

県内スギ・ヒノキ花粉の飛散予測および情報提供に関する研究

高岡 大・酒井忠彰・泉 宏導・花粉情報提供システム推進チーム

Survey Research on Forecast and Information of Airborne *Cryptomeria Japonica*
and *Cupressaceae* Pollen in Fukui Prefecture

Dai TAKAOKA, Tadaaki SAKAI, Hiromichi IZUMI, Propulsive team of Pollen Information

当センターでは平成 19 年から福井および敦賀においてスギ・ヒノキ花粉飛散数の観測を行っており、本研究ではこれらのデータを活用して花粉の飛散開始日や翌日の日飛散数予測を実施した。飛散開始日の予測は日最高気温の累積値を過去の測定データと照らし合わせて行い、差はすべて 2 日以内に収まり、予測精度は非常に高かった。日飛散数については、シグモイド関数を基にベースとなる数値を算出し、予測日の気象条件を数値化した式で補正して予測した。日飛散数予測のシーズンを通した適中率は 60%~83%とあまり高いとは言えず、現行の手法では正確な予測情報を得ることは難しいと考えられる。

1. はじめに

スギ花粉症については、1963 年に堀口らにより最初の報告¹⁾がなされて以来、様々な調査研究が実施されているが、ヒノキ花粉やブタクサ花粉なども含めた花粉症全般の患者数は未だに多く、社会的、経済的な損失が大きいことからその有用な対処法が強く望まれている。

また、スギおよびヒノキ樹は、優れた加工性や成長速度の早さから戦災復興や経済発展の需要に伴い人工林の造成面積が拡大した経緯があり、現在花粉症患者数増加の要因となっている。スギは樹齢が 25 年を越える頃から花粉量が増加し、30 年を超えると花粉の多い状態がその後数十年に渡って継続すると言われている²⁾。

そこで本研究では、当センターが平成 19 年から実施しているスギ・ヒノキ花粉飛散数の測定データを基に花粉の飛散開始日や翌日の日飛散数予測の情報を提供し、以って県民の健康維持に資することを目的とした。

2. 方法

2. 1 花粉飛散観測

2. 1. 1 捕集装置

自動交換機構を備えたダラム型（重力法）捕集装置にワセリンを塗布した格子線入りスライドガラスを装着し、自然落下してくる花粉を捕集した。装置の外観および機構の概要を図 1 に示す。

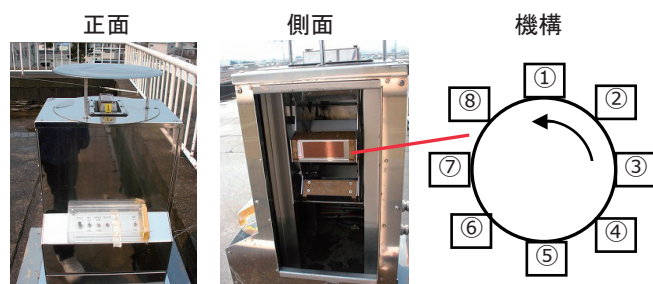


図 1 花粉捕集装置の外観および機構の概要

2. 1. 2 調査地点

花粉の捕集は、嶺北地域として衛生環境研究センター屋上（以下「福井地点」という。）、嶺南地域として二州健康福祉センター屋上（以下「敦賀地点」という。）の 2 地点で実施した（図 2）。なお、敦賀地点の調査については二州健康福祉センター衛生検査課が実施した。



図 2 調査地点

2. 1. 3 調査期間

調査実施期間は、平成 19 年から 27 年までの毎年 1 月下旬～ヒノキ花粉の飛散終了日までとし、1 日の捕集時間は午前 9 時～翌日午前 9 時までの 24 時間とした。

2. 1. 4 飛散数測定

捕集した花粉は、0.1%ゲシチアナバイオレットエタノール溶液で染色し、光学顕微鏡（OLYMPUS BX41）で個数を計測した（図 3）。検鏡においては、スライドガラス上の 18mm 四方（3.24cm²）に付着している花粉を、スギ・ヒノキ・その他に分類して計測し、1cm² あたりの数値に換算した（花粉飛散数＝計測数／3.24cm²）。

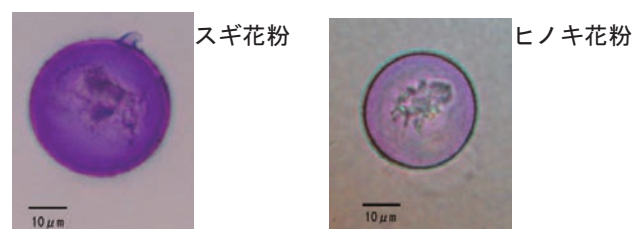


図 3 スギ・ヒノキ花粉の顕微鏡写真

2. 1. 5 用語の定義

花粉飛散に関する用語の定義は(財)日本アレルギー協会の「空中花粉測定および花粉情報標準化委員会(平成6年)合意事項」に基づく(表1)。

表1 用語の定義

飛散開始日	1 月 1 日より初めて連続 2 日以上 1 個/cm ² 以上を観測した最初の日	
飛散終了日	花粉飛散終了期に 3 日間連続して 0 個が続いた最初の日の前日	
花粉飛散 ランク基準 (4 段階)	少 な い	1 平方 cm あたり 10 個未満
	や や 多 い	同 10～30 個未満
	多 い	同 30～50 個未満
	非 常 に 多 い	同 50 個以上

2. 2 花粉飛散予測

2. 2. 1 飛散開始日

スギ花粉の飛散開始日については、先行研究で日最高気温の累積値との関連性が報告されている^{3, 4)}ことから、本研究でもこれに準拠することとした。

また特に気温積算の起点日については、各観測年の飛散開始日の日最高気温累積値を平均し、この気温に相当する各観測年の日と実際の飛散開始日の標準偏差が最小となる日に設定した⁵⁾。起点日設定方法の詳細を以下に示す。

変数 A: 起点日[day]
 変数 Bi: 各シーズン i における変数 A から飛散開始実測日までの最高気温累積値[°C]
 (i: 年度 H19～H26)
 変数 C: 変数 B₁₉～B₂₆ 平均値[°C]
 変数 Di: 各シーズン i における変数 A から飛散開始実測日までの日数[day]
 変数 Ei: 各シーズン i における変数 A からの最高気温累積値が変数 C を越えた日までの日数[day]
 変数 F: 変数[D₁₉－E₁₉]～変数[D₂₆－E₂₆]の標準偏差[day]
 操作: 変数 A を前年 11/1～翌年 2/9 (過去最も早い飛散開始日) の間で変えていき、変数 F が最小となったときの変数 A を最適な起点日とする

上記の手法で求められた最適な起点日と飛散開始日の日最高気温累積値は、それぞれ福井地点が 1/21, 258.9°C、敦賀地点が 1/16, 308.2°Cであった。

2. 2. 2 日飛散数

1日の間に飛散する花粉の数(日飛散数)の推移パターンは、日最高気温の累積値を変数とした次式のシグモイド関数(図4)で近似でき⁶⁾、予測日とその前日の相対比の差から基本日飛散数を求めた。

<シグモイド関数>

$$Y=100 \times \exp \{a \times \exp (b \times T)\}$$

Y: 花粉日飛散数の累積値の相対比(総飛散数比)

T: 日最高気温の累積値

(Tの起点日は2.2.1で求めた日)

a, b: 定数

<基本日飛散数算定式>

$$\text{基本日飛散数} = \{Y(T_1) - Y(T_2)\} \times M$$

T₁: 予測日までの日最高気温の累積値

T₂: 予測日前日までの日最高気温の累積値

M: シーズン中の総飛散数

なお、シグモイド関数中の定数 a, b については、予測の度に Microsoft Excel ソフトのソルバー機能を用いて最小二乗法により求めた。

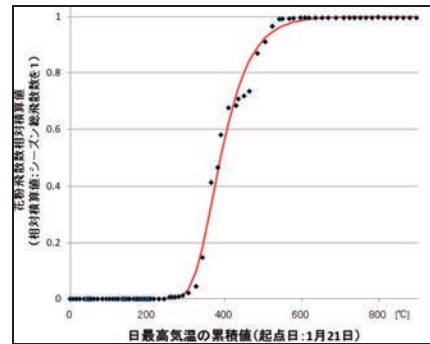


図4 H25 福井の花粉飛散数の相対比と累積気温の関係(シグモイド関数)

2. 2. 3 総飛散数

スギ・ヒノキそれぞれのシーズン中の総飛散数は、環境省が毎年公表している福井市の予測平年値比⁷⁾に福井地点または敦賀地点の平年値を乗じて求めた。

ただし、日最高気温の累積値が相対比 50% 推定値を越えた時点で、その時までの花粉日飛散数の累積値(実測値)の2倍量を総飛散数とした。なお 50% 推定値は、平成 19 年から 26 年までの 2.2.1 で求めた起点日から花粉日飛散数の累積値の相対比が 50% を超えた日までの日最高気温の累積値の平均から求めた。

2. 2. 4 補正式

日々の花粉飛散数は天気が良い暖かい日に多くなるとされており^{6, 8)}、またスギ林の分布と風向も影響することが分かっている⁵⁾。このことから、2.2.2 で求めた基本日飛散数を予測日の気象条件等で補正する式を求めた。補正式の導出に当たっては、日飛散数の実測値と予測値の相対比(次式)と降雨の有無、降水量、風向、風速、日照時間を重回帰解析して求めた。

なお、補正式はスギ花粉についてのみ導出し、ヒノキ花粉については飛散数が比較的少ないことと、重回帰解析によって相関が高い式が得られなかったことから補正を行わないこととした。

<実測値と予測値の相対比>

$$\text{相対比} = (\text{実測値} - \text{予測値}) / \text{予測値}$$

<補正式>

$$(\text{福井地点}) = -0.6862 \times X_1 + 0.1656 \times X_2$$

$$-0.7473 \times X_3 + 0.179$$

X₁: 降雨の有無(0.5mm以上の降雨ありで1、なしで0)

X₂: 平均風速(予測日の午前9時～翌日午前0時)

X₃: 北風頻度(予測日の午前9時～翌日午前0時)

$$(\text{敦賀地点}) = 0.0548 \times X_1 + 0.6234 \times X_2$$

$$-0.2652 \times X_3 - 0.3083$$

X₁: 日照時間

X₂: 南風頻度

X₃: 降雨の有無

※福井地点および敦賀地点いずれも係数は平成 19 年～25 年までのデータを基準としている。

2. 2. 5 気象データの取得

予測に必要な日最高気温や翌日の気象条件等のデータは気象庁のホームページ⁹⁾から取得した。特に翌日の気象予測は、予測日前日の午後5時時点での地域時系列予報を

参考とした。

また、補正式を導出する際に用いた風向・風速のデータは、大気汚染常時監視測定局のセンター局および敦賀局での測定値とした。

2. 3 花粉情報の提供

2.2 で求めた花粉飛散予測の情報は、当センターのホームページに特設ページを設け、県民に公開した。図 5 にそのトップページを示す。

また、当該ホームページでは予測情報の他に、過去の実測値や花粉に関する基礎知識、花粉症の予防法に関する情報等を併せて掲載した。

なお、日飛散数の予測情報はスギ・ヒノキ花粉の合計値とした。



図 5 花粉情報ホームページ

3. 結果

3. 1 花粉飛散観測結果

福井地点および敦賀地点における平成 19 年から 27 年までの花粉飛散の観測結果を表 2 に示す。また特にスギおよびヒノキ花粉のシーズンごとの総飛散数の推移を図 6 に示す。

福井地点のスギ花粉飛散数は平成 21, 23, 25 年の奇数年に 5,000 個/cm² を超え、平成 22, 24, 26 年の偶数年には 800 個/cm² 未満となっており、飛散数が多い年と少ない年を交互に繰り返す表年裏年の関係¹⁰⁾が見られた。ただし、平成 19, 20, 27 年のように必ずしもこのような隔年変動に適合しない年も見られた。

またヒノキ花粉についてはスギ花粉に比べて飛散数のものが少ないことから、隔年変動の明瞭な傾向は確認できなかった。

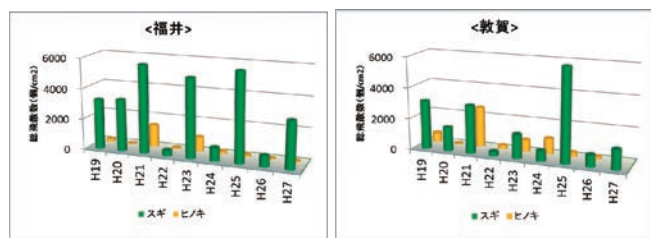


図 6 総飛散数の推移

3. 2 花粉飛散予測結果

3. 2. 1 飛散開始日

福井地点と敦賀地点それぞれについて、平成 25 年から 27 年のスギ花粉飛散開始日を予測した結果を表 3 に示す。

予測日と実測日の差はすべて 2 日以内に収まっており、予測精度は非常に高かった。

表 3 スギ花粉飛散開始日の予測と実測

シーズン	福井地点		敦賀地点	
	予測	実測	予測	実測
H25	2/27	2/28	2/27	2/27
H26	2/27	2/26	2/26	2/25
H27	2/24	2/23	2/23	2/25

3. 2. 2 日飛散数

福井地点および敦賀地点における平成 25 年から 27 年までの日飛散数の予測結果を表 4 に示す。また、概要としてシーズンを通じた予測の適中率を表 5 に示す。

平成 25 年は福井地点、敦賀地点ともに 76～83%と適中率は比較的高かったが、平成 26, 27 年の適中率は 60～71%と低かった。

花粉飛散ランク基準では、「やや多い」および「多い」と予測した場合の適中率が低く、これらの出現頻度が高い程、シーズン通しての適中率が低くなる傾向が見られた(表 5, 6)。「やや多い」および「多い」の出現頻度が高かったのは、総飛散数が平年値以下である平成 26, 27 年であったことから、総飛散数の少ない年には適中率が低くなると言える。

また、総飛散数の予測値を算出する際に用いた環境省の予測値と実測値の差が大きい程、予測の適中率は低下する傾向にあった(表 5, 7)。

今回用いた予測手法では、90%以上の高い精度を得ることは困難であると考えられ、特に総飛散数が平年値以下のシーズンへの対応に問題があると考えられる。

表 5 日飛散数予測の適中率と総飛散数

シーズン	適中率		総飛散数[個 / cm ²]	
	福井地点	敦賀地点	福井地点	敦賀地点
H25	76 %	83 %	5,916	6,902
H26	60 %	71 %	832	984
H27	66 %	71 %	3,147	1,520
H19-27 平均	—	—	3,503	2,771

表 6 花粉飛散ランク基準ごとの予測適中率

シーズン	適中率 (予測回数)			
	少ない	やや多い	多い	非常に多い
H25	93 % (43 回)	30 % (10 回)	50 % (2 回)	80 % (25 回)
H26	89 % (56 回)	28 % (18 回)	27 % (11 回)	0 % (3 回)
H27	87 % (57 回)	26 % (19 回)	50 % (6 回)	50 % (10 回)

表 7 環境省のスギ・ヒノキ総飛散数予測値と実測値 (福井地点)

シーズン	環境省予測値 [個 / cm ²]	実測値 [個 / cm ²]	差の割合
H25	7,070	5,916	19.5 %
H26	3,290	832	295.4 %
H27	5,676	3,147	80.4 %

4. まとめ

平成 19 年から 27 年まで福井地点および敦賀地点においてスギ・ヒノキ花粉の飛散数を観測し、これらのデータを用いて平成 25 年から 27 年の 3 年間、飛散開始日と日飛散数の予測を行い、その情報をホームページで県民に提供

した。

予測の結果は、飛散開始日については精度が非常に高かったが、日飛散数については高いとは言えず、現行の手法では正確な予測情報を得ることは難しいと考えられる。

謝辞

花粉飛散数の測定にご協力いただきました、二州健康福祉センター衛生検査課に深謝いたします。

参考文献

- 1) 堀口申作：栃木県日光地方におけるスギ花粉症 Japanese Cedar Pollinosis の発見, アレルギー **13**(5), 370 (1964)
- 2) 新田裕史：我が国における花粉症対策の展望, 科学技術動向(Science & Technology Trends) **59**, 11-18 (2006)
- 3) 安田京：降雪地帯におけるスギ花粉飛散状況とその予測－弘前市における検討－, 日本耳鼻咽喉科学会会報 **106**(2), 135-142 (2003)
- 4) 松原篤：降雪地域におけるスギ花粉飛散開始日の予測, 耳鼻と臨床 **51**(3), 220-225 (2005)
- 5) 酒井忠彰：福井県におけるスギ・ヒノキ花粉の飛散観測, 日本海地域の自然と環境(Science & Technology Trends) **20**, 49-54 (2013)
- 6) 関子光太郎：気象予報を用いたスギ花粉の日飛散量予測, 富山県林業技術センタ-研究報告 **15**, 25-32 (2002)
- 7) 環境省ホームページ：花粉情報サイトより
<http://www.env.go.jp/chemi/anzen/kafun/>
- 8) 環境省：花粉症環境保健マニュアル－2014年1月改訂版－
- 9) 気象庁ホームページ：過去の気象データ検索より
<http://www.data.jma.go.jp/obd/stats/etrn/index.php>
- 10) 高橋祐一：気象変動がスギ花粉飛散数に及ぼす影響の予測, 日本花粉学会第37回大会講演要旨集 34 (1996)

