

ISSN 0288-6901  
CODEN: EKGSDX

# 愛媛県公害技術センター所報

第 11 号

平成 3 年 3 月

Report of Ehime Prefectural Research  
Center for Environmental Protection

No. 11 Mar. 1991



愛媛県公害技術センター

## はじめに

昭和から平成へと年号が変わり、公害問題が環境問題と呼ばれるようになったことから、時代の流れが読み取れると思います。

近年、地球温暖化や酸性雨被害等、地球的規模の環境問題に対して、人々の関心が急速に高まってきて、環境保全の重要性が強く認識されるようになりました。

また一方で、日常身の回りの生活環境にも、住民の厳しい目が向けられ、川の汚れや悪臭、騒音等の公害がないというだけでなく、一步進んで、より豊かで、快適な環境を求めて、生活排水対策等の住民活動が展開されております。

本県では、このような住民のニーズを踏まえて、永年にわたり関係機関が協力して、幅広い環境問題について、実態把握調査を鋭意実施してきました。その結果、ほぼその環境姿を把握することができました。

しかし、光化学オキシダント、酸性雨、ダイオキシン等に関する発生メカニズムの究明調査は十分とはいえず、未解明の部分が多く残されているのが現状であります。

当センターでは、新しい環境問題に対処するため、情報の収集に努めるとともに、今年度、ガスマス、液クロ等主要分析機器の更新を行いました。

これを契機に、職員一人一人が問題意識をもち、本県における環境問題への新たな取り組みを始めていきたいと考えております。

本報は、大気、水質、環境放射線等の分野で、当センターが蓄積してきた調査研究結果の活用を図るという観点から、これまでのデータを整理し、経年的に環境質の変化をみたものや、ここ1～2年の調査研究の成果をまとめたものです。

御高覧頂いて、率直な御意見、御指導を賜りますようお願い致します。

平成3年3月

愛媛県公害技術センター

所長 御手洗 清

# 目 次

1. 環境大気中の浮遊粉じん及び浮遊粒子状物質の金属成分等調査……	新 次美・他…	1
2. 環境大気中の水銀濃度について……	武田邦夫・他…	6
3. テトラクロロエチレン及び1,1,1-トリクロロエタン含有水の処理について ……	岡本信二・他…	10
4. 生活排水の土壌処理試験……	岡本信二・他…	15
5. 肱川の水質（有機汚濁の経年変化について）……	岡 裕三・他…	20
6. ゴルフ場使用農薬の分析法について……	尾澤 博・他…	27
7. 環境中のセシウム-137の挙動……	一色祐子・他…	32
8. 屋内自然放射線調査……	大西 哲・他…	36
9. 環境試料中のプルトニウムの挙動……	影浦 久・他…	39
10. 環境水中のトリチウムについて……	篠崎由紀・他…	43
11. 熱蛍光線量計の自己照射線量について……	堀川輝明・他…	46
12. パソコンによる環境放射能データベース……	吉野内 茂 …	49

# 環境大気中の浮遊粉じん及び浮遊粒子状物質の金属成分等調査

新 次美・武田邦夫・大西こずえ・武士末純夫\*

## 1. はじめに

浮遊粉じんは、工場、自動車等の人為的由来によるもの、海塩粒子等の自然発生的なもの、更には、ガス状物質が大気中で化学変化を起こし、二次的に生成するもの等その発生源は多種多様であり、その汚染機構や生体への影響など未だ解明されていない点も多い。

なかでも、粒径  $10 \mu\text{m}$  以下の粉じんである浮遊粒子状物質は、エアロゾルとも呼ばれ空気中での沈降速度が小さいため、環境大気中では空気を分散媒として浮遊し、人体の気道や肺胞に吸入沈着され、呼吸器系への影響があることは既に知られている。<sup>1)</sup>

特に、その中に含まれるカドミウム、クロムまたベンゾ(a)ピレン等の重金属や多環式芳香族炭化水素等は、発がん関連物質として各方面で調査研究がなされている。<sup>2)</sup>

本県では、昭和58年から浮遊粉じん調査を実施しており、汚染の実態や汚染因子の推定等については、報告がなされているが<sup>3)</sup>、筆者らは、今回浮遊粉じんと浮遊粒子状物質について、重金属成分等の組成比較等の検討を行ったので、その概要について報告する。

## 2. 調査方法

### 2.1. 調査地点及び調査期間

調査地点：松山市三番町 愛媛県公害技術センター  
屋上(地上高 19 m)

調査期間：平成元年7月～平成2年6月(2回/月)

### 2.2. 検体捕集

機器：ハイボリウムエアースンプラー

(浮遊粒子状物質については、サイクロン付き)

ろ紙：石英繊維ろ紙 (PALLFLEX 2500 QAST)

吸引速度： $12 \text{ m}^3/\text{分}$

捕集時間：24 時間

なお、気象条件によって影響がでないよう晴天の続いた日を選び実施した。

## 2.3. 調査項目

浮遊粉じん、浮遊粒子状物質、マンガン、鉄、亜鉛、ニッケル、鉛、カドミウム、クロム、ひ素、バナジウム、ベンゾ(a)ピレン

## 2.4. 分析方法

分析は、ほぼ「大気汚染物質測定法指針(1)」<sup>4)</sup>(環境庁大気保全局監修)に準じて行った。

なお、分析項目と分析方法を表1に示す。

表1 分析項目及び分析方法

分析項目	分析 方 法
SP, SPM	温度 $20^\circ\text{C}$ 、湿度 $50\%$ で恒量とした重量法
Mn, Fe, Zn, Ni, Pb, Cd, Cr	硝酸-過酸化水素分解-原子吸光法
As	硫酸-硝酸-過塩素酸分解-吸光光度法
V	硝酸-過酸化水素分解-吸光光度法
B(a)P	ベンゼン超音波抽出-蛍光光度法

(注) SP：浮遊粉じん、SPM：浮遊粒子状物質

Mn：マンガン、Fe：鉄、Zn：亜鉛、

Ni：ニッケル、Pb：鉛、Cd：カドミウム

Cr：クロム、As：ひ素、V：バナジウム

B(a)P：ベンゾ(a)ピレン

### 3. 結果及び考察

#### 3.1. 重金属等の成分濃度及び経月変化等

浮遊粉じん及び浮遊粒子状物質の重金属等成分濃度の月平均値を表2及び表3に、経月変化を図1に示す。

なお、分析項目のうち、カドミウム、ヒ素、バナジウム及びSPMのマンガンについては、分析値の全て又は大部分が定量下限値以下であったので、考察の対象から除いた。

粉じん濃度は、SPが37.0～109.0 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ で、特に3月、5月、12月に高い値を示したが、変動は小さかった。

SPMは、18.0～37.0 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ で、SPの半分以下の低濃度であり、変動係数は0.18とSPMの成分中では最も小さく、ほぼ横ばいの状態で推移した。

マンガン濃度は、SPにおいては0.014～0.038 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、変動係数は0.3で、SPの成分中では最も変動

が小さかった。SPMにおいては9月、10月及び12月以外は全てNDであった。

鉄濃度は、SPにおいては0.36～2.24 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ で、特に、4月、5月の春季に高い値を示し、変動が大きかった。SPMにおいては0.07～0.27 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ で、変動が小さかった。

亜鉛濃度は、SPにおいては0.045～0.153 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ で変動が小さかったが、SPMにおいてはND～0.095 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ で変動が大きかった。

ニッケル濃度は、SPにおいては0.006～0.018 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ で、変動が小さかったが、SPMにおいては0.002～0.012 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ で変動が大きかった。

鉛濃度は、SPにおいては0.026～0.077 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、SPMにおいては、0.013～0.052 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ で、いずれも変動は小さかった。

表2 SPの重金属等成分濃度の月平均値

単位： $\mu\text{g}/\text{m}^3$

季節	月	粉じん	マンガン	鉄	亜鉛	ニッケル	鉛	カドミウム	クロム	ヒ素	バナジウム	ベンゾ(a)ピレン
春	3	92.0	0.024	0.36	0.069	0.006	0.044	ND	0.009	ND	ND	ND
	4	59.0	0.028	2.24	0.074	0.009	0.042	ND	0.012	ND	ND	ND
	5	109.0	0.037	2.12	0.115	0.011	0.077	ND	0.007	ND	ND	ND
夏	6	57.0	0.026	1.45	0.080	0.010	0.030	ND	ND	ND	ND	ND
	7	46.0	0.014	0.59	0.045	0.012	0.026	ND	0.008	ND	0.008	ND
	8	64.0	0.025	0.86	0.112	0.018	0.054	ND	0.005	ND	0.012	0.0011
秋	9	44.0	0.026	0.89	0.047	0.010	0.045	ND	ND	ND	0.006	0.0009
	10	39.0	0.019	0.73	0.063	0.006	0.032	ND	0.005	ND	0.008	0.0015
	11	37.0	0.016	0.68	0.075	0.008	0.032	ND	0.008	ND	0.007	0.0010
冬	12	83.0	0.038	1.19	0.120	0.007	0.058	0.0020	0.016	0.008	ND	0.0018
	1	55.0	0.017	0.38	0.086	0.009	0.039	ND	0.004	0.007	ND	0.0020
	2	57.0	0.023	0.43	0.153	0.013	0.062	0.0019	ND	ND	ND	0.0015
最大値		109.0	0.038	2.24	0.153	0.018	0.077	0.0020	0.016	0.008	0.012	0.0020
最小値		37.0	0.014	0.36	0.045	0.006	0.026	ND	ND	ND	ND	ND
年平均値		61.8	0.024	0.99	0.087	0.010	0.045	0.0003	0.006	0.001	0.004	0.0008
変動係数		0.34	0.30	0.62	0.36	0.33	0.32	—	0.86	—	—	0.76

表3 SPM重金属等成分濃度の月平均値

単位： $\mu\text{g}/\text{m}^3$

季節	月	粉じん	マンガン	鉄	亜鉛	ニッケル	鉛	カドミウム	クロム	ヒ素	バナジウム	ベンゾ(a)ピレン
春	3	37.0	ND	0.14	0.036	0.004	0.032	ND	0.004	ND	ND	ND
	4	32.0	ND	0.27	0.045	0.005	0.031	ND	0.009	ND	ND	ND
	5	26.0	ND	0.22	0.059	0.003	0.049	ND	0.005	ND	ND	ND
夏	6	25.0	ND	0.07	0.053	0.004	0.022	ND	ND	ND	ND	ND
	7	24.0	ND	0.08	0.003	0.012	0.018	ND	0.008	ND	0.006	ND
	8	26.0	ND	0.09	0.013	0.009	0.029	ND	ND	ND	ND	ND
秋	9	34.0	0.021	0.07	0.007	0.009	0.018	ND	ND	ND	0.006	ND
	10	28.0	0.017	0.08	ND	0.005	0.022	ND	ND	ND	0.008	0.0008
	11	23.0	ND	0.13	0.032	0.003	0.013	ND	0.005	ND	0.007	0.0008
冬	12	31.0	0.015	0.13	0.095	0.002	0.052	ND	0.005	ND	ND	0.0017
	1	18.0	ND	0.10	0.043	0.004	0.013	ND	0.004	ND	ND	0.0018
	2	29.0	ND	0.10	0.034	0.007	0.026	ND	ND	ND	ND	0.0009
最大値		37.0	0.021	0.27	0.095	0.012	0.052	ND	0.009	ND	0.008	0.0018
最小値		18.0	ND	0.07	ND	0.002	0.013	ND	ND	ND	ND	ND
年平均値		27.8	0.004	0.12	0.035	0.005	0.027	ND	0.003	ND	0.002	0.0005
変動係数		0.18	—	0.48	0.75	0.52	0.45	—	0.94	—	—	—

(注) 平均値の算出にあたっては、NDを0として扱った。

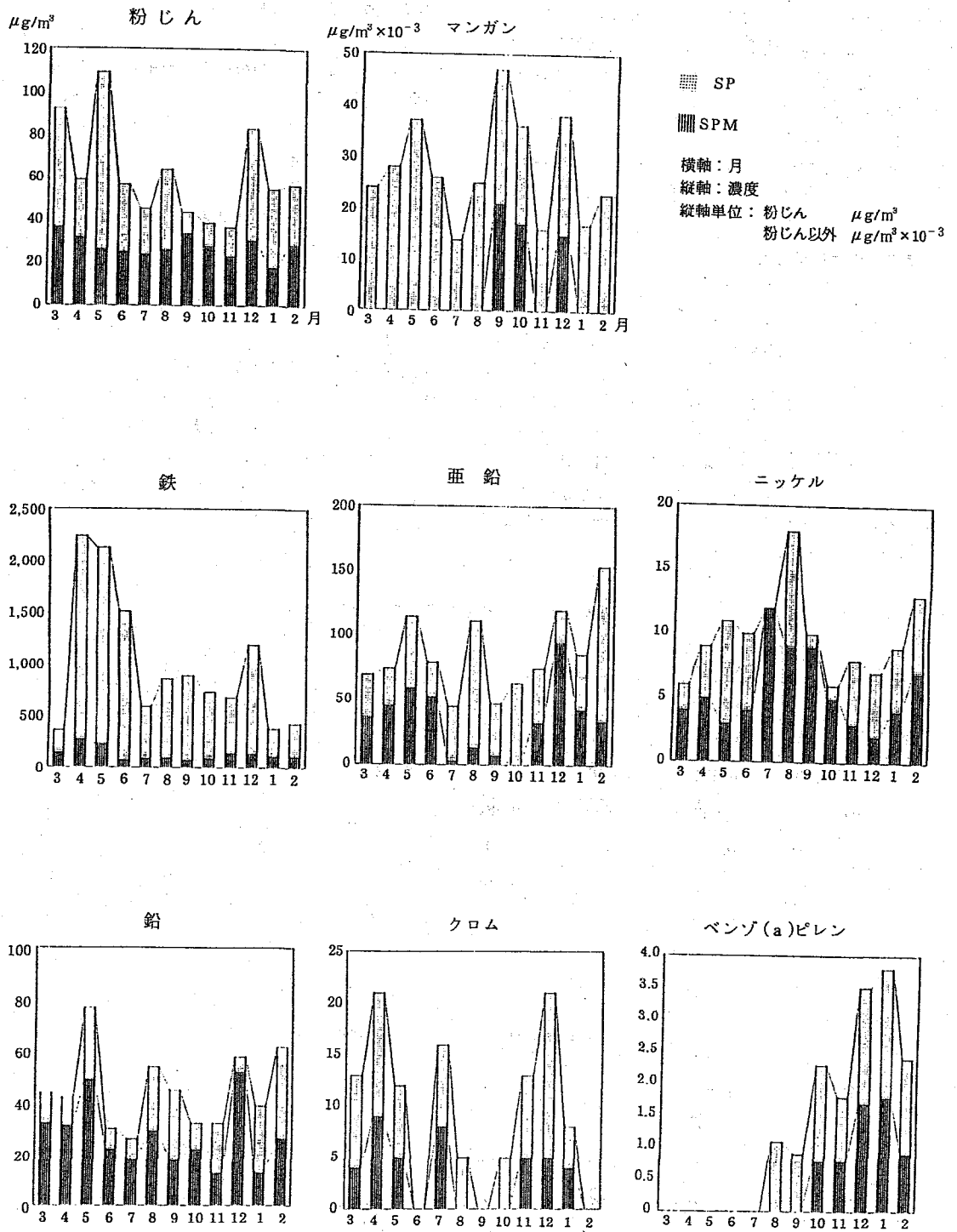


図1 SP及びSPMの金属成分等の経月変化

クロム濃度は、SPにおいてはND~0.016  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、SPMにおいてはND~0.009  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ で、変動係数も各々0.86、0.94といずれも各成分中で最も高かった。

ベンゾ(a)ピレン濃度は、SPにおいてはND~0.020  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ で変動が大きく、SPMにおいてはND~0.0018  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ で、いずれも従来の報告<sup>4)</sup>と同様、特に冬季に高い結果を得た。

なお、SP及びSPMの粉じん及び重金属等の成分濃度について、季節別の変動を見るため四季間の差異を検定したがいずれも有意差は認められなかった。

### 3.2. 各成分間の相関

SP、SPMの各々について調査結果から分析項目間の評価を行った。相関係数を表4及び表5に示す。

その結果、SP(表4)においては、粉じんは、マンガン、亜鉛、鉛と、マンガンは鉄、亜鉛、鉛、ベンゾ(a)ピレンと、鉄は鉛と、亜鉛は鉛とそれぞれ高い相関を示した。

また、鉄及びマンガンを関するFe/Mn濃度比について、溝畑ら<sup>5)</sup>は土壌由来は概ね40.5、鉄鋼関係由来は概ね7.1の値を報告しているが、本調査の場合は41.3で、ほぼ土壌由来に近い結果を得た。

一方、SPM(表5)においては、鉄のみが亜鉛及び鉛と高い相関を示した。

### 3.3. 成分濃度の比較

10  $\mu\text{m}$ 以下の粒子とそれより大きい粒子の割合が成分ごとにどのような違いがあるかを見るために、SPとSPMの各々の年平均値の差をとったものとSPMの年平均値との比を求めた。その結果を表6に示す。

これらの比を大きく分類すると次のようになる。

- (1) 2.0以上 : 鉄
- (2) 1.0~1.9 : 粉じん, 亜鉛, ニッケル, クロム
- (3) 1.0未満 : 鉛, ベンゾ(a)ピレン

鉄は7.3と特に高く、このことから鉄はほとんどが10  $\mu\text{m}$ 以上のいわゆる粗大粒子領域に偏在しているものと思われる。

粉じんは1.2、亜鉛は1.5で粗大粒子領域にやや多い結果が得られた。

ニッケル、クロムは1.0でほぼ等量であった。

一方、鉛及びベンゾ(a)ピレンは、いずれも1.0以下でこれらの成分は10  $\mu\text{m}$ 以下のいわゆる微粒子領域に多い結果が得られた。

表4 SPの分析項目間の相関係数

マンガン	0.919**						
鉄	0.742*	0.862**					
亜鉛	0.880**	0.871**	0.765*				
ニッケル	0.672	0.776*	0.682	0.759*			
鉛	0.930**	0.989**	0.884**	0.921**	0.771*		
クロム	0.620	0.470	0.400	0.524	0.473	0.455	
ベンゾ(a)ピレン	0.041	0.919**	-0.083	0.375	0.433	0.169	-0.217
粉じん	マンガン	鉄	亜鉛	ニッケル	鉛	クロム	

n = 24  
\* 有意水準 5%  
\*\* 有意水準 1%

表5 SPMの分析項目間の相関係数

鉄	0.701					
亜鉛	0.741*	0.899**				
ニッケル	0.662	0.169	-0.149			
鉛	0.720*	0.922**	0.760*	0.249		
クロム	0.109	-0.069	-0.345	0.738*	0.003	
ベンゾ(a)ピレン	0.149	0.120	0.393	0.213	-0.140	0.025
粉じん	鉄	亜鉛	ニッケル	鉛	クロム	

n = 24  
\* 有意水準 5%  
\*\* 有意水準 1%

表6 成分濃度比

粉じん	鉄	亜鉛	ニッケル	クロム	鉛	ベンゾ(a)ピレン
1.2	7.3	1.5	1.0	1.0	0.7	0.6

4. まとめ

1年間を通じて、浮遊粉じん及び浮遊粒子状物質の重金属成分等の組成の比較や経月変化等について調査し、概ね次のような結果が得られた。

(1) 重金属成分の平均濃度は、浮遊粉じんにおいては、鉄が最も高く、次いで、亜鉛、鉛、マンガン、ニッケル、クロムであり、浮遊粒子状物質においては、鉄、亜鉛、鉛、ニッケル、クロムの順に高かった。

なお、カドミウム、ヒ素及びバナジウムは検出されなかった。

一方、年間を通じた濃度の変動については、浮遊粉じんにおいては、鉄、クロム及びベンゾ(a)ピレンが特に大きかった。一方、浮遊粒子状物質においてはクロムが特に大きかった。

なお、浮遊粒子状物質の粉じん濃度は、変動が特に小さく、年間を通じてほぼ一定濃度で大気中に滞留しているものと考えられる。

(2) 各成分間の相関について見ると、浮遊粉じんでは粉じん、マンガン、鉄、亜鉛及び鉛間で特に高い相関を示した。

一方、浮遊粒子状物質においては、鉄のみが亜鉛及

び鉛と高い相関を示したのみで、両者の挙動に相違が見られた。

(3) 粒径別に成分濃度を比較した結果、鉛、ベンゾ(a)ピレンが10 μm以下の粒子領域に偏在していた。

なお、最近では更に粒径の小さい2 μm以下の粒子に関して健康面における影響についてその重要性が認識されていることから、今後はこれら微小粒子について捕集機器の検討をはじめとして、その挙動や成分調査の研究が必要であると思われる。

参考文献

- 1) 紀本岳志：環境と測定技術，Vol.13, No7, 30~47, 1986.
- 2) 久松由東他：公害と対策，Vol.25, No14, 13~21, 1989.
- 3) 渡辺和範他：愛媛県公害技術センター所報，第8号，1~6, 1988.
- 4) 環境庁大気保全局：大気汚染物質測定法指針，1988.
- 5) 溝畑朗他：大気汚染学会誌，Vol.15, 198~206, 1980.



# 環境大気中の水銀濃度について

武田邦夫・新 次美・大西こずえ

## 1. はじめに

環境大気中への水銀の放出は、自然的なものからと、人為的なものからの二つが考えられる。

自然的発生要因としては、火山活動や地熱作用による地表からの蒸発等がある。<sup>1)</sup>

一方、人為的発生要因としては、ボイラー等における化石燃料の燃焼、金属精錬、使用済の各種水銀製品を処理するための廃棄物焼却及び下水処理等があり<sup>1)</sup>、これらのプロセスからの放出量は自然的発生要因に比べてはるかに多いものと考えられる。

近年、石炭転換等に伴う化石燃料使用量の増加や経済活動の拡大に伴う廃棄物の増大等を考え合わせると、今後とも人為的発生要因による水銀放出量の増加が見込まれるため水銀濃度の現況を知ることは重要である。本県では、環境大気における重金属調査の一環として、昭和57年度から水銀の測定を実施しているが、今回過去8年間の調査結果をもとに、環境大気中の水銀濃度の現況を取りまとめたので報告する。

## 2. 調査地点

調査は、本県の東予・中予で行い、パルプ、紙、紙加工品製造業が立地する地点(St1)、化学工業、非鉄金属、一般機械製造等が立地する地点(St2, St3)、火力発電所が立地する地点(St4, St5)、都市部を代表する地点(St6, St7)及び周辺に大気汚染発生源のない比較的清浄な地点(St8)の8地点を選んだ。調査地点の概況及び位置を表1、図1にそれぞれ示す。

表1 調査地点の概況

地域	地点	地点名	所在地	地点の状況
工場地域	St 1	川之江	川之江市上分町	川之江市立上分小学校グラウンド
	St 2	東予支所	新居浜市八雲町	公害技術センター東予支所屋上
	St 3	中 村	新居浜市本郷	県立新居浜病院隣敷地内
	St 4	西 条	西条市大町	西条市児童公園敷地内
	St 5	西部公園	西条市水見	西条市西部公園敷地内
都市地域	St 6	保健ビル	松山市三番町	県生活保健ビル屋上
	St 7	富 久	松山市富久町	松山市消防署西部出張所敷地内
清浄地域	St 8	久 万	上浮穴郡久万町	県久万庁舎屋上

なお、調査地点の立地状況により工場地域(St1～St5)、都市地域(St6, St7)及び清浄地域(St8)に大別した。

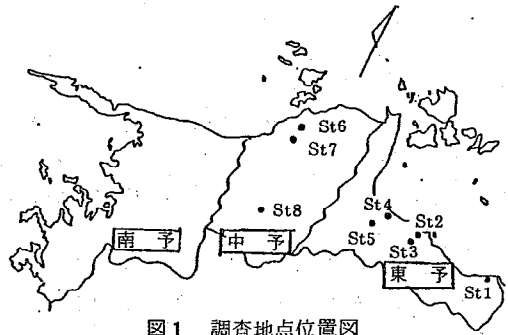


図1 調査地点位置図

## 3. 調査方法

### 3.1. 調査期間

調査期間は、昭和57年度から平成元年度までの8年間(ただし、調査地点St8は昭和61年度から平成元年度までの4年間)であり、測定は各年度とも夏季と冬季の2回実施した。

### 3.2. 捕集方法及び分析方法

#### 3.2.1. 捕集方法

試料の捕集は、図2に示すとおり水銀捕集管を吸引部先端に取り付け、吸引速度1.0ℓ/分で3時間、大気を直接吸引した。

捕集管はガラス管(内径4mm、外径6mm)に金コーティングクロモソルブW80mgを充填したものを用了。

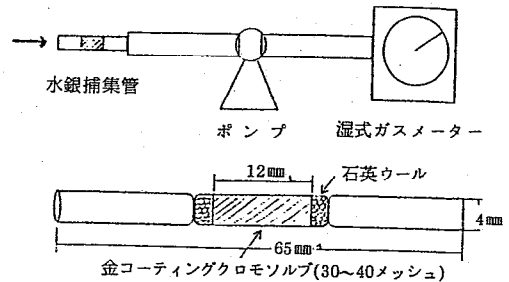


図2 採取装置図

### 3.2.2. 分析方法

分析は、金アマルガム-冷原子吸光法によるものとし、日本インスツルメンツ(株)製マーキュリーモニターAM-2型を使用した。

本機の構成を、図3に示す。

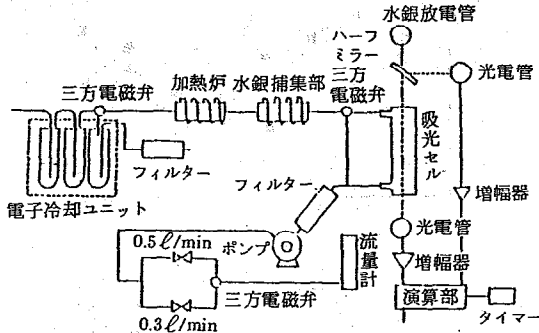


図3 分析装置構成図

### 4. 結果と考察

#### 4.1. 環境大気中の水銀濃度の推移

各地点における調査結果を表2に、地域別の経年変化を図4に示す。また、地域別出現頻度を図5に示す。

年度別平均値でみると、工場地域における環境大気中の水銀濃度は、1.7~3.9 ng/m<sup>3</sup>の範囲で推移し、総平均値は2.8 ng/m<sup>3</sup>(変動係数0.29)であった。都市地域では2.0~6.2 ng/m<sup>3</sup>の範囲で推移し、総平均値は3.2 ng/m<sup>3</sup>(変動係数0.40)であり、清浄地域では1.7~2.6 ng/m<sup>3</sup>の範囲で推移し、総平均値は2.2 ng/m<sup>3</sup>(変動係数0.16)であった。

