

AR-3-'90

国立公害研究所 特別研究年報

平成元年度

環境庁 国立公害研究所

平成元年度国立公害研究所特別研究年報の 発行にあたって

本研究所は、我が国の環境研究の中心的な役割を果たすために、昭和49年に環境庁付属機関の国立公害研究所として設置されました。その目的に合わせて本研究所は、理工学、医学・生物学等の自然科学分野はもとより、人文・社会科学に至る広範囲にわたっての多様な研究者集団によって構成され、さらに国公立大学、地方自治体の公害研究所等の所外の専門科学者の参加のもとに、多くの学際的な研究を展開してまいりました。

特別研究は、本研究所の学際性にみられる特徴を十分に活かすよう、総合的なプロジェクト研究として、昭和51年度の「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、すでに42課題を数えております。このうち30課題が昭和63年度末までに終了し、平成元年度時点で12課題の特別研究を実施いたしました。本年7月には研究所の組織を全面的に改編し、プロジェクト研究をさらに充実させる目的で総合研究部門を発足させ、所名も国立環境研究所に改称することになっております。

特別研究の成果につきましては、当初より「国立公害研究所研究報告」として公表し、また「国立公害研究所年報」にも収録してまいりました。しかし、特別研究が現実の社会的関心の高い課題を扱うことを考え、昭和62年度より新たに「国立公害研究所特別研究年報」を刊行いたしました。これは、一般の方々にも分かりやすい表現につとめ、図表を多くして、それぞれの特別研究の概況を簡潔に述べる目的で、作成したものであります。

幸い、昭和62、63年度の「国立公害研究所特別研究年報」につきましては、分かり易いとの評価をいただきました。しかし、文章の平易さ、図表による表現の適切さ等で至らない面はなお多いと思われまます。関係者の方々のご叱正を仰ぎ、これらの点についてさらに改善を加え、分かり易い特別研究年報という刊行の目的に沿うよう今後も努力してまいりたいと思ひます。

平成2年6月

国立公害研究所

所長 小 泉 明

目 次

1. 概 況	1
2. 特別研究	
2.1 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（最終年度）	3
2.2 雲物理過程を伴う列島規模大気汚染に関する研究（最終年度）	11
2.3 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	25
2.4 富栄養化による内湾生態系への影響評価に関する研究	31
2.5 先端技術における化学環境の解明に関する研究	38
2.6 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	45
2.7 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	54
2.8 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	63
2.9 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	72
2.10 広域都市圏における交通公害防止計画策定のための環境総合評価手法に 関する研究（初年度）	79
2.11 水環境における化学物質の長期暴露による相乗的生態系影響に 関する研究（初年度）	86
2.12 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（初年度）	98

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、環境庁の付属機関として、筑波研究学園都市に設立された。本研究所は、理工学、生物学・医学等の自然科学分野から、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で構成されており、大学の研究者や地方公害研究所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併せ、社会的ニーズに対応した目的指向型の研究プロジェクトとしての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42課題に達し、このうち30課題が昭和63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、重金属による土壌汚染や生態系の汚染といった、特定の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。しかし、最近においては、科学技術の進歩、産業構造、生活様式の変化等を背景として、先端産業の発展等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や生態系に及ぼす影響、地球的な規模での環境問題等が主要な課題として関心を持たれてきており、これに伴って当研究所の特別研究の内容も変化してきている。

平成元年度においては、次の12課題の特別研究を実施した。このうち、☆印を付した3課題は平成元年度よりの新規課題、★印を付した2課題は平成元年度をもって最終年度とする終了課題である。平成元年度の特別研究には、当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270名の客員研究員及び64名の共同研究員が参画した。

1. ★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
2. ★雲物理過程を伴う列島規模大気汚染に関する研究
3. 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
4. 富栄養化による内湾生態系への影響評価に関する研究
5. 先端技術における化学環境の解明に関する研究
6. 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
7. 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
8. 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
9. 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
10. ☆広域都市圏における交通公害防止計画策定のための環境総合評価手法に関する研究
11. ☆水環境における化学物質の長期暴露による相乗的生態系影響に関する研究
12. ☆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

2. 特別研究

2.1 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 (最終年度)

昭和 60 年度～平成元年度 (1985～1989 年度)

〔研究組織〕 水質土壤環境部

◎須藤隆一

土壤環境研究室 ○高松武次郎・○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・今井章雄

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

森田昌敏

生体化学計測研究室 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

〔研究概要〕

土壤は食料生産、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機ハロゲン化合物による地下水汚染の実態が明らかにされ、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。一方従来からの重金属による土壤汚染も、農地では着実に対策が進められているが、市街地での汚染や先端技術産業に伴う汚染が新たに懸念されることから、汚染機構に関する基礎的な知見の早急な蓄積が望まれる。

本特別研究では、汚染が土壤-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、土壤表層に負荷された有害化学物質が浅層、深層土壤層から地下水層へと移行する機構とその過程でおこる有害化学物質の土壤への吸・脱着反応や生分解反応等、並びに有害化学物質が陸上植物や土壤生物に与える影響等について検討した。また、有機ハロゲン化合物については、汚染源の特定や土壤への負荷過程に関しても検討を加えるとともに、除染対策についても検討した。

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、深層土壌、地下水層等）、及び用いる研究手法（数値解析、室内実験、現地調査等）の相違を配慮し、次の8課題について行った。すなわち、（1）有機ハロゲン化合物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）有機ハロゲン化合物の物理化学特性の把握、（5）有機ハロゲン化合物の浸透と流動、（6）重金属の土壌中での移動と分布特性、（7）重金属に対する植物応答、及び（8）有害化学物質の土壌生態影響と有機ハロゲン化合物の生分解、である。

既に5年間の研究を通して、有機ハロゲン化合物関連では、①全国の主な汚染事例を調査して汚染の現況を把握するとともに、地下水中の汚染物質の濃度変動の機構を解明した、②汚染物質が土壌層を通過して地下水層に至る過程と機構について新しい知見を得た、③未発見の汚染地を探索するための土壌ガス分析法を開発し、さらに、地下水汚染調査対策の手順を明らかにした、④原生動物絨毛虫類や後生動物輪虫類及び貧毛類に対する毒性を明らかにした、⑤分解菌を単離、同定し、それを固定したバイオリクターを開発して汚染の除去に有効であることを示した、などの成果を挙げれば当初の目的を達成した。

一方重金属関連では、①従来の化学溶剤で選択抽出する方法に代わり、浮遊選鉱法を用いて存在形態を分析する新しい方法を確立した、②植物種を重金属耐性及び吸収性に基づいて分類する新しい方法を見いだした、③カドミウム及びヒ素汚染地の微生物特性を明らかにした、④重金属が土壌微生物による有機物分解を阻害する機構を明らかにした、など基礎的な多くの成果を挙げれば当初の目的を達した。

以下に本年度得られた研究成果を中心に紹介する。

〔研究成果〕

（1）現場調査結果の解析による地下水汚染機構の解明

この課題では、全国数か所の汚染事例の継続的な汚染度調査、土壌ガス調査、ボーリング調査などの現場調査結果の解析から、土壌、地下水中で有機ハロゲン化合物の挙動を研究している。既に汚染源からの距離による物質変化や地下水レベルの上下変動に由来すると思われる汚染物質濃度の変化機構等を明らかにしているが、今回さらに、次の点を明らかにした。

1) 地下水汚染パターンの類型化

A事例の汚染物質濃度の経時変化データをクラスター分析し、汚染物質濃度の季節変動には、夏あるいは冬に汚染物質濃度がピークを示す2つのグループがあることを見いだした（図1）。また、汚染物質とその分解生成物の濃度比もこれら2つのグループで大きく異なった。夏にピークを示すグループでは、汚染物質濃度が分解生成物濃度を上回り、冬にピークを示すグループでは、分解生成物濃度が汚染物質濃度を上回った。また、冬にピークを示すグループでは、分解生成物濃度が汚染物質濃度に比例して変化するのに対し、夏にピークを示すグループでは、汚染物質濃度が増加しても、分解生成物濃度は変化しなかった。

2) 揚水の影響

B事例の水道水源井戸群の運転と汚染物質濃度の変化を解析することにより、揚水により地下水中の汚染物質濃度が大きく変化することを見いだした。

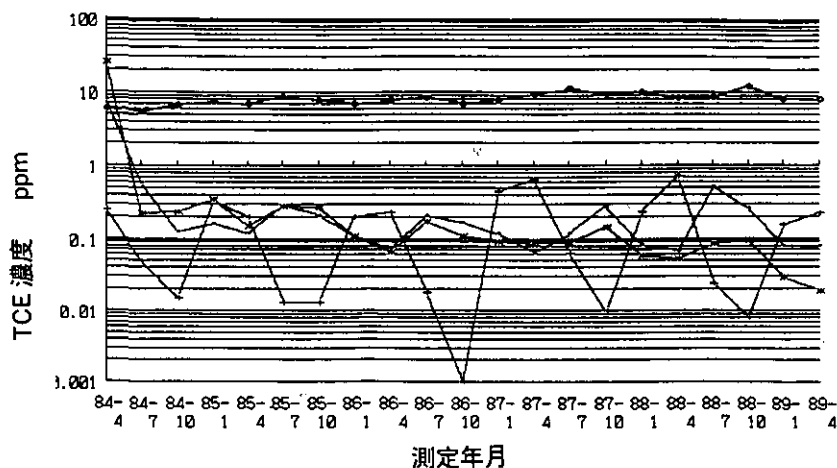


図1 地下水中のトリクロロエチレン濃度変化

— 浅井戸 1, + 浅井戸 2, * 浅井戸 3, o 深井戸

3) 汚染物質の存在状態

A及びB事例のボーリング調査結果から汚染物質は帯水層に存在するのを見いだした。また、地下水中濃度と土壌中濃度の比較から、汚染物質が水に溶けて存在するのか、あるいは土壌に吸着して存在するのかを明らかにした。

4) 汚染地下水帯水層の同定

既に確立している一般水質項目の統計解析から汚染帯水層を同定する手法をB事例に適用し、一般水質項目のクラスター分析による井戸の分類と汚染状況が良く対応するのを見いだした。

5) 地下水汚染調査マニュアルの作成

これまでに得られた知見を総合して、地下水汚染に対して実施すべき調査マニュアルの作成を試みた。

(2) 有機ハロゲン化合物を含む土壌ガスの分析法及び現地調査

土壌ガスの分析からトリクロロエチレンやテトラクロロエチレンによる土壌、地下水汚染を探索、調査する研究を進めてきた。方法は以下のとおりである。まずハンドオーガーで土壌表層に深さ約 20 cm の穴を開け、その底部近くにガスタイトシリンジ (20 ml 容) の先端に取り付けたテフロンチューブ (2 mm i.d. × 20 cm) を挿入して 20 ml の土壌ガスを採取する。このガスをミニバイアル瓶 (1 ml 容) 中の 0.8 ml の n-ヘキサンに通し、含有成分を溶解する。次に、このヘキサンに捕集された成分を ECD 付きガスクロマトグラフィー (分析カラム: 25% Silicone DC-550/Chromosorb WHP(80/100) を充てんした 3 mm × 3 m ガラスカラム) によって分析する。この方法を標高 800~900 m にある不燃物埋立地と湧水池、及びその周辺地域に適用した結果、湧水池からテトラクロロエチレンが 12~1440 ng/l (平均 444 ng/l) とトリクロロエチレンが 0~189 ng/l (平均 54 ng/l) 検出され、また埋立地においても、両物質がそれぞれ 0~1216 ng/l (平均 91 ng/l) 及び 3~933 ng/l (平均 54 ng/l) 検出された (図 2)。また、両域を直線的に結ぶ

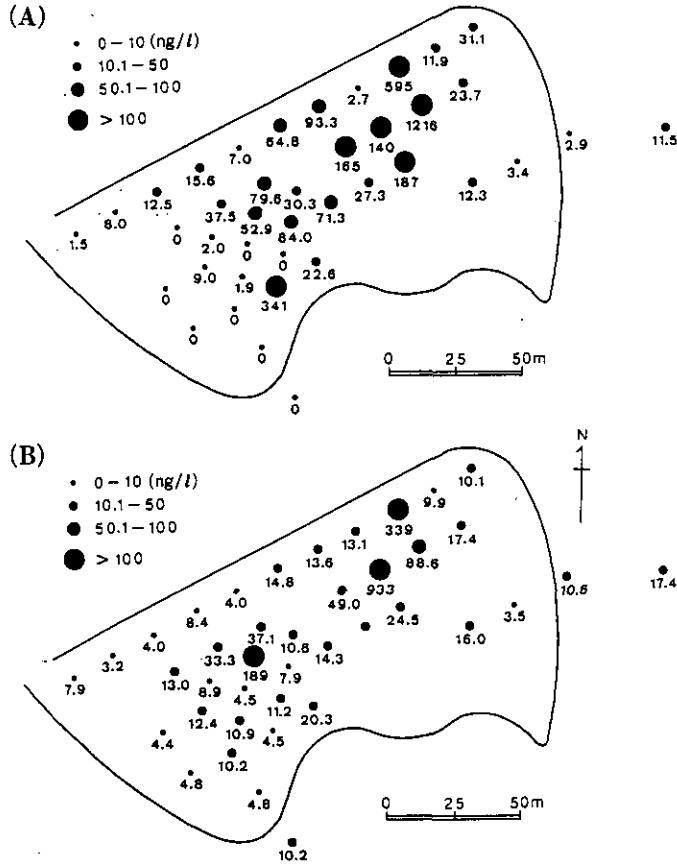


図2 不燃物埋立地における土壤ガス中の(A)テトラクロロエチレンと(B)トリクロロエチレンの濃度分布(1989年6月調査)

周辺域からも、低濃度ではあるが両汚染物質が検出された。現地の湧水では既に数年前からテトラクロロエチレンが検出されており、汚染源として埋立地に疑いが持たれていたが、今回それが確認されるとともに、土壤ガス分析法の有効性が示された。

(3)有機ハロゲン化合物の土壤浸透挙動に及ぼす界面活性剤の影響

有機ハロゲン化合物が土壤層から地下水層に浸透する場合、土壤亀裂などが重要な働きをするといわれているが、土壤中に共存する物質の影響も見逃せない。例えば、洗剤や天然の腐植物質などの界面活性物質が共存し、有機ハロゲン化合物の浸透挙動に影響を与えることも考えられる。ここでは、直鎖アルキルベンゼンスルホン酸を共存させトリクロロエチレンの溶解と浸透挙動を次の2法で検討した。

バッチ法：バイアル瓶(50 ml 容)に0~5,000 ppmのアルキルベンゼンスルホン酸水溶液を取り、トリクロロエチレンを数滴加えた。揮散を防ぐため密栓し、25°Cでゆっくりとかくはんして溶解平衡とした後、水溶液中のトリクロロエチレンをヘキサンに抽出してガスクロマトグラフィで分析した。

カラム法：ガラス管 (2.5 cm i.d. × 40 cm) に平均径 0.8 又は 0.2 mm のガラスビーズを 100 g 詰め、水飽和のカラムを作成した。カラム上端からトリクロロエチレンを 2 ml 添加し、0, 200, 2,000 ppm のアルキルベンゼンスルホン酸水溶液で溶出した。溶出液中のトリクロロエチレンはヘキサンに抽出してガスクロマトグラフィーで分析した。その結果、共存するアルキルベンゼンスルホン酸濃度が約 500 ppm 以上となり臨界ミセル濃度を越えると、トリクロロエチレンの飽和溶解度も上昇し、ミセル可溶化が起こることが確認された (図 3)。また、カラムから浸透溶出した溶液中のトリクロロエチレン濃度は、バッチ法で求めた飽和溶解度にほぼ一致した。このことから、界面活性剤が共存すると、有機ハロゲン化合物の土壌浸透は、ミセル可溶化による溶解度上昇、乳化と界面張力の減少などにより、促進される可能性が示された。

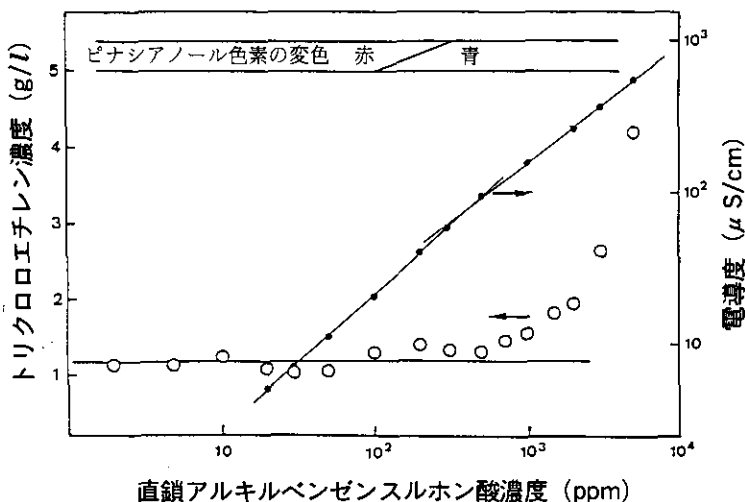
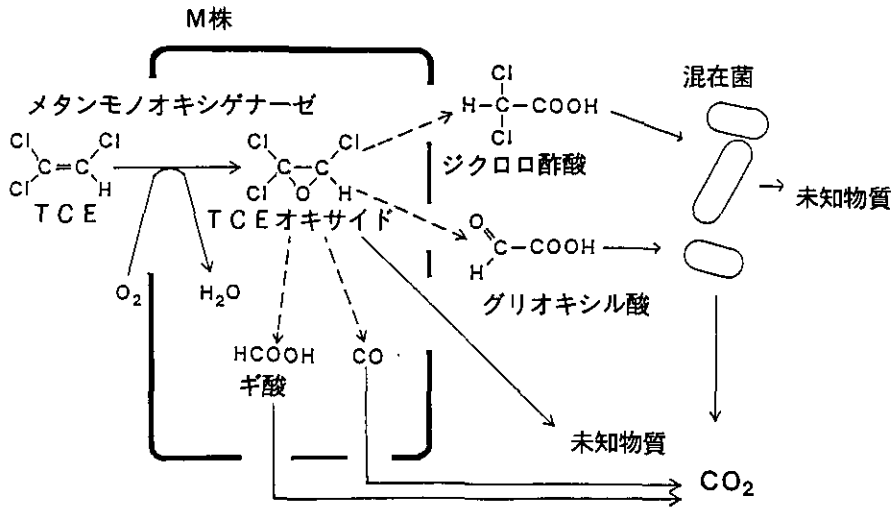


図 3 バッチ法によるトリクロロエチレンの溶解度曲線

(4) 有機ハロゲン化合物の微生物分解

この課題では既にトリクロロエチレンを好氣的に分解する混合微生物系を得、その系で主たる役割を担っている *Methylobacterium* sp. M 株を単離、同定している。今回この菌に ^{14}C -トリクロロエチレンを与えてその分解産物を分析した結果、トリクロロエチレンの一部は二酸化炭素にまで分解されるが、残りはグリオキシル酸やジクロロ酢酸に変換されることが分かった。また、混合微生物系に混在している微生物 2 株も単離し、それぞれ NG 2, DA 4 と命名してその役割を検討した。その結果、NG 2 は M 株がトリクロロエチレンを分解して生成したグリオキシル酸を、また、DA 4 はグリオキシル酸とジクロロ酢酸の両者をさらに分解することが明らかになった。以上の結果から混合微生物系によるトリクロロエチレンの分解経路を推定し、図 4 に示した。また M 株を、アガロース、カラギーナンあるいはアルギン酸ゲルに固定化し、その分解力を比較検討したところ、固定化しても分解能は保持されることが分かった。特に、アルギン酸ゲル固定化菌体では遊離菌より優れた分解力を持ち、35 ppm の高濃度のトリクロロエチレンでも分解できるため、バイオリアクターとしても十分利用できることが示された。



(5) 有機ハロゲン化合物が土壤微生物に及ぼす影響

土壤生態系は細菌、菌類、原生動物、後生動物など多様な生物群で構成され、土壤に負荷された有機物を分解、無機化する役割を担っている。ここでは、有機塩素化合物がこれらの土壤微生物にどのような影響を与えるかを検討するため、種々の濃度の有機塩素化合物を添加したLE培地(レタスと卵黄抽出液)で土壤微生物を培養し、その増殖への影響を調べた。結果を比増殖速度に着目して比較検討したところ、有機塩素化合物の毒性の強さは、テトラクロロエチレン>トリクロロエチレン>1,1,1-トリクロロエタンの順であること、また、検討した3種の微小動物では、汚染物質に対する耐性は、原生動物繊毛虫類(*Colpoda* sp.)>後生動物輪虫類(*Philodina erythrophthalma*)>後生動物貧毛類(*Aeolosoma hemprichi*)の順であることが分かった。また、有機塩素化合物に対する現在の各種水質基準の値では土壤微生物の増殖能は大きな影響を受けないと判断された。

(6) 重金属汚染土壤の微生物相

既にカドミウムとヒ素汚染地における微生物相の調査、研究から、耐性菌の出現状況など、汚染土壤の微生物相の特質を明らかにしてきた。今回さらに、ヒ素汚染土壤からヒ素耐性微生物を単離し、その種類を明らかにすると共に、培地中でのヒ素代謝機構について検討した。その結果、細菌では、*Bacillus circulans*, *Alcaligenes faecalis*, *Pseudomonas* sp.などがヒ素耐性を示し、いずれも10 mMの亜ヒ酸を含む培地で生育できた。特に*B. circulans*は30 mMの亜ヒ酸を含む培地でも生育した。また*A. faecalis*は培地中の亜ヒ酸をヒ酸に酸化した(図5)。一方糸状菌では、*Aspergillus fumigatus* (10株), *Talaromyces* sp. (17株), *Chaetomium* sp. (6株), *Scopulariopsis* sp.及び*Penicillium* sp.などがヒ素耐性を示した。これらの糸状菌を亜ヒ酸添加培地で培養した結果、*A. fumigatus*及び*Scopulariopsis* sp.はガス状ヒ素を発生したが、他の菌ではそのような作用は見られなかった。

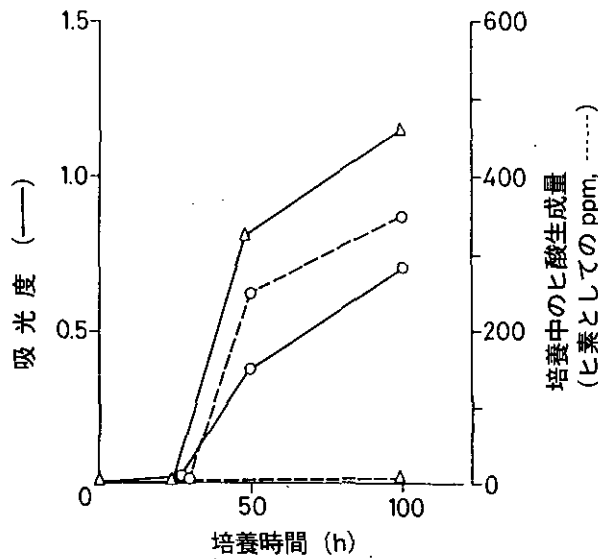


図5 ヒ素耐性細菌の生育とヒ酸の生成

○: *Alcaligenes faecalis*, △: *Pseudomonas* sp.

(7) 土壌中の有機物分解に及ぼす重金属の影響

既に、カドミウムによる土壌有機物の分解阻害が、水溶性カドミウムが直接微生物に毒性を示すことと、カドミウムが有機物に吸着することで官能基などをブロックし、有機物を分解しにくい構造に変えることの2通りの機構で起こることを明らかにしてきた。今回さらに、カドミウム以外の金属との比較を行う目的で、種々の重金属が土壌微生物のコロニー形成に及ぼす影響を培養実験で調べた。その結果、コロニー数を対照培地(重金属無添加)での値の1/10に減少させる培地への添加金属濃度(ED₉₀値)は、カドミウムと銅で約20 μmol/l、ニッケルで約50 μmol/lそして亜鉛とクロムで100 μmol/l以上であった。また、実際の土壌を用いた試験(土壌種:砂質土及び火山灰土、添加有機物:下水汚泥)を行って土壌中の水溶性金属濃度を分析し、その濃度をED₉₀値で割った値(仮称、重金属汚染指数)を求めて土壌からの二酸化炭素発生量との関係を調べた。その結果、両者には土壌種や重金属種によらない関係が見いだされ(図6)、有機物分解に対する重金属阻害は、各金属の水溶性金属量とその金属の固有の毒性(ED₉₀で代表される)によって決まることが示唆された。

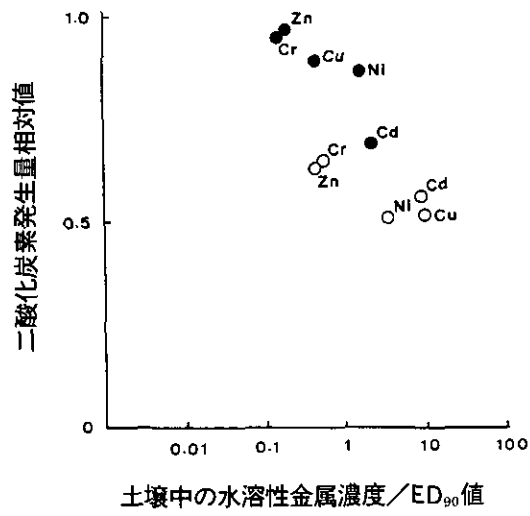


図6 土壌の重金属汚染指数と二酸化炭素発生量の関係
○：砂質土，●：火山灰土

2.2 雲物理過程を伴う列島規模大気汚染に関する研究 (最終年度)

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 縁・

○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

生体化学計測研究室 切刀正行

分析室 溝口次夫・西川雅高

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 12 名

〔研究概要〕

本特別研究は大気汚染物質の列島規模の長距離輸送と輸送中に発現する種々の形態の大気汚染、すなわち都市型 NO₂ 汚染、光化学オキシダント汚染、二次粒子汚染、湿性大気汚染、酸性雨等の生成機構と動態を解明しその予測手法を確立することにより列島規模大気保全計画に資することを目的として 4 年間にわたりとり行われた。研究は 5 つの研究課題に沿ってすすめられた。すなわち (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、(3) 野外調査による列島規模の大気汚染・気象の動態把握。そして列島規模大気汚染の予測手法としての、(4) 風洞予測手法と (5) 数値予測手法の確立である。このようにして得られた予測モデルによって、光化学オキシダント、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広域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った。

〔研究成果〕

本研究では列島規模大気汚染として、(1) 太平洋沿岸－関東平野－中部山岳地域－日本海沿岸を結ぶ陸上を渡る大気汚染の長距離輸送と、(2) 九州－日本海－朝鮮半島を結ぶ海上を渡る大気汚染の長距離輸送を研究対象とした。ここでは陸上を渡る大気汚染の長距離輸送の数値シミュレーション結果と海上を渡る大気汚染の長距離輸送に関する 1988 年のフィールド観測、解析結果を中心に述べる。

(1) 陸上を渡る大気汚染の長距離輸送

1) 長距離輸送機構

大気汚染長距離輸送の機構としては、従来、気圧傾度風(季節風など)による長距離輸送が考えられてきた。北欧、北米でみられるものはそれである。本研究では、種々の局地風が合体して形成される大規模風による長距離輸送があらたに見いだされた。

この種の長距離輸送は、暖候季、高気圧に覆われた晴天日に発生するもので、気圧傾度風がむしろ弱い場合に起こる。臨海地域では、海陸の日平均温度の違いによって生じる陸向きの風(定常海風)が、いわゆる海陸風循環を構成する海風と重なり、広域海風(extended sea breeze)を形成する。一方、内陸の山岳地帯では、日中、その中央付近に中心を持つ強い熱的低気圧が形成され、これに向かって周辺地域から台地平地風、定常平地風、斜面上昇流が吹き込む。これらの局地風は、高気圧に伴われて上空に形成される沈降性逆転層により蓋をされるため、簡単に合体して大規模風を形成し、これによって大気汚染物質が長距離輸送される。関東甲信地域の場合、まず、東京湾沿岸の大規模発生源地域で排出された汚染物質は、前日の陸風時、湾上に集積されて汚染気塊を形成する。この汚染気塊は翌朝再び上陸して大規模発生源の上空を通過する際に新たな汚染物質の供給を受けながら、日中関東平野を北上し、関東北部で進路を北西に変え、夕刻関東山地を越えて中部山岳地域内部に侵入する。この種の大気汚染長距離輸送は関東甲信地方の暖候期の最も典型的な輸送パターンであり、長距離輸送の到達点は熱的低気圧の中心位置までであること、後者は高低気圧配置により決定できることも示した。この種の長距離輸送は、局地風が日常的な風である中、低緯度地域では最も重要な輸送機構であると考えられる。

このような長距離輸送は中、低緯度地域で深刻な大気汚染をもたらす。それは、これが晴天時に発生するため光化学反応が急速に進行するためである。さらに重要なことは、局地風が地形に固有のものであるために、大気汚染の輸送経路が地形的に固定化されるためである。その結果、輸送経路にあたる地域は深刻な二次汚染に恒常的にさらされることになる。このことは、図1の高濃度オキシダントの発生時間数分布解析からも裏付けられた。

2) 大規模観測と数値モデル

輸送経路が固定化されることは大気汚染物質の物理・化学過程(輸送、拡散、反応、粒子化、乾性沈着、雲物理・化学過程、湿性沈着)を観測するのに好都合である。本研究では、関東から甲信地域に至る長距離輸送の経路に沿って大規模観測を実施し、種々の形態の大気汚染と気象要素の測定を行った。この結果は、最も整然としたデータセットとして、また数値モデル検証のための標準データセットとして高い評価を得ている。

数値モデルとして、輸送、拡散の他に、反応、粒子化、沈着を含んだオイラー型のモデルを完成させた。種々の形態の大気汚染の全てを1つのモデルで予測するためには、高度な反応モデルが必要であり、ここで用いた気相反応モデルは Atkinson らのもので 53 の反応種、112 の素反応を含む。ガスからエアロゾルへの変換率(粒子化)の予測では HNO_3 - NH_3 - NH_4NO_3 系などの気液固平衡が成立していると仮定した。また、乾性沈着量の予測では各々の汚染物質について一定の沈着速度を仮定した。酸性雨の生成機構モデルは、降雨に至る雲物理過程のモデルと雲粒や雨滴、雪への汚染物質の取り込み(あるいは蒸散)モデル、液相での反応モデルからなる。液相反応モデルは、高度の気相反応モデルに対応して、Chameides & Davis, Chameides の反応モデルを一部修正したもので、35 の反応種、53 の素反応を含む。これにより、一次汚染物質である窒素酸化物(NO_x)、硫黄酸化物(SO_x)及び各種炭化水素(パラフィン、オレフィン、芳香属)

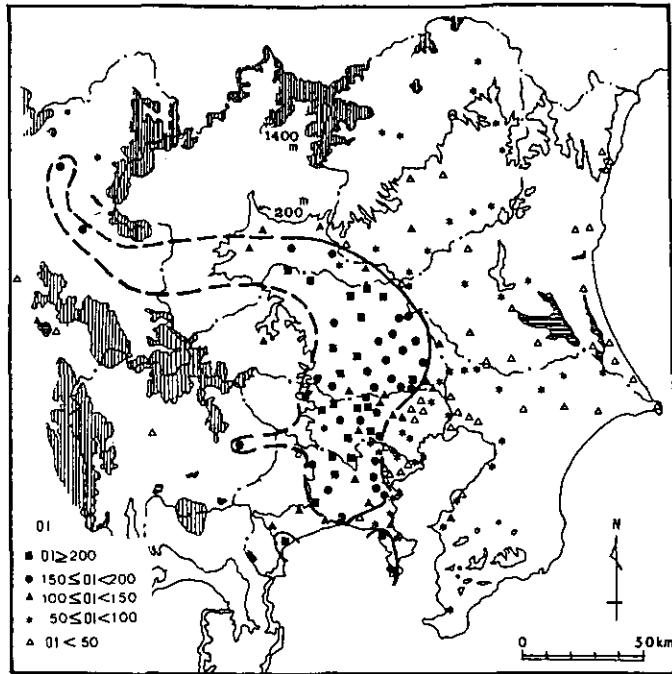


図1 オキシダント指数 (OI ; $O_x > 60$ ppb) の分布

及び二次汚染物質（酸化性ガス状物質，二次粒子，酸性雨）の挙動がほぼ再現できた。

3) 夏季長距離輸送中に起こる種々の大気汚染

この種の大気汚染長距離輸送発生時の各種大気汚染（図2）について，観測データの解析と数値シミュレーションから，次の結論が得られた。

①都市型 NO_2 汚染：本研究では，二酸化窒素 (NO_2) 問題は NO_x 単独の問題としてではなく， NO_x -炭化水素系の光化学反応の一環として考えることの必要性を定量的に示した。すなわち，直接排出される NO_2 は NO_x のわずか 10% であり，残りの一酸化窒素 (NO) が光化学オゾン (O_3) や過酸化ラジカル (RO_2)^{*)} と反応することにより， NO_2 が生成される。またこれら NO_2 は OH ラジカル， RCO_3 との反応により日中は数時間の寿命しかないことを考慮に入れる必要がある。夜間は NO が過剰状態にあるため， NO_2 の反応生成は O_3 や RO_2 の供給量によって決まり，反応生成される NO_2 濃度は 30~40 ppb (冬期では 20~30 ppb) と推定される。このため， NO_2 濃度と NO_x 濃度の日変化パターンは異なり， NO_2 濃度は車走行量と大気拡散能に強く依存して 8~10 時と 21~24 時にピークを持つものに対して， NO_2 濃度のピークは，夜間は NO_x のピーク時間の 2~3 時間前に現れ，朝は 2 時間程度遅れる。また， NO_x ， NO_2 の高濃度はいずれも大規模発生源地域内に現れるが，それら高濃度の発生位置はずれる。

②光化学 O_3 ，PAN， H_2O_2 汚染：光化学 O_3 は， NO_2 が光解離で NO に還るときに生成する酸素原子と，酸素分子との反応によって生成される。上記の $NO \rightarrow NO_2$ 酸化過程とこの光解離過程とで 1 つのサイクルをなしており，この反応サイクルを 1 回通るごとに O_3 は 1 分子ずつ生成される。図 1 に示したように，大都市域では O_3 濃度は正午頃ピークに達する。しかし，この

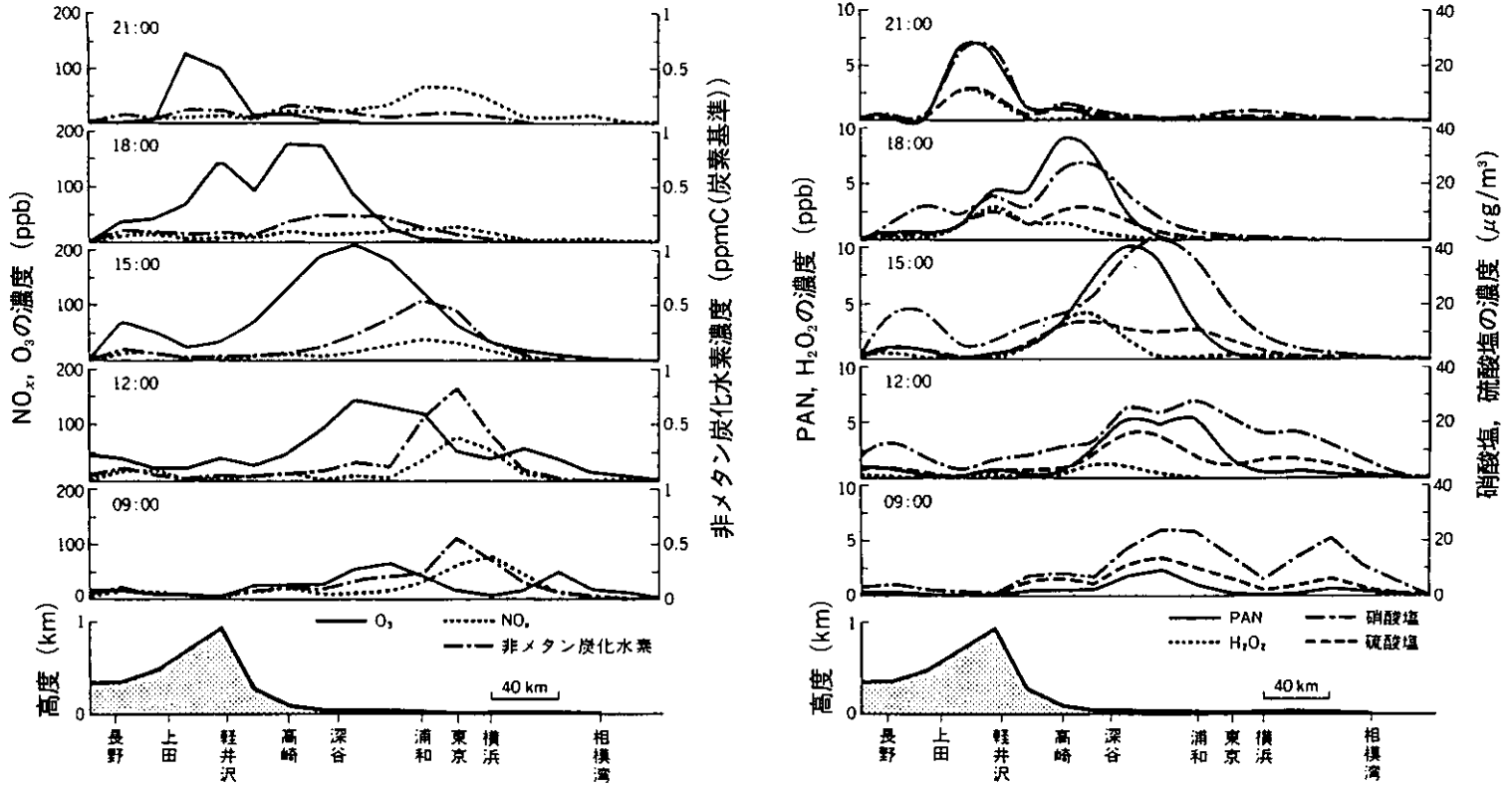


図2 長距離輸送の経路に沿っての汚染物質の濃度分布とその時間変化

汚染気塊が内陸地域に輸送される際には反応がさらに進んで、 O_3 濃度は浦和、高崎で100 ppbを越え、碓氷峠(軽井沢)を越える頃には150 ppbにも達する。輸送時間遅れを反映してピーク時間の遅れが生じ、中部山岳地域では夕方から夜半に O_3 濃度のピークが現れる。パーオキシアセチルナイトレート(PAN)も O_3 とほぼ同一の速度で生成され、その濃度は O_3 濃度の1/10程度に達する。過酸化水素(H_2O_2)濃度も数ppbにまで達する。

