

# 室内環境中における揮発性化学物質に関する研究 (第2報)

## A Study of Volatile Organic Compounds in Dwelling Environment II

阿部 時男 佐々木 ひとえ 浦山 清\*  
加藤 謙一 葛岡 勝悦 嵯峨 京時

Tokio ABE, Hitoe SASAKI, Kiyoshi URAYAMA,  
Ken-ichi KATOU, Shoetsu KUZUOKA, Kyoji SAGA

キーワード：揮発性有機化合物、室内環境

Key Words : Volatile Organic Compounds, Dwelling Environment

シックハウス (室内空気汚染) 問題が国内においても急増しその対策が急がれている。そこで、一般家屋の室内空気中の揮発性有機化合物 (以下VOCという) の実態調査及び個人の暴露調査を実施した。室内濃度は全般的に屋外濃度に比べ高いレベルであり、個人暴露濃度は室内濃度の影響が大きいことがわかった。

### 1. はじめに

近年、化学物質による室内空気汚染に伴うシックハウス症候群や化学物質過敏症など健康に関する問題が指摘されている。このため厚生省を中心に全国的な実態調査が行われ、この結果を踏まえ個々の物質のリスク評価、室内濃度指針値の設定など健康被害防止のための対策が進められているところである。本県においても平成10年から11年の2カ年にわたり、一般家屋を対象に実態調査を行ったので報告する。

### 2. 測定方法

平成10年度保健環境センター年報の室内環境の揮発性有機化合物の調査手法の検討 (第1報) の方法により、吸着剤 (活性炭) に24時間吸引し、その溶媒溶出液をGC/MSにて測定した。

### 3. 結果

測定は平成10年~11年の2カ年にわたり、一般家屋の新築、中古、一戸建、集合住宅等、条件の異なる住宅を対象に行った。測定項目は40物質以上について実施した。室内においては、図1のとおり、予想以上の化学物質の存在が示唆された。データの評価については、現在、厚生省の指針値の出ているトルエン、キシレン、P-ジクロロベンゼンの3物質、WHOのガイドライン値が出ている5物質の合計8物質について行った。表1、表2に示した平成10年、11年に測定した16家屋の結果をみると、トルエンは他の揮発性有機化合物と比べると、全体的に高い値を示している。室内において指針値を超えるもの

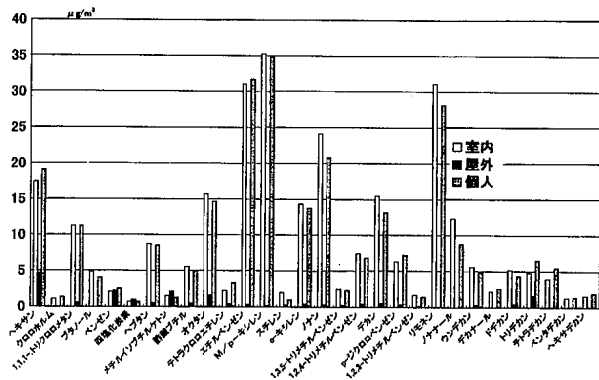


図1 測定結果例

表1 揮発性有機化合物の測定結果(平成10年度)

(単位: µg/m³)

家屋	化合物名	トルエン	キシレン	P-ジクロロベンゼン	クロロホルム	1,2-ジクロロエタン	エチルベンゼン	スチレン	テトラリン	測定時期	建築物の種類	築年数
A宅	室内	140	51	3	0.0	0.0	32	0.22	0.0	夏	鉄筋集合	3ヶ月
	屋外	6.9	0.8	0.14	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	冬		
	暴露	132	47	5.5	0.0	0.0	28	0.23	0.0	夏		
B宅	室内	160	98	14	0.8	0.6	56	81	0.56	夏	鉄筋集合	1年
	屋外	27	22.8	2.3	0.0	0.0	9.2	0.15	0.40	冬		
	暴露	173	80	27	1.2	0.9	48	193	0.58	夏		
C宅	室内	36	17.3	28	0.9	0.0	6.8	0.0	0.71	夏	木造1戸建	2年
	屋外	17	7.3	3.4	0.0	0.0	3.3	0.0	0.68	冬		
	暴露	450	54	25	1.7	0.0	33	2.0	0.68	夏		
D宅	室内	137	49	6.3	1.2	0.0	31	2.0	2.3	夏	木造1戸建	6ヶ月
	屋外	5.6	0.65	0.34	0.0	0.0	0.34	0.29	0.41	冬		
	暴露	142	49	7.3	1.4	0.0	32	1.0	3.4	夏		
E宅	室内	42.1	63.5	12.8	0.56	0.0	23	6.23	0.17	冬	鉄骨1戸建	1ヶ月
	屋外	4.9	10.9	0.0	0.0	0.0	2.51	0.0	0.0	夏		
	暴露	56.6	88.2	17.4	0.73	0.0	32.2	9.86	0.17	冬		
F宅	室内	28.3	68	17.4	0.33	0.0	48.9	0.94	0.33	冬	鉄筋集合	3ヶ月
	屋外	9.5	2.8	0.43	0.44	0.0	2.02	0.0	0.10	夏		
	暴露	31	71.3	23.3	0.0	0.0	51.3	0.54	0.51	冬		
G宅	室内	9.35	9.8	99	0.0	0.0	6.75	0.17	0.0	冬	鉄筋集合	25年
	屋外	2.16	0.78	1.02	0.0	0.0	0.60	0.0	0.0	夏		
	暴露	8.2	5.6	125	0.34	0.0	3.93	0.14	0.11	冬		
H宅	室内	42	15	0.63	0.0	0.0	3.39	3.28	0.38	冬	木造1戸建	1.6年
	屋外	1.4	0.8	0.1	0.0	0.0	0.2	0.0	0.17	夏		
	暴露	116	16.7	1.33	0.0	0.0	3.41	1.45	0.20	冬		
指針値等		260	870	240	1.3	700	22.000	260	250			

\* 現 環境対策課

表2 揮発性有機化合物の測定結果(平成11年度)

(単位:  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )

家屋	化合物名	トルエン	キシレン	p-ジクロロベンゼン	クロロホルム	1,2-ジクロロエタン	エチルベンゼン	スチレン	テトラクロロエチレン	測定時期 建築物の種類 年数
I宅	室内	210	37.7	0.0	0.0	0.0	37	42.6	0.0	夏 集合住宅
	屋外	5.99	2.0	0.0	0.73	0.0	1.44	0.67	0.0	0.6ヶ月
	暴露	30.9	6.9	0.0	0.0	0.0	5.21	2.66	0.0	0.0
J宅	室内	46.3	3.1	214	0.0	0.0	1.93	0.0	0.0	夏 集合住宅
	屋外	10.6	4.7	5.66	0.0	0.0	3.06	0.0	0.0	0.0
	暴露	92.6	6.1	398	0.0	0.0	3.98	0.0	0.0	10年
K宅	室内	16.4	9.6	35	0.0	0.0	7.21	10.5	6.63	夏 一戸建
	屋外	7.91	2.9	5.17	0.0	0.0	1.25	0.33	4.09	2ヶ月
	暴露	36	15.9	60	0.0	0.0	13.2	9.25	12.7	0.0
L宅	室内	5.73	3.2	0.0	0.0	0.0	1.03	0.0	0.0	夏 一戸建
	屋外	5.84	1.1	1.25	0.0	0.0	0.28	0.0	0.0	19年
	暴露	8.21	3.6	1.25	0.0	0.0	1.26	0.18	0.0	0.0
M宅	室内	17	30.7	0.0	0.0	2.41	7.85	52	0.0	冬 一戸建
	屋外	4.95	1.4	0.0	0.0	0.79	0.52	0.0	0.0	3年
	暴露	18	22.4	0.0	0.0	2.29	6.47	34	0.0	0.0
N宅	室内	17	14.3	0.0	0.0	2.15	4.39	0.0	4.21	冬 集合住宅
	屋外	5.58	4.6	0.0	0.0	0.79	1.83	0.0	0.87	16年
	暴露	261	17.3	0.0	0.0	0.79	7.58	0.0	0.87	0.0
O宅	室内	15	5.3	11	0.0	0.0	2.85	4.33	0.80	冬 集合住宅
	屋外	3.56	0.9	1.01	0.0	0.0	1.81	0.67	0.0	13年
	暴露	26	9.0	10	0.0	0.0	3.87	6.52	0.0	0.0
P宅	室内	49	111	19	0.0	0.0	3.85	339	0.0	冬 一戸建
	屋外	3.75	0.8	0.0	0.0	0.04	0.82	0.25	0.0	18年
	暴露	52	102	22	0.0	0.0	3.89	312	0.0	0.0
指針値等	260	870	240	1.3	700	22,000	260	250		

は無いものの個人暴露で2倍近い値がみられた。これは行動記録よりポーリング場での暴露と推定された。キシレンについては濃度の高い住宅においても指針値の十分の1以下であった。p-ジクロロベンゼンについては全体的に指針値の十分の1以下であったが、1家屋のみ指針値は超過しないものの同程度の値を示した。この個人暴露の値は指針値の1.5倍を示したが原因は不明である。表中のクロロホルム以降の物質はWHOのガイドライン値であるが、クロロホルムについては、ほとんどの住宅で不検出であったが、数家屋で超過はしないもののガイドライン値と同程度の値を示した。1,2-ジクロロエタン、エチルベンゼン、テトラクロロエタンについては大部分の住宅においてガイドライン値より、はるかに低い値を示した。スチレンについては大部分の住宅が低い値を示したものの1住宅のみがガイドライン値を超過した。(図2)

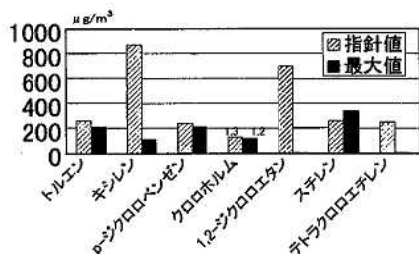


図2 室内空気の数値比較

厚生省は平成10年度に205戸の一般家屋の実態調査を実施しており、図3、表3に本県との比較を行った。これによると最大値では全国と比べ十分の1程度の低い値であった。しかし平均値、中央値で見ると全国と同程度ないしは、一部超過している項目もみられた。

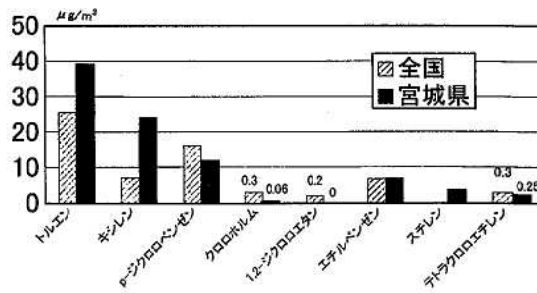


図3 全国との比較(中央値)

表3 全国との比較(室内)

項目	最大値		平均値		中央値	
	全国	宮城県	全国	宮城県	全国	宮城県
トルエン	3390	210	98.3	60.8	25.4	39.1
キシレン	569	111	17.2	36.7	7.0	24.0
p-ジクロロベンゼン	2250	214	123	28.8	16.1	12.0
クロロホルム	12.8	1.2	1.0	0.3	0.3	0.1
1,2-ジクロロエタン	11.5	2.4	0.5	0.4	0.2	0.0
エチルベンゼン	502	56.0	22.5	17.1	6.8	7.0
スチレン	133	339	4.9	35.1	0.2	3.8
テトラクロロエチレン	43.4	6.6	1.9	1.0	0.3	0.3

全国：平成10年度室内環境汚染全国実態調査結果

#### 4. 考 察

今回の二カ年にわたる一般家屋の揮発性有機化合物の実態調査より以下のことが明らかになった。

- 化学物質の室内濃度は屋外濃度と比べ明らかに高い濃度を示し、室内に発生源があることが確かめられた。
  - 個人暴露濃度については全般的に室内濃度と同じ傾向を示しており、室内の影響が個人暴露に大きく寄与していることが明らかになった。
  - 今回の調査では全般的に指針値等と比較すると低い濃度であるものの一部、指針値等を超過した家屋もあった。
  - 指針値等のない多くの化学物質が検出されており、一部それらの濃度が高い家屋もあるなど、今後へ向け問題が内在している事例がみられた。
  - 一般家屋以外での暴露事例もみられ、今後、多くの人が立ち入る施設についての調査が求められる。
- 揮発性有機化合物による室内環境汚染の調査研究は、全国的にも始まったばかりであり、今後も多くの調査事例の積み重ねが必要とされる。このため更に調査研究を進展させ室内空気防止対策や併せて健康被害防止対策の一助としたい。

## 古紙再生素材の環境負荷について

## Environment Loadings to Re-used Paper

阿部 時男 佐々木 ひとえ 浦山 清\*  
加藤 謙一 葛岡 勝悦 嵯峨 京時

Tokio ABE, Hitoe SASAKI, Kiyoshi URAYAMA,  
Ken-ichi KATOU, Shoetsu KUZUOKA, Kyoji SAGA

キーワード：資源循環、古紙、エコマテリアル、環境負荷

Key Words : Recycling of Resources, Used-Paper, Eco-materials  
Environment Loadings

古紙を用いて、発泡スチロール、発泡ポリウレタンなどに代表される、石油資源由来素材の代替品開発プロジェクトが進められている。この素材について、埋立に伴う溶出、焼却に伴う排ガス成分等について分析したところ問題なく、エコロジカルな低環境負荷型素材であることが検証された。

## 1. はじめに

包装用緩衝材に広く使用されている発泡スチロール等のプラスチック類は、環境に与える負荷が大きく、多くの企業で見直しの方向にあり環境負荷の少ない素材に対する要求が高まっている。

一方、古紙は、パルプ繊維が切断され再生紙として数回の利用には限界があると言われている。そこで古紙にバインダーとなるゼラチンを混合し、さらに発泡・成型し包装用緩衝材として活用できる素材の開発が進められており、このような素材の開発により、古紙のリサイクルの一層の促進が期待でき、リサイクルによる環境負荷の低減に寄与出来るものと考えられる。しかし緩衝材として有効利用されても、最終的には焼却、又は埋め立て処分される可能性がある。

このため本研究においては、廃棄された場合の環境影響を評価するため、焼却に伴う排ガス成分、埋立に伴う溶出成分等の分析を行い、この素材がエコロジカルな低環境負荷型緩衝材であるかどうかの検証を行った。

## 2. 調査概要

2.1 実施機関 宮城県保健環境センター 環境衛生部

2.2 調査期間 平成11年6月～平成12年2月

2.3 調査内容及び分析項目

古紙にバインダーとなるゼラチンを混合し、さらに発泡・成型し包装用緩衝材として開発された素材は、「パルフォーム」として商品化されることになったので、以下商品名「パルフォーム」を使用することとした。

