0.93	0.05	5
7	16.4	0.64	0.05	8
8	12.3	0.56	0.06	11
9	8.2	0.36	0.07	19
10	4.1	0.19	0.09	47

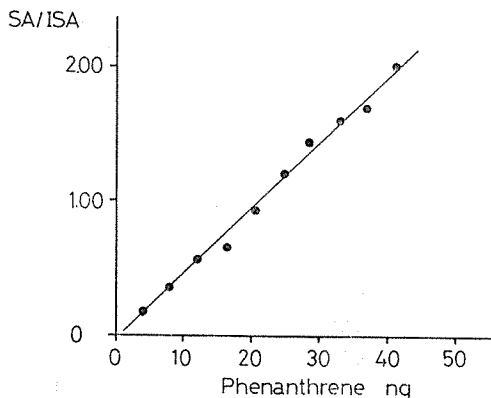
Regression Line  $y=0.05x-0.56$   $r=0.995$   $V_{yx}=0.0045$

表-7 MC内部標準法の検量線

I. S : o-Terphenyl m/e=230 20ng

No.	Phenanthrene ng (x)	SA/ISA (y) 95%	Confidence Interval of y (z)	z/y %
1	41	3.01	0.12	4
2	36.9	2.53	0.10	4
3	32.8	2.32	0.08	3
4	28.7	2.15	0.07	3
5	24.6	1.67	0.06	4
6	20.5	1.45	0.06	4
7	16.4	0.99	0.07	7
8	12.3	0.82	0.08	10
9	8.2	0.55	0.10	18
10	4.1	0.23	0.12	52

Regression Line  $y=0.074x-0.097$   $r=0.997$   $V_{yx}=0.0076$



図—10 MC 内部標準法の検量線

I. S : Phenanthrene-d<sub>10</sub> m/e=188

GC-MS Condition :

Column Temp. 180°C Packing 2wt. % OV-1  
 Support Chromosorb W Mesh 60/80  
 Treatment AW DMCS  
 Carrier Gas He Flow Rate 30ml/min  
 Injection Temp. 260°C  
 Separator Temp. 200°C Ion Box Temp. 290°C  
 Elec. Energy 70eV Emit. Curr. 240μA  
 Acc. H. V. 3.4KV Elec. Multi. H. V. 3.04KV  
 Slit 0.1 0.9 0.1  
 MC Scan Area 90-260 m/e  
 MC Scan Speed 1-1200 m/e/10sec.

Column Temp. 180°C Packing 2wt. % OV-1  
 Support Chromosorb W Mesh 60/80  
 Treatment AW DMCS  
 Carrier Gas He Flow Rate 30ml/min  
 Injection Temp. 260°C  
 Separator Temp. 200°C Ion Box Temp. 290°C  
 Elec. Energy 70eV Emit. Curr. 240μA  
 Acc. H. V. 3.4KV Elec. Multi. H. V. 3.04KV  
 Slit 0.1 0.9 0.1  
 MC Scan Area 90-260 m/e  
 MC Scan Speed 1-1200 m/e/10sec.

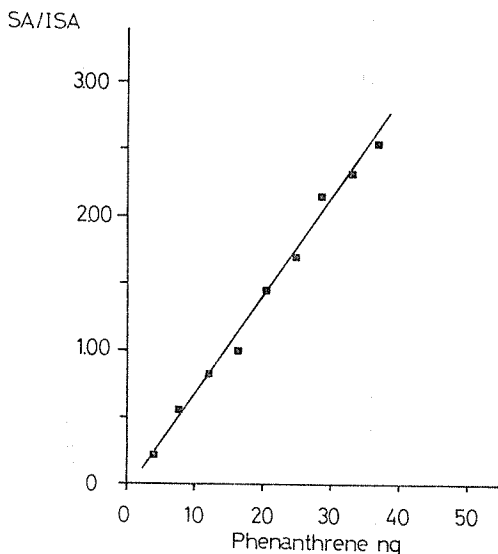
## 6. おわりに

環境中の化学物質の分析及び工場排水の成分分析において、GC-MSによる有機化合物の定性的な分析が行なわれている<sup>3)</sup>。又GC-MSで測定されるマスペクトルの電算処理による物質検索システムの開発も進んでいる。<sup>4)</sup>MCの測定による定量分析法は、一回の測定において内部標準物質を一種類添加することにより、定性分析と定量分析を同時に行えるデータを得ることが可能である。本報告は、一定の測定範囲においては、MC測定により定量分析が可能であることを示したが、環境中又は工場排水中の有機成分の同時定性定量分析のためには、測定対象物質が多数あると考えられ、かつその濃度レベルも異なると考えられるため、測定可能な濃度範囲を、拡大する必要があると考えられる。

今後検量線の数学的などりあつかいを含め検討を進めてゆく予定である。

## 文 献

- 1) 吉住秀夫, 立松みどり, 後藤裕子, 村田愛子, 鈴木信言, 立松晃: 「消炎剤 EMD-26644 の定量分析—試料調製法および内部標準物質の検討」 第13回有機化合物のマスペクトロメトリー討論会, 12. (1978).
- 2) 高橋誠二, 滝本まゆみ, 武田常蔵, 村田武: 「農薬へのマスマグメントグラフィーの応用」 島洋評論 vol. 34, No. 2, 3, 191. (1977).
- 3) 古賀実, 篠原亮太, 貴戸東, 衛藤修一, 堀悌二, 秋山高: 「水道水および河川水中微量有機物の検索」 水質汚濁研究 vol. 1, No. 1, 23. (1978).
- 4) 田窪芳博, 山本武, 加藤敬香: 「自動検索システムの最適化」 第13回有機化合物のマスペクトロメトリー討論会, 31. (1978).



図—11 MC 内部標準法の検量線

I. S : o-Terphenyl m/e=230

GC-MS Conition :

Model LKB 9000B

## リン酸分析における硫酸の影響の検討

—最適測定時間の数学的解析—

二宮 勝幸\*

## 要 旨

モリブデン青によるリン酸イオンの吸光光度定量法において、J I S<sup>1)</sup>では、発色後10~15分放置してから、吸光度を測定するとされているが、最適測定時間について、数学的解析を行なったところ、50~60分経過後測定することにより、より安定した吸光度が得られることが明らかとなった。また、全リン分析法の硫酸・硝酸による分解において、硫酸添加量が1.5/50ml程度になるように調製し、硫酸の白煙が発生するまで加熱分解を行なえば、硝酸イオンの残留の影響がなく、硫酸イオンによる誤差も少ないことが明らかとなった。

## 1. 目 的

近年、東京湾等の閉鎖性水域では、富栄養化が進行し、その原因物質とみられるチッソ・リンの排出規制の必要性が論じられている。リン酸イオンの分析に関しては、モリブデン青による吸光光度定量法について、河村ら<sup>2)</sup>が検討しており、J I S等に採用されている。河村によれば、安定した発色の得られる硫酸濃度の幅、(以下、安定発色域とする)は狭いとされているが、発色後の放置時間を長くすると安定発色域が広がる傾向があることがわかった。そこで本報告は、モリブデン青によるリン酸イオンの吸光光度定量法における硫酸濃度に対する吸光度の経時変化、および、リン酸イオン濃度の違いによる吸光度の経時変化について検討した。更に、全リン分析法に関しては、分解方法と分解後のリン酸の分析方法が検討されている<sup>3),4),5)</sup>るが、今回、硫酸・硝酸分解後モリブデン青によるリン酸イオン分析法の問題点と考えられる硫酸イオンおよび残留硝酸イオンの影響と最適硫酸添加量について検討を行ない、知見を得たので報告する。

## 2. 実験方法

## 2-1 試 薬

リン酸一カリウム、モリブデン酸アンモニウム、塩化第一スズ、硝酸カリウムは特級を、硫酸、硝酸、塩酸、アンモニア水は超特級を用いた。

## 2-2 調製試薬

1%モリブデン酸アンモニウム溶液；モリブデン酸アンモニウム  $(\text{NH}_4)_6\text{Mo}_7\text{O}_{24} \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ , 10g を蒸留水に溶解し、1000mlとした。

5 N硫酸溶液；硫酸を調製し、標準用水酸化ナトリウム溶液で標定した。

その他の調製試薬は、J I S-K0102に従って調製した。

## 2-3 操 作

リン酸イオンの分析は、J I S-K0102・27. 1. 吸光光度法(a)法に従って行なった。全リン分析法に関しては、三角フラスコに試料を取り、硫酸と硝酸を加えて砂浴上で加熱分解後、p-ニトロフェノールを指示薬として、アンモニア水で中和し、以下、リン酸イオンと同様に分析した。なお、発色の全操作は、室温25℃の中で行なった。

分光光度計は、日立製 200-10型を、セルは石英製10mmのものを使用した。

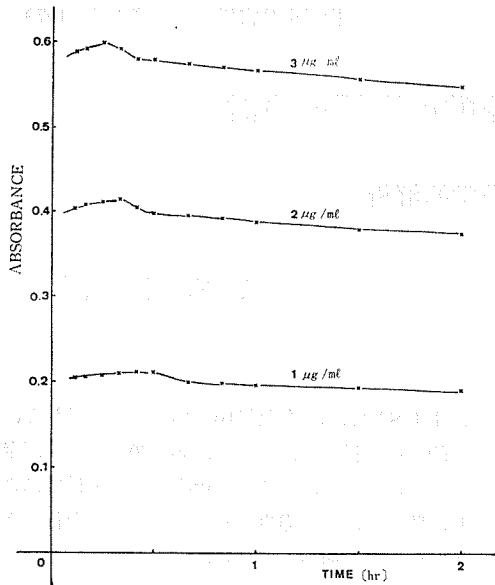
## 3. 結果と考察

## 3-1 リン酸イオン濃度の違いによる吸光度の経時変化

モリブデン酸アンモニウム濃度-0.15%、硫酸濃度-0.65Nの条件で、リン酸イオン濃度 1, 2および3  $\mu\text{g}/\text{ml}$ における吸光度の経時変化を図-1に示す。図

The Effect of sulfuric Acid for Determination Methods of Orthophosphate.

\* Katsuyuki Ninomiya, 横浜市公害研究所水質部門

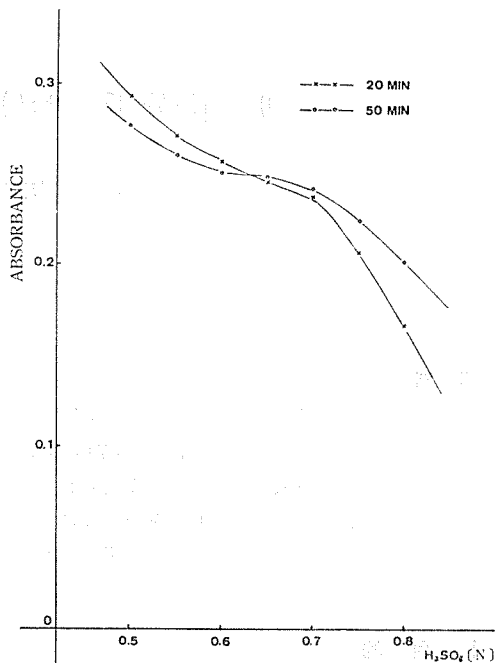


図一 各リン酸濃度における吸光度の経時変化

1からモリブデン青の吸光度には最大値があり、それ以降は時間の経過とともに吸光度は徐々に減少し安定して行くこと、リン酸イオン濃度が低くなるに従い吸光度が最大を示す時間が遅くなること、そして、いずれも40~50分経過すると安定していることがわかった。

### 3-2 安定発色域の経時変化

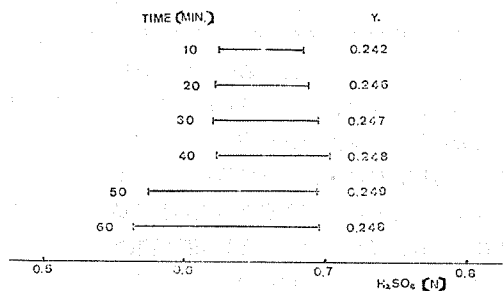
モリブデン青の発色は、硫酸濃度とモリブデン酸アンモニウム濃度に大きく影響され、特に安定した発色の得られる硫酸濃度の幅が狭いことが知られている。安定発色域の経時変化を調べるため、モリブデン酸アンモニウム濃度を0.15%に固定し、硫酸濃度0.5~0.8 Nの範囲について、発色後10分間隔で60分まで吸光度を測定した。図-2には、発色後20分と50分経過後における吸光度値を示す。発色後20分と50分の測定値を比較した場合、両曲線が交叉している付近では吸光度の差が小さいこと、また、硫酸濃度が低い程、吸光度の減少の割合が大きく、硫酸濃度が高い方では逆に吸光度の増加の割合が大きいく、即ち、発色後20分より50分経過した方が硫酸濃度の広い範囲で吸光度が比較的安定した値が得られることがわかった。そこで、数学的手法を用いて、安定発色域の経時変化を求めて



図二 各硫酸濃度における吸光度の経時変化

みた。

硫酸濃度0.55~0.75 Nの範囲で、硫酸濃度に対する吸光度を3次曲線近似し、その変曲点を求め、これを安定発色域の中心とみなした。そして、この変曲点における吸光度値の上・下限(±0.005注)に対する硫酸濃度の幅を安定発色域とした。安定発色域の経時変化と変曲点の吸光度Y<sub>c</sub>を図-3に示す。これから発色後



図三 安定発色域の経時変化と変曲点の吸光度Y<sub>c</sub>

50分経過すれば、安定発色域が広くなることが明らかとなった。

注) 上下限値を 0.005に設定した意味について。

3次曲線近似の手法として、ミニマックス法を用いた。同じ硫酸濃度の範囲で、変曲点近傍を3次曲線とみなし近似曲線を求めると、X<sup>3</sup>の係数の大きい曲線ほど近似の精度が悪くなる。そのため、各時間別に求めた近似曲線は精度が同一でなくなりその結果から得られる安定発色域を比較すると無理が生じる。そこで、近似の精度

が同一になるように、各時間別に硫酸濃度の範囲を決め、近似曲線を求めた。そして、近似曲線は各々決められた硫酸濃度の範囲内で近似が成立しているため、安定発色域を定義する吸光度の上下限値は、その範囲内になければならない。このような観点から上下限値を0.005とした。

### 3-3 硝酸イオンと硫酸イオンの影響

硫酸・硝酸分解による全リン分析法の問題点として、分解試料中に残留する可能性のある硝酸イオン（これはモリブデン青を退色させる性質を持つ）と正の誤差を生じさせる添加した硫酸イオン量の影響があげられる。そこで、リン酸イオン濃度  $2\mu\text{g}/\text{ml}$  について、硝酸イオンと硫酸イオンの添加量を変えて、吸光度の経時変化を測定した結果を図-4に示した。図-

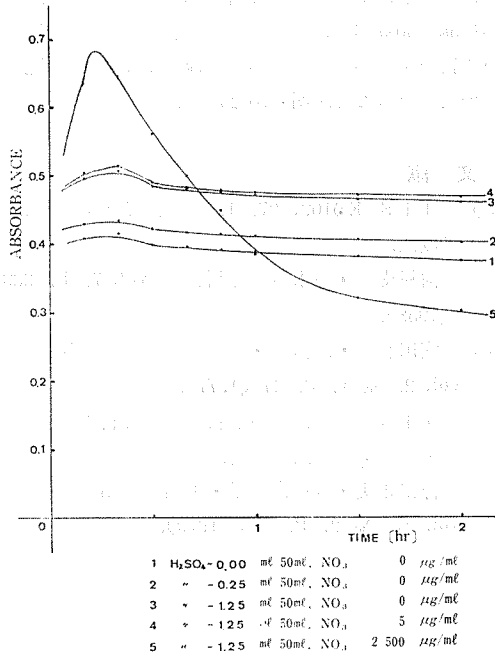


図-4 硫酸イオンと硝酸イオンによるモリブデン青の経時変化

4から硫酸イオンは大きな正誤差を生じさせること、硝酸イオン濃度は数千 $\mu\text{g}/\text{ml}$ のオーダーでは発色速度が大きく、しかも退色が激しいが、数 $\mu\text{g}/\text{ml}$ 程度では、ほとんど影響を受けないことがわかった。

### 3-4 硫酸・硝酸分解での硝酸イオンの残留性

3-3から硝酸イオンがモリブデン青の発色に大きな影響を持つことがわかった。そこで硫酸・硝酸分解において、硫酸の添加量と分解の程度を変えて、硝酸イオンの残留性を調べることにした。硝酸の添加量は  $10\text{ml}$  として、硫酸の添加量を  $1$  および  $5\text{ml}/100\text{ml}$ 、分解は硫酸白煙発生まで行なわないもの（以下、半分解という）と硫酸白煙発生までのものについて、残留硝酸イオン濃度を測定した結果を表-1に示す。これから、硫酸白煙発生まで分解を行なえば、硫酸の添加量によらず硝酸イオンの影響は無視できるが、硫酸添加量が多いと硫酸白煙発生まで分解を行なわなくても、

表-1 残留硝酸イオン濃度

No.	硫酸添加量 (ml/100ml)	分解	残留硝酸イオン濃度 ( $\mu\text{g}/\text{ml}$ )	標準偏差
1	1	半分解	17000	12000
2	5	"	13	13
3	1	硫酸白煙	3.5	1.8
4	5	"	3.4	1.0

注) 残留硝酸イオン濃度は、3回の実験の平均である。

残留硝酸イオンの明らかに少ないことがわかる。更に、硫酸添加量が多い方が汚濁の大きな試料の分解にも適していると思われる。

### 3-5 最適硫酸添加量

3-3で、硫酸イオンに正誤差があることがわかった。そこで、硫酸添加量の違いによる吸光度の変化について調べることにした。実験は、リン酸イオン濃度  $1.5\mu\text{g}/\text{ml}$  について、硫酸を  $0 \sim 3.5\text{ml}$  添加後、p-ニトロフェノールを指示薬として、アンモニア水で中和し、以下、J I S-K0102・27. 1. の(a)法に従って行なった。その結果、図-5に示すように、硫酸添加量が  $0 \sim 1.5\text{ml}/50\text{ml}$  までは硫酸添加量の違いによる吸光度の変化が大きいが、 $1.5\text{ml}/50\text{ml}$  以上では、その影響が少ないことがわかった。しかし、添加した硫酸を中和するのに要するアンモニア水量、そして中和に伴

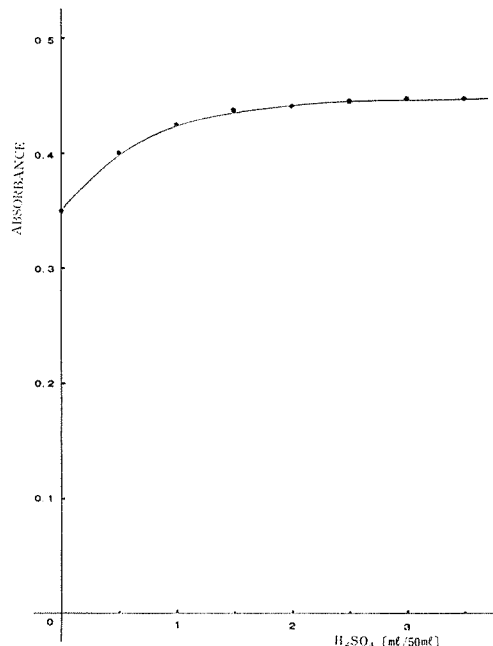


図-5 硫酸添加量の影響

う発熱を考慮すると、硫酸添加量は 1.5~2.0ml/50ml 程度が妥当と思われる。実際の分析操作をする場合、例えば、試料を100ml採取し、硫酸・硝酸分解後100ml にメスアップして、その40mlについて比色をする時、硫酸添加量を 4mlにするのが望ましい。

図-6 に、硫酸無添加の場合と上記操作による場合の検量線を示す。図-6 から、硫酸を添加した場合の

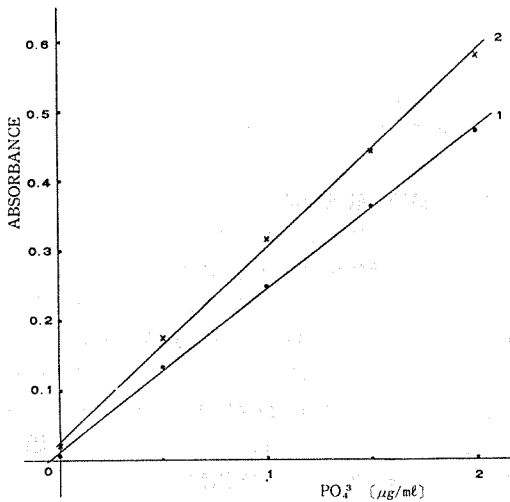


図-6 硫酸無添加と添加の検量線

1. 硫酸無添加 2. 硫酸添加

方が、無添加の場合に比較して、吸光度で約25%増加することが明らかとなった。

#### 4. まとめ

モリブデン青によるリン酸イオンの吸光度定量法の吸光度の経時変化から得られたグラフについて、数学的解析を行なった結果、発色後50~60分経過してから吸光度を測定することが望ましいこと、また、硫酸・硝酸分解による全リン分析法において、硫酸添加量が1.5ml/50ml程度になるように調製すると硝酸イオンの残留の影響がなく、しかも、硫酸イオンによる誤差も少なくなることが明らかとなった。

#### 文 献

- 1) J I S-K0102, 27. 1. リン酸イオンの吸光度光度法.
- 2) 河村文一・並木博; 分析化学 vol. 7. P. 238, (1958).
- 3) 安田和彦・武富真・堀梯二; 全国公害研誌 vol. 2. No. 1, P. 47 (1977).
- 4) J I S改正のための資料—水質分析方法検討試験・全リン分析法の検討.
- 5) 浮田正夫・蔵重由美子・中西弘; 用水と廃水 vol. 21, No. 2, P. 156 (1979).



# 固定床式活性汚泥法の検討

下村 光一郎\*

## 要 旨

捺染、染色等の有機系排水を凝集処理した場合、その難処理物質の代表として、水溶性糊剤等があげられる。今回はこれら難処理物質の処理対策を前進させるべく、固定床式活性汚泥法の検討を人工下水を用いて行った。その結果、BOD濃度負荷  $600 \pm 62 \text{ mg} / \ell$  が、処理水で  $38 \pm 27 \text{ mg} / \ell$  となり、満足すべき処理結果を得た。反面、無機性窒素、磷酸イオンについては、処理効果が少ないという結果が得られ、富栄養化の防止には、他の処理方法との併用が必要と考えられる。

## 1. 目的

最近、横浜の地場産業である捺染・染色・精練事業場から、難処理物質である水溶性高分子含有排水の処理対策として、コンパクトで、管理が容易で余剰汚泥発生量の少ない処理装置に対する要望が強い。そこで、従来の浮遊式標準活性汚泥法と比較する為に、人工下水を用い、①微生物の種類が多く、生物密度も高い。②汚濁負荷変動に強い。③pH変動に幅広い緩衝作用がある。④糸状菌によるバルキングの心配がない。⑤余剰汚泥の発生量が少ない等の利点を有するとされる、固定床式活性汚泥処理法をとりあげ、本法が高負荷有機系事業所排水にどの程度対応出来るかを知る為に、BOD負荷  $0.6 \text{ kg} / \text{m}^3 / \text{日}$  の条件で行い、若干の知見を得たので報告する。

ある。槽内部は、4槽に仕切られた上向越流式の曝気槽となっており、各曝気槽に10枚の固定床を設置してある。固定床は写真-2に示すように、ポリプロピレンとポリ塩化ビニリデン繊維を偏平マット状にしたも

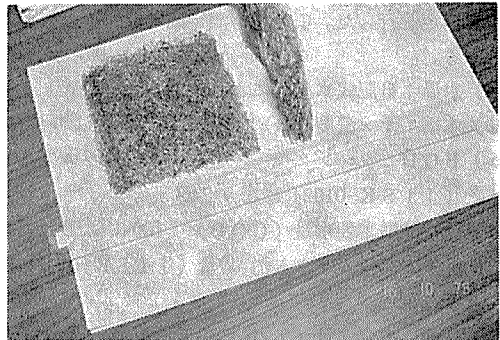
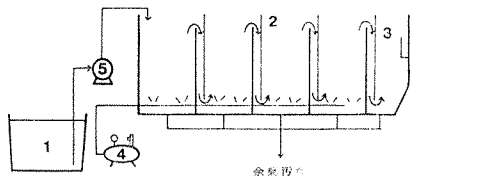


写真-1 固定床テストピース

## 2. 方法

### 2-1 装置

実験装置を図-1に示した。槽は鉄製で、長さ222×巾70×深さ70cmの大きさを持ち、槽容積は1000ℓで



1. 原水溶解槽 (円形  $1 \text{ m}^3$ )    2. 角型曝気槽 ( $1 \text{ m}^3$ )    3. 沈殿槽 ( $120 \text{ L}$ )  
 4. 曝気用ブロワー ( $250 \text{ L} / \text{min}$ )    5. 原水揚水ポンプ ( $42 \text{ L} / \text{Hr}$ )

図-1 実験装置



写真-2 固定床支持体と床

A Study on a Fixed Bed Type Activated sludge Process.

\* Koichiro Shimomura, 横浜市公害研究所水質部門

ので、床1枚の大きさは長さ50×巾50×厚さ2.5cmの6250cm<sup>3</sup>である。10枚ずつ固定した床の総容積は0.25m<sup>3</sup>である。原水溶解槽は、丸型ポリカーボネート製1m<sup>3</sup>の槽であり、原水は30ℓ/分の水中ポンプにより循環攪拌し、定量ポンプにより42ℓ/時で、本曝気槽へ移送した。また、処理温度は最低水温を20°Cに維持するように各曝気槽に、サーモスタット付ヒーターを入れた。

## 2-2 原水の調製

原水は、大豆脱脂蛋白（レシチンを主成分とする有効成分60%、窒素含有量16%の市販品）と蔗糖を、生物学的酸素要求量（BOD）比で、1：1に混合したものを水道水で溶解し、BOD濃度600mg/ℓに調製した。栄養バランス<sup>1)</sup>の点から、BOD：窒素量：燐量は100：5：1<sup>2)</sup>になるよう、窒素源としては尿素を、燐源としては燐酸一カリウムを添加し、毎日調製した。

## 2-3 水質測定

処理効果を知る為に、原水溶解槽、各曝気槽4槽、処理沈殿槽の6ヶ所で、項目別に1週間2回～6回の水質測定を行った。項目及び測定回数は以下のとおりである。

- a) 水温：自記式水温計により全期間。
- b) 水素イオン濃度(pH)：ガラス電極法により毎日。
- c) BOD：ウィンクラー・アジ化ナトリウム変法（J I S K-0102）により2回/週。
- d) 化学的酸素要求量(COD)：100°Cにおける過マンガン酸カリウム消費量（J I S K-0102）により毎日。
- e) 無機性総窒素量(T-N)：デバルタ合金・インドフェノール法により2回/週。
- f) 有機性窒素量(Org-N)：ケルダール・インドフェノール法により2回/週。
- g) アンモニア性窒素量(NH<sub>4</sub>-N)：水蒸気蒸留・インドフェノール法により2回/週。

h) 亜硝酸・硝酸性窒素量(NO<sub>2</sub>・NO<sub>3</sub>-N)：T-NとNH<sub>4</sub>-Nの差によって求めた。

i) 燐酸イオン(PO<sub>4</sub><sup>3-</sup>)：モリブデン青法。

(J I S K-0102)により2回/週。

なお、窒素化合物、燐化合物は同じ日に測定した。

## 2-4 生物相調査

固定床に付着した生物相の調査を行う為に、写真-1に示す10cm角、厚さ1.5cmの固定床と同質のテストピースを入れ、下水試験法に定める方法に従って、1回/週の頻度で測定を行った。

## 2-5 試験期間

20日間を調整期間として、25日間を本試験とした。

## 3. 結果及び考察

### 3-1 水質測定結果

水温は、サーモスタット付ヒーターを使用し、平均で20.6±0.7°Cと安定していた。

pHは、表-1及び図-2に示すように、槽を移行するに従い、僅かに高くなり、5.7±0.5の原水が、処

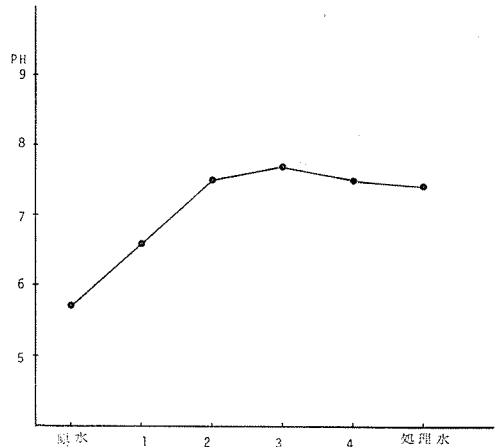


図-2 PHの槽内変動(全実験期間中の平均値)

1. 2. 3. 4: 曝気槽 No.

表-1 期間中平均による槽内変動

単位 mg/ℓ

	原水	第1槽	第2槽	第3槽	第4槽	処理水
PH	5.7±0.5	6.6±0.1	7.5±0.1	7.7±0.1	7.5±0.3	7.4±0.3
BOD	600±62	380±73	190±62	110±72	50±30	38±27
COD	440±17	140±11	110±24	69±30	50±28	30±12
T-N	74.7±8.5	70.0±19.5	71.1±9.1	65.7±10.1	49.4±6.3	50.5±5.4
NH <sub>4</sub> -N	4.4±1.2	39.2±6.7	41.9±7.8	47.4±6.6	35.2±7.4	33.8±7.9
NO <sub>3</sub> -NO <sub>2</sub> -N	4.1±2.2	4.5±5.8	5.2±5.5	4.4±3.9	12.9±7.8	15.2±6.6
Org-N	66.2±7.7	26.3±11.4	24.0±3.9	13.9±7.3	2.0±2.3	1.5±1.6
PO <sub>4</sub> <sup>3-</sup>	20.9±1.0	14.6±3.4	16.0±3.3	20.2±6.8	21.0±7.4	15.5±4.3

理水で、 $7.4 \pm 0.3$  となり、期間中の変動幅も少なく安定していた。

BODは、表-1及び図-3に示すように、期間平均で、原水が $600 \pm 62 \text{ mg/l}$ であり、第1槽目で、40%近くの $380 \pm 73 \text{ mg/l}$ となり、第2槽目で約70%に減少し、 $190 \pm 62 \text{ mg/l}$ となり、第3槽目で、80%の $110 \pm 72 \text{ mg/l}$ 、第4槽目で、92%の $50 \pm 30 \text{ mg/l}$ 、処理水で、94%の $38 \pm 27 \text{ mg/l}$ となった。また、原水及び処理水の経日変化は、図-4に示したとおりであり、8日目より除去率が僅かに低下したが、22日目より回復が見られた。しかし、期間平均のBOD除去率は、94%と高く、処理水は、県条例の $60 \text{ mg/l}$ を大きく下回った。

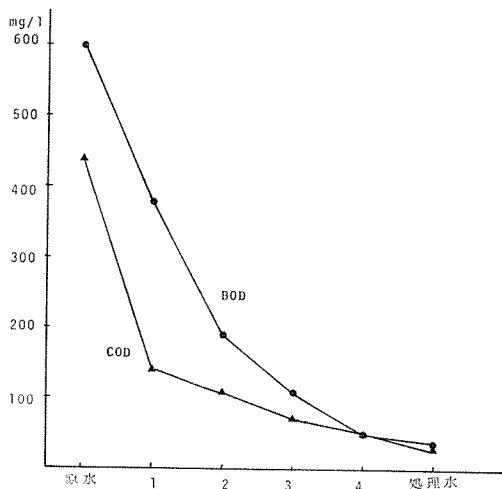


図-3 BOD および COD の槽内変動  
1. 2. 3. 4: 曝気槽 No.

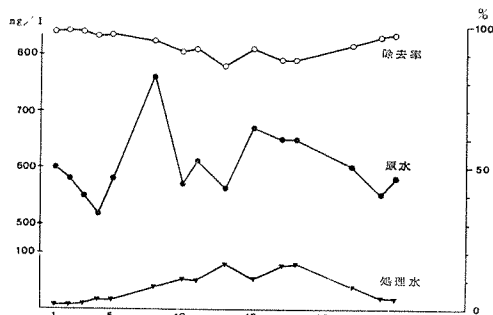


図-4 BOD および BOD 除去率の経日変化

CODについても表-1及び図-3に示すようにBODと同様の傾向を示し、原水で $440 \pm 17 \text{ mg/l}$ であったものが、第1槽から第4槽目と槽を移行するに従って、 $140 \pm 11$ 、 $110 \pm 24$ 、 $69 \pm 30$ 、 $50 \pm 28$ 、 $30 \pm 12 \text{ mg/l}$

と減少し、処理水では、93%と高い除去効果のあることがわかった。

窒素化合物の結果は、表-1に示すとおりであり、T-Nでは、 $74.7 \pm 8.5 \text{ mg/l}$ の原水が、処理水では $50.5 \pm 5.4 \text{ mg/l}$ と、処理効果は低かった。また、 $\text{NH}_4\text{-N}$ では、逆に槽を移行するに従い高くなり、原水で $4.4 \pm 1.2 \text{ mg/l}$ であったものが、第3槽目で最も高く、 $47.4 \pm 6.6 \text{ mg/l}$ となり、第4槽目、処理水と減少し、処理水では $33.8 \pm 7.9 \text{ mg/l}$ となった。 $\text{NO}_2 \cdot \text{NO}_3\text{-N}$ では、槽を移行するに従い、わずかながら増加し、原水で、 $4.1 \pm 2.2 \text{ mg/l}$ であったものが、処理水で、 $15.2 \pm 6.6 \text{ mg/l}$ となった。Org-Nでは、原水で、 $66.2 \pm 7.7 \text{ mg/l}$ であったものが、第1槽目で $26.3 \pm 11.4 \text{ mg/l}$ にまで減少し、高い処理効果を示し、第2槽、第3槽目まではゆるやかな減少となり、第4槽目で急な減少となり、更に減少して処理水では、 $1.5 \pm 1.6 \text{ mg/l}$ となった。 $\text{NH}_4\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2 \cdot \text{NO}_3\text{-N}$ 、Org-Nの各槽における割合を、図-5に示した。こゝろ窒素化合物の動態は、有機性窒素が分解して $\text{NH}_4\text{-N}$ となり、その一部が揮散により消失し、硝酸還元菌の作用と相まって、T-Nの減少が起ったものと考えられる。

$\text{PO}_4^{3-}$ は、表-1に示すように原水で、 $20.9 \pm 1.0 \text{ mg/l}$ であったものが、処理水で $15.5 \pm 4.3 \text{ mg/l}$ となり処理効果はほとんど認められなかった。

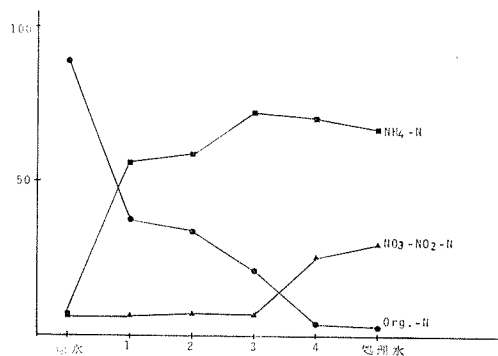


図-5 槽における窒素の動態  
1. 2. 3. 4: 曝気槽 No.

### 3-2 生物相調査結果

生物相の定量結果は表-2に示すとおりであり、優占種としては、繊毛虫類のVorticella spp., Aspidisca spp., 吸管虫類のpodophrya spp., 線虫類のNematoda spp., ケイ藻類のNitzshia palea, 分裂細菌のBegiatoa sp. が確認された。これらの優占種は主として、活性汚泥性の種であり、処理状況の良好であることを示すものである。横浜市内5ヶ所の下水処理場の10月から

表一2 固定床付着微生物の優占種名

織毛虫類	Vorticella spp.
	Aspidisca spp.
吸管虫類	Podophrya spp.
線虫類	Nematoda spp.
ケイ藻類	Nitzschia palea.
分裂細菌	Beggiatoa sp.

12月の平均生物相<sup>3)</sup>は、表一3に示すとおりであり、今回の実験結果は、表一4に示すように、これによく類似していることがわかった。また、生物相の定量結果より、Shanon<sup>4)</sup>の多様性指数(D. I)を求めると、2日目で1.2、11日目で0.7、17日目で1.2、23日目で2.5となり、これとBOD除去率との相関性も認められた。このことから、処理状況の良好なことが認めら

表一3 横浜市内5ヶ所下水処理場活性汚泥生物相

綱	目	出現生物	5処理場平均	5処理場(%)	
原 生 動 物	織毛虫類	Vorticella	1780	14.0	
		緑毛類	Epistylis	980	7.7
			Carchesium	93	0.7
			Pyxidium	3	0.2
	全毛類	下毛類	Aspidisca	5250	41.4
		Chilodonella	Chilodonella	74	0.6
			Litonotus	153	1.2
			Tracherophyllum	890	7.0
			Colpidium	1	0
			Dysteria	54	0.4
Microthrax	38		0.3		
鞭毛虫類	吸管虫類	Tokophrya	53	0.4	
	肉質虫類	根足虫類	Amoeba proteus	380	3.0
			A. spp	800	6.3
			A. radiosa	7	0.06
			Arcella	1160	9.1
			Euglypha	34	0.3
			Vahlkampfia	8	0.06
	動物性	鞭毛虫類	Bodo	0	0
			Poteriodendron	0	0
			Peranema	87	0.7
植物性			Entosiohon	547	4.3
鞭毛虫類	鞭毛虫類	Astasia	0	0	
		Prorocentrum	0	0	
輪虫類			303	2.4	
その他の後生動物			0	0	
織毛虫類	個体数		9316	73.4	
生物	総数		12695	100(%)	

(1972年10月~12月)

表—4 固定床付着生物相

No.	種 名	属 名	活性汚泥性*	出現頻度
1	Amoeba proteus	根 足 虫		2.18
2	Arcella	根 足 虫		10.0
3	Aspidisca	繊 毛 虫 (下 毛)	○	7.33
4	Carchesium	繊 毛 虫 (縁 毛)	○	0.83
5	Chaetonus	腹 毛 虫		0.17
6	Colurela	(後) 輪 虫		2.17
7	Entosiphon	鞭 毛 虫		1.0
8	Glaucoma	繊 毛 虫	×	12.83
9	Litonotus	繊 毛 虫 (全 毛)	△	0.67
10	Nematoda	(後)		23.38
11	Oxytricha	繊 毛 虫	△	6.17
12	Paramecium	繊 毛 虫 (全毛虫)	×	0.17
13	Peranema	鞭 毛 虫		15.1
14	Podophrya	繊 毛 虫 (吸管虫)	○	0.17
15	Rotaria			1.1
16	Stigeochromium			0.33
17	Synedra			2.83
18	Tokophrya	繊 毛 虫 (吸管虫)		0.17
19	Uronema			0.17
20	Vorticella	繊 毛 虫 (縁 毛)	○	5.5
21	Zoothamnium			7.3
				(99.47)
22	Zoogloea	雲 状 菌		
23	Sphaerotilus	糸 状 菌		
24	Beggiatoa	硫 黄 細 菌		

\* 活性汚泥性： ○：活性汚泥性（表面型） △：中間汚泥性 ×：非活性汚泥性（非表面型）

れた。また、今後生物処理維持管理上の指標として、次の式で表わされる生物相の数的要約である多様性指数 (D. I.) の適応が期待される。

$$D. I. : -\sum \frac{n_i}{N} \log_2 \frac{n_i}{N} \quad N; \text{総個体数} \\ n_i; i \text{ 目の種の個体数}$$

#### 4. ま と め

横浜市の地場産業である捺染、染色、精練事業場における難処理物質を含む排水の処理対策への応用の第1段階として、固定床式活性汚泥法を、従来の浮遊式標準活性汚泥法と比較する為に、人工下水を用いて実験を行った結果、BOD濃度負荷600mg/ℓでは、排出基準を充分満足する処理効果があることがわかった。また、従来の浮遊式標準活性汚泥法と比較すると、沈殿槽が小さくてすみ、返送汚泥もないことから、装置のコンパクト化と、管理の容易さの点が優れていると

言える。このことから、敷地面積が小さく、維持管理に充分な人手をかけられない、中小事業所では、有効な処理法と思われる。しかし、有機性窒素は少なくなったが、無機性窒素、磷酸イオンについては、除去効果が少なく、富栄養化の防止には、他の処理方法との併用が必要である。

#### 文 献

- 1) 田口 広：活性汚泥のバルキングと抑制対策 (4), 18 (1), P 3-15, (1977).
- 2) 市川邦介他訳 W. W. Eckenfelder：産業廃水の処理 P 151. 恒星社. (1970).
- 3) 横浜市下水道局, 水質管理年報, (1972).
- 4) Mac Arthur, R. H. and MacArthur, J. W. : On bird species diversity. Ecology, 42, 594-598 (1961).

