HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	北海道大学苫小牧地方演習林の大気汚染
Author(s)	太田, 路一; 川瀬, 清; 石崎, 健二; 前田, 豊
Citation	北海道大學農學部 演習林研究報告, 37(1), 287-305
Issue Date	1980-01
Doc URL	http://hdl.handle.net/2115/21030
Type	bulletin (article)
File Information	37(1)_P287-305.pdf

Instructions for use

Hokkaido University Collection of Scholarly and Academic Papers : HUSCAP

北海道大学苫小牧地方演習林の大気汚染*

太田路一** 川瀬　清**
石崎健二*** 前田　豊**

Air Pollution in Tomakomai Experiment Forest of Hokkaido University

By

Michikazu OTA, Kiyoshi KAWASE, Kenji ISHIZAKI and Yutaka MAEDA

目　次

緒　言 …… 287
I. 調査方法 …… 288
II. 結果と考察 …… 291
摘　要 …… 302
参考文献 …… 302
Summary …… 304

緒　言

北海道大学苫小牧地方演習林は新興工業都市苫小牧市の市街部に隣接し，ここ20年位の間に林木の枯損が目立ってきた。その原因がどこにあるかは単純に，あるいは性急に結論を下すことはできないが，近年苫小牧市の中に林木枯損の原因となる物質を大気中に放出する工場などの数が次第に増えてきていることは事実である。

植物に被害を与える物質の中でここで考たものは硫黄酸化物，フッ素化合物，窒素酸化物などであるが，被害の原因はこれらを含む諸物質の複合的作用であろうと思われる。汚染物質の発生源は，まず硫黄酸化物についてみると苫小牧市には古くから亜硫酸パルプを製造している大工場があって，ここでは蒸解薬液の原料として亜硫酸を多量に生産しているばかりでなく，ボイラーの燃料は硫黄を含む石油である。また，この工場以外に石油を燃料とする工場や火力発電所が増加している。

---

* 1979年7月31日受理
** 北海道大学演習林
Experiment Forest, Hokkaido University.
*** 北海道大学工学部
Faculty of Technology, Hokkaido University.

フッ素化合物はアルミニウム，過燐酸肥料，鉄，レンガ・タイルなどの製造のさいに発生することが知られている。苫小牧市にはアルミニウムと過燐酸肥料の製造工場があるため，フッ素化合物の放出が考えられている。アルミニウム製造のさいに発生するフッ素化合物はフッ化水素 (HF) をはじめ多種類あり，鋳型の表面塗装剤やアルミナの融剤に用いる氷晶石に含まれるフッ素化合物の分解によって発生し，また過燐酸肥料の製造ではフッ素を含有する燐鉱石を硫酸で処理するさいにこれが発生する。フッ素化合物の中でも HF は遠距離飛散して植物に大きな害を与えるのでとくに注目されている。

窒素酸化物 (NO_x) は空気を用いるあらゆる燃焼において発生する。そのおもな発生源として各種ボイラー，塵芥焼却炉，家庭用暖房器具などの固定発生源と自動車，航空機，船，鉄道車輌などの移動発生源が考えられ，その種類はきわめて多い。しかし NO および NO_2 以外の窒素酸化物は大気中の濃度がきわめて低いため，大気汚染物質として注目されているのは NO と NO_2 であり，ここでも窒素酸化物は $NO_x = NO + NO_2$ としてあらわす。

すでに述べたように，苫小牧市は工業化が進むにしたがって NO_x の固定発生源が急増しており，それに加えて演習林の南端を通過する高速道路が1981年開通の予定であるので，自動車の急増と演習林への近接による NO_x の林木に対する影響が最近真剣に考えられている。

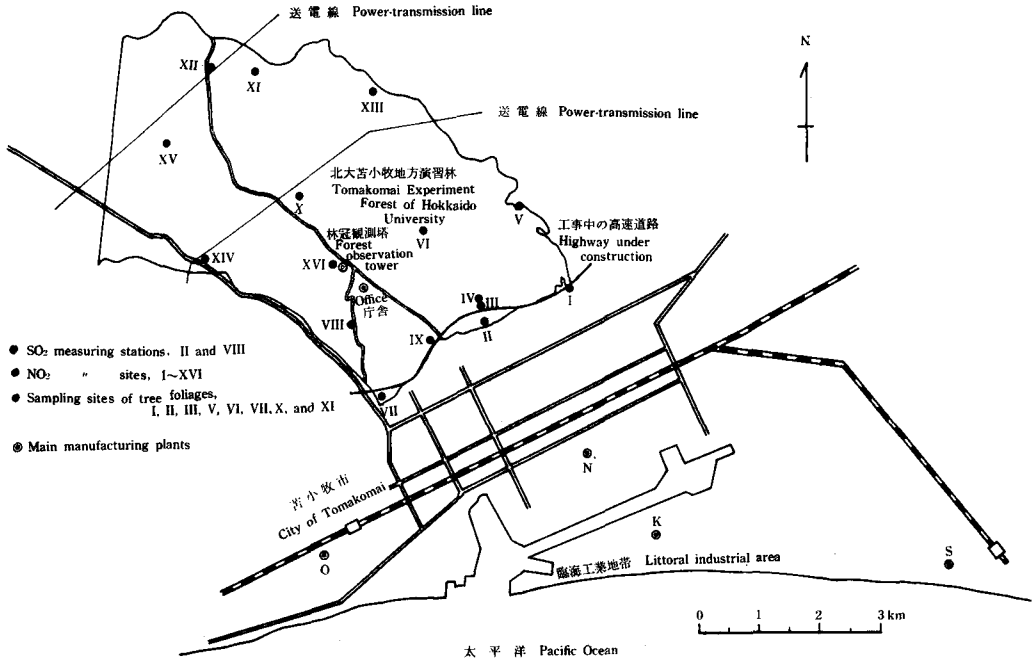
このように苫小牧地方演習林をめぐる環境は刻々悪化の一途をたどる可能性を秘めているが，森林に影響を与える諸因子は大気汚染のほかに，気象，土壌，地形など多数あって，それが相互に複雑に関連し合っているので，森林の被害と大気汚染の関係を論じるには長期間にわたる広範な観察と調査を必要とする[1]。北海道大学演習林では1970年代の初め頃から，大気汚染の森林に対する影響を解明するために，まず硫黄酸化物の測定をはじめて，すでに報告[2]も出されているが，自動測定器による測定は1974年からである。ここには最近数年間の自動測定器による測定結果を風向などと関連させながら報告することにした。

一方 HF については自動測定器による測定期間が短く，その間の測定値は有意な大きさに達せず特異な現象も観察されなかったので，今回は森林を平面的にみて，森林のほぼ全域にわたって採取した数種類の広葉樹葉について，フッ素の葉中濃度を測定した結果と，また窒素酸化物についてはアルカリ濾紙法によって同様にして分布をしらべた結果を報告する。

I. 調査方法

1. 苫小牧地方演習林の概況

調査対象地である北海道大学苫小牧地方演習林は苫小牧市字高丘に所在し，北緯42度40分，東経141度36分に位置し，総面積は約2720 ha である。図-1に示すように，南は太平洋に臨む苫小牧市の市街部に隣接し，臨海工業地帯から数 km の所にある。この演習林は勇払川の支流勇振川と苫小牧川との間に介在する支笏湖火山群からの抛出物によって厚くおおわれた，おもに海抜高5～90 m の台地状の丘陵の上に成立した森林である。地形は東南方に低く西



図—1 調査地点位置図

Fig. 1. Area of investigation.