なお、調査地点間、地域間の相違の有無を検定したが、有意差は認められなかった。

また、工場、都市地域は清浄地域に比べ、1.3~1.5倍程度高い濃度を示した。

表2 環境大気中の水銀濃度調査結果

地域		年度	年度												濃度範囲			平均			変動係数					
			57	58	59	60	61	62	63	元	夏季	冬季	夏季	冬季	夏季	冬季	夏季	冬季	全体	夏季	冬季	全体	夏季	冬季	全体	
工場地域	St 1	1.8	3.0	-	-	-	-	ND	1.2	3.4	2.9	3.1	5.9	2.2	1.8	ND~3.4	1.2~5.9	ND~5.9	2.1	3.0	2.5	0.57	0.55	0.59		
	St 2	3.0	1.7	5.4	2.7	3.6	2.6	2.1	2.3	1.7	ND	1.5	2.2	3.4	2.7	3.9	1.9	1.5~5.4	ND~2.7	ND~5.4	3.1	2.0	2.5	0.39	0.41	0.46
	St 3	7.0	2.4	3.2	3.9	5.2	2.2	1.3	1.8	1.8	1.2	2.4	2.5	2.6	5.5	2.9	1.1	1.3~7.0	1.1~5.5	1.1~7.0	3.3	2.6	2.9	0.54	0.53	0.55
	St 4	1.9	2.7	4.0	3.3	2.6	7.4	2.3	1.1	3.4	1.3	1.8	2.1	4.8	2.3	1.4	2.3	1.4~4.8	1.1~7.4	1.1~7.4	2.8	2.9	2.8	0.40	0.64	0.54
	St 5	3.0	2.2	3.3	3.1	2.3	5.0	ND	1.2	5.9	1.5	2.2	2.1	3.0	2.0	3.2	ND~5.9	1.2~5.0	ND~5.9	2.6	2.7	2.6	0.60	0.42	0.51	
	平均	3.3	2.4	4.0	3.3	3.4	4.3	1.4	1.6	2.6	1.0	2.3	2.4	3.2	4.0	2.5	2.1	1.4~4.0	1.0~4.3	1.0~4.3	2.8	2.6	2.7	0.27	0.41	0.34
	年度別	2.9		3.7		3.9		1.7		1.8		2.4		3.6		2.3		-	-	1.7~3.9	2.8			0.29		
都市地域	St 6	3.0	4.3	2.9	3.4	7.0	6.1	3.1	ND	3.0	1.7	3.1	2.5	2.1	6.3	5.2	2.8	2.1~7.0	ND~6.3	ND~7.0	3.7	3.4	3.5	0.41	0.59	0.50
	St 7	-	4.1	2.1	5.1	-	4.7	3.1	1.8	ND	3.1	1.4	2.0	2.1	2.1	2.2	1.7	ND~3.1	1.7~5.1	ND~5.1	1.8	3.1	2.5	0.52	0.42	0.52
	平均	3.0	4.2	2.5	4.3	7.0	5.4	3.1	0.9	1.5	2.4	2.3	2.3	2.1	4.2	3.7	2.3	1.5~7.0	0.9~5.4	0.9~7.0	3.2	3.3	3.2	0.50	0.43	0.47
	年度別	3.6		3.4		6.2		2.0		2.0		2.3		3.2		3.0		-	-	2.0~6.2	3.2			0.40		
清浄地域	St 8	-	-	-	-	-	-	-	2.1	2.5	1.5	2.5	2.8	2.4	1.7	1.7	1.5~2.8	1.7~2.5	1.5~2.8	2.0	2.3	2.2	0.25	0.15	0.21	
	平均	-	-	-	-	-	-	-	2.1	2.5	1.5	2.5	2.8	2.4	1.7	1.7	1.5~2.8	1.7~2.5	1.5~2.8	2.0	2.2	2.2	0.25	0.15	0.21	
	年度別	-	-	-	-	-	-	-	2.3		2.0		2.6		1.7		-	-	1.7~2.6	2.2			0.15			

(注) 平均値の算出にあたっては、NDを0として扱った。

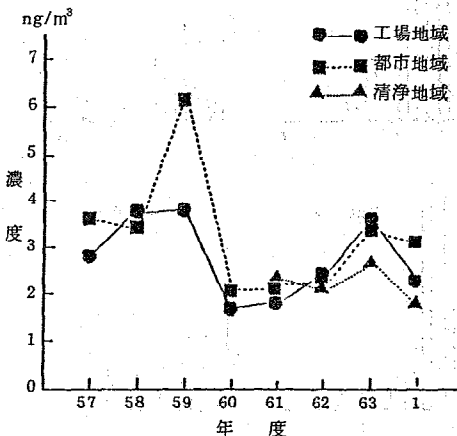


図4 水銀の地域別経年変化

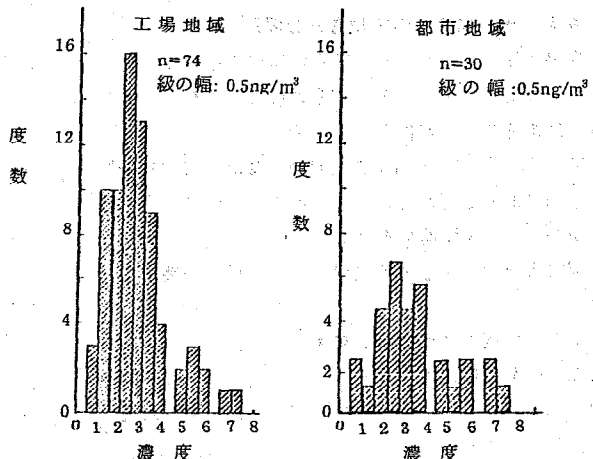


図5 水銀の地域別出現頻度

昭和57年度に環境庁が実施した有害物質全国総点検調査の結果では、全国の総平均濃度は $4.2 \text{ ng/m}^3$ であり、地域別では工場地域 $4.9 \text{ ng/m}^3$ 、都市地域 $4.1 \text{ ng/m}^3$ 及び田園地域 $2.6 \text{ ng/m}^3$ となっている。<sup>2)</sup>

以上のごとから、本県の環境大気中の水銀濃度は、全国レベルよりやや低めに推移していた。

一方、環境大気中水銀のバックグラウンド濃度としては、及川らが長崎県で得た $4 \text{ ng/m}^3$ <sup>3)</sup>、あるいは $3 \text{ ng/m}^3$ <sup>4)</sup>等が報告されているが、仮に本県のバックグラウンド濃度を $3 \text{ ng/m}^3$ とみなすと、工場地域、都市地域において $3 \text{ ng/m}^3$ を超える出現率は、それぞれ30%、43%になっており、人為的発生源からの影響が認められた。

#### 4.2. 季節別水銀濃度の推移

次に、夏季及び冬季の経年変化を図6に、季節別出現頻度を図7に示す。

季節別平均値で見ると、夏季の工場地域における環境大気中の水銀濃度範囲(平均値)は $1.4 \sim 4.0 \text{ ng/m}^3$ ( $2.8 \text{ ng/m}^3$ )、都市地域では $1.5 \sim 7.0 \text{ ng/m}^3$ ( $3.2 \text{ ng/m}^3$ )、清浄地域では、 $1.5 \sim 2.8 \text{ ng/m}^3$ ( $2.0 \text{ ng/m}^3$ )であった。

また、冬季の工場地域における環境大気中の水銀濃度範囲(平均値)は、 $1.0 \sim 4.3 \text{ ng/m}^3$ ( $2.6 \text{ ng/m}^3$ )、都市地域では、 $0.9 \sim 5.4 \text{ ng/m}^3$ ( $3.3 \text{ ng/m}^3$ )、清浄地域では、 $1.7 \sim 2.5 \text{ ng/m}^3$ ( $2.3 \text{ ng/m}^3$ )であった。

また、工場地域、都市地域におけるバックグラウンド濃度とみなした $3 \text{ ng/m}^3$ を超える出現率は、それぞれ夏季では38%、36%、冬季では22%、50%であった。

環境大気中の水銀濃度の変動については、江角の温度を基底とした因子の寄与が高く、夏季に高い傾向を示す報告<sup>5)</sup>や、押尾らの冬季に高い傾向を示す報告<sup>6)</sup>がある。しかし筆者らの調査では冬季に高くなる傾向はみられたが、両者間の有意差は認められず明確な傾向はなかった。

#### 4.3. 水銀濃度と汚染物質との関係

環境大気中の水銀と一次汚染物質との相関について、小林らにより二酸化硫黄及び窒素酸化物と有意な相関関係にあることが報告されている。<sup>7)</sup>

筆者らはSt1～St4の調査地点が環境大気常時監視測定局であることから、ここで得られた汚染物質の測定値を用いて相関関係を検討した。

環境大気中の水銀と各項目との相関係数を表3に示す。

筆者らの調査において、表3のとおり地点によっては弱い相関関係がみられるものの、全体的に環境大気中の水銀と各項目との有意な相関関係は認められなかった。

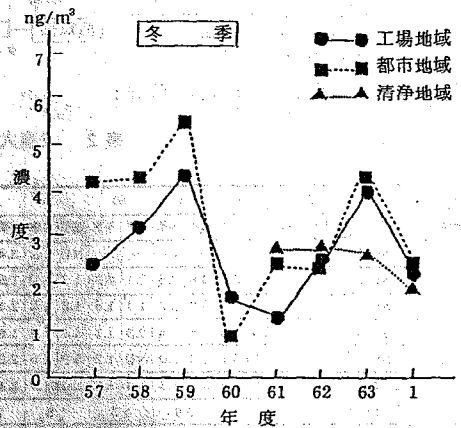
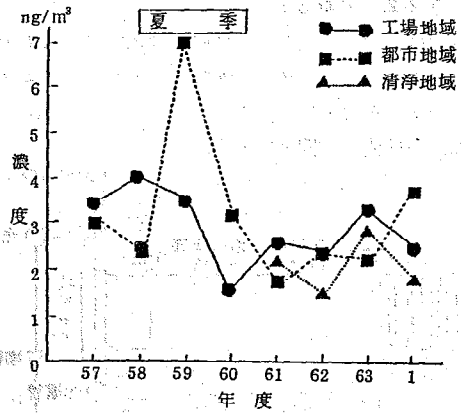


図6 水銀の季節別経年変化

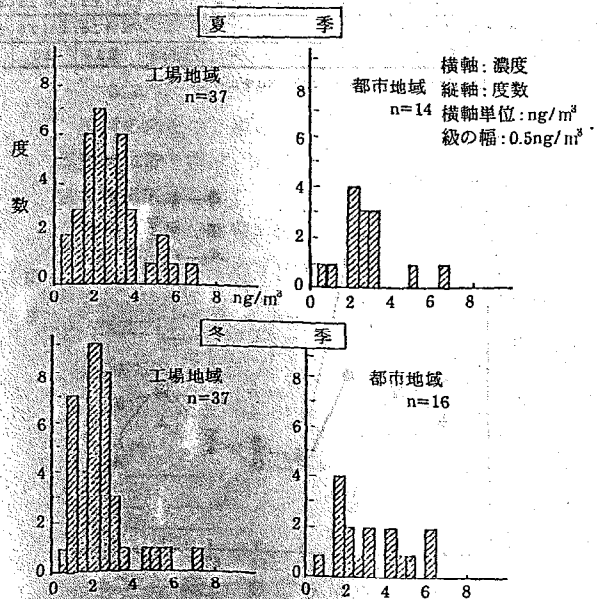


図7 水銀の季節別出現頻度

表3 水銀と各項目との相関係数

地点 \ 項目	気温	二酸化硫黄	浮遊粒子状物	一酸化窒素	二酸化窒素	非メタン炭化水素	メタン	一酸化炭素
St.1 (n=9)	-0.104	-0.026	-0.054	0.027	0.007	0.128	0.297	-0.057
St.2 (n=15)	0.337	0.128	0.388	-0.126	-0.314	-0.112	-0.410	-
St.3 (n=16)	0.002	0.219	0.375	-0.032	0.005	0.141	-0.203	0.391
St.4 (n=15)	0.101	0.107	0.265	0.044	0.337	0.292	-0.108	0.404
全体 (n=55)	0.087	0.048	0.260	-0.047	-0.108	0.005	0.099	0.093

5. まとめ

今後の環境大気中水銀調査の参考にするため、過去8年間の調査結果をもとに現況を把握した。

本県における環境大気中の水銀濃度は、概ね2~6 ng/m<sup>3</sup>の範囲で推移しており、人為的発生源からの影響はみられるが、全国レベルと比較しやや低めに推移していた。

なお、対照地点として選定した比較的清浄な地点での水銀濃度は、概ね2~3 ng/m<sup>3</sup>で推移し、全国レベルと同程度であった。

— 参考文献 —

- 1) 喜多村正次他：水銀，133~137, 232~241, 1981.
- 2) 環境庁大気保全局大気規制課：有害物質全国総点検調査結果報告書，8~16, 1984.
- 3) 及川紀久雄他：日本公衆衛生会誌，Vol. 23, No. 10, 1976.
- 4) 大竹千代子：日本環境図譜，189, 1978.
- 5) 江角光典：全国公害研究誌，Vol. 14, No. 3, 28~32, 1989.
- 6) 押尾敏夫他：千葉県公害研究所研究報告，Vol. 21, No. 2, 1~11, 1989.
- 7) 小林喜樹他：兵庫県公害研究所研究報告，Vol. 15, 11~18, 1983.

## テトラクロロエチレン及び1,1,1-トリクロロエタン 含有水の処理について

岡本信二\*・尾澤 博・余田幸作・林 弘  
稲荷公一

### 1. はじめに

近年、有機塩素系化学物質による地下水汚染が問題となったため、水質汚濁防止法及び政令の一部が改正され、平成元年10月から、トリクロロエチレン及びテトラクロロエチレンについて排水基準が適用されるとともに、これらの物質を含む水の地下への浸透が規制されることになった。

また、昭和59年8月に定められた暫定指導指針で管理目標が定められていた1,1,1-トリクロロエタン等3物質に加えて、平成元年4月、四塩化炭素についても排出水の管理目標が設定され、地下浸透を禁止するよう指導することとなった。

これらの有機塩素系化学物質を使用又は製造する事業場のうち、比較的規模の小さいものが多いドライクリーニング施設に対する排水処理の指導の参考とするため、洗浄剤として使用されているテトラクロロエチレン及び1,1,1-トリクロロエタンについて、その含有水からの除去方法を検討し、若干の知見を得たのでその結果を報告する。

### 2. 試験方法

ドライクリーニング施設からの排水は、ドライ機の水分離器排水のように、洗浄剤がほとんど飽和になっている高濃度で少量の排水と、ウェット系の洗浄水やドライ機の冷却水等にこれらが混入した比較的低濃度で多量の排水に別れており、単一の処理方法で処理することは困難であり、経済的にも別途処理する方が有利と考えられる。

そこで、高濃度含有水については、処理効率の良い活性炭吸着法について、また、低濃度含有水については、曝気処理法について検討を行った。

#### 2.1. 活性炭吸着処理試験

##### 2.1.1. 吸着試験

高濃度含有水として、テトラクロロエチレン濃度171～

178 mg/ℓの水溶液及び1,1,1-トリクロロエタン濃度544～597 mg/ℓの水溶液各200 mlを、それぞれ200 ml共栓三角フラスコにとり、ヤシガラ系及び石炭系粒状活性炭(液相用、8～32 mesh)を各4～6段階の重量別に加えて密栓し、スターラーで6時間攪拌、吸着後の水相の洗浄剤の濃度を測定して、吸着平衡データを求めた。

##### 2.1.2. カラム試験

直径1.5 cm、長さ30 cmのガラス製カラムに、ヤシガラ系粒状活性炭(液相用、8～20 mesh)を23 g及び20 g充填したものに、テトラクロロエチレン濃度約172 mg/ℓ及び1,1,1-トリクロロエタン濃度約964 mg/ℓの高濃度含有水を、それぞれ約300 ml/時の通水速度で流し、処理水の濃度を測定し、吸着量を求めた。

### 2.2. 曝気処理試験

5 ℓビーカーに、テトラクロロエチレンの0.21～3.7 mg/ℓの範囲の3段階の水溶液を5 ℓずつとり、スターラーでゆっくりと攪拌しながら、細孔の大きさ100～120 μmのガラスフィルターを用い、0.85 ℓ/分の通気速度で曝気を行った。

曝気開始前及び曝気開始後30分、60分、120分に試験水を採取し、濃度を測定し、除去率をみた。

なお、別に、攪拌のみで曝気を行わない対照試験も並行して行った。試験は、すべて室温で行った。

### 2.3. テトラクロロエチレン及び1,1,1-トリクロロエタンの分析条件

テトラクロロエチレン及び1,1,1-トリクロロエタンの分析は、JISK0125の5.2(ヘッドスペース・ガスクロマトグラフ法)の方法で行った。

ガスクロマトグラフの分析条件は、表1のとおりである。

### 3. 試験結果

#### 3.1. 活性炭吸着試験

##### 3.1.1. 吸着試験

テトラクロロエチレン及び1,1,1-トリクロロエタン

表1 ガスクロマトグラフの分析条件

装置	ガスクロマトグラフ：島津GC-14A (ECD)
測定条件	カラム：20%シリコンDC-550 クロモゾルブW (AW-DMCS, 60~80mesh) ガラス製カラム 3.1m×3.2mm i.d
温度	カラム 70°C 注入口 200°C 検出器 200°C
キャリアガス	N <sub>2</sub> (30ml/min)

表2 吸着平衡データ

活性炭添加量 M g/100 ml	平衡濃度 C <sub>1</sub> mg/100 ml	吸着量 X = C <sub>0</sub> - C <sub>1</sub> mg/100 ml	X/M mg/g
0.005	11.5	6.3	1266
0.025	2.4	15.5	618
0.05	0.63	16.7	333
0.125	0.089	17.7	142

(注) ○ 試料：テトラクロロエチレン  
○ 活性炭：ヤシガラ系粒状活性炭 (8-32mesh)  
○ Co = 17.8mg/100ml

表3 吸着平衡データ

活性炭添加量 M g/100 ml	平衡濃度 C <sub>1</sub> mg/100 ml	吸着量 X = C <sub>0</sub> - C <sub>1</sub> mg/100 ml	X/M mg/g
0.015	7.7	9.4	627
0.025	4.4	12.7	508
0.05	1.4	15.7	314
0.125	0.2	16.9	135

(注) ○ 試料：テトラクロロエチレン  
○ 活性炭：石炭系粒状活性炭 (8-32mesh)  
○ Co = 17.1mg/100ml

表4 吸着平衡データ

活性炭添加量 M g/100 ml	平衡濃度 C <sub>1</sub> mg/100 ml	吸着量 X = C <sub>0</sub> - C <sub>1</sub> mg/100 ml	X/M mg/g
0.05	36.7	23.0	460
0.15	19.8	39.9	266
0.50	2.0	57.7	115
1.25	0.7	59.0	47
2.50	0.4	59.3	24

(注) ○ 試料：1,1,1-トリクロロエタン  
○ 活性炭：ヤシガラ系粒状活性炭 (8-32mesh)  
○ Co = 59.7mg/100ml

表5 吸着平衡データ

活性炭添加量 M g/100 ml	平衡濃度 C <sub>1</sub> mg/100 ml	吸着量 X = C <sub>0</sub> - C <sub>1</sub> mg/100 ml	X/M mg/g
0.05	31.5	22.9	458
0.15	20.2	34.2	228
0.30	10.2	44.2	147
0.50	5.9	48.5	97
1.25	1.1	53.3	43
2.50	0.9	53.5	21

(注) ○ 試料：1,1,1-トリクロロエタン  
○ 活性炭：石炭系粒状活性炭 (8-32 mesh)  
○ Co = 54.4 mg/100 ml

表6 各洗浄剤の吸着等温式

洗浄剤	活性炭の種類	吸着等温式
テトラクロロエチレン	ヤシガラ系	$X/M = 418 \cdot C_1^{0.4513}$
	石炭系	$X/M = 266 \cdot C_1^{0.4311}$
1,1,1-トリクロロエタン	ヤシガラ系	$X/M = 64.6 \cdot C_1^{0.5245}$
	石炭系	$X/M = 22.2 \cdot C_1^{0.8288}$

の、ヤシガラ系及び石炭系粒状活性炭への吸着力を示す吸着平衡データを表2~表5に示す。

一般に、吸着平衡データは、次のフロイドリッヒ式で整理し、吸着等温線として示される。<sup>1)</sup>

$$X/M = K C_1^{1/n}$$

X：被吸着物質の吸着量 (C<sub>0</sub> - C<sub>1</sub>)

M：活性炭添加量

X/M：活性炭単位質量当りに吸着された被吸着物質の平衡吸着量

C<sub>0</sub>：空試験液中の被吸着物質濃度

C<sub>1</sub>：平衡時の溶液中の被吸着物質濃度

K：活性炭と吸着系によって決まる定数

1/n：活性炭と吸着系によって決まる定数

表2~表5の吸着平衡データを、上記の式に代入して求めた、活性炭の種類毎の各洗浄剤の吸着等温式は、表6のとおりで、これを図示すると図1、図2のようになる。

フロイドリッヒの式で、1/n (傾き) は吸着指数と呼ばれ、小さい時には、高濃度域から低濃度域にかけてよく吸着する。一般に1/nが0.1~0.5であれば吸着は容易で、1/nが2以上の場合は難吸着性であると言われている。<sup>2)</sup> 今回の吸着試験では、1/nの値は0.4~0.8程度であり、テトラクロロエチレン及び1,1,1-トリクロロエタンとも、どちらの活性炭にも高濃度

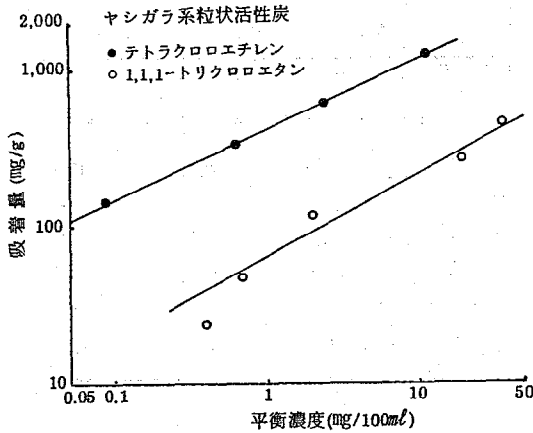


図1 吸着等温線(室温)

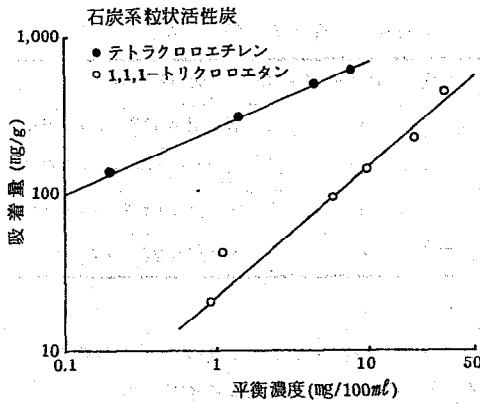


図2 吸着等温線(室温)

域から低濃度域にかけて良く吸着した。なお、Kの値については、石炭系よりヤシガラ系の方が大きいので、石炭系よりヤシガラ系の方がテトラクロロエチレン及び1,1,1-トリクロロエタンとも吸着が良いと考えられる。

また、テトラクロロエチレンの水に対する溶解度(150mg/l, 25℃)は、1,1,1-トリクロロエタンのそれ(1,090mg/l, 25℃)より小さいため、<sup>3)</sup> 前者の方が後者より吸着量が大きくなったものと思われる。

### 3.1.2. カラム試験

吸着試験の結果、吸着能力の大きかったヤシガラ系粒状活性炭(液相用、8~20mesh)を充填したカラムを用いたテトラクロロエチレン及び1,1,1-トリクロロエタンの除去率は、図3、図4のとおりである。

テトラクロロエチレンについては、カラムによる処理水の濃度が排水基準の0.1mg/lを超えたのは、テトラクロロエチレン高濃度含有水を45ℓ通水した時点であった。即ち、活性炭充填量23gから計算すると、ヤシガラ系粒状活性炭1g当たり、テトラクロロエチレン0.34gを吸着するまでは、排水基準以内で処理す

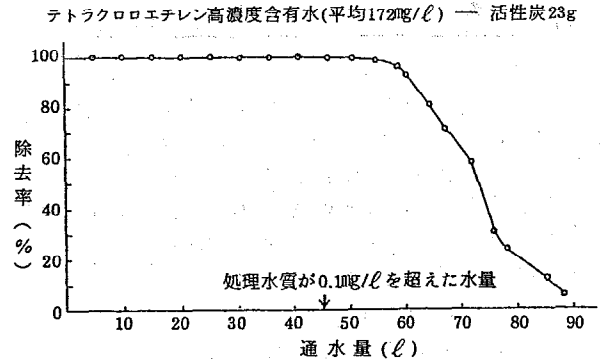


図3 ヤシガラ系粒状活性炭充填カラムによる除去率

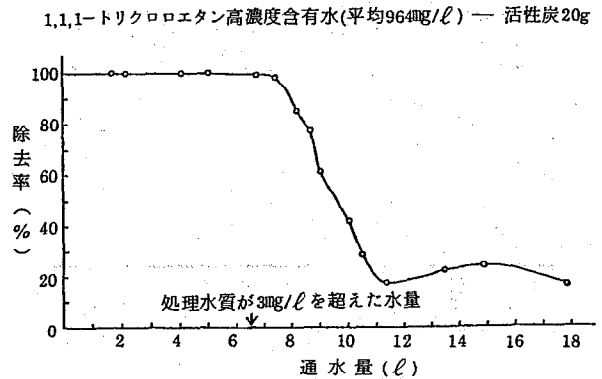


図4 ヤシガラ系粒状活性炭充填カラムによる除去率

ることができると考えられる。

1,1,1-トリクロロエタンについては、カラムによる処理水の濃度が、管理目標である3mg/lを超えたのは、1,1,1-トリクロロエタン高濃度含有水を6.5ℓ通水した時点であった。即ち、活性炭充填量20gから計算すると、ヤシガラ系粒状活性炭1g当たり、1,1-トリクロロエタン0.31gを吸着するまでは、管理目標以下で処理することができると考えられる。

なお、処理水が排水基準や管理目標を越えても、除去率は悪くなるが、しばらくの間は吸着が続いた。

### 3.2. 曝気処理試験

曝気によるテトラクロロエチレンの除去率は、表7のとおりである。

テトラクロロエチレンの濃度は、曝気開始後60分(気液比10)で、曝気開始前の約1/5に低下した。曝気を行わない対照試験では、60分後の濃度の低下は12~27%程度であった。

テトラクロロエチレンの濃度を排水基準の0.1mg/l以下にするためには、テトラクロロエチレンの数mg

表7 曝気によるテトラクロロエチレンの除去率

	曝気の 有 無	曝 気 時 間 (分)			
		0	30	60	120
実験 1	有	0.21	0.092	0.042	-
		-	56	80	-
	無	0.22	0.21	0.16	-
		-	5	27	-
実験 2	有	1.9	0.91	0.40	-
		-	52	79	-
	無	2.0	1.6	1.5	-
		-	20	25	-
実験 3	有	3.7	1.6	0.6	0.07
		-	57	84	98
	無	3.4	3.3	3.0	2.7
		-	3	12	21

(注) 上段: 濃度 (mg/ℓ) 下段: 除去率 (%)

/ℓ程度の排水5ℓに対し、通気速度0.85ℓ/分で曝気時間が2時間(気液比20)程度は必要であり、この場合の除去率は98%となった。

曝気による有機塩素系溶剤の減少速度は一次反応で近似できるという報告があり、<sup>4)</sup> 今回の実験においても縦軸(テトラクロロエチレン濃度)を対数目盛とすると、図5に示すとおり、ほぼ直線関係が得られ、その関係式は次のとおりになった。

実験1  $\log y = -0.0117 t - 0.681$

実験2  $\log y = -0.0113 t + 0.285$

実験3  $\log y = -0.0145 t + 0.609$

y: テトラクロロエチレン濃度 (mg/ℓ)

t: 曝気時間 (分)

実験1から実験3までの一次式の傾きの平均値は、-0.0125であるから、初期濃度を  $y_0$  とすると、この実験条件では、排水基準値以下に処理する為に要する時間は、次式で表わされる。

$$t_{0.1} = \frac{\log y_0 + 1}{0.0125}$$

$t_{0.1}$ : 初期濃度  $y_0$  のテトラクロロエチレン濃度が、0.1mg/ℓに達するまでの曝気時間(分)

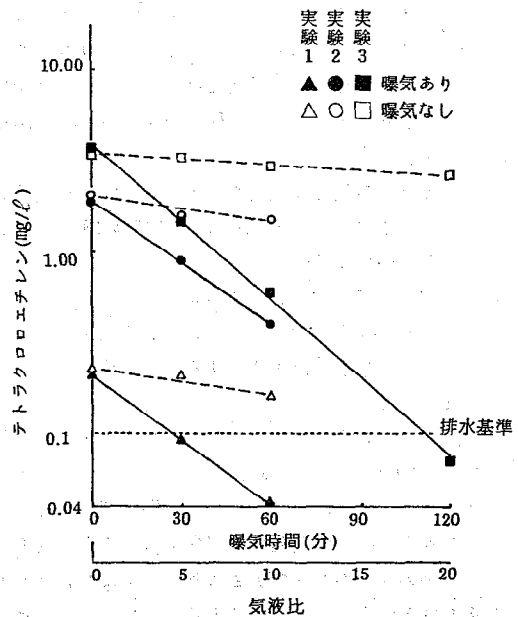


図5 曝気によるテトラクロロエチレンの濃度変化

#### 4. まとめ

テトラクロロエチレン及び1,1,1-トリクロロエタン含有水の処理試験を行い、次のような知見を得た。

(1) テトラクロロエチレン及び1,1,1-トリクロロエタンは、液相用粒状活性炭への吸着が容易であり、石炭系よりヤシガラ系の方が吸着が良い。

(2) ヤシガラ系粒状活性炭のカラムを用いて、テトラクロロエチレン及び1,1,1-トリクロロエタンの高濃度含有水を処理した場合、処理水の濃度がこれらの排水基準や管理目標を超えるまでに、テトラクロロエチレンは、活性炭1g当り0.34g、1,1,1-トリクロロエタンは0.31g吸着した。このことから計算すると、直径10cm、高さ50cmの活性炭塔に、ヤシガラ系粒状活性炭3.9ℓ(重量1.9kg)を充填した場合、テトラクロロエチレン高濃度含有水(約170mg/ℓ)は約3,800ℓ、1,1,1-トリクロロエタン高濃度含有水(約1,000mg/ℓ)は約600ℓを、排水基準や管理目標以下にまで処理することができる。なお、排水基準を越えてもしばらくの間は吸着が持続するので、実際の処理にあたっては、活性炭塔を2基直列にした方が経済的である。