## ポリビニルアルコール含有排水の処理方法の検討

(第2報)

遠田 和雄\* 野木 一男\*

## 要 旨

筆者らは当公害研究所報第2号<sup>1)</sup>で、ポリビニルアルコール(PVA)を含有する濃厚な排水の処理方法の一つとして、芒硝とホウ砂の併用による凝析処理方法を検討し、ピーカーテストにおける実験結果を報告した。その後、当処理方法を実際の排水に適用するために、スケールアップを行いながら実験を繰り返したところ、ピーカーテストにおける実験結果を再現することができた。またピーカーテストにおいて問題となった、PVA凝析物の塊化現象も乱流攪拌によって解決できた。これらの実験結果をもとにして、実用機を兼ねたモデルプラント一号機を作製し、同機により、凝析反応実験を行ったところ、ピーカーテストおよび中間スケールの実験結果と同様の結果が得られたので、それらの実験経過について報告する。

## 1. はじめに

所報第二号に報告したように、PVA含有濃厚排水を凝析処理する方法として、試料1ℓに対して、10%硫酸ナトリウム溶液<sup>\*\*</sup> 250ml (Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>として 19g/ℓ) および4%ホウ酸ナトリウム溶液 50~70ml (Na<sub>2</sub>B<sub>4</sub>O<sub>7</sub>・10H<sub>2</sub>Oとして1.5~2.1g/ℓ)を凝析剤として添加すれば、温度、pH<sup>\*\*\*</sup>等に殆ど影響を受けないでPVAを析出させ得ることが判明した。

このPVA凝析処理法を実際の排水に適用させるには、パイロットプラント規模の実験が必要であるため、昭和53年度初めより、排水中にPVAを含有している数社の繊維精練加工工場のうち、排水中のPVA含有率が最も高く、当凝析処理法を適用するのに最適と思われた工場をその代表として選び、次の2点

- (1) 現場規模における凝析法の再現性
- (2) 真空蒸発乾燥法によるPVA凝析物の取り出し方

に関して、実用化のための検討を開始した。本報では、(1)の項目について、最初は人力攪拌による凝析実験から始め、次に攪拌実験装置を使用して、装置化の

ための種々の条件を検討した後、実用機を兼ねたモデルプラント1号機を作製するまでの経過を報告する。なお、上記(2)の項目については、当所報の次号で報告する予定であるが、本報で再三ふれた、凝析反応による生成粒子の形状やpH条件等が、真空蒸発乾燥法と関連した要因となる。

## 2. 凝析反応装置の検討

## 2-1 実験 I

## 2-1-1 目的

室内実験で、10ℓ円筒型ガラス容器にて凝析反応を行った際に、生成した凝析物が攪拌軸を中心に同心円的に渦巻流動する間に凝析物の粒子どうしが結合して1個の団塊となる現象が確認された。PVAを2%含有する溶液の場合、上のような方法で凝析反応を行なうと、生成する凝析物の団塊が占める体積は水分を包含するため原液の20~30%の割合となった。実際の排水を処理するときは、1日の処理水量は、少なくとも数百リットルから10<sup>m</sup>程度の規模を想定しておかねばならない。その場合、20~30%もの凝析物の団塊が生成

## A Research on the Treatment of Poly Vinyl Alcohol in Industrial Waste Water (2).

\* Kazuo Enda, Kazuo Nogi, 横浜市公害研究所水質部門

\*\* 実装置化の検討実験からは薬品溶液の量をできるだけ削減するために15%溶液を使用した。

\*\*\* pHは、その後の検討で、より安定な凝析反応を起こし、また、凝析物の再溶解を防止するためにpH9以上にすることがわかった。

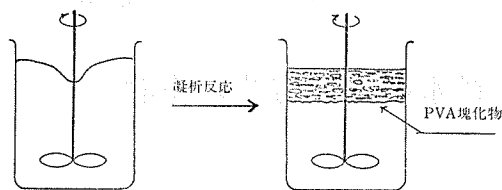


図-1 PVA 凝析物の塊化現象

するようでは、生成物の処分が困難となるし、また作業性も極めて悪い。したがって、当凝析処理法を実際の排水処理に適用するためには、生成した凝析物の分離、脱水および最終処分を容易に行えるような凝析反応装置<sup>2)~6)</sup>を検討する必要がある。以上の内容を含んで、凝析反応方法および装置について検討を行った。

### 2-1-2 実験方法

(1) 1.5<sup>m</sup>角型鉄製槽(図-2, イ)に、精練工程から採取した実排水約 1<sup>m</sup>を投入し、これに無水芒硝とホウ砂(四ホウ酸ナトリウム)を水に溶解した混合溶液を徐々に添加しながら、3~4名の実験者が、図-2, アに示すような攪拌棒で強い攪拌を行った。この時の凝析剤の添加量は次の通りとした。

PVA濃厚排水 (PVA含有率 1~1.8%, COD 20,000mg/ℓ)  
 約 1<sup>m</sup>  
 15%Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> 167ℓ  
 4%Na<sub>2</sub>B<sub>4</sub>O<sub>7</sub>・10H<sub>2</sub>O 70ℓ

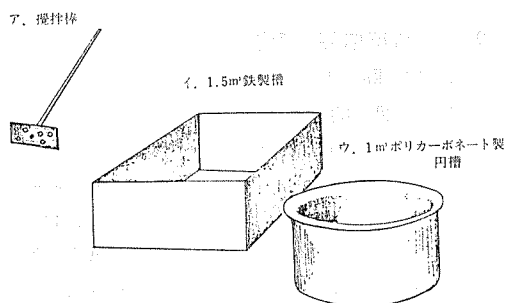


図-2 実験 I で使用した容器類

(2) 1<sup>m</sup>ポリカーボネート製円型槽(図-2, ウ)に(1)で使用したのと同じPVA濃厚排水約 600ℓを入れ、20% NaOH 水溶液にて pH 9 に調整後(1)と同じく人力による攪拌で凝析反応を行った。この場合の凝析剤の添加率は(1)の場合と同じであった。

PVA濃厚排水 約600ℓ  
 15%Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> 100ℓ  
 4%Na<sub>2</sub>B<sub>4</sub>O<sub>7</sub>・10H<sub>2</sub>O 42ℓ

なお、(1)と(2)で使用した容器を形、容量ともに変えた

理由は、角型と円型で生成する凝析物にどのような差が生じるか、あるいは槽の形や容量の違いが攪拌効率に与える影響等を観察する目的のためである。

### 2-1-3 実験結果および考察

#### 2-1-3-1 凝析反応

実験(1)の場合、凝析剤約 240ℓを約10分間で添加したところ、添加終了とほぼ同時に凝析物が生成した。凝析物の大きさは直径 7cm前後のものから40cm位の塊りまで種々の形状であった。一方、実験(2)の場合も、凝析剤の添加終了とほぼ同時に凝析物が生成したが、凝析物の大きさは直径 3~5cmのほぼ均一な粒状であった。

(1)の角型槽 (2)の円型槽ともに乱流攪拌の状態で反応させたものであるが、(1)と(2)で凝析物の形状に差が生じたのは攪拌効率の差によるものと思われる。特に角型槽の場合はデッドスペース等の原因で、均等な乱流攪拌にならないために、凝析物が塊化したものと思われる。凝析反応後の固液分離等の後処分を考え合わせると、粒径はできるだけ小さく、かつ均一であることが望ましい。

#### 2-1-3-2 攪拌方法

(1)、および(2)の実験結果から、生成粒子の形状に差は生じたが、攪拌方法を乱流攪拌とすれば、ビーカートでみられたような、析出粒子が結合して1個の団塊となるような塊化現象を防止できることが確認された。

#### 2-1-3-3 凝析物の経時変化とpH変動

凝析反応後、凝析物を反応液中に入れたまま約20時間放置したときの凝析物の状態を観察したところ、実験(1)の方は、凝析物の表面が溶けかかっており、再溶解が起きていることが確認された。このときの液の pH は 5.9 であった。他方、実験(2)の方の凝析物には再溶解は認められなかった。このときの液の pH は 8.3 であつた。凝析物の再溶解性に差が認められたのは、pH の影響によるものと思われたので凝析反応後の残液について、pH の経時変化を調べたところ、表-1 に示すとおりであった。反応前に pH 調整をしなかつ

表-1 凝析反応後の pH 変動

	反応直後	1日	2日	3日
(1)処理水	8.0	5.9	5.9	6.1
(2)処理水	8.5	8.3	8.1	8.1

た(1)の場合は、反応前に pH 調整をした(2)に比較して pH の低下の割合が大きく、反応翌日の pH は(2)の方が 8.3 でアルカリ側を維持したのに対し、(1)の反応液は

pH5.9で弱酸性を示した。

#### 2-1-3-4 COD<sub>Mn</sub>除去率

凝析反応前後のCODは表-2に示すとおりで、COD除去率は50%強であった。

表-2 実験 I COD除去率

	原水 mg/ℓ	凝析処理後 mg/ℓ	COD除去率
(1)	20,000	8,600	57%
(2)	19,000	9,200	52%

### 2-2 実験 II

#### 2-2-1 目的

実験 I で、凝析反応前に pH 調整を行わなかった場合の凝析物に再溶解の現象が認められたことから、反応前の pH 調整に重点を置いて凝析条件の検討を行った。

#### 2-2-2 実験方法

(1) 実験 I で再溶解が認められたときの反応液の pH は 5.9 の弱酸性側であったので、実験 I で得られた凝析物が酸性下で再溶解が起るか否かを調べるため、凝析物約 100g をビーカーに取り、これに 1% 硫酸溶液約 100ml を加えて、ゆっくり攪拌した。

(2) 実験 I で使用した 1.5m<sup>3</sup> 角型鉄製槽に、PVA 濃厚排水約 1.0m<sup>3</sup> を入れ、90 分間の pH 調整時間をとって、最終 pH を 10.2 としてから実験 I-(1) と同じ薬注量により凝析反応を行った。

(3) 実験 I で使用した 1m<sup>3</sup> ポリカーボネート製円型槽に、PVA 濃厚排水約 600ℓ を入れ、90 分間の pH 調整時間をとって、最終 pH を 9.0 としてから、実験 I-(2) と同じ薬注量により凝析反応を行った。なお、この実験(3)は実験 I-(2)と殆ど同条件で行うものであるが、実験に使用する原水が実験 I のときと同一排水ではないため、ここでは主として、原水の違いが pH 調整および凝析反応の再現性に与える影響について観察した。

#### 2-2-3 実験結果および考察

##### 2-2-3-1 凝析物の再溶解性

一旦析出した PVA 凝析物 (含水率約 80%) 100g をビーカーに取り、1% 硫酸溶液 100ml を加えて攪拌を続けると、凝析物は溶解し流動性を有するノリ状を呈した。pH は初め 1~2 の酸性であったが、凝析物中に含まれる凝析剤のアルカリ分と中和し、最終 pH は 7 となった。この結果より、凝析物を酸性側の条件で保持すると再溶解を起こすことが確認された。なお、PVA 凝析反応物を自然放置した場合に pH が低下するのは、排水中の PVA や PVA とともに混在す

るでんぶん等の有機物が加水分解等でアルカリ分を消費するためと思われる。

##### 2-2-3-2 凝析反応

実験(2)の場合、所要量の凝析剤の 70~80% を添加した時点で凝析物が生成した。凝析剤を添加終了後 30 分間放置したあと、凝析物を取り出して重量を測定したところ、約 267kg であった。すなわち凝析物の量は原液量に対して重量比で約 1/4 である。生成した凝析物は実験 I-(1) の場合よりも固くしまっていることが観察されたが、凝析物の形状は実験 I-(1) と全く同様で粒径は 7~40cm とバラツいていた。一方実験(3)では、所要量の凝析剤の約 1/2 を添加した時点で凝析物が生成した。生成した凝析物は固くしまり良好で、形状も実験 I-(2) と同様で 3~5cm のほぼ均一な粒状であった。

実験 I の場合は、反応前の pH 調整には特に注意を払わなかったが、今回は 90 分間の pH 調整時間を取り、pH を 9.0 および 10.2 に設定したのも凝析反応を行った。その結果、実験 II の方が生成した凝析物が固くしまっていた。

##### 2-2-3-3 pH 調整

実験 II では、凝析反応前の pH 調整を充分に行うために、最初に 20% 苛性ソーダ水溶液を添加して目的の pH 値にしたあと、30 分毎に pH を測定し、pH の経時変化を調べたところ、表-3 のとおりであった。すな

表-3 原水の pH 調整と経時変化

原水	調整目標	初期 pH	30分	60分	90分	反応直後	反応後 18時間
(2)	5.7	10	10.1	9.7	9.3 -10.2	9.3 8.8	8.7
(3)	5.7	9	9.4	9.4	9.3	9.0	8.6 8.3

わち、実験(2)では、初期の pH を 10.1 に調整したところ、90 分後に pH 9.3 まで低下したので、さらに 20% 苛性ソーダ溶液を添加して pH 10.2 に上げてから反応させた。(3) は、初期 pH を 9.4 としたところ、90 分後に pH 9.0 となったので、そのまま反応を行った。その結果、上で述べたように凝析反応は良好であったので、反応前の pH 調整は少くとも pH 9.0 以上に設定しておくことが望ましいと判断された。

##### 2-2-3-4 COD 除去率

凝析反応前後の COD は表-4 に示すとおりであ

表-4 実験 II COD 除去率

	原水 ml/ℓ	凝析処理後 mg/ℓ	COD 除去率
(2)	22,000	5,500	75%
(3)	21,000	5,500	74%



た。実験一Iに比較して、COD除去率が20%前後の上昇が見られたが、これは、実験IIで使用した排液中のPVA含有量が実験Iで使用した排液の場合より高く、PVAの凝析除去量はIIの方がそれだけ多いためCOD除去率が高くなったものと思われる。

### 2-3 実験一III

#### 2-3-1 目的

実験IおよびIIの結果をもとにして、実装置を兼ねたパイロットプラント作製のための検討を行った。反応装置を検討する際の最大のポイントは、凝析物の形状であったが、この問題は実験Iの結果から、乱流攪拌を行うことにより析出粒子の塊化現象を防止できることが確認されたので、「乱流攪拌」に的を絞って、攪拌機および反応槽の構造、攪拌速度等について検討した。

#### 2-3-2 実験方法

精練工場で発生する、PVA濃厚排液（原水）について無段変速式攪拌実験装置を使用して凝析反応実験を行った。実験の条件は次のとおりである。

原水 濃厚排液（PVA含有量約3%） 28ℓ  
 凝析剤 無水硫酸ナトリウム 710g およびホウ砂 80g  
 を水に溶解して水溶液としたもの 7ℓ  
 実験機 MT-24VOS-0.75 93~375rpm.

定格電流 3.8A

攪拌翼 プロペラ（循環用） $d_2 : 200\phi$ ,  $130\phi$   
 タービン（分散用） $d_1 : 180\phi$ ,  $140\phi$

反応槽の部分は図-3に示すとおりである。

以上の実験条件にしたがって、次に示す(1)~(3)の実験を行った。

(1) 図-3に示す反応槽（内容積約50ℓ）に原水28ℓを入れ、攪拌開始後、凝析剤7ℓを添加した。

攪拌機の回転数 240rpm 定格 3.8A

攪拌翼の条件  $d_2 : 180\text{mm}\phi$ ,  $d_1 : 200\text{mm}\phi$   
 パップルの条件 クリアランス無し

(2) 原水量、凝析剤の添加量等は実験一(1)と同条件

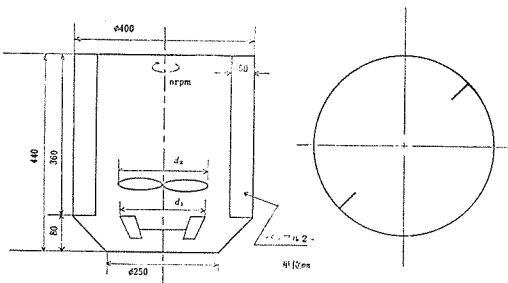


図-3 反応槽の諸条件

攪拌機の回転数 300rpm

攪拌翼の条件  $d_1 : 140\text{mm}\phi$ ,  $d_2 : 130\text{mm}\phi$

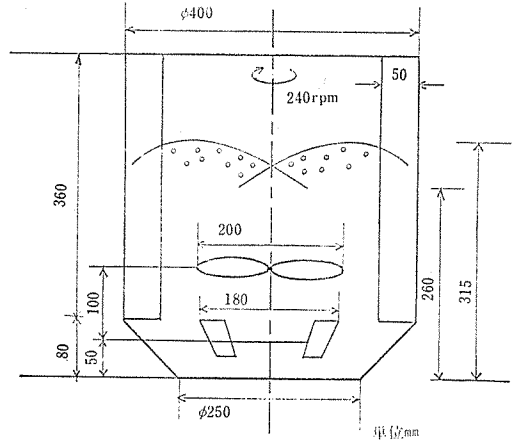


図-4 実験一(1)の条件

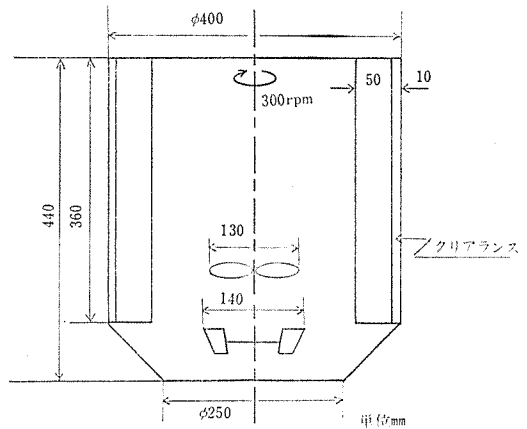


図-5 実験一(2)の条件

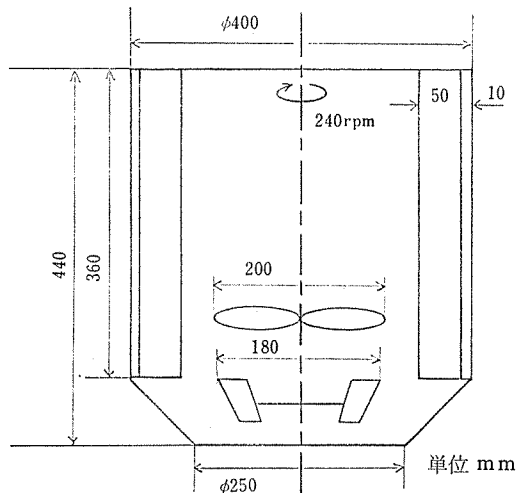


図-6 実験一(3)の条件

バッフルの条件 クリアランス有り (10mm)  
 (3) 原水量, 凝析剤の添加量は実験(1)と同条件  
 攪拌機の回転数 240rpm  
 攪拌翼の条件  $d_1: 180\text{mm}\phi$ ,  $d_2: 200\text{mm}\phi$

バッフルの条件 クリアランス有り (10mm)

### 2-3-3 実験結果および考察

実験結果をまとめると表-5のとおりとなった。すなわち、凝析反応における最大のポイントであった乱

表-5 実験Ⅲの結果

実験No. 項目	(1)	(2)	(3)
攪拌強度	充 分	充 分	充 分
凝析開始 時間	1分以内	1分以内	1分以内
凝析物の 形状	米粒状, 良好	5~20mmの塊り	米粒状, 良好
凝析物の 分散状態	バッフルの裏面に凝析物が付着, 他は分散良好	凝析物が反応槽の底部にあり, 塊化し分散不良	バッフルへの付着なし, 分散状態均一
動力負荷	2.25~2.32A	2.28A	2.25A
評 価	1. バッフルの裏面に凝析物が付着した外は, 問題なし。 2. 凝析物は予想以上に細かくかつ均一であった。	攪拌翼が小さいため, 回転速度を高くしたにもかかわらず液全体の攪拌は弱く, 分散不良, 凝析物は塊化した。	(1)で起きた, バッフルへの凝析物付着の欠点は, バッフルにクリアランスを設けたことによって解決した。

流攪拌は, バッフルを設置することで解決された。ただし, バッフルを反応槽の壁面に密着させて設置した, 実験(1)では, バッフルの裏面に凝析物が塊化付着する現象が起ったが, この問題は, バッフルと反応槽の壁面との間にクリアランスを設けた実験(3)では解消された。

また攪拌翼の大きさを縮小し, 攪拌速度を上げた実験(2)は, 攪拌力が弱く, 分散不良であった。

乱流攪拌とあいまって, 重要なポイントであった, 均一な分散については, 攪拌翼に循環用としてのプロペラタイプと, 分散用としてのタービンタイプの二種類を併用することによって解決した。

以上の結果から, 攪拌装置としては, 実験(3)で使用した仕様の装置をスケールアップすれば, 実用装置化は達成できると思われる。

## 2-4 実験Ⅳ

### 2-4-1 目的

実験Ⅲにおいて, 最適の凝析反応装置の条件を見出した。この条件にしたがって実装置を作製するのであるが, 実装置においても実験結果の再現性を確保するためには, 凝析反応に対する実排水の水質変動の影響を把握する必要がある。

本実験の共同研究者である精練工場においては, 生地の仕入れ先のうち大手としてはD社とS社の2社があり, D社の場合はサイジング剤中に占めるPVAの比率が90.5%で, S社の方はPVA21.3%, でんぶん

51.6%, アクリル系合成糊剤21.3%その他となっている。D社とS社ではサイジング剤の成分に差が見られる。加工側の精練工場としても加工時の処理剤をD社とS社の生地ではそれぞれ変えて使用しており, したがって, 排水の水質もその時扱った生地の種類によって変化してくるわけである。

D社とS社の生地を処理したときの排水をそれぞれ採取し, 工場で考えられる3通りほどの比率で混合して模擬排水を調合し, それぞれについて凝析反応の効果を観察した。また実装置化したときに, 凝析剤の添加方法として, 水溶液で加える場合と, 粉体のまま添加する場合と考えられる。粉体添加が可能であれば, 1回の排水処理量を増やすことができるので, 粉体添加の凝析反応への影響についても合わせて検討した。

### 2-4-2 実験方法

この実験で使用する原水は, D社の生地の精練排水(D)と, S社の生地の精練排水(S)であり, DとSの成分内容はおおよそ, 次に示すとおりである。

D: PVA 2.2%

S: PVA 0.8%, コーンスターチ 1.8%, アクリル系糊剤 0.8%

なお, PVA, コーンスターチ等の主成分の他に, 加工処理剤として, ノニオン界面活性剤約0.6%などが含まれている。これら2種類の排水を次の3通りの混合比で模擬原水を調合し実験に使用した。

(1) Dのみ

(2) D : S = 1 : 1

(3) D : S = 1 : 2

また、凝析剤の添加方法の検討については、無水芒硝(A)とホウ砂(B)を次の4通りの方法で検討した。

(1) A, Bを混合溶液として添加する。

(2) A, Bともに粉体のまま添加する。

(3) A—溶液, B—粉体で添加する。

(4) A—粉体, B—溶液で添加する。

さらに攪拌条件については、次のとおりとした。

反応装置：実験Ⅲ—(3)で使用した実験装置と同条件のもの（図—6参照）

バツフルを設置し、クリアランスを設ける(10mm)

回転速度：240rpm, 215rpm

### 2—4—3 実験結果および考察

個々の実験条件と実験結果については、表—6に示すとおりである。

表—6 実験Ⅳの結果

実験 No.	原水の種類および量	凝析剤の添加方法および量	攪拌速度 rpm	反応の方法	凝析反応の結果	判定
1	Dのみ 28ℓ	A B混合液 6.6ℓ	240	薬注2分間	凝析剤添加時凝析物発生。反応早い。凝析物の大きさ：大豆大(5~6mmφ)。凝析物および残液の粘性少ない。	○
2	Dのみ 35ℓ	A Bともに粉体	240	A添加10分間攪拌後B添加	薬品添加後3分で凝析物発生。反応遅い。凝析物の大きさ：大豆大。凝析物と残液に粘性あり、反応不完全な綿状凝析物も混っている。不溶解薬品が凝析物の芯にある。	×
3	D : S = 1 : 2 28ℓ	A B混合液 6.6ℓ	240	薬注約2分間	凝析剤添加開始後1分45秒で凝析物発生。米粒大(1~3mm × 1~1.5mm)の均一な粒子である。凝析物、残液ともに粘性少ない。	◎
4	D : S = 1 : 1 35ℓ	A Bともに粉体	240	Bを先に添加5分後A添加	B添加後、液全体がのり状を呈し、粘性強。5分後Aを添加すると粘性消え、米粒大の粒子となる。他はNo.2の結果と同様。	×
5	Dのみ 28ℓ	A B混合液 6.6ℓ	215	薬注約2分間	1.の実験条件のうち、回転数を240rpm→215rpmに下げた。薬注開始後70秒で凝析物発生。大豆大の均一結晶。分離性は1.よりも良さそう。残液の粘性少ない。実験3'とほぼ似た結果であった。	○
6	D : S = 1 : 1 33ℓ	A粉体 B溶液(2ℓ)	240	Aを先に添加5分後Bを添加	米粒大の均一粒子発生。他は実験3と同様の結果であった。	○
7	D : S = 1 : 1 30ℓ	A溶液(4.7ℓ) B粉体	240	Aを先に添加続いてB添加	米粒より大きめの粒子。実験6.より凝析物がやや柔かい。不完全反応物が混っている。	×
8	D : S = 1 : 1 28ℓ	A B混合液 6.6ℓ	215	薬注約2分間	米粒よりやや大きめの均一結晶。粒子および残液の粘性少く、分離性良い。他は実験3.と同様。	○

原水のpHは全実験ともpH試験紙で測り、8~9であった。液温26°C

凝析剤の量：芒硝(A) 710g, 硼砂(B) 80g

実験結果から考察すると次のようになる。

### 2-4-3-1 原水水質の違いによる凝析反応への影響

実験Ⅳで使用した原水のDと、D+Sとの大きな差は、Dは中に含有する糊剤がPVAだけであるのに対して、D+Sは、PVAの他にでんぶんと少量のアクリル系糊剤を含んでいることである。本実験の目的の一つは、原水の水質の変化に対して凝析反応が受ける影響について観察することであったが、実験結果から判断すると、原水中の糊剤がPVAだけの場合は、生成する凝析物の粒子は比較的大きく、直径5~6mmの大豆大であった。一方、でんぶんとアクリル系糊剤が混在すると、粒子は小さく、2~3mmの米粒状の形になる傾向がみられた。

### 2-4-3-2 攪拌速度の影響

攪拌速度は、240rpmと215rpmとの差について検討したのであるが、凝析反応に見られた影響としては、次の事があげられる。

I) 低速(215rpm)の方が、凝析物が生成するまでの反応時間が長い。

II) 生成した凝析物の大きさには殆ど差違は認められなかったが、低速の場合の方が、凝析物の表面および残液の粘性が低く、凝析物と液との分離性が良かった。一般に残液の粘性が低く、分離性が良い方が、それだけ反応が進んだものと判断され、このような状態の時は、反応不良の場合に見られるような綿状のやわらかい凝析物は見られず、固くひきしまった固形物を生成した。

### 2-4-3-3 凝析剤の粉体添加による影響

凝析剤を粉体のまま添加することが可能であれば、1回の排水処理量を増加することができるので、芒硝とホウ砂について、種々の組合せで、粉体添加の可能性について検討したところ、次の事がわかった。

(1) pH調整済みの原水に対して、所要量の無水芒硝を粉体のまま添加して、芒硝が完全に溶解するまで攪拌し(常温で10~15分)、そのあとホウ砂の飽和水溶液を添加する方法であれば、凝析反応には影響を与えない。

(2) ホウ砂を先に粉体添加すると、液全体が糊化して、非常に高粘度となり、攪拌装置に高負荷がかかるために、実装置では運転が困難となる恐れがある。したがって、ホウ砂を先に粉体で添加する方法は不適である。

(3) 芒硝を液体または粉体で添加し、原水へ完全に溶解させたあと、ホウ砂を粉体で添加する方法は、固形状のホウ砂が反応系に入ると同時に、ホウ砂の

表面で反応が起こり、未反応のホウ砂を芯に包含した形で凝析物を生成するため、所要量のホウ砂が液全体に行き渡らず、凝析反応が不完全となりやすい。

## 2-5 凝析反応装置(モデルプラント)の試運転

### 2-5-1 目的

実験Ⅰ~Ⅳの結果をもとに、精練工場に実用機を兼ねたモデルプラントとして、1回の処理量が3.5m<sup>3</sup>(凝析剤を含めて)の凝析反応装置1機を設置した。(図-7および写真-1参照)本項では、実装置の試運転の結果について報告する。

### 2-5-2 実験方法

#### (1) 空運転

反応槽を空の状態にして、攪拌機を回転させ、攪拌軸の振れや回転に伴う異常音等の有無をチェックした。このときの攪拌機の回転数:126rpm(実験ⅢおよびⅣにおける240rpmに相当する)

(2) 反応槽へ、この装置の最大仕込量である3,500ℓの原水(濃厚排液)を入れて攪拌し、攪拌状態をチェックした。

(3) (2)の原水を1,200ℓまで減らし、次に示す条件により凝析反応を行った。

原水量:1200ℓ, pH:6.6, 液温:35°C

pH調整:調整時間2時間を取り、20%NaOHによりpH10とした。

凝析剤:無水芒硝30kgを水に溶解して200ℓに、またホウ砂3.36kgを水に溶解して84ℓとした。

#### (4) 反応物の引き抜き

実際の運転では、凝析反応後、継続して、凝析物を分離するための真空蒸発乾燥工程に入るが、液の移送は、攪拌を継続したまま、反応装置下部のコックの開閉により、減圧又はポンプにより行う予定である。その場合、引き抜きの際の液面低下に伴って起こる槽内の攪拌状態の変化をチェックした。

### 2-5-3 実験結果および考察

2-5-3-1 攪拌機の空運転においては、攪拌軸の振れや回転に伴う異常音等は無く良好であった。

2-5-3-2 本装置の最大仕込量の3,500ℓを投入したときの攪拌状態は、実験Ⅲ、Ⅳとほぼ同様の乱流攪拌が得られ、良好であった。負荷状態での異常音や攪拌機の振れ等も無かった。

#### 2-5-3-3 凝析反応に関しては、

(1) 反応速度は、実験Ⅲ、Ⅳとほぼ同様であった。

(2) 凝析物の大きさは、長さ5~10mm、巾3~5mmの桿状または楕円形で、固液ともに粘性が低

く、分離性は良好であった。  
 (3) ビーカーテストでみられた凝析物の塊化現象や、実験Ⅲで起った、バッフル裏面へ付着塊化するような現象も起らなかった。

すなわち、実験Ⅲ、Ⅳで最も良好であった凝析反応の状態を再現することができた。

2-5-3-4 反応物の取り出しは、反応槽下部取り出し口へホースを連結し、ギャポンプにより行った。その結果液量の多いときは問題ないが、液面が二段目のプロペラ翼の下まで低下すると、同時にバッフルの効果もなくなるため、反応物が激しく周壁へ飛び散る形となり、液の出口の部分には、空の状態となって空気が送り出され、反応物の取り出しに支障をきたした。その原因は、最下段タービン翼に、攪拌効果を上げるために取付けたスクレーパーが、逆に攪拌を強め過ぎたことおよび、同タービン翼の部分になると、バッフルがないため、攪拌流が渦流の形となったことが考えられ、これらの点について改善の必要がある。

### 3. まとめ

#### 3-1 凝析反応

実験Ⅰ～Ⅳおよび、実装置を兼ねたモデルプラントの試運転までの結果から、実装置における凝析反応の標準的な処理手順をまとめると、図-8のようになる。

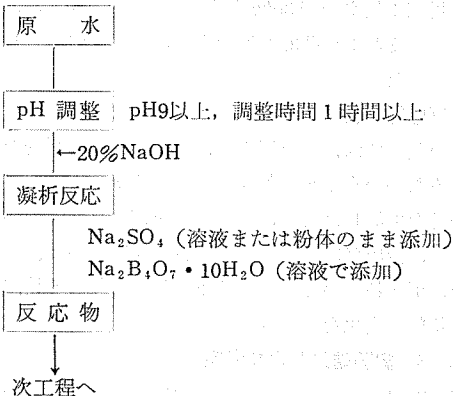


図-8 凝析反応の標準的フロー

#### 3-2 凝析反応装置

モデルプラントの試運転で問題となった、空気の巻き込みを防止する方法として

- (1) タービン翼に取付けたスクレーパーを取り外し、反応槽底部における攪拌を緩める。
- (2) 反応槽底部にも小型のバッフルを設置して、攪拌流が渦流にならないようにする。

の2点の改造を実施し、試運転を行って確認したとこ

ろ、空気の巻き込みは完全に防止することができた。図-9は凝析反応装置の最終図である。なお、実験ⅢおよびⅣで検討したクリアランスは、実装置では三角バッフルで代用した。

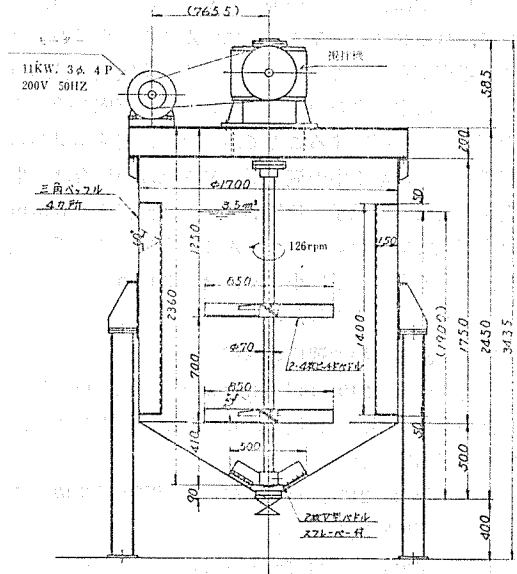
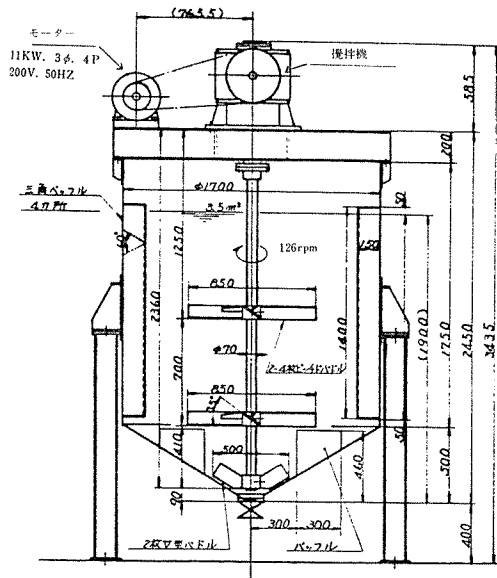


図-7 凝析反応装置 (改造前)



写真-1 凝析反応装置処理能力3.5m³/回



図一9 凝析反応装置 (改造後)

#### 4. おわりに

本実験は、昭和53年8月1日より横浜市公害研究所と福泉産業株式会社との共同研究で実施したものである。実験に際して、場所の提供等かずかずの御便宜と御協力をいただいた渡辺良太氏をはじめ、会社の皆様に、また攪拌機の検討に御協力をいただいた佐竹化学機械工業株式会社の皆様に厚く御礼を申し上げる。

#### 文献

- 1) 遠田和雄, 野木一男: 横浜市公害研究所報第2号 215—219 (1978).
- 2) 公開特許公報, 特開昭51—106341. ポリビニルアルコール含有廃液の処理方法.
- 3) 同上, 特開昭51—142855. P. V. A. 回収方法及び装置.
- 4) 同上, 特開昭51—142857. P. V. A. 回収装置.
- 5) 同上, 特開昭52—16555. ポリビニルアルコールの連続的回収方法.
- 6) 同上, 特開昭52—32873. ポパール排液の処理方法.

# 非イオン界面活性剤の凝集処理に及ぼす影響

飯塚 貞 男\*

## 要 旨

排水中の非イオン界面活性剤は、凝集処理法では除去できず、しかも凝集阻害物質として働くという報告がされている。そこで室内実験により酸性染料溶液の凝集処理に及ぼす非イオン界面活性剤の影響について考察した。その結果、親水性の強い非イオン界面活性剤ほど、凝集効果が悪くなり、また或る濃度範囲では、非イオン界面活性剤と酸性染料との付加物ができ、それが凝集剤と反応し界面活性剤が除去されることがわかった。

## 1. はじめに

市内事業所の排水処理方法には、凝集処理法が広く用いられている。この方法は、排水に硫酸アルミニウムなどの無機凝集剤を加え、溶存している汚濁物質をコロイド状にして、さらに高分子凝集剤を加え凝集させ、沈降し易いフロックを形成した後の上澄水を放流するものである。また処理装置に要する敷地面積が小さくてすみ、操作が簡単で比較的処理効果もよい等の理由から、横浜市では中小の事業所に対し凝集処理方法をとるように指導してきた。しかし凝集処理法は、排水中に界面活性剤が存在すると処理効果が悪くなるという欠点がある。

界面活性剤の中でもオキシエチレン系の非イオン界面活性剤は、イオン性を有しないため、凝集処理が困難で、しかも界面活性剤特有の性質である分散作用があるため、他の物質の凝集を阻害する挙動を示すとの報告もある。<sup>1)</sup>また非イオン界面活性剤を使用している捺染、染色、精練といった繊維関係の事業所からの排水の中には、界面活性剤の影響で、処理水質がおもわしくない例もみられる。このような現状から、非イオン界面活性剤の凝集処理に及ぼす影響を検討する目的で室内実験を行なった。

## 2. 実 験

### 2-1 実験内容

オキシエチレン系の非イオン界面活性剤（以下 POEn）の凝集処理に対する影響については、既に野木らが、捺染排水を例にして検討しているが、<sup>2)</sup>処理

効果を COD 値のみで判断し、POEn の濃度は測定していない。従って今回は凝集処理における POEn の消長を考慮して実験した。実験方法は、凝集処理法によって COD 値で 90% 以上の除去効果が明らかにされている酸性染料（C. I. Acid Red 274）を除去対象にし、これに 3 種類の POEn を添加し、ジャーテスターを用い、硫酸アルミニウムと高分子凝集剤の併用による凝集沈殿処理実験を行なった。測定項目は、処理前後の COD 値、POEn の濃度、凝集状態とし、POEn の影響は、以下の 3 点について検討した。

#### 1) 酸性染料の最適凝集処理条件の設定

100ppm の酸性溶液を凝集処理し、COD 除去効果の最もよい条件、(pH 及び凝集剤添加量等) を決定する。

2) 1) で設定した条件のもとに、POEn だけを含む水を凝集処理し、その除去効果について検討する。

3) 100ppm の酸性染料に POEn をオキシエチレンの付加モル数別、濃度別に添加後凝集処理し、COD 値、POEn の濃度を測定して POEn の添加による凝集処理の影響について検討する。

### 2-2 実験に用いた試薬

#### ①酸性染料溶液

酸性染料として C. I. Acid Red 274 を用い、これをイオン交換水に溶かし 100mg/l の濃度とし、実験に供した。

#### ②凝集処理用薬品

1) 硫酸アルミニウム溶液：Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> として 8% 溶液になるように硫酸アルミニウムをイオン交換水に溶解し

Effects of Non-ionic Surface Active Agents on Chemical Coagulation Treatment of Industrial Wastes water.

\* Sadao Iizuka, 横浜市公害研究所水質部門

た。

- 2) 高分子凝集剤：アクリルアミド系のアニオン凝集剤を 0.1% 溶液とした。
- 3) 水酸化ナトリウム溶液：pH 調整用として 1 規定溶液を用いた。
- 4) ポリオキシエチレンドデシルエーテル：図-1 に示す構造のもので、酸化エチレンの付加モル数が、5, 9, 20 の 3 種類を用いた。

### 2-3 凝集処理の実験

酸性染料溶液 1 ℓ をビーカーにとり、水酸化ナトリウム溶液を加え塩基性にし、次に硫酸アルミニウム溶液を加え、pH を酸性にし、ジャーテスターを用い 150 rpm で 3 分間攪拌し、これに高分子凝集剤 0.1% 溶液 1 ml 加え更に 5 分間 50 rpm で緩速攪拌する。その後、5 分間静置させその上澄水を分取し分析した。

### 2-4 測定項目及び方法

- 1) COD : JIS K 0102
- 2) POEn : コバルトチオシアネート法<sup>3)</sup>

## 3. 結果及び考察

### 3-1 酸性染料の最適凝集処理条件

実験に用いた酸性染料 C. I. Acid Red 274 は、モノアゾ系で親水基にスルホン酸基をもつ赤色の染料である。この染料溶液は、100ppm の濃度では、COD 値が 60ppm ある。この溶液を凝集処理した場合 COD 除去率が 90% 以上であるとされている。そこで最適凝集処理条件を検討した。一般に凝集処理の効果に影響を与える要因として、pH、凝集剤の添加量、攪拌速度などが挙げられているが、その中でも pH と凝集剤の添加量が大きな要因となっている。そこで急速攪拌の速度を実験概要で述べたように、150rpm と一定にし、pH と凝集剤の添加量を変え実験した。酸性染料の濃度は 100mg/ℓ とし、凝集反応は 1 規定の水酸化ナトリウムで pH を 10 とした後、硫酸アルミニウム溶液で pH が 3, 4, 5, 6, 7 の値になるように量を調節し、高分子凝集剤の添加量は、処理水 1 ℓ に対し、1, 2, 3 ml とした。

表-1 酸性染料 100ppm 溶液の凝集処理による COD 除去率

0.1% 高分子凝集剤溶液	pH				
	3.0	4.0	5.0	6.0	7.0
1 ml	53	45	95	94	80
2 "	33	33	91	90	77
3 "	35	32	93	92	78

単位%

凝集処理後の上澄水の COD 値の測定結果を表-1 に示す。一般に凝集処理では、COD 除去率が 85% 以上であれば良好であるとされており、また凝集剤の量も少量で除去効果があるものが好ましい。表-1 より pH が 5~6 の範囲で、高分子凝集剤を、1~2 ml 添加すると COD 除去率が 92~95% になることがわかり、以下の凝集実験はこの条件で行なうことにした。

### 3-2 界面活性剤の凝集処理

アルキルベンゼンスルホン酸ナトリウム (ABS) に代表される陰イオン界面活性剤の場合、凝集処理で除去することは可能であり、それは、凝集反応がイオン反応であるため、ABS のようなイオン性のある界面活性剤であれば、アルミニウムイオンと反応するからである。<sup>4)</sup>そこで 3-1 の凝集条件で POEn がどの程度除去できるのかを実験した。POEn は、図-1 に示

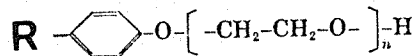
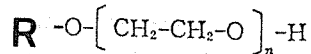


図-1 POEn の種類

すようなアルキルエーテル型とフェノールエーテル型の構造の 2 種類があるが、いずれにしても POEn としての特性は疎水基であるアルキル基の炭素数及び親水基である酸化エチレンの付加モル数 (図中に示す n の数) によって異なる。現在多く使用されている POEn は、アルキルエーテル型で、アルキル基の炭素数が 12 で、酸化エチレンの付加モル数が 8~15 程度のものである。実験に用いた POEn は、アルキル基の炭素数が 12 で、酸化エチレンの付加モル数が、5, 9 の 2 種類のオキシエチレンドデシルエーテルである。

実験は、それぞれの POEn を、30, 100, 200, 300 ppm にした溶液について 3-1 で得た条件で凝集処理し、処理前後の POEn の濃度を測定し除去率を求め

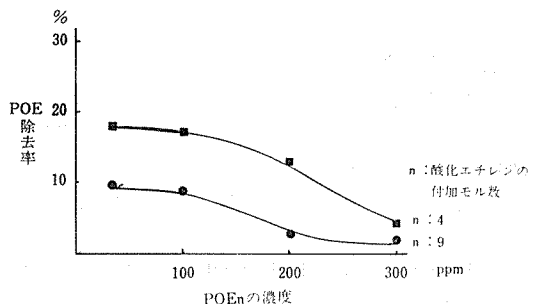


図-2 POEn の単独凝集処理



た。その結果は図-3に示したとおりで一般にいわれているように処理効果は悪く、100ppm以上の濃度では、除去率10%は以下であった。また酸化エチレンの付加モル数が多いほど、除去効果が低いという傾向もみられた。市内事業所における排水中のPOEnの濃度は通常100ppm以上であるため、処理できずに放流すると、それが有機性汚濁の原因になることも明らかである。またPOEn濃度とCOD値の関係は図-3に示

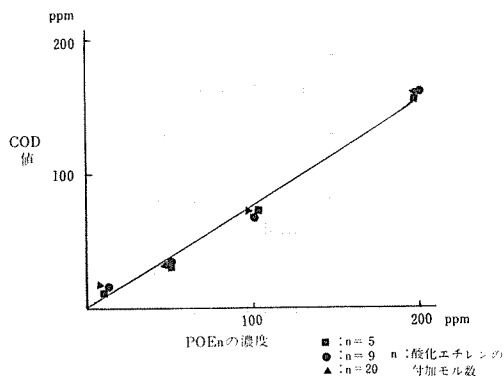


図-3 POEnのCOD値

したとおりであり、POEnの100ppm溶液はCOD値で70ppmに相当することがわかった。以上のことからPOEnは高濃度(100ppm以上)の場合、凝集処理を行っても、除去効果が期待できないものであり、かつ有機性汚濁の高い物質であることがわかった。

### 3-3 凝集処理に及ぼすPOEnの影響

酸性染料溶液にPOEnを添加後、凝集処理し、その添加量、親水基の違いなどによってどのように処理に影響があるかについて検討した。

#### 3-3-1 POEnの濃度及び親水基の違いによる影響

実験は、100ppmの酸性染料溶液に、酸化エチレンの付加モル数が、5、9、20のPOEnを濃度が25から200ppmになるように添加し、凝集処理実験を行なった。処理前後のCOD値を測定し、COD除去率を求めその結果を図-4に示した。

酸化エチレンの付加モル数の多いほど除去率が悪く、n=5とn=20を比較した場合、添加濃度が200ppmでは、酸性染料とPOEnの混合液のCOD値はそれぞれ160ppmであるが、処理後では、n=5で40ppm、n=20で110ppmと差がでている。また凝集したフロックはn=20では沈殿しにくく、酸性染料の色がかなり残るので処理効果が悪いことは容易に判断できる。表-2に酸化エチレンの付加モル数の違いによるPOEnの物性変化について示したが、<sup>6)</sup>付加モル数の増加とともに、親水性、分散力が大きくなることから、

