

AR-2-'89

国立公害研究所 特別研究年報

昭和 63 年 度

環境庁 国立公害研究所

昭和63年度国立公害研究所特別研究年報の

発刊に当たって

国立公害研究所は、我が国の環境研究の中心的役割を果たすために環境庁の付属機関として設立され、理工学分野、生物・医学分野、さらに、人文・社会科学分野に至るまで広範囲にわたる多種多様な研究者集団による構成に加え、大学や地方公害研究所等所外の専門家の参加を得て、学際的な研究を実施している。

特別研究は、前述した当研究所の学際性を十分に生かすべく、総合的なプロジェクト研究として昭和51年度から「陸上植物による大気汚染環境の評価と改善に関する基礎研究」を第1号としてスタートさせ、昭和63年度現在既に延べ39課題を数えている。このうち27課題が昭和62年度までに終了しており、昭和62年度時点では12課題の特別研究を実施した。

このような特別研究の成果については、従来、環境研究に携わる内外の研究者向けに「国立公害研究所研究報告」として報告してきたが、特別研究が特に現実の社会的関心の高いテーマを扱うことから、昭和62年度より従来の「国立公害研究所年報」で報告していた特別研究の部分を発展・拡充し、一般の方々にもできるだけ分かりやすい表現をモットーに、図表をまじえ、簡潔に各々の特別研究の概況報告をすべく本報告書を刊行することとした。幸い、昭和62年度の「国立公害研究所特別研究年報」については、関係者の方々から好意的な評価をいただき、当研究所の研究活動についてより多くの方々にご理解を深めていただくという当初の目的はある程度達成できたものと考えている。

しかしながら手前みそ故、まだまだ分かりやすさ、表現等で至らない面が多々あり、本年度の特別研究年報においてもその点について改善するよう努力したつもりであるが、十分でない部分については関係者の御叱正を仰ぎ、一層分かりやすい特別研究年報を目指していきたいと考えている。

平成元年 8 月

国立公害研究所

所長 不破 敬 一 郎

目 次

1. 概 況	1
2. 特 別 研 究	3
2.1 環境指標を用いた都市及び自然環境等の変動予測手法開発に関する 総合解析研究（最終年度）	3
2.2 水界生態系に及ぼす有害汚染物質の影響評価に関する研究（最終年度）	12
2.3 地球温暖化に係わる炭素系大気微量成分のグローバル変動に関する先導的研究	22
2.4 土壌及び地下水圏における有害化学物質の挙動に関する研究	34
2.5 雲物理過程を伴う列島規模大気汚染に関する研究	40
2.6 バイオテクノロジーによる大気環境指標植物の開発に関する研究	48
2.7 富栄養化による内湾生態系への影響評価に関する研究	53
2.8 先端技術における化学環境の解明に関する研究	61
2.9 環境容量から見た水域の機能評価と新管理手法に関する研究	68
2.10 大都市圏における環境ストレスと健康に係る環境保健モニタリング 手法の開発に関する研究（初年度）	76
2.11 粒子状物質を主体とした大気汚染物質の生体影響評価に関する 実験的研究（初年度）	88
2.12 成層圏オゾン層の変動とその環境影響に関する基礎的研究（初年度）	95

1. 概 況

国立公害研究所は、昭和49年3月、我が国の環境研究の中心的役割を果たすために、環境庁の研究機関として、筑波研究学園都市に設立された。本研究所は、理工学分野、生物学分野、医学分野、さらに、人文・社会科学分野に至るまで広範囲にわたる多種多様な研究者集団を擁し、大学の研究者や地方公害研究所等所外の専門家の参加を得て、研究を学際的に実施することを大きな特色としている。こういった学際性の上になつて、大型実験施設を駆使した研究と、野外の実地調査研究を組み合わせ、社会的ニーズに対応した目的指向型のプロジェクト研究を遂行する特別研究を活動の中心に据えている。

特別研究は、昭和51年度から「陸上植物による大気汚染環境の評価と改善に関する基礎研究」を第1号としてスタートさせたが、それ以来、実施課題は延べ39課題に達し、このうち27課題が昭和62年度末までに終了している。特別研究のスタート当初においては、有機汚染物質による水質汚濁、大気汚染に伴う光化学スモッグ、重金属による土壤汚染や生態系の汚染といった、顕著な汚染源による典型的な公害問題の解決が主要な課題であったが、最近においては、科学技術の進歩、産業構造や、生活様式の変化等に伴い、先端産業に伴う有害化学物質による環境汚染、低濃度かつ複合的な汚染の人間や生態系に及ぼす影響、地球的な規模での環境汚染等が主要な課題として関心を呼びつつあり、これに伴って本研究所の特別研究の設定課題も変遷してきている。

昭和63年度においては、下記の12課題の特別研究を実施した。このうち、☆印を付した3課題は昭和63年度よりの新規課題、★印を付した2課題は昭和63年度をもって最終年度とする終了課題である。昭和63年度特別研究には、本研究所の全研究職員並びに環境情報部、計測技術部及び技術部の関係行政職員のほか、所外から256名の客員研究員及び73名の共同研究員が参画した。

1. ★環境指標を用いた都市及び自然環境等の変動予測手法開発に関する総合解析研究
2. ★水界生態系に及ぼす有害汚染物質の影響評価に関する研究
3. 土壤及び地下水圏における有害化学物質の挙動に関する研究
4. 地球温暖化に係わる炭素系大気微量成分のグローバル変動に関する先導的研究
5. 雲物理過程を伴う列島規模大気汚染に関する研究
6. バイオテクノロジーによる大気環境指標植物の開発に関する研究
7. 富栄養化による内湾生態系への影響評価に関する研究
8. 先端技術における化学環境の解明に関する研究
9. 環境容量から見た水域の機能評価と新管理手法に関する研究
10. ☆大都市圏における環境ストレスと健康に係る環境保健モニタリング手法の開発に関する研究
11. ☆粒子状物質を主体とした大気汚染物質の生体影響評価に関する実験的研究
12. ☆成層圏オゾン層の変動とその環境影響に関する基礎的研究

2. 特 別 研 究

2.1 環境指標を用いた都市及び自然環境等の変動予測手法開発 に関する総合解析研究（最終年度）

昭和 60～63 年度（1985～1988 年度）

〔研究組織〕 総合解析部

◎内藤正明

環境管理研究室 西岡秀三・○甲斐沼美紀子・原沢英夫・金谷 健・森 保文

地域計画研究室 清水 浩・青木陽二・森口祐一

資源循環研究室 中杉修身・天野耕二

環境経済研究室 ○森田恒幸・青柳みどり

総合評価研究室 安岡善文・田村正行・飯倉善和

環境情報部

情報システム室 大井 紘・須賀伸介

電算機管理室 猪爪京子

計測技術部

分 析 室 溝口次夫

環境保健部

環境心理研究室 兜 真徳・相本篤子

客員研究員 17 名

〔研究概要〕

本研究は、21 世紀に向けての社会経済的諸条件の変化が我が国の環境問題に及ぼす影響を解明するため、長期予測の諸手法や情報システムを開発・整備して体系的な予測を行うことを目的としている。

本研究は大きく次の 3 つのサブテーマに分けられる。

(1) 21 世紀に向けての日本社会のトレンドを同定し、これを踏まえて環境問題を長期的に展望にする各種のシナリオを作成する。

(2) 長期予測のための諸手法や情報システムを開発し、各種データを整備するとともに、これらを体系化した長期予測支援システムを開発する。

(3) 専門家の知見を基にして予測シナリオを概括的に検証するとともに、重要なシナリオについて、長期予測支援システムを使って詳細な検証を行う。

昭和 62 年度までにサブテーマ(1)及び(2)に関する主要な作業がおおむね終了し、昭和 63 年度にサブテーマ(3)についての作業を終え、本特別研究は予定どおり完了した。

〔研究成果〕

(1)体系的な長期予測の試み

「予測」はそれを行った時点での一つの仮説であり、将来に向けての一つの可能性を示すに過ぎない。しかし、この種の仮説がなければ将来への対応が検討できない。いろいろな可能性を見定めて初めて将来の政策展開の方向が定まってくる。

21世紀初頭に向けて我が国の環境政策をどう展開していったらよいのか?このような思考に「予測」は不可欠である。21世紀に向けて環境問題の行方を探り、問題の所在を明らかにして、その対応策を考える。こうした予測を体系的に行おうとしたのが本研究である。

この研究の全容を、図1に示す。予測対象が広範囲かつ長期に及ぶため、シナリオ分析を主体にして、専門家の知見を積極的に活用することを試みた。その手順は、まず、21世紀に向けて我が国の社会経済の基本的なトレンド(以下「基本潮流」という。)を明らかにし、この基本潮流が環境問題に及ぼすインパクトを及ぼすかについてのシナリオを作った。次いで、多数の専門家の知見を活用してこれらのシナリオの確からしさを評価するとともに、特に重要なシナリオについてはコンピュータ・シミュレーションによってさらに詳細に検討した。一方、これらの作業を効率的に支援するため、数値データや知識データを体系的に管理する情報システムを開発し、また、予測モデルの構築やシミュレーションを体系的に支援するコンピュータ・システムを開発した。この長期予測支援システムについては、昨年の報告で詳しく紹介したので、今回は予測の中

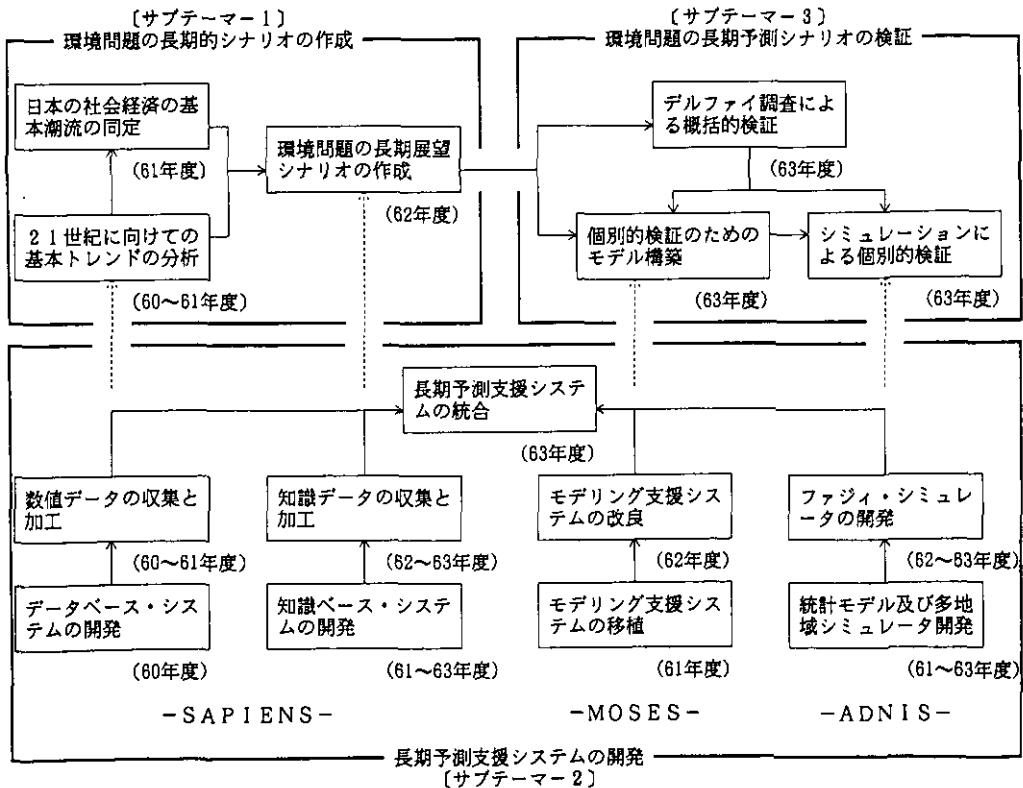


図1 本特別研究の全体構成

身を中心に報告することにした。

(2) 21世紀に向けた我が国の社会経済の基本潮流

まず、21世紀初頭に向けて日本の社会経済がどのように変わっていくかについて分析した。これには、過去の100件以上の長期予測事例をレビューするとともに、支援システムのデータベースを用いてトレンド分析を行った。この結果、以下に示す13種類の基本潮流が同定できた。

- 1) 生活の質の向上：勤労者の実収入は今の5割以上増加し、時間消費型の消費が拡大する。
- 2) 余暇時間の増大：一週間の実労働時間はさらに5時間程度減り、余暇時間が増える。
- 3) ライフスタイルの変化：共同住宅に住む都市住民が増え、女性の社会進出が加速する。
- 4) 高齢化の進行：65歳以上の人口割合は15%を越え、20%近くまで急激に増える。
- 5) 都市化の進行：都市への機能集中や人口集中が続く。人口の7割以上がDID地区に集まる。
- 6) 地価の高騰：東京都心部の地価上昇は地方や住宅地にも波及して、高水準で安定してしまう。
- 7) 産業のソフト化：GNPの2/3は第三次産業で稼ぎ、その半分は知識サービス生産による。
- 8) 高度情報化の進行：通信、情報、映像の市場規模が2～5倍と急激に拡大する。
- 9) 技術革新の進展：新素材、マイクロエレクトロニクス、バイオの分野を中心に技術が進む。
- 10) エネルギー制約の推移：石油価格や環境問題の推移によりエネルギー供給は制約を受ける。
- 11) 森林経営の弱体化：国有林や民有林で森林経営の収支が悪化し、労働人口の高齢化が進む。
- 12) 国際化の進展：国際的な情報交流や人の移動が活発化し、企業の海外進出も増える。
- 13) 湾岸開発の進展：東京湾を中心に、埋め立てを含む湾岸部の面的開発と交通網の整備が進む。

(3) 環境問題の長期展望シナリオ

次いで、この基本潮流が環境問題に与えるインパクトについて、各種のシナリオを作成した。検討対象は、最近各方面から問題が指摘されている環境分野で、図2に示すとおり、都市アメニティ問題（交通公害や自然保護等の下で扱う問題を除く）、交通公害問題（道路交通公害のみを対象）、水質汚濁問題（有害化学物質問題を除く）、廃棄物問題（有害化学物質問題を除く）、有害化学物質問題、自然保護問題（都市近郊の自然の保全を含む）、環境保全への市民参加、の7分野とした。

これらの分野ごとにシナリオを作成する際、4つの前提を置いた。第1に、21世紀初頭（2001年～2010年）の状況を展望すること、第2に、展望の前提条件は上述の社会経済の基本潮流だけで、関連する政策の大幅な転換は前提としないこと、第3に、展望は日本全体の視点から行い、特別な場合を除いて特定の地域に限定した展望は行わないこと、第4に、シナリオはインパクトの各側面について必ず楽観的な展望と悲観的な展望の2つを用意すること、である。最後の条件は客観的な予測を行うために特に重要である。恣意的で偏った判断を排除する効果がある。

各シナリオは150～300字程度の文章の形で表現された。例えば、産業のソフト化が交通公害問題に影響を与えるシナリオのうち、悲観的シナリオは、「産業形態が重厚長大型から軽薄短小型や遊創感美型に変化することにより、物流の小口化が進み、交通頻度は増加する。また、ファッション産業や情報関連製造業等の都市型産業が成長するが、これらの産業は需要地である都市部あるいはその近郊に立地することになり、都市及びその周辺部に新しい工場が増えて新規に交通が発生する。この結果、産業のソフト化は交通公害を悪化させてしまう。」というものである。こうして作成されたシナリオは合計210種類もの数にのぼった。

(4)デルファイ調査によるシナリオの概括的検証

以上のシナリオを概括的に検証するため、デルファイ調査を実施した。この方法は、専門家の優れた直観を周到かつ組織的に引き出す方法として広く用いられており、通常、アンケート調査を2回繰り返して実施し、専門家に情報をフィードバックしながら判断の適正化を図る工夫がされている。ここでは、図3に示すように、従来の方法に2つの改良を加えて適用した。この改良点は、第1に、先に作成したシナリオの評価を中心に調査票を設計したことであり、第2に、ファジィ理論を使って専門家のあいまいな判断を体系的に集計したことである。

調査は、7つの環境分野に加えて、東京湾の開発と保全問題を特別に1つの分野として、合計

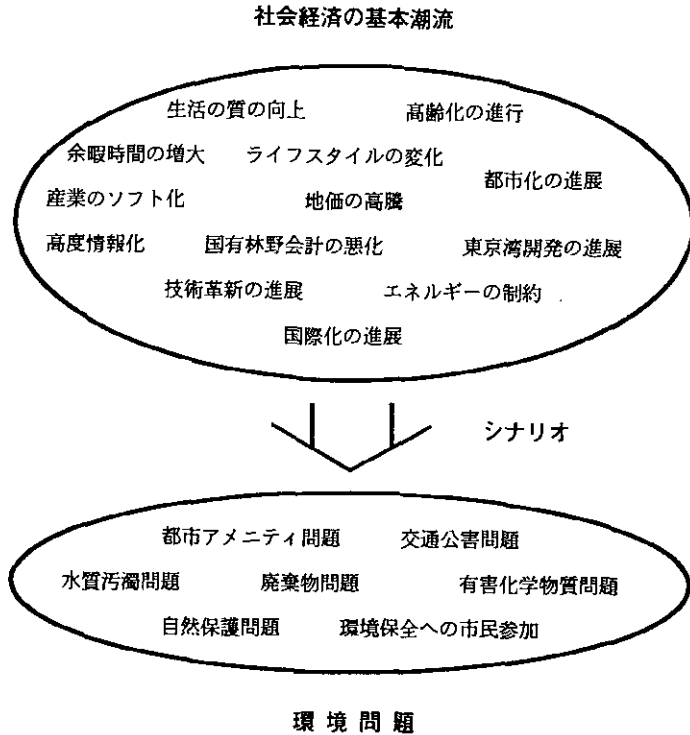


図2 予測シナリオの概念図

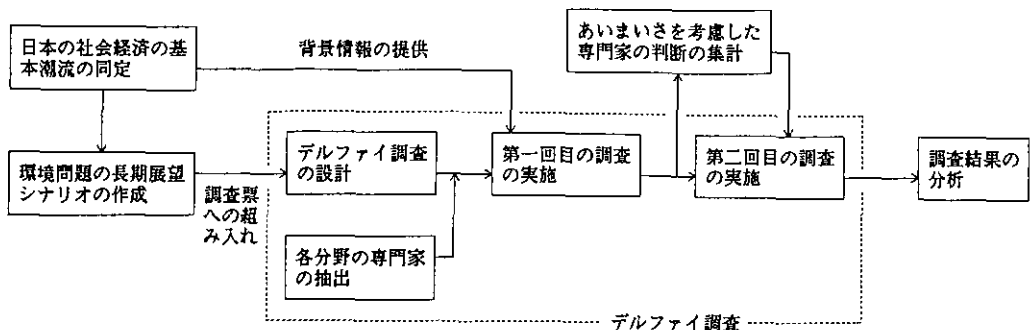


図3 デルファイ調査の全体手順

8つの分野に分けて実施した。そして、各分野の専門家、延べ234名(回収率72%)から回答を得た。この回答は、シナリオの評価、シナリオが実現した場合の影響の度合い等について判断されたものであり、この集計結果から、合計95のシナリオが実現の度合いが高いものとして選ばれた。

この結果の概要を整理して、表1に示す。この表により、環境問題の長期的変化の方向を概括的に把握することができる。主な傾向として、①都市化、地価上昇、生活向上、湾岸開発等の潮

表1 デルファイ調査によって支持されたシナリオの一覧

環境問題 基本潮流	都市ア メニテ イ問題	交公 通 問題	水汚 質 問題	質 濁 問題	廃棄物 問題	有害物 化学 問題	自保 然 問題	環境関 連の市 民参加	その他 環境 問題
生活の質の向上		●●	●●○	●●	●●				
余暇時間の増大			●●○				●●	○○	
都市住民の ライフスタイル の変化	○○							○○	
高齢化の進行	● ○							○○	
都市化の進展	●●	●●	●●	●●	●●	●●	●●		
地価の高騰	●●	●●						●●	
産業のソフト化	●○○	●●	▲ ○	●●	●●○	● ○	● ○	○	
高度情報化の 進行		●●				○		○○	
技術革新の進展		● ○	●○○	● ○	●○○	●○○			
エネルギー制約 の推移		● ○			●●				
国際化の進展	○○		● △	●	● ○	●●○	○○	○○	
東京湾開発の 進展		●●	●●○	●●			● ○		●● 災害リ スク等
その他の 潮流	○○ ●	○ ●		●	●● ●	○ ●	○○ ●●○	○○	
総合的展望	○	●●	● ○	●●	●●○	●●○	○○		

(記号の説明)

○●○/○△: 環境改善の方向への影響が大/中/小と判断された楽観的シナリオ
●●●/●▲: 環境悪化の方向への影響が大/中/小と判断された悲観的シナリオ

流は環境問題を悪化させる方向に作用し、②国民意識の向上や定住志向の高まり等は問題を改善させる方向に、③産業ソフト化、技術革新、国際化の影響は両方向の可能性があり、などが読み取れる。

(5) 詳細な分析と総合的考察

デルファイ調査で絞り込んだ95のシナリオのうち、特に重要なシナリオについてコンピュータ・シミュレーションを行い、さらに詳細な検証を行った。対象としたシナリオ及び予測に用いたモデルの一覧を表2に、また図4には、東京湾開発が進んだ場合の東京圏の二酸化窒素濃度のシミュレーション結果を示している。これらの計算結果は、いずれもシナリオの妥当性を示すものであった。

以上の検討結果を総合して21世紀初頭の環境問題を展望した。その結果をとりまとめて、表3に示す。ここには、各分野ごとに予測結果の概要を整理するとともに、十分解明されていない点や本質的に不確定な要因のうち、予測結果に大きく影響すると予想されるものを併せて列挙している。

この一連の予測作業の結論は、次のようにまとめることができる。すなわち、21世紀初頭に向けて現在のまま進めば、交通公害問題と廃棄物問題は総じて悪化の方向、有害化学物質問題と自然保護問題はやや悪化の方向、水質汚濁問題は方向が読みにくく、都市アメニティ問題はやや改

表2 長期予測シミュレーションの一覧

分野	予測シナリオ	予測に用いたモデル	担当者
都市アメニティ問題	都市化に伴うアメニティ水準の低下	快適環境指標を用いた土地利用変化の統計的推計モデル	内藤・西岡 阪本・森田
交通公害問題	都市化に伴う二酸化窒素濃度の増加	市区データを用いた統計的マクロ推計モデル	中森・西岡 甲斐沼
	エネルギー制約の推移が交通公害に及ぼす影響	専門家の判断に基づくファジィ予測モデル	甲斐沼
水質汚濁問題	都市化に伴う水質汚濁の進行	都市河川汚濁推移モデル	中杉
	農地管理の悪化に伴う水質汚濁の進行	栄養塩循環モデル	森
廃棄物問題	技術革新の進展に伴うごみ処理の効率化	廃棄物処理フローモデル	金谷
有害化学物質問題	都市化及び生活水準の向上に伴う生活系有害化学物質負荷の増加	有害化学物質のフェイト・モデル	天野
自然保護問題	都市化に伴う自然破壊の進行	快適環境指標を用いた土地利用変化の統計的推計モデル	内藤・西岡 阪本・森田
環境保全への市民参加	余暇時間の増加に伴う市民参加の活性化	専門家の判断に基づくファジィ予測モデル	甲斐沼
東京湾開発と保全問題	東京湾開発に伴う二酸化窒素濃度の増加	東京圏の湾岸開発の波及効果推計のための多地域モデル	森田・中森

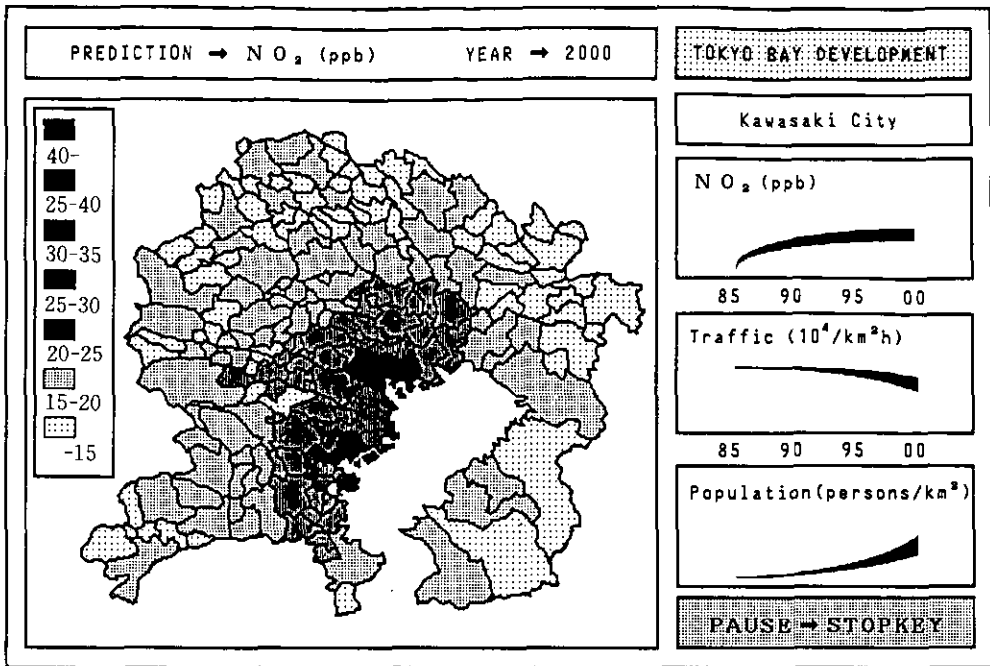


図4 東京湾開発に伴う大気汚染の予測結果

善、環境保全への市民参加は活性化の方向に推移する可能性が高い。

(6) 政策立案の体系的支援をめざして

以上の予測結果はあくまでも現時点のもので、今後、状況変化が生じたり具体的な政策立案をする時点で予測を修正していかなければならない。しかし、本研究の成果を使えば、その作業は非常に効率的に行うことができる。

まず、得られた95のシナリオは全て知識ベース・システムの中に関連データとともに収録されており、検索や表示のほか、図5に示すようなシナリオどうしの連結、さらには計算機による推論も可能となっている。このシステムを使えば、予測に必要なシナリオのほとんどを参照することができる。また、具体的な政策立案の際にはさらに詳細な予測シミュレーションが必要と考えられるが、本研究で開発した長期予測支援システムを用いれば、この種のモデルづくりやシミュレーションは容易である。こうして本成果を政策立案の場で活用していくことをめざしている。

表3 各分野の長期予測結果のまとめ（政策の大幅な変更が無く、現状のまま推移するケースを仮定）

分野名	21世紀初頭に向けた展望	展望を左右する不確定要因
都市 アメニティ 問題	<p>(1)総合的にみて都市アメニティは現状よりかなり向上する。 (2)国際化の進展は都市アメニティに対する国民の欲求水準を高め、都市アメニティの向上に貢献する。 (3)大都市や中核都市では再開発等の集中的な投資が促進されて都心部を中心にアメニティが向上する。 (4)また、地方都市でも住民の自主的な環境づくりや行政による魅力ある街づくり施策の推進によって、改善の方向に進む。 (5)一方で、一般住宅地や都市周辺部では地価の高騰やスプロール化によってアメニティが低下し、地域間の格差が広がる。</p>	<p>(a)地方都市で、アメニティ向上のためどの程度財源が確保できるかについて、見通しが不確定。 (b)高齢化に伴う福祉や医療への支出増がアメニティ関連財源をどの程度圧迫するか、予測が困難。 (c)都市住民の価値観の多様化が都市のアメニティ形成にどう影響するか不確定。 (d)開発途上国からの労働者の流入がアメニティ低下をもたらすが、この流入抑止策が予測困難。</p>
交通公害 問題	<p>(1)大都市での慢性的な交通公害の状況は、今後更に悪化する。 (2)この悪化の主な原因は、大都市への人口・産業の集中と交通の質の変化である。 (3)サービス化や高度情報化などの産業構造の変化は、都市への産業集中傾向を加速させる。 (4)高度情報化は物流の合理化に寄与する以上に集中化を加速。 (5)物流サービスへの欲求の高度化により、宅配やJ1Nのような小口高頻度交通を増加させてしまう。 (6)交通公害解決のための革新的な技術の普及には時間がかかる</p>	<p>(a)発生源対策における技術革新や、それを誘導するエネルギー価格・省エネルギー等のエネルギー制約の推移が不確定。 (b)エネルギー制約はまた、輸送コストを通じて流通システム合理化の進展を左右する。 (c)道路網の計画的整備と中核業務都市構想による都市機能分散がどの程度進展するか予測困難。 (d)交通公害に対する住民意識の向上が、どの程度政治的力を持てるか、見通しが難しい。</p>
水質汚濁 問題	<p>(1)顕著な改善は見込めないものの、全般的に改善傾向は示す。 (2)しかし、都市部への機能の集中や埋立てによって、内海部等の一部水域では水質が悪化する。また、身近な水辺の消滅は今後も食い止めることは難しい。 (3)一方、都市部以外でもリゾート施設の集中立地によって、局所的に水質汚濁や水辺破壊の問題が生じる。また、水源水域の飲料水の汚染も問題化する可能性が高い。 (4)排水処理の新技術が開発されるが、普及には時間がかかる。 (5)海洋汚染問題が国際的な関心のもとに注目を集める。</p>	<p>(a)海外からのエネルギーや原材料の供給制約により汚濁負荷が変化するか、この予測が困難。 (b)異常気象の見通しが難しく、渇水の発生等による水質汚濁や水資源開発への影響は不確定。 (c)水質改善は下水道事業等の水質保全対策事業に大きく依存するが、財政問題や住民の反対等によりこの事業の進展は簡単に見通せない。 (d)沿岸部や湖岸部のいわゆるウォーターフロント開発の進捗の見通しも、不確定な要因が多い。</p>
廃棄物 問題	<p>(1)全般的に、現状より問題が複雑化し、解決の困難さが増す。 (2)特に産業廃棄物については、技術革新の進展や産業構造のソフト化に伴いその質が複雑化して、処理処分が困難になる。 (3)一般廃棄物についても、製品・商品の多様化や産業のソフト化、生活レベルの向上などによって、事業系ごみの量が增大するとともに、事業系及び家庭系ごみの質の悪化が進む。 (4)都市化や再開発の進展、地価の高騰等により最終処分地の確保が困難となり、これを是正する技術開発は追いつかない。</p>	<p>(a)最も大きな不確定要因は、廃棄物問題に対して人々の意識がどの程度変化するかである。市民の危機意識が高まれば、廃棄物発生量を抑えて研究開発への投資や制度の整備が進展する。 (b)技術革新の見通しも不確定である。廃棄物処理のための技術革新はある程度期待できるが、生産系の技術革新に比べれば悲観的要因も多い。</p>
有害 化学物質 問題	<p>(1)全般的に、多様な有害化学物質に曝露される可能性は高まる。 (2)技術革新の進展は、多様な化学物質を生み出すことになる。 (3)産業のソフト化は、化学物質の管理を多様化・複雑化させる。 (4)都市化の進展は、工場隣接地や工場跡地での開発を促し、これらの地域で化学物質曝露の危険性が高まる。 (5)貿易の拡大により海外からの有害化学物質のリスクも増える。 (6)化学物質の管理に高度な監視能力及び多大な経費が必要となるため、一部の地方公共団体では対応が難しくなる。</p>	<p>(a)有害化学物質のリスクは、管理の方法によって大きく左右されるが、このための国内的・国際的な制度とその運用の見通しが不確定である。 (b)有害化学物質の環境汚染やその影響を評価・監視するための手法開発の見通しが不確定であり、どの程度リスクが正確に把握できるか予測困難。 (c)その他、国民の意識や国際世論の高まり、技術革新による代替化学物質の開発も不確定要因。</p>
自然保護 問題	<p>(1)わが国の自然保護問題は、少なくとも現状より悪化する。 (2)都市周辺部では、都市化の進展により丘陵地や田畑が宅地化され、都市遠隔地や過疎地では、リゾート開発、過疎対策のための土木事業、森林経営の弱体化等により自然破壊が進む。 (3)安価な外材や農産物の輸入や貿易摩擦の外圧といった国際的要因によっても、自然保護の展開に制約が課せられる。 (4)一方で、自然保護に対する国民の関心が高まり、関係する施策の展開を促す。また、産業のソフト化に伴う自然へのプレッシャーの減少や自然保護分野での技術革新も期待できる。</p>	<p>(a)最も大きな不確定要因は、自然保護に関する国民の関心やどの程度高まり、どこまで組織化されて具体的な政策に結びつくかである。 (b)また、国際化の進展、産業のソフト化、技術革新の各潮流が自然保護に及ぼす影響には、プラス・マイナスの両面があり、一つに絞れない。 (c)国有林の経営体制の行方は自然保護行政に影響を与えるが、現状では予測が難しい。</p>
東京湾地域 の開発と 保全問題	<p>(1)東京湾地域の開発は間違いなく進展するが、その規模については見通しが大きく分かれる。また、開発に伴う交通網などの施設整備についても、大きな巾の中で見通しが揺れ動く。 (2)しかし、この開発が東京湾地域の環境に及ぼす影響については、水質汚濁、交通公害、廃棄物、災害問題にわたってかなりの悪影響が予測される。 (3)ただし、自然生態の再生や環境対策の充実によって、一部地域の自然が再生され、水質が改善する可能性も残されている。</p>	<p>(a)用地需要が既存埋立地や未利用地の転用でまかなえるか、かなりの新規埋立が必要かについて、見通しが大きく異なる。 (b)交通施設整備の進捗予想についても、不確定な要因が多い。 (c)中核業務都市構想や副都心構想による都市機能分散策がどの程度効果を発揮するかによって、予測が大幅に異なるが、この見通しは不確定。</p>
環境保全 への 市民参加	<p>(1)環境保全への市民参加は、現在の水準よりも向上する。 (2)高齢化の進行、余暇時間の増大、女性の社会進出等によって環境問題に市民が自主的に参加する機会が増える。 (3)教育の高度化や国際化の進展は、参加意識を高揚させる。 (4)高度情報化の進展や環境関連産業の台頭は、情報や資金の提供等によって市民参加を支援する可能性が高い。 (5)その一方で、地価の高騰や住宅の高層化などによって、コミュニティ意識が低下し、参加意欲が減る可能性もある。</p>	<p>(a)高齢化の進行や余暇時間の増大により、確かに時間的余裕は増えるが、この時間を果たして環境問題の解決に割くかどうかは、甚だ不確定。 (b)市民参加の活性化は行政側の対応によっても大きく影響を受けるが、行政に市民意識の高揚を受け止める体制づくりができるかも、不確定。 (c)地価の高騰による都市のコミュニティの今後の動向について、予測が非常に難しい。</p>

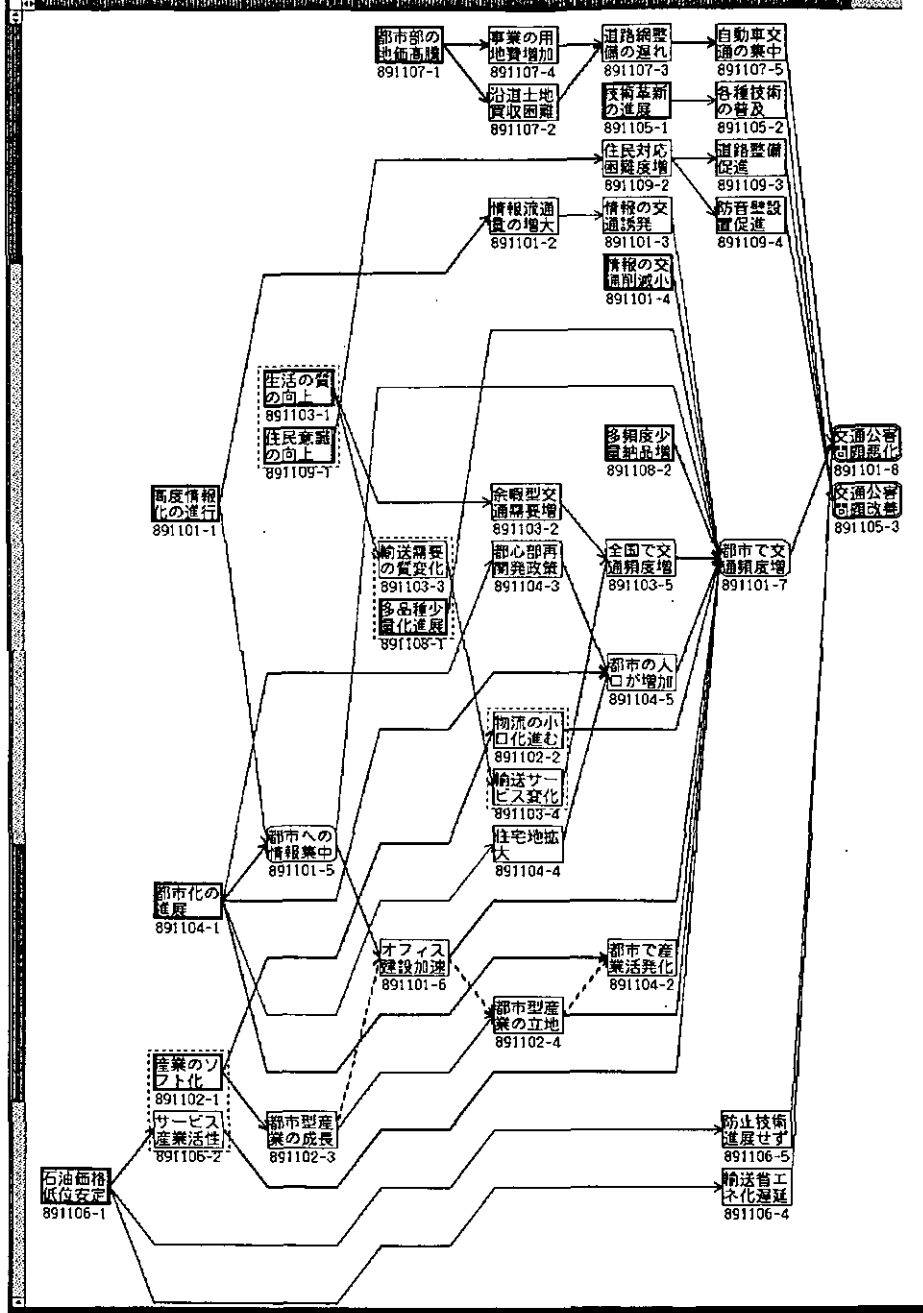


図5 知識ベースで処理した交通公害の予測シナリオ

2.2 水界生態系に及ぼす有害汚染物質の影響評価に関する研究（最終年度）

昭和60年度～昭和63年度（1985～1988年度）

〔研究組織〕 生物環境部

◎菅原 淳

水生生物生態研究室 ○安野正之・○畠山成久・春日清一・宮下 衛・高村典子・
花里孝幸・佐竹 潔

生物環境管理研究室 岩熊敏夫・高村健二・野原精一・上野隆平・多田 満

計測技術部

水質計測研究室 大槻 晃・白石寛明

水質土壌環境部

海洋環境研究室 渡辺 信

土壌環境研究室 袴田共之

環境保健部

人類生態研究室 鈴木和夫・平野靖史郎・青木康展

技 術 部

生物施設管理室 菅谷芳雄・笠井文絵

客員研究員 14名, 共同研究員 2名

〔研究概要〕

個々の水生生物種に及ぼす有害汚染物質の影響についても十分知られているわけではないが、単一種への影響をまとめても生態系影響を評価しえない。本特別研究においては、その評価法の開発と生態系影響の過程について解明することを目的としている。全体の研究計画概念図を図1に示す。