また、ドライクリーニング施設からの排水を、活性炭塔により処理するにあたっては、次の点に留意する必要がある。

- ドライ機の水分離器では、洗浄剤と水の分離を確実にし、洗浄剤が活性炭塔へ流入する



のを防止する。

- 活性炭塔は2基直列とし、1塔目の排水について、時々検知管等で濃度を測定し、活性炭の交換時期を把握する。また、使用済みの活性炭は適正に処分する。
  - カラム試験では、通水速達は $170 \text{ ml/cm}^2 \cdot \text{時}$ としたが、これは直径 $10 \text{ cm}$ のカラムでは $13 \text{ l/時}$ となり、中小規模のドライクリーニング施設の処理能力としては十分と考えられる。
  - 活性炭は常時水中にあることが望ましいので、通水方法は上向飽和流とするほうが良い。
- (3) 曝気処理試験の結果から、数 $\text{mg/l}$ のテトラクロロエチレン含有水を排水基準以下にするためには、気液比 $20$ 以上が必要である。

曝気処理の原理は、ヘンリーの法則に基づいて、液相の溶剤と気相の溶剤濃度が平衡になることを利用して、気相の溶剤濃度を減少させることにより、液相の溶剤濃度を減少させるものである。したがって、曝気槽の換気を良くすることや、吹き込む空気を外部から導入する等の考慮が必要であり、また、液相の温度も

高いほど有利である。しかし、高濃度排水の曝気処理は、排気による二次汚染を防止するため、回収設備の設置が必要で、小規模工場では無理と考えられる。

最後に、本試験は純水に洗剤を溶解させたものを用いたもので、実際のドライクリーニング施設の洗剤には、アルコール類等の安定剤が添加されており<sup>5)</sup>、その性状が異なるため、今後、実際の排水による検討を実施していきたいと考えている。

なお、この一部は、全公研中四国支部第16回水質部会(平成元年10月)において発表した。

#### — 参考文献 —

- 1) 日本規格協会：JISK 1474-1975 粒状活性炭試験方法，18～19。
- 2) 愛媛県：高度排水処理技術開発研究報告，73～76，1988。
- 3) クロロカーボン協会：「トリクロロエチレン等適正利用マニュアル」の解説，19～24，1986。
- 4) 長谷川一夫：神奈川県衛生研究所研究報告，No.13，19～35，1983。
- 5) 浦野紘平：公害と対策，Vol.26，No.12，25～38，1990。

## 生活排水の土壌処理試験

岡本信二\*・吉野内茂

### 1. はじめに

公共用水域の水質の状況は、総体的には改善の傾向にあるが、瀬戸内海等の閉鎖性水域での水質環境基準の達成率は、依然として低くなっている。

水質汚濁の要因のうち、産業系排水については、排出負荷量が削減されてきたが、生活系排水については、生活の質の向上による生活用水量の増加や汚濁負荷量の増大がみられ、水質汚濁の改善には生活排水対策が大きな課題となっている。

生活排水対策の柱は下水道の整備であるが、昭和63年度の本県の下水道普及率は19.8%と全国平均を下回っており、今後の整備地域が都市周辺部や町村部であることから、普及率の急激な上昇は望めない。

環境庁では、昭和63年に、「生活雑排水対策推進指導指針」<sup>1)</sup>を作成し、台所等での発生源対策の推進や家庭用合併浄化槽の設置の促進等を行っているが、タレ流しになっている生活雑排水の処理対策が急務となっている。

本県では、昭和60～62年度に、「高度排水処理技術開発研究」を行い、土壌に製紙スラッジ焼却灰を用いた土壌浄化法による工場排水の処理技術を開発した。<sup>2)~5)</sup>

この処理技術は、COD、窒素及びりんを高度処理できるとともに、脱臭や脱色の効果も優れており、閉鎖系の土壌処理であるので、地下汚染のおそれもなく、また、維持管理も容易であるので、家庭での生活排水の処理にも有効であると考えられる。

そこで、家庭にこの処理技術を用いた土壌処理模型を設置し、約20か月にわたり生活排水のフィールド処理試験を行い、生活排水処理について若干の知見を得たので報告する。

### 2. 調査方法

#### 2.1. 試験方法

2軒の家庭に土壌処理模型を設置し、処理試験を行った。

1軒(A宅)では台所排水のみを、もう1軒(B宅)では総合生活排水(試験の途中から、単独浄化槽処理水も混入した。)を通水速度200～500ℓ/㎡・日で通水し、処理前後の水を採取分析し、除去効率をみた。

土壌処理模型の概要は図1のとおりであり、表面積500cm<sup>2</sup>、深さ40cmの塩ビ製模型に、製紙スラッジ焼却灰を充填し、飽和層(嫌気層)と不飽和層(好気層)が半々になるようにした。

土壌として用いた製紙スラッジ焼却灰の物理学的、化学的性状や染料等の吸着試験の結果は、すでに報告しているが、<sup>2,3)</sup>製紙スラッジ焼却灰は、比較的粒径の小さいシルト、粘土が50%以上を占め、透水性も良く、染料やりんの吸着能力も優れているので、排水処理に使用する土壌として適当と考えられる。

なお、処理原水の均質化と浮遊物質の除去をはかるため、処理原水は家庭のピットからポンプで10ℓのポリタンクに貯水し、この中から定量をポンプで土壌処理模型へ通水した。

#### 2.2. 試験項目

原水と処理水について、毎月1回、次の8項目の試験を行った。

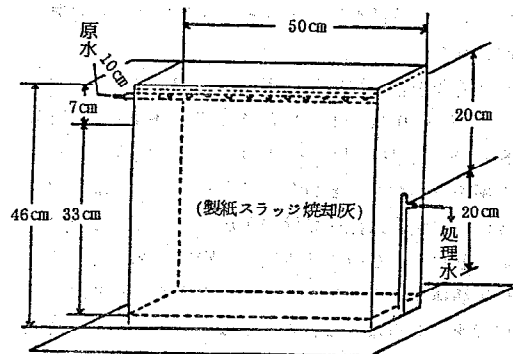


図1 土壌処理模型

pH, BOD, COD, SS, T-N, T-P, DO,  
MBAS (陰イオン界面活性剤)。

### 3. 試験結果

処理試験結果は、表1及び表2のとおりであり、汚濁物質の除去率の経過を示したものは、図2及び図3のとおりである。

#### 3.1. 台所排水のみの場合

通水速度は  $200 \ell / \text{m}^2 \cdot \text{日}$  で、11か月間連続通水したが、その間土壌の目詰りはなかった。しかし、処理水のDOはほとんど  $0 \text{mg} / \ell$  となり、飽和層は強い嫌気状態となった。

汚濁物質の平均除去率は、BOD 62%、COD 82%、SS 95%、T-N 50%、T-P 97%、MBAS 97%と、処理原水が高濃度であったわりには処理効率は良く、処理水もほとんど無色透明となったが、嫌気性が強いため、硫化水素臭が感じられた。

通水期間中の除去率の変化は、COD, SS, T-P, MBASでは大きくなかったが、BOD, T-Nでは途中極端に除去率が低下した時期があった。

通水速度は、 $200 \ell / \text{m}^2 \cdot \text{日}$  と期間中一定にしたが、原水のBODやT-Nが高濃度であることや汚濁物質の除去率や土壌処理槽の通水状態からみて、これ以上上昇させるのは困難と考えられた。

#### 3.2. 総合生活排水の場合

通水速度は、 $200 \ell / \text{m}^2 \cdot \text{日}$  で3か月間通水し、その後、 $500 \ell / \text{m}^2 \cdot \text{日}$  に増加させて1か月間通水したが、都合により4か月通水を停止した。その後、通水速度  $500 \ell / \text{m}^2 \cdot \text{日}$  で通水を開始し、この時から尿浄化槽排水も混入するようになったが、4か月半通水したところで土壌が目詰りをおこして通水不能となったため、土壌層から水を抜き、約3か月半乾燥状態にした。その後、約4か月通水したところ、目詰りせずに順調に処理された。

通水期間中の平均的除去率は、BOD 93%、COD 91%、SS 91%、T-N 57%、T-P 88%、MBAS 97%と、台所排水のみの場合とほぼ同様の良好な除去率を示したが、BOD, CODについては、台所排水のみの場合に比べて除去率が良かった。これは、原水のBODとCODの水質が、厨房排水に比べて、総合生活排水の方が低かったためと考えられる。

処理水のDOは、ほとんど  $1 \text{mg} / \ell$  以下で、飽和層は強い嫌気状態を示しているが、処理水の硫化水素臭は、土壌が目詰りする前以外は、それほど強く感じられなかった。

表1 処理試験結果 (A宅, 台所排水のみ)

項目	水質 (pH以外は $\text{mg} / \ell$ )		除去率 (%) 平均 (最小~最大)
	処理前 平均値 (最小値~最大値)	処理後 平均値 (最小値~最大値)	
pH	5.2 (4.8~6.7)	7.1 (6.1~7.7)	—
BOD	664 (420~1,090)	253 (91~606)	61.9 (18.3~88.3)
COD	189 (103~385)	34 (11~57)	82.0 (69.3~89.3)
SS	139 (66~276)	7 (<1~15)	95.0 (87.5~98.5)
T-N	19 (11~38)	9.6 (3.7~22)	49.5 (0~78.2)
T-P	5.1 (1.4~12)	0.16 (<0.02~0.42)	96.9 (94.1~98.6)
MBAS	2.2 (1.4~3.6)	0.07 (<0.02~0.25)	96.8 (87.9~98.0)
DO	—	0.1 (0~0.9)	—

(注) 通水量:  $200 \ell / \text{m}^2 \cdot \text{日}$ 。

表2 処理試験結果 (B宅, 総合生活排水)

項目	水質 (pH以外は $\text{mg} / \ell$ )		除去率 (%) 平均 (最小~最大)
	処理前 平均値 (最小値~最大値)	処理後 平均値 (最小値~最大値)	
pH	7.1 (5.7~9.0)	7.4 (6.1~8.0)	—
BOD	146 (28~862)	11 (<1~55)	92.5 (46.3~99.5)
COD	93 (17~656)	8 (2~21)	91.4 (63.7~96.8)
SS	42 (16~65)	4 (<1~10)	90.5 (81.5~99.2)
T-N	20 (2.7~83)	8.6 (0.9~31)	57.0 (30.0~92.1)
T-P	2.2 (0.49~6.0)	0.26 (0.13~1.0)	88.2 (63.0~96.7)
MBAS	5.4 (1.7~14.3)	0.17 (<0.02~0.93)	96.9 (87.6~99.9)
DO	—	0.8 (<0.5~2.3)	—

(注) 通水量:  $200 \sim 500 \ell / \text{m}^2 \cdot \text{日}$ 。

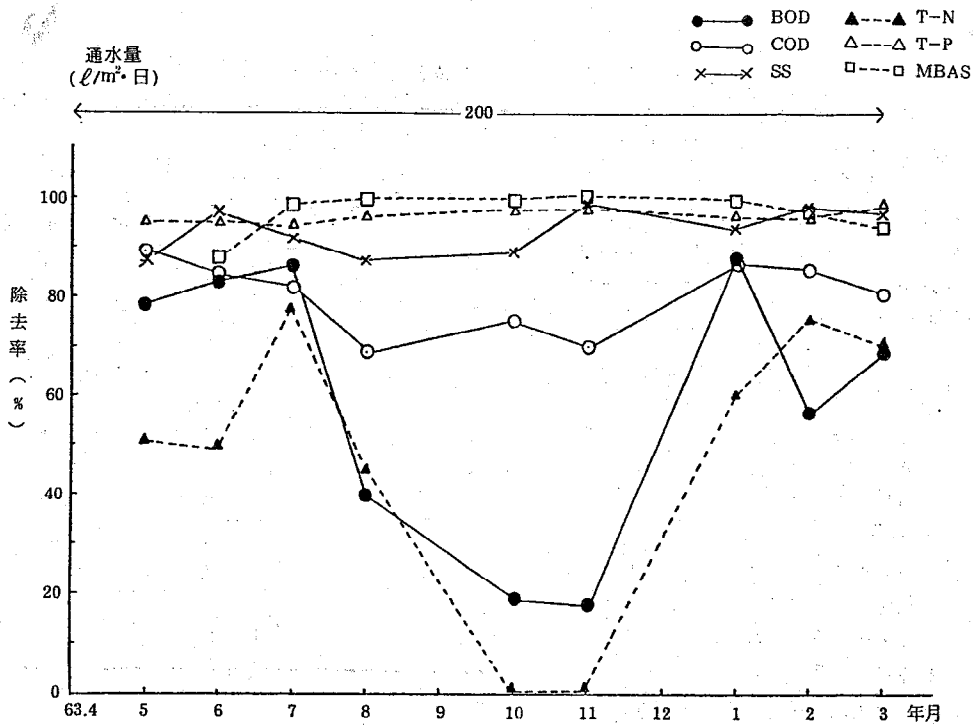


図2 汚濁物質の除去率の経過 (A宅, 台所排水のみ)

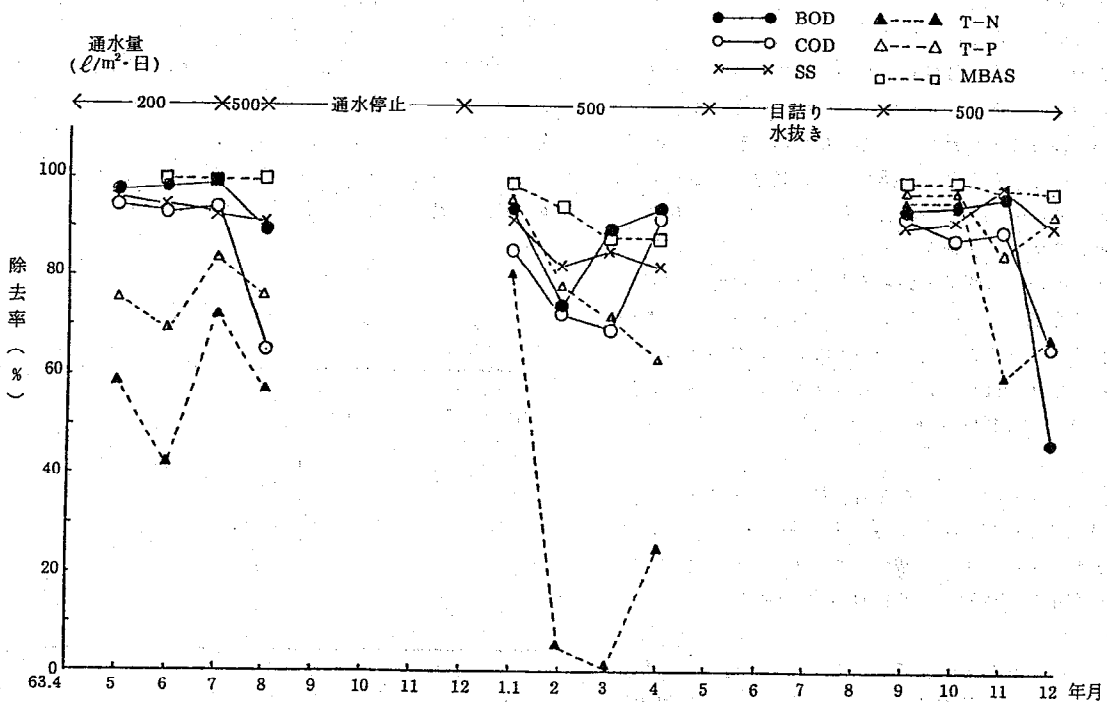


図3 汚濁物質の除去率の経過 (B宅, 総合生活排水)

#### 4. 考 察

「高度排水処理技術開発研究」では、製紙スラッジ焼却灰を用いた土壌浄化法による工場排水の3次処理の試験を行い、COD、窒素、りんの高濃度処理や脱色、脱臭が可能で、従来の排水処理技術に比べて建設、運転コストが低廉で、維持管理も容易であることがわかっている。今回は生活排水の2次処理として、同処理法による処理試験を行ったが、原水がかなり高濃度にもかかわらず、BOD、窒素、りん等の除去率が良かった。

「生活雑排水対策推進指導指針」による4人家族の1日当たりの平均的な系統別排水量、汚濁物質の水質及び負荷量は、表3のとおりである。

これを今回の調査結果の処理前の水質と比較すると、台所排水のみの場合は今回の調査の方が高かったが、総合生活排水の場合は、窒素、りんが低かった。原水の水質については、使用水量や食物、生活様式により、かなり変動してくるものと考えられる。

汚濁物質の占める割合を表3からみると、BODについては、台所排水が生活系排水の37%、生活雑排水の43%を占めており、高い割合となっているが、窒素、りんについては、し尿浄化槽排水が生活排水のうちのそれぞれ90%、81%と高い割合を占めており、し尿浄化槽排水を除いた生活雑排水のみでは、窒素については台所排水が半分近くを占め、りんについては洗たく排水が半分近くを占めている。

このことから、BODについては台所排水が汚濁負荷の中心で、窒素、りんについてはし尿浄化槽排水が中心であることがわかる。このため本試験では、BOD除去を中心に考えた台所排水の個別処理と、BOD、窒素、りんのすべての除去をねらった総合生活排水の処理の2種類の試験を行った。

4人家族の台所排水のみを本処理法で処理する場合、通水速度  $200 \text{ l/m}^2 \cdot \text{日}$  では表面積  $1 \text{ m}^2$  の土壌処理槽が必要であり、この場合の汚濁負荷量の削減率は、生活排水全体ではBOD 23%、窒素 2%、りん 6%、生活雑排水ではBOD 26%、窒素 24%、りん 33%となる。

また、し尿浄化槽排水を含めた生活系排水全体を本処理法で処理する場合、通水速度  $500 \text{ l/m}^2 \cdot \text{日}$  では表面積  $2 \text{ m}^2$  の土壌処理槽が必要であり、この場合の汚濁負荷量の削減率は、BOD 93%、窒素 57%、りん 88%となる。

なお、し尿汲み取りで生活排水のみを通水速度  $500 \text{ l/m}^2 \cdot \text{日}$  で処理する場合、約  $1.5 \text{ m}^2$  の土壌処理槽が必要であり、これによる汚濁負荷量の削減率は、前記の場合とほぼ同様になると考えられる。

表3 4人家族1日当たりの生活系排水

種 類	排水量 (ℓ)	BOD	SS	N	P	
し尿浄化槽	212	19.1 (90)	13.8 (65)	40.5 (191)	6.6 (31)	
生 活 雑 排 水	台 所	180	54.0 (300)	38.5 (214)	2.2 (12)	0.5 (2.8)
	風 呂	252	39.9 (158)	15.2 (60)	1.2 (4.8)	0.1 (0.40)
	洗たく	244	28.6 (117)	15.5 (64)	0.9 (3.7)	0.7 (2.9)
	その他	36	3.7 (103)	4.9 (136)	0.3 (8.3)	0.2 (5.6)
小 計	712	126.2 (177)	74.1 (104)	4.6 (6.5)	1.5 (2.1)	
合 計	924	145.3 (157)	87.9 (95)	45.1 (48.8)	8.1 (8.8)	

(注) 単位、上段: g, 下段( )内: mg/ℓ.

下水道の未整備地域を対象として、家庭用合併浄化槽の普及が促進されている。

建設省土木研究所が行った家庭用合併浄化槽(構造基準適合、6人極)と処理機能調査<sup>6)</sup>によれば、放流水の平均水質はBOD  $48 \text{ mg/ℓ}$ 、総窒素  $20 \text{ mg/ℓ}$ 、総りん  $2.3 \text{ mg/ℓ}$ と、構造基準のBOD  $20 \text{ mg/ℓ}$ 以下を満たしていないとしている。

これと今回試験を行った土壌浄化法による結果の汚濁負荷量を比較すると、表4のとおりである。

表4 処理法による汚濁負荷量の比較  
(4人家族 g/日)

項目 \ 処理法	家庭用合併 浄化槽	土壌浄化法
BOD	44.4 (18.5)	10.2
N	18.5	19.4
P	2.1	0.97

(注) 1. ( )内は、構造基準の  $20 \text{ mg/ℓ}$  で計算した数値。  
2. 水量、負荷量については、表3の数字を用いて計算した。

4 人家族の1日当たりの汚濁負荷量を、家庭用合併浄化槽処理と土壌浄化処理で比較すると、土壌浄化処理の方がBODでは1/4、総りんでは1/2と低く、総窒素についてはほとんど同じ負荷量となる。

土壌浄化法の欠点は、土壌の目詰りのために通水ができなくなることで、目詰りの回復のために土壌を入れ替えたりする等の維持管理費用がかかる点である。

今回の試験は、約20か月の短期の試験ではあったが、通水速度  $200 \text{ l/m}^2 \cdot \text{日}$  の台所排水のみの処理の場合、約1年間は目詰りせずに処理可能であった。また、通水速度  $500 \text{ l/m}^2 \cdot \text{日}$  の総合生活排水の処理の場合、約6か月間は処理可能と考えられ、目詰り後も約3か月間乾燥状態におけば回復し、土壌の入れ替えは必要ないと考えられる。

生活系排水は、BOD/N値が工場排水等に比べて小さく、特にし尿浄化槽排水は、BODより窒素濃度が2倍以上と高くなっている。このため窒素の除去が重要な課題であり、除去技術も難しくなっている。

BODを除去しても窒素の除去ができないと、放流先の水路等での付着藻類等の繁殖は防止できず、視覚的な水質の改善効果は現われず、また、プランクトン発生によるCODの二次生産も考えられる。

窒素の除去率を向上させるためには、嫌気-好気循環処理が必要であり、他の好気処理と土壌処理を組み合わせることも必要と考えられる。

## 5. ま と め

製紙スラッジ焼却灰を用いた土壌浄化法による生活排水の処理は、家庭用合併浄化槽と同等又はそれ以上の汚濁物質の除去効果が期待できる。また、合併浄化槽のように、曝気や汚泥の引き抜き等の電力等も不要で、省エネルギー型の処理方式であり、維持管理もほとんど手間がかからない。

また、土壌処理の欠点である土壌の目詰りについても、通水速度  $500 \text{ l/m}^2 \cdot \text{日}$  で約6か月間の連続処理が可能で、目詰り後も約3か月間乾燥状態にすれば回復して、再び処理することが可能である。

以上のようなことから、前処理用簡易沈澱槽や接触曝気槽と組み合わせた製紙スラッジ焼却灰を用いた土壌浄化処理法は、生活排水処理の一方として有効と考えられる。

なお、生活排水は、洗たくや風呂の排水等、一時的に片寄って排出されることが多く、この流量変動が排水処理を難しくし、排水水質を悪化させる一因となっている。今後は、これらのことも含め、生活排水の削減対策の全体について検討していきたいと考えている。

## 参考文献

- 1) 環境庁水質保全局：生活雑排水対策推進指導指針，1989。
- 2) 愛媛県：高度排水処理技術開発研究報告書，1988。
- 3) 毛利作太郎，石丸尚志，御手洗清，井上尊統，吉野内茂，余田幸作，中村洋祐，渡辺都雄：土壌浄化法による工場排水の高度処理（第1報），愛媛県公害技術センター所報，第8号，11～22，1987。
- 4) 岡本信二，毛利作太郎，吉野内茂，井上尊統，石丸尚志：土壌浄化法による工場排水の高度処理（第2報），愛媛県公害技術センター所報，第9号，13～20，1988。
- 5) 岡本信二，毛利作太郎，吉野内茂，井上尊統，石丸尚志：土壌浄化法による工場排水の高度処理（第3報），愛媛県公害センター所報，第10号，9～15，1989。
- 6) 中村栄一，長谷川清，酒井憲司：浄化槽等分散型処理装置の機能評価に関する調査，昭和63年度下水道関係調査研究年次報告書集，1989。

# 肱川の水質 (有機汚濁の経年変化について)

岡 裕三・青木平八郎・余田幸作・林 弘

## 1. はじめに

肱川は県下最大の一級河川で、県西部の内陸部、東宇和郡宇和町に源を発し、最初は南方向に流れているが、次第に方向を北西に転じ、大洲市を流下し、伊予灘へ流入している。肱川は、476の支川及び本川の中流と上流に設けられた2つのダム湖から構成されており、流域面積は約1,200km<sup>2</sup>で、水量も一年を通じて豊富である。そのため、肱川の水は発電用、農業用水及び飲料水として多方面に利用されている。

しかしながら、肱川には12市町村からの生活排水や産業排水が流入しているために、水質汚濁の進行が懸念された。そこで、本県では利水目的に合った水質を保全していくために、昭和50年に水質環境基準の類型指定を行い、以後毎年、環境基準達成状況の監視調査を実施し、その結果を環境白書<sup>1)</sup>に公表してきた。また、当センター所報に肱川の水質について、概に、6件の報告<sup>2~7)</sup>が行われている。

今回、肱川の水質のレベル及び有機汚濁を中心とし

た汚濁の実態を明らかにするために、過去9年間(昭和55年4月~平成元年3月)の調査結果をとりまとめ、解析を行ったので、結果を報告する。

## 2. 調査方法

### 2.1. 調査地点

調査地点及び地点名を図1に示す。

河川の調査地点はNo.1~No.11の11地点、ダム湖(鹿野川湖)の調査地点はNo.12とNo.13の2地点、計13地点である。これら13地点は全て環境基準点で、毎月1回調査を実施している。

### 2.2. 調査項目

調査項目及び分析方法は表1のとおりである。

表1 調査項目及び分析方法

調査項目	分析 方 法
pH	ガラス電極法
COD	100℃過マンガン酸カリウム酸性法
BOD	20℃, 5日間法
DO	ウィンクラー・アジ化ナトリウム変法
SS	GFP重量法
大腸菌群数	大腸菌群最確数法

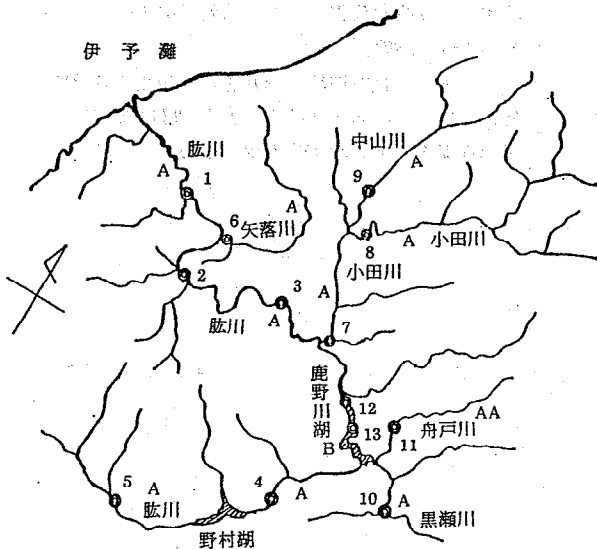


図1 調査地点

地点No.	地 点 名	水質環境基準類型
肱川	1 祇園大橋	河川 A 類型
	2 肱川橋	
	3 成見橋	
	4 天神橋	
	5 下宇和橋	
	6 生々橋	
	7 坊屋敷橋	
	8 小田川(内子町)	
	9 立川橋	
	10 魚成橋	
	11 小振橋	
鹿野川	12 ダム堰堤	湖沼 B 類型
野湖	13 ダム中央	

### 3. 結果及び考察

#### 3.1. 水質のレベル

肱川の調査地点の過去9年間の調査結果を表2に示す。

この結果をまとめると、次のとおりである。

- ① pH：河川の平均値は7.3～8.4、鹿野川湖（表層）の平均値は両地点とも8.5であった。
- ② DO：河川の平均値は9.1～11.0mg/l、鹿野川湖（表層）の平均値は両地点とも10.7mg/lであった。
- ③ BOD：河川の平均値は0.3～1.8mg/lであった。平均値の最小値はNo.11地点（小振橋）、平均値の最大値はNo.6地点（生々橋）であった。鹿野川湖（表層）のCODの平均値は3.2mg/lと3.3mg/lであった。
- ④ SS：河川の平均値は1.4～12.6mg/lであった。平均値の最小値はNo.11地点、平均値の最大値はNo.6地点であった。鹿野川湖（表層）の平均値は4.3mg/lと4.5mg/lであった。
- ⑤ 大腸菌群数：河川の平均値は340～22,000MPN/100mlであった。平均値の最小値はNo.11地点、平均値の最大値はNo.5地点（下宇和橋）であった。

測定結果のばらつきからみると、BOD（鹿野川湖

はCOD、以下略記）、SS及び大腸菌群数の変動係数はそれぞれ41～120%、64～414%及び117～276%であるのに対し、pHとDOの変動係数は、それぞれ2.6～11.3%、12.2～19.6%であり、BOD、SS及び大腸菌群数はpHとDOよりばらつきが大きい。

