

AR-1-'88

国立公害研究所 特別研究年報

昭和 62 年 度

環境庁 国立公害研究所

昭和62年度国立公害研究所特別研究年報の

発刊に当たって

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

特別研究は、前述した当研究所の学際性を十分に生かすべく、総合的なプロジェクト研究として昭和51年度から「陸上植物による大気汚染環境の評価と改善に関する基礎研究」を第1号としてスタートさせ、昭和62年度現在すでに延べ36課題を数えている。このうち24課題が昭和61年度までに終了しており、昭和62年度時点では12課題の特別研究を実施した。

このような特別研究の成果については、従来、環境研究に携わる内外の研究者向けに「国立公害研究所研究報告」として報告してきたが、国立公害研究所の発足以来14年が経過し、その研究活動がようやく研究者以外の方々からも関心をもたれるようになり、特別研究が特に現実の社会的関心の高いテーマを扱うことから、特別研究に関して専門家以外の方々向けの報告書の刊行が渴望されていた。

このため、所内においても検討を重ね、本研究所の研究活動をより詳しく紹介する意味からも、従来の「国立公害研究所年報」で報告していた特別研究の部分を発展・拡充し、一般の方々にもできるだけ分かりやすい表現をモットーに、図表をまじえ、簡潔に各々の特別研究の概況報告をすべく本報告書を刊行した次第である。手前みそ故、まだまだ分かりやすさ、表現等で至らない面が多々あると思うが、関係者の御叱正を仰ぎ、より分かりやすい特別研究年報にしていきたいと考えている。

昭和63年 8 月

国立公害研究所

所長 不破 敬一郎

目 次

1. 概 況	1
2. 特別研究報告	3
2.1 バックグラウンド地域における環境汚染物質の長期モニタリング 手法の研究(最終年度)	3
2.2 遠隔計測による環境動態の評価手法の開発に関する研究(最終年度)	8
2.3 複合大気汚染が及ぼす呼吸器系健康影響に関する総合的研究(最終年度) —局地的汚染に係る複合影響に関する実験的研究—	20
2.4 水界生態系に及ぼす有害汚染物質の影響評価に関する研究	28
2.5 環境指標を用いた都市及び自然環境等の変動予測手法開発に 関する総合解析研究	35
2.6 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	44
2.7 雲物理過程を伴う列島規模大気汚染に関する研究	50
2.8 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	60
2.9 富栄養化による内湾生態系への影響評価に関する研究	65
2.10 先端技術における化学環境の解明に関する研究(初年度)	72
2.11 地球温暖化に係わる炭素系大気微量成分のグローバル変動に 関する先導的研究(初年度)	77
2.12 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(初年度)	86

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、環境庁の附属機関として、筑波研究学園都市に設立された。本研究所は、理工学分野、生物・医学分野、さらに、人文・社会科学分野に至るまで広範囲にわたる多種多様な研究者集団で構成されており、大学の研究者や地方公害研究所等所外の専門家の参加を得て、研究を学際的に実施することを大きな特色としている。こういった学際性の上になんて、大型実験施設を駆使し、野外の現地調査研究と併せ、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36課題に達し、このうち24課題が昭和61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、顕著な汚染源による典型的な公害問題の解決が主要な課題であったが、最近においては、科学技術の進歩、産業構造、生活様式の変化等に伴い、先端産業に伴う有害化学物質による環境汚染、低濃度かつ複合的な汚染の生態系に及ぼす影響、地球的な規模での環境汚染等が主要な課題として関心を呼びつつあり、これに伴って本研究所の特別研究の内容も変わりつつある。

昭和62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課題は昭和62年度よりの新規課題、★印を付した3課題は昭和62年度をもって最終年度とする終了課題である。昭和62年度の特別研究には、本研究所の全研究職員並びに環境情報部、計測技術部及び技術部の関係行政職員のほか、所外から292名の客員研究員及び79名の共同研究員が参画した。

1. ★バックグラウンド地域における環境汚染物質の長期的モニタリング手法の研究
2. ★遠隔計測による環境動態の評価手法の開発に関する研究
3. 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
4. 水界生態系に及ぼす有害汚染物質の影響評価に関する研究
5. ★複合大気汚染が及ぼす呼吸器系健康影響に関する総合的研究
6. 環境指標を用いた都市及び自然環境等の変動予測手法開発に関する総合解析研究
7. 雲物理過程を伴う列島規模大気汚染に関する研究
8. 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
9. 富栄養化による内湾生態系への影響評価に関する研究
10. ☆先端技術における化学環境の解明に関する研究
11. ☆地球温暖化に係わる炭素系大気微量成分のグローバル変動に関する先導的研究
12. ☆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

2. 特別研究報告

2.1 バックグラウンド地域における環境汚染物質の長期モニタリング手法の研究(最終年度)

昭和58年度～昭和62年度

〔研究組織〕 計測技術部

◎松下秀鶴

大気計測研究室 安部喜也・藤井敏博・横内陽子・向井人史

水質計測研究室 ○大槻 晃・河合崇欣・古田直紀・白石寛明・野尻幸宏

生体化学計測研究室 森田昌敏・安原昭夫・岡本研作・植弘崇嗣・柴田康行

底質土壌計測研究室 ○相馬光之・相馬悠子・瀬山春彦・田中 敦

分析室 溝口次夫・功刀正行・伊藤裕康・柴田恵子

水質土壌環境部

水質環境計画研究室 相崎守弘

生物環境部

水生生物生態研究室 安野正之

客員研究員 32名, 共同研究員 10名

〔研究概要〕

全国的な、地球的規模の環境汚染をできるだけ早期に検知するためには、汚染のない、或はその影響が極めて少ない、いわゆるバックグラウンド地域における汚染物質とその濃度のベースライン値を知っておくことが基本となる。本研究の目的は、バックグラウンド値決定のための特定汚染物質の計測手法及びその長期的モニタリング手法の開発を中心とするものである。

全体計画は次のとおりである。

(1) バックグラウンド地域における各種媒質中の特定汚染物質及び生物相遷移の長期モニタリング手法に関する研究

日本列島における全国的な及び地球的規模の環境汚染変化を追跡するためには、ベースラインとして、バックグラウンド値の変動を知ることが不可欠である。本研究では過去の特別研究によりバックグラウンドモニタリング候補地として選定され、その基本的な適正(汚染物質濃度、地理的条件、開発からの長期的法的保護等)が調査・確認された摩周湖地域において、特定汚染物質(水銀、鉛、カドミウム、BHC等)の年変動パターン及び年間変動幅を明らかにする。また全国的な大気汚染物質のバックグラウンド値の決定の為、離島(隠岐島)及び山岳地域においてオゾン、大気粉じん及び粉じん中の重金属、化石燃料燃焼生成物等の年変動パターン及び年間変動幅を明らかにする。

(2) 特定汚染物質の選択的検出法及び高感度分析技術の開発

バックグラウンド地域における汚染物質の濃度は極めて低く、多くの場合、最新の分析機器を用いても濃縮操作なしに直接測定することは不可能である。本研究では、マイクロ波プラズマによる水銀の発光分析法、大気圧作動型質量分析計及び液体クロマトグラフィー共鳴ラマン分光法による有機汚染物質の選択的、高感度分析システムの開発、更にレーザー励起非共鳴原子蛍光法による鉛の高感度分析法の開発を行う。

(3) 二枚貝類による長期的沿岸海洋汚染モニタリング手法の研究

二枚貝、特にムラサキガイは世界中に広く分布し、汚染物質を濃縮することが知られているので、これを用いた世界的海洋汚染監視(Mussel Watch Programme)の重要性が指摘され検討されている。二枚貝中の汚染物質の含有量を精度良く測定する分析技術の確立は長期的モニタリングを実施する上で不可欠な要素である。本研究ではムラサキガイ等の二枚貝中の特定汚染物質の分析法を可能な限り自動化し、省力化された精度の高い分析システムを開発し、これを用いて長期的なモニタリング手法を確立する。

(4) 環境試料の長期保存によるモニタリング手法の研究

試料バンクの前提となる試料の保存性を更に検討するため、過去の特別研究で検討した保存方法について、更に試料種及び検体数を増やしてその有効性を検証する。対象としては、特に大気粉じん、生物試料等の固体試料をとりあげる。また、モニタリング法としての有効性を検討する事例研究及び試料バンク運営に付随する諸問題の検討を兼ねて、試料の系統的保存を行うモデルバンクを運転する。

【研究成果】

(1) バックグラウンド地域における各種媒質中の特定汚染物質及び生物相遷移の長期モニタリング手法の研究

1) 本年度は過去にどのような環境変化があったか推定するため底質コア試料、沈降粒子中の汚染物質の分析に重点を置いて研究した。1981～1985年の間に採取したコアサンプルについて、主として燃焼起源の発ガン性化合物ベンゾ[a]ピレンの分析を行った。表層では3～6 ppb、10 cm まで指数的に減少し、10 cm 以深では0.1 ppb 程度になった。しかしながら、このような減少曲線が最近のこの化合物の沈降量の増加によるものか、又は沈降後指数的に分解して減少したのか明らかでない。コアサンプル中に鉄で20%、マンガンで10%に及ぶ異常な両元素の濃縮層が存在することが発見され、各サンプリング地点で濃縮層の深度が必ずしも同じでないことが明らかになった。湖底表層堆積物中の鉄、マンガン量はある地点を中心に分別されており湖底湧水の存在を強く示唆した。すなわち、湧水中の2価の鉄、マンガンは十分な酸素を含む湖水と混合して、先に鉄は酸化され沈殿し、遅れてマンガンも酸化され沈殿するものと解釈される。

2) 最も効率の良いサンプリングのスケジュールを検討するために、摩周湖の水収支、湖水の混合状態、水温分布等を再調査した。湖沼を利用した長期的モニタリングシステムを開発するためには、採取する試料の代表性が十分保証されなければならない。それゆえ、湖水の水収支とその混合は最も基本的な因子である。しかし、摩周湖では夏期でも底層水温が4℃前後で、

水温からの密度推定だけでは容易に混合状態を判断できない。そのため、2年間の深度別(100 m, 150 m, 200 m)水温連続測定、春秋2回のCTD(電導度、水温、深度)測定装置による観測と採水による成分の深度変化を測定した。その結果、湖底に火山性の湧水が存在することが示唆され、これが湖水の鉛直混合に重要な役割を果たしていることが明らかになった。

3) 昨年度に引き続き、大気汚染長期モニタリングのベースライン値を得るため、隠岐島において大気粉じん、炭化水素等の濃度を測定した。また、山岳地域として八溝山及び大台が原でオゾン濃度の連続観測を行い、八甲田山、八方尾根で観測した変動パターンと類似していることを確認した。最近、成層圏のオゾン濃度の減少が、南極昭和基地、ハレーベイで観測され、また人工衛星による観測でも確認され、オゾンホールと呼ばれ注目されている。その原因として、地上の人為起源の排出成分であるフロンガス等の成層圏への侵入が、光化学反応を誘発しオゾン層を分解するとされているが、他方対流圏においてはオゾンは光化学大気汚染の主要原因物質とされ、バックグラウンド地域におけるオゾン濃度のモニタリングは成層圏からの供給、対流圏での生成、移流を考える上でますます重要になっていることが明らかになった。

(2) 特定汚染物質の選択的検出法及び高感度分析技術の開発

1) GC/API/MSによる環境汚染物質の超高感度測定法の研究

カチオンゼーション(有機化合物へのイオン付加によるイオン化)大気圧質量分析法の感度の検討を行った。一次イオンにリチウムを用いた時、 $4.0 \times 10^{-9} \text{g} \cdot \text{sec}^{-1}$ のアセトアルデヒドに対し、付加イオンの電流値が $3.2 \times 10^{-14} \text{A}$ が得られた。イオンカウンティングシステムを用いると、最小検出感度は $10^{-13} \text{g} \cdot \text{sec}^{-1}$ オーダーとなった。

2) 液体クロマトグラフィー共鳴ラマン分光法による汚染物質の高選択性分析法の研究

HPLCの検出法として種々の方法が試みられているが、共鳴ラマンスペクトルによる検出法は、移動相としての溶媒を除去する必要がなく、スペクトル測定のための制限が少ない等の利点がある上、吸収と振動スペクトルの両方で検出することになるので非常に選択性の高い検出法となる。ダブルモノクロメーターにインテンシファイヤー付マルチチャンネル検出器を取り付けPC-9801で制御できるようにした。ラマン分光器の試料室に置いたラマンセルは石英 $1 \times 1 \times 10 \text{ mm}$ の縦型フローセルで、上部からレンズで集光されたレーザー光が入射し、セルの真下に小さな反射鏡を置いてラマン光の増強に努めた。レーザーとしてアルゴンイオンレーザー(488.0 nm, 500-700 mW)を使用した場合、ラマンスペクトルの一度に測定出来る波数範囲は約 500 cm^{-1} であった。488 nm 励起で測定できるカロチンの絶対量は7 ngであることが分かった。各種のレーザーを用いることにより応用が広がることが確認できた。

3) レーザー飽和励起非共鳴原子蛍光法による鉛の高感度分析法の研究

鉛は、人為起源の汚染の良い尺度になるため、環境モニタリングを行う際の最も重要な元素の一つに挙げられている。ここで開発した方法は、カーボンカップアトマイザーを用いたレーザー原子蛍光法であり、従来の方法に比べ検出感度を一桁以上向上させることができた。したがって、より少ない試料量で鉛の分析が可能になり、抽出濃縮操作時のコンタミネーションを少なくすることができた。すなわち、カーボンカップアトマイザーを用いて、微量試量を、ある限られた空間に気化させ、そこに窒素レーザー励起の色素レーザーを照射し、その時発せら

れた蛍光(405.8 nm)を、光電子増倍管を用いて測定する方法である。約 50 fg (フェムトグラム 10^{-15} g)の検出限界を得ることができた。

(3) 二枚貝類による長期的沿岸海洋汚染モニタリング手法の研究

二枚貝のサンプリングを前年度に引き続き実施した。一部は微量元素及び人工汚染有機化合物の分析に供し、ほかは試料保存した。超高感度分析法として、ICP-質量分析法の導入により、従来困難であった重元素の測定が可能になり、貴重なデータが蓄積され始めた。一例として、図1にムラサキイガイの軽組織分解液のICP-質量スペクトルを示す。これによれば、ランタン、セリウム、ネメオジウム、サマリウム、ユウロピウム、ガドリウム、テルビウム、ジスプロシウム、ホルミウム、エルビウム、ツリウム、イッテルビウム、ルテチウム等、従来環境における存在量、挙動はほとんど知られていない。

有機塩素系化合物としては、PCBで $0.2 \sim 8.3 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$ 、p, p, -DDEで $0.1 \sim 3.7 \text{ ng}$ (ナノグラム, 10^{-9} g) $\cdot \text{g}^{-1}$ 、クロルデンで n.d. $\sim 1.8 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$ が得られた。北海道から沖縄までの全日本列島の沿岸を網羅するためには、高緯度地域でムラサキイガイ、低緯度地域でオハグログガキの二系統を用いるのが適当であることが分かった。

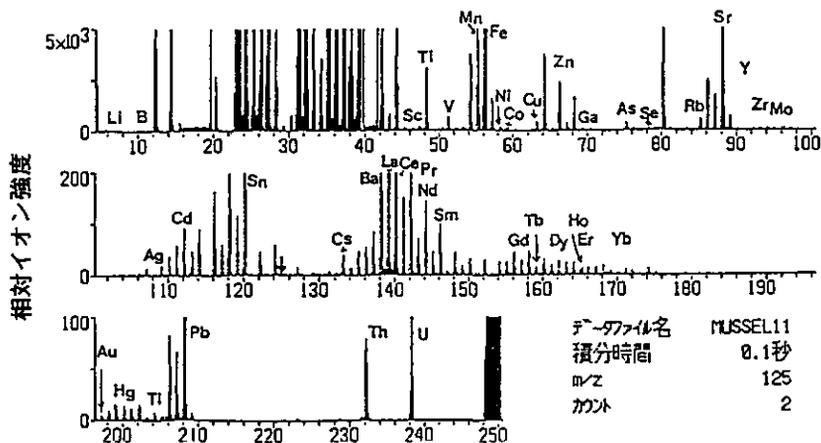


図1 ムラサキイガイ軽組織分解液のICP質量スペクトル

(4) 環境試料の長期保存によるモニタリング手法の研究

1) 東京都内でハイボリュウムサンプラーを用いて石英フィルター上に採取した大気粉じん試料を、フィルターごと、同一のベンゾ[a]ピレン濃度をもつ保存用試料片に分割し、その数個づつを各種の温度(20℃, -20℃)及び雰囲気(空気, アルゴン)条件下で保存した保存実験試料を引き続き一定期間ごとに取りだしベンゾ[a]ピレン濃度の変化を追跡した。図2はベンゾ[a]ピレンの保存性試験結果を示す。4年間の結果では、20℃及び-20℃いずれも保存開始後初期に濃度の減少が見られた。しかし、-20℃の場合は、その後ほぼ一定値を示し、4年後も $10 \pm 4\%$ 程度の減少であった。一方、20℃の場合は、その後も徐々に減少し、4年間の減少幅は $30 \pm 4\%$ であった。空気とアルゴンの差は余り明りょうでなかった。-20℃における保存は、初期の変化の理由は明確ではないが、ほぼ90%と一定値となることから実際的な方法としては有効なものと考えられる。生物試料の保存性を検討するために作製したムラ

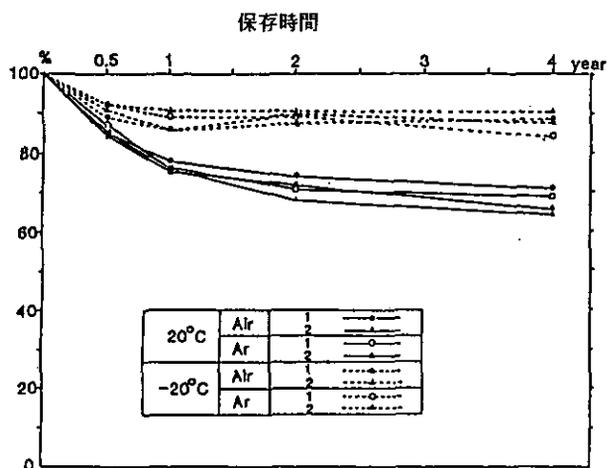


図2 粉じん中のベンゾ[a]ピレンの各種条件下での保存性

サキイガイのホモジネイトに各種化学物質を加えた保存試料については引き続き保存を続けている。

2) 大気粉じん及び二枚貝試料について組織的保存を行うと共に、環境庁生物モニタリングで行った魚貝類その他の試料もバンク中に入れた。保存における実際的な問題点として、停電と地震について経験をしたが、2～3時間の停電及び震度4程度の地震ならば特に問題はないことが確かめられた。試料の管理、保存空間の容量、試料保存の目的、有効性を考慮した試料の選択方法が重要な研究課題であることが再確認された。

2.2 遠隔計測による環境動態の評価手法の開発に関する研究(最終年度)

昭和59年度～昭和62年度

〔研究組織〕 大気環境部

◎秋元 肇

大気物理研究室 竹内延夫・○笹野泰弘・中根英昭・杉本伸夫・林田佐智子

エアロゾル研究室 村野健太郎

環境情報部

情報システム室 大井 紘・宮崎忠国

情報調査室 宇都宮陽二郎・新藤純子・横田達也

総合解析部

地域計画研究室 清水 浩

総合評価研究室 ○安岡善文・飯倉善和

計測技術部

分析室 溝口次夫・刃刀正行

技術部

理工施設管理室 松井一郎

客員研究員 31名, 共同研究員 1名

〔研究概要〕

今日、特に注目されている大気汚染の広域化、湖沼等の富栄養化の進行、緑の減少など直面する環境問題は、いずれも広域化、多様化の傾向を有することを特徴としている。これらの問題解決のためには環境を広域的に把握するとともに、その時間的変化を含めた環境の動態を精度よく包括的にとらえることが重要であるが、その手法の開発は必ずしも十分ではなく、その対応が遅れている状況にある。

環境に関する種々の計測技術の中で、遠隔計測^{注1)}は広域的な広がりをもつ面又は空間を対象にするほか、同時性、連続性、普遍性等、原理的に優れた点が多く、直接測定では困難な広域、高分解能の情報が時間的に連続して得られることから、大きな期待が寄せられてきた。昭和55～58年度に実施した特別研究においては、こうした遠隔計測の特徴を十分踏まえながら、大型レーザーレーダー、差分吸収レーザーレーダー等による大気観測データ及び人工衛星、航空機に搭載した多重分光走査装置(MSS)から得られる地表面、水面等の遠隔計測データのパターン情報解析を中心とする各種の手法の開発検討を行った。その結果、先に述べたような遠隔計測の特長を生かした、環境の把握が可能との結果が得られた。

そこで、さらにこれらの技術を発展させ、環境動態、すなわち、時間的変化を追跡することにより環境汚染の発生、移流、拡散等に係る構造をとらえるために有効な計測技術とパターン情報処理技術を確立することを目的とした特別研究を昭和59年度より4か年計画で実施してきた。この特別研究では、既設のレーザーレーダー等の大型施設を活用するとともに、大気汚染等に係るより精緻で、かつ、大量の情報を得るための装置の開発とこれに対応する新たな情報処理システ

ム技術の確立を図り、また、人工衛星、航空機等から得られる画像データを用いて、水質汚濁、植生等の環境動態を解析、評価するためのパターン情報処理システム技術の確立を図ってきた。

これらのねらいに沿って、本研究では、エアロゾル、NO₂による大気汚染、湖沼等の富栄養化、植生の変化等に係る具体的な事例に基づき、遠隔計測手法における各種検討課題に関する研究を進めるとともに、動態把握による環境の評価手法に関する基礎的検討を行ってきた。昭和62年度は本研究の最終年度であることから、各研究ごとにこれまでの成果を集大成する形でまとめの研究を行ってきた。各サブテーマの概要は以下のとおりである。

(1) 環境動態の把握のための遠隔計測装置の開発に関する研究

十分に高い精密性を有するデータを得るためには、より高い精度の情報が効率よく得られる装置の開発と高い精度を長時間にわたり安定して維持できる装置又は部品の開発導入が必須である。このため、野外連続観測のための高信頼性レーザー光発生装置の開発、高分解能レーザーレーダーの実用化、計測車搭載レーザーレーダーのレーザー光の多波長化、差分吸収レーザーレーダー装置の性能の拡大強化を図ってきた。

高分解レーザーレーダーの開発に関し、高分解色素レーザーを光源とし、セシウム原子フィルターを分光素子とするレーザーレーダーシステムを試作した。これを実際の大气観測に適用しエアロゾルによるミー散乱と空気分子によるレイリー散乱の強度比の鉛直分布を測定した。これより、高分解レーザーレーダーの実用化についてのめどをつけることができた。差分吸収レーザーレーダー装置による二酸化窒素鉛直分布の測定については、光電子増倍管の利得を時間的に制御する装置を製作し、地上視程の悪い状況でも信号誘導雑音の少ない測定を可能にした。

(2) 遠隔計測技術に係る大気の光学的性質とその時間・空間変動特性に関する研究

人工衛星、航空機による遠隔計測(MSS)においては、エアロゾルを中心とする大気中の各種成分による電磁波の吸収・散乱等の光学的な効果(大気効果)の影響を受ける。測定データの定量化を行うため、大型レーザーレーダー等により得られるデータに基づいてエアロゾルの光学的性質とその時間、空間変動特性を解明するとともに、大気の物理光学モデル等を用いた精度向上のための大気効果補正手法の検討を行った。

エアロゾルの鉛直分布に関する大型レーザーレーダーの通年観測データを基に、その季節変化、日変化を明らかにした。これによれば、晴れた日の日中の対流圏エアロゾル鉛直分布は、混合層(大気境界層)の高度と、層内のエアロゾル濃度によって特徴づけられる。混合層より上層では春季の黄砂飛来時を除くとエアロゾル濃度は一般に低い。黄砂飛来時には、上部対流圏のエアロゾル濃度が高くなることが多い。黄砂の同定には、いくつかの直接サンプリング手法及び分析手法を組み合わせて用い、その有効性について検討した。

大型レーザーレーダーを用いたエアロゾル空間分布パターンに関し、これまでに蓄積してきた測定データを総合的に解析した。これによれば、エアロゾルの水平分布パターンにおける最も顕著な特徴は、数百メートルのスケールでのエアロゾル分布が見られることで、固定発生源からの排出によるものと考えられる。数分程度から数時間程度までの時間スケールに応じて、数百メートルから数キロメートル以上の空間スケールでの変化が見いだされる。

MSS計測に係る大気効果補正手法の開発に関しては、日本初の地球観測衛星MOS-1の性能検証実験の一環として、MOS-1データ、レーザーレーダーデータ、地上でのスペクトル計測データを取得し、大気効果評価のための大気パラメータの推定を行い、方法の比較・検証を行った。

(3) 環境動態の把握のためのパターン情報処理に関する研究

環境動態の把握のためには、多時期の画像データを重ね合わせて比較すること、さらにその時間的変化を解析し、モデル化することが不可欠である。そのため、各環境項目について多重分光データ(MSS)によるパターン計測の総合化を図るとともに、動的パターン解析のための情報処理手法及びシステムの開発を行った。

MSS計測データを用いた水質分布パターン、植生生態パターン、土壌水分分布パターンの計測手法のそれぞれについて、これまでの研究成果を踏まえた取りまとめを行い、今後より一層の高精度測定を行うための方策を検討した。特に、動的パターンの解析に当たって、時期・条件の異なる計測データから変化量を抽出する手法を新たに開発した。この手法では大気的光学モデルに基づいた地表面反射特性(スペクトル特性)類似度を導入し、衛星画像からの大気特性等による影響の少ない変化領域の抽出を可能にした。

(4) 動態把握による環境の評価手法に関する研究

大型レーザーレーダー、人工衛星等の遠隔計測手法によって得られる各種項目の分布パターンとそれらの時間的変化を環境汚染の発生、移流、拡散等との関連において解析した。また、大気環境の動態把握のための道具のひとつとして、上空の風向・風速を遠隔的に測定する手法を新たに開発した。これは、ミー散乱レーザーレーダーを基礎とするもので、エアロゾル分布パターンの移動時間を時間相関計算から求めるものである。

さらに、大気汚染常時監視局の9年間に及ぶSO₂、NO₂、粒子状物質測定データを用いた季節ごとの濃度分布パターン、地点間の相関の経年変化を調べ、また、主成分分析の手法により変化の構造を明らかにすることで大気の変動特性を考慮した観測系の設計のための解析を行った。

【研究成果】

今年度の主な成果は次のとおりである。

(1) 多重分光画像の効率的な分類手法の開発

遠隔計測による多重分光画像(MSS)を用いた土地被覆分類(対象の分光特性スペクトルの相違から被覆状態のカテゴリ分類を行う方法)では、分類の精度が重要であることはいうまでもないが、多量のデータが処理の対象となるため計算機による自動識別が不可欠であり、実用的には処理の効率が大きな問題となる。自動識別の方法としては、与えられたデータの尤度(確率密度)をカテゴリごとに計算し、それが最大となるカテゴリを選択する方法(最尤法MLD)が最もよく用いられる。しかし、最尤法では変数の数の2乗に比例した計算時間を要するため、カテゴリの統計的性質(共分散行列)が等しいことを仮定した近似的な方法(フィッシャーの線形判別関数FLD)が使われることもある。FLDの場合には計算時間は変数の数に比例する。さらに、処理の効率の観点からはあらかじめ作られた分類規則にそってデータの分類を決める方法も検討されている(Binary Decision Tree(BDT))。しかし、これまでに提案された手法はいずれも分類の精度と処理の効率を同時に満足することができなかった。

本研究では、線形関数でしかもカテゴリごとの共分散行列の違いを分類に反映させる方法(最良線形判別関数BLD)のリモートセンシングデータへの適用を検討した。

図1はBLDを用いた4つのカテゴリの分類を変数平面上に示した例である。図の中の白抜き領域は分類が不能となった領域で、これはBLDでは一般に分類に際してカテゴリの順位を一意に決めることができないためである。このため、カテゴリの組み合わせに対して一対比

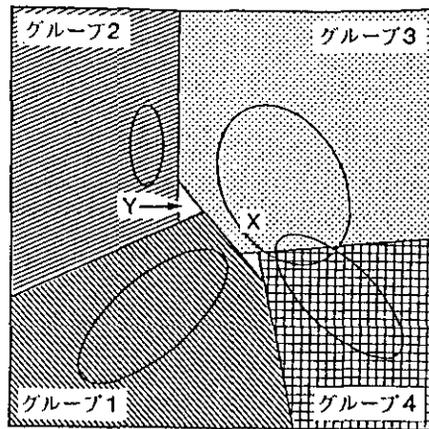


図1 最良線形判別関数による4群2変数の分類

較が必要となり、カテゴリーの数が多い場合、計算時間が問題となる。

この問題を解決するため、BLDをBDTの決定規則に利用する方法を開発した。開発した方法で得られた分岐木と変数平面上的分類結果を図2に示した。図1の場合と分類不能の領域を除いて一致している。一般のBinary Decision Treeではカテゴリーは2つの分岐のいずれかの方向に指定されるが、ここでは双方向に進むことを許したため分類の精度が改善されている。

表1は、開発した方法を含めた自動分類の手法の比較を行った結果である。対象とした画像は、LND SAT 5号が1987年2月15日に収集したプケ島(タイ国)のMSSデータ(バンド4, 5, 6の3バンド)であり、プケ島を中心とした512×512の領域に対して分類を行った。計算時間は6カテゴリーに分類したときに使用した大型計算機のCPU使用時間である。この結果、BLDを分岐規則として利用したBDTは情報の利用度及び計算の効率という2つの側面を同時に満足することが示された。

(2) 遠隔計測による土地被覆変化の抽出

都市近郊における居住環境の改変、熱帯地域における樹林の減少など、環境の動態に関する問題は多い。これらの問題を解決するためには、まず、その変化の状況を計測、評価することが必要である。本研究では、人工衛星等を利用した遠隔計測手法により土地被覆の変化を抽出する手法の開発を行った。

遠隔計測データから土地被覆の変化を抽出するためには、時期の異なった複数のマルチスペクトル画像データを重ね合わせて比較し、各対象地点のスペクトル特性(分光特性:色の違い)の変化を評価しなければならない。しかしながら、遠隔計測データは、地表面でのスペクトル特性のみならず、途中の大気の状態、太陽照度等により大きく変化するため、対象の土地被覆の変化を調べるためには、これらの影響を考慮することが不可欠である。従来遠隔計測データからの土地被覆変化の抽出では、2時期の画像の間の濃度差に基づく方法(差演算)や、濃度ベクトルの角度差に基づく方法(内積演算)などが利用されてきたが、これらの方法では大気等の影響を除去することが困難であった。

本研究では、大気状況等が変化しても、対象のスペクトル波形の特徴そのものは大きく変わらないことに着目し、スペクトル波形の特徴類似度から土地被覆の変化を抽出する手法を開発した。

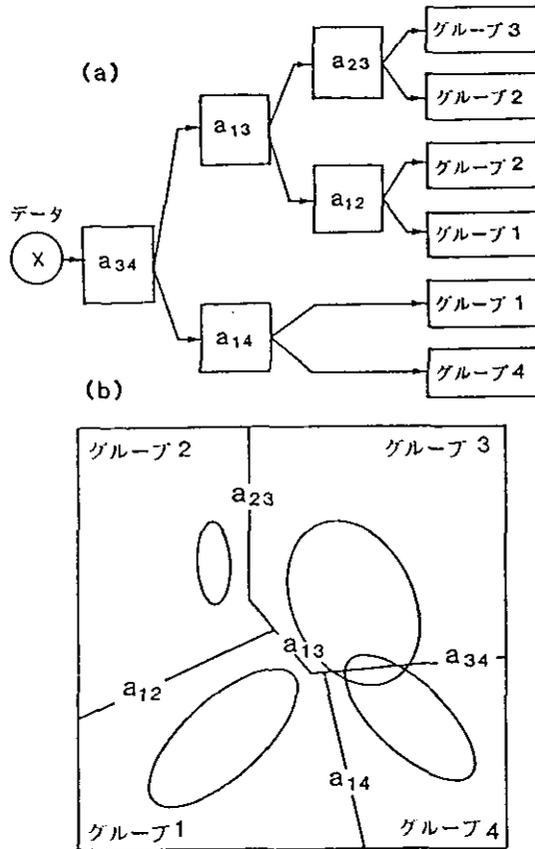


図2 最良線形判別関数をBDTの決定規則として利用した分類

表1 自動分類手法の比較

自動分類手法	情報の利用度	計算の効率 (計算時間 sec)
Binary Decision Tree BDT	可	優 (3.2)
フィッシャーの線形判別関数	可	良 (8.5)
最尤法に基づく2次判別関数	優	可 (27.4)
最良線形判別関数 BLDF	優	可 (22.6)
BLDFを用いたBDT	優	良 (11.5)

すなわち2つの異なった時期の同一地点におけるスペクトル波形を $\underline{L}_1(\lambda) = \{L_1(\lambda_1), L_1(\lambda_2), \dots, L_1(\lambda_n)\}$ 及び $\underline{L}_2(\lambda) = \{L_2(\lambda_1), L_2(\lambda_2), \dots, L_2(\lambda_n)\}$ とする時, そのスペクトル類似度を $\underline{L}_1(\lambda)$ 及び $\underline{L}_2(\lambda)$ の相関係数

$$D = \langle \underline{L}_1(\lambda), \underline{L}_2(\lambda) \rangle$$

により定義する。スペクトル類似度Dは, $-1.0 \leq D \leq 1.0$ の値をとり, 2つの波形 $\underline{L}_1(\lambda)$, $\underline{L}_2(\lambda)$ の特徴が変化しておらず, 相関関係に変化がない時には $D = 1.0$ となる。それ以外の場合,

すなわち、地表面の状況の変化によりスペクトル波形が変化した場合には $D < 1.0$ となる。したがって、各地点の2時期のスペクトル波形に対して類似度 D を計算することにより、変化領域を抽出することができる。

