

## 10. 酸性雨自動測定結果について (第4報)

## 一降水中のpH-ECpの経時変化

百川 和子 加賀谷秀樹 宮崎栄一郎

キーワード：地域汚染, 酸性雨自動測定, pH, EC, 経時変化

国設仙台, 箆岳における降水を, 一降水中のpHの経時変化から, 6つのタイプに分類し, タイプ別に季節別の出現頻度, pH等成分濃度を比較した。

季節別には, 梅雨期には国設仙台, 箆岳の両局とも継続して低pHで推移するタイプの降水が多く, 両局で同じような変化を示した。また, 台風時, 雷雨時には両局で同じような変化を示すが, 他の季節には同じ日時の降水であっても国設仙台, 箆岳のpHの変化のタイプは異なる場合が多く, 地域差が認められた。地域差の原因としては主に都市部の粉塵等の $Ca^{2+}$ の影響によるものと思われた。

## 1. はじめに

我々は前報<sup>1), 2)</sup>で, 降水の性状は,  $H^+$ 以外のイオン成分の存在量を表す汚染度と, pHで表される酸性度で表現でき, 汚染度は汚染導電率 (以下ECp) として近似的に

$$ECp = EC - \lambda_H \cdot [H^+]$$

$\lambda_H$ :  $H^+$ の極限当量伝導率 ( $349.8 \text{ S} \cdot \text{cm}^2 / \text{e q}$ ) として, pHとECの測定値から得られることを示した。汚染度と酸性度は, pH-EC図上に表現でき, 下限曲線からの偏差は中和の度合いの指標となる。これをもとに, 今回国設仙台, 箆岳の両局で酸性雨自動採取分析装置 (以下酸性雨計) で測定した降水のうち, 5.0mm以上継続した降水について, 一降水中のpHの経時変化により分類し, 代表的な事例をECpとpHの変化から検討した。

## 2. 方法

## 2.1 調査期間

1988年4月～1992年3月の4年間

ただし, 両局とも次の期間欠測

国設仙台: 1989年 7月10日～14日  
 1991年 7月14日～8月5日  
 (局舎移転のため)

国設箆岳: 1989年 7月31日～8月24日  
 1990年 9月15日～25日  
 10月13日～19日  
 11月4日～5日  
 11月10日～19日

11月20日～26日

12月1日～4日

1991年 5月23日～27日

(測定機障害のため)

## 2.2 測定場所

前報<sup>3)</sup>と同じく, 国設仙台は仙台市街地の県庁屋上, 国設箆岳は仙台市の北東約40kmで周囲が田圃地帯の箆岳山々腹 (標高165m) に位置する測定局である。

国設仙台は県庁舎新築工事のため, 以下の期間で設置場所を変更した。なお, 移設前後の距離は当初の設置場所から西方向に約20mの範囲内である。

1988年4月～1989年7月10日 北庁舎5階屋上  
 (高度45m)

1989年7月14日～1991年7月17日 東分庁舎3階  
 屋上 (高度35m)

1991年8月5日～1992年3月 県警庁舎7階屋上  
 (高度48m)

## 2.3 測定機及び測定項目

測定機: 前報<sup>3)</sup>と同じ

自動測定: 0.5mm毎にpH, EC (導電率)

(国設箆岳では1.0mm毎に $SO_4^{2-}$ ,  $NO_3^-$ )

保存試料: 2週間毎にpH, EC,  $SO_4^{2-}$ ,  $NO_3^-$ ,  
 $Cl^-$ ,  $Ca^{2+}$ ,  $Na^+$ ,  $K^+$ ,  $Mg^{2+}$ ,  $NH_4^+$

## 2.4 pHの経時変化のパターンによる降水の分類

国設仙台, 国設箆岳における5.0mm以上の降水を0.5mm毎のpHの経時変化から渡辺ら<sup>4)</sup>の分類方法を採用し, 6タイプに分類した。

タイプ①からタイプ⑥の分類は次のとおりで, タイプ別の模式的なpHの変化パターンを図1に示した。ただし, タイプ③については, ③-a, ③-bに細分した。

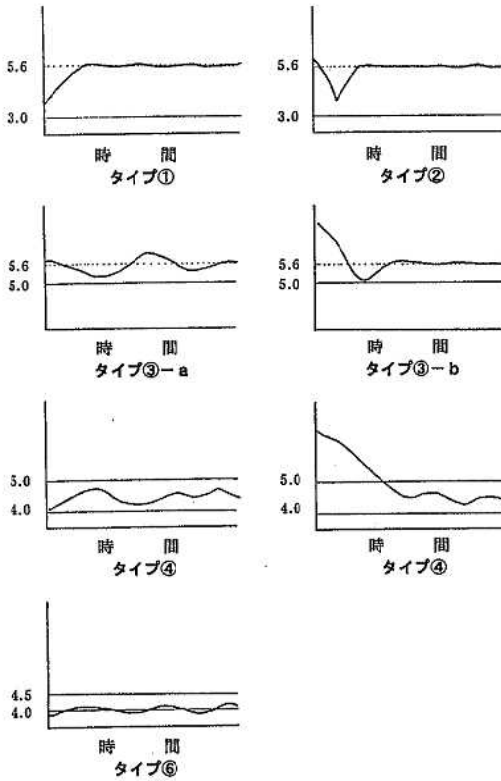


図1 pH経時変化の分類パターン

2.4.1 タイプ①  
降り始めにpHが低く、降水の継続とともにpHが5.6付近で一定となるもの。

2.4.2 タイプ②

降り始め0.5~1.0mm目よりも2.0~5.0mm目のpHの方が低く、降水の継続とともにpHが5.6付近で一定となるもの。

2.4.3 タイプ③-a

降り始めから後続降水までpHは5.0~6.0前後で変動が少ないもの。

2.4.4 タイプ③-b

降り始め0.5~1.0mm目のpHが6.0以上で降水の継続とともに一旦pH5.0付近まで低下した後pH5.6付近で一定となるもの。タイプ②に近い変化を示すが、pHが5.0以下まで低下しないもの。

2.4.4 タイプ④

降り始めから後続降水までpHがほぼ4.0~5.0と低く、降雨中も4.0~5.0の間で変動するもので、後続降水になってもタイプ①や②のようにpHは高くないもの。

2.4.5 タイプ⑤

降り始めにpHが高く後続降水で低くなるもので、初期の動きを除くとタイプ④とほぼ同じもの。

2.4.6 タイプ⑥

降り始めから後続降水までpHがほぼ一定で4.5以下と低いもの。

表1 年度別降水量（酸性雨自動採取分析装置による）

局名	年度	年間降水量 (mm)	年間 降水数	0.5mm降水毎 平均				
				pH	EC ( $\mu\text{S/cm}$ )	ECp ( $\mu\text{S/cm}$ )	$\text{SO}_4^{2-}$ ( $\mu\text{g/ml}$ )	$\text{NO}_3^-$ ( $\mu\text{g/ml}$ )
国設仙台	88	1268.5	128	4.8	17	11		
	89	1323.5	98	4.9	19	15		
	90	1344.5	105	4.9	20	16		
	91	1547.5	86	4.9	15	11		
仙台管区気 象台平年値	'51~'80	1238.1						
	'61~'90	1204.4						
国設箕岳	88	930.5	112	4.8	10	4	0.58	0.64
	89	858.5	79	4.8	10	4	0.33	0.75
	90	953.0	88	4.7	10	3	0.73	0.85
	91	1192.5	97	4.9	7	3	0.40	0.54
石巻測候所 平年値	'51~'80	1071.1						
	'61~'90	1047.6						

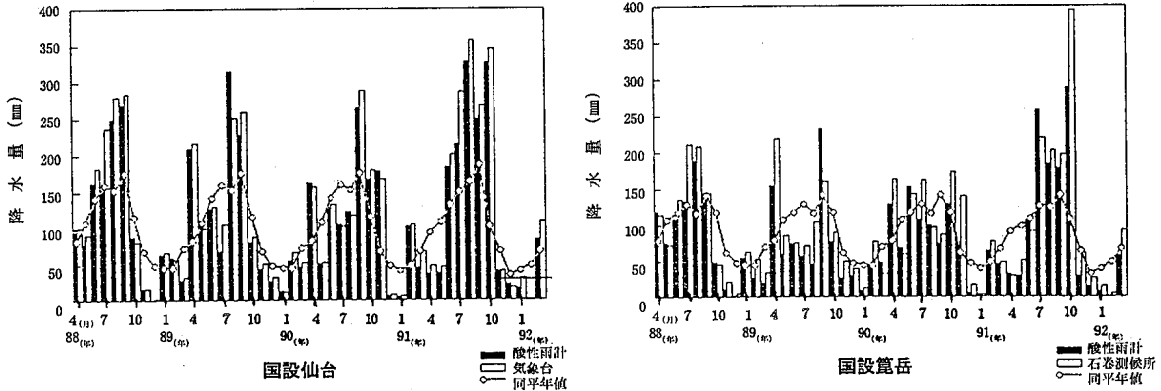


図2 月間降水量変化(88.4~92.3)

3. 結果及び考察

3.1 降水状況

調査期間中国設仙台、筧岳両局において酸性雨計で測定した年間降水状況の概略を表1に、月間降水量の変化を仙台管区气象台および石巻測候所の降水量と平年値<sup>6)</sup>の対比で図2に示した。国設仙台と仙台管区气象台とは約2.5km、また、国設筧岳と石巻測候所は約19km離れた

地点であり、酸性雨計と气象台(測候所)の降水量に若干の相違はあるが、両局とも酸性雨計と气象台(測候所)間での降水量の増減の傾向は一致していた。88年は台風の影響<sup>6)</sup>で8、9月の降水量が多く、89、90年は4月が、91年は7~10月に長雨が続き年間降水量も多かったのが特徴的である。

表2 pHの変化による降水の分類

局名	タイプ	季節 <sup>*1</sup>					一降水毎(加重平均)				
		春	夏(梅雨 <sup>*2</sup> )	秋	冬	合計	降水量(mm)	pH	ECp(μS/cm)	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> (μg/ml)	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> (μg/ml)
国設仙台	1	3	8 ( 5)	7	0	18	39.4	4.9	11		
	2	12	15 ( 5)	12	7	46	39.6	4.9	11		
	3-a	4	11 ( 3)	17	2	34	32.6	5.4	13		
	3-b	11	2 ( 2)	2	1	16	14.0	5.6	17		
	4	9	22 ( 15)	9	1	41	19.4	4.5	12		
	5	4	3 ( 3)	2	3	12	27.7	4.8	11		
	6	0	2 ( 0)	2	1	5	7.8	4.3	12		
	その他	1	0 ( 0)	1	0	2	39.3	4.8	10		
	5mm以上計	44	63 ( 33)	52	15	174	29.4	4.9	12		
	5mm未満計	59	69 ( 33)	69	46	243	1.5	4.8	31		
総計	103	132 ( 66)	121	61	417	13.2	4.9	13			
国設筧岳	1	13	14 ( 7)	14	3	44	32.1	4.9	1	0.29	0.35
	2	6	16 ( 14)	8	3	33	25.2	4.9	2	0.19	0.42
	3-a	0	9 ( 3)	12	1	22	24.4	5.2	1	0.11	0.21
	3-b	2	1 ( 1)	0	0	3	23.2	5.2	6	0.31	1.15
	4	21	14 ( 11)	8	7	50	12.3	4.5	3	1.00	1.35
	5	1	2 ( 1)	1	1	5	12.3	4.7	0	0.11	0.65
	6	2	5 ( 4)	0	0	7	11.3	4.0	8	2.65	2.73
	5mm以上計	45	61 ( 41)	43	15	164	22.0	4.8	2	0.42	0.59
	5mm未満計	45	64 ( 30)	55	42	206	1.6	4.5	11	1.69	1.93
	総計	90	125 ( 71)	98	57	370	10.6	4.8	3	0.51	0.68

\*1 春: 3~5月, 夏: 6~8月, 秋: 9~11月, 冬: 12月~2月

\*2 梅雨期: '88.6.9~7.31, '89.6.9~7.21, '90.6.15~7.20, '91.6.10.7.27

### 3.2 pHの経時変化のタイプ別分類

表2に各タイプの季節別出現頻度とそれらの一降水毎の平均濃度を示した。酸性雨計では一降水毎の成分分析は行ってないため、 $H^+$ 以外の溶存イオン総量の指標としてECpについても降水量の重みづけを行った。

調査期間中5.0mm以上であった降水は、国設仙台で417降水中174降水(42%)、国設箕岳で370降水中164降水(44%)であり、総降水量に占める割合は両局とも各々93%、92%であった。

5.0mm以上の降水と5.0mm未満の降水の平均を比較すると、国設仙台、箕岳とも5.0mm未満の降水は、pH、ECp、さらには国設箕岳の $SO_4^{2-}$ 、 $NO_3^-$ の各項目とも高く、樹葉等への影響は懸念されるが、一降水当りの平均降水量は、各々1.5、1.6mmと少ないため降下量としての寄与は低いと思われる。

各タイプ別の経時変化の代表的な事例を図3に示した。

#### 3.2.1 タイプ①

国設箕岳で44回と同局ではタイプ④に次いで出現頻度が高く、季節によらず一年中見られた。これは横浜市磯子区と同様な結果であり<sup>4)</sup>、調査期間や8mm以上の降水対象と条件は若干異なるが、横浜市のような都市部の降水と周囲が田園地帯で環境中の大気汚染物質濃度も低い国設箕岳の降水が同じようなpHの変化を示すということは興味深い。

一方、国設仙台では18回の出現で、出現頻度は中程度であった。

このタイプでは後続降水のECpは低く、汚染質が少ない清浄な降水であり、初期の段階で降り止めばpHの低い降水となるが、継続すると希釈され、一降水全量では低濃度の降水となる。

#### 3.2.2 タイプ②

国設仙台で46回と出現頻度が高く、特に冬期には、他のタイプと比較してタイプ②の出現頻度が多い。初期のpHが2~5mm目と比較して高いのがこのタイプの特徴であるが、国設箕岳と異なり、国設仙台では冬から春先にかけて、初期0.5~1.0mm目のpHが8に近い高pHの降水が出現することが多い。それらの降水を含む保存試料の成分としては $Ca^{2+}$ 濃度が特に高かった。

一方、国設箕岳においても保存試料中の $Ca^{2+}$ 濃度は冬から春にかけて高くなるが、国設仙台と比較してその濃度は低く、pH6.5以上の降水はほとんど出現しない。

タイプ①とタイプ②の初期の挙動の違いについて、渡辺らは、大気中に主に粗大粒子として存在する $Ca^{2+}$ のwash outによるものとしている<sup>4), 7)</sup>。

このような関東での冬期の $Ca^{2+}$ 濃度が高い原因について、鶴田らは、冬から春にかけては太平洋側で降水量が少なく乾燥状態が続き、季節風等の強風で粒子状物質中の $Ca^{2+}$ 濃度が上昇すること、及び岩手県三陸地方の綾里における同様の結果から、その発生源としてはセメントや道路のアスファルト舗装材、路面ペイント等だけ

ではなく黄砂等の土壌粒子の寄与も大きいと報告している<sup>8)</sup>。

#### 3.2.3 タイプ③

国設仙台ではa、bあわせて50回と最も出現頻度が高く、季節別には③-aのタイプは夏~秋に、③-bのタイプは春に出現が多かった。

国設箕岳では③-aのタイプの降水がほとんどであり、夏~秋にかけての出現が多かった。

③-aのタイプは両局とも横浜市磯子区と同様台風の影響による降水が多かった。台風による降水は、ほとんど中性であり、国設箕岳ではECpの低いものが多い。しかし台風による降水でも高ECpの降水が出現する事例があり、その場合には、これらの降水を含む保存試料の成分は $Na^+$ 、 $Cl^-$ が高く、海塩粒子の影響が見られた。国設仙台では箕岳と比較して、台風時の高ECpの出現頻度が高く、その差は国設仙台は地理的に海岸部に近いことに起因すると思われる。台風の際出現する高ECpは一降水中で継続することは少なく、降水の初期、あるいは降水強度が弱まった時に多く出現していることから(図3-1、タイプ③-a)、強風で大気中に舞い上がった粒子の取込み等wash outによるものと思われる。

また、国設箕岳では測定している $NO_3^-$ 濃度が他のタイプと比較して低いが、台風時の降水は、汚染されていない清浄な気団による降水であるためと報告されている。

一方、国設仙台で春先にみられる③-bのタイプの降水は、タイプ②と同様、初期0.5~1.0mm目に高pHが出現することが多い。

#### 3.2.4 タイプ④

国設箕岳では50回と最も出現頻度が高く、春~梅雨期の出現頻度が多い。国設仙台でも、タイプ③、②に次いで41回で、夏期、特に梅雨期が15降水と多い。pHも国設仙台、箕岳と同じく4.5と低く、国設箕岳では、タイプ⑥に次いで $SO_4^{2-}$ 、 $NO_3^-$ の濃度も高い。

タイプ④のような低pH出現のメカニズムを解明するには、汚染物質の輸送過程、雲粒、雨滴による取込機構及び反応過程等についての調査の必要性が指摘されている。これらについて、鶴田らは係留気球を用いた調査を行い、(1)地上での水溶性成分はrain outによってほぼ決定されること、(2)雲底部での雲粒と雨滴に取込まれる割合は一定ではないこと、(3)雲底部から下層の大気中のエアロゾルやガスによるwash outによってさらにpHが変動すること、(4)日射の弱い場合の支配的なNOXの酸化反応、(5)梅雨期における汚染雲は約1kmまでであることなどの知見を得ている<sup>10), 11)</sup>。

#### 3.2.5 タイプ⑤

国設仙台で冬期から春先に多く見られ、初期を除けば、タイプ④と同様であるが、初期降水の影響で、一降水全量のpHの平均は国設仙台で4.8、国設箕岳で4.7とタイプ④と比較して高くなっている。タイプ⑤の初期の挙動はタイプ②、③-bの場合と同じく大気中の $Ca^{2+}$ の

