

o381

ISSN 0288-6901  
CODEN: EKGSDX

# 愛媛県公害技術センター所報

第 7 号

昭和 61 年 3 月

Report of Ehime Prefectural Research  
Center for Environmental Protection

No. 7. Mar. 1986



愛媛県公害技術センター



## はじめに

日進月歩の技術革新の時代にあって、ハイテクノロジーの日常社会への浸透は目ざましいものがあります。

それに伴って、産業構造は転換し、地域経済の活性化をうながし、人々の生活様式も好むと好まざるとにかかわらず変遷し、高度化、多様化しているのが実情でございます。

公害・環境問題も、ひところの企業型から都市型、生活型へと移行し、特に今日では家庭生活から生ずる雑排水、騒音、廃棄物等による公害問題が増加の傾向にあり、その対応が重要となって参りました。

このような社会的背景の中で、本県では幸い環境改善の諸策が実を結び、全般的には好ましい状態が維持されているところであります。

当センターにおきましても、昭和47年発足以来の調査研究結果から、その間における汚染物質濃度の推移をみておりますが、その結果からも、環境改善の一端をうかがうことができます。

この所報は職員が日常業務の中から生じたいろいろな問題にとりくんで、解決の糸口を見出すために、調査研究を行ったなかからまとめたものであります。御一読いただきまして、御助言、御批判を賜われれば幸いに存じます。

今後とも快適な生活環境を求める県民ニーズにこたえるため、職員一同一丸となって努力して参りたい所存でございますので、一層の御指導、御支援を賜りますようお願い申し上げます。

昭和61年3月

愛媛県公害技術センター

所長 塩 梅 豊

# 目 次

はじめに

1. 雨水中のイオンとECの関係 ..... 楠 憲一・他 ..... 1
2. バックグラウンドオゾンに関する一考察 ..... 影浦 久・他 ..... 6
3. オキシダント濃度への判別関数の適用 ..... 西原 博明・他 ..... 11
4. 小野川における水質汚濁の現況 ..... 越智 久尚・他 ..... 16
5. プランクトン相から見た県内5湖沼の富栄養化  
状態について(鹿野川湖を中心として)(第1報) ..... 中村 洋祐 ..... 20
6. 古紙再生工場排水中のPCBについて ..... 篠崎 由紀・他 ..... 25
7. 自動測定機による航空機騒音の測定に関する  
基礎的検討 ..... 林 弘・他 ..... 29
8. 愛媛県における自然放射線分布 ..... 松浦 榮美・他 ..... 32
9. ゲルマニウム半導体検出器による $\gamma$ 線スペクトル  
の自動解析システムについて ..... 二宮 久・他 ..... 38
10. 環境放射能分析における相互比較分析について ..... 安井 正良・他 ..... 45

# 雨水中のイオンとECの関係

楠 憲一・三谷 美嶺雄・渡 辺 和 範

## 1. はじめに

雨水の酸性化の原因を知るには、雨水中に溶存する全イオンを把握することが重要である。それらがわかれば、イオンバランスからpH低下の原因となるイオンがわかり、雨水の酸性化機構も推定可能となる。全溶存イオンを知るには、溶存すると予測されるイオンを全て測定する方法<sup>1)</sup>と溶液の何らかの情報から全溶存イオンを知る方法がある。検水量などの点から通常の雨水調査ではあまり多くのイオンの測定ができないので、前者の方法は現実的でない。他方、後者の方法は全溶存イオンを測定しなくてもよいので現実的である。

溶液中の溶存イオンの情報としては導電率 (EC) がある。溶存イオンとECには密接な関係があることは知られており<sup>2), 3)</sup> 主要な溶存イオンを測定し、これらが示すECを算出し、これを実測したECと比較することによって、測定イオンが溶存イオンのうちのどの程度を占めているか知ることが可能となる。

著者らも数年間雨水調査を実施してきたが<sup>4), 5)</sup> 測定項目は雨水中に比較的多く含まれると予測されたイオンであり、これらのイオンが全溶存イオンのうちのどの程度を占めているのか不明であった。これを解決するために溶存イオンとECの關係に着目した。

溶存イオンとECの關係は活動度係数を用いて求められた例<sup>9)</sup>はあるが、これは各イオンが示す個々のECを無視したものであり、溶存イオンの種類によっては実測値と計算値が大きくずれ、雨水には近似式として用いることができない。

そこで、イオンの種類によってECが異なった値をとることを重視し、Arrheniusの式<sup>6)</sup>、Kolrouschの独立移動の法測<sup>2), 6)</sup>およびDebye-Hückel理論<sup>2), 7)</sup>から溶存イオンとECの近似式を新たに作成した。この近似式を実試料に適用して溶存イオンが示すECを計算で求め、実測のECと比較した。以下、溶存イオンとECの近似式の算出方法、実試料への近似式の適用結果および雨水の酸性化の原因について得られた知見を報告する。

## 2. 方法

### 2. 1. 試薬と装置

EC測定用および雨水分析用試薬：特級品あるいは

特級相当品を用いた。

EC計：堀場製DS-8F型

pH計：堀場製H-7LD型

吸光光度計：日立製181型

原子吸光光度計：日立製180-80型

### 2. 2. 定量方法

EC：EC計

pH：pH計

硫酸イオン(SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>)、硝酸イオン(NO<sub>3</sub><sup>-</sup>)、塩素イオン(Cl<sup>-</sup>)およびアンモニウムイオン(NH<sub>4</sub><sup>+</sup>)：吸光光度法<sup>8)</sup>

炭酸イオン(HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>)：容量分析<sup>9)</sup>

ナトリウムイオン(Na<sup>+</sup>)、カリウムイオン(K<sup>+</sup>)、カルシウムイオン(Ca<sup>2+</sup>)、マグネシウムイオン(Mg<sup>2+</sup>)：原子吸光光度法<sup>10)</sup>

### 2. 3. 雨水調査の時期と場所

時期：1985年6月21日～7月12日

場所：愛媛県公害技術センター屋上

### 2. 4. ECの計算

当量導電率(A)はArrheniusによると次式で示される。

$$A = \alpha A_0 \quad \text{————— ①}$$

$\alpha$ ：溶解度

$A_0$ ：極限当量導電率

また、Kolrouschのイオン独立移動の法則は次式で示される。

$$A_0 = \lambda_0^+ + \lambda_0^- \quad \text{————— ②}$$

$\lambda_0^+$ ：陽イオンの極限当量導電率

$\lambda_0^-$ ：陰イオンの極限当量導電率

### 2. 5. イオン強度および活動度係数の計算

イオン強度( $\mu$ )は次式で求められる。

$$\mu = \frac{1}{2} \sum C_i Z_i^2 \quad \text{————— ③}$$

$C_i$ ：モル濃度

$Z_i$ ：イオンの電荷

活動度係数( $r_i$ )はDebye-Hückel理論から次式により

求められる。

$$-\log ri = \frac{A Zi \sqrt{\mu}}{1 + Ba \sqrt{\mu}} \quad (4)$$

- A: 定数, 25°C で0.51
- B: 定数, 25°C で $3.3 \times 10^7$
- a: イオン径パラメーター

### 3. 結果と考察

#### 3. 1. イオン当量とECの関係

希薄溶液において①式の $\alpha$ がどのような係数で近似されるかを知るために水素イオン(H<sup>+</sup>), SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, Cl<sup>-</sup>, HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>, Na<sup>+</sup>, K<sup>+</sup>, Ca<sup>2+</sup>およびMg<sup>2+</sup>の各イオンのうちで, できるだけ多くの組合せの単一塩による実測値と $\alpha=1$ および $\alpha=ri$ とした場合の計算値の比較をおこなった。各単一塩が1meの場合の結果を表1に示す。なお, 実測値のEC(表1中EC1)は文献<sup>2)</sup>から引用し,  $\alpha=1$ の場合のEC(表1中EC2)は②式を用いて算出し,  $\alpha=ri$ の場合のEC(表1中EC3)はまず③式と④式を用いて $ri$ を算出し, 以下①式と②式から求めた。

EC2はEC1よりも高く見積られ, EC3はEC1よりも低く見積られる傾向があった。19物質のEC1/EC2, つまり真の $\alpha$ の平均値と $ri$ の平均値および $ri^{\frac{1}{2}}$ の平均値

表1 実測値のECと計算値のECの比較(25°C)

物質	EC1 ( $\mu S/cm$ )	EC2 ( $\mu S/cm$ )	EC3 ( $\mu S/cm$ )	EC1/EC2	ri	
					陽イオン	陰イオン
HCℓ	421.4	426.2	411.8	0.989	0.967	0.965
HNO <sub>3</sub>	414.6	421.3	407.1	0.984	0.967	0.965
H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	399.5	429.8	403.1	0.930	0.960	0.841
CaCℓ <sub>2</sub>	130.4	135.9	123.2	0.960	0.845	0.957
CaSO <sub>4</sub>	121.4	139.8	114.7	0.870	0.824	0.820
KCℓ	147.0	149.5	144.6	0.981	0.965	0.965
KHCO <sub>3</sub>	115.3	118.0	113.8	0.977	0.965	0.965
KNO <sub>3</sub>	141.8	145.0	139.8	0.978	0.965	0.965
K <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	147.1	153.5	137.7	0.958	0.957	0.841
MgCℓ <sub>2</sub>	124.1	129.4	118.1	0.959	0.848	0.957
Mg(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	119.5	124.5	113.4	0.960	0.848	0.957
MgSO <sub>4</sub>	118.1	133.1	109.6	0.887	0.829	0.820
NH <sub>4</sub> Cℓ	147.6	149.7	144.6	0.985	0.964	0.965
NH <sub>4</sub> NO <sub>3</sub>	142.0	145.0	140.9	0.979	0.964	0.965
(NH <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	143.5	153.6	137.8	0.934	0.957	0.841
NaHCO <sub>3</sub>	93.5	94.6	91.3	0.988	0.965	0.965
NaNO <sub>3</sub>	120.4	121.6	117.3	0.990	0.965	0.965
Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	124.2	130.1	115.3	0.955	0.958	0.841
NaCℓ	123.7	126.5	122.0	0.978	0.965	0.965
平均				0.960	0.926	

各物質の濃度: 1me, EC1: 実測値(文献から引用), EC2: Kohlrouschのイオン独立移動の法則から算出, EC3: Arrheniusの式およびKohlrouschのイオン独立移動の法則から算出(ただし $\alpha=ri$ )。

を比較すると以下のとおりとなった。

$$EC1/EC2=0.960$$

$$\frac{1}{n} \sum ri = 0.926$$

$$\frac{1}{n} \sum ri^{\frac{1}{2}} = 0.961$$

つまり,  $EC1/EC2 \approx \frac{1}{n} \sum ri^{\frac{1}{2}}$  となった。

濃度が各0.5meの場合も, 前述の19物質のうち文献<sup>2)</sup>に記載のある13物質(HCℓ, HNO<sub>3</sub>, H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>, CaCℓ<sub>2</sub>, CaSO<sub>4</sub>, KCℓ, KHCO<sub>3</sub>, KNO<sub>3</sub>, K<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>, MgSO<sub>4</sub>, NaHCO<sub>3</sub>, Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>およびNaCℓ)では以下のとおり $EC1/EC2 \approx \frac{1}{2} \sum ri^{\frac{1}{2}}$  となった。

$$EC1/EC2=0.971$$

$$\frac{1}{n} \sum ri = 0.944$$

$$\frac{1}{n} \sum ri^{\frac{1}{2}} = 0.971$$

さらに希薄溶液では $EC1/EC2$ および $\frac{1}{n} \sum ri^{\frac{1}{2}}$ がいずれも1に近づくので,  $EC1/EC2$ と $\frac{1}{n} \sum ri^{\frac{1}{2}}$ の差はますます小さくなる。そこでイオンとECの関係を以下の近似式とした。

表2 イオンの極限当量導電率(25°C)

陽イオン		陰イオン	
Ca <sup>2+</sup>	59.5	Cl <sup>-</sup>	76.35
H <sup>+</sup>	349.81	HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	44.5
K <sup>+</sup>	73.5	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	71.46
Mg <sup>2+</sup>	53.05	OH <sup>-</sup>	198.3
Na <sup>+</sup>	50.10	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	80.02
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	73.55		

単位:  $\mu S/cm \cdot me$

表3 混合溶液のEC, 実測値と計算値の比較(25°C)

溶液	希釈率	EC ( $\mu S/cm$ )	
		実測値	計算値
混合溶液1	×1	104.1	103.5
(NH <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> 0.25me	×0.4	42.0	41.8
KCℓ 0.25me	×0.2	21.1	21.0
NaNO <sub>3</sub> 0.25me	×0.1	11.6	11.5
	×0.04	4.3	4.2
	×0.01	2.1	2.1
混合溶液2	×1	58.0	57.2
(HNO <sub>3</sub> 0.0655me)			
(NH <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> 0.2me			
混合溶液3	×1	437	436
(H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> 0.874me)	×0.1	45.4	44.6
KCℓ 0.5me	×0.04	18.4	17.9
混合溶液4	×1	201	200
(H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> 0.3496me)	×0.1	20.5	20.4
KCℓ 0.2me			
Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> 0.2me			

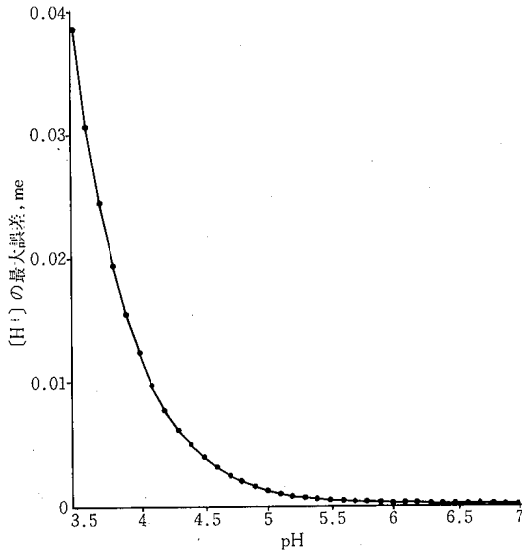


図 pHの有効数字2桁(3桁目四捨五入)の場合の[H<sup>+</sup>]の最大誤差

$$EC = \sum \lambda_{oi} \cdot r_i^{\pm} \cdot mei \quad \text{--- ⑤}$$

EC:  $\mu\text{S}/\text{cm}$  (25°C)

$\lambda_{oi}$ : 各イオンの極限当量導電率(表2)

$r_i$ : 各イオンの活動度係数

$m_{ei}$ : 各イオンのミリイオン当量

この式は溶存イオン量の差に比べて、 $r_i^{\pm}$ の差がはるかに小さいので、溶液中の大部分のイオンが既知であれば近似式として成立する。

雨水には多種のイオンが含まれる。そこで多種のイオンの溶存状態での近似式の実用性について実験した。まず各種の混合溶液を調製し、ECを測定し、イオン当量からは⑤式により計算上のECを求めた。この結果を表3に示す。実測値と計算値はよく一致し、この近似式は多種のイオンの存在下で適用できることがわかった。

H<sup>+</sup>は極限当量導電率が最も高く、近似式で計算上のECを求める場合にはその誤差は無視できない。H<sup>+</sup>はpHからの換算値であり、pHが低くなると対数的に大きくなる。図はpHを2桁にした場合の最大誤差を示している。pHが低下するに従って最大誤差は対数的に大きくなり、pH3.5では0.04me近くなる。これは近似式では約13 $\mu\text{S}/\text{cm}$ (25°C)の誤差に相当する。これらの誤差は雨水のイオンバランスを考える場合や近似式を使用する場合には大きすぎる値である。pHの桁数をさらに増せばこの問題は解決するので現在の市販のpH計の能力を考慮すれば小数点以下2桁まで測定し、これをH<sup>+</sup>に換算すべきである。また、精密測定用のpH計を用いる等pHの測定には最大限の注意が必要である。

### 3. 2. 雨水中のイオンとECの関係

1985年6月7日~7月12日の間の1mm分取試料(降り始めから降雨5mm目まで1mmごとに採取した試料)および日降雨(9時から翌日の9時の間の試料)の測定測結果を表4に示す。連続的に雨が降り続いた場合翌日は日降雨のみを採取したが、数時間の降雨間隔がある場合は1mm分取試料と日降雨の両方を採取した。またこの間の降雨日数は19日であった。表4の測定結果は先の報告<sup>4),5)</sup>とほぼ同程度の濃度であった。

表4から各イオンのミリイオン当量を算出し、⑤式により計算上のECを求めた。さらに1mm分取試料、日降雨および全検体について計算上のECと実測のECの平均値を求め表5に示した。1mm分取試料、日降雨および全検体のECの計算値と実測値はよく一致しており、測定項目が全溶存イオンのほぼ全てを占めていることを示した。実測値に比べ計算値の方がやや低いのは、主にSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>およびCl<sup>-</sup>に定量限界未満の検体があり、0として計算したこと、1mm分取試料では検水量が少なく、HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>を測定できず、計算に入れることができなかったからである。SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup> および

表4 雨水成分測定結果 (1985.6.7~7.12)\*

降雨区分	項目	pH	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> ( $\mu\text{g}/\text{ml}$ )	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> ( $\mu\text{g}/\text{ml}$ )	Cl <sup>-</sup> ( $\mu\text{g}/\text{ml}$ )	HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup> ( $\mu\text{g}/\text{ml}$ )	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> ( $\mu\text{g}/\text{ml}$ )	Na <sup>+</sup> ( $\mu\text{g}/\text{ml}$ )	K <sup>+</sup> ( $\mu\text{g}/\text{ml}$ )	Ca <sup>2+</sup> ( $\mu\text{g}/\text{ml}$ )	Mg <sup>2+</sup> ( $\mu\text{g}/\text{ml}$ )	EC ( $\mu\text{S}/\text{cm}$ (25°C))
1mm分取試料	n	56	56	56	56	0	56	56	56	56	56	56
	min.	3.69	<2.0	0.30	<0.50	—	0.05	0.03	<0.03	<0.05	<0.01	3.5
	max.	6.24	11	7.5	3.3	—	1.8	1.8	0.30	7.0	0.66	103
	Av.	4.70	2.6	0.98	0.81	—	0.45	0.39	0.09	0.46	0.07	26
日降雨**	n	17	17	17	17	17	17	17	17	17	17	17
	min.	4.11	<2.0	<0.30	<0.50	0	0.08	<0.03	<0.03	<0.05	<0.01	4.3
	max.	5.11	5.7	3.8	1.7	0.5	1.2	0.75	0.29	2.4	0.26	37
	Av.	4.67	<2.0	0.61	<0.50	0.1	0.31	0.26	0.08	0.23	0.04	18

\*降雨日数:19日。 \*\*日降雨:降雨量5mm未満の雨水は含まない。

表5 EC実測値の平均値と計算値の比較

降雨区分	実測値	計算値
1mm分取試料	18	17
日降雨	26	25
全検体	24	23

単位:  $\mu\text{S}/\text{cm}$  (25°C)。調査日: 1985.6.7~7.12。  
 検体数, 1mm分取試料: 56, 日降雨: 17。

$\text{Cl}^-$ の定量限界はそれぞれ2.0, 0.3および0.5 $\mu\text{g}/\text{ml}$ であり, ECに換算するとそれぞれほぼ3.0, 0.3および1 $\mu\text{S}/\text{cm}$ (25°C)に相当する。一方, 1mm分取試料の中で $\text{HCO}_3^-$ が含まれていたのは, pH値から判断すると56検体中12検体であった。

1985年6月22日から25日の間の雨水のpH, イオンおよびECの測定結果と⑤式により求めたECの計算値を表6に示す。この期間の雨水は調査期間を通じて特にpHが低かった。個々の試料においてもECの実測値と計算値はほぼ一致しており, 測定項目が全溶存イオンのほとんどを占めていた。

表6の雨水で, それぞれのイオンが示すECを算出し, それが実測したECに占める割合を求めて表7に示した。ほとんどの雨水で,  $\text{H}^+$ が寄与率の大半を占めており, 次に寄与率の高いのが $\text{SO}_4^{2-}$ であった。また1降雨で同程度の寄与率を示す項目が多かった。これ以外の試料についても, 降雨日ごとにほぼ同程度の寄与

率を示す項目が多かった。

表6の雨水について, 酸性化の原因を知る目的でイオンバランスの検討を行った。表8に陰イオンと陽イオンのミリイオン当量を示す。ここで, pH低下には数種のイオンが関与しているかもしれないが, EC実測値 $\approx$ EC計算値で, ほぼ全溶存イオンが知れておれば, 次式にあてはまる陰イオンがpH低下の原因に確実に関与するイオンであるといえる。

$$\text{陰イオン} > \text{H}^+ \text{以外の陽イオン} \quad \text{---} \quad \text{⑥}$$

6月22日~23日の1~4mmおよび日降雨, 6月23日~24日の全降雨とも $\text{SO}_4^{2-}$ が⑥式にあてはまる陰イオンであった。その他の検水では⑥式に該当する陰イオンはなかった。

全期間の雨水について同様の操作をした結果, ⑥式に該当する陰イオンは19日中5日にみられた。これらの雨水のpHおよび陰イオンを表9に示す。pH低下の原因に関与しているのはいずれも $\text{SO}_4^{2-}$ であった。またこれらの雨水のpHは全調査期間を通じて特に低かった。pH低下に関与する $\text{SO}_4^{2-}$ の起源は $\text{H}_2\text{SO}_4$ ,  $\text{SO}_2$ 等S系の化合物であり, 一般にこれらの起源は化石燃料の燃焼によるといわれている。

#### 4. おわりに

現在測定している雨水中のイオンが, 全溶存イオンのどの程度かを知るために, Arrheniusの式, Kolrousch

表6 雨水中のpH, イオンおよびEC

降雨日	区分	pH	$\text{SO}_4^{2-}$ ( $\mu\text{g}/\text{ml}$ )	$\text{NO}_3^-$ ( $\mu\text{g}/\text{ml}$ )	$\text{Cl}^-$ ( $\mu\text{g}/\text{ml}$ )	$\text{HCO}_3^-$ ( $\mu\text{g}/\text{ml}$ )	$\text{NH}_4^+$ ( $\mu\text{g}/\text{ml}$ )	$\text{Na}^+$ ( $\mu\text{g}/\text{ml}$ )	$\text{K}^+$ ( $\mu\text{g}/\text{ml}$ )	$\text{Ca}^{2+}$ ( $\mu\text{g}/\text{ml}$ )	$\text{Mg}^{2+}$ ( $\mu\text{g}/\text{ml}$ )	EC $\cdot\mu\text{S}/\text{cm}$ (25°C)	
												実測値	計算値
1985.6.22~23	1mm	4.11	5.3	1.5	0.73	0	0.61	0.38	0.08	0.37	0.07	43	44
	2mm	4.20	3.8	0.64	1.1	0	0.37	0.34	0.05	0.24	0.05	35	34
	3mm	4.10	4.4	0.88	1.1	0	0.39	0.37	0.05	0.17	0.05	40	41
	4mm	4.32	2.5	0.79	<0.50	0	0.23	0.25	0.08	0.09	0.03	23	24
	5mm	4.50	<2.0	0.36	0.56	0	0.18	0.12	<0.03	<0.05	0.02	16	14
	日降雨	4.32	2.8	1.2	0.64	0	0.37	0.22	0.05	0.11	0.03	26	26
1985.6.23~24	1mm	4.31	3.3	0.54	0.95	0	0.28	0.33	0.06	0.22	0.06	26	28
	2mm	3.69	9.8	1.6	3.3	0	0.62	0.63	0.11	0.23	0.11	103	100
	3mm	3.91	5.3	0.62	1.3	0	0.18	0.27	0.05	0.14	0.04	56	57
	4mm	4.11	4.1	0.32	0.82	0	0.14	0.15	0.05	0.11	0.02	36	37
	5mm	4.03	4.3	0.51	0.91	0	0.14	0.19	0.05	0.21	0.04	42	44
	日降雨	4.11	5.4	0.43	0.60	0	0.31	0.42	0.14	0.09	0.05	37	40
1985.6.24~25	1mm	4.39	4.6	<0.30	3.0	0	0.54	1.4	0.11	0.61	0.19	34	36
	2mm	4.47	3.6	<0.30	2.0	0	0.29	1.2	0.06	0.20	0.14	27	27
	3mm	4.67	2.3	<0.30	1.9	0	0.23	0.85	0.07	0.13	0.10	20	19
	4mm	4.26	3.6	<0.30	2.7	0	0.43	1.2	0.08	0.12	0.17	38	38
	5mm	4.07	4.6	<0.30	2.9	0	0.35	1.2	0.08	0.13	0.16	48	48
	日降雨	4.29	3.7	<0.30	1.7	0	0.29	0.73	0.06	0.14	0.10	23	31

表7 ECに対する各イオンの寄与率

降雨日	区分	H <sup>+</sup>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Cl <sup>-</sup>	HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	Na <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	Mg <sup>2+</sup>
1985.6.22~23	1mm	62.6	19.8	3.9	3.6	0	5.7	1.9	0.3	2.4	0.6
	2mm	62.6	17.5	2.0	6.7	0	4.2	2.1	0.2	1.9	0.6
	3mm	68.9	17.7	2.5	5.8	0	3.9	1.9	0.2	1.2	0.5
	4mm	72.3	17.6	3.9	—	0	4.0	2.3	0.6	1.1	0.5
	5mm	68.8	—	2.5	7.5	0	4.5	1.6	—	—	0.5
	日降雨	63.9	17.4	5.2	5.2	0	5.7	1.8	0.3	1.2	0.4
1985.6.23~24	1mm	65.4	20.5	2.3	7.8	0	4.3	2.7	0.4	2.4	0.9
	2mm	68.5	15.1	1.7	6.8	0	2.4	1.3	0.1	0.6	0.4
	3mm	76.4	15.2	1.2	4.9	0	1.2	1.0	0.1	0.7	0.3
	4mm	74.9	18.4	1.0	4.8	0	1.5	0.9	0.2	0.8	0.2
	5mm	77.1	16.5	1.3	4.6	0	1.3	0.9	0.2	1.4	0.4
	日降雨	72.8	23.5	1.3	3.4	0	3.3	2.4	0.7	0.6	0.5
1985.6.24~25	1mm	41.5	21.7	—	18.8	0	6.4	8.8	0.6	5.1	2.3
	2mm	43.5	21.5	—	15.8	0	4.3	9.6	0.4	2.1	2.1
	3mm	37.1	18.6	—	20.3	0	4.6	9.2	0.6	1.8	2.1
	4mm	53.7	15.2	—	15.1	0	4.5	6.8	0.3	0.9	1.8
	5mm	61.4	15.4	—	12.8	0	2.9	5.4	0.3	0.7	1.4
	日降雨	63.6	21.3	—	8.9	0	4.1	5.6	0.3	1.4	1.5

—: ND. 単位: %.