③二次生成粒子汚染(硫酸塩、硝酸塩、硫酸ミスト)：気相での光化学反応が進行すると、二酸化硫黄(SO_2)、 NO_2 は酸化されて、硫酸、硝酸に転換される。夏期の関東甲信地域の大気汚染長距離輸送の場合、 $NO_x \rightarrow NO_3^-$ の変換は O_3 の生成とほぼ並行して進行し、平均変換速度は14.7%/hに達する。これは浦和付近ではほぼ完結する。それに反して、 SO_2 の酸化は3.7%/hで、 NO_x 変換速度の1/4程度にすぎない。

生成した硝酸(HNO_3)はガス状あるいは硝酸アンモニウム(NH_4NO_3)の固体定粒子あるいは液滴として存在する。即ち、 HNO_3 (ガス)+ NH_3 (ガス) \rightarrow NH_4NO_3 (固体あるいは液滴)の平衡関係が成立する。高温低湿条件ではガス状で存在するが、低温で相対湿度が潮解限界以下では固体粒子に、それ以上では液滴になる。この解離定数は気温 $10^\circ C$ の減少(相対湿度一定条件)でおよそ1桁減少し、気温が一定でも潮解限界以上の湿度域で急減し、相対湿度が94%で1桁、98%でさらに1桁減少する。実際、汚染気塊の流入時に、浦和及び高崎ではガス状硝酸が顕著に増加するのに対して、軽井沢では粒子化が進行して硝酸塩エアロゾルが増加する。これは、軽井沢(海拔高度：1,000 m)では関東平野に比べて気温が約 $10^\circ C$ 低く、相対湿度は高くなり、平衡関係がエアロゾル側に片寄るためである。一方、硫酸は熱力学平衡からほとんど全量が粒子化する。一部は、それ自身が凝縮した形の、硫酸ミストとして存在する。また、 NH_3 ガスなどと反応して硫酸塩エアロゾルになる。硫酸塩、硝酸塩、硫酸ミストの増加は視程悪化や酸性雨の原因となる実際、軽井沢では、長距離輸送の影響のない時間帯では陰イオンとしての SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 Cl^- と、陽イオンとしての NH_4^+ 、 Na 、 K^+ 、 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} とで良好なイオンバランス(相関係数=0.996)が保たれるが、汚染気塊の流入時には硫酸ミストや硫酸水素塩によってもたらされる高濃度の H^+ イオンが付加される。

④二次生成粒子汚染(炭化系エアロゾル)：本研究では、大規模観測時に浮遊粒子状汚染物質中の炭素系エアロゾルの重要性を確認し、二次生成を含む挙動を調べた。長距離輸送されたエアロゾル粒子中では、 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 NH_4^+ イオンは、それぞれ、全質量の14%、10%、7%、程度であり、水溶性の全無機イオンを合計してもせいぜい35%にしかすぎない。残りのほとんどは炭素系エアロゾルである。これは、スス等の元素状炭素(EC)と極性有機炭素(POC)と非極性有機炭素(NPOC)とに分けられる。反応の進んだ高崎では、広域大気汚染発生時、炭素系エアロゾルはロスアンジェルスと同じく、ほぼ半量(全質量の43%)を占める。また、これを構成するEC、NPOC、POCはそれぞれ全質量の16、10、17%を占める。このうち、EC及びNPOCの大半は一次排出炭素と考えられる。光化学反応によるPOCの二次生成量は全有機エアロゾルの40~50%、したがってエアロゾルの全質量の11~14%に達すると推定される。二次生成有機エアロゾルの主要なものはジカルボン酸で、そのほかに高級アルデヒド、高級のモノカルボン酸も含まれる。これらは、炭化水素が酸化されてアルデヒドに、さらに酸化されてカルボン酸に変質する過程で、高沸点成分が順次粒子化し環境大気中におけるエアロゾル濃度を高める。代表的な有機エアロゾルであるジカルボン酸は、その濃度がオゾンとほぼ同じ日変化を示し、日中高く、夜間極端に小さくなる。他の有機エアロゾル成分として、植物起源のテルペン類^(註2)の酸化物であるピノンアルデヒド等の寄与も大きい。

⑤酸性雨：大規模観測では、酸性雨、酸性霧の体系的な観測はできなかったが、大気汚染長距離輸送中の雷雨時のデータが得られている。これにより、本数値モデルを用いた数値予測の妥当性が検証されている。輸送経路上の深谷から上田にかけて1mm/h(一定強度)の降雨が13~17時に発生した場合(日中の降雨)と、17~21時に発生した場合(夕刻の降雨)の2つのケースについての数値予測と観測結果から以下のことがいえる(表1)。

降水中の硫酸塩、硝酸塩濃度は降雨地域の風上側で最大値をとり、風下側で急減する。ただし、山上での濃度は雲中での反応過程を反映して上昇する。降水中の硫酸塩の50%は凝縮核を構成する二次粒子である。残りの50%は雲粒及び降雨滴に気相から取り込まれたSO₂と、同時に取り込まれたH₂O₂との反応によって生成される。溶解性の極端に高いH₂O₂が消費されると、反応生成はO₃との反応で進行する。この降雨に伴う硫酸塩の湿性沈着量は、降雨期間中の乾性沈着の1,000倍を越す。このことから、晴天時生成されて長時間大気中に滞留する硫酸塩はエアロゾルの除去には降雨が重要な役割を果たしていることが結論付けられる。一方、降水中の硝酸は、凝結核を形成する硝酸塩エアロゾルと、ガス状硝酸の溶け込み分によって構成されており、液相での反応生成の寄与は小さい。また、硝酸の除去機構としては、この湿性沈着とガス状硝酸の乾性沈着とが同オーダである。また、降雨期間を通じての湿性沈着量の積算値を比較すると、硝酸塩の沈着積算量は硫酸塩の1.5~2倍である。このことにより硝酸塩は、硫酸塩よりも速く大気中から除去される。

4) 冬期の都市型NO₂、二次粒子汚染

都市域におけるNO_x及び浮遊粒子状物質(SPM)の高濃度汚染は11~12月に顕著になる。この時期季節風のかわり目で気圧傾度風が弱く、晴天日が多いため、晴夜放射逆転層が特に強まることと密接に関連している。本研究では、都市気象の観測と数値モデルから、平均建物高度の2~4倍の高度に30~50m程度の厚みの逆転層(elevated inversion)が形成され、逆転層強度は温位差が数度のものになること、地表付近の気流は建物による機械的かく乱のために中立成層に近く、ヒートアイランド現象は人工排熱によるよりは、都市境界層上空からの高温大気の機械的かく乱によるエントレインメント^{*)}が原因であることを示した。

さらに、本研究では、東京首都圏地域のNO_x-SO_x-炭化水素系の光化学反応を上記数値モ

表1 降雨時の乾性、湿性沈着量及び気相、液相反応量の比較、単位、molecules、降雨領域：深谷~上田、降雨期間：13~17時(日中降雨)、17~21時(夕刻降雨)

	乾性沈着量*	湿性沈着量*	液相反応量*	気相反応量*	総 降雨前	量* 降雨後
日中降雨						
SO ₂	1.3 (22)	3.2 (22)	-8.6 (22)	-6.3 (22)	3.6 (23)	2.2 (23)
SO ₄ ²⁻	2.6 (20)	1.8 (23)	8.6 (22)	6.3 (22)	4.2 (23)	3.4 (23)
NO ₃ ⁻	9.7 (22)	3.6 (23)	2.6 (18)	2.9 (23)	7.9 (23)	4.9 (23)
夕刻降雨						
SO ₂	1.3 (22)	3.8 (22)	-1.6 (23)	-3.0 (22)	3.1 (23)	1.7 (23)
SO ₄ ²⁻	1.5 (20)	3.7 (23)	1.6 (23)	3.0 (22)	4.3 (23)	3.2 (23)
NO ₃ ⁻	3.5 (22)	5.7 (23)	4.3 (19)	3.5 (23)	6.0 (23)	4.0 (23)

カッコは10の指数、例えば1.3(22)=1.3×10²²、*は降雨期間中全計算領域(相模湾~長野)についての値。

デルを用いて再現させ高濃度汚染の発現原因を検討した。高濃度の発現には、強い逆転層の形成だけでなく、冬季でも進行する光化学反応が重要な役割を果たすことを示した。また、冬季の都市型 NO₂ 二次粒子汚染の特性を検討した。しかし、冬季の大気汚染の大規模観測はまだまだ行われておらず、その動態には不明な部分が多い。

5) 窒素系汚染物質、硫黄系汚染物質の収支と乾性沈着量

数値モデルを用いて、輸送、反応、粒子化、沈着など汚染物質の一連のライフサイクルの詳細な検討を行った。夏期、晴天日の窒素系、硫黄系汚染物質の収支を図3に示す。窒素系汚染物質の場合、硝酸生成は気相反応により進行すること、ガス状硝酸・アンモニアと硝酸アンモニウム間に気液固平衡が存在すること、ガス状硝酸の沈着速度(約2 cm/s)が他の汚染物質よりはるかに大きく(ガス状 NO, NO₂, O₃の5倍、粒子状硫酸塩、硝酸塩の100倍)、乾性沈着の機構として、地表に直接沈着するもののほかに、これより重要なものとして、硝酸が大粒子に沈着し、これが地面に沈着するという除去機構のあることを新たに見いだした。大粒子に含まれる NO₃⁻イオンが SO₄²⁻に比べて多いのはこのためである。さらに、1日を通しての窒素系汚染物質の収支として、排出された NO_xは種々の反応経路を経て、硝酸、硝酸塩に転換され、1日でその過半が地面に沈着することを示した。

硫黄系汚染物質の場合、SO₂→SO₄²⁻変換過程には浮遊粒子表面での異相反応が支配的であること、1日を通しての硫黄系汚染物質の収支では、排出された SO₂の約20%は SO₂の形のまま地表へ乾性沈着し、残りの SO₂ほとんどは硫酸ミスト、硫酸塩エアロゾルに変換されるが、粒子状で地表沈着するのは SO₂そのわずか1/100で、硫黄系汚染物質の大半は硫酸塩粒子の形で大気中に残留する。これは二次粒子に共通の特性で、粒径が0.1~1.0 μm範囲にあって、乾性沈着速度が極端に小さく(0.01 cm/sのオーダー)、この除去は主に雨、霧などの湿性沈着によるしかない。しかし、硝酸塩の場合は特別で、いったん生成された粒子は平衡関係を通してガス状硝酸に戻って大量に沈着除去される機構があるため、NO_x排出量は SO_x排出量の4倍程度であるにもかかわらず、硝酸塩粒子濃度は硫酸塩粒子と同じレベルになる。

これらの二次汚染物質は地面に沈着して植物、土壌、湖沼などにインパクトを与える。これらに対する負荷量の目安として、広域大気汚染の発生した日の1日にわたっての二次汚染物質の沈着量の最大になる位置は汚染物質の反応性によって異なるが、いずれも大規模発生源地域ではなく、大気反応で濃度が増した関東奥部地域である。

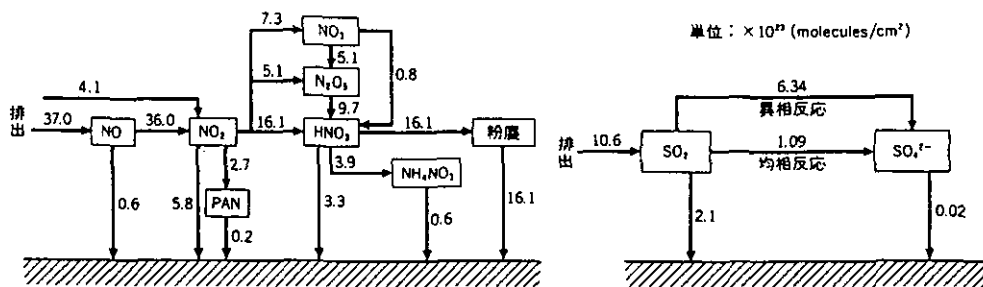


図3 1日を通しての窒素系、硫黄系汚染物質の収支

6) 排出量の削減効果

この大気汚染長距離輸送発生日について、数値モデルを用いて、汚染物質の排出量の削減効果の試算を行った。全領域で NO_x ($=\text{NO}+\text{NO}_2$)排出量を50%カットした場合、大規模発生源地域の東京、横浜では O_3 濃度は逆に増大し、現状の1.5倍にも達する。これは、排出される NO_x は光化学反応の原因物質であると同時に、 NO は生成された O_3 を消費する(NO_2 を生成する)役割も果たしていることによる。このとき、 NO_2 への効果としては20~30%の濃度減少がもたらされる。しかし、硝酸塩による二次粒子汚染については、大規模発生源地域では削減効果がほとんどなく、遠隔地域の浦和-高崎間で30%程度の濃度減少がもたらされる。

一方、 NO_x の排出量を現状のままにして炭化水素の排出量だけを50%カットすると、東京、横浜では O_3 、硝酸塩ともにその大幅な低減が見込まれる。 NO_2 濃度への効果は少ない。さらに、 NO_x 及び炭化水素の排出量とともに50%カットした場合には、 O_3 濃度は東京湾、相模湾上を除いて東京から長野全域で現状とほとんど変わらないが(光化学オキシダントの削減効果はない)、硝酸塩濃度については大幅な低減が見込まれる。このように排出量の削減効果は非常に非線形であり、すべての形態の大気汚染の軽減に有効な排出量削減シナリオは、種々の高濃度発生気象条件に対する計算から最適なものを選定しなければならない。

7) スギの衰退と二次汚染物質

関東地域全域と甲信地方の一部におけるスギの衰退状況を調査し、その原因として考えられる二次汚染物質や降雨量の分布との関連を検討した。二次汚染物質の指標として、一般環境大気測定局測定のおキシダント(O_x)濃度の1時間値が0.06 ppmを超えた時間数の5~9月(暖候期)の合計(1980年から5年間の平均値)を O_x 指数(OI)として定義した。

スギの中害・激害地帯は高い O_x 指数の分布地域とほぼ重なる。これらが一致しない地区(群馬県松井田から軽井沢をへて上田に至る間と山梨県大月市)も見られたが、これは降雨量と関係しており、降雨量が余りにも多いことは被害を少なくする働きがあると考えられる。

被害樹の周辺土壌分析や主風向との関連調査を実施しているが、このスギの衰退の原因はどの種の二次汚染物質であるかはいまだ不明である。しかし、この数年間で衰退が進行していることが確認された。

(2) 海上を渡る大気汚染の長距離輸送

1) 長距離輸送機構

九州地域においては人為起源と自然起源の大気汚染が複合して出現する。九州地域における大気汚染の特徴として、春季に O_3 の濃度が最大となり夏季に最小となること、 SO_2 の広域的な高濃度が観測されることがあること、降水中の SO_4^{2-} の濃度が相対的に高いこと等が挙げられる。これらは九州の広い地域で同時に観測されることが多い。春季の高濃度 O_3 は成層圏 O_3 の沈降によるものと人為起源による大気汚染物質が海上を長距離輸送されることにより出現することが分かった。また SO_2 の広域汚染には鹿児島県桜島から放出される SO_2 が長距離輸送されその過程で SO_4^{2-} に変換され、一部は降水水中に取り込まれ九州北部地域に降下することが明らかとなった。

2) 成層圏 O_3 の地上への輸送現象

九州地域においては春季に高濃度の O_3 が出現する。この高濃度の O_3 出現の原因の一つは成

層圏からの沈降によるものである。成層圏 O_3 は南北に振動するジェット気流の中心軸の北側にできた低気圧から派生する寒冷前線に吹き込む西風の下降気流により対流圏上層にもたらされ、これに引き続く移動性高気圧下での沈降により地上に達する。このため上空と地上での O_3 の上昇には約1日のずれが生じる。このようなメカニズムに基づいて、春季に地上で O_3 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方向の動きや、日本5か所で観測されている O_3 総量の観測データ等を用いて事前予測が可能である。

3) 火山からの SO_2 の長距離輸送

鹿児島県桜島南岳は標高が1,060 mで、排出ガス温度が高いため排煙は気象条件によっては上空2,000 m以上まで上昇する。この高度では大気は安定成層となっているため排煙はあまり拡散されることなく長距離輸送される。桜島からの SO_2 が九州地域に及ぼす影響の程度を把握するために桜島南岳とほぼ等しい高さの長崎県雲仙野岳(標高1,142 m)において1987年8月から SO_2 の連続測定を行った。その結果1987年8月~1988年4月と1989年5~7月までの間の1時間平均値のうち約97%は10 ppb以下であったが、50 ppbを越える高濃度が20回(0.2%)観測され最高値は298 ppbを示した。このような高濃度が雲仙野岳で出現したときの鹿児島における850 mbの風は東風から南西風に集中しており約86%がこの風系であった。しかし雲仙野岳で高濃度が出現したときには地上でも高濃度が出現するといった単純な関係にはないことが地上データを解析した結果、明らかとなった。そこで地上における高濃度の出現と気象パターンとの関係を解析したところ、長崎県や福岡県等の九州北部地域において地上で高濃度の SO_2 が広域にわたり出現するときの共通した特徴として九州地域が移動性高気圧の周縁部もしくはその後面に位置した場合がほとんどであった。このような気圧配置のときには一般に空気の沈降、並びのそれに伴う逆転層が形成される。これら一連の観測、解析により九州北部地域における広域 SO_2 汚染には桜島からの SO_2 が大きな影響を及ぼしていることが分かった。特に地上において高濃度が出現するメカニズムとしては移動性高気圧周縁もしくは後面での沈降性強安定層が鉛直拡散を抑制することと、下降気流による上空から地上への SO_2 の輸送が重要であるとの結論が得られた。

4) 長距離輸送中の SO_4^{2-} の生成

火山から排出された SO_2 は長距離輸送中に硫酸塩 (SO_4^{2-}) へと転換される。関東甲信地域における数値シミュレーション結果によれば、 NO_x の粒子状物質への平均変換速度が約15%/hであるのに対し SO_2 の酸化は約4%/hである。1日を通しての窒素系の収支として、排出された NO_x は種々の反応経路を経て、硝酸、硝酸塩、に転換され、1日でその過半が地面に沈着するのに対して、硫黄系の収支はその8割が硫酸塩粒子の形で大気中に残留する。このため硫酸塩粒子は長距離輸送され、雨、霧などの湿性沈着により地上に達する。このような理由から長距離輸送中の硫酸塩の生成速度をフィールド観測により明らかにすることは重要である。桜島からの硫黄系化合物は排煙温度が850~900°Cと高温なためほとんどが SO_2 の形で放出される。今回の航空機によるフィールド観測においても火山近傍のブルーム中においては SO_2 のみが高濃度であり、 SO_4^{2-} はほとんど存在していなかった。もし硫黄系化合物の1日スケールでの沈着によるロスアンジェルス並びに輸送中における供給が無視できると仮定すれば、 SO_2 と SO_4^{2-} 濃度の時刻変化を知ることにより変換速度が推定できる。

1987年の観測においては福江、長崎、対馬、見島で SO_2 と SO_4^{2-} の6時間平均の濃度変化を

求めた。この結果を用いると SO_2 と SO_4^{2-} への変換速度として $1.2\sim 1.5\%/h$ の値が得られた。この値は前述の関東甲信地域の夏季の数値シミュレーション結果の約 $1/2$ の値であった。1988年7月6~20日にわたり広域分布観測を実施し上空並びに地上でのガス、エアロゾルの分布を調査した。調査期間中の気象の概要は7~10日にわたり帯状の高気圧がやや南偏し晴で8日に上層を気圧の谷が通過し、11日からは太平洋高気圧の周辺部に当たり、大気が不安定となり、晴一次雨の天気は15日まで続いた。7月8~11日にかけての山口県、福岡県、長崎県(地上観測)の O_3 濃度は同様な変化を示しており、7月7~8日にかけて O_3 濃度が上昇していた。図4(A)に福岡県太宰府市における地上での化学成分の経時変化を示す。浮遊粉じん濃度(光散乱 Dust 計)とエアロゾル各成分の相関は SO_4^{2-} ($r=0.965$), NH_4^+ ($r=0.976$), NO_3^- ($r=0.815$) との間で高く、これ等の成分は浮遊粉じんの主な成分と考えられる。図4(B)に SO_4^{2-} 濃度と $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ 濃度比を示す。特異的に Dust 濃度と SO_4^{2-} 濃度が高い8日は、 $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ は小さい。飛行機観測においても $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ は SO_4^{2-} 濃度の高い場合に小さくなっており、火山の影響が考えられる。7月10日の航空機観測結果によれば O_3 濃度は全域にわたり 20 ppb 以下であった。これは強い南西の風の影響によるものである。この値は夏季におけるこの地域のバックグラウンド濃度であると考えられる。一方、桜島からの噴煙についても観測を行った結果、長崎県の

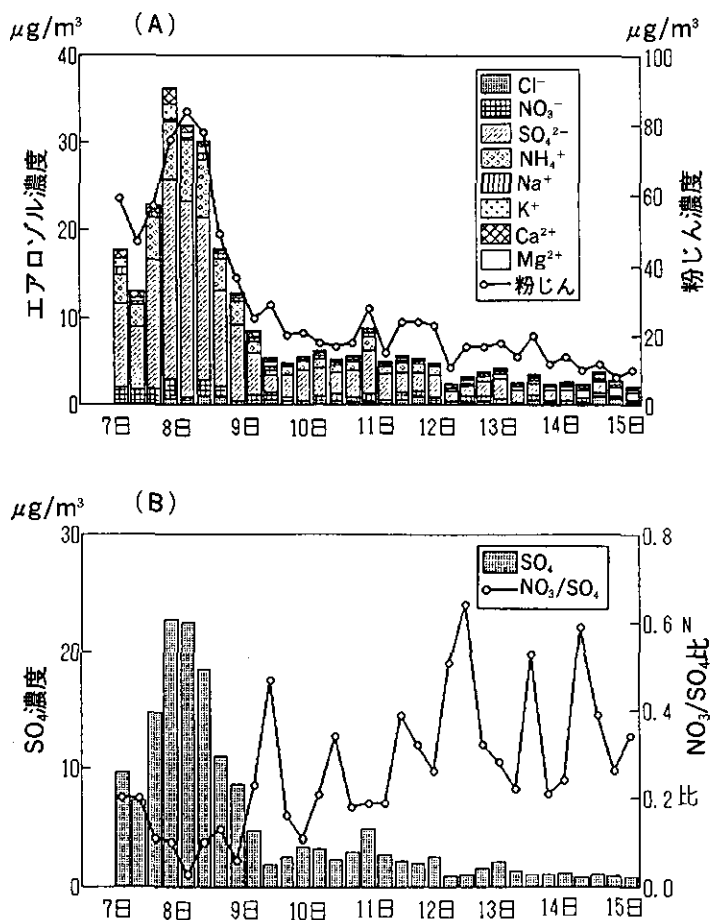


図4 エアロゾル成分及びガス成分経時変化

島原半島南海上約1,000 mの高度で150 ppb程度のSO₂が認められた。(7月8日12時10分～20分)このときのSO₄²⁻濃度は約20 μg/m³であり、高濃度を示した。これに対し桜島近傍ではSO₂濃度は数100 ppbと更に高濃度であったが、SO₄²⁻濃度は島原半島上空の1/10程度であった。

5) 上空並びに地上での雲水、雨水の観測

小型航空機にインパクター型の雲水サンプラー^{註4)}を設置し、雲水を捕集し、各種イオンとH₂O₂濃度を測定した。雲水の捕集が成功し、比較的多量に捕集された1988年7月11日の雲水(航空機)と、福岡県の三郡山(標高920 m)で同日に捕集された雲水(三郡)測定結果との比較を述べる。雲水の測定結果は表2に示したが、雲水(航空機)の電気伝導度は最高が25 μS/cmで、最低は5.0 μS/cmであった。pHは4.53～5.30の間であった。7月11日は、九州地域の地上のサンプリングにおいても汚染物濃度は低く、雲水中における各種イオン濃度も低かった。雲水(三郡)は電気伝導度が数10 μS/cm以上、pHは3.95～4.35、SO₄²⁻、NO₃⁻濃度は数μg/mlで比較的汚染された雲水であった。酸性雨生成機構解明を行うために、地上雨水(太宰府市)と近接する上空雨水(三郡山山頂)をほぼ同時に採取し、さらに雲水の採取も行い、両雨水の汚染物質の取り込みの違いについて比較した。太宰府と三郡山の雨水及び雲水の平均pHを表3に示す。ほとんどの降雨で、地上雨水の方が上空雨水に比べ低くなっており、地上雨水は低いpHを持つ雲底部の雲水によりpHが下がったものと考えられる。図5に示す1時間ごとのpH変化から分かるように、地上雨水と上空雨水は類似した変動を示しており、pHは基本的には上空雨水によって決まる。5月の上空雨水の主な成分のpH別の濃度を図6に示す。上空雨水のpHにどの成分が関与しているかをみるために、水素イオン濃度と([SO₄²⁻] - [Ca²⁺])の相関を取ると、r=0.77 (y=0.68x+1.0)の高い相関が得られた。pHはSO₄²⁻とCa²⁺に支配されること

表2 1988年7月11日における雲水(航空機)と雲水(三郡)のイオン種組成

	TIME	AMOUNT ml	E.C. μS/cm	pH	H ⁺ μg/ml	Cl ⁻ μg/ml	NO ₃ ⁻ μg/ml	SO ₄ ²⁻ μg/ml	NH ₄ ⁺ μg/ml	Na ⁺ μg/ml
雲水 (航空機)	9:15-9:55	17	25.0	4.53	0.0295	1.200	1.530	3.250	0.55	
	13:43-13:51	26	10.0	5.00	0.0100	0.780	0.520	0.800	0.09	0.53
	13:54-13:57	18	5.0	5.30	0.0050	0.200	0.190	0.280	0.04	0.12
	13:58-14:01	16	8.0	4.97	0.0107	0.470	0.290	0.530	0.07	0.12
	14:06-14:10	36	14.0	4.70	0.0200	0.410	0.380	1.050	0.09	0.43
雲水 (三郡)	12:25-12:55	150	45.0	4.35	0.0447	2.250	4.050	7.340	2.99	1.16
	13:25-13:55	115	59.0	4.15	0.0708	3.700	3.430	8.290	3.62	1.22
	14:15-14:45	45	91.0	3.95	0.1122	4.660	5.320	11.840	3.75	1.71

表3 1988年5月における降雨別の太宰府と三郡山の雨水及び雲水のpH

		5/10	5/11	5/14	5/20	7/11	7/12	7/13	7/15
pH	雨水 太宰府	4.35	3.88	3.88	4.88	4.65	5.02	5.08	4.81
	雨水 三郡山	4.35	4.43	4.22	5.56	4.75	5.55	5.02	5.81
	雲水 三郡山					4.15	5.65		

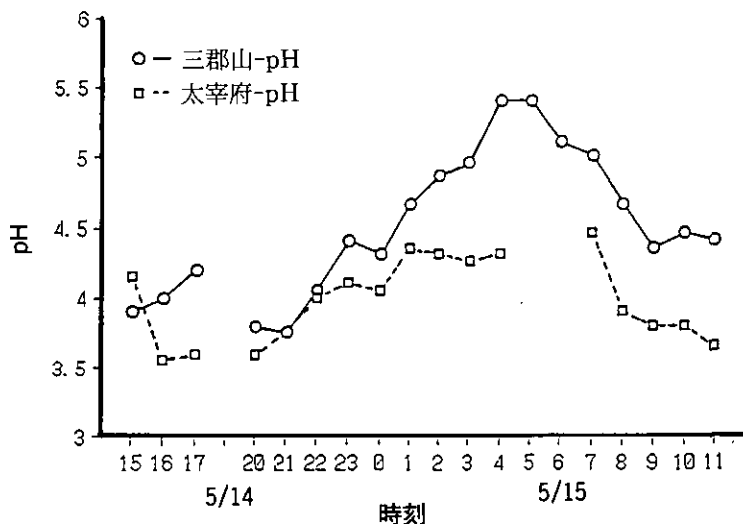


図5 雨水(5月14~15日)の時刻変化

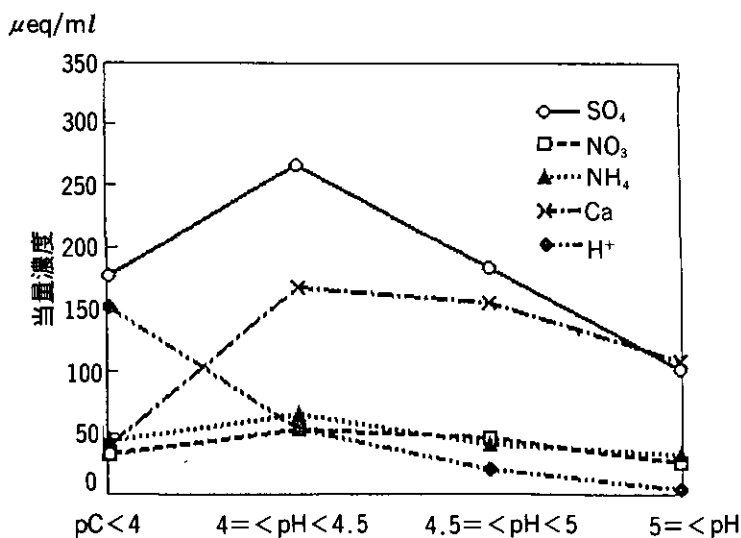


図6 上空雨水のpH別の各成分濃度

表4 1988年7月における雲水の過酸化水素濃度

	pH	EC μS/cm	SO ₄ neq/ml	N ₂ O ₂ μg/ml
7/11	4.35	45	152.9	0.63
	4.15	59	172.7	0.85
	3.95	91	246.7	1.29
7/12	5.65	36	104.6	0.09
7/14	5.4	—	583.3	0.00

が明らかとなった。雲水中の H_2O_2 濃度を表 4 に示す。

6) 九州全域における雨の分析

広島、山口を含む九州全域における雨水中の各種イオン成分の挙動と地域特性を明らかにするため、1988年7月6～19日に9県の協力のもとに一斉に雨水を採取し、各種イオン成分の分析を行った。採取した全試料のpHは3.55～7.00の範囲で出現した。降水量で重み付けしたpHの平均値は宮崎(4.11)広島(4.28)がやや低かったのに対し、佐賀(5.27)は高い値を示した。このうち、最もpHの低かった宮崎の試料は、図7に示すイオンの組成のとおり、低pHの原因が Cl^- であるという特異的な現象を示した。 Cl^- の供給源として桜島火山が考えられる。 NO_3^- の占める割合が10%以上を示したのは、広島(15.5%)、福岡(11.1%)、大分(10.3%)の3地点であり、九州全域でみれば NO_x に比較して SO_x の寄与が大きいと考えられる。

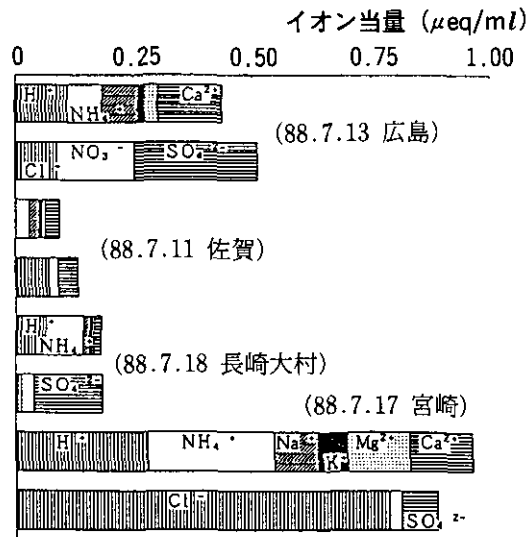


図7 九州地域における雨のイオン組成

(3) まとめと今後の研究課題

本特別研究で扱った大気汚染はすべて従来型大気汚染と酸性雨を含んでおり、これらの大気汚染についての数値モデルは一応の完成をみた。そして、夏期については観測によりその妥当性を検証した。今後は次のような方向の研究が必要である。

1) 都市規模、地域規模大気汚染と排出削減効果に関する研究

特に、環境基準の達成率の悪い NO_2 汚染と、SPM汚染の機構解明、予測手法の確立が緊急を要する。これまでは主に暖候期の現象を扱った。しかし、 NO_2 汚染と、SPM汚染が最悪になるのは寒候期であり、これについては上空を含めた観測は皆無に近い。したがって、今後冬季の大気汚染の大規模観測を実施して、動態を把握するとともに、数値モデルの確立を計る必要がある。この際、 NO_2 汚染とSPMの二次粒子汚染は光化学反応の一環としてとらえる必要がある。今回開発した数値モデルの妥当性を冬季の光化学反応の観測結果を用いて検証する必要がある。SPM汚染の場合には、さらに自然起源も含めた一次排出粒子の発生源モデルの構築が必要であ

る。SPM は大気中の滞留時間が数日～数週間に及ぶため、これまでよりはるかに広域、長時間にわたる数値シミュレーションを実施する必要がある。

2) 酸性、酸化性物質の生成と環境にあたるインパクトに関する研究

大気汚染物質の長距離輸送を解明するにあたっては硫黄系の挙動が重要である。このためにはガス、エアロゾル、雲水、雨水を一連の現象として統一的に評価することが必要である。本特別研究においては九州地域をフィールドとして、硫黄系の移流、拡散、変換、沈着の特徴を明らかにした。また硫黄系以外の海を渡る二次生成大気汚染の存在を示した。しかし特に海域におけるデータは限定されており、また雲中での挙動に関しては不明な点が多い。今後はこの研究を酸性、酸化性物質の生成と環境に及ぼすインパクトに関する研究へと発展させて行くことになる。

注1) ラジカル：フリーラジカル (Free radical) 又は遊離基ともいう。不対電子をもつ化学種で、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HO₂ラジカル(両者を合わせて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2) 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個のイソブレンが順次連結した基本骨格(C₅H₈)_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。なおイソブレン(C₅H₈)はテルペンとは区別される。

注3) エントレインメント：ここでは都市の粗度で生じる機械的な乱流変動が上空の逆転層から顕熱を取り込み境界層内に輸送する現象。

注4) インパクト型雲水サンプラー：航空機の窓から溝のあるプラスチック製の板を雲中に突き出し慣性衝突を利用して雲水を採取する装置。

2.3 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・榊 剛

陸生生物生態研究室 ○古川昭雄・藤沼康実・名取俊樹・可知直毅・清水英幸・
竹中明夫

分子生物学研究室 田中 浄・佐治 光・久保明弘・青野光子

技 術 部

生物施設管理室 ○大政謙次・安保文彰・増田啓子・町田 孝

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, 自動車の排ガス等からもたらされる都市域の窒素酸化物 (NO_x) 汚染が深刻化し, その光化学二次反応物質であるオゾン (O_3) やパーオキシアセチルナイトレート (PAN) 等によると思われる植物被害が都市近郊で頻繁に発生している。このような大気汚染の広域化の傾向にもかかわらず, PAN 等について, 常時監視体制に相当するものはなく, 現実的な対応として指標植物を用いる方法が提案されている。そこで, 大気汚染物質の植物影響に関するこれまでの研究成果を踏まえ, 光化学二次汚染物質の植物影響を個体の生理生態的なレベルからタンパク質, 遺伝子等の分子レベルにおいて解明するとともに, 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, 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, 探索手法を開発し, 併せて, 生体計測診断技術等と組み合わせた指標植物による野外の大気環境評価法を確立することを目的として研究を進めている。

本特別研究は 7 つの研究課題に沿って進められている。まず, (1) 光化学二次汚染物質に対する植物反応の指標性に関する研究では, 汚染物質に対する生理生態反応や生化学反応を解明し, 指標性に優れた反応を明らかにする。(2) バイオテクノロジーによる指標植物の作出法に関する研究では, (1) で得られた知見に基づき, 細胞工学や遺伝子工学的手法を用いて, 汚染物質に対する高感受性の植物を作出する。(3) 指標植物の探索と選抜に関する研究では, 在来種の中から高感受性で指標性に優れた植物を選抜し, 生育環境との関係を明らかにする。(4) 指標植物の系統保存と増殖に関する研究では, 選抜あるいは作出された指標植物の系統保存と同一形質を有する植物 (クローン) を大量供給するための技術の開発を行う。(5) 植物診断法の開発に関する研究では, 指標となる生理生態反応を計測し, 客観的な診断を行うための手法の開発を行う。(6) 環境調節装置の制御法に関する研究では, PAN 等の暴露実験のための装置の開発や自然環境シミュレータを用いた実験法の検討を行う。(7) 指標植物による大気環境評価装置に関する研究では, 実際に野外に指標植物を配置し, 大気汚染の状態を監視するための大気環境評価装置の開発を行う。また, (1)～(7) の研究課題で得られた成果を総合化して, 大気環境

評価を行うための手法を確立する。

〔研究成果〕

平成元年度までに得られた研究成果のうち、ここでは、研究課題(3)、(5)及び(6)に関して得られた主な成果について報告する。

(1) 光合成速度(CO₂吸収速度)を指標としたPAN感受性の種間差の検討(研究課題(3))

PANに対する植物の感受性は種によって異なる。昭和62年度の特別研究年報(AR-1-'88)において、可視害を指標とした植物種の感受性の違いを報告したが、ここでは、可視害より敏感な光合成速度(CO₂吸収速度)を指標としたPAN感受性の種間差について述べる。