\* 現 環境対策課

- (1) パルフォーム焼却に伴う有害ガス発生状況分析項目  
塩化水素、硫黄酸化物、塩素ガス、フッ素ガス、カドミウム、鉛、クロム、砒素、セレン
- (2) パルフォーム埋立に伴う有害溶出物質の状況分析項目  
水銀等の重金属：7物質、揮発性有機化合物：11物質、その他PCB等：3物質
- (3) 焼却灰中の重金属等の成分分析項目  
カドミウム、鉛、クロム、砒素、セレン

## 3. パルフォームの環境負荷調査結果

試験には表1のA～Eまでの5種類のパルフォームを用いた。パルフォーム(E)は(A)同様、段ボールを原料として用いているが、柔軟化剤の添加が少なくなっており(A)に比べ硬めに出来ている。

表1 試験に用いたパルフォームの種類

種類	原料古紙	バインダー	柔軟化剤
パルフォーム(A)	段ボール	ゼラチン	多い
パルフォーム(B)	中質紙	ニカワ	多い
パルフォーム(C)	漫画本	ニカワ	多い
パルフォーム(D)	ゲボール	ニカワ	多い
パルフォーム(E)	段ボール	ゼラチン	少ない

注) ゲボール：段ボール以外の包装箱

### 3.1 パルフォーム焼却に伴う有害ガス発生調査

パルフォームの燃焼は、あらかじめ800℃に加熱したマッフルの中央に、パルフォーム約0.2～0.4gを入れる。これに不純物を含まない純空気を、約0.5ℓ/minで通気し、試料を約15～20分で完全燃焼させる。この燃焼ガスを吸

収液に通し、ガス成分を吸収させ、それぞれの項目の測定を行った。

(1) 各項目の測定方法

吸収液35mlを吸収瓶に入れ、燃焼ガスを吸収させた後、洗浄液を合わせ50mlとし、それぞれの分析に用いた。なお硫酸化物については、0.5%のカタラーゼで過酸化水素を分解した後、分析に用いた。なおそれぞれの吸収液、定量法は表2のとおり。

表2 分析条件

測定項目	吸収液	定量法
塩化水素	0.01N NaOH	イオンクロマトグラフ
硫化水素	2.2%過酸化水素	イオンクロマトグラフ
塩素ガス	0.01%オルトトリジン溶液	発色法
フッ素	0.01N NaOH	イオンクロマトグラフ
重金属酸化物	HNO <sub>3</sub> (1+100)	フレイムレス原子吸光光度計

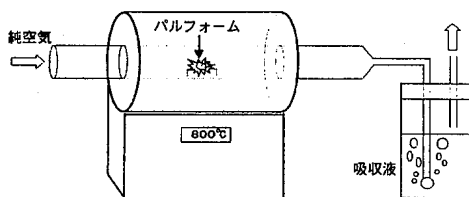


図1 燃焼実験装置

(2) 有害ガス発生調査結果

塩化水素、塩素ガス、フッ素ガス、カドミウム、鉛、クロム、砒素、セレンの測定結果を資料1に示す。

① 塩化水素ガス

パルフォームの塩化水素含量は、131~165mg/kgで種類ごとの差はあまりみられなかった。ガス濃度換算値は最大で24mg/N<sup>m</sup>であり、廃棄物焼却炉の基準値700mg/N<sup>m</sup>の三十分の一程度であった。また県内の平均的な一般廃棄物焼却施設からの排ガス処理前の濃度は550~1200mg/N<sup>m</sup>程度であり、パルフォームによるごみ焼却施設への負荷は少ないものと考えられる。

② 塩素ガス

パルフォームのすべての種類が、大気汚染防止法の排出基準30mg/N<sup>m</sup>未満であった。

③ フッ素ガス

パルフォームAの段ボールから定量下限近くの10mg/kgが検出されたものの、大気汚染防止法の排出基準10mg/N<sup>m</sup>の十分の一程度であった。他の種類からは検出されなかった。

④ 重金属

パルフォームAの段ボールから鉛が0.048mg/N<sup>m</sup>が検出された以外は、カドミウム、クロム、砒素、セレンともすべて検出されなかった。なお検出された値も、大気汚染防止法の排出基準30mg/N<sup>m</sup>より、はるかに低い値であった。

⑤ 硫酸化物

パルフォームより硫黄含量0.04~0.23%の範囲で検出

された。大気汚染防止法による重油その他石油系燃料の硫黄含量は0.7%以下とされており、パルフォームの最大値でも、この三分の一以下であった。パルフォーム中の硫黄由来を調べるため、古紙原料や市販用紙中の硫黄含量も併せて調査した結果を図2に示す。

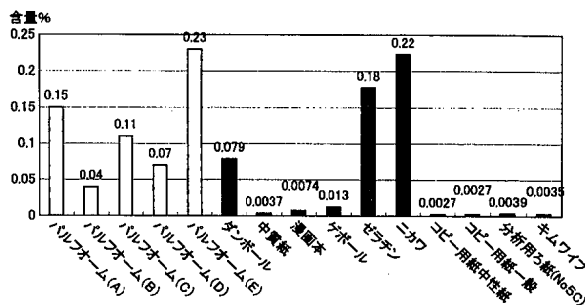


図2 硫黄含量

これによると、市販用紙は0.003%前後で、古紙原料では中質紙が同程度であった。ついで漫画本、ゲボールの順で高くなり段ボールが0.079%と古紙原料の中で一番高い値を示した。次に添加剤のゼラチンは0.18%と段ボールの2倍以上、ニカワは3倍程度の値を示した。このためパルフォームの硫黄含量は古紙原料の種類及び添加剤の含有割合に影響されることがわかった。なおゼラチン中の硫黄はタンパク質の組成成分であると思われる。

パルフォーム燃焼時の予想される硫酸化物濃度は110~680mg/N<sup>m</sup>であった。硫酸化物は濃度規制ではなく、総量規制となっているため規制値との比較はできないものの、県内の平均的なごみ清掃工場排ガス中の硫酸化物濃度は70~130mg/N<sup>m</sup>程度であり、これと比較すると最大値でほぼ5倍高い換算値となる。このため、ごみ焼却施設への硫酸化物の負荷は若干増すものと考えられる。

今後に向け、硫酸化物濃度の低いバインダーの検討が課題となる。

3.2 パルフォーム埋立に伴う溶出成分調査

古紙再生活用緩衝材であるパルフォームの環境に対する負荷を判定するため、廃棄物処理法に定める溶出試験を実施した。その結果を資料2に示す。結果は表のとおり、産業廃棄物の溶出規制項目すべてにおいて有害物が検出されず、判定基準を十分に満足している。

また、その保湿性緩衝性からして、園芸資材の培養土として利用される等、使用用途拡大が期待されることも考えられるため、土壤環境基準との比較も実施した。これは、人の健康を保護し、生活環境を保全するうえで維持することが望ましい基準として定められたものであるが、資料2から明らかなように十分に満足する値であった。なお溶出試験法は産業廃棄物に含まれる金属等の検定方法(昭和48年2月17日環境庁告示13号)に準拠して行った。このなかで、溶出溶媒と試料の混合割合は10%とされているが、試料はミキサー粉碎により単位重量当

たりの容積が大きいため、揮発性有機化合物は1%、重金属やその他は2%で実施した。結果については混合割合に応じて補正した。なお土壌環境基準における測定法は廃棄物の溶出試験と同じである。

### 3.3 パルフォームの重金属の調査

パルフォームは園芸等での再利用による土壌還元や、リサイクル使用の最終段階での焼却が考えられるため、これに含まれる重金属の環境影響評価を行った。

#### (1) パルフォームの重金属含量

パルフォーム及び古紙原料中の重金属含量を資料5に示す。これらの値は室内放置のそのままの湿重量換算で求めた。測定の結果カドミウム、砒素、セレンはいずれも検出されなかった。しかし鉛(図3)、クロム(図4)の含有が認められた。鉛はパルフォームには少なく、古紙原料、特に段ボール、ゲボールに多く含まれ、バインダーのゼラチン、ニカワには含まれていなかった。

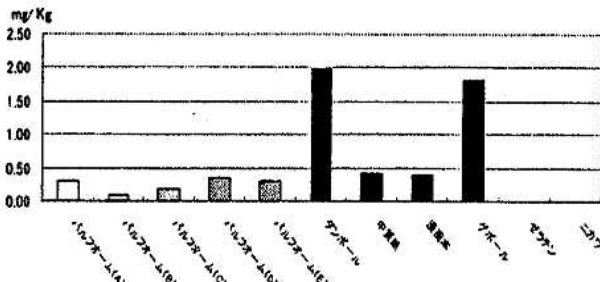


図3 鉛の含量

ゼラチンやニカワの添加により、パルフォームの鉛含有量の減少がみられた。このことは古紙のみのリサイクルに比べ、パルフォームはゼラチン等の、鉛を含まない素材を組み合わせていることによるものであり、リサイクルを繰り返すほど鉛濃度が減少し、環境に与える負荷が少なくなることが期待できる。

クロムについては図4に示されるように、ほぼ鉛の十倍程度の値を示した。パルフォームと古紙原料のクロム濃度を比較すると、鉛と同じようにパルフォームが低く、古紙のみのリサイクルに比べ、環境に与える負荷が少なくなことを示している。

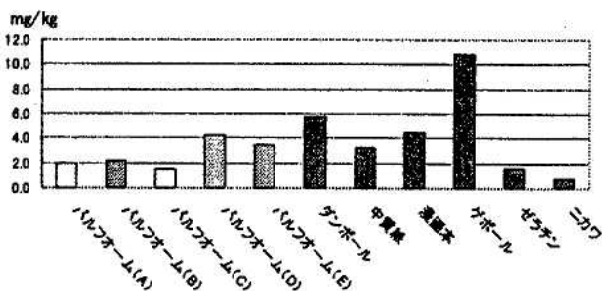


図4 クロムの含量

パルフォームのクロム濃度は、古紙原料濃度と比例し

ており、特にゲボール使用のパルフォームDが一番高い値を示している。

以上のようにパルフォームの重金属については、カドミウム、砒素、セレンは検出されなかったものの、鉛とクロムが検出された。パルフォームが園芸土壌改良材として土壌還元されることを想定して評価を試みた。元素の地殻存在度と土壌濃度との比較を行った(表3)。元素の地殻存在度との比較ではパルフォームはこの値より、はるかに低く、これら重金属については、環境に与える影響は少ないものと考えられる。

表3 地殻存在度とパルフォームとの重金属含有

	単位mg/kg				
	Cd	Pb	Cr	As	Se
地殻存在度	0.098	8	185	1	0.05
作土土壌濃度	0.31	7.3		1.94	
パルフォーム	0.05未満	0.08~0.03	1.5~4.3	0.05未満	0.05未満

又、県内の土壌環境基礎調査(1979年~1982年)による表層作土平均分析値より、はるかに低く、これら重金属については土壌環境に与える影響は少ないと考えられる。クロムについては汚泥発酵肥料の含有許容量の最大値は500mg/kgとなっており、パルフォームは、はるかに低い値であった。

#### 3.4 焼却灰の重金属について

パルフォームはリサイクル使用の最終段階では焼却されることもあることから、これら燃焼焼却灰の重金属調査を実施した。これら結果を資料3に示す。パルフォームを800℃で燃焼させた残分は2.7~6.8%で中質紙使用のパルフォームBが一番高かった。焼却灰の重金属濃度はカドミウム、砒素、セレンは検出されず鉛、クロムがパルフォーム素材の約10~20倍程度検出された。図5に焼却灰中の鉛濃度を示す。これによるとパルフォームはいずれも古紙原料より低い値であった。

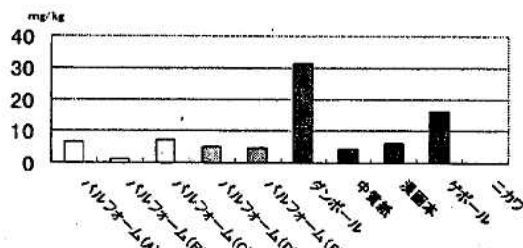


図5 焼却灰の鉛濃度

古紙原料の段ボールが高い値を示した。なおゼラチン、ニカワからは検出されなかった。図6に焼却灰中のクロム濃度を示す。パルフォームはクロム濃度も鉛濃度とほぼ同じような傾向を示し、鉛と同様、古紙原料より低い値を示している。

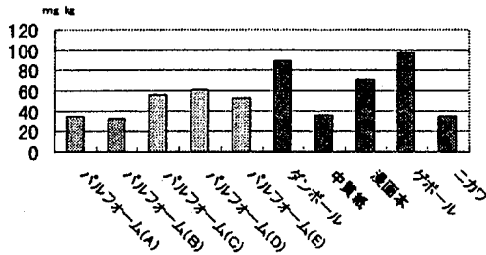


図6 焼却灰のクロム濃度

焼却灰を埋め立てる際は、廃棄物の溶出試験による濃度より規制される。今回、焼却灰の溶出試験は実施していないので基準と比較は出来ないが、わが国における一般的な農地においては鉛が2~220mg/kg、クロムが20~200mg/kgとなっておりこれらと比較しても、パルプフォームは低い値を示している。

## 4. まとめ

### 4.1 循環型社会システム構築のために

#### (1) ゼロエミッションの推進

環境負荷の少ない持続的発展が可能な地域社会が望まれており、循環型社会システムの構築が肝要である。なかでもゼロエミッション（廃棄物を出さない対策）の推進は、快適環境の創造のためにも、非常に重要なテーマである。

環境保全のためには循環型社会システムへの転換が重要であり、資源を有効活用し、生活環境まで目を向け、環境負荷の低減を図ることが肝要であると言われている。

#### (2) 新たな廃棄物処理の潮流

環境負荷の少ない資源循環型社会システムの構築が求められており、「燃やす・埋める」から「資源化・リサイクル」そして「発生抑制・減量化」への移行により、総合的に環境負荷の低減を図っていく必要がある。

#### 〔新たな廃棄物処理の潮流〕

- ・容器包装リサイクルシステムの本格化
- ・家電リサイクルシステムの制度導入、適正推進、円滑実施
- ・サーマルリサイクル、マテリアルリサイクル、パルプリサイクル等のベストミックスシステムの確立
- ・未利用資源の活用（有機系廃棄物のコンポスト化、メタンの発酵等）

#### (3) 課題への取り組み

循環型社会システムの早期構築を図るため、諸課題を検討し、早期に施策・システムの確立を図ることが重要である。

なかでも、効率的なリサイクル技術の開発が重要であり、古紙リサイクルの分野においては利用率向上のため、古紙の用途拡大としての素材開発が注目されているところである。また、プラスチック代替品としての緩衝材の開発も、環境負荷軽減につながり、環境配慮製品ということができる。

### 4.2 エコマテリアル素材の環境負荷の評価

リサイクル素材については、基本的に再利用される点では、環境配慮製品ということが出来るが、廃棄まで含めた総合的な環境負荷に関する検討がほとんどなされていない状況にある。