有害汚染物質のうち重金属については全国の延べ94地点の調査結果がまとめられた。銅鉾山からの廃水の流入がほとんどであるが、他の金属も当然混入しておりその生態系への影響を識別しうるかどうか課題として残されているとはいえ、生体内での重金属間のお互いの干渉効果も明らかにされ、汚染河川の底生動物、底生藻類への影響予測も、また生物の種組成から逆に汚染の程度をある程度予測することも可能となった。重金属汚染耐性種の耐性機構についてもかなり明らかになった。重金属汚染に関してはサブテーマ(1)～(4)に渡って、予定どおり研究が進み最終目標に近いところまで達したといえよう。

サブテーマ(1)は化学物質による生態系への影響を評価する方法の確立をめざしており、本特別研究において最も重要な課題であった。この研究によって湖、池等に設置した各種の隔離水界の有用性が明らかにされてきた。その大きさ、形状等について検討され、十分実用に供することが示されてきた。止水の場合と流水の場合に共通することは生物の相互作用が結果に大きく影響することである。このことがまた屋外型の自然に近似する実験生態系の必要性を強調する基にもなるのである。これまで色々な実験生態系が開発されたが、その多様さは選択の幅を広くしてお

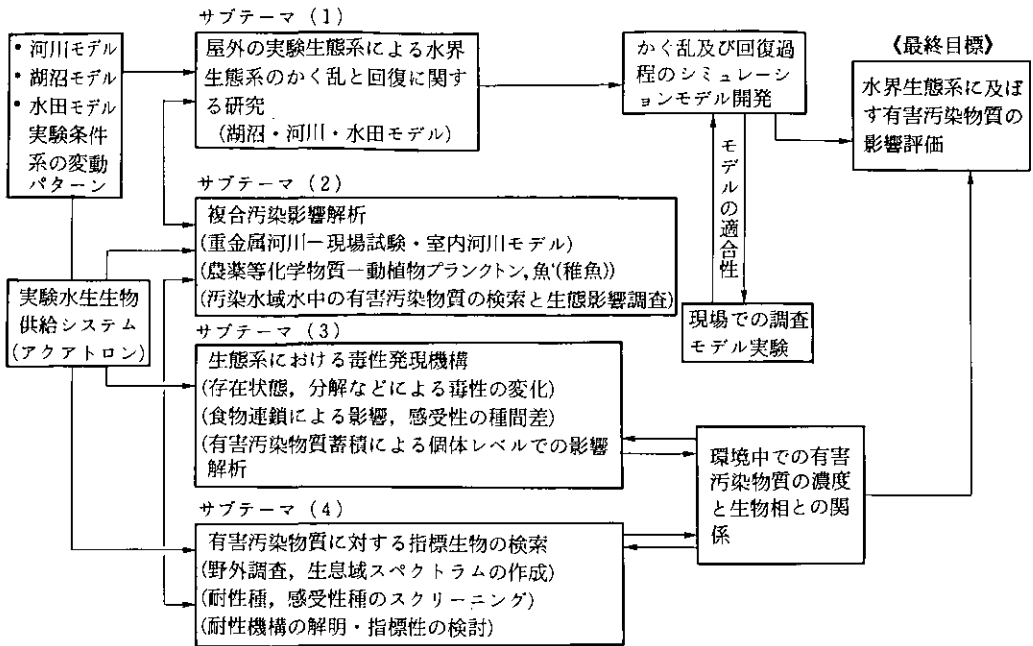


図1 研究計画概念図

り、現時点では画一化するよりも良いことと考えられる。本年度の報告は陸上式のメソコスムスについてであるが、この方法も実用的であることは十分証明される。将来これらの方法は各種の化学物質の生態系影響のリスクを評価するのに活用されるべきである。

サブテーマ(2)においては複合汚染の生物影響について研究された。魚及びミジンコに対して異なる農薬を逐次、あるいは同時に暴露する実験を行ってきた。その結果は別に報告されるが、これまでのところ顕著な相乗的影響は認められていない。使用した薬剤が限られていたこともあって、今後の大きな問題として残された。野外において農薬は混合して用いられことが多いこと、かりに単一の薬剤として用いても、散布地域によって別々の薬剤を使用することもあり、水系には混在することが多いことが考えられ、この研究においても確認された。

サブテーマ(3)と(4)についてはすでに述べたように、主たる研究は重金属に関して行われた。

〔研究成果〕

(1) 重金属汚染影響

1) 重金属汚染河川に特徴的に形成される生物相

底生動物の重金属耐性種を、最も生物影響の強い銅(Cu)の濃度範囲をもとに表1に整理した。表では、国内延べ94地点の重金属汚染河川に優占順位1~6で出現した回数(A),及びこの順位とは逆の得点(6~1点)の合計を出現回数で除した値(B)で耐性種の順位を示している。ユスリカの特定期種(10種類)はあらゆる銅の濃度範囲で常に最も優占した。またコカゲロウの1種シロハラコカゲロウ(*Baetis thermicus*)もユスリカに次ぐ耐性種としてほとんど常に出現した。ガガンボ(*Antocha* spp.), コガタシマトビケラの2種(*Cheumatopsyche brevilineata*, *Hydropsyche orientalis*)なども耐性種の上位にランクされたが強汚染区(Cu>100ppb)ではイフトビケラ

表1 銅濃度範囲ごとの優占種(～6位)出現頻度と地点当たりの得点
(延べ94地点)

種 類	銅 (Cu) 濃度範囲 (ppb)							
	<10(18*)		10<～<30(33*)		30<～<100(29*)		100<(14*)	
	A	B	A	B	A	B	A	B
<i>Chironomidae</i>	19	4.33	26	4.06	23	4.45	13	5.36
<i>Baetis thermicus</i>	10	2.39	24	3.39	21	3.62	7	2.79
<i>Antocha</i> spp.	11	1.72	18	2.03	8	1.07	3	0.64
<i>Cheumatopsyche brevilineata</i>	7	1.72	15	2.00	7	0.90	0	
<i>Hydropsyche orientalis</i>	7	1.17	13	1.21	8	0.69	1	0.29
<i>Nemoura</i> spp.	4	0.89	9	0.94	5	0.52	1	0.21
<i>Epeorus latifolium</i>	9	1.17	5	0.21	4	0.31	0	
<i>Atherix</i> spp.	2	0.33	6	0.36	7	1.00	2	0.35
<i>Baetis sahoensis</i>	2	0.39	4	0.67	4	0.48	0	
<i>Drunella bifurcata</i>	1	0.33	7	0.85	2	0.28	0	
<i>Dugesia japonica</i>	1	0.17	5	0.46	4	0.38	0	
<i>Serratella rufa</i>	4	0.56	3	0.46	2	0.31	0	
<i>Elmidae</i> spp.	0		5	0.33	3	0.35	1	0.43
<i>Polycentropus</i> spp.	1	0.22	3	0.24	1	0.14	3	1.00
<i>Bezzia</i> spp.	0		1	0.06	4	0.45	2	0.71
<i>Cinygma</i> spp.	1	0.11	4	0.45	2	0.14	0	
<i>Rhyacophyla kawamurae</i>	1	0.06	5	0.30	1	0.10	0	
<i>Protohermes grandis</i>	0		1	0.09	4	0.35	1	0.29

A : 全地点1～6位の優占種の出現地点数, B : 1地点当たりの平均得点 (総得点/A), *: 地点数 (計94)

表2 銅で汚染された河川に特徴的に優占する藻類

河 川	銅 濃 度	pH	種 類
小坂川	under 80ppb	above 6.0	<i>Achnanthes minutissima</i> , <i>Hydrurus foetidus</i> , <i>Chamaesiphon minutus</i>
梯 川	under 5300ppb	above 6.2	<i>Phormidium luridum</i> , <i>Achnanthes minutissima</i>
神流川	under 180ppb	above 7.0	<i>Achnanthes minutissima</i>
間沢川	under 190ppb	above 6.4	<i>Achnanthes minutissima</i> , <i>Phormidium luridum</i> , <i>Chamaesiphon minutus</i> , <i>Hydrurus foetidus</i>
背坂川	under 620ppb	above 6.1	<i>Achnanthes minutissima</i> , <i>Ochromonas</i> sp.
吉野川	under 640ppb	above 6.0	<i>Achnanthes minutissima</i> , <i>Ochromonas</i> sp., <i>Chamaesiphon minutus</i> , <i>Hydrurus foetidus</i>
吉野川	270ppb	4.7	No algae
吉野川*	6200ppb	2.6	<i>Euglena mutabilis</i> , <i>Pinnularia braunii</i> , <i>Cyanidium caldadium</i>
梯川	360ppb	under 3.5	<i>Phormidium</i> sp.
背坂川	1070ppb	6.0	No algae

* 貯留池

(*Polycentropus* spp.) などが2種のトビケラよりも上位にランクされた。重金属汚染区ではほとんど表1に見られるような生物種からなる特異的な生物相が成り立っている。

付着藻類においても重金属耐性種が整理され、代表的な耐性種として表2のような特定種が明らかにされている。

2) 重金属耐性機構の研究

重金属汚染河川に生息するコカゲロウは金属結合タンパクを誘導することによって耐性を示すことはすでに報告した。カドミウムと銅は別種の結合タンパクを誘導すると考えていたが、実際は同じものであった。しかし2種の重金属はそれぞれ別々の分子に結合することが分かった。このことはほ乳類と異なっている。また銅はカドミウムの5倍も結合できること、それぞれの結合タンパクは消化管上皮細胞内で位置的に分かれて局在することが明らかとなった(図2)。

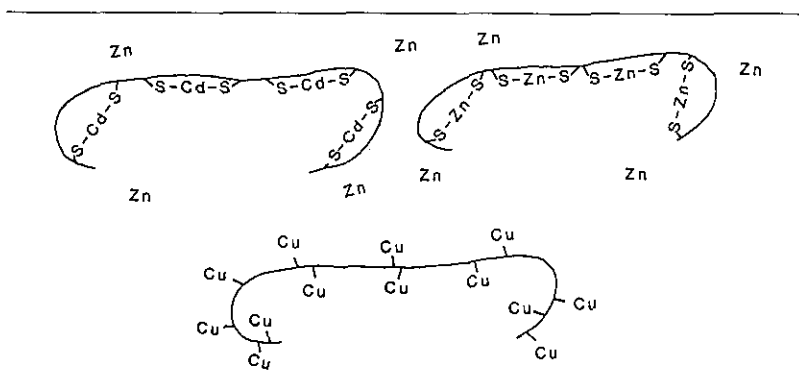
Achnanthes minutissima の銅に対する耐性機構についてもすでに報告したが、その後検討した結果、細胞内に少量と考えられた銅の濃度は培養液に添加した濃度に比べれば約1,000倍に濃縮していることが分かった。それらのほとんど(90%)はタンパクと結合していないこと、タンパクに結合している銅もメタロチオネンを誘導していないことが明らかになった。

3) 重金属汚染河川から単離された藻類の光合成, 生長特性

重金属に対する藻類の耐性の目安として重金属に暴露したときの光合成速度の阻害(50%阻害濃度=IC₅₀)を用いた。銅に対しては採集地点の銅濃度と藻類のIC₅₀は相関が認められた。しかし緑藻綱は非汚染地区から採集した藻でも高い耐性を示し、反対に汚染地区から採取分離したラン藻は低い耐性を示した。このことは光合成速度で測定する限り、実際に野外の重金属汚染河川でラン藻類が優占することを説明できない。そのため次の作業仮説をたて実験を行った。すなわちラン藻類は①低い光合成活性でも生長できる、②順化によって重金属汚染条件下で光合成活性を高めることができる。①については緑藻とラン藻で際だって異なる結果が得られ、仮説の妥当性が部分的に認められた。②についてもラン藻類においてより高い順化の傾向が認められた(表

消化管

漿膜側



粘膜側

図2 コカゲロウノ重金属結合タンパクへのカドミウム, 銅, 亜鉛の結合状態

表3 銅を添加しない培地(a), 又は10 μ Mの銅を添加した培地(b)で培養した各藻類種の光合成速度が対照の半分に阻害される銅の濃度(μ g/l)
 カッコ内の数値は単離から6か月以内, カッコ外の数値は単離から1.5~2年後に測定したもの。

	a	b
ラン藻綱		
銅の汚染地区から単離した藻		
<i>Chamaesiphon subglobosus</i> Lemm.	(47.7)	133.4 101.7 76.2
<i>Phormidium foveolarum</i> Gom.	(29.2)	228.1 214.8 229.4
<i>P. foveolarum</i> Gom.	(52.1)	27.8
	19.7	25.2
<i>P. Jenkelianum</i> G. Schmid	(19.1)	67.4 74.7
<i>P. molle</i> Ecorn.	(21.6)	106.1 90.0 65.5
<i>P. ramosum</i> Boye-Pet.	(99.8)	228.7
<i>P. ramosum</i> Boye-Pet.	(286)	117.5
	46.3	160.8
	55.3	162.0 (273.2)
<i>P. uncinatum</i> Gom.	(262)	127.1 168.4
<i>Phormidium</i> sp. (olivascens?)	(170)	223.5
銅の非汚染地区から単離した藻		
<i>Chamaesiphon polymorphus</i> Geitler	(0.83)	12.4 17.9
<i>Plectonema radiosum</i> (Schiederm.) Gomont	(49.6)	265.3 287.2
ケイ藻綱		
銅の汚染地区から単離した藻		
<i>N. palea</i> (Kutz.) W. Smith	(212)	310 403
緑藻綱		
銅の汚染地区から単離した藻		
<i>Chlorella vulgaris</i>	(411)	573 673
<i>Chlorolobion braunii</i> (Nag.) Kom.	(966)	1236 1270
銅の非汚染地区から単離した藻		
<i>Microthamnion kutzingianum</i> Nag.	(475)	471 480

3)。

緑藻類の一部、特に *Ulothrix vorabilis* も重金属汚染河川に見られ、その耐性機構解明も課題であった。この種も含め緑藻類も特に重金属を蓄積する傾向を示さないことが実験的に確認された。

(2) 屋外実験生態系によるかく乱と回復に関する研究

1) 池沼生態系に対する殺虫剤の影響試験法の開発

この特別研究において、生態系影響試験法の開発は、最も重要な研究課題の一つであった。これまでの研究で、湖、池沼に設置した各種の隔離水界の有用性が明らかにされた。ここでは陸上型のメソコスムとしてのコンクリート水槽による実験例を報告する。

湖沼生態系に対する殺虫剤の影響を調べるため、湖の底泥を入れた屋外コンクリート水槽を用い、カーバメイト系殺虫剤の動物プランクトン群集に及ぼす影響を調べてきた。

本年度は温度の低い時期のカルバリルの影響を調べるため、秋期からの実験を行った(図3)。カルバリルを投与しない水槽では、実験開始後まもなくワムシ類 (*Brachionus*, *Keratella* 等) や小型枝角類 (*Bosmina* 等) が優占したが、その後大型枝角類の *Daphnia* (*D. ambigua*, *D. galeata* 等) がそれらの増殖を抑えて優占した。*Daphnia* は冬の間生き残り、初春に個体数を増し、それ以外の種の出現を抑え、著しい *Daphnia* 優占の群集を形成した。初秋にカルバリルを投与した水槽では、薬剤により死滅した動物プランクトンがすぐに回復し、春には無処理の水槽と同様に

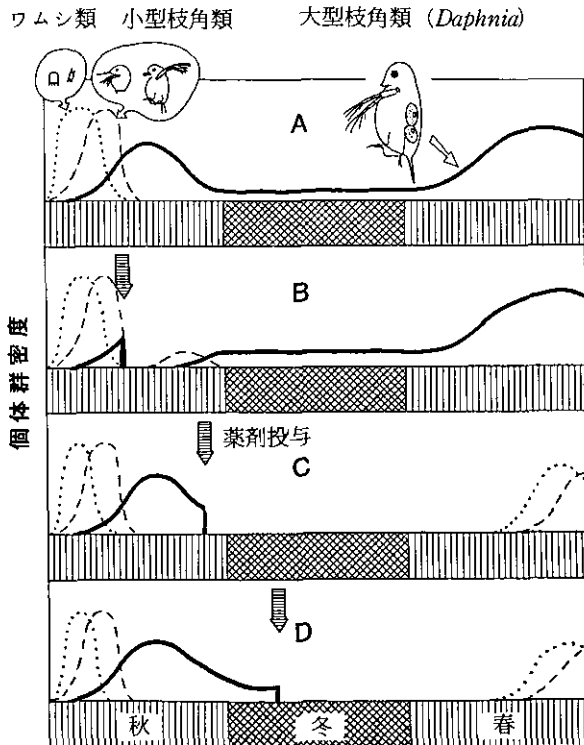


図3 冬期実験(大型水槽と小型水槽)での動物プランクトン群集の変動の模式図
矢印はカルバリル 1 ppm又は0.5ppmの投与時を示す。薬剤投与時の水温は、Bで16°C、
Cで10°C、Dで4°Cであった。

Daphnia 優占の群集ができた。カルバリルを晩秋及び冬に投与したときには、動物プランクトンの回復は見られず、春にはワムシ類や小型枝角類が増え、構成種数の多い動物プランクトン群集が形成された。投与されたカルバリルは1か月以内に消失しており、冬期に回復が見られなかったのは、カルバリルの残留のためではなく、低水温のためであったと考えられる。春の動物プランクトン群集の種組成の変化は越冬個体に大きく影響されていた。

これらの結果は、汚染の濃度、時期、頻度などによって影響が多岐にわたることを示した。このことは生物間相互作用系が壊された結果に依っており、今後も汚染の状況や環境条件、性質の異なる薬剤等の生態系影響の解析が必要であることを示唆している。

2) 河川生態系に対する殺虫剤等の影響試験法としての屋外型河川モデル

屋外循環式水路6基を用いて(図4)、界面活性剤LASの水生昆虫群集に対する影響を調べた。5～7月にかけて0.5ppmで連続暴露を行ったが、ユスリカ8種とフタバカゲロウのどれも対照水路と羽化量に有意の差は認められなかった。

一方掛け流し式の160mの実験水路においてカーバメイト系殺虫剤(カルボスルファン)を0.001, 0.01, 0.05ppm, の濃度でそれぞれ10分間、また昆虫生長阻害剤(S31183)を0.01, 0.1, 0.5ppm濃度でそれぞれ10分間流し底生生物の密度と羽化への影響を調べた。いずれの薬剤の場合も、投入後の底生生物の密度に顕著な変化はなく、サホコカゲロウ、コガタシマトビケラの羽化への影響も見られなかった。しかし、昆虫生長阻害剤0.5ppm処理区においてユスリカ類の羽化に対する影響が認められた。すなわち、*Thienemanniella majuscula* *Macropelopia nebulosa*で薬剤投入から2日後に羽化する個体が無くなりその影響は少なくとも4～5日続いた。*Macropelopia nebulosa*の場合は8日後になって羽化の阻害が見られその影響は約1週間続いた。

1989年度の試験においては比較的低い濃度の長期暴露、あるいは実際の適用濃度を用いたことから顕著な影響を見いださなかった。ここで用いた2種の実験水路は性格が全く異なり、出現生物の種類も同じでない。しかし両者とも環境汚染物質の濃度を任意に設定できること、生物量を正確に測定できることなどから有用であると結論できる。



図4 屋外循環式水路
6基、流路長30m、幅0.25m、流速0.15m/s界面活性剤影響実験に用いている。

表4 殺虫剤(MEP)散布後の流水水生昆虫の種数と流下数(流下ネット当たり)

水生昆虫	6月3日		4日		5日		6日		7日	
	18:30~4:30	4:30~18:30	18:30~4:30	4:30~18:30	18:30~4:30	4:30~18:30	18:30~4:30	4:30~18:30	18:30~4:30	4:30~18:30
カゲロウ類	a)	10	3	10	14	12	7	6	2	
	b)	1197	52	1429	11798	2981	208	156	12	
トンボ類	a)				2	1				
	b)				3	1				
カワゲラ類	a)	2			6	3		1		
	b)	2			46	7		1		
トビケラ類	a)	6	2	4	7	8	3	4	1	
	b)	29	3	9	211	60	10	13	2	
鞘翅目類	a)		1	1	1	1				
	b)		1	3	2	1				
双翅目類	a)	3	1	2	8	7	3	3	1	
	b)	15	6	5	345	101	17	12	10	
合計 種数	a)	21	7	17	38	32	13	14	4	
	b)	1243	62	1446	12405	3151	235	182	14	

▼:空散開始(4:30~8:30)

(3) 野外における殺虫剤等の複合汚染とその生物相への影響

1) 松食い虫防除の殺虫剤空中散布が河川の底生動物相へ及ぼす影響調査

森林に殺虫剤(フェニトロチオン)が空中散布された場合にある濃度では大量の底生動物が自然の流下を大幅に上回って流下することなどをすでに前年度の報告書で明らかにした。本年度は更に流下した底生動物の種組成(表4)、減少した生物種の回復過程などについても検討を加えた。カゲロウの大部分の種は散布前でも自然の流下が認められ、散布後に更に大量に流下した。しかし、カワゲラ類は散布前には流下がほとんどないのに散布後のみ明らかな流下が起こった。トビケラ類では散布の前後に流下量の増減が認められなかったが、ツメナガナガレトビケラのみは散布後に大量に流下した。他の種の多くはその後に回復が認められるが、この種は1年後の生物相調査でも流下ネット設置地点では生息が認められなかった。調査河川の上流には10年にわたり同様な殺虫剤散布(年2回)が繰り返されてきた。しかし、さらに上流に非散布域があり、カゲロウ類など良く流下する種の回復源となっているものと考えられる。カワゲラなど通常流下の少ない種の回復は遅れるらしく調査地点ではカワゲラ類はほとんど採取されなかった(3か月後、1年後)。周辺には比較的小さな河川で全域散布区に入る河川などがあり、長期の空中散布が底生生物相に及ぼす影響を種々の面から検討した。

2) 水田農薬の河川底生生物群集への影響

つくば市及びその周辺7河川の中流~下流域の13地点における農薬残留量と底生生物群集の変動を調査した。優占種はユスリカ類で全部で39種が確認され、農耕地の地点からは農薬散布期に幼虫飼育により十数種の成虫が回収された。これらのユスリカは、時期により種構成に変化が見られ、殺虫剤濃度の高い時の優占種は、汚染に耐性のあると考えられる種で占められていた。このうち *Polypedilum* 属は、従来殺虫剤に対する耐性は比較的低いとされていたが、種によってはセズユスリカやツヤユスリカの1種(*Cricotopus bicinctus*)同様に耐性の高いことが、今回明らかにされた。小野川では殺虫剤濃度が高く、5月末にフェニトロチオンで19ppb、BPMCで8ppbに達した。ユスリカ全体の密度は低下するが、汚染に強いイトミミズ類までもが極端に密

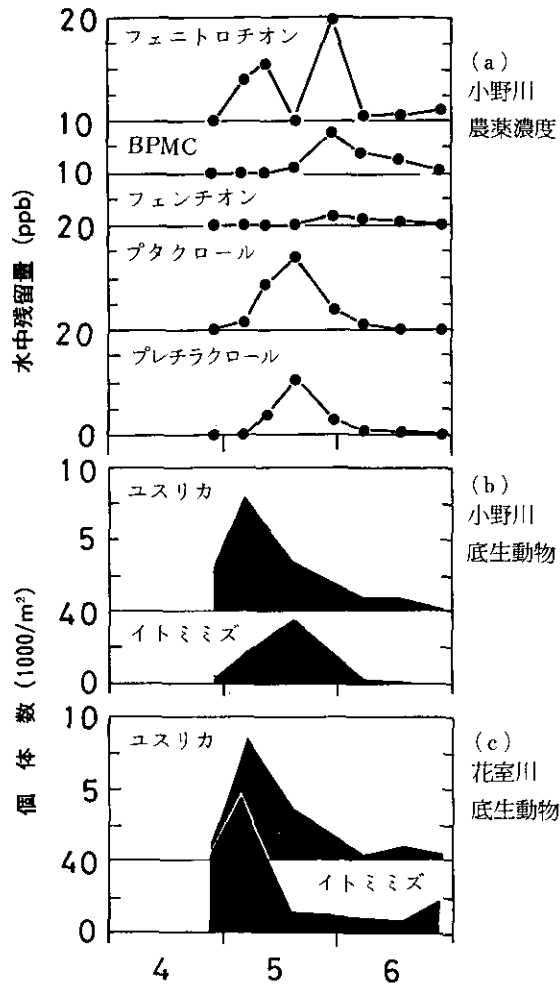


図5 (a) 4～6月の小野川河川水中の殺虫剤及び除草剤濃度, (b)小野川同地点での底生動物個体数の変動, (c)花室川における底生動物個体数の変動

度が低下した。これは他の農耕地河川では見られない現象である(図5)。

除草剤の散布は藻類の生産量、現存量を減少させることが期待されるが、水田用に空中散布された有機リン系農薬の殺虫剤フェンチオンと殺菌剤エディフェンフォスも河川水中の藻類及び底質中の藻類の現存量をも減少させることが明らかとなった。農薬の流入により光合成活性が低下し、水中の溶存酸素も減少した。この影響は少なくとも数日間持続した。本報告中にもあるように、殺虫剤が底生動物に影響することは当然期待されることであるが、一次生産者へも影響していることはすでに使用されている農薬全般について検討することが必要であることを示唆している。

3) 水田用農薬空中散布の河川水中への流入：生物検定、及び化学分析

かなり広範囲に散布される水田対象の殺虫剤、殺菌剤の空中散布が河川に流入することは昨年も報告した。本年度研究所周辺の3つの河川で7月下旬から河川水を定期的に採水し、農薬に対

してきわめて感受性が高いヌカエビを用いて生物検定を行った。農薬（殺虫剤，殺菌剤）の空中散布時期の河川水の流量はかなり多いにもかかわらず，散布後にエビの死亡が引き起こされた。エビの死亡は散布日又は翌日に急速に増加（96h，100%）し，2～3週後にかけてしだいに認められなくなった。空中散布後のエビ死亡率の増大は，水中の農薬の分析結果でほとんど説明できるが，まれに分析された農薬のみでは説明が困難，あるいは複合影響を示唆する死亡が認められた。しかし，9～3月末までに採取された河川水を用いた生物試験ではエビの死亡はほとんど認められなかった。

2.3 地球温暖化に係わる炭素系大気微量成分のグローバル変動に関する先導的研究

昭和 62 年度～昭和 63 年度 (1987～1988 年度)

〔研究組織〕 大気環境部

◎秋元 肇

大気化学研究室 ○鷺田伸明・井上 元・坂東 博・畠山史郎・酒巻史郎・鈴木 睦・橋本 訓

エアロゾル研究室 福山 力・村野健太郎・泉 克幸・尾崎 裕・内山政弘

大気環境計画研究室 植田洋匡・若松伸司・鶴野伊津志

計測技術部

大気計測研究室 安部喜也・横内陽子

技 術 部

理工施設管理室 高木博夫・水落元之

客員研究員 12 名

〔研究概要〕

化石燃料燃焼による大気中の二酸化炭素(CO₂)の増加が地球の温暖化をもたらし、地球規模での生態系の破壊等を引き起こす可能性のあることが指摘されている。さらに二酸化炭素以外のメタン、ハロカーボンなどの微量成分の濃度が増加し続けており、それらが、地球温暖化に対して二酸化炭素と同程度に寄与することが明らかにされている。しかし、これらの微量成分の増加の原因は明確でない。そこで本研究では、特にメタン、非メタン炭化水素など地球温暖化に係わる炭素系大気微量成分の光化学反応機構の解明と、それらの大気中濃度の長期的測定を行い、各種の大気汚染物質の排出がグローバルな大気質の変動に与える影響を評価する手がかりを得ることを目的とした研究である。

なお本研究は初めの計画では、4年間の研究期間で行うものとしてスタートしたが、平成元年度から新たに始まる総合特別研究「地球温暖化に係わる大気成分の環境動態の解明に関する研究」に統合されるため、2年間で形の上では一応終止符を打つこととなった。しかしその研究の大部分は上記の総合特別研究において引き続き継続・発展されるものであり文字通り先導的役割のみが終了したのである。

研究は以下のサブテーマ(1)～(4)からなり、ほぼはじめの年次計画に添って研究が進行中である。

(1)炭素系微量成分の発生量の測定と見積り

1) テルペン類^(注1)やイソプレンの測定について、ガスクロマトグラフ質量分析計を用いて高感度高精度連続自動分析法を開発し、100種類近く及びぶ植物起源の大気中微量有機物質の測定を可能とした。特にこれまで知られていなかったテルペン、イソプレンに加えて多数の含酸素有機化合物が見つかりその起源の検討が今後の課題となった。日光、西表島でのフィールド観測に加えて農

林水産省熱帯植物温室が、熱帯植物圏のモデルとして使用され得るかどうかの検討も行っている。

2) 水田からのメタン発生量の測定について、水田をビニールハウスで囲み、発生するメタンをガスクロマトグラフィーで連続測定し、その発生量を見積った。興味深い測定結果として、本研究所の実験ほ場水田からのメタン放出量が一般の水田での放出量の1/10程度と非常に少なく、土壌や水の質がメタンの放出量に大きな影響をもつことが判明した。今後は土壌の質の選別を行ったうえで放出量の測定を行い、土壌の質と放出量の関係を明らかにする。

(2) 炭素系微量成分の光化学反応機構の研究

1) 光化学チャンバーを用いてメタンの光酸化反応機構において重要なメチルペルオキシラジカル^{註2)}の反応機構の解明を行った。

2) 光化学チャンバーを用いてテルペンの大気光酸化反応の解明を行った。

- a) α -及び β -ピネン^{註3)}とOHラジカル^{註4)}反応の生成物の研究を行った。
- b) 窒素酸化物(NO_x)の濃度を変化させ、 NO_x の反応への寄与を調べた。
- c) 反応によるエアロゾル生成の収率を測定した。

3) レーザー誘起蛍光法^{註5)}を用いて、メタンの大気光酸化反応過程において重要なヒドロペルオキシド類^{註6)}(ROOH)とOHラジカルの反応及びその光解離過程を研究した。

4) 光イオン化質量分析法^{註7)}を用いて、大気中のエチレン光酸化過程において重要なヒドロキシエチルラジカル^{註8)}と酸素分子の反応速度を決定した。

(3) 対流圏微量成分濃度の測定法の開発と長期変動の測定

バックグラウンド大気中のメタン、 C_2 - C_4 炭化水素^{註9)}を分析するための、大気の捕集方法、FIDガスクロマトグラフ法^{註10)}による分析方法を確立した。富士山頂、小笠原父島、母島で捕集した実大気分析を行っている。興味ある測定結果としては、これまで3回採取した小笠原の大気分析から、小笠原では夏期にエタン、プロパン等の飽和炭化水素が減少し、エチレン、プロピレン等の不飽和炭化水素が増加する傾向が見いだされた。不飽和炭化水素の発生源が小笠原にあるかどうか季節変動の正確な測定が現在進行中である。

(4) 対流圏光化学反応モデルの開発

ギヤー法^{註11)}による光化学反応モデルと拡散過程を組み合わせた対流圏一次元モデルを作成した。既存の反応機構・反応速度定数をもとにボックスモデルでの試行計算を行った。

[研究成果]

(1) 森林起源炭化水素の大気中での動態

1) 森林起源炭化水素

大気中に放出される炭化水素には自然起源のもの(例えばメタン、テルペンなど)と、人為起源のもの(例えば非メタン炭化水素)があり、どちらも大気中で光化学反応を起こし、消滅し、その結果いわゆる安定で長寿命な大気微量成分の濃度を変化させる。近年、地球温暖化の原因物質と

して指摘されている二酸化炭素(CO₂), メタン(CH₄), 一酸化炭素(CO), オゾン(O₃), その他種々の大気中微量成分の増加の原因は, 人為的・自然的発生源の変動による直接的寄与によるだけでなく, 光化学反応を中心とする大気化学反応による間接的な寄与が複雑に影響し合った結果である。そのことを踏まえて, 本年度は地球上で最も代表的な自然起源炭化水素であるテルペン, イソプレン類の大気中での動態に焦点を絞って研究を行った。森林起源の炭化水素としては主に広葉樹から放出されるイソプレン(C₅H₈)と, 主に針葉樹から放出されるモノテルペン類(C₁₀H₁₆)が重要とされている。モノテルペン類は図1に示したような同じ分子式を持つ種々の炭化水素の総称で, その中ではα-ピネンの放出量が最も多いことが知られている。現在の推計では, 地球上の森林から放出されるテルペン類の総量は炭素換算で約4.8×10¹⁴gC/y^{注12)}であり, これはメタンの放出量(4.1×10¹⁴gC/y)を上回る。さらに, 3.5×10¹⁴gC/yと推定されているイソプレン含めると(表1)これらの炭化水素が自然起源による大気中の炭素循環のカギを握っていることは明白である。またこのような大きな放出量を持つテルペン類の濃度がバックグラウンド大気ではほとんどゼロであるということは(メタンが1.6 ppmあることと比較して)いかに大気中での光化学反応が速いかを示している。

さらに重要なことは大気中の一酸化炭素源としてのテルペンの寄与である。一酸化炭素は200 ppb程度の混合比で存在する大気微量成分の一つであるが赤外線吸収が弱いため直接的な温室

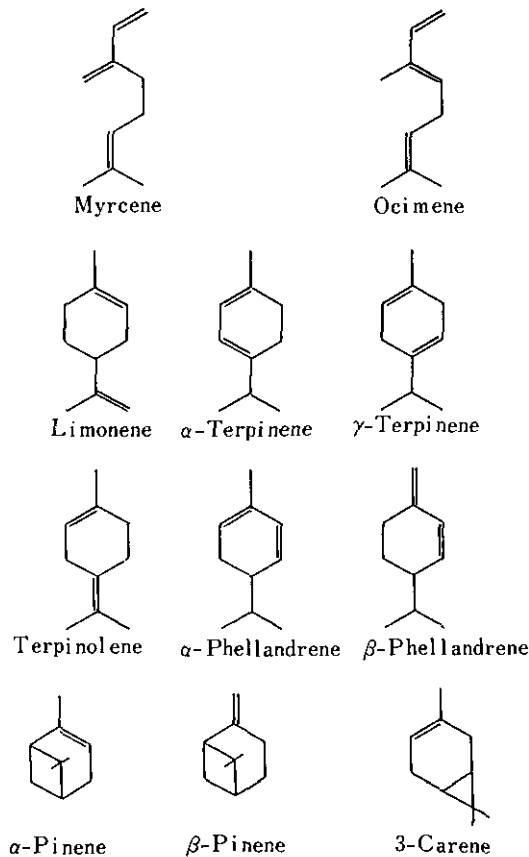


図1 種々のモノテルペン類

効果は余り問題にされてない。しかし OH ラジカルとの反応が比較的速いため大気中の OH ラジカル濃度をコントロールする化学種として最も重要な役割を果たしている^{注13)}。例えば一酸化炭素は大気中の OH ラジカル濃度をコントロールすることにより間接的に地球温暖化に影響を及ぼしていることになり、その生成・消滅の過程の研究と量の推算是重要である。一酸化炭素の発生源の見積りは表2に挙げたようにこれまでいくつかなされているが、その中で自然起源炭化水素の大気中での酸化反応に由来するものの寄与の大きいことは注目に値する。

現在の推定では大気中に放出される全 CO の約 2 割は植物起源炭化水素の大気光化学反応由来とされており、その見積りではテルペンから CO への変換率は炭素換算で 20% であると見積られている。以上のことを踏まえて本年度は特に森林起源炭化水素の動態について研究を行った。研究は森林起源炭化水素の測定とその大気中での反応研究からなる。

表1 米国並びにグローバルでの森林起源炭化水素の緯度別発生率 (gC/y)

緯度 (米国)	イソプレン	テルペン
I (45~50°)	1.8×10^{11}	4.6×10^{18}
II (40~45°)	5.8×10^{11}	1.0×10^{19}
III (35~40°)	4.3×10^{12}	1.6×10^{13}
IV (25~35°)	1.5×10^{13}	1.9×10^{13}
合計	2.0×10^{13}	5.0×10^{13}
グローバル		
温帯	9.6×10^{13}	2.3×10^{14}
熱帯	2.5×10^{14}	2.5×10^{14}
合計	3.5×10^{14}	4.8×10^{14}

表2 対流圏における一酸化炭素の収支 (10^{12} gCO/y)

source と sink	Seiler (1974)	Logan <i>et al.</i> (1981)	Volz <i>et al.</i> (1981)	Seiler and Conrad (1987)
[source]				
化石燃料の燃焼と工業活動	640	450	640	640±200
バイオマス燃焼	60	655	300-2200	1000±600
人為起源炭化水素の酸化	-	90	-	-
自然起源炭化水素の酸化	60	560	200-1800	900±500
海洋からの放出	100	40	100	100±90
植物からの放出	-	130	50	75±25
メタンの酸化	1500-4000	810	600-1300	600±300
source 計	2360-4860	2735	2800±900	3315±1700
[sink]				
OH ラジカルとの反応	1940-5000	3170	1650-3550	2000±600
土壌による吸収	450	250	320	390±140
成層圏への流入	110	-	-	110±30
sink 計	2500-5560	3420	2800±800	2500±770

2) 森林起源炭化水素の種類と量の測定

ガスクロマトグラフ質量分析計を用いた高感度・高精度連続自動分析法を開発し、森林起源炭化水素の種類と量の測定を行った。表1に示したようにこれまで森林起源炭化水素の放出は高緯度でテルペン、低緯度でイソプレンの放出が多いとされてきたが、この関係が我が国でも成立しているかどうか、またこれまでに見いだされていない炭化水素が見つかるかどうかに焦点を絞って研究を行った。特に、熱帯、亜熱帯植物圏から放出される炭化水素の測定はこれまで例が少なく、今回西表島で測定を行った。表3にその結果を示す。筑波での測定結果と、農林水産省熱帯植物温室で測定した結果も併記した。筑波では、 α -、 β -ピネンが代表的な有機物質であったが、西表島では、イソプレンの放出量がピネンを上回ることが判明し、そのことは熱帯植物温室での結果とも一致した。また、起源はよく分らないが多数の含酸素有機化合物が検出され、その種類は筑波を上回り、そのいくつかはテルペン類をしのぐ濃度で検出された。表3には特に高濃度で検出された炭化水素が示されており、実際には100種類を越える炭化水素が検出された。表3のノナナル以下は含酸素有機化合物である。これらの起源が植物から直接放出されたものか、あるいは大気中の反応による二次生成物なのかは明らかではない。西表島は筑波よりも温度が高く、これらの含酸素有機化合物の放出量が気温と関係していることも十分予想される。