表 2 花粉飛散観測結果 (H19～H27)

スギ花粉
福井地点

	H19	H20	H21	H22	H23	H24	H25	H26	H27
測定開始日	1月25日	1月24日	1月26日	2月1日	2月14日	1月30日	1月28日	1月27日	1月26日
花粉初観測日	2月16日	2月16日	2月10日	2月2日	2月14日	2月12日	1月31日	1月30日	2月7日
花粉飛散開始日	2月16日	3月7日	2月14日	2月23日	2月25日	3月6日	2月28日	2月26日	2月23日
飛散ピーク日	3月2日	3月18日	3月5日	3月8日	3月20日	3月29日	3月9日	3月17日	3月17日
花粉飛散終了日	4月15日	4月9日	4月5日	3月31日	5月11日	4月28日	4月15日	4月26日	4月24日
飛散期間[日]	59	34	51	37	76	53	47	60	63
花粉総飛散数 [個/cm ²]	3,245	3,363	5,736	388	5,138	903.3	5,793.3	751.7	3,050.2
H19～27の平均値	3,152.1								

敦賀地点

	H19	H20	H21	H22	H23	H24	H25	H26	H27
測定開始日	1月25日	1月24日	1月26日	1月29日	2月7日	1月30日	1月28日	1月27日	1月26日
花粉初観測日	2月6日	1月24日	1月29日	2月21日	2月20日	2月17日	1月30日	1月29日	2月11日
花粉飛散開始日	2月9日	3月7日	2月11日	2月24日	2月25日	3月6日	2月27日	2月25日	2月25日
飛散ピーク日	3月2日	3月13日	3月5日	3月8日	3月13日	3月16日	3月9日	3月17日	3月17日
花粉飛散終了日	4月12日	4月15日	4月15日	3月26日	5月7日	4月25日	5月2日	4月21日	4月16日
飛散期間[日]	63	40	64	31	72	54	65	56	51
花粉総飛散数 [個/cm ²]	3,123	1,517	3,089	297	1,556	704.7	6,619.7	789.3	1,299.1
H19～27の平均値	2,110.5								

ヒノキ花粉
福井地点

	H19	H20	H21	H22	H23	H24	H25	H26	H27
花粉初観測日	4月6日	3月27日	3月19日	3月19日	3月29日	3月29日	2月27日	3月21日	3月6日
花粉飛散開始日	4月6日	3月下旬	3月19日	4月5日	3月29日	4月2日	3月21日	3月24日	3月21日
飛散ピーク日	4月6日	5月1日	4月10日	5月5日	4月14日	4月12日	4月9日	3月29日	4月4日
花粉飛散終了日	4月22日	5月1日	4月23日	5月10日	5月15日	5月1日	4月30日	4月26日	4月24日
飛散期間[日]	17	-	36	36	48	30	41	34	35
花粉総飛散数 [個/cm ²]	182	45	1,414	82	972	184	122.8	80.1	96.6
H19～27の平均値	353.2								

敦賀地点

	H19	H20	H21	H22	H23	H24	H25	H26	H27
花粉初観測日	2月22日	3月13日	3月23日	3月18日	3月23日	3月27日	2月8日	3月24日	3月8日
花粉飛散開始日	3月28日	3月20日	3月23日	4月18日	4月1日	3月27日	4月3日	3月24日	3月21日
飛散ピーク日	4月20日	4月13日	4月11日	4月19日	4月15日	4月15日	4月5日	3月24日	4月12日
花粉飛散終了日	5月15日	5月4日	4月30日	5月13日	5月9日	5月5日	4月29日	4月30日	5月3日
飛散期間[日]	49	46	39	26	39	40	27	38	44
花粉総飛散数 [個/cm ²]	584	36	2,578	247	781	1020.2	282.4	195.1	220.6
H19～27の平均値	660.5								

表4 花粉日飛散数予測結果 (H25～H27)

適中

H25

月日	福井地点	敦賀地点
2月27日	-	少ない
2月28日	少ない	少ない
3月1日	少ない	少ない
3月2日	少ない	少ない
3月5日	やや多い	多い
3月6日	非常に多い	非常に多い
3月7日	非常に多い	非常に多い
3月8日	多い	非常に多い
3月9日	非常に多い	非常に多い
3月12日	非常に多い	非常に多い
3月13日	非常に多い	非常に多い
3月14日	非常に多い	非常に多い
3月15日	非常に多い	非常に多い
3月16日	非常に多い	非常に多い
3月19日	非常に多い	非常に多い
3月20日	非常に多い	非常に多い
3月22日	非常に多い	非常に多い
3月23日	非常に多い	非常に多い
3月26日	やや多い	やや多い
3月27日	やや多い	やや多い
3月28日	少ない	やや多い
3月29日	やや多い	やや多い
3月30日	やや多い	やや多い
4月2日	少ない	少ない
4月3日	少ない	少ない
4月4日	少ない	少ない
4月5日	少ない	少ない
4月6日	少ない	少ない
4月9日	少ない	少ない
4月10日	少ない	少ない
4月11日	少ない	少ない
4月12日	少ない	少ない
4月13日	少ない	少ない
4月16日	少ない	少ない
4月17日	-	少ない
4月18日	-	少ない
4月19日	-	少ない
4月20日	-	少ない
4月21日	-	少ない
4月22日	-	少ない
4月23日	-	少ない
4月24日	-	少ない
4月25日	-	少ない
4月26日	-	少ない
4月27日	-	少ない
4月28日	-	少ない
4月29日	-	少ない
適中率	76%	83%

H26

月日	福井地点	敦賀地点
2月25日	-	少ない
2月26日	少ない	少ない
2月27日	少ない	少ない
2月28日	少ない	少ない
3月1日	少ない	少ない
3月4日	少ない	やや多い
3月5日	少ない	少ない
3月6日	少ない	少ない
3月7日	少ない	少ない
3月8日	少ない	少ない
3月11日	やや多い	多い
3月12日	多い	非常に多い
3月13日	やや多い	多い
3月14日	少ない	やや多い
3月15日	多い	多い
3月18日	多い	多い
3月19日	多い	非常に多い
3月20日	やや多い	やや多い
3月21日	やや多い	少ない
3月25日	非常に多い	多い
3月26日	やや多い	やや多い
3月27日	やや多い	やや多い
3月28日	多い	多い
3月29日	やや多い	やや多い
4月1日	やや多い	やや多い
4月2日	やや多い	やや多い
4月3日	少ない	やや多い
4月4日	少ない	少ない
4月5日	少ない	少ない
4月8日	少ない	少ない
4月9日	少ない	少ない
4月10日	少ない	少ない
4月11日	少ない	少ない
4月12日	少ない	少ない
4月15日	少ない	少ない
4月16日	少ない	少ない
4月17日	少ない	少ない
4月18日	少ない	少ない
4月19日	少ない	少ない
4月22日	少ない	少ない
4月23日	少ない	少ない
4月24日	少ない	少ない
4月25日	少ない	少ない
4月26日	少ない	少ない
4月29日	-	少ない
適中率	60%	71%

H27

月日	福井地点	敦賀地点
2月24日	少ない	-
2月25日	少ない	少ない
2月26日	少ない	少ない
2月27日	少ない	少ない
2月28日	少ない	少ない
3月3日	少ない	少ない
3月4日	少ない	少ない
3月5日	少ない	少ない
3月6日	少ない	やや多い
3月7日	少ない	多い
3月10日	やや多い	やや多い
3月11日	やや多い	少ない
3月12日	やや多い	やや多い
3月13日	多い	多い
3月14日	非常に多い	やや多い
3月17日	非常に多い	非常に多い
3月18日	非常に多い	非常に多い
3月19日	非常に多い	やや多い
3月20日	非常に多い	多い
3月21日	非常に多い	多い
3月24日	やや多い	少ない
3月25日	やや多い	少ない
3月26日	非常に多い	やや多い
3月27日	非常に多い	やや多い
3月28日	多い	やや多い
3月31日	やや多い	やや多い
4月1日	少ない	やや多い
4月2日	やや多い	やや多い
4月3日	少ない	少ない
4月4日	少ない	やや多い
4月7日	少ない	少ない
4月8日	少ない	少ない
4月9日	少ない	少ない
4月10日	少ない	少ない
4月11日	少ない	少ない
4月14日	少ない	少ない
4月15日	少ない	少ない
4月16日	少ない	少ない
4月17日	少ない	少ない
4月18日	少ない	少ない
4月21日	少ない	少ない
4月22日	少ない	少ない
4月23日	少ない	少ない
4月24日	少ない	少ない
4月25日	-	少ない
4月28日	-	少ない
4月29日	-	少ない
5月1日	-	少ない
5月2日	-	少ない
適中率	66%	71%

浴槽水の過マンガン酸カリウム消費量に関する検討

酒井康行・山岸 浩・青木保憲

Investigation on the potassium permanganate consumption of bath water

Yasuyuki SAKAI, Hiroshi YAMAGISHI, Yasunori AOKI

過マンガン酸カリウム消費量の測定への影響について、県内温泉の泉質および成分量を調査したところ、影響を与え得る共存成分は塩化物イオンだけであることがわかった。そこで、塩化物イオンのマスキング法を調べると、各試験法（JIS、上水試験方法）で使用するマスキング剤の種類、添加方法および添加量が異なっていたので、これらの比較検討をおこなった。

県内入浴施設における実態調査では、対象とした 135 検体のほとんどは基準値以下であり、1 検体だけが超過したが、これは薬湯であるため適用が除外されるものであった。

また、過マンガン酸カリウム消費量と紫外線吸光度および TOC を併行測定して相関性を調べたところ、紫外線吸光度との間には高い相関性が認められたが、TOC との間には認められなかった。その原因として、炭酸水素塩泉の場合には TOC が著しく高値となることが確認され、酸性化通気処理が正しくおこなわれなかったことがその原因と考えられた。

1. はじめに

本県では、福井県公衆浴場基準条例施行規則および旅館業法施行細則によって入浴施設における浴槽水の水質基準を濁度、過マンガン酸カリウム消費量、大腸菌群数およびレジオネラ属菌数について定め、監視指導の一環として行政検査を実施している。これまで、福井健康福祉センターが検査を担当してきたが、今般の組織改編によって福井健康福祉センターの担当部署が廃止され、平成 24 年度から検査業務が当所へ移管されることになったので、検査体制を整備する必要があった。

過マンガン酸カリウム消費量は、有機物の汚染指標として用いられるものであり、その検査にあたっては、「公衆浴場における衛生等管理要領等の改正について（平成 15 年 2 月 14 日付け厚生労働省健康局長通知）」の別添 1「公衆浴場における水質基準等に関する指針」によって、「水質基準に関する省令（平成 4 年厚生省令第 69 号）」で定める検査方法」によることが示されている。その概要は、硫酸酸性下で過マンガン酸カリウムを加え煮沸して被酸化性物質を酸化した後、当量のシュウ酸ナトリウムを加えて未反応の過マンガン酸カリウムを消失させ、過マンガン酸カリウムで逆滴定するものである。酸化還元反応を利用した本法は、水道水のように有機物以外の被酸化性物質をほとんど含まない試料に対しては、良好な結果が得られるが、海水や工場排水のように多量に含む試料に対しては、妨害を受けることが知られており^{1,2,3)}、浴槽水に適用した場合にも同様の影響が懸念された。

そこで、当所における浴槽水の検査体制を整備することを目的として、県内の温泉成分を調査したうえで、測定に影響のある物質を除去（マスキング）して過マンガン酸カリウム消費量を測定する方法について検討をおこなった。また、確立した試験法を用いて、県内入浴施設における実態調査をおこなったので、その結果を報告する。なお、実態調査に際しては、過マンガン酸カリウム消費量と同じく有機物の汚染指標として用いられる紫外線吸光度および TOC（全有機炭素）を併行測定し、両者の比較検討もおこなったので併せて報告する。

2. 実験方法

2. 1 分析方法

2. 1. 1 過マンガン酸カリウム消費量

水質基準に関する省令（平成 15 年厚生労働省令第 101 号）によって、水質基準に関する省令（平成 4 年厚生省令第 69 号）は廃止され、水質基準から過マンガン酸カリウム消費量は除外された。したがって、過マンガン酸カリウム消費量の分析方法は、「水質基準に関する省令の制定及び水道法施行規則の一部改正等並びに水道水質管理における留意事項について（平成 15 年 10 月 10 日付け厚生労働省健康局水道課長通知）」の別添 4「水質管理目標設定項目の検査方法」による。なお、上記の分析方法と公衆浴場における水質基準等に関する指針に規定していた水質基準に関する省令（平成 4 年厚生省令第 69 号）で定める検査方法は、同一分析方法であることを確認している。

2. 1. 2 紫外線吸光度

上水試験方法²⁾で定める検査方法による。

2. 1. 3 TOC

水質基準に関する省令（平成 15 年厚生労働省令第 101 号）で定める検査方法による。

2. 2 試薬等

2mmol/L 過マンガン酸カリウム及び 5mmol/L シュウ酸ナトリウムは、和光純薬製の容量分析用を使用した。硫酸、塩酸、硝酸銀、塩化ナトリウムおよびラクトース水和物は、和光純薬製の試薬特級を使用した。TOC 標準液は、和光純薬製の水質試験用フタル酸水素カリウム標準液を使用した。分析に使用した精製水は、アドバンテック製の CPW-200 で作成した。

2. 3 装置

塩分濃度計：（株）佐藤計量器製作所製 SK-5S II

イオンクロマトグラフ：日本ダイオネクス（株）製 DXi-500

TOC 計：（株）島津製作所製 TOC-V

pH メーター：（株）堀場製作所製 F-23

各装置の仕様または測定条件を表1～表3に示す。

表1 SK-5SⅡの仕様

測定方式	導電率測定法
測定範囲	0.01～5.0%
測定精度	±0.3 以内 (濃度範囲 0.00～2.0%) ±0.5 以内 (濃度範囲 2.0～5.0%)
分解能	0.01% (濃度範囲 0.01～0.09%) 0.1% (濃度範囲 0.1～5.0%)

表2 DXi-500の測定条件

カラム	陰イオン交換カラム (4mm i.d.×25cm)
カラム温度	35℃
検出器	電気伝導度検出器
流速	1.0mL/min
溶離液	35mmol/L KOH

表3 TOC-Vの測定条件

IC処理	酸化通気処理法
注入量	150μL
酸添加	2N HClを試料量の1.5%
燃焼温度	680℃
通気時間	1.5min
キャリア	空気

2. 4 実態調査の試料

県内の公衆浴場または旅館業法の許可を受けた施設等入浴施設における浴槽水135検体(平成25年67検体、平成26年68検体)を用いた。

3. 結果および考察

3. 1 県内温泉の温泉成分

過マンガン酸カリウム消費量の測定に影響を及ぼすには、共存成分が酸化・還元能を有し、かつ、多量に存在する必要がある。そこで、温泉法に基づく温泉成分表を利用して、試料中に含まれる成分量を明らかにしたうえで、それらの酸化・還元能を調べ、影響を及ぼす可能性があるかを評価した。

表4 県内温泉の泉質

泉質	温泉数	泉質	温泉数
塩化物泉	95	炭酸塩泉	19
単純温泉	21	放射能泉	8
硫酸塩泉	19	その他	9

調査結果を表4および図1に示す。福井県内では塩化物泉が56%と最も多く、以下、単純温泉12%、炭酸水素塩泉11%、硫酸塩泉11%、放射能泉5%と続いた。日本国内では塩化物泉27%、単純温泉26%、硫黄泉14%、炭酸水素塩泉8%、放射能泉8%、硫酸塩泉7%、鉄泉2%と報告⁴⁾されていることから、塩化物泉の割合が高いことが本県の温泉の特徴であるとわかった。温泉成分量については、陽イオンではアルカリ金属イオンとアルカリ土類金属イオンが、陰イオンでは塩化物イオン、炭酸水素イオン、硫酸イオンが多かった。特に、ナトリウムイオン(最大値6789mg/L、中央値434mg/L)と塩化物イオン(最大値

10650mg/L、中央値394mg/L)が圧倒的に多く含まれていた。

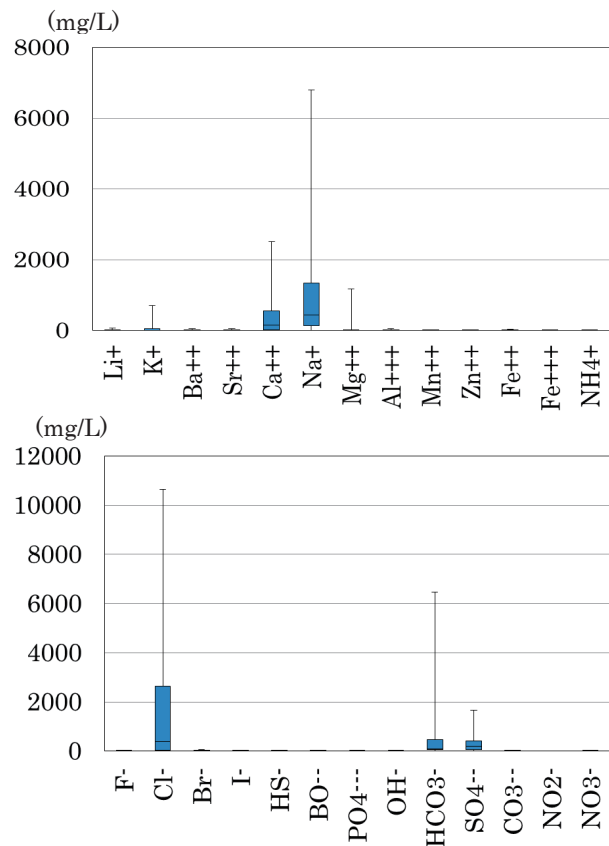


図1 県内温泉の温泉成分量(陽イオン、陰イオン)

