

15 宮城県の水質水質（第二報）

平 富貴 紺野 光雄

県内の水道水質の状況を把握するために水道法全項目検査データをまとめ、昨年度¹⁾と同様の評価を試みた。

その結果、原水の浄水処理方式は「消毒のみ」と「緩速ろ過」処理で68%を占め、かつ浄水処理可能な水質基準を十分満足するものであった。また、水道浄水の水質を「おいしい水」水質要件へ適合させたところ、全浄水の34.7%が満足した。

1. はじめに

現在、県下一円の水質水質の状況を把握する作業を行っているが、今回は沿岸部29市町を対象にして水道法全項目検査データを集計・解析した。

前回対象の仙南11市町に係わる結果は既に報告¹⁾しているところであるが、今回も前回同様の手法を用いて水質内容等について比較検討し、若干の評価を試みた。

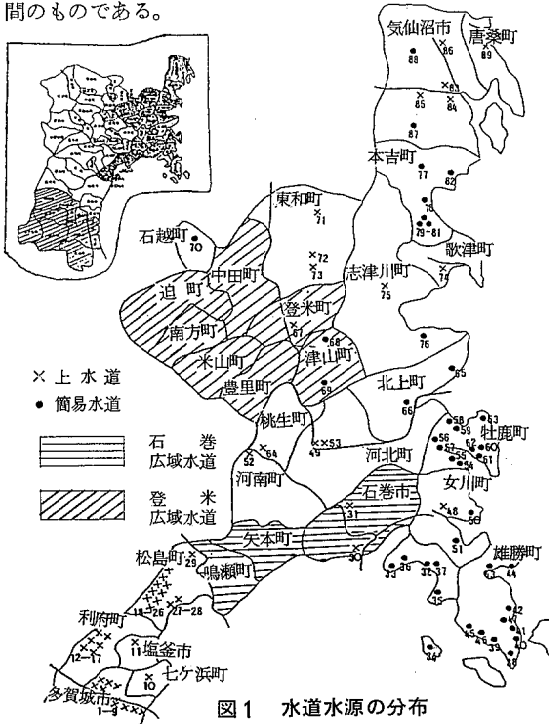
また、今回は水道浄水の水質結果も得られたので、併せて「おいしい水」の評価を試みた。

2. 調査方法

2.1 水質データの集計および解析

昭和63年度は県内9保健所のうち、塩釜、石巻、登米、気仙沼の4保健所管内4市25町に係る水道原水と水道浄水の水道法全項目検査データを対象に集計・解析した。

用いたデータは昭和58年度から昭和62年度までの5年間のものである。



水道原水の数は上水道33件、簡易水道42件の計75件である。これらによるおおよその給水人口は前者53万人、後者5万人である。

対象とした水道水源の分布を図1に示した。

2.2 調査対象とした水質項目

調査対象とした水質項目は、pH、色度、濁度、亜硝酸性窒素・硝酸性窒素、アンモニア性窒素、塩素イオン、有機物等（過マンガン酸カリウム消費量）、カルシウム・マグネシウムイオン（硬度）、蒸発残留物、フッ素、鉄、マンガン、銅、亜鉛、ひ素、水銀、六価クロム、カドミウム、鉛、シアンイオン、有機リン化合物、フェノール類、陰イオン界面活性剤、一般細菌、大腸菌群の25項目である。

3. 結果および考察

3.1 水道原水の状況

水道原水を水源の種類別に分類しその割合をみると図2のとおりである。

表流水54.6%、地下水30.7%、伏流水14.7%で表流水が半数以上を占めていた。

原水の浄水処理方式の適用状況は図3のとおりである。消毒のみで処理される原水は20%、緩速ろ過処理が48%、急速ろ過処理の両方式で68%を占めていた。

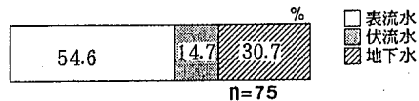


図2 原水の水源別比率

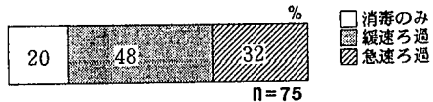


図3 原水の浄水方式別適用状況

3.2 水道原水と水道浄水の水質結果

水道法全項目検査データから個々の原水、原水全試料（以下、全原水と記す）、水道種類別、浄水処理方式別に分類し、各々、2.2に示した水質25項目の最大値、最小値、平均値等を求めた。浄水についても同様である。なお、原水、浄水ともにシアンイオン、水銀、有機リ

ン化合物, 鉛, カドミウム, 六価クロム, フェノール類, 陰イオン界面活性剤の8項目は定量限界値であったので, 検討対象から除外した。ひ素は同一地域の8原水(地下水)からのみ検出された。最高値は0.03mg/lであったが,

浄水では定量限界値であった。表1に全原水, 原水を水源種類別並びに浄水処理方式別に区分した場合の水質の項目別平均値を示した。

表1 水道原水の平均的水質結果(化学検査項目)

— 水源種類別, 浄水処理方式別 —

項目 定量限界値	pH	色度 (度)	濁度 (度)	NH ₄ -N (mg/l)	NO ₂ -N NO ₃ -N (mg/l)	有機 物等 mg/l	Cl (mg/l)	硬度 (mg/l)	蒸発 残留物 (mg/l)	F (mg/l)	Fe (mg/l)	Mn (mg/l)	Cu (mg/l)	Zn (mg/l)	As (mg/l)	
																原水の種類
全原水	7.2	10.1	3.2	0.10	0.55	4.4	20.1	45.4	139.9	0.14	0.56	0.13	0.01	0.020	0.005	
水源の種類	表流水	7.3	11.3	3.6	0.06	0.39	5.6	13.9	34.1	95.4	0.10	0.29	0.02	0.01	0.011	0.0025
	伏流水	6.9	2.6	0.7	0.05	0.77	2.4	12.3	48.1	89.7	0.10	0.10	0.02	0.01	0.063	0.0025
	地下水	7.2	11.2	3.4	0.18	0.72	3.2	33.8	63.6	236.9	0.23	1.21	0.35	0.01	0.017	0.0051
浄水処理方式	消毒のみ	7.0	1.8	0.7	0.05	1.18	1.8	19.7	55.8	120.4	0.10	0.18	0.01	0.01	0.057	0.0025
	緩速ろ過	7.2	7.9	1.7	0.06	0.37	4.5	14.2	34.8	88.2	0.10	0.18	0.01	0.01	0.008	0.0025
	急速ろ過	7.2	17.7	6.5	0.17	0.41	6.0	28.0	53.3	218.8	0.21	1.35	0.34	0.01	0.015	0.0049

1) ABS, 有機リン化合物, フェノール類, CN⁻, Pb, Ca, Cr, Hg の計8項目はすべて定量限界値であったので, 表から除外した。
なお, これらの項目の定量限界は次のとおりとした。

ABS (mg/l)	有機P 化合物 (mg/l)	フェノール 類 (mg/l)	CN ⁻ (mg/l)	Pb (mg/l)	Cd (mg/l)	Cr(六価) (mg/l)	Hg (mg/l)
0.2	0.1	0.005	0.01	0.01	0.005	0.02	0.0005

3.3 水道原水の水質評価

3.3.1 「水道水源の水質環境基準」等への適合

水道原水の水質結果(平均値)を評価するために「水道水源の水質環境基準」(生活審議会水質に係る環境基準専門委員会)と「水道用原水の水質標準」(衛生工学ハンドブック掲載)の二つから主な項目を抽出し, その値に浄水方式別に分類して得られた水質結果を適合させた。

適合の方法は円周上に水質環境基準, 水質標準の上限値をあらわし, 各項目の水質結果を放射状にプロットし, 星形グラフを作成し照合した。(図4)

その結果, 消毒のみと緩速ろ過処理の原水は全対象項目の値を十分に満足した。しかし, 急速ろ過処理の原水は色度, アンモニア性窒素, 鉄, マンガンが上限値を超えた。

前回の対象地域の結果と比較すると, 消毒のみと緩速ろ過処理の場合については同じ傾向を示し, 急速ろ過処理の場合では色度を除いて同じ傾向であった。

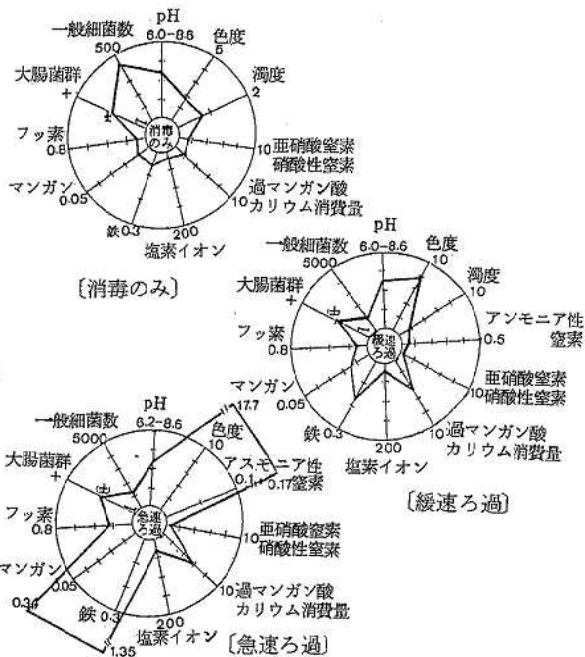


図4 処理方式別原水の水質
(水道用原水の水質基準・
水道水源の水質環境基準に適合させた場合)

3.3.2 「水道水質基準」への適合

原水の水源別水質結果を水道浄水に適用される「水道水質基準」（厚生省令）の中から10項目を抽出し適合させた。

適合の方法は円周上に水質基準の上限値をあらわし、各項目の水質結果を放射状にプロットして星形グラフを作成し照合した。（図5）

その結果、伏流状は全対象項目の値を十分満足した。しかし、表流水は色度、濁度、地下水は色度、濁度、鉄・マンガンが基準値を超えた。

前回の対象地域の結果と比較すると伏流水、表流水は同じ傾向であるが、地下水は前回対象地域では全対象項目の値を十分に満足した。このことは前回は地下水中に占める湧水の割合が約半数を占めていたのに対し、今回は湧水がなく、すべて深井戸、浅井戸であったことによると考えられる。

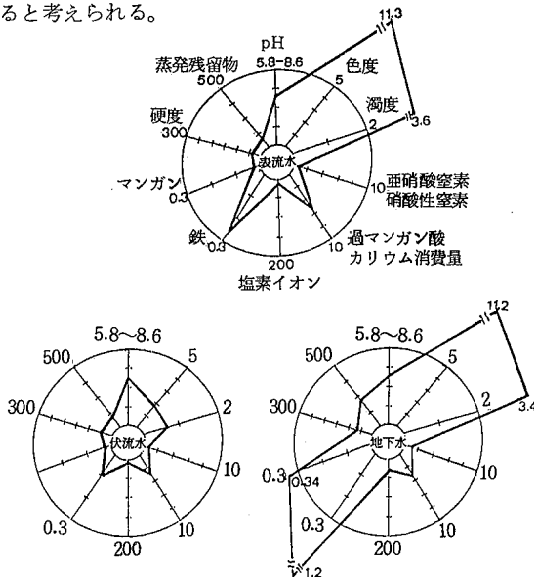


図5 水源別原水の水質
（水道水の水質基準に適合させた場合）

また、原水のままで水道水質基準に適合する割合は全原水の10.6%であり、水源別の適合率は表流水2.4%、伏流水10.0%、地下水25.0%であった。福岡県²⁾では、適合率は全体で37.5%、水源別では表流水12.1%、伏流水34.0%、地下水58.3%であり、本県の場合はかなり低い適合率であった。

3.4 水道原水の水質基準不適合率

原水に水道水質基準を適合させた場合の不適合率は大腸菌群63.9%、色度33.6%一般細菌32.8%、鉄19.2%、濁度16.4%、マンガン5.6%、有機物等3.9%、蒸発残留物1.4%、pH値0.6%の9項目であり、大腸菌群の不適合率が一番高かった。

福岡県²⁾では、大腸菌群が一番高く58.3%、一般細菌42.5%、濁度33.5%、色度38.5%、鉄34.6%、有機物等

10.6%、マンガン10.3%、蒸発残留物4.6%、pH値1.3%、他に臭気、硬度、塩素イオン、陰イオン界面活性剤、フッ素、亜鉛、鉛の不適合14項目を報告している。

また、浄水処理方式別に分類した原水の不適合率は急速ろ過処理が一番高く85.4%、次いで緩速ろ過処理81.9%、消毒のみ10.1%であった。

3.5 水道原水と水道浄水の水質の比較

水道原水が水道水質基準を超えるものであっても適切な浄水処理によって浄水されれば問題がないことになる。そこで水道原水と水道浄水の水質の変化を全原水と全浄水の平均値で比較した。

図6に全原水と全浄水の10項目の水質結果の星形グラフを示した。円周上には水道水質基準の上限値をあらわした。

原水から浄水の項目ごとの減少率はマンガンが一番高く94.4%、次いで鉄92.9%、色度85.1%、濁度81.2%、有機物等54.5%、蒸発残留物27.6%、塩素イオン12.9%、硬度9.7%、硝酸性・亜硝酸性窒素9.1%であった。この結果から蒸発残留物、塩素イオン、硬度、硝酸性窒素・亜硝酸性窒素等は浄水処理であまり変化しない水質成分であることがわかった。

福岡県²⁾でも同じ傾向であったことを報告している。

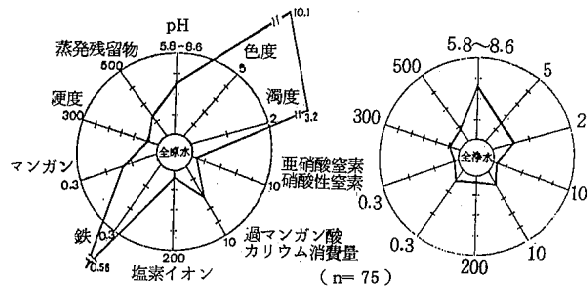


図6 原水と浄水の水質
（水道水の水質基準に適合させた場合）

又、適用している浄水処理の能力を超える原水においては特殊処理が付帯されることになる。

図7に除鉄・除マンガン処理を行っている水質の例を示した。

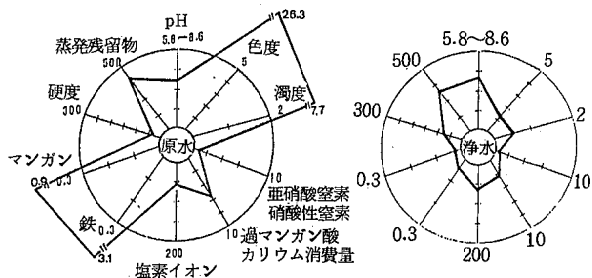


図7 特殊処理適用の水質（T市の場合）
（水道水の水質基準に適合させた場合）

原水から浄水の水質の変化は、色度26.3度から1.2度、濁度7.7度から0.5度、鉄 $3.1\text{mg}/\ell$ から $0.03\text{mg}/\ell$ 、マンガ $0.9\text{mg}/\ell$ から $0.005\text{mg}/\ell$ であり、減少率は色度95.4%、濁度93.5%、鉄99.0%、マンガ 99.4% で水道水質基準を十分に満足した。

3.6 水道浄水の水質基準不適合率

水道浄水の水道水質基準不適合は全浄水の2.5%であった。

水道種別の不適合率は上水道0.3%、簡易水道2.2%で、小規模な施設の簡易水道による不適合率が高かった。浄水処理方式別では消毒のみ0.8%、緩速ろ過処理1.4%、急速ろ過処理0.3%であった。

福岡県²⁾は水道浄水の水道水質基準不適合率は13.8%水道種別では上水道9.2%、簡易水道15.0%であった。

滋賀県³⁾は不適合率11.1%であった。

真柄ら⁴⁾は簡易水道12%、上水道5%の不適合率を報告しており、上水道や用水供給事業の広域化により安全性が高まっている一方で簡易水道等では問題が多いことを指している。

これらの結果と比較して本県の場合の不適合率は低いものであった。

また、浄水における不適合項目は色度1.4%、鉄1.1%、一般細菌0.6%、大腸菌群0.3%、濁度0.3%であった。

福岡県²⁾では色度が4.5%、鉄4.4%、大腸菌群3.9%、濁度2.4%、一般細菌2.4%、蒸発残留物2.0%、マンガ 2.0% 、臭気0.8%、亜鉛0.7%、有機物等0.6%、pH値0.6%、塩素イオン0.5%、硬度0.2%、陰イオン界面活性剤0.2%、フッ素0.2%であった。

真柄ら⁴⁾と滋賀県³⁾では、細菌類による不適合が多いと報告している。

3.7 「おいしい水」水質要件への適合

県民の飲料水に対する関心は安全性のみならず水のおいしさにも向けられている現況にかんがみ、水道水質基準に適合した浄水を「おいしい水」水質要件（厚生省、おいしい水研究会）へ適合させた。

「おいしい水」水質要件は次のとおりである。

- 1) 臭気度 (TON) : 3以下
- 2) 水温 : 20℃以下
- 3) 遊離炭酸 : 3~30 mg/ℓ
- 4) 硬度 : 10~100 mg/ℓ
- 5) 過マンガ $酸カリウム$ 消費量 : 3 mg/ℓ 以下
- 6) 蒸発残留物 : 30~200 mg/ℓ
- 7) 残留塩素 : 0.4 mg/ℓ 以下

今回はこの中から水道法全項目検査から得られた上記4)5)6)7)の4項目のみを用い評価を行った。

その結果、おいしい水水質要件へ適合した浄水は全浄水の34.7%であった。このことから、おいしい水の給水にあずかっている人口はおおよそ10.7万人であり、今回

の対象給水人口の18.4%にあたる。

おいしい水水質要件を満たした浄水は、水道種別では上水道9.3%、簡易水道25.3%であった。

福岡県²⁾では全浄水の24.4%、滋賀県³⁾では14.0%の適合率であったと報告している。

次に、おいしい水の適合率は水源別では表流水18.7%、地下水12.0%、伏流水4.0%であった。

滋賀県³⁾では適合した水源はおもに地下水および伏流水に集中し、表流水にはなかったと報告しているが、本県の場合は、表流水の割合が高くなっているが、これは溪流水を含んでいることや簡易水道源としての小河川が多いためと考えられる。

又、浄水処理方式別によるおいしい水の適合率は消毒のみ9.3%、緩速ろ過処理21.3%、急速ろ過処理4.0%であった。

3.8 浄水における残留塩素

飲料水の安全、衛生を確保するために欠くことのできない残留塩素は水のおいしさからは味を損う大きな要素となるものである。

今回、おいしい水水質要件を適合させたところ、残留塩素0.4 mg/ℓ 以下を満足できずに不適合となった浄水が17.3%あった。

浄水の残留塩素の平均的濃度は水道種別では上水道で0.6 mg/ℓ 、簡易水道0.5 mg/ℓ 、水源種別では地下水0.4 mg/ℓ 、伏流水0.5 mg/ℓ 、表流水0.6 mg/ℓ 、浄水処理方式別では消毒のみ0.4 mg/ℓ 、緩速ろ過処理0.5 mg/ℓ 、急速ろ過処理0.6 mg/ℓ であった。

このことから上水道において、表流水において、急速ろ過処理においても高濃度であった。

残留塩素に関しては安全、衛生の確保を第一義と考え、併せておいしい水供給にもつなげる適切な濃度管理が求められる。

一般に塩素消費量は水源の汚濁と密接に関係するところからトリハロメタン系有機塩素化合物等の問題も含めて安全でおいしい水の供給は清浄な水源に大きく依存すると考える。

3. ま と め

- (1) 29市町に係る水道原水及び浄水の水質概要が把握できた。また、地表水、伏流水、地下水の水質概要も把握できた。
- (2) 浄水処理方式は消毒のみ20%、緩速ろ過処理48%、急速ろ過処理32%であり、消毒のみと緩速ろ過処理両方式で68%を占めた。

なおかつ、両者は浄水処理可能な水質基準を十分に満足するところから、全般的に清浄な水道水源が確保されていると考える。

- (3) 水道水質基準不適合の浄水が2.5%あったが、安全性は水道にとって最もな基本である。

- 4) 今回、対象とした全浄水の34.7%がおいしい水水質要件を満たした。
おいしい水は水のおいしさを損う有機物等による汚濁を受けていない清浄な水源であることが基本的要件と考える。

参 考 文 献

- 1) 平 富貴 他：宮城県保健環境センター年報，第6号，1988
- 2) 北森成治 他：福岡県における水道水の水質 VOL. 30. No. 3 (1988)
- 3) 岡本茂胤 他：滋賀県における水道水の水質 滋賀衛環セ所報，21 145 (1986)
- 4) 真柄泰基 他：第35回全国水道研究発表会要旨集 (昭和59.5)
- 5) 岡沢和好：おいしい水の要件，用水と廃水27(8) 3 (1985)
- 6) 宮城県保健環境部環境衛生課：宮城の水道 昭和58, 59, 60, 61, 62 年度

16 水道水源のかび臭発生状況調査

菅原 隆一* 木戸 一博 高橋紀世子
平 富貴 千葉 規** 紺野 光雄

昭和63年7月下旬～9月下旬までの3ヶ月間にわたり、計6回、漆沢ダムのかび臭発生状況を調査したところ、ダム表層水から8月中旬～9月初旬にGeosminが4～14 $\mu\text{g}/\ell$ 検出され、生物調査では、8月初旬～8月下旬に藍藻類のAnabaenopsis arnordiiとAnabaena circinalisが出現していた。また気象要因調査では、本年は過去3ケ年に比べ7月中旬～8月下旬の降水量と降水日数が多く、ダム表層の水温も低い傾向にあった。

今回のかび臭物質の測定では、従来のセップバックを用いた方法に併用し前処理として塩素を注入する方法も試みてみたところ、塩素の注入により藻類の細胞内のGeosminが水中へ溶出し、特に8月初旬のかび臭発生初期に高いGeosminの測定値が得られ、このことからダムでのかび臭発生の早期把握が可能であった。

1. はじめに

筆者らは、水道水源保全対策調査事業の一環として、漆沢ダム（小野田町漆沢）のかび臭発生状況を調査し、60～62年の調査結果を既報¹⁾²⁾³⁾で報告したが、今回は63年の調査結果を報告する。

本調査では、かび臭物質の測定方法はセップバックカートリッジガスクロマトグラフ質量分析方法（GC-MS, SIM）⁴⁾によったが、この方法は試料をあらかじめガラス繊維濾紙でろ過する操作を行っていることから、試料中の藻類は分離されて細胞中のかび臭物質は測定されず、水中に溶出されているかび臭物質のみが測定される。一方、池田ら⁵⁾の実験によればAnabaenaによるGeosmin生成ではGeosminの大部分は藻類の細胞内に保持されているが、塩素の注入によりすべてのGeosminが水中へ溶出されると報告されている。

そこで、今回は池田らの実験方法を参考にして、これまでの測定方法に併用し、その前処理として塩素を注入した試料についても測定を行い、藻体内外のかび臭物質を測定してみた。

2. 調査方法

2.1 採水地点及び調査期間

採水地点はダム表層水の1地点とした。調査期間は7～9月の3ヶ月間とし、月2～3回の調査を実施した。

2.2 調査項目

調査項目は①かび臭物質の測定、②臭気強度（TON）の測定、③生物調査、④気象要因調査（降水量、降水日数、水温）の4項目とした。

2.3 かび臭物質の測定方法

2.3.1 試料の前処理と測定方法

測定方法は、セップバックカートリッジガスクロマトグラフ質量分析方法（以下セップバック法と略す）

によった。図1にその操作方法を示し、図2にセップバック法の前処理として行った塩素注入の方法（以下、塩素注入法と略す）を示す。

また、表1にGC-MS（SIM）の測定条件を示す。

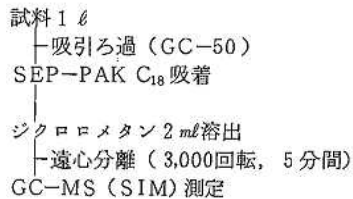


図1 かび臭物質の測定方法
（セップバック法）

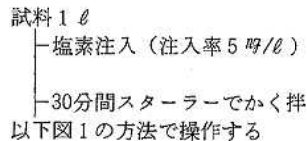


図2 塩素注入の操作方法
（塩素注入法）

表1 GC-MS（SIM）の測定条件

カラム：DB-5メガボアカラム (I.D. 0.53mm×30m, df=1.5 μm)
カラム温度：35→200℃
昇温速度：20℃/min
注入口温度：220℃
イオン源温度：250℃
イオン化電圧：70 eV
トータルフロー：50ml/min
メイクアップガス：OFF
カラム圧：15 psi
検出質量：2-MIB m/e 107,95 Geosmin m/e 149,112

* 宮城県保健環境部環境管理課

** 瀬峰病院

2.3.2 試薬と器具

使用した試薬及び器具は既報と同様である。

2.3.3 装置

ガスクロマトグラフ質量分析計：HP 5890 ガスクロマトグラフ（横河ヒューレットパッカード社）をJMS-D 300質量分析計に接続して使用した。

3. 結果及び考察

3.1 かび臭物質の測定

表2にかび臭物質の測定結果を示す。

Geosminは、セップバック法では7月26日と8月5日の調査では検出されなかったが、8月10日には4.1 $\mu\text{g}/\ell$ 検出され、以後8月18日には14 $\mu\text{g}/\ell$ 、9月2日には8.6 $\mu\text{g}/\ell$ が検出された。

また塩素注入法では、7月26日の測定ではセップバック法の場合と同様にGeosminは検出されなかったが、以後の測定では8月5日には5.2 $\mu\text{g}/\ell$ 、8月10日には24

$\mu\text{g}/\ell$ 、8月18日には21 $\mu\text{g}/\ell$ 、9月2日には12 $\mu\text{g}/\ell$ とセップバック法に比べ高いGeosminが検出された。

これは池田らが報告しているように、藻体に保持されていたGeosminが塩素注入により水中へ溶出されたためと推測されたが、特に8月5日にセップバック法では検出されなかったGeosminが微量(4.1 $\mu\text{g}/\ell$)検出されたことと、8月10日の測定値がセップバック法と比べ約6倍高い値を示したことは、この時期のGeosminの大部分は藻類の細胞内に存在していたものと考えられた。この結果によれば、塩素注入法は従来のセップバック法に比べかび臭発生初期に高い測定値が得られ、かび臭発生の早期把握が可能であることが示唆された。

なお、2-MIBはセップバック法でも塩素注入法でも全調査期間で検出されなかった。(2 $\mu\text{g}/\ell$ 未満)

表2 漆沢ダムの調査結果

調査日	Geosmin ($\mu\text{g}/\ell$)		臭気強度 (TON)	生物調査 (群 体 / ml)
	セップバック法	塩素注入法		
7. 26	4 未満	4 未満	藻臭：8	藍藻類：Anabaena fros-aquae 3 珪藻類：Cyclotella kutzingiana 1,700 Synedra acus 12
8. 5	4 未満	5.2	藻臭+かび臭：15	藍藻類：Anabaenopsis arnoldii 11 珪藻類：Asterionera formosa 8 緑藻類：Actinastrum hantzshii V. fiuviatile 7
8. 10	4.1	24	かび臭：15	藍藻類：Anabaenopsis arnoldii 428 Anabaena circinalis 117 Anabaena planctonica 21 珪藻類：Asterionera formosa 1,017
8. 18	14	21	かび臭+藻臭：25	藍藻類：Anabaena circinalis 6 Anabaena planctonica 2 珪藻類：Asterionera formosa 14
9. 2	8.6	12	藻臭+かび臭：16	珪藻類：Asterionera formosa 62 Cyclotella kutzingiana 1,100
9. 29	4 未満	4 未満	藻臭：10	珪藻類：Asterionera formosa 14 Cyclotella kutzingiana 9

(注) 2-MIBは全調査日で検出されていない。(2 $\mu\text{g}/\ell$ 未満)

3.2 臭気強度 (TON) の測定結果

表2にダム表層水の測定結果を示すが、本年度の異臭味発生は主として藻臭とかび臭である。

臭気強度 (TON) は7月26日には藻臭として8を示したが、この時にはかび臭は感じられていない。8月5日には藻臭が15と約2倍の強さになるとともに、かび臭も微量が感知された。

以後、臭気強度 (TON) は8月10日にはかび臭として15を示し、さらに8月18日にはかび臭と藻臭の混合臭として25と上昇したが、その後はしだいに低下し、9月2日の測定では藻臭とかび臭の混合臭として16、9月29日には藻臭として10となり、この9月29日にはかび臭も

確認されていない。

かび臭の臭気は、かび臭物質の検出状況とほぼ一致して感知されており、特に8月5日の調査では微量のかび臭 (TON2程度) が感知され、かび臭発生を臭気強度 (TON) によってもあらかじめ予測することができた。しかし臭気強度 (TON) については、官能試験であることから種々の測定上の問題があり、今後とも機器分析との併用が必要と考えている。

なお、図3は宮城県大崎広域水道事務所(麓山浄水場)で調査したダム表層水と菊水堰(ダム放流水)の臭気強度 (TON) の測定結果である。かび臭は、藻臭との混合臭としてダム表層水では8月5、8、12、18、22日に、

また、菊水堰（ダム放流水）では8月12, 18, 22日に確認されている。

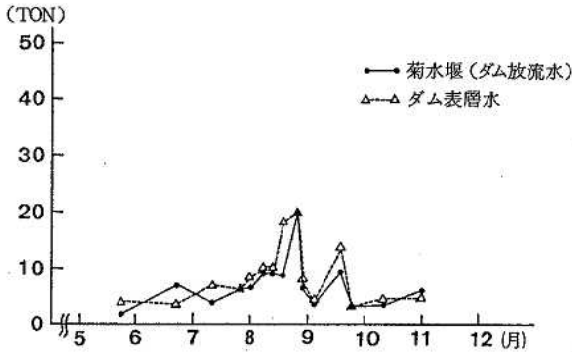


図3 漆沢ダムの臭気強度 (TON)
(大崎広域水道調査)

63年の漆沢ダムの異臭味発生を過去4年間の麓山浄水場で調査した菊水堰（ダム放流水）の臭気強度 (TON) で比較してみると、本年度の異臭味発生は過去4年間で最も低く、60年の30（その年の最高TON値）、61年の50、62年の70と年ごとに上昇していた臭気強度 (TON) が63年には20と低下している。

3.3 生物調査結果

表2にダム表層水の生物調査結果を示す。かび臭が臭気強度 (TON) で2程度感知され、塩素注入法により Geosmin が 5.2 $\mu\text{g}/\text{l}$ 検出された8月5日には、藍藻類の *Anabaenopsis arnoldii* が11群体/ ml 出現していた。

かび臭の臭気強度 (TON) が15と強まり、Geosmin が 24 $\mu\text{g}/\text{l}$ 検出された8月10日には藍藻類の *Anabaena circinalis* が 117 群体/ ml 、また *Anabaena planctonica* が 21 群体/ ml 出現していたが、これらのうち *Anabaena circinalis* は八木⁶⁾によれば Geosmin の産生が諸外国で報告されているが、*Anabaena planctonica* の産生例は国内、諸外国で報告されていない。