表8 雨水中の陰イオンと陽イオンのミリイオン当量

降雨日	区分	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Cl <sup>-</sup>	H <sup>+</sup>	その他の陽イオン
1985 6.22~23	1mm	0.11	0.02	0.02	0.08	0.08
	2mm	0.08	0.01	0.03	0.06	0.05
	3mm	0.09	0.01	0.03	0.08	0.05
	4mm	0.05	0.01	—	0.05	0.03
	5mm	—	0.01	0.02	0.03	0.02
	日降雨	0.06	0.02	0.02	0.05	0.04
1985 6.23~24	1mm	0.07	0.01	0.03	0.05	0.05
	2mm	0.20	0.03	0.09	0.20	0.09
	3mm	0.11	0.01	0.04	0.12	0.03
	4mm	0.09	0.01	0.02	0.08	0.02
	5mm	0.09	0.01	0.03	0.09	0.03
	日降雨	0.11	0.01	0.02	0.08	0.05
1985 6.24~25	1mm	0.10	—	0.08	0.04	0.14
	2mm	0.07	—	0.06	0.03	0.09
	3mm	0.05	—	0.05	0.02	0.07
	4mm	0.07	—	0.08	0.06	0.10
	5mm	0.09	—	0.08	0.09	0.09
	日降雨	0.07	—	0.05	0.05	0.07

—: ND, 単位: %.

表9 pH低下の原因に関与していた陰イオン

降雨日	pH	陰イオン
1985.6.18~19	3.92~4.12	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>
1985.6.22~23	4.10~4.50	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>
1985.6.23~24	3.69~4.31	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>
1985.6.26~27	4.15~4.52	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>
1985.6.28~29	4.20	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>

—: ND. 単位: %.

の独立移動移動の法則およびDebye-Hückel理論から溶存イオンとECの近似式を新たに作成した。

この近似式は多種のイオンの存在下で適用できることがわかった。

この近似式を雨水に適用した結果、現在測定してい

るH<sup>+</sup>, SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, Cl<sup>-</sup>, HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>, Na<sup>+</sup>, K<sup>+</sup>, Ca<sup>2+</sup>およびMg<sup>2+</sup>が全溶存イオンのほとんどを占めていることがわかった。

イオンのECに対する寄与率はpHの低い雨水ではH<sup>+</sup>が大半を占めていた。また1降雨については同程度を示す項目が多かった。

イオンバランスからpH低下の原因に関与している陰イオンを各降雨日ごとに検討した結果、19日中5日にSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>が関与していることがわかった。しかもこれらの雨水は調査期間を通じて特にpHが低かった。

— 参考文献 —

- 1) 王置元則, 平木隆年, 渡辺弘: 第25回大気汚染学会講演要旨集, 323, 1984.
- 2) 日本化学会編: 化学便覧, 基礎編II, 丸善, 1180~1201, 1966.
- 3) 水野直治: 日本土壌肥科学雑誌, Vol. 55, No.2, 1984.
- 4) 三谷美嶺雄, 岡田文明, 影浦久, 渡辺郁雄: 愛媛県公害技術センター所報, 4号, 1~3, 1983.
- 5) 三谷美嶺雄, 楠憲一, 影浦久, 岡本信二: 愛媛県公害技術センター所報, 6号, 1~6, 1985.
- 6) W.J.Moore著, 藤代亮一訳: 新物理化学上, 337~350, 東京化学同人, 1967.
- 7) Freiser H. and Ferrand Q.著, 藤永太郎, 関戸栄一訳: イオン平衡, 19~20, 化学同人, 1972.
- 8) 環境庁大気保全局大気規制課: 昭和58年度酸性雨成分分析調査実施細則, 15~28, 1983.
- 9) 日本水道協会: 上水試験方法, 201~210, 1978.
- 10) 楠憲一, 三谷美嶺雄, 渡辺和範: 愛媛県公害技術センター所報, 6号, 7~11, 1985.



# バックグラウンドオゾンに関する一考察

(東予支所) 影 浦 久・岡 田 文 明・池 田 広  
室 岡 学\*

## 1. はじめに

愛媛県東予地域におけるオキシダント濃度は、ひところの高濃度状態を脱して近年は注意報の発令はなくなっているが、毎年100ppb以上の濃度は数回観測されておりなお注意が必要である。

一般に、汚染地域に発生する高濃度オキシダントは、窒素酸化物-炭化水素系の光化学反応や他地域からの移流等によって説明されている。最近の報告では、オキシダント濃度におよぼす成層圏に起因するバックグラウンドオゾンの影響がとり上げられており<sup>1)~6)</sup>、光化学反応による生成を上回る場合さえあるという報告もある<sup>2), 3)</sup>。また、最高60 ppb程度という評価もあり<sup>7)</sup>、環境基準値との関係でも重要な問題となる。このバックグラウンドオゾンを考える場合、気象条件との対比が必要である。

ここでは、オキシダント濃度と各気象条件との関係を見るため、日周期の成分を取り除いたオキシダント濃度と各気象項目(気温、日射量、気圧)との全体的な変動の一致性について検討した。気温、日射量は、数日単位の周期性をもって変動しており、オキシダント濃度の変動とほぼ一致していた。しかし、気温等の変動が谷となった時オキシダント濃度の変動がピークを示す現象が何度かみられた。これらの日は、一般にオキシダント濃度が低下する夜間においても比較的高濃度を示していた。この現象について、大気じょう乱に伴った成層圏オゾンの侵入によるバックグラウンドオゾンの上昇という観点からオキシダント濃度の変動を評価したので報告する。

## 2. 測定データ

### 2. 1. 測定期間

昭和59年4月~9月

### 2. 2. オキシダント測定局

愛媛県東予地域は、東西に約70km、南北約25kmと東西に細長い地域である。ここでは、図1に示すとおり、東予地域の東西の端に位置する川之江局、東予局および中央のセンター局の3測定局を選んだ。

### 2. 3. 気象データ

今回使用した気象データは、気温、日射量、気圧お

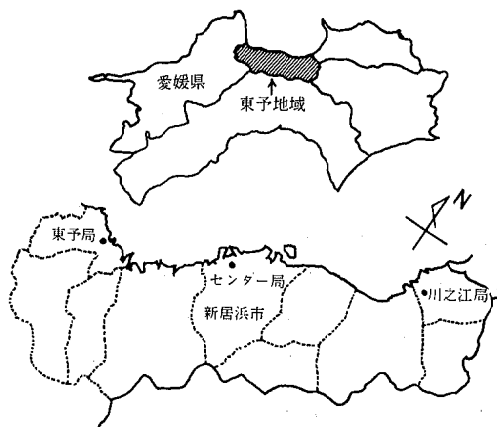


図1 測定局の位置

よび降雨量である。気温、日射量、気圧については、センター局の測定値を、降雨量は新居浜地区のアメダス観測データを使用した。

## 3. 結果と考察

### 3. 1. オキシダントと気象の変動

オキシダント濃度の日変化は、紫外線強度の日変化と類似し、8~9時頃から上昇し始め13~16時頃ピークに達し、その後急速に下降する。このような日変化は、特に晴天日にははっきり現われる。

ここでは、オキシダント濃度と気温、日射量、気圧の各気象条件との関係を見るため、センター局のオキシダントおよびそれぞれの気象項目について、24時間移動平均値を求め、日変化の短周期成分を取り除いた。その結果を図2に示す。なお、最上段にオキシダントの1時間値、最下段の気圧変動の図中に新居浜地区のアメダス観測による降雨量を合せて示す。

気温、日射量は、数日単位の周期性をもって変動しており、巨視的にみてオキシダント濃度とほぼ一致しているようにみえる。また、気圧の降下しているところではオキシダント濃度も低くなっている。

そこで、オキシダント濃度と気温、日射量および気圧の変動の一致性について、メジアン法を用いてカイ

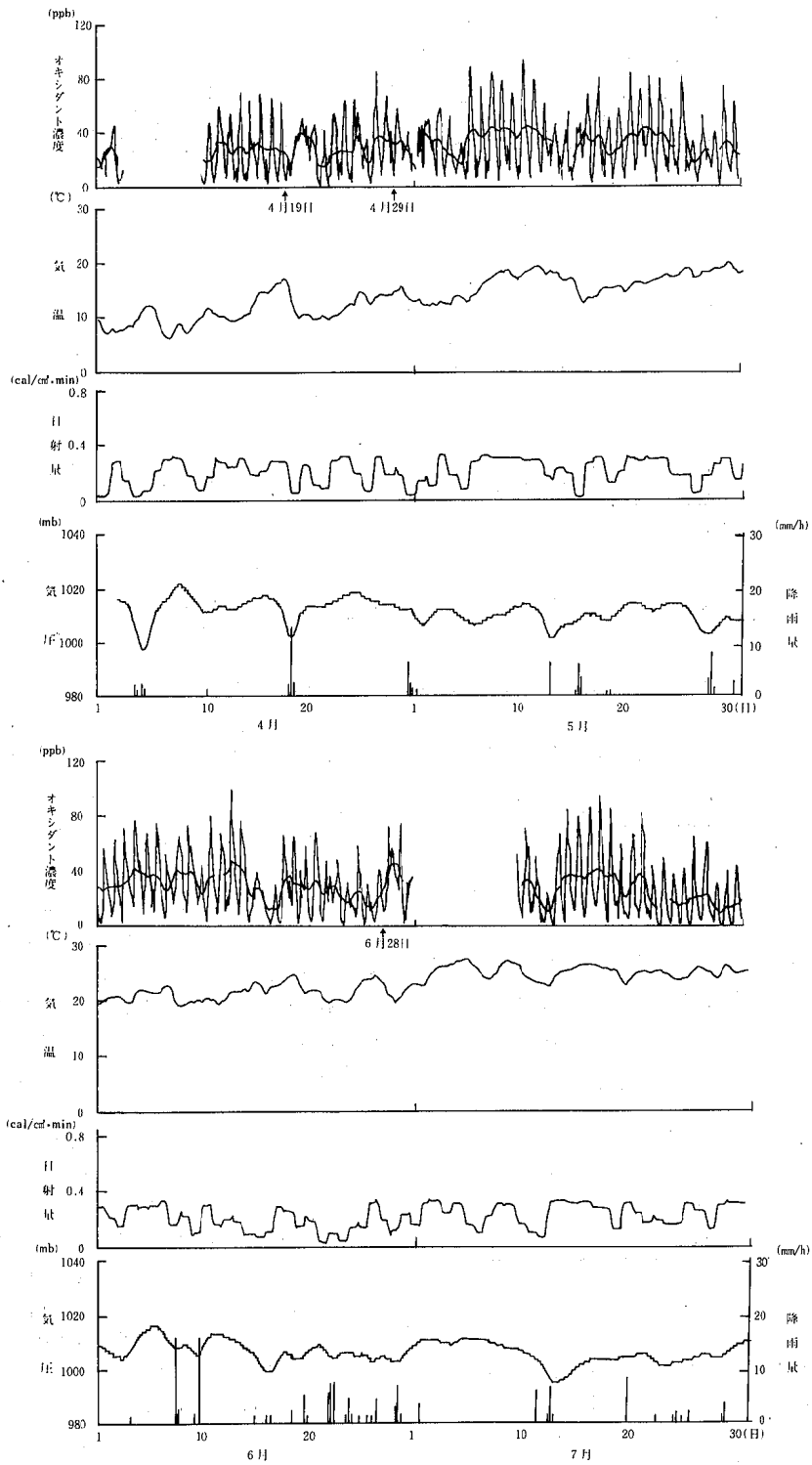


図2-1 オキシダントと気象の時間変動（センター局）

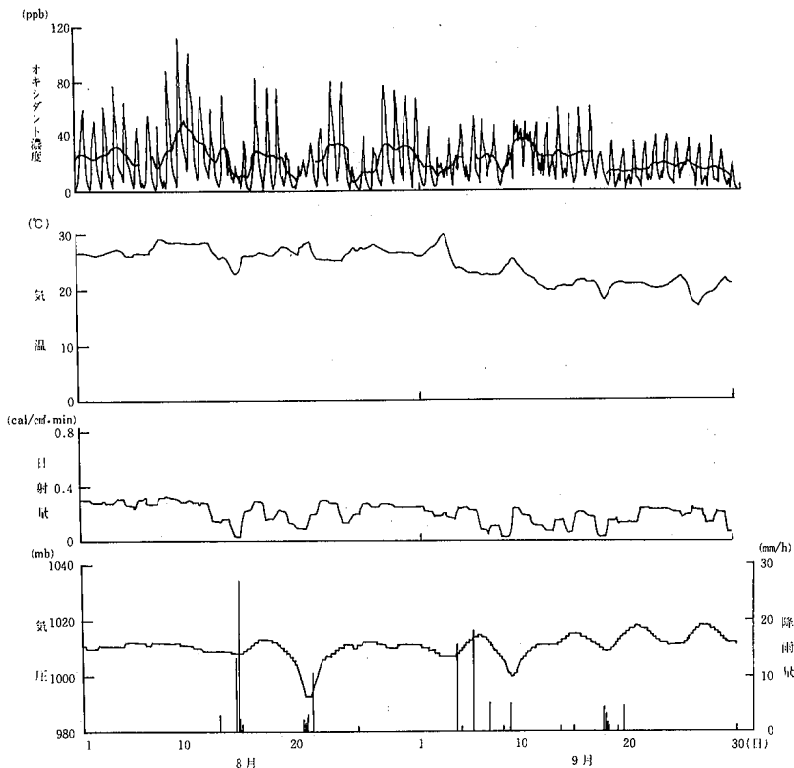


図2-2 オキシダントと気象の時間変動 (センター局)

表1 メジアン法によるカイ2乗検定結果

月	気 温		日 射 量		気 圧	
	n <sub>+</sub> (個) n <sub>-</sub> (個)	x <sup>2</sup> 値	n <sub>+</sub> (個) n <sub>-</sub> (個)	x <sup>2</sup> 値	n <sub>+</sub> (個) n <sub>-</sub> (個)	x <sup>2</sup> 値
4	303	43.66**	249	6.31*	217	17.09**
	161		196		139	
5	330	24.27**	456	229.64**	311	28.15**
	215		99		192	
6	281	3.63	423	105.88**	391	103.06**
	328		172		154	
7	274	37.62**	279	51.74**	164	2.51
	148		133		194	
8	330	4.81*	362	28.94**	225	0.69
	276		231		243	

注)  $x^2 = \frac{(n_+ - n_0)^2 + (n_- - n_0)^2}{n_0}$  (n<sub>0</sub>は期待値)

\* 5%有意 \*\* 1%有意

2乗検定した結果を表1に示す。なお、9月はオキシダント濃度が特異なので検定から除外した。また、気温については、季節における上昇、下降を傾向線により取り除いた後に検定を行った。

気温の6月、気圧の7、8月を除いて危険率5%で

有意であり、短周期の成分を取り除いた変動においてオキシダント濃度と気温、日射量および気圧の間には変動の一致性がみられた。

### 3. 2. バックランドオゾンの影響

オキシダントと各気象項目間には全体的な変動の一致性がみられたものの、細かくみれば、気温、日射量の変動が谷となった時オキシダントの移動平均値がピークを示す逆の現象がみられた。そういった特徴的な日は図2に示した4月19~21日、4月29~30日、6月28~29日などである。

これらの日の共通した特徴は、図3に示したとおり昼間高濃度となり夜間低くなるという一般的な日変化があまりみられず、夜間においても30~40ppbの比較的高濃度を示し、昼間の濃度とほとんど同じレベルとなっていることである。また、気圧の低下がみられ降雨が記録されている(図2)。この降雨後の夜間高濃度が最近報告されている低気圧通過後の成層圏大気の対流圏への侵入に伴ったバックランドオゾンであるなら、かなり広域的に同じ特徴が現われると考えられる。そこで、東予地域の東の川之江局、西の東予局および中央のセンター局(図1)について、オキシダント濃度の状況を比較検討した。

オキシダントのほとんどがオゾンであるので、以後オキシダント測定値をオゾン濃度と仮定し、4月と気圧の安定した8月の移動平均値と濃度変化を図4に示す。

4月の移動平均値をみると、3測定局ともほぼ同じ

動きを示し、先に述べた19~21日や29~30日にピークがみられた。そして、1時間値の変化でも夜間濃度が高くはつきりした日変化がないことがわかる。そしてその濃度は、図4からもわかるように、30~40 ppb程度であった。特に、図5に示したように、川之江局で

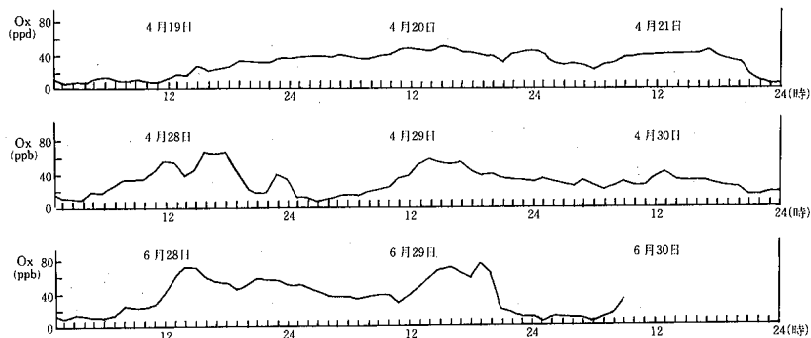


図3 特徴的な日のオキシダント濃度の変化 (センター局)

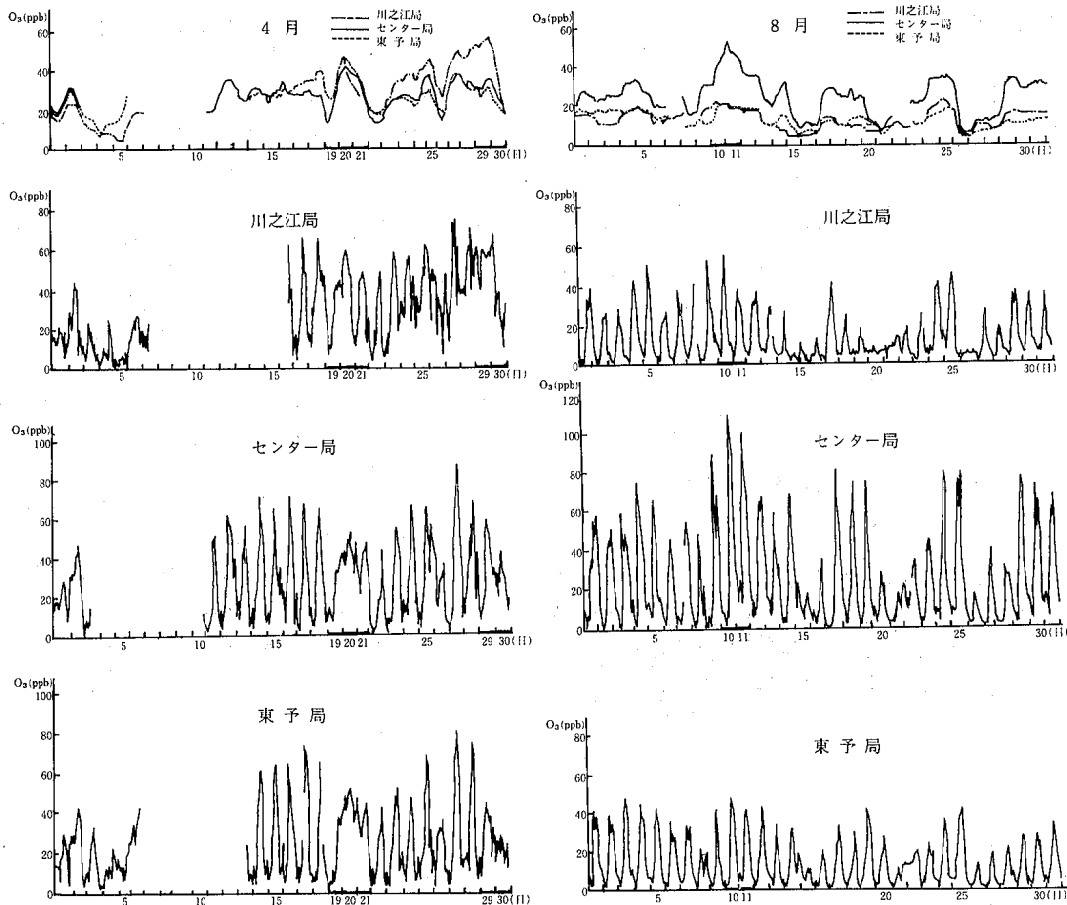


図4 オゾン濃度の変化

は29～30日の夜間に60ppbを超える濃度が出現した。

これら特徴的な日のうち4月19日から21日にかけての気圧配置の移り変りを図6に示す<sup>8)</sup>この天気図をみると、19日に低気圧が西日本を通過し20、21日は低気圧の後面にあたっている。

これらのことから4月19～21日等の夜間高濃度は、東予地域全体に広域的なものであり、成層圏大気の大気じょう乱に伴った成層圏オゾンの侵入によるバックグランドオゾンの上昇であると考えられる。そして、その濃度は30～40ppb程度で時には、環境基準値60ppbを超えることさえあると考えられる。

一方、8月の測定値をみると、3局とも一般的な日変化がほぼ毎日現われている。そして、夜間にはオゾン濃度がほとんど0にまで低下している。また、10日、11日にセンター局で100ppbを越えたのに対し、他の2測定局は、60ppb程度までしか上昇していないように3局の濃度差が4月に比べて大きいことがわかる。

このように、天候の安定した8月は、一般的な光化学反応が卓越し、昼間高濃度となり夜間に低下する濃度変化が支配的になると考えられる。

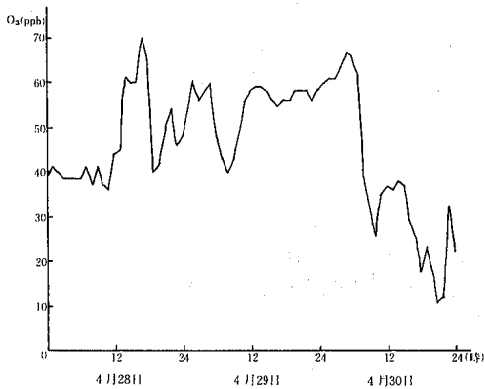


図5 オゾン濃度の変化(川之江局)



図6 天気図

#### 4. まとめ

オキシダント濃度の変動と気象の関係について次のことがわかった。

- (1) 日変化を除いたオキシダント濃度と各気象項目(気温、日射量、気圧)の間には、巨視的にみて変動の一致性がみられた。
- (2) 春には、夜間にオキシダント濃度が低下しないときが何度かみられたが、この現象は、東予地域全体に広域的な現象であり、数日間続く。
- (3) この夜間高濃度は、低気圧通過による成層圏オゾンの侵入に伴ったバックグランドオゾンの上昇だと考えられ、その濃度は、通常30～40ppb時には、60ppbを超える場合もある。
- (4) 一方、夏は、一般的な光化学反応が卓越し、昼間高濃度となり、夜間低下する日変化が支配的である。

#### — 参 考 文 献 —

- 1) 水野建樹他：環境大気中のオゾン濃度に関する事例解析，公害，16，323—329，1981.
- 2) 村尾直人他：札幌市における光化学オキシダントによる汚染に関する一考察，大気汚染学会誌，17，288—294，1982.
- 3) 村尾直人他：成層圏オゾンの地表オキシダント濃度に及ぼす影響に関する一考察，天気，29，537—545，1982.
- 4) 近藤裕昭他：播磨地域の夜間に観測された高濃度オゾンについて，公害，17，47—61，1982.
- 5) 藤田慎一他：地上オキシダント濃度に及ぼすバックグランドオゾンの影響，大気汚染学会誌，19，183—193，1984.
- 6) 鶴田治雄：日本におけるバックグランドオゾンの挙動(第2報)，第26回大気汚染学会講演要旨集，355，1985.
- 7) R.Guicherit：光化学オキシダント汚染およびその制御に関する三つの国際会議に関するレポート，経済協力国際機構 Env./AIR/76-180(通産省公害局公害防止指導課訳)，1976.
- 8) 財団法人日本気象協会：気象，6，1984.