成分量の多かった各イオンの酸化・還元能を調べたところ、塩化物イオンは還元性^{1,2,3)}を有することで正の妨害を与え、硫酸イオンは酸化性^{5,6,7)}を有することで負の妨害を与え得ることがわかった。ただし、温泉に含まれる硫酸イオンの量は、過マンガン酸カリウム消費量の測定過程で加える硫酸イオンの量と比べると十分に少ないことから、影響を及ぼす可能性は極めて低いと考えられた。よって、主たる妨害物質は塩化物イオンだけであると結論付けた。県内では、塩化物泉の割合が高いので注意が必要である。

なお、県内温泉では特に問題とはならなかったが、鉄(Ⅱ)イオン、亜硝酸塩および硫化物等も妨害を与えると報告³⁾されており、このほかにも塩化物イオンと同じハロゲン化物であるフッ化物イオン、臭化物イオン、ヨウ化物イオンは還元剤として、硝酸イオンは酸化剤として働くことが知られている^{5,6)}。したがって、試料の泉質または成分量によっては、妨害物質となることが想定されるので、これらの情報を把握しておくことは正確に過マンガン酸カリウム消費量を測定するうえで必須であることがわかった。

3. 2 塩化物イオンのマスキング

3. 2. 1 マスキングの方法

塩化物イオンのマスキング法の検討をおこなった。一般に、塩化物イオンの除去には塩化銀沈殿法、すなわち塩化物イオンに銀イオンを添加し、塩化銀として析出沈殿させることで試料中から除去する方法が用いられる。本法が採用されている各試験法(工場排水試験法JIS K0102(2013)

(以下、「JIS」¹⁾)、上水試験方法 2011 年版・理化学編(以下、「上水試験方法」²⁾)を見比べると、JIS では「200g/L の硝酸銀水溶液を当量よりも 5mL 過剰に加える。ただし、添加量が 10mL を超える場合には、硝酸銀水溶液(500g/L)に代えて当量よりも 2mL 過剰に加えるか、または硝酸銀粉末に代えて当量よりも 1g 過剰に加え、更に水 5mL を加える」ことを原則として、備考の記載により硫酸銀の使用も認めている。一方、上水試験方法では「100g/L の硝酸銀水溶液を当量加える」としており、両者の間で添加する銀塩の種類、添加方法および添加量に差異が見られたことから、これらについて検討をおこなった。

3. 2. 2 マスキング剤の種類

添加する銀塩では、硝酸銀と硫酸銀の 2 通りがあった。これまでに両者の比較検討は数多くなされており、伏脇ら⁸⁾は両者でほぼ同じ値が得られると報告しているが、手塚や鷹野ら^{9,10)}は硫酸銀を用いた場合に有意に測定値が低くなるとしている。一方、大森や山内^{11,12)}は硫酸銀ではなく、硝酸銀を用いた場合に優位に低くなると報告しており、その結果は様々である。ただし、これらの報告はいずれも試料の種類や試験方法等が僅かに異なっていることを考慮しなければならない。

ここでは、水溶性の違いから硝酸銀の方がマスキングに要する反応時間が短く、かつ、添加量を少量に抑えることができることとされていることから硝酸銀を用いた⁸⁾。

3. 2. 3 マスキング剤の添加方法

添加方法では、硝酸銀水溶液(100g/L、200g/L、500g/L)と硝酸銀粉末があった。水溶液であれば、ピペット等を用いて容易に添加することができ、均一化もしやすいので水溶液を採用した。水溶液の濃度については、県内温泉における塩化物イオン濃度が約 0~10g/L と広範囲であること、複数濃度の硝酸銀水溶液を用いると試験操作中に取り違える可能性があること等を考慮して、200g/L 硝酸銀水溶液のみを用いることとした。なお、塩化物イオンが多い試料では多量の硝酸銀水溶液を加えることになるので液量が増加して、過マンガン酸カリウム消費量の測定に影響を及ぼすことが懸念されたため、これらについて検討をおこなった。

精製水と塩化ナトリウム水溶液(0.5%、1.0%、1.5%)を用いて、それぞれの試料に含まれる塩化物イオンと当量の硝酸銀(200g/L : 0、7.5、15、22.5mL、500g/L : 3、6、9mL)を添加した後、過マンガン酸カリウム消費量を測定した。測定は、同一試料につき 4 回繰り返して行い、その平均値を算出した。その結果を図 2 に示す。

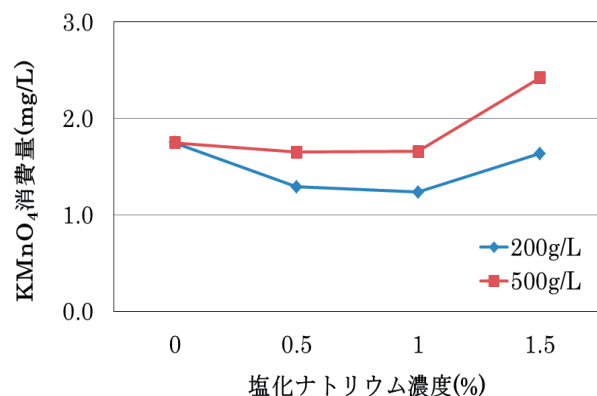


図 2 AgNO₃ 水溶液の濃度と KMnO₄ 消費量

図 2 では、200g/L 硝酸銀水溶液を用いた場合の測定値が有意に低いように見受けられたが、有意水準 5% で t 検定(表 5)を実施したところ、いずれの濃度でも硝酸銀水溶液の濃度による有意差はないと判定された。よって、検討した塩化物イオンの濃度範囲内においては、液量が増えることによる測定値への影響はないため、200g/L、500g/L のどちらも使用が可能と考えられた。

表 5 AgNO₃ 水溶液の濃度と KMnO₄ 消費量

n	NaCl 水溶液の濃度			
	0%	0.5%	1.0%	1.5%
(200g/L AgNO ₃)				
1	2.0	1.5	2.0	1.7
2	1.7	2.0	0.7	1.5
3	1.9	0.8	0.9	1.8
4	1.5	0.9	1.3	1.5
平均値	1.7	1.3	1.2	1.6
(500g/L AgNO ₃)				
1	2.0	1.6	1.7	2.0
2	1.7	1.4	2.0	2.2
3	1.9	1.4	1.3	2.4
4	1.5	2.2	1.6	3.1
平均値	1.7	1.7	1.7	2.4
p 値	—	0.48	0.41	0.07

3. 2. 4 マスキング剤の添加量

添加量では、塩化物イオンに対して当量、すなわち塩化物イオン 1g に対して硝酸銀 4.8g 加える場合と、当量にさらに一定過剰量を加える場合があった。硝酸銀は反応性が高いことから、当量で完全にマスキングできるとの見解が示されており⁸⁾、また、非常に高価な試薬でもあるので塩化物イオンの当量が適当と考えられた。

ただし、実際に測定する浴槽水検体の塩化物イオン量は不明であり、温泉成分表に基づく結果(図 1)を見ても、かなり幅があることが見て取れる。よって、実検体を処理する際には、塩化物イオンの定量が必須と考えられたので、これについて検討した。

塩化物イオンの定量には、一般にイオンクロマトグラフ法や滴定法が用いられるが、過マンガン酸カリウム消費量は当日検査が原則とされるため、塩化物イオンの定量には高い定量性と同時に迅速性が求められる。よって、イオンクロマトグラフ法や滴定法は不適と判断し、より迅速性の高い塩分濃度計((株)佐藤計量器製作所製の SK-5SII)の導入を試み、浴槽水を対象としてイオンクロマトグラフ法との比較検討をおこなった(図 3)。

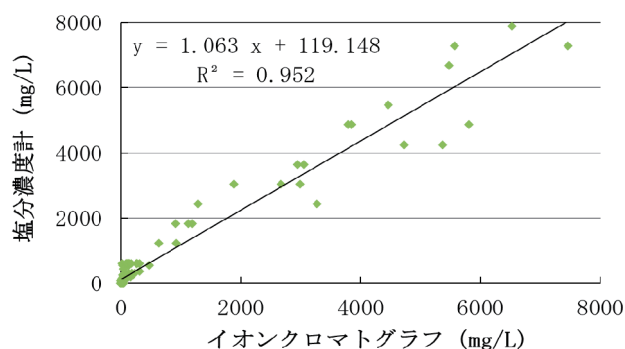


図 3 イオンクロマトグラフと塩分濃度計による Cl⁻ の測定値の比較

両者の測定結果から得られた回帰直線は、 $y = 1.063x + 119.148$ ($R^2 = 0.952$) であった。傾きがほぼ 1 を指し、かつ、相関係数も良好であったことから、定量性能は概ね十分であると考えられたが、両者の最大誤差は塩化物イオンとして $\pm 1,000\text{mg/L}$ 程度であり、検水 100mL に換算すると $\pm 100\text{mg}$ 程度に達した。上水試験法²⁾では塩化物イオンが約 30mg 以上存在すると測定に妨害が生じるとされていることから、このマイナス誤差は十分に妨害を与え得ることになる。よって、塩分濃度計が示す塩化物イオンの当量よりも硝酸銀を過剰に加える必要があると考えられ、塩化物イオン 100mg に対して硝酸銀 480mg が当量であり、すなわち 200g/L 硝酸銀水溶液 2.4mL に相当することから、その量は 200g/L 硝酸銀水溶液 3mL が適当と考えられた。

一方で、プラス誤差となる場合には、塩分濃度計が示したとおりに 200g/L 硝酸銀水溶液を加えたところで、既に最大 2.4mL 過剰であり、さらに補正用に 3mL 加えるとすると最大 5.4mL 過剰に加えることになる。そこで、硝酸銀を過剰量加えた場合の影響について検討をおこなった。表 6 には、精製水に段階的に 200g/L 硝酸銀水溶液 (0、1.5、5、 10mL) を加えて、過マンガン酸カリウム消費量を測定した結果を示す。

表 6 AgNO_3 水溶液の添加量と KMnO_4 消費量

n	200g/L 硝酸銀水溶液の添加量			
	0mL	1.5mL	5mL	10mL
1	0.38	0.36	0.46	0.48
2	0.28	0.25	0.30	0.41
3	0.30	0.37	0.38	0.39
p 値	—	0.85	0.09	0.01

200g/L 硝酸銀水溶液の添加量が増えるに連れて、過マンガン酸カリウム消費量の測定値も大きくなる傾向にあるが、t 検定 (有意水準 5%) では 5mL 程度までは有意差がないという判定であった。よって、最大プラス誤差 100mg を与える場合でも過剰量が 5.4mL に留まることから、その影響はないと考えられた。

以上の検討結果から、塩化物イオンに対して当量の硝酸銀でマスキングすることが適当と考えたが、塩分濃度計による塩化物イオンの定量に一定の誤差が認められるため、 200g/L 硝酸銀水溶液を塩分濃度計が示す塩化物イオンの当量にさらに 3mL 過剰に加えることとした (図 4)。なお、硝酸銀が有する触媒作用^{8,12)}に起因する測定値の差が出ないように、全ての試料に硝酸銀を添加する。

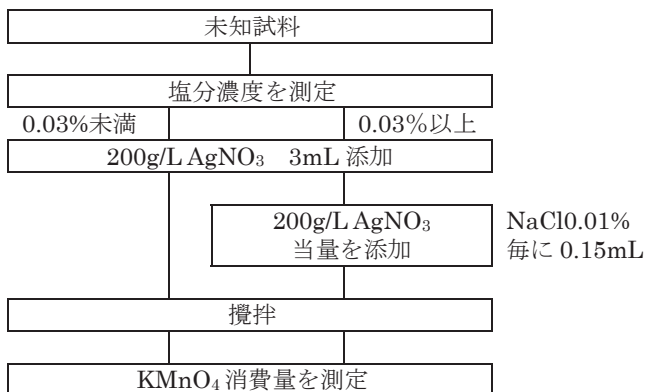


図 4 KMnO_4 消費量の測定フロー

3. 2. 5 マスキング法の検証

次に、確立した試験法が妥当であるか検証作業をおこなった。過マンガン酸カリウム消費量には標準品が存在しないので、「WHO 飲料水水質ガイドライン改訂等に対応する水道における化学物質等に関する研究」報告書¹³⁾を参考に、 5mg/L ラクトース水溶液と 0.75、1.5%の塩化ナトリウム含有 5mg/L ラクトース水溶液 (いずれも C として) をモデル試料とした。測定した結果を表 7 に示す。

表 7 ラクトース水溶液の過マンガン酸カリウム消費量

n	NaCl 濃度		
	0%	0.75%	1.5%
1	9.0	12.0	10.3
2	10.2	12.3	9.4
3	7.4	7.1	6.1
4	8.4	8.4	7.3
5	5.5	13.0	11.5
6	11.5	13.8	8.4
7	13.4	8.7	11.2
8	9.5	9.8	6.4
平均値(mg/L)	9.4	10.6	8.8
標準偏差	2.4	2.5	2.1
理論炭素濃度に対する割合(%)	187	212	176
p 値	—	0.34	0.71

得られた測定値から t 検定 (有意水準 5%) を実施したところ、塩化ナトリウムの濃度による有意差はないと判定された。よって、正の妨害を与える塩化物イオンを完全にマスキングできていると確認できたので、確立したマスキング法は有効であったと結論付けた。

ただし、得られた平均値の理論炭素濃度に対する割合は 176~212%となり、前出の報告書による報告値 115%と比較すると、やや高めに測定された。この点については、モデル試料の調製方法や使用した容器、加熱方法・加熱時間、滴定における終点の見極め等に因るところと考えているが、従来から過マンガン酸カリウム消費量は測定精度が悪いことが指摘されていることを鑑みると、やむを得ない程度であると考えている。

3. 3. 1 県内の実態調査

県内の入浴施設における浴槽水の実態調査をおこなった。先の検討で、過マンガン酸カリウム消費量の測定精度が悪いことが明らかとなったので、基準項目である過マンガン酸カリウム消費量と、別に紫外線吸光度および TOC を測定した。新たに測定する 2 項目は、有機物の汚染指標として用いられ、特に TOC は過マンガン酸カリウム消費量に代わって水道水質基準に採用された項目である。

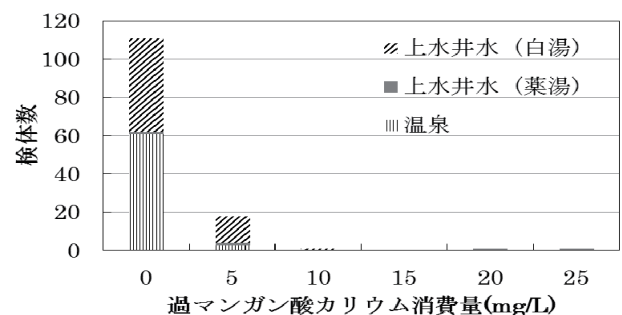


図 5 県内の入浴施設における KMnO_4 消費量

始めに過マンガン酸カリウム消費量の結果を図 5 に示す。測定した 135 検体の平均値は 3.17mg/L であり、最小値 0.05mg/L、最大値 40.59mg/L となった。基準値である 25mg/L を超過したのは 1 検体だけであったが、この検体は薬湯（レモンスカッシュ風呂）であったことから、基準の適用が除外されるものであった。

紫外線吸光度と相関関係では、回帰式が $y = 0.0044x + 0.0014$ ($R^2 = 0.7465$) (図 6) となり、高い相関性を示した。水種別ごとに見ると、上水・井水で $y = 0.0048x - 0.0027$ ($R^2 = 0.8695$)、温泉で $y = 0.0017x + 0.0104$ ($R^2 = 0.0729$) となり、上水・井水の方が良好な相関性を示す傾向にあることがわかった。この理由として、紫外線吸光度は、不飽和結合を有する有機物が示す紫外部（260nm）

の吸収を利用する方法²⁾であるから、水種別ごとに構成する有機物が異なっていたことが、その原因であると考えている。既報でも、紫外線吸光度を示さない場合でも過マンガン酸カリウム消費量が高いことがあることを認めている¹³⁾。

TOC との相関関係では、回帰式が $y = 0.324x + 2.795$ ($R^2 = 0.012$) となり、相関性が確認できなかった (図 7)。ただし、水種別に分けると、温泉では $y = -0.915x + 7.037$ ($R^2 = 0.009$) となったが、上水・井水では $y = 0.516x + 0.729$ ($R^2 = 0.627$) となり、相関性を示した。ここで、両者の測定値に著しく乖離が見られた検体（下図▲）を確認すると、いずれも炭酸水素塩泉であることがわかった。炭酸水素塩泉のデータを棄却した場合には、全体の回帰式