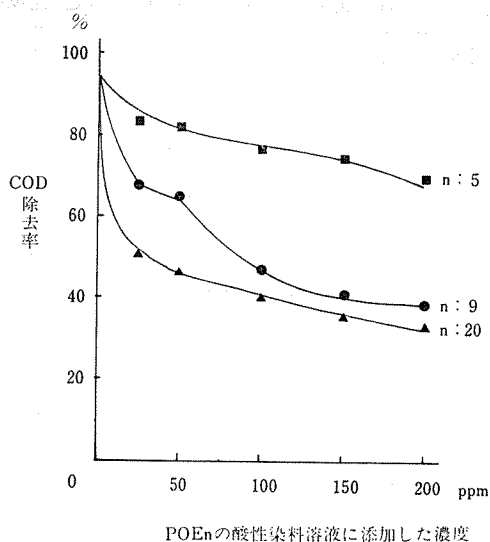


図-4 POEnを添加したときの酸性染料溶液のCOD除去率

酸化エチレン付加モル数の多いPOEnになるほど、凝集フロックを溶解する力が増すため凝集処理効果が悪くなると推定できる。処理技術の観点からは、酸化エチレン付加モル数の少ないものを使用した方が凝集処理効果はあがるが、一方精練、染色の工程には、付加モル数の高い親水性のものがよいとされており、また使用濃度も100ppmを越えた高濃度で使用されているのが実態である。

#### 3-3-2 POEnの除去効果

POEnを添加した酸性染料溶液中の処理前後のPOEn濃度を測定した。酸化エチレンの付加モル数が

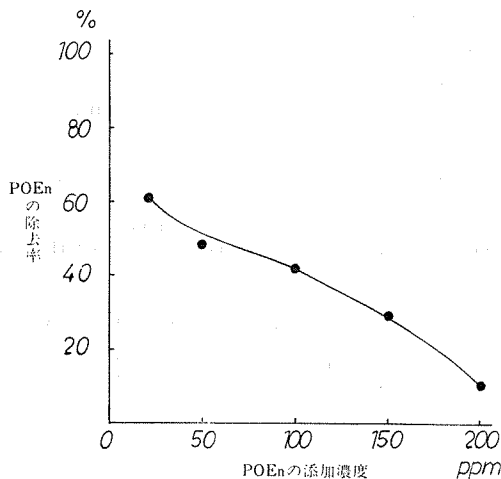


図-5 酸性染料と混合処理したときのPOEnの除去率



となどから、<sup>8)</sup>POEnの処理技術を検討するにあたり参考にしたい。

#### 4. まとめ

酸性染料の溶液を模擬排水として、それにPOEnを添加して凝集処理をし、その影響をみた。その結果次のことがわかった。

1) POEnを単独に凝集処理した場合、POEnの除去効果はおもわしくない。

2) オキシエチレンの付加モル数の多いPOEnほど凝集処理に悪い影響を及ぼす。

3) 酸性染料中のスルホン酸基をPOEnの親水基である酸化エチレンとが反応し、付加物を作り、POEnの凝集処理に有効である。

以上のことがわかった。今後は、酸性染料の他に実排水と同様な成分を加えた水溶液で検討していく方針である。

#### 文 献

- 1) 河村勸：凝集沈殿処理におけるコロイド質の凝集に関する基礎的調査研究(Ⅱ)。水処理技術，vol. 3, No. 12, 27—32 (1962)。
- 2) 横浜市公害対策局編：捺染染色加工業の排水処理処分について。(1974)。
- 3) 飯塚貞男：関東水道衛生協議会研究発表概要集 83—87 (1977)。
- 4) 丹保憲仁：凝集とフロック形成(3)。水処理技術 vol. 13; No. 3, 57—63 (1972)。
- 5) 西村正人他：界面活性剤含有排水の処理。化学工場，vol. 20, No. 12, 76—80 (1972)。
- 6) 堀口博：新界面活性剤。164—165 (1978)。三共出版。
- 7) 斉藤修二：高分子酸による非イオン界面活性剤の吸着と凝集・沈殿。化学工場，vol. 20, No 12, 117—121 (1977)。
- 8) 茂利 晃：界面活性剤排水の処理。化学工場，vol 20, No. 12。

## 摂餌の飼育水に及ぼす影響

齊藤治子\*

### 要旨

生物検定に関する蓄養あるいは投餌を必要とする長期試験時に、安定かつ良質な飼育水を維持する為の基礎研究として、150ℓの水に500ml/minの散気を行いながら平均魚体重約10gのコイを総体重量300g及び550g飼育し、人工飼料及び生物飼料を一定期間投与した時の水質の経時変化を調査した。指標としては水素イオン濃度、溶存酸素、化学的酸素要求量、総窒素、アンモニア性窒素、亜硝酸・硝酸性窒素を用い、168時間の止水式飼育試験を行った。

その結果、水素イオン濃度は7.49~7.76の範囲にあり、溶存酸素は6.0mg/ℓ以上と良好であったが、化学的酸素要求量では、未消化飼料を含む糞によると考えられる影響があり、その影響は生物飼料よりも人工飼料の方が大きかった。窒素化合物では魚類の排泄物によるアンモニア性窒素がその主たるものであり、その濃度は生物飼料よりも人工飼料の方が高くなり、良好な試験水のアンモニア量を基準とすると、最大ではその5倍の100.0μg/ℓにまで達した。

又、十分な散気が行われている条件下で、アンモニア量を指標として、良好な試験水質を保持する最低必要水量を算出した結果は0.27ℓ/g日であった。そして水質の汚れを少なくする為の飼料としては生物飼料の方が好ましいことがわかった。

### 1. 目的

生物検定に関する魚類飼育水の水質は、蓄養時あるいは投餌を必要とする長期試験時に重要な問題となる。飼育に用いる原水は日本の様に水資源の豊かな国ではあまり問題にならず、むしろ飼育によって生じる水質悪化、即ち、魚類の排泄物や体表面からの分泌物、あるいは残留飼料の溶解・腐敗による汚れ等が問題となり、その除去を含む水質の安定化が重要な課題となっている。

生物検定用として汎用されているコイは無胃魚である為、飼料は摂取されると直接腸に入り、食道部や腸管などから分泌される各種消化酵素<sup>1),2)</sup>により分解され、腸壁から吸収される。未消化物等は糞として排泄され、代謝産物等は尿として排泄される。

飼料の摂取量は水温<sup>3),4)</sup>、群行動<sup>5)</sup>、投餌回数<sup>6)</sup>、溶存酸素量<sup>7)</sup>等によって変化し、消化時間は水温<sup>8),9)</sup>、飼料の種類<sup>10)</sup>や物理化学的性質<sup>11),12)</sup>によって変化することが報告されている。

又、Dawes<sup>13)</sup>は飼料を反覆して与えると先に摂取した内容物は反射的に急速に移動し、十分に消化、吸

取されないうちに排泄されてしまうと報告している。

これら魚類飼育上の水質悪化についての報告は主として自然を利用した養殖池における水質汚濁として取り上げられている場合が多い。

一方、魚類の生活環境としての水質の基準は水産環境基準に定められており、各種の自然環境で魚類等の水産生物が正常な生息と繁殖を保証することを目的としている。又、アメリカのStandard Methods等では生物検定時の水質を定めており、試験目的以外の水質による影響を防ぐよう指示している。

蓄養時あるいは試験時に、一定水量に対して魚体量、投餌がその水質に対してどの程度の汚濁負荷となるかを知り、飼育水の水質を安定かつ良質に保持する為の基礎資料とするために、コイを用いての本実験を試み、若干の知見を得たので報告する。

### 2. 実験方法

#### 2-1 供試魚

神奈川県淡水魚増殖試験場においてふ化1ヶ月後の稚魚を購入選別し、15ヶ月間蓄養したコイを水温20.0

Effects of feeding on water quality in fish rearing.

\* Haruko Saito, 横浜市公害研究所水質部門

±1.5°Cで2週間順化した後、異状のないもの 366尾を試験に用いた。尚、試験前5日間は餌止めを行った。

### 2-2 試験水槽

奥行42.5×巾88.0×高さ58.0cmのガラス水槽に150ℓの脱塩素上水を入れ、500ml/minの空気量で直径2.5cmの球型散気石を用いて散気した。

### 2-3 飼料の種類及び給餌方法

生物飼料には当所で生育したイトミミズを用い、人工飼料には、市販のコイ稚魚用3C(以下コイ用飼料と言う)及びマス稚魚用3C(以下マス用飼料と言う)を用いた。これらの飼料の主成分は表-1に示す通りである。

表-1 試験に用いた飼料の主成分

成分	コイ用 <sup>*1</sup> 人工飼料	マス用 <sup>*1</sup> 人工飼料	イトミミズ <sup>*2</sup>
粗たん白質	43.0%	46.0%	59.6%
粗脂肪	3.0	3.0	19.0
粗繊維	3.0	2.5	
粗灰分	16.0	16.0	5.8
カルシウム	2.3	2.5	0.2
りん	1.6	1.5	0.52

\*<sub>1</sub> 市販飼料添付の成分表による

\*<sub>2</sub> 養魚学各論・川本信之編(恒星社厚生閣版)による

投餌時における飼料の溶解等による水質への影響を防ぐために、生物飼料は良く水洗して汚れないものを、人工飼料は16メッシュのフルイにかけたものを用意し、1分間に摂取するだけの量を1~2回/日の割合で与え、各飼料とも食べ残しのないように配慮した。

### 2-4 採水及び分析

採水は1回/日飼料投与前に行い、水素イオン濃度(pH)はpHメータにより、溶存酸素量(DO)はウインクラー・アジ化ナトリウム変法、化学的酸素要求量(COD)は100°C過マンガン酸カリウム法、総窒素量(T-N)はデバルタ合金蒸留・インドフェノール法、アンモニア性窒素量(NH<sub>4</sub>-N)はインドフェノール法により測定した。

又、総窒素量からアンモニア性窒素量を引いて亜硝酸・硝酸性窒素量(NO<sub>2</sub>・NO<sub>3</sub>-N)を求めた。

供試水である脱塩素水は魚類を飼育する前に採水し、上記の項目以外に、残留塩素量、亜硝酸量、総硬度、塩素イオン量を上水試験法により分析した。

### 2-5 試験条件

20.0±1.4°Cの脱塩素上水150ℓに総体重300g、550gのコイを飼育し、各々においてコイ用飼料投与、マス用飼料投与、イトミミズ投与の3投与群と飼料無投与の群、合計4群に分け、168時間の止水試験を行った。

## 3. 結果

試験に用いたコイの体長及び体重の測定結果は表-2に示す通りである。コイ総体重300g飼育のコイ用

表-2 飼育試験に用いたコイの体長と体重

投与飼料	尾数	体長 $\bar{x} \pm SD$ cm	体重 $\bar{x} \pm SD$ g	総体重 g
300g 飼育群				
無投与	32	7.19 0.91	9.57 3.57	305.9
コイ用人工飼料	30	7.35 0.98	10.24 4.34	307.2
マス用人工飼料	30	7.46 0.87	10.23 3.84	306.6
イトミミズ	30	7.76 1.10	11.32 4.86	339.6
550g 飼育群				
無投与	60	7.08 1.23	9.51 5.00	570.6
コイ用人工飼料	61	7.13 1.13	9.76 5.01	595.4
マス用人工飼料	62	7.18 1.11	9.26 4.36	574.1
イトミミズ	61	7.02 1.09	8.53 4.18	520.3

飼料、マス用飼料、イトミミズ各投与群及び飼料無投与群の各々の平均体重は9.57±3.57g(n=32), 10.24±4.34g(n=30), 10.23±3.84g(n=30), 11.32±4.86g(n=30)となり、各群の間に危険率5%(以下P=0.05と言う)で有意差は認められなかった。コイ総体重550g飼育も同様に、各々の平均体重9.51±5.00g(n=60), 9.76±5.01g(n=61), 9.26±4.36g(n=62), 8.53±4.18g(n=61)となり、各群の間にP=0.05で有意差は認められなかった。しかし、各群の総体重には多少の差が見られたので、測定結果を総体重300g、550gに補正して、以下検討を行った。

本試験に用いた脱塩素水の理化学的性状は表-3に示す通りであり、pHは7.86±0.20、CODは1.7±0.3mg/ℓ、NO<sub>3</sub>-Nは1.4±0.3mg/ℓと上水と比較するとやや高めであるが、DOは8.8±0.6mg/ℓとほぼ飽和状態であり、総硬度、塩素イオン量は各々69.4±3.0mg/ℓ、17.5±1.5mg/ℓと上水とほとんど変わらず、コイの飼育水としては良好な状態であった。

飼料の投与は、コイ総体重300g飼育の各群共に実験期間中9回行い、コイ用飼料投与群では総投与量13.13g、1回の平均投与量は1.46±0.25gであった。同様にマス用飼料投与群では各々15.39g、1.71±

表一三 供試脱塩素水の理化学的性状

項目	$\bar{x}$	$\pm$ SD
pH	7.86	0.20
DO $mg/\ell$	8.8	0.6
COD $mg/\ell$	1.7	0.3
T-N $mg/\ell$	1.4	0.3
NH <sub>4</sub> -N $mg/\ell$	N D	
NO <sub>2</sub> -N $mg/\ell$	N D	
NO <sub>3</sub> -N $mg/\ell$	1.4	0.3
総硬度 $mg/\ell$	69.4	3.0
塩素イオン $mg/\ell$	17.5	1.5

n=11

0.50gであり、イトミミズ投与群では各々 62.21g, 6.91 $\pm$ 1.74gであった。コイ総体重550g飼育においては各群共期間中6回の投与であり、コイ用飼料投与群では総投与量17.07g, 1回の平均投与量は2.85 $\pm$ 0.37gであった。同様にマス用飼料投与群では各々 18.06g, 3.01 $\pm$ 0.86g, イトミミズ投与群では各々64.63g, 10.77 $\pm$ 2.44gであった。

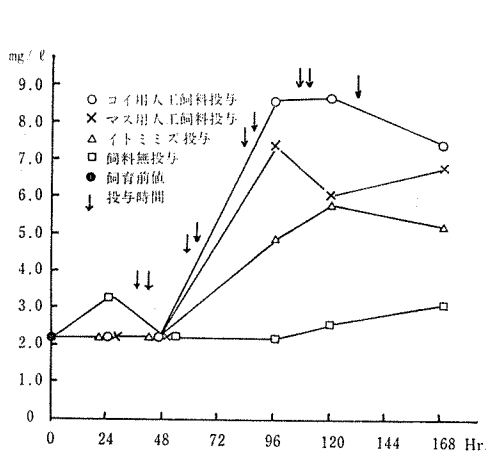
摂取量のバラツキの原因は、1分間に摂取するだけの量としたことと、試験が短期間であった為にコイが

表一四 実験期間の飼育水のpHとDOの測定結果

総体重	項目	飼料無投与 $\bar{x} \pm$ SD	コイ用人工飼料 $\bar{x} \pm$ SD	マス用人工飼料 $\bar{x} \pm$ SD	イトミミズ $\bar{x} \pm$ SD
300g	pH	7.59 0.08	7.56 0.08	7.55 0.08	7.49 0.13
	DO	7.8 0.3	7.8 0.4	7.5 0.3	7.2 0.5
550g	pH	7.72 0.10	7.52 0.18	7.51 0.19	7.56 0.13
	DO	7.6 0.3	6.6 0.7	6.5 0.7	6.8 0.5

n=6

DOの単位=mg/ℓ

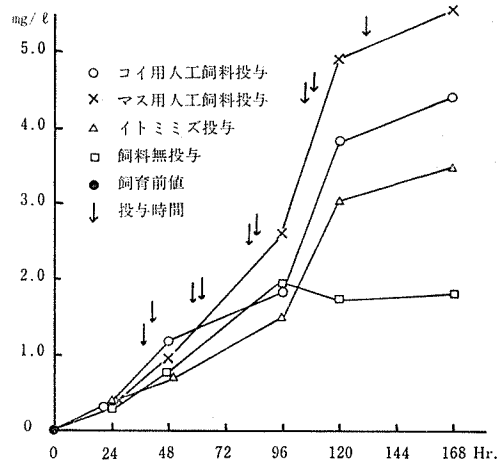


図一 300g飼育水のCOD濃度の経時変化

環境の変化に順応しきれなかったことによると考える。又、人工飼料と生物飼料の大きな差は、人工飼料では含水率の平均が10.4%であったのに対し、生物飼料のイトミミズでは平均が90.0%であったことも大きな原因の1つであると考えられる。飼料投与量のこの範囲でのバラツキは実際の毒性実験時に起り得るものとして、ここではこれらの条件下での水質影響について分析を行った。

実験期間中の各群におけるpHとDOの測定結果は表一四に示す通りである。pHではコイ総体重 300g及び550g飼育時に、コイ用飼料, マス用飼料, イトミミズ各々の投与群及び飼料無投与群の全ての群の間に  $P=0.05$ で有意差はなく、又、7.49 $\pm$ 0.13から7.72 $\pm$ 0.10の範囲にあり、飼育水としては良好な範囲にあった。DOは総体重 300g飼育時には各群の間に  $P=0.05$ で有意な差はなかったが、550g飼育時には飼料無投与群の7.6 $\pm$ 0.3mg/ℓと比較すると、飼料投与群ではコイ用, マス用, イトミミズと各々 6.6 $\pm$ 0.7, 6.5 $\pm$ 0.7, 6.8 $\pm$ 0.5mg/ℓとなり、 $P=0.05$ で有意な低下を示した。

コイ総体重 300g飼育水のCODと窒素化合物の経時



図二 300g飼育水のNH<sub>4</sub>濃度の経時変化

表—5 コイ総体重 300g飼育水の COD と窒素化合物の経時変化

時間	飼 料 無 投 与					コ イ 用 人 工 飼 料 投 与				
	COD mg/ℓ	T-N mg/ℓ	NH <sub>4</sub> -N mg/ℓ	NO <sub>2</sub> ・NO <sub>3</sub> -N mg/ℓ	NH <sub>4</sub> -N /T-N %	COD mg/ℓ	T-N mg/ℓ	NH <sub>4</sub> -N mg/ℓ	NO <sub>2</sub> ・NO <sub>3</sub> -N mg/ℓ	NH <sub>4</sub> -N /T-N %
24	3.2	1.93	0.32	1.61	16.6	2.1	1.81	0.33	1.48	1.82
48	2.1	2.52	0.78	1.74	31.0	2.1	2.66	1.18	1.48	44.4
96	2.1	4.71	1.97	2.74	41.8	8.5	6.44	1.88	4.56	29.2
120	2.5	3.13	1.75	1.38	55.9	8.6	5.12	3.83	1.29	74.8
168	3.0	3.34	1.83	1.51	54.8	7.3	5.82	4.46	1.36	76.6

表—6 コイ総体重 550g飼育水の COD と窒素化合物の経時変化

時間	飼 料 無 投 与					コ イ 用 人 工 飼 料 投 与				
	COD mg/ℓ	T-N mg/ℓ	NH <sub>4</sub> -N mg/ℓ	NO <sub>2</sub> ・NO <sub>3</sub> -N mg/ℓ	NH <sub>4</sub> -N /T-N %	COD mg/ℓ	T-N mg/ℓ	NH <sub>4</sub> -N mg/ℓ	NO <sub>2</sub> ・NO <sub>3</sub> -N mg/ℓ	NH <sub>4</sub> -N /T-N %
24	2.8	2.36	0.50	1.86	21.2	2.1	2.42	0.47	1.95	19.4
48	2.6	2.75	1.64	1.11	59.6	7.3	4.45	2.20	2.25	49.4
72	3.3	3.49	1.55	1.94	44.4	10.1	5.48	3.54	1.94	64.6
96	3.9	3.74	1.80	1.94	48.1	16.6	7.02	5.22	1.80	74.4
120	3.7	4.56	2.65	1.91	58.1	16.3	8.56	6.68	1.88	78.0
168	4.3	4.82	3.21	1.61	66.6	15.9	9.79	7.79	2.00	79.6

変化は表—5及び図—1, 2に示した通りである。CODは図—1に示すように飼料無投与の場合96時間迄はほとんど増加せず、その後漸時増加し、168時間後でも3.0mg/ℓであったが、飼料を投与すると、3群共48時間後まではほとんど増加が見られなかったが、その後急激な増加を示した。しかし、飼料の投与を停止すると、その値は低下の傾向を示し、168時間後にはコイ用飼料投与群、マス用飼料投与群、イトミミズ投与群の各々で、7.3, 6.7, 5.2mg/ℓとなった。96時間以後では飼料無投与群と飼料投与群との間にP=0.01で有意な差が認められた。T-Nについても、CODとはほぼ同様の傾向が認められ、168時間後で飼料無投与群、コイ用飼料、マス用飼料、イトミミズの各飼料投与群と各々3.34, 5.82, 7.37, 5.19mg/ℓとなり、96時間を越えると飼料無投与群と投与群の間にP=0.01で、人工飼料と生物飼料の間ではP=0.05で有意な差が認められた。NH<sub>4</sub>-Nは図—4に示すように、飼料無投与ではゆるやかな増加を示し、168時間後では1.83mg/ℓとなった。飼料投与群では96時間迄は無投与の群と同様の増加傾向を示したが、それ以後では急激に増加し、168時間後ではコイ用飼料、マス用飼料、イトミミズの各投与群で各々4.46, 5.61, 3.53mg/ℓとなった。96時間以後では、飼料無投与群と飼料投与群との間にP=0.05で、有意な差が見られたが、飼料投与群の間では有意な差は認められなかつ

た。NO<sub>2</sub>・NO<sub>3</sub>-Nは実験期間中96時間目を除いては多少の変動を示しただけで、ほぼ安定した値を示し、全実験期間を通して4群の間にP=0.05で有意な差は認められなかった。NH<sub>4</sub>-NのT-Nに占める割合は漸時増加し、168時間後で飼料無投与の場合54.8%となり、飼料投与群ではコイ用、マス用、イトミミズと各々76.6, 76.1, 68.0%となった。

コイ総体重550g飼育水におけるCODと窒素化合物の経時変化は表—6及び図—3, 4に示した通りである。CODは図—3に示されるように、飼料無投与の場合ゆるやかな増加を示し、168時間後に4.3mg/ℓとなった。飼料投与群では24時間を越えると急激な増加を示し、特に人工飼料ではその傾向が顕著であったが、人工飼料では96時間を越えると、又生物飼料では120時間を越すと、漸時減少し、168時間後に、コイ用飼料、マス用飼料、イトミミズの各投与群で各々15.9, 14.4, 3.9mg/ℓとなった。48時間以後では飼料無投与群と飼料投与群の間ではP=0.01で、人工飼料と生物飼料投与群との間ではP=0.05で各々有意差が認められた。T-Nにおいても4群共にCODと同様の傾向を示し、168時間後で、飼料無投与群及びコイ用飼料、マス用飼料、イトミミズの各投与群の各々が4.82, 9.79, 11.18, 4.96mg/ℓとなった。48時間以後では飼料無投与群と飼料投与群の間にはP=0.05で有意差が示されたが、飼料投与群の間では有意差は認められな

マス用人工飼料投与					イトミミズ投与				
COD mg/ℓ	T-N mg/ℓ	NH <sub>4</sub> -N mg/ℓ	NO <sub>2</sub> ・NO <sub>3</sub> -N mg/ℓ	NH <sub>4</sub> -N /T-N %	COD mg/ℓ	T-N mg/ℓ	NH <sub>4</sub> -N mg/ℓ	NO <sub>2</sub> ・NO <sub>3</sub> -N mg/ℓ	NH <sub>4</sub> -N /T-N %
2.1	1.91	0.37	1.54	19.4	2.1	1.92	0.37	1.55	19.3
2.1	2.99	1.00	1.99	33.4	2.1	2.41	0.71	1.70	29.5
7.3	8.70	2.63	6.07	30.2	4.7	6.25	1.52	4.73	24.3
6.0	6.36	4.96	1.40	78.0	5.7	4.34	3.07	1.27	70.7
6.7	7.37	5.61	1.76	76.1	5.2	5.19	3.53	1.66	68.0

マス用人工飼料投与					イトミミズ投与				
COD mg/ℓ	T-N mg/ℓ	NH <sub>4</sub> -N mg/ℓ	NO <sub>2</sub> ・NO <sub>3</sub> -N mg/ℓ	NH <sub>4</sub> -N /T-N %	COD mg/ℓ	T-N mg/ℓ	NH <sub>4</sub> -N mg/ℓ	NO <sub>2</sub> ・NO <sub>3</sub> -N mg/ℓ	NH <sub>4</sub> -N /T-N %
2.3	2.39	0.53	1.86	22.2	2.2	2.61	0.55	2.06	21.1
6.5	4.75	2.67	2.08	56.2	3.4	3.75	1.79	1.96	47.7
11.0	6.58	3.99	2.59	60.6	5.8	4.49	2.64	1.85	58.8
16.2	7.72	5.59	2.13	72.4	7.7	5.14	3.55	1.59	69.1
12.1	8.33	7.02	1.31	84.3	8.9	6.91	4.64	2.27	67.1
14.4	11.18	8.35	2.83	74.7	3.9	4.96	2.90	2.06	58.5

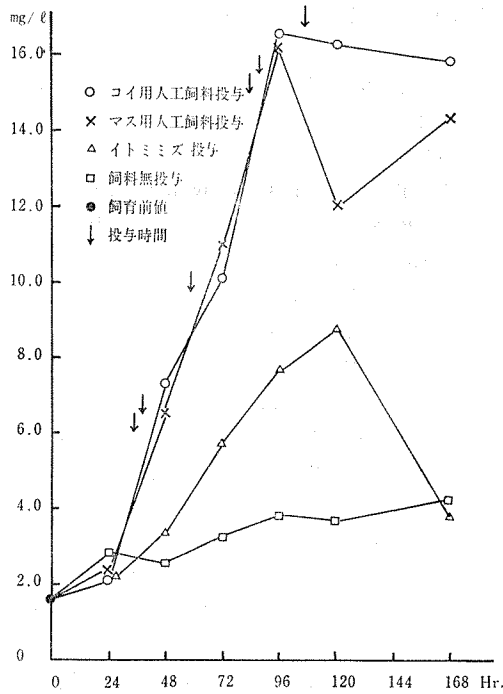


図-3 コイ総体重 550g飼育水のCOD濃度の経時変化

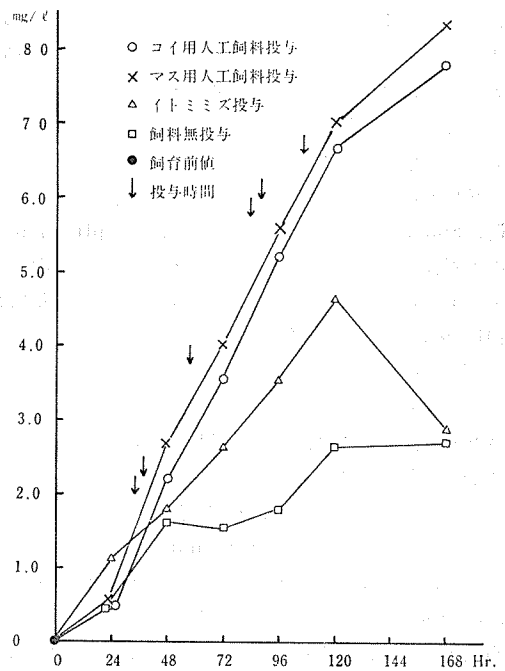


図-4 コイ総体重 550g飼育水のNH<sub>4</sub>濃度の経時変化



かった。NH<sub>4</sub>-N は図-4にも示すように飼料無投与群ではゆるやかな増加を示し、168時間後で3.21mg/ℓとなり、人工飼料投与群では24時間を越えると急激な増加を示し、飼料の投与を中止しても、率は低下するけれども増加は継続し、168時間後でコイ用飼料では7.79mg/ℓ、マス用飼料では8.35mg/ℓとなった。イトミミズを投与した生物飼料投与群は飼料無投与群と人工飼料投与群との中間の増加を示したが、120時間を越すと飼料投与中止の影響による為か減少し、168時間後で2.90mg/ℓとなった。しかし、飼料無投与群と飼料投与群の間ではP=0.05で有意差を認められたが、人工飼料と生物飼料の群の間には有意差が認められなかった。NO<sub>2</sub>・NO<sub>3</sub>-Nは、コイの総体重300g飼育時と同様にわずかな変動であって、実験期間中各群共ほぼ一定の値を示し、4群の間に有意差は認められなかった。NH<sub>4</sub>-NのT-Nに占める割合は漸時増加したが、96時間を越えるとその増加率は低下し、300g飼育時とほぼ同程度の割合を示した。

#### 4. 考 察

今回の実験における飼料の摂取量は石渡<sup>16)</sup>の報告にある、魚類の飽食量が魚体重の約8%であることと比較してかなり少ない量であったが、これは大方<sup>5)</sup>、石渡<sup>17)</sup>の指適にもあるように短期間試験であった為にコイが環境に順応しきれなかったことと摂取時間を1分間としたことに起因するものと考えられる。実際の生物検定時には摂取量を一定化する為にこれらを考慮した魚体重及び使用尾数を決定すべきであり、試験装置等への配慮も必要である。

魚類の飼育あるいは魚類を用いた生物検定等を行う時、Standard Methods等によると、水のpHは7.0~8.2が良好な範囲であるとしている。本実験結果は各群ともこの範囲に入っており、本実験条件の範囲ではpHの変化に対する考慮は必要としない。

飼育水中の溶存酸素量は千葉<sup>7)</sup>の報告にもあるように魚類飼育上きわめて重要なものであり、これを变化させる要因としては、魚の呼吸量、残留飼料の酸化、未消化飼料分の多い糞の酸化等による溶存酸素の消費と水の流れ及び散気等による溶存酸素の補給があげられる。本実験においては500ml/minの散気下でコイを飼育したが、飼料無投与群においては総魚体重300gと550gの間に溶存酸素量の差はみられなかったが、飼料投与群では体重の増加に伴い溶存酸素量が減少し、その度合は飼料の種類によって影響されなかった。生物検定上の溶存酸素量は酸素飽和度60%以上を必要としており、20℃に換算すると約5mg/ℓ以上を必要と

する。実験の結果ではこの値を充分満足したが、溶存酸素を消費する割合からみると、呼吸量による影響よりも、短時間ではあるが、飼料の溶解したものの腐敗と、未消化飼料を含む糞の酸化による影響がわずかではあるが現れたものと考えられる。飼育水の安定化を図る為には飼料の投与量と総魚体重量とを考慮した散気量に調整する必要がある。

CODを变化させる要因としては残留飼料、飼料の溶解、未消化飼料を含む糞に加えて魚体表面からの分泌物等が考えられるが、生物検定上では10mg/ℓ以下とし、その変動率は10%以下としている。本実験結果では魚体重量だけを増加させてもCODは増加せず、飼料の投与によって急激に増加し、その増加率は魚体重量の増加に伴って増加する。しかもその増加の割合は飼料の種類によって大きく異なり、生物飼料よりも人工飼料の方が大きいことが示された。このことは、投餌後12時間でミミズは70%消化されるのに対し、固形飼料等では30%程度しか消化されなかったとするWindellら<sup>9)</sup>の報告をよく反映している。又、前述の良好な水質を目標とした時、総魚体重300g飼育時では全実験期間168時間間は満足したが、550g飼育では、人工飼料では72時間前後、生物飼料でも飼料投与中ならば120時間迄しか満足されない。従って飼育水のCODの変動は飼料の未消化による糞の影響が最も大きな要因であろうと考える。

魚類の生長を阻害する最も大きな要因としては、前述の溶存酸素量と並んで窒素化合物、特にアンモニア<sup>14),18)</sup>がある。飼育水中の窒素化合物は主として魚類の排泄物に起因する。即ちBaldwin<sup>19)</sup>は淡水魚の尿組成で52.2%がアンモニアであるとし、糞中には摂取窒素の約85%が窒素化合物として排泄されると報告している。糞中の窒素化合物は水中細菌によってアンモニアに比較的短時間のうちに分解され、更に水中のアンモニア濃度を増加させると報告している。本実験結果においても、総窒素に占めるアンモニアの割合は、飼料無投与でも経時的に徐々に増加し、魚体重の増加によってもわずかに増加した。又、飼料の投与により更に増加し、魚体重量の増加は更にその比率を大きくした。亜硝酸・硝酸性窒素は総魚体重量、飼料の投与、飼料の種類を变化させてもほとんど変化しなかった。このことから、窒素化合物の中でアンモニアがその水質汚濁の主要因であることが判明した。しかし、その量はコイ総体重300g飼育時と550g飼育時を比較すると判るように、総魚体重量を増加させてもその割合にはアンモニア比は増加しなかった。このことは、散気によるアンモニアの揮散と、Botan<sup>20)</sup>の言う硝酸還元

菌の作用によるものと考えられる。しかし、今回得られたアンモニアの量は実際にはそのほとんどがアンモニウムイオンとして存在し、アンモニアの量は Sillen 等<sup>21)</sup>によれば、水温及び pH によって変化し、20°C では pH 7.0, 7.5, 8.0 と変化させると 0.37, 1.2, 3.7% に変化するとされている。この割合を本実験にあてはめて換算すると、Standard Methods に示めされたアンモニアとしての水質目標 20 $\mu\text{g}/\text{l}$  を満足するにはコイ総体重 300g 飼育の飼料投与 2 回で 48 時間迄であり、550g 飼育時では飼料無投与の 24 時間迄が限界となる。

従って飼育水の水質管理には一定量の酸素補給があればアンモニア性窒素量が最も重要な指標になることが判明した。又、これを指標として魚体重 1g で 1 日当りのコイ飼育水の最低必要量を影響の最も多かった人工飼料の結果から算出すると、総体重 300g 飼育時からは 0.25 $\text{l}$ 、550g 飼育時からは 0.27 $\text{l}$  となり、ほぼ同様の数値が得られた。Standard Methods で言われている一般的な目安 2~3 $\text{l}/\text{g}$  日と比較するとかなり少ない量で充分であることが解った。しかし、試験の方法、即ち止水、換水、流水等の方式、あるいは同時に投与する飼料の種類、投与量にも大きく影響されることから、蓄養時あるいは生物検定時のこれらへの配慮が必要である。

## 5. 結論

生物検定に関する魚類の飼育水の水質を安定かつ良質なものとする為の基礎研究として、150 $\text{l}$  の水に 500 $\text{ml}/\text{min}$  の散気をした中に平均魚体重約 10g のコイを総体重 300g 及び 550g 飼育し、人工飼料としてコイ用飼料及びマス用飼料、生物飼料としてイトミミズを 1 分間に摂取する量を 1 日 1~2 回与え、その水質の経時的変化を検討した結果、次の知見が得られた。

1) 各群の水素イオン濃度、溶存酸素量については魚類生活の環境としても、投餌を前提とした生物検定試験時の条件としても、pH は 7.49~7.76 の範囲にあり、溶存酸素量は 6.0 $\text{mg}/\text{l}$  以上という、良好な状態であった。

2) 化学的酸素要求量は主として飼料の未消化物を含む糞による影響であることが判明し、生物検定時の水質の目安である 10 $\text{mg}/\text{l}$  を満足するのは総体重 300g のコイ飼育時では全実験期間の 168 時間、総体重 550g 飼育時では人工飼料で 72 時間、生物飼料では 120 時間迄となった。

3) 窒素化合物は魚類の排泄に大きな原因を有し、その増加は投餌と大きな係りをもつことがわかった。

飼育水の汚濁源としては窒素化合物の内アンモニア性窒素がその主たるものであり、飼料無投与時においても経時的に増加した。そしてアンモニア性窒素は飼料の投与及び総体重の増加によって大きく増加し、生物飼料よりは人工飼料の方がその割合は大であった。又それらに係りなく、120 時間後からは増加率が少なくなることがわかった。

4) 魚類の飼育水の汚濁の指標としてはアンモニア性窒素が最も適していることが判明した。

5) 散気等による溶存酸素の補給が充分である時、本実験の結果からアンモニア性窒素を指標として、魚体重 1g 当りの最低必要水量を算出すると 1 日当り 0.27 $\text{l}$  となった。

6) 飼料の種類では生物飼料より人工飼料の方が水質汚濁を起し易かった。

## 文 献

- 1) Kawai S., et al : Studies on digestive enzymes of fishes. I. Carbohydrases in digestive organs of several fishes. 日水試, 37, 333-337 (1971).
- 2) 永山文男他 : 魚類の  $\beta$ -グルクロニダーゼ分布. 日水試, 33, 1132-1138 (1967).
- 3) 石渡直典 : 魚の摂取量に関する研究 (1963) 東京大学学位論文.
- 4) O. W. Neuhaus, et al : *Fish in Research*, 263-292 (1968). Academic Press, New York & London.
- 5) 大方昭弘 : 群れの中の個体の行動について-I. ウミタナゴの摂取. 日水誌, 36, 1101-1108 (1970).
- 6) 河野秀雄他 : 魚の摂取量と増重量の関係. I. 日摂取量が最大になる投餌回数. 日水試, 37, 169-175 (1971).
- 7) 千葉健治 : コイ稚魚の成長に及ぼす溶存酸素量の影響について. 淡水研報, 15, 35-47 (1965).
- 8) 尾崎久雄 : 魚類生理学講座, 4, 消化の生理 [下]. 328 (1972) 緑書房.
- 9) J. T. Windell, et al : Gastric digestion and evacuation in rainbow trout. *Prog. Fish-Cult.*, 31, 20-26 (1969).
- 10) J. B. Brett, et al : Effect of temperature on the rate of gastric digestion in fingerling Sockeye Salmon, *Oncorhynchus nerka*. *J. Fish. Res. Bd. Can.* 27, 1767-1779 (1970).
- 11) 北御門学他 : 餌料蛋白質のニジマスにおける消

- 消化率. I. 数種餌料蛋白質の消化率. 日水誌, 30, 46—49 (1964).
- 12) 北御門学他: 飼料蛋白質のニジマスにおける消化率. II. 餌料の澱粉, 油脂含量並びにニジマスの大きさの影響. 日水誌, 30, 50—54 (1964).
- 13) Dawes, B.: The histology of the alimentary tract of the plaice (*Pleuronectes plaessa*). *Quart. J. Microscop. Sci.*, 73, 243—274 (1929).
- 14) Kawamoto, N. Y., et al: Studies on effect by the pond-area and the densities of fish in water upon the growth rate of carp (*Cyprinus carpio L.*). *Rept. Fac. Fish Pref. Univ. Mie.*, 2, 437—447, (1957).
- 15) 川本信之: 魚類生理学から見た淡水養殖. I. 養魚池に於ける魚類排泄窒素の魚類成長に及ぼす影響に就て. *Rept. Fac. Pref. Univ. Mie.*, 3, 104—121 (1958).
- 16) 石渡直典: 魚の摂取に関する生態学的研究. V. 魚の大小と飽食量との関係. 日水誌, 34, 781—784 (1968).
- 17) 石渡直典: 魚の摂取に関する生態学的研究. II. 魚群の慣れと飽食量との関係. 日水誌, 34, 498—502 (1968).
- 18) Kawamoto, N. Y.: Production during intensive carp culture in Japan. *Prog. Fish-Cult.*, 19, 26—31 (1957).
- 19) Baldwin, F.: 魚類生理, 川本信之, 288(1977). 恒星社厚生閣.
- 20) Botan, E. A., et al: A study of the micrological decomposition of nitrogenous matter in fresh water. *Arch. f. Hydrobiol.*, 56, 334—354 (1960).
- 21) Sillen and Martell: *Stantard Methods For the Exanination of Water and Wastewater*. 14th. A. P. H. A., A. W. W. A. and W. P. C. F. 717 (1975). American Public Health Association.