表1は、可視害を指標とした場合にPAN感受性が高いとされるペチュニアと、インゲン、ナス、トマト、タバコ等にPANを暴露(0.17~0.19 ppm, 90分)したときの暴露直後及び翌日の光合成速度の低下を示す。なお、測定は同化箱を用いて個体当たりで行い、実験中は、気温25℃、湿度70%RH、光強度約250 μmol photons/m²/sの条件下に置いた。暴露終了時には、種の違いにかかわらず顕著な光合成速度の低下は認められなかったが、翌日の光合成速度は、インゲン、ペチュニア、ナス等において顕著な低下を示した。この現象は、光合成速度と気孔開度の指標である気孔コンダクタンスとの関係の解析から、展開終了後の葉においてはPANによる気孔閉鎖により、また、展開中の葉においては、気孔閉鎖に加えて、光合成反応過程の阻害によって引き起こされることが示唆された。これらの結果から、可視害を指標とした場合に指標植物として有用なペチュニアに加えて、気孔反応がPANに敏感で、光合成速度の低下が著しいインゲンも指標植物として有用であることが分かった。

表1 光合成速度を指標としたPAN感受性の種間差

植 物 種	光合成速度の低下(%)	
	暴露直後	翌 日
インゲン(新江戸川)	97	68
ペチュニア(タイタンホワイト)	103	86
ナス(千両2号)	97	68
トマト(福寿2号)	97	94
タバコ(キサンチン)	99	102

* 光合成速度の低下は暴露前の値に対する相対値。

(2) クロロフィル蛍光動画像計測による大気汚染害の早期診断法の開発(研究課題(5))

植物に光を照射するとクロロフィルaから蛍光が発せられる。特に、暗所においた状態で急に光照射すると、その蛍光の強度が時間的に複雑な変動をする。この現象は、クロロフィルaの蛍光誘導期現象(Kautsky効果)と呼ばれ、光合成反応、特に光化学系IIの電子受容体Q_Aの酸化還元状態を反映し、電子伝達反応や光リン酸化反応などの各光合成過程の反応に影響されることが知られている。そこで、まず、この誘導期現象を連続的に計測し、誘導期のOIDPSMT過程と関連づけて解析することができる動画像計測システムを開発した。

図1に、画像計測システムのブロック線図と写真を示す。画像センサとしては、高感度で残像

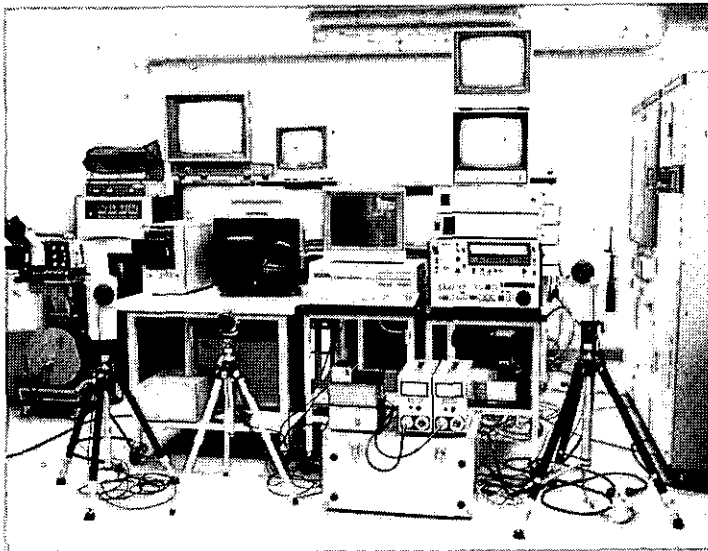
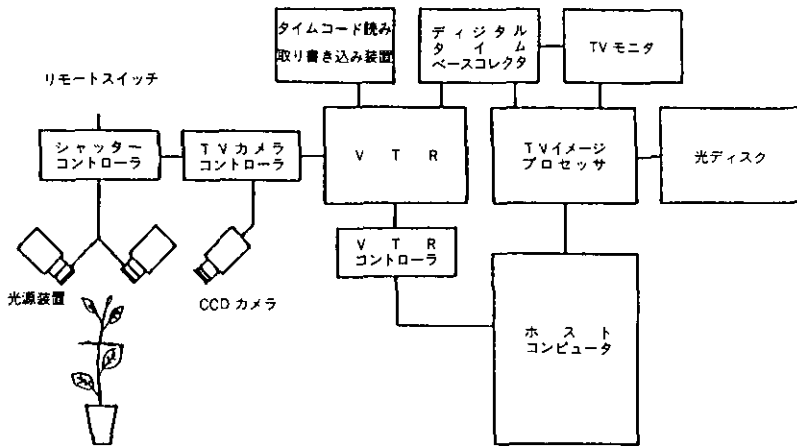


図1 クロロフィル蛍光動画画像計測システム

が少ない CCD 撮像素子をもつ TV カメラを改造し、使用した。蛍光の計測は、葉を 15 分程度暗条件下に置き、その後、青色光 ($0.4 \sim 0.6 \mu\text{m}$) を照射し、 $0.683 \mu\text{m}$ の干渉フィルター (半値幅 $0.01 \mu\text{m}$) を通して行った。このシステムでは、TV カメラの垂直同期信号と同期するシャッターをもつ光源装置、タイムコード読み取り書き込み機能をもった計算機制御の VTR、及び TV イメージプロセッサの組み合わせにより、 $1/60$ 秒ごとの蛍光動画を計測解析することができる。光源としてキセノンランプを使用し、特製の多重 ND (neutral density) フィルターを装着することにより、照射光の強度の空間分布を均一にすることができた。光ディスク (1.2 GB) は画像処理の高速化と画像データベースのために使用した。このシステムの特性について簡単に整理すると、CCD 撮像素子の感度は $10^{-4} \mu\text{mol photons/m}^2/\text{s}$ で、残像は 30 ms 後で 4% であった。また、蛍光画像のシェーディングとノイズは、タイムベースコレクタと TV イメージプロセッサによる処理で 1% 以内にする事ができた。その際の画像解像度は 280 lines 程度であった。光源の光強度の空間分布は、 $20 \text{ cm}\phi$ で 5% 以内であった。

図2は、ヒマワリ葉の局所部位に1.5 ppmの二酸化硫黄(SO₂)を30分間暴露した直後の蛍光強度の変化を示す。被暴しなかった部位では、蛍光誘導期の典型的なOIDPSMT変化を示したが、被暴部位では、その蛍光誘導に変化が見られた。蛍光解析の知見から、OIの過程は光化学系IIによる初期電子受容体Q_Aの光還元を、IDは光化学系IによるQ_Aの部分酸化を、DPは光化学系IIを介した水からの電子の流れによるQ_Aの還元を、またPSは光化学系Iの還元側の光活性化によるQ_Aの再酸化を反映している。一方、SMTは光リン酸化反応に関係したチラコイド膜を介した高エネルギー状態やマグネシウムなどのイオンによる色素間エネルギー転移効率の変化などに影響される。それゆえ、図2は、SO₂被暴によりこれらの光合成反応が阻害されたことを示している。なお、この被暴葉には可視害が発現せず、暴露後6時間経過した時点では蛍光誘導が葉脈の周辺から正常な状態に回復することが確認できた。図3は、ペチュニア葉に

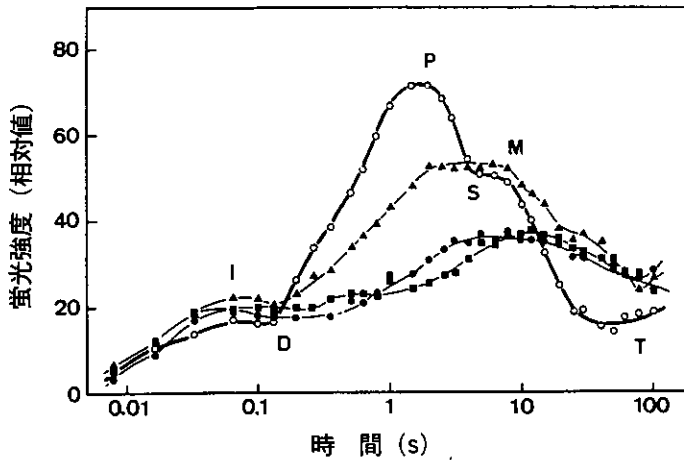


図2 SO₂に被暴したヒマワリ葉の蛍光強度の変化
●, ▲, ■: 被暴した部位, ○: 被暴しなかった部位

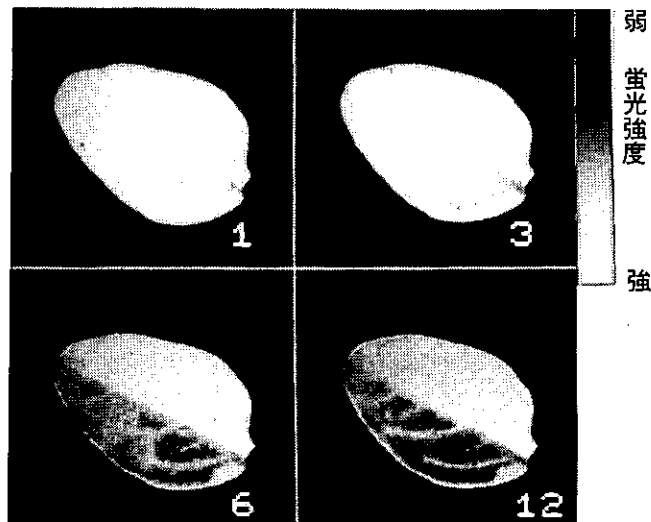


図3 ペチュニア葉のPANによる光合成障害の進行
数字は、PAN暴露後の経過時間。

0.06 ppm の PAN を 3 時間暴露した後、酸素発生系が障害を受けたことを表す蛍光誘導期の P の時点での蛍光画像の経時変化である。この場合、葉の下半分に光を照射し続け、上半分には測定時だけ光を照射した。その結果、時間の経過とともに、光照射をし続けた葉の下半分においてのみ光合成阻害が進行した。このことは、障害の進行に光が必要であることを示している。また、気孔コンダクタンスや光合成速度の低下と比較したところ、蛍光強度の低下の方が早く始まることが分かった。

以上の結果から、クロロフィル *a* 蛍光の動画像計測により、大気汚染ガスによる植物影響の早期診断が可能であることが分かった。また、今後、種々の環境ストレスに対する蛍光誘導期現象の変化をデータベース化することにより、光合成反応阻害の阻害反応の特定と、その原因の推定に有効に利用できることが示唆された。

(3) 植物実験用の PAN 暴露装置の開発 (研究課題 (6))

従来、植物影響実験に用いる PAN は気相反応によって合成していたので、純粋な PAN の精製には多大な労力を必要とした。また、純粋な PAN は爆発しやすく保存ができないため、実際には、ある程度不純物の混じった状態の PAN を用いて植物影響を調べることが多く、また、自動的にガス濃度を調節することは行われていなかった。そこで、Gaffney らの純度の高い PAN をトリデカン溶液中で合成する方法を用いて、高い精度の暴露実験を目的とした植物実験用の PAN 暴露装置を開発し、ガス濃度の自動制御法を検討した。

図 4 は、開発した植物実験用 PAN 暴露装置の概略図である。まず、低濃度の PAN を得るために、Gaffney らの方法で合成した PAN の希釈溶液中に、ポンペ入り窒素をバブリングし、数 100 ppm の気体状 PAN を発生させた。ガス濃度の制御は、得られた低濃度 PAN の流量を計算機により PI 制御することにより行った。ガス濃度の検出は、化学発光法の NO_x 計と ECD-ガスクロマトグラフィー (ECD-GC) により行った。制御用の検出信号には、連続的な測定が可能な NO_x 計からの信号を用い、6 分間隔で測定される ECD-GC 値により補正した。図 5 は、この装

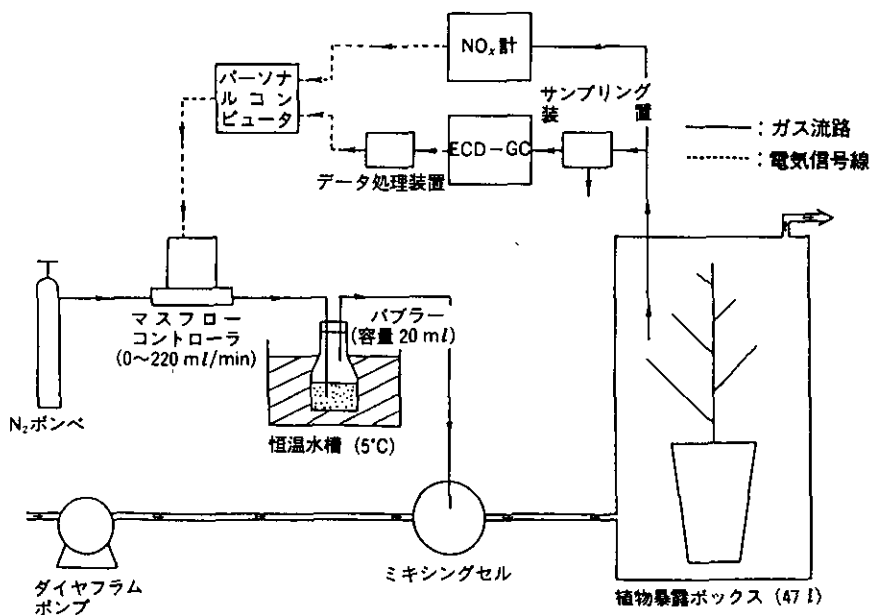


図 4 植物実験用 PAN 暴露装置

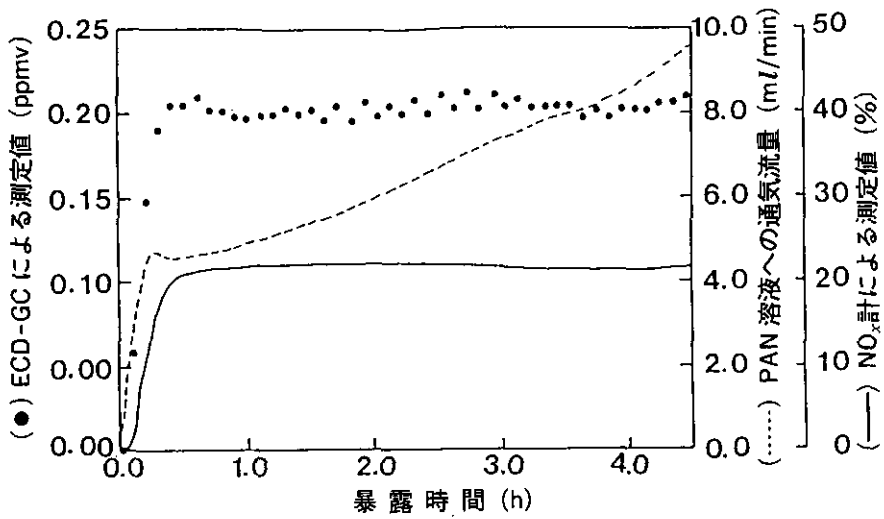


図5 PAN濃度の制御結果

置を用いた制御結果の一例である。目標値に整定するのに30分程度を要したが、整定した後は設定値からのずれは±5%以内であった。現在、本特別研究において、この装置を用いたPANの暴露実験が行われている。

2.4 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

◎須藤隆一

海洋環境研究室

○渡辺正孝・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・須賀伸介

情報調査室

横田達也

計測技術部

生体化学計測研究室 切刀正行

分析室

西川雅高

総合解析部

総合評価研究室

安岡善文

客員研究員 7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、量的変動とそれにとま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)現場メゾコズ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。

各研究課題は年次計画どおり進行し、富栄養化と赤潮発生との関連や大規模赤潮に至る海況等につき知見を得た。

〔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

1989年7月20日～8月13日まで、メゾコズ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、ビタミンB₁₂、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5mごとに5点でサンプリングした。

本年度は、調査海域で調査期間中に *Chattonella antiqua* による赤潮が発生し、赤潮の消長に伴う化学環境の変化を詳細にモニターすることができた。また、セディメントトラップ実験により、*C. antiqua* のシストが、赤潮の衰退期に、15m以深の層で主として形成されることが判明した。

(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孢子(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。前年度 *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たが、本年度はこれに基づき以下の点を明らかにした。

①顕微測光により、シストと栄養細胞の核中のDNAを定量・比較した。シストのDNAは、栄養細胞(G₁期)の約2倍であり、シストは有性生殖の結果形成される。

②窒素(N)ないしリン(P)枯渇条件下栄養細胞(~100 μm)から微小な配偶子(~30 μm)が形成され、これが融合することでシストは形成される。配偶子は一度形成されてしまうと、以後はN、Pを再添加しても栄養細胞にはもどらず、N、P-無添加の場合と同様の効率でシストが形成される。このことは、現場でのシスト形成には必ずしも水柱全体での栄養塩の枯渇が必要ではないことを示している((2)3参照)。

③シスト形成の至適照度・水温はそれぞれ<5 μE/m²/s, 22~26°Cであり、これらの結果は現場でのセディメントトラップ実験の結果をよく説明している。

海水マイクロゾム内に赤潮発生現場で特徴的にみられる水温・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。窒素・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・窒素欠乏状態にまで培養した *C. antiqua* を導入後、日周鉛直移動実験を行った。細胞内窒素・リン濃度が最小に近い状態での *C. antiqua* は夜間底層に移動し豊富な窒素・リンの両方を同時に摂取し得ることが判明した。さらにリンは夜間無機リン酸のまま生体内に蓄積し、昼間表層において光合成に用いていることが判明した。細胞内炭素量は昼間のみならず夜間も増加し、夜間も炭素固定を行うことが判明した。これは *C. antiqua* 個体群の増加にとって大きな生態的意義を持つものと思われる。

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

一つの生物が、離れて生育している他の生物に影響を与える作用、他感作用(allelopathy)は、陸上の植物生態学の分野で広く研究され、多くの化学的相互作用に関与する物質、他感作用物質(allelochemicals)の構造が明らかにされている。海洋生態系での他感作用物質はあまり研究例が多くなかったが、最近オキナワモズクが産する脂肪酸の一種がこの他感作用を示し、植物プランクトンの増殖を制限することが報告されている。本研究では赤潮藻類 *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結果、これらケイ藻に *C. antiqua* の増殖を阻害する他感作用を見いだ

した。特に *Amphiprora* で他感作用の強い種を *Amphiprora hyalina* と同定し、この作用について詳細に検討した。*A. hyalina* の培養液を熱処理、ろ過後、C-18 カートリッジを用いて濃縮した。この濃縮液には明らかに他感作用があり、高速液体クロマトグラフィーで分析した結果多数の高度不飽和脂肪酸が検出され、これらが他感作用物質であろうと推察された。さらに濃縮液から C-18 逆相カラムクロマトグラフィーで5つの分画を得、このうち他感作用が見られた3つの分画について現在解析を進めている。

内湾における赤潮の発生・消滅には物理的、化学的、生物的要因が密接に関連しているといわれている。これらの要因の中で生物的要因に着目して、特に赤潮の発生・消滅に関連の深い細菌 *Vibrio alginifestus* が各種赤潮藻類の生存・増殖・抑制に対していかなる効果を有するか、また、赤潮藻類を捕食する微小動物として、沿岸海域で普通に見られる原生動物絨毛虫有鐘類 *Favella taraikaensis*、魚類の養殖用餌料として重要な袋形動物輪虫類 *Brachionus plicatilis* が赤潮藻類の生存・増殖にいかなる効果を有するかについて検討を行った。その結果、細菌及び微小動物を適切な条件下で活用すれば、赤潮藻類の数種類については生物的な働きで消滅させ得る可能性のあることが明らかとなった。

3) 富栄養化の赤潮発生に及ぼす影響評価

1986~1988年と同様、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20日~8月13日)。本年度は、*Chattonella antiqua* の小規模な赤潮が発生した(8月7~12日)。例年と同様の現場環境の観測に加え、本年は赤潮発生期間を通じて毎日調査定点(水深21m)の15m層と19m層に毎日セディメントトラップを吊り下げ、シストが赤潮発生過程のどの段階でどの位の水深で、またどれ位の量形成されるのかを検討した。また赤潮発生前後を通じての底泥中のシストの量もモニターした。

① *C. antiqua* の生活深度である0~10m層の栄養塩が枯渇し、赤潮が衰退期にあった8月10~11日にかけて、19m層で多数の配偶子((2)1参照)が観察された。

② 底泥中のシスト濃度は底層水温が急上昇した7月26日~8月3日にかけて急減し、赤潮消滅後の8月12日には再び上昇した。

③ ほとんどのシストは、赤潮の衰退期(8月10~12日)に15mより下の層で形成された。また、赤潮発生期間を通じての19m層でのシストのフラックスは 9.8×10^5 cysts/m² であり、これは赤潮発生前の底泥中のシスト濃度とほぼ同程度であった。

④ シストが主として形成された8月10~12日の15m以深では、栄養塩濃度は高い値($PO_4 > 0.4 \mu M$, $NO_3 > 3 \mu M$)を示した。このことはシスト形成には水柱全体での栄養塩の枯渇が必ずしも必要ないことを意味しており、配偶子形成以後の栄養塩の存在がシスト形成に何ら影響を及ぼさないという実験室培養系の結果((2)1参照)ともよく対応している。

(3) 現場メゾコズムを用いた内湾生態系の物質循環・動態に関する研究

海洋メゾコズ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ゾコズム(図1:直径5m, 深さ18m, 底泥も含め、流入・流出を持つ半開放系)を設置した。海底に底部を固定レグパイプ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。実験期間は1989年7月20日~8月13日の25日間であった。測定項目は水温、

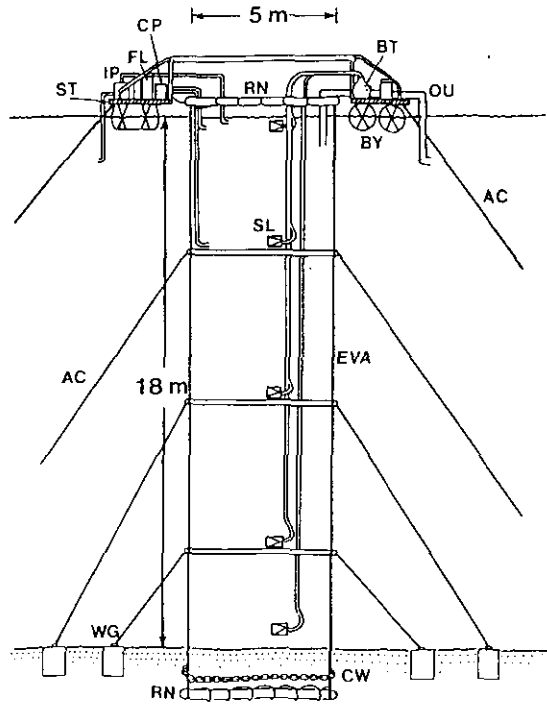


図1 海洋メゾコズムの概略図

塩分、照度、透明度、DO、栄養塩類（リン・窒素・ケイ素）、微量金属、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、メゾコズム内・外の鉛直5点計測を行った。外部5m層から取水し、ミリポアフィルター（ $5\mu\text{m}$ と $2\mu\text{m}$ ）による過後メゾコズム内1m層に放水する流入系を設置した。海洋メゾコズム内にゆっくりとした鉛直循環流を形成するために表層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（図2）。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とともに下降流ができ、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。

現場海域の生態系を捕獲後直ちに窒素（ NaNO_3 ）及びリン（ NaH_2PO_4 ）を0~18mの全層にわたって添加し人為的富栄養化実験を開始した。なお実験初期における全層への人為的栄養塩添加は、1987年に播磨灘家島海域で観測した*C. antiqua*赤潮発生時の栄養塩分布を再現させたものである。実験開始後水温・塩分による成層発達と、表層でのケイ藻による栄養塩摂取により表層で栄養塩が少なく、5m層以深に多くある栄養塩成層が形成された。

海洋メゾコズム内は有限の容量であるため、水深5m以深においても栄養塩がどんどん摂取されるため、安定した栄養塩成層を長期間維持することが困難である。このため7月28日及び8月10日に窒素・リンを今度は水深6~18mにのみ添加し、安定した栄養塩成層を強制的に形成させた。本年度は台風が本土に接近し、7月27~29日は強風であった。その後も8月1日頃までときどき強風が吹き、成層が破壊され、6m以深の栄養塩がまき上げられた。しかしその後

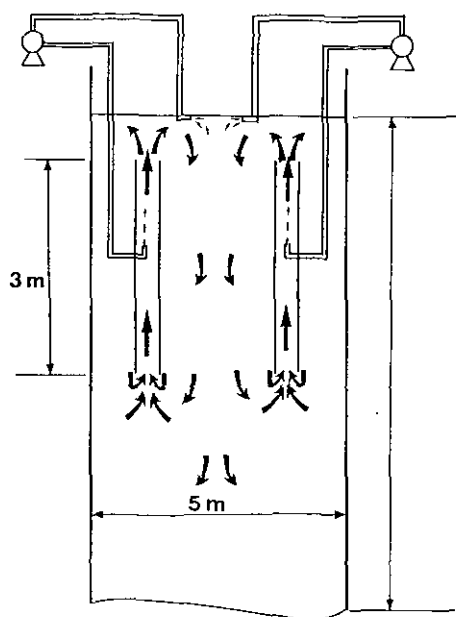


図2 鉛直循環装置

は安定した成層が形成された。鉛直循環流による表層へのまき上げが考えられたので、8月8日には鉛直循環流装置も停止し、完全なべたなぎ状態とした。8月7日までは *C. antiqua* は出現していなかったが、鉛直循環流を停止した8月8日に5m層で2 cells/ml出現した。その後8月9日表層で8 cells/ml、8月10日表層で21 cells/mlと増加し、8月11日15時には表層で157 cells/mlと赤潮状態となった。この人為的富栄養化実験期間を通じて $PO_4\text{-P}$ 、 $NO_3\text{-N}$ とともに水深5mを境として安定な成層が形成されていた(図3)。さらに $SiO_3\text{-Si}$ についても8月1日以降は表層ではゼロとなり、5~10m層においても2~5 μM と少なく、10m以深においてのみ15 μM と多量に存在した(図4)。このため表層ではケイ藻類は栄養塩欠乏のみならずSi欠乏のため8月1日以降はほとんど増殖できなかったと思われる。8月9日以降 *C. antiqua* 赤潮状態となったが、8月12~13日にかけて昼夜連続観測を行い、*C. antiqua* の現場での日周鉛直移動を観測した(図5)。8月12日15時には表層で119 cells/mlであったが、21時には表層は8 cells/mlとなり5m層に最大値143 cells/mlを示した。24時には5m層で88 cells/ml、7.5m層で86 cells/mlとなり、約半分の細胞が栄養塩豊富な6m以深に移動してきた。8月13日3時にはほとんどすべての *C. antiqua* 細胞は栄養塩豊富な7.5m層に移動し229 cells/mlとなった。6時には上層へと移動し、5m層に147 cells/ml、7.5m層で109 cells/mlとなっていたが、表層にはまだほとんどの細胞は到達していなかった。9時には表層で116 cells/mlとなり7.5m層にまで広く分布していた。12時にはほとんどの細胞は表層に達し、421 cells/mlとなり *C. antiqua* の大規模赤潮状態となった。この観測により *C. antiqua* は現場海域で水深7.5mまで鉛直移動することが初めて判明した。水深6m以深の人為的富栄養化が、7.5mまで日周鉛直移動を行う *C. antiqua* に夜間7.5m層での栄養塩の摂取を可能にした。これにより海洋メゾコズム内に *C. antiqua* 赤潮を人為的に発生させることに成功したものと思われる。

本実験により海洋メゾコズム内に鉛直循環流、ろ過海水の流入、人為的富栄養化等の度合を変

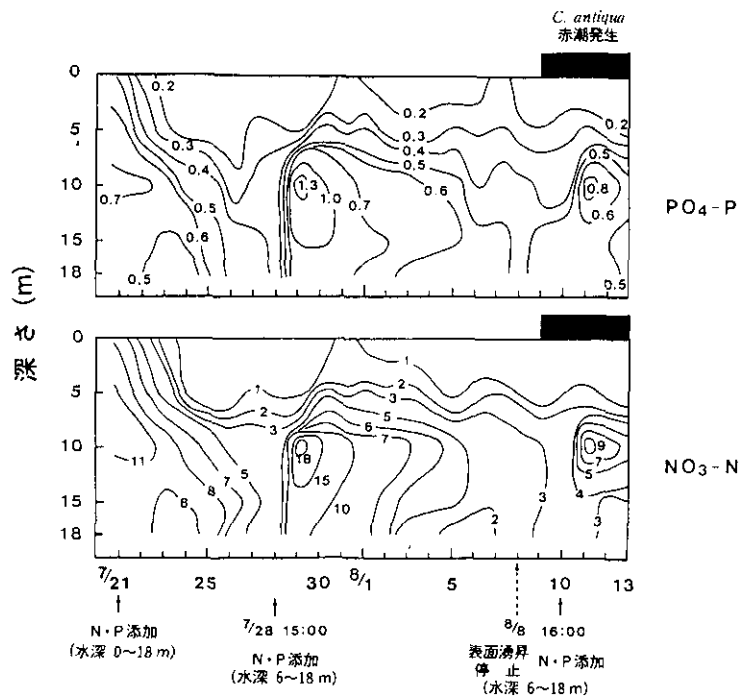


図3 メゾコズム内の $\text{PO}_4\text{-P}$, $\text{NO}_3\text{-N}$ 鉛直分布の経時変化

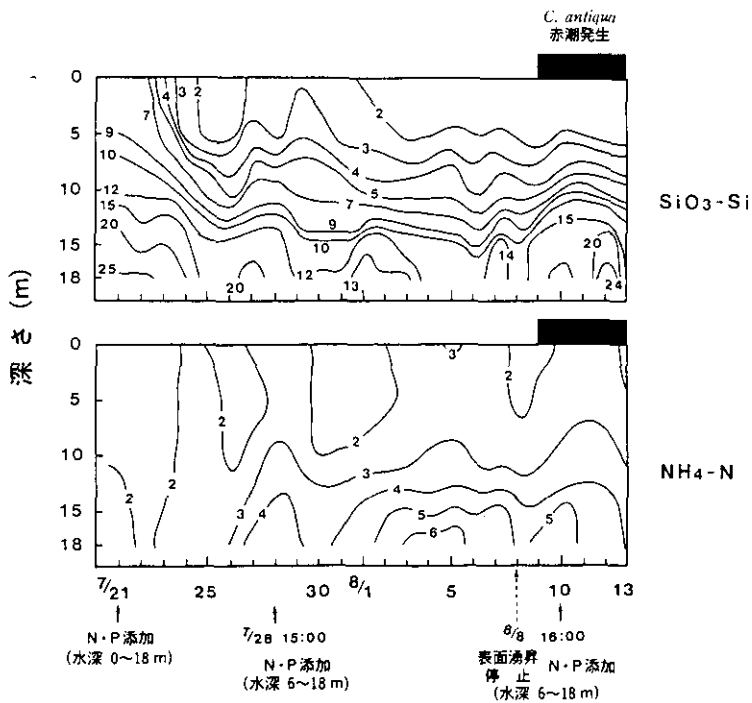


図4 メゾコズム内の $\text{SiO}_3\text{-Si}$, $\text{NH}_4\text{-N}$ 鉛直分布の経時変化

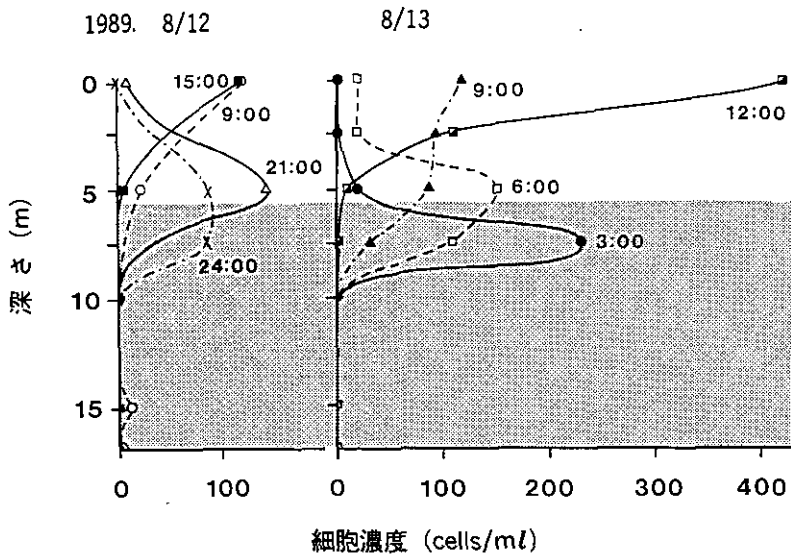


図5 メゾコズム内の *C. antiqua* 日周鉛直分布

化させることにより、藻類組成をケイ藻類-ペン毛藻類-*C. antiqua* 赤潮のいずれへも人為的に遷移させ得ることが明らかになった。現場海域での生態系に対してこのような制御因子を抽出し得たことにより、今後富栄養化による生態系応答の法則性が、物質循環の経路・量と速度・種組成の遷移等の立場から明らかにすることが可能となった。

2.5 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

◎森田昌敏

生体化学計測研究室 ○相馬悠子・安原昭夫・岡本研作・植弘崇嗣・功刀正行・柴田康行

大気計測研究室 横内陽子・向井人史

水質計測研究室 古田直紀・白石寛明

底質土壌計測研究室 相馬光之・瀬山春彦・田中 敦

分析室 溝口次夫・伊藤裕康・西川雅高

総合解析部

資源循環研究室 中杉修身

大気環境部

大気化学研究室 鷺田伸明・畠山史郎

環境生理部

環境生理研究室 高橋慎司

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 田村憲治

人類生態研究室 鈴木和夫・遠山千春・平野靖史郎

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・伊藤勇三

客員研究員 20 名, 共同研究員 4 名

〔研究概要〕

化学物質は、その有益性の反面、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を通じて、それが直接的にあるいは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、結果として人に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。

化学技術の進歩と環境問題は密接な関連がある。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は将来ますます重要な課題となり、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のための研究が必要と考えられる。

このような背景を踏まえ、本特別研究では(1)環境中の化学物質の分離・分析手法に関する研究、(2)バイオセンサーの開発に関する研究、(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、(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、(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、の研究課題について研究を行っている。

前年度までは、ジベンゾフラン以外は化学物質の特定はせず研究が進められてきたが、本年度より化学物質を特定して集中的に研究が進むようにした。本年度は各研究課題とも、トリブチルスズ等の有機スズ化合物、トリクレン等揮発性有機塩素化合物、ダイオキシンに関しての研究が主としてなされた。

〔研究成果〕

(1)有機スズ化合物に関する研究

有機スズ化合物は種々の化学形態をとるイオン性化合物であり、現在問題となっているのは、図1に示すようなブチル基、フェニル基のついたスズ化合物で陰イオンはこの化合物の存在する環境媒体により変化する。これらの化合物は、不揮発性であり、土壌や有機物に吸着しやすいなど、分析が面倒な物質である。そこで化学形態に関する情報を与える高感度高精度分析法の検討を行い、表1に示すような6つの方法の検討を行った。ガスクロマトグラフィーによる分析では揮発性誘導体にしての分析が必要であり、液体クロマトグラフィーでも陰イオンをそろえて分析する必要があり、表に示すような誘導体での分析法が適当であった。また検出器としてはMS(質量分析計)、FPD(Flame Photometric Detector)が有効であるという結果を得た。

これらの分析法を使って、東京湾の魚介類中の有機スズ化合物のモニタリングを行った。図2, 3に示すのは東京湾の各地域の岸壁に付着しているムラサキイガイ中のスズ化合物濃度の測定結果である。すべてのイガイからスズ化合物が検出されたが、高濃度に汚染されている地域は偏在していることが分かった。ブチルスズ化合物では、代謝物のジブチルスズ(DBT)がトリブチ

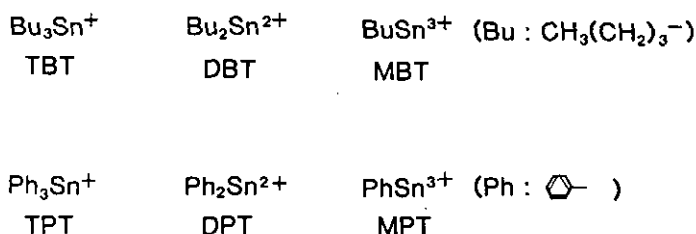


図1 有機スズ化合物

表1 有機スズ化合物の分析法

分析法	誘導体	検出限界
ガスクロマトグラフィー		
FPD	isopropylation	50 pg
MS (SIM)	ibid.	1 pg
MS (SIM)	hydride	5 pg
高速液体クロマトグラフィー		
AA (long tube)	chloride/tropolonate	5 ng
ICP-AES	ibid.	10 ng
ICP-MS	ibid.	50 pg

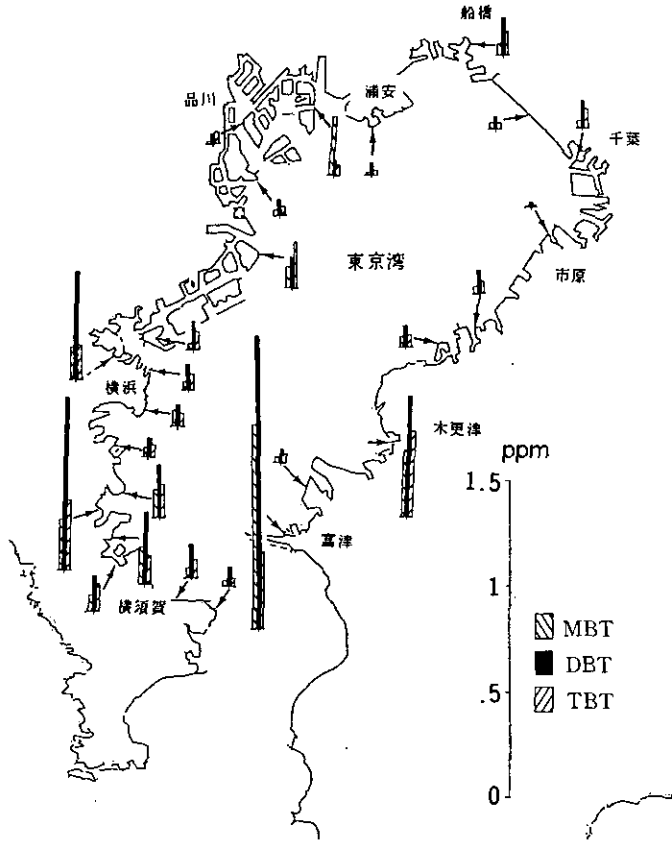


図2 東京湾のムラサキガイに含まれるブチルスズ
TBT (トリブチルスズ), DBT (ジブチルスズ), MBT (モノブチルスズ)