方に次第に高くなっており，数本の沢がほぼ北西より南東に走っている。最近10年間の観測結果[4]によると年平均気温6°C，最高気温35.2°C，最低気温 −26.5°C となっており年降雨量は1350 mm で夏秋に多い。同林は森林植物帯上は温帯北部林から亜寒帯林への移行帯である汎針広混交林帯に属し，人工造林地の約800 ha を除くとその大部分が天然の広葉樹林である。広葉樹のおもなものはミズナラ，カエデ類，アサダ，アオダモ，ハリギリ，ドロノキ，シナノキ，サクラ類，カンバ類，サワシバ，アズキナシ，ケヤマハンノキなどで，天然生の針葉樹にはトドマツ，エゾマツ，アカエゾマツ，イチイがある。もともとこの演習林には木本植物104種類と草本植物255種類があって，合計82科359種類が認められている[3]。おもな造林樹種はカラマツ，トドマツ，アカエゾマツで，ストローブマツ，バンクスマツ，ヨーロッパトウヒなど多種類の外来樹種も植栽されている。森林は1954年5月の低気圧と9月の洞爺丸台風によって大きな被害を受けたが，現在は回復に向っている。なお1977年冬より始められた演習林の南端を通過する高速自動車道路建設工事のため，森林が幅約60 m，長さ約1.8 km にわたり伐採された[4]。

この演習林における最多風向は4〜9月の間は南あるいは南南東で，一方1〜3月および10〜12月の間は北あるいは北北西である。したがって，森林が大気汚染の被害を受けやすい開葉期には，工業地帯からの汚染物質を含んだ風が演習林に向って吹いていることがわかる。そこでまず苫小牧市における大気汚染物質の排出状態を資料[5),6)]によって概説すると，この工業

地帯には2つの大きな火力発電所，2つの大きな紙パルプ工場，石油化学工場，アルミニウム精錬工場等を主体とした14企業の工場があり，この14企業だけで硫黄酸化物については地域総排出量の90%以上，また窒素酸化物については地域総排出量の80%以上を排出している。さらにこの主要14企業の年間の硫黄酸化物排出量をみると，1976年には約1600 N m^3/h，1977年には1500 N m^3/hで，電力事業と紙パルプ工業の合計4企業の排出量が1977年には主要14企業全体の約87%を占めていた。またこの主要企業からの窒素酸化物の年平均排出量は約600 N m^3/hとなっており，このうち前記4企業の排出量が主要14企業の約87%を占めていた。演習林に近い市街部では硫黄酸化物濃度は二酸化硫黄としての年平均濃度が1976年には0.017 ppm，1977年には0.020 ppmであり，窒素酸化物の濃度は二酸化窒素としての年平均値が1976年には0.013 ppm，1977年には0.010 ppmであった。フッ素化合物の排出源としてはアルミニウム精錬工場と熔成燐肥製造工場が考えられる。

2. 調査方法

A. 風向風速の測定方法

風向風速の測定は図-1に示すIIおよびVIII測定局で行なった。II局[7]は演習林南端の丘の上にあり，高さ13 mの鉄塔の上に1.5 mのポールを立てその先端にプロペラ型風向風速計を設置して風向風速を測定した。この辺の樹冠の高さは約8 mなので，風速計は樹冠上約6.5 mの所に位置する。ここで測定されたデータはテレメータ（デジタル伝送方式）により2分間隔で常時林冠観測塔の受信室に送られ，公称10分間平均値に変換された後コンピュータにより集録整理される。一方VIII局は硫黄酸化物の自動測定器を設置したプレハブ小屋でその屋上の，地上高約3 m（周辺にはこの程度の樹高の木が何本かある）のところに設置した自記式風向計と風程式三杯風速計で測定し，内部に設置された週巻記録計に記録した。なお風速は1時間平均値として算出した。

B. 硫黄酸化物の定量

測定はII及びVIII局でそれぞれGRH-72型とGRH-2型の測定器を用いて行なった。いずれも地上高約3 mのところに大気の取り込み口を設置し，大気中の硫黄酸化物を過酸化水素で酸化して硫酸とし，これを溶液導電率法によって1時間値として測定した。II局のデータは記録紙に記録すると共に，テレメータによって観測塔に送られて集録整理した。なお硫黄酸化物は二酸化硫黄として計算されている。

なおVIII局は標高約50 mの平坦な台地上に造成された若い造林地の中にあって，保守管理が容易なこと，近くに電源があることなどの理由で設置場所が選定された。またII局は演習林南端のほぼ中央部にあって，苫小牧工業地帯から汚染物質を運ぶ風が直接あたる林縁の台地上にあって，南よりの風が吹くときは，高速道路からの排気ガスの影響を受けることなく，工業地帯からの汚染物質を測定できる位置に設置されている。

C. 二酸化窒素の測定

この測定はアルカリ濾紙法[8]によった。すなわち東洋濾紙 No. 526 を 5×13 cm に切断し，30% 炭酸カリウム溶液に浸漬し，充分液が浸透したら取り出して水滴が落ちなくなるまで風乾し，ついで 50～60°C で乾燥した。この濾紙を収容した直径 15 cm，深さ 25 cm の円筒型シェルタを図-1 に示す I～XVI 測定点の地上高約 1.5 m につり下げ，1 カ月間大気にさらした。回収した濾紙は，細片に切断して 200 mℓ のビーカに入れ，水約 60 mℓ を加えた後，沸とう水浴中で 20 分間加温浸出した。冷却後 3G2 のグラスフィルタで濾過，洗滌し，イオン交換処理した蒸留水を加えて濾液の全量を 100 mℓ とした。これから供試液 10 mℓ を 25 mℓ のメスフラスコにとり，これにザルツマン試薬[9]を加えて 25 mℓ とし，よく振りまぜてから 20 分間室温に放置し，545 nm で吸光光度法により定量した。なおアルカリ濾紙のブランク値はビニル袋中に保存した濾紙について測定した。

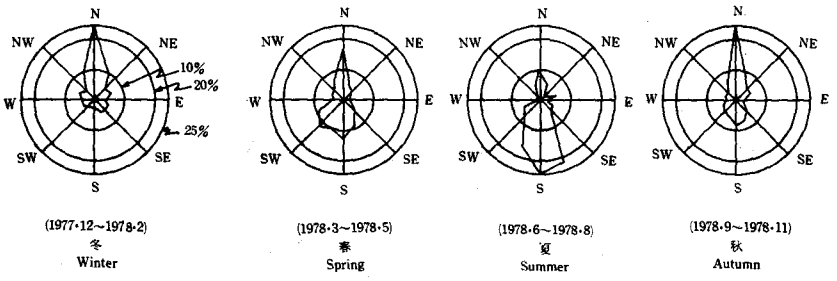
D. 樹葉中のフッ素の定量

樹種はイタヤカエデ，ハリギリ，ミズナラ，ホオノキ，シナノキ，エゾヤマザクラ，ヤマモミジの 7 種類を選び，地上高 5～6 m の樹葉を採取した。採取地点は図-1 に示してある I, II, III, V, VI, VII, X, XI の 8 地点である。樹葉中のフッ素の定量は山添の方法に準じて行なった[10),11),12),13)]。すなわち採取した樹葉は表面のダストを除くため，かるく水洗後直ちに 50～60°C で乾燥し，Wiley mill で粉砕した後 105°C で絶乾にした。分析試料 5 g をニッケルルツボにとり，約 3% の石灰乳 20 mℓ を加えてよく混合したのち，105°C で乾固させ，電気炉で灰化した。灰化は順次 300°C で 1 時間，400°C で 1 時間，500°C で 1 時間，ついで 550°C で 3 時間加熱して行なった。その後，灰分を少量の水でフッ素蒸留装置に移し，約 1 g の脱フッ素処理をしたケイ砂末，30 mℓ の過塩素酸，および 10 mℓ の濃硫酸を加えて液温 140±5°C で水蒸気蒸留を行なった。留出液は約 220 mℓ をメスフラスコに受け水を加えて 250 mℓ にした。このメスフラスコから 10 mℓ を 25 mℓ のメスフラスコにとり，3% ドータイト・アルフッソン試薬[14] 3 mℓ とアセトン 10 mℓ と水を添加して 25 mℓ とし，620 nm で吸光光度法により定量した。