# 酸素欠乏・過多、及び残留塩素曝露時におけるコイ (*Cyprinus carpio*) の鰓の形態学的変化について

水尾 寛 巳\*

## 要 約

魚の健康状態に係わる簡便な検査項目の一つとして、実体観察による鰓組織像が注目される。今回、コイの鰓組織に与える酸素の欠乏・過多及び残留塩素の影響を実体観察により検討した。

酸素の欠乏時においては、鰓弁および二次鰓弁の上皮が収縮する、すなわち二次鰓弁の呼吸面積が広がる傾向が見られ、死亡時点でも同様な像を示す傾向が明らかになった。

また、残留塩素に曝露された場合、鰓組織に一定の形態変化が見られた。

以上のことより、組織標本を用いずに、実体観察だけでも、水質変化の影響を把握できる見通しが得られた。

## 1. はじめに

1977年に横浜市が「工場等の排水に係る魚類飼育指針」<sup>1)</sup>を公表してから、すでに2年が経過し、現在、4事業場で「飼育指針」に基づき飼育がおこなわれている。この「飼育指針」はコイを指標魚として、1年間の飼育を義務づけている。指針を公表後、現在まで、魚類指標排水規制基礎研究会、公害対策局水質課と共同で、指標魚の検査項目・方法、判定手法<sup>2)</sup>について検討を進めている。

検査項目としては、専門家でもできる項目と専門家、研究者が行なうべき項目を区分し、総合的判定をより客観的に行なえるような方式の研究が必要とされる。専門家でもできる項目として、組織学的検査については、パラフィン包埋・染色を必要とする組織標本を作らないで、単時間に、簡単に把握できる方法（一次スクリーニング用）、たとえば体色の評価、臓器の色の客観化と環境因子との関係、臓器の実体観察による検査手法の開発などがあげられるが、この様な検査を実施するためには、少なくとも裏付けとなる基礎的研究の積み重ねが必要である。

また、屋外飼育魚を用いて検査を行なう場合、研究室での実験とは異なり、サンプリング等の過程での魚体へかなりのストレスを与えることも少なくない。したがって、ストレスを最少限にする方法を確立すると

ともに、一時的ストレスを無視できる検査項目の選定が要求される。

今回、簡便で専門家でもできる項目の一つとして、鰓 (gill) について、組織標本を作成することなく水質変化の影響を評価する方法について検討した。

鰓の構造・機能、および薬物による影響に関する報告<sup>6)~27)</sup>は、1960年以降、かなり見られる。これらの報告の中で、鰓の構造・機能に関しては、Morgan<sup>7)</sup>、Hughes<sup>8)~12)</sup>らにより、かなり明らかにされてきている。また、薬物による鰓への影響に関しては、アンモニア<sup>18)</sup>、硫化亜鉛<sup>19)</sup>、残留塩素<sup>20)</sup>、界面活性剤<sup>21)</sup>、(C)重油<sup>22)</sup>、Cu<sup>23)</sup>、Cd<sup>24)</sup>、<sup>26)</sup>、オゾン<sup>25)</sup>、ホルマリン<sup>26)</sup>、ニッケル<sup>27)</sup>、クロム<sup>27)</sup>等に関する報告がある。

これらのうち、Hughes<sup>12)</sup>、<sup>27)</sup>らは、薬物の鰓への影響を二次鰓弁の形態学的変化の数量化により表現しようと試みている。しかし、この種の研究は、基本的に鰓組織の固定—脱水—パラフィン封入—染色後の組織標本の観察結果であり、実体観察による報告例はない。

今回、鰓の実体観察による検査手法を検討するに際しては、通常、鰓は唯一の呼吸の場として重要な役割を果たしていることから、酸素欠乏・過多における変化等、通常の呼吸における特徴の観察、および残留塩

The effects of exposure to high or low dissolved oxygen and chlorine on the gill morphology of *Cyprinus carpio*

\* Hiromi Mizuo, 横浜市公害研究所水質部門

素の影響について実体観察をおこなった。

## 2. 方法

### (1) 供試魚

試験に使用した魚は体長6~9cm, 体重4~20gの当才ゴイ, および体長2~4cm, 体重0.5~2gの当才ゴイを用いた。入手先は神奈川県淡水魚増殖試験場で, 入手後約1ヶ月間以上, 室内の1m<sup>3</sup>水槽で蓄養飼育をおこない, 外観上, 良好なものを選別し, 試験に供した。

### (2) 鰓組織の固定・観察方法

供試魚は延髄刺殺後, 5%の中性ホルマリンで固定し, 固定後5分間から10分間のうちに鰓蓋を開いて, ピンセットで鰓を取り出し, ホールスライドグラスに乗せ, 5%以下の中性ホルマリンに浸し, 接眼×15, 対物×4, ×10, ×20の光学顕微鏡で観察をおこなった。また, 今回, 鰓形態変化を半定量的に把握するため, マイクロメーターの入った接眼レンズを使用した。今回, 固定時間と鰓の形態変化について, 10分間, 4時間, 24時間の比較を行ったが差は見られなかった。

ただ, 固定時間が10分以上になると, 組織の光学的透過性が悪くなり, 特に血管像が不鮮明となる。

また, 固定方法としては, 直接5~10%の中性ホルマリンに入れて固定する方法と, 頭部強打<sup>7), 12)</sup>, 又は延髄刺殺後, 中性ホルマリンで固定する方法が考えられるが, 直接中性ホルマリンで固定する方法では, 固定中に魚がばれ, 鰓形態によれが部分的に出現することがあり, 固定方法としては, 後者の方法を用いた方が良いと思われるので以下後者による固定法による。なお組織像を写真撮影するにあたっては, 固定後10分以内に観察をおこなった。

### (3) 実験に供した水

残留塩素による影響試験を除いては, 残留塩素を選択的に吸着する樹脂を通して脱塩素した水道水を, また, 残留塩素の影響試験は, イオン交換樹脂通過後のイオン交換水を使用した。

### (4) 供試水の調整と溶存酸素, 残留塩素の測定法

溶存酸素はJ I S K 0102. 24.3 ウインクラージャ化ナトリウム変法で測定した。酸素欠乏状態の供試水は7~14g/lの過密飼育, および窒素(N<sub>2</sub>)ガスを通気する方法により, また, 過飽和酸素状態の供試水は酸素ガスを300cc/minの流量で散気石で散気する方法で作らした。残留塩素は, オルトトリジン法で測定した。残留塩素濃度は, イオン交換水に次亜塩素酸ナトリウム溶液を所定の濃度になるよう添加調整し

た。

## 3. 結果

### (1) 通常の鰓組織像

コイの鰓(gill)の実体標本の組織像は通常, 図-1-(A), (B)のように観察できる。これを模式的に示したのが図-3-(A), 図-3-(A)'である。ただし, 第1鰓弓の第1片鰓は第2片鰓から第8片鰓に比べて, 鰓弁(gill filament)の上皮組織が広がっており, 図-3-(B)のような状態を示す。

第2から第8片鰓までは図-1-(A), (B)図-3-(A)のように図-3-(B)に比べて上皮組織は収縮しており, 二次鰓弁(Secondary gill lamella)への水の進入をより容易にする形態を示しているように思える。

また, 鰓弁上皮は, 小入鰓動脈(afferent filament artery)側と小出鰓動脈(efferent filament artery)側で異なり, 小入鰓動脈側の方が, より鰓弁上皮が広がっている(図-3-(H))ので, 鰓形態の観察を行なう場合, 観察部位を決めておく必要がある。ここでは, 第2, 第3鰓弓の小出鰓動脈側を中心に観察をおこなった。

### (2) 暗条件下の鰓組織像

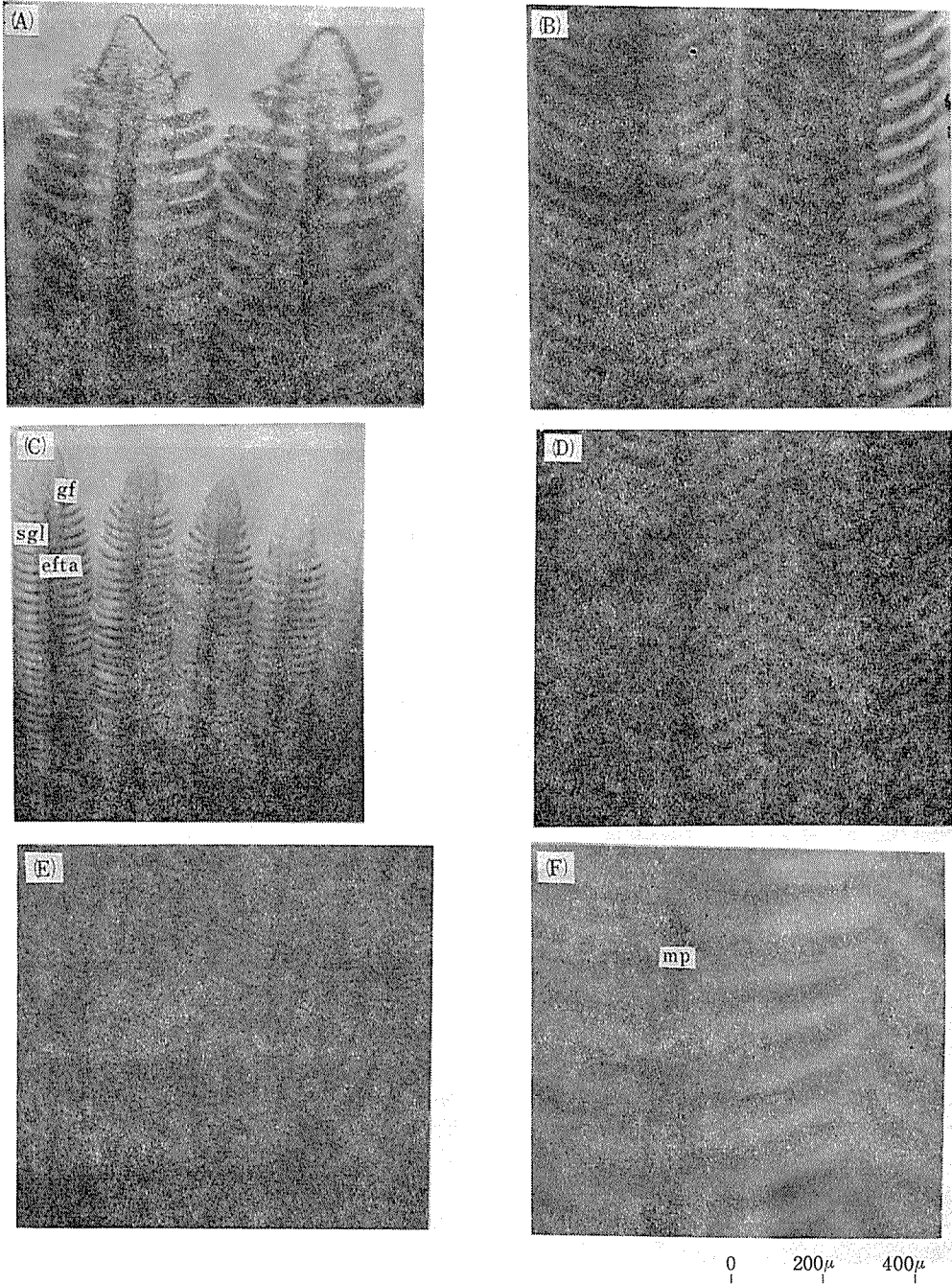
コイは1日の生活パターンの中で, 半分は暗条件下で生育しており, 通常の鰓組織像の一面として, 昼間の鰓組織像と比較してみた。

供試用のコイは体重5~10g, 10尾で, 20lの円筒水槽に入れ, 暗所に移し, 30分後, 暗条件下で延髄刺殺, ホルマリン固定をしたものについて観察した。

暗条件下に30分間隔離した魚は体色が明化現象をおこしており, それと並行して, 黒色素(melanin phore)が鰓弁上に図-1-(E), (F)のように凝集を示した。また, 暗条件下に置いた魚の方が, 通常の鰓組織像に比べて, 鰓弁の上皮が収縮しているように思われ, 酸素欠乏条件下の鰓像と類似していた。

### (3) 酸素欠乏条件下の鰓組織像

過密飼育(密封・非密封)および窒素(N<sub>2</sub>)ガスを吹きこむことにより, 酸素欠乏状態を作り, 鰓の観察をおこなった。その結果を表-1~3に示す。これらの結果からわかるように, 一般的傾向としては, 酸素欠乏条件下においては, 鼻上げ開始時において, 鰓弁の上皮が, わずかに広がり, その後は通常の鰓組織像, ないしは, 図-1-(C), (D)のように鰓弁の上皮が収縮する傾向がある。また, 鰓弓寄りにおいて, 隣接する鰓弁の二次鰓弁先端との間に間隙が多くなる傾向が見られた。



図一 鰓 (GILL) 組織の実体像

(A) : 通常の鰓 (約100倍)

(C) : 酸素欠乏条件下の鰓 (約40倍)

(E) : 暗条件下の鰓 (約30倍)

gf : 鰓弁 (gill filament)

effa : 小出鰓動脈 (effarent filament artery)

(注) : スケールは約 100倍で撮影した時のものを示す。

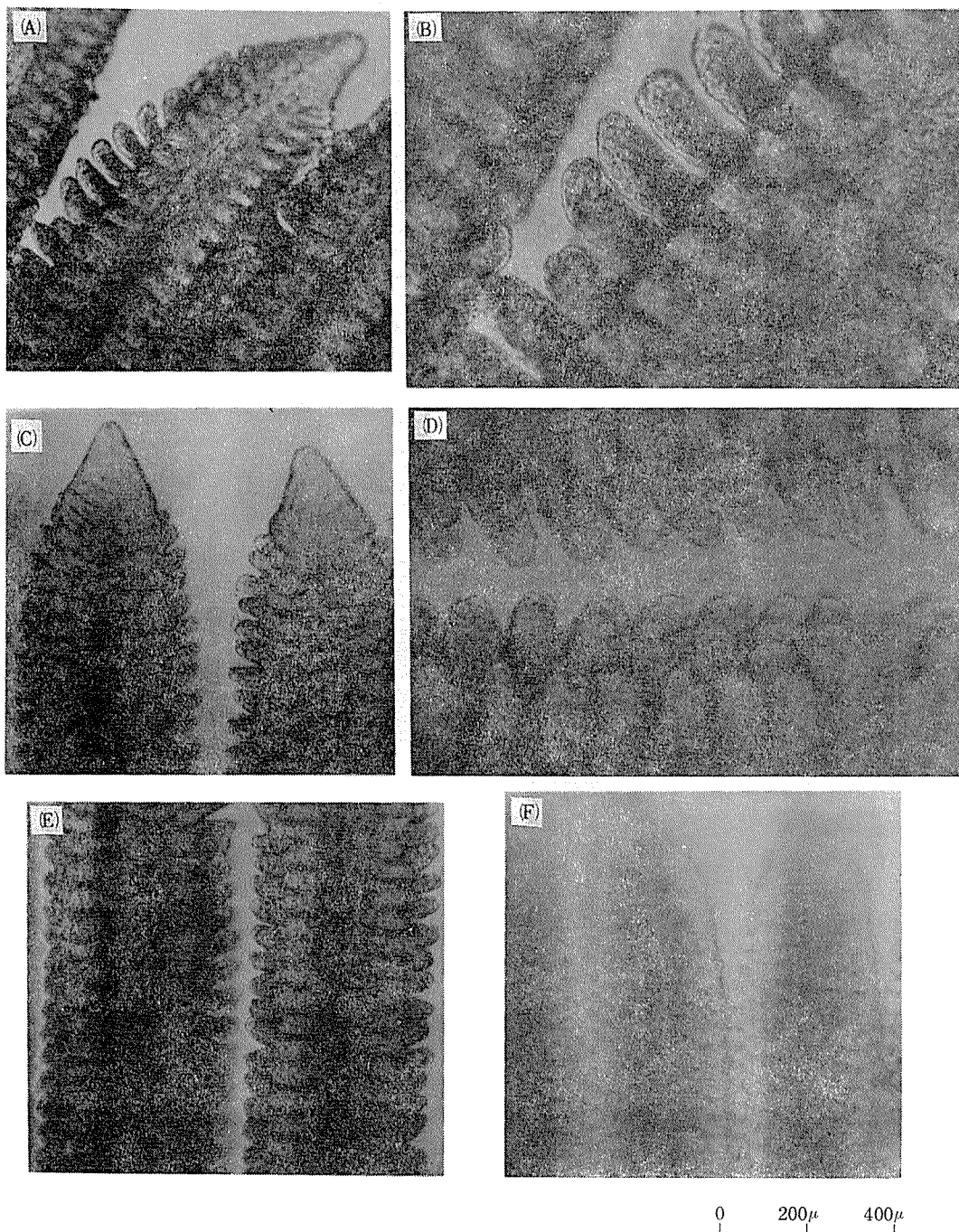
(B) : 通常の鰓 (約100倍)

(D) : 酸素欠乏条件下の鰓 (約100倍)

(F) : 暗条件下の鰓 (約240倍)

Sgl : 二次鰓弁 (Secondary gill lamella)

mp : 黒色素胞 (melanin phore)



図—2 鰓 (GILL) 組織の実体像

- (A) : 残留塩素濃度  $0.3\text{mg}/\ell$  に 5 分間曝露 (約100倍)      (B) : 残留塩素濃度  $0.3\text{mg}/\ell$  に 5 分間曝露 (約240倍)  
 (C) : 残留塩素濃度  $0.3\text{mg}/\ell$  に 10分間曝露 (約100倍)      (D) : 残留塩素濃度  $0.3\text{mg}/\ell$  に 10分間曝露 (約240倍)  
 (E) : 残留塩素濃度  $0.3\text{mg}/\ell$  に 10分間曝露 (約100倍)      (F) : 残留塩素濃度  $0.3\text{mg}/\ell$  に 15分間曝露 (約100倍)
- (注) : スケールは約 100倍で撮影した時のものを示す。







表一1 酸素欠乏条件下における鰓組織像（過密飼育・密封条件）

内 容	コントロール	曝 露 時 間			
		1 時間	2 時間	4 時間	5 時間
供 試 尾 数	5	10	10	10	10
溶存酸素(DO) (mg/l)	6.8	3.4	0.8	0.6	0.6
魚 の 状 態			鼻上げ開始		死亡魚発生
鰓 形 態 ※ <sup>1</sup>	(A)	(A), (B)	(B)	(A), (C)	(C)

(注) 約 1g のコイ, 10尾を, 水 1.5 l のビニール袋に入れて封入する。水温 20°C ± 2°C, 水の導電率は 0 時間から 5 時間まで 25 μS/cm

※<sup>1</sup> 鰓の形態は, 図-3. 鰓組織の実体レベルでの模式図により区分

表一2 酸素欠乏条件下における鰓組織像  
(過密飼育・非密封条件)

内 容	コント ロール	曝 露 時 間		
		45分間	1.5時間	3時間
供 試 尾 数	4	5	5	5
溶 存 酸 素 (DO) (mg/l)	6.0	0.6	0.8	0.9
魚 の 状 態		鼻上げ 開 始		
鰓 の 形 態 ※ <sup>1</sup>	(A), (C)	(A), (B)	(A) (C)	(C)

(注) 約 1g のコイ, 5尾を, 水 800cc の入った 2 l のビーカーに入れる。水温, 22°C ± 2°C

※<sup>1</sup> 鰓の形態は, 図-3. 鰓組織の実体レベルでの模式図により区分

表一3 酸素欠乏条件下における鰓組織像  
(N<sub>2</sub>ガス供給)

内 容	コント ロール	曝 露 時 間		
		10分間	30分間	1.5時間
供 試 尾 数	4	—	4	4
溶 存 酸 素 (DO) (mg/l)	6.0	0.8	0.2	<0.2
鰓 の 状 態			鼻上げ 開 始	
鰓 形 態 ※ <sup>1</sup>	(A)	—	(C)	(C)

(注) 5~10g のコイ, 8尾を, 水 4 l のビニール袋に入れる。水温, 20°C ± 2°C

※<sup>1</sup> 鰓の形態は, 図-3. 鰓組織の実体レベルでの模式図により区分

(4) 過飽和酸素条件下の鰓組織像

過飽和酸素状態は, 体重 5~10g のコイを 8尾, 水 5 l の入ったビニール袋に入れ, 散気石を用いて, 酸素ガスを 300cc/min の割合で供給して作った。供試水の溶存酸素 (DO) は試験開始時に 6.0mg/l, 30分で

は 18.4mg/l, 1 時間では 30mg/l で, それぞれ 4 尾ずつ観察した。結果は表一4 に示すとおりである。DO, 18mg/l では鰓の色が非常に鮮紅色を帯び, 光学顕微鏡で観察すると, 鰓弁, 二次鰓弁の血管が非常に濃い

表一4 過飽和酸素条件下における鰓組織像

内 容	コント ロール	曝 露 時 間		
		15分間	30分間	1 時間
供 試 尾 数	4	—	4	4
溶 存 酸 素 (DO) (mg/l)	6.0	13.4	18.4	30
鰓 の 形 態 ※ <sup>1</sup>	(A)	—	(A)	(F)

(注) 5~10g のコイ, 8尾を, 水 5 l のビニール袋に入れる。酸素ガスは 300cc/min の割合で散気石で供給。水温, 20°C ± 2°C

※<sup>1</sup> 鰓の形態は, 図-3. 鰓組織の実体レベルでの模式図により区分

赤味を帯びていた。鰓組織は, 通常の鰓組織像とあまり差が感じられなかった。

DO, 30mg/l の状態においては, 鰓弁の上皮. 二次鰓弁の上皮の隆起がおり, 一部に二次鰓弁上皮の壊死が見られた。(図-3-(F))

(5) 残留塩素に曝露されたときの鰓組織像

残留塩素に曝露されたときの鰓組織像は, 残留塩素濃度. 0.3mg/l, および 0.5mg/l の水中に曝露した。0.3mg/l の濃度においては 5分, 10分, 30分, 1時間, 0.5mg/l の濃度においては 5分, 10分, 15分間. 曝露後の鰓組織像を観察した。

結果は表一5 に示すとおりである。

残留塩素 0.3mg/l の濃度では, 5分間, 10分間で, 二次鰓弁上皮及び鰓弁上皮の隆起 (lifting) が見られ (図-2 (A)(B)(C)(D)(E)(F)), 15分経過後には, 図-2-(F), 3-(F) に示すとおり, 二次鰓弁の輪郭もはっきり

表—5 残留塩素に曝露したときの鰓組織像

(ア) 0.3mg/l の残留塩素に曝露したときの鰓組織像

内 容	コントロール	曝 露 時 間			
		5 分 間	10 分 間	30 分 間	10 時 間
残留塩素濃度 (mg/l)		0.3			<0.1
供 試 尾 数	6	6	6	6	6
鰓の形態※ <sup>1</sup>	(A)	(D), (E)	(F), (E)	(F)	(E), (F)

(注) 所定の濃度に調整した溶液 2l 中に約 1g のコイを 6 尾入れる。水温、20°C±2°C

(イ) 0.5mg/l の残留塩素に曝露したときの鰓組織像

内 容	コントロール	曝 露 時 間			
		5 分 間	10 分 間	15 分 間	20 時 間
残留塩素濃度 (mg/l)		0.5			<0.2
供 試 尾 数	5	5	5	5	—
鰓の形態※ <sup>1</sup>	(A)	(D)	(E)	(F)	

(注) 約 5g のコイ、15尾を所定の濃度に調整した溶液 20l の入った円筒ガラス水槽に入れる。水温 20°C

(ウ) 0.2mg/l の残留塩素に曝露後、清水及び低酸素水※<sup>2</sup>に移したときの鰓組織像

内 容	0.2mg/l 10分 間	清水に移し 1時間	低酸素水※ <sup>2</sup> に移し 1時間
供 試 尾 数	2	2	2
鰓の形態※ <sup>1</sup>	(E), (F)	(E)	(G)

(注) 約 1g のコイ、6尾使用  
水温 20°C±2°C

※<sup>1</sup> 鰓の形態は図—3. 鰓組織の実体レベルでの模式図により区分

※<sup>2</sup> 低酸素水は供試水 5l 中に、70g のコイ 1尾を入れることにより作成し、溶存酸素を 0.8mg/l 以下に保持した。

しなくなっていて、退色していた。残留塩素 0.5mg/l の濃度においても、0.3mg/l の濃度の場合と同様の傾向が見られた。

また、0.2mg/l の残留塩素に 10 分間曝露していた魚を 1 時間、溶存酸素 (DO) が 0.8mg/l 以下の低酸素水に移すと二次鰓弁上皮の収縮、鰓弁上皮の収縮、およびわん曲 (rounded) が見られた。(図—3—G) さらに、清水に移した時よりも、二次鰓弁、鰓弁上皮の収縮の程度は大きかった。(表—5—ウ)

逆に低酸素水においていた魚を残留塩素 0.2mg/l の濃度の所に 10 分間曝露すると、体色は明化現象をおこし、二次鰓弁上皮の隆起、および鰓弁上皮に黒色素が拡散した。通常、明化した魚の場合は、表皮の黒色素は凝集しているわけであり、同様に鰓弁上皮の黒色素も凝集する場合が多く、今回の結果はそれと異なっていた。また、残留塩素 0.01~0.05mg/l の濃度の水の中に十数日間曝露されていたと推定される飼育池の場合の魚の鰓組織をみると、二次鰓弁の隆起

(lifting) が目立ったが、鰓弁上皮は通常の鰓像と差が見られなかった。

また、この飼育水の表面に粘液分泌に帰因すると思われる白い泡の発生が見られた。

#### 4. 考 察

鰓は呼吸器官として重要であるとともに、腎臓と共に、排泄及び浸透圧調節の面でも重要な器官である。

今回、コイの鰓の実体観察により、呼吸に係わる水中の溶存酸素量と鰓の形態変化、および残留塩素による影響について検討した。

魚の呼吸に関しては、かなりの研究報告が見られるが、これらの研究の多くは、生理学的なものが中心で、病理組織学的なものは見られない。

今回の実験において、酸素欠乏条件下においては、鼻上げ開始時に、鰓の形態が通常の形態に比べて、鰓弁上皮が隆起する傾向を示し、その後、二次鰓弁上皮、鰓弁上皮とも収縮する傾向が見られた。又、酸素過多

の水の場合においては、水中溶存酸素 (DO) が  $18\text{mg}/\ell$  で鰓の血管が濃い赤色を呈し、 $30\text{mg}/\ell$  に達すると二次鰓弁上皮、鰓弁上皮が隆起し (図一3—F)、鰓の破壊が進行することが明らかとなった。

酸素欠乏時の呼吸への影響については、過密飼育条件の場合は、水中の溶存酸素 ( $\text{O}_2$ ) が減少するにつれ、水中の二酸化炭素 ( $\text{CO}_2$ ) が増加するので、 $\text{CO}_2$  の効果も無視できないと考える。

しかし、窒素 ( $\text{N}_2$ ) ガス供給による酸素欠乏条件下の場合は、水中の  $\text{CO}_2$  も外へ追い出されるので、過密飼育条件に比べて、 $\text{CO}_2$  の効果は無視できると考えられる。 $\text{CO}_2$  効果については、血液中の  $\text{CO}_2$  量が増加すると、呼吸を促進するとされている<sup>5)</sup>。今回の鰓組織への影響に関しては、過密飼育時、及び  $\text{N}_2$  ガス供給時においても同様な傾向を示していたので、 $\text{O}_2$  低下による鰓の形態変化と考えられる。酸素欠乏時の呼吸における行動として、血中酸素 ( $\text{O}_2$ ) が低下してゆくにつれ、活発に運動を始め、水面近くに上ってくる (鼻上げ) ようになり、その後は不活発になり、運動は痙攣的になり、窒息死するとされている<sup>5)</sup>。

今回観察した鰓弁上皮、二次鰓弁上皮の収縮の傾向が呼吸においてどういう意味を持つかについては、鼻上げ後、運動が不活発になってから、収縮する傾向 (図一1—C, D, 図一3—C, C') が見られることから、鰓弁上皮、二次鰓弁上皮が収縮することによって、呼吸面積がそれだけ拡張されるものと思われる。

そのことは呼吸運動をできるだけ最少限にする中で、酸素の獲得を効果的にするための、低酸素に対する防衛的な役割によるものと考えられる。しかし、この問題は、排泄及び浸透圧と鰓との関係をも考慮しなければならない問題と考える。水中酸素が  $30\text{mg}/\ell$  に達した時に、鰓の一部壊死が起きることについては、血中  $\text{O}_2$  が増すと無呼吸状態<sup>5)</sup> になり、また血中  $\text{CO}_2$  も水中酸素が過剰のため減少し、これにより呼吸中枢への刺激が得られないことによりおきるのか、それとも、毒物に曝露された場合と同様な効果を持つのだろうか。

次に、残留塩素の鰓組織への影響に関しては、Middaugh<sup>20)</sup> らの報告があり、魚種として *Leiostomus Xanthurus* を用いて、残留塩素  $1.57\text{mg}/\ell$  で95分曝露した場合に、二次鰓弁上皮の隆起が見られ、さらに進行すると、二次鰓弁上皮の水腫 (edema) がおこることが組織像で示されている。

実体観察においては、二次鰓弁上皮の隆起とともに、鰓弁上皮の隆起が見られた。Middaugh<sup>20)</sup> らの

組織像において、鰓弁上皮の隆起が見られないのは、鰓弁上皮の隆起は図一3に示されている鰓弁のうち、小入鰓動脈側と小出鰓動脈側の両端において出現し、通常の二次鰓弁も含めた組織標本では観察が難しいことによるものと思われる。残留塩素に曝露された場合に、二次鰓弁上皮の隆起、鰓弁上皮の隆起が見られるのは、Hueges らが述べているように、薬物に対する防衛的作用を示すことによると思われる。

また、残留塩素に曝露した魚を低酸素水へ移した方が酸素が十分な清水に移した場合よりも二次鰓弁上皮、鰓弁上皮の縮小の程度が大きい (表一5—(ウ)) ことから、二次鰓弁上皮、鰓弁上皮の隆起は、薬物に対する防衛的作用とともに、酸素の供給の低下をもたらしているのではないかと考えられる。

今回、また、実体観察において見られた鰓の形態変化を図一3の通り示した。これらの鰓の形態変化は、薬物の鰓への影響に関する組織学的研究報告<sup>6)~27)</sup> において観察される像であり、このことから、実体観察だけでも、水質変化の影響把握に有効であると思われる。

## 5. まとめ

今回、コイの鰓組織に与える酸素の欠乏・過多、及び残留塩素の影響を実体観察により検討した。

鰓の実体観察はホルマリン固定後、10分以内に鰓をピンセットで取りはずし、5%の中性ホルマリンの入ったホールスライドグラスにのせ、それを光学顕微鏡観察することにより、鮮明な像が得られた。

酸素欠乏条件下においては、鼻上げ開始時に、鰓の形態が、通常の形態に比べ鰓弁上皮が隆起する傾向を示し、その後、二次鰓弁上皮、鰓弁上皮とも収縮する傾向が見られた。

また、酸素過多でDOが  $30\text{mg}/\ell$  に達すると鰓弁が棍棒化し、鰓の壊死が進行することが明らかになった。

酸素欠乏条件下において、鰓弁上皮、二次鰓弁上皮が収縮するのは、呼吸運動をできるだけ最少限にする中で、酸素の獲得を効果的にするための、酸素欠乏に対する防衛的役割によるものと考えられる。

残留塩素に曝露した場合、二次鰓弁上皮の隆起、鰓弁上皮の隆起が見られ、これは Hughes らが述べているように、薬物に対する防衛的作用を示すことによるものと思われる。また逆に、酸素供給の低下をもたらしているものと考えられる。

また、今回の観察の結果から、鰓の実体観察でもって、水質変化の影響把握が可能であることが明らかに

なった。

## 文 献

- 1) 横浜市：工場等の排水に係る魚類飼育指針。(1977).
- 2) 鈴木重之：生物学的手法による工場排水規制方式導入の研究計画，横浜市公害研究所報(第2号) P176~179 (1978).
- 3) 板沢靖男：呼吸“魚類生理学概論”(田村 保編). 恒星社厚生閣, 1~33 (1977).
- 4) 岩井 保：呼吸循環系の機能解剖学“魚の呼吸と循環”(日本水産学会編). 恒星社厚生閣, 7—19 (1978).
- 5) 尾崎久雄：呼吸の生理“魚類生理学講座第2巻” 緑書房, (1970).
- 6) 山元寅男：鰓上皮, 動物細胞学II, 朝倉書店, 100—118, (1978).
- 7) Miriam Morgan and P. W. A. Tovell : The structure of the trout *Salmo gairdneri*, *Z. Zellforsch.*, 142. 147—162. (1973).
- 8) G. M. Hughes and A. V. Grimstone : The fine structure of the secondary lamellae of the gills of *Gadus pllachius*. *Quart. J. microsc. Sci.* 106. 343—353 (1965).
- 9) G. M. Hughes : A Comparative Study of Gill Ventilation in Marine teleosts, *J. Exp. Biol.* 37. 28—45 (1959).
- 10) G. M. Hughes and Miriam Morgan : The structure of Fish Gills in relation to their respiratory function. *Biol. Rev.* 48. 419—475 (1973).
- 11) G. M. Hughes and G. Shelton : The Mechanism of Gill Ventilation in three freshwater teleosts *J. Exp. Biol.*, 35, 807~823 (1958).
- 12) G. M. Hughes and S. F. Perry : Morphometric study of trout gills, A Light-Microscopic Method suitable for the evaluation of Pollutant Action *J. exp. Biol.* 64, 447—460 (1976).
- 13) I. E. Gray : Compararative study of the gill area of Marine Fishes, *Biol. Bull.*, 107. 219—225 (1954).
- 14) James. D. Newstead : Fine structure of the Respiratory Lamellae of Teleostean Gills., *Z. Zellforsch. Mikrosk Anat.* 79. 369—428. (1967).
- 15) Kenneth R. Olson and Paul. O. Fromm : A Scanning Electron Microscopic Study of Secondary lamellae and Chloride Cells of Rainbow Trout (*Salmo gairdneri*), *Z. Zellforsch.*, 143, 439—449 (1973).
- 16) W. Vogel, V. Vogel and M. Pfantsh : Arterio-Venous Anastomoses in Rainbow Trout Gill Filament. *Cell. Tiss. Res.*, 167, 373—385. (1976).
- 17) W. Vogel, V. Vogel and W. Schlote : Ultrastructural Study of Arterio-venous Anastomoses in Gill Filaments of *Tilapia mossambica*, *Cell Tiss. Res.*, 155. 491—512 (1974).
- 18) Geoffrey Smart : The effects of ammonia exposure on Gill Structure of the Rainbow Trout., *J. Fish. Biol.* 8. 471—475 (1975).
- 19) J. F. Skidmore and P. W. A. Tevell : Toxic effects of Zinc Sulphate on the Gills of Rainbow Trout, *Water. Res.*, 6, 217—230 (1971).
- 20) D. P. M. Daugh, A. M. Crane and J. A. Couch : Toxicity of Chlorine to Juvenile spot *Leiostomus xanthurus*, *Water. Res.*, 11, 1089—1096, (1977).
- 21) P. D. Abel and J. F. Skidmore : Toxic effects of an anionic detergent on the gills of Rainbow Trout. *Water. res.*, 12, 157—163. (1974).
- 22) B. A. Mckeown and G. L. March : The acute effects of Bunker C Oil and oil dispersant on. *Water. Res.*, 12, 157—163. (1978).
- 23) JEREMY. T. P. : Histological and Electron Microscopical Observations on Copper Poisoning in the Winter Flounder, *J. Fish. Res. Boardcan*, 26, 2785—2793 (1969).
- 24) George R. Gardner and Paul. P. Yevich : Histological Responses of an Hematological Responses of an Estuarine Teleost to Cadmium, *J. Fish. Res. Board Can.*, 27, 2185—2196, (1970).
- 25) Garya. Wedemeyer, Nancy C. Nelson and William T Yasutake : Physiological and Bio-chemical Aspects of Ozone Toxicity to Rainbow Trout (*Salmo gairdneri*), *J. Fish. Res.*

*Board Can.*, 36, 605—614, (1979).

26) Charlie E. Smith and Robert G. Piper :

Pathological Effects in Formalin-Treated Rainbow Trout (*Salmo gairdneri*), *J. Fish. Res. Board. Can.*, 29, 328—329, (1972).

27) G. M. Hughes and S. F. Perry :

A Morphometric study of Nickel Chromium and Cadmium on the secondary lamellae of Rainbow Trout Gills, : *Water Research*. 13. 665—679 (1979).

# コイ (Cyprinus carpio) に及ぼす塩化ナトリウムの急性、亜急性影響

樋口 文夫\*

## 要旨

塩化ナトリウム (NaCl) のコイ (Cyprinus carpio) に対する急性、亜急性影響試験を0 (対照), 2,500, 5,000, 10,000mg/ℓの濃度段階で行なった結果, 以下の成績を得た。

急性影響としては, 曝露後1日目, 5,000, 10,000mg/ℓの試験区で鰓弁上皮に粘液分泌がみられ, 4日目では10,000mg/ℓの試験区で二次鰓弁の肥厚と腎臓における尿細管の萎縮がみられ, 30日目では10,000mg/ℓの区で二次鰓弁上皮の肥厚, 浮腫, 鰓弁上皮の隆起, 増生, また腎臓の尿細管上皮細胞の萎縮, 退行, 造血組織の変性などの病理組織学的所見が認められた。血液性状においては, 30日目の10,000mg/ℓの区では, ヘモグロビン量が低下していたが, ヘマトクリット値は他の区と比較して差がなかった。

以上のことから NaCl は, 10,000mg/ℓの濃度段階でコイに対して急性的に鰓と腎臓に軽度の障害を引き起こし, 亜急性的には, 鰓と腎臓, 特に腎臓の組織変性をともなう障害を生じさせることがわかった。

## 1. はじめに

横浜市は, 工場排水の安全性を総合的に評価するために, 大手事業所を対象に排水による魚類飼育を実施している<sup>1)</sup>。これら対象事業所の排水には, 無機塩が数千mg/ℓの比較的高い濃度で含まれている。そのため塩類の魚類に対する影響の解析が, 排水中に含まれる他の有害物質の影響を評価するうえでも重要となってきた。

特に飼育対象魚であるコイ (Cyprinus carpio) は, 狭塩性硬骨魚であり, 塩分の影響を大きく受けるものと思われる。そのため本研究は, 塩分の魚類に対する影響を解析し, 他の有害物質との相乗作用, さらに排水の総合的評価を行なうための基礎的な知見を得ることを目的として行なった。

今回は, 無機塩の中で, NaCl を用い半数致死濃度以下の濃度に曝露してコイに対する急性, 亜急性影響をみた。NaCl の魚類に対する影響については, 成長<sup>2)</sup>, 浸透圧調節<sup>3)</sup>, 血液等<sup>4)</sup>の生理学的側面からの報告があるが, 病理組織学的側面からの報告は少ないようである。ここでは浸透圧調節機能として重要な役割を担っている鰓と腎臓を中心に病理組織学的観点からその影響を検討した。また血液学的観点からも若干の

検討を行なったので報告する。

## 2. 材料及び方法

供試魚は, 昭和53年8月に神奈川県増殖試験所より購入し, 8ヶ月間蓄養池で飼育したコイ (未成熟魚) を使った。実験用のコイは蓄養池から採取し, 試験開始1週間前より実験室内で順化飼育した。給餌は配合飼料 (日本配合飼料株式会社製) を順化飼育中に十分に与え, 試験開始1日前より中止した。亜急性影響試験の期間中は体重の約1%の割合の給餌量で1日1回与えた。実験は硬質ガラス製の円筒型水槽 (容量30ℓ) に試験水量20ℓを入れ, 恒温水槽内に設置し, 水槽内の水温を  $20 \pm 1^\circ\text{C}$  にコントロールして行なった。

NaCl の濃度の設定は, 平均体重  $11.8 \pm 2.3\text{g}$ , 平均体長  $7.8 \pm 0.7\text{cm}$  のコイを使って急性毒性試験を行ない, 24, 48, 72, 96時間のLC50が14,500, 13,200, 12,300, 11,700mg/ℓの値を得, これをもとにNaClの濃度をそれぞれ0 (対照), 2,500, 5,000, 10,000mg/ℓの段階に調整した。NaCl は精製塩 (純度99%) を試験水は脱塩素処理した水道をそれぞれ使用した。試験は止水方式で行ない, 3~4日に1回の頻度で試験水を交換した。また球型散気石で試験水槽内に通気を

Acute and Subacute Effects of Sodium Chloride on the Carp (Cyprinus carpio)

\* Fumio Higuchi, 横浜市公害研究所水質部門

十分に行なつた。

急性影響試験は供試尾数が各区10尾であつた(表一1)。実験期間は、昭和54年4月23日から27日の4日

表一1 急性影響試験における供試魚の体重、体長の平均値、標準偏差

NaCl 濃度	N	体重(g)		体長(cm)	
		$\bar{x}$	u	$\bar{x}$	u
対 照	10	12.0	3.3	7.8	0.8
2500mg/l	10	10.9	4.1	7.6	0.8
5000mg/l	10	11.5	2.6	7.7	0.5
10000mg/l	10	10.3	2.6	7.5	0.5

注)  $\bar{x}$  は平均値, u は不偏分散からの標準偏差を示し, 以下の表も同じ。

間で、開始後1日目(24時間)、4日目(96時間)に各濃度段階のコイ2尾を採取し、病理学的解析に供した。

亜急性影響試験は、供試尾数が各10尾であつたが、実験途中、とびはね等により尾数が若干減少した。なお各試験区ごとに供試魚の個体識別を鱗剝離によつて行なつた。実験期間は昭和54年6月4日から7月4日までの30日間であつた。30日の飼育期間中、中間日数での魚体に対する影響の度合を知るために、15日目の各濃度段階のコイ3尾を採取し、30日目の終了時に残り尾数を採取してそれぞれ病理学的、血液学的解析に供した。成長量の測定は、体重、体長を週1回、計4回測定した。

病理学的解析は、コイの鰓と腎臓を摘出し、10%中性ホルマリンあるいはヴァン液で固定し、パラフィン包埋したのち、厚さ5~10 $\mu$ の切片で組織標本を作つた。染色法は、PAS反応とヘマトキシレン重染色、ヘマトキシレン・エオシン染色、アザン染色、一部鉄コロイド染色等<sup>5)</sup>を使った。

血液学的解析は、ヘパリン塗布した注射器、針を用い魚体の尾部に穿刺して採血した<sup>6)</sup>。解析項目及び方法は、ヘマトクリット(以下Htと略記)が毛細管法、ヘモグロビン量(以下Hb量と略記)がシアノメトヘモグロビン法、赤血球数(以下RBCと略記)はBüker-Turkの血球計算板法である。

### 3. 結果

#### 3-1 急性影響

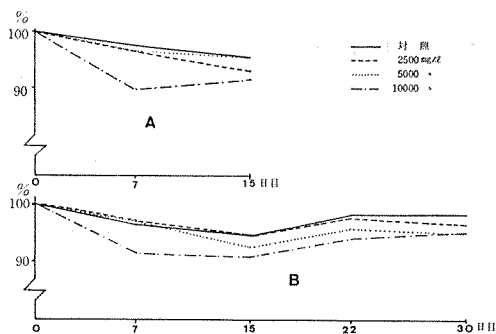
NaCl曝露1日目の病理組織学的所見; 10,000mg/lの濃度で、粘液細胞から分泌された粘液が鰓弁上皮細胞を被覆し、PAS反応陽性、鉄コロイド染色によつ

て染色された。また二次鰓弁上皮細胞は基底膜から剝離し、肥厚しているのが確認された。この所見は5,000mg/lの試験区でもみられた。腎臓においては、糸球体、尿管、造血組織のいずれにも著変がみられなかつた。

同4日目の所見; 2,500, 5,000mg/lの濃度では、1日目の組織像と比較して差はなく、粘液分泌、二次鰓弁上皮の肥厚がわずかにみられたにすぎなかつた。10,000mg/lの濃度では、二次鰓弁上皮の肥厚が進行し、鰓弁下位細胞にまで達するが二次鰓弁上部には肥厚が進行していなかつた。腎臓では、糸球体、尿管に軽度の萎縮と遠位尿管における粘液分泌がみられた。造血組織では著変はなかつた。2,500, 5,000mg/lの区は、腎臓のいずれの部位も変化がなかつた(図版I-A, B, C, D)。

#### 3-2 亜急性影響

成長量は、15日目に魚が各3尾づつ採取されるために、それぞれ以後の測定値に変動をきたすと思われたので、15日飼育魚と30日飼育魚とに分けて経時的な変動をみた(表一2, 図一1)。



図一1 体重の経日変化

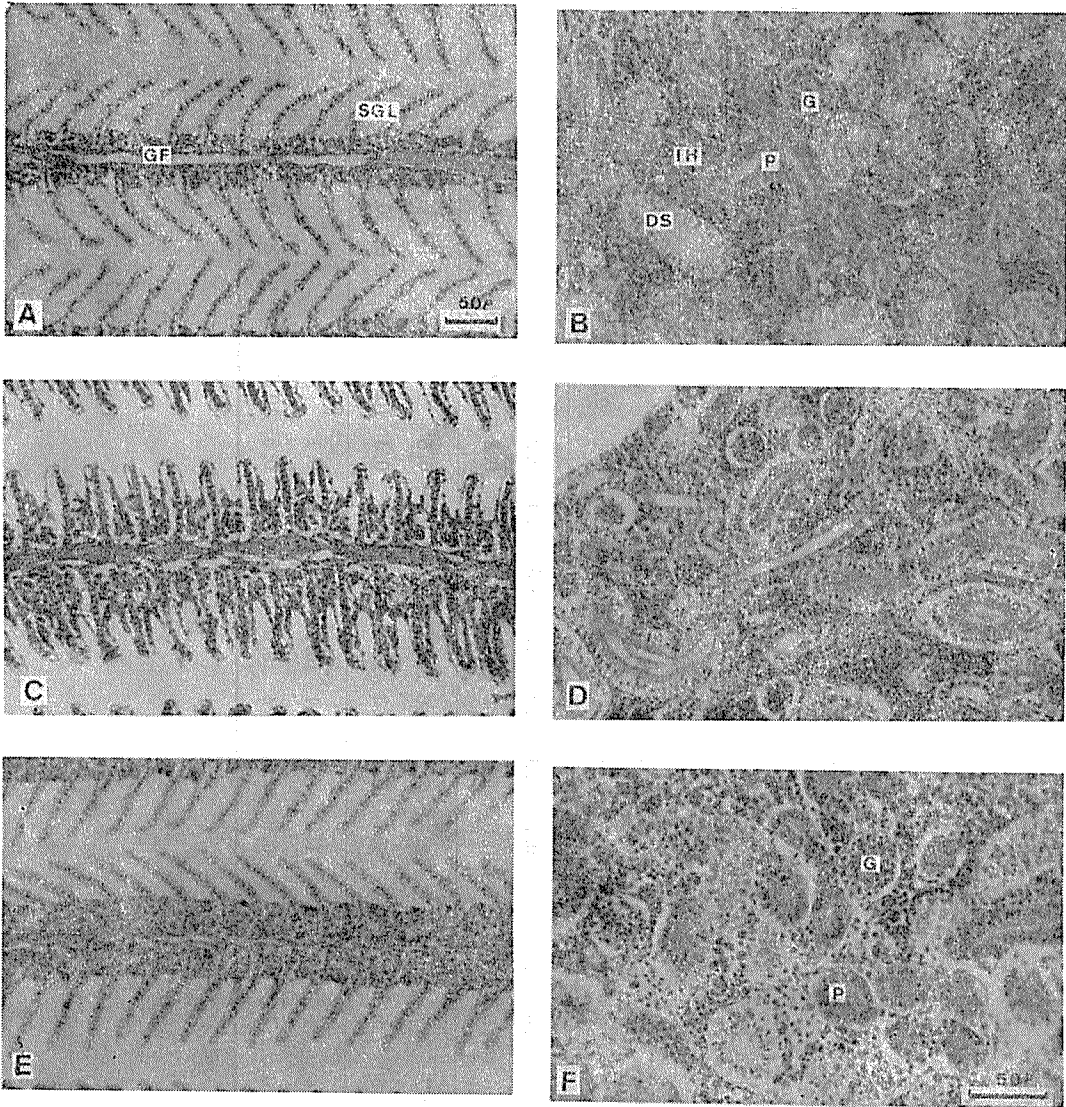
注 1) 0日目の体重を100としたときの増減率  
2) Aは15日飼育魚, Bは30日飼育魚を示す。