なお、BOD、SS及び大腸菌群数の平均値が最小値を示したNo.11地点は、肱川水系で唯一AA類型に指定されている舟戸川の調査地点である。また、BODとSSの平均値が最大値を示すNo.6地点と大腸菌群数が最大値を示すNo.5地点は、それぞれ大州市と宇和町の人口密集地の下流に位置する地点である。

次に、肱川水系の環境基準の達成状況を表3に示す。

BODの達成率はいずれの類型においても、毎年おおむね90%以上である。河川区間別にみると、河川AA類型に指定されている舟戸川及び湖沼B類型に指定されている鹿野川湖については、昭和55年度以降、すべての基準点で環境基準を達成している。河川A類型に指定されている肱川本川などの河川区間で未達成の年度があるのは、人口密集地の下流地点であるNo.6及びNo.5地点で達成率が低いためである。

表2 調査結果

調査地点	測定項目	平均値	標準偏差値	最大値	最小値
No. 1 砥園大橋	pH	7.6	0.2	8.4	7.2
	DO	9.8	1.2	13.0	7.5
	BOD	0.6	0.3	1.5	< 0.5
	SS	4.6	5.2	34.0	< 2.0
	大腸菌群数	2,500	5,700	49,000	5
No. 2 肱川橋	pH	7.6	0.2	8.2	7.0
	DO	9.5	1.4	12.0	6.9
	BOD	0.7	0.3	1.7	< 0.5
	SS	5.5	10.5	101.0	< 2.0
	大腸菌群数	2,500	6,900	49,000	79
No. 3 成見橋	pH	7.6	0.3	8.5	6.9
	DO	9.6	1.5	13.0	5.6
	BOD	0.5	0.3	1.6	< 0.5
	SS	3.4	3.1	15.0	< 2.0
	大腸菌群数	1,800	3,800	35,000	1
No. 4 天神橋	pH	7.9	0.5	9.0	7.0
	DO	10.0	1.4	13.0	7.2
	BOD	0.9	0.5	2.2	< 0.5
	SS	6.8	11.8	95.0	< 2.0
	大腸菌群数	2,100	3,500	17,000	8
No. 5 下宇和橋	pH	7.3	0.2	8.3	6.4
	DO	9.6	1.4	13.0	7.5
	BOD	1.3	0.6	3.1	< 0.5
	SS	7.6	6.6	46.0	< 2.0
	大腸菌群数	22,000	56,000	540,000	110
No. 6 生々橋	pH	7.3	0.2	8.0	6.2
	DO	9.1	1.3	12.0	5.0
	BOD	1.8	0.8	5.1	< 0.5
	SS	12.6	31.6	260.0	< 2.0
	大腸菌群数	12,000	16,000	130,000	140
No. 7 坊尾数橋	pH	7.6	0.2	8.4	7.1
	DO	10.0	1.5	15.0	7.6
	BOD	0.5	0.3	1.4	< 0.5
	SS	8.1	28.2	290.0	< 2.0
	大腸菌群数	5,600	10,000	92,000	310

(昭和55年4月～平成元年3月, n=108)

調査地点	測定項目	平均値	標準偏差値	最大値	最小値
No. 8 小田川 (内子町)	pH	8.1	0.4	9.3	7.4
	DO	10.6	1.6	14.0	8.2
	BOD	0.4	0.2	1.2	< 0.5
	SS	4.3	6.2	37.0	< 2.0
	大腸菌群数	2,200	3,900	24,000	2
No. 9 立川橋	pH	8.4	0.5	9.7	7.5
	DO	11.0	1.9	16.0	7.1
	BOD	0.5	0.4	2.5	< 0.5
	SS	4.9	20.3	210.0	< 2.0
	大腸菌群数	4,500	9,800	79,000	23
No. 10 魚成橋	pH	8.0	0.3	9.0	7.3
	DO	10.4	1.7	14.0	8.0
	BOD	0.5	0.6	4.9	< 0.5
	SS	3.5	4.0	25.0	< 2.0
	大腸菌群数	3,600	4,200	24,000	70
No. 11 小振橋	pH	8.2	0.3	9.1	7.6
	DO	10.6	1.5	14.0	8.1
	BOD	0.3	0.2	1.2	< 0.5
	SS	1.4	1.2	8.0	< 2.0
	大腸菌群数	340	660	5,400	0
No. 12 ゲム豊堤 (表層)	pH	8.5	0.9	10.1	7.0
	DO	10.7	2.1	17.0	2.7
	COD	3.3	1.8	10.0	1.2
	SS	4.5	2.9	17.0	< 2.0
No. 13 ゲム中央 (表層)	pH	8.5	0.9	10.1	7.0
	DO	10.7	1.9	14.0	4.0
	COD	3.2	1.3	9.0	1.3
	SS	4.3	2.8	19.0	< 2.0

(注) BODとSSの検出限界未満の数値は、計算処理上、BODは0.3mg/l、SSは1mg/lとして処理した。  
単位: DO, BOD, COD, SS .....mg/l  
大腸菌群数.....MPN/100ml



一方、その他の項目の環境基準の達成状況は次のとおりである。

- ① pHは、河川では全て達成しているが、鹿野川湖では、昭和57、59、60、及び63年度に未達成である。
- ② SS及びDOはいずれの水域でも達成している。
- ③ 大腸菌群数の達成率は他の項目と比べて低く、河川AA及びA類型のいずれにおいても未達成である。

### 3.2. BODの経年変化

牝川水系の全調査地点におけるBODの経年変化を図2に示す。さらに、長期変動をわかりやすくするために、12項の移動平均も示した。移動平均を一見すれば、BODは顕著な長期変動を示している地点はないように見える。そこで、測定値の傾向変動<sup>8)</sup>とトーマスプロットによる測定値の確率分布<sup>9)</sup>を求めることにより、9ヶ年の変動をさらに詳しく検討した。

#### 3.2.1. BODの傾向変動

傾向変動は時系列の長期間にわたる基本的な変動傾向を示す変動部分である<sup>8)</sup>。最小2乗法により時系列

の傾向変動を計算する場合、まずその長期変動の形に適切な傾向線の型を選定しなければならない<sup>8)</sup>。BODの経年変化を移動平均より判断すると、No.4, 6, 10地点のように、変動巾が大きく、複雑な変化がみられる地点もあるが、大部分は長期変動を直線で表すことができると考え、全地点に直線傾向線  $f(t) = a + bt$  を適用した。すなわち、昭和55年4月を始点 ( $t = 1$  月目)、平成元年3月を終点 ( $t = 108$  月目)として、その間のBODの変動を、最小2乗法により求めた1次式で表し、9ヶ年の全般的なBODの変動の傾向を求めた。この結果を表4に示す。

この結果によれば、BODはNo.3, 4, 6, 7, 8, 9, 10, 11地点の計8地点で上昇傾向、No.1, 2, 5, 12, 13地点の計5地点で下降傾向を示している。上昇傾向を示す地点の中で、No.3, 7, 8, 9, 10, 11地点は、表2からわかるように、BODの平均値が0.5mg/l以下の低値であり、また、これらの地点は、No.3地点を除いて、全て支川の地点である。

表3 水質環境基準の達成状況

(1) BOD(鹿野川湖はCOD)

河川区画	水域 類型	区 分	年 度								
			55	56	57	58	59	60	61	62	63
舟戸川	河川	達成率(%)	100	100	100	100	100	91	100	100	91
		未達成基準 点数/基準点数	0/1	0/1	0/1	0/1	0/1	0/1	0/1	0/1	0/1
		A A 評価	○	○	○	○	○	○	○	○	○
牝川本川 他4支川	河川	達成率(%)	98	97	96	90	94	97	96	96	94
		未達成基準 点数/基準点数	0/10	0/10	1/10	2/10	1/10	0/10	1/10	0/10	1/10
		A 評価	○	○	×	×	×	○	×	○	×
鹿野川湖	湖沼	達成率(%)	99	88	94	93	98	97	97	98	95
		未達成基準 点数/基準点数	0/2	0/2	0/2	0/2	0/2	0/2	0/2	0/2	0/2
		B 評価	○	○	○	○	○	○	○	○	○

(注) 1 達成率の算出は次式による。

$$\text{達成率}(\%) = \frac{\text{総検体数} - \text{環境基準値を超える検体数}}{\text{総検体数}} \times 100$$

2 評価については、○が環境基準達成で、×が環境基準未達成である。

なお、環境基準達成とは、すべての基準点で環境基準を達成している場合であり、それ以外は環境基準未達成となる。

(2) その他の項目

河川区画	水域 類型	項 目	年 度 別 達 成 率 (%)									
			55	56	57	58	59	60	61	62	63	
舟戸川	河川	PH	100	92	83	76	83	100	100	100	100	
			SS	100	100	100	100	100	100	100	100	
		AA	DO	100	100	100	100	100	100	100	100	
			大腸菌群数	29	42	43	49	49	43	41	49	49
牝川本川 他4支川	河川	PH	96	96	85	88	86	89	94	98	97	
		SS	96	97	95	97	98	99	100	98	96	
		A	DO	99	91	96	97	96	97	96	98	98
鹿野川湖	湖沼	PH	78	76	74	75	72	73	75	79	69	
			SS	100	97	97	97	100	100	98	97	100
		B	DO	100	96	99	94	98	95	93	91	91
			大腸菌群数	69	49	49	47	41	49	43	29	43

(注) ○で囲んだものは、環境基準未達成である。

なお、環境基準未達成とは、達成率75%未満をいう。

表4 BOD(鹿野川湖はCOD)の傾向変動

地点番号	傾 向 線	$f(1) - f(108)$ mg/l	傾 向
No. 1	$f(t) = 0.698 - 0.121 \times 10^{-2} \times t$	0.70 - 0.57	↓
No. 2	$f(t) = 0.756 - 0.162 \times 10^{-2} \times t$	0.75 - 0.58	↓
No. 3	$f(t) = 0.449 + 0.115 \times 10^{-2} \times t$	0.45 - 0.57	↑
No. 4	$f(t) = 0.836 + 0.158 \times 10^{-2} \times t$	0.84 - 1.01	↑
No. 5	$f(t) = 1.384 - 0.960 \times 10^{-3} \times t$	1.38 - 1.28	↓
No. 6	$f(t) = 1.596 + 0.377 \times 10^{-2} \times t$	1.60 - 2.00	↑
No. 7	$f(t) = 0.333 + 0.313 \times 10^{-2} \times t$	0.34 - 0.67	↑
No. 8	$f(t) = 0.304 + 0.239 \times 10^{-2} \times t$	0.31 - 0.56	↑
No. 9	$f(t) = 0.246 + 0.454 \times 10^{-2} \times t$	0.25 - 0.74	↑
No. 10	$f(t) = 0.477 + 0.544 \times 10^{-3} \times t$	0.48 - 0.54	↑
No. 11	$f(t) = 0.274 + 0.205 \times 10^{-2} \times t$	0.28 - 0.50	↑
No. 12	$f(t) = 3.766 - 0.824 \times 10^{-2} \times t$	3.76 - 2.88	↓
No. 13	$f(t) = 3.476 - 0.573 \times 10^{-2} \times t$	3.47 - 2.86	↓

(注) 1  $f(t)$ は昭和55年4月を始点 ( $t = 1$ )、平成元年3月を終点 ( $t = 108$ )とする、 $t$ 月目のBOD値を表す。

2 ↓はBODが下降傾向にあることを、↑は上昇傾向にあることを示す。

また、最も顕著な下降傾向にあるとみられるのは、鹿野川湖のCODで、計算上は昭和55年3月以降、9ヶ年で、No.12地点が0.88mg/ℓ、No.13地点が0.61mg/ℓ減少している。

### 3.2.2 BODのトーマスプロットによる分布

各地点の測定値の経年的変動を詳細にみるために、トーマスプロットによる確率分布を図3に示す。トーマスプロットとは全データ(n個)を順序数に並べたとき、i番目のデータの発生する確率が $i/(n+1)$ で与えられるという仮説に基づきプロットしたものである<sup>9)</sup>。但し、ある程度まとまったデータ数を揃えた方が、真に近い分布状態を示すものと考えられるので、9ヶ年を3期に分けて、3ヶ年毎の分布の変化を示した。

図3より次のことを推察することができる。

① 3期のBODの変動を、確率分布の平行移動の方向または確率分布の勾配によって推測すると、前期→中期→後期の順に下降傾向にあるとみられる地点は、No.1, 2, 12, 13地点で、反対に、上昇傾向にあるとみられる地点はNo.3, 4, 7, 8, 9, 10, 11地点である。また、No.6地点は中期に水質が最も悪化した

近年、回復傾向にあるとみられる。

② 分布形の推移に注目すると、上昇傾向を示した地点の中で、支川のNo.7, 8, 9, 10, 11地点は、共通する特徴を持っている。すなわち、これらの地点では、確率分布の勾配が前期→中期→後期の順に緩やかになっており、このことは、BODが常に低濃度であった前期から中期さらに後期になるにつれ、BODの高濃度の出現率が増していることを示すものである。

③ No.5及びNo.6地点の確率分布は他地点と比べて、勾配が緩やかで、従って広い濃度の範囲で存在している。これは、前述したように、両地点は人口密集地の下流地点であるので、生活排水等による不規則な汚濁負荷を受け、水質が一定しない状況を示しているものと考えられる。

④ 鹿野川湖の両地点については、4mg/ℓを越すような高いCODの出現率が前期→中期→後期の順に減少しており、これがCODの全般的下降傾向に寄与しているものと考えられる。また、緩やかな勾配は、図2からもわかるように、季節変動の大きいことを反映しているものと考えられる。

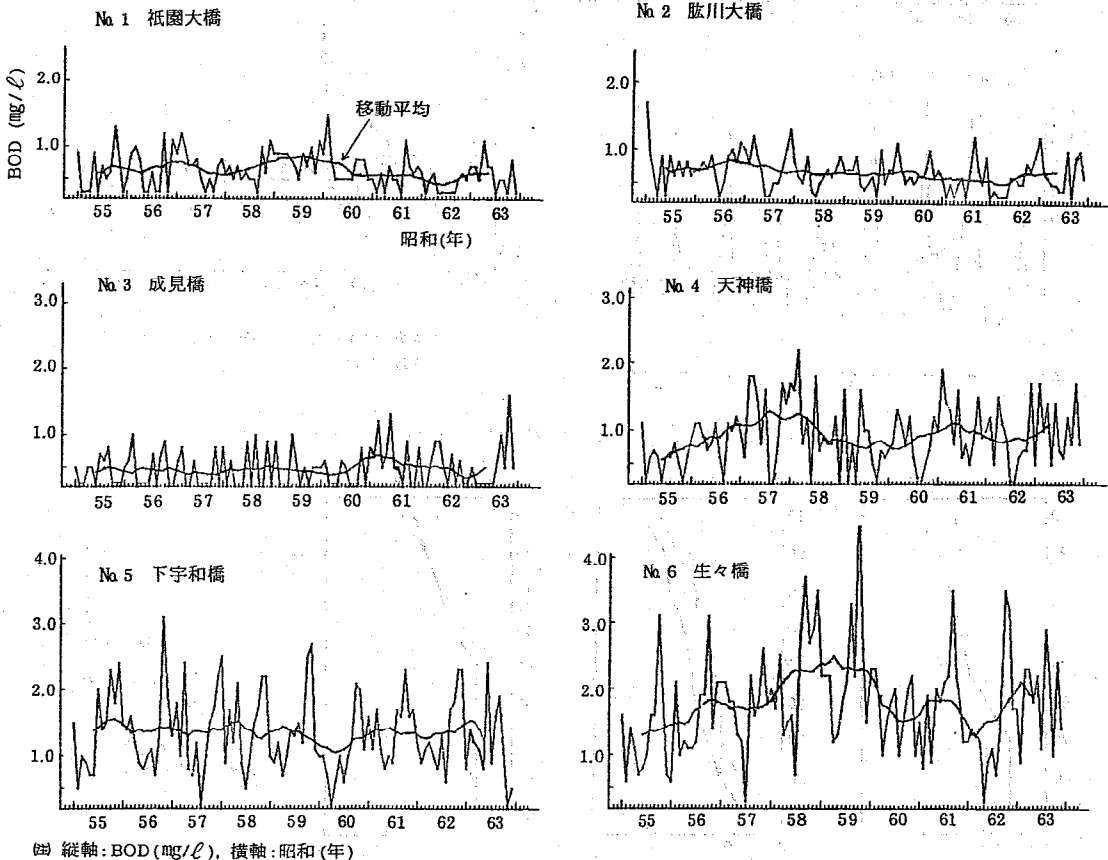


図2-1 BODの経年変化

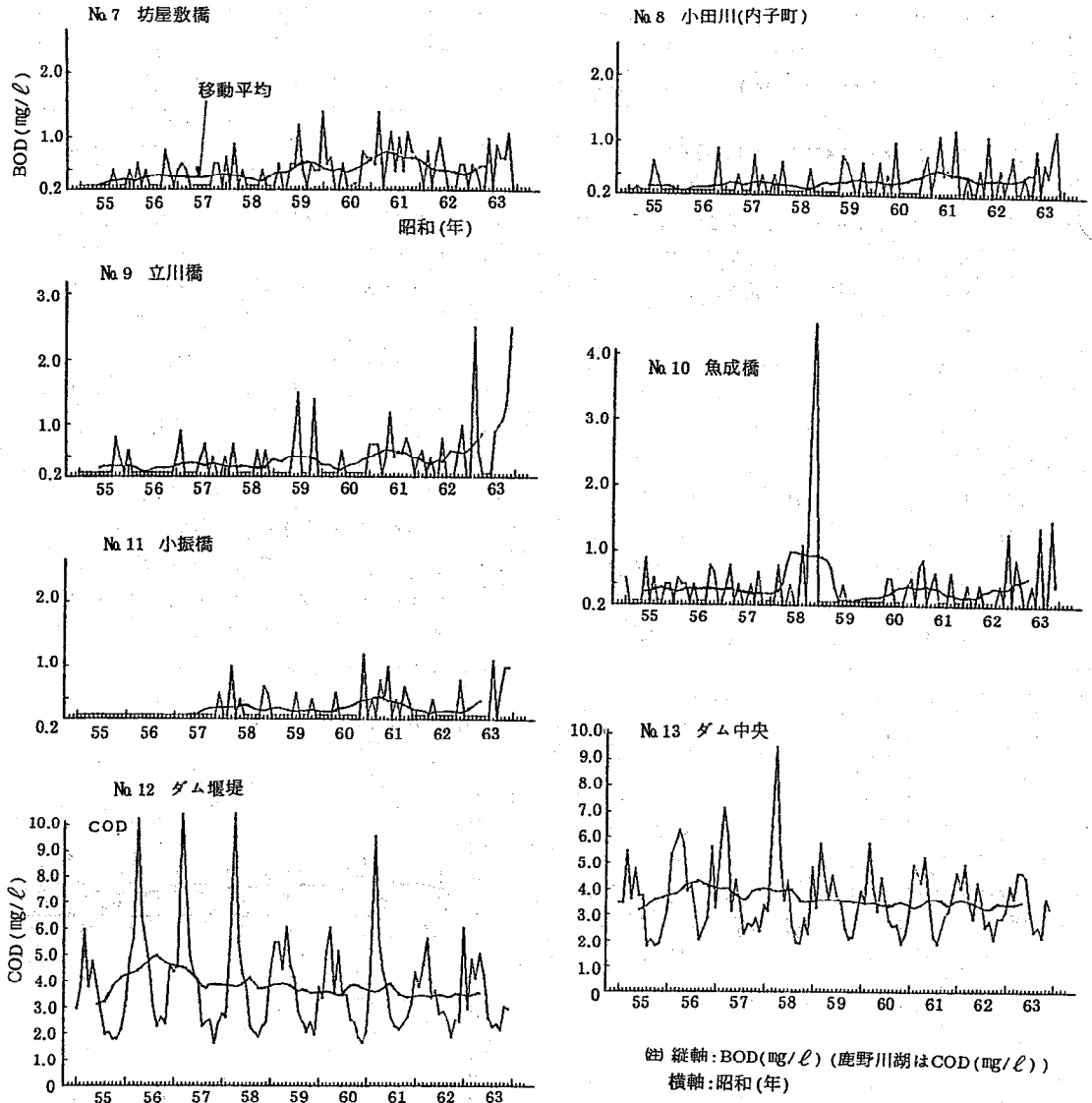


図2-2 BOD(鹿野川湖はCOD)の経年変化

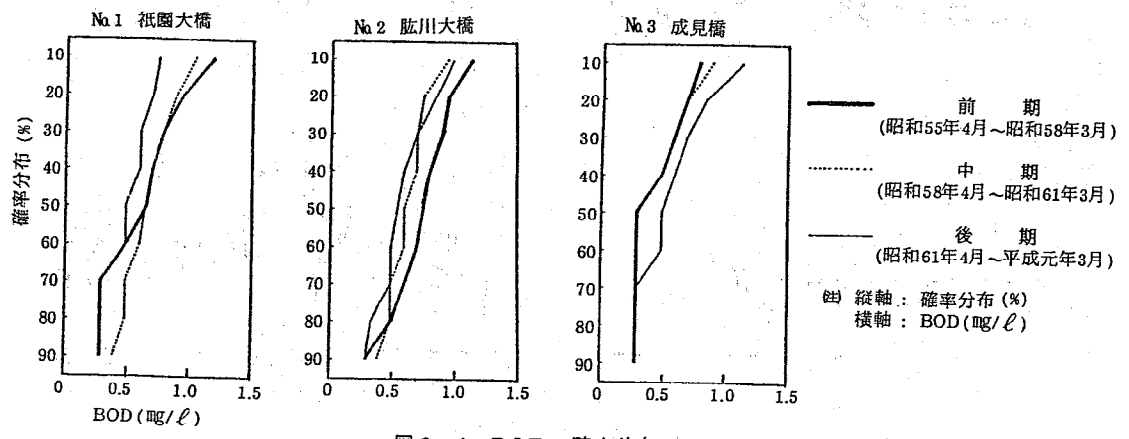


図3-1 BODの確率分布

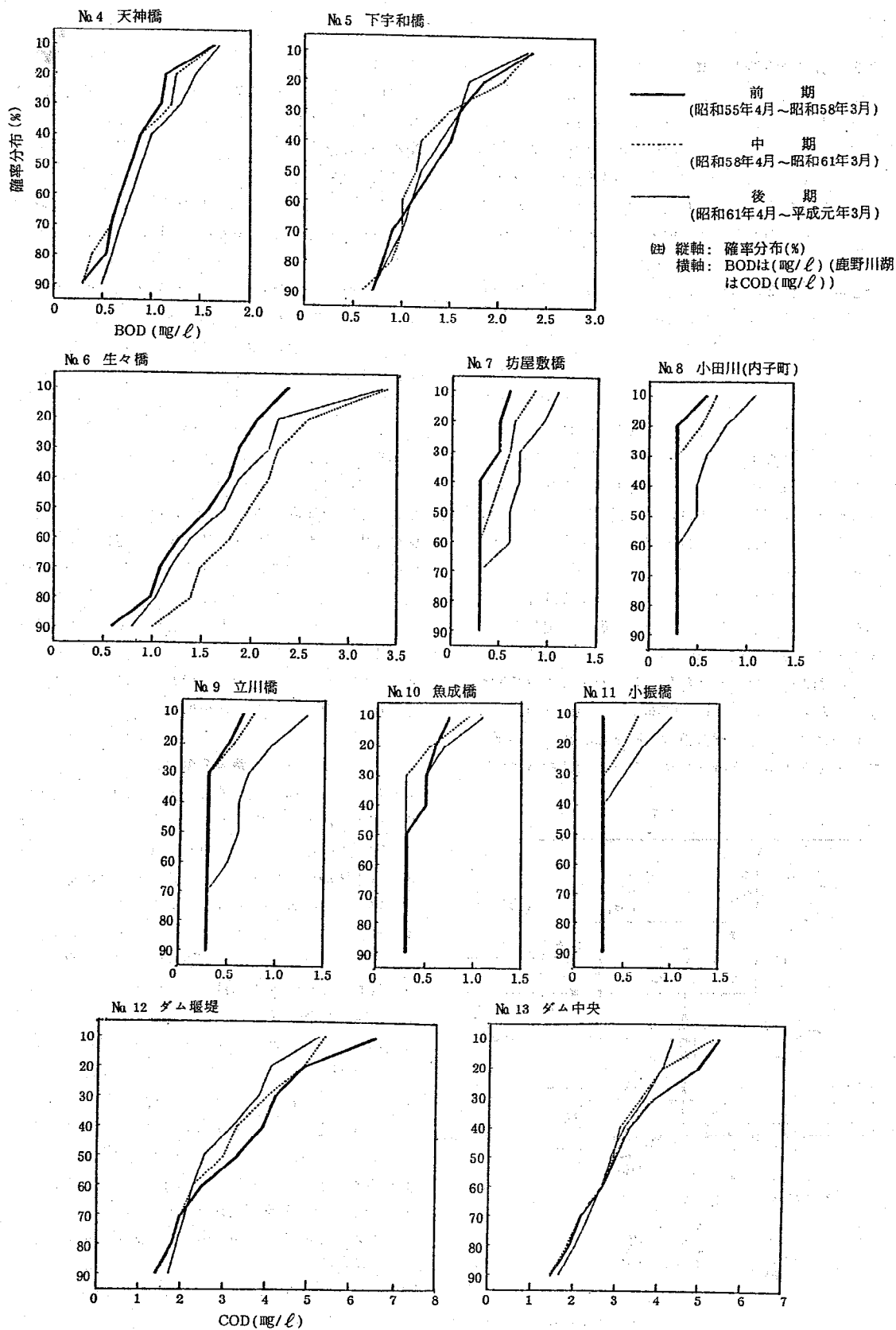


図3-2 BOD(鹿野川湖はCOD)の確率分布

### 3.3. 肱川の汚濁の特徴

肱川の排出汚濁負荷量のうち生活排水に由来するものが最も多く、BODでみると47%を占めているといわれている<sup>10)</sup>。肱川の水質に係る報告が御手洗<sup>3)</sup>、越智<sup>4)</sup>らによって行われており、大腸菌群数及びステロールと調査対象はそれぞれ異なるものの、いずれの報告も人口密集地から下水が流入し、本川水質へ影響を及ぼしていることを示唆している。

図4は、表2に基づき、流下過程における、BODと大腸菌群数(各々平均値)の状況を示したものである。図4によると、肱川にはNo.5地点(下宇和橋)とNo.6地点(生々橋)で示されるように、水質が汚濁している地点が存在するが、両地点より下流地点の水質は、むしろ浄化している。例えば、No.3地点(成見橋)のように清澄な水質を示す地点もある。

御手洗らは、肱川における大腸菌群による汚染の実態を精密に調査し、肱川における汚染の特徴について「肱川は最上流部から大腸菌群による汚染が始まり、大きい汚染源のない場所では河川の自浄作用により大腸菌群数は短距離で減衰するが、人口密集地などの汚染源があると再び増加するという形態を反復しながら流下している。」<sup>3)</sup>ことを報告している。このことと、今回の調査結果で大腸菌群数とBODの間には相関が認められることから( $r=0.730$ ,  $p<0.01$ ,  $n=11$ )、BODについても大腸菌群数と同様に、流下する過程で、濃度が上昇、下降を反復していることが推察される。

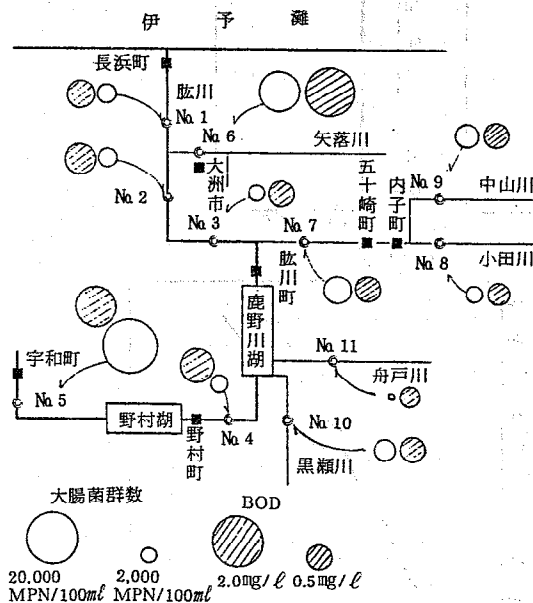


図4 流下過程における水質の状況

### 4. まとめ

肱川水系の過去9年間(昭和55年4月~平成元年3月)の環境基準監視調査の結果をとりまとめ、有機汚濁を中心に水質のレベル、汚濁の推移等の解析を行った結果、次のことがわかった。

- (1) BOD, SS, 及び大腸菌群数について、最も清浄な水質を示した地点は、AA類型に指定されているNo.11地点(小振橋)であった。反対に、最も汚濁が進行しているとみられる地点は、人口密集地の下流地点であるNo.5地点(下宇和橋)及びNo.6地点(生々橋)であった。BODの環境基準達成状況は、いずれの類型においても、毎年おおむね90%以上の達成率である。しかし、大腸菌群数は他項目と較べて達成率が低い。
- (2) BODの傾向変動とトーマスプロットによる確率分布を求めることにより、経年変化について検討を行った。その結果、河川の11地点は上昇傾向を示している地点と下降傾向を示している地点に分かれ、また、鹿野川湖は両地点とも下降傾向を示していると考えられる。河川において上昇傾向を示した地点は支川の地点が多く、元来、低値を示していたが、近年、高値を示す割合が増えており、水質が悪化している傾向がみられる。
- (3) 肱川における有機汚濁の状況は、流下過程で汚濁と浄化を反復していることが推察される。

### 参考文献

- 1) 愛媛県: 環境白書(愛媛の公害), 1973~1988.
- 2) 御手洗清他: 肱川水系の水質調査, 愛媛県公害研究所報, 第1号, 16~18, 1977.
- 3) 御手洗清他: 肱川水系の水質調査(第2報), 愛媛県公害技術センター所報, 第2号, 37~44, 1980.
- 4) 越智久尚他: 肱川水系におけるステロールの分析, 愛媛県公害技術センター所報, 第2号, 60~64, 1980.
- 5) 浅野淑子他: 鹿野川湖の水質, 愛媛県公害技術センター所報, 第4号, 11~14, 1982.
- 6) 浅野淑子他: 鹿野川湖の水質(第2報), 愛媛県公害技術センター所報, 第5号, 9~13, 1983.
- 7) 中村洋祐: 湖沼の富栄養化状態について(鹿野川湖を中心として)(第1報), 愛媛県公害技術センター所報, 第7号, 20~24, 1986.
- 8) 森田優三: 新統計概論, 104~120, 1974.
- 9) 市川 新: 多摩川における汚濁物質の収支, 水汚染の機構と解析(日本地球化学学会編), 99~115, 1978.
- 10) 肱川をきれいにする協議会: 肱川をきれいにする運動実績報告書, 7, 1990.