ルスズ (TBT) の約 1.5 倍程あり、代謝が速いことがうかがわれた。フェニルスズ化合物ではトリフェニルスズ (TPT) が大部分であるが、その濃度は TBT よりも一桁近く高い場合があった。図4は東京湾のアサリの中での TBT と TPT の経年変化であるが、TPT による汚染が1980年に既に存在し、増加の方向にあるのではないかと考えられる結果となっている。

前年度淡水貝サカマキガイで急性毒性を調べ、毒性の高かった TPT と DPT について同じサカマキガイで慢性毒性影響 (成長阻害, 増殖抑制, 殻形成) を調べた。10 ppb の濃度での成長阻害, 親貝の死亡が見られたが、増殖抑制や殻の変形の兆候は見られなかった。

(2) トリクレン等揮発性有機塩素化合物に関する研究

前年度作製した大気中の揮発性有機塩素化合物の自動分析装置を使用し、当研究所敷地内で大気を1年間自動分析した。定量した物質は7種類 (フロン-11, フロン-113, 四塩化炭素, クロロホルム, トリクレン, パークレン, メチルクロロホルム) である。これらはいずれも、濃度の時間変動, 季節変動が大きい。メチルクロロホルムは他の物質より常に数倍高い濃度を示した。図5にその例を示しているが、いずれの物質も冬濃度が高く、夏低い季節変動が見られ、時間変動の最大値は通常には朝、最小値は日中に見られ、この時間変動は冬に顕著であった。

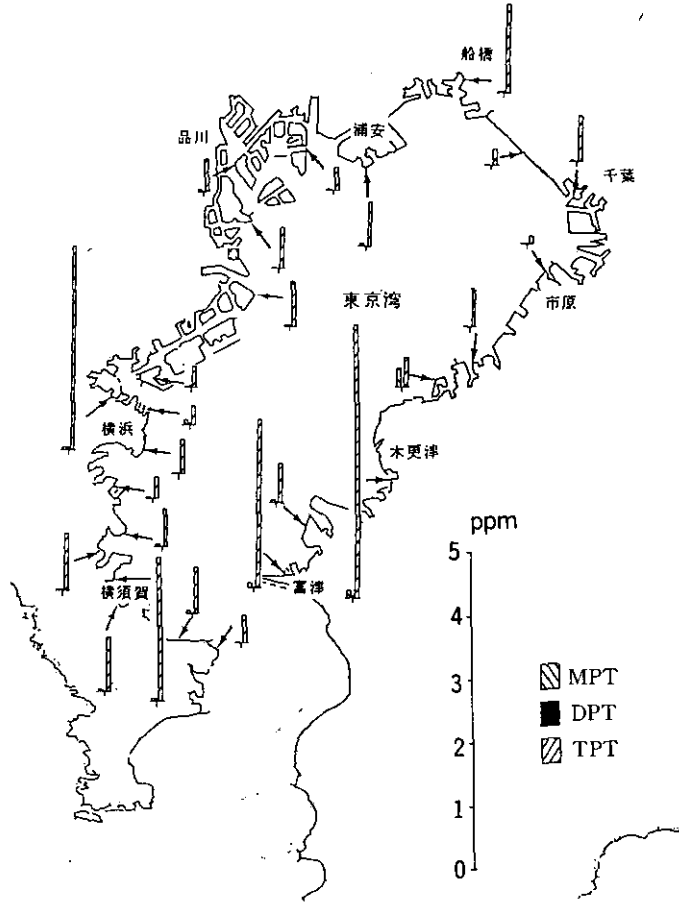


図3 東京湾のムラサキガイに含まれるフェニルスズ
TPT (トリフェニルスズ), DPT (ジフェニルスズ), MPT (モノフェニルスズ)

土壤中の揮発性有機塩素化合物の分析のために、土壌を加熱し塩素化合物を気化させ、分析する加熱気化方式の分析システムを作製した(図6)。このシステムを使用し、汚染レベルの異なる土壌での測定を行い、土壌表面からの深さ方向での濃度分布を調べた。地下水汚染のない地域においても、ほとんどの場合にトリクレンとパークレンは検出され、それらの地域では濃度は地表面において高く、大気から土壌への移行を示していると考えられた。

トリクレンを焼却処理した場合、どのような分解をするかを知るために、空气中でトリクレンを熱分解し、分解生成物を調べた。表2は1gのトリクレンを熱分解したときの生成物を示すが、トリクレンは500°Cで大部分が壊れてしまい、400°Cで分解生成物の種類が最も多く塩素の入ったアルカン、アルケン類、酸素との反応で生成するトリクロロ酢酸メチル等が検出された。

またトリクレン、パークレンの水質汚濁防止法等による法的規制に関連し、汚泥、土壌からのトリクレン、パークレンの溶出法の検討を行った。

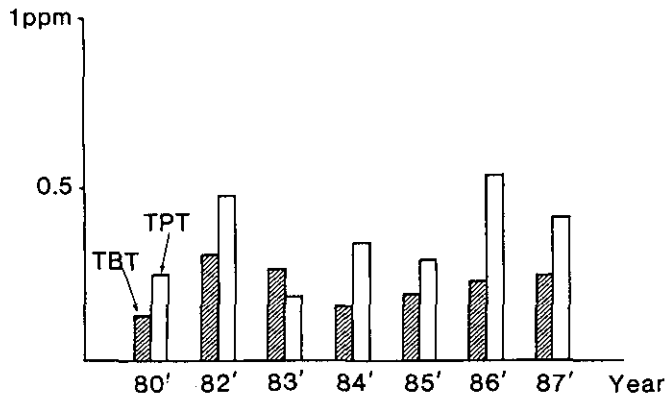


図4 東京湾のアサリ中のトリブチルスズ (TBT) とトリフェニルスズ (TPT) の経年変化

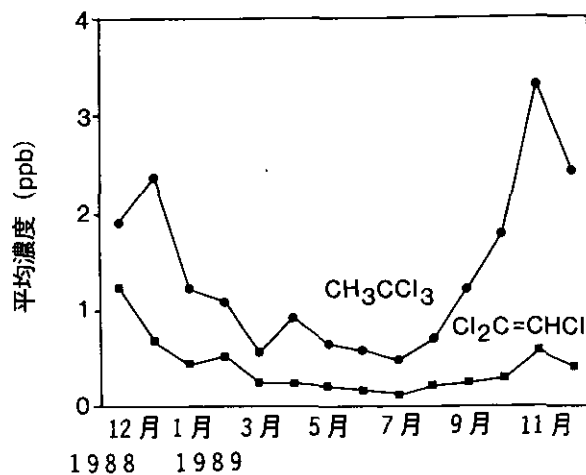
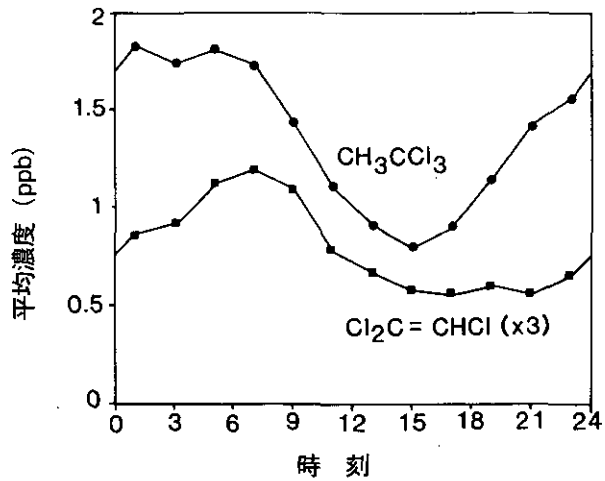


図5 当研究所敷地内で計測した大気中のメチルクロロホルムとトリクレン濃度の時間変化(年平均値)と季節変化

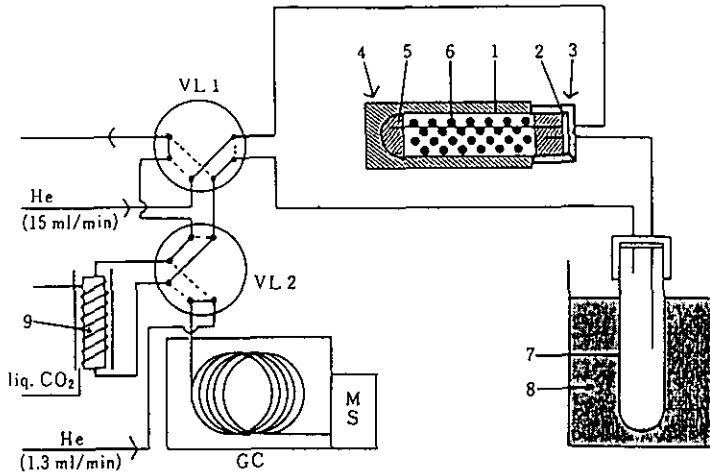


図6 土壤中の揮発性有機塩素化合物の分析システム

1: スクリューバイアル瓶, 2: テフロンライナー付シリコンセプタム, 3: アルミ製スクリュウキャップ, 4: ヒーター, 5: 石英ウール, 6: 土, 7: 水トラップ, 8: 氷水, 9: Tenax GC tube

表2 トリクロロエチレンの熱分解生成物

化合物名	1 g 当たりの生成量 (μg)					
	熱分解温度 ($^{\circ}\text{C}$)					
	300	400	500	600	700	800
四塩化炭素	216	8200	38,600	73,500	48,400	31,000
(トリクロロエチレン	302,000	143,000	773)			
テトラクロロエチレン	1,720	40,400	68,500	81,000	27,200	173
トリクロロ酢酸メチル	3,450	9,090				
1,2,3,3-テトラクロロプロペン	474	199				
塩化2,3,3-トリクロロプロペノイル	444	827				
ペンタクロロエタン	58	186				
ペンタクロロシクロプロパン	1,850	2,300	167			
ヘキサクロロエタン	1,454	16,100	2,260	481	313	
1,1,2,3,3-ペンタクロロ-1-プロペン	390	2,780				
ヘキサクロロプロペン	92	831				
ヘキサクロロブタジエン	1,970	4,280	4,160	809		
1,1,1,2,3,3,3-ヘプタクロロプロパン		93				
ヘキサクロロシクロペンタジエン		106				
ヘプタクロロブテン	55	204				
ヘプタクロロブテン		73				
ペンタクロロベンゼン		131	44			
ヘキサクロロベンゼン		807	1,420	290	43	

(3)ダイオキシン関連物質

環境中に存在するダイオキシンの分析として、本年度は母乳及びドライミルク製品中の塩化ダイオキシンの分析を行った。母乳9検体中の2,3,7,8-四塩化ダイオキシンの平均は5.57 pg/g (fat)、ドライミルク(3種)の平均は1.2 pg/g (fat)である。この値は、既に我が国において報告された値より幾分低く、米国あるいはヨーロッパと同程度である。

焼却によるダイオキシン関連物質の生成の可能性を調べるために、塩化ビニル樹脂の熱分解実験を行い、その分解生成物を分析したが、塩素系生成物はわずかであった。

ダイオキシン関連物質を使って、毒性評価の研究が行われた。PCB(ポリ塩化ビフェニル)の発ガン性の機構を明らかにするために、ラット肝臓細胞を使い、肝臓中におけるPCBによる特異的タンパク合成の有無を検討し、図7に示した3,4,5,3',4'-, 3,4,5,3',4',5'-PCBに特異的に誘導される分子量26,000のタンパク質があるのが分かった。このタンパク質がどのようなものであるかは、現在研究中である。

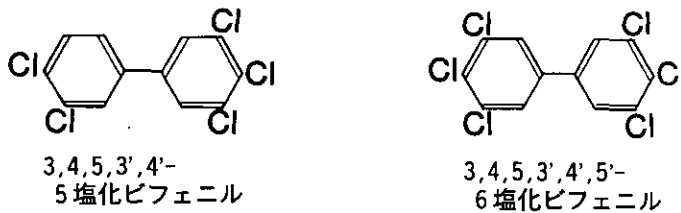


図7 特異タンパク合成の有無を検討したポリ塩化ビフェニル

また一塩化ジベンゾフラン異性体の中で強い変異原性を示す3-クロロジベンゾフランを使い、動物の肝薬物代謝活性との関連を薬物代謝酵素誘導剤を前投与したラットより調製したS9及びその細胞画分を用いて調べた。その結果、3-クロロジベンゾフランは3-メチルコラントレンによって誘導されるチトクロームP-448ばかりでなく、正常なラットの肝臓に存在する酵素によっても活性化されることが分かった。

(4)化学物質による環境汚染防止システムの検討

化学物質による環境汚染の特徴の整理をし、その特徴に応じた化学物質管理システムのあり方を検討し、その構成要素を整理した。

- ①地域における化学物質のクロスメディア汚染のリスク評価に基づいて地域における化学物質の製造・使用を計画する。
- ②事業者による自主的管理と化学物質取扱資格制度を設ける。
- ③浄化基金の設置。
- ④化学物質汚染によるリスクを計測するための総合指標の開発と監視システムの整備。

2.6 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〕 水質土壤環境部

◎須藤隆一

水質環境計画研究室 ○海老瀬潜一・平田健正・大坪国順・○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

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

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 森 保文

資源循環研究室 中杉修身・天野耕二

計測技術部

水質計測研究室 ○河合崇欣・白石寛明・野尻幸宏

底質土壤計測研究室 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

理工施設管理室 松重一夫

客員研究員 28 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 63 年度で 43.3%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言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、水域のもつ多様な機能を潜在的な面も含めて正確に把握する一方で、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、適正利用や総合的な水管理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。

そのためには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、湖沼の持つ多様な機能を高め、かつそれを持続的に保持するために、“環境容量”概念に基づく新たな管理手法の研究を旨とするものである。

(1) 環境容量の概念を導入した水域環境管理の研究

人間と水域環境とのかかわりを典型的に整理し、水域の利用形態に対する水域環境機能を住民の意識・行動調査などによって評価する手法を確立する。次いで、これら多様な機能を保持し高めて行くための規準として環境容量を見だし、これに立った水域環境管理の基本的な考え方を明らかにする。さらに、この水域環境管理施策の多面的な評価分析手法を開発する。

(2) 湖沼の物質循環速度と生態系管理に関する研究

容量を定量するため、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し、さらに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。次いで、この関係に基づい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。

(3) バイオテクノロジー等新技術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術の開発、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。

(4) 汚濁負荷流出管理に関する研究

流域から湖沼に流入する汚濁負荷量の大きさと負荷発生源別シェアを明らかにし、流域の自然、社会、人間環境の変化特に土地利用形態の変化に伴う湖沼への汚濁負荷インパクトの影響を算定しうるような汚濁負荷の流出予測モデルを開発する。このため、汚濁負荷の流出特性を現地調査から明らかにするとともに、流域の自然、社会環境をデータベース化し、流域情報システムとして整備し、これらを用いて汚濁負荷流出モデルの作成を行う。

(5) 複合利用湖沼の環境保全システムに関する研究

将来に視点を置いて、良好な水域環境にするにはどのような水管理手法が適切かを明らかにする。特に、多面的で複合化した湖沼の水利用に対して、湖沼という環境の場の適正でかつ有効な水利用を行うために、長期的にみて将来の湖沼環境の保全システムはどうあるべきかを水域や流域の機能を評価する指標等によって検討する。これより、土地利用や水利用のあり方、生活基盤や産業構造の転換、湖沼構造の改変など総合的な流域管理への展開の基礎概念と手法を確立する。

[研究成果]

(1) 水辺の親水機能の評価

水域利用の実態の機能別評価の研究として、親水性の評価体系を作成するための評価構造を明らかにした。水辺の親水機能を評価するには、住民の意識や行動に基づいた評価が必要であるために、自由連想法によるアンケート調査を実施した。その住民へのアンケート調査のクラスター分析結果から、住民の水辺に対する意識は図1のような階層構造に整理できた。全体としては、直観的、動的、静的な意識構造が明らかとなり、親水性評価ではこれらの構造要素に基づいた指標化が必要である。湖岸に近い住民と湖岸から遠い住民についての調査・解析結果の比較検討から住民の居住地と湖や川との距離による意識構造の違いも明らかとなった。これらの結果から、親水機能の面から見た望ましい水質レベルの設定の基礎が得られた。

(2) アオコの異常増殖条件

富栄養化した湖沼におけるアオコの優占増殖条件に関する研究では、米ぬか熱水抽出液によるマイクロキスティスの増殖促進効果が明らかになったため、さらに詳細な実験を続けた。

1) 米ぬか熱水抽出液のマイクロキスティスへの増殖促進効果

マイクロキスティスに対する米ぬか熱水抽出液の増殖促進効果では、米ぬか熱水抽出液の分子量画分による培養実験を行って、十分な窒素(N)とリン(P)の存在下でのマイクロキスティスへの有効成分の確認を行った。また、米ぬか熱水抽出液と鉄の共存効果については、マイクロキスティスは米ぬか熱水抽出液のみの添加ではその増殖速度や最大現存量が小さく、鉄の共存が必須であることが判明した。その鉄塩の形態も米ぬか熱水抽出液の添加の場合では図2,3のようにEDTA鉄より塩化鉄やクエン酸鉄が効果的であり、米ぬか熱水抽出液の無添加の場合は塩化鉄よりもクエン酸鉄の方が有効であった。

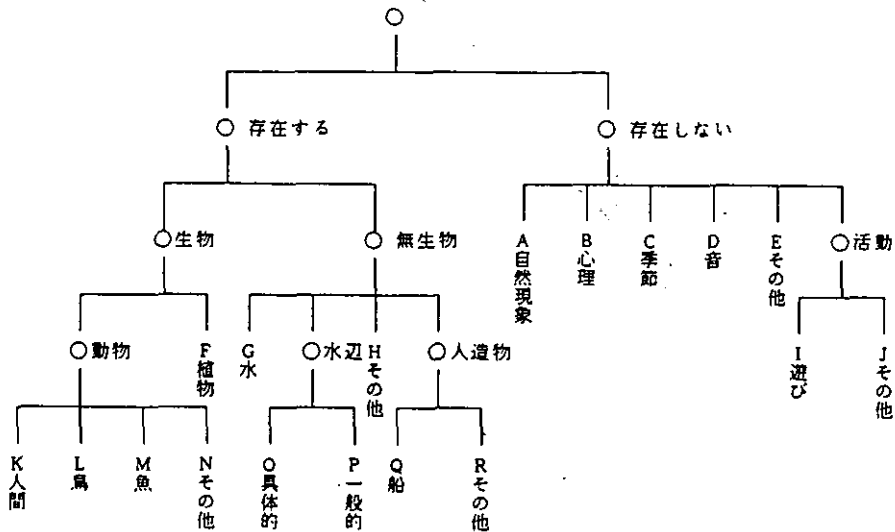


図1 刺激語「水辺」の辞書的意味に関する階層構造

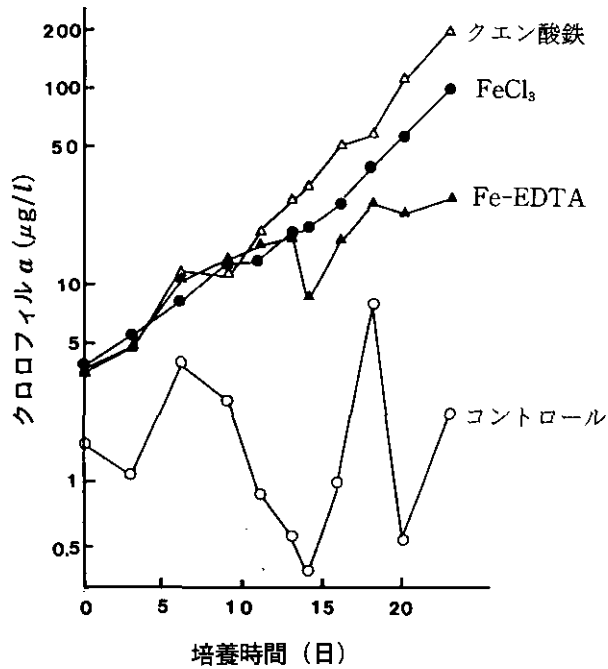


図2 鉄添加効果のための培養実験

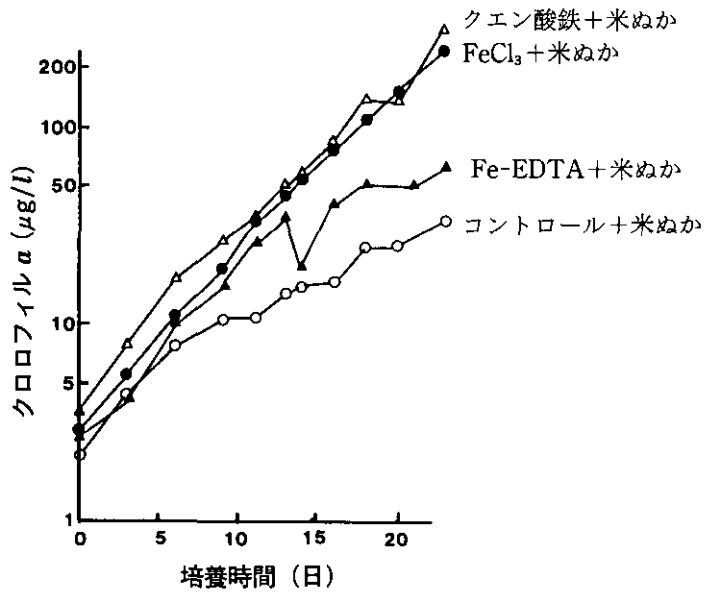


図3 鉄と米ぬか添加効果のための培養実験

2) 屋外実験池でのアオコ優占培養実験

屋外実験池におけるアオコの優占培養実験では、昨夏と同じ池で優占培養に成功したと同じ条件での追試と確認の実験を中心として研究を進めた。7月19日からの1回目の実験ではpHが

10 以上となりマイクロキスティスよりセネデスムスを中心とする大型藻類が増加して、マイクロキスティスの優占増殖とはならなかった。8月23日からの2回目の実験では pH を 9~10 に調節して行ったが、マイクロキスティスは消滅した。9月12日からの3回目の実験では EDTA を 0.2 mg/l の濃度になるようにした。その実験結果は図4のように、昨夏と同じ栄養塩条件で 40 μ m 以上の粒径のクロロフィル a 濃度が 160 μ g/l まで増加し、昨夏とほぼ同程度のマイクロキスティスの増殖が見られた。塩化鉄を加えた別の池でもマイクロキスティスは若干の増加を示したが、その後消滅した。これらの結果から、米ぬか熱水抽出液はマイクロキスティスの増殖促進成分であることは確認できたが、ほかにも増殖抑制物質の存在が予測されるに至った。pH 調節や EDTA 添加実験から、増殖抑制物質の一つではないかとされていた銅 (Cu) は増殖抑制物質として考え難い結果となった。

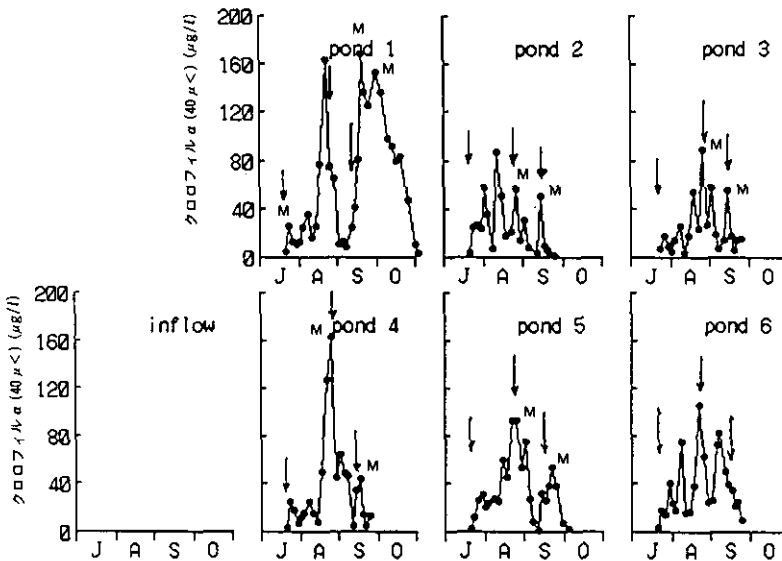


図4 屋外実験池における 40 μ m 以上の植物プランクトンのクロロフィル a 濃度の変化

(3) 汚濁負荷削減のための排水処理技術

1) バイオテクノロジーを活用した排水処理技術

バイオテクノロジーを活用した汚濁負荷削減のための排水処理技術の研究では、湖沼の環境基準の COD 負荷削減と、難分解性物質や窒素の除去も目的として、限外ろ過膜と高濃度活性汚泥法の組み合わせによる処理法と微生物活性炭流動床法の実験を行った。限外ろ過膜と高濃度活性汚泥法の組み合わせ法を用い、難分解性物質として埋立地浸出液を排水対象とした実験では、TOC の除去率が 33~39% と通常の活性汚泥法の場合よりも高く、窒素の除去率も 43~62% と高い結果が得られた。また、微生物活性炭流動床法は、図5のように生物処理反応槽に活性炭を充てんすることによって有機物の吸着と微生物による生分解が同時に進行するよう考慮された処理法である。埋立地浸出液を排水とした実験では TOC の除去率は 70% 程度となり、IC 製造工場現象はく離液を排水とする実験では、TOC の除去率は 90% 以上になった。窒素の除去では埋立地浸出液を排水とした場合はメタノール添加が効果的であり現象はく離液を排水とした

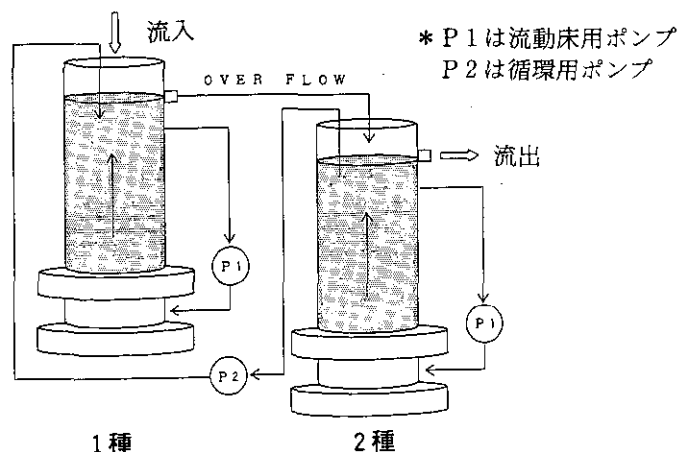


図5 微生物活性炭流動床法の排水処理装置

場合は、メタノール無添加でも循環されていれば同程度の除去率が得られた。これは脱窒細菌の有機炭素源として必要な BOD 成分の排水中での含有量の違いによるものと推測された。

2) *Trithigmostoma cucullulus* によるカビ臭物質の除去

霞ヶ浦では春期に発生するカビ臭物質 2-MIB (2-メチルイソボルネオール) の原生動物繊毛虫類 *Trithigmostoma cucullulus* による分解における pH の影響を検討した。2-MIB の酸による分解は pH 4 以下で非常に高いが、pH 5 以上ではほとんど分解されず、高温で接触時間が長いほど高分解率となった。したがって、*T. cucullulus* のように低 pH 状態で強酸の食胞を形成し、かつ、糸状ラン藻類でカビ臭物質を生産する *Phormidium tenue* 等を摂食可能な微小動物が、接触酸化槽に多数出現するようになれば藻類とカビ臭物質の同時除去が期待できる。

(4) 流域からの汚濁負荷の流出管理

湖沼とその流域を同一の水質項目で取り扱う一貫した水質管理を旨とし、両者を含めた形で物質収支が取れる形で、かつ、同じ物差しによって富栄養化や水質汚濁の原因—結果、あるいは、対策—効果が一体的に評価できる水質管理体系を検討した。対症療法的な段階にある富栄養化現象を対象とするために、栄養塩や植物プランクトンの主要構成元素から、炭素、窒素、リンの 3 元素に注目して調査や解析を進めた。霞ヶ浦 (西浦) のほとんど全ての流入河川 38 について、1987 年 6 月～1988 年 5 月の各季節ごとに流出負荷量調査を実施してその平均値による流入負荷の CNP 比として TOC : T-N : T-P の比を明らかにした。また、霞ヶ浦 (西浦) の毎月 1 回 10 地点の調査を継続しており、その 1 年間の湖沼全体の CNP 比として TOC : T-N : T-P を求めた。さらに、湖沼底質については 1981 年 7 月の 25 地点での底質表層についての POC : PON : PTP の比や、流入河川の河口域における流入懸濁物質の同様の比との比較検討を行った。また、夏期に湖水表面に集積するアオコの POC : PON : PTP の比との関係も検討した。これらを表に示すと表 1 のようにまとめられる。

CNP 比で見ると、流入負荷量の多くは懸濁物質として流入し、流入河口部付近で沈殿して底質となる。また、湖内では河口部を通過した溶存物質の流入と湖内での物質循環に支配される形

表1 霞ヶ浦湖沼全体及び高浜入のC:N:P比

	湖 水 全 体	高 浜 入 湾 形 部
流入河川水 (36河川)	TOC:T-N:T-P 36.3:16.6:1 (4回データ)	TOC:T-N:T-P 35.9:14.9:1 (52週データ)
湖 沼 水 (10地点)	TOC:T-N:T-P 78.4:26.1:1 (12か月データ)	TOC:T-N:T-P 56.2:20.9:1 (12か月データ)
底 泥 表 層 (25地点)	POC:PON:PTP 45.3:5.3:1	POC:PON:PTP 25.0:2.9:1
ア オ コ (ミクロキスティス) 懸濁物質 (流入河川)	TOC:T-N:T-P 53.1:13.8:1	POC:PON:PTP 24.4:3.1:1

と推定できる。また、汚濁負荷量調査に基づく流入特性の経年変化として、年間降水量の大きい年の年間流入負荷量が大きく、合成洗剤の無リン化によるリンの生活雑排水負荷量の減少、農耕地流域での窒素負荷量の経年的な増加傾向、大気からの降水負荷量のうち表2のように無機態窒素負荷量とくに硝酸態窒素負荷量の増加傾向などが霞ヶ浦の湖水中での年間平均現存量あるいは年間平均水質濃度にも図6のように反映されていることが明らかとなった。

表2 降水による汚濁負荷量の経年変化

	(10 ³ kg/km ² /y)				
	'84年6月 ~'85年5月	'85年6月 ~'86年5月	'86年6月 ~'87年5月	'87年6月 ~'88年5月	'88年6月 ~'89年5月
降水量 (mm)	807	1,388	1,110	1,307	1,600
NH ₄ -N	0.267	0.736	0.423	0.468	1.183
NO ₂ -N	0.004	0.008	0.008	0.008	0.010
NO ₃ -N	0.191	0.435	0.389	0.473	0.527
Inorg.-N	0.461	1.180	0.821	0.951	1.727
PO ₄ -P	0.003	0.038	0.012	0.030	0.005
Cl	1.03	2.40	1.61	1.87	2.15
COD	1.76	2.17	2.24	3.34	2.56
SO ₄	1.36	3.39	1.70	2.33	2.44

(5) 湖沼流域管理のための支援システム開発

水質改善がなかなか進まない湖沼に対して、総合的・計画的な対策を有機的に実施して行くためには個々の対策のもつ効果を把握するだけでなく、対策の組み合わせのように複合的に実施した場合の相乗効果をも検討する必要がある。こうした対策の効果を定量的に評価し得る支援システムの開発を目的として研究を行った。支援システムは、①流域の社会・経済活動の実態を把握するための社会・経済データ及び自然条件データ(例えば、国勢調査、国土数値情報、点源

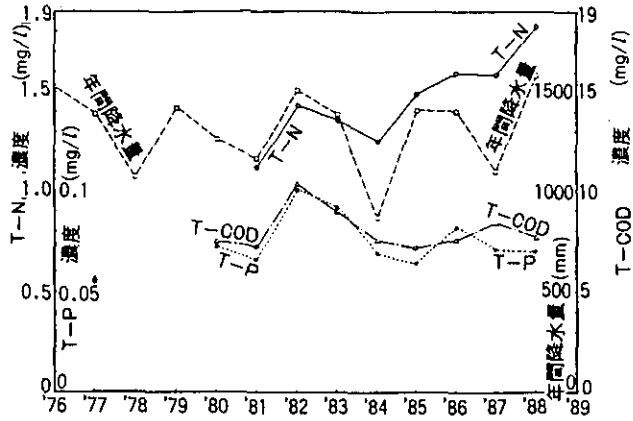


図6 霞ヶ浦の年間平均水質濃度の経年変化

負荷情報、各種地形図)、さらにリモートセンシングデータ(衛星画像情報など)から推定した流域の土地被覆状態に関するデータを収集・整理するシステム(GIS)、②流域別の発生汚濁負荷量の予測が可能な負荷発生モデル、③降雨時流出も含めた流域からの汚濁負荷流出の過程を再現する流出モデル、から成る。

汚濁負荷の流出モデルについては、流域レベルのモデルとして完成度の高いHSPF(Hydrological Simulation Program-Fortran)を利用した。本年度は上記の各サブモデルの作成と調整を行うとともに、各々のシステムを統一的に取り扱う目的で計算機を中心とした全体システムの設計を行った。図7は支援システムの位置づけを図化したものであり、図8は霞ヶ浦の各流域における発生負荷量(COD)の計算値を図示したものである。汚濁負荷の流出モデルについては、霞ヶ浦の流入河川の1つの恋瀬川上流部を対象例として計算を行い、パラメータ等を検討

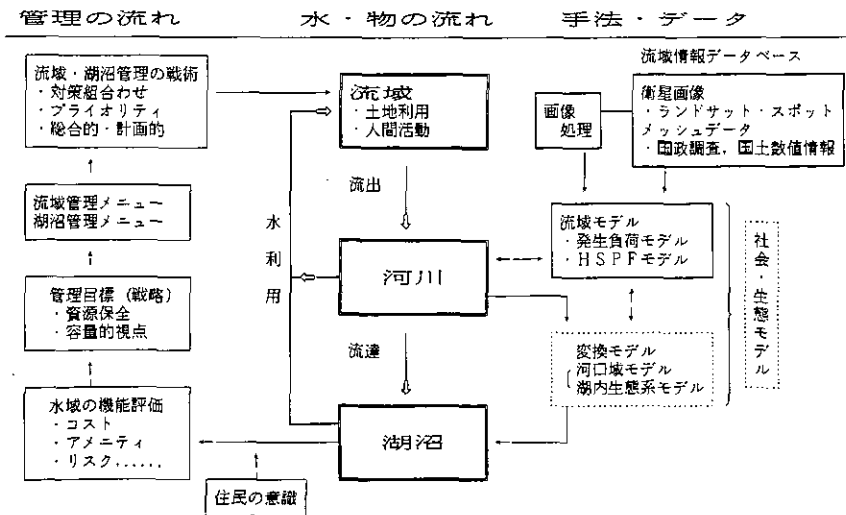


図7 流域管理のための支援システムの位置づけ

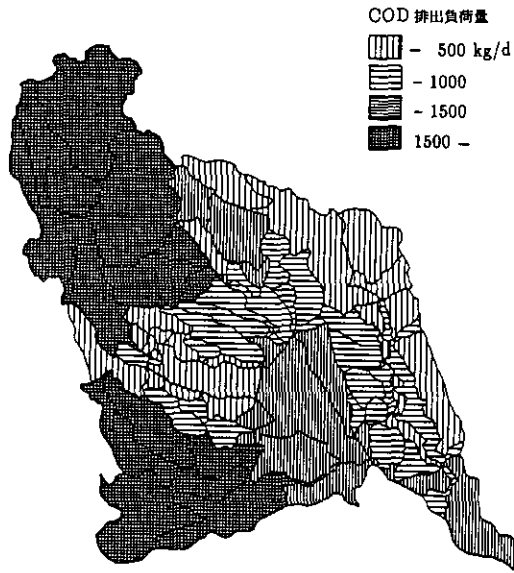


図8 霞ヶ浦集水域の COD 排出負荷量予測の例

した。モデルによる計算結果と調査による実測値とを比較すると、降雨時流出における汚濁負荷 (COD) のピーク及び変化の形状はよく一致しており、流域からの汚濁負荷の流出サブモデルとして十分な精度を有することが確認できた。

2.7 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

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・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

森田昌敏

生体化学計測研究室 功刀正行

〔研究概要〕

昨今の環境問題は、従来の急速な工業化に伴ういわゆる「産業型」から「都市生活型」になってきている。すなわち、産業側の主要な汚染発生源に対する対策が効を奏し、代わって自動車などの移動発生源による騒音・大気汚染、近隣騒音などが環境保健の主要な問題となってきている。このような環境汚染の低濃度化・多様化の方向の状況に対応して、住民の意識、苦情、健康影響も多様化している。すでに高密度に活発な経済活動が行われている東京圏等、大都市圏では二酸化窒素、浮遊粒子状物質による大気汚染、自動車騒音等に係る環境の改善が遅れており、依然として、居住者の健康影響に関する訴え、苦情が跡を絶たない。今後の大都市圏の再開発の動向等を勘案すると、その居住環境をめぐる状況は一段と厳しくなることが予測される。このような複合的な環境汚染による健康影響の評価方法を確立し、また長期的な監視の方策を見いだすことが、今日的な環境保健管理上の課題でもある。

本特別研究では、生活の都市化が最も進行している東京大都市圏人口を対象として、環境汚染への複合的暴露の具体的実態の把握及び精神的ストレスを含む健康影響の評価法を確立し、さらに、これらの手法を用いた長期的監視システムの構築に関する基礎的検討を加えることを目的とする。

上記目的を達成するために、全体計画は以下の4種の研究課題から構成されている。

- (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
- (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
- (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

