

公害研資料

No. 81

# 横浜市公害研究所報

第 12 号

1988年3月

横浜市公害研究所

## は し が き

横浜市公害研究所報第12号を発刊する運びとなりました。

昭和62年度は、国内的にも国際的にも、あるいは政治、経済、社会にわたって世の中が変りつつあることの様々な現象が大きな変動として眼前しはじめた年でした。63年度も同じような現象が続くものと思われます。このような状況では将来の予測が難しいように見えますが、こういう時こそ心を静め眼を凝らし耳を澄ませれば、変動の陰に潜む本質がかえって解ってくる機会でもあります。

したがって、長期的・総合的展望の中で環境、公害問題の基礎的調査研究を着実、地道に進め、快的環境の保全創造を科学的に支えていく研究所としては、ここで一層腰を据えて、社会経済変貌の底流にあるものを捉えていくことが大切だと思ひます。

本所報は、昭和61年の業務実績ですが、調査研究については現段階でまとまったものを14編掲載しました。

関係各位の忌憚ない御意見、御批判をいただきたいと存じます。

昭和63年3月

横浜市公害研究所長

宮 腰 繁 樹

# 目 次

## I 業務報告編

大 気 部 門 .....	1
水 質 部 門 .....	1
公害セミナー .....	2

## II 調査研究編

### 大 気 部 門

○ 横浜市における酸性降水 .....	5
○ ダスト測定における非等速吸引の影響(II) .....	19
—— タルク粒子及び吸引流速が一定の場合 ——	
○ 固定発生源から排出されるばいじん中の多成分元素 .....	29
○ 大気汚染物質の雲粒および雨滴によるとりこみ機構と 酸化反応(第1報) .....	37

### 騒音・振動部門

○ 植樹帯による減音効果の研究(第3報) .....	57
—— 挿入損失としての物理的効果 II ——	

### 水 質 部 門

○ 底質柱状試料からみた横浜港の汚染の変遷 .....	73
○ 横浜港における底質汚染(第1報) .....	85
○ 魚類へい死事故に関する調査 .....	97
—— 柏尾川 ——	
○ 飼育コイを指標とした河川水質のモニタリング .....	109



○排水処理汚泥の資源化に関する基礎的調査（第3報）	115
——流動媒体の製造及び外部循環式三相流動床による排水処理実験——	

#### 地盤沈下部門

○軟弱地盤の沈下に関する調査研究（第3報）	121
——帷子川低地の軟弱地盤構造と地盤沈下特性——	

#### ノート

#### 水質部門

○横浜港水域の高級脂肪酸濃度	137
○魚類の簡易呼吸量測定法	143
○残留塩素のコイの鰓呼吸に及ぼす影響	145

### Ⅲ 資料編

1 人員及組織	147
2 主要機器一覧表	147
3 予算額	149
4 学会等研究発表	150
5 雑誌等投稿	153
6 公害研究所発行資料（報告書）	156
7 公害研究所発行資料目録	158



## I 大気部門

大気部門では、規制各課が行う工場・事業所に対する立入検査業務に伴って生じる検体および市民からの苦情に係る検体について迅速、正確に対処するために実施している。昭和61年度に実施した各項目ごとの検体数及び延べ項目数は次のとおりである。

表一1 昭和61年度

検体項目	検体数	項目数
重油中の硫黄分	384	384
炭化水素類	96	519
悪臭	162	162
浮遊粉じん及び重金属	29	92
その他	63	328
合計	734	1,485

### 1. 重油中の硫黄分

重油中の硫黄分の分析は、JIS-K-2541に基づく燃焼管式（空気法）及び蛍光X線法で行った。

### 2. 炭化水素

横浜市炭化水素系物質対策指導要綱に基づく各種化学工場、油槽所から排出される炭化水素類の測定及び悪臭検体中の炭化水素類の測定を行った。

### 3. 悪臭

三点比較式臭袋法及びガスクロマトグラフ等を用いて養豚、養鶏、油脂工場、印刷工場、食品工場等から排出される悪臭の臭気指数及び悪臭物質を測定した。

### 4. 粉遊粉じん及び重金属

一般環境及び道路沿道でローボリウムエアサンプラーを用いて、浮遊粉じんを採取し、Pb, Cd, Mn, Fe, V等の重金属の測定を行った。

### 5. その他

既定の項目に分類できないもの、たとえば、ばいじん、窒素酸化物、苦情などによる試料をその他としてまとめた。

本年度は、神奈川県公害防止条例に規定されている塩化水素及び塩素について固定発生源の排出実態調査を行い、その検体を分析した。

## II 水質部門

昭和61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を表一2に示した。

### 1. 工場立入調査に伴う検体の分析

昭和61年度に実施した工場立入調査とそれに伴って採取した検体数及び主な分析項目は、次のとおりである。

#### (1) 定期立入調査

工場排水1,323 検体……BOD, COD, 重金属他

#### (2) 東京湾岸自治体調査

工場排水36検体……COD, 窒素, リン

#### (3) 有機塩素化合物調査

工場排水 98検体……TCE, PCE, TCET

### 2. 環境調査に伴う検体の分析

昭和61年度に実施した環境調査とそれに伴って採取した検体及び分析項目は、次のとおりである。

#### (1) 化学物質調査（環境庁受託）

底質96検体、海水96検体、魚60検体；……イソプロピルベンゼン他

#### (2) 公共用水域水質測定（クロスチェック）

河川水及び海水計30検体……BOD, COD, 全リン他

#### (3) 地下水汚染調査

井戸水等34検体……TCE, PCE, TCET,

#### (4) 中小河川調査

河川水等82検体……BOD他

### 3. 除害施設の維持管理に伴う検体の分析

除害施設の維持管理のため毎月1回、原水、処理水等を採取し、BOD, COD, 重金属等の分析を行った。

### 4. 苦状処理等に伴う検体の分析

河川などにおける魚の浮上事故の原因調査に必要な魚の検査や水質分析を行った。

表一2

検体項目	検体数	項目数
工場立入調査	1,457	3,077
魚類調査	185	1,055
環境調査	373	569
除害施設	108	504
苦状処理等	23	46
合計	2,146	5,251

### Ⅲ 公害セミナー

#### 1. はじめに

当研究所では昭和52年度から「明日の都市環境を考える」を統一テーマに、公害・環境問題を市民と共に考えていく場として公害セミナーを開催している。

従来は、研究所の研究内容の紹介もかねて、一般市民を対象とした講演や研究発表を中心に行ってきたが、昭和61年度は研究所設立10周年記念事業の一環として、内容・形式を一新し、青少年を対象として公募した作品・論文の発表を中心を実施した。

「調べてみよう、身近な環境——水、みどり、まち……——」というテーマで、昭和61年11月23日（日）、横浜市技能文化会館大ホールで開催し、195名の参加者を得た。

#### 2. 作品募集

開催に先だち、上記テーマで、小・中学生、高校生の作品を7月から9月20日まで募集し、小学生12編、中学生8編、高校生6編、計26編の応募を得た。作品は個人、グループ、学校の科学部などの日頃の、地域に根ざした調査研究等の活動の成果であり、公害・環境問題に対する関心の高さと自主的な熱意を示すものであった。また、内容、表現方法ともに工夫がこらされており、多様であった。これらは公募作品集としてまとめ、セミナー開催当日、参加者に資料として配付した。（公害研資料№72 第10回公害セミナー公募作品集 昭和61年11月発行）

#### 3. セミナーの開催

##### (1) 作品発表

神奈川新聞社の渡部允氏の司会進行により、映画、講演等をまじえながら、午前に7編、午後10編、計17編の作品をそれぞれ発表した。各々OHPやスライド等を駆使し、発表方法、説明等工夫があり、多くの参加者に感銘を与えた。

発表作品、発表者等は次のとおりである。

- ①「いくつかの川を調べて」  
横浜市立井戸ヶ谷小学校5年 須田康一
- ②「団地の中の植物調べ」  
横浜市立帷子小学校5年 本間由紀子
- ③「川調べ体験レポート」  
鶴見川子供発見団カラス、横浜市立上末吉小学校5年 佐貫典子、菅井亮介
- ④「川歩き体験レポート」  
鶴見川子供発見団カルガモ、横浜市立大豆戸小学校5年 山田美希、比永健太郎
- ⑤「NEW鶴見川子供発見団活動報告」

横浜市立末吉中学校1年 斉藤由紀拡

- ⑥「しげちゃんとはなえちゃんの春・ぎっそうしらべ」  
鶴見川子供発見団雑草グループ 横浜市立末吉中学校1年 遠藤優子
  - ⑦「舞岡谷戸における鳥類調査」  
横浜市立南高校野鳥研究部 同校2年 戸嶋一成
  - ⑧「わたしたちのすんでいる町のようす」  
横浜市立希望ヶ丘小学校3年 兵藤久美子
  - ⑨「どうくつ探険」  
横浜市立石川小学校5年 荒木あい、二宮美智子、内田律子、富田麻美
  - ⑩「生活と温度」  
横浜市立桜台小学校6年 福島礼子
  - ⑪「円海山の自然について」  
横浜市立港南台第一中学校3年 村瀬道夫
  - ⑫「茅ヶ崎中学校を中心とする学区内の自然研究」  
横浜市立茅ヶ崎中学校科学部 同校3年 金子健児、藤田文人、同校2年 守谷英史、水野道
  - ⑬「ほたるに関する基礎的研究」  
横浜市立汲沢中学校自然研究部 同校3年 福元猛
  - ⑭「松の葉の気孔の汚れによる大気汚染の調査」  
横浜市立上飯田中学校3年 荻田恭子、高橋美由紀
  - ⑮「横浜における空中飛散スギ花粉の調査」  
神奈川県立新栄高校生物部 同校2年 櫛永英成
  - ⑯「学校周辺の窒素酸化物汚染調査」  
東海大学付属相模高校2年 国井博之
  - ⑰「タンポポ調査」  
横浜市生物部連合（県立市ヶ尾高校、港北高校、新栄高校、瀬谷西高校、鶴見高校、金井高校、豊田高校、野庭高校、舞岡高校、川和高校、旭高校、横浜翠嵐高校、横浜市立桜ヶ丘高校、関東学院六浦高校、計14校の生物部）、県立横浜翠嵐高校生物部 同校3年 栗木徹、水島末記
- (2) 講 評
- 作品発表①～⑦については、新栄高校教諭・高梨征雄氏、⑧～⑮については横浜市文化財総合調査会委員・大内実氏、⑯～⑰については新田中学校長・小松田昭氏によって、各年代に応じた問題のとらえ方、調査研究、活動の方法、その解決への努力等について言及され、良かった点、今後の参考とすべき点など適切な講評があった。
- また、「横浜という巨大都市に住む小中高」の児童、生徒が「水と緑を愛するやさしい目」と「環境づくりに役立つという科学の心」を持ち、さらによりよい環境のづくり手として「協力の手足」を持っているこ

とを頼もしく思う旨の総評があった。

### (3) 講 演

日本自然保護協会理事・柴田敏隆氏により「子供の生活と自然」という題で講演が行われた。

はじめに、今と昔の子供の違いについて楽しいスライドをまじえた説明があり、昔の子供たちは野生味溢れていたが、今の子供たちは、生き残りの力（サバイバル・アビリティ）が低下しているとの話があった。

次に、都会の子供たちが自然の中で活発に遊んでいるようすを見せながら、自然というものには本来大事な教育的役割があり、自然破壊と子供たちへのさまざまな規制が、子供の野生能力を摘み取る結果になっていると指摘した。

そして、自然とのふれあいから多くのことを学ぼうとしている子供たちに対して、大人たちが公害や環境破壊を押しつける形で残していくことはしのびないことであり、もう一度大人のあるべき立場を考える必要があるとしめくくった。

### (4) 映 画

県立平沼高等学校卒業生・戸田恵実さん外4人が在学中に作成した「帷子川」と、横浜市視聴覚センター所蔵の「トンボの世界」の2編を上映した。

### (5) アンケート結果

参加者195名中95名から回答が寄せられた。今回のセミナーは青少年が対象であったので参加者全体の約6割が10代の学生であった。

作品については、小学生から高校生までというのはやや内容に差がありすぎるという意見があった反面、高校生の発表についてたいへん勉強になったとする小学生の感想も見られた。

また、発表作品に川や自然観察に関するものが多かったためか、行政に良好な自然環境を守り育てることを望む意見が多く寄せられ、今後もこうした企画を続けてほしいという要望も述べられていた。

そして、「身近な環境で関心のあるものは何でしょうか」という問いに対し「目でみるもの、耳に聞くもの、呼吸している空気がきたないと感じられるとき、きれいにしたいと思う。自分の手ですこしでもきれいにできる可能性のあることには、とても関心がある」という回答があり、参加者の共通の気持ちとして代表的な意見であると思われた。（公害研資料4677 第10回公害セミナー会議録 調べてみよう身近な環境 昭和62年3月発行）



# 横浜市における酸性降水

渡辺 善徳,\* 草野 一\*

## 要 旨

横浜市域における近年の降水データをまとめ、次の知見を得た。

- (1) 昭和59年5月～62年4月の3年間に採取した一降水試料(175試料)の平均pHは4.63,このうち,pH5.65以下のいわゆる酸性雨の割合は96.0%であった。また,同期間中に採取した降水初期1mm目試料(173試料)の平均pHは4.24,このうち,酸性雨の割合は83.2%であった。
- (2) 横浜市域においては,降水のpHに地域差はほとんどなかった。
- (3) 横浜市域における降水のpHは,全国的にみて比較的低いレベルであった。
- (4) 降水初期1mm目の $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{NO}_3^-$ は夏期に高い濃度の試料が多く,また, $\text{Ca}^{2+}$ は春期に高い濃度の試料が多くみられた。
- (5) 降水初期1mm目の試料について本市と関東地方とを比較すると,本市の $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{Ca}^{2+}$ は関東地域ではともに高い濃度レベルにあり,特に本市の臨海部は $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{Ca}^{2+}$ の濃度が高かった。
- (6) wet deposition (湿性降水物)について,その中に含まれる各イオンを分析した結果, $\text{H}^+$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{NO}_3^-$ の降水量は降水量と相関があり,降水量の多い夏に多く,降水量の少ない冬に少なかった。

## 1. はじめに

酸性雨の問題は,我国におけるこれまでの大気汚染の状況,今後のエネルギー事情,さらに近隣諸国の急速な工業化等を考えあわせると,生態系への長期的慢性影響が顕在化,深刻化することが懸念され,重要な環境問題のひとつとなっている。このため当研究所では,昭和58年度から,近隣都県市との共同調査を含め,酸性雨に関する体系的な調査研究を行ってきたが,本報告は,本市における降水の観測結果を昭和59年5月以降3年間のものについてまとめたものである。

## 2. 調査内容

検討の資料とした降水試料の採取地点および採取方法は,図-1および表-1のとおりである。なお,採取方法,また分析項目および分析方法は既報<sup>1)2)</sup>のとおりである。

また,表-2に,昭和59年5月～62年4月に当研究所

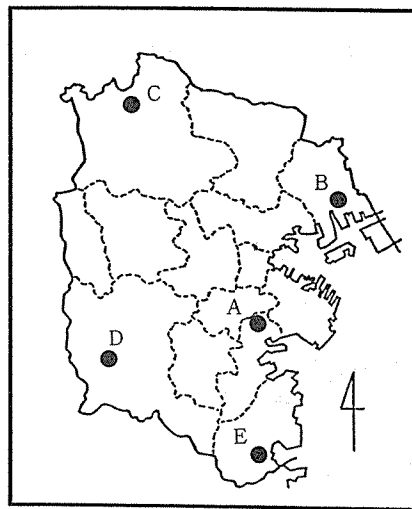


図-1 試料採取地点  
( 図中の記号は表-1の記号に対応 )

Acid precipitation in Yokohama City area

\*Yoshinori Watanabe, \*Hazime Kusano

横浜市公害研究所大気部門

表-1 降水試料採取地点および調査方法

記号	地 点	降 水 試 料	採 取 方 法	期 間
A	滝頭 (磯子区, 公害研究所)	降水初期 1mm 目	毎降水をウェット採取*	昭和59年5月~62年4月
	"	一降水	"	"
	"	大気降水物	1ヶ月単位でバルク採取**	昭和59年4月~62年7月
B	本町通 (鶴見区)	"	"	"
C	鉄 町 (緑 区)	"	"	"
D	汲 沢 町 (戸塚区)	"	"	"
E	町屋町 (金沢区)	"	"	"

\* 降水のみを選択的に採取 \*\* 降水および粉じん等の乾性降水物を併せて採取

(磯子区滝頭) 屋上で採取した試料の数を降水量(貯水量から換算)別に示す。

3年間に採取した試料数は合計175試料であったが、1試料あたり降水量が10mm未満のものが68試料と最も多く、全試料の39%、次いで10mm以上20mm未満のものが42試料、24%であり、また、50mm以上の降水量のものが19試料、10%の割合であった。

### 3. 結 果

#### 3-1 降 水 量

表-3に、昭和59年4月~62年7月における、鶴見区本町通など市内5地点の月別降水量の最高、最低、平均値を示す。最高値は5地点とも昭和60年6月に観測され、この降水量は市内降水量の年平均値(約1600mm<sup>2)</sup>)の約32%(滝頭)から約27%(鉄町)にあたる量であった。また、最低値は5地点とも昭和61年1月に観測され、滝頭で0.1mm、他の4地点で1mm前後であった。

さらに、この期間における平均値は110~125mmとなり、5地点間の降水量は町屋町(金沢区) > 本町通(鶴見区) > 滝頭(磯子区) > 汲沢町(戸塚区) > 鉄町(緑区)の順で、わずかずつではあるが、郊外部に比べて臨海部で多い傾向がみられた。

#### 3-2 pH

##### 3-2-1 毎降水試料のpH

降水は、清浄な地域であっても、大気中に約350ppmある二酸化炭素に溶解することによって、平衡状態ではpH5.65程度の弱酸性を示す。このことから、一般にpH5.65以下の降水を酸性降水と定義している。

図-2に、公害研究所屋上において採取した一降水試料の降水量とpHの関係を示す。これをみると、一降水の降水量が少ないほど試料の示すpHの範囲の幅が大きく、また、試料数が少ないため明確なことはいえないが、降水量が増加するとpHは高くなる傾向がみられた。

表-2 降水量区分別試料数と試料全数中の割合

(昭和59年5月~62年4月, 公害研究所)  
(n=175)

降水量区分	試料数	割合 (%)
10mm未満	68	39
10mm以上20mm未満	42	24
20mm " 30mm "	24	14
30mm " 40mm "	10	6
40mm " 50mm "	12	7
50mm " 100mm "	15	8
100mm以上	4	2
計	175	100

表-3 市内5地点の1ヶ月あたり降水量

(昭和59年4月~62年7月)  
(mm/月)

	本町通	鉄町	汲沢町	町屋町	滝頭
最高値	476	433	509	471	514
最低値	1.1	1.1	0.7	0.9	0.1
平均値	115	108	111	125	113
n	40	40	40	40	39

降水量が少ない試料のpH幅が大きくなるのは、大気の状態が比較的降水初期に反映するためであると考えられる。

なお、175試料のうち最低pHは3.57(昭和61年6月25日、降水量1.6mm)、最高pHは6.55(同62年2月12日、降水量4.9mmで強風を伴う)、降水量で重みづけした平均pHは4.63であった。また、全試料をpH階級別にみると、pH4未満14試料(全試料に占める割合8.0%)、4以上5未満125試料(71.4%)、5以上6未満35試料(20.0%)、6以上1試料(0.6%)となり、pH4以上5未満の試料が最も多かった。また、酸性雨の定義とするpH5.65以下の試料は168試料(96.0%)あり、本市の降水のほとんどが酸性降水であった。一方、pH5.65を超える試料が7試料あったが、これらは台風

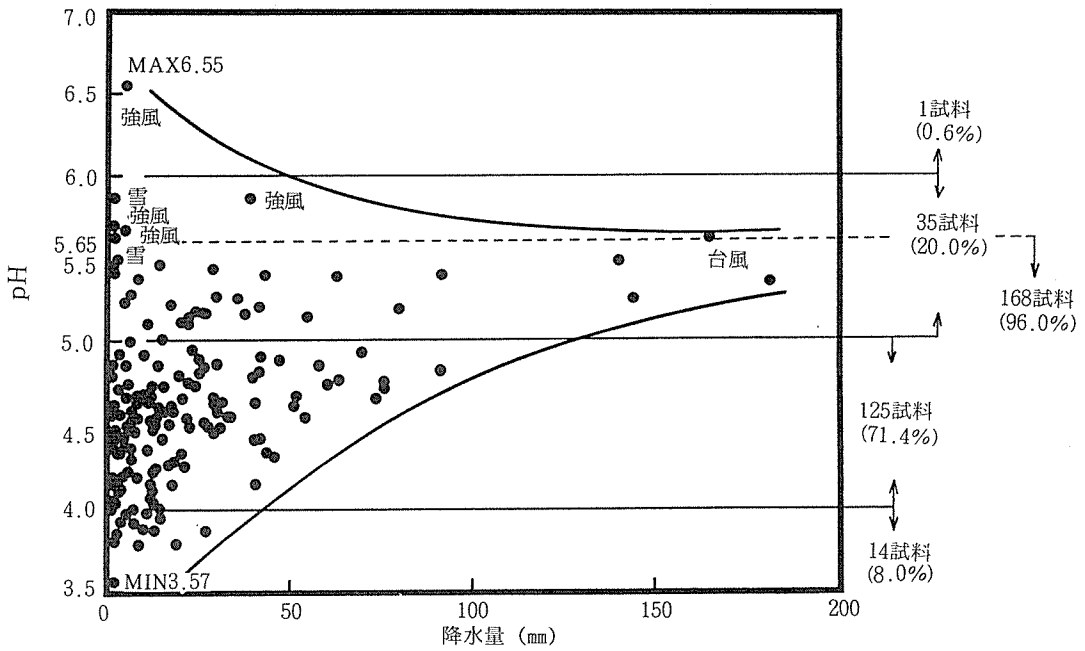


図-2 一降水試料の降水量とpHの関係 (n=175)  
 (昭和59年5月~62年4月, 公害研究所)

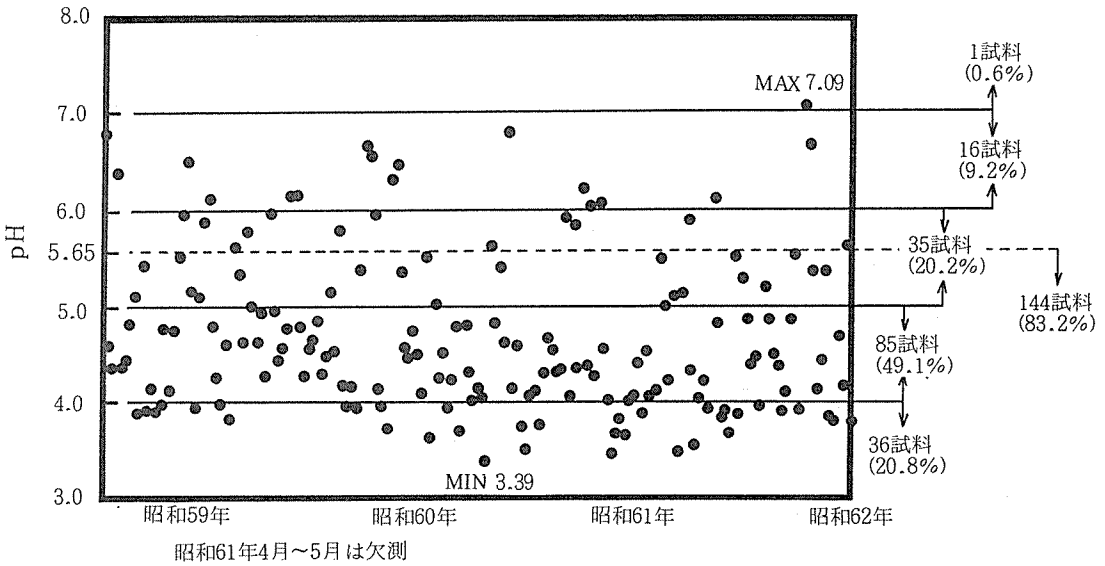


図-3 降水初期1mm目試料のpH時系列(n=173)  
 (昭和59年5月~62年4月, 公害研究所)



など強風を伴う雨または雪で、土砂などの粉じんを多量に取込んだと考えられる試料である。

図-3に、一降水試料と同時に採取した降水初期1mm目試料(以下1mm試料とする)のpHを時系列で示す。なお、1mm未満の降水試料はイオンバランスを大きくくずしている場合が多いので、ここでは1mm以上降った場合の1mm試料を検討の対象とした。最低pHは3.39(昭和60年7月12日)、最高pHは7.09(同62年2月12日、一降水試料でも最高値を示した)、平均pHは4.24であった。また、全試料(173試料)をpH階級別にみると、pH4未満36試料(全試料に占める割合20.8%)、4以上5未満85試料(49.1%)、5以上6未満35試料(20.2%)、6以上7未満16試料(9.2%)、7以上1試料(0.6%)となり、pH4以上5未満の試料が最も多いものの、一降水試料に比べてpHのバラツキが目だった。また、pH5.65以下の降水は144試料(83.2%)であり、この割合は一降水試料の場合よりも低く、相対的にpHの高い試料の割合が高かった。

表-4 市内5地点における大気降水試料のpH  
(1ヶ月単位のバルク採取)

年月	本町通	鉄町	汲沢町	町屋町	滝頭
5904	5.66	5.80	5.53	5.92	5.33
5905	6.12	4.86	5.71	5.26	5.86
5906	4.95	4.86	5.12	4.89	欠測
5907	5.16	4.63	5.05	4.71	4.81
5908	5.60	4.50	5.82	5.83	5.23
5909	5.11	4.61	4.85	5.10	4.87
5910	5.12	5.61	5.28	5.16	4.56
5911	5.06	5.03	6.16	5.01	4.78
5912	5.12	5.75	5.84	5.17	4.94
6001	4.95	5.40	6.56	5.30	5.64
6002	4.99	4.87	5.39	5.00	5.00
6003	4.77	4.65	4.81	4.90	4.82
6004	4.87	4.59	4.86	4.76	4.76
6005	5.12	6.52	6.00	5.01	4.92
6006	4.55	5.55	4.86	4.84	4.73
6007	4.51	4.06	4.73	4.38	4.45
6008	5.48	5.72	5.72	5.55	5.43
6009	5.21	4.62	4.91	4.75	4.60
6010	5.12	4.98	5.18	4.80	5.11
6011	4.97	5.07	5.36	4.68	4.90
6012	5.80	5.73	6.11	5.39	5.76
6101	6.70	5.91	6.54	5.79	4.44
6102	5.90	5.92	6.12	5.74	5.90
6103	5.39	5.05	5.38	5.07	5.60
6104	4.58	4.47	4.72	4.77	5.33
6105	5.06	4.80	4.91	4.99	4.77
6106	4.59	4.51	4.66	4.58	4.43
6107	4.68	4.29	4.56	4.80	4.56
6108	4.89	4.92	4.79	5.05	4.79
6109	4.61	4.65	4.66	4.89	4.75
6110	5.36	5.13	5.59	5.08	4.88
6111	5.66	5.68	5.50	5.53	5.70
6112	5.12	5.04	5.12	5.18	5.13
6201	6.48	6.10	6.28	6.10	5.81
6202	6.71	6.67	6.82	6.58	6.72
6203	5.61	4.84	5.25	4.89	5.02
6204	6.43	6.11	6.10	5.67	5.14
6205	5.86	5.83	6.36	5.26	5.75
6206	5.37	4.79	4.91	5.09	5.26
6207	4.58	4.77	6.08	6.10	5.71
平均値	4.90	4.80	5.02	4.94	4.89

### 3-2-2 バルク採取試料のpH

表-4に、昭和59年4月~62年7月の期間における、市内5地点の月単位バルク採取大気降水試料のpHを示す。最高値は全地点とも昭和62年2月にみられ、6.82(汲沢町)~6.58(町屋町)、最低値は4.06(鉄町)~4.56(汲沢町)であった。また、降水量で重みづけした平均値は汲沢町(戸塚区) > 町屋町(金沢区) > 本町通(鶴見区) > 滝頭(磯子区) > 鉄町(緑区)の順で、わずかながら差がみられたが、この差は小さく、市内での地域差はほとんどないといえる。

図-4に、地点毎および全地点のpH階級別試料数と、その全体(199試料)に占める割合を示す。

まず5地点合計についてみると、pH4未満(A階級)0試料、4以上5未満(B階級)81試料(41%)、5以上6未満(C階級)94試料(47%)、6以上7未満(D階級)12試料(6%)、7以上(E階級)0試料(0%)となることがわかる。

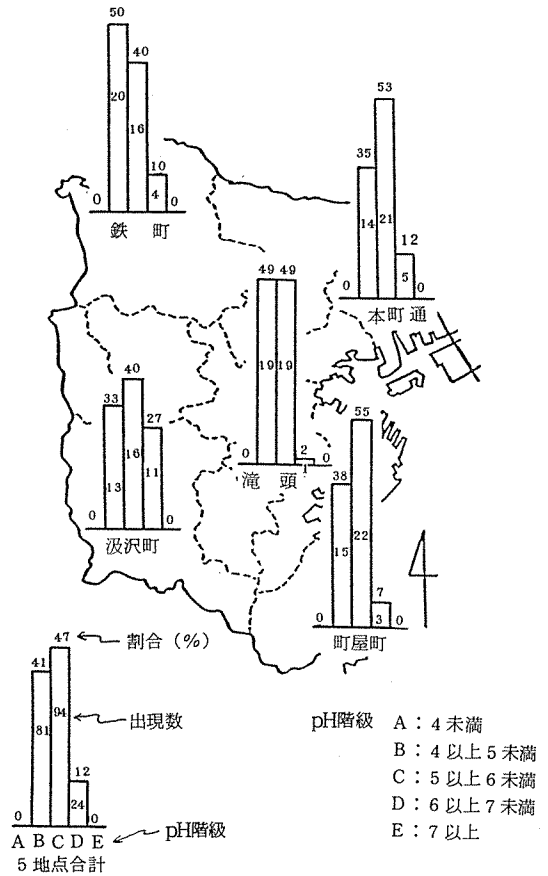


図-4 pH階級別出現数とその割合(%)  
(昭和59年4月~62年7月)

満 (D階級) 24試料 (12%) , 7以上 (E階級) 0試料で、C階級が最も多く、pH 6未満のB、C階級で全体のほぼ90%を示した。これを地点別にみると、鉄町 (緑区) ではB階級が50%と最も多く、次いでC、D階級の順であり、滝頭ではB、C階級が同じ割合 (49%)、また汲沢町 (戸塚区)、本町通 (鶴見区)、町屋町 (金沢区) ではC、B、Dの順で試料が得られており、月単位でpH値をみるとわずかながら地域的な相違がみられた。

次に、5地点における季節別、pH階級別試料数を表-5に示す。春季は5地点の合計はB、C階級が約半数ずつであったが、鉄町 (緑区) ではB、本町通 (鶴見区)、滝頭 (磯子区) ではC階級が多かった。夏季は5地点合計ではB階級がC階級のおよそ2倍であり、また地点別では各地点ともB階級がC階級の1.5倍程度であったが、鉄町 (緑区) だけは11試料中9試料がB階級であった。秋季は春季と同様、5地点合計は、B、C階級で約半数ずつであったが、地点別では本町通 (鶴見区) でC階級が、また滝頭でB階級が多かった。冬季は他の季節と異なり、C、D階級が多かった。これらのことから、各地点ごとに特徴がみられるものの、月単位でpHをみると、夏季はB階級 (pH 4~5) の試料が、また冬季はこれより高いC階級 (pH 5~6) の試料が得られ、さらに、春季、秋季はB、C階級の試料がほぼ同数得られるなど、季節によってそれぞれ特徴がみられた。

### 3-2-3 他地域との比較

これまで本市における降水試料のpHの実態を述べてきた。次にこれと国内の他地域における測定結果とを比較してみることにする。

〈全国規模の調査〉

表-6に、酸性雨対策検討会大気分科会 (環境庁) がとりまとめた全国各地におけるpHの調査結果<sup>4)</sup> (昭和59年度) を示す。この調査結果は、沓式採取器を用いて1週間単位でバルク採取した試料から得られたpH値を降水量で重みづけし、1ヶ月の平均値として表わしたものである。最小値をみると、北海道の地点が他の地点に比べやや高いpH値 (4.9, 4.7) を示しているが、その他の地点はほぼ同程度 (4.0~4.5) で、地域的な差異は小さい。また月間降水量で重みつけた年平均値でみると、大都市地点 (東京、名古屋、大阪の地点) におけるpH値 (4.4~4.8) はその他の地点に比べて低い傾向がみられる。この調査は降水の採取期間および採取法が本市と異なるので単純な比較はできないが、本市内5地点におけるバルク採取試料によるpH値 (3ヶ年平均値) が4.8~5.0であることを考えれば、本市の状況は、この全国調査の大都市地点のpH域に近いといえよう。

表-5 市内5地点における季節別pH階級別試料数 (昭和59年4月~62年7月)

季節	春			夏			秋			冬		
	B	C	D	B	C	D	B	C	D	B	C	D
本町通	3	6	2	7	4	0	2	7	0	2	4	3
鉄町	6	3	2	9	2	0	4	5	0	1	6	2
汲沢町	4	4	3	6	4	1	3	5	1	0	3	6
町屋町	5	6	0	6	4	1	4	5	0	0	7	2
滝頭	4	7	0	6	4	0	7	2	0	2	6	1
5地点合計	22	26	7	34	18	2	20	24	1	5	26	14

pH階級 B : 4以上5未満 C : 5以上6未満  
D : 6以上7未満

表-6 国内各地における大気降下物のpH (昭和59年度、酸性雨検討会大気分科会)

地点	月	4	5	6	7	8	9	10	11	12	1	2	3	最大値	最小値	平均値
		北海道	札幌市	6.9	6.3	5.8	5.2	5.6	5.5	4.9	5.8	6.4	4.9	4.9	6.8	6.9
	鶴川町	5.4	5.5	4.9	5.0	4.9	4.7	4.8	5.0	5.3	5.9	5.4	5.2	5.9	4.7	5.0
宮城	仙台市	4.8	4.4	4.2	4.5	4.5	4.6	4.9	4.6	4.9	6.8	5.1	5.7	6.8	4.2	4.9
	大河原町	4.8	4.2	4.5	4.3	4.7	4.8	5.0	5.0	5.5	6.0	5.3	6.1	6.1	4.2	5.1
東京	江東区	5.3	5.8	4.8	5.1	5.2	4.9	5.5	4.8	4.7	6.5	4.6	4.5	6.5	4.5	4.8
	武蔵野市	4.4	5.4	4.3	4.2	4.5	4.3	5.4	5.3	4.5	4.5	4.3	4.3	5.4	4.2	4.4
名古屋	南区	5.4	5.7	5.0	4.7	5.0	4.8	5.3	4.4	5.1	4.6	4.6	4.4	5.7	4.4	4.8
	名東区	4.9	4.9	4.9	4.5	4.2	5.3	5.0	4.3	4.7	4.7	4.9	4.7	5.3	4.2	4.7
大阪	大阪市	4.6	4.7	4.4	4.3	4.8	4.5	4.6	4.5	4.5	5.1	4.6	4.5	5.1	4.3	4.5
	池田市	4.7	4.9	4.6	4.3	4.9	4.7	4.6	4.5	4.5	4.5	4.9	4.7	4.9	4.3	4.6
広島	広島市	5.7	5.1	4.8	4.7	5.8	4.5	4.7	4.5	5.6	5.7	6.0	5.1	6.0	4.5	4.9
	庄原市	6.1	5.5	4.9	4.5	5.6	4.8	4.9	4.2	5.6	5.6	5.9	5.1	6.1	4.2	4.9
長崎	長崎市	5.3	5.2	5.3	5.1	5.5	4.8	5.8	5.4	4.6	4.4	4.8	4.6	5.8	4.4	5.0
	大村市	5.7	5.0	5.2	4.4	4.8	4.5	4.5	4.1	4.0	4.2	4.0	4.2	5.7	4.0	4.5

〈関東甲信越地域の調査〉

図-5に、前述の検討会がとりまとめた関東甲信越地域（本市も参画）における調査結果<sup>4)</sup>（昭和59年9月～60年8月）を示す。この調査結果は、沓過式採取器を用いて半月単位でバルク採取した試料から得たpH値を降水量で重みづけて年平均値で表わしたものであるが、最も低い値は関東平野中央部の埼玉、群馬両県の都市域およびその西部の山間地（4.6）にみられ、本市（5.0）は東京都（4.8～5.1）、神奈川県の本市を除く地域（4.8、4.9）とほぼ同じpH値を示し、関東一円では中位の状況にあるといえる。

また、関東地方公害対策推進本部大気汚染部会（関東甲信越圏の1都10県と本市が参画）が毎年梅雨期に約2週間にわたって実施している共同調査結果<sup>5)</sup>でも同様の結果が得られている。

〈神奈川県内の調査〉

神奈川県と、本市を含む県内6市は、毎年6～7月の2ヶ月間、共同で降水の調査を行っている。

図-6は、昭和61年度の共同調査結果<sup>6)</sup>であるが、一降水試料のpH平均値は県中西部の臨海部で低く（4.1）、本市を含む東部の臨海部で高く（4.2～4.6）、また東部の中では本市が最も低い値を示している。

これらの調査結果を参考に、本市の状況をまとめてみると、①全国的にみて、大都市圏におけるバルク採取試料のpHはその他の地域に比べるとやや低い傾向にあり、本市もこのレベルに属する。②関東一円で行っているバルク採取試料では、本市におけるpHは関東北部および北西部より高いが、関東東部よりは低く、東京都、神奈川県下と同じ程度のレベルにある。③一降水試料の平均値では、本市は神奈川県の中では低いほうのレベルに属するといえる。なお、神奈川県地域における比較的低いpHの降水は、北東気流型の気象条件下でよくあらわれることがわかっている。

3-3 導電率（EC）

導電率（EC）は、温度が一定であれば溶液中のイオンの種類と濃度に比例する。したがって、導電率は降水中に含まれるイオン、すなわち汚染物質の存在量を知る指標として降水の測定項目のひとつになっている。

図-7に、一降水試料の降水量とその試料の導電率の関係を示す。導電率は降水量が少ない時はバラツキが大きいのが、降水量が多くなるに従い減少する結果が得られた。また、175試料のうち、導電率の最高値  $197\mu\text{S}/\text{cm}^2$ （昭和60年3月25日、7mm、強風を伴う降水）、

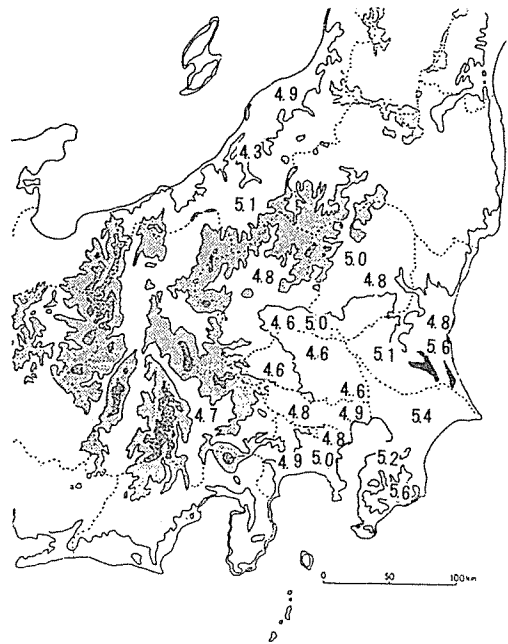


図-5 関東甲信越地域における大気降下物のpH（年平均値）  
（昭和59年9月～60年8年、酸性雨検討会大気分科会）

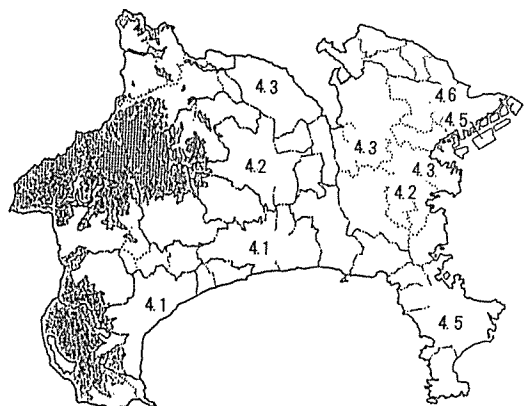


図-6 神奈川県における一降水試料のpH調査結果（昭和61年6月～7月）



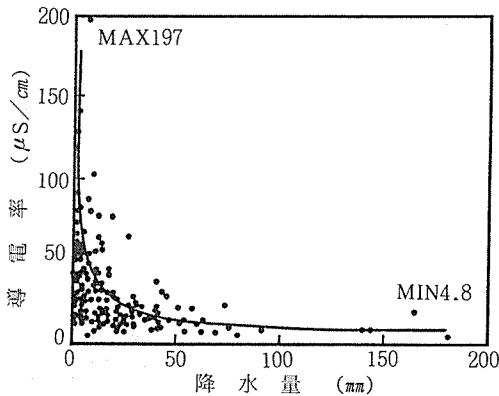


図-7 一降水試料の降水量と導電率の関係  
(n=175) (昭和59年5月~62年4月, 公害研究所)

最低値4.8  $\mu\text{S}/\text{cm}^2$  (昭和61年8月3日, 180mm, 台風に伴う降水), 平均値 33.2  $\mu\text{S}/\text{cm}^2$  で, 50  $\mu\text{S}/\text{cm}^2$  以上の導電率を示した試料は39試料 (22.3%) であった。

また, 表-7に, 市内5地点における月単位のバルク採取試料 (降水量が微量であった昭和61年1月の試料を除く) について導電率の最高, 最低, 平均値を示す。最高値は各地点とも昭和60年1月に, また, 最低値は町屋町 (金沢区, 昭和61年5月) を除いて60年8月に観測された。

なお, 平均値は本町通 (鶴見区) > 鉄町 (緑区) > 町屋町 (金沢区) > 滝頭 (磯子区) > 汲沢町 (戸塚区) の順で高かった。

### 3-4 イオン成分

#### 3-4-1 イオン成分濃度の年平均値

表-8に1mm試料および一降水試料のイオン成分濃

表-7 導電率 (EC) の最高, 最低, 平均値  
(昭和59年4月~62年7月)

( $\mu\text{S}/\text{cm}^2$ )

	本町通	鉄町	汲沢町	町屋町	滝頭
最高値	58.7	60.9	58.9	66.4	60.5
最低値	18.7	7.6	7.2	11.7	8.9
平均値	19.4	18.9	13.2	16.1	15.9

(試料は1ヶ月単位でバルク採取  
(降水量が微量であった昭和61年1月を除く))

度の年平均値を示す。3ケ年の総平均値で, 各イオン濃度を比較すると, 1mm試料は  $\text{SO}_4^{2-} > \text{Cl}^- > \text{NO}_3^- > \text{Na}^+ > \text{NH}_4^+ > \text{Ca}^{2+} > \text{Mg}^{2+} > \text{K}^+ > \text{H}^+$ , 一降水試料は  $\text{SO}_4^{2-} > \text{Cl}^- > \text{NO}_3^- > \text{NH}_4^+ > \text{Na}^+ > \text{Ca}^{2+} > \text{Mg}^{2+} > \text{K}^+ > \text{H}^+$  の順となり, とともに  $\text{SO}_4^{2-}$  が最も濃度が高く次いで  $\text{Cl}^- > \text{NO}_3^-$  の順で高くなっている。世界気象機関 (WMO) では, バックグラウンド大気汚染測定網の1つとして岩手県綾里で降水の観測を実施しているが, その結果によれば, 降水中のイオン濃度は  $\text{Cl}^- > \text{Na}^+ > \text{SO}_4^{2-} > \text{Ca}^{2+} > \text{NO}_3^- > \text{K}^+ > \text{Mg}^{2+}$  の順となっている。  $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{NO}_3^-$  は人為的なものが主と考えられることから, 本市の降水は人為的な汚染の影響を強く受けていることがわかる。また, 各年度別年平均値で各イオンの経年変化をみると, 1mm試料, 一降水試料とも  $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{Cl}^-$ ,  $\text{Ca}^{2+}$  等の各イオン濃度は若干の増減があるものの一定の傾向はみられないが,  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{H}^+$ ,  $\text{NH}_4^+$  の各イオンについては, 59年以降, 経年的にやや濃度が

表-8 イオン成分濃度の年平均値

( $\mu\text{g}/\text{ml}$ )

期 間	降 水 試 料	$\text{H}^+$	$\text{SO}_4^{2-}$	$\text{NO}_3^-$	$\text{Cl}^-$	$\text{NH}_4^+$	$\text{Ca}^{2+}$	$\text{Mg}^{2+}$	$\text{K}^+$	$\text{Na}^+$
昭和59年5月~60年4月	初期1mm目 (n=67)	0.038	6.95	3.68	5.82	1.54	1.82	0.42	0.15	2.21
	1降水 (n=67)	0.017	2.01	0.73	1.24	0.45	0.21	0.08	0.03	0.48
昭和60年5月~61年4月 (61年3.4月欠測)	初期1mm目 (n=46)	0.064	5.63	4.71	4.35	1.74	1.32	0.37	0.22	1.83
	1降水 (n=45)	0.021	1.56	0.98	1.30	0.41	0.13	0.09	0.05	0.57
昭和61年5月~62年4月 (61年5月欠測)	初期1mm目 (n=60)	0.076	7.79	6.27	6.23	1.99	1.46	0.36	0.11	1.86
	1降水 (n=63)	0.033	2.28	1.64	1.52	0.73	0.19	0.06	0.01	0.30
3ケ年の平均	初期1mm目 (n=173)	0.058	6.88	4.84	5.56	1.75	1.56	0.39	0.16	1.98
	1降水 (n=175)	0.023	1.95	1.10	1.35	0.53	0.18	0.08	0.03	0.45

高くなっている傾向がみられる。また、図-8にみられるように、 $(\text{SO}_4^{2-})/(\text{NO}_3^-)$ の比が経年的に小さくなる（ $\text{SO}_4^{2-}$ に比べ $\text{NO}_3^-$ が相対的に大きくなる）傾向がみられる。3年間のデータだけで $\text{NO}_3^-$ が増加してきていると判断することは危険ではあるが、我が国の場合、酸性雨の原因の主体が $\text{NO}_3^-$ であるとする報告が多数みられることから、この動向は今後大いに注目すべきことであると考えられる。

次に、1mm試料と一降水試料を比較してみると、3ヶ年の総平均の（1mm試料）／（一降水試料）比は、 $\text{Ca}^{2+}$  8.7,  $\text{K}^+$  5.3,  $\text{Mg}^{2+}$  4.9,  $\text{Na}^+$  4.4,  $\text{NO}_3^-$  4.4,  $\text{Cl}^-$  4.1,  $\text{SO}_4^{2-}$  3.5,  $\text{NH}_4^+$  3.3,  $\text{H}^+$  2.5 となり、イオンの種類によって初期降水水への取り込まれかたが異なり、かつ各イオン成分とも初期降水水に著しく取り込まれることがわかった。このことが、過去に幾度かみられた酸性雨による人身被害と関連すると考えられるので、長期的な影響評価を行う際に重要な意味をもつ一降水試料とともに、降り始めの降水についても観測を継続していくことは非常に意義のあることであると考えられる。

### 3-4-2 主要イオンの濃度別出現頻度

図-9に1mm降水水中の主要イオン成分の濃度別ヒストグラムを示す。

$\text{SO}_4^{2-}$ 濃度は2~4 $\mu\text{g}/\text{ml}$ の濃度範囲の頻度が最も高く、次いで6~8 $\mu\text{g}/\text{ml}$ 、4~6 $\mu\text{g}/\text{ml}$ のものが多かった。この3つの濃度域で全体の約65%を占めた。一方、12 $\mu\text{g}/\text{ml}$ 以上の高濃度のものも約10%みられた。

$\text{NO}_3^-$ 濃度は2~4 $\mu\text{g}/\text{ml}$ のものが最も頻度が高く、この濃度域を最高に0~6 $\mu\text{g}/\text{ml}$ の範囲で全体の73%を占めた。一方、10 $\mu\text{g}/\text{ml}$ 以上の濃度のものも約12%みられた。

$\text{Ca}^{2+}$ 濃度は0.5~1.5 $\mu\text{g}/\text{ml}$ のものが最も多く、0~2.5 $\mu\text{g}/\text{ml}$ の範囲で、全体の85%を占めた。一方、3 $\mu\text{g}/\text{ml}$ 以上の濃度のものも12%存在した。

$\text{NH}_4^+$ 濃度は0~1 $\mu\text{g}/\text{ml}$ のものが最も多く全体の43%を占め、4 $\mu\text{g}/\text{ml}$ 未満までで全体の91%を占めた。

$\text{Na}^+$ 濃度は全体的にバラツキが大きく0~0.5 $\mu\text{g}/\text{ml}$ のものを最高に、1 $\mu\text{g}/\text{ml}$ 未満までで全体の45%を占め、また、 $\text{Cl}^-$ 濃度は2~4 $\mu\text{g}/\text{ml}$ をピークに6 $\mu\text{g}/\text{ml}$ 未満までで全体の71%を占めた。

### 3-4-3 イオン成分濃度の季節変化

図-10に1mm試料についての、主要イオン成分の季節変化、また表-9にその季節別濃度を示す。

$\text{SO}_4^{2-}$ は季節別の平均値でみると春・夏に高く、冬に

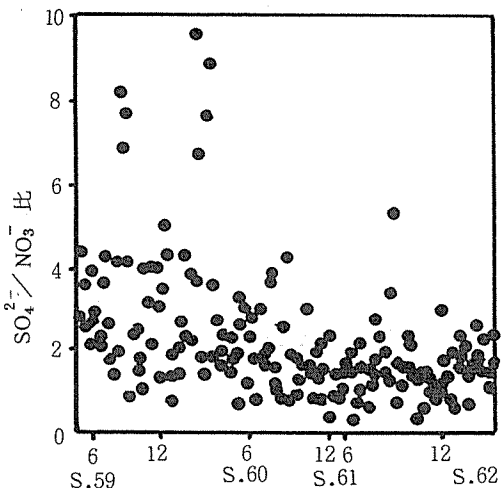


図-8  $\text{SO}_4^{2-}/\text{NO}_3^-$  比の時系列変化  
(一降水試料)

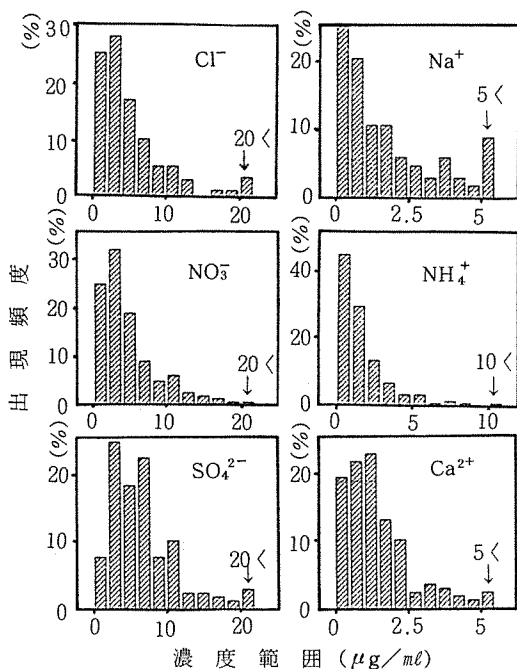


図-9 各イオンの濃度階級別出現割合

低い傾向がややみられ、また高濃度の試料が夏期(6~8月)に多く出現する傾向にある。前述したように12 $\mu\text{g}/\text{ml}$ 以上の濃度を示した試料は18試料(全体の10%)あったが、このうち10試料(56%)は6~8月に出現し

あとは春期（3～5月）に5試料（27%）、秋期（9～11月）に3試料（17%）となり、冬期（12～2月）は全く出現していない。また、この $12\mu\text{g}/\text{ml}$ 以上の濃度の時の試料の56%はpH 4以下の値を示した試料であった。

$\text{NO}_3^-$  濃度は、季節別の平均値で見ると季節変化は小さいが、夏期に比較的高い濃度の試料が多く出現する傾向にある。前述したように $10\mu\text{g}/\text{ml}$ 以上の試料は21試料（全体の試料の12%）あったが、このうち10試料（48%）が夏期に、7試料（33%）が秋期、3試料（14%）が春期にそれぞれ出現し、冬期は2月に1試料出現したにすぎない。

また、この $10\mu\text{g}/\text{ml}$ 以上の高い濃度の時の試料の71%はpH 4以下の値を示した試料であった。このように、夏期に、 $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$  濃度の比較的高い試料が多く出現するのは、夏期は、日射が強かつ気温が高いために $\text{SO}_x$ 、 $\text{NO}_x$ の酸化反応が促進されるためであると考えられる。

一方、 $\text{Ca}^{2+}$  濃度は $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$  と異なり四季の平均値では春期に濃度が高く、また、比較的高い濃度も多く出現し、 $3\mu\text{g}/\text{ml}$ 以上の試料21のうち、15試料（71%）が春期に観察された。このような傾向は全国的にみられるが、春の強い風による道路ダストや土壌のまいあがりおよび中国大陸から飛来する黄砂の影響が強く表われているためと考えられる。また、この $3\mu\text{g}/\text{ml}$ 以上の高い濃度の時の試料の62%は、pH 5以上の値を示す試料であった。

また、この他のイオン成分では、 $\text{Cl}^-$ は $\text{Na}^+$ の季節変化と非常に類似しており、春にやや高く、夏に低い傾向、 $\text{NH}_4^+$ は夏・秋に高く、冬に低い傾向にあった。

### 3-4-4 他地域との比較

図-11、図-12にそれぞれ関東地方公害対策推進本部大気汚染部会の調査<sup>5)</sup>、神奈川県共同調査結果<sup>7)</sup>を示す。

$\text{SO}_4^{2-}$  濃度は関東地方の調査では、長野県（ $1.0 \sim 2.14\mu\text{g}/\text{ml}$ ）が最も低く、東京湾岸地帯の川崎（18.1）千代田（16.8）、市原（10.3）、本市（10.2）で高い傾向であった。また、神奈川県調査では県西部に比べて、臨海部地域の川崎、本市中区で濃度が高かった。したがって、本市の降水中の $\text{SO}_4^{2-}$  濃度は関東地方では高いレベルにあり、特に臨海部で高いといえる。

$\text{NO}_3^-$  濃度は関東地方の調査では、東京湾岸地帯から関東平野の中央部で濃度が高く、また、神奈川県調査では、 $\text{SO}_4^{2-}$ とは異なり臨海部より県西部で濃度が

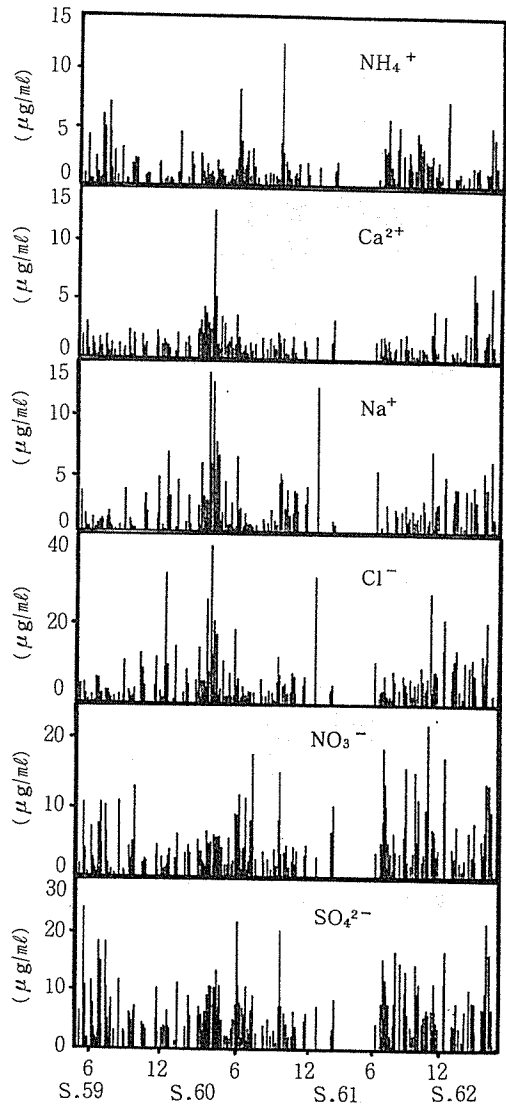


図-10 各イオン成分の季節変化

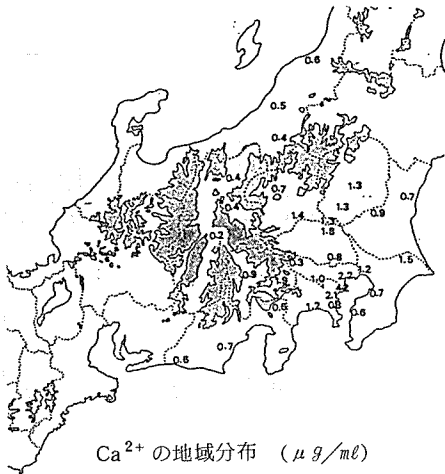
表-9 初期1mm降水の季節別濃度 ( $\mu\text{g}/\text{ml}$ )

季節	$\text{SO}_4^{2-}$	$\text{NO}_3^-$	$\text{Cl}^-$	$\text{NH}_4^+$	$\text{Ca}^{2+}$	$\text{Na}^+$	$\text{Mg}^{2+}$	$\text{K}^+$
春	8.19	4.48	7.47	1.29	2.76	3.22	0.63	0.19
夏	7.07	4.93	3.18	1.99	0.96	0.97	0.22	0.11
秋	6.42	5.51	5.92	2.13	1.23	2.06	0.36	0.16
冬	5.42	3.99	7.88	1.21	1.73	2.54	0.48	0.19

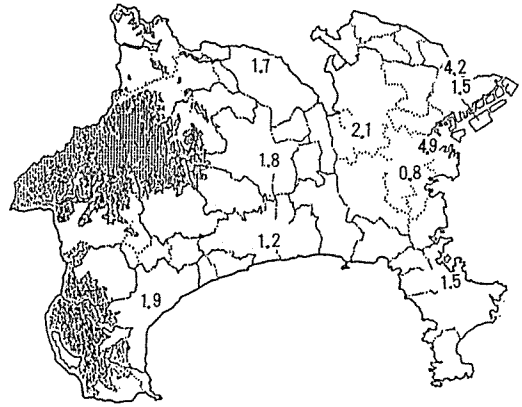
高い傾向にあった。したがって、本市の降水中の $\text{NO}_3^-$  濃度は関東地方では高いレベルに属し、本市の中では都市部よりむしろ郊外で高いと推測される。

$\text{Ca}^{2+}$  濃度は関東地方の調査では、東京湾岸地帯の

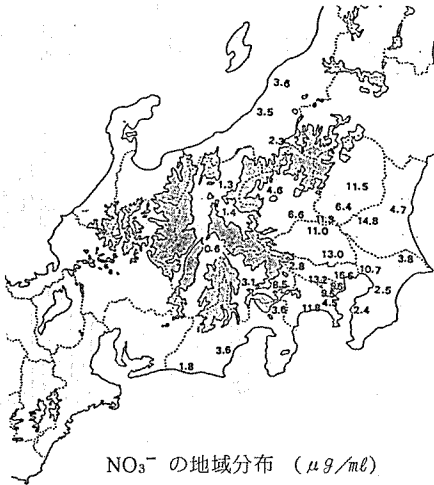




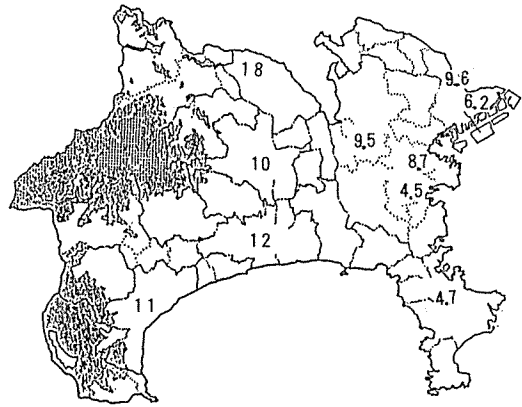
Ca<sup>2+</sup>の地域分布 (μg/ml)



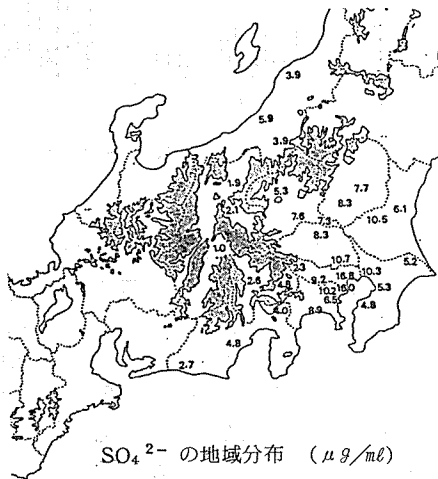
Ca<sup>2+</sup>の地域分布 (μg/ml)



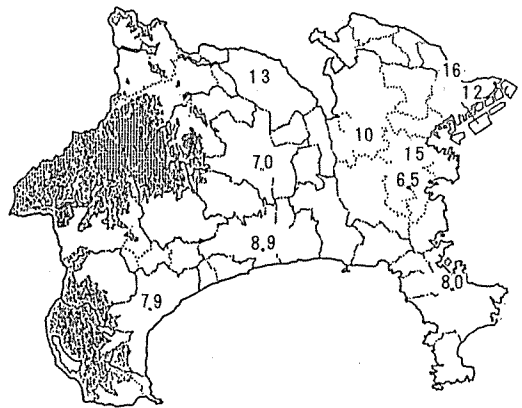
NO<sub>3</sub><sup>-</sup>の地域分布 (μg/ml)



NO<sub>3</sub><sup>-</sup>の地域分布 (μg/ml)



SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の地域分布 (μg/ml)



SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の地域分布 (μg/ml)

図-11 関東甲信越静地域のイオン成分濃度  
(昭和60年6月17日～28日における初期1mm目の  
の平均値)

図-12 神奈川県におけるイオン成分の調査結果  
(昭和60年6月17日～28日における初期1mm目の  
の平均値)

川崎、千代田、で高く、また、神奈川県調査では、県西部に比較し、臨海部で高い傾向にあった。なお、これらの調査時期はいずれも梅雨期であることから、 $\text{Ca}^{2+}$  が東京湾地帯で高くなる原因は主に道路ダストによるものとみられる。以上から、本市の降水中の  $\text{Ca}^{2+}$  濃度は関東では高いレベルに属し、特に臨海部で高いレベルにあるといえる。

### 3-5 イオン成分の降下量

イオン成分降下量は一降水試料の成分濃度と降水量の積による求めた。なお、検討に供した降水量は、図-13にみられるように横浜地方気象台（測定地点から4km離れている）における降水量とはほぼ一致していることからその降下量は十分その地域を代表するものと考えられる。

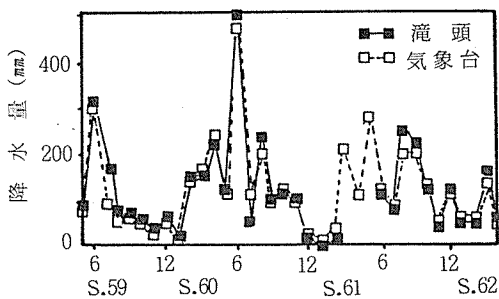


図-13 降水量の季節変化

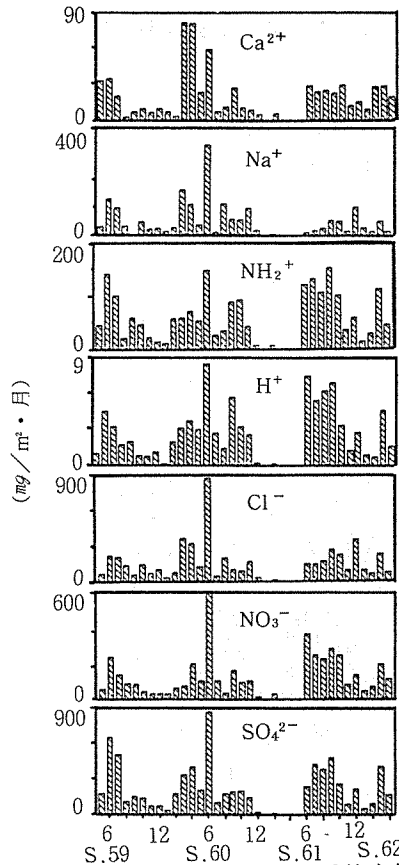


図-14 イオン成分降下量の季節変化  
(昭和61年3月～5月は欠測)

表-10 降水によるイオン成分の降下量

測定期間	降水量	$\text{H}^+$	$\text{SO}_4^{2-}$	$\text{NO}_3^-$	$\text{Cl}^-$	$\text{NH}_4^+$	$\text{Ca}^{2+}$	$\text{Mg}^{2+}$	$\text{K}^+$	$\text{Na}^+$	$\text{SO}_4^{2-}$ xs	$\text{Cl}^-$ xs	$\text{Ca}^{2+}$ xs
	mm	$\text{mg}/\text{m}^2\cdot\text{年}$	$\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{年}$										
昭和59年5月～60年4月	1403	23.6	2.82	1.03	1.73	0.64	0.29	0.12	0.05	0.68	2.65	0.50	0.26
昭和60年5月～61年4月 (3,4月欠)	1263	27.2	1.98	1.24	1.64	0.52	0.17	0.11	0.07	0.72	1.80	0.34	0.14
昭和61年5月～62年4月 (5月欠)	1230	40.7	2.81	2.02	1.87	0.89	0.23	0.08	0.01	0.37	2.72	1.20	0.22
3ヶ年の平均	1299	30.5	2.53	1.43	1.75	0.68	0.23	0.10	0.04	0.59	2.38	0.68	0.21

Xxsはその成分の非海塩起源を示す。

表-11 各成分の降水による季節別平均降下量

( $\text{mg}/\text{m}^2\cdot\text{季節}$ )

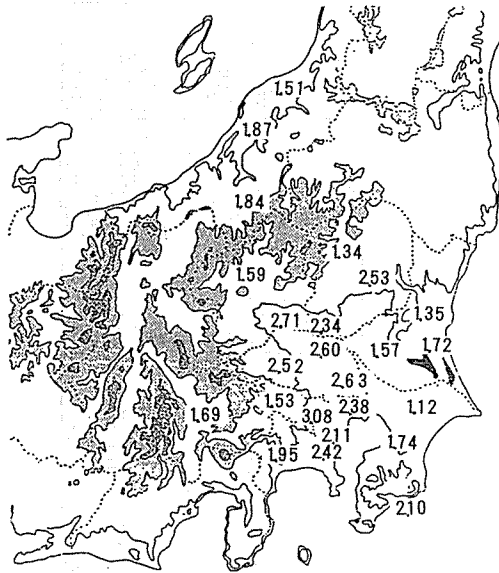
季節	降水量	$\text{H}^+$	$\text{SO}_4^{2-}$	$\text{NO}_3^-$	$\text{Cl}^-$	$\text{NH}_4^+$	$\text{Ca}^{2+}$	$\text{Mg}^{2+}$	$\text{K}^+$	$\text{Na}^+$
春(2)	398	8.4	847	365	581	189	131	40	9	200
夏(3)	589	11.3	1150	667	701	274	69	44	21	252
秋(3)	285	8.7	576	372	397	210	42	19	13	129
冬(3)	150	2.5	231	136	251	64	26	11	2	72
夏/冬	3.9	5.4	-5.0	4.9	2.8	4.3	2.7	4.0	10.5	3.5

注) ( ) 内は、例えば春(2)は、59年5月～62年4月までの期間で、3月～5月が2回あったことを示す。

### 3-5-1 イオン成分の年降下量

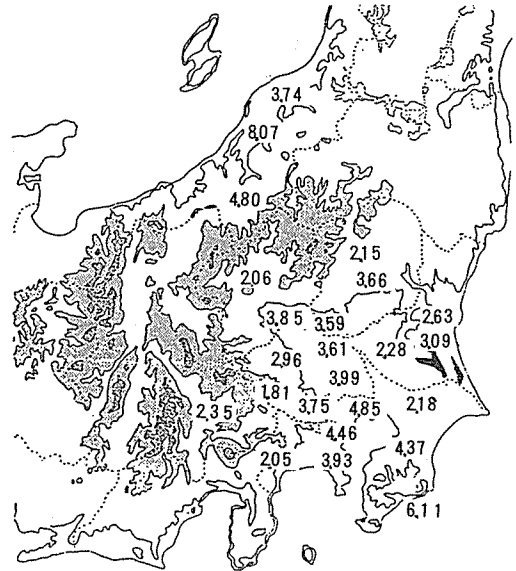
表-10に各イオンの年降下量を示す。3ヶ年の平均値で、各イオン成分の降下量を比較すると、 $\text{SO}_4^{2-}$ が最も多く以下、 $\text{Cl}^- > \text{NO}_3^- > \text{NH}_4^+ > \text{Na}^+ > \text{Ca}^{2+} > \text{Mg}^{2+} > \text{K}^+ > \text{H}^+$ の順に多かった。

60.61年と欠測期間があるので、経年的な降下量の比較は困難であるが、 $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{H}^+$ 降下量が59年以降経年的に多くなる傾向がみられる。また、酸性降水の主因である $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{SO}_4^{2-}$ の降下量の推移を比較すると、 $(\text{SO}_4^{2-}/\text{NO}_3^-)$ 比が小さくなる特徴がみられる。



単位：g/m<sup>2</sup>・年

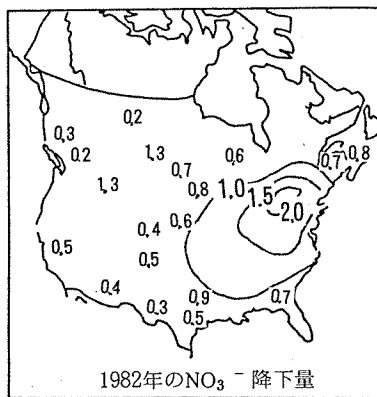
$\text{NO}_3^-$ の年間降下量



単位：g/m<sup>2</sup>・年

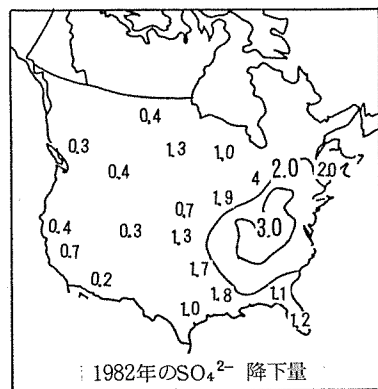
$\text{SO}_4^{2-}$ の年間降下量

図-15 関東地方の $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ の年降下量



1982年の $\text{NO}_3^-$ 降下量

(数値一部省略)



1982年の $\text{SO}_4^{2-}$ 降下量

(数値一部省略)

図-16 北米における $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ の年降下量 (g/m<sup>2</sup>・年)

### 3-5-2 イオン成分降下量の季節変化

表-11に、3年間のイオン成分降下量を季節別に整理したものを示す。また、図-14に、 $H^+$ および $SO_4^{2-}$ 、 $NO_3^-$ 、 $Ca^{2+}$ の降下量の季節変化を示す。

$Ca^{2+}$ を除いて各成分とも季節的にみてその降下量は夏に多く、冬に低い傾向を示し、降水量と強い関係がみられた。これらの成分の夏期/冬期の比は、表-11に示すように、 $H^+$ (5.4倍)、 $SO_4^{2-}$ (5.0)、 $NO_3^-$ (4.9)、 $Cl^-$ (2.8)、 $NH_4^+$ (4.3)、 $Mg^{2+}$ (40)、 $Na^+$ (3.5)、 $K^+$ (10.5)となり夏期における降下量が非常に大きかった。一方 $Ca^{2+}$ の降下量は冬期に少なく、春に多かった。この特徴は降水量の季節変化に伴って降下量が変動する $SO_4^{2-}$ 、 $NO_3^-$ とは異なり、 $Ca^{2+}$ は季節的な濃度変化が他のイオンに比べて大きいこと、および前述したように(1mm試料)/(1降水試料)比が最も大きく、降り始めに比べ、後続降水ではきわめて低濃度となる成分であるため、降水量との相関が小さいものと考えられる。

### 3-5-3 他地域との比較

図-15に酸性雨対策検討会大気分科会がとりまとめた昭和59年9月~60年8月の関東甲信越地域の調査結果<sup>4)</sup>(採取方法はバルク法)を示す。

$SO_4^{2-}$ の降下量は千代田(4.85g/m<sup>2</sup>年)川崎(4.46)市原(4.37)等の東京湾岸地帯で最も多く、次いで関東平野中央部の都市域、その西部山間部の順となっている。本市における $SO_4^{2-}$ の降下量は3.93g/m<sup>2</sup>で関東地方では高いレベルにある。

$NO_3^-$ の降下量は $SO_4^{2-}$ の降下量の分布とやや異なり、東京湾岸地帯(2.1~2.4g/m<sup>2</sup>年)より、関東平野中央部(2.3~2.6g)でやや多く、山間部(1.3~1.6)で少ない。本市の $NO_3^-$ は2.4g/m<sup>2</sup>・年で、関東地方では高いレベルに属する。

なお参考までに図-16に、昭和57年、北米における $SO_4^{2-}$ 、 $NO_3^-$ の降水による年降下量の調査結果を示す。

$SO_4^{2-}$ 、 $NO_3^-$ の年降下量は、いずれも西部に比べ、東部で多く、 $SO_4^{2-}$ 、 $NO_3^-$ の降下量の極大地域はほぼ重なっている。 $SO_4^{2-}$ 、 $NO_3^-$ の極大地域の年降下量はそれぞれ(3g/m<sup>2</sup>年、2.8g/m<sup>2</sup>年)である。本市の降水による $SO_4^{2-}$ 、 $NO_3^-$ の降下量は前述したように、3年間の観測で $SO_4^{2-}$ 降下量は2~2.8g/m<sup>2</sup>・年、 $NO_3^-$ 降下量は1~2g/m<sup>2</sup>・年であり、 $SO_4^{2-}$ 、 $NO_3^-$ ともに、北半の極大地域と同レベルないしはやや低いレベルにあるといえる。

## 4. ま と め

横浜地域における近年の降水データをまとめ、次の知見を得た。

- (1) 昭和59年5月~62年4月の3年間に採取した一降水試料(175試料)の平均pHは4.63このうち、pH5.65以下のいわゆる酸性雨の割合は96.0%であった、また、同期間中に採取した降水初期1mm目試料(173試料)の平均pHは4.24、このうち酸性雨の割合は83.1%であった。
- (2) 横浜地域においては、降水のpHに地域差はほとんどなかった。
- (3) 横浜地域における降水のpHは、全国的にみて比較的低いレベルであった。
- (4) 降水初期1mm目の $SO_4^{2-}$ 、 $NO_3^-$ は夏期に高い濃度の試料が多くみられ、また、 $Ca^{2+}$ は春期に高い濃度の試料が多くみられた。
- (5) 降水初期1mm目の試料について本市と関東地域とを比較すると、本市の $SO_4^{2-}$ 、 $NO_3^-$ 、 $Ca^{2+}$ は関東地方ではともに高い濃度レベルにあり、特に本市の臨海部は $SO_4^{2-}$ 、 $Ca^{2+}$ の濃度が高かった。
- (6) wet deposition(湿性降下物)について、そのなかに含まれる各イオンを分析した結果、 $H^+$ 、 $SO_4^{2-}$ 、 $NO_3^-$ の降下量は降水量と相関があり、降水量の多い夏に多く、降水量の少ない冬に少なかった。

## 文 献

- (1) 草野 一、渡辺善徳、鶴田治雄：酸性降水に関する調査研究(第1報) - 横浜市における酸性降水の現状、横浜市公害研究所報、第9号、39-49(1984)
- (2) 草野 一、渡辺善徳、鶴田治雄：酸性降水に関する調査研究(第4報) - 酸性降下物の環境への負荷、横浜市公害研究所報、第11号、17-27(1986)
- (3) 日本気象協会横浜支部：神奈川県気象月報、(1985)
- (4) 酸性雨対策検討会大気分科会：酸性雨対策調査中間報告書(1987.3)
- (5) 関東地方公害対策推進本部大気汚染部会 一部三県公害防止協議会：昭和60年度湿性大気汚染調査報告書(1987.3)
- (6) 神奈川県環境部：昭和61年度湿性大気汚染(酸性雨)調査結果
- (7) 神奈川県環境部：昭和60年度湿性大気汚染(酸性雨)調査結果

## ダスト測定における非等速吸引の影響 (II)

— タルク粒子及び吸引流速が一定の場合 —

佐俣 満夫\*

## 要 旨

前報<sup>1)</sup>では、ダクト内流速を一定とし吸引流速を変化させた場合のフライアッシュ粒子による非等速吸引の影響について考察した。今回は、タルク粒子による実験を行うと共に、吸引流速が一定でダクト内流速が変化する場合について実験した。これより次の知見が得られた。

- (1) ダクト内流速： $V_0$ 、吸引流速： $V_s$ 、ダクト内ダスト濃度： $C_0$ 、非等速吸引によるダスト濃度： $C_s$ とすると、タルク粒子を使用した場合でもフライアッシュ同様非等速吸引の誤差は、 $C_s/C_0 = \alpha (V_0/V_s) + (1 - \alpha)$ で表された。
- (2) 吸引流速を一定とし、ダクト内流速を変化させた場合 $V_0/V_s < 1$ の範囲では $C_s/C_0$ の値の1からの偏差は小さく、 $V_0/V_s > 1$ では漸次大きくなった。
- (3) フライアッシュ及びタルク粒子を使用した結果、次のような新たな評価式を得た。

$$C = \alpha V + (1 - \alpha)$$

$$\text{ただし、} C = \frac{C_s}{C_0} \quad \alpha = \frac{(5V+3) Sk^2}{1 + (5V+3) Sk^2}$$

$$V = \frac{V_0}{V_s} \quad Sk = \frac{Dp^2 \rho_p V_0}{9 \mu Dn}$$

## 1. はじめに

近年、煙道中のダスト濃度測定において、連続自動測定法あるいは簡易測定法等の必要性が論議されているが、それらの方法の基礎としてダスト測定での非等速吸引による影響を理論的に説明することは、ますます重要となってきている。そこで前報<sup>1)</sup>において、JIS 10種 フライアッシュ粒子を用いた非等速吸引の影響について報告した。しかし、非等速吸引の影響は、粒子の形、大きさ、その他の特性、あるいは煙道や吸引による条件によって変化すると考えられ、さらに異なった種類の粒子について種々の条件で実験する必要がある。また前回は、実験ダクトのダクト内流速を一定とし、吸引流速を変化させたが、実際の煙道で

は逆に吸引流速を一定にしても、煙道中の流速が変化する場合やどのような煙道流速でも一定の吸引流速で吸引する必要のある場合などがあり、このようなケースについて検討及び解析を行っておく必要がある。

そこで、今回は、前報で得られた知見をもとにしてJIS 9種 タルク粒子を用いて前回と同様の実験を行うとともに、吸引流速を6 m/sに固定し、ダクト内流速を3~11 m/sに変えた場合の実験をフライアッシュとタルク粒子について行い、合わせて非等速吸引に関する理論的解析を試みたので報告する。

## 2. 実験ダクト及び実験方法

使用した実験ダクトは前報の実験で使用したものと

Errors for anisokinetic sampling on dust sampling (Report II)