II. 結果と考察

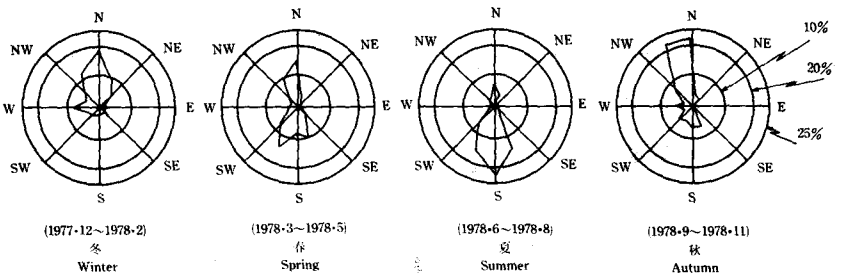
1. 風向風速

II 局と VIII 局の風向はそれぞれ図-2 および図-3 に示すように，両局とも冬季と秋季には北よりの風が，また夏季では南よりの風が卓越しており，春季には南よりと北よりの風がほぼ同程度に卓越していた。この年度の測定結果は従来のそれと比較して特別変った傾向はみられなかった。つぎに風速は表-1 にみられるように，2 局間に大きな相違があり，II 局では 3.5～6.5 m/s の頻度が約 60% ともっとも高く，VIII 局では 0.3～3.4 m/s が約 83% ともっとも高かった。両地点で冬の風速が秋よりも小さくなっているのは林冠観測塔のデータ[7]からも



図—2　II 局の季節別風配図

Fig. 2.　Seasonal wind rose in measuring station II shown in Fig. 1.



図—3　VIII 局の季節別風配図

Fig. 3.　Seasonal wind rose in measuring station VIII shown in Fig. 1.

表—1　II 局と VIII 局 (図-1) における風速階級の頻度

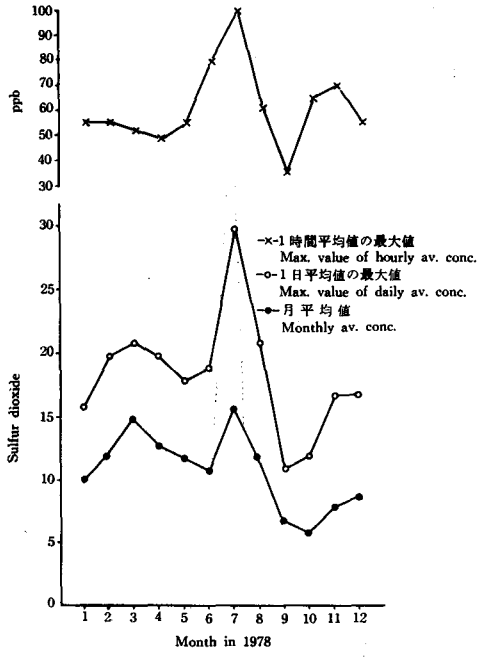
Table 1.　Seasonal variation of a distribution of wind velocity range in measuring stations II and VIII shown in Fig. 1　(%)

Season / Station / Range of WV m/s	冬 Winter		春 Spring		夏 Summer		秋 Autumn		通年 All seasons	
	II	VIII	II	VIII	II	VIII	II	VIII	II	VIII
静穏 Calm	0	7.4	0	6.9	0	14.4	0	4.0	0	8.1
0.3～3.4	40.3	83.3	28.0	82.6	30.1	83.7	32.6	83.5	32.8	83.3
3.5～6.5	55.8	9.1	61.7	10.1	64.4	1.7	60.5	12.5	60.6	8.4
6.6～	3.9	0.2	10.3	0.4	5.5	0.2	6.9	0	6.6	0.2
合計 Total	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100

明らかなように，一般風が冬におそくなることを両地点とも同じように反映している結果と考える。VIII 局で夏の風速が小さいことは樹葉の繁茂によって説明できる。これはB塔のデータ[7]からもわかる。

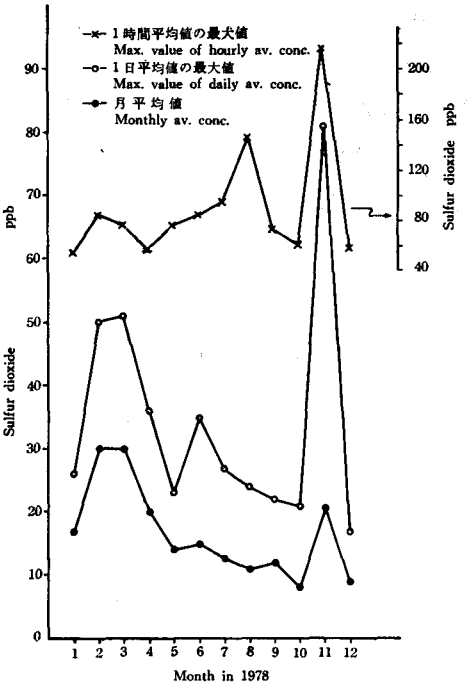
2. 硫黄酸化物

II 局における二酸化硫黄の月毎の濃度は，つぎの通りである。図-4 に示すように，1時間値の最大値は 31～96 ppb，1日平均値の最大値は 8～31 ppb，月平均値は 4～16 ppb の範囲にあり，それぞれの年最高値は7月にみられた。年平均値は 11 ppb であった。大気汚染の森林に対する影響は開葉期の夏季に大きいと思われるので，夏季についてみると，主風向が風上に



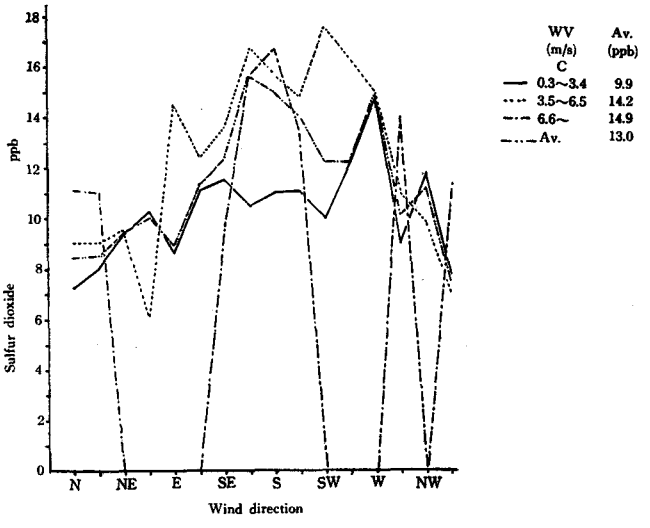
図—4 II 局の二酸化硫黄濃度の月変化

Fig. 4. Monthly concentrations of sulfur dioxide in measuring station II.



図—5 VIII 局の二酸化硫黄濃度の月変化

Fig. 5. Monthly concentrations of sulfur dioxide in measuring station VIII.



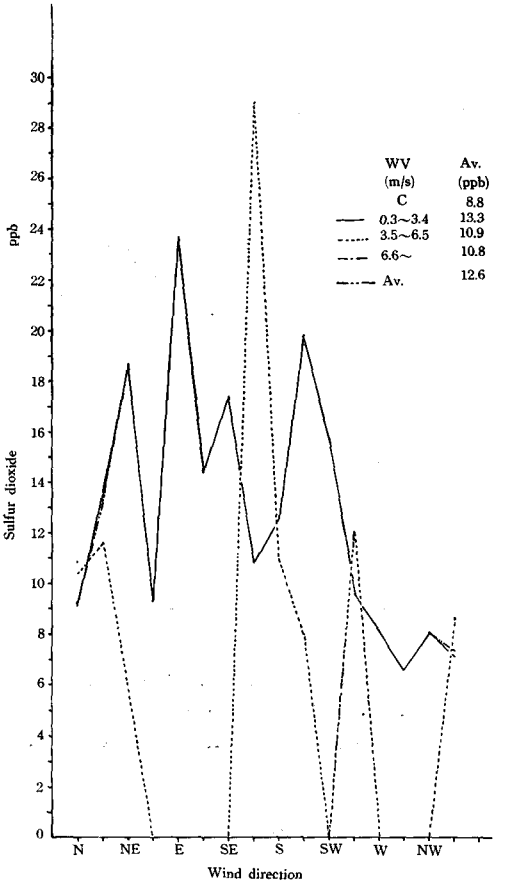
図—6 II 局の夏季 (1978. 6~8) における風向風速別 SO_2 平均濃度

Fig. 6. Relation between SO_2 concentration and wind direction for various wind velocities in summer (Jun.-Aug., 1978) in measuring station II.