30日飼育魚の成長量を体重でみると、どの試験区も15日目まで減少していくが、特に10,000mg/lの区が7日目まで体重の減少が著しうかつた。この傾向は、15日飼育魚でも同様であつた。15日目以後の22日目まで体重は減少から増加の傾向を示し、30日目になると2,500, 5,000mg/lの区で若干減少したが、10,000mg/lの区では増加していった。その結果、対照区に比較していずれの区も低い率を示した。

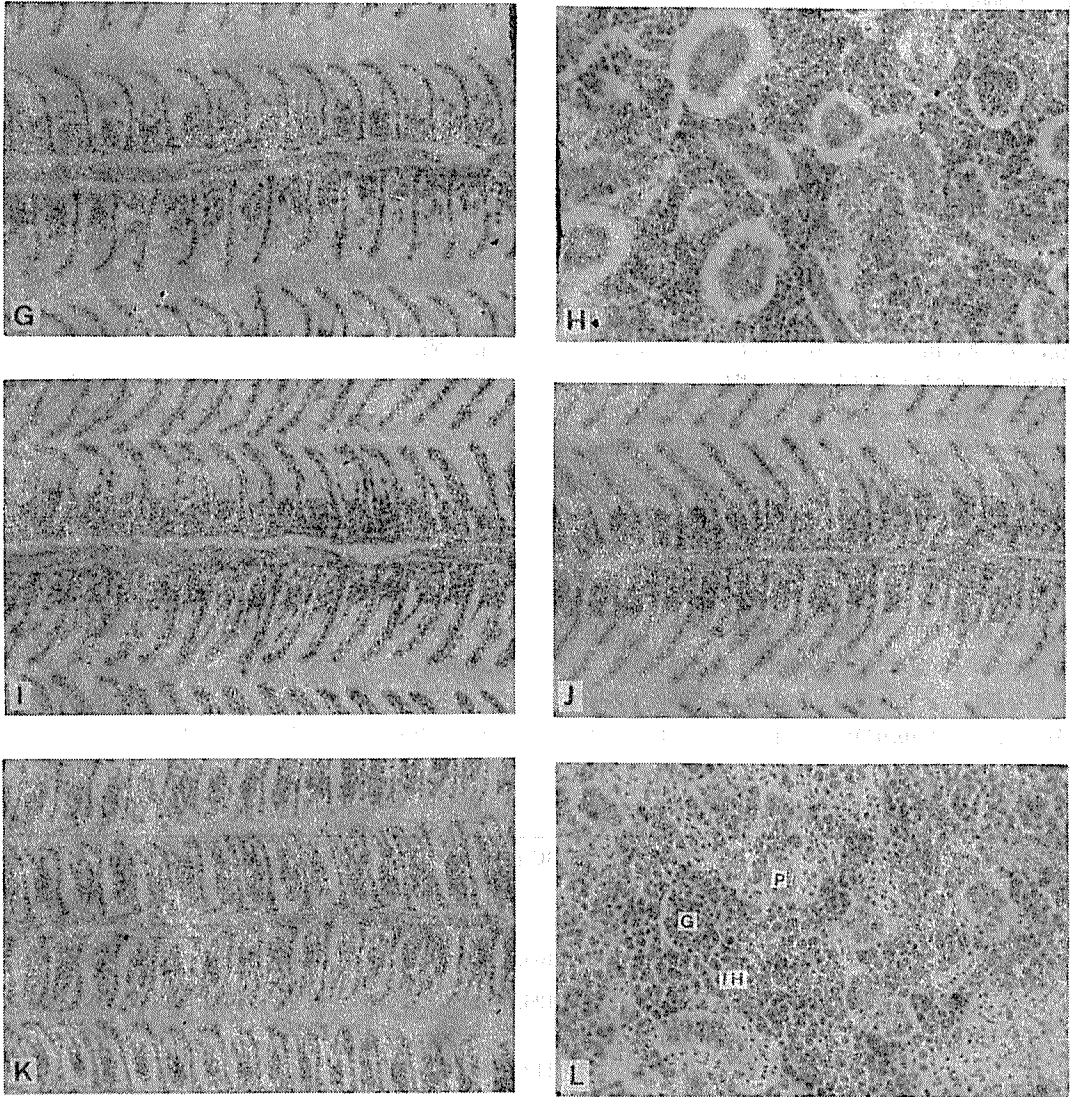
つぎに病理組織学的所見をみると、15日目の各試験区のなかで10,000mg/lの区は、二次鰓弁上皮の肥厚、浮腫がみられたが、二次鰓弁の上部まで肥厚は進行していなかつた。この所見は、急性影響の4日目の所見







図版 I A, 急性影響試験; 対照区の鰓 (×200), B: 対照区の腎臓 (×200)  
 C, " ; 10,000mg/l の試験区における曝露4日目の鰓 (×200) 及びD, 腎臓 (×200)  
 E, 亜急性影響試験; 対照区の鰓 (×200), F, 対照区の腎臓 (×330), PAS反応—ヘマトキシリン  
 染色  
 SGL: 二次鰓弁, GF: 鰓弁, G: 糸球体, P: 尿細管, DS: 遠位尿細管, IH: 造血組織



図版 II G, 10,000mg/l の試験区における曝露15日目の鰓 (×200) 及びH, 腎臓 (×330)  
 I, 5,000mg/l の試験区における曝露15日目の鰓 (×200), J, 2,500mg/l の試験区における曝露  
 30日目の鰓 (×200), K, 10,000mg/l の試験区における曝露30日目の鰓 (×200) 及びL, 腎臓 (×  
 330)  
 PAS 反応—ヘマトキシリン染色

と比較して変わりなかった。2,500, 5,000mg/ℓの区では、局所的に肥厚がみられたにすぎなかった。腎臓は、2,500, 5,000mg/ℓの試験区のいずれも著変はみられなかった。10,000mg/ℓの区は、糸球体の萎縮、細尿管の萎縮、退化が進行していた。ただし造血組織には著変はみられなかった(図版 I-E, F, II-G, H, I)。

30日目になると、2,500mg/ℓの区で二次鰓弁上皮の肥厚がみられ、5,000mg/ℓの区の見より変化が大きかった。10,000mg/ℓの区は、二次鰓弁上皮の肥厚、浮腫が進行し、二次鰓弁上皮の先端部まで及んだ。さらに鰓弁上皮細胞の隆起、増生をともなって軽度の棍棒化を呈していた。ただし二次鰓弁内の毛細血管の充、うっ血、出血等の所見はみられなかった。腎臓は10,000mg/ℓの区で尿細管萎縮、退化が進行し、近位尿細管の上皮細胞の崩壊が多くみられた。また尿細管周囲毛細管からの出血、造血組織及び実質の変性、多糖類変性等の著変が認められた。他の2,500, 5,000mg/ℓの区では、変化がなかった(図版 II-J, K, L)。

つぎに血液学的検査の結果をみる。

15日目; Ht がどの区とも大差ないものであったが2,500, 10,000mg/ℓの区では、対照と比較して高い値を示した。Hb量は、いずれの区も対照に比較して低い値を示した。RBCは、5,000, 2,500mg/ℓの順で多かった。なお10,000mg/ℓの区では、採血量が少な

かったために計数できなかった。

30日目; Ht は、いずれの区とも30%前後を示し差がほとんどなかった。Hb量は、対照に比較して2,500mg/ℓの区では高く、5,000, 10,000mg/ℓの区の順で低い値を示した。特に10,000mg/ℓの区は、4.3g/dℓの低い値を示した。RBCは、2,500, 5,000mg/ℓの区が対照に比較して多かった(表-3)。

なお、10,000mg/ℓの試験区では7日目に3尾が尾鰭の1部が欠損していたため、飼育魚から除外し、静水にもどして経過観察を行なった。その結果、1ヶ月後には鰭は修復し、正常にもどった。

#### 4. 考 察

淡水魚は、体液の浸透圧が、約0.5~0.7% NaClに相当するといわれている<sup>7)</sup>。淡水は体液より浸透圧が低いので常に魚体内へ主に鰓を通じて浸入する。浸入した水は腎臓等でこされて体外へ排泄される。また塩分は、常に損失されるため、それを充たすために主に鰓及び腎臓から吸収されており、水分あるいは塩分調節を行なっていくうえで鰓及び腎臓のもつ役割は大きいものといえよう。これら恒常的にたもたれている調節機構は、外界水の塩分濃度の上昇によって崩されてくる。狭塩性硬骨魚であるコイは、高張塩液中に入れられると体重の急速な減少をひきおこし、それが水分

表-3 15日及び30日飼育魚の血液性状検査結果

NaCl 濃度	飼育 日数	N	Ht		Hb量(g/dℓ)		RBC(10 <sup>4</sup> /mm <sup>3</sup> )		MCHC(%)		MCV(μm <sup>3</sup> )		MCH (nmg)	
			$\bar{x}$	u	$\bar{x}$	u	$\bar{x}$	u	$\bar{x}$	u	$\bar{x}$	u	$\bar{x}$	u
対 照	15	3	27.1	3.7	8.3	2.5	105.6	19.8	31.1	10.4	262.4	57.2	78.0	9.3
	30	4	30.2	3.0	6.5	1.2	126.0	24.7	22.5	6.3	240.2	52.1	53.5	15.5
2500mg/ℓ	15	3	31.7	5.7	5.2	0.7	112.0	62.8	16.5	2.4	351.2	216.4	59.9	40.5
	30	6	30.4	1.7	7.4	1.7	133.7	22.3	24.4	6.1	233.8	48.5	56.8	16.4
5000mg/ℓ	15	3	27.1	4.1	7.8	1.2	141.6	24.9	28.8	2.3	195.8	44.5	55.7	8.8
	30	6	30.4	3.1	6.0	0.7	128.5	21.5	19.8	2.7	240.8	37.0	47.2	5.1
10000mg/ℓ	15	2	31.8	4.1	7.7	0.0				24.4	3.1			
	30	2	29.7	2.3	4.3	0.1				14.7	1.4			

注 1) MCHC 平均赤血球ヘモグロビン濃度 =  $\frac{Hb}{Ht} \times 100$

2) MCV 平均赤血球容積 =  $\frac{Ht}{RBC} \times 10^3$

3) MCH 平均赤血球ヘモグロビン量 =  $\frac{Hb}{RBC} \times 10^{11}$

の喪失によるものであることが知られている<sup>8)</sup>。また田村等はコイを1% NaCl液に入れるとRBCが増加することをみている<sup>4)</sup>。10,000mg/ℓの区の体重の経時変化をみると、7日目まで急激に体重が減少しており、鰓、腎臓等からの水分喪失がその一要因となっているものと推測された。しかし15日以後の体重の回復は、脱水に対する防御機構が働いたか、飼育環境への順応とも関連していると考えられた。

鰓と腎臓、特に鰓は水分及び塩分調節の場とともにガス交換の場として外界と接しており、重金属<sup>9)</sup>、残留塩素<sup>10)</sup>、ホルマリン<sup>11)</sup>、アソモニア<sup>12)</sup>、<sup>13)</sup>等の有害物質に曝露されると急性的に障害される。鰓は粘液を分泌させ、二次鰓弁の肥大、増生、水腫、さらに高濃度段階では毛細血管の充、うっ血、出血、変性、壊死等の症状を示してくる。NaClに曝露された時、急性影響として粘液の分泌がみられ、それが二次鰓弁の基部に近いところにある粘液細胞からであることが示された。広塩性硬骨魚は、塩分の吸収、排泄の役割をもつ塩類細胞の存在が認められているが、コイはその存在が不明だとされており<sup>7)</sup>、<sup>14)</sup>、本実験でも確認することができなかった。10,000mg/ℓの試験区では、4日目に二次鰓弁の肥厚、浮腫が現われ、さらに30日目になるとその先端まで症状が進み、鰓弁上皮細胞の隆起、増生の症状が現われた。これは先の有害物質の低濃度段階に曝露された症状に似ていた。またこれらの症状は、血液と外界水との障壁を大きくして、血液を有害物質から防御する効果があるとされている<sup>15)</sup>、<sup>16)</sup>。

藤谷<sup>17)</sup>は、パルプ排水に曝露されたコイは、鰓の障害とともにHt、Hb量、RBCが増加し、さらに出血等の症状が現われるとそれらが減少することをみている。また魚が窒息状態におかれたときHb量が増加するといわれている<sup>18)</sup>。NaCl溶液10,000mg/ℓ曝露30日目の鰓の所見は、出血等の症状はみられず、むしろ有効ガス交換面積の減少によって窒息状態になっていることが推測されるが、血液性状をみるとHb量の減少として現われ、鰓だけでなく腎臓の造血組織等の所見を考慮して考える必要があると思われた。

小川<sup>19)</sup>は、キンギョを1/2海水に投入して腎臓の組織変化をみた、その結果、3日後より腎組織の変化が現われ、3週間になると糸球体の萎縮、退化、尿細管の変性、退化などの変化が現われた。コイの場合は、10,000mg/ℓの濃度段階で、4日目に軽度の腎組織の変化、15日目に糸球体、尿細管の萎縮、30日目に尿細管の萎縮、退化、造血組織の変性等の変化が現われた。若干の程度の差があれば同じコイ科の塩分に対する影響が本試験においても類似した現象として観察され

た。またこれらのことによって造血機能に影響を及ぼし、血液性状におけるHb量の減少等にもみられるように魚体の生理系に変化をひき起こしたものと思われた。

以上のことからNaClの10,000mg/ℓの濃度段階で、急性的には鰓における粘液分泌、肥厚が現われ、脱水等による体重の減少が発生し、15、30日目になると鰓の肥厚、浮腫、増生によって外界水に対する防御機構が働くが、ガス交換への影響、腎臓の糸球体、尿細管の萎縮、退化、造血組織の変化によって造血機能にも影響を及ぼして来たものと推測された。

## 5. まとめ

コイの未成熟魚(当才魚)を用いて、NaClの半数致死濃度以下の濃度段階(0, 2,500, 5,000, 10,000mg/ℓ)で病理組織学的観点から急性、亜急性影響試験を行なった。また亜急性影響試験においては血液学的検査を行なった。実験期間は、昭和54年4月の4日間、6、7月にかけての30日間であった。

### 1) 急性影響

曝露1日目では10,000, 5,000mg/ℓの試験区で、鰓弁上皮の粘液分泌細胞より粘液の分泌がみられた。4日目では、二次鰓弁上皮の肥厚、腎臓には粘液分泌、糸球体、尿細管の軽度の萎縮がみられた。

### 2) 亜急性影響

15日目の10,000mg/ℓの区で腎臓の糸球体、尿細管の萎縮がみられ、30日目になると鰓の肥厚と浮腫、鰓弁上皮細胞の隆起と増生が現われた。また腎臓の尿細管の萎縮、退化、造血組織の変性が現われ、造血機能に影響を及ぼしているものと推測された。

3) 血液性状をみると、30日目の10,000mg/ℓの区でHb量が低下していたが、Htでは他の区と大差ないのであった。

4) 以上の結果よりNaClの10,000mg/ℓの濃度段階で、急性的には鰓と腎臓の軽度の影響、亜急性的には鰓と腎臓、特に腎臓の組織変性をともなう障害が現われていた。

## 文 献

- 1) 横浜市公害対策局：工場等の排水に係る魚類飼育指針、(1977)。
- 2) 畠中潤一郎、水尾寛巳、福島悟：溶存食塩の鯉個体群の成長に及ぼす影響、横浜市公害研究所報、2、187—190(1978)。
- 3) T. Hirano: Some Factor Regulating Water Intake by the Eel, *Anguilla Japonica*, J. Exp.

- Biol., 61, 737 (1974).
- 4) 田村修, 保田正人, 藤木哲夫: 赤血球などの量的変動による魚類生理状態の判定, 日. 水. 誌, 28, 504—509 (1962).
  - 5) 佐野豊: 組織学研究法 (1975), 南山堂, 東京.
  - 6) H. Dombrowski: Untersuchungen über das Blut des Karpfens (*Cyprinus carpio* L) und einiger anderer Süßwasserfischarten, Biol. Zbl., 72, 182—195 (1953).
  - 7) 尾崎久雄: 魚類の鰓と鰓, 医学のあゆみ, 64, 712—719 (1968).
  - 8) 尾崎久雄, 菊地界善: 稀釈海水中のコイの血液水分含量, J. Tokyo Univ. Fish., 59, 27—31 (1972).
  - 9) G. R. Gardner, P. P. Yenich: Histological and Hematological Responses of an Estuarine Teleost to Cadmium, J. Fish. Res. Board Can., 27, 2185—2196 (1970).
  - 10) D. P. M. Daugh, A. M. Crane, J. A. Couch: Toxicity of Chlorine to Juvenile Spot, *Leiostomus Xanthurus*, Water Res., 11, 1089—1096 (1977).
  - 11) C. E. Smith, R. G. Piper: Pathological Effects in Formaline-Treated Rainbow Trout, J. Fish. Res. Board Can., 29, 328—329 (1972).
  - 12) C. E. Smith, R. G. Piper: Lesion Associated with Chronic Exposure to Ammonia, Pathology of Fishes, 497—513 (1975). The University of Wisconsin Press, Wisconsin.
  - 13) R. V. Thorston, R. C. Russo: Acute Toxicity of Ammonia and Nitrite to Cutthroat Trout Fry, Trans. Am. Fish. Soc., 107, 361—368 (1973).
  - 14) 内田清一郎: 浸透圧, 魚類生理学, 318—353 (1977), 恒星社厚生閣, 東京.
  - 15) M. Morgan, R. W. Tovel: The Structure of the Gill of the Trout, *Salmo gairdneri* (Richardson), Z. Zellforsch., 142, 147—162 (1973).
  - 16) G. M. Hughes, S. F. Perry: Morphometric Study of Trout Gills: A Light-Microscopic Method Suitable for the Evaluation of Pollutant Action, J. Exp. Biol., 64, 447—460 (1976).
  - 17) 藤谷超: パルプ工場排水の水産生物に及ぼす生理学的影響に関する研究, 内水研報, 17, 1—40 (1962).
  - 18) 尾崎久雄: 血液の生理, 魚類生理学講座 I (1975), 緑書房, 東京.
  - 19) 小川瑞穂: 金魚に及ぼす塩分濃度の影響, 動物学雑誌, 68, 87 (1959).

# 横浜市の地下水利用に関する調査研究

## —農業用（畜産事業）井戸の利用実態について—

杉本 実\* 安藤 康輝\*\*

### 要 旨

本市は地盤沈下の被害や地下水障害を未然に防止し、地下水を合理的に利用するため、現在種々の調査研究をおこなっている。

その一環として地下水の安全水位の策定のための資料を得る目的で、地下水面図の作成に着手している。今回の調査は、既存資料のない地域の地下水利用実態を把握するため、当該地域内の畜産事業所の井戸について水位、揚水量等を調査したものであり、これと他地域における既存資料と合わせて考察し、次のような結果を得た。

- (1) 冬季における横浜市内の地下水位（静止水位）は丘陵地・台地で高く（標高+20m～+60m）、河川低地等では低い（標高+10m～-40m）数値であった。
- (2) 畜産用としての地下水の揚水量は緑区・戸塚区に多く、全体の約67%を占めていた。
- (3) 特に河川低地のうち、鶴見川流域では揚水量が多く見られ地下水位の低下も目につく。

### 1. はじめに

地下水は恒温・良質な水で、また取水が簡便であるなどの特性を有しているため、生活用水源として古くから利用されてきた。さらに農業の近代化と共に、農工業用水としての利用は拡大され、揚水技術の進歩によって経済的かつ安定した供給が得られることから、大量に利用されるようになった。そして天水による地下かん養量を超えた過剰揚水は次第に地下水を枯渇させ、これが地盤沈下や水質悪化等の地下水障害を引き起す原因になっている。また地盤沈下の著しい進行に伴って、建造物の損壊・高潮被害等、二次災害の危険性を誘うなど、社会的に及ぼす経済損失は計り知れないものとなった。

本来、地下水の利用は地域周辺全体との調和を必要とし、環境保全を考慮した上で行う事が望ましく、その為には地下水の収支を把握するための十分な調査と共に、周辺地域の実情に応じた適正かつ安全な地下水利用の方法を導く事が基本と考えられる。

横浜市は地盤沈下の防止と地下水の保全を図るため、工業用水法と神奈川県公害防止条例を適用し、全

市域を地下水採取規制地域に指定し、可能な限り揚水量削減に努めている。

しかし、地下水は有効な資源としての評価もあり、また地下水保全を目的とする総合立法が未制定である事もあって、行政指導そのものにも限界が生じつつある。

現在これらに対処するため、「適正揚水量」「安全水位」等について調査・研究を進めているが、ここではその作業の一環として地下水面図の作成を進めるに当り、既存資料のない地域の井戸について、調査する必要が生じている。

### 2. 目的及び方法

本市では地下水に関する総合的な基礎資料の把握を目的として昭和48年と昭和49年に地下水総合調査<sup>1)</sup>を行い次の結果を得た。

①主要な帯水層は上総層群中のN値50以上の泥岩（固結シルトまたは固結粘土で土丹ともいわれている）に夾まれた砂層部が主である。②市域では河川低地が特に大きな沈下量を示し、地盤沈下の被害を生じ

Investigation on use of ground water in Yokohama

— Use of well for livestock breeding —

\* Minoru Sugimoto, 横浜市公害研究所地盤沈下部門

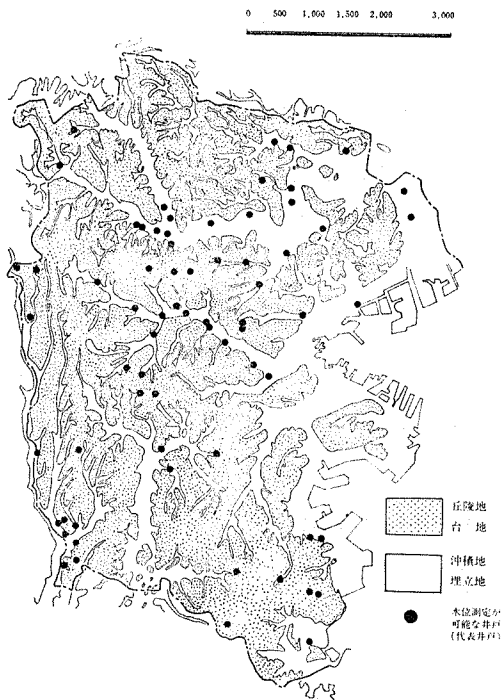
\*\* Yasuteru Ando, 横浜市公害対策局水質課

ている。③地下水の塩水化は海岸部から内陸部に進行しつつある。④揚水されている地下水の年代は20～30年前の雨水である。⑤上総層群への地下水のかん養は非常に乏しく、その上、この層からの揚水行為は上部層に堆積した沖積層に沈下という形態の影響を与えている。

一方本市における地下水揚水実態<sup>2)</sup>～<sup>6)</sup>は過去5年間の平均値で52,840<sup>3)</sup>m<sup>3</sup>/日に達しており、年間値に直すと19.3×10<sup>6</sup>/m<sup>3</sup>年となる。これを水道水におきかえると年間約15×10<sup>4</sup>人分（1人1日平均給水量0.364m<sup>3</sup>として計算<sup>7)</sup>）となり、本市磯子区民が1年間利用できる量に匹敵する。この揚水量は神奈川県公害防止条例に基づき、日量100m<sup>3</sup>以上の地下水揚水事業所が届出たものと、水質汚濁防止法などによる届出書の地下水使用量をまとめたものである。

しかし、農業用あるいは届出台帳以外（100m<sup>3</sup>/日以下）のものについては未調査の井戸があるので、全体の揚水量はつかめない。

図一 昭和53年に公害対策局が行った地下水位調



図一 水位測定可能井戸分布図

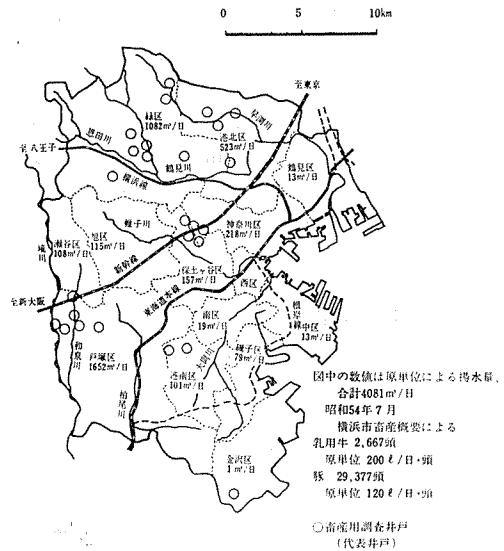
査結果の井戸分布状況を示したものであるが、これによると市内の主要河川（鶴見川及びその支流の早瀬川、帷子川、柏尾川、境川及びその支流の和泉川）各流域に井戸が集中している。したがって地下水面図の作成や市域全体の地下水変動を把握する上で困難な一

面があり、これを補う為には空白地域の揚水井戸を調査し、水位測定可能な井戸を選出して、市域全体のバランスを考えた観測井を定める必要がある。

そこで本調査は、未調査となっている畜産事業所（農業用）井戸を対象に、市緑政局農政部の協力を得て井戸の実態調査を行い、既存資料と合わせて市域の揚水量や地下水位等について考察した。

調査地域は図一2に示すとおりである。調査は1日当りの揚水量、水位、井戸深さ、地下水採水部、さく井時の水位、ポンプ能力等について行った。

また地下水の水位測定結果はTP値（標高）で表わし、調査期間は水位変動の比較的小さい春季を選び、昭和54年1月6日から3月13日まで実施した。



図二 畜産用井戸調査位置及び推定揚水量図

### 3. 結果

調査資料を整理するに当たって被圧地下水と自由地下水の分類を試みたが調査地点の地質が判る土質柱状図等の資料が不足しているため、便宜上井戸の深さで分類することとし、深さが20m未満を自由地下水（浅井戸）、20m以上を被圧地下水（深井戸）としてまとめた。

今回の調査は市域内に存在する畜産用井戸<sup>8)</sup>のうち、59井について行ったが被圧地下水の揚水量は約2,400m<sup>3</sup>/日であった。

またこの調査で得た数値から豚一頭当りの水利用の原単位を求め、全家畜の地区毎の揚水量を推定すると図一2に示したように総計約4,082m<sup>3</sup>/日である。

揚水量の多い地域は戸塚区上飯田町、和泉町付近と



緑区北八朔町付近であり、この両区は全市域の畜産揚水量の約67%を占めている。

揚水量で日量 100 $\text{m}^3$ 以上の井戸は5井あり、最大揚水量は 270 $\text{m}^3$ /日、平均揚水量は 40 $\text{m}^3$ /日であった。また井戸の口径は最大 200mm、最少 75mmで口径 150mmの井戸が最も多くみられる。被圧地下水の採取位置は地表面からの深さでみて、20m~49mが7井、50m~79mが21井、80m~119mが21井、120m以深が3井、不明のものが7井あり、戸塚区上飯田町、和泉町付近の井戸は50m前後が多く、緑区北八朔町付近では80m前後の井戸が多かった。また揚水中の被圧地下水位は前者の井戸が標高+23m~+39mを示し、後者の井戸では標高+9m~+16mの値を示している。

これらの井戸は沖積地帯に分布しており、夏に水田用の井戸が稼動すると、畜産用井戸の水位が低下し、揚水が困難になる地区も見られた。

神奈川区羽沢町付近の井戸は地下水の採取位置も80m~100mと深くなっているものの、地下水は乏しく一部水道水で不足分を補っている所もある。この付近には以前新幹線、横浜新貨物線の建設工事が行なわれ、地下水の水位低下により、揚水ポンプに一時トラブルをきたし、その後も地下水水位が回復していないと見られるところもある。

また港南区下永谷町付近は最近開発された団地が多く、(洋光台、野庭団地周辺)付近の井戸所有者の報告によれば、開発前と後とでは特に夏季において地下水水位に大きな違いがでている。同様の声が戸塚区の相鉄いずみ野駅周辺や緑区鉄町付近の井戸所有者から聞かれた。一方本調査の中で井戸設置時から今日まで地下水水位の変動が認められなかった地域は金沢区六浦町で、横須賀市、逗子市に近い雑木林に被われた丘陵地である。ここは揚水井戸が少ないことや地下水のかん養条件に恵まれているため、現存でも地下水の自噴がみられた。

#### 4. 考察

本調査結果と既存資料によって揚水量の地域的な分布状況と地下水の静止水位、揚水水位について考察した。

##### 4-1 揚水量の地域別分布状況

図-3は現在把握している全井戸数のうち、地点と揚水量( $\text{m}^3$ /日)が明らかなものについて、地域別に図示したものである。これによると本市域で比較的揚水量の多い地域は瀬谷区、戸塚区を流れる境川流域で、次に緑区、港北区、鶴見区を流れる鶴見川流域である。

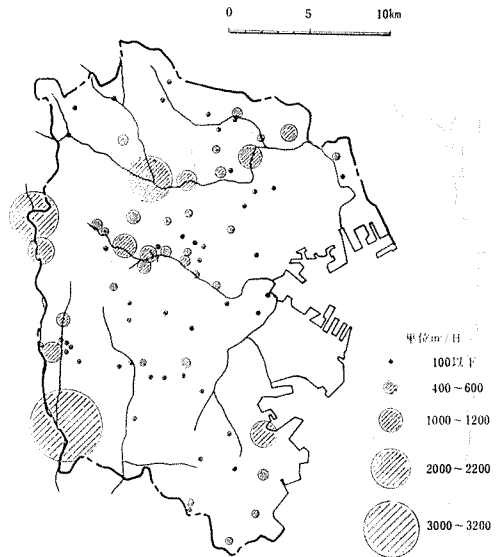


図-3 揚水量分布図

一方旭区、保土ヶ谷区、西区を流れる帷子川流域とその他の地域は前者に比べ揚水量の少ない井戸群が分散している。また金沢区昭和町付近では揚水量の多い井戸群が見られるが、各河川流域に分布する井戸群ほどの量ではない

##### 4-2 被圧地下水水位の地域分布状況

図-4-1、図-4-2は被圧地下水を静止状態で測定した値を整理し水位の高低差を面的に表現し、そこから地域的な水位差の特徴を求めたものである。図-4-1は静止水位のTP(東京湾中等潮位、標高0.000m)から上の水位(+水位)を表わし、図-4-2は静水位のTPから下の水位(-水位)を表わしたものである。また井戸の多い地点での静止水位は平均水位で示し、井戸が一つの地点についてはそれを代表地として使った。

図-4-2によると、TP(-水位)の静止水位が見られるのは主に鶴見川流域から下流の沖積地、帷子川流域下流の沖積地、金沢区の埋立地及び沖積地で、その値は標高約-10m~-30mである。しかし、この付近の揚水量(図-3)は全体から見ると中以下のものであって、特に帷子川流域下流ではほとんどの井戸が100 $\text{m}^3$ /日以下である。

一方図-4-1からはTP(+水位)の静止水位分布状況を見ることができ、鶴見川流域から南の内陸丘陵地域は高い静止水位であることが分かる。特に興味あることは、図-3と図-4-1・2を比較した場合、境川、鶴見川両流域で多くの揚水量が認められ



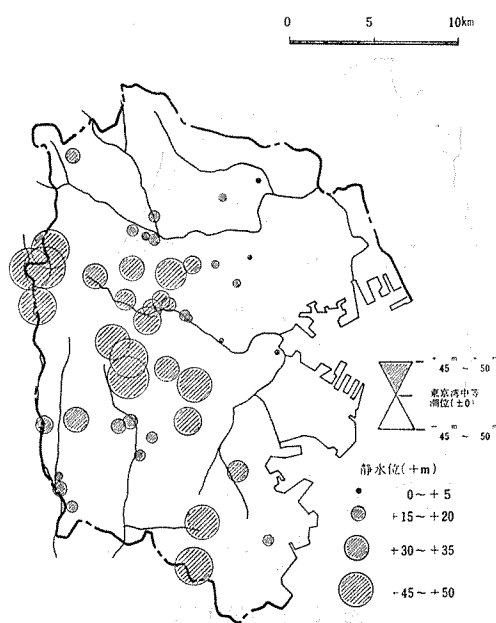


図-4-1 静水位分布図(+標高)

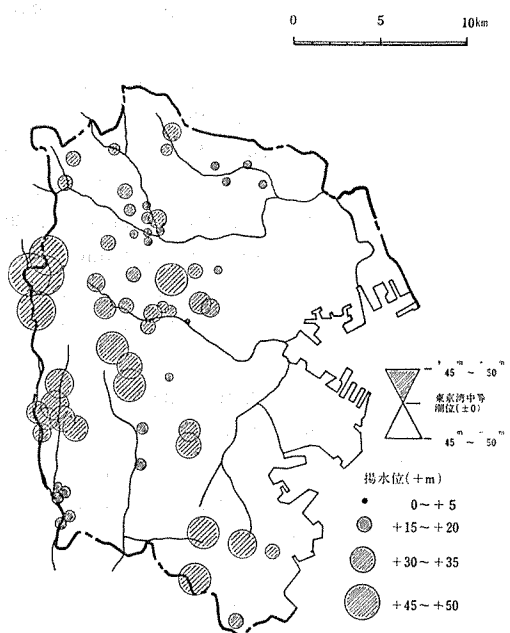


図-5-1 揚水位分布図(+標高)

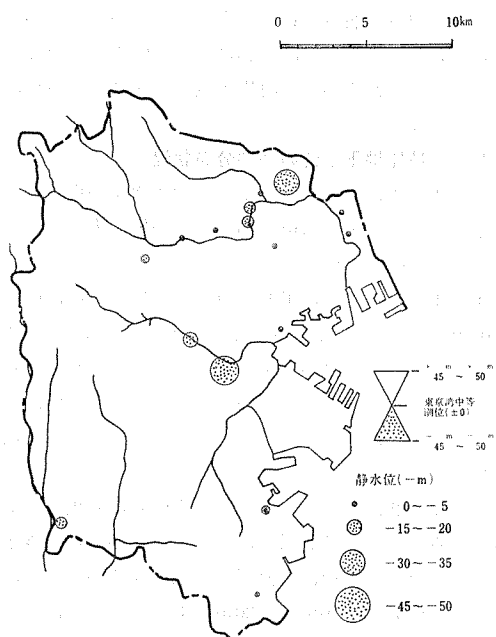


図-4-2 静水位分布図(-標高)

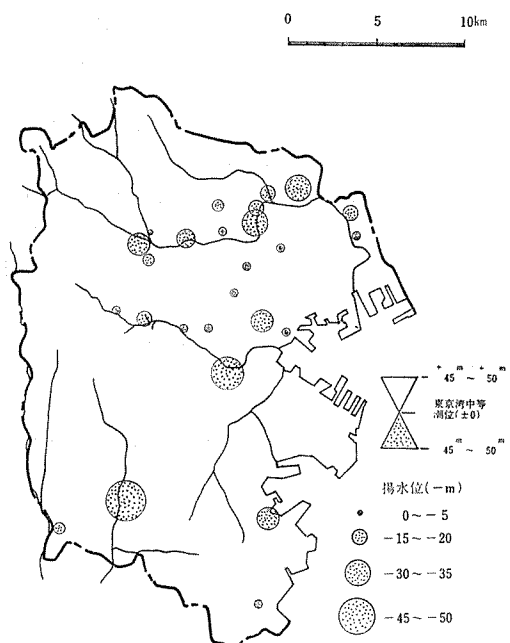


図-5-2 揚水位分布図(-標高)

ているにもかかわらず、境川流域の静止水位はT P (+水位)の標高を保ち(約+10m~+60m)、鶴見川流域ではT P (-水位)と標高約10m以下の静止水位を示していることである。同様に帷子川流域の上流付近も高い静止水位を保っている。揚水量と静止水位との相関性を証明するためには、水文地質と合わせて

考察することが必要であり、ここでは資料不足のため、これらの関係を明らかにできなかった。しかし、揚水井戸付近の地形と静止水位から検討して、丘陵地(T P約+20m~+70m)にある揚水井戸は静止水位が高く、また沖積地(T P約+20m以下)にある揚水井戸は静止水位が低くT P約+10m以下のものが多く、

一部にはTP（一水位）のものがあり、このことから地下水の流動勾配は高い丘陵地及び台地から低い河川低地に向かって下がっていることが考えられる。

#### 4-3 被圧地下水の静水位と揚水位の関係

上総層群の帯水層はかん養能力が乏しいことや地下水の利用が昼間に多いことから考えて、揚水中は周囲の地下水位が低下しているものと思われる。そのため、静水位と揚水位の相関性を考察することにした。揚水中の水位測定値はポンプの移動条件によってかなりの水位差があるものと思われるので、ここではおよその傾向を把握するものとした。図-5-1はTP（+水位）の揚水位を図-4-1と同様に整理したものである。これよりTP（+水位）の揚水位は図-4-1と同じ傾向を示し、揚水中であっても高いTP（+水位）を保っていることが分かる。また今回の調査から明らかになった緑区や港北区の鶴見川上流の流域、恩田川流域、早淵川流域等においても高い水位を保っている。

一方、図-5-2はTP（一水位）の揚水位を図-4-2と同様の条件で考察したものである。図から明らかのようにTP（一水位）の水位差がかなり顕著に表われている。すなわち鶴見川流域中流付近と恩田川合流地点付近は静水位でTP約-5m前後あったものが、揚水位ではTP約-20m~-25mと低下し、帷子川流域や戸塚区柏尾川流域の下倉田付近で新たにTP（一水位）の現象がみられる。

以上のことから、横浜地域の被圧地下水位低下は鶴見川、帷子川、柏尾川の各流域で発生し、鶴見川下流、帷子川下流付近では揚水後の水位回復が少ない。またこの付近の揚水量も全体から比較して少ないことなどから見て、付近は地下水かん養がかなり乏しい地下構造になっていることが考えられる。これに対し、瀬谷区、旭区、戸塚区、港南区、金沢区等、内陸の丘陵地域は比較的高い水位を保ち、揚水時でも大きな水位低下は認められない。特に境川流域では揚水量が多い地点であっても水位低下は認められず、かん養に富んだ地下構造になっていることが考えられる。

#### 5. まとめ

横浜地域の畜産事業所井戸の地下水利用実態と、既存資料等より、全体の地下水位の動向を探り、揚水量の実態を考察したが、これらは今後地下水面の精度を高める上において重要な基礎資料となり、また市域全体の地下水の動きを見る上において役立つものと思われる。

しかし、「適正揚水量」「安全水位」等の策定を試

みるためには、現状の資料では不十分であり、今後さらに詳細な井戸実態調査を進める必要がある。特に市域南部は井戸調査の行われていない地帯が目立っていることから、早急な調査が望まれる。

同時に当面の対策としては現状の井戸で市域全体の水位観測を継続的に実施し、地域実情の特殊性に応じた地下水管理を行い、地盤沈下の要因となる地下水位低下を未然に防止しながら、地下水の合理的な利用を図るようにすることが大切であると考えられる。

#### 謝辞

この調査は横浜市緑政局農政部園芸畜産課の御協力により実施したものであり、関係者の方々には深く感謝いたします。また本報告をまとめるに当たり、終始御指導いただいた公害対策局片山雅之氏に感謝いたします。

#### 文献

- 1) 横浜市公害対策局：横浜市地下水総合調査報告書，No.56，206，（1975）。
- 2) 横浜市公害対策局：横浜市地盤沈下調査報告書，No.51，66，（1973）。
- 3) 横浜市公害対策局：横浜市地盤沈下調査報告書，No.59，90，（1974）。
- 4) 横浜市公害対策局：横浜市地盤沈下調査報告書，No.67，56，（1975）。
- 5) 横浜市公害対策局：横浜市地盤沈下調査報告書，No.71，51，（1976）。
- 6) 横浜市公害対策局：横浜市地盤沈下調査報告書，No.72，51，（1977）。
- 7) 安芸皎一・多田文男（監修）：朝食書店，水資源ハンドブック，80，（1966）。
- 8) 横浜市緑政局：横浜市畜産概要，（1979）。
- 9) 市川正巳・榎根勇：古倉書院，日本の水収支，211~222，（1978）。
- 10) 水収支研究グループ：地下水益の管理，73，（1976），大海大学出版会。
- 11) 中野尊正：日本の0メートル地帯，224，（1963），東京大学出版会。
- 12) 新藤静夫：武蔵野台地の水文地質，地学雑誌，Vol. 77，No. 4，31~54，（1968）。
- 13) 太田陽子・当間唯弘・須磨重允：横浜市付近の下末吉層基底面の地形，地理学評論，Vol. 43，No.11，647~659，（1970）。
- 14) 寿円晋吾：多摩丘陵の地形と地質，波丘地農業研究所報，第1号，27~45，（1958）。
- 15) 関東第四紀研究会：横浜付近の第四系に関する

- 諸問題 (1), 地球科学, 28卷5号, 155~171,  
(1974).
- 16) 神奈川県建築士会: 神奈川県地盤図, 879,  
(1972).
- 17) 建設省計画局東京湾継合開発協議会: 東京湾周  
辺地帯の地盤, 都市地盤調査報告書第17巻, 138,  
(1969).
- 18) 地質調査所: 東京湾とその周辺地域の地質,  
(1976).