\* Mitsuo Samata 横浜市公害研究所大気部門

同じ装置を用いた。この装置はダクト内径310 mmでダクト内流速1~15m/s,ダスト濃度5~300mg/m<sup>3</sup>の範囲で粉体を安定して供給できる。またダストの採取は前報と同様に行ったが,今回使用したタルク粒子が盤状結晶粒子であるため吸引流速の調整によるバラツキが生じ,そのため,今回は自動吸引流量調整装置を用いた。

実験条件は,ダクト内流速V<sub>0</sub>を一定とし,吸引流速V<sub>s</sub>を変化させる実験では,前回同様,ダクト内流速は5,7.5,10 m/sとし,吸引流速比は0.25<V<sub>0</sub>/V<sub>s</sub><2.0の範囲とした。また使用したノズル径も前回同様4~10mmのノズルをそれぞれ使用した。ダスト濃度について前報<sup>1)</sup>の知見をもとづき,ダクト内のダスト濃度の影響はほとんどみられないことから,50mg/m<sup>3</sup>一定とした。なお,使用した粉体は,前回は球状のフライアッシュであったが,今回はそれよりかなり形状の異なった盤状粒子としてタルク粒子を選び,JIS 9種タルクを使用した。

また,吸引流速を一定とし,ダクト内流速を変化させる実験では,吸引流速は6 m/s一定とし,ダクト内流速は3~11 m/sとした。また使用した粉体はJIS 10種フライアッシュとJIS 9種タルク粒子を用いた。さらにダスト濃度は50mg/m<sup>3</sup>一定とした。

### 3. 結果と考察

#### 3-1 ダクト内での粒径分布

アンダーセンサンプラーを用いてダクト内流速V<sub>0</sub>=5,7.5,10 m/sで測定したタルク粒子の粒径分布を図-1に示す。これより重量中位径(MMD)がV<sub>0</sub>=5 m/sで3.8 μm,7.5及び10 m/sで3.1 μmであり,粒径分布は0.5~15 μm程度に分布していた。またタルク粉体を遠心沈降光透過法を用いて粒径分布を測定したところMMDは3.46 μmであった。これらのことより,気流中で分散しているタルク粒子もタルク粉体そのもののMMDもほぼ一致していることがわかり,実験したダクト内流速範囲では粒子はよく分散しているものと思われた。またタルク粒子の真比重は,液相置換法を用いた真比重測定器による測定の結果,2.85であり,以下の考察では真密度としてこの値を用いた。

#### 3-2 ダクト内流速を一定とした実験

タルク粒子を用いてダクト内流速V<sub>0</sub>を一定とし,V<sub>s</sub>を0.25<V<sub>0</sub>/V<sub>s</sub><2の範囲で変化させた場合の実験結果について以下述べる。

##### 3-2-1 吸引流速比とダスト濃度比の関係

ダクト内でのダスト濃度をC<sub>0</sub>,非等速吸引によるダ

スト濃度をC<sub>s</sub>,ダクト内流速をV<sub>0</sub>,非等速吸引による吸引流速をV<sub>s</sub>とし,前報<sup>1)</sup>同様C<sub>s</sub>/C<sub>0</sub>とV<sub>0</sub>/V<sub>s</sub>について整理し図示すると,図-2~4のようになり,タルク粒子の場合も良い直線関係が認められ,さらに相関係数rも0.97以上とフライアッシュの場合より高かった。これより次式が得られた。

$$\frac{C_s}{C_0} = \alpha \frac{V_0}{V_s} + F \dots\dots(1)$$

ここでα, F, rについてフライアッシュ(前報)の場合と比較して表-1に示す。V<sub>0</sub>/V<sub>s</sub>=1のとき,C<sub>s</sub>/C<sub>0</sub>もほぼ1となり,測定点による濃度差は,フライアッシュの場合より少なく,ほぼ無視できるものとして次式でまとめられた。

$$\frac{C_s}{C_0} = \alpha \frac{V_0}{V_s} + (1 - \alpha) \dots\dots(2)$$

これより,フライアッシュ及びタルクはともに非等速吸引の影響については,(2)式で評価できることがわかった。ここで,C<sub>s</sub>/C<sub>0</sub>はV<sub>0</sub>/V<sub>s</sub>とαによって定まることになり,前報ではαを吸引パラメータと呼んだが以後はDavies(1982)<sup>7)</sup>にならいαを慣性関数(inertia function)と呼ぶことにする。さらに,表-1より同じダクト内流速でのタルクによるαの値とフライアッシュによるαの値とを比較すると,フライ

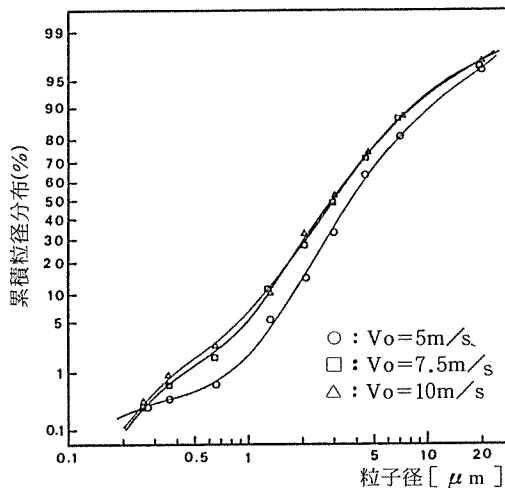


図-1 タルク粒子の粒径分布

表-1  $Cs/Co = \alpha (Vo/Vs) + F$ における各係数

粒子	ダクト内流速 (m/s)	ダスト濃度 (mg/m <sup>3</sup> )	$\alpha$	F	相関係数 r	サンプル数
タルク	10	50	0.400	0.602	0.986	26
	7.5	50	0.340	0.647	0.985	33
	5	50	0.223	0.777	0.971	22
*フライアッシュ	10	120	0.277	0.669	0.985	15
	10	50	0.252	0.696	0.979	15
	10	10	0.246	0.708	0.993	15
	7.5	50	0.218	0.677	0.962	22
	5	100	0.209	0.757	0.982	22
	5	50	0.214	0.762	0.954	38
	5	10	0.201	0.777	0.990	19

\*前報で報告済み

アッシュの場合より、タルクの方がダクト内流速 5 m/s でおよそ1.1倍、7.5及び10m/sで1.6倍高い値が得られた。

### 3-2-2 各種の評価式との比較

非等速吸引による影響については、従来より多くの研究者により研究されているが、ここでは、前報同様 Davies<sup>2)</sup>, Badzioch<sup>3)</sup>, Watson<sup>4)</sup>, Belyaev<sup>5)</sup>, Selden<sup>6)</sup>らの評価式 (Appendix 1~4: 参照) と今回の結果とを比較検討する。なお、ここでは各評価式との比較のために粒子径はMMDで代表し、ノズル径は等速吸引で用いたノズル径 (Vo=5, 7.5, 10m/sで、ノズル径はそれぞれ8, 8, 6mm) で代表することとする。

実験結果と各評価式との比較を図-5~7に示す。フライアッシュの場合は、Davies式が比較的一致していたが、タルクの場合は、Davies式ではVo=5m/sで一致したが、7.5m/sでは若干異なり、10m/sではVo/Vs < 1 でほぼ一致した。

またBelyaev及びSelden式は、ほぼ同じ傾向がみられ、ともにVo=5m/sではVo/Vs > 1 で一致し、7.5及び10m/sではVo/Vs < 1 でほぼ一致した。さらに、Belyaev及びSelden式はフライアッシュでも同様であるが、Vo/Vs < 0.5になるとCs/Coが急に小さくなり、実験値から外れる傾向がみられた。

Badzioch及びWatson式では、フライアッシュの場合と同様に今回の実験でも他の評価式に比べて異なった傾向を示した。

これらより今回の解析でも、粒子径にMMDを用い、ノズル径に代表値を用いた場合、フライアッシュと同様に各評価式中Davies式が比較的良好一致を示した。しかし前報の解析と同様に実際に使用されたノズル径 (4~10mm) をそれぞれ用い、それを近似させた曲線と実験値とを比較すると、図-8に示すようにVo=

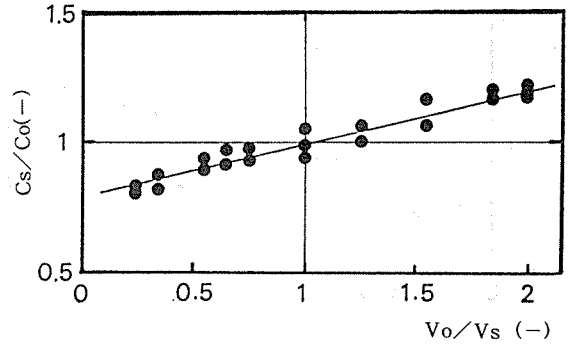


図-2 ダクト内流速 5m/s,ダスト濃度 50mg/m<sup>3</sup>での実験結果 (タルク)

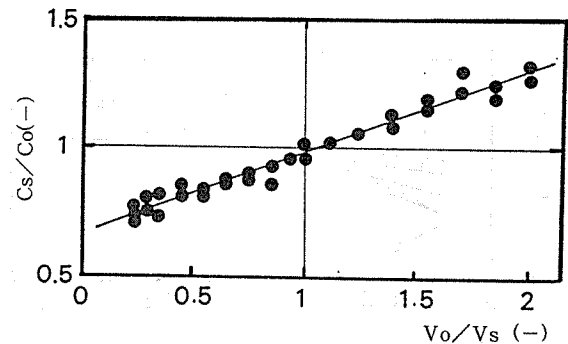


図-3 ダクト内流速 7.5m/s,ダスト濃度 50mg/m<sup>3</sup>での実験結果 (タルク)

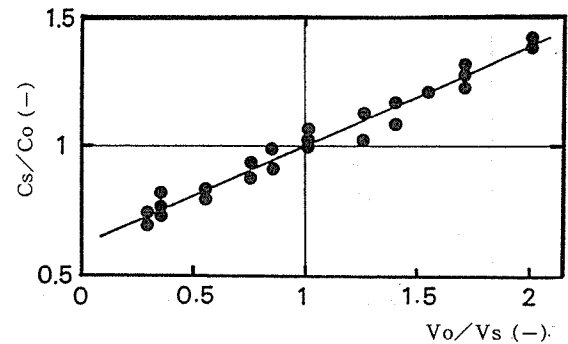


図-4 ダクト内流速 10m/s,ダスト濃度 50mg/m<sup>3</sup>での実験結果 (タルク)



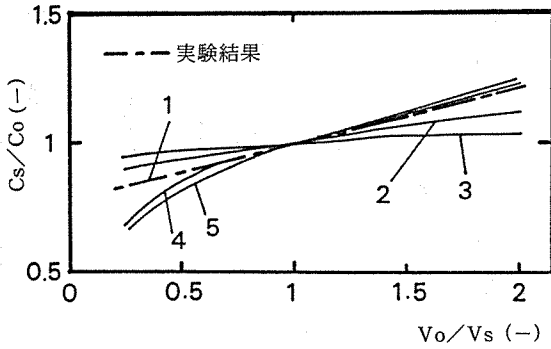


図-5 各評価式と実験結果との比較  
( $V_0=5 \text{ m/s}$ )  
1: Davies式 4: Belyaev式  
2: Badzioch式 5: Selden式  
3: Watson式

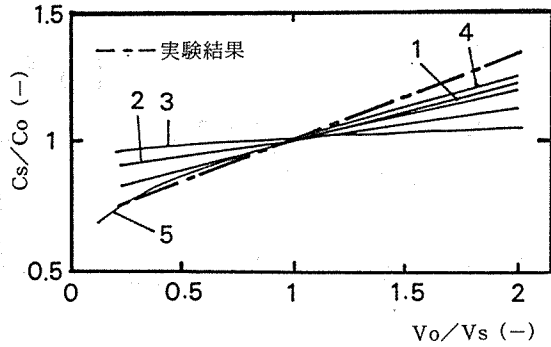


図-6 各評価式と実験結果との比較  
( $V_0=7.5 \text{ m/s}$ )  
1: Davies式 4: Belyaev式  
2: Badzioch式 5: Selden式  
3: Watson式

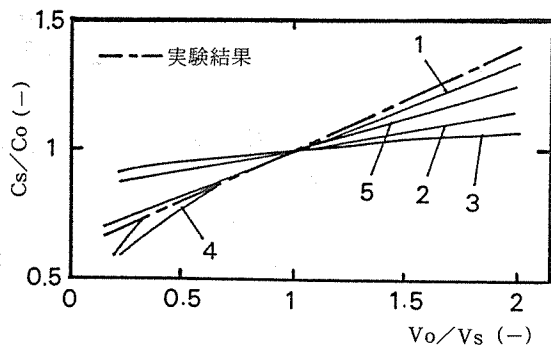


図-7 各評価式と実験結果との比較  
( $V_0=10 \text{ m/s}$ )  
1: Davies式 4: Belyaev式  
2: Badzioch式 5: Selden式  
3: Watson式

7.5m/s以外の例えば $V_0=10\text{m/s}$ の場合でも実験値と若干異なる傾向が見られた。

### 3-2-3 本実験シリーズによって新たに導かれた評価式

ノズル径 $D_n$ を変えるとDavies式でも実験値と一致しなくなることから、前報では、粒子径 $D_p$ に重量中位径を用い、 $D_n$ の変化にも良く一致する(3)式を導いた。

$$C = \alpha V + (1 - \alpha) \dots\dots\dots(3)$$

ただし、 $C = \frac{C_s}{C_o}$  ,  $V = \frac{V_0}{V_s}$

$$\alpha = \frac{(5V + A) Sk^2}{1 + (5V + A) Sk^2}$$

$$Sk = \frac{D_p^2 \rho_p V_0}{9 \mu D_n}$$

$$A = -0.32V_0^2 + 4.4V_0 - 10$$

しかし、(3)式はタルクでは、かならずしも一致せずそこで新たにシミュレートした結果、 $0.25 < V_0/V_s < 2$ の範囲で(3)式を改良して $A=3$ とすることにより、フライアッシュでもタルクでもほぼ一致する(4)式を新たに導いた。

$$C = \alpha V + (1 - \alpha) \dots\dots\dots(4)$$

ここで、 $C = \frac{C_s}{C_o} \dots\dots\dots(4-1)$

$$V = \frac{V_0}{V_s} \dots\dots\dots(4-2)$$

$$\alpha = \frac{(5V + 3) Sk^2}{1 + (5V + 3) Sk^2} \dots\dots\dots(4-3)$$

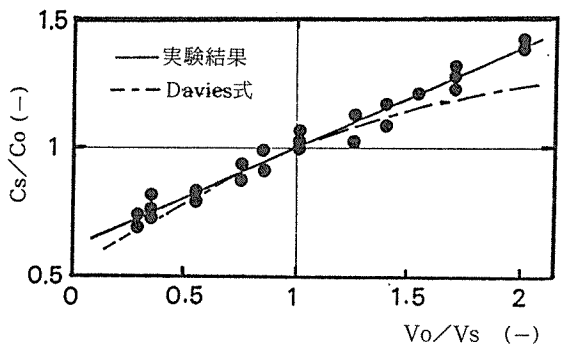


図-8 各 $D_n$ を用いて計算したDavies式と実験結果との比較 (タルク,  $V_0=10 \text{ m/s}$ )

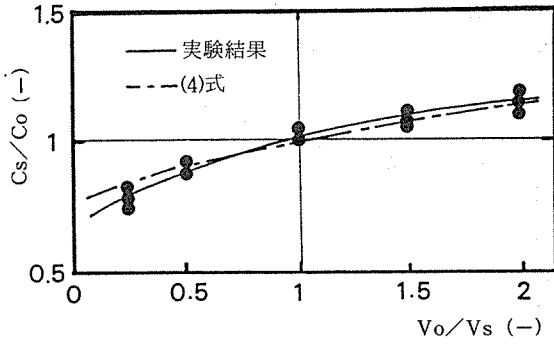


図-9 実験結果と(4)式との比較  
(フライアッシュ,ダクト内  
流速7.5m/s,ダスト濃度  
50mg/m<sup>3</sup>)

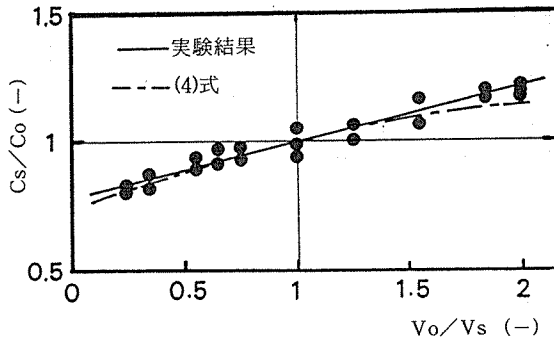


図-10 実験結果と(4)式との比較  
(タルク,ダクト内流速5m/s,  
ダスト濃度50mg/m<sup>3</sup>)

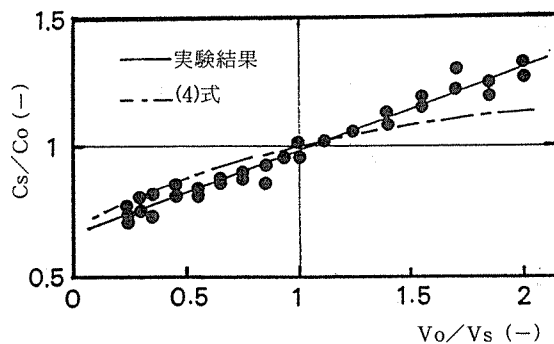


図-11 実験結果と(4)式との比較  
(タルク,ダクト内流速7.5m/s,  
ダスト濃度50mg/m<sup>3</sup>)

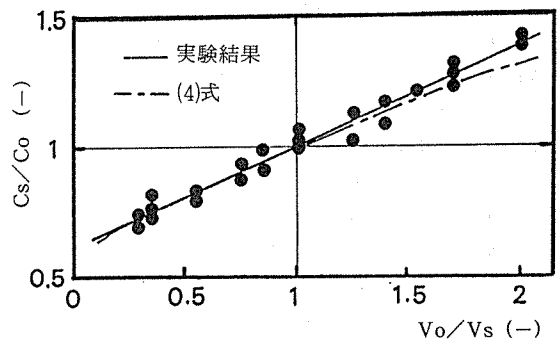


図-12 実験結果と(4)式との比較  
(タルク,ダクト内流速10m/s,  
ダスト濃度50mg/m<sup>3</sup>)

$$Sk = \frac{Dp^2 \rho_p V_o}{9\mu Dn} \dots\dots\dots (4-4)$$

これは、(3)式のAの値はVoの関数となっているが、むしろ定数=3とした方が広範囲に使えることがわかった。そこで実験結果と(4)式の比較例をフライアッシュは図-9、タルクについては図-10~12に示す。

図-11はタルク粒子のVo=7.5m/sの場合であるが他の評価式同様(4)式でもかならずしも一致しないが、(4-3)式中の(5V+3)の項を(15V+1)に置き換えると一致する。これについては、実験条件を含め今後詳細に検討する必要がある。

しかし、(4)式は粒子形状の異なったフライアッシュとタルクについて共に一致することから、かなり広範囲に使用できるものと考えられる。

### 3-3 吸引流速を一定とした実験

3-2では、吸引流速を変化させた場合について考察したが、ここでは、吸引流速が一定でダクト内流速を変化させた場合について述べる。

#### 3-3-1 フライアッシュとタルクの 実験結果

ダクト内ダスト濃度を50mg/m<sup>3</sup>、Vs=6m/sに一定してVoを3~11m/sの範囲で変え、0.5 < Vo/Vs < 1.83の範囲で、フライアッシュ及びタルク粒子のそれぞれについて実験した結果を図-13、14に示す。この条件での実験は、ダスト濃度を一定に保ち、順次ダクト内流速を変えて行うため、実験操作も繁雑となり、実験値はVoを一定とする場合に比べて、多少バ

ラツキが大きくなる傾向がみられた。特に、 $V_o/V_s < 1$  では、条件が難しく、精度を高めることは困難だった。しかし、図-13, 14に示すように、フライアッシュ及びタルクではともに $V_o/V_s = 1$  を境に異なった傾向を示しており、 $V_o/V_s < 1$  では $C_s/C_o$ の幅は0.85~1と小さいが、 $1 < V_o/V_s < 2$  では $C_s/C_o$ は1~1.4と漸次大きくなる。このことは、煙道中でダストをサンプリングする場合煙道中の流速が等速吸引流速より小さくなくても、そのダスト濃度の誤差は比較的小さいが、煙道中の流速が大きくなるとその濃度誤差は急激に大きくなることを示している。そして、この場合は $V_o$ を一定とする場合と異なり $C_s/C_o$ と $V_o/V_s$ との関係は直線とはならない。

### 3-3-2 本研究による評価式とDavies式の適用

非等速吸引での理論的解析において、 $V_o$ 及び $V_s$ のどちらが変化してもダクト内の粒子に関する動力学的相似則は変わらないものとするれば、3-2で述べた評価式は $V_o$ を変えた実験でも同じく適用されるはずである。

そこで、(4)式とDavies式について、本実験結果での比較を図-13, 14に示した。これより、フライアッシュ及びタルクともに $V_o/V_s > 1$ では、得られた実験結果の信頼性が高かったのでDavies式より(4)式の方が比較的一致した傾向がみられたが、 $V_o/V_s < 1$ では評価することが困難であった。これは、先に述べたように0.5  $< V_o/V_s < 1$ の範囲では実験によるバラツキが大きくなり、(4)式及びDavies式による曲線と実験値の差を判別するのが難しいためである。しかし、(4)式とDavies式の比較では、(4)式では $V_o/V_s < 1$ で $C_s/C_o$ の値は、ほぼ1に近い(最小0.95程度)が、Davies式では $V_o/V_s$ が0.5前後で最小となり、 $C_s/C_o$ はほぼ0.9である。また、 $V_o/V_s > 1$ では $V_o/V_s$ が大きくなるほど(4)式の $C_s/C_o$ の値がDavies式のそれより大きくなる傾向を持っている。また、Davies<sup>7)</sup>(1982)は、 $0 < V_o/V_s < 1$ の範囲で、新たなDavies(2)式を提案している(Appendix 5参照)。これと実験値との比較とを図-15に示すが、フライアッシュもタルクもともに今回の実験値と異なっていた。これはDavies(2)式の実験条件と今回の実験条件の相違によるものと思われる。

しかし、総じて本実験結果から(4)式とDavies式との良否を推定することは難しく、むしろ両式ともこの条件下では、ほぼ実験値と一致した傾向を持つものと判断された。

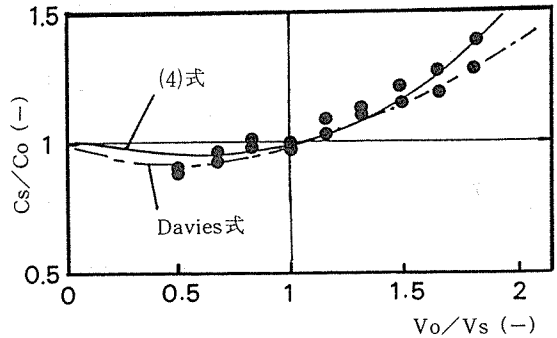


図-13  $V_s=6\text{m/s}$ 一定として $V_o$ を変化させた実験による実験結果と(4)式及びDavies式との比較  
(フライアッシュ,ダスト濃度  $50\text{mg/m}^3$ )

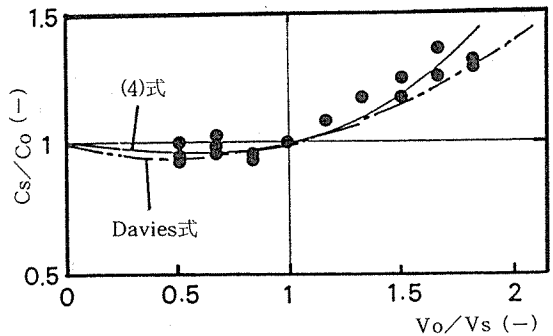


図-14  $V_s=6\text{m/s}$ 一定として $V_o$ を変化させた実験による実験結果と(4)式及びDavies式との比較  
(タルク,ダスト濃度  $50\text{mg/m}^3$ )

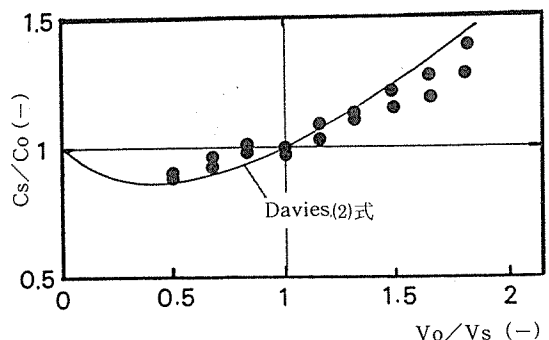


図-15  $V_s=6\text{m/s}$ 一定として $V_o$ を変化させた実験による実験結果とDavies(2)式との比較  
(フライアッシュ,ダスト濃度  $50\text{mg/m}^3$ )

### 3-4 静止空間及び高速気流中での ダストサンプリングへの推定

静止空間での粒子のサンプリングは、大気環境中のサンプリングを考察する上で重要であることから、種々の研究がなされている。またMHD発電のように排ガスを高流速で流す技術が開発されつつある現在、50m/s以上の高速流体中でのサンプリングについても考える必要性が生じつつある。そこで、ここではこれまでに得られた結果から静止空間及び高速気流を仮定し単純に評価式の流速 $V_0$ を変化させて、これらの問題について一定の考察を試みた。

(4)式及びDavies式において $V_0 \rightarrow 0$ としたとき、条件は静止空間のサンプリングの問題に近づく、 $V_0 \rightarrow 0$ は $V_0/V_s \rightarrow 0$ となり、 $\alpha$ は $\alpha \rightarrow 0$ となる。よって、(4)式及びDavies式では、ともに図-13,14に示すように、 $C_s/C_0 = 1$ で近似される。したがって、粒子径や粒子密度には無関係になって次式で表される。

$$C_0 = C_s \dots\dots\dots (5)$$

そこで、静止空間ではどのような吸引流速で吸引しても、サンプリング誤差は小さいことが推測される。しかし、吉田ら<sup>8)</sup>によれば、静止空間からのサンプリングはノズル径を大きくかつ下向きにし、吸引流速が速いほど誤差が小さいとしている。

次に高速気流中でのサンプリングでは  $V_0 \rightarrow \infty$ としたとき、 $V_0/V_s \rightarrow \infty$ となり、 $\alpha$ は $\alpha \rightarrow 1$ となる。この場合も(4)式もDavies式もともに $C_s/C_0 = V_0/V_s$ で近似され

$$C_0 = C_s \left( \frac{V_s}{V_0} \right) \dots\dots\dots (6)$$

となる。これは、(4)式及びDavies式において、 $V_0/V_s$ が大きくなると $C_s/C_0 = V_0/V_s$ の直線に漸近することを意味している。

そこで、以上の考察を踏まえて(6)式の適用される高

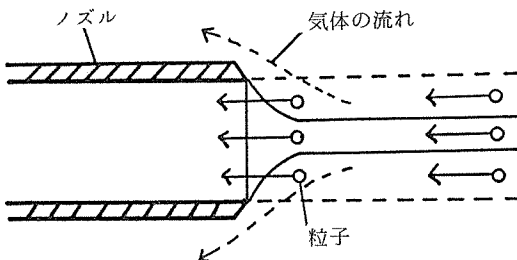


図-16 高速気流中での粒子のサンプリングに関する1モデル

速気流中のダストサンプリングの概念について、簡単なモデルを示して考察する。図-16に示すように高速気流中では、粒子は大きな慣性力をもっており、ノズルの中へ入る気流の流れは実線のようにになる。ここでノズル径断面内の粒子は気流のノズル外へのがれるときの慣性力より、気流中にもっていた慣性力の方が遙かに大きいため、ノズル径断面部分の粒子は気流の変化に関係無く全部ノズル内に進入するものとする。したがって、単位時間当たりのノズル前方に存在する粒子量  $M(g/s)$  は全部ノズル内に捕捉される。そこでノズル半径を  $r$  とすれば、単位時間当たりのノズル前方に存在する粒子量は  $\pi r^2 \cdot V_0 \cdot C_0 = M$  となる。

また単位時間当たりノズル内にとり込む粒子量は、 $\pi r^2 \cdot V_s \cdot C_s = m (g/s)$  となる。よって前提条件より、 $M = m$  であれば、

$$\pi r^2 \cdot V_0 \cdot C_0 = \pi r^2 \cdot V_s \cdot C_s$$

となり、

$$C_0 = C_s \left( \frac{V_s}{V_0} \right)$$

となって(6)式が得られる。

ここで、(4)式とDavies式について、(6)式が適用されるような $V_0$ を推定する。そこで、 $V_0 \rightarrow \infty$ で $\alpha \rightarrow 1$ となるが、 $\alpha$ が0.95以上になるときの $V_0$ の値として $V_0$ を推定すると、粒子径がミクロンオーダーの場合、 $V_s = 5 m/s$ としたとき、(4)式では $V_0$ がほぼ40~100m/s以上で適用されるようになるが、Davies式では300~1000m/s以上となり、Davies式では気流がマッハ流以上でないと上記モデルは適用されないことになる。

## 4. おわりに

今回は、前報<sup>1)</sup>にひきつづき、ダクト内流速を一定とした場合のタルク粒子による非等速吸引の影響、及び吸引流速を一定としてダクト内流速を変えた場合のタルク及びフライアッシュを用いた実験を行った。その結果煙道中のダスト測定における非等速吸引の影響がさらに明らかにされると共に、今回ミクロンオーダーのフライアッシュ及びタルク粒子に適用できる新たな評価式を導くことが出来た。そこで、得られた知見を以下に述べる。

- (1) タルク粒子を用いた場合、非等速吸引の影響は、フライアッシュの場合と同様 $C_s/C_0 = \alpha (V_0/V_s) + (1 - \alpha)$ で整理され、慣性関数 $\alpha$ によって評価される。
- (2) タルク粒子の場合でも重量中位径を用いた場合、

Davies式が各評価式の中では比較的一致していたが、 $V_0=7.5\text{m/s}$ では異なっていた。

(3) 本研究より、タルクとフライアッシュを用いた場合について、 $0.25 < V_0/V_s < 2$ の範囲で、新たに次のような非等速吸引の評価式を得た。

$$C = \alpha V + (1 - \alpha)$$

ただし、 $C = \frac{C_s}{C_0}$        $\alpha = \frac{(5V+3) Sk^2}{1 + (5V+3) Sk^2}$

$$V = \frac{V_0}{V_s} \quad Sk = \frac{Dp^2 \rho_p V_0}{9 \mu Dn}$$

(4) 吸引流速を6m/s一定とし、ダクト内流速を3~11m/sに変えることによって、フライアッシュとタルク粒子で実験した結果、 $V_0/V_s < 1$ では、非等速吸引によるマイナスの誤差は比較的小さいが、 $V_0/V_s > 1$ ではプラスの誤差が漸次大きくなるのがわかった。また、この場合でも筆者の評価式(4)式及びDavies式がほぼ適用できるが、その差をさらに評価することはこの実験からは困難であった。

(5) 静止空間及び高速気流中でのダストサンプリングについて、非等速吸引の評価式の流速 $V_0$ を単純に変化させて考察を加えたところ、静止空間でのサンプリングではほぼ $C_0=C_s$ に近づくと推測された。また、高速気流中では $C_0=C_s (V_s/V_0)$ で近似され、筆者の評価式では $V_0=40\sim 100\text{m/s}$ 以上で適用されると推測された。

以上、タルク粒子による非等速吸引の影響及び吸引流速を一定としダクト内流速を変化させた場合について実験及び解析を試み、新たな評価式を導いた。今後は、(4)式の適用性の検討を続けると共に、実際の煙道ばいじんでの実験及び粒径分布による評価等を行う必要がある。

## Appendix

非等速吸引に関する各種の評価式

(1) Davies式<sup>2)</sup>

$$\frac{C_0}{C_s} = \frac{Sk}{0.5+Sk} \cdot \frac{V_0}{V_s} + \frac{0.5}{0.5+Sk}$$

$$Sk = \frac{Dp^2 \rho_p V_0}{9 \mu Dn}$$

(2) Watson式<sup>4)</sup>

$$\frac{C_s}{C_0} = \frac{V_0}{V_s} \left\{ 1 + F(P) \left[ \left( \frac{V_s}{V_0} \right)^{1/2} - 1 \right] \right\}^2$$

(3) Badzioch式<sup>3)</sup>

$$\frac{C_s}{C_0} = \alpha \left( \frac{V_0}{V_s} \right) + (1 - \alpha)$$

$$\alpha = \{ 1 - \exp(-L/\lambda) \} / (L/\lambda)$$

$$\lambda = \frac{(\rho_p - \rho_g) Dp^2 V_0}{18 \mu}$$

$$L = 6.0 - 1.6 Dn$$

(4) Belyaev式<sup>5)</sup>, Selden式<sup>6)</sup>

$$A = \frac{C_s}{C_0}, \quad Z = \frac{1}{\left( \frac{V_0}{V_s} \right)}$$

$$\frac{AZ-1}{Z-AZ} = \frac{Sk^a Re^d}{b+cZ}$$

ここで、Belyaevの式では

$$a = -1, \quad b = 2, \quad c = 0.62, \quad d = 0$$

Seldenの式では、

$$a = 0.918, \quad b = 1.53, \quad c = 0.617, \quad d = 0.355$$

である。

(5) Davies(2)式<sup>7)</sup>(1982)

$$C = \frac{C_s}{C_0}, \quad V = \frac{V_0}{V_s}$$

$$C = 1 - (1-V) \frac{Sks \cdot V^{3/2} \cdot (4V+0.62)}{0.1Sks \cdot (1-V) + V^{3/2} \{ 1 + Sks \cdot (4V+0.62) \}}$$

$$Sks = \frac{Dp^2 \rho_p V_s}{9 \mu Dn}$$

## 本文中で使用した記号

$C_0$  : 等速吸引によるダクト中のダスト濃度〔 $\text{mg}/\text{m}^3$ 〕

$C_s$  : 非等速吸引によるダスト濃度〔 $\text{mg}/\text{m}^3$ 〕

$V_0$  : ダクト内流速〔 $\text{m}/\text{s}$ 〕

$V_s$  : 非等速吸引による吸引流速〔 $\text{m}/\text{s}$ 〕

$\alpha$  : 慣性関数

$Sk$  : 粒子のストークス数(慣性パラメータ)〔-〕

$Dp$  : 粒子の粒径〔 $\text{cm}$ 〕

$\rho_p$  : 粒子の真密度〔 $\text{g}/\text{cm}^3$ 〕

$\mu$  : 気体の粘度〔 $\text{g}/\text{cm} \cdot \text{s}$ 〕

$Dn$  : 吸引ノズル径〔 $\text{cm}$ 〕

$F(P)$ : Wastonによる $Sk$ の関数

L : ノズル上流の乱れ関数  
λ : 粒子の慣性飛行距離〔cm〕  
ρ<sub>g</sub> : 気体の密度〔g/cm<sup>3</sup>〕  
Re : 粒子のレイノルズ数〔-〕  
Sks : Vsによる粒子のストークス数〔-〕

## 文 献

- 1) 佐俣満夫：ダスト測定における非等速吸引の影響  
(I), 横浜市公害研究所報, **10**, 63-77 (1985)
- 2) C.N.Davies : Dust is dangerous,  
*Faber* (1954)
- 3) S.Badzioch : Correction for anisokinetic

- sampling of gas-born dust particles,  
*J.Inst.Fuel* **33**,106 (1960).
- 4) H.H.Watson : *Am.Ind.Hyg.Assoc.Quart.*, **15**,  
21(1954)
  - 5) S.P. Belyaev and L.M.Levin : *J. Aero-  
sol Sic.*, **5**, 325 (1974)
  - 6) M.G.Selden : *J.Air Pollut.Cont.Assoc.*,  
**27**,235 (1977)
  - 7) C.N,Davies and M.Subari : *J.Aerosol,Sic.*,  
**13**,1,59-71 (1982)
  - 8) 吉田英人, 浦上雅行, 増田弘昭, 井伊谷鋼一 :  
化学工学論文集, **4**, 123 (1978)

## 固定発生源から排出されるばいじん中の多元素成分

佐俣満夫\*, 太田正雄\*

### 要 旨

固定発生源から排出されるばいじん中の多元素成分(33元素)、炭素及び多環芳香族炭化水素(PAHs)について、横浜市内の主要なばい煙発生施設及びその処理装置を対象に調査した結果以下のような知見が得られた。

- (1) ばいじんの放射化分析の結果では、油燃焼施設は重質油燃焼の場合のみ、Vが発生源推定の際の指標物質になり得ることがわかった。また、施設によって特有な元素組成パターンがみられたが、バラツキも大きかった。
- (2) ばい煙処理装置での各元素の捕集効率は乾式電気集じん機においてのみばいじんとはほぼ同じ捕集効率を示した。
- (3) PAHsは、処理装置の排ガス温度が低い程、その除去効率が大きいことがわかった。

### 1. はじめに

近年、環境中の浮遊粒子状物質に係わる研究の一環として、その発生源寄与率を算定する試みが各地で行われるようになった。そのためには、各種発生源の粒子状物質調査は基礎データとして重要である。とりわけ、粒子の粒径分布や含有元素組成の調査は、寄与率算定での貴重なデータとなる。そこで昭和59,60年に横浜市内の主要なばい煙発生施設及びその処理装置について、そのばいじん中の成分として33元素及び炭素について調査し、各ばい煙発生施設のばいじんの元素成分の排出特性を把握するとともに、処理装置での各元素の捕集特性を調査した。また、3種類の多環芳香族炭化水素(ベンゾ(a)ピレン、ベンゾ(k)フルオランテン、ベンゾ(ghi)ペリレン)についても同時に調査したので合わせて報告する。

### 2. 測定施設

測定は各種ばい煙発生施設20施設及びばいじん処理装置10施設(その内処理装置の前後で測定した施設は8施設)を対象に実施した。測定施設を表-1に示す。

### 3. 測定方法

ばいじんの採取は、分析を放射化分析法を用いて行う必要から、採取量が10~50mg以上必要であったので発生源用ハイボリュームサンプラーを用いて行った。採取方法は、JIS Z 8808に準じた等速吸引法を用い、ろ紙は東洋ろ紙PF-10を用いた。なお、吸引ガス量は5~20m<sup>3</sup>程度であった。分析した元素はAg, Al, As, Ba, Br, Ca, Cd, Ce, Cl, Co, Cr, Cs, Cu, Fe, Hf, Hg, K, La, Lu, Mn, Na, Ni, Pb, Sb, Sc, Se, Sm, Th, Ti, U, V, W, Znの33元素であるが、Cd, Pbは原子吸光法を用い、他は全て放射化分析法を用いた。

ばいじん中の炭素成分の採取については、石英繊維製径37mmの円形ろ紙を用い、JIS Z 8808に基づいておこなった。分析はCHNコーダ(柳本MT-3)を用い、有機性炭素と元素状炭素との分離温度はHe雰囲気で800°Cとし、元素状炭素量=総炭素量-有機性炭素量として求めた。また、多環芳香族炭化水素の採取方法は図-1に示す装置を用い、吸引流量14ℓ/min以下で、JIS Z 8808の等速吸引に準じたアイスストラ

Multielements of dusts emitted from stationary sources.

\* Mitsuo Samata, Masao Ohta 横浜市公害研究所大気部門



表-1 測定対象施設

施設名	処理装置	測定ヶ所	施設数	測定ヶ所数
灯油焚きボイラ	-	煙突	2	2
LSA重油焚きボイラ	-	"	3	3
LSC重油焚きボイラ	DEP	前・後	1	2
C重油焚きボイラ	排煙脱硫	前・後	1	2
石炭ボイラ	DEP	前・後	1	3
	DEP+排煙脱硫	後		
石油加熱炉(ガス専焼)	-	煙突	2	2
"(ガス+LSC)	-	"	1	1
ガラス熔融炉	DEP	前・後	1	4
	排煙脱硫	前・後	1	
コークス炉	WEP	前・後	1	3
	バグフィルター	後	1	
カーボン炉	-	煙突	1	1
アルミナか焼炉	DEP	前・後	1	2
キューボラ	バグフィルター	後	2	2
COボイラ	DEP	前・後	1	2

DEP： 乾式電気集じん機  
WEP： 湿式電気集じん機

表-2 高速液体クロマトグラフィー  
ケイ光分光光度計の操作条件

固定相	デベロシール ODS (5 $\mu$ m) 25cm $\times$ 4.6mm $\phi$
移動相	アセトニトリル：水 (7：3) 10分 2%/min G.E
流量	2ml/min
温度	室温
検出器	ケイ光分光光度計 E 300 nm F 407 nm

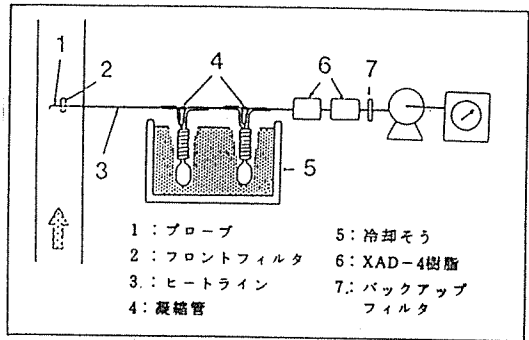


図-1 アイストラップ法による試料採取方法

ップー吸着法で行った。

分析方法は、ろ紙、吸着剤についてはベンゼン、エタノール混液(4：1)で超音波抽出し、また凝縮管及び凝縮水はベンゼンにより抽出したあと、定量は表-2に示す条件で、高速液体クロマトグラフィーケイ光分光光度計により行った。

## 4. 結果と考察

### 4-1 施設別の多元素成分

横浜市内の大型ボイラ、ガラス熔融炉等の大規模発生源では、集じん装置あるいは排煙脱硫装置等の排ガス処理装置が殆どの場合設置されているが、ここでは各ばい煙発生施設そのものから排出されるばいじん中の多元素成分の特徴をみるため、処理装置を設置している施設については全て処理装置前の測定値について検討した。測定施設の代表的な結果を表-3に示す。表中カッコを付した値は検出限界の値を示した。

#### 油焚きボイラ

C重油焚きボイラでは、表-3に示すようにAl, Ni, Vの濃度が高く、LSC重油焚きボイラではAl, Cl, Fe, K, Na, Ni, Vの濃度が高か

った。今回のC重油とLSC重油との結果の比較ではC重油よりLSC重油の方が重金属類も軽元素も多い傾向がみられたが、重質油燃焼の場合Niが2800~3800 $\mu$ g/g, Vが2400~3600 $\mu$ g/gと軽質油焚きや他の施設に比べてNi, Vが多いことが特徴的であった。しかし、真室ら<sup>1)</sup>のデータより今回の測定の方がNi, Vをはじめ全ての元素の測定値が低い傾向がみられた。これは重油の産地の違いによる影響が大きいものと思われる。

LSC重油焚きボイラについては、LSC重油焚きボイラ(2)ではAl, Cl, Fe, Ni, Vが比較的濃度が高かったが、同ボイラ(1)ではFe及びVがそれぞれ18, 7.7 $\mu$ g/gとかなり低く、LSC重油焚きでは施設によって元素濃度にかなりの差がみられた。また灯油焚きボイラではClの濃度が若干高い傾向がみられたが、他の元素の濃度は比較的lowかった。しかし、LSC重油焚きボイラ(1)と灯油焚きボイラではSeが280~370 $\mu$ g/gと他の施設に比べて高い濃度がみられた。そこで化石燃料油を燃焼させた場合、一般にばいじん中ではV及びNiの濃度が高く、これらの元素が化石燃料油の

表一3 施設別の多元素成分

単位：μg/g

施設 元素	C重油抜き ボイラ	LSC重油抜き ボイラ	LSA重油抜き ボイラ(1)	LSA重油抜き ボイラ(2)	灯油抜き ボイラ	石炭抜き ボイラ	COボイラ	ガラ 熔機	キューボラ	コークスボ ボイラ	カーボ ボイラ	アルミナ か焼機	石油加熱 ボイラ(1)	石油加熱 ボイラ(2)	アスファ ルト
Ag	(0.9)	(30)	0.08	(20)	(6)	(0.8)	(5)	39	(3)	(20)	5	(0.02)	1	(1.0)	(10)
Al	820	11000	10	8700	1500	98000	180000	200	5900	7000	21000	65000	85000	68000	120000
As	4.9	170	0.1	290	31	40	24	(1)	7.9	49	180	23	(2)	80	75
Ba	780	(1000)	(1)	(400)	(100)	900	(200)	1000	(200)	(400)	(500)	(60)	(200)	(2000)	590
Br	(20)	(30)	(0.4)	(200)	47	0.9	(70)	(0.6)	(300)	410	89	23	4	(20)	(100)
Ca	350	(5000)	(7)	(8000)	(1000)	29000	22000	(700)	(10000)	(10000)	4000	200	(900)	(9000)	19000
Cd	(1)	(50)	(0.07)	(40)	(10)	0.82	(2)	18	5.5	(40)	780	0.02	0.2	0.7	(20)
Ce	18	19	0.025	11	16	55	4100	0.9	3.6	(10)	98	0.81	2	(9)	99
Cl	(100)	15000	(4)	6000	18000	(100)	(2000)	(200)	(6000)	55000	1400	140	(200)	(2000)	5200
Co	12	480	0.099	6.8	(1)	40	65	0.7	3.4	(3)	16.3	0.47	3.2	560	17
Cr	20	260	0.24	340	(9)	98	280	590	190	99	250	0.9	280	60	260
Cs	(0.1)	(4)	(0.008)	1.1	(0.03)	8.3	(0.8)	0.8	8.1	(1)	2	0.084	(0.02)	(4)	5.8
Cu	(400)	(2000)	(3)	(1000)	(400)	(200)	110	(400)	(1000)	(1000)	(400)	(60)	(100)	(1000)	(1000)
Fe	2200	6000	18	4000	650	26000	2900	400	36000	3400	7600	98	1700	10000	48000
Hf	(0.1)	(8)	(0.008)	1.0	(0.3)	4.2	27	(0.1)	0.6	1.5	6	0.12	(0.1)	(2)	5.9
Hg	(0.8)	(20)	(0.01)	(20)	(10)	(0.3)	(3)	(0.9)	(2)	22	(1)	0.12	(0.7)	(8)	(20)
K	700	20000	(30)	(20000)	(8000)	11000	(10000)	18000	19000	19000	(10000)	(300)	(20000)	(20000)	27000
La	18	(30)	(0.03)	(20)	10	29	2900	0.3	3.8	(20)	5.8	0.07	1	6	40
Lu	(0.05)	(1)	(0.001)	(0.41)	(0.3)	0.44	0.21	(0.02)	(0.2)	(0.4)	0.16	(0.001)	(0.02)	(0.2)	0.73
Mn	7.8	100	0.26	180	25	340	43	(10)	32000	91	1920	(1)	26	(70)	1800
Na	(200)	28000	(10)	(4000)	1700	8500	9800	35000	(1000)	14000	6000	5800	7300	13000	17000
Ni	2800	3800	29	810	(30)	(60)	1100	170	(100)	(200)	(800)	(2)	(7)	10000	210
Pb	(7)	(300)	0.59	(200)	(80)	79	27	220	8140	580	9900	1.5	20	0	150
Sb	0.71	(20)	0.015	(8)	(3)	3.4	(5)	260	130	(10)	48	0.088	0.7	7	7.9
Sc	0.084	0.95	0.0015	0.76	0.13	19	7.6	0.016	0.02	0.84	3.6	0.016	0.24	0.6	15
Se	3.7	44	(0.02)	280	370	3.5	(5)	69	(6)	7.8	64	2.7	(2)	60	780
Sm	0.81	1.3	(0.001)	(0.8)	(0.8)	4.2	160	0.077	0.87	(0.8)	4.9	0.023	0.02	0.5	7.8
Th	(0.1)	(2)	(0.002)	(0.8)	(0.3)	10.7	12	(0.1)	0.51	(1)	3.2	0.006	0.3	(2)	16
Ti	130	(4000)	4.9	(3000)	(100)	4200	4500	2300	2700	(2000)	1100	(100)	300	(8000)	4400
U	(0.7)	(30)	(0.03)	(20)	(5)	3.8	(10)	8	(2)	(20)	7.5	0.86	(0.4)	(5)	(8)
V	8600	2400	7.7	2100	7.9	230	120	3300	46	490	350	(2)	13	2200	110
W	(1)	(50)	(0.07)	(30)	(10)	(0.4)	(20)	(0.7)	(3)	30	1.2	(0.08)	(1)	(10)	15
Zn	140	490	1.5	320	65	(7)	110	88	14000	500	22000	4.4	10	900	520

( ) : 検出限界値

ばいじんの指標物質となるとされているが、今回の測定では、Vは灯油及びL S A重油では $10 \mu\text{g/g}$ 以下と少ないものもあり、指標物質としてのVは重油にしか適用できない結果が得られた。また真室らのデータ<sup>1)</sup>に比べると油焼きボイラはいずれの元素も今回の測定の方が $1/2 \sim 1/10$ 程度低い傾向がみられた。これらの傾向は、単に油の産地の相違だけでなく、近年の規制強化にともない都市部でのクリーンエネルギーの需要に応じて精製された油が良質化していることも影響しているものと考えられる。

#### 石炭焼きボイラ，COボイラ，ガラス熔融炉

石炭焼きボイラではAl, Ca, Fe, K, Naがそれぞれ $1 \sim 10\%$ 程度含まれており、これらの元素が主成分であることがわかる。また重金属ではTi, Feが多くみられたが他の金属は比較的少なかった。真室らのデータ<sup>1)</sup>との比較ではAlは高く、Pbが $1/20$ と低い他は、Na, K, Ca, Se, Fe, Baはほぼ同じ値であり、石炭ボイラはどの施設でも同じ傾向を示すものと思われる。

COボイラでは、Alが $18\%$ と最も濃度が高く、他にNa, Tiの濃度が高かった。またCeが $4100 \mu\text{g/g}$ と高いのが特徴的であった。これは石油精製でのFCCの触媒の破砕された粒子が多く含まれているためと考えられる。

ガラス熔融炉ではCr, K, Na, Ti, V, Sbが高い値を示した。これはガラス熔融炉のばいじんの主成分が $\text{Na}_2\text{SO}_4$ であり、燃料もL S A重油であることから容易に推測される。また真室<sup>2)</sup>らの測定結果と比べるとNa, Al, Fe, Znは筆者らの結果の方が低く、特にFe, Znは $1/10 \sim 1/50$ 程度低い濃度だった。また逆にSbは30倍以上高い値であった。

#### キューボラ，コークス炉，カーボン炉

キューボラのばいじん中にはAl, Fe, K, Mn, Pb, Ti, Zn等の濃度に高い傾向がみられた。これらはいずれも鉄の溶解時に飛散する金属ヒュームによるものと考えられる。

コークス炉ではAl, Cl, K, Na等が比較的高い値であり、重金属類は比較的少なかった。

カーボン炉ではAl, Cl, Fe, Pb, Ti, Znに高い濃度がみられた。Pb及びZnは全測定中最も高い値であった。これらの元素はカーボン原料あるいはバインダー中に含まれているものと思われる。

#### 石油加熱炉，アルミナか焼炉，アスファルトプラント

石油加熱炉ではガス専焼（石油加熱炉(1)）の場合はAlとNaが比較的高い値を示したが、その他の元素は他の施設に比べて一様に低かった。ガス及びL S A重油混焼（石油加熱炉(2)）ではAl, Na以外にもFe, Ni, V, Zn等が高い値を示した。これは明らかに重油燃焼による影響と考えられる。なお、表-3に記載しなかったが他のガス専焼石油加熱炉について行った測定例では、ばいじん中にFe, Vが $1 \sim 10 \text{mg/g}$ 程度含まれるものがあり、これは燃料の影響より煙道中のサビあるいは付着物等の剥離したものによる影響と思われる、測定に当たって注意すべき点と思われる。

アルミナか焼炉ではAlが多くみられたが、他の元素の濃度は低くFeは $98 \mu\text{g/g}$ とボイラと比べてもかなり低い値だった。これはポーキサイトからアルミナを生成する過程で重金属等が殆ど除去されてしまうためと考えられる。

アスファルトプラントではAl, Ca, Cl, Fe, K, Mn, Na, Tiの濃度が比較的高かった。これらの元素は道路用骨材中に多く含まれるものであり、これらの骨材粒子がばいじん中に多く混入しているためと思われる。また、Seが $730 \mu\text{g/g}$ と高いのが特徴的である。Seはアスファルトプラントだけでなく、灯油及びL S A重油焼きボイラのばいじん中にもみられた。またAl, Ca, K, Fe, Ni等は真室らのデータ<sup>3)</sup>と同様の値であるが、Na, Cl, Mnは筆者らの方が $10 \sim 50$ 倍ほど高い濃度であった。

#### 4-2 各元素の処理装置による捕集効率

4-1では各ばい煙発生施設（処理装置前）での多元素成分の排出特性を述べたが、ここではこれらの多元素成分の電気集じん機及び湿式排煙脱硫装置における捕集効率について述べる。

乾式電気集じん機では、図-2に示すようにアルミナか焼炉の場合はばいじんの捕集効率が $99\%$ 以上であるが、今回測定した元素についても全て $99\%$ 以上の捕集効率がみられた。またL S C重油焼きボイラではばいじんの捕集効率は $93\%$ であり、各元素も $85 \sim 99\%$ の捕集効率がみられたが、Cu, Cr, Feは $85\%$ 前後であり、他の元素に比べて捕集効率が低かった。さらに石炭ボイラではばいじんの捕集効率が $88\%$ であり、各元素の捕集効率の差も小さかったが、Brは $50\%$ とかなり低い効率を示した。しかし、この例を除くと乾式電気集じん機ではいずれの元素も、ばいじんの捕集効率の $\pm 3 \sim 7\%$ 以内の変動幅のなかで捕集されており、乾

式電気集じん機では、主にボイラ排ガスの場合、各元素の捕集効率はばいじんの捕集効率とほぼ一致することがわかった。

次に、図-3にガラス熔融炉に設置された乾式電気集じん機と排煙脱硫装置による捕集効率の比較を示す。これより排煙脱硫装置では、ばいじんの捕集効率は99%以上であるが、各元素についてみると、Scが78% Al, Fe, Laの捕集効率が95%と若干低いで他の元素は殆ど98%以上であった。しかし、乾式電気集

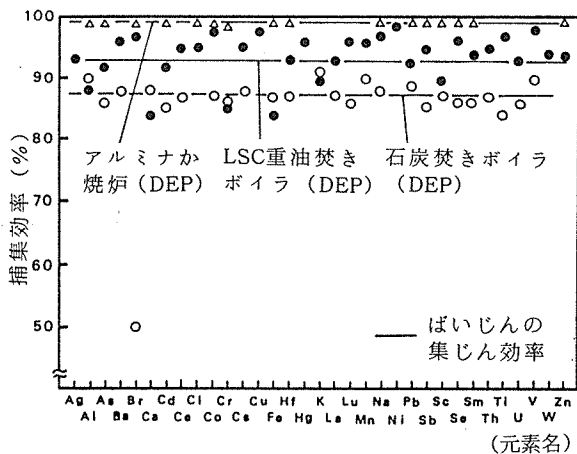


図-2 乾式電気集じん機でのばいじん及び各元素の捕集効率、○印：石炭焼きボイラ (DEP)、●印：LSC重油焼きボイラ (DEP)、△印：アルミナか焼炉 (DEP)

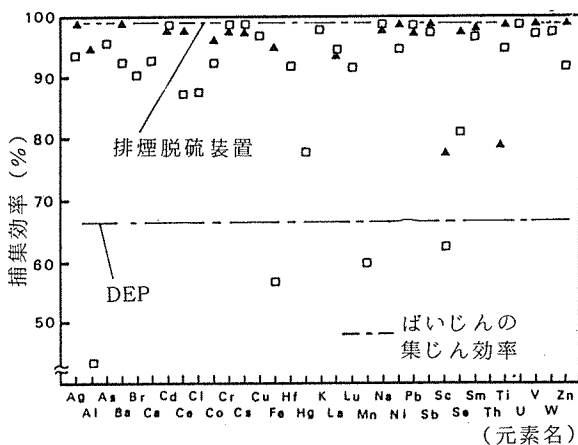


図-3 ガラス熔融炉での乾式電気集じん機 (□印) と湿式排煙脱硫装置 (▲印) による捕集効率の比較

ん機では各元素の捕集効率は55~99%とその差は大きく、Fe, Mn, Scが60%前後と最も低く、Hg, Seが80%前後であるが、他の元素はほぼ90%以上であった。さらにはばいじんの捕集効率は67%と各元素の捕集効率の平均と比べて、ほぼ25%程度低かったが、これは測定の対象としなかった元素に捕集効率の低いものが含まれているか、あるいはひょう量誤差によることが考えられる。しかし、ガラス熔融炉の場合、電気集じん機と湿式排煙脱硫装置では各元素の捕集効率のパターンが異なることがわかった。

コークス炉の湿式電気集じん機では、図-4に示すように各元素の捕集効率はMnが85%とやや低いのを除くと、他の元素はほぼ90%以上であるが、ばいじんの捕集効率は87%であった。これはばいじん中のカーボン粒子が処理装置によって十分に除去されないことに起因しているものと思われる。

C重油焼きボイラの湿式排煙脱硫装置での捕集効率を図-5に示す。ばいじんの捕集効率は99%以上であるが、各元素の捕集効率は55~99%に分布しており、そのバラツキは今回測定した中で最も大きかった。捕集効率が80%以下の低い元素としてはCd, Hg, Mn, Na, Pb, Ti, U, W等がみられる。この結果はガラス熔融炉の排煙脱硫の場合 (図-3) とかなり異なった傾向を示した。またNaが55%と最も低い捕集効率を示したが、この装置ではNaOHを吸収液として使用しており、この吸収液及び副生成物の微細なミストが出口で捕捉されないため、このような傾向を示すものと思われる。

以上のように、各種処理装置での各元素の捕集効率は、ボイラ後の乾式電気集じん機では、ばいじんの捕集効率とほぼ一致するが、その他は、ばい煙発生施設存び処理装置の種類によってさまざまな特性を示すことが窺われた。

#### 4-3 炭素成分

ばいじん中の炭素量測定結果を表-4に示す。総炭素をCt, 元素状炭素をCe, 有機性炭素をCoで示すと、CtはL S A重油及び石炭焼きボイラでは500~650  $\mu\text{s}/\text{Nm}^3$ , アルミナか焼炉では100  $\mu\text{g}/\text{Nm}^3$  程度の濃度であったが、灯油焼きボイラ, ガラス熔融炉は20  $\mu\text{g}/\text{Nm}^3$  以下で、それぞれかなりの差が見られた。また、L S C重油焼きボイラではCt/ダストがともに80%以上あり、他の報告<sup>4)</sup>と同様の傾向がみられ、これより重質油燃焼では、ばいじんの主成分はほとんどが元素状炭素で占められることがわかった。しかし、灯油焚

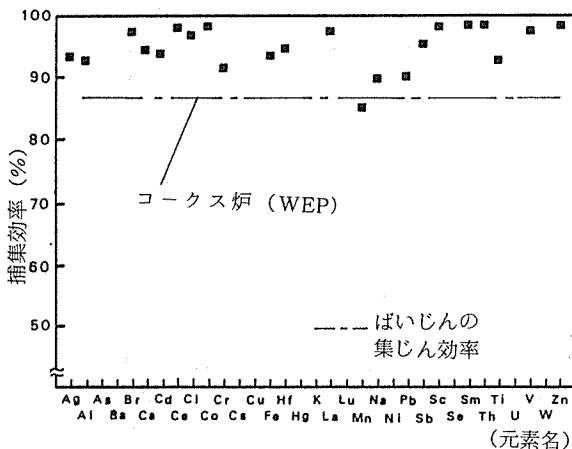


図-4 コークス炉の湿式電気集じん機でのばいじん及び各元素の捕集効率

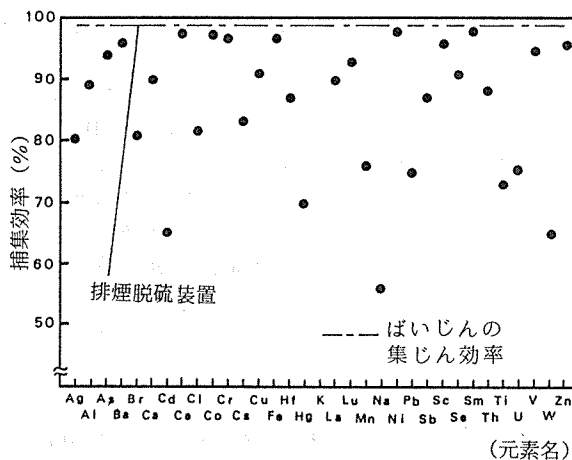


図-5 C重油焚きボイラの湿式排煙脱硫装置でのばいじん及び各元素の捕集効率

きボイラについてみると、Ct/ダスト、Ce/ダストはそれぞれ17%、5%で、軽質油ではばいじん中に占める炭素成分の割合は減少し、さらにCe/Ct比が小さくなる結果が得られた。また、石炭焚きボイラではCt/ダストが1.87%と小さく、これは灰分としてのフライアッシュが多いこと、さらに排煙脱硫装置による副生成物が混入しているためと思われるが、Ce/Ctは80%であり、石炭燃焼では炭素成分のほとんどが、元素状炭素であることが推測された。またガラス熔融炉ではLSC重油燃焼にもかかわらず、Ct/ダストが0.83%と極めて小さいのは、ばいじん中の主成分が

Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>等の副生成物であること、さらに炉内温度が1200℃以上と高く、滞留時間も長いこと、炭素成分の多くが完全燃焼することによるものと思われる。またアルミナ焼炉でのCt/ダスト比が低いのも、ばいじん中の成分の大部分がアルミナであるためと考えられる。

#### 4-4 多環芳香族炭化水素 (PAHs)

ベンゾ(a)ピレン (BaP) ベンゾ (k) フルオランテン (BkF), ベンゾ, (ghi) ペリレン (B (ghi)P) の測定結果を表-5に示す。各々の排出濃度は、ばい煙発生施設で使用される燃料の種類、原材料の種類、燃焼状態等により異なり、Nm<sup>3</sup>当たりの排出量はBaPが、0.004~2.28 μg, BghiPが、0.054~2.10 μg, BkFが、0.026~6.90 μgであった。燃料の種類別に排出量をみると、作業工程にPAHsの発生するもの(アスファルトプラント及びカーボン焼成炉)を除き燃料使用量当たりのPAHs排出量は、いずれの物質も灯油<A重油<C重油の順となり、重質油になるほど、PAHsの排出量は増加する傾向を示した。

集じん装置前後におけるPAHsの変化をみると、電気集じん機では排ガス温度が高いため、PAHsの除去率は低下し、排ガス温度がEP入口で230℃、出口で115℃の場合では、9~32%の除去率しか示さず同時に採取した金属類の除去率の1/3程度であった。しかし排ガス温度が220℃から60℃に低下する湿式脱硫装置を用いた例ではPAHsの除去率は74~92%を示し、排ガス温度を低下させる湿式方式の方が、PAHsの除去に有効であることがわかった。

また、排ガス温度とBghiPのガス状・粒子状別存在形態を図-6に示す。排ガス温度が数十度と低い場合は、BghiPは殆どばいじん中に吸着しているが、100℃以上では逆にガス状で存在しており、この傾向は他のPAHsについても同様であった。集じん装置によるPAHsの採取法も高温ガスの場合にはガス状のPAHsのみを考慮した採取法を採用しても支障が無いことがわかった。

#### 5. おわりに

各種のばい煙発生施設(20施設)及びばい煙処理装置(10施設)から排出される排ガス中のばいじんについて33元素、炭素、多環芳香族炭化水素成分について調査し次のような知見が得られた。

(1) 油燃焼施設のばいじん中の元素成分は軽質油になるほど各元素の含有量も少なくなる傾向を示すが、その割合は一様ではない。またV、Niは発生源を推定す

表-4 ばいじん中の炭素量測定結果

施設	ダスト濃度	Co濃度	Co/ダスト	Ce濃度	Ce/ダスト	Ct濃度	Ct/ダスト
	mg/Nm <sup>3</sup>	μg/Nm <sup>3</sup>	%	μg/Nm <sup>3</sup>	%	μg/Nm <sup>3</sup>	%
灯油焼きボイラ	0.10	10.6	12.0	4.33	5.0	14.9	17.1
LSC焼きボイラ	0.80	26.7	3.5	622	80.3	648	83.8
LSC焼きガラス熔融炉	0.30	1.67	0.51	1.04	0.32	2.71	0.83
石炭焼き発電用ボイラ	26.5	96.1	0.36	401	1.51	497	1.87
アルミナか焼炉	29.2	58.7	0.20	43.7	0.15	102	0.35

る指標物質となり得るといわれているが、今回の結果（横浜市内）では重油についてしか適用できないことがわかった。さらに他のデータと比べてボイラでの各元素の濃度はいずれも低かった。

(2) ボイラ以外の施設のばいじん中の各元素の濃度は使用原材料の主成分に見合った特有なパターンをもつことがわかったが、バラツキが大きくその発生源を特徴づける元素は少なかった。

(3) ばい煙処理装置での各元素の捕集効率は、ボイラに設置された乾式電気集じん機では、ばいじんの捕集効率とほぼ一致するが、湿式電気集じん機や排煙脱硫装置では種々の傾向がみられ元素によってはかなり捕集効率の低い（60%以下）ものもみられた。

(4) ばいじん中の炭素成分は油燃焼の場合、重質油になるほどばいじん中の炭素成分の占める割合が大きくなるとともに、炭素成分中の元素状炭素の占める割合も大きくなることがわかった。

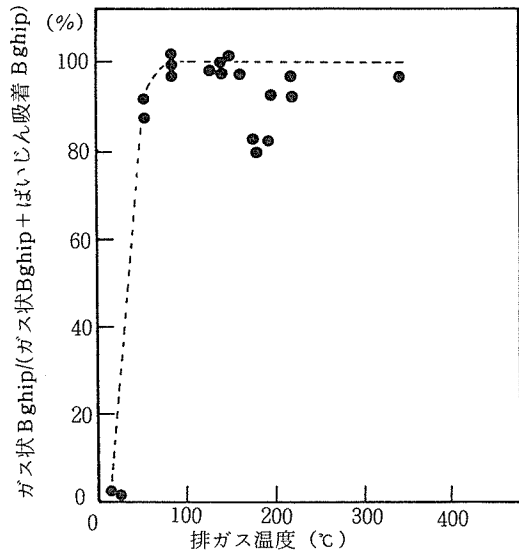


図-6 排ガス温度とBghipの存在状態の関係

表-5 PAHsの測定結果

施設	燃料の種類	BaP		BghiP		BkF	
		μg/Nm <sup>3</sup>	μg/l・燃料	μg/Nm <sup>3</sup>	μg/l・燃料	μg/Nm <sup>3</sup>	μg/l・燃料
ボイラ	灯油	0.166	0.182	0.605	0.664	0.527	0.578
アスファルトプラント	〃	0.048	1.96	0.180	6.80	0.160	6.20
LSA 焼きボイラ (I)	A 重油	0.004	0.058	0.054	0.74	0.086	1.20
LSA 焼きボイラ (II)	〃	0.013	0.17	0.120	1.60	0.035	4.50
カーボン焼成炉	〃	2.28	244	2.05	219	6.00	738
アルミナか焼炉	C 重油	0.039	0.852	0.078	1.70	0.213	4.66
C重油焼きボイラ	〃	0.083	1.60	2.10	39	0.420	7.90
(湿式脱硫入口-220°C)							
C重油焼きボイラ	〃	0.008	0.15	0.17	3.20	0.110	2.00
(湿式脱硫出口-60°C)							
ガラス熔融炉	〃	0.019	0.69	0.16	5.80	0.036	1.30
(EP 入口-230°C)							
ガラス熔融炉	〃	0.013	0.47	0.13	4.70	0.026	0.94
(EP 出口-115°C)							

(5) PAHsの排出量は使用される燃料の種類，原材料の種類，燃焼状態等に影響を受け，集じん装置によるPAHsの除去効率は排ガス温度の低い湿式の方が大きいことがわかった。

## 文 献

1) 真室哲雄，溝畑 朗，久保田寅英：ボイラより放

出される浮遊粒子の元素組成，14, 7 (1979)

2) 真室哲雄，溝畑 朗，久保田寅英：ガラス製造において放出される浮遊粒子の元素組成，15, 1 (1980)

3) 真室哲雄，溝畑 朗，久保田寅英：種々の小発生源から放出される浮遊粒子の元素組成（Ⅱ），15, 4 (1980)

4) 安田： 25回大気汚染学会大会予稿集，610 (1984)



## 大気汚染物質の雲粒・雨滴による とりこみ機構と酸化反応(第1報)

鶴田治雄\*、草野 一\*、渡辺善徳\*  
太田正雄\*、平野耕一郎\*

### 要 旨

都市・工業地帯の近くで、梅雨期間中に、係留気球を用いて、雲底部の雲水、雨水を採取するとともに、地上でも雨水、ガス、エアロゾルを採取することにより、汚染物質の雲粒や雨滴によるとりこみ過程と酸化反応について、次のことがわかった。

- (1) 雲底部での雲水は、同一高度での雨水より EC は大きく、水溶性成分の濃度は高かったので、汚染物質を大量にとりこんでいることがわかった。しかし、雲底部の雲粒が雨滴にとりこまれる割合は一定でなく、雲粒の密度、粒径や落下速度、さらに降水機構によって異なると推測された。
- (2) 地上での雨水中の水溶性成分は、雲の中で雲粒や雨滴にとりこまれる rain out によってほぼ決定されていた。
- (3) 雲底部より下層の大気中のエアロゾル濃度が高かったり、霧雨のような場合には、雨滴によってさらにエアロゾルやガスがとりこまれ(いわゆる wash out)、地表での雨水中の pH は、NH<sub>3</sub> ガスや粗大粒子中の Ca により高くなることがわかった。
- (4) 雲底部での大気中のエアロゾルや SO<sub>2</sub>、HNO<sub>3</sub> ガスの濃度は、検出限界以下の非常に低い濃度であり、それらの物質の雲粒による捕集効率は、ほぼ 100 % であった。
- (5) NO<sub>x</sub> の酸化反応は、日射の弱い場合は、NO<sub>x</sub> と O<sub>3</sub> との一連の反応で生成される N<sub>2</sub>O<sub>5</sub> が、液滴中で H<sub>2</sub>O と反応して HNO<sub>3</sub> が生成される、という過程が最も重要である、と推測された。
- (6) 雲水中の水溶性成分の濃度、特に Cl<sup>-</sup>、Na<sup>+</sup>、Ca<sup>2+</sup> などが非常に高くなる場合が、1 例測定された。これは、固定発生源、特に焼却炉から排出された汚染物質が、雲粒にとりこまれたためと推測された。
- (7) 上層気象の解析から、梅雨期には、地上付近で排出された物質によって汚染されている雲の高さは低く、ただだか 1 km. までと推測された。

### 1. はじめに

地上で測定される降水中の化学成分は、図 1 に示すように、大気中に放出されてから、輸送されるとともに一部分は変質し、雲粒・雨滴にとりこまれて最終的に地上に沈着する。そこで、降水の汚染機構を明らかにするには、物質の輸送過程と、物質がどの段階で雲粒や雨滴にとりこまれ(凝結核や氷晶核となる場合を含める)、どのような化学反応で変質していくかを解明していかなければならない。酸性雨とともに広域大気汚染現象である光化学大気汚染は、気相での光化学反応によるガス、エアロゾルの 2 次汚染物質の生成

によって引き起こされる。しかし、降水の汚染、特に酸性雨の生成過程では、気相だけでなく、雲粒や雨滴という液相での物質の挙動を知らなければならない。

液滴中での反応が重要であることを最初に明らかにしたのは、Penkettら<sup>2)</sup>である。彼らは、1979年に室内実験で、SO<sub>2</sub>の酸化反応が、大気中よりも雲粒等の水滴中で非常に速く進行する、ということを示した。その後、雲化学(Cloud chemistry)という観点から、雲水(あるいは霧水)の採取・分析とその解析や、雲粒中での化学反応の理論や実験に関する研究が、北米およ

Scavenging of atmospheric pollutants by cloud droplets and rain drops and their oxidation processes (part I)

\* H. Tsuruta, H. Kusano, Y. Watanabe, M. Ohta and K. Hirano  
横浜市公害研究所大気部門

び欧州等で集中的に行われており、その進歩は著しい。

さらに、図1に示したように、汚染物質が排出されてから地上に沈着するまでのすべての過程をとり入れた、酸性雨の生成機構に関する数値実験が、NCAR<sup>11)</sup>で開発されつつある。また、Hegg, HobbsとRutledge<sup>12~14)</sup>は、具体的に温暖前線や寒冷前線の場合について、雲物理過程や降水機構をとり入れた酸性雨の数値実験を行っている。しかし、これらの数値実験では、まだ未解明の部分を多く含んでいるので、現在、それらに対応する野外調査や室内実験の成果と比較して、モデルの妥当性を判断する時期であろう。それに対して、モデルを考慮して実施された野外調査は、米国ではOSCAR調査しかないので、モデルと対応できるような野外(あるいは室内)実験が、現在、強く望まれている。

ところで、降水の酸性化には、 $\text{SO}_4^{2-}$ だけでなく $\text{NO}_3^-$ も寄与している。特に、関東地方のように、 $\text{SO}_2$ より $\text{NO}_x$ の方が排出量の多い地域では、梅雨期の降水のpHの低下と、 $[\text{NO}_3^-]/[\text{SO}_4^{2-}]$ あるいは $[\text{NO}_3^-]/([\text{SO}_4^{2-}] + [\text{NO}_3^-] + [\text{Cl}^-])$ の増加とはよく対応している、との報告<sup>16)</sup>がなされている。したがって、 $\text{SO}_2$ から $\text{H}_2\text{SO}_4$ への酸化反応だけではなく、 $\text{NO}_x$ から $\text{HNO}_3$ への酸化過程をも明らかにしていくことが重要である。 $\text{HNO}_3$ は、気相では $\text{NO}_2$ と $\text{OH}$ との反応で生成されるので、日射の強い夏期には冬期よりも大気中の濃度は高くなる<sup>17)</sup>。もし、液相での $\text{HNO}_3$ の生成がなければ、都市域での降水中の $\text{NO}_3^-$ は、夏期には、主に $\text{HNO}_3$ ガスが雲粒に溶けこんでいるものと考えられる<sup>18~20)</sup>。しかし、日射の弱い冬期や梅雨期、あるいは夜間でも降水中に $\text{NO}_3^-$ は存在していて、pHの低下に寄与しているの、前述した気相反応以外の酸化過程を明らかにしなければならない。

一方、反応機構だけでなく、物質の輸送過程と雲粒等によるとりこみ過程を明らかにすることも、重要である。酸性物質の先駆物質である $\text{SO}_2$ 、 $\text{NO}_x$ 等は、自動車等の移動発生源だけでなく、工業地帯周辺では、固定発生源、特に高煙源から排出されている。したがってこれらの排出高度や排出強度の違う発生源から出た物質が、どのような割合で降水中に含まれているかを把握することは、汚染対策上からも重要である。

さて、日本では、雲水(あるいは霧水)の採取・分析の報告例は、次に述べるように非常に少ない。

Okita<sup>21)</sup>は、1963年に山岳地帯で霧水を採取し、乗鞍岳ではpHが3.4~5.9、11月の筑波山では5.6~6.5であった、と述べている。1973年の梅雨期に、関東地方

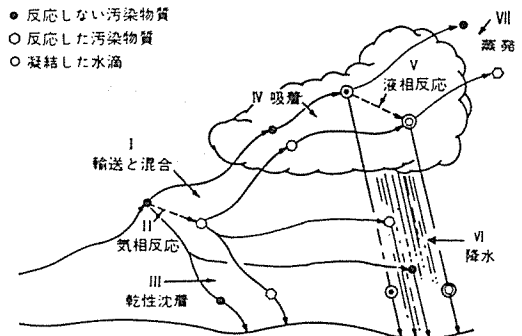


図1 酸性沈着に至るまでの汚染物質の大気中での径路

(文献1)の図に筆者がさらに加筆した)

で酸性雨によるとみられる目や皮膚の刺激等の急性被害が発生した。その翌年の秋に、古明地ら<sup>22)</sup>は、東京上空の雲水を航空機で採取し、雲水のpHは、地上の4ヶ所での降水のpHよりも低かった、と述べている。環境庁は、1975年から1978年の梅雨期に筑波山頂と神奈川県大山(大山では1978年だけ採取した)で霧水を採取し、pHの最低値は筑波山で2.80、大山で3.05だった、と報告した。なお大山での測定結果については三村と篠崎が詳しく述べている。藤田と寺田<sup>25)</sup>は、1982年の6月に北海道釧路市周辺で、霧水とガス・粒子状物質の同時測定を行い、それらの濃度変化を議論している。また、村野ら<sup>26)</sup>は、1983年夏に軽井沢で霧水を採取し、 $\text{NO}_3^-$ 濃度の方が $\text{SO}_4^{2-}$ 濃度よりもモル比で1.8~3.0倍高かった、と報告している。さらに、赤城山中腹でも、村野ら<sup>27)</sup>により霧水の観測が1984年秋に行われている。

これらの数少ない報告例は、古明地らや藤田と寺田のものを除けば、都市域から離れた山間部での実態把握が中心であり、雲粒・雨滴による汚染物質のとりこみ過程を調査研究したものは、なかった。

ところで、環境庁<sup>28)</sup>が実施した関東地域での酸性雨調査によれば、pHの年平均値は、東京のすぐ北側の埼玉で最も低かった。

また、北米や欧州でも、酸性雨の全体像を理解するには、汚染物質の長距離輸送や広域大気汚染というこれまでの視点からだけでなく、中規模あるいは発生源近傍での汚染機構をも明らかにする必要がある、という指摘がなされている<sup>29)</sup>。

そこで、横浜市公害研究所では、降水の汚染機構に関する調査研究の一環として、係留気球を用いて、雲底部での雲水等を採取する立体調査を、1986年と1987

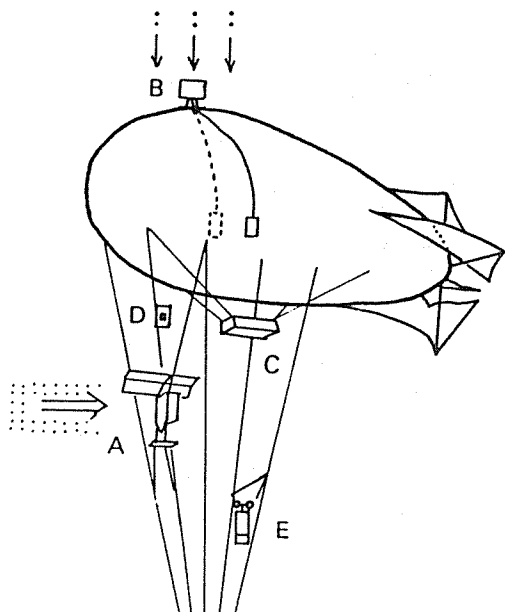


図2 係留気球での各装置の搭載位置

年の梅雨期に実施した。これらの調査では、雲水と雨水だけでなく、地上および上空で同時にガスとエアロゾルを測定して、大気中のガスとエアロゾルの雲粒や雨滴によるとりこみ過程と、雲粒中での酸化反応について、解析を行っている。本報告では、1986年6月に実施した第1次調査の主な成果について述べる。