このたび、エコマテリアル素材の有害物質含有量を指標として評価を試みたところ下記のとおりであった。

- ① 燃焼時の有害ガス発生状況を見ると、塩化水素、塩素、フッ素、カドミウム、鉛、クロム、砒素、セレンとも、いずれも基準値よりはるかに低く環境負荷としては非常に低いレベルであると考えられる。
- ② 燃焼時の硫黄酸化物はバインダーに含まれる硫黄分により、古紙原料より高い値となっている。このため、ごみ焼却施設への硫黄酸化物の負荷は若干増すものと考えられる。今後に向け、より環境負荷の低いバインダーの検討が課題となる。
- ③ パルプフォームはゼラチン等の重金属を含まない素材を組み合わせており、リサイクルを繰り返すほど重金属濃度が減少し、環境に与える負荷が少なくなることが期待できる。
- ④ 土壌環境基準等を充分満足するなど、また保湿性緩衝性からして、園芸資材の培養土として利用される等の使用用途拡大が期待される。
- ⑤ 埋立に伴う溶出については廃棄物に係る溶出規制項目すべてにおいて有害物等が検出されておらず、判定基準を満足している。

### 結 論

焼却に伴う排ガス中の硫黄酸化物の負荷増加の課題があるものの、埋立に伴う溶出、焼却に伴う排ガス、素材成分について問題はなく、エコロジカルな素材であると検証される。

### 4.3 今後に向けて

総合的環境負荷の評価のためには、LCA手法等の採用により、素材毎に原料調達時、製造時、消費時そして廃棄時における環境負荷を算定し、総合評価を加えていくことが重要であり、早期に評価手法の確立が望まれる。

また、エコマテリアル素材の用途拡大のため各種研究も重要と考えられる。

#### 〔今後の研究予定〕

- ・エコマテリアル素材の変異原性試験による評価
- ・使用用途拡大可能性模索

なお本研究はNEDO（新エネルギー・産業技術総合開発機構）の委託を受け実施したものであります。

資料1 燃焼による有害ガス発生調査

(1) エコマテリアル焼却に伴う排ガス中の有害ガス発生状況

エコマテリアル	塩化水素 (HCl)		塩素ガス		フッ素	
	含量 mg/kg	ガス濃度換算 mg/N m <sup>3</sup>	含量 mg/kg	CL濃度換算 mg/N m <sup>3</sup>	含量 mg/kg	ガス濃度換算 mg/N m <sup>3</sup>
パルフォーム(A)	160	24	200未満	30未満	10	1.5
パルフォーム(B)	145	21	200未満	30未満	10未満	1未満
パルフォーム(C)	165	24	200未満	30未満	10未満	1未満
パルフォーム(D)	131	19	200未満	30未満	10未満	1未満
パルフォーム(E)	154	23	200未満	30未満	10未満	1未満
※基準値		700		30		10

(2) エコマテリアル焼却に伴う排ガス中の重金属発生状況

エコマテリアル	カドミウム	鉛	クロム	砒素	セレン
	ガス濃度換算 mg/N m <sup>3</sup>	ガス濃度換算 mg/N m <sup>3</sup>	ガス濃度換算 mg/N m <sup>3</sup>	ガス濃度換算 mg/N m <sup>3</sup>	ガス濃度換算 mg/N m <sup>3</sup>
パルフォーム(A)	0.03未満	0.048	0.03未満	0.03未満	0.03未満
パルフォーム(B)	0.03未満	0.03未満	0.03未満	0.03未満	0.03未満
パルフォーム(C)	0.03未満	0.03未満	0.03未満	0.03未満	0.03未満
パルフォーム(D)	0.03未満	0.03未満	0.03未満	0.03未満	0.03未満
パルフォーム(E)	0.03未満	0.03未満	0.03未満	0.03未満	0.03未満
※基準値	1	30			

※ 基準値は大気汚染防止法に基づく。

資料2 有害物質溶質試験結果

検査項目	産業廃棄物基準値 ※1	土壌環境基準値 ※2	パルフォーム(A)	パルフォーム(B)	パルフォーム(C)	パルフォーム(D)	パルフォーム(E)
	mg/l	mg/l	ダンボール	中質紙	漫画本	ゲボール	ダンボール
	mg/l	mg/l	mg/l	mg/l	mg/l	mg/l	mg/l
アルキル水銀化合物	検出されないこと	検出されないこと	検出せず	検出せず	検出せず	検出せず	検出せず
水銀又はその化合物	0.005	0.0005	0.0005未満	0.0005未満	0.0005未満	0.0005未満	0.0005未満
カドミウム又はその化合物	0.3	0.01	0.005未満	0.005未満	0.005未満	0.005未満	0.005未満
鉛又はその化合物	0.3	0.01	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005
有機燐化合物	1	ND	0.1未満	0.1未満	0.1未満	0.1未満	0.1未満
六価クロム又はその化合物	1.5	0.05	0.005未満	0.005未満	0.005未満	0.005未満	0.005未満
砒素又はその化合物	0.3	0.01	0.005未満	0.005未満	0.005未満	0.005未満	0.005未満
シアン化合物	1	ND	0.1未満	0.1未満	0.1未満	0.1未満	0.1未満
PCB	0.003	ND	0.001未満	0.001未満	0.001未満	0.001未満	0.001未満
トリクロロエチレン	0.3	0.03	0.001未満	0.001未満	0.001未満	0.001未満	0.001未満
テトラロロエチレン	0.1	0.01	0.001未満	0.001未満	0.001未満	0.001未満	0.001未満
ジクロロメタン	0.2	0.02	0.001未満	0.001未満	0.001未満	0.001未満	0.001未満
四塩化炭素	0.02	0.002	0.001未満	0.001未満	0.001未満	0.001未満	0.001未満
1,2-ジクロロメタン	0.04	0.004	0.001未満	0.001未満	0.001未満	0.001未満	0.001未満
1,1-ジクロロエチレン	0.2	0.002	0.001未満	0.001未満	0.001未満	0.001未満	0.001未満
シス1,2-ジクロロエチレン	0.4	0.04	0.001未満	0.001未満	0.001未満	0.001未満	0.001未満
1,1,1-トリクロロエタン	3	1	0.001未満	0.001未満	0.001未満	0.001未満	0.001未満
1,1,2-トリクロロエタン	0.06	0.006	0.001未満	0.001未満	0.001未満	0.001未満	0.001未満
1,3-ジクロロプロペン	0.02	0.002	0.001未満	0.001未満	0.001未満	0.001未満	0.001未満
ベンゼン	0.1	0.01	0.001未満	0.001未満	0.001未満	0.001未満	0.001未満
セレン又はその化合物	0.3	0.01	0.005未満	0.005未満	0.005未満	0.005未満	0.005未満

※1 金属等を含む産業廃棄物に係る判定基準を定める総理府令(第一条 産業廃棄物の埋立処分に係る判定基準、第三条 特別管理産業廃棄物の埋立処分に係る判定基準)

※2 環境基本法第一六条第一項に基づく土壌環境基準

資料3 燃焼灰の重金属含量

(1) エコマテリアル焼却灰の重金属

エコマテリアル	カドミウム mg/kg	鉛 mg/kg	クロム mg/kg	砒素	セレン ng/kg	強熱残分 mg/kg
パルフォーム(A)	1未満	6.40	34.5	1未満	1未満	5.5
パルフォーム(B)	1未満	1.18	32.2	1未満	1未満	6.8
パルフォーム(C)	1未満	7.03	55.5	1未満	1未満	2.7
パルフォーム(D)	1未満	5.07	60.6	1未満	1未満	7.1
パルフォーム(E)	1未満	4.84	53.0	1未満	1未満	6.6

(2) 古紙原料の焼却灰重金属含量

原料	カドミウム mg/kg	鉛 mg/kg	クロム mg/kg	強熱残分 %
ダンボール	1未満	31.2	89.0	6.4
中質紙	1未満	4.36	35.1	9.4
漫画本	1未満	6.16	71.4	6.3
ゲボール	1未満	16.2	97.3	11.1
ニカワ	1未満	1未満	34.8	2.3
ゼラチン	-	-	-	0.0

## 宮城県における光化学オキシダントの特徴 (1999年度)

Characteristic of the photochemical oxidant in Miyagi Prefecture  
(in the fiscal year 1999)

野村 保 中村 栄一 仁平 明\*<sup>1</sup>  
佐藤 信俊 沢田 和夫\*<sup>2</sup> 鈴木 康民

Tamotu NOMURA, Eiichi NAKAMURA, Akira NIDAIRA  
Nobutoshi SATOU, Kazuo SAWADA, Yasutami SUZUKI

キーワード：光化学オキシダント高濃度日、光化学反応、成層圏からのオゾンの沈降、輸送現象、定常近似反応

Key Words : Photochemical oxidant high density day, Photochemical reaction, Subsidence of the ozone from the stratosphere, Transport phenomenon, Approximation reaction

1999年度に光化学オキシダントの高濃度が観測された日の特徴を、一次汚染物質の光化学反応、高濃度地域からの輸送及び成層圏オゾンの対流圏への沈降の3点から解析したところ、7月30日、7月23日及び5月1日の高濃度事例がそれぞれの原因の特徴を強く示すものであった。

また、宮城県の光化学オキシダント濃度は、高濃度日を除くと、ほぼ全局が同様な変化を示しており、その変化は光化学オキシダントのバックグラウンドとして考えられる筧岳局の濃度に対して定常近似反応がおこなっていることを窺わせるものであった。

### 1. はじめに

1999年度(平成11年度)4月1日から9月30日までの183日間の緊急時光化学オキシダント測定期間中、光化学オキシダントが90ppb以上の高濃度を観測した日は12日間であった。高濃度日の特徴を気象要素、出現位置、出現時刻の視点から眺めると、500m以下の逆転層の出現及び露点の降下、地域的な偏り並びに日照が最強のとき以外の出現等があった。特に入梅までの期間で朝9時の仙台気象台観測による露点降下、下降したのち上昇するときに高濃度日が出現する(図1)現象は成層圏オゾンの沈降と考え合わせると興味深いものがある。

これらの特徴を踏まえて、一次汚染物質の光化学反応、高濃度地域からの輸送及び成層圏オゾンの対流圏への沈降現象の3点から解析したところ、7月30日、7月23日及び5月1日の高濃度事例がそれぞれの原因の特徴を強く示すものであり、本県では、いずれの原因でも高濃度が出現していることが窺えた。

また、高濃度以外の日では、特に秋から春にかけての本県の光化学オキシダントが、バックグラウンドとして考えられている筧岳局の光化学オキシダント濃度と各測定局のNO<sub>x</sub>濃度が定常近似反応を起こし、各測定局の光

化学オキシダント濃度が出現していると考えられる解析結果が得られた。

次に、この解析結果について報告する。

### 2. 光化学オキシダント高濃度事例

#### ① 光化学反応による高濃度出現と推測された事例

7月30日に内陸部の大和(95ppb/14時)、古川Ⅱ(93ppb/15時)局で90ppbを超える光化学オキシダントが観測された。この日の気象状況は、仙台港朝8時の風速0.8m/sで代表されるように午前中は風が弱く、朝9時には495mに逆転層があり、日射時間は10時間、気温は30℃を超えるなど、いわゆる、光化学スモッグが発生するといわれる気象条件を満足していた。この日の大和局の光化学オキシダントは、最小値1ppbから出発し最大値95ppbに至り、日較差は94ppbであった。バックグラウンドといわれている筧岳局のこの日の最小値も14ppbと低く、69ppbの日較差を記録している。

この日の光化学オキシダント濃度は海岸部から内陸部に移動するに従い高くなっており、利府局で観測された気塊は大和局に到達し、さらに古川Ⅱ局へと移動している形跡がピークの時間的な推移から推測される(図2)。この傾向は7月27日の光化学オキシダント濃度変化で、

\*1 現 原子力安全対策室 \*2 現 宮城県下水道公社



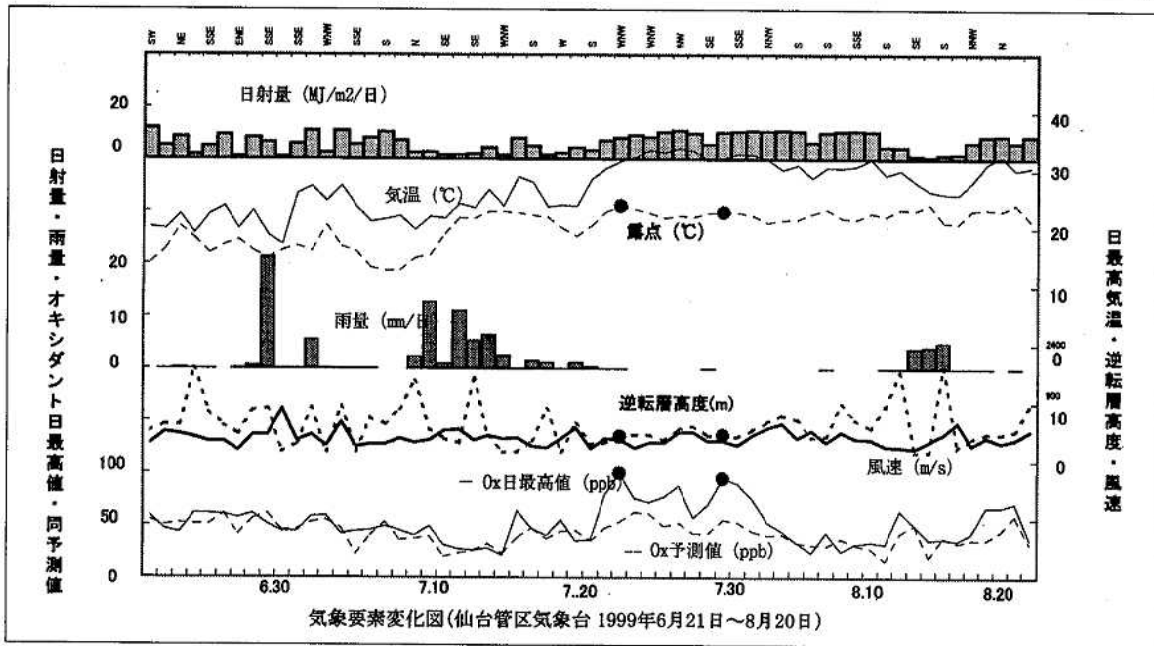
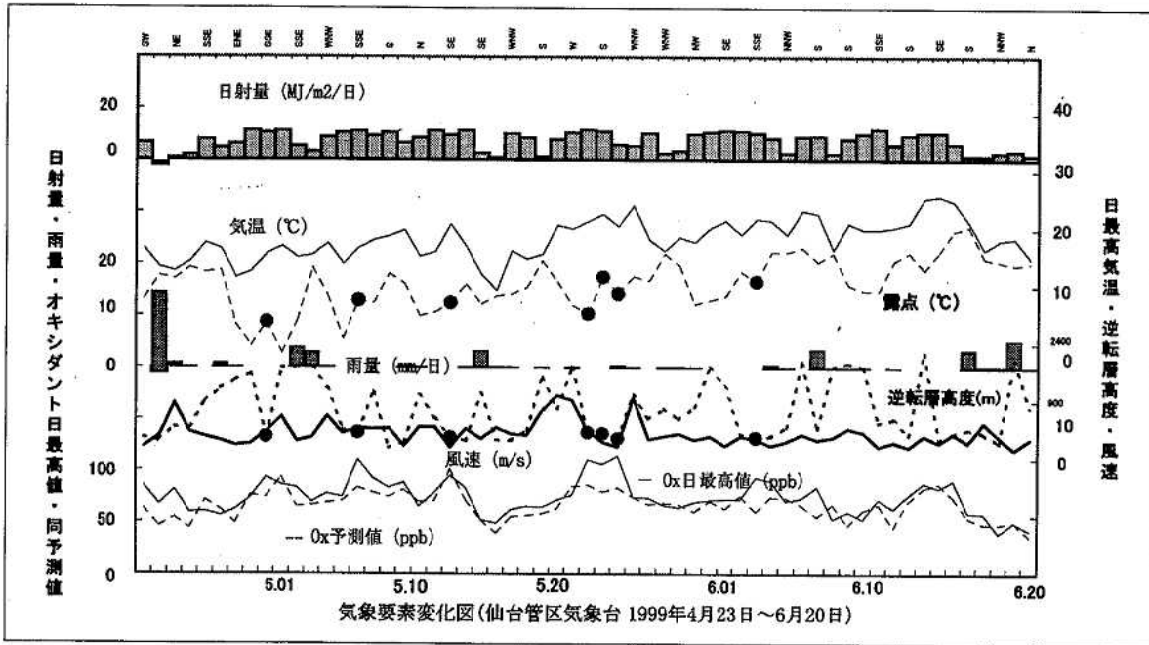