工業地帯がある SSW～SSE で，図-6 に示すように濃度が高くなっていた。また風向 W のときにも高い濃度があらわれた。しかしこの風向の頻度は低いので全体としての寄与は小さいが今後検討を要する。

夏季の風向別平均濃度の最大値を示す風向について風速別平均濃度をみると，3.5～6.5 m/s の風速の時に高い濃度を示すことが多い。時刻別濃度の年平均値は図-8 に示すように，午前 6 時前後から急激に増加して午前 11 時前後に最大に達し，以後徐々に減少している。時間帯別にみると，午前 (8～12 時) と午後 (13～18 時) の時の濃度が同程度に高く，夜間 (19～7 時) が最低であった。また，季節別にみると，春季と夏季が同程度に高く，秋季が最低であった (図-8)。

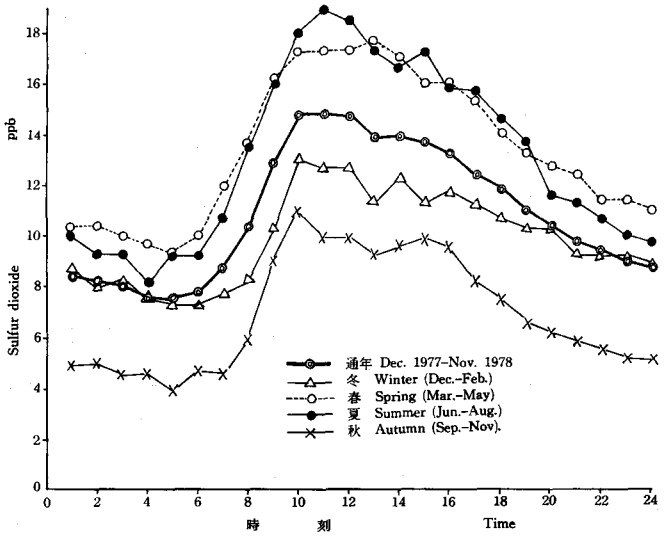
つぎに VIII 局における二酸化硫黄の月毎の濃度はつぎの通りである。図-5 に示すように，1 時間値の最大値は 34～217 ppb，1 日平均値の最大値は 9～81 ppb，および月平均値は 5～30 ppb の範囲であり，1978 年 11 月に非常に高い濃度がみられた。年平均値は 17 ppb であった。さらに，月平均値は 2 月と 3 月に高濃度になる傾向がみられた。また，図-7 に示すように，夏季では風向が SSW～SW と SE～NE の風の時に濃度が高くなる傾向があった。NE にもかなり高濃度があるが頻度が小さいので寄与は小さい。VIII 局には苫小牧市の上水道貯水池が北の方向に隣接し，塩素ガスを放出しているので，今後はこれによる測定値への影響についても検討する必要がある。夏季の風向別平均濃度の最大値を示す風向について風速別平均濃度をみると，0.3～3.4 m/s の風速の時に高い濃度を示すことが多い。時刻別濃度の年平均値は図-9 に示すように，6 時前後から急激に増加して，15 時前後に最大に達し，以後急激に減少している。時間帯別にみると，午後 (13～18 時) の濃度が一番高く，夜間 (19～7 時) が最低であった。また季節別にみると冬季と春季が同程度に高く，夏季と秋季が低かった。



図—7　VIII 局における夏季 (1978. 6～8) における風向風速別 SO_2 濃度

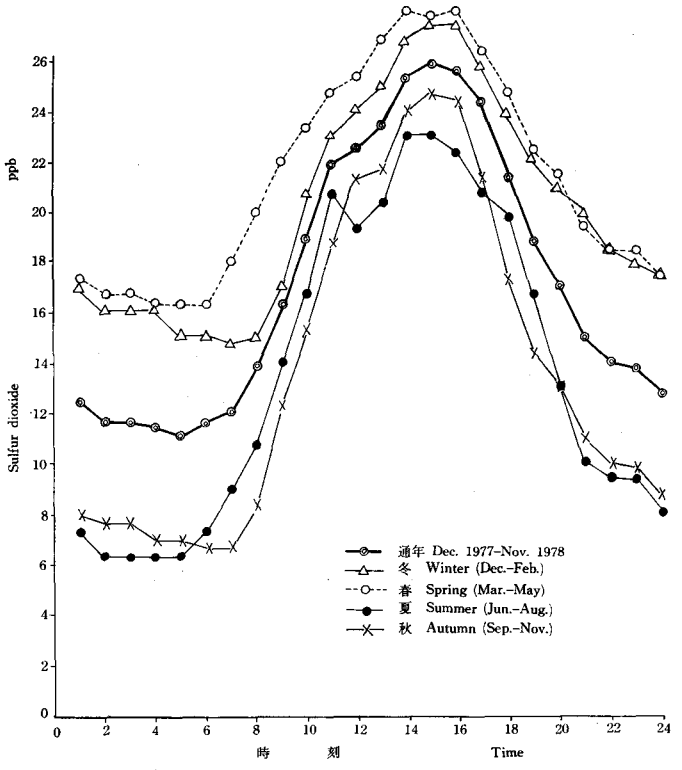
Fig. 7. Relation between SO_2 concentration and wind direction for various wind velocities in summer (Jun.-Aug., 1978) in measuring station VIII.

2 つの測定局 II と VIII は図-1 にみられるように約 2.2 km 離れて，東南から西北に走る



図—8 II 局の 1977 年 12 月～1978 年 11 月の間における時刻別 SO_2 平均濃度

Fig. 8. Diurnal variations of SO_2 concentration (Dec. 1977–Nov. 1978) in station II.



図—9 VIII 局の 1977 年 12 月～1978 年 11 月の間における時刻別 SO_2 平均濃度

Fig. 9. Diurnal variations of SO_2 concentration (Dec. 1977–Nov. 1978) in station VIII.

谷によって隔てられた台地上に設置されている。このうちII局は樹高約8mの林縁部にあり，一方VIII局は比較的開けた若い造林地内にあって，それぞれ環境が異なることや，二酸化硫黄の大発生源との位置関係の相違などを考え合せると，測定値にかなりのちがいが生ずることは想像できるが，共に大汚染源地帯のほぼ北の方向に存在するなど大局的な共通点のあることも念頭におき，既往の文献[15),16),17),18)]を参考にしながら測定結果を総合すると以下に列記するような特色がある。

まず2局に共通している点をみると，①二酸化硫黄の濃度は南寄りの風のときに高い，②日中は高く夜間は低い，③時刻別平均濃度の変化は6〜7時頃急激に濃度が高くなりはじめ，数時間後にピークに達し，その後は次第に低下して24時にはほぼ最低となって，それが数時間持続している，④濃度が急に高くなりはじめる時刻は夏にくらべて冬は遅い。④の起きる理由は日射による地表温度の上昇が夏の方が冬よりはやいために，高所にある高濃度の空気が対流によって，測定局に達する時間に遅速の生じることが原因ではないかとも考えられる[19)]。

一方相違点をみると，①年平均濃度がII局では11 ppbでVIII局の17 ppbより低い，②月別平均濃度はII局では3月と7月が高く，VIII局では2月と3月が高い。③時刻別濃度のピークはII局では10時，VIII局では15時にあらわれ，ピークのあらわれる時刻に5時間のずれがある。

さて，大気中の二酸化硫酸の植物に対する影響については本研究においてはそれを観察していないので，ここで具体的に指摘することはできないが，既往の報告を参考にしながら考察してみる。両測定局の濃度は年平均値として11および17 ppbであって，この程度の濃度が樹木に対してどのような被害を与えているかは，この分野における現在の研究段階では確かなことはいえない[20),21),22),23),24)]。しかし長期にわたる野外調査の事例[25)]によると，大気中の二酸化硫黄の濃度が年平均値で17 ppbのとき，ストローブマツの生長量が0.6%減少する事例がみられ，さらに数多いくん煙実験の結果[28)]をも参考にして判断すると，二酸化硫黄に対する感受性の高いストローブマツが被害を受けていることは容易に考えられる。ストローブマツは生長がはやく，独特の趣きのある林になるので，苫小牧地方演習林のように，都市近郊林としての機能も期待されるところでは，重要な造林樹種であり，今後は最近の文献を総括して森林の二酸化硫黄による汚染状況を3段階に分類したSMITHの報告[28)]などを参考にしながら，樹木に対する生理学的観察も加味して研究を進める必要がある。