# オキシダント濃度への判別関数の適用

(東予支所) 西原博明・佐々木正光

## 1. はじめに

本県では、56年以降光化学オキシダントに係る注意報発令はないが、59年は光化学オキシダント 80ppb 以上の高濃度出現日数が最も多かった。<sup>1)</sup>

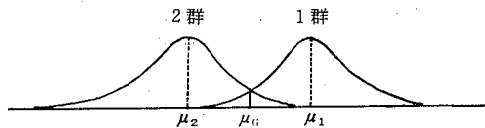
59年度の80ppb以上の高濃度出現の測定局と月日(曜日)は表1に示す。

この80ppb以上の高濃度出現の有無について、測定局別に昭和59年度のデータに基づき判別関数<sup>2~3)</sup>を用い、少しでも今後の光化学スモッグに関する調査を進める上での手がかりを得ることを目的とする。

なお、判別関数の手法について簡単なモデルを示す。この手法は全サンプルをグループ1とグループ2の2つに分ける方法で、m個のサンプルについてn個の変数に関するデータ(m×n)があるとすると、サンプルの各々にあらかじめ、それがあつかいカテゴリー(仮にAとする)に属するか、属さないかがわかっている場合、本来Aに属するサンプルを非Aと誤って判断する確率P(a/A)やその逆の確率P(ā/A)を最小にするように、各変数に適当な重みをかけ、それを合成することによって判別関数の値を求める。この関数fは

$$f = X' S^{-1} (\mu_1 - \mu_2) - 1/2 (\mu_1 - \mu_2)' S^{-1} (\mu_1 - \mu_2)$$

という形で表わされる。ただし、 $\mu_1 - \mu_2$ は1群のサンプルと2群のサンプルの各変数Xに関する平均合成量の差で、Sは全サンプルに関する分散共分散行列である。判別境界値を $\mu_G$ とすると、



の形となり、(合成変数-判別境界値)の正、負値で、2群を判別し、正しく判別する割合を正判別率として表示する。

## 2. 調査方法

### 2.1.1 調査地点

川之江局(川之江市上分町)、伊予三島局(伊予三島市宮川4丁目)、センター局(新居浜市八雲町)、中村局(新居浜市本郷3丁目)、高津局(新居浜市宇高町)、泉

表1 0.08ppmを超えた測定局と月日(曜日)

(昭和59年度)

No	日出曜山	川之江	伊予三島	センター	中村	高津	泉川	西条	東予	局数
1	4.27(金)		○	○		○			○	3
2	5.6(日)	○	○	○			○			5
3	5.8(火)	○	○	○		○				3
4	5.9(水)	○	○			○				2
5	5.11(金)	○		○						3
6	5.18(金)			○						2
7	5.21(月)			○						1
8	5.23(水)			○		○				1
9	5.24(木)			○						1
10	5.26(土)	○	○	○						4
11	5.30(水)		○			○				1
12	6.11(月)		○							1
13	6.13(水)		○	○			○			4
14	7.8(日)		○						○	2
15	7.15(日)	○	○	○						3
16	7.16(月)	○	○							2
17	7.17(火)	○	○	○						3
18	7.18(水)	○	○	○			○		○	5
19	7.19(木)	○	○	○			○		○	5
20	7.22(日)	○	○	○		○	○			4
21	8.9(水)			○		○				2
22	8.10(金)		○	○	○	○	○			5
23	8.11(土)			○						2
24	8.17(金)			○						1
25	8.25(土)					○				1
日数	11	16	19	1	9	6			4	66
備考	日…4	月…3	火…2		水…5	木…3	金…5	土…3		

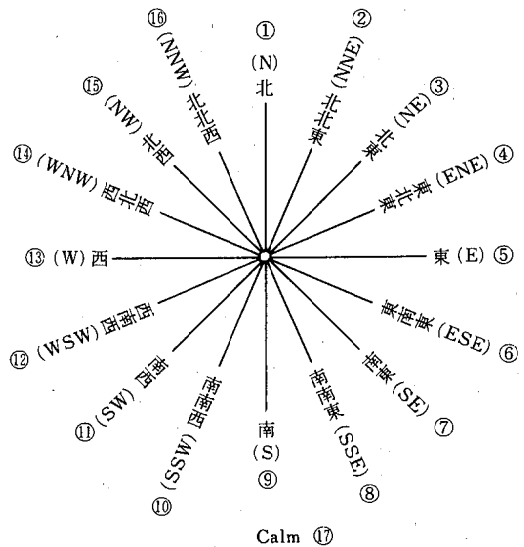


図1 風向(16方位)

川局（新居浜市星原町）、西条局（西条市大町）、東予局（東予市壬生川）の8測定局である。

## 2.2 調査項目

8測定局の4月～9月（9：00～21：00）における毎時のオキシダント濃度（Ox—ppm）、風向（16方位）、風速（m/s）、一酸化窒素濃度（NO—ppm）、二酸化窒素濃度（NO<sub>2</sub>—ppm）、非メタン炭化水素濃度（NMHC—ppm）の測定データを用い、風向はN(1)～NNW(16)（calm時—17）と数値化し、風速はcalm時について0.4m/sとする。（図1）

## 2.3 調査データ

この測定データについて、川之江局、伊予三島局、センター局、高津局、泉川局、東予局の各局で抽出した高濃度データを1群として非高濃度データ（原則として、高濃度出現の前日の同時刻のデータ）を2群として調査データに用いる（表3～表8）。

変数は(1)風向、(2)風速、(3)一酸化窒素濃度、(4)二酸化窒素濃度、(5)非メタン炭化水素濃度の5個である。

## 2. 調査結果

6局の1群、2群の平均合成変量、判別境界値、判別式を表2に示す。

表2 判別式

測定局名	1群の平均合成変量	2群の平均合成変量	判別境界値	粗データを標準化したときの判別式	粗データから直接に合成変量をもとめるときの判別式
川之江	-1.878	-3.844	-2.861	$f^* = 0.191832x_1 - 0.16036x_2 - 0.0297838x_3 - 0.961544x_4 - 0.109686x_5$	$f = 2.8613 + 0.039271x_1 - 0.230013x_2 - 21.6028x_3 - 133.141x_4 - 1.15297x_5$
伊予三島	1.105	0.560	0.832	$f^* = 0.382088x_1 - 0.234483x_2 + 0.625971x_3 - 0.541483x_4 + 0.337615x_5$	$f = -0.832406 + 0.087693x_1 - 0.372813x_2 + 133.395x_3 - 131.465x_4 + 4.92543x_5$
センター	-0.501	1.184	0.342	$f^* = 0.240819x_1 - 0.175232x_2 + 0.538333x_3 + 0.60277x_4 - 0.5081x_5$	$f = -0.341741 + 0.0401486x_1 - 0.226247x_2 + 137.078x_3 + 59.675x_4 - 3.88522x_5$
高津	-0.441	0.204	-0.118	$f^* = 0.266525x_1 + 0.019283x_2 - 0.200429x_3 + 0.76006x_4 - 0.55743x_5$	$f = 0.11821 + 0.0420777x_1 - 0.0372366x_2 - 94.1975x_3 + 65.7599x_4 - 8.41292x_5$
泉川	-0.871	-0.312	-0.591	$f^* = 0.186307x_1 - 0.105995x_2 + 0.64587x_3 + 0.240102x_4 - 0.692284x_5$	$f = 0.591429 - 0.0253901x_1 - 0.149229x_2 + 119.852x_3 + 14.9629x_4 - 8.74908x_5$
東予	-4.755	-3.938	-4.347	$f^* = 0.171972x_1 + 0.103108x_2 - 0.300985x_3 + 0.369385x_4 - 0.850612x_5$	$f = 4.34655 + 0.0567361x_1 + 0.149605x_2 - 0.425657x_3 + 174.13x_4 - 21.9653x_5$

表3 川之江局

群別	No	月日	時刻	Ox (ppm)	(1) 風向(16方位) (x <sub>1</sub> )	(2) 風速 (m/s) (x <sub>2</sub> )	(3) NO (ppm) (x <sub>3</sub> )	(4) NO <sub>2</sub> (ppm) (x <sub>4</sub> )	(5) NMHC (ppm) (x <sub>5</sub> )
1 群 (≥0.08ppm)	1	5.6	15:00	0.092	15	0.9	0.002	0.013	0.18
	2	〃	16:00	0.095	15	1.2	0.002	0.016	0.23
	3	〃	17:00	0.102	17	0.4	0.002	0.011	0.18
	4	〃	18:00	0.091	8	0.5	0.002	0.013	0.25
	5	7.15	12:00	0.082	14	2.3	0.002	0.017	0.31
	6	〃	13:00	0.085	14	2.5	0.002	0.012	0.20
	7	〃	14:00	0.090	15	1.7	0.002	0.009	0.24
	8	7.16	14:00	0.082	14	1.6	0.002	0.012	0.35
	9	〃	15:00	0.084	13	2.0	0.002	0.017	0.30
	10	〃	16:00	0.080	17	0.4	0.002	0.011	0.37
	11	7.17	16:00	0.086	14	1.4	0.002	0.015	0.38
2 群 (<0.08ppm)	12	5.5	15:00	0.046	11	1.2	0.004	0.025	0.17
	13	〃	16:00	0.048	13	2.1	0.004	0.025	0.20
	14	〃	17:00	0.044	9	0.8	0.004	0.029	0.47
	15	〃	18:00	0.040	17	0.4	0.006	0.035	0.41
	16	7.14	12:00	0.052	1	0.5	0.003	0.020	0.35
	17	〃	13:00	0.059	14	2.5	0.003	0.020	0.32
	18	〃	14:00	0.065	14	2.0	0.003	0.021	0.46
	19	7.14	14:00	0.065	14	2.0	0.003	0.021	0.46
	20	〃	15:00	0.059	14	0.7	0.004	0.030	0.41
	21	〃	16:00	0.059	1	1.4	0.006	0.028	0.36
	22	7.14	16:00	0.059	1	1.4	0.006	0.028	0.36

表4 伊予三島局

群別	No	月日	時刻	Ox (ppm)	(1) 風向(16方位) (x <sub>1</sub> )	(2) 風速(m/s) (x <sub>2</sub> )	(3) NO (ppm) (x <sub>3</sub> )	(4) NO <sub>2</sub> (ppm) (x <sub>4</sub> )	(5) NMHC (ppm) (x <sub>5</sub> )
1 群 (≥0.08ppm)	1	6.11	18:00	0.084	5	0.9	0.019	0.022	0.34
	2	7.15	14:00	0.096	16	1.7	0.001	0.004	0.19
	3	7.16	13:00	0.086	16	3.0	0.001	0.011	0.41
	4	〃	14:00	0.088	16	1.6	0.001	0.007	0.26
	5	7.22	14:00	0.089	16	1.2	0.001	0.007	0.16
	6	〃	15:00	0.091	16	1.5	0.001	0.007	0.17
	7	〃	16:00	0.097	16	1.0	0.001	0.007	0.17
	8	〃	17:00	0.095	16	1.1	0.001	0.007	0.19
2 群 (<0.008ppm)	9	6.10	18:00	0.040	1	0.9	0.013	0.016	0.24
	10	7.14	14:00	0.058	16	1.9	0.001	0.009	0.22
	11	7.14	13:00	0.055	16	2.6	0.001	0.009	0.25
	12	〃	14:00	0.058	16	1.9	0.001	0.009	0.22
	13	7.21	14:00	0.058	16	2.4	0.001	0.008	0.14
	14	〃	15:00	0.055	16	2.0	0.001	0.007	0.19
	15	〃	16:00	0.055	16	1.2	0.001	0.009	0.17
	16	〃	17:00	0.059	16	2.4	0.001	0.010	0.18

表5 センター局

群別	No	月日	時刻	Ox (ppm)	(1) 風向(16方位) (x <sub>1</sub> )	(2) 風速(m/s) (x <sub>2</sub> )	(3) NO (ppm) (x <sub>3</sub> )	(4) NO <sub>2</sub> (ppm) (x <sub>4</sub> )	(5) NMHC(ppm) (x <sub>5</sub> )
1 群 (≥0.08ppm)	1	6.13	16:00	0.098	1	1.2	0.004	0.012	0.24
	2	〃	17:00	0.087	1	0.7	0.004	0.015	0.64
	3	〃	18:00	0.080	12	0.9	0.005	0.020	0.59
	4	7.15	14:00	0.084	1	2.6	0.002	0.011	0.28
	5	8.9	13:00	0.088	1	3.0	0.002	0.012	0.24
	6	8.10	14:00	0.100	2	3.1	0.002	0.013	0.28
	7	〃	15:00	0.109	2	1.8	0.002	0.012	0.28
	8	〃	17:00	0.096	1	2.2	0.002	0.011	0.21
	9	〃	18:00	0.089	2	2.3	0.002	0.011	0.28
2 群 (<0.08ppm)	10	6.12	16:00	0.066	15	1.0	0.004	0.028	0.43
	11	〃	17:00	0.064	2	0.7	0.005	0.033	0.44
	12	〃	18:00	0.052	7	1.1	0.007	0.049	0.54
	13	7.14	14:00	0.049	16	1.8	0.008	0.034	0.34
	14	8.8	13:00	0.048	1	2.5	0.006	0.021	0.27
	15	8.8	14:00	0.035	16	2.8	0.007	0.022	0.32
	16	〃	15:00	0.022	16	1.7	0.007	0.014	0.29
	17	〃	17:00	0.019	2	1.2	0.007	0.021	0.29
	18	〃	18:00	0.008	5	2.0	0.019	0.024	0.55



表6 高津局

群別	No	月日	時刻	Ox (ppm)	(1) 風向 (16方位) (x <sub>1</sub> )	(2) 風速 (m/s) (x <sub>2</sub> )	(3) NO (ppm) (x <sub>3</sub> )	(4) NO <sub>2</sub> (ppm) (x <sub>4</sub> )	(5) NMHC (ppm) (x <sub>5</sub> )
1 群 (≥0.08ppm)	1	5.6	13:00	0.080	1	1.8	0.002	0.009	0.12
	2	〃	14:00	0.081	1	2.1	0.001	0.007	0.11
	3	5.26	14:00	0.080	1	1.5	0.002	0.013	0.11
	4	6.13	15:00	0.085	16	1.3	0.002	0.010	0.19
	5	〃	18:00	0.084	1	1.1	0.002	0.013	0.20
	6	8.9	13:00	0.095	1	2.2	0.003	0.008	0.10
	7	〃	14:00	0.088	1	1.9	0.002	0.007	0.07
	8	8.10	14:00	0.091	1	1.4	0.002	0.008	0.10
2 群 (<0.08ppm)	9	5.5	13:00	0.020	16	1.3	0.010	0.034	0.16
	10	〃	14:00	0.024	2	1.1	0.005	0.023	0.13
	11	5.25	14:00	0.064	1	0.7	0.002	0.016	0.10
	12	6.12	15:00	0.071	16	1.6	0.003	0.016	0.19
	13	〃	18:00	0.056	8	0.9	0.006	0.050	0.31
	14	8.8	13:00	0.057	1	2.5	0.003	0.007	0.06
	15	〃	14:00	0.063	16	2.2	0.003	0.007	0.05
	16	8.8	14:00	0.063	6	2.2	0.003	0.007	0.05

表7 泉川局

群別	No	月日	時刻	Ox (ppm)	(1) 風向 (16方位) (x <sub>1</sub> )	(2) 風速 (m/s) (x <sub>2</sub> )	(3) NO (ppm) (x <sub>3</sub> )	(4) NO <sub>2</sub> (ppm) (x <sub>4</sub> )	(5) NMHC (ppm) (x <sub>5</sub> )
1 群 (≥0.08ppm)	1	5.6	14:00	0.094	16	2.7	0.005	0.017	0.14
	2	〃	15:00	0.083	1	2.1	0.006	0.032	0.18
	3	〃	16:00	0.082	1	1.1	0.006	0.036	0.22
	4	〃	17:00	0.084	16	1.3	0.006	0.024	0.14
	5	7.22	15:00	0.080	1	0.9	0.002	0.010	0.12
2 群 (<0.08ppm)	6	5.5	14:00	0.017	3	0.7	0.020	0.053	0.37
	7	〃	15:00	0.019	17	0.4	0.015	0.050	0.24
	8	〃	16:00	0.022	15	0.6	0.012	0.049	0.23
	9	〃	17:00	0.023	2	0.4	0.009	0.048	0.25
	10	7.21	15:00	0.056	2	1.3	0.003	0.010	0.08

表8 東子局

群別	No	月日	時刻	Ox (ppm)	(1) 風向 (16方位) (x <sub>1</sub> )	(2) 風速 (m/s) (x <sub>2</sub> )	(3) NO (ppm) (x <sub>3</sub> )	(4) NO <sub>2</sub> (ppm) (x <sub>4</sub> )	(5) NMHC (ppm) (x <sub>5</sub> )
1 群 (≥0.08ppm)	1	7.15	13:00	0.084	4	2.5	0.002	0.006	0.25
	2	7.19	16:00	0.083	4	1.9	0.000	0.006	0.29
2 群 (<0.08ppm)	3	7.14	13:00	0.050	4	1.8	0.001	0.003	0.19
	4	7.20	16:00	0.043	11	0.6	0.001	0.009	0.28

この判別式 f を用いて、表3 (川之江局)～表8 (東子局) のデータについて計算した判別結果は表9 (川之江局) から表14 (東子局) まで示す。

この判別結果について表12の高津局の正判別率93.8%を除いて全て正判別率100%である。

表9 判別結果(川之江局)

群別	No	f 値	判別結果	正判別率
1 群 (≧0.08ppm)	1	1.26	1	100 (%)
	2	0.74	1	
	3	1.72	1	
	4	1.00	1	
	5	0.22	1	
	6	0.96	1	
	7	1.54	1	
	8	1.00	1	
	9	0.26	1	
	10	1.50	1	
	11	0.61	1	
2 群 (<0.08ppm)	12	-0.59	2	
	13	-0.76	2	
	14	-1.46	2	
	15	-1.83	2	
	16	-0.35	2	
	17	-0.26	2	
	18	-0.44	2	
	19	-0.44	2	
	20	-1.30	2	
	21	-1.69	2	
	22	-1.69	2	

表10 判別結果(伊予三島局)

群別	No	f 値	判別結果	正判別率
1 群 (≧0.08ppm)	1	0.40	1	100 (%)
	2	0.47	1	
	3	0.15	1	
	4	0.46	1	
	5	0.11	1	
	6	0.05	1	
	7	0.24	1	
	8	0.30	1	
	9	-0.40	2	
	10	-0.11	2	
	11	-0.23	2	
	12	-0.11	2	
	13	-0.56	2	
	14	-0.04	2	
	15	-0.10	2	
	16	-0.63	2	

表13 判別結果(泉川局)

群別	No	f 値	判別結果	正判別率
1 群 (≧0.08ppm)	1	-0.60	1	100 (%)
	2	-0.13	1	
	3	-0.27	1	
	4	-0.17	1	
	5	-0.23	1	
	6	0.36	2	
	7	0.53	2	
	8	0.27	2	
	9	0.09	2	
	10	0.15	2	

表14 判別結果(東予局)

群別	No	f 値	判別結果	正判別率
1 群 (≧0.08ppm)	1	-0.35	1	100 (%)
	2	-0.47	1	
2 群 (<0.08ppm)	3	0.77	2	
	4	0.05	2	

3. まとめ

今回、オキシダント濃度への判別関数の適用に5変数を用いて判別式を算出し、一つのパターンを形成しかなり良好な正判別率を得たが、今後用いるデータ、とくに日射量等の気象ファクター、他の大気汚染物質濃度等の変数を加え、さらに単年度の測定データだけでなく、経年データをも用いてより普遍性の高い判別式を求めることが今後の課題である。

いずれにしても、光化学スモッグ調査を進める上で一つの手がかり(予報等)となれば幸甚である。

表11 判別結果(センター局)

群別	No	f 値	判別結果	正判別率
1 群 (≧0.08ppm)	1	-0.24	1	100 (%)
	2	-1.50	1	
	3	-0.48	1	
	4	-1.05	1	
	5	-0.92	1	
	6	-1.00	1	
	7	-0.77	1	
	8	-0.68	1	
	9	-0.94	1	
2 群 (<0.08ppm)	10	0.58	2	
	11	0.53	2	
	12	1.48	2	
	13	1.70	2	
	14	0.16	2	
	15	0.70	2	
	16	0.58	2	
	17	0.55	2	
	18	1.31	2	

表12 判別結果(高津局)

群別	No	f 値	判別結果	正判別率
1 群 (≧0.08ppm)	1	-0.38	1	$\frac{16-1}{16} \times 100 = 93.8(\%)$
	2	-0.32	1	
	3	-0.04	1	
	4	-0.29	1	
	5	-0.81	1	
	6	-0.36	1	
	7	-0.09	1	
	8	-0.29	1	
	9	0.79	2	
	10	0.19	2	
	11	0.21	2	
	12	0.02	2	
	13	0.60	2	
	14	-0.07	1	
	15	0.63	2	
	16	0.21	2	

— 参 考 文 献 —

- 1) 愛媛県: 愛媛県における光化学スモッグを主とした大気汚染調査報告書 (12報), March, 1985
- 2) 奥野忠一他: 多変量解析法, 1971
- 3) 奥野忠一他: 続多変量解析法, 1976

# 小野川における水質汚濁の現況

越 智 久 尚・毛 利 作 太 郎・渡 辺 郁 雄

## 1. はじめに

水質汚濁の主要原因とされてきた工場・事業場排水は水質汚濁防止法の施行以来、汚水処理施設の普及により水質が著しく改善されてきた。一方、人の生活活動に伴って発生する生活系排水は、下水道施設が十分普及していないことから、水質悪化を招く一原因として指摘されている。これらのことから、流路長は短い流域人口の多い小野川を対象河川に選定し、当河川における水質汚濁の現況を把握することにより、汚濁源の解明を試みた。また、コレステロール、コプロスタノールの環境中における挙動についても把握を試みたので、結果を報告する。

## 2. 調査方法及び分析方法

### 2.1 調査方法

汚濁状況を把握するための調査（以下「状況調査」という）は、昭和58年11月16日、59年8月27日、60年1月9日の3回、14地点で実施した。調査地点を図1に示す。また、濃度の時間変動を把握するための調査（以下「通日調査」という）は、59年4月23日から24日にかけて、St4で実施した。

コレステロール、コプロスタノールの分解速度の測定は、59年11月14日～21日の間、実験室で実施した。

### 2.2 分析方法

pH、DO、BOD、MBAS、T-P、T-NはJIS K0102による方法、コレステロール、コプロスタノールは、所報第2号に報告した方法<sup>1)</sup>により分析を行った。

## 3. 小野川の概要

小野川は、松山市南西部の人口密集地を流下する、流路長約15km、流域面積約40km<sup>2</sup>の河川で、途中石手川と合流して一級河川重信川に流入する。現状では、人口約77,000人、浄化槽約14,000基からの排水が小野川に流入している。一方、当流域に、水質汚濁防止方法に基づく規制対象工場・事業場は、ほとんどない。

また、流域の河川改修は部分的になされているものの、まだ自然がかなり残された河川である。

なお、今回設定した調査地点のうち、St1～3は、

石手川流域に含まれるが、調査当日は石手川に流水がなかったので、小野川の流水として評価した。

## 4. 調査結果及び考察

### 4.1 状況調査

#### 4.1.1 濃度

測定値を項目ごとに評価するのでは持報量に限界があるので、調査3回の結果を給合特性値に要約して評価するため、主成分分析を行った。計算は、相関行列から開始した。

表1に相関行列を、表2に因子負荷量及び寄与率を示す。

第1主成分 ( $Z_1$ ) は、汚濁指標と考えられるCOD、MBAS、コレステロール、コプロスタノールとは正で強い相関を持つ。このことから、 $Z_1$  は「大きさの因子」すなわち汚濁度を表わす指標と考えられる。

第2主成分 ( $Z_2$ ) は、光合成の指標と考えられるpH、DOと正で強く相関することから、 $Z_2$  は光合成の強さを表わす指標と考えられる。

累積寄与率は、 $Z_2$  まででほぼ90%を占めており、情報の大部分は、 $Z_2$  までで説明できる。従って、以後は $Z_2$  成分までを考察する。

調査季節別に、基準化したスコア散布図を図2～4に示す。

$Z_1$  スコアは、St8で、1月(冬季)に異常に大きいスコアを示した以外は、St5まで、流下とともに大きくなり、その下流域で小さくなっていると言える。このことは、流域人口がSt5まで増加するが、その下流で増加しないことと良く一致している。また、上流のSt9～12はスコアが小さく、季節による変動が少ない。これは、流域からの汚濁水の流入が少ないためと考えられる。

調査地点のうち、St13とSt14は常にスコアが大きくなっている。このことは、流域人口が多いことのみならず、人口の密集化も寄与しているものと推察される。

季節別にスコアをみると、冬季>秋季>夏季の順に小さくなっている。これは、汚濁の浄化に関与する生物の活性が、水温に依存していることを反映したもの

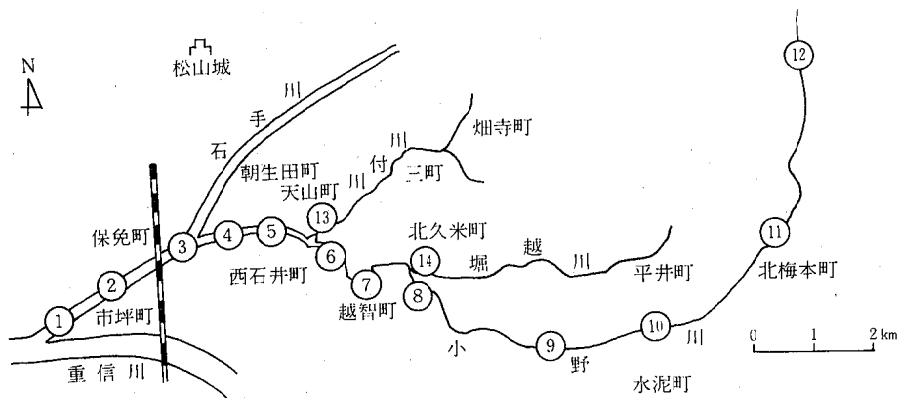


図1 調査地点図

表1 相関係数行列

pH	.630							
DO	-.154	-.345						
COD	-.270	-.478	.856					
T-P	-.398	-.502	.846	.857				
T-N	-.353	-.569	.863	.892	.789			
MBAS	-.333	-.529	.907	.918	.928	.882		
コレステロール	-.372	-.545	.902	.721	.939	.873	.985	
コプロスタノール	-.207	-.343	.517	.466	.487	.336	.503	.514
流域	pH	DO	COD	T-P	T-N	MBAS	コレステロール	コプロスタノール

n=41  
\*\* 有意水準 1%

表2 主成分分析結果

項目	第1主成分 (Z <sub>1</sub> )		第2主成分 (Z <sub>2</sub> )	
	因子荷量	寄与率%	因子荷量	寄与率%
pH	-.446	19.9	.796	63.3
DO	-.597	35.6	.673	45.3
COD	.881	77.6	.341	11.6
T-P	.955	91.3	.180	3.2
T-N	.962	92.5	.102	1.1
MBAS	.925	85.6	.015	0.0
コレステロール	.975	95.1	.101	1.0
コプロスタノール	.979	95.9	.075	0.6
累積寄与率	74.2		89.9	

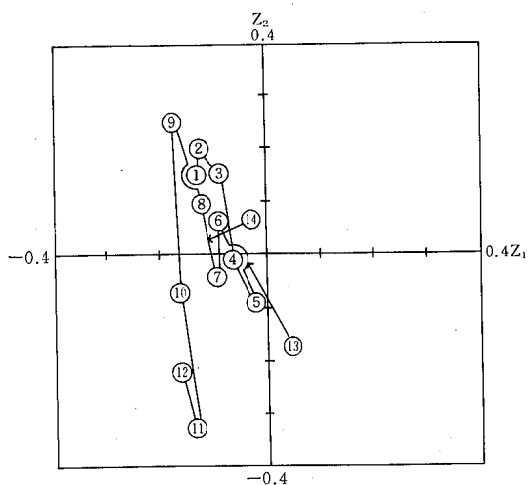


図2 スコア散布図(夏)

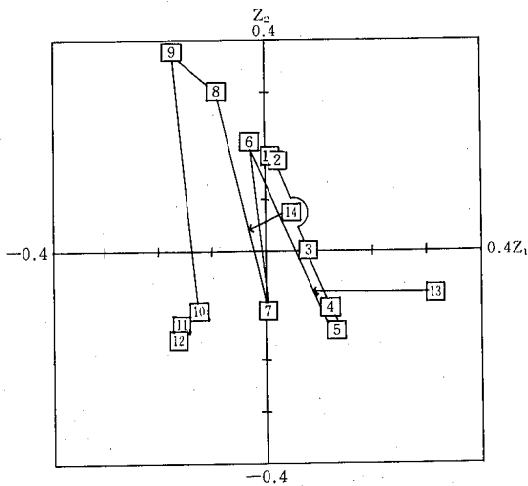


図3 スコア散布図(秋)

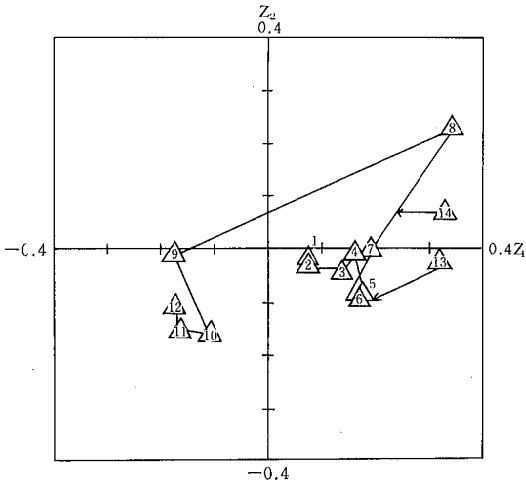


図4 スコア散布図(冬)

図3 流域別流入負荷量

流域名	流域人口 人	COD		T-P		T-N		MBAS		コレステロール		コプロスタノール		
		kg/日	%	kg/日	%	kg/日	%	kg/日	%	kg/日	%	kg/日	%	
支川	堀越川	6,673	48.5	9	3.13	9	24.1	10	3.13	10	127	11	42.0	10
	川付川	22,611	223	44	15.6	47	114	46	24.2	68	625	53	224	56
本川	A*	13,329	61.4	11	2.85	9	20.4	8	1.89	5	71.4	6	20.5	5
	B*	30,852	190	36	11.4	35	90.6	36	6.00	17	353	30	117	29
計	73,465	533	100	32.98	100	249.1		35.4	100	176.6	100	403.5	100	

\*St 8より上流 \*\*St 5とSt 7の間

とみなせる。

Z<sub>2</sub>スコアは、St 1, St 2, St 9で比較的大きいスコアを示しており、光合成の強いことがわかる。また季節別では、低水温期の冬季が、夏季、秋季に比べてスコアが少く、光合成が弱くなっている。