農林水産省熱帯植物温室が熱帯植物圏のモデルとして使用可能かどうかとも検討された。熱帯温室ではイソプレンの放出量が最も多い。温室内でのイソプレンの濃度の日変化を測定した結果が図2に示されている。この日は温室の窓の開閉がなく、イソプレンは日中増加し、日没後、温室内で吸着反応等によって減少する。夜間のイソプレンの放出量をゼロとし、日中のイソプレンの放出量を一定とし、日没後の減少を一次関数とし、さらに日中のイソプレンの消滅も日没後と同じであると仮定して、日中のイソプレンの放出量を推算すると、温室内で放出量は約1 mg/m² hとなる。この値はこれまで推算されている熱帯林からのイソプレンの放出量1~5 mg/m² hに

表3 大気中に存在する植物起源その他のガス状有機物質 (ppbC)

化合物	西表島 ^a	熱帯植物温室 ^b	筑波 ^c
イソプレン	1.8	22.3	
α -ピネン	0.4	12.8	6.6
カンフェン	0.1		1.0
β -ピネン	1.0	8.9	3.2
サビネン		6.9	
リモネン	0.5	3.4	
β -フェランドレン			2.8
ノナナル	5.8	1.7	1.1
デカナル	2.6	1.1	0.8
アセトフェノン	0.6	5.7	0.4
2-メチルフラン	0.3	0.3	
オクタン酸メチル	2.1		
メチルエチルケトン	0.8	2.2	7.6
酢酸エチル	1.0	0.5	1.7

a : 西表島亜熱帯雑木林内, 1988年3月24日 午前11時

b : 農林水産省熱帯植物温室, 1988年11月28日 午前11時

c : 国立公害研究所松林内, 1987年5月26日 午前0時

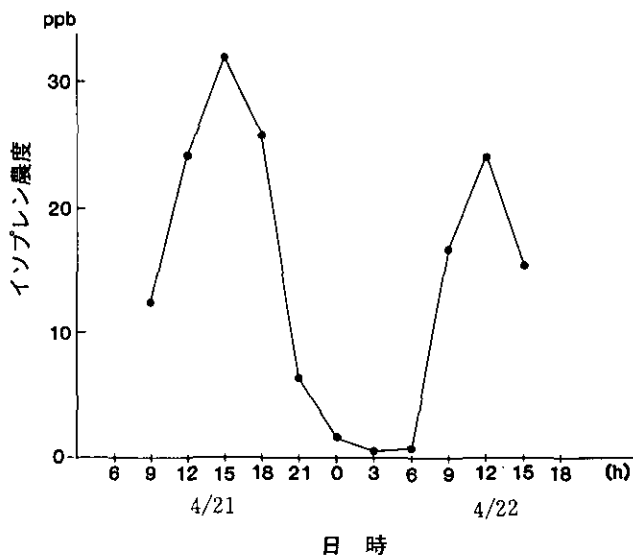


図2 熱帯植物温室内のイソプレン濃度の日変化

近い値であり、熱帯植物温室が熱帯植物圏のモデルとして使用し得ることを示している。含酸素化合物（例えばノナナール）についても日中増加し夜間減少する傾向が確認され、含酸素化合物の発生源の研究が温室内を用いて行うことができる見通しがついた。

3) 光化学チャンバーを用いたテルペンの大気光化学反応の研究

テルペン類の大気中での消滅は主にオゾン又はOHラジカルとの反応による。 α -ピネンの場合これらとの反応は非常に速く、 α -ピネンの大気中での寿命はオゾンとの反応だけを考えた場合には4時間、OHラジカルとの反応だけを考えた場合には10時間と見積られている。これまで α -ピネンの大気中における光酸化反応に関してはいくつかの研究例が報告されているが、光化学スモッグと関連した NO_x 存在下での研究が主であり、バックグラウンド地域において見られる低濃度 NO_x 条件下での研究はこれまでほとんどなされていなかった。本研究では大型光化学チャンバーとUV強調型のソーラーシミュレーター^{注14)}を用い、過酸化水素(H_2O_2)の光分解によって NO_x のない条件下でOHラジカルを発生させ、 α -ピネンとの反応を研究し、反応機構に及ぼす NO_x の効果を検討するとともに、後続反応による一酸化炭素の生成率を見積る上で重要な生成物の分析を行った。

過剰のNOが依存する場合には α -ピネンとOHの反応から主生成物としてピノンアルデヒドが生成する。図3に示したようにピノンアルデヒドの収率はNOの初期濃度には依存せず約60%である。この値はOHラジカルの発生源として亜硝酸メチル(CH_3ONO)の光分解を用いた場合でも変わらない(図3)。この反応は従来から知られている光化学スモッグ反応によって説明される。すなわち α -ピネンにOHが付加して生成したペルオキシラジカル(ROOと略記)がNOを酸化して自身はROラジカルとなり、これが大気中の酸素と反応してピノンアルデヒドを生成するものと考えられる(図4経路A)。一方、NOが存在しない系においてはピノンアルデヒドの収率は低下する。図5に示すようにNO非存在下のピノンアルデヒドの収率は α -ピネンと H_2O_2 の初期濃度の比、 $[\alpha\text{-ピネン}]_0/[\text{H}_2\text{O}_2]_0$ に依存する。この比は反応で生成するROOと HO_2 の濃度の比

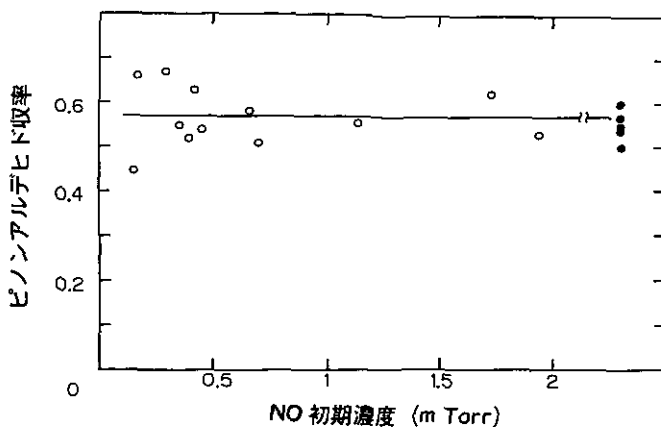


図3 α -ピネン+OH ラジカル反応におけるピノンアルデヒド収率のNO初期濃度依存性
 ○: H_2O_2 , ●: CH_3ONO をOH源として用いた。

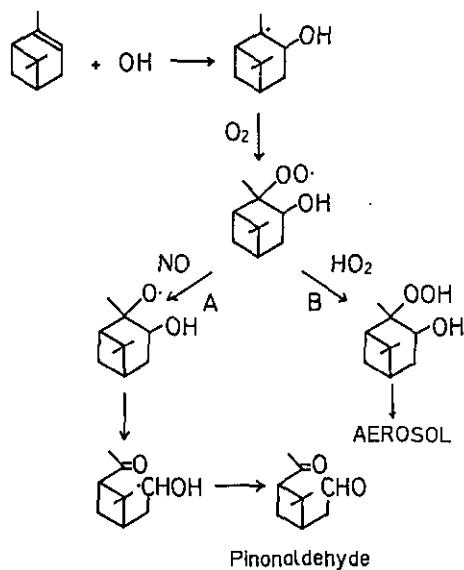


図4 α -ピネン+OH 反応の経路

を反映しているものと考えられるので ROO ラジカルの濃度に比較して HO_2 ラジカルの濃度が高い時には基本的にはピノンアルデヒドの収率はゼロになるものと思われる。すなわち NO 非存在下では ROO は HO_2 と反応してヒドロペロキシドとなりエアロゾルを形成するものと考えられる(図4経路B)。

このことはエアロゾル生成の面からも裏付けられる。エアロゾルの収率はNOの濃度に対してピノンアルデヒドとは逆の依存性を示す。 H_2O_2 をOHラジカル源として用いた場合NOが存在しないと図6(a)に示すようにエアロゾル体積濃度(V_a)は α -ピネンの減少量にほぼ比例して増加し、 $200 \mu\text{m}^3/\text{cm}^3$ にも達する。これに対し初期に過剰のNOが存在する場合には(図6(c))

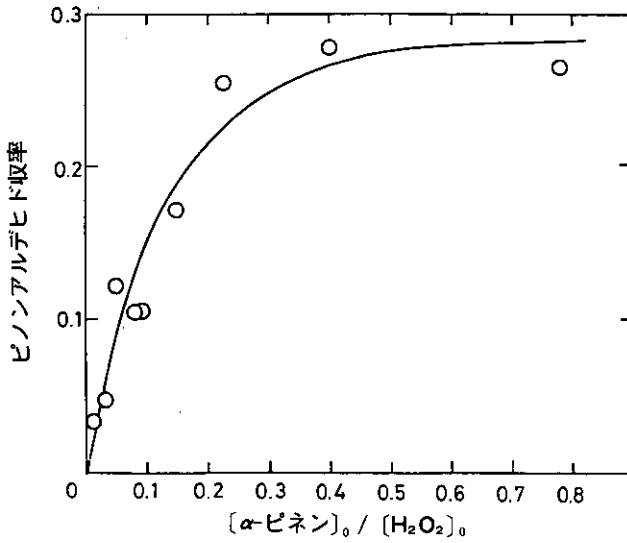


図5 ピノンアルデヒド収率の α -ピネンと H_2O_2 初期濃度比に対する依存性

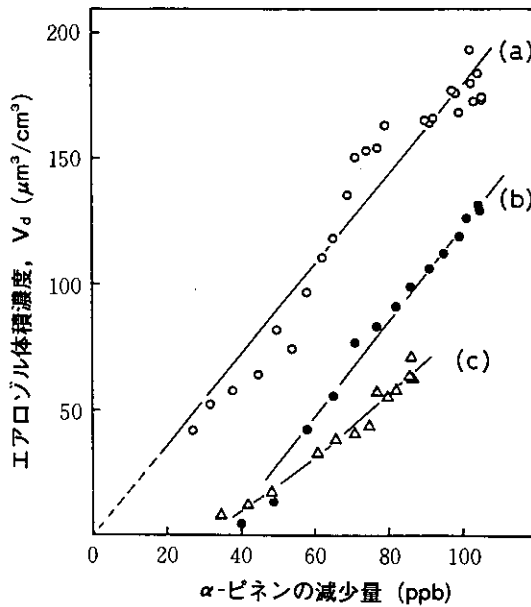
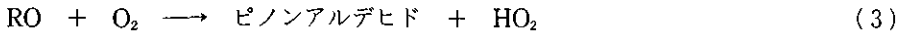
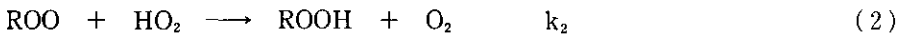


図6 α -ピネン+OH 反応からのエアロゾル生成に及ぼす NO の添加効果
 (a) : $[\text{NO}]_0=0$, (b) : $[\text{NO}]_0 \sim 1.5\text{ppm}$, (c) : $[\text{NO}]_0 \sim 3.2\text{ppm}$

エアロゾルの立ち上がりに遅れが見られ V_d も低い。既に報告しているように V_d は炭素数基準のエアロゾル収率に換算することができ、(a) のエアロゾル収率は $17.6 \pm 1.9\%$ 、(c) は $6.4 \pm 3.2\%$ と計算される。照射光量を増やして反応を加速し沈着の影響を小さくすると、NO 非存在下のエアロゾル収率はさらに高くなって 20% 以上の値が得られた。また CH_3ONO を OH ラジカルの発生源として用いた場合のエアロゾルの収率は、 α -ピネンの実大気中の濃度に外挿した値として

1.6±1.1% (炭素数基準) であった。

実際の大气中においてはテルペン類から生成する ROO ラジカルの濃度は非常に低いので α -ピネンと OH ラジカルの反応によって生成する ROO ラジカルの消滅過程は主に NO 又は HO₂ との反応によって支配されるものと考えられる。今、実大气中でも図 4 のような経路で反応が進行するものと仮定し、エアロゾルは全て沈着すると考えるとピノンアルデヒドの収率は(4)式のように表すことができる。ここで k_1, k_2 は反応 (1), (2) の反応速度定数である。



$$\text{ピノンアルデヒドの収率} = 0.6 / (1 + k_2[\text{HO}_2]/k_1[\text{NO}]) \quad (4)$$

k_1 及び k_2 の値として第三級の R に対する文献値 = 7.6×10^{-12} 及び $3.0 \times 10^{-12} \text{cm}^3/\text{molec s}$ を用い、清浄なバックグラウンド大气中における HO₂ の濃度 0.025 ppb ($6 \times 10^6 \text{molec}/\text{cm}^3$) を用いると、NO の濃度が 0.1 ppb であればピノンアルデヒドの収率は上で得られた NO が過剰に存在する時の値とほとんど同じであるが、10 ppt になると収率は半分になる。CO はピノンアルデヒドの後続光化学反応のみから生成するものと考え、ピノンアルデヒドの収率はテルペン類の大气中における酸化反応に由来する CO の生成に密接に関係しているものと思われるが、従来の CO 放出量の見積りにはこの点は考慮されてはおらず、今後モデルの信頼性を向上させるにはこれらの点も考慮せねばならないと思われる。

テルペン類からの CO の放出量を見積るために従来テルペンの光酸化反応からの CO の収率として炭素数基準で 20% という値が使われている。しかしテルペンから CO が生成する経路は複雑であり多段階を経るものなので最終 CO 収率を一義的に定義するのは困難である。そこで本研究ではテルペンの光化学反応による CO の放出量を見積る実験を行った。

α -ピネン ~ 1.3 ppm と H₂O₂ ~ 10 ppm にソーラーシミュレーターのランプ 19 灯全灯で 4 時間照射する実験を行い CO の生成を追跡した。光及び壁面で分解する H₂O₂ の減少を補うため実験中一定量の H₂O₂ を補給し続けた。全灯照射の実験結果を図 7 に示す。この図には α -ピネン、CO、及び全炭化水素計で測った炭化水素量がプロットされている。また、図 8 には 9 灯照射における CO 生成の時間プロファイルと簡単なシミュレーションの結果が示されている。このシミュレーションは次のような考察のもとに行った。すなわちテルペンから CO に至る間の中間体の個々の素性には触れずに中間体 X として、この X に対する OH の反応によって CO が生成すると考え、OH 反応と deposition (沈着) が競争していると考え、つまり以下の式のように取り扱う。



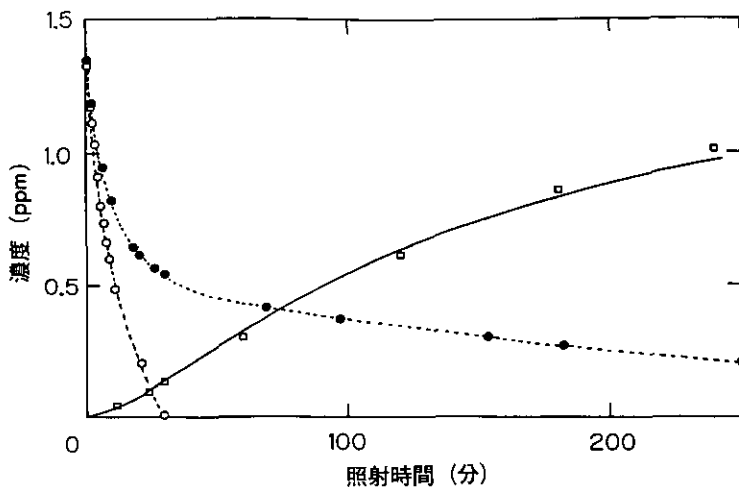


図7 α -ピネン+OH 反応における α -ピネン(\circ), 全炭化水素(\bullet)の減少と CO (\square)の生成

α -ピネンと全炭化水素の値は 1/10 倍されている。実線はシミュレーションの結果。

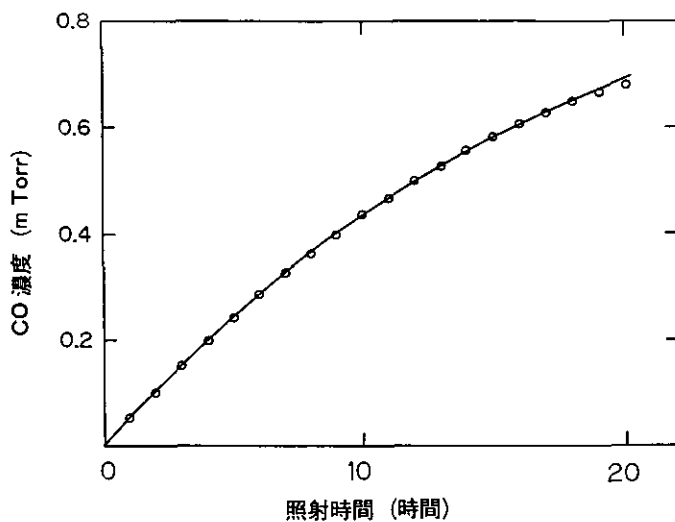


図8 α -ピネン+OH 反応の長時間照射実験における CO の生成

実線はシミュレーションの結果。

反応 (5), (8) に文献値を用い簡単なモデル計算を行った結果, 図7の実測値を最もよく再現する値として $k_6 \sim 3.0 \times 10^{-12} \text{cm}^3/\text{molec s}$ が得られ (これは X 分子から CO 一分子が生成する速度に対応する), チャンバー内における沈着速度が $k_7 \sim 2 \times 10^{-6}/\text{s}$ と求められた (図8の実線はこれらの値を用いて得た計算値を示す)。これらの値は図8の長時間の実験結果もよく再現することができる。 k_6 の値は, 例えばアセトアルデヒドと OH の反応速度定数と比較すると約一桁小さく, 多段階の反応であること及び, 1分子の X から生成する CO の収率が低いことを反映している。清浄なバックグラウンド大気中における OH ラジカルの濃度 $\sim 5 \times 10^5 \text{molec}/\text{cm}^3$ を用いると

中間体XのOH反応に関する寿命は185時間と計算される。Xの乾性及び湿性沈着の速度は不明であるが、比較のためLoganら(1981)のモデルに用いられているHCHOやCH₃OOH等の高度0~4kmにおける沈着速度定数 2×10^{-6} /sを採用するとXの沈着に関する寿命は120時間となり、テルペンとOHの反応で生成した中間物質Xの60%は沈着することになる。CO生成に向う経路は40%であるが炭素数基準では4%にしかならない。上で述べたようにNOが存在すればラジカル連鎖反応が効率的に起こるのでCOの収率は高くなると考えられる。NOが10ppt存在する時のピノンアルデヒドの収率は上記のように30%と計算される。一方、ピノンアルデヒドの光酸化反応によるCOの収率は現在知られている炭化水素類の光酸化反応の機構を用いて見積ると、炭素数基準で上限値36%となる。ピノンアルデヒドとOHとの反応速度定数にアセトアルデヒドの速度定数を採用すると、OH反応に関するピノンアルデヒドの寿命は34時間となり、反応と沈着はほぼ78:22となる。したがってCOの収率は8.4%($=0.30 \times 0.36 \times 0.78$)となる。図7、8で示した実験から求められたピノンアルデヒドを経由しないCOの収率($0.70 \times 0.04 = 0.028$)を加えると、得られる全COの収率の上限値は約10%となる。この値は従来モデルで使われていたCOの収率20%と直接比較することはできないが、沈着を考慮に入れないとしても従来の値より小さい値である。大気中では α -ピネンは70%がオゾンにより、また30%がOHにより消費されるものと見積られる。したがって α -ピネンで全てのテルペンを代表すると自然界から放出されるテルペン類 4.8×10^{14} gC/yからは、平均NO濃度が10pptであれば、OHとの反応によって 3.4×10^{13} g/y (1.4×10^{13} gC/y)のCOが放出されることになる。

4) まとめ

森林起源炭化水素の種類と量の測定については、国内の測定においても中緯度(筑波)でモノテルペン、低緯度(西表島)でイソプレンの放出量が多いことが確認され、このことは、米国等での測定結果と一致した。今後は実際の放出量の測定と見積りをどのように実行していくかが課題である。さらに、新たに多くの含酸素有機化合物が検出され、その発生源を正しく解明することも新たな課題となった。これらの課題に対しては実際のフィールド測定も重要であるが、農林水産省の熱帯植物温室が一つのモデルとして使用できる見通しがついたので、今後温室とフィールド測定をうまく活用して、解答を出していきたい。

光化学チャンバーを用いたテルペンの大気光化学反応研究においては、 α -ピネンをモデルとして研究が行われ、反応の機構はNO_x濃度に大いに依存すること、NO_x濃度が高ければ、ピノンアルデヒドが生成し、それが大気中のCO源となりうるが、NO_xが無い条件ではピノンアルデヒドは全く生成せず、大量のエアロゾルが生成することが判明した。したがって、バックグラウンド大気のような低NO_x条件では植物起源炭化水素からのCO放出量は、改めて見直しが必要となる。表2にあるように、自然起源炭化水素の酸化に起因するCOの放出量は不確定要素が多い。本研究の結果は、表2で示されたCO放出量はより小さく見積られなければならぬことを示すものであるが、より正確な見積りをするためには、自然起源炭化水素の放出量、バックグラウンド大気中のNO_x、オゾン、OHラジカルの平均濃度、さらにはアルデヒドやエアロゾルの雨による大気中からの除去効率のより正確なデータと見積りが必要であり、それらのデータに本研究で得られた反応機構の結果を加えて、はじめて、自然起源炭化水素の酸化に起因するCOの放出量が推定されるのである。なお、COが大気中のOHラジカルの濃度を支配していることは1)で記してあるので地球温暖化におけるCOの重要性は御理解いただけるものと思う。

- 注1) テルペン：種々の植物から得られる有機化合物のうち、炭素数が5の倍数で、 n 個のイソプレレンが順次連結した基本骨格 $(C_5H_8)_n$ をもつ物質の総称。 $n=2$ のものをモノテルペン（炭素数10個）と呼ぶ。大気化学においては森林から放出される低沸点化合物である α 、 β -ピネン等が自然起源炭化水素として重要である。なおイソプレレン (C_5H_8) はテルペンとは区別される。
- 注2) メチルペルオキシラジカル：メチルラジカル (CH_3) と酸素分子 (O_2) が結合して生成したラジカル $CH_3OO\cdot$ のこと。
- 注3) α -及び β -ピネン：注1)又は図1参照。
- 注4) ラジカル：フリーラジカル (Free radical) 又は遊離基ともいう。不対電子を持つ化学種で、一般に分子の熱分解、光分解、放射線分解、電子授受などによって化学結合が切断されて生じる。そのようにして生じたラジカルは化学的活性に富み、極めて速やかに安定分子とも反応する。例えば水や過酸化水素から水素原子が1つ切れた OH や HO_2 ラジカル(両者を合せて HO_x ラジカルという)は、大気化学反応において、反応の連鎖連絡体として極めて重要である。
- 注5) レーザー誘起蛍光法：レーザー光を分子に吸収させ、分子をエネルギーの高い状態(励起状態)に上げ、そこから分子が再び元の状態に戻るとき、その分子が出す光を測定することによって分子を検出する方法。極めて感度が高く、フリーラジカルの検出に適している。0.1 ppt の OH ラジカルまで検出できるといわれている。
- 注6) ヒドロペルオキシド： $ROOH$ の構造を持つ分子。 CH_3OOH はメチルヒドロペルオキシドと呼ぶ。
- 注7) 光イオン化質量分析法：質量分析法は通常分子を電子衝撃によってイオン化し、イオンの質量によって分子を分ける方法である。電子衝撃によらずに、分子を光によってイオン化する方法を光イオン化法と呼び、フリーラジカルの検出等に優れた利点がある。
- 注8) ヒドロキシエチルラジカル：エチレンと OH ラジカルの反応で生成するエチレンと OH の付加体、 $\cdot CH_2-CH_2(OH)$ のこと。
- 注9) C_2 - C_4 炭化水素：炭素数2-4の炭化水素。エタン、プロパン、ブタン、エチレン、プロピレン、ブテン等。
- 注10) FID ガスクロマトグラフ法：水素炎イオン化法を検出器に用いたガスクロマトグラフ法。
- 注11) ギヤー法：化学反応モデルにおいて、速い反応と遅い反応の両方を分離せずに、予測子補正子(predictor corrector)を用いて解く方法。ギヤー (Gear) は人名。
- 注12) gC/y ：炭素を含む物質の年間当たりの総放出量を表わすときに、物質中の炭素重量のみを考えた量、グラム炭素/年。
- 注13) OH ラジカルとの反応： OH ラジカルは一酸化炭素 (CO) に対してメタンに対する速度の約40倍の速さで反応する $(OH+CO \rightarrow H+CO_2)$ 。生成した水素原子は大気中では HO_2 ラジカルになる $(H+O_2 \rightarrow HO_2)$ 。 CO 及びメタンの大気中での寿命は各々約46日及び5年である。
- 注14) 大型光化学チャンバーとUV強調型のソーラーシミュレーター：内容積 $6 m^3$ のステンレス製真空排気型大型チャンバーと波長が200ナノメートルより長波長の光を照射する光源(擬似太陽光)。波長分布としては、対流圏の光より、UV光(紫外線)の強い成層圏での光に近い。ここでは過酸化水素 (H_2O_2) を効率よく光解離させるため、UV強調型のものを用いている $(H_2O_2+h\nu \rightarrow 2OH)$ 。

2.4 土壌及び地下水圏における有害化学物質の挙動に関する研究

昭和60年度～平成元年度（1985～1989年度）

〔研究組織〕 水質土壌環境部

◎村岡浩爾

土壌環境研究室 ○高松武次郎・袴田共之・○向井 哲・久保井徹・服部浩之・
広木幹也

水質環境計画研究室 ○平田健正・大坪国順・福島武彦

陸水環境研究室 矢木修身・○稲森悠平・内山裕夫・細見正明・富岡典子・
稲葉一穂・岩崎一弘

環境情報部

後藤典弘

総合解析部

資源循環研究室 中杉修身・乙間末広

計測技術部

生体化学計測研究室 森田昌敏・安原昭夫

生物環境部

陸生生物生態研究室 名取俊樹

技 術 部

理工施設管理室 松重一夫

客員研究員 31名， 共同研究員 10名

〔研究概要〕

土壌は食糧生産、植物生産の場として、地下水は飲料水やかんがい水源として、ともに人間の生存を支える重要な環境である。ところが、近年、環境庁等諸機関の調査から有害化学物質による地下水汚染の実体が明らかにされ、大きな社会・環境問題となっている。しかし、この地下水汚染については、汚染源や汚染経路について不明な点が多く、その解明は環境保全上極めて急務である。

本研究では、汚染が土壌—地下水—井戸水という経路をたどることを想定し、この一連の系を一貫して扱い、土壌表層に負荷された有害化学物質が浅層、深層土壌層から地下水層へと移行するメカニズムとその過程で起こる有害化学物質の形態変化(分解等)及び各層で、有害化学物質が陸上植物や土壌生物に与える影響について検討する。また、汚染源と土壌への負荷機構についても併せて検討し、最終的に地下水汚染の未然防止対策に資する。

実際の研究の実施に当たっては、扱う有害化学物質の種類(有機ハロゲン化合物、重金属等)、対象とする空間(浅層土壌、地下水層等)、用いる研究手法(数値解析、室内実験、現地調査)等の相違を配慮し、次の8課題について行っている。

- (1)有害化学物質の環境侵入形態と保全対策
- (2)土壌中における金属元素の存在形態

- (3)有機ハロゲン化合物の分析法の確立
- (4)有害化学物質と土壌の理化学特性の把握
- (5)有機塩素化合物の浸透と流動
- (6)土壌環境と有害化学物質の移動特性
- (7)有害化学物質の植物応答
- (8)有害化学物質の分解と土壌生態系への影響

以下に(1)及び(8)の課題に関連して、本年度得られた研究成果を紹介する。

[研究成果]

(1)カドミウム吸収と耐性の植物種間差

植物の元素吸収や耐性については今まで体系的研究がほとんど行われていない。この研究ではまず、カドミウム(Cd)を添加した砂質土を用いて9科34種の植物を栽培し、培地(土壌)中Cd濃度(sc)と地上部組織中濃度(tc)を式： $\log(tc) = \alpha + \beta \log(sc)$ に関係づけた。その結果、 α 及び β 値は同一栽培条件では植物の科に固有で、植物の元素吸収能や耐性の指標となることが分かった。しかし、科や種ごとの詳細な元素吸収特性は複雑で、ウリ科植物では培地Cd濃度が高くなると急激にCdを吸収、蓄積するが、アカザ科植物では培地Cd濃度が低い条件下で高いCd蓄積能を示し、濃度が高くなるとむしろ低下した。そこで、これら特性の要因を明らかにするため、①Cdの根から地上部への移行率を水耕栽培で、また②細胞レベルでのCd吸収の種間差を培養細胞(カルス)を用いた実験で検討した。水耕栽培の結果、ウリ科植物では、Cdの根から地上部への移行率が、培地Cd濃度の増加に伴って著しく上昇することが分かった(マメ科も同様に上昇したが、ほかの科では逆に低下した)。また培養細胞試験の結果、フダンソウ(アカザ科)の細胞は他種植物に比べ、Cdの低濃度処理区で非常に高いCd吸収能を示した。これらの事実から、植物の元素吸収特性は、根から地上部への元素移行率と細胞自身が持つ元素吸収能に依存していることが明らかとなった。現在、このような元素の移行や細胞吸収に働いている生理活性物質の同定を行っている。

(2)土壌中の物質代謝に及ぼすカドミウムの影響

すでに、Cdを添加した各種土壌(砂質、沖積、黒ボク等)に有機物として汚泥を加え、その分解、無機化速度を発生炭酸ガス量で測定して得た結果から、Cdによる分解阻害が土壌種によらず、水溶性Cdの量に依存することを明らかにしている。さらに今回、Cd阻害が有機物種(その吸着特性)によってどのように変化するかを検討した。すなわち、砂質土にCd(10 μ mol/g乾土)を加え、これに各種有機物(グルタミン酸、カゼイン、グルコース、デンプン、セルロース、リグニン、稲ワラ、堆肥、及び汚泥)を1%添加して8週間培養(28 $^{\circ}$ C)したときの炭酸ガスの累積発生量を比較した。その結果、Cd吸着性の弱い有機物(グルタミン酸、カゼイン、グルコース、デンプン、セルロース、リグニン)に比べ吸着性の強い有機物(稲ワラ、堆肥、汚泥)の分解がより強く阻害された。また同様の実験を、あらかじめCdを吸着、結合させた汚泥と稲ワラを砂質土や火山灰土に添加して行った結果、Cdを多く結合している有機物ほど分解が阻害されることが分かった。これらの結果から、Cdによる土壌有機物の分解阻害は、水溶性Cdが直接土壌微生物の活性を阻害して起こるのに加え、有機物がCdを吸着することで、分解されにくい形態に変化することによっても起こることが分かった。この第二の現象は、有機物分解の際に微生物が最も攻撃しやすい有機物部位(官能基など)が毒性元素でブロックされる結果と考えられる。実際の汚染土

壤では、Cd 吸着性の強い有機物が分解されずに選択的に残存することも予想される。

(3) 重金属汚染土壌の微生物相

すでに各地の重金属(特に Cd)汚染地の微生物相の調査から、①汚染によって放線菌数が急激に減少するが、糸状菌数と汚染の間には明確な関係が認められないこと、②土壌中の Cd 含量が高いと細菌相に占める Cd 耐性菌の比率が高くなること、及び③ Cd 耐性菌の比率は、土壌の利用形態に依存することなどを明らかにしてきた。今回さらにヒ素(As)汚染土壌(水田及び畑)の微生物相を調査し、その特徴を明らかにした。その結果、As 汚染水田土壌では、糸状菌が他の土壌より優占していた。また汚染水田では、糸状菌相の多様性が低く、高濃度の亜ヒ酸に耐性を持つ特異的な菌が優占していた。さらに、各地から採取した As 含量の異なる 11 種の汚染土壌を室内で培養し、発生する微生物相と土壌中の As 含量の関係を検討した。その結果、As 含量の低い土壌では、As 耐性菌の優占度と土壌中の As 含量との間に明確な関係は認められなかったが、土壌中の As 含量が 100ppm 以上の高濃度に汚染された土壌では、いずれも As 耐性細菌の優占度が高かった(図 1)。これらの事実から、As 汚染土壌が特徴的な微生物相を持つことが明らかとなった。現在、土壌中の As 形態が微生物相に与える影響並びに汚染土壌から単離した As 耐性菌が As の形態変化にどのようにかかわっているかなどを検討中である。

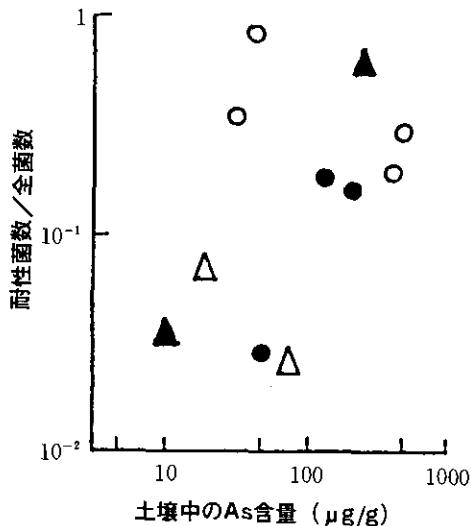


図 1 土壌中の As 含量と 1 mMAs³⁺耐性細菌の優占度
図中の記号は土壌を採取した地域を示す。

(4) 土壌における重金属等の平面分布の評価について

土壌中の重金属等の空間分布に関する情報は、汚染機構の解明やモニタリングの基本情報として重要である。今回、一筆の重金属汚染水田の汚染質の平面分布を明らかにするため、米代川流域の銅(Cu)、Cd 汚染田で 1 m 間隔のメッシュの交点 100 個所から表層土(4 点のコンポジット)試料を採取し、各試料(風乾細土)の 0.1N 塩酸抽出 Cu、Cd、及び亜鉛(Zn)を分析した。分析値から二次元のセミバリオグラムを求めたところ、Cu の地点間相関には方向性がなかったが、Cd と Zn では方向性が認められた。そこで、あぜ沿いの基準方向に対し、0、 $\pi/4$ 、 $\pi/2$ 、 $3\pi/4$ 及び π

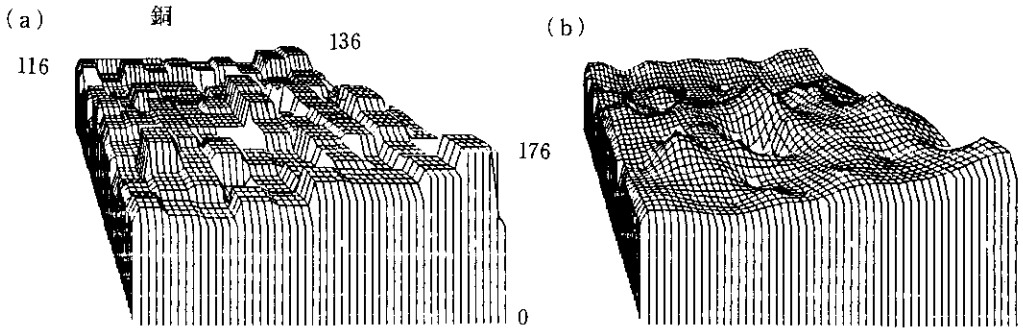


図2 銅の実測分布(a)とクリジング補間分布(b)

の5方向につき一次元のセミバリオグラムを求めて一様性の検定を行った。その結果、Cuは全方向で一様であったが、Cdは $\pi/4$ 、 $\pi/2$ 、Znは $\pi/2$ 方向で一様ではなかった。これは、各元素の水田内での存在状態や元素固有の移動特性を反映したものと考えられる。また、クリジング補間による各元素の分布図を作成したところ(図2)、水口から水尻への一定のトレンドと汚染による変動とからなる構造が見られた。さらに一様であった方向に関し、点間距離とバリエーションとの両対数軸上で共通の回帰係数を求め、それによりフラクタル次元を求めた。その結果、Znが1.70、Cdが1.80、Cuが1.85となり、フラクタル次元が汚染の程度を示す指標として有効である可能性が示された。なお、分析に蛍光X線分析マッピング装置を用いれば、よりマイクロなスケールでの評価が可能と考えられる。

(5) 地下水流れによるトリクロロエチレンの溶出について

廃棄物の埋め立てや溶剤タンクにき裂などがあると原液に近い物質が土壌圏に侵入する可能性がある。この原液の土壌浸透は地下水汚染を引き起こす要因の一つと考えられ、トリクロロエチレンを用いた土壌・地下水での浸透実験を行ってきた。これまでの結果を要約すると、トリクロロエチレン原液は不飽和状態の土壌によく浸透し、土壌に団粒構造が発達していると、団粒内にも浸透する。また飽和帯でも間げき規模が大きいと容易に浸透し、粒子と粒子の間げき中にたまる。さらに土壌中に浸透したトリクロロエチレンは降雨浸透があると、極めて高濃度で溶出することが明らかにされている。こうした一連の研究を受けて、本年度は地下水中に侵入したトリクロロエチレン原液の地下水流れによる溶出を調べた。

実験は内径6 cm、深さ20 cmの円筒カラムに平均径3 mmのガラスビーズを充てんし(空げき率38%)、飽和帯を作る。この飽和帯にトリクロロエチレン原液を注入するのであるが、ある断面内(円形)にほぼ一様に注入するケースと1か所にまとめて注入する2種の実験を行った。注入したトリクロロエチレンは2 gであり地下水流速は1 m/d(実流速で2.6 m/d)としている。図3は地下水流に溶出したトリクロロエチレン濃度の経時変化を描いている。図より断面内に一様に注入した方が濃度は高く、平均的な溶出濃度は62 mg/l程度である。降雨浸透に伴う土壌からのトリクロロエチレンの溶出実験では、ほぼ飽和溶解度に近い1,000 mg/lの濃度で溶出しているが、これに比較すると地下水流れに伴う溶出濃度はかなり小さい。これには水とトリクロロエチレン原液との接触面積や接触時間が影響していると考えられる。そこで長さ25 cm×深さ25 cm×幅5 cmのガラス製矩形管路内に純水(深さ2 cm)とトリクロロエチレン原液(深さ3 cm)の二成層を作り、上層の水を流してトリクロロエチレンの溶出濃度を調べた。結果は図4のとおり、流