2.　二酸化窒素汚染度の分布

二酸化窒素の発生源はすでに述べたように，大小すべての燃焼設備器具等である[29),30)]。したがって苫小牧市の工業地帯は有力な発生源であるが，本研究のきっかけとなったのは，演習林の南端を通過する高速道路上の自動車の影響に関する研究であったので，測定点の配置もそれを配慮して行なっている。すなわち，

表—2　1978年における二酸化窒素汚染度の月変化

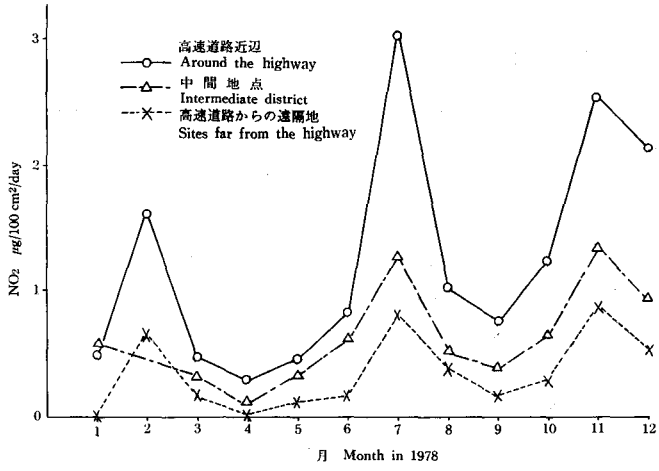
Table 2. Monthly variation of NO_2 value in 1978

(NO_2 μg/100 cm²/day)

測定点 Measuring site	月 Month	1978												年平均 Annual average
		1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	
高速道路近辺 Around the highway	I	0.69	2.05	0.57	0.41	0.41	0.35	2.13	1.35	0.98	1.73	2.29	2.69	1.30
	II	0.66	2.74	0.68	0.47	0.59	0.89	3.65	1.47	0.92	1.35	2.29	3.03	1.56
	III	0.16	1.20	0.42	0.36	0.59	1.25	4.21	1.46	1.00	1.85	3.60	2.11	1.52
	IV	0.09	0.98	0.29	0.17	0.36	—	3.30	0.87	0.64	0.21	1.66	1.16	0.88
	VII	0.67	1.00	0.29	0	0.41	0.51	1.16	0.65	0.58	0.53	2.60	1.30	0.81
	IX	0.59	1.55	0.52	—	0.33	1.06	3.82	0.50	0.43	1.64	2.65	2.46	1.41
平　均 (Av.)		0.48	1.59	0.46	0.28	0.45	0.81	3.05	1.05	0.76	1.22	2.52	2.13	1.25
高速道路から離れた地点 Sites far from highway	X	0.10	0.84	0.20	0	0.21	0.11	0.94	0.36	0.17	0.16	1.18	0.65	0.41
	XI	0	0.48	0.16	0.04	0.10	0.23	1.00	0.45	0.18	0.27	0.74	0.61	0.36
	XII	0	0.61	0.13	0	0.02	0.09	0.54	0.39	—	0.29	0.92	0.42	0.39
	XIII	—	—	—	—	—	0.31	0.97	0.39	0.26	0.50	0.59	0.58	0.51
	XV	—	—	—	—	—	0.12	0.54	0.36	0.08	0.29	0.87	0.45	0.39
平　均 (Av.)		0.03	0.64	0.16	0.01	0.11	0.17	0.80	0.39	0.17	0.30	0.86	0.54	0.41
中間地点 Intermediate districts	V	—	—	—	—	—	0.54	1.82	0.72	0.40	0.90	1.48	1.10	0.99
	VI	—	—	—	—	—	0.63	1.38	0.43	0.36	0.60	1.69	0.82	0.84
	VIII	0.59	—	0.31	0.10	0.33	0.83	0.77	0.50	0.43	0.76	1.43	1.41	0.68
	XIV	—	—	—	—	—	0.42	0.97	0.45	0.53	0.46	0.89	0.65	0.62
	XVI	—	—	—	—	—	—	1.36	0.43	0.25	0.50	1.19	0.65	0.73
平　均 (Av.)		0.59	—	0.31	0.10	0.33	0.61	1.26	0.51	0.39	0.64	1.34	0.93	0.77
総平均 Mean		0.36	1.27	0.36	0.17	0.34	0.52	1.79	0.67	0.48	0.75	1.62	1.26	0.84

1. 高速道路近辺　：I, II, III, IV, VII, IX
2. 道路からの遠隔地：X, XI, XII, XIII, XV
3. 1と2の中間地点：V, VI, VIII, XIV, XVI

である。このうちXIVは遠隔地とも考えられるが，国道276号線沿いにあって，自動車の排気ガスの影響を受けるので中間地点の中に入れた。1978年の測定結果を表-2および図-10に示す。この測定は高速道路が1981年に開通し供用されるので，事前調査の目的で始められたが，1978年には土木工事がさかんに行なわれ，工事用車輌の往来がきわめてはげしかったため，事前調査としてはかならずしも適切な状況ではなかった。まず測定地点を高速道路からの遠近によって3群に分けてその傾向をみると，年間平均汚染度は道路近辺の平均が1.25 μg/100 cm²/dayと一番高く，逆に遠隔地の平均が0.41 μg/cm²/dayと最低で，中間地点が0.77 μg/100 cm²/dayと両者の中間の値を示した。汚染度の月変化をみると，2月，7月，11月にピー



図—10 二酸化窒素汚染度の年間の月平均値

Fig. 10. Monthly variation of NO_2 value in 1978.

クがあり，これは二酸化硫黄の変化の傾向と一致している。しかもほとんどの月が道路に近い地点ほど汚染度が高くなっている。隣接2点についてみると，III 点は道路から 10 m 入った林縁内の地点で，これからさらに 40 m 入った林内に IV 点がある。この2点における測定結果をくらべてみると，いずれの月も林縁の III 点の汚染度が高く，年間の平均値は III と IV がそれ

表—3 樹種別，採取月日別

Table 3. Fluorine content of foliages of seven wood species collected (N plant in Fig. 1)

採取地点 Sampling site	N工場からの方位と距離 Direction and distance from N plant		ハリギリ *Kalopanax pictus*				エゾヤマザクラ *Prunus sargentii*	
	Direction	Distance (km)	Jun. 24	Jul. 30	Aug. 31	Sep. 30	Jun. 24	Sep. 30
II	NW	2.8	21.0	75.3	90.5	70.5	—	41.6
I	N	2.9	16.5	25.6	49.4	47.2	21.9	48.8
III	NW	3.0	—	—	29.4	33.3	3.9	62.3
VII	WNW	3.6	6.4	—	10.3	17.2	3.6	7.8
V	NNW	4.3	—	—	37.4	36.5	—	24.1
VI	NW	4.5	—	—	11.5	23.8	—	—
X	NW	6.4	8.2	13.9	10.4	18.4	6.2	15.5
XI	NW	8.3	—	—	6.1	18.3	7.1	—
発生源のない地方 Location very far from the emission source								
雨竜地方演習林 Uryu Experiment Forest			6.1		Jul. 5, 1978			
中川地方演習林 Nakagawa Exp. For.			9.2		Jul. 7, 1978			
白老町構前 Shiraoi town			6.0		Jul. 12, 1978			