## ゴルフ場使用農薬の分析法について

尾澤 博・室岡 学・稻荷公一

### 1. はじめに

近年、ゴルフ場で使用される農薬による周辺環境の水質汚濁が問題となり、この防止を図るため本県は平成元年9月、「愛媛県ゴルフ場農薬適正使用指導要綱」を制定した。一方厚生省は、平成2年5月、「ゴルフ場使用農薬に係る水道水の暫定水質目標」を発表すると共に、水質目標値を示した21種の農薬の分析方法を公表した。また環境庁は、平成2年5月、「ゴルフ場使用農薬に係る暫定指導指針」を通知し、厚生省と同様の21種の農薬について、ゴルフ場排水口における指針値と標準分析法を示した。

当センターにおいてこれらの農薬を分析するに当たり、厚生省の示した分析法<sup>1)</sup>ではGC/MSによる18農薬の同時分析が可能であるが、新たにGC/MSの導入を必要とする。環境庁の示した分析法<sup>2)</sup>(以下「標準分析法」という。)では18種の農薬の測定は従来より使用しているGCによるものであるが、個別分析法であるため分析に多大の時間と労力を要する。

そこで、標準分析法において、抽出操作及びバックドカラムの仕様が類似している16種の農薬について、カートリッジカラムによる精製、6種のバックドカラムの分離能、ECD及びFTDに対する検出感度を検討した結果、GCによるゴルフ場使用農薬分析法の簡素化について若干の知見を得たので報告する。

### 2. 試験方法

#### 2.1. 試薬等

農薬標準品：表1に示す。

農薬標準原液：農薬標準品(ナノゲン製は除く)を1000mg/ℓアセトン溶液に調製。

農薬標準溶液：農薬標準原液をヘキサン及びアセトンにて0.05～10mg/ℓに希釈調製。

ヘキサン、アセトン：和光純薬製、残留農薬試験用  
カートリッジカラム：ウォーターズ社製、セップバックフロリジル (Sample Size 0.9g)

表1 農薬標準品

農薬名	規格
ブタミホス トルクロホス メチル ナプロバミド	キング化学, 97.5% 住友化学, 99.8% ICI, 99.8%
インフエンホス プロピザミド ペンデイメタリン	ナノゲン 1000ppmトルエン溶液
ダイアジノン フェニトロチオン クロルピリホス イソキサチオン イプロロジオン シマジソン イソプロチオラン イソプロチオン キルトラニル クロロタニル	和光純薬 残留農薬試験用標準品

#### 2.2. 装置

GC：機種及び分析条件を表2に示す。

カラム：バックドカラムの仕様を表3に示す。

表2 GCの機種及び分析条件

機種	メーカー・型式	島津GC-9A	島津GC-14A
検出器	FTD	FTD	ECD( <sup>63</sup> Ni)
データ処理装置		島津C-R2AX	島津C-R6A
分析条件	カラム温度	200℃	240℃
	注入口温度	240℃	240℃
	検出器温度	240℃	240℃
	キャリアーガス	N <sub>2</sub> , 40ml/分	
	空気	0.7kg/cmf	—
	水素	0.7kg/cmf	—
	RANGE	10 <sup>0</sup>	10 <sup>1</sup>
POWER	6.5	—	
CURRENT	—	0.1	

表3 バックドカラムの仕様

カラム	仕様
DC-200	5%シリコンDC-200, クロモソルブWAWDMCS 60-80mesh, 3mmφ×1.6m
OV-1	2%シリコンOV-1, ガスクロムQ 100-120mesh, 3mmφ×2.0m
OV-101	5%シリコンOV-101, クロモソルブWAWDMCS 80-100mesh, 3mmφ×1.6m
OV-17	5%シリコンOV-17, ガスクロムQ 80-100mesh, 3mmφ×1.0m
QF-1	5%シリコンDCQF-1, ガスクロムQ 80-100mesh, 3mmφ×1.6m
UB-20M	ウルトラボンド20M 80-100mesh, 3mmφ×1.6m

### 2.3. カートリッジカラムによる精製

#### (1) 回収試験 1

図1に示したフローチャートにより、カートリッジカラム精製法における農薬の溶出状況を検討した。

溶離液は15%アセトン・ヘキサンの1種とした。農業標準溶液は10mg/ℓ(シマジン及びナプロバミドは100mg/ℓ)ヘキサン溶液とし、定量は島津GC-14A(カラム:DC-200)により行った。

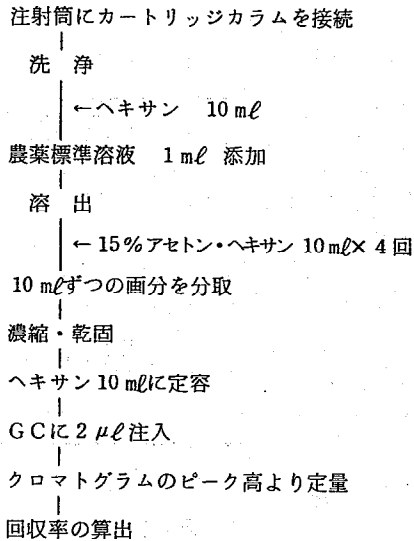


図1 回収試験1フローチャート

#### (2) 回収試験 2

回収試験1において、第1画分にそのほとんどが溶出したことから、図1のフローチャートにおける全溶離液量を15mlとした場合の回収率を求めた。

### 2.4. バックドカラムの分離能

#### (1) 分離能試験 1

DC-200を島津GC-14Aに装着し、0.5~5mg/ℓ農業標準ヘキサン溶液2μℓをGCへ注入し、得られたクロマトグラムより各農薬の保持時間を求めた。次いで16農薬の混合溶液(0.5mg/ℓ)2μℓをGCへ注入し、得られたクロマトグラムよりDC-200の分離能を求めた。

#### (2) 分離能試験 2

分離能試験1においてピークの重なりがみられた10農薬を保持時間順にA, B, Cのグループに分け、5種のカラム(OV-1, OV-101, OV-17, QF-1, UB-20M)について分離能試験1と同操作を行い、得られたクロマトグラムより保持時間及び分離能を求めた。

### 2.5. 検出感度

#### (1) ECDの検出感度

島津GC-14AにDC-200を装着し、0.005~5mg/ℓ農業標準ヘキサン溶液2μℓをGCへ注入し、得られたクロマトグラムよりECDの最小検出量を求めた。

#### (2) FTDの検出感度

島津GC-9AにDC-200を装着し、0.005~5mg/ℓ農業標準アセトン溶液4μℓをGCへ注入し、得られたクロマトグラムよりFTDの最小検出量を求めた。

表4 カートリッジカラム精製法における回収率

単位: %

農 薬 名	回収試験 1					回収試験 2	標準分析法における精製法
	第1画分	第2画分	第3画分	第4画分	累計		
イソフェンホス	82	—	—	—	82	98	
クロルピリホス	75	< 1	< 1	< 1	75	93	
ダイアジノン	98	—	—	—	98	96	
フェニトロチオン	93	< 1	< 1	< 1	93	94	精 製 な し
トルクロホスメチル	92	< 1	< 1	< 1	92	94	
ブタミホス	88	< 1	—	—	88	93	
イブロジオン	85	—	—	—	85	84	
シマジン	99	—	—	—	99	99	
ナプロバミド	88	—	—	—	88	103	フロリジル, 15%アセトン・ヘキサン50ml
イソプロチオラン	96	—	—	—	96	98	
キャプタン	86	2	—	—	88	94	
イソキサチオン	81	< 1	—	—	81	101	フロリジル, 5%アセトン・ヘキサン50ml
フルトラニル	88	< 1	—	—	88	85	フロリジル, 20%アセトン・ヘキサン50ml
ペンディメタリン	87	< 1	—	—	87	100	5%含水フロリジル, 5%エーテル・ヘキサン50ml
クロタロニル	85	< 1	< 1	< 1	85	98	シリカゲル, 10%エーテル・ヘキサン50ml
プロピザミド	94	1	< 1	< 1	95	98	フロリジル, 5%アセトン・ヘキサン75ml

(注) 回収試験1において<1はピークは見られるが1%未満, —はピークが見られなかったことを示す。

### 3. 結果及び考察

#### 3.1. カートリッジカラムによる精製

クロマト管カラムよりも簡易に精製操作が行えるカートリッジカラム<sup>3)</sup>を用い、その精製法における回収試験結果を表4に示す。表4の回収試験1に示すとおり、16農薬とも第1画分にそのほとんどが溶出し、クロルピリホスを除いて80%以上の回収率が得られた。また、回収試験2においてもイプロジオン、フルトラニルの回収率が80%台であった他は90%以上の回収率が得られた。

残留農薬分析における回収率の不良はカラムクロマトグラフィーでのロスが主要因であるといわれているが<sup>4)</sup>今回用いたカートリッジカラムでは、標準分析法においてフロリジル以外の吸着剤を用いるもの、あるいは15%アセトン・ヘキサン以外の溶離液を用いることとなっているものについても、85%以上の回収率が得られた。

以上の結果から、カートリッジカラムを使用することにより、1種類でかつ少量の溶離液により16種の農薬の精製操作を行うことができる。

#### 3.2. カラムの分離能

(1) DC-200における16農薬の保持時間を表5に、混合溶液クロマトグラムを図2に示す。このカラムにおける農薬の溶出順序はキャピラリーカラムSPB-1あるいはSPB-5(スベルコ社)と同じ<sup>5)</sup>であったが、プロピザミド、ダイアジノン、クロロタロニルの3種(ピーク番号2, 以下「Aグループ」という。), キャプタン,

ペンディメタリン、イソフェンホスの3種(ピーク番号6, 以下「Bグループ」という。), イソプロチオラン, ブタミホス, ナプロバミド, フルトラニルの4種(ピーク番号7, 以下「Cグループ」という。)においてピークが分離されなかった。

(2) A, B, Cのグループについて、カラムの種類<sup>6)</sup>をかえた場合の保持時間を表6に示す。

DC-200と同じ無極性のOV-1あるいはOV-101では、どのグループにもピークの分離はみられなかった。

OV-17では、各グループともピークが2つしかみられず、十分な分離はされなかった。

QF-1では、図3のクロマトグラムに示すように、A及びBグループの3種は分離され、表6に示すように両グループ間の保持時間の重なりもみられなかった。しかし、Cグループのブタミホス, ナプロバミド, フルトラニルの3種が分離されずピークが2つしかみられなかった。

UB-20Mでは、図4のクロマトグラムに示すように、A, B, Cの3グループともピークの分離が確認された。しかし、表6に示すように、AグループのプロピザミドとBグループのペンディメタリンに保持時間の重なりがみられた。

以上の結果から、DC-200によって6種の農薬の定量を行い、次いでA, Bグループの位置にピークがみられたときはQF-1により6種, Cグループの位置にピークがみられたときはUB-20Mを用いることにより4種の農薬の分離・定量を行うことができる。

表5 DC-200における16農薬の保持時間

農薬名	保持時間(分)	ピーク番号
シマジン	2.1	1
プロピザミド	2.5	2
ダイアジノン	2.6	
クロロタロニル	2.7	
トルクロホスメチル	3.6	3
フェニトロチオン	4.0	4
クロルピリホス	4.8	5
キャプタン	5.7	6
ペンディメタリン	5.8	
イソフェンホス	6.3	
イソプロチオラン	7.8	7
ブタミホス	7.9	
ナプロバミド	8.0	
フルトラニル	8.1	8
イソキサチオン	9.7	
イプロジオン	19.9	9

(注) ピーク番号は図2のクロマトグラムのピーク番号のものである。

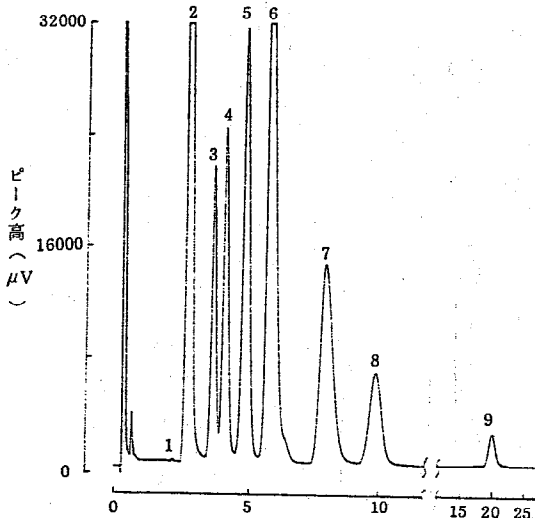


図2 DC-200による16農薬のクロマトグラム

(注) チャートスピードは、保持時間12分まで8mm/分、12分以降2mm/分である。



表6 DC-200以外のカラムにおける10農薬の保持時間

		単位：分				
グループ	農薬名	OV-1	OV-101	OV-17	QF-1	UB-20M
A	プロピザミド	2.5	3.3	2.7	2.0	3.0
	ダイアジノン	2.5	3.3	2.8	1.5	1.3
	クロタロニル	2.6	3.5	4.5	4.5	2.4
B	キャプタン	5.2	7.4	9.6	7.0	7.1
	ベンディメタリン	5.3	7.6	6.6	5.8	3.0
	イソフェンホス	6.0	8.0	7.1	5.0	4.4
C	イソプロチオラン	7.4	10.1	13.5	8.7	10.7
	ブタミホス	7.1	10.2	9.7	8.5	6.9
	ナプロバミド	7.3	10.3	10.5	8.7	6.0
	フルトラニル	7.3	10.7	9.8	10.7	18.4

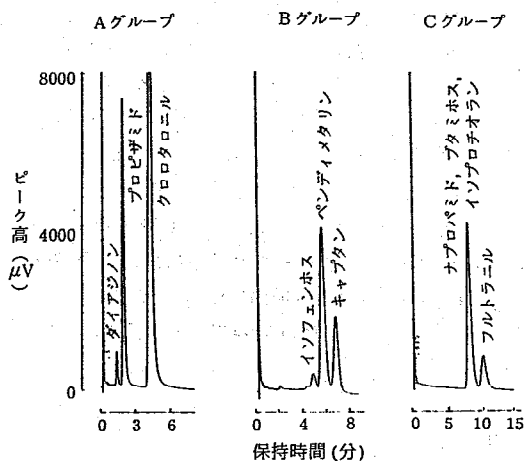


図3 QF-1によるクロマトグラム

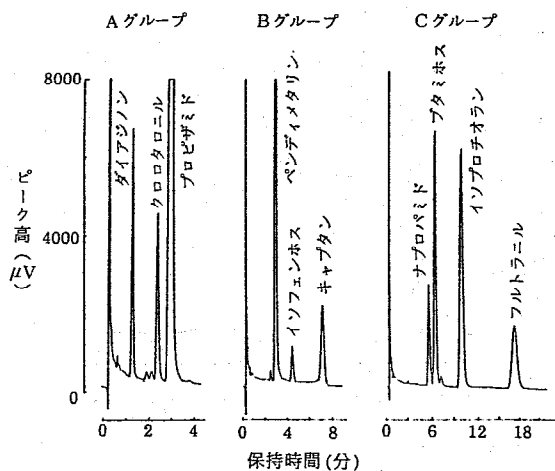


図4 UB-20Mによるクロマトグラム

### 3.3. 検出感度

ECD及びFTD(カラム：DC-200)における各農薬の最小検出量を表7に示す。

ECDでは、シマジンとナプロバミドの2農薬に対して最小検出量1 ng以上と感度が悪かったものの、他の14農薬では最小検出量0.2 ng以下と良い感度を得た。

FTDでは、イソプロチオラン、イプロジオン、キャプタン及びフルトラニルの4農薬に対して最小検出量1 ng以上と感度が悪かったものの、他の12農薬では最小検出量0.4 ng以下と良い感度を得た。

標準分析法ではFPD(P)による測定が指定されている6種の有機りん剤(ダイアジノン、トルクロホスメチル、フェニトロチオン、クロルピリホス、イソフェンホス、ブタミホス)に対する検出感度は、ECD及びFTDともに最小検出量0.2 ng以下であり感度よく検出された。

感度良く検出された農薬は、100倍濃縮した試験溶液にて検出限界1 μg/l以下の値が得られる。

今回の検討結果から得られた16農薬の分析法フローチャートを図5に、カラムの選択順序を図6に示す。

なお、ベンスリドは、標準分析法に示された精製法からみて図5のフローチャートにより試験溶液は得られると考えるが、保持時間(DC-200で40分以上)の関係からカラム長を短くしたもので測定する必要がある。トリクロルホンは、抽出操作及びカラムの仕様とも異なっており、個別に分析する必要がある。

表7 16農薬の最小検出量

農薬名	検出器	
	ECD	FTD
シマジン	1	0.04
プロピザミド	0.01	0.1
*ダイアジノン	0.1	0.02
クロタロニル	0.01	0.1
*トルクロホスメチル	0.02	0.02
*フェニトロチオン	0.02	0.02
*クロルピリホス	0.01	0.04
キャプタン	0.02	1
ベンディメタリン	0.02	0.1
*イソフェンホス	0.2	0.1
イソプロチオラン	0.04	10
*ブタミホス	0.04	0.02
ナプロバミド	10	0.4
フルトラニル	0.2	1
イソキサチオン	0.1	0.2
イプロジオン	0.2	2

(注) \*は標準分析法においてFPD(P)による測定が指定されている農薬

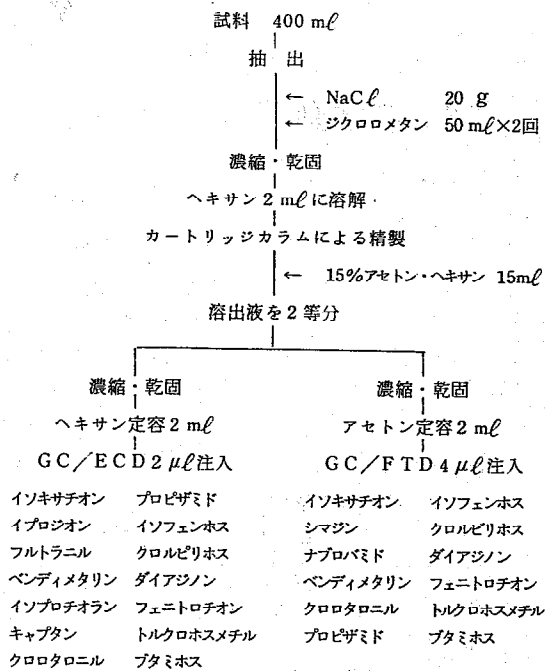


図5 分析法フローチャート

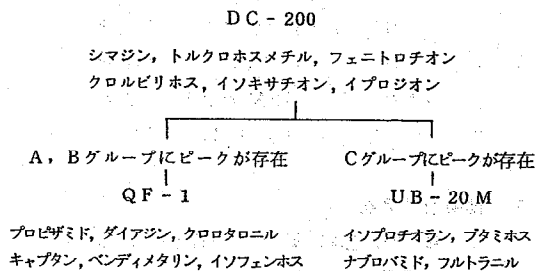


図6 カラムの選択順序

#### 4. まとめ

- (1) カートリッジカラムの使用により、農薬分析における精製操作の簡素化が可能である。
- (2) DC-200, QF-1, UB-20Mの3種のカラムにより、16農薬の分離・定量が可能であるが、確認についてはさらに極性の異なるカラムで行う必要がある。
- (3) ECDで14種, FTDで12種の農薬について、検出限界  $1 \mu\text{g}/\ell$  を達成することは容易である。

#### 参考文献

- 1) 厚生省生活衛生局水道環境部水道整備課：ゴルフ場使用農薬に係る検査方法について，別添1，1990。
- 2) 環境庁水質保全局土壌農薬課：ゴルフ場使用農薬に係る暫定指導指針について，別表，1990。
- 3) 公害研修所：残留有機りん農薬分析実習手順，1～4，1989。
- 4) 後藤真康他：残留農薬分析法，28～32，1980。
- 5) スペルコジャパン(株)：ゴルフ場農薬のGC分析データ，1～4，1990。
- 6) 全国公害研協議会中国四国支部：第17回水質部会資料，6～8，1990。

## 環境中のセシウム-137の挙動

一色祐子・吉野内茂

### 1. はじめに

フォールアウトとは、広義には降水以外の大気中から降下してくる微細物質をいい、その起源はさまざまである。地表から舞上がった土やほこり、火山灰、黄砂、海からの風送塩など自然由来のものに加えて、人の営為活動等により発生するばい煙や塵埃などの人為的なものも含まれ、特に後者は環境汚染や健康被害等の社会的問題に深く関わっている。狭義には、その内の一つである放射性降下物をフォールアウトと呼ぶことが多い。これは、過去の大気圏内核爆発実験や原子炉事故等により大気中に放出された放射性物質が、気流によって運ばれ、あるいは、爆発により成層圏に達したものは徐々に対流圏へ移行して、やがて自然に、また降雨により地表へ落下して来たものである。1945年にアメリカが核実験を開始してから、大気圏内での最後の実験となった1980年の中国の第26回核実験までに、423回もの実験が行われた。<sup>1)</sup> また、1986年にはチェルノブイリ原子力発電所事故が発生し、これらによる放射性降下物は地球規模の汚染をひきおこした。なかでもCs-137は、比較的半減期が長いため現在でも環境中に残留しており、人体の構成元素の一つであるカリウムと同じ挙動を示すことから、着目すべき核種である。

本県では、昭和50年度から伊方原子力発電所周辺環境放射線等調査を実施し、その結果を年報等<sup>2)</sup>で報告している。今回、これまでの調査結果をもとに、伊方

表1 試料の採取状況

試料	採取地点	採取頻度
降下物	松山市(公害技術センター) 伊方町(九町越公園)	各12回/年
土壌	伊方町内3地点 (九町越公園, モニタリングポイントNo.6, No.7)	各12回/年
海水	伊方町沖(平暮透過堤沖)	4回/年
海底土	伊方町沖延べ3地点 (透過堤東方, 透過堤北東, 平暮沖入江)	各4回/年

(注) 海底土は、昭和60年5月まで透過堤東方で、昭和60年7月から透過堤北東で採取

地域におけるCs-137の挙動について考察を加えたので報告する。

### 2. 調査方法

#### 2.1. 試料及び採取場所

表1に示すとおり、降下物は伊方町及び松山市、土壌は伊方町、海水及び海底土は伊方町沖のいずれも定点で採取した。土壌は地表から10cmまでの層を、海水は表面水を試料とした。

#### 2.2. 分析方法及び測定装置

科学技術庁の放射能測定法<sup>3,4)</sup>に準じて、試料の採取及び調製を行い、ゲルマニウム半導体検出器を用いてγ線スペクトロメトリを行った。

測定に用いた検出器は次のとおりである。

- ・キャンベラ社 Ge(Li)7229-7500S (相対効率15%)
- ・オルテック社 GMX-30200 (相対効率30%)
- ・オルテック社 GEM-40195 (相対効率40%)
- ・プリンストンガマテック社 IGC-3019S (相対効率30%)

### 3. 結果及び考察

#### 3.1. 降下物、土壌、海水及び海底土中のCs-137の経年変化

降下物、土壌、海水及び海底土中のCs-137の経年変化を図1に示す。降下物は年間降下量を、土壌、海水及び海底土は年間平均値で表した。

降下物中のCs-137は、昭和56年頃まで大気圏内核実験の影響を受けながら推移し、核実験の停止後急速に減少して、昭和60年には53年の1/50から1/60に落ち着いた。昭和61年にチェルノブイリ原子力発電所事故が起こり、降下量は事故直前に比べて松山市で150倍、伊方町では390倍に達したが、短期間に減少し現在では事故前のレベルを下回っている。

土壌、海水及び海底土中に存在するCs-137は、降下物中の劇的な変動とは異なり、核実験等の影響はあまりみられず、近年ゆるやかな減少傾向を示している。昭和51年～平成元年までの土壌中のCs-137の濃度は平

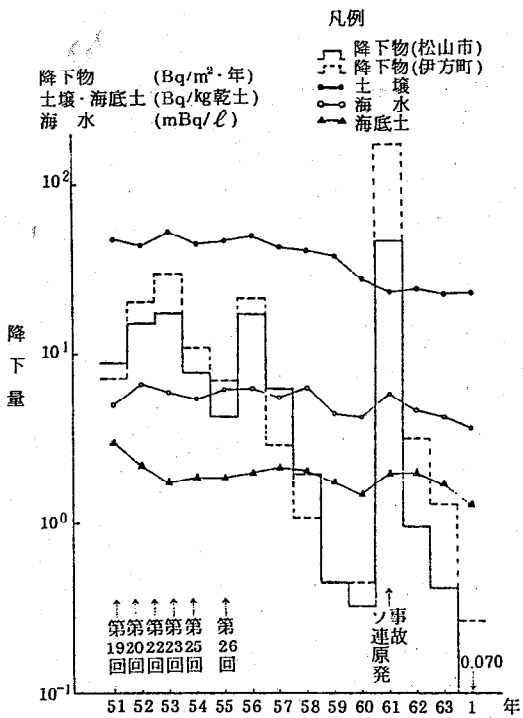


図1 環境中のCs-137の経年変化

均5.8Bq/kg乾土であり、採取地点表層10cmの土壌について平均4.3g/cm<sup>2</sup>とする<sup>5)</sup>と、表層10cmには約1.5kBq/m<sup>2</sup>のCs-137が存在することになり、伊方町で観測されたCs-137の平均降下量約20Bq/m<sup>2</sup>・年に比べて土壌中の蓄積量ははるかに大きいことがわかる。これは、土壌中ではCs-137が陽イオン交換基に吸着するほか、多くは結晶格子に固定され容易に遊離されない<sup>6,7)</sup>た

めと考えられる。このことは、現状の自然条件下では、土壌からのCs-137の流出、浸透などによる減少はわずかであることを意味し、土壌中のCs-137濃度は、物理的半減期(約30年)に従ったゆるやかな減少となるものと考えられる。

海水中のCs-137は、気圏から降下したものと陸圏から流入したものに由来するが、陸上に蓄積されたCs-137が河川水によって海洋へ流入する割合は、年間蓄積量の2~6%という報告<sup>8)</sup>がある。また、陸水からはほとんどCs-137が検出されていない<sup>2)</sup>ことから、降下物による供給の占める割合の方が陸圏からの供給よりも大きいと考えられるが、大量の海水で混合希釈されるため、降下量の増減が直接現れてこないものと考えられる。