## 2. 調査方法

2-1 調査期間 1986年6月21日～6月24日

2-2 調査場所 横浜市磯子区岡村公園

2-3 上空での採取方法

容積 $70\text{ m}^3$ の係留気球(カイツーン)を雲底部の高度に係留して、表1に記す採取装置を図2に示すように搭載し、3～4時間連続して雲水、雨水、ガス、エアロゾル等の採取を行った。係留気球の最高到達高度は $500\text{ m}$ に設定したので、雲底高度が $500\text{ m}$ 以上の時は、雲底より下層の大気中で係留した。また、できるだけ同一高度に係留したが、風速が $8\text{ m s}^{-1}$ を超えた場合は、安全性を最優先させて係留高度を低くした。

雲水の採取装置は、直径 $0.35\text{ mm}$ のポリエステル製の細線を縦方向に巻いた面積約 $780\text{ cm}^2$ の捕集網を4層にしたもので、ファンで大気を吸引して細線に捕集した雲水を、下方に滴下させてポリエチレン瓶に貯蔵する方式である。

ガス・エアロゾル採取装置は、テフロン製のホルダ

表1 係留気球に搭載した装置

図2の記号	搭載装置	採取方法
A	雲水採取装置	細線捕集法
B	雨水採取装置	ポリエチレン容器
C	ガス・エアロゾル採取装置	フィルターパック法 ( $\text{SO}_2$ , $\text{HNO}_3$ , エアロゾル) カートリッジ法(RCHO)
D	$\text{NO}_2$ 捕集器	分子拡散法
E	$\text{O}_3$ ゾンデ 気象ゾンデ	KI 法

表2 地上での採取・測定項目

採取・測定項目	方法・装置
雨水	雨水採取装置
エアロゾル	フィルターパック法
ガス( $\text{SO}_2$ , $\text{HNO}_3$ )	〃
ガス(RCHO)	カートリッジ法
エアロゾル (粗大・微小粒径別)	アンダーセンローボリウム エアサンプラー
ガス( $\text{O}_3$ , $\text{CO}$ , $\text{NO}_x$ )	自動連続測定機

表3 分析項目と分析方法

項目	採取物質		分析方法
	雲水	雨水	
pH	○	○	ガラス電極法
EC	○	○	電気伝導度計
$\text{SO}_4^{2-}$ , $\text{NO}_3^-$ , $\text{Cl}^-$	○	○	イオンクロマトグラフィ
$\text{NH}_4^+$	○	○	インドフェノール法
$\text{Na}^+$ , $\text{K}^+$ , $\text{Ca}^{2+}$ , $\text{Mg}^{2+}$	○	○	原子吸光法
$\text{SO}_2$		○	アルカリ含浸ろ紙法
$\text{HNO}_3$		○	イオンクロマトグラフィ
R-CHO	○	○	高速液体クロマトグラフィ
$\text{NO}_2$		○	吸光度法
$\text{O}_3$		○	化学発光法、電量法
粒子形態	○	○	電子顕微鏡 (XMA-SEM)

ー内にテフロンフィルター、アルカリ含浸ろ紙、ナイロンフィルターを挿入して、リチウム電池で駆動させる直流ポンプにより大気を吸引して、各エアロゾル、 $\text{SO}_2$ 、 $\text{HNO}_3$ を採取するものである。吸引流量は約 $9\text{ l min}^{-1}$ で連続8時間以上安定していることを事前に確認した。さらに、アルデヒド類は、SEP-PAK C<sub>18</sub>カートリッジを用いて、 $1\text{ l min}^{-1}$ の流量でミニポンプにより大気を連続吸引して、採取を行った。

雨水は、内口径 $250\text{ mm}$ のポリエチレン製容器に雨水を受けて、その底部にテフロン管を接続して容量 $250\text{ ml}$ のポリエチレン瓶に捕集した。ポリエチレン容器は係留気球の上部に固定し、係留気球の側部に左右1個ずつポリエチレン瓶を固定した。

さらに、当研究所で開発した分子拡散法による $\text{NO}_x$

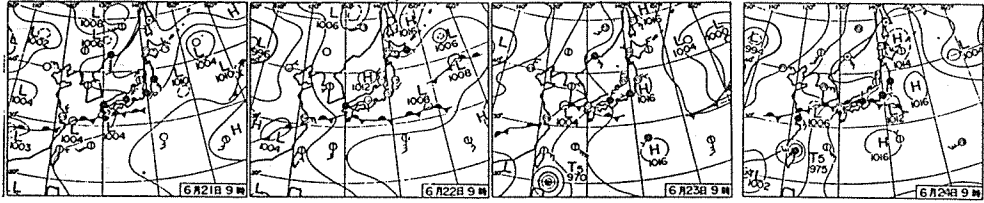


図3 1986年6月21日～6月24日の09時の地上天気図  
(日本気象協会発行の雑誌“気象”より)

捕集器<sup>30)</sup>を、係留気球の側部のロープに雨水と雲水防止用のカバーをかぶせて固定し、大気中のNO<sub>2</sub>を捕集した。

大気中のO<sub>3</sub>は、後述する気象ゾンデの下に電量法のO<sub>3</sub>ゾンデをとりつけ、O<sub>3</sub>濃度に比例した電流値を、気象データとともに無線で地上へ送ることによって、連続測定した。

#### 2-4 地上での採取方法

地上でも表2に示すように、雨水、ガス、エアロゾルを、上空とほぼ同一方法で同一時間帯に採取した。

なお、O<sub>3</sub>、NO<sub>x</sub>、CO等の連続測定は、調査地点より約1km北東の横浜市公害研究所で行った。

#### 2-5 分析項目と分析方法

雲水、雨水、エアロゾルおよびガスの分析項目の分析方法を、表3に示す。

#### 2-6 上空での気象観測

係留気球に搭載した気象ゾンデ(A.I.R.社製)で、係留高度での風向、風速、気温、湿度、気圧を連続測定した。また、1時間毎にパイロットバルーンを放球して上層風の鉛直分布を求めた。

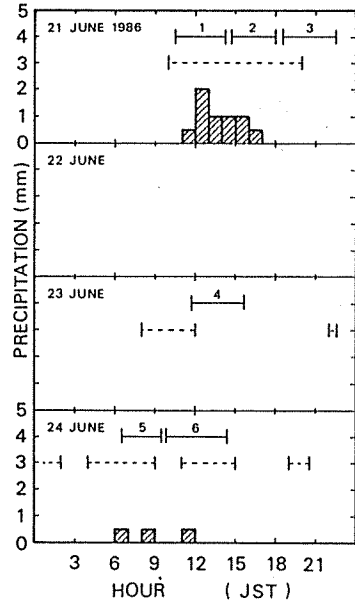


図4 調査期間中の降水時間帯(-----)、時間降水量と係留気球による採取時間帯(——)数字はRun番号

表4 調査期間中の試料採取状況

	Run 1	Run 2	Run 3	Run 4	Run 5	Run 6
date (June,1986)	21	21	21	23	24	24
sampling time	1030-1415	1440-1800	1830-2230	1140-1540	0630-0930	0950-1425
height of balloon (m)	300-350	250	300-350	400-500	200	300-400
wind direction	N-NNE	N-NNE	N-NNE	SSW	NNE-NE	NE-ENE
cloud base						
cloud water		○	○		○	
rain water	○*	○			○	
gas (SO <sub>2</sub> ,HNO <sub>3</sub> ,RCHO)	○*	○		○*		○*
gas (NO <sub>2</sub> ,O <sub>3</sub> )	○*	○	○	○*	○	○*
aerosol (total)	○*	○		○*		○*
ground						
rain water	○	○			○	
gas (SO <sub>2</sub> ,HNO <sub>3</sub> ,RCHO)	○	○	○	○	○	○
gas (NO <sub>2</sub> ,O <sub>3</sub> )	○	○	○	○	○	○
aerosol (total)	○	○	○	○	○	○
aerosol (coarse, fine)	○	○	○	○	○	○

\* height below cloud base

### 3. 調査期間中の気象と採取状況

1986年の梅雨は、関東地方では、6月19日頃から始まった。6月21日は、図3にみられるように梅雨前線は八丈島付近を通過して東西方向に停滞していた。この北側の本州南岸沖合いを活発な対流雲域が西から東へ進んだので、関東南部では10時から18時にかけて雨が降り、横浜气象台での降水量は6mmであった。

6月22日は移動性高気圧が通過したので、関東地方では晴となった。

6月23日は、南寄りの風が一日中吹き続け、雨は時々ぱらついたが、降水量は1mm未満であった。24日になると梅雨前線は、21日の位置より北上して本州付近に停滞し、九州北部から若狭湾を経て、南東方向に三河湾から三宅島方面へのびていた。24日の未明に風が南から北に変化するとともに神奈川県東部で弱い雨が2時頃から9時頃にかけて降り、横浜气象台での降水量は1mmであった。

係留気球による測定は、図4に示すように、この調査期間中に6回実施した。表4に、地上および上空での採取状況を示した。係留気球で上空の雲水と雨水とが同時に採取されたのは、Run2とRun5だけだったので、これらのデータを中心に解析した。また、雨が止んだ後のRun3では雲水が採取されたので、そのデータについても解析を行った。

なお、気象の解析に際しては、各地の气象台による気象データ、ひまわりの衛星画像データ等を用いた。

### 4. 結果と考察

まず、大気中のガスやエアロゾルが、雲底部やそれより下層の大気中で雲粒や雨滴によって、どのようにとりこまれていたのかを、Run2とRun5のデータを用いて考察した。

#### 4-1 雲粒・雨滴によるガス・エアロゾルのとりこみ機構

##### 4-1-1 Run2

表5は、6月21日午後のRun2における、雲水、雨水および地上の粗大・微小エアロゾル中の、主要な水溶性成分の濃度である。これらのデータから次のことがわかった。

- (1) 雲底部での雲水中の水溶性成分の濃度は、同一高度での雨水と比較して、pH以外は高く、EC、 $\text{SO}_4^{2-}$ は、3.3倍、 $\text{NO}_3^-$ は4.8倍、 $\text{NH}_4^+$ は6.2倍であった。雨滴は、雲粒との併合過程により成長しながら落下するので、雲底部での雨水中の濃度は、雲底部より上層の雲粒中の平均濃度を示している。したがって、雲底部での雲水中の濃度が、それより上層の雲粒中の平均濃度より高かったことは、雲の中では雲底部の雲粒が最も汚染されていたことを示している。
- (2) 雲底部での雲水中の濃度の組成比は、同一高度での雨水中の濃度組成比と異なっていた。したがって雲底部での雨滴は、同一高度の雲粒だけでなく、もっと上層の雲粒 — その濃度組成比は雲底部のそれと異なっていた — の影響を強く受けていた。
- (3) 雲底部での雨水と地上の雨水とを比較すると、主要な水溶性成分の濃度やECの値はほぼ等しかった。このことは、雲底部より下層の大気中では、雨滴によるガスやエアロゾルのとりこみがなかった — すなわちwash outがなかった — ことを意味する。したがって、Run2での降水の汚染はすべて雲の中で起こっていた — すなわちrain outによるものであった — ことがわかる。
- (4) 地上でのエアロゾルの重量濃度 — 粗大粒子は $2.0 \mu\text{g m}^{-3}$ 以下、微小粒子は $31.9 \mu\text{g m}^{-3}$ であった — は非常に低く、特に粗大粒子は、微小粒子との重量

表5 Run2(6月21日14:40~18:00)での雲水、雨水と粗大・微小粒子中の主要な水溶性成分の濃度

Height	Sample	EC	pH	$\text{SO}_4^{2-}$	$\text{NO}_3^-$	$\text{Cl}^-$	$\text{NH}_4^+$	$\text{Ca}^{2+}$	$\frac{\text{SO}_4^{2-}}{\text{NO}_3^-}$	$\frac{\text{Cl}^-}{\text{NO}_3^-}$	$\frac{\text{NH}_4^+}{\text{NO}_3^-}$	$\frac{\text{Ca}^{2+}}{\text{NO}_3^-}$
cloud base	cloud water ( $\mu\text{eq l}^{-1}$ ) A	167	3.7	263	194	332	483	113	1.36	1.71	2.49	0.58
	rain water ( " ) B	50	4.0	79	41	36	79	9	1.93	0.88	1.93	0.22
ground	rain water ( " ) C	45	4.1	76	38	34	77	17	2.00	0.89	2.03	0.45
	coarse aerosol ( $\text{neq m}^{-3}$ )			8	6	-	ND	30	1.33	-	-	5.00
	fine aerosol ( " )			63	98	-	222	50	0.64	-	2.26	0.51
ratio	A/B	3.3		3.3	4.8	9.1	6.2	11.5				
	C/B	0.9		0.9	0.9	0.9	1.0	1.5				

表6 Run 2の地上と雲底部でのガスとエアロゾルの濃度

Height	SO <sub>2</sub> (ppb)	O <sub>3</sub> (ppb)	NO <sub>2</sub> (ppb)	HNO <sub>3</sub> (ppb)	aerosol (μg m <sup>-3</sup> )
cloud base	ND	20~30	40	ND	<6
ground	6	5	40	ND	54

濃度比が0.06以下と少なかった。調査日の6月21日を含む6月18日から6月23日まで、新井と白砂<sup>31)</sup>は磯子の当研究所でアンダーセンローボリュームエアサンプラーでエアロゾルを連続採取していた。その結果によれば、粗大粒子と微小粒子の重量濃度はそれぞれ、17.3, 34.1 μg m<sup>-3</sup>で、両者の濃度比は0.51であった。したがって、Run2の降水時には、粗大粒子が激減していたことがわかる。

これまでの研究<sup>32-37)</sup>によれば、降水時の大気中の粗大粒子と微小粒子との重量濃度比は、非降水時に比べて小さくなり、その原因は主に粗大粒子が雨滴にとりこまれるためであることが指摘されている。

さて、すでに述べたように、Run2の測定では、雲底部より下層の大気中では雨滴によるガスやエアロゾルのとりこみがなく、しかも地上での大気中の粗大粒子は非常に少なかった。これらの2つの事実は、すでに鶴田<sup>37)</sup>が降雪時での調査結果で明らかにしたように、地表面が降水でぬれたために粗大粒子の再飛散がなかったためである、ということと矛盾なく説明できる。6月21日の雨は10時過ぎから降り始めており、Run2の前に実施したRun1(10時30分~14時15分)での地上の粗大粒子と微小粒子の重量濃度はそれぞれ、8.3, 59.5 μg m<sup>-3</sup>とRun2よりも高く、両者の濃度比も0.14でRun2よりも大きかった。したがって、雨滴による下層大気中のエアロゾ

ルのとりこみは、降水初期だけであったと推測される。

(5) 雲底部でフィルターパック法により採取したエアロゾルの重量濃度は、表6に示すように、検出限界(6 μg m<sup>-3</sup>)以下で、地上で同一方法で採取したエアロゾルの重量濃度(54 μg m<sup>-3</sup>)に比べて、非常に低かった。雲底部への物質の輸送は、一般に地上からの鉛直輸送だけでなく、4-5節で述べるように、固定発生源の高煙突からの水平輸送もある。雲底部での大気中のエアロゾル濃度が検出限界以下と非常に低かったことは、これらの過程で物質が雲底部に輸送されているにもかかわらず、雲粒によるエアロゾルの捕集率がほぼ100%であったことを示唆している。フィルターパック法による大気採取流量は約9 ℓ min<sup>-1</sup>で、アンダーセンローボリュームエアサンプラー(約27 ℓ min<sup>-1</sup>)の1/3の流量であり、採取原理も異なるので、雲底部と地上の比較は、同一採取方法による結果を用いた。

(6) 雲底部での大気中のSO<sub>2</sub>濃度は、地上より低く検出限界以下であった。雲水中のSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>は、エアロゾルだけではなく、SO<sub>2</sub>ガスとして雲粒中にとりこまれた後に酸化反応でSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>となったものを含んでいると考えられるので、雲粒によるSO<sub>2</sub>ガスの捕集効率はほぼ100%だったことを示唆している。

一方、HNO<sub>3</sub>ガスは、雲底部および地上とも検出限界以下であり、また日射量も少なかったことからHNO<sub>3</sub>ガスは下層大気中には、ほとんど存在していなかったと思われる。

ところで、雲底部のNO<sub>2</sub>濃度は、地上とほぼ等しく、またO<sub>3</sub>は地上より高かった。水への溶解度を示すヘンリー定数は、NO<sub>2</sub>, O<sub>3</sub>に対してSO<sub>2</sub>は10<sup>2</sup>倍、HNO<sub>3</sub>は10<sup>7</sup>倍と大きい。したがって、一般にSO<sub>2</sub>やHNO<sub>3</sub>が雲底部に水平あるいは鉛直方向に輸

表7 Run 5(6月24日06:30~09:30)での雲水、雨水と粗大・微小粒子中の主要な水溶性成分の濃度

Height	Sample	EC	pH	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>		NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>		Cl <sup>-</sup>		NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>		Ca <sup>2+</sup>	
				NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>		
cloud base	cloud water (μeq ℓ <sup>-1</sup> ) A	146	4.3	455	261	155	877	73	1.74	0.59	3.36	0.28	
	rain water ( " ) B	78	4.2	208	110	68	353	33	1.89	0.62	3.21	0.30	
ground	rain water ( " ) C	91	4.6	282	136	89	519	54	2.07	0.65	3.82	0.40	
	coarse aerosol (neq m <sup>-3</sup> )			21	21	3	17	20	1.00	0.14	0.81	0.95	
	fine aerosol (neq m <sup>-3</sup> )			92	95	14	233	35	0.97	0.15	2.45	0.37	
ratio	A/B	1.9	2.2	2.4	2.3	2.5	2.1						
	C/B	1.2	1.4	1.3	1.3	1.5	1.6						

送された後にすぐ雲粒にとりこまれるのに対し、NO<sub>2</sub>やO<sub>3</sub>は速い気相反応がなければ、雲の中の大気中に存在していることが可能である。このように、雲粒によるガスのとりこみは、ガスの種類によって大きく異なっていることが、実測からわかった。このことは4-4節での雲化学の考察にとって、貴重なデータを与えることとなった。

#### 4-1-2 Run 5

表7は、6月24日早朝のRun 5での、雲水、雨水および地上のエアロゾル（粗大・微小粒子）中の、主要な水溶性成分の濃度である。これらのデータから次のことがわかった。

- (1) 雲底部での雲水中の濃度は、同一高度での雨水と比較して、pH 以外は高く、EC は1.9 倍、主要な水溶性成分は2.1~2.5倍であった。Run 2の場合と同様に、雲底部での雲水中の濃度が雨水より高く、雲の中では雲底部の雲粒が最も汚染されていたことを示している。
- (2) 雲底部での雲水中の主要成分濃度のNO<sub>3</sub><sup>-</sup> に対する比は、同一高度での雨水のそれと、ほぼ等しかった。すなわち、両者の主要成分の濃度組成比がほぼ等しく、Run 2の場合とは異なっていた。これは雲底部付近の雲粒が雨滴にとりこまれる割合が、Run 2よりも大きかったことを示している。この違いをひき起こす要因としては、雨滴や雲粒の粒径や密度、雲底部の雲の厚さや雲水量等がある。降水機構については、4-3節で述べるが、特に、Run 5の雨は霧雨であり、Run 2では並雨であったので、粒径が異なっていた。したがって、衝突や凝集による雲粒の成長過程や、降水粒子が落下中にどれだけ雲粒を捕集するか、などが降水によって異なるためであろう。
- (3) 雲底部での雨水と地上の雨水とを比較すると、Run 2の場合と異なって、各成分とも地上の雨水の方が高く、特に陰イオンよりもNH<sub>4</sub><sup>+</sup>、Ca<sup>2+</sup>の方が増加率が大きかった。これは、雲底部より下層の大気中を雨滴が落下するときに、エアロゾルやガスを取りこんだためである。すなわち、Run 5では、Run 2と異なって、wash out の影響がみられた。また、地上の雨水のpH が、雲底部での雨水よりも大きかった原因は、下層大気中のNH<sub>3</sub>ガスやCaを含むエアロゾルが雨滴にとりこまれたためである。
- (4) 地上でのエアロゾルの重量濃度は、微小粒子 9.1 μg m<sup>-3</sup>、粗大粒子42.1 μg m<sup>-3</sup>で、Run 2の時より高く、また、粗大粒子と微小粒子との重量濃度比も0.22とRun 2の時よりも大きかった。しかし、6月

23日から28日まで新井と白砂<sup>31)</sup>が連続採取したエアロゾル中の粗大粒子 (15.9 μg m<sup>-3</sup>) と微小粒子 (24.2 μg m<sup>-3</sup>) との濃度比は0.66だった。したがって、その濃度比よりも、Run 5の降水中の濃度比の方が約1/3小さく、粗大粒子の減少が大きかったことが確認された。

6月24日の早朝の雨は神奈川県東部と千葉県西部で降っただけで、降水量も1mm前後と少なかった。地上から雲底部までの風向は北東で、測定地点の風上には、雨の降っていなかった東京都心部や京浜工業地帯がある。したがって、測定地点に輸送された下層大気中には、その地域だけでなく風上側で排出されたものや再飛散したものが含まれていて、雨の降っている地域で wash out されつつあった、と推測される。

- (5) 地上でのSO<sub>2</sub>濃度は7ppb、HNO<sub>3</sub>ガスは検出限界以下と低かった。雲底部での大気中のSO<sub>2</sub>、HNO<sub>3</sub>は、採取できなかったが、並雨であったRun 2の時に検出限界濃度以下と低かったことから判断すると、Run 5での雲底部の大気中でも、ほとんどなかったと推測される。一方、NO<sub>2</sub>は雲底部と地上ではほぼ等しく約50ppb、O<sub>3</sub>は雲底部で35ppb、地上では15ppbと、雲底部の方が高かった。NO<sub>2</sub>とO<sub>3</sub>はRun 2と同様に雲底部の方が地上よりもやや高いか同じ濃度であった。

- (6) Run 2とRun 5の雲水中の成分を比較すると、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>はRun 5の方が高かったが、Cl<sup>-</sup>やCa<sup>2+</sup>はRun 2の方が高かった。すなわち、両者の雲水中の成分濃度組成比が異なっていたことがわかる。これは、前述したように、雲底部付近の風向が、Run 2では北であったのに対して、Run 5では北東だったので、風上側の大気中のガスやエアロゾルの組成比が異なっていたため、と推測される。

以上のように、Run 2とRun 5のデータを解析して、雲底部の雲粒中の濃度は、ガスやエアロゾルが雲粒に効率よくとりこまれているために、非常に高いことがわかった。さらに、雲底部の雲粒が雨滴にとりこまれる割合は、それぞれの降水機構によって異なっていると推測された。また、地上で測定される降水中の成分は、ほぼ雲の中でのrain outによって決定されるが、さらに、雲底部より下層の大気中の物質を取りこんでいる(wash out)場合には、それらに含まれているCaCO<sub>3</sub>やNH<sub>3</sub>が雨水のpHを高めていることがわかった。

4-2 関東南部での降水中の水溶性成分濃度の地域分布

Run 2が行われた6月21日, Run 5が行われた6月24日早朝は, 関東地方でも雨が降っており, 各地で降水の採取・分析が実施されていた。そこでこの節では, それらのデータを比較して, 係留気球による調査を実施した礫子での降水の成分濃度のその地域代表性を検討した。

この調査期間中には, 酸性雨に関する共同調査が2つ独立して行われており, 当研究所もそれらに参加した。1つは, 関東甲信越静岡地域の1都11県1市が約30地点で, 他の1つは神奈川県内の1県6市が約10地点で, 初期降水と1降水全量の水溶性成分を分析しており, それらの結果はすでに報告書<sup>35-39)</sup>にまとめられている。

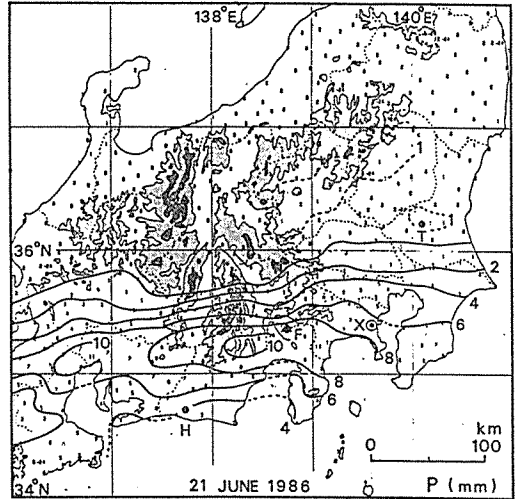


図5 AMeDAS資料から求めた1986年6月21日の総降水量(mm), X-調査地点, T-館野 H-浜松, F-富士山

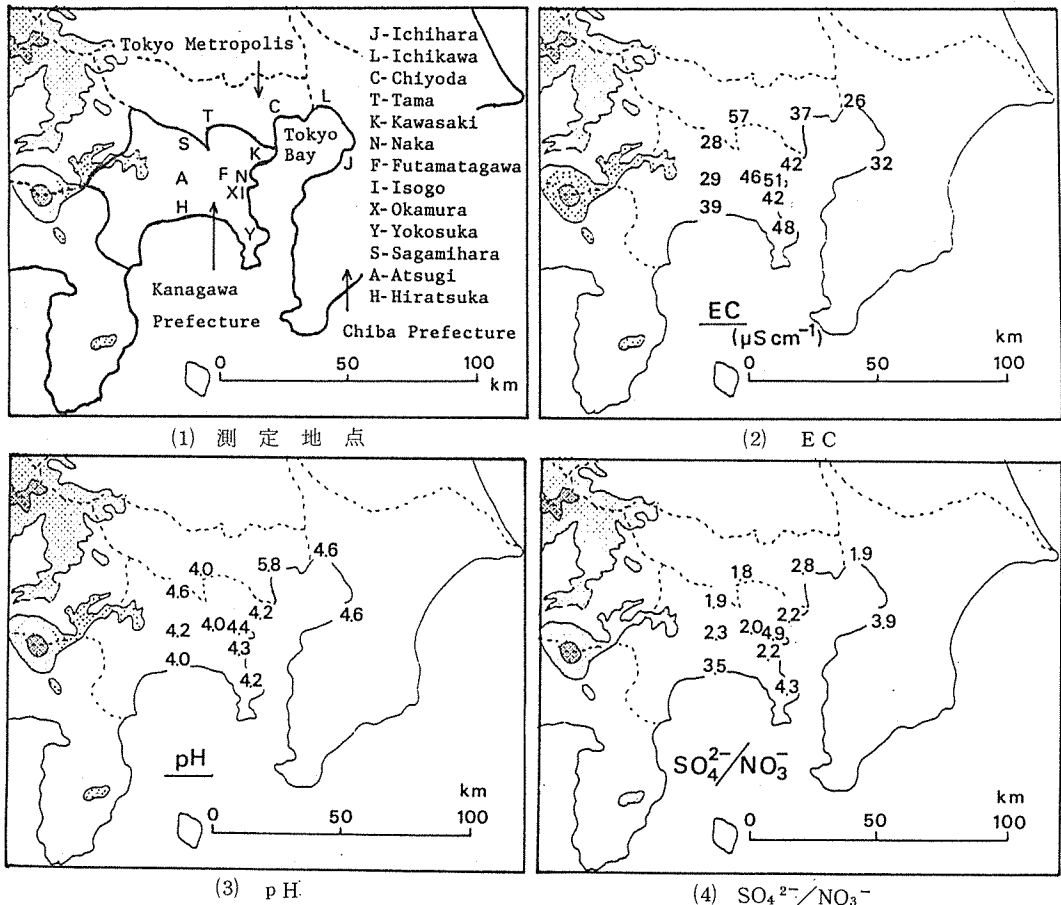


図6 関東南部での測定地点, 1降水全量のEC, pHとSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>/NO<sub>3</sub><sup>-</sup> (当量濃度比)



なお、ここで用いた礫子の降水成分のデータは、係留気球による調査を実施した岡村公園内でのものではなく、その地点より北東約1kmにある公害研究所での降水——前述した2つの共同調査期間中に同一手法で採取したもの——のデータである。

#### 4-2-1 6月21日の降水

6月21日の降水量は、AMeDAS データによれば、図5に示すように、太平洋沿岸地域では4~10mmだったが、その北側では2mm以下と少なかった。一般に初期降水と1降水全量での降水中の成分濃度を比較すると、前者の方が高いことは、よく知られている。したがって、1降水全量が少ない地点と多い地点の成分濃度を単純に比較することはできない。

そこで、降水量が2mm以下の調査地点（主に、茨城、栃木、群馬および埼玉である）を除いて、図6-1に解析の対象とした地点を示した。これらの地点で測定された1降水全量は、4.3~8.6mmであった。また、それらの多くは東京湾岸地帯に位置し、他の4地点はその西側の郊外にあった。

図6-2、6-3は、各地点でのECとpHの分布である。神奈川県内では、ECは、東京湾岸地帯を含む東部の地点（K,N,I,Y）の方が、約30km離れた中部の地点（S,A,H）より大きかった。また、 $\text{SO}_4^{2-}$ や $\text{NO}_3^-$ 等の濃度も、ECと同じ傾向を示した。しかし、pHは、S地点を除くと、4.0~4.4で、その変動巾は、他の成分に比べて小さかった。なお、 $\text{SO}_4^{2-}$ と $\text{NO}_3^-$ との当量濃度比は、図6-4に示すように、1より大きく、都市

中心部や工業地帯に位置する地点——これらの地点での濃度比は8~5と大きかった——を除くと、約2の値を示し、当量濃度比のほぼ等しい雨が降ったと推測された。

次に、降水を1mm毎に連続して採取した地点での、各降水中の成分濃度の時間変化を、 $\text{SO}_4^{2-}$ とpHについて、図7に示した。 $\text{SO}_4^{2-}$ については、ほとんどの地点で、初期1mm目の降水中の濃度が最も高く、2mm以降の降水中の濃度はほぼ一定であった。このような経時変化は、pHを除く他の成分でも同じであった。なお、pHは、主に $\text{NH}_4^+$ 、 $\text{Ca}^{2+}$ 、 $\text{SO}_4^{2-}$ や $\text{NO}_3^-$ 濃度等に依存するので、2mm以降ですぐに一定とならなかったが、後期の降水になるほど各地点のpHの値のばらつきが小さくなった。

ところで、Run 2の時間帯では、図4からわかるように、1降水中の初期ではなく後期の降水を採取した。係留気球の調査地点でのRun 2の降水中の成分濃度は、図6や図7からわかるように、周囲の地点と比較して、ほぼ等しかった。

局地的な汚染物質の影響は、初期降水ほど強く受けるといわれている。すでに述べたように、神奈川県内では、1降水全量中の成分濃度が東部より中部の方が低かったが、この要因が主に初期降水の影響によるものかどうかを検討した。

表8は、神奈川県の、中部での主要な成分の平均濃度と東部での平均的な濃度との比を、初期1mm降水、1降水全量および後続降水について、示したものである。なお、後続降水の定義は、ここでは2mm目以降の全降水とし、その濃度は、1降水全量の濃度から初期1mm目の降水の濃度を、降水量の重みづけをして、さしひいたものである。表8に示すように、濃度比は、1降水全量だけでなく、初期1mmについても1より小さく、 $\text{Ca}^{2+}$ を除いて、1降水全量の方が初期1mmより小さかった。したがって、後続降水でも、成分濃度は東部の方が中部より高かったことがわかる。

すでに、4-1節で述べたように、Run 2では、雲底部より下層の大気中では、汚染物質の雨滴によると

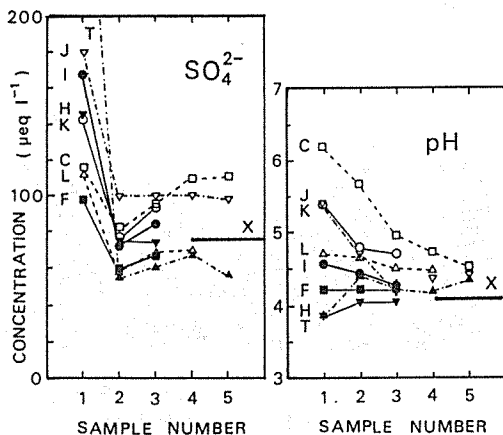


図7 関東南部での6月21日の降水の1mm毎の連続試料中の $\text{SO}_4^{2-}$ 濃度とpH

(太実線はRun2での調査地点の地上の濃度)

表8 1986年6月21日の降水中の主要成分の、神奈川県中部での平均濃度と東部での平均濃度の比

	$\text{SO}_4^{2-}$	$\text{NO}_3^-$	$\text{Cl}^-$	$\text{NH}_4^+$	$\text{Ca}^{2+}$	$\text{H}^+$	EC
初期1mm降水	0.84	0.86	0.80	0.81	0.30	0.89	0.79
1降水全量	0.72	0.76	0.71	0.61	0.28	0.76	0.68
後続降水	0.67	0.70	0.67	0.53	0.25	0.76	0.64

りこみは、ほとんどなかった。このことが神奈川県内では共通な現象であると仮定すると、後続降水中の成分濃度の東部と中部との違いは、雲粒中の濃度の差が主な原因とみなすことができる。一般に、上空ほど水平方向の雲粒中の濃度差は小さくなると考えられるので、わずか30 kmの間の濃度差は、下層の雲粒中での現象と推測される。東部の風上側には、工業地帯や東京都心部が存在するので、それらの発生源からの汚染物質が下層の雲粒にとりこまれ、それらが落下する雨滴に捕捉されたため、と推測される。

#### 4-2-2 6月24日早朝の降水

6月23日から6月24日の早朝にかけての降水は、AMeDAS データによれば、関東南部では6mm以下と少なかった。第3章で述べたように、23日の日中は関東平野では南寄りの風で、降水はあったが1mm以下と非常に少なく、23日の夜半から24日9時頃まで弱い雨が降り続いた。後者の降水時間帯について富士山でのレーダーエコーを調べたところ、23日23時～24日3時頃と24日4時～7時頃に、雨域が中部・関東地方の太平洋沿岸地域西北部から東南東に移動していた。礫子での降水量は、図4に示したように、6～9時の間に1.0 mm観測されたので、後者の雨域の通過によってもたらされたものであることがわかった。神奈川県内の降水の採取は、5地点で6月23日の朝から6月24日の日中まで行われ、降水量は0.6～2.6mmであり、AMeDAS データから推測すると、採取された降水はほとんど24日の早朝の降水であった。なお、Run 5の時間帯では、関東南部の房総半島南部で1mm以下の降水があっただけで、Run 2の6月21日と異なり、局地的な降水であった。

5地点の降水のpHは4.4～5.9、ECは40～88  $\mu\text{Scm}^{-1}$ と、地点によって大きく変化していた。しかし、水溶性成分濃度（データ省略）には共通した特徴——すなわち、 $\text{NH}_4^+$ が高く、 $\text{Na}^+$ に比べて $\text{Ca}^{2+}$ の方が高いこと、また、 $\text{SO}_4^{2-}$ の方が $\text{NO}_3^-$ より高く、 $\text{Cl}^-$ 濃度は $\text{NO}_3^-$ と等しいか低い——がみられた。これらの特徴は、礫子で採取された雲水や雨水と定性的には同じであった。したがって、4-1-2節で述べたように、各地点とも、雲底部付近の雲粒やそれより下層の大気中で雨滴によりエアロゾルやガスが主にとりこまれたと推測される。

### 4-3 降水機構と広域での汚染物質の輸送過程

#### 4-3-1 6月21日の降水機構

6月21日の降水については、雲底部より上層の雲粒の影響を強く受けていると推測され、また、神奈川県内の降水の成分濃度はほぼ、等しかった。そこで、6月21日の降水機構を、上層気象データを用いて考察する。

気象衛星ひまわりの可視画像では、写真1に示すように、梅雨前線帯に対応した雲が北緯30°Nから日本列島南半分をおおって東西に存在していた。この雲の高さは10,000 mにも達し、30°N以北の本州南方海上では、活発な対流性の雲域が西から東へ移動していた<sup>4)</sup> AMeDAS 資料によれば、21日の総降水量は図5にすでに示したように、太平洋沿岸地域では最大10mmだったが、36°N以北ではほとんど降水はなかった。また、活発な対流雲域の北側の端は、降水量4～5mm以上の太平洋沿岸地域南部上空に対応しており、調査地点は、その雲域の北端に位置していた。そこで気象台の気象観測データ等を用いて、太平洋沿岸地域での鉛直方向の雲の状態を推測して図8に示した。

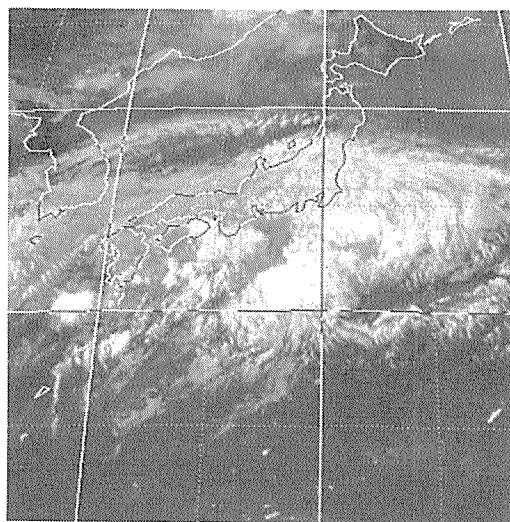


写真1 1986年6月21日12時の気象衛星“ひまわり”の赤外画像

高度 3776 m の富士山頂では、21日の日中は西北西の風が  $9\text{ms}^{-1}$  吹いており、気温は  $-0.1^\circ\text{C}$  で雪であった。浜松、館野の高層気象観測データでも、図9に示すように、高度650mb付近で気温が  $0^\circ\text{C}$  だったので、乱層雲(Ns)上端付近の高度3,500m以上は雪、それより下層は、雪が溶けて雨となっていたことがわかる。即ち上層の巻層雲での氷晶核が次第に落下しながら成長して雪片となり、さらに落下する途中で雨滴となり、最終的に地上に到達したことがわかる。

雪として存在していた高度は少なくとも3,500m以上であり、その高さでは  $10\text{ms}^{-1}$  以上の強い風が吹いていたので、この雪の中に含まれている物質は、西方から運ばれてきたものと考えられる。雪片は溶けて雨滴となり乱層雲中を落下するが、この時、雨滴（あるいは雪片）は、水蒸気が凝結して、あるいは雲粒が付着して増大する。高橋<sup>41)</sup>やYoshizaki<sup>42)</sup>によれば、雲粒の併合による雨滴の増大の方が、水蒸気の凝結によるものよりはるかに大きい。したがって、係留気球で採取された雲底部での雨水中の物質は、乱層雲の雲粒と最下層の層雲の雲粒の中の物質とから構成されていることがわかる。

それでは、乱層雲付近の高度の大気は、どこから輸送されてきたのか。図9に示すように館野の上空は21日09時では4層の異なる風系で構成されており、地上から900mbまでは、冷たく湿った北東～東寄りの風、750mbまでは南西の比較的暖かく湿った風、その上層650mbまでは乾いた西寄りの風、そしてそれより上層には再び湿った強い西風の層がある。それ故、乱

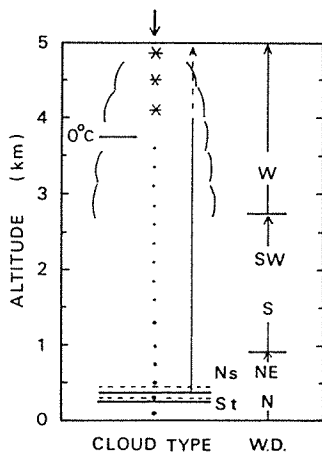


図8 6月21日15時頃の鉛直方向の雲の分布と風向と雪片(\*), 雨滴(·)の落下

層雲の下部は冷たい東～北東風と接していたので、関東南部の都市・工業地帯からの汚染物質の一部が鉛直混合で層雲を通り抜けてとりこまれた可能性がある。図10に示すように、6月21日15時の地上風では、神奈川東部は北寄りの風であった。また、その上部は南西風の領域だったが、この南西風は、850mbの天気図からは、本州南方海上の上空を通過してきたと推測され、この大気中の物質の濃度が、どの程度だったかを知る必要がある。

以上から総合的に判断すると、地上から約1kmまでの北東風の領域の雲は、東京湾岸地帯の都市・工業地帯を通過してくるので、その上空の南西風の大気よりも多くの汚染物質をとりこんでいる、と考えられる。しかし、雲の層の厚さは後者の南西風層内の方が大きいので、雨滴は前者の北東風層内よりも多くの雲粒をとりこんでいるために、後者の雲粒中の平均濃度も、雲底部での雨水の水溶性成分の濃度に寄与していたと思われる。それ故、雲底部の雲粒だけでなく、さらにその上層の雲粒や大気中のガス・エアロゾル濃度を測定するとともに、それらの物質がどこから運ばれてくるかを明らかにすることが、降水の汚染過程を解明する上で重要な課題である。

#### 4-3-2 6月24日早朝の降水機構

4-2-2節で述べたように、富士山レーダによれば、24日の4時から7時頃にかけて、雨域が愛知県南部から東南東の方向に八丈島方面へ、移動していた。

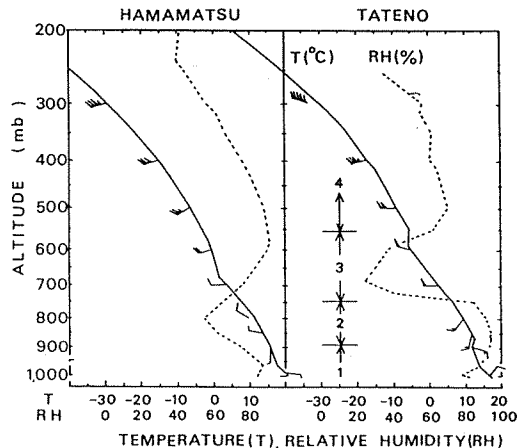


図9 浜松と館野での気温(T), 相対湿度(RH), 風向風速の鉛直分布(1986年6月21日9時)

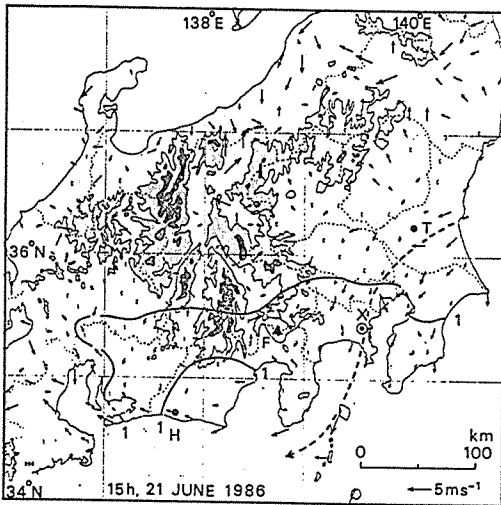


図10 AMeDAS資料から求めた1986年6月21日15時の地上風。破線は調査地点(X)を通過する流線(実曲線は、時間降水量1mmの等値線を示す)

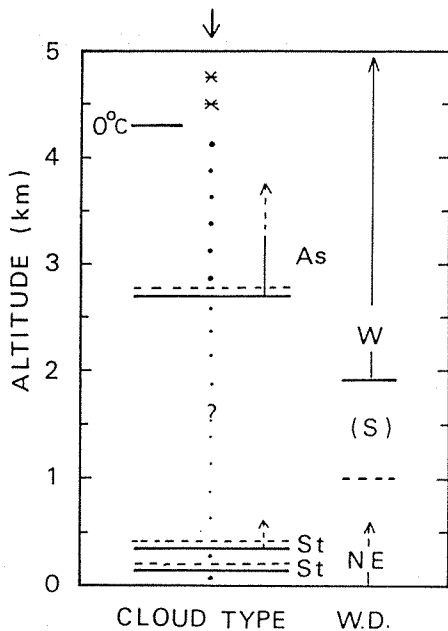


図11 6月24日6時頃の鉛直方向の雲の分布と風向、雪片(\*), 雨滴(●)の落下

6時頃に、この雨域より北側の相模湾岸域に弱い雨域が形成され、房総半島南部へ移動していた。Run5は、この雨域の通過中に実施され、礫子で1mm近い降水が測定された。

朝6時頃の、鉛直方向の雲の分布を図11に示した。最下層の雲は、雲底高度約150mの層雲で、さらに高度300~400mにも層雲が存在していた。地上からこれらの層雲までは、約 $4\text{ms}^{-1}$ の北東風であり、気温の鉛直分布によれば大気は安定していた。層雲の厚さがどの程度あったのかわからないが、館野のデータから判断すると、北東風は少なくとも高度500mまでは吹いていたと推測される。高度2,000m付近から上層は西の風となっており、2,700m付近に高層雲(As)の雲底部が存在していた。気象衛星によれば、Asの上に巻層雲がひろがっていて、雲頂は8~9,000mであった。

気温が $0^{\circ}\text{C}$ の高度は、約4kmだったので、その高度以下では雪片は解けて雨滴となっていた、と考えられる。しかし、Asより下層の大気中では、湿度は70%と低かったので、雨滴は成長せず次第に蒸発していったと推測される。そして、最下層の層雲内で、再び雲粒を併合して、地上へ落下した可能性が強い。

調査地点での雨は、霧雨に近い非常に細かい雨で落下速度は、Run2と比べて小さかった。一方、雲水量は、約 $0.3\text{gm}^{-3}$ で、Run2の雲水量よりも多かった。これは、層雲の雲粒の個数密度が大きき、また(あるいは)、雲粒の粒径が大きかった、ことを示している。

さらに、層雲が存在していた下層大気は安定しており風もあまり強くなかったので、汚染物質は、最下層の層雲にとりこまれたため、それより上層の大気は、ほとんど汚染されていなかったと推測される。

すでに述べたように、Run5では、雲底部の雨水と雲水中の成分組成は、ほぼ同じであったが、ECは、雲水の方が雨水よりも2倍大きかった(表7)。これから、層雲に入る前の雨滴は比較的清浄で、層雲内で、非常に汚染された雲粒を併合して、雨滴の成分濃度が高くなった、と考えられる。

以上のように、Run2とRun5の時の降水機構は異なっており、その違いが、雨水の汚染過程にも強く影響を与えていることが、推測された。

#### 4-4 雲粒中での酸化反応

$\text{SO}_2$ ,  $\text{NO}_x$ の大気中あるいは液滴中での酸化反応について、表9に示す。これらの中で、どれが、日射の弱い時の酸化反応として重要かを、考察する。

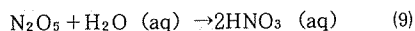
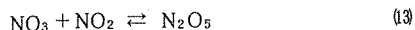
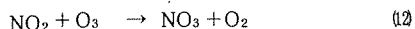
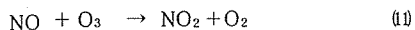
表9 SO<sub>2</sub> と NO<sub>x</sub> の酸化反応

SO <sub>2</sub>	+ OH (+M)	→	H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	(1)
SO <sub>2</sub> ·H <sub>2</sub> O	+ H <sub>2</sub> O <sub>2</sub>	→	H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	(2)
S(IV)	+ O <sub>3</sub>	→	H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	(3)
S(IV)	(Fe <sup>3+</sup> , Mn <sup>2+</sup> )	→	H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	(4)
HSO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	+ radicals(OH, NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> , HO <sub>2</sub> )	→	H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	(5)
NO <sub>2</sub>	+ OH (+M)	→	HNO <sub>3</sub>	(6)
N <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	+ H <sub>2</sub> O	→	HNO <sub>3</sub>	(7)
NO <sub>3</sub>	+ HCHO	→	HNO <sub>3</sub>	(8)
N <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	+ H <sub>2</sub> O (aq.)	→	HNO <sub>3</sub>	(9)
NO <sub>3</sub> (g.)	(aq.)	→	HNO <sub>3</sub>	(10)

#### 4-4-1 NO<sub>x</sub> の酸化反応

光化学反応(6)で生成するHNO<sub>3</sub>ガスは、すでに述べたように、Run 2の地上および雲底部では、検出限界以下と低かった。また、Run3, Run5の場合でも、地上の濃度は検出限界以下であり、下層大気中でもほとんど存在していなかったと考えられる。したがって、雲粒(あるいは雨滴)中のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>は、(6)や(8)の気相反応で生成したHNO<sub>3</sub>ガスが液滴中に溶けこんだものではないことがわかった。

次に、NO<sub>2</sub>からNO<sub>3</sub>を経てN<sub>2</sub>O<sub>5</sub>が生成され、N<sub>2</sub>O<sub>5</sub>とH<sub>2</sub>Oとの気相反応でHNO<sub>3</sub>ガスが生成するという一連の反応(7)は、最後の気相反応が非常に遅いので、考慮する必要はない。しかし、N<sub>2</sub>O<sub>5</sub>が液滴のH<sub>2</sub>Oと反応して液滴中でHNO<sub>3</sub>が生成される不均質反応(9)は、非常に速い、と推測されているが<sup>43)</sup>、まだその反応速度定数は測定されていない。この一連の反応は、正確には次の反応が続いておこる場合である。



今回の調査で、雲底部の大気中には、NO<sub>2</sub>, O<sub>3</sub>のガスが一定の濃度で存在していたことが、はじめてわかった。これは、上記の反応が進行する可能性が充分にあることを示唆している。

なお、O<sub>3</sub>は、もともと対流圏下部には20~40ppb存在しており、地表付近では、日射が弱ければNOとの反応(11)で分解するので、上空より低くなる。一方、NO<sub>2</sub>

は、主に反応(11)で生成するので、地上と上空とであまり濃度に変化しない。表6に示した、地上と雲底部でのNO<sub>2</sub>とO<sub>3</sub>の濃度は、これらの反応を考えれば日射の弱い時の一般的なものと考えられる。

雲水中のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度は、Run 5(およびRun 3)で約5 μgm<sup>-3</sup>であった。これらの濃度は、もし、地上付近のエロゾル濃度がすべて雲粒中にとりこまれると仮定して求めた雲粒中の濃度よりも高かった。したがって、固定発生源から直接HNO<sub>3</sub>やNO<sub>3</sub><sup>-</sup>などが排出されていないと仮定すると、雲の中でHNO<sub>3</sub>あるいはNO<sub>3</sub><sup>-</sup>が生成されていることになる。

なお、固定発生源からHNO<sub>3</sub>がガスとして排出されているという報告はなく、また後述するように排出されているエアロゾル中のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>は非常に少ないが、NO<sub>x</sub>濃度は非常に高い。したがって、固定発生源からの排出物質の影響については、上述のNO<sub>x</sub>の酸化反応を考慮する必要がある(自動車からの排出物質中のNO<sub>x</sub>についても同様である)。

Run 2の場合には、地上のエロゾル濃度の方が、雲水中のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度より高かった。しかし、Run 2の直前に実施したRun 1では、雲底部より数十m低い大気中で係留気球による測定が行われ、その高さでのエアロゾル、およびエアロゾル中のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>の濃度は、検出限界以下と非常に低かった。しかし、地上でのエアロゾル中のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度は、Run 2での濃度とほぼ等しかった。したがって、雲底部より下層の大気中から雲粒中にとりこまれるエアロゾルが、地上付近の濃度に等しいという仮定は、6月21日の気象条件の時には成り立たない。もし、Run 2で雲粒中にとりこまれたエアロゾル中のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>が、地上付近の濃度の半分以下とすると、Run 3の場合と同様に、雲の中でNO<sub>3</sub><sup>-</sup>が生成されていることになる。

#### 4-4-2 SO<sub>2</sub> の酸化反応

光化学反応(1)は、今回の調査時では日射が弱かったので無視できる。その他の反応(2)~(5)は、全て液滴中の反応であり、今回の測定ではどの反応が重要であるかは、H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>やS(IV)等の測定をしていないので、判断することはできなかった。なお、一般的には、(2)と(3)の反応ではないか、と推測されている。O<sub>3</sub>は、雲底部での大気中に数十ppb存在していることがわかったので、(3)の反応を無視することはできない、と推測される。なお、WalcekとStokwell<sup>44)</sup>は、SO<sub>2</sub>の酸化反応のモデル計算で、発生源近傍では(2)の反応が最も重要だが、遠方に行くにつれて、(3)、(5)の反応も(2)と同程度に重要となる、と述べている。

#### 4-5 固定発生源から排出される大気汚染物質の雲粒によるとりこみと降水への寄与

一般に、雲水あるいは雨水中の汚染物質濃度から、それらに対する固定と移動発生源からの汚染物質の寄与割合を求めることはむずかしい。しかし、発生源に特有な排出物質があれば、それを指標として、その発生源からの汚染物質の寄与割合を推定することは可能である。

Run 3 — すでに述べたRun 2にひき続いて実施した — では、次に述べるように、雲水中の非海塩起源のCl<sup>-</sup>濃度が非常に高かった。一方、固定発生源の中で焼却炉から排出されるガス状物質のHCl濃度が高いことは、すでによく知られている(たとえば文献45)。そこで、この節では、Run 3 で得られた雲水中の汚染物質の発生源について具体的に考察し、さらに長期間の地上での降水試料の中でCl<sup>-</sup>濃度の高かった降水についても検討する。

##### 4-5-1 Run 3の雲水中の物質と焼却炉から排出される物質との比較

Run 3での雲水の特徴は、図12に示すようにEC が780  $\mu\text{Scm}^{-1}$ と非常に大きく、水溶性成分の濃度が非常に高かったことである。特にCl<sup>-</sup>の当量濃度は、全陰イオン([SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>] + [NO<sub>3</sub><sup>-</sup>] + [Cl<sup>-</sup>])中で約50%の割合を占めていて最も高く、またH<sup>+</sup>を除く陽イオンではNH<sub>4</sub><sup>+</sup>、Na<sup>+</sup>、Ca<sup>2+</sup>の濃度が高かった。Run2、Run3 およびRun 5の雲水採取期間中、地上から雲底部までは表4に示すように、北東～北寄りの風が吹き続けており、採取した雲水への海塩粒子の寄与はなかった。これらから、Run 3の雲水は、Run 5の雲水と質的に異なっていたことがわかる。なお、Run 2では、雲水中の水溶性成分の濃度はRun 5より低かったが、Cl<sup>-</sup>濃度の全陰イオン中に占める割合は約32%で、通常の雨水中での割合よりも大きかった。したがって、Run 2の雲水はRun 3と質的に似ている可能性があるが、ここでは、Run 3だけを考察の対象とした。

ところで、固定発生源から大気中へ排出されるガスの主要成分はSO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub> 等であるが、HClガスの濃度については、焼却炉の方が他の燃焼施設よりも非常に高いことが、よく知られている<sup>45)</sup>。また、固定発生源から排出されるエアロゾル(発生源から排出される粒子は、一般に「ばいじん」といわれているが、大気中や雲中のエアロゾルとの整合性から、ここではエアロゾルと呼ぶ)中の陰イオン成分(SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、Cl<sup>-</sup>)についても、焼却炉では、他の燃焼施設と比較してCl<sup>-</sup>濃度が非常に高いことが報告されている<sup>46)</sup>。最近、松

尾ら<sup>47)</sup>は、8種類の施設から排出されたエアロゾル中のSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、Cl<sup>-</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>濃度をイオンクロマトグラフで測定した結果、焼却炉では4イオンの中でCl<sup>-</sup>濃度が最も高かったが、他の施設ではほとんどSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>が90%以上を占めていた、と報告している。さらにNO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度の組成比率は、セメント工場からのエアロゾル中では約25%を占めていたが、その他の施設では1%以下と非常に低かった、と報告されている。また加藤ら<sup>48)</sup>が行った煙道でのエアロゾル中の水溶性アニオンの測定によれば、焼却炉から排出されるエアロゾル中のCl<sup>-</sup>濃度はSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度より高く、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>は検出限界以下と非常に低かった。そして、同時に測定したアルカリ吸収法によるHClガスの測定結果によれば、エアロゾル中には全Cl濃度の約10%しか存在せず、ほとんどのClは、HClガスとして存在していた。

また松尾<sup>47)</sup>らは、前述した8種類の固定発生源から排出されるエアロゾル中の主要な15元素についても同時に分析し、焼却炉については、K、Na、Ca、Znの4元素だけで、15元素の総重量の90%を占めていた、と報告している。一方、占部<sup>49)</sup>は、ごみ焼却炉からのエアロゾル中の主要な9元素について分析し、Na、Ca、Kの重量濃度が最も高かった、と述べている。また、千葉県公害研究所<sup>50)</sup>が実施した焼却炉から排出されるエアロゾルの組成分析結果では、K、Naが多かったと述べている。

これらの固定発生源から排出されるガスおよびエアロゾルに関する測定結果から、焼却炉からの排出物質の特徴は、HClガス濃度がSO<sub>2</sub>やNO<sub>x</sub>濃度よりも高く全Cl濃度に占めるエアロゾル中のCl濃度は低いこと、また、エアロゾル中の主要元素は、Na、Ca、K、Zn であ

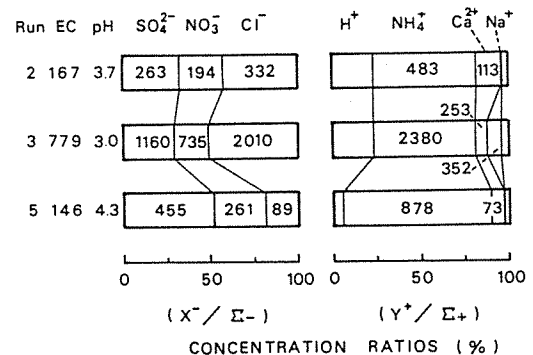


図12 雲水中の陽イオン、陰イオン成分の当量濃度比。数字は当量濃度( $\mu\text{eq l}^{-1}$ )

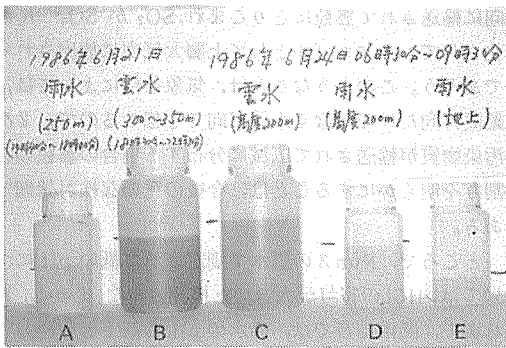


写真2 係留気球を用いて採取した雲水と雨水の主な試料

- A - Run2 の雨水 (高度250 m)
- B - Run3 の雲水 (高度300 - 350 m)
- C - Run5 の雲水 (高度200 m)
- D - " の雨水 ( " )
- E - " の雨水 (地上)

ることが確認された。したがって、Run 3 の雲水中 — Cl<sup>-</sup> 濃度が全陰イオン中の約40%と高く、Na<sup>+</sup>、Ca<sup>2+</sup> の濃度も高かった — には、焼却炉からの汚染物質が多くとりこまれていたことが、推測された。

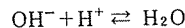
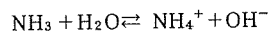
さらに、Run 3 の雲水は、写真2に示すように、その前に採取されたRun 2 の雨水や雲水 (写真省略) よりも非常に黒っぽい色をしていた。この雲水の不溶性粒子を走査型電子顕微鏡で形態分析したところ、燃焼系から排出されたと推測される多孔質の球形粒子とすすが多く存在していた<sup>51)</sup>。谷川らは、<sup>52)</sup> 焼却炉での低酸素燃焼時には、炉内が部分的に不完全燃焼になるため高濃度のCOとTHC(全炭化水素)および黒煙が排出された、と報告している。また、渡辺らは、<sup>53)</sup> 煙道中のエアロゾルの形態を電子顕微鏡を用いて分析し、産業廃棄物焼却炉から排出される不溶性粒子の特徴は黒色微粒子と多孔質の残留炭素形粒子である、と報告している。これらから、Run 3 の黒っぽい色を呈した雲水中には、焼却炉から排出されたエアロゾルも多く含まれていた、と推測される。

#### 4-5-2 pH 3.0 の雲水中の酸性物質

Run 3 の雲水の pH は3.0 と非常に低かったが、その主要な酸性物質は、H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>、HNO<sub>3</sub>、HCl のどれであろうか。各陰イオンの H<sup>+</sup> に対する当量濃度比は、[SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>]/[H<sup>+</sup>]=1.27、[NO<sub>3</sub><sup>-</sup>]/[H<sup>+</sup>]=0.81、[Cl<sup>-</sup>]/[H<sup>+</sup>]=2.21 となり、NO<sub>3</sub><sup>-</sup> だけは、全て酸として存在したと仮定しても、3.0 という低い pH の値を満足させるだけの濃度より低いことがわかる。

焼却炉からの排出物質の特徴の第一は、前述したように、HCl ガスの濃度がSO<sub>2</sub> やNO<sub>x</sub> に比べて高いことであり、また、HCl の水に対する溶解度を表わすヘンリー一定数は、HNO<sub>3</sub> やSO<sub>2</sub> よりも大きい。したがって、Run 3 の雲水中のCl<sup>-</sup>濃度の多くは、排出されたHCl ガスが雲粒にとけこんで pH を低下させた、という推測もできる。次に、雲水中のSO<sub>4</sub><sup>2-</sup> とNO<sub>3</sub><sup>-</sup> の重量濃度比は [SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>]/[NO<sub>3</sub><sup>-</sup>]=1.22 であった。前述したように、焼却炉からのエアロゾル中のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度はSO<sub>4</sub><sup>2-</sup> に比べて非常に少ないが、排出ガス中の NO<sub>x</sub> 濃度はSO<sub>2</sub> 濃度と同程度か高い。したがって、NO<sub>x</sub> として排出された後に、O<sub>3</sub> との反応で最終的に雲粒中でHNO<sub>3</sub> が生成された可能性もある。さらに、排出ガス中のSO<sub>2</sub> が、雲粒にとけた後に H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 等の反応で H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> となっていることも、十分に考えられる。

一方、Run 3 の雲水中の NH<sub>4</sub><sup>+</sup> に対する当量濃度比は、[SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>]/[NH<sub>4</sub><sup>+</sup>]=0.49、[NO<sub>3</sub><sup>-</sup>]/[NH<sub>4</sub><sup>+</sup>]=0.31、[Cl<sup>-</sup>]/[NH<sub>4</sub><sup>+</sup>]=0.85 であった。先に述べた松尾<sup>47)</sup>らの測定結果によれば、焼却炉からのエアロゾル中の NH<sub>4</sub><sup>+</sup>濃度は、全イオン濃度 ([SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>]+[NO<sub>3</sub><sup>-</sup>]+[Cl<sup>-</sup>]+[NH<sub>4</sub><sup>+</sup>]) の1%以下と低かった。したがって、雲水中の高濃度の NH<sub>4</sub><sup>+</sup> は、大気中にもともと存在していた NH<sub>3</sub> あるいは NH<sub>4</sub><sup>+</sup> や、排出されたエアロゾル中の NH<sub>4</sub><sup>+</sup> だけでなく、NH<sub>3</sub> として排出された後に雲粒中にとけこんだものが主である、と考えられる。この場合には、雲粒にとけた後に生成した OH<sup>-</sup> が、酸生物質の H<sup>+</sup> と反応することになる。



しかし、この H<sup>+</sup> は、H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>、HNO<sub>3</sub>、HCl の中のどの H<sup>+</sup> と特定することはできない。

なお、Run 3 の雲水中では、Na<sup>+</sup> や Ca<sup>2+</sup> 等も濃度が高かった。これらは、主に塩として存在していたと考えられる。しかし、もしすべてが塩として存在していたと仮定しても、これらと結合していた陰イオン濃度は、当量濃度比では、([Na<sup>+</sup>]+[Ca<sup>2+</sup>]+[K<sup>+</sup>]+[Mg<sup>2+</sup>])/([SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>]+[NO<sub>3</sub><sup>-</sup>]+[Cl<sup>-</sup>])=0.2 となり、全陰イオン濃度の20%と少ないことがわかる。ところで、占部<sup>49)</sup>によると、焼却炉からのエアロゾル中のNa、Ca、K等は、主にNaClやCaCl<sub>2</sub>という塩化物として存在している。そこで、これらの陽イオンが全て塩化物だったと仮定すると、雲水中のCl<sup>-</sup>濃度の約37%はこれらの塩として存在することになる。この場合には、残りのCl<sup>-</sup>の全陰イオンの当量濃度に対する比は0.40と小さくなり、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の全陰イオン濃度に対す

る比 (0.37) とほぼ等しくなる。

以上から、次の2点 — 雲水中の $\text{NH}_4^+$ は $\text{NH}_3$ として排出された後に雲粒にとけこんだ、また、 $\text{Na}^+$ 、 $\text{Ca}^{2+}$ 等は塩化物として排出された — を仮定すると、3.0 という低い pH に寄与している酸性物質は、 $\text{HCl}$ と $\text{H}_2\text{SO}_4$ とが約4割ずつで、残りの3割が $\text{HNO}_3$ となる。しかし、これらの結果は仮定でしかないことを断っておく。

なお、飯豊<sup>54)</sup>によれば、試験用燃焼ボイラーから排出されたエアロゾル中の $\text{NO}_3^-$ は不検出だったが、エアロゾル捕集部を循環水で冷却させて得られた凝縮水中では $\text{NO}_3^-$ が検出されている。もし、この $\text{NO}_3^-$ が $\text{HNO}_3$ として存在していたとすれば、固定発生源から直接 $\text{HNO}_3$ が排出されていることになるので、大変興味ある結果である。

固定発生源から排出される物質については、これまで多くの調査研究がなされてきた。しかし、Run 3で得られた雲水の分析結果と十分に比較検討し得る排出物質の総合的なデータは、現在ではまだ得られていない。したがって、今後は、硫黄酸化物、窒素酸化物、塩素化合物、アンモニア等が、ガス、エアロゾル（ミストを含める）として、それぞれ、どれだけ排出しているのかを明らかにすることが、重要である。そのためには、冷却を含めた多段階採取方法によりミストを含めたエアロゾル、ガスを同時に採取すること、また、測定対象として、従来の固定発生源だけでなく、焼却炉等の施設をも含めることが、必要であろう。

一方、大気環境の測定についても、雲水だけでなく、上空の大気中の $\text{HCl}$ 、 $\text{NH}_3$ やエアロゾル中の水溶性成分等今回測定できなかった項目についても、今後、採取・分析をしていく必要がある。

#### 4-5-3 降水中の汚染物質に及ぼす固定発生源の影響

Run 3の雲水の採取は、6月21日の午後のRun 2に引き続いて、夜に実施したが、すでに雨は止み、雲底部での風向は北～北北東で、風速は $6 \sim 8 \text{ ms}^{-1}$ と強かった。

これらの雲粒が、風下側へ輸送され、その後雨滴にとりこまれることなく日射によって蒸発すると、雲粒中の水溶性成分の一部は、大気中に酸性のガスやエアロゾルとして存在することになる。即ち、雲粒は、発生源から排出された1次汚染物質をとりこんで、その一部を大気中に2次汚染物質として放出する役割もっていることが、推測される。たとえば、対流積雲の場合は、雲底より下層の大気中の汚染物質が鉛直方

向に輸送されて雲粒にとりこまれ、 $\text{SO}_2$ が $\text{SO}_4^{2-}$ に酸化されて、エアロゾルとして上層大気中に放出されるであろう。このようなことは、気象条件によっては、鉛直方向だけではなく水平方向でも起こるので、2次汚染物質が輸送されて広域に分布する場合の雲粒の役割りを明らかにすることは、今後の重要な検討課題である。

ところで、Run 3の雲水で測定された低い pH については、 $\text{HCl}$ の寄与が大きいと推測された。しかし、これまで、関東地方では、降水の pH の低下と $[\text{NO}_3^-] / [\text{SO}_4^{2-}]$ の増加とは良い対応がある、すなわち、pH が低くなるにつれて $\text{NO}_3^-$ の寄与が $\text{SO}_4^{2-}$ よりも相対的に大きくなる、という結果<sup>16)</sup>が、梅雨期に得られている。また、当研究所の夏期の降水でも、pH が4.0前後と低い降水中の陰イオン濃度については、 $\text{xsSO}_4^{2-}$ （非海塩起源の $\text{SO}_4^{2-}$ ）や $\text{NO}_3^-$ の濃度は高いが $\text{Cl}^-$ 濃度は低いという解析結果<sup>18)</sup>が得られている。すなわち夏期の低い pH の降水には、 $\text{Cl}^-$ の寄与は少ないことを示している。

神奈川県<sup>46)</sup>では、煙道中のエアロゾルの pH を測定した結果、ボイラーやガラス溶融炉では2以下と非常に低い場合もあったが、焼却炉の pH は6～7で高かった、と報告している。一般に、焼却炉では、稼働条件や処理方法によって排出物質の成分濃度は大きく変化するので、排出されるエアロゾルの pH は、低い場合も高い場合もあると思われる。また、エアロゾルの pH は高くても、排出ガスの $\text{HCl}$ 濃度が高く雲粒や雨滴にとりこまれれば、Run 3の雲水のように、雨水の pH も低くなる可能性はある。

さて、焼却炉からの排出物質が降水にとりこまれているならば、降水中の $\text{Na}^+$ 、 $\text{Cl}^-$ あるいは $\text{Ca}^{2+}$ 等の濃度は高くなるはずである。一方、海塩粒子がとりこまれれば、やはり降水中の $\text{Na}^+$ 、 $\text{Cl}^-$ 濃度は高くなる。両者を区別することは、気象条件を解析すれば、ある程度可能であろう。

南方の海岸線から30kmしか離れていない当研究所で測定しているエアロゾル中の $\text{Na}^+$ や $\text{Cl}^-$ 濃度は、南寄りの強い風の時には、海塩粒子が運ばれるので、高くなる<sup>55)</sup>。そこで、当研究所で長期間採取分析されている降水の中で、 $\text{Na}^+$ や $\text{Cl}^-$ 濃度の高い特徴的なデータを、表10に示した。北寄りの風の時には、海塩粒子の寄与は少ないと考えられ、高濃度の $\text{Na}^+$ や $\text{Cl}^-$ は他の発生源、すなわち焼却炉等からの排出物質が降水に含まれたためと推測される。これらの降水の pH は4.5以上で、酸性を示していたが、その酸性度はあまり大きくな



表 10 磯子での  $\text{Cl}^-$  濃度の高い降水中の主要成分濃度の例

Na	Y	M	D	pH	$\text{Na}^+$	$\text{Ca}^{2+}$	$\text{SO}_4^{2-}$	$\text{NO}_3^-$	$\text{Cl}^-$	$\text{xsSO}_4^{2-}$	$\text{xsCl}^-$	p	WDmax	WSmax
				$(\mu\text{eq l}^{-1})$							$(\text{mm})$	$(\text{ms}^{-1})$		
1	1985	1	11	5.5	162	71	164	71	233	—	—	1.4	N	8.1
2	1985	6	10	4.5	376	144	400	134	575	—	—	2.6	N	6.1
3	1985	4	4	5.1	110	24	33	7	175	20	47	21.8	SSE	11.6
4	1985	3	25	4.0	913	117	258	26	727	149	-338	7.0	SW	8.4

った。

一方、海からの南寄りの強い風が吹いている場合でも、海塩起源だけでなく非海塩起源の  $\text{Cl}^-$  が多く存在していることがあり、その時の降水の pH は、5 前後の場合が多かった。また、Na 4 のデータにみられるように、pH が 4.0 と非常に低い降水もあった。この日は南西の風が非常に強かったが、 $[\text{Cl}^-]/[\text{Na}^+]=0.80$  と海塩粒子の組成比 (1.1) よりも小さく、また、 $\text{xsSO}_4^{2-}$  濃度は高く、 $\text{NO}_3^-$  濃度は低かった。この降水では、 $\text{Na}^+$  が全て海塩粒子からのものであるとは考えられず、焼却炉等からの排出物質もとりこまれて、pH が低くなったと推測される。

ところで、関東甲信越静地域での酸性雨に関する共同調査の結果<sup>10)</sup>、太平洋沿岸地域から内陸域へ遠ざかるにつれて、降水中の  $\text{Cl}^-$  濃度の減少割合は、 $\text{Na}^+$  のそれよりも小さいことが明らかになっている。このことは、内陸域での降水中の  $\text{Cl}^-$  の発生源として、海塩粒子以外のものがあることを示している。

都市域では、人間活動に伴うごみの排出量の増加とともに焼却炉の数も増加しているため、それらから排出されるガスやエアロゾルの量も増加していると推測される。したがって、今後、焼却炉を含めた固定発生源からの排出物質の、降水に与える影響を調べていくことは、重要な課題である。

## 5. ま と め

都市、工業地帯の近傍で、係留気球を用いて、雲底部の雲水、雨水（さらにガスおよびエアロゾル）を採取する調査を1986年の6月の梅雨期間中に実施した。雲水は3つの試料が得られ、同時に、地上で採取した雨水、ガス、エアロゾルの分析を行って、それらを総合的に解析した結果、次のことが明らかになった。

(1) 雲底部の雲水は、同一高度での雨水より、ECは大きく、主要な水溶性成分の濃度は高かった。

(2) 雲底部での雲水中の水溶性成分の組成比と、同一高度での雨水中のそれとを比較すると、異なっている場合と同じ場合とが得られた。この違いは、雲底部を落下する雨滴による雲底部の雲粒をとりこむ割合が、降水によって異なるためである。これをひき起す原因は、雲粒や雨滴の密度や粒径および落下速度、あるいは降水機構が異なることによると推測される。

(3) 雲底部での雨水中の成分と、地上での雨水中の成分とを比較すると、地表面が十分にぬれて粗大粒子の再飛散がない場合は、wash outは全くなかった。wash outがある場合は、主にエアロゾルが雨滴にとりこまれ、粗大粒子中のCaや $\text{NH}_3$ ガス等が雨水中のpHを高めていることが明らかになった。

(4) 雲底部での大気中では、エアロゾルや $\text{SO}_2$ および $\text{HNO}_3$ ガスの濃度は、検出限界以下と非常に低かった（ $\text{HNO}_3$ は地上でも検出限界以下と低かった）。(1)で述べたように、雲底部の雲水中の汚染物質の濃度が非常に高かったことを考えると、雲底部での雲粒は、 $\text{SO}_2$ や $\text{HNO}_3$ ガス、エアロゾルをほぼ100%とりこんでいた、と推測される。

(5)  $\text{NO}_x$ の酸化反応は、光化学反応で生成される $\text{HNO}_3$ ガスが検出限界以下と低かったため、他の反応によって起こっていると考えられた。雲底部での大気中には $\text{NO}_2$ 、 $\text{O}_3$ とも一定の濃度で存在していたので、 $\text{NO}(\text{+O}_3) \rightarrow \text{NO}_2(\text{+O}_3) \rightarrow \text{NO}_3(\text{+NO}_2) \rightarrow \text{N}_2\text{O}_5(\text{+H}_2\text{O}) \rightarrow \text{HNO}_3$ という一連の反応で、液滴中で $\text{HNO}_3$ が生成されると推測された。

(6) 雲水の試料では、ECが約 $780 \mu\text{Scm}^{-1}$ と非常に大きく、各成分の濃度も非常に高く、黒っぽい色を呈していたものが、1例採取された。各成分の中で、 $\text{Cl}^-$ 、 $\text{NH}_4^+$ 、 $\text{Na}^+$ 、 $\text{Ca}^{2+}$ などの濃度が、他の雲水よりも非常に高く、固定発生源、特に焼却炉から排出された汚染物質が、雲粒にとりこまれたものであると推測された。

(7) 上層気象の解析から、梅雨期には、汚染されている

る雲の高さは低く、たかだか1 kmまでと推測された。

## 6. 今後の課題

係留気球を用いて上空の雲水や雨水を採取・分析することにより、地上での降水の分析だけではわからなかったこと—雲粒・雨滴による汚染物質のとりこみ機構や、酸化反応など—の一部が明らかになった。しかし、この調査は、酸性雨の生成機構を解明するための第一歩であり、今後、さらにとりくまなければならない課題を、次に記す。

- (1) 今回の第1次調査の解析をさらに行う。特にアルデヒド、不溶解性粒子の形態分析等は、ほとんどふれなかったため、他の汚染物質と関連させながら考察をする。また、酸化反応や雲粒による汚染物質のとりこみについても、定量的な議論をしていく予定である。なお、雲底部より上層の大気運動について、流跡線解析を行って考察する。
- (2) SO<sub>2</sub>の酸化反応にとって重要なH<sub>2</sub>O<sub>2</sub>やS(IV)、また、カルボン酸等の有機酸の濃度を把握することが重要なので、それらの分析手法を確立する。
- (3) 焼却炉を含めた固定発生源から排出される物質の総合的な把握が重要である。特に、S、N、Cl等が、ガス、エアロゾルあるいはミストとしてどの程度排出されているか、という調査が必要である。
- (4) 今回の調査は、梅雨期の雲底部での雲水だけを採取したが、異なった気象条件の時に、雲の下層だけでなく上層や中層での雲水の採取・分析が必要である。特に、日射が弱く気温の低い冬期、また、日射の強い時の積乱雲、あるいは、温暖前線や寒冷前線付近の雲水の採取・分析が、重要である。さらに、比較的清浄な地域での雲水中の化学成分と、汚染地域のそれとを比較・検討することも、必要であろう。

## 謝 辞

AMeDAS データ、ひまわりの気象衛星画像等の気象データを利用していただいた気象庁に深く感謝致します。また、降水成分のデータ利用に関して便宜を図っていただいた、関東地方公害対策推進本部大気汚染部会・1都3県公害防止協議会と神奈川県環境部に厚く感謝致します。

## 文 献

- 1) National Research Council, Committee on Atmospheric Transport and Chemical Transformation in Acid Precipitation: Acid deposition;

Atmospheric processes in eastern North America, National Academy Press, p30 (1983).