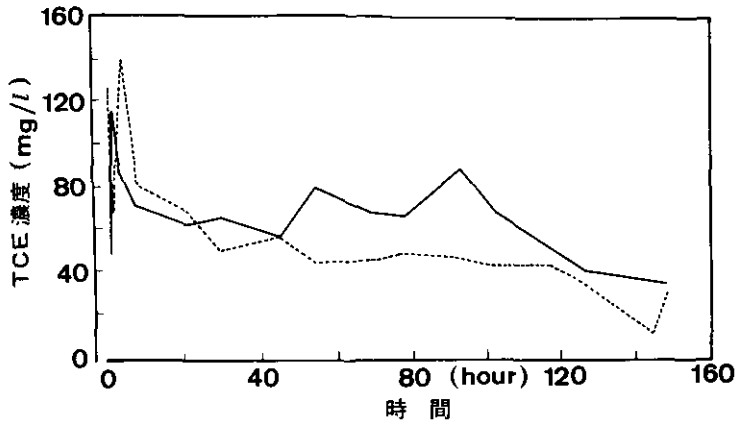


図3 TCEの地下水流れによる溶出実験
 — : 2gバラバラ, - - - : 2gかたまり

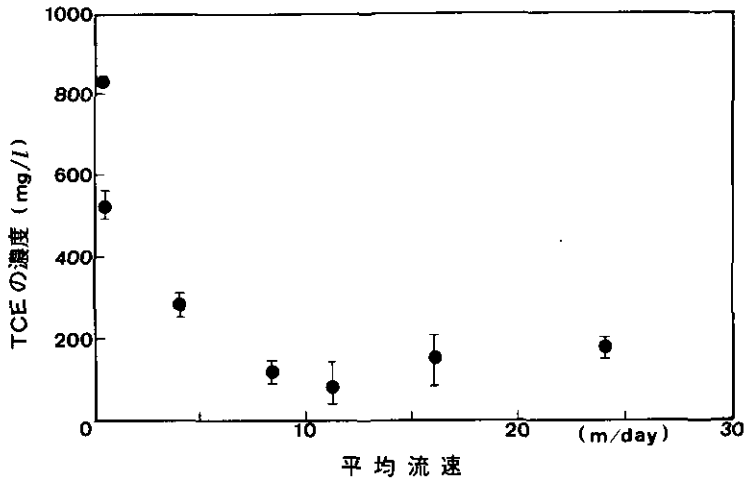
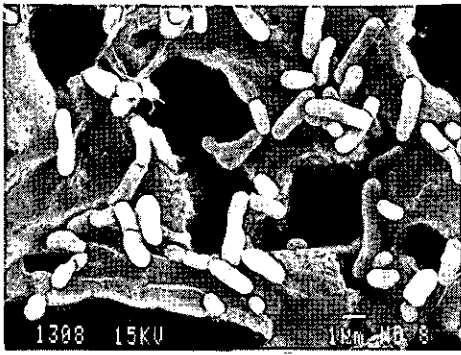


図4 トリクロロエチレン-水2層系におけるトリクロロエチレンの溶出

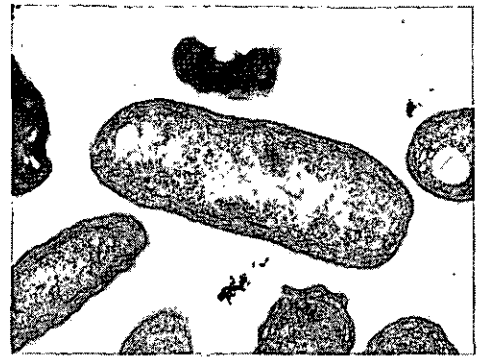
速の大きい程、すなわち水とトリクロロエチレンとの接触時間が短い程、溶出濃度が低くなる事が分かる。このようにトリクロロエチレンが地下水中に侵入すると、かなりの濃度で溶出し、直接地下水を汚染することが明らかにされた。

(6) 有害化学物質の分解

含ハロゲン有害物質であるトリクロロエチレンを好氣的に及び嫌氣的に分解する微生物を検索し、分解菌の諸性質を調べるとともに汚染浄化への可能性を検討している。前年度までにトリクロロエチレンを好氣的に分解する混合培養系を得た。本年度は、本混合培養系より分解の主たる役割をなしているメタノトロフを単離し、菌学的諸性質を調査し、同定した。また、メタノトロフ株単独によるトリクロロエチレン並びに他の有機塩素化合物に対する分解性を検討すると共に嫌気分解系についても検討を加えた。



(a)



(b)

図5 (a)単離したメタノトローフ株の形態
(b)メタノトローフの細胞内膜構造

1) メタノトローフの同定

単離したメタノトローフ株についてグラム染色, 形態 (図5(a)), ペン毛, 運動性, 炭素源資化性, 生育温度, DNAのGCの含量, 構成, 脂肪酸, ヒドロキシ脂肪酸並びにキノンタイプを調べた。また細胞内膜構造 (図5(b)) は Type IIメタノトローフの特徴を示した。以上の結果より, 本菌は新菌株であることが判明したため, *Methylosinus trichosporium* TSUKUBA と命名した。

2) *Methylosinus trichosporium* TSUKUBA による分解

トリクロロエチレンは混合培養系と同様に分解され, 10ppmトリクロロエチレンが10日間で約60%分解された。またトリクロロエチレン, 1,1-ジクロロエチレン, シス-1,2-ジクロロエチレン, トランス-1,2-ジクロロエチレン, 1,2-ジブromoエチレン, 1,2-ジクロロエタン, クロホルム等は混合培養菌による場合と同様に分解されたが, テトラクロロエチレン, 1,1,1-トリクロロエタン, フロンガス, 四塩化炭素等は分解されなかった。

3) 嫌気混合培養系による分解

トリクロロエチレン, テトラクロロエチレン, に対し高い分解能を有するハス田泥を微生物源として, 合成培地を用いてトリクロロエチレン及びテトラクロロエチレンで馴養し, 分解能を有する嫌気混合培養系を確立した。この系は100ppmのトリクロロエチレン, テトラクロロエチレンを25日間で50%, 83%それぞれ分解した。トリクロロエチレンからはシス-1,2-ジクロロエチレンが, またテトラクロロエチレンからはトリクロロエチレン, シス-1,2-ジクロロエチレン, トランス-1,2-ジクロロエチレンが生成された。トリクロロエチレン, テトラクロロエチレンは嫌氣的に脱ハロゲンすることが判明した。

2.5 雲物理過程を伴う列島規模大気汚染に関する研究

昭和 61 年度～平成元年度 (1986～1989 年度)

〔研究組織〕 大気環境部

◎秋元 肇

大気環境計画研究室 ○植田洋匡・光本茂記・宮崎 武・花崎秀史・高藪 緑
○若松伸司・鶴野伊津志

大気化学研究室 鷺田伸明・井上 元・酒巻史郎

エアロゾル研究室 福山 力・○村野健太郎

大気物理研究室 竹内延夫・笹野泰弘・中根英昭

環境情報部

情報調査室 松本幸雄

総合解析部

内藤正明

計測技術部

分析室 溝口次夫・西川雅高・功刀正行

技術部

理工施設管理室 竹下俊二・上原 清・水落元之

客員研究員 15 名

〔研究概要〕

列島規模大気汚染においては雲生成に伴う対流圏全域への汚染物質の拡散や、長距離輸送中における物理・化学変化が重要となり光化学大気汚染、二次粒子汚染、湿性大気汚染及び、多国間における大気汚染授受問題などの様々な発現形態を解明しなければならない。本研究においては、これらの様々な形態の大気汚染を一つの問題として統一的に明らかにし、もって列島規模の大気保全計画に資することを目的とする。

本研究は 5 つの研究課題に沿ってすすめられている。まず、(1)雲物理過程・混合反応過程と、(2)複雑地形上の大気現象に関する基礎研究を実施すると共に、(3)野外調査により列島規模の大気汚染・気象の動態を把握する。そして、これを踏まえて、列島規模大気汚染を予測するための手法として(4)大気拡散風洞、エアロゾル風洞を用いた風洞予測手法と(5)数値予測手法の確立を図る。このようにして得られる予測モデルによって、光化学スモッグ、酸性降下物など列島規模大気汚染の気圏、土圏、水圏への負荷量、並びに生態系の影響の推定等を行い大気汚染対策のための汚染物質排出削減効果の検討を行うことが本研究の課題である。

〔研究成果〕

今回は主に研究課題(3)に関して九州地域において実施したフィールド観測による研究成果を取りまとめ報告する。

九州地域においては春季に高濃度のオゾン(O₃)が観測されるとともに、降水中の硫酸塩濃度の

比率も日本の他の地域と比較して高いことが知られている。しかしその原因は十分には解明されていない。本研究においてはフィールド観測により九州地域における大気汚染物質の動態を明らかにし、得られたデータを解析することにより、周辺地域から流入する汚染物質及びその地域から発生する汚染物質が地域汚染に及ぼす影響を定量的に把握すること、これら一連の研究を行う中で、海洋、平野、山岳地域等の複雑な境界条件下での大気汚染濃度の予測手法の確立をはかることを目的とする。

九州地域における大気汚染の要因としては① 成層圏 O_3 の沈降、② 九州地域において発生する人為起源、自然起源の大気汚染物質、③ 大陸方面からの大気汚染物質の移流、等が考えられる。① は対象とする地域の上端の境界条件、②、③ は水平方向の境界条件を与える。これらの諸点を明らかにするために上空 30 km までの O_3 の特別観測、航空機によるガス状物質、エアロゾル物質の立体分布観測、地上でのガス、エアロゾル、降水成分の観測、山頂におけるガス状物質の観測を実施し、以下の結果を得た。

(1) 成層圏オゾンの地上への輸送現象

春季に地上において O_3 の濃度が上昇することは良く知られた事実である。これは成層圏 O_3 の

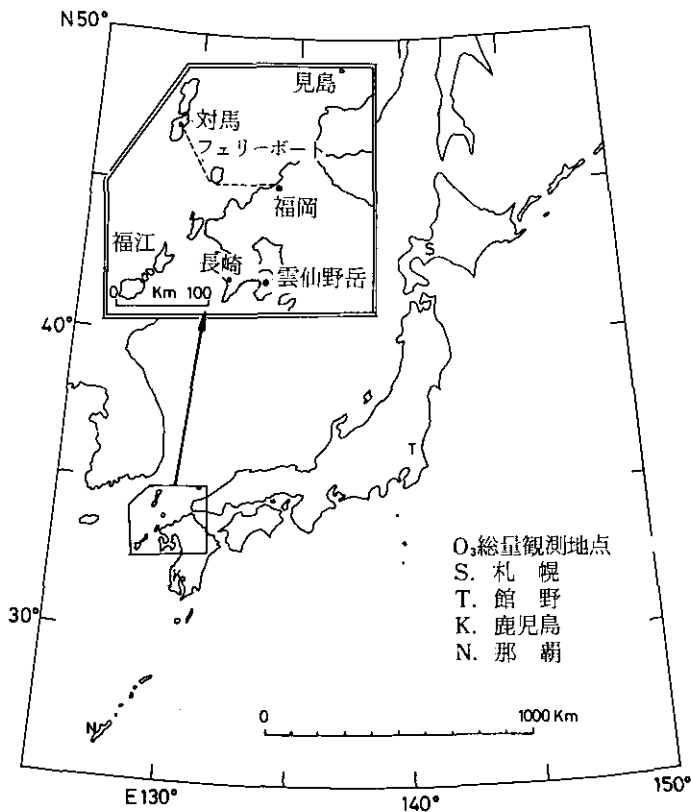


図1 観測地点図

O_3 の垂直分布観測(対馬) 地上の O_3 濃度観測(対馬, 雲仙野岳) 海上の O_3 濃度観測(福岡-対馬 フェリーポート) 気象官署(対馬, 福岡, 長崎)。

沈降によるものであるが、そのメカニズムについてはまだ十分に解明されていない。このことを明らかにするために図1に示す九州北部地域において観測を実施し、得られたデータを日本の4地点(札幌、館野、鹿児島、那覇)で測定されている O_3 総量のデータ、及び高層気象観測データとともに解析した。観測の結果地上の O_3 濃度は図2に示すように九州北部地域ほぼ全域において地上の気圧が上昇するとともに上昇していた。一方 O_3 総量濃度の時刻変化は地上の O_3 濃度の時刻変化と少し異なった動きを示している。1986年5月10~19日の間の O_3 総量濃度の緯度-時間断面図、及び対馬を通る東経130°上空におけるジェット気流中心軸の南北変動の動きを図3に示す。 O_3 総量は地上での O_3 上昇より約1日早い位相のずれがあることが分かる。これは以下のような2つの主要なメカニズムによるものであることが分かった。

まず第1に成層圏 O_3 は寒冷前線に吹き込む北~西系の下降流により対流圏の上層に輸送される。この寒冷前線は、地球全体を取り巻く波数4~5のプラネタリー波が北上する西側の地域に形成された低気圧に伴うものである。また O_3 総量はジェット気流の北側で増大しておりこのジェット気流はプラネタリー波が南下するに伴って南下する。第2に対流圏上層に輸送された成層圏 O_3 は低気圧が通過した後に引き続き出現する移動性高気圧の影響下でゆっくり下降する。この時にはプラネタリー波は北上しておりジェット気流もこれに伴って北上しているため O_3 総量は減少する。また、対流圏を O_3 が下降する時には局所的に形成される気温の逆転層、又は安定層が O_3 を保持する役割を果たしていることが分かった。このような引き続いて起こる2つのメカニズムによりジェット気流の動きと O_3 の総量との間には1日のずれが生じ、さらに O_3 総量と地上

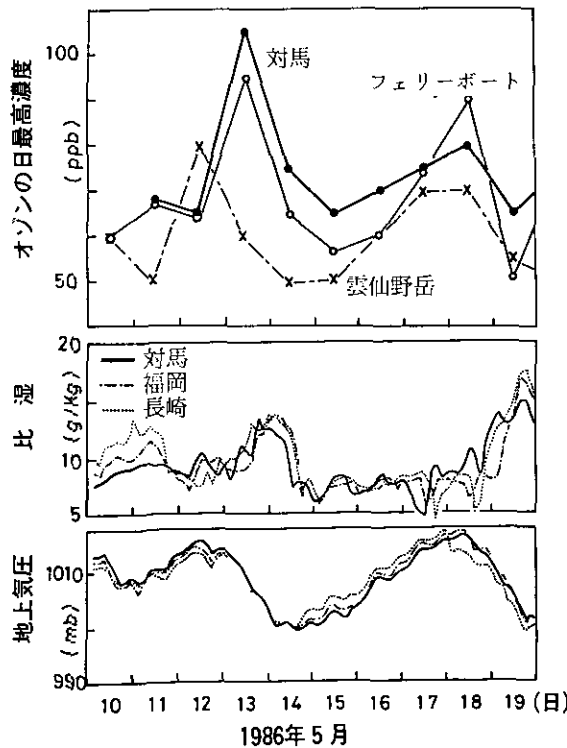


図2 1986年5月10~19日にかけて対馬、フェリーボート、雲仙野岳において観測した O_3 濃度(UV法による)の最高値と対馬、福岡、長崎における比湿と気圧の日変化

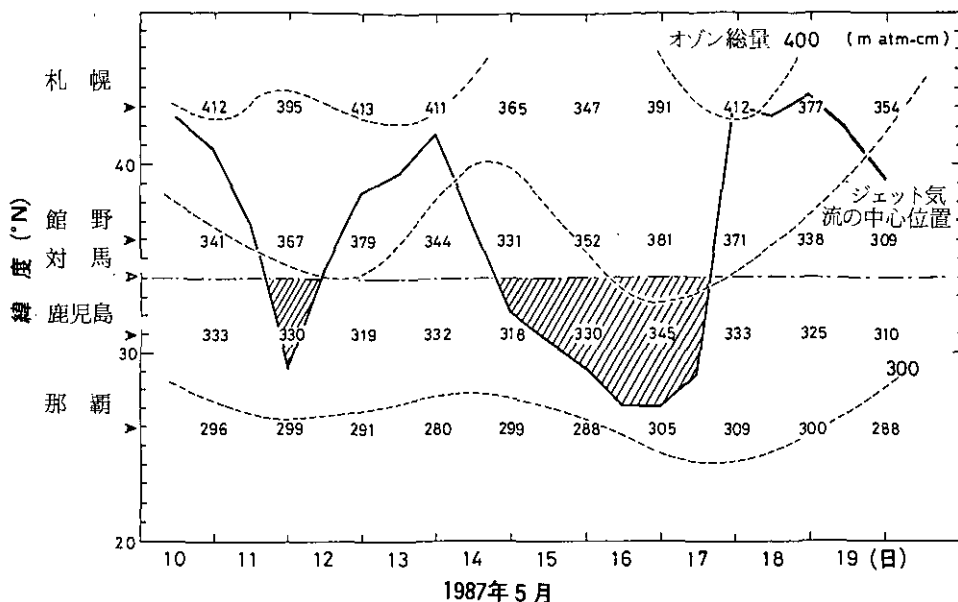


図3 1986年5月10～19日間のO₃総量濃度の緯度-時間断面図, 及び東経130°(対馬)におけるジェット気流中心軸の時刻変化

でのO₃濃度との間にも1日のずれが生じる。このことから、春季において地上でO₃が上昇する時期や地域等については、ジェット気流の南北振動や、O₃総量の観測データ等を利用することにより事前の予測が可能である。

(2) 自然起源の大気汚染

九州地域においては自然起源の大気汚染物質を重視する必要がある。航空機観測並びに地上における観測において火山からのものと思われる汚染物質をとらえることができた。1987年5月9日の高度300mにおける航空機観測においては長崎県の北西海上において150 ppb以上の二酸化硫黄(SO₂)が認められた。このときサルフェート(SO₄²⁻)濃度も13 μg/m³の値を示した。これに対してナイトレート(NO₃⁻)濃度は低濃度でありSO₂やSO₄²⁻が最大値を示した場所において0.5 μg/m³以下であり、人為起源の汚染空気中における比率と大きく異なる値を示した。

上空の観測とともに地上においても見島(山口県萩沖)、対馬(長崎県)、長崎、福江、及び鹿児島(薩摩半島西海岸)においてガス、エアロゾル、雨水成分の観測を行ったが、風下側に位置する対馬、見島において各種成分ともに高濃度を示し、特に見島においては5月11～12日の降雨7検体中6検体がpH 3代を示した。長崎と見島での観測結果の一部を図4に示す。気流解析の結果、これらの九州北部地域において観測されたSO₂やSO₄²⁻は桜島からのものと考えられたため長崎県の雲仙野岳(1,142 m)において連続観測を実施した。その結果50 ppb以上の高濃度がしばしば認められ特に8～9月にかけての南風が卓越する時期には100 ppb以上の濃度が4回観測された。これらの観測の結果は九州地域の大気汚染を考える場合には火山からの硫酸化物の寄与を正しく評価することの重要性を示している。

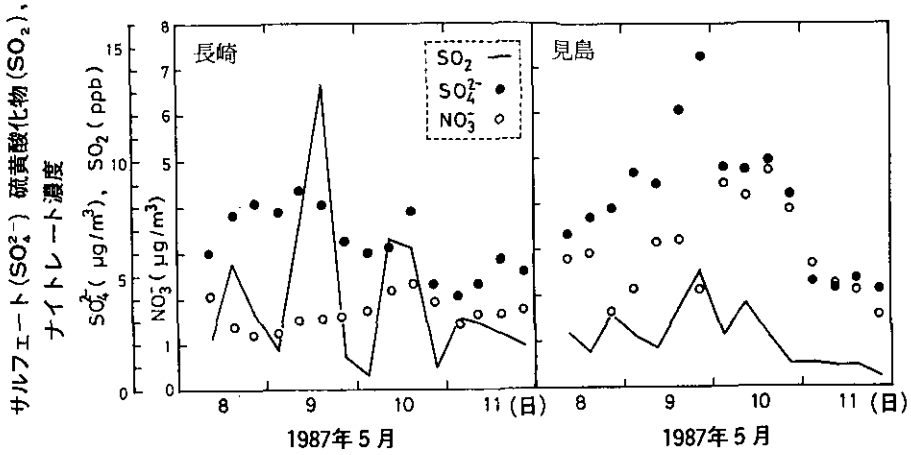


図4 1987年5月8～11日にかけての長崎市と見島におけるSO₂, SO₄²⁻, NO₃⁻の濃度の時刻変化

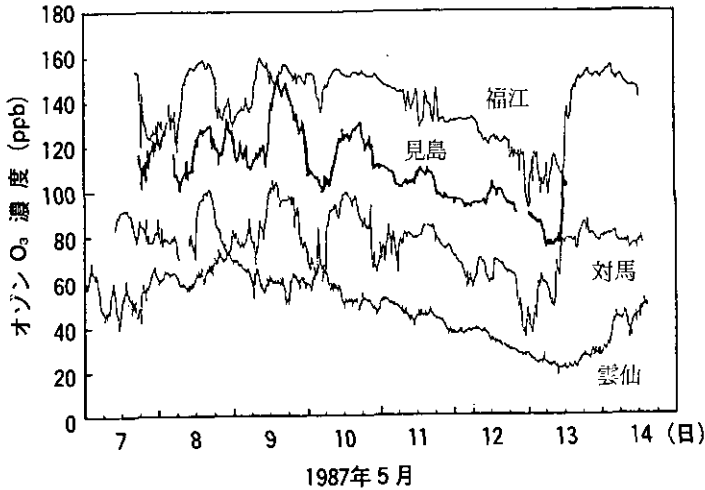


図5 1987年5月7～14日にかけての地上4地点でのO₃濃度(UV法)の時刻変化
 雲仙野岳のデータは実測値であるが、他の測定地点のデータは図を見やすくするために対馬は30 ppb、見島は60 ppb、福江は90 ppb シフトして示した。

(3) 海を渡る広域大気汚染

海上では大気境界層が発達せず上下方向の空気の混合が小さいため各層に放出された大気汚染物質は、気象条件によっては、高濃度のまま長距離を輸送されたり、長時間にわたって海上に滞留したりする可能性がある。特に九州北部海域においては九州の都市域や工業地域からの大気汚染物質、上空を輸送される火山からの排出物、成層圏から輸送されるO₃、大陸方面からの大気汚染物質等が複合的に影響を及ぼすことが推察される。このため海上、及び島での観測を実施し、幾つかの重要な事実を認めた。

1987年5月7～14日にかけて九州北部地域の4地点においてO₃の連続測定を行った。その結果を図5に示す。5月9日の午後に見島において90 ppb以上のO₃が観測された。14時20分に観

測した上空 300 m での O_3 の値も見島の南西海上で 100 ppb 以上の値を示した。5 月 8～12 日間の炭化水素成分、アルデヒド類、カルボン酸類、有機性炭素、元素状炭素の観測結果を図 6 に示したが、いずれの濃度も 5 月 9 日に高い値となっていた。このことは日本海上に汚染物質が流出し光化学反応により O_3 が生成したことを示すものである。

一方、5 月 8 日には航空機により日本-韓国、国境線付近の海上で、エアロゾル物質等の垂直分布観測を行った。その結果の一部を図 7 に示す。上空 1,000 m に SO_4^{2-} 、 NO_3^- の相対的な高濃

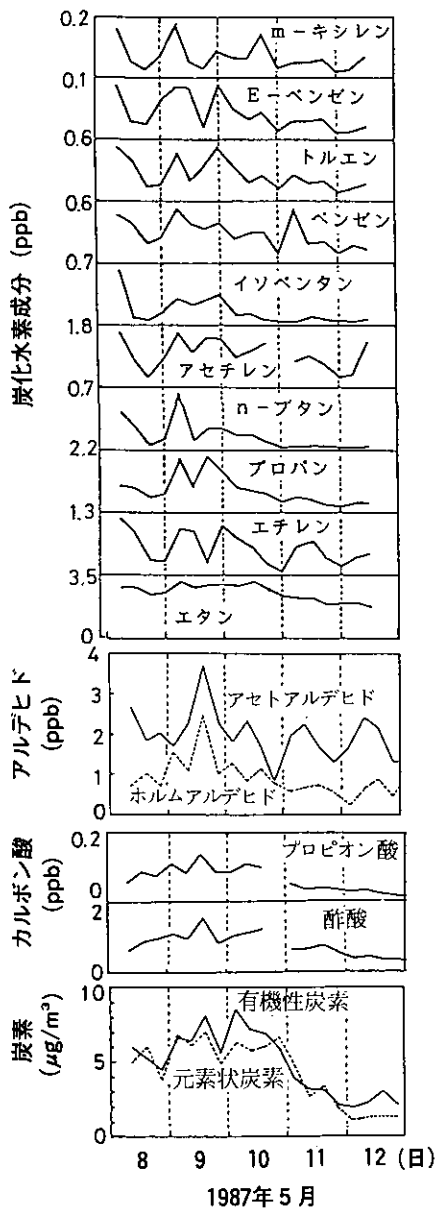


図 6 1987 年 5 月 8～12 日にかけての山口県萩市見島における炭化水素成分、アルデヒド類、カルボン酸類、有機性炭素 (TOC)、元素状炭素 (EC) の時刻変化

度域があり、 SO_4^{2-} と NO_3^- の垂直分布には良い相関関係が認められた。一般に火山性ガスの場合には両者の間には相関は認められないため観測された汚染物質は人為起源のものである可能性が高い。ただし、 SO_4^{2-} 、 NO_3^- ともに首都圏における光化学大気汚染気塊中の濃度と比べると1/3~1/4で、その比率も著しく異なっており SO_4^{2-} の割合が高いことが特徴的である。また1987年5月13日には正午から風が北風変わった直後に雲仙野岳を除く海上の測定点（見島，対馬，福江）で O_3 濃度が急上昇を示した。これらの観測結果は日本海上に大気汚染物質が滞留していることを示唆するものであり、九州地域における大気汚染の出現に重要な役割を果たしているものと思われる。

このように人為起源並びに自然起源により放出された汚染物質は環境大気中において光化学反応を起こし O_3 等の二次汚染物質を生成する。これらが気象条件によっては雲中に取り込まれ降水となって地上に達するため雲水中における各種物質の挙動の解明が極めて重要である。しかし雲の中での観測は困難である。1988年の観測においては初めての試みとして雲水中の過酸化水素濃度の測定を行った。過酸化水素は光化学反応により生成するが、ヘンリー定数が大きく、液相に溶け込みやすい。亜硫酸イオンを硫酸イオンに酸化するため、酸性雨生成の代表的な化学種である。今回の観測においては、航空機にインパクター方式の雲水捕集器を積み込み、上空で雲水の捕集を行いフライト終了後、直ちに過酸化水素の測定を行った。捕集量は数ml~36mlであった。測定値は0.68~2.7 $\mu\text{g/ml}$ (ppm) であり、米国における測定値と同じレベルであった。この値は雲水中での硫酸イオン生成のシミュレーションにとって有用な値となるであろう。

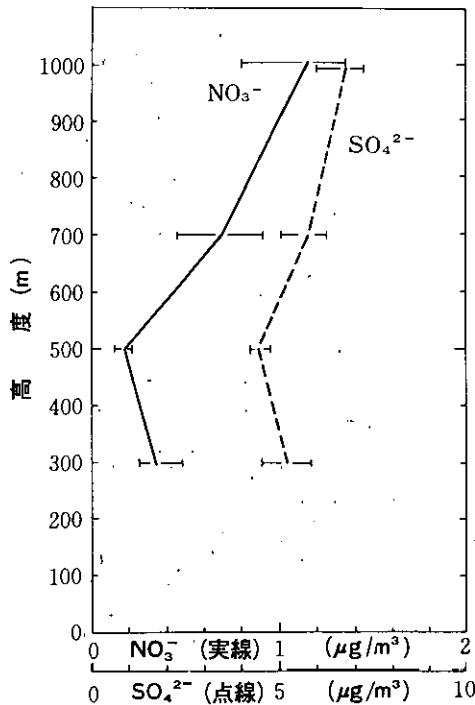


図7 1987年5月8日の午前中に対馬北西部の対馬海峡上において航空機により測定したサルフェートとナイトレートの高濃度分布

(4)まとめ

1986～1988年にかけて九州地域において大規模なフィールド観測を実施し成層圏 O_3 の地上への輸送過程、自然起源の大気汚染物質の挙動、海上を渡る広域大気汚染現象の実態等を解明することができた。今後は以下に示すような研究が必要と思われる。

1) 一次汚染物質、二次汚染物質の生成消滅のメカニズムを大気中、霧水、雲粒、雨水中における濃度を解析することにより明らかにする。

2) 海上における大気汚染物質の物理・化学変化を明らかにし各種の気象パラメータや反応、変換率等をモデルに入力できるような形に整理する。

3) 大気汚染物質の測定を継続的に実施し、各種発生源の指標となるような物質に着目しその寄与率を求める。

4) フィールド観測により得られた結果を基礎に、計算機シミュレーションを行い、海上での高濃度 O_3 の生成機構を陸上でのそれと対比させながら明らかにする。

2.6 バイオテクノロジーによる大気環境指標植物の 開発に関する研究

昭和61年度～平成2年度(1986～1990年度)

〔研究組織〕 生物環境部

◎菅原 淳

生理生化学研究室 ○近藤矩朗・田中 浄・島崎研一郎・榊 剛・佐治 光
久保明弘・青野光子

陸生生物生態研究室 ○古川昭雄・可知直毅・名取俊樹・清水英幸・竹中明夫

技 術 部

生物施設管理室 ○大政謙次・安保文彰・藤沼康実・町田 孝・増田啓子

理工施設管理室 竹下俊二・高木博夫・戸部和夫

客員研究員 32名, 共同研究員 5名

〔研究概要〕

近年、自動車交通の拡大に伴い窒素酸化物(NO_x)汚染はますます深刻になってきており、各地でオゾン(O_3)やパーオキシアセチルナイトレート(PAN)を主成分とした光化学オキシダントによると思われる傷害が植物に発現している。しかし、現在、PAN等についての常時監視体制に相当するものはなく、植物を用いた大気環境評価手法の確立が急務である。そこで、光化学二次汚染物質の可視的植物影響やタンパク質、遺伝子等の分子レベルでの影響の解明を行うとともに、植物組織培養や遺伝子組換え技術等のバイオテクノロジーを利用して野外における光化学二次汚染物質による大気環境の汚染状況を評価するために有効な指標植物の開発・探索手法を確立し、指標植物による野外の大気環境評価法の開発を行うことを目的として研究を進めている。

光化学二次汚染物質に対する植物反応の指標性を明らかにするため、光化学オキシダントが植物に及ぼす影響の作用機作を明らかにし、光化学オキシダント処理によって特異的に変化する植物反応を見だし、汚染物質濃度と植物反応の定量化を目的とした研究を行っている。その結果、 O_3 による傷害が顕在化する前に、植物葉内で葉緑体の脂質の代謝が変化することが明らかになり、その調節機構のほぼ全貌を解明することができた。また、タバコを用いたPAN暴露実験により、PANによる傷害の発現様式や発現部位等が、他の大気汚染物質とは異なっていることが明らかとなった。

これまでに得られた知見に基づき大気環境指標植物を開発するために、組換えDNA技術や組織培養技術等のバイオテクノロジーの技術を導入するとともに、この技術を用いて光化学オキシダントを構成する種々の汚染物質に特異的に反応する指標植物の作成を試みている。これまでに O_3 による傷害発現に関与すると思われる主要な酵素の単離・精製に成功し、抗体の作成、cDNA^{注1)}断片の作成を行ってきた。現在、全長のcDNAの単離を試みている。また、微生物由来の遺伝子の植物細胞導入用のベクター^{注2)}への組み込みを行っている。

一方、指標植物を用いて客観的に大気汚染状況を把握するために、植物に発現した傷害の診断法を開発することを目的として、生育環境下の植物から非破壊で植物の生理情報を得るための画

像計測及び電気計測の手法を開発するための研究を行っている。これまで、植物の光合成機能を画像診断するためのクロロフィル蛍光動画像計測システムの開発を行ってきたが、この研究の一環として、野外植物の遠隔計測のためのレーザースキャンシステムを開発し、蛍光誘導期現象の計測を行った。また、気孔の発達と機能診断のための顕微熱画像計測システムを開発した。野外における大気汚染状況を指標植物を用いて評価するために、光化学オキシダント濃度の高い地域に PAN に感受性の高いペチュニアの一品種タイタンホワイトを配置し、植物の個体差、令による感受性の変化について調査した結果、傷害発現の有無は、植物の令と有意な負の相関を示し、令が進んだ個体ほど感受性が低下することが明らかとなった。この結果は、ペチュニアを用いて PAN 汚染を評価する場合には植物の令を考慮する必要があることを示している。

以上の研究に加え、タバコのリーフディスクにアグロバクテリウムを用いて遺伝子を導入し、植物個体を再生することを確認した。また、植物による PAN の吸収速度の自動計測のための装置を開発した。

〔研究成果〕

本年度の主な成果は研究概要に示したとおりである。昭和 63 年度までに顕著な成果が得られた研究のうち、 O_3 による脂質代謝変化と、 O_3 抵抗性に関する酵素遺伝子の研究について、以下にその内容を報告する。

(1) オゾン処理による葉緑体膜脂質の代謝変化とその生理的意味

すでに報告しているように、 O_3 処理による植物の傷害が顕在化するまでにかかなりの時間を要し、それ以前に様々な酵素活性の変化等が認められる。とりわけ葉緑体膜を形成する糖脂質であるモノガラクト脂質(MGDG)の減少は著しく、同時に中性脂質であるトリグリセリド(TG)が顕著に増加した。これらの脂質の構造解析等の詳細な研究により、TG は MGDG より生成されることが明らかとなった。さらに、放射性同位元素を用いたトレーサー実験や酵素化学的研究等により以下のことが明らかになった(図 1 参照)。

- ① O_3 は葉緑体のガラクトリパーゼを活性化することにより、MGDG を加水分解して脂肪酸を遊離する。
- ② 遊離脂肪酸は Mg^{2+} 存在下で葉緑体の包膜に存在する 2 種類のガラクトシルトランスフェラーゼの一方を阻害し、他方を促進することにより、1,2-ダイアシルグリセロール(1,2-DG)の生成を促進する。
- ③ 遊離脂肪酸はアシル-CoA^(註3) となり、アシルトランスフェラーゼの触媒作用で 1,2-DG と反応して TG を生成する。上記①で生成される遊離脂肪酸は生物にとって有害物質であり、その後続く反応は植物が本来備えている遊離脂肪酸の解毒反応と考えることができる。しかし、葉緑体を構成する糖脂質が減少することは、葉緑体の構造の破壊につながり、いずれは光合成機能障害、可視的傷害に発展するものと考えられる。いずれにせよ、 O_3 によるガラクトリパーゼの活性化による遊離脂肪酸の生成は、 O_3 の毒性発現機構の一つであると思われる。 O_3 によるガラクトリパーゼの活性化の仕組みは明らかでないが、この酵素の活性化を制御したり、酵素タンパク質の生合成を制御することにより O_3 に感受性あるいは耐性の植物を作り出すことも夢ではないと考えられる。

すでに、 O_3 による傷害発現には活性酸素が関与していることを報告している。今回明らかにした脂質代謝変化に活性酸素がどのようにかかわっているかは今後の問題である。

(2) 大腸菌グルタチオンレダクターゼ遺伝子の調製とこの酵素の酵素化学的性質

O_3 による植物の傷害には活性酸素が関与しており、活性酸素代謝系酵素のうちアスコルビン酸

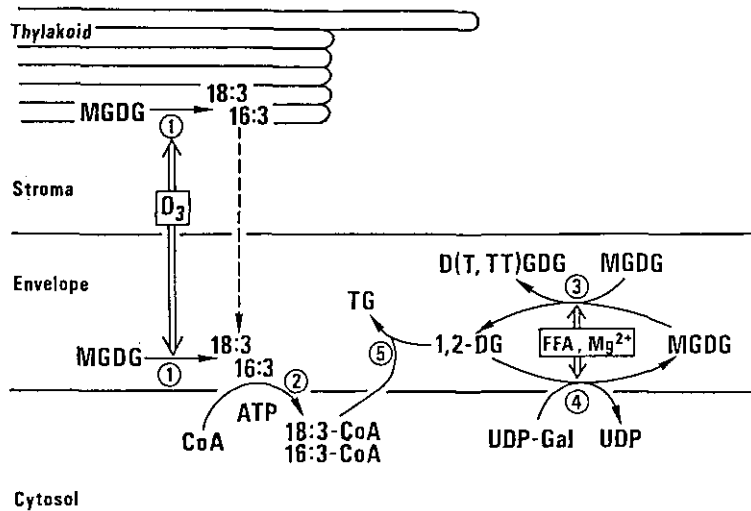


図1 O₃暴露中のホウレンソウ葉におけるモノガラクト脂質からトリグリセリド合成の経路と調節機構

M (D, T, TT) GDG: モノ (ジ, トリ, テトラ) ガラクト脂質, 1,2-DG: 1,2-ジアシルグリセロール, TG: トリアシルグリセロール, UDP-Gal: UDP-ガラクトース, FFA: 遊離脂肪酸, 18:3: α -リノレン酸, 16:3: ヘキサデカトリエン酸, ①ガラクトリパーゼ, ②アシル-CoA シンターゼ, ③ガラクトリピド: ガラクトリピドガラクトシルトランスフェラーゼ, ④UDP-ガラクトース: 1,2-ジアシルグリセロール ガラクトシルトランスフェラーゼ, ⑤ジアシルグリセロール アシルトランスフェラーゼ

ペルオキシダーゼ (AP), グルタチオンレダクターゼ (GR) が O₃ に対する植物の抵抗性において重要であることが示唆された。したがって、これらの酵素活性を人為的に制御することによって O₃ に対して抵抗性の異なる植物を作出することが可能と考えられる。そこで、まず AP, GR をホウレンソウから単離・精製し、抗体を作成した。次いで、これらの抗体を用いてホウレンソウの cDNA ライブラリーをスクリーニングして、これらの酵素の遺伝情報をもつと推測される cDNA の断片をいくつか得ている。

O₃ に対する感受性が高いことで有名なタバコの Bel-W₃ に含まれている数種の酵素活性を調べたところ、他のタバコの品種と比較して AP 活性はほとんど変わらないが、GR 活性が低いことが明らかとなった。そこで、タバコ Bel-W₃ に GR 遺伝子を導入して O₃ に強い Bel-W₃ の作出を計画した。もし、これが作成できれば O₃ に対する抵抗性が異なる Bel-W₃ ができるはずである。すでに、大腸菌の GR 遺伝子がプラスミド^{註4)}上にクローニングされているので、このプラスミド (pGR) を入手した。pGR 上の GR 遺伝子は、植物導入用のプラスミド・ベクターには直接結合できないため、いったん、大腸菌の中でコピー数の多い (大腸菌 1 個当たりのプラスミドの数が多く、結果として GR 遺伝子を多数含むことになる) ベクターにつなぎ変えることにした。これをサブクローニングといい、手順を図 2 に示す。まず、DNA を切断する種々の酵素 (制限酵素) で pGR を切断し、それぞれの酵素が作用する DNA 上の位置を明らかにし (制限地図の作成)、GR 遺伝子を含む DNA 断片を単離した。これをベクター pBluescriptI IKS (+) に組み込み、大腸菌に導入した。こうして得られた大腸菌は、組換え前のもの比べて、約 15 倍の GR 活性を示した。O₃ 抵抗性植物を作るためには、この大腸菌の GR が葉緑体ストロマで働くような性質でなければ

ならない。大腸菌のGRはホウレンソウのGRとは構造がかなり異なっていると考えられる。また、過去に報告された大腸菌GRの性質はホウレンソウのGRと大きく異なっているが、報告は35年も前のものなので、改めてその性質を調べる必要がある。葉緑体内ストロマのpHは高く、したがって、GRは高pHで活性を持たねばならない。図3に大腸菌抽出物のGR活性のpH依存性を示す。以前の報告とは異なり、中性から高pH領域で高い活性を示した。この結果は大腸菌GRは植物の葉緑体中で十分に機能し得ることを示唆している。大腸菌GRに関する従来の報告、