(4) 大都市住民の環境汚染暴露と健康影響評価にかかわる環境保健モニタリング手法の開発に関する研究

以上において、課題(1)、(2)及び(3)では代表的4地域(都心部、商業地、工業地及び住宅地)を対象とした調査を実施し、騒音及び大気汚染物質等の地域並びに個人レベルでの複合的暴露実態の把握と、騒音・個人の暴露レベルに対する住民の意識構造及び健康状態(苦情、不眠症、ストレス、呼吸器症状等)をとらえる。さらに、大気汚染暴露に関しては、地域の暴露レベルのデータから個人暴露量を推定することの妥当性を検討する。課題(4)では、課題(1)～(3)の調査地域を含む大都市圏について、行政地域別の健康情報(疾病・死亡等)、環境汚染情報(騒音・大気汚染)、さらにその他社会・経済等の地域特性情報をもとに地域類型化を行い、調査対象とした4地域の代表性を検証する。その結果を踏まえ、類型化された地域別に性、年齢、職業などの属性別人口ごとに暴露状況を推定し、地域住民の環境汚染による健康影響を考慮し、従来の科学的判断規準との比較検討を含めて健康影響評価を試みる。最後に、これら一連の調査、データ解析等を通して環境汚染の状況及び地域人口集団の健康像の関連性を長期的に監視していくためのモニタリング手法を検討して行く。

【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

東京のT区(特に商業地域)の61名及びC区(特に都心の商住混在地域)の43名を対象に、前年度と同様24時間騒音暴露量測定を実施し、結果を、前年度実施したS区(住居地域)・K区(住工混在地域)の測定結果と併せて、比較検討した。表1は、屋内外騒音レベルと個人暴露レベルの同時測定の結果を示す。屋内外のレベル(10分ごとの騒音レベル=Leq(10)の昼夜の差を調整した平均)は、C区を除き沿道で有意に高くなっている。C区(都心地域)では、幹線道路の交通量が他の地域に比較して少なく、また、サンプル数が少なかったことが主要な原因と考えられる。また、暴露レベルもT区を除き沿道に有意に高い。T区(商業地域)では、対象者の中に商店経営者(自営業)が多く含まれていたことによると考えられる。以上のような幹線道路の影響は、地域別・昼夜別に検討してもなお多くの条件下で認められた。

次に、暴露測定を実施した全対象者について、10分ごとのLeqを主な行動別に平均して、沿道と後背地で比較してみたが、特にS区(住居地域)とK区(工業地域)において、多くの行動時の暴露レベルが沿道で有意に上昇している傾向が明らかであった。他の2地域では前述のような要因により、差が明確にならなかったものと考えられる。ここで、生活行動を睡眠時とそれ以外

表1 沿道・後背地世帯での騒音レベルの差

	屋 外		屋 内		暴露レベル	
	沿 道	後背地	沿 道	後背地	沿 道	後背地
S区・住居地域 (n= 6)	56.8 dB [#]	49.9 dB [*]	68.7 dB	60.0 dB [*]	57.5 dB	55.7 dB [*]
K区・工業地域 (n= 4)	56.0	48.8 [*]	67.8	49.0 [*]	57.7	56.3 [*]
T区・商業地域 (n=11)	60.9	52.9 [*]	62.5	63.2 [*]	55.8	55.1
C区・都心地域 (n= 6)	57.8	62.1 [*]	38.3	41.6 [*]	55.2	53.1 [*]

: 10分ごとの騒音レベル(Leq(10))の昼夜差調整済み平均値

* : 沿道と後背地の差の有意性: P<0.001

の覚せい時に大別し、それぞれの平均暴露レベルについて、幹線道路以外の条件も含め可能性の想定された11種の関連要因による影響を検討した。その結果、表2に示すような条件と暴露レベルとの有意の関連がみられた。すなわち、住居地域の睡眠時・覚醒時、及び工業・商業地域の睡眠時には、個人暴露レベルへの道路の影響が認められた。

表2 覚せい時・睡眠時の平均暴露レベルと関連のみられた諸条件

住居地域		工業地域	
覚せい時暴露 ←	職業あり** — 幹線道路の沿道*	覚せい時暴露 ←	窓が木造 or 一重サッシ+
睡眠時暴露 ←	幹線道路の沿道* — 窓が木造 or 一重サッシ*	睡眠時暴露 ←	集合住宅* — 寝室が道路に面する+
商業地域		都心地域	
覚せい時暴露 ←	(有意の関連要因なし)	覚せい時暴露 ←	(有意の関連要因なし)
睡眠時暴露 ←	寝室が道路に面する*	睡眠時暴露 ←	(有意の関連要因なし)

** p<0.01, * p<0.05, + p<0.1

2) 大気汚染の地域レベルと個人暴露量

(3)の「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」の結果を参照されたい。

3) 住民意識の調査

大都市住民の環境問題についての意識・認識を、可能な限り構造的に把握すべく、前年度に引き続き以下のようなアンケート調査等を行い、解析した。

① 申し立て苦情調査：東京都のある区の公害部局にもたらされる公害苦情の申し立て者に、苦情内容の記述をしてもらい分析した。その結果、a) 各申し立て者の訴える迷惑被害の内容が同一対象者について多数挙げられている。苦情が、いろいろな迷惑行為をする理不尽な(と思われる)対象者に向けられている。b) 苦情の訴えにいたるまでの経過が多段階になっている。c) 申し立て者が解決に多様な方法を試みているケースが見られる。d) 被害事実そのものより、理不尽だ、不法だということが、苦情の原因になっている場合がある。

② 幹線道路沿道住民の被害・迷惑意識の調査：沿道・非沿道による生活上の迷惑・被害意識を自由に記入してもらうアンケート調査をした。幹線道路沿道として、都道環状7号線が通る地域、非沿道としてその後背地の結果を次に示す。

分析のため、文章で表わされた記述内容を単語に分解し、それを地域ごとに合わせて各地域の記述語の集合を作る。単語の集合についての頻度の分析から、音や自動車交通による被害・迷惑感是非沿道でも目立ち、沿道に固有の特徴ではなく、沿道に特徴的なのは「排気ガス」と「振動」なことが分かる。また、沿道では「ひどい」が「うるさい」よりも上位にくる。次に、同じ記述語の集合を、沿道・非沿道ごとに共通の多くの回答者に使用されている語同士をクラスター分析でひとまとめにする。沿道の記述語クラスターを表3に示す。縦線で区切られた範囲が1つのクラスターを表す。クラスターのうち、Cは自動車交通による大気汚染と騒音・振動による不眠という状況を表わしている。Dは窓を開けたときの音や悪臭、地震のような揺れ、物の黒い汚

れがひどいという自動車公害の具体的・感覚的描写である。Eは最も多くの回答者によって記述されている語の集まったクラスターであり、ここに対象地域の被害状況や原因が具体的に表わされている。この沿道地域では、幹線道路による種々の迷惑・被害ではほぼ回答が埋まってしまい、その迷惑・被害感が圧倒的なことが分かる。

③高層住宅住民の音環境意識の分析：東京の住宅地にある高層住宅住民に音についての感想を自由に記入してもらい、同じように記述語のクラスター分析を行った。その結果、高層住民の意識は自分の住む棟内、それも上下左右の戸に集中し、近隣社会への関心が極めて低いことが明らかになった。高層住民の記述語のクラスターを表4に示すが、そのH、I、Jという語のクラスターに、このことは端的に読み取れる。語クラスターFにも棟内での音の問題が切実に感じられるであろう。都市騒音問題を、高層団地はかなり緩和する可能性があるが、それは一方で新たな異質の騒音問題を引き起こすことが示された。

表3 幹線道路沿道のD3における語のクラスター (54語)

A				B		C			D																		
汚染	大気	トラック	規制	工事	前	問題	住む	大きい	必要	通行	汚れ	空気	作る	安眠	音	使う	地震	窓	開け	夏	揺れる	ひどい	黒い	よい	考える		
																										→	
E											F					G			H	I							
大型車	一日中	朝	多い	交通	車	道路	騒音	振動	環状7号線	排気ガス	夜	悩む	走る	子ども	小さい	人	自分	現在	家	昼間	静か	深夜	面する	歩道	バイク	一年中	困る
→																											

表4 高層住宅に居住する人の語クラスター

A				B		C		D	E	F										
開け	窓	騒音	高速道路	うるさい	しずか	分	外	車	深	防音	問	高層住宅	住む	生活	集合住宅	生活	音	程	が	しょうがない
閉め	屋	音	路	い	か		る	路	夜	要	題	宅	活	宅	音	度	ん			
G				H		I		J							K					
注	わ	迷	困	マン	近	自	上	両	と	響	飛	子	上	気	ピ	聞	足	下	お	走
が				シ	所	分	下	ど	下	な	家	上								
意	家	惑	る	ン	ン	ン	階	り	り	く	る	も	階	る	ノ	る	音	階	互	を
				ン	ン	ン														

(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

環境汚染等による精神・心理的ストレスを評価し、その対策を考えるためには、まず、人間の

生活レベルにおける“不快感・不満・愁訴(annoyance)”の測定法の開発が重要である。本特別研究では、比較的研究の進んでいる環境騒音による“annoyance”の定量法の開発を目的として、前年度に引き続き、以下のような調査実験を行った。

1) 都内T区・C区が受け付けた騒音苦情事例について

昭和63年度に前記の自治体(T区：商業地域，C区：都心地域)の公害担当課が住民から受けた騒音苦情事例について、それぞれの課の苦情処理記録を整理した。検討した事例数は、T区106件，C区71件であった。これらを、前年度に整理したS区の苦情処理記録(昭和62年度受付分178件)と合わせ、356件について比較検討した。主要な結果は以下のとおりである。

① 苦情申し立て者の特性

- a) 苦情者の性別は、男性58%(206件)，女性31%(112件)であった。
- b) 匿名の苦情は18%(64件)あった。このほかに、騒音の発生者に対して氏名を明らかにしないように、との要請もみられる。
- c) 103件(29%)では、申し立て者が自治体へ訴える前に、騒音の発生者とも直接交渉していた。

② 問題とされた音の特性

- a) 建設騒音は、T区(商業地域)では苦情の61%，C区(都心地域)では76%を占めるが、S区(住居地域)では30%にすぎない。C区では主として、日中のビル建設騒音が問題になっているのに対し、T区では夜間の道路工事に関する訴えも少なくない。いずれもほとんどが、業者に対する注意指導のみによって短期間に処理されており、実際、短期間で作業そのものが終了することが多い。
- b) 商業騒音は全体の16%を占め、カラオケなど夜間の騒音が問題となる場合も多い。
- c) 家庭騒音はS区では27%を占めるが、他の2区では14%にすぎない。特にS区では、家庭騒音について、何らかの防音施工を行う割合が他の騒音よりも多い。それがどの程度物理的な実効を伴うかよりも、誠意を尽くしたという表明として申し立て者に受け取られている場合が少なくない。
- d) 工場・作業場の騒音については、意外にもS区でのみ苦情が訴えられていた。住居地域の中にこれらが混在している状況はS区でのみみられ、他の2区では土地利用の分別がなされているためと考えられる。

③ 自治体の対応とその後の経過

- a) S区では、音の種類を問わず、苦情処理日数が長い。その背景として、当事者同士がすでに交渉を重ねた末に持ち込まれるような、もつれた事例が少なくないことが考えられる。
- b) S区では、家庭や店舗からの夜間騒音についての苦情に対応するため、月1回職員が夜間パトロールを実施している。このため、夜間騒音についての苦情は処理期間が長引きがちである。
- c) 現場で騒音レベルを実測した事例は、S区・T区では15%にすぎないが、C区では51%にのぼる。S区の場合、測定は苦情申し立て者からの要請によることが多く、その75%は条例等の基準を下回っている。T区では、現場を実査せず電話等で処理する事例も40%にのぼり、測定事例では、57%が基準以下であった。C区では、測定事例の72%が基準を上回っており、これを根拠に注意指導することが多くみられた。これらの

状況の違いは、問題となっている騒音の発生状況や、自治体の対応方針の違いによると思われる。

- d) 全苦情の42%では、音源が消滅したり、何らかの対策が講じられた結果、申し立て者が状況の改善を認めている。しかし、匿名の苦情や音源が不明確な苦情など、転帰の確認が困難な場合も多い。

以上のように、地域によって苦情の内容が異なるのみならず、これへの自治体の対応も異なることが示されたが、苦情者の属性や、苦情申し立て前の経過についての情報は少なかった。とはいえ、これらの事例検討の結果は、同一地域での精神・心理的影響に関する調査結果(次項)と、苦情発生率との関係を考察する上で、貴重な資料と考えられる。

2) 生活環境による精神・心理的影響に関する質問紙調査

前年度、S区及びK区の主婦を対象に実施した質問紙調査結果に基づき、質問紙の一部を改訂した上で、T区及びC区の主婦1,200名を対象に、同様の調査を実施した。有効回答数は、T区411(68%)、C区151(25%)であった。以上4地域の結果について、生活環境騒音に対する不快感・不満、過去の対処行動、これらと健康・ストレス状態との関連等を検討した。現在までに得られている結果によれば、生活環境騒音に対する不快感には、推定騒音暴露レベルなどの物理的条件の他に、職業の有無、心身の自覚症状、性格行動類型などの関連が示唆されている。また、もっともうるさい音に関して、これまでに具体的な対処行動をとった経験があるかどうかには、その音そのものによる迷惑度のみならず、近所付き合い、外向性、職業の有無などが関連している可能性が示唆されている。

3) 音の快・不快にかかわる心理・生理学的実験

前年度までに、各種生活音の快・不快に関する心理実験、また、騒音の生理的影響にかかわる自律神経系反応の個人差(感受性検査の開発)についての、AEPGR(指尖容積脈波の反応)、尿中カテコールアミン・レベルに関する研究などを行った。本年度は、さらに生活音の快・不快にかかわる心理反応と生理反応の接点に位置する脳波(特に α 波、 β 波)を用いた、音の快・不快の評価手法の開発について基礎的研究を行った。ただし、結果は次年度に一括して報告する。

(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

都市住民の大気汚染質への暴露状況を評価するには、地域の濃度分布構造、家屋内外の濃度変動及び、これらと個人暴露濃度との関係を把握する必要がある。今までにそのための基本的情報を得る目的で、東京都内の3地区(S区:住宅地域、I区:商業地域、O区:工業地域)で調査を実施した。まず、1988年12月に3地区で二酸化窒素(NO_2)濃度と浮遊粒子状物質(SPM)濃度について一斉調査(3日間、家屋内外、地域)、1989年3月及び8月にS区、1990年2月にI区において、 NO_2 とSPMの個人暴露及び生活空間の濃度分布調査を各6日間実施した。結果は解析中であるが一部について以下に示す。

S区、I区の調査対象地域は、それぞれ環状7号線、中山道を主たる発生源とし、一般環境常時監視局を含む3×4km四方の領域で、「沿道(幹線道路から50m以内)」、「中間(50~100m)」、「後背(200~400m)」の3地区から、喫煙者のいない各6世帯を選んで家屋内、軒下及び

個人暴露濃度の測定を行った。同時にこれらの世帯を含む領域の屋外で①1 km 程度の間隔での濃度変動(幹線道路の影響を受けないメッシュ地点)、②1 km メッシュ内での変動、③幹線道路近傍の濃度減衰を調べた。SPM 濃度測定 ($2\mu\text{m}$ 以上と $2\mu\text{m}$ 以下に分級) は我々の開発した小型サンプラーを用いて2日平均値を求め、 NO_2 濃度測定はフィルターバッジにより1日平均値を求めた。

1) 地域(屋外)濃度の測定

地域(屋外)濃度に関しては、 NO_2 、SPMとも日による変動(日効果)が地点の違いによる変動(地点効果)に比べて非常に大きかった。特に1 km 程度のスケールでの地点間の変動に比べて顕著に大きい傾向が認められたが、日ごとの NO_2 とSPM濃度の相関は、0.7程度であった。また、地点に固有の濃度の高低が1 km 間隔のスケールでも存在することは統計的に確認された。地点間の変動が特に大きいのは1 km 以下のスケールの変動で、幹線道路から数10 mの領域である。図1はS区役所を含む1 km メッシュ内の16地点の NO_2 の、日効果を除いた残差の環状7号線からの距離ごとのヒストグラム(1989年3月)であるが、道路端から30 m以内で顕著な道路の影響を示している。また、幹線道路から離れている場合にも、比較的交通量の多い小道路や気象の影響が無視しえないことも示唆された。

汚染レベルの地域代表値に関して、さらに統計的に検討した結果、道路の影響を直接受けない地点に限れば、3 km 四方程度の領域内の NO_2 濃度(日平均)をその中の1地点の濃度で代表させたときのばらつきが2~3 ppb程度であることが示された。SPMについても同様の傾向はみられるものの、領域全体の変動が NO_2 の場合に比べて大きく、さらに詳細な検討が必要であろう。

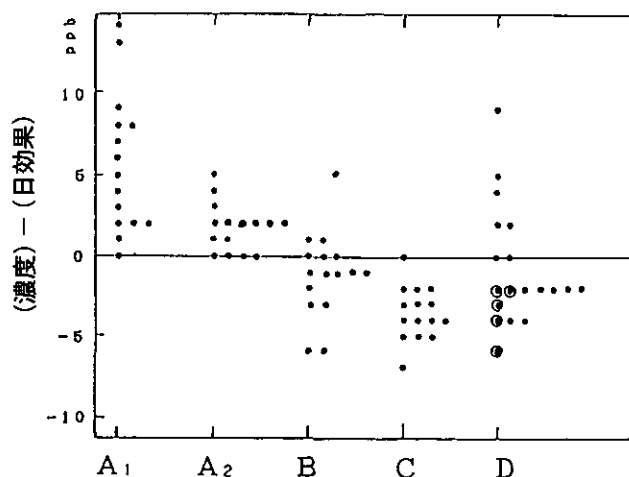


図1 環状7号線からの距離で分類した NO_2 地域濃度の日効果除去後の残差のヒストグラム(S区:1989年3月,16地点)

A₁: ~30 m 道路との間に構造物なし(3地点), A₂: ~30 m 構造物あり(3地点), B: 50~100 m(3地点), C: 200~400 m(3地点), D: 400~800 m(4地点)

2) 家屋内外濃度からの個人暴露量の推定と個人暴露量(実測値)との関係

調査地域内の一般局(世田谷局)の採気口付近で行ったSPMの平行測定の結果では、一般局が $64.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、我々の用いた小型サンプラーが $62.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$ とよく一致していたが、 NO_2 濃度は一般局の34.3 ppbに対し、フィルターバッジは24.9 ppbと低値となる傾向があった。

一方、家を閉め切り、暖房器を使用していた3月の調査では、同じ家屋内外のSPM濃度あるいは NO_2 濃度にはいずれも明確な関連は見られなかったが、8月の調査ではいずれも有意な正の相関を示した。SPMでは、粒径別にみても、 $10 \mu\text{m}$ 以上の粒子から $2 \mu\text{m}$ 以下の粒子までいずれも有意な相関を示していた。ただし、粒径が小さいほど相関係数が大きくなる傾向があった。

また、8月の調査では、屋外あるいは屋内のいずれでも、 NO_2 濃度とSPM濃度との間にも高い相関(相関係数は前者:0.92, 後者:0.72~0.83)が見られた。こうした傾向は、SPM、 NO_2 の濃度変動に関して、自動車排ガス由来の共通性を示唆するものと考えられた。

個人暴露調査は、各世帯の構成員のうち日常的に対象地区区内で生活している人を対象に実施した。調査では、フィルターバッジを装着させた個人暴露量の実測と、別途測定した居間、台所、寝室、屋外の各々24時間の平均濃度及び対象者の家屋内外の滞在時間から個人暴露濃度を推定することを試みた。結果、両者の間にはよく一致していた(相関係数:0.86)(図2)。ただし、調査日には、対象者はほとんど屋内で生活しており、屋内3か所間の NO_2 濃度間の相関は0.8~0.9と高い状況があり、こうした高い相関となる条件がそろっていたケースと考えられる。

家屋内と屋外のSPM濃度と滞在時間から推定した個人暴露推定濃度は、個人に携帯させた小型サンプラーのSPM濃度の実測値と、相関係数が0.62と比較的よく一致していた(図3)。また、 $10 \mu\text{m}$ 以上の濃度には実測値と推定値との関連は見られず、実測値がほとんど推定値を上回っており、個人の活動に伴う発じんが、大きな粒子の濃度には影響しているように考えられた。

以上の結果は、著しいSPMや NO_2 の発生が観察される幹線道路周辺に居住する住民の、SPMや NO_2 への個人暴露量を推定していくことが、可能であることを示唆している。

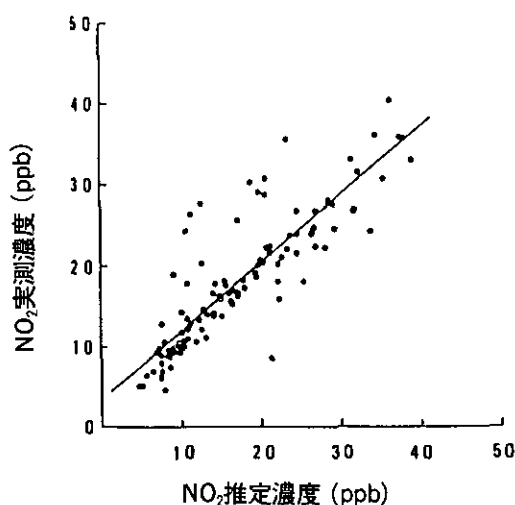


図2 NO_2 個人暴露濃度の推定値と実測値

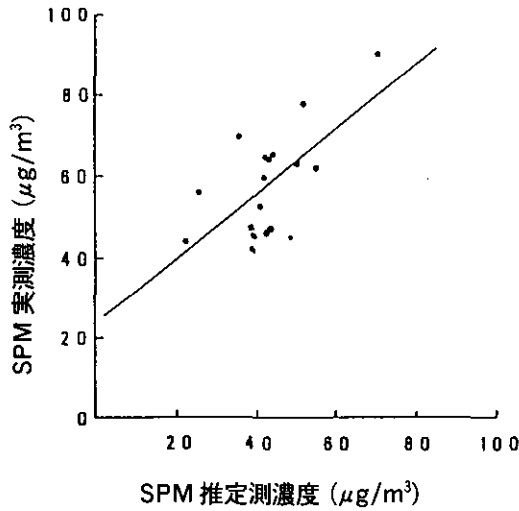


図3 SPM 個人暴露濃度の推定値と実測値

(4)大都市住民の環境汚染暴露と健康影響評価にかかわる環境保健モニタリング手法の開発に関する研究

区市町村単位で集計されている大気汚染情報と死因別死亡率(標準化死亡比, SMR)(1969~83年)を基本として, 最新の疾病・死亡統計, 全国交通量別沿道人口推定, などの情報を収集し, データ・ベースの構築を行いつつある。

これを使って検討した結果の一部は, 平成2年度所外発表会での発表「都市域における高肺ガン死亡率傾向を巡って」にまとめてあるので, そちらを参照されたい。

2.8 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

昭和 63 年度～平成 4 年度 (1988～1992 年度)

〔研究組織〕 環境生理部

◎小泉 明

環境生理研究室 河田明治・鈴木 明・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 8 名、共同研究員 3 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汚染と異なり、主に幹線道路沿道を中心に窒素酸化物 (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と二酸化窒素 (NO₂) の環境基準値達成率が低く、ヒト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、鉄道から直噴式ディーゼル自動車の増加という交通輸送手段の変化などにより、NO₂ と大気中粒子状物質が特に注目される物質であり、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、本特別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り、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、ヒトの健康維持にかかわる科学的知見の蓄積とともに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など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し、呼吸器疾患発症機序の解明に資する。

(3) 粒子状物質と二酸化窒素など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

慢性閉鎖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との因果関係を解析するため、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、発症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、及び肺ガン死亡者の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指摘されている。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こ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

ディーゼル排気中の粒子状物質が肺にどのような傷害を起こすかを短期間にかつ鋭敏に検出し得る手法を確立する。

2) 遺伝子傷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^{※1)}等の遺伝子への傷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、粒子状物質の

生体影響を総合的に評価する。

なお、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。

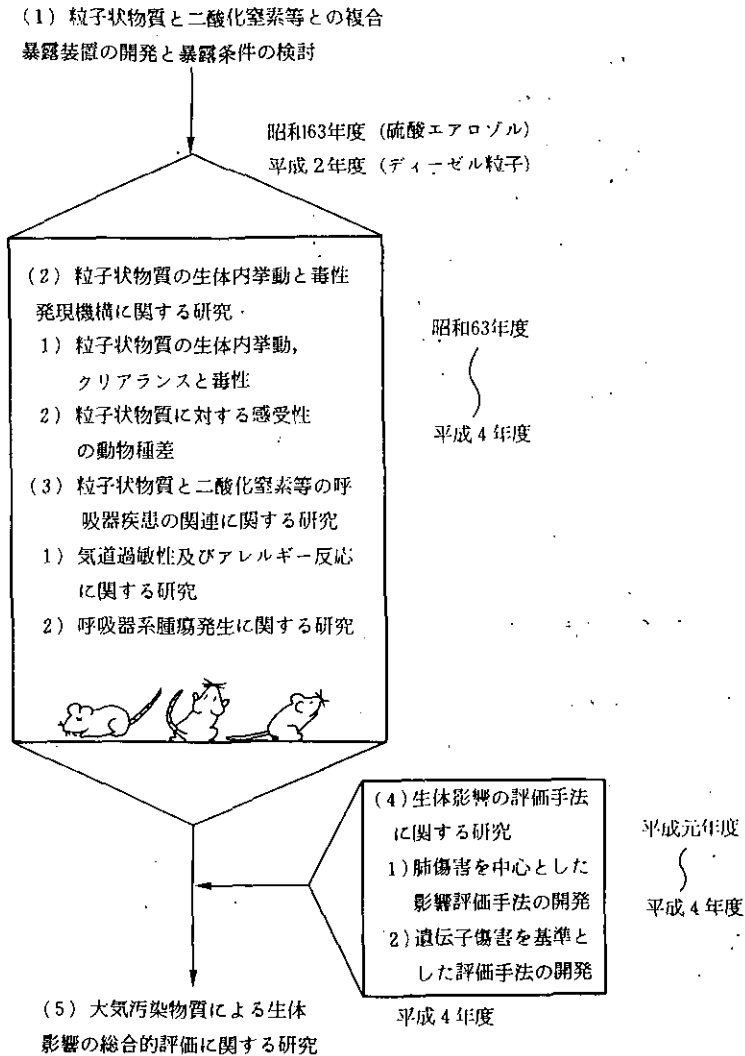


図1 本特別研究の全体構成

【研究成果】

(1) 粒子状物質と二酸化窒素などの複合暴露装置の開発と暴露条件の検討

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、肺ガンやぜん息・気道過敏性などの生体影響が改めて問題となっているディーゼル排気暴露が可能な装置の建設を開始した。その概要を図2に示した。

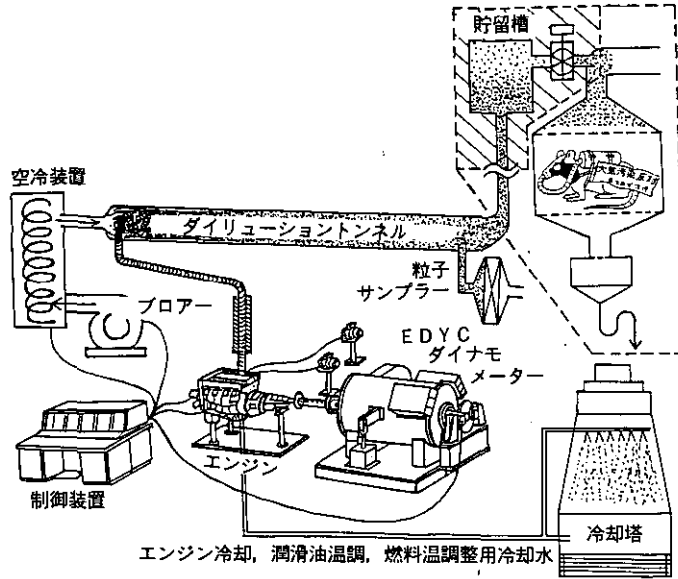


図2 ディーゼルエンジン排気暴露実験装置の概略図

(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

本課題では, ラットを用いて, 経気道暴露した粒子状物質の肺クリアランス^{B2)}や生体内挙動を気管支肺胞洗浄液中の炎症指標とともに測定することによって, 粒子状物質の肺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, 経気道的暴露方法の違いによる重金属化合物の肺クリアランス速度と肺傷害の程度の差異を中心に検討した。重金属化合物としては, 炭素系フライアッシュやタバコ煙に含まれるニッケル(硫酸塩)を用いて, 系気道的暴露方法としては, 0.4 mlの生理食塩水に溶解させ直接注入する気管内投与法(50 μgNi /ラット)と, 粒径が約1 μm のエアロゾルとして2時間急性暴露させる吸入法を用いた。エアロゾルは超音波ネブライザーを用いて発生させ, 暴露装置内の濃度が37.5 mgNi/m^3 ラットとなるように設定した。この濃度は, ラットの分時換気量が111 ml/min , 下部気道への沈着率が10%と仮定したとき, 2時間の吸入により気管内投与と同量の50 μgNi がラットの下部気道に沈着すると推定される濃度である。図3に気管内投与法(A)と吸入法(B)により硫酸ニッケルを暴露したラットにおけるニッケルの肺クリアランス曲線を示した。両曲線より肺におけるニッケルの半減期を求めたところ, 気管内投与法で31.6時間, 吸入法で32.1時間と算出され両暴露方法間でほぼ同じ値が得られた。肺の炎症指標である気管支肺胞洗浄液中の乳酸脱水素酵素活性, タンパク質量並びにマクロファージや多形核白血球も両暴露方法間で大きな差は認められなかった。しかし, 気管内投与法では実験期間中死亡例は認めなかったが, 吸入法では暴露中止1~2日後に約30%の死亡率を認めた。これらのことは, たとえ粒子状物質の肺への負荷量が同じでも, 気管内投与法では肺への影響を過小評価する危険性があることを示唆している。

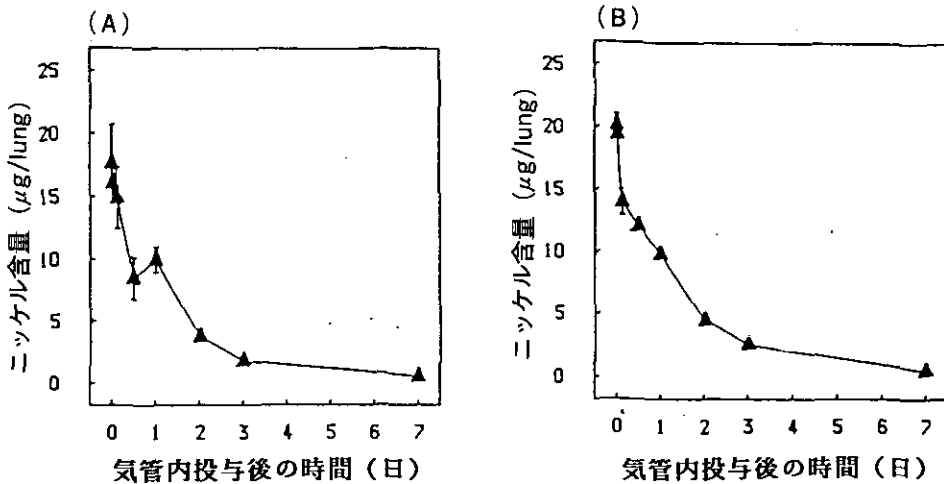


図3 ラットの肺に沈着したニッケルの経時的減衰曲線
(A) 吸入暴露法, (B) 気管内投与法

2) 感受性の動物種差に関する研究

大気汚染物質によってぜん息等の呼吸器疾患が起こることは四日市ぜん息の例に加えて、実験的にも明らかにされている。しかし、これらの疾患は汚染地域に住むすべての人に現れるわけではなく、個人差が大きいのが特徴である。これまで多くの研究がなされてきたにもかかわらず、その個人差の生理的因子は不明のままである。

今回我々は、肺気流抵抗を高める作用を持つことが知られている硫酸エアロゾルに対する感受性の相違にかかわる生理的因子を探る研究の一環として、硫酸エアロゾルに最も敏感といわれているモルモットと最も感受性が低いといわれているラットの過酸化脂質生成能^(*)、抗酸化性防御能^(*)及び肺胞マクロファージのスーパーオキシド (O_2^-) 産生能^(*)とを比較した。過酸化脂質生成能と抗酸化性防御能は肺細胞の酸化性傷害の指標として、肺胞マクロファージの O_2^- 産生能は肺内炎症状態の指標として測定した。実験は10週令のラットとモルモットに 10 mg/m^3 の硫酸エアロゾルを1日8時間ずつ10日間間欠暴露した。

肺傷害の指標である過酸化脂質はモルモットでのみわずかではあるが有意に増加し、逆にいくつかの抗酸化性防御系酵素活性はラットでのみ有意に増加していた。このことから、動物の抗酸化性防御系の誘導(合成)能の違いが肺傷害の受けやすさの一因であることが示唆された。このことは $NO_2 + O_3$ に対してもモルモットが敏感で、やはり抗酸化性防御系の合成能がモルモットで著しく低かったという結果と符合している。

肺の炎症指標としての肺胞マクロファージの O_2^- 産生能(図4)はいずれの動物でも硫酸エアロゾル暴露で半減したが、PMA(膜刺激物質)刺激系では10~18%の低下にすぎなかった。また、PMA刺激による O_2^- 産生増加の割合はモルモットで著しく、また肺胞マクロファージの数もモルモットのほうがラットより10倍も多いことから、ある刺激に対する肺胞マクロファージの O_2^- 産生能の増加が感受性の相違の大きな要因と考えられる。このことは、肺の病理標本のコラーゲン染色によるコラーゲン合成の亢進^(*)の結果からも支持された。なぜならば、 O_2^- がコラーゲン合成を亢進することが知られているからである。

一方、我々のこれまでの研究で、 NO_2 に対してはマウスやラットよりハムスターやウズラの

感受性が有意に高いことを示し、また O_3 に対しては全く逆となりマウスやラットの感受性が高いことを示した。そこで本年度は、粒子状物質として硫酸エアロゾル (3.2 mg/m^3 及び 6.4 mg/m^3)、ガス状物質として NO_2 (20 ppm) を 5 日間複合暴露し、両物質に対するハムスターとウズラの感受性を比較した。 NO_2 (20 ppm) に対する平均生存時間は、ウズラが 8~14 h で、ハムスターは 50~72 h であったのに対して、硫酸エアロゾルと NO_2 を複合暴露した場合、硫酸エアロゾルが 6.4 mg/m^3 以上の濃度でウズラ、ハムスターとも生存時間が短縮した。しかし、硫酸エアロゾルの 3.2 mg/m^3 複合暴露群では NO_2 単独暴露群と差がなかった (図 5)。

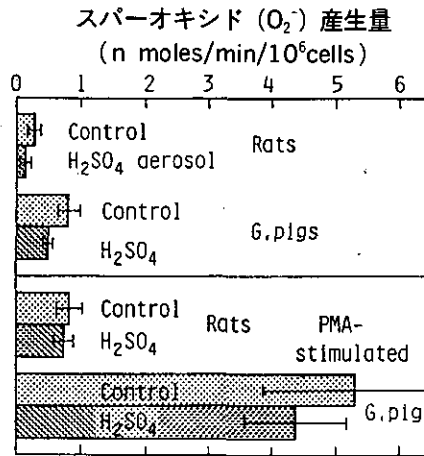


図 4 硫酸エアロゾル (10 mg/m^3) を暴露されたモルモットとラットの肺胞マクロファージのスーパーオキシド (O_2^-) の産生能の比較

動物種 (系統)	実験区	供試数	平均生存時間 (M \pm SD)	死亡率 %
ウズラ (H_2, L_2 WE, AVE CN, CR, AMRP)	A	80	(8.0 ± 6.3 h)	90
	B	80	(17.7 ± 7.0 h)	54
	C	446	(11.0)	87
ハムスター (Siliam)	A'	45	(38.7 ± 13.8)	93
	B'	46	(61.0 ± 13.4)	59
	C'	52	(60.0)	77

図 5 二酸化窒素単一又は硫酸エアロゾルとの複合暴露に対するウズラとハムスターの感受性比較

- A : $20 \text{ ppm } NO_2 + 6.4 \text{ mg/m}^3 H_2SO_4$, 24 時間連続暴露
- B : $20 \text{ ppm } NO_2 + 3.2 \text{ mg/m}^3 H_2SO_4$, 24 時間連続暴露
- C : $20 \text{ ppm } NO_2$, 24 時間連続暴露
- A', B', C' : 120 時間連続暴露

(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、など種々の刺激に対して気道が過敏に反応し、気管の収縮が起き呼吸が困難になることであり、この気道過敏性はぜん息の典型的な症状の一つとされている。また、気道過敏性の発現がぜん息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、ぜん息に及ぼす大気汚染物質の作用を検討するうえで、大気汚染物質暴露により気道が過敏になるかどうか検討することは重要なステップと考えられる。これまで、硫酸エアロゾル暴露と気道過敏性との関係を検討した例は非常に少なく、しかも、短時間暴露に限られているため、ぜん息発症に及ぼす硫酸エアロゾルの影響を評価することは困難と言わざるをえないのが現状である。

そこで本年度は、モルモット(1群15匹)に 1 mg/m^3 、 3.2 mg/m^3 の硫酸エアロゾル又は清浄空気を3, 7, 14, 30日間暴露し、同じ個体へのエアロゾルの暴露前後の気道反応性を比較した。気道反応性は気管の収縮作用を持つヒスタミン-エアロゾルをモルモットに吸入させ気道の収縮の起きやすさを比較した。ヒスタミンに対する濃度-反応曲線を測定し、気道抵抗を基準レベルの2倍にするに要するヒスタミン濃度(EC_{200})を指標として用いた(EC_{200} の値が小さいほど気道の反応性が高いことを示す)。

3.2 mg/m^3 エアロゾル3日間暴露により気道反応性は低下したが、14日間暴露後では上昇し、気道が過敏になることが明らかになった(図6)。また、30日暴露後では、気道反応性は暴露前と差がなくなることが見いだされた。 1 mg/m^3 では有意な変化は観察されなかった。