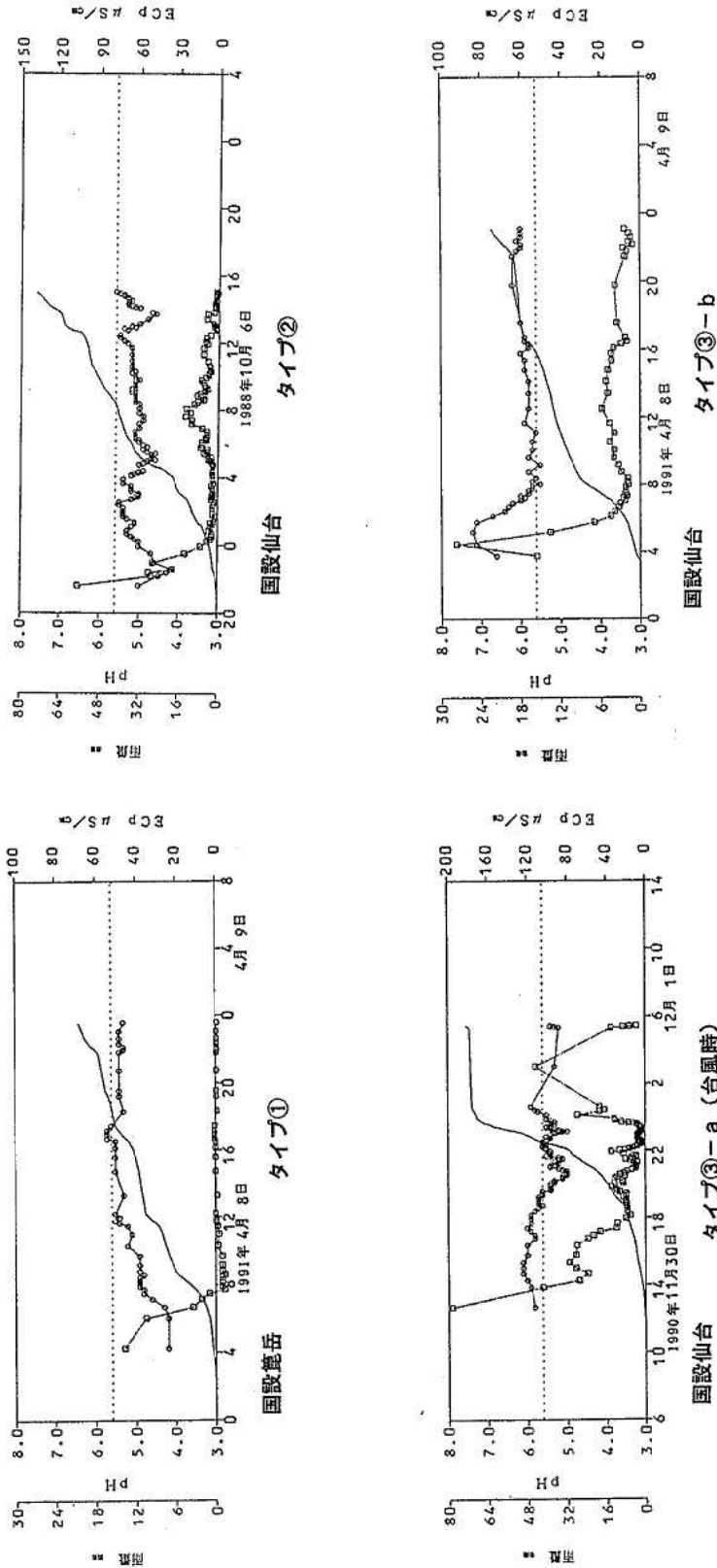


図3-1 タイプ別pH-ECPの変化事例

— 雨量 □ pH ○ ECP ... pH5.6

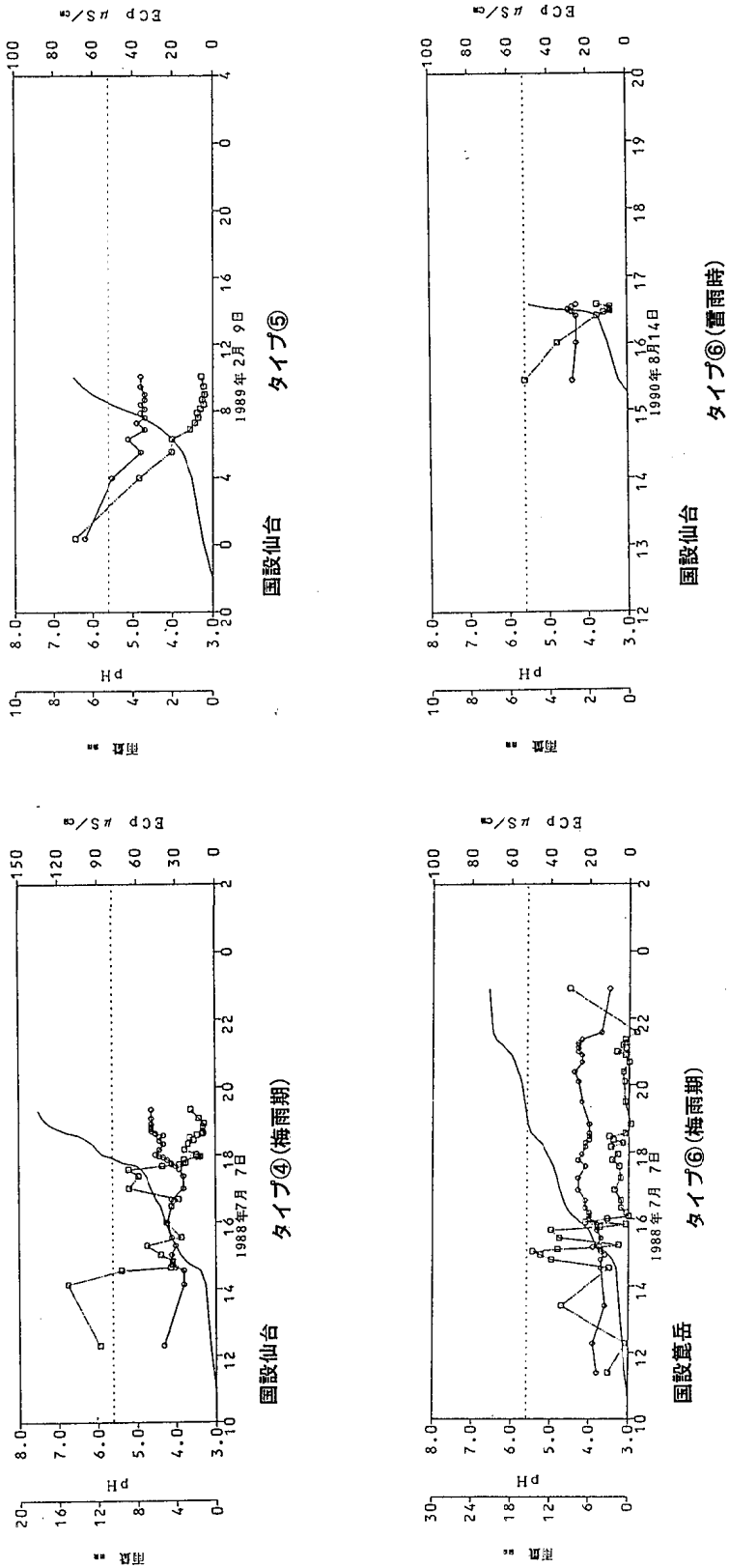


図3-2 タイプ別pH-ECpの変化事例

wash outによるものと思われる。

### 3.2.6 タイプ⑥

降り始め初期から後続降水まで pH がほぼ一定で4.5以下と低く、国設仙台では横浜市と同様、夏の雷雨時に見られた(図3. タイプ⑥)。鶴田らは雷雨時の低 pH は、激しい上昇気流により地上付近の汚染物質が積乱雲に取込まれ、雲粒中で急速に酸化反応が進行するため出現するとしている<sup>9)</sup>。

国設麓岳ではこのタイプの降水は雷雨の他雷雨時にも出現し(図3. タイプ⑥)、一降水全量の  $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$  の濃度の平均は各々、2.65、2.73  $\mu\text{g}/\text{ml}$  と6タイプの中で最も高い。特に梅雨期、霧雨のように降水強度が弱い場合、pH は4.0付近で推移し、その時には  $\text{SO}_4^{2-}$  に比較し  $\text{NO}_3^-$  濃度が高く、村野ら<sup>12)</sup> の報告と同様の傾向が認められた。

### 3.3 タイプ別降水の ECP の経時変化

数mm以上の降雨が継続する場合、ECP の変化は、国設仙台、麓岳両局ともタイプ④、⑥を除き、初期0.5~1.0mm が特に高くその後降水とともに急激に減少する変化を示す。国設麓岳では  $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$  の変化も ECP と同様初期1.0~2.0mm が特に高くその後降水とともに急激に減少する変化を示す。

タイプ④、⑥の降水は、初期0.5~1.0mm が特に高いものが多い点は他のタイプと同様であるが、後続降水になっても、ECP は極端には減少せず、pH の変動とともに増減し、その場合、国設麓岳では、 $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$  濃度も対応した変化を示す。ただし、いずれのタイプの降水も降水継続中に降水強度が弱くなると、ECP は増大し、国設麓岳では、同様に  $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$  濃度が対応した変化を示す。

降水強度は、雷雨等のにわか雨を除き、初期と終了直前は弱い場合が多いが、降水強度が弱いときには ECP は増加する傾向があり、これは、大気中の汚染物質が降水に取込まれる wash out による変化と思われる。

### 3.4 pH と EC の関係からみた降水の特徴

#### 3.4.1 地域差の事例：1991年4月8~9日の降水

1991年4月8日には本州南岸に停滞していた前線が北東進し、国設仙台、麓岳において各々22.5mm、20.5mmの降水があった。時期を同じくして降った降水であるが、この降水の pH の経時変化は、国設仙台では図3-1のタイプ③-b、国設麓岳は同図タイプ①に分類された。両局の pH-EC の関係を図4に示した。2週間毎の保存試料の成分分析の解析結果<sup>3)</sup> から、ECP は  $\text{H}^+$  以外のイオン成分が示す導電率で、同じ pH でも EC が大きい場合は ECP が大きく、 $\text{H}^+$  の以外のイオン成分を多量に含んでいることを表している。

ECP = 0 の曲線は  $\text{H}^+$  のみが示す EC (極限当量伝導率曲線) であり、 $\text{SO}_4^{2-}$  を例にとり、 $\text{SO}_4^{2-}$  が  $\text{H}^+$  と100% (中和曲線： $\alpha = 1$ ) バランスしている場合から右側いく程  $\text{SO}_4^{2-}$  が  $\text{H}^+$  以外の陽イオンにより中和されていることを示す。

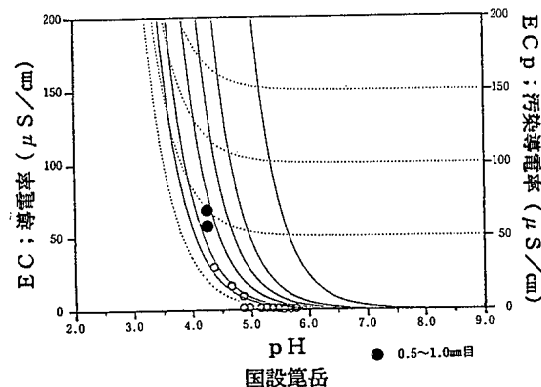
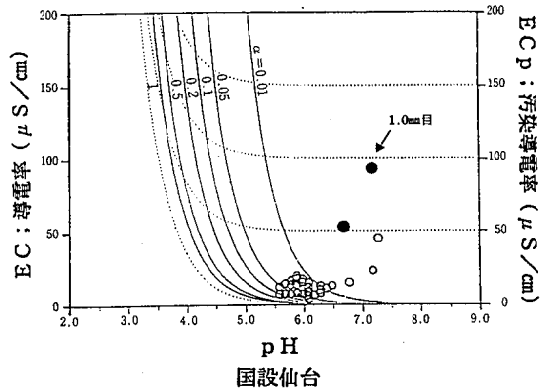


図4 pH-EC 相関図 (1991年4月8~9日)

\*  $\alpha$  ;  $\text{SO}_4^{2-}$  の  $\text{H}^+$  とのバランス (当量比)

図4からわかるように国設仙台と麓岳で明らかに散布が異なる。つまり、国設仙台では初期1.0~2.0mm目の pH が7.1~7.2と高く、3.0mm目以降でも  $\text{Ca}^{2+}$  等の陽イオンにより pH は高くなっている。

また、ECP も初期1.0mm目 (←印) が最高92と高く、 $\text{H}^+$  以外の中和成分が存在しなければ、おおよそ pH 3~4 付近まで低下させるだけの  $\text{SO}_4^{2-}$  等の陰イオンの存在が推定される。

一方、国設麓岳では初期0.5~1.0mm目 (●印) の pH は4.2と低いが、中和曲線  $\alpha$  は0.2~0.5の範囲にあり、麓岳においても初期0.5~1.0mm目は80~50%程度は  $\text{H}^+$  以外の  $\text{Ca}^{2+}$  等の陽イオンによって中和されている。このように pH-EC 図からも国設仙台における汚染度が麓岳と比べ高いことがわかる。

国設仙台、麓岳では同時刻の降水量でも地域差が認められ、そのタイプは国設麓岳ではタイプ①または④に分類されるのに対して、国設仙台はタイプ②、③-b、⑤に分類される場合が多い。タイプ②、③-b、⑤の特徴である初期の pH の挙動はいずれも wash out による大気中の  $\text{Ca}^{2+}$  等の汚染物質の取込みによるもので、都市部

の大気汚染が地域差に影響を与えているものと思われる。

3.4.2 広域性の事例：1988年7月7～8日の降水

1988年7月7日には東西にのびる梅雨前線を低気圧が通過し、東北地方全域で雨が降り、国設仙台、箆岳では各々18.0mm、21.5mmの降水があった。この時の最低pHは両局とも3.8、3.5と低く、降水中継続してpHが低かった。pH等の経時変化は図3-2に示したが、国設仙台はタイプ④に、国設箆岳はタイプ⑥に分類された。また、図5にpH-ECの関係を示したが、国設仙台、箆岳の両局とも同様の分布であった。国設仙台では0.5～1.0mm目を除き、 $\alpha$ が0.5の中和曲線の付近で変化しており、 $SO_4^{2-}$ と $H^+$ の存在比はほぼ一定で変化していることがわかる。

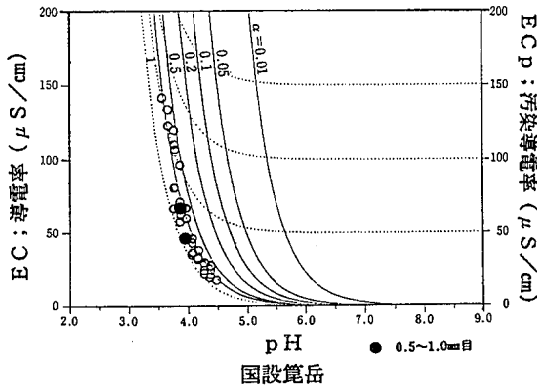
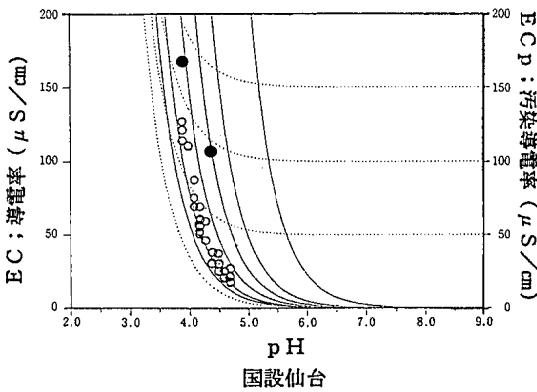


図5 pH-EC相関図(1988年7月7～8日：梅雨期)  
\*  $\alpha$  ;  $SO_4^{2-}$ の $H^+$ とのバランス(当量比)

梅雨期には低pHの降水の出現率が高く、東北、北海道においても共同で梅雨期の調査が実施されている。1988年の調査結果<sup>13)</sup>から7月7日～9日の東北各地の降水の一降水毎のpHの範囲を図6に示した。各地ともpH3から4程度が観測され、この時の降水の低pHの出現は広域的であった。

このように国設仙台、箆岳の両局とも梅雨期にはタイプ④あるいは⑥と共通の変化を示すことが多いが、梅雨期以外にも台風時にはタイプ⑤-a、また雷雨時にはタイプ⑥と両局で同様の変化を示すことが多い。

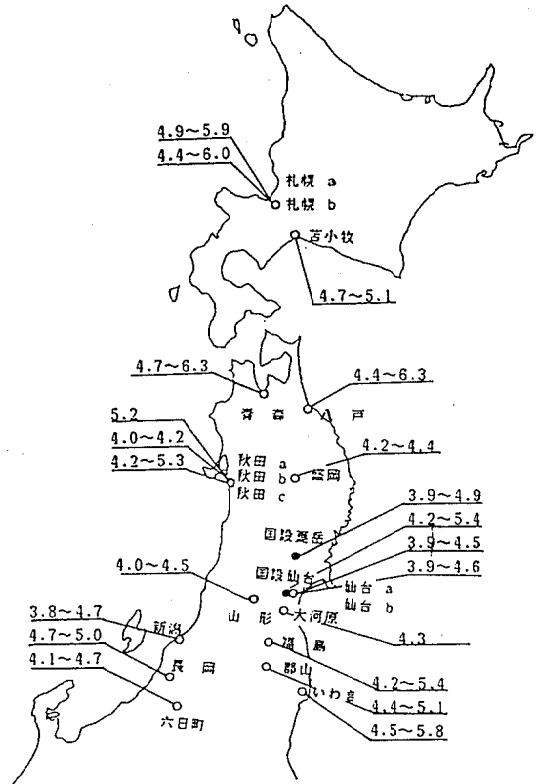


図6 北海道・東北ブロック合同酸性雨測定調査結果  
1988年7月7～9日

(一降水全量のpHの最低～最高)

\* 国設仙台、箆岳は自動測定の一降水毎平均値の範囲

4. まとめ

国設仙台、箆岳局で酸性雨計で測定した降水をpHの経時変化から渡辺らの採用した6タイプに分類し、それらのタイプ別に代表的な降水の事例を検討した結果は、次のとおりであった。

- (1) 国設仙台、箆岳における降水のpHの変化はほぼ6タイプに分類できた。
- (2) 国設箆岳ではpHが低く、降水の継続中pHが4～5の間で変動するタイプ④が最も多く、季節にかかわらず一年中見られた。
- (3) 国設仙台では、初期から降り終わりまでpH5.0以上の降水のタイプ③が多く、タイプ③はさらに、夏から秋の台風による降水(タイプ③-a)と冬から春にか



けて初期のpHが特に高い降水(タイプ③-b)の2つのタイプに分類された。

(4) pHが低く、降水の継続中pH4~5の間で変動するタイプ④は国設仙台でも梅雨期に多く、梅雨期には両局とも同様な変化を示すことが多い。

(5) 梅雨期の他、国設仙台、釜岳の両局で同様な変化を示す降水は、台風、雷雨による降水で、台風時にはタイプ③-a、雷雨時にはタイプ⑥の変化を示すことが多い。

(6) タイプ①とタイプ②、タイプ③-aとタイプ③-b、タイプ④とタイプ⑤はそれぞれ初期のpHが高く、初期の挙動は異なるが後続降水になると同一の変化を示す。初期降水の挙動の違いは、主に粒子状物質中の $Ca^{2+}$ のwash outによるもので、特に国設仙台で冬から春先にかけて $Ca^{2+}$ の影響が顕著であり、都市部での粉塵等の大気汚染物質が地域差に寄与していると考えられた。

自動測定による酸性雨の測定は、手分析と比較して精度に多少の問題はあるが<sup>1)</sup>、一降水中のpH、ECの0.5mm毎の詳細な変化パターンを知ることが可能であり、酸性雨の解析にとって有効であると思われる。

## 5. おわりに

今回の検討に際して、雨量、気象等のデータをはじめ、種々の御助言、御指導を頂きました仙台管区気象台の東予報官ならびに佐藤予報官に深謝します。

## 参 考 文 献

- 1) 百川和子, 小島秀行, 仁平明, 氏家愛子, 斎藤達夫: 宮城県保健環境センター年報, 9, 81~86 (1990)
- 2) 仁平明, 百川和子, 小島秀行, 氏家愛子, 斎藤達夫: 宮城県保健環境センター年報, 9, 87~92 (1990)
- 3) 百川和子, 小島秀行, 仁平明, 斎藤達夫: 宮城県保健環境センター年報, 8, 102~108 (1990)
- 4) 渡辺善徳, 矢本てるみ, 草野一, 鶴田治雄: 横浜市公害研究所報, 15, 27~36 (1991)
- 5) 日本気象協会東北本部: 宮城県気象月報, 昭和63年4月~平成3年3月
- 6) 仙台管区気象台編: 「降水をもたらしたじょう乱の分類ならびに大雨資料」, 昭和63年~平成3年(1988~1991)
- 7) 渡辺善徳, 草野一: 横浜市公害研究所報, 13, 19~26 (1989)
- 8) 鶴田治雄, 草野一, 渡辺善徳: 横浜市公害研究所報, 9, 59~71 (1984)
- 9) 鶴田治雄, 渡辺善徳, 矢本てるみ, 草野一: 第32回大気汚染学会講演要旨集, p. 392 (1991)
- 10) 鶴田治雄, 草野一, 渡辺善徳, 太田正雄, 平野耕一郎: 横浜市公害研究所報, 12, 37~55 (1988)
- 11) 鶴田治雄, 草野一, 渡辺善徳, 太田正雄, 平野耕一郎: 横浜市公害研究所報, 14, 27~35 (1990)
- 12) 村野健太郎: 公害と対策, 27, 229~234 (1991)
- 13) 東北・北海道ブロック酸性雨共同調査結果報告書(昭和63年度梅雨期)