### 3.2 降下物中のCs-137の由来

松山市及び伊方町の降下物中のCs-137の推移を図2に示す。両地点において全般的によく似たパターンの推移をみせ、いずれも核実験等の影響が強くてている。2地点間の比較では、図3に示すとおり、危険率1%で相関が認められた。

Cs-137以外のフォールアウトに由来する人工放射性核種としては、これまでにRu-103, Ce-141, Nb-95, Zr-95, I-131など数十種類が降下物から検出されており、その起源が核実験か原子炉事故かにより、出現する核種の組成比や影響期間に差が認められることが報告されている<sup>9)</sup>。そのうちNb-95, Mn-54及びRu-103について検討したところ、図4~図6に示すとおり2地点間において相関(危険率1%)が認められた。これらの

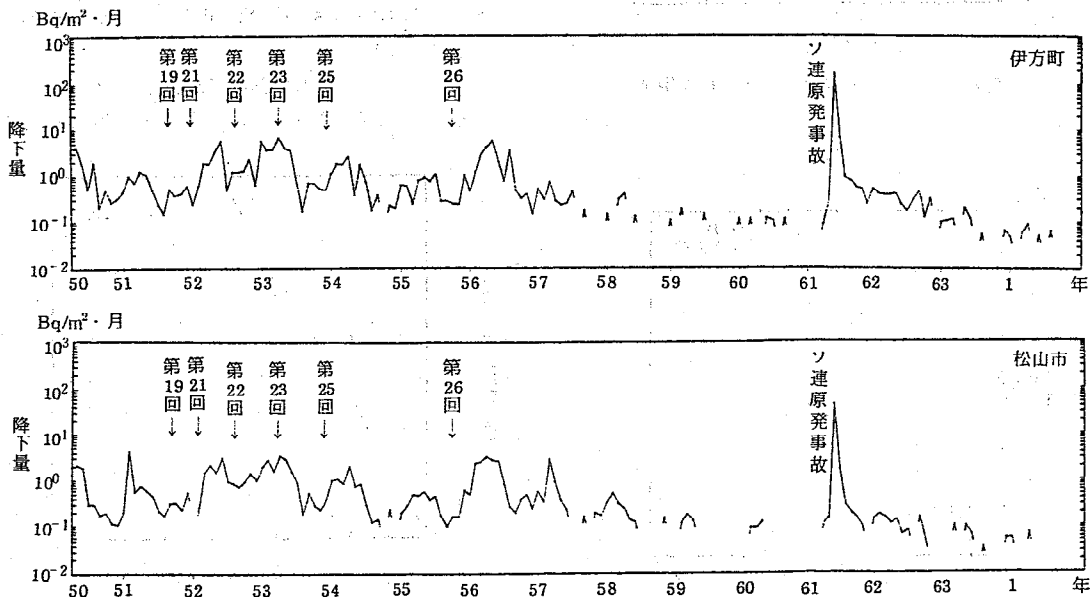


図2 降下物中のCs-137の推移

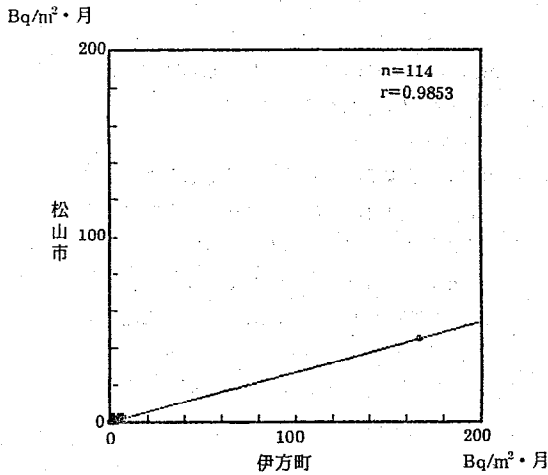


図3 松山市と伊方町のCs-137の相関

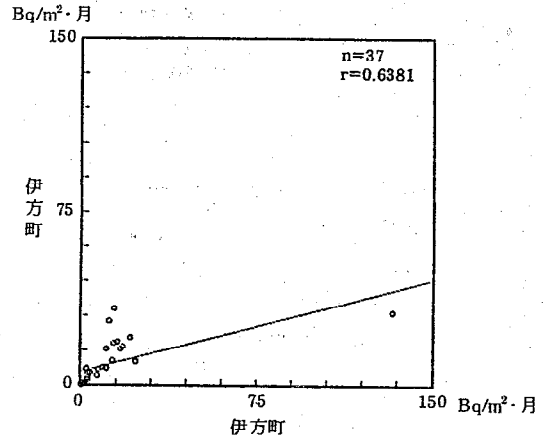


図6 松山市と伊方町のRu-103の相関

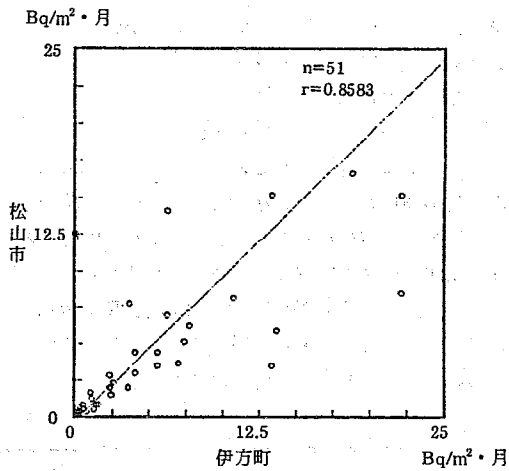


図4 松山市と伊方町のNb-95の相関

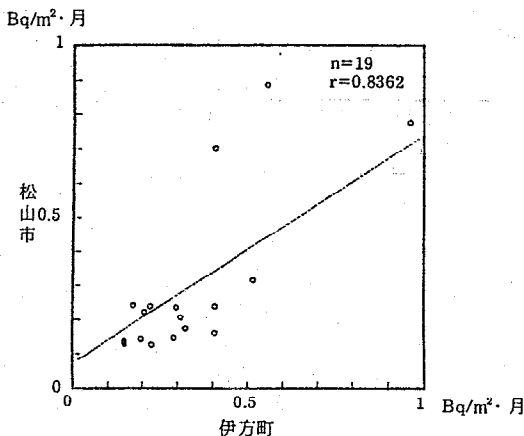


図5 松山市と伊方町のMn-54の相関

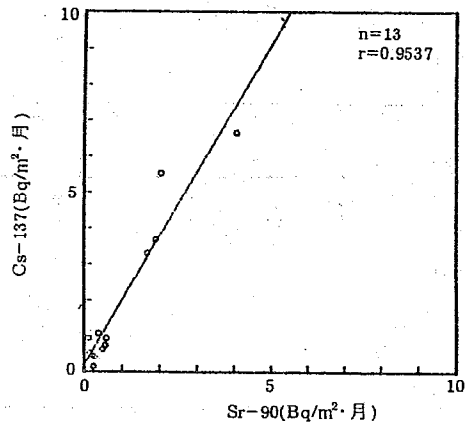


図7 降下物(松山市及び伊方町)中のCs-137とSr-90の相関

ことは、松山市及び伊方町に出現した人工放射性核種は核実験やソ連の原子炉事故によりもたらされたもので、若干の地域差が見られるものの、両地点にはほぼ同様な影響を及ぼしたことを示している。なお、Cs-137とRu-103については、原子炉事故による降下量が核実験による降下量に比べ特に大きかったが、相関係数には大きな差はなかった。

### 3.3. 環境中のCs-137の挙動

環境中のCs-137の挙動を把握するために、同じく代表的なフォールアウト核種で、28年の半減期をもつSr-90との比較を行った。

環境試料中のCs-137とSr-90は、図7～図10に示すとおり海底土を除き相関(危険率1%)が認められ、各試料におけるCs-137/Sr-90比の平均値は表2に示すとおりであった。

現在では降下物中にCs-137がほとんど検出されないこと、また、降下物中のCs-137/Sr-90比が1.8であ

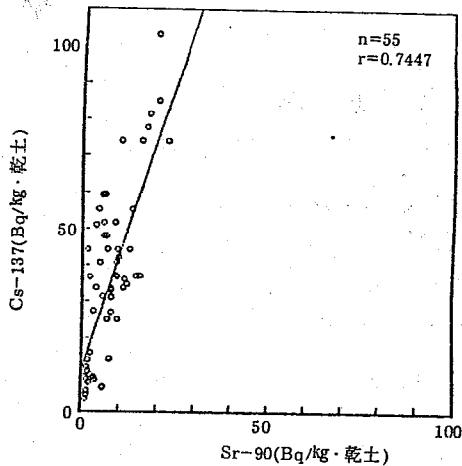


図8 土壤中のCs-137とSr-90の相関

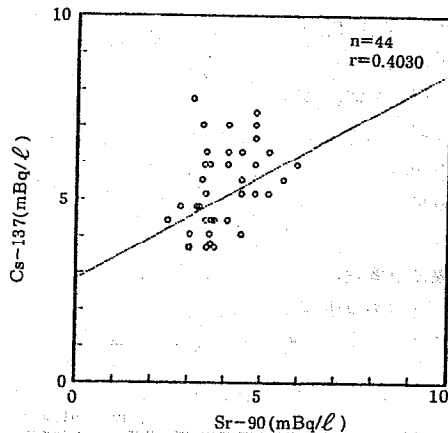


図9 海水中のCs-137とSr-90の相関

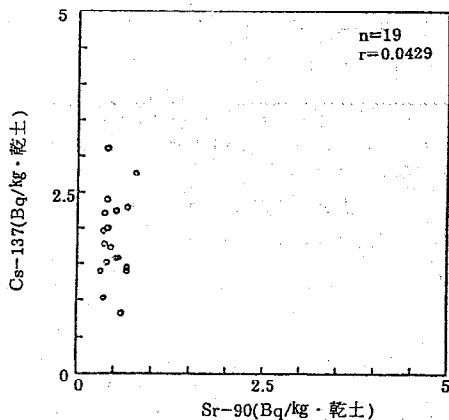


図10 海底土中のCs-137とSr-90の相関

表2 伊方町における各試料のCs-137/Sr-90比

試料名	降下物	土 壤	海 水	海底土
Cs-137 / Sr-90 比	1.8	5.7	1.4	4.6

り、核爆発時に生成するCs-137/Sr-90比 $1.6^{10)}$ によく近似していることから、現存するCs-137はフォールアウト由来であることが裏付けられる。

また、Cs-137/Sr-90比が降下物の1.8に対し土壤では5.7であることから、地表に降下したCs-137はSr-90に比べ土壤から流出しにくいことが考えられる。さらに、海水のCs-137/Sr-90比1.4に対し海底土が4.6であることは、表面海水中のCs-137はSr-90より海底土へ移行しやすいことが考えられる。

#### 4. ま と め

昭和50年度から平成元年度までの期間の環境試料の核種分析結果から、伊方地域におけるCs-137のレベルの推移及び挙動について次のことが明らかになった。

- (1) 降下物中のCs-137は現在ではほとんど検出されず、土壤、海水及び海底土中ではきわめてゆるやかな減少傾向にある。
- (2) 現在環境中に検出されるCs-137はフォールアウト由来のもので、松山市と伊方町に同様に影響を及ぼしている。
- (3) 地表へ降下したCs-137はSr-90に比べ土壤中にとどまりやすい。
- (4) 海水中のCs-137はSr-90に比べ海底土へ移行しやすい。

#### — 参考文献 —

- 1) 佐伯誠道：環境放射能，86，1984。
- 2) 愛媛県：伊方原子力発電所周辺環境放射線等調査結果，1976～1989。
- 3) 科学技術庁：ゲルマニウム半導体検出器を用いる機器分析のための試料前処理法，1982。
- 4) 科学技術庁：ゲルマニウム半導体検出器を用いた機器分析法，1979。
- 5) 二宮 久：愛媛県公害技術センター所報，第6号，48～50，1985。
- 6) 佐伯誠道：環境放射能，170～198，1984。
- 7) 日本化学会：放射性物質，121～122，1976。
- 8) 日本化学会：放射性物質，18，1976。
- 9) 矢野隆司他：愛媛県公害技術センター所報，第8号，42，1987。
- 10) M. アイゼンバット：環境放射能第2版，263～310，1979。

## 屋内自然放射線調査

大西 哲・堀川輝明・篠崎由紀・一色祐子  
影浦 久・吉野内茂

### 1. はじめに

当センターでは自然放射線調査として野外での放射線レベル、また、放射線と地質・地形との関係について実態調査を実施し報告してきたが、<sup>1)~3)</sup>我々は生活時間の大半を建造物内で過ごしていることから、自然放射線源からの被曝を考える場合、野外のみならず建造物内の放射線レベルを把握する必要がある。建造物内の放射線レベルに寄与するものとしては、大地に広く分布している自然放射性物質から放出される放射線が壁や床を透過してくるもの、壁、床、天井等の建築材料中に含まれる自然放射性物質から放出されるもの、空気中のラドン及びその娘核種から放出されるもの及び屋根、天井等を透過してくる宇宙線が考えられる。一方、建築材料による屋外からの放射線の遮蔽効果も考えられる。(図1参照)

そこで、主として一般住宅を対象とした家屋内の放射線(γ線)調査を行ったので、その結果を報告する。

### 2. 調査方法

#### 2.1. 調査対象

松山市内の住宅を、建築様式別に比較検討するためコンクリート、プレハブ及び木造の3様式に分類し、調査対象とした。今回の調査では、

コンクリート住宅	7家屋	14室
プレハブ住宅	6家屋	15室
木造住宅	8家屋	17室
ビル	2棟	9箇所
対照地点(庭)		14箇所

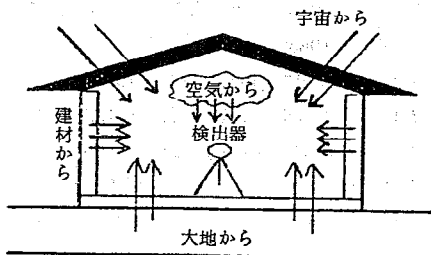


図1 屋内における自然放射線概念図

について空間線量率を測定した。

#### 2.2. 調査地点

おおむね部屋の中央に検出器を置き、高さは床から1mの位置とした。

#### 2.3. 調査期間

平成元年7月~平成2年9月

#### 2.4. 測定器

球形3"φNaI(Tl)シンチレーションスペクトロメータ  
アロカ製JSM-101

#### 2.5. データ解析方法

測定時間は1,000秒とし、カセットテープに収録したデータをコンピュータで読取り、ピールオフ法<sup>4,5)</sup>により解析した。

### 3. 結果及び考察

#### 3.1. 屋内の線量率

3様式の住宅についての平均線量率を表1に示す。

表1 屋内の平均線量率

単位:nGy/h

建築様式	γ線線量率		γ線寄与線量率		宇宙線線量率		
	平均	最低	最高	K-40	U系列	Th系列	
コンクリート住宅	107	92	122	50	20	39	17
プレハブ住宅	63	44	77	23	11	26	28
木造住宅	81	60	110	37	9	35	28

註 U系列、Th系列とは、地球起源の自然放射性核種であり、それぞれU-238、Th-232を親核種として連鎖的に壊変して壊変系列をつくるものをいう。

松浦らが行った野外での調査結果によれば、松山市の平均線量率はγ線線量率が86nGy/h、宇宙線線量率が29nGy/hとされており<sup>1)</sup>、屋内の平均線量率の値はこの自然界のレベルと同程度であった。

γ線線量率については、コンクリート住宅が一番高く、次いで木造、プレハブ住宅の順となっている。大地からのγ線の遮蔽効果はコンクリートの場合約4cm厚で50%、約10cm厚で80%であり、プレハブ、木造で

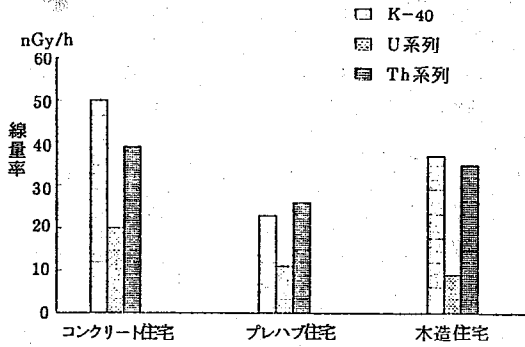


図2. 屋内の $\gamma$ 線寄与線量率

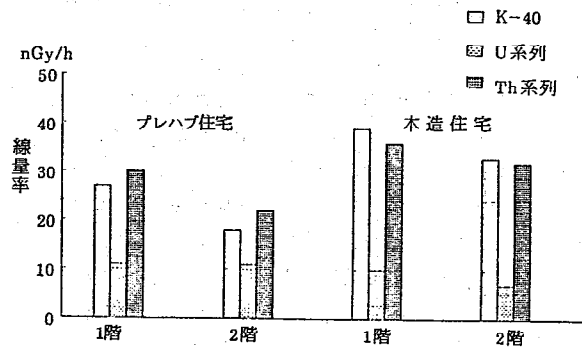


図3. 1階と2階の $\gamma$ 線寄与線量率比較

は少ない<sup>6)</sup>ことから、コンクリート住宅の場合は、大半が建築材料からの影響、プレハブ、木造住宅の場合は大地及び建築材料からの影響と推定される。また、プレハブ、木造住宅については大地からの $\gamma$ 線の遮蔽効果にはほとんど差がみられないと考えられることから、プレハブ住宅に主として使用されている石膏より、木造住宅に使用されている壁材からの影響のほうが大きいと考えられる。宇宙線については、コンクリート住宅が他の住宅に比較して約6割程度の低線量率であり、建築材料(コンクリート)による遮蔽効果が認められている。

この $\gamma$ 線線量率を自然放射性核種であるK-40、U系列、Th系列からの寄与線量率として図示したのが図2である。近年、屋内ラドン濃度が注目され、建築材料中のRa-226、Th-232の研究<sup>7)</sup>が行われているが、気密性の高いコンクリート住宅ではU系列の寄与線量率が他の住宅に比較して約2倍高い値を示していることが特徴的である。また、プレハブ住宅は壁材等が石膏であることから、K-40の影響が一番小さくなっている。

### 3.2. 一戸建住宅の1階と2階の比較

次に一戸建住宅であるプレハブ、木造住宅について

表2. 一戸建住宅の1階と2階の比較  
単位: nGy/h

建築様式	$\gamma$ 線線量率	$\gamma$ 線寄与線量率			宇宙線線量率
		K-40	U系列	Th系列	
プレハブ住宅					
(1階)	69	27	11	30	28
(2階)	54	18	11	22	28
(2階/1階)	0.78	0.67	1.00	0.73	1.00
木造住宅					
(1階)	85	39	10	36	28
(2階)	72	33	7	32	28
(2階/1階)	0.85	0.85	0.70	0.89	1.00

1階と2階の線量率を比較したのが表2及び図3である。 $\gamma$ 線線量率はいずれも1階のほうが2階より大きい値になっており、1階のほうが大地からの影響が強く表れている。プレハブ住宅の場合は、 $\gamma$ 線寄与線量率のK-40、Th系列ともに2階の方が小さな値となっているにもかかわらず、U系列についてはほとんど差がみられない。これは、空気中のラドン及びその娘核種の影響ではないかと考えられる。1階と2階の比率は、U系列、宇宙線線量率を除き木造住宅の方が大きい値となっており、この結果からも木造住宅の方がプレハブ住宅より建築材料からの影響が大きいことが考えられる。なお、1階2階とも宇宙線線量率に差はなく、建築材料による宇宙線の遮蔽効果は認められない。

### 3.3. コンクリート住宅における階層比較

コンクリート住宅については、マンションが主体となり、一戸建住宅の場合のような比較ができないため、5階建てビル及び11階建てビルにおいて、各階の測定が可能なエレベーターホールで測定した。階層による比較をするため1階の線量率に対する比率で示したのが表3である。

いずれも階層による顕著な差は認められなかった。

表3. コンクリート住宅の1階の線量率に対する比率

ビル	$\gamma$ 線線量率	$\gamma$ 線寄与線量率			宇宙線線量率
		K-40	U系列	Th系列	
Aビル(2階)					
(3階)	0.85	0.87	0.79	0.86	0.91
(4階)	0.94	1.00	0.79	0.96	1.07
(5階)	0.87	0.96	0.71	0.88	1.10
(屋上)	0.85	0.89	0.75	0.84	1.23
Bビル(4階)					
(7階)	1.09	1.18	0.86	1.23	1.15
(11階)	0.93	0.97	0.71	1.04	1.07
(11階)	0.91	1.00	0.78	0.94	1.06



コンクリート住宅が大地からの放射線をほとんど遮蔽していることを考えれば、検出器に対して同じ形態のコンクリートの箱が積み重なったような状態で、いずれの階もほぼ同一環境場となっているためではないかと思われる。U系列の $\gamma$ 線寄与線量率が1階に対して全て約8割程度と一定しているのは、エレベーターホールでの測定のため各階とも換気状態が一定していたためと思われる。また、宇宙線については、Bビルの場合はエレベーターが建物の外付けとなっているため、明確な差はみられなかったが、Aビルの場合は建物内にあるので、各階のコンクリートの遮蔽効果が認められる。

### 3.4. 家屋内外の比較

次に一戸建住宅であるプレハブ、木造住宅について、屋内及び屋外の比較を行った結果を表4に示す。屋外の $\gamma$ 線線量率は、家屋が建築されている場の線量率を代表するものとして、庭の線量率を測定したが、一般住宅では十分な広さの庭を有していないため、ブロック塀、家屋等からの影響によりやや高くなっていると考えられるが、定量的には不明である。 $\gamma$ 線線量率については、木造住宅では屋内、屋外ともに同程度であるが、プレハブ住宅の場合は屋内の線量率は屋外の約8割の値を示している。しかし、U系列はいずれも屋外に比べ屋内が全て大きい値になっており、屋内の空気は屋外に比べ滞留しやすく、空気中のラドン及びその娘核種の影響が強くて<sup>2)</sup>ものと思われる。なお、宇宙線線量率は屋内外に差はみられない。

表4 屋内外の放射線量率比較 (屋内/屋外)

建築様式	$\gamma$ 線線量率	$\gamma$ 線寄与線量率			宇宙線線量率
		K-40	U系列	Th系列	
プレハブ住宅	0.75	0.59	1.32	0.71	0.99
木造住宅	1.00	0.95	1.43	0.94	1.00

### 4. まとめ

$\gamma$ 線線量率については、次のとおりであった。

(1) 屋内の線量率は屋外のバックグラウンドレベル(自然界のレベル)と同程度であった。

(2) 屋内の線量率は、コンクリート住宅が一番高く、次いで木造住宅、プレハブ住宅の順であった。また、 $\gamma$ 線寄与線量率では、気密性の高いコンクリート住宅でU系列が高く、プレハブ住宅でK-40が低い値を示していた。

(3) 一戸建住宅の1階と2階の比較では、いずれも大地からの影響を受けやすい1階の方が大きくなっているが、木造住宅より気密性の高いプレハブ住宅では、1・2階におけるU系列の寄与線量率に差はみられなかった。

(4) コンクリート住宅では階層による差はみられなかった。

(5) 屋内の線量率は屋外に比べ木造住宅の場合は差がなく、プレハブ住宅は低めであるが、U系列の寄与線量率はいずれも屋内の方が高い値を示していた。

一方、宇宙線線量率については、コンクリート住宅では建築材料による遮蔽効果が認められるが、プレハブ、木造住宅では遮蔽効果は認められなかった。

なお、今回の調査は一般住宅の居室内での放射線の測定であり、調査にご協力頂きました方々に対し、厚くお礼を申し上げます。

### 参考文献

- 1) 松浦榮美他：愛媛県公害技術センター所報，第7号，32～37，1986。
- 2) 矢野隆司他：愛媛県公害技術センター所報，第8号，38～41，1987。
- 3) 真木 強他：愛媛県公害技術センター所報，第9号，37～41，1988。
- 4) 青野 真他：愛媛県公害技術センター所報，第3号，36～39，1981。
- 5) 岡野真治：理化学研究所ニュース，No.58，5～8，1979。
- 6) (財)原子力安全研究協会：環境放射線モニタリング，20～24，1987。
- 7) 伊藤和男他：生活環境におけるラドン濃度とそのリスク，134～143，1989。
- 8) 放射線医学総合研究所：人間環境と自然放射線，37～46，1978。

## 環境試料中のプルトニウムの挙動

影浦 久・吉野内茂

### 1. はじめに

伊方原子力発電所周辺の環境放射能監視の一環として、当センターにおいて、プルトニウム濃度の分析を開始して10年が経過した。これらの調査の結果は、年報<sup>1)</sup>としてこれまでに報告しているが、プルトニウムの同位体であるPu-239, Pu-240は、その半減期がそれぞれ $3.4 \times 10^4$ ,  $6.6 \times 10^3$ 年と非常に長く、 $\alpha$ 線放出核種であることから現時点におけるプルトニウム濃度を把握しておくことは重要である。

そこで、今回は、過去10年間の分析結果をもとに、プルトニウム濃度の経年変化について取りまとめるとともに、その挙動、移行形態等について検討した。

また、同位体比や原子力発電所操業前の環境試料中の濃度、本県の他地域の環境試料の測定結果をもとに、環境中のプルトニウムが大気中核爆発実験のフォールアウトに由来することの検証も試みたので報告する。

### 2. 調査方法

#### 2.1. 試料採取地点

土壌については伊方町、海水、海底土については伊方町沖の定点において採取した。また、対照地点として、新居浜沖の海底土等を分析試料とした。それぞれの試料採取地点を図1に示す。

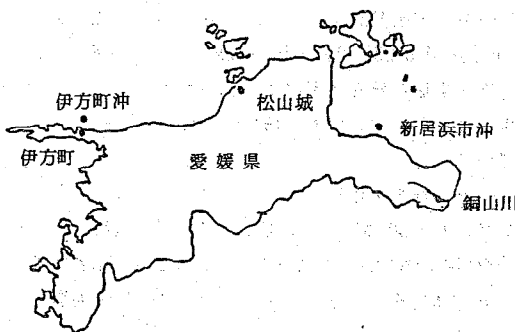


図1 試料採取位置図

#### 2.2. 試料採取方法

土壌は表層10cm、海水は表面水、海底土は採泥器により表層土を採取した。

#### 2.3. 分析方法および使用機器

プルトニウムの分析方法は、科学技術庁編「プルトニウム分析法」<sup>2)</sup>に準じて行った。土壌、海底土は50g・乾土、海水は未ろ過水100ℓを供試料とした。測定は、表面障壁型シリコン半導体検出器を用いた $\alpha$ 線スペクトロメトリーにより行った。

主な仕様は以下のとおりである。

検出器：オルテック 576

波高分析器：オルテック 7010

測定時間：試料  $1.5 \times 10^4$  秒  
バックグラウンド  $3.0 \times 10^4$  秒

### 3. 結果および考察

#### 3.1. 経年変化

##### 3.1.1. 土壌

土壌中のPu-239+240濃度の経年変化を図2に示す。図中の点は3地点×1回/年の各年度毎の平均値であり、ほぼ同レベルで推移している。各年度毎には差がみられるが、試料数が少ないためのばらつきと考えられる。

昭和56～平成元年度の全平均値は、0.54Bq/kg・乾土

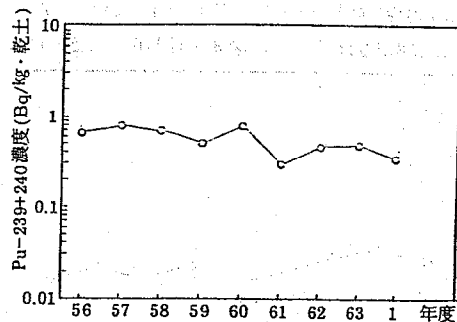


図2 土壌中(伊方町)のPu-239+240の経年変化

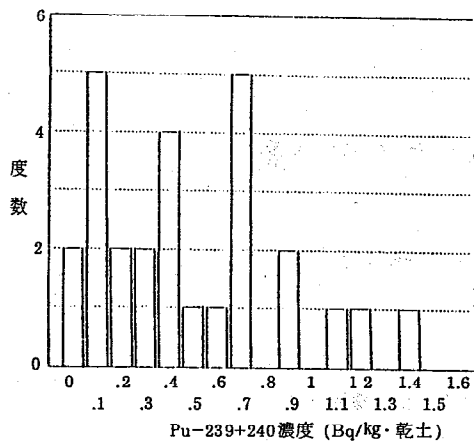


図3 土壤中(伊方町)のPu-239+240濃土の度数分布であり、表層10cmの採取において $4.3 \text{ g} \cdot \text{乾土} / \text{cm}^3$ だとすると、表層10cmには $23 \text{ Bq} / \text{m}^2$ のPu-239+240を含有している。一方、伊方町におけるこの期間のPuの降下量の平均値から推定すると、平均降下量は約 $0.03 \text{ Bq} / \text{m}^2 \cdot \text{年}$ であり、降下量は土壌含有量の1%にも満たない。