これまでのモルモットを使った実験では、重量濃度が 20 mg/m^3 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、これよりもかなり低い濃度でも、長い期間(14日間)の暴露により気道が過敏になること、さらに長い期間(30日)の暴露により、過敏になった気道が元に戻ることを示している。暴露により誘起された気道過敏性が永続的なものではないことは O_3 、 NO_2 暴露の場合においても見いだしている。その機構として、硫酸エアロゾル等の暴露により気道が過敏になった後、粘液過分泌となることにより粘液が気管内を覆い、ヒスタミンの気管平滑筋への到達を妨げることが考えられている。形態学的には 3.2 mg/m^3 硫酸エアロゾル暴露で杯細胞からの粘液分泌が盛んになっていることが示された。

今後、硫酸エアロゾル暴露により①ぜん息発作の起きる確率が上がる可能性、②ぜん息症状の増悪化が起きる可能性、③気道が過敏になった後に、粘液分泌、炎症性変化など気道過敏性以外の症状に変化していく可能性の検討が必要となる。また、ヒトの気道反応性を安全かつ容易に測定できるシステムの開発も必要と考えられる。

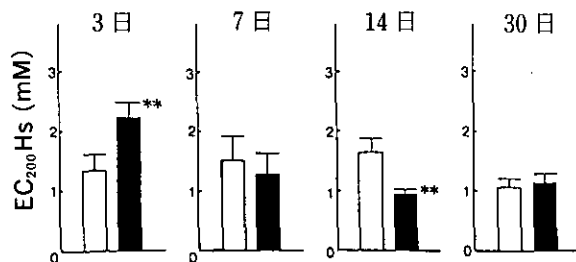


図6 硫酸エアロゾル(3.2 mg/m^3)がモルモットの気道反応性に及ぼす影響

I型のアレルギー反応を誘導するには、アレルゲンとしての抗原を吸収し、その抗原刺激によりIgE抗体産生系⁸⁷⁾を活性化することが重要なステップである。前年度は、このIgE抗体産生系に硫酸エアロゾル暴露が及ぼす影響について、抗原(卵白アルブミン)投与の方法を変えて検索した。

本年度は、硫酸エアロゾルとNO₂の複合暴露について検索した。IgE抗体産生の誘導には、暴露後抗原のエアロゾル投与を行い、1週間後に抗原とアラム(アジュバント)⁸⁸⁾を腹腔内投与する実験系と、暴露前に抗原を腹腔内投与し、暴露後に抗原をエアロゾル投与する実験系を用いた。8.2 mg/m³の硫酸エアロゾルと4 ppmのNO₂の2週間、4週間暴露を行った。

硫酸エアロゾル、あるいは、NO₂単独暴露の結果と同様に複合暴露においてもIgE抗体価には対照群と比べて有意な差異は認められなかった。抗原刺激の方法をかえてもIgE抗体価に違いはみられなかった。

アレルギー反応の発現には、IgE抗体とともに肥満細胞⁸⁹⁾が重要な役割を果たしている。抗原刺激は肥満細胞の活性化にも関与するので抗原の侵入の容易さを検討するための予備実験として、ハートレイ系モルモットに1.0及び3.2 mg/m³の硫酸エアロゾルを3日間、1週間、2週間暴露し呼吸器系の形態変化を調べた。その結果、肥満細胞数には変化は認められなかったものの、3.2 mg/m³硫酸エアロゾル暴露で特に気管支や鼻部粘膜の呼吸上皮や嗅上皮などの上部気道には、粘膜上皮層の肥厚、好酸球⁹⁰⁾の浸潤がみられた(図7)。また、杯細胞内での粘膜物質の合成と貯溜の亢進が認められ、いわゆる閉そく性疾患にみられる形態変化が検出された。1.0 mgでは上部気道への影響も軽度であった。

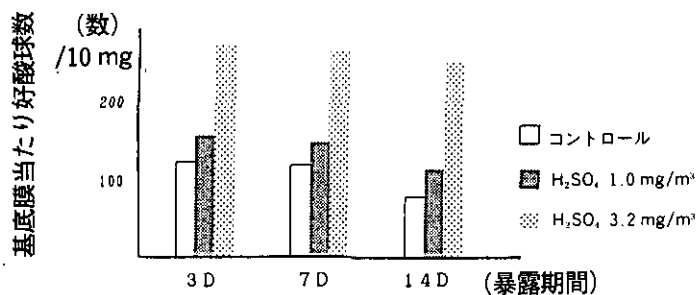


図7 気管上皮層への好酸球の浸潤

2) 呼吸器系腫瘍発生に関する研究

発ガン物質投与と大気汚染物質暴露との併用実験による肺腫瘍発生率と発ガン物質単独投与による肺腫瘍発生率とを比較することは、大気汚染物質の作用を強調して見ることができるので、極めて重要である。本年度は、発ガン剤のDHPN (N-bis (2-hydroxypropyl) nitrosamine) をラットの腹腔内にkg体重当たり0.5 g, 1.0 g, 1.5 g及び2.0 gをそれぞれ1回投与した。その結果、最も濃度が低い0.5 g投与群では40匹中1匹(2.5%)に腫瘍が、1.0 g投与群では37匹中3匹(7.7%)に腫瘍が、1.5 g投与群では37匹中3匹(8.1%)に生じ、2.0 g投与群では42匹中14匹(33%)に腫瘍が認められた。これにより、発ガン物質と大気汚染物質との併用実験に用いるDHPNの量は0.5 g/kg体重が妥当であることが示された。

一方、昭和63年7月に、ラットに0.5 g/kgのDHPNを投与し、その翌日から0.05 ppm

O₃, 0.05 ppm O₃+0.4 ppm NO₂ 及び 0.4 ppm NO₂+1 mg/m³ 硫酸エアロゾルを 13 か月間暴露し、現在これら大気汚染物質の呼吸器系腫瘍促進効果の有無を病理学的に検討している。このラットは平成 2 年 7 月に全例と殺し、肺と鼻腔の腫瘍検査を行う予定であるが、さらにこれらの結果と本年度行った発ガン剤単独投与の実験結果と、さらには前年度行った DHPN+NO₂ 実験の結果とを比較し、大気汚染物質の複合暴露下における各汚染物質の腫瘍促進効果を明らかにする予定である。

-
- 注 1) ディーゼル排気粒子中には発ガン性等が知られている多環芳香族炭化水素等の多数有機化合物が含まれている。これらの化合物はベンゼンで抽出可能であることからベンゼン可溶画分と呼ばれている。
- 注 2) 粒子状物質等の経気道的に肺に吸入されたものが、吸収や排泄によって肺から消失すること。
- 注 3) 様々な汚染物質の吸入等によって生体内膜脂質成分の過酸化されやすさをいい、生体膜等の傷害の受けやすさの指標。
- 注 4) 生体内に存在している酵素やビタミン C, E, A 等の作用により生体膜脂質成分等が過酸化され、生体膜傷害が起こるのを防ぐ能力(過酸化防止能力)。
- 注 5) 肺胞マクロファージは肺胞内に侵入した細菌等を貪食してから、スーパーオキシド(O₂⁻)という活性酸素(ピストルの実弾に相当)を放射して殺菌するが、この O₂⁻ を産生する能力。
- 注 6) 肺の病理標本をアザン染色法で染めるとコラーゲン部分がよく染色され、肺のコラーゲン合成の亢進を知ることができる。
- 注 7) アレルギー反応を引き起こす免疫グロブリン E を産生する実験系。
- 注 8) 免疫反応を強く発現させる、いわゆる非特異的免疫強化物質であり、今日 Freund アジュバンドが最も広く使われている。成分は鉱物油と好酸菌の菌体膜成分の混合物。
- 注 9) 即時型アレルギー反応を誘導するヒスタミンやセロトニンなどを産生する細胞。ぜん息や麻疹などのアナフィラキシー型アレルギーの成因に関与。
- 注 10) 気管支ぜん息などの I 型アレルギー性疾患などで増加する顆粒状血球。

2.9 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

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

○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

高層大気研究室

竹内延夫・鈴木 睦

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

生体化学計測研究室

切刀正行

分 析 室

溝口次夫・西川雅高

環境生理部

環境生化学研究室

三浦 卓・国本 学・高橋勇二

環境保健部

人類生態研究室

遠山千春

生物環境部

生理生化学研究室

○近藤矩朗

分子生物学研究室

田中 浄

陸生生物生態研究室

清水英幸

技 術 部

生物施設管理室

大政謙次・増田啓子

理工施設管理室

高木博夫・松井一郎・土井妙子

〔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)の中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。

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りオゾン濃度が低くなると、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。

本特別研究は、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。

オゾン濃度の実測には昭和62年度に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。

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窒素、酸素から成る純空気に紫外線を照射し、いわば自然状態に近い光定常濃度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(高度方向のみの変化を説明するモデル)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により、紫外線による障害の仕組みを解明する。

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1)。

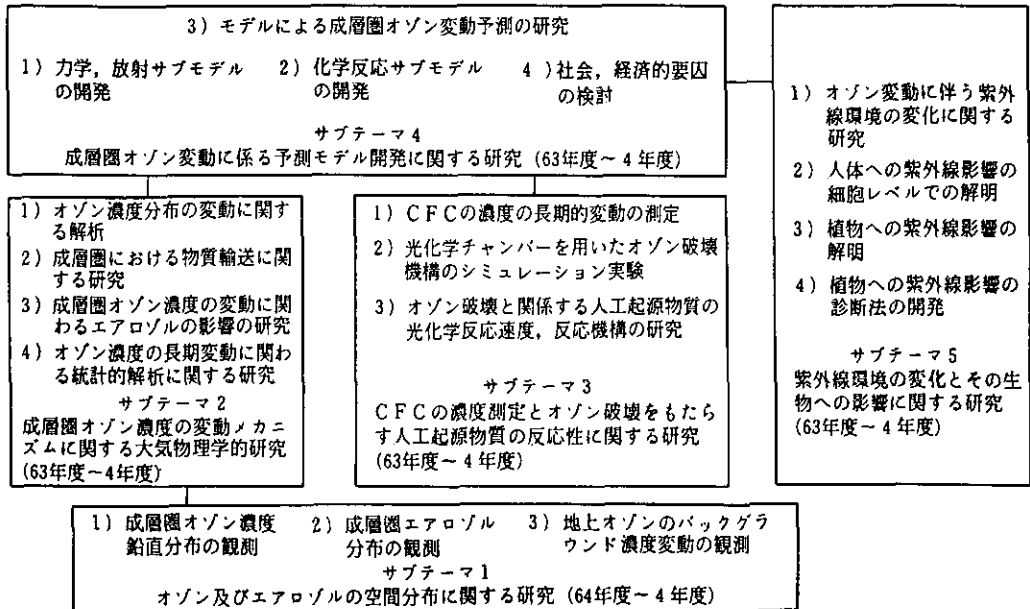


図1 本特別研究の全体構成

(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。

本年度は計測手法の確立を目指して、技術的問題点の解決を図りつつ、データの蓄積に努めた。また、成層圏エアロゾル、バックグラウンドオゾンの観測を前年度よりの継続として行った。

(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。

これまで、主として季節周期変動について、光化学理論を用いた解釈を試みてきた。また、気温の高度分布を計測するためオゾンレーザーレーダー装置の整備を行った。

(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。

前年度に成層圏チャンバーを用いて行ったフロン、ハロンに対するオゾン破壊実験結果について化学反応モデル計算を行い、破壊メカニズムに検討を加えた。

(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。

本年度は、前年度までに作成した一次元化学反応・拡散モデルについてテストランを行いつつ、計算効率の向上のための検討を行った。

(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、オゾン変動に伴う紫外線環境の変化、人体への細胞レベルでの紫外線影響、植物への紫外線影響、植物への紫外線影響の診断法の開発について研究する。

本年度は、特にキュウリを用いた紫外線の植物影響に関する実験を進め、UV-B、UV-A及び可視光線の混在下での影響等を調べた。

今後は、オゾンレーザーレーダーによる観測手順をマニュアル化し、継続的な観測体制に移行

させるとともに、引き続き人工衛星データ、オゾンゾンデデータとの比較を行う。また、種々の時間スケールの変動現象を明らかにするための特別観測を実施するほか、空間構造を併せて解明するためオゾンゾンデ観測を他の地点において実施する。

成層圏チャンバーを用いた実験的研究としては、モントリオール議定書記載のフロン・ハロン類のほか、代替フロン等についてもオゾン破壊実験を行い、オゾン破壊能の評価を行う。また、オゾン破壊にかかわる大気ラジカル反応の反応速度、反応機構の解明を行う。成層圏理論モデルは、さらに日平均操作などについて改良を加え、基本的な化学反応モデルの結果の妥当性を吟味した上で、長期変動予測などに適用する。

紫外線の人体に対する影響予測を目的として、皮膚ガン発症細胞に対する紫外線UV-B照射実験などを進める。また、植物影響に関して、キュウリを主な対象とし種々の条件のもとでUV-B、UV-A、可視光照射実験を行う。

〔研究成果〕

(1) オゾンレーザーレーダーなどによる成層圏オゾン層の観測・データ解析

オゾンレーザーレーダーによる成層圏オゾン測定手法の確立を目指して、測定データに混入する系統的誤差の原因を明らかにし、データ診断法を開発するとともに対策を講じた。また、オゾンレーザーレーダーによる観測データを、同時期に取得された米国航空宇宙局の人工衛星SAGE II、気象庁高層気象台オゾンゾンデなどによる観測データと比較し、それぞれの特性を調べた。

継続的な観測を実施してきた結果から、下部成層圏、上部成層圏にそれぞれ固有の季節変動が

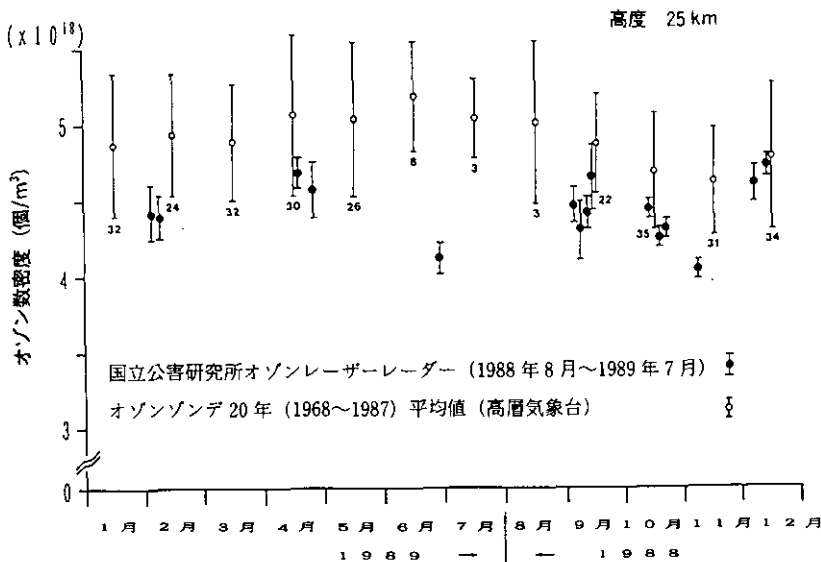


図2 レーザーレーダー(●)及びオゾンゾンデ(○;気象庁)で観測された高度25 kmのオゾン濃度の季節変化

オゾンレーザーレーダーは1988年8月～1989年6月までのデータをプロットした。オゾンレーザーレーダーデータの縦線は1回の測定(2～4時間)の測定誤差、オゾンゾンデの縦線は1968～1987年の標準偏差の大きさを表わす。数字は、ゾンデの観測回数を表わす。

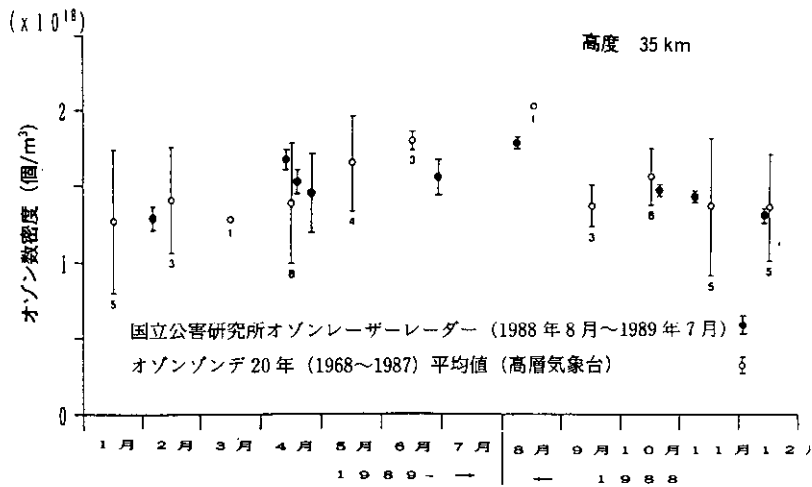


図3 レーザーレーダー(●)及びオゾンゾンデ(○;気象庁)で観測された高度35 kmのオゾン濃度の季節変化

見いだされた。1988年8月～1989年6月までの間にレーザーレーダーで観測された高度25 km (図2), 35 km (図3)におけるオゾン濃度の季節変化を示している。高度35 kmでは夏期に極大, 冬期に極小という1年周期変化が見られる。この領域では光化学反応が卓越するので, 1年周期変化は光化学反応係数の季節変化に依存している。高度25 kmでは輸送による濃度変動が大きく, 冬から春にかけて増大する傾向がある。

過去20年間のオゾンゾンデデータを解析し, 季節・月別のオゾン濃度の経年変化, 平均の季節変化を調べている。図2, 3にゾンデ観測から得られた高度25 km, 35 kmにおけるオゾン濃度の季節変化(1968～1987年平均)を併せて示した。レーザーレーダーデータと比較し, 変化傾向として両者によい一致が見いだされる。しかし, 高度25 kmではレーザーレーダーデータはオゾンゾンデの20年間平均値に比べ, その標準偏差の下限付近にあり, 1988年夏からの1年間は全般的に低めの濃度となっていたことが分かる。

(2) 紫外線環境の変化とその植物への紫外線影響の解明

紫外線増加が植物へ与える影響に関する従来の実験結果が一定しない原因を解明することを目的として, 紫外線による植物の成長阻害及び可視傷害についてキュウリを用いて検討した。紫外線として290～320 nmのUV-B, >320 nmのUV-Aを人工光室において可視光とともに照射した。得られた結果は以下のとおりである。

① UV-B照射により, キュウリ(品種:北進)の子葉及び第1, 2葉の成長が阻害された。また, 子葉の周辺部は上方に反り返り, 第1葉の周辺部に顕著なクロロフィルの分解が見られた。
 ② UV-Bと同時にUV-Aを照射すると, UV-Bによる成長阻害は回復した(表1)。UV-AとUV-Bを同時に照射したものが最も良い成長を示すこともあった。また, 子葉周辺部の上方への反り返りも抑制された。しかし, UV-Bによる可視傷害はUV-Aによって回復しなかった。これらの結果からUV-Bの成長阻害作用はUV-Aとの量的比率によって影響されることが示唆された。また, UV-Bによるクロロフィルの分解と成長阻害のメカニズムが異なっていることが示唆された。

表1 キュウリの成長に対する UV-B と UV-A の影響

紫外線処理	乾燥重量 (mg)		
	子葉	第1葉	
-UV-B	-UV-A	66±8	216±34
	+UV-A	68±8	226±49
+UV-B	-UV-A	57±13	183±34
	+UV-A	62±13	211±36

キュウリの幼植物を人工光室において1日12時間光を照射した。可視光とともにUV-Bを照射する実験区(+UV-B)照射しない実験区(-UV-B)を設け、それぞれにUV-Aを照射する区(+UV-A)照射しない区(-UV-A)を設けた。

紫外線の影響の強さはその波長により異なるため、たとえ紫外線の強度が同じでも照射用のランプや太陽光などの光源の種類により生物に対する影響の程度は同じではない。波長ごとに光の影響の相対的な強さを示したものが作用スペクトルであるが、これまでに紫外線の作用スペクトルとしては試験管内の酵素反応等について測定されている。しかし、植物個体を用いた成長阻害等に関する作用スペクトルは知られていない。そこで、文部省基礎生物学研究所の大型スペクトログラフを用いて、紫外線によるキュウリの成長阻害に関する作用スペクトルを得るための予備実験を行った。照射紫外線として280~320 nmの間で10 nmごとに5波長選び、各波長の強度を4段階に設定し、各1個体ずつ1日4時間照射した。その前後に4時間ずつ蛍光灯で可視光を照射し、4日間繰り返した。その結果、①280, 290及び300 nmにより、光の当たった葉面(子葉及び第1葉)に水浸症状が現れ、やがて、クロロフィルの分解がおこった。②280~310 nmの紫外線により第1葉の成長が阻害された。今回の実験では、紫外線照射中に可視光が当たっていないこと、紫外線照射前後に与えた可視光の強度が低い(約10,000 lux)こと等の問題点のほかに、照射紫外線の波長が1点につき約5 nmの幅があり、波長純度が低いという問題点がある。このような問題点にもかかわらず、成長阻害の作用スペクトル測定の方法はついたと考えている。

(3) 紫外線環境の変化と皮膚ガン発症への紫外線影響の解明

地上への紫外線照射量の増加が皮膚ガンの発症率を増加させると疫学調査の結果から予測される。紫外線は発ガン過程において発ガン作用と発ガン促進作用、あるいは両者の作用を示す可能性が示唆されているが具体的には証明されていない。低レベルの紫外線照射量の増加が皮膚ガンの発症に及ぼす影響を予測するために、発ガン過程への影響を鋭敏に検出できる方法を開発する第1段階としてヒト皮膚細胞を収集し、発ガンの初期過程に関連すると考えられる発ガン遺伝子の紫外線による活性化について検討した。

このため自治医科大学より供与されたヒト皮膚から表皮を構成している線維芽細胞と表皮細胞を分離保存した。現在、線維芽細胞については、正常人4株、動脈硬化症患者1株、色素性乾皮症患者2株の計7株を凍結保存している。表皮細胞については、正常人4株、動脈硬化症患者1株の計5株を凍結保存している。

ガン化の際に細胞は性質を変え、増殖性を増し、細胞間のはく離が起こる。この発ガン過程において多種類の遺伝子が活性化され発現する可能性がある。皮膚細胞のガン化の初期過程を検出する指標を確立するために、まず、UV-B を収集した細胞に照射し生存曲線を求めた。生存曲線から 30% の細胞が死亡する照射線量は、線維芽細胞の場合では $100\sim 76 \text{ J/m}^2$ であった。次いで、収集した 7 株の線維芽細胞に 80 J/m^2 の UV-B を照射し発ガン遺伝子の活性化を検討した。UV-B を照射後、細胞を集め破碎し電気泳動法によりタンパク質を分画しニトロセルロース膜に移送した。移送後、ヒト発ガン遺伝子産物に対する抗体を用いて活性化された遺伝子を検出した。その結果、細胞増殖の初期段階に活性化される c-jun 遺伝子が最も UV-B により活性化されることが明らかになった。

以上の結果は、ここで用いた遺伝子の活性化を調べることにより UV-B による発ガン過程を鋭敏に検出できる可能性を示唆している。

2.10 広域都市圏における交通公害防止計画策定のための 環境総合評価手法に関する研究(初年度)

平成元年度～平成3年度(1989～1991年度)

〔研究組織〕 総合解析部

◎内藤正明

地域計画研究室 ○清水 浩・○青木陽二・○森口祐一

環境管理研究室 西岡秀三・甲斐沼美紀子

環境経済研究室 森田恒幸

総合評価研究室 安岡善文・○田村正行

環境情報部

情報調査室 松本幸雄・新藤純子

計測技術部

生体化学計測研究室 功刀正行

分析室 溝口次夫

大気環境部

大気環境計画研究室 植田洋匡・鶴野伊津志

環境保健部

環境心理研究室 兜 真徳・相本篤子・影山隆之

技術部

理工施設管理室 上原 清

客員研究員 11名

〔研究概要〕

大都市圏における自動車公害問題は旧来からの公害事象のうち、未解決でかつ最も深刻な課題として残されている。一方、生活環境の向上に対する要求はかつてない程に強まっており、都市環境においても、より潤いのある街づくりや道路づくりが要請されている。このように、環境や公害に対する要求度と満足度はいずれも向上する方向にある。また、湾岸を中心とした開発などによっても交通公害問題が一層深刻化することが懸念される。

これまでの自動車公害に関する研究やその対策を振り返ると、エンジン自動車を今後も使い続けることを前提とした自動車単体、あるいは道路ごとの局地的で個別の問題に目が向けられていた。しかし、今後より深刻化が予想される交通公害の解決を前進させるためには、領域的には局地と広域の関連を明らかにし、事象に関しても大気汚染、騒音及びアメニティを総合的な見地から、把握することが必要である。また、自動車公害問題の解決の観点からは、多様に存在する対応策とその数多い組み合わせの中から最適のものを選択し、環境と調和のとれた交通計画を策定して行くための手法を開発することが重要である。

本特別研究は、このように深刻な自動車公害問題に対応するために、広域都市圏における交通公害を総合的に評価するための手法を開発するものであり、下記の3つのメインテーマから構成される。

第1に、従来、自動車公害問題は局地的な視点から取り扱われることが主流であり、局地的な交通公害対策の結果が広域的にもたされる影響の解明がこれまで皆無に近かった。しかし、変性を伴う大気汚染物質の拡散は局地的見地からだけではとらえられない問題であることが認識されつつあり、既存の公害激甚地区の環境改善のために郊外に作られる道路施設などによる新たな環境問題を精度良く予測する必要性に迫られている。このような現状から、本研究では自動車公害問題を局地と広域が密接に結合した問題としてとらえる。

第2に、従来は、自動車公害にかかわる大気汚染、騒音及びアメニティの各事象は互いに独立に取り扱われてきた。だが、これらの各事象に対する対策は相互に影響し合うことが多く、ある事象に注目した対策は他の事象にとっては状況を悪化させることになりかねないことが多い。また、これらの事象の取り扱いにおいて、気象条件等の共通の影響を受けることが多いので、理論上これらを統一的に把握することにより、現象がより明確になることが期待される。したがって本研究では自動車公害に関する各事象を総合的見地からとらえる。

第3に、上記の新たな観点に立った研究を行うための支援手段として、交通公害評価のための画像情報システム及び地理情報システムを開発する。

上記の3条件を実現するために本特別研究は以下に示す4つの研究課題を中心に推進するものである(図1及び図2参照)。

(1)交通公害の個別事象の計測とモデル化に関する研究

本研究の最も基礎となる、交通公害の個別事象の計測とモデル化の研究を行う。ここでは、風洞実験、実測調査、数値シミュレーション等の手段を用いて下記のサブモデルを開発する。

1) 大気汚染サブモデルの開発

道路構造、沿道構造などの条件のほか、逆転層の出現など垂直方向の温度条件や風配などの気象条件を考慮した沿道局地細密拡散モデルを開発するとともに、中域・広域スケールの大気汚染と自動車排気ガス汚染の関係を解明する。

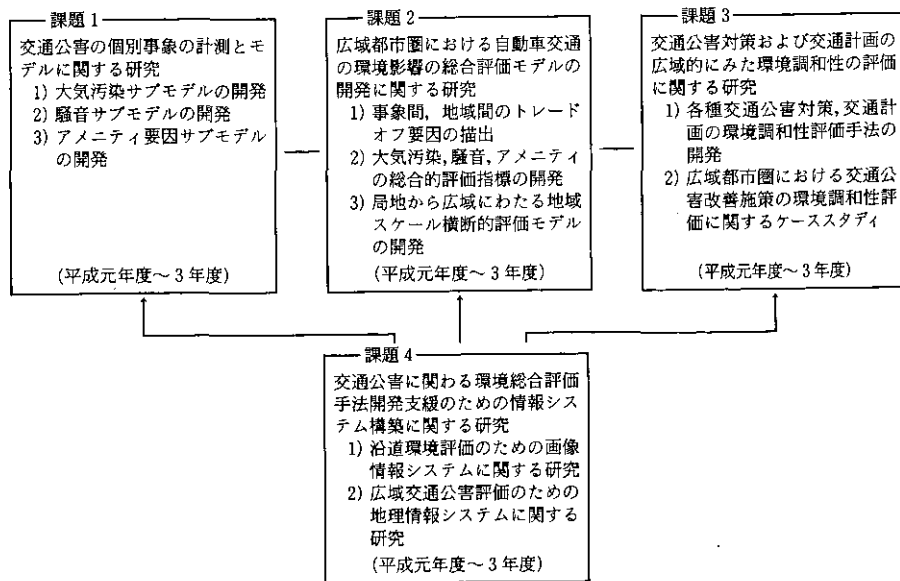


図1 本特別研究の全体構成

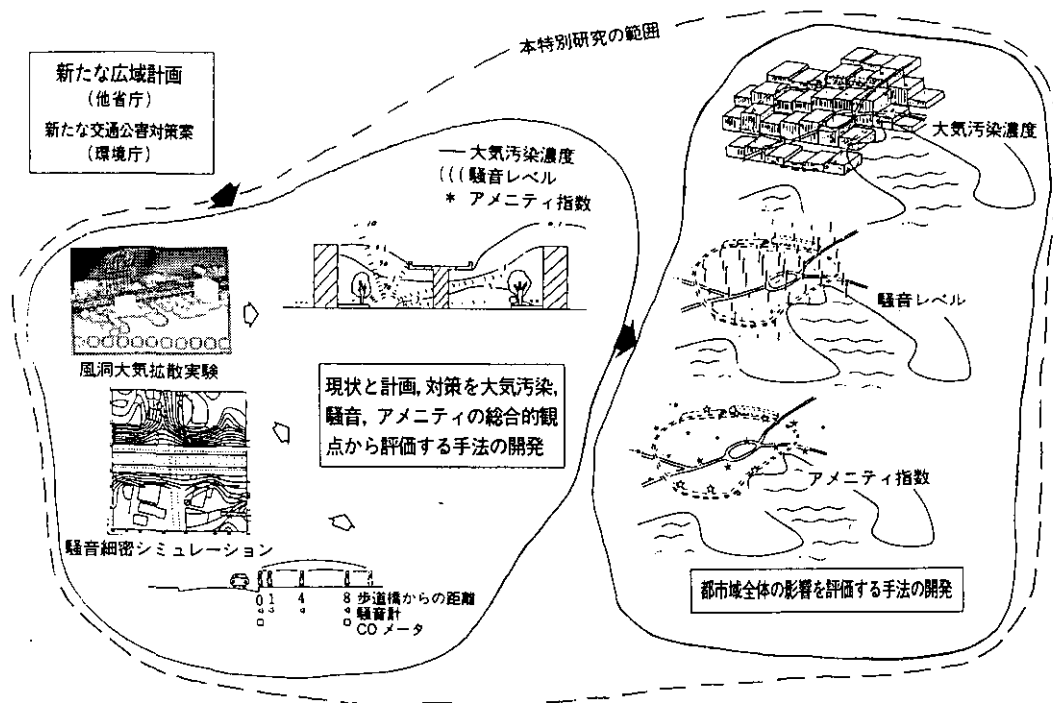


図2 本特別研究の全体像

2) 騒音サブモデルの開発

道路構造、沿道構造等、道路周辺の構造物の影響を考慮した局地細密騒音伝播予測モデル、及び風速分布、温度こう配等気象条件を加味した広域騒音伝播予測モデルの開発を行う。

3) アメニティ要因サブモデルの開発

実験心理学的手法を用いた沿道の快適感・危険感の計測をもとにした沿道迷惑度モデルと、通過交通によるコミュニティ分断の評価モデルを開発する。また、画像合成システムを利用した沿道景観の予測モデルの開発を行う。

(2) 広域都市圏における自動車交通の環境影響の総合評価モデルの開発に関する研究

課題(1)により開発された各サブモデルを用いて、広域都市圏の交通公害の現状把握を行うとともに、各種対策の効果及び大規模開発等に伴う交通条件の変化の環境影響を総合的に評価するためのモデルを開発する。ここでは、大気汚染、騒音、アメニティ要因を総合化する指標と、局所的な環境状況評価指標を広域的に集約して、都市全体あるいは都市圏全体としての環境状況評価を行うためのモデルを開発する。

1) 事象間、地域間のトレードオフ要因の抽出

各種の対策、計画がある事象を改善する反面、別の事象を悪化させるケースや、ある地域の環境改善に資するが他の地域の環境悪化を起こすといったケースを抽出、整理し、これらのトレードオフ構造の総合評価モデルへの組み入れについて検討する。

2) 大気汚染, 騒音, アメニティの総合的評価指標の開発

各種交通公害対策, 交通計画の環境改善効果をそれぞれの事象への影響を考慮して総合的に評価するため, 従来互いに独立して評価されてきた事象を総合化した指標の開発を行う。

3) 局地から広域にわたる地域スケール横断的評価モデルの開発

局地的な環境状況の評価指標をもとに, これを集約して都市全体, あるいは広域都市圏全体としての環境状況を表現するモデルを構築し, 各種対策・計画が環境に与える影響を広域都市圏全体として評価する手法を開発する。

(3) 交通公害対策及び交通計画の広域的にみた環境調和性の評価に関する研究

さまざまな交通公害対策や交通計画について, 課題(2)で開発した総合的評価手法を用いてその環境改善効果を算定するとともに, 費用便益や利便性効果等の幅広い視点を含めた評価を行う手法を開発する。

1) 各種交通公害対策, 交通計画の環境調和性評価手法の開発

道路・沿道構造の改変などの沿道整備対策, 低公害自動車の開発などの単体対策, 交通規制や新規道路建設などの交通流対策といった各種の交通公害対策, 交通計画について, その環境改善効果だけでなく費用便益や利便性効果などを考慮した評価(環境調和性評価)を行うための手法を開発する。

2) 広域都市圏における交通公害改善施策の環境調和性評価に関するケーススタディ

広域都市圏において実際に交通公害が大きな問題となっている代表的地域とそこでの主な改善施策を取り上げてその環境調和性評価のケーススタディを行う。

(4) 交通公害にかかわる環境総合評価手法開発支援のための情報システム構築に関する研究

上記課題(1)~(3)における各種のモデル, 評価手法開発に必要なデータベース, 解析のための共通のソフトウェア等を提供する情報システムを開発する。

1) 沿道環境評価のための画像情報システムに関する研究

沿道景観予測のための画像合成や, 各種モデルの出力結果の表示等に用いる画像情報システムの整備を行う。

2) 広域交通公害評価のための地理情報システムに関する研究

地域スケール横断的評価モデルをはじめ, データの地理情報的取り扱いを必要とするモデルの開発を支援するための地理情報システムを整備する。

[研究成果]

(1) 交通公害の個別事象の計測とモデル化に関する研究

1) 大気汚染サブグループ

本課題では主に, 自動車排ガス及び沿道大気の大気汚染物質の計測, 沿道汚染の時空間変動の解

析、汚染物質の伝播過程のモデル化を行う。本年度は、汚染物質の実測関係では、シャーシダイナモ装置上の自動車排ガスから採取した試料中の多環芳香族の分析を行った。一方、幹線道路の交差点周辺において、簡易測定法を用いた窒素酸化物 (NO_x) 濃度分布調査を実施し、汚染の空間変動について解析した。また、沿道での二酸化窒素生成にかかわりの深いオゾン、及びディーゼル車起源で沿道でも高濃度の報告のある二酸化硫黄 (SO₂) の簡易測定法についての研究を地方公害研究機関の協力を得て実施した。

汚染物質の拡散予測手法関係では、大型大気拡散風洞での模型実験と数値計算モデルの両面から研究を進めている。従来、両手法とも単一の道路の直交風時を主として扱ってきたが、本研究の中では道路条件として交差点、立体交差などを含め、全風向時を想定した評価を目標としている。本年度は、トレーサガス発生系の改良など、必要な風洞実験の条件整備を行った後、平行風時の拡散実験に着手した。平行風時には、直交風と違って濃度評価点に寄与する発生源を風上側に遠く遡る必要があり、測定部の長さが十分にとれる本研究所の大型風洞の利点を生かして長さ約 10 m にわたる線発生源を設置した実験を進めている。この実験は、後に行う予定の実市街地模型を用いた実験において、対象地域周辺のみを模型で再現した場合に欠落する、模型対象部以外の風上側煙源からの寄与を推定、再現するための新しい試みである。

数値計算モデル関係では、道路構造別、沿道構造別の拡散のしやすさを表す指標の試算を行い、結果が風洞実験結果と整合するものであることを確認した (図 3 及び表 1)。

2) 騒音サブグループ

本課題では、道路構造、沿道条件などの影響を考慮した局地精密騒音伝播予測モデルの開発と、風速分布、温度こう配など気象条件を考慮した広域騒音伝播予測モデルの開発を行う。本年度、局地騒音伝播予測モデルに関しては、境界要素法を用いた二次元騒音伝播予測モデルを開発し、種々の道路構造と沿道条件の場合の騒音伝播予測を行った。図 4 に予測の一例を示す。その

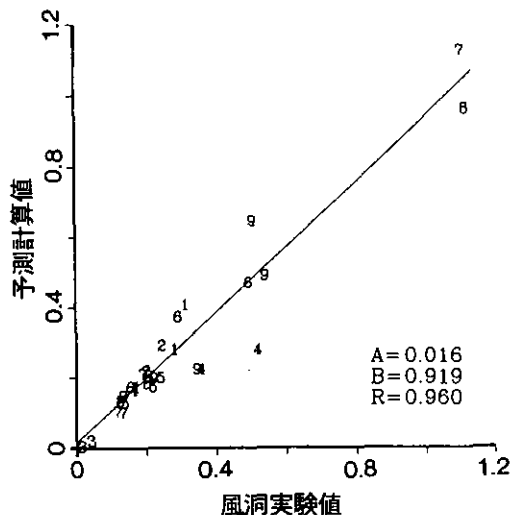


図 3 風洞実験結果と数値計算結果の比較

表 1 に示した道路構造・沿道構造ごとの指標濃度について比較したもので、図中の数字は表中のケース番号と対応している。

表1 道路構造・沿道構造の違いによる沿道濃度の比較

設定	道路構造	建物構造		指標濃度 (CUL/Q)					
		沿道	後背地	風上路端	風下路端	風下15m	風下50m	風下平均	全点平均
1	平面	なし	なし	0	0.350	0.272	0.164	0.262	0.197
2	掘割	なし	なし	0	0.258	0.199	0.130	0.196	0.147
3	高架	なし	なし	0	0	0.002	0.022	0.008	0.006
4	盛土	なし	なし	0	0.389	0.282	0.156	0.276	0.207
5	盛土+防音壁	なし	なし	0	0.211	0.187	0.125	0.174	0.131
6	平面	低層散在	低層散在	0.032	0.473	0.323	0.155	0.317	0.246
7	平面	中層連続	なし	1.106	0.192	0.102	0.108	0.134	0.377
8	平面	中層	低層散在	1.030	0.196	0.184	0.120	0.167	0.383
9	平面+高架	中層	低層散在	0.275	0.567	0.507	0.200	0.425	0.387