図1 気象要素の変化とOx高濃度日

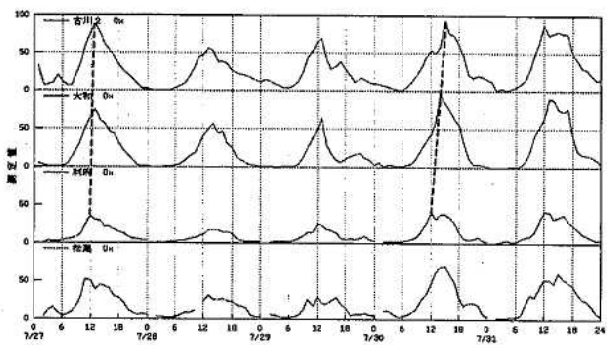


図2 O<sub>3</sub>気塊の移動

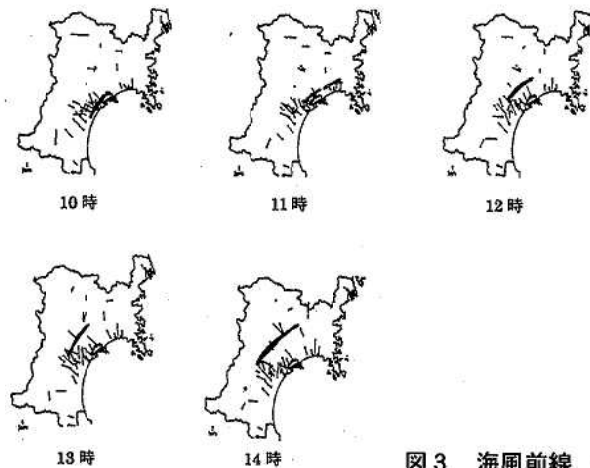


図3 海風前線

より明瞭に現われている。また、矢本Ⅱで観測された気塊が箕岳へと移行している形跡も見られる。

この日の光化学オキシダント高濃度出現時刻は、海風前線の出現とほぼ一致していた。海風は、10時から11時にかけて松島局と石巻局までに達し、さらに、11時から12時にかけて大和局へ、12時から13時にかけて古川Ⅱ局へと侵入している(図3)。この時刻とほぼ同じくしてそれぞれの局において光化学オキシダント濃度が急激に変化している現象が見られた。

以上のような現象から、当日は汚染物質が光化学反応を引き起こしながら、海風に伴い海岸部から内陸部へ侵入していったものと推測される。

② 輸送現象による高濃度出現と推測された事例

7月23日には夜半に90ppb以上が観測された。中野局では18時以降光化学オキシダントが急騰し20時に100ppbを観測した。また、石巻局では20時に99ppbを、箕岳局では21時に98ppbを観測し、石巻局から、箕岳局、追局へと気塊が流れていた形跡も認められた(図4)。中野と石巻局は約50km離れているが、17時から20時にかけてのこの日の変化は類似していた。

この日の18時の地上天気図には、秋田沖に弱い熱帯低気圧があり、高気圧縁辺の空気が流入していた(図6)。この地上天気図と一致するように、仙台港、八木山では21時ころから温かい空気が流入しており、光化学オキシダント濃度の上昇とほぼ重なっていた。また、石巻、箕岳局のSPM濃度が光化学オキシダントと同じく上昇しており(図5)、汚染された空気が流入したことを窺わせている。

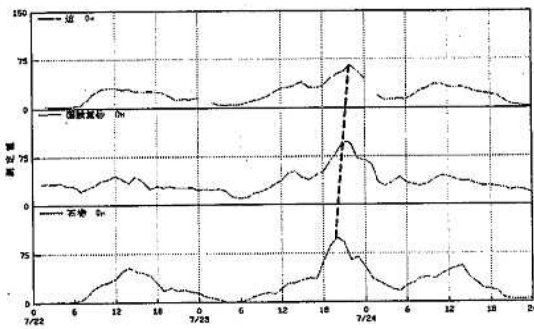


図4 Ox気塊の移動(7/23)

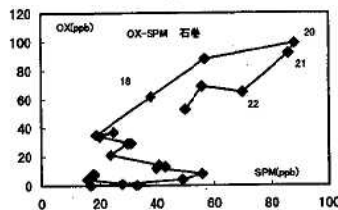


図5 OxとSPM

本県では、仙台港で強い南風が観測されるときに高濃度の出現が見られる。9月24日がこの事例に当てはま

り、20m/s近い南風が17時から仙台港上空で吹き初め、これと同じくして海岸地域の光化学オキシダントの濃度が急上昇し松島局で83ppbを観測した。9月24日の気象条件は、台風18号が日本海からオホーツク海に向かって進んでおり、これに向かっの強い南風であった(図6)。

7月23日は、秋田沖に熱帯低気圧があったが、仙台港の風は20時にS1.4m/sであった。しかし、アメダスデータによれば、北関東では11時ころから17時ころまで南風が吹き、筑波山の風速は3~5m/s(S~SSW)となっていた。(図7)。

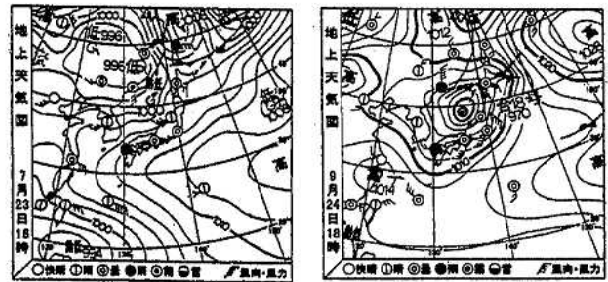


図6 7月23日と9月24日の地上天気図

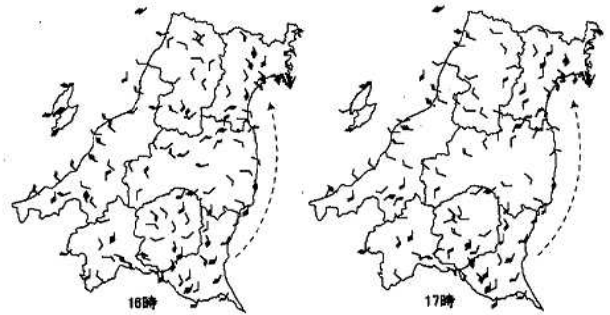


図7 7月23日 北関東からの風の流れ

以上のような現象から、当日のナイトスモッグは輸送による高濃度の出現であることを強く示唆するものであった。

③ オゾンの沈降が重要な役割を果たし高濃度が出現したと推測された事例

5月1日には丸森(93ppb/16時)と多賀城Ⅱ(91ppb/16時)局で90ppbを超えた。この日、丸森局では朝6時ころから光化学オキシダント濃度が上昇し始め、16時には最高濃度93ppbを観測した。また、18時以降は急減した。翌日も朝6時から急増し、9時に86ppbのピークを観測している。1日の16時のピークと2日の9時のピークを線で結ぶと滑らかな変化となり、この変化は箕岳局の変化と相似してくる(図8)。1日の18時以降には地上付近に逆転層が出現してきており、光化学オキシダント濃度の急激な減少は、地上付近でのO<sub>3</sub>の急激な消費によるものと推測される。

5月1日の光化学オキシダント濃度は全県が類似の変

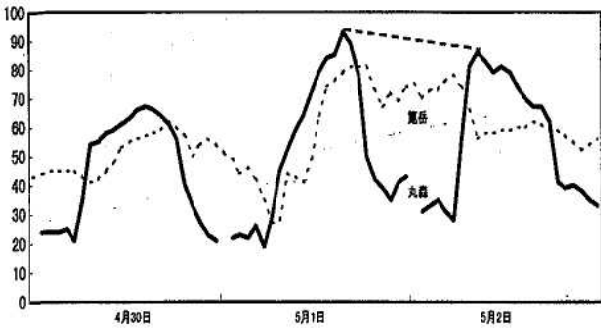


図8 丸森局と筧岳局のOx濃度変化

化を示しており、NO<sub>x</sub>濃度の少ない丸森、筧岳局の濃度が高いのも特徴的である。なお、5月1日を挟んだ4月29日から5月3日の期間の光化学オキシダント濃度も同様な変化を示しており、全県が一つの光化学オキシダント気塊に覆われていたことを窺わせるものである。

この日の気象状況は、2日前に気圧の谷が通過し、高気圧の後面に当たっており(図9)、成層圏O<sub>3</sub>の沈降が現われる気象条件を満足していた。また、気象庁月報によると、この日925hpa上空の湿度は17%と低く成層圏の大気の沈降を示唆するものであった。なお、この日の最高気温は17.1℃と平年並(17.5℃)である。

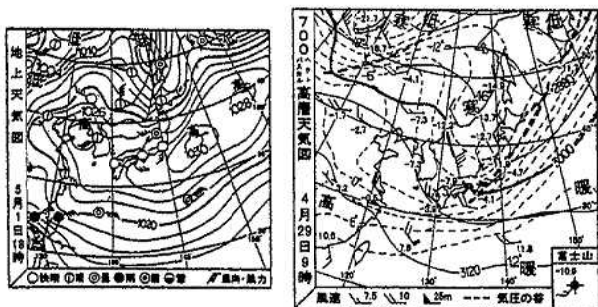


図9 5月1日の地上天気図及び4月29日高層天気図

以上のような現象から、当日の高濃度出現には成層圏から沈降したO<sub>3</sub>が重要な役割を果たしていたと推測される。

### 3. バックグラウンド濃度と各測定局のオキシダント濃度

上記の①や②の事例の日は、地域的に特徴のある濃度変化を示すが、本県の光化学オキシダント濃度変化の大部分は③の事例と同じように全体が類似の変動を示している。県内全局の光化学オキシダント濃度間の相関関係では、石巻、矢本II局間のR=0.95から多賀城II、気仙沼間のR=0.67まで広がるが、日射量が観測されたとき(SR>0)だけの値に限ると、ほとんどで相関係数が高くなり、仙台市内の各局間ではR=0.9以上の上位を占めてくる(表1)。さらに、この相関行列を基に主成分分析を行うと、第1主成分の寄与率が85.6%を占め、ひとつの因

子によって全体が大きく変動していることを推測させる。

筧岳局は、日射量が観測されたときだけのデータに限るとR=0.1ポイント近く上昇し、大きく変化する。筧岳局は、海拔165mにあり付近に発生源もほとんどないため、光化学オキシダントの日変化は小さく全国的にも光化学オキシダントのバックグラウンドとして知られている局である。筧岳局では、春に高く夏から秋にかけて低くなるバックグラウンド特有の変化を観測することもできる(図10)。年間の大部分の日で、バックグラウンドである筧岳局と各局間で相関が高いことは興味深いことである。

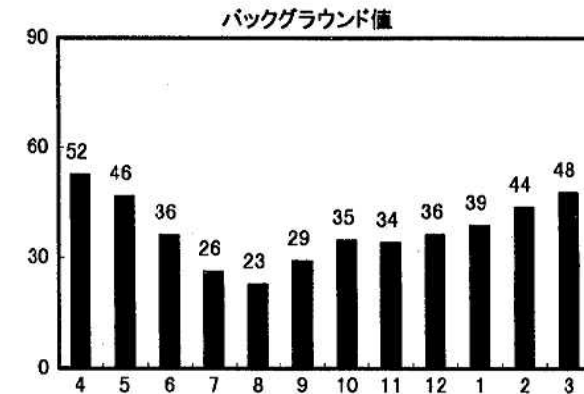
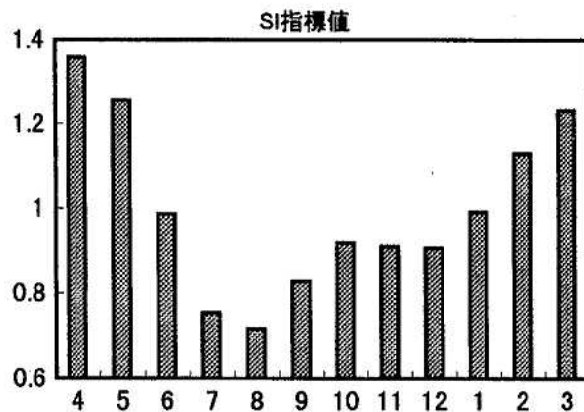


図10 Ox濃度のSI指標及びバックグラウンド値

注：バックグラウンド値は月最大値の最小の値と、月最小の最大の値との中間の値として、1989年度から1998年度までの値を平均した値。

高濃度日以外の光化学オキシダント濃度は全県が大きな一つのかたまりとして動いていると推測されることから、O<sub>3</sub>とNO<sub>x</sub>との定常近似反応を仮定し定常近似式を使用して計算したところ、大部分の局で計算結果と実測値の相関が非常に高かった(表2、図13)。

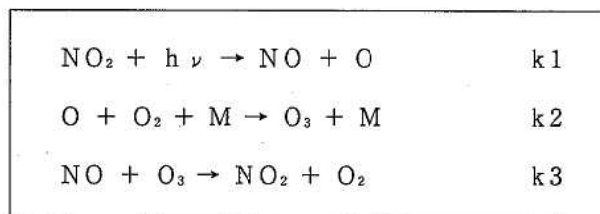


図11 定常近似反応式



また、月別で計算した結果では、大和局と笹岳局の2月、3月の実測値間の決定係数が $R^2=0.34, 0.44$ であったのに対し、定常近似計算結果と大和局の実測値との間では $R^2=0.96, 0.93$ と、特に大きな差異が見られた(図13)。