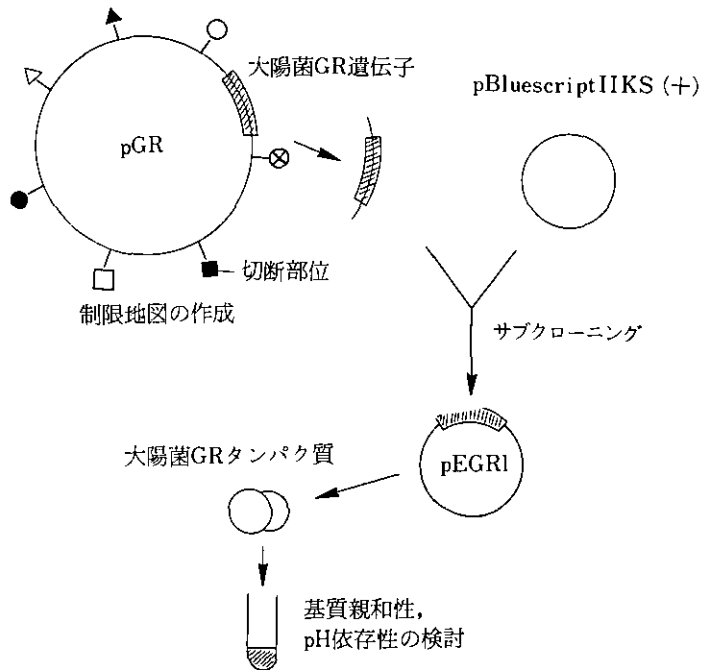


図2 大腸菌グルタチオンレダクターゼ遺伝子の調整の流れ図

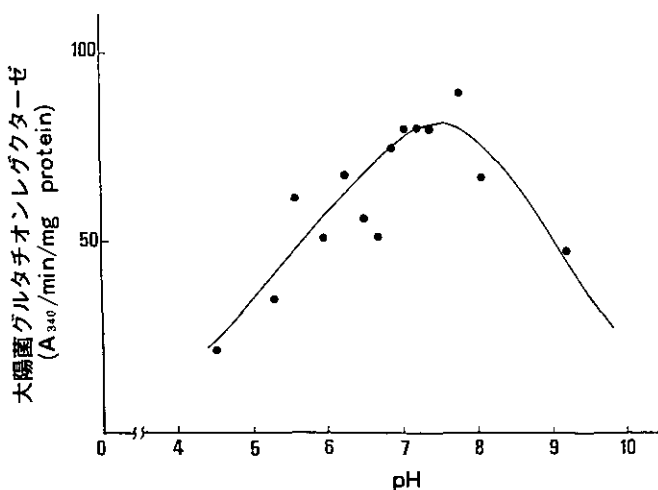


図3 大腸菌グルタチオンレダクターゼのpH依存性

表1 大腸菌とホウレンソウのグルタチオンレダクターゼの酵素化学的性質

	至適 pH	km 値 (mM)		
		GSSG に対する	NADPH に対する	
大腸菌	7.5~8.0	0.37	0.081	本研究
	6.9	1.40	0.037	既報
ホウレンソウ	8.5~9.0	0.20	0.0028	既報

ホウレンソウの GR の性質と、今回の結果を表1で比較した。今回の結果は以前の報告と大きく異なっており、この GR は植物の葉緑体でも働き得ることを示している。

今後に残された課題は、① 植物導入用ベクターにつなぎ変えること、② 植物で酵素を合成できるように GR 遺伝子の5'側の部分（調製した GR 遺伝子には余分な塩基配列が含まれている）を改変する、③ 植物細胞で生成された酵素タンパクが更に葉緑体に移るために必要とするタンパク領域（トランジットペプチド）の遺伝子を GR 遺伝子の前につなく、④ 組換えられた植物が実際に大腸菌の GR を合成しているかどうかを調べるために大腸菌 GR の抗体を作成する、等がある。

注1) cDNA: mRNA (伝令 RNA) を鋳型にして合成した DNA。

注2) ベクター: 組換え DNA 実験において、組換え用の DNA を細胞に運ぶ DNA。

注3) アシル-CoA: 脂肪酸のカルボキシル基と CoA (補酵素 A) の SH 基がチオエステル結合をしたもの。

注4) プラスミド: 染色体とは独立して細胞内に存在する遺伝因子で、通常は小さな環状の2本鎖 DNA。

2.7 富栄養化による内湾生態系への影響評価に関する研究

昭和61年度～平成2年度（1986～1990年度）

〔研究組織〕 水質土壌環境部

◎村岡浩爾

海洋環境研究室

○渡辺正孝・渡辺 信・原島 省・木幡邦男・中村泰男

陸水環境研究室

矢木修身・稲森悠平・内山裕夫

土壌環境研究室

高松武次郎

環境情報部

情報システム室

宮崎忠国

情報調査室

横田達也

計測技術部

分析室

切刀正行・西川雅高

総合解析部

総合評価研究室

安岡善文

技術部

須藤隆一

客員研究員 6名, 共同研究員 3名

〔研究概要〕

内湾海域は産業排水や都市排水などの流入にともない富栄養化が進行し、赤潮発生などの有力な一因となっている。一方内湾海域は生物生産の最も顕著な水域でもあり、諸漁業に活発に利用されており、富栄養化による生物生産の増大という一面もまた否定することはできない。このため生物生産の増大と海洋環境保全の両立にとって望ましい状態とはどのようなものであるか（特に窒素・リン濃度レベル）を明らかにすることが強く求められている。しかし内湾海域は淡水から塩水への急激な遷移領域であり、複雑な海洋環境を形成しており、このため種々の汚濁物質の質的、量的変動とそれに伴う生態系への影響を科学的に明らかにすることはいまだ極めて不十分な状態である。

本特別研究においては、(1)閉鎖性海域における富栄養化がもたらす環境特性の把握に関する研究、(2)制御実験系を用いた富栄養化の影響評価に関する研究、(3)現場メソコスムを用いた内湾生態系の物質循環・動態に関する研究を行い、内湾の環境管理のための基礎となる科学的知見の蓄積を行う。

〔研究成果〕

(1)閉鎖性海域における富栄養化がもたらす環境特性の把握に関する研究

1988年7月20日～8月13日まで、現場メソコスム設置場所である播磨灘家島における化学環境(窒素、リン、ケイ素、炭素、色素、金属類、pH、DO等)、物理環境(水温、塩分、光強度、透明度)、微生物を中心とした生物相(植物プランクトン、動物プランクトン、バクテリアの現存

量と種組成)の現場把握を行った。現場の物理・化学・生物的鉛直構造を調査するために、表層から底層まで鉛直方向に5 mごとに5点でサンプリングした。化学環境・生物相は2日に1度調査し、物理環境は毎日計測を行った。

本年度は、調査海域で調査期間中に *Chattonella antiqua* による赤潮は発生せず、ケイ藻類が卓越した。

(2) 制御実験系を用いた富栄養化の影響評価に関する研究

1) 指標藻類の環境変動に対する応答特性の解析

赤潮生物の多くは冬期海底泥中に休眠胞子(シスト)として存在している。そして赤潮の発生はシストからの発芽によって開始されると考えられている。したがってシストがどのような条件下、いかにして形成-休眠-発芽を行っているのかを明らかにすることは赤潮の発生機構を解明する上で極めて重要であると思われる。本年度は *Chattonella antiqua* のシストを実験室培養系で形成させることに初めて成功し、これによって以下の点を明らかにした。

- ① 窒素(N)ないしはリン(P)欠乏条件下で本種のシストは形成される。形成率は2~10%である。
- ② *C. antiqua* は、NないしP欠乏条件にさらされると非常に小さな細胞(≒ 30 μm)を形成する。これが配偶子(gamete)として作用し、配偶子の融合を経て、シストが形成される。
- ③ こうして形成されたシストは10°C暗所で5か月間保存したのち、22°Cにもどすと発芽を行って通常の栄養細胞を水中に放出する。

海水マイクロコスム内に赤潮発生現場で特徴的に見られる水温・塩分・栄養塩の成層条件を形成し、*C. antiqua* の日周鉛直移動を行わせつつ夜間での底層における栄養塩摂取の実験を行った。まず、リン濃度を表層でゼロ、底層に多くという成層構造を作成し、リン欠乏状態で培養した *C. antiqua* を導入後日周鉛直移動実験を行った。*C. antiqua* は夜間底層で摂取したリンを無機リン酸のままで生体内に蓄積し、昼間表層において光リン酸反応に用いていることが判明した。また、窒素による成層構造を作成し、窒素欠乏状態で培養した *C. antiqua* を導入後日周鉛直移動実験を行った。この結果 *C. antiqua* は夜間底層で窒素を摂取し得ることが判明した。リンもしくは窒素成層条件下のいずれの実験においても、夜間底層でのリン及び窒素摂取は同調していることも明らかになった。

H. akashiwo のリン欠乏状態からリン添加実験を行い、リン摂取に伴う微量金属類の生体内摂取を放射化分析により行った。この結果ポリリン酸形成と生体内マンガン量の間に関係がみられることが判明した。

2) 指標動・植物プランクトン及びバクテリアの相互作用に関する研究

赤潮藻類 *Chattonella antiqua* と播磨灘で採集した数種のケイ藻(*Chaetoceros* sp., *Amphiprora* sp. 他)との混合培養を行い、種間競争を解析した。播磨灘に存在したケイ藻のうち、*Chaetoceros* sp. と *Nitzschia* sp. に *C. antiqua* への増殖阻害がみられ、接種後3~4日後に *C. antiqua* 細胞濃度は著しく減少した。高pHでの *C. antiqua* の増殖を検討した結果、9.2 pH以下では良好な増殖が得られ、9.2 pH付近では変形した細胞が見られるもののわずかに増殖した。それ以上のpHではほとんどの細胞が変形した後、徐々に細胞濃度が減少した。一方、ケイ藻の *Nitzschia* sp. は、9.5 pH以上でも良好な増殖を示した。*C. antiqua* が高濃度に増殖あるいは集積すると、

その光合成により海水の pH が上がる。約 9.2 pH に上がると *C. antiqua* の増殖が止まるが、この時、同時に *Nitzschia* sp. が存在すると *C. antiqua* の細胞濃度が著しく減少することが明らかとなった。このように増殖阻害性に著しい pH 依存性があることから、阻害物質としてある種の脂肪酸の可能性が示唆された。赤潮発生海域では表層に *C. antiqua* が集積すると pH=9.2 程度に上がる。今回実験した阻害性は、赤潮発生海域での急激な *C. antiqua* の消滅を説明するものであろう。

3) 富栄養化の赤潮発生に及ぼす影響評価

1986, 1987 年と同様に、本年度も夏季、瀬戸内海家島諸島において環境調査を実施した(7月16日~8月13日)。*C. antiqua* 赤潮が大発生した '87 年と異なり、'88 年は、ケイ藻が卓越しペン毛藻による赤潮は発生しなかった。'87 年の調査結果と比較して以下の点が明らかとなった。

① 調査期間を通じて 0~10 m 層の水温・塩分は *C. antiqua* 増殖の至適範囲にあったが、本種の赤潮は発生しなかった。

② 窒素、リン栄養塩濃度は表層で低く、下層で高いという '87 年と同様のパターンを示したが、栄養塩の躍層は '87 年に比べ深い位置 (10~15 m) に存在していた。特に底層 (21 m) 水温が 22°C (= *C. antiqua* のシストの発芽が最も活発となる温度) に達した 8 月 4 日以降、栄養塩の躍層は 15 m 深度にまで下降した。

③ *C. antiqua* の増殖速度のリン酸イオン (PO_4^{3-}) 無機窒素 (DIN: NH_4^+ , NO_3^-) 濃度依存性に基づき、無次元パラメータ GP を導きだした。GP は現場海水がどの程度の速さで *C. antiqua* を増殖させるかを示す一種の増殖ポテンシャルである。GP の分布 (PO_4^{3-} , NH_4^+ , NO_3^- 濃度から計算) を '87 年と '88 年で比較すると、'87 年は GP の高い (≥ 0.6) 海水が 10 m 以深に存在しているのに対し、'88 年は主として 15 m 以深にしか存在していなかった(特に 8 月 4 日以降)。*C. antiqua* の生息深度は 0~15 m であるので、'88 年には本種は高 GP の海水に“触れる”ことができずに個体群を拡大しえなかったと考えられた。

④ ビタミン B_{12} 濃度は '87 年と同様に *C. antiqua* 増殖の至適範囲 (2~5 ng/l) にあった。

⑤ 現場表層海水中の“溶存” (0.8 μm 通過) 鉄濃度は 0.4 ppb 以下であった。一方、この 0.8 μm 通過海水に N, P, B_{12} を至適量添加して *C. antiqua* をうえ継ぎ、培養を行ったところ 0.3~0.4/d の増殖速度が得られた。さらにこの海水に N, P, B_{12} のほか 100 nM (~6 ppb) の無機鉄を添加して培養を行ったところ 0.7/d の増殖速度が得られた。このことから '88 年の家島表層海水では N, P のみならず鉄も不十分な量しか存在していなかったと考えられた。

(3) 現場メソコスムを用いた内湾生態系の物質循環・動態に関する研究

現場メソコスムは実験海域に存在する生態系をそのまま捕獲してその属性やかく乱の影響を調べるもので、もっとも自然に近い状態において富栄養化の影響評価を行うものと位置づけられる。貧栄養海域である播磨灘家島において生態系を長期間維持するための海洋メソコスム (図 1: 直径 5 m, 深さ 18 m, 底泥も含め、流入・流出を持つ半開放系) を設置した。海底に底部を固定しダイバーにより底部を完全に埋め込んだ後、シート部を静かに引き上げ生態系を捕獲する方法をとった。測定項目は水温、塩分、照度、透明度、DO、栄養塩類 (リン・窒素・ケイ素)、微量元素、植物プランクトン、動物プランクトン、バクテリアの現存量と種組成で、メソコスム内・外の鉛直 5 点計測を行った。外部 5 m 層から取水し、ミリポアフィルター (5 μm と 2 μm) による過剰メソコスム内 1 m 層に放水する流入系を設置した。

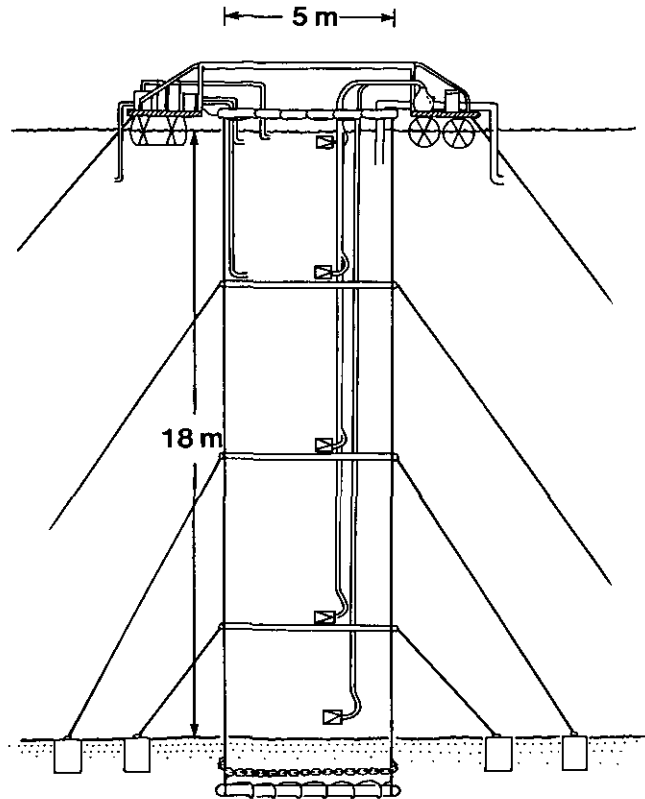


図1 メソコスムの概略図

1) 1987年実験の解析結果

実験期間は1987年7月20日～8月13日の25日間であった。深度7mに設置したパイプより取水し、ポンプ揚水を行って表層1mで放流する循環系により鉛直混合を行った。外部5m層からの流入量は平均 $5\text{ m}^3/\text{d}$ であった。生態系を捕獲後7日間そのままの状態を維持し、8日目の朝、窒素・リンを添加し人為的富栄養化実験を開始した。添加量は0～5m層が均一に混合しているとして、その層内の濃度がそれぞれ $3.0\ \mu\text{M}(\text{NO}_3\text{-N})$ 、 $0.2\ \mu\text{M}(\text{PO}_4\text{-P})$ となるよう17日間毎日添加を行った。それと同時にメソコスム内の閉鎖性を増加するため外部との海水交換を約半分とした。

調査中に得られたクロロフィル *a* (Chl *a*) 量の変動を図2に示す。Chl *a* 量は、栄養塩添加後、各層で速やかに増大した。HPLC分析で得られたカロチノイド量から推定した各植物プランクトン網別のChl *a* に対する寄与を多変量解析で求めた(図2)。この解析では、調査期間中各層について、カロチノイドとChl *a* の比は一定であったものと仮定した。また、peridininに対応するものを渦ベン毛藻、*fucoxanthin*, *violaxanthin*に対応するものをラフィド藻、*19'-hexanoyloxyfucoxanthin*に対応するものをハプト藻、*fucoxanthin*, *diadinoxanthin*に対応するものをケイ藻とした。解析の結果、残差として求められたものは、ここで考慮に入れなかった藻類(例えばラン藻)による寄与と思われる。カロチノイド量から推定したChl *a* 量と実測のChl *a* 量とが調査期間中、全層のデータで良く一致していることから、この期間で、カロチノイドとChl *a* の比に大きな変化のなかったことが推察される。検鏡の結果、藻類47種、渦ベン毛藻20種、ラフィド藻3種と、

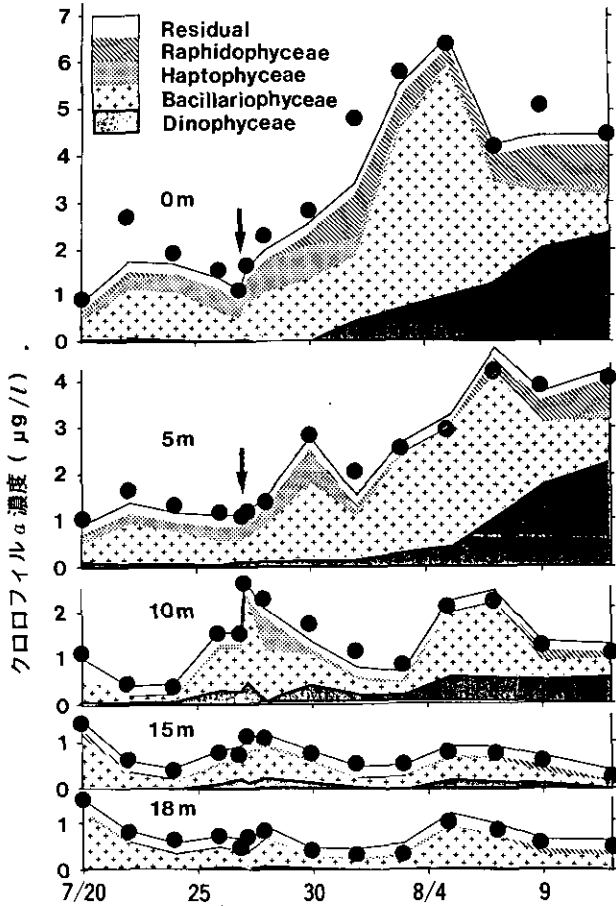


図2 メソコスム内各層でのクロロフィル *a* の実測値(●)と、多変量解析による各網の寄与の推定(1987年)
 回帰式は下式(1)(2)を用いた。

$$\text{クロロフィル } a = a_0 + a_1 [\text{violax}] + a_2 [\text{perid}] + a_3 [\text{fucox}] + a_4 [19'\text{-hex, fucox}] \quad (1)$$

$$\text{クロロフィル } a = b_0 + b_1 [\text{violax}] + b_2 [\text{perid}] + b_3 [\text{diadinox}] + b_4 [19'\text{-hex, fucox}] \quad (2)$$

ほかに未同定のペン鞭毛藻数種が見いだされた。これらのうち出現の多かった種について、その表層での変動を図3に示す。

栄養塩添加後、メソコスム内の特に表層でケイ藻の速やかな増殖が見られた(図2, 3)。表層では8月5日、5m層では8月7日にケイ藻の量は最大になるが、その後急速に減少した。この時期に0~5m層でケイ酸濃度が約10~2 µM以下まで急速に減少(図4)しており、ケイ素がケイ藻の増殖を制限したと思われる。しかし、リン酸、硝酸濃度は実験期間中大きな変動はなく、それぞれ0.2~0.35 µM、5~10 µM程度(図4)であった。このため、実験の後半ではケイ藻から渦鞭毛藻やラフィド藻への遷移が観測された。また、ケイ藻類の沈降効果も大きく、ケイ藻類のピークが時間とともに底層部へと移動していることが図2より判明した。

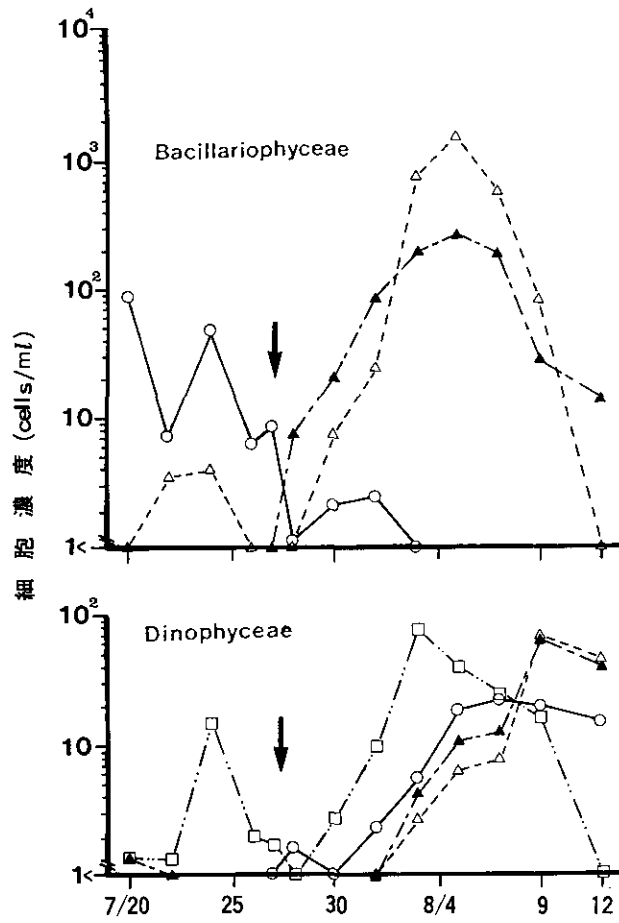


図3 メソコスム内表層での代表的植物プランクトンの変動 (1987年)

Bacillariophyceae

○—○ *Dactyliosolen mediterraneus*

▲-●-▲ *Nitzschia closterium*

△-.....△ *Nitzschia spp.*

Dinophyceae

○—○ *Peridinium spp.*

▲-●-▲ *Prorocentrum triestinum*

△-.....△ *Scrippsiella trochoideum*

□-→-□ *Protoperdinium bipes*

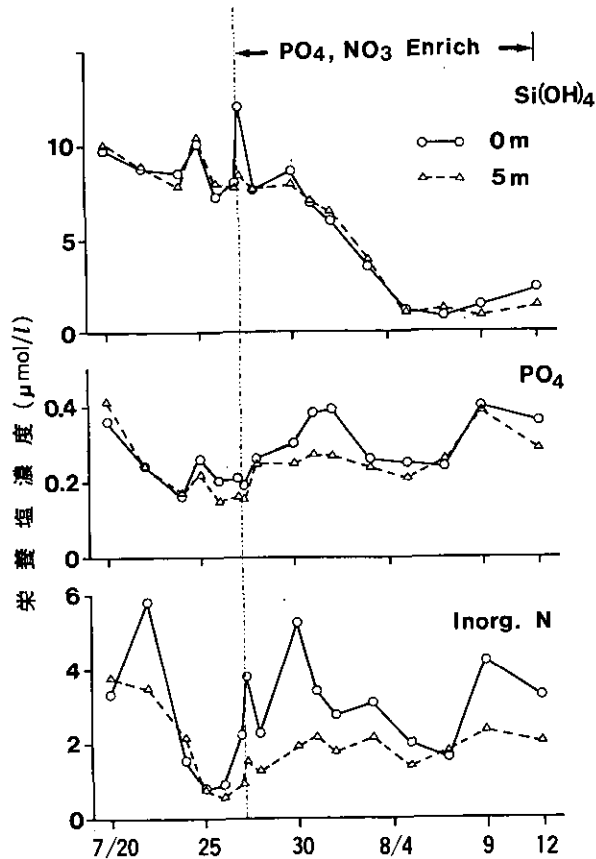


図4 メソコスムの内の栄養塩変化 (1987年)

2) 1988年実験結果

従来の実験では水深5m層からポンプ揚水した海水を、0m層にジェット噴流する方法を用いていた。本年度はさらに改良を加え、表層0mでポンプ揚水した海水を円筒(長さ5m, 直径0.2m)内で水深0.5mに設置したノズルより上方に向けジェット噴流を行った。この上方ジェット噴流による連行流が発生し、水深5m層の海水が円筒内をゆっくりと湧昇することが確認できた。これにより表層0~5m間にゆっくりとした鉛直循環流を形成させることができた。この方法はケイ藻のような遊泳力を持たない藻類を浮上・維持することができるのみならず、ポンプによる藻類の破壊を最小にすることができる。

実験は1988年7月20日~8月11日で、生態系を捕獲後5日間そのままの状態を維持し、6日目(7月25日)に窒素・リンを添加し人為的富栄養化実験を開始した。添加した窒素・リン量は前年度と同様である。

メソコスム内の藻類各網の現存量の変化を図5に示す。生態系捕獲時にはケイ藻が優占種であった。7月25日に栄養塩添加後ケイ藻類(特に *Nitzschia*)が急激に増加し、それとともにケイ素濃度が減少し、ケイ素 $2.5 \mu\text{M}$ 以下となった時点(8月1日)でケイ藻の現存量が急激に減少した。その後も栄養塩添加を続けたが、メソコスム側壁に緑藻の一種である *Enteromorpha* が多量付着し栄養塩摂取を行ったため、渦ベン毛藻類への遷移は見られなかった。フィルターを通して

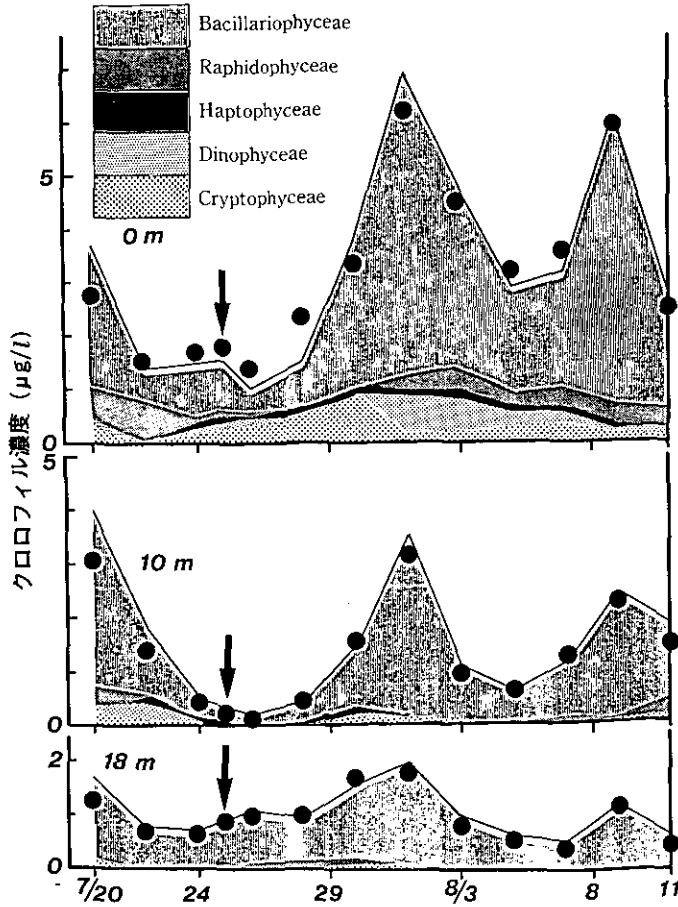


図5 メソコスム内の藻類組成の変遷 (1988年)

のケイ素供給に伴い、再度ケイ藻類(優占種 *Rhizosolenia*)が増加し、8月7日を最大としてその後減少した。

本実験によりメソコスム内にケイ藻等の遊泳力を持たない藻類を有光層内に維持するための鉛直循環を与え、半開放系として連続的にろ過海水を流入させることにより、現場生態系を安定に維持することが可能となった。さらに、それら環境因子と人為的富栄養化の度合との組み合わせにより、メソコスム内の藻類組成の変遷が支配されていることが示唆された。今後はこの安定生態系に対し富栄養化物質(N, P)の添加によるかく乱実験の蓄積を行い、富栄養化による生態系応答の法則性を物質循環の経路、量と速度、種組成の遷移等について明らかにする必要がある。

2.8 先端技術における化学環境の解明に関する研究

昭和 62 年度～平成 3 年度 (1987～1991 年度)

〔研究組織〕 計測技術部

◎松下秀鶴

生体化学計測研究室 ○森田昌敏・安原昭夫・岡本研作・植弘崇嗣・柴田康行

大気計測研究室 安部喜也・構内陽子・向井人史

水質計測研究室 大槻 晃・河合崇欣・古田直紀・白石寛明・野尻幸宏

底質土壌計測研究室 相馬光之・相馬悠子・瀬山春彦・田中 敦

分析室 溝口次夫・伊藤裕康・功刀正行

環境情報部

後藤典弘

情報システム室 春山眺美

総合解析部

環境管理研究室 甲斐沼美紀子

資源循環研究室 ○中杉修身・乙間末広

大気環境部

大気化学研究室 鷺田伸明・畠山史郎・井上 元

水質土壌環境部

陸水環境研究室 矢木修身・内山裕夫

環境生理部

環境病理研究室 白石不二雄・米元純三

環境生化学研究室 三浦 卓・国本 学・高橋勇二

環境保健部

環境保健研究室 安藤 満・松本 理

環境疫学研究室 平野靖史郎・田村憲治

人類生態研究室 鈴木和夫・遠山千春

生物環境部

水生生物生態研究室 安野正之・畠山成久・宮下 衛

技 術 部

動物施設管理室 高橋 弘・高橋慎司・伊藤勇三

客員研究員 10 名, 共同研究員 2 名

〔研究概要〕

世界中で報告されている化学物質は 930 万種類を越え、産業的に生産されている数は 5 万種類を越えると言われている。このような化学物質は、その有益性の半面、人の健康や生態系に悪影響を及ぼす可能性を持つものもある。化学物質の安全性については職場での衛生、あるいは流通、取り扱い上の危険防止などの面で注意が払われてきているが、化学物質の使用あるいは使用後の廃棄の過程や環境において変化して、間接的に環境を汚染し、結果として影響を与えるという問

題についてはまだ解明されるに至っていない。

科学技術の進歩と環境問題は密接な関連がある。近年の状況を見ると半導体産業、新素材産業、バイオテクノロジー等の先端技術が急速に進展しており、新たな技術革新は一方で環境汚染防止技術の発展を促し、また一方では新たな環境負荷をもたらす可能性を有している。先端技術産業で使用されるいろいろな化学物質による汚染もその一つであり、生産から廃棄に至るまで化学物質の管理と汚染の未然防止は重要な課題と考えられる。

このような背景を踏まえ、本研究では化学物質の分離・分析あるいはその生物毒性検定のための新技術の開発、化学物質の性状や挙動の予測、さらには環境汚染の防止手法等に関する研究を行い、化学環境の解明のための科学的知見の蓄積を行う。以下の5つのサブテーマにより構成し、研究を行った。

(1) 環境中の化学物質の分離・分析手法に関する研究

先端的分析技術の開発あるいは導入により、従来の計測技術では困難であった化学物質の計測を可能とする。特に高性能のガスクロマトグラフ質量分析法を用いた定性定量法、プラズマ発光法を検出法とするクロマトグラフ法、プラズマをイオン化源とする質量分析法等について分析技術の確立を行う。

(2) バイオセンサーの開発に関する研究

毒性についての一次スクリーニングを行う手法として、生物あるいは細胞の化学物質に対する反応によってその毒性を評価する簡易な手法の開発を行う。また、損傷DNAの検出手法やリセプターを利用したバイオセンサーの開発を検討する。

(3) 化学物質の環境中における変化と移行過程に関する研究

化学環境の評価には化学物質の環境中での挙動を知ることが必要であり、そのための基礎情報となる化学物質の環境中での化学反応、化学物質の各媒体間（大気—水—土壌—生物）の移動について研究する。また環境中から検出された化学物質の起源や経路を明らかにする手法、さらにはフィールドを設定しての精密なデータの集積を通じて、全体的な化学物質循環のモデルの検討と設計を行う。

(4) 化学物質による環境汚染を防止するための方法論に関する研究

化学物質の環境汚染防止の方策の基本的考え方を整理するとともに、そのために必要となる具体的な手法の開発を行う。また研究に必要な大型の情報データベースを整備する。

(5) 先端技術産業用化学物質及び非意図的生成化学物質に対する上記4手法の応用に関する研究

化学物質の例として、半導体産業についてはトリクロロエチレン、テトラクロロエチレンやアルシン等の不安定水素化合物、新素材産業については有機フッ素化合物や希土元素類、また非意図的生成化学物質として塩化ダイオキシンやフラン等の塩素化芳香族化合物について、上記4手法を適用して検討を行う。

〔研究成果〕

(1) 環境中の化学物質の分離分析手法の開発

1) 高分解能 GC-MS を用いた化学物質の高感度高精度分析法

フューズドシリカキャピラリカラムを用いたガスクロマトグラフと高分解能質量分析計を用いた Selected Ion Monitoring 法により、2,3,7,8-TCDD の最小検出量 50fg (10^{-15} g) が達成された。これにより大気粉じん中の極微量の塩化ダイオキシン、フラン類の異性体別分析が可能となった。図1に示した結果は、大気粉じん中の塩化ダイオキシン類、フラン類の年間変動であり、冬に高く夏に低いという傾向が示されている。また異性体別分析の結果から、2,3,7,8-TCDD 以外の塩化ダイオキシン、フラン類の毒性への寄与を評価することが可能となった。

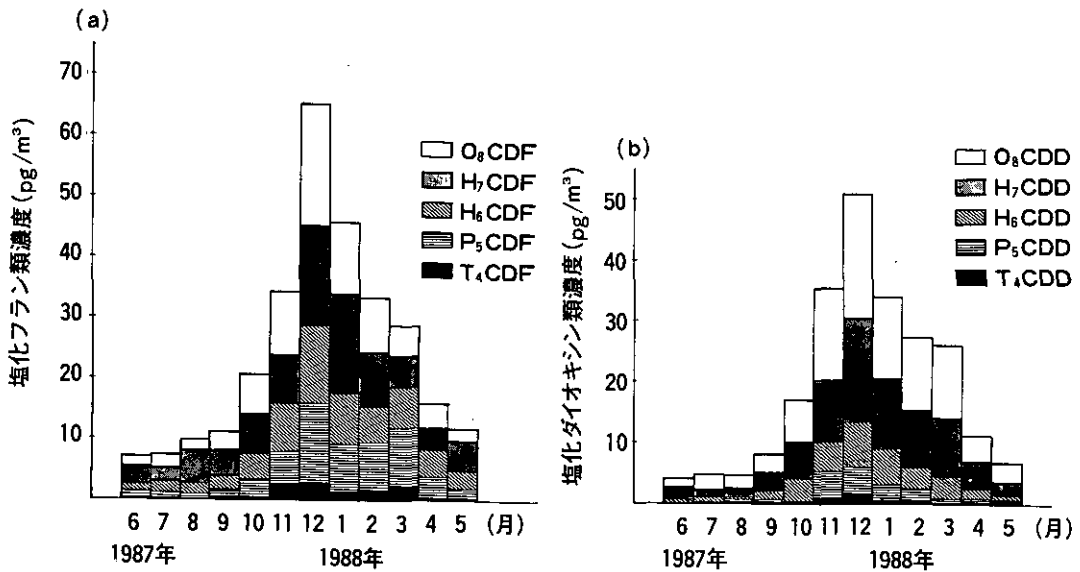


図1 大気粉じん中の(a)塩化フラン類及び(b)塩化ダイオキシン類の年間変動

2) ICP 質量分析法を用いた極微量元素の高感度分析法

超電導材料として注目をあびている希土類元素及び触媒として用いられる貴金属元素等の極微量元素の高感度分析を ICP 質量分析を用いて検討した。大気粉じん中の白金元素の分析法として、ハイボリウムサンプラーを用いて採取した試料を HF/王水で溶解し、in-line にイオン交換樹脂を組み込んだフローインジェクション法によりハフニウムの妨害を除去し ICP-MS に導入する手法を確立した。国立公害研究所屋上でのサンプリング試料により 0.052~0.299 mg/kg 粉じんの濃度で検出された(表1, 図2)。

この濃度は地殻組成 (0.005 mg/kg) の 10~60 倍に相当しており、排出源として自動車の排ガス用触媒が推定される。

3) 大気中のハロカーボン類の連続自動モニタリング手法の開発

大気中のハロカーボン類は通常放射線源を利用した電子捕獲検出器 ($\text{Ni}^{63}\text{-ECD}$) を検出法とするガスクロマトグラフにより測定される。しかしながら、放射線源を利用するため無人運転は不可能であり、代替の選択的検出法を用いた分析法を必要とした。ここでは、 H_2 還元-電導度検出法

表1 冬期における大気中の白金濃度

年 月	mg-Pt/kg-aerosol	pg-Pt/m ³
83-10	0.184	8.6
83-11	0.173	13.4
83-12	0.154	21.7
84-10	0.299	7.0
84-11	0.164	14.7
84-12	0.225	20.0
85- 9	0.140	4.4
85-10	0.052	4.6
86-10	0.154	15.5
86-12	0.120	8.8
87- 1	0.173	6.1
87-12	0.095	13.7

自動車排出粒子 NIES No. 8	0.177	

を用いたガスクロマトグラフ法を用い、前段に自動サンプリング-濃縮装置を組み込んで大気中のハロカーボン濃度を70分間隔で測定することを可能とした。本法は、有機ハロゲン化合物にのみ感応し、その検出下限はおおむね0.1ppbであり、かつ1か月以上の連続無人運転が可能である。なお前年度に報告した自動サンプリング-キャピラリカラムガスクロマトグラフ-水素炎イオン化検出法は、キャピラリカラムとアルミナプロットカラムを用いることにより、より低沸点のハロゲン化炭化水素の自動分析を可能とすることが明らかとなった。