Anabaena circinalis は、63年で最もかび臭の臭気強度 (TON) が強まり、Geosmin も 21 $\mu\text{g}/\text{l}$ 検出された8月18日も 6 群体/ ml 検出されたが、その数は8月10日に比べると少ない。

以後、9月2日以降の調査では藍藻類は出現していない。

3.4 気象要因調査

63年の気象要因の大きな特徴は、7月中旬～8月の異常低温と多雨があげられる。図4は宮城県漆沢ダム管理事務所 で調査した昭和59～63年の漆沢ダムの降水量と降水日数である。

降水量は例年に比べ1～9月で多いが、特に7月は 207 mm 、8月は 411 mm と過去5年間で最も多い。また降水日数でも4～8月の降水日数が多く、特に4, 5, 6, 8月は過去5年間で最多となっている。

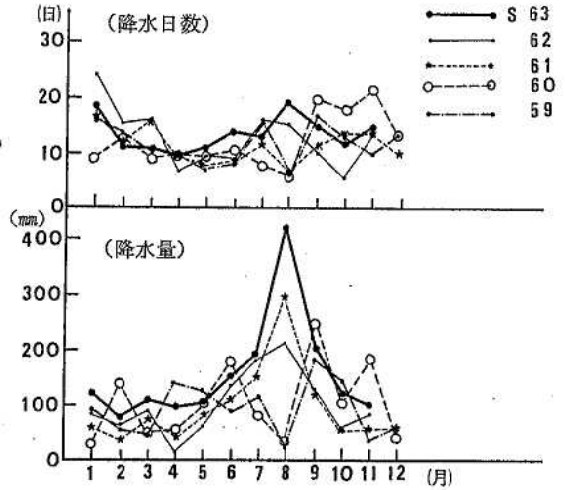


図4 漆沢ダムの降水量と降水日数
(漆沢ダム管理事務所調査)

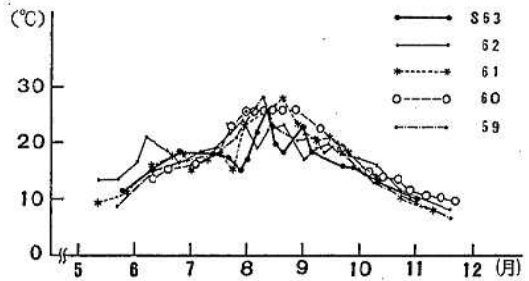


図5 漆沢ダム (ダム表層水) の水温
(大崎広域水道事務所調査)

図5は宮城県大崎広域水道事務所 で調査した昭和59～63年のダム表層水の水温である。水温は7月中旬までは例年よりもやや高い傾向がみられたが、7月中旬以降は逆に低下して7月末まで20℃以下の低水温が続いている。8月初旬以降水温は急激に上昇し、8月8日に26.7℃を記録したが、長くは続かず再び水温は低下している。

藻類の生育あるいは増殖には、一般的にある程度の日照時間と水温 (20℃以上) が必要と考えられているが、これらに関しては63年の気象条件は適していたとはいえない。

最後に本調査を実施するにあたり御協力をいただいた宮城県大崎広域水道事務所、宮城県漆沢ダム管理事務所の皆様に厚く御礼申し上げます。

参考文献

- 1) 菅原隆一 他：宮城県保健環境センター年報4, 89 (1986)
- 2) 菅原隆一 他：宮城県保健環境センター年報5, 93 (1987)

- 3) 菅原隆一 他：宮城県保健環境センター年報 **6**, 79 (1988)
- 4) 中条幸次 他：水道協会雑誌 **55**, 5, 32 (1986)
- 5) 池田勝洋 他：第37回全国水道研究発表会要旨集 (昭和61. 5)
- 6) 八木正一：用水と廃水 **26**, 8 (1984)

17 ICP 発光分光分析法の水道水全項目 分析への適用性について

高橋紀世子 千葉 規

1. はじめに

重金属の分析は、従来より原子吸光法が用いられてきており、環境、排水、水道等の分析の公定法となっている。一方、近年誘導結合プラズマ発光分光分析法（以下 ICP-AES と略記）が急速に普及し、共存元素の影響が少なく、分析感度、精度が優れ、多元素同時（逐次）で分析の迅速化が可能等の理由で各分野で利用されているが、抗水廃水試験方法以外では公定法として採用されていない。

当センターの ICP-AES は昭和54年に購入されたもので、アーク、スパークによる発行分光分析との兼用型であるため出口スリットの中が広く（100 μ m）、他元素の影響を受け易く、又、現在の機種のようにソフト面でも充実していないが、水道水全項目試験の Cd, Cr, Cu, Fe, Mn, Pb, Zn についての適用性と、共存元素の影響について検討した。

2. 実 験

2.1 試 薬

金属標準溶液：Al, As, Be, Ca, Cd, Cr, Cu, Fe, Mg, Mn, Ni, P, Si, Sn, Ti, V, Zn の各標準液は、関東化学製の化学分析用（1000 mg/l 又は 100 mg/l ）を用い、適宜希釈し、酸濃度を硝酸約 2% とした。

硝酸：和光純薬製有害金属測定用を用いた。

純水：ミリポア社製の逆浸透後イオン交換したものを用いた。

2.2 装置及び測定条件

ICP 発光分光分析装置：島津製作所製 GEW-170p
測定条件を表 1 に示す。

表 1 測定条件

ICP-AES 装置		島津 GEW-170P	
高周波出力		1.6 kw	
アルゴンガス流量			
冷却ガス		10.5 l/min	
キャリアガス		1.0 l/min	
プラズマガス		1.5 l/min	
コイルからの観測点		15 mm	
分析波長			
Al 3961.5	Cu 3274.5	pb 2203.5	
As 1937.7	Fe 2599.4	Si 2516.1	
Be 2348.6	Mg 2795.5	Ti 3349.4	
Ca 3933.7	Mn 2576.1	V 3110.7	
cd 2265.0	Ni 2316.0	Zn 2025.0	
Cr 2677.2	P 2136.2		

原子吸光分析装置：日立製作所製 フレーム170-50A
フレームレス170-70

2.3 前処理

試料 200 ml に硝酸 6.5 ml を加え濃縮し、20 ml とした。
（最終硝酸濃度約 2%）

原子吸光法は Cd, Pb はフレームレス法を用い、他はフレーム法とした。

3. 結果と考察

3.1 σ 値と定量限界値について

通常分析精度は同一試料の繰り返し分析によって得られた標準偏差 σ または変動係数で表わされる。今回は Blank 溶液の 10 回くり返し測定値の標準偏差の 3 倍値を検出限界、10 倍値を定量限界値とする。

又、水道水（源水及び浄水）を 10 倍濃縮して分析することを想定し、影響の少ない元素をグループ化し、表 2 のように検量線の高濃度の値でアテネッターを設定した条件で Blank を分析した場合（以下 G10 とする）と、高濃度を全元素 10 $\mu g/ml$ にアテネッターを設定して Blank を分析した場合（以下 H10 とする）を表 3 に示す。

H10 は月日をかえての 5 回分の σ の変動も記載してある。G10 と H10 を比較すると、Al, Fe, P, Si を除き、検量線の高濃度の値の低い方、つまりアテネッターの高い方が σ 値が低い傾向にある。但し、H10 の σ 変動を見ると、測定毎のバラツキもかなりあるため、G10 の値が 1 回の σ 値であることを考慮する必要もある。このことは Al, Fe の高濃度が同じ 10 $\mu g/ml$ で設定してあるのに、G10 の σ の方が低いことから示唆される。

今回は、水道水を 10 倍濃縮して分析することを想定しているため、定量限界値は G10 の値を用いることとする。

表 2 標準溶液の作成 (G10)

No.	元素および濃度	mg/l
01	Be Cd Cr Cu Ti V Zn	各 0.5
02	Mn 0.5 Ni 2.0 Pb 2.0 P 2.0	
03	Ca	200
04	Al	10
05	Fe	10
06	Si 100 Mg 50	
07	Blank (2% HNO ₃)	

CaやMgは発光による輝線が強く、多くの元素に影響を与え、又、河川水や水道水に多く含有しているため、濃縮によりその影響は大きくなる。各元素の影響を回帰直線 $Y = aX + b$ で表わし、影響する値を差し引いて補正することとする。

3.4 ICP-AES値とAA値の比較について

昭和63年8月採水の川崎町の水道原水及び浄水21件と白石川(ダムサイトと取水堰)の試料を10倍濃縮(2%硝酸)し、ICP-AESで分析した値(ICP)、表5で補正した値(補正ICP)及び、原子吸光光度計での分析値(AA)を表6に示した。又、通常のルーチン検査での値を1倍AAとして付記した。

各単素毎についてみると

Al Caの影響が大きく、補正ICP値はAA値と近似しているものが多いが、No.16, 18のように補正ICPが高いものもある。補正が十分か否か低濃度についても少し検討を要する。

Ca 10倍濃縮値であるので高値である。そのため他の元素に与える影響が大きい。

Cd 補正ICPで0.02mg/l前後の値を示しているが、AA値では一桁低い値である。10σ値は0.018mg/lであるが、10倍濃縮しているので試料換算では報告下限値0.005mg/lを満足できるがCa濃度が高い場合は注意を要する。

Cr 濃縮しているので試料換算では報告下限値0.02mg/lを満足できる。

Cu 補正ICPは、Ca50mg/l以下についても、補正しているので補正し過ぎている可能性がある。濃縮しているため試料換算では報告下限値0.01mg/lを満足できる。

Fe Ca, Mgの補正分は、ごくわずかである。ICP値はAA値よりやや低い。報告下限値0.05mg/lを満足できる。

Mg Caと同様に含有量が多く、他の元素に影響を与える。

Mn Mgによる補正はわずかである。AA値ともよく近似している。濃縮しているため試料換算では報告下限値0.01mg/lを満足出来、0.001mg/lまで可能である。

Ni Siの影響を受ける元素であるので、配分解を十分に、SiO₂としてろ過除去後に、ICP-AES分析をした方がよい。(Si濃度を必要としないとき)。定量下限値は0.12mg/lであるが、Siが多い試料では0.2mg/lが定量下限値であるが10倍濃縮では0.02mg/lである。

Pb 10σ値が0.249mg/lであるが、Ca, Mgの補正でも充分でなく、AA値とも一桁異っている。濃縮しているため試料換算では報告下限値は0.05mg/l程度である。

Si 今回の分析ではSiO₂が析出しないように濃縮したが、No.11, 16, 18, ダムサイトでは結晶が少々析出したため、Siが低値である。

Zn 補正ICP値とAA値、1倍AA値が近似するもの(No.1, 5, 20等)と、AA値がD₂で補正され過ぎて低

いもの(No.9, 15, 18等)があるが、1倍AAと補正ICPの近似するものが多い。模擬試料等を作り検討する必要があるが、濃縮しているため、試料換算では報告下限値0.01mg/lを満足出来る。

Al, Cu, Fe, Mnについての相関をとり、表7に示した。Alは補正によりAA値との相関が良くなっている。Cu, Mn, Feは補正をしなくとも良い相関である。

表7 ICP値とAA値の相関

元素	補正の有無	Y = aX + b	Y:ICP	X:AA
	Al	無	Y = 2.1247 + 0.1887 X	r = 0.6727
有		Y = 0.3510 + 0.9439 X	r = 0.9761	
Cu	無	Y = -0.0050 + 0.9440 X	r = 0.9809	
	有	Y = -0.0070 + 0.9416 X	r = 0.9835	
Fe	無	Y = -0.0140 + 0.8602 X	r = 0.9935	
	有	Y = -0.0451 + 0.8610 X	r = 0.9930	
Mn	無	Y = 0.0038 + 0.9068 X	r = 0.9933	
	有	Y = 0.0027 + 0.9032 X	r = 0.9940	

4. まとめ

- (1) 試料を10倍濃縮してICP分析し、Ca, Mg, Si等による補正を行うことにより、Pbを除いて水道水全項目の当部の報告下限値を満足できる。
- (2) 補正は手計算で実施したが、ベースが経過時間と共に下降する傾向が、高周波出力を1.2KWに下げをことにより低くなっているため、内蔵する含有量計算機の利用を検討する価値もある。
- (3) Al, Zn等でAA値とICP値で異なっている値もあるので、水道水の模擬試料を作り、検討することも必要である。

参考文献

- 1) 環技協ニュース Vol. 9 No. 3
- 2) 高橋紀世子 他:宮城県保健環境センター報告 Vol. 1, 1983

18 底質中の低沸点有機塩素化合物の分析法と吸着量について

高橋紀世子 木戸 一博 紺野 光雄

ヘッドスペース法での、底質や土壌中の低沸点有機塩素化合物の分析において、標準添加回収実験より、土壌あるいは、底質への吸着量はテトラクロロエチレン〈トリクロロエチレン〉1, 1, 1-トリクロロエタンの順に高く、オクタノール/水分係数の高いもの、程吸着量が多い。又、強熱減量の高いもの程吸着量が大きく、土壌中に含まれる、有機炭素量に支配されることから、標準添加法で分析する必要があると考えられる。

1. はじめに

トリクロロエチレン等の低沸点有機塩素化合物による地下水や飲用水の広範囲な汚染が判明し、大きな社会問題となり、その後、これらの物質に対する水道水の暫定基準や暫定排水濃度目標の設定、さらには排水基準の改正等の対策が講じられ、分析法についても、厚生省通知及びJISにより、ヘッドスペース法又は有機溶媒抽出法が水質の測定方法として定められているが、土壌や底質中の分析法については十分に確立されていない。

今回、昭和63年度環境庁委託事業としての指定化学物質環境残留性検討調査の中で、海域の底質中の低沸点有機塩素化合物の分析に際し、溶媒抽出法よりGC検出器への汚染の少ない、ヘッドスペース法を前処理法として用い、若干の知見を得たので報告する。

2. 方 法

2.1 試 薬

n-ヘキサン、メタノール：和光純薬水質分析用トリクロロエチレン(TCE)、テトラクロロエチレン(PCE)、1, 1, 1-トリクロロエタン(MCF)標準液：和光純薬製有機ハロゲン化合物標準A-3(各々0.50mg/ml, 0.20mg/ml, 0.10mg/mlメタノール溶液)を希釈して用いる。

クロロホルム(CF)、四塩化炭素標準液(CTC)：関東化学製トリハロメタン用、水質試験用(各々1mg/mlメタノール溶液)を希釈して用いる。

NaCl：和光純薬特級 マッフル炉(500℃)で2時間加熱。

精製水：MILLI-Q水を常法通りn-ヘキサンで振とうし、水層を1時間煮沸後冷却して用いる。

2.2 器具及び装置

バイアル：容量50mlのもの。ガラス器具はすべて100℃で1時間加熱したものを用いる。

ガスクロマトグラフ：カラム20%シリコンDC-550クロモソルグW(AW-DMCS, 60~80メッシュ) 3mカラム温度90℃, 検出器温度150℃

2.3 実験方法

バイアルに土壌又は底質(湿泥)約10gを精秤し、5M NaCl溶液45mlを加え、N₂ガス置換後、テフロンシート

で覆いセプトムとアルミシールで密栓する。メタノール5μlをマイクロリンジに加え、激しく振とう後25℃の恒温槽に倒置し、超音波を20分間照射し、30分静置後ヘッドスペースガス0.2mlをGCに注入する。標準添加は、数段階に調整したメタノール標準溶液5μlを添加する。又、検量線では、5M NaCl溶液を50mlとした。

3. 結果及び考察

3.1 添加回収実験

土壌中の低沸点有機塩素化合物の測定方法には、表1に示したように、溶媒抽出法、ヘッドスペース法、還流式水蒸気蒸留法等があり、各々一長一短がある。又、表1の回収率は、今回の環境庁委託での分析法¹⁾の値から引用したものである。これらの測定方法の中で、今回はGC検出器への汚染の少ないヘッドスペース法を用いることとし、二点ほど方法を改良した。

一点は、液相を水の替わりに5M NaClとした。海水中には約3%のNaClが含まれており、塩濃度が高くなるとイオン強度が高まり、ヘッドスペース法での感度が増大することが知られており²⁾、検量線と底質のイオン強度を一定とするため、5M NaClを加えた。

第二点は、超音波を20分間照射したことで土壌での感度の増大が報告されている³⁾。

参考法では、ヘッドスペース法での検量線は被検物質の含まれていない土壌に標準添加を行い作成するとされている。

表1 土壌または底質中のトリクロロエチレン等の測定方法

方法	溶媒抽出法	ヘッドスペース法	還流式水蒸気蒸留法
特 徴	<ul style="list-style-type: none"> ・簡便である ・高濃度での希釈が容易である ・水分の多い粘土質では抽出率が悪い ・検出器を汚染する 	<ul style="list-style-type: none"> ・検出器の汚染が少ない ・精製水や室内の汚染の影響を受け易い ・検出感度が良い 	<ul style="list-style-type: none"> ・回収率が低い ・器具を多く必要とする ・分解の可能性がある
1) 回収率	$Cl_2C=CHCl$ 87% $Cl_2C=CCl_2$ 98 $Cl_3C \cdot CH_3$ 82	$Cl_2C=CHCl$ 93% $Cl_2C=CCl_2$ 76 $Cl_3C \cdot CH_3$ 84	$Cl_2C=CHCl$ 65% $Cl_2C=CCl_2$ 77 $Cl_3C \cdot CH_3$ 33

1) 環境庁委託 昭和59年度地下水汚染物質土壌中分析法検討調査

そこで、被検物質の含まれていない山砂と土壌で添加回収実験を行い、結果を表2に示す。

表2 RECOVERY TEST

SUBSTANCES	ADDED CONC. (ng)			RECOVERY (%)							
	I	II	III	SAND (IL.1.8%)				SOIL (IL.7.3%)			
CHCl ₃	50	100	200	84	87	85	85	68	68	69	68
CCl ₄	0.25	0.5	1	95	97	94	95	85	84	85	85
C ₁₂ Cl ₂ C = CHC	12.5	25	50	93	93	93	93	64	64	63	64
C ₁₂ Cl ₂ C = CCl	5	10	20	99	97	92	96	67	58	52	59
C ₁₃ Cl ₃ C · CH ₃	2.5	5	10	93	100	93	95	83	81	86	83

山砂では、MCFで85%前後、その他は平均値で93~96%の回収率であるが、土壌では、59~85%とPCEの回収率が特に低い。

従って、被検物質が含まれていない土壌で検量線を作成することは問題があると思われ、仙台湾の底質(B-1, B-2, B-3)の分析では、底質毎の標準添加を実施した。その結果、5物質共に検出されなかったが、回収率は土壌の場合と同様に、平均で56~90%であった。

図1に5MNaClのみの検量線と、B-3地点の底質を添加した場合の検量線とを示したが、底質添加で回収率が下がっていることがわかる。

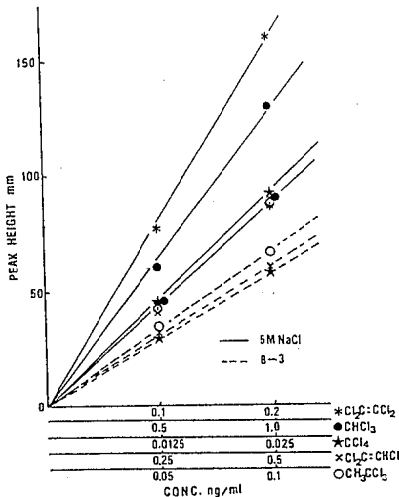


図1 標準添加検量線

3.2 土壌吸着量

一般に、吸着平衡はFreundlichの吸着等温線 $Q = KC \frac{1}{n}$ (Q: 平衡吸着量, C: 水中有機物濃度, K: 吸着平衡定数, $\frac{1}{n}$: 非線型の程度) で表わされる。

土壌と底質の回収率から、TCE, PCE, MCF の泥へ

の吸着量と5MNaCl中の濃度とを計算し、その関係を両対数グラフにプロットし、図2, 図3, 図4に示した。

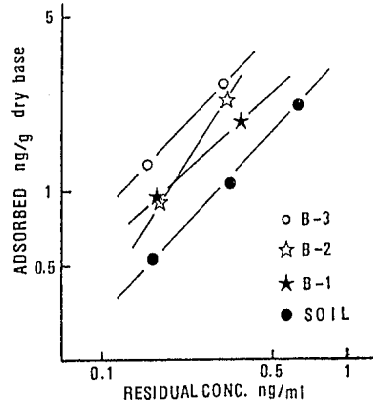


図2 テトラクロロエチレンの吸着等温線

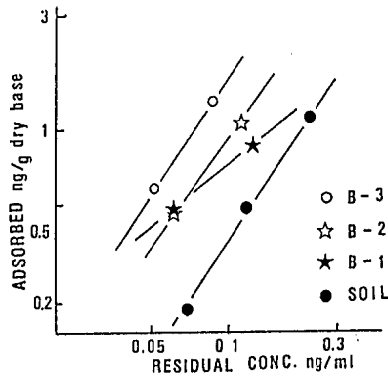


図3 トリクロロエチレンの吸着等温線

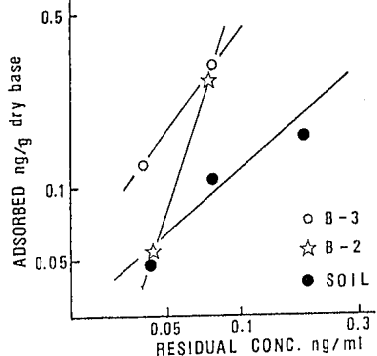


図4 1,1,1-トリクロロエタンの吸着等温線

TCE, PCEではB-3 > B-2 > B-1 > 土壌の順で吸着量が高い。MCFでは、ばらつきがあるが、同様の傾向が見られる。これら三物質について、横軸と縦軸のスケールを合わせ、一枚のグラフ上に描き、吸着量を比較すると(図5)、底質B-3, 土壌共にPCE > TCE > MCFの順に吸着量大きい傾向にある。この傾向はオクタノール/水分係数と関係があると考えられる。

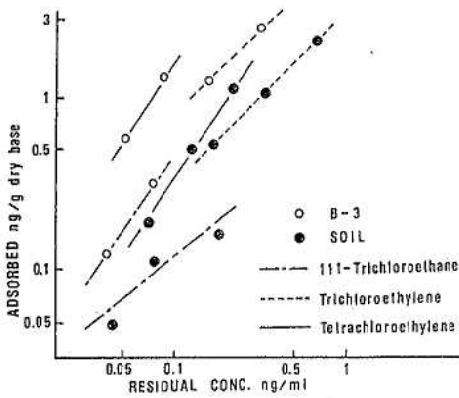


図5 三物質の吸着等温線

オクタノール/水分配係数 (Pow) は、化学物質の生物体内への濃縮を推定する際の重要な値とされ、又、化学物質の水への溶解度及び土壌吸着平衡定数なども密接な関係をもっているといわれている。^{4) 5)}

Pow は実験者により数値が少々異って報告されているが、表3は我々が高速液体クロマトグラフィーを用いて測定した値であり、PCE>TCE>MCFの順に高く、底質の吸着量の傾向と同様である。

表3 オクタノール/水分配係数

$$Pow = \frac{n\text{-オクタノール中の化学物質の濃度}}{\text{水中の化学物質の濃度}}$$

化学物質	Pow
テトラクロロエチレン	2,570
トリクロロエチレン	478
1,1,1-トリクロロエタン	354

高速液体クロマトグラフ条件

カラム: μ -Bondapak C-18 25cm
 溶離液: 67.5%メタノール

3.3 土壌吸着量と強熱減量

土壌又は底質により回収率が異っていることから、強熱減量を指標として吸着量との関係を両対数グラフに示した(図6, 7, 8)。

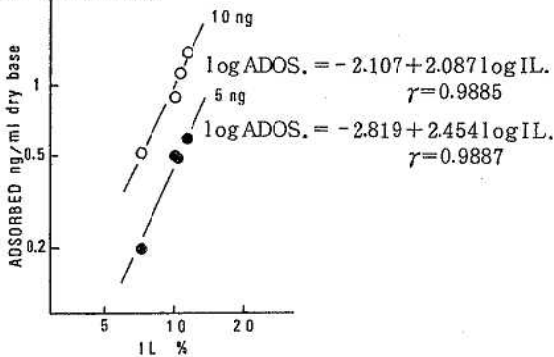


図6 テトラクロロエチレンの吸着量と強熱減量の関係

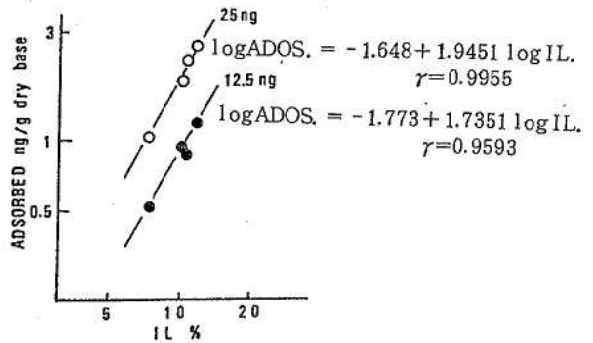


図7 トリクロロエチレンの吸着量の強熱減量の関係

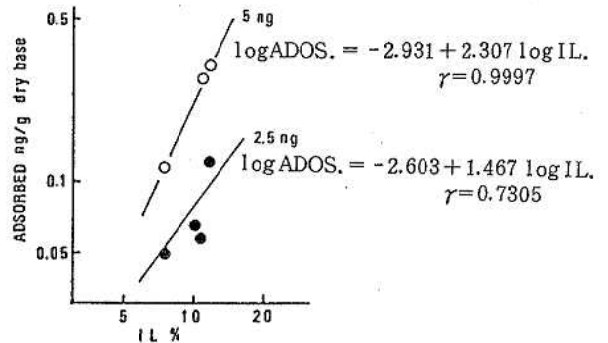


図8 1,1,1-トリクロロエタンの吸着量と強熱減量の関係

強熱減量は常法通り、600℃、2時間強熱し求めた。吸着量と強熱減量とは非常に高い相関があり、添加量が高い時は吸着量も高くなっている。MCFでやや相関係数は低くなっているが、すべて1%の危険率で有意である。

一方、土壌吸着平衡定数Kは、土壌中の有機炭素含有率と比例関係にあるといわれ(表4)、さらにTomson等は、有機炭素含有率とKowでも表わされるとしている。今回、底質中の有機炭素の分析は実施しなかったが、強熱減量(IL)と有機炭素(Co)の間には、従来より良い相関があるとされている。表5に伊豆沼調査報告書⁶⁾⁷⁾より計算したILとCoとの相関を示したが、相関係数0.969, 0.892と良い相関がある。

表4 土壌吸着平衡定数について

土壌吸着平衡定数

$$K = \frac{C_{soil}}{C_{water}} = Koc \cdot Co \cdot \beta$$

Csoil : 土壌中の化学物質濃度

Cwater : 水中の化学物質濃度

Koc : 土壌の有機炭素に対する分配係数

Co : 土壌の有機炭素含有率

β : 土壌の密度

Tomson等(1981)

$$K = 0.63 \cdot Co \cdot Kow$$

Kow : n-オクタノール/水分配係数

表5 強熱減量(IL)と有機炭素(Co)との関係

伊豆沼 S. 56 ~ 57

$$Co = -14.1 + 4.49 IL.$$

(n=19, $r=0.9690$)

伊豆沼 S. 61 ~ 62

$$Co = -5.56 + 3.01 IL.$$

(n=22, $r=0.8921$)

伊豆沼調査報告書(保環センター水質部)より計算

従って、今回の低沸点有機塩素化合物の泥への吸着も、強熱減量つまり、土壌中有機炭素との関係として説明される。

4. ま と め

以上のように、ヘッドスペース法にて底質中の低沸点有機塩素化合物の分析を行う際に、被検物質を含有しない土壌に標準添加をして検量線を作成する方法は、含有する有機炭素が回収率に大きな影響を与える点から問題があり、試料毎への標準添加が必要であると考えられる。

参 考 文 献

- 1) 昭和59年度環境庁委託業務結果報告書 地下水汚染物質土壌中分析法検討調査結果報告書 昭和60年3月
- 2) 秋野正造他:宮城衛研年報 **56** 92(1981)
- 3) 川田邦明他:分析化学 **37** 279(1988)
- 4) 化学物質の物理化学的性状に関する研究:環境庁委託昭和56~58年度
- 5) 昭和57年度環境庁委託業務結果報告書 有害物質による地下水汚染実態調査:昭和58年3月
- 6) 伊豆沼,内沼環境保全学術調査報告書:宮城県,昭和63年3月
- 7) 伊豆沼湖沼水質調査結果報告書:宮城県,昭和57年3月

19 北国のオキシダント濃度に関する解析(1)

仁平 明 加藤 憲治 佐藤 郁子*
齋藤 達夫

北海道東北地方のOxは、宮城、福島、新潟の南部地域で濃度変化が大きく、0.12ppm以上の高濃度が発生している。環境基準は全道県で超過している。Ox変化の広域的要因としては、全域共通に春期に増大する季節変化、春期後半～夏期と盛夏期に現われる南北間差及び4月～11月の期間、短期に生じる北部太平洋・日本海側と南部太平洋側の地域差が特徴的である。

1. はじめに

Ox汚染は光化学反応による二次汚染である。又、成層圏O₃の沈降や汚染気塊の長距離輸送の要因を含み、広域的現象であることが知られている。¹⁾²⁾北海道東北地方におけるこれらの状況を解明するために、全国公害研協議会北海道東北支部会員間でOxに係る大気常時監視データの交換を実施した。第1報として、これらのデータに含まれる全体的な特性、即ち、平均的濃度レベル及び広域の変動要因について解析した。

2. 方 法

2.1 データの処理

各自治体の大気常時監視データファイルから作成したデータ交換共通ファイルを、本県開発の大気汚染データ解析ファイルに変換し、平均値、標準偏差等の基本統計量及び時系列図を出力した。主成分分析は解析ファイルを統計解析パッケージSTATPAC-4形式に再度変換して行った。

2.2 対象データ

データ交換を行った昭和59、60年度のOx測定80局の日最高濃度を基礎データとした。日最高値は、環境基準の評価法とは異なり、1日20時間以上測定した日の1～24時の間で求めた。

3. 結 果

3.1 基礎集計

3.1.1 日最高値の平均、標準偏差と最大

Ox日最高値の平均と標準偏差の関係は、図1のとおり、北部地域に比べて福島、新潟の南部地域では標準偏差が大きく、濃度増減の変化が大である。図2にはOx日最高値の平均と最大の関係を示したが、全体的な散布状況は図1と同様である。昭和59、60年度の2カ年間で0.12ppm以上を記録したのは宮城、福島、新潟の3県であり、南部地域で高濃度のOxが発生している。環境基準は全道県で超過している。

3.1.2 OxとNO₂濃度の関係

Ox日最高値の平均とNO₂日平均値の平均により、OxとNO₂の関係を図3に示した。ここで、NO₂日平均値は1日20時間以上測定した日について求めたものである。

濃度レベルに差があり全体的にバラツキがあるが、道県別にみるとOxとNO₂は概ね反比例の関係にある。大気が汚染しNO₂濃度が高い測定局では、OxがNOに消費されていることがわかる。