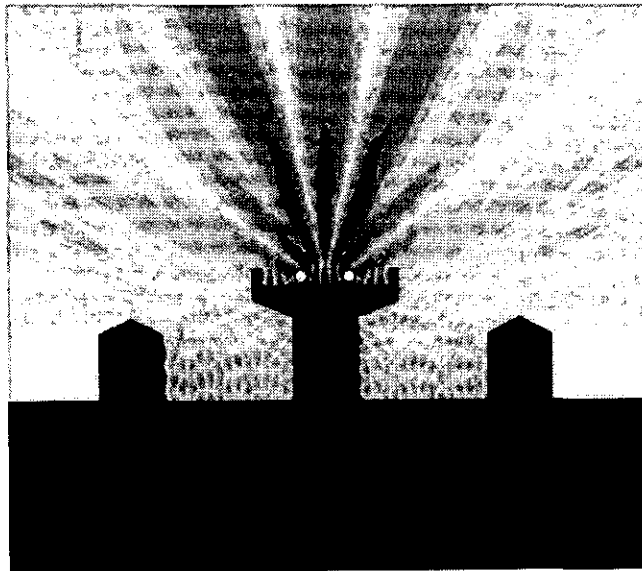


図4 局地騒音伝播予測モデルによる騒音伝播の予測例
高架道路上の交通流 (○印) からの周波数 300 Hz の音の伝播と予測。

結果、騒音伝播の状況や騒音対策の有効性を調べる上で有用であることが確かめられた。広域騒音伝播予測モデルに関しては、風速分布、温度こう配、地形などが騒音の伝播に及ぼす影響に関して調べ、現行の騒音伝播予測モデルの問題点を明らかにした。また、諸外国で用いられている騒音伝播予測モデルの調査と比較を行い、今後研究すべき点に関する示唆を得た。

3) アメニティサブグループ

本課題では、車輛の走行による道路近傍における歩行者及び住民が受ける心理的不快感の違いを交通量と道路施設のの違いによって明らかにし、適正な交通条件や道路施設条件を探る。本年度

は交通量、道路構造、車線数、植樹帯、歩行者交通量、周辺土地利用の異なる多様な道路を見学し心理的不快感の測定を行うに適切な地点を探った。また被験者を現場に立たせたり歩行、路上観察評価を行う手法について検討を行い、現場の物理的条件として騒音、明るさ、色、風速、気温、湿度などを測定する方法について検討した。その結果、心理的評価といくつかの物理的量との関連が明らかになった。また、交通量の多い国道・高速の沿道と、その後背地において住民の不快感・不満を調べると共に行動別騒音暴露を測定した。

(2) 広域都市圏における自動車公害の環境影響の総合評価モデルの開発に関する研究

本特別研究の最終目標である、交通に起因する環境汚染の「総合」評価手法開発の一環として、沿道汚染を広域都市圏レベルで地域集約した評価を行うための評価指標の考え方の整理、算定法の定式化を従来から進めてきた。本年度は、課題(4)で開発中の情報システムを援用し、ケーススタディとして東京都内の環状幹線道路に適用した試算を行った(表2)。

表2 広域評価指標でみた環状7号線沿道の交通公害状況の推移

	指数 (55年=100)		昭和55年の値
	58年	60年	
平均断面交通量	105.7	110.3	34,029台/12h
車種別加重平均断面交通量*	105.9	110.7	136,754台/12h
沿道人口密度加重平均交通量	106.0	106.4	37,312台/12h
住宅地加重平均交通量	105.1	106.1	37,635台/12h
騒音60dBを超える地域の面積	106.3	111.3	6.26km ²
騒音60dBを超える住宅地面積	106.5	107.6	2.59km ²
騒音60dBを超える地域の人口	107.6	107.7	99,800人
騒音70dBを超える地域の面積	106.5	115.5	0.61km ²
騒音70dBを超える住宅地面積	106.3	110.6	0.26km ²
騒音70dBを超える地域の人口	106.8	110.3	10,100人

*) 乗用車1に対して、小型貨物車3、普通貨物車10の重みを乗じて環境汚染負荷排出量を概括的に表す指標

(3) 交通公害対策及び交通計画の広域的にみた環境調和性の評価に関する研究

交通公害対策のケーススタディを行うための材料として、新たな対策の提言とその技術的検討を行った。新たに提言された対策は、①沿道NO_x処理装置、②ソフトチムニー、③ショートカットピギー、④ランドフェリーとそれぞれ名付ける技術である。前2者は沿道の排気ガス対策、後2者は鉄道の有効利用による交通公害の削減に関するものである。

(4) 交通公害にかかわる環境総合評価手法開発支援のための情報システム構築に関する研究

首都圏を対象として、過去の一時点における道路交通量、道路諸元データ(道路交通センサス)及び土地利用データ(細密数値情報)を収集し、課題(2)で行う広域評価指標算定を支援する情報システムを構築した。また、沿道大気拡散モデルの境界条件を作成するための地図データベースの整備を行った。

2.11 水環境における化学物質の長期暴露による相乗的生態系影響に関する研究（初年度）

平成元年度～平成5年度（1989～1993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 白石寛明

技 術 部

生物施設管理室 笠井文絵・菅谷芳雄

客員研究員 8名， 共同研究員 1名

〔研究概要〕

動植物，大気や水等の各種自然生態系は，人間の生存を支える根元的なものであり，社会・生活の安全性や快適性を保証するものであるが，開発や公害の影響に常にさらされている。近年の公害対策技術等の進展により環境汚染は改善されつつあるものの，社会経済活動の質的量的拡大により，環境問題は複雑多様化している。さまざまな化学物質による河川，湖沼，地下水などの水界の汚染は微量ながらも多種にわたってきている。

化学物質の環境中の動態や環境に対する影響についての知識は極めて限られているため，これまでの報告でもごく限られた種類にとどまっている。化学物質の安全性評価作業は国際的にも緊急の課題であるため，現在使用されている，または使用される可能性のある化学物質について，特に環境へのリスクアセスメントのための研究が急務である。

事故や災害で流出する化学物質による環境破壊は言うに及ばず，通常使用されている，あるいは使用される可能性のある化学物質について，その生態系に対するリスクを事前に予測する必要がある。そのためには，当該化学物質の暴露量の推定と生物の感受性についてのデータが必須である。最近の分析技術の向上により，多種の化学物質が低濃度で混在していても検出できるようになった。本研究ではこの成果を取り入れ，これまで十分調査研究のなされていない野外での水生生物に対する暴露量を正確に推定し，生態系影響の程度を測定し，それに基づいて環境のクライテリアの確立をめざす。

本研究は以下の4つのサブテーマに別れて行われる。

- (1) 生態系レベルにおける化学物質の相乗的影響に関する研究
- (2) 生物の化学物質に対する種特異的感受性に関する研究
- (3) 水環境評価のための生物指標システムの開発に関する研究
- (4) 生態系レベルでの化学物質のリスクアセスメントに関する研究

水系を汚染する化学物質のなかで生態系に影響を与える可能性の高いのは農薬である。その影響が及ぶのは特定の季節に限られ，長期に残留する農薬は少なくなっていると考えられるが，一

方多種類の農薬が使われることから、それらの相乗的影響が懸念される。したがって野外調査によって、農薬による影響の実状を把握することが重要であり、初年度はその点に重きを置いて研究を始めた。

(1)生態系影響は本来あるべき生物相がどのくらい歪められているかによって判断される。野外における研究においては農薬以外の要因が歪みの原因となることもあり、その識別も課題の一つである。田畑、森林、更に河川敷やゴルフ場に散布された薬剤は一過性ではあっても、高濃度のこともあり得る。しかしそれをモニターするシステムはまだ開発されておらず、現在ではできる限り高い頻度で採水し分析を行うことで、そのような一過性の農薬流出をとらえる工夫をしなければならない。昨年は、いくつかの河川について流下する農薬の濃度を測定したが、時には単独の農薬では説明しにくい生物相への影響を見るなど、複合汚染の相乗的影響を示唆する場合があった。

水田については粒剤のように残効性をもたらすような製剤が用いられていることから比較的長期の残留を考慮する必要がある。それ自体は本来の目的のためであり、環境汚染と考えることはできないが、薬剤の潜在的影響評価に益するデータを期待できることから、本研究では無農薬水田は、農薬散布水田の生物相及びその生理学的特性の違いに関する研究も手がけた。

(2)自然環境の個別の生物種についての農薬に対する感受性の違いについて本年度は藻類の一部のみについて行われ、予定した河川の水生昆虫については次年度に持ち越された。

(3)水環境評価のための生物指標システムの開発は地方公害研究機関との共同研究として進められ、水環境における有機汚染と化学物質汚染の問題の扱いについて研究会を開いた。

(4)生態系の回復能も汚染物質によるかく乱の程度を測るクライテリアになり得るが、コンクリート水槽や隔離水界における生態系を対象として実験を行った。また環境中での農薬の挙動ないし運命もこの実験系で調べるとともに、自然の沼沢に流入した農薬についても調べた。

各研究課題の相互の関係及び年次計画は図1に示す。

【研究成果】

(1)生態系レベルにおける化学物質の相乗的影響に関する研究

1) 河川及び湖沼底泥の農薬とその生物検定

河川水の潜在的生態影響を評価するため、つくば市内及び周辺の9河川の定点(下流部)において夏期は週3回採水し、化学物質に高感受性のヌカエビを用いた生物検定を行った。霞ヶ浦高浜入(河口付近や中心部)でも採水し生物試験に供した。河川による差異もあるが、概して田植後の5月下旬からエビの死亡率は高まり、その毒性は小貝川の場合のように1か月近く続くことが多かった(図2)。7月中旬までにはいったん低下する毒性は、7月下旬~8月初旬にかけ再び増大する傾向を示す。河川の化学分析の結果、5月下旬から高まる毒性は、その時期数種類の除草剤濃度(モリネート、シメトリン、ベンチオカープ、ブタクロールなど)はかなり(数~25 ppb)高まるものの、エビに対する毒性はむしろ殺虫剤よりも低いため、単独あるいは数種類の殺虫剤(フェニトロチオン、フェンチオン、ダイアジノン、マラソン、BPMCなど)の複合影響による可能性が高い。しかし、除草剤と殺虫剤の複合影響に関しては今後の実験室における毒性試験によって検討しなければならない。年度後半(7月下旬~)の死亡率増加は、この時期各地で行われる殺虫剤と殺菌剤の空中散布ときわめて因果関係が高い。8月初旬、台風による大雨で各河川水の毒性がそろって減少した。9月中旬以降は各河川とも3月まで、エビの死亡(4日間)は全く起こらなかった。

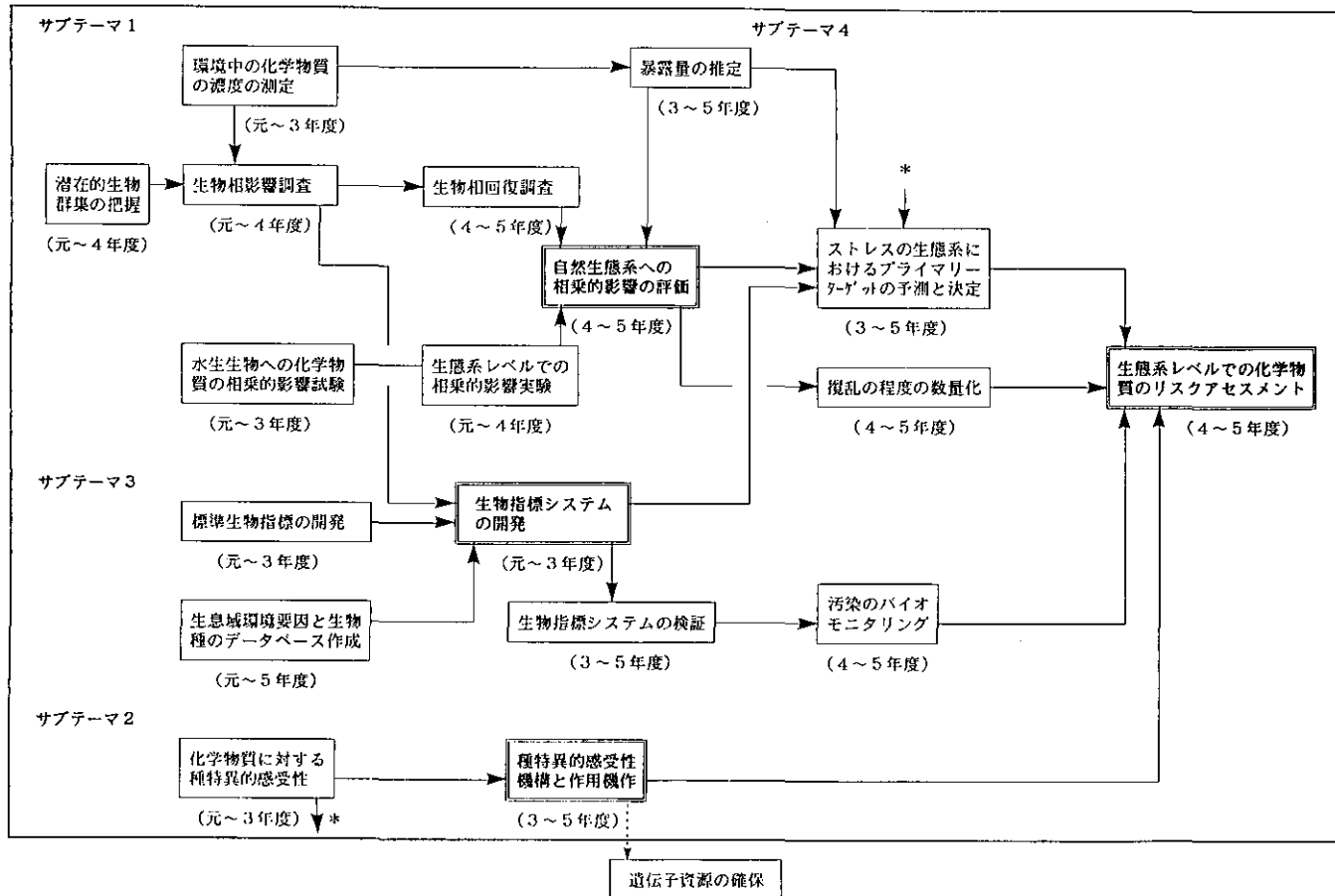


図1、本特別研究の全体構成

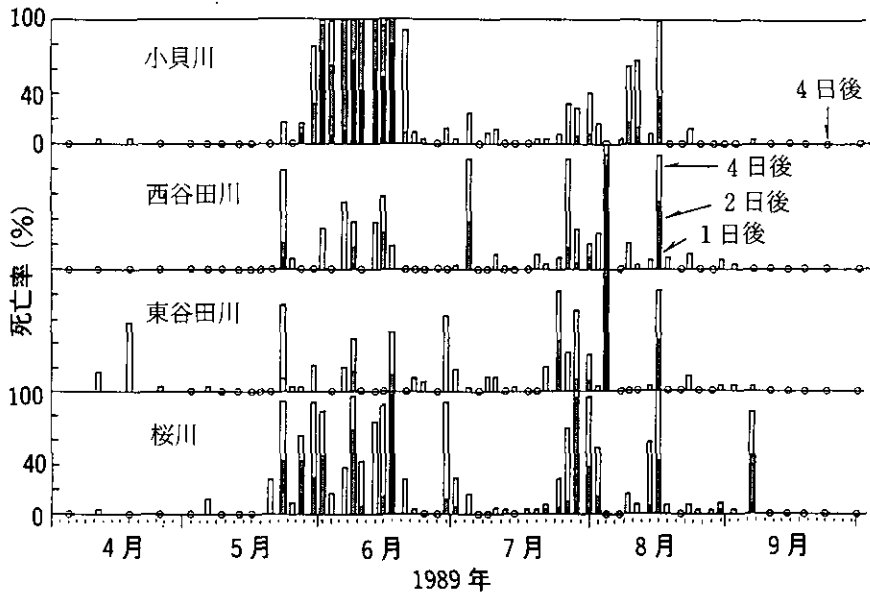


図2 つくば市近辺の河川水の化学物質複合汚染による毒性の季節変動
淡水産エビ(ヌカエビ)による生物検定試験(4日間)による。

霞ヶ浦高浜入湖水については、河川水よりは毒性がかなり低下し、河川水の毒性変動に半月前後遅れるものの、6~9月初旬にかけ1週間後のエビ死亡率はしばしば10~60%に高まった。同時にコアサンプル(底泥+水)を採取し、エビの生物試験を行ったが、採取場所の違いで死亡率に年間を通して大きな差が見られた。高死亡率を引き起こした要因が、底泥中の化学物質によるものかは今後更に検討を要する。

2) 農薬散布地帯と無農薬地帯の河川の生物相

①無農薬(あるいは低農薬)水田地帯(上流側4地点)と農薬多量散布水田地帯(空中散布を年4回、4地点)を流下する河川において、定期的に藻類と底生動物(水生昆虫が主体)を採取し、両地区における生物相を比較した。無農薬地帯の1地点ではユスリカ(多くの種類からなる)を除いても、常時50種類前後の水生昆虫が採取されるが、下流の農薬散布地帯では11~30種類と上流に比較し少ない。しかも下流に優占する水生昆虫はユスリカ(種は未同定)、トビケラの1~2種、コカゲロウの1~2種など極めて限られ、他の種類は出現してもこれらの種類に比べその生息数はわずかであった。これらの採取法(サーバーネット)とは別に、同じ採取地点の岸辺の水草帯からトンボ幼虫を定量採取した(6, 10, 12, 3月)。採集は横25cm縦20cmの網枠に熊手状に5cmの爪が付いたタモ網(6, 10, 3月)か同じ大きさの爪なしタモ網(12月)を用いた。流れに面した川岸で植物が連続して生えている所を選んで15mの距離にわたって水中の植物体に付着している生物をこれらの網で掻き出した。そして、その採集物の中からトンボ目幼虫を拾い出した。表1に4回の調査で採れた個体数を合計して示した。この調査で5種の幼虫の分布が確認された。全地点でモイワサナエが採れたが、総種数は地点1, 2, 3で3種、地点4, 5で2種、地点6, 7, 8は1種と無農薬地帯河川で多い傾向があった。採集個体数は農薬散布地帯の4地点

表1 高島町砂川水系でのトンボ幼虫採集個体数

	カワトンボ	オニヤンマ	モイワサナエ	シオヤトンボ	コヤマトンボ
無農薬水田地帯河川					
地点1	1	1	3		
地点2	3	3	21		
地点3	1		16	1	
地点4	4		11		

農薬散布水田地帯河川					
地点5			1		1
地点6			1		
地点7			1		
地点8			1		

個体数は4回の採集の合計。

は4回の調査で多くても2個体しか採れなかったのに対して、無農薬地帯では地点1を除いては4回の調査で10個体以上採れており、後者で圧倒的に多い結果となった。今回の調査ではトンボ目幼虫の分布は無農薬地帯河川で豊富であるが農薬散布地帯河川で貧弱であるというように両者の間で顕著な違いが確認された。流程に沿って接する地点4と地点5との間は1kmしかなく、このように短距離の間で分布が変化することを考え合わせると農薬散布地帯では流入農薬がこの幼虫の分布を制限していると判断された。

②宮城県名取川水系の沢戸川で水生無セキツイ動物相の調査を行った。里山の間を流れる上流部から水田の間を流れる中流部まで、上流から4か所に採集地点を設定した。調査は4, 5, 6月に月1回ずつ行った。流水中の農薬を分析したところ、採集地点3から下流で殺虫剤BPMC, 除草剤シメトリン, モリネートの流入が顕著であった。採集された無セキツイ動物の分類群数は最上流の採集地点1では46種類が確認され、その他に種までの同定ができなかった個体については1属4亜科2科が認められた。採集地点2では56種1属5亜科1科が認められ、種類は豊富になる傾向が認められた。ところがその下流の地点では種数の減少が著しく、採集地点3では37種1属4亜科3科、採集地点4では20種3亜科1科が認められたのみであった。この結果は農薬の流入が無セキツイ動物相に影響していることを示唆している。

③茨城県玉造町を流れ霞ヶ浦に流入する梶無川の中流から下流域の3地点における、農薬残留量と底生動物群集の変動を調査した。その結果、殺虫剤ではBPMCが、除草剤ではブタクロールが農薬散布時期である5~6月にかけて10~20ppbの濃度で検出された(図3)。また、この時期コガタシマトビケラ幼虫の密度の増加が抑制され、下流地点ではウスバヒメガガンボ幼虫の個体数が異常に増加した(図4)。農薬による他の底生動物の消失、附着藻類相の変化など生物環境の変化がガガンボの異常増殖をもたらした可能性がある。

④つくば市周辺の農耕地を流れる河川において、1989年4月17日~1990年3月6日の期間(計23回)、河川水中の農薬濃度及び底生動物相の調査を行った。花室川、小野川及び乙戸川において、イトミミズ密度が減少したが(図5)、この時期には河川水中の濃度が比較的高かった(殺虫剤のBPMC:最高3.8ppb, 除草剤のモリネート:最高2.8ppb, ブタクロール:最高4.9ppb, オキサジアゾン:最高3.9ppb, プレチラクロール:最高4.6ppb, シメトリン:最高4.6

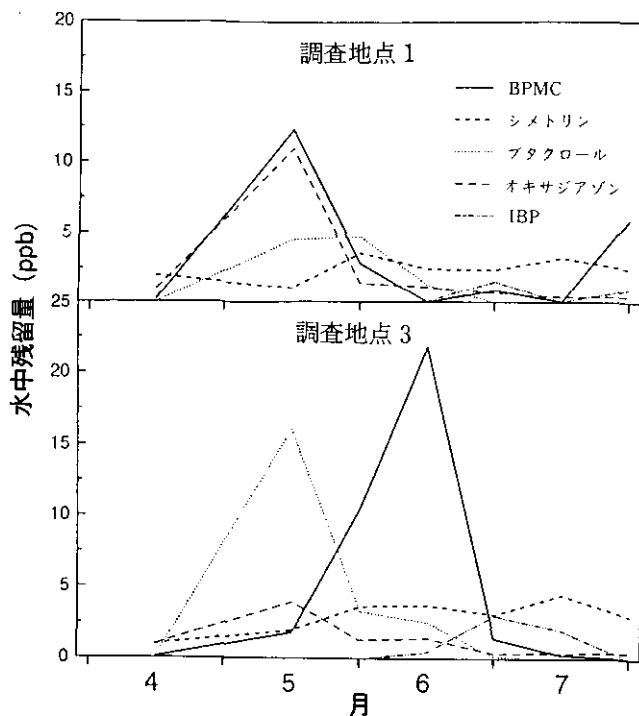


図3 梶無川の上流地点(調査地点1)と下流地点(調査地点3)の河川水中の殺虫剤及び除草剤濃度

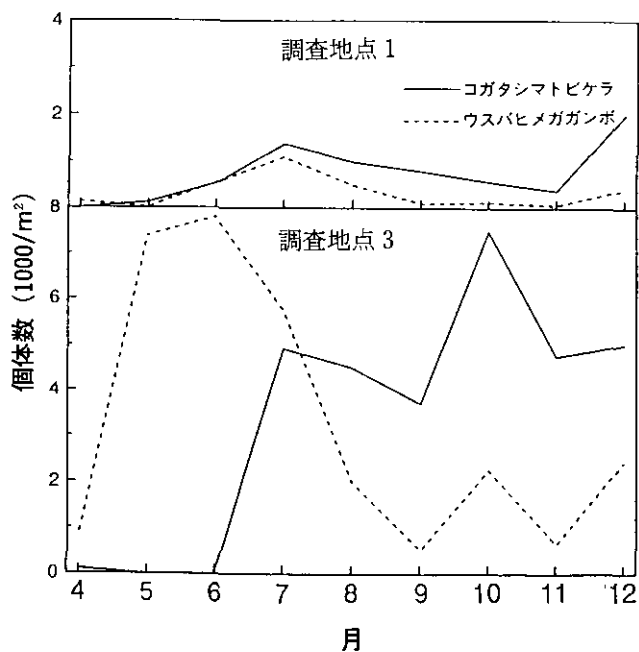


図4 梶無川同地点での底生動物個体数の変動

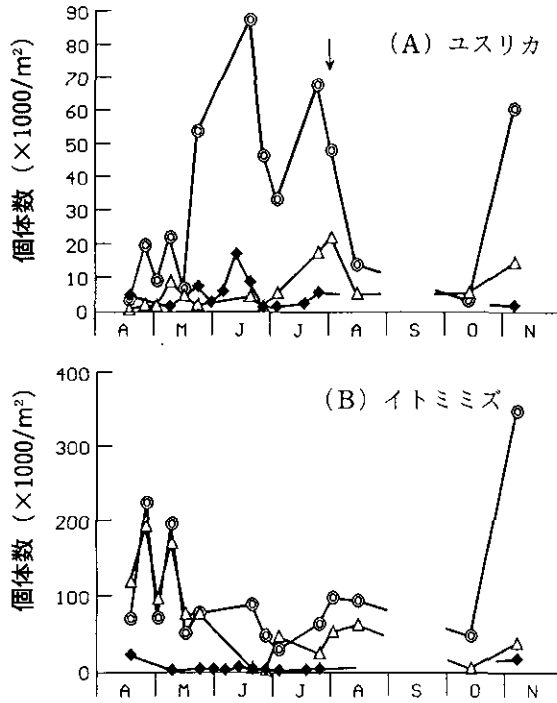


図5 (A) 全ユスリカ個体数の変動, (B) イトミミズ個体数の変動
矢印は空中散布の時期を示す。◎：花室川, △：小野川, ◆：乙戸川

ppb)。ユスリカ密度は6月下旬に減少するほかは、5～7月の間比較的高密度だった。6月下旬には殺虫剤のフェニトロチオンの濃度がやや高かった。7月下旬～8月上旬の空中散布の時期にはユスリカ密度が減少した(図5)。この時期には殺菌剤のIBP, エディフェンフォス, 殺虫剤のフェンチオンの濃度が高かった(それぞれ最高33.9 ppb, 76.2 ppb, 63.0 ppb)。以上の4地点のユスリカ相は似ており、室内羽化法により28種が確認されたが、幼虫では *Cricotopus bicinctus*, *Rheocricotopus chalybeatus*, *Polypedilum* 属の3種, セスジユスリカなどが多かった。いずれも比較的汚れた河川に普通にみられる種で、自然状態では春・夏を中心に連続的に発生すると思われる。ここで検出された農薬の濃度は単体としては底生動物に影響しないと考えられるが、暴露時間が長いことと複合影響による結果として考えねばならないかも知れない。

(2) 生物の化学物質に対する種特異的感受性に関する研究

1) 農薬散布水田の藻類群集組成とその光合成活性

野外での藻類群集に対する農薬の影響を明らかにするために、1989年6～9月まで山形県高畠町の完全無農薬水田と農薬散布水田(殺虫剤のフェンチオン, フェニトロチオン, BPMC, 殺菌剤のIBP, エディフェンフォス, フサライド, トリサイクラゾウルを使用)において藻類群集の現存量, 光合成量, 種類組成を調べた。現存量はいずれも5～150 mg/m²の間で変化し、無農薬水田と農薬散布水田の違いは認められなかった。25°C 500 μmol 光量子/(m²・s)の同一条件のもとで測定した光合成速度(図6)はバラツキが大きかったが7, 8月は農薬散布水田が無農薬水田より低い傾向を示した。藻類種の多様性には明確な差が認められた。すなわち、完全無農薬水田

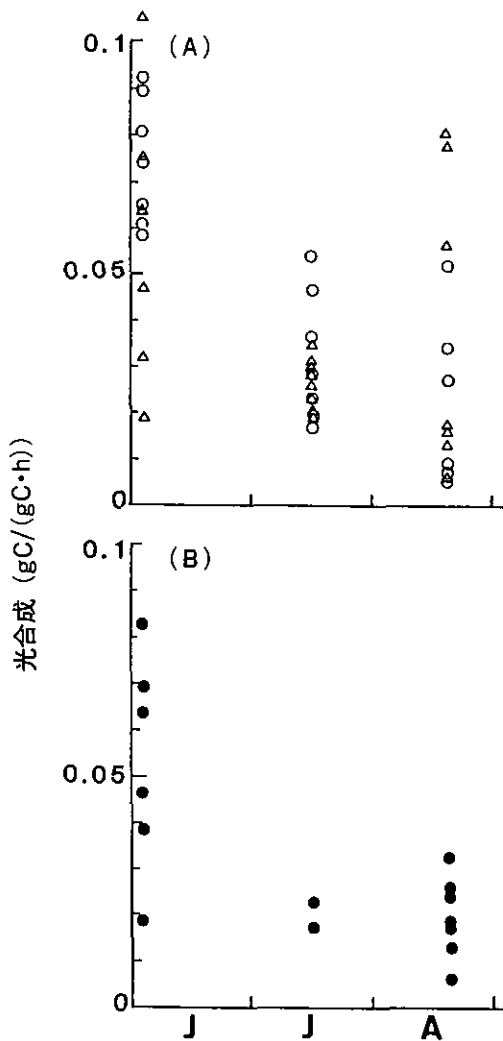


図6 完全無農薬水田(A)と農薬散布水田(B)における藻類群生の光合成速度

では、ランソウ綱6~8種、ケイソウ綱10~11種、緑藻綱(すべてオオヒゲマワリ目)3種、ミドリムシ綱4~6種、が観察されたにもかかわらず、農薬散布水田では、ランソウ綱3種、ケイソウ綱4種、緑藻綱なし、ミドリムシ綱3種が観察されたにとどまった。一方、車軸藻綱は双方の水田に10~11種観察された。したがって、農薬散布水田では藻類の生産性が低くなっている可能性があること、また、車軸藻綱以外の藻類種がなんらかの影響を受け、出現が抑えられていることが明らかになった。

2) 農薬散布水田から分離した緑藻類の農薬に対する感受性差

無農薬及び農薬散布水田より分離された藻類のうち、緑藻類の一部の株について除草剤シメトリンと殺虫剤フェンチオンに対する感受性を調べた。図7にこれらの農薬の緑藻分離株の増殖に対する $EC_{50}^{*1)}$ を示す。除草剤のシメトリンに対する EC_{50} 値は、緑藻オオヒゲマワリ目では10~30 ppbの範囲にほとんどの株が入り、ホシミドロ目では15~100 ppbと広く分散した。こ

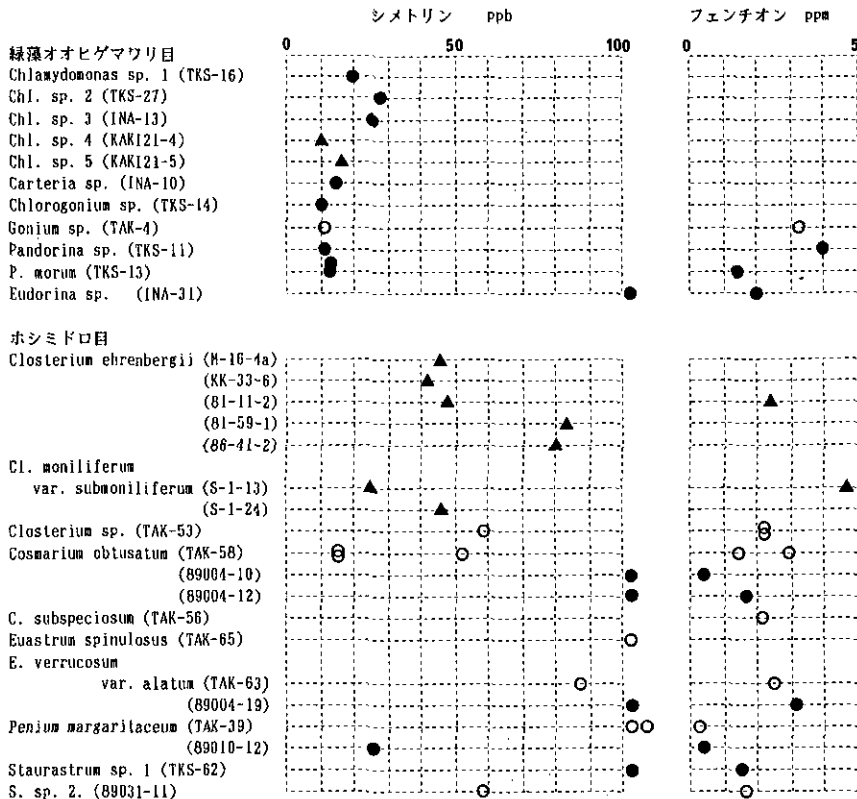


図7 除草剤シメトリンと殺虫剤フェンチオンの緑藻分離株の増殖に対する EC_{50} 値

○：無農薬水田から分離した株，●：農薬散布水田から分離した株，
▲：その他の地域から分離した株

のように、各株の感受性は分離された水田の農薬散布歴の相違よりも種による相違が大きいたことが示された。農薬散布水田と無農薬水田で同じ種が得られた、鼓藻類の *Cosmarium obtusatum* と *Euastrum verrucosum* var. *alatum* では、無農薬水田より分離された株の方が農薬散布水田より分離された株より感受性が高かったが、*Penium margaritaceum* では逆の関係となり、ここでも農薬散布歴との相関は見られず、今後の検討を要すると思われる。また、これらの株のシメトリンに対する EC_{50} 値は、これらの種の増殖が除草剤散布の影響を受けることを示している。しかし、殺虫剤のフェンチオンに対する EC_{50} 値は、0.2~5 ppm となり、単独ではあまり影響を受けないと思われる。

(3) 水環境評価のための生物指標システムの開発に関する研究

生物指標システムを開発するためには底生動物群集組成を定量的、定性的に把握する方法を確立する必要がある。河川底生動物群集の採集法について日光外山沢・大谷川、つくば市周辺の河川、山形県砂川等で、通常のサーバーネットや箱型ネット以外に、室内で幼虫を飼育して羽化成虫を採集する方法(主としてユスリカ科昆虫用)、かや状の羽化トラップで成虫を採集する方法

(水生昆虫用), 爪付きタモ網 (種としてトンボ目昆虫用), 人工基物法による底生動物の採集法 (底生動物群集一般用), D フレームネット (底生動物群集定性採集用), 捕虫網による成虫の採集方法 (水生昆虫用) の有効性を検討した。小石を設置する人工基物法は, 同じような底質の地点でサーバーネットと比較した場合に, 2 週間で同等の種類数を数えることができた。しかしながら小型のユスリカ幼虫の採集には, この 2 つの方法は適しておらず, 箱型ネットを使用する必要がある。外山沢でユスリカ成虫の採集法の比較を毎月 1 回ずつ 1 年間行った。各方法の合計種数は, 飼育羽化法で 19 種, 捕虫網による採集法で 13 種, 羽化トラップ法で 11 種採集され, 必ずしも現場での成虫採集が有効ではなかった。ただし, 源流域に特徴的なヤマユスリカ亜科については, *Diamesa tsutsui* のように密度が高くても飼育羽化法では回収することが困難な種があった。農業濃度の高い河川のユスリカさなぎの定量採集と飼育羽化法で得られた種を属レベルで比較すると, 個体数の比率は類似していた。

(4) 生態系レベルでの化学物質のリスクアセスメントに関する研究—生態系の回復能に関する研究

1) 栄養段階の異なった水界における殺虫剤の挙動と生態系影響

研究所内の生物生態園実験池に設置した 12 個の小型隔離水界の半数に N, P を添加し富栄養水界を用意した。水への溶解度が高く, 残留性も高いといわれる殺虫剤のピラクロフォスを 10 ppb と 50 ppb の 2 段階で処理を行い, 水中及び底泥表層の殺虫剤の濃度を定期的に分析しその挙動を検討した。水中のピラクロフォスの濃度は次第に減少するが, 栄養塩添加区ではより早く減少し無添加区では比較的緩やかに減少した。しかし底泥表層中の濃度も前者で少なく, 栄養塩添加により増加した藻体に付着して沈降したためではなく, 藻類による分解によるものと考えられた。この系における動物プランクトンへの影響は感受性の高いミジンコ類に厳しく, 低濃度区でも実験終了の 60 日後でも回復しない。一方顕著に増加するプランクトンはヤマトヒゲナガケンミジンコである。特に栄養塩無添加区で高濃度処理区で最も高く, 対照区では栄養塩添加区でも増加しない。ワムシ類は栄養塩添加区の殺虫剤処理区で大增殖した。このことは動物プランクトン組成が餌の絶対量と競争者の有無の組み合わせによって決定されていることを示唆している。

2) 暴露時間を変化させた場合の殺虫剤のプランクトン群集への影響解析

屋外コンクリート水槽を用い, 動物プランクトン群集に対する分解の早い殺虫剤カルバリルの一時投与及び連続投与の影響を調べた。水槽では枝角類動物プランクトンが優占し, カルバリルを投与すると枝角類個体群の崩壊を引き起こした。しかしカルバリルの分解が早いいため, 一度だけカルバリルを投与した水槽では枝角類がすぐに回復し, 再び動物プランクトン群集を優占するようになった。一方 1 日おきに 20 日間カルバリルを投与 (計 10 回) した水槽では, 投与によって壊された枝角類群集の回復は長い間抑制され, それに変わって枝角類との競争関係で劣性にあるワムシが増えて優占する水界がつくられた (図 8)。これらの結果は, 水槽において投与された薬剤の残留時間が異なると動物プランクトン群集の回復パターンが異なることを示しており, あるいは分解速度の違う薬剤が投与された場合, 異なった動物プランクトン群集が形成されることを示唆している。