## 11. 宮城県におけるメタン濃度の変動について

加賀谷秀樹 百川 和子  
高橋 誠幸 宮崎栄一郎

キーワード：メタン，高濃度事例，箱ひげ図

地球の温暖化に寄与する物質として二酸化炭素が問題となっているが、メタンも温室効果ガスの一つとして、近年、その挙動について関心もたれている。今回、大気常時監視局における県内のメタン濃度のデータ解析を行ったところ、全局の年平均値で1.75ppmCから1.82ppmCに上昇していた。増加量は0.01ppmC/年で年率0.6%であった。また、多賀城Ⅱ及び塩釜における静穏時の高濃度については、かなり大きな発生源の存在が示唆された。

### 1. はじめに

メタンは無色の可燃性の気体で空気に対し比重が0.56と軽く、メタン細菌の嫌気性発酵により生成するといわれている。このことから、メタン発生源は、清水<sup>1)</sup>によれば、農業・畜産によるものが67%であり（内訳水田40%、家畜27%）、つづいて廃棄物の処理によるものが25%である（うち埋立22%）。また、メタンのバックグラウンド濃度と増加率は、廣田<sup>2)</sup>によれば、1990年現在1.72ppmCで0.9%である。鶴田<sup>3)</sup>は、国内の大気環境常時測定網のデータ解析を行い、その結果として1987年度の年平均値は、1.82ppmCで増加率は0.6%前後を得ている。

一方、宮城県においては、光化学スモッグの原因物質の一つとして非メタン炭化水素に着目しており、メタンについてはあまり注目していなかった。しかし、今後の地球温暖化対策を考えていく上では、二酸化炭素の約21倍の温暖化ポテンシャルを持つといわれるメタンについても発生源の把握や挙動などの基礎的検討が必要と思われる。

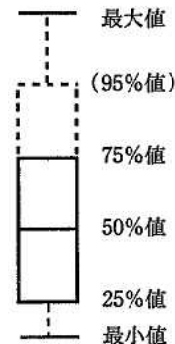
そこで本稿では、大気中メタンの局別特性と一部高濃度事例について検討したものである。

### 2. データ解析方法

宮城県内の大気常時監視局におけるメタン濃度測定地点は、図1に示すとおり7カ所である。測定地点のうち五橋は自動車排出ガス測定局、国設篤岳は環境大気測定局といわれ、いわゆるバックグラウンド測定局であり、残りの5局は大気汚染測定局に該当する。データ解析の方法としては、経年変化、主成分分析、箱ひげ図による季節変化等のデータ解析を行った。ここで箱ひげ図とは、探索的データ解析手法の一つで、順序統計量（最小値、25%値、50%値、75%値、最大値等）を用いて、データの分布及び位置を直感的に分かりやすく示す手法である。今回は、参考図に示すように95%値も用い、高濃度データ値の分布状況も分かるようにした。なお、経年変化を除いて使用したデータは平成2年度の測定結果である。



図1 メタン濃度測定地点



参考図 箱ひげ図について

### 3. 結果及び考察

#### 3.1 経年変化

メタン濃度を長期間測定している国設仙台、多賀城Ⅱ、塩釜、松島、国設寛岳の5局における昭和59年度から平成2年度までの7年間の年平均値の推移を表1及び図2に示す。表1に示すように全5局の平均値では、1.75ppmCから1.82ppmCへと増加しており、増加率は0.6%であった。この結果は前述の鶴田の報告例と同じであった。

表1 メタン濃度の年平均値の経年変化  
単位：ppmC

局名 年度	国設寛岳	塩釜	多賀城2	国設仙台	松島	全局
S59	1.73	1.77	1.78	1.73	1.75	1.75
S60	1.78	1.79	1.81	1.76	1.77	1.78
S61	1.72	1.8	1.81	1.78	1.74	1.77
S62	1.8	1.83	1.83	1.78	1.8	1.81
S63	1.78	1.82	1.83	1.78	1.81	1.8
H 1	1.78	1.87	1.85	1.81	1.81	1.82
H 2	1.8	1.86	1.87	1.81	1.78	1.82

—因子負荷量のプロット—

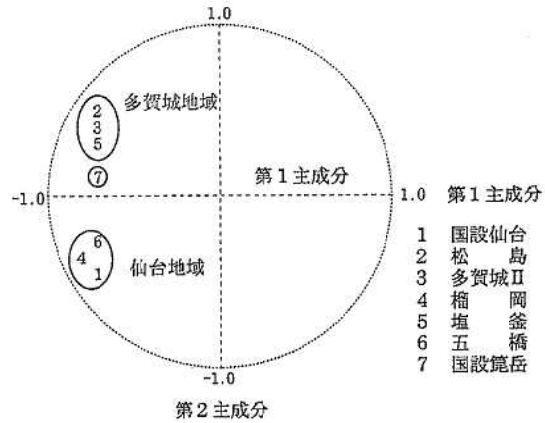


図3 因子負荷量によるグルーピング結果

#### 3.2 主成分分析

1時間値を基に主成分分析を行ったところ2つの主成分が検出され、その累積寄与率は58%であった。因子負荷量をプロットしたところ、図3に示すように仙台地域（国設仙台、榴岡、五橋）と多賀城地域（多賀城Ⅱ、塩釜、松島）と国設寛岳の3地域にグルーピング出来た。

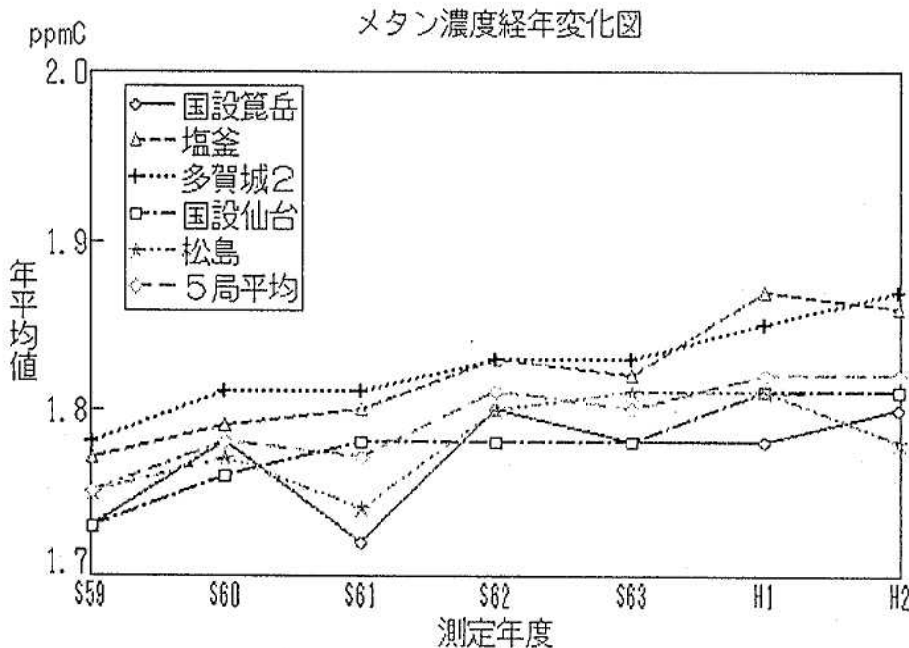
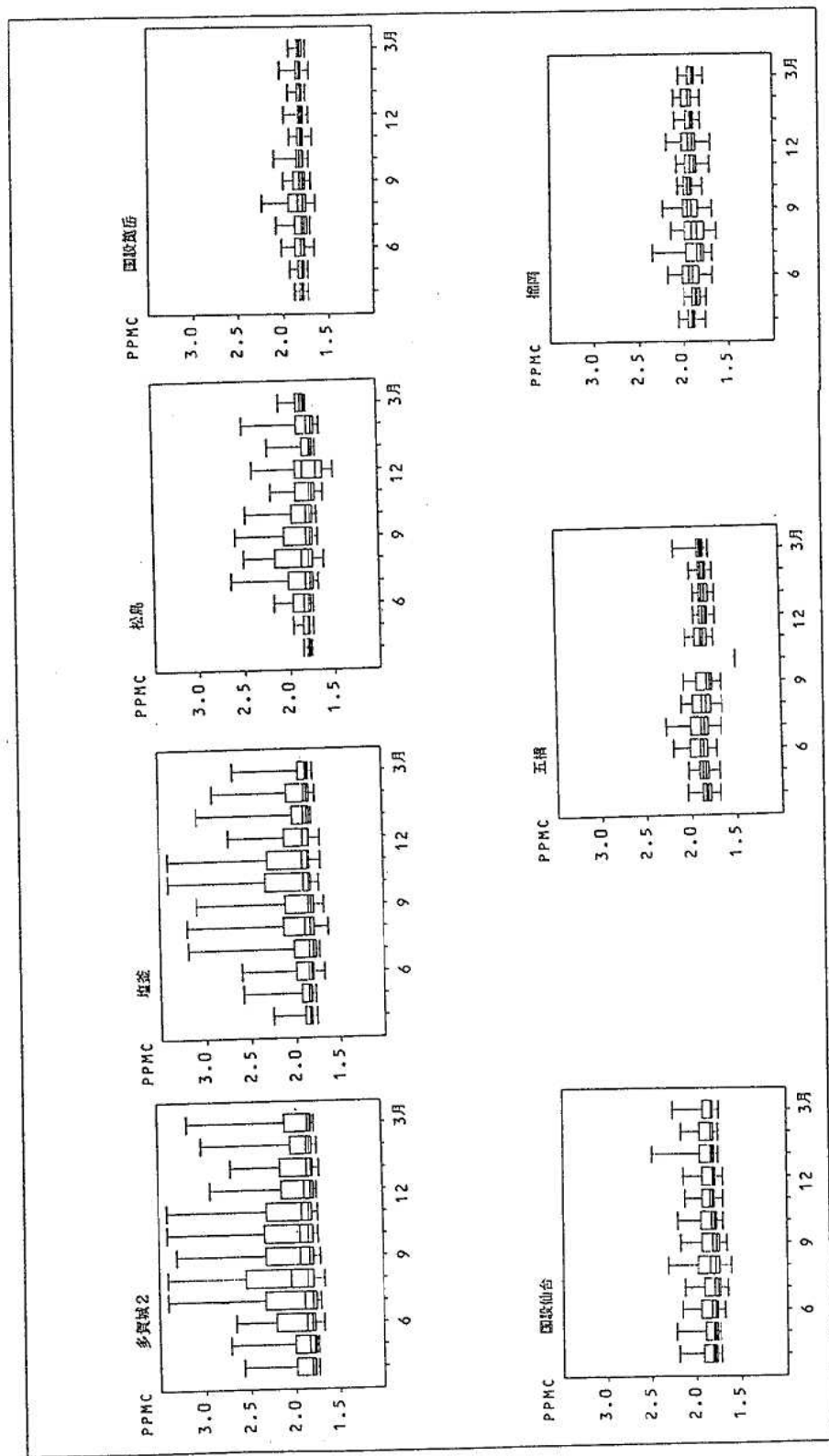


図2 メタン濃度経年変化図

図4 箱ひげ図による経月変化

宮城県メタン炭化水素データ（経月グラフ）

西暦1990年度  
測定項目：メタン



3.3 箱ひげ図

各局別月毎の順序統計量により箱ひげ図(前ページ図4)を用い、季節変化の検討を行った。図4をみると、各局とも「箱」の幅は狭く、メタンの濃度変動は小さいことがわかる。多賀城II、塩釜においては、7月から11月に「ひげ」の部分である最大値が3.0ppmCを超える高濃度時があり、95%値のレベルも高濃度であった。松島は上述2局ほどではないがパターンは似ていた。都市部の国設仙台、五橋、榴岡では明瞭な季節変化は認められなかった。田園山麓部に存在する国設篤岳は、暖候期に比較的小さな変動がみられる。これらのパターンの相違は発生源の存在形態の違いに由来しているものと推定される。

3.4 気象要素別平均濃度

上述の主成分分析及び箱ひげ図により、多賀城II、塩釜において高濃度となる条件を風向別及び風速別平均濃度により検討した。比較のために国設篤岳のデータも表示した。その結果は、図5~6、表2~3に示す。風向別平均濃度をみると、国設篤岳は東南東から南にかけて

の風向の時、比較的低い値を示すが強い風向依存性はなかった。多賀城II及び塩釜は、両局とも静穏時(CLM)に最も濃度が高く、次に多賀城IIでは北西、塩釜では西南西の風向で濃度が高くなっていた。

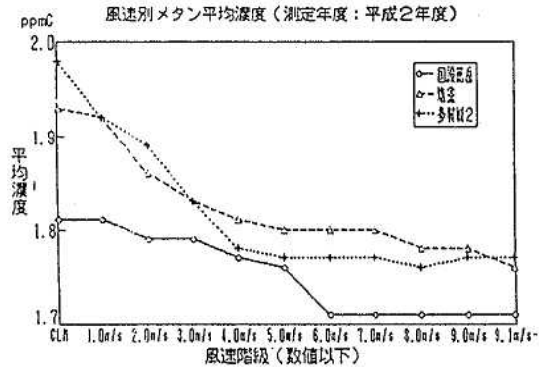


図5 風速別平均濃度

表2 風速別平均濃度

単位: ppmC

階級	局名	国設篤岳	塩釜	多賀城II
CLM		1.81	1.93	1.98
1.0m/s		1.81	1.92	1.92
2.0m/s		1.79	1.86	1.89
3.0m/s		1.79	1.83	1.83
4.0m/s		1.77	1.81	1.78
5.0m/s		1.76	1.80	1.77
6.0m/s		1.71	1.80	1.77
7.0m/s		1.71	1.80	1.77
8.0m/s		1.71	1.78	1.76
9.0m/s		1.71	1.78	1.77
9.1m/s		1.71	1.76	1.77

表3 風向別平均濃度

単位: ppmC

風向	局名	国設篤岳	塩釜	多賀城II
CLM		1.81	1.93	1.98
NNW		1.81	1.87	1.92
N		1.81	1.86	1.88
NNE		1.79	1.86	1.84
NE		1.79	1.87	1.83
ENE		1.79	1.85	1.82
E		1.79	1.82	1.80
ESE		1.78	1.81	1.80
SE		1.78	1.81	1.80
SSE		1.78	1.82	1.80
S		1.78	1.82	1.83
SSW		1.79	1.88	1.84
SW		1.81	1.89	1.85
WSW		1.79	1.92	1.85
W		1.79	1.90	1.83
WNW		1.81	1.88	1.90
NW		1.81	1.87	1.92

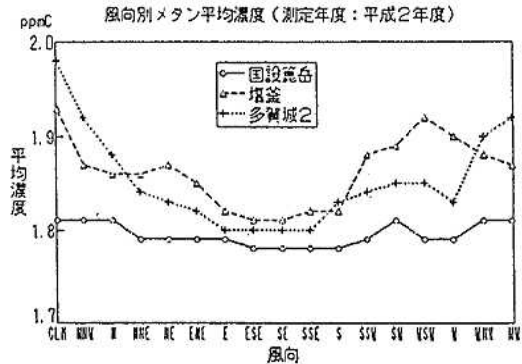


図6 風向別平均濃度

一方、風速別平均濃度をみると、全体的に風が強くなると濃度が低くなり、国設篤岳では6m/s以上になると1.71ppmCとなることから、メタンのバックグラウンドレベルは1.71ppmC程度と推定される。この結果は、廣田<sup>3)</sup>の結果と一致する。また、風速4m/s以内でメタン濃度が高いのは、地域内からのメタンの補給がなされていることを示している。

3.5 高濃度事例

平成2年度に多賀城IIにおいて高濃度となった代表的な事例は、4月13日、5月10日、7月5日、8月20日、11月2日、12月31日、1月13日、3月6日であった。これらの日は、北西の弱風で逆転層が形成されているときに濃度が上昇していた。

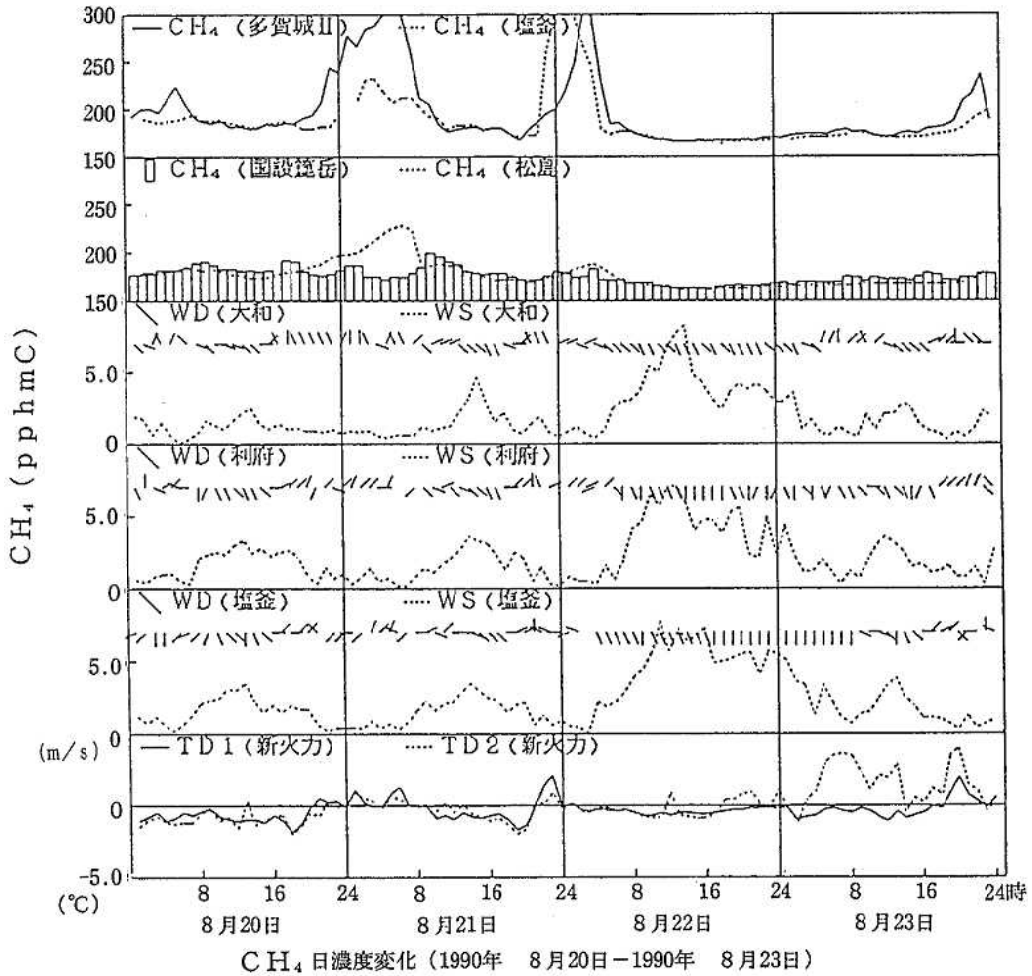


図7 高濃度事例 (平成3年8月20日)