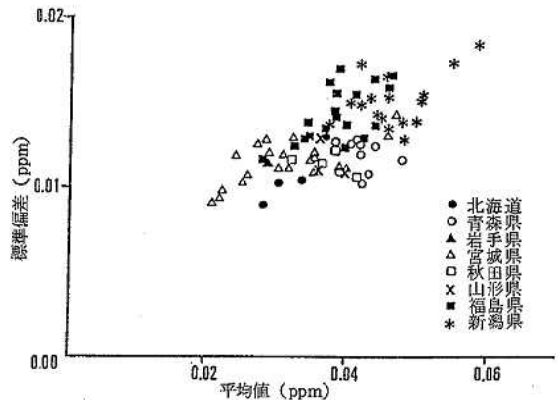


図1 Ox日最高値の平均値と標準偏差の関係 (昭和59～60年度)

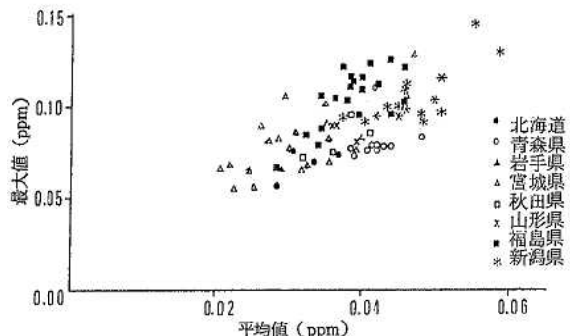


図2 Ox日最高値の平均値と最大値の関係 (昭和59～60年度)

* 現理化学部

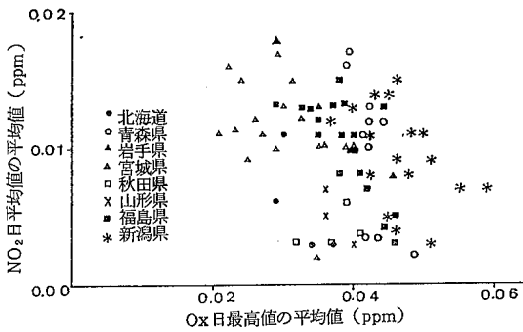


図3 O_xとNO₂の関係(昭和59~60年度)

3.1.3 O_x日最高値の変化

後述の主成分分析を行った18測定局について、昭和59~60年度2カ年間の、O_x日最高値の時系列を図4に示す。

O_xは長期平均的には春期に増加する傾向がみられる。苦小牧、青森、岩手の北部地域では急激な濃度変化が少なく、この傾向が明瞭である。南部地域では春、夏期に日々の濃度変化が大きい。晩秋から冬期には、全体的にO_xはあまり変化をしないようである。

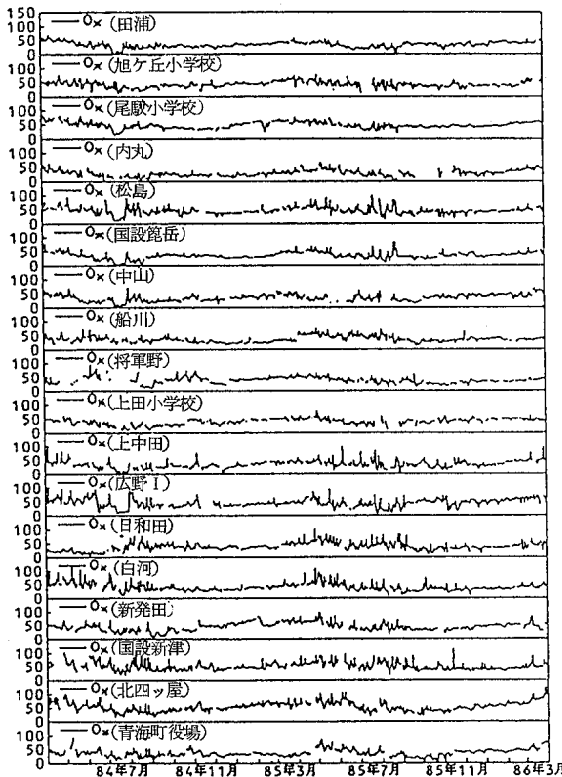


図4 日最高オキシダント濃度変化図 (1984年4月1日~1986年3月31日)

3.2 サンプル数テスト

日最高値を計算するための最低測定時間数(以下「有効測定時間数」という。)を決めるに当たっては、その代表性及び主成分分析を行うための同時測定日数の観点から、以下の検討を行った。

3.2.1 有効測定時間数別サンプル数

日最高値を計算する日の有効測定時間数を20, 17, 15及び13時間以上としたときに、昭和59, 60年度の年間測定日数がともに80%(292日)以上の測定局数は、表1のとおりいずれの場合も70局であった。全測定局80局のうち10測定局は、有効測定時間数を変えても年間測定日数は80%に満たず、半日以上の長時間欠測が数多く生じていた。

80%以上の年間測定日数を有する70測定局での2カ年間測定日数の最小値は、有効測定時間数を13時間にすれば20時間の場合より26日多いが、全期間日数730日からみれば軽微である。日最高値の代表性を犠牲にして有効測定時間数の基準を下げても、測定日数の増加にはほとんど効果がない。

表1 有効測定時間数別の年間測定日数が80%以上の測定局数

有効測定時間数	該当局数	除外局数	(1) 該当局測定日数の最小	(2) 除外局測定日数の最大	(1)-(2)
20	70	10	632 (87%)	592	40
17	70	10	645 (88%)	599	46
15	70	10	650 (89%)	599	51
13	70	10	658 (90%)	599	59

※全測定局数80, 全日数730日
※除外局はいずれの場合も同じ

表2 有効測定時間数別の対象局同時測定日数

対象局	有効測定時間数			
	20	17	15	13
80局(全測定局)	9	12	14	21
70局(注1)	39	56	67	90
68局(注2)	42	64	80	111

注1 昭和59, 60年度の測定日数がともに80%(292日)以上の測定局

注2 有効測定時間数が15時間のときに、2カ年間の測定日数が90%(657日)以上の測定局

3.2.2 同時測定日数

主成分分析を行うには分析対象局のデータがすべてそろふ必要がある。表2に有効測定時間数別の分析対象局同時測定日数を示した。ここで対象局数80局は全測定局、70局は前述の各年度とも測定日数が80%以上の測定局、又、68局は有効測定時間数を15時間としたときに2年間通算の測定日数が90%(657日)以上の測定局を対象とした場合である。

Ox 測定機は保守管理に時間を要し、各測定局で交互に行うため同時にデータがそろえる数は極めて少ない。有効測定時間数を13時間、対象局数を68局としても、同時測定日数は全期間日数の約1/4の111日にしかなかった。これらのデータを分析して全体を議論するのは危険と思える。

3.2.1 同様、有効測定時間数の基準を下げてても同時測定日数は増加しないことから、日最高値の代表性を配慮して有効測定時間数は20時間に設定した。

3.3 測定局のグルーピング

3.3.1 管轄区域別、県域別グルーピング

局所の変動要因を除去するために、管轄区域（Ox 計管理機関）別、県域別に主成分分析を行い、測定局をグルーピングした。結果を表3、表4に示す。1より大きい主成分は、表3の管轄区域別では最大第2主成分まで、表4の県域別では最大第3主成分までである。各共通因子の因子荷重をもとに測定局をグループ分けした。このとき、地理的分布を考慮し、因子荷重分布が類似していても距離が離れているものは同一グループ化しなかった。このようにして分類したグループ数は表4の23である。このグループは、分析対象局数を減少しサンプル数を増した表3の管轄区域別の分析でも、同様にグルーピングされることを確かめた。

表3 管轄区域別主成分分析結果

地区名	対象局数	サンプル数	固有値（累積寄与率%）	
			第1主成分	第2主成分
苫小牧地方	4	668	3.3(82)	-
青森県	10	358	7.2(72)	-
岩手県	1	-	-	-
宮城県	11	331	6.3(57)	1.1(67)
仙台市	9	482	5.8(64)	-
秋田県	4	363	2.5(64)	-
山形県酒田	3	578	2.5(83)	-
福島県いわき	12	468	8.5(71)	-
福島県郡山	8	468	4.2(53)	1.8(75)
新潟県東港	6	521	4.0(66)	1.0(83)
新潟県上越	4	562	2.9(72)	-

*有効測定時間数が20時間以上のときの測定日数が630日/2年以上の測定局を分析対象にした。

なお、表4の宮城、仙台地域では6グループに分類できたが、このうち2つは地域的にまとまりがなく、Ox 計感度低下³⁾によるものであるため除外した。

各グループの中から代表測定局を1つ選出した。代表局の選出に当たっては、NOx 濃度の多寡、地域的バランス等を配慮した。

3.3.2 地域別グルーピング

次に、これらの23測定局を対象に表5の太平洋側と日本海側に分けた場合、北部と南部に分けた場合について、主成分分析を行った。その結果、いずれの場合にもグルーピングされた5局は更に除外し、最終的に図5の18局

を選定した。

表4 県域別主成分分析結果

道県名	北部太平洋	宮城県	北部日本海	福島県	新潟県										
管轄区域	苫小牧 青森 岩手	宮城 仙台	秋田 酒田	福島 いわき 郡山	新潟 東港 上越										
対象局数	15	20	7	20	10										
サンプル数	282	232	296	335	402										
固有値 与積率	Z ₁	9.5(64)	10.5(52)	3.8(54)	10.8(54)	6.1(61)									
	Z ₂	1.5(73)	1.7(61)	1.3(73)	2.3(66)	1.1(72)									
	Z ₃	-	1.4(68)	-	1.9(75)	-									
グループ数	5	4	3	6	5										
代表局	田 旭 ヶ 丘 尾 内	浦 丘 野 丸	松 島 中	島 岳 山	船 将 野 上	川 野 田	上 野 田	中 野 田	新 野 田	新 野 田	津 野 田	北 野 田	四 野 田	上 野 田	越 野 田

*有効測定時間数が20時間以上のときの測定日数が630日/2年以上の測定局を分析対象にした。

表5 地域別主成分分析結果

地域名	太平洋側	日本海側	北部	南部	
対象道県	北海道 青森、岩手 宮城、福島	秋田 山形 新潟	北海道 青森、岩手 秋田、山形	宮城 福島 新潟	
対象局数	15	8	8	15	
サンプル数	298	383	370	321	
固有値 与積率	Z ₁	7.3(49)	4.1(51)	4.2(52)	7.8(52)
	Z ₂	1.9(61)	1.1(66)	1.1(66)	1.4(61)
	Z ₃	1.1(69)	-	-	1.1(68)
選択局数	11	7	7	11	
除外局数	4	1	1	4	

*有効測定時間数が20時間以上で、表4の代表局を分析対象にした。



図5 主成分分析対象測定局

これらの18局は、隣接測定局との相関は高く、図5の測定局間では相関が低いもので、全対象局70局の変動情報をなるべく失わないように選んだものである。

3.4 広域的Ox変化

3.4.1 主成分分析対象データ

項目：Ox日最高値（有効測定時間数20時間以上）

期間：昭和59～60年度

測定局：グルーピング後の18局（図5）

サンプル数：222日

表6 固有値と固有ベクトル

道県	測定局	平均値 (ppb)	標準 偏差 (ppb)	固有ベクトル			
				第1 主成分	第2 主成分	第3 主成分	第4 主成分
北海道	田浦	34	9	-0.23	-0.38	-0.13	0.07
青森	旭ヶ丘	44	11	-0.25	-0.10	-0.17	-0.41
	尾畷	49	11	-0.24	-0.21	-0.26	0.24
岩手	内丸	29	11	-0.23	-0.15	-0.29	-0.02
宮城	松島	46	11	-0.27	0.18	-0.12	-0.19
	国設麓岳	37	10	-0.27	-0.08	-0.18	-0.17
	中山	37	11	-0.19	-0.35	0.36	-0.17
秋田	船川	36	11	-0.18	0.28	-0.45	-0.03
	將軍野	39	12	-0.21	0.11	-0.00	0.45
山形	上田	41	11	-0.24	-0.21	0.23	0.10
福島	上中田	36	12	-0.26	-0.07	0.09	-0.24
	広野	47	15	-0.18	-0.18	-0.04	-0.51
	日和田	39	13	-0.16	0.49	0.23	-0.04
	白河	41	15	-0.25	0.22	-0.16	-0.14
新潟	新発田	47	17	-0.25	0.06	0.39	0.27
	国設新津	49	14	-0.23	0.36	0.10	0.05
	北四ッ谷	56	18	-0.28	-0.01	0.33	0.03
	青海	39	14	-0.23	0.18	0.15	-0.20
固有値				8.67	1.82	1.21	1.04
累積寄与率				0.48	0.58	0.65	0.71

3.4.2 主成分分析結果

図5の18局で同時に日最高値が求められたのは222日である。主成分分析の結果は表6のとおり、第4主成分までの固有値が1より大きく、累積寄与率は71%であった。解析図として、第1主成分と第2主成分、第2主成分と第3主成分の因子負荷量分布を図6に、各主成分得点の時系列的变化を図7に、第2～第4主成分で固有ベクトルが正の領域を図8にそれぞれ示す。

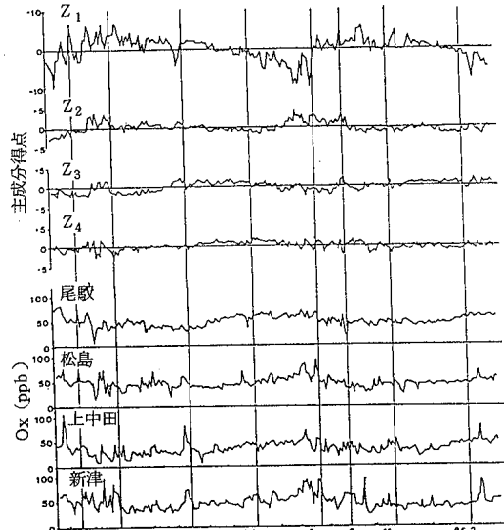


図7 主成分得点とOx日最高濃度の変化

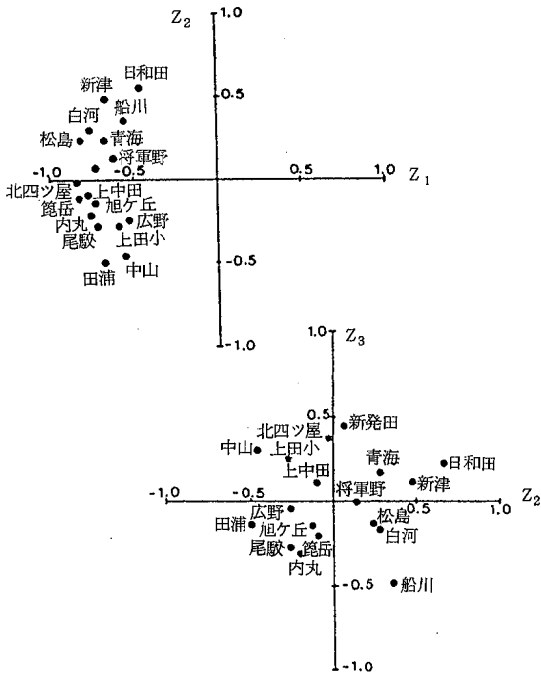


図6 因子負荷量分布

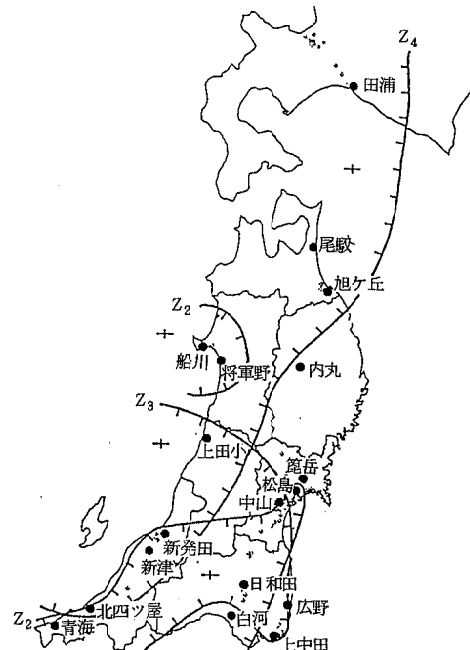


図8 主成分分析測定局と第2～第4主成分固有ベクトルの正值領域

3.4.3 第1主成分

第1主成分は寄与率が48%で圧倒的に大きく、全変動の半分を説明する。その固有ベクトルはすべて負で、 $-0.16 \sim -0.28$ の狭い範囲に分布することから、全局平均的な意味を持つ。因子負荷量分布によれば、各測定局は第1主成分との相関が大きく、全域的に共通の変動が存在することを示す。

第1主成分の得点は3~5月の春期に集中して負の大きな値となる。第1主成分が負になるのは、その固有ベクトルがすべて負であることから、各測定局でのOx日最高値がそれぞれの平均値より大きいときである。全域的に濃度が増加すれば第1主成分は負の大きな値になる。

第1主成分により、図4でみた春期のOx濃度増加傾向が全域的なもので、北海道東北地方のOx季節変化で支配的要因になっていることが示される。

3.4.4 第2~第4主成分

第2~第4主成分の固有ベクトルは測定局により正又は負の値をとる。第2、第3主成分の因子負荷量分布では、苫小牧、青森、岩手の北部太平洋側地域が第Ⅲ象限に、郡山と新潟の南部内陸・日本海側地域が第Ⅰ象限に分離している。宮城といわきの南部太平洋側地域及び秋田、山形の北部日本海側地域はこれらのグループの中間に分布し、第2、第3主成分にOx変化の南北及び太平洋側と内陸部・日本海側の地域差が現われているようである。

第2主成分の得点は春期後半から夏期にかけて正の大きな値になる。図8で第2主成分の固有ベクトルが正の領域は郡山、新潟の南部内陸部・日本海側と秋田である。主成分得点はこれらの地域で通常より高い濃度になるか、固有ベクトルが負の地域でOxが平均以下になったときに正になる。南部内陸部・日本海側地域のOx増加、或いは太平洋側・北部地域での減少が春期後半から夏期に卓越することが特徴付けられる。

第3主成分の得点は盛夏期と冬期に正、春~梅雨期と秋期に負になる。固有ベクトルは、福島、新潟、宮城、山形を含む第2主成分よりも広範な南部地域で正であり、これらの地域における盛夏期のOx増加を説明するものと思われる。

第4主成分の得点は4~11月の期間中、短期的に正負に変化し、第2、第3主成分のような季節的に特異の変動要因でない。固有ベクトルは、北部太平洋側と日本海側地域で正、岩手から福島までの太平洋側地域で負であり、4~11月の期間に現われる短期間のこれらの地域間差を示している。

3.4.5 特異日のOx

第1、第2主成分得点が特異的な日の天気図を図9に示す。

昭和59年4月4日は第1主成分得点が負で大きく、第2主成分得点も負の場合で、季節的には全域的にOx

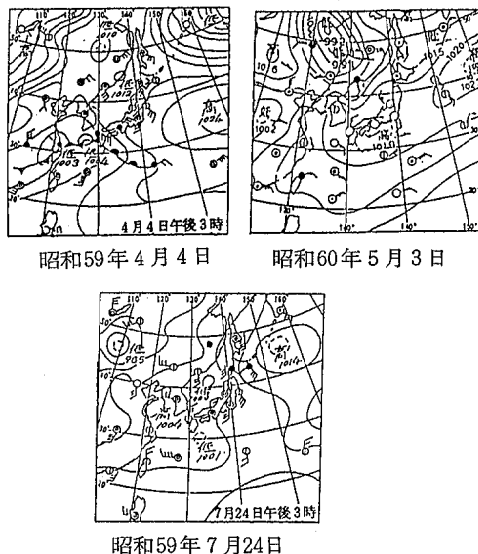


図9 特異日の天気図

のベースが高い時期のものである。天気図によれば、この日はやや北に偏った移動性高気圧が東海上に抜けたときで、図4によれば福島いわき、白河で特に顕著な濃度増加がみられた。福島郡山、新潟では大きな変化はなかった。

昭和60年5月1~3日は、前の例と同様に第1主成分得点は負で大きい、第2主成分得点は正のときである。帯状高気圧が日本全体を覆っており、東北中南部全域でOxが増加していた。

昭和59年7月24日は、第1、第2主成分得点ともに正のときである。北海道東北地方は北海道東海上の高気圧の影響下にあり、太平洋側地域のOxはかなりの低濃度であった。

4. まとめ

北海道東北地方におけるOxは、東南北部で濃度増減の変化が大きく、昭和59、60年度は宮城、福島、新潟の3県でOx 0.12 μ 以上を記録した。季節的、地域的な変化の特徴としては、全域的に春期に増加する季節変化が基本となり、これに季節ごとの地域的な変化が加わっている。季節ごとの地域的な差異は、①春期後半から夏期にかけての南北間差で、南部内陸部・日本海側地域での増加又は太平洋側・北部地域での減少、②盛夏期に現われる南部地域での増加、③4月から11月までの間に短期的に変化する、北部太平洋側から日本海側にかけての地域と岩手から福島までの太平洋側地域との間の差である。主成分分析的に言えば、全域的な変動が5割、地域的な変動が2割で、残り3割がこれら以外の県域以下の局所変動であった。

当地方の O_x 変化の広域性に関しては早狩が既に解析している。⁴⁾ 早狩の場合は、4月～9月の期間について2カ年間10測定局を分析し、第2主成分まで抽出した。そして、第1主成分と大気圏オゾン全量及び気象要素との重回帰分析により、春期の広域的 O_x 増加は成層圏オゾンが地表付近に沈降したためのものとしている。本報の結果も基本的には早狩のものと同じであろう。分析期間が通年で対象局数が多いために、第4主成分まで抽出されたと思われる。ただし、全域的に O_x が増加する春期後半（初夏）には、南部を中心とした濃度増加が重なっていることに注目しておく必要がある。

主成分分析による解析は、濃度変化傾向の類似性を示すだけであって、濃度増減の原因が同一であることまでを説明するものではない。地域的な差異は、小笠原高気圧の張出しや移動高の後面、梅雨前線や秋雨前線の南北移動、移動高通過等の気象条件に関連すると思われるが、具体的には今後の解析が必要である。今回の分析は全期間の30%の日だけを対象にしており、結果の一般性には不安が

ある。別の角度からの補足が必要であろう。

おわりに、本調査は全国公害研協議会北海道東北支部各会員とのデータ交換の成果によって行い得たものである。北海道苫小牧地方環境監視センター、青森県公害センター、岩手県公害センター、秋田県環境技術センター、山形県公害センター、福島県いわき公害対策センター、福島県郡山公害対策センター、新潟県衛生公害研究所、仙台市衛生研究所及び新潟県環境保健部、仙台市衛生局環境公害部の各機関及びその担当者の方々の御協力に対し深謝します。

参 考 文 献

- 1) (財)日本気象協会：昭和59年度、昭和60年度環境庁委託業務報告書（1985, 1986）
- 2) 鶴田：第26回大気汚染学会講演要旨集、P355(1985)
- 3) 北村：大気汚染学会誌 22, P36(1987)
- 4) 早狩：青森県公害センター所報 6, P1(1983)

20 県内における等価騒音レベルの実態 について（第4報）

一 主要幹線道路沿道地域のスパイクタイヤ 使用禁止期間における騒音レベル調査

柳田 則明 小野 研一 齋藤 達夫
高梨 忠男

今年度は、主要幹線道路沿道地域においてスパイクタイヤ使用禁止期間（4～11月）の中でも騒音レベルが上昇傾向を示す10月中旬から11月下旬までの期間に調査を行い、解析結果から交通量と騒音レベルの関係等の実態が明らかになった。また、前年度の冬場の調査結果との比較検討結果から、本県の幹線道路沿道地域において冬場に騒音区域が拡大している実態が明らかになった。

1. はじめに

県内における等価騒音レベルの実態を把握するため、昭和62年度から2カ年継続で主要幹線道路沿道地域の騒音レベル調査を行い、昭和62年度に調査を行ったスパイクタイヤ対策条例（昭61. 4. 1 施行）による同タイヤの使用自粛期間（12～3月、以下「冬場」と記す。）における調査結果については既に報告した。¹⁾今年度はスパイクタイヤ使用禁止期間（4～11月、以下「夏場」と記す。）に調査を行い、交通量と騒音レベルの関係等について解析を行うとともに、夏場と冬場の比較検討を行った。

2. 調査地点、調査内容等

調査は表1に示すとおり18市町村の24箇所て延35回行った。調査地点は、歩道や環境施設帯の有無や路肩のとり方、道路端までの距離など区間によってまちまちとなっている道路構造の実態に左右されず、音源と受音点間の距離に統一性の保たれる車道部端を起点とし、5m離れた地点及び10m離れた地点（以下単に、「5m地点」「10m地点」と記す。）の2地点で同時に騒音測定を実施し、併せて交通量及び走行速度についても調査を行った。本県では、都市計画法に基づく住居地域に対しては、道路に面する地域のうち64箇所の区間について道路端から10mまでの区域を騒音に係る環境基準のB地域に指定（それ以外の住居地域は全てA地域に指定）を行っていることから、幹線道路沿道の道路端から概ね10mまでの区域における騒音レベルの実態を把握するため、道路端から10mまでの区域に含まれる5m地点及び10m地点の2地点で測定を行い、距離減衰等について解析したものである。これら24箇所の調査地点における車道部端から道路端までの距離は平均で1.71m（標準偏差1.57）であり、5m地点及び10m地点はそれぞれ道路端から平均で3.29m及び8.29mの地点にあったが、調査箇所によって変動は大であった。

表1 調査地点

調査対象道路			調査延箇所数			
区	分	路線数	2車線 道路	4車線 道路	6車線 道路	計
国道	一般国道	8	19	8	4	31
県道	主要地方道	2	2	2	0	4
計		10	21	10	4	35

備考 道路構造は平坦で、道路とマイクロホンの間に障害物はない。

調査期間は、今年度調査対象とした夏場では、本県のこれまでの自動車交通騒音調査結果において5～10月期よりも4月及び11月の騒音レベルが高い傾向を示している²⁾ことから、条例による取締りの対象となるスパイクタイヤは別として、冬タイヤへの履き替えが始まるなど沿道地域の騒音レベルが上昇しはじめる時期における本県の実態を把握するため、10月中旬から11月下旬までの平日約1カ月半を調査期間に選定し、時間帯は昼間の時間帯（8:00～19:00）のうち騒音レベルが安定している10:00～11:45及び13:15～16:30（以下、「昼間安定期」と記す。）に限定し、調査を行った。

3. 調査方法

3.1 騒音レベル

測定は、「騒音に係る環境基準（昭46. 5. 25 閣議決定）」及び「騒音規制法第17条第1項の規定に基づく指定地域内における自動車騒音の限度を定める命令（昭46. 6. 23 総・厚令三）」に準じて行い、騒音計のマイクロホンは地上高1.2m（道路面からの高さ1.2～1.5m）に設置した。測定方法は日本工業規格Z-8731「騒音レベル測定方法」に基づき、騒音計の周波数補正回路はA特性、動特性は速とし、 $L_5 \cdot L_{50} \cdot L_{95} \cdot L_{eq}$ の4値を得た。

測定機器はリオン製NA33型環境騒音観測装置を使用し、測定時間は10分間（データサンプリング間隔0.6

秒、サンプリング回数1,000回)とした。

3.2 交通量及び走行速度

交通量は、騒音レベルを測定している10分間に走行する車両を(社)日本音響学会の報告による L_{50} 予測式(以下、「学会式」と記す。)の2車種分類により車線方向別に調査を行った。

走行速度は、騒音レベル測定箇所を中心とし、50mの区間を走行する車両をストップウォッチで車線方向別に各20台計測し、平均走行速度を算出した。

4. 調査結果

4.1 騒音レベル

調査結果を表2に示し、表2から代表的な数値を取り出したものを表3に示す。

表2 5m地点(X)と10m地点(Y)の騒音レベルの関係

区分	回帰式	相関係数	データ数	Xの実測範囲
L_5	$Y = 0.899417X + 4.6137$	0.957	35	71 ~ 82
L_{50}	$Y = 0.886324X + 5.12732$	0.988	35	49 ~ 76
L_{95}	$Y = 0.862015X + 5.91125$	0.985	35	40 ~ 69
Leq	$Y = 0.92355X + 2.36539$	0.978	35	64.6 ~ 77.2

表3 騒音レベル代表値の比較

5m地点のレベル(dB)	L_5		L_{50}		L_{95}		Leq	
	10m地点のレベル(dB)	2地点間のレベル差	10m地点のレベル(dB)	2地点間のレベル差	10m地点のレベル(dB)	2地点間のレベル差	10m地点のレベル(dB)	2地点間のレベル差
40	-	-	-	-	40	0	-	-
45	-	-	-	-	45	0	-	-
50	-	-	49	1	49	1	-	-
55	-	-	54	1	53	2	-	-
60	-	-	58	2	58	2	-	-
65	-	-	63	2	62	3	62	3
70	-	-	67	3	-	-	67	3
75	72	3	72	3	-	-	72	3
80	77	3	-	-	-	-	-	-

時間率騒音レベル L_5 ・ L_{50} ・ L_{95} の3値は交通量の増加に伴う騒音レベルの上昇に従って5m地点と10m地点のレベル差が開いていくが、等価騒音レベル Leq については道路直近であることから概ね線音源の距離減衰を示しており、2地点間のレベル差は約3dBではほぼ一定している。

また、学会式による L_{50} の計算値と実測値の関係は図1に示すとおりであり、実測値が計算値を約0.8~0.9dB上回り、沿道地域の騒音レベルが上昇しはじめる調査期間の時期的な要因を反映したものとされている。

なお、冬場では実測値が計算値を約5.4dB上回っており、夏場から冬場へと移行するのに伴い、沿道地域の騒音レベルが大幅に上昇することを示している。

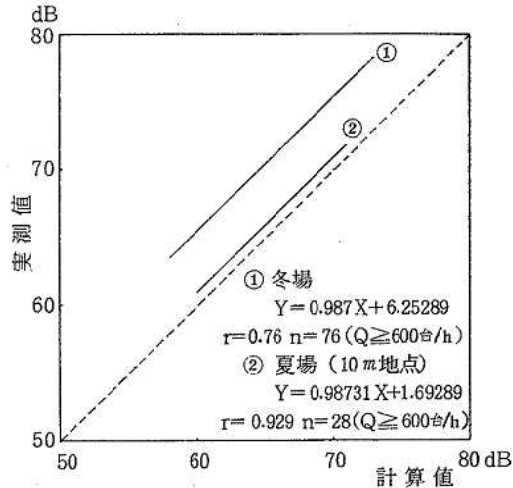


図1 L_{50} の計算値と実測値の関係

4.2 交通量及び走行速度

交通量は300台/h(R108, 河南町広瀬)から5,172台/h(R4仙台B.P., 仙台市郡山)の範囲にあり、走行速度は目測の計測ではあるが、法定速度をやや上回る結果となっていた。