図3には一例として LANDSAT MSS 画像を用いた土地被覆変化抽出例を示した。図3(a)及び図3(b)はタイ南部ブケ島周辺の LANDSAT MSS 画像でそれぞれ1986年1月23日及び1987年2月15日に得られたものである。図3(c)はスペクトル類似度による変化領域抽出画像で、白い部分が変わ化した領域(類似度の低い点)を示している。本方式は、大気状態の変動によっても地表面反射特性の波形の特徴は大きく変化しないことに着目して地表面の変化を抽出するもので、大気特性等による影響の少ない変化領域抽出手法といえる。

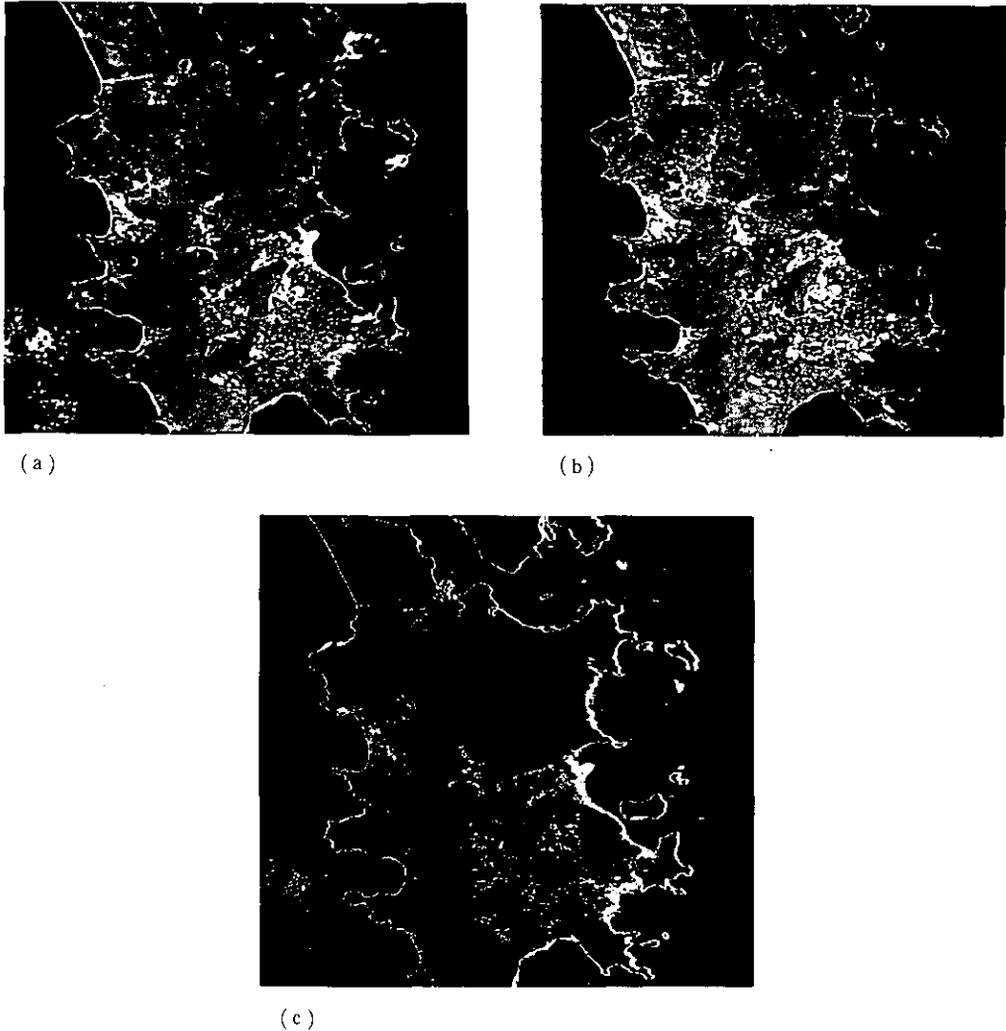


図3 LANDSAT MSS 画像を利用した土地被覆変化領域の抽出例
(a), (b)1986年1月23日及び1987年2月15日のタイブケ島における MSS 画像
(c) (a), (b)の MSS 画像より抽出された変化領域

(3) 高分解レーザーレーダーの開発

高分解レーザーレーダーはレーザー光の大気による散乱スペクトルを高分解で測定することにより、散乱比や視程の精密測定や気温の遠隔測定を行う手法である。本研究ではエキシマーレーザー(エキシマーとは励起された状態のみで分子になるような分子で、高効率のレーザー作用をする)により励起した高分解の色素レーザー(有機色素を用いたレーザーで、近紫外から近赤外の領域で波長可変であるという特徴を持つ)を光源とし、蒸気状の金属原子を利用したフィルターを分光素子とする高分解レーザーレーダーの開発を行った。蒸気状の金属原子は非常に鋭い吸収線を持ち、これをフィルターとして用いることにより、高分解の分光が可能となる。高分解能の分光素子として金属原子フィルターを用いる方法は干渉計などの分光装置を用いる方法に比べて光学システムとして簡単で信頼性が高く、分光素子としての性能においても優れている。また、フィルターのスペクトル幅が原子蒸気のセルの温度により自由に制御できるという利点も持っている。

本研究では金属原子としてセシウム原子を選んで原子フィルターを試作し、そのスペクトル特性を調べた。次にこの原子フィルターを受信光学系に分光素子として組込んだレーザーレーダーにより大気散乱のスペクトルを高分解能で測定する手法を開発した。図4に製作した装置のブロック図を示す。さらに最終年度では製作した装置による実際の大气で散乱したスペクトルの測定を行った。

図5に実測したスペクトルの一例を示す。図中の参照スペクトルはレーザー光を直接原子フィルターに透過させたときに観測されるスペクトルで、信号スペクトルは大気散乱光を原子フィルターに透過させて得られるスペクトルである。これらのふたつのスペクトルを比較解析することにより大気散乱のスペクトルが導出される。測定実験では大気散乱スペクトルのうちのアエロゾ

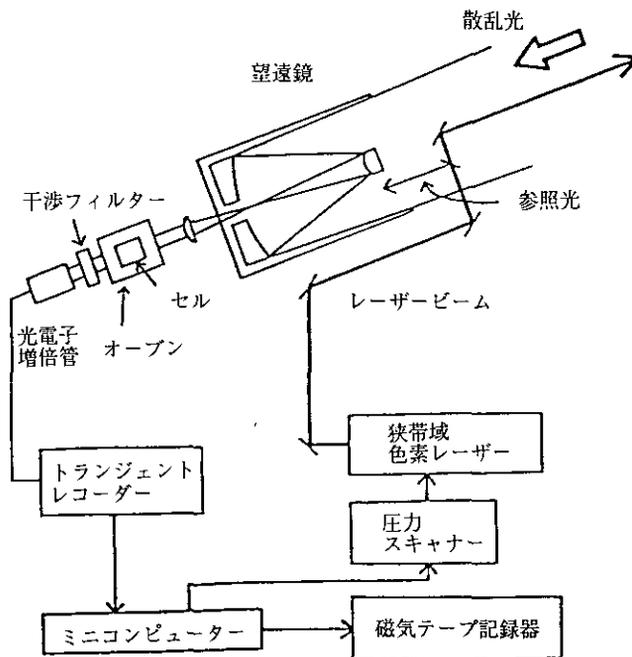


図4 高分解レーザーレーダーのブロック図

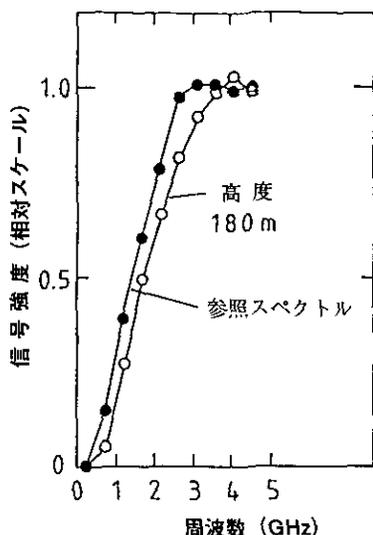


図5 高分解レーザーレーダーで測定されたスペクトル

ルによる散乱成分(ミー散乱)と空気分子による散乱成分(レイリー散乱)の強度比(散乱比)の鉛直分布を得た。散乱比の測定はエアロゾルの光学的性質の定量的な把握や視程の高精度の観測に必要であり、高分解レーザーレーダーはこれらの観測の非常に有効な手段となる。

一方、高分解レーザーレーダーにより得られた大気散乱スペクトルを詳細に解析することにより気温の遠隔計測を行うことが可能である。本研究では高分解レーザーレーダーによる気温測定について計算機によるシミュレーションを行い、差分吸収レーザーレーダーなど他の方法との比較を行った。その結果、高分解レーザーレーダーによる気温測定が非常に有効であることが確認された。

(4) 環境濃度 NO₂ 測定用差分吸収レーザーレーダーの開発

差分吸収レーザーレーダー(英文名を略して DIAL と呼ばれる)は、ミー散乱レーザーレーダーとガスの吸収測定を組み合わせた方法で、汚染気体の空間分布を遠隔計測する最も有効な手法の一つである。差分吸収レーザーレーダーの原理を図6に示す。差分吸収レーザーレーダーはガスの吸収の大きい波長と小さい波長の2波長を用いてレーザーレーダー信号を記録する。このとき、ガスの吸収の大きい波長のレーザーレーダー信号は吸収の少ない波長に比べて早く減衰する。ある距離までの減衰の比を取るによりその距離までのガスによる吸収が分かり、これをさらに距離で微分すれば各距離におけるガスの濃度が得られる。

本研究では都市域における環境濃度の NO₂ の測定を目的とする差分吸収レーザーレーダーの製作を行い観測実験を行った。昭和61年度に行った NO_x 計との比較による検証実験の結果を図7に示す。NO_x 計による測定では大型の係留気球を用いて上空の大気を地上までテフロンチューブで引き込む方法を用いた。図7の例では200mの高度における NO₂ 濃度が測定されている。一方、DIALにより測定された NO₂ 濃度は150mから250mまでの平均値である。両者の測定結果はよく一致している。

図8は埼玉県浦和市において行った NO₂ の鉛直分布の日変化の観測の一例である。この図では NO₂ 濃度が等値線表示されている。図中の数値は ppb 単位で表した NO₂ 濃度である。高高度

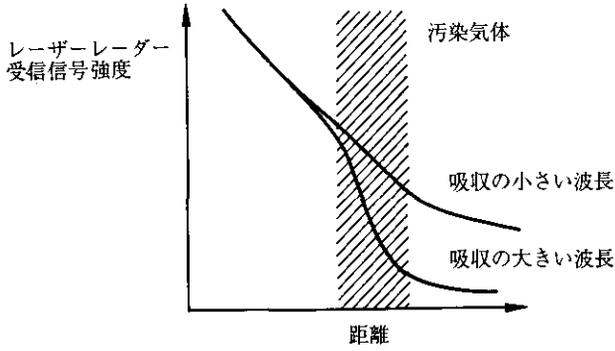
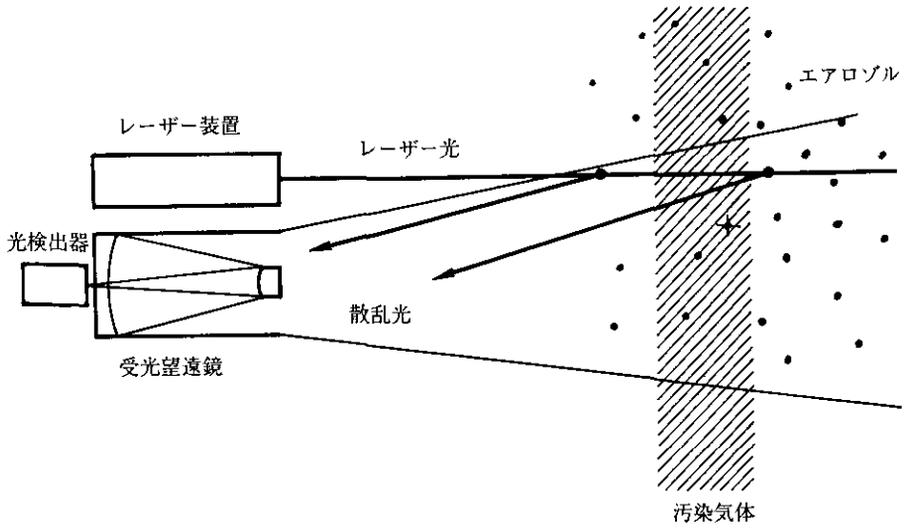


図6 差分吸収レーザーレーダーの原理図

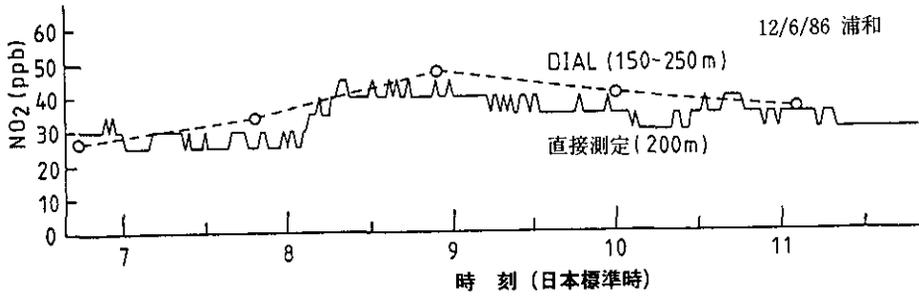


図7 差分吸収レーザーレーダーとNO_x計による測定の比較

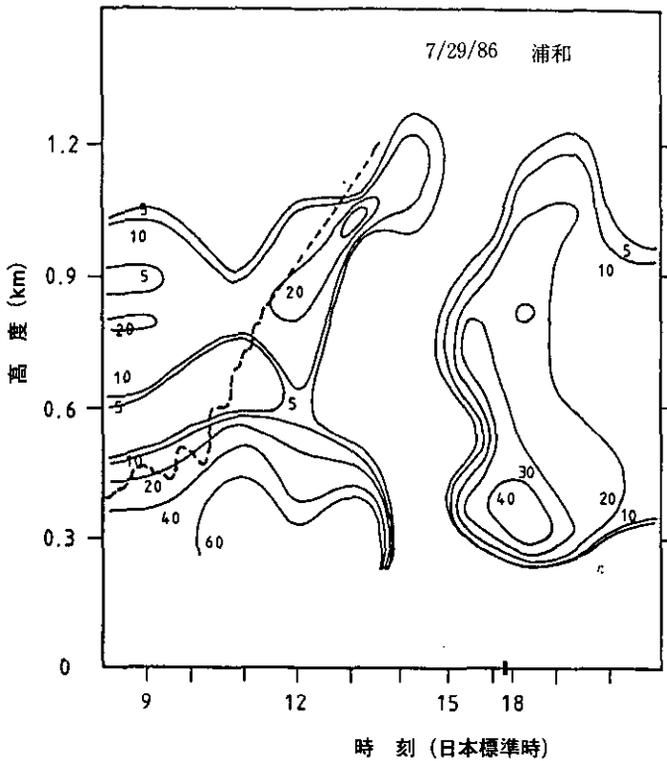


図8 NO₂濃度鉛直分布の日変化(数値は ppb)

ほど受信信号強度が小さく信号対雑音比が悪くなる。この解析ではどの高度においても同じ信号対雑音比でNO₂濃度が得られるように高度分解能を上空に行くほど粗くっており、高度分解能は、高度200mで100m、高度1.2kmにおいて300mである。図中に破線で示したのは、吸収の少ない波長の信号から得られたエアロゾル分布から推定した大気混合層の高度である。大気混合層の構造とNO₂の分布の間に相関が見られる。

最終年度は、測定精度をさらに改善するために光電子増倍管の利得を時間的に制御する装置を試作し試験を行った。これにより地上の視程の悪い状況下においても光電子増倍管の信号誘導雑音の影響をあまり受けなくて低高度から測定出来るように改善された。

差分吸収レーザーレーダーはNO₂の高度分布を地上から遠隔的に、時間的に連続して測定することができる。また、差分吸収レーザーレーダーでは、エアロゾルの分布を同時に測定し混合層などの大気の構造を同時に把握することができる。これらのデータを併せて解析することで種々の汚染現象の把握が可能となると期待される。また、差分吸収レーザーレーダーによるNO₂の観測と風向風速の観測を同時に行うことにより観測地点上空のNO₂の流量を推定することも可能となる。

(5) 風向風速測定用時間相関レーザーレーダーの開発

エアロゾルの分布パターンの移動をとらえることにより上空の風向風速を測定するレーザーレーダーを製作し観測実験を行った。エアロゾルの分布パターンは風と同じ速度で移動すると考えられ、この移動速度を計測することで風向風速が求められる。エアロゾルの分布の移動をとら

えるために、製作したレーザーレーダーでは図9に示すように各高度について円周上の6つの点でエアロゾル濃度の時間変化を測定し、各点の時間変化のパターンを比較する方法を用いた(時間相関法)。

6つの点でエアロゾル濃度を測定するために図10に示す装置を用いて6つの方向のレーザーレーダー信号を測定する。各方向の測定は順番に切替えて行う。測定されたレーザーレーダーの

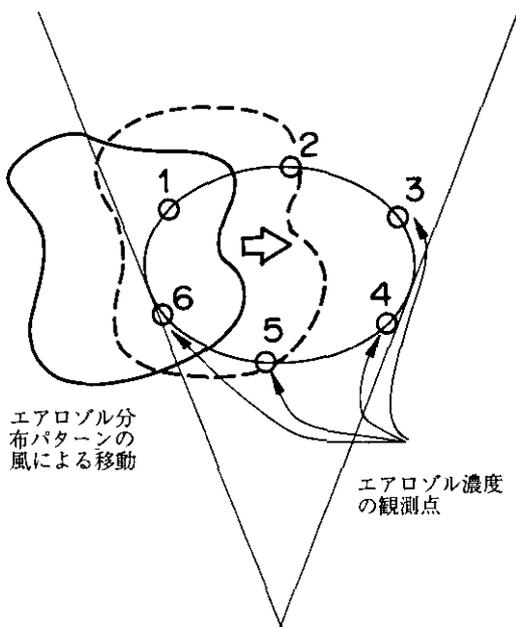


図9 時間相関レーザーレーダーの原理図

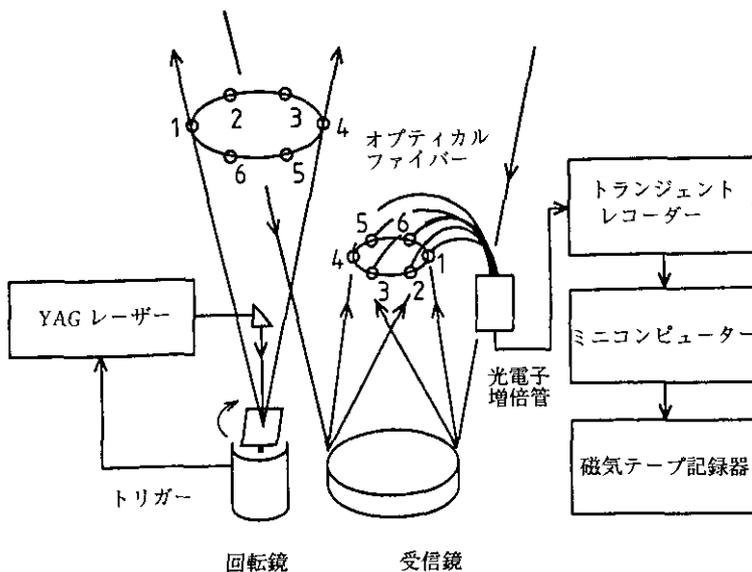


図10 時間相関レーザーレーダーの構成ブロック図

高度ごとの信号から、その高度の6つの測定点のエアロゾルの時間変化が得られる。これを解析することで各高度の風向風速が得られる。

この方法を用いて得られた風向風速の鉛直分布の観測例を図11に示す。図11中には同時に行われたパイバル(一定速度で上昇するよう浮力調整した小気球を経緯儀を用いて追跡し、その方位角、高度角の変化から風向・風速を求める方法)による観測結果も示した。レーザーレーダーによる観測値はパイバルによる観測値とほぼ一致した。パイバルによる測定値が風向風速の瞬間値をとらえていることを考慮するとこの一致は良いと考えられる。

本研究により時間相関レーザーレーダーが風向風速の鉛直分布の測定に有効であることが実験的に示された。また、風向風速の導出手法が確立され自動的なデータ処理の手法が開発された。これにより、時間相関レーザーレーダーを用いて連続測定を自動的に行うことが可能となる。

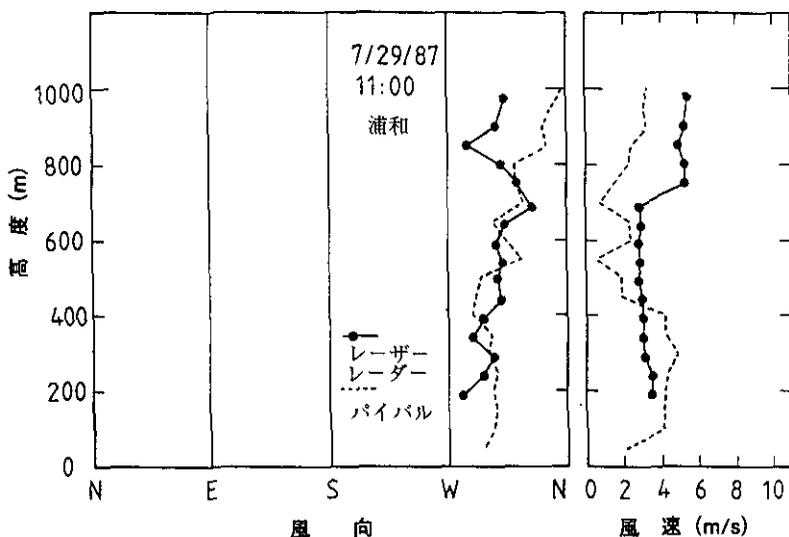


図11 風向風速鉛直分布の測定結果

注1) 遠隔計測：測定対象により電磁波が散乱、吸収、反射、放射される時の波長依存特性等を利用して、非接触で対象の検出とその同定を行う技術であり、アクティブ(能動型)とパッシブ(受動型)の二つに大別することができる。前者は、こちらから出した電磁波が測定対象によって散乱、吸収、反射される時の特性を検出するもので、例えばマイクロ波レーダー、レーザーレーダーなどがこの範ちゅうに入る。一方、パッシブな遠隔計測では、太陽光の地表面反射や、地表面あるいは大気からの電磁波の放射を分光して画像としてとらえ、その分光特性から地表面状態の情報を得ようとするもので、航空機あるいは衛星搭載の多重分光走査装置等が代表的である。

2.3 複合大気汚染が及ぼす呼吸器系健康影響に 関する総合的研究(最終年度) —局地的汚染に係る複合影響に関する実験的研究—

昭和60年度—昭和62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・中野篤浩・三森文行・松本 理

環境疫学研究室 小野雅司・金子 勇・田村憲治

人類生態研究室 鈴木和夫・遠山千春・青木康展・杉平直子・平野靖史郎

環境心理研究室 兜 真徳・相本篤子

環境生理部

環境病理研究室 藤巻秀和・米元純三・河越昭子

環境生化学研究室 ○三浦 卓・持立克身

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

計測技術部

底質土壌研究室 相馬悠子

分 析 室 切刀正行

大気環境部

大気計画研究室 植田洋匡・宮崎 武

エアロゾル研究室 金谷 健

技 術 部

動物施設研究室 高橋 弘・高橋慎司・清水 明・山本昭二・伊藤勇三

客員研究員 20名, 共同研究員 1名

〔研究概要〕

昭和62年度の本特別研究は、昭和60、61年度の「呼吸器系健康影響に係る長期潜在リスク評価手法に関する研究」に「局地的汚染に係る複合影響に関する実験的研究」の課題が加わったものとなった。両者共に、呼吸器系健康影響に関する研究であるが、前者は屋内の浮遊粒子状物質(SPM)を対象とした調査及び粒子状物質暴露に関する実験研究であり、後者はより基礎的な知見を求めた動物暴露実験研究である。

昨今の的大気環境汚染は、主として自動車排ガスにより、汚染は広域化、低濃度レベル化し、しかも汚染質は多様化し、一方、住民の生活環境に対する意識そして健康観も、過去のそれとは変化している。また、環境汚染との関連を懸念される疾患も、肺がん、アレルギー疾患などの遅発性疾患が目されてきた。

このような状況に合せて、調査の対象とする人口集団を、幹線道路沿道住民として、その家屋内の大気環境状態を測定し、また、家屋外の大気環境の寄与の割合を検討し、さらに、家屋内汚染の特徴を検討し、併せてその住民の健康影響について症状調査を行った。一方、環境中の

SPM の成分の知見を得るとともに、体内摂取との関連をみるためにヒトの肺内蓄積物の成分を検討した。さらに一方、ヒトの体内に摂取されていることが分かった物質の生体への作用に関しては、動物実験により検討した。

〔研究成果〕

(1) 家屋内浮遊粒子状物質に関する調査研究

1) 沿道からの距離と屋内 SPM 及び屋内外 NO₂ 濃度

東京都葛飾区内水戸街道及び環状七号線沿家屋内外における NO₂ 濃度及び屋内 SPM 濃度の測定 (200世帯, 61年3月, 7月, 10月, 62年2月, 5月) を行うとともに、対象地区内での一般大気環境測定データ並びに調査対象地域内の交通量に関する資料の収集等を行った。

その結果、屋内の SPM のうち粒径 2.5 μm 以下の粒子濃度と NO₂ 濃度は、それぞれ家庭内の喫煙と開放型ストーブの使用による影響が著しく高いことが分かった。また屋内の粒径 2.5 μm 以下の粒子濃度及び屋内の NO₂ 濃度は、屋内に汚染質発生源 (喫煙, 開放型ストーブ) がいない場合には、他の家屋構造に比べて木造家屋世帯の濃度が高く、逆に屋内に汚染質発生源がある場合には、外部との遮断度の高い鉄筋鉄骨家屋世帯の濃度が高かった。

家庭内喫煙と開放型ストーブ使用の影響を除いて、道路からの距離別の各汚染質濃度をみると、屋内の SPM 濃度は、1, 2 回目では道路からの距離によって緩やかな減衰がみられたが、他の 3 回は認められなかった。しかし、NO₂ 濃度は屋内外共に道路端に近い地域ほど高濃度を示した (図 1)。

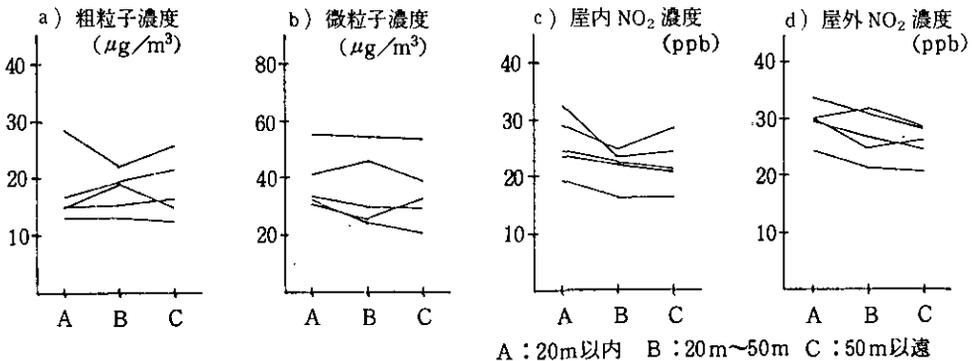


図 1 道路からの距離別粒子状物質濃度, NO₂ 濃度

2) 家屋内粒子状物質濃度の地域差及び季節差と粒子状物質組成元素濃度及び汚染指標元素濃度の比較

東京都内の調査地点としては環状七号線 (板橋区, 北区) 及び首都高速道 (江東区) 沿道の 3 地区の家屋各々 10 戸, 人の多く集まる屋内としてデパート (池袋) 内売り場, 合計 10 か所及び高層ビル (池袋) 内の会議室, 応接室を選定した。また, 東京都以外の地区として, 東北 (仙台市, 62年5月) 及び関西 (奈良県内, 62年9月) の各々 10 戸以上, さらに比較のため, 粉じんの多い作業現場 (埼玉県内の採石場及び建材工場) を調査対象とした。都内及び作業現場の調査は, 61年1~2月, 7月, 62年2~3月に3回繰り返し, 合計延べ 150 か所以上の SPM の収集を行った。その結果, 沿道の家屋は外気 SPM の侵入が多いことは確かで, 家屋構造及び屋内測

定場所の相違により、濃度に差があった。屋内の清潔さの違いによる差も観察された。本課題は、個人レベルでの観察を行ったので、屋内粉じん調査を評価する際の注目すべき点も確認できた。粒径 $2.5\mu\text{m}$ 以上と以下により特徴がみられた。喫煙があると、特に $2.5\mu\text{m}$ 以下のSPM重量が増すことも確認できた(表1)。デパート内のSPM濃度は、ビル空調の管理がされているためか、一般家屋内の濃度よりも低値であった。都内3地区間の差もわずかに認められた。すなわち高架道に沿った地区では、窓を開ける時が多い夏の屋内SPM中に自動車排ガス特有のバナジウム(V)濃度が高かったが、これは、地形、気象条件のほかに、道路の形態にも関係があるためと思われる。作業現場に関しては、 $2.5\mu\text{m}$ 以上の粒子が非常に多かった。SPM組成濃度及び指標元素濃度の比較は、サンプラーの粒径別ステージ上に捕集された粒子をSPM組成の主成分をX線分析にて分析し、元素重量比を求めて行った。Na, Si, Cl, Fe, Mg, Al, Ca, Ti, Zn, K, S等(表2)がほとんどの試料から検出された。さらに、この方法では検出できない微量元素で、汚染指標として使用可能なMn, V, 及びTi, Alを放射化分析で定量して濃度比較を行った。Mn及び

表1 地区別家屋内浮遊粒子濃度

地 区	A			B			C			D			E		
	計	有	無	計	有	無	計	有	無	計	有	無	計	有	無
喫煙対象数	10	3	7	9	5	4	9	5	4	12	6	6	13	7	6
≥ $5.0\mu\text{m}$	18	21	17	16	18	13	22	25	17	14	14	14	15	20	14
粒径≤ $2.5\mu\text{m}$	63	101	46	86	113	53	90	116	57	39	51	27	35	42	26

平均値($\mu\text{g}/\text{m}^3$)

表2 屋内浮遊粒子状物質の主組成元素濃度

粒径*	主組成元素濃度(重量%)			M氏家屋内
	≥ $5\mu\text{m}$	≥ $2.5\mu\text{m}$	≥ $1.2\mu\text{m}$	≥ $0.61\mu\text{m}$
Na	14.78	13.67	21.54	14.82
Si	29.59	34.33	22.72	2.46
S	8.49	12.26	17.76	41.40
Cl	13.05	9.52	6.20	7.61
K	4.20	3.45	4.00	12.04
Ca	15.05	13.21	7.36	2.43
Ti	1.27	0.85	0.57	1.27
Fe	10.01	12.72	15.14	10.61
Cu	1.70		4.73	7.36
Zn	1.86			
			デパート	7階 催物売場
Na	9.01	9.57	20.92	20.78
Si	29.09	29.72	18.00	12.63
S	7.69	7.05	14.60	36.26
Cl	9.39	7.76	7.53	5.94
K	5.73	5.13	3.58	7.82
Ca	24.28	23.67	12.47	4.72
Ti	2.75	1.99	1.32	0.62
Fe	9.38	15.12	21.59	11.21
Zn	2.68			

*)粒径別のインパクションプレート上に捕集された試料

V の濃度は、明らかに地区差、季節差が認められた。これは夏期の屋外由来、冬期の屋内発生由来を示唆し、環境評価に役立った。

3) 家屋内外の粒子状物質濃度及び毒性有機化合物濃度

都内環状七号線沿道の家屋 6 戸について、研究開発した SPM 個人サンプラーを用いて、家屋内外の SPM 及び SPM 中の多環芳香族化合物濃度を、年間を通じて測定した。また、スパイクタイヤ使用による SPM 発生 of 著しい道路周辺の家屋内外の調査研究も行った。

都心部環状幹線道路周辺の家屋について調査の結果、窓を開放する機会の多い春から秋の時期については、家屋内外の SPM 濃度の関係は比較的高い相関があった (図 2)。これは、窓を開放することの多い時期は屋外大気中 SPM 濃度が家屋内気中の SPM 濃度に反映するためである。

SPM について得られたこのような傾向は SPM 中の多環芳香族化合物についても観察された。すなわち屋内の気中多環芳香族化合物濃度は屋外大気中濃度に比例していくことが判明した。図 3 に示すように、発がん性が指摘されているベンゾ [a] ピレンについても強い相関関係が認められた。

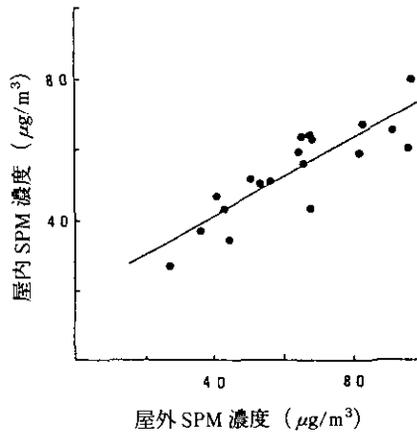


図 2 春～秋期における家屋内外 SPM 濃度の相関

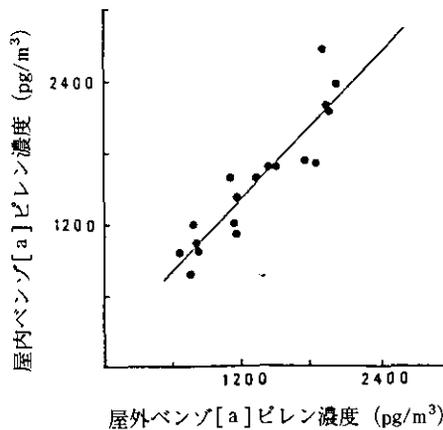


図 3 家屋内外の SPM 中ベンゾ [a] ピレン濃度の相関

(2) 粒子状物質の肺内蓄積及び体内摂取に関する検討

大気中及び家屋内に浮遊するSPMは、吸入され、肺に沈着・蓄積して、体内摂取の過程を経て行く。これまでの研究で、環境中のSPMの組成及びヒト肺沈着物の組成を明らかにすることができたため、体内吸収と健康への影響、蓄積によるリスク評価について考察した。SPMの生体への有害性を考えるに当たり、肺への蓄積の有無を検討した(n=72)。含有物質を元素ごとに見た場合、元素濃度が年齢と正の相関を示す元素に注目する。そこで両者間の相関係数についてみると、V(r=0.34)、Al(r=0.48)、Fe(r=0.39)、Si(r=0.48)では正の相関を示し、Mn(r=0.14)、Ti(r=0.25)では蓄積性があまり無いことが示された。またCaの相関係数は-0.56であった。一方、結晶性物質、繊維状物質、炭素のフリーラジカル等の蓄積及び変異原性物質の検出結果については慎重に検討すべきと考える。また、環境中SPM濃度からヒト生涯にわたる吸入量の試算もできるが、量(重量)とともに質(組成物質)がより重要であることを確認した。