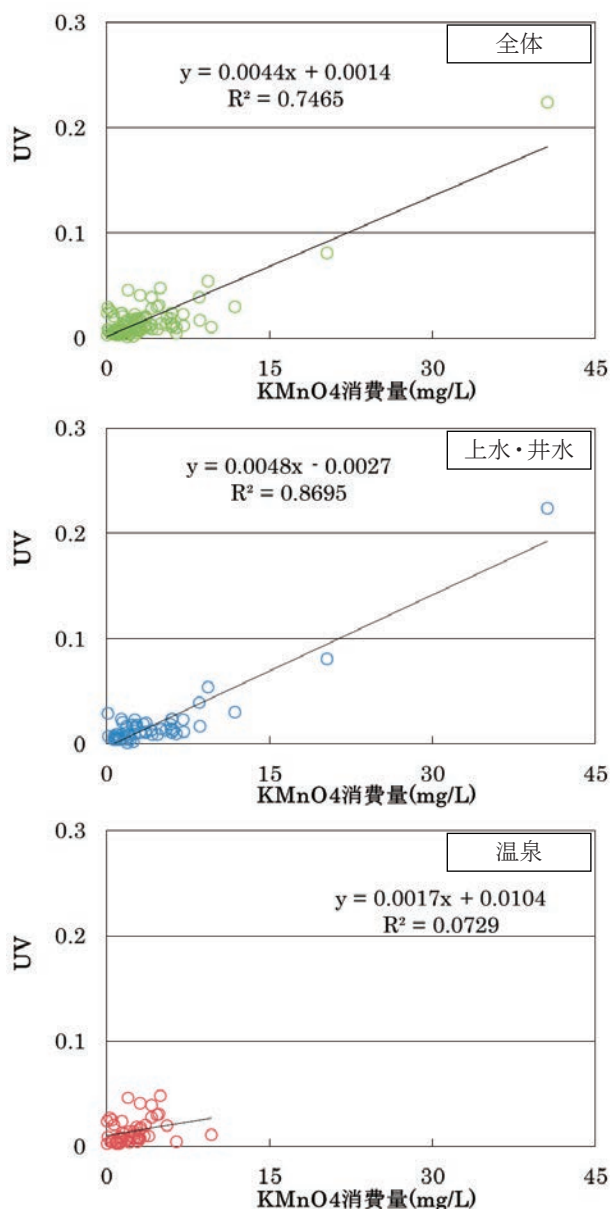


図 6 KMnO_4 消費量と E260

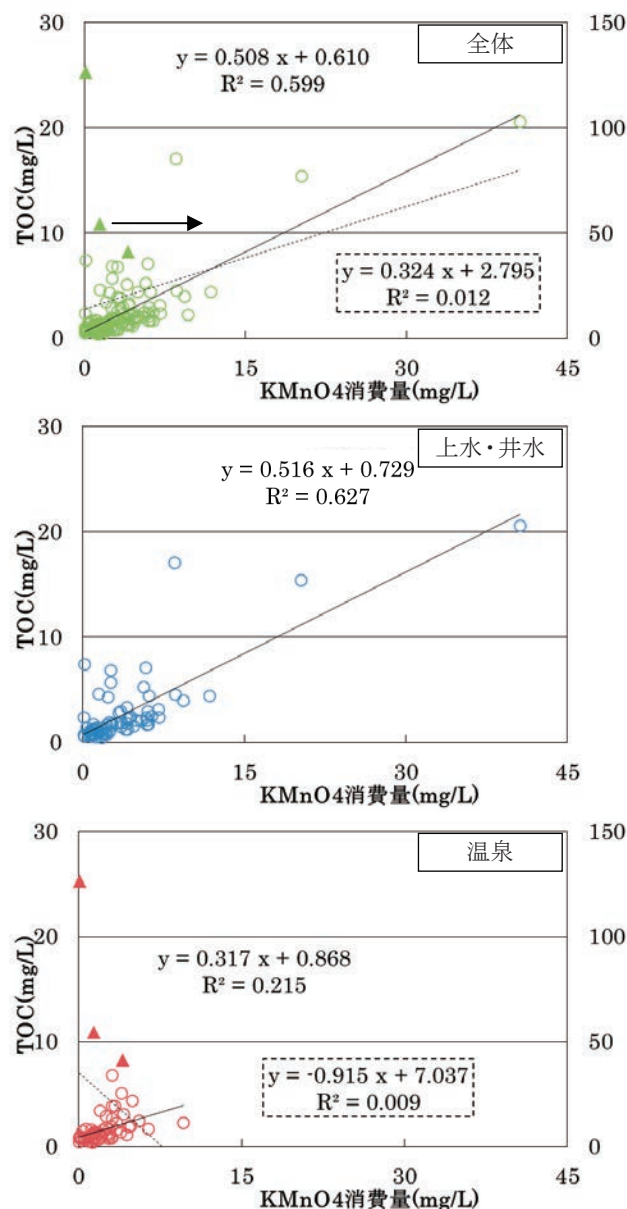


図 7 KMnO_4 消費量と TOC

図 7 中の▲は薬湯を指し、第 2 軸を使用。また、同図中の破線は薬湯（▲）を含めた全検体の回帰直線を指し、実線は薬湯（▲）を除いた検体の回帰直線を指す。

表 8 TOC と炭酸塩類・炭酸水素塩類

	ラク トース	NaHCO ₃		Na ₂ CO ₃		NaHCO ₃ －Na ₂ CO ₃	
		25mM	50mM	25mM	50mM	25mM	50mM
TOC	4.3	4.4	328.9	267.1	656.5	627.4	793.9
pH (酸添加前)	6.9	9.2	9.3	10.8	11.1	10.2	10.2
pH (酸添加後)	1.4	2.0	6.2	6.4	9.8	7.3	9.5

表 9 TOC と炭酸塩類・炭酸水素塩類(5 倍希釈後、再測定)

	ラク トース	NaHCO ₃		Na ₂ CO ₃		NaHCO ₃ －Na ₂ CO ₃	
		25mM	50mM	25mM	50mM	25mM	50mM
TOC	4.7	4.7	6.0	5.6	5.7	4.6	80.7
pH (酸添加前)	6.8	8.4	8.7	10.4	10.8	10.1	10.2
pH (酸添加後)	1.5	1.5	1.5	1.5	1.7	1.6	2.8

は $y = 0.508x + 0.610$ ($R^2 = 0.599$)、温泉の回帰式は $y = 0.317x + 0.868$ ($R^2 = 0.215$) と大幅に改善した。この理由については、次節で詳しく考察する。なお、棄却後の回帰式は、青沼ら¹⁴⁾や森脇ら¹⁵⁾によって報告された回帰式(上水を用いた浴槽水を対象として) $y = 0.473x + 0.041$ ($R^2 = 0.68$)、(上水、井水等を用いた浴槽水を対象として) $y = 0.51x + 0.52$ ($R^2 = 0.741$) と傾きがほぼ合致していることから、上水に限らず温泉・薬湯等でも十分に相関性を有していることが確認できた。

3. 3. 2 TOC 異常の考察

今回採用した TOC 測定法は、酸性化通気処理法と呼ばれる方法で、酸を少量加えた試料を通気処理することによって、試料中の無機炭素(IC)を二酸化炭素として追い出し、残った全炭素(TC)を完全燃焼させることで生成する二酸化炭素を赤外線ガス分析部にて検出する方法である($\text{TOC} = \text{TC} - \text{IC}$)²⁾。本来、炭酸水素イオンは酸性化通気処理($\text{CO}_3^{2-} + 2\text{H}^+ \rightarrow \text{HCO}_3^- + \text{H}^+ \rightarrow \text{H}_2\text{CO}_3 \rightarrow \text{H}_2\text{O} + \text{CO}_2 \uparrow$)によって、系外に除去されるべきところであるが、酸が不足したことによって上記の反応が進まず、系内に残存してしまったことが TOC が高値となった原因として疑われた。なお、JIS では、酸性化通気処理の際には、pH2 以下にしなければならないと規定している¹⁾。

そこで、5mg/L ラクトース水溶液と炭酸ナトリウムおよび炭酸水素ナトリウムを用いてモデル試料を作成し、pH および TOC の比較検討をおこなった(表 8)。いずれの検体も、塩酸添加前は中性～アルカリ性を示していたが、添加後は 5mg/L ラクトース溶液および 25mmol/L NaHCO₃ 含有 5mg/L ラクトース水溶液だけが酸性(1.4～2.0)を示し、その他の検体は中性～アルカリ性(6.2～9.8)を示したままであった。

TOC を測定したところ、添加後に酸性を示した 5mg/L ラクトース溶液および 25mmol/L NaHCO₃ 含有 5mg/L ラクトース水溶液は理論値 5mg/L に近い値が得られたが、その他の検体では良好な結果を得ることができなかった。この対策としては、塩酸の濃度を高くする、塩酸の添加量を増やす、あるいは試料を希釈すること等が有効と考えられたが、塩濃度を高くすることは測定機器へのダメージに繋がると考えられたので、希釈することを選択した。モデル試料において、5 倍希釈後に再測定した結果では

50mmol/L NaHCO₃－Na₂CO₃ 含有 5mg/L ラクトース水溶液を除いて良好な結果が得られることを確認している(表 9)。残る 50mmol/L NaHCO₃－Na₂CO₃ 含有 5mg/L ラクトース水溶液についても、緩衝作用が働いて pH が 2.0 以下とならなかったことが直接的な原因であると推察されるので、さらに希釈することで良好な結果が得られるものと考えている。

以上の検討結果から、炭酸イオンおよび炭酸水素イオンと pH、TOC の間には密接な関係があることが確認できた。実態調査で異常値を示した 3 検体については、いずれも検査時に pH を測定していなかったのも本理由が原因であると断言できないが、温泉分析表から原水となる温泉の pH は 6.5～7.8 の間であることを確認しており、また、鉱物中には炭酸イオンが広く存在することを踏まえると、緩衝作用が働いて塩酸添加後の pH が 2.0 以下にならなかった可能性は極めて高いと考えられる。

3. 3. 3 紫外線吸光度および TOC の活用

過マンガン酸カリウム消費量と、紫外線吸光度および TOC の間には一定の相関性が認められたので、次に活用方法を検討した。関係法令では、過マンガン酸カリウム消費量を規制物質としているため、紫外線吸光度や TOC に代えることはできない。ただし、測定精度が悪いので基準の適合判定を見誤るおそれがあり、また、有機物の種類によって消費される過マンガン酸カリウムの量が異なることから有機物量を正しく評価できていないことが問題視されている¹⁵⁾。よって、これらのリスクを軽減するために、過マンガン酸カリウム消費量で基準に近い値が検出された場合には、紫外線吸光度または TOC を併行測定し、これらの測定値をもって総合的に判定することとしたい。その際の各検査方法における閾値は、回帰直線を基に紫外線吸光度は 0.11、TOC は 13.6 が妥当と考えられた。

4. まとめ

過マンガン酸カリウム消費量の測定に影響を与え得る浴槽水の共存成分は、塩化物イオンだけであることを見出し、塩化物イオンのマスキングに使用するマスキング剤の種類、添加方法および添加量の検討をおこなった。

確立した試験法を用いて、ラク トース水溶液および塩化

ナトリウム含有ラクトース水溶液を測定したところ、両者の測定値に有意差が無かったことから、マスキング法の有効性を確認することができた。

県内入浴施設における浴槽水 135 検体を対象にした実態調査では、そのほとんどが基準値 25mg/L に対して低値（平均値 3.17mg/L）に収まったが、僅か 1 検体が基準値を超過した。ただし、薬湯であるため、基準の適用が除外されるものであった。

過マンガン酸カリウム消費量と紫外線吸光度との回帰式は $y = 0.0044x + 0.0014$ ($R^2 = 0.7465$) と良好な結果を示したが、TOC との回帰式は $y = 0.324x + 2.795$ ($R^2 = 0.012$) で、相関性を得ることができなかった。ただし、試料が炭酸水素塩泉である場合に限って測定値が著しく乖離することがわかり、当該データを棄却することによって $y = 0.508x + 0.610$ ($R^2 = 0.599$) と大幅に改善した。

この理由として、酸の不足によって酸性化通気処理が正常におこなわれず、炭酸水素イオンが残存してしまったことが TOC が高値となった原因であると推察しており、試料の希釈が有効な対処法であると考えられた。

参考文献

- 1) 日本工業標準調査会：JIS K-0102 (工場排水試験方法)，日本規格協会，38-41(2013)
- 2) 日本水道協会：上水試験方法，日本水道協会，2，117-119，140-142(2011)
- 3) 日本薬学会：衛生試験法・注解 2010，金原出版株式会社，733-734(2010)
- 4) 金原啓司：日本温泉・鉱泉分布図及び一覧，地質調査所，7(1992)
- 5) 日本化学会：化学便覧 基礎編 改訂 4 版，丸善，466-468(2004)
- 6) 田中誠之，飯田芳男：機器分析 三訂版，裳華堂，248(1996)
- 7) 化学大辞典編集委員会：化学大辞典，共立出版株式会社，6，910(1963)
- 8) 伏脇裕一，深谷勝久，和田裕，並木博：COD 試験における塩化物イオンのマスキング剤の検討，工業用水，253，20(1979)
- 9) 手塚真知子：地下かん水の化学的酸素要求量測定値に及ぼす銀塩の影響，分析化学，29.9，T68-T72(1980)
- 10) 鷹野 洋，藤田和男，斎藤直己，田邊英子：海水の COD 分析についての一考察，岡山県環境保健センター年報，32，31-34(2008)
- 11) 大森正男：COD 測定に関する 2、3 の考察 水質総量規制の実施にあたって，環境技術，8(6)，589-602(1979)
- 12) 山内陽子：硝酸銀法による COD の検討および試料の保存効果，用水と廃水，23(6)，676-680 (1981)
- 13) 第 9 回厚生科学審議会生活環境水道部会水質管理専門委員会：過マンガン酸カリウム消費量と全有機炭素の関係について，資料 2(2003)
- 14) 青沼徹，前田信治，岡田誠之，野知啓子，赤井仁志：循環式浴槽水の水質実態に関する研究，空気調和・衛生工学会論文集，157，11-17(2010)
- 15) 森脇直子，石丸陽子，岸美紀，林幸子，田中幸生：過マンガン酸カリウム消費量と全有機炭素 (TOC) の量の関係について (第 2 報)，川崎市衛生研究所年報，42，69-73(2006)
- 16) 大野浩之，鈴木昌子，六鹿元雄，河村葉子：合成樹脂製器具・容器包装および玩具における過マンガン酸カリウム消費量および全有機炭素の検討，食品衛生学雑誌，50(5)，230-236 (2009)

光化学オキシダント等の越境汚染に関する調査研究 (第3報) —水平および垂直分布について—

谷口佳文、福島綾子、川下博之、泉 宏導

Research on the Cross-border Pollution of Photochemical Oxidants(3)
— For horizontal and vertical distribution—

Yoshifumi TANIGUCHI ,Ayako FUKUSHIMA ,Hiroyuki KAWASHITA ,Hiromichi IZUMI

福井県への光化学オキシダント等の越境汚染の影響を探るため、県西部の海沿いの高地、県東部の内陸の高地、県西部の海沿いの中間高度での調査を行い、平野部の測定局との比較を行った。その結果、標高が高くなるほど移流の影響を受けやすく、海沿いと内陸の比較では海沿いが移流の影響を受けやすいことが示唆された。また、オキシダントが高濃度となる場合は、上空および平野部のオキシダントの蓄積が影響することが示唆された。

1. はじめに

本県における光化学オキシダント等の越境汚染の影響を探るため、県西部の海沿いに位置する標高 600m 付近（以下「海沿いの高地」という）での調査を平成 21 年度から行っている。

これまでの調査で、各調査地点における汚染物質濃度は、県内の常時監視測定局（以下「測定局」という。）に比べ概ね低いもしくは同程度の濃度であったが、オキシダント(Ox)のみ高めに推移しており、特に夜間に測定局との濃度差が大きくなる傾向にあった。また、移流等により夜間上空に蓄積された Ox が、日中の平野部の Ox 濃度を上昇させることを示唆する解析結果が得られた¹⁾。

本報では、Ox の水平および垂直分布から越境汚染の影響等について解析したので、その結果について報告する。

2. 調査方法

Ox の水平および垂直分布を把握するため、従来から実施している大気環境測定車「みどり号」（以下「みどり号」という。）による海沿いの高地（国見岳）での調査に加え、内陸の高地として県東部の六呂師高原に位置し、国見岳と同程度の高度にある福井県自然保護センター（以下、「六呂師」という。）に Ox 計を設置し調査を実施した。

また、水平および垂直分布の評価にあたっては、国見岳および六呂師の測定結果に加えて、県西部の海沿いの中間高度に位置する国設越前岬酸性雨測定所^(注)（以下「越前岬」という。）および調査地点に近い平野部の測定局である福井局、大野局（以下「評価対象測定局」という。）の測定値を用いた。

（注）酸性雨モニタリング調査事業により設置され Ox 計の測定値を使用。測定値は環境省に帰属する。

○調査地点

- ・国見岳（県西部の海沿いの高地）
福井市国見元町 標高 640m
- ・六呂師（県東部の内陸の高地）
大野市南六呂師 標高 550m
- ・越前岬（県西部の海沿いの中間高度）
丹生郡越前町血ヶ平 標高 220m