表4 平行走行速度

法定速度(km/h)	調査延箇所数	平均走行速度(km/h)	標準偏差	備考
30	1	45.1	0	
40	6	51.0	2.80	
50	19	62.7	3.30	
60	9	67.9	1.41	
計	35	-	-	法定速度を平均11.2km/h超過(標準偏差3.49)

5. 騒音レベルと交通量の関係

交通量については10分間の実測値を6倍し1時間値とし、小型車類交通量を Q_1 台/h、大型車類交通量を Q_2 台/hとして、(1)断面交通量の実数 $Q_1 + Q_2 (= 300 \sim 5,172)$ 台/hのほか、(2)都市環境騒音把握手法³⁾による換算交通量 $Q_1 + 8Q_2 (= 606 \sim 15,096)$ 台/h、及び(3)学会式の平均パワーレベル算出方法に準じた換算交通量 $Q_1 + 10Q_2 (= 690 \sim 17,976)$ 台/hのそれぞれについて騒音レベルとの関係を解析した。

5.1 L_{50} との関係

表5に示すとおり、交通量と L_{50} の相関はいずれもほぼ同程度であったが、5m地点及び10m地点とも(2)の換算交通量 $Q_1 + 8Q_2$ 台/hとの間にやや高い相関がみられ、2地点間のレベル差は交通量の増加に伴って大になっている。

表5 L₅₀(Y)と交通量(X)の関係

区分	交通量	回帰式	相関係数	データ数	図2の番号
5 m 地点	Q ₁ + Q ₂	Y=17.8974 log ₁₀ X+11.7026	0.903	35	—
	Q ₁ + 8Q ₂	Y=16.8042 log ₁₀ X+ 7.40482	0.910	35	②
	Q ₁ +10Q ₂	Y=16.4925 log ₁₀ X+ 7.3128	0.906	35	—
10 m 地点	Q ₁ + Q ₂	Y=15.7231 log ₁₀ X+15.9313	0.884	35	—
	Q ₁ + 8Q ₂	Y=14.8765 log ₁₀ X+11.7522	0.898	35	③
	Q ₁ +10Q ₂	Y=14.6077 log ₁₀ X+11.6452	0.894	35	—
(参考) 冬場5 m地点	Q ₁ + 8Q ₂	Y=16.2484 log ₁₀ X+13.2042	0.811	56	①

図2に②の換算交通量とL₅₀の関係を示すが、交通量の増加に伴う騒音レベルの上昇は道路に近い地点ほど顕著となり、交通量が10倍に増加したときの5 m地点と10 m地点のレベル差は約1.9 dBとなっている。

また、5 m地点の冬場と夏場の対数回帰直線はほぼ同一傾向を示しており、冬場が夏場を大きく上回っている。

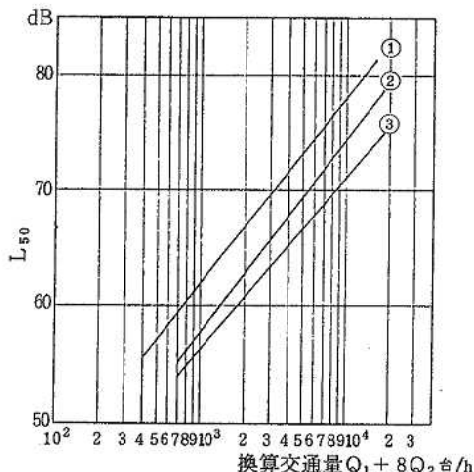


図2 交通量とL₅₀の関係

5.2 Leqとの関係

表6に示すとおり、交通量の実数とよりも換算交通量とLeqの間に高い相関がみられ、なかでも③の換算交通量(Q₁+10Q₂台/h)との相関がやや高い結果となっていた。5 m地点と10 m地点のレベル差は交通量の増加に伴ってやや開くものの、②の換算交通量とL₅₀の関係ほどは開いていない。

表6 Leq(Y)と交通量(X)の関係

区分	交通量	回帰式	相関係数	データ数	図3の番号
5 m 地点	Q ₁ + Q ₂	Y=8.76308 log ₁₀ X+44.7646	0.872	35	—
	Q ₁ + 8Q ₂	Y=8.9383 log ₁₀ X+40.1418	0.955	35	—
	Q ₁ +10Q ₂	Y=8.83593 log ₁₀ X+39.8634	0.958	35	②
10 m 地点	Q ₁ + Q ₂	Y=7.88883 log ₁₀ X+44.3386	0.832	35	—
	Q ₁ + 8Q ₂	Y=8.15136 log ₁₀ X+39.8055	0.922	35	—
	Q ₁ +10Q ₂	Y=8.0629 log ₁₀ X+39.534	0.925	35	③
(参考) 冬場5 m地点	Q ₁ +10Q ₂	Y=9.37004 log ₁₀ X+41.0322	0.89	56	①

図3に③の換算交通量とLeqの関係を示すが、交通量の増加に伴う騒音レベルの上昇が10 m地点においても5 m地点と近似した傾向を示し、交通量が10倍に増加したときでも2地点間のレベル差は約0.8 dBにとどまっている。

また、5 m地点についての冬場と夏場の調査結果では、冬場が夏場を約3dB上回り、図3の②をはさみ①と③の対数回帰直線がほぼ対称的位置にあることから、冬場の10 m地点の③の換算交通量とLeqの関係は夏場の5 m地点の③の換算交通量とLeqの関係に相当するものと考えられ、本県においてB地域の指定を行っている住居地域など道路端から10 m程度の道路近傍の区域においては、夏場から冬場へと移行するのに伴い、Leqの評価値で騒音区域が約5 m拡大するものと思われる。

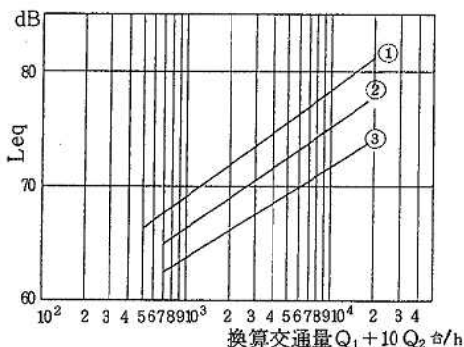


図3 交通量とLeqの関係

5.3 LeqとL₅₀の差との関係

表7に示すとおり、①の交通量の実数とLeq-L₅₀の間にやや高い相関がみられる。

表7 Leq-L₅₀(Y)と交通量(X)の関係

区分	交通量	回帰式	相関係数	データ数	図3の番号
5 m 地点	Q ₁ + Q ₂	Y=-9.13433 log ₁₀ X+ 33.0619	-0.802	35	②
	Q ₁ + 8Q ₂	Y=-7.86592 log ₁₀ X+ 32.7369	-0.742	35	—
	Q ₁ +10Q ₂	Y=-7.6566 log ₁₀ X+ 32.5506	-0.732	35	—
10 m 地点	Q ₁ + Q ₂	Y=-7.83431 log ₁₀ X+ 28.4073	-0.801	35	③
	Q ₁ + 8Q ₂	Y=-6.72518 log ₁₀ X+ 26.0533	-0.738	35	—
	Q ₁ +10Q ₂	Y=-6.54478 log ₁₀ X+ 27.8888	-0.729	35	—
(参考) 冬場5 m地点	Q ₁ + Q ₂	Y=-9.44225 log ₁₀ X+ 33.5309	-0.75	56	①

LeqとL₅₀の差は騒音の変動の性質に依存しており、図4に交通量の実数Q₁+ Q₂台/hとの関係を示すとおり、道路からの距離との関係では道路から遠い地点の方が近い地点よりも差は小となり、また、交通量との関係では交通量の多い地点の方が少ない地点よりも差は小となる。5 m地点及び10 m地点とも交通量の実数が約3,700台/hでLeqとL₅₀の差がほぼ0.5 dB以内となり、定常音に近似した状態がみられた。

また、5 m 地点の冬場と夏場の対数回帰直線は、冬場の方が交通量がやや下回る状態でほぼ同一の傾向を示していた。

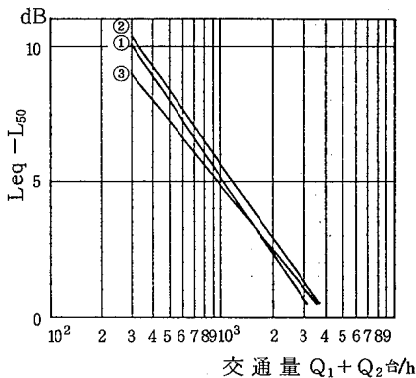


図4 交通量と $Leq - L_{50}$ の関係

6. 聴力損失レベルとの関係

昼間安定期では、 Leq の10分間値は1時間値と等しいとみることができ、前年度の調査結果に基づく回帰式 $Leq(24h) = 1.00456 Leq(41min) - 1.79615$ ($r = 0.96$, $n = 114$) から得られた $Leq(24h) \approx Leq(41min) - 1.5$ の関係は $Leq(24h) \approx Leq(10min) - 1.5$ と考えることができることから、EPA(米国環境保護庁)が提案した表8に示す「公衆の健康と福祉を十分な安全幅で保護するのに必要と認められた騒音レベル」⁴⁾に基づく聴力を損失しないレベルとしている $Leq(24h) \leq 70dB$ を沿道地域の住宅が立地している場所で年間を通して達成するためには、区間の一部が冬季に閉鎖される道路は例外として一般の道路では騒音レベルが上昇している冬場に $Leq(24h) \leq 70dB$ を達成していることが必要条件になる。今年度の調査では調査地点のうち5 m 地点は住宅のほぼ道路側の居室の位置に相当しており、前述の $Leq(24h) \approx Leq(10min) - 1.5$ の式と図3に示した冬場の①の回帰式から、昼間安定期の換算交通量 $Q_1 + 10Q_2 = 1.780$ 台/h のとき $Leq(10min) \approx 71.5dB$ 即ち $Leq(24h) \approx 70dB$ が得られる。

表8 公衆の健康と福祉を十分な安全幅で保護するのに必要と認められた騒音レベル

影響	レベル	区 域
聴力損失	$Leq(24h) \leq 70dB$	すべての区域
屋外活動 妨害とう るささ	$Ldn \leq 55dB$	住居地域および農場における屋外その他の屋外において人々がさまざまな時間を過ごす場所、その静けさが必要とされる場所
	$Leq(24h) \leq 55dB$	学校構内とか運動場など人が限られた時間を過ごす屋外
屋内活動 妨害とう るささ	$Ldn \leq 45dB$	住居地域の屋内
	$Leq(24h) \leq 45dB$	その他学校など人間活動が行われる屋内の場所

また、図3の夏場の②の回帰式から、同様に昼間安定期の換算交通量 $Q_1 + 10Q_2 = 1.780$ 台/h のとき $Leq(10min) \approx 68.5dB$ 即ち夏場の $Leq(24h) \approx 67dB$ が得られ、夏場にこのレベル以下であれば冬場においても $Leq(24h) \leq 70dB$ が達成されるものと考えられることから、夏場の測定結果をもとに通年で聴力損失のレベルに達しているか否かを推定する場合は、この数値をその目安として用いることが可能と考えられる。

Leq については、 L_{50} と $(L_5 + L_{95})/2$ から計算した値との差が1dB以内であれば、 $Leq = L_{50} + (L_5 - L_{95})^2/94$ として求めた等価騒音レベルの推定値と実測値の差はほぼ±1dB以内であること、及び車道部端から5 m 地点は道路端から平均で3.29 m 地点(標準偏差1.57)にあったことから、本県の昭和62年度自動車交通騒音測定結果²⁾について、車道部端からほぼ5 m の地点に相当する道路端から1~5 m の地点で測定を行った72地点のうち、昼間の L_{50} と $(L_5 + L_{95})/2$ から計算した値との差が1dB以内となっている35地点について上式から Leq の推定値を求め、その値が夏場の測定結果にあつては68.5dB 以下、冬場の測定結果にあつては71.5dB 以下のレベルを通年で $Leq(24h) \leq 70dB$ を達成するレベルとみなして達成状況を見ると31.4%に当たる11地点が達成しているものと推定されるが、これらの地点を調査対象道路の車線数ごとに区分してみると、2車線道路では28地点中10地点(35.7%)が達成していると推定されるのに対し4車線道路では達成していると推定される地点は5地点中1地点(20.0%)しかなく、また、6車線道路では2地点中達成していると推定される地点はないなど、車線数の多い幹線道路の沿道地域ほど音環境は厳しい状況にあることを示している。

7. おわりに

主要幹線道路沿道地域における2カ年間の調査結果から、本県における季節変動の大きい自動車交通騒音レベルと交通量の関係等が明らかとなり、解析結果から冬場の騒音レベルが学会式による計算値を5dB以上上回ることや道路端から10 m 程度までの道路近傍の区域においては夏場から冬場へと移行する際に Leq の評価値で騒音区域が約5 m 拡大し、同一地点で約3dB上昇することなどが明らかとなった。

本県ではスパイクタイヤ対策条例を制定し、同タイヤの使用自粛運動が県民総ぐるみで展開されているが、冬場は依然として装着車両の走行がみられ、また、全国レベルでも公害等調整委員会により国内タイヤメーカー7社は平成2年12月末日限りスパイクタイヤの製造を中止し、平成3年3月末日限り同タイヤの販売を中止する旨の調停が成立しているところであるが、今後輸入タイヤの販売等の問題も残されており、スパイクタイヤ装着車両の走行がみられなくなるまではまだ時間がかかるもの

と予想される。また、ノーマルタイヤとスノータイヤ（バイアス構造）では、定常走行騒音のA特性パワーレベルが後者が前者を40km/hで1.7dB、60km/hで2.3dB上回るという結果も報告⁵⁾されており、年間を通じて温暖な地域とは異なり冬期に積雪のある本県において自動車交通騒音防止対策を推進し、沿道地域の快適な音環境を確保するためには、今後も季節変動要因を十分に踏まえた対応が必要であると考えらる。

参 考 文 献

- 1) 宮城県保健環境センター年報No.6 (1988)
- 2) 宮城県公害資料(特殊公害編)昭和57年度～昭和62年度版
- 3) 都市環境騒音の把握手法 昭和61.10 環境庁大気保全局特殊公害課編
- 4) 東京都公害研究所資料 3-0-5 (昭和53.2)
- 5) 市内環境騒音の寄与解析調査研究 昭和57.3 仙台市衛生局

2.1 名取自排局における測定結果について

佐藤 郁子* 仁平 明 加藤 憲治
 斎藤 達夫 高梨 忠男

名取市内の国道4号線バイパスの道路近傍に自動車排出ガス測定局（自排局）を設置し、窒素酸化物（NO、NO₂）浮遊粒子状物質（SPM）を測定している。昭和63年の測定では、名取自排局は国道45号線沿線の塩釜自排局よりも濃度が高く、秋～冬期に増加する季節的な濃度変化は見られなかった。特に、NO_x濃度は道路の風下になる時に増加していた。

1. はじめに

昭和63年1月から名取市内の国道4号線バイパス沿線に名取自排局を設置し、1月から浮遊粒子状物質、4月から窒素酸化物を測定している。同自排局の特性を把握するため、昭和63年の測定結果を、過去に実施した窒素酸化物濃度分布実態調査及び塩釜自排局と対比しながら検討したので報告する。

2. 調査方法

2.1 調査地点

2.1.1 名取自排局

調査地点を図1に示す。60年と62年に行われた濃度



図1 名取自排局，
移動観測車の設置場所

分布実態調査では、60年7月と11月、62年5月と11月に移動観測車（移動局）を設置して測定を行った。¹⁾²⁾

自排局の設置地点と60年の移動局設置地点はバイパス

スの西側であるが、62年の設置地点は東側の交差点付近であった。バイパスの交通量は、60年、62年の調査では5万台～6万台/日であった。

2.1.2 塩釜自排局

名取自排局との比較として、塩釜市内の国道45号線沿線に設置している塩釜自排局と、58年の調査結果を使用した。³⁾ 国道45号線の交通量は約3万5千台/日であった。

2.2 測定方法

2.2.1 自排局

名取、塩釜自排局では窒素酸化物（NO、NO₂）と浮遊粒子状物質（SPM）を自動測定法により測定している。

2.2.2 移動局

移動局では二酸化硫黄、浮遊じん（DUST）、光化学オキシダント、窒素酸化物（NO、NO₂）、一酸化炭素（CO）、非メタン炭化水素（NMHC）、メタン風向、風速の測定を自動測定法により行った。

3. 結果及び考察

3.1 NO_x濃度

名取、塩釜の自排局2局のNO_x（NO+NO₂）濃度の63年4～12月の平均値と、仙台市内の62年の同時期のNO_x平均値を図2に示した。

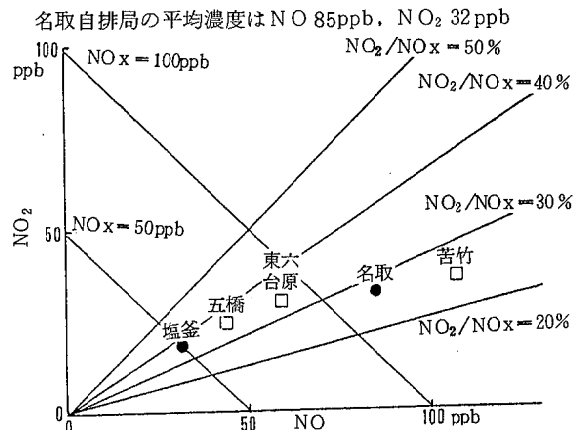


図2 自排局のNO_x平均値(4～12月)
 [名取、塩釜-昭和63年、
 仙台市-昭和62年]

* 現保健環境センター理化学部

(NOx 117ppb)であった。自排局のうちでは苦竹局に次ぐ高濃度となっている。NOx 濃度に対するNO₂ 濃度の割合も27.4%と30%を下回っており、低い割合であった。

自排局6局のNOx 濃度とNO₂ 濃度との関係を見ると、NOx 濃度が高くなるにしたがってNO₂ 濃度の割合が低くなる傾向がある。

3.2 NO₂ 濃度

名取、塩釜自排局のNO₂ 月平均値の変化を図3に、また、NO₂ 高濃度の時間数、日数を表1に示した。

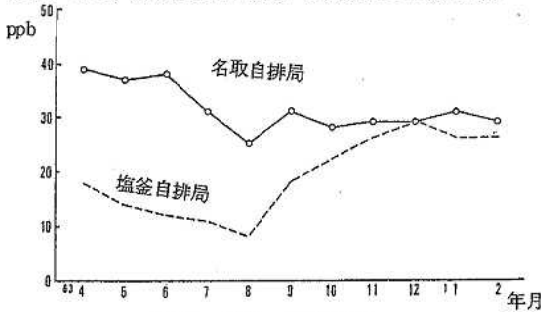


図3 NO₂ 月平均値

表1 NO₂ 月平均値及び高濃度の時間数、日数 (名取自排局)

年月	月平均値 (ppb)	1時間値が0.2ppmを越えた時間数	1時間値が0.1ppm以上0.2ppm以下の時間数	日平均値が0.06ppmを越えた日数	日平均値が0.04ppm以上0.06ppm以下の日数
63. 4	39	0	0	0	14
5	37	0	2	1	13
6	38	0	0	0	12
7	31	0	0	0	1
8	25	0	0	0	3
9	31	0	0	0	1
10	28	0	0	0	1
11	29	0	0	0	2
12	29	0	0	0	6
1. 1	31	0	0	0	11
2	29	0	0	0	4

(塩釜自排局)

年月	月平均値 (ppb)	1時間値が0.2ppmを越えた時間数	1時間値が0.1ppm以上0.2ppm以下の時間数	日平均値が0.06ppmを越えた日数	日平均値が0.04ppm以上0.06ppm以下の日数
63. 4	18	0	0	0	0
5	14	0	0	0	0
6	12	0	0	0	0
7	11	0	0	0	0
8	8	0	0	0	0
9	18	0	0	0	0
10	22	0	0	0	1
11	26	0	0	0	0
12	29	0	0	0	4
1. 1	26	0	0	0	4
2	26	0	0	0	1

塩釜自排局は4月から8月にかけてNO₂ 濃度は低くなり、9月以降上昇して12月に最高となる年変化が見られた。

これに対し、名取自排局では4~6月の方が濃度が高く、7月に濃度が減少した後はほぼ一定といった、異なる変化を見せた。

また、表1より自排局のNO₂ 高濃度の時間数、日数は、月平均値の高い名取自排局の方が多い。時間数、日数ともに月平均値の上昇に伴って増加しているため、名取自排局では4~6月にNO₂ 日平均値が0.04ppm以上0.06ppm以下の日数が10日以上と多く出現していた。

3.3 SPM濃度

自排局のSPM月平均値の変化と環境基準を超過した時間数、日数を図4、表2に示した。SPM月平均値でも名取自排局は4月以降塩釜自排局よりもやや高め

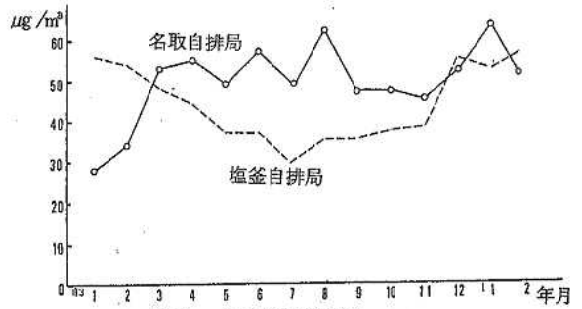


図4 SPM月平均値

表2 SPM月平均値と環境基準超過時間数、日数 (名取自排局)

	SPM (µg/m³)	1時間値が0.2µg/m³を越えた時間数	日平均値が0.1µg/m³を越えた日数
63. 1	28	0	0
2	34	0	0
3	53	3	1
4	55	2	0
5	49	0	1
6	57	0	0
7	49	0	0
8	62	1	3
9	47	0	0
10	47	2	1
11	45	4	1
12	52	5	1
1. 1	63	6	2
2	51	1	1

(塩釜自排局)

	SPM (µg/m³)	1時間値が0.2µg/m³を越えた時間数	日平均値が0.1µg/m³を越えた日数
63. 1	56	4	1
2	54	1	0
3	48	1	1
4	44	1	0
5	37	3	0
6	37	2	0
7	29	0	0
8	35	1	0
9	35	0	0
10	37	1	0
11	38	1	0
12	55	3	0
1. 1	52	5	2
2	56	7	1

度となっているが、塩釜自排局ほどはっきりした季節変化は見られなかった。環境基準を超過した時間数、日数も塩釜自排局では濃度変化と同じく季節による増減が見られるのに対し、名取自排局では月平均値が高くなっている4月、8月にも増加している。

3.4 自排局と移動局の調査結果

3.4.1 名取での調査結果

名取自排局のNOx、SPM濃度の63年4月からの月平均値の推移と、移動局により測定した60年7月、11月と62年5月、11月のNOx、DUST（浮遊粉じん）の月平均値を図5に示した。

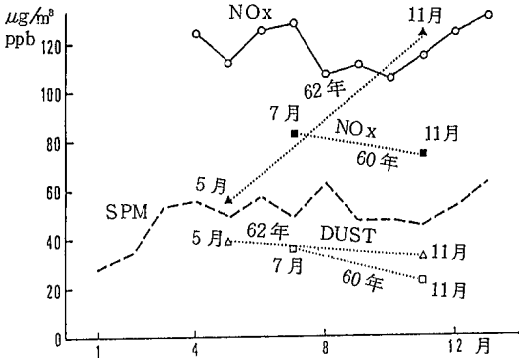


図5 名取自排局（昭和63年）と昭和60、62年度調査の月平均値

名取自排局では、測定開始以来NOxの月平均値が100ppbを越えている。

移動局での調査結果は、60年と62年とでは異なった傾向を示していた。60年はNOx濃度、DUST濃度ともに7月の方が11月よりも高くなっている。これに対し、62年は11月のNOx濃度が5月より倍近く高かった。DUST濃度は5月よりも11月の方がわずかに低かった。

これらより、自排局の63年の測定結果は60年の調査結果に類似していた。

3.4.2 塩釜での調査結果

同様に、塩釜自排局の63年のNOx、SPM月平均値の推移と58年7月、11月の月平均値を図6に示した。

塩釜自排局では、NOx、SPM濃度ともに季節による増減が明瞭であった。58年の調査でもNOx濃度、DUST濃度は7月よりも11月の方が高く、自排局の結果と一致していた。

3.5 一酸化炭素(CO)濃度との関係

名取での調査結果で、年度によりNOx濃度の季節変化が異っていた。その原因として、自動車排出ガス以外のNOx発生源からの影響の有無を見るため、自動車排出ガスの他の成分であるCO濃度、NMHC濃度との関係を図7-1、7-2に示した。また、CO濃度とNMHC濃度との関係を図8に示した。

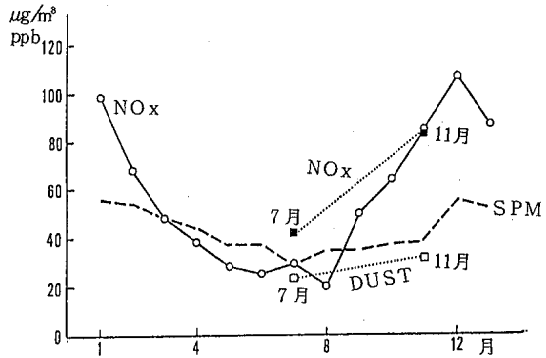


図6 塩釜自排局（昭和63年）と昭和58年度調査の月平均値

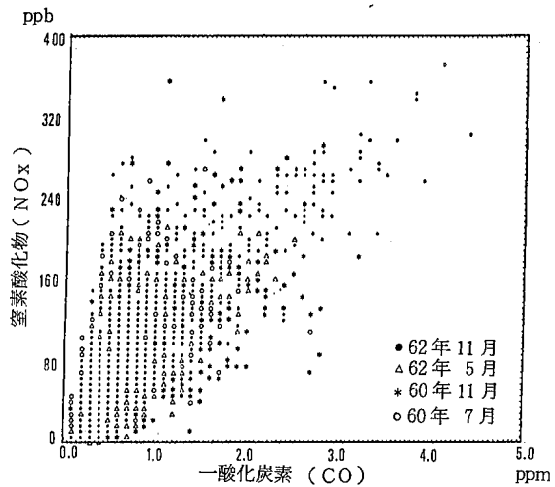


図7-1 移動局におけるCO濃度とNOx濃度との関係

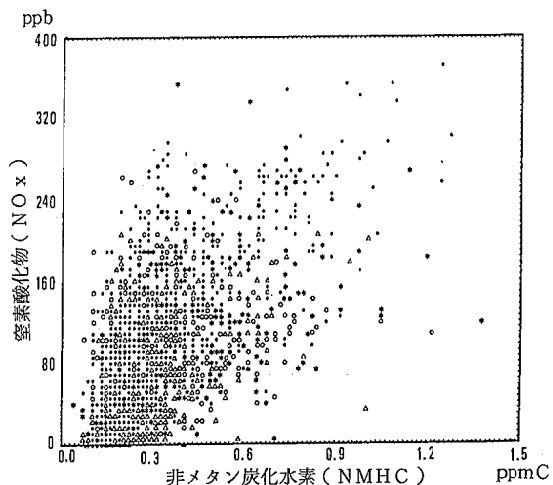


図7-2 移動局におけるNMHC濃度とNOx濃度との関係

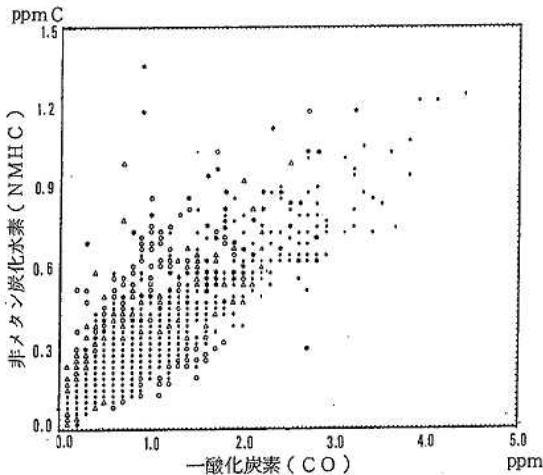


図8 移動局におけるCO濃度とNMHC濃度との関係

CO濃度とNOx濃度の関係は、全体のばらつきは大きいものの、各年度、季節における調査結果はいずれも同じ範囲に散布しており、偏りは見られない。他の成分間の関係も同様であった。

成分比がほぼ固定していたことから、60年と62年とで発生源の差はなかったものと思われる。季節変化の差異はその他の要因によるところが大きいと考えられた。

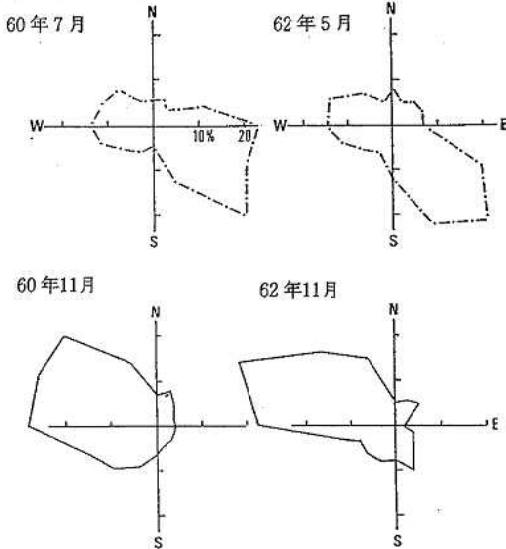


図9 移動局風配図

3.6 移動局における風向

移動局の風配図を図9に示した。風配図は60年、62年とも5～7月は南東方向、11月には北西の風が多く、共通であった。

62年の調査では11月にNOx濃度が上昇しているが、この時移動局は4号線バイパスの東側であり、風下側となっていた。

これに対し、60年の移動局と自排局の設置地点はバイパスの西側であり、11月には風上側になる。

3.7 NOx風向別濃度

60年と62年の移動局におけるNOxの風向別濃度を図10に示した。60年は7月、11月とも東方向の風の時

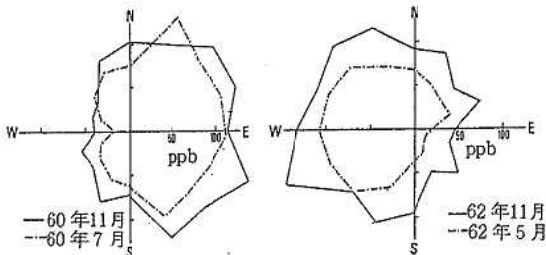


図10 移動局NOx風向別濃度

に濃度が高く、季節的な差異はない。2年とも、図9の風配図と比較してみると、風向頻度にかかわらずバイパスの風下側となった時に濃度が増加していた。

このことから、名取自排局でのNOx濃度の増減は、発生源の間近で測定しているために道路の風下、風上の影響が大きいと考えられる。

4. まとめ

- (1) 名取自排局のNOx濃度は他の自排局と比較すると高めであり、秋冬期に増加する季節変化は見られなかった。
- (2) 4号線バイパス沿線上の60年と62年の調査結果と比較すると、測定地点がともにバイパスの西側である60年の調査結果と自排局の測定結果は対応しており、NOx濃度は秋期よりも春～夏にかけての方が高かった。
- (3) 自動車排出ガス以外のNOx発生源の影響は特に見られず、また、名取自排局は4号線バイパスの西側に位置することから、秋から冬にかけては、主風向である北西方向の風上になるために、NOx濃度の上昇が抑えられるものと考えられた。