(3) 住民健康に関するアンケート調査

調査対象地区(葛飾区内水戸街道及び環七沿道)内より住民基本台帳に基づき調査対象世帯を選定した。1,200世帯を対象とした呼吸器症状に係るアンケート調査(62年10月)及び200世帯を対象とした毎日の呼吸器症状を中心とする健康状態と罹患状態の電話による追跡調査(62年7月～63年7月)を実施した。その結果、児童及び成人とも各症状の有症率及び呼吸器系疾患の既往歴は道路端に近い地域(20m以内)ほど高率であった(表3、4)。

つぎに、SPM調査時に環状七号線(北区、板橋区)及び首都高架高速道沿道(江東区)の住民への全調査世帯に対し延べ3回にわたり、家族に呼吸器症状に対する問診調査を行った。板橋区の調査対象付近は過去に大気汚染の見られた所で家族の中には喘息症状がある者もいた。江東区の対象家族にも幼児に喘息様症状がみられた例もあったが、家庭内環境との関係も無視できないと思われた。北区の対象家族は、症状と関係ある家庭は含まれていなかった。全体を通じて、成人においては喫煙者に呼吸器に関する訴えが多かったといえる。

またSPMの暴露による住民の健康影響については、スパイクタイヤ使用によりSPMの高濃度発生の観察される長野県南佐久郡において、62年2月に調査を行った。調査対象の住民は1,597名であり、健康調査票の回収率は95%であった。スパイクタイヤ使用によるSPMの高濃度発生

表3 道路からの距離別、児童の呼吸器症状有症率
(4～11歳、居住歴3年以上、%)

道路からの距離	A	B	C
対象数(人)	207	249	656
持続性せき	4.8	2.4	3.2
持続性たん・ゼロゼロ	3.9	1.6	1.8
ぜん息様症状	11.1	4.8	6.0
〃 現在	6.8	3.6	4.7
ぜん鳴症状	11.4	3.8*	7.8
ひどいかぜ	30.4	22.5	26.6
たんを伴うひどいかぜ	16.4	8.4*	13.1

A: 20m以内, B: 20m～50m, C: 50m以遠

*: Aと危険率5%で有意差あり

表4 道路からの距離別，成人の呼吸器症状有症率
(30~40歳，居住歴3年以上，%)

道路からの距離 対象数(人)	父 親			母 親		
	A	B	C	A	B	C
持続性のせき	3.8	3.6	4.0	2.3	1.3	1.2
持続性のたん	19.0	13.1	10.6*	9.3	3.2*	4.5*
持続性せきたん	2.9	2.2	2.9	2.3	0.0	1.2
〃 2年以上	2.9	2.2	2.6	2.3	0.0*	0.9
ぜん息様症状	1.0	0.7	0.8	1.6	3.2	1.4
〃 現在	1.0	0.7	0.0	0.8	2.6	0.9
ぜん鳴症状	3.8	3.7	2.9	7.1	4.6	2.6*
息切れ	12.6	5.9*	9.9	15.0	7.6*	10.2

A : 20m 以内, B : 20m~50m, C : 50m 以遠

* : A と危険率 5 % で有意差あり

地区は，SO₂，NO₂ の影響を除いた SPM 単独の大気汚染の人への影響を検討していく上で重要な情報を与えると予想される。質問紙による健康調査の結果では，スパイク粉じんのためと考えられる目の痛み，痰やのどの症状，屋内や着衣の汚れ等の訴えは，沿道家屋居住者に高いことが判明した。

(4) 粒子状物質吸入による影響の実験的研究

1) 炭素粒子の肺内沈着に関する研究

ディーゼル排ガスによる粒子の増大も含めて沿道家屋内 SPM 中には炭素粒子が多く存在している。元素状炭素は，ガス又はエアロゾル等が吸着して，それらが体内に吸入される可能性が高いことから，炭素粒子の肺内への沈着を調べるため，安定同位体炭素 ¹³C トレーサー法にて，短時間の，動物暴露実験を行った。暴露条件は，粒径 2.5 μm の ¹³C 粉体の暴露装置内濃度が 2.4 mg/m³ で 1.85 h 及び 0.93 mg/m³ で 1.92 h であった。肺組織中の ¹³C 測定の結果，対照群(未暴露ラット)の組織中 ¹³C pdb(炭素 δ ¹³C の国際的標準物質である種の貝化石) δ ¹³C が -20.4‰ (パーミル) に対し，最も吸入したと見られる試料では δ ¹³C が -5.4‰ であり，この事実は SPM 中の炭素粒子が短時間で肺に取り込まれることを示した。

このようにして吸入された炭素粒子の肺での食食能に関する知見を得るために，あらかじめ 0.2 ppm オゾンを経験したラットの肺胞マクロファージの炭素粒子の食食能を調べたところ，オゾン暴露によりその食食能は低下することが分かった。これらの結果は，オゾン等の汚染物質暴露により肺内に吸入された異物や細菌の処理に関連する一連の生体防御機能を低下させることを意味し，特に感染抵抗性低下の原因になることを示すものと思われる。

2) カドミウムの吸入毒性に関する研究

カドミウムの可溶性イオン及び不溶性酸化物をラットに気管内投与して，用量-反応関係を検討した。毒性指標として，肺胞腔に溶出してくる表面活性物質や，肺細胞への傷害を示す指標を調べた。投与量が 8 μg/kg 体重以下ではカドミウムは主に肺に沈着するが，それ以上では投与量に依存して肝に移行する割合が増し，毒性指標も変化した。したがって，この量がカドミウム

の経気道暴露による毒性に可逆的に対応できる限界であった。また、肝の抗酸化防御指標としてグルタチオン濃度を検討したところ、生体内に過酸化反応が生じていると推定された。カドミウムの化学形態による作用の違いは少なかった。

3) アスベスト吸入による呼吸機能に関する研究

アスベスト（クロシドライト及びクリソタイル）の懸濁液をラットに気管内投与した。投与後経時的に肺の換気力学的測定を行い、摘出した肺の肺胞洗浄液の生化学的所見を観察した。その結果、呼吸機能に関しては、クリソタイル投与群には機能的残気量と肺気流抵抗の上昇、最大呼気流量や肺活量の低下がみられた。クロシドライト投与群よりも肺換気能の低下は大きかった。また、肺の線維化の指標と考えられる単位肺重量当りのコラーゲンとエラスチン含量はクリソタイル投与群でのみ上昇した。クリソタイルがクロシドライトに比べ毒性が強いと考えられた。

4) フライアッシュ吸入による抗体産生能に関する研究

フライアッシュは主に火力発電所等で発生するものであるが、風に乗って都市部へも輸送されてきており、SPMを構成している汚染物質の一つである。このフライアッシュを抗原であるタンパクアルブミン(OA)とともにマウスに気管内投与し、免疫グロブリンE(IgE)抗体産生能を調べた。比較的高濃度のフライアッシュ(0.2mg)を抗原(OA)と同時に投与すると、高い抗OA・IgE抗体の産生がみられた。また、きわめて低濃度のフライアッシュでも、同一抗原を再度投与(追加免疫)することにより高い抗体産生能を示した。なお、抗原(OA)だけを追加免疫しても、フライアッシュが共存しなければIgE抗体産生は認められなかった。これらの結果は、フライアッシュなどの粒子状物質の中には、抗原に対する抗体産生能を亢進させて、アレルギー反応を増強させるものがあることを示している。

5) NO₂とオゾンの複合暴露による病態成立に関する研究

気管支喘息発症に及ぼすNO₂とオゾンの影響を解明する一環として、NO₂あるいはオゾン暴露ラットに濃度の異なるヒスタミン・エアロゾルを吸入させ、それによる気道抵抗の変化を調べた。この目的のために、まず生体内(*in vivo*)測定システムと摘出気管平滑筋のヒスタミンに対する反応性を調べる生体外(*in vitro*)測定システムを作製した。このシステムを用いて、NO₂やオゾンを暴露したモルモットの気道反応性を測定したところ、*in vivo*系では一時的に気道の反応性が亢進するが、その後では低下していた。*in vitro*系では何の変化も認められなかった。これらの結果は、大気汚染物質の気道反応性に及ぼす影響は暴露期間の推移(おそらく炎症過程の推移)に伴って変化すること、また*in vivo*と*in vitro*との比較から、この気道反応性の変化には神経系などが関与していることも示唆された。

一方、ラットに低濃度のNO₂とオゾンの複合ガスを長期間暴露させて、その病態成立に至るまでの病理学的研究と、肺組織の生体防御抗酸化性物質の変化に関する生化学的研究を行った。病理学的研究では、暴露2~4か月で肺胞壁厚の増加が認められたが、9~18か月では不明りようとなり、22か月では再び肺胞壁厚の増加と間質におけるコラーゲン線維の増加が認められた。肺胞壁間質の線維化傾向は軽微ではあるが、長期間の暴露により蓄積性の変化が起きていることを示している。生化学的研究では、肺の過酸化脂質の増加と防御系酵素活性の低下が9か月で見られたことは昨年報に述べたが、今回検討した18~22か月ではこの変化は全く認められなかった。これに対し、肺の抗酸化性物質のグルタチオンやビタミンE含量などが低下しており、肺の

酸化障害が起こりやすい状態にあることを示唆している。

(5) まとめ

本特別研究の一つの大きな特徴は、浮遊粒子状物質 (SPM) を対象に、都市幹線道路沿道の家屋内の濃度測定及び沿道からの距離とその濃度との関係を明らかにする調査と、その粒子状物質成分の分析知見から屋内汚染の様態を把握すること、さらに沿道住民の呼吸器系症状調査により、有症率と沿道からの距離との関連を検討した点にある。このような広範囲の屋内粒子状物質汚染調査は今までになされていない。

本研究の結果、幹線道路沿道では、NO₂、SPM で代表される局所的な汚染が存在し、これらの地域に居住する住民の間では呼吸器症状に関する訴えや呼吸器系の既往歴が高いことが示された。また、予備的検討ではあるが、家屋内における SPM 中に含まれる多環芳香族化合物濃度は屋外の濃度に比例しており、住民の発がん性物質暴露のレベルを低下させるためには屋外 SPM 濃度低減の配慮が必要であることが示唆された。

一方、屋内 SPM 濃度に関しては、特に粒径 2.5 μm 以下では喫煙の影響が大きく、交通量の多い沿道では燃焼由来のバナジウム濃度が高い。また調理由来と思われる元素の存在など、SPM 調査に当たっては、量(濃度)と質(組成)の両面から測定することが重要であることが分かった。対照として行った地方都市においても、幹線道路沿道家屋内の粒子状物質の濃度に差があり、組成元素でもバナジウムが検出された。沿道家屋内は、その後背の家屋よりも SPM が多く、家屋外気との関連も認められた。

ヒトは、多種多様な成分からなる粒子状物質を吸入するが、その生体影響評価をするに当たって、それぞれの成分の毒性発現の機序を知ることが必要である。そこで、自動車排ガス中にも含まれる炭素粒子、繊維状物質のアスベスト、重金属のカドミウム、さらにフライアッシュなどの粒子状物質をラット、マウス、モルモットなどの動物に吸入、あるいは経気道的に投与した。当該物質の肺内での沈着、生体内への取り込み、毒性発現及び生体防御反応の過程の機序について検討した結果、従来の基礎的知見をさらに強化する成果が得られた。

以上の研究成果は、単に地域の大気汚染状況の把握に留まらず、地域住民が吸入する屋内外の大気による呼吸器系影響へのリスク評価に際し、住民の大気汚染質の暴露レベルの推定の方法として必要な粒子状物質の分粒捕集方法、その成分の測定、分析法の問題点を明らかにし、さらに健康影響の評価に用いられる呼吸器症状の有症率の意味に検討を加えねばならないことを示唆している。

2.4 水界生態系に及ぼす有害汚染物質の影響評価に関する研究

昭和60年度～昭和63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・○島山成久・春日清一・宮下 衛・高村典子・
花里孝幸・佐竹 潔

生物環境管理研究室 岩熊敏夫・高村健二・野原精一・上野隆平・多田 満

計測技術部

水質計測研究室 大槻 晃・白石寛明

水質土壌環境部

海洋環境研究室 渡辺 信

土壌環境研究室 袴田共之

環境保健部

人類生態研究室 鈴木和夫・青木康展・平野靖史郎

技 術 部

生物施設管理室 菅谷芳雄・笠井文絵

客員研究員 14名、 共同研究員 2名

〔研究概要〕

各種の殺虫剤、除草剤、殺菌剤などは大量に使用されその多くは水界に流入するため水生生物、水界生態系に及ぼす影響は大きい。この研究では単独種を用いた実験、実験生態系によるモデル実験、野外調査などの総合的研究からこれら化学物質の生態影響の評価を行う。そのためには単独生物種の特長（薬剤に対する感受性、生活史や食性など）のみならず、各種生物の相互関係に基づいた影響評価が不可欠である。

重金属汚染河川の生物調査から重金属（特に銅、亜鉛、カドミウムなど）に対する耐性種、感受性種などを明らかにし、重金属汚染に対する指標生物を整理する。また代表的重金属耐性種に関してはその重金属耐性機構を明らかにし、指標生物の特徴を生理学的な面からも明らかにする。

研究は、以下のサブテーマ（(1)～(4)）からなり、ほぼ年次計画通り研究が行われているが、昭和63年度は最終年度に当たり、これまで遅れている研究、補足的な研究の後、成果の取りまとめを行う予定である。

(1) 有害汚染物質の水界生態系に及ぼす影響とその回復力の予測手法に関する研究

湖沼実験生態系、隔離水界、モデル河川などを用い、化学物質（主に殺虫剤、除草剤）の生態影響とその回復過程に関し、単独種の生物影響のみならず生物間の相互関係に基づいた影響評価を行ってきた。最終年度は補足的な実験と、これまでの多くのデータから特に生物の相互関係による二次的影響やその回復過程を整理し、影響予測の手法の確立に資する。

(2) 有害汚染物質の水界生態系に及ぼす複合影響に関する研究

魚の稚魚を用い、暴露時期をずらした2種類の農薬の複合影響を検討した。動物プランクトン(ミジンコを使用)の繁殖に及ぼす殺虫剤間(2種)の複合影響に関しては現在検討を行っている。農薬散布前後の河川水、底質、水性植物などの農薬の濃度変化に関し多くのデータを集積し、一部の河川で水生生物に対する影響評価を行った。さらにこれらの濃度に基づき現場の生態系主要構成生物種(ユスリカ、トビケラ、カゲロウなど)に対する複合影響の検討を行う。

(3) 有害汚染物質の水界生態系に及ぼす毒性発現機構に関する研究

農薬の影響に対する感受性の種間差については一部の水生生物種で、行われているが急性影響にしても、慢性影響にしても野外の多くの生態系構成生物種を見渡すと極めて不十分である。

食物連鎖を通した農薬(除草剤)の生物影響に関しては低いと見なされる結果を得たが(5種の除草剤の内1種)、他の除草剤や殺虫剤については今後さらに検討する。重金属の存在状態と藻類に対する毒性に関しては銅について成果を得た。

(4) 有害汚染物質に対する指標生物の検索に関する研究

各地の重金属汚染河川の生物調査を付着藻類、底生動物に関して行い、それらの結果を河川水中の重金属濃度と各種生物密度との関係から整理する段階である。藻類と水生昆虫の代表的重金属耐性種についてはその耐性機構に関して多くの知見を得ているが、さらに通常種との比較、耐性に関与している程度などさらに検討を要する。

〔研究成果〕

(1) 湖沼生態系に対する殺虫剤の影響と回復過程に関する実験的研究

1) 化学物質の生態影響とその後の回復過程は生態系の構造や、その処理時期(季節)に大きく依存することをこれまで多くのモデル実験から明らかにしてきた。屋外実験池を用いた実験ではこの中に霞ヶ浦の動物プランクトン由来のモデル生態系を作成し、動物プランクトン群集に及ぼす殺虫剤(カーバメイト系殺虫剤NAC)の影響を種々検討してきた。本年度は薬剤の動物プランクトン群集に及ぼす影響が、動物プランクトンの捕食者が存在する場合としない場合でいかに異なるかを屋外実験池(1.5トン、12基)を用い検討した。動物プランクトンの捕食者とし、この実験系ではフサカの幼虫が存在し、その密度をネットにより成虫の産卵を防ぎコントロールした。フサカが存在するとミジンコ類(*Daphnia*, *Moina*, *Bosmina*)は捕食されて消滅し(図1、開放池-対照)、他の動物プランクトンであるワムシ類優占の水界となった。一方、フサカ密度の低い池では3種のミジンコの存在期間が延長し、その後種間競争により *Daphnia* 優占の系として存続した(ネット遮閉池-対照)。これらの実験池に殺虫剤(NAC)を投入すると(図中、矢印)、捕食者(フサカ)の密度によりその後の系の回復過程が全く異なった。フサカ密度の低い系ではミジンコ類が激減した後、*Bosmina*, *Moina* の回復が見られた(ネット遮閉池-処理)。一方、フサカ密度の高い系では薬剤処理直後にミジンコ、フサカとも消滅したがミジンコの回復は見られなかった(開放池-処理)。これはこの時期(春)フサカの回復速度がミジンコのそれを上回り、回復過程に向かうミジンコを次々に捕食してしまったためと考えられる。前年度までに行った夏期の同様の実験では、ミジンコの回復がフサカのそれを上回って、ミジンコ類の回復が起こった。水温により両者の生長速度が異なる(室内実験による)ため春と夏では違った結果が生じたものと考えられる。

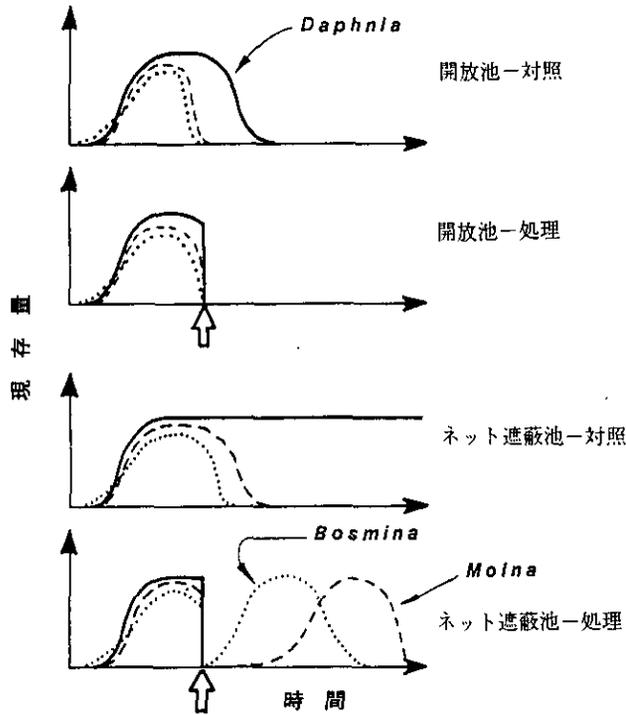


図1 動物プランクトン群集の回復過程に及ぼす捕食者の影響

2) 実験生態系(同上)の構成種は経時的に変化する。そのため10基の実験池(ネットで覆いフサカを除去)を用い、殺虫剤(NAC, 0.5 ppm)を異なる時期(実験開始後13, 20, 27日目)に、またそれぞれの日に繰り返し(合計3回)投入し、その後の動物プランクトン群集に対する影響と回復過程を調べた(秋期実験)。主要な動物プランクトンの密度変化を図2(縦の破線でNAC投入)に示したが、対照と薬剤処理実験池、また薬剤処理池間でも薬剤処理のタイミングが異なると、その後の動物プランクトン群集の組成が全く異なることが明かとなった(図2)。これらの変化をもたらした機構が、動物プランクトン個体群の内的な活性の変化(特にワムシの*Keratella*)、動物プランクトン間の種間競争(餌の競合などで、ミジンコ類の増加はワムシの密度を下げる)、薬剤に対する感受性の種間差(ミジンコ類の方が*Keratella*よりもNACに対し高感受性)、季節による生長速度の変化など(*Daphnia*は低水温で生長阻害を受けやすい)に基づいて考察された。ミジンコの*Daphnia*の回復は薬剤の処理時期が遅れる程延びたが、これは実験期間中水温が徐々に低下したためと考えられる。

(2) 農薬の河川生態系に対する影響評価

1) 農薬の水系への流入が水生生物に及ぼす影響評価を水田地帯を流れる河川調査から行っている。前年度までに、農薬散布前後の水中及び底質中の残留量とその変動を明らかにしてきたが、本年度はそれらが種々の水生生物に及ぼす影響の評価を行った。水中に検出された主な薬剤は、殺虫剤では有機リン系のダイアジノン、フェンチオン、フェニトロチオン及びカーバメイト系のBPMC、除草剤ではモリネート、シメトリン、ベンチオカーブ、オキサジアゾン、殺菌剤ではIBPであった。これらの中で最大残留量は、殺虫剤では30 ppb、除草剤では10 ppb、殺菌剤

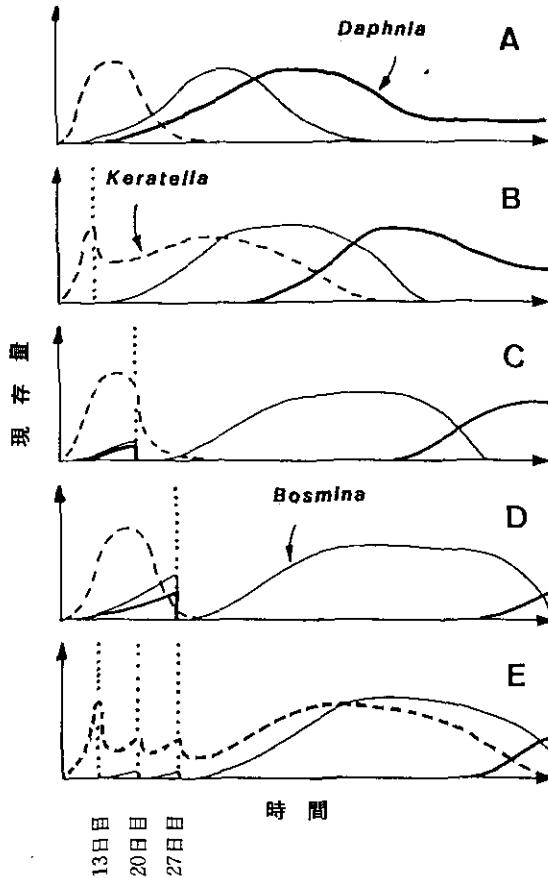


図2 殺虫剤投与時期と湖沼生態系回復過程の関係

では 8 ppb 程度であった。調査は5月から9月まで週1回行い、その間の主要な薬剤の濃度と底生生物の密度との関係を図3に示した(梅雨期は増水により底生生物の密度低下が起こるのでデータを省いてある)。コカゲロウ類(幼虫)は除草剤特にオキサジアゾン濃度が3~4 ppbを越えると生息密度が1/10以下に低下することが示され、それは主に薬剤により流下を受けたためと考えられた。殺虫剤(BPMC, Fenthion)に関しても同様の結果が得られた(図3)。コカゲロウ個体群の回復には自然の流下(主に夜間)によるものと(シロハラコカゲロウ)と、成虫の産卵によるもの(サホコカゲロウ)とがあり、前者による回復は早かった。ユスリカ類(図3)、イトミミズ、ヒル及び付着藻類(現存量)などには影響が認められなかった。図に見られるように河川水は除草剤、殺虫剤、殺菌剤などにより複合的に汚染されているため複合汚染の生態影響の評価が今後さらに必要とされる。

2) 松くい虫防除のため殺虫剤(フェニトロチオン, NAC)が空散された山地溪流において河川に流入した薬剤の水生昆虫群集に及ぼす影響を調べた。薬剤は6月初旬と下旬に2回散布されそれぞれ調査地点の水中のフェニトロチオン濃度はおよそ20 ppbまで急速に高まりその3時間後には50%の濃度に減少した。NAC(カーバメイト系殺虫剤)の濃度は最高でも1.2 ppbと比較的低かった。一般に水生昆虫の多くの種は夜間に流下することが知られているが(図4, 散

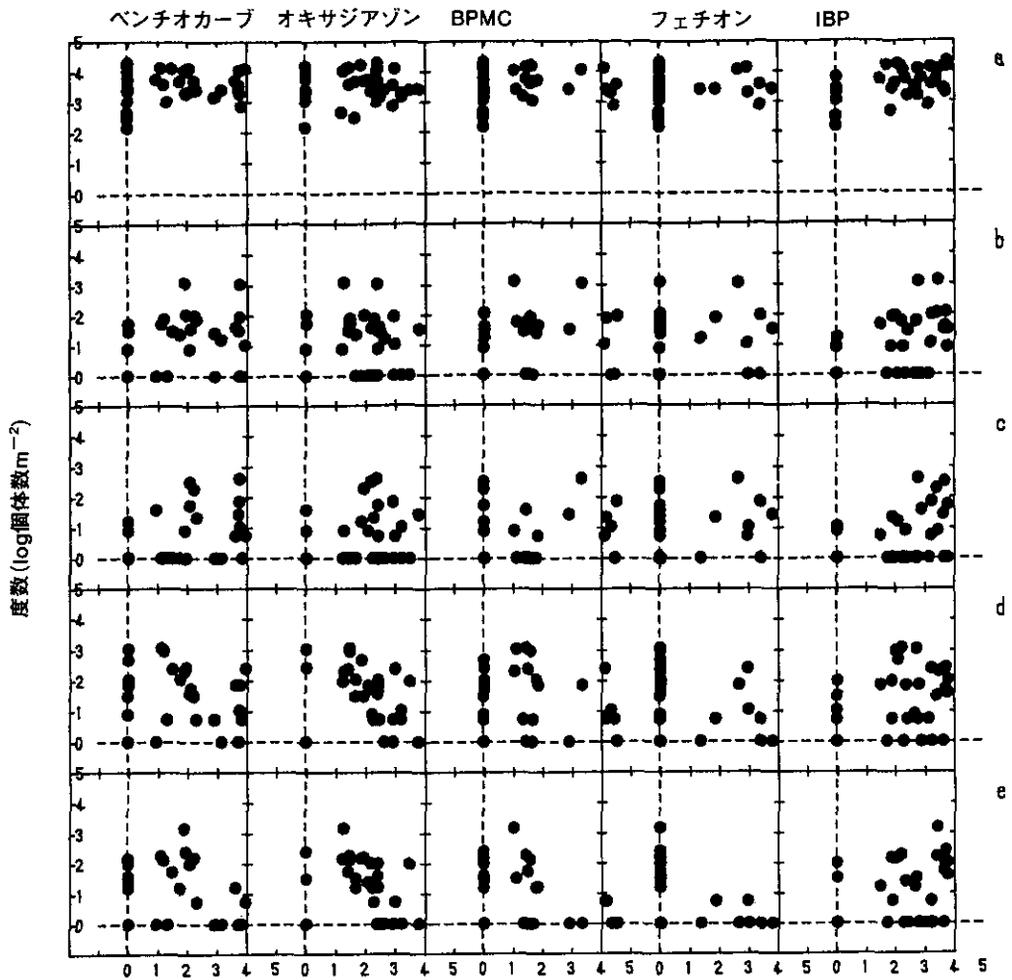


図3 農薬残留量 (log ppt)

- a: 小型ユスリカ, b: セスジユスリカ, c: ヒシモンユスリカ
 d: サホコカゲロウ, e: シロハラコカゲロウ

布前), 殺虫剤の流入により (図中, 矢印) 昼間でもさらに大量の水生昆虫が流下した (図4, 6月5日)。殺虫剤散布前の全サンプルでは25種類の底生生物が見られたが, 散布後24時間のサンプルでは45種類の底生生物が流下していた。散布前ほとんど流下せず, 散布後特に流下を受けたものとしてはユミモンヒラタカゲロウを始めとするヒラタカゲロウの仲間の4種類であった。また近縁の水生昆虫でも生息環境, 生息密度, 薬剤に対する感受性などにより流下のパターンが異なり, 短時間で流下が終るものと (ヨシノコカゲロウなど), 薬剤散布24時間後まで流下が続くもの (シロハラコカゲロウなど) までであった。殺虫剤は自然の流下ではあまり流下しない弱令の水生昆虫 (コカゲロウ類) を特に大量に流下させた (図5)。殺虫剤により多くの水生昆虫が流下したため, その後の夜間の正常な流下パターンが消失した (図4)。この様な流下の結果は調査地点の上流における現存量調査にも反映され多くの種で生息密度が減少した。2回目の空散では, 水中の殺虫剤濃度はほとんど同様に増減したが, 水生昆虫の流下はほとんど起こらなかった。これは1回目の散布による生息密度の減少によるものかどうかさらに検討を要する。

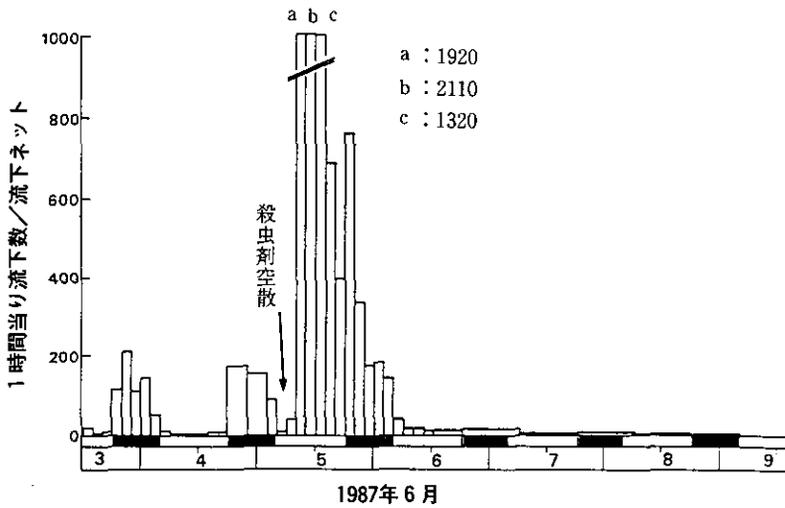


図4 殺虫剤空散前後の底生生物流下数の変化

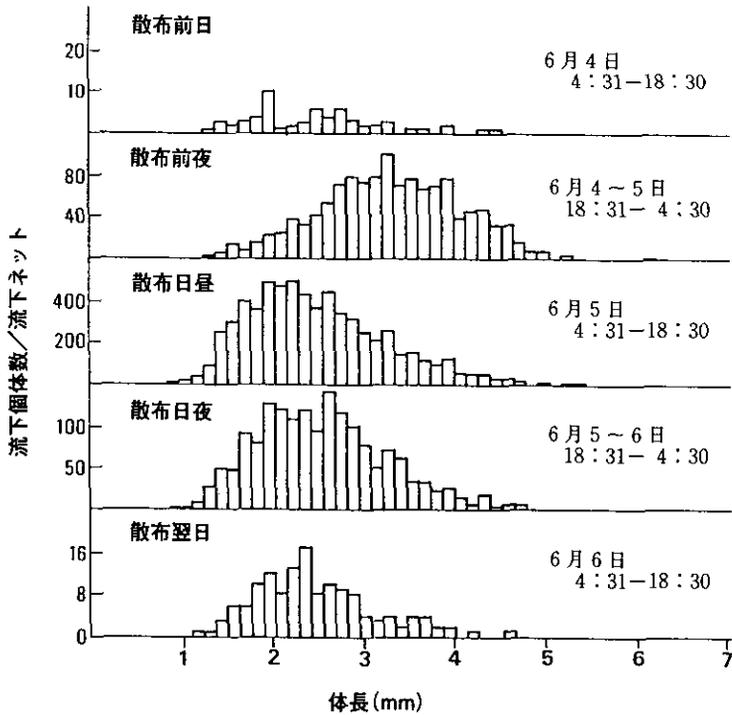


図5 殺虫剤散布前後の流下シロハラコカゲロウの体長組成の変化

(3) 重金属耐性水生昆虫の耐性機構及び付着藻類の重金属耐性に関して

1) コカゲロウの一種、シロハラコカゲロウ (*Baetis thermicus*) はユスリカの特種(複数)と共に水生昆虫では代表的な重金属耐性種である。この種については重金属汚染区のみならず非汚染区にも分布すること、カドミウムや亜鉛の濃度が高いことなどから重金属汚染の指標種としての検討がなされた。また、その耐性機構に関しては組織化学的方法により重金属の体内分布と、

この種は銅及びカドミウムに対するそれぞれ異なった重金属結合タンパクを誘導しているが亜鉛は特定の結合タンパクが誘導されることなく高濃度で蓄積していることを明らかにしてきた。本年度は本種の重金属耐性機構を重金属結合タンパク（体内の有害金属を結合して無毒化する）の誘導の面から研究した。本種とやや耐性を示すサホコカゲロウ（*B. sahoensis*）、非耐性であるヨシノコカゲロウ（*B. yoshinensis*）を非汚染河川から採集し、人工河川に入れて10 ppbのカドミウムに10日間暴露した。3種のコカゲロウは経時的にはほぼ同じ濃度のカドミウムを蓄積し、体内の総タンパク量にも顕著な差異は認められなかった。しかし、シロハラコカゲロウにのみカドミウム暴露5日後からカドミウム結合タンパクの誘導が認められ（ウエスタンプロテティング法による）、その量は10日後さらに増大した。このカドミウム結合タンパク質とシロハラコカゲロウの重金属耐性機構の関係、体内での重金属の存在部位と存在状態との関係などさらに検討を要する。