○評価対象測定局

- ・福井局（平野部）
福井市豊島 2 丁目 標高 7m
- ・大野局（平野部）
大野市水落町 標高 170m

○測定項目

- ・二酸化硫黄(SO₂)
- ・窒素酸化物(NO_x(NO+NO₂))
- ・炭化水素(NMHC、CH₄)
- ・浮遊粒子状物質(SPM)
- ・オキシダント(Ox)

※六呂師および越前岬は Ox のみ

○調査期間

- 平成 25 年度 6 月 5 日～7 月 29 日
- 平成 26 年度 5 月 1 日～6 月 30 日



図1 調査地点

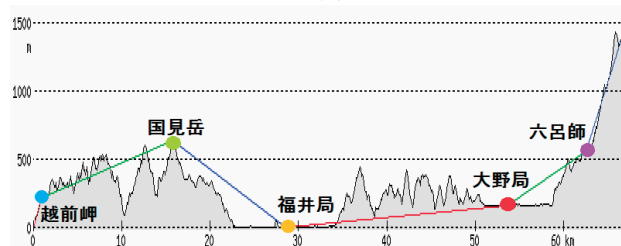


図2 地形断面図

(<http://www.heywhatsthat.com/profiler.html> を使用)

3. 結果および考察

3. 1 予備調査

六呂師における大気環境を把握するため、平成 25 年 4 月 24 日～5 月 31 日にみどり号による予備調査を行った。調査結果を図 3～14 に示す。

六呂師における大気環境は、県内の測定局に比べ SO_2 、

NO_x 、NMHC、 CH_4 、SPM の日平均値、日最高値とも低いまたは同程度で推移した。 O_x は、日平均値は高めに推移し大きな差がでる日もみられたが、日最高値は概ね同程度であった。

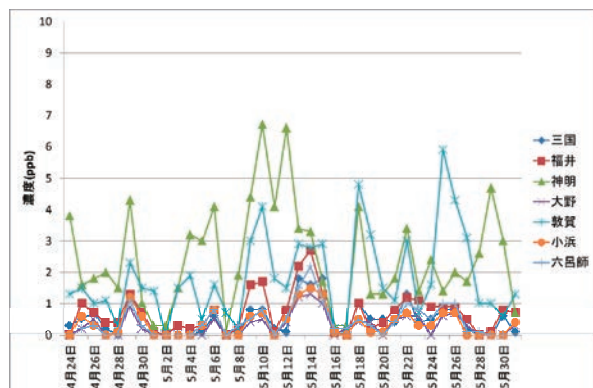


図 3 SO_2 日平均値

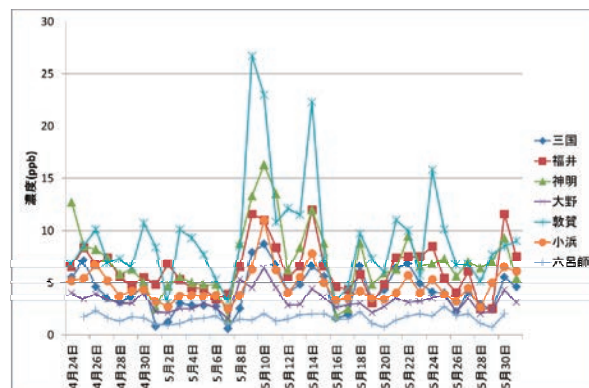


図 4 NO_x 日平均値

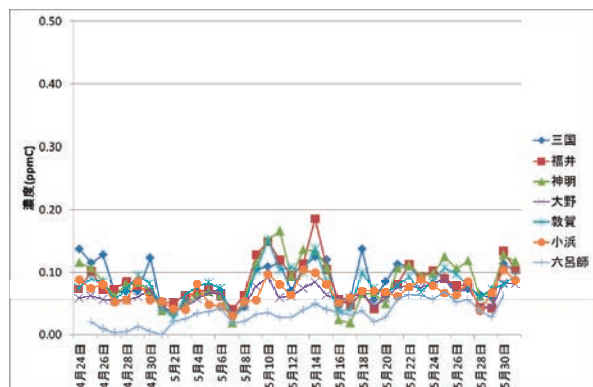


図 5 NMHC 日平均値

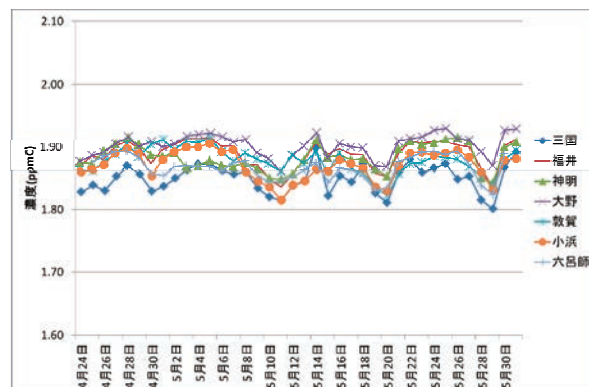


図 6 CH_4 日平均値

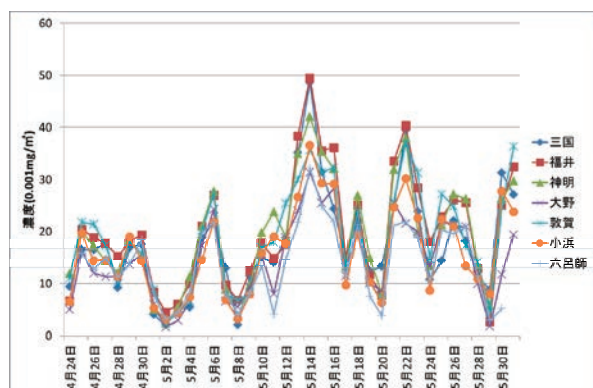


図 7 SPM 日平均値

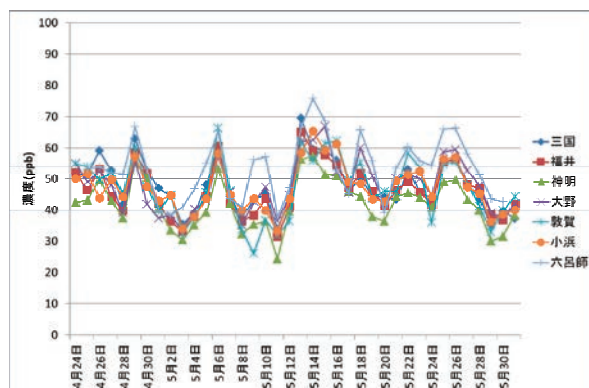


図 8 O_3 日平均値

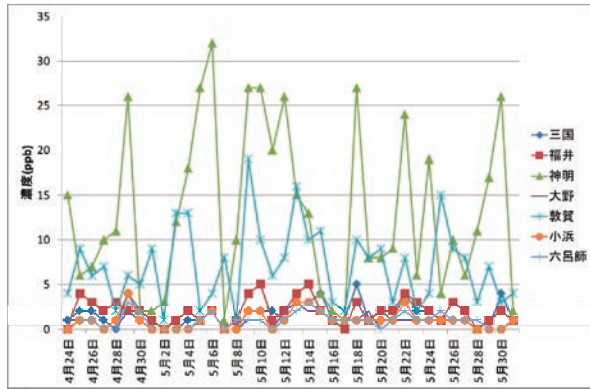


図9 SO₂ 日最高値

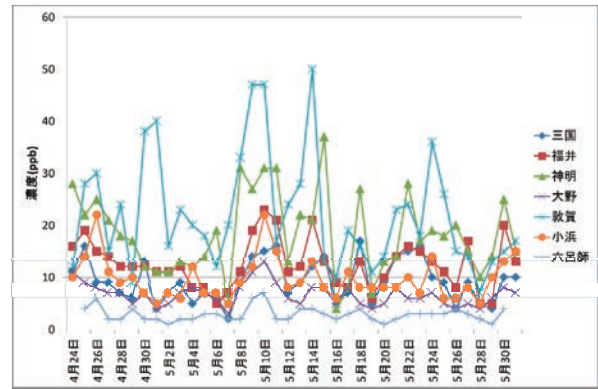


図10 NO_x 日最高値

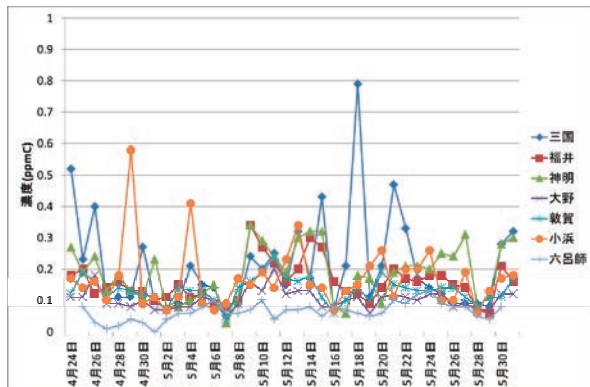


図11 NMHC 日最高値

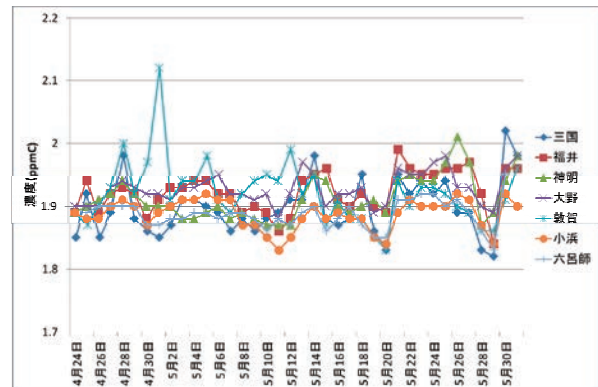


図12 CH₄ 日最高値

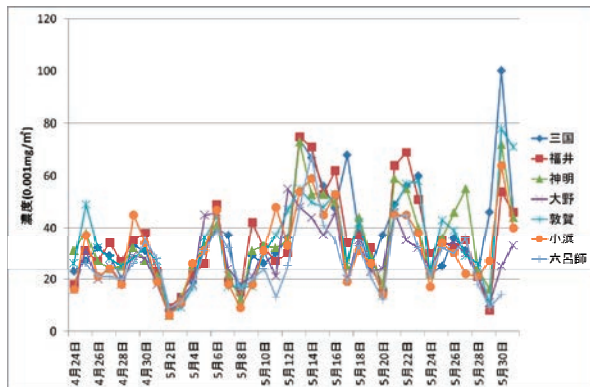


図13 SPM 日最高値

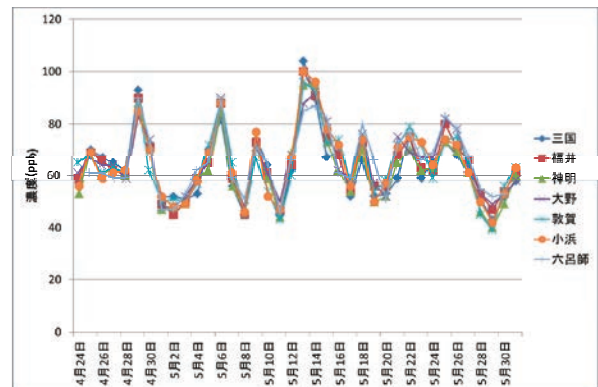


図14 O₃ 日最高値

3. 2 O_x 計での評価に関する検討

O_x 濃度の評価については、NO タイトレーションの影響を避けるため、PO を用いて評価を行うのが一般的であるが、越前岬および六呂師については O_x 計のみの調査となるため、O_x 値で PO の代用が可能か否かの検討を行った。

その際、六呂師については予備調査の結果を、越前岬については以下のみどり号による測定値を用いた。

- 調査地点 (みどり号による調査)
福井市菜崎町 (越前岬より東北東 8km)
- 調査期間
平成 24 年 8 月 31 日～10 月 1 日

図 15、図 16 に六呂師での、図 17、図 18 に福井市菜崎町での PO と O_x の 1 時間値および時刻別平均濃度を示す。

1 時間値および時刻別平均濃度とも、調査地点における PO と O_x の濃度推移は同様の傾向であり、濃度差も数 ppb 以内に収まっていた。

このことから、六呂師、越前岬ともに、O_x 値を用いて評価を行うことは可能と考えられた。

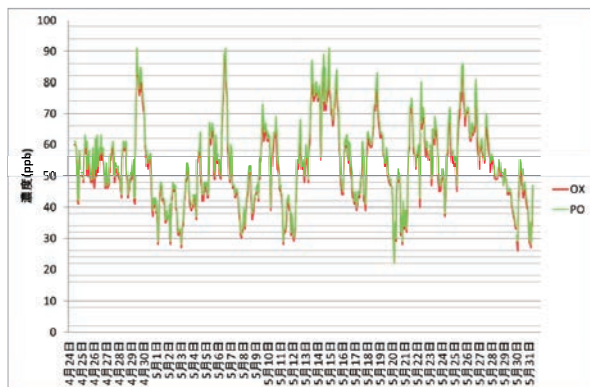


図 15 1 時間値推移 (六呂師)

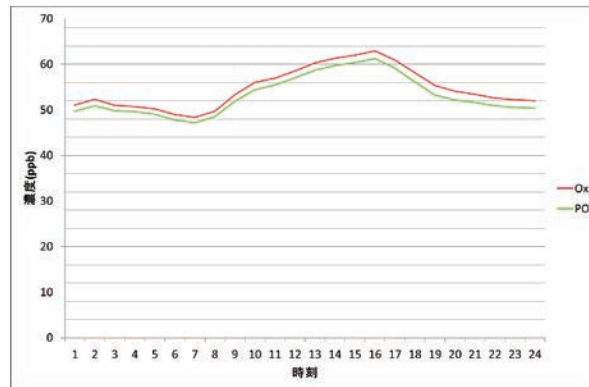


図 16 時刻別平均値 (六呂師)

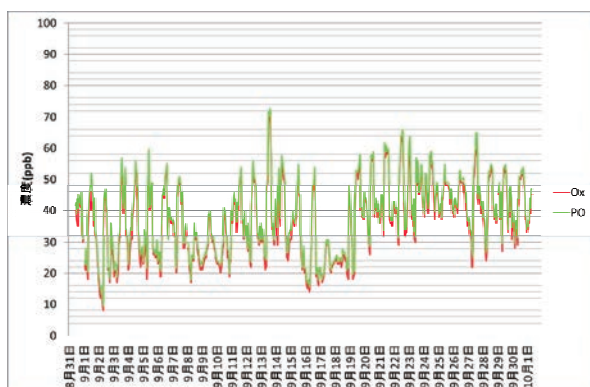


図 17 1 時間値推移 (福井市菜崎町)

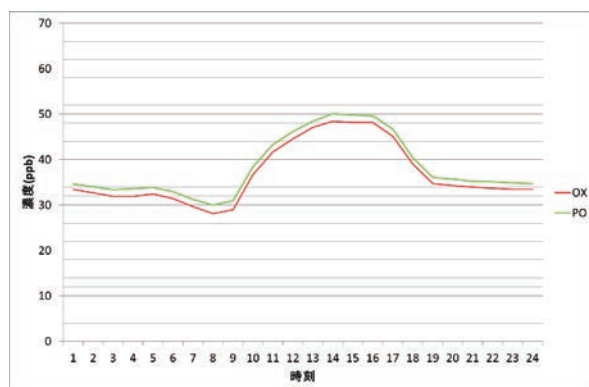


図 18 時刻別平均値 (福井市菜崎町)

3. 3 調査結果

図 19～24 に各調査期間における PO(Ox)の 1 時間値、日平均値および日最高値の濃度推移を示す。また、表 1 に日平均値および日最高値の期間平均値を示す。

平成 26 年度の PO(Ox)の濃度は、各調査地点、評価対象測定局とも平成 25 年度に比べ日平均値、日最高値ともに高めに推移した。

1 時間値では、各調査地点は評価対象測定局に比べ夜間に濃度が下がりにくい傾向にあり、調査地点と調査地点に近い評価対象測定局 (越前岬および国見岳=福井局、六呂師=大野局) との 24 時の濃度差が 15ppb 以上となる頻度は、平成 25 年度、26 年度ともに国見岳>越前岬>六呂師の順であった。(表 2)

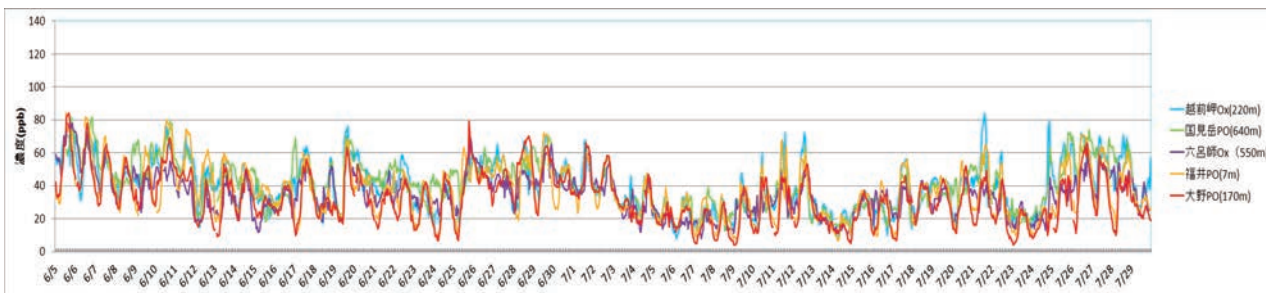


図 19 1 時間値推移 (H25)