このことから、実測値間の相関を低くしている要因としてNOによるO<sub>3</sub>の消費反応を推測することができ、年間の大部分の日は、上空のO<sub>3</sub>と測定局近辺で観測されたNO<sub>x</sub>とが定常近似反応を引き起こし、光化学オキシダント濃度を決定していると推測される。

ただし、笹岳局の光化学オキシダント濃度日較差が、過去に8月に最大で107ppbを観測したことがありバックグラウンドと一言でいってしまうには注意が必要である。また、定常近似反応で上昇するO<sub>3</sub>濃度は高々30ppbであるといわれていることを考慮しなければならない。

#### 4. まとめ

1999年度の高濃度出現状況を、一次汚染物質の光化学反応、高濃度地域からの輸送及び成層圏オゾンの対流圏への沈降の3点から解析したところ、それぞれの特徴を強く示す事例を見出すことができた。また、年間の大部分は全県が一律の光化学オキシダント濃度変化を示していることから、O<sub>3</sub>とNO<sub>x</sub>との定常近似反応モデルを使って計算したところ実測値間より高い相関係数が確認された。

このことから、宮城県の光化学オキシダントは日常的には全県が相似した変化を示し、通常は定常近似反応によって濃度が決まってくるが、通説となっている3つの原因によって高濃度が出現すると仮定することで、光化学オキシダントの特徴を把握できるものであった。

$$\begin{aligned}
 [\text{NO}_x] &= [\text{NO}_x]_{\text{BG}} + [\text{NO}_x]_{\text{DF}} \\
 [\text{PO}] &= [\text{NO}_2] + [\text{O}_3] \\
 &= (1-\gamma)[\text{NO}_x]_{\text{DF}} + [\text{O}_3]_{\text{BG}} + [\text{NO}_2]_{\text{BG}} \\
 \text{S} &= [\text{PO}] + [\text{NO}_x] + \beta \text{とし} \\
 \\ 
 [\text{NO}_2] &= \text{S}/2 - \text{SQRT}(\text{S}^2/4 - [\text{PO}] \times [\text{NO}_x]) \\
 [\text{NO}] &= [\text{NO}_x] - [\text{NO}_2] \\
 [\text{O}_3] &= \beta \times [\text{NO}_2] / [\text{NO}] \\
 \beta &= k1/k3
 \end{aligned}$$

図12 定常近似モデル計算式

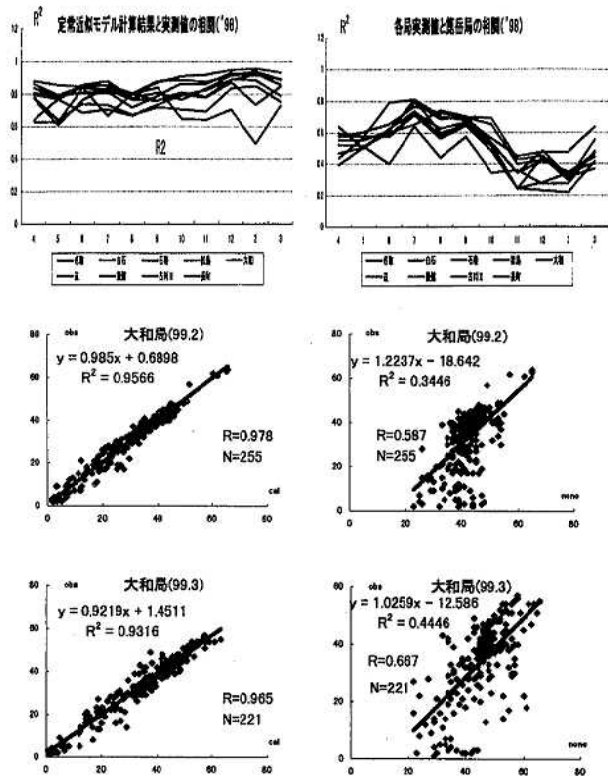


図13 定常近似計算結果と実測値

## 全県一斉酸性雨調査結果について

### Simultaneous Survey of Acid Rain throughout MIYAGI Prefecture

佐久間 隆 木戸 一博 小野 研一  
中村 栄一 野村 保 仁平 明\*<sup>1</sup>  
沢田 和夫\*<sup>2</sup>

Takashi SAKUMA, Kazuhiro KIDO, Ken-ichi ONO  
Eiichi NAKAMURA, Tamotsu NOMURA, Akira NIDAIRA  
Kazuo SAWADA

キーワード：酸性雨、水平分布、海塩粒子

Key words : Acid Rain, Horizontal Distribution, Seasalt Particle

全県一斉酸性雨調査結果に関して、平成11年度第1回調査時（梅雨期）の降水は中和及び海塩粒子の影響が小さく、これまで実施した中でも低いpHが出現し、大気汚染の降水酸性化能力を支配する要因が地表付近に最も反映した事例であった。主要イオン成分濃度は、地域的に降水量の増加とともに減少する関係を示したが、 $nssCa^{2+}$ 濃度は比較的濃度の高いものが降水量10mm位までの間に急激に減衰し、さらに降水量が多くなると低濃度の $nssCa^{2+}$ が緩やかに減衰する2つの段階が考えられた。第2回調査時（秋雨期）の降水は降水量が多く全体的に清浄で低いpHの出現はなかった。三陸沿岸ではECが大きく海塩粒子由来のイオン成分濃度が高く、さらに総イオン量に対する海塩成分の割合は内陸ほど小さくなる傾向があった。

#### 1. はじめに

本県では地域による雨の違いを面的に把握することを目的として、県内の全市町村で一斉に降水を採取する全県一斉酸性雨調査を平成4年度から年2回づつ実施してきた。

これまでの調査結果から、筆者らは中和の影響が小さく海塩成分が少量である降水の場合、同一降水の水平分布上においても分画した降水の時系列の場合と同様に、降水の継続により降水量が多くなるとともに降水中イオン成分濃度の減少が確認されることを前々報<sup>1)</sup>で報告した。さらに同じような発現事例を解析した上で、降水量とイオン成分濃度の関係から簡単なモデルを構成し、実測pHを降水量変化によって説明される部分とそれ以外に分離したところ、pHの水平分布はイオン成分濃度の降水量に応じた地域変化だけで決まる分布を基本として、これに地域的な中和の影響が重なる構造をしていることを前報<sup>2)</sup>で報告した。

今回、これまでの報告<sup>1,2)</sup>を踏まえ平成11年度に実施された調査結果から、酸性雨自動測定や気象庁アメダス観測結果<sup>3)</sup>を参考にし、主要成分濃度と降水量の関係、海塩粒子の影響等について考察した。

#### 2. 方法

##### 2.1 濃度変化式

降水量Rに伴うイオン成分平均濃度Cmの地域変化には、前報<sup>2)</sup>と同様に

$$C_m = D_0 R^{-a} \quad (1)$$

を適用した。D<sub>0</sub>、aをそれぞれ初期濃度、減衰係数とした。

##### 2.2 pH成因モデル

前報<sup>2)</sup>と同様に、降水量とイオン成分濃度の関係から構成した簡単なモデルを用いた。即ち、[H<sup>+</sup>]は主要イオン成分により

$$[H^+] = [nssSO_4^{2-}] + [NO_3^-] - [NH_4^+] - [nssCa^{2+}] \quad (2)$$

で決定されるとしている<sup>5)</sup>。ここで(2)式右辺の各成分濃度は(1)式によって降水量の関数で表現されるため、H<sup>+</sup>濃度も降水量の関数となる。このようにして求めた水素イオンをH<sub>0</sub><sup>+</sup>、水素イオン指数をpH<sub>0</sub>と定義する。また、降水量に依らない分として、実測値からpH<sub>0</sub>、H<sub>0</sub><sup>+</sup>を除去したものをそれぞれΔpH(=pH - pH<sub>0</sub>)、ΔH<sup>+</sup>(=[H<sup>+</sup>] - [H<sub>0</sub><sup>+</sup>])と表す。

##### 2.3 酸性雨指標

前報<sup>2)</sup>と同様に、pH及びECのみ測定の場合については、汚染度及び中和度の指標として、汚染導電率EC<sub>p</sub>及び水素イオン比率rHを用いた。EC<sub>p</sub>はH<sup>+</sup>以外のイオン成分が

\*1 現 原子力安全対策室      \*2 現 宮城県下水道公社

示す電気伝導率であり、水素イオン濃度  $[H^+]$  の極限当量伝導度を  $\lambda_H (=349.8Scm^2/eq)$  としたとき

$$ECp = EC - \lambda_H [H^+] \quad (3)$$

である<sup>5)</sup>。また、 $rH$ は $H^+$ 以外の陽イオンと陰イオンの極限当量伝導度の単純平均値を  $\lambda_0 (=67.2Scm^2/eq)$  としたとき

$$rH = \frac{2 \lambda_0 [H^+]}{ECp + \lambda_0 [H^+]} \quad (4)$$

である<sup>2)</sup>。

### 2.4 データ

平成11年度に実施した全県一斉酸性雨結果<sup>6)</sup>を解析の対象とした。調査の方法は前報<sup>2)</sup>にも示したが、県内72地点において県(仙台市内2地点)と県内市町村(各1地点、仙台市を除く。)が合同で同一時間帯の雨水を採取、管轄保健所でpH及びECを測定するとともに、仙台市及び各保健所・支所管内の代表1地点について保健環境センターがイオン成分濃度の測定を行った。なお、本調査の降水量は全て採取試料量から換算している。

## 3. 結果及び考察

### 3.1 第1回調査(梅雨期)

#### 3.1.1 結果概要

調査を実施した平成11年6月23~24日は、梅雨前線に発達した低気圧が日本海を東北東に進んでいるときであり、温暖前線の接近によって降雨があったものである。図1に示したように、県北部を中心とした降水で、中南部での降水量は5mm以下と少なかった。pH分布は降水量が少なかった県中央部で低く、10市町村でpH3台を記録したが、相対的に降水量が多い県北部地域のpHが高い傾向がみられた。このときの各地点における測定値のpH-EC図を図2に表した。 $rH$ がほぼ0.1以下の全体の散布から外れている3地点を除けばあまりバラツキがなく、 $rH$ はほぼ一定で $ECp$ の減少とともにpHの値は高くなっており、中和の影響が少ない降水であった。また、イオン成分測定地点における陽イオン総量に対する $Na^+$ 比( $Na^+/Cation$ )の平均値は0.24であり海塩成分は少なかった。

#### 3.1.2 イオン成分濃度と降水量との関係

図3は主要イオン成分濃度と降水量の関係である。第1回調査時の雨は中和の影響が小さく海塩成分が少量で、これまでの全県一斉酸性雨調査結果と同様、イオン成分濃度は地域的に降水量の増加とともに両対数軸上で直線的に減少する関係を示した。ただし、詳細にみると各成分とも□及び■印で示した白石市は他の測定地点の関係から外れており、地域全体で共通にみられる現象のほか、別な現象が加わっていることが考えられる。もう一つは $nssCa^{2+}$ の減衰の仕方が、他の成分とは異なり、降水量の少ない地点と多い地点に分かれることである。降水量10mm程度を境にこれより少ない場合の減衰は大きく、多いところで減衰は小さくなっている。このような事例は図4の過去の調査結果でも観察されており、 $nssCa^{2+}$ の

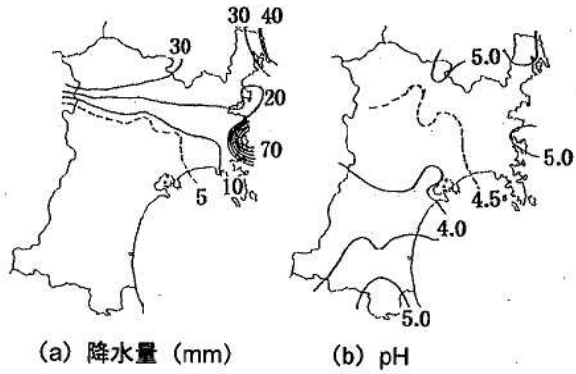


図1 第1回調査結果(1999年6月23日~24日)

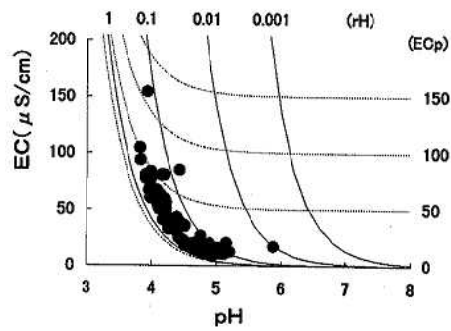


図2 pH-EC図

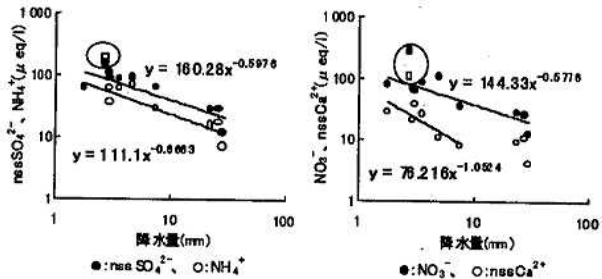


図3 イオン成分濃度の降水量変化  
(平成11年6月23日~24日、□及び■は白石市)

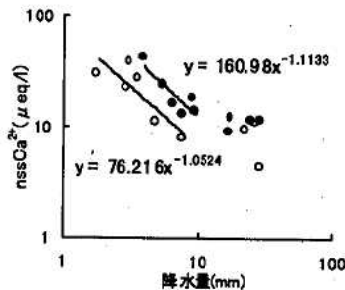


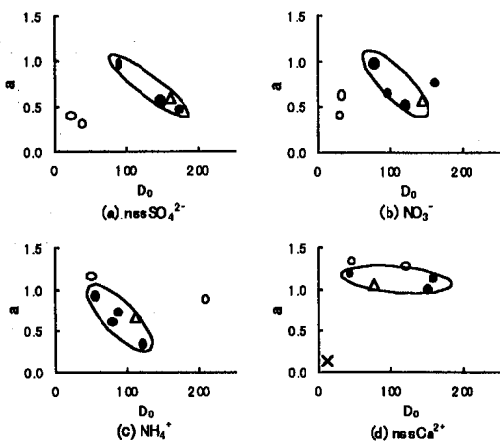
図4  $nssCa^{2+}$ の降水量変化  
○:1999年6月23~24日、●:1996年9月9~10日

除去過程については、比較的濃度の高いものが降水量10mm位までの間に急激に除去される段階と、低濃度の $nssCa^{2+}$ が緩やかに除去される段階の、2通りで行われることが考えられた。