# 幹線道路の公害対策と住民意識

## —沿道環境整備対策についての—考察—

森 清 和

### 目 次

1 はじめに(問題の所在)	2-4 沿道住民の公害意識
2 幹線道路沿道住民の公害意識	3 公害対策としての沿道環境整備対策
2-1 意識調査	3-1 沿道環境整備対策とその背景
2-1-1 調査概要	3-1-1 建設省の沿道環境整備促進事業
2-1-2 環境諸量からみた沿道環境	3-1-2 43号線沿道環境整備モデル
2-2 自動車公害の実態	3-1-3 環境庁土地利用研究会の土地利用制御論
2-2-1 幹線道路と居住環境	3-2 沿道環境整備対策の性格
2-2-2 健康影響	3-2-1 現実化の条件
2-2-3 日常生活への影響	3-2-2 合意形成の課題
2-3 自動車公害の解決策	3-2-3 問題解決の可能性
2-3-1 調査の位置づけ	3-2-4 発生源対策の限界性
2-3-2 自動車公害解決の責任主体	4 おわりに
2-3-3 自動車公害対策	別表 アンケート調査項目および回答比率

### 1. はじめに(問題の所在)

自動車公害は、大気汚染、騒音、振動をはじめとする多種多様な公害現象の複合した公害として、人の健康や日常生活のほとんどすべての面に影響を及ぼす。しかも、有効な公害防止対策が講じられないままに、モータリゼーション化が進展させられることによって、その被害はますます深刻化するのみならず、点から線、線から面へと広域化している。自動車公害問題は、今日最大の公害問題のひとつとなっている。それはまた、交通事故や公共交通の破壊等の問題とならんで、現代のクルマ社会における重層的、構造的な自動車問題の主要課題でもある。<sup>1)</sup>自動車公害問題自身、重層的で問題領域はかなり広いが、主要なのは次の3部面である。第1は、交通量が多く、道路機能が自動車交通機能に特化された、しかも通過交通が大半を占めているいわゆる幹線道路の沿道地域における公害問題である。現実にもっとも深刻な被害を受けている地域である。なお、この幹線道路公害問題はさらに、高

速道路等のように高架や掘割構造などで沿道地域と隔離した関係にある自動車専用道路における場合と、平面道路で沿道アクセスをもつ一般の幹線道路の場合とに分かれているが、本稿ではとくに断わらない限り一括して扱う。第2は、光化学スモッグや二酸化窒素汚染に象徴される広域大気汚染問題である。都市域での窒素酸化物総量規制の主たる対象領域である。第3はもっとも数多くの道路公害反対住民運動を惹起している道路建設計画問題である。環境アセスメント制度の主たる課題となっている領域でもある。以上が主要な問題領域であるが、そのほか第4の問題として、居住地区内の細街路等のいわゆる生活道路の公害問題も、ことに幹線道路周辺地域での生活道路において、幹線道路から迂回した通過交通の増加により、無視しえない問題になってきている。

幹線道路公害問題、広域大気汚染問題、道路建設計画問題等、いずれも密接に絡み合って自動車公害問題の重層的な体系をなしている。しかし、自動車公害問

A Study on Protection from Roadside Environmental Pollution

\* Seiwa Mori, 横浜市公害研究所社会科学部門

題の原点は、被害の深刻さあるいは問題発生経緯からして、幹線道路の公害問題である。三者いずれも解決の困難な問題には違いないが、その中でも幹線道路公害はとりわけ困難な課題である。それが解決しえれば、そこから派生したすべての自動車公害問題は解決に至るが、逆に、後二者の解決は幹線道路公害の根本的解決にはつながらず、依然として問題は残される。幹線道路公害問題に対してある種の諦観が支配しつつあるが、自動車公害問題の原点として何はともあれ解決しなければならない課題である。

最近、建設省の「沿道環境整備促進事業」(1977年)や、モデルプランの段階であるが兵庫県の「国道43号沿道環境整備対策」(1978年)等の沿道地域の土地利用からのアプローチが、急速に注目を集めてきている。環境庁土地利用研究会は土地利用制御による道路と地域環境の調和が交通公害問題の抜本的な解決策であるとの観点から提言を行い(1979年)、54年版『環境白書』も交通公害対策として土地利用の適正化を強調する。さらに、今夏には「沿道環境整備制度」の法制化の動向も大きく報道されている。<sup>2)</sup>他に環境庁において「大型トラック交通量規制」も検討されており、<sup>3)</sup>土地利用制御対策一本に絞られたとはいえないが、幹線道路の公害対策として沿道環境整備対策が衆目を集めつつある。

しかし、沿道環境整備対策は、本当に抜本的な解決策となりうるであろうか。現代社会にビルト・インしている自動車を対象とした対策の選択、導入は、市民の合意形成なくしては困難である。市民生活の基盤に直接に関係する土地利用計画においては、とりわけ市民の合意形成が不可欠である。絶対的条件といつてもよからう。けれども、我々が実施した幹線道路沿道の住民意識調査の結果をみるかぎり、それは容易に市民合意を得られそうにはない。他地域のアンケート調査結果をみても同様である。抜本的解決策という位置づけと住民意識の間には大きな「ズレ」が感じられる。

その「ズレ」は、埋めることのできる性質のものであろうか、そもそも今日展開されている沿道環境整備対策はどのような性格のものであろうか。本稿は、我々の実施した住民意識調査を媒介項として、上記の主題を検討するとともに、幹線道路の公害問題へのアプローチの基本視角について考察する。

## 2. 幹線道路沿道住民の公害意識

— 国道1号線三ツ沢・松本地区沿道住民自動車公害意識調査より —

### 2-1 意識調査

幹線道路公害対策が公害問題の解決にとって現実の有効性と可能性をもちうるためには、まず前提として、沿道公害の実態を反映していることと、住民の合意形成が可能なことの2要件が不可避の条件となる。今日提唱されている沿道環境整備対策は、2要件を充足しうるであろうか。この問いに答えるためには、実際に深刻な被害を受けている住民の公害意識を把握しておくことが必要である。幹線道路公害に関する沿道住民意識調査については、これまでに自治体、住民運動組織、研究者等によって多くの地域で実施されているが、<sup>4)</sup>ここでは我々が実施した「国道1号線三ツ沢・松本地区における沿道住民自動車公害意識調査」<sup>5)</sup>をもとに、自動車公害の実態および自動車公害の解決策に関する住民の公害意識をみてゆくこととする。

#### 2-1-1 調査概要

調査対象地域は、平面の一般国道1号線の神奈川区三ツ沢・松本地区、通称「行政道路」の約1.2kmの区間で片側100m、両側200mの沿道地域である。調査は、地域の全世帯・全店舗等を対象として、配布留置訪問回収法により、1978年3月17日～26日に実施した。配布数は1,077人、有効回収数は920人(85%)であった。調査の設計・実施・分析は、当公害研究所社会科学部門と騒音部門が、横浜市立大学の村橋克彦助教授の指導と協力のもとに行った。

対象地域は、木造一戸建て住宅を中心とした古くからの密集度のかかなり高い住宅地で、地域住民を顧客とした住居併用の商店も2割ほど存在する。道路は両側に歩道のある平面4車線で、24時間交通量は平日43,000台、休日36,000台である。大型車混入率は平日の日平均で25%、夜間のピークでは50%に達している。朝のラッシュ時は数キロにわたって渋滞する。横浜では代表的な幹線道路の沿道地域である。

調査結果の分析は、下記のゾーニングを基礎に行った。

Aゾーン	国道の車道端から	0～12.5m(188人)
Bゾーン		12.5～25m(100人)
Cゾーン		25～50m(251人)
Dゾーン		50～100m(381人)

なお、アンケート調査項目および回答比率は別表に示す。

#### 2-1-2 環境諸量からみた沿道環境

意識調査と並行して騒音および交通量調査を行った。また別途に大気汚染調査が三ツ沢地区で実施されている。<sup>6)</sup>

交通量、車速および大型車混入率は、図-1に示す。騒音測定結果およびこの地域の環境基準値は図-2

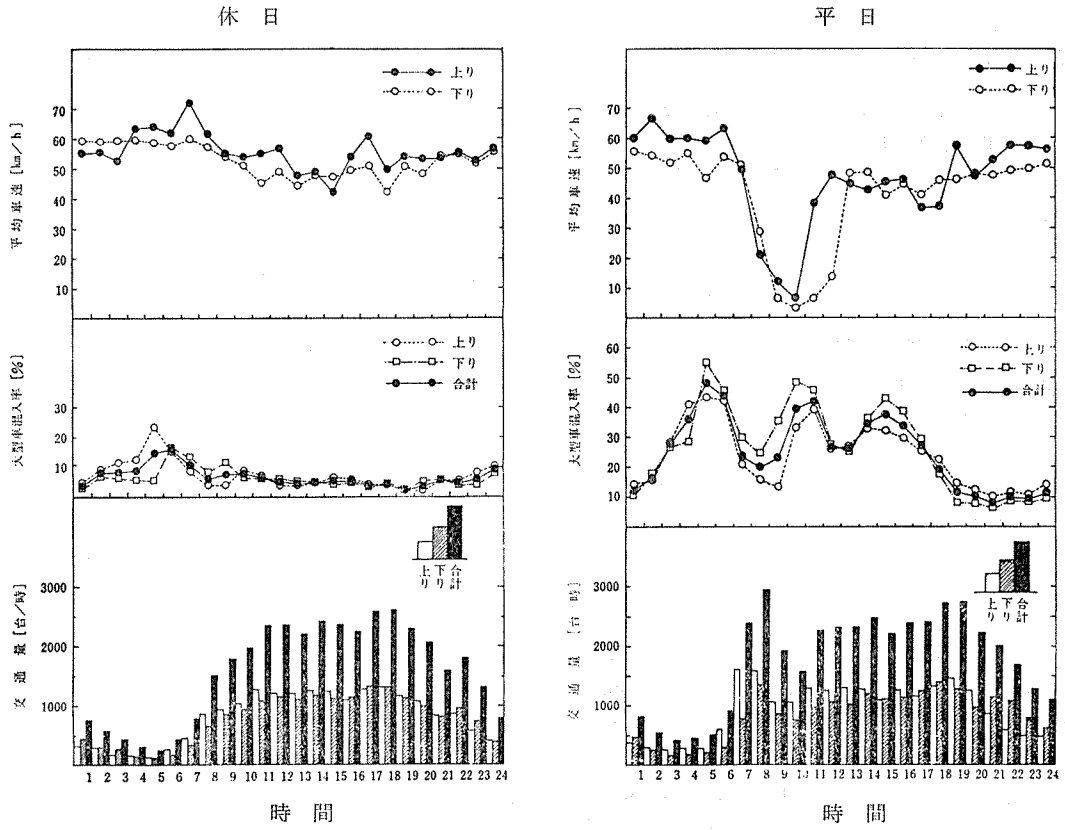


図-1 休日・平日における交通量・車速の時間変動

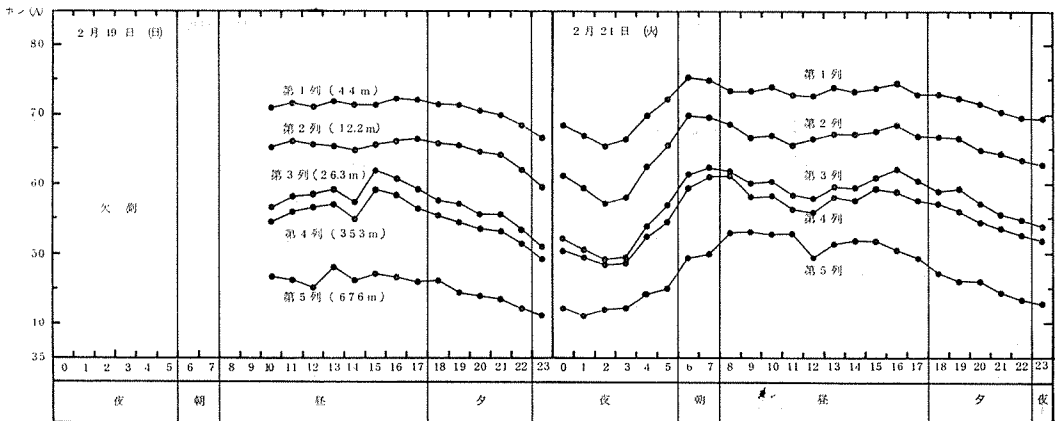


図-2 騒音レベルの時間変動

および表-1に示すとおりである。道路から100mの地域の中に3種類の環境基準値が存在すること自体が異常であるが、Dゾーンに属する第5列目の一部時間

表-1 測定地点に適用される環境基準および自動車騒音の限度

測定点	環境基準			自動車騒音の限度		
	昼間	朝夕	夜間	昼間	朝夕	夜間
第1列	65	65	60	80	75	65
第2列	60	55	50	—	—	—
第3～5列	50	45	40	—	—	—

(単位ホン(A))

帯を除いて、すべての地点および時間帯で、環境基準を最大15ホン(A)近くも超えている。道路境界の第1列では夜間と早朝に自動車騒音の限度(要請基準)にすら適合していない。

排気ガス汚染も同様である。約40日間の測定結果をみると、道路境界では、大巾に緩和された二酸化窒素(NO<sub>2</sub>)環境基準の日平均値0.04ppm、0.06ppmすら超えている割合が、それぞれ92～95%、40～44%となっている。なお、横浜市は高速道路の建設においてその環境目標を窒素酸化物(NO<sub>x</sub>)で日平均値0.1ppmに設定しているが、平均ですらその2.5倍、最高では8倍以上となっている。

## 2-2 自動車公害の実態

### 2-2-1 幹線道路と居住環境

騒音や大気汚染の環境諸量のデータは幹線道路沿道地域の環境条件がきわめて劣悪なことを示しているが、それがどのような被害として顕在化し、またどのように意識されているであろうか。この節では、自動車公害の実態について概観する。

まず、自動車公害による被害意識について、騒音(66%)と排気ガス汚染(44%)を中心に、地域全体で8割以上の人が何らかの自動車公害を受けていると意識しており、「受けていない」という回答は12%にすぎない(図-3)。居住環境に対する満足度はさらに低下し、「静かさや空気のきれいさ」に満足感を表わしているものは、地域全体でも僅かの6%、AゾーンやBゾーンでは皆無に近づいている。

また、上記の被害意識でもっとも有訴率の高かったのは騒音公害を受けているの66%であったが、同じく幹線道路の自動車騒音が「聞こえる」と答えた人も67%、さらにその騒音を「うるさい」と感じている人も67%と、三者とも3分の2で同じ比率となっている。

各ゾーン別にみてもほぼ同一比率となっており、幹線道路からの自動車騒音について、「聞こえる」という客観的な環境条件、「うるさい」という主観的な把握、そして「騒音公害」という公害意識との三者が対応関係にあることが示されている(図-4、5)。

### 2-2-2 健康影響

自動車公害被害においてもっとも重大なのは、言うまでもなく身体健康への影響である。けれども、その直接的原因が排気ガス(NO<sub>x</sub>, CO, Pb……)、騒音、振動、低周波空気振動等々と多様で複合的に作用すること、しかも健康障害が主に非特異的疾病であることなどにより、決め手となる医学的な調査手法も開発されておらず、その実態像を客観的に把握することは非常に困難である。このため既成の手法(主にBMRC法)による疫学調査で影響が統計的に確定されないことをもって、自動車公害における健康影響を軽視ないし捨象してゆく傾向も見受けられる。しかし、意識調査の結果は、地域住民の健康に深刻な影響が及んでいることを示している。

調査は、家族を含めた世帯を対象とした。

まず、家族構成員の健康状態が「自動車からの公害により影響を受けているか」という設問に関して、そのことを「つよく感じている」と答えた人は全体では14%であるが、Aゾーン34%、Bゾーン22%、Cゾーン10%、Dゾーン5%と、道路に近くなるほど多くなっている。また、「多少感じている」と答えた人はさらにひろがり全体で30%、Aゾーン38%、Bゾーン36%、Cゾーン29%、Dゾーン26%となっている。すなわち、「つよく」と「多少」を合わせて健康影響を訴えている世帯は、道路に面しているAゾーンでは実に72%、Bゾーンも半数を越える58%、Cゾーンで39%と漸く半数を割るものの、50～100mのDゾーンでも31%と依然として3割以上あり、地域全体では44%に及んでいる(図-6)。

その症状では、大気汚染系の「セキヤタンが出る」が各ゾーンとも40～55%で最高率となっている。そのほかでは、どちらかといえば全身的な症状である「カゼを引きやすい」(38%)、「頭がいたくなる」(37%)、「疲れやすい」(28%)などが多くなっている。なお、「目がしみる、涙がでる」、「耳が遠くなった」、「血圧が高くなった」および「胃腸の調子が悪い」等の有訴率が、Aゾーンにおいて他ゾーンに比べ著しく高率となっていることが注目される(図-7)。

ところで、現在、我々は健康影響を「感じている」という個人の主観的な被害意識から健康被害の客観的な実態像を構成する確立した手法を持っていない。従

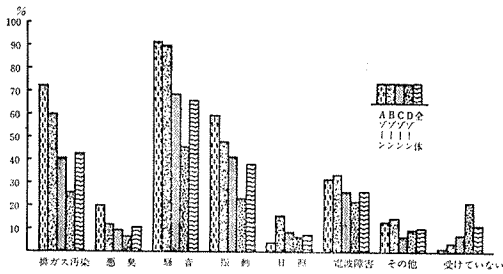


図-3 自動車公害の種類

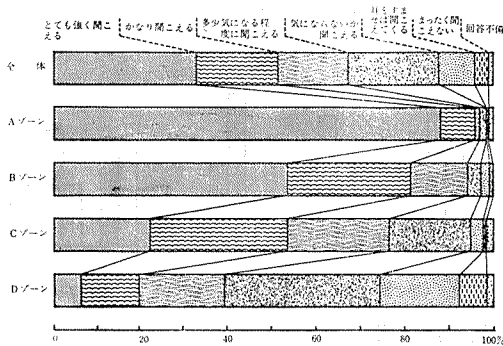


図-4 国道1号線の騒音

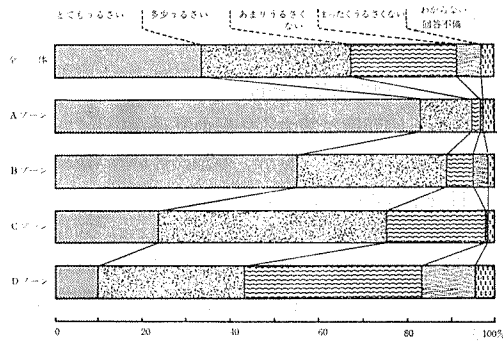


図-5 国道1号線のうるささ

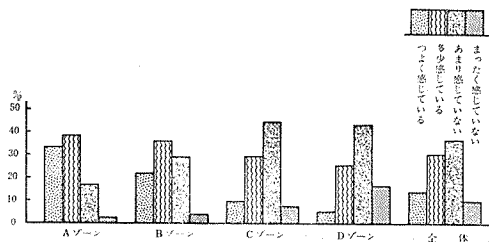


図-6 健康状態への影響

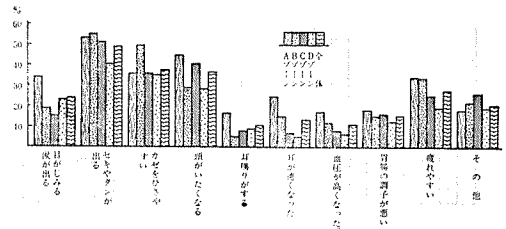


図-7 健康影響の症状

って、調査データの比率を無媒介に健康被害の客観的な尺度とすることは注意を要する。<sup>7)</sup>しかしながら、そのことを考慮したとしてもなお、排気ガスや騒音<sup>8)</sup>等により健康に相当深刻な影響が生じていることは疑いえない事実であろう。<sup>9)</sup>

なお、自由意見欄に記入された、

「排気ガスの出ない車ができると良いと思います。騒音や振動は少々我慢できますが、空気が汚れていては体にも悪いと思います」(Aゾーン、女性29才)  
 「長期間による排気ガス汚染の体への影響が心配です。特に、子供の通学路が国道1号線のため、毎朝の渋滞状況の歩道を登校する小学生を見ておりますと心配です」(Dゾーン、女性37才)

の意見の例に見られるような、いわば潜在的な健康被害意識——言いかえれば、自覚することのできない排気ガスによる健康影響への危惧や不安感——の存在も、幹線道路公害対策の検討過程で忘れてはならない性質のものであろう。後述するように、潜在的な被害意識を捨象しては、公害対策について住民のコンセンサスを得ることが不可能だからである。

### 2-2-3 日常生活への影響

生活環境への侵害もまた多様で、深刻である。生活環境の破壊は、健康被害影響と比べて軽く扱われる傾向にあるが、人間の人格形成、人間性の基本にかかわるものとして、把握する必要がある。

まず、イライラするとか、目がさめるとか等の精神的神経的な側面を主とする生活影響は、全体で概ね3~5割、道路に近いAゾーンでは5~7割に及ぶ有訴率となっている。もっとも高率となっているのは、「騒音や振動でハットする」(49%)である。睡眠妨害の典型である「寝ている時に目がさめる」は、Dゾーンにおいてさえ有訴率36%となっている(図-8)。次いで、家族だらん時や思索時などの主に家庭内の日常的な行為への影響は、概ね全体で2~4割、Aゾーンでは項目によって差があるが3~7割の有訴率となっている。傾向としては精神的な影響より若干低い。ただし、テレビや電話などの聴取妨害は、国道に近くなるにつれて急激に高くなっており、精神的側



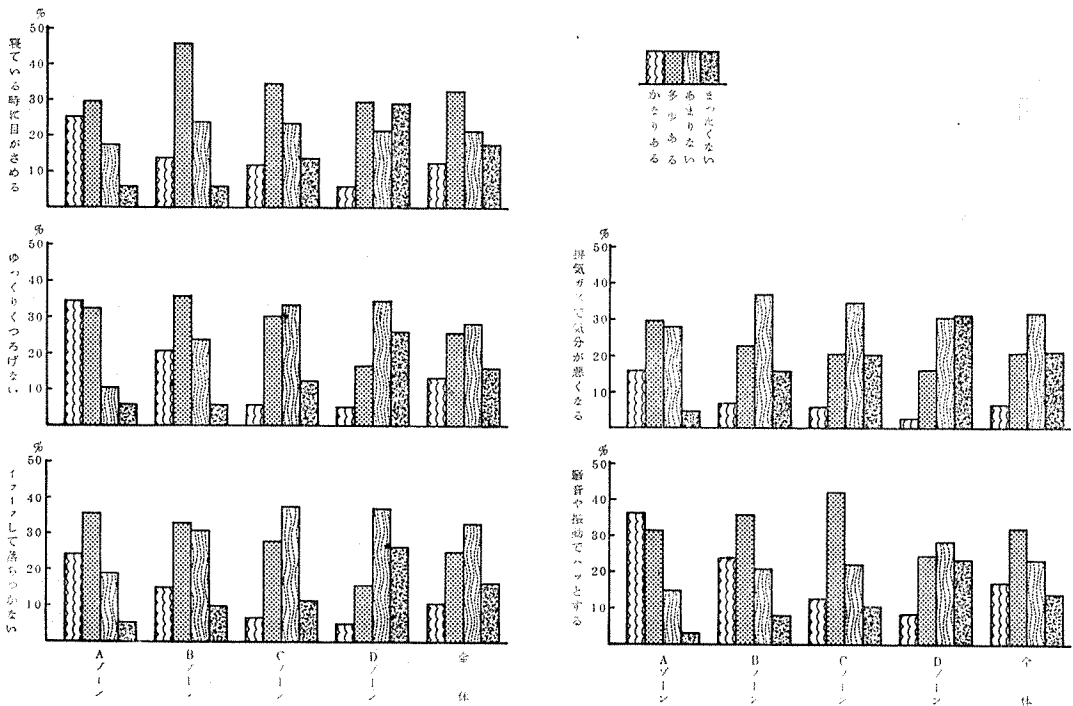


図-8 精神的神経的影響

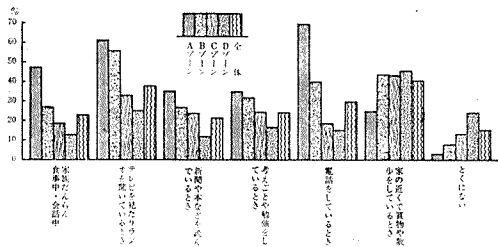


図-9 日常生活への影響

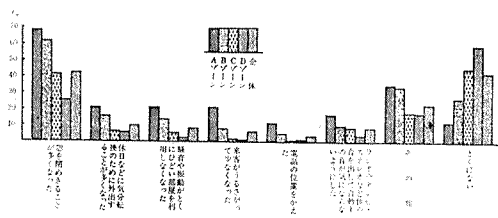


図-10 生活形態の変化

面と同程度の率に達している(図-9)。

これらの影響は、地域住民の生活形態の変化をも惹起している。ある意味では公害に対する自衛策ともいえる生活の仕方や様式の変化は、概ね全体で1割以下であるものの、「窓をしめきることが多くなった」という変化は43%に及び、図抜けて有訴率が高くなっている(図-10)。

その他にも、子供の勉学への影響、経済的物理的な被害、草花が枯れる等、非常に広い範囲にわたって深刻な影響がみられる。地域全体の回答比率は別表を参照されたい。

### 2-3 自動車公害の解決策

#### 2-3-1 調査の位置づけ

自動車公害問題に関する住民の意識ないしはその評価の差異は、住民の“見解”の差異というものではなく、自動車公害問題についての関心の高さや学習の程度によって大きく規定されているといわれている<sup>10)</sup>。その意味においては、自動車公害に日夜を通じ深刻に悩まされている幹線道路の沿道住民の公害意識は、公害対策の基礎として大きな重みをもっている。しかしまた、当該地区の自動車問題に対処した行動経験は、電話や手紙などによる話し合い・相談・要望・申入れなどを含めても、全体で8%と非常に低く、住民運動という言葉は最大の学習経験は皆無に近い。沿道住民の自動車公害問題に対する関心は高く、回答者個人は十分に思慮された意見を出しているとは考えられるが、それらは実践や科学的知識を媒介として形成されたものとはいえない。そのかぎりでは必ずしも地域の“成熟した見解”と看做すことはできない、ということにも留意を要する。

従って、当該アンケート調査結果をもって沿道地域

の最終見解であると無媒介的に結論を導出することはできない。しかしながら、既存の幹線道路沿道で住民運動が展開されているところはむしろ少数であり、逆にみれば、かかる公害意識が現状の幹線道路沿道地域における一般的な意識レベルとして重要性をもっている、といえよう。

さて、自動車公害の解決策にかかわる意識として、主要な問題は解決の責任主体と対策手段であろう。最初に、前者からみてゆくことにしよう。

### 2-3-2 自動車公害解決の責任主体

自動車公害の解決の責任主体については、図-11に見られるように、まず全体では、「国（政府）」が38%で圧倒的に多く、次いで主なところでは「自動車メーカー」(13%)、「自動車の使用者または所有者」(13%)、「市民一人ひとり」(11%)となっている。

「国（政府）」が第1位となっているのは、自動車公害問題の本質のナショナルな性格および道路管理者としての責任を投影しているものと考えられる。また「自動車メーカー」や「自動車の使用者および所有者」が一定の比率を占めていることも、首肯しうるところである。しかし、直接的な原因者とは目されない「市民一人ひとり」がそれらとほぼ同程度に解決の責任主体として意識されていることは、何を反映しているのであろうか、留意を要する点である。

ところで、ゾーン別に見ると、「政府」や「メーカー」はAゾーンでとくに高くなっていることが目立ち、逆に「所有者」や「市民」は道路から遠ざかるにつれて高くなっており、反対の傾向を示している。このことを読みとるためには、意見の自由記入欄を合わせて考える必要がある。自由意見欄の傾向は、表-2からも窺えるように、国道付近では自動車による公害問題が中核をなしているのに対し、国道から離れたDゾーンやCゾーンでは、公害問題だけでなく、裏通りの通過交通や駐車問題、あるいは渋滞によるバス通勤の困難など自動車問題総体へと問題が拡大している。これらのことを合わせ考えると、解決の責任主体に関する意識は、自動車公害による影響の深刻さの度合いと、住民の直面する自動車問題の局面の相違を反映して形成されるものと考えられる。

同時に見方をかえて言えば、回答が分散しているということは、自動車公害問題の解決主体が住民にとって十分に「見える」存在とはなっていないという状況をもあらわしているといえることができる。

### 2-3-3 自動車公害対策

まず、11種の対策を例示して、「効果があり、また必要である」ものを3つ以内を選択してもらった(図-

12)。

傾向は4つにわかれている。第1は、「自動車そのものの低公害化」が圧倒的に高く、53%を示した。第2グループ(3分の1前後のもの)は、「道路構造の改良」36%、「渋滞解消」29%、「自動車の所有台数・走行台数の制限」29%である。2割前後の第3グループは、「運転者のマナー向上」や「乗り入れ制限や交通規制」および「自動車のための道路建設」である。「公共交通機関の整備」、「歩行者天国の増設」、「自動車に対する増税」および「緩衝施設設置」は1割前後にすぎなかった。

この傾向は、当面「急いで実施すべき」対策手段の

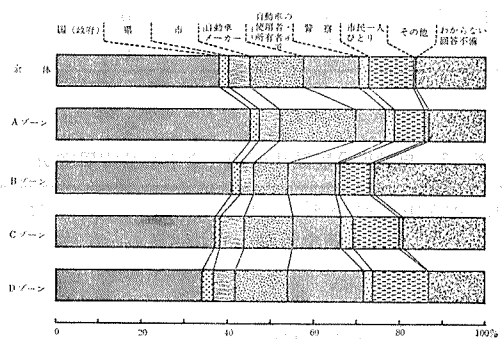


図-11 公害解決の責任主体

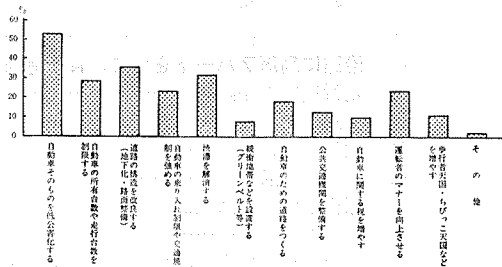


図-12 有効な自動車公害対策

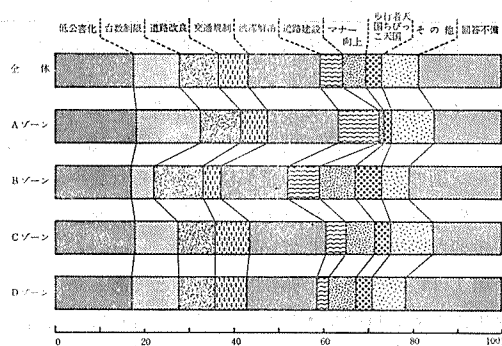


図-13 当面実施すべき自動車公害対策

表-2 自由意見の問題別・ゾーン別件数

	Aゾーン	Bゾーン	Cゾーン	Dゾーン	計
(1) 幹線道路と公害	13	4	2	4	23
(2) 渋滞と公害	6	2	0	0	8
(3) オートバイ・運転マナー	2	4	0	9	15
(4) 居住環境とクルマ	0	2	9	10	21
(5) 駐車	0	3	7	13	23
(6) 原因と解決方法	1	1	5	4	11
(7) 自動車台数抑制	1	1	7	11	20
(8) 自動車の低公害化	9	1	3	2	15
(9) 交通規制等	9	3	8	4	24
(10) 渋滞解消	2	2	1	3	8
(11) 渋滞と公共交通	0	0	6	12	18
(12) アンケート調査	2	0	3	4	9
(13) その他	0	1	1	5	7
計	45	24	52	81	202

表-3 自動車公害防止対策（東京都公害研究所）

Q. 道路の騒音や振動を防止するために、あなたはそのような対策を希望しますか。 5つまであげて下さい。	S Q. そのうち最も希望する対策と2番目に希望する対策をあげて下さい。	
	〔Q〕	〔1番目〕
(イ) 自動車自体の改善	18.7	8.5
(ロ) 運転手のマナーの改善	23.2	8.0
(ハ) 道路構造の改善	16.3	4.7
(ニ) 道路ぞいの防音塀の設置	3.9	1.1
(ホ) 舗装管理の徹底	13.8	4.4
(ヘ) 沿道に高層アパートを建て、音を遮断する	1.1	0.3
(ト) 走行速度の制限	28.5	6.5
(チ) 交通量の制限	33.1	10.1
(リ) 大型車の通行規制	40.0	12.4
(ル) 裏通りの通行止	12.0	4.4
(レ) 深夜早期の交通規制	22.2	5.1
(ヲ) 夜間の通行止	7.2	1.5
(ワ) 路上駐車を禁止し、車の流れをよくする	17.5	4.0
(カ) 住宅の防音工事費の助成	6.6	1.5
(コ) 移転の場合の費用の補償	3.7	0.7
ない、わからない	25.8	

（東京都公害研究所騒音部『自動車騒音・振動による生活影響に関する調査結果』（昭和50年1月）より）

選択（単数）においても、「渋滞解消」が第2位となってくるほかは、ほぼ同様であった（図-13）。なお、ゾーン別の顕著な意識の差異は見受けられなかった。

この調査結果は、幹線道路の自動車公害対策について重要な内容を提起している。

第1は、総体として指摘できることであるが、公害発生源である自動車・交通・道路等に対して、公害の発生量そのものを抑制すべき直接的な対策が高率を占め、反対に間接的あるいは誘導的な対策の選択率は低

くなっていることである。住民は、排気ガスや騒音の排出量の削減を要求するとともに、そのためにはその発生源に対する直接的アプローチが有効であると看做しているといえる。

第2は、グリーンベルトや遮音施設等の「緩衝施設設置」が、長期的あるいは当面の対策としても、もっとも低く評価されていることである。このことは、発生源対策を放置した公害の緩衝対策への消極的評価、および自分の生活基盤を崩しかねない対策への不賛同

を表わしているものと読みとれよう。

これらのことは、東京都公害研究所等による他地域の幹線道路におけるアンケート調査結果においても同様となっている(表-3)。

なお、有効な公害対策としては「自動車の低公害化」を要求する意見が圧倒的な多数を占めるにもかかわらず、先の解決責任主体では「国(政府)」が圧倒的に多く、「メーカー」責任論が相対的に低率であったということは、メーカーの自主努力に期待しておらず政府の規制強化が必要であると考えられていること、あるいはメーカー等によって流布されている自動車の構造改善の限界説が納得されていない、ということを表わしていると読むことができよう。

また、その公害対策により解決を図っていくためにはどのような行動が有効かについては、自治体への働きかけが1割近くを占めており、自治体の自動車公害行政の展開が期待されている。

#### 2-4 沿道住民の公害意識

以上、自動車公害の実態と解決策を中心に概観したが、調査結果全体を踏まえて次のことが指摘できよう。

第1は、自動車公害の影響は、身体および生活の総体に及んでおり、しかもきわめて重大な事態にあること。

第2は、排気ガスによる健康への影響と危惧が強く意識されていること。

第3に、影響は、沿道地域(100m)の全域に及んでいるが、幹線道路に近くなるほど公害問題は急激に深刻となり、反対に離れるに従って他の自動車問題と包括して意識されていること。

第4は、国(政府)の公害解決の責任が強く求められていること。

第5に、公害対策としては、発生源に対する直接的アプローチによる対策が有効かつ必要と考えられ、間接的・誘導的対策あるいは緩衝対策には消極的評価しか与えられていないこと。

第6は、自治体の自動車公害行政への依存である。これらを通して読むと、自動車公害問題の解決についてひとつの意識像が浮び上がってくる。すなわち、自動車公害にはもうがまんできない、すぐにも解決する必要がある。その解決には自動車そのものの低公害化がもっとも有効であるが、自動車メーカーの自主努力には期待できない。国(政府)の規制強化が必要である。そして、その国を動かすためには自治体が住民の代理として自動車公害行政の推進を図る必要がある、という意識である。

このような自動車公害の実態と意識のもとにおいて、真に住民の合意を獲得しつつ解決に有効性を発揮しうる自動車公害対策とはどのようなものであろうか。

### 3. 公害対策としての沿道環境整備対策

#### 3-1 沿道環境整備対策とその背景

公害対策としての沿道環境整備対策は、自動車・自動車交通・道路の自動車公害発生源の側における対策ではなく、従って公害発生量は前提としたうえで、公共主導により土地利用の誘導、規制および整備事業をもって、良好な沿道の地域環境を創造しようとするものである。しかも、単に自動車公害の防止だけでなく、同時に生活環境全体を考慮した総合的な「街づくり」も指向されており、文字通り一石二鳥が目指されている。モータリゼーション化を否定せず、暗礁に乗り上げている自動車公害の発生源対策を回避して、なおかつ公害防止と街づくりが実現するとすれば、申し分はないであろう。54年版『環境白書』も幹線道路公害対策として「基本的には、沿道の土地利用の適正化を図るための対策」が必要であるという。<sup>11)</sup>しかし、沿道環境整備対策をこのような性格のものとして評価することができるであろうか。前章で見たように、それに対する住民の評価は芳しくなかったが、それは住民が沿道環境整備対策の性格や効果について「見透せない」ためであり、今後の展開によって解消しうる性質のものであろうか。

まず、主要な沿道環境整備対策やモデル等とその背景について概観しておこう。

##### 3-1-1 建設省の沿道環境整備促進事業

土地利用面からの公害対策へのアプローチの必要性は、公害対策基本法にも包括的ではあるが規定され、また騒音の環境基準においては、とくにその達成の施策として土地利用の適正化が述べられている。しかし、自動車公害防止のための具体的な土地利用対策は、公害環境行政サイドではこれまでほとんど講じられてこなかった。幹線道路の公害対策として土地利用面からの制度的な対策に最初に着手したのは、建設省である。

最初の制度的な対策は、1974年(昭和49年)4月の「道路環境保全のための道路用地の取得及び管理に関する基準」(通達)にもとづく。道路用地の拡大による沿道対策である。4車線以上の幹線道路を新設又は改築する場合、その沿道部に環境施設帯(植樹帯、遮音壁、歩道、自転車道等)を設置するための用地を車道より10~20mの巾員で道路用地として取得すること

のできることを定めたものである(図-14)。この制度自体は、一般市街地での10~20m巾という土地取得の困難さに加えて、仮に取得できたとしても、平面道路では歩道、緑地帯、自転車道の設置が可能とはなるが、遮音壁を設置することはできず、公害の緩衝機能としてはほとんど機能しない不十分なものである。<sup>12)</sup>しかしながら、道路用地を拡大して対処すべき施設を設置するという、いわば道路法の枠内における対策ではあるが、道路管理者自から沿道対策に踏み出したということは注目に値することであった。従来の道路建設者・管理者の論理は、自動車公害は自動車に起因するもので、道路は無関係であり、むしろ道路建設が公害対策となるというものであった。今日もこの論理はかならずしも放棄されていないが、自から公害対策として沿道対策に乗り出したということは、実質的にその論理が破綻したとみることもできよう。この背景には、道路建設に対する住民反対運動の全国的な興隆がある。すなわち、それまでの線的な道路建設が困難になり、公害対策として面的整備を道路建設に取り入れざるを得なくなったことの反映といえる。沿道対策は住民運動のひとつの産物といえよう。

しかし、先に述べたように、道路用地の拡大だけでもって公害対策とすることはできない。道路用地内の環境施設帯でもって有効な公害対策とするためには、少なくとも50m以上、恐らくは100~200m必要であり、日本での土地利用形態あるいは財源からいっても不可能である。

次いで導入された対策は、1976年7月の「高速自動車国道等の周辺における自動車交通騒音に係る障害の防止について」(通達)にもとづく、有料道路周辺の住宅の防音工事等への助成である。夜間の騒音の中央値65ホン(要請基準)以上を対象に、1978年末までに約5,500戸について講じられた。<sup>13)</sup>防音工事対策は、緊急被害対策として、環境基準を目安に一般幹線道路にも拡大される必要はあるが、窓を閉めきった環境が空調施設を附帯したとしても、とくに春秋において我が国の生活形態に適合しないこと、さらに屋外環境の改善には何ら資さないものであり、根本的な対策とはなりえない。

これら道路用地の拡大や防音工事では被害の深刻化を食い止めることはできず、市街地の平面の一般幹線道路の公害対策は放置されたままであった。この幹線道路公害対策の隘路を打開するものとして編み出されたのが、遮音壁の代替として遮音壁と同様の効果を有する「緩衝建築物(Buffer Building, B. B.)」を核として公園等の「緩衝緑地(Buffer Zone, B. Z.)」

を組み合わせた、沿道環境整備促進事業である。

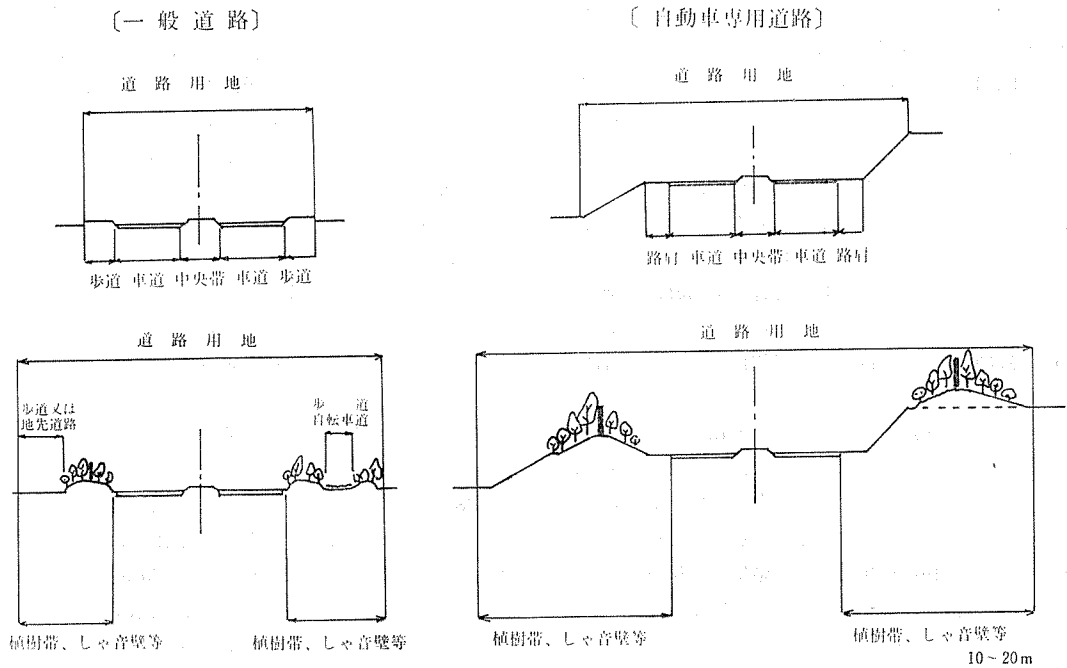
これは建設省が1977年10月に定めた「沿道環境整備要綱」(以下、「要綱」と略す)にもとづいて、現在のところ一応現行道路法の運用として行われている。なお、先に述べたように、最近ではその法制化も検討されているようである。

「要綱」は、「幹線道路周辺の生活環境の整備の促進を図り、もって自動車交通騒音等により生ずる障害の防止及び道路と沿道土地利用との調和の実現に資すること」を目的に掲げ、まず道路管理者が「沿道環境整備道路」を指定する。指定対象は、4車線以上の幹線道路であって騒音(夜間)が、供用中のものは要請基準を、新設又は改築の場合は環境基準を越えるものである。指定された沿道環境整備道路について概ね街区を単位として、緩衝建築物と緩衝緑地で構成される「沿道環境整備計画」を作成する(図-15)。この整備計画にもとづいて、道路管理者の負担金により「沿道環境整備促進事業」が実施される。事業の中心をなす緩衝建築物は、高さ2階・間口30m・奥行12m以上のビルで、一般に犠牲棟と称されている。助成額は、住居部分については建築費の17%、非住居部分は8.8%に相当する額、実際は1,000~1,500万程度と見積られている。<sup>14)</sup>

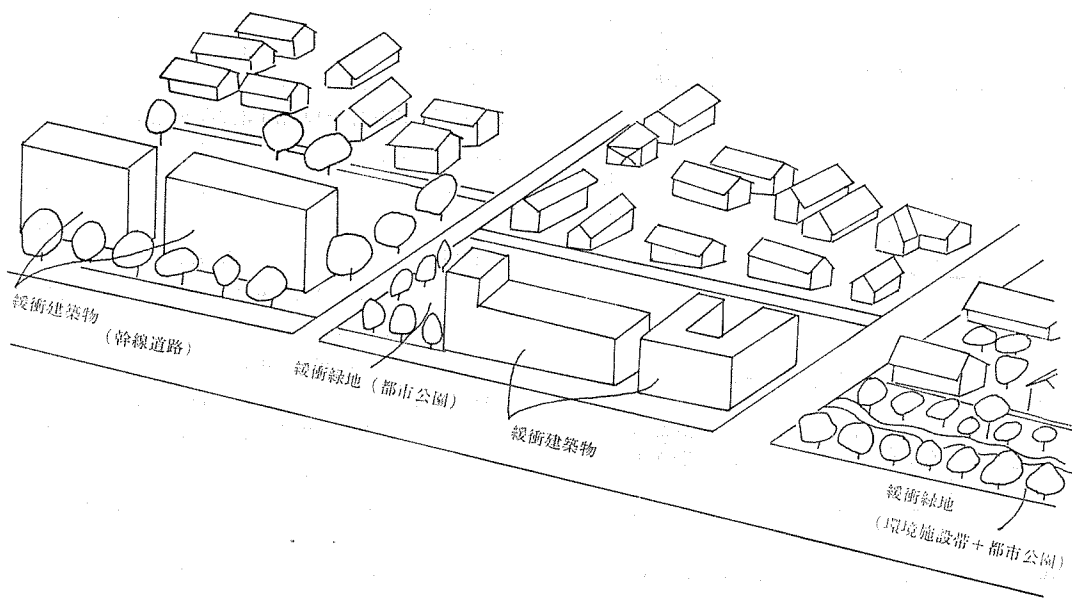
この「要綱」による緩衝建築物の誘導そのものは、建設省の内部でも疑問視されている。<sup>15)</sup>助成額の誘導効果や実体にそぐわない間口30m以上というビル建設の現実性に問題があるからである。実際に今日まで事業はほとんどすすんでいないようである。とはいえ、その遮音効果は図-16のように推定されており、現実に導入されれば少くとも騒音の緩衝としては一定の効果があろう。幹線道路からの自動車騒音を伝播過程の遮音で対策を講じるとすれば、おそらく緩衝建築物の導入による以外にはないであろう。