8月20日の事例を図7に示す。図7の上2段がメタン濃度の変動、中3段が北から大和局、利府局、塩釜局の風向・風速、下段が地表との温度差で、東北電力新仙台火力発電所の煙突上45m、100mの高さに設置した温度計から求めたものである。

8月20日の16時頃から風向が南方向から北方向へ変化し、風速も弱くなり、さらに新火力の温度差もプラスになるにつれメタン濃度が著しく上昇している。翌21日に再び南方向の風になるにつれ濃度が減少しているが、深夜から北方向の風向きに変わるにつれ再び高濃度となった。

#### 4. まとめと考察

- (1) 宮城県内のメタン濃度は、毎年0.01ppmC増加しており、その割合は0.6%であった。この結果は、他の報告例とほぼ同じであった。
- (2) 県内7カ所の常時監視局のデータを主成分分析、箱

ひげ図により解析したところ、仙台地域と多賀城地域と国設筧岳の3つに分類できた。

- (3) メタンのバックグラウンドレベルは、国設筧岳のデータから、1.71ppmCと推定された。
- (4) 多賀城II、塩釜の高濃度現象は、静穏時でかつ特定の風向の際に著しく上昇している。メタンの発生源は、水田、廃棄物処理場などといわれているが、濃度上昇地域の広域性、季節変化などから測定局付傍の発生源ではないと考えている。今後は流線解析を行うなど発生源の同定に努めたい。

#### 参考文献

- 1) 清水浩：地球を救うエコ・ビジネス100のチャンス、につかん書房 (1991)
- 2) 廣田道夫：温室効果気体の観測 ぶんせき 1 (1991)
- 3) 鶴田治雄：大気汚染学会講演論文集 (1989)

## 12. 簡易偏光装置によるアスベスト計数について

佐藤 博明 庄司 幸雄 鈴木 壽雄  
 齋藤 善則 宮崎栄一郎

キーワード：大気，粉じん，アスベスト，顕微鏡

位相差顕微鏡によるアスベスト粒子の計数に簡易偏光装置を装着することにより計数作業時における偏光観察が可能となった。また，計数時における個人差の検証を行って位相差，生物及び偏光視野における計数判断力の安定性についての検証を行った。さらに，実試料におけるアスベスト以外の粒子の混入について計数をおこなった。

### 1. はじめに

環境中のアスベスト濃度の測定には光学顕微鏡による計数法が用いられている。この測定法は特に高価な装置類を必要とせず，手軽に実施できるという点で優れた方法であるが，その反面アスベスト粒子の判別にはかなりの経験が必要とされるため，測定結果には個人差による影響が大きく反映されるものと考えられる。

特に生物顕微鏡視野における粒子の判定基準が個人の主観に左右される度合いが高いことと，この測定方法がアスベスト粒子を直接判別するのではなく，位相差顕微鏡と生物顕微鏡による計測数差からアスベスト濃度を間接的に求めていることから，計測者が結果について確信を抱きにくいという点も個人差を大きくする要因の一つとなっている。

アスベストそのものは鉱物であり，鉱物粒子の判定には通常偏光顕微鏡が非常に有効であるが，顕微鏡の構造上から，粒子数の計数に適さないとされていたが，今回の調査においてアスベスト測定用の位相差顕微鏡に簡易偏光装置を装着する機会を得たので，計数時における偏光装置の有効性について検討を加えて見た。

### 2. 調査方法

#### 2.1 個人差の調査方法

##### 2.1.1 試料について

アスベストモニタリングマニュアル（昭和62年5月環境庁大気保全局編）に従い実際の環境中でサンプリングしたものを試料として使用した。なお，顕微鏡の標本はアセトン・トリアセチン法を用いて作成している。

##### 2.1.2 測定装置について

今回の調査において使用した顕微鏡は位相差顕微鏡であるが，鏡筒取り付け部にアナライザーを，ポラライザーをベース部へ挿入することによって簡易的に偏光観察を行える様にしたものである。また，偏光装置を使用して，対象となる粒子の干渉色および消光現象を確認するためにはステージが回転できるものが必要であり，さらに計数を効率に行うためには十字動装置も不可欠なため，ステージは回転ステージと十字動装置を組み合わせたものを使用した。

顕微鏡の概要については表1に示す通りである。

表1 顕微鏡の概要

本体	オリンパス BHS-PC-B 位相差顕微鏡
接眼レンズ	WHK 10X
対物レンズ	PCSP1an 40×PL
簡易偏光フィルター	BH-POL
ステージ	BH2-SRG 回転ステージ
十字動装置	AH-FMP

表2 アスベストの種類

名称	化学構造式	鉱物名	
蛇紋石族 Chrysotile (温石綿)	$Mg_3Si_2O_5(OH)_4$	Chrysotile	
角閃石族	Crocidolite (青石綿)	$Na_2(Fe^{2+}Mg)_7Fe^{2+}O_{22}(OH)_2$	リーベック閃石
	Amosite	$(Fe^{2+}Mg)_7Si_8O_{22}(OH)_2$	カミントン閃石 ～グリュネル閃石
	Tremolite	$Ca_2Mg_5Si_8O_{22}(OH)_2$	透角閃石
	Actinolite	$Ca_2(Mg, Fe^{2+})_5Si_8O_{22}(OH)_2$	陽起石
Anthophyllite	$(Mg, Fe^{2+})_7Si_8O_{22}(OH)_2$	直閃石	

注)分類はNIOSH-OSHA Asbestos Work Groupによる分類に従った。

表3 アスベストの光学的性質

項目	種類	クリソチル	クロシドライト	アモサイト	トロンビイト	アクチノライト	アンソフィライト
結晶系		単斜晶系	単斜晶系	単斜晶系	単斜晶系	単斜晶系	斜方晶系
色(薄片)		無色 ～淡緑色	多色性 濃青 ～黄緑色	無色 ～淡緑色	無色	淡緑色	無色～淡褐 ～淡黄 ～淡緑色
屈折率	α	1.493 ～1.546	1.645 ～1.701	1.635 ～1.685	1.599 ～1.620	1.620 ～1.660	1.596 ～1.694
	β	1.504 ～1.550	1.662 ～1.711	1.644 ～1.675	1.612 ～1.632	1.632 ～1.670	1.605 ～1.710
	γ	1.517 ～1.557	1.668 ～1.717	1.655 ～1.698	1.627 ～1.645	1.645 ～1.677	1.615 ～1.722
複屈折		0.011 ～0.014	0.006 ～0.016	0.020 ～0.030	0.020 ～0.027	0.017 ～0.027	0.013 ～0.028
消光角			3'～21'	15'～21'	10'～21'	16'～21'	直消光
干渉色		二次		二次	二次	二次	二次



2.1.3 アスベストの光学的性質について

アスベストという言葉は表2に示す次の5種類の鉱物の繊維状の集合体を指すと定義されており、これらの鉱物の光学的性質については表3に示した。

2.1.4 測定者(パネル)について

測定は5名のパネルを選定して行った。いずれも40~50年代の男性であり、そのうちアスベスト計数の経験者は1名で経験年数2年である。その他のパネルはいずれも経験は無く、直前に計数方法等を説明して測定を行った。

2.1.5 測定方法について

サンプル数は6種類で、採取した試料より無作為で抽出したものを使用したが、顕微鏡の視野を固定して、5人のパネルに順次同一視野内の粒子の計数を行わせた。計数に際しては、長さが5μm以上、幅が3μm未満であり、かつ長さとの幅の比が3:1以上の粒子のみを計数対象として選定させている。

視野は位相差視野、生物視野、偏光視野の順に切り替え、各視野にスケッチをしながら計数を行わせた。生物視野における『みえにくいもの』の判断はパネルに任せられた。偏光視野においてはステージを回転させながら、消光する粒子のみを計数させた。

計数作業は一日内で行っている。

2.2 実際の計測時における偏光装置の有効性調査

アスベストモニタリングマニュアルの地域区分に従って、表4に示す通り、バックグラウンド地域及び発生源周辺で19試料を採取し、それらについて位相差視野、生物視野及び偏光視野毎に50視野の計数を実施した。

計数者は一人である。

表4 アスベスト測定地域

地 域	地 域 区 分
バックグラウンド(1)	内陸山間地域
	離島地域
バックグラウンド(2)	住宅地域
	商工業地域
	農業地域
発生源周辺(1)	廃棄物処分場等周辺
発生源周辺(2)	幹線道路沿線

3. 結果及び考察

3.1 偏光装置の効用について

今回使用した偏光装置は、上方ニコルが鏡筒内に組み込まれてしまうため、構造上単ニコル(上方ニコルを除いた状態)での観察は不可能であり、直交ニコルによる観察のみを行った。

直交ニコルでは、粒子の干渉色と消光位の観察を行った。薄片での観察と違って、粒子をそのままの形で固定しているために粒子の厚さが一様ではないが、表3のアスベストの光学的性質のとおりアスベスト類の複屈折率はかなり小さいため大半の場合干渉色は灰白色~灰青色であった。また、各アスベスト類の標準品を作成して観察した結果では、干渉色に違いは認められなかった。

さらに、消光位の観察においては、粒子の計数を行うことが主目的であるために視野をずらすことが出来ず、回転のみが可能であることから、消光の有無のみの観察に留まった。計数作業は視野内を適当な目印で区分けし、区域を順次小刻みに回転することにより消光の有無を確認することが出来た。

偏光顕微鏡で観察できる繊維状の複屈折体はアスベスト類以外にも木綿等の繊維類が数多く存在するが、生物の組織構造が確認できるものや、ナイロンのような人造繊維類の様にその形状が不自然に整い過ぎているものについては計数対象から除外することは容易であった。

以上のことから、アスベスト製品製造事業所のように対象となるアスベストの種類が判明する場合には、標準のプレパレートを作成して偏光視野下での干渉色や消光位が分かることから計数が楽なものとなることが期待される。

これに反して、発生源が特定できない幹線道路やバックグラウンドにおける試料については、判別の基準が求められないが、現行の位相差と生物視野での計数差からアスベスト濃度を求める方法に比べて、アスベスト以外の粒子が混入する確立を低下させることは可能であると思われる。

3.2 個人差について

表5は5人のパネルによる計数結果である。いずれのサンプルをとってもバラツキはかなり大きなものとなっている。

位相差視野の場合、視野背景から粒子類が浮かび上が

表5 パネル計測値のバラツキ

サンプル名	顕微鏡視野毎の計数結果											
	位 相 差			生 物			(位相差-生物)			偏 光		
	範 囲	平均値	標準偏差	範 囲	平均値	標準偏差	範 囲	平均値	標準偏差	範 囲	平均値	標準偏差
サンプ* #1	16~44	26.8	9.7	2~6	3.6	2.0	14~42	23.2	9.8	9~32	18.0	7.7
サンプ* #2	6~10	7.6	1.5	0	0.0	0.0	6~10	7.6	1.5	0~5	3.4	1.9
サンプ* #3	3~6	4.2	1.0	0~1	0.8	0.4	2~6	3.4	1.4	2~4	3.0	0.6
サンプ* #4	3~8	6.2	2.2	0~4	2.2	1.3	1~6	4.0	1.7	1~7	4.2	2.0
サンプ* #5	9~33	17.6	8.8	0~3	2.0	1.1	6~33	15.6	9.7	1~12	6.4	4.2
サンプ* #6	1~11	7.0	3.6	1	1.0	0.0	4~10	6.0	3.6	2~5	2.8	1.2



って見えるため計数が最も容易であるが、それでもサンプルによっては倍以上の違いが生じているのが確認された。

生物視野では、位相差視野にくらべ計数対象粒子数が極端に減少するが、判定基準に個人差が出やすいためかなり大きな粒子についてもパネルによっては見落としていたケースが見られた。

偏光視野での計数結果は、計数作業がやや複雑であるものの位相差視野と代わらない程度のバラツキとなった。

表6は、各サンプルの平均値を真値と仮定した場合の、各パネルの計数値と平均値との相関を示すものである。

位相差視野においては、パネル4を除いて相関関係が高いことから、位相差視野下においては、各パネルとも

表6 平均計数値とパネル計数値との相関

パネル名	警 備 供 視 野 種 類			
	位 相 差	生 物	差	偏 光
パネル1	0.979	0.728	0.964	0.996
パネル2	0.904	0.797	0.879	0.953
パネル3	0.958	0.965	0.951	0.825
パネル4	0.616	0.736	0.587	0.970
パネル5	0.966	0.750	0.926	0.952

注：「差」は位相差と生物の計数差をしめす。

計数判断力は安定したものとなっていることが推定される。

生物視野下では相関は各パネルとも低いものとなっていることから、計数判断力は不安定で、判定に際してや戸惑う部分があることを示すものと思われる。

偏光視野下においては全員のパネルが高い相関を示したことから、計数判断力は最も安定したものとなっており、判定に際して個人的には問題となる点が少ないものと考えられる。

図1は表6における平均値とパネル個人値との関係を回帰式で示したもので、各パネルの計数判断力を示すものである。これによるとパネル1は計数の経験者であるが、他の無経験のパネルに比べて位相差視野下においては判断力が突出しており、また無経験のパネル間で判断力にあまり大きな差異が無いのが分かる。生物視野下では経験者と無経験者の違いは見られず、判断力に大きな差異が生じている。偏光視野下では経験者と無経験者との違いは大きく、さらに無経験者間で判断力に差が生じているのが分かる。これらの事から、位相差視野は最も計数しやすく、そのため無経験者でもあまり間違えることなくほどほどには計数行うことが出来ること、さらに経験を積むほど計数判断力も向上する可能性があることが推定される。生物視野は経験の有無に関係なく各パネルがそれぞれの別個の判断基準を有して計数を行っており、三つの視野のうち最も作業が難しいものとなっている。偏光視野では、各パネルが異なる判断基準を有しており、経験によって判断力の向上は可能であるが、その場合も個人差の解消の可能性は低いことが推定される。

### 3.3 実際の計数における偏光装置の有効性について

試行回数が非常に多いけれどもまれにしか起きないという事象にたいしては、確率式のうちのポアソン分布式が最も良くあてはまるが、顕微鏡による計数作業についてもこのポアソン分布式で説明出来るとされている。ポアソン分布式では平均値 (m値) と分布値が等しくなるため、この (m値) がわかれば確立分布式は決定されることとなる。アスベスト計数の観測回数 (視野数) は50回とされていることから、一視野当たりの平均繊維数を (m値) とすると図2に示す通りのポアソン分布

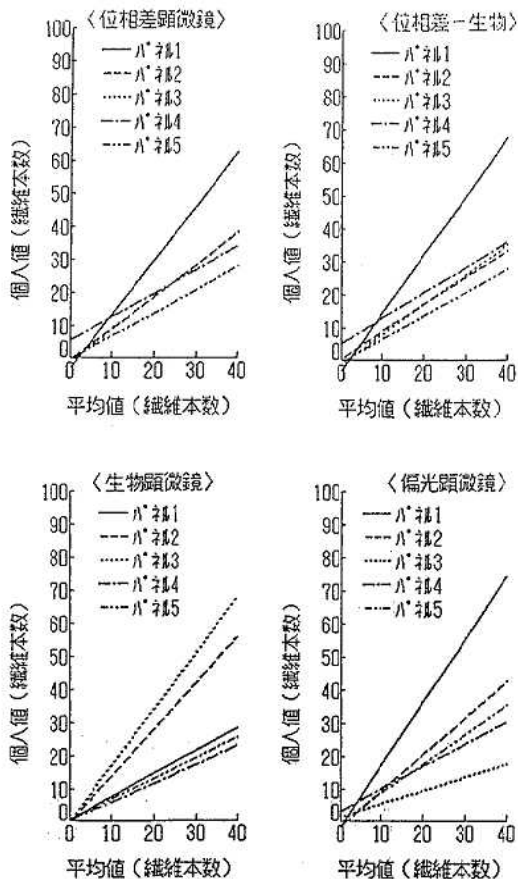


図1 平均値とパネル個人値との比較

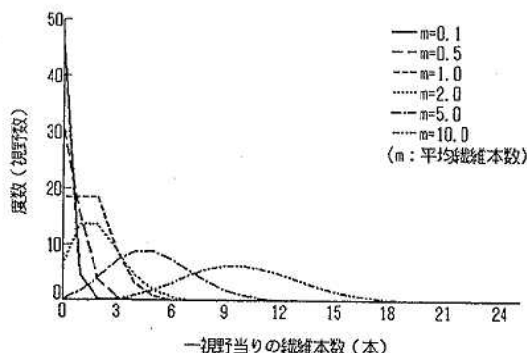


図2 ポアソン分布式による視野数分布

式が求められる。

アスベストモニタリングマニュアルの地域区分に従って採取した試料の計数結果にポアソン分布を当て嵌めてみると位相差、生物、偏光視野とも比較的良く適合しているのが判明した。図3に位相差視野のうちの代表的なものを(m値)別に示した。

この場合、(m値)が1以下の場合は非常に良く適合しており、1以上の場合にやや適合性が悪くなることから、

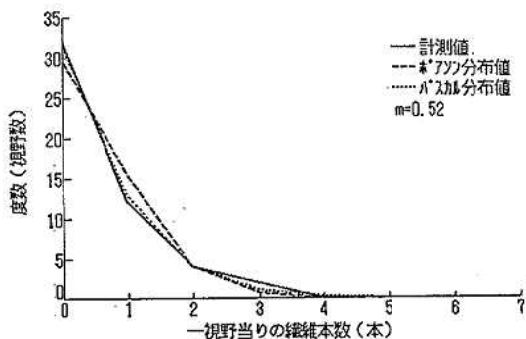


図3-1 ポアソン、パスカ分布による視野数分布比較(位相差)(内陸山間地域)

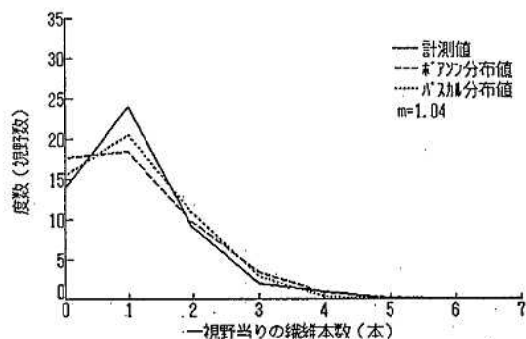


図3-2 ポアソン、パスカ分布による視野数分布比較(位相差)(廃棄物処理場敷地境界)

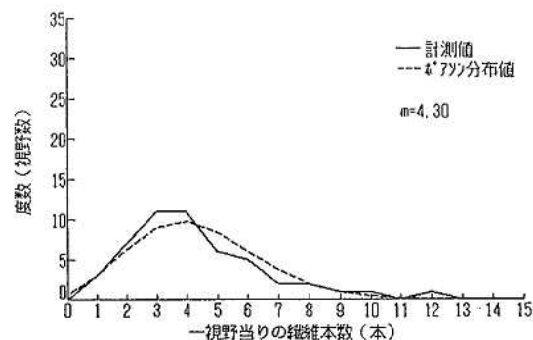


図3-3 ポアソン、パスカ分布による視野数分布比較(位相差)(農業地域)

( $m = 1$ ) を境として  $m > 1$  では「めったにありえない事象」と言う仮説が成り立たない可能性もあるが、視野数が少ないと言う統計上の問題もあり、今後の検討課題になるものと思われる。