2) 重金属汚染河川に優占して生息している水生生物は一般に重金属耐性種と見なされているが、それらの耐性の度合や耐性の機構については明らかにされていない。本年度は藻類については重金属汚染河川と非汚染河川から多くの種（100種 120クーロン）を単離培養し、これらの光合成活性に対する銅（Cu）、カドミウム（Cd）、亜鉛（Zn）の阻害濃度を調べその一部を表1に示した。その結果、銅に対する藻類の耐性は藻類の分類群により大きく異なることが明らかになった。例えば、ケイ藻と緑藻の仲間の *Charophyceae* では、採取場所の銅の濃度と藻の耐性に高い正の相関があった。このことは同一種内でも確かめられた。*A. minutissima*（ケイ藻）と *K. klebsii*（緑藻）は重金属汚染河川から単離培養したものが非汚染河川から単離培養したものよりも著しく高い重金属耐性を示した。しかし緑藻の仲間の *Chlorococcales* のように採取場所に関係なく強い耐性を示す種もあった。一方、ラン藻では重金属汚染河川に優占している種でも光合成活性阻害試験ではいずれも重金属耐性は低く、自然の河川では他の藻類と異なった耐性機構を考えざるをえない。

表1 重金属汚染及び非汚染地点から単離された藻類に対する3種の重金属の藻類に対する50%光合成阻害濃度(μM)

付着藻類	採取河川	重 金 属		
		Cu	Cd	Zn
<i>Bacillariophyceae</i> (ケイ藻類)	重金属			
<i>Achnanthes minutissima</i>	汚染河川	15.7	311.0	504.1
<i>A. minutissima</i>	汚染河川	>20	274.4	1145.8
<i>Surirella angustata</i> Kutz.	汚染河川	6.0	55.1	212.5
<i>Nitzschia palea</i> S. smith	汚染河川	3.3	36.3	64.2
<i>A. minutissima</i>	非汚染河川	1.67	44.2	71.1
<i>Surirella ovata</i> var. <i>pinnata</i>	非汚染河川	0.31	290.9	49.9
<i>Pinnularia brevicostata</i>	非汚染河川	0.58	71.8	129.1
<i>Synedora</i> sp.	非汚染河川	0.58	28.3	203.4
<i>Chlorophyceae</i> (緑藻類)				
<i>Chlorella vulgaris</i> Beji.	汚染河川	>20	222.4	510.5
<i>Uronema gigas</i>	汚染河川	>20	376.8	>1500
<i>Klebsormidium klebsii</i>	汚染河川	>20	>500	>1500
<i>Ulothrix variabilis</i>	汚染河川	>20	>500	>1500
<i>Stigeoclonium aestivale</i>	汚染河川	19.5	66.7	207.6
<i>Ulonema gigas</i>	非汚染河川	5.0	195.8	701.9
<i>Klebsormidium klebsii</i>	非汚染河川	0.84	368.8	181.2
<i>Spirogira</i> sp.	非汚染河川	0.20	86.6	>1500

2.5 環境指標を用いた都市及び自然環境等の変動予測手法 開発に関する総合解析研究

昭和60年度～昭和63年度

〔研究組織〕 総合解析部

◎内藤正明

環境管理研究室

西岡秀三・○甲斐沼美紀子・原沢英夫・森 保文

地域計画研究室

清水 浩・青木陽二・森口祐一

資源循環研究室

中杉修身・天野耕二

環境経済研究室

○森田恒幸・青柳みどり

総合評価研究室

安岡善文・田村正行・飯倉善和

環境情報部

情報システム室

大井 紘・須賀伸介

電算機管理室

猪爪京子

計測技術部

分析室

溝口次夫

大気環境部

エアロゾル研究室

金谷 健

環境保健部

環境心理研究室

兜 真徳・相本篤子

客員研究員 13名

〔研究概要〕

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

本研究は大きく次の3つのサブ・テーマに分けられる。

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

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

(3) 長期予測支援システムを使って環境問題の長期的シナリオを検証するとともに、主要な政策課題を抽出する。

昭和62年度までにサブ・テーマ(1)及び(2)に関する主要な作業がおおむね終了し、昭和63年度はサブ・テーマ(3)についての作業を実施する予定である。昭和62年度は主にサブ・テーマ(2)についての作業を実施したので、以下ではこの部分の研究成果を中心に報告する。

〔研究成果〕

(1) 21世紀に向けて環境問題の行方を探る

まず最初に表1をご覧ください。戦後の日本社会の概括的なトレンドを、各年代の代表的なキーワードの移り変わりで表現してみた。戦後四十数年の間に我が国の経済社会はドラスティックに変化し、それに伴って生活・環境分野の問題や国民意識、それに各種の政策が変わってきていることが読み取れよう。我が国の公害環境問題が激化した時期は1950年代の後半から1960年代にかけてであり、この時期に今の環境行政の基礎がつけられた。その後、深刻な環境問題が回避され社会経済的な背景や国民意識が変化するにつれて、環境問題の構造が大きく変化し、環境政策の質的転換が模索されてきたのである。

我が国の経済社会は21世紀に向けてさらに大きく変わろうとしている。成熟化、ソフト化、都市化、高齢化、国際化などで表現されるこれらの基本潮流は、国民の価値意識や生活様式の変化、産業構造の高度化、都市への人口集中と地方の過疎化、諸外国との貿易構造の変化などを通じて、環境問題に大きなインパクトを与えようとしている。果たしてその行方はどうなるか。

本特別研究では、21世紀初頭の我が国の環境問題を予測することを目的にして、各種の手法開発とその応用研究に取り組んできた。この研究の全体手順は図1に示すように、まず、① 21世紀に向けての社会経済的トレンドを同定し、次いで、② このトレンドが環境問題にどのような

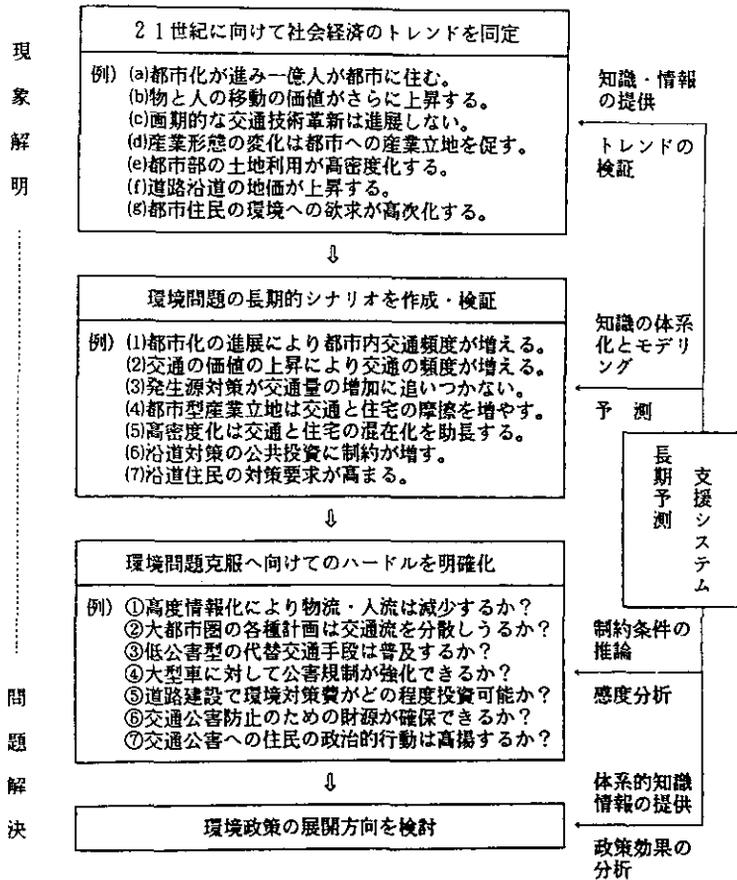


図1 長期予測研究の全体手順と支援システムの役割(交通公害問題を例として)

表1 戦後日本社会の概括的トレンド

		1950	1960	1970	1980	1990	2000
经济社会一般	社会構造 開発計画	経済・産業復興社会 北海道総合 開発計画	首都圏 基本計画	高度成長社会 全国総合 開発計画	新全国総合 開発計画	多角的微調整社会 第三次全国 総合開発計画	第四次全国 総合開発計画
	開発方式	官主導	地方公共団体主導	拠点開発	大規模Project 大規模社会資本 公社公園等活躍	定住構想 地域主体 民間活力	交流ネットワーク構想
	開発法制	国土総合 開発法	ブロック別 開発促進法	新産・工特 促進法	再配置促進法	電源 三法	
	経済計画		経済自立 五ヶ年計画	国民所得 倍増計画	経済社会 発展計画	新経済社会 発展計画	新経済社会 七ヶ年計画
	発展制約 地方行政	資金制約 地方自治制度の確立 地域行政の改革	労働力制約	環境制約	資源制約	国際関係制約	
	都市化現象		広域計画 行政開始	新中央集権的傾向 起業立地中心政策	シビルミニマム 公害・環境行政	事務事業の総点検 広域生活圏行政	地方の活性化 文化重視の行政
	都市政策		都市化 過疎化 大都市化政策	郊外化 ドーナツ現象 都市化制御政策	空同化・逆都市化 Uターン現象	再都市化・インナーシティ	多心都市
	技術開発		パワーの時代 バツフル	スピードの時代 機械	エコノミーの時代 電子	情報 の時代 エレガンス・オペレーショナル 高分子	文化の時代 生体システム (バイオメーション)
	エネルギー	石炭 水資源	石油	原子力	LNG 石炭見直し	省エネ・エネルギー源の多様化	新エネルギーの開発
	交通・通信 政策	物的流動の骨格整備 (鉄道・道路・港湾)	人的流動の骨格整備 (新幹線・高速道路・国際港湾・空港)		情報流動の骨格整備 (通信衛星・INS)		知識流通の骨格整備 (VAN/CATV)
生活・環境	国民意識		消費者 モータリゼーション世代 生活防衛 プロテクター	シラケ世代	生活者 ネクラ世代 生活改善 アドボケイター	ライフクリエーター パフォーマンス世代 環境創造 ロビイスト・コーディネーター	
	住民運動		伝統的家族社会	核家族中心社会		多様な家族社会	
	生活様式 余暇活動		都市・軟楽型 簡易型	飲食型 行業型	保養型 参加型	創造型 表現型	
	住宅問題 環境問題	住宅不足	公害被害の 顕在化	量的充足 住民運動 公害関係 訴訟の多発 公害の激化	深刻な被害 の回避	質的充足 環境問題 の質的変化 自然環境の保護 快適性	生涯型 自己主張型 多様な住宅 → 高級化
	環境政策	歴史的環境の破壊	自然環境の破壊 健康	被害の救済 公害防止条例 の制定 協定の締結 緊急公害対策 法的規制	環境基準 国の公害 関係法体系化	環境行政 行政体系化 の質的変換 選択的・総合的充足の発想 相互調整 社会経済的の制度	環境保全・創造 歴史文化環境の保全 付加価値創造の発想
		1950	1960	1970	1980	1990	2000

インパクトを与えるかについて各種のシナリオを作成してその確からしさを吟味し、さらに、③シナリオを左右する重要な政策変数(ハードル)を明らかにする、という手順が進められてきた。

そして、これらの作業を効率的に行うため、コンピュータ支援システムを開発してきた。このシステムは、専門家の優れた知識や判断と客観的な数値データを組み合わせて、現象解明から問題解決に至る一連の作業を体系的に支援する非常にユニークなものである。以下では、この支援システムについて研究成果を報告する。

(2) 三位一体で力を発揮する支援システム

環境問題の長期的な行方を探るためには、図1に示したように広い範囲の複雑な作業が必要となる。各種の知識データや数値データの収集と解析、シナリオ書き、モデル構築、予測シミュレーション、感度分析などである。このためこの研究プロジェクトでは、図2に示すように三種類の大規模な支援システムを開発してきた。これらは、①膨大な知識データ及び数値データを体系的に管理し、必要に応じて即座にデータの検索・処理・表示を行う知識情報システム(SAPIENS)、②計算機との対話方式により人間の持つイメージを数式モデルに表現し、現実のデータとの整合性を評価しながら予測モデルの構造を決定するモデリング支援システム(MOSES)、③こうして決定された予測モデルをもとに将来予測を行い、感度分析や政策評価を支援する長期予測シミュレーター(ADNIS)、である。

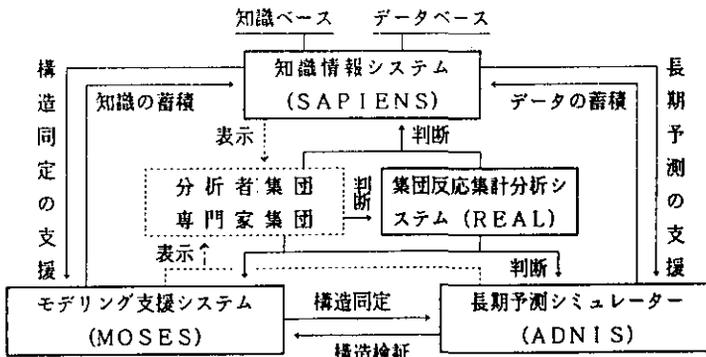


図2 支援システムの全体構成

これらのシステムはいずれも、当研究所の専用コンピュータ・システム(VAX 8550、ワークステーション、グラフィック・コントローラ、などで構成)上で管理され、相互に有機的に連携している。そして、これらのシステムが三位一体となって効果を発揮するのである。

この支援システムの最大の特長は、専門家の知識と判断を体系的に収集し、最大限に活用する点にある。本研究のように予測対象が多領域にまたがり複雑なうえに、予測期間が長期にわたる場合には、広範な現象の中から重要なものを要領よく選び出し、限られた情報のなかで説得力あるモデル構造を見だし、さらに、不確定な条件のもとで整合性のある長期の見通しをつけなければならない。これらは個人の能力の範囲や伝統的な解析手法の範囲を越えており、これを可能にする唯一の方法は、多様な領域の専門家の知識や判断を結集して活用すること以外にない。システム設計に当たってはこのことを第一に念頭に置いた。

このために開発された主な仕掛けは、大きく次の2つにまとめることができる。

① いろいろな領域の専門家の知識データを体系的に蓄積・管理し、知識データの結合や推論などの処理ができる知識ベース・システム(知識情報システム—SAPIENS—の一部)。

② 情報の選択や加工、モデリング、予測シミュレーション等の過程で、特定の専門家の判断をリアルタイムで反映させ、その結果や関連情報を即座にフィードバックするインタラクティブ・システム(三つの支援システムのいずれも装備)。

なお、これらの仕掛けは当研究所の会議室に設えてあり、スクリーンに写し出されるコンピュータの出力を見ながら複数の専門家が会議形式で参加できるようになっている。

次に、これらの仕掛けを使うと何ができるかについて、具体的に説明する。

(3) 専門家の知識を集積して見通しをつける

まず、利用できる数値データがほとんど手に入らないときや、詳細な分析に先立って見通しをつけるようなときに、専門家の知識と判断だけから予測するケースがしばしば生じる。このような場合を想定して、支援システムを使う一連の手順を図3に示した。この図に従って説明する。

最初に、予測対象に関連するいろいろな知識データを集めて、知識ベースに蓄える。これは文献調査や専門家へのインタビューなどによる。個々の知識データは、図4に示すように特定の命題とその推論過程の構造からなっている。この種のデータを大量に収集し、知識の背景情報や評価情報、情報源などとともに知識ベースのファイルに入力し、管理させる。この知識ベースはワーク・ステーション上で処理でき、ファイルの登録・修正、検索・表示、結合処理・推論等が非常に効率に行える。今のところ、収録されている知識データの数はいくつかだが、この一年の間に計画的に集積できる予定である。

さて、こうして集積された知識データは、特定の専門家集団(しばしば分析者)によって検索され吟味される。そして、選択された複数の知識データは自動的に結合されて、より総合的な知識

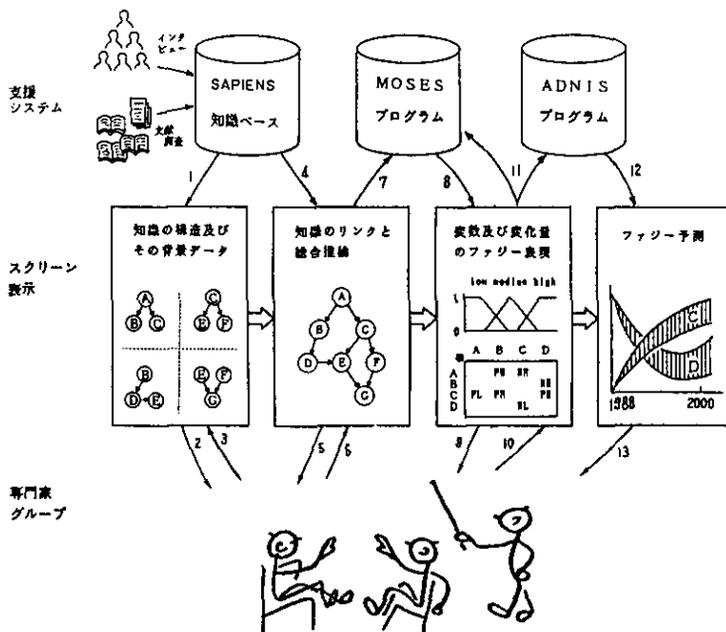


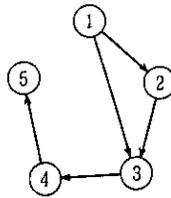
図3 専門家の知識を集積して見通しをつける

に高められる。図5は知識ベースのリンクの例を示している。このリンクの結果を用いれば、シナリオ・タイプの子測が可能となり、広範囲の影響や複雑な因果関係を定性的に推論できる。

さらに高度の子測を行う場合は、モデリング支援システムを使ってファジィ・モデルなどを作ることができる。これは、専門家集団の判断を特定のルールで記述し、あいまい推論を用いて子測する方法で、人間の直感に基づきながらも可能な限り論理的かつ整合性を持った見通しを得ようとするものである。図6にはファジィ子測の結果の一例を示した。

想定された命題

都市圏への情報の集中化により、都市内及び都市周辺
の環境問題はさらに悪化する



- 1 都市圏への情報の集中はさらに増大する
- 2 都市圏の人口増加はさらに継続する
- 3 大都市には小規模で小まわりのきく産業が立地する
- 4 サービス業は頻度の高い交通を発生さす
- 5 都市圏における大気汚染は深刻化する

図4 知識データの一例

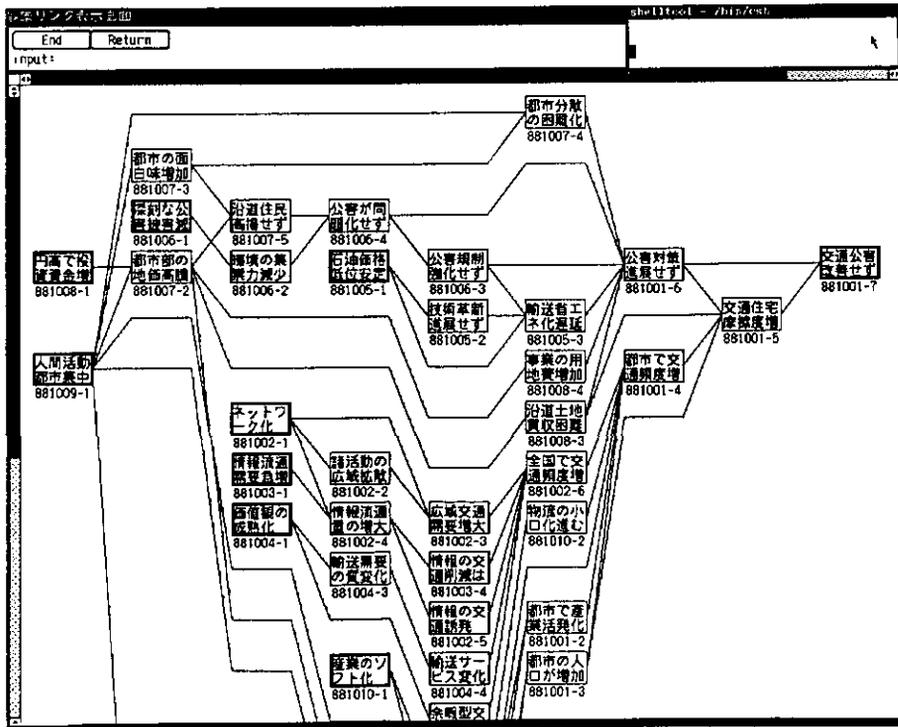


図5 知識データのリンクの例

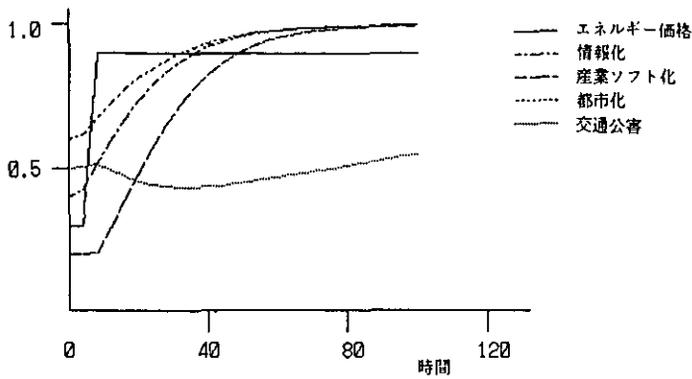


図6 ファジィ予測の一例

(4) 専門家の判断を組み込んで予測する

次に、一定の数値データを入手することは可能でも、統計手法が十分な説得力をもつほどデータが豊富ではないケースが頻繁に見られる。この場合には、専門家の判断とデータ解析とを適時組み合わせて予測を行うことが必要となる。我々の支援システムはこのような一連の予測作業についても体系的にサポートできる。図7に示す手順に沿って、システムの使い方を説明しよう。

まず、知識情報システム(SAPIENS)のデータ・ベースに蓄積された膨大な数値データから、関係するものを選んで専門家集団に提供する。このデータ・ベースには、現在、社会経済領域及び環境領域の数値データが約20年分収録されており、約250系列の国際データと800系列以上の国内データ(都道府県データ：570系列、市町村データ：250系列)を検索・加工して、時系列図や色塗り地図、散布図などの形で即座に表示できる。

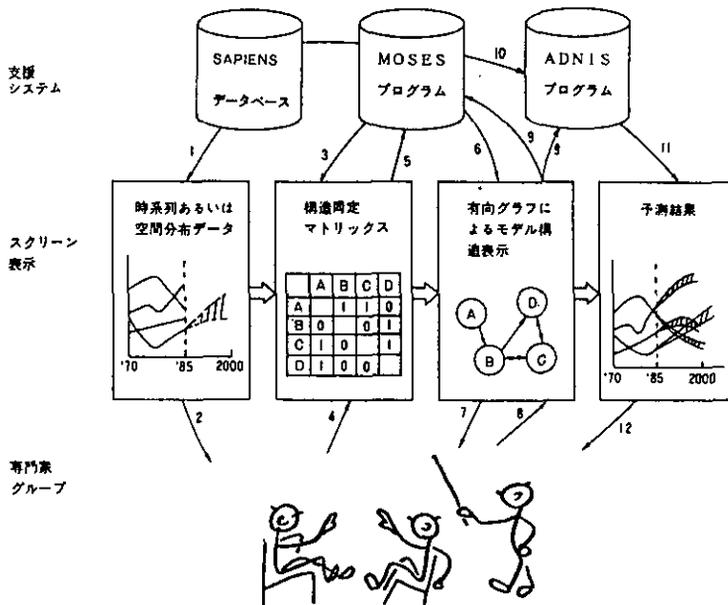


図7 専門家の判断を組み込んで予測する

これらのデータを参照しながら、専門家集団は計算機との対話方式によりモデル構造を決定していく。これには、対象とする事象への人間のイメージを、グラフ理論の助けを借りてマトリクス上に記述していく手法を用いる。図8には、大気中の窒素酸化物の将来変化を予測するため、専門家の判断をもとにモデル構造を決定した例を示している。左側には、検討された24個の変数が13の変数群に集約されたことを示し、右側には、その13の変数群の構造がグラフにより図示されている。こうして同定された構造は、実際の数値データを当てはめて妥当性が検証され、再度、専門家集団にフィードバックされて修正される。この作業も対話方式で行われる。

以上で決定されたモデル構造を使って、次に、数値データの統計解析などによりモデルのパラメータを決定し、数値シミュレーションによる予測を行う。図9には、予測シミュレーションの出力例を示す。図の右側にはモデルの構造を表示し、例えば①は窒素酸化物濃度、②は単位面積当たりの普通貨物交通量、④は非装置型工業出荷額といった変数を示す。矢印は因果の方向である。図の左側には、三つのシナリオを想定してそれぞれのケースについて、(1) 窒素酸化物濃度、(2) バス交通量、(8) 交通用地面積などを予測した結果を示している。これらの予測結果はさらに専門家集団にフィードバックされて、必要に応じてシナリオの変更やモデル構造の修正が検討される。

(5) より体系的な知識の活用をめざして

以上で説明した支援システムは、現在、主要な部分がほぼ完成した状態にあり、63年度はこれを使っていろいろな長期的シナリオを検証し、今後の政策課題を抽出していく予定である。このため、広範囲の領域の専門家に対してインタビュー調査やアンケート調査を行い、知識データの蓄積量を増やすとともに、各分野の中心的専門家を招いてモデリングや予測作業に参加してもらうことを予定している。このような作業を通じて専門家の知恵を体系的に集積し、各種の政策研究に活用していくことをめざしている。

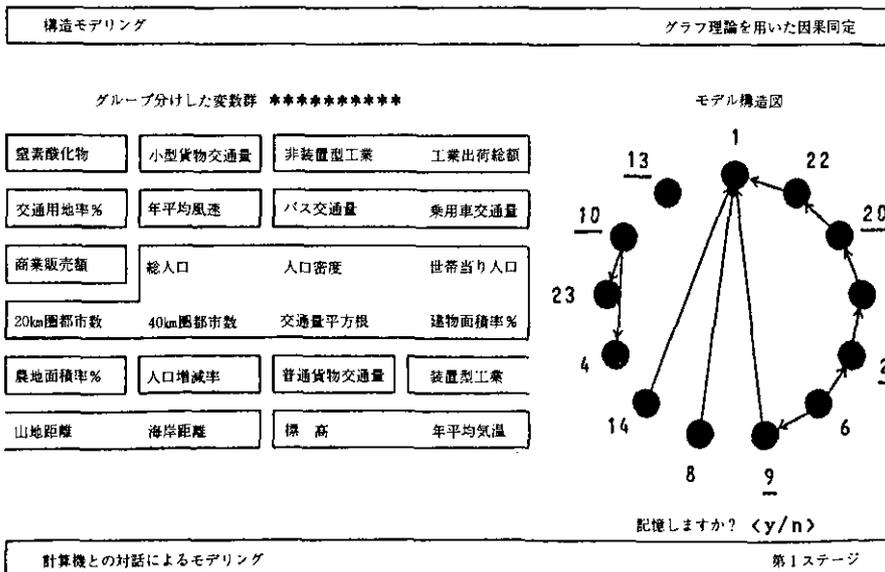
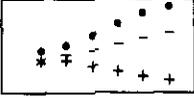
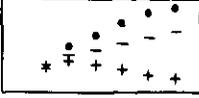


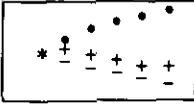
図8 専門家の判断に基づくモデリングの例



(1) 窒素酸化物 (年平均)



(19) 40km圏都市数



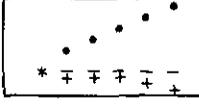
(21) バス交通量 (面積当り)



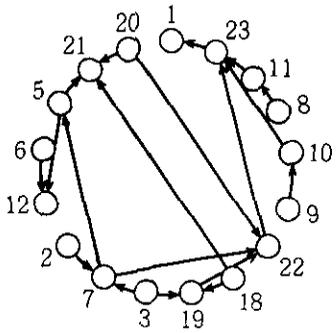
(6) 農地面積率%



(8) 交通用地面積率%



(3) 人口密度



続けますか? <y/n>

図9 専門家の判断に基づく予測の例

2.6 土壌及び地下水圏における有害化学物質の挙動に関する研究

昭和60年度～和64年度

〔研究組織〕 水質土壌環境部

◎村岡浩爾

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

水質環境計画研究室 ○平田健正・大坪國順・福島武彦

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

臨湖実験施設 田井慎吾

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

正体化学計測研究室 森田昌敏・安原昭夫

生物環境部

陸生生物生態研究室 名取俊樹

技 術 部

理工施設管理室 松重一夫

生物施設管理室 山口武則

客員研究員 31名, 共同研究員 10名

〔研究概要〕

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

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

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

- (1) 有害化学物質の環境侵入形態と保全対策
- (2) 土壌中における金属元素の存在形態
- (3) 有機ハロゲン化合物の分析法の確立
- (4) 有害化学物質と土壌の理化学特性の把握
- (5) 有機塩素化合物の浸透と流動
- (6) 土壌環境と有害化学物質の移動特性
- (7) 有害化学物質の植物応答
- (8) 有害化学物質の分解と土壌生態系への影響

以下に(1)及び(8)の課題に関連して、本年度得られた研究成果を紹介する。

〔研究成果〕

(1) 有機塩素化合物による地下水汚染機構と地域地下水汚染の実態

トリクロロエチレン(TCE)等による地下水汚染機構を究明する目的で、地下水汚染と直結する物質原液の水、土壌、地下水での挙動と環境水への溶解量を実験的に調べてきた。TCE等は浸透すれば、土壌や地下水の間隙に原液の塊として残留する。現実には土壌中に侵入し、土壌中に残留したTCEは降雨浸透に伴って溶解し、移動するのだろうか、また溶解すればどの程度の濃度となるのか、円筒カラムを用いて実験した。カラムは内径6cm、深さ20cm、で、その中に鹿沼土を充てんし、あらかじめTCE原液を注入した後、上方から降雨浸透を与える。図1はカラム底からの浸出水に含まれるTCE濃度の経時変化を描いている。結果として、TCEは容易に溶出し、しかもその濃度は浸出開始直後からTCEの飽和溶解度^{注1)}に近い1,000ppmの濃度で溶出する。図1に見るように、浸出開始から高濃度を維持するが、原液がなくなれば、かなり急激に濃度低下するところに特徴がある。

また室内実験と併行して、地下水汚染の実態を知り、具体的な施策を掲げる上で必要な科学的知見を蓄積する目的で、現に汚染されている地域地下水の資料収集と数値シミュレーションを行ってきた。調査を行ったある都市では地下水の一部でテトラクロロエチレン(PCE)による汚染が見いだされた。都市型汚染に見られる典型で、地域内に汚染源らしきものは認められるが、

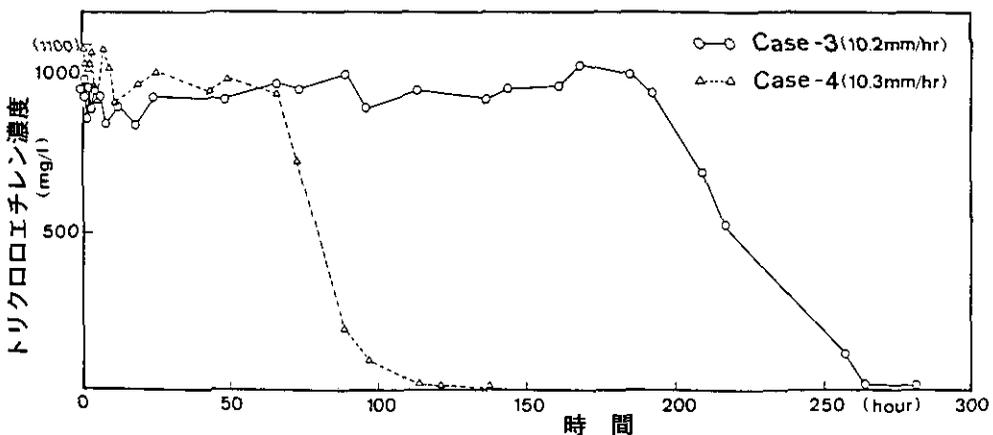


図1 浸出水に含まれるトリクロロエチレン濃度の経時変化

Case-3: トリクロロエチレン注入量8.87g, 流出率66.5%

Case-4: トリクロロエチレン注入量2.96g, 流出率70.8%

特定できない。最近の井戸水調査から、汚染は広がっているようである。また山間部に位置する都市で湧水から PCE が検出された例もあった。

地下水汚染が見つかる、1) 揚水の停止、2) ばつ気等による浄化、3) 他水源の水による希釈等の応急対策はとられるが、それでは今汚染されている状況は将来どのようなようになるのか、また汚染土壌の入れ替え等の対策が講じられたとき、その効果はどうかなどについても明らかにする必要がある。その手法として現在最も有効なものは、数値シミュレーションであろう。また、土壌ガスの調査が地下水汚染の広がりや汚染源点の特定など、モニタリング手法として有効であることが明らかになったので、経済的かつ迅速に行える分析手法を検討中である。

(2) トリクロロエチレン (TCE) テトラクロロエチレン (PCE) の生分解

PCE の土壌中における吸着と生分解を調べるために、ハス田泥 (3 試料)、水田土壌 (2 試料) 及び淡色黒ボク土 (2 試料) を用い実験を行った。約 70 ml のバイアルビンに土壌溶液 50 ml を入れ、これに PCE 及び TCE を 1~50 μg / バイアルビン (水層に対し 20~1,000 ppb) 添加した後ブチルゴム栓をし、アルミキャップでシールした。反応 1 日目の減少量を土壌への吸着量とし、以後の減少を生分解とした。