参考文献

- 1) 北村洋子他：保健環境センター年報，4，93，(1986)
- 2) 浦山 清他：保健環境センター年報，6，98，(1988)
- 3) 北村洋子他：保健環境センター年報，2，159，(1984)

2.2 PIXE法による沿道大気粉じんの分析事例

氏家 愛子 大金 仁一 浦山 清
加藤 謙一 仁平 明 斎藤 達夫

スパイクタイヤ装着期の2月に、沿道の大気粉じんを2時間毎に採取し、荷電子粒子誘導X線対射化分析法 (Particle Induced X-ray Emission: 以下PIXE法) により多元素同時分析を行った。元素の時系列変化から、粉じん濃度の高低にかかわらず、いずれの時間でもスパイクタイヤ車粉じんによる寄与が大きいことが明らかになった。また、降水時に海風が入りこむことによって、その時間帯に海塩粒子の寄与が大きくなることが確認された。

1. はじめに

近年、PIXE法が環境試料の分析に応用されはじめ微量の試料でも高感度で多元素分析が可能になった。このPIXE法により、昭和56年3月から実施してきたスパイクタイヤ車粉じん調査の一環として、沿道大気中の粉じんの元素濃度の時系列変化について調査を実施し、スパイクタイヤ車による影響等について解析したので結果を報告する。

2. 調査方法

図1に示したステップサンプラーにより、2時間毎に沿道大気中の粉じんを採取し、(株)日本公害防止センターに分析を委託した。ステップサンプラーは、(株)日本公害防止センターKE-101型を使用した。

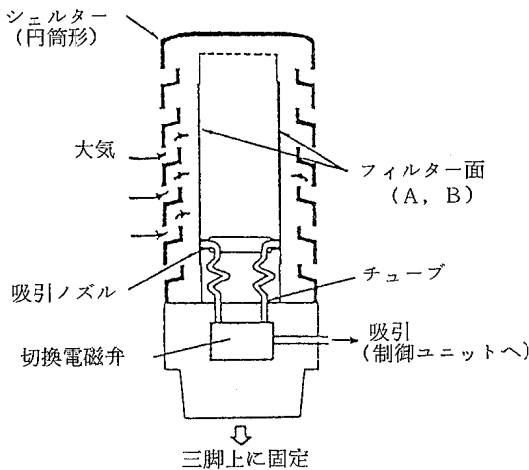


図1 ステップサンプラーの内部構造

2.1 調査地点

宮黒保健所敷地内(仙台市通町1-6-9)

2.2 調査期間

平成元年2月14日23:00 ~

平成元年2月18日23:00

2.3 サンプリング条件

- 1) 使用フィルター: Nuclepore N100, 孔径1 μ m (ポリカーボネイト製)
- 2) 試料スポットサイズ: 4.7mm ϕ

- 3) 捕集時間間隔: 2時間/スポット
- 4) 吸引流量: 0.5 ℓ /min
- 5) 吸引空気量: 0.06m³/スポット

2.3 PIXE法分析条件

米国フロリダ州にあるEAC社 (Element Analysis Corporation) で分析を実施した。

- 1) 加速器: General Ionex社製, 4 MeV
- 2) X線検出システム: Liドリフト型Si検出器, 1024チャンネル波高分析器
- 3) 照射粒子: 2.5 MeV 陽子
- 4) 照射ビーム径: 1/4 in ϕ (照射面積 = 0.317 cm²)
- 5) キャリブレーション: Micro Matter社, 標準蒸着膜 (50 μ g/cm²程度) を基準とする。

サンプリングに用いたフィルター (A, B面) について、試料スポットの脇の部分にスリット状ビーム (1 \times 7mm) を照射し、それぞれ3点の分析を行いフィルターブランクの補正を行った。

3. 結果

各元素濃度の時系変化を図2に示した。

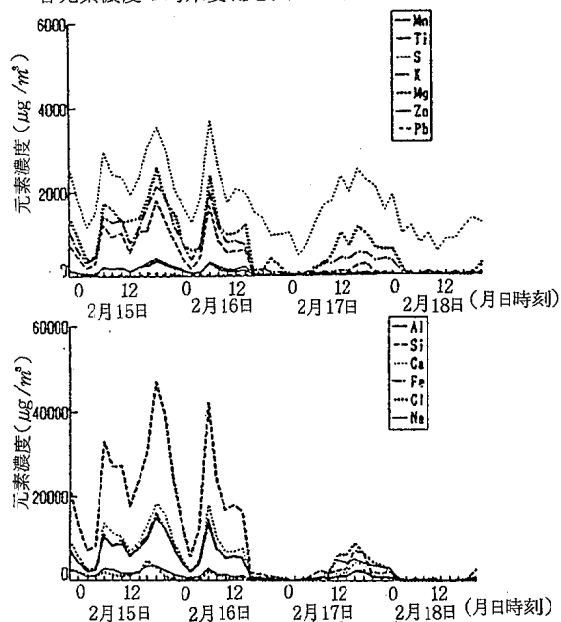


図2 各元素濃度の時系列変化

土壌を主な起源とする Si, Al, Fe, Ca, Mn の濃度はほぼ同じ変動をしており, Ti, K, Mg, Zn も同様な変動を示した。また, 海塩を主な起源とする Na, Cl の濃度がほぼ同じ変動を示しており, これらの元素間の相関係数 (表 1) は, 0.92~1.0 であった。

表 1 粉じん構成元素の相関行列

	Al	Si	S	Cl	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	Pb	Na	Mg
Al	1.00																
Si	1.00	1.00															
S	0.86	0.86	1.00														
Cl	0.18	0.17	0.56	1.00													
K	0.99	0.99	0.91	0.28	1.00												
Ca	0.96	0.96	0.37	0.20	0.98	1.00											
Ti	0.99	0.99	0.37	0.20	0.98	0.95	1.00										
V	0.57	0.57	0.47	0.15	0.57	0.53	0.60	1.00									
Cr	0.56	0.56	0.43	0.11	0.54	0.51	0.56	0.47	1.00								
Mn	0.99	0.99	0.36	0.20	0.99	0.95	0.99	0.62	0.56	1.00							
Fe	1.00	1.00	0.86	0.18	0.99	0.96	1.00	0.59	0.58	0.99	1.00						
Ni	0.44	0.43	0.45	0.16	0.46	0.43	0.47	0.41	0.33	0.47	0.46	1.00					
Cu	0.85	0.85	0.78	0.15	0.87	0.87	0.84	0.37	0.43	0.85	0.85	0.38	1.00				
Zn	0.95	0.94	0.80	0.12	0.94	0.92	0.94	0.59	0.57	0.95	0.95	0.51	0.88	1.00			
Pb	0.67	0.66	0.60	0.17	0.69	0.64	0.66	0.43	0.54	0.69	0.68	0.29	0.70	0.73	1.00		
Na	0.42	0.41	0.74	0.92	0.52	0.41	0.43	0.27	0.20	0.43	0.42	0.24	0.35	0.33	0.32	1.00	
Mg	0.94	0.93	0.93	0.45	0.96	0.89	0.94	0.56	0.52	0.94	0.94	0.41	0.79	0.87	0.66	0.87	1.00

各元素濃度は, 2月15日(晴れ)および2月16日午前(曇)には, SPM濃度と同様に, 二峰性が認められたが, 降雨のあった16日の17時頃から急減した。その後, 天気は, 2月17日の6時~8時に1.5mmの降雨があった後, 時間降雨量0.0mmの弱い雨が続き, 翌18日の3時頃から0.5mm以上の雪に変わったが, 弱い雨が降っていた17日の17時~21時(通勤時間帯)に土壌を主な起源とする元素濃度が, 若干高くなった。

2元素間の相関係数の高かった, 土壌を主な起源とする Si, Al, Ca 等について, 2元素間の相関図を図3に示した。〔Si-Al〕は, 泥質岩の平均化学組成¹⁾と比較すると, 〔Si/Al〕の値がほぼ一致し, 相関係数が1.0であることから, ここでの Al はすべて土壌(舗装骨材も含む)起源と考えられた。そこで, スパイクタイヤ車粉じん調査で分析を行っていない Si の代わりに, Al を用いて土壌起源(骨材も含む)の指標とした。アスコンは, 宮黒保健所前で採取したコアを粉碎し, 200メッシュの篩を通過した粒径 74 μm 以下の分析値を, 土壌(44 μm 以下)は, 市内 5ヶ所の分析値の平均を用いた。²⁾

スパイクタイヤ車粉じんの指標物質の1つである Ca について, Al との関係を見ると, 沿道大気粉じんの〔Ca/Al〕の値は, 土壌の〔Ca/Al〕よりアスコンの〔Ca/Al〕に近い値であり, 濃度の高低にかかわらず, いずれの時間の粉じんに対しても, アスコン摩擦物の影響が大きいことがわかった。一方, Na および Cl の濃度は, 17日の11時~23時に急増しており, 〔Cl/Na〕の値もこの時間には, 海塩の〔Cl/Na = 1.8〕に近い値になっている(図4)。宮城県内の一般環境大気

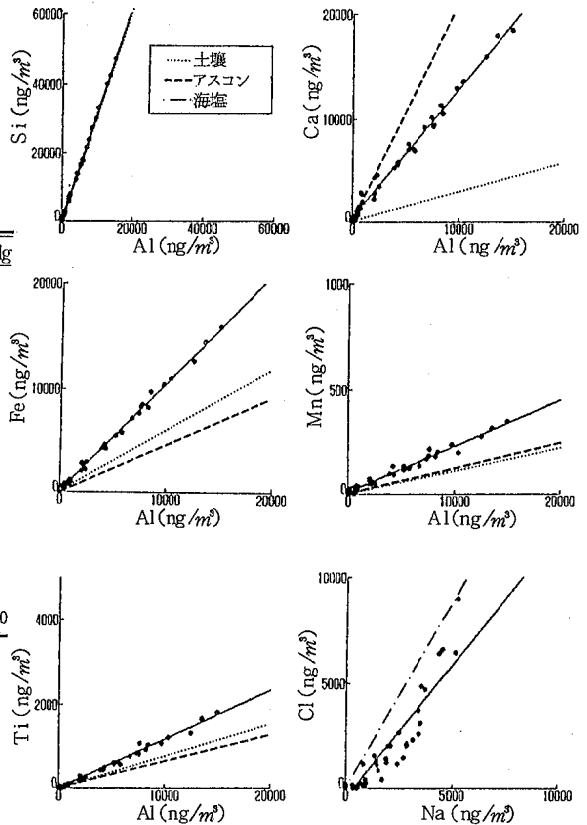


図 3 2元素間の相関図

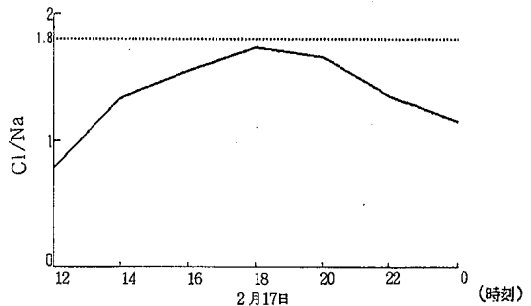


図 4 Cl/Na sea salt の時系列変化

測定局の風向の時系列変化をみると(図5), 10時頃から海岸に近い局で海風が入りはじめ, 14時頃には, 内陸部の局を含む殆どの局で海風になった。22時頃には, 一部の局を除き陸風になってきており, 17日の11時~23時の Na 濃度および Cl 濃度の増加は, 海風によって運ばれた海塩粒子によるものと考えられた。

次に, SPM濃度及び Si 以下13元素(Al, S, Cl, K, Ca, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Ni, Cu, Zn, Pb, Na, Mg)と〔Si〕, 〔0〕の地殻存在比から〔0〕濃度を算出して加算した合計量の時系列変化を図6に示

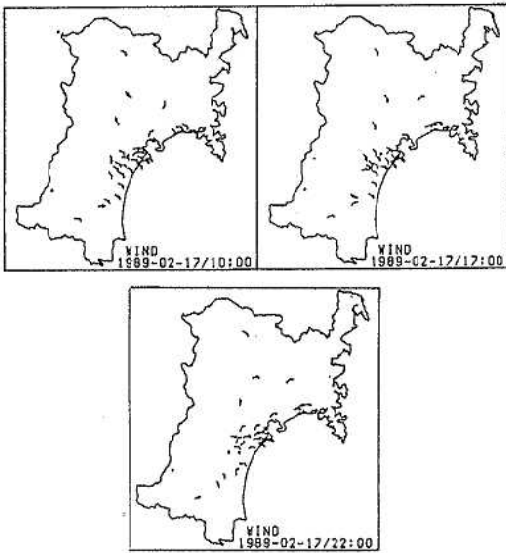


図5 県内測定局の風向の変化

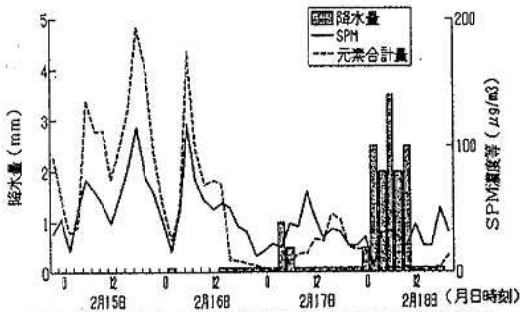


図6 SPM濃度, 元素合計量および降水量の時系列変化

した。併せて、降水量の時系列変化を示した。SPM濃度は、同じ場所でβ線吸収式SPM計で測定した値を、上記サンプリング時間の2時間毎に区切り、平均値をと

った。図中の元素合計量が実際の粉じん量に近い(炭素濃度, NH₄濃度, NO₃濃度等をここでは計算に入れていないので、実際の濃度よりは低めと考えられる)とすると、ステップサンプラーで捕集された粒子の径は、β線吸収式SPM計のそれより若干大きいと考えられた。しかし、雨が降った2月16日の17時頃~2月17日15時頃および雪が降った2月18日5時以降は、SPM濃度が各元素合計量より26 μg/m³ (7 μg/m³ ~ 49 μg/m³)高かった。これは、ミストやろ紙に吸湿した水分のβ線吸収により、SPM濃度として高く測定されたものと考えられた。

4. まとめ

冬期に、仙台市の沿道大気中の粉じんのSi, Al等13元素濃度の同時分析を2時間毎の試料について行い、粉じんの質の時系列変化を調査した。その結果、Si, Al, Fe, Ca, Mn等土壌(舗装骨材も含む)を起源とする元素濃度とSPM濃度は、非降水日には、ほぼ同じ変動パターンを示した。スパイクタイヤ車によるアスコン摩耗物の寄与は、粉じん濃度の高低にかかわらず、いずれの時間の沿道大気粉じんにも大きく、また、海風が入りこんでいる時間には、粉じんに対する海塩粒子の寄与が大きいことが確認された。また、SPM濃度の測定上問題となる湿度の影響についても、降水日に、ミストやろ紙に吸湿した水分によるβ線吸収のため、実際に高く測定されることが確認された。

参考文献

- 1) 理科年表, 丸善(1985)
- 2) 大阪府立放射線中央研究所: 昭和58年度自動車用タイヤによる粉じん等対策調査報告書, 昭和59年3月
- 3) 角階静男: 雨水の分析, P 67, 講談社(1975)

23 臭気指数判定の簡略法開発(その2)

—臭気質と閾値の関係及び測定機器の改良—

佐藤 博明 小野 研一 渡辺 丈夫*
齋藤 達夫 高梨 忠男

1. はじめに

昭和58年に宮城県公害防止条例施行規則が改正され、悪臭の測定法として五点比較式臭袋法が採用されたが、従来の食塩水平衡法に比べ測定精度の高さ、処理効率の向上によって良好な稼働率を示してきている。

しかしながら、近年の社会情勢の変化や住民意識の向上もあって、さらに効率的な悪臭対策が望まれている。

このためには、測定法の簡略化が必要であり、既に昭和60年度のセンター年報第4号に報告しているが、その後測定データが蓄積したこともあり、精度上の向上も可能となったため再度検討を行なった。

また、簡略法実施の際には測定法を効率化することも必要となるため測定機器類の改良についても検討を加えた。

2. 簡略法の必要性について

図1は、昭和36年度以降の悪臭の苦情件数の推移について取りまとめたものである。

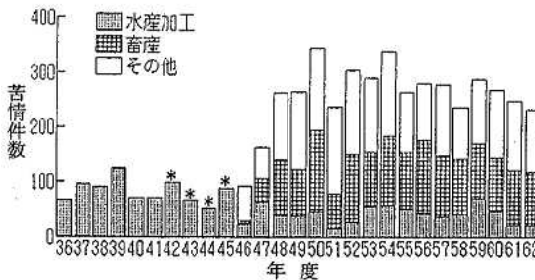


図1 悪臭苦情件数の経年変化

(注) *の年度の内訳は不明であるが、70~90%は水産加工に対するものと推定される。

昭和36年度から昭和41年度にかけての苦情の100%は気仙沼市・石巻市・塩釜市等漁港地帯の水産加工工場特に飼肥料製造事業所に起因したものであり、製造工程からの猛烈な悪臭が未処理のまま外部に排出されていたことを反映している。これ等の苦情に対して法的に有効な対策等がとれなかったことが契機となって昭和41年度に宮城県公害防止条例が制定された。

昭和42年度から昭和46年度にかけては、正確な内訳は不明であるが、70~90%は飼肥料製造事業所に対してのものであると推定される。苦情件数の総数に大きな

増減はないものの、飼肥料事業所に対しては若干減少しその他の発生源に起因する苦情件数が徐々に増加している。これは県条例により、飼肥料製造事業所から発生する悪臭に対しては、臭気濃度による規制基準が設定され測定法として食塩水平衡法が用いられたことから、事業所側の脱臭設備が整備されてきた結果を示しているものと思われる。

昭和47年度以降は苦情件数の急激な増加が認められているが、これは生活環境の変化及び住民意識の向上によるもので、従来あまり問題視されていなかった畜産及び種々の業種における悪臭が苦情の対象となってきたためと考えられている。この様な環境下で飼肥料製造事業所に対する苦情が約50件程度に押えられていることは、従来の高濃度域の苦情に対する規制効果が認められる半面、苦情の質が低濃度域のものに及んできていることを示しているものと考えられる。

図2と図3は、昭和40年度以降に飼肥料製造事業所の排出口、換気口においておこなった測定結果を取りま

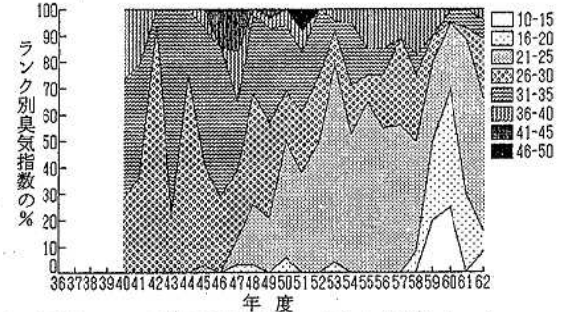


図2 ランク別臭気指数%の経年変化(排出口)



図3 ランク別臭気指数%の経年変化(換気口)

とめたもので、臭気指数測定結果をランク分けし、その度数を%で表したものである。

なお、昭和57年度以前の食塩水平衡法の臭気濃度表

* 現保健環境部環境管理課

示による結果については、五点比較式臭袋法との相関式により臭気指数値に換算し求めている。

排出口における基準値は臭気指数30となっているが、昭和40年代前半においてはこの基準値を越えるものの%が非常に高い。臭気指数30以上の悪臭の場合悪臭苦情に非常に結びつき易いが、この原因としては、事業所が脱臭装置に設備投資を始めたものの装置自体の効率の悪さや事業所側の技術的な対応能力の低さ等が原因で十分な脱臭効果が得られなかったためと推定される。

しかしながら、昭和40年代中頃から燃焼脱臭方式が普及してくるにつれて脱臭効率も上昇し、基準値を超過したものの割合は昭和50年代中頃では30%、昭和60年代前半では10%程度にまで低下してきているのが認められる。このことは排出口に関する限り事業所側の脱臭システムが技術的に定着していることを示すものと思われる。

なお、昭和58年度以降臭気指数20以下の%が急増しているのは、食塩水平衡法から五点比較式臭袋法に測定方法が変わり、低濃度域での測定精度が向上したためである。

換気口については、規制基準が設けられたのが新しく3年間の測定結果のみを示してあるが、規制基準の臭気指数25を超過したものの割合は40%と極めて高いものであり、事業所側の対応が技術的にもまだ不完全な状態にあり、ここから排出される悪臭が苦情に結びついている可能性は非常に大きいものと推定される。

従って、今後は換気口での臭気測定を重点的に行なう必要があるが、排出口に比べて換気口は測定箇所数が多く、またそれ以外にも工場建屋の壁面の隙間や高窓等からの臭気漏れも考えられることから、苦情に対応するためには、建屋全体からの漏出臭気について把握しておく必要がある。さらに、根本的には建屋内での悪臭の発生源の特定にまで至ることが望ましい。従って測定検体数はかなりの数にのぼるが、現行の測定法の検体処理能力は、臭気のサンプリング試料の保存期間が採取後24時間となっていることから、一回の測定で処理出来る数は最大で6件と限られており、上記測定の実行は難しいものとなっている。このため、簡略法により予めスクリーニング手法により測定地点を絞って行くことが必要となっている。

また、将来的には悪臭苦情に対応して発生源の特定、苦情の被害の程度及び範囲の把握も必要であり、この面でも簡略法の開発が必要となっているものと思われる。

3. 臭気レベルの算定

五点比較式臭袋法では約20名のパネルを定員として登録しているが、測定が週日に行なわれ、ほぼ一日を拘束し、しかも不定期的であるということから、パネルは30~40才代の主婦層に限定されている。採用に当た

は出来る限り無作為に行なっており、さらに人員は年々入替えが行なわれている為、このパネル集団は特殊な集団ではなく普通の主婦層を代表したものであると考えることができる。

実際の測定はこれらのパネル集団の中からさらに無作為に8名を抽出し、その個人閾値から臭気指数を算出しているため、測定結果(臭気指数)はパネル集団を代表している真値であると仮定することができる。

従って、臭気指数と各パネルの閾値を比べることにより集団のなかでのパネル嗅覚の優劣の判定が可能となる。

そのため昭和58年度から昭和62年度迄に行なわれた約300例の測定結果を使用して、パネル毎に個人閾値と臭気指数との比較をおこなった。

また、人間の嗅覚が臭気の種類によって異なるのはよく知られていることであるが、現在県内の魚腸骨処理場に対して行なっている測定結果をみると、パネルの反応が排出口の臭気と換気口や建屋場内での臭気に対するものでは人により反応が異なることが観察されている。換気口では魚の煮汁臭や腐敗臭の混合したものであるのに対し、排気口はガスの燃焼臭であり明らかに臭気の質が異なり、また、同じ飼肥料製造業でも獣骨処理場における換気口臭は魚腸骨処理場のものとは異なり、ややアーモンド臭に近い臭気質である。そのため300例の測定結果から上記三種類の臭気質のものを選定し、臭気質毎に比較作業を行なった。

図4及び図5、図6はこの結果を示すもので、ある特定のパネルについて取りまとめたものである。図中で点線は、パネルの個人閾値 $\times 10$ (臭気指数は個人閾値の平均値を10倍して計算されるため比較のため個人閾値も10倍値としている)と臭気指数との一対一の対応線を示すもので、パネルの個人閾値が安定している場合は臭気の強弱に関係なく臭気指数と平行関係にあると考えられたが、測定結果もほぼこの対応線に沿った分布を示すことが確認された。実線はパネル個人閾値 $\times 10$ と臭気指数との差の平均値から求めたものであり、この平均線の位置によって各パネルの嗅覚レベルを表すことが出来るもの

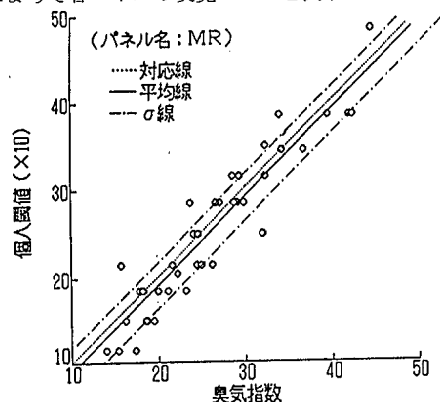


図4 臭気指数とパネル個人閾値との関係(魚腸骨臭)

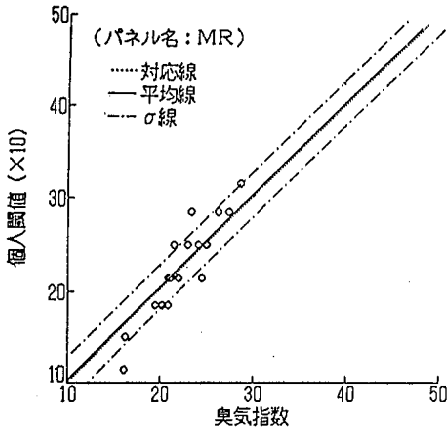


図5 臭気指数とパネル個人閾値との関係(排気臭)

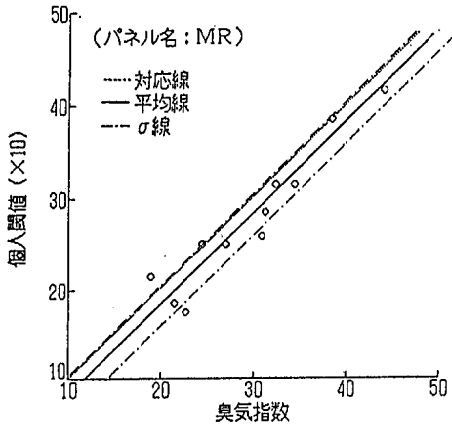


図6 臭気指数とパネル個人閾値との関係(獣骨臭)

と考えられる。一点鎖線はその差の標準偏差値より求めたもので、幅の大きさがパネルの嗅覚の安定性を示すものである。

図に示すパネルMRの場合、嗅覚レベルは魚腸骨臭に対してやや低く、排気臭ではほぼ平均的、獣骨臭に対してはかなり低いと判定することが出来る。

表1は各パネル毎の計算結果を示したもので、パネルによっては臭気質が変わった場合に嗅気レベルも異なったものになることが確認された。

また、この表でσの値が3~3.5未満(希釈濃度で1段階に相当する)のパネルは嗅覚がかなり安定していると判断することが出来る。従って、表1から、臭気質毎に嗅覚の安定したパネルを一人選定すれば、±3程度の精度で臭気指数の推定が可能となり測定時間の大幅な短縮と測定処理件数の増加が望めるものと思われる。

4. パネルの嗅覚のチェック

パネルの嗅覚の安定性については、測定当日の心理的生理的な理由により通常の状態から大きく逸脱する現象

表1 臭気質毎のパネルの嗅覚レベル

パネル名	魚腸骨臭の嗅覚レベル			排気臭の嗅覚レベル			獣骨臭の嗅覚レベル			E基準臭閾値		
	n	x	σ	n	x	σ	n	x	σ	n	x	σ
AH	21	3.02	2.54	11	3.37	2.53	11	1.63	2.95	8	6.88	0.54
OD	33	1.71	3.08	19	0.92	4.35	17	0.88	2.59	19	7.58	0.61
SS	24	1.47	2.81	14	0.20	2.39	16	-0.62	3.09	16	7.34	0.42
TB	10	1.36	1.73	10	-1.39	2.64	7	-2.17	3.17	13	7.19	0.50
TK	27	0.88	2.73	11	1.11	2.98	11	3.38	4.48	13	6.23	0.78
GJ	17	0.56	3.55	16	4.19	3.57	18	1.69	2.54	13	6.92	0.43
ON	36	0.29	3.15	18	-0.48	3.10	18	-0.13	2.86	24	6.73	0.91
KT	36	0.10	2.48	18	-0.29	3.01	15	-0.25	1.93	17	6.56	0.51
MR	41	1.14	3.08	18	0.19	2.35	12	-2.00	2.21	11	6.41	0.60
KK	27	2.76	2.26	14	-2.89	4.00	12	-3.10	2.99	10	6.45	0.47

- 注1) n: データの個数
- 注2) x: (個人閾値×10-臭気指数)の平均値、ただしE基準臭では測定結果の平均値
- 注3) σ: (個人閾値×10-臭気指数)の標準偏差、ただしE基準臭では測定結果の標準偏差
- 注4) ○: 魚腸骨臭との間で嗅覚レベルに統計的な差異が認められる者(危険率5%)
- 注5) ⊙: 排気臭との間で嗅覚レベルに統計的な差異が認められる者(危険率5%)

も見られ、これをチェックするために、嗅覚基準臭の内で魚腸骨臭にもっと最も臭感が近いと思われるE基準臭(Skatole)を用いて、測定の都度パネルの閾値をも合せて調査した。(希釈方法は五点比較式臭袋法に合せて下降法を用い、希釈倍数は10^{0.5}で行なった)また、五点比較式臭袋法ではガス体を嗅ぐのに比べ、E基準臭は液体であり、嗅ぎ方も異なることからパネルの受ける臭感も違うものになることが考えられたため、魚腸骨臭の主成分であるトリメチルアミンの標準ガス(TMA)を作成し、同様の閾値調査を行なった。

その結果、すべてのパネルにおいて、E基準臭及びTMAとも魚腸骨臭との間で直接的な因果関係は認められなかった。

しかしながら、表1に示した各パネルのE基準臭閾値(平均値)と魚腸骨臭の嗅覚レベルの関係をパネル間で比較したものが図7であるが、一部のパネルを除けば、

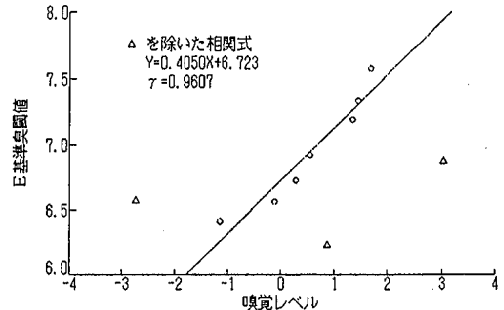


図7 魚腸骨臭に対する嗅覚レベルとE基準臭との関係

E基準臭と魚腸骨臭を同等に感じているパネルが多く存在することが確認されることから、臭気質は凡そ似たものであると推定することが可能である。

従って、同質感を有するパネルであればE基準臭によ

り嗅覚のチェックを行なうことは有効であると思われる。その場合、表1の結果は約3ケ年に及ぶものであり、パネルの凡その閾値幅を表しているものと考えられることから、簡略法の実施前にE基準臭による嗅覚チェックを行ない、その測定値が表1に示す閾値範囲内に取った場合はパネルの嗅覚レベルは正常であるとして差し支えないと考えられる。