生物視野の場合は大半が  $m < 1$  であり適合性はきわめて良好であった。

偏光視野の場合は位相差とほぼ同様の結果となった。

また、ポアソン分布式では計数者の計数判断力が常に(m値)を維持していると仮定した上で成り立つ公式であるが、逆に、判断力が不安定な場合はパスカル分布式(合成ポアソン式)の方が適合が良いとされている。

(m値)が小さい場合は分布範囲が極めて狭くなってしまいうために両者の差異は比較出来ないが、図3の例に示すように、大半の試料において、各視野ともパスカル分布式のほうが若干適合性が良い程度であり、ほとんど差異は見られなかった。従って、位相差視野及び偏光視野においては、計数判断力の安定性については問題が無いようである。

図4は各試料毎の計数繊維総数を視野の種類別に示したものである。

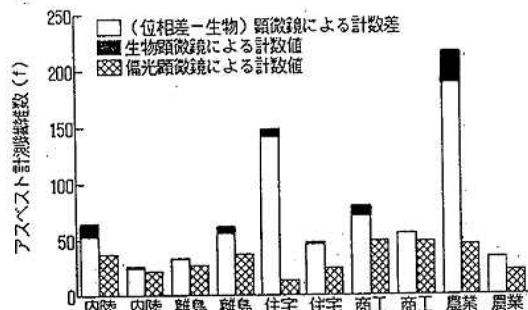


図4-1 各地域毎の計数結果(バックグラウンド)

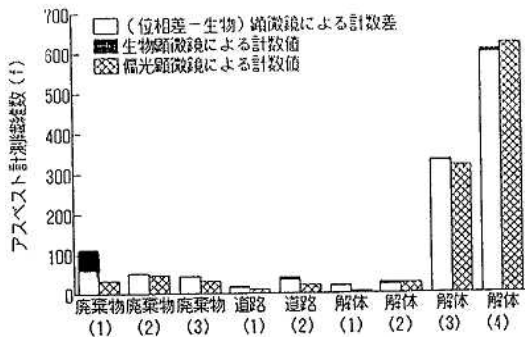


図4-2 偏光顕微鏡による計数結果(発生源周辺)

大多数の試料において、(位相差-生物)視野での計数値に比べ偏光視野での計数値が少ないものとなっているが、これは(位相差-生物)視野において計数したもののうち偏光特性がなくアスベスト粒子ではないものが

含まれていることを示している。

バックグラウンド地域の場合、位相差視野において繊維総数が100本を越えることは通常あまりないものの、住宅地域(1)及び農業地域(1)においてかなり高い値を示した。これを偏光視野で計数した結果、計数した粒子の大半が偏光特性がなく、アスベスト粒子ではないと判定された。

発生源周辺の場合、ビル解体時におけるものに極めて高い値が出ているが、この場合は計数粒子のほとんどすべてのものが偏光性を有していることが判明した。

#### 4. まとめ

(1) 簡易偏光装置の装着により、位相差顕微鏡でも計数作業と同時に偏光特性（干渉色及び消光）の観察が可能となった。

(2) 位相差視野及び偏光視野においては粒子の計数判断力は安定しているものの、生物視野ではやや不安定である。

(3) 位相差視野は最も計数がやりやすく経験の有無の影響も大きい、個人差は少ない。生物視野では、経験の有無に関係無く計測は難しいものとなっている。偏光

視野は経験の有無の影響が見られるが、個人差の解消は難しいことが判明した。

(4) 計数結果にはポアソン分布式が良く適合することが判明した。

(5) 簡易偏光装置の使用によってもアスベストそのものを計数することは出来ないが、位相差視野での計数に含まれている混入粒子の排除は可能であり、精度を向上することは可能である。

#### 参考文献

- 1) 田中克己：顕微鏡の使い方，裳華房
- 2) 黒田吉益他：偏光顕微鏡と岩石鉱物，共立出版
- 3) 石村貞夫：統計解析のはなし，東京図書
- 4) 益富壽之助：原色岩石図鑑，保育社
- 5) 環境庁大気保全局：石綿・ゼオライトのすべて，(財)日本環境衛生センター
- 6) 環境庁大気保全局：アスベスト排出抑制マニュアル，(株)ぎょうせい
- 7) (社)日本石綿協会：石綿粉じん濃度測定要領
- 8) 仲座政宏他：環境測定技術者のための石綿および代替繊維写真集，リコーテクノリサーチ

## 13. 低級脂肪酸等悪臭物質の実態調査について

榎野 光永\* 佐々木俊行\*\*  
新垣 康秀 宮崎栄一郎

キーワード：悪臭，低級脂肪酸，臭気測定

### 1. 目的

悪臭防止法施行令の一部が平成元年9月27日付けで改正され、低級脂肪酸4物質（プロピオン酸，ノルマル酪酸，ノルマル吉草酸，イソ吉草酸）が悪臭物質に追加指定された。この改正に伴い、本県における悪臭物質の追加指定及び指定地域の見直しの資料とするため、2カ年計画で、県内の畜産事業場，魚腸骨処理場等の低級脂肪酸の主要発生源事業場の敷地境界及び換気口等の悪臭物質濃度，臭気強度等の測定を行った。

表1 低級脂肪酸等悪臭物質実態調査測定施設数

業種	H2年度	H3年度	計	
畜産事業場	養牛	6	3	9(17)
	養豚	7	2	9(18)
	養鶏	2	3	5(10)
肥料製造業(強制発酵施設)	3	-	3(7)	
排水処理場	1	3	4(8)	
と畜場	-	1	1(2)	
食品製造業	-	4	4(8)	
飼料肥料製造業(化製場)	4	8	12(22)	
合計	23	24	47(92)	

注) ( )内は、測定検体数

### 2. 調査期間 平成2年5月から平成3年11月

### 3. 測定対象事業場及び測定地点

測定対象事業場及び施設数は表1のとおりである。

測定地点は、化製場では脱臭炉等排出口及び敷地境界とし、化製場以外は換気口（窓，建屋開放部等を含む）及び敷地境界とした。

### 4. 試料採取方法及び測定方法等

#### 4.1 臭気強度

試料は201試料採取用袋（ポリエステル製）に近江オドエアーサーブス(株)製のフレックスポンプAC型を用いておよそ5分間で約201採取した。

採取した試料は遮光して持帰り、翌日又は翌々日に「三点比較式臭気採点法（宮城県悪臭公害防止対策要綱（昭和53年4月1日））」（以下「要綱」という。）によりパネルテストを実施し、臭気強度をもとめた。

#### 4.2 臭気指数

試料の採取は臭気強度と同様に行い、翌日に、宮城県公害防止条例に定める「五点比較式臭袋法（宮城県告示第1364号（昭和58年12月23日））」による官能試験を行い、臭気指数を求めた。

#### 4.3 悪臭物質

アンモニア（NH<sub>3</sub>），トリメチルアミン（TMA），プロピオン酸（Prop.），ノルマル酪酸（n-But.），ノルマル吉草酸（n-Val.），イソ吉草酸（i-Val.）の試料の捕集及び測定は「悪臭物質の測定の方法（環境庁告示第9号（昭和47年5月30日））」により行った。

硫黄化合物の硫化水素（H<sub>2</sub>S），メチルメルカプタン（MM），硫化メチル（DMS），二硫化メチル（DMD S）については、試料は、201の試料採取用袋（ポリフッ化ビニルフィルム製）近似オドエアーサーブス(株)製のフレックスポンプAC型を用いて5分間で約201採取した。採取した試料は遮光して持帰り、「悪臭物質の測定の方法（同上）」により行った。

### 5. 測定結果及び考察

測定結果は悪臭物質については、物質濃度を臭気強度に換算し（表2参照）その臭気強度が2.5を超過するか否かで評価した。

表2 悪臭物質濃度と臭気強度の関係

物質名/臭気強度	1	2	2.5	3	3.5	4	5
アンモニア	0.1	0.6	1	2	5	10	40
トリメチルアミン	0.0001	0.001	0.005	0.02	0.07	0.2	3
プロピオン酸	0.002	0.01	0.03	0.07	0.2	0.4	2
ノルマル酪酸	0.00007	0.0004	0.001	0.002	0.006	0.02	0.09
ノルマル吉草酸	0.0001	0.0005	0.0009	0.002	0.004	0.008	0.04
イソ吉草酸	0.00005	0.0004	0.001	0.004	0.01	0.03	0.3
硫化水素	0.0005	0.006	0.02	0.06	0.2	0.7	8
メチルメルカプタン	0.0001	0.0007	0.002	0.004	0.01	0.03	0.2
硫化メチル	0.0001	0.002	0.01	0.05	0.2	0.8	2
二硫化メチル	0.0003	0.003	0.009	0.03	0.1	0.3	3

(単位：ppm)

\* 現宮城県原子力センター

\*\* 現宮城県下水道課

それらの結果は図のとおりである（飼料肥料製造業の排出口は除く）。

換気口：図1, 2, 3  
敷地境界：図4, 5, 6

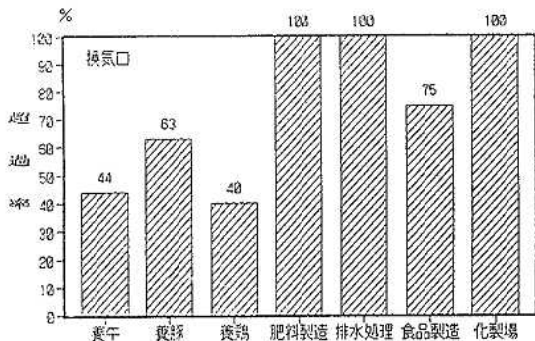


図1 各業種で臭気強度2.5を超える割合

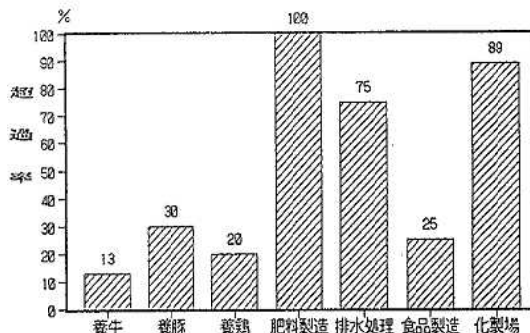


図4 敷地境界の臭気強度2.5を超過する割合

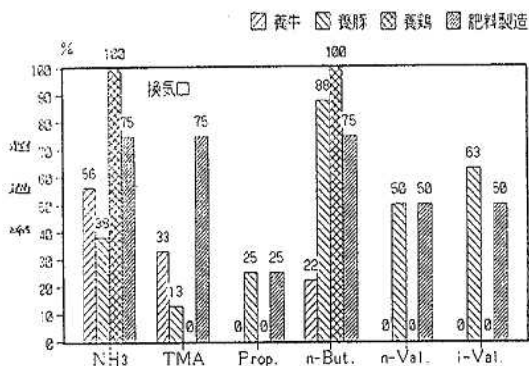


図2 各物質の臭気強度2.5を超過する割合

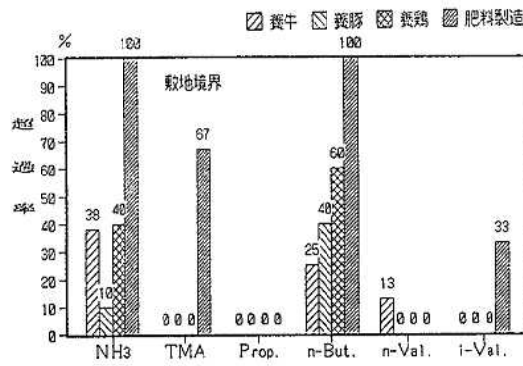


図5 各物質の臭気強度2.5を超過する割合

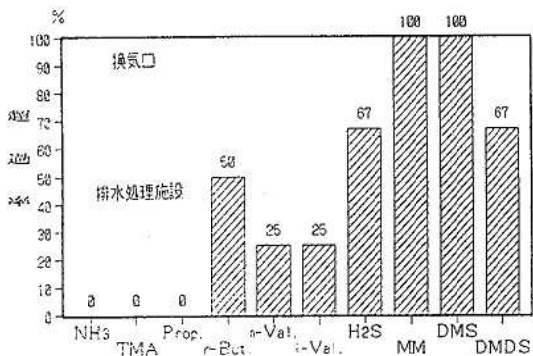


図3 各物質の臭気強度2.5を超過する割合

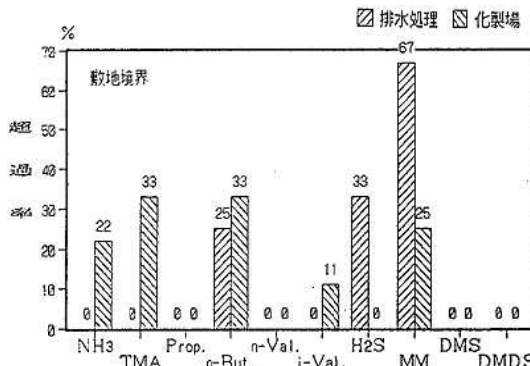


図6 各物質の臭気強度2.5を超過する割合

## 5.1 畜産事業場

### 5.1.1 養牛

養牛は9事業所で調査を行った。

臭気強度が2.5を超えたのは換気口で9地点中4地点(44%)、敷地境界で8地点中1地点(13%)であった。

臭気強度2.5に相当する濃度を超える悪臭物質は、換気口では9地点中アンモニアが5地点(56%)、トリメチルアミンが3地点(33%)、ノルマル酪酸が2地点(22%)であった。敷地境界では8地点中、アンモニアが3地点(38%)、ノルマル酪酸が2地点(25%)、ノルマル吉草酸が1地点(13%)であった。

これらは、他の2業種に比べトリメチルアミンの割合が高くなっており、その他はアンモニアを除くと低い割合であった。

### 5.1.2 養豚

養豚は9事業所で調査を行った。

臭気強度2.5を超えた地点は換気口で8地点中5地点(63%)、敷地境界で10地点中3地点(30%)であった。

臭気強度2.5に相当する濃度を超える悪臭物質は、換気口では8地点中、ノルマル酪酸が7地点(88%)、イソ吉草酸が5地点(63%)、ノルマル吉草酸が4地点(50%)、アンモニアが3地点(38%)、プロピオン酸が2地点(25%)、トリメチルアミンが1地点(13%)であった。敷地境界では10地点中、ノルマル酪酸が4地点(40%)、アンモニアが1地点(10%)であった。

これらは、他の2業種に比べノルマル酪酸を除く低級脂肪酸の割合が高くなっている。

また、臭気強度は、3業種の中でいちばん高い割合を示している。

### 5.1.3 養鶏

養鶏は5事業所で調査を行った。

臭気強度が2.5を超えた地点は換気口では5地点中2地点(40%)で、敷地境界では5地点中1地点(20%)であった。

臭気強度2.5に相当する濃度を超える悪臭物質は、換気口では5地点中、アンモニア及びノルマル酪酸が5地点全て(100%)で、敷地境界では5地点中アンモニアが2地点(40%)、ノルマル酪酸が3地点(60%)で超過しており、どちらも同様の傾向を示している。

養鶏は、アンモニアとノルマル酪酸の割合が他の2業種に比べ高く他の物質は2.5を超えるものがなかった。

## 5.2 肥料製造業(強制発酵施設)

肥料製造業では3事業所で調査を行った。

臭気強度は換気口では3地点全てが4.0以上(100%)で、敷地境界では3地点全てが2.6以上(100%)であった。

臭気指数は、敷地境界で3地点全てが「宮城県公害防止条例」(以下「条例」という。)の規制基準10を超えていた。

臭気強度2.5に相当する濃度を超える悪臭物質は、換気口では4地点中アンモニア、トリメチルアミン、ノルマル酪酸が3地点(75%)、ノルマル吉草酸、イソ吉草酸が2地点(50%)、プロピオン酸が1地点(25%)であった。敷地境界では3地点中アンモニア、ノルマル酪酸が全てで(100%)、トリメチルアミンは2地点(67%)、イソ吉草酸では1地点(33%)であった。

肥料製造業は、畜産事業場3業種からの糞尿を原料として強制発酵を行っているが換気口、敷地境界の合計に対する割合で見ると各悪臭物質において畜産事業場よりも臭気強度2.5相当濃度を超過する割合が高くなっている。また、臭気強度においても同様である。

### 5.3 排水処理場・と畜場

排水処理場は4事業所で、と畜場は1事業所で調査を行った。

排水処理場の臭気強度は、換気口で4地点全てが3.5以上(100%)、敷地境界では、4地点中3地点が2.5以上(75%)で高い割合を示していた。

臭気強度2.5に相当する濃度を超える悪臭物質は、換気口ではメチルメルカプタン、硫化メチルが3地点全て(100%)で、硫化水素、二硫化メチルは2地点(67%)、ノルマル酪酸が4地点中2地点(50%)、ノルマル吉草酸、イソ吉草酸が4地点中1地点(25%)であった。敷地境界では、3地点中メチルメルカプタンが2地点(67%)、硫化水素が1地点(33%)、ノルマル酪酸が4地点中1地点(25%)であった。測定した悪臭物質の換気口における傾向は、硫黄化合物が高い割合を示し、アミン類では2.5相当濃度を超えるものはなかった。

と畜場の調査は1施設だけであり、臭気強度は換気口、敷地境界ともに2.5以下であった。また、臭気指数2.5に相当する濃度を超える悪臭物質はなかった。

### 5.4 食品製造業

食品製造業は4事業所で調査を行った。

臭気強度は、2.5を超えるものが換気口で4地点中3地点(75%)、敷地境界では4地点中1地点(25%)であった。

臭気強度2.5に相当する濃度を超える悪臭物質は、換気口、敷地境界ともになかった。しかし、「要綱」による臭気強度では2.5を超えるものがあるので、測定対象物質以外のトリメチルアミン、硫黄化合物などが原因物質として考えられる。

### 5.5 飼料肥料製造業(化製場)

魚腸骨処理場では8工場、鳥ガラ・フェザー処理工場では4工場で調査を行った。

また、悪臭防止法の排出口の規制基準流量(臭気強度2.5に相当する濃度で計算)を当該工場の脱臭炉等の排出口に適用した場合の規制基準流量及び実測した悪臭物質流量(悪臭物質濃度と排ガス流量から計算)を表3に示す。



表3 悪臭防止法による排出口の規制基準をあてはめた場合の排ガス中の悪臭物質質量

No.	事業所名	調査年月	アンモニア $\text{Nm}^3/\text{hr}$	トリメチルアミン $\text{Nm}^3/\text{hr}$	硫化水素 $\text{Nm}^3/\text{hr}$
1	A	H3. 1	0.002 (52)	0.0014 (0.26)	—
2	B	H3. 1	0.002 (21)	0.00011 (0.10)	—
3	C	H3. 2	0.006 (32)	0.00001 (0.16)	—
4	D	H3. 2	0.003 (145)	0.0010 (0.72)	—
5	E	H3. 4	0.0059 (41)	0.00003 (0.21)	—
6	F	H3. 4	0.0012 (33)	0.00021 (0.16)	—
7	G	H3. 10	0.0005未満 (31)	0.00001未満 (0.16)	0.00005未満 (0.62)
8	H	H3. 10	0.0005未満 (36)	0.00051 (0.18)	0.00005未満 (0.72)
9	I	H3. 10	0.0085 (58)	0.00011 (0.29)	0.00005未満 (1.15)
10	J	H3. 10	0.0090 (29)	0.00001未満 (0.15)	0.00005未満 (0.59)
11	K	H3. 11	0.0004 (90)	0.0004 (0.45)	0.00005未満 (1.79)
12	L	H3. 11	0.053 (49)	0.0004 (0.25)	0.00005未満 (0.99)