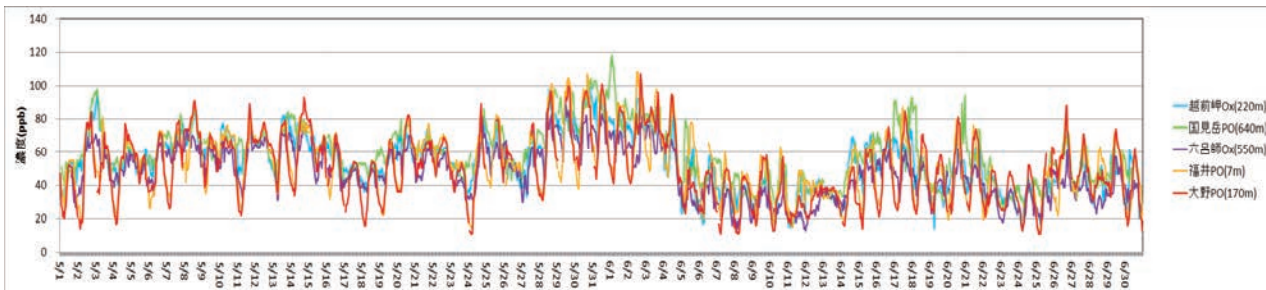


図 20 1 時間値推移 (H26)

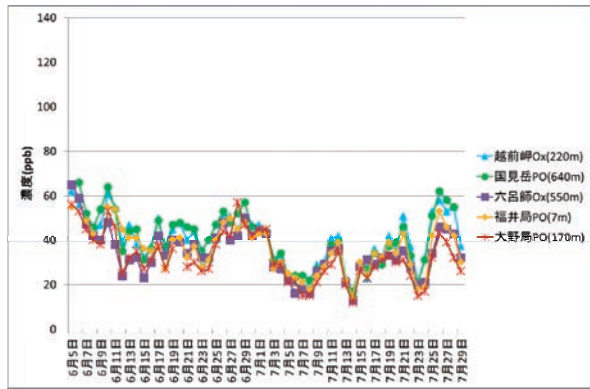


図 21 日平均値推移 (H25)

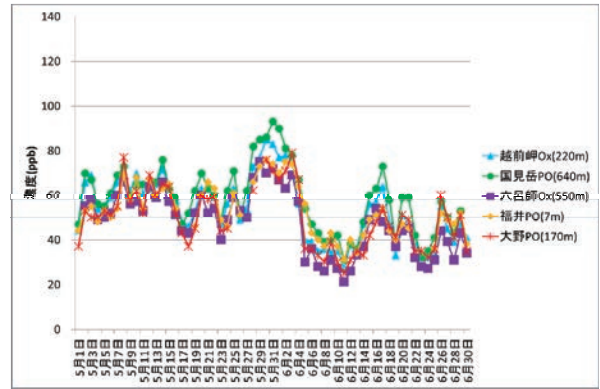


図 22 日平均値推移 (H26)

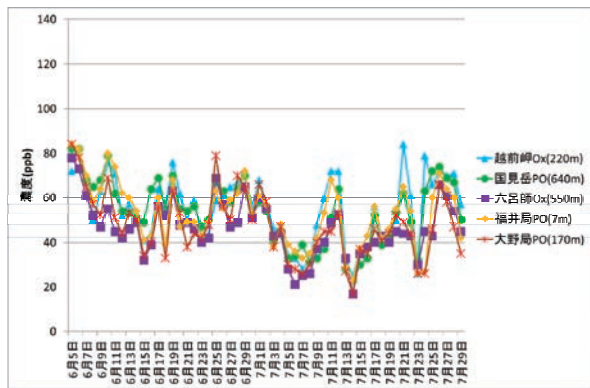


図 23 日最高値推移 (H25)

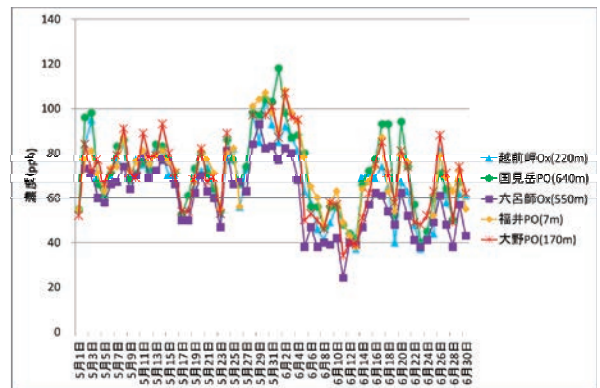


図 24 日最高値推移 (H26)

表 1 日平均値および日最高値の期間平均 (ppb)

		越前岬	国見岳	六呂師	福井局	大野局
日平均値	平成25年度	40	40	34	36	32
	平成26年度	54	59	48	54	50
日最高値	平成25年度	56	54	46	53	48
	平成26年度	67	72	60	74	70

表 2 24 時の濃度差が 15ppb 以上の頻度 (回)

	国見岳-福井局	越前岬-福井局	六呂師-大野局
平成25年度	19	11	6
平成26年度	31	19	13

3. 4 夜間濃度差に関する考察

県内いずれかの測定局で 80ppb 以上の Ox 濃度が観測された日を抽出し、前日 24 時の国見岳に対する各調査地点もしくは評価対象測定局との濃度差について、後方流跡線による分類をおこなった。結果を図 25 に示す。

なお、分類は気塊の源流やその経路別に図 26 のとおりとし、地表に接地した場合は不明とした。

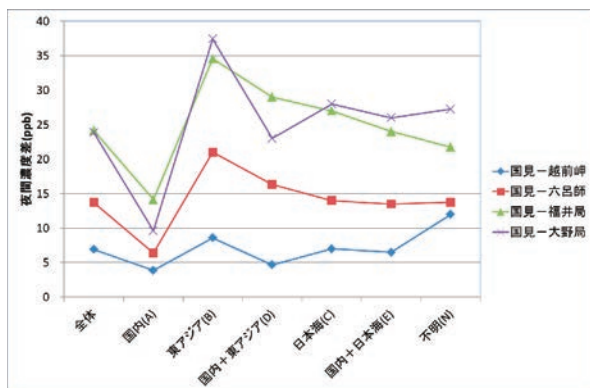


図 25 後方流跡線分類一夜間 (24 時) 濃度差

国見岳との濃度差は、特に福井局、大野局において、国内(A)由来の場合に小さく、東アジア(B)由来の場合に大きくなる傾向であった。

標高が高くなるほど風速が速くなる傾向であることや、夜間は混合層高度の低下により平野部からの Ox の供給も弱まることから、Ox の発生源がより遠方となる東アジア (B)由来の場合に夜間の濃度差が大きくなると考えられる。

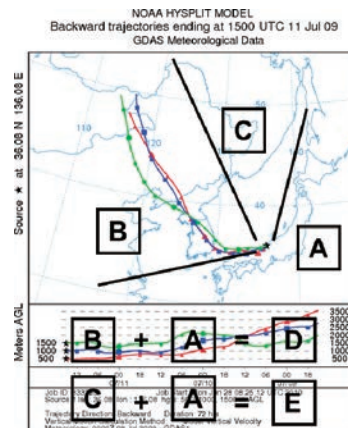


図 26 後方流跡線による分類

3. 5 標高および距離による考察

図 27～33 に各調査期間における PO(Ox)の標高別および海岸からの距離別の日平均値および日最高値の期間平均を示す。

標高別では、日平均値、日最高値ともに明確な傾向は見られず、相関についてもほとんどない～弱いであったが、同程度の標高では海沿い（西寄り）の地点が高くなる傾向であった。

距離別では、内陸（東寄り）に入るに従って日平均値お

よび日最高値がともに下がる傾向が見られ、平成 26 年度の日最高値を除き距離との強い相関が得られた。

海沿い（西寄り）の調査地点（越前岬、国見岳）は、付近に排出源が無いに関わらず PO(Ox)濃度が高い傾向にあることから、海沿いは移流の影響を受けやすく、内陸に入るに従って影響を受けにくくなることが示唆された。

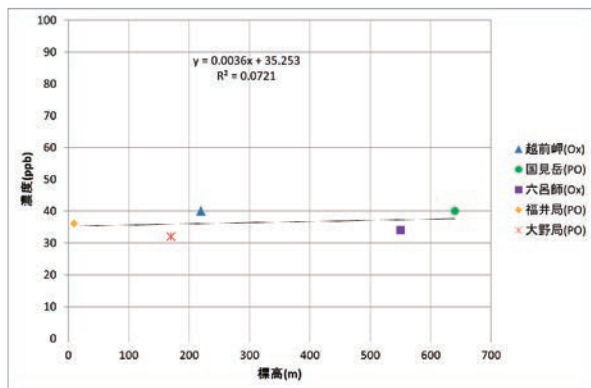


図 27 標高別日平均値 (H25)

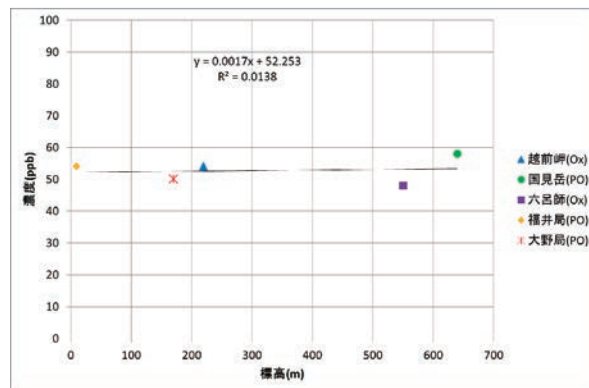


図 28 標高別日平均値 (H26)

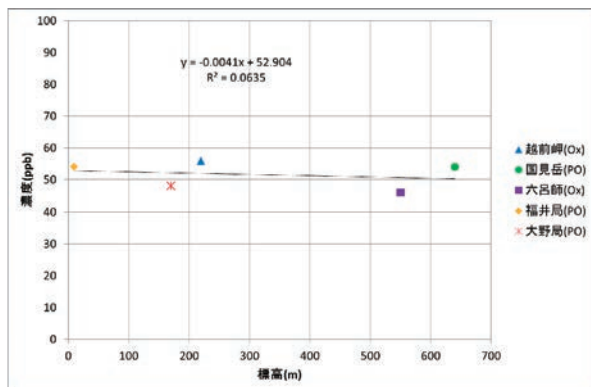


図 29 標高別日最高値 (H25)

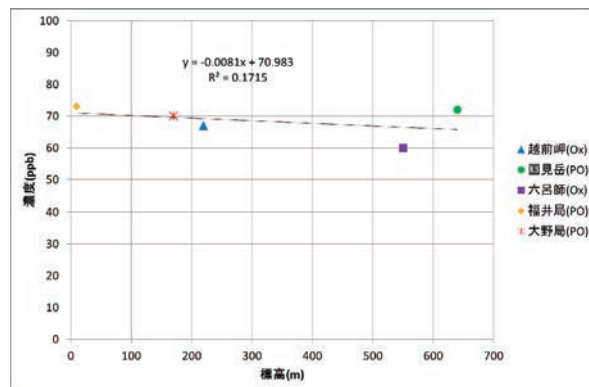


図 30 標高別日最高値 (H26)

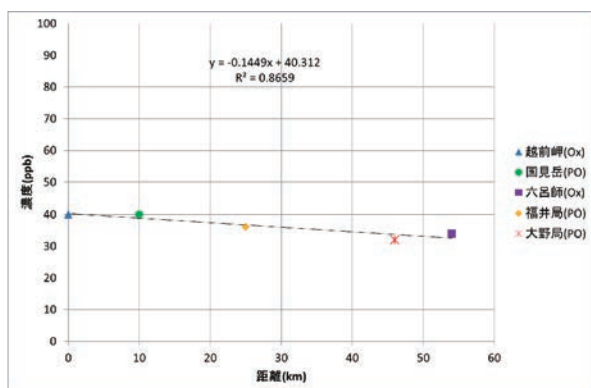


図 31 距離別日平均値 (H25)

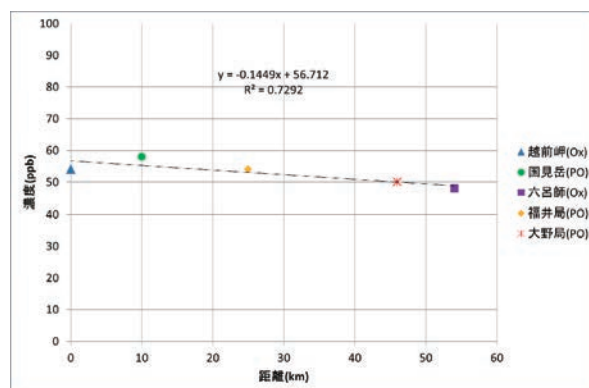


図 32 距離別日平均値 (H26)

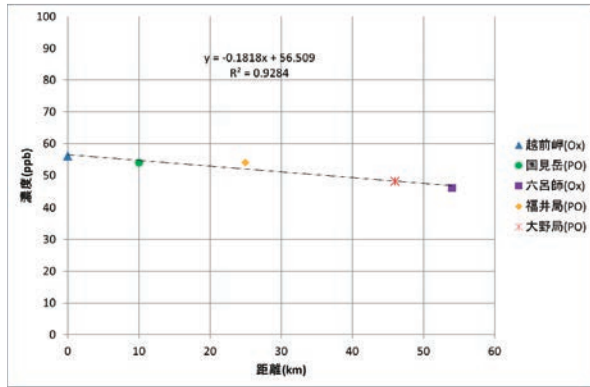


図 33 距離別日最高値 (H25)

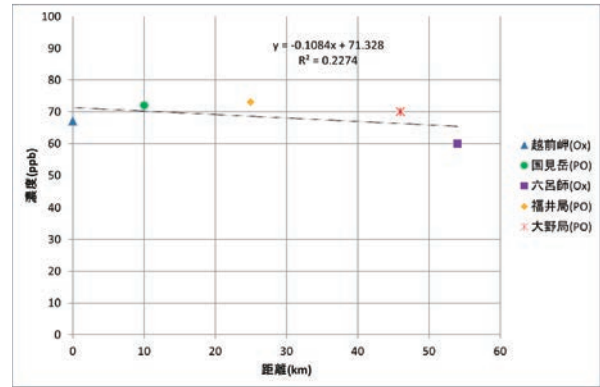


図 34 距離別日最高値 (H26)

3. 6 時刻別濃度推移による考察

図 35～46 に PO(Ox)の時刻別濃度および福井局の日最高 PO 濃度区分毎の時刻別濃度を示す。なお、降雨による影響を排除するため、福井地方気象台で降雨が観測された日は除外した。

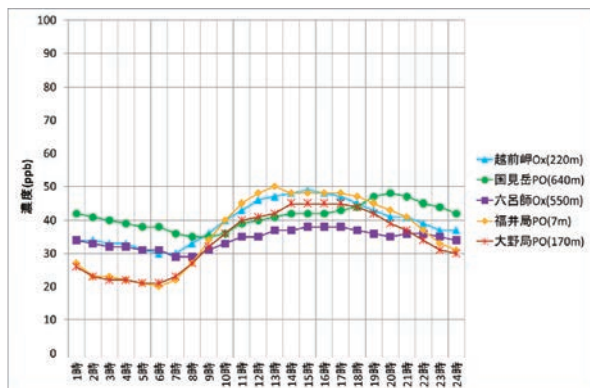
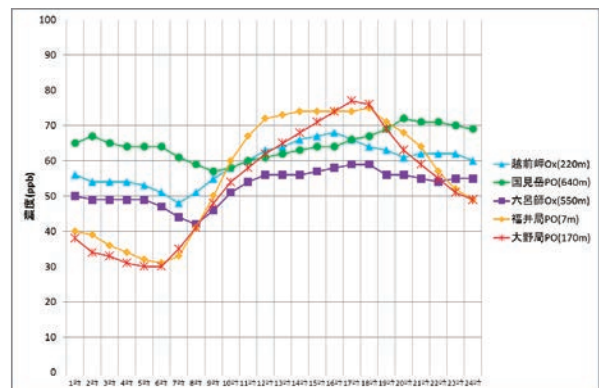
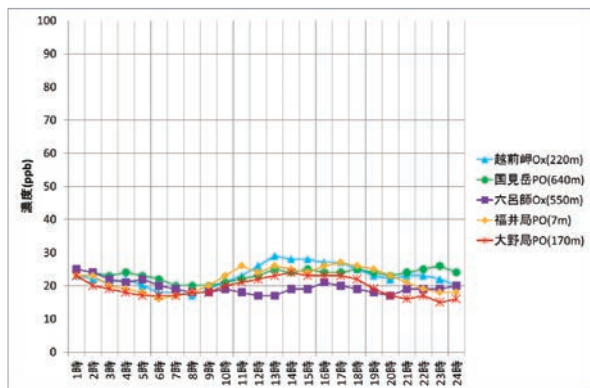
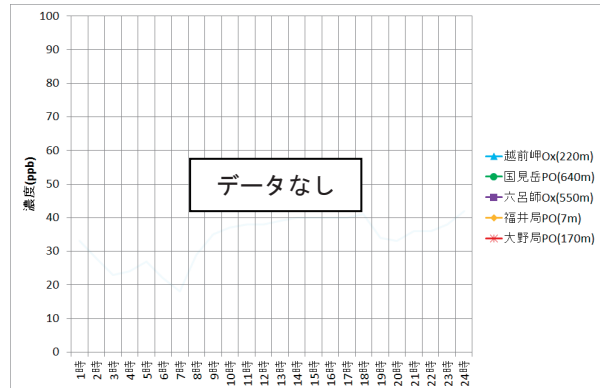
平成 25 年度、平成 26 年度ともに、各調査地点の濃度推移は評価対象測定局に比べて緩やかで、標高が低くなるに従い、評価対象測定局の濃度推移に近づく挙動がみられた。この要因として、日中に混合層高度が高くなり、夜間に低下することから、標高が低くなるほど一日を通して対流の影響を受けやすくなることが考えられる。