5. 測定器具の改良

簡便法を実際に運用する場合、サンプリングや官能試験において時間が非常に限られたものとなるために従来の測定法のままでは効率が悪いものとなる。このため以下の機器類について改良を施した。

5.1 換気口用サンプリング導管支持棒

換気口は、通常建屋天いることから臭気のサンプリング箇所が高く、また数も多いことから軽量で機動性のある器材が必要となっている。

このため長尺導管の支持棒としてグラスファイバー製の振出竿(長さ8m)を応用することにより長時間の高所サンプリングが可能となった。また、これと市販の発煙管(スモークテスター)を組合せることにより換気口や工場建屋内の気流の流れをある程度視認出来るようになった。

5.2 サンプリング用ポンプ

換気口用の長尺導管は管摩擦抵抗が大きくなるため、吸引量が低下し、サンプリングに時間がかかることとなる。このため市販のカートリッジポンプを三連装のものに改良してポンプ重量をそれ程増加させることなく流量を増加させることが可能となった。

5.3 サンプリングバッグ

環境臭気サンプリング用のバッグとして注入孔を三個にしたものを作成し、先程の三連装ポンプを連結を切換えて並列としたものに繋ぐことにより、20秒程度で10ℓの吸気が可能となった。官能試験の試料としてはこの程度の量で充分であることから、軽量で廉価な環境臭気サンプリング装置として数を揃えることも容易であり、測定も極めて短時間で行なうことが可能となった。

5.4 臭袋洗浄装置

簡略法を実施する場合、使用する臭袋の数は150～250枚を越えることとなる、この場合使用後の臭袋の付着臭の洗浄には大変な手間が掛ることとなるが、自動洗浄装置を作製することにより、10日前後で約100枚の臭袋の洗浄が可能となり作業の大幅な効率化を促進することができた。(本装置の洗浄効果は昭和61年度のセンター年報に記載済み)

5.5 臭袋の簡易容量測定装置

官能試験法で使用している臭袋の容積は公称で20ℓとになっているが、実際は25～28ℓまで注入が可能のために希釈倍数の計算誤差はかなり大きなものとなることが予想される。このため簡易なゲージを作製し、短時間に100～300ml程度の誤差で計量が可能となった。

6. まとめ

6.1 各パネル毎に(個人閾値×10-臭気指数)を取りまとめることにより嗅覚レベル及び嗅覚の安定性が判定できるようになった。

6.2 嗅覚レベル及び安定性は臭気質により異なったものとなる可能性がある。

6.3 嗅覚の安定したパネル1名を選定すれば±3程度の精度で臭気指数の推定が可能である。

6.4 魚腸骨臭とE基準臭とは、ほぼ同一の臭気質系統のものとして推定され、魚腸骨臭の測定の際にE基準臭を用いて嗅覚のチェックを行なうことは有効である。

6.5 測定機器類の改良により臭気のサンプリング及び官能試験時の所用時間の短縮が可能となった。

参 考 文 献

- 1) 宮城県：宮城県公害資料，昭和38年度版～昭和47年度版
- 2) 宮城県：宮城県公害資料(特殊公害編)，昭和48年度版～昭和62年度版
- 3) 佐藤博明他：保健環境センター年報，3(1985) 4(1986)，5(1987)

2.4 β 線吸収式SPM計のサイクロン分級特性に関する調査

氏家 愛子 仁平 明 佐藤 郁子 大金 仁一
加藤 憲治 加藤 謙一 浦山 清 斎藤 達夫

現在、環境大気中のSPM濃度の連続測定には β 線吸収法、ピエゾバランス法が用いられている。 β 線吸収式SPM計は、4社から市販され使用されているが、スパイクタイヤ車粉じんのように、粒径 $10\mu\text{m}$ 付近の粒子が多量にある粉じんを測定する場合、それぞれの測定値に大きい差が生じることがわかった。これは、粒子を分級するサイクロンの分級特性の違いが原因と考えられた。

1. はじめに

昭和56年6月に「大気汚染に係わる環境基準」の一部改正により、SPM濃度の基準測定法であるLow-Vol法の等価濃度測定法として、 β 線吸収法、ピエゾバランス法が追加された。当県では、57年11月から β 線吸収法を導入し、スパイクタイヤ粉じんの測定を開始したのを始めとして、現在、4社のSPM計を環境測定に使用している。

β 線吸収式SPM計の器差については、伊瀬他¹⁾、井上他²⁾³⁾等の報告があるが、いずれも、一般環境大気中の粉じんを測定しており、道路粉じんのような粒径の大きい粉じんを測定対象としてはいない。

当県で63年2月に、道路粉じんを対象として行なった調査では、同一地域で測定した2社(A社、B社)のSPM計の指示値に、月平均値でA社〔 $119\mu\text{g}/\text{m}^3$ 〕、B社〔 $28\mu\text{g}/\text{m}^3$ 〕と顕著な差がでた。⁴⁾このため、更にこの2社の並行試験を行なった結果、この原因が $10\mu\text{m}$ 以上の粒子をカットするサイクロンの分級特性によるものであることが推定された。⁵⁾

県内には、自動車排ガス測定局はもちろんのこと、環境大気測定局でも道路に近いスパイクタイヤ粉じんの影響を受ける局があり、現在使用している4社のSPM計について、サイクロンの粒子分級の実態を明らかにする必要が生じた。そこで、基準測定法であるLow-Vol、粒径別に粒子を捕集するアンダーセンサンプラーと4社のSPM計を並行運転することにより、Low-Vol法との整合性やSPM計の分級程度を明らかにすることを目的として調査を行なった。

2. 調査内容

2.1 調査方法

白石市の市街地をほぼ南北に走る県道〔白石・青根・川崎線〕の東側道路端約1mで調査を行なった。この地点の12時間交通量は、約10,000台であり、大型車混入率は、約4.6%、冬期のスパイクタイヤ装着率は、昭和63年12月中旬に40%、平成元年1月に60%弱であった。図1に示した位置に測定機を設置し、サンプリング

口を地上2mに、SPM計のサンプリング管の長さを4mに統一した。

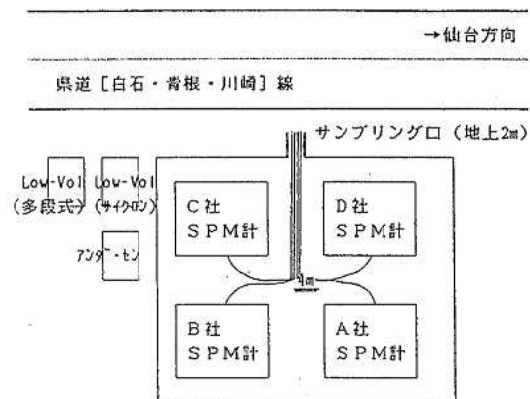


図1 測定機設置状況

2.2 調査期間

昭和63年11月～平成元年1月

2.3 使用機器

- 1) β 線吸収式SPM計

(株)アロカ製	RTG-102	1台
柴田科学器械(株)製	BAM-102S	1台
紀本電子工業(株)製	MODEL-185	1台
電気化学計器(株)製	DUB-33	1台
- 2) ローボリューム サンプラー

新宅機械製作所製	1台 (サイクロン式)
柴田科学器械(株)製	1台 (多段式)
- 3) アンダーセンサンプラー

(株)ダイレック製	1台 AN-200
-----------	-----------

3. 結果

3.1 β 線吸収式SPM計の指示値について

4社のSPM計による測定結果を表1に、2社間それぞれの時間値の関係を平成元年1月分について図2に示した。

11～12月には、A社製SPM計(以下A社)のデータが欠けているが、4社間のSPM計の指示値は、B社製

表1 平均値及び標準偏差

	データ数			平均値			最大値			最小値			標準偏差			変動係数		
	11月	12月	1月	11月	12月	1月	11月	12月	1月	11月	12月	1月	11月	1月	12月	11月	1月	
A社	-	132	702	-	48.1	70.2	-	200	335	-	0	0	-	36.8	62.1	-	76.5	88.6
B社	636	743	704	28.9	31.6	40.5	189	171	164	0	0	0	23.8	29.8	29.3	82.3	94.4	72.5
C社	681	742	704	25.9	31.1	39.1	214	192	171	1	1	1	23.6	32.0	31.0	91.0	103.0	79.2
D社	607	744	703	32.2	37.0	47.5	195	173	189	0	0	0	35.8	32.6	35.0	80.1	88.0	73.6
A-B	-	-	701	-	-	29.4	-	-	221	-	-	-43	-	-	42.2	-	-	143.5
A-C	-	-	701	-	-	30.8	-	-	192	-	-	-44	-	-	38.8	-	-	126.1
A-D	-	-	700	-	-	22.2	-	-	173	-	-	-54	-	-	36.1	-	-	162.6
B-C	633	742	704	1.9	0.5	1.4	28	58	64	-25	-54	-43	6.5	8.0	9.1	335.1	1620	657.6
B-D	607	743	703	-3.7	-5.4	-7.0	26	112	23	-53	-37	-73	10.3	10.9	13.0	279.8	200.1	185.5
C-D	604	742	703	-5.5	-5.9	-8.4	34	54	27	-53	-33	-68	10.3	9.9	11.8	189.3	166.0	140.2

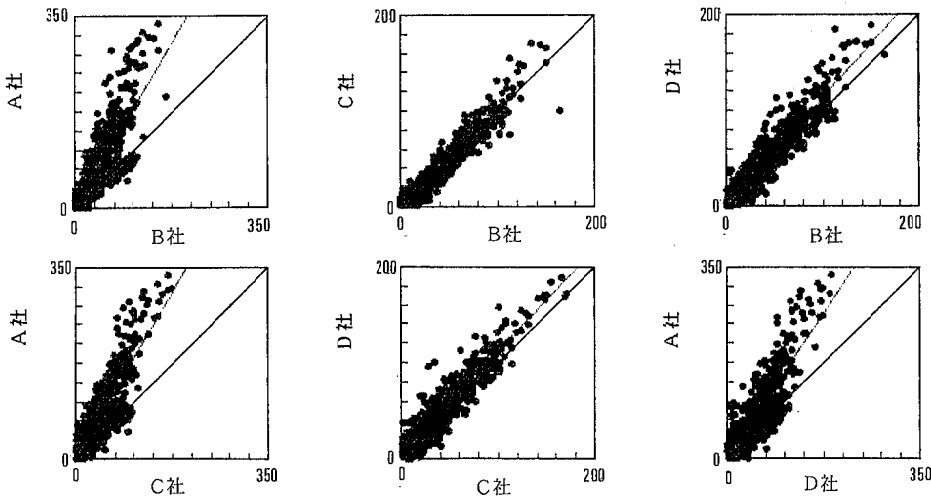


図2 2社間のSPM濃度指示値の関係(1月)

SPM計(以下B社)とC社製SPM計(以下C社)が3ヶ月を通じて良く一致していた。D社製SPM計(以下D社)の指示値は、上記2社に比較して、月平均値で約 $4 \mu\text{g}/\text{m}^3 \sim 8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ と若干高い傾向であった。

4社の中では、A社の指示値が最高で、他3社のSPM計に比べ月平均値で、1月に $22 \mu\text{g}/\text{m}^3 \sim 31 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 高い値を示した。比較的良好な対応を示したB社等3社について、2社間の1時間値の差の約95%が入る【平均値 $\pm 2\sigma$ 】をみると、{B, C}社の差が3ヶ月とも $\pm 20 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下、{C, D}社及び{B, D}社の差が $\pm 33 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下であった。しかし、差の最大値は1月には約 $70 \mu\text{g}/\text{m}^3$ と、1時間値の環境基準である $200 \mu\text{g}/\text{m}^3$ の $1/3$ に及んでいた。

また、A社と3社の指示値の差は、1月には最大で $173 \mu\text{g}/\text{m}^3 \sim 221 \mu\text{g}/\text{m}^3$ であり、1時間値の環境基準と同程度の大きな差が認められた。

3.2 降水時のSPM濃度の指示値について

SPM濃度の時系列変化を図3(1時間値)に示した。4社とも濃度の差はあるものの、増減の変動パターンは良く一致している。

ウォッシュアウト効果によって、雨滴と衝突した際に取り込まれる割合は、半径 $10 \mu\text{m}$ 以上のエアロゾルではほぼ100%、 $5 \mu\text{m}$ で50%、 $2 \mu\text{m}$ で10%、 $1 \mu\text{m}$ 以下では0%に近いといわれている。⁶⁾ したがって、粒径の大きいスパイクタイヤ車粉じんは、雨や雪が降ることによって大気中から除去され、濃度がかかなり低下する。

このような、大きい粒子が除かれて、比較的粒径の小さい粒子だけが浮遊している条件下での4社の指示値を、降水のあった日のSPM濃度の時系列変化でみると(図4.5)、降水のあった時間には、4社の指示値の差はほとんど認められなかった。

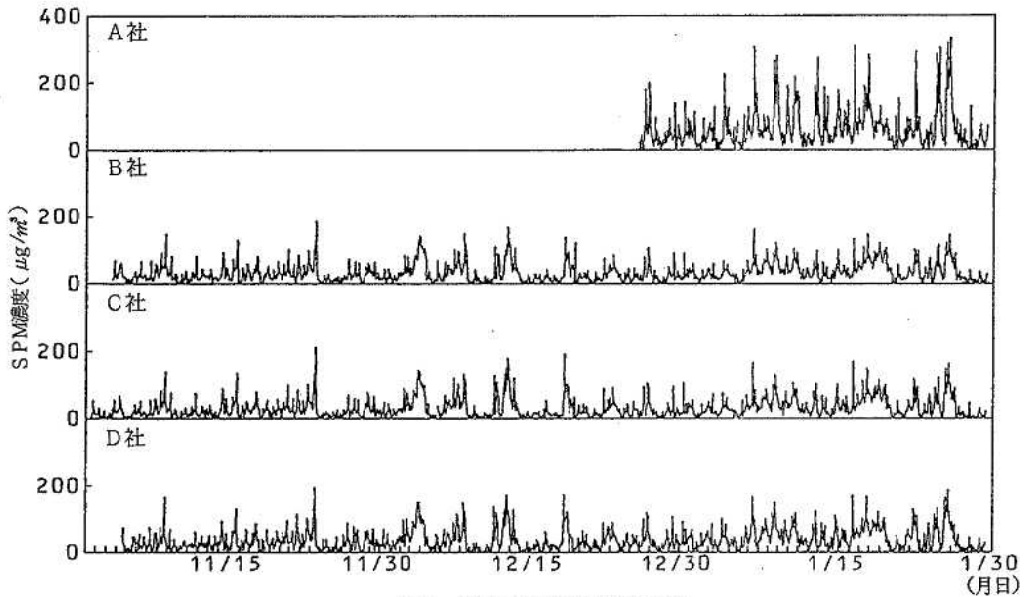


図3 SPM濃度の時系列変化

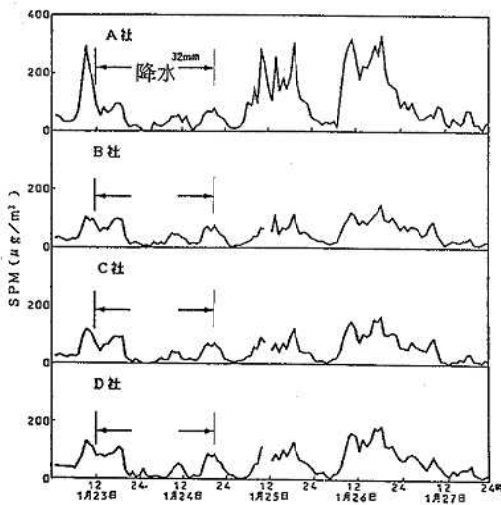


図4 雨の日のSPM濃度の時系列変化

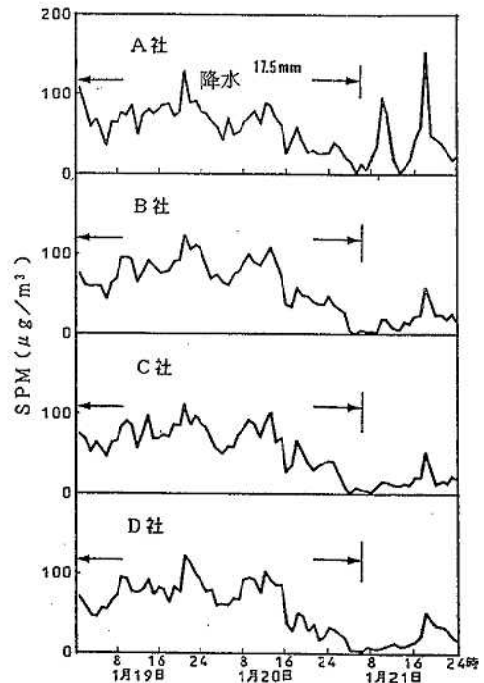


図5 雪またはみぞれの日のSPM濃度の時系列変化

3.3 Low-Volとの整合性

粒子の分級をサイクロン式分粒装置で行なっている新宅製のLow-Volの濃度と、4社のSPM計の指示値の関係を図6、図7に示した。

スパイクタイヤを装着しない、または装着率の低い11月～12月前半には、B、C、D社の指示値とLow-Volの濃度とは一致した(A社がこの時点では、未稼働)が、スパイクタイヤ装着率が高くなってきた12月後半～1月には、3社のSPM計の指示値の方が低く、B社が約21 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (13 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ～29 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)、C社が約22 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (13 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ～

31 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)、D社が約14 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ～24 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) 低い値となった。また、A社は、12月後半～1月のデータだけではあるが、Low-Volの濃度との差は、逆に約8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (-8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ～17 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) 高い指示値を示した。

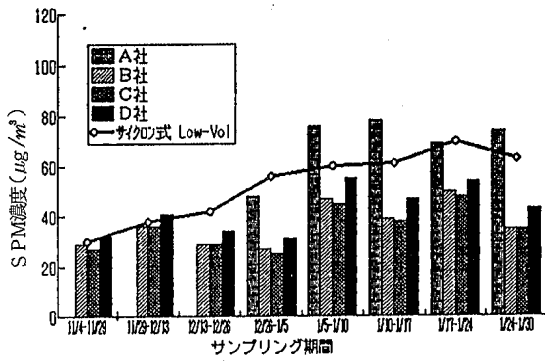


図6 サイクロン式Low-Vol法とβ線吸収式SPM計の比較

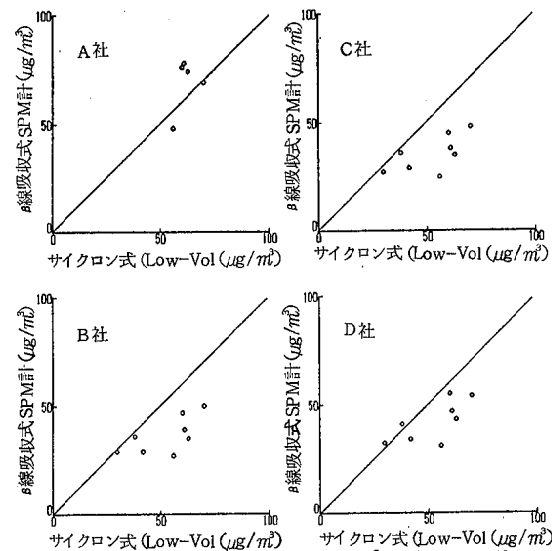


図7 サイクロン式Low-Volとβ線式SPM計の指示値との関係

次に、分級を多段式分粒装置で行なっているB社のLow-Volの濃度と、4社のSPM計の指示値の関係を図8、図9に示した。

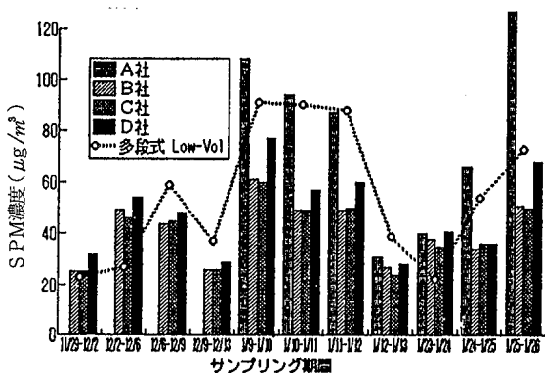


図8 多段式Low-Vol法とβ線吸収式SPM計の比較

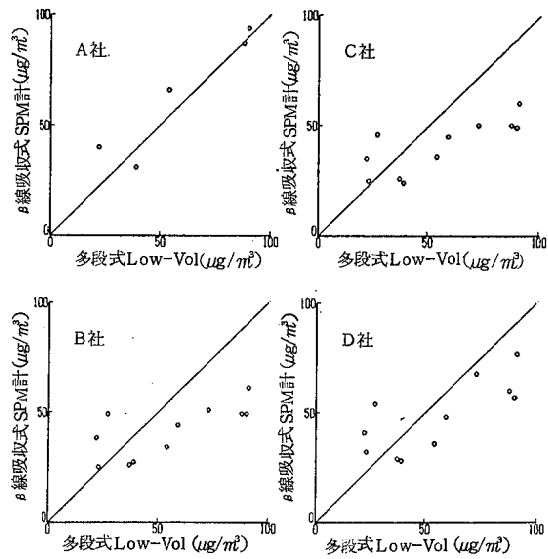


図9 多段式Low-Volとβ線式SPM計の指示値との関係

B社のLow-Volは、フローメーター式流量計の流量低下を防ぐため、スパイクタイヤ車粉じんが急増する1月には1日ごと、その他は3～4日ごとのサンプリングを行なった。

多段式の場合も、サイクロン式Low-Volとの関係とはほぼ同様な傾向を示した。

3.4 アンダーセンとの対比

同じ期間に採取した、アンダーセンサンプラーによる粒径別濃度と、サイクロン式Low-VolによるSPM濃度および4社のSPM計の指示値の期間平均値との対応を図10に示した。図中矢印は、Low-Vol及びSPM計の濃度がアンダーセンサンプラーによる濃度と対応する所を示したものである。4社そろったデータがあるのは元年1月だけであった。

結果をみると、B、C社のSPM計による期間平均値は、粒径4.7µm以下の粒子の濃度合計より低く、A社の指示値は、7.0µm以下の粒子の濃度合計より低かった。また、標準測定法であるLow-Vol法も、スパイクタイヤ装着期には、7.0µm以下粒子の濃度合計より低く、しかも、A社より濃度が低かった。

3.5 SPM計の指示値と環境基準との関係

4社のSPM計の指示値が異なることによって生ずる問題の一つに環境基準の評価がある。

白石市での環境基準の超過状況についてみると、指示値の低かったB社等3社のSPM計による測定では、1時間値、24時間平均値とも基準超過はないが、A社のSPM計による測定では、1月には、それぞれ1時間値で5.0%、24時間平均値で20.7%の超過があることになる。このことは、同じ場所、同じ時間での環境評価が、

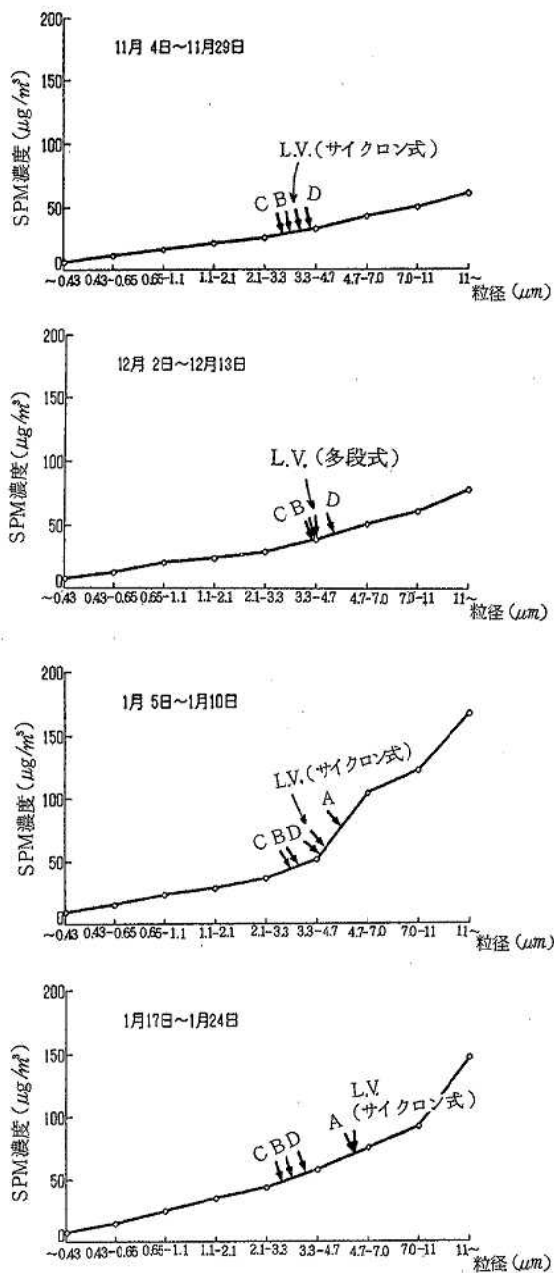


図10 アンダーセンサンプラーによる粒径別濃度とSPM計等による測定値の比較

使用するSPM計のメーカーの違いによって必ずしも一致しない可能性を示唆している。

4. 考察

スパイクタイヤ装着期でも、降水によって大気中から粒径の大きい粒子が取り除かれた状況で、4社の指示値が一致したことから、指示値の差の原因は、計測部では

なく粒子を分級するサイクロンであると考えられた。

4社のSPM計のサイクロンによる分級程度は、C、B、D、A社の順に大きくなり、一番大きいA社でも粒径 $4.7\mu\text{m} \sim 7.0\mu\text{m}$ 程度の粒子を全部、分級捕集してはいなかった。B、C社にあっては、 $3.3\mu\text{m} \sim 4.7\mu\text{m}$ 以下の粒子の分級をしているため、スパイクタイヤ車粉じんの大きい粒子の大半はカットされてしまうと考えられた。また、SPMの基準測定法とされているサイクロン式Low-Volでは、A社とほぼ同程度または若干小さい分級程度と考えられた。

5. まとめ

SPMの基準測定法とされているサイクロン式Low-Volおよび4社の β 線吸取式SPM計は、それぞれ、サイクロンの分級程度が異なっていることが明らかになった。この結果、特に、A社以外の3社のSPM計については、スパイクタイヤ車粉じんのような大きな粉じんを殆んどカットしてしまうことになり、同じ場所、同じ時間での環境評価に大きな違いが出て来ることが明らかになった。

全国的にみれば、SPMの発生源は、自動車排ガス、工場の煤煙、海塩粒子、土壌、ガス状物質の二次生成物火山灰、スパイクタイヤ車粉じん等様々であり、粒径分布も異なっている。測定対象となるSPMの粒子の質(粒度分布)の違いによって、SPM計のメーカー間の指示値に差が生じるとすれば、環境評価をする上で大きな問題である。これを解決するためには、SPM計について、計測部だけでなく、サイクロンの構造、サンプリング管の長さ等、国レベルでの細部の指定・統一が必要不可欠であると考えられる。

最後に、今回の調査にSPM計を提供して頂きました(株)アロカ、柴田科学器械(株)、紀本電子工業(株)電気化学計器(株)に謝意を表します。

参考文献

- 1) 伊瀬洋昭他：東京都公害研究所年報，P 73 (1985)
- 2) 井上康明他：第25回大気汚染学会講演要旨集，P 393 (1984)
- 3) 井上康明他：第25回大気汚染学会講演要旨集，P 394 (1984)
- 4) 昭和62年度スパイクタイヤ対策条例の目標値に関する基礎調査結果報告書
- 5) 佐藤郁子他：第29回大気汚染学会講演要旨集，P 345 (1988)
- 6) 角皆静男：雨の分析，講談社 (1975)
- 7) 宮城県保健環境センター：スパイクタイヤ装着地域における道路粉じん実態調査報告書 (昭和57年度)，P 4

25 古川市内交差点周辺における窒素酸化物 濃度分布実態調査結果

浦山 清 大金 仁一 氏家 愛子 加藤 謙一
加藤 憲治 仁平 明 佐藤 郁子 斎藤 達夫

簡易測定法を用い、市街地域内主要道路交差点周辺において、窒素酸化物(NO 、 NO_2)濃度分布調査を5月と11月に行った。その結果、道路近傍において自動車排出ガスによる窒素酸化物が高濃度で分布していることはもちろん、地域形態や気象状況等の局地的な要素によって、分布が大きく異なっていることが確認された。

1. はじめに

近年、都市域における窒素酸化物の汚染が心配されていることから、県北古川市内の市街地域内主要道路交差点周辺において、窒素酸化物分布調査を実施した。この結果について報告する。

2. 調査方法

2.1 調査地点

JR古川駅から北西方向約500mの市内ほぼ中心部主要道路周辺に調査地域を定めた。南側に国道108号線が西側を国道4号線が、そのさらに西側約1.7kmを4号線バイパスが走っている。調査地点は地域内交差点周辺において、約25m間隔で36地点、外に3地点を定めた。また、交差点付近に移動観測車を設置した。調査地域内県合同庁舎屋上(地上約15m)には環境大気測定局の古

川局がある。調査地点、移動観測車及び古川局の位置関係を図1に示す。

2.2 分析方法

(1) NO_x サンプラーによる測定

図1の38地点に移動観測車と古川局の2地点を加えた計40地点において、 NO 、 NO_2 同時測定用サンプラー¹⁾(以下「 NO_x サンプラー」という。)をフェンスや樹木、ポール等を利用して地上高約1~3mに取りつけたシェルター(タテ17cm×ヨコ17cm×タカサ24cm)内に約24時間放置し NO_2 及び NO_x 濃度の日平均値を求めた。

(2) 移動観測車による測定

図1に示す地点に移動観測車を設置し、次の項目について1時間値を求めた(以下「自動測定」という。)

〔項目〕風向、風速、二酸化硫黄(SO_2)、一酸化窒素(NO)、二酸化窒素(NO_2)、窒素酸化物(NO_x)、一酸化炭素(CO)、非メタン炭化水素(NMHC)

2.3 調査期間

〔前期〕 NO_x サンプラーによる測定

昭和63年 5月24日~27日

移動観測車による測定

昭和63年 5月16日~6月15日

〔後期〕 NO_x サンプラーによる測定

昭和63年11月15日~18日

移動観測車による測定

昭和63年11月1日~30日

3. 結果

3.1 自動測定法と NO_x サンプラー法による NO 及び NO_2 濃度の関係

自動測定(ザルツマン法)と NO_x サンプラーによる NO 及び NO_2 濃度測定との相関を調べるために、移動観測車サンプリング口付近に設置した NO_x サンプラーによる値と同時間の自動測定による1時間値の平均値との関係を調べた。結果を図2・1と図2・2に示す。