注) ( ) 内は、規制基準流量(臭気強度2.5に相当する濃度で計算)

臭気強度は排出口12地点全てで(100%)、敷地境界では9地点中7地点(78%)で2.5以上であった。

排出口では臭気指数は、「条例」の規制基準30を12工場中3工場(25%)で超過していた。一方、アンモニア、トリメチルアミン、硫化水素の実測流量は表3に示すように各工場とも規制基準を大幅に下回っている。これは昭和54年度の調査と同様の結果であった(昭和54年度宮城県公害資料(特殊公害編)を参照)。

敷地境界では臭気指数は、「条例」の規制基準10を、9工場中4工場(44%)で超過していた。

また、敷地境界において、臭気強度2.5に相当する濃度を超過したのは、9地点中アンモニアが2地点(22%)、トリメチルアミン及びノルマル酪酸が3地点(33%)、イソ吉草酸及びメチルメルカプタンが1地点(11%)であった。

なお、硫黄化合物については、敷地境界において4工場で検査を実施したが、メチルメルカプタン1件を除き、臭気強度2.5に相当する濃度を超えるものはなかった。

なお、製造原料による特徴的な傾向は認められなかった。

## 6. ま と め

(1) 畜産事業場での臭気強度は、換気口では養豚、養牛、養鶏の順であり、敷地境界では、養豚、養鶏、養牛の順であった。

悪臭の主な原因物質としては、養牛でアンモニア

及びトリメチルアミン、養豚でノルマル酪酸及びイソ吉草酸、養鶏でアンモニア及びノルマル酪酸であった。

(2) 肥料製造業は、測定した業種の中で臭気強度、悪臭物質濃度ともに最も高い値を示しており、特にアンモニアの割合が高くなっていった。今後、畜産農家において、家畜糞尿処理施設は、増加の傾向にあるので、その臭気対策は非常に重要になってくると思われる。

(3) 排水処理場では、臭気強度及び悪臭物質濃度ともに高い値を示しており、特に硫黄化合物の割合が高くなっていった。と畜場での調査は1施設だけであったが、臭気強度及び悪臭物質濃度とも低い値を示していた。

(4) 食品製造業の換気口では、臭気強度が比較的高い値を示していた。しかし、臭気強度2.5に相当する濃度を超える測定対象物質は存在しなかったため、これ以外の悪臭物質の寄与が考えられる。

(5) 飼料肥料製造施設の排出口で臭気強度が全て4以上の高い値を示していた。しかし、これに相当する濃度を超える測定対象物質は存在しなかったため、今後、燃料由来の臭気等からの影響についても検討が必要であると考えられる。

## 参 考 文 献

- 1) 悪臭物質の指定及び規制基準の範囲の設定に関する参考資料(平成元年9月4日、環境庁大気保全局)
- 2) 悪臭防止法施行令の一部を改正する政令の施行等について(平成元年10月13日、環大特第127号)

## 14. 白石川における冬期の高pH出現の原因調査について

水質部 富塚 和衛 佐々木久雄 大場 修  
濱名 徹 氏家 顕

キーワード：高pH, 付着藻類, 光合成, 河川流量

### 1. はじめに

白石川は、県南部の白石市、大河原町、柴田町の重要な水道水源となっている。また、上流部の七ヶ宿町には、150万県民の水ガメとして貯水量1億 $m^3$ をこえるダムが建設された。

昭和50年に、船岡水質自動測定局が設置され、水質の常時監視が行われてきている。この測定局のpH値が平成3年1月中旬から2月中旬にかけて、日間最大値で環境基準を超える現象が続き、上水道の水源としている柴田町、岩沼市の浄水場に影響がでた。

過去にこのような現象は冬期には起きていない。この時期は、ちょうど前年完成した七ヶ宿ダムで試験湛水が行われており、従来の流況に変化があることも考えられることから、今回、高pHの原因を明らかにすることを目的に、水質、河床付着生物、河川流況などを中心に調査を実施した。

### 2. 調査方法等

#### 2.1 調査年月日

事前調査 H3. 7. 1  
採水調査 H3.11. 6 H3.11.18 H3.12. 4  
H3.12.17 H4. 1.23 H4. 2. 3  
H4. 2.18

pHの経時変化調査 (採水調査の翌日)

付着藻類の水質浄化機能調査  
H4. 2.19 H4. 2.20

水塊流下に伴うpH変化調査  
H3.12.18

#### 2.2 調査地点

本川：蔵本堰、白石用水堰、葦神橋堰

支川：斎川、児捨川、松川

調査地点の概要は、図1のとおり。

#### 2.3 分析方法

pH, DO, BOD, COD, SS : JISK0102

COND : 導電率計

$NH_4-N$ ,  $NO_2-N$ ,  $NO_3-N$ , T-N,  $PO_4-P$ , T-P : JISK0102, 環境庁告示59号, 吸光度

測定はオートアナライザーによる。

クロロフィル a : 海洋調査指針, 蛍光光度法

酸度, アルカリ度 : 上水試験法

#### 2.4 調査方法

##### 2.4.1 水質調査

延べ7回、白石川本川3ヶ所、支川3ヶ所で、水質、流量を測定した。

##### 2.4.2 pHの経時変化調査

各調査地点に一定期間設置しておいた生物付着板(粘板岩, 5cm×5cm)に付着した藻類を現場水でピーカーに洗い流し、太陽光下で、pHの経時変化を調べた。

さらに、藻類のクロロフィル a を測定し、pHとの関係を見た。

(試水量は、100ml, 1000mlの2例)

##### 2.4.3 付着藻類の水質浄化機能調査

生物付着板(11cm×11cm)を藻類が付着したままで、図2に示す模擬河川中に設置し、pH, DOの経時変化と、栄養塩類の添加、無添加の場合の水質変化を調べた。

実験条件

a. 栄養塩無添加

使用水 : 30L (白石用水堰)

流速 : 150ml/20sec

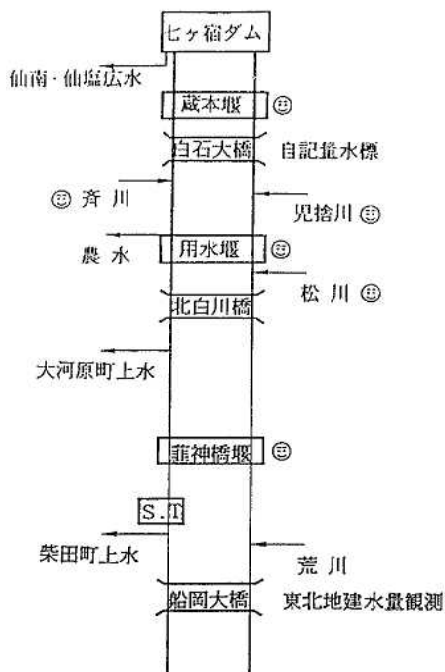


図1 調査地点概要



測定項目：pH, DO, COD, T-N, NH<sub>4</sub>-N, NO<sub>2</sub>-N, NO<sub>3</sub>-N, T-P, PO<sub>4</sub>-P

b. 栄養塩添加

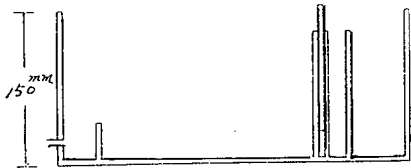
使用水：aに同じ

流速：200ml/32sec

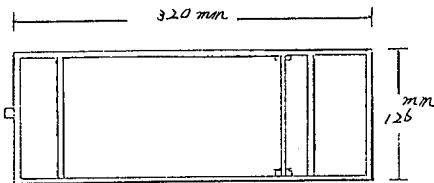
添加濃度：PO<sub>4</sub>-P

試水を0.1mg/lに調整

測定項目：aに同じ



断面図



平面図

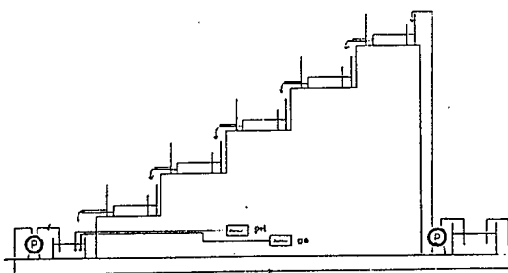


図2 模擬河川

2.4.4 水塊流下に伴うpH変化調査

調査地点最上流端から最下流端まで支川を含め、計16ヶ所で、河川水の流下に伴うpHの変化を把握するため、日照の強い時間帯に調査を行った。

2.4.5 流況調査

調査地点の流量測定を行い、ダム放流量を加味した調査区間の水収支の検討を行った。さらに河川縦断面図から平均河床勾配を求め、流量測定時の流速を参考にマンゲの式から流達時間の検討をおこなった。

3. 調査結果

3.1 河川水水質分析結果

分析結果を表1に示した。昨年程のpH上昇は見られなかったものの、H3.12.17に児捨川でpH8.9ともっと

も高い値が得られた。この日は、蔵本堰を除き他の調査地点でも同じ傾向が見られた。

主成分分析を行った結果を図3に示した。その結果では、pHとDO、クロロフィル-a、水温については相関認められたものの他の項目では認められなかった。

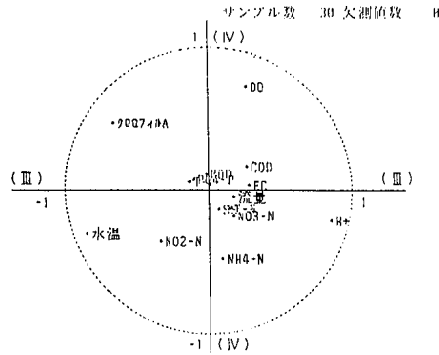


図3 主成分分析結果

3.2 pHの経時変化調査

結果の一例を図4-1～図4-3に示した。pHのピークは15時前後に現れている。ピークにズレがあるものの、船岡水質自動測定局でも見られた現象である。

この現象は、付着藻類の光合成によるものと思われることから、pHとクロロフィル-aと相関を見た。その結果を図5に示した。パラツキはあるもののクロロフィル-aが増加すれば、pHが上昇する傾向にあった。パラツキの原因は、太陽光下の実験のため、光合成に影響する照度、温度等の違いにより藻類の活性度が異なったためと思われる。

3.3 付着藻類の水質浄化機能調査

結果を図6-7～図6-17に示した。

DOが前駆的に高くなり、その後pHが上昇する現象が見られた。

NO<sub>2</sub>-N, NO<sub>3</sub>-N, PO<sub>4</sub>-P, T-Pについては、太陽光の強い時間帯に藻類への取り込みによると思われる減少傾向が見られた。COD, T-Nは、上昇傾向が見られ藻類の剥離が原因と考えられる。NH<sub>4</sub>-Nは、傾向がつかめなかった。

この傾向は、PO<sub>4</sub>-Pの添加、無添加でもPO<sub>4</sub>-Pを除き同じであった。ただし、pHの上昇は、水冷しない無添加の方が大きかった。

3.4 水塊流下に伴うpH変化調査

結果を表2に示した。

支川の斎川、松川、児捨川で高pHが認められ、本川でも顕著ではないが、北白橋付近流域で認められた。

3.5 流況調査

昨年の高pH時のダム放流量とpHの関係を図7に示した。

今回調査時のダム放流量と流量測定結果から流量収支を検討したものを表3に示した。

高pH現象は、ダム放流量が少なく(3 m<sup>3</sup>sec)結果として河川流量も少ない時期に限って認められている。本年は、昨年のような高pH現象は出現していない。これは、ダム放流量が昨年と較べ若干多いためであったこと、相当量の放流が一時的にあり、付着藻類が洗い流されたことによるものと思われる。

高pH現象時、pHのピークが日没後に出現していたことから、マンニングの式を用いて、流達時間の検討を行った。その結果を図8に示した。調査区間の流達時間は、約7時間であり、室内実験とのズレを加味すると、高pH現象は、北白川橋上流域でより強く起きているものと推定された。

manning公式

$$V = 1/n * R^{2/3} * I^{1/2} \text{ (m/s)}$$

V: 流水断面の平均流速

R: 径深(m) = 流水断面 / 淵辺長

I: 水面勾配(河床勾配)

n: manningの粗度係数

## 4. 考 察

### 4.1 pH, DO等水質からの検討

(1) 高pH出現時の船岡水質自動測定局のデータでは、日による変動がなく、pH, DOの日変化が規則的であり、DOの上昇が前駆的に現れていた。このことは、生物の光合成が強く関与しているものと思われる。この状況は、室内実験でも認められた。

(2) 河川調査結果では、pH上昇に結びつくデータは得られなかった。

(3) 付着藻類を用いたpHの経時変化調査では、pHの最大値は、午後3時頃に現れ測定局のデータとズレがあった。

また、試水量が多いほどpHの上昇は、小さかった。このことは、河川流量が高pH現象出現と関係があるものと考えられた。

(4) pHのピーク値と、実験に供した藻類のクロロフィル-a量との間には、相関が認められた。

(5) 模擬河川による藻類の水質浄化機能は、NO<sub>2</sub>-N, NO<sub>3</sub>-N, T-P, PO<sub>4</sub>-Pでは、藻体への取り込み、吸着による減少が顕著にみられた。しかし、COD, T-Nについては、増加傾向が見られ藻類の剥離がその原因と考えられた。

このことは、実河川において、付着藻類は、溶解性の栄養塩類を浄化する働きがあるものの、何等かの原因で

藻類の剥離が起これば、一時的には河川水質を悪化させるものと思われる。

### 4.2 流況からの検討

(1) 昨层高pH現象が出現した時期は、ダム放流量が少なく、河川流量も少ない時期に限っていた。本年は、ダム放流量が若干多かったこと、一時的にフラッシュ的な放流があり付着藻類が洗い流されたことなどから出現しなかった。これを、逆に利用し低水が連続的に続くときに、一定期間毎にダムからフラッシュ的放流があれば、藻類の剥離が起こればpH上昇は、起こりにくくなるものと思われる。ただし、この場合は、河川水質の一時的悪化が懸念される。

また、pHの経時変化調査を考え合わせると、河川流量が一定程度保持されれば、問題になるほどのpH上昇はないものと考えられる。その量は、ダム放流量として4 m<sup>3</sup>secから5 m<sup>3</sup>sec程度と推定される。しかし、ダム放流量と河川流量との間には、必ずしも相関があるとは、限らないので、今後、船岡大橋で測定されている流量が、公表された段階で今回の調査結果と考え併せて河川での必要流量を検討しておく必要がある。

(2) 水質自動測定局のデータでは、pHのピークは、午後6時前後に出現しているが、pHの経時変化調査と3時間程度のズレがある。これは、河川全体が同じレベルで高pH現象を起こしているのではなく、藻類が付着しやすい河床条件の所で、特に強くpHの上昇を起こしていることが原因と考えられる。

水塊流下に伴うpH変化調査、流達時間の検討、河床状況の調査から判断すると、北白川橋付近上流域で特に強いpH上昇があり、その水塊が測定局付近まで流下する時間としてズレが生じたものと推定された。

## 5. ま と め

今回の調査結果では、白石川の高pH現象は、河床付着藻類の光合成が原因で、河川流量が少なく河床が安定している時期に起こった自然現象であることがわかった。

河川管理と水質保全との係わりから考えると、流水の正常な機能を維持する観点からも、pH上昇が問題とならない程度の流量を確保することが、良好な河川環境の保持には、必要条件となる。

しかしながら、河川流量は、自然現象に左右され易く必ずしも必要量を確保出来るとは限らない。

河川管理者、利用者を含めあらゆる人々が、水質源の有限性を自覚し、水と接していくことこそが、問題解決の糸口となる。

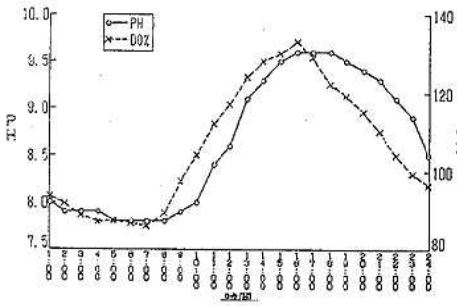


図4-1 pHとDO%の経時変化

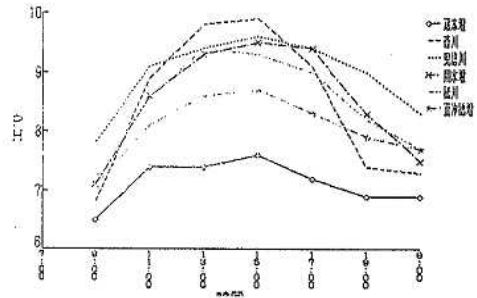


図4-2 pH経時変化(11/10)

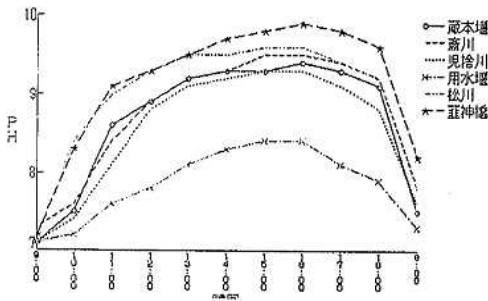


図4-3 pH経時変化(12/18)

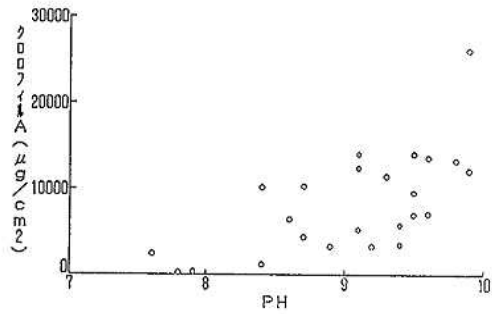


図5 pHとクロロフィルa量の関係

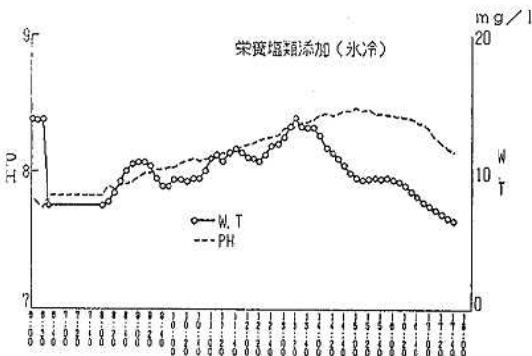


図6-1 付着藻類の水質浄化機能(温度とpH)



図6-2 付着藻類の水質浄化機能(pHとDO%)

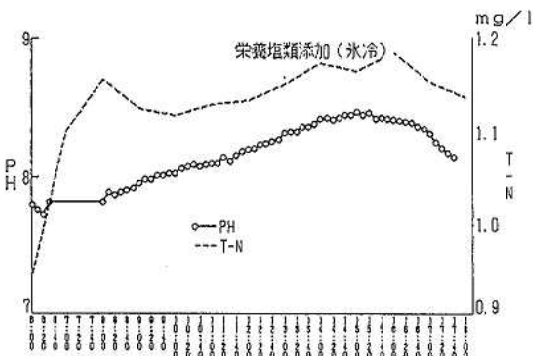


図6-3 付着藻類の水質浄化機能(pHとT-N)