#### 3.1.3 初期濃度と減衰係数との関係

初期濃度 $D_0$ と減衰係数 $a$ の関係は前報<sup>2)</sup>においても検討したが、今回 $nssCa^{2+}$ は降水量による減衰の仕方が降水量10mm付近を境に異なっていたことより、このような現象が現れた降水については、降水量に伴う $nssCa^{2+}$ 濃度の変化を表した(1)式の適用範囲を降水量10mm以下だけに限定して、改めて減衰係数 $a$ と初期濃度 $D_0$ を評価し直した。その上で、これまで主要成分濃度と降水量に関係があった降水について減衰係数と初期濃度の関係をみたのが図5である。なお、今回の分については特異的であった白石市を計算から除いている。今回の調査で事例を追加し、さらに $nssCa^{2+}$ の取扱い法を評価し直したことにより、減衰係数と初期濃度の関係は前報<sup>2)</sup>よりも鮮明になってきた。即ち、中和の影響が小さい場合の $nssSO_4^{2-}$ 、 $NO_3^-$ 及び $NH_4^+$ は、 $NO_3^-$ の1例を除けば、図5でグループ化したように、初期濃度 $D_0$ が大きいほど減衰係数は小さい傾向が現れている。これは初期降水の濃度が高濃度のときは除去されにくいことを表している。これに対して、中和の影響が大きい場合の様子は酸性化成分と中和成分で異なる。 $nssSO_4^{2-}$ 、 $NO_3^-$ は初期濃度、減衰係数とも小さく支配的でないが、 $NH_4^+$ の減衰係数は初期濃度が高くても大きい。また、 $nssCa^{2+}$ は中和の大小による差はほとんどなく、常に減衰係数は大きいことがわかる。

図5 減衰係数 $a$ と初期濃度 $D_0$ の関係



●：中和が小の場合、○：中和が大の場合  
△：今回調査分、×： $nssCa^{2+}$ で降水量が多い場合

3.1.4 pH成因モデルによる $pH_0$ 、 $\Delta pH$ の評価

図6に $pH$ と $pH_0$ 、及び $pH$ と $\Delta pH$ の関係を示したが、 $pH_0$ が $pH$ に反映しているのがわかる。これまで解析<sup>2)</sup>した事例では、 $pH$ は主に地域的な中和作用による $\Delta pH$ に関係し、 $pH_0$ は $pH$ を説明していなかった。今回の降水は中和が顕著でなく、 $pH_0$ が $pH$ にそのまま反映した珍しい事例であり、地表付近の調査で低 $pH$ が出現した一つの要因となる。即ち、地表付近での中和による $\Delta pH$ の影響が小さかったため、降水量が少なかった県中南部の広い地域では低 $pH$ を記録した地点が多かったと考えることができる。

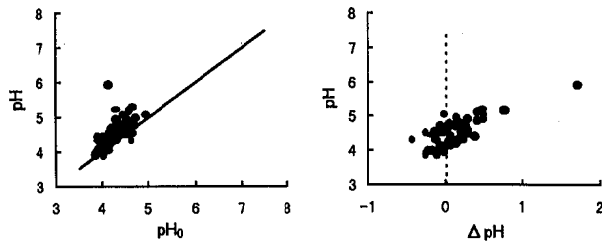


図6  $pH$ と $pH_0$ 、 $\Delta pH$ の関係  
(平成11年6月23~24日)

3.2 第2回調査(秋雨期)

3.2.1 結果概要

調査を実施した平成11年9月20~22日は、図7のように東西に延びる前線が東北部から南下し、20日21時~21日3時頃に宮城県地方を通過した後、本州南岸まで南下し停滞して活発化したときである。図8に示したように長雨となったため降水量が多く全体的に清浄な雨で、低い $pH$ の出現はなかったが、三陸沿岸での $EC$ が大きかった。また、イオン成分測定地点における濃度測定結果は、海塩成分の濃度が高い地点があり、その組成比は三陸沿岸部で大きく、内陸部では小さく地域差があった。

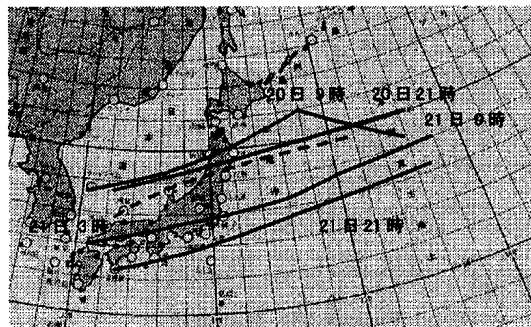


図7 前線の南下(平成11年9月20~21日)

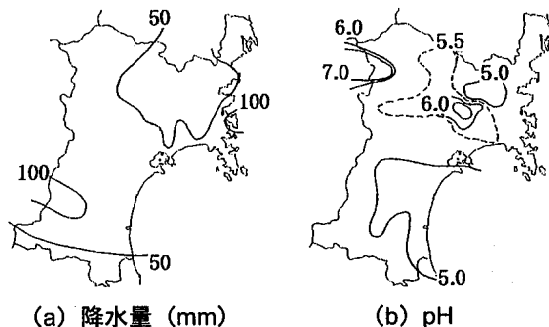


図8 第2回調査結果(1999年9月20~22日)

3.2.2 降水の段階

図9のアメダス雨量<sup>3)</sup>によれば、第2回調査時の降水は、①前線が接近した20日12時過ぎから県北部でみられ、15時から23時にかけて、幅60km程度の帯状の雨域が北部から南部に移っている。その後21日4時頃までの間に、



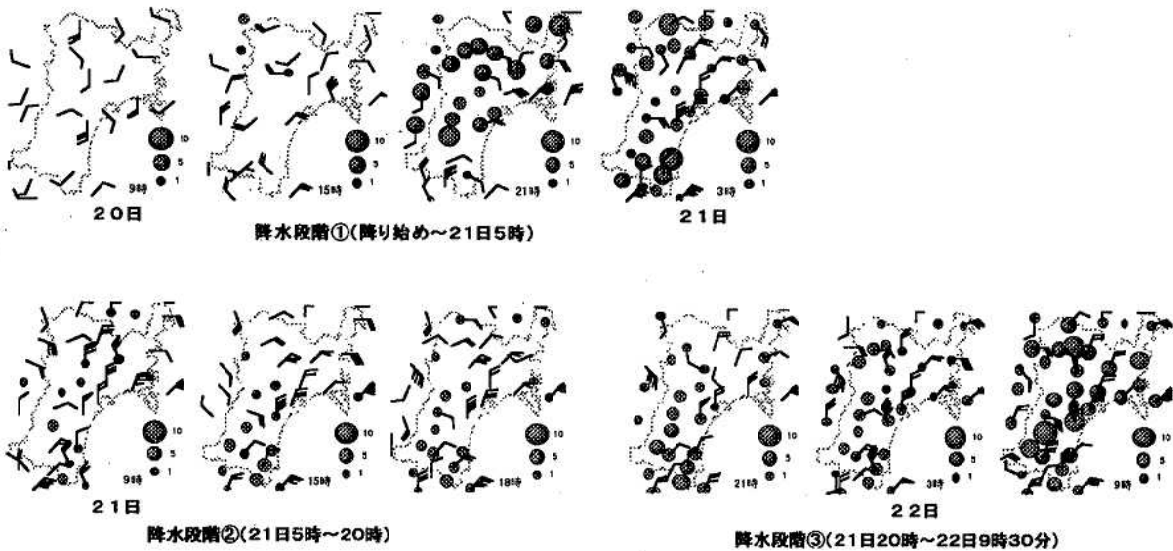


図9 各降水段階における降水量、風分布

北部山沿いを中心に再び雨が強まり、仙台平野部では21日1時に北寄りの風に替っていることから、この時間帯に前線が当地方を南下したとみられる。②これ以降は、図7のように前線が急速に南下したことに伴って降水は小康状態となり、主に県中南部で弱い雨が続いた。③本州南岸に停滞する前線の活発化により、21日20時頃から県南部の雨域は北上しはじめ、22時過ぎには全域的な雨となり、次第に強まったところで22日9時30分に調査を終了している。雨は長時間継続したが、降水状況はこのような3段階に分かれていた。

### 3.2.3 自動測定結果

仙台局の酸性雨自動測定機による降水量、pH及びECの経時変化を図10に示した。降り始めの時間は、20日11時42分で、降り終わりの時間が23日10時19分と長時間にわたる降水であった。図のpH、EC変化は複雑であるが、降水の段階に分け、降り始め～21日5時(初期)、21日5時～20時(中期)、21日20時～22日9時30分(終期)に区分し、このときのpH-EC図を図11に示した。pH-EC図の特徴は以下のとおりである。

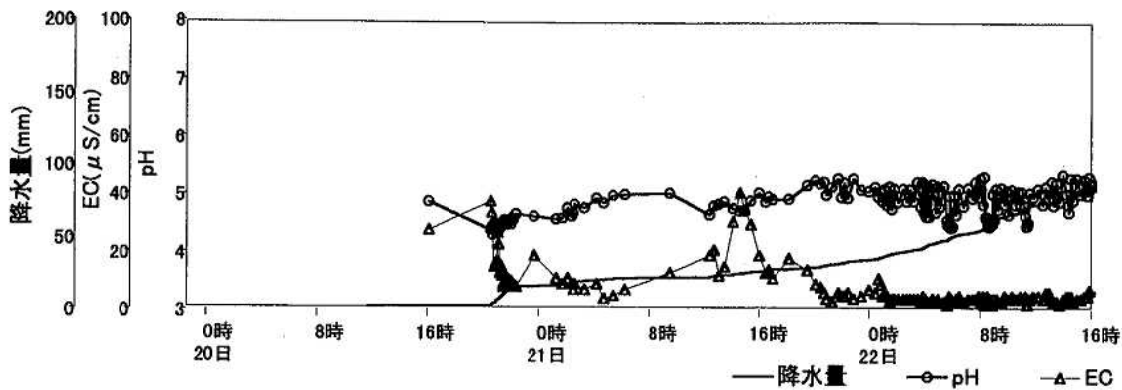


図10 降水量、pH、ECの経時変化(仙台局)

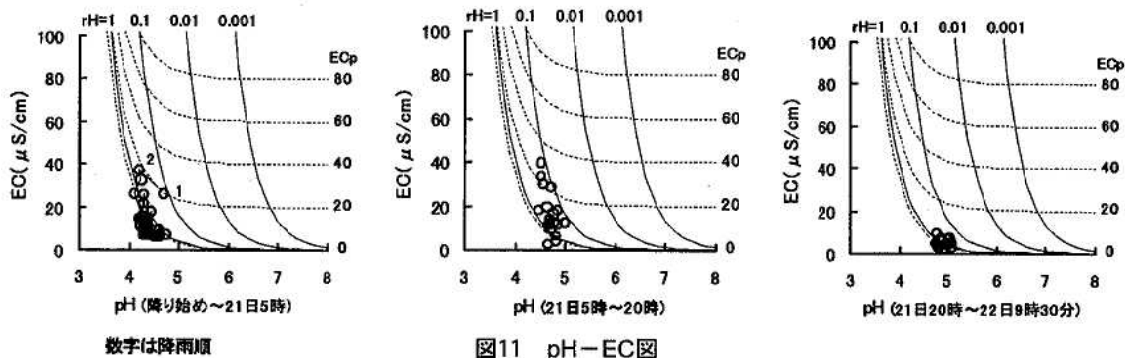


図11 pH-EC図

(1) 初期 (降り始め～21日5時)

前線が当地方に接近、通過したときであり、降り始めのECは大きく、前線通過で雨が強まったときに一時減少したが、通過後には初期ECの半分程度にまで復帰し、その後減少している。図11によれば、0.5mm目 (図中の1) のrHが0.1程度で中和の影響がみられたものの、その後はrHの大きい状態で推移し、全体的には中和の影響は小さく、この降水を通じての最低pH (4.11) は、雨が強まり始めたときに現れている。高EC、低pHが出現し、降水の汚染が最も進んでいた段階であった。なお、ECは1mm目の方が大きい、ECpとしては0.5mm目の方が大きい。

(2) 中期 (21日5時～20時)

前線が南下して当地方から離れたときで、雨は弱まっている。ECはこの間に再び増加をみせ、14時30分～16時30分の間に急激な増加があった。図11のpH-EC図上では、pHはあまり変化していないので、このときのEC増加は海塩粒子の影響によるものとみられる。なお、仙台局では降水期間を通じてECpが20 $\mu$ S/cm以上となったのはこのときだけであり、降り始めよりも大きかった。

(3) 終期 (21日20時～22日9時30分)

本州南岸に停滞した前線が活発化したときで、図9でみたように県南部の方が先に降り出している。ECは、全般に小さく、図11のpH-EC図上ではpH5前後、ECpは概ね10 $\mu$ S/cm以下に集中しており、この期間の雨は清浄で質的な変化も少なかった。

3.2.4 海塩粒子の影響過程

図12に海塩成分間の関係を示した。気仙沼でNa<sup>+</sup>濃度が過大またはCl<sup>-</sup>、Mg<sup>2+</sup>濃度が過小であるほかは、Na<sup>+</sup>、Cl<sup>-</sup>、Mg<sup>2+</sup>濃度間の関係は直線で表した海水組成に一致しているので、これらを全量海塩由来とみなすことは妥当と考える。

自動測定結果の検討では、仙台局で21日14時30分～16時30分の間に生じた急激なEC増加は海塩粒子の影響と考えられた。図13は仙台局でECが最大となった時間 (14時48分) に近い15時の風分布である。三陸沿岸は東風で、内陸の大崎平野で吹いていた北東風は仙台周辺で北寄りの風に転じている。山沿いでは風が弱く風向きは異なっていた。図中に表示した数字はイオン成分測定地点のNa<sup>+</sup>/陽イオン比である。仙台局の自動測定で観測されたのと同じ時間帯に、これらの地点でも海塩粒子の顕著な影響が生じていたとすれば、図13における風の流れとNa<sup>+</sup>/陽イオン比に対応が認められ、海岸から離れて内陸に入るにしたがってNa<sup>+</sup>/陽イオン比は減衰し、海岸に近い塩釜、岩沼の値はより大きい傾向が読み取れる。また、このときは県北部で1mm/時間以上の雨量を観測したところは少なかったことから、海塩成分の影響に関しては、雨雲に含まれる過程のほかに、内陸に輸送された海塩粒子が降雨によって除去される過程を考察する必要があると思われた。