ぞれ 1.52 と 0.88 であった。なお，今後は植物などに対する影響について行なった既往の文献[31)~40)]を参考にしながら究明する。

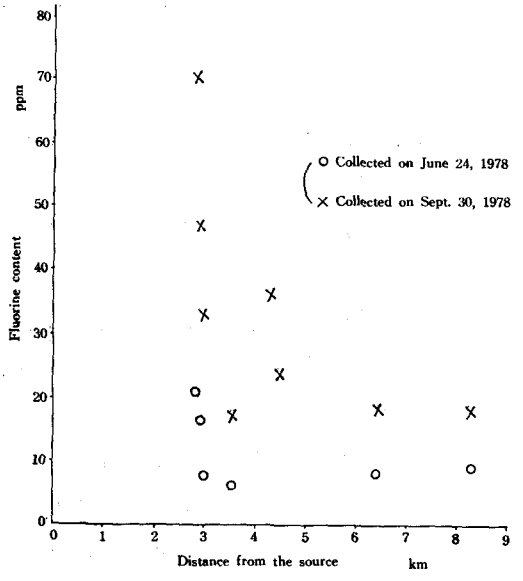
3. 樹葉中のフッ素濃度

測定結果を表-3 および図-11～17 に示す。これによると樹葉のフッ素とり込みにはハリギリ，エゾヤマザクラ，イタヤカエデのように，とり込みやすいものとヤマモミジ，シナノキ，ホオノキ，ミズナラのようにとり込みの少ないものとに 2 大別することができる。そこでフッ素のとり込み量の多いハリギリを例にして検討してみる。樹葉採取点の近くに特定のフッ化物発生源をもたない雨竜地方演習林，中川地方演習林，白老町樽前で 7 月初中旬に採取した葉のフッ素含有率がそれぞれ 6.1，9.2，6.0 ppm であった。一方苫小牧演習林で発生源から 3 km 以上離れた 2 点から 6 月 24 日に採取した葉の含有率がそれぞれ 6.4 ppm，8.2 ppm であったことから，完全に開葉したときのハリギリの葉は，自然状態では 10 ppm 以下のフッ素を含有していることが伺われる。しかし発生源から 3 km 以内の 2 点ではすでに 6 月 24 日に 16.5，21.0 ppm という比較的高い値を示しており，落葉期直前の 9 月 30 日には 47.2，70.5 ppm ときわめて高い値となっている。時間の経過と共に，いずれの地点においても含有率が高くなる傾向を示しており，9 月の葉は 6 月の葉の 2～3 倍の含有率となっている。発生源からの距離との関係は，6 月 24 日採取した葉については明確な傾向はみられないが，9 月 30 日採取の葉についてみる

樹葉中のフッ素濃度
in the forest at various distances from the fluoride source

(ppm, dry weight)

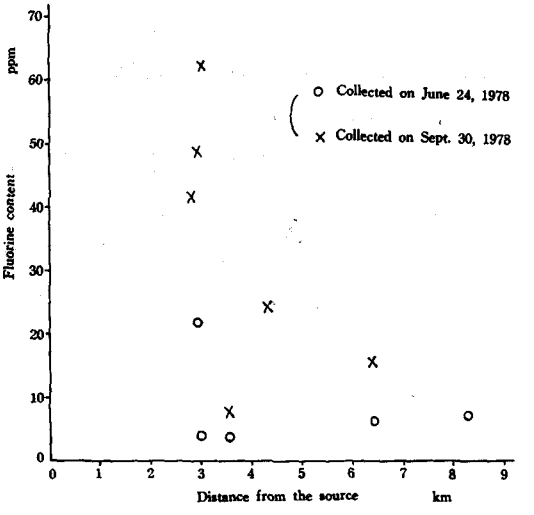
イタヤカエデ *Acer mono*		ヤマモミジ *Acer palmatum* var. *matsumurae*		シナノキ *Tilia japonica*		ホウノキ *Magnolia obovata*		ミズナラ *Quercus mongolica* var. *grosseserrata*	
Jun. 24	Sep. 30	Jun. 24	Sep. 30	Jun. 24	Sep. 30	Jun. 24	Sep. 30	Jun. 24	Sep. 30
9.7	71.8	9.0	23.3	12.8	84.3	6.4	35.3	9.8	13.2
28.0	70.3	17.8	10.3	25.9	—	17.4	14.5	20.7	27.9
13.7	92.0	6.7	9.0	9.1	23.1	8.6	4.5	16.2	25.8
5.9	10.2	5.5	1.8	5.7	—	3.9	4.7	6.9	6.0
—	24.1	—	4.9	—	—	—	2.3	—	7.7
—	—	—	5.9	—	—	—	—	—	—
7.0	14.2	8.5	2.5	9.2	9.1	16.1	2.3	7.4	3.1
8.5	—	3.8	4.9	9.4	—	7.1	9.4	6.2	5.6



図—11 ハリギリの葉中フッ素濃度と発生源からの距離

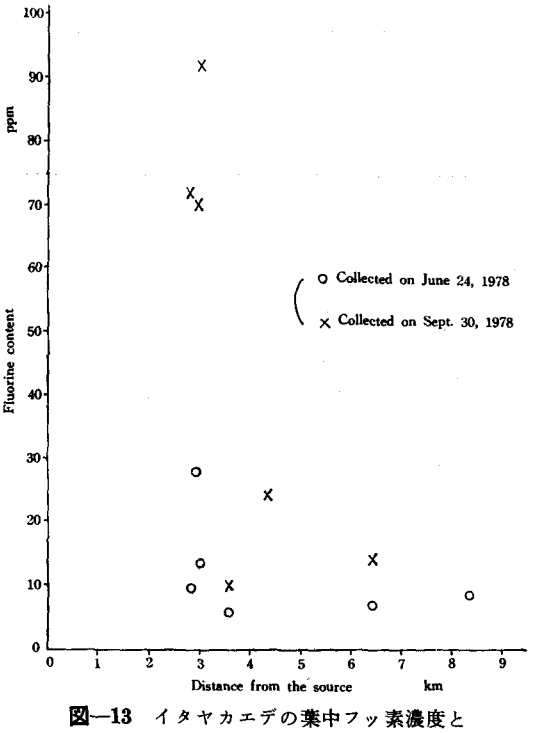
Fig. 11. Fluorine content of foliage of *Kalopanax pictus* collected at various distances from the fluoride source (N plant in Fig. 1).

と，近距離ほど含有率が高くなっている。ただし発生源からの距離が3.6 km のVII点で採取した葉は，樹種，採取時期によらずフッ素の含有率が遠隔地同様低かったが，これは夏から秋にかけての開葉期の主風向が発生源の方向と異なっており[41),42)]，環境濃度も相対的に低い[43)]地点であるためと思われる。フッ化水素自動測定器(電気化学計器 KK. GN-71型)によるII局およびXVI局における測定の結果をみると，この2年間くらいの間は一貫して測定限界以下の濃度であるにもかかわらず，樹葉中にフッ素が蓄積されて次第に高濃度に達していくことは注目に値する[44),45)]。すなわち，フッ素の発生源からはるかに離れた3地点から，7月初中旬に採取した葉のフッ素含有率がそれぞれ6.0, 6.1, 9.2 ppm であ



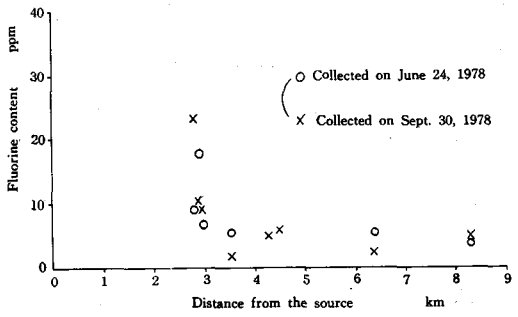
図—12 エゾヤマザクラの葉中フッ素濃度と発生源からの距離

Fig. 12. Fluorine content of foliage of *Prunus sargentii* collected at various distances from the fluoride source (N plant in Fig. 1).