- 2) Penkett, S.A., B.M.R. Jones, K.A. Brice and A.E.J. Eggleton: The importance of atmospheric ozone and hydrogen peroxide in oxidising sulfur dioxide in cloud and rain-water, *Atmos. Environ.*, 13, 123-137(1979).
- 3) Calvert, J.G. and W.R. Stockwell: Mechanism and rates of the gas-phase oxidations of sulfur dioxide and nitrogen oxides in the atmosphere, in "SO<sub>2</sub>, NO and NO<sub>2</sub> oxidation mechanisms: Atmospheric conditions," J.G. Calvert, Ed., Butterworth Publishers, 1-62(1984).
- 4) Martin, R.L.: Kinetic studies of sulfite oxidation in aqueous solution, in *ibid*, 63-100(1984).
- 5) Hoffmann, M.R. and D.J. Jacob: Kinetics and mechanisms of the catalytic oxidation of dissolved sulfur dioxide in aqueous solution, in *ibid*, 101-172(1984).
- 6) Schwartz, S.E.: Gas-aqueous reactions of sulfur and nitrogen oxides in liquid-water clouds, in *ibid*, 173-208(1984).
- 7) Daum, P.H., T.J. Kerry, S.E. Schwartz and L. Newmann: Measurements of the chemical composition of stratiform clouds, *Atmos. Environ.*, 18, 2671-2684(1984).
- 8) Gertler, A.W. and R.W. Michael: Cloud Chamber studies of NO<sub>x</sub> reactions in cloud droplets, PB85-149383(1985).
- 9) 大喜多敏一, 原 宏, 太田幸雄, 内山政弘: 降水滴およびエアロゾル中の亜硫酸, 亜硝酸の酸化機構, 「環境科学」研究報告集, B290-R11-7(1986).
- 10) 鶴田治雄: 酸性雨の調査研究の現状, 環境研究, No61, 70-85(1986).
- 11) The NCAR Deposition Modeling Project: The NCAR Eulerian Acid Deposition Model, NCAR/TN 256+STR(1985).
- 12) Hegg, D.A., S.A. Rutledge and P.V. Hobbs: A numerical model for sulfur chemistry in warm-frontal rainbands, *J. Geophys. Res.*, 89, 7133-7147(1984).
- 13) Rutledge, S.A., D.A. Hegg and P.V. Hobbs: A numerical model for sulfur and nitrogen scavenging in narrow cold frontal rainbands; I. Model description and discussion of microphysical

- fields, *J. Geophys. Res.*, **91**, 14385-14402(1986).
- 14) Hegg, D.A., S.A. Rutledge and P.V. Hobbs: A numerical model for sulfur and nitrogen scavenging in narrow cold frontal rainbands; 2. Discussion of chemical fields, *J. Geophys. Res.*, **91**, 14403-14416(1986).
- 15) Earter, R.C.: The OSCAR Experiment, in Proceedings of ACS Symposium on Acid Rain, Las Vegas, Nev.(1982)
- 16) 関東地方公害対策推進本部大気汚染部会・一都三県公害防止協議会：昭和58年度湿性大気汚染調査報告書(1985).
- 17) Calvert, J.G., A. Lazrus, G.L. Kok, B.G. Heikes, J.G. Walega, J. Lind and C.A. Cantrell: Chemical mechanisms of acid generation in the troposphere, *Nature*, **317**, 27-35(1985).
- 18) 渡辺善徳, 草野 一, 鶴田治雄：酸性降水に関する調査研究(第5報)——酸性ガスの挙動——, 横浜市公害研究所報, 第11号, 29-35(1986).
- 19) 鶴田治雄, 渡辺善徳, 草野 一：沿岸域から内陸域への汚染物質の変質過程, 「環境科学」研究報告書 B280-R11-2, 168-173(1986).
- 20) 鶴田治雄：降水の汚染機構に関する調査研究, 第28回大気汚染学会予稿集, 206-207(1987).
- 21) Okita, T.: Concentration of sulfate and other inorganic materials in fog and cloud water and in aerosol, *J. Meteor. Soc. Japan*, **46**, 120-127(1968).
- 22) 古明地哲人, 福岡三郎, 中野欣嗣, 朝木野国彦, 大平俊男：雨水の汚染とそのメカニズムに関する研究, 東京都公害研究所年報, **7**, 27-37(1976).
- 23) 環境庁光化学二次生成物質検討会(湿性分科会)：湿性大気汚染調査総合報告書(総括編), 170-197(1981).
- 24) 三村春雄, 篠崎光夫：酸性雨に関する調査研究(第3報)——平塚における初期降水について——, 神奈川県公害センター研究報告, 第6号, 8-16(1984).
- 25) 藤田慎一, 寺田信之：海霧とガス状・粒子状物質との相互作用, 電力中央研究所報告282086(1983).
- 26) 村野健太郎, 関口恭一, 寺田信之, 水落元之, 尾崎 裕, 泉 克幸, 福山 力, 氏家淳雄：赤城山の南東面に発生する滑昇霧の化学組成, 「環境科学」研究報告集 B-248-R-11-8, 65-78(1985).
- 27) 村野健太郎, 水落元之, 尾崎 裕, 泉 克幸, 福山 力, 植田洋匡, 大喜多敏一, 寺田信之, 佐々木一敏, 栗田秀實：軽井沢で観測された放射霧と雨の化学組成, 「環境科学」研究報告 B280-R-11-2, 180-184(1986).
- 28) 環境庁酸性雨対策検討会大気分科会：酸性雨対策調査中間報告書(1987).
- 29) Patrinos, A.A.N.: The impact of urban and industrial emissions on mesoscale precipitation chemistry, *J. Air Poll. Control Assoc.*, **35**, 719-727(1985).
- 30) 平野耕一郎, 前田裕行, 石井哲夫, 米山悦夫：NO, NO<sub>2</sub>の簡易測定法, 環境と測定技術, **12**, No.12, 32-39(1985).
- 31) 新井久雄, 白砂裕一郎：未発表資料.
- 32) Gatz, D.F.: Wet deposition estimation using scavenging ratios, *J. Great Lakes Res.*, **2**, 21-32(1976).
- 33) 小林英生, 橋本芳一：エアロゾルの粒度分布に対する降水の影響, 第17回大気汚染研究全国協議会大会講演要旨集, P.123(1976).
- 34) Dana, M.T. and J.M. Hales.: Statistical aspects of the washout of polydisperse aerosols, *Atmos. Environ.*, **10**, 45-50(1976).
- 35) Pruppacher, H.R. and J.D. Klett: Microphysics of clouds and precipitation, D. Reidel Publishing Company(1978).
- 36) Tanaka, S., M. Darzi and J.W. Winchester: Short term effect of rainfall on elemental composition and size distribution of aerosols in north Florida, *Atmos. Environ.*, **14**, 1421-1426(1980).
- 37) 鶴田治雄, 渡辺善徳, 草野 一：都市大気中のエアロゾルの降水の化学成分に及ぼす影響, 第3回エアロゾル科学・技術研究討論会講演要旨集, 37-39(1985).
- 38) 関東地方公害対策推進本部大気汚染部会・一都三県公害防止協議会：昭和61年度湿性大気汚染調査部会報告書(1988).
- 39) 神奈川県環境部：昭和61年度湿性大気汚染(酸性雨)調査結果(1987).
- 40) Meteorological Satellite Center: Monthly report of Meteorological Satellite Center, June 1986(1986).
- 41) 高橋 劭：雲の物理, 東京堂出版(1987).
- 42) Yoshizaki, M.: Numerical simulations of tropical squall-line clusters: Two-dimensional model, *J. Meteor. Soc. Japan*, **64**, 469-491(1986).
- 43) Chang, T.Y.: Estimates of nitrate formation

- in rain and snow systems, *J. Geophys. Res.*, **91**, 2805-2818(1986).
- 44) Walcek, C.J. and W.R. Stockwell: The contribution of aqueous-phase radical chemistry to sulfate production in symposium on acid rain I. Sources and atmospheric processes at ACS meeting(1986).
- 45) 岩崎好陽, 石黒辰吉, 福島 悠, 小野塚春吉, 大平俊男: 清掃工場における排ガス汚染物質の測定法の検討と結果について, 東京都公害研究所年報 **5**, 37-43(1974).
- 46) 神奈川県: 煙道ばいじんの成分組織と影響調査, 神奈川県大気汚染調査研究報告, 第16報, 156-164(1974).
- 47) 松尾清孝, 柴田幸雄, 井上俊明: 固定発生源から排出されるばいじんの成分組成について, 第9回公害研究合同発表会講演要旨集, 31-33(1985).
- 48) 加藤 進, 村田 俊, 松井孝悦, 中森立郎, 清水千秋: 煙道ばいじん中の水溶性アニオンについて, 三重県環境科学センター研究報告, 第7号, 35-38(1987).
- 49) 占部武生: ごみ焼却炉内での元素, 特に重金属の挙動, 衛生工学研究論文集, **22**, 49-60(1986).
- 50) 千葉県公害研究所: 固定発生源から排出されるばいじんの組成分析, 千葉県公害研究所年報1985, 73-75(1986).
- 51) 平野耕一郎, 草野 一, 渡辺善徳, 太田正雄, 鶴田治雄: 酸性雨の生成機構に関する調査研究(その2) — 雲水・雨水中不溶性粒子の形態的特徴 —, 第28回大気汚染学会予稿集, (1987).
- 52) 谷川 昇, 岩崎好陽, 中浦久雄, 泉川碩雄: 流動床式都市ごみ焼却炉から排出される大気汚染物質, 大気汚染学会誌, **22**, 52-56(1987).
- 53) 渡辺将隆, 中森立郎, 白井宣一郎, 中川和也, 畑中幸市, 前川徳昭: 煙道中におけるばいじんの形態と酸性化について, 三重県環境科学センター研究報告, 第5号, 27-32(1987).
- 54) 飯豊修司, 鈴木房宗, 星野 充, 内藤季和, 飯村晃, 鈴木将夫: 1形ばいじん採取における排ガス温度のばいじん濃度測定値への影響, 大気汚染学会誌, **21**, 402-410(1986).
- 55) 横浜市公害研究所: 浮遊粉じん・ばいじんに関する総合調査報告書, 横浜市公害研究所資料No.46(1983).

## 植樹帯による減音効果の研究 (第3報)

## — 挿入損失としての物理的効果 II —

鹿島教昭\*, 田村明弘\*\*

## 要 旨

本研究の目的は市街地の一般道路に設置される植樹帯の減音効果について、物理的な面と心理的な面から究明することである。物理的効果については公園等に実在する植樹帯の挿入損失を求め、また更地に造った植樹帯の挿入損失を調査し既に報告した<sup>1)</sup>。しかし現場実験では植栽密度や植樹帯の幅等を変化させ、植樹帯の物理量を変えらることはかなり困難である。従って植樹帯の模型を使った縮尺模型実験で現場の調査結果が再現できれば非常に便利になり、研究は容易になる。そこで本報では完全反射面を地表面とした1/10縮尺模型を用いて現場実験の結果の検証を行った内容について報告する。実験結果を要約すると次の通りである。

- 1) 模型実験は現場実験の結果を完全に再現し、極めて有効な手法であることが判った。
- 2) 植樹帯の挿入損失については既に定性的に明らかにしたが、今回、挿入損失は単位体積当りの葉面積と音が通過する植樹帯の幅との積からなる“葉面積係数”で定量化可能であることが判明した。
- 3) 上記挿入損失には植樹帯が地表面による過剰減衰を打消すために生じる見かけの増幅分を含み、植樹帯の真の挿入損失ではない。真の挿入損失を求めて定量化するには、地表面による過剰減衰が生じない工夫が模型実験に求められる。

## 1. はじめに

本研究は市街地の一般道路から伝播する道路交通騒音対策として、植樹帯を設置した場合を想定し、その植樹帯の減音効果を物理、心理の両面から明らかにすることを目的としている。筆者らは既に公園等に実在する植樹帯を用いてその物理的減音効果(挿入損失)を求め、また植樹帯の樹種、植樹帯の幅(奥行)及び樹高の減音に対する効果を検討するために、更地に植栽した植樹帯の挿入損失を詳細に測定、検討し、第1報<sup>1)</sup>にまとめた。心理的効果については、歩道上から撮影した緑量をコントロールしたスライドと、それに道路交通騒音を付加した場合と、そうでない場合等に区分した心理実験を行い、緑による心理的減音効果の存在を明らかにした(第2報<sup>2)</sup>)。

本実験は第1報に示した現場実験の結果と同様な結果を模型実験で得ることを目的として実施した。現場

実験の結果を模型実験で検証することができれば、極めて困難な植栽密度の変更、植樹帯の幅の変更、樹高の変更等が模型では容易に可能であり、植樹帯が内包する物理特性を種々変化させて様々なデータを得ることができる。植樹帯の模型実験例は多くはないが、まずR.BullenとF.Fricke<sup>3)</sup>は高さ30cm、直径2cmの紙チューブを木の幹のモデルとし、樹林モデルの挿入損失を求めた。また渡辺と山田<sup>4)</sup>は木の葉をモデル化した短形のビニール板と鉄板の障害物を、内面にガラスウールを取付けた実験装置内につるし、障害物による減衰量を求めた。しかし前者は、余りに単純化したモデルであり(幹のモデルを無限に多く採れば壁になるとは言えるが)、M.J.M.Martens<sup>5)</sup>は葉を全て取り去ったカバの木は音に対して何ら影響を示さないと報告していることから問題があるといえる。また後者では

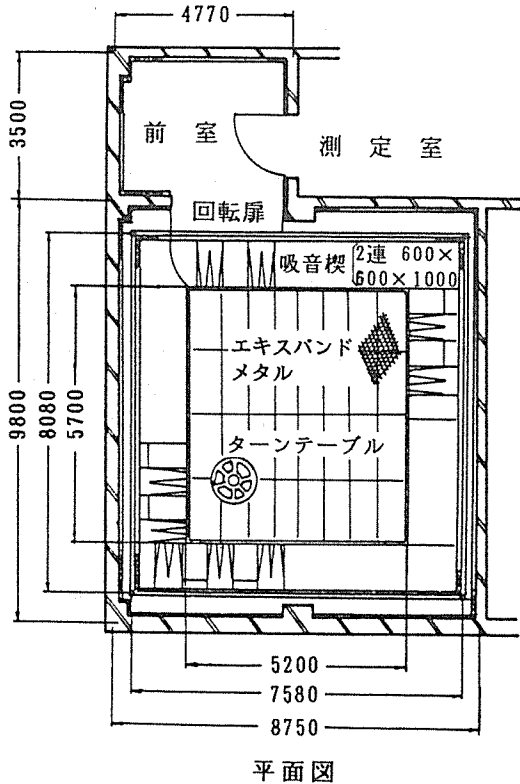
Study on effect by planting belts on noise attenuation(3rd Report)

— Physicl effect as insertion loss II —

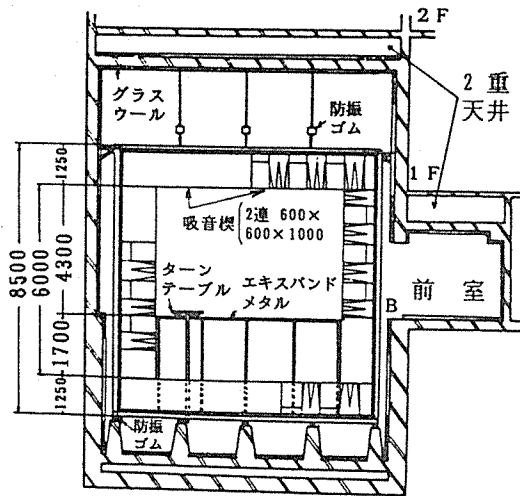
\* Noriaki Kashima 横浜市公害研究所騒音振動部門

\*\* Akihiro Tamura 横浜国立大学工学部建築学教室

地表面による過剰減衰の影響を全く考慮していない。  
 以上の諸点をふまえ、筆者らは実際の樹を用いて模型  
 実験を進め、現場実験との比較を行うこととした。



平面図



断面図

図-1 神奈川県公害センターの無響室

## 2. 実験方法

### 2-1 測定方法及び測定機材

図-1に実験の際使用させて頂いた神奈川県公害センターの無響室<sup>6)</sup>の平面図と断面図を示す。植樹帯の挿入損失は、この無響室内に植樹帯の1/10縮尺模型

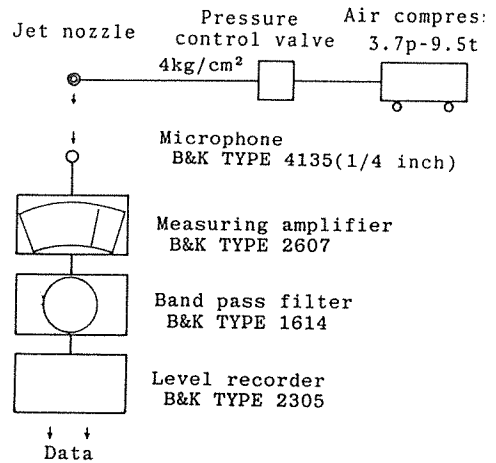


図-2 測定系列

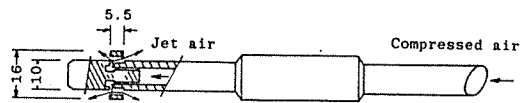


図-3 音源のジェットノズル 単位mm

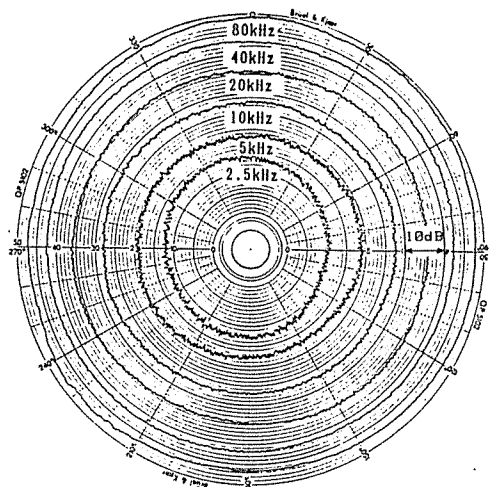


図-4 ノズルの軸に直角な面内の指向特性

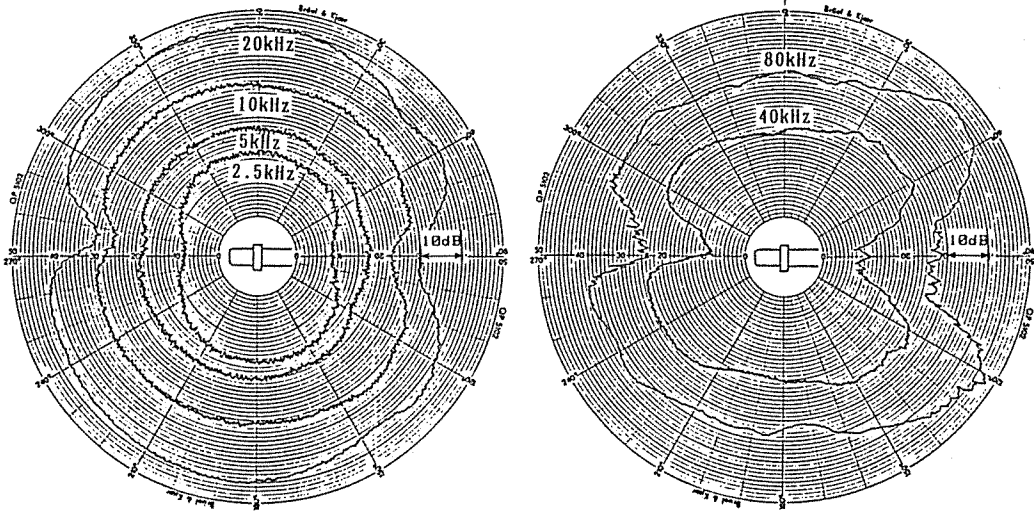


図-5 ノズルの軸を含む面内の指向特性

を設置し、植樹帯の無い場合の音圧レベルから植樹帯が在る場合の音圧レベルを差引いて求めた。図-2に測定系列を示す、無響室内の前室に備えられた圧縮機で圧縮した空気は無響室内の圧力制御弁で一定圧（4 kg/cm<sup>2</sup>）とし、この空気がジェットノズルから噴出する時に発生するジェット音をマイクロホンで受音し、1/3オクターブバンドで周波数分析し結果をレベルレコーダに出力させた。

図-3に音源として用いたジェットノズルを示す。これは東京大学生産技術研究所の橋研究室から借用したものである<sup>7)</sup>が、音源の指向特性を改善するためジェットの噴出口の周囲に幅5.5mmのリングを付加したものである。このノズルの軸に直角な面における指向特性を図-4に、またノズルの軸を含む面における指向特性を図-5に示す。実験用音源としては周波数に関係なく無指向性点音源であることが望ましい。図-5では明らかに無指向性ではないが、実験に用いる面内である図-4では周波数2.5~80kHzの帯域において、ほぼ無指向性点音源である。なお音源のパワーレベルを図-6に示す。

### 2-2 模型実験の方法

図-7に模型実験の方法を示す。地表面は完全反射面とし、厚さ21mmのベニヤ合板の両面に厚さ1.2mmのメラミン板を貼付して製作した。植樹帯模型は幅0.15mと0.30mの完全反射面に直径6mmの穴をうがち、この穴に実際の樹を差込み模型とした。なお幅0.15mの板は2枚、同0.30mの板は1枚を夫々用意した。これらの模型を音源から0.2m（水平距離、以下同じ）離れ

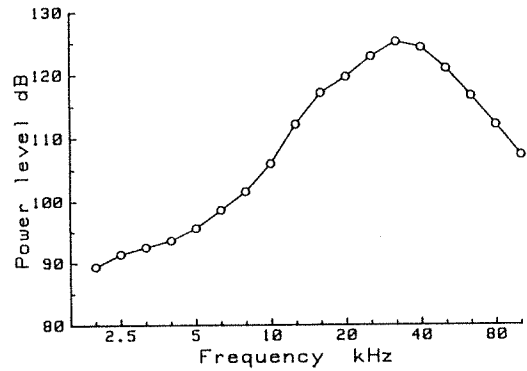


図-6 音源のパワーレベル

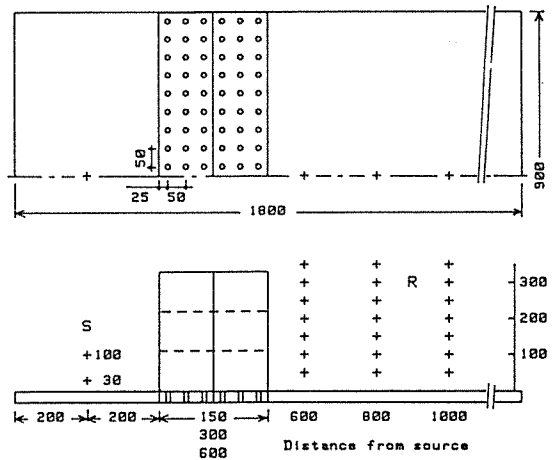


図-7 模型実験の方法 単位mm

た位置に設置し、この模型の後方に完全反射面を敷くことによって模型実験装置とした。受音点は音源からの距離が0.6, 0.8 及び1.0mとなる位置で、各々地表面上0.05, 0.10, …, 0.30, 0.35mの7点に設けた。従って受音点の全数は21である。なおマイクロホンの向きは、どの受音点においても常にマイクロホンの軸が音源に向くようにセットした。

ここで模型実験の周波数と寸法について簡単に記しておく。模型は1/10の縮尺であるので、この寸法と周波数との間に実寸法との相似則が成立する条件は、実験に用いる周波数が実際の周波数の10倍となることである。従って実験で使用した周波数2kHz~100kHzは実寸換算で200Hz~10kHzとなり、図-7に示した距離0.6mや高さ0.35mは夫々実寸換算では6m, 3.5mとなる。

### 2-3 植栽密度

植樹帯の物理量を変化させるために植栽密度を100cm<sup>2</sup>当り4本, 2本, 1本と変えたが、図-8に示した樹帯幅0.30mの場合でこれを説明する。まず4本/100cm<sup>2</sup>の場合は全ての植樹用穴に樹を植込んだ状態である。2本/100cm<sup>2</sup>は半数の穴に樹を差込むが、樹は千鳥状に並んでいる。1本/100cm<sup>2</sup>の場合は、2本/100cm<sup>2</sup>の状態から更に、音源側からみて偶数列の樹を削除したものである。以下植栽密度を表現する時は「100cm<sup>2</sup> 当り」

を省略する。

### 2-4 実験用樹種とその物理特性

模型実験に用いた樹種は葉の大きさ(葉面積)を考慮して、葉面積の小さい方からクサツゲ、スドウツゲ(別名アメリカツゲ)、ヒサカキの3種を選定した。ヒサカキは極端に葉面積の大きいものとして選定したこれらを図-9~11に示す。

表-1に3樹種の物理特性を示す。樹高に2段階、または3段階あるが、これらは先ず最も高い状態で実験を行い、順次設定高さまで刈込んでいったものである。葉の長さとは幅は、3つの樹高夫々につき10本をサ



図-9 クサツゲ

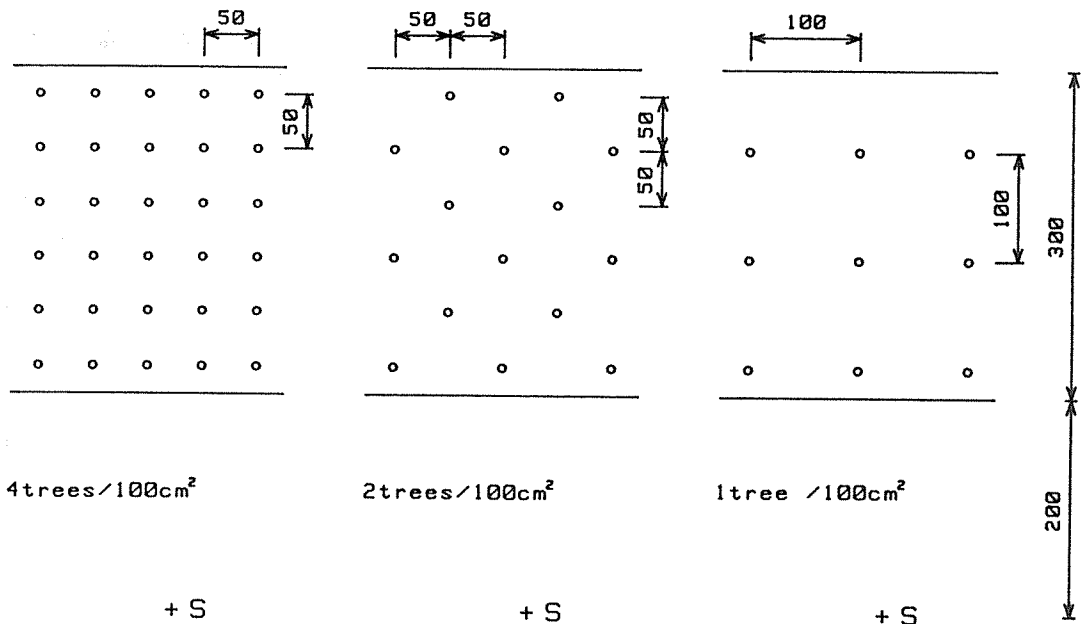


図-8 樹木の植栽方法と植栽密度 単位 mm



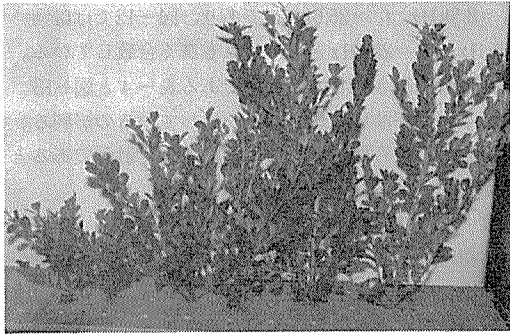


図-10 スドウツゲ



図-11 ヒサカキ

表-1 植樹帯の物理特性

樹種	クサツゲ		スドウツゲ			ヒサカキ		
	110	220	110	220	330	110	220	330
樹高 (mm)	110	220	110	220	330	110	220	330
葉の長さ (mm)	15.1	15.6	16.8	17.1	17.3	36.1	37.9	43.2
葉の幅 (mm)	5.2	6.0	9.9	9.8	9.7	15.9	17.1	19.0
葉の面積 (mm <sup>2</sup> )	51.4	61.0	111.3	115.5	113.0	394.1	438.7	552.0
葉の枚数 (枚/本)	258.3	971.3	157.1	370.3	457.4	32.2	73.5	118.5
葉面積 (mm <sup>2</sup> /本)	13243	58636	17487	42151	51686	12068	31914	64753
葉の質量 (g/本)	2.9	8.9	6.0	12.6	15.2	2.5	6.4	13.6
幹の質量 (g/本)	3.1	5.6	5.9	9.3	10.6	3.2	4.8	7.1

ンプリングし、1本の樹について20枚、合計200枚の葉を測定した平均値である。また葉面積の算出には測定結果より求めた次式を用いた。

$$S = 2.6 \cdot \frac{l}{2} \cdot \frac{w}{2} \quad (1)$$

$l$  : 葉の長さ

$w$  : 葉の幅

### 2-5 測定条件

模型実験の測定条件を表-2に示す。音源の高さは0.03 mを基本とし、音源高さの影響をみるために0.10 mについても測定した。また植樹帯の幅は0.15, 0.30及び0.60 mの3種を選んだ。

表-2 測定条件

樹種	植樹帯の幅 m	樹高 0.11m (注)			樹高 0.22m			樹高 0.33m		
		植栽密度			植栽密度			植栽密度		
		4	2	1	4	2	1	4	2	1
スドウツゲ	0.15 0.30 0.60	○	○	○	○	○	○	○	○	○
ヒサカキ	0.15 0.30 0.60	○	○	○	○	○	○	○	○	○
クサツゲ	0.15 0.30 0.60	○	○	○	○	○	○			

○ 音源高さ 0.03m 反射性地表面

□ 音源高さ 0.10m 反射性地表面

注) 植栽密度 単位: 本/100 cm<sup>2</sup>

## 3. 実験結果と考察

### 3-1 完全反射面上の過剰減衰

点音源が自由空間に在る場合、音源から発した音波は倍距6dBの距離減衰を示す。しかし音源が地表面近くに在ると、受音点では音源から直接来る音波と表面から反射して来る音波とが干渉し、距離減衰以上に減衰する。これを過剰減衰という(或いは超過減衰)。地表面が完全反射面であれば、過剰減衰を起す干渉周波数 $fn$ は次式で与えられる。

$$fn = \frac{2n+1}{2} \cdot \frac{c}{\delta} \quad n=0,1,2,\dots \quad (2)$$

$c$  : 音速

$\delta$  : 直接波と反射波の経路差

(2)式から求めた音源高さ0.03 mの場合の干渉周波数 $f_0, f_1$ を表-3に、また音源高さ0.10 mの場合を表-4に示す。また、実験から得た完全反射面による過剰減衰の結果を図-12と13に示す。図-12は音源高さが

0.03m, 図-13は同0.10mのものである。過剰減衰は図中で上に凸となる部分で示され, これらは受音点が地表面に近い程大きな値となっている。この過剰減衰を起す周波数を表-3及び表-4に示した計算値と比較すると, 両者は良く一致している。例えば音源高さが0.03mの場合, 距離0.60m, 高さ0.05m(以下(0.60, 0.05)のように記す)における干渉周波数は, 表-3から $f_0 = 33.9\text{kHz}$ ,  $f_1 = 101.8\text{kHz}$ であり, 図-12に現われた $f_0$ は31.5kHz,  $f_1$ は100kHzと両者は殆ど一致している。次に受音点(1.0, 0.35)では表-3から

$f_0 = 8.5\text{kHz}$ ,  $f_1 = 25.6\text{kHz}$ であり, 図-12では $f_0 = 10\text{kHz}$ ,  $f_1 = 25\text{kHz}$ となりこれも良く合致している。同様に音源高さ0.10mの場合である表-4と図-13に示された干渉周波数も殆ど一致しているのが判る。これらの事から作製した地表面は完全反射面であると言える。

### 3-2 植樹帯による挿入損失

植樹帯の挿入損失は先にも述べたように, 植樹帯が無い場合の完全反射面上で得た音圧レベルから, 完全反射面に植樹帯を設置して得た音圧レベルを差引いて

表-3 音源高さ0.03mの干渉周波数 kHz

高さ m	距離 m					
	0.6		0.8		1.0	
	$f_0$	$f_1$	$f_0$	$f_1$	$f_0$	$f_1$
0.35	5.6	16.8	7.0	21.1	8.5	25.6
0.30	6.3	18.9	8.0	24.1	9.8	29.4
0.25	7.3	22.0	9.4	28.3	11.6	34.8
0.20	8.9	26.7	11.6	34.8	14.4	43.1
0.15	11.6	34.8	15.3	45.8	19.0	56.9
0.10	17.1	51.4	22.7	68.1	28.3	84.9
0.05	33.9	101.8	45.1	135.4	56.4	169.1

表-4 音源高さ0.10mの干渉周波数 kHz

高さ m	距離 m					
	0.6		0.8		1.0	
	$f_0$	$f_1$	$f_0$	$f_1$	$f_0$	$f_1$
0.35	1.7	5.1	2.1	6.4	2.6	7.7
0.30	1.9	5.7	2.4	7.3	2.9	8.8
0.25	2.2	6.6	2.8	8.5	3.5	10.5
0.20	2.7	8.1	3.5	10.5	4.3	13.0
0.15	3.5	10.6	4.6	13.8	5.7	17.2
0.10	5.2	15.6	6.9	20.6	8.5	25.6
0.05	10.3	30.9	13.6	40.9	17.0	51.0

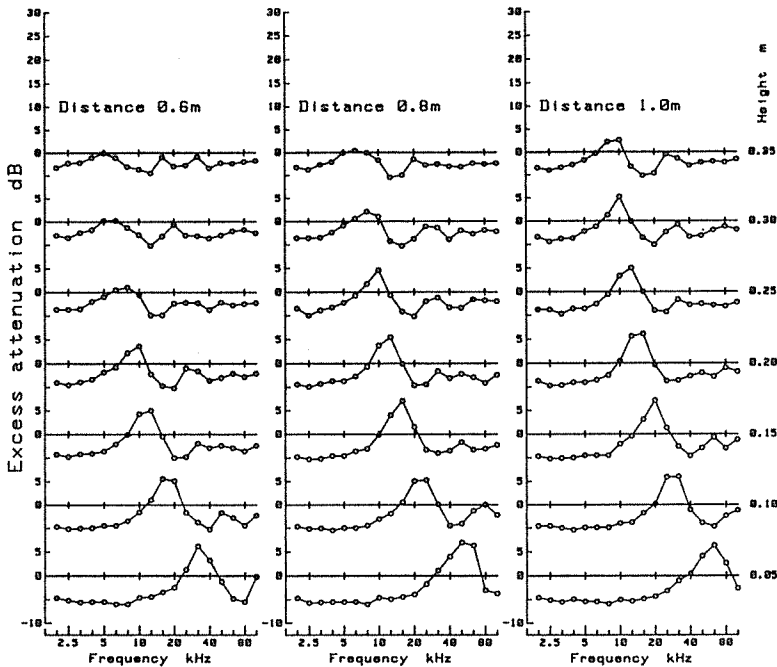


図-12 完全反射面上の過剰減衰 音源高さ0.03m

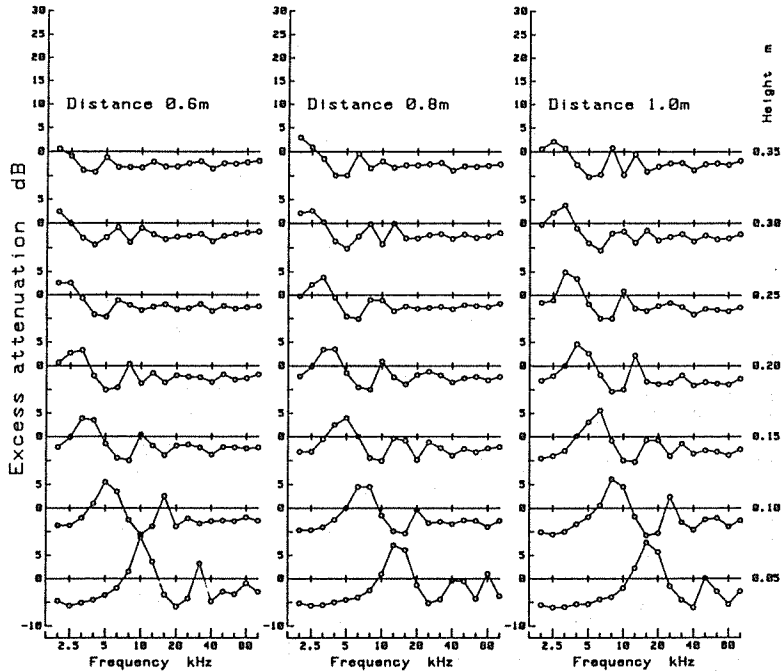


図-13 完全反射面上の過剰減衰 音源高さ0.10 m

求めた。

以下、音源の高さを地表面上0.03 mとした場合の挿入損失に関して記述する。

### 3-2-1 挿入損失の分布

図-14に植樹帯の高さが0.22 m、幅0.30 m、植密度1本のクサツゲの挿入損失を示す。ここで挿入損失がプラスであることは植樹帯を挿入したことにより音が減衰したことを意味し、マイナスは植樹帯を設けたために何も無い場合よりも音が増幅したことを意味する。低い周波数域では挿入損失は殆どゼロであるが、10~20kHz辺りからプラスとなり、周波数が高くなるほど挿入損失は大きくなる傾向を示す。但し、80~100 kHzで挿入損失が頭打ちとなり下方に向いているのはマイクロホンの測定限界のためであり、実際には更に大きな値となると考えられる。以上の事は第1報に記したツバキの挿入損失と全く同じ傾向である。

増幅となった部分を第1報と比較するため受音点(0.6, 0.15)についてみると、周波数10kHzにおいて下に凸のピークが生じている。この周波数は表-3に示した干渉周波数 $f_0 = 11.6\text{kHz}$ にほぼ等しい。またこの図では歴然とはしていないが、31.5kHzにわずかではあるが下方に凸となっており、この周波数は $f_1 = 34.8\text{kHz}$ に近い値である。但しこの31.5kHzでは植樹帯による

音の散乱効果が大きく増幅現象とはなっていない。これらの事実も実際の植樹帯を使って得た結果と完全に一致している。同様に受音点(1.0, 0.15)においては、干渉周波数 $f_0 = 19.0\text{kHz}$ にほぼ等しい20kHzで下方に凸のピークが増幅となっており、 $f_1 = 56.9\text{kHz}$ に近い50kHz或いは63kHzに下方に凸の第2のピークがある。これも第1報と全く同じ結果である。従って植樹帯の挿入損失を求める際に、実際の植樹帯の代替として樹枝使用の縮尺模型を用いることは極めて有効な方法であることが証明された。

図-15は図-14をもとに挿入損失を周波数毎に空間分布させたものである。音源からの距離に示した垂線が挿入損失ゼロを表わし、それにより左側がプラス(減衰)、右側がマイナス(増幅)を表わしている。増幅は干渉周波数帯域に出現することは既に述べた。また(2)式から、音源からの距離が大きくなれば径路差 $\delta$ は小さくなり干渉周波数は高くなる。音源からの距離が同一でも地上高さが高い程 $\delta$ は大きくなり干渉周波数は低くなる。逆に1つの干渉周波数に着目すると、(2)式で常に $\delta$ が一定であることになる。この干渉周波数は音源からの距離が小さければ地上高さの低い位置に出現し、距離が大きくなれば高い位置に現われる。これは前掲の表-3の $f_0 = 11.6\text{kHz}$ をみれば明らかである。これ

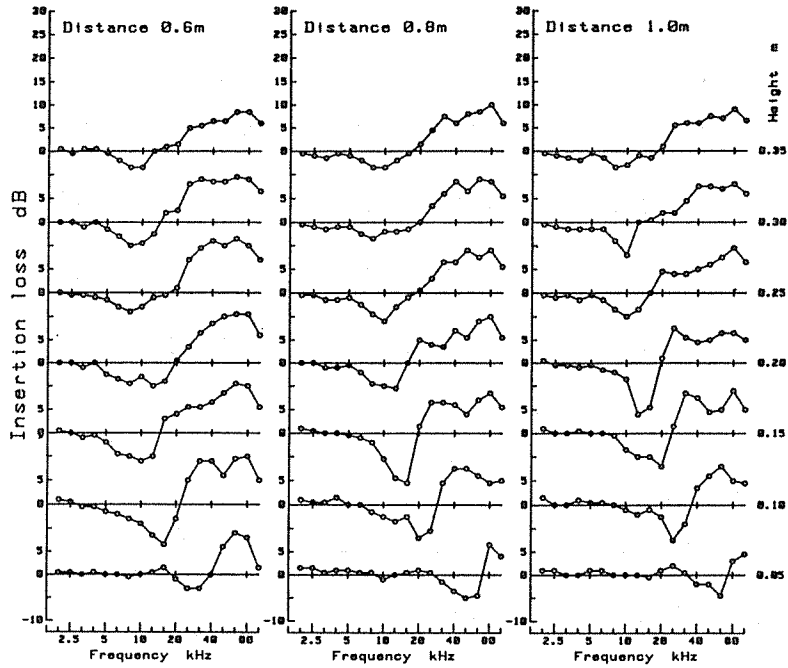


図-14 クサツゲの挿入損失 高さ0.22m, 幅0.30m, 植栽密度1本/100cm<sup>2</sup>

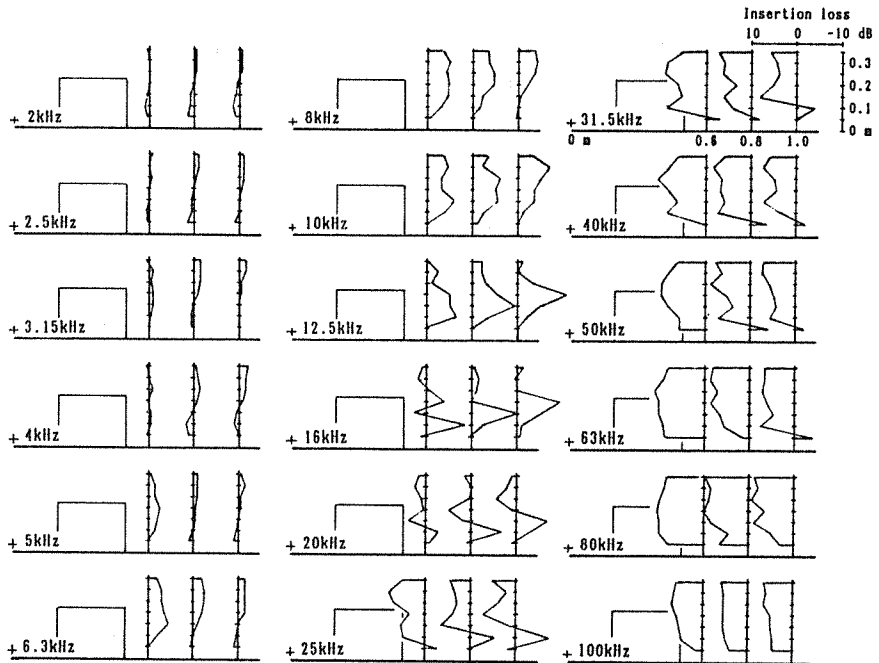


図-15 挿入損失の空間分布 クサツゲ 高さ0.22m, 幅0.30m, 植栽密度1本/100cm<sup>2</sup>

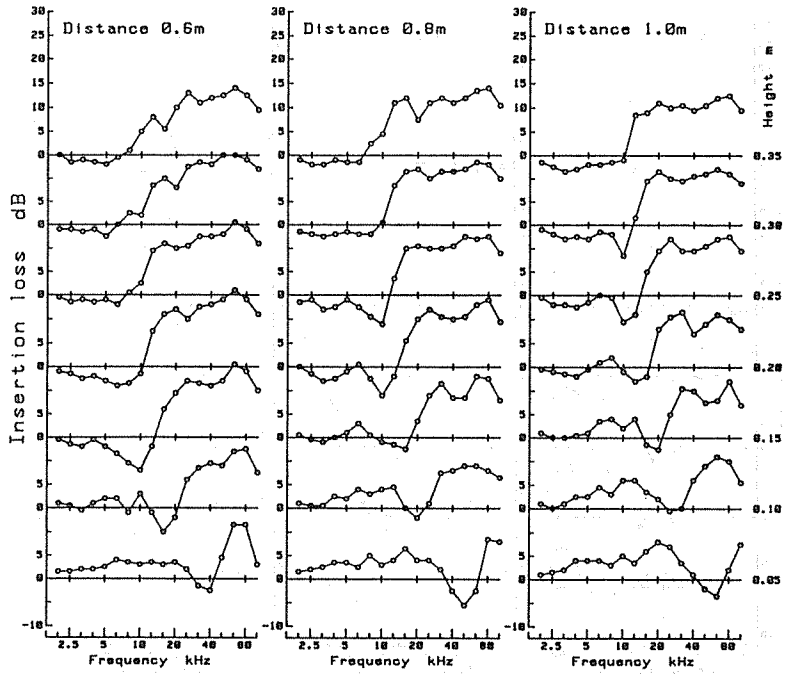


図-16 スドウツゲの挿入損失 高さ0.33m, 幅0.30m, 植栽密度2本/100cm<sup>2</sup>

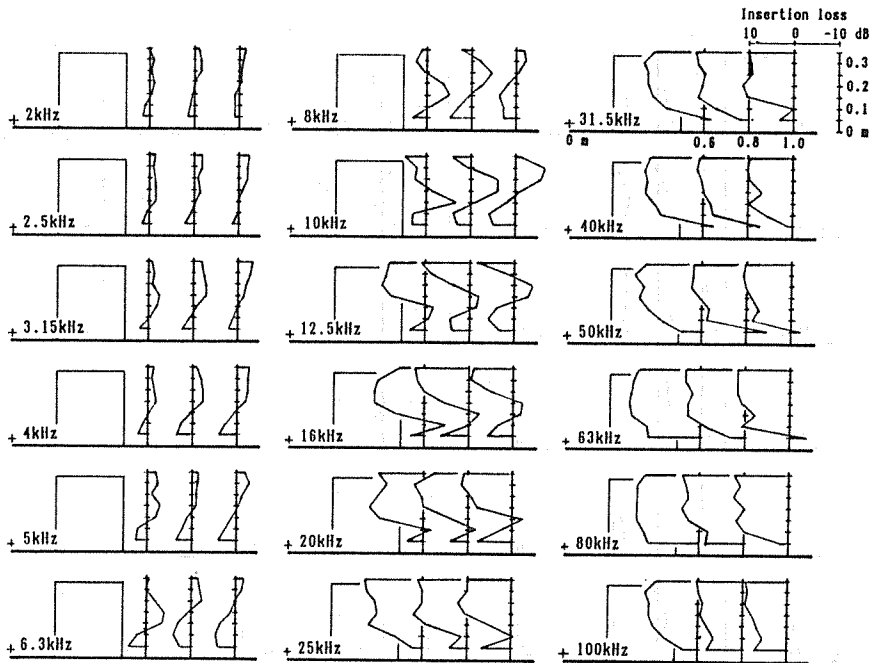


図-17 挿入損失の空間分布 スドウツゲ 高さ0.33m, 幅0.30m, 植栽密度2本/100cm<sup>2</sup>

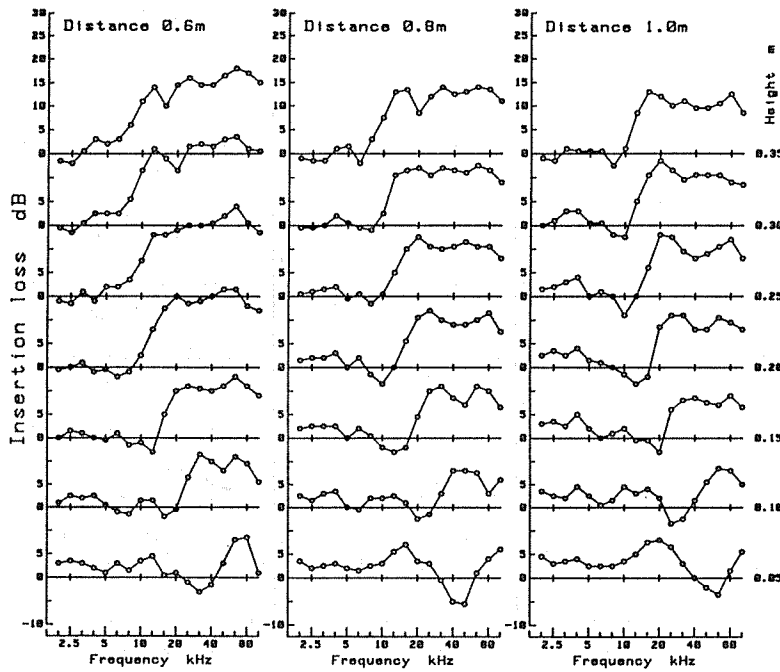


図-18 ヒサカキの挿入損失 高さ0.33m, 幅0.30m, 植栽密度4本/100cm<sup>2</sup>

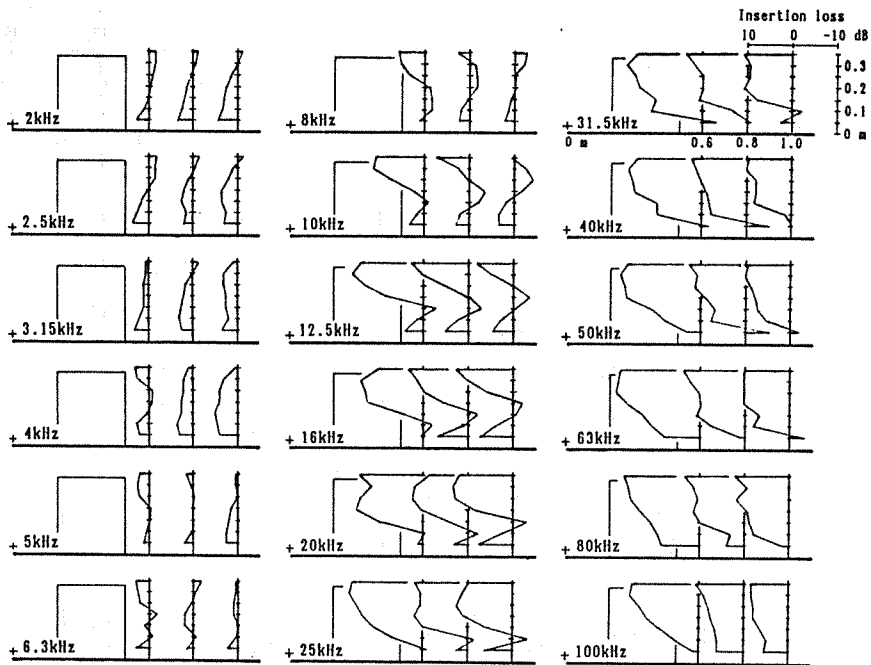


図-19 挿入損失の空間分布 ヒサカキ 高さ0.33m, 幅0.30m, 植栽密度4本/100cm<sup>2</sup>

これらの説明が図-15の増幅部分に非常に良く表われている。

実際の植樹帯による増幅の理由は第1報に述べたが模型実験による増幅理由も全く同一である。即ち植樹帯が無い場合には地表面による過剰減衰が生じ、距離減衰以上に減衰する部分が存在するが、植樹帯が在る場合には、植樹帯がその音の散乱効果により音波の位相を乱し、地表面による過剰減衰の出現を妨害するために、植樹帯が無い場合の音圧レベルから植樹帯がある場合の音圧レベルを差引くと見かけの増幅が干渉周波数帯域に生じるのである。

図-16と17は高さ0.33m、植栽密度2本のストウツゲの挿入損失であり、図-18と19は高さ0.33m、幅0.30m、植栽密度4本のヒサカキによる挿入損失である。これらの結果についても図-14及び15と同様の説明がなされる。

### 3-2-2 樹種、植栽密度、幅及び高さによる挿入損失の差異

図-20に樹種別の挿入損失を示す。3樹種共に高さ0.22m、幅0.30m、植栽密度4本の場合であり、破線がクサツゲ、実線がストウツゲ、一点鎖線はヒサカキである。中及び高周波数域において挿入損失はストウ

ツゲ>クサツゲ>ヒサカキの順となっている。

図-21はクサツゲの植栽密度別挿入損失である。周波数毎にみると10kHzまでは植栽密度が大きくなるに従って減衰量も大きくかつ増幅も大きい。12.5~20kHz辺りで挿入損失は複雑な様相を呈し、それ以上の周波数では植栽密度の大きい方が減衰量が大きくなる様子が徐々に明確になっていく。この原因は次の様に考えられる。つまり低周波数域においては、植栽密度の大きな植樹帯は強く過剰減衰を打消すために、見かけの増幅が大きくなるが、一方減衰量についてみると音の散乱効果が植栽密度に比例して強くなるために、見かけの増幅が生じない領域における減衰量も大きくなる。そして中周波数域では、過剰減衰に起因して生じる見かけの増幅以上に散乱効果が周波数の上昇とともに強まり、この場合では16kHzから20kHz辺りで植栽密度4本の結果から増幅が消滅しかけている。更にそれ以上の周波数では増幅は認めにくくなり、周波数が高くなるにつれ最終的に植栽密度による減衰の差異が明確となる。以上の考察から植樹帯の挿入損失はある周波数以上で植樹帯の物理量に比例して大きくなると考えられる。

図-22に植樹帯の幅別挿入損失を示す。幅が0.6mの

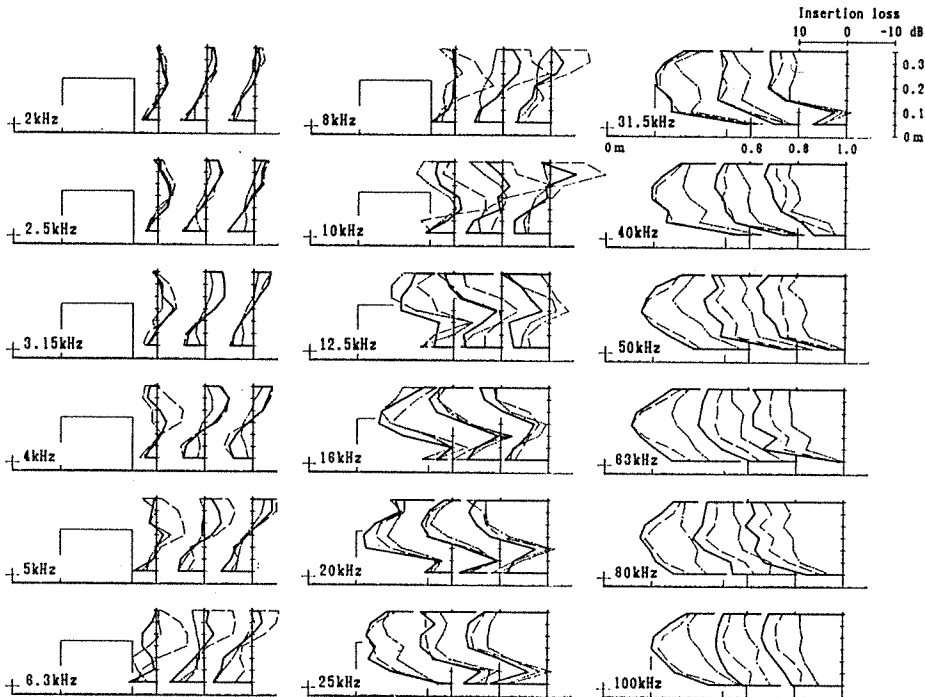


図-20 樹種別挿入損失 高さ0.22m、幅0.30m、植栽密度4本/100cm<sup>2</sup>  
破線：クサツゲ、実線：ストウツゲ、一点鎖線、ヒサカキ

場合は音源からの距離が1.0mの位置でだけ測定した。植樹帯の幅を増すことは前記の植栽密度を大きくし、植樹帯の物理量を増加することに等しい。従って植樹帯の幅別の挿入損失は植栽密度別挿入損失と同様な結果となっている。

次の図-23はストウツゲの樹高別挿入損失である。樹高が0.22と0.33mの場合、全受音点が植樹帯によって音の影となり、各受音点から音源を見通すことはできない。樹高が0.11mの時は受音点(0.6, 0.3)と(0.6, 0.35)が音の影とならず、音源から音が直接到達する位置になる。従って、この場合に上記2つの受音点における挿入損失が殆ど認められず、音の影となる位置になると挿入損失が大きくなる。例えば周波数50kHz辺りの図を見れば明らかである。そして完全に音の影となる位置では樹高が変化しても挿入損失そのものは余り差がない。減衰や増幅については前述の説明と同様な傾向である。即ち植樹帯によって完全に音の影となる位置の挿入損失は樹高の影響を受けない。しかし樹高を増すことは挿入損失が生じる領域を拡大することにつながる。

#### 4. 葉面積係数と挿入損失

植樹帯の挿入損失はある周波数以上では植樹帯の物理量に比例することが明らかになった。そこでその物理量として無次元数の“葉面積係数” $F \cdot L$ を導入する。 $F \cdot L$ の定義は次の通りである。

$F \cdot L$  : 葉面積係数 [ 無次元 ]

$F$  : 単位体積当りの葉面積 [  $L^{-1}$  ]

$L$  : 音が通過する植樹帯の幅 [  $L$  ]

植栽密度1本の場合の $F$ を示せば、クサツゲ $12.1 \text{ m}^{-1}$ 、ストウツゲ $15.9 \text{ m}^{-1}$ 、ヒサカキ $11.0 \text{ m}^{-1}$ である。これらと植栽密度及び植樹帯の幅から求めた葉面積係数 $F \cdot L$ を用いて挿入損失を整理したものが図-24である。この挿入損失は、音源からの距離0.6, 0.8, 1.0m, 地上高さが各々0.1, 0.15, 0.2mの9ポイントについて、植樹帯が無い場合の9個の音圧レベルのエネルギー平均から、植樹帯が在る場合の9個の音圧レベルのエネルギー平均を差引いて求めた。20kHz以上では挿入損失は $F \cdot L$ に正比例し殆ど一本の直線で表わされ、しかも周波数が高くなるほど回帰直線の傾きも大きくなる。この様に植樹帯の挿入損失を葉面積係数 $F \cdot L$ で整理することが可能と思われる。しか

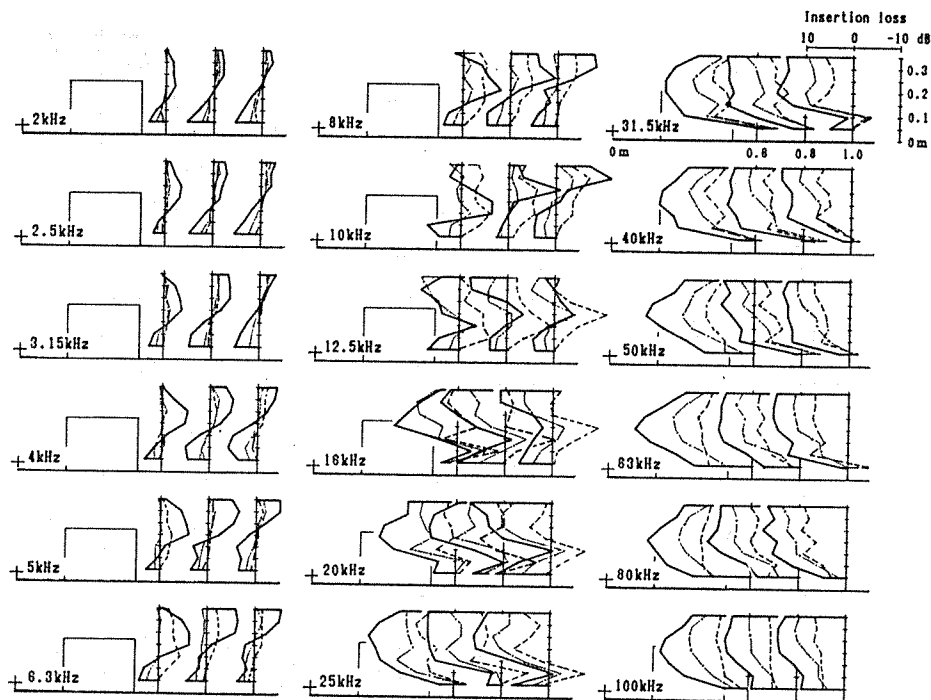


図-21 植栽密度別挿入損失 クサツゲ 高さ0.22m, 幅0.30m,  
破線: 1本/100 $\text{cm}^2$ , 一点鎖線: 2本/100 $\text{cm}^2$ , 実線: 4本/100 $\text{cm}^2$



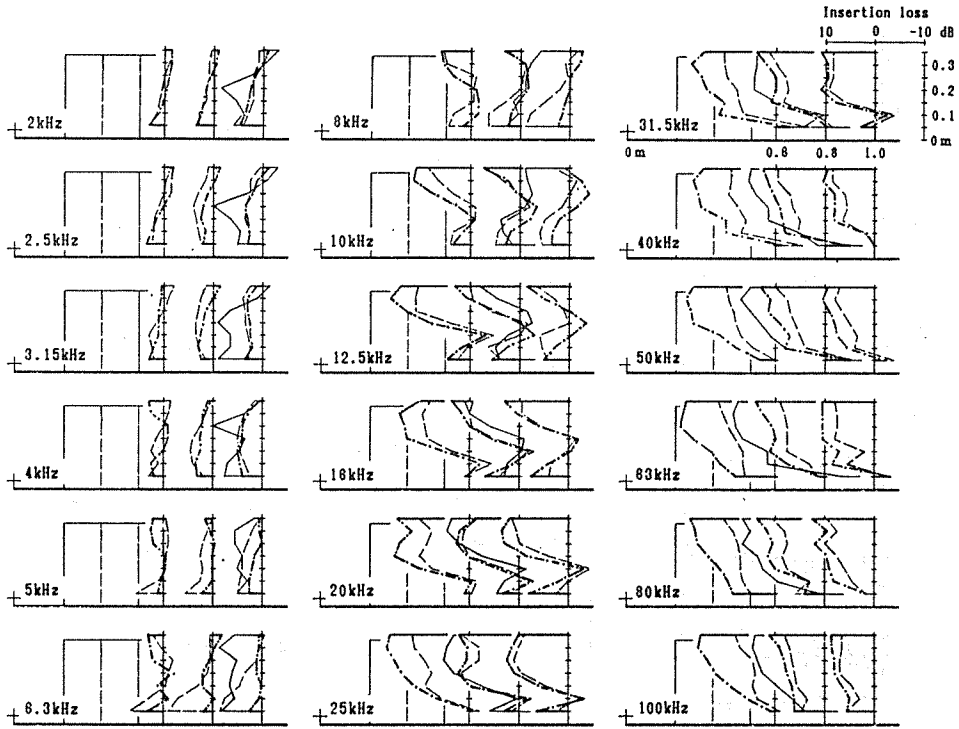


図-22 植樹帯の幅別挿入損失 ヒサカキ 高さ0.33m, 植栽密度4本/100 $\text{cm}^2$   
破線: 0.15m, 一点鎖線: 0.30m, 実線: 0.60m

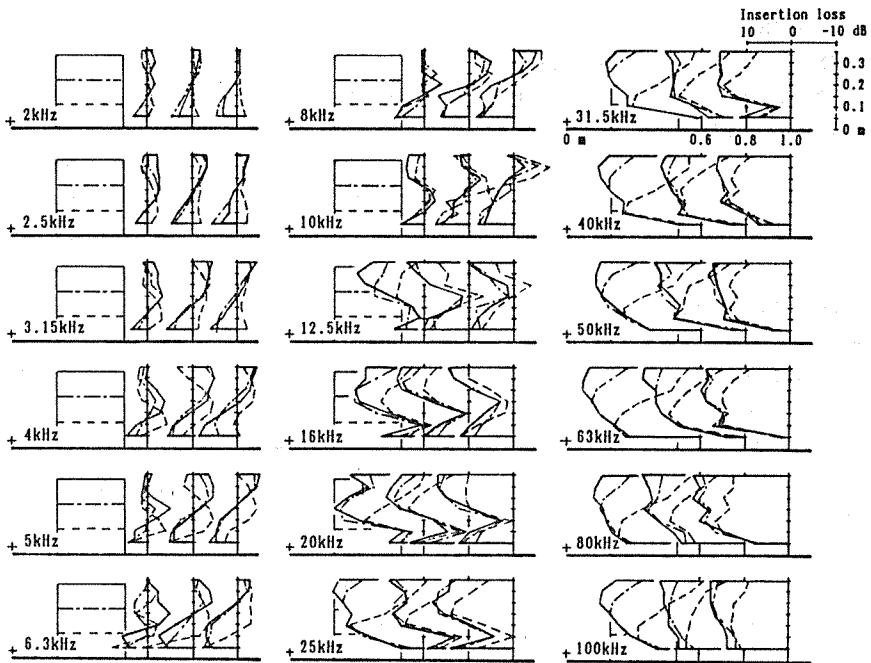


図-23 樹高別挿入損失 スドウツゲ 幅0.30m, 植栽密度4本/100 $\text{cm}^2$   
破線: 0.11m, 一点鎖線: 0.22m, 実線: 0.33m

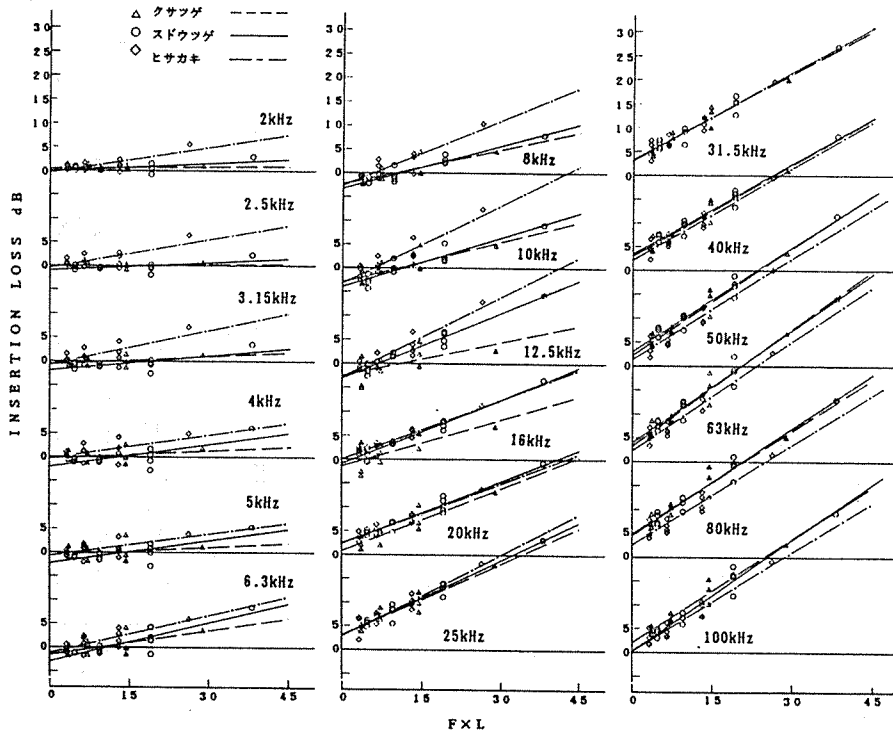


図-24 葉面積係数と挿入損失の関係

しこの結果には植樹帯が地表面の過剰減衰を打消すために生じる増幅分を含み、植樹帯の真の挿入損失が表現されている訳ではない。従って、今後は地表面による過剰減衰の影響を受けない工夫が模型実験に求められる。

## 5. まとめ

1/10 縮尺模型実験手法を用い植樹帯の挿入損失を求めるとともに、実際の植樹帯を対象とした現場実験の結果を検証し次の事実が明らかとなった。

- 1) 模型実験は第1報にまとめた現場実験の結果を完全に再現し、非常に有効な手法である。
- 2) 第1報では植樹帯の挿入損失に関して、定性的に明らかにしたが、今回の実験から挿入損失は単位体積当りの葉面積  $F$  と音が通過する植樹帯の幅  $L$  との積である“葉面積係数”  $F \cdot L$  で整理でき、挿入損失を定量的に把握することが可能と考えられる。
- 3) 上記挿入損失には植樹帯が地表面による過剰減衰を打消すことから生じる見かけの増幅分を含み、植樹帯の真の挿入損失ではない。真の挿入損失を求めるには、地表面による過剰減衰が生じない工夫が模型実験

に必要である。

## 6. おわりに

今回の実験結果の一部は既に文献(8)にまとめたが、本報告はこれを大幅に加筆したものである。植樹帯の挿入損失はほぼ定量的に把握できるところにまで到達したが、模型実験に工夫をこらし更に明確に定量化する必要がある。緑を用いた騒音対策は多分に感覚をたよりにしているが、上記定量化が明確になれば、低減すべき騒音レベルに対して必要な緑の量を決定することが可能となる。

## 謝 辞

本研究の実施に際し無響室の使用を快諾いただいた神奈川県公害センター騒音振動科石井貢氏はじめセンター職員諸氏、並びに音源のジェットノズルを借用させていただいた東京大学生産技術研究所橋研究室の諸氏、またジェットノズルの使用に関して種々御教示いただいた同研究室の吉久光一氏（現名城大学）、更に実験に協力いただいた横浜国立大学院遠藤仁氏（現フジタ工業）、同大学真鍋弘幸氏に深く感謝の意を表し

ます。

## 文 献

- 1) 鹿島教昭, 中村俊亮, 田村明弘: 植樹帯による減音効果の研究 (第1報) - 挿入損失としての物理的効果 -, 横浜市公害研究所報第9号, 73-83(1984).
- 2) 鹿島教昭, 田村明弘: 植樹帯による減音効果の研究 (第2報) - 心理的減音効果 I -, 横浜市公害研究所報第11号, 45-56(1986).
- 3) R.Bullen, F.Fricke: Sound Prpagation through vegetation, *J.Sound and vib.* **80**(1), 11-23(1982).
- 4) 渡辺敏夫, 山田伸志: 植物による音の散乱 (模型実験), 音響学会講演論文集 II, 389-390(1982, 10).
- 5) M.J.M.Martens: Foliage as low-pass filter: Experiments with model forests in an anechoic chamber, *J.Acoust.Soc.Am.*, **67**(1), 66-72(1980).
- 6) 深野松三他: 音響実験室の構造と性能, 神奈川県公害センター年報第10号, 124-132(1978).
- 7) 橘 秀樹, 石井聖光: 音響模型実験における相似則と実験手法, 音響学会誌, **32**(10), 621-630(1976).
- 8) 横浜市公害研究所: 道路周辺の植樹帯による物理的及び心理的減音効果に関する研究 - 総合報告 - 公害研究所資料 No.66(1985, 3).