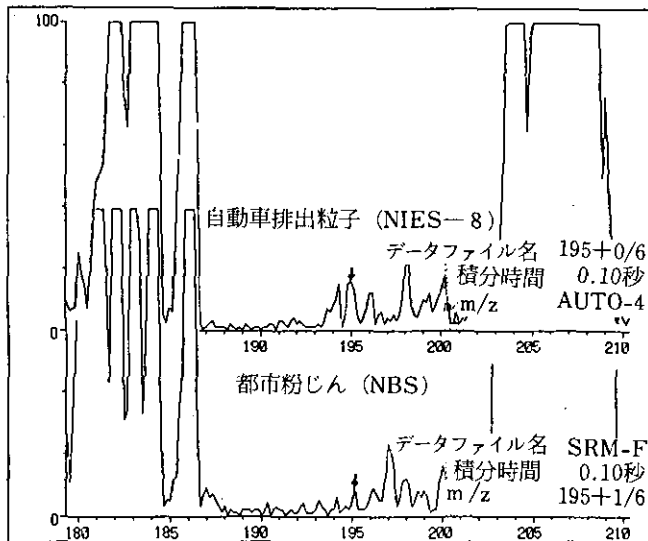


図2 Pt 付近のマスペクトル

(2) バイオセンサーの開発に関する研究

1) ウズラ胚を用いた毒性の高感度検出手法

一般的に胚は化学物質の毒性に対して感受性が高い。鶏胚がしばしば利用されてきたが、鶏胚に比較して1/5の重量をもつウズラ胚を利用することにより、より少量の物質でも毒性を検知しうる手法を確立した。本法をモノクロロジベンゾフランの毒性検定に応用した。

2) Ames テストを用いた変異原性試験法の検討

一塩化ジベンゾフランの4異性体の中で、最も強い変異原性を示した3-クロロジベンゾフラン(3-CDF)の変異原性の代謝活性化について検討した。この代謝活性化はメチルコランスレン型の誘導剤である β -ナフトフラボンを前投与したラットのS9について活性化能が最も高い結果を与えたが、非誘導系の酵素によっても、また肝細胞成分のうち、ミクロソーム画分以外にも核画分上清画分によっても活性化を受け、複数の代謝活性化過程をもつことを示していると考えられる。なお、3-CDFを150 mg/kg 経口投与したラットの24時間尿からS9非存在下で変異原性を示す物質が検出された。

3) ミクロソーム酵素活性を指標とする特異的検出方法の検討

先端産業のポリマー合成開始剤である合成有機過酸化物(ベンゾイルペルオキシド、メチルエチルケトンペルオキシド)について特異的検出の可能性をグルタチオン-S-トランスフェラーゼ、グルタチオンペルオキシターゼ、チトクローム b_5 、NADH-チトクローム b_5 レダクターゼ、NADPH-チトクロームP450レダクターゼ、NADPH-ペルオキシダーゼ活性に対する阻害について検討した。NADPH-ペルオキシダーゼのみが阻害を受け、メチルエチルケトンペルオキシドがベンゾイルペルオキシドの10倍近い強さの阻害を示した。

4) 水生生物を用いた毒性検出法

従来ミジンコ(*Daphnia magna*)、グッピーを用いた手法を用いていたが、今回淡水貝(*Physa acuta*)も試験に用いた。対象化学物質として有機スズ化合物6種を用いた。その結果、①二置換体より三置換体の有機スズ化合物の毒性が高い。②*Daphnia magna*に対してはトリブチルスズの毒性が最も高く、その LC_{50} は、17ppb(48h)、5.5ppb(96h)であった。③*Physa acuta*に対してはトリフェニルスズが最も高く8.4ppb(48h)、<6.6ppb(96h)である。④ LC_{50} 値は時間とともに小さくなる。このことは慢性影響を考慮すると自然界では、はるかに低い濃度で影響を与える可能性を示していることが明らかとなった。

(3) 化学物質の環境における変化と移行過程の解明

1) 化学物質の環境挙動モデルの開発

環境へ侵入した化学物質は、大気、水、土壌などのコンパートメントに分配され、それらの中、あるいは間を移動しながら、様々な反応によって分解されていく。フロン-11、-12をはじめとして、環境へ侵入した揮発性ハロゲン化合物は、大気中に大部分が分配され、環境中での分解反応はOHラジカルとの反応が多くの場合相対的に速い。次の図3に示すようにバックグラウンド大気濃度(ppb)が酸化分解半減期と関連していることが明らかとなった。

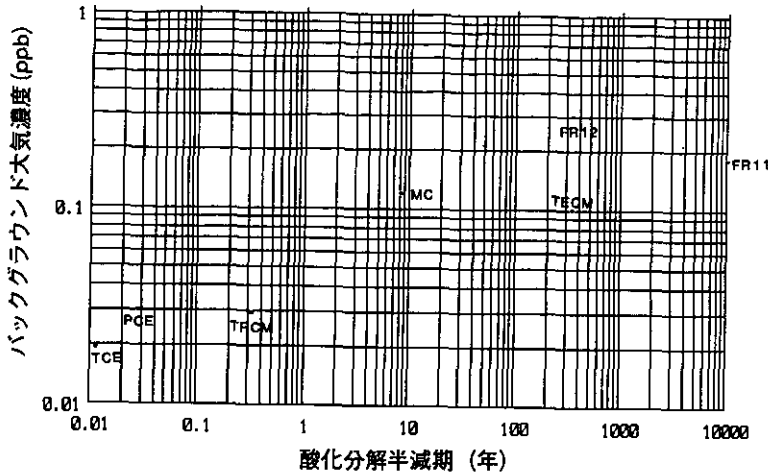


図3 フロン類等の酸化分解半減期

(4) 化学物質による環境汚染を防止するための方法論に関する研究

1) 化学物質研究のための情報システム開発に関する基礎的研究

約1万5千種の市販化学物質について、分子式、分子量、沸点、融点、屈折率等の物性、またその一部の物質についての毒性及び環境データのファイルを作製した。これらのファイルをもとに適当な情報システムのあり方について検討を行った。

2) 化学物質同定のための検索手法の開発とデータベースシステムの設計に関する研究

有毒な化学物質を的確に同定するための支援システムとしてマススペクトルデータベースの構築を進めており、新しく合成された試薬類の中から約100種類について新しいレファレンスペクトルの作成を行った。また3種類の標品を用いて、8機関の参加を得て各機関のGC-MSで測定を行い、NIES-MSLS法により検索を行った。その結果、四重極型質量分析計で測定されたマススペクトルも、検索条件のプリサーチを厳しくしなければNIES-MSLSシステムで十分検索が可能であることが明らかとなった。

(5) 先端技術産業用化学物質及び非意図的生成化学物質に対する上記4手法の応用に関する研究

1) 半導体関連化学物質の大気中での反応と寿命に関する研究

CVDを用いた半導体素子製造プロセスに用いるシラン、ゲルマン、アンモニア、ホスフィン、アルシン等の有毒ガスが大気中でどの程度の寿命をもつかを明らかとする目的で、OHラジカルとの反応速度を測定した。これを用いて都市大気中でOH濃度の最も高い値 10^7molec/cm^3 から計算される最も短寿命の条件下での寿命を表2に示す。

2) トリクロロエチレン、テトラクロロエチレン等の有機塩素系溶剤類の環境残留に関する研究

日本の火山灰土壌の主要成分である粘土鉱物アロフェン上で吸着した有機塩素化合物がどのような反応を起こすかを調べた。あらかじめ含水率を調整した粘土鉱物をバイアル瓶に入れ光遮へ

表2 各種水素化合物の反応速度 ($10^{-12}\text{cm}^3/\text{molec s}$ 及び大気中での寿命)

CH ₄	0.0073 (160 日)	C ₂ H ₆	0.29 (4 日)	NH ₃	0.16 (7 日)
SiH ₄	0.22 (5 日)	Si ₂ H ₆	48. (0.6 時間)	PH ₃	110 (15 分)
GeH ₄	45. (0.6 時間)	Ge ₂ H ₆	n.a.	AsH ₃	160 (10 分)

いして5～7日間室温放置後分析した。

1,1,2-トリクロロエタン, 1,1,1,2-テトラクロロエタンは不均化反応をおこし, テトラクロロエタンではトリクロロエチレンが生成しているのが見られた。非生物的な分解反応が環境土壤中で起こりうることを見いだした訳であり非常に興味深い。トリクロロエチレンは反応を起こしていなかった。

3) トリクロロエチレン及びテトラクロロエチレン熱分解生成物に関する研究

電気炉で加熱した石英管にトリクロロエチレンあるいはテトラクロロエチレンを含んだ空気を通し, 出てきたガスをインピンジャー中に捕集し, 生成物をGC-MSで同定, 定量した。電気炉に温度をかけない場合は, 出発原料のみが回収された。800°Cでは出発原料がトリクロロエチレンでもテトラクロロエチレンでも同様な生成物を示し, クロロホルム, 1,1,2,2-テトラクロロエタン等が生成するとともに発ガン性をもつビス(クロロメチル)エーテルが検出された。400°Cではトリクロロエチレンから多量のテトラクロロエチレンが生成すると共に, 特定化学物質であるヘキサクロロベンゼンの生成が見いだされた。

2.9 環境容量から見た水域の機能評価と新管理手法に関する研究

昭和62年度～平成3年度（1987～1991年度）

〔研究組織〕 水質土壌環境部

◎村岡浩爾

水質環境計画研究室 ○海老瀬潜一・平田健正・大坪國順・○福島武彦・井上隆信

陸水環境研究室 矢木修身・○稲森悠平・内山裕夫・細見正明・稲葉一穂・富岡典子・岩崎一弘

海洋環境研究室 渡辺 信

臨湖実験施設 ○相崎守弘

環境情報部

情報システム室 大井 紘・須賀伸介

情報調査室 宇都宮陽二郎

総合解析部

内藤正明

環境管理研究室 ○原沢英夫

地域計画研究室 青木陽二・森 保文

資源循環研究室 中杉修身・天野耕二

環境経済研究室 青柳みどり

計測技術部

水質計測研究室 大槻 晃・○河合崇欣・白石寛明・野尻幸宏

大気計測研究室 安部喜也

底質土壌計測研究室 相馬悠子

分析室 西川雅高

生物環境部

水生生物生態研究室 春日清一・高村典子

生物環境管理研究室 野原精一・上野隆平

技 術 部

須藤隆一

理工施設管理室 松重一夫

客員研究員 31名， 共同研究員 5名

〔研究概要〕

湖沼では水質汚濁や富栄養化が進行しており、従来からの「水質汚濁防止法」に加えて、昭和59年「湖沼水質保全特別措置法」が制定され、昭和60年には湖沼に係る窒素・リンの排水規制が施行された。このように湖沼の水質保全施策が推進されてきているが、生活環境項目に係る環境基準の達成は昭和62年度で43.1%と依然として河川や海域に比べて低く、まだ水質改善が十分とはいえない状況下にある。このような状況に対処するためには、従来からの汚濁物質排出削減

の方策に加えて、水域のもつ機能を潜在的な面も含めて正確に把握した上で、水利用や水質管理を考えねばならない。湖沼における生活用水・工業用水・農業用水や、水産・レクリエーションといった水利用形態の複合化や水ガメ化に対して、適正利用の考え方を示す必要がある。さらに、湖沼集水域の汚濁負荷の状況は厳しく、流域の土地利用形態をはじめとする汚濁負荷構造から見て、良好な水の確保は楽観を許されない情勢にあり、バイオテクノロジーを活用した排水処理技術による汚濁負荷削減手法も開発する必要がある。また、富栄養化の進んだ湖沼で毎年繰り返されるアオコをはじめとする藻類の大量発生あるいは異常増殖を抑制する手段もいまだ模索の段階にある。

これらの状況を鑑み、将来を見通して後顧の憂いを残さぬためにも長期的な集水域の汚濁負荷特性、湖沼の物質循環特性や生態系構造の特性等を考慮した新しい水域環境管理概念を検討するとともに、湖沼の機能の的確な把握に基づく新たな管理手法の研究を旨とするのである。

本研究では、主として水質改善の傾向を認めがたいような湖沼環境を対象に、その流入河川も含めた水域としての正確な機能評価を行うとともに、環境容量の観点から、湖沼の適正利用を目指した新しい概念に基づいた管理手法を研究する。具体的な研究内容としては、以下の5つのサブテーマを設けて多角的な検討を行う。

(1) 環境容量の概念を導入した水域環境管理の研究

環境の場としての水域を環境容量の観点からとらえて管理するための手法を研究する。新しい水域環境管理概念として環境容量の検討を行い、人間と水域環境とのかかわりを類型的に整理し、水域の利用形態に対する水域環境機能を評価する手法を確立する。また、住民の意識・行動調査により、水域環境管理施策の多面的な評価分析手法を開発する。さらに、環境容量からみた水域環境管理の基本的な考え方を明らかにする。

(2) 湖沼の物質循環速度と生態系管理に関する研究

湖沼における各種の元素や汚染物質の流入、蓄積、移動等物質循環についての速度論的な研究を行うとともに、湖水の無機的環境や微量汚染物質の平衡濃度や供給速度と生態系としての一次生産や食物連鎖との定量的な関係を明らかにして、生態系管理へのアプローチを行う。特に、漁法の変更や高次捕食者の移入による生態系構造の改変や、湖水の無機的環境や微量有機物質の制御により藻類の異常増殖を抑制する手法を検討する。また、浅い湖の湖水-底泥間の物質の移動の有無や循環速度と、生態系構造の差異との対応関係を明らかにする。護岸の改修等湖沼構造の改変と生態系構造の変化の検討も行う。

(3) バイオテクノロジー等新技术を応用した水域の浄化機能促進に関する研究

水域の浄化機能を促進するために、バイオテクノロジーを活用した新技术の開発、すなわち、窒素、リン及び有害物質等を除去する能力を有する環境浄化に有用な生物の検索及び遺伝子操作技術をも活用した遺伝育種を行い、その増殖特性、代謝活性を把握し、大量培養法を確立する。次いでこれらの生物の有する浄化能を汚濁物質を排出している施設に活用し、汚濁負荷削減へ応用する。また、捕食、共生等の混合培養系を活用して、湖沼で異常発生している藻類の発生防止及び除去の研究も行う。

増殖制御のために、屋外の実験池で N, P のほか微量物質の濃度条件を変えて、多種藻類の競合状態で異常増殖要因の追求実験を行った。霞ヶ浦湖畔の臨湖実験施設多目的実験池を用い、実際の湖沼でアオコが増殖する 6～8 月 (前半) と 8～9 月 (後半) の 2 回に分けて、N と P の比, N や P の濃度, 米ぬか, EDTA, クエン酸鉄などの添加条件を変えて実験を行った。前年度の屋外実験水槽での同様の実験によって、米ぬか, EDTA, クエン酸鉄のアオコ増殖に対する有効性は確認している。クエン酸鉄の濃度は増殖促進効果を考慮してすべての池で同一とし、表 2 (前半), 表 3 (後半) の実験条件で、霞ヶ浦高浜入で採取したアオコの濃縮液を 6 つの池に投入して増殖実験を行った。

前半の実験では *Microcystis* の増加は見られなかったが、後半の実験では No. 4 の池で *Microcystis* (粒径 40 μ 以上) のクロロフィル *a* (Chl *a*) が 188 $\mu\text{g/l}$ の最高濃度に達した。この Chl *a* 濃度は霞ヶ浦高浜入におけるアオコ最盛期の値とほぼ同程度である。後半の実験における Chl *a* 濃度の変化を粒径が 40 μ 以上と未満とに分けて示したのが図 1 である。他の 5 つの池では粒径が 40 μ 以上の最高濃度は 60 $\mu\text{g/l}$ 以下であった。同じ N, P 濃度であった No. 6 の池では *Microcystis* が優占してアオコ状態となったものの、No. 4 の池と比べるとその現存量はかなり低かった。No. 4 の池の実験条件は米ぬか入りで N と P の比は 10, N は 4.60 mg/l , P は 0.46 mg/l , クエン酸鉄 3 mg/l で、滞留時間は 20 日間で EDTA は入っていないかった。No. 4 と No. 6 の池の比較から、米ぬか熱抽出液は *Microcystis* の異常増殖に重要な役割を果たしていることが明らかとなった。しかし、No. 1 の池では米ぬか熱抽出液を添加したが、*Microcystis* は一時的に優占種となったものの、異常増殖には至らず他の藻類に変化した。

また、No. 1～3 の池の N と P の負荷量レベルは霞ヶ浦高浜入のほぼ夏期のそれと同程度であり、No. 4～6 の池ではその倍の N, P 負荷量を与えたが、池水の濃度は設定濃度まで上がらず、

表 2 6 月第 3 週～8 月の実験条件

池No.	滞留時間	N/P	P	N	米ぬか	EDTA	クエン酸鉄
1.	30日	5	0.23 mg/l	1.15 mg/l	730 g/Pond	—	3 mg/l
2.	30日	5	0.23 mg/l	1.15 mg/l	730 g/Pond	1 mg/l	3 mg/l
3.	30日	5	0.23 mg/l	1.15 mg/l	730 g/Pond	—	3 mg/l
4.	30日	10	0.23 mg/l	2.30 mg/l	730 g/Pond	—	3 mg/l
5.	30日	10	0.23 mg/l	2.30 mg/l	730 g/Pond	1 mg/l	3 mg/l
6.	30日	10	0.23 mg/l	2.30 mg/l	730 g/Pond	—	3 mg/l

表 3 8～9 月の実験条件

池No.	滞留時間	N/P	P	N	米ぬか	EDTA	クエン酸鉄
1.	20日	10	0.23 mg/l	2.30 mg/l	730 g/Pond	—	3 mg/l
2.	20日	10	0.23 mg/l	2.30 mg/l	730 g/Pond	1 mg/l	3 mg/l
3.	20日	10	0.23 mg/l	2.30 mg/l	730 g/Pond	—	3 mg/l
4.	20日	10	0.46 mg/l	4.60 mg/l	730 g/Pond	—	3 mg/l
5.	20日	10	0.46 mg/l	4.60 mg/l	730 g/Pond	1 mg/l	3 mg/l
6.	20日	10	0.46 mg/l	4.60 mg/l	730 g/Pond	—	3 mg/l

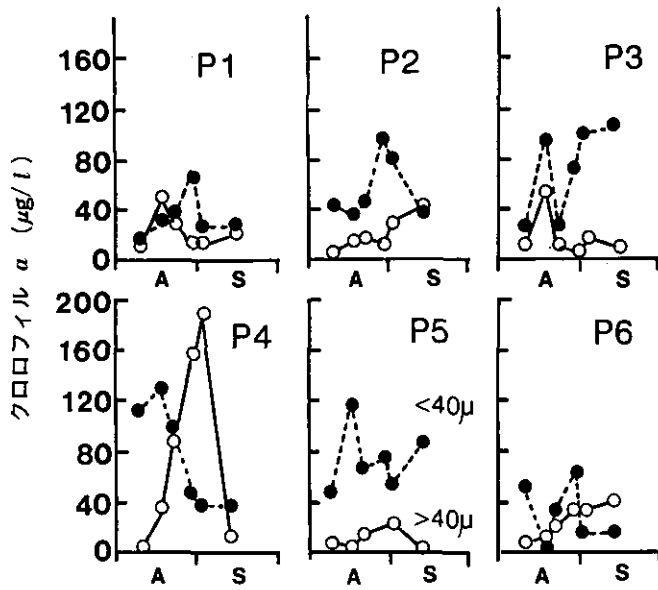


図1 屋外実験池における 40μ 以上及び以下の植物プランクトン中のクロロフィルa濃度の変化

No. 1~3の池と大差ない値であった。さらに無機態栄養塩の残存量から見て、 $\text{NH}_4\text{-N}$ に対して *Microcystis* と他の藻類の競合状態の可能性と、栄養塩の連続的な供給が *Microcystis* には必須条件であることが明らかとなった。

(3) カビ臭生成藻類の細菌と微小動物による分解・除去

汚濁湖沼水を水源とする浄水場の浄水工程の前段階での生物膜法の一つである接触酸化処理において、生物膜に出現する捕食者としての微小な原生動物 *Trithigmostoma cucullulus* が糸状性藻類でカビ臭生成原因生物の *Phormidium tenue* の分解・除去に果たす役割等について検討を行った。その結果は以下のようにまとめられる。① *T. cucullulus* の増殖には活性汚泥の抽出液が効果的であり、 $20\sim 25^\circ\text{C}$ の最適増殖温度のほか好気的条件がその生存・増殖に必要なことが明らかとなった。② *T. cucullulus* の糸状性藻類の摂食速度は $10\sim 30\mu\text{m/s}$ 程度であり、*P. tenue* がその好適食物源となることが分かった。③ *T. cucullulus* が *P. tenue* を捕食した場合の最大比増殖速度は $1.611/\text{d}$ であり、最大増殖個体数は $1,200\text{ N/ml}$ であった。④ *T. cucullulus* の生物膜中での存在は、TON、2-MIB、Chl a、濁度、TOC 及び DOC の除去効率を高める結果となった。⑤ カビ臭分解細菌を霞ヶ浦より分離して継代培養し、*T. cucullulus* とともに接触酸化処理装置に定着させた。その結果図2に示すのガスクロマトグラムによる評価から、水道原水のカビ臭物質の2-MIBの分解・除去には、その細菌のみより、細菌と原生動物 *T. cucullulus* の組み合わせによる生物膜の方が効果的であることが明らかとなった。

(4) 土地利用の異なる流域の汚濁負荷レベルと管理目標

流域の土地利用が異なれば汚濁負荷のレベルが異なる。そのうえ、水文条件や汚濁負荷構造は経年変化を伴うため、正確な年間総流出負荷量の算定を困難にしている。流域からの汚濁負荷削

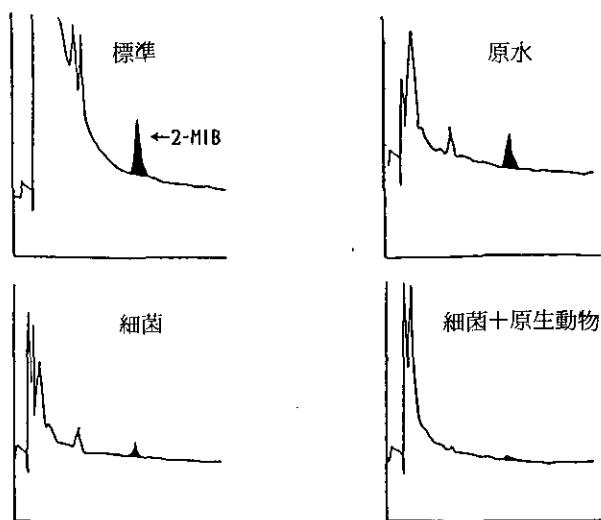


図2 カビ臭2-MIBの分解除去のガスクロマトグラムによる評価

減のための諸施策をとるには、例えば、「アオコが出現しない」等の湖沼水質の管理目標と連動させる必要があるが、湖沼と直接接することのない流域住民にとってはその実感が乏しいことが多い。それよりは、各流域の土地利用の違いや上・中・下流部等河川の中で占める位置関係ごとに、それぞれの汚濁負荷レベルやシェアを示して、どのレベルまでを目標に汚濁負荷削減の施策をとるべきかを汚濁負荷構造との関係から提示する方が住民の納得を得やすい。そのため、代表的な土地利用の流域あるいは河川の上流部・下流部での精度の高い年間総流出負荷量を算定し、「降雨」→「山地」→「農耕地・市街地」→「湖沼・海域」のような水の流れに応じて、流域相互間あるいは上流域・下流域間での汚濁負荷レベルの比較検討を行った。

調査対象の流域は、河川上流部での山地流域及び田園地流域、河川下流部での流域全体としては山地と農耕地からなる田園地流域及び市街地流域である。また、流域への汚濁負荷入力としてバックグラウンド負荷あるいはベース負荷の意味のある降水負荷量についても調査を行った。その結果を流域面積当たりの年間流出負荷量として表4に示す。下段の3河川は毎週1回定時で年間52回の調査、上流部の3小河川は毎月1回以上3年間で78回の調査によるものであり、山地流域には一部人家や農耕地の影響を含んでいる。

河川上流部の調査は流量の大きな場合が多く含まれていたが、山地流域からの流出負荷量は降水負荷量と比べて、T-N、T-Pで約2倍、T-CODで約30%増、CIで3倍以上の値となっている。田園地流域の下流部での調査結果は、全流域として上流部田園地流域と同程度で、下流部からの汚濁負荷量が特に大きいわけではないことが判明した。ただ、上流部の調査に流量の大きな場合が多かったことを考慮すれば、下流部の方が若干大きめとなることが推定できる。市街地流域の流出負荷量は、他の流域のそれと比べてすべての水質項目で非常に大きい。

(5) 河川流出負荷量のCNP比による評価

陸域から水域へ排出された汚濁物質の多くは河川を通じて、湖沼や海域に達する。各水域の場の特性、特に滞留時間の違いによって、種々の水質問題が生じているが、これを各水域での汚濁

表4 流域相互間での汚濁負荷レベルの相違

流域	面積 km ²	調査期間	比流量 mm/y	T-N kg/km ² /y	T-P kg/km ² /y	T-COD kg/km ² /y	Cl kg/km ² /y
降水負荷量 (国公研)		'87June~'88May	(1,307)	(951)	(30)	3,330	1,870
上流部山地流域 (大作沢)	3.11	'84May~'87April	1,318	1,940	81	4,260	7,100
上流部山地流域 (小桜川)	7.99	'84May~'87April	1,018	1,830	76	4,700	6,000
上流部田園地流域 (寺山沢)	6.31	'84May~'87April	1,324	2,650	137	5,500	10,500
田園地流域 (恋瀬川本流)	147.4	'87June~'88May	617	1,843	128	4,706	8,530
田園地流域 (天の川)	53.1	'87June~'88May	502	2,453	112	4,031	10,100
市街地流域 (山王川)	12.9	'87June~'88May	1,112	3,278	384	9,275	35,900

物質の物質収支がとれる形で、同じ水質指標の物差しで原因-結果あるいは対策効果が一体的に評価できれば水質管理も行いやすくなる。湖沼や内湾の対症療法的な段階にある富栄養化現象を取り扱う場合には、栄養塩や植物プランクトンの構成元素を考えると、C、N、Pが最も重要な対象元素となることは容認される。それゆえ、このC、N、Pとその関連水質項目に的を絞って河川の汚濁負荷量レベルをその構成比も把握できるように示したのが図3である。

霞ヶ浦高浜入最奥部の高崎入に流入する恋瀬川本流と、湖への流入端近くで本川に合流する最大支川の天の川、及び山王川のC、N、Pの構成比を示したのが表5である。流域面積当りの流出

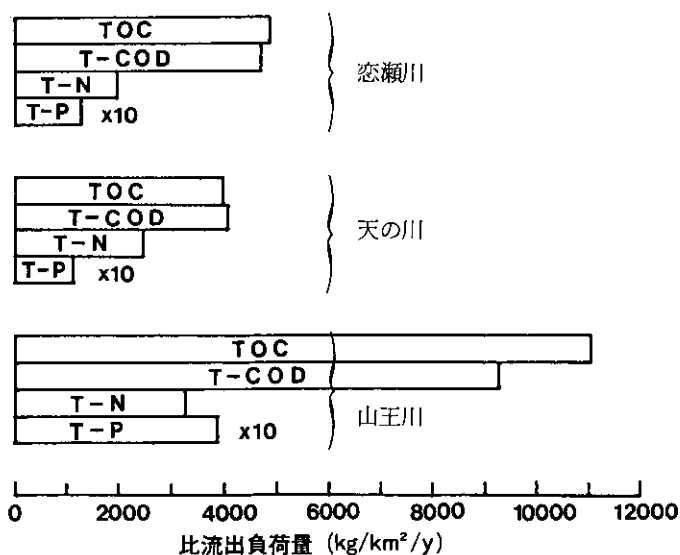


図3 3河川の比流出負荷量の比較

表5 河川水質構成比率（流量荷重平均濃度）

河川	TOC : T-N : T-P	TOC : T-N	TOC : Org-N : Org-P	TOC : Org-N	COD : TOC
恋瀬川	37.9 : 14.4 : 1	2.64 : 1	46.5 : 3.00 : 1	15.5 : 1	0.97 : 1
天の川	35.5 : 21.9 : 1	1.62 : 1	46.3 : 3.66 : 1	12.7 : 1	1.02 : 1
山王川	28.8 : 8.5 : 1	3.37 : 1	57.3 : 5.33 : 1	10.7 : 1	0.84 : 1

負荷量（比流出負荷量）では、田園地河川の恋瀬川本流や天の川と、市街地河川の山王川の大きさの違いだけでなく、TOC、T-N、T-Pの違いが明らかである。ただ、TOC : Org-N : Org-Pの値の違いは小さい。また、TOCとT-CODの値がいずれの河川でもほぼ同じくらいであるため、TOCをT-CODに入れ替えてもかなり似た結果となる。このような年間平均の水質構成の汚濁流入負荷があり、その滞留時間との関係もからんで湖水の水質構成が結果としてもたらされている。ここで、CODの分析はアルカリ性マンガン法によっている。

2.10 大都市圏における環境ストレスと健康に係る環境保健モニタリング手法の開発に関する研究（初年度）

昭和 63 年度～平成 3 年度（1988～1991 年度）

〔研究組織〕 環境保健部

◎村上正孝

環境保健研究室 太田庸起子・安藤 満・松本 理

環境疫学研究室 小野雅司・金子 勇・田村憲治

人類生態研究室 遠山千春

環境心理研究室 ○兜 真徳・相本篤子・影山隆之

環境情報部

情報システム室 ○大井 紘・宮崎忠国・須賀伸介・近藤美則

情報調査室 松本幸雄・宇都宮陽二郎・新藤純子・横田達也

総合解析部

環境管理研究室 金谷 健

総合評価研究室 田村正行

計測技術部

生体化学計測研究室 森田昌敏

分 析 室 功刀正行

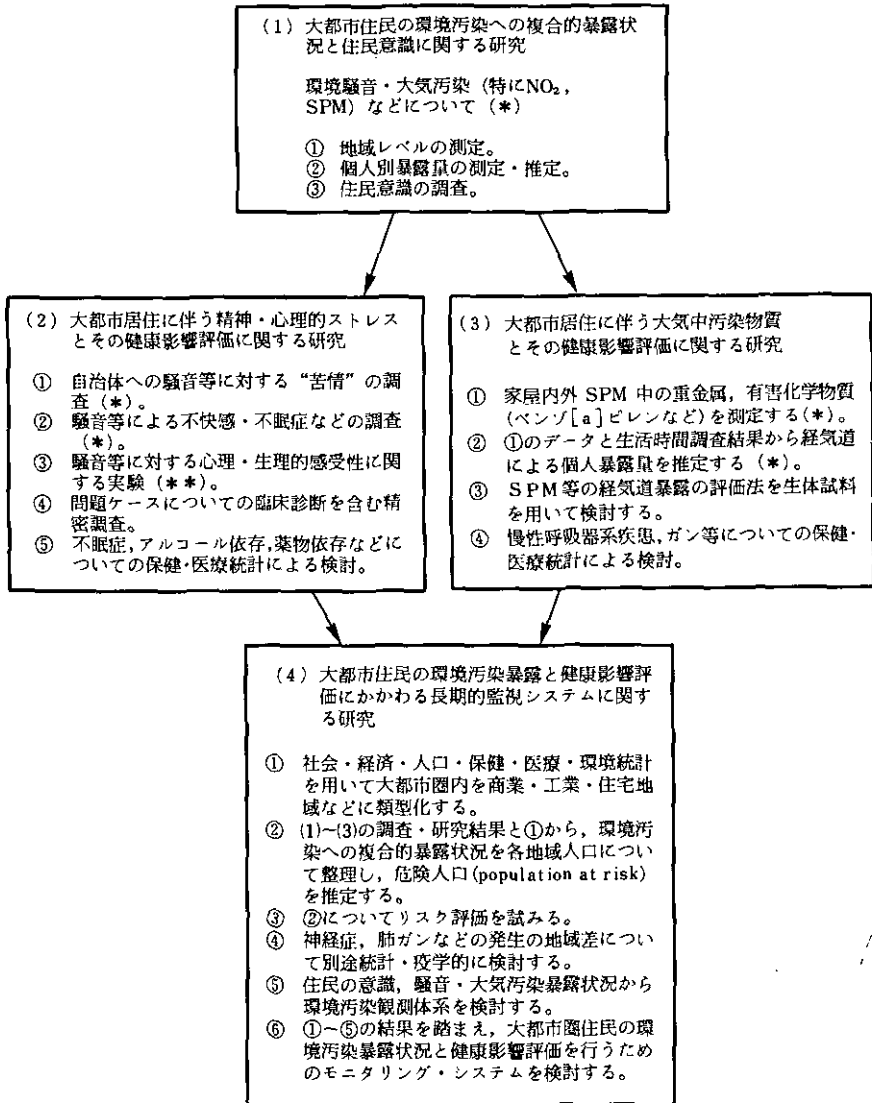
〔研究概要〕

大都市圏においては、環境騒音あるいは二酸化窒素（NO₂）・浮遊粒子状物質（SPM）等の大気汚染などに対する改善が遅れており、また、こうした環境汚染による健康影響についても、精神・心理的影響をはじめ、急性的には睡眠妨害、呼吸器系などへの影響、また慢性的には聴力損失、発ガン、呼吸器系疾患などへの身体的影響も示唆されているところである。したがって、大都市域での環境汚染状況、それらへの暴露状況あるいは以上のような精神・身体的健康への影響について体系的かつ総合的に評価・監視しようとするシステムの構築が急務と考えられる。とはいえ、暴露状況の把握あるいは健康影響の評価のいずれについても、局所的汚染あるいは潜在的汚染の問題、低濃度・長期暴露による健康影響の検出・評価の問題、高感受性個体の問題などを含み、極めて複雑かつ多様といわざるを得ない。したがって、同システムは、少なくとも特定の環境汚染について個別に、（1）暴露量評価、（2）疫学的研究、実験的研究あるいは健康情報の解析などに基づく健康影響評価、（3）特定の健康影響に関する疫学・動物実験結果等に基づくリスク評価が行えるものであることが必要であり、それらサブシステムの総体としてのシステムの構築が必要と考えられる。ただし、これらの評価のために必要であるにもかかわらず欠けている情報については適宜補てんされることが必要であることはいうまでもない。

本研究は、以上のようなシステムを構築するための基礎的検討をするものであるが、このために、都市化が最も高度に進行している代表的大都市域として東京大都市圏を対象に、同人口における環境汚染（騒音、NO₂、SPM）への複合的暴露状況の把握及び精神・心理的影響を含む健康影響の評価並びにリスク評価の調査と解析を開始した。ただし、本研究でいう環境ストレスとは、

環境あるいはその変化による精神・心理的ストレスと環境汚染物質の生体負荷並びにそれらに対する生体の反応の総体の意である。

研究内容は、図1のサブテーマ(1)～(4)からなり、4年間の全体計画(図1)の中で、東京大都市圏内の都心部、商業地域、工業地域、住宅地域あるいは沿道・非沿道などの地域性を考慮した調査を実施し、東京大都市圏全体について推定可能な情報を収集・整理していく予定である。



(*) : 都心部, 商業地域, 工業地域, 住宅地域/幹線道路の沿道・非沿道などの地域別にデータを収集・整理する。
 (**): 性・年齢・性格・自律神経機能・精神機能・更年期・老人性難聴・既往疾患などによる差異を量的・質的に明らかにする。

図1 本特別研究の全体構成

初年度に当たる本年度は、工業地域の代表としてK市、住宅地域の代表として都内S区及びE区（超高層団地）を対象に(1)～(3)にかかわる調査・研究が行われた。以下、現在まで得られている成果について概要を報告する。

〔研究成果〕

(1) 大都市住民の環境汚染への複合的暴露状況と住民意識に関する研究

1) 家屋内・外の24時間騒音レベル及び個人別騒音暴露量

K市及びS区を対象に、前者では特に工業地区、後者では特に住宅地区の中から家屋内外の同時騒音測定を10世帯について、また個人別騒音暴露測定（リオン社製騒音集積計 NB-13 を使用）を95名の主婦について実施した。これら対象の選択に当たっては、幹線道路の沿道・非沿道の条件を考慮した。(図2)は、昼間(7時～21時)と夜間(21時～7時)における屋外、屋内及び個人暴露における10分ごとの騒音レベル(Leq(10))の各平均値を沿道・非沿道で比較した結果を示す。ただし、対象世帯及び主婦は、沿道6例、非沿道4例である。図に明らかなように、屋内・屋外・個人暴露を問わず騒音レベルは沿道側に有意に高い傾向を示しており、幹線道路からの交通騒音の影響を反映しているものと考えられる。また図3は、95名の個人別騒音暴露レベルを、測定と同時に記入された生活行動記録をもとに、生活件動内容別の等価騒音レベル(Leq, dB(A))として整理し、沿道・非沿道間の差異を検討したものである。ただし、ここでのLeqレベルは、共分散分析により昼夜及びK市・S区の地域差の影響を調整した調整平均値である。したがって、昼夜、地域性を問わず、沿道の要因が独立して、多くの生活行動時の暴露騒音レベルを有意に上昇させていることが知られた。

2) 大気汚染の地域レベルと個人別暴露量の測定

大都市の大気汚染状況を「発生源—地域濃度レベル—個人暴露レベル」との関連で把握することを目的として、本年度は以下の調査を行った。

SPMとNO₂について常時測定を実施している交通要所の監視局の周辺家屋に、粒径による分級特性を兼ね備えたSPM測定用のSPMPサンプラーとNO₂バッジを設置し調査した。調査家屋は幹線道路からの距離によって選定し、幹線道路「沿道」、道路から50～100m「中間地」、

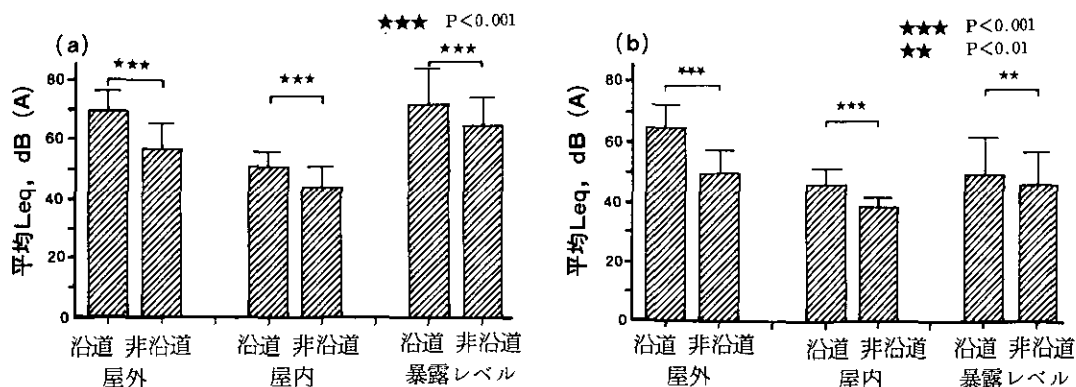


図2 沿道・非沿道世帯での騒音レベルの差

(a) 平均昼間騒音レベル：時間帯(7時～21時)

(b) 平均夜間騒音レベル：時間帯(21時～7時)