#### 4.1.2 負荷量

小野川流域では、流域人口の大部分がSt 5より上流に分布している。このことから、St 5より上流を、①堀越川 ②川付川 ③小野川A (St 8より上流) ④小野川B (St 5とSt 7の間)の4流域に区分し、COD, T-P, T-N, MBAS, コレステロール, コプロスタノールについて求めた負荷量を表3に示す。ただし、負荷量は調査3回の幾何平均値である。

各項目とも、川付川が全体の40%以上、次いで小野川Bが、MBASを除けばほぼ30%以上を占めており、両流域に人口が多いこと及び密集していることとよく一致している。また両流域を合せると、各項目とも総負荷量の75%以上を占めており、小野川流域での流入負荷量の大部分が、川付川及び小野川B流域で発生

しているといえる。

#### 3.2 通日調査

人口密集地を流下する河川の水質は、流域住民の生活活動に伴って変動することが予想される。このことから、小野川流域における水質の時間変動を把握するため、St 4において、1時間毎に26回、COD, MBAS, コレステロール, コプロスタノール, pH, DO, 流量を測定した。結果を図5に示す。

各項目とも周期的に変動しているが、流量は正午及び深夜に極大、早朝及び夕方極小があり、そのうち正午に最大値、早朝に最小値がみられる。これは、流域住民の生活時間帯が反映したものと考えられる。また、流量に対する各項目の従属性をみるため求めた、スピアマンの順位相関係数を表4に示す。COD, MBASについては、危険率1%で有意な正の従属性を示すが他は示さない。このことは、流量の変動が流入

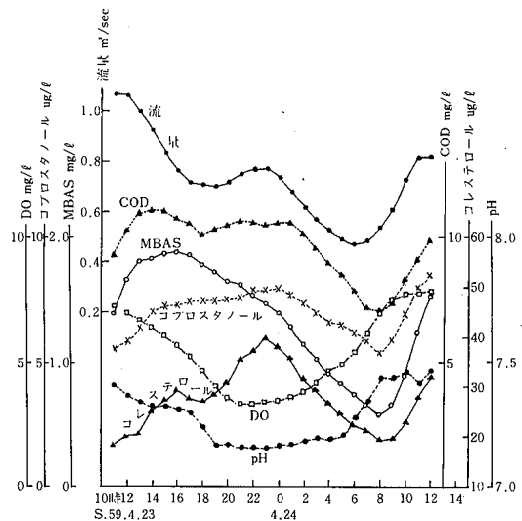


図5 時間変動(3項移動平均値)

表4 スピアマンの順位相関係数

項目	DO	pH	COD	MBAS	コレステロール	コプロスタノール
流量	0.193	0.152	0.526	0.595	0.031	0.164

\*\*有意水準 1%

域住民の生活時間帯を反映していること及びCOD, MBAS濃度の変動が流量の変動パターン類似していることと併せて考えると, 小野川の流量変動は, 流域から流入する生活系排水の流入量に大きく依存していることが推察できる。

pH, DOは, 昼間高く夜間低くなっている。これは, 藻類などの光合成作用によるためと考えられる。

### 3.3 分解速度の測定

これまで, 県内3河川(肱川, 重信川, 広見川)において, コレステロール, コプロスタノールなどの調査を行ってきた結果, 両ステロールが人畜汚染の指標物質として有効であることがわかった。<sup>2)3)</sup>しかし, これらステロールの環境中における分解性は未検討であったので, 今回, 分解速度を測定することからその把握を試みた。

分解速度の測定には, St1及びSt4で採水した河川水をガラスウールでろ過して使用し, 通気状態及び静置状態で濃度の時間変動を測定した。

期間中通気状態の試料は10ℓの試料に対し500ml/分の通気量を保持した。また, 各試料は実験室雰囲気に放置し, 温度調節は行わなかったが, 液温はほぼ20℃で安定していた。

一次反応速度式を仮定<sup>4)</sup>して求めた速度定数を表5に示す。

両ステロールとも分解速度定数は, 静置状態のものに比べて通気状態のものが約1.5倍であった。ステロールの分解速度定数としては, 小椋が, コレステロール $0.0075\text{hr}^{-1}$ , コプロスタノール $0.0063\text{hr}^{-1}$ を報告<sup>5)</sup>しており 筆者らの静置状態の速度定数とほぼ一致している。そこで, 今回算出した静置状態の速度定数を使って小野川での濃度の減衰量を試算すると, 当河川の

表5 分解速度定数

区 分	コレステロール		コプロスタノール	
	静 置	通 気	静 置	通 気
St1速度定数 ( $\text{hr}^{-1}$ )	0.0097	0.015	0.010	0.014
St4速度定数 ( $\text{hr}^{-1}$ )	0.0090	0.013	0.0076	0.012
平均	0.0094	0.014	0.0088	0.013

平均流速 0.22m/秒で流路長15kmを流下すれば, 最大でコレステロール14%, コプロスタノール12%濃度が減衰したことになる。このことは, 河川に流入したコレステロール, コプロスタノールは, 極端な分解は受けず, かなり河川水中に残留していることを示しており, 汚濁指標物質として有効であることがわかる。

### 4. まとめ

今回の調査から次の結果を得た。

- ① 小野川では, 中流域で汚濁が大きい, その原因は, 流域人口, 負荷量からみると, 流域から流入する生活排水であると考えられる。
- ② 季節別に汚濁度をみると, 冬>秋>夏の順に小さくなっている。
- ③ 流量変動は, 生活系排水の流入量に大きく依存しており, そこには, 流域住民の生活時間帯が反映している。
- ④ 小野川の流水を使用して求めた分解速度定数は, コレステロール $0.0094\text{hr}^{-1}$ , コプロスタノール $0.0088\text{hr}^{-1}$ であり, 両ステロールが環境中で安定であることを示唆している。

### — 参 考 文 献 —

- 1) 越智久尚, 林 弘, 篠崎由紀, 岡田啓: 愛媛県公害技術センター所報第2号, 60-64, 1980
- 2) 越智久尚, 二宮久: 愛媛県公害技術センター所報第4号, 18-23, 1982
- 3) 越智久尚, 篠崎由紀, 林 弘: 愛媛県公害技術センター所報第6号, 31-34, 1985
- 4) 古坂澄石: 土壤微生物入門, 44-46
- 5) 小椋和子: 地球化学, 17, 68-75, 1983  
伊藤治郎, 立川涼: 陸水学雑誌, 39, 3, 1978  
伊藤治郎, 立川涼: 地球化学, 12, 1978  
岡本拓, 橋本敏子: 広島県環境センター研究報告5, 1983  
小倉紀雄, 市川陽子: 地球化学, 17, 1983  
高雄真一: 水質汚濁研究, 7, 8, 1984  
園田浩二, 中村洋祐: 愛媛県公害技術センター所報第6号, 1985

# プランクトン相から見た県内5湖沼の富栄養化状態について（鹿野川湖を中心として）第1報

中村 洋 祐

## 1. はじめに

現在、湖沼の富栄養化問題は、全国的な社会問題となっている。愛媛県では、鹿野川湖、面河ダム、黒瀬ダム、柳瀬ダム及び新宮ダムの5湖沼について、昭和56年度から順次、りん、窒素等の栄養塩類の調査を追加してきた。しかし、あくまで理化学的調査が中心であった。

富栄養化問題は利水障害から起ってきたものでありその原因のほとんどの場合がプランクトンによるものである以上、理化学的調査に加えてプランクトン調査が必要である。さらに、富栄養化問題を利水という側面から眺めるのみでなく、生態系の変化としてとらえることが必要と考えた。これらの観点から、低次生産生物であるプランクトン調査が必要と考えている。

そこで、今回、鹿野川湖を中心に県内5湖沼について、プランクトン相からその富栄養化状態について検討を行った。その結果、若干の知見が得られたので報告する。

## 2. 調査方法

### 2. 1. 調査地点

今回調査を行った5湖沼は全てダム湖であり、その位置を図1に示す。鹿野川湖については、ダムの中央付近と堰堤付近の2地点、柳瀬ダムはダム中央付近、新宮ダム、黒瀬ダム及び面河ダムについては堰堤付近でそれぞれ調査を行った。

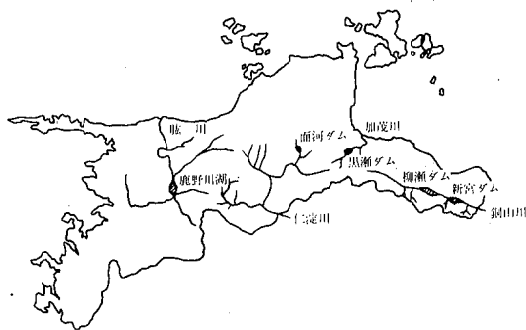


図1 県内5湖沼位置図

Yousuke NAKAMURA

### 2. 2. 調査期間

鹿野川湖の調査は、昭和60年1月から60年12月まで行った。

また、新宮ダム、柳瀬ダム、黒瀬ダム及び面河ダムについては、60年7月から9月を中心に調査を行った。

### 2. 3. プランクトン調査の方法

5湖沼とも、表層水を採水し、次の二つの方法で濃縮し顕微鏡観察を行った。

① 試料の約2ℓを中性ホルマリンで固定して<sup>1)</sup>数十倍から数百倍に濃縮した。

② 試料の約300mlをメンブランフィルターでろ過し、数秒間超音波処理を行い毎分3,000回転で数分間遠沈処理を行い濃縮した。

試料は①の方法により濃縮を行い、その0.1mlを格子線付きスライドグラスに取り固定を行いながら計数した。また、プランクトンによっては固定することによって固定が困難となる場合があるので、②の方法により前もって顕微鏡観察を行うようにした。

固定については、「日本淡水プランクトン図鑑」<sup>2)</sup>によった。

## 3. 調査結果及び考察

### 3. 1. 鹿野川湖のプランクトン相の季節変化

鹿野川湖のプランクトン相の変化を表1に示す。なお採水は2地点で行ったが両地点で種類、個体数に多少の違いはあったがプランクトン相の大きな違いはなかったので堰堤付近を中心に述べる。

1月から2月にかけては珪藻が特に多く、一時期、湖水の色がいくぶん茶色味を帯びていた。これは、森下の報告<sup>3)</sup>にもあるように *Melosira* 等の珪藻が増加するためと思われる。

3月には、*Melosira* にかわって *Asterionella* が非常に多くなっていた。この時、*Peridinium* も多く見られた。

4月には、*Peridinium* が優占していた。この時、わずかではあるが、緑藻の *Pediastrum* が確認された。

5月になると緑藻が種類、量とも少し増えてきた。個体数では *Cyclotella* が多かったが大きさは非常に小

表1 鹿野川湖のプランクトンの季節変化

採水月日	1月17日	2月4日	3月5日	4月16日	5月23日	6月11日
珪藻植物	Melosira ★ Synedra Gyrosigma ①	Melosira ② Asterionella ② Synedra Navicula	Asterionella ★ Melosira ② Synedra Cymbella	Melosira Synedra Asterionella	Cyclotella ② Asterionella Fragilaria Melosira	Fragilaria ★ Synedra ① Melosira ①
緑藻植物	Scenedesmus ①			Pediastrum ①	Pediastrum Scenedesmus Staurastrum	Westella Oöcystis Pediastrum Chodatella ① Scenedesmus ① Staurastrum ①
藍藻植物					Anabaena ①	Anabaena ②
原生動物		Chlamydomonas ①	Peridinium ② Chlamydomonas ① Euglena ①	Peridinium ② Pandorina ① Chlamydomonas ① Euglena ①		Eudorina Pandorina
輪形動物						
節足動物						

採水月日	7月23日	8月20日	9月10日	10月1日	11月12日	12月3日
珪藻植物	Synedra ① Melosira ①	Synedra ② Cyclotella Melosira ①	Synedra Melosira	Synedra Melosira	Melosira ★ Cyclotella Synedra ①	Melosira ★ Cyclotella ② Synedra ①
緑藻植物	Scenedesmus ② Pediastrum Actinastrum ①	Westella ② Scenedesmus ② Cosmarium ① Pediastrum ① Staurastrum ① Chodatella ① Micractinium ①	Oöcystis ★ Westella ② Pediastrum Scenedesmus Staurastrum	Oöcystis ② Westella Scenedesmus Staurastrum Pediastrum ① Sphaerocystis ①	Scenedesmus Westella Staurastrum Oöcystis ① Cosmarium ①	Scenedesmus ① Westella ① Pediastrum ①
藍藻植物	Anabaena ② Microcystis		Anabaena ①	Anabaena ① Microcystis ①	Chroococcus ①	Oscillatoria ①
原生動物	Pandorina Peridinium ① Halteria ①	Pandorina Peridinium Eudorina Halteria Chlamydomonas ① Diffugia ① Tintinnidium ① Strombilidium ①	Peridinium ① Ceratum ①	Tintinnidium ① Peridinium ① Ceratum ① Halteria ①	Peridinium ① Ceratum ① Tintinnidium ① Strombilidium ①	Halteria ① Peridinium ① Tintinnidium ①
輪形動物		Keratella ① Polyarthra ①	Keratella ①	Keratella ① Trichocerca ①		Polyarthra ①
節足動物						

★：優占種    ②：比較的多い種類    ①：少ない種類

さいものであった。

6月にはさらに緑藻の種類が増え、また5月に少しいた Anabaena が増加していた。優占種は Fragilaria であった。

7月になると珪藻が減って藍藻が増えていた。この時、部分的にはあるがアオコの発生を確認した。またプランクトンの種類もいくぶん減少しているようだった。

8月には緑藻をはじめとして、再びプランクトンの

種類が増えた。同時に Peridinium も確認されたが、これは3月に発生したものは異った種と考えられる。

9月になると、Oöcystis をはじめとして緑藻がさらに増えていた。

10月、11月と少しずつ緑藻は量的には減少して珪藻(特に Melosira)が増加していた。この頃の Melosira は、3月、4月頃に確認されたものとは異った種であった。すなわち、3、4月頃のものほとんどが、Melosira・variance であり、10、11月頃のものほとんど



が *M. granurata* と考えられる。

12月になるとほとんどが *Melosira* であった。 *Cyclotella* も個体数は *Melosira* の次に多かったが、非常に小さく  $10\mu$  以下のものがほとんどであった。

上記調査日以外の3月18日には、ダム上流付近で *Peridinium* 赤潮を確認した。そして、3月24日にはダムの中央付近まで達していた。個体数では  $1\text{ml}$  当たり数千から数万にも達するものであった。4月16日にダムの中央付近及び堰堤付近でも *Peridinium* が優占種として確認されたが、個体数は赤潮発生時に比較してはるかに少ないものであった。これは通常言われているように<sup>4)</sup> 河川流入部付近に発生した *Peridinium* 赤潮がダムの堰堤付近まで流されてきたものと考えられる。

以上のとおり、鹿野川湖では、一時的に淡水赤潮やアオコの発生があるが、通常言われているような<sup>5)</sup> プランクトン相の明らかな季節変化が見られた。すなわち、冬季には珪藻が優占し、春から夏にかけて珪藻が少なくなり、徐々に緑藻が増加してくる。夏季にはさらに藍藻が増えて、秋のはじめ頃藍藻が減少する。次

いで秋の終わり頃緑藻が減少し、再び珪藻が増加してくるようである。

### 3. 2. 県内5湖沼のプランクトン相の比較

主に7月から9月にかけて調査を行った結果を表2に示す。プランクトン数については、比較的個体数の多いものについてのみ  $1\text{ml}$  当りの個体数で示した。また *Westella* 等のように群体を形成するものについては、群体数を計数した。さらに、図2には、  $1\text{ml}$  当りのプランクトン総数とその種類ごとの割合を示す。

表2から見ると、鹿野川湖以外の4湖沼は、鹿野川湖に比較してプランクトンの種類が少ないようであった。優占種は、通常貧栄養湖に優占的に出現すると言われている<sup>6),7)</sup> *Cyclotella* であった。また、4湖沼では *Cyclotella* のように、鹿野川湖の *Westella* とか *Pediastrum* に比較して小さいプランクトンが多い。

一方、鹿野川湖では、他の4湖沼と比較してプランクトンの種類が多い。8月には優占種は存在しなかったが、9月には緑藻の *Oocystis* が優占していた。また9月には、中栄養湖以上の湖沼に出現すると言われて

表2 県内5湖沼のプランクトン相の比較

湖沼名	新宮ダム		柳瀬ダム	黒瀬ダム		面河ダム	鹿野川湖	
採水月日	7月15日	8月21日	7月15日	8月23日	9月11日	9月4日	8月20日	9月10日
珪藻植物	<i>Cyclotella</i> ★ (75) <i>Synedra</i> ⊕ <i>Navicula</i> ⊕	<i>Cyclotella</i> ★ (40) <i>Synedra</i> ⊕ <i>Fragilaria</i> ⊕	<i>Cyclotella</i> ★ (130) <i>Navicula</i> ⊕	<i>Cyclotella</i> ★ (400) <i>Navicula</i> ⊕	<i>Cyclotella</i> ★ (440) <i>Navicula</i> ⊕	<i>Cyclotella</i> ★ (250) <i>Synedra</i> ⊕	<i>Synedra</i> ⊕ (200) <i>Cyclotella</i> <i>Melosira</i> ⊕	<i>Synedra</i> ⊕ (300) <i>Cymbella</i> ⊕
緑藻植物	<i>Scenedesmus</i> ⊕		<i>Chodatella</i> ⊕ <i>Scenedesmus</i> ⊕	<i>Chodatella</i> ⊕	<i>Scenedesmus</i> ⊕ (140)		<i>Westella</i> ⊕ (70群) <i>Scenedesmus</i> ⊕ (120) <i>Cosmarium</i> ⊕ <i>Pediastrum</i> ⊕ <i>Staurastrum</i> ⊕ <i>Chodatella</i> ⊕ <i>Micractinium</i> ⊕	<i>Oocystis</i> ★ (4000) <i>Westella</i> ⊕ (200群) <i>Pediastrum</i> <i>Scenedesmus</i> <i>Staurastrum</i>
藍藻植物								<i>Anabaena</i>
原生動物	<i>Peridinium</i> ⊕ (35) <i>Halteria</i> ⊕ <i>Strombolidium</i> ⊕	<i>Peridinium</i> ⊕ (10) <i>Eudorina</i> ⊕ <i>Halteria</i> ⊕ <i>Diffugia</i> ⊕	<i>Peridinium</i> <i>Eudorina</i> ⊕ (30) <i>Halteria</i> <i>Strombolidium</i> ⊕ <i>Diffugia</i> ⊕	<i>Peridinium</i> ⊕ (60) <i>Eudorina</i> ⊕ (30) <i>Halteria</i> <i>Strombolidium</i> ⊕ <i>Diffugia</i> ⊕	<i>Peridinium</i> <i>Diffugia</i> ⊕	<i>Ceratium</i> ⊕ (10) <i>Peridinium</i> <i>Halteria</i> ⊕ <i>Strombolidium</i> ⊕ <i>Eudorina</i> ⊕	<i>Pandorina</i> ⊕ (60) <i>Peridinium</i> <i>Eudorina</i> <i>Halteria</i> <i>Chlamydomonas</i> ⊕ <i>Diffugia</i> ⊕ <i>Tintinnidium</i> ⊕ <i>Strombolidium</i> ⊕	<i>Peridinium</i> ⊕ <i>Ceratium</i> ⊕
輪形動物	<i>Keratella</i> ⊕ <i>Polyarthra</i> ⊕ <i>Trichocerca</i> ⊕ <i>Pompholyx</i> ⊕	<i>Keratella</i> ⊕	<i>Keratella</i> ⊕ <i>Trichocerca</i> ⊕ <i>Pompholyx</i> ⊕ <i>Polyarthra</i> ⊕			<i>Polyarthra</i> ⊕	<i>Keratella</i> ⊕ <i>Polyarthra</i> ⊕	<i>Keratella</i> ⊕
節足動物			<i>Daphnia</i> ⊕					

いる *Anabaena* が出現していた。プランクトンの大きさから見ると他の4湖沼に比較して大きいものが多いようであった。

動物プランクトンから見ると、鹿野川湖以外の4湖沼では渦鞭毛虫類が多く、新宮ダム、柳瀬ダム及び黒瀬ダムでは *Peridinium* が多く、面河ダムでは *Cerati-*  
*um* が比較的多く確認された。

図2から、プランクトン数は、新宮ダム、柳瀬ダム及び面河ダムが少なく、黒瀬ダムがいくぶん多かった。一方、鹿野川湖は、他の4湖沼に比較してプランクトン数が多く、他の4湖沼が数十から数百のオーダーであるのに対し、数千にも達するようである。

次にプランクトン相から見ると、新宮ダム、柳瀬ダム、黒瀬ダム及び面河ダムはプランクトン総数の70~90%が珪藻であるのに対し、鹿野川湖は10~20%が珪藻であった。すなわち、理化学的調査の結果、貧栄養湖と考えられていた鹿野川湖以外の4湖沼<sup>8),9)</sup>では珪藻が多く、富栄養湖と考えられていた鹿野川湖<sup>8),9)</sup>では珪藻が少ない。このことは、門田ら<sup>6)</sup>の「貧栄養湖では珪藻が優占的に出現することが多い」ということと一致する。

以上のとおり鹿野川湖は、プランクトンの種類も量も多い中栄養以上の湖沼であり、他の4湖沼はプランクトンの種類も量も少なく、そのほとんどが珪藻であるような貧栄養湖である。

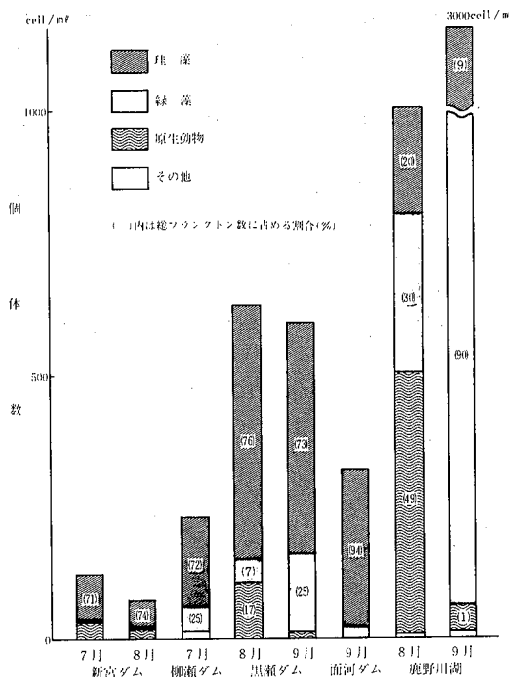


図2 県内5湖沼のプランクトン数とその種類ごとの割合

### 3. 3. 多様性指数から見た県内5湖沼について

富栄養化はある意味では植物プランクトン増殖の問題であり、その植物プランクトンから求めた多様性指数は、湖沼の栄養状態の評価に有用であると言われている<sup>10)</sup>。そこでShanon-Weaverの式を用いて多様性指数を求めた。

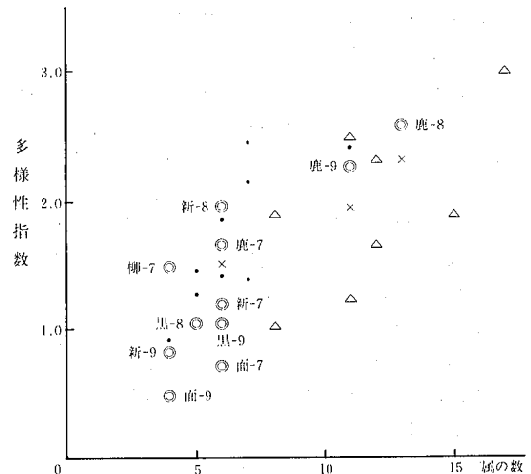
$$\text{多様性指数} = -\sum \frac{N_i}{N} \log_2 \frac{N_i}{N}$$

N : 観測された植物プランクトン総数

N<sub>i</sub> : i番目の属の個体数

植物プランクトンから求める多様性指数は、属までの同定で十分安定した数値が得られるという報告があることから<sup>10)</sup>、属までの同定にもとづいて計算を行った。また、多様性指数は、水温、日射量等の気象条件によっても変動することから<sup>11)</sup>、主に夏季(7~9月)のデータを用いた。なお、植物プランクトンの分類については、「日本淡水藻区鑑」<sup>12)</sup>を用い、珪藻については、「日本淡水プランクトン区鑑」<sup>12)</sup>によった。

図3には植物プランクトンの属の数と多様性指数の関係をプロットした。比較のために、小川らが調査を行った、全国の主な湖沼の調査結果も、あわせてプロットした。



新-7, 新-8, 新-9: 新宮ダム7, 8, 9月  
 柳-7: 柳瀬ダム7月  
 黒-8, 黒-9: 黒瀬ダム8, 9月  
 面-7, 面-9: 面河ダム7, 9月  
 ●: 貧栄養湖    ×: 中栄養湖  
 △: 富栄養湖(小川らの調査結果<sup>13)</sup>)

図3 植物プランクトンの属の数と多様性指数

面河ダム、黒瀬ダムの多様性指数は1.0以下の低い値で、属の数も少ない。次に、柳瀬ダム、新宮ダムは前二者に比較して高いが属の数は前二者と同様に少ない。新宮ダムの8月の多様性指数が高いのは、プランクトン総数そのものが少なく(約50cell/ml)しかも、種

類ごとの個体数の差が極端でないためと考えられる。

一方、鹿野川湖は、8, 9月には多様性指数も高く、属の数も多い。7月に鹿野川湖では多様性指数も属の数も減少しているが、これはこの時期に部分的にアオコが発生したことを反映しているものと思われる。

通常、多様性指数は貧栄養湖から富栄養湖に進むにつれて、二次関数的に変化するとされている<sup>13)</sup>。すなわち、貧栄養湖では1.0以下の低い多様性指数を示し、中栄養から富栄養に進むにつれて高くなりさらに富栄養化が進むと多様性指数は下がる。面河ダム、黒瀬ダム、柳瀬ダム及び新宮ダムは比較的、多様性指数が低く、属の数も少なく、小川らの調査結果<sup>13)</sup>と比較しても貧栄養湖と考えられ、鹿野川湖は多様性指数が高く、属の数も多く、小川らの調査結果からも、富栄養湖と考えられる。このことは所報第6号の結果<sup>9)</sup>と一致する。

以上のとおり、多様性指数から見ると、鹿野川湖は中栄養以上の湖沼であり、他の4湖沼は貧栄養湖と考えられる。

#### 4. まとめ

鹿野川湖を中心に県内5湖沼について、プランクトン相から富栄養化状態について検討を行った結果、次のことがわかった。

- (1) 鹿野川湖では、プランクトン相の明らかな季節変化が認められた。すなわち、冬季には珪藻が優占し、春から夏にかけて珪藻が少なくなり、徐々に緑藻が増加してくる。夏季にはさらに藍藻が増えて、秋のはじめ頃藍藻が減少する。次いで秋の終わり頃緑藻が減少し、再び珪藻が増加してくるようである。
- (2) 県内5湖沼のプランクトン相を比較すると、鹿野川湖はプランクトンの種類も量も多く、中栄養以上の湖沼と考えられる。他の4湖沼は、プランクトンの種類も量も少なく、そのほとんどが珪藻であり、貧栄養湖と考えられる。
- (3) 県内5湖沼の多様性指数から考えると、鹿野川湖は多様性指数が大きく植物プランクトンの種類も多いことから、中栄養以上の湖沼と考えられる。一方、他の4湖沼は多様性指数が小さく、植物プランクトンの種類も少なく、貧栄養湖と考えられる。