3.2 NO_x サンプラーによる測定結果

NO_x サンプラーによる地点ごとの測定結果を、自動

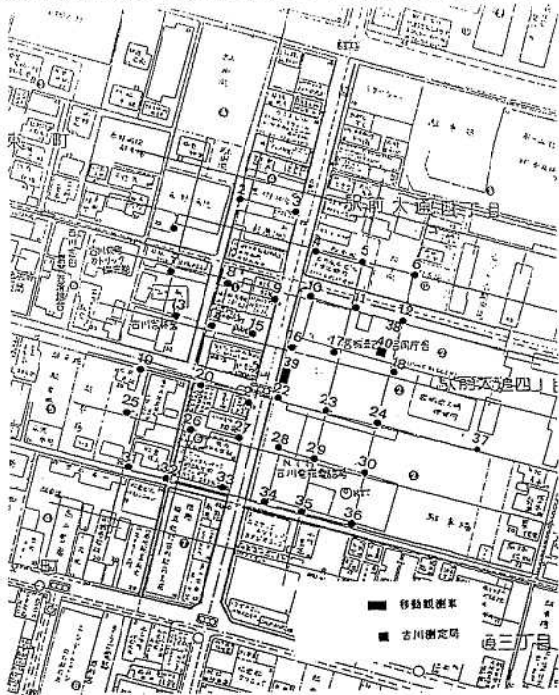


図1 調査地点、移動観測車設置場所及び一般環境大気測定局

測定と NOx サンプラーによる濃度の関係式から自動測定
の値に換算して表 1・1 と表 1・2 に示す。また、そ
の測定結果を幹線道路から地点ごとに並べたものを図 3
・1 と 3・2 に、NOx に占める NO₂ の割合を図 4 に
示す。

表 1・1 NOx サンプラーによる一酸化窒素と
二酸化窒素濃度測定結果(換算値)
(単位: ppb)

月日 地点	5.24~5.25		5.25~5.26		5.26~5.27		備 考
	NO	NO ₂	NO	NO ₂	NO	NO ₂	
1	-	11	-	20	-	10	
2	6	10	-	24	-	14	
3	18	11	10	26	-	16	
4	-	12	-	19	-	8	
5	-	11	-	19	-	15	
6	12	10	-	15	-	11	
7	1	10	-	15	-	11	
8	1	19	-	25	-	14	
9	14	16	13	28	1	18	
10	-	12	-	16	-	15	
11	-	10	-	16	-	11	
12	-	11	-	19	-	12	
13	-	10	-	21	-	6	
14	4	14	-	23	-	14	
15	21	14	-	25	6	20	
16	2	7	-	18	-	11	
17	-	8	-	18	-	11	
18	-	8	-	16	4	15	
19	20	15	4	20	-	11	
20	30	20	11	32	4	12	
21	11	11	20	38	54	30	
22	2	10	-	23	6	21	
23	-	7	-	20	-	16	
24	-	10	-	18	8	11	
25	-	11	-	19	-	7	
26	12	16	-	23	-	15	
27	11	12	12	28	10	10	
28	13	12	-	23	-	12	
29	14	8	-	21	-	14	
30	-	10	-	20	3	15	
31	11	10	-	18	-	11	
32	20	14	-	16	8	11	
33	26	16	4	34	29	23	
34	-	8	-	23	10	28	
35	-	5	-	15	-	12	
36	-	6	-	18	8	10	
37	-	7	-	15	-	12	
38	-	14	-	23	-	18	地上高約 8.5m

(注) 1. - : NOx サンプラーの値を Zaltzmann 法の
値に換算する際にマイナスの値になったもので、
以後の計算では 0 とした扱った。

表 1・2 NOx サンプラーによる一酸化窒素
と二酸化窒素濃度測定結果(換算値)

(単位: ppb)

月日 地点	11.15~11.16		11.16~11.17		11.17~11.18		備 考
	NO	NO ₂	NO	NO ₂	NO	NO ₂	
1	-	15	-	29	-	28	
2	-	14	-	24	-	20	
3	17	20	26	36	12	28	
4	2	12	-	28	9	24	
5	8	12	-	25	60	24	
6	-	14	2	23	3	23	
7	-	15	-	32	-	24	
8	3	12	12	30	-	25	
9	37	18	42	37	24	29	
10	16	19	13	25	-	23	
11	9	18	8	28	-	26	
12	19	16	11	25	6	28	
13	9	11	-	28	-	25	
14	6	14	14	28	-	21	
15	54	28	32	34	22	33	
16	35	15	28	26	12	26	
17	22	15	3	29	-	26	
18	10	18	3	24	-	24	
19	6	15	6	32	-	25	
20	42	16	32	26	31	29	
21	103	26	57	33	114	42	
22	42	21	26	25	37	29	
23	31	20	13	28	25	33	
24	19	14	1	25	-	32	
25	13	10	-	26	-	25	
26	-	14	7	23	-	23	
27	12	16	19	30	1	26	
28	14	14	-	26	6	30	
29	33	11	8	26	11	28	
30	21	15	10	21	9	25	
31	13	11	-	24	-	21	
32	20	12	14	24	-	25	
33	48	18	46	37	35	37	
34	23	19	25	28	9	26	
35	26	15	16	28	-	30	
36	24	15	-	33	-	28	
37	20	8	-	21	-	26	
38	31	8	8	26	12	26	地上高約 8.5m

(注) 1. - : NOx サンプラーの値を Zaltzmann 法の
値に換算する際にマイナスの値になったもので、
以後の計算では 0 とした扱った。

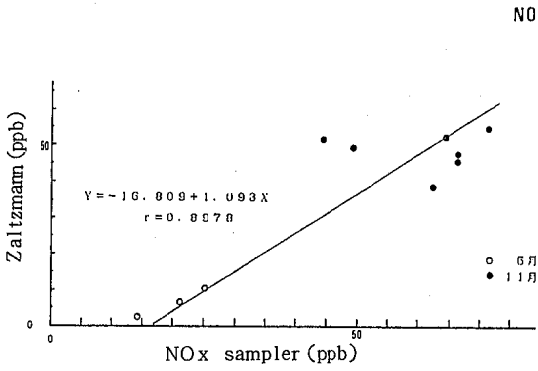


図2・1 自動測定法とNO_xサンプラーによるNO濃度の関係

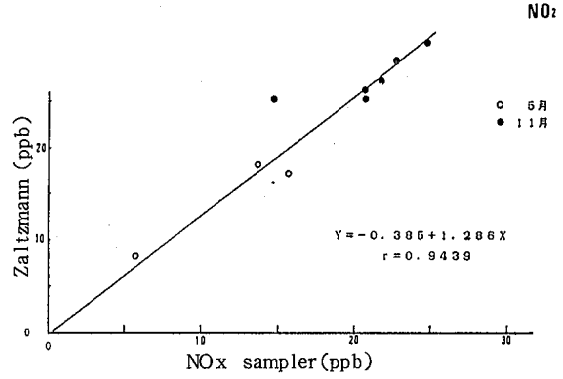


図2・2 自動測定法とNO_xサンプラーによるNO₂濃度の関係

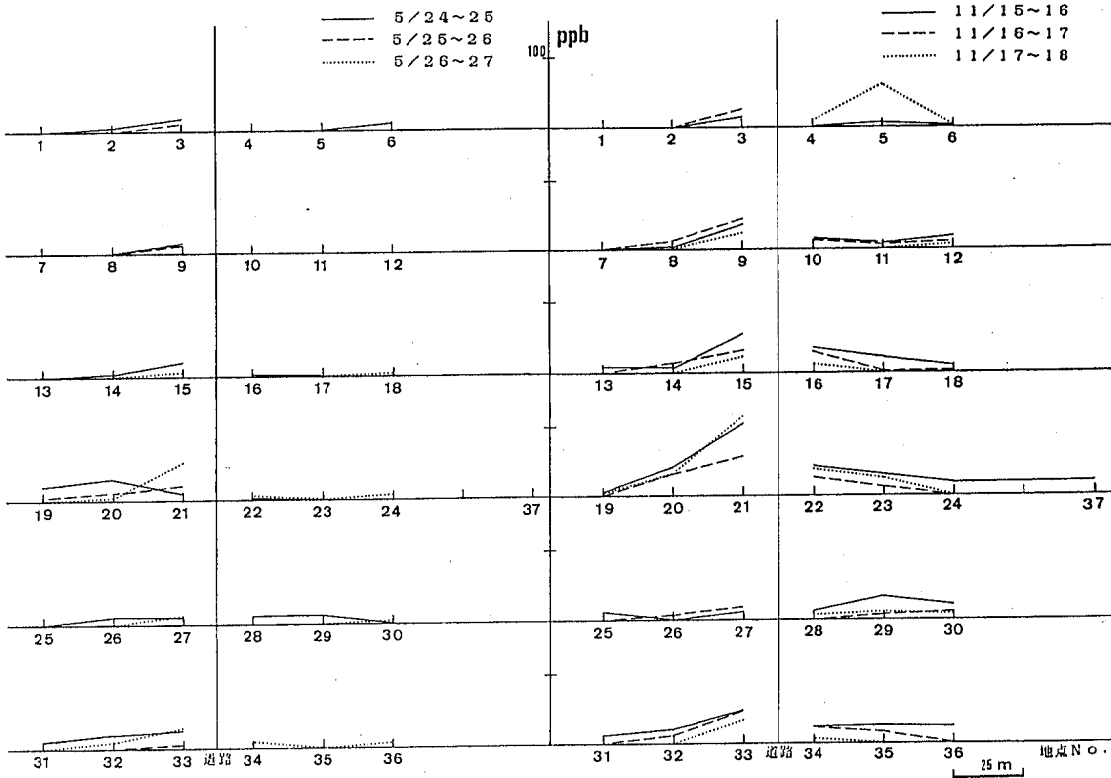


図3・1 幹線道路からの距離と一酸化窒素濃度との関係

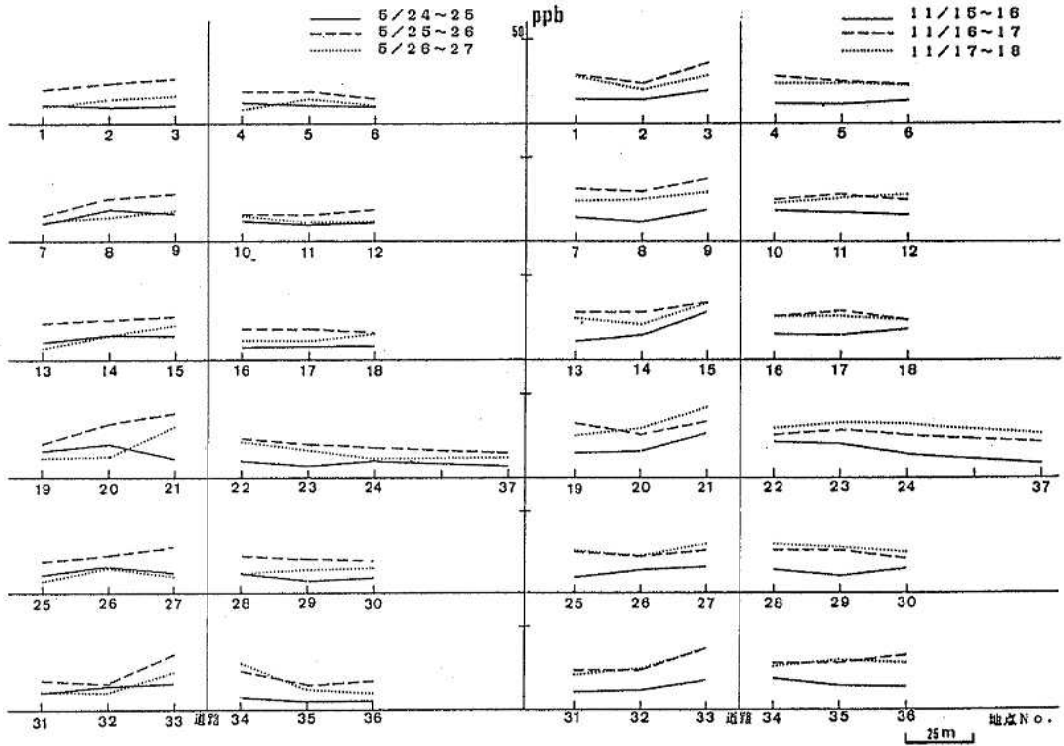


図3・2 幹線道路からの距離と二酸化窒素濃度との関係

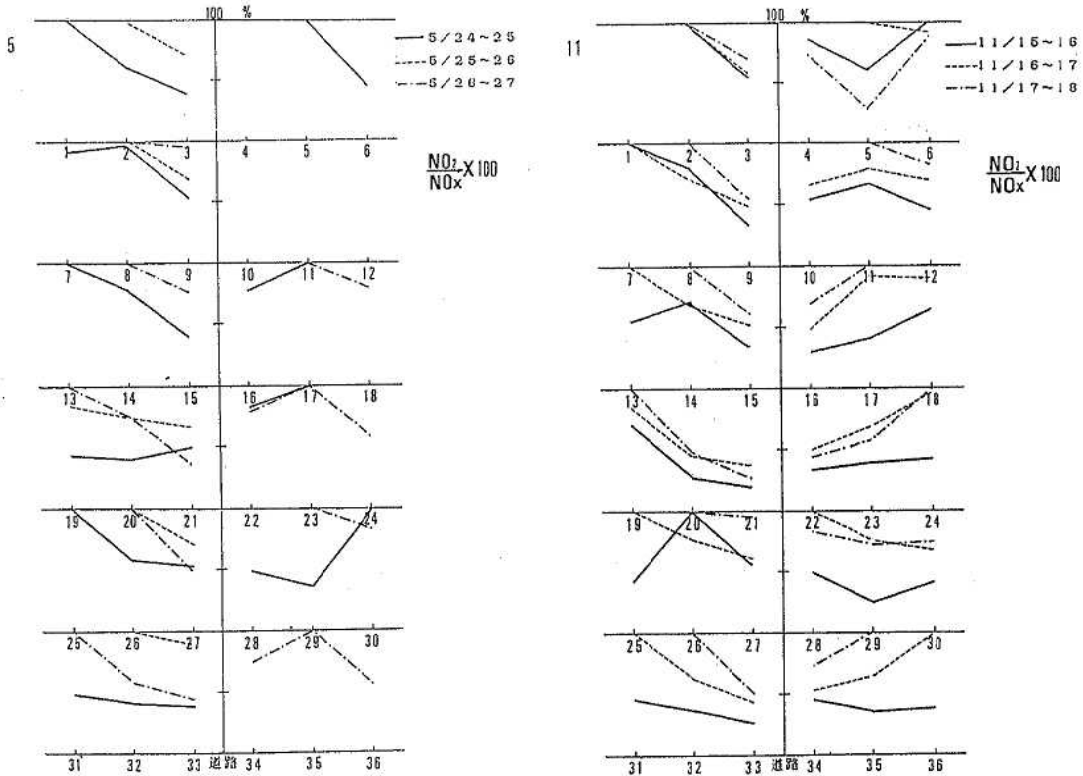


図4 窒素酸化物に占める二酸化窒素の割合の幹線道路からの変化

3・3 自動測定による測定結果

移動観測車による測定結果のまとめを表2に示す。

表2 移動観測車による測定結果

測定項目	上段 63. 5. 16 ~ 6. 15		下段 63. 11. 1 ~ 11. 30		
	測定時間	平均値	1時間値最高	日平均値最高	日平均値40ppb超過日数
二酸化硫黄 (SO ₂ ppb)	717 691	5 5	18 17	10 10	0 0
一酸化窒素 (NO ppb)	717 690	7 44	70 325	20 85	- -
二酸化窒素 (NO ₂ ppb)	717 690	17 25	54 71	24 33	0 0
窒素酸化物 (NO _x ppb)	717 690	24 69	106 373	54 113	- -
一酸化炭素 (CO ppm)	716 693	0.6 1.5	4.2 9.4	1.4 2.4	- -
非メタン炭化水素 (NMHC ppmC)	682 659	0.39 0.67	2.87 4.85	0.86 1.08	- -

3.4 調査地域の交通量

昭和60年度の道路交通情勢調査(宮城県)によれば、国道108号線調査地域付近の地点では1日約14,000台である。

3.5 調査期間中の天気概況

調査期間中の天候は、前期調査の前日5月23日は多少の降雨があり、NO_xサンプラー設置調査開始日の24日は曇り、NO_xサンプラー交換1日目の25日は、昼間曇り夜間多少降雨があった。2日目の26日は午前中は曇りのち晴、3日目回収日の27日は、ほぼ晴れといった状況であった。後期の調査では、調査の前日11月14日は曇り調査開始の15日は曇り時々晴、NO_xサンプラー交換1日目の16日は曇りで午後から時々小雨、2日目の17日は曇り、3日目回収日の18日は夜半から朝に少し降雨があって、その後曇りの状況であった。前期の3日間と後期3日間の大気安定状況は、逆転層観測局の仙台港局における気温鉛直測定結果でみると、5月より11月が安定状態であったと考えられる。

なお、移動観測車による測定期間中の風配図を図5に示す。

3.6 調査地域の概況

南北に走る幹線路を中心として、東側は道路に面して北から南の方へ3~4階ビルが並んでいる。中央部には合庁前の駐車場がやや広い空間を作っている。立ち並ぶビルの更に東裏側は、駐車場の空間が多い。幹線路の西側は、道路に面して北から南の方へ1~3階の店舗が並んでいて、南はずれのところに7階ビルが立っている。その更に西裏側には、1~2階の家屋が続いている。中央部の交差点付近と、そこから西にのびるやや広い道路が空間を成している。図1参照。

4. 考 察

図1に示されるように、調査地域は、周辺に固定発生

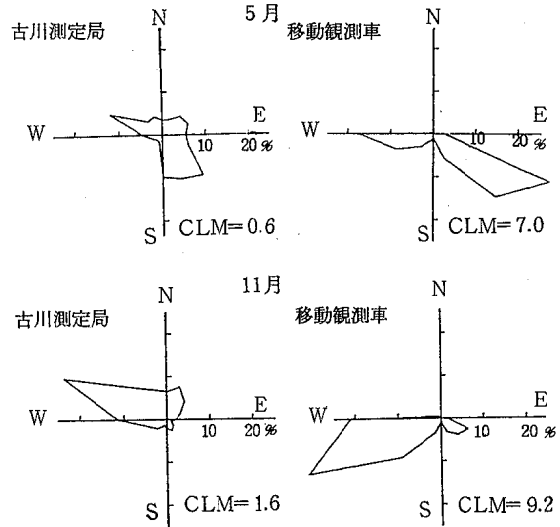


図5 移動観測車による測定期間中の風配図

源で大きなものではなく、移動発生源として自動車からの影響が大きいと考えられる地域である。環境局古川局の窒素酸化物測定結果は、年平均値で昭和58年度から62年度まで、二酸化窒素が9~11ppb、一酸化窒素が6~7ppbの状況にある。62年度の結果⁵⁾でみると、県内27環境局の年平均値で高い値を示しているのは、二酸化窒素が泉局の17ppbや国設仙台局、名取局、榴ヶ岡局の16ppbで、一酸化窒素が泉局の14ppbや七郷局の13ppb名取局、榴ヶ岡局の11ppbである。このように、年平均値の比較では、古川局は県内27局の中では低い方のレベルにある。古川局は、県合同庁舎屋上(地上高約15m)にあり、合庁の南西付近に設置した移動観測車で、5月と11月に約1カ月間同時測定を行っている。その結果を図6・1と図6・2にグラフで示してある。古川局の1時間値では、5月の二酸化窒素が0~32ppb、一酸化窒素が0~14ppb、11月は二酸化窒素が1~59ppb、一酸化窒素が0~154ppbである。これに対して、移動観測車の1時間値では、5月の二酸化窒素が1~54ppb、一酸化窒素が0~70ppb、11月の二酸化窒素が1~71ppb、一酸化窒素が0~325ppbと同地域においても、地点によってかなり異なる値を示している。

調査地域は、交通量の多い幹線路を中心にして調査地点を点在させてあるが、どの地点においても小路や駐車場が付近にあり、幹線路のような交通量はないものの、自動車が通行する地域である。一酸化窒素では、図3・1に示すように、幹線路側近のNo21地点で、11月に103, 57, 114ppbと調査結果の中では高い値を示している。外には、幹線路に面した地点では、他の地点よりやや高い値の傾向がみられるものの、特に大きな傾向はみられなかった。二酸化窒素では、一酸化窒素と同じくNo21地点で、最高値の42ppbを測定したが、測定値は5, 11月

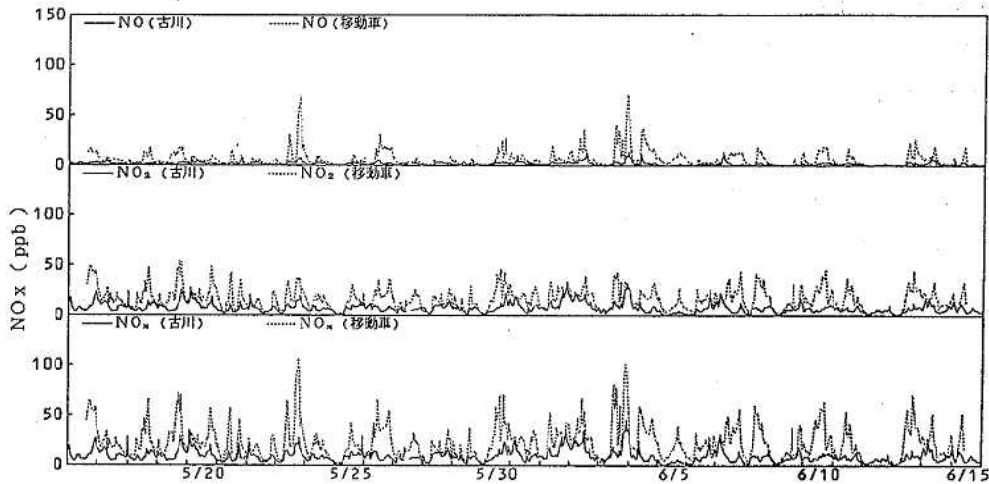


図 6・1 NOx 濃度変化図(1988 5/16~6/15)

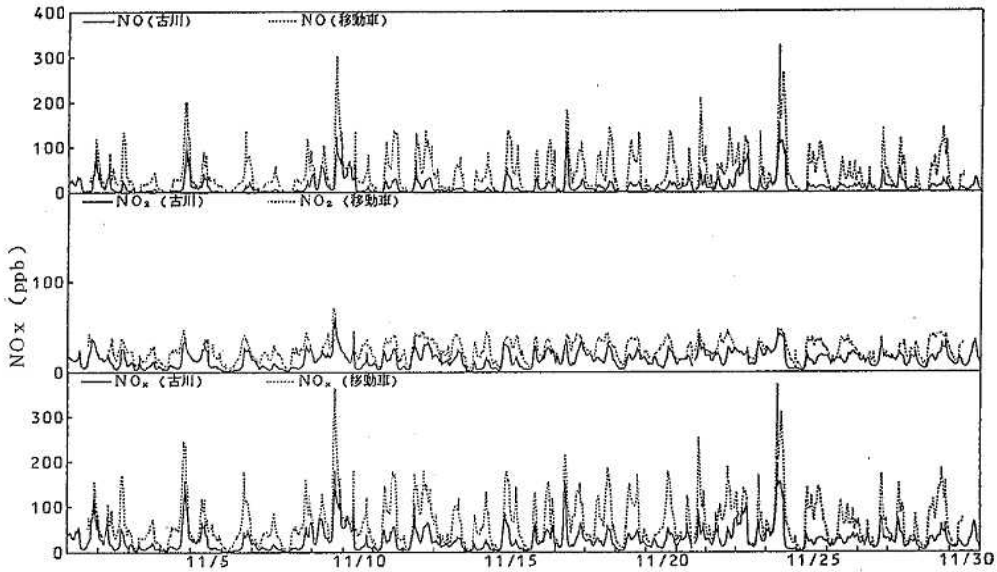


図 6・2 NOx 濃度変化図(1988 11/1~11/30)

の6日間で、5~42 ppbで、幹線路に面した地点が他より少し高い値を示してはいるものの、特に大きな傾向はみられなかった。

なお、No.10の地点は、駐輪場に位置し、道路境界に立つ塀と屋根によって、No.11の地点は、合庁建屋と倉庫によって、閉鎖された地点となっているためか、幹線路に近い地点の割には、外の地点より全体的に低い値を示しているようである。

垂直分布について、合庁北側の建屋壁にそって下からNo.12、38地点そして古川局のNo.40地点でみてみると、No.40の地点は縦横5~10mのずれはあるが、地上高約1.5、8.5、15mの地点で、図7に示すように一日の平

均濃度でみると、特に大きな差が認められなかった。

5. まとめ

過去の窒素酸化物に関する調査²⁾³⁾⁴⁾で幹線道路の自動車排出ガスによって、特に道路端が窒素酸化物の高濃度出現地域になっていることがわかっている。今回の調査では、調査地域を大きな市街地域内から一部分の地域についてとりだしての調査である。したがって、幹線道路は至るところに存在し、高濃度地点も多数あるものと容易に予想できる。交通量の多い幹線道路からの汚染が、各地点の局地的な特殊性にあらゆる気象状況が複雑に影響しあって、高濃度汚染地点が出現するものと考えられ

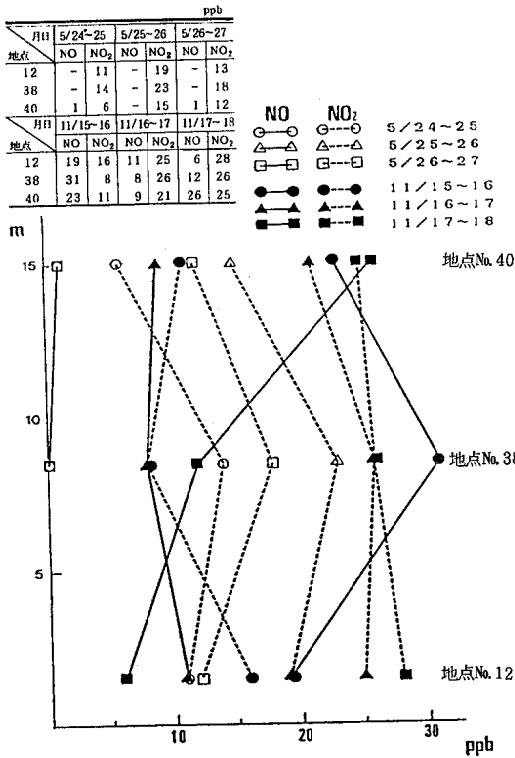


図7 一酸化窒素及び二酸化窒素の垂直方向濃度分布

る。市街地域を全体的にみると、調査地域が数多くつながっている形で、地域を大きくみれば汚染が均一化されるものと考えられるが、結果にみられるように、地点によってはかなりの格差が生じている。都市域においてはますます交通量は増加傾向にあり、地点によっては長期的に高濃度暴露の生活環境が存在することになり、抜本的な対策がとられるように、関係方面に対し訴えていく必要があるものと思われる。

最後に、本調査の実施にあたり御協力いただいた、大崎保健所の方々、また、関係各方面の方々に対し厚く御礼申し上げます。

参 考 文 献

- 1) 平野耕一郎・前田裕行・石井哲夫・米山悦夫：環境と測定技術12No.12 P 32～39 (1985)
- 2) 宮城県保健環境部 昭和60年度 宮城県公害資料(大気編) P 76～90 (1985)
- 3) 宮城県保健環境部 昭和61年度 宮城県公害資料(大気編) P 97～122 (1986)
- 4) 宮城県保健環境部 昭和62年度 宮城県公害資料(大気編) P 96～110 (1987)
- 5) 宮城県 昭和63年度環境白書 P 73～95、256～279 (1988)
- 6) 環境庁大気保全局大気規制課 昭和62年度一般環境大気測定局測定結果報告 P 11～60 (1987)

26 釜房ダム上流域の農業用水路降雨時水質調査

藤原 秀一 佐々木久雄 安斎 文雄
 伏谷 均 伊藤 孝一 鈴木 弘一

湖沼水質保全特別措置法（湖沼法）に基づく指定湖沼に指定された釜房ダム上流域の農業用水路の降雨時における流入負荷量を調査した。自動採水器により連続採水した検体を基に、COD、T-N、T-Pの流入負荷量について検討した。降雨時における流入負荷量は、非降雨時の数十倍と大きなものであった。この結果を基に、釜房ダム貯水池水質汚濁解析シミュレーションの洪水時流入負荷量（直接流入部）について実証を行った。

1. はじめに

釜房ダム貯水池は、昭和62年10月に湖沼水質保全特別措置法（湖沼法）に基づく指定湖沼に指定されたことから、県は同法に基づく湖沼水質保全計画の策定を行った。

ここでは、その湖沼水質保全計画策定の基礎資料となった釜房ダム貯水池水質汚濁解析シミュレーションの洪水時流入負荷量（直接流入部）について追認試験を行ったので報告する。

2. 調査方法

2.1 調査地点

釜房ダム湖に直接流入する農業用水路の9カ所に調査地点を設けた。図-1のKs-1からKs-3¹とKs-6からKs-10までが、調査地点を示す。

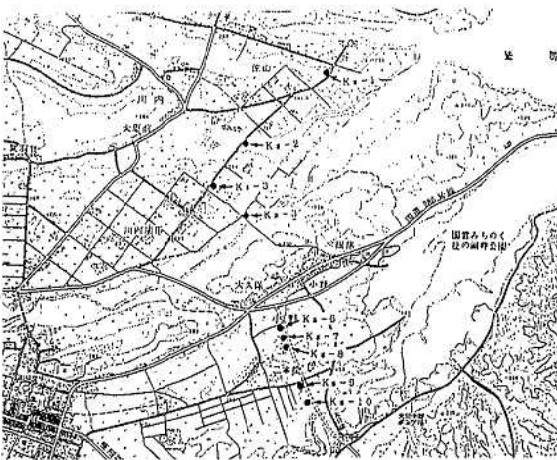


図-1 調査地点

2.2 調査日及び採水方法

この調査は、降雨の無い日が6日間続いた後でまとまった降雨のあった、昭和63年10月6日から7日にかけて行った。図-2に時間毎の降雨状況を示す。このときは、6日の午前零時頃から午後3時頃まで降雨があり、最も激しかったのが午前9時から10時にかけての8.5 mm/hourであった。なお、この調査日の総雨量は、74mmである。

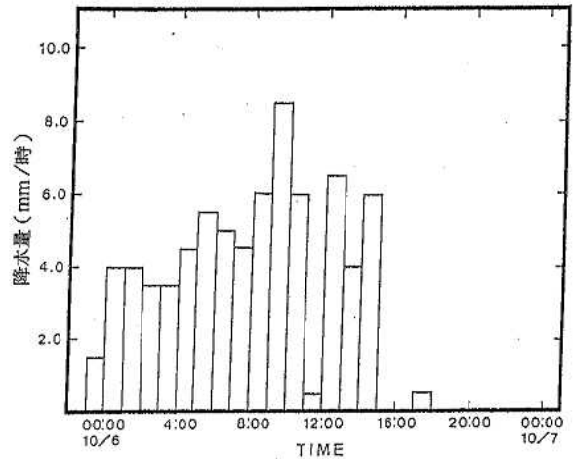


図-2 降水量の経時変化

採水は、Ks-2地点では、10分間に1mmの降雨があると採水を開始する自動採水器を用いて1時間毎に行い、流量測定は昼間はほぼ1時間毎に、夜間は3時間毎に実施した。