この実験では、PCE、TCE は、各々 $0.1 \mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ 、 $0.5 \mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ まで正確に測定が可能であった。土壌への吸着量 $Q (\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1})$ は、水層の平衡濃度^{注2)} $C (\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1})$ と直接関係が得られ、 $Q=KC$ で表されるヘンリー型の吸着等温式^{注3)} で近似できた。各バイアルビンに 5 μg の PCE を添加し生分解性を調べた結果、ハス田泥では分解が速く、培養 15 日目に 3 試料でそれぞれ 78%、56%、45% の減少が認められた。水田の 2 試料ではそれぞれ 32%、49% でこの場合もかなりの減少が認められた。また淡色黒ボク土の 2 試料では 23%、7% で減少速度は遅かった。すべての土壌の系で 33 日後に PCE は完全に消失した。PCE の分解に伴い TCE の生成が認められた。ハス田泥系では TCE が水層中で 55 ppb に達し、以後分解されたが、淡色黒ボク土系では、分解された PCE がすべて TCE に変換し、蓄積する現象が認められた。温度は高温ほど分解が速く、10 $^{\circ}\text{C}$ でも分解が認められた。

また、TCE の好氣的生分解機構を明らかにするために、土壌試料 128 サンプルを 1ppm TCE 存在下で培養を繰り返した後、TCE 分解能を持つサンプルを選別した。この系をさらにメタン・空気混合ガス下で培養したところ、酸素、メタンの減少にともなって、TCE の減少が観察された (図 2)。一方、メタンの有無にかかわらず、嫌気条件下では成育及び TCE の分解は認められなかった。100 ppb の TCE で 3 日間培養すると、その 90% 以上が分解され、1ppm、3 ppm、10 ppm、30 ppm 及び 100 ppm の各濃度でそれぞれ培養した結果、30 ppm 以下の濃度では生育が認められ、30 ppm では、16 日間で約 50% が分解された。100 ppm では生育及び分解は認められなかった。さらにメタン以外の炭素源を用いた場合の TCE 分解活性を検討した。この混合系は、メタン以外に、メタノール、エタノール、グルコースにも生育するが、TCE 分解はメタンを炭素源として与えた場合にのみ観察された。また、エタン、酢酸、ギ酸には生育が認められず、TCE 分解もなかった。以上のことから、この混合系には好気性菌であるメタン資化性菌が存在し、TCE の分解に重要な役割を果たしている可能性が示唆された。

(3) 重金属の水質浄化と土壌動物に及ぼす影響

土壌の生物学的な浄化機能は、土壌生態系を構成する細菌、菌類、原生動物、後生動物など多種多様な生物群の働きにより主として土壌に負荷された有機物を分解・無機化する機能に依存し

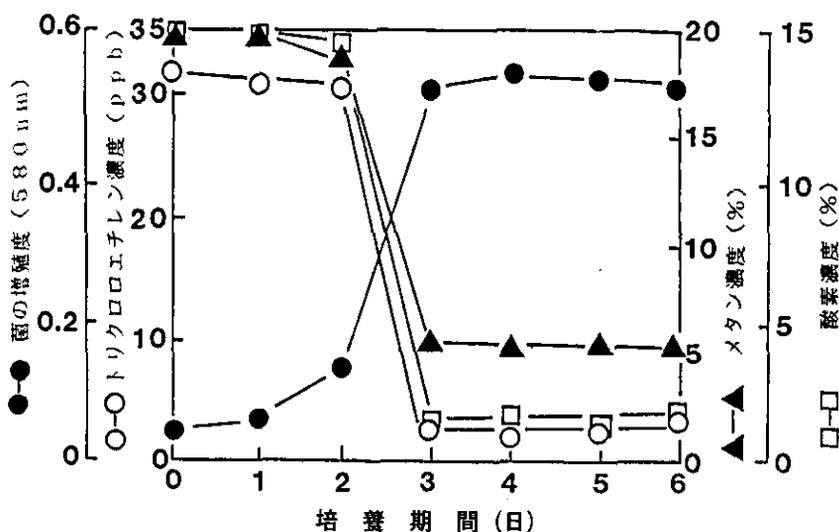


図2 TCEの生分解

ている。ここでは有害化学物質がこのような土壤の浄化機能及び土壤生態系を構成する生物群にどのような影響を及ぼすかを検討している。本年度は重金属の土壤動物 *Eisenia foetida* (シマミミズ)の生存に及ぼす影響を検討すると同時に特に Zn の土壤の浄化機能に及ぼす影響について検討した。

金属が *E. foetida* の生存・増殖に及ぼす影響については、金属を染み込ませたる紙を充てんしたサンプルビンを用いて実験した。生存に及ぼす影響は LC_{50} で評価し、Zn, Pb, Cu, Fe, Mn について検討した。Zn が土壤の浄化能に及ぼす影響については、黒ボク土壤を充てんしたトレンチ構造を有する土壤カラムを用いて実験した。土壤カラムには実験開始前に *E. foetida* を接種し、定量ポンプを用いてペプトン、酵母エキス、肉エキスを主成分とする人工排水を流下した。実験装置は20℃恒温室内に設置した。なお土壤カラム流入水の BOD 濃度は $200\sim 400\text{ mg}\cdot\text{l}^{-1}$ に、水量負荷は $100\text{ l}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{d}^{-1}$ に、Zn 濃度は $0.5\sim 500\text{ mg}\cdot\text{l}^{-1}$ に設定し、定期的にカラム浸透水を採取して、BOD, TOC, N, P, 透視度及び Zn 濃度を分析した。実験終了後にはカラムを解体し、*E. foetida* の固体数及び土壤微生物の生菌数を計測した。

E. foetida の生存に及ぼす金属の影響を検討した結果、 LC_{50} は Zn で $102\text{ mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 、Pb で $>2,000\text{ mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 、Cu で $180\text{ mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 、Mn で $800\text{ mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 、Fe で $>2,000\text{ mg}\cdot\text{l}^{-1}$ であり、生活由来の金属について着目すると、Pb よりも Zn の方が *E. foetida* の生存に及ぼす影響は大きいことが分かった(表1)。

また、土壤カラムを用いた実験で、Zn $5\text{ mg}\cdot\text{l}^{-1}$ を含有する排水を流入させた系においては、浄化能の劣化はおこらなかったが、Zn $500\text{ mg}\cdot\text{l}^{-1}$ を含有する排水を流入させた系においては、ほとんど処理できず、極端な浄化能の劣化が起こった。土壤の持つ有機物分解・無機化能は Zn 濃度の増加に伴って低下した。流下した排水に含まれた Zn が土壤中にすべて均一に蓄積されたと考えて、土壤の有機物分解能に及ぼす Zn の影響を評価したところ、土壤中の Zn 蓄積量が $150\text{ mg}/\text{kg}^{-1}$ 土壤に達するまではまったく影響は認められなかった。また、リン吸着能は Zn の負荷量に関係なく高く、浸透水の T-P は Zn $500\text{ mg}\cdot\text{l}^{-1}$ でも $0.05\text{ mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 以下であった。*E. foetida* は Zn $5\text{ mg}\cdot\text{l}^{-1}$ の負荷量までは十分カラム内で生息可能であったが、Zn $500\text{ mg}\cdot\text{l}^{-1}$ の負荷量ではほ

表1 *E. foetida* の各種重金属に対するLC₅₀ (mg · l⁻¹)

重 金 属	培養時間(時間)			
	24	48	72	96
Zn	> 160	102	40	35
Pb	>2000	>2000	1400	1000
Cu	280	250	210	150
Fe	>2000	>2000	810	640
Mn	>2000	800	400	> 64

とんど息ができないことが分かった。

(4) 土壤中の物質代謝に及ぼすカドミウムの影響

ここでは、重金属のうちカドミウム(Cd)を取り上げ、土壤中の物質代謝に及ぼす影響、阻害機構を明らかにするための実験を行った。

まず5種類の土壤(川砂、砂質土、沖積土、淡色黒ボク土)を用いて、Cd量と、土壤中での汚泥の分解量との関係を調べた。その結果、土壤の種類によらず、土壤中の水溶性Cd量が1μg/g乾土以上になると、その対数値に比例して二酸化炭素発生量及び窒素無機化量が減少することが見いだされた(図3)。またCdの物質代謝阻害機構を明らかにするため、各種有機物の分解に及ぼすCdの影響を調べた。その結果、カゼイン、デンプン、セルロースなどCd吸着性の低い有機物の分解は、Cdによってそれほど阻害されず、逆にCdを吸着しやすい有機物(稲ワラ、たい肥など)は、Cdによって分解が大きく阻害されることが見いだされた(表2)。さらに、土壤中でのグルコースの分解及び微生物相に及ぼすCdの影響を調べた結果、Cd濃度が高い土壤で

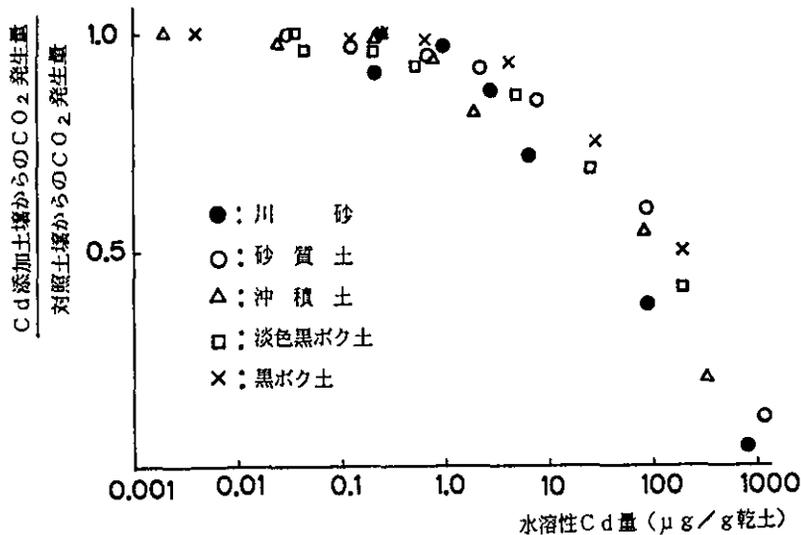


図3 土壤中の水溶性Cd量とCO₂発生量との関係

表2 各種有機物の分解に及ぼす Cd の影響

	Cd 添加土の C 無機化率	Cd 吸着性
	対照土の C 無機化率	
グルタミン酸	94.6%	—
カゼイン	84.4	8.8%
グルコース	88.7	—
デンプン	84.5	15.6
セスロース	90.2	15.8
リグニン	68.2	21.5
稲ワラ	35.6	88.7
稲ワラ堆肥	27.2	84.6
汚泥A	34.3	92.8
汚泥B	70.3	90.2
汚染C	51.8	84.3

もグルコースは3日後には分解され完全に消失した。しかし発生する二酸化炭素量は、Cd濃度が高い土壌ほど少なかった(図3)。また、Cd濃度の高い土壌ほど土壌中の細菌数は少なく、逆に糸状菌数及びATP量^{注4)}は多かった。

以上の結果から、Cdが土壌中の物質代謝を阻害する機構として、Cdが有機物に吸着し、そのために有機物の分解が抑えられる。また、有機物に吸着しない場合でも、土壌中の糸状菌が増加し、バイオマスに取り込まれる炭素量が多くなるため、二酸化炭素まで分解される炭素量は少なくなることが考えられた。

注1) 飽和溶解度：TCEが水に溶けられる最大濃度、25℃で1,100ppm。

注2) 平衡濃度：土壌への吸着が完了し、水層のPCEやTCE濃度が変化しなくなった時の濃度。

注3) ヘンリー型の吸着等温式：気体の溶解度(C)が気体の圧力(P)と $C = k_p P$ の簡単な関係で示されることをヘンリーの法則というが、これと類似の関係で示される吸着平衡式。

注4) ATP：土壌中の総微生物量の指標

2.7 雲物理過程を伴う列島規模大気汚染に関する研究

昭和61年度～昭和64年度

〔研究組織〕 大気環境部

◎秋元 肇

大気環境計画研究室 ○植田洋匡・光本茂記・宮崎 武・花崎秀史・高藪 緑・

○若松伸司・鶴野伊津志

大気化学研究室 鷺田伸明・井上 元・酒巻史郎

エアロゾル研究室 福山 力・○村野健太郎

大気物理研究室 竹内延夫・笹野泰弘・中根英昭

環境情報部

情報調査室 松本幸雄

総合解析部

内藤正明

計測技術部

分析室 溝口次夫・西川雅高・刃刀正行

技術部

理工施設管理室 竹下俊二・上原 清・水落元之

定員研究員 25名、 共同研究員 5名

〔研究概要〕

近年、大気汚染の長距離輸送が顕在化して、欧米では多国間の汚染の授受問題に発展している。本研究はこのような列島規模大気汚染の長距離輸送と、長距離輸送中の大気汚染の一連の形態変化(都市 NO₂ 汚染から光化学オキシダント、硫酸塩・硝酸塩エアロゾル、湿性大気汚染、酸性雨への変化)とに関して、その動態とメカニズムの解明を目的とする。さらに、これら大気汚染を統一的に予測する手法を開発して、排出削減効果の評価等大気保全計画に資することを目的とする。

長距離輸送機構として、季節風によるものと局地風によるものがある。後者は本研究により新たに見いだされたものであり、暖候期、季節風の弱い晴天日発生する種々の局地風(海陸風、斜面上昇・下降風、台地-平地風)が合体し大規模風を形成することによる。本年度、数値モデルにより大規模風の形成メカニズムと種々の局地風の寄与を定量的に示した。さらに臨海地域からの大規模汚染の山岳地域内部にまで及ぶ内陸地域の長距離輸送に関して、NO₂、光化学オキシダント、エアロゾル生成を予測し、観測結果との良好な一致を示した。一方、海上を渡る大気汚染長距離輸送と湿性大気汚染、酸性雨の動態解明のための野外観測に着手した。

〔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-日本海沿岸間の汚染問題と、(2)朝鮮半島-日本海-九州間の汚染問題を対象とする。前者は、本研究

で新たに見いだされたもので従来北欧、北米で言われている大気汚染長距離輸送とは全く異なり、暖候期、季節風の弱い晴天日に熱的に誘起される種々の局地風(海陸風、定常海風、斜面上昇・下降風、台地—平地風、定常平地風)が結合して生成される大規模風によって輸送される。後者は、北欧、北米の場合と同様、汚染物質は季節風により長距離輸送される。しかし、この場合には日本海上で著しい気団変質(降雨、雲を伴う)を受けるのが特徴である。

(1) 沿岸地域から内陸山岳地域に及ぶ広域大気汚染

1) 熱的に誘起される局地風

気圧傾度によって生じる風(傾度風)が弱い晴天日には、種々の局地風が熱的に誘起される。このような局地風としては、海陸風、山谷風(斜面下降・上昇流)、台地—平地風などがあり、このような局地風の発達する状況は大気汚染にとって最も深刻な状況である。さらに、局地風はしばしば結合して、より大規模な局地風を形成し、その中で汚染物質の長距離輸送が起こる。

大気汚染物質の主要発生源である大都市、工業地帯は臨海(あるいは臨湖)地域にあることが多い。臨海(湖)地域での大気汚染には海陸風(湖陸風)が重要な役割を担っている。海陸風は海・陸表面の温度差によって引き起こされる一日周期の流れで、メソスケール(100kmスケール)の大気循環を形成する。日中は、下層の海風と上層の補償風(反流)とで閉じた循環流を構成する。夜半にはパターンが逆転し、下層の陸風は4時頃最も盛んで、10時と22時頃になぎになる。また、海陸風の構造は気圧傾度や緯度のほか、海岸線の屈曲や陸地の起伏によって変化する。中緯度地域の海陸風では、日中海風層の厚さは600~900mで、夜半陸風層厚さはやや小さく、反流層の厚さは1~2km程度である。

上記の海陸風は海陸の温度差によって生じるが、温度差の1日平均値をゼロとしたときのものである。実際、日本の場合には、夏季、陸地の日平均温度の方が海面温度より高い。また、寒流に面する地域でもこのような温度差があり、これによって海から陸に向かう風が生じる。これを定常海風と呼ぶ。また、温度差が逆で陸から海に向かって生じる風を定常陸風と呼ぶ。これらが海陸風と重畳して臨海気候の季節変化や地域差を構成している。

単純な定常海風と海陸風に対して理論的な厳密解を求め、それらのフローパターンを比較してみると、海岸線に直角な風速成分Uの鉛直分布はほぼ相似で、下層に海風が吹き、その上に補償風が形成されて閉じた循環流を構成する。定常海風、海陸風は共に、海陸の温度差1K当たり海岸線付近で0.7m/s程度の風速を生む。また、海風層の厚さ、海風の範囲などもほぼ同じになる。このことから、海陸風と定常海風は同一のメカニズムによって生じると考えて差し支えない。逆に、日周期変化は比較的遅いため海陸風は擬定常状態にあるとすることができる。このような相似性は、海岸線に直角な風速成分Uについて言える。しかし、大気中の流れでは、地球の自転に伴って生じるコリオリカを介して、海岸線に平行な風速成分Vが生みだされ、Uと同じオーダーの強さになる。海陸風の場合にはV成分の生成が日周期変化に追従できず、特に上空では定常海風のV分布とは相当異なったものになる。

斜面の加熱、冷却に伴って斜面上昇、下降風が形成される。このとき、上空にはこれを補償する反流が形成され、山麓、山頂で閉じた山谷風循環を形成する。無限に長い斜面については、L. Prandtlが解析を行っており、これが観測や数値計算結果を良く説明できることが確かめられている。

平野部と山岳地域の間には、斜面風のほかに重要な局地風が形成される。いま、単純に、水平な平地と台地とがあり、これらの表面温度が同一振幅で日周期変化しており、これらの境界が鉛

直な断熱壁で構成されている場合を考える。もちろん、台地と平地との高度差がない場合には運動は起きないが、高度差があれば台地—平地間に循環流が形成される。これを台地—平地風循環と呼ぶ。図1に日中のフローパターンを示す。大気下層には平地から台地に向かう風(平地風)が形成され、上層には反流が誘起されてメソスケールの大気循環を構成する。また、夜半にはフローパターンが反転し、大気下層には台地風が形成される。

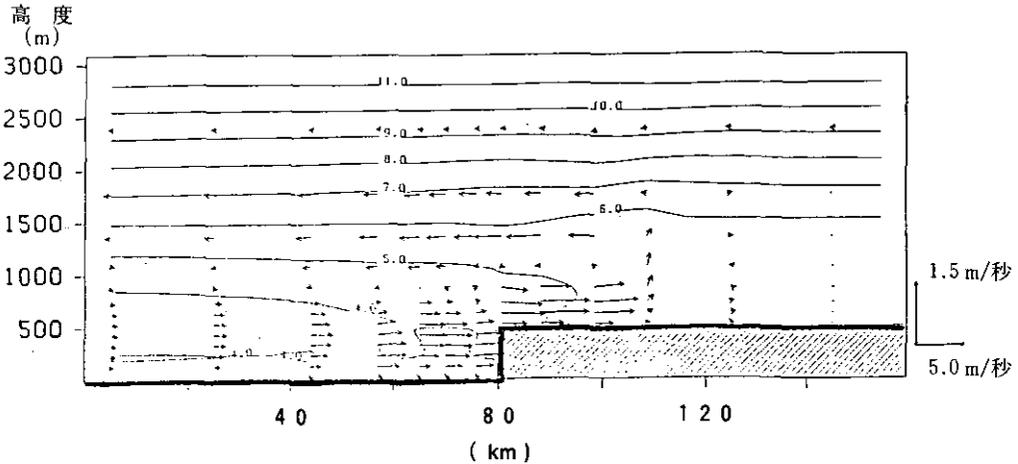


図1 台地—平地風最盛時の風速ベクトルと等温位線図

このような大気循環の強さは台地—平地間の高度差が増大するにつれて増すが、高度差が500 m程度以上になると一定値に漸近する。図1はこのときのフローパターンである。これを海風最盛時の海陸風のパターンと比較すると、平地上空の台地高度までの気層を除けばパターンはほぼ相似と言ってもよい。台地上に限って言えば、平地風の層厚、侵入距離は海風のそれとほぼ同じであり、最大風速はともに温度差1度あたり0.7 m/sになる。これらの相似性から、台地—平地風も海陸風と同様のメカニズムに従っているのではないかと推測される。実際、台地—平地間の高度差が十分大きければ台地高度での温度条件は海陸風の場合と同じになる。すなわち、高度差が十分大きいとき、平地上に形成される混合層や逆転層の影響は平地上空の台地高度にまでは及ばないため、そこでの温度は一日を通じてほぼ一定に保たれる。これに対して、同一レベルの台地表面温度は海陸風の場合の陸地温度と同一のパターンで日周期変化する。このようにして生じた水平方向の温度傾度が台地—平地風、海陸風を起動すると考えられるので、両者は本質的に同一のメカニズムによっていると言うことができる。また、上記の台地—平地風は、台地表面温度の日平均値が平地上空の台地高度の平均値と同一であるとしたときのものである。しかし、例えば中部山岳地帯の場合、夏季にはその日平均温度が周辺の平野部より2~4度高く、冬季にはその逆になる。このとき、定常海風の場合と同様、定常平地風あるいは定常台地風ともいべき風が形成され、しかも、これらの構造及びメカニズムは海陸風と同様のものであると言うことができる。

2) 局地風の結合

夏季の日中、臨海地域では海陸風と定常海風が重畳して大規模海陸風 (extended sea breeze) が

形成される。海陸風と定常海風の相似性のため、これらが重畳してもフローパターン自体は大きく変化しないが、循環流の強さは増幅される。このため、海風の影響範囲(例えば風速0.5 m/s以上の地域)は拡大する。これに、高気圧から吹き出す傾度風が重なると影響範囲は更に拡大し、大気汚染物質の輸送も100 kmにも及ぶことがある。米国西海岸地域ではこのような状態が何日も連続する。このとき、上空には高気圧の下降気流に伴う沈降性逆転層が形成され、これによって大気はふたされた状態になって、閉鎖型の循環を形成する局地風の中では、排出された汚染物質は何日間にもわたって蓄積され、その間に光化学反応が進行して高濃度のオキシダント汚染やスモッグが発生する。ロサンゼルス光化学スモッグは特に有名で、ロサンゼルス・スモッグと呼ばれ、オキシダント濃度は日本より数倍高い500~600 ppbにも達する。

日本の場合、臨海地域は幅が狭く背後に山岳斜面を控えている場合が多い。このときには、海陸風と斜面風が結合して、見掛上、海陸風循環のスケールは拡大し、風速も増す。また、斜面風の位相はほぼ斜面温度の位相に追従していることから、これが海陸風と結合したとき、大規模循環の位相は純粋の海陸風の場合よりも1~2時間程度早められる。

平野部が十分広く、しかも山岳地域の面積も十分広いような場合、台地-平地風に比べて斜面風の寄与は比較的小さい。実際、台地-平地の境界に500 m/20 kmの斜面がある場合の日中のフローパターンをみると、斜面直上に斜面上昇流が形成されているものの全体のフローパターンは図1とほとんど同じで、台地-平地風が支配的であることがわかる。このことは斜面の勾配が変わったときにも言え、平地-斜面-台地から構成される地域での局地風は、従来直感的に考えられていたような斜面風によるのではなく、台地-平地風によって起動されていると考えることができる。さらに、夏季には台地-平地風と定常平地風が重畳して、日中、山岳地域の中央部に中心をもつ熱的低気圧が現われ、山岳地域に向かう風は増幅される。逆に、冬季には夜間的高気圧が形成される。

海-平野-斜面-山岳から構成される地形の例として、関東甲信越地域の局地風と大気汚染の輸送を示したのが図2である。これは高気圧に覆われた夏季の晴天日の日中にみられる最も典型的なパターンである。臨海地域には海陸風、定常海風が形成され、斜面には山谷風が形成されるが、山岳地域の中央部に日中熱的低気圧が形成され、これに吹き込む台地-平地風、定常平地風が種々の局地風を併合して大規模な風系を形成する。東京湾岸地域の工業地帯や大都市から大量に発生した汚染物質はまず関東平野を北上し、平野部奥部で進路を西寄りに変えて碓氷峠などの関東山地を越え、中部山岳地帯の内部に侵入する。このとき、高気圧に伴う沈降性逆転層が形成され、上方への拡散が抑制されているため、高濃度大気汚染の長距離輸送は200 km以上にも及び、汚染気塊が熱的低気圧の中心位置に到達するのは夜半になる。このため、通常日中に起こる光化学スモッグは夜半に発生する。

3) 光化学スモッグ、硫酸塩・硝酸塩汚染の予測

NO_x、SO_xや炭化水素など一次汚染物質は日射を受けて反応し、光化学オキシダント汚染、光化学スモッグをもたらす。さらに反応が進行すると硝酸塩・硫酸塩エアロゾル、湿性大気汚染、さらに酸性雨に移行する。数値モデルには、気相反応として112個の素反応(53個の化学種)が含まれ、これらが連鎖状に、あるいは並列的に関与する。さらに、粒子生成機構としてHNO₃(気相)-NH₃(気相)-NH₄NO₃(固相、液相)の気-液-固平衡関係、さらに地面への乾性沈着、雲、雨への取り込み、液相反応過程を含む。

数値予測は、東京湾沿岸域から長野に至る大気汚染物質の長距離輸送が発生した1983年7月

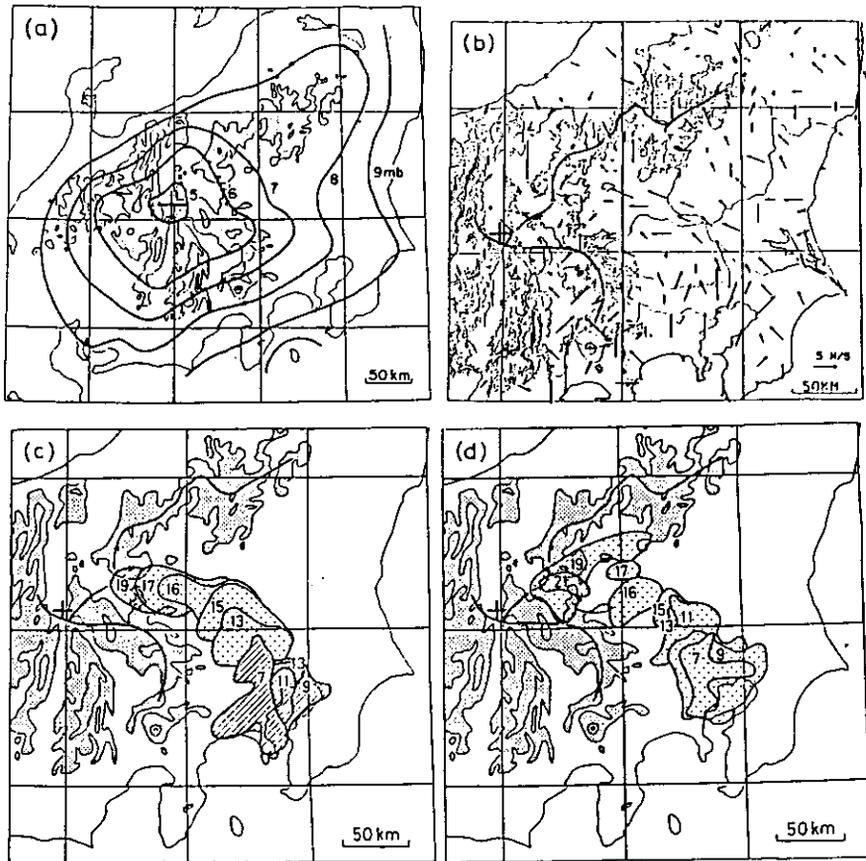


図2 大気汚染の長距離輸送

(a)地上気圧, (b)地上風ベクトル, (c)ガス状汚染物質の高濃度域の移動
 (□; オキシダント濃度 > 100 ppb, ▨; NO₂ 濃度 > 40 ppb, 図中数字は時刻), (d)粒子状汚染物質(sp)の高濃度域の移動 (sp > 90 µg/m³)

28日～29日について実施した。観測結果の比較を図3から図8に示す。このような大気汚染の長距離輸送は夏季晴天日には最も頻繁に発生する輸送パターンである。東京湾沿岸地域で排出されたNO_xと炭化水素は日射を受けて徐々に反応してO₃を生成し、その濃度(図3)は浦和、高崎で100 ppbを越え、碓氷峠を越える頃(軽井沢)には150 ppbにも達する。また、この地域で日平均濃度(図4)も最大になる。一方、NO₂(図5)は大規模発生源地域で高く、東京、横浜では10～11時に環境基準を越える。汚染気塊が東京湾沿岸地域から流下するにつれて、NO_xは炭化水素との光化学反応により消費されてその濃度は減少するが、NO₂は反応によりHNO₃ガス、硝酸塩(図6)、PANなどに変質し、これらの濃度は浦和、高崎などで増加する。このように、O₃、PAN、硝酸塩・硫酸塩などの二次汚染物質濃度は、浦和～高崎など関東平野北西奥部で最大になり、地表植物への暴露量も最大になる(図4)。

本数値予測は、O₃、NO₂、HNO₃、NOだけでなく、SO₂、硫酸塩についても観測結果を良く説明している(図7、8)。また、各種の炭化水素やアルデヒド、ギ酸などについても観測値との良好な一致がみられる。以上のことから、本数値モデルの結果は光化学大気汚染、硫酸塩・硝酸塩汚染をほぼ忠実に予測していると考えられる。