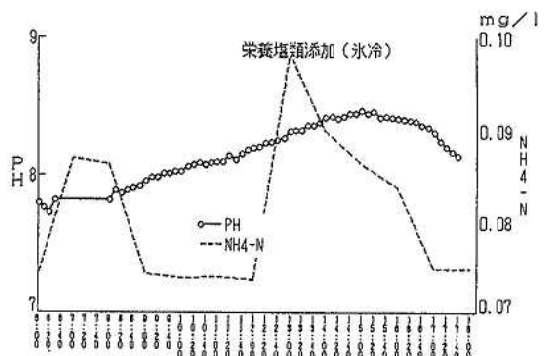


図6-4 付着藻類の水質浄化機能(pHとNH<sub>4</sub>-N)

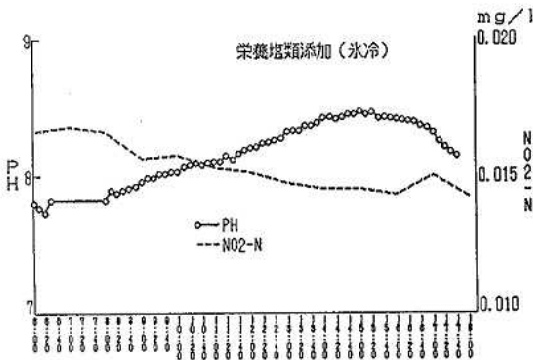


図6-5 付着藻類の水質浄化機能(pHとNO<sub>2</sub>-N)

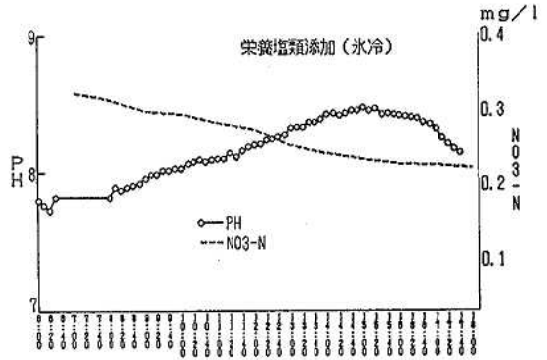


図6-6 付着藻類の水質浄化機能(pHとNO<sub>3</sub>-N)

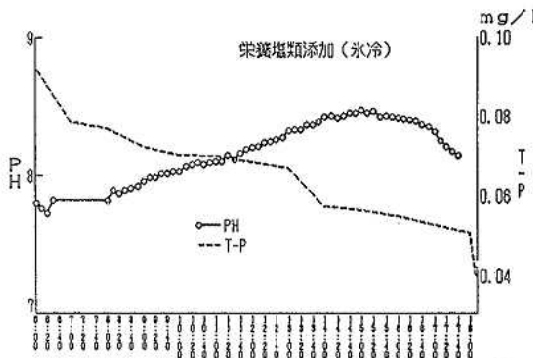


図6-7 付着藻類の水質浄化機能(pHとT-P)

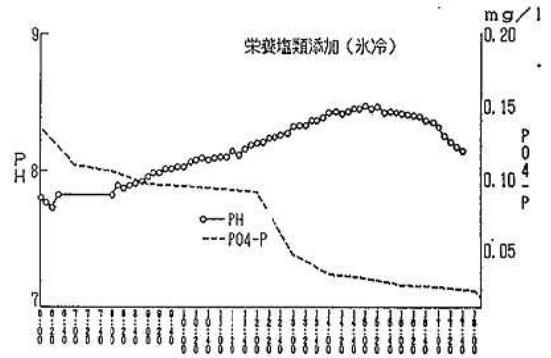


図6-8 付着藻類の水質浄化機能(pHとPO<sub>4</sub>-P)

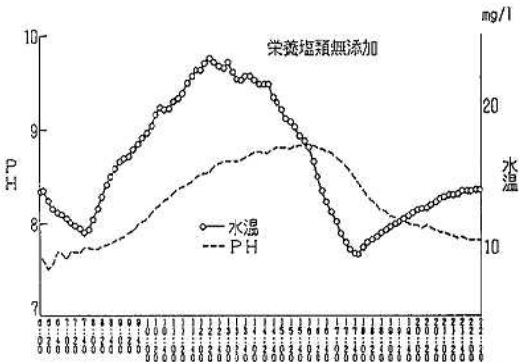


図6-9 付着藻類の水質浄化機能(水温とpH)

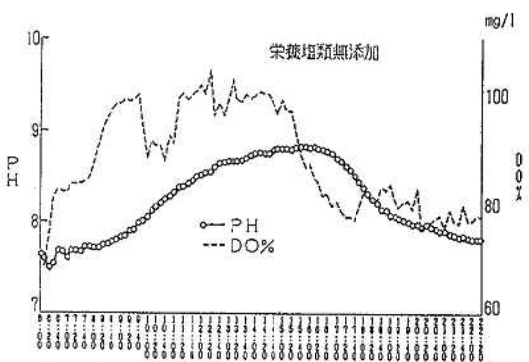


図6-10 付着藻類の水質浄化機能(pHとDO%)

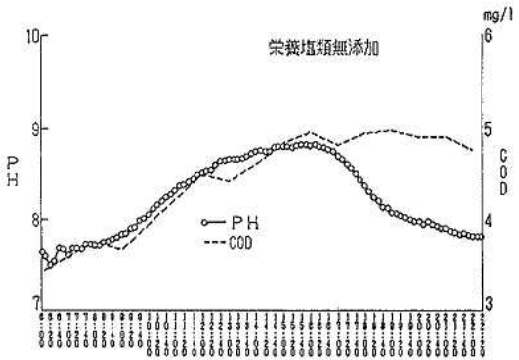


図6-11 付着藻類の水質浄化機能(pHとCOD)

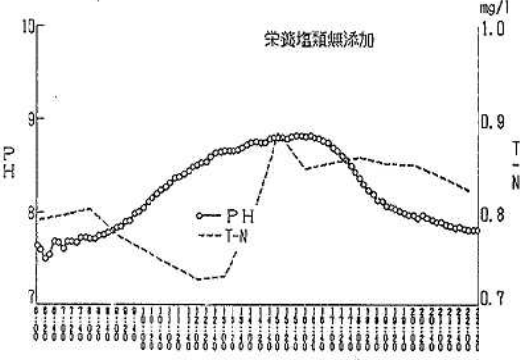


図6-12 付着藻類の水質浄化機能(pHとT-N)

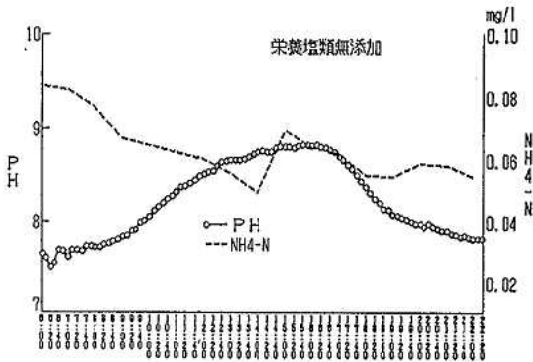


図 6-13 付着藻類の水質浄化機能(pHとNH<sub>4</sub>-N)

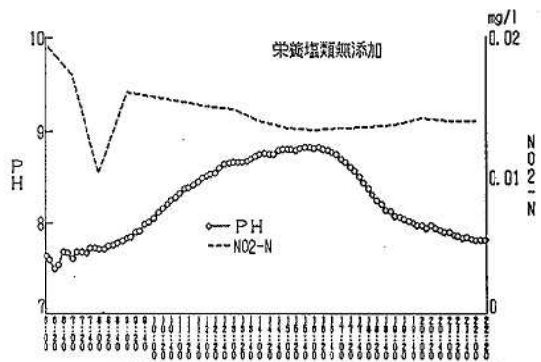


図 6-14 付着藻類の水質浄化機能(pHとNO<sub>2</sub>-N)

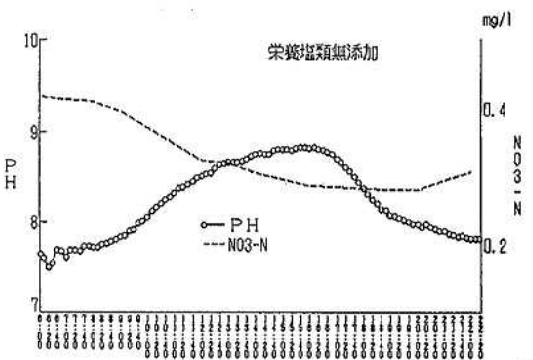


図 6-15 付着藻類の水質浄化機能(pHとNO<sub>3</sub>-N)

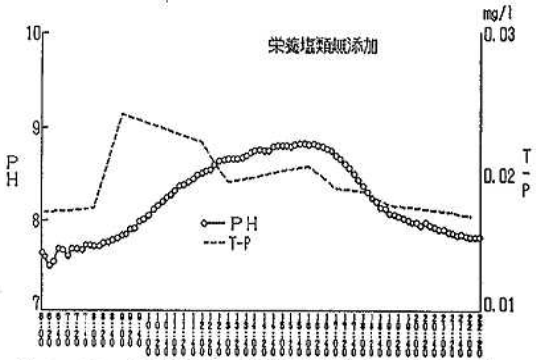


図 6-16 付着藻類の水質浄化機能(pHとT-P)

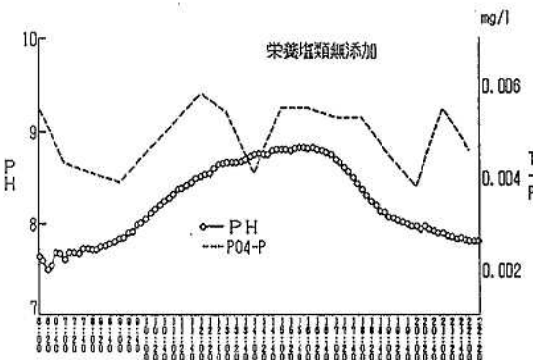


図 6-17 付着藻類の水質浄化機能(pHとpH-PO<sub>4</sub>-P)

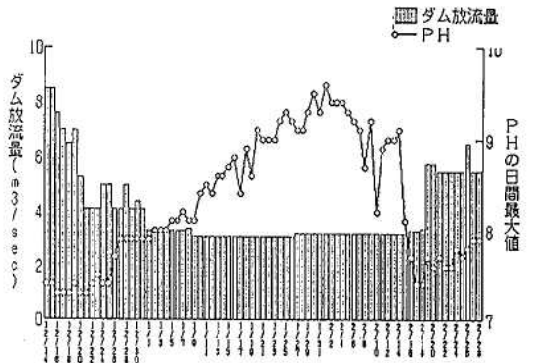


図 7 ダム放流量とpHの関係

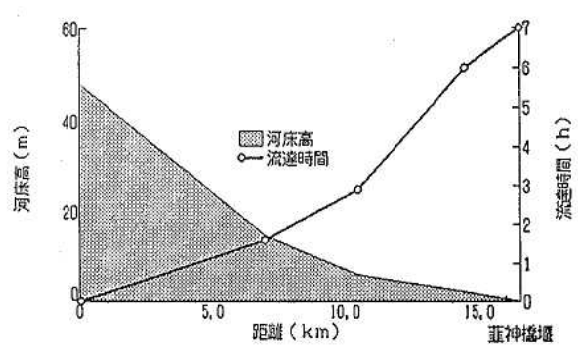


図 8 河床勾配と流達時間

表1 河川水水質分析結果

## 蔵本堰

採水年月日	H3.11. 6	H3.11.18	H3.12. 4	H3.12.17	H4. 1.23	H4. 2. 3	H4. 2.18
採水時刻	11:00	10:40	10:10	10:30	11:15	11:35	11:35
流量 (m <sup>3</sup> /sec)	7.38	5.43	5.98	7.75	4.87	1.83	3.43
気温	12.2	12.2	10.1	9.5	3.2	5.8	9.5
水温	10.8	10.7	8	7.5	3.7	3.6	4.6
色相	微黄色	微黄色	微黄色	なし	なし	なし	なし
臭気	なし	なし	なし	なし	なし	なし	なし
濁り	なし	なし	なし	なし	なし	なし	なし
透視度	50	50	50	50	50	50	50
PH	7.1	7.7	7.6	7.6	7.5	7.4	7.5
DO (mg/l)	11.8	11.5	11.7	12.24	12.7	13.1	13.7
BOD (mg/l)	0.7	1.25	0.6	0.34	0.32	0.6	0.24
COD (mg/l)	1.7	2.1	1.6	1.2	0.5	1.1	2
SS (mg/l)	3.4	4.7	1.9	1.1	1.1	1	0.8
酸度	4	1	1				
アルカリ度	16.5	17.5	17.5				
NH <sub>4</sub> -N (mg/l)	0.014	0.042	0.004	0.005	0.057	0.005	0.016
NO <sub>2</sub> -N (mg/l)	0.001	0.013	0.003	0.001	0.003	0.002	0.001
NO <sub>3</sub> -N (mg/l)	0.248	0.222	0.237	0.227	0.251	0.249	0.255
T-N (mg/l)	0.258	0.317	0.29	0.312	0.312	0.255	0.284
PO <sub>4</sub> -P (mg/l)	0.009	0.004	0.005	0.001	0.005	0.003	0.003
T-P (mg/l)	0.011	0.011	0.009	0.002	0.011	0.003	0.003
クロロフィルa(μg/l)		2,447	3,260	5,800	320	450	
COND (μs/cm)	75.2	82	84.6	80.9	89.7	88.9	89.8

## 齊川

採水年月日	H3.11. 6	H3.11.18	H3.12. 4	H3.12.17	H4. 1.23	H4. 2. 3	H4. 2.18
採水時刻	11:50	11:16	10:50	11:50	10:40	11:05	11:05
流量 (m <sup>3</sup> /sec)	3.69	2.73	2.04	1.59	2.04	2.6	2.01
気温	14.5	14.5	12	14	3	6	8.1
水温	11.5	11.1	8.6	10.6	4.4	4	4.9
色相	微黄色	微黄色	微黄色	微黄色	微黄色	なし	微黄色
臭気	下水臭	下水臭	なし	下水臭	なし	なし	なし
濁り	ややあり	なし	ややあり	なし	ややあり	ややあり	なし
透視度	50	50	50	50	50	50	50
PH	7.4	8.1	7.7	8	7.5	7.5	7.3
DO (mg/l)	11.8	13.2	12.5	13.6	12.8	13.3	13.6
BOD (mg/l)	1.6	2.1	1.7	2.4	2.1	3.1	2.2
COD (mg/l)	2	2.9	2.9	2.4	3.2	3.3	3.6
SS (mg/l)	4.8	6.2	3.5	3.5	4.1	8.1	6.3
酸度	3.5	1	2				
アルカリ度	29	27	29				
NH <sub>4</sub> -N (mg/l)	0.079	0.007	0.077	0.087	0.121	0.021	0.123
NO <sub>2</sub> -N (mg/l)	0.011	0.004	0.012	0.012	0.004	0.011	0.012
NO <sub>3</sub> -N (mg/l)	0.64	0.459	0.496	0.456	0.479	0.541	0.496
T-N (mg/l)	0.886	0.669	0.764	0.869	0.751	0.781	0.854
PO <sub>4</sub> -P (mg/l)	0.041	0.028	0.034	0.043	0.031	0.032	0.039
T-P (mg/l)	0.06	0.048	0.06	0.098	0.061	0.052	0.039
クロロフィルa(μg/l)		12,090	13,233	14,033	3,250	6,700	
COND (μs/cm)	113.8	118.9	118.3	121.1	135.5	166.3	133.2

## 児捨川

採水年月日	H3.11. 6	H3.11.18	H3.12. 4	H3.12.17	H4. 1.23	H4. 2. 3	H4. 2.18
採水時刻	13:15	12:45	13:00	13:30	12:30	13:20	13:20
流量 (m <sup>3</sup> /sec)	2.52	2.16	1.58	1.56	1.17	1.19	1.2
気温	16.7	12.5	9.8	12.7	2.8	5.5	11.5
水温	11.2	11.5	9	8.8	6.5	6.7	7.8
色相	なし	なし	なし	なし	なし	なし	なし
臭気	なし	なし	なし	なし	なし	なし	なし
濁り	なし	なし	なし	なし	なし	ややあり	なし
透視度	50	50	50	50	50	50	50
PH	7.9	8.7	8.7	8.9	7.9	7.9	7.4
DO (mg/l)	11.8	11.7	12	12.3	12.2	12.4	12.2
BOD (mg/l)	0.6	1.1	0.9	0.6	0.5	1.7	0.4
COD (mg/l)	1.1	1.4	1.1	0.5	2	1.1	1.8
SS (mg/l)	1.6	3.1	0.6	0.7	0.5	6.1	2.3
酸度	0.5						
アルカリ度	24.5	24	25.5				
NH <sub>4</sub> -N (mg/l)	0.016	0.013	0.003	0.005	0.025	0.016	0.023
NO <sub>2</sub> -N (mg/l)	0.004	0.004	0.004	0.002	0.003	0.003	0.004
NO <sub>3</sub> -N (mg/l)	0.494	0.357	0.344	0.275	0.461	0.521	0.447
T-N (mg/l)	0.6	0.406	0.363	0.361	0.522	0.611	0.53
PO <sub>4</sub> -P (mg/l)	0.005	0.008	0.005	0.001	0.007	0.011	0.013
T-P (mg/l)	0.01	0.005	0.006	0.001	0.003	0.025	0.013
クロロフィルa (μg/l)		7,050	10,233	11,500	5,240	12,300	
COND (μs/cm)	114.2	116.4	119	121.8	130	132.7	130.9

## 用水堰

採水年月日	H3.11. 6	H3.11.18	H3.12. 4	H3.12.17	H4. 1.23	H4. 2. 3	H4. 2.18
採水時刻	13:50	13:10	11:15	14:00	9:50	10:30	10:15
流量 (m <sup>3</sup> /sec)	19.56	11.19	8.33	11.12	10.62	8.51	11.6
気温	14.2	12.5	12.2	12.6	5.2	6.8	7.2
水温	11.1	10.6	7.8	7.9	4	3.7	2.6
色相	微黄色	なし	なし	微黄色	なし	なし	なし
臭気	微下水臭	なし	なし	なし	なし	なし	なし
濁り	ややあり	なし	なし	なし	なし	なし	なし
透視度	35	50	50	50	50	50	50
PH	7.3	7.5	7.4	7.5	7.3	7.4	6.3
DO (mg/l)	11.9	11.6	11.5	12.7	12.2	13.3	13.2
BOD (mg/l)	0.5	0.6	1.4	0.8	0.9	1	0.9
COD (mg/l)	1.7	1.8	2.3	1.4	2.6	1.7	2.5
SS (mg/l)	6.2	5.6	4.2	1.6	1.1	2.9	3
酸度	2	1.7	3				
アルカリ度	22	23.5	24				
NH <sub>4</sub> -N (mg/l)	0.02	0.009	0.029	0.017	0.022	0.018	0.062
NO <sub>2</sub> -N (mg/l)	0.004	0.007	0.006	0.003	0.004	0.003	0.006
NO <sub>3</sub> -N (mg/l)	0.44	0.439	0.424	0.355	0.451	0.471	0.411
T-N (mg/l)	0.572	0.527	0.549	0.489	0.509	0.521	0.596
PO <sub>4</sub> -P (mg/l)	0.011	0.008	0.004	0.0005	0.005	0.009	0.012
T-P (mg/l)	0.017	0.014	0.021	0.018	0.017	0.015	0.015
クロロフィルa (μg/l)		6,900	9,500	10,130	420	900	
COND (μs/cm)	110	103.4	111.2	107.3	125.1	140.8	117