また、核爆発実験による影響がみられた昭和38年に東京で観測された最大降下量 $4) 7.4 \text{ Bq} / \text{m}^2 \cdot \text{年}$ ( $200 \mu \text{ Ci} / \text{km}^2 \cdot \text{年}$ )でも30%程度であり、東海村 $5)$ における測定結果も数%程度である。

上記の結果とプルトニウムが酸化物の状態 $6)$ で難水溶性であり、その半減期が非常に長いことを考え合わせると、これまでに土壤に吸着した大部分のプルトニウムは、そのまま土壤中に保持されており、降下物による供給と浸透や植物摂取等による減少が、ほぼ平衡状態にあると考えられる。

なお、測定値は、図3に示すとおりばらつきがみられる。これは、土壤の形態(土質)により、吸着率、浸透性に差があるためと考えられるが、今後更に調査が必要である。

### 3.1.2. 海水

海水中のPu-239+240の経年変化を図4に示す。図中の点は、1地点×4回/年の各年度毎の平均値である。(注:昭和55,56年度は1回のみ)図4から明らかなように、

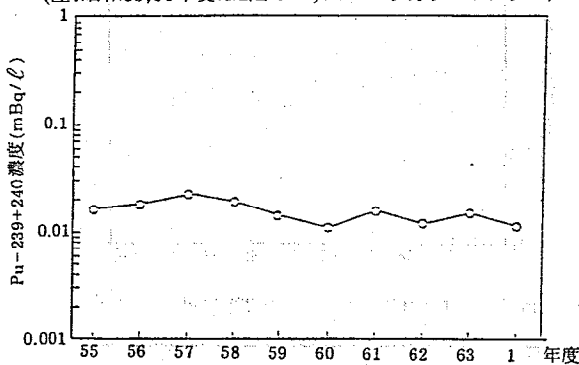


図4 海水中(伊方町)のPu-239+240濃度の経年変化

横ばい状態で推移しており、土壤よりも安定している。これは、海水中のプルトニウムが水溶液で、試料としてのばらつきが少ないためと考えられる。

海水中濃度の全平均値は $0.016 \text{ mBq} / \ell$ であり、日本の沿岸海域試料 $7)$ の平均値 $0.012 \sim 0.024 \text{ mBq} / \ell$ ともよく一致している。

### 3.1.3. 海底土

海底土中のPu-239+240の経年変化を図5に示す。図中の点は、2地点×年4回採取の年度平均値である。

なお、昭和60年途中より海面埋め立てのため、1地点を移動した。

図5に示すとおり、ほぼ横ばい状態で推移しているが、昭和60年度の濃度低下は、工事に伴う土壤の取込があったものと考えられる。なお、平均濃度は、日本近海海底土中濃度 $8)$ の平均値 $0.35 \sim 3.0 \text{ Bq} / \text{kg} \cdot \text{乾土}$ と比較して、低濃度からの平均的濃度の範囲にある。

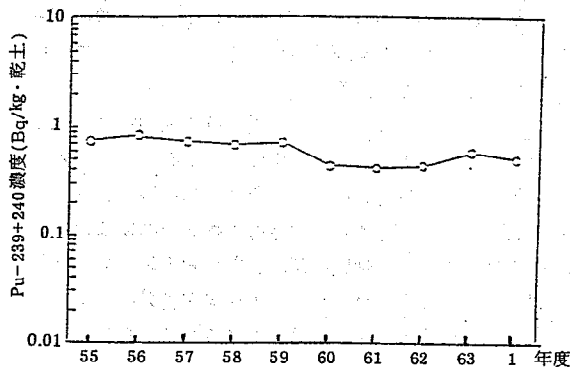


図5 海底土中(伊方町)のPu-239+240濃度の経年変化

## 3.2. 環境中プルトニウムの起源の推定

### 3.2.1. Pu-238とPu-239+240の同位体比

環境中で検出されるプルトニウムは、主として大気中核爆発実験に由来するといわれ、国連科学委員会の推定による生成量は、Pu-238,  $3.3 \times 10^{14} \text{ Bq}$ , Pu-239,  $7.8 \times 10^{15} \text{ Bq}$ , Pu-240,  $5.2 \times 10^{15} \text{ Bq}$ である。この値からPu-238/Pu-239+240の比を求めると0.025となり、放射線医学総合研究所等による降下物中のプルトニウム測定結果 $6)$ においても、ほぼこの値に近い結果となっている。

一方、軽水炉燃料のプルトニウム含量は、燃料1トン当たり $3,300 \text{ Mw}(t)$ の燃焼度で150日間冷却した時の燃料中の放射性核種含量 $9)$ から、Pu-238/Pu-239+240の同位体比を求めると約3.5となり、先の核実験による同位体比0.025と大きく異なる。

そこで、環境試料中に存在するプルトニウムの起源を推定するため、Pu-238とPu-239+240の同位体比をみると、土壤中では図6に示すとおり正の相関がみられ、

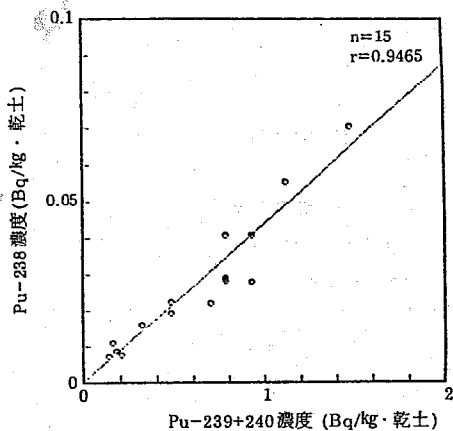


図6 土壤中(伊方町)のPu-238とPu-239+240の相関図

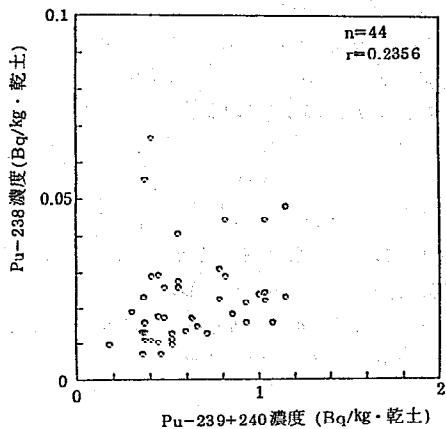


図7 海底土中(伊方町)のPu-238とPu-239+240の相関図

海底土では図7に示すとおり相関ははっきりしないが、同位体比の平均値は土壤が0.043、海底土が0.041で、いずれも軽水炉燃料の同位体比とは異なっており、核実験由来によることがわかる。

### 3.2.2 操業前環境試料等のプルトニウム濃度

次に、プルトニウムの起源について、さらに検証するため、原子力発電所操業前の土壤及び海底土試料と

表1 発電所操業前の環境試料中のプルトニウム濃度  
単位: Bq/kg・乾土

試料名	採取地点	採取年月日	Pu-238	Pu-239+240	同位体比	操業後のPu-239+240
土壤	伊方町九町越公園	50. 9. 9	0.019	0.75	0.025	0.14
		50.11.12	0.035	1.1	0.032	~ 1.5
	愛媛県モニタリングポイントNo.7	50. 9. 9	0.022	0.55	0.040	0.048
		50.11.12	ND	0.049	-	~ 0.93
海底土	伊方町平野	50. 9.10	0.018	0.78	0.023	0.84
		50.11.13	0.0086	0.81	0.011	~ 1.1
	伊方町平野 沖入江	50. 9.10	0.0096	0.43	0.023	0.35
		50.11.13	ND	0.27	-	~ 0.81

表2 県内他地域の環境試料中のプルトニウム濃度  
単位: Bq/kg・乾土

試料名	採取地点	採取年月日	Pu-238	Pu-239+240	同位体比
土壤	松山城	1. 7.24	0.015	0.50	0.030
河川土	銅山川	1. 7.24	0.0071	0.26	0.027
海底土	新居浜市沖	1. 5.22	0.0085	0.43	0.020
		1. 7. 3	0.0089	0.38	0.023
		1. 9. 4	0.0069	0.35	0.020
		1.11. 6	0.0090	0.39	0.023
		2. 1. 8	0.020	0.57	0.035
		2. 3. 8	0.0088	0.53	0.017

県内他地域の環境試料について測定を行った。その結果を表1、表2に示す。

表1をみると、発電所操業前においても、すでに、ほぼ同レベルのプルトニウムが環境中存在していたことがわかる。また、県内他地域の土壤、海底土にも現在検出されている程度のプルトニウムが存在しており、同位体比も同様である。

これらのことから、環境中には極微量であるが広くプルトニウムが存在し、その存在量はどの地域もほぼ同レベルであり、プルトニウムの起源は過去に行われた大気中核爆発実験に由来していることがわかる。

### 3.3 セシウム-137との比較

次に、環境中へのプルトニウムの移行、蓄積傾向の特徴をみるため、フォールアウト核種として環境中に広く分布しているCs-137との比較を行った。

土壤におけるCs-137とPu-239+240の関係を図8に示す。

Cs-137とPu-239+240は正の相関があり、ほぼ一定の比率で土壤中存在していることがわかる。そして、Pu-239+240/Cs-137の比の平均値は0.021であり、土

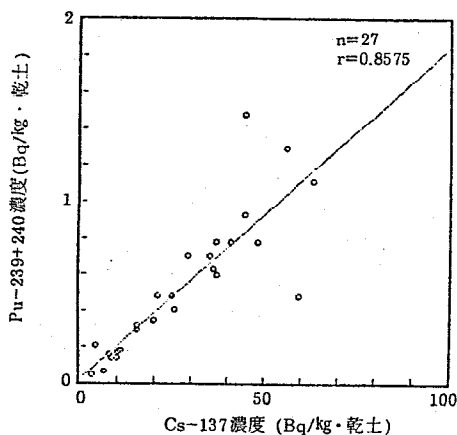


図8 土壤中(伊方町)のCs-137とPu-239+240の相関図

表3 伊方地域のCs-137に対する存在比

比	試料名			
	降下物	土 壤	海 水	海底土
Pu-239+240/Cs-137	0.015	0.021	0.0030	0.32

壤中にはCs-137に対して約2%のPu-239+240が存在している。

試料間のPu-239+240/Cs-137比を表3に示す。降下物中の同位体比は0.015で、土壌もほぼ同じ0.021であることから、土壌中ではCs-137と同様に、プルトニウムもそのまま吸着蓄蔵されていると考えられる。

また、海水中の同位体比は0.0030で、降下物の1/5であるのに対し、海底土は0.32で降下物の約20倍となった。このことから、表面海水中のプルトニウムの滞留時間は、Cs-137に比べて短く、海底土へ移行し易いことがわかる。

#### 4. ま と め

- (1) 昭和56～平成元年度の土壌、昭和55～平成元年度の海水及び海底土中のプルトニウム濃度はほぼ一定で推移している。
- (2) Pu-238とPu-239+240の同位体比や原子力発電所操業前のプルトニウム濃度、県内他地域の環境試料の分析結果から、環境に広く分布しているプルトニウムは、大気中核爆発実験によってもたらされたことが確認された。

- (3) フォールアウトとしてもたらされたプルトニウムは、土壌中にほぼ蓄蔵されている。
- (4) 海水中のプルトニウムは、表面海水中から海底土へ移行し易く、海底土中に蓄積されている。

#### — 参考文献 —

- 1) 愛媛県：伊方原子力発電所周辺環境放射線等調査結果，1980～1989。
- 2) 科学技術庁：プルトニウム分析法，1979。
- 3) 二宮久：環境におけるストロンチウムの挙動，愛媛県公害技術センター所報，第6号，48～50，1985。
- 4) 葛城幸雄他：第18回環境放射能調査研究成果論文抄録集，18～23，1975。
- 5) 林直美：第26回環境放射能調査研究成果論文抄録集，65～68，1983。
- 6) 佐伯誠道：環境放射能—挙動・生物濃縮・人体被曝線量評価—，101～102，1984。
- 7) 長屋裕他：第24回環境放射能調査研究成果論文抄録集，93～96，1981，第28回，69～73，1986，第29回，75～78，1987。
- 8) 宮本哲司他：第26回環境放射能調査研究成果論文抄録集，112～114，1983，第28回，90～94，1986，第30回，69～73，1988。
- 9) 佐伯誠道：環境放射能—挙動・生物濃縮・人体被曝線量評価—，38～40，1984。

## 環境水中のトリチウムについて

篠崎由紀・一色祐子・大西 哲・吉野内茂

### 1. はじめに.

トリチウム ( $^3\text{H}$ , 三重水素) は、半減期が 12.3 年、最大エネルギー 18.6 keV の  $\beta$  線放出核種である。水素の放射性同位体であり、その 99% は水の型 (HTO) で存在する<sup>1)</sup> ために、水と同様に地球上の水文学的サイクルを循環している。生成源としては、宇宙線と大気圏の酸素、窒素などの核反応によるもの、原爆、水爆の核爆発実験により大気中に放出されたもの、原子力施設から発生する人工的なものがある。

生物圏におけるトリチウムは、天然の核反応により定常的に存在しているが、昭和 27 年に始まる大気圏内核爆発実験により、莫大な量のトリチウムが環境中に放出され、昭和 38 年大気圏内核実験停止条約が締結されるまで環境トリチウムのレベルは増加し続けた。以後核爆発実験に起因するトリチウムは減少を続け、近年の降水中の濃度は核爆発実験前の値に近づいているとの調査報告がある。<sup>2)</sup>

本県においては、伊方原子力発電所周辺の環境放射能監視の一環として、昭和 51 年度から、降水、河川水、海水について調査を継続しており、その結果はすでに年報として報告している<sup>3)</sup>。そこで、今回過去 14 年間のデータをもとに、経年変化等について取りまとめたので報告する。

表 トリチウムの採取地点と採取方法

種別	採取地点	採取容器	採取回数
降水	松山市:愛媛県公害技術センター	20 l の 丸底ポリ瓶 ( $\phi$ 30cm のロート付き)	1カ月間の降水を1試料として年 12 回
	伊方町:九町越公園		
河川水	伊方町九町新川	500 ml ポリ瓶	58 年度まで 月 1 回 59 年度以降 年 4 回
海水	伊方町平暮透過堤沖	500 ml ポリ瓶	年 4 回

### 2. 調査方法

#### 2.1. 採取地点

採取地点、採取方法を表に示す。

#### 2.2. 試料の調製

科学技術庁編「トリチウム分析法」<sup>4)</sup> に基づき、図 1 に示すフローに従って試料の調製を行った。バックグラウンド水は、日本分析センターから供給を受けた地下水を使用し、試料と同様に調製を行った。

#### 2.3. 測定

使用機器等については、次のとおりである。

- ・低バックグラウンド液体シンチレーション測定装置  
アロカ製 LSC-LBI (昭和 51 ~ 61 年度)
- ・アロカ製 LSC-LBII (昭和 61 ~ 平成元年度)
- ・計数時間 500 分 (20 分  $\times$  25 回)
- ・液体シンチレータ Aquasol II 60ml
- ・バイアル瓶 100ml テフロンバイアル
- ・分析供試料 40ml

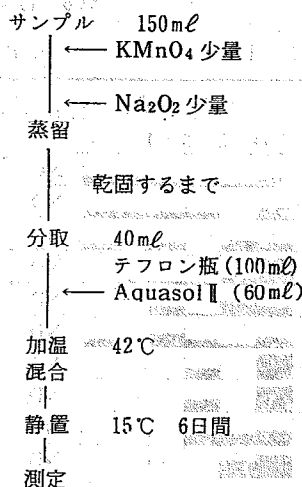


図 1 試料水の前処理

### 3. 結果と考察

#### 3.1. 降水中のトリチウム濃度

図2に示すとおり、松山市及び伊方町における降水中のトリチウム濃度は、ここ14年間両地域ともに徐々に減少傾向にあることがわかる。

また、図3に各年度ごとのトリチウム濃度分布状況を示す。核爆発実験により成層圏に入りこんだトリチウムは、平均1～2年の滞留時間の後対流圏に移動し

約26日の平均滞留時間で降水として、地表面や海面に運ばれることが知られている。<sup>1)</sup> 図3に示すとおり松山市では、調査開始期の昭和52年度には最高値8.7Bq/ℓのトリチウムが検出されたが、最後の中国核爆発実験があった55年度の2年後には最高値5.4Bq/ℓのピークを示し以後徐々に減少し、近年の5年間はND～2.4Bq/ℓの範囲で推移している。また、伊方町においても同様の傾向を示しており、近年の5年間はND～2.2Bq/ℓ

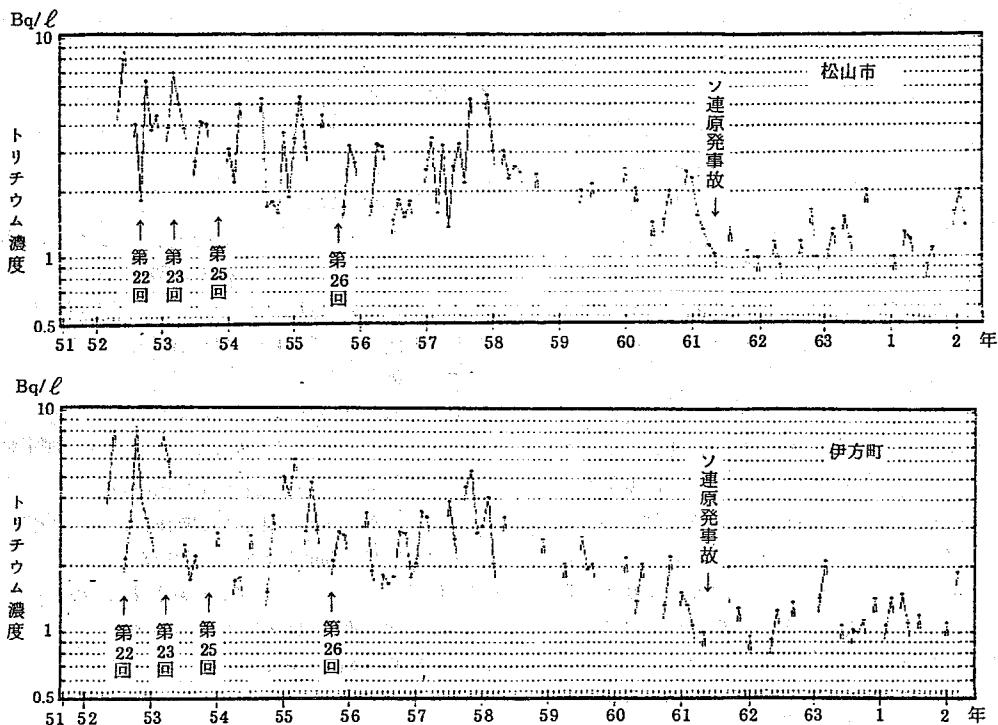


図2 降水中のトリチウム濃度の推移

松山市 単位:Bq/ℓ							伊方町 単位:Bq/ℓ										
年度	試料数	トリチウム濃度					最低値	最高値	年度	試料数	トリチウム濃度					最低値	最高値
		ND	2	3	4	5～					ND	2	3	4	5～		
52	12						ND	8.7	52	12						ND	8.5
53	12						ND	5.0	53	12						ND	5.8
54	12						ND	5.3	54	12						ND	6.0
55	12						ND	4.5	55	12						ND	4.8
56	12						ND	3.5	56	12						ND	3.5
57	12						ND	5.4	57	12						ND	5.3
58	12						ND	2.6	58	12						ND	3.3
59	12						ND	2.5	59	12						ND	2.7
60	12						ND	2.4	60	12						ND	2.2
61	12						ND	1.4	61	12						ND	1.6
62	12						ND	1.6	62	12						ND	2.1
63	12						ND	2.0	63	12						ND	1.4
1	12						ND	2.0	1	12						ND	1.9

凡例  

 10  
5  
0  
(度数)

図3 降水中のトリチウム濃度の分布

の範囲にある。これらのことから、近年では核爆発実験の影響が少なくなって来ていることが分かる。

また、高島らにより昭和61, 62年に全国で実施された降水中のトリチウム濃度は、98.8%が0~3.0Bq/ℓ(平均値は1.0Bq/ℓ)<sup>5)</sup>であり、本県の近年の5年間の値とよく一致している。

なお、昭和61年4月のチェルノブイリ原子力発電所事故によるトリチウムの影響は、両地域ともに見られなかった。

また、従来は全国的にスプリングピークとして春に高いトリチウム濃度が認められていたが、近年は全体的な濃度の低下とともに変動幅も小さくなり、現在では明らかな変動を認めることは困難で<sup>6~8)</sup>、松山市と伊方町においても明確な季節変動は認められなかった。

### 3.2. 河川水中のトリチウム濃度

伊方町九町新川における河川水中のトリチウム濃度の推移を図4に示し、各年度ごとの濃度分布状況を図5に示す。

河川水については、降水から地下水に供給されたトリチウムがある期間地層中に留まり、ゆっくり河川水

中へ流入することが考えられることから、河川水中のトリチウム濃度は降水中のトリチウム濃度の変化より遅れて同様の傾向を示すことが知られている。<sup>6)</sup> 九町新川においては、昭和52年度に最高値10Bq/ℓであったものが57年度の最高値5.7Bq/ℓをピークに徐々に減少し、60年以降はND~1.8Bq/ℓの範囲を推移し、伊方町の降水とほぼ同レベルの変動をしていることが分かる。九町新川のような小さな河川においては、降水中のトリチウム濃度が直接影響していることを示唆している。

### 3.3. 海水中のトリチウム濃度

海水については、この14年間どの試料も検出限界値(計数誤差の3倍未満, 500分計測で=0.9Bq/ℓ・LBⅡ)を超えることがなかった。なお、昭和57~58年に全国29か所の沿岸海域で調査された海水のトリチウム濃度は、0.43~1.1Bq/ℓ(平均値は0.74Bq/ℓ)<sup>9)</sup>と報告されており、本調査の検出限界値もこの範囲に含まれることから、伊方町の海水も全国的なレベルの範囲にあることが推測される。

## 4. ま と め

以上の結果をまとめると、次のとおりである。

- (1) 降水中のトリチウム濃度は、松山市と伊方町における地域差はなく、52年度には最高値8.7Bq/ℓであったものが、60年度以降はND~2.4Bq/ℓの範囲になっている。
- (2) 河川水については、降水と同様の減少傾向を示し、60年度以降はND~1.8Bq/ℓの値で推移している。
- (3) 海水については、全て検出限界値以下であった。

### — 参考文献 —

- 1) 原子力安全研究協会：環境放射線モニタリング, 109~113, 1987.
- 2) 核融合特別研究総合総括班：トリチウム資料集, 1988.
- 3) 愛媛県：伊方原子力発電所周辺環境放射線等調査結果, 1976~1989.
- 4) 科学技術庁：トリチウム分析法, 1977.
- 5) 高島良正：環境トリチウムの変動測定とその解析, 15~74, 1988.
- 6) 加治俊夫：環境トリチウムの分布と挙動, トリチウム資料集, 1988.
- 7) 茶谷邦男：環境と人体におけるトリチウム研究の諸問題, 57~71, 1983.
- 8) 葛城幸雄：環境と人体におけるトリチウム研究の諸問題, 37~47, 1983.
- 9) 百島則幸：環境トリチウムの変動測定とその解析, 93~129, 1988.

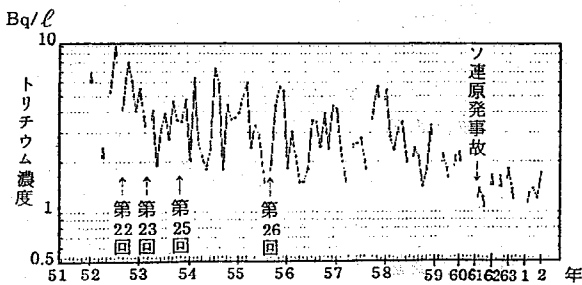


図4 河川水中のトリチウム濃度の推移

年度	試料数	トリチウム濃度					最低値	最高値
		ND	2	3	4	5~		
52	12	■	■	■	■	■	ND	1.0
53	12	■	■	■	■	■	ND	6.4
54	12	■	■	■	■	■	ND	7.3
55	12	■	■	■	■	■	ND	5.7
56	12	■	■	■	■	■	ND	4.4
57	12	■	■	■	■	■	ND	5.7
58	12	■	■	■	■	■	ND	3.5
59	4	■	■	■	■	■	ND	2.3
60	4	■	■	■	■	■	ND	ND
61	4	■	■	■	■	■	ND	1.7
62	4	■	■	■	■	■	ND	1.8
63	4	■	■	■	■	■	ND	1.4
1	4	■	■	■	■	■	1.2	1.7

図5 河川水中のトリチウム濃度の分布



## 熱蛍光線量計の自己照射線量について

堀川輝明・大西 哲・吉野内茂

### 1. はじめに

熱蛍光線量計(以下「TLD」という。)は、科学技術庁の「環境放射線モニタリングに関する指針」<sup>1)</sup>において、積算線量測定手段として示されており、昭和50年度から伊方地域における環境放射線等調査においても使用している。

現在使用されているTLDのうち、最も広く用いられている熱蛍光物質にCaSO<sub>4</sub>:Tm(UD-200S)がある。

UD-200Sは組織等価性はないが、フィルタによりエネルギー特性を改善している。しかし、このフィルタ等による自己照射線量の影響があることも知られている。<sup>2)</sup>

TLDを環境モニタリングに使用する際、長期間の設置に伴うTLDの自己照射線量の影響を考慮しなければならない。<sup>2)</sup>特に、伊方地域は環境の放射線レベルが低いため、この影響が考えられる。そこで、当センターでは、従来からも自己照射線量の少ないTLDを使用しているが、今回新たにTLDを購入したので、セルフドーズ等を測定し、測定結果についてt検定、G-rubbsの方法による棄却検定<sup>3)</sup>を行い、測定値のばらつきを検討を行ったので報告する。

### 2. 調査方法

#### 2.1. 使用機器

##### 2.1.1. TLD

松下電器産業㈱製CaSO<sub>4</sub>:Tm(UD-200S):200素子を1グループとし、昭和63年11月製造分(400素子)を第1,第2グループ,平成元年12月製造分(400素子)を第3,第4グループとする合計4グループ800素子を使用

##### 2.1.2. 熱処理(アニール)炉

松下電器産業(株)製 UD-605C

##### 2.1.3. 読取装置

松下電器産業(株)製 UD-512P:Cs-137で標準照射したTLDで校正した後使用

#### 2.2. 自己照射線量の測定

JISに定められた自己照射線量の測定方法<sup>4)</sup>に準じ、第1~第4グループの素子を400℃で2分間アニールした後、銅で内張りした厚さ5cmの鉛製遮へい体の中に約3ヶ月間放置し、回収後直ちに測定した。

なお、この測定値には、本稿ではJISと同様宇宙線が含まれており、自己照射線量(以下「セルフドーズ」という。)とした。

#### 2.3. 環境における測定

第1~第4グループの素子を400℃で2分間アニールした後、科学技術庁編「熱ルミネセンス線量計を用いた環境γ線測定法」(以下「アニュアル」という。)<sup>3)</sup>に定められた収納箱(松山市に設置)に約3ヶ月間放置し、回収後直ちに測定した。

#### 2.4. 統計処理

マニュアルに定められている異常値の棄却検定法により検定した。

### 3. 結果及び考察

#### 3.1. セルフドーズの測定結果

各グループの91日間のセルフドーズは、表1に示すとおり平均34~37μGyでJISに定められた値(61μGy)<sup>4)</sup>より低い値で、棄却された素子の数も各グループ(200素子中)平均10素子(5%)と少なかった。

表1 セルフドーズの測定値

グループ	測定時期	測定値 (μGy/91日)	使用素子数(個)	棄却素子数(個)
1	H 1.第4 四半期	37 ± 1.3	200	12
2	H 1.第3 四半期	36 ± 1.2	200	11
3	H 2.第1 四半期	34 ± 2.6	200	9
4	H 2.第2 四半期	35 ± 2.1	200	8
計			800	40