ところで、この建設省の道路用地外での沿道環境整備対策は、道路法の運用として位置づけられているとはいえ道路概念の外延による対策であり、そのかぎりでは神戸市自動車公害防止条例(1976年4月)の提起した道路管理者の環境管理にたいする責務たる「道路環境管理権」<sup>16)</sup>を実質的に認めたと看做すことのできるものであり、道路行政としては大きな方針転換を意味しているといえよう。道路公害反対運動の産物とはいえ、ともあれ建設省のこれらの動きでもって、幹線道路公害問題への土地利用面からのアプローチが大きな一歩を踏み出すことになったことは事実である。

3-1-2 43号線沿道環境整備モデル



図一14 道路環境保全のための道路用地の取得について（概念図）



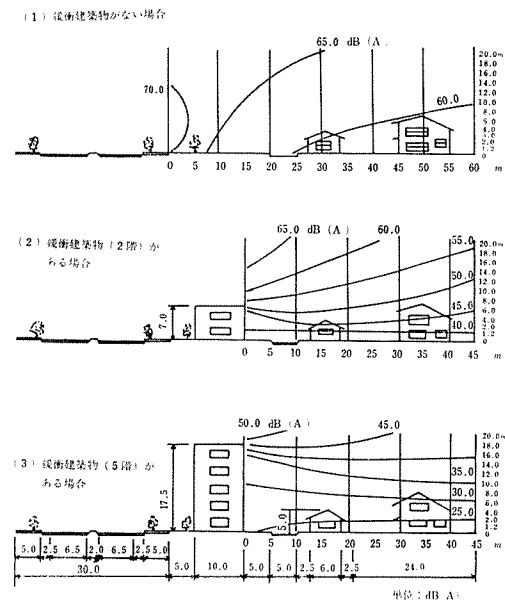
図一15 沿道環境整備の概念図

国道43号、とくに高架で併行している阪神高速道路神戸西宮線（併行部分12.7km）のところは、両道あわせて1日16万台に及ぶ交通量で、わが国有数の公害道路となっている。幹線道路公害の原点ともいわれている。尼崎市、西宮市等の沿道住民により、騒音および窒素酸化物の環境基準値を起える車の走行禁止と阪神高速道路の延長の建設中止を求める既存幹線道路では最初の訴訟も争われている。43号線の車線削減（環境施設帯、自転車道に転化）や防音工事助成、阪神高速の防音壁の設置等の対策が講じられてきたが、事態の深刻さは回復せず、自動車公害防止は大きな障害に直面している。

このような状況のなかで、「国道43号沿道における自動車公害の現状を打開するには、これまでの手法に加えて、その枠を越えた新しい発想の展開が必要」であるとして、土地利用調査や住民意識調査を媒介に作成されたのが1978年10月の兵庫県生活部環境局による「国道43号沿道環境整備モデル」（以下、「モデル」と略す）である。<sup>17)</sup>

まず、「モデル」の概念図を見てみよう。図-17に示す。

緩衝建築物の導入による自動車騒音対策は、先の建設省の「要綱」と同じである。基本的な違いは、「モデル」の場合においては背後部の再開発、街づくりを同時に、沿道環境整備の柱としていることである。



交通量：500台/h一車線，速度：50km/h，混入率：乗用車類40%，小型貨物車類40%，大型貨物車類20%

図-16 緩衝建築物の遮音効果

ところで、この沿道環境整備対策の作成の背景となっている論拠は、その報告書によれば主に次の2点である。第1は、環境影響の予測である。将来、自動車の排出ガスおよび騒音に対する第2段階規制（後述）が実施されたとしても、二酸化窒素は新環境基準（日平均値0.06ppm）に適合しそうであるが、<sup>18)</sup>騒音は最も低減効果のあらわれる昭和65年でも環境基準はおろか、夜間にあっては要請基準をも上回る。他方、道路構造対策、交通規制対策等は可能な限り実施されており、現行の対策は技術的、物理的に限界に近い。従って、騒音対策は沿道土地利用面からの対策に求めざるを得ない。

第2は、住民意識調査の結果である。住民は「自動車公害防止対策の効果」をあまり認めていない（効果ある28%，効果ない52%）。また、生活環境改善に関する意見として、自動車公害の「対策強化論」に賛成34%に対して「街づくり必要論」に賛成46%と、「街づくり必要論」が、しかも表面部や現況に不満のほど多くなっている（図-18）。沿道土地利用現況調査も、住商工混在の解消等の土地利用再編の必要性を示している。

かくして、新しい「街づくり」をめざす「生活環境全体を踏えた」沿道環境整備対策が、幹線道路沿道問題への「最も有力で、有効な方法」と位置づけられる。

建設省の「要綱」が住民運動をまよへ何となくして道路建設を押しすすめるために、やむを得ず編み出された公害対策とすれば、「モデル」は現状の深刻な公害状況を何とか自治体でもって打開しようとするところから生まれた苦心の公害対策プランといえよう。

### 3-1-3 環境庁土地利用研究会の土地利用制御論

自動車公害対策としての土地利用対策について、体系的な理論展開を図っているのは、環境庁土地利用研究会（以下、「研究会」と略す）の「交通公害対策と土地利用制御」（『かんきょう』、1979年1月号）である。そこでは、自動車公害対策としての土地利用制御が単に沿道土地利用制御にとどまらず、国土土地利用計画に至るまで包括的体系的に展開される。

43号線の沿道環境整備対策は、既存の自動車公害対策の限界性の認識から出発し、いわば消極的な公害被害の緩衝策として展開された。この点は、建設省の「要綱」も基本的に変わらない。それに対し、「研究会」は、既存対策の限界性を同じく認めかつ強調するのであるが、土地利用制御策導入の必要性の一背景理由に押しやり、論理展開の出発点とはしない。反対に、公害発生は、狭い国土のかつ狭あいな交通空間に、「極

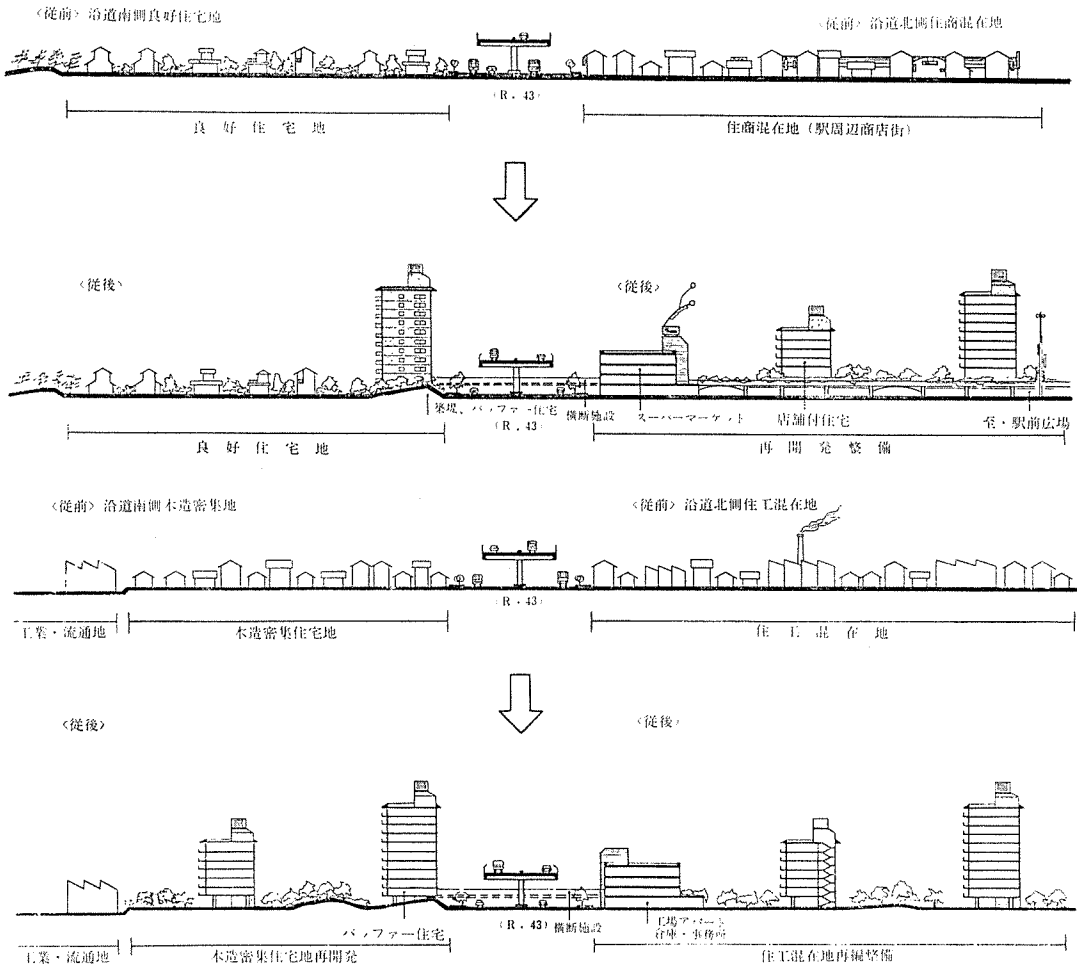


図-17 整備モデルの考え方

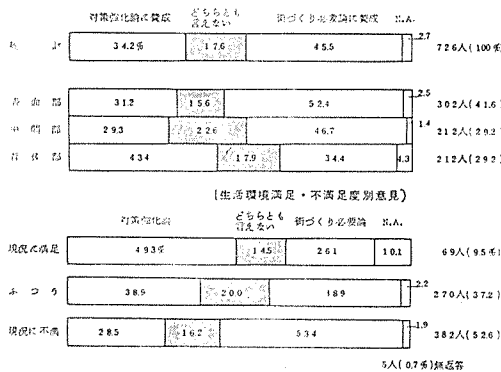


図-18 生活環境改善に関する意見

めて高密度の経済社会活動が営まれていることが一つの大きな要因」であり、「環境保全の観点からする適切な土地利用がなされていないならば、周辺の住民の健

康や生活環境に被害を生じさせるのはむしろ必然である」。従って、「いびつな土地利用形態」を適正化することが公害の抜本的な解決策となる、という把握から出発する。土地利用制御対策は、自動車公害の原因を対象とした根本的な解決策であると、積極的な規定がなされる。そこでは、公害の直接的な発生源としての

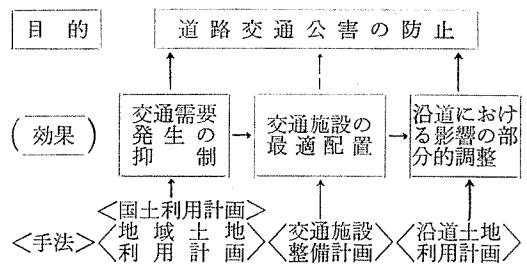


図-19 道路交通公害防止のための土地利用制御の諸手法とその効果



自動車構造の欠陥性への批判や、モータリゼーションに対する批判は一切見られない。

この「研究会」が自動車公害の解決策として展開している土地利用制御論の指向するのは、「道路の機能と沿道の土地利用形態の調和」である。既存の公害対策の限界のなかで、どのようにして「調和」を図るのか。土地利用制御による対策に限定していえば、次の3段階の論理である(図-19)。

まず、第1段階は、国土利用計画による人口、産業等の再配置や地域土地利用計画による都市的諸機能の再配置を図ることによる「交通需要発生の抑制」である。

第2は、交通需要発生を抑制したうえで、交通施設整備計画による道路施設の分化再編成である。この場合は、「はじめに道路ありき」ではなく、「道路の地域環境への適合」を基本にして、道路を「通過交通道路」、「都市生活道路」および「住生活道路」に機能分類し、再編成する。

第3は、交通需要発生の抑制や道路機能の分化によっても、なお沿道土地利用形態と適合しない「通過交通道路」の場合には、「環境基準の達成の観点」から、周辺地区を一体として、緩衝緑地の整備や緩衝建築物の立地等を内容とする、「徹底した再開発、都市・街区改造」を行う、というものである。

交通需要発生の抑制や道路再編成がベースとされ、沿道土地利用計画の機能は「部分的調整」とされているが、沿道環境整備対策の内容そのものは、「研究会」のそれでは居住区での通過交通の排除が明確にされているが、43号線のモデルと基本的に変わらない。

### 3-2 沿道環境整備対策の性格

#### 3-2-1 現実化の条件

前節での概観から明らかなように、建設省の「要綱」にもとづく沿道環境整備促進事業、兵庫県の43号沿道環境整備モデル、および環境庁土地利用研究会の土地利用制御論は、背景や位置づけあるいは論理構成においてそれぞれ特色を有してはいるが、沿道環境整備対策としての基本的な方向性は同質である。すなわち、一方におけるモータリゼーションの進展、他方における自動車対策・交通対策・道路対策の技術的物理的な限界という2点を制約条件として前提とし、その条件下において自動車公害から沿道環境地域の良好な生活環境を確保する——具体的には騒音の環境基準を達成するためには、緩衝建築物(B.B.)の導入を核とする沿道土地利用の適正化がもっとも有効な対策である、という把握である。

問題は、沿道環境整備対策の現実性にある。いかに

すぐれたプランも実現可能性が存在しなければ、所詮「絵にかいた餅」にすぎない。この対策の実現可能性におけるキーポイントは、何であろうか。

従来、この種の論議で主に論じられているのは、法制度と財源の問題である。確かに、現状では法制度や財源が大きなネックとなっており、それが解決しないと沿道環境整備の具体的な展開が望みえないことは事実である。しかしながら、それはいうなれば技術的問題であり、政府の政策のカテゴリーに属することがらであって解決の可能な性質の問題である。キーポイントは、住民の合意形成の可能性の問題である。

43号の「モデル」は、今後の課題として「沿道環境整備対策を実施の方向にむけるには、制度・財源・実施主体の確立とあいまって、地域住民のコンセンサスの形成が極めて重要な要素である」<sup>19)</sup>と述べ、住民参加について強調されている。しかし、主要には制度・財源におかれている。「研究会」の理論においては、まったく触れられてさえない、良い計画であるならば自動的にコンセンサスの形成が可能と考えているのであろうか。自動車対策、交通対策および道路対策の対象者は、自動車メーカー、保有者ないし交通需要発生者、あるいは道路管理者等の自動車公害の発生原因者であり、住民の合意形成の手続を経ずに政府・自治体が権限を行使して先行的に規制に乗り出すことも可能である。ただし、合意の無い段階では力を十分に発揮しえないのはもちろんである。

それに対して、沿道環境整備対策は、被害者である住民の地域生活のなかで良かれ悪しかれ長年にわたって築きあげてきた生活基盤に対するアブローナである。それによる地域再開発は、名目はともあれ、一戸建住宅を集合住宅に、木造家屋をコンクリート建築物に生活の“容器”を変えることにより、地域生活の基底的因子である近隣関係などの人間関係を急変させる。強権的な権限の行使でもってしては、名目の如何を問わず新たな軋轢が発生することは必至である。権力行使ではなく、住民の合意形成が主軸となることによって、はじめて沿道環境整備による公害対策の展望が見出せよう。むしろ、沿道環境整備対策を担う真の主体は、“公”ではなく“私”、行政ではなく地域住民であり、公害対策としての“街づくり”が成功し、新たなコミュニティが形成されるかどうかは、本質的には物的な施設ではなく、主体形成に依存している。まして、区画整理事業のように経済的インパクトを有さない沿道環境整備対策においては、なおのこと主体形成は決定的要素であり、住民の主体的エネルギーの高揚なくしては実現されえないであろう。「私生活主義」

が一定の地歩を占めている今日の意識状況において、沿道環境整備対策に対する合意がただちに主体的エネルギーの高揚をもたらすであろうと考えるのは、あまりにオプティミスティックであるが、少なくとも住民の合意形成なくしては主体的活力の展開はありえないであろう。沿道環境整備対策における住民の合意形成は、単に行政が提起する計画について賛同をうるためだけでなく、その主体形成のうえにおいても不可欠なキーポイントであるといえよう。

### 3-2-2 合意形成の課題

住民意識調査では、前章で見たように、公害の緩衝施策は、その発生源対策に比べてきわめて低い評価しか与えられていない。43号の沿道環境整備の根拠とされた意識調査では「街づくり必要論」が「対策強化論」を上回っているが、自動車公害対策の内容として自動車の低公害化や高速道路の建設の中止、さらには日16万台という交通量そのものについての設問は除外されており、そのまま「街づくり必要論」が多数を占めているとの結論を導き出すことには問題がある。横浜の調査も、沿道環境整備対策そのものについて問うたものではないが、住民意識と沿道環境整備対策とのあいだには大きな「ズレ」があり、少なくとも現状では住民の合意形成はなされていない。

住民の合意を得るためには、住民参加の手続き、形式等も重要であるが、根本的には施策の内容や性格について、住民自身が評価し、選択しうるよう見透せることが第一義的な要件であろう。沿道環境整備対策は、公害対策であるとはいえ、住民にとっては生活形態の変更をもたらすものであり、茫漠とした内容をもって合意が形成されることはありえないであろう。

すなわち、そのためにはまず第1に、その沿道環境整備によって、少なくとも地域環境における自動車公害問題が解決しうるということが明確化されなければならない。問題解決の可能性が把握されなければ、抽象論にとどまり、住民の合意は獲得できないであろう。

第2は、代替の対策がなく唯一の対策であること、すなわち他の自動車公害対策、とくに発生源対策の限界性が明らかにされなければならない。三ツ沢地区の調査結果を読んでも、発生源対策をはじめとした他の諸施策への試みとその限界への展望が住民に納得されない限り、沿道環境整備だけでは住民の合意を得るのは難しいとみるのが妥当であろう。

この「解決の可能性」と「発生源対策の限界性」の明確化は、住民の合意を形成するうえで最小限の要件であろう。

### 3-2-3 問題解決の可能性

自動車公害対策としての沿道環境整備対策は、いずれも緩衝建築物(B.B.)と緩衝緑地(B.Z.)による騒音環境基準の達成を目標としている。それが計算値どおりかどうかは別としても、緩衝施設の導入による基準達成は理論的には可能である。もちろん、幹線道路12万km余のうち、騒音の要請基準を起しているものが5%の6,400km、環境基準の場合は14%の17,900kmといわれる実態(建設省調査)において、<sup>20)</sup>その公害地域の全沿道に緩衝施設を張り巡らせることは、およそ非現実的である。しかし、地域を限定したとしても、その対策が沿道住民の課題としている自動車公害問題の抜本的な解決を意味しているかといえは疑問である。

問題は2点ある。第1は、沿道環境整備対策の解決課題とする対象にかかわる問題であり、第2は、その環境の質の問題である。

まず、第1の問題から検討しよう。言うまでもなく、沿道環境整備対策は、それ自体としては騒音の緩衝対策にすぎない(振動対策を内包させることは可能であるが)。従って、他の公害現象——とくに深刻な健康影響と危惧感を惹起している大気汚染問題にどう対処するかが、重要な問題となる。

まず、これは騒音対策で大気汚染対策は別途改めて検討する所存ですという段階論では、沿道環境整備対策の地域住民にかける負担が重いだけに合意形成は到底不可能であろう。先に引用した通学する小学生の健康への不安感ひとつを例にとっても、騒音は解消するが大気汚染による健康影響については不明であるというのでは、主体的エネルギーの高揚はおろか対策についての賛成さえ不確定であろう。沿道環境整備対策は、大気汚染対策を対象外とするのではなく、それ自身のうちに包摂する必要がある。

大気汚染問題について、建設省の見解はほとんど無視に近く、環境庁土地利用研究会の場合は、明言していないがどちらかという段階論に近い。兵庫県のプランは一応将来予測を行っているが、先に見たように、大中に緩和された二酸化窒素環境基準を拠り所として、自動車排ガス規制の強化——長期目標の第2段階規制に委ねている。しかし、新環境基準の科学的根拠をはじめ、排出ガス規制のプログラムや効果については具体的な説明がなされておらず、大気汚染問題が解決しうる保証は何も示されていない。願望の域を越えておらず、そのかぎりでは段階論と基本的に変らない。もちろん、一自治体で解決しうる性質のものではないが、その故をもって免責される性質のものでもないであろう。

排出ガス規制強化の具体的なプログラムとその効果の科学的な予測、そしてそれが身体や生活環境を侵害しないことが、ppmでなく生活実感でもって把握されるものとならない限り、いいかえれば、沿道環境整備対策が文字通り根本的かつ全面的な自動車公害対策の一環であるということが自覚されるものとならない限り、それが選択され合意されることは不可能であろう。

なお、意識調査結果から明らかなように、沿道住民は、被害の深刻さによって相違はあるが、自動車公害問題を交通事故や公共交通問題や迷惑問題とともに、居住環境における自動車問題総体の中でとらえており、公害問題を分離しては考えていない。街づくりによる公害対策を考える場合には、この傾向は一層強まるであろう。その意味では、沿道環境整備対策の展開においては、環境庁土地利用研究会の主張するように、生活道路対策や交通施設整備計画の同時的な展開が必要である。ただし、「研究会」の理論は、沿道環境整備対策における交通環境や居住環境対策等の公害対策にとっては外延的な対策の重要性についての指摘にとどまり、その現実化の論理（戦略、戦術）を欠いている。<sup>21)</sup>

第2は、それが目標とする環境の質に関する問題である。沿道環境整備対策は、目標とする環境の質を環境基準に設定しているが、環境基準によって合意形成を図ることは可能であろうか。

環境基準は、<sup>22)</sup>人の健康と生活環境の保全に十分適切なものでなければならないが、その達成でもって、住民の基本的権利である良好な環境を享受する権利たる環境権が保障されるとはいいがたい。あくまで行政がミニマムとして達成しなければならない基準であって、本質的に住民の目標とする環境の質（レベル）とは性格を異にするものである。おそらくこのちがいは、意識調査でいえば先に見たように、うるさいあるいは自動車公害を受けているという意識と、「静かさや空気のきれいさ」といった居住環境の満足度との差といったものであろう。沿道再開発によって、たとえ密集した木造家屋であろうと、一戸建から集合住宅への転換に住民が合意するとすれば、単に環境基準は達成し、法律で定める公害は解消するというだけではなく、さらに良好な居住環境が創造されるということが見える必要があろう。行政の基準である環境基準でもって、沿道環境整備のコンセンサスを形成することは、およそ不可能であろう。「より良い環境のあり方、より良い環境の質のレベルを決めることができるのは、当該環境に住む地域住民自身である」という考え方に

たち、環境の質を住民自身が決定しうる権利たる「環境自主権」<sup>23)</sup>を認めて、その権利を保障するほかには、沿道環境整備についての住民合意を形成することは不可能であろう。また、そのことは街づくりの主体形成にも連なる問題でもある。対象を限定して大気汚染対策を捨象し、かつ環境基準をベースとした沿道環境整備対策でもってしては、沿道地域の環境問題を解決することは困難といわなければならない。まして、騒音環境基準のように、地域内にいくつもの基準値が存在するようでは論外であろう。

#### 3-2-4 発生源対策の限界性

自動車公害問題への緩衝対策について、「それが一方で、どんな経済的效果を生むものであっても許されることではない。地下壕を完備したまちには核爆弾を落してよい——などという論理は成り立たないのだから」<sup>24)</sup>という批判がある。当然すぎる批判である。こういった批判のなかで、沿道環境整備対策が自動車公害の抜本的解決策であることを主張しうるためには、発生源対策の限界性が十分に論証され納得しうるものである必要がある。

発生源対策としては、公害発生要因となっている自動車対策、交通対策および道路対策がある。既存の沿道環境整備対策は、土地利用の適正化以外のアプローチによる発生源対策の限界を主要な基軸としているが果してその通りであろうか。

最大の問題は、自動車構造の改善の技術的限界の問題である。『環境白書』等を見るかぎりでは、環境庁は中央公害対策審議会の答申における自動車排出ガス・騒音の許容限度の長期設定目標値（表-4.5）を自動車構造改善の技術的限界と考え、それ以上は電気自動車等の開発以外にはないと考えているようである。環境庁土地利用研究会は、その自動車騒音の環境騒音低減効果が第2段階規制によっても3.5~7.5ホンしか望めないことを土地利用制御導入のひとつの理由としている。

中公審の長期設定目標値を技術的に批判することはきわめて困難な作業であるが、西村肇氏は自動車対策の技術的可能性について、「窒素酸化物に関しては排出量を少くとも現在の半分以下にする必要があるが、現在の技術を大巾に変えないという前提で考えると、これはかなり困難であるが到達不可能な目標ではない」、「騒音に関しては大型トラックの騒音を、現在より15ホン程度上げることがどうしても必要である。……これは技術的には困難ではあるが不可能な値ではない」と述べている。<sup>25)</sup>

ところで、自動車公害防止技術の歴史が始まったの

表-4 自動車（トラック・バス）排出ガス（NOx）に関する許容限度の長期設定目標値（中公審答申，77・12）

自動車の種別	現行の 規制値	第1段階		第2段階		
		目標値	低減率 (対現行)	目標値	低減率 (対現行)	
ガソリン・LPG車 （軽量車 （車両重量 1.7トン以下） 中量車 （同 1.7-2.5トン） 重量車 （同 2.5トン以上）	1.89g/km	1.0g/km	44%	0.6g/km	67%	
		1.2g/km	33%	0.9g/km	50%	
		1.100ppm	29%	750ppm	52%	
ディーゼル車	直接噴射式	650ppm	540ppm	17%	470ppm	28%
	副室式	380ppm	340ppm	11%	290ppm	24%
軽自動車（乗用車と2サイクル車を除く）	1.8g/km	1.2g/km	33%	0.9g/km	50%	

表-5 自動車騒音の許容限度の長期設定目標値（中公審答申，76・6）

自動車の種類	許容限度設定目標値 (加速走行騒音)	
	第一段階	第二段階
原動機付自転車	七八	七五
除く（原動機付自転車） 以下重量が三・五トン を超えるもの （乗用車、二輪車、三輪車、原動機付自転車）	八一	七八
車両総重量が三・五トンを超えるもの	八六	八三

(備考) 2 1 単位はホン、(DBA)  
JIS D1024 (自動車の車外騒音試験法) による値である。

技術水準からの限界とは区別して把握しておく必要がある。自動車メーカーは 長期目標の達成さえ困難であるといっているが、前者からしても納得しうるところではない。

富山和夫氏が述べるように、「自動車産業は、現在の先進工業国を代表する産業の一つであり、巨大な資金力と豊かな技術力をもっている。だが、それを社会生活の向上の面に利用することを避け、企業の利害だけを追求する方向に走りがちである。したがって、社会の側からの強制が、各種の環境対策のためには不可欠である。自動車の社会的性能の改善は まだ大きな可能性が残されているとみてよいであろう。」<sup>26)</sup>

交通対策についても同じである。確かに都市あるいは幹線道路での自動車交通総量抑制は困難であり、有効な手法は見出されていない。しかし、決して不可能とは考えられない。マイカー保有抑制策や物流対策や大規模自動車交通需要発生源に対する規制は、まだほとんど手つかずで実施されておらず、限界を問題とする時期でさえないのである。

道路対策についても、現在の枠組の中では遮音壁を設置したり半地下化にすることはできないであろう。しかし、現在実施されている車線削減（バス専用レーン化などを含め）は、交通流への著しい影響のない範囲内で行なわれているが、交通量の削減を目的とした車線削減は不可能なのか。あるいはそもそも既存の幹線道路や道路建設がどれだけ必要なのかどうか、などについて根本的に再検討する必要がある。

沿道環境整備対策の前提となっている自動車・交通・道路に対する発生源対策の限界性の論理は、科学的合理的に説得しうる根拠をもっていない。つくられた現代の「神話」といってもよいのではなからうか。

は、マスクー法以来わずか10年足らずである。現代技術の歴史を概観するに、道具時代と比べいかに技術の寿命が短縮されたとはいえず、10年や15年で爛熟し発展のストップした技術はない。また、マスクー法は10分の1の削減を目標としたが 技術発展で10倍程度の性能アップで陳腐化した技術もないであろう。ケタが違っている。公害防止技術といえども現代技術体系の一環であり、技術の原理は同じであって、公害防止技術だけ原理を異にするということは技術史的な常識からいっても考えられない。現に、自動車公害防止技術より格段と長い歴史を有する排水処理技術や固定煙源の排ガス処理技術はいまなお発展途上にあることが、なによりの反論である。なお、既存の技術システムと経済的制約からの限界と、技術発展の潜在力を内包した

なお、兵庫県の論理に一言触れておけば、対策それ自体の固有の限界と、自治体がそれに取組める権限等の限界の問題が混同されているようである。すなわち、自動車の低公害化は、メーカーに対する外的な強制以外には大きな効果を望みえないが、今日のところその権限は政府に集中されている。その政府がメーカーの限界説に与して権力を行使しないとすれば、自治体にとってはそれがひとつの限界とならざるを得ない。しかし、それは政府と自治体との権限関係に規定された限界であって、公害防止技術の本性上から生れた限界とは無縁である。また、その意味においては、「七大都市自動車技術評価委員会」によるメーカーに対するヒヤリング活動は、高く評価される。<sup>27)</sup>

#### 4. おわりに

上記で述べてきたように、今日いわれている幹線道路公害対策としての沿道環境整備対策は、現実の公害・環境問題の抜本的解決策でもなく、また代替策のない唯一の解決策とも結論することのできないものである。住民の合意形成は、およそ不可能である。第2章でみた住民の公害意識は、その意味では、直観的な認識とはいえ、問題の本質をすどく洞察したものといえる。

自動車公害対策としては、再び原点に立ち返り、自動車の構造改善を中心とする発生源対策を中核に据え、少くともその発生源対策でもって環境基準の達成を図ることが必要であろう。沿道環境整備ということそのものを否定するのではないが、しかしそれを現状において自動車公害発生源対策の代替として位置づけることは誤りであろう。沿道環境整備という土地利用形態にかかわる問題は、自動車公害対策とは分離し、環境権と環境自主権にもとづいて地域住民の自治に委ねられるべき性質のものであると考える。言いかえれば、環境基準の達成は自治体、沿道地域の環境創造は地域住民、というように問題領域による主体の分担が必要なのではなかろうか、ということである。なお、自動車公害問題の本質はナショナルな側面に規定されており、自治体が単独で解決しえることがらでないことはいうまでもない。しかし、その制約された条件のなかで、自治体が政府あるいは自動車メーカー等と対決し、公害対策を要求してゆく過程において、はじめて自動車公害問題をめぐる自治体と住民との共同関係が発生し、自動車問題の根本的解決への展望が切り開かれるのではなかろうか。<sup>28)</sup> 沿道環境整備対策にしても、実はかかる媒介を経ることによって、逆に現実化の可能性が生れてくるのではないかと考える。

(1979年9月)

#### 文 献

- 1) 拙稿「自動車公害の問題性」(『横浜市公害研究所報』第2号, 1978年3月) 参照
- 2) 朝日新聞, 1979年8月11日。建設省が都市計画中央審議会および道路審議会の答申を受けて、「幹線道路の沿道の整備に関する法律案」(仮称)としてまとめ、次の通常国会に提出する予定であることが報じられている。
- 3) 毎日新聞, 1979年8月23日夕刊。8トン車以上を対象に1982年度実施が目標とされている。
- 4) 道路騒音の影響に関しては、東京都の依頼で吉田敬一・長田泰公両氏によってまとめられた、『道路騒音の健康影響(文献的考察)』(昭和52年6月, 東京都衛生局)が各地、各種の調査研究を総括しており、非常にすぐれた文献となっている。  
個別的な調査の報告書としては、『道路公害白書・高速道路の地域社会におよぼす諸影響』(1973年8月, 新建築家技術者集団大阪支部), 『自動車公害——その科学的解明』(1978年11月, 自動車公害実態調査委員会)なども基礎的な文献である。
- 5) 報告書は、『自動車公害に関する意識調査(第1報。単純集計結果)——国道1号線三ツ沢・松本地区, 1978年3月実施——』(公害研資料No.10, 1979年3月, 横浜市公害研究所)。  
なお、村橋克彦・森清和「幹線道路の沿道環境と住民意識」(環境政策研究会『横浜市における自動車公害に関する基礎研究』, 1979年, 横浜市公害研究所)も参照されたい。
- 6) 騒音調査結果の詳細については、鹿島教昭・樋高雄治「三ツ沢地区における幹線道路の自動車騒音レベル」(『横浜市公害研究所報』第3号, 1978年12月), および本号における同「市街地の平坦道路から伝搬する道路騒音の高度別測定結果とその予測法」を参照されたい。  
大気汚染調査結果については、中村貢他「自動車排気ガスによる道路周辺での大気汚染に関する研究(第2報)」, 鈴木正雄他「同(3報)」(『横浜市公害研究所報』第3号)を参照。
- 7) 健康影響調査手法の開発において、意識調査を基礎としてその客観化を指向した手法の開発も、医学的検討とともに重要なのではないかと考える。

- 8) 現在の「環境基準」の考え方は、健康影響と生活環境への侵害とを区別し、騒音は後者にかかわるものとしている。しかし、騒音による影響が身体健康に及んでいることは明らかであり、騒音環境基準の再検討が必要と考えられる。
- 9) 図一六に見られるように、道路からの距離に対応した有訴率のパターンは、それがかなり信頼度の高いものであることを物語っている。
- 10) 「高速道路についての住民の意識ないしはその評価のちがいは、高速道路に関する住民の“見解”のちがいというものではなくて、高速道路“問題”に関する関心の高さや知識の有無や道路公害にたいする科学的対策についての見とおしのちがいということにある」(長尾演雄『現代生活と住民運動の社会学』, 125頁, 1979年, 恒星社厚生閣)。
- 11) 『環境白書』昭和54年版, 246頁。
- 12) 横浜市道高速2号線では20mの環境施設帯が計画されている。
- 13) 『環境白書』, 前掲書, 245頁。
- 14) 建設省都市局 都市交通調査室の依田和夫氏の「街路整備と沿道再開発」(『都市計画』No.107, 1979年)を参照。
- 15) 同上
- 16) 「道路環境管理権」については、野中明「自動車公害防止条例の意義と役割」(『都市政策』第4号 1976年), および拙稿, 前掲書を参照。
- 17) 報告書は、『国道43号沿道環境整備対策調査報告書』(昭和53年10月, 兵庫県生活部環境局)。同名の冊子もつくられている。
- 18) 同上『報告書』では、素素酸化物の排出総量は「第2段階規制が実施されたものと仮定」して昭和65年には現況の67%減になる。その減少効果による環境濃度の変化は、「一概には予測しえないが、風下においては、バック・グラウンド濃度等の外的条件を除けば、原則的には総量が半減すれば沿道濃度も半減するといえる」という表現をとり、明言はしていない。
- 19) 前掲冊子, 13頁。
- 20) 前掲朝日新聞。
- 21) 横浜市環境政策研究会(代表者・清水嘉治教授)の自動車公害に関する「4つの課題・15の提言」は、かかる対策について現実化の視点から展開している。なお、「4つの課題・15の提言」およびその基礎となっている各論(11論文)は 横浜市環境政策研究会の前掲書に収められている。
- 22) 環境基準の概念ないし性格については、村橋克彦・森清和「二酸化窒素環境基準問題の検討」(『経済と貿易』126号, 1979年2月, 横浜市立大学経済研究所)を参照。環境基準は、望ましいレベルのものでなければならないが、行政が達成を拘束される行政の基準であって、ゴールの性格とスタンダード的性格との統一として把握しなければならないことを主張している。
- 23) 淡路剛久「『環境自治権』について」(環境政策研究会, 前掲書)。
- 24) 高田昇「高速道路の地域社会に及ぼす諸影響」(日本科学者会議道路問題研究会『都市高速道路は必要か』, 73頁, 1973年, 汐文社)。
- 25) 西村肇「自動車公害と交通政策」(『ジュリスト』増刊総合特集No.15, 1979年)。
- 26) 富山和夫「自動車産業と環境対策」(環境政策研究会, 前掲書)。
- 27) 最近では、ジーゼル車メーカー4社に対するヒヤリングの調査結果が報告されている。七大都市自動車技術評価委員会『七大都市自動車技術評価委員会報告書』(昭和54年3月)。ヒヤリングのベースは長期目標値である第2段階規制値におかれている。
- 28) そのためには、環境政策研究会の「4つの課題・15の提言」がその基礎的前提としてはじめて提唱した、「市民の環境を享受する基本的権利(環境権・環境自主権)に根ざした自治体の権限」たる「環境自治権」という概念の導入が大きな意義をもつのではないかと考える。
- なお、淡路剛久氏は、前掲論文において「住民から信託を受けて、環境の質を守り、住民の安全で快適な生活環境を保障するために、地域の特性に応じた適切な公害・環境行政を展開することは、自治体の固有の役割と考えられなければならない。それこそ、地方自治を保障し(憲法92条, 94条)。『地方自治の本旨』(同92条)をうたう憲法上の要請であるからである。これを自治体の環境自治権と名づけるならば、それこそ、われわれが『提言』において基礎にした考え方にほかならない。したがって、環境自治権は、憲法によって保障された自治体の権限にほかならない」と述べている。

別表

3

アンケート調査項目および回答比率（全体，％）

Ⅰ 生活環境

はじめに、この地域の生活環境についてうかがいます。

**問1** このあたりは、市内で住みよい方だと思いますか。次の中から、あなたの意見に近いものを一つ選んで、○印をつけて下さい。

1	とても住みよい	8	どちらかという住みにくい	18
2	どちらかという住みよい	29	とても住みにくい	5
3	普通である	38	わからない	1

**問2** この周辺について、次のアからカまで6つのことがらをとりあげた場合、あなたは、どの程度満足していますか。それぞれについて一つずつ、あてはまるところに○印をつけて下さい。

	十分満足している	多少満足している	普通である	多少不満である	大変不満である	わからない
ア 緑や公園などの環境	2	9	30	30	21	4
イ 静かさや空気のきれいさ	2	4	18	30	41	1
ウ 交通事故からの安全性	2	4	21	31	36	2
エ 地震など災害時の安全性	1	3	17	30	38	7
オ 日当たりや風通しの具合	13	15	31	20	17	0
カ ふだんの買物の便	36	25	27	7	2	0

**問3** お宅では、次にあげるような公害を受けていますか。もっともこまっているものを一つ選んで○印をつけて下さい。

1. 大気汚染	12	5. 水質汚染	1	9. その他	2
2. 悪臭	4	6. 地盤沈下	0	10. 受けていない	13
3. 騒音	39	7. ゴミの問題	2		
4. 振動	6	8. 日照のさまたげ	9		

**問4** お宅では、自動車や道路からの公害を、多少でも受けていますか。次の中から、あてはまるものすべてに○印をつけて下さい。

1. 排気ガス汚染	43	7. 風通しのさまたげ	5
2. 悪臭	11	8. 自動車のライトや道路照明による光公害	3
3. 騒音	66	9. その他	3
4. 振動	38	10. 受けていない	12
5. 日照のさまたげ	8	11. わからない	3
6. 電波障害	27		

## II 騒音・振動の状況

次に、騒音・振動について、うかがいます。

問5 A お宅では、外からの騒音によって、なやまされたり、迷惑をうけることがありますか。次の中から、どれか一つに○印をつけて下さい。(自動車の騒音にかぎりません。)

- |                 |    |          |    |
|-----------------|----|----------|----|
| 1. ある           | 71 | 3. ない    | 18 |
| 2. 以前あったが、いまはない | 4  | 4. わからない | 4  |

B (Aで、1または2と答えた方に) その騒音の発生源は何でしょうか。次の中から主なもの一つに、○印をつけて下さい。

- |        |    |              |   |           |   |
|--------|----|--------------|---|-----------|---|
| 1. 自動車 | 77 | 5. 工事現場      | 2 | 9. その他    | 0 |
| 2. 鉄道  | 0  | 6. 駐車場       | 3 |           |   |
| 3. 飛行機 | 3  | 7. 近くの家や商店など | 0 | 10. わからない | 7 |
| 4. 工場  | 4  | 8. 学校、幼稚園など  | 4 |           |   |

問6 お宅の窓をあけると、「幹線道路」(国道一号線)の騒音がどの程度聞こえますか。次の中から、もっとも近いもの一つに、○印をつけて下さい。

- |                  |    |                 |    |
|------------------|----|-----------------|----|
| 1. ととてもよく聞こえる    | 32 | 4. 気にはならないが聞こえる | 20 |
| 2. かなり聞こえる       | 18 | 5. 耳をすませば聞こえてくる | 8  |
| 3. 多少気になる程度に聞こえる | 16 | 6. まったく聞こえない    | 3  |

問7 あなたは、ふだんの生活で、「幹線道路」からの自動車騒音を「うるさい」と感じていますか。次の中から一つ選んで○印をつけて下さい。

- |            |    |               |    |          |   |
|------------|----|---------------|----|----------|---|
| 1. とてもうるさい | 33 | 3. あまりうるさくない  | 24 | 5. わからない | 2 |
| 2. 多少うるさい  | 34 | 4. まったくうるさくない | 6  |          |   |

問8 お宅では、自動車の騒音と振動とをくらべると、どちらの方に強くなやまされていますか。次の中のどれか一つに○印をつけて下さい。(幹線道路の騒音・振動にかぎりません。)

- |                     |    |               |    |
|---------------------|----|---------------|----|
| 1. 騒音、どちらかという騒音     | 58 | 4. どちらも気にならない | 17 |
| 2. 振動、どちらかという振動     | 9  | 5. わからない      | 2  |
| 3. 両方とも、区別することはできない | 13 |               |    |

問9 お宅で、自動車による騒音や振動を「うるさい」と感じるのは、一日のうちで何時頃でしょうか。次の中から一つだけ選んで○印をつけて下さい。(幹線道路にかぎりません。)

- |                |    |                |    |
|----------------|----|----------------|----|
| 1. 1日中         | 29 | 6. 夜間(19~23時頃) | 11 |
| 2. 早朝(6~8時頃)   | 4  | 7. 深夜(23時以降)   | 10 |
| 3. 午前中(8~12時頃) | 4  | 8. とくにきまっていない  | 16 |
| 4. 午後(12~17時頃) | 3  | 9. うるさくない      | 10 |
| 5. 夕方(17~19時頃) | 6  | 10. わからない      | 3  |



### Ⅲ 自動車公害の影響

自動車公害の影響についてうかがいます。以下の質問には「幹線道路」以外からの公害も含めます。なお、「影響を受けていない」と思う方も、それぞれの問いに答えて下さい。

**問10** **A** あなた、またはあなたのご家族の健康状態が、自動車からの公害により影響を受けていると感じていますか。次の中から、一つに○印をつけて下さい。

- |             |    |               |    |
|-------------|----|---------------|----|
| 1. つよく感じている | 14 | 3. あまり感じていない  | 37 |
| 2. 多少感じている  | 30 | 4. まったく感じていない | 10 |
|             |    | 5. わからない      | 7  |

**B** [Aで1または2と答えた方に] その影響はどのようなことですか。次の中から、あてはまるものすべてに○印をつけて下さい。

- |               |    |              |    |
|---------------|----|--------------|----|
| 1. 目がしみる、涙が出る | 25 | 7. 耳が遠くなった   | 14 |
| 2. セキやタンが出る   | 50 | 8. 血圧が高くなった  | 12 |
| 3. カゼをひきやすい   | 38 | 9. 鼻血が出る     | 2  |
| 4. 息切れがする     | 7  | 10. 胃腸の調子が悪い | 16 |
| 5. 頭がいたくなる    | 37 | 11. 疲れやすい    | 28 |
| 6. 耳鳴りがする     | 11 | 12. その他      | 12 |