また、国見岳のみ日没後の PO 濃度の上昇がみられた。この要因として、国見岳よりも標高の低い地点では夜間の濃度上昇が見られないことや、夜間は混合層高度の低下に

より平野部からの Ox の供給も弱まることから、近傍発生源よりも遠方からの移流の影響が大きいと考えられる。

PO 濃度区分別では、濃度区分が高くなるにつれ、各調査地点の夜間の PO(Ox)濃度が上昇していた。また、評価対象測定局の日の出前後の日最低 PO 濃度は、濃度区分が 90ppb 未満では概ね 20～30ppb の範囲にあることから、調査地点のある地域（県北部）における春から初夏にかけての PO のバックグラウンド濃度は 20～30ppb 程度と推察される。

濃度区分が 90ppb 以上では、評価対象測定局の日の出前後の日最低 PO 濃度が 50ppb 付近まで上昇しており、数日間かけて徐々に濃度が上昇する傾向にあることから(図 20)、上空に加え平野部においても Ox(PO)が蓄積されることで高濃度になると考えられる。


図 35 時刻別濃度推移 (H25)
(濃度区分なし)

図 36 時刻別濃度推移 (H26)
(濃度区分なし)

図 37 時刻別濃度推移 (H25)
(40ppb 未満)

図 38 時刻別濃度推移 (H26)
(40ppb 未満)

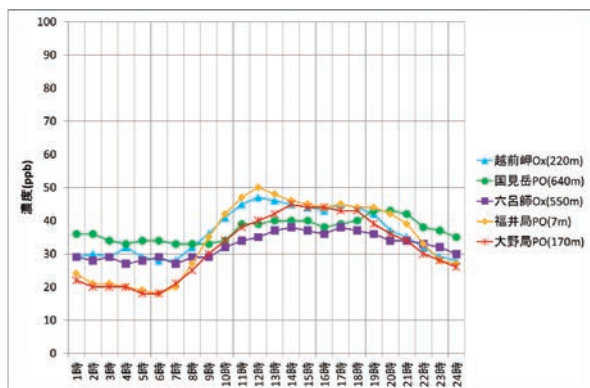


図 39 時刻別濃度推移 (H25)
(40~59ppb)

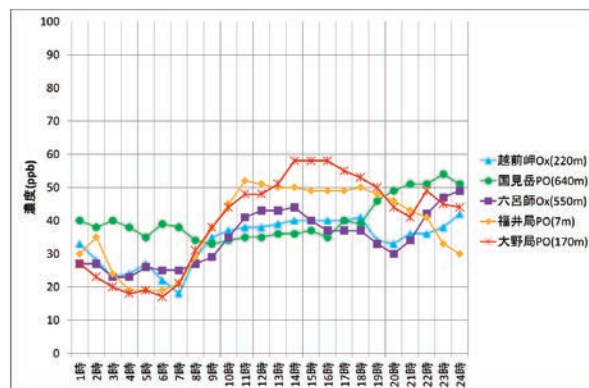


図 40 時刻別濃度推移 (H26)
(40~59ppb)

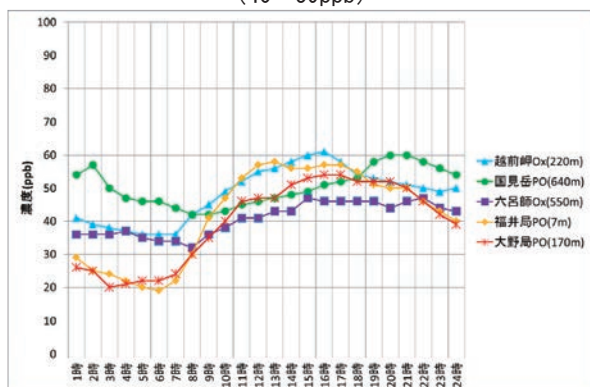


図 41 時刻別濃度推移 (H25)
(60~74ppb)

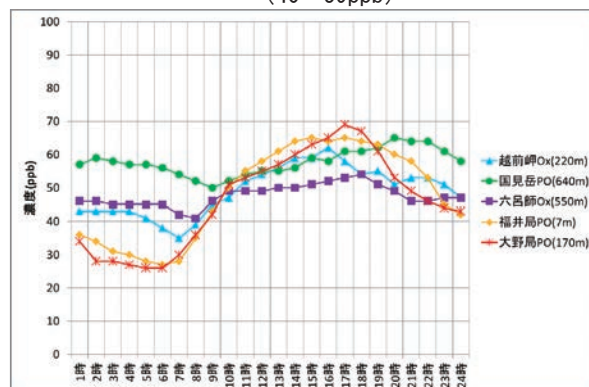


図 42 時刻別濃度推移 (H26)
(60~74ppb)

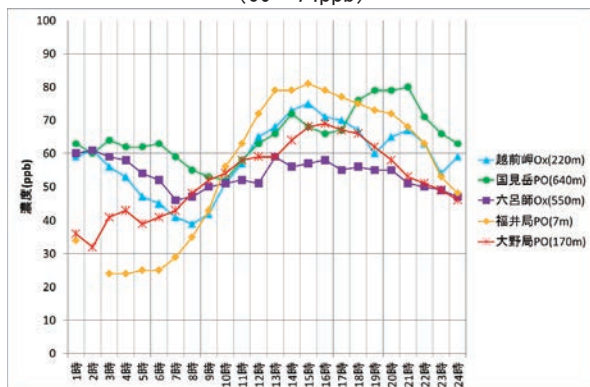


図 43 時刻別濃度推移 (H25)
(75~89ppb)

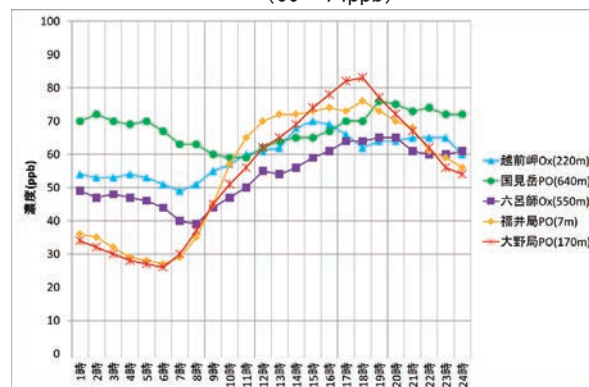


図 44 時刻別濃度推移 (H26)
(75~89ppb)

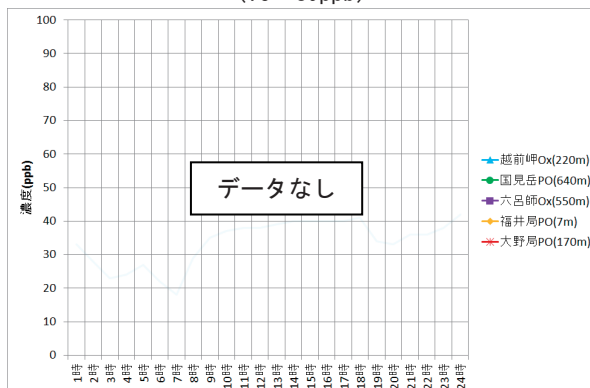


図 45 時刻別濃度推移 (H25)
(90ppb 以上)

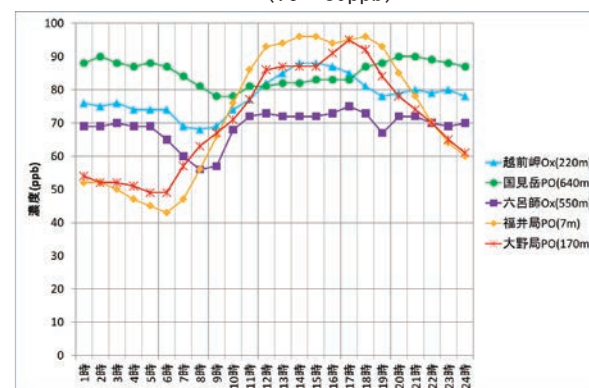


図 46 時刻別濃度推移 (H26)
(90ppb 以上)

3. 7 SPM 計ろ紙の成分分析

越境汚染の指標となる物質を探るため、国見岳でのSPM計のろ紙(ガラス繊維)を用い、Ox濃度が特に高く、後方流跡線により源流が国内(A)と考えられる日と東アジア(B)と考えられる日(平成25年度は6月10日と7月26日、平成26年度は5月31日と6月3日)について、8時間分(1-8時、9-16時、17-24時)のスポットを1検体として、時間帯毎にイオン成分の分析を行った。

表3に分析結果の日平均値、県内測定局の日最高Ox濃度、後方流跡線分類および国内由来の日とアジア由来の日の濃度比(B/A)を示す。

なお、SPM計ろ紙は、1ヶ月単位の回収であることから、捕集された成分の揮発や、ろ紙の裏写り等の影響が考えられるため、分析値については参考値とする。

平成25年度は、硫酸イオン(SO_4^{2-})、アンモニウムイオン(NH_4^+)、カルシウムイオン(Ca^{2+})、マグネシウムイオン(Mg^{2+})が2倍以上の濃度比であったが、平成26年度に2倍以上の濃度比となったのは Ca^{2+} 、 Mg^{2+} のみで、 SO_4^{2-} 、 NH_4^+ の濃度比はそれほど高くなかった。

平成26年度の5月末から6月上旬にかけては、Ox濃度が高い状態を維持しており、この間、後方流跡線から東アジア(B)を源流とする気塊が国内(A)に数日間滞留したとみられることから、6月3日は国内と東アジアの複合汚染の影響を受けて SO_4^{2-} 、 NH_4^+ の濃度が高い状態を維持し、このことにより濃度比がそれほど高くなかったと考えられる。このため、今後データを蓄積することで、越境汚染の指標となる物質が明らかになると考えられる。

4. まとめ

後方流跡線分類による地点間の夜間のPO濃度差の評価において、福井局、大野局で国内(A)のときに国見岳との濃度差が少なく、東アジア(B)の時に大きくなる傾向にあった。標高が高くなるほど風速が速くなることから、Oxの発生源が遠方となる東アジア由来の場合に国見岳にいち早くOxが到達することで、測定局との濃度差が大きくなると考えられた。

標高別および海岸からの距離別によるPO濃度は、標高による明確な傾向は見られなかったが、同程度の標高では海沿い(西寄り)の濃度が高い傾向にあり、距離別では海沿いが高く、内陸(東寄り)に入るに従い濃度が低下する傾向にあった。

時刻別濃度推移では、国見岳のみ夜間の濃度上昇がみられた。また、各調査地点の濃度推移は緩やかで、調査地点の標高が低くなるに従い、評価対象測定局の濃度推移に近づく挙動がみられたことから、国見岳は対流の影響を受けにくく、移流の影響を受け易いと考えられた。また、県北部における春～初夏にかけてのPOのバックグラウンド濃度は20~30ppb程度であることや、オキシダントが高濃度となる場合は、上空および平野部のオキシダントの蓄積が影響することが示唆された。

参考文献

- 1) 谷口佳文他：光化学オキシダント等の越境汚染に関する調査研究(第2報),福井県衛生環境研究センター年報,8,79-84(2012)

表3 成分分析結果

	SO_4^{2-}	NO_3^-	NH_4^+	K^+	Ca^{2+}	Mg^{2+}	$\mu\text{mol/l}$ ※Oxはppb	流跡線分類
平成25年6月10日	28.4	6.7	34.9	4.2	0.9	0.3	91	国内(A)
7月26日	65.7	6.4	92.6	6.5	1.9	0.7	80	東アジア(B)
濃度比(B/A)	2.3	1.0	2.7	1.5	2.0	2.0	-	-
平成26年5月31日	77.8	15.2	64.5	11.8	5.9	2.1	99	東アジア(B)
6月3日	55.2	10.5	55.4	9.1	2.5	0.9	96	国内(A)
濃度比(B/A)	1.4	1.4	1.2	1.3	2.4	2.4	-	-

透水性最終覆土中の水分変化挙動

田中宏和・松井亮

Moisture Content Behavior inside the Water Permeable Final Soil Cover

Hirokazu TANAKA, Ryou MATSUI

透水性が高い砂質土を最終覆土に使用している管理型最終処分場において、最終覆土内部の水分量の変化をモニタリングした。その結果、最終覆土中の水分量は浅層部では変動が大きいが、深層部では高値で変動しにくく、また、地点により土壌水分量の変動挙動に差がみられた。これらの原因として、最終覆土からの蒸発、水分移動・再分配、保有水水位の上昇および廃棄物層の不均一性が影響していると考えられた。さらに、10m 四方のキャッピングをした場合の影響について評価したところ、キャッピング下部の土壌水分量は周辺と差がみられず、豊富な浸透水量による保有水水位の上昇と、最終覆土内部の水分分配による影響が考えられた。

1. はじめに

最終処分場の最終覆土層に関しては厚さに関する法的基準はあるが、材質については「土砂またはそれに類するもの」とされ、具体的な基準は無い¹⁾。一般的には、浸出水量を削減して水処理のランニングコストを抑制するために、透水性が低い土質が望ましいとされている²⁾。しかしながら、埋立地内部の早期安定化を優先するのであれば、塩類洗い出しと有機物の好気性分解を速やかに進行させる上で、透水性と透気性が高い土質の方が有利であるように思われる。従って、処分場廃止までに要する費用を検討する上では、安定化に要する期間と処理浸出水量が重要な要素であり、最終覆土はこれらの要素に直接影響する。

しかし、透水性が高い最終覆土を採用している処分場は全国的に少なく、研究事例が少ない。そこで今回、最終覆土に砂質土を使用している管理型最終処分場を対象として、最終覆土内部の水分変化挙動の把握を目的とし、覆土中の土壌水分量をモニタリングした。

また、浸透水量の制御として有効な手法のひとつであるキャッピングが最終覆土内の水分量に及ぼす影響を調べるため、埋立地の一部に小面積のキャッピングを施し、降水を遮断した場合の水分量変化についても評価した。

2. 方法

2. 1 試験対象処分場埋立地の概要

試験は北陸地方沿岸部に位置する掘り込み式の管理型最終処分場で実施した。この処分場では埋立地造成時に発生した砂質土を保管し、最終覆土として使用している。2009年に計測した最終覆土厚は0.75m、日本工業規格 JIS A 1218 の定水位法で測定した透水係数は 1.11×10^{-2} cm/s であり、一般的な最終覆土に比べて透水性が高い。一方、廃棄物層の透水係数はバラツキが大きく、最高で 1.55×10^{-2} cm/s、最低で 8.53×10^{-3} cm/s であり、概して最終覆土よりも透水性が低い傾向にあるが、高い部分も存在した。

2. 2 土壌水分量、降水量および保有水水位調査

最終覆土の地表から深度約 0.2m と約 0.4m に複数のセンサー (onset 社製 S-SMC-M005) を埋設し、土壌水分量

を 1 時間間隔で計測した。地表の凹凸や傾斜の影響を避けるため、センサーの埋設は水準器を用い、センサー間の相対的な高さに差が生じないように配慮した。試験期間は 2012 年 6 月 23 日から 2013 年 8 月 31 日としたが、11 月 27 日から 29 日までモニタリングを中断し、野生動物によるセンサーケーブル切断対策と、それに伴うレイアウト変更を行った。レイアウト変更前後のセンサー位置をそれぞれ図 1 と図 2 に示す。

さらに、2012 年 12 月 3 日から 2013 年 5 月 2 日の間は図 2 の正方形で示した位置にブルーシート (10m×10m) を敷設し、地表から覆土層への降水浸透を遮断した (キャッピング)。ブルーシート上の降水は周囲に設置した「雨樋」にて導水し、センサーから離れた位置に排除した。試験現場の写真を図 3 に示した。

試験区域の近くに気象計も併せて設置し、試験期間中の

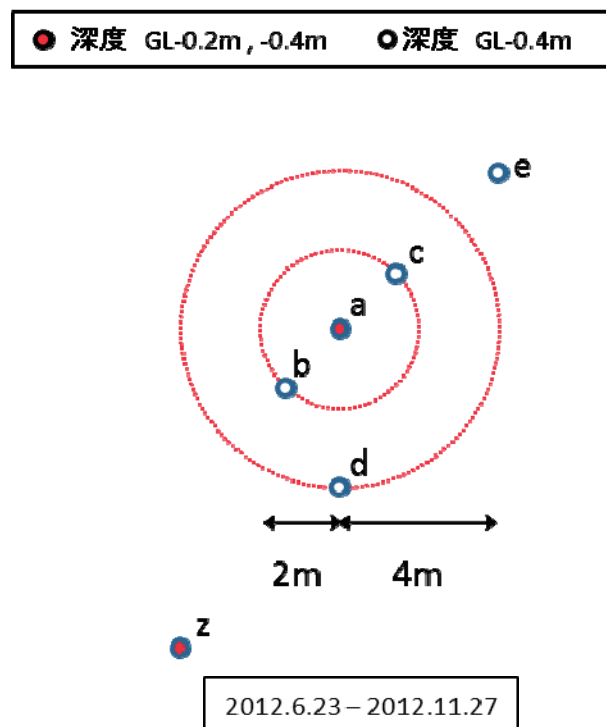


図 1 レイアウト変更前のセンサー埋設位置

気温と降水量を計測した。また、試験対象処分場から約8km離れた地点のアメダスデータを用い、Blaney Criddle法による月間可能蒸発量を算出し、その60%が蒸発に有効に使用されたとした場合の水分浸透量を算出した²⁾。