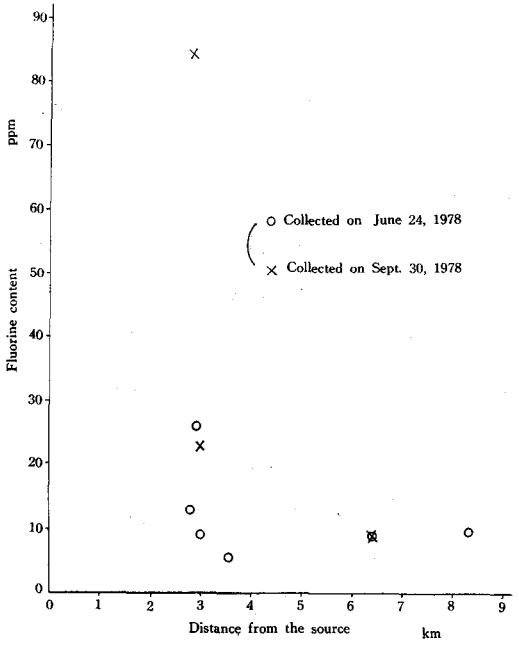
図—13 イタヤカエデの葉中フッ素濃度と発生源からの距離

Fig. 13. Fluorine content of foliage of *Acer mono* collected at various distances from the fluoride source (N plant in Fig. 1).



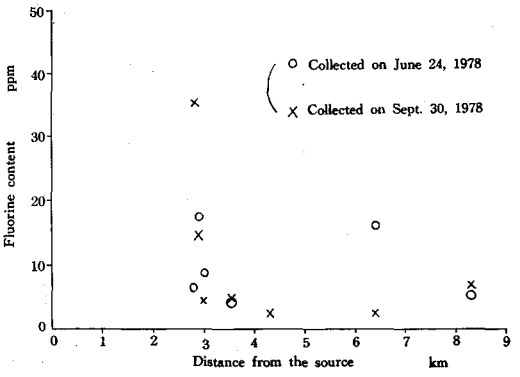
図—14 ヤマモミジの葉中フッ素濃度と発生源からの距離

Fig. 14. Fluorine content of foliage of *Acer palmatum* var. *matsumurae* collected at various distances from the fluoride source (N plant in Fig. 1).



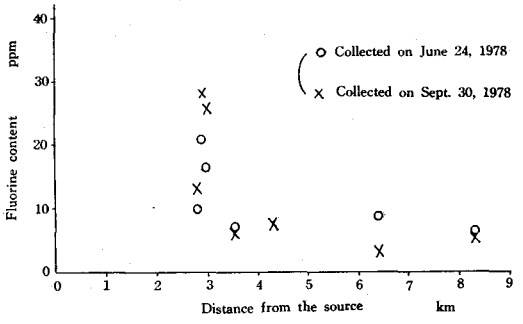
図—15 シナノキの葉中フッ素濃度と発生源からの距離

Fig. 15. Fluorine content of foliage of *Tilia japonica* collected at various distances from the fluoride source (N plant in Fig. 1).



図—16 ホウノキの葉中フッ素濃度と発生源からの距離

Fig. 16. Fluorine content of foliage of *Magnolia obovata* collected at various distances from the fluoride source (N plant in Fig. 1).



図—17 ミズナラの葉中フッ素濃度と発生源からの距離

Fig. 17. Fluorine content of foliage of *Quercus mongolica* var. *grosseserrata* collected at various distances from the fluoride source (N plant in Fig. 1).

り，遠隔地Xにおいて6月24日に採取した葉が8.2 ppmと近い値を示し，さらに遠隔地点X, XIから9月30日採取した葉がそれぞれ18.3, 18.4 ppmであったことから，ハリギリの場合，自然条件の下ではフッ素含有率が20 ppm以下[46),47)]と考えられるので，発生源からの距離が4.5 km以内の森林ではかなり高い値を示している。この傾向はフッ素をとり込みやすい他の樹種についても同様である。

本報告は大気汚染の森林に及ぼす影響をしらべるための基礎調査についてまとめたものであるが，個々の汚染物質の濃度や分布などについては，わずかながら傾向を知ることができ

た。樹木に対する被害はそれぞれの汚染物質の濃度や環境要因などが複合的に作用するし，また樹病的因子を加えると一層複雑となるので，現状では被害の状況を判断することは困難である。そこで汚染物質とそれによる被害との関係は，既往の文献を参考にした推測に止めたので，今後研究を推進するに当っては，その点について配慮する必要がある。さらに今後は樹葉中のフッ素含有率と植物被害との関連について論及している報告[48)~56)]を参考にしながら研究を深める必要があろう。

摘　　要

北海道大学苫小牧地方演習林は苫小牧市の新興工業地帯の北方に隣接し，そこから排出される大気汚染物質による森林の被害が憂慮されている。そこで筆者等は演習林内の2測定局において市販の測定器による二酸化硫黄の測定を行ない，さらに演習林内の全域にわたり，アルカリ濾紙法による二酸化窒素と葉中のフッ素濃度を測定した (図-1)。

1. 二酸化硫黄濃度の年平均値はII局で11 ppb, VIII局で17 ppbであった。また両局ともに夏季の主風向である南寄りの風が吹くとき高濃度であった (図-6, 7)。また1日の時間平均値は日中にピークがみられた (図-8, 9)。これらのことから，活発に活動している植物への影響が憂慮される。

2. アルカリ濾紙法によって二酸化窒素の汚染度を測定したところ，図-1に示す高速自動車道路の建設作業現場周辺 (I, II, III, IV, VII, IX) の年間の平均汚染度が平均1.25 μg/100 cm^2/dayと一番高く，遠隔地 (X, XI, XII, XIII, XV) が0.41 μg/100 cm^2/dayと最低で，中間地点 (V, VI, VIII, XIV, XVI) が0.77 μg/100 cm^2/dayと中間的値を示した。年間の月平均値をみると2月，7月，11月にピークがみられた (図-10)。この傾向は二酸化硫黄の変化の傾向と一致していた。

3. 樹葉中のフッ素濃度はハリギリ，エゾヤマザクラ，イタヤカエデがフッ化物発生源からの距離と葉の採取時期によって含有率に相違があった。これをハリギリについてみると，発生源からの距離が近いほど高く (表-3, 図-11, 12, 13, 14) また9月採取葉は6月採取葉の含有率の2～3倍であった。

参 考 文 献

1) 森田弘彦： 苫小牧市内マツ類の生育と大気汚染. 北方林業, 28 (5), 120-122 (1976).
2) 前田　豊・氏家雅男： 大気汚染と森林 (予報). 日本林学会北海道支部講演集, 20, 151-154 (1971).
3) 工藤祐舜・吉見辰三郎： 苫小牧演習林野生植物調査報告. 北大演報, 1, No. 4, 1-62 (1916).
4) 五十嵐恒夫： 苫小牧演習林の一般概況. 北海道における道路計画と森林環境の保全に関する調査研究 (その1), 4-6, 北大演習林印刷物 (1977).
5) 北海道： 苫小牧東部大規模工業基地に係る環境保全について, 14-21 (1978).
6) 苫小牧市環境部： 環境の現況と対策, 28-48 (1978).
7) 藤原滉一郎・工藤哲也・田中夕美子・杉下義幸： 52年度気象観測報告. 北海道における道路計画と森林環境の保全に関する調査研究 (その2), 162-248 (1978), 北大演習林印刷物.
8) 大気汚染研究全国協議会第二小委員会： 大気汚染ハンドブック (1), 147-149 (1971), コロナ社.