#### 5. おわりに

鹿野川湖は、過去のデータからも、他の4湖沼に比較して常に高いCOD値を示していた。このことはプランクトン量の大小関係とほぼ一致している。これは、有機汚濁が進むにつれて、生物による内部生産量がCODの大きな割合を占めてくるためではないかと

思われる。

従来、CODとして一元的に取扱っていたものの中に、多くの種類のプランクトンがふくまれており、それが季節的に変化し、湖沼によっても異っていることがわかった。今後は、有機汚濁に占める内部生産の割合を数値的に把握し、さらには理化学的データと生物的データの関係についても検討を加えたいと思っている。また、プランクトン調査等の生物調査は長期に渡るデータが必要であるので、今後とも続けて行きたいと考えている。

最後に、本調査を行うに当たり、プランクトンの同定について、御指導をいただいた松山市公営企業局の森原一範技師に対し厚く御礼申し上げます。

#### — 参 考 文 献 —

- 1) 気象庁編：海洋観測指針。
- 2) 水野寿彦：日本淡水プランクトン図鑑，保育社，1981。
- 3) 森下郁子：ダム湖の生態学，山海堂，1983。
- 4) 環境庁：国立公害研究所研究資料第24号，1983。
- 5) 福島博編：淡水植物プランクトン，ニューサイエンス社，1983。
- 6) 門田定美編：日本プランクトン学会創立30周年記念号，p 87~117。
- 7) 津田松苗他：生物による水質調査，山海堂，1979。
- 8) 浅野淑子他：愛媛県公害技術センター所報第5号，1983。
- 9) 中村洋祐他：愛媛県公害技術センター所報，第6号，1984。
- 10) 田井慎悟他：水質汚濁研究，8，7，p 435~442，1985。
- 11) 田井慎悟他：国立公害研究所研究報告，第6号，1979。
- 12) 廣瀬弘幸：日本淡水藻図鑑，内田老鶴圃新社，1977。
- 13) Y. Ogawa 他：Jap. J. Limnol 45，3，p173~177，1984。

# 古紙再生工場排水中のPCBについて

篠崎 由紀・遠富 良雄・林 弘

## 1. はじめに

愛媛県においては、紙・パルプ製造業が盛んであり、回収古紙を原料とする、古紙再生工場が約70工場ある。

昭和47年4月にPCB（ポリ塩素化ビフェニル）の排出等にかかる暫定的指導指針が、50年2月には、PCBの排水基準が設けられた。当センターでは49年度より、PCBの排出の恐れのあるこれら70工場について、年に1～2回の立入調査を継続して実施している。その間排水基準を越えるものについては、その度に原因調査を行い、水質汚濁防止法に基づき、改善、指導を実施して来た。その原因としては高濃度PCB含有古紙が原料に混入していた場合、蒸解液の循環使用によるPCBの濃縮、あるいは処理施設の維持管理の不手際等、様々であった。57年度からは違反工場もなく、古紙再生工場排水のPCB濃度は低く、ほとんど検出されていない。

古紙再生工場排水のPCB調査及び、指導を始めて以来10年が経過したのを機に、今後のPCB対策に役立てるため、今までに得たデータを整理し、PCB濃度の推移と挙動について考察したので報告する。

## 2. 分析方法と使用機器

PCBはJIS K 093工場排水中のPCBの試験方法により分析し、定量はポリ塩化ビフェニル混合標準液（KC-300：KC-400：KC-500：KC-600=1：1：1：1）を用いた係数法によった。SSは、JIS K 0102の14-1懸濁物質により分析した。

## 3. PCB濃度の経年変化

PCBは昭和4年に米国で生産が開始され、41年にスウェーデンのJensenにより、環境汚染が初めて指摘された。わが国においては29年に生産が開始され、43年には西日本でカネミ油症事件が発生し、47年8月にはPCBの製造と一部の使用が禁止された。その間に国内では、約6万tのPCBが製造され、電器用、熱媒体用等様々な用途に使用された。現在は、鉄道車輛の主変圧器または主整流器に限定使用されている<sup>1)</sup>が、化学的に安定な物質でかつ残留性が高いため、今なお環境汚染は広範囲におよび、長期に渡る恐れがあると

いわれている<sup>2)</sup>

そのような背景の中で、古紙再生工場排水のPCB汚染は、原料古紙に混入した高濃度PCBを含むノーカーボン複写紙が大きな原因であるといわれている。

古紙再生工場排水のPCB濃度について過去11年間の推移を見たのが図1である。検出率とは調査検体数に対する、定量限界値0.0005mg/l以上を示した検体数の割合、違反率とはPCB排水基準値、0.003mg/lを越えた検体数の割合である。

49年度は検出率が46%、違反率が22%あったものが、50年度には、検出率が25%、違反率が8%に下がり、その後増減を繰り返しながらも漸次減少し、57年度からは検出率は10%以下、違反率は0になっている。

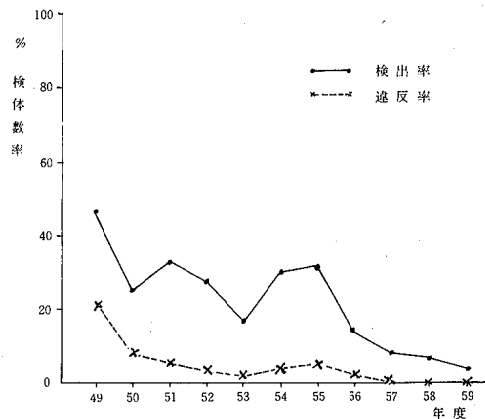


図1 PCBの検出率と違反率の推移

次にPCB負荷量の推移を図2に示す。工場ごとの届出排水量とPCB濃度から求めた古紙再生工場70社のPCB負荷量は、49年度に比べて、50年度は著しく減少し、54～55年度にわずかな増加が見られるが、以後減少傾向を示しており、負荷量の推移は図1の検出率と違反率の推移とほぼ同傾向にある。立川らの47年の報告では日量4～40kgの負荷量が推定されている<sup>5)</sup>ことから見ても、現在は大幅に減少している。

同時に測定した70社の平均SS濃度を図2に示す。

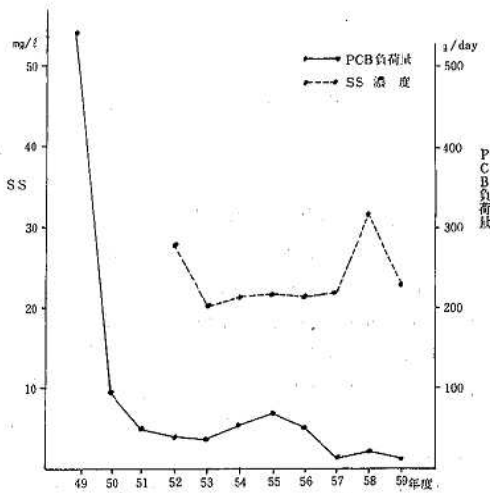


図2 PCB負荷量とSSの推移

SSは53年度まで大きく減少し、53年度以降は58年度を除いて20~24ppmの低い値を示している。58年度のピークは、同年10月から翌年春にかけての、深刻な水不足が影響しているものと思われる。

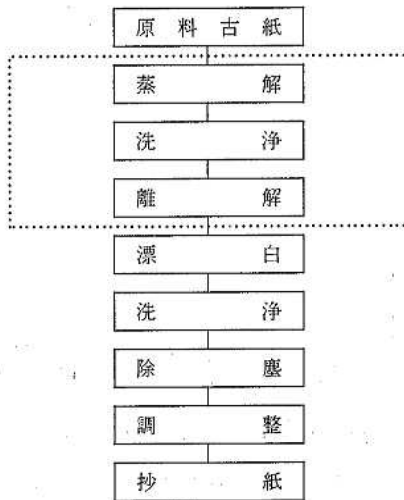


図3 製紙工程図

#### 4. 古紙処理方法とPCB濃度

古紙再生工場における一般的な製紙工程を図3に示す。工場によって、図3の点線部分の古紙処理方法が異なり、地球釜を使って高温高圧の条件で薬品を加えて、繊維の離解を行う高圧蒸解法、平釜で薬品と熱を加えてオープン方式で行う常圧蒸解法、水の中で機械的に繊維をほぐすだけのパルパー法の3つに大別すること

ができる。これら3つの方法について、PCBの検出率、違反率及びPCB平均濃度を比較したのが図4である。

検出率・違反率ともに、パルパー法を用いた工場が最も低く、高圧蒸解法、常圧蒸解法の順に高くなっている。PCB濃度についても、パルパー法は高圧蒸解法の5割、常圧蒸解法の2割と低い値を示し、蒸解法はパルパー法よりPCBが溶出しやすいことを示している。

高圧蒸解法では、COD負荷物質の溶出が大きい<sup>6)</sup>ことから、パルパー法に切り換える工場もあり、このことがPCB濃度の低下にも寄与しているものと思われる。

#### 5. PCB濃度とSS及び原料古紙の関係

古紙再生工場のPCB対策としては、排水中のPCBの大部分がSSに認められる<sup>7)8)</sup>ことから、SSの低減に努めるよう指導してきた。

特に、違反のあった工場に対しては、過去の調査結果等を考慮して、SSの濃度を10mg/l未満にすることを目標に排水処理方法の指導を行って来た。

今までに検出率の高かった4工場について、53~55年のPCB濃度とSSの関係を図5に示す。

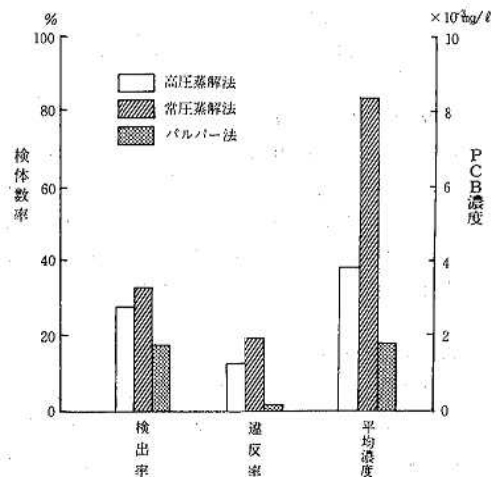


図4 古紙処理方法によるPCBの検出率、違反率、平均濃度(49年度~59年度)

図5よりA及びB工場では、SS濃度が増加すれば、PCB濃度も増加し、PCBがSSと挙動を共にしていることが伺われる。

A及びB工場の原料は、バージンパルプ、古紙パルプ及び一品物といわれる連続模造、ミルクカートンの古紙から成っている。バージンパルプと一品物古紙に

は高濃度PCBを含むノーカーボン複写紙が混入することは、まず考えにくいことから、これらの工場のPCBの原因は古紙パルプと思われる。この古紙パルプは見当、模造、色上等多種類の古紙を原料として、パルパー処理したもので、これをA及びB工場が購入し、そのまま使用している。パルパー処理のためPCBは排水中には溶出しにくく、SSに含有された状態にあり、PCBがSSと挙動を共にするものと思われる。このような挙動を示す工場のPCB対策は、今後もSS濃度を10mg/l未満におさえることにより、排水基準の遵守が可能である。

それに対して、C及びD工場ではPCB濃度はSS

に関係なく変動している。C及びD工場では、原料に占める古紙の使用率が高く、種類も一品物でなく多種類であるため、これらにノーカーボン複写紙の混入が考えられる。また高温で薬品を用いた蒸解処理が行われているため、高濃度PCBを含んだ古紙が混入すると、PCBが溶出しやすく、排水中には溶解したPCBの状態が存在するため、PCB濃度がSSと挙動を共にしないものと思われる。PCBはKC-400で0.1mg/l程度の溶解度を持つと言われている<sup>9)</sup>

C工場については、SSが5mg/lの時PCB濃度は0.0034mg/l、0.006mg/lと排水基準を越える値が検出され、SSの低減対策では対応しきれない問題が生じ

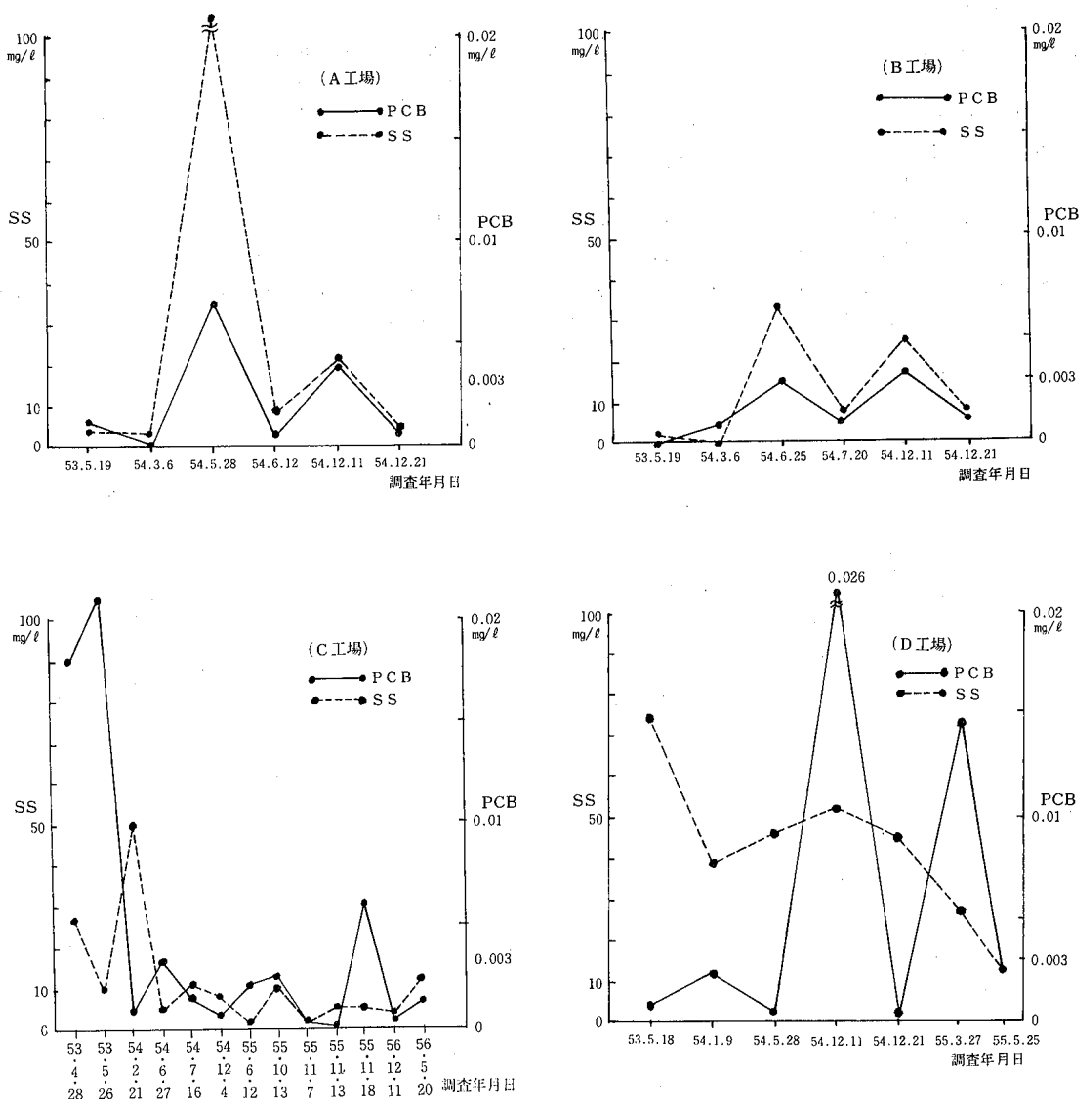


図5 4工場のPCB濃度とSS

ている。これは前記の溶解したPCBが原因と考えられるため、原料のチェックを厳しく行うと共に、古紙納入業者の選定を行い原料の見直しを実施し、以後排水基準を越える値は検出されていない。

D工場については、C工場と同様に溶解したPCBが考えられることから、原料のチェックと見直しを行うとともに、SSが全般的に高いためSSを10mg/ℓ未満におさえることを目標に、排水処理を指導した結果、現在は排水基準を越えなくなった。

## 6. まとめ

- 古紙再生工場における11年間のPCB濃度の推移は高濃度PCB含有古紙の混入の防止、排水処理の維持管理の徹底、パルパー法への切り換え等の効果により、漸減傾向にある。
- 古紙処理方法で見ると、蒸解法を用いた工場は、パルパーを用いた工場に比べ、検出率、違反率共に高く、排水中のPCBが高濃度になりやすい。
- 古紙再生工場のPCB対策としては、原料古紙の十分なチェック及び古紙を一品物にするなどの質の高さと、古紙納入業者の選定による原料古紙の見直しを行うことが必要である。

特に蒸解法を用いている工場では、溶解したPC

Bが考えられるのでこのことが重要である。それでもなお排水基準を越えるPCBが検出される場合は、できるかぎりSSを低減する(目標10mg/ℓ未満)よう排水処理の徹底を計っていく必要がある。

## —参考文献—

- 1) 財団法人日本環境協会：化学物質環境運命予測手法開発調査 p105～125 1985.
- 2) 立川 涼：第7回日本水質汚濁研究会セミナー講演資料集 p113～121 1985.
- 3) 環境庁環境保健部保健調査室：WHO環境保健クライテリア2 PCB, PCT, 1979.
- 4) 上田喜一監修：公害と対策, vol. 8 No.10 p917～958 1972.
- 5) 立川 涼：第3回水質汚濁研究シンポジウム講演集 p1～11, 1972.
- 6) 芳地全保：愛媛県製紙試験場報告 No.39, p10～12 1979.
- 7) 森 仁：岐阜県公害研究所年報 No.3, p39～41 1973.
- 8) 岡田 啓：愛媛県公害研究所報 1, p19～22, 1977.
- 9) 武藤利雄：RADIOISOTOPES vol. 23, No.4 p19～22 1974.

# 自動測定機による航空機騒音の測定に関する基礎的検討

林 弘・遠 富 良 雄・篠 崎 由 紀

## 1. はじめに

航空機騒音に係る環境基準（以下「環境基準」という）の監視測定の場合は、通常自動測定機を用いて連続測定を行っているが、この自動測定機による無人測定においては、航空機騒音を暗騒音と区別して測定評価する方法が確立されていない。

現在の自動測定機では、設定レベルと継続時間が識別の条件として使用されているが、これでは自動車や電車等の音と航空機の音との区別はほとんど不可能である。またリオン(株)は、上空移動音源に基づく位相差を用いた識別方法(以下「位相差識別法」という)を開発しているが、この方法には仰角 $30^\circ$ 以上という使用上の制限があり、空港周辺部では、使用できない場合の方が多く、従って、自動測定機を用いた連続測定では、測定精度を確保するために、航空機騒音と暗騒音の識別を手作業で行っており、この点で時間と労力を要しているのが現状である。

このような現状に鑑み、松山空港周辺の航空機騒音の監視測定にあたり、測定精度の向上と省力化の面から、測定方法について若干検討したので、その結果を報告する。

## 2. 検討項目

### 2. 1. 識別方法の検討

松山空港では、昭和59年度から図1に示す4測定地点で、リオン(株)製自動測定機NA-31を用いて環境基準の監視測定を実施している。

測定地点No.1およびNo.2は、滑走路から、その南北の側方約500mに位置しているため、航空機の位置が仰角 $30^\circ$ 以下となり、リオン(株)の識別装置が使用できない。また、松山空港は、滑走路の一端が海に面しているので、騒音軽減対策として、優先滑走路方式を採用し、年間定期便数の70~80%が海側から離着陸している。そのため、No.3やNo.4では、海側からの離陸音やリバース音をも測定しないと、日WECPNLに大きな誤差を生じる恐れがある。従って、これらの測定地点でも、仰角 $30^\circ$ 以下の航空機騒音を測定する必要があり、やは

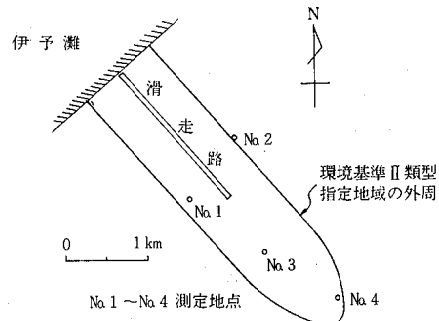


図1 松山空港 (模式図)

り、識別装置を使用することができない。

このように松山空港における、環境基準の指定地域内、もしくはその周辺部の測定においては、位相差識別法が使用できないため、それに変わる識別方法を用いることによって、精度の良い測定を行わなければならない。

そこで、次の2段階の識別方法を用いることを検討した。

### ・第1の識別方法

設定レベルと継続時間による識別で、設定レベルは暗騒音+10dB(A)とした。即ち、自動測定機による測定の前に、各測定地点で暗騒音を測定した結果、4測定地点とも昼間の平均が50dB(A)前後であったので、設定レベルは、4測定地点とも60dB(A)とした。また、継続時間は、リバース音のような瞬間的な音も測定するため2秒と短くした。

### ・第2の識別方法

フライトデータと機種別飛行形態別騒音レベルによる識別である。自動測定機のピークレベル記録時刻と、空港事務所のフライトデータの時刻が一致するものを航空機騒音とし、フライトデータから、そのピークレベルに相当する機種及び飛行方向(海側、陸側)を判断し記録した。また、あらかじめ、自動測定機による測定の前に、普通騒音計を用いて一日の全便(小型機



やヘリコプターも含む)について、機種別飛行形態別のデータを取っておき、フライトデータと時刻が一致したピークレベルでも、その機種や飛行形態では、発生し得ないと判断されるピークレベルは除外した。

## 2. 2. 設定レベルの検討

環境基準に係る測定方法においては、「暗騒音より10dB(A)以上大きいすべての航空機騒音のピークレベルを測定する」ことが規定されている。<sup>1)</sup>そのため、現在測定している4測定地点は、暗騒音がいずれも50dB(A)前後であるので、この規定に基づいて、59年度は、設定レベル60dB(A)で測定して、そのピークレベルについて識別後、パワー平均値、機数及びWECPNLを計算した。しかしこの方法は、暗騒音の測りこみがあり、航空機騒音の識別に多くの時間と労力を要するので、暗騒音を除外する目的で、設定レベルを上げることを検討した。

## 3. 結果と考察

### 3. 1. 識別方法の検討結果

59年度のデータについて、第1の識別方法のみによる測定結果と、第1と第2の識別方法による測定結果を比較したのが図2～図4である。

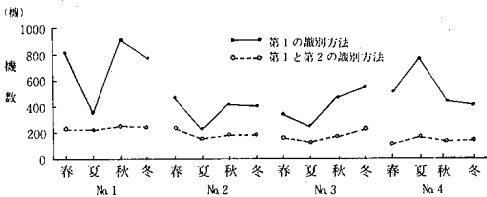


図2 識別方法による機数の比較(7日間合計値)

図2に示すとおり、機数は、第1の識別方法のみと第1と第2の識別方法による場合とでは、大きな差がある。この差は、暗騒音によるものである。即ち、第1の識別方法のみによる機数には、航空機騒音以外の音を航空機騒音として測りこんでいるために、これがこの差の原因となっている。特に測定地点No.1やNo.4では、機数の60～80%を暗騒音が占めることもあり、第2の識別方法を用いないと、機数を実際よりかなり大きく評価してしまふことになる。

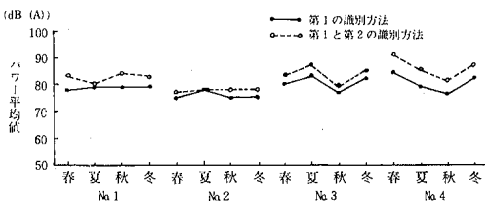


図3 識別方法によるパワー平均値の比較(7日間平均値)

図3に示すとおり、パワー平均値は、第1の識別方法のみと、第1と第2の識別方法による場合とでは、前者の方が後者より0～7dB(A)小さい。これは、第1の識別方法のみでは、機数のところで述べたように、暗騒音の測りこみが多いため、パワー平均値は実際より小さく評価されるためである。

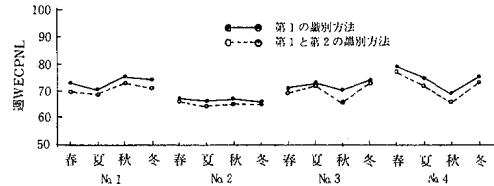


図4 識別方法による週WECPNLの比較(日WECPNLの7日間パワー平均値)

図4に示すとおり、週WECPNLは、第1の識別方法のみと第1と第2の識別方法による場合とでは、前者の方が後者より1～4WECPNL大きい。これは第1の識別方法のみでは、次の式

$$WECPNL = (\text{パワー平均値}) + 10 \log (\text{機数}) - 27$$

において、パワー平均値は過小評価されるにもかかわらず、機数の過大評価のために、WECPNLは実際より大きく評価されるためである。

以上、識別方法を検討してきた結果、測定精度を向上させるには、第1と第2の識別方法をとる必要があることがわかった。

### 3. 2. 設定レベルの検討結果

59年度に設定レベル60dB(A)で測定して得た各測定地点の年間ピークレベル数を図5に示す。これは、各測定地点で測定期間中に記録した(航空機騒音+暗騒音)の全ピークレベル数である。ピークレベルが61～70dB(A)の範囲の数がどの測定地点でも全ピークレベル数の60～70%を占めている。そのため、設定レベルを60dB(A)から70dB(A)に上げ、この60～70%のピークレベル数を除外することによって、第2の識

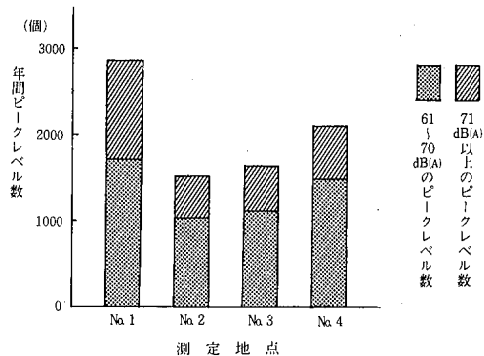


図5 年間ピークレベル数の比較

別方法の手数を省くことができる。

しかし、設定レベルを70dB (A)にすることは、(暗騒音+10dB (A)以上の航空機騒音を全て測定するという規定を無視することになるので、それによって、測定結果に誤差を生じないことを確認しておく必要がある。

まず、航空機騒音の年間ピークレベル数に占める割合は、図6に示すように、ピークレベル61~70dB (A)の範囲では、およそ20~30%にすぎないが、71dB (A)以上では、およそ50~80%を占めている。従って、61~70dB (A)のピークレベルは、それに占める航空機騒音の割合も少なく、WECPNLの計算式から考えて、除外しても計算結果に余り影響しないと思われる。