## 底質柱状試料からみた横浜港の汚染の変遷

白柳 康夫\*，石井 哲夫\*，二宮 勝幸\*  
飯塚 貞男\*，福島 悟\*

### 要 旨

横浜港における底質柱状試料の金属類，油分，化学物質および珪藻について調査し，過去の連続的，多面的な水質汚濁の変遷について推察した。また，東京湾における同様な調査結果，石油などの生産量のデータと対比させることにより，堆積年代の推定を試みた。その結果，次のことが明らかとなった。

- (1) 重金属，油分，PCBなどの人為的汚染に由来する項目はいずれも表層からの深さ30～50cmの層で最大値を示し，この層は1960～1970年頃に堆積したものと推定された。
- (2) 東京湾の赤潮生物として代表的な *Skeletonema costatum* は表層からの深さ30～50cmでの出現率が高かった。
- (3) 70cm以深の層は人為的汚染が顕著でない時代に堆積したものと考えられ，この層と比較して表層部では汚染度が高かった。

### 1. はじめに

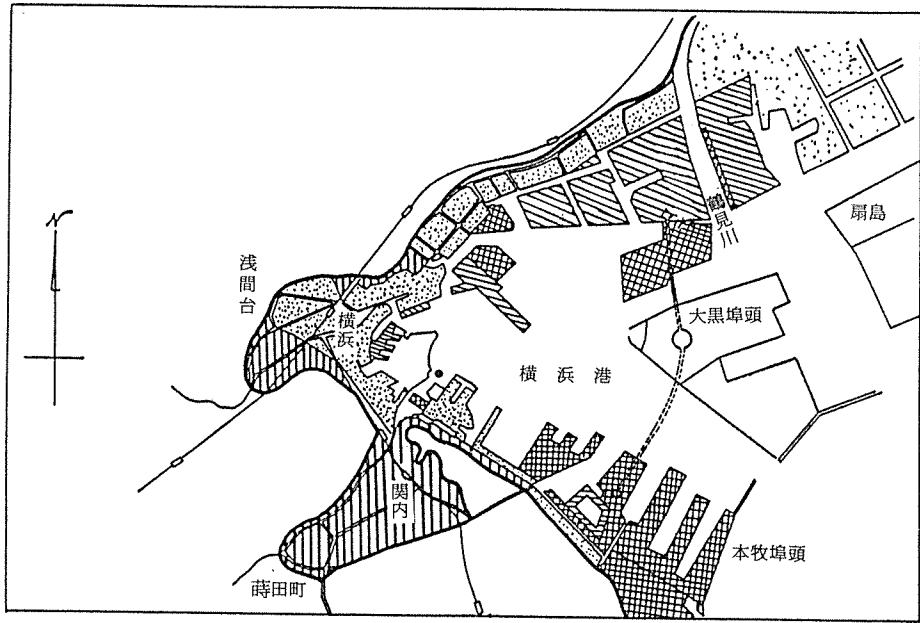
横浜港は1859年に開港して以来128年の歴史を経て，現在の姿へと発展してきた。第2次大戦以降は，特に経済の高度成長に伴い埋立地や埠頭の造成工事などが盛んに行われた。その様子を表す横浜港の周辺部における埋立事業の実施年次経過の概要図を図-1に示す<sup>1)</sup>。そしてその埋立地への工場進出，さらには生産量の拡大と続き，その一方で内陸部では宅地開発が進み人口が急増した。その状況を図-2と3に示す。図-2は横浜市における1956年から1983年までの工業生産高を示す製造品出荷額等<sup>2)</sup>であり，1959年から1962年の3年間に倍増しており，この頃に工場の新設，拡大が急ピッチに進められたことがわかる。また図-3は横浜市の1950年から1985年までの総人口とその増加率<sup>3)</sup>であるが，1960年から1965年にかけての増加率が最高値を示している。このような人間活動の非常に盛んな

地域を背景にもつ横浜港には，直接あるいは河川を通じて多量の物質が流入し，水質汚濁をもたらした。これらの流入物質は，横浜港のような閉鎖的な水域では比較的速やかに沈降し，海底に堆積する。このように次々と順序良く堆積していった堆積物は，その堆積した時代の水域環境を記録している貴重なサンプルである。もし物理的，生物学的かく乱を受けていない底質柱状試料が採取できれば，横浜港における過去の水質汚濁の変遷を知ることにも可能となる。

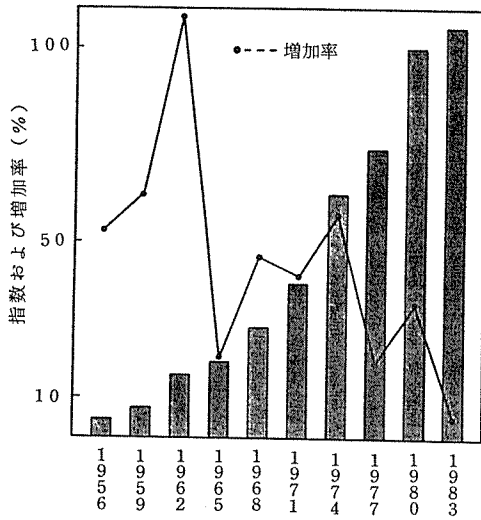
横浜港の水域環境に関する詳しいデータが見られるのは1975年前後からである。それ以前の資料として，横浜検疫所が1956年から横浜港内の海水を調査した結果<sup>4)5)</sup>は貴重である。そのうちの化学的酸素要求量(COD)のデータを図-4に示す。なお1956年から1972年までのデータは過マンガン酸カリウム消費量をCODに換算したものである。また1972年から水質汚濁防止

History of Pollution showned in Sediment Core Sample of Yokohama Port

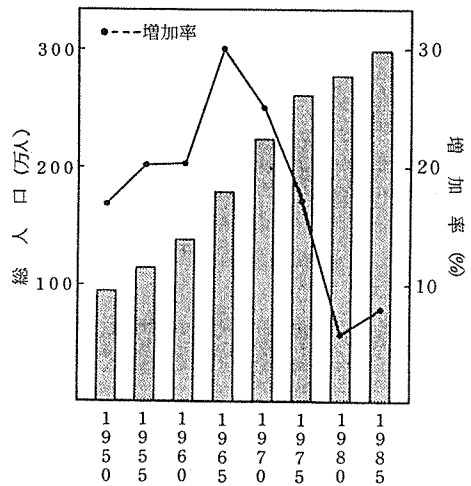
\* Yasuo Shirayanagi, Tetsuo Ishii, Katsuyuki Ninomiya, Sadao Iizuka, Satoshi Fukushima  
横浜市公害研究所水質部門



図一 埋立事業実施年次経過概要図



図二 横浜市における製造品出荷額等(1980年を100とする)及び増加率の推移



図三 横浜市の総人口及び増加率の推移

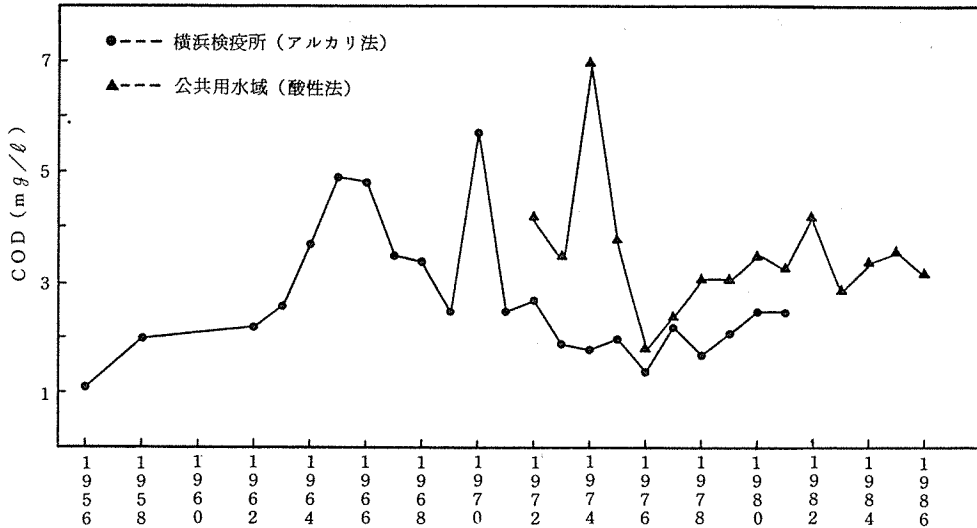


図-4 横浜港のCODの推移

法による公共用水域水質測定が行われるようになり、その測定結果<sup>6)</sup>も合わせて示してある。

これらのデータから水質汚濁の一面を知ることができるが水質試験の結果は採水した瞬間のデータであり連続的なものではなく、時刻や気象などによる変動も大きい。そこで底質柱状試料を多項目にわたって分析することにより、さらに連続的、多面的な水質汚濁の変遷が間接的にはあるが推察可能となる。水質汚濁の変遷を知るために底質柱状試料の分析がされた例はかなりある<sup>7-9)</sup>がいずれも金属類のみ、化学物質のみといった分析項目をしばった例が多い。また珪藻の分析を行った例はみられない。そこで横浜港奥部の底質柱状試料を用いて、ZnやPbなどの金属類、油分などの有機汚濁物質、PCBなどの化学物質および珪藻について分析することにより、横浜港の水質汚濁の変遷について検討した。

## 2. 調査方法

試料は横浜市港湾局が1986年8月に潜水夫により、100mm塩ビパイプを用いて採取したものを用いた。採取した試料は表層より10cmごとに分取して分析に供した。

### 2-1 調査地点

調査地点を図-5に示す。地理的には大岡川の河口前面にあたり、河口からは約400m程度の距離である。水深は8~9m程度である。また、記録によればこの地点付近の浚渫は行われた記録はない。すぐ西側では

現在、埋立工事が行われている。図-1の埋立事業実施年次経過概要図をみると調査地点の周辺の埠頭は1877年(明治11年)~1928年(昭和3年)の間に造成されたものであることがわかる。

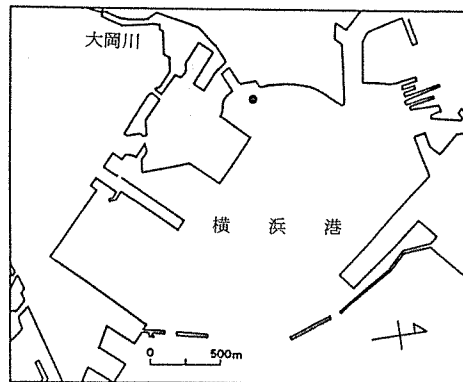


図-5 調査地点

### 2-2 分析方法

分析方法を表-1に示す。また珪藻の分析法は以下による。

試料の一部をメスシリンダーに取り、蒸留水を加え、攪拌後一次プレパラートを作成し検鏡に供した。検鏡時に約400個体(細胞数)を計数し、*Skeletonema costatum*、他の海・汽水生種そして淡水生種に区分しその出現率を算出した。

表-1 分析方法

強熱減量 (I. L.) : 底質調査方法<sup>10)</sup>  
 金属類 : けい光X線法<sup>11)</sup>  
 抽出物質 (Ext) : 酢酸エチル法<sup>12)</sup>  
 全油分 (T-Oil), 非極性油分 (n-Oil) 及び  
 極性油分 (p-Oil) : NMR法<sup>12)</sup>  
 n-Oilの寄与率 (以下寄与率とする) :  

$$\frac{n-Oil}{n-Oil+p-Oil} \times 100$$
 から算出  
 全炭素, 全窒素 (T-C, T-N) : CHNコーダー  
 PCB : 底質調査方法<sup>10)</sup>  
 POEn : ガスクロマトグラフ法<sup>13)</sup>

PCB (Polychlorinated biphenyls)

POEn (Polyoxyethylenes)

### 3. 結果と考察

各層の分析結果を表-2に, 各項目間の相関係数を表-3に, また深度分布図を図-6に示す。

#### 3-1 金属類

底質柱状試料の金属類の分析例は多数あり, その中には東京湾における報告<sup>14)</sup>もみられる。松本<sup>14)</sup>は東京湾の中央部 (羽田沖合) において23元素の測定および<sup>210</sup>Pbを用いた堆積年代測定により, 東京湾の重金属汚染の歴史を明らかにした。それによれば, 東京湾におけるZn, Pbなどの重金属汚染は1950年頃より急激に進み, 1970年前後にピークに達して, それ以降は減少傾向にあるとしている。その他の東京湾における調査例<sup>15)</sup>でも汚濁のピークは1970年前後にあるとされている。先に示した図-4の横浜港におけるCODの水質変化でも, 1965, 6年および1970年にピークが見られ, 東京湾の一部である横浜港における汚濁の歴史もそれ程

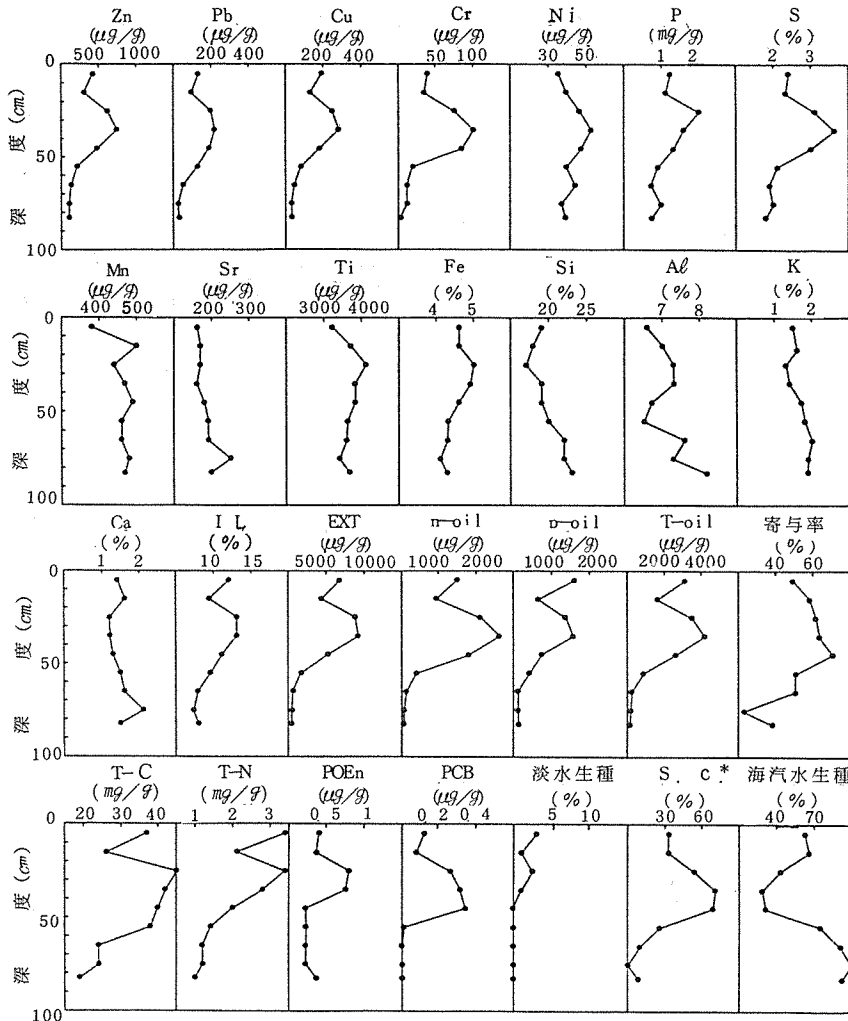


図-6 深度分布 \* *Skeletonma costatum*

表-2 分析結果

深度 (cm)	I.L. (%)	Zn ( $\mu\text{g/g}$ )	Cu ( $\mu\text{g/g}$ )	Pb ( $\mu\text{g/g}$ )	Ni ( $\mu\text{g/g}$ )	Cr ( $\mu\text{g/g}$ )	P ( $\mu\text{g/g}$ )	S (%)	Sr ( $\mu\text{g/g}$ )	Ti ( $\mu\text{g/g}$ )	Mn ( $\mu\text{g/g}$ )	Fe (%)	Si (%)	Al (%)
0-10	12	440	190	130	35	40	1200	2.4	160	3200	380	4.6	19	6.6
10-20	9.3	310	130	95	39	34	1100	2.3	170	3700	500	4.6	18	7.0
20-30	13	610	250	200	46	74	2000	3.1	170	4100	440	5.0	17	7.3
30-40	13	740	280	220	52	100	1600	3.6	160	3800	470	4.9	19	7.3
40-50	11	480	180	190	47	87	1300	3.0	180	3800	490	4.6	19	6.7
50-60	9.5	210	84	130	39	19	880	2.1	190	3600	460	4.3	20	6.5
60-70	7.8	140	46	54	44	12	710	1.9	190	3600	460	4.3	22	7.6
70-80	7.4	110	35	24	37	12	980	2.0	250	3400	480	4.1	22	7.3
80-85	8.0	100	35	30	39	10>	710	1.8	200	3700	470	4.3	23	8.2

深度 (cm)	K (%)	Ca (%)	T-C (mg/g)	T-N (mg/g)	Ext ( $\mu\text{g/g}$ )	n-oil ( $\mu\text{g/g}$ )	p-oil ( $\mu\text{g/g}$ )	T-oil ( $\mu\text{g/g}$ )	寄与率 (%)	POEn ( $\mu\text{g/g}$ )	PCB ( $\mu\text{g/g}$ )	S.c* (%)	海汽 水種 (%)	淡水 生種 (%)
0-10	1.5	1.4	37	3.4	6700	1500	1600	3100	49	0.40	0.12	34	63	3
10-20	1.6	1.6	26	2.1	4300	920	670	1590	58	0.37	0.074	33	66	1
20-30	1.3	1.2	45	3.4	8800	2100	1400	3500	61	0.80	0.26	54	43	3
30-40	1.4	1.2	42	2.8	9100	2600	1600	4200	63	0.76	0.31	71	28	1
40-50	1.7	1.3	40	2.0	5200	1800	750	2550	70	0.22	0.34	69	31	0
50-60	1.8	1.5	38	1.4	1700	410	410	820	50	0.23	0.01	25	75	0
60-70	2.0	1.6	24	1.2	640	110	110	220	50	0.23	0.01>	9	91	0
70-80	1.9	2.1	24	1.2	390	35	120	155	23	0.23	0.01>	0	100	0
80-85	1.9	1.5	19	1.0	450	41	130	171	38	0.36	0.01>	8	92	0

\* *Skeletonema costatum*

大きな違いはないと考えられる。

金属類の中でも人為的汚染を示す元素であるZn, Pb, Cu, Cr, の深度分布をみると, 30~40cm層が最大値を示している。先の東京湾の例と比較すると, 東京湾の中央部では 15~20cm 層で最大値を示しており, 横浜港の方が沿岸よりのため, 底質の堆積速度が約2倍程度大きいと考えられる。

また, 表-4に横浜港と東京湾<sup>14)</sup>における重金属の最大値を示す。これを比較してみると, PbとCuが横浜港の方が2~3倍程度高く, Znがほぼ同程度であり, Crは東京湾中央部の方が2倍程度高くなっている。これは地質的な要因もあると考えられるが, 主として重金属の種類により底質への堆積速度が異なるため,

表-4 横浜港と東京湾における  
重金属の最大値

	横浜港	東京湾
Pb	220 $\mu\text{g/g}$	約100 $\mu\text{g/g}$
Cu	280 $\mu\text{g/g}$	約100 $\mu\text{g/g}$
Zn	740 $\mu\text{g/g}$	約950 $\mu\text{g/g}$
Cr	100 $\mu\text{g/g}$	約220 $\mu\text{g/g}$

すなわちCuとPbは沿岸の近くで早く堆積し, 次にZn, Crの順となる。小倉ら<sup>16)</sup>は河川における, 重金属の堆積される度合いとしてはCu>Pb>Zn>Crの順であると報告しており, この順と一致していた。

またこれら重金属が底質中においては, 主に硫化物として固定されて存在する<sup>17)</sup>とされており, Sの深度分布はZn, Pbなどと同様な傾向を示し, 表-3の相関係数も高い値を示している。

Pは主として有機性汚濁と関わりがあると考えられ, 洗剤のビルダーとして用いられてきた。洗剤の無リン化が促進されたのは1980年頃からであり, Pの深度分布をみると10~20cm層での減少が目立ち, 先の堆積年代の推定から30~40cm層が1970年頃とすると, 10~20cm層は1980年前後と考えられ, これとほぼ一致する。また減少の要因としては図-7に示すように, 大岡川流域での下水道普及率<sup>19)</sup>の向上も合わさったものと考えられる。

その他のSi, K, Srなどは地質に由来する元素であり, 深度による変化はあまりない。Alが深度により変動しているが, 原因ははっきりしない。横浜港の底質の主要成分元素の組成は, Si 20%, Al 7%, Fe 4.5%, K 1.7%, Ca 1.5%程度であるといえる。この値は先に筆者ら<sup>18)</sup>が求めた横浜市内の河川底質における値, Si 20%, Al 5%, Fe 5%, Ca



表-3 相關係數

	I.L.	Zn	Cu	Pb	Ni	Cr	P	S	Sr	Ti	Mn	Fe	Si	Al
I.L.	1.00													
Zn	0.96	1.00												
Cu	0.98	0.99	1.00											
Pb	0.93	0.94	0.93	1.00										
Ni	0.52	0.68	0.61	0.69	1.00									
Cr	0.86	0.95	0.92	0.83	0.56	1.00								
P	0.88	0.89	0.90	0.83	0.79	0.84	1.00							
S	-0.76	0.72	0.75	-0.71	-0.40	-0.60	-0.49	1.00						
Ti	0.37	0.46	0.43	0.52	0.72	0.52	0.58	0.54	1.00					
Mn	-0.42	0.21	0.27	-0.15	0.31	0.01	-0.18	-0.02	0.35	0.42	1.00			
Fe	0.92	0.94	0.95	0.87	0.63	0.85	0.90	0.87	-0.80	0.60	-0.20	1.00		
Si	-0.81	-0.79	-0.83	-0.80	-0.32	-0.72	-0.82	-0.71	0.70	-0.42	0.16	-0.84	1.00	
Al	-0.39	-0.31	-0.34	-0.47	0.13	-0.32	-0.22	-0.26	0.31	0.26	0.24	-0.17	0.58	1.00
K	-0.93	-0.91	-0.94	-0.82	-0.39	-0.77	-0.92	-0.82	0.70	-0.40	0.34	-0.94	0.88	0.32
Ca	-0.83	-0.78	-0.78	-0.83	-0.62	-0.72	-0.61	-0.71	0.87	-0.56	0.27	-0.83	0.60	0.15
T-N	0.90	0.85	0.86	0.95	0.52	0.82	0.81	0.83	-0.59	0.38	-0.32	0.76	-0.78	-0.60
C	0.92	0.85	0.90	0.74	0.25	0.69	0.84	0.72	-0.72	0.18	-0.58	0.86	-0.83	-0.39
EXT	0.97	0.98	0.90	0.89	0.54	0.88	0.91	0.91	-0.75	0.40	-0.32	0.96	-0.85	-0.32
n-Oil	0.96	1.00	0.99	0.94	0.67	0.96	0.89	0.97	-0.72	0.45	-0.20	0.93	-0.79	-0.38
p-Oil	0.96	0.91	0.94	0.81	0.36	0.77	0.81	0.80	-0.76	0.16	-0.53	0.87	-0.77	-0.33
T-Oil	0.98	0.99	0.99	0.91	0.56	0.91	0.88	0.92	-0.75	0.34	-0.34	0.93	-0.80	-0.36
寄与率	0.70	0.74	0.74	0.84	0.68	0.79	0.57	0.73	-0.83	0.58	0.06	0.78	-0.74	-0.37
POEn	0.77	0.79	0.80	0.64	0.55	0.63	0.84	0.74	-0.53	0.57	-0.23	0.86	-0.58	0.17
PCB	0.83	0.91	0.88	0.90	0.75	0.98	0.82	0.95	-0.57	0.54	0.01	0.83	-0.68	-0.26
S.c.*	0.87	0.93	0.91	0.96	0.73	0.97	0.78	0.94	-0.71	0.53	0.01	0.86	-0.77	-0.40
海水生種	-0.89	-0.94	-0.93	-0.96	-0.72	-0.97	-0.80	-0.95	0.72	-0.53	0.03	-0.87	-0.78	-0.40
淡水生種	0.73	0.60	0.67	0.47	-0.04	0.38	0.69	0.42	-0.58	0.06	-0.73	0.70	-0.69	-0.24

	K	Ca	T-C	T-N	EXT	n-oil	p-oil	T-oil	寄与率	POEn	PCB	S.c.*	海水生種	淡水生種
K	1.00													
Ca	0.68	1.00												
T-C	-0.78	-0.72	1.00											
T-N	-0.94	-0.64	0.76	1.00										
EXT	-0.97	-0.76	0.83	0.93	1.00									
n-Oil	-0.90	-0.78	0.35	0.85	0.97	1.00								
p-Oil	-0.94	-0.71	0.79	0.96	0.96	0.91	1.00							
T-Oil	-0.93	-0.77	0.84	0.91	0.99	0.99	0.97	1.00						
寄与率	-0.59	-0.84	0.69	0.54	0.70	0.76	0.57	0.70	1.00					
POEn	-0.85	-0.63	0.57	0.73	0.82	0.75	0.76	0.77	0.40	1.00				
PCB	-0.73	-0.73	0.78	0.67	0.85	0.93	0.72	0.87	0.78	0.59	1.00			
S.c.*	-0.77	-0.81	0.84	0.68	0.87	0.95	0.76	0.89	0.88	0.58	0.96	1.00		
海水生種	0.79	0.82	-0.85	-0.71	-0.89	-0.96	-0.79	-0.91	-0.88	-0.60	-0.96	-1.00	1.00	
淡水生種	-0.82	-0.47	0.54	0.92	0.75	0.59	0.82	0.70	0.28	0.66	0.37	0.37	-0.41	1.00

\*S.c. *Skeletonema costatum*

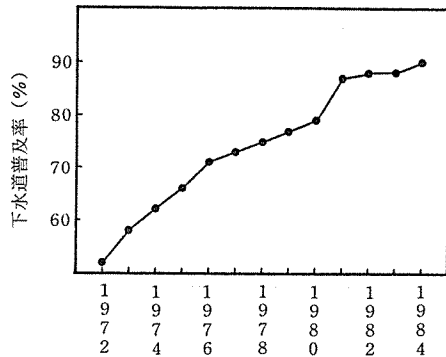


図-7 大岡川流域の下水道普及率

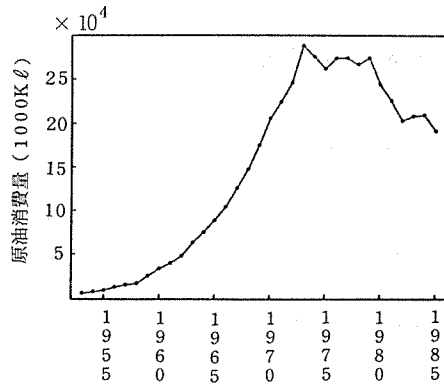


図-8 年度別原油消費量(全国)

2%, K 1%とほぼ同程度の値であった。

また底質柱状試料の70cm以深の部分は人為的影響がほとんどなかった時点のものと考えられ、横浜港におけるバックグラウンド値(以下BG値とする)とすることができる。これによれば、Zn 100  $\mu\text{g/g}$ , Cu 35  $\mu\text{g/g}$ , Pb 30  $\mu\text{g/g}$ , Cr 10  $\mu\text{g/g}$ , P 700  $\mu\text{g/g}$  程度の値と考えられる。このBG値との比を汚染度と考え、0~10cm層での値として、Zn 4.4, Cu 5.4, Pb 5.4, Cr 4, P 1.7となり、1970年頃よりは改善してきているものの、まだかなり汚染されていることがわかる。

0~10cm層が10~20cm層と比較してZn, Pbはかいくつかの項目の濃度が上昇しているが、これは採取地点の近くで現在埋立工事が進行中であり、この影響があったものと考えられる。

### 3-2 油 分

使用される石油類の2,3%が環境に排出されていると見積られている<sup>20)</sup>。その一部は直接、あるいは河川などを通して沿岸域に到達し、懸濁物への吸着を経て沈降、堆積する。直鎖炭化水素は沈降過程で生物分解を受けるが、分岐アルカン、シクロアルカンなどは分解性が低く<sup>21)</sup>海域底質中に残留する<sup>18)</sup>。石油による環境汚染は石油の消費量に密接に関連すると考えられ、底質柱状試料中の油分濃度は、堆積した時代の石油消費量と対応するものと推察される。図-8に、日本における年度別の原油消費量を示す<sup>22)</sup>。原油消費量は1959年頃から急激に上昇し始め、第1次石油危機を経験した1973年にピークに達した後、横バイあるいは減少して現在に至っている。底質中の油分の中、石油由来と考えられる非極性油分(n-Oil)の深度分布(図-6)は原油消費量図-8と良く対応している。n-Oil濃度は60~90cm層まではほぼ横バイであるが、

50~60cm層から高くなり、30~40cm層で最大値を示し、それより上層では減少している。原油消費量がピークに達したのは1973年であるが、水質汚濁防止法および海洋汚濁防止法が1970年に施行されたことを考慮すると最大値を示した30~40cm層は1970年頃に堆積したと推定される。

I.L.とT-C, T-N, 抽出物質, n-Oil, p-Oilとの相関係数はいずれも0.9以上の値を示し、油分の汚染と有機物との汚染は密接に関連している。

一方、底質柱状試料の採取地点は横浜港内であり、石油による汚染は生活系由来のものよりも、むしろ船舶の排水や工場での石油取扱い中の事故による流出の影響が大きいと推察される。油分による汚染のうち石油類の占める比率、即ちn-Oilの寄与率は40~50cm層で最も高い70%を示すが、それより上層では減少している。n-Oilの寄与率が40~50cm層で最も高い値を示すことから、1965年頃には生活系由来による油分よりも石油由来による油分の影響の方が大きかったと思われる。また、40~50cm層より上層で、n-Oilの寄与率が減少しているのは、船舶・工場等による直接的な石油の排出が少なくなったためと考えられる。

横浜港では、船舶・工場などによる油の汚染は無視できない。しかし、今後は多くの人口を抱える後背地からの影響がより大きくなるものと思われる。後背地からは、主として降雨により地表面等に堆積している油分等が河川を通して海域に排出される。油分濃度は土地利用形態により非常に異なり、居住地の4.1mg/ℓから駐車場の15.3mg/ℓまでの範囲にあるという報告がある<sup>23)</sup>。底質柱状試料では、30~40cm層から上層で油分濃度が減少しているが、都市の土地利用形態が高度化する中で、今後堆積する底質中の油分濃度は大幅な減少を示さないと推察される。

### 3-3 化学物質

環境汚染の代表的な化学物質としてPCBと界面活性剤を取上げる。

PCBはもともと自然界には存在せず、人間が新たに合成した化学物質であり、その生産、使用により環境中へ放出されてきた。底質への蓄積過程としては、PCBは水中では主として懸濁物質などに吸着されて存在しており<sup>24)</sup>、その懸濁物質が堆積して底質へ移行する。PCBは生産時期と量がかかなり正確に把握されており、また分解性も低いことから、堆積年代の鍵物質となりうる。PCBの生産量を図-9に示す<sup>25)</sup>。

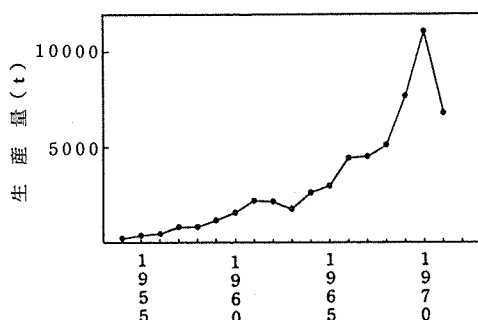


図-9 PCBの生産量 (全国)

PCBの分析例としては東京湾において伏見ら<sup>26)</sup>が行っており、採取地点により少し差はあるものの1960年頃からPCB汚染が始まっていることが確認されている。日本におけるPCBの使用は1950年代からであり、使用量の増大とともに環境汚染へと進行した。

横浜港においては、0~10cm層で $0.12 \mu\text{g/g}$ で、その後は増加傾向を示し、40~50cm層で最大値 $0.34 \mu\text{g/g}$ となり、50~60cm層では $0.01 \mu\text{g/g}$ と減少し、それより下層では検出されなかった。PCBの生産量が急激に増加したのは1965年頃からであり、また伏見ら<sup>26)</sup>が行った生産量と使用量をもとにして求めた一般環境への予測進入量でも1965年頃からの急激な増加が示されており、これらから推察すると、40~50cm層がこの年代に対応するものと考えられる。その後1972年に生産が中止され、底質中の濃度も表層に近くなるにしたがって減少傾向を示しているが、生産中止後14年を経た今でも、0~10cm層においてPCBが検出されている。生物などに直接的に影響を与える表層部において、PCBが検出されなくなるにはまだ長年月が必要であることを示している。

つぎに、界面活性剤も人間が新たに合成し、広く使用されているものの一つである。今回は界面活性剤の

中の非イオン界面活性剤 (POEn) について調査を行った。POEnの歴史は古く1932年にドイツのI.G 社で販売され<sup>27)</sup>、その後日本へも入ってきた。POEnは主として工業用合成洗剤として利用されてきており、最近の洗剤の無リン化に伴い家庭用洗剤にも利用されるようになった。その生産量を図-10に示す<sup>28)</sup>。

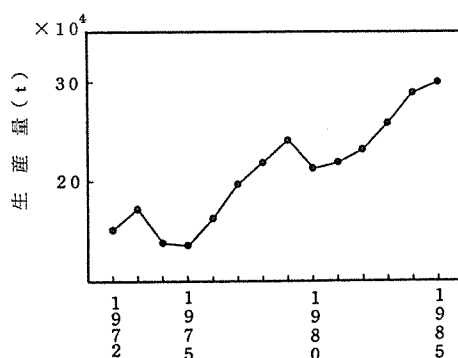


図-10 POEnの生産量 (全国)

POEnの底質に関する調査例はほとんどなく、底質柱状試料の分析例は見られない。このような化学物質の深度分布を求める際に問題となるのがその分解性である。先のPCBは非常に安定なものであり分解性はほとんどないと考えてよい。POEnの底質における分解性に関する報告もほとんど見られないが、一般に嫌気的条件下では分解性は極めて低いと考えられている<sup>29)</sup>。

横浜港における深度分布からも、下層においてもわずかではあるが検出されており、その歴史が古いことがわかる。そして30~40cm層で急激に増加しており、20~30cm層も同レベルであった。他の項目から推定される堆積年代として30~40cm層は1970年頃であり、この年代においては主として工業的な利用であり、先にもふれたが家庭用洗剤への利用は1980年頃からということも考え合わせ、この増加は工業的に利用されたものが原因と考えられる。その工業としては、横浜の地場産業として染色工業があり、横浜港に流入している大岡川、帷子川の流域に多数の染色、精練工場が存在していた。飯塚<sup>30)</sup>によれば、これらの工場排水中には高濃度のPOEnが存在することが確認されており、それが原因と考えられる。その後、POEnの生産量は増大しているが0~20cm層でPOEnの濃度は減少している。これは下水道の整備、公害問題等による工場の移転などによるものと考えられる。

### 3-4 珪藻群集からみた横浜港の水質環境変化

#### 3-4-1 珪藻堆積環境

淡水生種と海・汽水生種の出現率を合わせたものを図-11に示した。

河川により運ばれた淡水生種の出現率は最大でも3%にすぎなかった。それに対し海・汽水生種の出現率

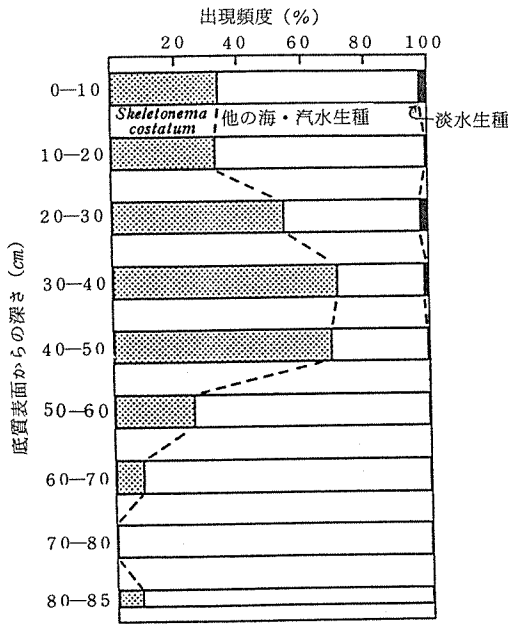


図-11 淡水生種と海・汽水生種の出現率

は97~100%と極めて高かった。

一般に河川水中には河床より剥離した淡水生藻類が多く含まれ、多摩川水系では約19,000個体/mlが測定された地点もある<sup>31)</sup>。これらの流下藻類は河川、河口及び海域で沈降堆積する。

分析対象とした珪藻の沈降速度は、静かな海では30m/日で<sup>32)</sup>、動物プランクトンにより摂食され糞として排出された場合は30~200m/日とされている<sup>33)</sup>。

底質柱状試料の採取場所は前述のように大岡川河口より約400m横浜港に入った水深約8~9mの地点で、立地的には河川により運ばれた淡水生種の割合が大きいことが想像されたが、分析結果は極めて低い出現率を示した。

陸起源有機物の河口域における分布は、河川の形状、流れ方により影響を受けることが東京湾流入河川の調査結果から推察されている<sup>34)</sup>。大岡川河口部では複雑な地形等の影響により、河川水中の珪藻の多くは底

質柱状試料採取地点より更に河口に近い部分で沈降、堆積することが考えられる。そのため、底質柱状試料採取地点では、横浜港を中心とした海域で生産された珪藻の出現率が高くなっている。

#### 3-4-2 *Skeletonema costatum* を指標とした赤潮発生頻度の推移

富栄養化した海域では赤潮がしばしば発生する。東京湾では1907年に最初の赤潮発生の報告があり、その後1966年までの間に131回の赤潮発生が観測され、そのうち渦鞭毛藻 *Gymnodinium* spp. が25回、渦鞭毛藻 *Exuviaella* (= *Prorocentrum*) sp. が23回そして珪藻 *Skeletonema costatum* が18回主な赤潮生物となったことが報告されている<sup>35)</sup>。

また、東京都の調査でも1977年から1985年までの間、毎年12~32回の赤潮発生が認められており、ほとんどの年で *Skeletonema costatum* を主とする赤潮発生回数が最も多かった<sup>36)</sup>。

赤潮は環境に適応した種の極端な増殖により生じるものであるが、他の種は平常時と同程度の現存量を保つ複合相赤潮と、他の種が著しく減少する単相赤潮とがある。*Skeletonema costatum* は渦鞭毛藻 *Noc-titucamiliaris* とならんで代表的な単相赤潮を形成する種である。また、*Skeletonema costatum* は複合相赤潮としても出現頻度が高い<sup>37)</sup>。

東京湾では1927~29年当時の調査でも *Skeletonema costatum* が冬期に植物プランクトンの85~90%を占め<sup>38)</sup>、1947年にも珪藻プランクトンのなかで優占種のひとつとなっていた<sup>37)</sup>。

珪藻は死滅後も殻が残るため、花粉、有孔虫、貝等とともに、その生育していた年代の環境状況を推察するための指標として用いられている。また、*Skeletonema costatum* の生育最適塩分濃度は約17~25‰<sup>39)</sup>、内湾的環境には普遍的に分布する。このことから、堆積物中の *Skeletonema costatum* が海・汽水生種に占める割合は、巨視的には赤潮発生頻度と相関があると考えられる。

*Skeletonema costatum* の出現率は図-11に示したように堆積物の深度によりかなり異なっている。堆積物の表面に近い0~10cm層と10~20cm層ではいずれも40%以下の出現率であった。しかし、20~30cm層では50%を超え、30~40cm層と40~50cm層ではともに約70%と最も高い出現率を示した。それより下層の堆積物中の出現率は低く、50cm~60cm層では約25%で、その下部の85cmまでの3層では10%以下の出現率であった。

50~60cm層と40~50cm層で *Skeletonema costatum* の出現率の増加傾向が認められる。これは、これらの層の堆積した時期が、赤潮発生頻度の増加時期であったことを示している。

東京湾における赤潮発生報告件数は、東京湾周辺の工業近代化が進行した1955年前後から著しく増加し始めている<sup>37)</sup>。しかし、1970年代後半までの間の約10年間にわたる赤潮発生回数もしくは報告件数に関しては不明であるため、赤潮発生頻度が最も高かった時期を特定することはできない。

赤潮発生報告件数の増加し始めた時期と、堆積物中の *Skeletonema costatum* の出現率が増加し始めた時期がほぼ同じであったとの仮定のもとに堆積年代を推定すると、50~60cm層は1955年以降に堆積されたことが考えられる。

### 3-5 総合考察

前項までに同一の底質柱状試料を金属類、油分、化学物質、珪藻という面からみた結果について述べてきた。各項においてそれぞれの社会経済的なデータ、過去の汚染状況のデータなどつぎ合わせるにより、底質柱状試料の堆積年代について推察してきた。その結果をまとめたものを表-4に示す。項目によりキーポイントとする年代が異なり、その対応する深度も異なっている。

表-4 各項目より推定された堆積年代

	重金属	P	油分	PCB	珪藻
0~10cm					
10~20cm		1980			
20~30cm					
30~40cm	1970		1970		
40~50cm				1965	
50~60cm					1955 前後
60~70cm					
70~80cm					
80~85cm					

表-4からは、各項目により推定された堆積年代に矛盾はないと考えられる。すなわち、表層部は試料採取した1986年であり、10~20cm層は1980年頃、30~40cm層は1970年頃、40~50cm層は1965年頃、50~60cm層は1955年以降と推定される。わりあてた年代からの見かけ上の堆積速度に差があり、表層部で大きく下層で

小さくなる。これは圧密によるものと、その時代における汚染の度合いにより説明可能である。柱状試料の年代推定の仕方について、合田ら<sup>7)</sup>は多面的な情報により解析することが重要であると指摘しており、今回のように4つの視点から解析した結果はある程度の信頼が得られる。4つの項目とも水域の汚染という視点からは、発生源、汚染機構などは異なるものではあるが、一つの指標となるものである。このように発生源、汚染機構などが異なるにもかかわらず、その深度分布をみると、30~50cm層で、すなわち1960~70年頃に汚染のピークが認められるのは注目すべきことであり、この年代における全般的な環境汚染のすさまじさが想像できる。そして危機的な状態に陥って、公害問題が重大な社会問題となり、水質汚濁防止法などの公害関連諸法の整備制定へと結びついた。公害関係の法律の整備により一時期の危機的な状態から脱したことが0~30cm層での減少傾向より理解できるが、人為的な影響が少なかった年代の状態にはまだ程遠いことも60~85cm層の結果と比較することによりわかる。

## 4. まとめ

横浜港における底質柱状試料の金属類、油分、化学物質、珪藻について調査した結果、次のことが明らかとなった。

- (1) 重金属元素のZn, Pbなどは表層から50~60cmより増加を始め、30~40cm層で最大値を示し、それより上層では減少傾向を示した。30~40cm層の堆積年代は東京湾のデータと比較して考えると、1970年頃と推定される。
- (2) 柱状試料の70cm以深の部分は人為的影響がほとんどなかった時点のものと考えられ、横浜港におけるBG値として、l.L. 7~8%, Zn 100  $\mu\text{g/g}$ , Cu 35  $\mu\text{g/g}$ , Pb 30  $\mu\text{g/g}$ であった。
- (3) 底質の油分による汚染は石油消費量に比例して増加しており、30~40cm層で油分の最大値を示す。この層は1970年頃と推定され、それ以降は汚染の度合いは減少傾向が認められた。
- (4) PCBによる汚染は50~60cm層から始まり、40~50cm層で最大値0.34  $\mu\text{g/g}$ を示し、それより上層では減少傾向が認められた。PCBの生産量などから、40~50cm層の堆積年代は1965年頃と推定された。0~10cm層でも0.12  $\mu\text{g/g}$  検出され、1972年に生産中止され14年たった現在でもPCBによる汚染が認められた。
- (5) 界面活性剤のPOEnが、20~30cm層で最大値0.8  $\mu\text{g/g}$  検出され、POEnの底質での残存性が認められ

た。

(6) 海・汽水生珪藻に比較して淡水生珪藻の出現率は極めて低かった。海・汽水生種のうち、東京湾の赤潮生物の代表的な *Skeletonema costatum* の出現率は60~70cm層より下層では少なく、50~60cm層から上層で急激に増加し、40~50cm層、30~40cm層の出現率が高かった。またそれより上層では減少する傾向が認められた。

(7) 人為的汚染に由来する重金属、油分、PCBなどはすべて30~50cm層で最大値を示し、この層に対応する1960~70年頃の汚染は工業系、生活系の全般的なものであり、汚染の度合いも高かったと推察される。また現在は減少傾向にあるものの、人為的な影響がなかった年代の状態にはまだ程遠いことがわかった。

今回の調査では、1地点で横浜港を代表して考察を行ったが、より確実な情報を得るためにはさらに地点数を増して行う必要があり、また堆積年代の推定法として絶対年代測定法の  $^{210}\text{Pb}$  を用いた方法も行う必要があると考えられる。

## 謝 辞

本報告に際して、底質試料を提供して下さった横浜市港湾局企画課に、また横浜港の水質データを提供して下さった横浜検疫所に感謝する。

## 文 献

- 1) 横浜市港湾局資料
- 2) 横浜市総務局：統計横浜，396，2-16 (1985)。
- 3) 横浜市総務局：統計横浜，403，2-4 (1987)。
- 4) 横浜検疫所：横浜・川崎港港湾区域衛生対策実施報告書，昭和37年度版~昭和41年度版 (1962-1966)。
- 5) 横浜・川崎港衛生管理運営協議会：横浜・川崎港衛生年報，昭和42年度版~昭和56年度版 (1967-1981)。
- 6) 神奈川県・横浜市・川崎市・横須賀市・藤沢市・相模原市：公共用水域測定結果，昭和47年度版~昭和61年度版 (1973~1987)。
- 7) 合田四郎，山崎秀夫，森重清利：沿岸堆積物中の汚染物質の歴史の変遷に関する一考察，近畿大学環境科学研究所研究報告，12，57-61 (1984)。
- 8) Akira Hoshika, Takayuki Shiozawa: Sedimentation Rates and Heavy Metal Pollution of Sediments in the Seto Inland Sea Part 2. Hiroshima Bay, Journal of the Oceanographical Society of Japan, 40, 115-123 (1984)。

- 9) 佐藤茂之，半田暢彦，松永捷司：伊勢湾堆積物における多環芳香族炭化水素の分布Ⅱ，1983年度地球化学会講演要旨集，23-24 (1983)。
- 10) 環境庁水質保全局：底質調査方法，昭和50年度版。
- 11) 白柳康夫：底質のけい光X線分析法の検討，横浜市公害研究所報，8，103-110 (1983)。
- 12) 二宮勝幸：油分による鶴見川の底質汚染，横浜市公害研究所報，8，119-126 (1983)。
- 13) 飯塚貞男：排水中の非イオン界面活性剤の定量法，横浜市公害研究所報，5，79-83 (1980)。
- 14) 松本英二：東京湾の底質環境，地球化学，17，27-32 (1983)。
- 15) 岩崎公俊，平尾良光，木村幹，松本英二：東京湾海底土中の水銀分布，1983年度地球化学会講演要旨集，19-20 (1983)。
- 16) 小倉久子，鎗田功，小林節子，中島淳：河川における重金属の堆積機構，水質汚濁研究，2 (3)，173-180 (1979)。
- 17) 北野康：環境化学情報，東京大学出版会，172-178 (1982)。
- 18) 二宮勝幸，白柳康夫，小市佳延：水域環境指標Ⅱ主成分分析による底質評価，横浜市公害研究所報，11，83-109 (1986)。
- 19) 横浜市公害対策局水質課資料。
- 20) Miller G.J., Connell D.W.: Global production and fluxes of petroleum and recent hydrocarbons, Int. J. Environ. Stud. 19 (3/4), 273~280 (1982)。
- 21) Gearing P.J., Gearing J.N., Pruell R.J., Wade T.L., Quinn J.G.: Partitioning of No. 2 fuel oil in controlled estuarine ecosystems. Sediments and Suspended Particulate matter, Environ. Sci. Technol. 14, (9), 1129~1136 (1980)。
- 22) 資源エネルギー庁：総合エネルギー統計，昭和61年度版。
- 23) Silverman G.S., Bursztynsky T.A.: Oil and grease in urban stormwaters, J. Environ. Eng. 110, (1), 58~72 (1984)。
- 24) Steen W.C., Paris D.F., Baughman G.L.: Partitioning of selected Polychlorinated biphenyls to natural sediments, Water Res. 12, 655~657 (1978)。
- 25) 通産省資料。
- 26) 伏見洋子，杉浦桂，松本英二，後藤幹保：東京湾

- の堆積物に記録されているPCB汚染の歴史, THE HITACHI SCIENTIFIC INSTRUMENT NEWS, 30 (2), 6~10 (1987).
- 27) 井上勝也: 生活の中の洗剤・活性剤, 研成社, 44 (1978).
- 28) 通商産業大臣官房調査統計部編: 化学工業統計年報, 昭和47年度版~昭和60年度版(1972~1985).
- 29) 日本水質汚濁研究協会: 底質汚濁改善対策調査総合報告書, 91-92 (1987).
- 30) 飯塚貞男: 横浜市内河川水中の合成界面活性剤の濃度分布, 横浜市公害研究所報, 10, 141-145 (1985).
- 31) 建設省関東地方建設局京浜工事事務所: 多摩川の生物相と水質汚濁の現況, 247-266 (1975).
- 32) 巖佐耕三: 珪藻の生物学, 東京大学出版会, 136 (1976).
- 33) 小泉格: 海底に探る地球の歴史, 東京大学出版会, 105 (1980).
- 34) 石渡良志: 河口域堆積物中の有機物の分布と解釈 - 東京湾を例にして -, 陸水学雑誌, 48, 105-104 (1987).
- 35) 菅原兼男・佐藤正春: 東京湾の赤潮, 赤潮に関する研究会, 水産海洋研究会報, 9, 116-133 (1966).
- 36) 東京都環境保全局水質保全部: 昭和60年度・東京都内湾赤潮調査報告書, 101(1987).
- 37) 柳田友道: 赤潮, 講談社サイエンティフィック, 198 (1976).
- 38) 村野正昭: 東京湾のプランクトン, 海洋科学, 12, 761-777 (1980).
- 39) 大野正夫: 汽水域の藻類の生態, 藻類の生態, 内田老鶴圃, 347-370 (1986).

## 横浜港における底質汚染（第1報）

白柳 康夫\*

### 要 旨

横浜港における底質汚染状況を把握するため、内港の25地点において金属類、強熱減量、全窒素及び全炭素の調査を行った。うち6地点においては柱状試料についての調査を行った。その結果、次のことが明らかとなった。

- (1) 重金属のZn、Pbなどが帷子川の河口前面で高濃度を示し、そこから港内の潮流に沿った港央に向って減少傾向を示した。また、大岡川の河口付近は帷子川に比較して濃度が低かった。これに対して、有機性汚濁の指標である強熱減量、全炭素などはほぼ全域で同様な濃度を示した。
- (2) 深度分布などから推定される底質の見かけ上の堆積速度は、大岡川河口付近で、 $2.2\text{cm}/\text{y}$ 、港奥の中央部で $5\text{cm}/\text{y}$ 、港央部で $3.4\text{cm}/\text{y}$ 、山下公園前面で $5.1\text{cm}/\text{y}$ 、堤防付近で $2.2\text{cm}/\text{y}$ であった。
- (3) 主成分分析により底質の汚染を総合的に評価したところ、港内では浚渫の影響のあった地点を除いたほぼ全域で汚染度が高く、その底質は約50~80cmの深度まで存在することがわかった。

### 1. はじめに

近年、ウォーターフロントについての関心が高まってきたが、横浜内港のような商業港においては人々が水と接することができる場所は少ない。現在は内港地区において山下公園地区が開放されているのみであり、近い将来は横浜みなとみらい21（MM21）地区の水際公園が利用できるようになる。

横浜港内の水質は1960年代に比較して改善されつつあるが、決して満足のいくものとは言えない。実際、「横浜港に関する市民意識調査」<sup>1)</sup>では75%の人が海の汚れが気になると回答している。水質汚濁の原因としては河川などからの汚染物質による流入負荷と、底質から溶出する内部負荷とが考えられ、赤潮の発生には内部負荷が大きな役割を果していると考えられる。その汚染された底質は長年にわたって堆積したものであり、過去の汚染の変遷をものがたっている。

そこで今回は、横浜港内港地区の25地点（うち6地点は柱状試料）において行った、底質の汚染状況調査

の結果について報告する。

### 2. 調査方法

底質の採取はエックマンバージ型採泥器を用いて表層のサンプリングを行った。柱状試料については横浜市港湾局が潜水夫により100mm径の塩ビ製パイプを用いて行った。

#### 2-1 調査地点

調査地点を図-1に示した。このうちSt.2,4,10,17,19,25において柱状試料の採取を行った。

#### 2-2 分析方法

分析方法を表-1に示した。

柱状試料については表層より10cm毎に分取して、各深度別に分析を行った。

### 3. 結果と考察

表層25試料と柱状51試料（0~10cmは表層とする）計76試料を用いた測定項目間の相関係数を表-2に示



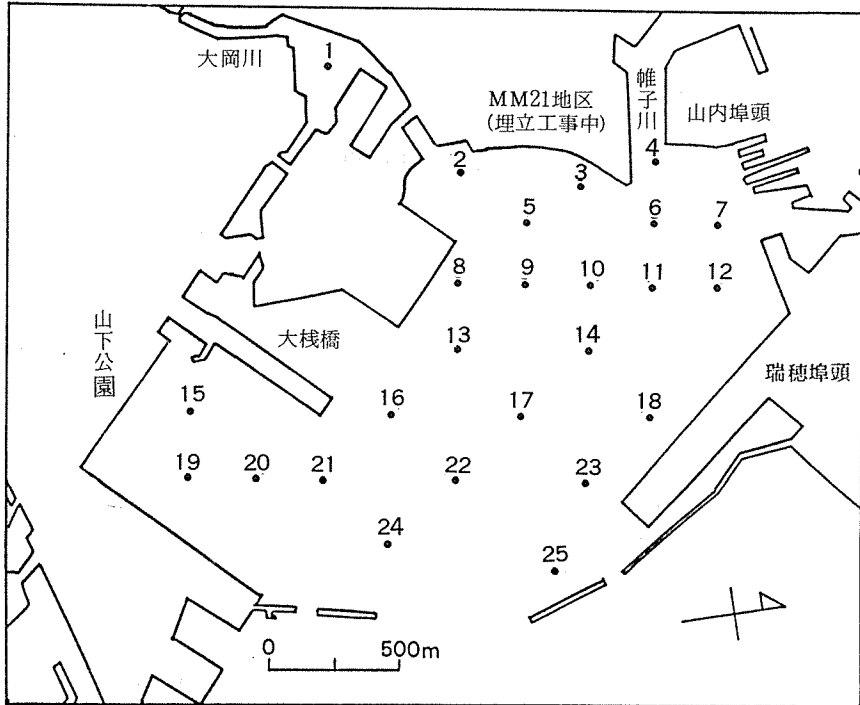


図-1 調査地点

表-1 分析方法

強熱減量 (I.L.) : 底質調査方法 <sup>2)</sup>
金属類 : けい光X線法 <sup>3)</sup>
全炭素, 全窒素 (T-C, T-N) : CHNコーダー

す。

### 3-1 表層試料

#### 3-1-1 濃度分布

結果の1例として重金属はZnとPbについて、有機汚濁に関する項目としてI.L, P, T-C, T-Nの濃度分布を図-2から7に示す。

重金属の濃度分布の特徴として帷子川の河口前面で濃度が高く、港央に向って減少し、山下公園の前面で再び濃度が高くなっていった。重金属は主として河川から流入し、海域での拡散堆積により、その底質中の濃度は河口からの距離とともに減少傾向を示すと考えられる。しかし、山下公園の前面については地形が閉鎖的であるため、底質が堆積しやすく高濃度を示したと考えられる。また大岡川の河口付近は帷子川と比較して濃度レベルがかなり低く、重金属の負荷源としては帷子川の比率が大きいと考えられる。

一方、I.L., T-C, T-N は全域でほぼ同様な濃度

を示した。これはI.L.などが比較的に軽い粒子に基因し広範囲に移動すること、また2次生産による内部負荷があるためと考えられる。

Pは重金属やI.L.などとはやや異なり、港奥で濃度が高く、St.14あたりを境とした沖合で低値を示した。

またSt.13と16における各項目の濃度は、周辺と比較して低値を示したが、これは1986年に行われた大棧橋周辺の浚渫工事の影響と考えられる。

#### 3-1-2 距離減衰

先述したように、重金属の濃度は河口からの距離とともに減少すると考えられるので、河口からの距離減衰について検討した。

伊藤<sup>4)</sup>は名古屋港において底質中重金属濃度を河口からの距離の指数関数で表わしている。そこで重金属の負荷が大きい帷子川を対象として適用してみた。帷子川の河口としてはSt.4であるが、この付近は1984年に浚渫工事が実施されており周辺と比較して低値となっているため、基準点とするには適当ではないと考えられた。そこで周辺地点で重金属濃度が最大値を示したSt.7を基準点とした。対象地点としては港内の潮流に沿ったSt.5, 6, 8, 9, 10, 11, 12, 14, 17, 18, 22, 23, 24, 25の15地点とした。

重金属の例としてZn, Pb, Cuを、有機汚濁に関す

表-2 相 関 係 数

	I.L.	Zn	Cu	Pb	Ni	Cr	P	
I.L.	1.00							
Zn	0.54	1.00						
Cu	0.51	0.85	1.00					
Pb	0.24	0.81	0.79	1.00				
Ni	0.24	0.76	0.61	0.67	1.00			
Cr	0.23	0.78	0.59	0.79	0.66	1.00		
P	0.32	0.54	0.54	0.51	0.23	0.53	1.00	
S	0.53	0.75	0.65	0.52	0.64	0.37	0.35	
Sr	-0.64	-0.34	-0.30	0.04	-0.27	0.01	0.13	
Ti	-0.01	0.46	0.29	0.40	0.37	0.48	0.43	
Mn	-0.01	0.05	-0.01	0.17	0.03	0.37	-0.11	
K	-0.67	-0.62	-0.58	-0.34	-0.18	-0.40	-0.66	
Ca	-0.64	-0.44	-0.46	-0.15	-0.33	-0.12	-0.01	
T-C	0.68	0.80	0.74	0.62	0.60	0.59	0.58	
T-N	0.85	0.54	0.48	0.16	0.27	0.21	0.35	

	S	Sr	Ti	Mn	K	Ca	T-C	T-N
S	1.00							
Sr	-0.51	1.00						
Ti	0.26	-0.03	1.00					
Mn	-0.33	0.17	0.10	1.00				
K	-0.44	0.36	-0.38	-0.08	1.00			
Ca	-0.55	0.90	-0.19	0.14	0.39	1.00		
T-C	0.72	-0.40	0.38	-0.01	-0.65	-0.50	1.00	
T-N	0.54	-0.68	0.16	-0.02	-0.75	-0.64	0.72	1.00

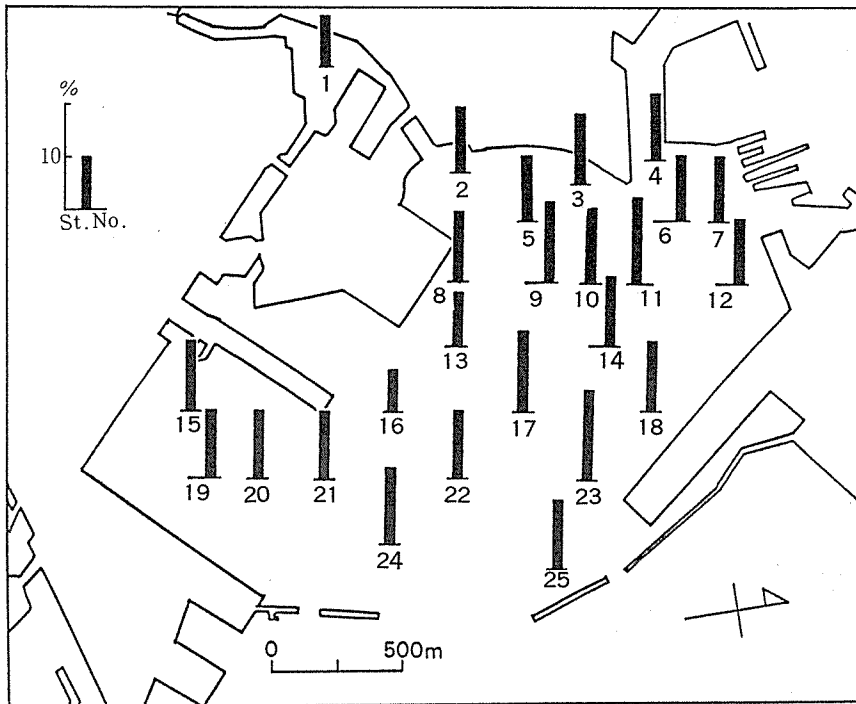


図-2 表層におけるI.L.の濃度分布

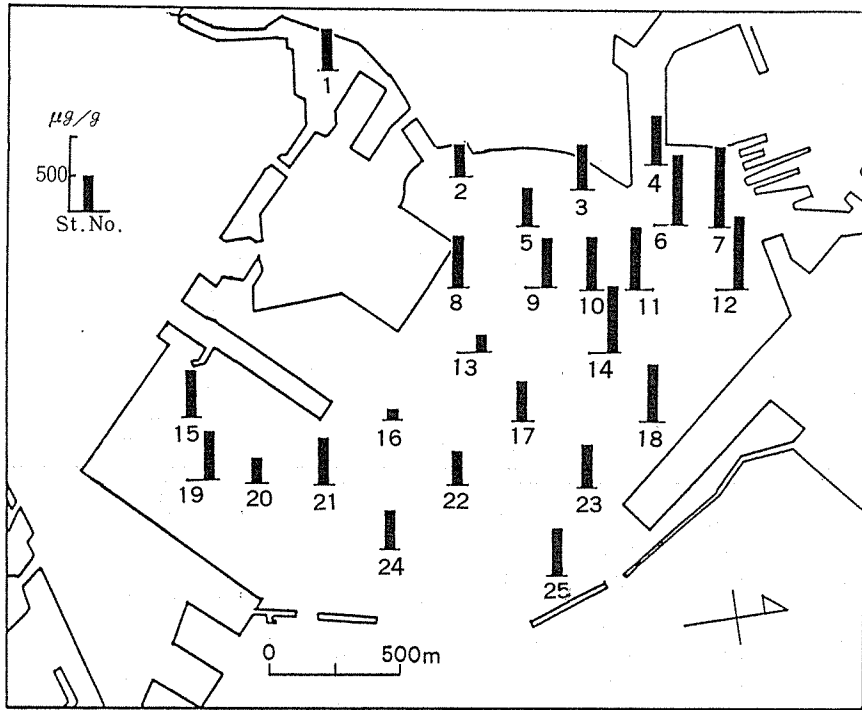


図-3 表層におけるZnの濃度分布

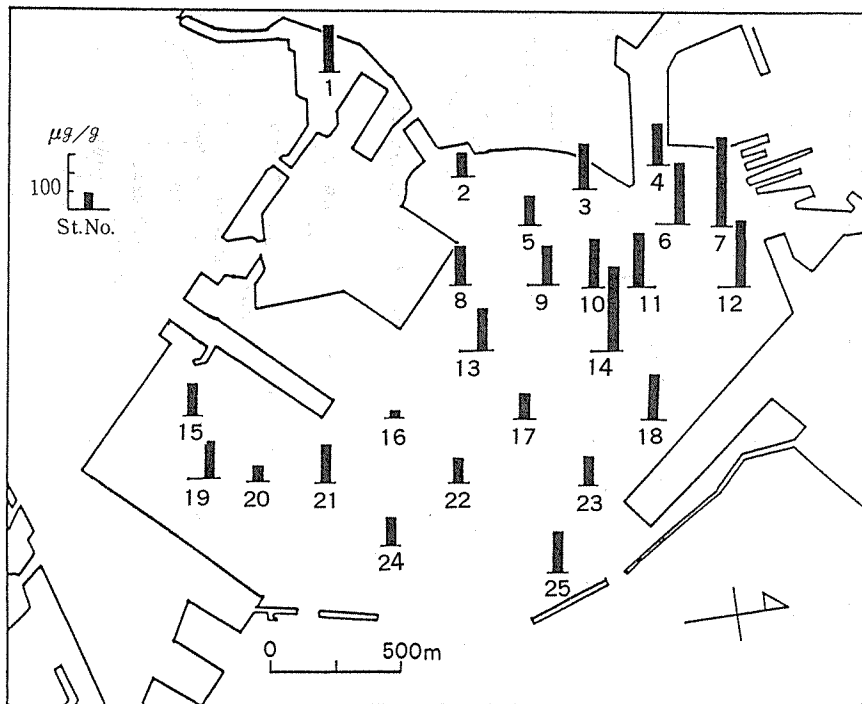


図-4 表層におけるPbの濃度分布

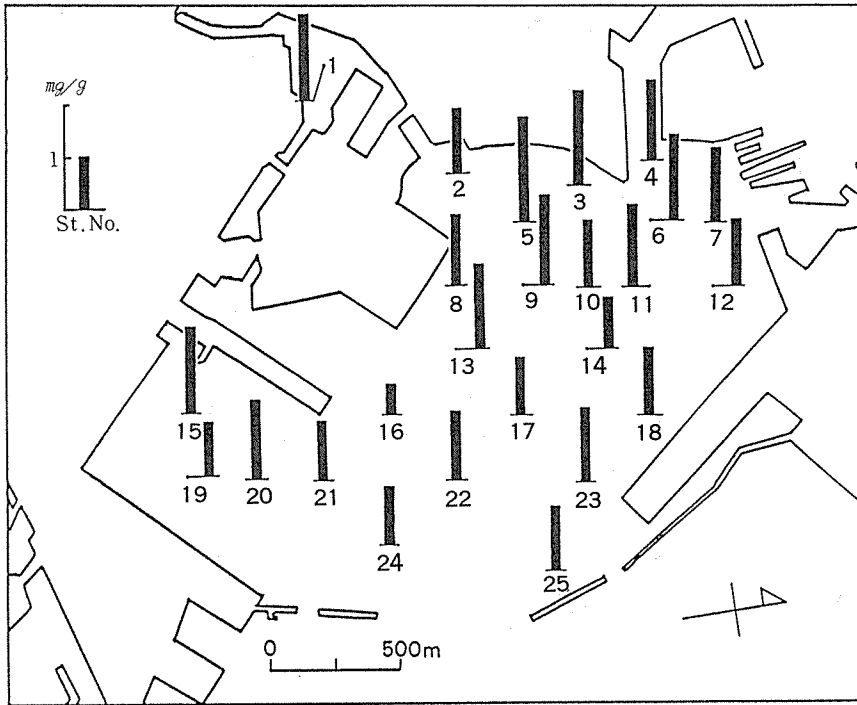


図 - 5 表層におけるPの濃度分布

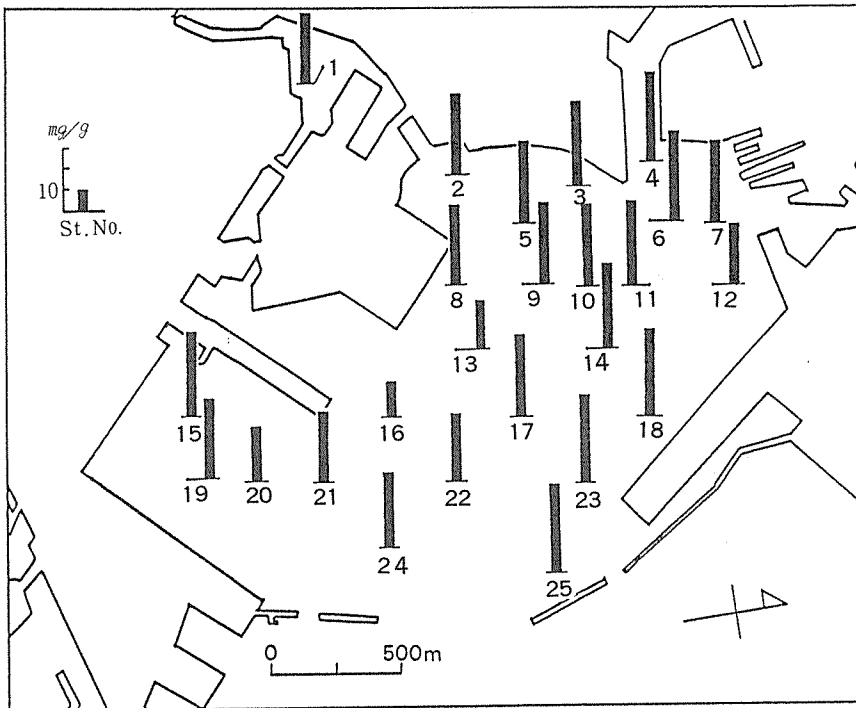


図 - 6 表層におけるT-Cの濃度分布

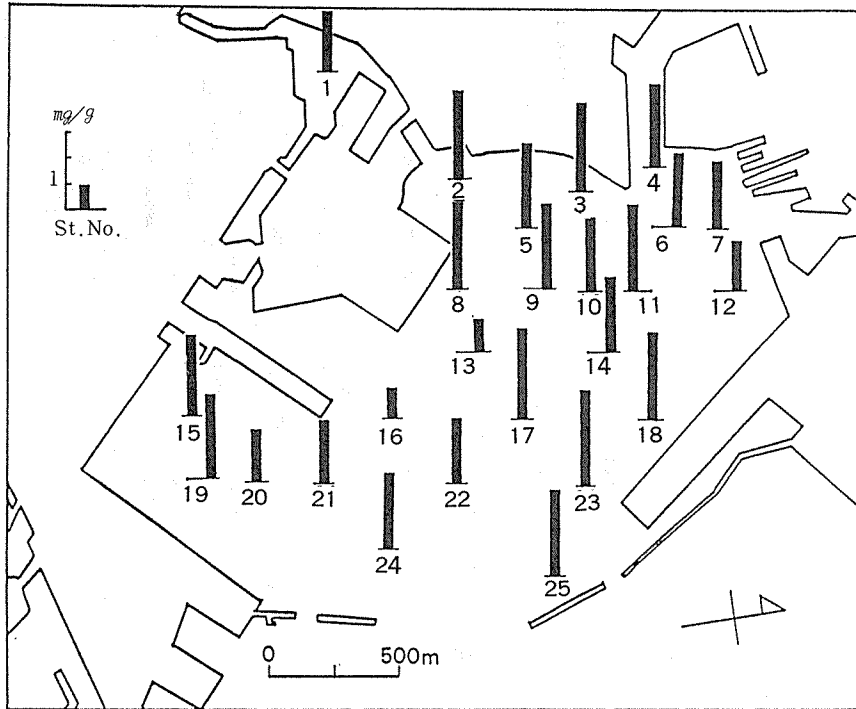


図-7 表層における T-N の濃度分布

る項目としてI.L.の例を図-8から11に示す。Zn などの重金属は高い相関性を示すが、I.L. などの有機汚濁に関する項目は距離にかかわらずほとんど一定であった。これは先述したように重金属と有機汚濁物質との堆積機構の違いによるものと考えられる。また、回帰式の傾きは減衰の速さ、すなわち重金属の場合は主に吸着のしやすさを表わしていると考えられる。成瀬ら<sup>5,6)</sup> は懸濁物質への重金属イオンの親和力が $Pb \geq Cu > Zn$  の順、底泥へは $Cu \geq Pb > Zn$  の順であると報

告している。今回の結果からは傾きの大きさが $Pb > Cu > Zn$ の順になっており、懸濁物質の結果と一致していた。今回のように河口からの距離が2 km程度の場合、河川の影響が強く、河川から流入する懸濁物質の挙動に近似したものと考えられる。

### 3-2 柱状試料

底質柱状試料は過去の水域の汚濁状況を知るために重要なものであるが、その解析にあたっては堆積物の過去のかく乱の状況を調査することが重要である。特

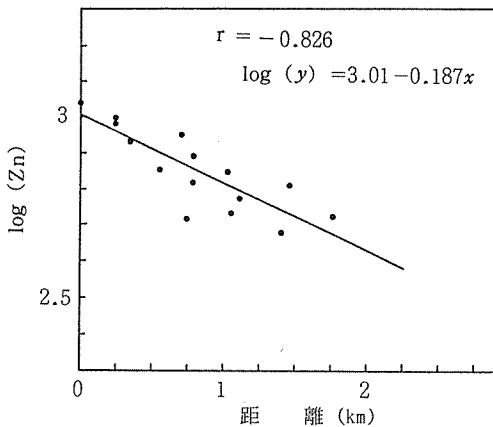


図-8 距離とZn濃度との関係

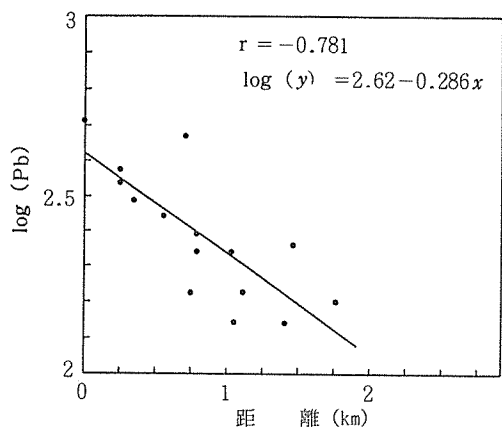


図-9 距離とPb濃度との関係

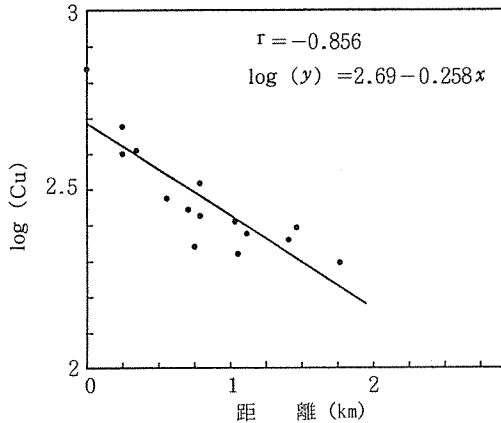


図-10 距離とCu濃度との関係

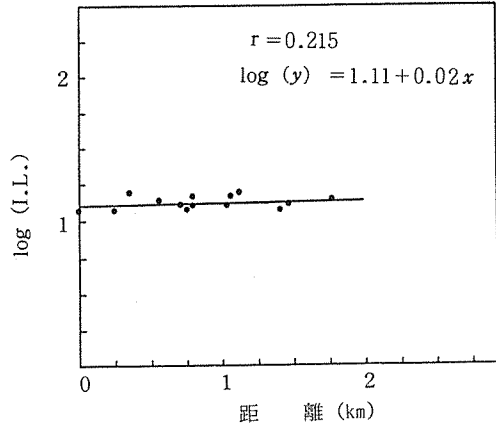


図-11 距離とI.L.濃度との関係

に、横浜港のような船の往来がはげしく、浚渫工事が頻繁に行われている状況においては、これらの外的要因を十分に考慮する必要がある。浚渫工事の状況を過去にさかのぼり正確に把握することができれば、工事による環境変化と堆積層を対比させることが可能となる。そこで柱状試料採取地点の浚渫状況などについて調査した結果を以下に述べる。

○ St.2

大岡川の河口の前面で、水深8～9m。浚渫が実施された記録はなかったが、すぐ西側でMM21の埋立工事が行われており、この影響が多少あるかと考えられる。

○ St.4

帷子川の河口前面であり、水深9～10m。1972年に1～1.5m程度の浚渫が<sup>7)</sup>、また1984年にも除去深度は不明であるが、浚渫工事が<sup>8)</sup>行われている。

○ St.10

水深約10m。浚渫工事は0.5～1m程度の除去が1972年に行われている<sup>7)</sup>。

○ St.17

水深11～12m。浚渫が実施された記録はなかった。

○ St.19

山下公園の前面で、水深約12m。浚渫工事は1971年に行われているが、詳細な資料がないため除去深度は不明である。

○ St.25

水深約10m。浚渫が実施された記録はなかった。

以上のように St.2, 17, 25は過去に浚渫された記録はなかった。またSt.4, 10, 19は浚渫工事が行われた記録が明確なので堆積状況の解析のための対象とした。

### 3-2-1 深度分布

今回の6地点における15項目の深度分布を図-12から14に示す。

東京湾における金属類の深度分布については松本<sup>9)</sup>の報告があり、<sup>210</sup>Pbによる堆積年代測定を行っている。それによれば、Zn, Pb, Cuなどの重金属は60～80cmの深さより増加し、40～50cmの深さで急増し、15～20cmの深さで最大値を示している。これに堆積年代をあてはめると、1900年頃から増加し、1950年頃より急増し、1970年前後に最大値を示し、それ以後は減少傾向を示している。これは東京湾中央部での結果であるが、この程度の時間のスケールでは、横浜港における汚染史も東京湾と差はないと考えられる。

図-12をみると、I.L.はSt.2においてのみ前述のようなパターンを示した。

St.2における最大値は20～30cmと30～40cmの2層であり、東京湾中央部よりも深い層であった。これは沿岸であるため、堆積速度が大きいことによると考えられる。また、下層における値はバックグラウンド値(以下BG値とする。)となるわけであるが、I.L.の場合は7～8%であった。

Zn, Pb, Cu, Crのように人為的汚染に由来する重金属元素は、St.2, 25で東京湾と同じパターンを示した。この2地点において最大値はSt.25のPbを除いてすべて30～40cmの層であった。またSt.2に比較してSt.25の値の方が高くなっていた。これは前述したように重金属の負荷としては帷子川の方が大岡川より大きく、St.25は帷子川からの影響が大きいからと考えられる。これは横浜港内の潮流が帷子川河口から山内埠頭、瑞穂埠頭に沿って流れているためと考え

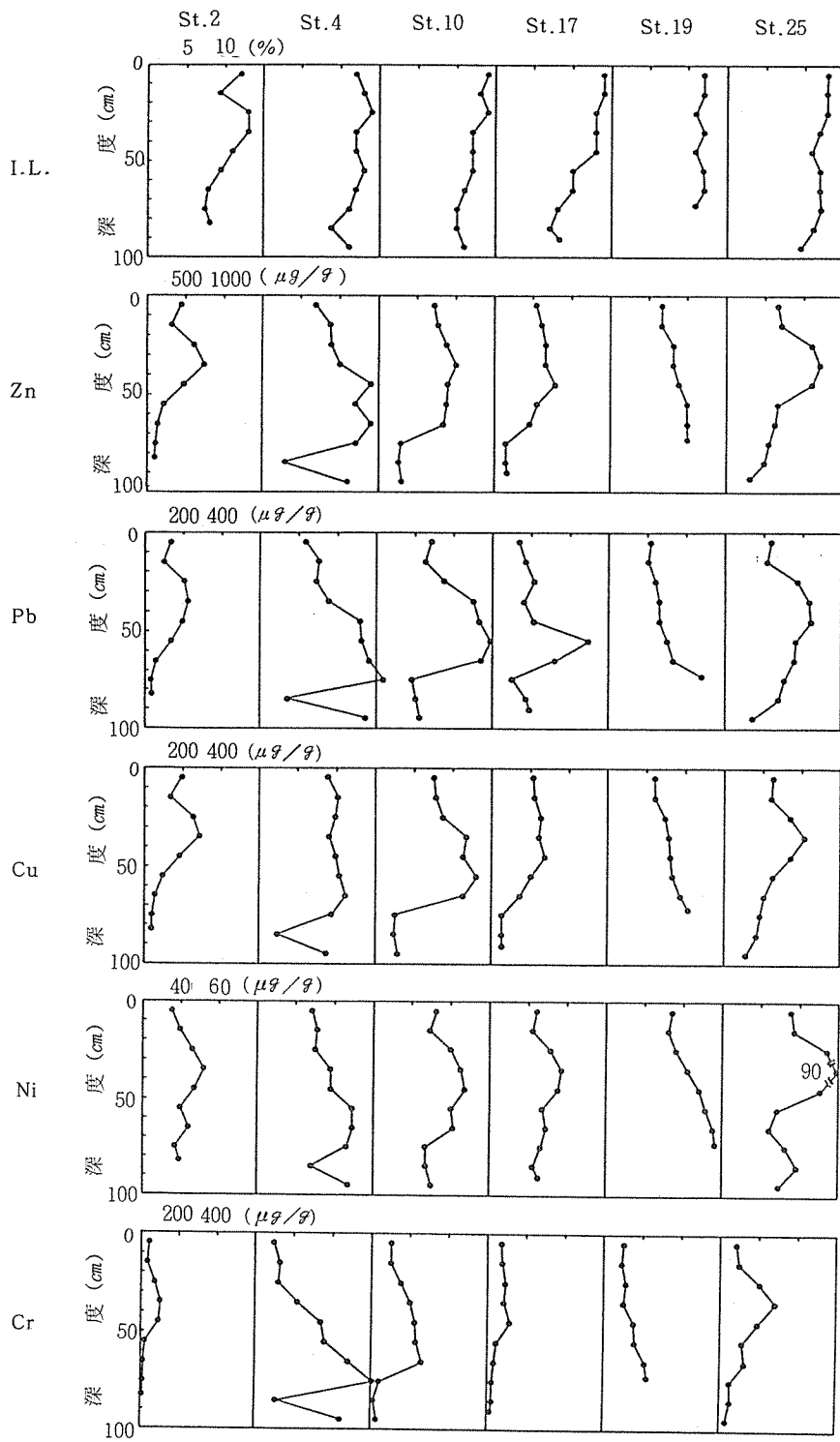


図-12 I.L., Zn, Pb, Cu, Ni, Cr の深度分布

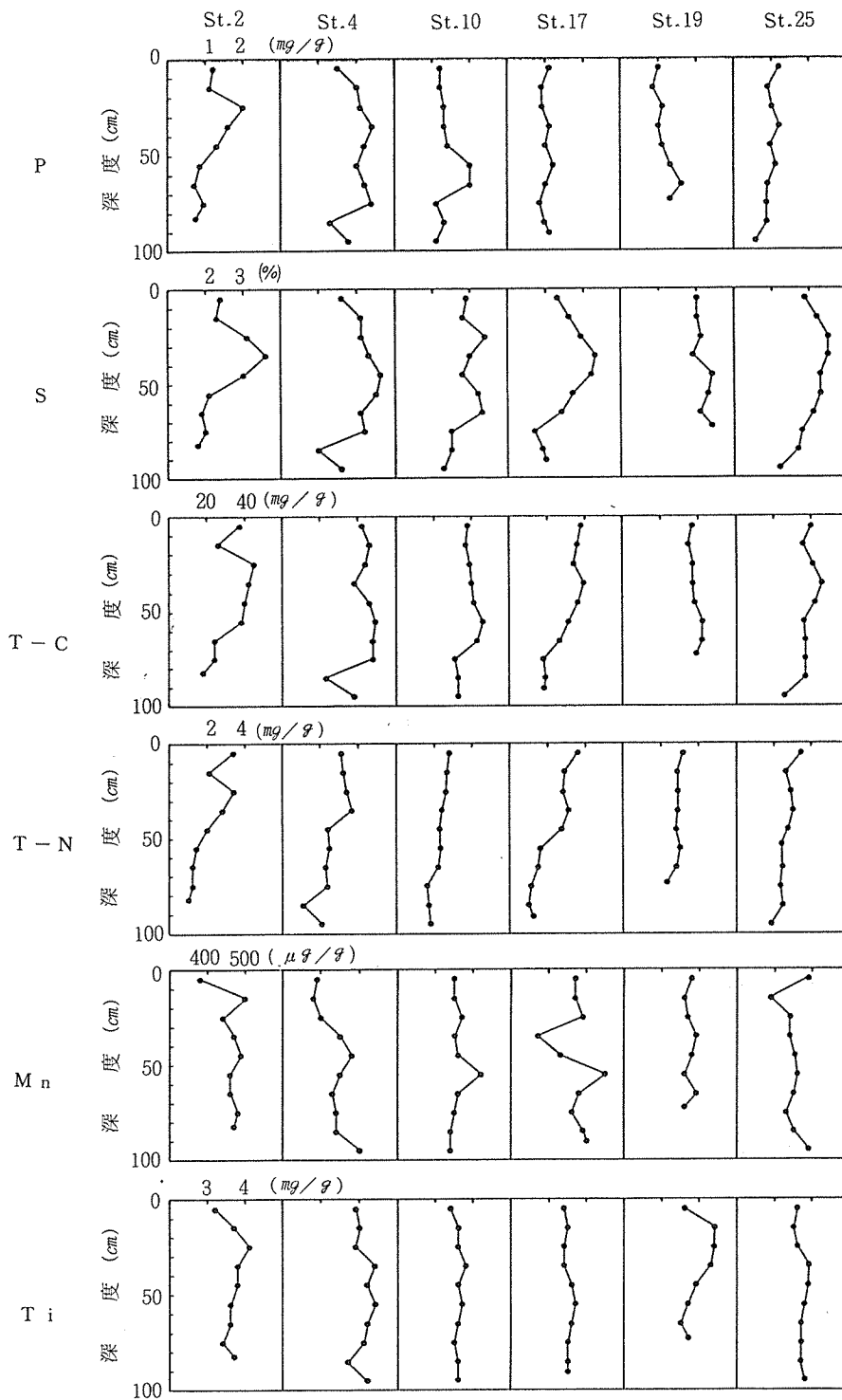


図-13 P, S, T-C, T-N, Mn, Tiの濃度分布



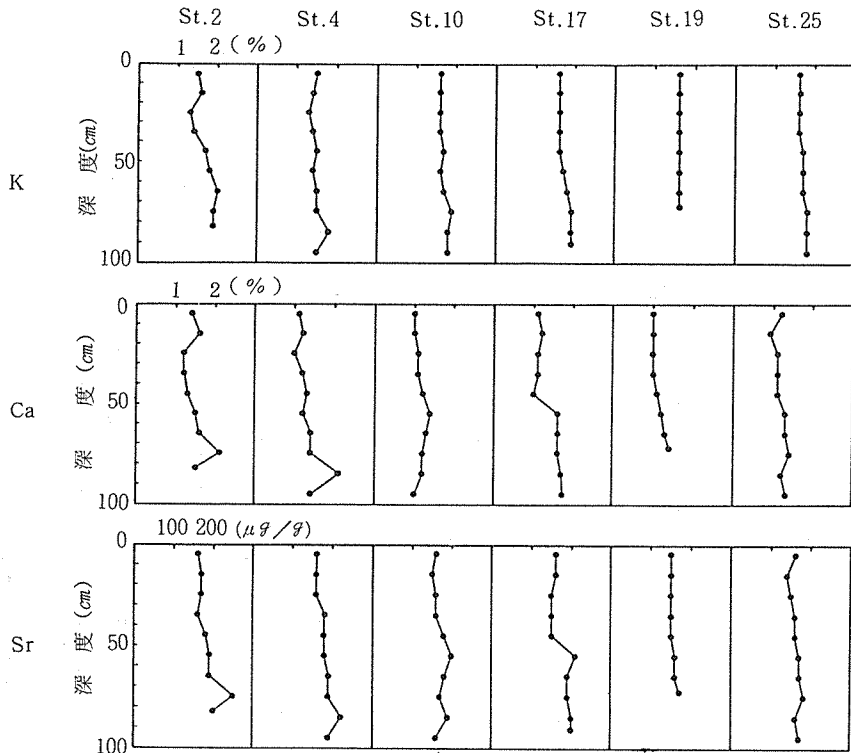


図-14 K, Ca, Sr の深度分布

られる。これらのBG 値としてはSt.2の下層の値から、Zn  $100 \mu\text{g/g}$ , Pb  $30 \mu\text{g/g}$ , Cu  $35 \mu\text{g/g}$  程度と推定される。横浜市内の河川でのBG 値<sup>10)</sup> Zn  $100 \sim 150 \mu\text{g/g}$ , Cu  $20 \sim 50 \mu\text{g/g}$  とほぼ一致している。

有機性汚濁の指標であるT-C, T-Nは重金属のようなパターンを示さなかった。

Mn, Ti, K, Ca, Srのように地質に由来する元素は、深度による規則的なパターンはなく、かく乱によるバラツキはあるものの、ほぼ一定値を示し、平均値としてはMn  $470 \mu\text{g/g}$ , Ti  $3700 \mu\text{g/g}$ , K 1.6%, Ca 1.3%, Sr  $170 \mu\text{g/g}$  であった。

### 3-2-2 堆積速度の推定

底質の堆積速度は、柱状試料の堆積年代から推定できる。松本は<sup>210</sup>Pbを用いて堆積年代を測定することにより、東京湾での値を推定し、湾奥部では $0.5 \text{ g/cm}^2 \cdot \text{y}$ 程度の値を報告している。これは底質の堆積による下部での圧密をも考慮している。今回は堆積年代の測定にまでは至らなかったため、先述したように東京湾での深度分布のパターンと堆積年代との関係をもとに、横浜港での見かけ上の堆積速度の概略値を推定することとする。

St.2の重金属の深度分布は比較的にかく乱がない分布を示しており、最大値を示す30~40cm層が東京湾での最大値を示した1970年頃に堆積したと考えることができる。これから単純に計算すると堆積速度は $2.2 \text{ cm/y}$ となる。

St.4は浚渫による影響が大きく推定不可能である。

St.10も浚渫の影響を受けているが、重金属の深度分布をみると60~70cm層と70~80cm層の間で濃度の急増がある。これから推定すると1972年の浚渫で今の70cmの上部が除去され、0~70cmはそれ以降に堆積したものと考えられる。これから計算すると $5 \text{ cm/y}$ となる。