**問11** あなたは、ふだんの生活で、自動車の騒音や振動、排気ガスなどにより、次にあげるようなことがありますか。アからオまでそれぞれの項目について、一つずつ○印をつけて下さい。

	かなりある	多少ある	あまりない	まったくない	わからない
ア イライラして落ちつかない	11	25	33	16	4
イ ゆっくりくつろげない	13	26	28	16	4
ウ 寝ている時に目がさめる	13	33	22	18	3
エ 騒音や振動でハッとする	17	32	23	14	3
オ 排気ガスで気分が悪くなる	7	21	32	21	6

**問12** 小学校入学前のお子さんをおもちの方、または小中高校生や受験生がいらっしゃる方だけにうかがいます。

**A** [小学校前のお子さんをおもちの方に]  
あなたのお子さんには、自動車の騒音や振動、排気ガスなどによって、次のような影響があると思いますか。あてはまるものすべてに○印をつけて下さい。

- |                   |    |          |    |
|-------------------|----|----------|----|
| 1. イライラして落ちつかない   | 9  | 5. その他   | 4  |
| 2. なかなか寝つかない      | 14 | 6. とくにない | 47 |
| 3. 寝ているとき、よく目がさめる | 16 | 7. わからない | 9  |
| 4. 騒音や振動でハッとする    | 25 |          |    |

◇ [小中高生や受験生がいらっしゃる方に]

自動車による騒音や振動などが、勉強をさまたげていると思いますか。次の中のあてはまるもの一つに○印をつけて下さい。

1. さまたげている 40    2. さまたげていない 37    3. わからない 23

問 13

お宅の日常生活で、自動車の騒音や振動は、次のような場合に影響していると思いますか。あてはまるものすべてに○印をつけて下さい。

1. 家族だんらん、食事中、会話中 23    6. 家の近くで買物や散歩をし  
2. テレビを見たり、ラジオなどを聞いているとき 38    ているとき 41  
3. 新聞や本などを読んでいるとき 22    7. その他 4  
4. 考えごとや勉強をしているとき 24    8. とくにない 15  
5. 電話をしているとき 30    9. わからない 2

問 14

お宅では、自動車によるさまざまな公害が原因で、次のような被害を受けたことがありますか。あてはまるものすべてに○印をつけて下さい。

1. 洗たくものがよごれる 16  
2. 建具や壁などにすきまができた、建てつけが悪くなる 22  
3. 窓ガラス、雨戸、外壁などがよごれる 36  
4. 花や植木や草などが、変色したり、枯れたりなどする 28  
5. その他 5    6. とくにない 33    7. わからない 7

問 15

この場所で、営業している方だけにかがいます。

◇ その営業の種類は、次のうちどれにあたりますか。

1. 小売業 46    2. 卸売業 7    3. サービス業 24    4. 工業 7  
5. その他 16

◇ その場合に、自動車による公害が原因で次のようなさしさわりが生じていますか。あてはまるものすべてに○印をつけて下さい。

1. 客足が遠のいた 17    5. 商品がいたみやすくなった 9  
2. 商品の売れゆきが悪くなった 6    6. その他 3  
3. お客様の話がよく聞きとれない 37    7. とくにない 33  
4. 商品や製品などがよごれやすくなった。 36    8. わからない 2

問 16

◇ お宅では、いままで自動車公害に関連して、次にあげるような家屋の対策をとったことがありますか。あてはまるものすべてに○印をつけて下さい。

1. 窓をサッシにかえた 15    4. 家屋を建て直した 4  
2. クーラーをつけた 16    5. その他 2  
3. 家屋を修繕した 7    6. とくにないにしてもいない 59

◇ 今後、なにか対策を実施しようと考えていますか。次の中であてはまるものすべてに○印をつけて下さい。

- |              |    |              |    |
|--------------|----|--------------|----|
| 1. 窓をサッシにかえる | 11 | 5. その他       | 4  |
| 2. クーラーをつける  | 5  | 6. とくに考えていない | 52 |
| 3. 家屋を修繕する   | 6  | 7. わからない     | 8  |
| 4. 家屋を建て直す   | 7  |              |    |

**問 17** お宅では、自動車公害に関連して、なにかふだんの生活のしかたに変化したことがありますか。次の中から、あてはまるものすべてに○印をつけて下さい。

- |                               |    |  |    |
|-------------------------------|----|--|----|
| 1. 寝る時刻が変わった                  | 4  | 7. お酒の量がふえた                                  | 3  |
| 2. 窓をしめきることが多くなった             | 43 | 8. 来客がうるさくなって少なくなった                          | 6  |
| 3. 休日など、気分転換のために、外に出ることが多くなった | 10 | 9. 電話の位置をかえた                                 | 4  |
| 4. 外に出るのがおっくうになった。            | 8  | 10. ラジオやテレビやステレオなど、他の音を出して、自動車の音が気にならないようにした | 9  |
| 5. 騒音や振動がとくにひどい部屋を利用しなくなった。   | 8  | 11. 買物先を変えた                                  | 2  |
| 6. 寝室や居間や勉強部屋などを移動した          | 4  | 12. その他( )                                   | 1  |
|                               |    | 13. とくにない                                    | 43 |

#### IV 自動車公害の解決策

次に、自動車公害の解決策についてうかがいます。なお「影響を受けていない」という方も、それぞれの問いに答えて下さい。

**問 18** 自動車公害を解決する責任は、どこにあると思いますか。次の中から、一つだけ選んで○印をつけて下さい。

- |          |    |                  |    |            |     |
|----------|----|------------------|----|------------|-----|
| 1. 国(政府) | 38 | 4. 自動車メーカー       | 13 | 7. 市民一人ひとり | 11  |
| 2. 県     | 2  | 5. 自動車の使用者または所有者 | 13 | 8. その他( )  | 0.5 |
| 3. 市     | 5  | 6. 警察(公安委員会)     | 2  | 9. わからない   | 8   |

**問 19** ◇ 自動車公害を解決するためには、次にあげる対策のうち、どんなことが効果があり、また必要である、と思いますか。いますぐできるかどうかは一応別にして、あなたの意見に近いものを三つまで選んで○印をつけて下さい。

	A	B
1. 自動車そのものを低公害化する	53	18
2. 自動車の所有台数や走行台数を制限する	29	10
3. 道路の構造を改良する(地下化, 路面整備など)	36	9
4. 自動車の乗入れ制限や交通規制を強める	23	7
5. 渋滞を解消する	32	16
6. 緩衝地帯などを設置する(グリーンベルト, シャ音施設等)	8	2
7. 自動車のための道路をつくる	18	5
8. 公共交通機関を整備する	13	3
9. 自動車に関する税を増やす	10	3
10. 運転者のマナーを向上させる	24	5
11. 歩行者天国・ちびっこ天国などをふやす	12	3
12. その他	2	1
13. わからない	2	19

Ⓔ Aの各項目の中で、いまあなたが、とくに急いで実施すべきだと思うものがありましたら、一つだけ選んで、次の□の中に、その番号を記入して下さい。

問 20 Ⓐ お宅では、自動車公害の問題に関連して、どなたか、話しあい、相談、要望、申入れなどの行動や経験をされた方が、ありますか。(電話や手紙などによるものも含めます。)

1. ある 8      2. ない 83  
3. わからない 3

Ⓑ [Aで1と答えた方に] その行動の内容と効果についてうかがいます。次のアからケまで、それぞれの項目について、あてはまるところに○印をつけて下さい。

	行動したことがある	効果があった
ア 地元の有力者に相談した	18	5
イ 警察に交通規制を要望した	45	9
ウ 市、区役所・保健所などに相談したり、対策や調査を要望した	14	5
エ 議会に要望した	3	1
オ 政党に相談したり、要望した	8	3
カ 国・県・市や道路公団など、道路の建設者や管理者に申入れをした	14	3

キ	自治会や町内会・商店会など、地域の団体で話しあった	35	3
ク	住民運動・市民運動団体に相談したり、その団体とともに運動をした	9	3
ケ	その他の行動( )	6	4

◇ 今後、自動車公害を解決するためには、どのような行動が必要だと思いますか。次の中から、もっとも効果があるとお考えのものを、一つ選んで○印をつけて下さい。

- |                       |    |                |    |
|-----------------------|----|----------------|----|
| 1. 地域の有力者に頼む          | 2  | 7. 裁判に訴える      | 1  |
| 2. 警察(公安委員会)に要望する     | 13 | 8. その他の行動      | 1  |
| 3. 市、区役所などに対策の実施を要求する | 25 |                |    |
| 4. 議会に働きかける           | 13 | 9. とくに行動は必要でない | 3  |
| 5. 自治会、町内会、商店会などで動く   | 8  | 10. わからない      | 18 |
| 6. 住民運動・市民運動に加わる      | 8  |                |    |

問 21 ◇ あなたは、ベイブリッジや東京湾岸道路の建設計画がすすんでいることについて、知っていますか

- |          |    |         |    |
|----------|----|---------|----|
| 1. 知っている | 43 | 2. 知らない | 52 |
|----------|----|---------|----|

◇ (Aで1と答えた方に) その計画は、横浜にとって必要であると思いますか。

- |          |    |          |    |          |   |
|----------|----|----------|----|----------|---|
| 1. 必要である | 70 | 2. 必要でない | 16 | 3. わからない | 7 |
|----------|----|----------|----|----------|---|

◇ (Aで1と答えた方に) その計画は、市内の自動車公害とどのような関係があると思いますか。あてはまるもの一つに○印をつけて下さい。

- |             |    |                |    |
|-------------|----|----------------|----|
| 1. 公害がひどくなる | 12 | 3. 公害とは直接に関係ない | 30 |
| 2. 公害が少なくなる | 36 | 4. わからない       | 16 |

ご意見をおうかがいすることはここまでですが、次に、今回の調査結果をまとめるために必要なことがらについてうかがいます。

(1) 回答者の性別、年齢をうかがいます。

- |        |       |        |        |        |        |        |         |
|--------|-------|--------|--------|--------|--------|--------|---------|
| (1) 性別 | 男 35  | 女 64   |        |        |        |        |         |
| (2) 年齢 | 10代 1 | 20代 15 | 30代 21 | 40代 24 | 50代 19 | 60代 13 | 70代以上 5 |

〔2〕 回答者の職業をうかがいます。

(1) あなたは、主婦の方ですか。別にお仕事をおもちの方も、どちらかに○印をつけて下さい。

1. 主婦である 52      2. 主婦ではない 45

(2) あなたの職業は、次のどれにあたりますか。一つ選んで○印をつけて下さい。

- |                                      |          |    |                                      |          |   |        |    |
|--------------------------------------|----------|----|--------------------------------------|----------|---|--------|----|
| ┌<br>自<br>営<br>し<br>て<br>い<br>る<br>└ | 1. 農林漁業  | 0  | ┌<br>勤<br>務<br>し<br>て<br>い<br>る<br>└ | 6. 管理職   | 4 | 11. 無職 | 47 |
|                                      | 2. 商業    | 12 |                                      | 7. 専門技術職 | 3 |        |    |
|                                      | 3. サービス業 | 7  |                                      | 8. 事務職   | 7 |        |    |
|                                      | 4. 工業    | 2  |                                      | 9. 技能職   | 5 |        |    |
|                                      | 5. 自由業   | 5  |                                      | 10. その他  | 5 |        |    |

〔3〕 お宅の世帯主の方の職業をうかがいます。次の中から、あてはまるもの一つに○印をつけて下さい。なお、あなたご自身が世帯主である場合は、12に○印をつけて下さい。

- |                                      |          |   |                                      |          |    |             |    |
|--------------------------------------|----------|---|--------------------------------------|----------|----|-------------|----|
| ┌<br>自<br>営<br>し<br>て<br>い<br>る<br>└ | 1. 農林漁業  | 0 | ┌<br>勤<br>務<br>し<br>て<br>い<br>る<br>└ | 6. 管理職   | 11 | 11. 無職      | 6  |
|                                      | 2. 商業    | 8 |                                      | 7. 専門技術職 | 6  | 12. 回答者が世帯主 | 35 |
|                                      | 3. サービス業 | 5 |                                      | 8. 事務職   | 6  |             |    |
|                                      | 4. 工業    | 3 |                                      | 9. 技能職   | 8  |             |    |
|                                      | 5. 自由業   | 4 |                                      | 10. その他  | 5  |             |    |

〔4〕 回答者は、この場所に何年くらい住んで（あるいは勤めて）いますか。次の中から、いずれか一つに○印をつけて下さい。

1. 1年未満 6      4. 5年以上10年未満 10      7. 20年以上 48  
2. 1年以上3年未満 8      5. 10年以上15年未満 8  
3. 3年以上5年未満 9      6. 15年以上20年未満 9

〔5〕 現在この場所に住んでいる方だけにうかがいます。回答者を含めて、同居の家族は何人ですか。次の中から一つに○印をつけて下さい。

1. 1人 12      3. 3人 20      5. 5人 12      7. 7人以上 5  
2. 2人 20      4. 4人 24      6. 6人 8

〔6〕 こちらの建物の種類は、次の中のどれですか。一つだけ○印をつけて下さい。

1. 持家一戸建て住宅 49  
2. 持家共同住宅（分譲マンション・アパートなど） 3  
3. 借家一戸建て住宅 6  
4. 借家共同住宅（賃借アパートなど） 17

5. 社宅・公務員住宅の一戸建て住宅	0.4
6. 社宅・公務員住宅の共同住宅	0.4
7. 持家の店舗（または事務所・工場）併用住宅	13
8. 借家の店舗（または事務所・工場）併用住宅	7
9. 専用の店舗，事務所，工場	3
10. その他	0.7

〔7〕 その建物の構造は、次の中のどれですか。あてはまるものに○印をつけて下さい。

1. 木造	65	3. 鉄筋コンクリート	7	5. その他	1
2. 木造モルタル	24	4. プレハブ	1		

〔8〕 お宅の部屋数はいくつですか。次の中からあてはまるものに○印をつけて下さい。

1. 1室	8	4. 4室	16	7. 居室なし	5
2. 2室	17	5. 5室	18	(店舗，事務所等のみ)	
3. 3室	14	6. 6室以上	21		

〔9〕 回答者の寝室は、何階にありますか。次の中からあてはまるところに○印をつけて下さい。

1. 1階	58	2. 2階	37	3. 3階	2	4. 4階以上	2
-------	----	-------	----	-------	---	---------	---

〔10〕 (1) お宅では、自動車をもっていますか。(オートバイは除きます。)次の種類ごとに台数を記入して下さい。

1. 乗用車	..... (略) 台	36
2. ライトバン	..... (略) 台	10
3. トラック	..... (略) 台	9
4. その他	..... (略) 台	2

(2) 乗用車をおもちの方にうかがいます。その乗用車の主な用途を、次の中から一つだけ選んで○印をつけて下さい。

1. 通勤・通学	32	3. 買物・家事	7	5. その他	4
2. 仕事	41	4. レジャー	14		

## 1. 沿革

- 昭和39年12月・衛生公害センター設置さる
- 昭和46年6月・機構改革に伴い、公害センターが公害対策局に昇格すると同時に、水質汚濁防止法、大気汚染防止法が施行されたことにより、増大した行政検体の試験検査は衛生研究所の環境衛生課がその分析処理を行なった。
- 昭和48年1月・横浜市公害対策審議会「公害研究所の建設について」建議
- 昭和49年2月～3月・地質調査（ボーリング）、基本設計
- 昭和49年4月～12月・実施設計、用地整備
- 昭和50年1月・建築物本体工事着工、（49年度進捗率18%）
- 昭和50年度・建築物本体工事、付属建物工事、外構工事、緑化工事、液体クロマトグラフ等備品整備事業
- 昭和51年3月・工事完成
- 昭和51年4月・横浜市公害研究所開設さる  
初代所長 助川信彦
- 昭和53年7月・二代所長 菅野明男
- 昭和54年3月・第二研究棟完成

## 2. 施設の概要

### (1) 庁舎規模

- 建設地・横浜市磯子区滝頭一丁目2番15号  
敷地面積・2,525㎡  
建築面積・817.99㎡
- 規模  
本 体・鉄筋コンクリート造 地上5階建  
3133.90㎡（床面積）  
車 庫・鉄筋造平家建 81.0㎡  
薬 品 庫・補強コンクリート造平家建 39.8㎡  
ポンベ庫・補強コンクリート造平家建 16.3㎡  
第二研究棟・鉄筋コンクリート造2階建 233.28㎡  
（消毒所跡改修）

### 3. 設計監督

横浜市建築局工事課  
株式会社国建築事務所にて設計委託

### 4. 施 工

建築工事・和同建設株式会社  
電気工事・株式会社江電社  
衛生工事・有限会社伊藤工務店  
空調工事・東横工業株式会社

昇降機工事・日本オーチスエレベータ株式会社

### 5. 植 樹

設計監督・横浜市緑政局施設課  
設 計・株式会社吉村造園設計事務所  
施 工・横浜植木株式会社  
工 事 費・6,000千円

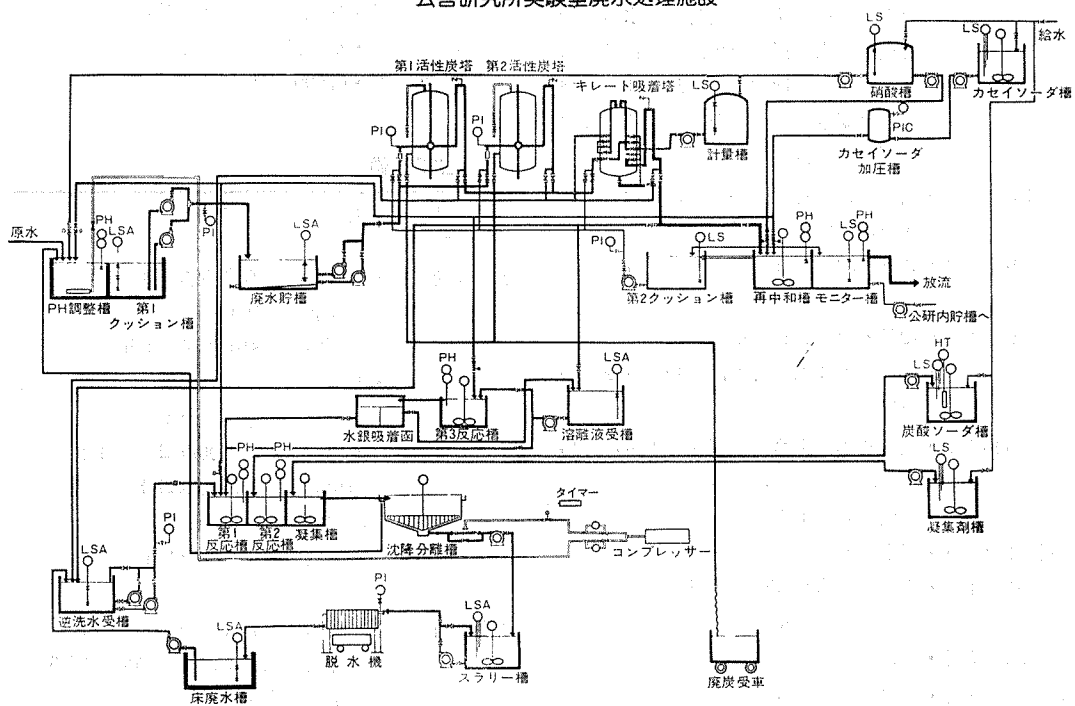
### (2) 主要設備

項 目	主 要 設 備
空調設備	— 吸収型冷温水発生機 1台 冷凍能力 193 t 暖房能力 810,000kcal/h ・温水ボイラー 120,000kcal/h 1台 ・パッケージ型エアコン 冷房能力 13,500kcal/h 1台 冷房能力 20,000kcal/h 2台 ・冷凍機 1台 冷凍能力 4,000kcal/h
衛生設備	— 上水受水槽 14 t, 雑排水受水槽 9 t 消化栓受水槽 9 t, 上水高置水槽 6 t 雑排水高置水槽 4 t 消化栓ヘッドタンク 0.5 t 消化栓 5ヶ所, 揚水ポンプ 5.5kw 2台 雑揚水ポンプ 3.7kw 1台 消化栓ポンプ 7.5kw 1台 排水ポンプ 0.75kw 2台
電気設備	— 受変電設備 6.6kv 725KVA 非常照明設備 100v 200Ah 時計装置, 拡声装置, 自動火災報知設備 TV共聴装置, 自動防煙ダンパー, 防火扉設備

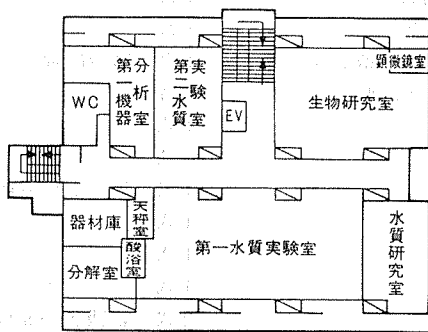
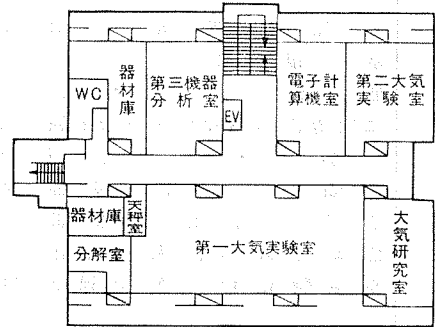
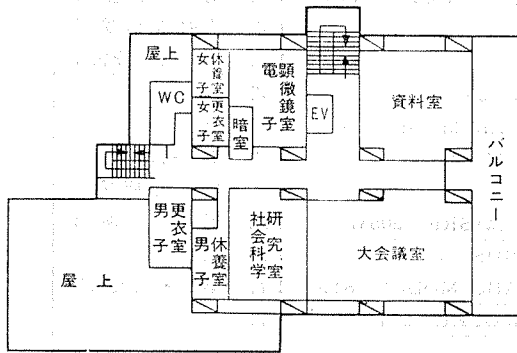
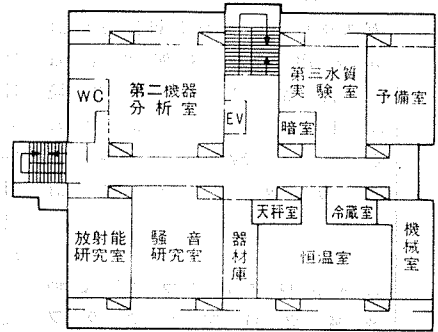
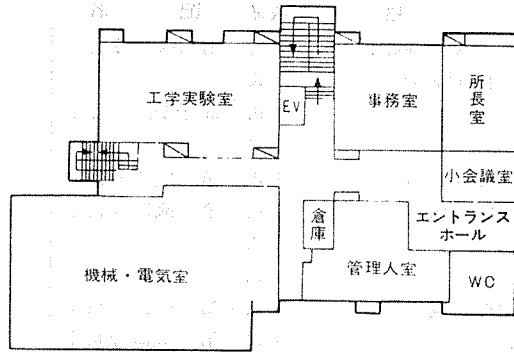


(3) 排水処理施設

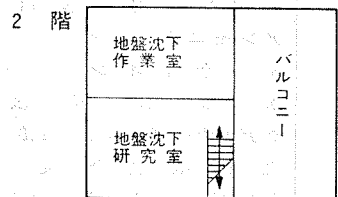
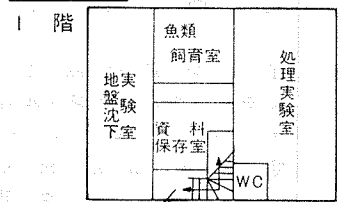
公害研究所実験室廃水処理施設



### 3. 平面図



#### 第二研究棟

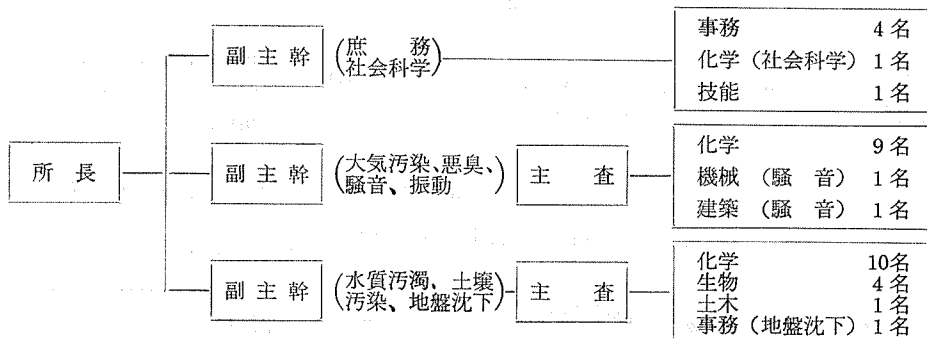


#### 4. 主要機器一覧表

品名	規格	数量	配置
ガスクロマトグラフ質量分析計	島津LKB, GC-MS-9000B	1式	第二機器分析室
同上用データ処理装置	島津GC-MS-PAC300形	1式	"
走査型電子顕微鏡	日立S-550型	1式	電子顕微鏡室
同上用X線分析装置	The KeveX 5100	1式	"
蛍光X線分析装置	理学電機MODEL4053A3	1式	第二機器分析室
原子吸光光度計	日電バリアンAA-1150A	1式	第一機器分析室
"	島津AA-620	1式	"
"	島津AA-630-02	1式	"
ガスクロマトグラフFID他	島津GC-6AMPTF 他	9式	第三機器分析室
液体クロマトグラフ	島津FRC-1A	1式	第二機器分析室
赤外分光光度計	日本分光A-3	1式	恒温室
光化学反応実験装置	600Aスモークチャンバー	1式	"
分光光度計	日立139-0018	2式	3階天秤室5階天秤室
"	ダブルビーム自記 日立200-10型	1式	第二水質実験室
分光蛍光光度計	日立MPF-4	1式	放射能研究室
水銀分析計	島津UV-201	1式	第一機器分析室
低温灰化装置	ヤマト科学PR-503	1式	"
二次導函数微量ガス分析装置	LEAR SIEGLER MODEL400	1式	恒温室
超軟X線発生装置	SOFTEX-CSM-2	1式	第二機器分析室
重油中S分分析装置	東芝	1式	放射能研究室
標準粒子発生装置	東京高周波電気炉SRF-305W	1式	工学実験室
標準ガス精密希釈装置	製鉄化学工業SDS-401	1式	恒温室
窒素酸化物自動記録計	MONITOR RABS MODEL-8440	1台	第二大気実験室
"	紀本電子工業MODEL-214	1台	"
"	"	1台	"
オキシダント自動記録計	電気化学	1台	"
オゾンメータ	京都電子工業OX-21	1台	"
風向風速計	海上電機SA-200	1台	"
"	" RA-211S	1台	"
イオン濃度測定装置	オリオン801A型	1台	"
多チャンネルデジタル騒音計	リオンSV-70型の改良型	1台	騒音研究室
データレコーダ	NAGRA-IV-SJ型	1台	"
騒音振動解析装置	YHP5420型	1式	"
" データ処理装置	YHP9825A	1式	"
シアンイオン蒸留装置	桐山製作所製	1式	第一水質実験室
アンモニアイオン	"	1式	"
ふっ素イオン	"	1式	"
水銀分解装置	"	1式	"
グデルナーダーニッシュ濃縮装置	"	2式	第二及び三水質実験室
流動電位測定装置	島津ZP-10B	1式	4階予備室
魚に対する慢性毒性試験装置	関東工機製作所製	1式	生物研究室
魚に対する急性毒性試験装置	"	1式	"
波高分析機	東芝USC-1 MODEL10	1式	放射能研究室
電子計算機	NEAC3100	1式	電子計算機室

微粒子自動計測器	ロイコ社 MODEL 226	1台	第二大気実験室
攪拌実験装置	佐竹化学機械工業製	1式	処理実験室
標準圧密試験器(3速型)	丸東 S43-3UL-1	1台	地盤沈下研究室
ソイルミキサー	// SE-27	1台	//
一軸圧縮試験装置	// SG-2033	1式	//

### 5. 人員・組織



### 6. 予算

予算額(昭和53年度)

(単位 千円)

事業内訳

科目	金額	付記
賃金	4,888	
報償費	914	
旅費	1,735	普通旅費
需用費	56,035	消耗品費 20,907 燃料費 258 食糧費 656 印刷製本費 4,550 光熱水費 28,072 修繕費 1,592
役務費	2,260	通信運搬費 1,097 手数料 1,163
委託料	35,327	清掃その他委託料
使用料及び賃借料	2,412	
工事請負費	9,882	雑工事費
備品購入費	50,000	
負担金補助及び交付金	180	会費及び負担金
公課費	38	
計	163,671	

管理運営費	63,680
試験検査費	7,847
主要機器維持費	6,562
管理運営費	
自動車公害対策費	3,000
基本計画調査費	
調査研究事業費	24,850
施設整備事業費	50,000
第2研究棟改築費	7,732
計	163,671

## 7. 学会等研究発表

学会大会名	年月	題名	発表者、共同研究者
第32回関東水道衛生協議会	52.10	低濃度重金属分析における精度向上についての検討	○大場栄次・石井哲夫
日本水処理生物学会第14回大会	52.11	付着藻類による水質判定における一考察	福嶋悟
〃	〃	SCI法による Diversity Index についての 2. 3 の検討	福嶋悟, ○金田彰二・猪口真美 (日本工学院)
第18回大気汚染研究全国協議会大会	52.11	神奈川県東部上空におけるNOxおよびO <sub>3</sub> 濃度の垂直分布	○鶴田治雄, 安田憲二, ほか. [神奈川県臨海地区大気汚染調査協議会] (神奈川県. 横浜市. 川崎市. 横須賀市)
〃	〃	対流圏における光化学反応〔Ⅱ〕	○鶴田治雄, 小川利紘 (東大理学部)
〃	〃	神奈川県南方海上での大気中ベンゾ(a)ピレンについて	○太田正雄, 松下秀鶴 (産業医学総合研)
〃	〃	浮遊粒子状物質の粒度分布と季節変動	○平野耕一郎・米山悦夫
〃	〃	溶液導電率法による大気中の二酸化硫黄自動計測器に関する調査研究 (第1報)	○平野耕一郎, 山手昇 (国立衛試), 泉川碩雄 (都公害研), 伊藤道生 (千葉県公研), 紀本岳志 (環境理化研), 深谷光世 (東京電力), 森正樹 (電気化学)
〃	〃	溶液導電率法による大気中の二酸化硫黄自動計測器に関する調査研究 (第2報)	平野耕一郎, 山手昇 (国立衛試), 泉川碩雄 (都公害研), ○伊藤道生 (千葉県公研), 紀本岳志 (環境理化研), 深谷光世 (東京電力), 森正樹 (電気化学)
〃	〃	小規模燃焼施設における窒素酸化物排出調査	○中村貢・太田正雄・佐俣満夫・平野耕一郎・米山悦夫, 渡辺善徳・教野賢治 (横浜市公害対策局)
〃	〃	神奈川県上空における炭化水素組成及び濃度について	前田裕行, ○鈴木英世・足立一彦・沼川美登利ほか. [神奈川県臨海地区大気汚染調査協議会] (神奈川県. 横浜市. 川崎市. 横須賀市)
第4回環境保全公害防止研究発表会	52.12	ポリビニルアルコール含有排水の処理方法の検討	遠田和雄
〃	〃	廃油中のイオウ分析方法の検討	○沖津正樹・太田正雄・佐俣満夫
第2回公害研究合同発表会 (神奈川県. 横浜市. 川崎市)	53. 6	乳化油排水処理材の評価	野木一男
〃	〃	窒素及び燐分析の空間精度について	石井哲夫
〃	〃	道路周辺の汚染物質の拡散状況について	○中村貢・米山悦夫・平野耕一郎・沖津正樹・太田正雄・前田裕行・鈴木正雄, 高橋潤 (横浜市公害対策局)

学会大会名	年月	題名	発表者・共同研究者
第2回公害研究合同発表会(神奈川県、横浜市、川崎市)	53. 6	相模湾及び伊豆諸島海域上における大気汚染物質の輸送過程に関する観測	鶴田治雄
日本陸水学会第43回大会	53. 7	殺虫剤による溪流生物相の破壊とその回復過程(1)水生昆虫相の変化	福嶋悟, ○安野正之・畠山成久・森下正彦・長谷川淳一・菅谷芳雄(国立公害研), 斉藤一三(横浜市大), 中村謙(横浜市衛研), 佐藤英毅(川崎市衛研), 塩山房男(宇都宮大)
"	"	殺虫剤による溪流生物相の破壊とその回復過程(2)藻類相の変化	○福嶋悟, 安野正之・畠山成久・森下正彦・長谷川淳一・菅谷芳雄(国立公害研), 斉藤一三(横浜市大), 中村謙(横浜市衛研), 佐藤英毅(川崎市衛研)
第13回横浜市衛生局公害対策局研究発表会	53. 8	横浜市海域の魚類相	○樋口文夫, 加山孝・岩田明久・酒井敬一・細谷誠一(東京水産大)
"	"	道路からの浮遊粒子状物質の動向について	○太田正雄・鈴木正雄
"	"	横浜市の自動車騒音について(その2)	○樋高雄治・鹿島教昭
第19回大気汚染学会	53. 9	道路からの粒子状物質とその含有成分について	○太田正雄・米山悦夫・中村貢・鈴木正雄・沖津正樹・前田裕行・平野耕一郎
"	"	環境大気におけるアスベスト粉じんの計測について	○平野耕一郎・佐俣満夫・沖津正樹・太田正雄
"	"	相模湾、伊豆諸島海域上でのO <sub>3</sub> , NO <sub>x</sub> , HCに関する調査(第2次) -1. O <sub>3</sub> ~NO <sub>x</sub> , の輸送および反応過程-	鶴田治雄
"	"	相模湾、伊豆諸島海域上でのO <sub>3</sub> , NO <sub>x</sub> , HCに関する調査(第2次) -2. C <sub>2</sub> ~C <sub>3</sub> 炭化水素のバックグラウンド濃度-	前田裕行
"	"	オキシダント計の動的較正法について(その1)	○小林善雄・町山徹(横浜市公害対策局), 平野耕一郎・渡辺善徳
"	"	オキシダント計の動的較正法について(その2)	○平野耕一郎・渡辺善徳, 小林善雄・町山徹(横浜市公害対策局)
"	"	神奈川県上空における炭化水素組成および濃度について(第2報) -環境大気中の発生源別汚染特性-	○足立一彦, 前田裕行, 鈴木英世, 三村春雄ほか〔神奈川県臨海地区大気汚染調査協議会〕(神奈川県、横浜市、川崎市、横須賀市)
"	"	神奈川県上空における炭化水素組成および濃度について(第3報) -環境大気中の発生源別汚染特性-	○前田裕行, 足立一彦, 鈴木英世, 三村春雄ほか〔神奈川県臨海地区大気汚染調査協議会〕(神奈川県、横浜市、川崎市、横須賀市)

学会大会名	年月	題名	発表者・共同研究者
第19回大気汚染学会	53. 9	東京湾西部上空における大気汚染物質の輸送及び反応過程に関する観測（その1）	○鶴田治雄, 牧野宏, 安田憲二ほか〔神奈川県臨海地区大気汚染調査協議会〕（神奈川県, 横浜市, 川崎市, 横須賀市）
〃	〃	東京湾西部上空における大気汚染物質の輸送及び反応過程に関する観測（その2）	○鶴田治雄, 牧野宏, 安田憲二ほか〔神奈川県臨海地区大気汚染調査協議会〕（神奈川県, 横浜市, 川崎市, 横須賀市）
〃	〃	道路周辺地域の窒素酸化物濃度とその予測	○米山悦夫・中村貢
〃	〃	神奈川県における大気中のベンゾ(a)ピレン濃度について	○林久緒, 太田正雄ほか〔神奈川県臨海地区大気汚染調査協議会〕（神奈川県, 横浜市, 川崎市, 横須賀市）
第33回関東水道衛生協議会	53.10	非イオン界面活性剤の分析方法	飯塚貞男
第5回環境保全公害防止研究発表会	53.12	付着藻群落の多様性を用いた水質汚濁評価法の検討	福嶋悟
〃	〃	幹線道路からの大気汚染物質の減衰調査	○鈴木正雄・中村貢・太田正雄・平野耕一郎・沖津正樹・米山悦夫
第2回環境における化学物質分析法研究発表会	54. 3	フェニルフェノール分析法の検討	○福島博・石井哲夫

〔雑誌等投稿〕

発表雑誌名		執筆者（共同研究者）	題名
天 気	vol. 25, No. 1 (1978)	竹田厚・三沢信彦・石川浩治（東大海洋研）, 鶴田治雄・前田裕行（横浜市公害研）, 鈴木英世（川崎市公害研）, 遠藤辰雄・長利富勝（北大理学部）	相模湾および伊豆諸島近海における大気中の汚染物質と「その輸送過程」に関する観測

（要 旨）

沿岸地域における大気汚染物質の輸送過程に関連して、海上の大気中の窒素酸化物、オゾン、炭化水素、エアロゾル等の濃度と、風、日射量等の気象要素についての船上観測を、相模湾から伊豆諸島に至る海域で行なった。その結果、（1）北東風の時に、相模湾上の窒素酸化物やエアロゾルの濃度が、沿岸の都市域と同程度の値になることが観測され、高濃度の汚染気塊は34°N 近くの伊豆半島沖合いの海上にまで到達する。（2）陸上より相模湾上に輸送された汚染大気中で光化学反応により生成された高いオゾン濃度が観測された。（3）沿岸地域の大気の輸送機構の一つとして海陸風循環が注目されるが、相模湾の場合、海風の陸上側（風下側）への侵入距離は短時間に30km以上にも達するのに対して、海上側（風上側）への風域の拡大は遅く、沖合10kmにも及ばないこともある。……などの特徴的な事例が見出された。

全国公害研究会誌	vol. 3, No. 1 (1978)	助川信彦・鈴木重之・野木一男・下村光一郎	実験排水処理施設の構造機能および運転実績とその問題点に関する二・三の考察 ——横浜市公害研究所等の報告——
----------	----------------------------	----------------------	--

(要 旨)

一般に、実験室排水は鉛、カドミウム、水銀等の重金属、油分あるいはフェノール等の有害物質を微量ながら含んでいる。当研究所では基本的姿勢として、これら有害物質は微量といえども除去することになっている。そこで種々の処理方式を検討した結果、排水中の有害物質が低濃度であることから、吸着を主プロセス、凝集をサブプロセスとした方式を採用した。本装置は通常自動運転とし本館の制御室で管理され、処理水の一部は所内雑用水、一部は本館前の池へ導かれ、魚類飼育による安全性確認の研究用として、それぞれ再利用ができるようになっている。

経済と貿易 (横浜市立大学経済研究所)	No. 126 (1970. 2)	森清和, 村橋克彦 (横浜市立大学 経済研究所)	二酸化窒素環境基準問題の検討 ——環境基準の概念を中心として——
------------------------	----------------------	-----------------------------	-------------------------------------

(要 旨)

1978年7月に二酸化窒素環境基準が大巾に緩和された。この環境基準の改定は、基準値の科学的な検討の結果からではなく、環境基準のもつ性格を形骸化することによって強引に行われた。環境基準は現行公害行政の支柱であり、「基準値」のみならず「概念」そのものの改定は公害行政全般の後退に波及しかねない重大問題である。本稿は改定をめぐる論争を総括するとともに、環境基準とは何かという概念把握を試みた。今度の改定の根拠とされた拘束力を持たない長期目標としてのゴールという環境基準概念を批判し、スタンダード的把握とゴールの把握とを統一した環境基準概念の展開の必要性を提起した。

公害と対策	vol.15, No.1 (1979. 1)	戒能通敏	特集——人間環境のための都市改造 「自動車公害と環境政策」
-------	---------------------------	------	----------------------------------

(要 旨)

都市の自動車問題に関する議論は近年活発であり、新しい発想も生まれてはいるが、有効な対策は実践されることが余りにも少ない。自動車公害としては、沿道地域における深刻な被害とともに、被害地域の拡大、汚染の「面」的な広域化にも注目すべきである。そのうえで、交通事故や移動の阻害、都市空間の破壊などへの対処と併せて、全体的な関連の中から戦略を見出すべきなのである。すなわち、自動車の可能性を極力制限し、その他の選択を援助するような環境政策の導入がなされなければならない。

8. 図書及び雑誌目録

分 類		分 類	
図 書 の 部	0 辞典・便覧	134	雑 誌
	1 環境・公害	567	和 雑 誌
	2 社会科学	607	洋 雑 誌
	3 実験・分析	162	計
	4 自然科学	559	※ 資料
	5 工 学	172	10 横浜市資料
	6 産 業	131	11 他都市等資料
	7 政府刊行物	188	計
8 百科事典その他	120		
計	2,640冊		1979. 3. 31. 現在
		※ 整理済みのもののみ。	



9. 横浜市公害研究所発行資料目録

1979年10月末日現在

資料番号	件名	発行年月	体裁等
	明日の都市環境を照らす	1977. 3.	A4, 16頁 (パンフレット)
No. 1	窒素酸化物特殊発生源調査報告書 (環境庁大気保全局委託調査)	1977. 3.	B5, 49頁
2	横浜市公害研究所報(創刊号)	1977.11.	B5, 56頁
3	公募論文集・クルマ社会をどうするか ——明日の都市環境を考える——	1977.11.	B5, 136頁
4	第1回公害セミナー会議録・クルマ社会をどうするか ——明日の都市環境を考える——	1978. 3.	B5, 96頁
5	昭和52年度環境庁委託業務結果報告書 非特定重大障害物質発生源等対策調査 (アスベスト発生施設)	1978. 3.	B5, 36頁
6	横浜市公害研究所報(第2号)	1978. 3.	B5, 236頁
7	中間報告・横浜市における自動車公害に関する基礎研究	1978. 8.	B5, 195頁
8	横浜市公害研究所報(第3号)	1978.12.	B5, 156頁
9	第2回公害セミナー会議録・合成洗剤	1979. 3.	B5, 89頁
10	自動車公害に関する意識調査 ——国道一号線三ツ沢・松本地区, 1978年3月実施 単純集計結果(第1報)	1979. 3.	B5, 112頁
11	大気中の炭化水素濃度調査及び各種発生源施設からの 排出実態調査結果	1979. 3.	B5, 66頁
12	第3回公害セミナー論文集・川・よこはまに水辺をもとめて	1979. 8.	B5, 85頁
13	横浜市における自動車公害に関する基礎研究	1979. 9.	B5, 201頁

## ▷編集後記◁

本号は「業務報告編」「調査研究編」及び「資料編」とから成り、所報としての構成を一応整え、ここに第4号として発刊いたします。「業務報告編」の中には、これまでの「公害セミナー」開催の報告も含め、「資料編」と併せ、当研究所の年間業務活動の全般が伝わるようにと配慮しました。

昨年の初夏、第1回の編集会議を開いて以来、すでに半年有余の期間が経ち、やはり今回も、春を迎える頃の発刊となってしまいました。度重ね開かれた編集会議の中では、編集方針、内容も含め、所報の位置、性格づけに対する論議が出され、それは公害研究所のあり方にも、深くかかわってくる問題提起でもありました。所報が、公害研究所のこれまでの歩みを、どの程度、跡づけ、それを収録しているものであるか、又、所報の位置づけは、どうあるべきなのかは、今後全体で論じていく課題となってきています。ともすれば、膨大な作業量に追われ、内容論議に十分取り組めなかったことを反省し、今後はこれを基礎に更に充実したものを創り出していくことを念じております。

### 所報第4号編集委員会

笠原 三枝子  
戒能 通敏  
鶴田 治雄  
渡辺 善徳  
福嶋 悟  
福島 博

きんぎょ・野田実地会合委員会

一九九四年四月

委員長 笠原三枝子  
委員 戒能通敏、鶴田治雄、渡辺善徳、福嶋悟、福島博  
事務局 野田実地会合委員会事務局  
〒100-0001 東京都千代田区千代田1-1-1