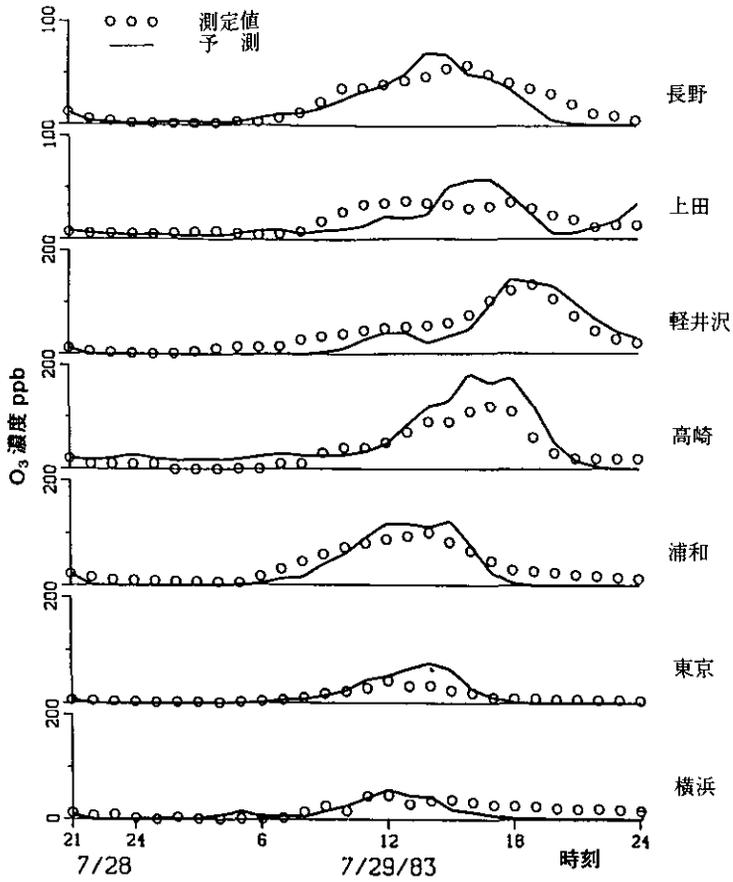


図3 大気汚染長距離輸送日のオゾン濃度
観測結果と予測結果の比較

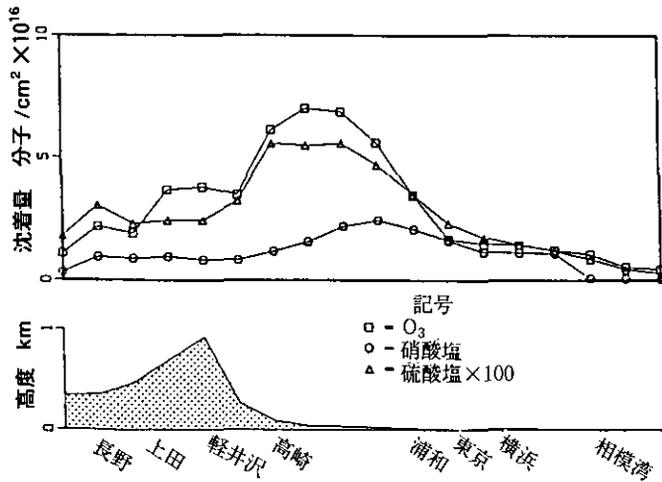


図4 大気汚染長距離輸送日の二次汚染物質の地面への沈着量の分布

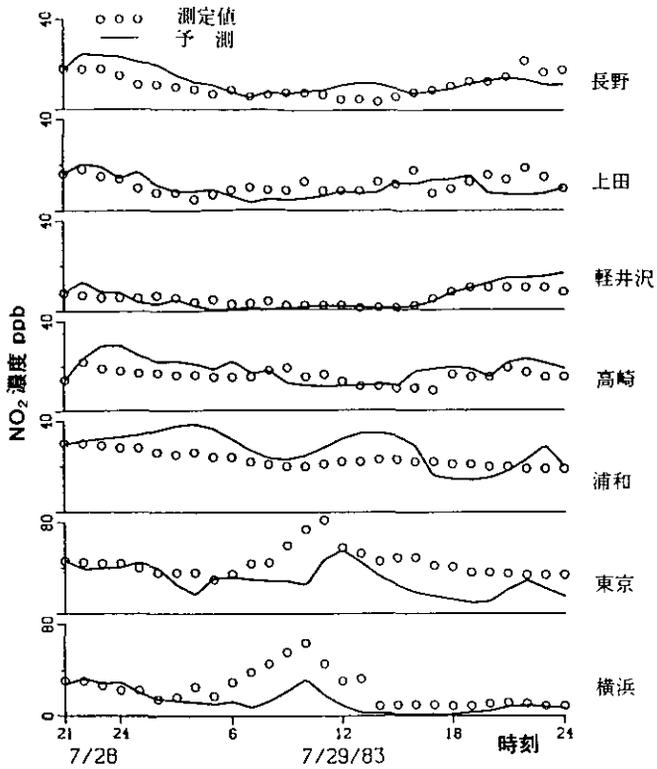


図5 大気汚染長距離輸送日のNO₂濃度
観測結果と予測結果の比較

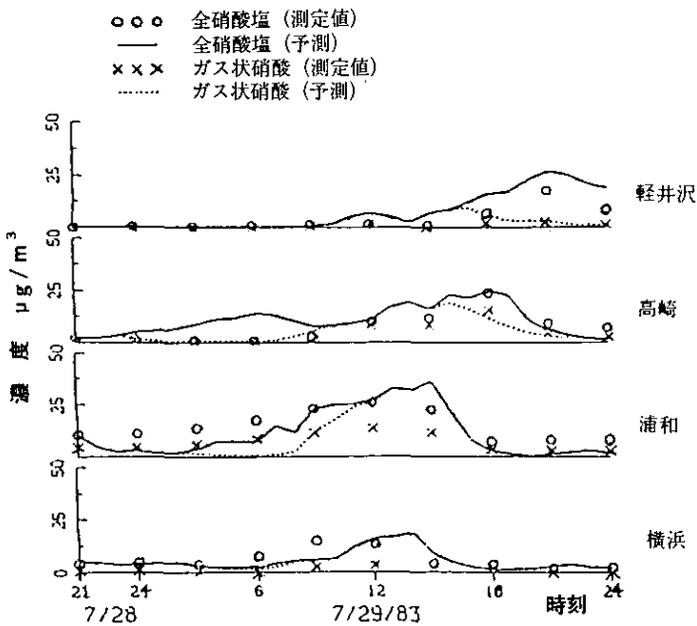


図6 大気汚染長距離輸送日のHNO₃ガス、硝酸塩濃度
観測結果と予想結果の比較

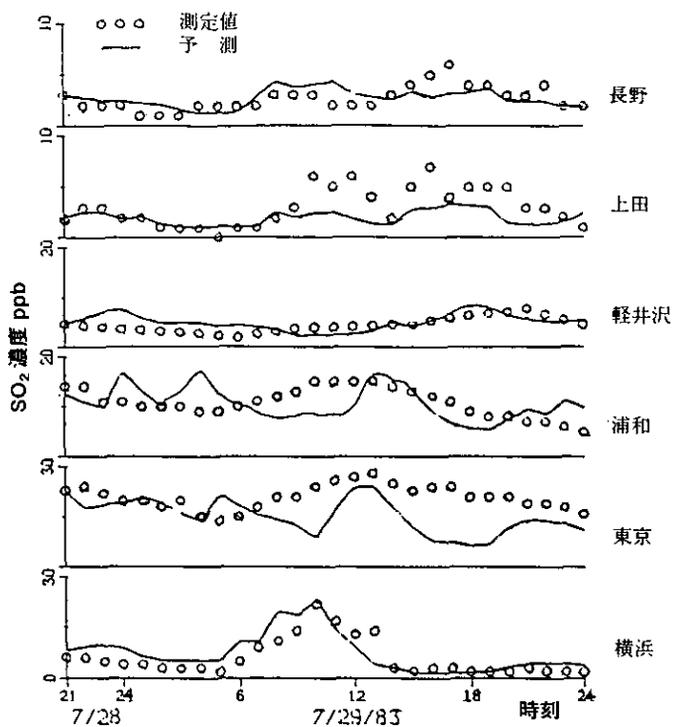


図7 大気汚染長距離輸送日のSO₂濃度
観測結果と予測結果の比較

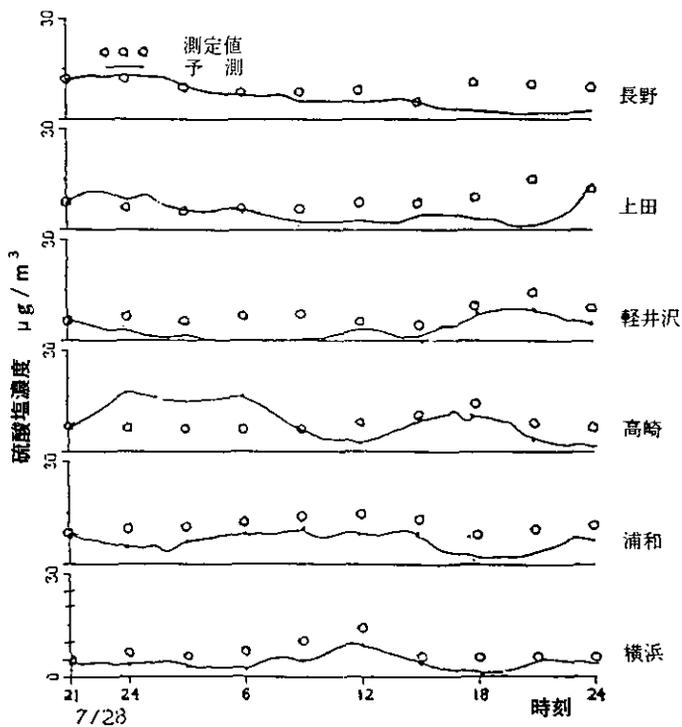


図8 大気汚染長距離輸送日の硫酸塩濃度
観測結果と予測結果の比較

(2) 海上を渡る広域大気汚染

九州北部地域における大気汚染物質の挙動を明らかにするために昭和62年5月6日から1週間、二次汚染物質を含む地上観測及び航空機観測を実施した。現在までに次のような結論が得られている。

1) 海上では大気境界層が発達しないため汚染物質は数100mの薄い気層に閉じ込められ、高濃度で長距離輸送される。山口県萩の沖合35kmの見島でも100ppb以上の O_3 が観測された。これは九州北部地域(距離150km)からの汚染物質の海上での光化学反応によるものであると考えられる(図9)。

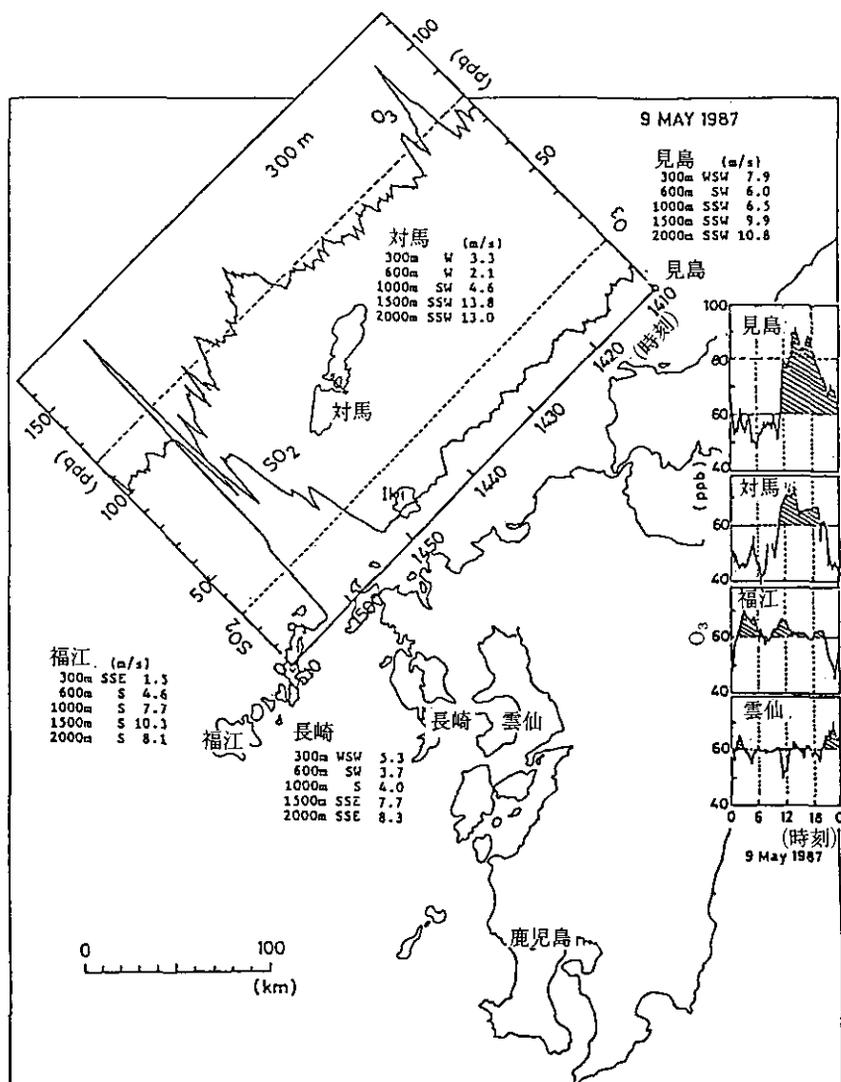


図9 北九州地域の典型的な大気汚染状況(5月)

2) また、高濃度の SO_2 が上空で観測された。図 9 には 5 月 9 日 14:10~15:10 見島から福江にかけての高度 300 m での SO_2 と O_3 濃度の分布と見島、対馬、福江、雲仙での地上 O_3 濃度の日変化を示したが SO_2 高濃度は桜島の噴煙によるものと思われる。このことは、長崎県雲仙の野岳で実施している通年観測でも高濃度 SO_2 がしばしば観測され、その出現は桜島の活動と比較的良く対応していることから分かる。

(3) まとめ

1) 内陸を渡る大気汚染については、その長距離輸送の機構が明らかになった。さらに、長距離輸送中の一次汚染物質、ガス状、粒子状二次汚染物質の予測もほぼ可能になった。今後、雲粒、雨滴、霧水中の汚染物質の挙動を中心にした観測と予測を実施する予定である。

2) 海上を渡る大気汚染については、長距離輸送に伴う海上での高濃度二次汚染物質の生成と火山起源の SO_2 問題が提起された。今後、観測と数値予測を行い、これらの機構を内陸上でのそれと対比させながら明らかにする。

2.8 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～昭和65年度

〔研究組織〕 生物環境部

◎菅原 淳

生理生化学研究室 ○近藤矩朗・田中 浄・島崎研一郎・竹内裕一・榑 剛・
佐治 光・久保明弘

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

技 術 部

生物施設管理室 ○大政謙次・安保文彰・藤沼康実・山口武則・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 27名

〔研究概要〕

近年、各地で O_3 やPANを主成分とした光化学オキシダントによると思われる傷害が植物に発現しているとの報告がなされている。しかし、現在、PAN等についての常時監視体制に相当するものではなく、植物を用いた大気環境評価手法の確立が急務である。そこで、光化学二次汚染物質の可視的植物影響やタンパク質、遺伝子等の分子レベルでの影響の解明を行うとともに、植物組織培養や遺伝子組換え技術等のバイオテクノロジーを利用して野外における光化学二次汚染物質による大気環境の汚染状況を評価するために有効な指標植物の開発・探索手法を確立し、指標植物による野外の大気環境評価法の開発を行うことを目的として研究を始めた。

光化学二次汚染物質に対する植物反応の指標性を明らかにするため、光化学オキシダントが植物に及ぼす影響の作用機作を明らかにし、光化学オキシダント処理によって特異的に変化する植物反応を見だし、汚染質濃度と植物反応の定量化を目的として研究している。その結果、光化学オキシダントによって特異的に変化する植物反応のいくつかが判明してきている。現在、指標反応性の検討を継続するとともに、汚染質濃度を植物反応指標性を用いて定量的に評価するためのデータを蓄積する研究を行っている。また、バイオテクノロジーによる指標植物の作出法を開発するため、バイオテクノロジーの技術を取得するとともに、この技術を用いて光化学オキシダントを構成する種々の汚染質に特異的に反応する指標植物の作成を試みている。これまでに光化学オキシダントの主成分である O_3 による傷害発現に関与する主要な酵素の単離・精製に成功し、これらの酵素のcDNA^{注1)}断片を作成することに成功している。また、 O_3 処理によって一部のタンパク質の増減が観察されている。さらに、交雑育種、突然変異誘起剤処理による突然変異誘起法^{注2)}の検討も行っている。

本研究では、指標植物の探索と選抜に関しても研究を行っており、現存する野生植物種や栽培植物種、さらに人為的に作成した植物種の中から光化学オキシダントに対して特異的、選択的性質を有する植物種を選抜することを試みている。この試みを遂行するために、 O_3 とPANに対

する感受性の種間、品種間差を調べ、感受性の差異を決めている要因の検討を行っている。このようにして開発、選抜した指標植物の系統保存と増殖をどのような手法で行い、植物の安定供給を行うためにはどのような手法を用いるべきかを明らかにするため、指標形質を有する植物個体もしくは細胞をクローン化する手法を取得し、系統保存方法を確立するための研究を行っている。これまでに、PANに高い感受性があるペチュニアの母系統から自己繁殖によって後世代を得、形質の遺伝的変異性を検討した。

指標植物を用いて客観的に大気汚染状況を把握するために、植物に発現した傷害の診断法を開発することを目的として、生育環境下の植物から非破壊で植物の生理情報を得るための画像計測及び電気計測の手法を開発するために研究を行っている。その結果、これまでにクロロフィル蛍光動画像計測装置^{注3)}を開発し、生育環境の履歴を異にする植物や培養細胞の光合成の機能診断に適用した。さらに、指標植物の保存を行う目的で植物種の検索システムのための画像データベースを作成し、葉の形や色から品種を決定するエキスパートシステムを開発した。今後は、より高性能な計測システムの開発を行うとともに、指標植物を用いての環境評価を行うためのエキスパートシステム^{注4)}の開発を行っている。

光化学二次汚染物質の作成、供給手法を確立することを目的として、これまでにPANの液相合成法^{注5)}の安定性を検討し、供給手法の確立と濃度制御手法の検討を行うとともに、植物によるPAN吸収速度の測定法を確立するため、NO_x計を用いた自動制御装置の検討を行っている。

野外で発生している植物被害の状況を調査し、光化学オキシダントに感受性が高く、指標植物として適当な植物種を把握し、探索と選抜のための一助とし、指標植物を野外に配置する際の栽培手法を検討するとともに、指標植物を用いた野外大気環境のモニタリングに有効な手法を確立することを目的として研究を行った結果、これまでに次の成果を得た。光化学オキシダント濃度が高い地域にPAN感受性の高いペチュニアの一品種を配置し、配置方法の検討を行った。今後の研究としては、植物の個体差、令による感受性の変化について調査し、より精度の高い配置法の検討を行う予定である。

【研究成果】

本研究の研究成果の概要は、研究概要において述べた。そこで、62年度の研究において、とりわけ成果の上があった研究に関する成果の一部について報告する。

(1) PAN及びO₃感受性の植物品種間差

前述のように、近年、PANによると思われる可視害^{注6)}が野外において様々な植物種に発現しているとの報告がなされている。しかし、感受性は植物種によって異なるばかりではなく、同一植物種であっても品種によって感受性が大きく異なることは良く知られている。指標植物を探索し選抜するためには、どのような植物種のどの品種が何の汚染質に感受性が高いのかについて明らかにしておく必要がある。

ハツカダイコンは、これまでの研究結果からO₃に対して感受性が高いことが明らかになっており、ペチュニアはPANの指標植物として知られている。また、タバコの一品種(Bel-W₃)もO₃に対して高い感受性を有することが知られている。しかし、これらの植物種や品種がPANとO₃に対して、他の植物種、品種と比較した際にどの程度の感受性を示すのかについては明らかでない。そこで、光化学オキシダントの主成分であるO₃及びPANに対するペチュニア、タバコ、ハツカダイコンの感受性の品種間差を調べた。なお、PANの処理は本特別研究によって

開発した装置を用いて行った。

表1に、PANとO₃処理によってペチュニア18品種に発現した可視害の程度を示した。25 ppb PAN処理によって可視害発現が顕著であったのは、ナナコンパクター系のホワイトであった。50 ppb PAN処理では、ほかにホワイトエンサイン、タイタンレッド、タイタンホワイトに最も高い可視害の発現が見られた。この結果は、白花系統のペチュニアがPANに対して感受性が高いことを示している。タイタンレッドは赤花系統ではあるが、25 ppb PAN処理では可視害の発現は観察されなかったため、他の白花系統よりもPAN感受性は低いものと思われる。一方、O₃に対する感受性は、概して低く、ナナコンパクター系のサーモンに顕著な可視害が観察されただけであった。タバコの8品種に対するPANとO₃の影響を調べた結果(表2)、PANに対してはブライトイエローとサムソンが、O₃に対しては、高感受性品種として有名なBel-W₃が傷害を最も激しく受けた。O₃処理によって著しい可視害の発現が観察されたBel-W₃でも、PAN処理による可視害の発現は見られず、同じ光化学オキシダントの成分であるPANとO₃の植物に対する作用機構は全く別であることが明らかになった。ハツカダイコンについても同様の調査を行った(表3)。ハツカダイコン10品種のどの品種でもPANに対する感受性は低く、150 ppb PAN処理によっても、4品種にわずかに可視害が発現したにすぎなかった。

指標植物としては、ある大気汚染質に対して特異的に反応し、葉面に可視害が汚染質の濃度に対応して発現するような植物種が適当である。そこで、表に示した結果からも、どの植物種のどの品種がPANやO₃の指標植物として適当かの判断は可能ではあるが、より分かりやすく比較するために、PAN処理によって発現した可視害の程度とO₃処理によって発現した傷害の程度との関係を図1に示した。

表1 PANとO₃による可視害発現のペチュニアの品種間差

品 種	PAN		O ₃
	25 ppb	50 ppb	200 ppb
ホワイトエンサイン	+	+++	-
タイタン系ローズ	±	++	+
タイタン系レッド	-	+++	-
タイタン系ブルー	-	+	+
タイタン系ホワイト	-	+++	-
リカバラ系ピンク	±	+	+
リカバラ系サーモン	-	+	+
ローズパラソル	+	+	-
レッド系チャンピオン	±	+	+
レッド系ピコッチャー	±	+	-
ブルーフロスト	±	+	±
フルコンサーモン	±	+	+
ミッチェル	-	++	-
ナナコンパクタ系バイオレット	±	+	±
ナナコンパクタ系サーモン	±	+	++
ナナコンパクタ系ローズ	-	+	+
ナナコンパクタ系ホワイト	++	+++	±
ナナコンパクタ系スター	-	-	±

可視害の程度を5段階に分け、可視害の見られなかったものを-、可視害の最もひどかったものを+++とした。

表2 PAN と O₃ による可視害発現のタバコの品種間差

品 種	PAN			O ₃	
	100 ppb	150 ppb	200 ppb	100 ppb	200 ppb
キサンチ	±	+	++	-	±
キサンチ NC	±	+	++	-	±
ブライトイエロー	++	++	+++	-	+
ホワイトパロー	-	-	+	+	++
Bel-W ₃	-	-	-	+++	+++
Bel-B	-	-	-	-	++
サムソン	+	++	+++	-	++
<i>Nicotiana glutinosa</i>	±	+	+	-	+++

可視害の程度を5段階に分け、可視害の見られなかったものを-、可視害の最もひどかったものを+++とした。

表3 PAN と O₃ による可視害発現のハツカダイコンの品種間差

品 種	PAN		O ₃
	100 ppb	150 ppb	200 ppb
コメット	-	-	+++
ホワイトチェリッシュ	-	-	-
フレンチブラックファースト	-	+	++
スパークラー	+	+	+
カラフルファイブ	-	-	+
紅白	±	-	+++
紅娘	±	-	++
さくらんぼ	-	-	+++
雪小町	±	+	++
大赤丸	±	+	+

可視害の程度を5段階に分け、可視害の見られなかったものを-、可視害の最もひどかったものを+++とした。

図からも明らかなように、PAN もしくは O₃ のどちらかによって傷害を受ける植物種と両汚染質によって同程度に傷害を受ける植物種とがあった。PAN もしくは O₃ のどちらかのみによって傷害が発現する植物種が汚染質に特異的に反応していると考えられることから、PAN の指標植物としてはペチュニアが、O₃ のそれにはハツカダイコンが適していることになる。ペチュニアの中でも白花系統の品種が PAN に対して感受性が高く、とりわけナナコンパクター系統の白花(ホワイト)が PAN の指標植物に適しているものと考えられる。タバコの一品種である Bel-W₃ が O₃ に極めて高い感受性を示すのに対して PAN 処理によってまったく傷害が発現しないため、O₃ に対する指標性は高いが、実際に野外で栽培するには様々な制約があり、我が国で用いる指標植物としては不適当と思われる。ハツカダイコンの栽培は容易で、植物体が小さく、どこにでも配置できることから、コメットやさくらんぼのような品種は O₃ に対する指標植物と

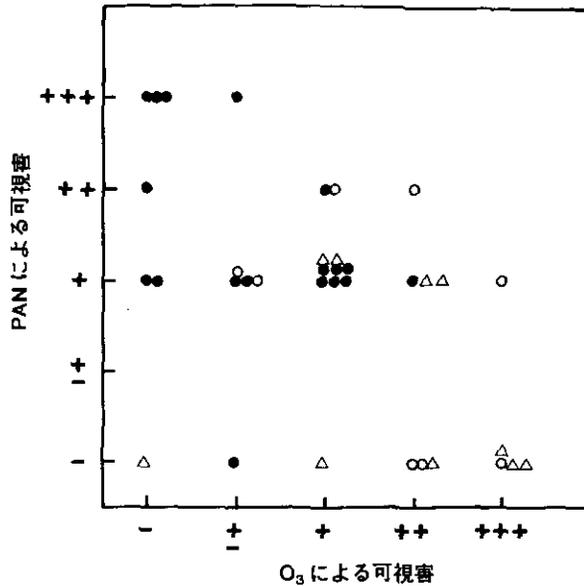


図1 PANとO₃処理によってペチュニア、タバコ、ハツカダイコンの種々の品種の葉面に発現した可視害の程度の関係
 ペチュニア：(●)，タバコ：(○)，ハツカダイコン：(△)
 可視害の程度を5段階に分け、可視害の見られなかったものを-、可視害の最もひどかったものを+++とした。O₃濃度は200 ppb、PAN濃度はペチュニアで50 ppb、タバコとハツカダイコンで150 ppb。

して有効ではあるが、個体による傷害発現の程度に差があるので、個体差の少ない均一な個体を作成することが今後の課題である。実際に、本特別研究において、ナナコンバクター系ホワイトを野外に配置してPANの汚染状況を調べ、このペチュニアの品種がPANに対する指標植物として有効であることが判明している。しかし、PANの濃度が高まったと思われる時においても傷害の発現が見られないことがある。このような感受性の後退現象が何によるものかを明らかにすることも今後の研究課題である。

注1) cDNA：mRNA (伝令RNA) を鋳型にして合成したDNA。

注2) 突然変異誘起法：突然変異を誘起する方法。

注3) クロロフィル蛍光動画計測装置：葉面からの蛍光を継続的に測定する装置。

注4) エキスパートシステム：ある専門分野についての画像による人間とコンピューターとの会話形式。

注5) 液層合成法：液層で合成する方法。

注6) 可視害：肉眼で識別できる被害。

2.9 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～昭和65年度

〔研究組織〕 水質土壌環境部

◎村岡浩爾

海洋環境研究室 ○渡辺正孝・渡辺 信・原島 省・木幡邦男・中村泰男

陸水環境研究室 矢木修身・稲森悠平・内山裕夫

土壌環境計画研究室 高松武次郎

情報環境部

情報システム室 宮崎忠国

情報調査室 横田達也

総合解析部

総合評価研究室 安岡善文

計測技術部

分析室 切刀正行・西川雅高

技術部 須藤隆一

客員研究員 6名, 共同研究員 3名

〔研究概要〕

内湾海域における富栄養化は産業排水や都市排水などの流入に伴って進行し、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いる。ここでは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いる。このため種々の汚濁物質の質的、量的変動とそれともな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。

〔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

昭和62年7月20日から8月13日まで、現場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, 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(図1)。現場の物理・化学・生物的鉛直構造を調査するため

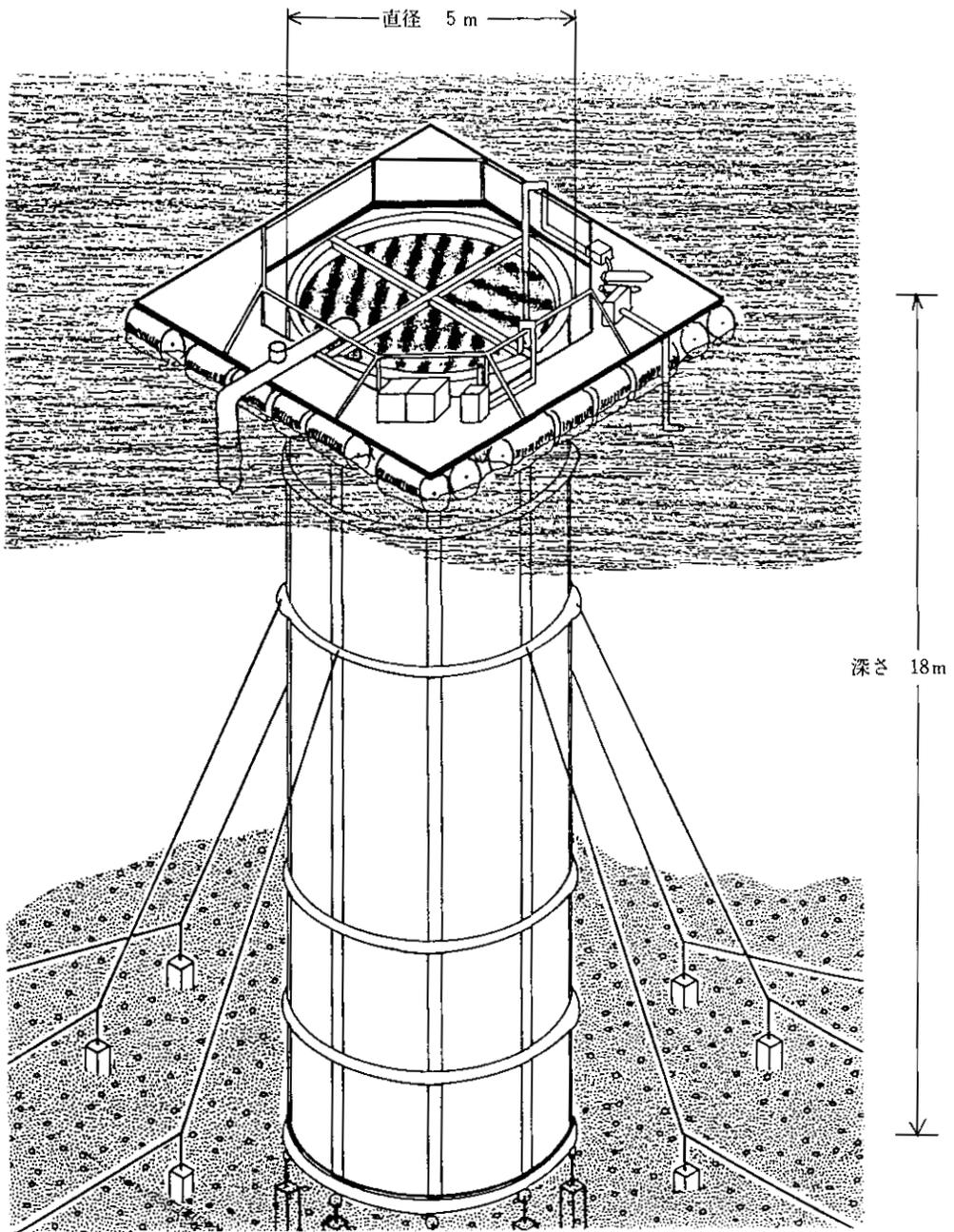


図1 現場メゾコズム

に、表層から底層まで鉛直方向に5 m ごとに5点でサンプリングした。化学環境・生物相は2日に1度調査し、物理環境は毎日計測を行った。

特に、本年度は、調査海域で調査期間中に *Chattonella antiqua* による大規模赤潮が発生し、*Chattonella* 赤潮発生前・発生中・発生後の詳細なデータを集積することができた。同時にメゾコズム実験を行っており、メゾコズム内生態系と現場環境データとの比較により、系の相似性と安定性を解析する基礎資料を得た。赤潮発生期間中に現場で3時間ごとに24時間観測を行い、

Chattonella の日周鉛直移動を確認できた。

(2) 制御実験系を用いた富栄養化の影響評価に関する研究

1) 指標藻類の環境変動に対する応答特性の解析

赤潮生物の多くは冬期海底泥中に休眠胞子(シスト)として存在しており、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。したがってシストの形成・発芽条件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。このような観点から、*Chattonella antiqua* のシストを培養実験系で形成させることを試みた。リンの枯渇した培養系にカバーグラスを懸濁させて本種を培養すると、定常期に達した数日後、ガラス片上に多数のシスト状細胞が固着しているのが見いだされた。このシスト状の細胞は、今井ら(1986)によって、海底泥中から見いだされた本種のシストと酷似していた。現在培養容器中に見いだされたシストが低温保存(10℃)の後も発芽能力を持つのか否かを検討中である。またシスト形成条件をより精細に併せ検討している。

海水マイクロゾム^{注1)}で赤潮原因種の1つである *Pyramimonas parkeae* と *Heterocapsa triquetra* を培養し、炭素・窒素量、光合成色素量等の変化を観察し、前年度に行った *Heterosigma akashiwo* と *Chattonella antiqua* についての同様の実験と比較した。光合成色素は、それぞれの種で特徴的な組成であり、色素組成から現場における特定種の占有率推定を試みた。種によって構成元素の含有量・要求量には差があり、例えば、*P. parkeae* のリン要求量は *H. akashiwo* や *C. antiqua* の半分程度であった。

海水マイクロゾム内に赤潮発生現場で特徴的に見られる水温・塩分・栄養塩の成層条件^{注2)}を形成し、特に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た。リン欠乏状態で培養した *C. antiqua* を導入後、日周鉛直移動を行わせつつ培養し、夜間での底層におけるリン摂取と表層でのリン代謝過程を³¹P-NMR^{注3)}を用いて解析した。昨年度実験した *H. akashiwo* は、夜間底層でリン摂取を行うとともにポリリン酸としてリン蓄積を行った。しかし、*C. antiqua* では、夜間底層で摂取したリンを無機リン酸のままで生体内に蓄積し、ポリリン酸の蓄積は見られなかった。両種は、昼間表層において、夜間に蓄積したリンを用いた光リン酸化反応を行っていることが判明した。

2) 指標動・植物プランクトン及びバクテリアの相互作用に関する研究

赤潮藻類 *Chattonella antiqua* と播磨灘で採集した数種のケイ藻(*Chaetoceros* sp. *Amphiprora* sp. 他)との混合培養を行い、藻類種間の相互作用を研究した。一方、播磨灘に存在したケイ藻のうち、*Chaetoceros* sp. と *Amphiprora* sp. に *C. antiqua* への増殖阻害がみられ、接種後3~4日後に *C. antiqua* 細胞濃度は著しく減少した。前記2種ケイ藻の培養のろ過液やクロロホルム抽出液には阻害作用がみられず、生きた細胞だけが *C. antiqua* の増殖を阻害した。この主な原因の1つは、前記2種ケイ藻の方が、増殖速度が *C. antiqua* に比べ2倍ほど速く、また栄養塩摂取も速いことから、栄養塩を介しての競合で *C. antiqua* に勝るためと考えられる。前記2種ケイ藻培養のろ過液で *Chattonella antiqua* を培養するとその細胞形状に著しい異常が見られた。この事は、ケイ藻が単に栄養塩競合において *C. antiqua* に勝るだけでなく、*C. antiqua* の増殖を抑制する何らかの物質を放出している可能性を示唆する。海域では、赤潮の発生する夏期は温度成層が発達し、ケイ藻の大部分は沈み増殖を続けられない。しかし、混合等で *Chaetoceras* sp. 等の増殖を維持できるなら、その阻害性により *C. antiqua* 赤潮の発生を防げる

であろうことが推察される。

3) 富栄養化の赤潮発生に及ぼす影響評価

1987年7月中旬から8月中旬にかけて、瀬戸内海家島諸島において環境調査を実施した。調査開始時 10 cells/ml 以下であった *Chattonella antiqua* は次第に個体群を拡大し8月初旬には赤潮を形成した(水柱全体の平均濃度 = 250 cells/ml)。赤潮生物の消長と同時に、現場の物理化学的環境のモニタリングも行った。その結果、以下の点が明らかとなった。

① 現場における個体群密度の変化から推定した *C. antiqua* の増殖速度は $\sim 0.2 \text{ d}^{-1}$ (約3日で個体数が2倍)であった。この値は現場吊下実験から推定した値とよく一致していた(図2)。

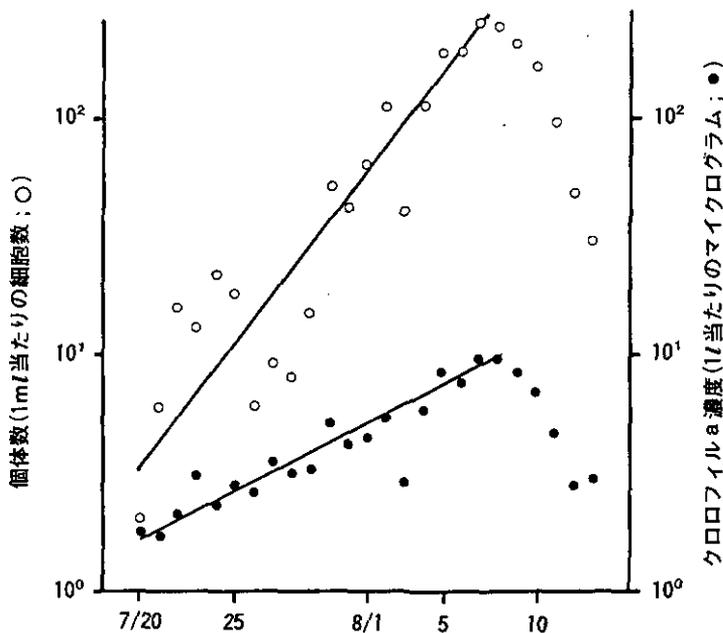


図2 *Chattonella antiqua* 個体数(水柱での平均値)の経日変化

② 調査期間中を通じて水温・塩分は *C. antiqua* の増殖の至適範囲にあった(図3)。

③ *C. antiqua* の増殖にとって必須なビタミン B_{12} は赤潮の発生しなかった86年と同程度の濃度 (1.5~7 ng/l) 存在しており、さらに本種の増殖は B_{12} によっては律速されていなかった。