St.17は重金属により最大値を示す層が異なるが、Zn, Cu, Crで50~60cm層が最大値となるので、ここを1970年頃と考え、 $3.4 \text{ cm/y}$ となる。

St.19は1971年に浚渫工事が実施されており、堆積しているのがすべて黒色のヘドロ状でもあり、汚染由来の元素の濃度レベルも高いので、1971年の浚渫で岩盤層まで掘り下げられ、その上に76cmのヘドロが堆積したものと考えられる。これから計算すると $5.1 \text{ cm/y}$ となる。

St.25は比較的に堆積状態が良く保たれていると考

えられ、30~40cm層で重金属が最大値を示し、これから計算すると2.2cm/yとなる。

以上、見かけ上の堆積速度の概略値であるが、これからも帷子川からの影響が港内の潮流に沿って港央におよんでいることがわかる。またSt.19の値が大きいことから、地形による要因も大きいことがわかる。

### 3-3 主成分分析による評価

底質の汚染を総合的に評価するために主成分分析を適用してみた。筆者ら<sup>10)</sup>は既に横浜市内の河川底質について主成分分析を試み、I.L.,油分,T-N,S<sup>2-</sup>,Znの5項目を採用して解析を行った。今回は油分の代わりに有機物の指標であり相関が高かったT-C,S<sup>2-</sup>の代わりにS<sup>2-</sup>と相関の高かったSを用いて解析を試みた。

表-3 主成分分析結果(第1主成分のみ)

固有ベクトル	
I.L.	0.4384
Zn	0.4420
S	0.4298
T-C	0.4792
T-N	0.4451
<hr/>	
固有値	3.6744
<hr/>	
寄与率	73.5%

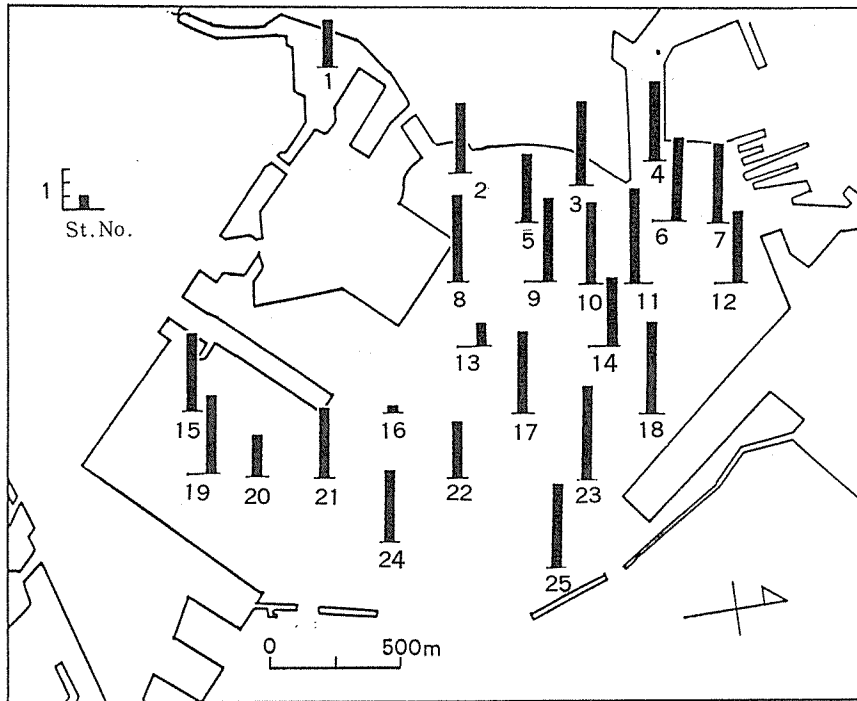


図-15 表層におけるSPIの分布

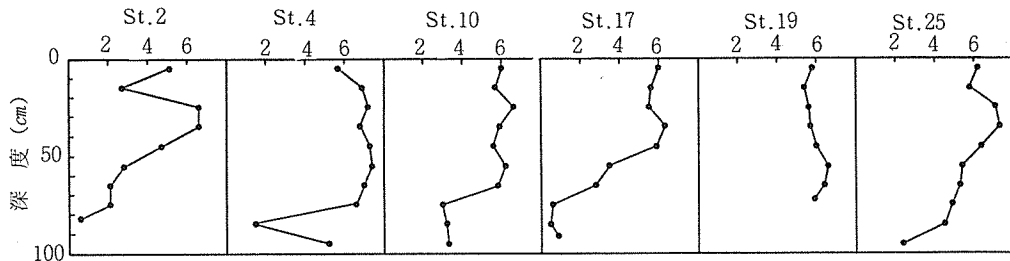


図-16 SPIの深度分布

解析の対象としては表層および柱状試料のすべてであり76サンプルとした。まず異常値の棄却であるが、前報<sup>10)</sup>にしたがって平均値から標準偏差の3倍以上離れた数値としたが、5項目の中では該当するものはなかった。次に正規分布に近似させるためのデータ変換であるが、平方根変換、対数変換をして比較したところ、5項目とも無変換データが正規分布に近似していた。

そこで5項目の無変換データを用いて行った主成分分析の結果を表-3に示す。第1主成分の寄与率は73%と高かった。次に各地点の総合指標（以下SPIとする）を図-15、16に示す。なおSPIは第1主成分スコアの算出式である下式によった。

$$\text{スコア} = \left( \sum_{i=1}^5 Ki \times (Xi - Avi) + \sigma i \right) + 5$$

ただし Ki : i項目の固有ベクトル  
 Xi : i項目のX地点の値  
 Avi : i項目の平均値  
 σi : i項目の標準偏差

なお5を加算したのは数値の比較をし易くするためである。図からわかるように、浚渫の影響のあったSt. 13, 16を除いて、港内はほぼ全域で汚染度が高い。また、柱状試料の結果から港内では約50~80cmの深度まで汚染度の高い底質が堆積していることがわかった。

#### 4. ま と め

横浜港の底質汚染調査を実施し、次の結果が得られた。

- (1) 重金属のZn, Pbなどが帷子川の河口前面で高濃度を示し、そこから港内の潮流に沿った港央に向かって減少傾向を示した。また、大岡川の河口付近は帷子川に比較して濃度が低かった。
- (2) 有機性汚濁の指標であるI.L., T-Cなどはほぼ全域で同様な濃度を示した。
- (3) 帷子川河口付近を基点として、重金属濃度は基点からの距離とともに減衰し、距離との指数関数で表わすことができた。回帰式の傾きから求めた減衰の速さはPb > Cu > Znの順であった。
- (4) 浚渫かく乱の影響がなかった地点における重金属の深度分布は、30~40cm層で最大値を示した。
- (5) 深度分布から推定されるバックグラウンド値は、

I.L. 7~8%, Zn 100 μg/g, Pb 30 μg/g, Cu 35 μg/gであった。

- (6) 深度分布などから推定される底質の見かけ上の堆積速度は、大岡川河口付近で2.2cm/y, 港奥の中央部で5 cm/y, 港中部で3.4cm/y, 山下公園前面で5.1 cm/y, 堤防付近で2.2cm/yであった。
- (7) SPIを用いた評価を行い、港内では浚渫の影響のあった地点を除いたほぼ全域で汚染度が高く、その底質は50~80cmの深度まで存在することがわかった。

今回の調査は内港地区であったが、今後さらに範囲を広げて調査する予定である。

#### 謝 辞

本報告に際して、底質試料を提供して下さった横浜市港湾局企画課に、また浚渫工事に関する資料を提出して下さった運輸省京浜港工事事務所ならびに横浜市港湾局港湾工事事務所に感謝する。

#### 文 献

- (1) 横浜市港湾局：横浜港に関する市民意識調査，54-55 (1986)。
- (2) 環境庁水質保全局：底質調査方法，昭和50年度版。
- (3) 白柳康夫：底質のけい光X線分析法の検討，横浜市公害研究所報，8，103-110 (1983)。
- (4) 伊藤和男：河口から沿岸沖への底質中重金属の分布に見られる規則性に関する考察，名古屋市公害研究所報，10，45-50 (1980)。
- (5) 成瀬洋児，安藤良，土山ふみ，杉山博夫：市内河川の重金属汚染について（第3報）-懸濁物質への重金属の吸着について-，名古屋市公害研究所報，9，47-50 (1979)。
- (6) 成瀬洋児，安藤良，土山ふみ，伴野勝也：市内河川の重金属汚染について（第4報）-底泥への重金属の吸着について-，名古屋市公害研究所報，10，27-28 (1980)。
- (7) 運輸省京浜港工事事務所資料。
- (8) 横浜市港湾局港湾工事事務所資料。
- (9) 松本英二：東京湾の底質環境，地球化学，17，27-32 (1983)。
- (10) 二宮勝幸，白柳康夫，小市佳延：水域環境指標Ⅱ-主成分分析による底質評価-，横浜市公害研究所報 11，83-109 (1986)。

## 魚類へい死事故に関する調査

### — 柏 尾 川 —

二宮勝幸\*, 水尾寛己\*

#### 要 旨

魚のへい死がしばしば発生する横浜市南部を流れる柏尾川において、降雨時とその後の水質変化および魚に対する濃縮毒性の変化を調査した。その結果、毒性の強さは $\text{NH}_4\text{-N}$ と対応していることが明らかとなった。また柏尾川水系4地点で水質および濃縮毒性の季節変化を調査した結果、地点により毒性の強さは異なるとともに、季節的にも異なっていた。そして、濃縮毒性がアンモニア( $\text{NH}_3$ )と関連のある地点と、アンモニア以外の物質によると思われる地点に区分された。

#### 1. はじめに

魚類へい死事故は水質の一時的悪化によって引き起される例が多く、特に都市河川では水質の悪化要因は数多くある。前報<sup>1)</sup>で著者らは横浜市内水域で過去に発生したへい死事故について調べた結果を報告した。その結果、へい死事故は冬期に比べ夏期に多く発生しており、季節的な違いがみられた。清水らの名古屋市の調査でも同様の傾向がみられ、冬期にへい死事故が少ない理由として、水温が低いいため水の酸素飽和量が多いこと、また、藻類の活動が少ないため、水中の $\text{O}_2$ 、 $\text{CO}_2$ などの量が安定していること、魚の生理条件としては、魚の活動が少ないため酸素消費量が少なく、さらに、温度が低いため血液の酸素飽和度が高いことなどが考えられている。<sup>2)</sup>

一方、夏期には、都市河川のように水質汚濁の進んだ水域では、底質中の有機成分の分解によって、 $\text{NH}_4$ などが生成されるとともに水中の $\text{O}_2$ が減少するため、魚の生息には不適当な環境となる。このような環境の中で、水質をさらに悪化させる要因が加わると、魚のへい死を招くような状態に至るものと推定される。事実、過去のへい死発生事例をみても、降雨後あるいは気温の高い時に発生する場合が多かった。

そこで、夏期の降雨時における水質変化と魚に対す

る濃縮毒性変化について、最近、へい死事故の発生頻度の高い柏尾川を対象として調査を行った。また、柏尾川水系4地点で濃縮毒性の季節変化についても検討した。

#### 2. 調査方法

##### 2-1 調査地域の概況と調査地点

柏尾川は流路延長約11km、境川の最大支流である。その源流部は横浜市戸塚区内の丘陵地にあり、藤沢市内で境川に合流する。柏尾川上流部では市街化は進んでいないが、柏尾川中流および下流部は市街地の中にあり、工場も多い。

調査地点を図-1に示す。降雨の影響の調査地点は柏尾川環境水質測定局(st.A)であり、濃縮毒性の季節的变化の調査地点は柏尾川本流の鷹匠橋(st.1)と高島橋(st.3)、支流独川の天神橋(st.2)、支流舞岡川の宮下橋(st.4)の計4地点である。

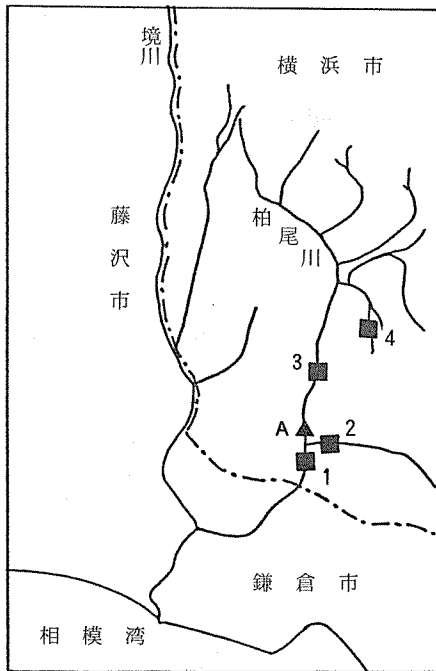
##### 2-2 降雨の影響の調査方法

st.A において1986年8月18日12時から22日8時までの4日間、内部を氷で冷却した自動採水器を用いて4時間間隔で各1ℓ採水した。但し、18日20時、19日8時、および21日4時の計3試料については、自動採水器の誤動作等により採水されなかった。

Study on Fish Mortality in River

— Kashio River —

\* Katsuyuki Ninomiya, Hiromi Mizuo 横浜市公害研究所水質部門



図一 調査地点

毎日午前中に試料の回収を行い、直ちに常法により  $PO_4-P$ ,  $NH_4-N$ ,  $NO_2-N$ ,  $NO_3-N$ ,  $C\ell$ ,  $SO_4-S$  を分析した。

水位は横浜治水事務所の観測資料を、水温、濁度、pH、COD、DO、電気伝導率 (EC) については柏尾川環境水質測定局の常時監視データ<sup>3)</sup>を用いた。

降雨の影響がみられなくなった21日12時から22日8

時までの1日間、計6試料についてはアカヒレによる24時間、96時間の $LC_{50}$  (24hr $LC_{50}$ , 96hr $LC_{50}$ ) の濃縮毒性試験を行った。

また、毎日回収時 (10時~11時頃) に、自動採水とは別途に2ℓ採取した。それらの試料については、COD、 $NH_4-N$ を常法により分析し、アカヒレによる24hr $LC_{50}$ , 96hr $LC_{50}$ の濃縮毒性試験も行った。なお、22日のCODは欠測となった。

### 2-3 季節変化の調査方法

st. 1~4の4地点について、1986年2月、6月、8月、10月及び1987年1月の5回調査を行った。採水は午前10時から14時の間に行った。水質は水温、pH、透視度、電気伝導率 (EC)、DO、COD、 $NH_4-N$  について常法により分析した。又、アカヒレによる24hr $LC_{50}$ , 96hr $LC_{50}$  の濃縮毒性試験を行った。

### 2-4 濃縮毒性試験について

濃縮毒性試験は、次の方法によった。採水試料は回収後直ちに凍結濃縮装置 (大洋科学、FC-6型) により濃縮を行い、1.0, 1.8, 3.2, 5.6...倍の濃縮倍率に濃度を調整した。試験は所定の濃度に調整した試料100mlをガラスシャーレ (直径120mm, 深さ25mm) に入れ、その後、体長約15mm, 体重約0.02gのアカヒレを各7尾入れてフタをし、25℃の恒温槽で24時間及び96時間の $LC_{50}$  (Median Lethal Concentration) 試験を行った。同様に対照水 (脱塩素水道水) についても行った。24hr $LC_{50}$ , 96hr $LC_{50}$ については、片対数グラフを用いて算出した。

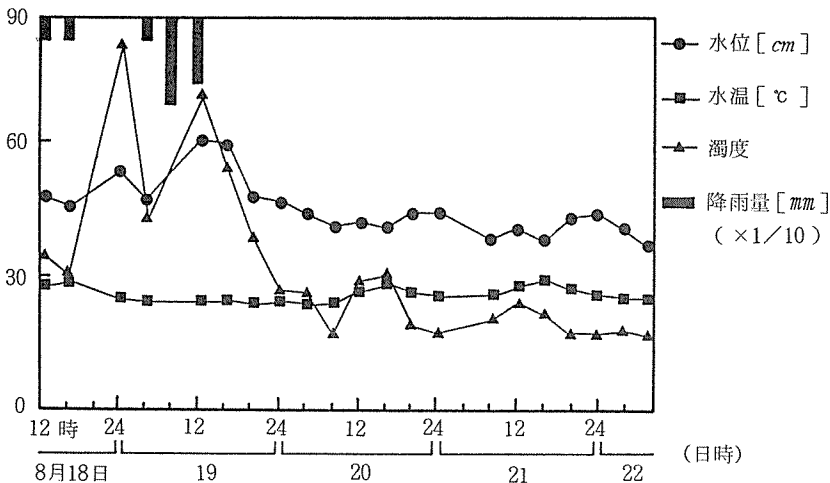


図-2 (a) 降雨影響の水質変化

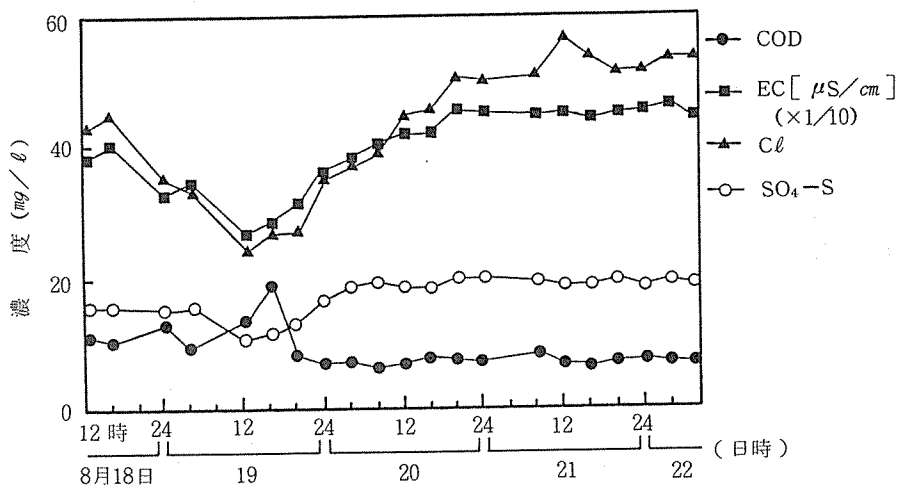


図-2(b) 降雨影響の水質変化

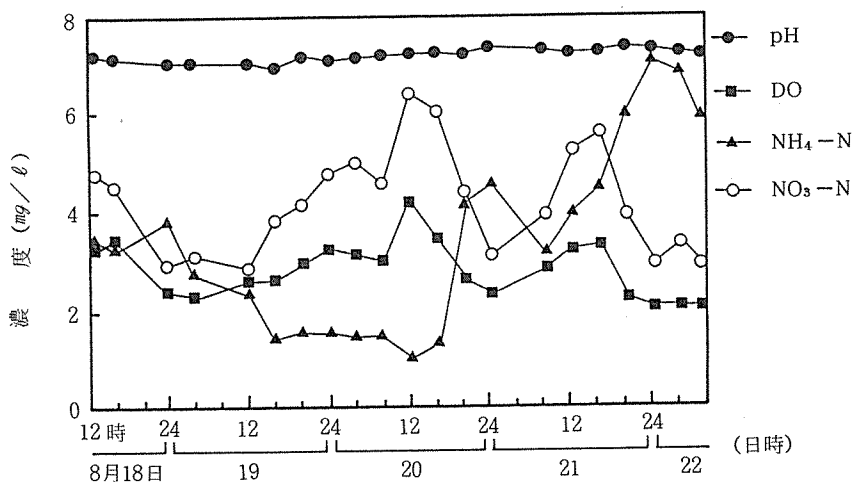


図-2(c) 降雨影響の水質変化

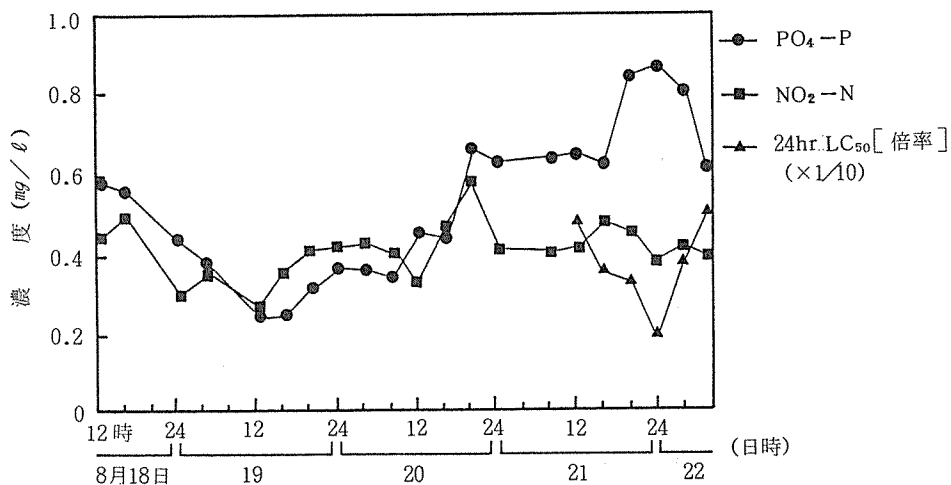


図-2(d) 降雨影響の水質変化

### 3. 結果と考察

#### 3-1 河川水質の変動特性

図-2(a)~(d)に8月18日12時から22日8時までの水質変化を示す。調査期間中、降雨量は18日に1mm、19日に4mmであった。

##### 3-1-1 降雨による影響がみられなくなった時期の水質の日間変動と濃縮毒性

図-2(b)のECについてみると、18日から19日にかけての降雨に伴い、ECは減少し、19日12時に最低値269  $\mu\text{S}/\text{cm}$ を示した後、ECは徐々に増加した。20日20時以降になると、大きな変動はみられなくなり、ECは450  $\mu\text{S}/\text{cm}$ 前後の値に戻った。<sup>3)</sup> このように降雨のない通常の時期のECに戻ったのは、河川水質に対して降雨の希釈による影響がなくなったと考え、降雨の影響が認められなくなった時期として、8月21日12時から22日8時までの1日間の調査結果を中心に水質と濃縮毒性の日間変動について考察する。

図-2の中で、21日12時から22日8時までの測定結果についてみると、水温、DOなどは昼間高く、夜間低くなるが、 $\text{NH}_4\text{-N}$ 、 $\text{PO}_4\text{-P}$ などは逆に深夜24時に最大となった。また、水位、濁度などは人間の活動パターンに影響されて、12時と24時の2回ピークを示した。このように各成分は様々な変動傾向があるので、それら相互の関係を明らかにするため、主成分分析法を用いて検討した。

8月21日12時から22日8時までの測定項目間の相関係数を表1に示す。また、固有値が1以上となった主成分の固有ベクトルを表2に、主成分のスコアを図3

に示す。図3から、第1主成分( $Z_1$ )は周波数が1で12時から16時にかけて最大値を、24時に最小値を示す変動成分であることを表わしている。即ち、 $Z_1$ は水温、DOなどを代表する成分である。一方、表2において、 $Z_1$ の係数が正の大きな値を示すほど、その成分は $Z_1$ の変動と対応し、 $Z_1$ の係数が負で絶対値が大きな値を示すほど、その成分は $Z_1$ の変動と逆の関係になる。 $Z_2$ は周波数が3で、その係数が大きな正值を示すのは、 $\text{SO}_4\text{-S}$ 、ECなどである。 $Z_3$ は $Z_1$ と同様に周波数は1

表-2 1日間の主成分分析結果  
(固有ベクトル)

主成分 固有値	$Z_1$	$Z_2$	$Z_3$	$Z_4$
	7.63	2.65	1.81	1.12
水位	-0.23	0.31	0.31	-0.35
水温	0.29	0.05	0.41	-0.13
濁度	0.33	0.16	-0.05	-0.25
pH	-0.24	-0.30	0.14	-0.21
DO	0.34	0.07	0.15	-0.17
COD	-0.15	0.37	-0.16	-0.51
EC	-0.17	0.46	-0.13	0.22
$\text{PO}_4\text{-P}$	-0.28	0.27	0.28	-0.08
$\text{NH}_4\text{-N}$	-0.34	-0.01	-0.01	0.16
$\text{NO}_2\text{-N}$	0.20	0.10	0.47	0.41
$\text{NO}_3\text{-N}$	0.33	0.14	0.23	-0.04
Cl	0.29	0.13	-0.35	-0.19
$\text{SO}_4\text{-S}$	-0.08	0.50	-0.00	0.35
24hrLC <sub>50</sub>	0.25	0.18	-0.38	0.18
寄与率	0.54	0.19	0.13	0.08
累積	0.54	0.73	0.86	0.94

表-1 1日間についての相関係数

	水位	水温	濁度	pH	DO	COD	EC	$\text{PO}_4\text{-P}$	$\text{NH}_4\text{-N}$	$\text{NO}_2\text{-N}$	$\text{NO}_3\text{-N}$	Cl	$\text{SO}_4\text{-S}$	24hrLC <sub>50</sub>
水位	1.00													
水温	-0.18	1.00												
濁度	-0.36	0.76	1.00											
pH	0.33	-0.46	-0.77	1.00										
DO	-0.39	-0.92	0.94	-0.67	1.00									
COD	0.69	-0.35	-0.11	0.21	-0.31	1.00								
EC	0.54	-0.44	-0.22	-0.28	-0.40	0.48	1.00							
$\text{PO}_4\text{-P}$	0.94	-0.37	-0.59	0.38	-0.60	0.56	0.64	1.00						
$\text{NH}_4\text{-N}$	0.53	-0.81	-0.89	0.52	-0.93	0.24	0.55	0.74	1.00					
$\text{NO}_2\text{-N}$	-0.19	0.77	0.38	-0.37	0.60	-0.48	-0.21	-0.19	-0.53	1.00				
$\text{NO}_3\text{-N}$	-0.31	0.94	0.89	-0.67	0.97	-0.30	-0.31	-0.49	-0.89	0.75	1.00			
Cl	-0.53	0.44	0.91	-0.76	0.75	-0.05	-0.14	-0.71	-0.78	0.09	0.65	1.00		
$\text{SO}_4\text{-S}$	0.40	-0.16	-0.12	-0.18	-0.21	0.51	0.70	0.47	0.17	0.22	-0.02	-0.12	1.00	
24hrLC <sub>50</sub>	-0.60	0.26	0.65	-0.61	0.52	-0.01	-0.08	-0.67	-0.70	0.26	0.53	0.79	0.28	1.00

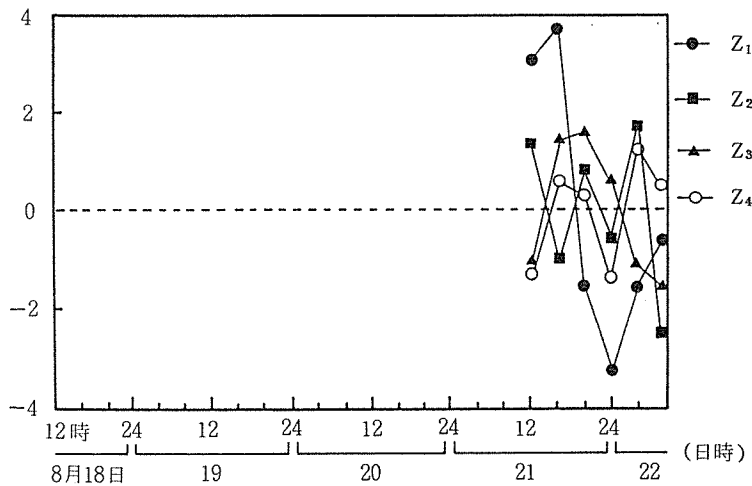


図-3 降雨影響の認められない1日間の主成分スコア

であるが、位相の異なる変動成分であり、 $Z_4$ は周波数が2の変動成分である。

$Z_1$ は全変動の55%を説明できる主成分であり、 $Z_1$ の変動傾向は24hr $LC_{50}$ と対応している。24hr $LC_{50}$ の濃縮毒性値は濃縮倍率で表わされるから、低い値の方が高い毒性を示す。それ故、24hr $LC_{50}$ と逆の変動傾向を示し、濃縮性のある成分が濃縮毒性と関連する。それらの成分は $Z_1$ の係数が負の成分であり、 $NH_4-N$ 、 $PO_4-P$ 、 $PH$ 、 $COD$ などである。 $NH_4-N$ は $mg/l$ のオーダーで魚毒性を示すことが知られている。<sup>5)</sup>  $PO_4-P$ が24hr $LC_{50}$ と関連しているのは、 $PO_4-P$ は還元状態では

底質から溶出し易いことなど、物理化学的挙動が $NH_4-N$ と類似しているもので<sup>6)</sup>、変動傾向が同じパターンを示したためと考えられる。pHとCODも魚毒に関連しているようである。

なお、 $LC_{50}$ は濃縮操作によって表わされた数値であるから、DOなどの物質は考察の対象から外した。

次に河川水質の日間変動に、さらに降雨による変動が加わった降雨時とその後の水質変化について考察する。

### 3-1-2 降雨時とその後の水質変化

図2において、降雨時とその後の変化についてみる

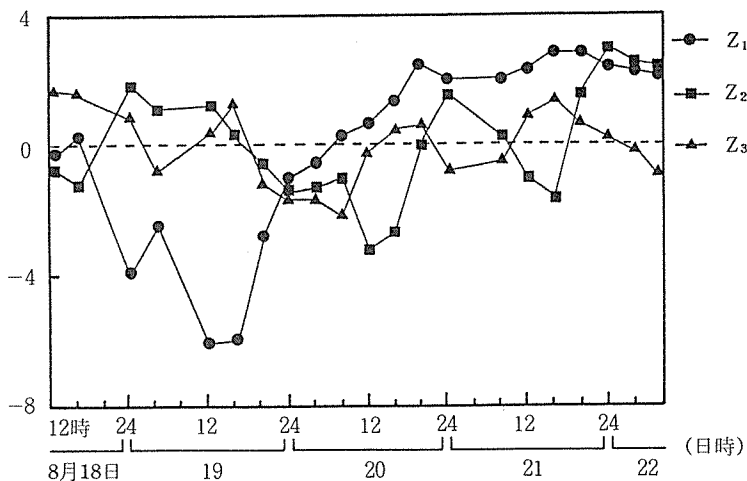


図-4 降雨影響の主成分スコア



表-3 降雨影響についての相関係数

	水位	水温	濁度	pH	DO	COD	EC	PO <sub>4</sub> -P	NH <sub>4</sub> -N	NO <sub>2</sub> -N	NO <sub>3</sub> -N	Cl	SO <sub>4</sub> -S
水位	1.00												
水温	-0.46	1.00											
濁度	0.83	-0.34	1.00										
pH	-0.80	0.44	-0.79	1.00									
DO	-0.13	0.41	-0.03	-0.10	1.00								
COD	0.85	-0.22	0.77	-0.75	-0.09	1.00							
EC	-0.87	0.57	-0.83	0.88	-0.05	-0.74	1.00						
PO <sub>4</sub> -P	-0.58	0.53	-0.59	0.77	-0.36	-0.47	0.84	1.00					
NH <sub>4</sub> -P	-0.32	0.24	-0.32	0.54	-0.69	-0.25	0.58	0.87	1.00				
NO <sub>2</sub> -N	-0.53	0.52	-0.65	0.42	0.15	-0.43	0.59	0.44	0.18	1.00			
NO <sub>3</sub> -N	-0.37	0.56	-0.30	0.11	0.90	-0.30	0.22	-0.12	-0.51	0.39	1.00		
Cl	-0.82	0.65	-0.73	0.83	-0.07	-0.63	0.97	0.87	0.65	0.53	0.19	1.00	
SO <sub>4</sub> -S	-0.87	0.39	-0.81	0.81	-0.02	-0.82	0.93	0.67	0.41	0.50	0.25	0.87	1.00

と、濁度・CODなどの懸濁成分と関連する項目は水位が高い時に増加し、以後減少する。しかし、栄養塩などの溶解成分は逆に水位が高い時に減少し、以後増加する。ECは20日20時には降雨の影響がないと考えられる平常時の値に戻っている。

調査各項目間の相関係数を表3に示す。これらのデータを用いて、主成分分析法を適用した。固有ベクトルを表4に、主成分スコアを図4に示す。Z<sub>1</sub>は19日の12時に最小値を示し、以後増加する変動成分であり、降雨による希釈の影響を説明する成分と考えられる。表-4の固有ベクトルから、Z<sub>1</sub>と関連するものはpH、水温、ECおよびNO<sub>3</sub>-Nを除く栄養塩類である。NO<sub>3</sub>-Nを除く栄養塩類がZ<sub>1</sub>と同様な変動を示すのは、18日から19日に降った雨により濃度が希釈された結果であり、pHについても平常時の河川のpHより低い値をもつ降雨によるためと考えられる(表-5)<sup>7)</sup>。Z<sub>1</sub>と逆の関係の成分は水位・濁度・CODである。水位は降雨に伴う増水によるもの、濁度とCODは地表面および河川底質などに由来する懸濁成分の増加によるものであろう。Z<sub>1</sub>は降雨による直接的な影響を受ける変動ともいえる。

一方、Z<sub>2</sub>はZ<sub>1</sub>より約1日遅れの位相を持つ。Z<sub>2</sub>の固有ベクトルが正の大きな値を示すのはNH<sub>4</sub>-Nで、負の大きな絶対値を示すのはDOとNO<sub>3</sub>-Nである。降雨による変動成分をみるため、NH<sub>4</sub>-NとNO<sub>3</sub>-NおよびDOの時系列について6項移動平均を行い、1日

表-4 降雨影響の主成分分析結果 (固有ベクトル)

主成分	Z <sub>1</sub>	Z <sub>2</sub>	Z <sub>3</sub>
固有値	7.59	2.84	1.14
水位	-0.32	0.10	0.22
水温	0.21	-0.21	0.63
濁度	-0.31	0.06	0.24
pH	0.32	0.06	-0.11
DO	-0.00	-0.57	0.08
COD	-0.28	0.08	0.45
EC	0.35	0.02	0.01
PO <sub>4</sub> -P	0.30	0.24	0.28
NH <sub>4</sub> -N	0.20	0.44	0.25
NO <sub>2</sub> -N	0.23	-0.15	0.17
NO <sub>3</sub> -N	0.09	-0.55	0.09
Cl	0.34	0.05	0.17
SO <sub>4</sub> -S	0.33	-0.01	-0.21
寄与率	0.58	0.22	0.09
累積	0.58	0.80	0.89

表-5 8月18~19日の降雨成分濃度

項目	濃度 (mg/ℓ)	
pH	3.8	~ 4.3
EC (μS/cm)	61	~ 78
NH <sub>4</sub> -N	1.1	~ 2.1
NO <sub>3</sub> -N	1.2	~ 1.3
Cl	2.1	~ 3.6
SO <sub>4</sub> -S	2.3	~ 2.5

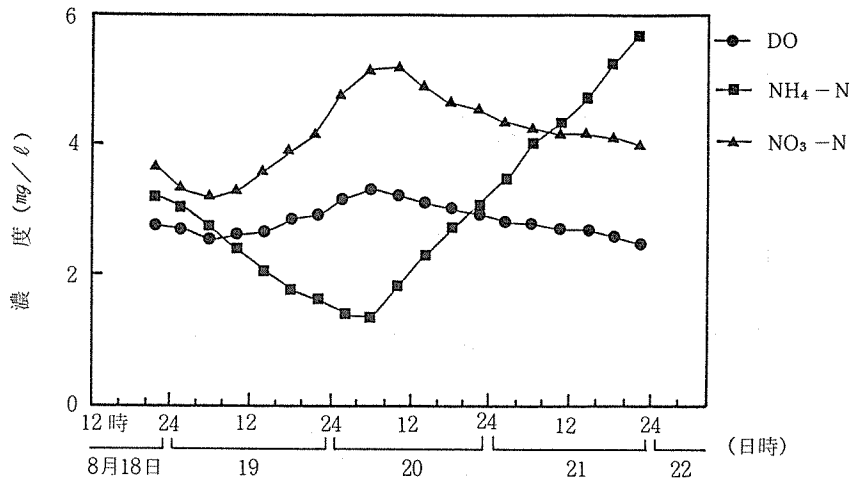


図-5 移動平均の水質変化

間の周期変動を除去すると図5が得られる。NH<sub>4</sub>-Nは、増水後約半日経過した19日24時から20日4時にかけて最小値を示し、以後増加しているが、NO<sub>3</sub>-NとDOは19日の降雨直後から増加し、20日8時頃に最高値を示した後、減少している。NO<sub>3</sub>-Nについては、降雨に伴いNO<sub>3</sub>-Nの豊富な土壌からの溶出が時間遅れで表われたためと考えられた。<sup>8)</sup>

### 3-1-3 降雨時とその後の河川水の濃縮性変化

降雨時とそれに続く期間における水質変化と濃縮毒性の変化を図6に示す。19日と21日に比べ18日と20および22日に、LC<sub>50</sub>は高い濃縮倍数(毒性が弱まる)を示した。また、24hrLC<sub>50</sub>に比べ96hrLC<sub>50</sub>が常に1以上小さな値を示した。NH<sub>4</sub>-Nは、降雨時の18日には3.2mg/lであったが、その後19日には2.3mg/lと下がり、20日にはさらに1mg/lと低下し、その後は上昇し、22日には5.8mg/lとなった。CODも、NH<sub>4</sub>-N

と同様な変化傾向を示していた。

水質と濃縮毒性の関係を図6でみると、CODと96hr LC<sub>50</sub>の濃縮倍数の間には逆の関係(相関係数、 $r = -0.873$ )が見られ、NH<sub>4</sub>-Nと96hr LC<sub>50</sub>の濃縮倍数の間にも同様逆の関係(相関係数 $r = -0.813$ )が見られた。水中のアンモニアはNH<sub>4</sub><sup>+</sup>のイオンの状態とNH<sub>3</sub>の非イオンの状態で存在し、その割合はpH値と水温により変わることが知られている。NH<sub>3</sub>の濃度は通常、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-Nの濃度から、その時の水温及びpH値を基に算出される<sup>9)</sup>このことから、水温とpHが同一の条件ならば、NH<sub>4</sub>-Nの濃度が高くなるとNH<sub>3</sub>の濃度も高くなる関係がある。以上から、ここでの濃縮倍数の変化はNH<sub>4</sub>-Nの増減と関連するNH<sub>3</sub>が影響していることも考えられた。また、CODも濃縮倍数と逆の、即ち、毒性と順の対応を示し、CODと毒性の関連も否定できなかった。

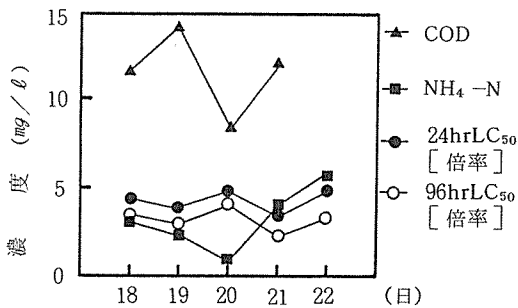


図-6 降雨影響の濃縮毒性変化

表-6 St1における5年間の主成分分析結果 (固有ベクトル)

主成分 固有値	Z <sub>1</sub>	Z <sub>2</sub>	Z <sub>3</sub>
FLOW	0.47	0.01	0.17
TEMP	0.48	-0.05	-0.48
pH	-0.06	-0.71	-0.49
DO	-0.11	-0.67	0.53
NH <sub>4</sub> -N	-0.55	0.13	0.04
NO <sub>3</sub> -N	0.46	-0.07	0.45
寄与率	0.41	0.21	0.17
累積	0.41	0.62	0.79

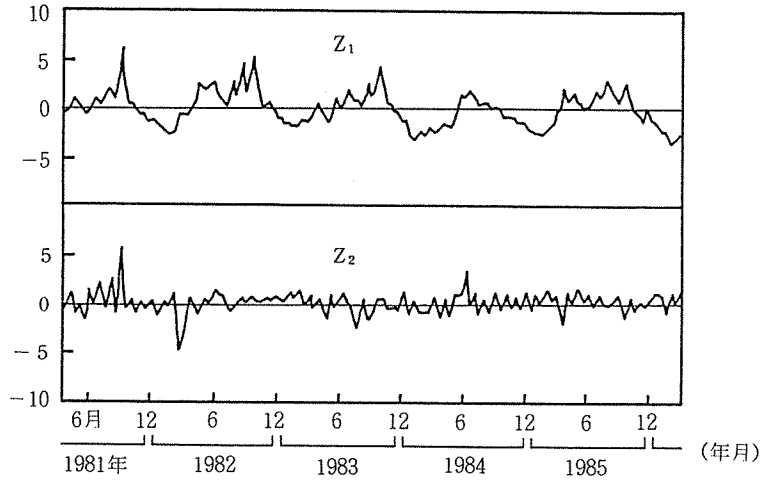


図-7 St.1における5年間の主成分スコア

### 3-2 年間の水質変動

これまでに述べたように、日間および降雨時の水質変動などから、魚のへい死に関連する項目として、流量・水温・pH・DO・NH<sub>4</sub>-Nなどが考えられた。ここでは、上記の項目の他にDOやNH<sub>4</sub>-Nと関連の深いNO<sub>3</sub>-Nも含めて、河川水質の年間変動について考察する。考察に用いたデータは1981年から1985年の毎月1回、その日の昼と夜の2回測定された公共用水域測定計画に基づく鷹匠橋(st.1)のデータ<sup>10)</sup>である。

表6に主成分分析結果を、図7に主成分スコアを示す。図7から、Z<sub>1</sub>は春から夏にかけて大きな値をとり季節変動を表わす変動成分と考えられる。表6の固有ベクトルから流量、水温、NO<sub>3</sub>-NはZ<sub>1</sub>と同様な変動を示すが、NH<sub>4</sub>-NはZ<sub>1</sub>と逆の変動傾向を示す成分である。NO<sub>3</sub>-NがNH<sub>4</sub>-Nと異なり夏期に高い値を示すのは、降雨に伴うNO<sub>3</sub>-Nの土壌からの溶出があるとともに、硝化反応が進んでいるためと考えられる。<sup>11)</sup>

一方、図7からZ<sub>2</sub>はZ<sub>1</sub>のような季節変動を示さず、むしろ、測定毎の差が大きい、即ち、昼夜間の変動が大きい主成分であるといえる。表6の固有ベクトルから、Z<sub>2</sub>はpHおよびDOとの係数が負の大きな絶対値を示しており、昼夜間の変動が大きい項目はpHとDOであった。pHとDOの昼夜間の変動が大きいのは、光合成作用の影響で昼間にpHとDOが高くなるためと思われる。<sup>12)</sup>

### 3-3 地点別、季節的濃縮毒性の変化

図8は、柏尾川河川水の濃縮毒性(24hr LC<sub>50</sub>)の季節変化を示したものである。調査地点により、濃縮毒性の季節変化のパターンが異なり、二つに分けられた。St.1、St.3では冬期1、2月および6月は毒性が強く

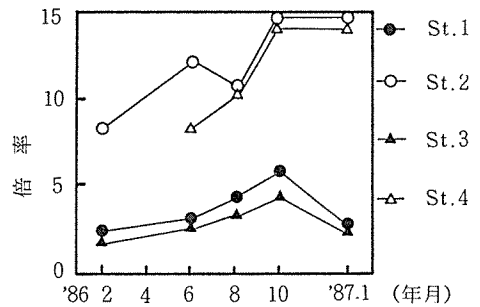


図-8 各調査地点の濃縮毒性の季節変化

その後8、10月には毒性が弱くなるという傾向が見られた。

St.1、St.4では夏期6~8月に比べて10月(秋)から1月(冬期)にかけて毒性が弱まるパターンが見られた。しかし、96hr LC<sub>50</sub>で比較すると、地点別の所で詳しく述べるが、St.1、3においては24hr LC<sub>50</sub>の結果と同様な傾向を示したが、St.2、4においては、24hr LC<sub>50</sub>の結果と異なった傾向が見られた。

パターンがこのようなに分かれた原因については、St.1とSt.3は柏尾川本流であり、主として生活系排水の影響を受けていると考えられるのに対し、St.2柏尾川支流舞岡川、St.4柏尾川支流独川は、流域に緑地が残っていて湧水が見られ、生活系排水の影響もSt.1、3に比べて少なく、水質的にも比較的良好であることと関連していると思われる。濃縮毒性で比較すると、St.1、St.3が濃縮倍数2倍から6倍の範囲に対し、St.2、St.4は8倍から16倍と大きく異なっていた。

以下に各測定地点別の濃縮毒性について述べる。

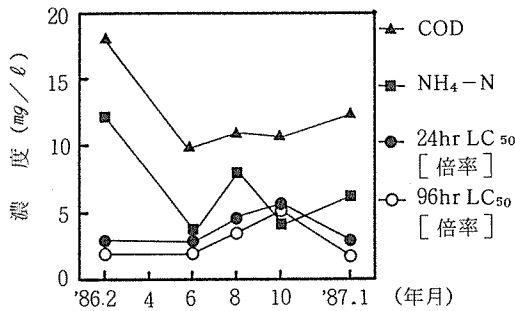


図-9 St.1の濃縮毒性の季節変化

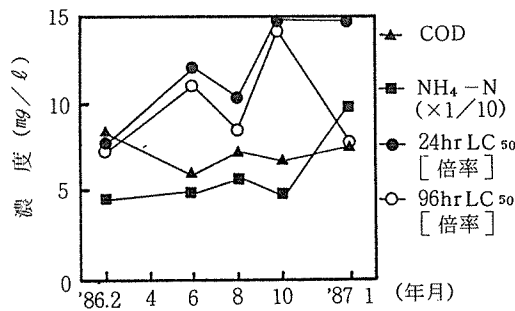


図-10 St.2の濃縮毒性の季節変化

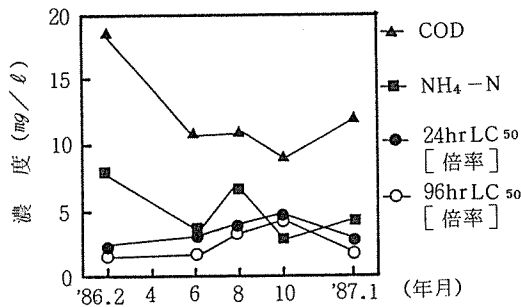


図-11 St.3の濃縮毒性の季節変化

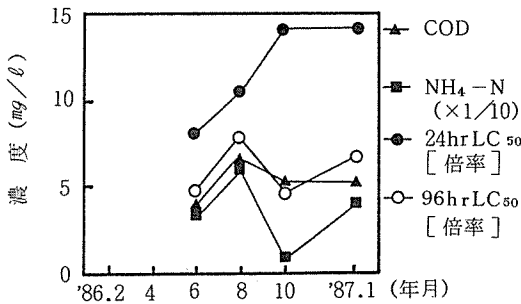


図-12 St.4の濃縮毒性の季節変化

(1) St.1 鷹匠橋

調査結果を図9に示す。24hrLC<sub>50</sub>、96hrLC<sub>50</sub>とNH<sub>4</sub>-N、CODの間に逆の関係が見られた。すなわち、NH<sub>4</sub>-N、CODが高くなるにつれて濃縮倍率は小さくなる(毒性は強まる)関係がみられた。1986年2月にはNH<sub>4</sub>-Nは12mg/l、CODは18.0mg/lと高い値を示したものに對し濃縮倍数の大きい10月にはNH<sub>4</sub>-Nは4.2mg/lでCODも10.6mg/lと低くなっている。

濃縮毒性について比較すると、24hrLC<sub>50</sub>で2月に2.5に對し、6月に2.8とわずかに毒性が弱まる傾向が見られ、8月4.4、10月5.8と毒性は弱まり、1月に2.5と毒性は強まる。同様に、96hrLC<sub>50</sub>では2月1.5、6月2.2、に對し、8月3.4、10月5.8と毒性は弱まり、1987年1月には1.4と毒性は強まった。以上より、季節的には、冬期の1、2月に毒性が強く、夏期(6、8月)、秋期(10月)において毒性が弱まる傾向を示した。

(2) St.2 天神橋

調査結果を図10に示す。CODは2月に8.6mg/l、6月6.1で、8、10、'87.1月は6.8~7.2mg/lの値で、NH<sub>4</sub>-Nについては2月に0.44mg/lで、6、8、10月は0.5~0.59の値で、'87.1月に0.98mg/lの値を示した。濃縮毒性とNH<sub>4</sub>-N、CODとの関係について比較した結果では、2月の結果を除くと、96hrLC<sub>50</sub>とNH<sub>4</sub>-Nの間には逆の関係(相関係数 $r = -0.715$ )が見られた。24hrLC<sub>50</sub>で季節的变化を見ると、濃縮倍率は冬期の2月に8以上、1月には15以上と毒性は低く、8月には10.3と毒性は強いが、6、10月ではNH<sub>4</sub>-Nと逆に対応して12.0、14.5と8月に比べ毒性は弱まった。96hrLC<sub>50</sub>においては、'87.1月の結果7.0を除いては同様な傾向を示した。'87.1月の値は24hrLC<sub>50</sub>の14.5に比べて著しくちがうが、原因については不明である。

(3) St.3 高島橋

調査結果を図11に示す。St.1と同様に24hrLC<sub>50</sub>、96hrLC<sub>50</sub>とNH<sub>4</sub>-Nの間に逆の関係、すなわち毒性はNH<sub>4</sub>-Nの濃度と対応する傾向が見られた。NH<sub>4</sub>-Nの変化とCODの変化を比較すると、1986年2月にはNH<sub>4</sub>-N、7.6mg/l、COD、18.0mg/lと高いのに對し、10月にはNH<sub>4</sub>-N、2.6mg/l、COD、8.9mg/lとともに低くなっている。濃縮毒性について比較すると、24hrLC<sub>50</sub>で2月に2.0に對し、8月3.4、10月に4.4と毒性が弱まる傾向が見られ、96hrLC<sub>50</sub>では1月、2月、6月に1.4に對し、8月3.2、10月に4.4と同様な傾向が見られた。季節的に冬期の2月、1月に毒性が強く、8、10月の夏期から秋期にかけて毒性が弱まる傾向を示した。

(4) St4 宮下橋

調査結果を図12に示す。水質については、10月のNH<sub>4</sub>-N 0.11mg/ℓと低い値の時を除いては、NH<sub>4</sub>-NはCODの変化と似た傾向を示した。6月には、NH<sub>4</sub>-Nは0.36mg/ℓで、CODも3.8mg/ℓと低く、その後8月から1月にかけては、NH<sub>4</sub>-Nは0.62mg/ℓから0.40mg/ℓ（但し、10月の値を除く）の値を示し、CODは6.4mg/ℓから5.2mg/ℓの値を示した。

濃縮毒性について比較すると、24hr LC<sub>50</sub> で6月8.1に対し、8月10.4、10月14.0、1月14.1と夏から冬にかけて毒性は弱まる傾向を示した。一方、96hr LC<sub>50</sub>については6月4.4、8月7.8、10月4.7、87.1月6.7と24hr LC<sub>50</sub>とは異なった傾向を示した。

3-4 pH, NH<sub>4</sub>-Nと濃縮毒性との関係

濃縮毒性の主な因子がNH<sub>4</sub>-N由来のNH<sub>3</sub>によるのか否かを明らかにするために、NH<sub>4</sub>-NとpHとの関係からNH<sub>3</sub>濃度を推定し<sup>9)</sup>、NH<sub>3</sub>と濃縮倍数による濃縮毒性との関連について検討した。

NH<sub>4</sub><sup>+</sup>とNH<sub>3</sub>との化学的変化の関係は

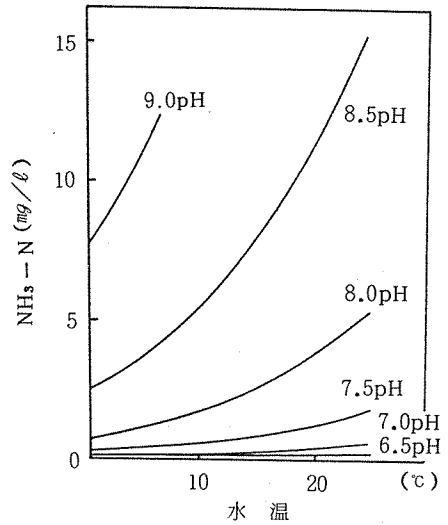
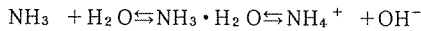


図-13 水温、pHとアンモニア中のNH<sub>3</sub>の割合との関係

表-7 濃縮毒性とアンモニア濃度

St.	Month	pH	NH <sub>4</sub> -N (mg/l)	NH <sub>3</sub> -N (mg/l)	24hrLC <sub>50</sub> (濃縮倍数)	NH <sub>3</sub> Nat		96hrLC <sub>50</sub> NH <sub>3</sub> -Nat	
						24hrLC <sub>50</sub> (mg/l)	96hrLC <sub>50</sub> (濃縮倍数)	24hrLC <sub>50</sub> (mg/l)	96hrLC <sub>50</sub> (濃縮倍数)
St.1	Feb. 1986	7.8	12.0	0.39	2.5	0.99	1.5	0.59	
	Jun. 1986	8.0	3.8	0.20	2.8	0.55	2.2	0.43	
	Aug. 1986	8.4	8.0	0.96	4.4	4.24	3.5	3.28	
	Oct. 1986	8.3	4.2	0.42	5.8	2.39	5.8	2.39	
	Jan. 1987	7.9	6.2	0.26	2.5	0.65	1.4	0.36	
St.2	Feb. 1986	7.8	0.44	0.015	> 8.0	> 0.12	8.0	0.12	
	Jun. 1986	8.0	0.50	0.03	12.0	0.31	10.9	0.28	
	Aug. 1986	8.4	0.59	0.07	10.3	0.73	8.4	0.60	
	Oct. 1986	8.1	0.50	0.03	14.5	0.46	14.5	0.46	
	Jan. 1987	7.9	0.98	0.04	> 15.0	0.62	7.0	0.29	
St.3	Feb. 1986	7.8	7.6	0.25	2.0	0.50	1.4	0.35	
	Jun. 1986	8.1	3.0	0.19	2.7	0.52	1.4	0.27	
	Aug. 1986	8.3	6.3	0.25	3.4	0.87	3.2	0.82	
	Oct. 1986	8.3	2.6	0.07	4.4	1.12	4.4	1.12	
	Jan. 1987	8.0	4.1	0.21	2.5	0.53	1.4	0.30	
St.4	Feb. 1986	-	-	-	-	-	-	-	
	Jun. 1986	8.0	0.36	0.02	8.1	0.15	4.4	0.08	
	Aug. 1986	8.4	0.62	0.08	10.4	0.78	7.8	0.59	
	Oct. 1986	8.4	0.11	0.01	14.0	0.18	4.7	0.06	
	Jan. 1987	8.1	0.40	0.03	14.1	0.37	6.7	0.17	

で表わすことができる。水中のイオンとしての $\text{NH}_4^+$ から非イオンの $\text{NH}_3$ への変化は水温とpHにより左右される。

水温が $10^\circ\text{C}$ 上昇するとアンモニア ( $\text{NH}_4^+$ ) 溶液中の非イオンアンモニア ( $\text{NH}_3$ ) の量は2倍に増える関係がある。

$$\text{関係式は } \frac{\text{NH}_3 - \text{N}}{\text{NH}_4^+ - \text{N}} (\%) = 100 / (1 + 10^{(\text{PKa} - \text{pH})})$$

PKa: 解離定数

$25^\circ\text{C}$ の場合  $\text{PKa} \approx 9.263$

で示すことができ、図13のような関係図が得られている。今回の濃縮毒性試験における24hr  $\text{LC}_{50}$ 、96hr  $\text{LC}_{50}$ 、と濃縮した水の $\text{NH}_3$ との関係について検討した。(表7)

St.1 においては、24hr  $\text{LC}_{50}$ での $\text{NH}_3$ 濃度は、 $0.55 \sim 4.24 \text{ mg/l}$ 、96hr  $\text{LC}_{50}$ での $\text{NH}_3$ 濃度は $0.36 \sim 3.28$ の値を示し、8月、10月においては $\text{NH}_3$ 濃度が $0.96, 0.42 \text{ mg/l}$ と高いこと、 $\text{NH}_3$ の24hr  $\text{LC}_{50}$ 、96hr  $\text{LC}_{50}$ はブルーギルでそれぞれ $2.29 \text{ mg/l}$ 、 $0.4 \sim 1.3 \text{ mg/l}$ と報告されており、その値を参考にして、主として $\text{NH}_3$ の影響による毒性と推定した。St.2においては24hr  $\text{LC}_{50}$ での $\text{NH}_3$ 濃度は、 $0.31 \sim 0.73 \text{ mg/l}$ 、96hr  $\text{LC}_{50}$ での $\text{NH}_3$ 濃度は $0.12 \sim 0.60 \text{ mg/l}$ の値を示し、濃度から判断して $\text{NH}_3$ の毒性よりも他の因子による影響が考えられた。

St.3においては、24hr  $\text{LC}_{50}$ での $\text{NH}_3$ 濃度は $0.50 \sim 1.12 \text{ mg/l}$ 、96hr  $\text{LC}_{50}$ での $\text{NH}_3$ 濃度は $0.27 \sim 1.12 \text{ mg/l}$ の値を示し、濃度から判断して、8、10月の毒性は主として $\text{NH}_3$ による毒性と考えられるが、他の時期については、 $\text{NH}_3$ および他の毒性の影響が考えられる。

St.4においては、24hr  $\text{LC}_{50}$ での $\text{NH}_3$ 濃度は $0.15 \sim 0.78$ 、96hr  $\text{LC}_{50}$ での $\text{NH}_3$ 濃度は $0.08 \sim 0.58$ の値を示し、濃度から判断して $\text{NH}_3$ による毒性よりも他の因子による影響が考えられる。

## 4. ま と め

柏尾川において、水質と濃縮毒性の変化を調査した結果、以下のことが明らかとなった。

1) 1日間の濃縮毒性の変化から、毒性は夜間に最も高く、 $\text{NH}_4 - \text{N}$ と高い相関を示した。また、夜間にはDOも低く、魚の生息に不適な環境が形成されると考えられる。

2) 降雨時の濃縮毒性の変化では、降雨後3日目

毒性は最も低くなり、その後徐々に増加した。毒性の強弱は $\text{NH}_4 - \text{N}$ およびCODと対応していた。

3) 降雨時の水質変化では、懸濁成分濃度は増水に伴い一時的に増加し、水位がもとに戻ると減少した。溶解性栄養塩類は懸濁成分とは逆の傾向を示すが、 $\text{NO}_3 - \text{N}$ とDOについては増水直後から濃度が増加し、約1日後にピークに達した後減少した。

4) 年間の水質変化では、 $\text{NH}_4 - \text{N}$ は夏期より冬期に高く、 $\text{NO}_3 - \text{N}$ 、 $\text{NO}_2 - \text{N}$ はその逆の傾向を示した。また、DOとpHは季節変動より日間変動の方が大きかった。

5) 地点別、季節的濃縮毒性の変化は、地点により毒性の強さは異なり、季節的濃縮毒性の変化は、毒性の強いSt.1,3と毒性の弱いSt.2,4で異なったパターンを示した。

6) 今回調査水域の濃縮毒性因子としてのアンモニア ( $\text{NH}_3$ ) との関連性についてpHおよび $\text{NH}_4 - \text{N}$ 濃度から $\text{NH}_3$ 濃度を計算し検討した。その結果、毒性の比較的強いSt.1,3については $\text{NH}_3$ の影響との関連性がかかり見られたが、毒性の比較的弱いSt.2,4については、 $\text{NH}_3$ よりも他の因子による影響が考えられた。

## 文 献

- 1) 二宮勝幸：横浜市における魚類へい死事故について、横浜公害研究所報，11，161～167 (1986)
- 2) 清水正信，成瀬洋児，加藤豊雄，土山ふみ，村上哲生，鎌田敏幸：都市水域における魚類のへい死について、名古屋市公害研究所報，9，59～64 (1979)
- 3) 横浜市公害対策局資料
- 4) 日本気象協会横浜支部：神奈川県気象月報 (1986)
- 5) Mayes M.A., Alexander H.C., Hopkins D.L.: Acute and chronic toxicity of ammonia to freshwater fish, Environ. Toxicol. chem., 5(5), 437～442 (1986)
- 6) 細見正明，須藤隆一：底泥からの窒素・りん溶出に及ぼす温度の影響，第20回水質汚濁学会講演集，138～139 (1986)
- 7) 渡辺善徳，草野一，鶴田治雄：未発表
- 8) 海老瀬潜一：面源負荷の流出に及ぼす水文条件の影響，国立公害研究所報告，95，57～69 (1986)
- 9) Peter J. Ruffier, William C. Boyle James. K. Shmide: Short-term acute bioassays to evaluate ammonia toxicity and effluent standards, Journal WPCF. 53(3), 367～377 (1981)
- 10) 神奈川県：昭和56年度～60年度神奈川県水質調査

年表 (1981-1985)

11) 日本地球化学会：水汚染の機構と解析-環境科学特論，産業図書，85~124 (1978)

12) 福島博，小市佳延，大場栄次，福嶋悟：鶴見川中流域における水質の周日変動，横浜市公害研究所報，10, 129~140 (1985)

# 飼育コイを指標とした河川水質のモニタリング

齋藤 治子\*

## 要 旨

河川水のモニタリング方法として、河川水の流水方式で、試験用の孵化後約1ヶ月のコイを1年間飼育し、その体内の蓄積物質を測定する方法を試みた。この結果、重金属類の蓄積量は対照群と実験群の間にはほとんど差は認められなかったが、有機塩素化合物では差が認められた。PCBは対照群の70ng/gに対し、実験群では330ng/gであり、同様にPP'-DDEは0.070ng/gに対し、0.314ng/g、trans-chlordaneは0.025ng/gに対し、0.189ng/gであった。cis-chlordaneは共に0.003ng/gと差はなく、多環芳香族は両群とも認められなかった。

このことから、飼育した1年間に河川水中に混入した化学物質の測定が可能であり、蓄積性化学物質の経年変化を知ることができた。

さらに魚が生息していない水域への応用も可能であり、既知物質の継続的測定、監視、評価という、モニタリングと現在魚体中に混在しているかも知れない未確認物質を繰返しチェックし、物質を同定した上で化学物質の環境中での挙動や分布を調べるというサーベルランスの機能を持った方法として有効と考えられた。

## 1. はじめに

化学物質による水質汚濁調査は、現在、環境庁が、毒性、蓄積性、生産量などからプライオリティリストを作成し、問題性の高い物質から、個々の物質について、水質、生物、底質等の調査を行っている。

特に蓄積性化学物質の調査については、捕獲した生物を用いて行われている。このように、生体に蓄積した化学物質を測定することは、その水域に存在する有害な物質の早期発見や汚染実態の把握という点で有益である。

しかし、横浜市内河川のように、市民や行政の手で魚の放流が行われている所では、捕獲した魚の経歴等が不明であるため、検出された化学物質が当該河川水由来であるか疑問である。また、蓄積された化学物質がいつから存在したかを知ることも不可能である。

そこで、今回、コイを河川水で約1年間飼育し、その体内に蓄積した化学物質を測定することにより、河川水の化学物質による汚染モニタリングを試み、若干の知見を得たので報告する。

## 2. 実験方法

### 2-1 飼育方法

群馬県水産試験場で孵化した稚魚を購入し、その後約2か月間当研究所内で蓄養した健康なコイ50尾を選定し試供魚とした。試供魚を、横浜市内の帷子川水質監視所内に設置した魚類試験水槽の対照槽に2週間順化した。順化後、全魚に異常は認められなかったことから、河川水を通した実験水槽に、ランダムに25尾を移し、実験を開始した。

飼育期間は昭和60年9月10日から61年8月13日の約11か月であり、飼育期間中、体重の変化と水温の変化に応じて配合飼料を給餌した。

試験に用いた魚類試験水槽は図1に示したとおりであり、溶存酸素確保のため曝気した。対照水槽は市水を、残留塩素のみを吸着する樹脂を詰めた脱塩素塔を通して連続通水した。実験水槽は定量ポンプにより、河川水を連続的に揚水し、通水した。

The monitoring of river water using cultured carp.

\*Haruko Saito, 横浜市公害研究所水質部門



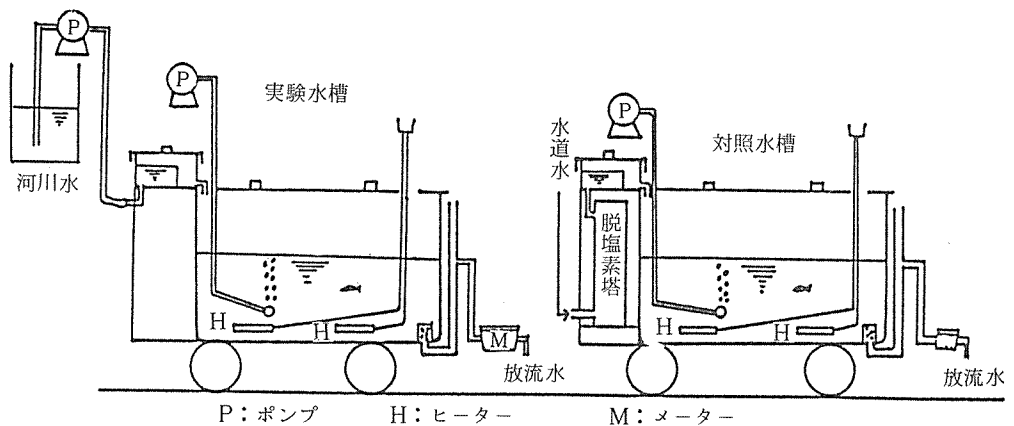


図-1 魚類試験水槽

表-1 水質測定方法

水素イオン濃度	(pH)	JIS-K0102-21
電気伝導率	(CND)	JIS-K0102-13
溶存酸素量	(DO)	JIS-K0102-32
残留塩素量		JIS-K0102-33・1
化学的酸素要求量		JIS-K0102-17
アンモニア性窒素 (NH <sup>+</sup> -N)		JIS-K0102-42
生物学的酸素要求量 (BOD)		JIS-K0102-21
界面活性剤 (陰イオン; LAS)	飯塚による方法 <sup>1)</sup>	
	(非イオン; POE)	飯塚による方法 <sup>1)</sup>
重金属	(鉛:Pb)	JIS-K0102-54・2
	(カドミウム; Cd)	JIS-K0102-55・2
	(ニッケル; Ni)	JIS-K0102-59・2
	(銅; Cu)	JIS-K0102-52・2
	(水銀; Hg)	JIS-K0102-66・2

## 2-2 水質測定

飼育期間中の試験水槽水と流入河川水の水質測定項目とその分析方法を表1に示した。試験項目の内、水素イオン濃度 (pH)、電気伝導率 (CND)、溶存酸素量 (DO)、残留塩素量 (対照水槽のみ) および水温、通水量は毎週1回測定した。化学的酸素要求量 (COD) アンモニア性窒素量 (NH<sub>4</sub>-N)、生物学的酸素要求量 (BOD)、界面活性剤 (陰イオン: LAS, 非イオン: POE)、重金属 (鉛: Pb, カドミウム: Cd, ニッケル: Ni, 銅: Cu, 水銀: Hg) については毎月1回測定

した。また、実験水槽のpH, CND, 水温については自記測定器を取り付け連続測定も行った。

## 2-3 コイの測定

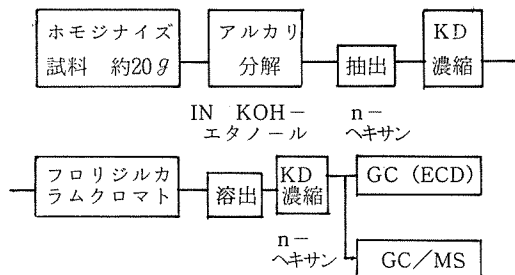
飼育開始時にコイの体長, 体重, 外観について測定, または観察し, 飼育期間中の健康観察は外観により毎週1回行った。

飼育終了時には, 体長, 体重の他, 外観, 内観および鰓の鏡検を行った後, 全魚体をホモジナイズして, 約20gずつを蓄積性物質の測定に供した。

蓄積性物質としては, 重金属類については水質測定項目と同様に測定した。その他に有機塩素化合物および多環芳香族を測定した。有機塩素化合物は鶴川ら<sup>2)</sup>の方法を生物試料用に変えて測定した。分析フローおよびガスクロマトグラフィー (GC) とガスクロマトグラフィー/マススペクトル (GC/MS) の測定条件は図2に示すとおりである。多環芳香族の測定は石井ら<sup>3)</sup>の方法を生物試料用に変えて行った。

## 3. 結果 および考察

水質の測定結果は表2に示すとおりであり, pHはほぼ中性であり, CNDは対照水槽での平均が166  $\mu\text{s}/\text{cm}$ , 実験水槽での平均が334  $\mu\text{s}/\text{cm}$ であった。DOは対照水槽では平均 9.6  $\text{mg}/\ell$ , 実験水槽では 7.8  $\text{mg}/\ell$ であり, 流入河川水は 4.8  $\text{mg}/\ell$ , 最低量で 1.4  $\text{mg}/\ell$ を示したが, 曝気により, 雨水槽共, コイにとって必要とされる 5.0  $\text{mg}/\ell$  以下を示すことはなかった。また



GC条件

機種 島津4CM  
 カラム OV-17  
 (2%) クロモソルブW  
 2mmφ×3m  
 カラム温度 230℃  
 キャリヤーガス  
 N<sub>2</sub> 45ml/min

GC/MS条件

機種 日本電子JEOL-DX303  
 充填カラム  
 カラム OV-1 (2%) 21m  
 カラム温度 230℃ (PCB)  
 220℃ (DDE他)  
 キャピラリーカラム  
 カラム DB-1, 30m  
 カラム温度  
 60℃ (1min) 16℃/min昇温  
 120℃, 8℃昇温

図-2 有機塩素化合物の分析法

平均流量は交換率にして、対照水槽で3.0交換/日、実験水槽では4.2交換/日であった。飼育期間中の水温は対照水槽での最高値は28.5℃、最低値が5.5℃、実験水槽では最高値は28.5℃、最低値が6.0℃であり、年間を通じて対照水槽と実験水槽との間に差はあったが最大でも3℃、最低で0.5℃と実験水槽の方が高い傾向

にあった。残留塩素は全飼育期間を通じて不検出であった。

以上のことから、実験環境として、両槽に有意な差はないと考えられた。

COD, NH<sub>4</sub>-N, BOD, LAS, POE については表2のとおりであり、実験水槽では対照水槽に比較して高濃度検出されたが、横浜市内河川水の測定結果<sup>1)6)</sup>と比較して異常に高い値ではなかった。重金属類についてはすべて定量限界値 (Pb: 0.05mg/l, Cd: 0.05μg/l, Ni: 0.02mg/l, Cu: 0.02mg/l, Hg: 0.0002mg/l) 以下であった。

コイの飼育開始前後の体長、体重は表3に示したとおりであり、対照群の平均体重は4.2±0.7gが28.7±7.0gに、実験群では4.4±0.9gが43.6±18.6gにと成長している。実験群の方が有意に成長しているが、給餌以外の河川水由来の生物の摂取によるものと考えられた。外観、内観、鯉の鏡検結果では、すべてに異常は認められなかった。

コイ体内への蓄種物質の測定結果は表4に示すとおりであり、重金属類では、Pb, Cd (定量限界値, Pb: 0.4μg/g, Cd: 0.08μg/g) についてはすべてに検出されなかった。Niも両群ともに痕跡程度 (定量限界値: 0.2μg/g) であった。CuとHgについては微量検出されたが、両群に差はなかった。

表2 水質等測定結果

項目	対照水槽	実験水槽	河川水
pH	7.7 (8.2~7.3)	7.7 (8.1~7.3)	7.5 (8.1~7.2)
CND μs/cm	166 (300~125)	334 (450~190)	326 (570~210)
DO mg/l	9.6 (12~6.7)	7.8 (11~5.3)	4.8 (8.2~1.4)
流量 交換/日	3.0	4.2	
水温 °C	28.0~5.5	28.5~6.0	
残留塩素 mg/l	不検出		
COD mg/l	-	10 (12~6)	12 (25~7)
NH <sub>4</sub> -N mg/l	0.07 (0.02~-)	1.70 (2.40~0.70)	2.00 (3.80~0.90)
BOD mg/l	-	16 (31~10)	13 (20~8)
LAS mg/l	0.05 (0.12~0.01)	0.90 (1.26~0.9)	1.17 (1.89~0.37)
POE mg/l	-	0.18 (0.32~0.04)	0.18 (0.28~0.08)
Pb mg/l	-	-	-
Cd mg/l	-	-	-
Ni mg/l	-	-	-
Cu mg/l	-	-	-
Hg mg/l	-	-	-

- ; 定量限界以下

数值; Mean (Max.~Min.), 水温のみMax.~Min.

表3 飼育開始前後の体長体重(M ± SD)

測定時期	対 照 群		実 験 群	
	体長 (cm)	体重 (g)	体長 (cm)	体重 (g)
飼育開始時	5.3±0.4	4.2±0.7	5.5±0.5	4.4±0.9
飼育終了時	10.5±9.6	28.7±7.0	11.7±1.7	43.6±18.6

表4 魚体内蓄積量

物 質 名	対照群	実験群
<b>重金属類</b>		
Pb (ug/g)	-	-
Cd (ug/g)	-	-
Ni (ug/g)	Tr	Tr
Cu (ug/g)	0.76	0.82
Hg (ug/g)	0.02	0.02
<b>有機塩素化合物</b>		
PCB (GC-ECD) (ng/g)	70	330
PP'-DDE (GC/MS) (ng/g)	0.070	0.314
トランス-クロルデン (〃) (ng/g)	0.025	0.189
シス-クロルデン (〃) (ng/g)	0.003	0.003

有機塩素化合物のECD-GCによる測定結果を図3および4に示した。図中番号を付してあるのはPCBのピークである。図3は対照群、図4は実験群のクロマトグラムであり、測定条件、注入量は同一である。

図3,4を比較すると図4に示したピークXおよびYが対照群では認められないことから、このピーク物質は河川水由来の特異的なものであろうと推定した。また、GCおよびGC/MSの測定によって、表4に示し

たとおり、PCBの他にDDEとクロルデンが検出された。PCBはECD-GCによるクロマトグラムから係数法によって算出した結果、対照群の70ng/gに対して実験群では330ng/gと約4.7倍検出された。DDEはm/z 318、クロルデンはm/z 373のSIMによる定量を行った結果、PP'-DDEは対照群の0.070ng/gに対して実験群では0.314ng/gと約4.5倍検出された。

トランス-クロルデンは同様に、0.025ng/gに対して0.189ng/gと約7.5倍検出された。

シス-クロルデンは両群とも0.003ng/gであり、差は認められなかった。

多環芳香族については、アセナフチレン、アセナフテン、フルオレン、ジフェニルメタンの4物質混合濃度で定量限界の2μg/g以下であった。

#### 4. ま と め

河川水のモニタリング方法として、河川水で試験用のコイを約1年間飼育し、その体内に蓄積した化学物質を測定する方法を試みた。その結果、河川水由来と

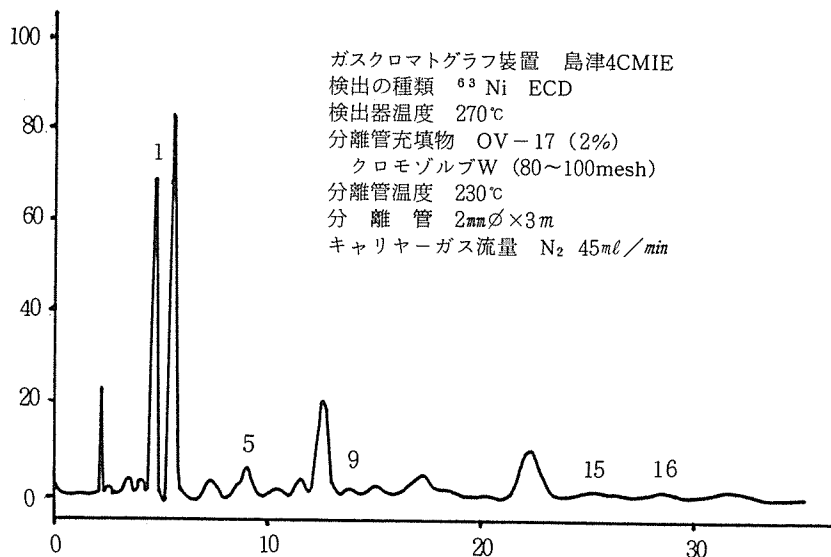


図-3 対照群のクロマトグラム (注入量: 5ul)

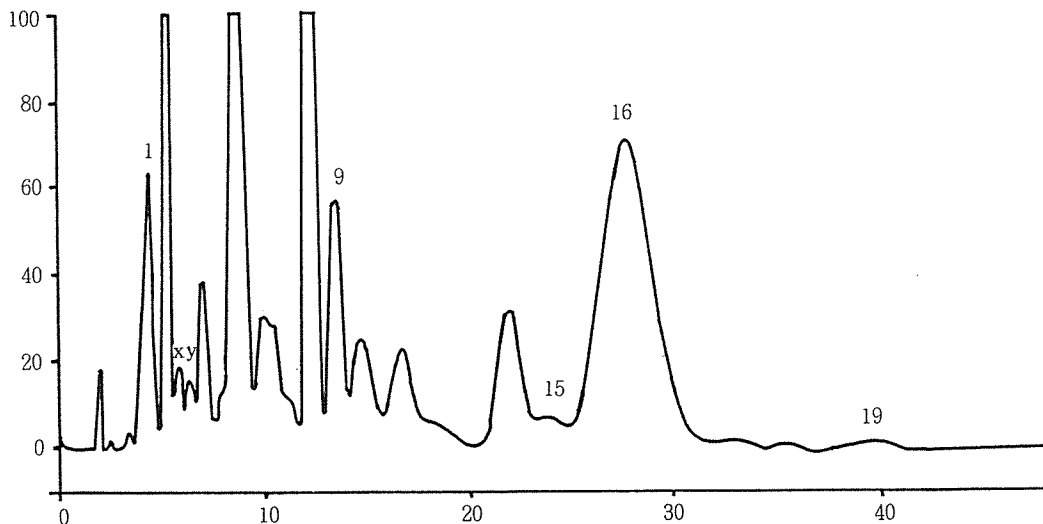


図-4 実験群のクロマトグラム（注入量：5 $\mu$ l）

推定される未確認物が検出され、また確認物質でも可川水により4.5~7.5倍という高濃度の蓄積が認められた。

このことから、この手法は、飼育した1年間に河川水中に混入した化学物質の測定が可能であり、また、蓄積性化学物質の経年変化を知ることができる。

さらに、魚が生息していない水域にも応用が可能であり、既知物質の経時的測定、監視、評価というモニタリングと、現在魚体中に混在しているかも知れない未確認物質を繰返しチェックし、物質を同定した上で化学物質の環境中での挙動や分布を調べるというサーベランスの機能を持った方法として有効と考えられた。

## 謝 辞

本報告に際してGC/MSの測定にご協力をいただきました。神奈川県公害センターの杉山英俊氏に感謝いたします。

## 文 献

- 1) 飯塚貞男：排水中の非イオン界面活性剤の定量法，横浜市公害研究所報，5，79-83（1980）。
- 2) 鶴川昌弘，中村彰夫，榎本隆：PCBの数値方法に関する研究，食品衛生学雑誌，14，415-424（1973）。
- 3) 石井哲夫：昭和57年度化学物質分析法開発調査報告書，環境庁環境保健部保健調査室（1983）。
- 4) 神奈川県，横浜市・川崎市・横須賀市・藤沢市・相模原市：昭和60年度公共用水域水質測定結果（1985）。
- 5) 飯塚貞男：横浜市内河川水中の合成界面活性剤の濃度分布，横浜市公害研究所報，10，141-145（1985）。

## 排水処理汚泥の資源化に関する基礎研究 (第3報)

## —流動媒体の製造及び外部循環式三相流動床による排水処理実験—

野木 一男\*, 下村光一郎\*

## 要 旨

生物処理の効率向上を図るため流動床式排水処理法に用いる流動媒体の製造及び、それを用いた外部循環式三相流動床による排水処理実験を行った。

流動媒体は、下水汚泥焼却灰75重量%, 黒曜石発泡体10重量%, ポルトランドセメント10重量%, 活性炭粉末5重量%と水25重量%を混合して成形固化したものが適当であった。

外部循環式三相流動床を使用した人工排水処理実験における有機物 (BOD) 濃度は、はじめ500 mg/l程度とし、その後約1,400 mg/l (最大2,730 mg/l) まで増大させても、良好な水質の処理水が得られ、処理水中の有機物濃度は終始、数mg/lから10 mg/lと安定していた。

また、当初、容積負荷0.5kg・BOD/m<sup>3</sup>・Dayで開始した。その後、最大17kg・BOD/m<sup>3</sup>・Dayまで負荷を上昇させたが、そのときの処理水中の有機物濃度は10 mg/l以下に維持された。

実験開始後約数か月を経過しても除去率は良好に維持できた。

## 1. はじめに

流動床式生物処理法によって排水中の有機物を除去する場合、その有機物を分解する微生物を附着、増殖させる流動床媒体として、通常、砂、活性炭、プラスチック粒子、ゼオライトが使用されてきた。しかしこれら従来から使われてきた流動媒体には次のような問題があった。

- (1) 砂は表面積が極めて小さく、滑らかなので、微生物が附着しにくく、また、比重が2.6 g/cm<sup>3</sup>と大きいので、流動させるのに多くのエネルギーを要する。このため砂の粒子が衝突し、附着した微生物膜が剥がれやすい。
- (2) 活性炭は、表面積は大きいけれども微生物が附着するには細孔径が小さ過ぎる。
- (3) プラスチックは、砂と同様表面が滑らかなので、微生物が附着しにくく、疎水性であるので微生物の保持量が小さい。また、ミネラ

ルの溶出も期待できないため、砂と同様、微生物にとって好ましい生存環境をつくれぬ。(4) ゼオライトは親水性であり、アンモニアの選択吸着性は有するが機械的強度が弱い。このように、従来の流動床媒体には、微生物の附着に適した表面細孔が少なく、また、個々にみれば、粒子の強度は大きいけれども、重くて流動床における流動性に欠けるとか、親水性がないとか、ミネラルの溶出がない等の欠点があった。排水中の有機物を効率的に除去するために高濃度の微生物を保持できかつ、流動性の良い流動媒体が必要とされている。下水汚泥焼却灰を主成分とし、必要とされる比重、強度、細孔径分布、親水性等を有する流動床媒体の製造について検討を行うとともに、外部循環式三相流動床による排水処理実験を行ったので報告する。

An experimental research on utilization of Sludges from wastewater treatment.