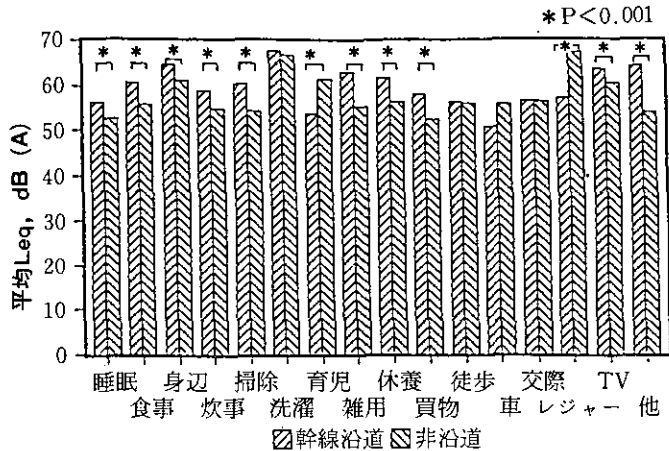


図3 沿道・非沿道世帯での主婦の騒音暴露レベルの差
ただし昼夜及びK市・S区の地域差を調整した平均値。

200~400m「後背地」に3区分した。SPMの測定はSPMPサンプラーを家屋内外に設置したほか、代表的地点に光散乱方式の自動計測器(PCD-1)を設置し、SPMの経時的濃度測定を行った。

図4に示すように、SPMの濃度は「沿道」において最も高く、「中間地」、「後背地」においては急激に減衰する。またSPMの濃度の経時的変動は「沿道」において著しいが、「中間地」、「後背地」においても朝の出勤の時間帯に急激な上昇を示す。以上の結果は生活環境中SPMの測定に際し、幹線道路より居住地までの距離で測定点「沿道」、「中間地」、「後背地」に3区分することが必要であることを示している。また個人の行動様式によってはSPMの暴露量が著しく異なってくる可能性があることを示している。

このようなSPMの屋外大気中濃度変動に対応した家屋内レベルや個人暴露レベルの変動については、都内のS区及びK市に調査対象家屋を設定し、現在調査が進行している。

さらにNO₂濃度の空間分布を調査するため、常時監視局のあるS区役所を中心とする南北約3km、東西4kmの領域で調査した。その結果NO₂日平均濃度(図5)は、次のような特徴を持つことが判明した。

① 幹線道路の直接影響を受けない地点のNO₂濃度については、地域内の1km程度の間隔での空間変化は地域全体の日ごとの濃度レベルの変化に比べて緩やかである。(図中折れ線グラフのI群)。区域のほぼ中心にある常時監視測定局(S区役所)は、図中に示されていないがほぼI群の範囲に入る。

② 幹線道路近傍のNO₂濃度は、日による変化が大きいと同時に、直接道路の影響を受けない地点に比べて一貫して高濃度である。同一の道路の沿道でも道路や付近の建造物の構造などにより濃度レベルに差がある(図5中II群)。

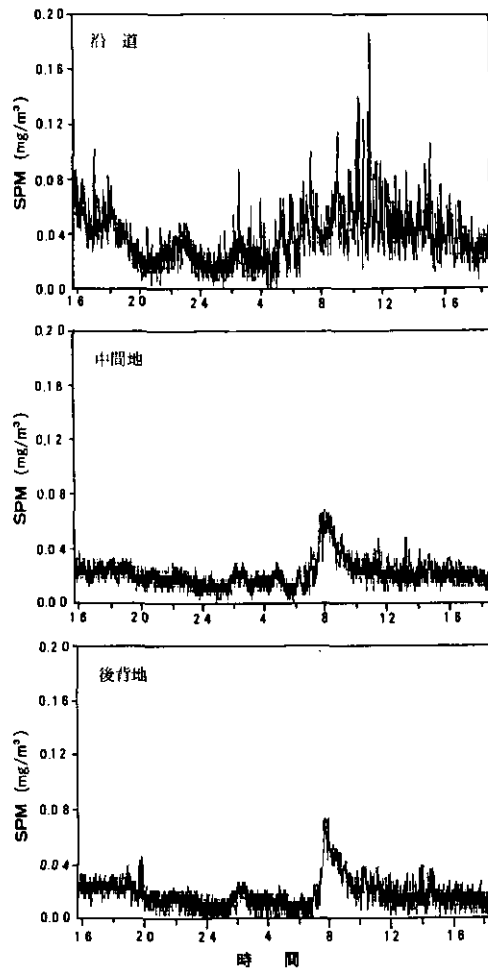


図4 屋外の大気中 SPM 濃度の経時的変動

3) 環境汚染に対する住民の意識調査

環境汚染に対する住民の意識については、2種の方法による調査を行っている。1つは自由記述法と自由連想法による調査であり、他方は(2)の4)に関する調査と同一調査票を用いた選択肢によるアンケート調査である。本年度すでに上記(2)の3)で述べる調査のほか、両2地区においても調査を終えているが、後者の結果は解析中である。自由記述法により得られた現在までの知見から、日常生活環境について住民が不快感・不満・苦情を訴えている項目には、特に非沿道地域では、建設・解体に伴う振動・騒音・粉じん、事業所の騒音・粉じん・ばい煙・悪臭、交通騒音、機械騒音(エアコン、洗濯機、ポンプ等)、楽器・オーディオ、ペット(鳴き声、フン)、電波障害、ゴミの散乱、コミュニティのルール違反(アパート、ワンルームマンション等によるもの)、不法行為(違法建築、違法営業などで違法性が問題とされる)など、いわゆる“生活型公害”を象徴するようなものがある。幹線道路沿道地域では、さらにいわゆる“交通あるいは沿道公害”にかかわる項目が目立って多くなる。

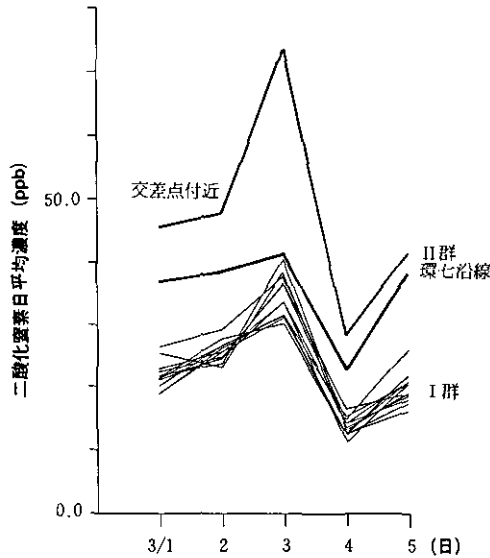


図5 S区役所をほぼ中心とする東西3 km, 南北4 kmの領域におけるNO₂濃度
縦軸はNO₂の1日平均濃度, 横軸は調査日

I群: 3(東西)×4(南北)の計12個の1 kmメッシュにおいて, メッシュ中央付近で幹線道路の直接影響を受けない12地点の濃度。

II群: 環状7号線に面する民家の軒先での濃度の例。1例は交差点付近。

(2)大都市居住に伴う精神・心理的ストレスとその健康影響評価に関する研究

本研究では, 環境汚染による不快感・不満・潜在的な苦情など, いわゆる精神・心理的ストレスの測定手法の開発と定量, 騒音苦情を同ストレスの指標とする場合に問題となる要因の同定・その量的把握, 不眠症など直接的影響の評価, あるいは神経症患者などストレスに高感受性個体への影響評価などが目的とされている。そのための方法論としては, 一般調査及び臨床を含む精密調査, 実験あるいは保健・医療統計の解析などがある。

1) 東京大都市圏内市部における騒音の種類別“苦情”(新規)発生状況

関東地方の1都6県内の176市(23区を含む)から報告された昭和61年度における新規の騒音苦情発生率(環境庁特殊公害課による)について, その他それら市別の35種の社会・経済・人口統計データあるいは道路沿道の交通騒音レベル別推定暴露人口割合(環境庁交通公害対策室資料)とともに統計的に検討した。まず, 35種の地域別データについて主成分分析を行った結果, 有意な4因子, すなわち, 都市化, 人口の安定性, 工業化及び郊外的性質が抽出された。図6は, このうち都市化と人口の安定性の因子により大都市圏を中心部, 中間部及び周辺部に3分割した場合の騒音苦情発生状況を示している。同図は, 苦情発生が中心部に集中している状況とともに騒音の種類による大きな発生率の差異をも示している。一方, 各地域の上記4因子に対する因子得点と各苦情発生率との相関関係を見たのが表1である。同表から, 建設, 商業, 近隣騒音に対する苦情では都市化の因子との, また, 工場騒音に対するものでは工業化の因子との相関が有意に強い傾向が明らかである。ただし, 道路交通騒音に対する苦情は, その推定暴露人口に比較して極めて低く, この表でも相関係数が低いのであるが, ロジスティック・モデルなど感度のよい解析法を用いることにより, 高レベルの道路交通騒音暴露人口割合と有意な相関関係を示すことが

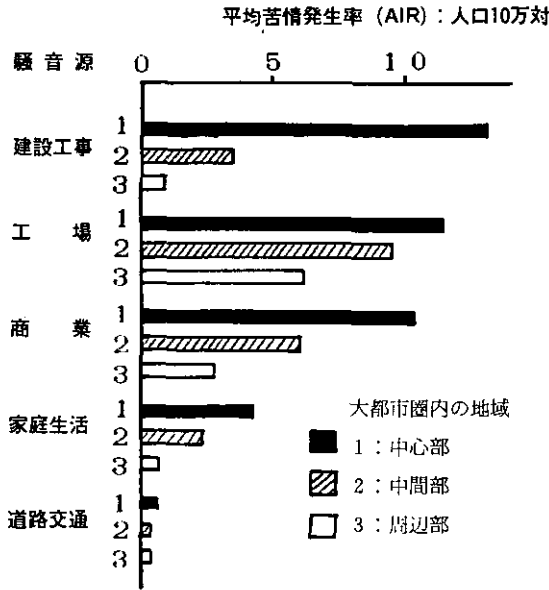


図6 類型化された大都市圏内地域別平均苦情発生率 (昭和61年度)

表1 騒音の種類別苦情発生率と地域特性を示す4因子との相関係数

因子	騒音の種類						
	特定工場	その他工場	特定建設	その他建設	商業	近隣	道路交通
第1因子 (都市化)	.042	.373***	.533***	.627***	.583***	.550***	.229**
第2因子 (人口の安定性)	.154	-.125	.288**	.057	.017	.080	.049
第3因子 (工業化)	.435***	.401***	.081	.065	.064	-.062	.075
第4因子 (郊外性)	.068	-.175*	.104	.075	-.060	-.011	.121

* : $P < .05$; ** : $P < .01$; *** : $P < .001$

知られた。

2) 都内S区に持ち込まれた騒音などに対する“苦情”ケースについて

昭和62年度中にS区の公害対策課が取り扱った騒音苦情ケースについて同課の記録を整理した。計210件のうち有効ケース195件(うち新規181)を対象とした。主要な結果は以下のとおりである。

①苦情者の特性

- a) 苦情者の性別は、男子106件 (54%)、女子58件 (30%)、不明 (記載なし) 31件 (16%)。
- b) 氏名の明らかなもの154件 (79%)、匿名での訴え41件 (21%)。

c) 苦情を訴える前に、苦情者が騒音発生者と交渉したかどうかでは、有 76 件(39%)、無 105 件 (54%)、不明 14 件 (7%)。これらの頻度の性による差は無し。

② 音源別にみた苦情発生状況とその特徴

a) 問題とされた騒音源は、建設作業(これに伴う車両騒音等も含む) 62 件 (32%)、家庭生活 61 件 (31%)、商業活動(営業用拡声器も含む) 32 件 (16%)、工場・作業場 26 件 (13%)、その他 14 件 (7%)。音源と、苦情者の特性との関連は無し。

b) 発生場所は、第 1 種住居専用地域 86 件 (44%)、第 2 種住居専用地域 36 件 (19%)、住居地域 21 件 (11%)、近隣商業地域 40 件 (21%)、商業地域と準工業地域が各 6 件 (3%)。用途地域別の人口比と比較すると、1 専では有意に苦情が多かった($p < 0.05$)。また、第一種住居専用地域では家庭生活による騒音、商工地域では商業活動による騒音の苦情が有意に多い。

c) 騒音の発生時間帯は、全日 38 件 (20%)、日中 100 件 (52%)、深夜・早朝 56 件 (29%)。これを音源別にみると、工場・建設騒音では日中のみ、商業騒音では深夜早朝、家庭生活からの騒音では一日中というものが多。

d) 現場での騒音レベルの実測例は、28 件 (14%)。そのうち 21 件 (75%) は、騒音規制法による基準以内であった。

e) 苦情の原因になった発生者側の問題点についての記録は 31 件 (16%) について残されていたが、その半数は、建設工事等において発生者が近隣へ事前に挨拶・断わりがなかったという指摘であった。また、法令違反が明らかなのは 6 件であった。

以上のほか、記録からは、担当職員の対応の内容、処理結果などについても一定程度の情報が得られることが知られたが、苦情の発生プロセスあるいは苦情者の属性・特性等に関する記載はほとんどなく、より詳細な解析は困難である。しかし、これら限られたデータであっても、以下の 4) の同一地域での精神・心理的影響調査結果と上述の地域別苦情発生率の間を埋めるための有用な情報源と考えられる。

3) 都内 E 区超高層団地居住主婦の生活騒音による“うるささ”に関する質問調査

本調査は、以下の 4) の調査に先行して都内 E 区内の超高層団地居住の主婦を対象に実施した。前年度予備調査として第 1 回目の調査を行い、本年度は同一の団地を対象に第 2 回目の調査を行った。調査内容は、a) 生活騒音への“うるささ”など住環境への不快・不満度及びその変動要因に関する項目、b) “うるささ”と苦情行動との関連性に関する項目、c) 住環境への不快・不満度と飲酒行動との関連性に関する項目、d) 以上の関連が住棟・居住階によって異なるか否かに関する項目、等である。方法と結果の概要は以下のとおりである。

前年と同じ 23/14/8/4F 建て集合住宅に居住する主婦全員に質問紙を配布し、444 名(平均 44.7、21~76 才; 前年も回答した者 131 名を含む)から回答を得た(回収率 54.3%)。444 名中有職者 237 名 (53%)。住居棟・階・間取りについては、4F 棟 4~5LDK、8/14F 棟 4LDK、23F 棟 2~3LDK(上層階)と 4LDK(下層階)の 4 つのカテゴリーに分類された。ただし、居住階別にみると 1~4F: 40%、5~8F: 24%、9~23F: 37%であった。結果、騒音が“うるさい”と感じている人の割合は屋内騒音 96 名 (22%)、屋外騒音 185 名 (43%)であった。主要音源はバイク・高速道路(屋外)、排水・走り回る子供(屋内)など。また、騒音の“うるささ”をはじめ住環境への不快・不満度を従属変数、表 2 の項目のカテゴリー変数を説明変数として共分散分析を行った結果、屋内・外騒音に対するうるささと居住条件のほか、怒りっぽい、イライラする、消

表2 居住環境への不快感・不満に関連が予想された変数

(属性関係)	(健康・ストレス・性格)
年齢・ライフステージ	1年間の既往
職業の有無	不定愁訴
要ケア老人の有無	更年期指数
(住居関係)	一般的健康スコア
住居棟・階・間取り	ライフイベント
幼稚園に面するか?	ストレス関連性格 (A/B)
最上階・エレベータの止まる階?	

極的などの性格因子との関連が認められた。一方、うるさいと回答した人が苦情を訴えるかどうかには、屋外騒音についてのみ、同時に地震時の不安を感じている、あるいは更年期指数が高いなどとの関連性が有意であった。また、飲酒の頻度・1回飲酒量(アルコール量換算)・飲酒動機と職業の有無・性格等には関連がみられたが、住環境への不快・不満度との関連は明らかではなかった。

4) K市, S区居住の主婦の生活環境に対する不満, 苦情等に関する質問調査

上記3)の調査の経験を基に、新たな質問調査表を作成し、K市及びS区の主婦1,500名を対象に調査を実施した。この結果から、生活環境騒音に対する意識、不快感、不満、潜在的苦情、苦情行動についての情報が、これらに關与することが予想される要因に関する情報とともに得られている。

5) 各種生活騒音に対するうるささに関する実験的研究

日常生活レベルにおける各種騒音に対する不快感・不満・潜在的な苦情などのストレスは、通常以上のようなアンケート調査を通して調べられている。しかし、調査によって調べられるストレスが極めて人類生態学的な特徴を有することは明白であり、その構造を明らかにするためにもさらに、騒音に対する直接的な心理的反応(うるささ)に関する知見が必要となる。ここで、騒音に対する直接的な心理的反応の個人内・間の変動とその変動要因を同定・定量し、また、それら心理的と生理的反応の関連性を検討するために、以下の3種の心理・生理実験を行った。

実験(I)では、種々の生活音を等価騒音レベルで一定($L_{eq}(A)=90$)として再生した時にじゃっ起される直感的なうるささ(7段階スケール)の性、年齢、あるいは性格(YGテスト)による変動について検討した。対象音は、①交通騒音 ②職場騒音 ③その他の生活行動に伴う騒音 ④音楽 ⑤自然音(「雷鳴」「川のせせらぎ」など)に分けられる30種であり、各再生時間は16秒、間隔は44秒とした。被験者は若年男女、中年女子、老年男女各20名、計100名である。結果、1:うるささは音の種類により大きく変動し、概略上記カテゴリー別に①, ②>④, ⑤の傾向があり、③の音ではこれらに重複して幅広く分布していた。また、うるささは性別では男子が女子より有意に大きく、また年齢群別では中年群が他の2群より有意に大きかった。ただし、うるささの変動に対する音の種類、性、年齢の説明率は23%であった。2:うるささと性、年齢、性格との関連性を各音別に検討した結果、性差は9種の音(うち8種がカテゴリー③)で有意、いずれも男子>女子であった。年齢差は14種の音で有意であったが性差にみられるような音の種類のカテゴリーによる系統性はなかった。性格との関連性については、一定の傾向は見

られない。3：各再生音の周波数別 Leq, 時間率騒音レベル (L5, L50, L95) などの物理的特性との関連性では、低帯域あるいは高帯域の Leq (A) 並びにレベル変動成分との関連が有意であり、その説明率は 14~30%であった。4：好き嫌いスコア (5段階スケール) とうるささは極めて強い逆相関関係を示し ($r = -0.90$), その説明率は 79%であった。

実験 (II) では、上記と同様の 30 種の音についてうるささとのレベル—反応関係を調べた。聴力正常で健康な男子 19 名, 女子 21 名 (18~23 歳) を対象に, 30 種の生活音 (耳の位置で Leq (A) = 60, 70, 80, 85, 90 の 5 段階に調整) を聞かせ, 大きさ, うるささ (各 7 段階) と好き嫌い (5 段階) を評価させた。ほかの実験条件は実験 (I) に同じ。結果, 音のカテゴリー別に大きさ, うるささ, 好き嫌い得点の平均値を求め (ただし, 性差を調整) と Leq との関係を見たのが図 7 である。また, 各心理量について, Leq 及び音のカテゴリーとの関連性を検討すると, 大きさでは Leq のみが, うるささ, 好き嫌いでは Leq と音のカテゴリーの両者が有意な関連性を示したが, この順に Leq 依存性が弱くなり, 音の種類への依存性が大きくなる傾向が明らかであった。ここで, うるささ, 好き嫌い, Leq 3 者の関係をまとめてみると図 8 のとおりである。ただし, 騒音の物理的特性と各心理量との関連性についての検討では, Leq の 8kHz 成分, L95 などが若干の関連を示すものの音のカテゴリーの説明率に比べ極めて小さいことが知られた。

以上の 2 種の実験は, 各種生活騒音に対する直接的なうるささ (不快感) を対象としており, 本研究の調査, 苦情などの背景となる心理量の定量にかかわるものであるが, 結果はうるささが騒音のレベル及び種類に大きく依存しており, その変動は, 性, 年齢あるいは性格などによるものよりはるかに大きい。ただし, 音のカテゴリーを越えて, その他の物理的特性による変動も相当大きいことを示している。しかし, 結果はよく安定しており, 各種生活騒音の騒音レベルとうるささに関する trade-off 関係のある程度整理して行ける可能性を強く示唆している。また, 好き嫌い尺度は騒音レベルよりは騒音の種類と同時にうるささとも強い相関を示しており, 日常的に暴露される各種生活騒音暴露状況をうるささという側面から評価するために有用な指標となりうることを示唆された。

実験 (III) として, 騒音に対する心理反応と生理反応との関連性を検討するために, 以上の実験と並行して, 特に交感神経系の反応性を示すと考えられる聴性誘発指尖脈波反応 (auditory evoked plethysmogram response AEPGR) と各種騒音に対する心理反応, すなわち大きさ, うるささ及び好き嫌いとの関連性を調べる実験を行った。対象は若年者 (年齢 18~23 歳) 男性 18 名, 女性 17 名, 合計 35 名である。AEPGR 検査の刺激音はホワイトノイズ (帯域 20Hz~20kHz) とし, 50, 70, 及び 90dB の 3 種類のレベルで刺激時間は 3 秒, 5 回ずつ繰り返した。繰り返しの間隔は 1~4 回のランダム系列で実施し, 5 回の反応を平均した。ただし指尖脈波は刺激後 30 秒まで 3 秒ごとのブロック内に完全に入る波形の平均振幅を求め, 刺激前 30 秒間の平均振幅を 1 とし各ブロックごとの相対振幅として処理した。また, 実験は生理実験用防音室 (6×5.4×2.4m) 内で原則として 3 人 1 組で行った。

その結果, 刺激開始後 30 秒間の脈波振幅の経時変化を男女別平均としてみると (図 9), 脈波振幅縮小は男女共に 6~9 秒で最大, 12~15 秒で回復することが知られた。また, 刺激後 6 もしくは 9 秒後の脈波振幅のうち小さい方の値を AEPGR (max) として個人別に集計し, 刺激音レベルとの対応関係をみると, 有意なレベル—反応関係が認められたが, 同関係に性差は認められなかった。一方, 暴露レベル 90dB における AEPGR (max) の大きさが 0.7 以下を R++ (反応性大), 0.7~0.9 を R+ (反応性中), 0.9 以上を R± (反応性小) として反応性をカテゴリー分類し, 上記 30 種の 5 レベルの騒音に対する大きさ, うるささ, 好き嫌いの差異を検討した結果, 特

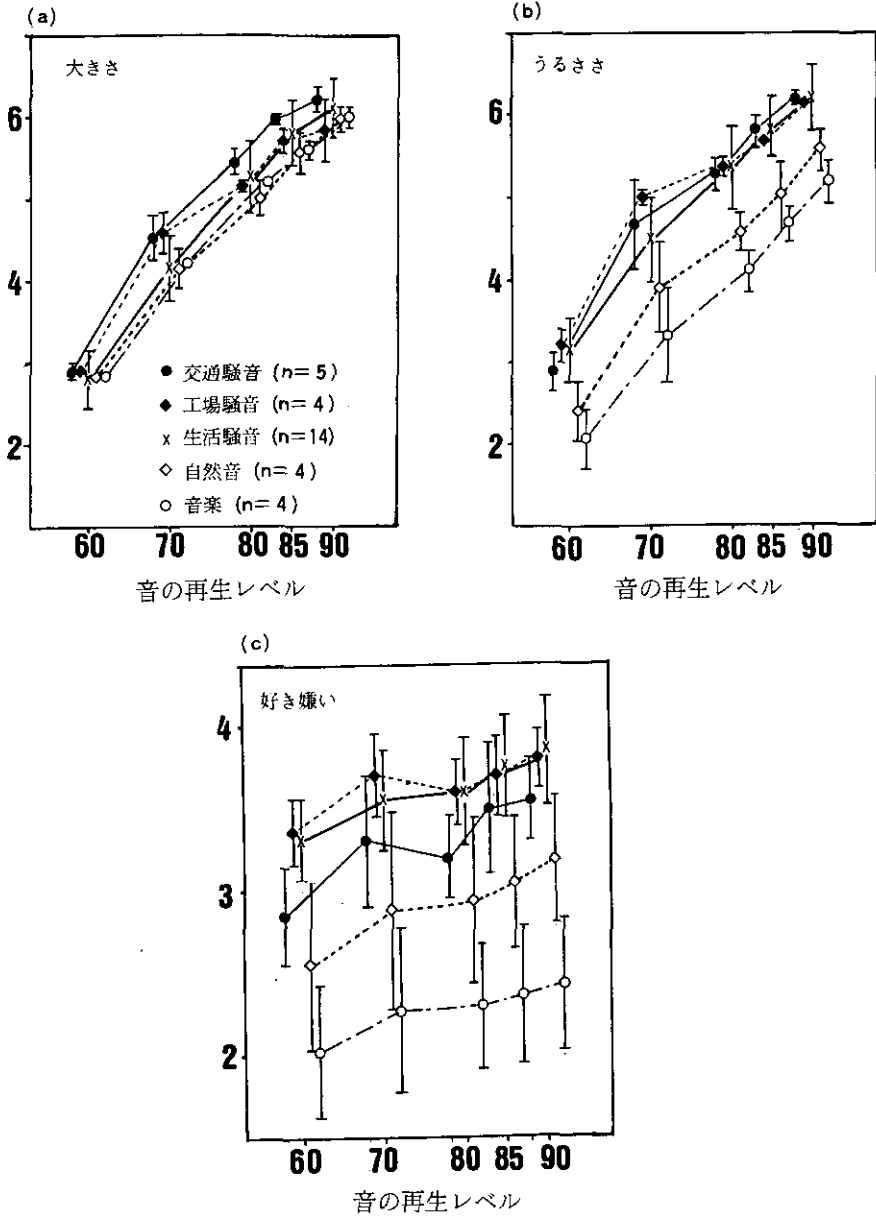


図7 音の大きさ,うるささ,好き嫌いのレベル反応関係

に騒音の大きさが, AEPGR の反応性大グループで高レベルほど有意に低くなる傾向がみられた。しかし, その他の心理量との関係には系統性が認められなかった。

(3) 大都市居住に伴う大気中汚染物質とその健康影響評価に関する研究

経気道的に取り込まれた有害化学物質がどのような生体内挙動を示すかについての研究は, 暴露量評価の調査をリスク評価へと発展させるため必須の課題といえる。このため, 本研究では SPM の大気汚染調査に並行し, SPM 中の有害化学物質の微量分析法を検討し, その生活環境中

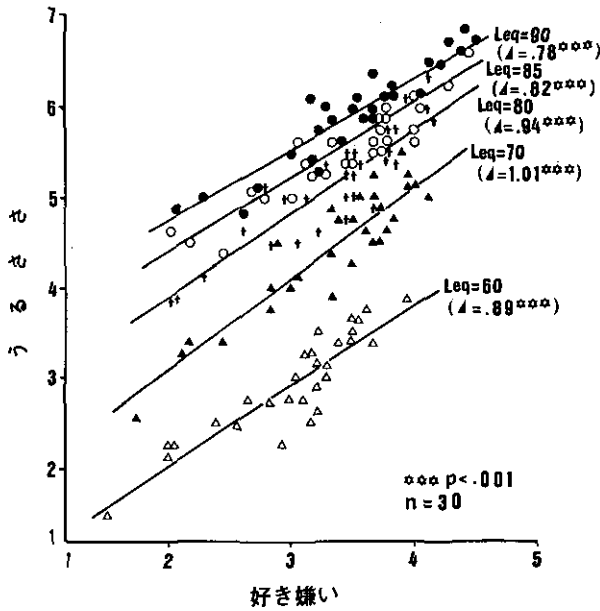


図8 再生レベル別の音の好き嫌い，うるささの関係

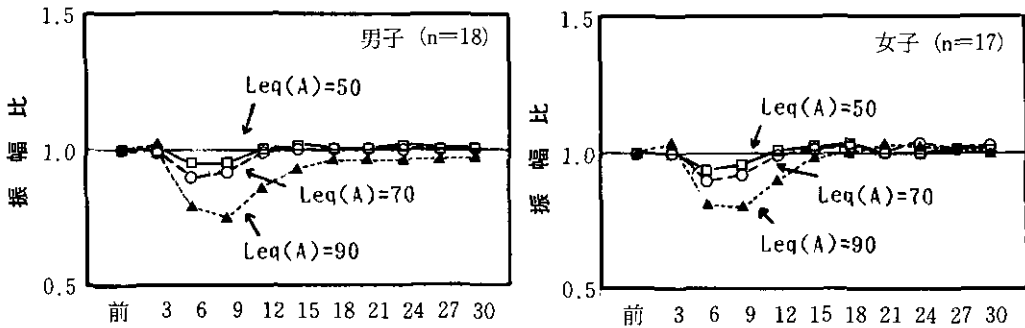


図9 男女別刺激音レベル別 AEPGR

濃度と個人の経気道暴露レベルについて調査を行った。さらに有害化学物質の経気道暴露量把握法の開発を目的として，24時間尿を採取・分析し，生体試料による方法の予備的検討を開始した。現在病院の協力を得て，SPMや有害化学物質の高濃度暴露群である喫煙者について調査を進めている。

また，特に有害重金属への暴露状況モニタリングの一環として，生体試料のうち歯科医から入手可能な歯を利用する場合の測定法の検討，測定される重金属レベルの値の有用性，さらに得られたレベルからリスク評価を行う場合の問題点の吟味など，新しいモニタリング手法の開発も行なっている。本年度すでに，都市域及び対照地域の歯科医から相当数のサンプルを収集し，ICP-MS法による測定法を吟味し，測定を開始した。

2.11 粒子状物質を主体とした大気汚染物質の生体影響評価に関する実験的研究（初年度）

昭和63年度～平成4年度（1988～1992年度）

〔研究組織〕 環境生理部

◎横山栄二

環境生理研究室 河田明治・鈴木 明・局 博一・野原恵子

環境病理研究室 彼谷邦光・藤巻秀和・米元純三・白石不二雄・河越昭子

環境生化学研究室 三浦 卓・持立克身・国本 学・高橋勇二

慢性毒性研究室 ○嵯峨井勝・○小林隆弘・市瀬孝道・山根一祐・佐野友春

環境保健部

人類生態研究室 鈴木和夫・平野靖史郎・杉平直子

技 術 部

動物施設管理室 高橋 弘・高橋慎司・清水 明・伊藤勇三・山元昭二

客員研究員 18名, 共同研究員 6名

〔研究概要〕

近年の大気汚染の特徴は、従来の硫黄酸化物(SO_x)や降下ばいじんを主体としたものと異なり、幹線道路沿道を中心とした窒素酸化物(NO_x)及び粒子状物質を主体とする複合汚染であり、特に、都市部においては粒子状物質並びに二酸化窒素(NO₂)の環境基準値達成率が低く、人の健康に及ぼす影響も危惧されている。

これについては、例えば、中央公害対策審議会・環境保健部会の「大気汚染と健康被害との関係評価等に関する専門委員会報告(昭和61年4月)」においても、「我が国の大気汚染は鉄道荷物車から直噴式ディーゼル自動車の増加というような交通輸送機関の構造変化等により、NO₂と大気中粒子状物質が特に注目される汚染物質であり、現在の汚染のレベルでも総体として、気管支ぜん息等の慢性閉塞性肺疾患の発症から増悪に至る過程に影響を与える可能性を否定できない」とし、今後、「これらの点について疫学的調査と共に実験的研究が必要である」と指摘している。また、環境大気に由来する発ガンについては、「現時点ではまだ確定的な報告がなされていないと考えられるが、今後予防的観点に立つての様々な留意が必要であろう」と述べ、実験的研究も必要であることを示唆している。

このような状況において、呼吸器疾患の有症率等の疫学的指標と大気汚染物質、特に粒子状物質やNO₂等との因果関係を明らかにし、大気汚染物質の健康への影響を総合的に評価しうる研究が必要となっている。このために、本研究においては大気汚染物質と健康障害との関連を実験的に明らかにするために動物実験による両者間の量-反応関係、量-効果関係あるいは複合影響等を解析し、健康に及ぼす影響の総合的評価を行い、ヒトの健康維持に係る行政課題等に資することを目的としている。

この目的のために以下の5課題についての研究を行う。

(1) 粒子状物質と二酸化窒素等の複合暴露装置の作製及び暴露条件の検討

実験動物に粒子状物質及びNO₂等を複合暴露するための装置を開発する。さらに、慢性暴露実験を行うため、長期運転が可能でかつ生体影響研究に必要とされる暴露条件の検討を行う。

(2) 粒子状物質の生体内挙動と毒性発現機構に関する研究

1) 粒子状物質の生体内挙動、クリアランスと毒性

粒子状物質の生体内挙動及び分布とその化学形態との関連を検討し、化学形態の相違による毒性発現機構の修飾に関する研究を行う。

2) 感受性の動物種差

粒子状物質とNO₂等の単一及び複合暴露による動物の感受性の違いとその原因について検討する。

(3) 粒子状物質と二酸化窒素等の呼吸器疾患との関連に関する研究

1) 気道過敏性及びアレルギー反応に関する研究

慢性閉塞性呼吸器疾患の発症から増悪に至る過程に影響を与える可能性のある因子としては、気道の過敏性、アレルギー反応の亢進などがある。この気道の過敏性、及びアレルギー反応の亢進と大気汚染物質がどのような関係にあるかを解析するため、粒子状物質とNO₂等の単一又は複合暴露の影響の検討を行う。また、その機構に関してアレルギー反応と関連が深い免疫機能、及び過敏性発現と関連の指摘されている感染抵抗性についても検討する。

2) 呼吸器系腫瘍発生に関する研究

都市部と農村部での肺ガン死亡率を比較した疫学調査結果、及び肺ガン死亡者中の腺ガンの割合の増加などから大気汚染と呼吸器系発ガンとの関連が憂慮されている。この関連を実験的に解明するため、それだけでは腫瘍を起さない少量の発ガン物質を投与したあと、粒子状物質やNO₂等の単一あるいは複合慢性暴露を行い、呼吸器系腫瘍の発生促進効果の有無について検討する。さらに短期間暴露実験系でNO₂や粒子状物質の発ガン促進作用の有無についても検討する。

(4) 生体影響の評価手法に関する研究

1) 肺傷害を中心とした影響評価手法の開発

NO₂や粒子状物質の生体影響を評価する手段として、肺を中心とする臓器の主要な生理機能及び細胞諸機能の恒常性の偏りや傷害を短期間にかつ鋭敏に検出し得る手法を確立する。また、細胞諸機能を修飾するなどの手法によって高感受性要因の解析についても検討を行う。

2) 遺伝子障害を基準とした評価手法の開発

粒子状物質の中に含まれる多環芳香族炭化水素類をはじめとするベンゼン可溶画分等の遺伝子への障害作用を鋭敏に検出する手法を確立する。

(5) 大気汚染による生体影響の総合的評価に関する研究

(1)で作製した暴露装置で(2)~(3)の課題の吸入実験を行い、得られた結果と、(4)で開発した、主に試験管内評価法で得られた結果、及び文献的研究結果とを合わせて、粒子状物質

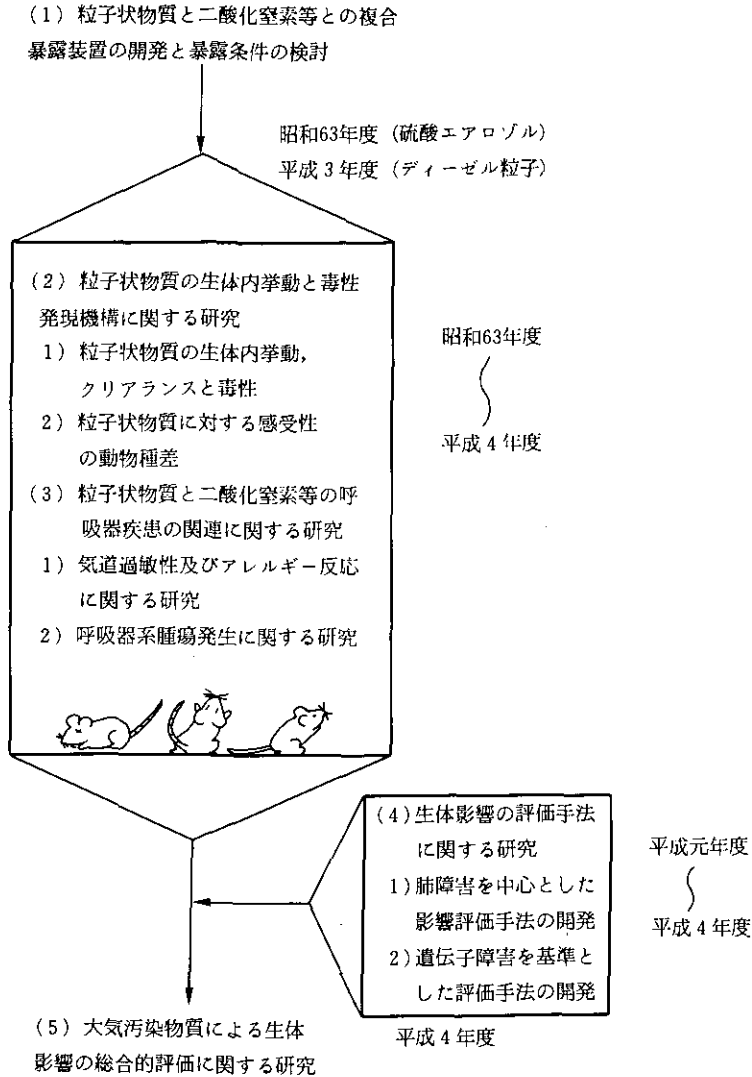


図1 本特別研究の全体構成

の生体影響を総合的に評価する。また、大気汚染の生体影響を疾病、疾病の前段階及び恒常性の偏りという3段階で評価し、大気汚染物質の健康への影響評価法のあり方について考察する。

各サブテーマの相互の関係及び年次計画は図1のとおりである。

【研究成果】

(1) 粒子状物質と二酸化窒素等の複合暴露装置の開発及び暴露条件の検討

経気道的に吸入された粒子は、その大きさにより、呼吸器での沈着部位、あるいは毒性が異なることが報告されている。本年度は、粒子状物質の中で組成比率が高く、気道過敏性等の生体影響が改めて問題となっている硫酸エアロゾルを例にとり現実の大気中にある粒子径に近い径を持つ粒子状物質の暴露が可能な装置を開発した。

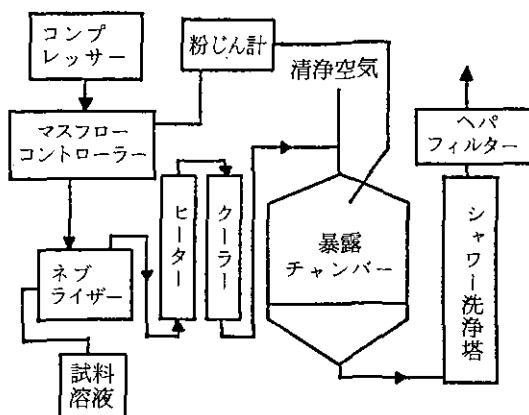


図2 粒子状物質暴露装置概要

暴露装置の概要を図2に示した。装置はネブライザーにより発生させた硫酸エアロゾルを加熱・冷却し、粒子から適量水分を取り除くことにより、目的粒径の粒子を作り、また、発生粒子数を変化させることにより、目的の重量濃度にするを基本とした。

本装置において、硫酸の元液濃度を下げ、加熱温度を高めることにより粒径は低下し、逆に硫酸の元液濃度を上げ、加熱温度を下げることにより、粒径は上昇することが明らかになった。

このことを利用し、暴露装置内において目的の粒子径(0.5~0.8 μm)及び重量濃度(1 mg/m^3 及び3.2 mg/m^3)の硫酸エアロゾルを発生させることが可能になった。