他の8地点では1回/日の頻度で手動採水及び流量測定を実施した。

2.3 分析項目及び分析方法

表-1のとおり。

表-1 分析方法

項目	分析方法	備考
pH	ガラス電極法	JIS K 0102
BOD		JIS K 0102
COD	100 °Cにおける酸性過マンガン酸カリウム法	JIS K 0102
SS	GFPろ過法	JIS K 0102
NH ₄ -N	インドフェノール法	JIS K 0102
NO ₂ -N	ナフチルエチレンジアミン法	衛生試験法註解
NO ₃ -N	Cu-Cdカラム還元法	海洋観測指針
T-N	告示法（Cu-Cdカラム還元法）	分解アルカリ性ペロキソ二硫酸カリウム
PO ₄ -P	アスコルビン酸還元法	
T-P	告示法（アスコルビン酸還元法）	分解ペロキソ二硫酸カリウム
導電率		東亜電波 CM-30ET
流量		東邦電探 CM-1BN

3. 結果と考察

これから、Ks-2地点において自動採水器により連続採水を行ったものの分析結果について述べる。

図-3にCODの経時変化を示す。午前10時をピークとする山型のパターンを示し、これを図-2の降雨状況と見比べると、降雨強度の最も大きいところでCODも最大になっていることがわかる。なお、その最大値は19.0mg/lであった。

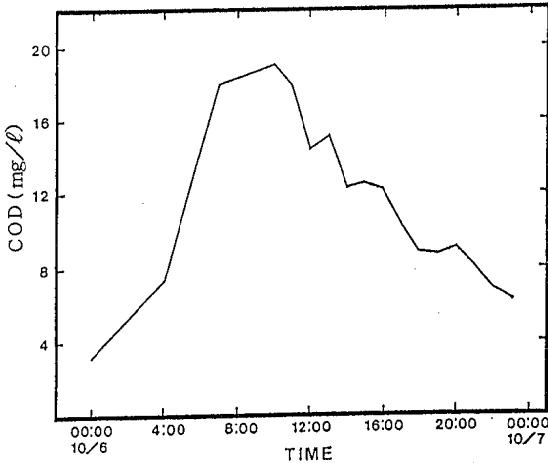


図-3 CODの経時変化 (Ks-2)

図-4にT-Nの経時変化を示す。CODの場合と異なり、降雨初期では一時的に濃度が減少し、その後午前10時をピークとする山型のパターンを描く。その最大値は、2.02mg/lであった。

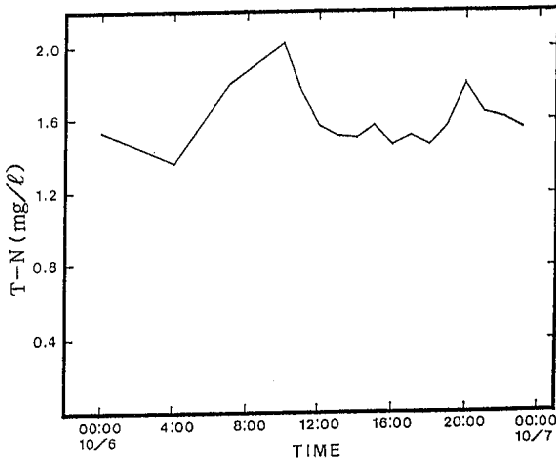


図-4 T-Nの経時変化 (Ks-2)

図-5にT-Pの経時変化を示す。前述のCODと同様な変化を示し、その最大値は、0.460mg/lであった。

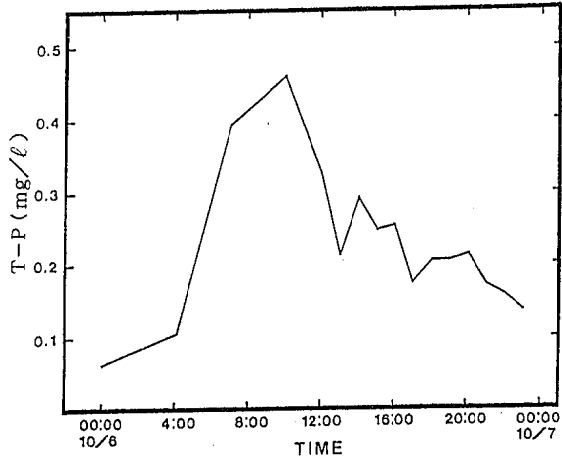


図-5 T-Pの経時変化 (Ks-2)

このグラフは、6日の正午付近からしか描かれていない。これは、当日、我々が現地に到着したのが午前11時過ぎであり、それ以前のデータがないためである。

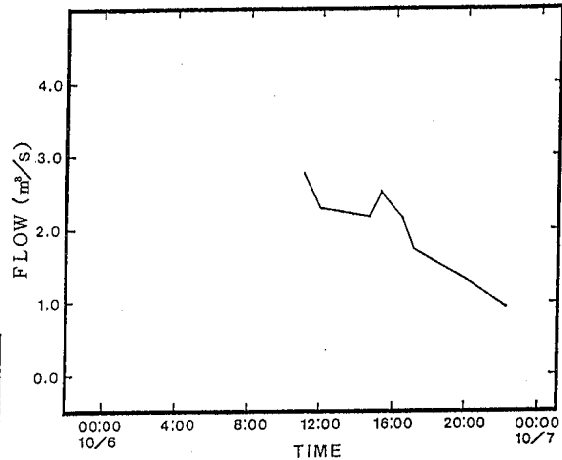


図-6 流量の経時変化 (Ks-2)

ここでは、負荷量の算出が出来ないので流量の推定を行った。今回の調査では、その推定に無機態窒素と全窒素の比を用いた。ここで無機態窒素というのは、NH₄-N、NO₂-N、NO₃-Nの和を指す。

図-7に実測流量と対応する無機態窒素と全窒素の比の値の相関図を示す。これら12個のデータを用いて流量とこの比の値の相関を求めた。これらは、相関係数rが-0.979と強い負の相関を示し、直線回帰により回帰直線を求めたところ、 $y = 4.789 - 5.191x$ という式が得られた。ここで、yは流量 (m³/s)、xは無機態窒素と全窒素の比の値を示す。この式を用いて各時間毎の流量を算出した。推定した流量の経時変化を図-8に示す。

つぎに、流量の推定値及び実測値とCOD、T-N、T-Pの各濃度から各々の負荷量を算出した。

図-6にKs-2地点の流量の経時変化を示す。こ

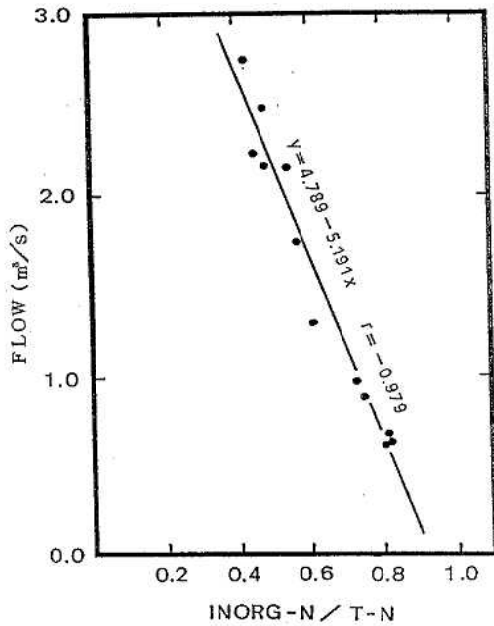


図-7 無機態窒素と全窒素の比の値と実測流量の相関

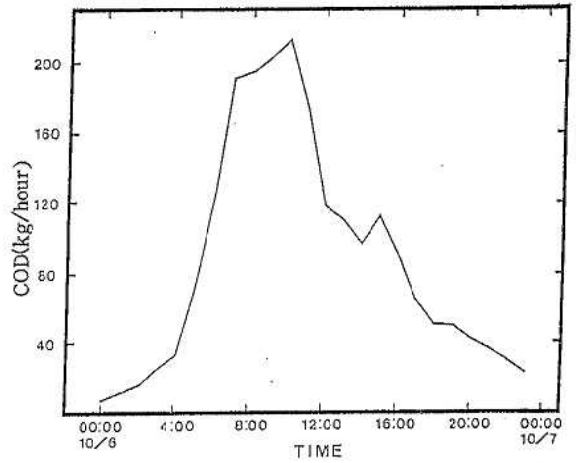


図-9 COD負荷量の経時的変化(Ks-2)

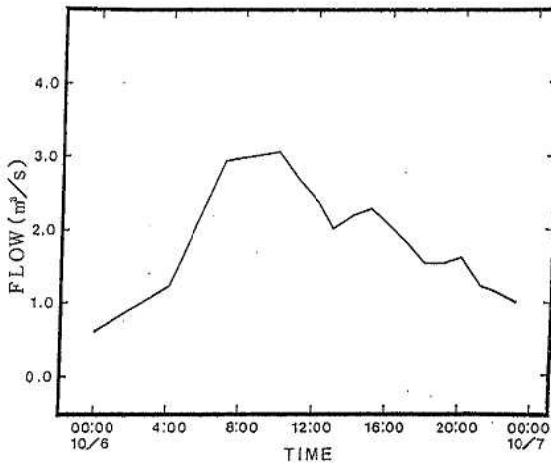


図-8 推定流量値の経時的変化(Ks-2)

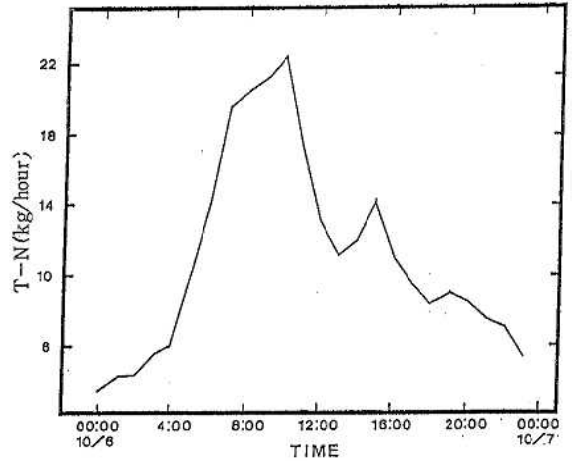


図-10 T-N負荷量の経時的変化(Ks-2)

図-9にCOD負荷量の経時的変化を示す。COD負荷量も濃度と同様に午前10時をピークとする山型のパターンを示し、その最大値は208.6kg/hourと推定された。

図-10にT-N負荷量の経時的変化を示す。T-N負荷量は、COD負荷量と同様の変化を示し、その最大値は22.18kg/hourと推定された。なお、T-N濃度で見られたような降雨初期の一時的減少傾向は、認められなかった。

図-11にT-P負荷量の経時的変化を示す。T-P負荷量もCODやT-Nの負荷量と同様な変化を示し、その最大値は5.05kg/hourと推定された。

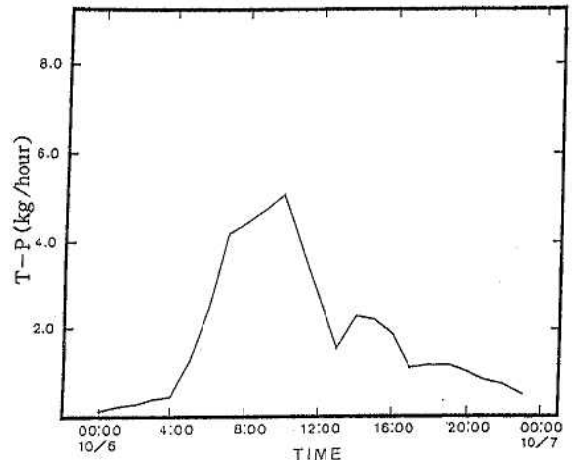


図-11 T-P負荷量の経時的変化(Ks-2)

これらの時間毎の負荷量より日負荷量を求めると、CODで2,074 kg/day、T-Nで261.2 kg/day、T-Pで44.41 kg/dayとなった。この降雨時の負荷量は、非降雨時調査より求めた日負荷量の平均値と比較すると、CODで約40倍、T-Nで約10倍、T-Pで約60倍と大きなものであった。

また、今回の調査では降雨強度が4mm/hour、かつ降水量の積算値が16.5mmの時点で見られたCOD等の大きな変化が降雨の影響によるものと考え、この条件を満たした日を降雨時とした。この降雨時に該当する日は昭和63年には26日あった。この日数と各々の日負荷量から降雨時の年負荷量を求めたところ、CODで53.9 ton/year、T-Nで6.8 ton/year、T-Pで1.2 ton/yearとなった。

これまで求めてきた負荷量等の数値は、全てKs-2地点についてのものである。これらから直接流入部全体の負荷量を計算するためには、直接流入部全体の負荷量に占めるKs-2の負荷量の割合が必要となる。この負荷割合の算出には、1回/日の頻度で行ったKs-2を除く他の8地点の調査結果を用いた。表-2に各地点の負荷量及びKs-2の負荷割合を示す。これらより直接流入部全体の負荷量を算出した。その結果を湖沼水質保全計画策定の基礎資料となった釜房ダム貯水池水質汚濁解析シミュレーションの直接流入部の洪水時流入負荷量

表-2 直接流入部(降雨時)の負荷割合

	COD (kg/日)	T-N (kg/日)	T-P (kg/日)
Ks-1	353.1	50.30	12.55
Ks-2	2,331	284.2	55.14
Ks-3	31.84	8.464	1.788
Ks-3 ¹	83.33	28.95	4.334
Ks-6	39.48	3.318	0.756
Ks-7	242.2	26.30	4.896
Ks-8	326.4	43.24	7.757
Ks-9	165.2	21.87	4.281
Ks-10	35.31	7.461	0.626
計	3,607.9	474.103	72.128

Ks-2 : 直接流入部全体 = 1 : 1.548 (COD)
 = 1 : 1.668 (T-N)
 = 1 : 1.671 (T-P)

(S61) と併せて、表-3に示す。

表-3 直接流入部(降雨時)の負荷量

	今回の調査値		水質汚濁解析シミュレーション
	Ks-2	直接流入部全体	
COD(t/年)	53.924	83.474	59.622
T-N(t/年)	6.791	11.328	13.916
T-P(t/年)	1.154	1.929	0.949

この両者の比較によりシミュレーションの値として使用された数字がほぼ妥当なものであることがわかった。

4. まとめ

湖沼水質保全特別措置法(湖沼法)に基づく指定湖沼に指定された釜房ダム湖上流部のダム湖に直接流入する農業用水路の降雨時の負荷について調査した。その結果降雨時の日負荷量は、CODで2,074 kg/day、T-Nで261.2 kg/day、T-Pで44.41 kg/dayという大きなものであることがわかった。

また、これらを用いて算出した降雨時の年負荷量の数値と、湖沼水質保全計画策定の基礎資料となった釜房ダム貯水池水質汚濁解析シミュレーションの直接流入部の洪水時流入負荷量(S61)の比較によりシミュレーションの値として使用された数字がほぼ妥当なものであることがわかった。

終わりに、調査地点の選定等に御助力いただいた仙南保健所環境公害課の皆様、厚く御礼申し上げます。

参 考 文 献

- 1) 宮城県, (株)日水コン: 釜房ダム貯水池水質汚濁解析シミュレーション報告書(昭和62年3月)
- 2) 田淵俊雄, 高村義親: 集水域からの窒素・リンの流出, 東京大学出版会, 1985

27 ダム流域の土壤特性と流入河川水質の 関係について

安齋 文雄 伊藤 孝一 伏谷 均
佐々木久雄 藤原 秀一 鈴木 弘一

県内のダムの上流河川流域の土壤中の燐の存在量、存在形態及び土壌からの燐の溶出濃度を定量し、燐の存在量、存在形態及び溶出濃度との関係、並びに、土壌の特性と河川の水質との関係について検討した。各態燐の存在量及び存在割合を指標とすると、山林の土壌と農用地との間には明確な差が認められた。また、流域の土壌中のA1型りん酸、Fe型りん酸の存在割合が高い河川ほど全燐濃度が高く有意の相関が認められた。

1. はじめに

水質の汚濁に係る環境基準では、湖沼の水質は、CODを指標として判断されている。湖沼のCODは、湖沼流域内で発生した有機性汚濁物質が河川を経由して湖内に流入することによるものと、流入する栄養塩類によって湖内の植物プランクトンの増殖により生産されるもの（内部生産によるCOD）とに分けることができる。栄養塩類のうち一般的に窒素及び燐が最も大きな制限因子であるといわれており、特に汚濁があまり進行していない湖沼においては、燐が植物プランクトン増殖の制限因子となっていると考えられている。

湖沼の富栄養化現象の主要な原因物質としての燐、窒素の物質循環及び収支を解明するために、湖沼底泥中の燐の存在形態と燐の溶出に関する研究は数多くなされている。^{1) 2)}

県内のダム湖のほとんどは山間部に位置し、その流入河川の流域は大部分山林であることから、河川を経由してダム湖に流入する燐は、河川流域の土壌中の燐に起因すると考えられるが、湖沼流域の土壌中の燐の存在形態と湖沼の富栄養化に関する研究はほとんどなされていない。

本研究は、流域の土壌中の燐の存在量、溶出濃度及び存在形態相互の関係並びにこれらと河川水質との関係について検討したものである。

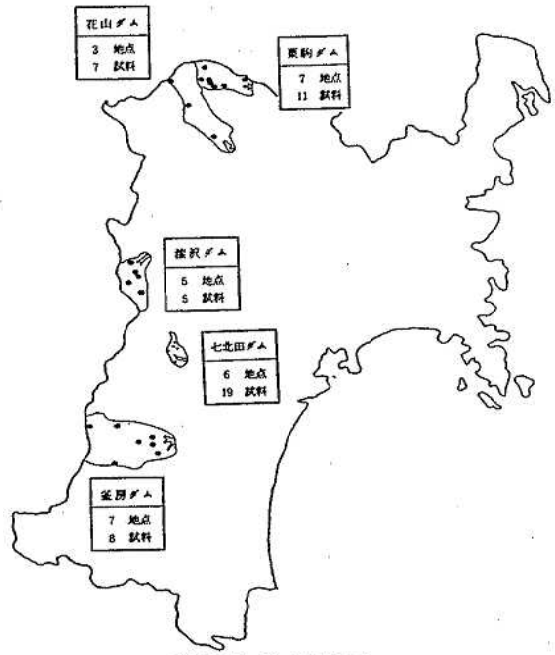
2. 方 法

2.1 試 料

流入河川及びダム湖内の水質が知られている漆沢ダム七北田ダム、花山ダム、栗駒ダム及び釜房ダムの上流域の28地点から50検体を採取し（調査地点位置図）、風乾後分析試料とした。

2.2 定 量 法

試料中の燐の存在形態を把握するため、土壌養分測定法委員会（農林水産省）の土壌養分分析法³⁾に従い、Ca型りん酸、Al型りん酸、Fe型りん酸を定量した。また試料に蒸留水を一定量加え、2時間振とうして、溶出する全燐濃度と燐酸態燐濃度を定量した。試料中の燐の存



調査地点位置図

在量は、硫酸分解により定量した（図1）。

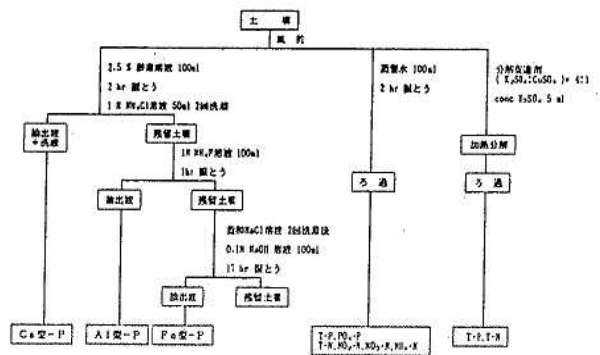


図1 定 量 法

磷の存在量に対する各態磷の割合を平均値と比較すると、(図2)山林の表層では、明らかにCa型りん酸の割合が多く、Al型りん酸、Fe型りん酸の割合は同程度である。これは、山林の下層でも同様の傾向である。これに対し、農用地では、Al型りん酸の割合が高くなっており、Ca型りん酸、Fe型りん酸の割合は同程度となっていて、山林の土壌と農用地の土壌の間には明確な差が認められた。

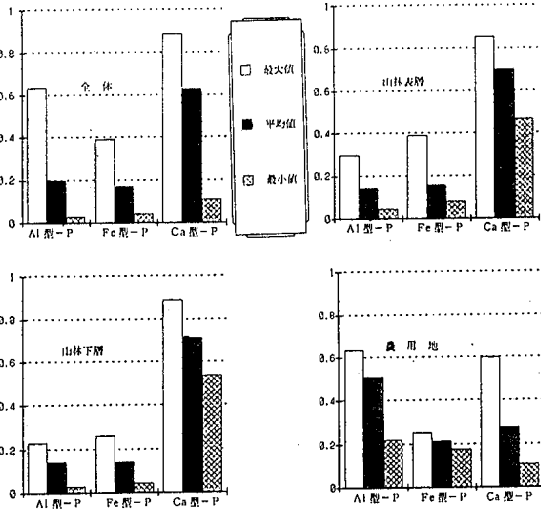


図2 各態磷の存在割合

Fe型りん酸、Al型りん酸の存在量と溶出濃度との関係を見ると(図3)、Fe型りん酸、Al型りん酸とも同様の傾向で、存在量、溶出濃度ともに小さいグループと存在量が小さく溶出濃度が大きく変動するグループ及び存在量が変動し、存在量が増大すると溶出濃度も高くなるグループの3グループに分けることができる。それぞれのグループと採取地点周辺の状況を重ね合わせると、存在量が小さく溶出濃度が大きく変動するグループに入

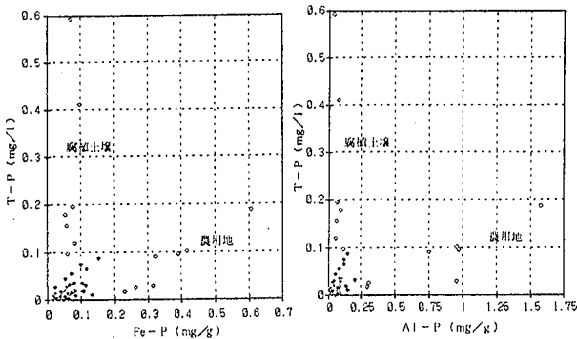


図3 Fe型-P, Al型-Pの存在量とT-P(溶出濃度)

る土壌は、山林表層の腐植に富んだ土壌であり、存在量が増大すると溶出濃度も高くなるグル

ープに入る土壌は、現在畑作が行われている土壌の表層又は過去に果樹園であった土地の表層から下層の土壌であった。存在量、溶出濃度ともに小さいグループ(図4)は山林の表層及び下層の土壌であるが、表層及び下層の土壌の間には明確な差は認められなかった。

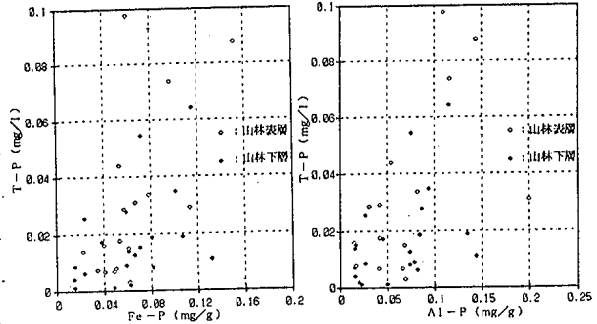


図4 Fe型-P, Al型-Pの存在量とT-P(溶出濃度)

Al型りん酸とFe型りん酸の存在量の関係を見ると(図5) Al型りん酸、Fe型りん酸共に0.2 mg/g以下のグループと0.2 mg/g以上のグループとに分けられるが、0.2 mg/g以上のグループに入る土壌は全て現在農用地であるか過去に農用地であった地点の土壌であった。

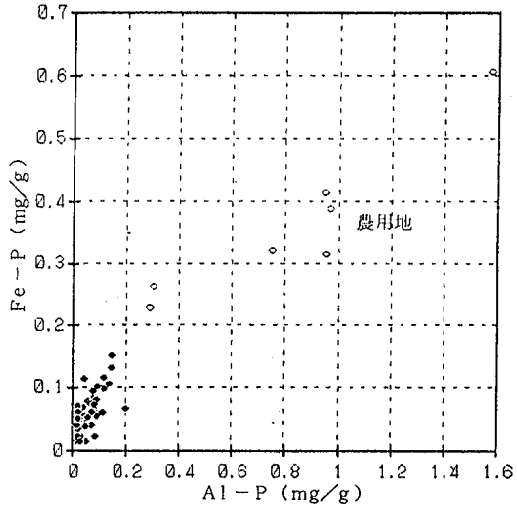


図5 Al型-PとFe型-Pの関係

Al型りん酸、Fe型りん酸共に0.2 mg/g以下のグループについてみると(図6)、このグループに入るのは山林の表層及び下層の土壌であるが、表層と下層とで明確な差は認められない。

土壌中の磷の存在量とCa型りん酸の存在割合との関係を見ると(図7) 磷の存在量が少なくCa型りん酸の存在割合が小さいグループとにわけられる。磷の存在量が少なくCa型りん酸の存在割合が多いグループに入る土壌は全て山林の土壌であり、農用地の土壌は全て磷の存在量が多くCa型りん酸の存在割合が小さいグループ

に入っている。

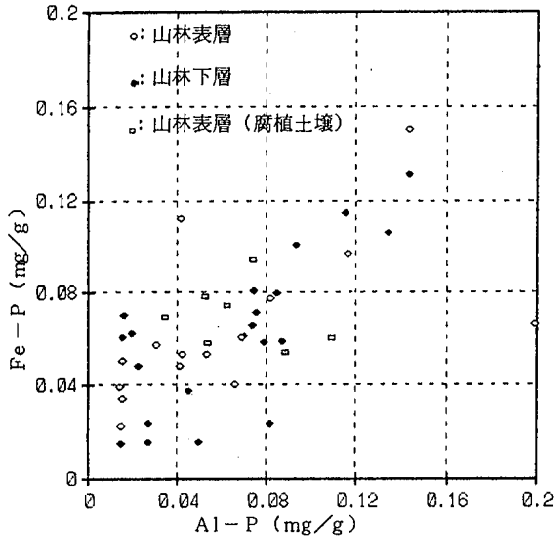


図6 Al型-PとFe型-Pの関係

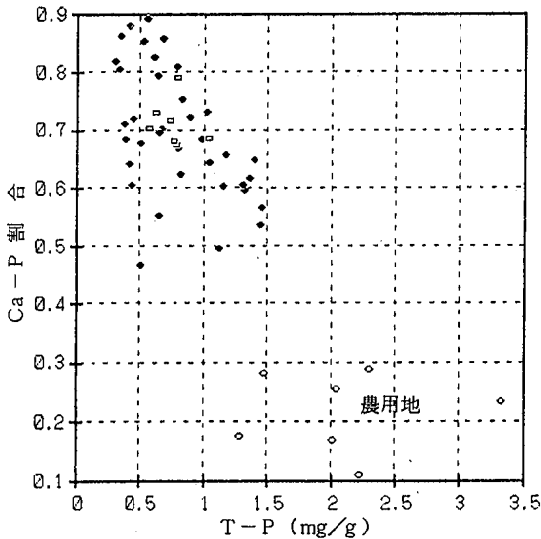


図7 Ca型-Pの割合と土壤中の磷存在量

次に、ダム湖に流入する河川の磷濃度とその河川の流域の土壤中の各態磷の存在割合の平均値との関係を見ると(図8)流域土壤中のAl型りん酸、Fe型りん酸の存在割合が高い漆沢ダム(唐府沢)、七北田ダムの流入河川の全磷濃度が高く、Al型りん酸、Fe型りん酸の存在割合が低い釜房ダム、栗駒ダムの流入河川の全磷濃度は低くなっており、各態磷の存在割合と河川の全磷濃度との間には相関があるものと考えられる。

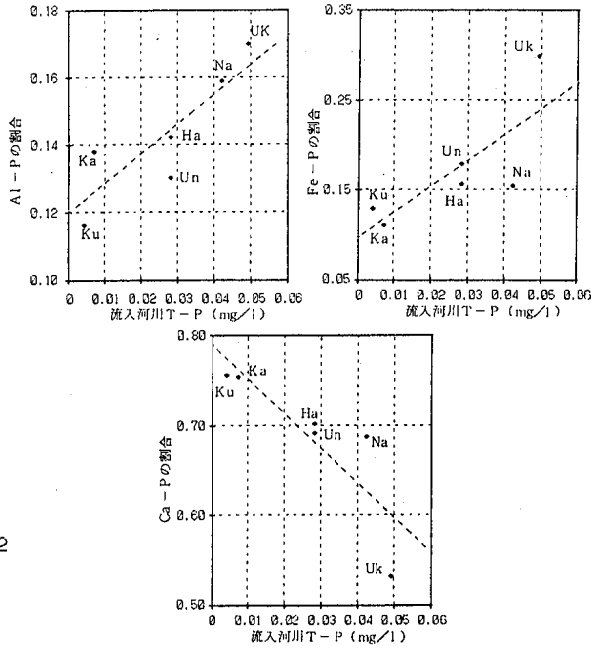


図8 流域土壤中のAl型-P、Fe型-P、Ca型-Pの存在割合と流入河川の全りん濃度

〔Ku:栗駒ダム Ka:釜房ダム Ha:花山ダム〕
〔Un:漆沢ダム(鳴瀬川) Na:七北田ダム〕
〔Uk:漆沢ダム(唐府沢)〕

流域に人為的汚濁源がほとんどないダム湖のCODとクロロフィル-aをみると(表1)、流域土壤中のAl型りん酸、Fe型りん酸の存在割合が低い栗駒ダムのCOD、クロロフィル-aとも明らかに他のダム湖と比較して低くなっており、人為的汚濁源のほとんどない湖沼の富栄養化の進行には流域の土壤中の磷の存在形態が関与していると考えられる。

表1 ダム湖のCODとクロロフィル-a

ダム湖	COD (mg/l)	クロロフィル-a (μg/l)
栗駒ダム	1.6	3.0
花山ダム	2.5	10.0
漆沢ダム	2.3	8.2
七北田ダム	2.7	9.8

昭和59年度から昭和63年度までの平均値

参 考 文 献

- 1) 細見正明・須藤隆一:水質汚濁研究, 2, No.3, P 35~40 (1979)
- 2) 大垣真一郎:国立公害研究所報告, 第22号, P 68~76 (1982)
- 3) 土壤養分測定法委員会編:土壤養分分析法, P235~238, 養賢堂(1980)
- 4) 宮城県:公共用水域水質測定結果報告書, 昭和59年度~昭和63年度