— Preparation of granular media and treatment experiment by external loop three-phase fluidised bed —

\* Kazuo Nogi, Koichiro Shimomura 横浜市公害研究所水質部門

## 2. 使用原材料

### 2-1 石灰系下水汚泥焼却灰

石灰系焼却灰は、横浜市下水道局北部第二下水処理場より提供を受けた。これは下水汚泥に燃焼調質剤として、炭酸カルシウムを添加して焼却したものである。

主成分は、CaO27%、SiO<sub>2</sub> 34%、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 13%、Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 7%であった。また、粒度分布は、0.05mmから0.1mmが90%を占めていた。

### 2-2 黒曜石発泡体

黒曜石は、無水ケイ酸に富む黒緑色でガラス質の火成岩であり、貝ガラ状断面を呈し、容易に割ることができる。化学大辞典によると主成分は、SiO<sub>2</sub> 74%、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 13%、K<sub>2</sub>O4%、Na<sub>2</sub>O4%、CaO1.5%で、含水率は1.5%である。また、この発泡体は黒曜石を破砕後、900℃前後に加熱し発泡させたもので、元の体積の10倍位になる。そのために軽量で、化学的に中性である。今回使用した発泡体は、粒径が0.3mmから0.6mmのものである。

### 2-3 普通ポルトランドセメント

JISR-5210 で定められている市販のポルトランドセメントを使用した。

### 2-4 活性炭粉末

市販の活性炭粉末で粒径は、0.043以下が70%を占め、含水率65%のものを使用した。

## 3. 流動媒体の製造方法

### 3-1 ペレット押し出し機による造粒

予備試験の結果、最適配合とされた配合比、すなわち、下水汚泥焼却灰75W/W%、黒曜石発泡体粉末10W/W%、普通ポルトランドセメント10W/W%、活性炭粉末5重量W/W%の割合で配合した原料を混合

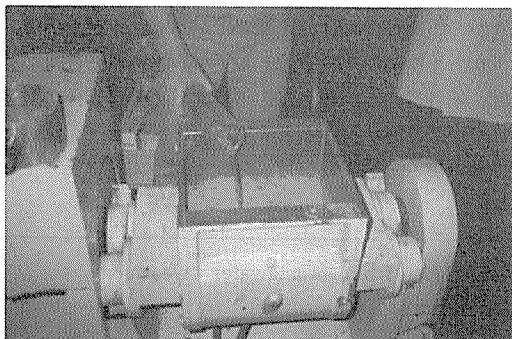


写真-1 混練機

機に入れて充分混合し、次いで得られた混合物に水25W/W%を加えてよく混練した。このとき混練物は少し湿った状態の砂状となった。

次に、砂状混練物を圧力型押し出し機でペレット状に押し出した。押し出されたペレットは、約24時間湿潤状態で養生した。この湿潤状態での養生により、ペレットの強度は増加した。写真-1に混練機、写真-2に押し出し機を示す。

### 3-2 流動媒体の調整

流動床媒体としての物理的条件は、鈴木等<sup>1)</sup>によれば、比重が1.4前後で粒径が0.5mmから1mmがよいと報告されている。そこで、上記の造粒物を粉砕後ふるいにより分け、0.42mmから0.59mmになるように媒体の粒径を調整した。

## 4. 流動媒体の性質

製造した流動媒体の諸性質はつぎのようであった。

全体構造は、写真-3の走査型電子顕微鏡写真に示すように、表面に多数の微細な凹凸がある。写真-4は、写真-3に示した粒子を拡大した走査型電子顕微鏡写真で、黒曜石発泡体が混合されている状態を示している。写真-5はさらに拡大した走査型電子顕微鏡写真で、細孔が多数あることを示している。

圧縮強度 (JISA 1108による) は表-1に示すように28日強度で170kgf/cm<sup>2</sup>であった。

比表面積 (N<sub>2</sub> BET法による) は、53.5m<sup>2</sup>/gであった。



写真-2 押し出し機

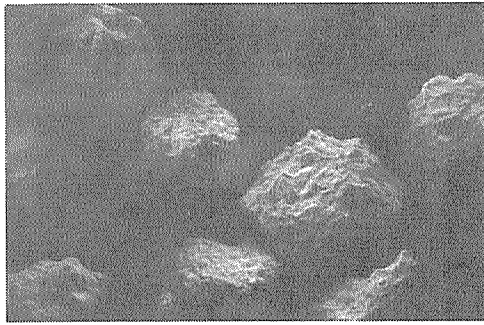


写真-3 流動媒体NS-1号の粒子構造の走査型電子顕微鏡

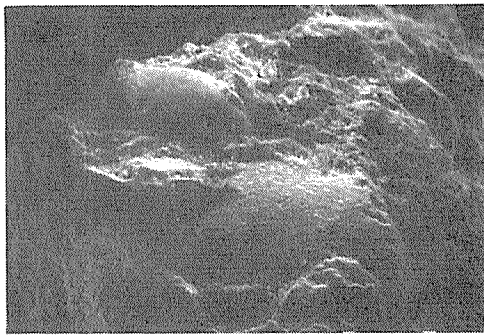


写真-4 第1図の粒子構造を拡大した走査型電子顕微鏡写真

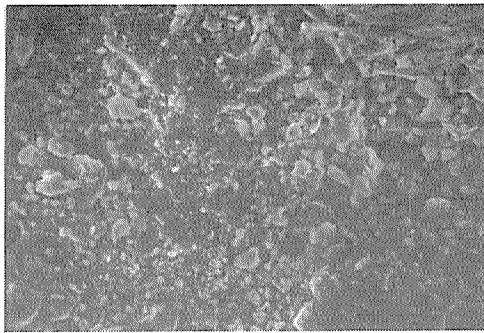


写真-5 第1図の粒子構造を拡大した走査型電子顕微鏡写真

	(kgf/cm <sup>2</sup> )		
材 材 令	3 日	7 日	28 日
圧縮強度	50	90	170

細孔径分布 (N<sub>2</sub> 吸着等温線をDollimore Hea-1 法により解析) は、図-1に示すように、半径25 Å以上の細孔を多数有していた。

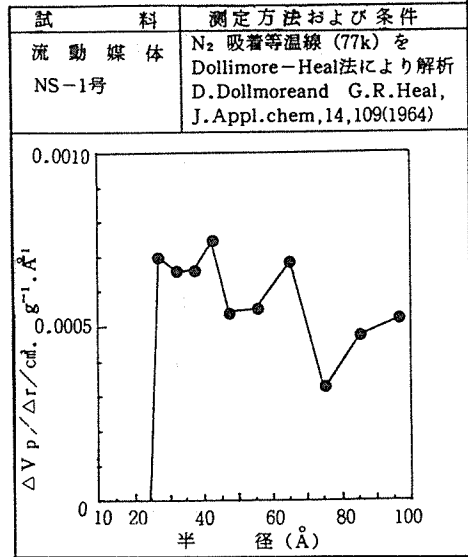


図-1 流動媒体の細孔径分布

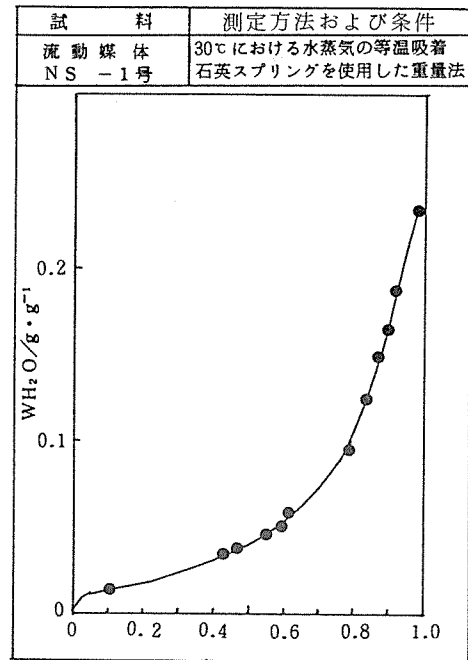


図-2 流動媒体の水吸着等温線

水吸着性 (30℃における水蒸気の等温吸着スプリングを使用した重量法) は、図-2に示すように、湿度100%で0.23WH<sub>2</sub>O/g・g<sup>-1</sup>であった。

重さ (JISA1110 による) は、絶乾比重で、1.14であった。

陽イオン交換能は、31.6meq/100gであり、陽イオ

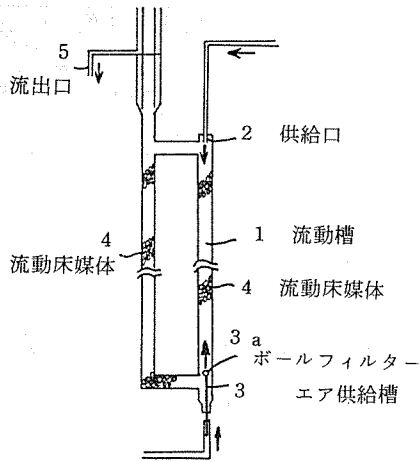


表-2 人工廃水の組成

成分	濃度mg/l
グルコース	678
ペプトン	542
K <sub>2</sub> HPO <sub>4</sub>	176
KH <sub>2</sub> PO <sub>4</sub>	690
Na <sub>2</sub> HPO <sub>4</sub> -12H <sub>2</sub> O	363
NH <sub>4</sub> Cl	13.8
MaSO <sub>4</sub> -7H <sub>2</sub> O	183
CaCl <sub>2</sub>	224
FeCl <sub>3</sub> -6H <sub>2</sub> O	2.3

図-3 外部循環式三相流動槽

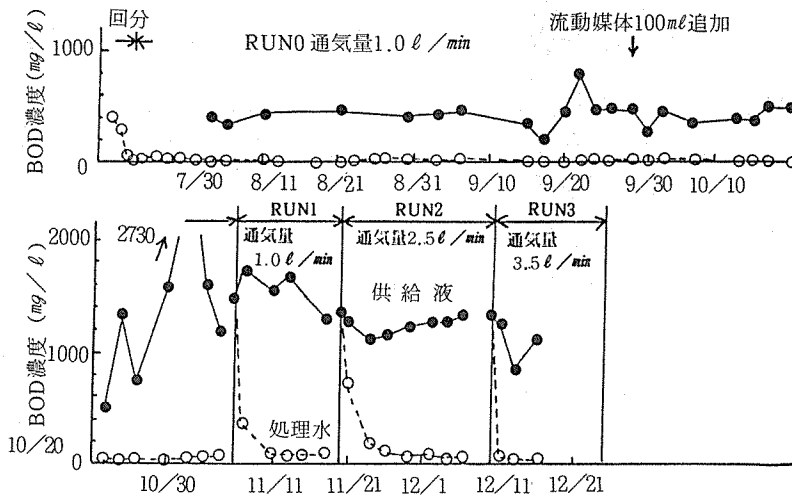


図-4 有機物除去実験の供給液と処理水のBOD濃度

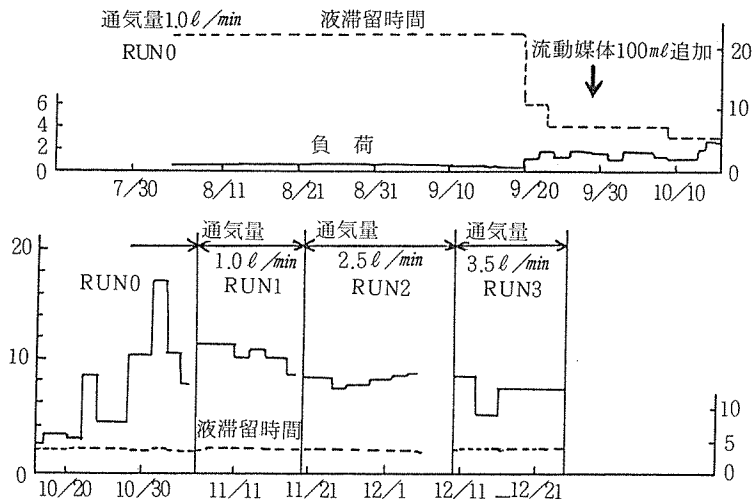


図-5 有機物除去実験における有機物容積負荷と液滞留時間の変化



ン交換剤に近いイオン交換能を有していた。

主成分は、 $\text{SiO}_2$  36.6%、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  11.9%、 $\text{CaO}$  27.1%、 $\text{Fe}_2\text{O}_3$  6.4%であった。

無機成分の溶出試験（昭和48年環境庁告示第13号による溶出試験）では、製造直後の溶出量は $\text{Ca}$  8.4  $\text{mg}/\ell$ 、 $\text{K}$  1.19  $\text{mg}/\ell$ 、 $\text{Fe}$  0.06  $\text{mg}/\ell$  で、一年間流動媒体として使用後の溶出量は $\text{Ca}$  10.8  $\text{mg}/\ell$ 、 $\text{K}$  15.8  $\text{mg}/\ell$  であった。また、重金属等有害物質は基準値以下であった。なお、比表面積、細孔径分布、水吸着性及び陽イオン交換能の試験は、神奈川県工業試験場に依頼して行った。

## 5. 外部循環式三相流動床による排水処理実験

排水中の有機物除去を目的とし外部循環式三相流動床による処理実験を行った。

### 5-1 装置

図-3に示すように、環状の流動槽（図中の1）、流動槽1に人工排水を供給する供給口（図中の2）、酸素供給とエアリフト兼用のエア供給管（図中の3）、ボールフィルタ（図中の3a）、流動槽1に添加した流動床媒体（図中の4）、流動槽1を循環し、有機物の除去された処理水の流出口（図中の5）で構成されている。

### 5-2 実験方法

有効内容積376ℓの流動槽内に、粒子径0.42mmから

0.59 mmの流動媒体を0.5ℓ添加し、表-2の組成を有する人工排水を供給口より供給しながら、エア供給管よりエアを吹き込み、そのエアリフト効果により流動媒体を循環させた。人工排水の供給は、はじめバクテリア等の微生物の馴養のため少量とし、徐々に負荷を上げるようにした。温度は室温とし、pH調整は行なわなかった。エアの吸込量は、1.0ℓ/minから3.5ℓ/minとした。処理水は流出口より採取した。

### 5-3 実験結果

図-4、5に人工排水を用いた有機物除去実験の結果を示す。図-4には、供給水及び処理水のBOD濃度を、図-5には、BOD容積負荷を示している。実験開始当初は、供給水のBODは500  $\text{mg}/\ell$ 、容積負荷は0.5  $\text{kg} \cdot \text{BOD}/\text{m}^3 \cdot \text{Day}$ とし、その後、処理水の状態を調査しながら上げてゆき、最大時は、供給水のBOD 2,730  $\text{mg}/\ell$ 、容積負荷は17  $\text{kg} \cdot \text{BOD}/\text{m}^3 \cdot \text{Day}$ で実験した。実験の期間中、処理水のBODは10  $\text{mg}/\ell$  になっており、最大17  $\text{kg} \cdot \text{BOD}/\text{m}^3 \cdot \text{Day}$ の容積負荷としたときにおいても、除去率90%以上であった。

RUN0に引続き、通気量とBOD除去率との関係を見るため、RUN0のときに用いた流動媒体及び流動床装置により、通気量を変えてRUN1（1.0ℓ/min）RUN2（2.5ℓ/min）、RUN3（3.5ℓ/min）の実験を行った。通気量を変えたとき菌体の洗浄により一時的に処理水のBODは上昇するが、その後は通常のBOD濃度に回

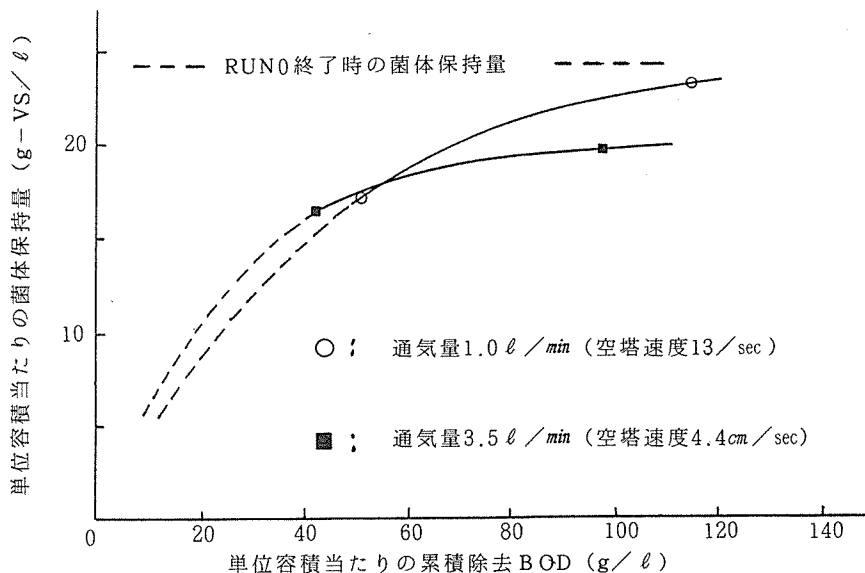


図-6 有機物除去実験における装置単位容積あたりの菌体保持量

復する。このように、通気量 $1.0 \text{ l/min}$ ,  $2.5 \text{ l/min}$ ,  $3.5 \text{ l/min}$ , のいずれのときもBOD除去率に大きな差はみられなかった。

次に、図-6に単位容積当たりの菌体保持量を示した。単位容積当たりの累積除去BODの増加とともに菌体保持量は増加し、 $20 \text{ g-VS/l}$ 以上となった。また菌体保持量は通気量の影響を受けられるが、 $3.5 \text{ l/min}$ 以下の通気量では明らかな差は見られなかった。

## 6. 考 察

製造した流動媒体について、比表面積の $53.5 \text{ m}^2/\text{g}$ は、珪鉍石の $1.4 \text{ m}^2/\text{g}$ , 砂 $0.7 \text{ m}^2/\text{g}$ あるいは吸着剤として開発されているシリカゲルの20から $30 \text{ m}^2/\text{g}$ と比較しても大きな比表面積が得られた。

また、細孔径分布は、 $25 \text{ \AA}$ 以上が多く発達している(図-1)。これらのことは、得られた流動媒体が比表面積が大きく、かつバクテリア等の水中微生物の体長に近い表面細孔を多く持ち微生物の付着に適した構造であることを示している。おそらく、これは下水汚泥焼却灰と普通ポルトランドセメントと黒曜石発泡体粉末という複数の材料の混合物の固化物であるためであろう、この製造例では、絶対比重1.14であったが黒曜石発泡体の配合比を変えることによって、比重を可変し得る。このため、流動媒体を流動槽において適度の流動性をもって循環させることができた。

流動媒体の原材料は、ほとんどが水に濡れる性質を有し、測定結果による水吸着性は、シリカゲルやアルミナのそれに類似しており、親水性の構造体となっていることを示している。このため流動媒体が水中にある時は、その中の無機成分が溶出し易く、溶出実験例において、微生物の増殖に必要な無機成分の供給源となるばかりでなく、水中のアンモニア態窒素が硝化されるのに必要なアルカリ供給源となり、アンモニア態窒素の硝化にも応用できることが示唆された。

また、圧縮強度試験の結果に示した $170 \text{ kgf/cm}^2$ (28日材令)は、流動槽内で破壊しただけの強度を有していることを示している。これは、下水汚泥焼却灰と普通ポルトランドセメントがともに自硬性を持つており、また、黒曜石発泡体粉末が、 $\text{SiO}_2$ を主成分とする天然鉍物を原料としながらもpHが中性という特性を有し、硬化により影響を与えているためと考えられ

た。

有機物除去実験において、有機物の容積負荷は $10 \text{ kg BOD/m}^3 \cdot \text{Day}$ 以上、最大時は $17 \text{ kg} \cdot \text{BOD/m}^3 \cdot \text{Day}$ とすることができた。処理水のBODは $10 \text{ mg/l}$ 以下で持続させることができた。これらの結果は、鈴木等によって報告されている流動媒体として活性炭を使用した場合の容積負荷3から $15 \text{ kg} \cdot \text{BOD/m}^3 \cdot \text{Day}$  砂の $2.5 \text{ kg}$ から $15 \text{ kg} \cdot \text{BOD/m}^3 \cdot \text{Day}$ , フライアッシュの $10 \text{ kg} \cdot \text{BOD/m}^3 \cdot \text{Day}$ と比較しても同等あるいはそれ以上の容積負荷であった。

菌体保持量は $20 \text{ g-VS/l}$ (最大 $27 \text{ g-VS/l}$ )であり、通常の活性汚泥法ばっ気槽内のMLSS濃度に比較し、5から10倍高い値となった。このことは、流動媒体が多くの菌体を保持していることを示している。今後、通気量等を考慮すれば、生物処理装置のコンパクト化や、処理効率の向上を可能にすることを示している。

## 7. ま と め

以上のように製造した流動媒体は、(1)比表面積が大きく、表面に微生物に適した細孔を有し、(2)、比重調節が可能であり、(3)、流動槽において破壊しない強度を有し、(4)、親水性を有し、(5)、微生物の増殖に必要なとされるCa, K等の無機成分を有している等、流動媒体として必要とされる性質を有していることが明らかとなった。

また、排水処理実験においても、容積負荷 $10 \text{ kg} \cdot \text{BOD/m}^3 \cdot \text{Day}$ 以上、菌体濃度 $20 \text{ g-VS/l}$ 以上と他の流動床法に劣らぬ有機物除去効果を有していることが明らかとなった。

## 謝 辞

有機物除去実験にご協力いただいた、東京工業大学資源化学研究所資源循環研究施設久保田宏教授、藤江幸一助手、ならびに、下水汚泥焼却灰を提供してくれた横浜市下水道局に感謝します。

## 文 献

- 1) 鈴木操, 桃々井清至, 原田秀樹, 生物排水処理シンポジウム, プロシーリングス, 化学工学協会P, 34 (1983)

## 軟弱地盤の沈下に関する調査研究（第3報）

### － 帷子川低地の軟弱地盤構造と地盤沈下特性－

杉本 実\* 梅原順造\*

#### 要 旨

帷子川低地下流部の地盤沈下は戦後の都市開発に伴って、著しくなってきた。

そこで本市では1975年9月1日から建設工事等の施工法指導を主な内容とする「横浜駅周辺地盤沈下対策指導要綱」を施行しその結果、急激な地盤沈下は最近認められなくなったが、1970年代の急激な地下水位低下に伴う残留沈下は依然大きな速度で進んでいる。

本論は帷子川低地における軟弱地盤の地質層序、土質特性、圧密沈下予測等の調査から、当低地の地盤沈下機構を解明したものであり、今後の地盤沈下対策に有益な知見を得た。

- ① 帷子川低地の軟弱地盤は深度約12～28mの粘土質海成層（AC<sub>2</sub>-Ch）が最も軟弱であり今後、地下水位が低下すれば圧密沈下は最も大きく発生する部分と思われる。
- ② 当低地の単位層厚当り沈下速度（Vs mm/年m）は1974年頃が最大であり、その中でも特に水準点No.227, No.209 No.207 付近の地域が大きかった。
- ③ 岡野公園地盤沈下観測所地点をモデルケースとして次元圧密の沈下予測を試みた結果、地下水位上昇分を考慮した補正予測方法が実測値に近く、実態に即しているように思われた。また、双曲線法による予測方法も実測値によく適合しており、今後は簡易な予測方法として利用可能と思われる。
- ④ 地下水位低下に伴って生じる軟弱地盤の間隙水圧分布を考察した結果、1972～1978年の年間ですでに全体の約65%が減少しており、これが完全に消散する時期は2025年頃と試算された。

#### 1. はじめに

帷子川下流部は縄文海進時代、谷底に軟弱な土が堆積して形成された低地である。当低地は横浜の交通の要衝、商業の中心地として栄え、戦後の経済活動による発展と都市開発とが相まって、大規模地下掘削工事が盛んに行われていた。

このような社会的背景の中で、1955年以降地盤沈下現象が顕著となり、高潮や洪水等による災害の危険性が懸念され始めた。1974年に「横浜駅周辺地盤沈下解析」を委託調査によって進め、地盤沈下の主因が諸建設工事などに伴う地下水の排除によるものと結論した。

そこで1975年9月1日から建設工事などの工法指導を主な内容とする「横浜駅周辺地盤沈下対策指導要綱」を施行し、今日まで行政指導を行っている。

このような行政指導が効を奏し、低下していた地下水位が上昇し始め、地盤沈下も鈍化しているものの、地下水位は依然として低下以前の水位まで回復しておらず、残留沈下は大きな値を示している。

また、当低地の地盤沈下は測量開始が同時期である大岡川低地下流部や鶴見川下流部及び中流部の港北区新羽町付近と比較して、著しく大きな沈下を示している<sup>2)~9)</sup>。

Studies on Ground Subsidence of Soft Ground (Part 3)

－ The constitution of soft Layers and its relation to ground subsidence in the Katabir Rivers

Lowland -

\* Minoru Sugimoto, Junzou Umehara, 横浜市公害研究所地盤沈下部門

これまでの調査結果によれば、本市の地盤沈下の特徴は事業場等の地下水揚水と軟弱地盤の大規模地下掘削工事が原因と考えられている。したがって地盤沈下は地下水揚水付近や大規模地下掘削工事現場付近を中心に周辺部へと広がって行くことが予想されるが、現状では沈下の波及状況を把握するに至っていない。

そこで、著者らは公害研究所開所以来、地盤の環境保全を目的とした調査研究を進め、ボーリング資料収集等による軟弱地盤構造の研究を進めているが、本論はこれらの調査結果を基に帷子川低地の軟弱地盤特性（地質層序、土質特性等）と地盤沈下特性（圧密沈下予測、双曲線予測、沈下速度の面的特性、間隙水圧分布の経時変化等）を考察し、今後の地盤沈下対策のための基礎資料を得るものである。

## 2. 横浜の地形地質概要と調査位置<sup>10)-12)</sup>

横浜の地形地質概要と調査位置を図-1に示す。

横浜は標高(TP)60~100mの丘陵地とTP30~80mの台地及びTP2.5~25mの沖積低地、埋立地から形成されている。丘陵地は多摩丘陵が本市の北西から中心部を経て三浦半島(南東)に張り出している。この丘陵から西側は相模原台地、東側は下末吉台地、北側は武蔵野台地で形成され、これらの丘陵地や台地を構成する地層の最上位は立川ローム層、武蔵野ローム層、下末吉ローム層等で覆われている。

沖積低地は縄文海進によって埋没谷にシルト、粘土、砂などが堆積して浅瀬の入江を形成していた。帷子川低地下流部も浅い入江の湿原地帯が形成されていたが江戸時代初期~明治時代初期にかけて埋立が進められ、平沼新田や岡野新田として開発された。

埋没谷の下位地層は更新世後期~中期の相模層群と鮮新世の上総層群であり、本市の地盤構造を成している。

上総層群は主に固結状のシルトと砂から成り、N値は50以上で建物の基盤となり、地下水揚水等に利用されている。上総層は本市南部の金沢区及び隣接する鎌倉市で丘陵地斜面に露出し、下向きに北に傾くが、金沢区富岡町付近を境にして北に上向きに傾き、半盆状構造を成す。

上星川付近では丘陵地斜面に現れ、再び下向きに北に傾いており、上星川付近を中心にドーム構造となっている。

帷子川はこのドーム構造の中央を南東に流れ、今井川合流付近から北東に流れを転じ、横浜港に注いでいる。

主な低地は横浜新道から下流部に発達し、その中で

も特にJR線の横浜駅周辺は商業ビルが林立する地域として栄え、地盤沈下が著しく現われている。

## 3. 調査方法

帷子川低地軟弱地盤の地質・土質特性は既往の調査結果を基に解析するものとし、地盤沈下予測等は以下の方法によった。

### 3-1 地盤沈下の発生地域と分布状況の検討

水準点位置における軟弱地盤の層厚は表1に示すとおりである。

地盤沈下の発生地域における分布状況を検討するに当たっては、地盤沈下を同一レベルで比較するため、水準点毎に各年の地盤沈下を層厚で除し、これを単位層厚当り沈下速度 $V_s$ (mm/年m)とした。したがってどここの水準点でも $V_s$ は同一条件となり、 $V_s$ により各水準点における地盤沈下の進行状況を比較することができ、沈下発生地域の状況を把握することができる。

### 3-2 双曲線法による予測手法<sup>13)</sup>

双曲線法は図-2に示すように圧密沈下時間曲線が双曲線に類似することを仮定して予測するものである。

最終沈下 $S_f$ と残留沈下 $\Delta S$ は次式で得られる。

$$S_t = S_0 + \frac{t - t_0}{\alpha + \beta(t - t_0)} \quad \dots\dots (1)$$

$t_0$  : 検討始点の時間 (年)

$t$  : 任意の時間 (年)

$S_0$  : 検討始点における沈下 (mm)

$S_t$  : 時間  $t$  における沈下 (mm)

$\alpha, \beta$  : 図-2に示した関係を用いて求められる  
 常数

(1)式において  $t$  を $\infty$ にしたときの最終沈下 $S_f$ を求めると

$$S_f = S_0 + \frac{1}{\beta} \quad \dots\dots (2)$$

となり、残留沈下 ( $\Delta S$ ) は

$$\Delta S = S_f - S_t \quad (S_t : \text{現在時点の沈下 mm})$$

で示される。

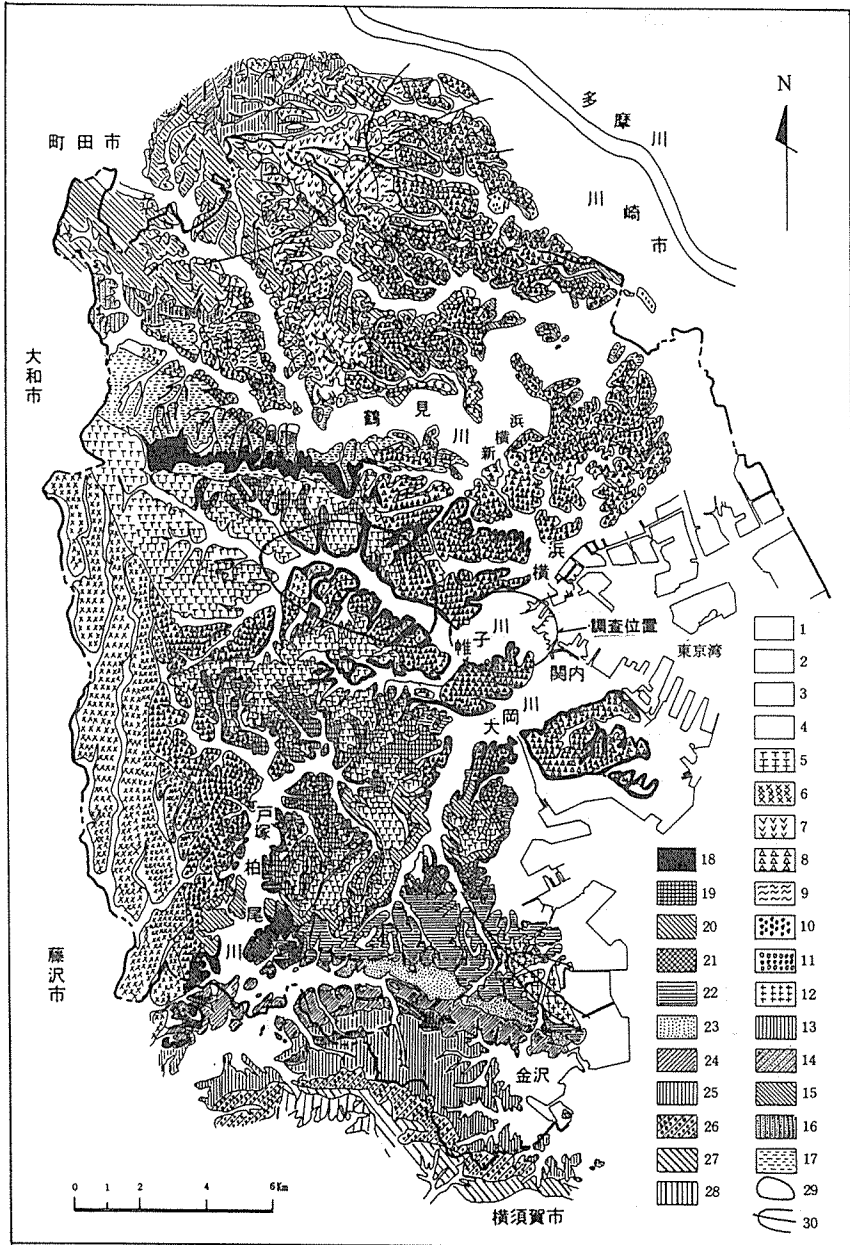
今回の解析では沈下の時系列データから最小二乗法によって(1)式の $\alpha, \beta$ を求め、年単位の時間を設定して1974年から2025年までの沈下を予測するものとした。

### 3-3 圧密理論による予測手法<sup>14)-16)</sup>

圧密理論はテルツァギー (Karl Terzaghi 1883~1963年) の一次元圧密理論によるものとした。

圧密最終沈下  $S$  (地盤沈下と同じ意味であるが以後沈下と呼ぶ)

$$S = m_v \cdot 2H \cdot \Delta P = \frac{0.435}{P(1+e)} C_c \cdot \Delta P \cdot 2H \dots\dots (1)$$



1 : Am沖積層, 埋立地, 2 : Og小原台砂礫層(未記入), 3 : Tk高津層(未記入), 4 : Im飯室層(未記入), 5 : Tc新时期ローム(未区分), 6 : Ml武蔵野礫層及びローム層, 7 : T2L多摩Ⅱローム層, 8 : S下末吉層及びローム層, 9 : SoL早田ローム層, 10 : Tm鶴見層, 11 : Osおし沼砂礫層, 12 : Hm浜層, 13 : Ik生田層, 14 : Dd出店層, 15 : Oz王禅寺層, 16 : Kk柿生層, 17 : Tr鶴見層, 18 : Kh上星川層, 19 : Km上倉田層, 20 : By屏風方浦層, 21 : Ng長沼層, 22 : Nz中里層, 23 : Ko小柴層, 24 : Of大船層, 25 : Ug浦郷層, 26 : I池子層, 27 : Z逗子層, 28 : 半盆状構造, 29 : フーム状構造

図 - 3 横浜の地形と地質概要図

表一 帷子川低地の軟弱地盤層厚と水準点

水準点番号 (No.)	層厚 (m)	水準点番号 (No.)	層厚 (m)
202	13.8	224	40.0
204	33.7	226	6.2
205	31.2	227	16.0
206	37.3	229	2.5
207	30.0	230	25.0
209	24.7	231	12.7
212	26.1	232	39.9
215	8.6	233	32.0
216	7.5	235	20.0
217	7.5	801	18.5
218	24.4	802	16.5
219	2.4	804	21.6
220	2.4	805	9.5
223	6.8	808	14.1

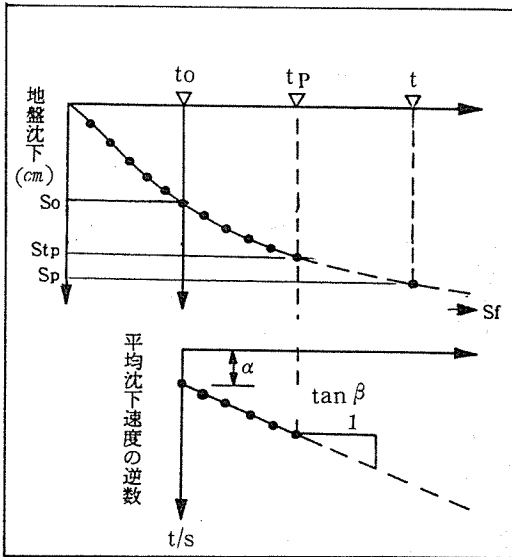


図-2 双曲線法による予測

- $m_v$  : 体積圧縮係数 (cm<sup>3</sup>/kyf)
- 2H : 層厚 (cm)
- $\Delta P$  : 有効増加応力 (kyf/cm<sup>2</sup>)
- P : 荷重強さ (kyf/cm<sup>2</sup>)
- e : 間隙比
- Cc : 圧縮係数

また、 $\Delta P$ の発生によって圧密が開始し、終了するまでの圧密時間は次式で得られる。

$$U = 1 - \sum_{m=0}^{m=\infty} \frac{2}{M^2} \epsilon^{-M^2 T_U} \dots\dots\dots (2)$$

$$M = \frac{\pi(2m+1)}{2} \dots\dots\dots (3)$$

$$T_U = \frac{1}{4H^2} \cdot C_v \cdot t \dots\dots\dots (4)$$

$$t = \frac{1}{C_v} \cdot 4H^2 \cdot T_U \dots\dots\dots (5)$$

U : 圧密度 (%)

m : 整数

$T_U$  : 圧密度 (U) に相当する時間係数

2H : 圧密層 (軟弱地盤) の排水距離 (cm)

t : 圧密時間 (年)

$C_v$  : 圧密係数 (cm<sup>2</sup>/d)

ここでUと $T_U$ の関係は圧密層 (軟弱地盤と同じ意味であるが以後圧密層と呼ぶ) の排水条件と $\Delta P$ の分布によって各々異なってくる。今回の解析ではUと $T_U$ の関係は(2)式から求め、 $\Delta P$ は岡野公園地盤沈下観測所の地下水位観測データから平均的な地下水位変化のモデル図 (図-8) を作成し、 $m_v$ 、 $C_v$  は当低地の代表的な値を採用するものとした。

地下水位の上昇による予測値の補正は次のように考えた。図-3において、地下水位が $h_1$ のときの沈下は $S_a(t)$ 、 $h_2$ は $t_p$ 点で $\Delta h$ 分だけ地下水位が上昇したときに生じている沈下 $S_b(t)$ である。沈下の補正はこの両者を合成して求めた。すなわち、 $t_0 < t < t_p$ において

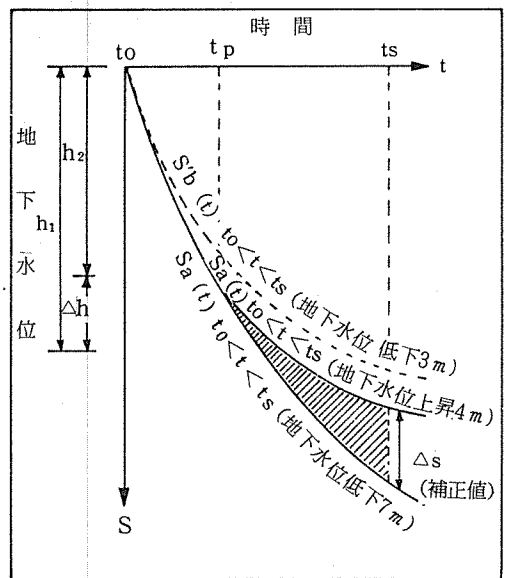


図-3 地下水位上昇に伴う沈下補正

はSa(t)であるが、 $tp < t < ts$  においてはSb(t)であり、 $\Delta S$ は地下水位上昇分の補正值である。

#### 4. 既往の調査結果と軟弱地盤の検討<sup>17)~23)</sup>

##### 4-1 地質断面図

図-4、5に帷子川低地の代表的な地質断面図を示す。

図-4は紅葉ヶ丘～横浜駅～高島台を南北に結ぶ断面で、基盤(BR)の上位は七号同等の砂層(Ns)、礫層(Ng)、及び、シルト層(Nc)が互層に約15mの厚さで堆積する。その上位は粘土質海成層(AC<sub>2</sub>-Ch)とシルト質海成層(AC<sub>2</sub>-Sm)が互層に約23m堆積する。全体ではAC<sub>2</sub>-Ch層が最も多くその他の砂層(AS<sub>2</sub>)やAC<sub>2</sub>-Sm層は少ない。また、AC<sub>2</sub>-Ch層の上位には比較的均一な砂(ASg)が堆積するが河川縦断方向への連続性はみられない。

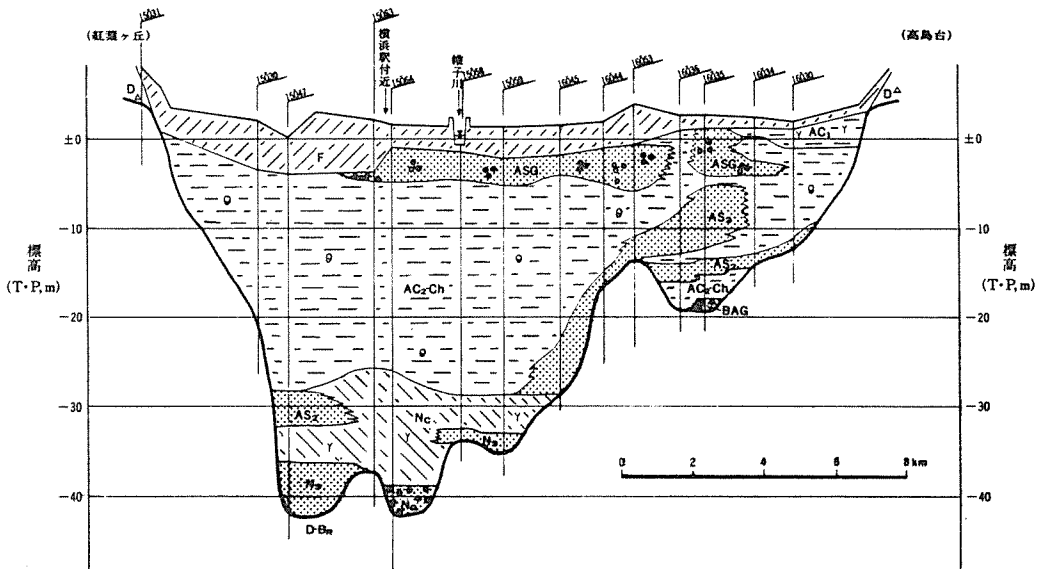
図-5は西前町～西平沼町～浅間台を結ぶ断面であり埋没谷の幅も狭まっている。BR層の上位は約10mのNc層、約23mのAC<sub>2</sub>-Ch層がそれぞれ堆積する。AC<sub>1</sub>層は上位にわずかに堆積するのみである。当低地におけ

る埋没谷の特徴は湾奥が浅く、谷壁は左岸が急崖で右岸が緩やかな勾配となる。古帷子川の谷底は左岸寄りに片寄って刻まれている。上流から下流に至る谷底の縦断勾配は6.5/1000で縄文海進は現在の横浜新道付近まであり、これを境界に上流は陸成の堆積物、下流は海成の堆積物に分類された。

##### 4-2 土質特性<sup>21)</sup>

表-2は帷子川低地における軟弱地盤の土質特性を平均値でまとめたものである。軟弱地盤を層相区分するとシルト質陸成層(AC<sub>1</sub>)、粘土質海成層(AC<sub>2</sub>-Ch)シルト質海成層(AC<sub>2</sub>-Sm)、七号同等シルト層(Nc)に分類されるがこのうち、AC<sub>2</sub>-Sm層はデータが不足しているため、ここでは省いて検討した。表-2によればNc層の一軸圧縮強さ(qu)や湿潤密度( $\rho_t$ )はAC<sub>1</sub>層やAC<sub>2</sub>層よりも明らかに大きな値が示されている。この理由としてNc層は約1万年前に海面が-40m付近で一時的に停帯、あるいは若干の海面低下があった時期に堆積したものと思われ、上載荷重や河川運搬物等の相違が考えられる。

また、AC<sub>1</sub>層とAC<sub>2</sub>-Ch層を比較すると、quはAC<sub>2</sub>



B: 埋土・盛土    ASG: 旧砂州  
 AC<sub>2</sub>-Ch: 粘土質海成層    AS<sub>2</sub>: 海成砂層  
 BAG: 基底礫層    Nc: 七号同等シルト層  
 Ns: 七号同等砂層    Ng: 七号同等礫層

図-4 帷子川低地地質横断面図

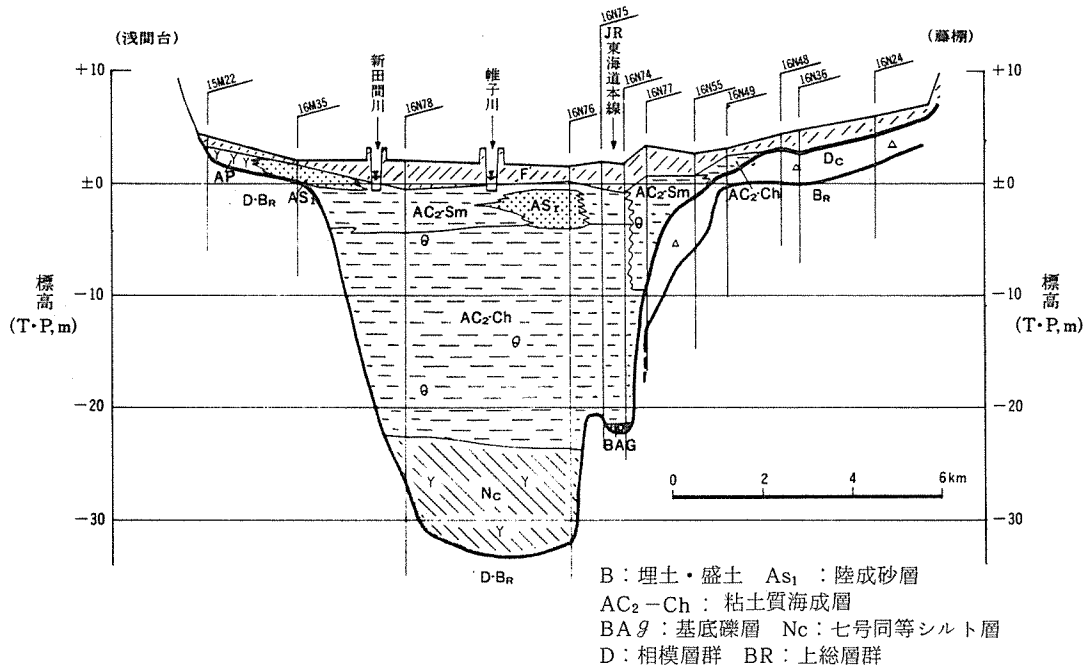


図-5 帷子川底地質断面図

- Ch 層で  $0.81 \text{ kgf/cm}^3$  に対し、 $AC_1$  層は  $0.49 \text{ kgf/cm}^3$  であり、 $AC_2 - Ch$  層の約 6 割にすぎない値である。 $AC_2 - Ch$  層の方がより深いため、原位置有効上載荷重の増加に伴う強度増加と考えられる。

自然含水比 ( $W_n$ ) は  $AC_2 - Ch$  層がより大きく、湿潤密度 ( $\rho_t$ ) は  $AC_1$  層がより大きな値となっていた。

その他の比重 ( $G_s$ )、圧縮降伏応力 ( $P_c$ )、圧縮指数 ( $C_c$ ) 等では両者の間に大きな差はみられなかった。

これらの関係から軟弱地盤の土質特性を総合的に検討すると  $AC_1$  層や  $NC$  層はこれまでに調査してきた大岡川低地や鶴見川低地の軟弱地盤と比較して大差ないが、 $AC_2 - Ch$  層の  $W_n$  等は若干大きな値を示している。

#### 4-3 軟弱地盤の深度別土質特性

図-6 は岡野公園地盤沈下観測所付近の土質を深度

別に示した土性図である。

物理特性の  $W_n$  と  $\rho_t$  は深度約 22m 付近を境にして、 $W_n$  は上下に小さくなり、 $\rho_t$  は上下に大きくなっている。また、力学特性の  $C_c$  でもこの傾向は同じであり、 $C_c$  は上下に小さくなっている。これらの相違が生じる理由は明らかでないが、堆積環境の違いや盛土荷重及び地下水位低下などの影響が考えられる。また、 $C_c$  は通常 0.9~1.0 以上になると圧縮性が高い土であるといわれている。

$C_c$  の 0.9 以上を示す範囲は約 12~28m 間であり、 $AC_2 - Ch$  層に相当する。

図 7 はキャサグランデによる塑性図を採用して、塑性指数 ( $I_p$ ) と液性限界 ( $WL$ ) との関係プロットしたものである。キャサグランデによれば図中の A 線より上

表-2 帷子川低地の軟弱地盤土質特性表

土質常数名	土質記号	シルト質陸成層 ( $AC_1$ )	粘土質海成層 ( $AC_2 - Ch$ )	七号同等シルト層 ( $Nc$ )
比重	$G_s$	2.601	2.654	2.675
自然含水比	$W_n$ (%)	88.7	94.1	11.2
湿潤密度	$\rho_t$ ( $g/cm^3$ )	1.505	1.477	1.542
一軸圧縮強さ	$qu$ ( $kgf/cm^2$ )	0.49	0.81	1.44
圧密降伏応力	$P_c$ ( $kgf/cm^2$ )	1.28	1.23	—
圧縮指数	$C_c$	0.96	0.981	—



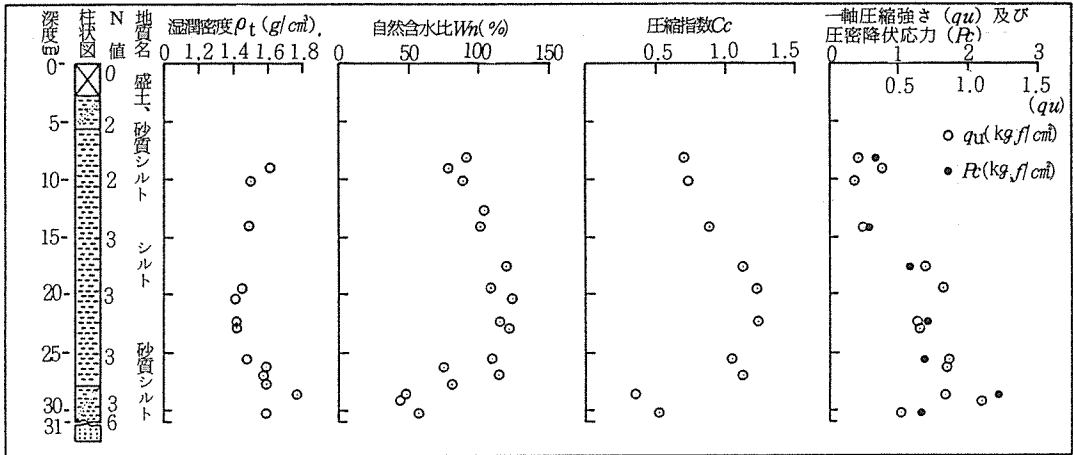


図-6 土性図

は無機質の粘土で、下は無機質のシルト及び有機質の粘土またはシルトに分類される。図中にプロットしたデータはA線付近に集まり、塑性または圧縮性の高い土であることが分る。また、AC<sub>2</sub>-Ch層の一部データは特に高塑性または高圧縮性の値を示すものがある。

以上のことから当地点の土質は深度約12~28m間のAC<sub>2</sub>-Ch層が極めて軟弱であり、今後地下水位低下などが生じれば圧密沈下が最も大きく現われる部分と思われる。

#### 4-4 岡野公園地盤沈下観測所における地下水位と沈下の経年変化<sup>22)</sup>

図-8は1960年以降の地下水位と地盤沈下の経年変化を示したものである。

地下水位は1960年頃に約TP-6m前後であったが、

1962~1963年頃には約TP-2.5mに上昇(回復)し、その後再び低下し始め、1965~1970年頃まで約TP-6m前後になっていた。更に1972年にTP-3.5mまで上昇したが、1973年に至り、急激に低下し1年間に約8.5mも低下し、水位はTP-12.0mとなった。その後、地下水位は上昇し、1978年頃に約TP 6.5mとなり、それ以降は約2.5m前後の変動差で上昇と低下を繰り返している。

一方、地盤沈下は1960~1972年まで、年間約16.4mmの一定速度で進んでいたが、1972年頃を境にして急激な沈下を示し、その後10年間で360mmも沈下している。1982年以降の沈下速度は11.1mm/年のほぼ一定速度で進んでいる。

このように地下水位と地盤沈下の関係を示した図-9からは1972年頃を境にして、地下水位の低下に伴って軟弱地盤が圧密し、沈下が年々増加して行くことがよく分る。

当観測所の井戸深度は32mであり、ストレーナの位置は礫層部のTP-23.7~-24.7mに設置されている。軟弱地盤は約26mの層厚で、礫層の上位がこれに当る。

したがって地下水の脱水は軟弱地盤の最下位からと考えられ、地下水は上位から下位に向って脱水し、圧密したものと推測される。

## 5. 調査結果及び考察

### 5-1 地盤沈下の発生地域と分布状況

図-9は各々の水準点<sup>23)</sup>における単位層厚当り沈下速度Vs(mm/年m)の経年変化を示したものである。Vsが最大となったのは地点No.227(1974年)の7.2mm/年mであり(図-10)、同地点はその前後も大きな値となって

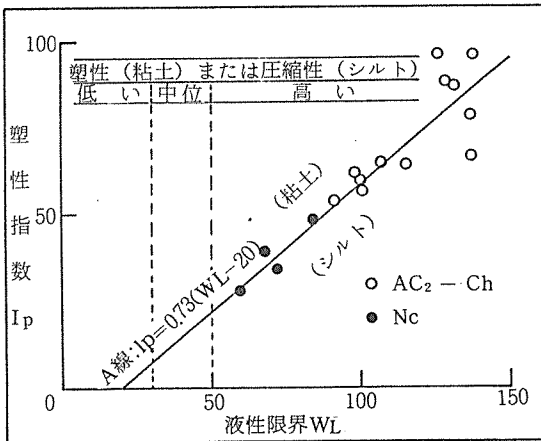


図-7 キャサグランデによる塑性図

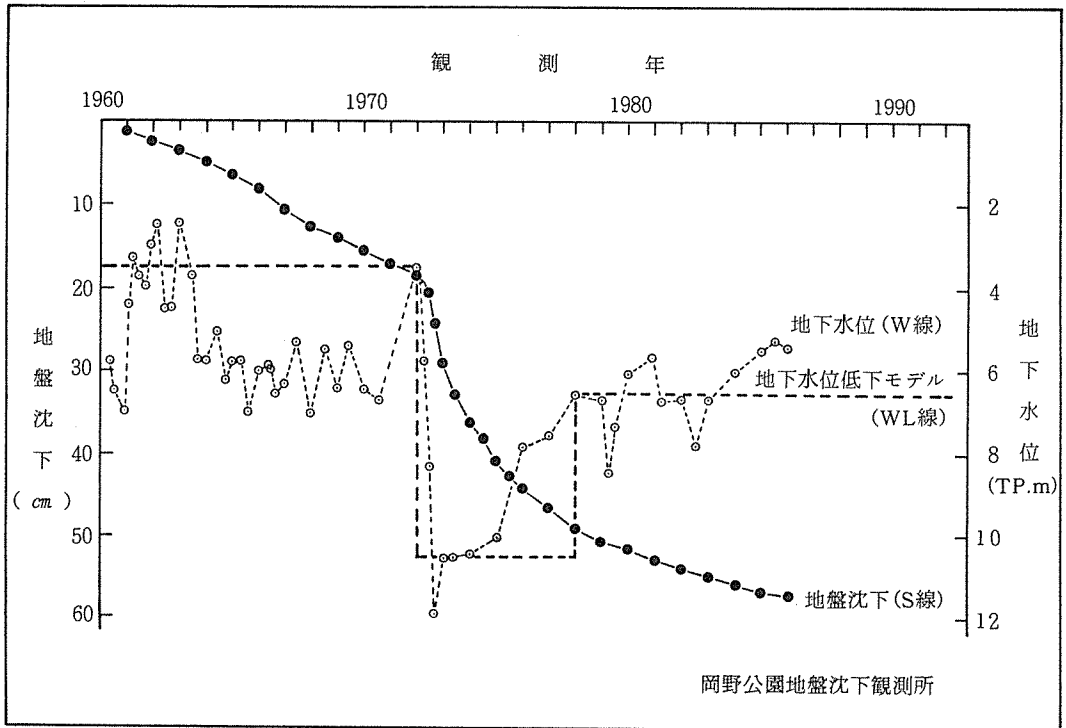


図-8 地下水位と地盤沈下の実測値及び地下水位低下モデル

いた。これを更にVsが $1.0\text{ mm}/\text{年m}$ 以上となった地点の数を年度別に集計してみると、図-11のように1974年頃が最大となっていた。

岡野公園地盤沈下観測所のデータによれば地盤沈下が急激に発生した時期は1972年頃である。地点No.227は当観測所に比較的近接していることからみて、沈下は1971年前後にNo.227付近を中心として発生し始め、その周辺地域に次第に拡がっていたと考えることができた。

また、この関係を更に詳しく検討したのが図-12のVs分布面積図である。1961年頃のVsはNo.224(横浜駅前付近)とNo.802(今井川合流付近)で約 $1.4 \sim 1.5\text{ mm}/\text{年m}$ であり、その他のNo.215, No.216, No.234は沈下がみられない。Vsは1965年頃になると $1.0\text{ mm}/\text{年m}$ 以上の地域はNo.220, No.229を中心とする地域でみられるようになり、帷子川右岸寄りの層厚が比較的薄い地域で著しくなった。

1972年頃になると、VsはNo.227( $7.2\text{ mm}/\text{年m}$ )を中心とする地盤沈下地域が現われてきた。また、この時期のVsが $1.0\text{ mm}/\text{年m}$ 以上となる地域はNo.227を中心として西側はNo.209, No.231まで拡がり、東側No.230のように $3.0\text{ mm}/\text{年m}$ となる地点も現われた。更に1974年になるとVsが $1.0\text{ mm}/\text{年m}$ 以上となる地域が更に拡大し、図に示

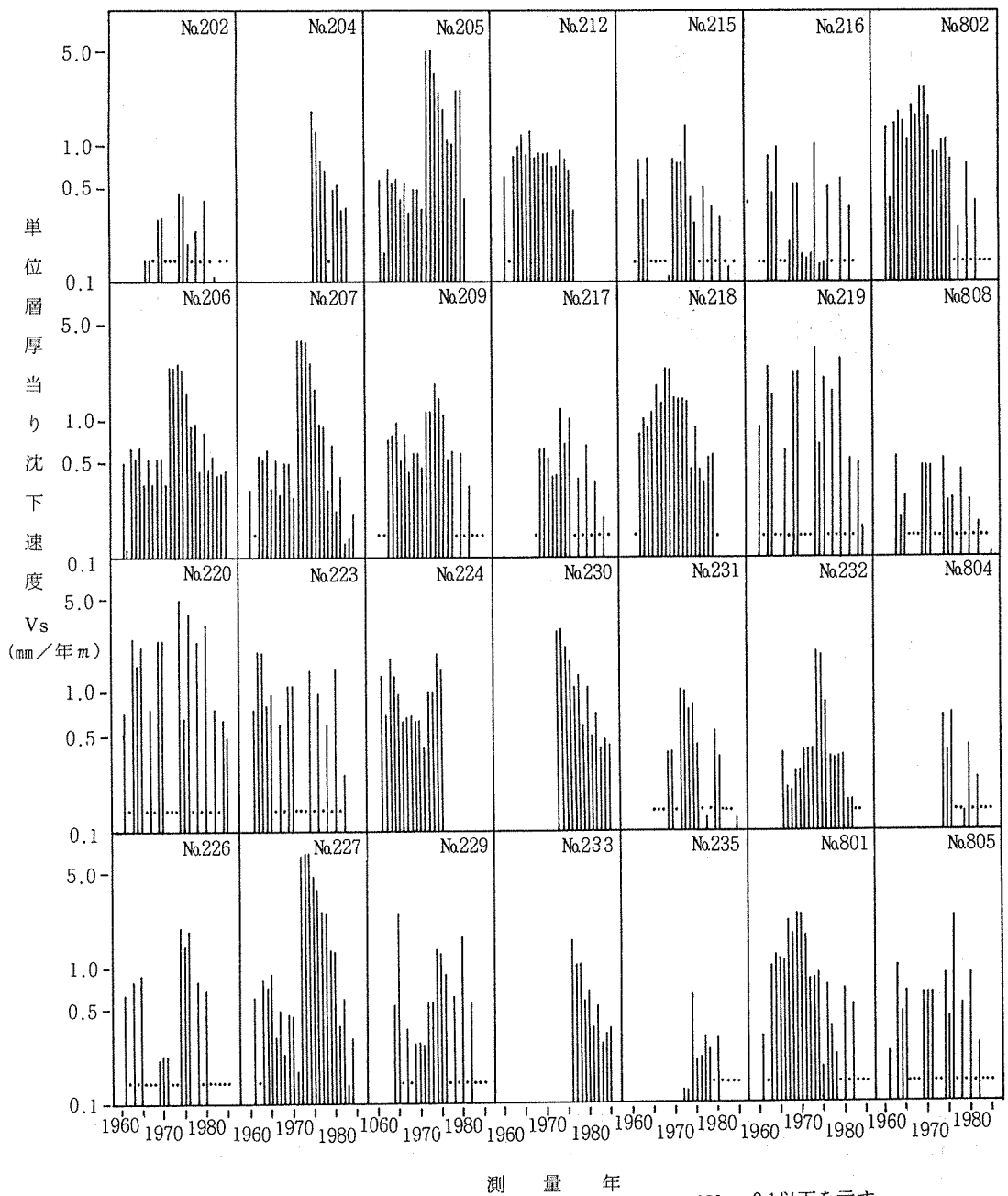
すように最大となった。

Vsが $1.0\text{ mm}/\text{年m}$ を超す地域は1974年頃を境に小さくなり、1976年頃になるとNo.212, No.215, No.216, No.217, No.218, No.801などの地点のVsが $1.0\text{ mm}/\text{年m}$ 以下となり、1980年頃になるとNo.206, No.207, No.209, No.204-1, No.226などが更に $1.0\text{ mm}/\text{年m}$ 以下となり、 $1.0\text{ mm}/\text{年m}$ を超えるVsの分布面積は最盛期の50%以下となった。1985年頃になると $1.0\text{ mm}/\text{年m}$ 以上の地点はみられなくなり、この地域のVsは全体的に鎮静化してきた。

以上のことから当低地のVsは1972年頃にNo.227, No.209, No.207を中心とした地域で大きく現われ、次第に周辺部に拡大していったように思われる。また、Vsでみる限り、軟弱地盤の層厚が薄い地域であってもVsは大きく現われることがあった。

図-13は1974年に最大値を示したNo.227を中心にして周辺部の水準点との関係をみたものである。

No.205, No.202はNo.227の北方向、No.232, No.224, No.230はNo.227の北東～東方向、No.209, No.212はNo.227の西方向、No.270, No.206, No.229はNo.227の西方向、No.219, No.220, No.223はNo.227の南西方向にそれぞれ位置しているが、No.227に近い地点はVsが大きく、一定の限度内では距離が遠ざかるにしたがいVsは小さくなっていった。



•は $V_s$  0.1以下を示す。  
 $V_s$ は単位層厚当り沈下速度 $mm/年m$

図-9  $V_s$  経年変化

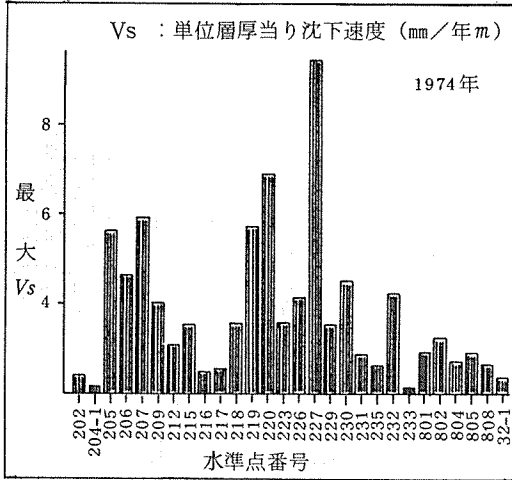


図-10 水準点別最大Vs

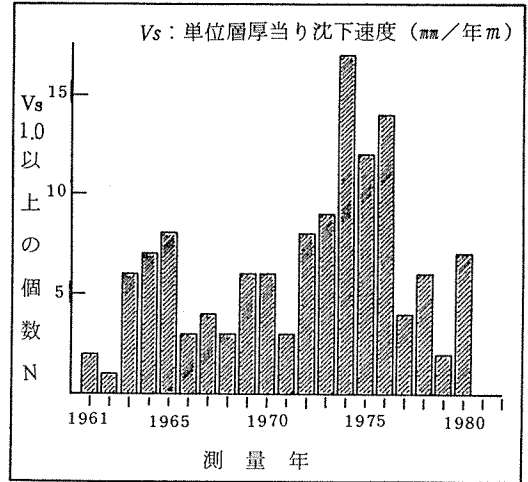


図-11 Vs1.0以上の測定年別頻度

また、No227を1976年で検討するとVsはやや小さくなり、No220とほぼ同様の値を示し、全体的に差がみられなくなってくる。更に1980年頃になるとVsと距離との相関は明確でなくなる。

### 5-2 地盤沈下予測

予測手法として双曲線法とテルツアギによる一次元圧密理論を用いた。

解析に使用した土質常数值などは表-3に示すとおりであり、解析結果を図-14に示した。

双曲線法では、適合を良くするため、どの期間の実測値を採用するかが重要である。ここではSfとSがほぼ一致する1975~1985年までの時系列データを採用し、予測検討開始年を1975年とし、2025年までを予測した。

図中で双曲線法から得られた予測値はSfで示し、実測値(地盤沈下)はSで示した。

予測結果においては予測値と実測値の相関は極めて良く、このままの傾向で沈下が推移するとすれば1986年以降の予測についても高い精度が得られるものと考えられる。

双曲線法による予測値Sfは1990年で約41.0cm、2000年で約43.7cm、2015年で約45.5cm、2025年で約46.2cmとなり、最終的には約49.5cmの沈下が予測された。

圧密理論による予測では図-8の地下水位モデルから1972年に地下水位がTP-3.5~-10.5mに約7m低下し続けた場合の予測(Sa)と1972年から6年経過後に水位が4m上昇し、そのままの状態が継続された場合の予測(Sb)を行った。

図-14のSaは地下水位が1972年から圧密終了まで7m低下し続けた場合の予測値であり、Sbは地下水位が

4m上昇し、そのままの状態が継続された場合の予測値である。

SaはSやSfと比較してやや大きな値となり、圧密終了は2025年で約48.5cmの予測となる。

Sbは1978年以降の地下水位上昇分を見込んだため、やや緩やかな曲線となりSやSfの値に近づき、1990年で38.4cm、2000年で39.3cm、2015年で41.0cm、圧密終了は2025年で41.1cmと試算された。

このようにSaとSbの比較ではSbの方がよりSに近い値を示すことから、沈下の予測解析では地下水位の上昇分を考慮した方がより実態に即しているように思われる。

#### 5-2-1 間隙水圧分布の解析方法<sup>24)~25)</sup>

圧密沈下を解析するうえで圧密層内の間隙水圧分布の経時変化を知ることが必要である。

地下水位は圧密層の下部砂礫層から低下し始め上部圧密層に及んでいくが、これを模式図で示すと図15のようになる。地下水位低下時点から任意の時間が経過したときの間隙水圧はABCの分布を示し、有効増加応力(ΔP)はBCDを囲む範囲内で発生する。この時圧密層内の間隙水圧U(z,t)の分布は

$$\frac{\partial u}{\partial t} = C_v \frac{\partial^2 u}{\partial z^2} \dots\dots\dots(1)$$

を境界条件

$$u(0,t) = 0 \dots\dots\dots(2)$$

$$u(2H,t) = 0 \dots\dots\dots(3)$$

と初期条件

$$u(z,0) = (z/2H) \cdot \Delta h \cdot \gamma_w \dots\dots\dots(4)$$

を用いて解くことで得られる。

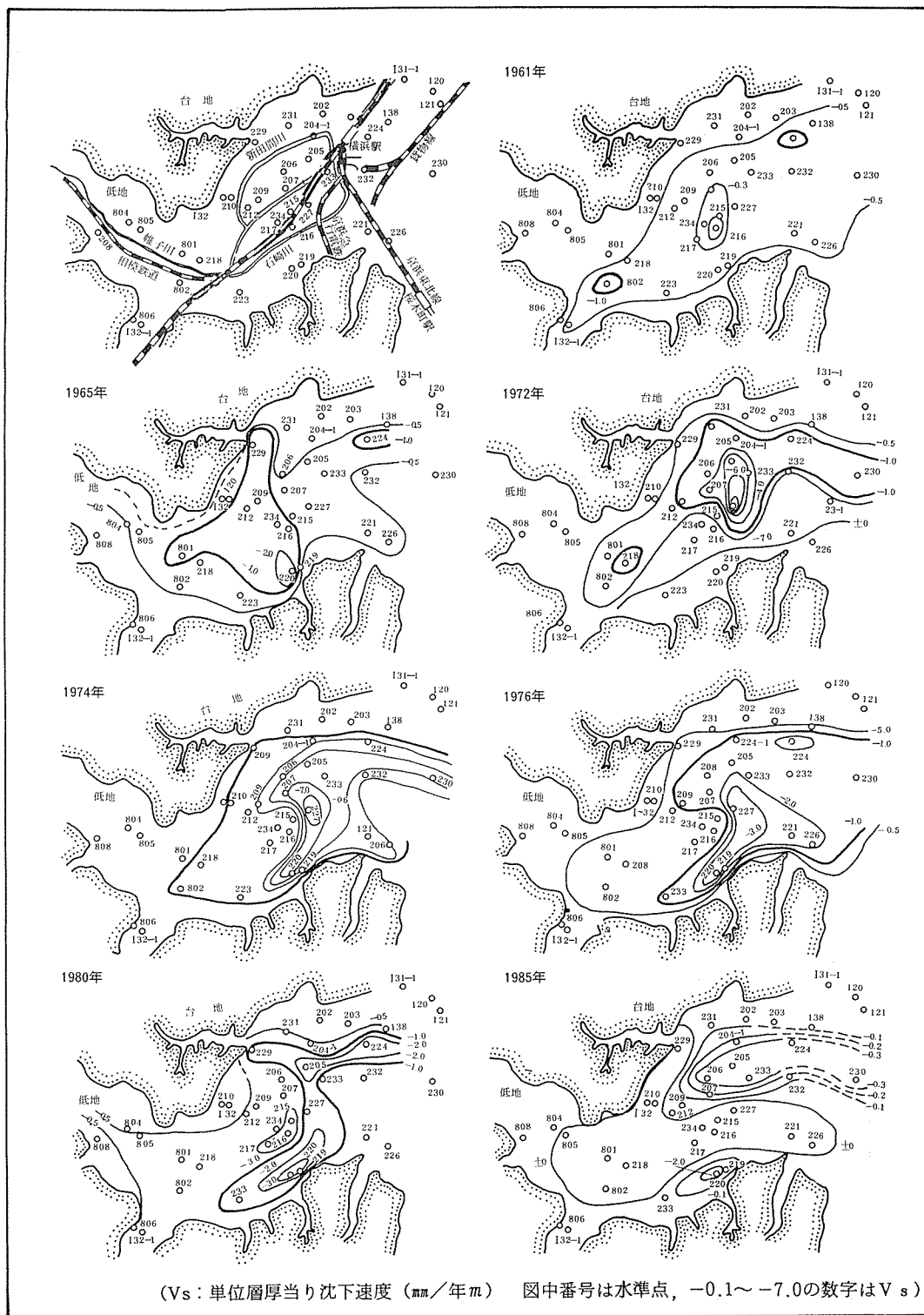


図-12 Vsと距離との関係

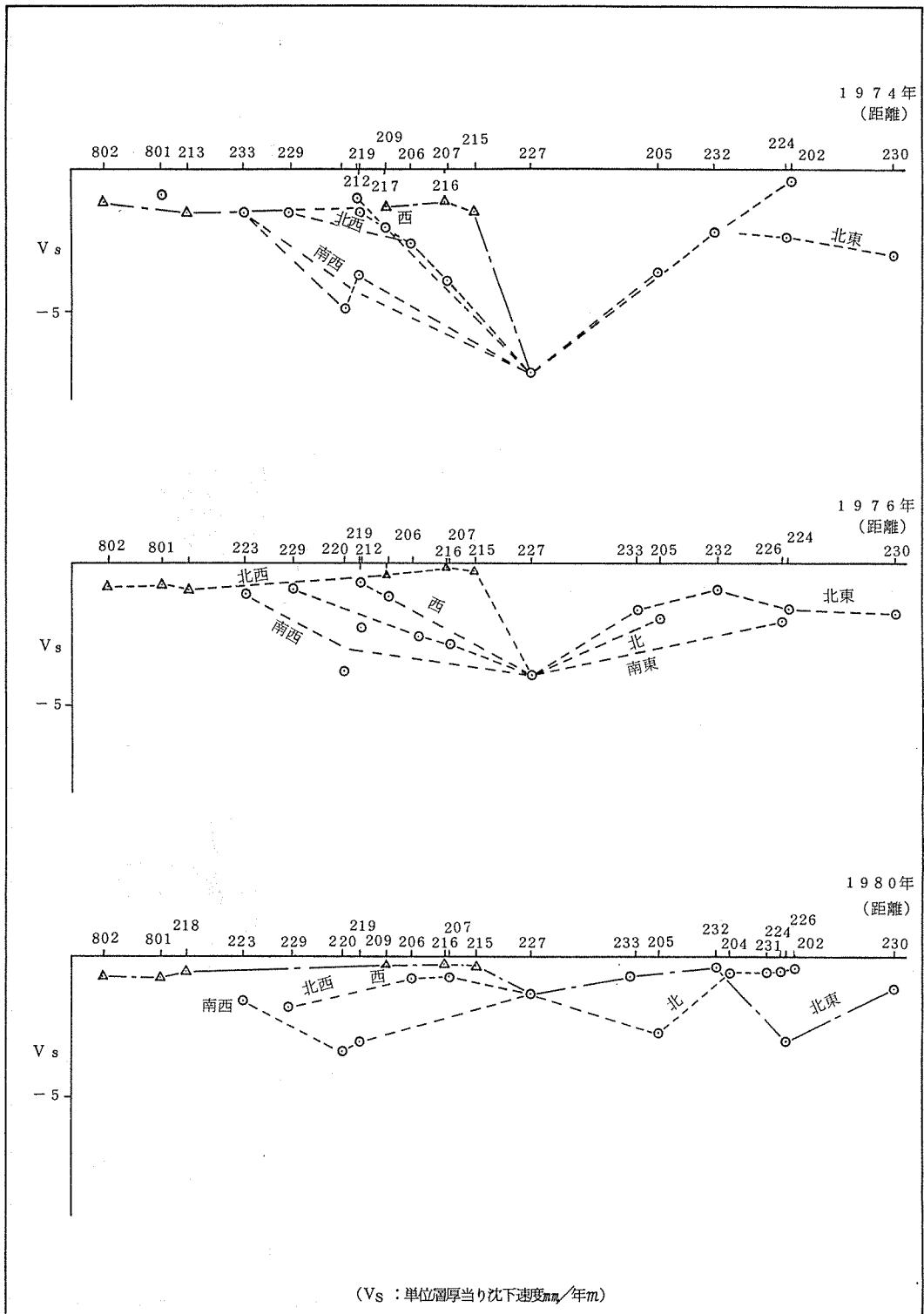


図-13 Vs と距離との関係

表-3 土質常数值表

層別	地下水位低下時期(西暦年)	深度(m)	層高2H(m)	有効増加応力 $\Delta P(\text{kgf}/\text{cm}^2)$	体積圧縮係数 $m_v(\text{cm}^3/\text{kgf})$	圧密係数 $C_v(\text{cm}^2/\text{day})$
A 層	1972~1978	0~12.3	12.3	0.170	$4.5 \times 10^{-2}$	$1.04 \times 10^3$
	1978~1985	"	"	0.075	"	"
B 層	1972~1978	12.3~26.0	13.7	0.510	$5.6 \times 10^{-2}$	"
	1978~1985	"	"	0.220	"	"

(岡野公園地盤沈下観測所例)