この暴露装置を用い、急性暴露用チャンバーを使った1か月暴露を昭和63年7月から5回、慢性暴露用チャンバーを使った暴露を同年7月から10か月間(継続中)行い、粒径、濃度制御ともに満足すべき結果を得ている。

(2) 粒子状物質の生体内挙動と毒性発現機構に関する研究

本課題では、化学形態の異なる粒子状物質の生体内挙動、クリアランスと毒性を調べることにより、粒子状物質の毒性発現機構を解明することを目的としている。

本年度は、硫酸塩として銅化合物に着目し、可溶性の硫酸銅溶液と難溶性の酸化銅をラットに気管内投与し生体内挙動と毒性について検討し、これまでに得られている亜鉛やカドミウムの結果と比較した。肺からの銅のクリアランスを明らかにし、肺組織内の銅の存在形態変化を高速液体クロマト-プラズマ発光分光法(HPLC-ICP法)により調べた。また、毒性の指標としてと肺胞洗浄液中のタンパク質量、LDH及び β -グルクロニダーゼ活性、更に、肺胞マクロファージと多形核白血球数変化を調べた。

肺胞からの銅のクリアランス速度は可溶性銅でも難溶性銅でも極めて速く、吸収された銅はメタロチオネイン画分に取り込まれていた。図3には、酸化銅を投与したラットの肺ホモジネート上清中の銅の存在形態を示した。対照群の肺では、銅はセルロプラスミン(CP)とスーパーオキシドディスムターゼ(SOD)として存在しているが、銅化合物投与によりメタロチオネイン画分への取り込みが増加していた。肺胞洗浄液中のタンパク質量、酵素活性及び貪食細胞数は2~3日目に最大に増加し、炎症が起こっていることを示した。この結果、肺胞洗浄液中の炎症反応からみた可溶性及び難溶性の銅化合物の毒性はほぼ同じであることが明らかとなった。さらに、難溶性の銅化合物も速やかに可溶化され、水溶性の銅化合物と類似挙動をとることも明らかとなった。

(3) 粒子状物質と二酸化窒素等の呼吸器疾患との関連に関する研究

1) 気道過敏性及びアレルギー反応に関する研究

気道過敏性とは、刺激物質、冷気など種々の刺激によって気道が過敏に反応し、気管が収縮し、呼吸が困難になりやすくなることであり、この気道過敏性の発現はぜん息に典型的とされている。また、気道過敏性の発現がぜん息発症の引き金になることも示唆されている。

このようなことから、大気汚染物質とぜん息との関連を検討するうえで、気道過敏性の点からの検討は重要な手段と考えられる。これまで、硫酸エアロゾルにより気道過敏性を検討した例は非常に少なく、しかも、短時間暴露例に限られているため影響評価が困難であるのが現状である。

そこで、モルモット(1群15匹)に1 mg/m³、3.2 mg/m³の硫酸エアロゾル又は清浄空気を3、7、14日間暴露し、同じ個体の暴露前後で気道の反応性を比較した。

気道反応性はヒスタミン濃度-気道抵抗より濃度-反応曲線を求め、気道抵抗を基準の2倍にさせるヒスタミン濃度(EC₂₀₀)として比較した。EC₂₀₀値が小さいほど気道の反応性は高い。

3.2 mg/m³の硫酸エアロゾルの3日暴露により気道反応性は低下したが、14日間暴露後では上

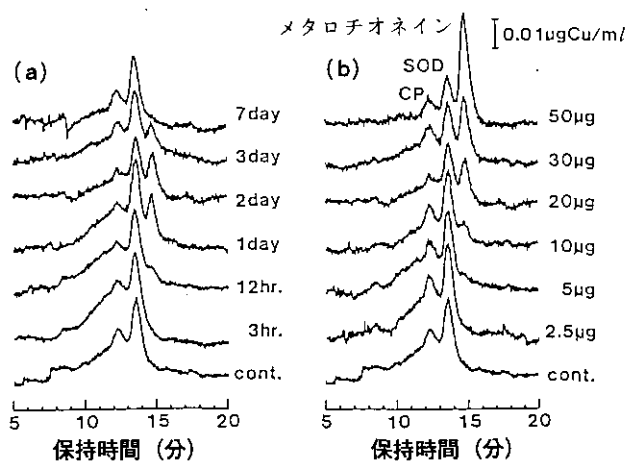


図3 HPLC-ICP法による肺ホモジネート上清中の銅の存在形態の変化
(a) 経時変化, (b) 用量反応変化

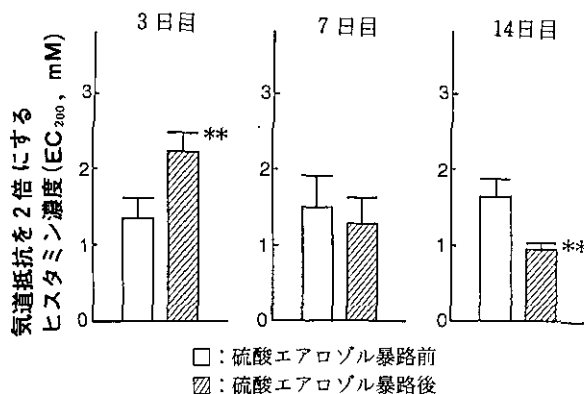


図4 3.2 mg/m³硫酸エアロゾル暴露が気道反応性に及ぼす影響

昇し、気道が過敏な状態になることが明らかになった(図4)。1 mg/m³では有意な変化は観察されず、また清浄空気暴露前後でも気道反応性に有意な変化はみられなかった。

これまでのモルモットを使った実験では、濃度が20 mg/m³以上の硫酸エアロゾルの1時間暴露で気道が過敏になるとの報告がある。今回の結果は、これより低い濃度でも、長時間暴露により気道が過敏になることを示している。今後、さらに長期間暴露により気道の過敏性がどのような変化をたどるかを検討していく必要がある。

一方、モルモットの気道反応性については個体差が大きく、もともと、気道が過敏なモルモットがいることが見いだされた。ヒトでも気道の反応性は個人によって大きく異なることが知られている。モルモットにおける個体差を利用し、気道が過敏なヒトに対する大気汚染影響を調べるモデルとして利用しうる可能性が示された。

アレルギー反応は、ダニ、花粉等の抗原に対して体の中でできた抗体が、再び侵入してきた抗原と反応するとき起きる免疫反応の一つである。この反応が呼吸器系でおきれば呼吸困難を引き起こしやすくなるとともにぜん息の引きがねになることもある。そこで、硫酸エアロゾル暴露によりアレルギー反応の原因になるIgE抗体産生能がどのような影響を受けるかを検索する目的で以下の実験を行った。

BALB/c雄マウスに硫酸エアロゾル1.0 mg/m³、3.2 mg/m³あるいは清浄空気を3、7、14日間連続暴露し、PCA反応^{注1)}でIgE抗体価を、Elisa法^{注2)}でIgG抗体価を測定した。まず、硫酸エアロゾル暴露前に抗原(卵白アルブミン)を腹腔内投与しておき、硫酸エアロゾル暴露直後に再度抗原をエアロゾルとして経気道投与してIgE抗体産生能を調べると、いずれの暴露群においても対照群との間に差異は認められなかった。ところが、IgG抗体産生能は3.2 mg/m³の硫酸エアロゾル群で有意に低下していた。次に、硫酸エアロゾル暴露直後に抗原をエアロゾルとして投与し、1週間後に抗原をアジュバンドとともに腹腔内投与するヘルパーT細胞誘導系^{注3)}を用いてIgE抗体産生を調べたところ、やはり硫酸エアロゾルの影響は認められなかった。一方、IgG抗体産生能は、14日間暴露の場合にのみ低下していた。

これらの結果より、硫酸エアロゾル暴露により抗体産生能は変化しないか、低下の傾向にあり、暴露によりアレルギー反応が起こりやすくなるとしても、その原因としてはむしろ抗体価の上昇以外の要因、つまり肥満細胞あるいはそのケミカルメディエーターについての検討が必要であることが示唆された。

2) 呼吸器系腫瘍発生に関する研究

本年度は、短期間暴露実験系でNO₂や粒子状物質の肺での腫瘍発生促進作用の有無を調べる一環として、10 ppm NO₂と3.2 mg/m³の硫酸エアロゾルの4週間の亜急性暴露を行い、腫瘍の発生促進作用をスクリーニングする際の指標として知られている肺のODC(ornithine decarboxylase)活性とポリアミン含量の変化を調べた。

ODC活性は硫酸エアロゾル単独暴露では全く変化しないが10 ppm NO₂単独暴露では一過性に約2倍に増加した。これに対し、硫酸エアロゾルとNO₂を複合暴露するとNO₂単独暴露の場合と同様に2倍の増加にとどまったが、増加していた期間はNO₂単独暴露の場合の2倍に達していた。また、肺内ポリアミン含量も低率ではあるが、複合暴露群で有意に増加していた。これらの結果より、NO₂と硫酸エアロゾルの複合暴露群では単独暴露の場合より腫瘍発生促進効果のある可能性が示唆される。

また、我々は先に呼吸器系に腫瘍を生じさせることが知られているDHPN(N-bis-2-hydroxy-

propyl nitrosamine)を、それだけではほとんど腫瘍を生じない少量を腹腔内に1回投与し、その後NO₂を17か月間連続暴露すると、対照群では40匹中に1匹のみ腫瘍が発生していたのに対して、4 ppm NO₂群では5匹に腫瘍が認められ、かつそのうちの1匹には悪性腫瘍が認められ、また0.04 ppmと0.4 ppm NO₂群では共に対照群と同じく、1匹にしか腫瘍は認められなかった、という結果を得た。なお、対照群と4 ppm NO₂群との間に有意差は認められないながらNO₂には腫瘍発生促進作用がある可能性が示唆された。

本年度は、上記NO₂と粒子状物質の複合効果を調べるために、0.4 ppm NO₂に1.0 mg/m³硫酸エアロゾルを複合暴露し、肺腫瘍の発生率が上昇するかどうかの実験を開始した。なお、本実験においては0.4 ppm NO₂と0.05 ppm オゾン(O₃)との複合影響の実験も並行して実施している。

注1) PCA 反応：即時型過敏症の原因となるIgE抗体を証明するための *in vivo* の受身伝達法。

注2) Elisa 法：酵素標識した抗体を用い酵素反応で抗体価を測定する方法。

注3) ヘルパーT細胞：我々が開発したTリンパ球の活性を調べる方法。

2.12 成層圏オゾン層の変動とその環境影響に関する基礎的研究（初年度）

昭和 63 年度～平成 4 年度（1988～1992 年度）

〔研究組織〕 大気環境部

◎秋元 肇

大気物理研究室 竹内延夫・○笹野泰弘・中根英昭・杉本伸夫・林田佐智子・湊 淳

大気化学研究室 鷺田伸明・井上 元・坂東 博・畠山史郎・酒巻史郎・

鈴木 陸・橋本 訓

環境情報部

情報調査室 松本幸雄・新藤純子・横田達也

総合解析部

資源循環研究室 中杉修身

地域計画研究室 清水 浩

計測技術部

分析室 溝口次夫・功刀正行・西川雅高

環境生理部

環境病理研究室 彼谷邦光

環境生化学研究室 三浦 卓・国本 学・高橋勇二

生物環境部

生理生化学研究室 ○近藤矩朗・島崎研一郎

技 術 部

生物施設管理室 大政謙次・藤沼康実・増田啓子

理工施設管理室 高木博夫・松井一郎

客員研究員 23 名

〔研究概要〕

フロンガス(クロロフルオロカーボン；CFC)は、無臭、不燃などの数々の特徴を持っているため、身近なところでは一部のスプレー製品の噴射剤を始めとして、冷蔵庫やクーラーの冷却剤や洗剤等に幅広く使われてきた。しかし、フロンガスは大気中に放出されるとその化学的に安定な性質のために対流圏(地上から高度約 15 km 位までの大気)のなかでは壊れることなく、拡散されてついには成層圏と呼ばれる高度 15 km 以上の大気領域にまで達する。成層圏にまで運ばれたフロンガスは、波長の短い紫外線によって分解されて塩素原子を放出し、成層圏のオゾンを壊すような化学的な連鎖反応を引き起こす。元来、このような人工起源物質が使われ始める前までは、大気の状態はある種の平衡状態にあつて図 1 に模式的に示すようなオゾン分布、気温分布をしていたわけだが、フロンガスの使用が増えるにつれて上に述べたような化学反応が進行し、高度 40 km 付近を中心にオゾン破壊が進行する(図 2)と考えられている。

成層圏オゾン層は太陽からの波長の短い、生物に有害な紫外線を吸収する働きを持っており、そのおかげで動物・植物は現在の繁栄を続けている。そこへ成層圏オゾンの破壊が起こればオゾン

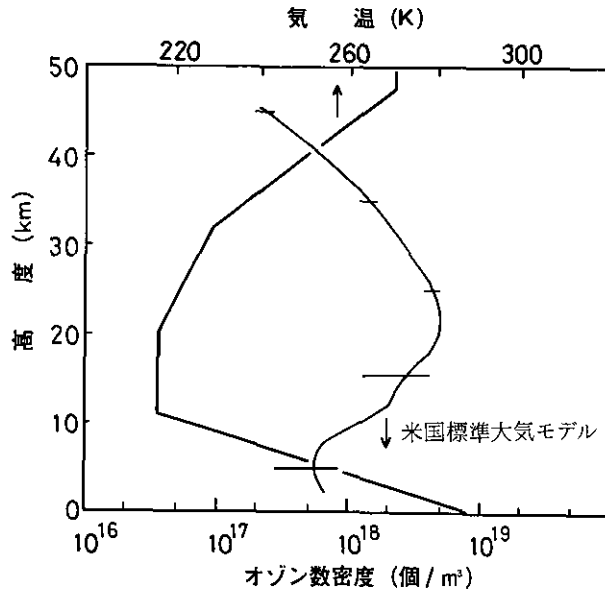


図1 平均的なオゾン、気温の鉛直分布 (米国標準大気モデル)

濃度が低くなると、有害紫外線の地上到達量は増加し地上に生息する生物に大きな影響を与えると考えられている。1974年にアメリカの化学者 Rowland 博士らがこのようなフロンガスによる成層圏オゾンの破壊の可能性を指摘して以来、その環境に与える影響の重大さに関心を抱いた多くの科学者がこの問題に取り組んできた。そして、国際的にフロンガスの生産・使用量削減、あるいは禁止の動きが出てきた (ウィーン条約・モントリオール議定書として、国際的な取り決めとなった)。特に、南極上空のオゾン層濃度が極端に低くなる、いわゆる「オゾンホール」が1985年に発見されてからはその動きが一層活発となり、我が国においても「オゾン層保護法」が整備されるに至っている。フロンガス等の生産・使用量の削減に関する国際的な取り決めの改訂の動きは極めて急であって、最近では95%削減、全廃といった声も聞かれる状況にある。

そのような行政的な取り組みの一方で、科学的な知見の強化を図る必要性はいささかも減じるものではない。我々はいまだ、成層圏オゾン濃度の変動について十分に理解しておらず、将来予測を高い確度で行えるほどの完全な知見を持っているわけではない。モントリオール議定書においても、今後定期的に内容の見直しを行うことを定めており、科学的な知見の強化の必要性を唱えている。本特別研究はこのような背景の下に、フロンガス等の人工起源物質による成層圏オゾン破壊の問題に関連して、成層圏オゾン濃度変動の実態とそのメカニズムを大気物理・大気化学の両面から、オゾン濃度の実測、室内実験、理論モデルの手段を用いて調べることを目的としている。また、成層圏オゾンの変動がもたらす紫外線環境の変化と、その生体影響についても実験的に調べて行くこととしている (図3)。

オゾン濃度の実測には昭和62年度の補正予算で導入されたオゾン計測用のレーザーレーダーが主要な役割を演じる。これは下部対流圏から上部成層圏 (高度50 km程度まで) の広い高度領域について、高い測定精度でオゾン濃度の高度分布を測定できるよう製作したもので本研究の開始と同時に装置の整備、データ解析プログラムの開発、最適測定手法の検討を行いつつデータの収集を始めた。

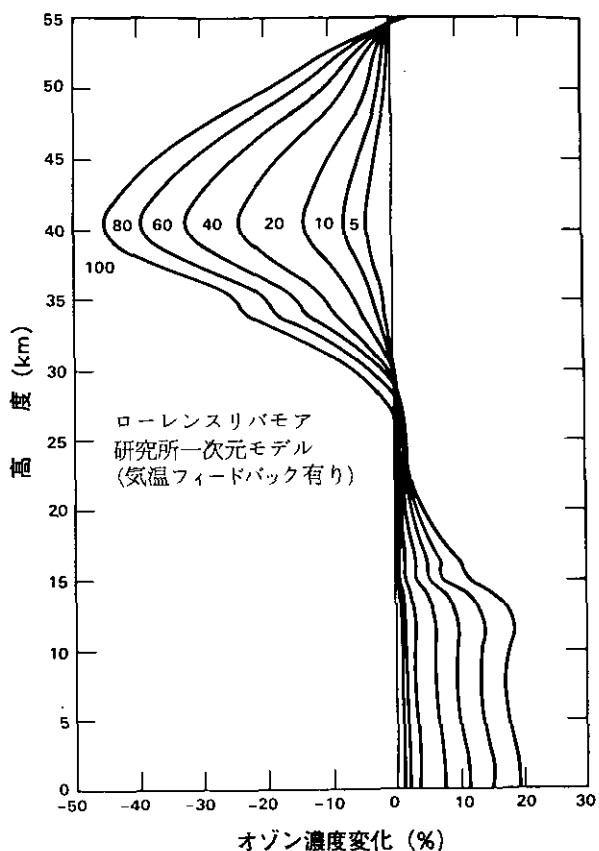


図2 理論モデル(ローレンスリバモア研究所)で予測されたオゾン濃度の変化
 CFC, メタン, 一酸化二窒素の放出は1980年レベルからそれぞれ年率1.5%, 1.0%, 0.25%
 で増加するとし, 二酸化炭素については米国エネルギー省のシナリオに基づいて増加する
 と仮定している。高度40 km 付近での減少率が最も大きい。

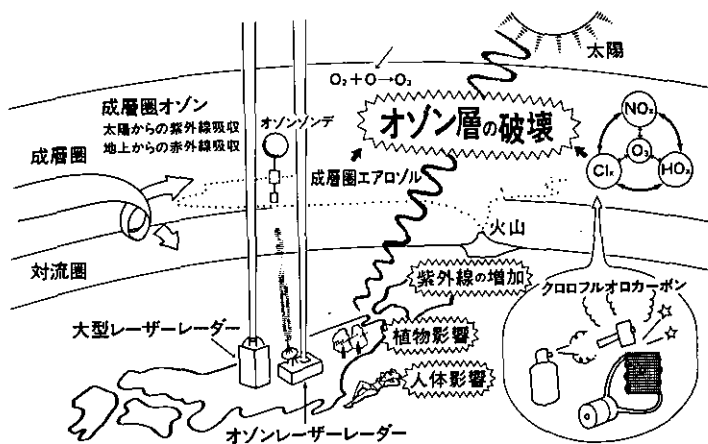


図3 本特別研究の概念図

フロンガス等によるオゾンの破壊に関する実験的研究は、紫外線光を透過するように改修された成層圏チャンバーを用いて行われる。チャンバー内に封入した純酸素空気に紫外線を照射し、いわば自然状態のオゾンを作り出した後にフロンガス、ハロンガス(プロモフルオロカーボン)等を導入し、オゾン破壊の状況を観測することにより、これら人工起源物質によるオゾン破壊に関する基礎的データを収集する。

成層圏オゾン濃度の長期的変動予測、種々の人工起源化学物質によるオゾン破壊への寄与の解明などは物理・化学モデルにより行われる。本研究ではこれまでに集積されてきた知見を総合し、化学反応、放射過程、拡散過程を組み込んだ次元モデルを構築する。

紫外線の生物影響に関しては、植物や人体細胞を用いた紫外線照射の実験的研究を行う。

本特別研究は以下の5つのサブテーマから構成されている(図4)。

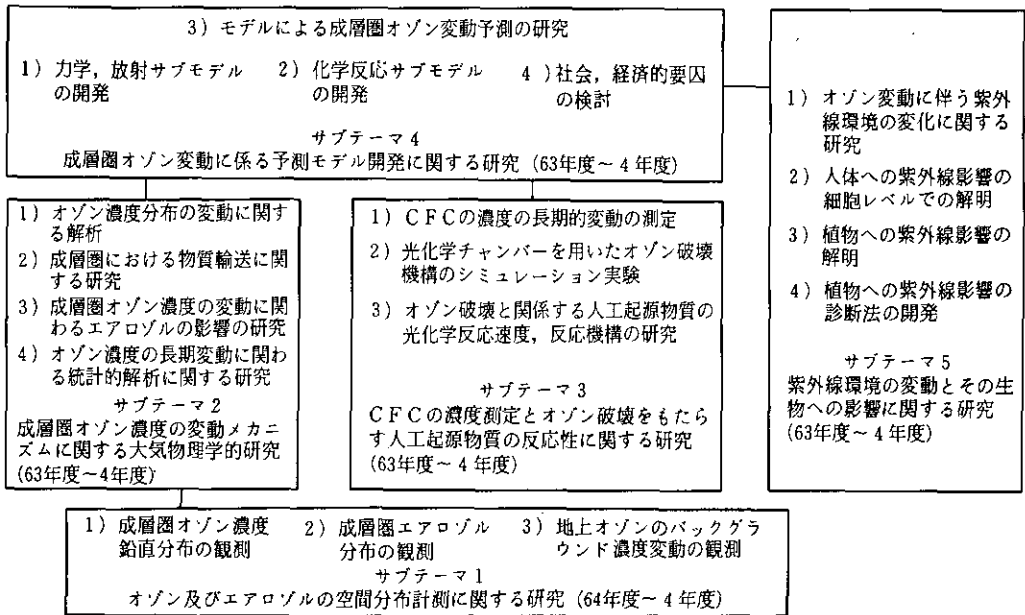


図4 本特別研究の全体構成

(1) オゾン及びエアロゾルの空間分布に関する研究

オゾンの変動を計測するために、オゾン計測用レーザーレーダーを長期にわたって安定に動作させてデータを蓄積する。また、オゾン変動と関連して、成層圏エアロゾルの変動特性についてのデータの蓄積を行う。さらに変動特性を抽出するためのデータ処理手法を開発し系統的にデータを解析する。このため、以下に示す観測を行う。

- 1) オゾン濃度鉛直分布の観測
- 2) 成層圏エアロゾル分布の観測
- 3) 地上オゾンのバックグラウンド分布の観測

(2) 成層圏オゾン濃度の変動メカニズムに関する大気物理学的研究

実測された成層圏オゾン及びエアロゾルのデータを基に、種々の時間スケールでのオゾン濃度

変動の把握を行うとともに、その原因を主として大気物理学的に物質輸送の観点から解明する。さらに、オゾン濃度変動に対するエアロゾルの表面反応、紫外線伝達を通しての光化学反応機構への寄与を評価する。また、オゾン濃度の長期変動の把握のための新たな統計解析手法を開発し、信頼度の高い解析を行う。

- 1) オゾン濃度分布の変動に関する解析
- 2) 成層圏における物質輸送に関する研究
- 3) 成層圏オゾン濃度の変動にかかわるエアロゾルの影響の研究
- 4) オゾン濃度の長期変動にかかわる統計的解析に関する研究

(3)CFCの濃度測定とオゾン破壊をもたらす人工起源物質の反応性に関する研究

バックグラウンド大気中のCFC濃度の長期変動を測定するとともに、成層圏チャンバーを用いたオゾン破壊機構のシミュレーション実験と人工起源物質の均一及び不均一化学基礎反応速度・機構の研究を行い、反応の分類整理に役立つデータを蓄積し、予測モデルの確立を助ける。

- 1) CFC濃度の長期的変動の測定
- 2) 光化学チャンバーを用いたオゾン破壊機構のシミュレーション実験
- 3) オゾン破壊と関係する人工起源物質の光化学反応速度、反応機構の研究

(4)成層圏オゾン変動に係る予測モデル開発に関する研究

CFCその他の大気微量成分の長期濃度変動によってもたらされる成層圏オゾンの変動を予測するため、大気力学、放射などを記述するサブモデルを開発し、それらを総合したモデルに基づいた計算機シミュレーションを行う。また、大気微量成分の濃度変動の将来予測に関して、社会、経済的要因を考慮にいたれた検討を行う。

- 1) 力学、放射サブモデルの開発
- 2) 化学反応サブモデルの開発
- 3) モデルによる成層圏オゾン変動予測の研究
- 4) 社会・経済的要因の検討

(5)紫外線環境の変化とその生物への影響に関する研究

地上に降り注ぐ紫外線の増減によって、人間を含む生物の生理的あるいは遺伝的影響が生じる可能性がある。生物への影響がどの程度生じるかについて基礎的な知見を得るために、以下の研究を行う。

- 1) オゾン変動に伴う紫外線環境の変化に関する研究
- 2) 人体への紫外線影響の細胞レベルでの解明
- 3) 植物への紫外線影響の解明
- 4) 植物への紫外線影響の診断法の開発

[研究成果]

本年度は初年度であったので各課題とも今後の研究のための準備が中心であった。オゾンレーザーレーダーは本格的な観測を始めるための調整、測定手法の検討が行われ、また、成層圏チャンバーを用いて予備的な実験が始められた。予測モデルの開発については、フロンガスその他の大気微量成分の長期濃度変動によってもたらされる、成層圏オゾンの変動を予測するための一次

元化学拡散モデルの基礎的枠組みの開発を行った。生物影響などの研究に関しては、セミナー等を通して研究課題の整理と、今後の実験のための準備を行った。

以下ではオゾンレーザーレーダーによる成層圏オゾン観測と成層圏チャンバーを用いたオゾン破壊の実験について、これまでの成果を述べる。

(1) オゾンレーザーレーダーによる成層圏オゾンの観測

フロンガスによる成層圏オゾンの破壊は、現在までに知られている知見によれば高度 40 km あたりを中心とする上部成層圏において最も顕著にその影響が現われると考えられている(図 2)。成層圏オゾンは高度 20~30 km 程度の高度領域で高濃度となっているが、この領域でのオゾン濃度の減少はあまり大きくなく、また、対流圏では逆にオゾン濃度は増加するものと見積られている。したがって、フロンガスによる高層大気中のオゾンの破壊を早期に検出しようとするならば、上部成層圏に着目する必要がある。また、上部成層圏のオゾン濃度を高精度で測定し、種々の時間スケール(日々変動、季節変動、年々変動等)での変動現象を正確に把握することがきわめて重要であり、多くの努力がなされてきているところである。レーザーレーダーを用いた高層のオゾン濃度測定は 1970 年代後半から試みられており、高度分解能を持った測定法として最も有望なものと考えられてきた。

レーザーレーダーによるオゾン濃度測定の原理は差分吸収方式と呼ばれている。差分吸収方式では測定対象のガスによる光の吸収量を求め、これから濃度を算出する。すなわち、吸収の大きな波長のレーザー光と、吸収の小さな波長のレーザー光を用いてレーザーレーダー測定を行う。そして、両者の信号の比から光の吸収量を求め、さらに高度方向に微分することでオゾン濃度の高度分布が得られる。

1) 国立公害研究所オゾンレーザーレーダー装置の概要

国立公害研究所におけるオゾンレーザーレーダー装置の特徴を表 1 に簡潔に示した。ポイントは対流圏下部から成層圏上部までの測定を可能にするために最適化された高高度領域測定用、低高度領域測定用の 2 つのサブシステムからなること、エアロゾルの存在による系統的誤差を抑えるためにそれぞれのサブシステムで 3 つの波長のレーザー光を用いていること、高高度システムに直径 2 m の大口徑受信望遠鏡を採用していることである。

表 1 国公研オゾンレーザーレーダーの特徴

- | |
|----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| <ul style="list-style-type: none">・高高度、低高度システムの 2 系列を採用・各システムで 3 波長のレーザー光を利用・大口徑 (直径 2 m) の受信望遠鏡 |
|----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|

2) オゾンレーザーレーダーの整備状況

昭和 63 年 3 月末に搬入・設置されたオゾンレーザーレーダーは、4 月初めの段階で最初のレーザーレーダー信号を受信するまでに至ったが、オゾンレーザーレーダーとして信頼できる信号を得るためには、さらに国公研側として手を加えるべき問題がいくつか残されていた。すなわち、

- ① 波長変換装置光学系の再検討、② 受信光学系アライメントの再検討、③ 信号収集のタイミン

グ、チョッパータイミングの再検討, ④ 系統的電気信号ノイズの除去, などである。

4月以来, これらの問題に対して主として高高度システムを対象に, テスト観測などをおして検討を加えてきた。現在のところ, 高高度システムについては, ほぼこれらの問題は解決した。低高度システムについては, 今後, テスト・改良を加えていく予定である。ハードウェアの整備に合わせて, 新しいデータ処理手法の開発, データ処理プログラムの整備を行った結果, 受信信号強度, オゾン濃度, 気温, 測定精度等の高度分布の出力が可能になった。

3) 受信信号の処理

受信信号はレーザーレーダー方程式に従った差分吸収レーザーレーダーの式に基づいて, オゾン濃度に換算される。当面は, エアロゾル量が少ないと考えられる上部成層圏を対象としているので, 3波長を同時に用いた解析は行っていない。むしろ, オゾンによる吸収の無視できる2波長の信号を比較することにより, 受信信号における系統的誤差の有無を調べ, 装置としての信頼性の確認を行っている。

図5に測定されたオゾン濃度分布の例を示した。同図には高高度システムの結果のみが描かれており, 波長と, 高感度・低感度検出器の区別(H, L)が図中に示されている。また, 図中の細かい曲線は測定誤差の幅を示している。測定誤差は, 検出器出力の統計的性質で決まると仮定して, 受信信号の光電子数を基に理論的に計算したものである。ただし, この計算では受信信号は距離自乗の補正の後, 幅2 kmの移動平均(2次式のあてはめ)を施し, さらに2 kmの高度分解能で差分をとっている。

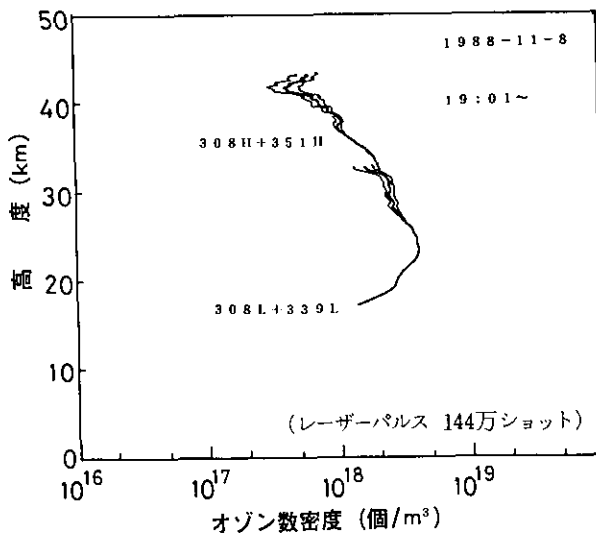


図5 オゾン濃度高度分布 (太い実線)

1988年11月8日測定。高度30 km以上は波長308 nm, 351 nmの高感度検出器の受信信号を用いてオゾン濃度を求めた。30 km以下は308 nmと339 nmの低感度検出器の信号を用いた。細い実線は測定誤差の幅を示す。測定には144万発のレーザーパルスを用い, 距離自乗補正を施した信号に2 km幅の移動平均(2次式のあてはめ)をかけ, 高度分解能2 kmとして差分をとり濃度を求めた。

このようにして計算された測定誤差は、高度 35 km, 40 km のそれぞれで 2.8%, 11.2% である。ショットノイズで決まる測定誤差と、高度分解能、平滑化の幅の理論的關係から、例えば高度 40 km で 2% の測定精度を得ようとする測定時間を約 8 時間とし、平滑化幅・高度分解能ともに 5 km にする必要があることが分かる。ここで平滑化幅は受信信号に対する移動平均の幅であり、高度分解能は求めたオゾン濃度が代表する高度幅を意味している。

4) 最近の観測結果から

図 6 に昨年 8 月以来 12 月までの観測のうちから毎月 1 例を抜きだし、予備的な解析の結果を並べて表示した。それぞれの濃度分布は 2~4 時間程度の測定時間をかけ、また図 5 と同様に 2 km の平滑化幅、高度分解能を持たせたものである。これらのオゾン濃度分布は、米国標準大気モデルのオゾン濃度分布やその他の過去の観測結果とも比較的良好に一致しており、現在までのオゾンレーザーレーダー観測から見る限りはつくば上空の成層圏オゾンに大きな変化は見いだされていない。

年率 1~2% に満たないと予想される系統的な濃度変化や、季節変化を論じるには多くの測定の積み重ねが必要であることが分かる。

(2) 成層圏チャンバーを用いたフロン・ハロン類によるオゾン層破壊模擬実験

まず、以下の反応から成る光定常状態（純酸素モデルによるオゾン層）を成層圏チャンバー内に達成させた後、

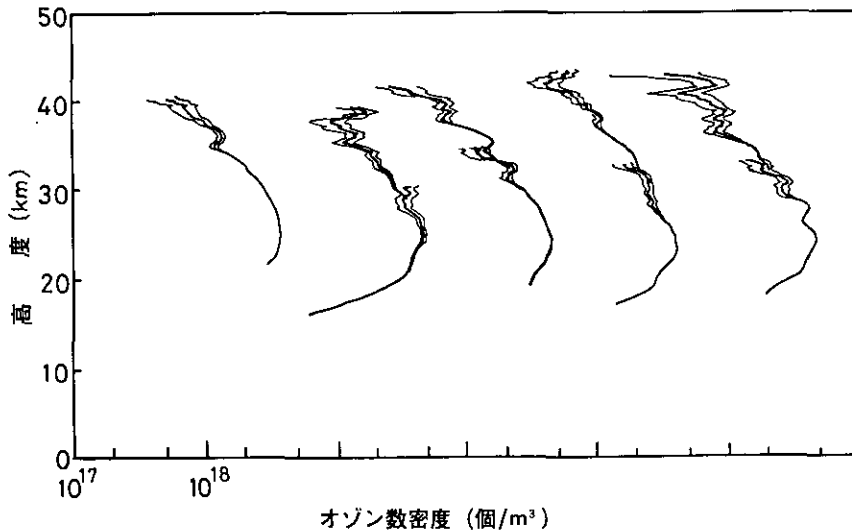


図 6 1988 年 8~12 月までの各月 1 例ごとのオゾン濃度高度分布の予備解析の結果
 左から順に、8 月 9 日、9 月 14 日、10 月 13 日、11 月 8 日、12 月 7 日、いずれも横軸座標をずらせて描いている。測定時間は 2~4 時間をかけている。

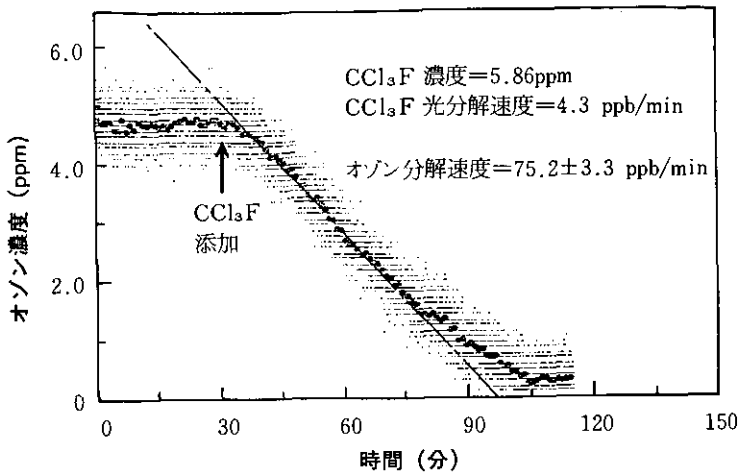
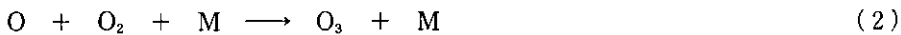


図7 フロンによるオゾン破壊のチャンバー実験

高度 20 km に相当する 0.07 気圧下で 4.4 ppm の光定常状態になったオゾンが、フロン-11 の添加 (図中、矢印) により急激に減少していく。



そこに、フロン・ハロン類を導入した。ここで $h\nu$ は光子を、M は空気分子を表している。そして、それらの光分解により放出される塩素あるいは臭素原子によって引き起こされるオゾン分解サイクル (X = 塩素又は臭素原子)，



によるオゾン破壊の速度を、オゾン濃度の変化を直接モニターすることにより定量的に評価した。

図7に、高度約 20 km の成層圏大気圧に相当する清浄空気下における実験結果の一例を示した。初期 30 分間にみられる 4.4 ppm で一定したオゾン濃度は、本チャンバー内でオゾンの光定常状態が達成されていることを示す。そこに矢印で示した時点で 5.9 ppm 相当のフロン-11 (CCl_3F) を添加すると図に明らかなようにオゾンの減少が見られる。破壊実験を効率的に行うためにここで用いたフロン濃度は実大気と比べると約 2 万倍の高濃度になっており、急激なオゾン減少が観測される。フロン・ハロンの種類によるオゾン破壊能を評価するために、単位時間当たり分解するフロン・ハロン類の量を一定にして、オゾンの減少速度を比較した。その結果、フロン-11 によるオゾン減少速度を 1 とすると、フロン-12 (CCl_2F_2)、ハロン-1301 (CBrF_3)、ハロン-2402 ($\text{C}_2\text{Br}_2\text{F}_4$) で各々 0.96, 1.69, 2.87 (モル基準) となった。

以上の実験結果は、次の点で大気化学的に重要な意味を持つ：① 模擬成層圏大気条件下で初めてフロン・ハロン類によるオゾン破壊を実験的に測定した。② フロン-11 と-12 では、分子が持っている塩素数が異なるにもかかわらず同じオゾン破壊能を示す。このことから、フロン-11 の持つ

3個の塩素のうち、2個の塩素のみが初期分解過程で放出されオゾン破壊に関与する。③ フロンに比べハロンの方がオゾンの破壊能が高い。従来、速度論的データから予想されていた BrOx 系の高いオゾン破壊効率が、実際のオゾン分解速度により初めて確かめることができた。本実験の結果は、オゾン層保護条約におけるモントリオール議定書の付属書に示されたフロン・ハロン類のオゾン破壊能 (ODP ; Ozone depletion potential) の傾向を支持するもので、ODP を評価する定量的基礎データを与える初めての実験結果である。

昭和63年度 編集委員会

委員長	後藤典弘
副委員長	相馬光之
〃	三浦卓
委員	海野英明
〃	宇都宮陽二郎
〃	田村正行
〃	藤井敏博
〃	笹野泰弘
〃	相崎守弘
〃	小林隆弘
〃	太田庸起子
〃	古川昭雄
〃	大政謙次
事務局	古田早苗

国立公害研究所特別研究年報

昭和63年度

平成元年8月30日

編集 国立公害研究所 編集委員会

発行 環境庁 国立公害研究所

〒305 茨城県つくば市小野川16番2

印刷 フクダ工芸株式会社

東京都中央区新川1-3-2