また、グループ別のばらつきは、図1、表2に示すとおりであり、平均値との差が大ききものはあまり見られなかった。

#### 3.2. 環境における測定

環境における測定結果は、表3に示すとおり平均値

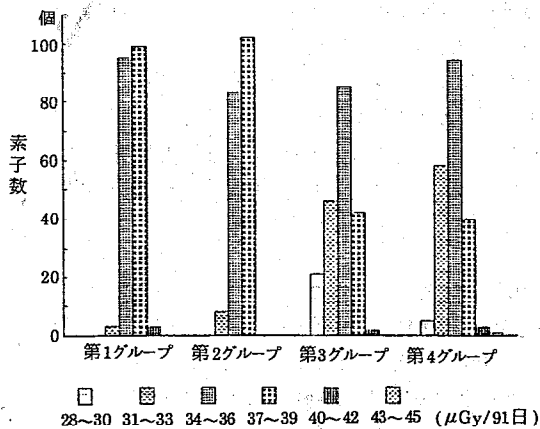


図1 セルフドーズの分布図

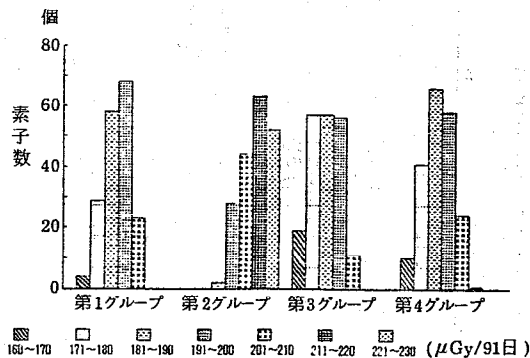


図2 環境における測定値の分布図

表2 棄却された素子の内訳

グループ	平均値 ( $\mu\text{Gy}/91\text{日}$ )	棄却素子	
		測定値( $\mu\text{Gy}/91\text{日}$ )	カッコ内素子数(個)
1	$37 \pm 1.3$	33(3), 34(2), 39(4), 40(3)	
2	$36 \pm 1.2$	31(1), 32(1), 33(6), 34(2), 39(1)	
3	$34 \pm 2.6$	28(2), 29(5), 40(2)	
4	$35 \pm 2.1$	29(2), 30(2), 40(3), 44(1)	

表3 環境中における測定結果

グループ	測定時期	測定値( $\mu\text{Gy}/91\text{日}$ )	使用素子数(個)	棄却素子数(個)	同時期のモニタリング値( $\mu\text{Gy}/91\text{日}$ )
1	H2.第1四半期	$190 \pm 9.3$	200	5	207
2	H1.第4四半期	$214 \pm 10.0$	200	3	225
3	H2.第2四半期	$184 \pm 9.9$	200	6	185
4	H2.第3四半期	$188 \pm 10.5$	200	9	195
計			800	23	

が184~214  $\mu\text{Gy}/91\text{日}$ であった。なお、測定値がばらついているのは、素子の設置時期がグループにより異なるための自然変動であり、同時期に測定したルーチンのモニタリング値とよく一致しており、棄却された素子の数も800素子中23素子(3%)と少なかった。

また、グループ別のばらつきは、図2に示すとおりであり、平均値との差が大ききものはあまり見られなかった。

### 3.3. セルフドーズと環境における測定値の比較

一般的にセルフドーズが高い場合は環境における測定値も高く、低い場合は低い傾向を示しているため、相関があるものと思われたが図3に示すとおり相関はあまり認められなかった。これは、松山市においては

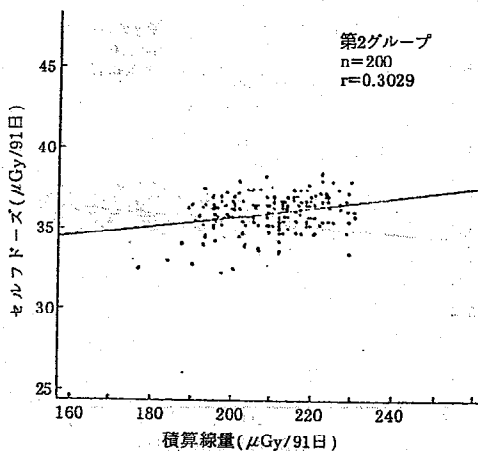
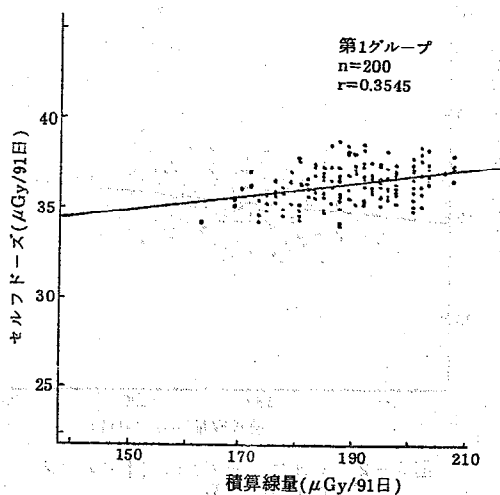


図3-1 セルフドーズと松山市における測定値の相関

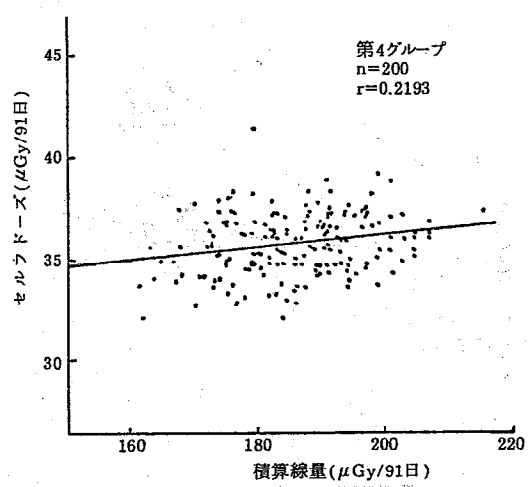
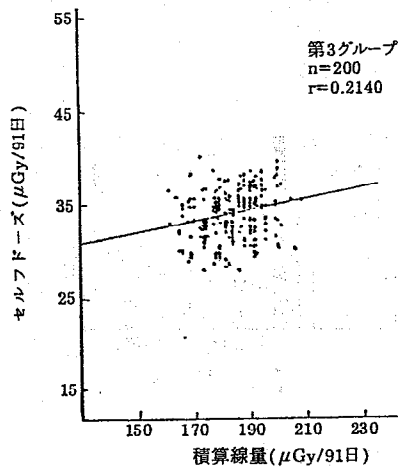


図3-2 セルフドーズと松山市における測定値の相関

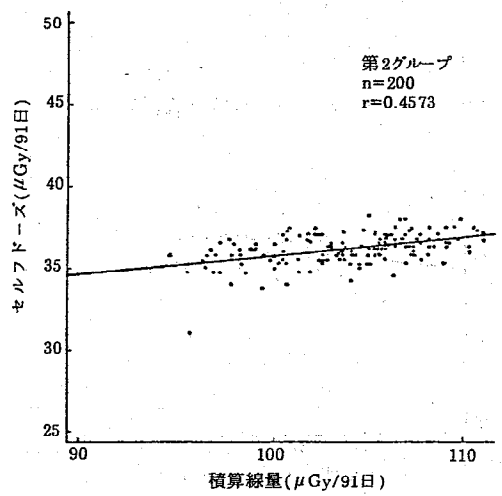


図4 セルフドーズと伊方町における測定値との相関

環境における測定値に占めるセルフドーズの割合が約20%と少ないためと思われる。

一方、環境放射線レベルの低い伊方町（モニタリングポイント№4）に第2グループの素子を設置し約3ヶ月間測定したところ、図4に示すとおり環境における測定値に占めるセルフドーズの割合が約35%と増加するため、やや相関が認められた。

#### 4. まとめ

CaSO<sub>4</sub>:Tm(UD-200S)のセルフドーズについて調査した結果は、次のとおりであった。

- (1) CaSO<sub>4</sub>:Tm(UD-200S)のセルフドーズは34~37 μGy/91日と低い線量であり、素子間のばらつきも少なかった。また、製造時期の異なるロット間の差も少なかった。
- (2) 環境における測定でも、各グループとも測定値のばらつきは少なく、自然放射線に対する素子の感度の相違も少なかった。
- (3) 本県伊方地域のように、環境放射線レベルの低い地域においては、セルフドーズを測定し、ばらつきの少ない素子を用いることが必要である。

#### 参考文献

- 1) 科学技術庁：環境モニタリングに関する指針，6，1989。
- 2) 北原明治：ラジオアイソトープス，Vol.36,186~189, 1987。
- 3) 科学技術庁：熱ルミネセンス線量計を用いた環境γ線測定法，6~18, 1990。
- 4) (財)日本工業規格協会：JISハンドブック放射線(能)，568~570, 1990。

## パソコンによる環境放射能データベース

吉野内茂

### 1. はじめに

伊方原子力発電所周辺の環境放射線等の監視調査については、昭和50年度からの事前調査を含めると、15年を経過しており、環境試料中の放射能の測定結果は核種分析データ等多種類で膨大なデータ量になっている。特に、平成元年4月からの新単位採用に伴い、旧データの換算等の必要性が高まってきた。そこで、パソコンによるデータベースを作製し、データの検索、時系列グラフ、度数分布、相関図等の作成並びに単位変更に伴うファイルデータの変換等を迅速に行うようにしたので、その概要について報告する。

### 2. 使用機器

- パソコン NEC PC-9801 RX
- FDD 5インチ(1MB)
- プリンタ NEC PCPR101G
- 使用言語 N 88-BASIC(86)

### 3. プログラムの概要

プログラムの構造は、図1に示すとおりである。データ入力、修正、検索の各プログラムは独立した機能を持っており、必要に応じて図2に示すメニュー画面から呼び出す。

#### 3.1. データの入力

データの入力は、ファイル名を入力した後、図3に示す入力画面により、試料名、採取地点、採取年月日、測定データを順次入力する。この場合、試料名、採取地点は全て調査計画に定められているので、表示された該当項目にカーソルを移動させ決定する。ファイルへの書込データは、試料名は4個の整数の組合せにより、地点名はファイルデータの5番目に整数で登録するようにしている。また、測定データは、8桁で入力するが、NDはRETキーにより自動的に0を、測定しない項目は「-」を入力し、実際にはありえない-999.9をデータとして登録している。データ入力作業を終了する場合は、試料名入力画面で終了を選択する。

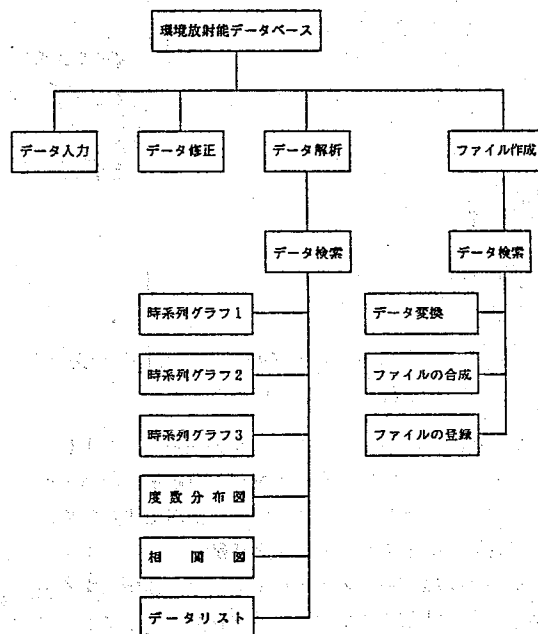


図1 プログラムの構造

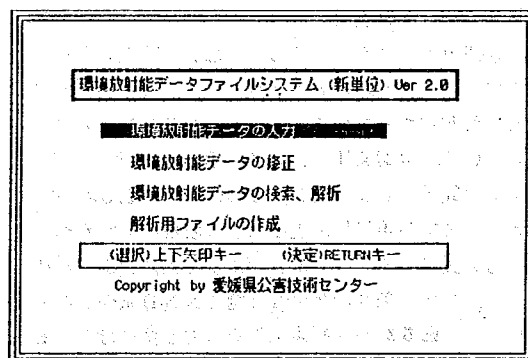


図2 メニュー画面

#### 3.2. データの修正

データの修正は、ファイル名を入力した後、当該ファイルの修正したいデータのコードNoを入力すると、図4に示す修正画面によりデータの全内容が表示さ

項目No	項目名	採取地点	採取	年 月 日
Es-1	放射線	大気浮遊じん		
Es-2				
Es-3				
Es-4				
Es-5				
Es-6				
Es-7				
Es-8				
Es-9				
Es-10				
Es-11				
Es-12				
Es-13				
Es-14				
Es-15				
Es-16				
Es-17				
Es-18				
Es-19				
Es-20				

図3 データ入力画面

項目No	項目名	採取地点	採取	年 月 日
Es-1	放射線	大気浮遊じん		
Es-2				
Es-3				
Es-4				
Es-5				
Es-6				
Es-7				
Es-8				
Es-9				
Es-10				
Es-11				
Es-12				
Es-13				
Es-14				
Es-15				
Es-16				
Es-17				
Es-18				
Es-19				
Es-20				

図4 データ修正画面

れる。修正したい項目にカーソルを移動させ、正しいデータを入力した後、RETキーで当該項目の修正を行う。ディスク上のファイルデータを修正するためには、最後の項目までカーソルを移動することにより完了する。なお、データ修正中に前の項目を修正する必要がある場合は、カーソルを移動することにより何度でも修正が可能である。修正作業を完了する場合は、コードNoの入力時に「E」を入力する。

### 3.3 データの検索

登録済みデータを検索する場合は、データ入力時と同様に、試料名一覧が表示されるので、カーソルを移動し、RETキーで当該ファイルをOPENするようにしている。検索条件は、全ての項目について設定可能で、採取年月日は上限と下限のいずれか又は両方を、測定データは各項目毎に上限値と下限値のいずれか又は両方、更に、それらの組合せによる条件設定が可能である。なお、条件の組合せは全てAND条件となっている。(図5参照)検索条件を入力した後は、「ESC」キーを押すと、ディスクからのデータの呼び出しと、データの判別を行い、メモリー上に解析用ファイルを作成する。全データを読み出した後は、図6に示すデータ一覧を画面に表示する。画面に一度に表示できるのは7項目であるので、左右矢印キーにより表示項目を変更することができる。また、データ数は最大21であるので、これを超える場合は「RET」

項目No	項目名	採取地点	採取	年 月 日
Es-1	放射線	大気浮遊じん		
Es-2				
Es-3				
Es-4				
Es-5				
Es-6				
Es-7				
Es-8				
Es-9				
Es-10				
Es-11				
Es-12				
Es-13				
Es-14				
Es-15				
Es-16				
Es-17				
Es-18				
Es-19				
Es-20				

図5 データ検索画面

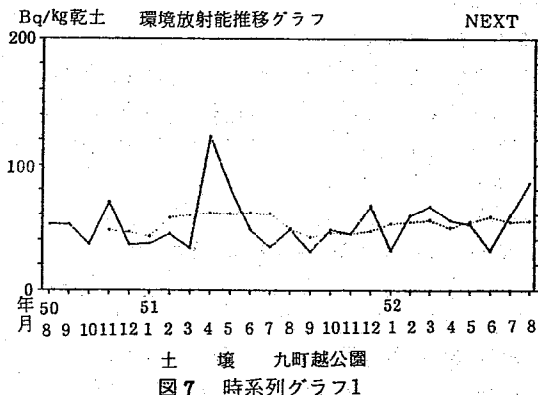
No	試料名	採取年月日	Zr-95	Nb-95	Ru-103	Ru-106	Sb-125	Cs-137	Ca-137
52	大気浮遊じん	56. 5.28	ND	ND	ND	ND	ND	ND	.8481
51	陸水(河川水)	56. 2. 6	2.103	3.103	1.332	ND	ND	ND	.0518
52	陸水(河川水)	56. 3. 4	4.07	3.145	1.035	ND	ND	ND	.074
61	陸水(河川水)	56. 4. 9	3.7	7.03	1.776	ND	ND	ND	.1443
76	産 食 品	56. 5.14	.899	1.828	2.223	ND	ND	ND	.0658
77	陸 下 水	56. 6. 4	1.48	3.198	.518	.777	.1443	ND	.1258
78	汚 泥	56. 7. 8	.3552	.777	.0399	ND	.1443	ND	.0555

図6 データ一覧画面

キーを押すことにより、順次画面表示する。なお、画面表示を中断し、解析作業に進む場合は、「ESC」キーを押す。

#### 3.3.1. 時系列グラフ 1

解析用ファイルの任意の1項目について、時系列グラフと移動平均を表示する。表示項目No、スケールの最大値、移動平均の有無、有の場合はデータ数を入力すると、図7に示す時系列グラフ1を表示する。一度に表示出来ない場合は、「RET」キーを押すと順次表示する。



#### 3.3.2. 時系列グラフ 2

任意の7項目以内について、1画面で時系列グラフ1の2倍のデータを表示出来るので、長期間のデータ

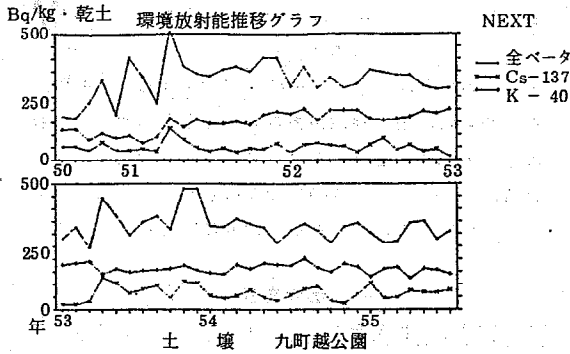


図8 時系列グラフ2

の傾向を見るのに適している。表示項目数、項目No、スケールの最大値を入力すると図8に示す時系列グラフ2を表示する。

3.3.3. 時系列グラフ3

時系列グラフ1の表示スケールを対数グラフにしたものであり、変動の大きい降下物中の核種濃度を見る場合に適している。表示する項目数、項目No、最大値を入力すると図9に示す時系列グラフ3を表示する。

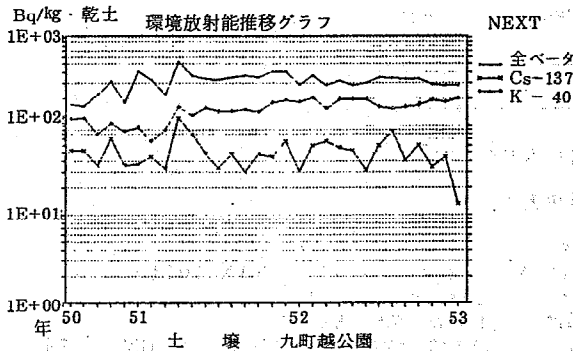


図9 時系列グラフ3

3.3.4. 度数分布

解析用ファイルの任意の項目について、度数分布図を表示する。表示項目No、最度数、最小値、区分値

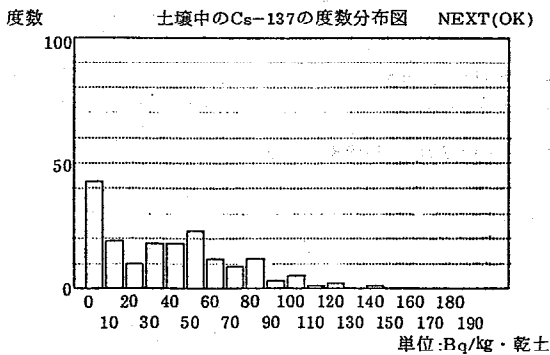


図10 度数分布図

(級の幅)を入力すると図10に示す度数分布図を表示する。なお、表示区分が不適切な場合は、再度条件を変更して表示できる。

3.3.5. 相関図

相関を見たい2つの項目Noと、表示最大値を入力すると図11に示す相関図を表示する。ただし、いずれかの項目のデータにNDが含まれていると、計算過程で桁あふれ(オーバーフロー)のエラーメッセージがでるので、データ検索の段階で除いておく必要がある。

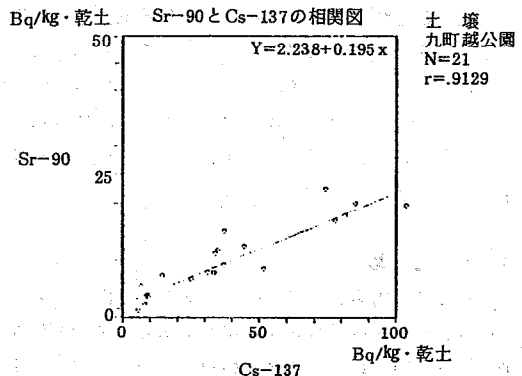


図11 相関図

3.3.6. データリスト

解析用データファイルのデータリストが必要な場合には、表1に示すデータリストをプリンターにより打ち出すことが出来る。

表1 データリスト

(No)	資料名	項目No	項目名	単位	検出限界	測定値	備考
1	土	60	9	Bq/kg-乾土	ND	ND	
2	土	60	10	Bq/kg-乾土	ND	ND	
3	土	60	11	Bq/kg-乾土	ND	ND	
4	土	60	12	Bq/kg-乾土	ND	ND	

3.3.7. 最大, 最小, 平均値及び標準偏差

全ベータ放射能のデータチェックには「平均値+標準偏差の3倍」を目安にしており、これに必要な計算を行わせると表2に示す計算結果が得られる。

表2 最大, 最小, 平均値等の計算結果

項目No	項目名	最大値	最小値	平均値	標準偏差
60	9	4.4E+00	7.0E-01	1.3E+00	1.0E-01
60	10	8.6E+00	2.1E+00	2.3E+00	1.0E-01
60	11	6.7E+01	1.2E+00	1.2E+00	ND
60	12	4.4E+00	3.0E+00	4.8E-01	ND

### 3.3.8. 単位変更に伴うデータの変換等

50~63年度までの測定値は、pCiの旧単位で報告書に取りまとめられている。そこで、新単位のBqに換算するためのサブルーチンを作成し、旧単位データに換算係数を乗じ、新ファイルを作成した。例えばpCi/gからBq/kgに変換する場合は $K = \text{pCi/g} / \text{Bq/kg} = 37$ を乗じる。

### 3.3.9. ファイルの合成

本プログラムでは、同一試料中の項目間の相関は簡単に見ることができる。しかし、異なる地点間又は異なる試料間の任意の項目について相関を見る場合は、採取年月日を同一とする新しいファイルを作る必要がある。ファイル合成サブルーチンにより、必要な項目を合成した新しいファイルを作成すれば、簡単に相関を見ることができる。

## 4. ま と め

これまでに得られた多くのデータを十分活用するためには、データベース化が不可欠である。環境放射能のデータベースは、すでに(財)日本分析センターで実

施されており、今後、各自治体に端末機器を設置し、システムのネットワーク化が計画されている。しかし、国内の各機関のデータが一括して管理されているので、その使用には多少制約があるものと考えられる。手軽に、自由に使えるデータベースとして、今後もパソコンによるデータベースの必要性は変わらないので、更に使いやすいものに改善していきたいと考えている。

### —— 参考文献 ——

- 1) 宮井博, 牧明彦: パーソナルコンピュータによる環境データベースの作成と利用, 公害と対策, Vol. 22, No 2, 1986.
- 2) 日本電気(株): N88-日本語BASIC(86)(Ver6.0)リファレンスマニュアル, 1988.
- 3) 岩瀬純夫: 実用プログラム講座, 電波新聞社, 1988.
- 4) 永瀬敏: サブルーチン(秘)作法 BASIC プロテクニック, 情報科学出版社, 1990.

### 参考資料1 データ変換サブルーチン

```
10600 -----
10610          ファイル作成
10620 -----
10630 *FSAKU:CLS 3
10640 LOCATE 15,2:PRINT "ファイル作成条件の入力"
10650 GOSUB *FOP:CLS 3
10660 LOCATE 15,2:PRINT "ファイル作成条件の入力"
10670 LINE(0,50)-(620,330),6,B
10680 LOCATE 20,5:PRINT "ファイル名 ";F$
10690 LOCATE 20,7:INPUT "ファイルの追加 (Y/N)";A$:IF A$<>"Y" THEN 10710
10700 LOCATE 20,8:INPUT "追加ファイルNoは ";A$:TF=VAL(A$)
10710 LOCATE 20,7:INPUT "データの換算係数は ";K$:KE=VAL(K$)
10720 LOCATE 20,8:INPUT "データの追加数は ";K$:TU=VAL(K$):IF TU=0 THEN 10740
10730 LOCATE 20,9:INPUT "追加ファイルNoは ";K$:TN=VAL(K$)
10740 LINE(100,180)-(450,250),4,B
10750 LOCATE 20,12:PRINT "データの作成中です          N=":(TU+S)/2
10760 LOCATE 20,14:PRINT "しばらくお待ち下さい。"
10770 GOSUB *BF0:DA=INT((TU+S)/2+.5):PUT #1,DA
10780 IF TF>0 THEN RR=TF ELSE RR=1
10790 FOR R=RR TO 500
10800 LOCATE 45,14:PRINT "R=";R
10810 FOR P=1 TO 2
10820 H=H+1
10830 IF TU>0 AND H=TN THEN H=H-TU:TU=0:GOTO 10890
10840 FOR I=1 TO 8:DA(P,I)=DX(H,I):NEXT I
10850 FOR I=9 TO 29
10860 IF DX(H,I)=LACK THEN DA(P,I)=DX(H,I):GOTO 10880
10870 DA(P,I)=DX(H,I)*KE
10880 NEXT I
10890 GOSUB *BF
10900 PUT #1,R
10910 IF H>S THEN CLOSE #1:RETURN
10920 NEXT P
10930 GOSUB *BF0
10940 NEXT R
```

参考資料2 ファイル合成サブルーチン

```

11460 '-----
11470 '       ファイルの合成
11480 '-----
11490 *FGOU:CLS 3
11500 LOCATE 15,2:PRINT "ファイル合成条件の入力"
11510 LINE(0,50)-(620,330),6,B
11520 LOCATE 20,7:INPUT "採取年月を修正しますか(Y/N)";YMS:IF YMS<>"Y" AND YMS<>"N" TH
EN 11520
11530 LOCATE 20,8:INPUT "合成する項目は(1~10=1,11~21=2)";GS:GK=VAL(GS):IF GK<>1 AND
GK<>2 THEN 11530
11540 LINE(100,180)-(450,250),4,B
11550 LOCATE 20,12:PRINT "データの合成中です"
11560 LOCATE 20,14:PRINT "しばらくお待ち下さい。"
11570 IF YMS="Y" THEN GOSUB *YMSHU
11580 LOCATE 20,16:PRINT "年月の修正は終わりました。"
11590 GOSUB *SOTO
11600 FOR I=1 TO SS
11610   FOR J=1 TO 29
11620     DX(I,J)=DZ(I,J)
11630   NEXT J
11640 NEXT I
11650 S=SS
11660 RETURN
11670 *YMSHU '-----
11680 FOR I=1 TO S
11690   IF DX(I,8)<15 THEN DX(I,7)=DX(I,7)-1:IF DX(I,7)=0 THEN DX(I,6)=DX(I,6)-1
:DX(I,7)=12
11700   DX(I,8)=0
11710 NEXT I
11720 RETURN
11730 *SOTO '-----
11740 SS=0
11750 FOR I=1 TO S
11760   IF I=1 THEN GOSUB *INPU:TITEN=DX(I,5):GOTO 11780
11770   IF DX(I,5)=TITEN THEN GOSUB *INPU
11780 NEXT I
11790 LOCATE 20,18:PRINT "第一番目地点のファイル作成は終わりました N=";SS
11800 FOR J=1 TO SS
11810   GOSUB *TUIN2
11820   FOR I=1 TO S
11830     IF J=1 THEN IF DZ(I,5)<>DX(I,5) THEN TITEN=DX(I,5) ELSE 11860
11840     IF DX(I,5)<>TITEN THEN 11860
11850     IF DZ(J,6)=DX(I,6) THEN IF DZ(J,7)=DX(I,7) THEN GOSUB *TUIN1:GOTO 11860
11860   NEXT I
11870 NEXT J
11880 RETURN
11890 *INPU '-----
11900 SS=SS+1
11910 FOR II=1 TO 30
11920   DZ(SS,II)=DX(I,II)
11930 NEXT II
11940 RETURN
11950 *TUIN1 '-----
11960 LOCATE 20,19:PRINT "第二番地点のデータ書き込みは終わりました。";J
11970 IF GK=2 THEN 12020
11980 FOR JJ=20 TO 29
11990   DZ(J,JJ)=DX(I,JJ-11) 'MAE COPY
12000 NEXT JJ
12010 RETURN
12020 FOR JJ=9 TO 18
12030   DZ(J,JJ)=DX(I,JJ+11) 'ATO COPY
12040 NEXT JJ
12050 RETURN
12060 *TUIN2 '-----
12070 IF GK=2 THEN 12120
12080 FOR JJ=20 TO 29
12090   DZ(J,JJ)=0 'MAE COPY
12100 NEXT JJ
12110 RETURN
12120 FOR JJ=9 TO 18
12130   DZ(J,JJ)=0 'ATO COPY
12140 NEXT JJ
12150 RETURN

```



---

愛媛県公害技術センター所報  
第 11 号

平成 3 年 3 月発行

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

印刷所 仙波印刷所  
松山市西垣生町869-4番地  
電話 松山 (0899) 73-1673

---