## 松 川

採水年月日	H3.11. 6	H3.11.18	H3.12. 4	H3.12.17	H4. 1.23	H4. 2. 3	H4. 2.18
採水時刻	14:50	13:55	13:30	14:15	13:00	13:40	13:45
流量 (m <sup>3</sup> /sec)	11.24	8.92	4.69	4.57	3.2	3.1	3.37
気温	14.2	15	11	12.8	4.2	6.5	8.7
水温	11.3	12	9.7	8.9	5.5	5.9	7.5
色相	なし	微黄色	なし	なし	なし	なし	なし
臭気	なし	なし	なし	なし	なし	なし	なし
濁り	なし	なし	なし	なし	なし	なし	なし
透視度	50	35	50	50	50	50	50
PH	7.4	7.8	7.9	8.7	7.5	7.5	7.2
DO (mg/l)	11.6	L. A	11.8	12.8	12.7	12.9	12.2
BOD (mg/l)	0.6	0.4	1.1	0.6	0.7	0.8	0.5
COD (mg/l)	1	1.6	1.8	0.6	1.2	0.8	1.4
SS (mg/l)	1.8	15.4	3.4	3	0.9	1.9	2.5
酸度	6	1	0.5				
アルカリ度	16.5	15	15.5				
NH <sub>4</sub> -N (mg/l)	0.028	0.092	0.012	0.005	0.041	0.011	0.046
NO <sub>2</sub> -N (mg/l)	0.007	0.006	0.008	0.006	0.005	0.002	0.008
NO <sub>3</sub> -N (mg/l)	0.895	0.86	0.866	0.672	0.712	0.821	0.86
T-N (mg/l)	0.979	0.913	0.791	0.711	0.921	0.951	0.893
PO <sub>4</sub> -P (mg/l)	0.009	0.007	0.004	0.004	0.002	0.008	0.015
T-P (mg/l)	0.013	0.016	0.014	0.012	0.012	0.011	0.015
クロロフィルa (μg/l)		3,500	12,400	13,666	6,433	5,200	
COND (μs/cm)	159.1	168.6	185.6	199.3	220	217	233

## ニラ神橋堰

採水年月日	H3.11. 6	H3.11.18	H3.12. 4	H3.12.17	H4. 1.23	H4. 2. 3	H4. 2.18
採水時刻	15:55	14:35	14:40	15:00	13:40	13:40	14:45
流量 (m <sup>3</sup> /sec)		16.17	15.67	16.78	12.78	12.2	9.58
気温	11.9	12.3	12.8	9.8	2.2	6.5	6
水温	11	11.5	9.8	8.1	5.2	5.3	5.1
色相	微黄色	なし	なし	なし	なし	なし	なし
臭気	なし	なし	なし	なし	なし	なし	なし
濁り	なし	ややあり	なし	なし	なし	なし	なし
透視度	35	50	50	50	50	50	50
PH	7.3	7.7	7.6	8.2	7.4	7.5	6.3
DO (mg/l)	11.4	12.4	13	14	12.5	13.7	14.6
BOD (mg/l)	0.8	0.2	1	0.51	1.2	1.2	1
COD (mg/l)	1.4	1.6	1.7	1.5	2	1.3	2.5
SS (mg/l)	5.6	3.3	3.4	3.4	2.4	3.4	2.3
酸度	5	1.7	2				
アルカリ度	23.6	23.5	23				
NH <sub>4</sub> -N (mg/l)	0.083	0.009	0.014	0.005	0.051	0.019	0.064
NO <sub>2</sub> -N (mg/l)	0.007	0.005	0.007	0.005	0.005	0.004	0.008
NO <sub>3</sub> -N (mg/l)	0.341	0.645	0.639	0.509	0.621	0.601	0.536
T-N (mg/l)	0.511	0.703	0.706	0.59	0.771	0.711	0.688
PO <sub>4</sub> -P (mg/l)	0.017	0.007	0.007	0.004	0.009	0.011	0.016
T-P (mg/l)	0.021	0.014	0.002	0.018	0.018	0.017	0.016
クロロフィルa (μg/l)		4,360	14,000	26,100	1,260	890	
COND (μs/cm)	133	138	150.8	139.9	162.3	172.5	150.2



表2 水塊流下に伴う pH 等の変化

地 点	p H	計 算 値	C O N D	計 算 値	流 量
蔵 本 堰	7.63		81.9		7.75
白 石 大 橋	7.66		83		
齊 川	8.09		120		1.59
齊 川 合 流 後	7.81	7.68	91.8	88.4	
児 捨 川	8.69		118.3		1.56
児 捨 川 合 流 後	8.36	7.86	98.7	92.7	
白 石 用 水 堰	7.56		102.5		11.12
松 川	8.45		196		4.57
松 川 合 流 後	7.89	7.68	156.3	129.7	
北 白 川 橋	8.19		134.8		
合 庁 前	8.15		137		
大 河 原 橋	7.91		142.3		
末 広 橋	7.82		139.9		
葦 神 橋 堰	7.72		140.6		16.78
荒 川	7.83				
荒 川 合 流 後	7.71				

表3 ダム放流量と河川流量(m<sup>3</sup>/sec)

地 点	H3.11. 6	H3.11.18	H3.12. 4	H3.12.17	H4. 1.23	H4. 2. 3	H4. 2.18	平 均
ダム放流量	5.6	4.9	4	6.4	3.5	2.7	2.4	4.2
蔵 本 堰	7	5.6	6	7.8	4.9		3.4	5.8
齊 川	3.7	2.7	2	1.6	1.2	2.6	2	2.3
児 捨 川	2.5	2.2	1.6	1.6	2	1.2	1.2	1.8
白 石 用 水 堰		11.2	8.3	11.1	10.6	11.5	11.6	9.9
松 川		8.9	4.7	4.6	3.2	3.1	3.4	4.7
葦 神 橋 堰		16.2	15.7	16.8	12.8	12.2	9.6	13.9

## 15. 野積み畜産廃棄物の降雨による流出について

佐々木久雄 大場 修  
大庭 和彦\* 八木 純\*\*

畜産廃棄物の野積みによる環境への影響は、かなり大きいものと考えられているが、特にその地下浸透量の定量についての知見は少ない。黒ボク土壌の上に堆肥をのせ、その浸透水を採水できる実験装置を使い定量化を試みた。その結果、Pの流出量は小さかったものの、N、CODについては実験終了時の1年後にも流出が続き、実験開始時の堆肥の含有量のうち、Nで5.3%、Pで0.21%の浸透量があった。これらの値は、1ha当たりに換算するとN、P、CODでそれぞれ259、6.9、154kg/ha年となり、栄養塩の流出が問題となっている畑などの流出量に比較してかなり大きな値を示していた。

キーワード：野積み堆肥、地下浸透量、黒ボク土壌

### 1. はじめに

釜房ダムは、わが国で最初の湖沼法の指定を受けたダム貯水池である。宮城県ではそれを受けて水質保全計画を策定し、その水質の保全に努めてきた。平成3年度は水質保全計画の見直しの年に当たっているが、汚濁源としての畜産廃棄物からの負荷量、特に野積みによる畜産廃棄物からの地下浸透量については、その実測文献や資料が少なく、その扱いに苦慮していた。そのため、筆者等は、モデル実験を行い、地下浸透量について考察を試み、水質保全計画の基礎的な資料を得たので、報告する。

### 2. 方法

#### 2.1 実験装置

図1に実験装置の概略を示す。

径79cm、深さ36cmの円形の塩ビ製の容器にすかしを敷き、釜房上流部の典型的な土壌である黒ボク土を123kg入れ、その上に牛堆肥44kgを置き屋外に設置した。黒ボク土は川崎町佐野原の工場現場の深さ1.5mから採取した。牛堆肥は新鮮な肉用牛のものを使用した。対象として、黒ボク土壌のみを入れた容器も設置した。

#### 2.2 採水方法、採水間隔

降雨により、実験装置に溜った水は、すかしの底まで入れたチューブからサイホン方式で採水した。採水間隔

は、実験開始当初は10mm程度以上の降水があったときに比較的細かく実施し、除々に間隔を広げた。また実験装置上に繁茂した草はその都度刈り込み、堆肥中に鋤き込んだ。

#### 2.3 分析手法

表1に分析時に用いた手法を示した。

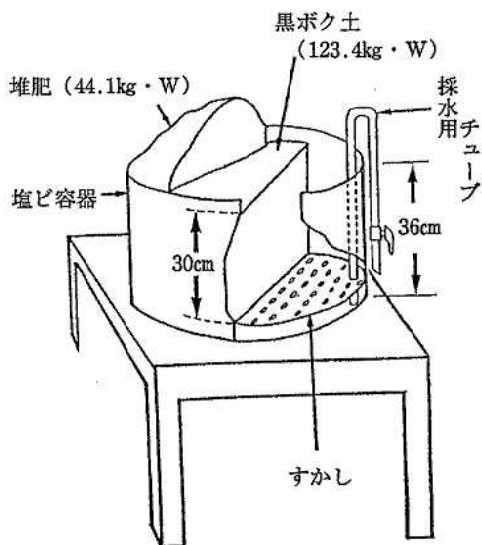


図1 実験装置

\* 現環境管理課

\*\* 現仙南保健所

表1 水質・堆肥土壌の分析方法

〈水質〉

項目	分析方法	備考
pH	ガラス電極法	JIS K0102
COD	100℃における酸性過マンガン酸カリウム法	〃
NH <sub>4</sub> -N	インドフェノール法	〃 ・*オートアナライザー分析
NO <sub>2</sub> -N	スルファミン・ナフチルエチレジアミン法	衛生試験法注解*
NO <sub>3</sub> -N	Cu-Cd還元法	海洋観測指針*
T-N	告示法(Cu-Cd還元法)	分解 アルカリ性ペルオキシ二硫酸カルウム*
PO <sub>4</sub> -P	アスコルビン酸還元法	*
T-P	告示法(Cu-Cd還元法)	分解 ペルオキシ二硫酸カルウム *

〈堆肥・土壌〉

項目	分析方法	備考
pH	ガラス電極法	海洋観測指針
COD	過マンガン酸カリウム法(アルカリ法)	神奈川県方式
T-N	チューリン法	実験農芸化学上(朝倉書店)
IL	-	環境片底質調査方法
T-N	マイクロケルダール法	実験農芸化学(朝倉書店)
T-P	バーナードモリブデン酸法	土壌養分分析法(養賢堂)
T-S	検知管法	北原式

3. 結果

3.1 累積採取量と累積降雨量

図2に実験開始当初からの累積採取量と降水量を示した。実験開始当初は、降水量に比較して採取量は小さかったものの、ほぼ降水量に比例して採水できた。また期間中1500mm程度の降水があり、理論値の55%が採取されたことになる。

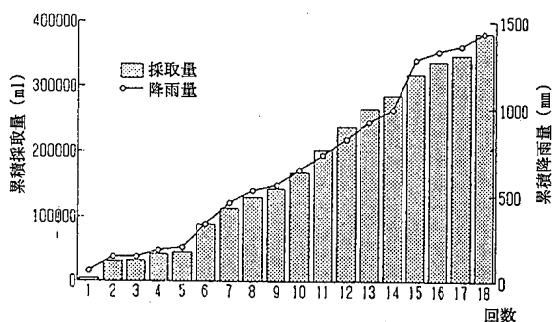


図2 累積採取量と累積降雨量

3.2 採取された水質の変化

図3に採取された試水の量と水質の変化を示した。T-Pは、実験期間中著しい濃度の上昇は認められなかった。T-Nは、3週間後の3回目の降水時から高濃度の流出が認められ、10ヶ月後程度で流出濃度は安定化するが、その濃度は5mg/lと対照に比べて、まだ高い濃度であった。CODはT-Nよりさらに遅れて、実験開始2ヶ月後の7回目の降雨から濃度が高くなり、その濃度は実験終了時まで、あまり低くならず流出していた。

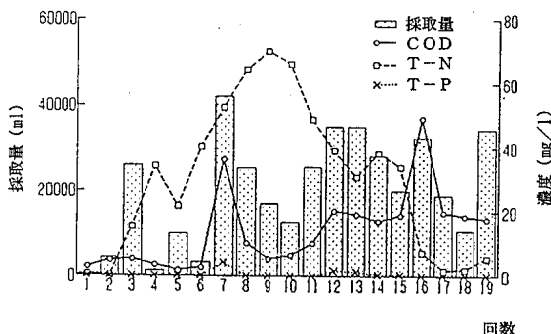


図3 採取量と水質

### 3.3 流出量の変化

図4は、流出したT-Nの累積量を示している。流出濃度の高くなる時期に累積流出量も急激に増加し、濃度が低くなる実験終了時には横ばい傾向を示している。結局1年間の野ざらし状態で、12.7gのNが土壌を通じて流出したことになる。同様に、図5にはCOD、図6にはT-Pの流出量を示した。CODは、実験当初はT-Nと同様な累積量を示しているが、実験終了時近くになっても、比較的高い濃度で流出が続いていたこともあって、累積量は延び続けている。T-Pは、比較的降雨強度の強いときに、一時的な流出が認められるものの、通常の降雨では土壌を通じての流出量は小さい値を示す。最終的には1年間で、COD 7.5g、T-P 0.33gの流出があった。

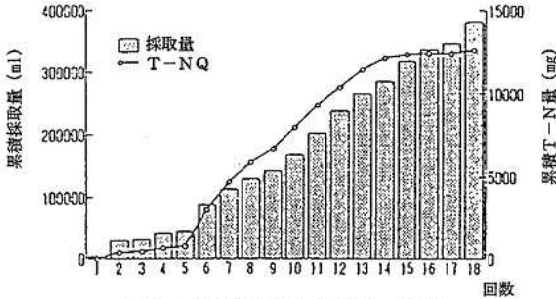


図4 累積採取量と累積T-N量

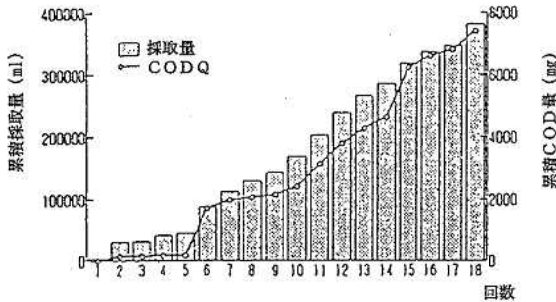


図5 累積採取量と累積COD量

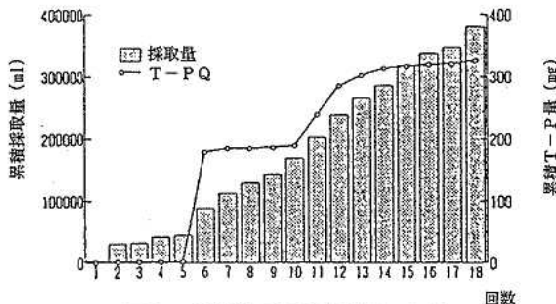


図6 累積採取量と累積T-P量

図7は、実験結果を模式化して示したものである。実験開始時の堆肥に含まれる窒素、磷は減少し、下に敷いた黒ボク土壌に移行していることがわかる。

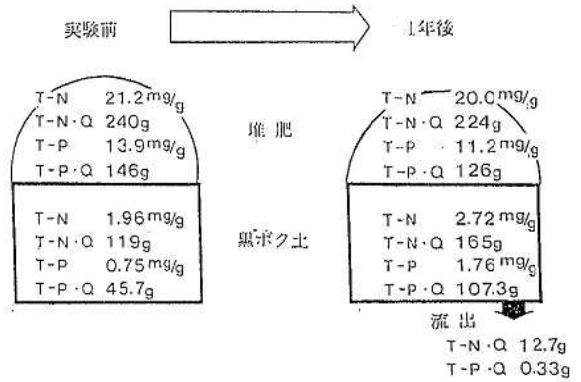


図7 実験結果の模式図

### 4. 考察

野積みにされた堆肥からの栄養塩の流出は、降雨による表面流出、地下浸透および大気中への発散などに大別できる。今回の実験は、装置上に降った雨は表面流出せず、全量土壌に浸透する条件を想定した。サンプル量は、装置上に降った量の55%採取できたが、残りは実験装置上の土壌に保持され、大気中に蒸発したものと思われる。釜房ダム上流域での、大部分の堆肥の野積み場では、かなり大量の降雨がなければ、表面流出は考えられない状態と似かよっており、また、扇状台地上の浸透しやすい土壌条件を考え併せると妥当な量であろう。リンの流出は、実験期間中を通じて小さく、土壌に吸着しているものと思われ、黒ボクが主な構成土壌である釜房上流地域でも、地下への浸透量、もしくは地下水への流出量は小さいものと考えられる。

窒素の流出は実験当初は小さいが、硝酸菌の活性が大きくなるにつれて流出量も大きくなり、三ヶ月ぐらいでピークに達している。

表2には、堆肥を蒸留水で浸透させた場合などの各態窒素と、今回の実験結果を比較して掲げた。堆肥を蒸留水で振とうしたものや、現場の堆肥置き場からの滲出水中では、流出してくる窒素のほとんどが $\text{H}_4\text{-N}$ であり、実験装置からのものは、 $\text{NO}_2\text{-N}$ である。また、野積み置き場の下流に位置する湧水の水質も、窒素のほとんどが硝酸性の窒素であり、濃度的にも実験終了時(1年後)のものに近似していることは興味深い。

表2 堆肥滲出水などの水質の比較

	T-N	NH <sub>4</sub> -N	NO <sub>2</sub> -N	NO <sub>3</sub> -N	$\frac{\text{NH}_4\text{-N}}{\text{NO}_3\text{-N}}$
堆肥振とう水	177	96	0.17	0.11	872
堆肥滲出水	445	230	0.05	0.83	277
実験直後(3日目)	0.87	ND	ND	0.71	$7 \times 10^{-3}$
ピーク時(85日目)	70.2	0.03	0.01	70	$4 \times 10^{-3}$
湧水	5.2	0.005	0.002	5.1	$1 \times 10^{-3}$

CODは窒素より遅く流出が始まるが、実験終了時にもかなりの高濃度で流出しており、窒素と共に長期間流出が続くものと考えられる。実験開始時には溶解性のCODはあまり高くなく、除々に全CODに対して溶解性のCODの占める割合が高くなっていることを考えれば、水に溶けやすい形のCOD成分に変化してきたものと考えられる。

1年間の実験結果として、最終的にはNで12.5g, Pで0.33g, CODでは7.5gの流出があったことになり、1ha当たりに換算すると、それぞれ259kg, 6.7kg, 154kgとなり、同じ面源負荷である水田や畑に比べてかなり大きな値である。

## 5. ま と め

今回の実験結果から次のようなことがいえる。

- (1) 野積み堆肥から、土壌を浸透して流出する負荷量はPは小さいが、Nは大きい。
- (2) Nの流出の形体はそのほとんどがNO<sub>3</sub>-Nである。

(3) したがって、堆肥をおいてすぐには流出せず、硝酸菌の働きが活発になる、3週間目ぐらいからNが流出を始め、またCOD成分の流出はそれより遅れて始まる傾向にある。

(4) 野積み堆肥からの栄養塩類の流出は、畑などよりはるかに大きく、毎日積み重ねてあると考えられる。

今回の実験結果からは以上のような地見が得られたが

- (1) 表面流出分と浸透分を区別しなかったこと
- (2) 実験終了時の堆肥と黒ボク土壌の境界が明確に区別できなかったこと
- (3) みみず、昆虫などの影響を考慮しなかったことなどが反省点として上げられ、今後の課題として残った。

## 参 考 文 献

- 1) 霞が浦地区富栄養化対策調査報告書、関東農政局 S 53
- 2) 集水域からの窒素、リンの流出、田淵俊雄ら 東京大学出版
- 3) 釜房ダム水質保全計画 宮城県