そこで、59年度の測定結果を用いて、設定レベルを70dB (A)にした場合、さらに80dB (A)にした場合を、

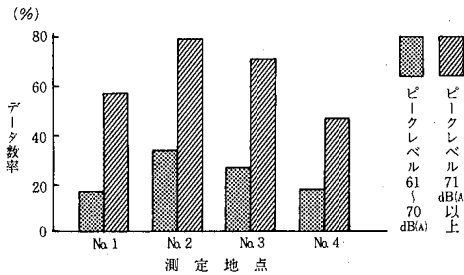


図6 年間ピークレベル数に占める航空機騒音数

$$\left( \frac{\text{航空機騒音数}}{\text{年間ピークレベル数}} \times 100 = \text{データ数率} \right)$$

60dB (A)の場合と比較し、日WECPNLがどの程度異

なるかをみたのが図7である。60dB (A)と70dB (A)とでは、日WECPNLにほとんど差はみられない。差の最大は測定地点No. 2の1.0WECPNLであった。それに対して、60dB (A)と80dB (A)とでは、日WECPNLに大きな差を生じる場合がある。

以上のことから、設定レベルを70dB (A)に上げることは、測定結果に重大な誤差を生じることはなく、問題ないことがわかった。

#### 4. まとめ

環境基準の監視測定は、時間と労力を要し、ルーチンワークのかんりのウエイトを占めるため、測定精度を保ちながら、できるかぎり省力化することの必要性から、測定方法を検討した。その結果、松山空港の場合は、設定レベル70dB (A)、継続時間2秒で測定し、得られたピークレベルについて、フライトデータと機種別飛行形態別騒音レベルから航空機騒音を識別する方法を用いるのが最も妥当と思われる。しかし、自動測定機による測定には、識別方法等まだ多くの問題を残しており、今後も検討していくつもりである。

#### — 参考文献 —

- 1) 環境庁告示第154号 (昭和48年12月27日)
- 2) 子安勝ほか：日本騒音制御工学会技術発表会講演論文集49-52, 1985
- 3) 昭和58年度環境庁委託業務結果報告書 (特殊飛行場周辺航空機騒音判定手法検討調査) (財)小林理化学研究所

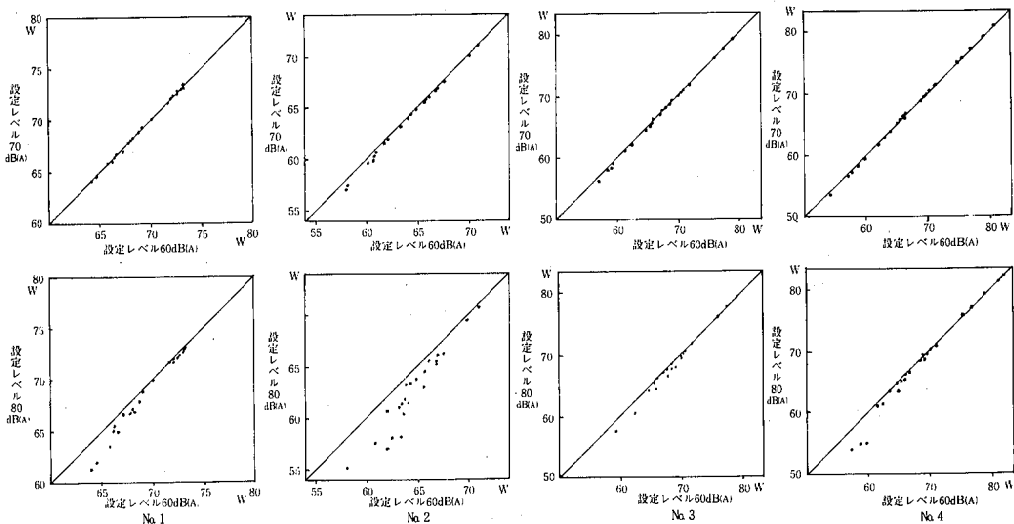


図7 設定レベルによる測定結果の比較 (W=日WECPNL)

# 愛媛県における自然放射線分布

松浦 榮美・二宮 久・安永 章二  
矢野 隆司・金子 敏明・安井 正良

## 1. はじめに

生活環境には至るところに放射線源が存在し、人々は絶えず放射線を受け続けて生活している。この環境放射線は、自然放射線と人工放射線に大別される。

自然放射線による被ばく線量は、人工放射線による被ばく線量と比較するための一つの基準レベルとしてしばしば使用されることがある。また、自然放射線は地質あるいは高度等によって差異があることがわかっており、環境放射線の地域特性を明らかにすることは、その地域の人々の被ばく線量を把握するうえにおいて、

また、環境放射線に対する一般の方々への理解を深めるためにも有用である。

この観点から、愛媛県下一円で実地に測定し、自然放射線分布の実態を明らかにしたので、その結果を報告する。

## 2. 調査方法

### 2. 1. 調査期間

調査は、昭和60年5月から10月までの6か月間で実施した。降雨時には異常な高線量率を示すことがある

表1 市町村別測定地点数

市 町 村	測定地点数	市 町 村	測定地点数	市 町 村	測定地点数
松山市	17	伯方町	1	喜多郡	肱川町 2
今治市	6	魚島村	1	河辺村	1
宇和島市	5	弓削町	1	保内町	2
八幡浜市	4	生名村	1	伊方町	2
新居浜市	6	岩城村	1	西宇和郡	瀬戸町 1
西条市	6	上浦町	2	三崎町	2
大洲市	7	大三島町	2	三瓶町	2
川之江市	3	関前村	1	東宇和郡	明浜町 1
伊予三島市	3	温泉郡	重信町 3	宇和町	4
伊予市	3	川内町	2	野村町	4
北条市	4	中島町	3	城川町	3
東予市	4	久万町	3	北宇和郡	吉田町 3
宇摩郡	新宮村 1	上浮穴郡	面河村 1	三間町	2
	土居町 3		美川村 2	広見町	3
	別子山村 1		柳谷村 1	松野町	2
周桑郡	小松町 2		小田町 2	日吉村	1
	丹原町 3		松前町 2	津島町	3
越智郡	朝倉村 1	伊予郡	砥部町 2	南宇和郡	内海村 1
	玉川町 1		広田村 1	御荘町	2
	波方町 1		中山町 2	城辺町	2
	大西町 1		双海町 2	一本松町	1
	菊間町 2	喜多郡	長浜町 3	西海町	1
	吉海町 1		内子町 4	愛媛県	175
	宮窪町 1		五十崎町 1		

ので<sup>1)</sup>、好天を選んで調査した。

## 2. 2. 調査箇所

県下の70全市町村で、175地点を選定した。各市町村別の測定地点数の算出については、人口の重みづけを考慮して、可住地面積(国土面積-林野面積)を100km<sup>2</sup>で除した数とした。陸地部で159地点、島しょ部で16地点となった。

現地における測定場所の選定に当たっては、①周辺地域を代表する地質であること、②平坦な裸地又は草地で、敷石等が施されていないこと、③近くに大きな樹木、石碑等がないことなどに留意した。

## 2. 3. 測定方法

測定には、アロカ球形3"φNaI(Tl)シンチレーションスペクトロメータを用いた。

測定時間は1,000秒とし、測定高さは地上1mで行った。

測定から解析までの流れを図1に示す。現地で検出器から得た各信号ごとの波高値をデジタルでテープに収録し、測定室に収録テープを持ち帰ってから、デジ

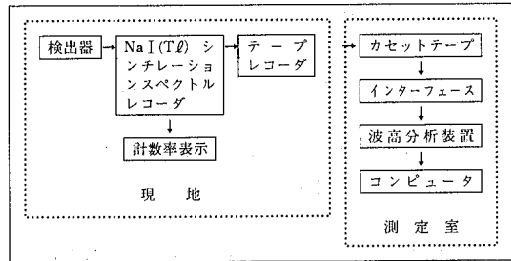


図1 環境放射線測定ブロック図

タル情報をインターフェイスでアナログ情報に変換し、NAIG多重波高分析装置とヒューレットパッカードのコンピュータ9845Bを用いて解析した。

γ線線量率の解析は、ピールオフ法によった<sup>2)</sup>この解析例を図2に示す。この図は、スペクトル情報として、

- 1 測定地点における実測データを10keV/chに変換したスペクトル
- 2 1のスペクトルからコンプトン分布を差引いたスペクトル

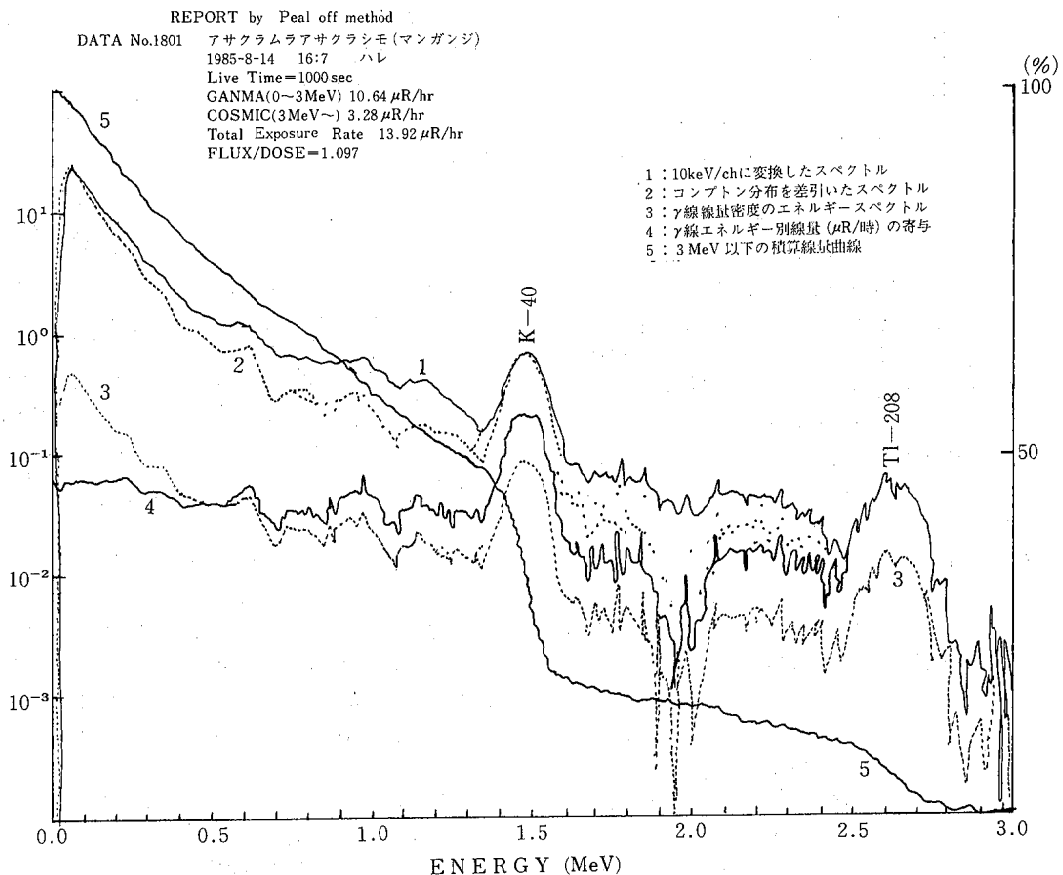


図2 NaI(Tl)シンチレーションスペクトルと線量評価例

- 3 2のスペクトルに検出体の計数効率を用いた実際のエネルギースペクトル
- 4 3から得た $\gamma$ 線エネルギー別線量( $\mu\text{R}/\text{時}$ )の寄与スペクトル
- 5 3 MeV以下のエネルギー別線量寄与の100分率(高エネルギーからの積算)

を表したものである。

宇宙線線量率は、3 MeV以上の情報を宇宙線に基づくものとして取り扱い、単位計数率(cps)当たり、 $2.12\mu\text{R}/\text{時}$ 相当の宇宙線として計算した<sup>3)</sup>。

### 3. 環境放射線の分類と人工放射線の寄与

環境放射線は、図3に示すように分類される。自然放射線を測定するには、自然放射線と人工放射線を分離して把握する必要がある。人工放射線には、核爆発実験による放射性物質からの放射線及び原子力・放射性物質などの利用に伴う放射線があるが、以下の理由で、これらの影響を無視することができる。

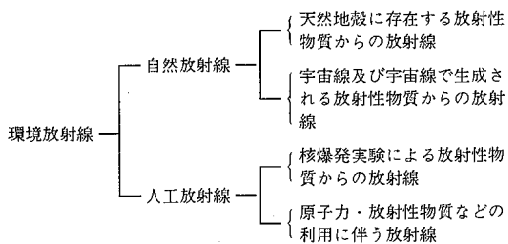


図3 環境放射線の分類

#### 3. 1. 大気圏内核爆発実験の影響

大気圏内の核爆発実験は、55年10月に中国で実施されて以来行われておらず、核爆発実験による放射性物質の年間降水量は逐年減少している<sup>4)</sup>。ちなみに、60年8月27日、松山市(公害技術センター内)で高純度Ge半導体検出器を用いたIn-situ測定によると、核爆発の寄与は、Cs-137のみである。その寄与は、 $0.021\mu\text{R}/\text{時}$ であった。

#### 3. 2. 原子力施設からの放射線

伊方町にある原子力発電所からの寄与線量は、施設近傍のモニタリングステーション、モニタリングポスト等で常時監視しているが検出されていない<sup>4)</sup>。

## 4 結 果

### 4. 1. 測定地点別の測定結果

県下175測定地点の測定値から得られた最高値、最低値等の測定結果を表2に示す。

$\gamma$ 線線量率の測定値の範囲は、 $1.86\mu\text{R}/\text{時}$ から $14.53\mu\text{R}/\text{時}$ であり、平均値は $7.8\mu\text{R}/\text{時}$ となっている。

表2 測定地点別最高値・最低値の状況

項目	最高値	最低値	平均値	標準偏差
$\gamma$ 線線量率( $\mu\text{R}/\text{時}$ )	14.53 (上浦町井口)	1.86 (中山町豊岡)	7.76	2.33
宇宙線線量率( $\mu\text{R}/\text{時}$ )	3.79 (面河村波草)	3.04 (吉海町八幡)	3.27	0.13
全平均線量率( $\mu\text{R}/\text{時}$ )	17.71 (上浦町井口)	5.09 (中山町豊岡)	11.02	2.31

宇宙線線量率の測定値の範囲は、 $3.04\mu\text{R}/\text{時}$ から $3.79\mu\text{R}/\text{時}$ であり、平均値は $3.3\mu\text{R}/\text{時}$ となっている。全平均線量率は、 $5.09\mu\text{R}/\text{時}$ から $17.7\mu\text{R}/\text{時}$ となっており、平均値は $11.0\mu\text{R}/\text{時}$ であった。

### 4. 2. 市町村別の測定結果

$\gamma$ 線線量率と宇宙線線量率とこれらを加算した全平均線量率の測定結果を表3に示す。

$\gamma$ 線線量率の最も高かったのは越智郡大三島町の、 $12.3\mu\text{R}/\text{時}$ であり、最も低かったのは伊予郡中山町の、 $2.2\mu\text{R}/\text{時}$ であった。

伊方原子力発電所のある西宇和郡伊方町は $2.8\mu\text{R}/\text{時}$ で、県下の市町村で二番目に低い結果であった。

宇宙線線量率の最も高かったのは上窪穴郡面河村の、 $3.8\mu\text{R}/\text{時}$ であり、最も低かったのは越智郡吉海町及び伯方町の、 $3.0\mu\text{R}/\text{時}$ であった。

### 4. 3. $\gamma$ 線線量率の地域分布

$\gamma$ 線線量率の地域分布傾向を図4に、愛媛県地質構造概要を図5に示す。

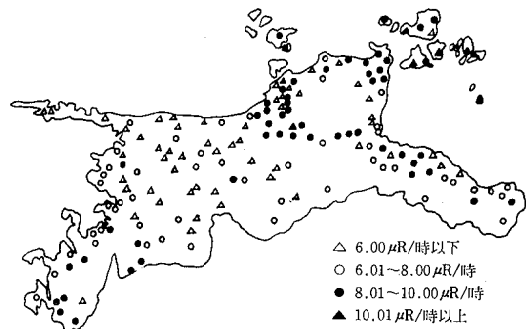


図4  $\gamma$ 線線量率の地域分布傾向

中央構造線の北側、島しょ部から高縄半島にかけての火崗岩等の火成岩地域に高線量率域があり、中山町、伊方町及び三崎町にかけての三波川変成岩層に低線量率域がある。 $\gamma$ 線線量率は地質に依存しているのがよくわかる。

市町村別の行政区画に分けた分布をみても、図6に示すとおり、その傾向は現われている。

### 4. 4. 宇宙線線量率の分布

宇宙線線量率は図7に示すとおり、高度の高い山間

表3 市町村別測定結果

市町村	γ線量率 (μR/時)	宇宙線量率 (μR/時)	全平均量率 (μR/時)	市町村	γ線量率 (μR/時)	宇宙線量率 (μR/時)	全平均量率 (μR/時)		
松山市	9.9	3.3	13.2	上浮穴郡	久万町	4.3	3.5	7.8	
今治市	8.6	3.2	11.8		面河村	7.7	3.8	11.5	
宇和島市	8.1	3.3	11.4		美川村	5.7	3.6	9.3	
八幡浜市	5.5	3.2	8.7		柳谷村	8.6	3.5	12.1	
新居浜市	8.6	3.3	11.9		小田町	8.7	3.3	12.0	
西条市	7.4	3.3	10.7	伊予郡	松前町	8.7	3.2	11.9	
大洲市	5.1	3.2	8.3		砥部町	9.1	3.2	12.3	
川之江市	8.0	3.3	11.3		広田村	5.9	3.5	9.4	
伊予三島市	7.5	3.2	10.7		中山町	2.2	3.4	5.6	
伊予市	8.5	3.3	11.8		双海町	5.2	3.2	8.4	
北条市	8.6	3.2	11.8	喜多郡	長浜町	4.3	3.3	7.6	
東予市	9.5	3.2	12.7		内子町	5.9	3.3	9.2	
宇摩郡	新宮村	7.5	3.3		10.8	五十崎町	7.0	3.3	10.3
	土居町	6.2	3.2		9.4	肱川町	5.4	3.2	8.6
	別子山村	6.0	3.7		9.7	河辺村	5.4	3.4	8.8
周桑郡	小松町	9.0	3.2	12.2	西宇和郡	保内町	4.8	3.2	8.0
	丹原町	8.9	3.2	12.1		伊方町	2.8	3.2	6.0
越智郡	朝倉村	10.6	3.3	13.9		瀬戸町	6.9	3.1	10.0
	玉川町	10.0	3.2	13.2		三崎町	3.2	3.2	6.4
	波方町	9.1	3.1	12.2		三瓶町	6.4	3.3	9.7
	大西町	9.2	3.1	12.3	東宇和郡	明浜町	6.5	3.2	9.7
	菊間町	9.4	3.2	12.6		宇和町	6.1	3.4	9.5
	吉海町	11.8	3.0	14.8		野村町	5.8	3.4	9.2
	宮窪町	9.7	3.2	12.9		城川町	9.1	3.4	12.5
	伯方町	10.9	3.0	13.9		北宇和郡	吉田町	7.3	3.3
	魚島村	8.3	3.1	11.4	三間町		6.6	3.3	9.9
	弓削町	10.8	3.2	14.0	広見町		8.2	3.3	11.5
	生名村	11.6	3.5	15.1	松野町		8.2	3.2	11.4
	岩城村	8.5	3.3	11.8	日吉村		7.9	3.5	11.4
	上浦町	11.7	3.2	14.9	津島町	8.5	3.2	11.7	
	大三島町	12.3	3.1	15.4	南宇和郡	内海村	8.0	3.1	11.1
関前村	8.9	3.4	12.3	御荘町		8.2	3.2	11.4	
温泉郡	重信町	9.4	3.4	12.8		城辺町	7.8	3.2	11.0
	川内町	8.3	3.3	11.6		一本松町	8.0	3.3	11.3
	中島町	10.3	3.2	13.5		西海町	6.9	3.3	10.2

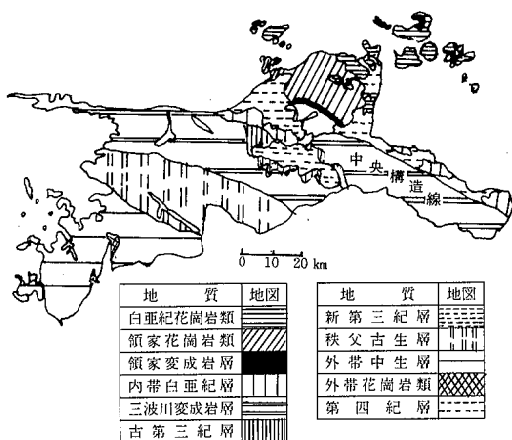


図5 愛媛県地質構造概要図

部で高く、平野部、島しょ部で低い傾向にある。

島しょ部の生名村で3.5μR/時となっているのは、島の丘りょう部で測定し、宇宙線に関しての測定条件が良かったことによる。

#### 4. 5. 線量率頻度分布

γ線線量率のヒストグラムを図8に、累積頻度百分率を図9に示す。正規分布しているのがよく分かる。

宇宙線線量率のヒストグラムを図10に、累積頻度百分率を図11に示す。分布の形がシフトしているが、これは測定地点の高度差及び地形の影響の二因子によるものと考えられる。

#### 4. 5. 全国レベルとの比較

放射線医学総合研究所の阿部らによって、全国の自然放射線分布調査が行われている<sup>5)</sup>。この調査による

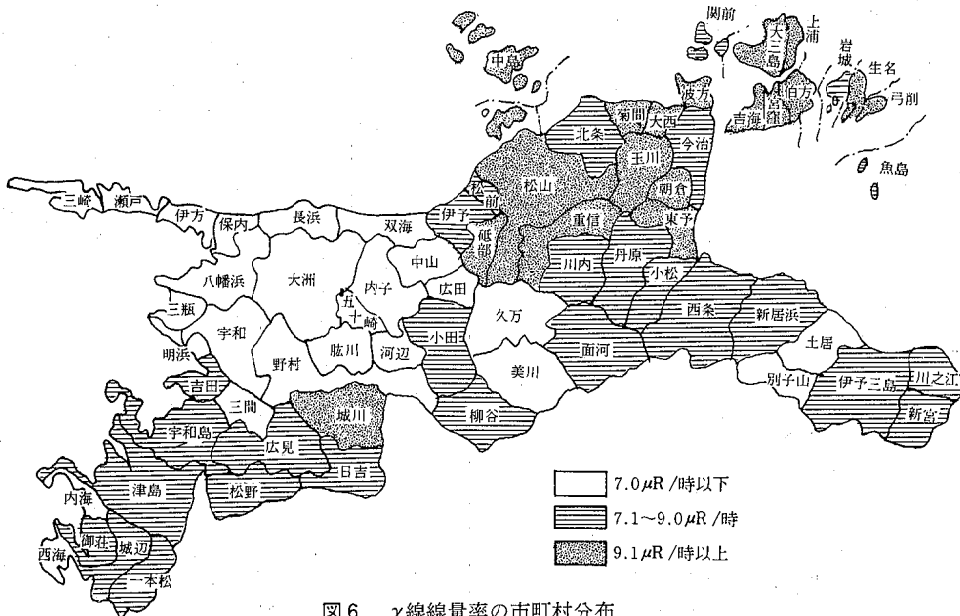


図6 γ線線量率の市町村分布

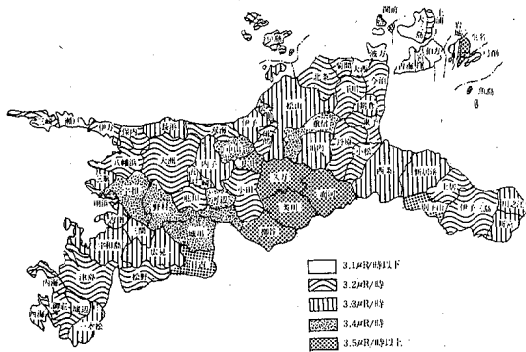


図7 宇宙線線量率の分布

と、全平均線量率(照射線量率)の全国平均率は、 $9.0 \mu\text{R}/\text{時}$ となっている。この調査では愛媛県内13地点で測定が行われており、その平均値は $11.2 \mu\text{R}/\text{時}$ 、最高値は松山市道後の $14.8 \mu\text{R}/\text{時}$ 、最低値は大洲市の $7.6 \mu\text{R}/\text{時}$ 、標準偏差は $1.7 \mu\text{R}/\text{時}$ となっている。

筆者らの調査と平均値はよく一致しているが、最高値、最低値ではその値が大きく異なっている。この差は、筆者らの調査では、全県下の山間部から島しょ部にかけてくまなく測定し、阿部らは結果的に中線量率域を測定したことによる差である。両者の測定地点ごとのデータを比較した場合、おおむね一致している。

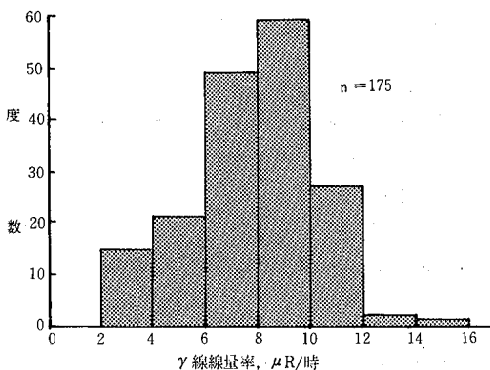


図8 γ線線量率のヒストグラム

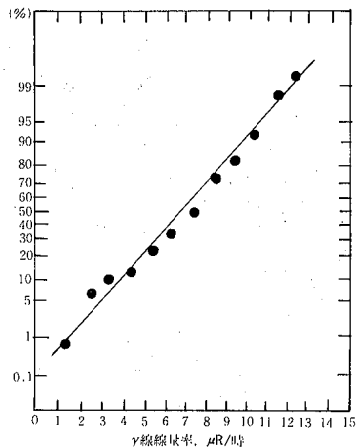


図9 γ線線量率累積分布

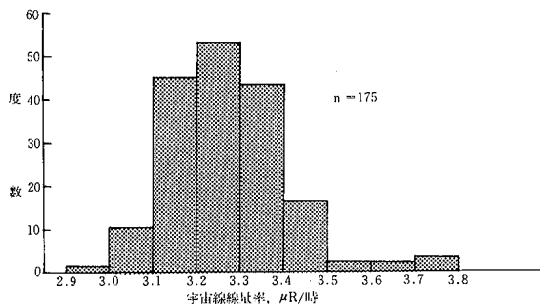


図10 宇宙線線量率のヒストグラム

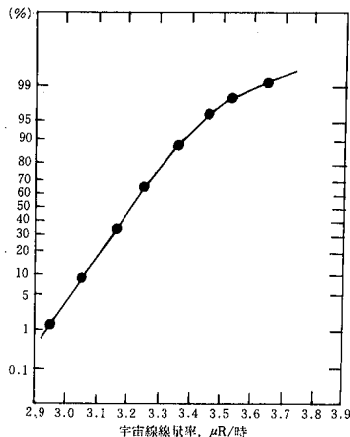


図11 宇宙線線量率累積度分布

### 5. まとめ

この調査結果から、愛媛県における自然放射線分布の実態が次のとおり明らかになった。

- (1)  $\gamma$ 線線量率の高線量率地域は、中央構造線の北側、島しょ部から高縄半島にかけての花崗岩等の火成岩地域にあり、最も高かったのは上浦町井口で14.5 $\mu$ R/時であった。
- (2)  $\gamma$ 線線量率の低線量率地域は、中山町、伊方町及び三崎町にかけての三波川変成岩層にあり、最も低かったのは中山町豊岡で1.9 $\mu$ R/時であった。
- (3) 宇宙線の影響は、高度の高い山間部で高く、逆に低地では低い傾向にある。宇宙線線量率の平均値は3.3 $\mu$ R/時であった。
- (4) 愛媛県における自然放射線の平均値は11.0 $\mu$ R/時で、全国平均値（放射線医学総合研究所調べ）

9.0 $\mu$ R/時と比較して2.0 $\mu$ R/時高いことが分かった。

### — 参 考 文 献 —

- 1) 松浦榮美ほか：愛媛県公害技術センター所報，第5号，30-32，1983.
- 2) 青野真ほか：愛媛県公害技術センター所報，第3号，36-39，1981.
- 3) 浜田達二・岡野真治ほか：第20回環境放射能調査研究成果論文抄録集，143-145，1977.
- 4) 愛媛県：昭和59年度伊方原子力発電所周辺環境放射線等調査，1985.
- 5) S. Abe et al. : Extensive Field Survey of Natural Radiation in Japan J. Nucl. Sci, Tech, 18-21 1981.