また、本報における保有水水位は、埋立地に存在する最も近傍の約30m離れた観測井の水位を用いた。

3. 結果および考察

3.1 深度による影響

2012年6月23日から11月27日までのa地点における深度0.2mと0.4mの土壤水分量(体積含水率)の変化を、降水量と併せて図4に示す。また、z地点(a地点から8mの地点)についても、気温と併せて図5に示す。この間はブルーシートの被覆はしていない。

図4、図5とも、深度0.4mに比べて0.2mの土壤水分量は低く、変動が大きい傾向がみられた。降水後に水分量が増加しており、降水直後においては短時間ではあるものの、深度0.4mよりも0.2mの水分量が多くなる場合もみられた。

月間可能蒸発量と水分浸透量を図6に示す。6月から10月までは月間可能蒸発量が100mm以上であり、8月の浸透量はマイナス値を示した。

観測井の保有水水位を図7に示す。8月を除き、保有水水位は最終覆土(GL-0.75m)以上の水位に達しており、最終覆土の底部の水分は飽和していたと考えられる。

最終覆土内部の土壤水分量に及ぼす影響因子として降水量、蒸発量、廃棄物層への浸透水量が挙げられる。砂質土は一般の土壌に比べて透水性と透気性が高いため、地表から浸透した降水は速やかに底部に移動し、かつ、大気への蒸発による乾燥も進みやすく、このことが表層部の水分変動が大きい原因と考えられた。一方、深層部においては、保有水水位がセンサーの深度(GL-0.4m)まで達していなくても、最終覆土層よりも廃棄物層の方の透水性が低い傾向があるため、水分は溜まり易い。さらに加えて、毛管現象もあることから、0.4m深度においては水分が飽和、もしくはそれに近い状態になりやすく、その結果、水分量変動が小さかったと考えられた。

なお、図5の8月にみられたz-0.4mの水分量低下は、図6と図7で確認できる水分浸透量の減少と、それによる保有水水位の低下が原因と考えられ、降雨後は速やかに回復している。覆土深層部の水分が低下している時期に集中した降水があると、浅層部と深層部の水分量が一時的な逆転が起こり得ると考えられる。

3.2 キャッピングと位置による影響

2012年11月29日から2013年8月31日までのB地点、C地点およびD地点(それぞれブルーシート中心部から

● 深度 GL-0.2m, -0.4m ○ 深度 GL-0.4m

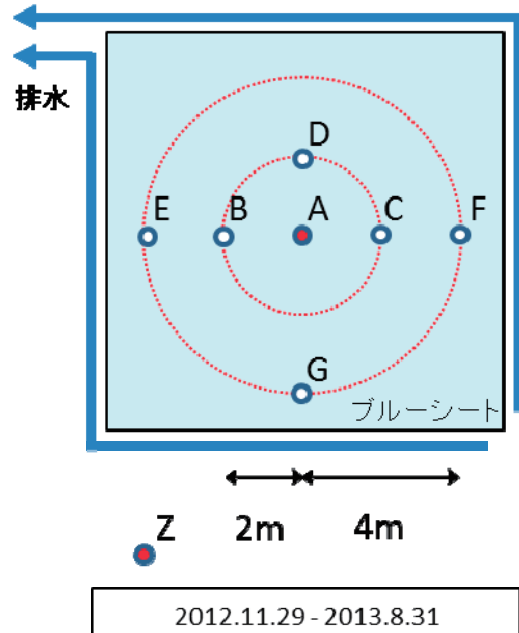


図2 レイアウト変更後のセンサー埋設位置



図3 キャッピング試験現場の写真

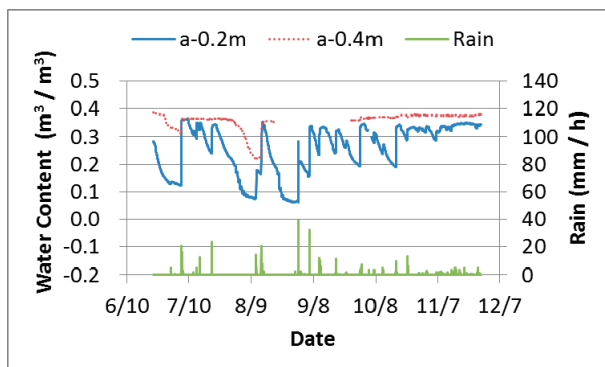


図4 a地点の水分量と降水量

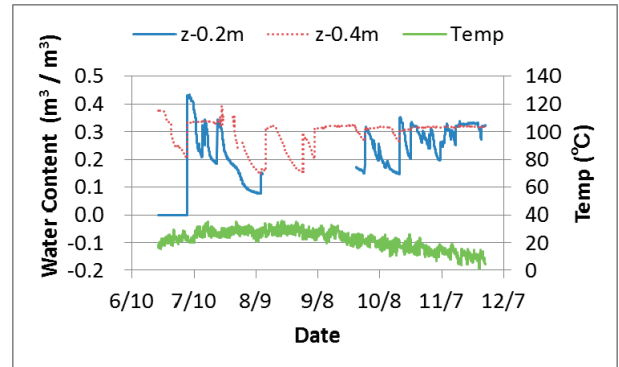


図5 z地点の水分量と気温

2m)の結果を図8に、E地点とG地点(それぞれ中心部から4m)の結果を図9に示す。図8に降水量を、図9に気温を併せて示した。F地点は試験再開直後から異常値を示し、短期間でデータ欠損したため評価から除外した。

図8では、B地点は11月29日から1月9日、D地点は3月20日以降、C地点は4月28日以降のデータが欠損している。3地点ともデータ収集できた期間については、土壌水分量の大きな変動はみられず、 $0.33 \sim 0.37 \text{ m}^3/\text{m}^3$ であり、ほぼ同程度の水分量を示した。図9では、7月にE地点とG地点で $0.1 \text{ m}^3/\text{m}^3$ 程度の差がみられた期間があったが、それ以外では両地点で同程度の値を示した。

A、B、EおよびZの各地点の深度0.4mの結果を図10に示す。これらの地点はそれぞれ、ブルーシートの中央、中央から2m、4m、ブルーシート外(中央から8m)にある。モニタリング再開から3月中旬までは、全ての地点の土壌水分量はそれぞれ一定の値で推移し、大きな変動はみられなかった。

月間可能蒸発量と水分浸透量を図11に示す。12月から2月の冬期は、月間可能蒸発量が50mm未満であるが、3月以降は月間可能蒸発量が増加し、5月の水分浸透量はマイナス値を示した。

観測井の保有水水位を図12に示す。12月から2月の冬期は、保有水はGL-0.4mよりも高い水位を示しており、深度0.4mのセンサーは水没していたと考えられる。3月以降は低下し、5月から7月の間は最終覆土(GL-0.75m)以下となった。

以上から、モニタリング再開から3月中旬までの期間で水分量変動が小さかった原因は、保有水水位上昇に伴う水分飽和によると考えられ、このことは図4と図5における10月以降のキャッピングを実施していない期間においても同程度の値を示していることから示唆される。センサー間の僅かな水分量の差は間隙率等の影響が考えられ、深度0.2m付近の間隙率は $0.39 \sim 0.47$ の範囲で差がみられた。

次に、3月下旬から4月上旬にみられた水分量の変動について考察する。キャッピング中で大きな水分変動が確認されたのはこの期間のみであり、図11で示した月間蒸発可能量が増加し、水分浸透量が減少した時期と一致する。ただし、図12では、この期間の観測井の水位はGL-0.6m程度で依然高く、最終覆土層にある。

水分量が最も大きく減少したのはZ地点、続いてB地点、A地点であり、E地点についてはごく僅かな減少しかみられず、ブルーシートの中心からの距離との関係はみられなかった。さらに、E地点はブルーシート撤去後も、土壌水分量が減少した後の降雨による回復幅が大きく、全体的にも他の地点に比べて水分量が多い。一方、Z地点は降雨後の水分回復量が少ない傾向がみられた。

このような地点による水分量変化挙動の差は、廃棄物層の不均一な透水性が影響していると推察した。つまり、下部の埋立廃棄物の透水性が高く、浸透水が速やかに下部に移動しやすい地点であっても、降水量が多く、水分浸透量が豊富な期間は周囲から水分が移動することによる水分の再分配が発生し、周囲と同等の水分量を維持できる。しかし、水分浸透量が少なくなると、再分配による水分移動速度が低下し、相対的に廃棄物層への浸透移動速度の方が速い部分が発生し、その結果、地点により最終覆土層の水分量に差が生じたものと考えた。

地点による水分量変動挙動の差異を引き起こす因子としては、廃棄物層の透水性以外にも表層部の蒸発散量の差異が考えられる。例えば、部分的なキャッピングは降雨を

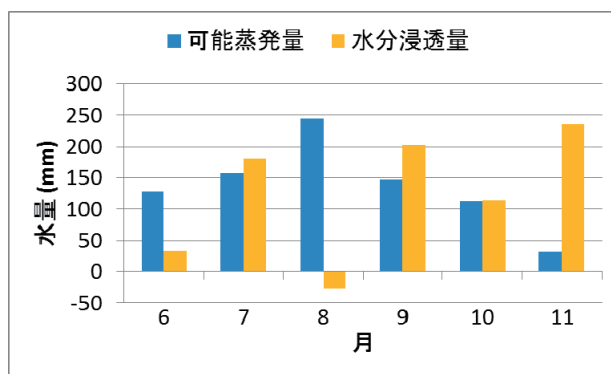


図6 可能蒸発量と水分浸透量

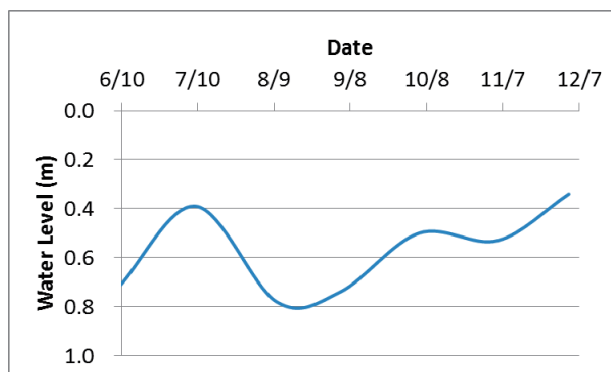


図7 観測井の地表からの水位

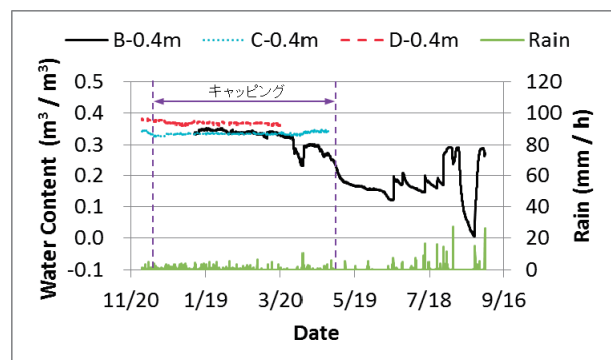


図8 2m地点の水分量と降水量

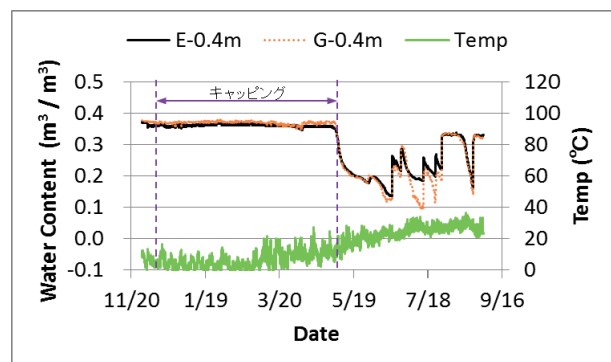


図9 4m地点の水分量と降水量

遮水するだけでなく、蒸発可能量も低減させる効果がある。つまり、夏期の蒸発散量が多い時期はキャッピング部以外の水分量が低下することで吸引力が発生し、キャッピング下部の水分がキャッピング部周辺に移動することが考

えられる。しかし、透水性が高い砂質土を使用した場合は蒸発に起因する水分移動よりも、降雨の浸透による水分移動が速いため、本研究で試験した程度の部分的なキャッピングが、その下部の土壤水分のみを局所的に低下させることは考えにくい。

4. まとめ

最終覆土に砂質土を使用した場合、最終覆土中の水分量は浅層部では変動が大きく、深層部では高値で変動しにくいことが分かった。浅層部の変動は深部への水分移動と蒸発が、深層部の安定は保有水水位の上昇と毛管現象に伴う水分飽和が原因と考えられた。

また、地点による土壤水分量の変動挙動に差がみられた。これは廃棄物層の不均一な透水性によるものであり、水分浸透量が少なく保有水水位が低い時期においては、透水性が高い埋立廃棄物の上部にある覆土中の水分減少が、最終覆土内部での周囲からの水分の移動・再分配よりも速くなることが原因と推察された。

本研究では、部分的なキャッピングによって降雨を遮断しても、保有水水位の上昇や覆土層内での水分移動・再分配により、キャッピング下部の水分量がキャッピング部周辺と同程度で維持されることが確認された。このことは、透水性が高い最終覆土を用いた埋立地において、キャッピング面積が過大でなく、周囲に水分浸透する部分があれば、下部の廃棄物層への水分浸透や塩類洗い出し効果を阻害しないことを意味しており、総浸透水量と水分浸透エリアを適正に調整したキャッピングは安定化の促進と維持管理費用の削減を同時に実現することが期待できると考えている。

謝辞

本研究は、特別電源所在県科学技術振興事業「安定化の促進と安全な跡地利用のための最終処分場の分析評価と技術開発」の一環として実施した。御指導いただいた国立環境研究所資源循環・廃棄物研究センター廃棄物適正処理処分研究部の山田正人室長、遠藤和人主任研究員、石垣智基主任研究員、日本工業大学の小野雄策教授、早稲田大学理工学術院の香村一夫教授、そして、調査に御協力いただきました関係者の方々に深謝いたします。

参考文献

- 1) 総理府厚生省：一般廃棄物の最終処分場及び産業廃棄物の最終処分場に係る技術上の基準を定める省令（昭和52年3月 総理府・厚生省令）
- 2) 社団法人全国都市清掃会議：廃棄物最終処分場整備の計画・設計要領（平成13年11月28日）

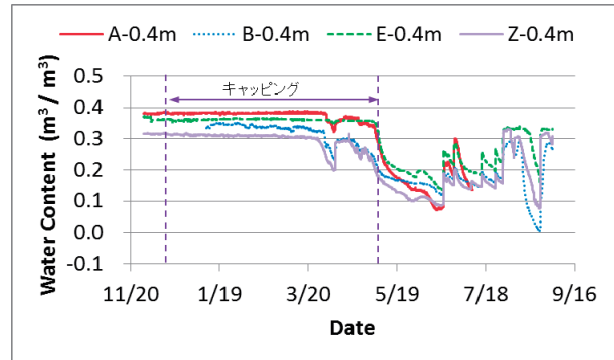


図10 各地点の水分量

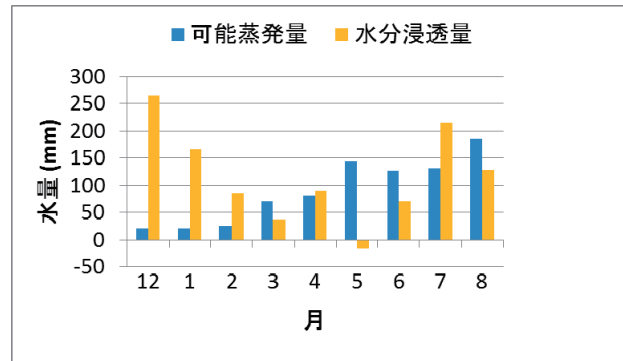


図11 可能蒸発量と水分浸透量

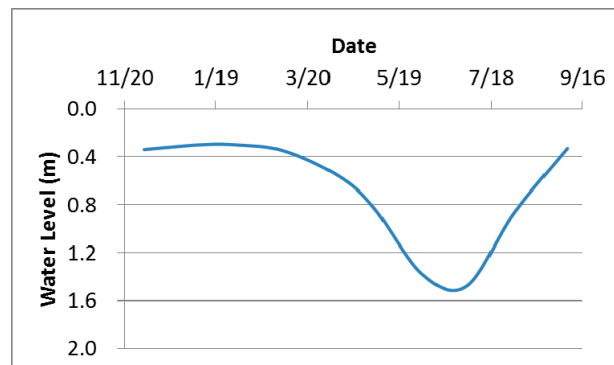


図12 観測井の地表からの水位