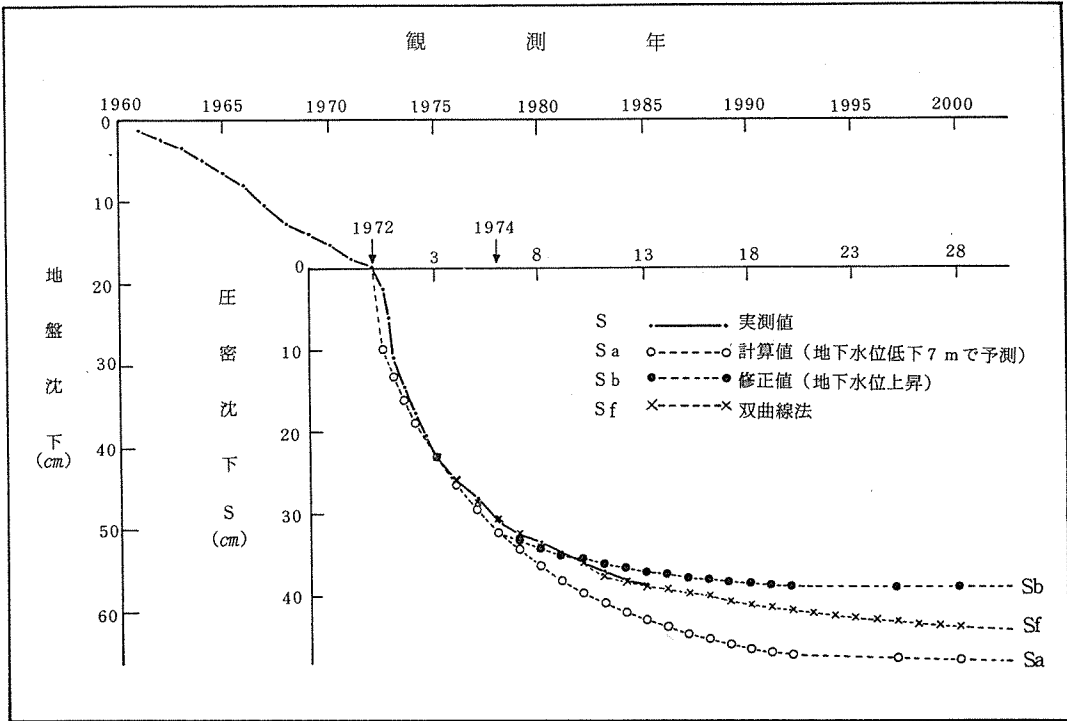


図-14 地盤沈下の経年変化と沈下予測

ただし  $C_v$ : 圧密係数( $\text{cm}^2/\text{day}$ )  
 $2H$ : 圧密層厚( $\text{cm}$ )  
 $\Delta h$ : 地下水位の低下量( $\text{cm}$ )  
 $\gamma_w$ : 水の密度( $\text{g}/\text{cm}^3$ )

(1)式の解析解は

$$u(z, t) = \frac{2}{\pi} \cdot \Delta h \cdot \gamma_w \sum_{n=1,2,3,\dots}^{\infty} \frac{(-1)^{n+1}}{n} \exp(-n^2 \cdot N \cdot t) \sin \frac{n\pi z}{2H}$$

ただし  $N = \pi^2 \cdot C_v / (4H^2)$

で与えられるが、今回は(1)式を差分式に変換して、図-8の地下水位モデル図から間隙水圧分布の経時変化を考察した。

図-16は縦軸に深度( $z$ )、横軸に時間( $t$ )をとり、 $z$ と $t$ の差分間隔 $\Delta z, \Delta t$ 及び格点番号を示したもので、この時( $i, j$ )点における(1)式の差分式は次式で与えられる。

$$u_{i,j+1} = \frac{C_v \Delta t}{\Delta z^2} (u_{i-1,j} + u_{i+1,j}) + \left(1 - \frac{2C_v \Delta t}{\Delta z^2}\right) u_{ij} \quad \dots\dots(6)$$

ここで

$$\Delta t = \frac{\Delta z^2}{2C_v} \quad \dots\dots(7)$$

とすれば(6)式は

$$u_{i,j+1} = \frac{1}{2} (u_{i-1,j} + u_{i+1,j}) \quad \dots\dots(8)$$

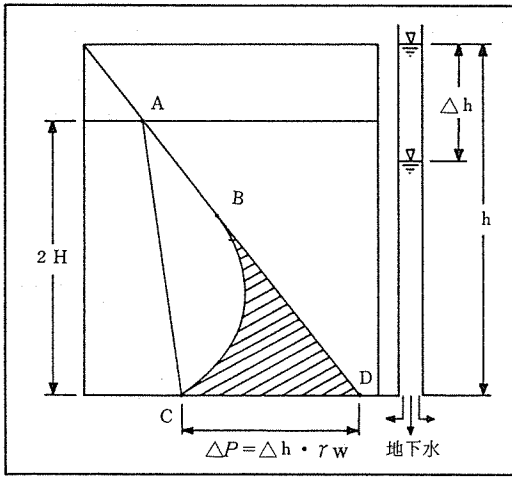


図-15 間隙水圧分布モデル

となって時間  $0 + j\Delta t$  で深さ  $0 + (i-1)\Delta z$  及び  $0 + (i+1)\Delta z$  の  $U$  が既知であれば時間  $0 + (i+1)\Delta t$  で深さ  $0 + i\Delta z$  での  $U$  が数値として得られる。

### 5-2-2 間隙水圧分布の解析結果

図-17は下位層の地下水位低下に伴う圧密層の間隙水圧分布の経時変化を示したものである。 $U_1 \sim U_{13}$  はそれぞれ4, 8, 12, 16, 20, 24, 36, 48, 72, 96, 104, 240, 336ヶ月を示したもので、1972年にADだった間隙水圧( $U$ )はABCのように減少し、この時間発生する有効増加応力( $\Delta P$ )はBDCから約4ヶ月経過して $U_1$ となる。地下水位低下から6年経過すると $U$ は $U_9$ の線まで減少し、 $\Delta P$ はAD, DC,  $U_9$ を結ぶ範囲に増加する。 $U_9$ に達した時の $\Delta P$ の割合は全体の約65%を占め、圧密層全体に拡がっていることが分る。 $U$ がこのままの状態で行進すればAC(終期水圧)に達する年数は約53年後と試算され、2025年に圧密終了となる。

実際には1978年以降の地下水位は上昇したため、 $U$ はC( $U_9$ )から増加し、 $\Delta P$ は減少して、最終的に $U$ はAECの範囲になり、ADE分だけの $\Delta P$ が残留して継続されることになる。

## 6. まとめ

帷子川低地における軟弱地盤特性と地盤沈下特性を検討した結果、次のような知見が得られた。

1) 軟弱地盤の粘土質海成層( $AC_2 - Ch$ )は市内の他低地の $AC_2 - Ch$ 層より若干軟弱であり、自然含水比や圧縮指数などでは深度約12~28mが特に大きかった。したがって今後地下水位などが低下すれば当深度での圧密沈下が大きく現われるものと考えられる。

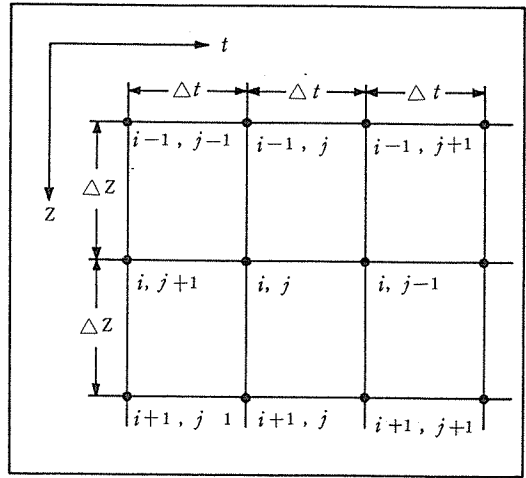


図-16 差分格子

2) 当低地の単位層厚当り沈下速度 ( $V_s$ : mm/年m) は1974年頃が最大であり、中でも特に水準点No.227, No.209, No.207 付近の地域が大きかった。

3) 1975~1985年までの実測沈下の時系列データで予測した双曲線法予測値は実測値によく適合し、1986年以降の予測値についても高い精度が得られるものと思われた。双曲線法の予測結果は1990年には約41.0 cm、2000年約43.7 cm、2015年約45.5 cm、2025年約46.2 cmとなり、最終沈下は約49.5 cmが予測された。

また、一次元圧密理論から試算した結果においては地下水位の上昇分を見込んだ予測値は実測値とよく一致し、実態に即した方法と考えられた。予測結果では圧密終了時期が2025年、最終沈下は39.7 cmとなった。この値は双曲線法による予測値46.2 cmに比べ、約6.5 cm小さい値となった。この差が生じた理由として、二次圧密や圧密常数などの分類上の問題が考えられるが、この点双曲線法は時系列データを採用しているため、あらゆる要因が含まれて予測されたためと考える。

このように今回は一次元圧密理論予測よりも双曲線による予測が実測値により近い結果となった。

4) 地下水位低下に伴う圧密層の間隙水圧分布は経時的に変化し、1972~1978年の6年間(地下水位低下が最大期間)ですでに全体の約65%が減少しており、これが完全に消散する時期は2025年頃と試算された。

## 今後の課題

軟弱地盤の沈下に関する調査研究においては全市域の既存ボーリング資料収集整理に取り組み、地質層区分や土質工学的性質等から軟弱地盤を解明してきた。



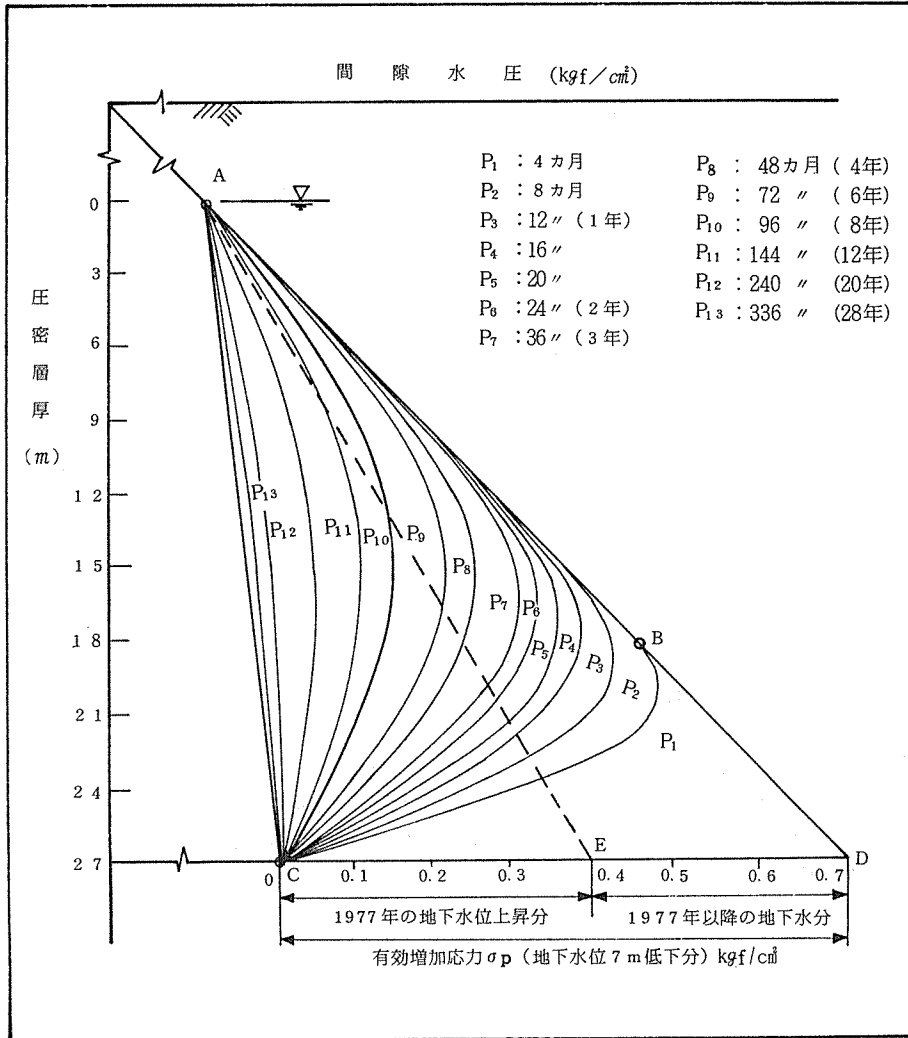


図-17 間隙水圧分布の経時変化

また、地盤沈下観測所データ及び精密水準測量データ等から本市の地盤沈下の特性を明らかにしてきた。

これらの調査結果を基に精度の高い地盤環境の保全対策に向けて現在作業を進めている。

現在マクロ的には全市域の軟弱地盤構造と地盤沈下特性は把握され、圧密沈下予測の解析も可能であるが、細部に渡っては本市の地形地質があまりにも複雑であるため、今後は更にミクロ的な面から軟弱地盤の特性を明らかにし、調査結果の精度を更に向上させる必要がある。

## 謝 辞

この調査を進めるに当り、関係各機関から多数の資料を借用致しました。また、地盤沈下関係については公害対策局水質課の資料を使用し解析致しました。本論をまとめるに当っては横浜国立大学土木工学科の今井教授の御指導をいただきました。これらの方々に深く感謝いたします。

## 文 献

- 1) 横浜市公害対策局：横浜駅周辺地盤沈下解析委託報告書資料，1～57(1979)
- 2) 杉本実：戸塚駅周辺の地盤沈下について，横浜市

- 公害研究所報第5号, 199~218(1980)
- 3) 杉本実: 新横浜駅周辺の地盤沈下について, 横浜市公害研究所報第6号, 183~200(1981)
  - 4) 杉本実: 横浜南部沿岸地域の軟弱地盤構造と地盤沈下特性について, 第20回土質工学研究発表講演集, 85~86 (1985)
  - 5) 横浜市公害研究所: 横浜市南部沿岸地域の軟弱地盤層調査報告書, 公害研資料No.59, 1~56(1984)
  - 6) 杉本実, 赤石勝: 横浜の地盤沈下に関する一考察, 第21回土質工学研究発表講演集, 70~71(1986)
  - 7) 杉本実, 梅原順造: 軟弱地盤の沈下に関する調査研究, 第2報(軟弱地盤層の沈下予測に関する一考察), 横浜市公害研究所報第11号, 169~180(1986)
  - 8) 杉本実, 梅原順造: 時系列データを用いた軟弱地盤の沈下予測, 第11回公害研究合同発表会講演要旨集, 10~12(1987)
  - 9) 杉本実, 梅原順造: 横浜の軟弱地盤構造と地盤沈下特性, 第22回土質工学研究発表講演集, 131~132 (1987)
  - 10) 三梨昂, 菊地隆男: 横浜地域の地質, 地質調査所, 1~96(1982)
  - 11) 岡重文, 菊地隆男, 桂島茂: 東京西南部地域の地質, 地質調査所, 1~148(1964)
  - 12) 三梨昂, 外: 東京湾とその周辺地域の地質, 地質調査所, 1~60(1979)
  - 13) 稲田倍徳: 土質工学, 鹿島出版会, 70~71(1985)
  - 14) 小野・星・加藤・三木共訳: 土質力学(テルツァギ・ベック)基礎編, 丸善, 1~225(1966)
  - 15) 山内豊聡: 土質力学, 理工図書, 1~77(1965)
  - 16) 今井五郎: わかりやすい土の力学, 鹿島出版会 1~258(1983)
  - 17) 横浜市公害研究所: 10年のあゆみ横浜市公害研究所設立10周年記念誌, 公害研資料No.76, 90~115(1987)
  - 18) 横浜市公害研究所: 横浜市地盤環境図(2.5万分の1) 軟弱地盤の等厚分布とボーリング位置図(1987)
  - 19) 横浜市公害研究所: 横浜市地盤環境図(2.5万分の1) 軟弱地盤の砂質土層と腐植土層等厚分布図(1987)
  - 20) 横浜市公害研究所: 横浜市地盤環境図(2.5万分の1) 軟弱地盤の粘性土層等分布図(1987)
  - 21) 横浜市公害研究所: 横浜市軟弱地盤層調査報告書, (土質試験データ図集), 1~217(1987)
  - 22) 横浜市公害対策局: 横浜市地盤沈下報告書(1973~1986)
  - 23) 横浜市公害対策局: 横浜市水準測量成果表(1959~1986)
  - 24) 大阪地盤編集委員会: 大阪地盤, 土質工学会, 337
  - 25) J.M. マコーミック, M.G. サルバドリ(清水留三郎訳): FORTRANによる数値計算プログラム, サイエンス社, 116~118(1975)

# 横浜港水域の高級脂肪酸濃度

大場 栄次\*

## 1. はじめに

水中の高級脂肪酸は、人為的には石ケン、あるいは動植物油脂を使用した排水から供給される。また、高級脂肪酸は高等生物から微生物にいたるまで、あらゆる生物に含まれており、 $C_{12}$  から  $C_{34}$  にわたる脂肪酸としては、バクテリア脂質に比較的多く存在する枝鎖脂肪酸、プランクトンなどの生体に普遍的に存在する  $C_{16}$ 、 $C_{18}$  などを主成分とする脂肪酸、あるいは植物ワックスの  $C_{20}$  以上の脂肪酸などがあり<sup>1)</sup>、何らかの機会に水中に移行する。

これまで、横浜市内の河川水中の高級脂肪酸濃度の調査を実施してきたが<sup>2),3)</sup>、今回は横浜港及び横浜港に流入する河川の河口部の水域について調査した。

## 2. 調査方法

### 2-1 調査地点及び調査時期

調査は昭和61年7月、8月、11月、62年1月及び6月の4回実施した。調査地点は横浜港及び、横浜港に流入する河川の河口付近である。図-1に調査地点を示す。

### 2-2 分析方法

高級脂肪酸は図-2に示す<sup>2)</sup>高速液体クロマトグラフ法により分析した。ここで使用した分離カラムは逆相分配によるカラムであるため、中和価の大きい方、すなわち極性の強い方から順に検出される。この方法によりおおよそ中和価が190から300までの高級脂肪酸が検出される。

## 3. 結果および考察

昭和61年7月～62年6月までの4回の調査結果を表-1、表-2に示す。また前報の流入する河川の上中流

部の結果と今回の結果を加えて図-3に示した。検出された高級脂肪酸はラウリン酸 ( $C_{12:0}$ 、中和価280)、ミリスチン酸 ( $C_{14:0}$ 、中和価246)、パルミチン酸 ( $C_{16:0}$ 、中和価219)、ステアリン酸 ( $C_{18:0}$ 、中和価197)、オレイン酸 ( $C_{18:1}$ 、中和価199)及びリノール酸 ( $C_{18:2}$ 、中和価201) (ただし  $C_m:n$  の  $C_m$  は炭素数、 $n$  は二重結合の数を示す) の6種類であった。

総高級脂肪酸濃度 (検出された6種類の高級脂肪酸

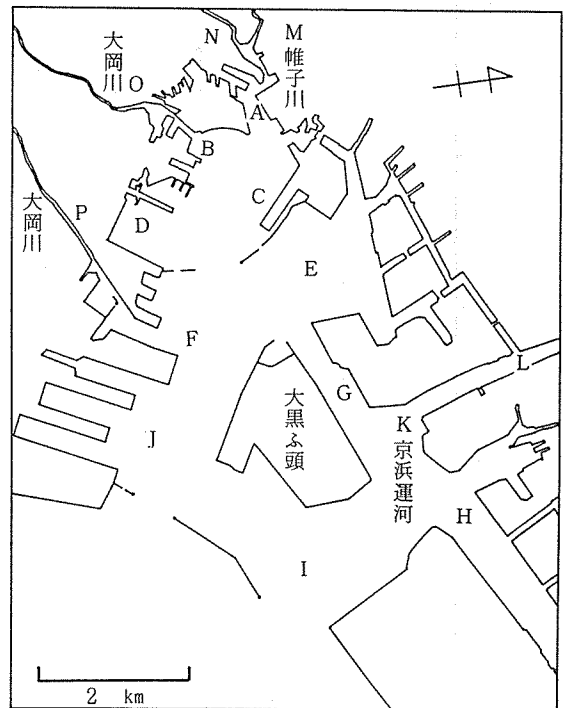


図-1 調査地点

Distribution of Fatty acids in Port of YOKOHAMA

\*Eiji Ohba 横浜市公害研究所水質部門

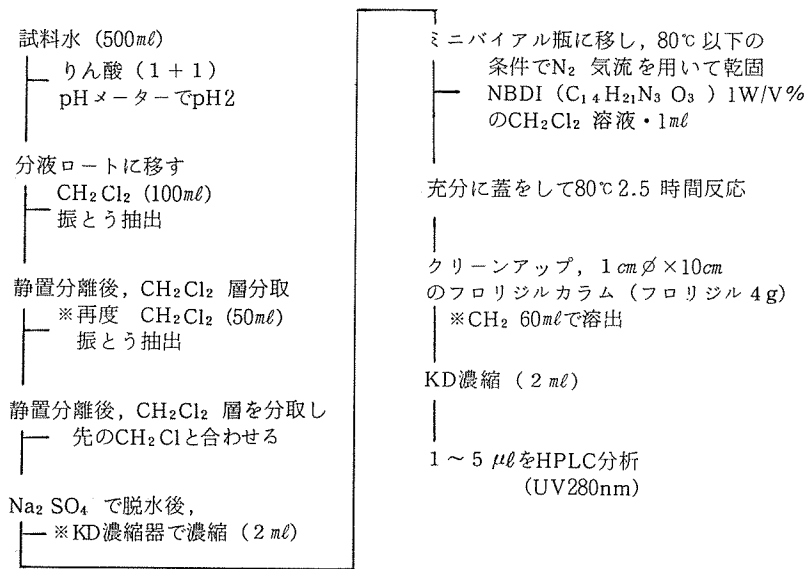


図-2 高級脂肪酸分析フロー

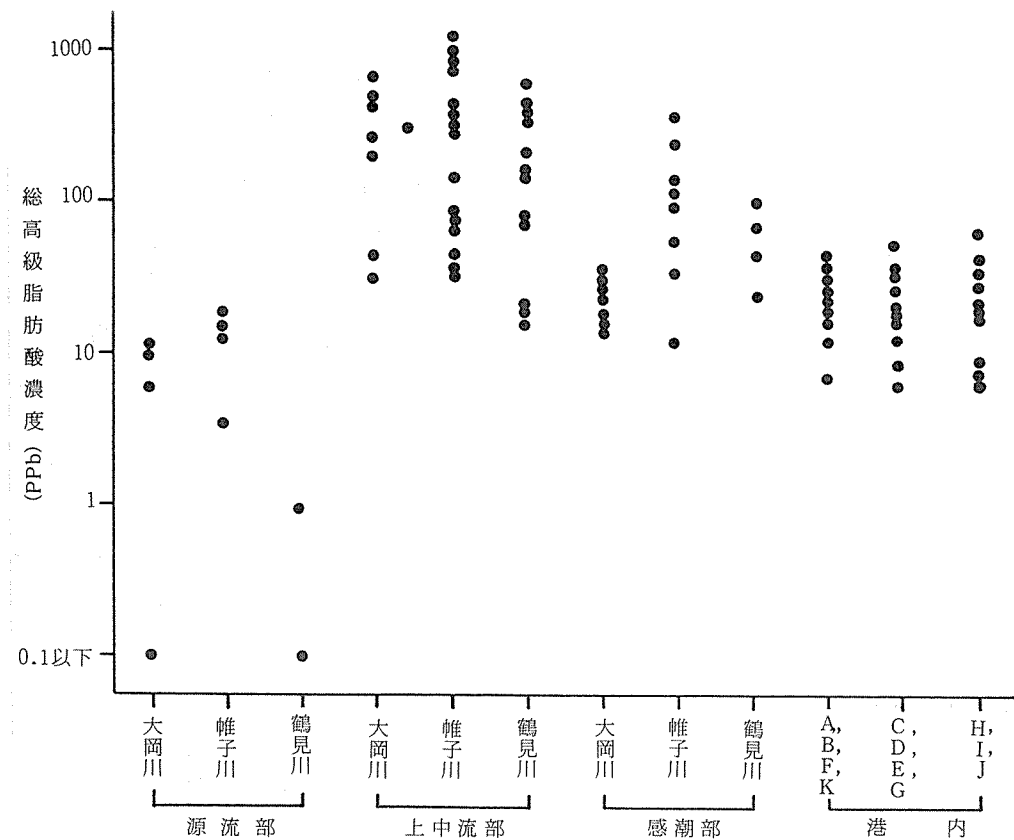


図-3 横浜港及び流入河川の総脂肪酸濃度

表一 横浜港水域の高級脂肪酸濃度

調査地点	調査月日	ラウリン酸 ppb	ミリスチン酸 ppb	パルミチン酸 ppb	ステアリン酸 ppb	オレイン酸 ppb	リノール酸 ppb	総高級脂肪酸 ppb	塩分 %
L 鶴見大橋 (鶴見川)	61年 8月	1.1	0.4	8.9	8.6	3.1	2.0	24.1	6.0
	61年11月	1.1	0.8	13.6	16.3	5.9	2.7	40.4	13.7
	62年 1月	1.4	1.1	33.3	48.4	9.5	5.3	99.0	12.7
	62年 6月	1.4	1.0	24.3	32.3	5.5	4.5	69.0	7.7
M 月見橋 (帷子川)	61年 8月	0.7	0.3	4.1	3.0	2.2	1.3	11.6	5.1
	61年11月	1.9	2.4	32.8	45.2	13.8	7.5	104	2.6
	61年 1月	1.6	1.8	44.9	73.1	15.3	7.8	145	7.2
	62年 6月	0.9	1.0	19.4	25.9	4.2	2.8	54.2	2.3
N 築地橋 (帷子川)	61年 8月	1.4	0.6	9.9	14.2	5.3	3.8	35.2	3.7
	61年11月	5.5	5.9	75.1	104	43.8	14.6	249	1.4
	62年 1月	4.6	7.3	116	160	67.6	20.2	376	5.8
	62年 6月	1.8	2.2	32.4	43.5	7.8	6.8	94.5	2.2
O 弁天橋 (大岡川)	61年 8月	1.1	1.3	7.2	4.0	4.7	2.4	20.7	10.6
	61年11月	1.0	0.4	5.9	5.6	3.7	1.7	18.3	26.1
	62年 1月	1.0	0.4	10.8	13.6	4.3	2.3	32.4	27.0
	62年 6月	0.8	0.3	8.9	11.7	1.7	1.5	24.9	13.8
P 新山下橋 (大岡川)	61年 8月	1.1	0.3	5.3	2.9	2.9	2.2	14.7	17.3
	61年11月	1.2	0.3	5.9	4.9	3.2	1.8	17.3	27.0
	62年 1月	0.8	0.4	9.4	11.4	3.6	1.8	27.4	28.0
	62年 6月	0.9	0.3	12.9	19.8	2.2	2.0	38.1	23.3
A 帷子川河口先	61年 7月	0.4	0.8	11.0	9.5	6.9	3.5	32.1	15.6
	61年11月	0.9	1.0	11.7	11.7	5.3	2.2	32.8	27.3
	62年 1月	0.8	0.6	9.7	11.5	2.9	2.6	28.1	28.1
	62年 6月	1.4	0.5	10.4	14.5	3.0	7.3	37.1	28.3
B MM21先	61年 7月	1.3	0.3	10.2	6.5	2.8	2.9	24.0	24.3
	61年11月	0.5	0.2	2.5	1.9	1.4	0.7	7.2	28.1
	62年 1月	0.6	0.4	6.2	7.5	1.2	1.7	17.6	28.1
	62年 6月	0.8	0.3	8.3	8.8	1.6	3.5	23.3	29.5
C 瑞穂埠頭先	61年 7月	1.4	0.3	9.8	2.9	2.8	3.6	20.8	23.3
	61年11月	0.6	0.3	2.9	1.6	1.6	1.2	8.2	28.7
	62年 1月	0.9	0.4	5.4	6.2	1.2	1.9	16.0	27.7
	62年 6月	1.4	0.4	11.4	10.1	2.9	6.8	33.0	29.5
D 山下公園先	61年 7月	1.0	0.3	11.1	2.8	2.6	3.5	21.3	22.9
	61年11月	0.7	0.3	2.8	1.9	1.8	1.0	8.5	28.6
	62年 1月	0.6	0.3	6.5	7.1	1.5	1.6	17.6	23.2
	62年 6月	1.5	0.4	14.3	11.8	2.4	5.6	36.0	29.4
E 恵比須町先	61年 7月	0.8	0.2	9.8	3.2	2.2	3.4	19.6	24.8
	61年11月	0.6	0.3	2.1	1.2	1.1	0.8	6.1	29.0
	62年 1月	0.6	0.3	6.3	7.6	1.2	1.7	17.7	28.0
	62年 6月	2.1	0.6	21.6	18.2	3.7	8.8	55.0	29.7
F 本牧A突堤先	61年 7月	0.9	0.3	6.9	2.2	2.6	3.2	16.1	25.1
	61年11月	0.7	0.3	2.7	1.3	0.9	1.1	7.0	28.9
	62年 1月	0.6	0.3	8.1	7.5	1.4	1.7	19.6	28.1
	62年 6月	1.6	0.4	18.9	16.1	3.1	6.3	46.4	29.9

表1のつづき

調査地点	調査月日	ラウリン酸 ppb	ミリスチン酸 ppb	パルミチン酸 ppb	ステアリン酸 ppb	オレイン酸 ppb	リノール酸 ppb	総高級脂肪酸 ppb	塩分 %
G 大黒大橋	61年 7月	0.9	0.3	8.0	2.8	2.4	3.4	17.8	24.3
	61年11月	0.8	0.4	5.7	3.4	1.3	1.8	13.4	28.8
	62年 1月	0.8	0.3	6.3	8.0	1.5	1.5	18.4	28.4
	62年 6月	1.6	0.4	15.2	11.6	3.5	6.4	38.7	30.1
H 末広町先	61年 7月	1.2	0.3	7.5	3.1	2.0	3.5	17.6	25.5
	61年11月	0.7	0.2	3.0	1.8	2.2	0.9	8.8	28.9
	62年 1月	0.7	0.3	7.6	10.0	1.7	1.8	22.1	28.2
	62年 6月	1.4	0.3	13.1	10.9	3.0	5.2	33.9	30.0
I 扇島・ 大黒埠頭周	61年 7月	0.8	0.3	11.0	2.6	2.0	3.2	19.9	24.0
	61年11月	0.6	0.2	2.3	1.4	1.0	0.7	6.2	28.6
	62年 1月	0.7	0.4	6.8	8.8	1.7	1.8	20.2	27.5
	62年 6月	1.8	0.5	18.0	12.2	3.4	7.3	43.2	28.8
J 本牧C突堤先	61年 7月	6.5	4.9	15.0	20.3	8.2	7.2	62.1	25.4
	61年11月	0.7	0.2	2.7	1.6	1.5	0.9	7.6	29.6
	62年 1月	0.8	0.3	6.2	7.3	1.7	1.8	18.1	28.5
	62年 6月	1.3	0.3	12.4	9.0	1.7	4.7	29.4	30.5
K 鶴見川 河口先	61年 7月	0.9	0.4	5.7	3.6	2.4	2.4	15.4	23.0
	61年11月	0.8	0.3	4.1	2.0	3.6	1.7	12.5	28.8
	62年 1月	0.9	0.4	11.3	12.2	3.5	2.9	31.2	28.4
	62年 6月	1.2	0.4	12.0	13.1	2.2	4.3	33.2	28.8

備考： 採点は10時から12時の間に行った。採水月日及び当日の潮汐はつぎの通り

地点L～P	61年 8月 6日	満潮	4時45分	干潮	11時35分
	61年11月26日	干潮	5時49分	満潮	12時55分
	62年 1月28日	干潮	10時14分	満潮	15時26分
	62年 6月22日	干潮	8時20分	満潮	15時18分
地点A～K	61年 7月23日	満潮	5時20分	干潮	12時22分
	61年11月13日	干潮	8時54分	満潮	15時12分
	62年 1月13日	干潮	10時 7分	満潮	15時34分
	62年 6月18日	満潮	9時23分	干潮	15時58分

表一 2 横浜港内及び河口域における高級脂肪酸濃度（平均値）

	ラウリン酸	ミリスチン酸	パルミチン酸	ステアリン酸	オレイン酸	リノール酸	総脂肪酸
港内11地点							
濃度 (ppb)	1.1	0.5	8.7	7.3	2.5	3.2	23.2
構成比 (%)	4.7	2.0	37.7	31.3	10.6	13.7	100.0
河川5地点							
濃度 (ppb)	1.6	1.4	24.1	32.4	10.5	4.8	74.7
構成比 (%)	2.1	1.9	32.2	43.4	14.1	6.4	100.0
全地点							
濃度 (ppb)	1.2	0.8	13.5	15.1	5.0	3.7	39.3
構成比 (%)	3.1	2.0	34.4	38.5	12.7	9.3	100.0

濃度の和)は港内11地点の平均は23.2ppb, 河川5地点の平均は, 74.7ppb であり, 港内では河川のおおよそ $\frac{1}{3}$ の濃度であった。

種類別に見ると, 港内ではもっとも平均濃度が高かったのはパルミチン酸8.7ppb であり, 次いでステアリン酸7.3ppb, 以下リノール酸, オレイン酸, ラウリン酸, ミリスチン酸の順であった。河川ではステアリン酸43.4ppb がもっとも高く, 次いでパルミチン酸32.3ppb 以下, オレイン酸, リノール酸, ラウリン酸, ミリスチン酸の順であった。

調査地点別にみると, 総高級脂肪酸濃度で河口では62年1月調査時の, 帷子川のM月見橋(145ppb)とN築地橋(376ppb), 61年11月調査時のM築地橋(249ppb)で100ppb を超える濃度となり, 他の地点に比べ著しく高かった。築地橋は60年2月に1000ppb 以上となったことがある地点<sup>3)</sup>であり, そのときに比較すれば今回は低濃度であった。帷子川, 鶴見川河口に比較して大岡川河口の弁天橋, 新山下橋では各調査時期とも, 低い値を示した。

横浜港内では, 帷子川河口先にあたるA地点では, 各調査時期を問わず高濃度値を示していたが, 鶴見川河口先のK地点, 大岡川河口先のB地点, F地点などでは比較的低濃度になっていた。

横浜の港内は, 流入する河川の河口から遠ざかった地点ほど高級脂肪酸の濃度が低くなった。また, 河口

付近の地点を除き, 11月の濃度が最低となった。

しかし, これらの河口先海域の濃度は, 横浜港内の濃度に比べればいずれも高く, 流入する河川の影響を多く受けていると考えられた。

#### 4. おわりに

横浜港及び横浜港に流入する河川の河口の水域について高級脂肪酸濃度を調査した結果から, 横浜港内は各河川の影響を受けていることがわかった。

この報告では, 濃度の調査結果の報告だけにとどめたが, 高級脂肪酸は人為由来のほか, 特に赤潮等生物など生物由来のものもあり, 水中への供給, 増減の要因などについても調査したいと考えている。

#### 文 献

- 1) 小山恩四郎: 生物地球化学, 環境科学への基礎と応用, p-169-178, 東海大学出版会(1980).
- 2) 大場栄次: 市内河川における脂肪酸濃度分布について, 横浜公害研究所報, 9, 145-150 (1984)
- 3) 大場栄次: 高級脂肪酸による市内河川の水質汚濁状況とその評価, 横浜市公害研究所報, 11, 133-142 (1986)
- 4) 山手重好, 色部航: 脂肪酸化学(改訂増補版) 幸書房(1964)

## 魚類の簡易呼吸量測定法

齋藤 治子\*

### 要 旨

1.5ℓ容量のガラス製気密容器を用いた、水中溶存酸素消費量による魚類の呼吸量の簡易な測定法について、コイを用いて試みた結果、最終溶存酸素濃度を5.0mg/ℓ以上で、測定時間20分にして測定し、 $319 \pm 8 \mu\text{g/g} \cdot \text{hr}$ と、精度も良く、安定した測定結果を得ることができた。水質汚濁の魚類の鰓呼吸に与える影響を知る方法として有効であることがわかった。

### 1. はじめに

従来、魚類の呼吸量は、水中の酸素分圧をマンメータ等を用いて測定したり<sup>1)</sup>、開放系の流水中に魚を投入し、流入前後の水中の溶存酸素量を測定し、その減少量から測定する方法<sup>2)</sup>が用いられて来た。マンメータを用いる方法では、測定手技の良否が測定値に影響を与えるため技術的に高度な熟練を要求された。また、開放系の流れによる方法では、流れによる水表面からの酸素の取り込みによる誤差も考えられ、装置も大型となっていた。

そこで、今回、気密性のあるガラス容器を用いて魚類の呼吸量の測定を行い、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孵化し、2ヶ月を経たコイの稚魚を選別後約1年間蓄養し、20℃に2週間馴化した後、健康なもの90尾を用いた。コイの平均体重は $16.93 \pm 1.86 \text{g}$ 、体長は $8.83 \pm 0.6 \text{cm}$ である。これをランダムに8群に分け試験に供した。

また、試験2日前から無給餌とした。

#### 2-2 呼吸量の測定法

図1に示す、約1.5ℓ容量のガラス製気密容器に溶存酸素飽和の脱塩素上水道水を満たす。そこに測定魚を静かに投入し、直ちに空気が容器内に残らないように注意しながら栓をして密閉をした後に、暗箱に放置す

る。その前後の溶存酸素量をウインクラージ化ナトリウム法により測定し、その酸素消費量から、次式により呼吸量を求める。

$$R = \frac{D_1 - D_2}{W \cdot t} \times (V - v) \times 60$$

R: 魚の呼吸量 ( $\mu\text{g/g} \cdot \text{hr}$ )

D<sub>1</sub>: 魚投入前の溶存酸素量 ( $\mu\text{g/ml}$ )

D<sub>2</sub>: 魚投入 t 分放置後の溶存酸素量 ( $\mu\text{g/ml}$ )

W: 魚の体重 (g)

t: 呼吸量測定時間 (分)

V: 気密容器の水量 (ml)

v: 魚の容積 (ml)

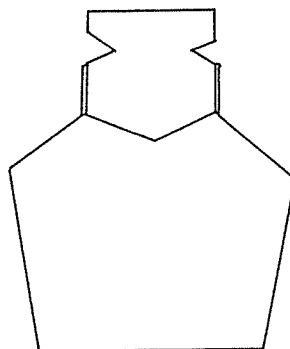


図-1 気密型呼吸量測定器

A method of simple measurement for respiratory volume.

\* Haruko Saito, 横浜市公害研究所水質部門



表 1 各種条件における呼吸量の測定結果 (測定時間20分)

尾 数	最終溶存酸素量 $\mu\text{g}/\text{ml}$	5 以 上		
		5 未 満	3 以 上	3 未 満
1 尾	空隙無	274 ± 17(5)	361 ± 51(2)	
2 ~ 4 尾	空隙無	406 ± 46(2)	466 ± 16(4)	434 ± 37
3 ~ 4 尾	空隙有		282 ± 7(2)	240 ± 5 (2)*

数 値 :  $x \pm \text{SD } \mu\text{g}/\text{g} \cdot \text{hr}$  , ( )内 : 繰返し数

\* : 有意差有り (  $P < 0.001$  )

### 3. 結果および考察

表 1 に、各測定条件における呼吸量の測定結果を示した。検定の結果、最終溶存酸素量、測定尾数による有意な差は認められなかった。測定容器内に空隙があると、空隙に残る空気から水中に酸素が供給され、測定された呼吸量は、有意 ( $P < 0.001$ ) に低下した。このため測定器内に空隙がないようにすることが重要である。

また、溶存酸素量が  $5.0 \mu\text{g}/\text{ml}$  以下に下がることは魚類の試験環境条件として好ましくない<sup>3)</sup>ことから、終了時においても溶存酸素量が  $5.0 \mu\text{g}/\text{ml}$  以上残るように測定時間を20分に設定することとした。また、測定尾数は1尾の場合および2尾以上の場合と比較すると、複数にすると、若干呼吸量が高くなる傾向があったので、測定は1尾にすることとした。

繰返し精度を見るために、1尾ずつ、20分間の測定を34尾について行った結果、 $319 \pm 8 \mu\text{g}/\text{g} \cdot \text{hr}$  が得られた。このように精度も高く、安定した測定結果を得ることができ、測定方法も簡易なことから、水質汚濁の魚の鰓呼吸に対する影響を知る方法として有効であると考えられた。

### 4. ま と め

1.5 ℓ 容量のガラス製気密容器を用いた、水中溶存酸素消費量による魚類の呼吸量の簡易な測定法について試みた結果、最終溶存酸素濃度を  $5.0 \text{mg}/\ell$  以上で、測定時間20分にして測定し、 $319 \pm 8 \mu\text{g}/\text{g} \cdot \text{hr}$  と、精度も良く、安定した測定結果を得ることができた。

### 文 献

- 1) M.Leiner: Die Atmung des kurzschnauzigen Seepferechens (*Hippocampus brevisrostris* cuv.) und seiner Embryonen und Jungfische, Z. vergl. Physiol., 24, 143-165 (1937).
- 2) H.Meyer: Die Atmung von *Uranoscopus scaber* und ihre Abhängigkeit von Sauerstoffdruck, Z. vergl. Physiol., 22, 435-449 (1935).
- 3) A.P.H.A., A.W.W. and W.P.C.F.: *Standard Methods for the Examination of Water and Wastewater*, 14th (1975) American Public Health Association.

## 残留塩素のコイの鰓呼吸に及ぼす影響

齋藤 治子\* , 水尾 寛己\*

### 要 旨

1.5ℓ容量のガラス製気密容器を用いた呼吸量測定方法による、残留塩素のコイ呼吸量に及ぼす影響について検討を行った。0~1.0 mg/ℓ濃度の残留塩素に5分間曝露した後、その呼吸量を測定した結果、対照群の $319 \pm 8 \mu\text{g/g} \cdot \text{hr}$ に対して、0.3 mg/ℓでは $257 \pm 14 \mu\text{g/g} \cdot \text{hr}$ と有意に低下した。そして、0.7 mg/ℓ以上の残留塩素濃度では対照群の半分にまで低下した。

このように残留塩素は低濃度でも魚類に影響を与えることから、排水の滅菌などの目的で塩素注入を行うに当たっては、環境中での残留塩素濃度を考慮し、添加量には十分な配慮が必要であると考えられた。

### 1. はじめに

工場の排水の中には、40~500 mg/ℓという高濃度の残留塩素が含まれているもの時にはある。当然のことながら、高濃度の残留塩素がそのまま排出された時には、水中の生物に悪影響をおよぼす。そこで今回、致死に至らない低濃度の残留塩素が魚類に対してどのような影響を与えるかを、コイの鰓呼吸の面から検討を行い、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孵化後、2ヶ月経ったコイの稚魚を選別後約1年間蓄養し、20℃に2週間馴化後、健康なもの100尾を用いた。コイの平均体重は $28.4 \pm 0.9\text{g}$ 、体長は $11.4 \pm 0.3\text{cm}$ である。

コイはランダムに5群に分けて試験に供した。

また、試験2日前から無給餌とした。

#### 2-2 残留塩素曝露方法

食品添加物用次亜塩素酸ナトリウム液を用い、脱塩素水にて稀釈し、所定の残留塩素濃度に調整した。この試験水2ℓに魚体重1gの比率で、調整濃度を保持できる時間である5分間遊泳曝露し、直ちに呼吸量を測定した。

曝露後の呼吸量の測定は、横浜市公害研究所が開発

した簡易型魚類呼吸量測定器を用いた方法によった。また、鰓形態の観察は光学顕微鏡によって行った。

### 3. 結果および考察

Arthurら<sup>1)</sup>によれば残留塩素の96時間LC<sub>50</sub>値は、淡水魚であるFathead minnowでは0.086~0.130 mg/ℓであり、*Gammarus pseudolimnaeus*では0.215~0.330であると報告している。また、止水曝露において、残留塩素濃度を低下しない最大時間が5分であることから、曝露時間を5分とし、曝露濃度を0~1.0 mg/ℓに設定した。

残留塩素曝露後の呼吸量の測定結果は表1に示すとおりであり、0.3 mg/ℓの濃度曝露で呼吸量は $257 \mu\text{g/g} \cdot \text{hr}$ となり対照群の $319 \mu\text{g/g} \cdot \text{hr}$ に対して有意に低下した。そして、0.5 mg/ℓでは $208 \mu\text{g/g} \cdot \text{hr}$ 、0.7 mg/ℓでは $146 \mu\text{g/g} \cdot \text{hr}$ 、1.0 mg/ℓでは $158 \mu\text{g/g} \cdot \text{hr}$ となり、0.7 mg/ℓ以上では対照群の半分にまで低下した。

魚類の呼吸は鰓で行われる。水が口腔から入り、鰓腔から排出する際に、水中の酸素を血中のヘモグロビンによりガス交換し、体内に酸素を取り込む。鰓での二次鰓弁の血液は上皮を隔てて流れる水とは逆の方向に流れる。いわゆる対向流であるため、酸素摂取効率は肺呼吸の動物よりも数倍高いと報告されている<sup>2)</sup>。

Effect of residual chlorine to gill respiratory of carp (*Cyprinus carpio*).

\* Haruko Saito, Hiromi Mizuo, 横浜市公害研究所

表1. コイの呼吸量に対する調留塩素の曝露結果

残留塩素濃度 mg/l	呼吸量 $\mu\text{g/g} \cdot \text{hr}^{-1}$
0	319 ± 8 (34)
0.3	257 ± 14 * (23)
0.5	208 ± 13 * (20)
0.7	146 ± 1 * (10)
1.0	158 ± 13 * (13)

\* : 危険率0.01%未満で対照群との間に有意差有り  
 数値 : 平均値 ± 標準偏差 (繰返し数)

表2 残留塩素曝露時の鰓の形態学的観察結果

残留塩素濃度 mg/l	鰓の形態学的変化
0.3	対照と差は見られない。
0.5	二次鰓弁上皮に軽度の浮腫
0.7	二次鰓弁上皮に浮腫, 毛細血管中の血液のうっ滞, 鰓弁上皮の拡張
1.0	二次鰓弁上皮に著しい浮腫, 鰓弁上皮の先端が貧血で白色化

このため、水質が悪化すると、鰓の粘液分泌量の増加や形態変化などの防御作用が現れる。鰓の形態変化は、まず二次鰓弁の表面に起こり、二次鰓弁上皮が剥離し、上皮の細胞が肥厚する。これにより、ガス交換が著しく阻害される。こうして、血液と水の間の障壁を大きくすることにより、血液を毒物から守るのである。次の段階では血管内や剥離した上皮下の腔所に顆粒白血球が多数出現する。さらに進行すると血液の停滞が起こり、ついに死亡すると報告されている<sup>3)</sup>。したがって、魚の鰓呼吸について検討することは、水質汚濁を判定する上で感度良く、わかりやすい目安となる。

残留塩素に5分間曝露したときの鰓の形態学的観察結果は表2に示すとおりであり、0.3 mg/lでは変化は見られなかったが、0.5 mg/l以上では二次鰓弁に変化が認められた。0.7 mg/lでは、二次鰓弁上皮の浮腫と血液のうっ滞が見られ、1.0 mg/lでは二次鰓弁上皮が著しく浮腫し、鰓弁上皮の先端に貧血の起こっていることが認められた。

以上のように残留塩素は0.3 mg/lあるいは0.5 mg/lという低濃度で5分間曝露しただけでも、コイの鰓に形態変化を起こし、呼吸量を低下させることが解った。

このため、工場等の残留塩素を含む排水の排出に当たっては、排出先の水域の生物に対して影響を与えないように、十分な配慮が必要であると考えられた。

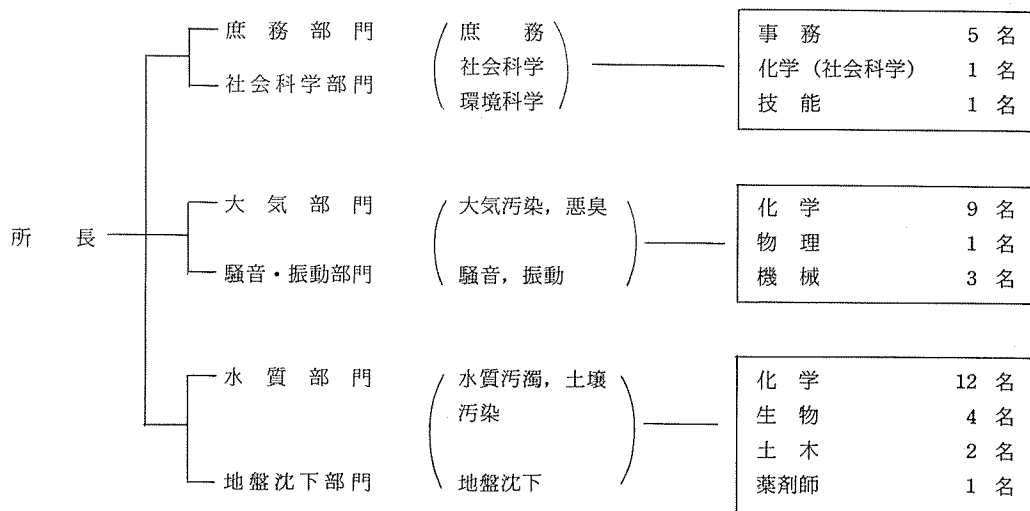
#### 4. ま と め

残留塩素のコイの鰓呼吸に与える影響を、簡易な方法による呼吸量測定および光学的顕微鏡による鰓形態の観察によって把握した結果、0.3 mg/lの低濃度でも呼吸量を低下させること、0.5 mg/lで、二次鰓弁上皮に軽度の浮腫が起こるなどの影響のあることが解った。このため、滅菌等の目的あるいはその他により、工場等の残留塩素を含む排水の排出に当たっては、排出先の水域の生物に対して影響を与えないように、十分な配慮が必要であると考えられた。

#### 文 献

- 1) J.W.Arthur et al : Comparative toxicity of sewage-effluent disinfection to freshwater aquatic life, EPA Ecol.Res. Ser., EPA-600/3-35-012, 1-61 (1975).
- 2) 日本水産学会編 : 魚の呼吸と循環, 恒星社厚生閣 (1978)
- 3) M.Morgan And P.W.A.Tovell : The structure of the gill of the trout, *Salmo gairdneri* (Richardson), Z.Zellforsch., 142, 147-162 (1973).

## 1. 人員及び組織



## 2. 主要機器一覧表

品 名	規 格	数 量	配 置
ガスクロマトグラフ質量分析計	日本電子GC-MS DX 303	1 式	第二機器分析室
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MODEL 4053A3	1 式	第二機器分析室
原子吸光光度計	日電バリアンAA-1150A 外	3 式	第一機器分析室
ガスクロマトグラフFID他	島津GC-6AMP TF他	13 式	第三機器分析室
液体クロマトグラフ	島津LC-4A	1 式	第二機器分析室
赤外分光光度計	日本分光3A	1 式	恒温室
光化学反応実験装置	600Aスモークチャンバー	1 式	〃
分光光度計	ダブルビーム自記 日立200-10型外	4 式	第二水質実験室
分光蛍光光度計	日立MPF-4	1 式	放射能研究室
水銀分析計	柳本AMD	1 式	第一機器分析室
二次導函数数量ガス分析装置	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
標準粒子発生装置	東京高周波電気炉SRF-305W	1 式	工学実験室
標準ガス精密希釈装置	製鉄化学工業SDS-401	1 式	恒温室
窒素酸化物自動記録計	MONTIOR RABS MODEL-8440外	3 台	第二大気実験室
オキシダント自動記録計	電気化学	1 台	〃
オゾンメータ	京都電子工業OX-21	1 台	〃

品 名	規 格	数 量	配 置
風 向 風 速 計	海上電機WA-200外	2台	第二大気実験室
イオン濃度測定装置	オリオン801A型	1台	〃
多チャンネルデジタル騒音計	リオンSV-70型の改良型	1台	騒音研究室
データレコーダ	NAGRAIV-SJ型	1台	〃
騒音振動解析装置	YHP5420型	1式	〃
〃 データ処理装置	YHP310AJ	1式	〃
魚に対する慢性毒性試験装置	関東工機製作所製外	2式	生物研究室
波 高 分 析 機	東芝USC-1 MODEL10	1式	放射能研究室
電 子 計 算 機	ACOS 250 (賃借)	1式	電子計算機室
微粒子自動計測器	ロイコ社 MODEL 226	1式	第二大気実験室
攪拌実験装置	佐竹化学機械工業製	1式	処理実験室
標準圧密試験器(3連型)	丸東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	〃
核磁気共鳴装置	日立製作所R-600型	1式	第二機器分析室
凝縮核モニター	日本科学工業MODEL3020	1台	第二大気実験室
14チャンネルデータレコーダ	ソニーUN61430W	1台	騒音研究室
イオンクロマトグラフ	ダイオネックス社MODEL10	1台	第三水質実験室
全有機炭素分析計	ベックマンMODEL915-B	1台	第一機器分析室
高精度NOx計	ダイレック社DY8400型	1台	第二大気実験室
高精度オゾン計	紀本電子工業製	1台	〃
高精度弾性波速度測定装置	丸東製作所製	1台	地盤沈下実験室
炭素・水素・窒素(CHN)分析計	柳本CHNコーダ-MT-3型	1台	第二大気実験室
クロロフィルメータ	ターナーデザイン社MODEL ID-00OR	1台	生物研究室
電 気 炉	西村工業製	1台	第一水質実験室
三軸圧密試験記録装置	理研電子製	1式	地盤沈下実験室
1/8オクターブ実時間自動分析装置	リオン SA-25	1式	騒音研究室
凍結濃縮装置	大洋科学工業 FC-6	1台	第2水質実験室
水生植物による水処理実験用装置	公害研究所設計	1式	処理実験室
煙道用水銀連結分析計	日本インスツルメンツ DM-C1	1式	工学実験室
圧密自動記録装置	理研電子 MODEL DACT-6	1式	地盤沈下実験室
風向別制御装置	日本公害防止技術センター-WDP-100	1式	屋 上
パーソナル・ダストモニタリングシステム	柴田科学 PDS-1	1式	恒 温 室
コンポジット・サンプラー	日科機 S-4081	1式	第一機器分析室

### 3. 昭和61年度 予算額

(単位：千円)

科 目	金 額	付 記
共 済 費	206	社会保険料
賃 金	4,862	
報 償 費	1,884	
旅 費	2,016	普通旅費
需 用 費	96,921	消耗品費 27,972
		燃 料 費 305
		食 糧 費 535
		印刷製本費 8,800
		光熱水費 45,949
		修繕料 13,360
役 務 費	4,357	通信運搬費 1,880
		手 数 料 2,337
		筆耕翻訳料 140
委 託 料	42,733	清掃その他委託料
使用料及び 賃 借 料	15,685	
工事請負費	700	雑工事費
備品購入費	20,050	
負担金補助 及び交付金	230	会費及び負担金
公 課 費		
計	189,644	

管理運営費	97,709
試験検査費	10,707
主要機器維持 管理運営費	15,438
調査研究事業費	37,000
機器等整備 事業費	20,000
施設改修工事費	4,000
公害教育啓発等 その他事業費	4,790
計	189,644

#### 4. 学会等研究発表

学会大会名	年 月	題 名	発表者・共同研究者
昭和61年度日本水産学会春季大会	61. 4	コイを指標とした長期間飼育による工場排水の評価(1) — 生・死・成長について —	○水尾寛己・樋口文夫・畠中潤一郎・福島悟・斉藤治子
昭和61年度日本水産学会春季大会	61. 4	コイを指標とした長期間飼育による工場排水の評価(2) 血液検査について	○樋口文夫・池田弥生(東水大)
ACS Symposium on Acid Rain I, Sources and atmospheric Processes. (New York)	61. 4	Mesoscale Precipitation Chemistry Around the Tokyo Metropolitan - Area.	○鶴田治雄
“	“	Characterization of Wet and Dry Depositions in Remote and Urban-Industrial Areas.	○鶴田治雄・草野一・渡辺善徳
WMO Symposium on modeling of atmospheric pollutants and its dispersion. (Leningrad)	61. 5	Roles of local wind systems in photochemical air pollution(I),(II).	○鶴田治雄
土質工学研究発表会 (第21回)	61. 6	横浜の地盤沈下に関する一考察	○杉本実, 赤石勝(東海大)
神奈川県公害研究機関協議会公害研究合同発表会(第10回)	61. 6	在来線鉄道における振動調査について	○中村俊亮
“	“	バグフィルター及び電気集じん装置の集じん特性について	○佐俣満夫
“	61. 6	横浜市における魚(コイ)を指標とした工場排水のモニタリングについて	○水尾寛己・樋口文夫・福島悟・畠中潤一郎・斉藤治子, 山口一誠・阿久津卓・佐野定男(公害対策局水質課)
7th World Clean Air Congress (Sydney)	61. 8	Size Distribution of Dust emitted from an Atomizer Burner in an Experimental Furnace of Medium Size.	○佐俣満夫
“	“	Influence of Anisokinetic Sampling on the Concentration of Fine particles in Dust.	○佐俣満夫
第10回合成洗剤研究会	61. 8	非イオン界面活性剤による魚のへい死事故(誌上発表)	○水尾寛己・二宮勝幸・飯塚貞男・白柳康夫
日本陸水学会第51回大会	61. 10	重金属汚染と河川(南紀・数河川)生物相との関係について, 環境及び底生生物相	○畠山成久・佐竹潔・宮下衛(国公研), 福島悟
“	“	重金属汚染と河川(南紀・数河川)生物相の関係について, 藻類相への影響	○福島悟, 畠山成久・佐竹潔・宮下衛・安野正之(国公研)
“	“	重金属汚染と河川(南紀・数河川)生物相との関係について, ユスリカ相について	○菅谷芳雄・畠山成久・佐竹潔(国公研), 福島悟, 安野正之(国公研)
“	“	コカゲロウ(Baetis)による重金属汚染の指標性について	○畠山成久・佐竹潔・安野正之(国公研), 福島悟
日本水処理生物学会第23回大会	61. 10	中小都市河川における水辺環境の回復に関する研究(3), 野火止水の水質と底質	○川原浩(都環科研), 岡田光正(東京農工大), 福島悟, 武藤敦彦(日本環境衛生センター)

学会大会名	年月	題名	発表者・共同研究者
日本水処理生物学会 第23回大会	61. 10	中小都市河川における水辺環境の回復に関する研究(4)、遮光が水路維持用水に生育する藻類群落へ与える影響	○福島悟、岡田光正(東京農工大)、川原浩(都環科研)、武藤敦彦(日本環境衛生センター)
全国公害研協議会関東 甲信静支部水質専門部 会	〃	横浜市内河川水中の界面活性剤の濃度分布	○飯塚貞男
第12回有害底質の処理 処分に關する日米専門 家会議	61. 11	化学物質による底質汚染とその評価方法について	○二宮勝幸
大気汚染学会 (第27回)	61. 11	雨水中に含有するアルデヒド類の測定	○太田正雄
〃	〃	関東地方の酸性雨に関する研究(第14報) — 降水の汚染機構に関する考察(その2) —	○鶴田治雄・草野一・渡辺善徳 「関東地方公害対策推進本部大気汚染部会」
〃	〃	日本のバックグラウンドオゾンの春季高濃度現象に関する気象学的解析(その1)	○鶴田治雄、梅原茂(青森県公害センター)、仁平明(宮城県保健環境センター)、加藤賢二(福井県公害センター)、大前利隆(奈良県公害課)、立石ヒロ子(長崎県衛生公害研究所)
〃	〃	沿岸都市域から内陸域への大気汚染物質の輸送および変質過程(V) — 佐久盆地周辺における山谷風に伴うオゾンの輸送・除去過程 —	○鶴田治雄 「内陸域における大気汚染の動態」観測班
〃	〃	NOxサンプラーによる道路周辺の濃度分布調査 — 道路沿道高層建物地域における濃度分布 —	○平野耕一郎・前田裕行・畑澤智・米山悦夫
〃	〃	ダスト試料採取における大容量法の検討	佐俣満夫、○二宮章(神奈川県ポリューション)、田森行男(公害資源研究所)、石岡修(機械電子検査検定協会)、大重勇治(東電環境サービス)、風間行雄(日本環境技術測定協会)、宮島信夫(トーコン)、森修身(神奈川県工業試験所)
〃	〃	固定発生源から排出されるばいじん中の炭素成分	○太田正雄・佐俣満夫・新井久雄
〃	〃	簡易NOxサンプラーによる窒素酸化物自動計測器の評価	○平野耕一郎、落合純一(公害対策局大気課)
日本気象学会 (秋季大会)	61. 11	沿岸域から内陸域への大気汚染物質の輸送および変質過程(その3) — 内陸盆地での山谷風に伴うオゾンの輸送・除去過程 —	○鶴田治雄
〃	〃	大気バックグラウンド汚染観測地点(岩手県綾里)における降水と乾性沈着物質中の水溶性成分の挙動(その1)	○鶴田治雄・草野一・渡辺善徳



学会大会名	年月	題名	発表者・共同研究者
環境科学シンポジウム	61. 11	沿岸域における大気汚染物質の立体分布に果たす海陸風の役割	○鶴田治雄，浅井富雄（東大海洋研究所）
シンポジウム 水域における生物指標の問題点と将来	61. 12	重金属汚染河川に形成される付着藻類群落	○福島悟
日本水質汚濁学会	62. 3	横浜市内河川水中の界面汚性剤の濃度分布	飯塚貞男・石井哲夫
“	“	飼育コイを指標とした河川水質のモニタリング	斉藤治子

## 5. 雑誌投稿

雑誌名	発行年月	執筆者	題名
環境技術	61. 9	新井久雄	サーマル法による元素状炭素と有機系炭素の分析

### (要旨)

サーマル法(熱分離法)により粉じん中の元素状炭素および有機系炭素を分離定量する際に、最良な温度条件を設定するうえで不可欠な基礎データとなる各種粉じん(13試料:標準試料3,発生源粉じん6,大気浮遊じん4)の熱特性(炭素成分の熱に対する安定度)を、Heおよび10%O<sub>2</sub>-He雰囲気下の2条件で測定し、それを基に元素状炭素および有機系炭素の分離温度について検討した。また、各種粉じんの熱特性から得られた分析値と別法である硝酸分離法および溶媒抽出法等との分析を相互に比較した。

雑誌名	発行年月	執筆者	題名
環境研究	61. 9	鶴田治雄	酸性雨の調査研究の現状

### (要旨)

第191回アメリカ化学会総会の期間中(1986年4月)に行われた、酸性雨に関するシンポジウムの内容の紹介と、日本の現在の酸性雨の調査研究の動向について報告した。前者については、特に雲化学(Cloud chemistry)と酸性雨の数値実験に焦点が当てられており、活発な議論が行われた。後者については、降水量の調査研究の課題について述べた。

雑誌名	発行年月	執筆者	題名
環境と測定技術	61. 10	佐俣満夫	各国の大気汚染と研究の現状

### (要旨)

1986年8月25日~29日にシドニーで行なわれた第7回世界清空会議に出席した内容について、現在の各国での大気汚染の現状と研究段階について報告した。世界30ヶ国から参加者があり、固定発生源としては、NO<sub>x</sub>, SO<sub>x</sub>, ばいじんの同時処理技術の研究、酸性雨、種々の有害物質の測定法等のトピックスがみられた。

雑誌名	発行年月	執筆者	題名
「環境科学」研究報告(B-307', R11-2) 「沿岸域から内陸域にいたる広域大気汚染に関する研究」	62. 3	平野耕一郎	環境大気中のエアロゾルの形態

### (要旨)

関東甲信越地域上空でのエアロゾルの形態と、その発生源推定を行った。

雑 誌 名	発行年月	執 筆 者	題 名
「環境科学」研究報告 (B-307' R11-2) 「沿岸域から内陸域にいたる広域大気汚染に関する研究」	62. 3	鶴 田 治 雄	佐久盆地における山谷風に伴うO <sub>3</sub> の輸送と沈着過程

**(要 旨)**

山谷風と大規模風に伴う盆地内のO<sub>3</sub>濃度の空間分布の日変化を明らかにした。

雑 誌 名	発行年月	執 筆 者	題 名
「環境科学」研究報告 (B-307' R11-2) 「沿岸域から内陸域にいたる広域大気汚染に関する研究」	62. 3	鶴 田 治 雄	海風前線の構造と汚染物質の移動

**(要 旨)**

関東地方で海風前線が沿岸域から内陸域へ移動するときの立体構造と汚染物質の立体分布を考察した。

雑 誌 名	発行年月	執 筆 者	題 名
「環境科学」研究報告 (B-307' R11-2) 「沿岸域から内陸域にいたる広域大気汚染に関する研究」	62. 3	鶴 田 治 雄	沿岸域と内陸域における大気汚染物質の輸送・変質・沈着過程

**(要 旨)**

沿岸域の海陸風に伴う汚染物質の輸送・変質・沈着過程と、内陸域での大規模風に伴う汚染物質の3つの過程とを比較検討した。

雑 誌 名	発行年月	執 筆 者	題 名
「環境科学」研究報告 (B-307' R11-2) 「沿岸域から内陸域にいたる広域大気汚染に関する研究」	62. 3	鶴田治雄, 須山芳明 (神奈川県公害センター)	沿岸域における炭化水素の挙動

**(要 旨)**

光化学スモッグ発生時の沿岸域から内陸域にかけての炭化水素の時間・空間変化を考察した。

雑 誌 名	発行年月	執 筆 者	題 名
港湾技術要報 No.100	62. 3	二 宮 勝 幸	化学物質による底質汚染とその評価方法について

**(要 旨)**

横浜港と鶴見川河口における底質中の油分と化学物質濃度を調査した。油分濃度は鶴見川河口より横浜港の方が高く、しかも、油分に占める非極性油分の割合も横浜港の方が大きかった。また、油分と化学物質の関係から、化学物質による底質の汚染状態の違いを明らかにした。

雑誌名	発行年月	執筆者	題名
Management of Bottom Sediments Containing Toxic Substances, November 1986	62. 3	二宮勝幸	Evaluation of Chemical Pollutant by Analysis of Oil Component in Sediments.

(要旨)

同上

雑誌名	発行年月	執筆者	題名
港北ニュータウン地区3号公園生物相保護区自然環境調査 (昭和60. 61年)	62. 3	福嶋悟	① 水環境調査 ② 魚類相

(要旨)

1981年から1984年までの間のBOD, N, P, クロロフィルa 濃度からは池が富栄養化していないことが示された。また、魚類相及びその体長分布はヨシノボリ, ホトケドジョウ, モツゴの調査区における世代交代があることを示しているが、流出小河川の河川工事によりホトケドジョウがほとんど採集されなくなった。

## 6. 横浜市公害研究所発行資料（調査研究等報告書）

公害研資料	報 告 書 名	発 行 年 月
No. 72	第10回公害セミナー公募作品集 調べてみよう，身近な環境 — 水・みどり・まち… —	昭和61年11月

### （要 旨）

第10回公害セミナーの開催にあたり，当日発表する小・中学生，高校生の作品・調査研究等を公募した。小学生12編，中学生8編，高校生6編，計26編の応募作品を収録した。

公害研資料	報 告 書 名	発 行 年 月
No. 74	円海山・港北ニュータウン地区生態調査報告書・第2報	昭和62年3月

### （要 旨）

円海山地区の水質，土壌，水辺利用状況，付着藻類，底生動物，トンボ調査結果及び港北ニュータウン地区の水質，魚類，水生動物，植物プランクトン，池沼植生調査結果を示すとともに前報(公害研資料No.57)と合わせ1981年から4年間に及ぶ各生物群の調査結果をとりまとめた。そして，それらの結果より環境変化と生物群集の関係を表わした。

公害研資料	報 告 書 名	発 行 年 月
No. 75	排水処理施設維持管理マニュアル — 汚 泥 処 理 編 —	昭和62年3月

### （要 旨）

本市における工場，事業場の排水処理施設の維持管理不備による排水基準違反への対応策の一つとして，運転管理実務者向けに本書を作成した。第一章では，市内工場，事業場における汚泥処理分の概況について検討会で出された問題点や技術的要望等の内容を紹介した。第二章では，汚泥処理の事前調査に必要な基礎的事項を述べた。第三章から第五章では，汚泥処理の各工程についてその概要を説明し，各種処理方法の維持管理上の留意点及び性能の比較について述べた。第六章では，二次公害対策として汚泥処理施設の脱臭設備について維持管理費を含めて述べ，第七章には，汚泥の適正な処理に関する横浜市環境事業局産業廃棄物指導課の指導方針を掲載した。

公害研資料	報 告 書 名	発 行 年 月
No. 76	10年のあゆみ 横浜市公害研究所設立10周年記念誌	昭和62年3月

### （要 旨）

横浜市公害研究所は昭和51年4月に設立した。設立10周年を記念し，この間の業務全般の推移，研究成果等をまとめ，将来に向け，広く公害・環境行政についての内外の見識・提言を掲載した。内容は，Ⅰ10年の歩みと今後の展望（各部門の調査研究，行政検体の分析，公害セミナー），Ⅱ10周年に寄せての寄稿，Ⅲ資料（所報掲載論文一覧，横浜市公害研究所発行資料目録等）である。

公害研資料	報 告 書 名	発 行 年 月
No. 77	第10回公害セミナー会議録 調べてみよう，身近な環境 — 水・みどり・まち… —	昭和62年3月

**(要 旨)**

昭和61年11月23日(日) 上記テーマで第10回公害セミナーを開催した。本報告書は当日の発表，講演等をまとめたものである。内容は応募した小・中学生，高校生の作品，論文等から小学生7編，中学生6編，高校生5編，計18編の発表，その講評(横浜市文化財総合調査委員・大内実，横浜市立新田中学校校長・小松田昭，神奈川県立新栄高校教諭・高梨征雄の各氏)，講演「子供の生活と自然の役割」(日本自然保護協会理事・柴田敏隆氏)等である。

公害研資料	報 告 書 名	発 行 年 月
No. 78	横浜市地盤環境図 (付図及び土質試験データ図集)	昭和62年3月

**(要 旨)**

横浜市地盤環境図は地盤沈下部門が開所以来進めてきた軟弱地盤調査の結果を用いて本市の地盤環境を①横浜の地質と地盤沈下特性図(5万分の1)，②軟弱地盤等厚線及びボーリング位置図(2万5千分の1)，③軟弱地盤の粘性土層等厚分布図，④軟弱地盤の砂質土層及び腐植土層として表わした。また，土質試験データ図集は付図を作成するうえで区分した地質層序にしたがって各層の物理，力学的な値を頻度図，相関図で示した。

公害研資料	報 告 書 名	発 行 年 月
No. 79	資料室図書目録	昭和62年3月

**(要 旨)**

当研究所は発足以来，公害環境問題に関する調査研究に必要な文献資料を収集整備してきたが，研究者及び一般市民の効率的な利用を図るため，昭和60年3月までに収集した図書について目録を作成した。

## 7. 横浜市公害研究所発行資料目録

1987年3月末現在

資料番号	件名	発行年月	体裁等
	明日の都市を照らす	1977. 3	A 4. 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	B 5. 49頁
2	横浜市公害研究所報創刊号	1977. 11	B 5. 56頁
3	公募論文集・クルマ社会をどうするか — 明日の都市環境を考える —	1977. 11	B 5. 136頁
4	第1回公害セミナー会議録・クルマ社会をどうするか — 明日の都市環境を考える —	1978. 3	B 5. 96頁
5	昭和52年度環境庁委託業務結果報告書 非特定重大障害物質発生源等対策調査(アスベスト発生施設)	1978. 3	B 5. 36頁
6	横浜市公害研究所報第2号	1978. 8	B 5. 236頁
7	中間報告・横浜市における自動車公害に関する基礎研究	1978. 8	B 5. 195頁
8	横浜市公害研究所報第3号	1978. 12	B 5. 156頁
9	第2回公害セミナー会議録・合成洗剤	1979. 3	B 5. 89頁
10	自動車公害に関する意識調査 — 国道一号線三ツ沢・松本地区, 1978年3月実施 単純集計結果(第1報) —	1979. 3	B 5. 112頁
11	大気中の炭化水素濃度調査及び各種発生源施設からの排出実態調査結果	1979. 3	B 5. 66頁
12	第3回公害セミナー論文集・川, よこはまに水辺をもとめて	1979. 8	B 5. 85頁
13	横浜市における自動車公害に関する基礎研究	1979. 9	B 5. 201頁
14	横浜市公害研究所報第4号	1980. 3	B 5. 204頁
14	第3回公害セミナー会議録・川, よこはまに水辺をもとめて	1980. 5	B 5. 72頁
15	横浜市地域環境大気調査報告書(昭和54年度環境庁委託調査)	1980. 3	B 5. 72頁
16	非特定重大障害物質発生源等対策調査(ベンゼン取扱施設)	1980. 3	B 5. 31頁
17	沿道環境整備対策のための基礎調査報告書 —三ツ沢地区対象—	1980. 12	B 5. 84頁
18	魚類の健康評価に関する研究(1)(昭和53年度)	1981. 2	B 5. 20頁
19	魚類の健康評価に関する研究(2)(昭和54年度)	1981. 2	B 5. 51頁
20	横浜市公害研究所報第5号	1980. 12	B 5. 236頁
21	帯水層々序確定のための地質調査	1981. 3	B 5. 32頁 付図4枚
22	第4回公害セミナー資料提言要旨	1981. 3	B 5. 18頁
23	第4回公害セミナー資料・調査研究事業のあらまし	1981. 3	B 5. 41頁
24	—		

資料番号	件名	発行年月	体裁等
No. 25	地域交通環境に関する意識調査 — 金沢4区, 1980年11月実施 —	1981. 3	B5. 46頁
26	第4回公害セミナー会議録・80年代の環境政策の課題	1981. 3	B5. 115頁
27	低周波空気振動実態調査報告書	1981. 3	B5. 163頁
28	有機ハロゲン化合物の分解と消長 — 有機塩素化合物特にPCBの環境中における動態について —	1981. 3	B5. 98頁
29	第5回公害セミナー公募文集・よこはまに自然をもとめて	1981. 8	B5. 150頁
30	横浜市公害研究報第6号	1981. 12	B5. 211頁
31	横浜市自動車問題研究会第二報告書 — 横浜の物流と自動車公害に関する調査研究 —	1981. 12	B5. 227頁
32	排水処理技術維持管理マニュアル — 凝集処理編 —	1982. 3	B5. 116頁
33	固定発生源から排出されるばいじん(粒度分布)調査報告書	1982. 3	B5. 133頁
34	第5回公害セミナー会議録・よこはまに自然をもとめて	1982. 3	B5. 123頁
35	魚類の健康評価に関する研究(3)	1982. 3	B5. 34頁
36	魚類指標による排水評価のための技術要領	1982. 3	B5. 30頁
37	横浜市深層地下水調査中間報告書	1982. 3	B5. 44頁 付図2枚
38	横浜市自動車問題研究会第一報告書 — 地域交通環境とまちづくり —	1982. 3	B5. 124頁
39	横浜市緑区及び戸塚区における道路交通騒音と交通量調査報告書	1982. 3	B5. 440頁
40	会下谷の雑木林の生物相とその季節変化 (横浜の旧市街に残る小雑木林)	1982. 3	B5. 11頁
41	自動車騒音公害対策模型実験 — 車線内遮音壁 —	1982. 7	B5. 87頁
42	第6回公害セミナー資料 大気汚染 — 青空はよみがえったか, この横浜に —	1982. 8	B5. 31頁
43	会下谷の雑木林の生物相とその季節変化 (横浜の旧市街に残る小雑木林)	1982. 11	B5. 143頁
44	横浜市公害研究所報第7号	1982. 11	B5. 105頁
45	第6回公害セミナー会議録 大気汚染 — 青空はよみがえったか, この横浜に —	1983. 1	B5. 99頁
46	浮遊粉じん・ばいじんに関する総合調査報告書	1983. 1	B5. 187頁
47	南関東地域での光化学大気汚染に関する総合調査報告書	1983. 2	B5. 177頁
48	こども自然公園環境調査報告書	1983. 2	B5. 155頁 付図4枚
49	道路周辺の植樹帯による物理的及び心理的減音効果に関する研究 — 中間報告 —	1983. 3	B5. 106頁



資料番号	件名	発行年月	体裁等
No. 50	横浜市南部沿岸地域の軟弱地盤調査図 付図1-5	1983. 3	B2.
51	調査研究事業のあらまし	1983. 3	B5. 34頁
52	都市自然に関する社会科学研究	1983. 11	B5. 226頁
53	第7回公害セミナー公募論文集 身近な水辺とまちづくり — 「よこはまの川と池」再発見 —	1983. 11	B5. 149頁
54	横浜市公害研究所報第8号	1983. 12	B5. 157頁
55	排水処理施設維持管理マニュアル — 生物処理編 —	1983. 12	B5. 132頁
56	魚類の健康評価に関する研究(4)	1984. 1	B5. 67頁
57	円海山・港北ニュータウン地区生態調査報告書	1984. 2	B5. 183頁
58	第7回公害セミナー会議録 身近な水辺とまちづくり — 「よこはまの川と池」再発見 —	1984. 2	B5. 135頁
59	横浜市南部沿岸地域軟弱地盤調査報告書	1984. 2	B5. 付図6枚
60	横浜のホタル生息地(1983年度版)	1984. 3	B5. 49頁
61	第8回公害セミナー公募論文集 いま 横浜の海は — 水質, 生物, 水ぎわ… —	1984. 11	B5. 105頁
62	横浜市公害研究所報第9号	1984. 12	B5. 193頁
63	横浜南部丘陵 舞岡川源流域の水文調査	1984. 12	B5. 120頁
64	排水処理施設維持管理マニュアル — イオン交換処理編 —	1985. 1	B5. 134頁
65	第8回公害セミナー会議録 いま 横浜の海は — 水質, 生物, 水ぎわ… —	1985. 2	B5. 133頁
66	道路周辺の植樹帯による物理的及び心理的減音効果に関する研究 — 総合報告 —	1985. 3	B5. 173頁
67	横浜市公害研究所報第10号	1985. 12	B5. 190頁
68	平潟湾・金沢湾周辺水域環境調査報告	1986. 3	B5. 149頁
69	魚類指標による工場排水規制手法に関する研究	1986. 2	B5. 192頁
70	第9回公害セミナー会議録 静かなまちづくりをめざして — 道路緑化と騒音 —	1986. 2	B5. 179頁
71	ホタルの生息環境づくり ～ 技術マニュアル試案 ～	1986. 2	B5. 121頁
72	第10回公害セミナー公募作品集 調べてみよう, 身近な環境 — 水・みどり・まち… —	1986. 11	B5. 174頁
73	横浜市公害研究所報第11号	1987. 3	B5. 216頁
74	円海山・港北ニュータウン地区生態調査報告書・第2報	1987. 3	B5. 275頁
75	排水処理施設維持管理マニュアル — 汚泥処理編 —	1987. 3	B5. 132頁

資料番号	件名	発行年月	体裁等
No 76	10年のあゆみ・横浜市公害研究所設立10周年記念誌	1987. 3	B5. 203頁
77	第10回公害セミナー会議録 調べてみよう，身近な環境 ― 水，みどり，まち… ―	1987. 3	B5. 127頁
78	横浜市軟弱地盤層調査報告書 土質試験データ図集 付図1～4	1987. 3 1987. 3	B5. 217頁 B2.(付図1),A0
79	横浜市公害研究所資料室図書目録	1987. 3	B5. 328頁

## ◇ 編 集 後 記 ◇

研究所発足以来、毎年刊行してまいりました所報もここに「第12号」をとりまとめることができました。

内容構成は従来と同じく「業務報告編」、「調査研究編」及び「資料編」からなっております。今回は「調査研究編」中に従来の論文形式の外に「ノート」を新設しました。

今後ともより一層充実した所報を発行することをめざして努力を続ける所存です。皆様の御意見，御助言等をお寄せいただければ幸いです。

所報第12号編集委員会

草 野 一

平 野 耕一郎

二 宮 勝 幸

杉 本 実

黒 田 剛

永 田 珠 恵