# ゲルマニウム半導体検出器による $\gamma$ 線 スペクトルの自動解析システムについて

二宮 久・矢野 隆司・松浦 榮美

## 1. はじめに

ゲルマニウム半導体検出器による $\gamma$ 線スペクトルの解析法については、今までに多くの報告があるが、サム効果補正、妨害核種補正については、自動化することが困難であった。

今回、従来からの自己吸収補正<sup>1~2)</sup>に加えて、任意の核種に機械的に適用できるサム効果補正法および妨害核種の補正法を開発し、満足できる結果を得た。さらに、ピーク解析から核種同定・定量に致る一連の流れを全て自動化し、ルーチン業務として実用に耐える解析システムを開発したのでここに報告する。

## 2. 測定

### 2.1 装置

測定に使用したゲルマニウム半導体検出器の仕様を表1に示す。

表1 ゲルマニウム半導体検出器の仕様

測定装置コード	GLI	GMX	GEM
検出器	Canberra 7229-7500S-1519 (クロズドエン ド同軸型)	Ortec GMX-30200 (クロズドエン ド同軸型)	Ortec GEM-40195 (クロズドエン ド同軸型)
前置増幅器	Canberra 2001	Ortec 137CN2-2	Ortec 137CP2-2
主増幅器	Canberra 2010	Ortec 572	Ortec 572
高圧電源	Canberra 3105	Ortec 459	Ortec 459
波高分析器	Canberra 8100	Ortec 7050	Ortec 7010
有感部容積(cm <sup>3</sup> )	88	135.3	183.5
相対効率(%)	15	30	40

### 2.2 標準線源

日本アイソトープ協会製のアルミナ容積線源を使用した。仕様を表2に示す。

表2 標準線源の仕様

核種	放射能濃度 nCi/g	精度 (%)	内径 (cm)	高さ (cm)	密度 (g/cm <sup>3</sup> )
241 Am	1.362	5.7			
109 Cd	9.054	5.7			
57 Co	0.7324	4.8		0.2	1.19
139 Ce	0.5066	4.9			
51 Cr	7.705	5.0	4.8		
85 Sr	0.7746	4.9			
137 Cs	0.7446	4.9		5.0	1.20
54 Mn	0.7927	4.8			
88 Y	0.9851	5.1			
60 Co	1.019	4.8			

### 2.3 測定条件

エンドキャップ上に直接試料を置き、必要な時間測定した。

## 3. ピーク解析

### 3.1 方法

ピーク解析の方法については、これまでに種々発表されているが、ここでは、平滑化二次微分によるピークサーチと関数フィッティング法の組み合わせを採用し、ピーク解析プログラムを作成した。ピーク解析全体の流れを図1に示す。以下、本報告の結果は、全てこの解析法による。

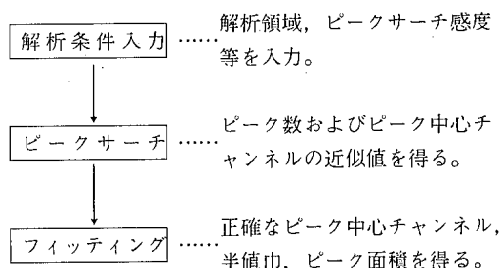


図1 ピーク解析の流れ

### 3. 1. 1 ピークサーチ

ピークサーチは、平滑化二次微分法<sup>3)</sup>により行った。

iチャンネルでの平滑化二次微分 $n''(i)$ およびその統計誤差 $\sigma''(i)$ を(1), (2)式より求め、さらに(4)式によりピークの判定を行い、最小の $n''(i)$ を示すチャンネルをピーク中心チャンネルの近似値とした。フィルタ関数 $A_j$ としては、(3)式に示すガウス関数二次微分フィルタを用いた。

$$n''(i) = \sum_{j=-k}^k A_j \cdot n(i+j) \quad (1)$$

$$\sigma''(i) = \sqrt{\sum_{j=-k}^k A_j^2 \cdot n(i+j)} \quad (2)$$

ここで

$$A_j = \frac{A_0}{\sigma^2} \cdot \left(1 - \frac{j^2}{\sigma^2}\right) \cdot \exp\left(-\frac{j^2}{2\sigma^2}\right) \quad (3)$$

但し、i : チャンネル

n(i) : iチャンネルの計数值

A<sub>0</sub> : 10

$\sigma$  :  $\frac{i \text{チャンネルでの半値巾(ch)}}{2\sqrt{2} \cdot \log_e 2}$

k : INT(4J)

$$n''(i) < -S \cdot \sigma''(i) \quad (4)$$

但し、S : ピークサーチ感度

### 3. 1. 2 フィットting

正確なピーク中心チャンネル、半値巾、ピーク面積は、(5)式に示す適合関数への非線形最小二乗法<sup>4)</sup>により求めた。

$$f(i, C_k) = C_1 + C_2(i-1) + \sum_n \{C_3 \exp\{-C_{3n+1}(i - C_{3n+2})^2\}\} \quad (5)$$

但し、i : チャンネル

l : 解析領域の最小チャンネル

n : 解析領域内のピーク数

C<sub>k</sub> : フィットtingにより求めるパラメータ

f : iチャンネルでの計数值

(6)式の条件が成り立つ場合には、複合ピークとみなしひとまとまりの解析領域としてフィッティングした。また解析領域は、(7)式で示す範囲とした。

CENTER<sub>i</sub> < CENTER<sub>j</sub> のとき

$$\begin{aligned} & \text{CENTER}_i + 1.5 \cdot \text{FWHM}_i \geq \text{CENTER}_j \\ & + 1.5 \cdot \text{FWHM}_j \end{aligned} \quad (6)$$

$$\begin{aligned} & \text{CENTER}_{\min} - 2 \cdot \text{FWHM}_{\min} \sim \text{CENTER}_{\max} \\ & + 2 \cdot \text{FWHM}_{\max} \end{aligned} \quad (7)$$

但し、CENTER<sub>i</sub> : ピークサーチにより得られたピーク中心チャンネルの近似値

FWHM<sub>i</sub> : あらかじめ求めておいたエネルギーと半値巾の関係から求めたCENTER<sub>i</sub>における半値巾(ch)

フィッティングにより求めた各パラメータC<sub>k</sub>と、ピーク中心チャンネル、半値巾、ピーク面積との関係は(8)~(10)式で表される。

$$\text{ピーク中心チャンネル} = C_{3n+2} \quad (8)$$

$$\text{半値巾}^2 = \frac{4 \log_e 2}{C_{3n+1}} \quad (9)$$

$$\text{ピーク面積} = \frac{1.772 \cdot C_{3n}}{\sqrt{C_{3n+1}}} \quad (10)$$

### 3. 2 結果

このピークサーチと関数フィッティング法の組み合わせによるピーク解析法の適否を検討するため、この方法によって求めたピーク面積と計数值積算法<sup>5)</sup>によって求めたピーク面積の比を求めた。図2に半値巾と比の関係を示す。図から明らかなように、両者の結果は非常によく一致している。図3にピーク面積の大きさと比の関係を示す。図中のバーは、計数誤差1 $\sigma$ を示す。ピーク面積が小さくなり、計数誤差が大きくなると差がみられるようになるが、計数誤差を考慮すると一致しているといえる。

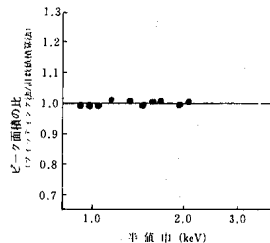


図2 ピーク形状からみた二法の比較

(GLI. <sup>137</sup>Cs 661.6keV)

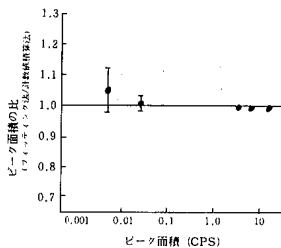


図3 ピーク面積の大きさからみた二法の比較

(GLI. <sup>137</sup>Cs 661.6keV)

#### 4. 自己吸収補正

##### 4.1 方法

自己吸収補正は、武田らの方法<sup>6)</sup>に従い、(11)式によって行った。

$$\epsilon(E, h) = f(E) \cdot \epsilon(E_s, h, \mu) \quad (11)$$

ここで

$$f(E) = C_1 E^{-C_2} + C_3 e^{-C_4 E} + C_5 e^{-C_6 E}$$

$$\epsilon(E_s, h, \mu) = f \left[ \frac{1 - e^{-(\alpha + \mu)h}}{(\alpha + \mu)h} + \frac{1 - e^{-(\beta + \mu)h}}{(\beta + \mu)h} \right]$$

- 但し、 $\epsilon(E, h)$  : エネルギーE, 試料高hにおける効率  
 $f(E)$  : エネルギーEにおける相対効率  
 $\epsilon(E_s, h, \mu)$  : 基準エネルギー $E_s$ , 試料高h, 試料の線吸収係数 $\mu$ のときの効率

基準エネルギー $E_s$ は、<sup>137</sup>Csの661.6keVとした。(11)式で必要な線吸収係数は、測定試料の元素組成比と構成元素の全相相互作用断面積(コヒレント散乱を除く)から計算により求めた。任意の原子番号, エネルギーにおける全相相互作用断面積は、データ集<sup>7)</sup>から原子番号, エネルギー両面のスプライン補間により求めた。

##### 4.2 結果

自己吸収補正を行った場合と行わない場合の結果を図4~5に示す。自己吸収未補正の場合の効率は、(11)式において $\mu = \mu_s$ に固定することにより求められる。基準エネルギー付近では、自己吸収補正の有無にかかわらずよい値を示すが、図4のように基準エネルギーより低いエネルギーでは、補正をしないと低めの値を示す。逆に図5のように基準エネルギーより高いエネルギーにおいては、補正をしないと高めの値を示す。このずれは、自己吸収の大きな厚い試料ほど大きい。

#### 5. サム効果補正

##### 5.1 原理

サム効果補正の原理を記述するため、通常の崩壊図を図6のように書き換える。図中実線は $\gamma$ 線放出を、点線は内部転換を示す。<sup>57</sup>Coの例を図7に示す。

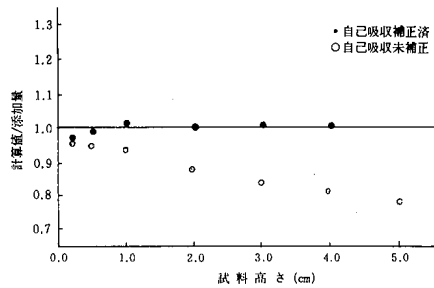


図4 自己吸収補正の有無の比較 (GEM, <sup>241</sup>Am 59.5keV)

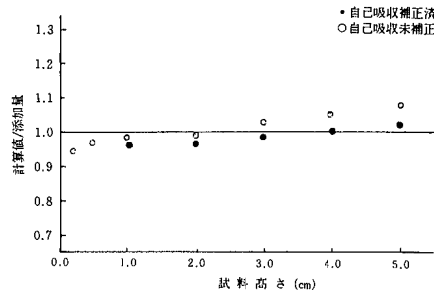


図5 自己吸収補正有無の比較 (GEM, <sup>88</sup>Y 1836.0keV)

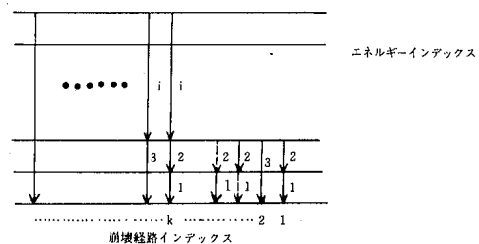


図6 サム効果補正用崩壊図

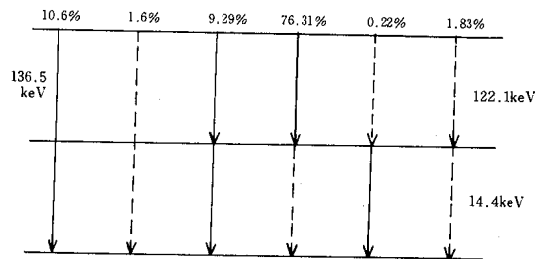


図7 <sup>57</sup>Coのサム効果補正用崩壊図

このときみかけ上 $\gamma_i$ が検出される確率は次のようになる。

$$\text{みかけ上 } \gamma_i \text{ の } \\ \text{検出される確率} = \sum_k \left[ \gamma_i \text{ が経路 } k \text{ 中にあり, 経路中 } \gamma_i \right. \\ \left. \text{だけが検出される確率} \right]$$

$$+ \sum_k \left[ \gamma_i \text{ とクロスオーバーにある } \gamma_x \right. \\ \left. \gamma_y, \dots \text{ が経路 } k \text{ 中にあり, } \gamma_x, \right. \\ \left. \gamma_y, \dots \text{ だけが全て検出される} \right. \\ \left. \text{確率} \right]$$

$$= \sum_k \left\{ a_k \cdot \varepsilon_i \cdot \prod_{i=j} (1-T_{jk}) \right\}$$

$$+ \sum_k \left\{ a_k \cdot \varepsilon_x \cdot \varepsilon_y \dots \prod_{j=x,y,\dots} (1-T_{jk}) \right\} \quad (12)$$

- 但し,  $k$  : 崩壊経路  
 $i$  : エネルギーインデックス  
 $\gamma_{ik}$  : 系路  $k$  におけるエネルギーインデックス  $i$  の  $\gamma$  線  
 $\gamma_x, \gamma_y, \dots$  :  $\gamma_i$  とクロスオーバーにある  $\gamma$  線  
 $\varepsilon_i$  : サム効果のない場合の  $\gamma_i$  の効率  
 ((11)式により求められる)  
 $T_{jk}$  :  $\gamma_{jk}$  の全効率

よって, サム効果を含む  $\gamma_i$  の効率  $\varepsilon_i^*$  は次式で表わされる。

$$\varepsilon_i^* = \frac{1}{a_i} \left[ \sum_k \{ a_k \cdot \varepsilon_i \cdot \prod_{i=j} (1-T_{jk}) \} \right. \\ \left. + \sum_k \{ a_k \cdot \varepsilon_x \cdot \varepsilon_y \dots \prod_{j=x,y,\dots} (1-T_{jk}) \} \right] \quad (13)$$

但し,  $a_i$  :  $\gamma_i$  の放出率

## 5. 2. 方法

任意の核種に対してサム効果補正を適用できるようにするため, (13)式を次のように変形した。

$$\varepsilon_i^* = \frac{1}{a_i} \left[ \frac{\varepsilon_i}{(1-T_i)} \sum_k \{ a_k \prod_j (1-T_{jk}) \} \right. \\ \left. + \sum_k \left\{ a_k \cdot \frac{\varepsilon_x \cdot \varepsilon_y \dots}{(1-T_x)(1-T_y) \dots} \prod_j (1-T_{jk}) \right\} \right] \quad (14)$$

但し,  $T_i$  :  $\gamma_i$  の全効率

さらに, 各核種の崩壊形式を表3のようにライブラリ化した。表3には,  $^{57}\text{Co}$ の例を同時に示す。

NODE ( $k, \ell$ ) は, その絶対値が1であるときに, 単位  $\ell$  が  $k$  系路の一連の崩壊の始点および終点であることを示し, さらにその符号により, 正であれば, その単位を終点とする崩壊が  $\gamma$  線放出であることを, また負であれば, 内部転換であることを示す。 $^{57}\text{Co}$  の場合について, NODE( $k, \ell$ ) を崩壊図と共に図8に示す。

表3 核種ライブラリのフォーマット

$\gamma$ 線の数	遷移経路の数	準位の数
NGAM 整数値	NSRS 整数値	NST 整数値
3	6	3

エネルギー インデックス	$\gamma_i$ のエ ネルギー	$a_i$	$\gamma_i$ の放出前 の単位	$\gamma_i$ の放出後 の単位
$i$	ENERGY ( $i$ ) 実数配列	AB( $i$ ) 実数配列	STNODE( $i$ ) 整数配列	ENNODE( $i$ ) 整数配列
1	122.1	0.856	3	2
2	136.5	0.106	3	1
3	14.4	0.0954	2	1

遷移経路インデックス	$a_k$	k系列に関する単位		
$k$	SERIES( $k$ ) 実数配列	NODE( $k, \ell$ ) 0, 1, -1のスイッチで示す		
		$\ell=3$	$\ell=2$	$\ell=1$
1	0.0183	1	-1	-1
2	0.0022	1	-1	1
3	0.7631	1	1	-1
4	0.0929	1	1	1
5	0.0160	1	0	-1
6	0.1060	1	0	1

準位インデックス	基底準位との差
$\ell$	STATUS( $\ell$ ) 実数配列
3	136.5
2	14.4
1	0.0

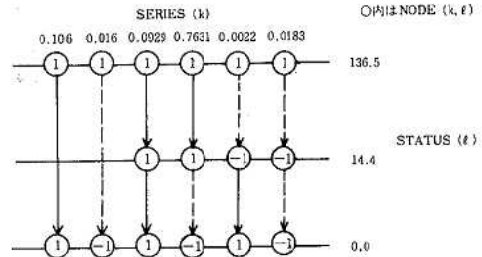


図8  $^{57}\text{Co}$ の崩壊形式のライブラリ化

このライブラリ化の方法によって, はじめて, 従来核種毎に考える必要のあったサム効果補正を, 図9に示すアルゴリズムにより機械的に行うことが可能となった。図中P, PCROSS, PCASCADE は実数変数である。

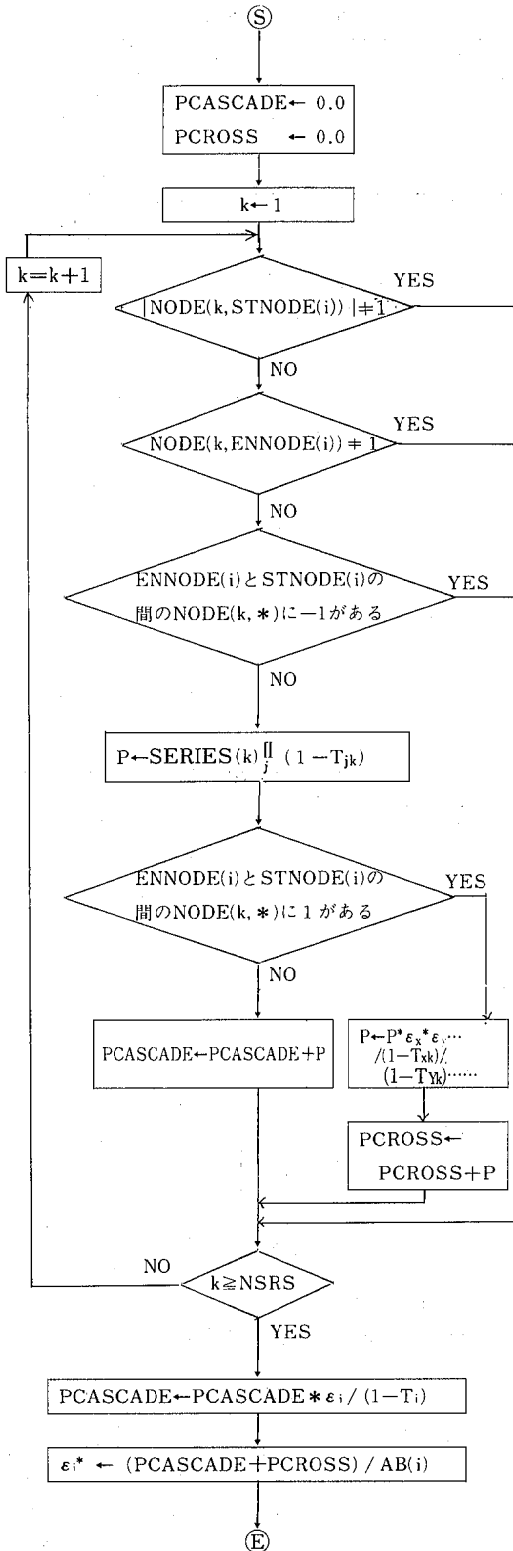


図9  $\epsilon^*$ を求めるアルゴリズム

ここで、全効率 $T_i$ は、(15)式により求めた。

$$T_i = \frac{\epsilon_i}{P_i} \quad (15)$$

但し、 $P_i$ ： $\gamma_i$ のエネルギーにおけるピークトータル比

任意のエネルギーにおける $P_i$ は、数点の実験値からスプライン補間により求めた。

### 5.3. 結果

サム効果補正を行った場合と行わない場合の結果を図10~11に示す。 $^{57}\text{Co}$ の136.5keVの $\gamma$ 線のように、他の $\gamma$ 線がクロスオーバーに存在し、みかけ上効率が上昇する場合も、 $^{88}\text{Y}$ の1836.0keVのように、他の $\gamma$ 線がカスケードにあり、みかけ上効率が低下する場合も、共に正しく補正されている。

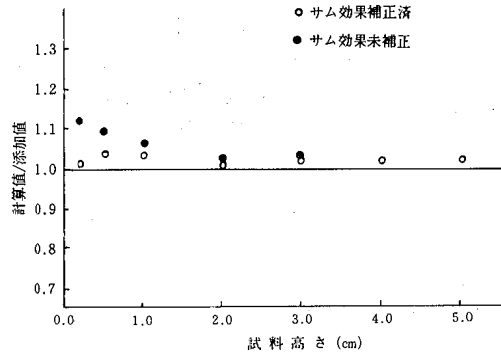


図10 サム効果補正有無の比較  
(GMX,  $^{57}\text{Co}$  136.5keV)

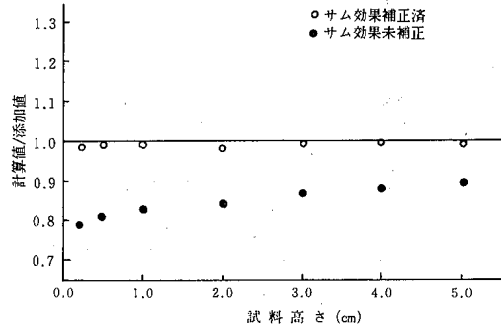


図11 サム効果補正有無の比較  
(GMX,  $^{88}\text{Y}$  1836.0keV)

次に、検出器によるサム効果の違いを図12に示す。 $^{57}\text{Co}$  (136.5keV)の場合、GLI、GEMでは補正による違いがあまりみられず、GMXだけ異常に大きな違いを示している。これは、サム効果に14.4keVの $\gamma$ 線が関与しているため、低エネルギー領域で高い効率を示すGMXでサム効果が顕著にあらわれたものと思われる。

る。今後、機器の進歩に伴い効率が大きくなればなるほど、サム効果補正の必要性は高まってくると思われる。

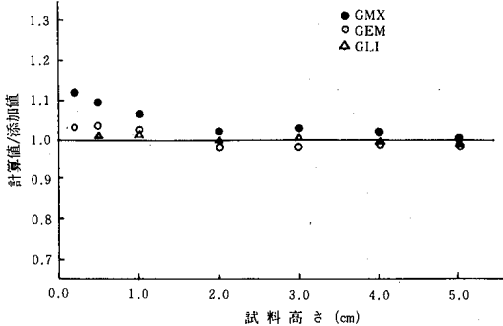


図12 検出器によるサム効果の違い  
( $^{57}\text{Co}$ , 136.5 keV)

## 6. 妨害核種の補正

### 6.1. 方法

スペクトルの同一位置にピークを生じる妨害核種については、図13に示す方法で補正した。同一のピークについて未定量核種が2つ以上残る場合にも、さらにくり返すことによって定量できるが、通常はこれで十分である。この方法の場合、妨害核種の基準エネルギーを決める際に、目的核種の基準エネルギーと重ならないよう留意しなければならない。 $^{54}\text{Mn}$  (目的核種) と  $^{228}\text{Ac}$  (妨害核種) の場合の設定例を表4に示す。表中\*印が基準エネルギーを表わす。

表4 基準エネルギーの設定例

$^{54}\text{Mn}$		$^{228}\text{Ac}$	
エネルギー (keV)	放出率 (%)	エネルギー (keV)	放出率 (%)
834.8*	100	129.1	2.9
		463.0	4.6
		835.6	1.8
		911.1*	29.0
		964.6	5.5

### 6.2. 結果

アルミナに、Th系列、U系列の核種と  $^{54}\text{Mn}$  を添加した模擬土壌について、この方法を適用した。その結果を表5に示す。2試料とも添加値とよく一致している。

表5 妨害核種補正の適用例

	模擬土壌 I	模擬土壌 II
$^{54}\text{Mn}$ の添加値 (pCi/g)	4.868 ± 0.219	4.868 ± 0.219
$^{54}\text{Mn}$ の測定値 (pCi/g)	4.83 ± 0.06	4.80 ± 0.06
比	0.992	0.986