市町村測定地点におけるpH-EC図とECp分布図を図

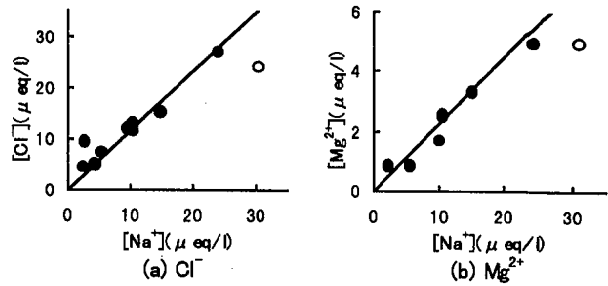


図12 海塩成分間の関係  
○印は気仙沼、直線は海水組成比

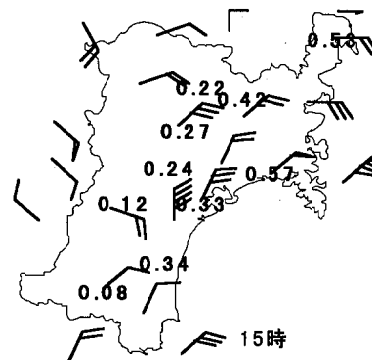


図13 Na<sup>+</sup>/Cationの分布  
風は1999年9月21日15時

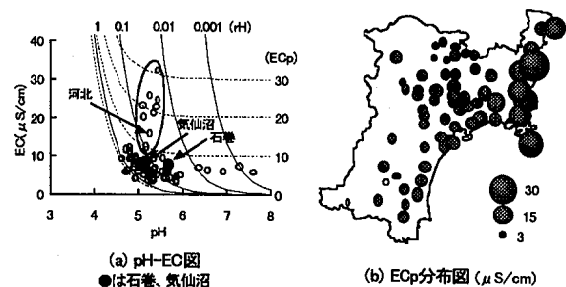


図14 市町村測定結果

14に示した。pH-EC図では、図中グループ化したように、ECpが大きくpHは大體同程度の市町村があり、これらの市町村はすべて三陸海岸に接しているところである。pH-EC図上の散布状況は、図11の仙台局で海塩粒子の影響が大きいと考えられた中期と同様であり、ECpが大きかった三陸沿岸市町村は海塩粒子の影響が大であったと推測できる。なお、イオン成分でNa<sup>+</sup>/陽イオン比が大きかった石巻、気仙沼はこのグループに属していない。三陸沿岸市町村のECp増大が海塩粒子の影響によるものとすれば、その影響は石巻、気仙沼以上であったことになる。図14のECp分布図ではこれらの市町村のECpは特に大きい。河北町以外は北上高地の東側に位置し、河北町の調査地点は北上川沿いで三陸海岸の河口部まで東側が低地となっている。図13の風分布のとおり、これらの地域では東寄りの風が卓越していた。したがって、北上高地以西の地域でECpが三陸沿岸市町村より小さかった

のは、海岸からの距離減衰に加えて、海上から供給された海塩粒子が北上高地で遮られる効果もあるのではないかと考えられた。

#### 4. ま と め

- (1) 第1回調査時の雨は、10市町でpH3台となるなど、pHは降水量の少ない地点ほど低い傾向があった。要因の一つとしては、地表付近での中和の影響が小さかったために、 $\text{nssSO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ の初期濃度がともに高く、降水による除去が緩やかで酸性化能力の大きい状態が地表付近に反映したことが挙げられる。
- (2)  $\text{nssCa}^{2+}$ 濃度と降水量の関係から、 $\text{nssCa}^{2+}$ の除去過程は、比較的濃度の高いものが降水量10mm位までの間に急激に除去される段階と、低濃度の $\text{nssCa}^{2+}$ が緩やかに除去される段階の2通りで行われることが考えられた。
- (3) 第2回調査時の雨は長時間継続し、降水量が多く全体的に清浄で低いpHの出現はなかった。降水は3つの段階に要約されるが、1降水平均のイオン成分濃度は沿岸部で海塩成分の寄与が大きく、pH、EC自動測定結果から類推して、海塩粒子の影響は主に雨の弱まった降水中期に生じていたと推測される。
- (4) 海塩粒子の影響過程としては、雨雲に含まれる過程のほかに、内陸に輸送された海塩粒子が降雨によって

除去される過程が考えられた。また、影響の度合いに関しては、そのときの風向きに対応して内陸部で減衰するとともに、地形によって遮られるなど、進入高度は比較的低いことが推定された。

#### 5. 謝 辞

調査に御協力をいただいた各市町村公害担当職員及び大倉ダム管理事務所職員、さらに連絡調整、分析等に携わりました保健所並びに環境対策課の関係者に深謝いたします。

#### 参 考 文 献

- 1) 仁平明他：降水pHの評価に関する一考察、宮城県保健環境センター年報、16、68～75(1998)
- 2) 仁平明他：酸性雨の水平分布構造に関する考察、宮城県保健環境センター年報、17、90～94(1999)
- 3) 気象庁監修(財)気象業務支援センター：気象庁月報(CD-ROM版)、2、9(1999)
- 4) 酸性雨対策検討会大気分科会：酸性雨対策調査報告書(1990)
- 5) 百川和子他：酸性雨自動測定結果について(第2報)、宮城県保健環境センター年報、9、81～86(1991)
- 6) 宮城県環境生活部：平成11年度宮城県公害資料〔大気編〕、未発行

# 嗅覚測定法による評価に関する検討

## A study on estimation of sensory test

菊地 英男 新垣 康秀 須藤 幸藏\*

Hideo KIKUCHI, Yasuhide ARAGAKI, Kozo SUDO

キーワード：嗅覚測定法、臭袋法、臭気指数、臭気強度、不快感

Key Words : Sensory Test, Odor-Bag Test, Odor Index, Odor Intensity, Odor Hedonics

悪臭防止法に嗅覚測定法である三点比較式臭袋法が導入されたことにより、既に本県において採用されている五点比較式臭袋法及び三点比較式臭気採点法を用いて、それぞれの関係を多面的な方向から検討した結果、五点比較式臭袋法よりも三点比較式臭袋法の方が5程度高い臭気指数を示し、臭気強度2.5~3.5に相当する53物質の濃度から算出した臭気指数は13~21と法で示している範囲の中であった。又、臭気強度2.5~3.5に対する物質濃度から換算した不快感は1.2~2.0であったが、複合臭による不快感は1.4~2.4となっていた。なお、臭気採点法による平均臭気強度1.8は不快感を訴える割合が約30%であるのに対し、法で採用している臭気強度2.5は不快感を訴える割合が約50%であることが判明した。

### 1. はじめに

本県における悪臭公害防止に係る規制は、公害防止条例（以下条例という）を制定した昭和40年から全国に先駆けて嗅覚測定法を採用し、現在、悪臭問題が依然として大きい施設である飼料又は有機質肥料製造事業場を規制対象として、五点比較式臭袋法による規制を行っている。又、畜産悪臭など特定施設を有しない工場・事業場から発生する悪臭により周辺住民の生活環境が阻害されることを防止するために、昭和53年に悪臭公害防止対策要綱（以下要綱という）を制定し、三点比較式臭気採点法を採用している。

一方、昭和46年に制定された悪臭防止法（以下法という）では、悪臭物質を測定する機器分析法が採用され現在に至っているが、複合臭が問題となり十分対応できない業種があることや、悪臭の原因となる未規制の多種多様な物質への実効性のある対応が困難であることから、嗅覚測定法（三点比較式臭袋法）が導入された。

このように、法、条例及び要綱で採用している嗅覚測定法の評価方法が異なるため、これらの関係を明確にすることを目的として検討を行ったものである。

### 2. 調査対象事業場

法では指定地域内に立地する全ての工場・事業場を対象に、また条例では飼料・肥料製造業を規制対象としている。このうち、条例で規制対象としている魚腸骨処理施設6事業場、コンポスト施設11事業場の合計17事業場に

\* 現環境対策課

ついて排出口、換気口及び敷地境界における臭気を平成8年4月から平成10年3月の期間に調査した。

### 3. 試料採取方法等

各測定法により得られた評価値の妥当性の検討を行うためには、同一の試料を用いる必要があることから、現場での臭気ガスの採取は、小型軽量で携帯型のフレックスポンプ（DC I-N型：近江オドエアーサービス<sup>(株)</sup>製）を使用し、Flek-SamplerDタイプ（50ℓ：近江オドエアーサービス<sup>(株)</sup>製）に50ℓ採取し、その後三点比較式及び五点比較式臭袋用としてFlek-SamplerDタイプ（20ℓ：近江オドエアーサービス<sup>(株)</sup>製）に20ℓ、三点比較式臭気採点法用としてFlek-SamplerAタイプ（20ℓ：近江オドエアーサービス<sup>(株)</sup>製）に20ℓ分取後、暗所で保管し、翌日のパネル判定用とした。

### 4. 判定方法

#### 4.1 嗅覚測定法

嗅覚測定法は、5種類の基準臭を用いた嗅覚テストに合格した人をパネルとして登録し、その中から無作為に抽出した6~8人に対して、現場で採取した試料臭気ガスを各パネルが臭わなくなるまで希釈操作を繰り返し、パネル全員が臭いを感じなくなった時点の希釈倍数を求める方法である。

今回の判定試験はパネル控え室、判定室及び試料調整室からなる専用の官能試験室を用い、室温17~28℃、湿度56~77%の環境で行った。

4.2 五点比較式臭袋法

昭和58年12月23日県告示第1364号に定める「五点比較式臭袋法」(以下五点比較式という)に基づき、パネルの人数は8人とし、無臭空気用ポンプ(AP-240Z:株イワキ製)を用い、活性炭槽に通した室内空気(無臭空気)を20ℓ注入したFlek-SamplerAタイプ(20ℓ)5個の袋を1組とし、そのうち2個に試料臭気をガラス製注射器で注入し希釈試料を調整する。その後5個の袋について無作為にA~Eの符号を付けてパネルに提示し、臭いの付いた袋2個を正しく選んだものについて正解とした。最初にパネルに提示する試料の希釈倍数は、誰にでも十分判る程度とし、順次希釈倍数を2倍系列で上げ(下降法)、正解が続く限り継続した。

以上の判定試験結果から下式により臭気指数を求めた。

①パネルの閾値(Xa)を算出する。

$$Xa = (\log(a1) + \log(a2))/2$$

a1: パネルが試料ガスを注入したにおい袋を選定した場合における当該におい袋に係る希釈倍数の値のうち最大のもの

a2: パネルが試料ガスの注入されていないにおい袋を選定した場合、又は選定することが不能である場合における試料ガスを注入したにおい袋に係る希釈倍数の値

②パネル全体の閾値(X)を算出する。

$$X = (Xa1 + Xa2 + \dots + Xa8)/8$$

Xa1 ~ Xa8: 各パネルの閾値

③臭気指数(Z)を求めると。

$$Z = 10X$$

4.3 三点比較式臭袋法

平成7年9月13日付け環境庁告示第63号に定める「臭気指数の算定の方法」に基づく三点比較式臭袋法(以下三点比較式という)では、パネルの人数を6人とし、無臭空気を3ℓ注入した臭い袋(3ℓ:近江オドエアサーブス株製)3個を1組とし、その内1個に試料臭気をガラス製注射器で注入して希釈試料を調整する。その後3個の袋について無作為にA~Cの符号を付けてパネルに提示し、臭いの付いた袋を正しく選んだものについて正解とした。

なお、環境臭気については、調整した同一濃度の試料をパネル1人あたり3回ずつ提示した。最初にパネルに提示する試料の希釈倍数は、五点比較式と同様に誰にでも十分判る程度とし、順次希釈倍数を10倍系列で上げ、正解が続く限り継続して行った。

以上の判定試験結果から下式により臭気指数を求めた。

[環境試料]

$$Y = 10 \times \log(M \times 10^{((r1-0.58)/(r1-r0))})$$

Y: 臭気指数

M: 当初希釈倍数

r1: 当初希釈倍数に係る平均正解率

r0: 当初希釈倍数を10倍した時の平均正解率

[排出口試料]

①各パネルの閾値を算出する。

$$Xi = (\log(Mli) + \log(M0i))/2$$

Xi: 試料臭気の希釈倍数に係るパネルの閾値

Mli: 当該パネルが付臭におい袋を選定した場合における当該におい袋に係る希釈倍数の値のうち最大のもの

M0i: 当該パネルが無臭のにおい袋を選定した場合又は選定することが不能であった場合における付臭におい袋に係る希釈倍数の値

②各パネルについて算出したXiのうち最大の値と最小の値をそれぞれ1つずつ除き、当該除かれた値以外の値を加算して得た値をパネルの人数から2を減じた値で除す。

③臭気指数(Y)を算出する。

$$Y = 10X$$

X: 上記②により算出された値

4.4 三点比較式臭気採点法

昭和53年に制定された要綱に基づく三点比較式臭気採点法(以下臭気採点法という)は、パネルの人数を8人とし、Flek-SamplerAタイプ(20ℓ)3個を1組とし、1個には現場で採取し分注した試料臭気を、他の2個には無臭空気を注入し、無作為にA~Cの符号を付けてパネルに提示し、臭いの付いた袋を選ばせるとともに、その臭いの強さの程度(臭気強度:表1)及び不快さの程度(不快度:表2)等について回答させた。

表1 臭気強度の区分

臭気強度	強さの程度
1	やっと感知できるニオイ
2	何のニオイであるかがわかる弱いニオイ
3	らくに感知できるニオイ
4	強いニオイ
5	強烈なニオイ

臭気強度の算出は、最初の段階で臭いの付いた袋を正しく選定できなかったパネルと誤った袋を選定したパネルについて臭気強度を0点とし、8人のパネルの採点値を加算して得た値を8で除した。ただし、この際8人の採点の中央値から2以上隔たる値を採点したパネルについては、最小値と最大値に相当するパネル各1人を計算の対象から除外した。

なお、不快度の算出については、臭気強度の算出の際に除外したパネルを除いて平均値を算出した。

表2 不快度の区分

不快度	不快さの程度
0	不快でない
1	やや不快
2	不快
3	非常に不快
4	極端に不快

## 5. 結果及び考察

### 5.1 調査対象事業場の概要

今回調査した事業場の概要は以下のとおりである。

魚腸骨処理施設については、塩竈及び石巻地区で操業している全事業場6ヶ所を調査した。原料については、鳥ガラ及びフェザーを60~65t/d処理している1事業場以外は、全て魚の加工残滓や小売店からの魚滓を40~100t/d処理し、チキンミール(14t/d)やフィッシュミール(9.5~24t/d)を製造している。これらの事業場からの悪臭の主な発生源としては、原料置場、クッカー(蒸煮施設)、プレス(圧搾施設)、ドライヤー(乾燥施設)、デカンター(遠心分離機)及び濃縮装置からであり、これらの施設から発生する高濃度の臭気ガスは脱臭ボイラーや専用脱臭炉で燃焼処理される。又、建屋内の低濃度臭気は水洗、薬液洗浄やオゾン処理により臭気ガスを処理し、大気放出されている。

また、コンポスト施設11ヶ所については、豚糞や鶏糞を主としてスクープ式や積置方式により2.9t/d~180t/d処理し、有機質肥料を0.2~32t/d製造している。悪臭の主な発生源は原料置場、発酵槽及び乾燥施設であり、特に脱臭対策は行っていないが、戻し堆肥による水分調整、発酵槽下部からの通気や切り返しにより好気性発酵を促進している。