④ N, P-栄養塩濃度は調査開始時水柱全体を通じて高い値を示した。温度成層の発達と *C. antiqua* の増殖に伴い表層 (0~5 m) の栄養塩は速やかに枯渇したが、赤潮の発達期間中 (7/20~8/3), 10 m 層以下では、高濃度の栄養塩 ($[\text{NO}_3^-] \geq 2 \mu\text{M}$, $[\text{PO}_4^{3-}] \geq 0.2 \mu\text{M}$) が存在していた。8月4日以降は風による鉛直混合と、*C. antiqua* による摂取によって、10 m 層以下での栄養塩濃度も減少し、赤潮がピークに達した8月7日には水柱全体 (20 m) で無機態窒素 (DIN) は $0.1 \mu\text{M}$ 以下になった。一方リン酸塩は完全には枯渇しなかった(図4)。

⑤ *C. antiqua* の増殖速度の PO_4^{3-} , DIN 濃度依存性に基づいて無次元パラメーター GP^{注4)}を導きだした。GPは現場海水がどの程度の速さで *C. antiqua* を増殖させうるかを示す一種の増殖ポテンシャルである。GPの分布を87年と、赤潮の発生しなかった85年で比較すると、GPの高い

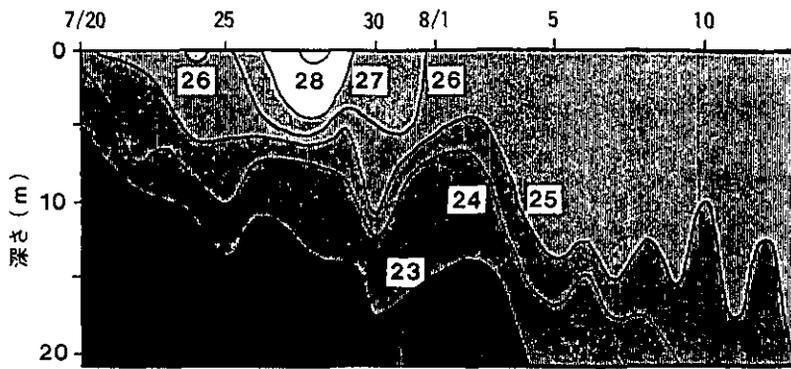


図3 水温(°C)の変化

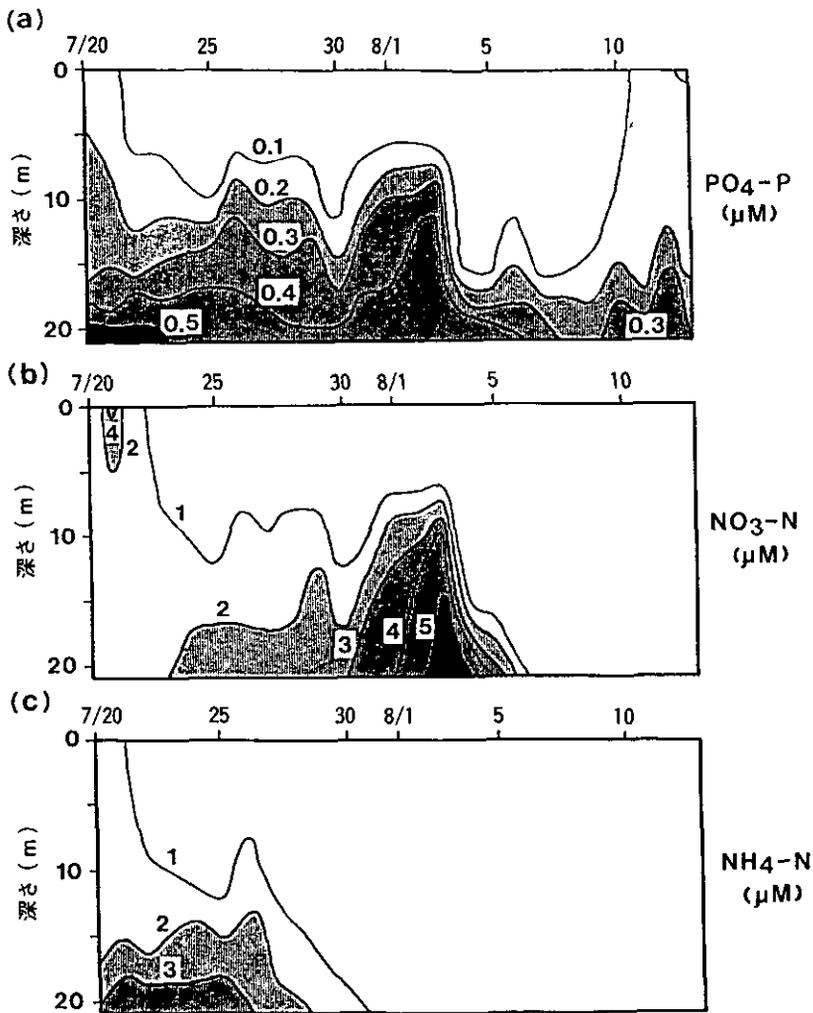


図4 N, P-栄養塩濃度の経日変化

(≥ 0.6)海水が、87年には底層から10 m層にまで存在しているのに対し、85年は15 mより深い深度でしか存在していなかった。*C. antiqua*の生息深度は0~15 mであるので、87年には本種は10 m以深に存在している高いGPの値を持つ海水を利用して比較的速やかな増殖を維持できたと考えられた。一方、85年の場合、本種の生息深度でのGPは低く(≤ 0.2)、速やかな増殖を維持することが不可能となって赤潮を形成し得なかったと思われる(図5)。

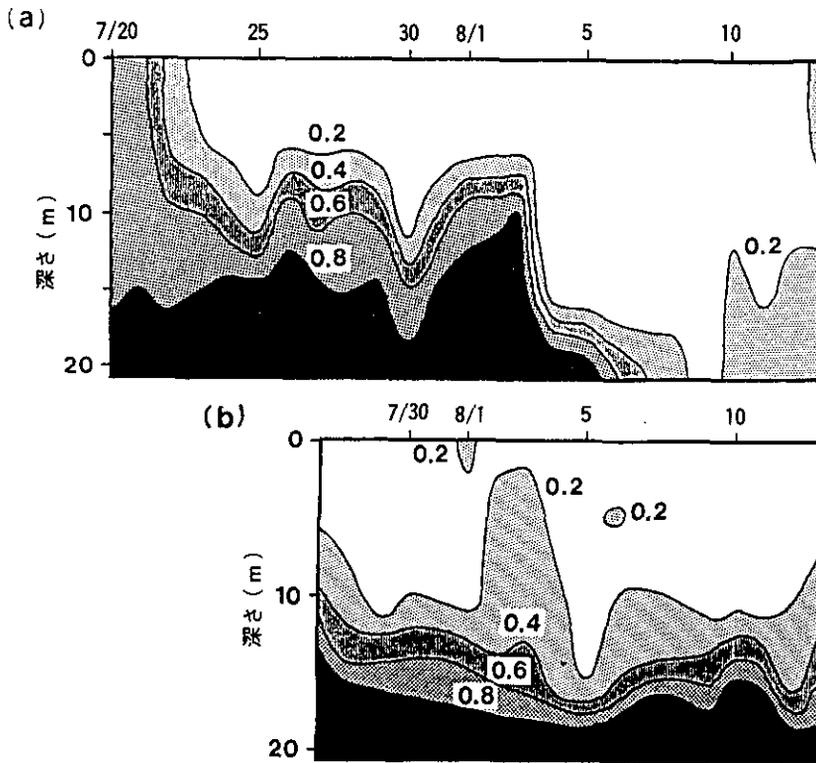


図5 GPの変化
 (a) 87年 赤潮発生
 (b) 85年 赤潮発生

⑥ 調査期間中を通じてケイ藻類は極めて少なかった。Si(OH)₄はつねに10 μM以上の濃度が存在していたので、ケイ素がケイ藻類の増殖を律速していた可能性は否定された。また現場の海水にN, P, Si, ビタミン, メタルを同時に添加した海水中で、ケイ藻 *Skeletonema costatum* を培養しても速やかな増殖が認められたことから、これら以外の未同定化学物質(e.g. *C. antiqua*が生産するケイ藻の増殖抑制物質)がケイ藻類の増殖を抑制していた可能性も否定され、何故87年にケイ藻類が少なかったのかについて明確な解答は得られなかった。

以上、高いGP値を持つ海水が*C. antiqua*の生息深度にまで“突き上げて”きた事が、87年の赤潮の1つの原因と考えられた。しかしながら、何故*C. antiqua*が他の藻類より卓越したのかについては、今後の研究をまたなければならない。

(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

現場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(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。海底に底部を固定シダイバーにより底部を完全に埋め込んだ後, シート部を静かに引き上げ生態系を捕獲する方法をとった。実験期間は昭和62年7月20日~8月13日の25日間であった。測定項目は水温, 塩分, 照度, 透明度, DO, 栄養塩類(リン・窒素・ケイ素), 微量金属, 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。深度7mで取水し, 表層1mで放流する循環系により鉛直混合を行った。さらに外部5m層から取水し, ミリポアフィルター(5 μ mと2 μ m)によるろ過後メゾコズム内1m層に放水する流入系を設置した。生態系を捕獲後7日間そのまま状態で維持し, 流入量は平均5m³・d⁻¹であった。8日目の朝, 窒素・リンを添加し人為的富栄養化実験を開始した。添加量は鉛直7m層が均一に混合しているとしてその層内の濃度がそれぞれ2.14 μ M(NO₃-N), 0.14 μ M(PO₄-P)となるよう17日間毎日添加を行った。それと同時にメゾコズム内の閉鎖性を増加するため外部との海水交換を約半分とした。動・植物プランクトンの種同定, バクテリア量測定及び微量金属量測定等で得られたデータは現在解析中である。N, P添加と閉鎖性の増加に伴う植物プランクトンの網レベル組成の変遷について得られた結果の一部を以下に示す。植物プランクトンの存在量は, それぞれの網に特徴的な光合成色素量の測定値から算出した。現場生態系を捕獲後7日間はケイ藻類をはじめとして当初捕獲した種組成を維持することができた。メゾコズム内N, P, Si濃度も大きな変動を示さなかった。N, P添加後は, 表層0mと5m層でのSi濃度が急激に低下した。これはN, P添加により多量のケイ藻類が急激に増加し, その結果Siが多量に摂取されたことと, さらに海水交換の半減により外部からのSi供給が半減したために, 表層5m層内ではN, Pは十分であるが, Siが制限状態となったためと考えられる。また, ケイ藻類の沈降効果も大きく, ケイ藻類のピークが時間とともに底層部へと移動していることが色素鉛直分布より判明した。このような機構により植物プランクトン組成はN, P添加と閉鎖性の増加に伴いケイ藻→渦鞭毛藻類へと変遷したと考えられる。本実験によりメゾコズム内に十分な鉛直混合と海水交換を与えることにより, 現場生態系を安定に維持することが可能となった。さらにそれら制御因子と人為的富栄養化の度合との組み合わせによりメゾコズム内の植物プランクトン組成の変遷が支配されていることが示唆された。

注1) 海水マイクロコズム: 容量1m³の純粋培養装置で現場海域の水温・塩分・栄養塩の鉛直分布構造を再現できる培養系である。

注2) 成層: 夏期現場海域に見られる表層での高水温・低塩分及び底層での低水温・高塩分状態を言い, 上下の混合が著しく低下する。

注3) ³¹P-NMR: 核磁気共鳴を用いてリンの様態を知る測定装置。

注4) GP: PO₄濃度(S_{PO4}), DIN濃度(S_N)の関数として次式で表される。

$$GP = 1.4 \cdot \frac{S_{PO4}}{0.11 + S_{PO4}} \cdot \frac{S_N}{1.0 + S_N}$$

GPの大きな値を示す海水ほど, *C. antiqua*を速やかに増殖させうる。

2.10 先端技術における化学環境の解明に関する研究(初年度)

昭和62年度～昭和66年度

〔研究組織〕 計測技術部

◎松下秀鶴

生体化学計測研究室 ○森田昌敏・安原昭夫・岡本研作・植弘崇嗣・柴田康行

大気計測研究室 安部喜也・横内陽子・向井人史

水質計測研究室 大槻 晃・河合崇欣・古田直紀・白石寛明・野尻幸宏

底質土壌計測研究室 相馬光之・相馬悠子・瀬山春彦・田中 敦
分析室 溝口次夫・伊藤裕康・刃刀正行

環境情報部

後藤典弘

情報システム室 春山暎美

総合解析部

情報管理研究室 甲斐沼美紀子

資源循環研究室 ○中杉修身・乙間末広

環境経済研究室 仁科克己

大気環境部

大気化学研究室 鷺田伸明・畠山史郎・井上 元

水質土壌環境部

陸水環境研究室 矢木修身・内山裕夫

環境生理部

環境病理研究室 白石不二雄・米元純三

環境生化学研究室 三浦 卓・国本 学・高橋勇二

環境保健部

環境保健研究室 安藤 満・松本 理

環境疫学研究室 平野靖史郎・田村憲治

人類生態研究室 鈴木和夫・遠山千春

生物環境部

水生生物生態研究室 安野正之・畠山成久・宮下 衛

技 術 部

動物実験施設管理室 高橋 弘・高橋慎司・伊藤勇三

客員研究員 10名、 共同研究員 2名

〔研究概要〕

世界中で報告されている化学物質は760万種類を越え、産業的に生産されている数は5万種類を越えると言われている。このような化学物質は、その有益性の半面、人の健康や生態系に悪影響を及ぼす可能性を持つものもある。化学物質の安全性については職場での衛生、あるいは流通、

取扱い上の危険防止などの面で注意が払われてきているが、化学物質の使用あるいは使用後の廃棄の過程や環境において変化して、間接的に環境を汚染し、結果として影響を与えるという問題についてはまだ解明されるに至っていない。

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

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

(1) 環境中の化学物質の分離・分析手法に関する研究

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

(2) バイオセンサーの開発に関する研究

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

(3) 化学物質の環境中における変化と移行過程に関する研究

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

(4) 化学物質による環境汚染を防止するための方法論に関する研究

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

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

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

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。

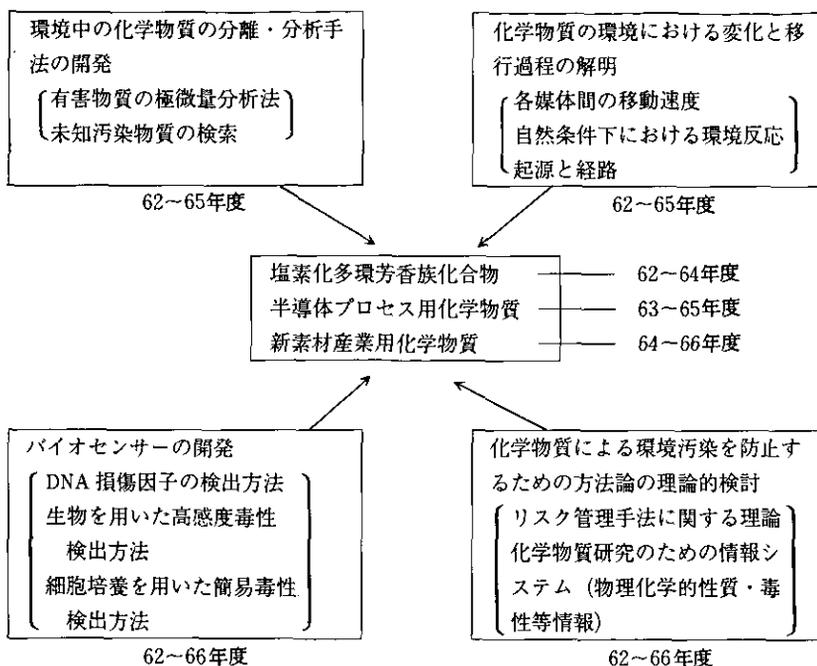


図1 年次計画

〔研究成果〕

環境中の化学物質の分離・分析手法に関する研究として、高分解能ガスクロマトグラフ質量分析法について重点的に検討を行った。JEOL-HX 110(最高分解能^{注1)} $m/\Delta m = 100,000$)を用いて、極微量化学物質の分析について次のような結果が得られた。

① 分解能 $m/\Delta m = 10,000$ での質量スペクトルの測定は感度をほとんど失わずに測定可能である。

② 分解能 10,000での SIM 検出^{注2)}の選択性は $m/e = 319,8966$ の質量数において DDE ($C_{14}H_8^{35}Cl_2^{37}Cl_2$)の m/e ^{注3)} = 319,9321の影響を 1/500 程度に減少させる。

③ キャピラリカラム(DB-1)ガスクロマトグラフ-SIM 検出(分解能10,000)法を用いることにより、最小検出下限は 50 フェムトグラム ($10^{-15}g$)に達する。

④ 測定質量数の自動スイッチングにより、塩素数の異なる同族体も同時の分析条件で測定可能である。

以上のことが明らかとなった。本手法を用いることにより、従来検出することが不可能であった一般大気中のダイオキシン(2, 3, 7, 8-TCDD)の検出・定量が可能となった(図2)。この濃度は人の健康に影響を及ぼすものではないが、TCDDの環境動態を知る上で価値がある。

化学物質の環境における変化と移行過程の解明に関する研究として、トリクロロエチレン、パークロロエチレン、フロン113を対象物質として検討を開始した。大気中のこれらの物質の自動測定手法の確立と常時監視手法について一定の成果が得られた。またこれらの物質の挙動を数理的に予測する手法について検討した。大気濃度について13種の揮発性有機塩素化合物を対象として、沸点、生産量、用途、人口密度、水溶解度、蒸気圧、OHラジカル反応速度等をパラメーターとして予測式を求めた。蒸気圧、水溶解度、用途、人口密度を用いた場合の予測式は次のようなものとなった。

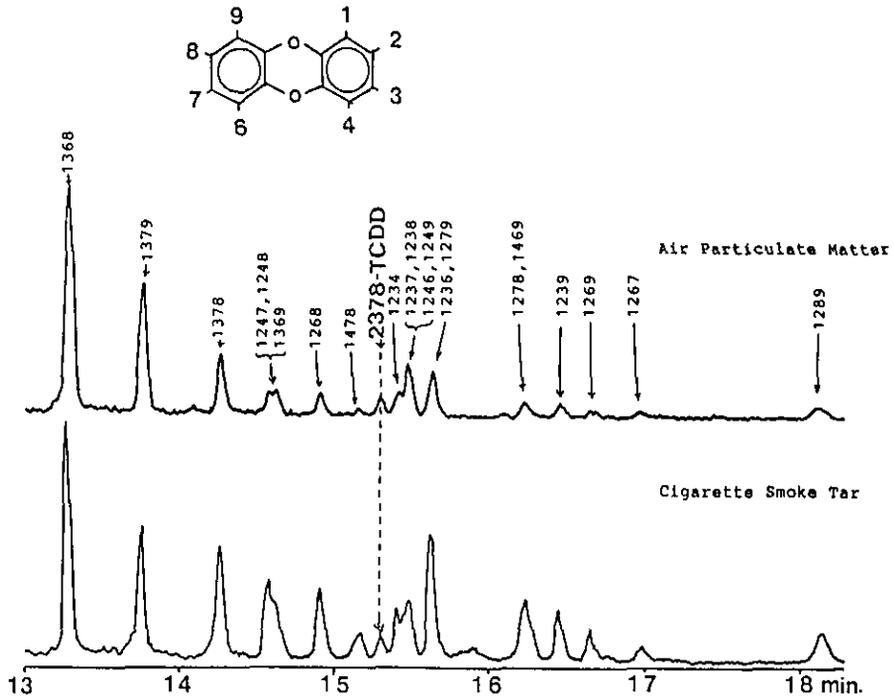


図2 大気粉じん中の四塩化ダイオキシンのガスクロマトグラフパターン

$$\log C_{\text{air}} = -2.80 + 0.0914 \times \log(\text{人口密度}) + 1.046 \times \log(\text{蒸気圧}) - 0.718 \times \log(\text{水溶解度}) + 0.200 \times \log(\text{生産量}) + 0.323 \times \log(\text{用途})$$

$R^2 = 0.675$ であった。(R = 相関関数)

この予測式により環境大気中の濃度がオーダーのレベルで予測できることが明らかとなった。このようなアプローチは、数万種と言われる多数の化学商品の環境中での濃度を推測する上で役立つものである。

バイオセンサーの開発に関する研究としては、ショウジョウバエの突然変異原性を簡易に検出する系について検討した。化学物質暴露量評価のために、デカフルオロビフェニールを内部標準として添加する手法を検討した。また高感受性の水性生物としてヌカエビの利用についても検討した。その他の生物検定手法についても検討し、その応用としては後述の塩化ジベンゾフランを研究対象とした。

化学物質による環境汚染を防止するための方法論の理論的検討として、まずその基盤となる化学物質情報の収集整理を開始した。約15,000種の物質について、CASナンバー^{注4)}、分子量、分子式、構造式、沸点、融点等の物理化学的性状を、そのうちの約6,000種の物質について生産量、生産方法、価格、毒性、生産業者、用途等についても記載したファイルの作製を行った。またマススペクトルデータの収集を行った。また方法論の検討として、クロスメディアアプローチ^{注5)}、リスク構造の解析、データベース設計の検討、優先物質の選択手法の検討を行った。

上記4手法の応用研究の例として、モノ塩化ジベンゾフランの生成機構及びその生物影響に関する研究を実施した。分析や毒性実験のためには、モノ塩化ジベンゾフランの標準品が必要であり、市販品がないため、その合成法の検討を行い、合成した標品を用いて以下の研究を行った。

生成機構として、ジベンゾフランの塩素化、塩化ビニリデン樹脂の熱分解生成、固相表面でのクロロフェノールからの触媒の生成を検討した。低濃度塩素による塩素化は、酸性側 (pH 2.3) で効率よく生成し、pH 7.6 では生成しなかった。水中での塩素化反応を考える上で興味ある結果が得られた。塩化ビニリデン樹脂は 500°C での熱分解により樹脂 1g 当たり 1-クロロ 0.2 μ g, 2-及び 3-合計 2 μ g, 4-クロロ 0.4 μ g をそれぞれ生成した。モンモリロナイトに吸着したクロロフェノールからはヒドロキシクロロジベンゾフランが生成された。以上いくつかの生成源から微量ながらモノ塩化ジベンゾフランが生成されることが明らかになった。また、これらのモノ塩化ジベンゾフランの生体影響として、マウスの LD₅₀ 代謝, 変異原性, 胎児毒性, 酵素誘導能, 生態毒性について検討した。薬物の量に制限があり, LD₅₀ の正確な値が求められなかったが, おおむね DDT 並みの急性毒性と推定され, 強毒性の 2, 3, 7, 8 四塩化ジベンゾフランに比較して, はるかに弱いことが明らかとなった。また代謝実験においては, 2-モノクロルジベンゾフランは急速に代謝され, 代謝物は尿中に排泄されること, 48時間後に残留するのは15%程度であることが明らかとなった。したがって, 蓄積性はあまりないと推定された。変異原性については, 2-クロロ及び 4-クロロ体は陰性, 3-クロロ体が陽性であることがエームズテスト^{注6)} (TA 98, TA 100) で明らかとなった。ショウジョウバエの系では, 2-クロロ, 3-クロロ, 4-クロロ体とも陽性であり, 特に 3-クロロ体が比較的強かった。チャイニーズハムスターの白血球細胞を用いた姉妹染色体交換においては, S9 存在下で 1-クロロ, 3-クロロ, 2-クロロ体が, S9 不在下で 3-クロロと 2-クロロ体が, 弱いながら陽性を示した。胎児毒性としては 1.5 mM の 2-クロロ体で成長阻害がみられた。薬物代謝酵素 (AHH 活性) の誘導において 3-クロロ > 4-クロロ > 2-クロロの順の強さで誘導能⁷⁾ を示し, またこの順で細胞の呼吸活性を抑制した。1-クロロ体及び無置換のジベンゾフランは陰性であった。生態毒性として, 水性生物の半数致死濃度 (LC₅₀) を求めた。グッピー (96時間) では 4-クロロ体で 2ppm, オオミジンコ (96時間) で 2-クロロ 0.3 ppm, 3-クロロ 0.2 ppm, 4-クロロ 0.1 ppm, また高感性生物であるヌカエビ (48時間) において 4-クロロ体で 0.077 ppm の値が得られた。

注 1) 分解能: 二つのピークを識別できる能力を表したもので, 測定質量数 (m) をそのピークの中 (Δm) で割ったもの。

注 2) SIM: Selected Ion Monitoring の略で, 一定の質量数のイオンのみを検出する手法。

注 3) m/e : 質量荷電比で, これに従って質量分析計でイオンが分離される。

注 4) CAS ナンバー: ケミカルアブストラクツに登録されている化学物質のコードナンバー。

注 5) クロスメディアアプローチ: 化学物質のように, 大気, 水, 土, 生物といったメディアの中を循環するような汚染があるとき, 単純に大気, 水の系だけで考えると全体像がとらえきれないので, メディアを横断的に, その汚染を把握しようという試み。

注 6) エームズテスト: サルモネラ菌を用いた突然変異原性のテストの手法。

注 7) 誘導能: 化学物質を作用させたとき, 体内にそれに対応して酵素の活性が高まるが, その活性の高まりを誘導する能力の強さ。

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

昭和62年度～昭和65年度

〔研究組織〕 大気環境部

◎秋元 肇

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

エアロゾル研究室 福山 力・村野健太郎・泉 克之・尾崎 裕・内山政弘

大気環境計画研究室 植田洋匡・若松伸司・鶴野伊津志

計測技術部

大気計測研究室 安部喜也・横内陽子

技 術 部

理工施設管理室 高木博夫・水落元之

客員研究員 12名

〔研究概要〕

近年、化石燃料燃焼に起因するグローバル大気中の二酸化炭素の増加が将来の地球の温暖化をもたらし、地球規模生態系の破壊につながる可能性のあることが指摘されている。さらに最近では、単に二酸化炭素のみならず、それ以外のメタン・ハロカーボン^{注1)}その他の微量成分の濃度が、グローバル大気中で現実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ことが明らかにされている。しかし、これら微量成分のグローバル大気中の増加の原因は明確ではなく、人為的・自然的発生源の変動による直接的寄与以外に、大気中における光化学反応等による間接的寄与が複雑に影響し合っているものと考えられている。特に、一酸化炭素・非メタン炭化水素などの大気汚染物質の人為的排出が大気中の光化学反応を通じて、それら地球の温暖化をもたらす微量成分の増加を招いている可能性が指摘されており、従来の大気汚染物質を新しい視点からとらえることが急務とされている。そこで本研究では、特にメタン、非メタン炭化水素など地球温暖化に係わる炭素系大気微量成分の大気中における光化学反応機構の解明とそれらの大気中濃度の長期的測定を行い、各種の大気汚染物質の排出がグローバルな大気質の変動に与える影響を評価する手掛かりを得ることを目的とする(図1参照)。

本研究では特に、対流圏における光化学的変質過程を通して大気質の長期的濃度変動に大きな役割を果たしている炭素系大気微量成分に着目し、これまで原因の分かっていないそのグローバル変動メカニズムについて研究する。具体的な研究内容としては、まず炭素系微量成分の発生・放出量についての情報を得るため、テルペン^{注2)}等について森林内等での実測を行うとともに、既存のデータから自然起源炭化水素、人為起源炭化水素、一酸化炭素等についてグローバル発生量の推定を行う。次に大気中に放出された炭素系微量成分の変質過程を解明するため、光化学チャンバー、エアロゾルチャンバーを用いた実験、その他の物理化学的測定手段を用いた室内実験によって、メタン、テルペンなどの対流圏バックグラウンド条件下での光化学反応機構の解明

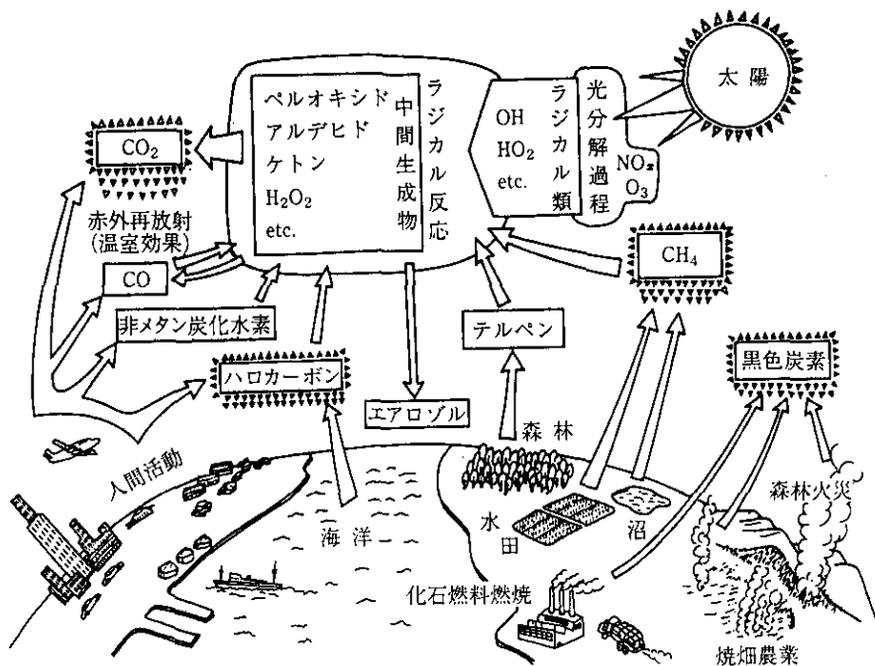


図1 炭素系微量成分の大気循環

を行う。また炭化水素、含酸素有機化合物、一酸化炭素、炭素系エアロゾルなどグローバル大気中の微量成分物質の測定法を開発しバックグラウンド大気中の測定点の選定を行った後、それらのいくつかの成分について長期的変動の測定を開始する。さらにこれらの光化学反応実験の成果を取り入れながら、対流圏光化学反応モデルを開発し、一酸化炭素、非メタン炭化水素などの人為的、自然的放出量の変動が地球温暖化をもたらす大気微量成分の濃度変動に与える影響の解析を行う。サブテーマは以下の4課題からなる。

(1) 炭素系微量成分の発生量の測定と見積り

1) 野外における植物起源炭化水素の自動連続測定装置を開発し、我が国の代表的森林等におけるテルペンその他の炭化水素の放出量の測定を行う。

2) メタン、一酸化炭素、テルペン類、その他の炭化水素について自然起源発生量、人為起源発生量に関する既存データを集積し、地域ごとのそれらのグローバル放出量の見積りを行う。

本年度は、テルペン類やイソプレンの測定に関しては、ガスクロマトグラフ質量分析計を用いて高感度・高精度連続自動分析法を開発し、20種類以上の植物起源の大気中微量有機物質の測定を可能とした。また、水田からのメタンの発生量の測定に関しては、水田をビニールハウスで囲み、ガスクロマトグラフで発生するメタンを連続測定する方法を試みた。

(2) 炭素系微量成分の光化学反応機構の研究

1) 光化学反応チャンバーに赤外半導体レーザーを組み込み、フーリエ変換赤外分光器と併用して従来分析のあまりされていなかった過酸化水素、ヒドロペルオキシド^{注3)}等を中心に生成物分析を行い、メタン、その他の低級炭化水素の光酸化反応機構を検討する。

2) ヒドロペルオキシド等対流圏光化学で重要な二次生成物の生成・消滅過程を明らかにする

ために必要な反応速度，反応機構，光分解過程等に関する研究を行う。

3) テルペン等植物起源炭化水素の大気中酸化反応生成物を光化学反応チャンバー，エアロゾルチャンバーを用いてガス状生成物，粒子状生成物の両面から，その組成，収率を明らかにする。本年度に得られた重要な成果は次項で詳しく説明する。

(3) 対流圏微量成分濃度の測定法の開発と長期的変動の測定

1) メタン・その他の低級飽和炭化水素，ブラックカーボン^{注4)}など，地球規模での長期的濃度変動が予想される大気微量成分についてその測定法を確立し，長期的測定を開始する。

2) 過酸化水素，その他対流圏光化学の解明に必要な微量成分気体の測定法を検討し，バックグラウンド地域での測定を試みる。

本年度は，バックグラウンド大気中のメタン， C_2-C_4 炭化水素を分析するための，大気の捕集方法，FID ガスクロマトグラフ法による分析方法，較正方法の確立を行った。大気試料捕集は富士山頂，小笠原父島で行った。

(4) 対流圏光化学反応モデルの開発

1) メタン—酸化炭素系の基本反応モデルを作成し，これに鉛直方向の拡散を考慮した対流圏一次元モデルを開発する。このモデルを用いて人為起源—酸化炭素がメタンなどの濃度変動に及ぼす影響を評価する。