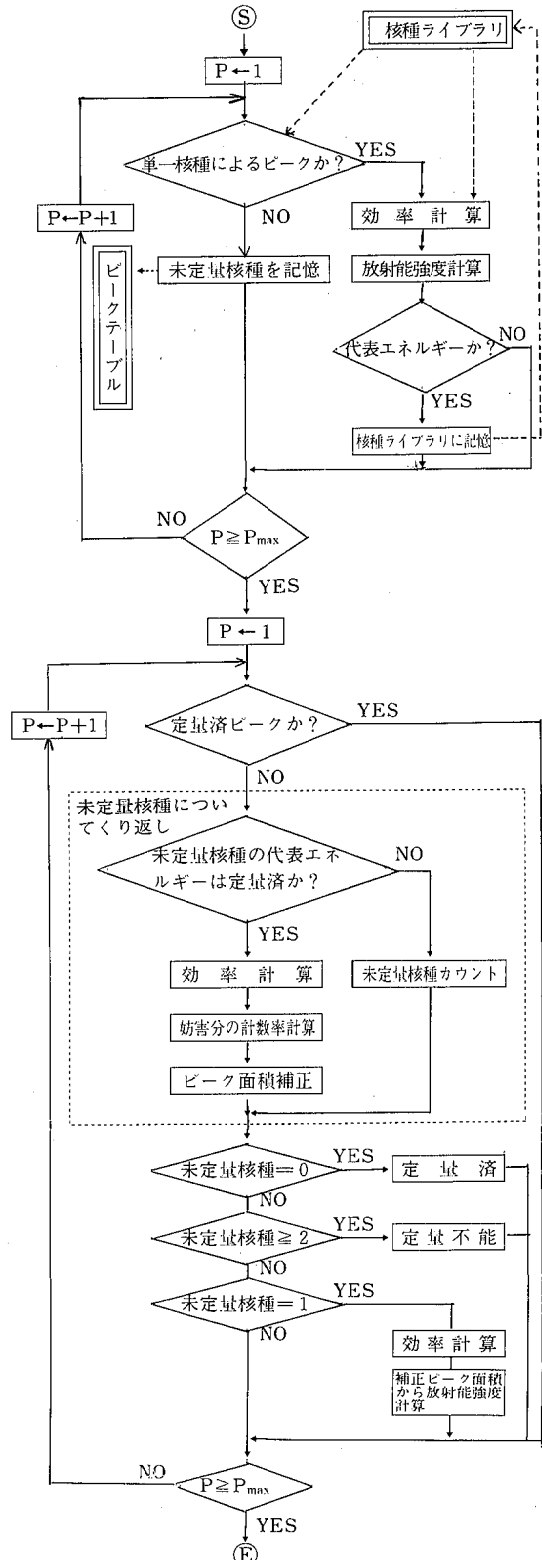


図13 妨害核種補正のアルゴリズム

## 7. おわりに

ここに報告した解析システムにより、 $\gamma$ 線スペクトル解析を簡便、迅速化することができた。特に、サム効果補正、妨害核種補正については、従来機械的に行うことができず、多大な労力と時間を要していたが、この方法によれば、核種ライブラリに必要なデータを登録するだけで補正することができる。また、複雑な崩壊をする核種について、サム効果を補正することは容易でなかったが、この方法により可能となった。

この解析システムによる測定値は、(財)日本分析センターとの分析確認調査においてもよい一致を示した。今後、さらに正確な測定値を得ることができるよう努力していきたい。

## — 参 考 文 献 —

- 1) 西原博明他：公害技術センター所報, 5, 33, 1983
- 2) 西原博明：公害技術センター所報, 6, 51, 1985
- 3) 野口正安： $\gamma$ 線スペクトロメトリー, 89, 1980
- 4) 同 上 , 112, 同上
- 5) 科学技術庁：ゲルマニウム半導体検出器を用いた機器分析法, 1979
- 6) 武田健治他：Radioisotopes, 28, 24, 1979
- 7) E. Storm et al. : Nuclear Data Tables, 7, 6, 1970

# 環境放射能分析における相互比較分析について

安井 正良・松浦 榮美・金子 敏明  
二宮 久・矢野 隆司・安永 章二

## 1. はじめに

原子力発電施設等周辺の環境放射能分析を行っている分析機関と、分析専門機関である(財)日本分析センターとが昭和50年度から、放射能分析確認調査事業(以下「クロスチェック」という。)を実施している。

この事業は、両機関が同一試料について分析を行い、それぞれの分析結果を相互に比較し、分析データの信頼性を確認し、試料採取、前処理、測定手法等一連の環境放射能分析技術の向上に資することを目的としている。

当センターでは、初年度から積極的に参加しており、50年度から54年度までの結果については、すでに報告している。<sup>1)</sup>

ここでは、55年度から59年度の放射性核種分析の結果について報告する。

## 2. 調査の実施状況

当センターが実施してきたクロスチェックの状況を表1に示す。

55年度以降は、試料数及び分析項目とも拡大し、その充実を図ってきた。

このクロスチェックは、極めて低レベルである環境放射能の分析における試料採取、前処理、計測、計測データの解析等分析操作の各段階の精度(再現性)と正確度を総合的にチェックするもので、次の二つの方法により実施している。

### 2.1. 試料分割法

当センターが採取した試料を分割し、科学技術庁編の放射能測定法<sup>2-5)</sup>に準拠して、両者が各々に前処理、測定試料調製、計測及びデータ解析を行い、その結果を各分析操作段階毎に比較検討するものである。

分割が困難な試料については、当センターが前処理をして調製した測定試料を、両者が計測及びデータ解析を行い、その結果を比較検討している。

### 2.2. 標準試料法

分析専門機関が、分析対

表1 クロスチェックの実施状況

項 目	試料	年度										区分		
		50	51	52	53	54	55	56	57	58	59			
試料分割法	γ線分光分析	降下物	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	○
		降水	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	◎
		土壌	1	1	1	1	1	2	3	3	3	3	3	◎
		農作物・指標生物	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	◎
		海水	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	◎
		海底土	1	1	1	1	1	2	2	2	2	2	2	◎
	トリチウム分析	海産生物	5	5	5	5	5	5	10	10	10	10	10	◎◎
		陸水		1	1	1	1	3	3	3	3	3	3	◎
	Sr-90放射化学分析	海水		1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	◎
		土壌						1	1	1	1	1	1	◎
	小計	海産生物							1	1	1	1	1	◎
		小計	12	14	14	14	14	19	26	26	26	26	26	—
標準試料法	γ線分光分析	寒天			4	5	5	5	5	5	10	10	○	
		模擬土壌		4	4	1	1	2	1	1	2	2	○	
		海水		1	2	1	3	3	2	2	2	2	◎	
		海産生物			1	1	1	1	1	2	2	2	◎	
		牛乳			1	1	1	2	2	1	1	1	○	
	トリチウム分析	試料水		2	2	2	2	2	2	2	2	2	◎	
	Sr-90放射化学分析	陸水等			1	1	1	2	2	4	2	2	◎	
	Co-60放射化学分析	海産生物								1	2	2	◎	
	小計	小計		7	15	12	14	17	15	18	23	23	—	
		小計	12	21	29	26	28	36	41	44	49	49	—	

区分欄の◎印は、両者が各々前処理、計測を行い比較する試料、○印は計測のみを行い比較する試料である。

Masayoshi YASUI · Shigemi MATSUURA · Toshiaki KANEKO  
Hisashi NINOMIYA · Takashi YANO · Shoji YASUNAGA



象核種を既知量添加して作成した標準試料について、科学技術庁編の放射能測定法<sup>2-8)</sup>に準拠して、両者が計測及びデータ解析のみを行うものと、両者が各々に前処理、測定試料調製、計測及びデータ解析を行うものがあり、その分析結果を分析操作段階毎に比較検討するものである。

### 2. 3. 分析結果の妥当性の検討

分析結果の相違の有無を判定する一応の目安は、試料分割法においては、両者の分析結果の差が分析専

門機関分析値の10%+3σ(計数誤差の3倍)以内であるかどうか、標準試料法においては、添加値との差が添加値に対して10%+3σ以内であるかどうかを基準となっている。この判定基準により、分析結果の妥当性を検討している。

### 3. 結果と考察

#### 3. 1. 試料分割法

Ge 半導体検出器によるγ線分光分析結果のうち、Cs-137の分析結果を表2に示す。このCs-137は、過

表2 試料分割法のCs-137分析結果

試料名	試料形状	55年度	56年度	57年度	58年度	59年度	単 位	
降下物	蒸発乾固残さ	15±1.2	92±2.5	22±1.8	6.5±1.4	*	pCi/m <sup>3</sup>	
		17±1.5	95±2.7	26±1.9	7.3±1.4	3.7±0.78		
		26±1.4	67±2.1	6.8±1.2	6.0±1.3	*		
		25±1.9	73±3.1	7.6±1.3	11±1.4	*		
陸水	〃	*	*	*	*	*	pCi/l	
		*	*	*	*	*		
土 壤	乾 土	1800±30	3000±40	1100±20	2100±30	1000±20	pCi/kg 乾土	
		1800±40	2800±40	1100±32	2200±44	990±29		
		770±22	880±22	920±20	290±16	84±14		
		720±26	940±24	1000±32	300±20	90±12		
		2000±40	1300±20	1000±30	950±20			
		2100±46	1400±38	1100±31	970±30			
農作物 指標生物	灰化物	17±0.8	15±0.70	8.2±0.65	*	*	pCi/kg 生	
		15±0.8	12±0.71	5.4±0.54	3.3±0.60	1.5±0.25		
海水	沈澱物	*	0.22±0.033	0.11±0.031	0.13±0.029	0.12±0.028	pCi/l	
		0.23±0.052	0.18±0.042	0.16±0.047	0.18±0.044	0.11±0.025		
海底土	乾 土	69±12	55±10	66±13	*	61±10	pCi/kg 乾土	
		56±13	52±13	46±13	43±8.6	41±12		
		45±11	64±10	49±14	54±12	54±13		
		50±14	74±11	84±15	58±9.6	44±12		
海産生物	魚 類	10±1.1	11±1.4	6.5±0.98	8.5±1.1	10±0.80	pCi/kg 生	
		11±1.2	7.5±0.88	6.3±0.93	10±0.89	8.6±0.82		
		5.6±1.3	7.4±1.4	3.7±1.2	4.4±1.3	8.4±0.91		
		7.8±1.4	5.8±1.1	5.7±1.1	4.4±0.83	5.2±1.2		
		—	9.2±0.90	9.0±1.1	9.3±1.1	10±0.9		
		—	11±0.74	12±1.0	9.2±0.97	11±0.74		
		—	7.3±1.3	7.4±1.3	5.7±1.2	5.0±0.91		
		—	6.5±1.1	9.5±1.3	9.0±1.1	4.9±1.2		
	貝 類	灰化物	—	—	—	—		4.6±0.88
			—	—	—	—		4.1±0.88
			*	*	*	2.6±0.68		*
			*	*	*	1.3±0.40		2.0±0.43
	海 藻	灰化物	*	*	*	*		—
			*	*	*	1.5±0.41		—
			—	*	*	*		*
			—	1.8±0.52	*	1.4±0.37		*
海 藻	灰化物	—	4.1±1.2	*	*	—		
		—	8.2±1.9	*	5.7±0.87	—		
		—	*	*	*	*		
		*	*	*	2.9±0.73	*		
		*	*	*	*			
		7.6±1.9	*	*	*			

上段：分析センター，下段：愛媛県

\*：検出限界以下(計数誤差の3倍未満)

表3 試料分割法の短半減期核種分析結果 (昭和56年度)

試料	核種	Ce-144	Sb-125	Ru-106	Mn-54	Ce-141	Ru-103	Zr-95	Nb-95	Y-88	単位	
降下物		1300±10	47±5.1	560±22	31±2.4	300±9	550±11	1100±20	2100±50	10±1.2	pCi/m <sup>2</sup>	
		1500±16	50±7.3	560±26	34±1.6	350±4.7	650±6.5	1300±12	2300±14	11±1.4		
		930±11	42±4.3	450±19	28±2.2	400±14	700±15	1000±20	1800±80	9.8±1.3		
		990±15	50±7.8	450±27	28±1.9	430±8.0	790±12	1100±16	1800±29	8.5±1.9		
農作物 指標生物		190±3	8.5±1.5	28±4.9	5.4±0.90	29±0.9	22±0.9	150±2	280±3	1.4±0.30	pCi/kg生	
		170±3.2	9.4±1.7	36±5.8	5.8±0.54	23±0.86	22±1.0	130±2.4	260±2.9	2.2±0.42		
海産生物	貝		48±3.5	*	23±6.8	*	*	27±3.0	92±4.5	130±16	*	pCi/kg生
			52±5.8	*	38±10	*	22±4.2	26±3.4	100±5.1	110±11	*	
			15±2.5	*	*	*	*	15±2.1	29±3.0	88±10	*	
			18±4.3	*	*	*	*	21±2.6	25±3.3	92±7.6	*	
	類		47±2.5	*	39±4.9	*	19±2.6	36±2.1	10±2.4	*	*	
			53±4.0	*	35±5.4	*	19±3.0	36±1.8	6.1±1.6	16±3.4	*	
	海		54±5.6	*	*	*	*	25±4.5	190±8	160±26	*	
			61±8.1	*	*	*	20±2.9	19±2.8	190±6.6	150±6.6	*	
	藻		*	*	*	*	*	*	71±4.4	62±9.1	*	
			*	*	*	*	*	*	72±4.1	91±7.7	*	
	藻		90±6.0	*	*	*	27±3.1	14±2.8	200±7	230±13	*	
			130±8.5	*	*	*	39±3.2	20±2.9	230±7.2	280±8.2	*	

上段：分析センター，下段：愛媛県 \*：検出限界以下（計数誤差の3倍未満）

去の核爆発実験に由来する長半減期核種で、例年多くの試料から検出されている。

また、55年10月の中国の核爆発実験の影響により、56年度には多数の試料から短半減期核種が検出されたので、その分析結果を表3に示す。

トリチウム分析の結果を表4に、放射化学分析 (Sr-90)の結果を表5に示す。

これらの分析結果は、ほとんど判定基準に合致しており、前処理方法・測定手法等分析操作に特段の問題がなかったといえる。ただ表5の59年度の土壌の分析結果のように、分割試料中の核種の偏在に起因すると

考えられる分析結果の相違がある場合があった。

### 3. 2. 標準試料法

Ge半導体検出器によるγ線分光分析の寒天試料は、10核種程度が添加され、厚みが5段階に調整されている。この試料は計測のみを行い、測定機器の校正及び試料の自己吸収補正等が適正に行われていることをチェックしている。

模擬土壌(アルミナ粉末)は、10核種程度が添加され、さらに自然系列(U系列及びTh系列)の核種が添加されている。この試料は計測のみを行い、自然系列核種による妨害に対して適正な補正が行われていることを

表4 試料分割法のトリチウム分析結果

試料名	55年度	56年度	57年度	58年度	59年度	単位
降水	*	61±15	*	65±11	*	pCi/ℓ
	*	89±13	88±14	62±20	*	
河川水	*	46±11	*	70±11	*	pCi/ℓ
	78±16	94±15	*	*	56±13	
海水	42±7	41±11	41±11	50±10	58±10	pCi/ℓ
	90±17	41±13	69±13	94±16	51±13	
海水	*	*	*	43±10	*	pCi/ℓ
	*	*	*	*	*	

上段：分析センター，下段：愛媛県 \*：検出限界以下（計数誤差の3倍未満）

表5 試料分割法の放射化学分析 (Sr-90) 結果

試料名	55年度	56年度	57年度	58年度	59年度	単位
土壌	133±8	356±11	177±8	129±6.8	218±8.6	pCi/ /kg乾土
	140±8	333±10	176±8	135±8	143±8	
海産生物 (海藻)	—	2.5±0.44	2.1±0.38	3.0±0.42	2.0±0.36	pCi/ /kg生
	—	2.3±0.50	3.9±0.7	4.0±0.9	2.2±0.5	

上段：分析センター，下段：愛媛県

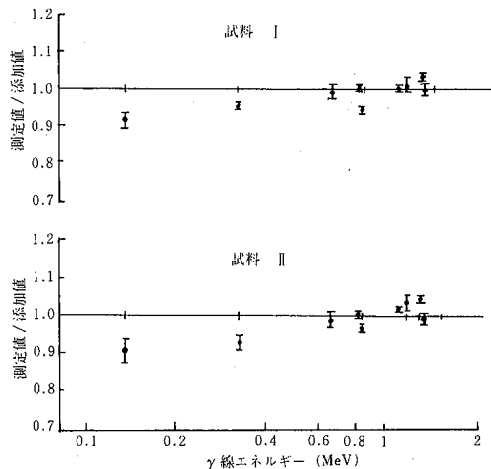


図1 模擬土壌の分析結果 (59年度)

チェックしている。

模擬土壌の分析結果を図1に、寒天試料の分析結果を図2に示す。図中のバーは、計数誤差 $1\sigma$ を示し、以後同様である。

これらの結果は、添加値に対して10%以内でよく一致しており、測定機器の校正、試料による $\gamma$ 線の自己吸収に対する補正、並びに妨害核種に対する補正も適切に行われていることがわかる。

また、前処理を行い測定試料を調製し分析する海水と海産物の分析結果を表6、表7に示す。このうち

55年度のCe-144とFe-59については、標準試料作成時の容器等への付着による濃度低下があり、当センターの分析結果に問題点のないことが確認されている。その他の分析結果は、判定基準に合致している。

NaI(Tl)シンチレーション検出器による $\gamma$ 線分光分析の結果を図3に、トリチウム分析の結果を図4に、放射化学分析の結果を図5、図6に示す。

これらの分析結果も判定基準に合致しており、前処理方法、測定手法、データ解析等分析手法に特段の問題がなかったといえる。

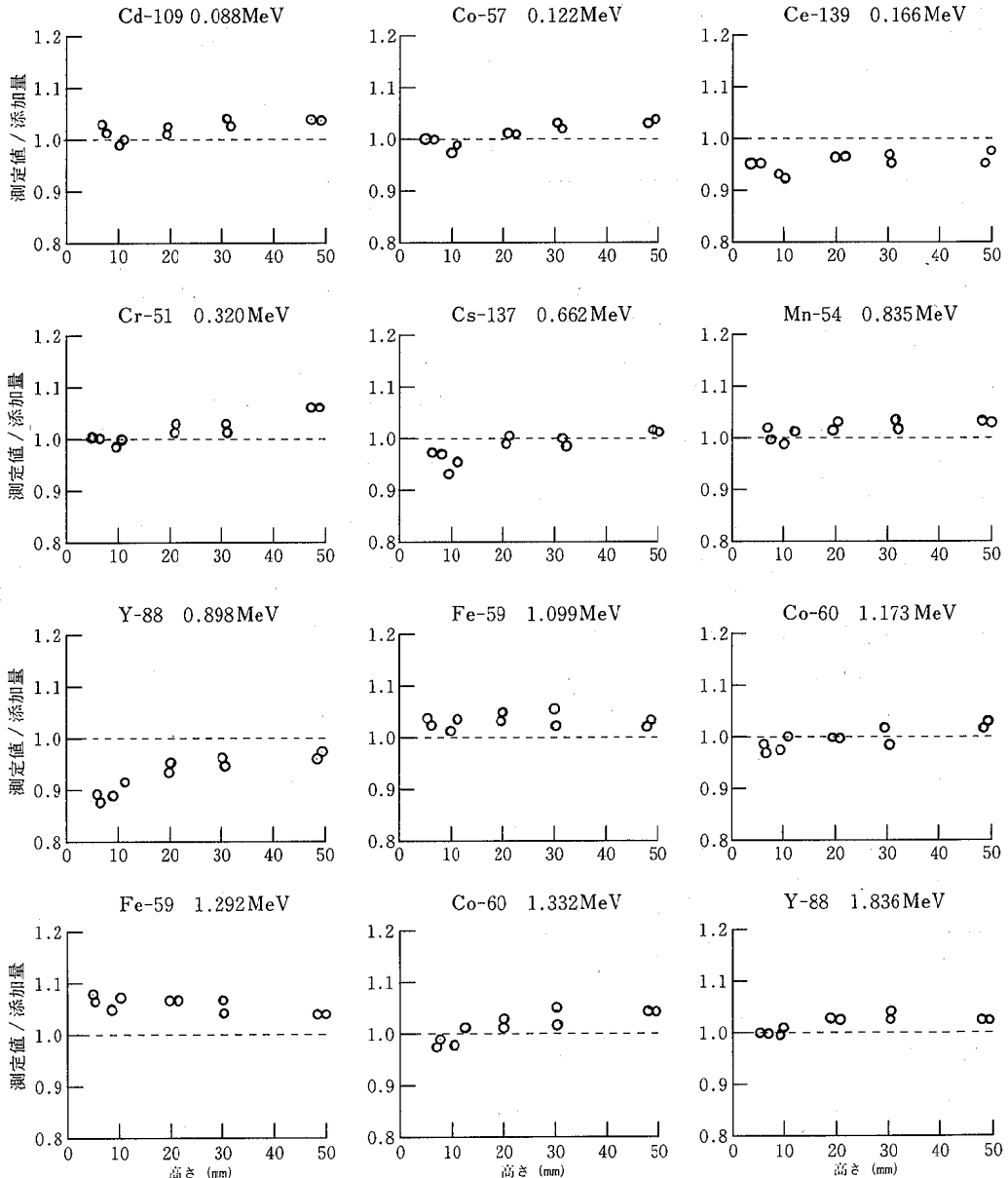


図2 寒天試料の分析結果 (59年度)

表6 標準試料法(海水)の分析結果

核種	55年度	56年度	57年度	58年度	59年度	単位
添加量	2103±4.3%	2074±4.6%	509.0±4.2%	136.9±4.8%	113.8±4.1%	pCi/試料
Ce-144	1430±16	2160±19	536±14	151±8.1	96.0±3.3	
	1540±17	2031±26	487±14	152±6.9	96.8±3.5	
	1450±17					
添加量	1084±3.3%	1085±2.0%	101.1±2.4%	27.38±3.5%	28.43±3.6%	
Cs-137	964±7.3	1125±8.5	94.9±2.0	30.8±1.2	29.2±0.76	
	974±7.9	1134±9.9	112±2.3	29.6±1.0	36.9±0.84	
	1270±8.7					
添加量	539.2±4.3%	514.6±4.7%	95.08±4.5%	29.00±4.6%	21.69±4.4%	
Mn-54	486±6.1	490±6.4	97.8±2.4	28.4±1.3	18.7±0.68	
	513±6.7	532±8.2	109±2.6	28.2±1.2	19.2±0.72	
	519±6.7					
添加量	880.9±5.6%	992.1±4.6%	248.2±4.5%	64.42±4.6%	55.17±4.4%	
Fe-59	682±15	1101±14	250±5.7	63.5±8.4	58.7±2.0	
	745±17	1087±25	295±8.8	71.8±9.8	58.3±2.3	
	748±17					
添加量	538.8±1.85%	508.1±1.75%	98.37±1.1%	29.01±2.2%	23.48±2.6%	
Co-60	465±4.5	471±4.9	95.1±1.9	28.6±1.3	24.0±0.84	
	496±5.0	502±5.9	103±1.9	28.4±1.1	23.8±0.86	
	514±5.0					

各核種を既知量添加して作成した海水試料である。

表7 標準試料法(海産生物)の分析結果

核種	55年度	56年度	57年度	58年度	59年度	単位
添加量	102.4±4.3%	119.7±4.7%	100.3±4.9%	104.8±4.8%	107.0±4.1%	pCi/kg生
Ce-144	51.1±5.6	137±5.8	114±8.4	108±4.2	111±3.6	
			121±8.4	110±4.4	112±3.6	
添加量	24.19±4.0%	21.70±3.4%	22.05±3.1%	21.94±3.5%	22.95±3.6%	
Cs-137	23.2±1.4	21.8±1.4	21.1±1.3	21.4±0.88	21.6±0.81	
			23.7±1.3	14.7±0.83	48.6±1.0	
添加量	24.43±4.3%	23.44±4.8%	24.33±5.4%	25.21±4.6%	21.47±4.4%	
Mn-54	20.9±1.6	24.0±1.5	25.8±1.4	26.3±0.97	21.9±0.80	
			25.1±1.4	26.7±0.99	20.6±0.80	
添加量	33.91±1.55%	25.81±1.95%	20.83±1.8%	23.91±2.2%	22.46±2.6%	
Co-60	27.8±1.4	25.9±1.31	21.0±1.1	22.7±1.0	21.7±0.92	
			20.9±1.1	23.2±1.0	21.1±0.92	
添加量	993	1100	1870	1970	1840	
K-40	995±34	1141±33	1791±35	2290±27	1810±23	
			1770±34	2160±27	1820±23	

各核種を既知量添加して作成した海産生物試料である。

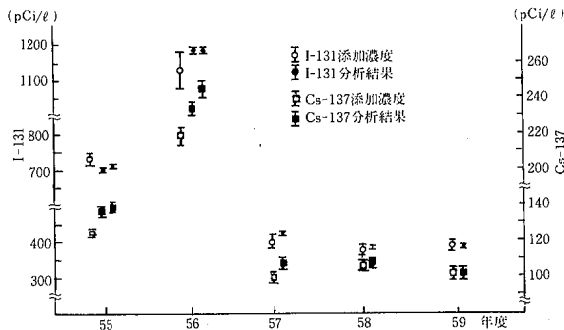


図3 標準試料法(牛乳)の分析結果

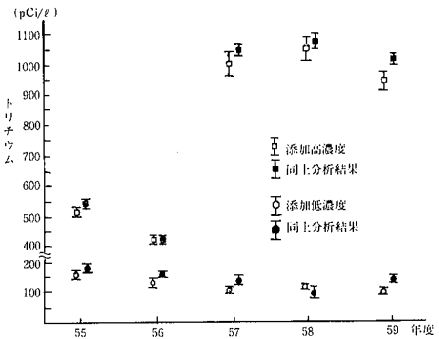


図4 標準試料法(試料水)のトリチウム分析結果

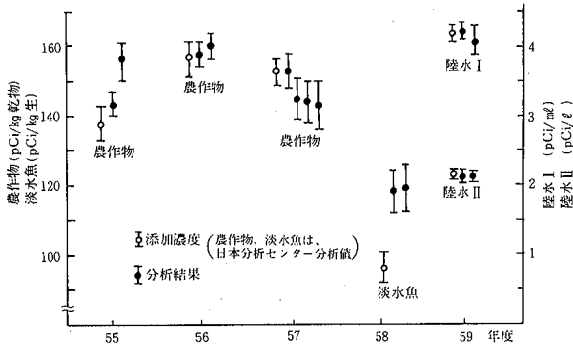


図5 標準試料法の放射化学分析(Sr-90)結果

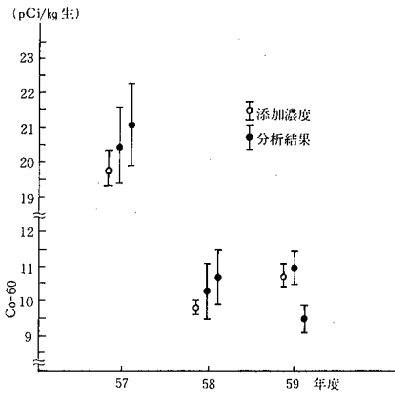


図6 標準試料法(海産生物)の放射化学分析(Co-60)結果

#### 4. おわりに

クロスチェックへの参加は、環境放射能分析における分析データの信頼性を確認するとともに、分析に対する自信を得る等多大な成果があった。

今後とも、本事業に積極的に参加するとともに、最新の分析技術情報の収集と各種研修により、分析技術の向上を図っていききたい。

なお、55年度から実施している環境放射線に係るクロスチェックの結果については、別に報告したいと考えている。

#### — 参 考 文 献 —

- 1) 徳山崇彦ほか：愛媛県公害技術センター所報第2号 72-75, 1980
- 2) 科学技術庁：ゲルマニウム半導体検出器を用いる機器分析のための試料の前処理法, 1982
- 3) 科学技術庁：ゲルマニウム半導体検出器を用いた機器分析法, 1979
- 4) 科学技術庁：トリチウム分析法, 1977
- 5) 科学技術庁：放射性ストロンチウム分析法, 1983
- 6) 科学技術庁：放射性ヨウ素分析法, 1977
- 7) 科学技術庁：NaI(Tl)シンチレーションスペクトロメータ機器分析法, 1974
- 8) 科学技術庁：放射性コバルト分析法, 1974

---

愛媛県公害技術センター所報

第 7 号

昭和61年 3月発行

編集発行所 愛媛県公害技術センター  
松山市三番町8丁目234番地 (〒790)  
電 話 松山 (0899) 21-3900

印刷所 アマノ印刷有限公司  
松山市東石井町172番地4  
電 話 松山 (0899) 56-2442

---