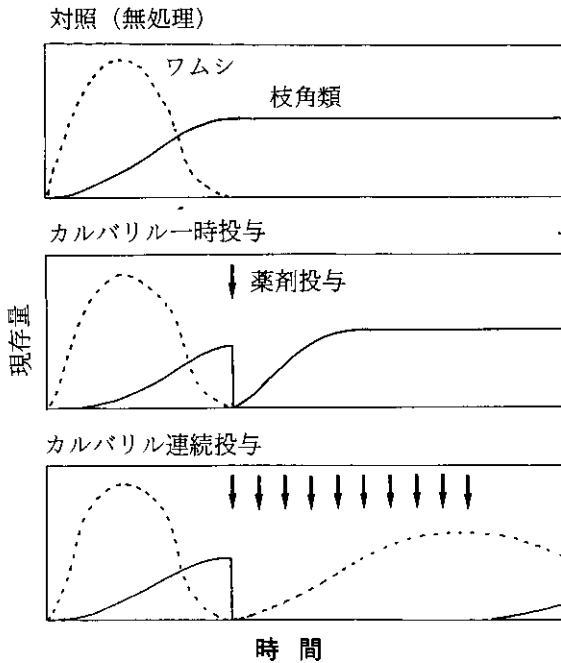


図8 カルバリル暴露条件の異なる場合の動物プランクトン群集の変動の模式図

3) 湖沼における農薬の運命調査

水深 13 m, 面積 1,075 m² の茨城県中沼を深い温度成層湖における農薬の動態のモデルケースとして月 1 度の頻度で調査した。この池は 5, 6 月にのみ水路から小貝川起源の流入があり, その後雨とわずかに地下水が入る以外水の出入りは無い。NPD 及び ECD 検出器のガスクロマトグラフィーを使って湖心の 0, 4, 8, 12 m の水深で農薬濃度を測定した。最大濃度は除草剤のオキサジアゾンが 12 ppb, 殺菌剤のイソプロチオランが 7 ppb, 除草剤のモリネートが 1.6 ppb, 除草剤のシメトリンが 0.7 ppb であった。水温の高い流入水が表層から入るために表層ほど濃度が高かった。表層は早く検出されなくなり, 深層部には低濃度ながら長い間検出された。モリネートとシメトリンは 12 月にはほとんど見られなくなったが, オキサジアゾンとイソプロチオランは 1 年中低濃度で検出された。除草剤のオキサジアゾンとクロルニトルフェン (CNP) は流入水には比較的高い濃度にもかかわらず湖心の表層水には 1/4 以下しか検出されなかった。モリネートとオキサジアゾンの年間の水深別の分布を図 9 に示す。農薬の濃度はその種類と湖の成層構造によって挙動が異なることが明らかとなった。

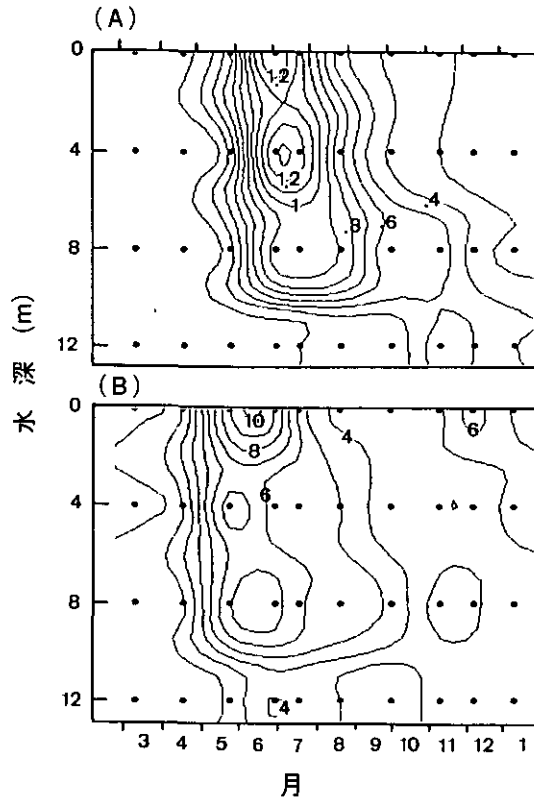


図9 中沼におけるモリネート (A) とオキサジアゾン (B) の深度分布の季節変動 (ppb)

注1) EC_{50} : 50%阻害濃度。何段階かの農業濃度での培養実験に基づき、藻類の増殖が50%阻害される濃度を求めた。

2.12 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(初年度)

平成元年度(1989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・島山史郎・酒巻史郎
エアロゾル研究室	福山 力・村野健太郎・泉 克幸・内山政弘・尾崎 裕
大気環境計画研究室	植田洋匡・若松伸司・鶴野伊津志

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
---------	---------------------

総合解析部

環境管理研究室	西岡秀三・甲斐沼美紀子・森 保文
地域計画研究室	森口祐一
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

計測技術部

大気計測研究室	安部喜也・横内陽子・向井人史
水質計測研究室	河合崇欣・白石寛明・野尻幸宏
底質土壌計測研究室	田中 敦
生体化学計測研究室	切刀正行

水質土壌環境部

海洋環境研究室	渡辺正孝・木幡邦男・中村泰男・原島 省
---------	---------------------

生物環境部

陸生生物生態研究室	古川昭雄・藤沼康実・可知直毅・竹中明夫
-----------	---------------------

技 術 部

生物施設管理室	大政謙次・町田 孝・増田啓子
理工施設管理室	高木博夫・水落元之

客員研究員 25名

〔研究概要〕

近年、化石燃料の燃焼に起因する大気環境中の二酸化炭素の増加が地球の温暖化をもたらし、地球規模の生態系破壊等につながる可能性のあることが指摘されている。また、二酸化炭素以外のメタン、ハロカーボン⁽¹⁾、亜酸化窒素等の微量成分の濃度が大気環境中で現実に著しく増加し続けており、それらが地球の温暖化に対して二酸化炭素と同程度の寄与をもつという推定もされている。昭和62年4月には、国連の「環境と開発に関する世界委員会」が報告書を発表し、このような地球規模の環境問題を解決するために、各国政府、各国際機関、民間団体等がそれぞれの立場から直ちに行動を起こすよう求めたところである。また、昭和63年6月トロントで開催された先進国首脳会議の経済宣言の中においても、地球温暖化現象は最優先の考慮が払われるべき問題として言及されており、本問題への対応について日本もリーダーシップを発揮するこ

とが強く求められている。また世界全体としてこの問題に対応するために WMO (世界気象機関) と UNEP (国連環境計画) の指導のもとで「気候変動に関する政府間パネル (IPCC)」が設けられ政府間の初めての公式な検討の場として活動が開始されている。

一方、地球温暖化現象に関する科学的な解明の現状は、世界的にみても、マクロスケールでの二酸化炭素等温暖化関連成分の増加や、それらの温暖化への影響等につき限られた知見に基づく推定が行われている段階であって、温暖化現象の正確な予測に必要な二酸化炭素の植物生態系及び海洋中での動態や温暖化関連成分に対する光化学反応の寄与等の重要な事項は、未解明の部分が多い。

本研究は大気、生物、海洋圏を含めた地球規模環境中での二酸化炭素 (CO₂)、メタン (CH₄) 及びその他の大気微量成分の動態を解明し、その変動が地球温暖化現象に与える影響の評価を行うための科学的知見を得ることを目指すもので以下の研究課題からなる。

(1) 地球温暖化にかかわる大気成分の起源と発生に関する研究

増加しつつある大気微量成分の起源と発生量を推定するために、1) 過去の試料や大気中の CO₂、CH₄ 中の炭素の安定同位体比の測定、2) 水田、畑地からの CH₄、一酸化二窒素 (N₂O) の発生量の測定、3) 植物起源炭化水素の測定、4) 放出データの収集、を行う。

(2) 地球温暖化にかかわる大気成分の動態把握に関する研究

大気中微量成分の対流圏での動態を把握するため、1) CH₄、CO、低級炭化水素などの地球規模で長期変動が予想される微量成分濃度の測定、2) 窒素酸化物 (NO_x)、オゾン (O₃)、過酸化水素 (H₂O₂)、水素 (H₂) など対流圏光化学の解明に重要な微量成分濃度測定法の開発、3) 東アジアを中心とする大気微量成分の航空機観測と広域モニタリング手法の検討、を行う。

(3) 地球温暖化にかかわる大気成分の光化学反応機構に関する研究

大気中に放出された微量成分の変質過程を解明するために、1) 光化学チャンバーを用いた微量成分の光酸化反応機構の解明、2) 二次生成物の除去過程の研究、3) 反応中間体の検出と素反応研究、4) 対流圏光化学反応モデルによる評価、を行う。

(4) 地球温暖化にかかわる大気成分の生物圏・水圏における相互作用機構の解明

温暖化の植物・水圏への影響を評価するため、1) 植物の乾物生長に及ぼす高濃度 CO₂ の影響、2) 植物の CO₂ 吸収速度に及ぼす高濃度 CO₂ の影響、3) 高濃度 CO₂ 下における植物の生長に対する環境ストレスの影響、4) 森林生態系における CO₂ 収支の定量的解析、5) 海洋における炭素循環にはたす生物過程の役割に関する実験的研究、を行う。

(5) 地球温暖化にかかわるデータベース等の構築に関する研究

温暖化対策手法の評価のため、1) 温暖化防止のための政策オプションの分析、2) 政策オプション評価のための温暖化予測モデルの構築、3) 温暖化関連データベースの構築、を行う。

以上の研究は本年度は地球温暖化総合特別研究として行われたが、平成 2 年度からは地球環境研究総合推進費において引き続き行われることになる。

〔研究成果〕

各研究テーマ各々において研究が進行しているが、今回は特に低級炭化水素の動態にテーマを絞って報告する。

（1）低級炭化水素の動態

大気中の微量成分の中で C_1 - C_4 程度の低沸点炭化水素^{※2)}が重要な役割を果たしていることはいうまでもない。これらの炭化水素の動態を知るには放出、反応、蓄積の3つの切口からアプローチしなければならない。放出の例としては今回は水田からのメタンの放出量の測定を報告する。メタンの大気中での反応については昭和62年度の特別研究年報で発表してあるので割愛する。反応の研究としては大気中で重要なヒドロキシアルキルラジカル^{※3)}の反応について報告する。蓄積については小笠原母島での低級炭化水素濃度とその季節変動について報告する。最後に温暖化の影響評価の問題として、光化学オキシダントの発生量と温度の関係について報告する。

1) 水田からのメタンの放出量の測定

大気中のメタンは約1.7 ppmと炭酸ガスについて濃度が高く、さらに二酸化炭素の約20倍の効果を示す温室効果ガスであり、近年1%/年の割合の増加が世界中で観測されている。しかしながら、この CH_4 増加の理由や、さらに水田、湿地、天然ガスの漏れ、埋立地、反すう動物等各種 CH_4 発生源の寄与は十分明らかにされてはいない。水田は CH_4 の主要な発生源の一つであり、地球全体の CH_4 の発生量の約2割を占めるといわれている。

本研究では研究所内の実験用水田において、 CH_4 発生量の通年測定を実施するとともに、肥料による発生量の差異を調べた。肥料条件の CH_4 放出量への影響を見るために、窒素系の肥料を添加した水田(PF-2)と、有機物を多量に含む牛糞堆肥(300 kg/a)を入れた水田(PF-1)の CH_4 放出量の比較を行った結果を図1に示す。PF-1からの放出量は田植後、徐々に増加し、約70日後にピークに達してから次第に減少した。ピーク時の放出速度は約6 mg/m²/h以上であった。一方、PF-2からの放出量には大きな季節変動は見られず、概して2 mg/m²/h以下であった。すなわち、牛糞堆肥を施した水田からの CH_4 放出量は経月変化の程度及び平均放出量いざれも窒素系の化成肥料を添加した水田に比べてはるかに大きいことが分かった。同様な実験を8

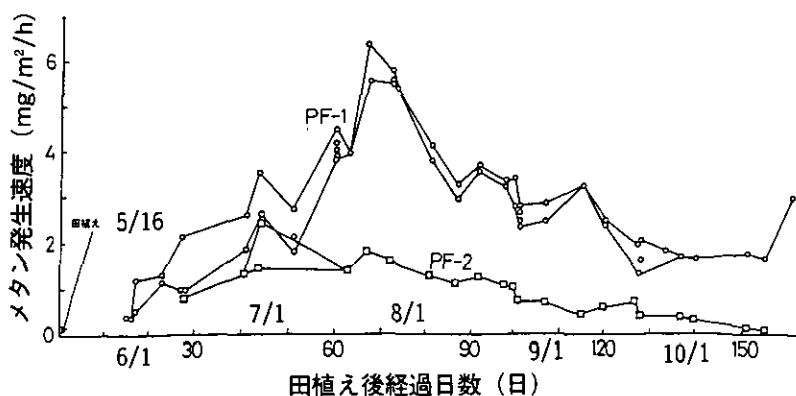


図1 水田からのメタン発生量の通年測定の結果
PF-1, PF-2については本文参照。

種の小水田で行った結果を図2に示す。水田A~Hには NH_4^+ を含む化成肥料を、22 kg/a 添加してある。D, E, F, Gにはさらに牛糞堆肥を650 kg/a 添加してある(Dは稲が植えてない)。Hには牛糞堆肥を1,300 kg/a 添加してある。DとE, F, Gの結果を比較すると、稲がない場合には発生量は低い。A, B, CとE, F, GとHの比較によると、牛糞堆肥の量により発生量が増加することが明らかとなった。通年の測定結果を見ると、田植え後70日(7月20日)前後に発生量がピークを示す1山型であった。 CH_4 放出量に太陽光が大きく関与しているかどうかや土壌温度との関連を調べるために、夜間の測定も行った。その結果真夜中でも放出量は昼間とそれほど変わらず、太陽光が CH_4 放出の必要条件ではなかった。また、 CH_4 放出量と土壌温度との相関は見いだせなかった。一般に水田では最表層(1~2 cm)は酸化状態にあるが、酸素が微生物によって消費されるため、すぐ下は還元層になっている。この還元層は有機酸に富み還元層の酸化還元電位^{#4)}が-200~-300 mV(ミリボルト)になってくると、メタン還元菌によるメタン発酵が起こるといわれている。本研究において水田土壌の酸化還元電位の実測も行ったが、 CH_4 放出量の大きい水田は酸化還元電位が-190 mV以下であり、低かった。

以上の結果によると、水田からの CH_4 放出量を求めるには田植後50~100日の間の測定値が重要であり、さらに夜間も同じような放出量を示していることを考慮に入れる必要があり、肥料の差異による差が大きいため日本全体の放出量を見積るためには、肥料をパラメータ化した放出量算定式を作成しなければならないことが明らかになった。

2) 低級炭化水素の大気中での反応にかかわるフリーラジカル^{#5)}の素反応速度の決定

大気中における炭化水素の光酸化過程の多くは、炭化水素とOHラジカルの反応によって開始することが知られている。大気中の炭化水素は主としてアルカン類(飽和炭化水素)とアルケ

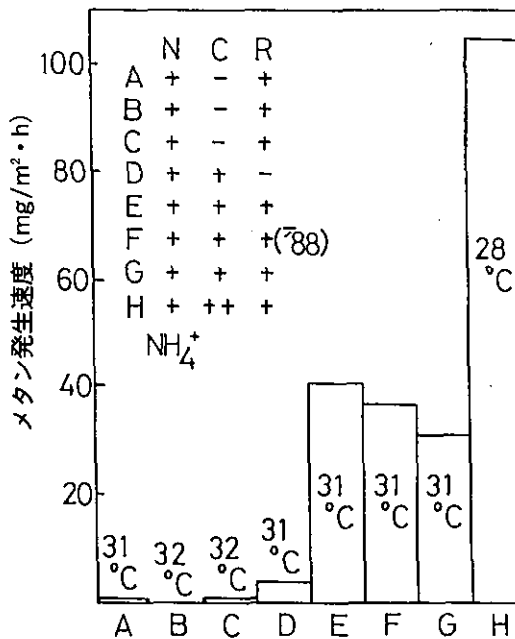


図2 水田からのメタン発生量の牛糞堆肥肥料の量に対する依存性(Nは窒素系肥料, Cは牛糞堆肥, Rは稲)

ン類(不飽和炭化水素)に分類される。このうち、アルカンはOHラジカルによって水素原子を引き抜かれてアルキルラジカルを生成し、アルケンもOHラジカルとの付加反応によりヒドロキシアリルラジカルを生成する。またアルコール類の光酸化過程でも、アルコールとOHラジカルの反応によりヒドロキシアリルラジカルが生成する。これらのラジカルの大気中の主要な反応は、酸素分子との反応によりペルオキシラジカル⁽⁶⁾を生成する反応であるが、その反応速度定数についての情報は少なく、特にヒドロキシアリルラジカルについてはほとんどデータがなかった。その理由としては、これらの素反応速度定数は大気中の反応解析に重要であるにもかかわらず、ラジカルを実験室的に直接生成すること、検出することが困難であったためである。

本研究ではレーザー閃光分解法⁽⁷⁾によりこれらのラジカルを直接生成し、光イオン化質量分析法⁽⁸⁾によりラジカルを検出することで、これまで決定されていなかった素反応速度定数を測定することができた。結果として、7種のヒドロキシアリルラジカルと酸素分子との反応速度定数、2種のヒドロキシアリルラジカルと一酸化窒素の反応速度定数が決定された。さらにヒドロキシアリルラジカルと酸素分子の反応に関しては、図3に示すように、反応速度定数とラジカルのイオン化ポテンシャル⁽⁹⁾の間により相関関係があることが見いだされた。図中、○はC₁からC₃のヒドロキシアリルラジカルであるが、これまでに知られている●で示したC₁からC₄のアルキルラジカルと同様、反応速度定数とイオン化ポテンシャルの相関はよいことが分かる。この結果はラジカルの素反応速度定数を予測する上で重要であり、大気中の反応解析に有効な情報を与えるものであると考えられる。

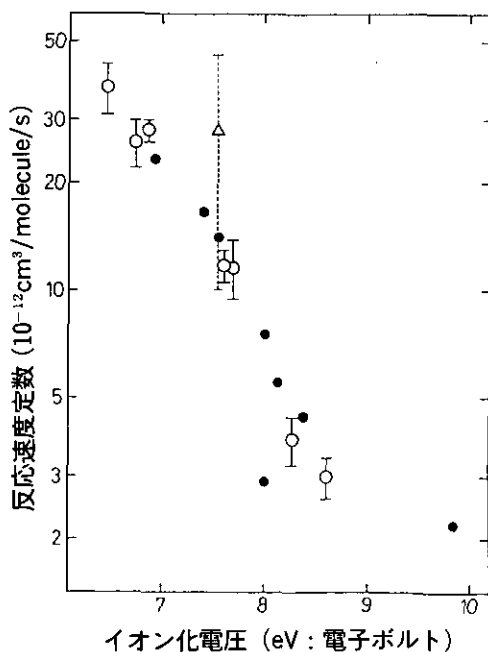


図3 アルキル(●)及びヒドロキシアリル(○)ラジカルと酸素分子の反応速度定数と各ラジカルのイオン化電圧との相関

3) 小笠原母島での低級炭化水素濃度

炭化水素は対流圏大気中の光化学反応に影響を与える主要な大気微量成分の一つであり、大気中の OH ラジカル濃度を支配するとともにそれ自身の酸化によって一酸化炭素 (CO) を生成させるために大気中の CO の重要な発生源でもある。したがって、対流圏の大気化学反応機構を明確にするためにも炭化水素の地球規模のバックグラウンド地域での分布と季節変動を明らかにすることが必要とされる。バックグラウンド地域での炭化水素を測定する試みは既にいくつかの研究グループによって大西洋地域や東太平洋地域で行われているが、日本近傍の西太平洋地域ではまだ測定を試みた例はない。そこで日本近傍のバックグラウンド地点として小笠原諸島に着目して 1987 年 11 月より継続的に大気の採集を実施している。ここではエタンからペンタン類までの 14 種類の炭化水素について現在までに得られている結果について報告する。

代表的な 4 種の炭化水素濃度の季節変動の結果を図 4 に示す。全体的に夏に低く、冬に高い傾向が認められる。このような変動傾向は北半球では一般的に見られる傾向であり、この原因として大気中の炭化水素を消失させる OH ラジカル濃度が太陽光量が高い夏に高く、逆に冬に低いことが考えられる。また、小笠原の場合、冬期には北西系の風が卓越することから日本列島や東アジア大陸からの陸上発生源の影響を受けて、高濃度となっていることも考えられる。定量した 14 種の炭化水素の濃度も夏に低く、冬高い傾向があることが分かった。測定した 14 種の炭化水素の OH ラジカルとの反応速度相対値 (k_{OH})、それにより求められる寿命 (日)、夏期平均濃度 (C) を表 1 に示した。これらの炭化水素の中で大気中の寿命が数か月と比較的長いエタンの場合、その濃度は夏期で約 0.6 ppb、冬期で約 2 ppb であった。これらの値は都市大気中の濃度の数分の 1 であり、また大西洋や東太平洋の船上での濃度測定結果とほぼ一致していた。したがって、このことから小笠原は日本の近傍でのバックグラウンド地域として適当であることが認められた。夏期の値ではエチレン/エタンの比は 1 以下であり、都市域でのその比 2~3 よりも小さくなっており、人為的発生源から比較的遠方に位置していることが理解される。また、海洋上の

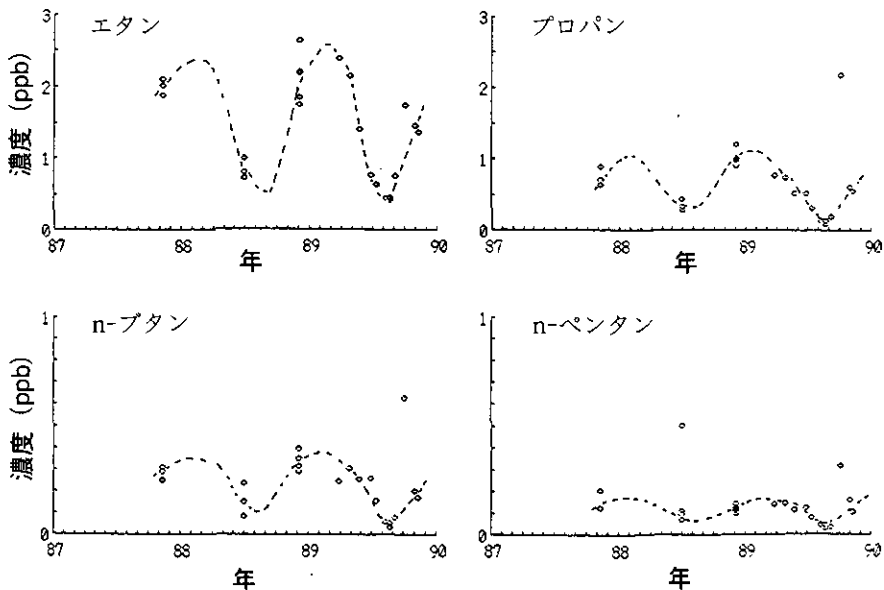


図 4 小笠原母島でのエタン (C_2H_6)、プロパン (C_3H_8)、n-ブタン (C_4H_{10})、n-ペンタン (C_5H_{12}) の各炭化水素濃度の季節変動

表1 小笠原での夏期(6~9月)の各炭化水素の濃度測定結果

炭化水素	k_{OH} (メタン相対比)	寿命 (日)	濃度 $C \pm \sigma$ (ppb)	反応寄与比 ($k_{OH} \times C$) (メタン相対値)
メタン	1	2200	1650	1
エタン	33	68	0.658 ± 0.179	0.013
プロパン	270	8.3	0.259 ± 0.134	0.042
n-ブタン	540	4.1	0.120 ± 0.072	0.039
iso-ブタン	500	4.5	0.471 ± 0.388	0.143
n-ペンタン	670	3.3	0.068 ± 0.032	0.028
iso-ペンタン	630	3.5	0.025 ± 0.011	0.010
neo-ペンタン	130	17	0.018 ± 0.010	0.001
エチレン	790	2.8	0.550 ± 0.153	0.263
プロピレン	3150	0.71	0.389 ± 0.214	0.743
1-ブテン	3650	0.61	0.127 ± 0.119	0.281
iso-ブテン	6360	0.35	0.474 ± 0.767	1.825
t-2-ブテン	6400	0.35	0.023 ± 0.008	0.089
c-2-ブテン	6730	0.33	0.022 ± 0.009	0.089
アセチレン	23	97	0.310 ± 0.180	0.004

寿命は OH 濃度を 6.5×10^8 個/cc として計算。

バックグラウンド大気中の炭化水素の濃度と分布をより反映した夏期の濃度測定結果と各炭化水素の OH ラジカルとの反応速度とから大気中の化学反応に対する寄与の見積 ($k_{OH} \times C$) を試みた。その結果、メタンの反応性を 1 とした場合にアセチレンの相対反応性は 0.004 で無視できるが、エタンからペンタンまでの 7 種のパラフィン系炭化水素は全部で約 0.3、またエチレンからブテンまでの 6 種のオレフィン系炭化水素は全部で約 3.3 となり、バックグラウンド大気中でもメタン以外の炭化水素も濃度は低いけれども大気中の反応に対してメタンと同程度に十分寄与していることが分かった。

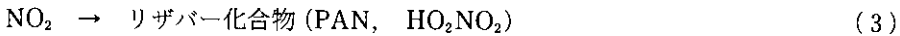
4) 温暖化の大気質への影響—光化学オキシダント

地球温暖化現象の大気質への影響の一つとして、気温上昇により光化学オキシダントが増加するか否かという問題がある。この問題に関する研究は今のところ非常に少ない。米国の EPA (環境保護庁) では EKMA モデルを用いたシミュレーションの結果に基づいて温暖化により最高オゾン濃度 ($[O_3] \max$) が $1.4 \sim 1.6\% / ^\circ C$ 上昇すると報告している。この問題に関する実験的研究は過去に Carter 等による一例 (1979) しかなく、基礎的データが不足している。今回我々は、種々の温度で光化学オゾン生成のモデル実験を行い、気温上昇の効果について、特にオゾン生成の立ち上がり、高濃度オゾンの持続の機構解明に重点を置いて、実験及びコンピュータ・シミュレーションによる検討を行った。

実験は当研究所の大型光化学チャンバーを用いて行った。光路長 221.5 m の FT-IR (フーリエ変換赤外分光計) と化学発光オゾン計及び NO_x 計によって反応物・生成物を追跡した。炭化水素 (HC) としてはプロピレンを選び、 $HC-NO_x$ -加湿空気-光照射系の実験を行った。初期条件はプロピレン ~ 2 ppm, $NO \sim 0.26$ ppm, $NO_2 \sim 0.48$ ppm である。反応温度は 20, 30, 40, $50^\circ C$

に設定した。湿度は水蒸気圧で5.8~6.5 torrとした(20°Cにおける相対湿度として33~37%に相当)。実験的に得られた種々の温度効果の原因を明らかにするために秋元ら(1981)の大気反応機構に基づき、これに最新の温度依存性反応速度定数データ等を取り入れて改訂した反応式数133, 化学種数79からなる反応モデルによるシミュレーションを行った。

図5は20, 30, 40, 50°Cの各温度におけるオゾンとPAN(パーオキシアセチルナイトレート)の濃度を、それぞれ時間に対してプロットしたものである。図から明らかなように、 $[O_3]_{max}$ の値は温度変化に対して系統的な変化を示していないので、実験の誤差を考慮すると、この濃度領域では $[O_3]_{max}$ に対する温度の効果は小さいものと考えられる。一方、オゾン生成の立ち上がり時間は温度上昇とともに短くなっている。これはオゾンの生成源となる NO_2 を生成する反応、すなわちNOの酸化反応に寄与するOH, HO_2 , RO_2 等の酸化性ラジカルが反応初期に蓄積していく過程において、全体の反応速度に温度依存性があることを示唆している。上述したオゾン生成に関与する初期の反応としては次のようなものが考えられる。



シミュレーションの結果、オゾン生成の立ち上がりの違いは過硝酸(HO_2NO_2)の生成・分解速度の温度依存性に最も強く依存していることが明らかになった。計算による HO_2NO_2 及び HO_2 の各温度における濃度を図6, 7に示す。低温においては HO_2 と NO_2 が次式、

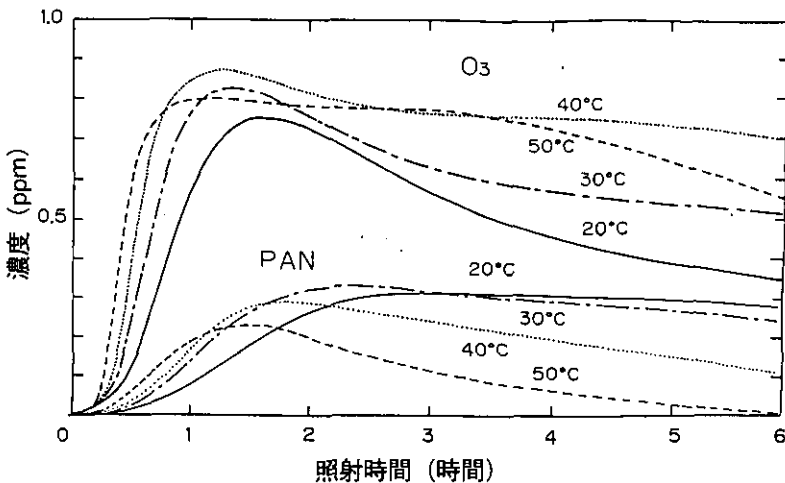


図5 20, 30, 40, 50°Cにおけるプロピレン- NO_x -加湿空気-光照射系におけるオゾン及びPANの生成

初期条件: プロピレン~2 ppm, NO ~0.26 ppm, NO_2 ~0.48 ppm, 水蒸気5.8~6.5 torr (20°Cにおける相対湿度として33~37%に相当する)。

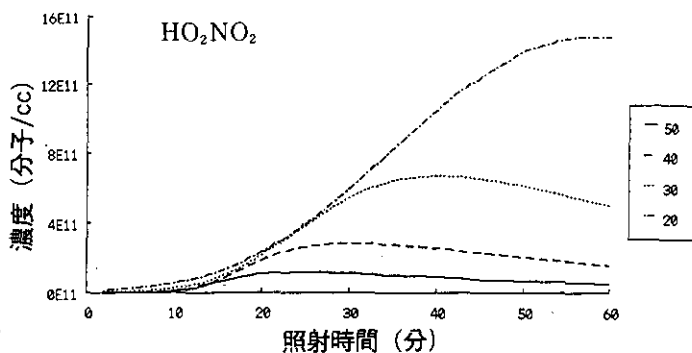


図6 シミュレーションによる20, 30, 40, 50°Cの各温度でのHO₂NO₂濃度の時間変化

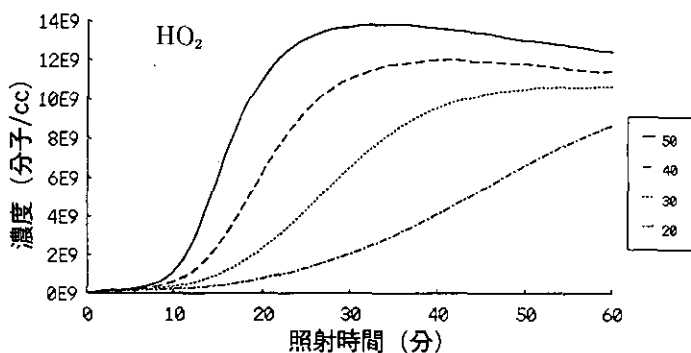
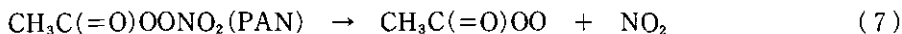


図7 シミュレーションによる20, 30, 40, 50°Cの各温度でのHO₂濃度の時間変化



に従ってHO₂NO₂として準安定にとどまっているために、オゾン生成に必要なNO₂の濃度の上昇が遅くなり、そのためオゾンの生成も遅れるものと考えられる。反応後半でのオゾン濃度の持続性にも温度の効果が顕著に現われる。すなわち、温度が低いと[O₃]maxに到達した後オゾンは急速に減少するが、温度が高いとオゾンの高濃度が持続する。これは図5に同時に示したPANの時間変化から見て、PANの分解によるものと考えられる。PANは分解すると次式の反応に従ってNO₂を生成し、(4)、(5)の反応によってオゾンを生成する。



PANの分解速度は温度に強く依存し50°Cにおける分解速度は30°Cにおけるその約15倍である。図はこの点を明りょうに示しており、高温においてはPANの熱分解によって生成するNO₂がオゾンを生成している。このことはシミュレーションの結果からも支持された。最高オゾン濃度に関しては本実験の結果から明りょうな温度依存性は認められなかったが、実大気のように炭化水素及びNO_xの発生源が広域にわたっていたり、それに海風・陸風の影響が加わった場合の検討も今後必要であろう。

以上の結果をまとめると、温暖化によって主に高濃度オゾンの早期生成と持続時間の延長により光化学オキシダントの被害を受ける地域は拡大するものと考えられる。しかし PAN の濃度は低下するので PAN の被害は減少するものと考えられ、温暖化の光化学大気汚染の被害に対する影響の評価には両者の程度を勘案する必要がある。

5) まとめと今後の問題

メタンの水田からの放出量については放出量が有機肥料の量に大きく依存することが明らかになった。本特別研究においては2倍の有機肥料(牛糞)を加えた場合、ほぼ2倍のメタンの放出が認められた。そこで平成2年度は有機肥料の量を4, 6, 10倍にしてメタンの放出量がどこまで有機肥料の量に依存して増加して行くか、また有機肥料が十分な場合メタン放出のピークがどのあたりに現われるかの確認を行う予定である。

大気反応として重要な素反応研究では、今回これまで研究のなかったヒドロキシアルキルラジカルの反応速度が決定された。今後は最も重要な RO, RO₂ ラジカルの反応速度の決定が残された課題となる。これらのラジカルは濃度は高いが検出方法に困難な点があり、研究が遅れている。平成2年度から従来と異なる新しい物理化学的手法を用いてこれらのラジカルの検出とその反応速度の測定を試みる予定である。

バックグラウンド大気の測定では今回小笠原母島が測定地として適していることが証明され、さらに低級炭化水素の太平洋上での濃度及び季節変動が解明された。炭化水素は NO_x やオゾン濃度とも強く関係していることから、今後は市販の測定器では対応できない低濃度 NO_x 計やオゾン計の開発と、それを用いた炭化水素、NO_x、オゾンの同時測定が課題となる。また CO₂、メタン、ハロカーボンはもちろん、CO や PAN その他の二次生成物のバックグラウンド値の測定も必要となる。光化学オキシダント生成の温度依存性の研究においては、温暖化の影響評価に役立つデータと解析結果が得られた。この研究では解析に化学反応シミュレーションモデルが大いに役立ったが、今後、温暖化をめぐる種々の現象の解明にはモデルの併用が不可欠である。そのためモデルの整備と運用が今後の課題となる。

注1) ハロカーボン：メタン、エタンなどのフッ素と塩素又は臭素置換体の総称で、前者はフロン後者はハロンと呼ばれている。フロンはクロロフルオロカーボンとも称され、商品名ではフレオン (Freon, デュポン社) が世界的に有名である。おもに冷媒、熱媒、溶媒あるいは噴霧剤に用いられる。これらの化合物にはコードナンバーが決められており。例えば F-11 (CCl₃F), F-113 (CCl₂FCClF₂), Halon-1211 (CF₂BrCl) などと呼ばれるが、フロンの場合には1位の数はFの数、10位はHの数+1、100位はCの数-1を示し、ハロンの場合は1位はBr, 10位はCl, 100位はF, 1000位はCの数を示している。一般に安定な化合物で、対流圏ではほとんど反応せず蓄積され地球の温暖化に影響を与え、成層圏に拡散して、オゾン層を破壊することが指摘されている。

- 注2) C_1 - C_4 の低沸点炭化水素：炭素数1~4の低級炭化水素。メタン、エタン、プロパン、ブタン、エチレン、プロピレン、ブテン等。
- 注3) ヒドロキシアルキルラジカル：飽和炭化水素（アルカン）から水素原子が一個切断したラジカルをアルキルラジカルと呼ぶ（例：メチルラジカル（ $\cdot CH_3$ ）、エチルラジカル（ $\cdot C_2H_5$ ）…等）。またアルキルラジカルの水素の一つが水酸基（ $-OH$ ）に変わったものをヒドロキシアルキルラジカルと呼ぶ（例：ヒドロキシエチルラジカル（ $\cdot CH_2-CH_2(OH)$ ）。ヒドロキシエチルラジカルはエチレンと OH ラジカルの反応（ $OH + C_2H_4$ ）で生成する付加体である。
- 注4) 酸化還元電位：酸化還元電極の平衡電極電位で溶液の酸化力や還元力の強さを表わす量。正の大きな値ほど酸化力は大きい。
- 注5) 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（両者を合わせて HO_x ラジカルという）は、大気化学反応において、反応連鎖連絡体として極めて重要である。
- 注6) ペルオキシラジカル：アルキルラジカルやヒドロキシアルキルラジカルと酸素分子の付加体。 RO_2 ラジカルとも書く。例えばメチルペルオキシラジカルはメチルラジカル（ 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7) レーザー閃光分解法：短い時間に閃光を出すレーザー光を用いて分子を瞬時に分解させる方法。ラジカル等を瞬時に高い濃度で生成するために用いる。
- 注8) 光イオン化質量分析法：質量分析方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などに優れた利点がある。
- 注9) イオン化ポテンシャル：分子から電子を一つ奪いイオン化するのに必要な最低エネルギーのこと。

平成元年度 編集委員会

委員長 後藤典弘

副委員長 相馬光之

〃 海老瀬 潜一

委員 竹内 正

〃 宇都宮 陽二郎

〃 田村 正行

〃 藤井 敏博

〃 笹野 泰弘

〃 高松 武次郎

〃 彼谷 邦光

〃 兜 真徳

〃 古川 昭雄

〃 上原 清

事務局 古田 早苗

国立公害研究所特別研究年報

平成元年度

平成2年6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 株式会社 明文社

〒103 東京都中央区日本橋蛸殻町1-24-8