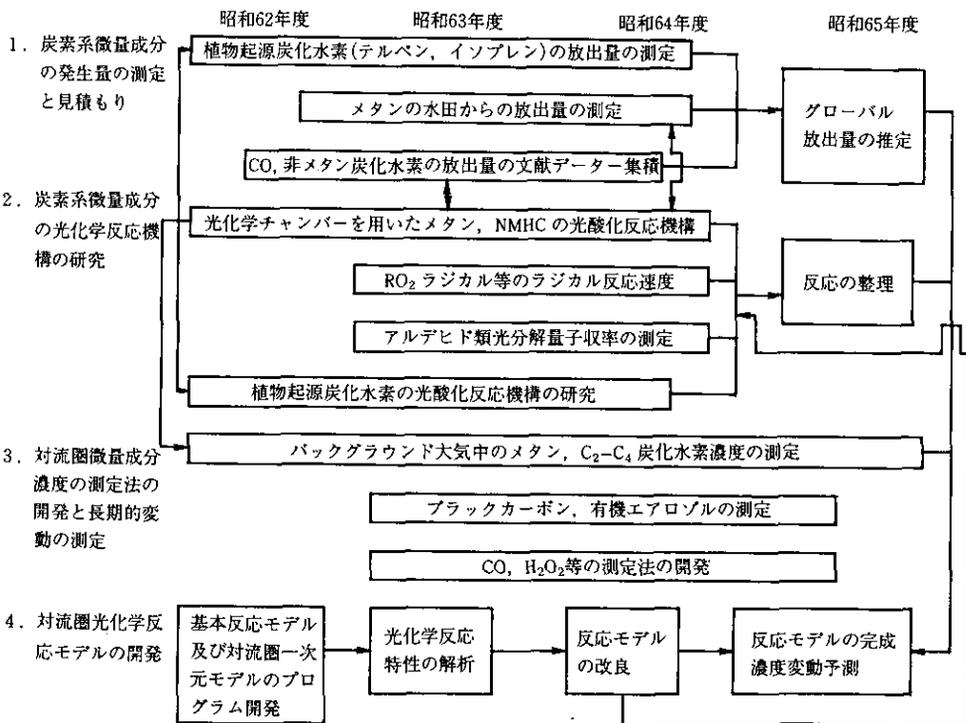


図2 年次計画
(NMHCは非メタン炭化水素)

2) 人為起源炭化水素, 植物起源炭化水素等の光酸化反応を基本反応モデルに取り入れそれらの影響について検討する。

本年度は, ギャー法による光化学反応モデルと拡散過程を組み合わせた対流圏一次元モデルを作成した。既存の反応機構・反応速度定数をもとに試行計算を行い, モデルの検証を行っている。

年次計画は図2にブロック図で示す。

【研究成果】

(1) メタンの対流圏での消滅反応

地球温暖化はいわゆる地球の温室効果と呼ばれる現象に起因するもので, 代表的な例としては化石燃料の使用によるとされている対流圏での炭酸ガスの増加がたびたび引用されている。これは炭酸ガスが地表から放射される赤外線をよく吸収し, 保温の役目をするためである。現実に炭酸ガスは年に1.4 ppm (約0.4%)程度増加している。さらに, メタン, 一酸化炭素, 非メタン炭化水素等の炭素系微量成分や, N_2O , クロロフルオロカーボン等の大気中の微量成分が, 炭酸ガスと同程度かそれ以上に地球の温暖化に寄与する可能性があることが指摘されている。とりわけメタンは大気中の炭素系微量成分としては炭酸ガスに次いで濃度が高く(1.6 ppm), しかも現在年1%の大きな増加率で増え続けているため(図3)その生成と消滅の過程の研究は大気化学において極めて重要である。大気中のメタンは, 湿地, 湖沼, 水田や家畜など生物の作用により生成すると言われているが, その発生源はまだ十分解明されていない。大気中のメタンの増加と人間活動の関連については, 化石燃料の使用により生ずる一酸化炭素が原因で増加することも考え

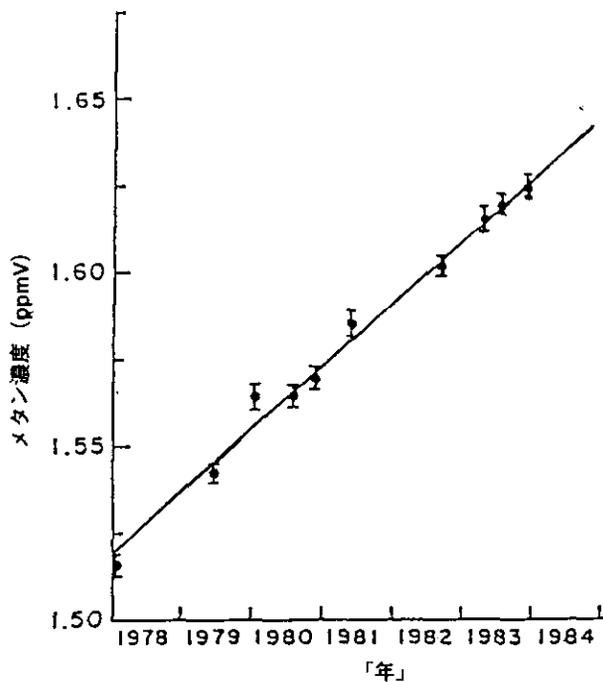
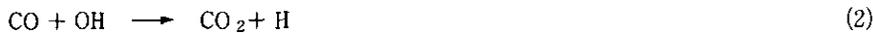


図3 対流圏バックグラウンド大気中のメタン濃度の年次変化
(ローランド博士らによる)
(ppmVは体積比で1/100万)

られる。すなわち、大気中のメタンの主な消滅反応は CH_4 と OH ラジカル^{注5)}の反応、



であり、また CO は、



という速い反応で OH を減少させるので、CO はメタンの消滅を抑え、結果的にはメタンの増加を招くことになる。

大気中に放出されたメタンは OH ラジカルによりその大気酸化が開始され、酸化が進行すると CO を経て最終的には CO_2 にまで酸化される。一方、その酸化過程を通じて、さらに OH を消費したり HO_2 を生成したりするために、 HO_x 等大気中のフリーラジカルの濃度を左右し、他の大気微量成分の濃度に変化をもたらす。これまで報告されている知見を基にメタンの大気酸化反応の様子を図4に模式的に示した。対流圏バックグラウンドで観測される NO_x 濃度100 ppt 以下の条件では $\text{CH}_3\text{OO}\cdot$ の消滅過程として、スモッグ反応で知られた NO との反応 (NO_x 濃度数百 ppt 以上で重要) よりむしろ HO_2 、 $\text{CH}_3\text{OO}\cdot$ との反応が主経路となり、図4にみられるように酸化過程は複雑になる。これらの反応により生成する CH_3OH 、 CH_3OOH は、① 水への溶解度が高く雨水への取り込み等(図中の破線)により放出された炭素を大気から取り除く過程に大きく寄与すること、② その後続反応の違いにより大気中 HO_x 濃度バランスに影響するなどの点から、その生成・消滅過程の詳細を明らかにしなければ、メタンの増加の原因や、その増加が今後大気質の変動に与える影響を正確に評価・予測することができない。

以上のような観点から62年度は光化学チャンバーやレーザー蛍光法を用いてメタンの酸化による消滅過程の研究を重点的に行った。メタンは上に示したように大気中でまず OH ラジカルと反応してメチルラジカル ($\text{CH}_3\cdot$) を生成する(この反応は非常に遅い反応であり、その反応速度から

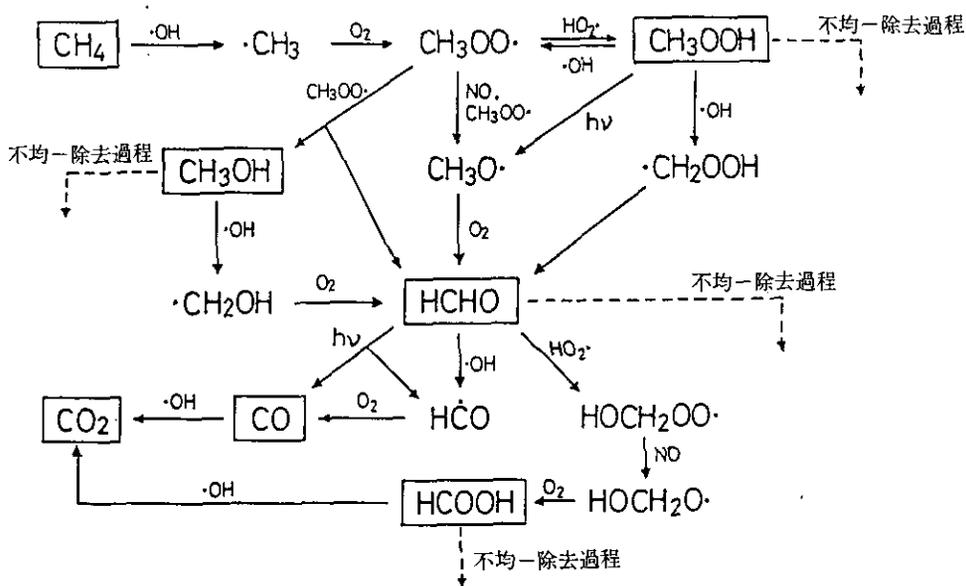


図4 メタンの大気酸化反応のブロック図

大気中のメタンの寿命は約20年と推定されている)。 CH_3 ラジカルは大気中の酸素分子と反応しメチルペルオキシラジカル ($\text{CH}_3\text{OO}\cdot$) やさらに反応してメチルヒドロペルオキシド (CH_3OOH) を生成する。これらの不安定分子が大気中でさらにどのように反応していくかについては未だ不明な点が多く、それらの反応の速度や機構を解明することが本研究の目的である。

光化学チャンバーを用いたメタン大気酸化反応機構の研究では、 NO_x 濃度の極めて低い条件下での CH_3OO ラジカル反応生成物を分析し、またその生成収率の温度依存性を明らかにした。図5はフーリエ変換赤外分光器により分析された反応生成物の時間変化の例を示している(ここでは、 $\text{CH}_4 + \text{OH}$ の代わりにアゾメタン $\text{CH}_3\text{N}_2\text{CH}_3$ の光分解により CH_3 ラジカルを発生させている)。図から明らかなように CH_3OOH 、 CH_3OH も主成分として観測された。さらに反応温度を変化させ、表1に示したような各反応生成物の収率の温度依存性を求めた。

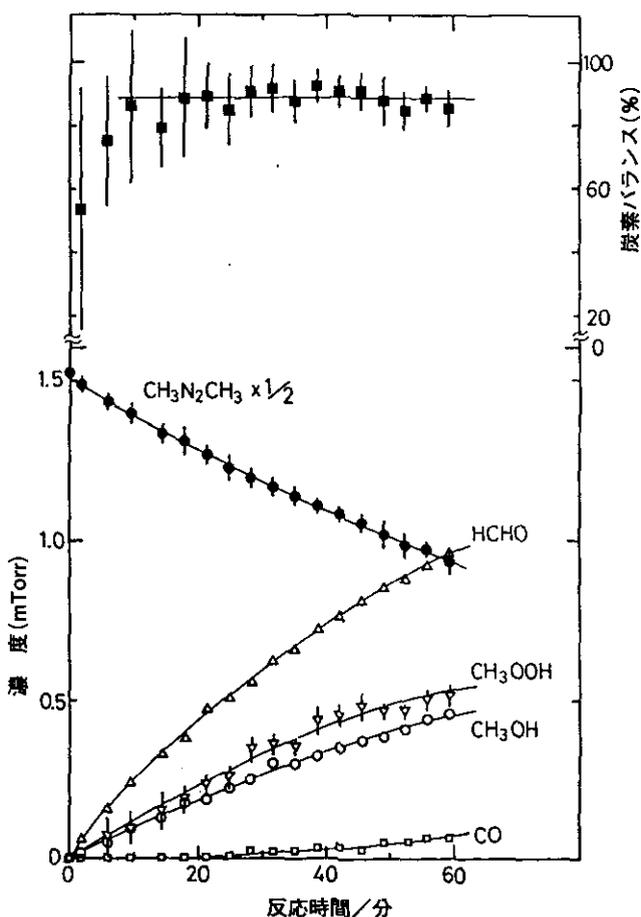
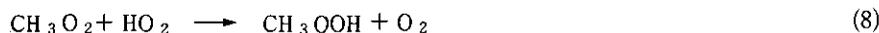


図5 光化学チャンバー実験による CH_3OO ラジカル反応生成物濃度とその時間変化
(1 mTorrは1/76万気圧)



反応(3)～(9)で下線を引いた分子が光化学チャンバー実験で測定された生成物である。

これらの結果で重要な点は、対流圏バックグラウンドにおけるメタン酸化反応過程では、直接ホルムアルデヒド(HCHO)を生成するほかに反応(8)によるメチルヒドロペルオキシド(CH₃OOH)、反応(6)によるメタノール(CH₃OH)も主要な中間生成物として存在していること、さらに他の中間生成物に比べてOHとの反応による消滅過程が遅いCH₃OHの生成収率が低温になるに従って高くなる(表1参照)ことである。対流圏の気温が高度の上昇とともに低下し成層圏との圏界面付近では、約220 Kにまで低下することから、後者の結果もメタンの形で放出された炭素を大気から取り除く過程を助長する効果を持つ。したがって、大気中に放出されたCH₄がCO、CO₂にまで変換される割合が従来推定されていた値よりも小さいことが示唆される。

表1 CH₃OO+CH₃OO / 空気系反応における生成物の収率の温度依存性

生成物	温度(K)		
	284	303	338
HCHO	0.85(2)	0.85(2)	0.85(2)
CH ₃ OH	0.41(3)	0.38(1)	0.36(1)
CH ₃ OOH	0.55(2)	0.48(4)	0.58(2)

上の研究結果でも分かるように、バックグラウンド条件下では、CH₃OO + HO₂ 反応により生成するCH₃OOHはメタン酸化過程の中の主中間生成物の一つである。報告されている大気モデル計算の結果においても、酸化反応の盛んな低緯度地域ではCH₃OOの消滅過程のうち60%以上がHO₂との反応であることを示唆しておりバックグラウンド大気中ではCH₃OOHの生成量は多い。したがって、メタンの酸化過程としてCH₃OOHの消滅過程が極めて重要である。本研究ではパルスレーザー光分解^{注6)}とレーザー誘起蛍光法(LIF法)^{注7)}を用いてCH₃OOHとOHラジカルの反応速度と反応機構の研究を行った。

まずオゾンを経パルスレーザー光で光分解し、生成した励起酸素原子O(¹D)と水の反応でOHラジカルを発生させ、レーザー蛍光法でOHラジカル濃度をモニターした。CH₃OOHとの反応によるOHの減衰速度からCH₃OOH+OHの反応速度が(2.1 ± 0.2) × 10⁻¹² cm³·molecule⁻¹·s⁻¹

と従来予想されていた速度より5倍遅いことが判明した。またこの反応では、反応(10)及び(11)の二つの過程が存在し、その比率が(10)：(11) = 2：1と推定された。



さらに(11)で生成した CH_2OOH は単分子分解を起こし、 OH ラジカルを生成することが初めて直接的に証明された。



一例として $\text{CH}_3\text{OOH} + \text{OD}$ の反応で観測される OH のLIF信号強度の時間変化を図6に示す。 OH は反応(11)を経て(12)で生成するため反応初期には増加する。しかし同時に起きている反応(10)のために $\text{OH} + \text{OD}$ 全量は減少していくことから反応の後半では OH も減少していく。●は CH_3OOH 濃度が0の場合で、この場合の OH は OD 同位体中の不純物である。

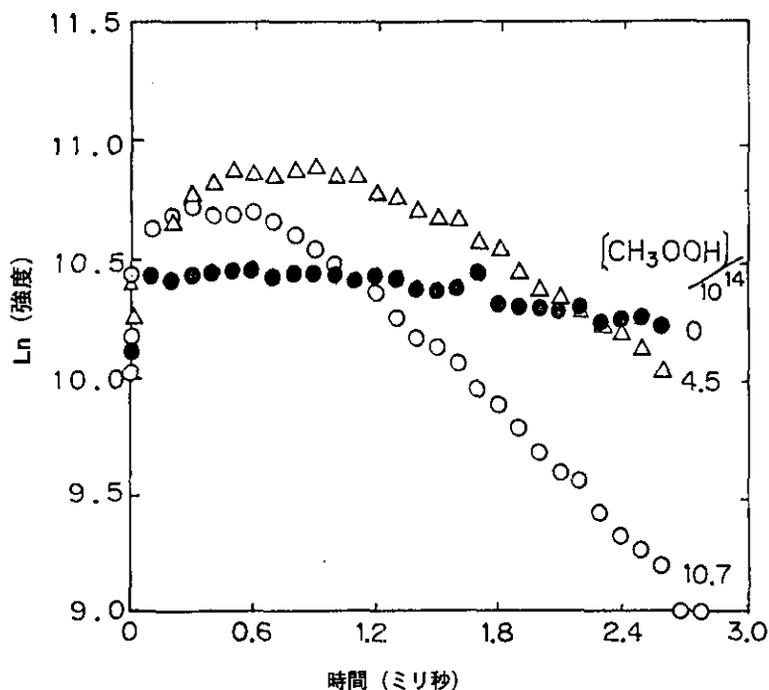


図6 $\text{CH}_3\text{OOH} + \text{OD}$ の反応で生成した OH ラジカルのレーザー蛍光信号強度の時間変化(右側の数字は CH_3OOH の濃度)

この結果は、メタン大気酸化反応の中で以下のような大気化学的意味を持つ重要な成果である。

- ① 得られた反応の速度定数は、従来報告されていた反応の速さ(1例のみ、間接的な方法で求めた値)が約5倍過大評価されていたことを意味する。 CH_3OOH の消滅過程としては図4に示したように a) OH との反応、b) 光分解(図中 $h\nu$)、c) 不均一除去過程(図中、点線)があり、今回求めた値を使うとこの3つの過程がほぼ同程度の寄与をしていることになり、従来の見積り

に比べ相対的にc)の寄与が大きくなる。すなわち、大気から炭素の除去される割合が高くなる。

② 反応 $\text{CH}_3\text{OO} + \text{HO}_2 \rightarrow \text{CH}_3\text{OOH} + \text{O}_2$ (8) と $\text{CH}_3\text{OOH} + \text{OH} \rightarrow \text{CH}_3\text{OO} + \text{H}_2\text{O}$ (10) で HO_x の分解サイクルを形成することになる。実環境大気中の OH 濃度は、他の中間生成物による HO_x 化学種の生成・消滅も含めてこのような反応のバランスで決まってくるので、ここで求めたような素反応過程の詳細は、将来モデル計算を行う際のデータとして重要である。

注1) ハロカーボン：メタン、エタンなどのフッ素また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, デュボン社) が世界的に有名である。主に冷媒、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 (CCl_3F)、F-113 ($\text{CCl}_2\text{FCClF}_2$)、Halon-1211 (CF_2BrCl) などと呼ばれるが、フロンの場合は1位の数に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事が指摘されている。

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個のイソプレンが順次連結した基本骨格 (C_5H_8)_n をもつ物質の総称。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イソプレンや、 α 、 β -ピネン等が自然起源炭化水素として重要である。

注3) ヒドロペルオキシド：ROOHの構造を持つ分子。 CH_3OOH はメチルヒドロペルオキシドと呼ぶ。

注4) ブラックカーボン：いわゆるすすのような無定形炭素のかたまり。焼畑農業、森林火災や化石燃料の燃焼によって生じる。大気中に浮遊し、太陽光を吸収し、大気加熱に影響を与えるとされている。

注5) ラジカル：フリーラジカル (Free radical) または遊離基ともいう。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、きわ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一つ切れた 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、反応の連鎖連絡体として極めて重要である。

注6) バルスレーザー光分解：短か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7) レーザー誘起蛍光法：レーザー光を分子に吸収させ、分子を高い状態 (励起状態) にあげ、そこから分子が再びもとの状態にもどる時、その分子が出す光を測定する事によって分子を検出する方法。極めて感度が高くフリーラジカルの検出に適している。0.1 ppt の OH ラジカルまで検出できるといわれている。

2.12 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(初年度)

昭和62年度～昭和66年度

〔研究組織〕 水質土壌環境部

◎村岡浩爾

水質環境計画研究室 ○海老瀬潜一・○相崎守弘・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

海洋環境研究室 渡辺 信

臨湖実験施設 田井慎吾

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 青木陽二・森保文

資源循環研究室 中杉修身・天野耕二

環境経済研究室 仁科克己・青柳みどり

計測技術部

水質計測研究室 大槻 晃・○河合崇欣・白石寛明・野尻幸宏

大気計測研究室 安部喜也

分析室 西川雅高

生物環境部

水生生物研究室 春日清一・高村典子

生物環境管理研究室 野原精一・上野隆平

技 術 部

須藤隆一

理工施設管理室 松重一夫

客員研究員 32名, 共同研究員 10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61年度で40.0%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、水域のもつ機能を潜在的な面も含めて正確に把握した上で、水利用や水質管理を考えねばならない。湖沼における生活用水・工業用水・農業用水や、水産・レクリエーションといった水利用形態の複合化や水ガメ化に対して、適正利用の考え方を示す必要がある。さらに、湖沼集水域の汚濁負荷の状況は厳しく、流域の土地利用形態をはじめとする汚濁負荷構造から見て、良好な水の確保は樂觀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未だ模索の段階にある。

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

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

(1) 環境容量の概念を導入した水域環境管理の研究

環境の場としての水域を環境容量の観点からとらえて管理するための手法を研究する。新しい水域環境管理概念として環境容量の定義・定式化を行い、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評価する手法を確立する。また、住民の意識・行動調査により、水域環境管理施策の便益計測及び費用効果分析手法を開発する。さらに、環境容量からみた水域環境管理の基本的な考え方を明らかにする。

(2) 湖沼の物質循環速度と生態系管理に関する研究

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

(3) バイテク等新技术を応用した水域の浄化機能促進に関する研究

水域の浄化機能を促進するために、バイオテクノロジーを活用した新技术の開発を行う。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管理の手法を開発する。また、流域内に存在する地下水、河川水を対象に水利用の実態把握を行うとともに、地下水質と水・土地利用、表流水質との関係の解析、河川における管理指標の検討を行う。

(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、湖沼構造の改変等の検討への展開が行える。

各サブテーマの相互の関係及び年次計画は図1に示す。

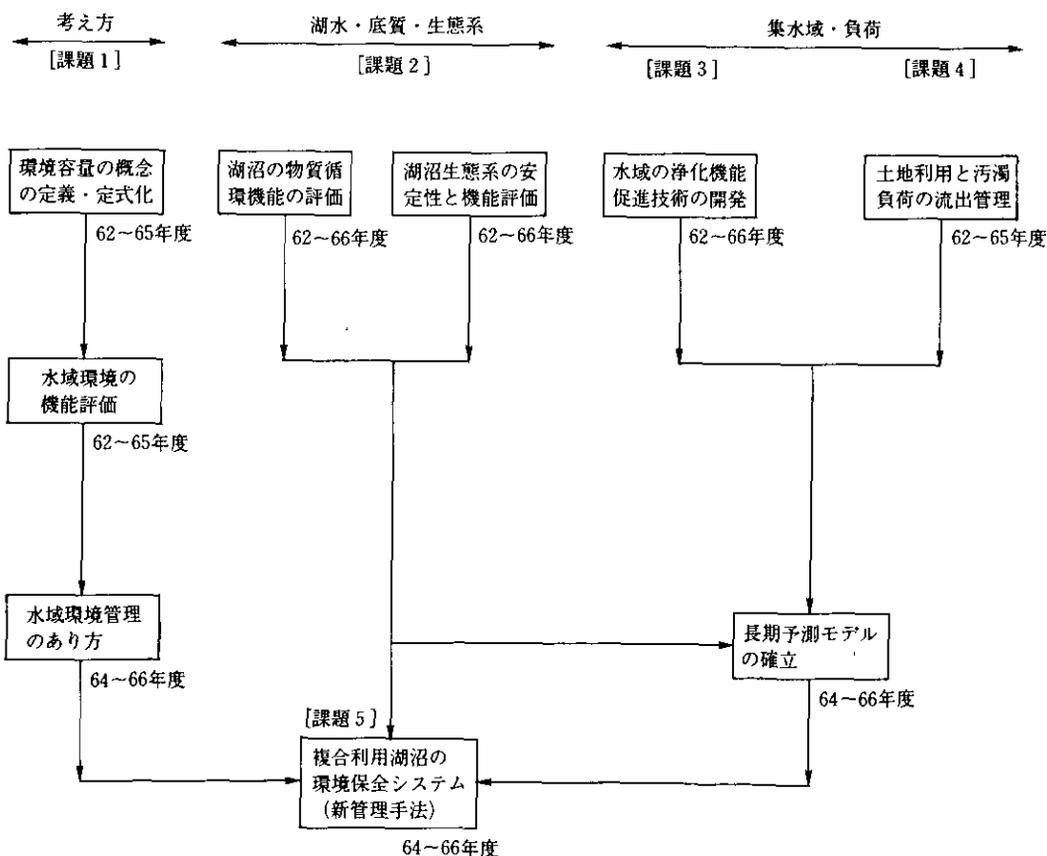


図1 年次計画

〔研究成果〕

本年度の主たる結果をまとめると以下のようなになる。

(1) まず、既往の研究をもとに環境容量^{注1)}の概念の整理・検討を行うとともに、環境容量と環境質の測定項目を結ぶ総合評価指標として、専門家の知見をデルファイアンケートで活かした価値関数 f_i を用い、水質判定指標値 (CWQI) の多摩川・名取川への適用を行った。その代表的なものとして以下の 2つを選んだ。

$$CWQI_1 = \sum_{i=1}^n W_i f_i(x_i), \quad CWQI_2 = \prod_{i=1}^n f_i(x_i)^{W_i}$$

ここで、 W_i は水質項目 i の重みで $\sum_{i=1}^n W_i = 1$ 、 f_i は水質項目 i の価値関数、 x_i は水質項目 i の計測値である。図 2 は、pH, DO, BOD, SS, 大腸菌群, NH_4-N , T-P, T-N の 8 項目で最悪値 0 から最良値 1 までの範囲に納まる価値関数 f_i を用いた $CWQI_1$ の多摩川の経年変化である。図 2 では経年的に水質改善の傾向が見られるが、図 3 の BOD_5 の経年変化ではその傾向が認められない。

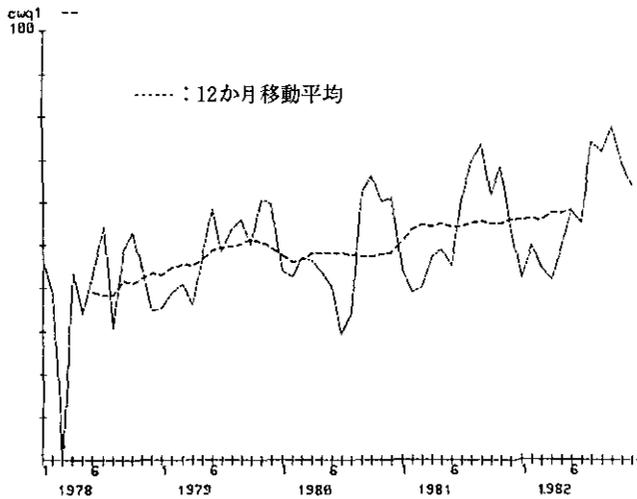


図 2 $CWQI_1$ の経年変化 (多摩川原橋)

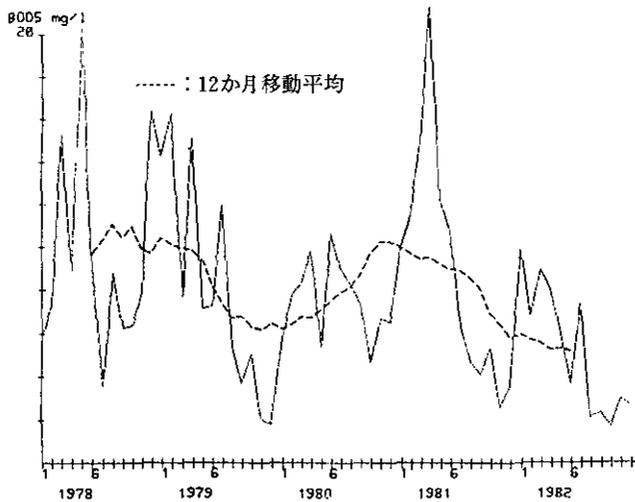


図 3 BOD_5 の経年変化 (多摩川原橋)

また、水域のリクレーション的利用を自由連想法によるアンケート調査を行うことによって、住民の「水辺」に対する自然性、利水性、快適性の価値評価や意識構造のクラスター分析を行った。水辺の利用目的ごとに水辺の状態についての住民の意識や要望の違いが明らかとなった。

(2) 湖沼での藻類の種組成制御の機構を明らかにするため、臨湖実験施設の実験池及び水槽を用いて、アオコ(主にマイクロキスティス)が他の藻類種より優占的に増殖する条件を検討した。藻類増殖に促進作用があるとされる鉄や EDTA^{注2)}の水槽への添加による効果はあまり小さくなく、表1のように pH 8~9がマイクロキスティス(*Microcystis*)の増殖最適条件である結果が得られた。実験池への酸添加実験では、pH 変化は炭酸の吸収しやすさを変えることになり、多くの藻類種が競合して増殖することに影響を及ぼすことが明らかとなった。

表1 水槽実験による藻類優占種の変化

pH	添加物	4日目	10日目	13日目
>10	N,P,Fe	★	★○△	□○△
>10	N,P,EDTA	★	★●□	□
>10	N,P	★	▲□★	▲
9~10	N,P,Fe	★	★	★○
9~10	N,P,EDTA	★	★	★■○
9~10	N,P	★	★▲□	★▲○
8~9	N,P,Fe	★	★	★
8~9	N,P,EDTA	★	★■○	■○☆
8~9	N,P	★	★	★
7~8	N,P,Fe	★	★	★◎☆■
7~8	N,P,EDTA	★	★	◎■☆
7~8	N,P	★	★	★

★ *Microcystis*, ○ *Scenedesmus*, △ *Chodatella*,
 □ *Monas*, ● *Coelosphaerium*, ▲ *Aphanothece*,
 ■ *Coelastrum*, ◎ *Merismopedia*, ☆ *Synechocystis*

(3) 窒素の高分解能菌の開発では、硝酸塩より生成される窒素ガス量より、脱窒活性の高い細菌を分離してプラスミド^{注3)}を有する菌種を確認した。図4の包括固定化・生物膜の2段処理による排水の高度処理では、固定化処理反応槽だけでなく、生物処理反応槽と組み合わせて循環させる系の効率が高く、固定化処理反応槽を嫌気化することにより、BOD, TOC 及び T-N 濃度を低下させることができた。また、カビ臭発生糸状藻類 *Phormidium Tenue* を捕食する原生動物 *Trithigmostoma cucullulus* を分離して、その食物源として *P. Tenue* を捕食した場合の比増殖速度は $1.61(d^{-1})$ であり、最大 $1,180 N/ml$ の個体数まで増殖可能であることが分かり、接触酸化法によるカビ臭を生成する藻類除去の足がかりを得た。

(4) 霞ヶ浦高浜入に流入する恋瀬川の本支流と山王川の10地点で毎週1回の頻度で流出負荷量観測を実施して、各支川等の流域内の各土地利用形態から流出する汚濁負荷量の大きさやその流出の季節変化特性などを明らかにした。例えば、市街地河川の山王川では下水道が普及段階にあ

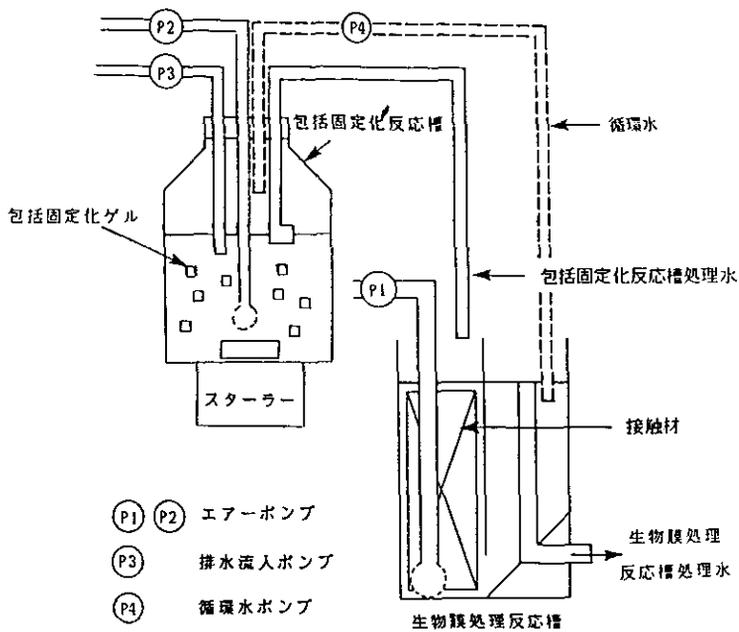


図4 包括固定化・生物膜二段処理実験装置

るが、普及以前に比べてアンモニア態窒素やCODの負荷量の減少が認められた。また、西浦への全流入河川(38河川)の流入負荷量調査を各季節1回、1年間で4回実施して、各流域の土地利用や水利用の違いとの関係を検討した。手賀沼や霞ヶ浦へ流入する合成洗剤中の直鎖状アルキルベンゼンスルホン酸塩の流入特性調査を行い、水中や底質中の濃度変化から河川、河口域、湖心域へと減少して行く状態が明らかとなった。さらに、公共用水域の全国で千を超える河川水質測定データを基に、流出による河川パターンの分類や水質変化の統計的な基本特性を明らかにした。

- 注1) 環境容量：環境の収容力とも言える概念で、対象とする空間(地球、日本、地域、流域、公園等)や対象とする環境質(大気・水質など)によっていろいろな種類の環境容量がある。
- 注2) EDTA：エチレンジアミン四酢酸の略称で、微量金属や金属イオンの触媒作用を除去する働きがあり、酵素反応で金属イオンの酵素活性への阻害や促進の影響を除去する目的で使用される。ここでは、キレート物質の重金属による増殖への影響を緩和するために用いた。
- 注3) プラスミド：細菌細胞内で寄生増殖する遺伝因子で、細胞内で宿主染色体とは独立して増殖し、多くの世代にわたり安定して保持される遺伝因子である。そのため遺伝子組み換えに利用される。

昭和62年度 編集委員会

委員長	村岡浩爾
副委員長	溝口次夫
〃	近藤矩朗
委員	海野英明
〃	松本幸雄
〃 (幹事)	古田早苗
〃	清水浩
〃	安部喜也
〃	鷺田伸明
〃	相崎守弘
〃	三浦卓
〃	遠山千春
〃	古川昭雄
〃	大政謙次

国立公害研究所特別研究年報

昭和62年度

昭和63年8月31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 茨城県つくば市天久保2-11-20

株式会社 イセブ