なお、臭気指数等の測定結果を表3に示す。

### 5.2 五点比較式と三点比較式の関係

法で採用した三点比較式と条例で規制指導を行っている五点比較式は、いずれもパネルが臭いを感じなくなるまで試料の希釈操作を行い、その希釈倍数を臭気濃度とし、臭気指数を算出する方法で、原理的には同じものであるが表4に示すような違いがある。

両方法の違いは判定試験方法にあり、五点比較式は測定対象による区分なしに判定試験及び臭気指数を算出することが出来るが、三点比較式は環境試料と排出口試料の場合では判定試験及び臭気指数の算定方法が異なっている。すなわち排出口試料(高濃度臭気)は五点比較式と同じであるが、環境試料(低濃度臭気)については同一濃度の試料をパネル1名につき3回づつ提示し、希釈倍率は10倍系列となっている。

今回調査を行った魚腸骨処理施設及びコンポスト施設

表4 五点比較と三点比較式の主な違い

項目	五点比較式	三点比較式
希釈倍数	2倍系列	おおよそ3倍系列
臭い袋の容量	20ℓ	3ℓ
指示個数	5個	3個
付臭袋の数	2個	1個
袋の共用	有り	無し

表5 施設毎等の五点比較式と三点比較式の関係

区分	n	r	五点(X)と三点(Y)の関係	
施設	魚腸骨等処理	17	0.875	$Y=0.953X+7.926$
	コンポスト施設	18	0.895	$Y=0.972X+5.378$
採取	排出口等	26	0.929	$Y=1.059X+4.228$
	敷地境界	9	0.863	$Y=1.073X+4.575$
全体	35	0.934	$Y=1.046X+4.677$	

について、施設区分及び試料採取区分別に算出した臭気指数の五点比較式と三点比較式の間係を求めると表5に示すとおりで、危険率1%で有意の相関が認められた。

施設区分別については、五点比較式の臭気指数10~30に対して、三点比較式の臭気指数は魚腸骨処理施設で7高い値を示しているが、コンポスト施設では5高い値であり、魚腸骨処理施設の方が差が大きくなっている。又、試料臭気の採取区分別では、三点比較式の方が五点比較式よりも排出口等(換気口、場内を含む)で5~6、敷地境界で5~7高い値であった。

同様の検討は、昭和59年度に佐藤<sup>1)</sup>が行っており、その結果でも五点比較式よりも三点比較式の臭気指数が高い値となり、その差は排出口及び敷地境界で2~3であった。この原因としては、データが少ないこともあるが、パネルが偶然正解になる確立の差としている。

しかし、今回の差がそれ以上に大きくなった理由としては前述の他に、試料の希釈倍率の違いと臭い袋の嗅ぎ方が考えられる。試料の希釈倍率が2倍系列と3倍系列では指数値で1~2の差が出てくる。又、臭いの嗅ぎ方については、五点比較式では臭い袋から吐出される臭気を鼻から10cm程度離して嗅ぐため周囲の空気で希釈される可能性があるが、三点比較式の場合は、鼻あてを使用するため臭気ガスが希釈されずにパネルの鼻に到達する。

表3 調査測定結果

施設区分	測定施設数	項目	臭気指数		臭気強度	不快度
			五点比較式	三点比較式		
魚腸骨処理施設	6	平均	28	35	4.3	3.2
		範囲	14~45	19~49	3.1~5.0	1.9~3.9
		n	17	17	13	13
コンポスト施設	11	平均	18	23	3.9	2.8
		範囲	11~30	14~35	2.9~4.9	1.9~3.9
		n	18	18	20	20

これらのことが総合的に影響して、三点比較式の評価値が高くなったものと思慮される。

### 5.3 臭気強度と濃度及び臭気指数の関係

悪臭物質の濃度と臭気強度の関係は、これまでに法に定める硫化水素等22種類の特定悪臭物質とそれ以外の悪臭物質としてエチルメルカプタン等31物質の合計53物質について、調香師（パーヒューマーともいう）による嗅覚試験によって得られた値<sup>2)</sup>が工場事業場の敷地境界における規制基準の根拠になっている。これらの調香師によって得られた、物質毎に臭気強度1に対する濃度（検知閾値濃度）を基準として、各臭気強度に対する濃度の比から下式により臭気指数を求めた。

$$\text{臭気指数} = 10 \times \log_{10} \frac{\text{各臭気強度に対する濃度}}{\text{検知閾値濃度}}$$

この結果、臭気強度と臭気指数はほぼ直線関係が成り立つが、その比は物質によって異なり、22特定悪臭物質ではパルプ製造及び魚腸骨処理場等から発生する硫化メチル及びトリメチルアミン、塗装工場からのイソブタノール、又、22特定悪臭物質以外ではクレゾール類、メチルアミン、ジメチルアミン、エチルアルコール、エチルメルカプタンについてその比が大きく人間の鼻に対する感度が鋭い。一方、嗅覚感度が鈍いのは、22特定悪臭物質では畜産業から発生するアンモニア、塗装工場からのメチルイソブチルケトン、22特定悪臭物質以外では酢酸メチル、メタアクリル酸メチル、イソブテンであった。

なお、法に定める敷地境界線における臭気強度2.5～3.5に対応する濃度から求めた臭気指数の平均値は表6に示すように22特定悪臭物質と、それ以外の31悪臭物質ではほとんど差がなく13～21となっている。

表6 悪臭物質の臭気強度と臭気指数の関係

区 分	臭 気 強 度		
	2.5	3.0	3.5
特定悪臭物質の平均	13	17	22
他の悪臭物質の平均	12	17	21
全物質の平均	13	17	21

これまで述べたのは、単一の悪臭物質についてであるが、環境中の悪臭は様々な悪臭物質が複合しており、環境庁では平成7年の法改正により嗅覚測定法による敷地境界での規制基準設定にあたっては、昭和58年から平成4年までに全国の自治体において臭気指数と臭気強度の関係を様々な業種について調査・集計したもの<sup>3)</sup>が根拠になっており、臭気強度2.5、3.0及び3.5に対応する臭気指数はそれぞれ10～15、12～18、14～21となっている。

次に、五点比較式と三点比較式について臭気指数と臭気強度の関係は図1のとおりである。

臭気指数10以下のデータが得られていないため、直線回帰が当てはまるかどうか明確でない。つまり臭気はある濃度以上から感じ始め（臭気強度1）、以後濃度の上昇に伴い臭気強度も増すが、臭気強度5になるとその後いくら濃度を増加しても臭気強度5以上の尺度が無いため一定になるが、臭気指数と臭気強度のデータの分布が明らかでないため回帰式は求めないこととした。ただし、臭気指数（濃度）が同じでも臭気強度としては非常に大きなバラツキを持っていることが判明した。例えば、五点比較式の臭気指数が14、三点比較式の臭気指数が19の場合の臭気強度は2.9～4.8となっている。

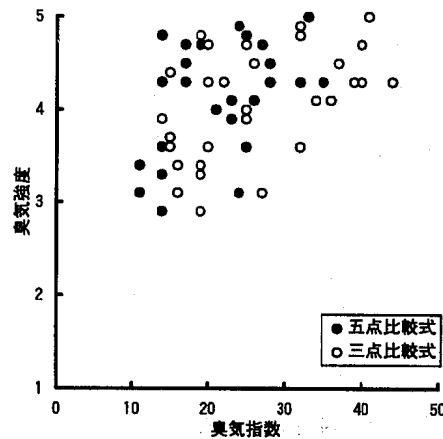


図1 臭気指数と臭気強度の関係

パネルの嗅覚に影響を与える要因としては臭質、温度、湿度、天候、パネルの体調等が考えられるが、今回検討した結果のバラツキの原因は、臭気の質の違いによるものが最も大きいと思われる。

### 5.3 不快度と臭気強度及び臭気指数の関係

法においては、工場事業場の敷地境界における規制基準の範囲は、規制地域の住民の大多数が悪臭による不快感を持つことがないように悪臭物質の濃度範囲として臭気強度2.5～3.5に対応する濃度としている。ここで、悪臭物質濃度と不快度の関係を調香師により求めた結果<sup>4)</sup>から、不快度に対する物質濃度を臭気強度に変換して求めた値の平均値と不快度の関係を表7に示すが22特定悪臭物質の平均値で見ると、臭気強度2.5、及び3.5に対応する不快度はそれぞれ1.2、2.0となっており、特定悪臭物質以外の30悪臭物質及び全52物質の平均もほぼ同じ結果であった。

表7 悪臭物質に対する臭気強度と不快度の関係

区 分	臭 気 強 度		
	2.5	3.0	3.5
特定悪臭物質の平均	1.2	1.6	2.0
他の悪臭物質の平均	1.1	1.5	1.9
全物質の平均	1.2	1.6	2.0

また、悪臭物質濃度と不快度の関係から求めた臭気指数と不快度の関係は表8に示すとおり、22特定悪臭物質と特定悪臭物質以外の30悪臭物質を比較すると、不快度が増すと臭気指数の差が少し大きくなるがその差は不快度5で2程度である。また、敷地境界における法の規制基準である臭気指数10~21に相当する不快度はおおよそ1~2に相当することがわかる。

表8 悪臭物質に対する臭気指数と不快度の関係

区 分	不 快 度				
	1	2	3	4	5
特定悪臭物質の平均	11	22	33	44	55
他の悪臭物質の平均	11	21	32	42	53
全 物 質 の 平 均	11	22	33	43	54

これまで述べたのは悪臭の単一物質についてであり、複合臭の場合にはこのまま利用することは難しい。

今回検討した臭気強度と不快度の関係を表9に示すが、各施設とも危険率1%で有意の相関があり、臭気強度2.5、3.0及び3.5に対する不快度はそれぞれ1.4、1.9、2.4と単一物質の場合より0.2~0.4高い値となっている。

表9 事業場毎の臭気強度と不快度の関係

区 分	n	r	五点(X)と三点(Y)の関係
魚腸骨等処理	13	0.988	$Y = 1.022X - 1.195$
コンポスト施設	20	0.966	$Y = 1.055X - 1.226$
全 体	33	0.971	$Y = 1.015X - 1.108$

また、不快度と臭気指数の関係は図2のとおりで、臭気強度と臭気指数の関係と同じで臭気指数10以下のデータが得られておらず、又分布の型も明確でないため回帰式を求めなかったが、同一の臭気指数でも不快度のバラツキがかなり大きいことが判る。

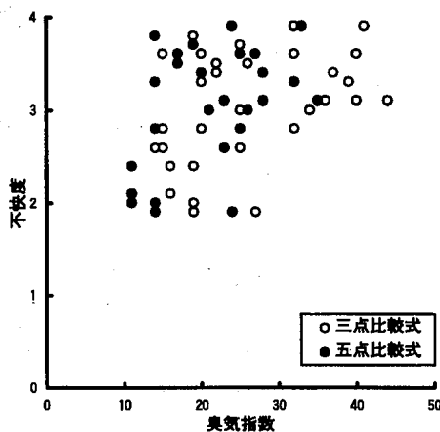


図2 不快度と臭気指数の関係

#### 5.4 臭気採点法における評価値の検討

本県においては、要綱において複合臭の評価指標として臭気強度を基本とした臭気採点法を採用しており、その基準値を1.8としているが、その妥当性について検討する。要綱策定時においては、養豚業等の畜産関係と飼肥料製造事業場を中心に臭気強度と不快度のデータから、平均臭気強度の等しい測定値に対する不快感（不快度2以上）の割合を求めて得られた結果から、不快感を訴える出現率30%に相当する平均臭気強度として1.8が得られた。つまり住民の大多数（70%とする）が不快感を持つことがないような臭気強度として1.8が決定された。

今回これまで得られたデータについて、要綱策定時と同じ手順、つまり臭気強度が等しい測定値について各パネルの不快度の判定値を並べ、その中から不快度2以上の判定個数を数え、全体に占める割合を求めて得られた臭気強度と不快感の関係を図3に示す。

その結果、要綱策定時に求めた回帰式と傾き及びY切片ともほぼ同じであり、再現性が非常に良い結果となっている。又、この図から法で採用した最も厳しい臭気強度2.5の場合でも約50%の人が不快感を訴えることが判る。

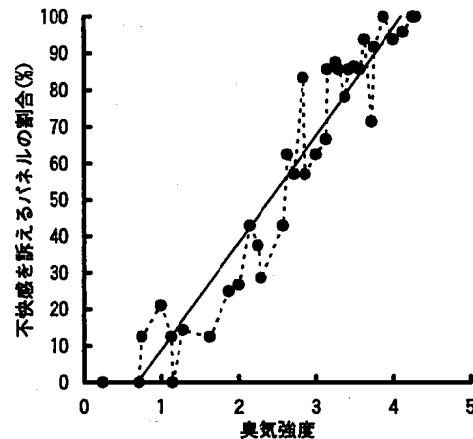


図3 臭気強度と不快度の関係

#### 6. ま と め

本県においては、悪臭公害の防止に当たり条例や要綱で従来から嗅覚測定法である五点比較式や臭気採点法を用いて規制指導を行ってきた。しかし、平成7年に三点比較式が法に採用されたため、各測定法の比較検討を行ったものである。

五点比較式と三点比較式の間には強い相関 ( $r = 0.93$ ) があり、三点比較式のほうが6~7高い臭気指数を示すことが判明した。この要因としては、パネルの偶然正解率、試料の希釈倍率及び臭い袋の嗅ぎ方の違い等が考えられる。

次に、臭気強度と不快度の関係については52悪臭物質濃度から算出した平均臭気強度2.5~3.5に対応する不快度は1.2~2.0であった。又、複合臭による臭気強度2.5



～3.5に対応する不快度は1.4～2.4と物質濃度から算出した場合よりも不快の程度が大きく、物質濃度から算出した不快度と複合臭による不快度を同一レベルにするためには複合臭を評価する場合の臭気強度を2～3にする必要がある。

なお、要綱で用いている臭気強度1.8は、住民の大多数（70%とする）が不快感（不快度2以上）をもつことがないような臭気強度として決定されており、法で採用している最も低い臭気強度2.5の場合では約50%の人が不快感を訴えることが判る。この臭気強度1.8は、悪臭苦情の発生はほとんど考えられないレベルと思われることから、望ましい臭気環境の目標値として活用して行けるものと思われる。

最後に、複合臭による臭気指数と臭気強度及び臭気指数と不快度の関係が必ずしも直線関係にあるとは限らないため、今後その分布を明らかにする必要があるものと思われる。

### 参考文献

- 1) 佐藤博明他：宮城県保健環境センター年報、3、165、(1984)
- 2) 悪臭法令研究会：三訂版ハンドブック悪臭防止法、464、(株)ぎょうせい
- 3) 環境庁大気保全局生活環境室：悪臭防止行政ガイドブック、65、平成8年3月
- 4) 悪臭法令研究会：三訂版ハンドブック悪臭防止法、467、(株)ぎょうせい