9) 杉浦公昭: 二酸化窒素による大気汚染. 人間と環境, **2**, 20–25 (1976).
10) 山添文雄: フッ化水素による煙害の実態ならびに機作に関する研究. 農技研報 B, No. 12, 1–125 (1962).
11) 大喜多敏一・森 正樹・金田和子: 環境汚染分析法 11, ハロゲン. 山縣登, 大喜多敏一編, 大日本図書 (1973).
12) 山本丈夫・祐田泰延・高橋公江・永金栄子: 植物試料中のフッ素定量法 (第1報). 衛生化学, **15** (2), 90–95 (1969).
13) COOKE, J. A., M. S. JOHNSON & A. W. DAVISON: Determination of Fluoride in Vegetation: A Review of Modern Techniques. Environ. Pollut., **11** (4), 257–268 (1976).
14) 同仁薬化学研究所: "ドータイト・アルフッソン (Alfusone)" ドータイト試薬解説資料, No. 231.
15) 館 正知・他13名: 大気汚染にもとづく公害に関する研究 (第1報). 大垣市の大気汚染, その1. 衛生化学, **15** (1), 26–36 (1969).
16) 山田 剛・他8名: 四日市市における拡散気象条件調査 (第1報). 公害, **3** (2), 48–58 (1968).
17) 若松伸司: 神奈川県の海風と大気汚染 (1). 天気, **22** (2), 33–37 (1975).
18) FUKUOKA, Y.: Meteorological study of air pollution (2). Effects of wind directions and land relieves on the distribution of air pollution. Sci. Rep. Fukushima Univ., No. **24**, 67–77 (1974).
19) 太田久雄・長尾 隆: 公害と気象, 観測と調査の実際. 11–21 (1974), 地人書館.
20) 垰田 宏: 大気汚染が植物に与える影響とその調査方法. Japanese Journal of Ecology, **23** (2), 81–89 (1973).
21) 中島康博: 大気汚染のスギの生育に及ぼす影響. 林業技術, **439**, 19–22 (1978).
22) 佐藤 明・河原輝彦: ケヤキに対する大気汚染の影響. 北方林業, **29** (7), 10–13 (1977).
23) MUDD, J. B.: Sulfur Dioxide in "Responses of Plants to Air Pollution" ed. by J. B. MUDD & T. T. KOZLOWSKI, 9–22 (1975), Academic Press, Inc..
24) GUDERIAN, R.: Air Pollution Phytotoxicity of Acidic Gases and Its Significance in Air Pollution Control, 60–97 (1977), Springer-Verlag, Berlin. Heidelberg. New York.
25) 松岡義治: 二酸化硫黄と高等植物. "図説環境汚染と指標生物" 松中昭一編, p. 60–65 (1979), 朝倉書店.
26) WILLIAMS, R. J. H., M. M. LLOYD & G. RICKS: Effects of Atmospheric Pollution on Deciduous Woodland 1: Some Effects on Leaves of Quercus Petraea (MATTUSCHKA) Leibl. Environ. Pollut., **2** (1), 57–68 (19771).
27) 前野道雄: 大気汚染植物被害写真集. 6–15 (1973), 大気汚染研究全国協議会第7小委員会編, 財団法人日本公衆衛生協会.
28) SMITH, W. H.: Air Pollution Effects on the Structure and Function of the Temperate Forest Ecosystem. Environ. Pollut., **6** (2), 111–129 (1974).
29) 長 哲郎・佐藤 伸・幸田清一郎・吉田忠雄・高橋 甫・冨永博夫: NO_x の化学. 12–18 (1978), 共立出版.
30) MOORE, J. W. & E. A. MOORE: Environmental Chemistry, 229–237 (1976), Academic Press, Inc..
31) 松島二良: 窒素酸化物と高等植物. "図説環境汚染と指標生物" 松中昭一編, 124–127 (1979), 朝倉書店.
32) 藤原 喬: 窒素酸化物の植物におよぼす影響について. 公害と対策, **9** (3), 253–257 (1973).
33) 藤原 喬・梅沢 武: 二酸化窒素, オゾンのホウレンソウに対する影響. 大気汚染研究, **10** (4), 308 (1975).
34) 山田博歳・前田達男・福田哲郎・廣末孝行: 防府市における光化学オキシダントの解析結果—O_x と NO_x との関係について—. 大気汚染研究, **10** (4), 476 (1975).
35) ZEEVAART, A. J.: Some Effects of Fumigating Plants for Short Periods with NO_2. Environ. Pollut., **2** (2), 97–108 (1976).
36) MILLER, P. R. & R. M. YOSHIYAMA: Self-Ventilated Chambers for Identification of Oxidant Damage to Vegetation at Remote Sites. Environ. Sci. & Technol., **7**, 66–68 (1973).
37) MILLER, P. R., M. H. MCCUTCHAN & B. C. RYAN: Influence of Climate and Topography

on Oxidant Air Pollution Concentrations that Damage Conifer Forests in Southern California. Mitteilungen der Forstlichen Bundes-Versuchsonstalt Wien, **97**, 585–607 (1972).

38) MILLER, P. R.: Oxidant-induced Community Change in a Mixed Conifer Forest. Advance in Chemistry Series, No. 122, "Air Pollution Damage to Vegetation", the American Chemical Society, 101–117 (1973).

39) 藤川福二郎・他18名: 大気汚染による文化財に対する影響 (第1報). アルカリろ紙法による大気汚染濃度の測定とそれの金属光沢におよぼす影響について. 衛生化学, **15** (6), 377–387 (1969).

40) 林富美子・内山征洋・嶋田好孝・高橋勇夫・斎藤 譲: アルカリ濾紙法による大気汚染調査 (第2報). 大気汚染研究, **10** (4), 428 (1975).

41) 広沢伊一郎: アルミニウム製錬工場排ガスによる地域汚染. 公害と対策, **9** (4), 347–351 (1973).

42) MILLER, P. R. & J. R. MCBRIDE: Effects of Air Pollutants on Forests in "Responses of Plants to Air Pollution" ed. by J. B. MUDD & T. T. KOZLOWSKI, 57–95 (1975), Academic Press, Inc..

43) 日本科学者会議北海道支部公害委員会: 苫小牧臨海工業地帯のフッ化物汚染. 公害と科学運動, **7**, 15–20 (1973).

44) GILBERT, O. L.: Effects of Air Pollution on Landscape and Land-use around Norweigian Aluminium Smelters. Environ. Pollut., **8**, 113–121 (1975).

45) 角田文男: アルミニウム製錬工業におけるフッ化物による大気汚染防止対策. 公害と対策, **9** (4), 376–381 (1973).

46) 山添文雄: フッ化水素と高等植物. "図説環境汚染と指標生物" 松中昭一編, 128–133 (1979), 朝倉書店.

47) 松浦新之助・国分信英: フッ素の研究. 39–72 (1973), 東京大学出版会.

48) 千葉県環境部: 市原地区におけるフッ化物大気汚染調査報告, 1977.

49) 祐田泰延・山本丈夫: 植物に及ぼす気中フッ化物の影響. 農化, **49** (7), 341–346 (1975).

50) 山添文雄: フッ化物による植物被害とその実態. 公害と対策, **9** (4), 331–338 (1973).

51) MCLAUGHLIN, S. B. JR & R. L. BARNES: Effects of Fluoride on Photosynthesis and Respiration of Some South-east American Forests Trees. Environ. Pollut., **8**, 91–96 (1975).

52) GARREC, J. P., R. PLEBIN & A. M. LHOSTE: Influence du Fluor sur la Composition Minerale D'aiguilles Polluees de Sapin (*Abies alba* MILL.) Environ. Pollut., **13**, 159–166 (1977).

53) CHANG, C. W.: Fluorides in "Responses of Plants to Air Pollution" ed. by J. B. MUDD & T. T. KOZLOWSKI, 57–95 (1975), Academic Press, Inc..

54) GARREC, J. P. et A. VAVASSEUR: Distribution du Fluor chez Populus nigra L. en Zone Polluee. Eur. J. For. Path., **8**, 37–43 (1978).

55) MCCUNE, D. C. & L. H. WEINSTEIN: Metabolic Effects of Atmospheric Fluorides on Plants. Environ. Pollut., **1**, 169–174 (1971).

56) POOVAIAH, B. W. & H. H. WIEBE: Tylosis Formation in Response to Fluoride Fumigation of Leaves. Phytopath., **59**, 518–519 (1969).

Summary

Tomakomai Experiment Forest of Hokkaido University has been concerned about forest damage by air pollutants emmitted from the new industrial area of Tomakomai city which is located adjacently to the southern end of the forest.

Therefore, the field studies described in this paper, measurement of SO_2 concentration by a continuous automatic conductivity analyser in both measuring stations of II and VIII in the forest (Fig. 1), measurement of relative NO_2 value by the filter paper treated with potasium carbonate all over the forest, and also analysis of the fluorine content of foliage at varying

distances from the fluoride emission source (N plant in Fig.1) were undertaken in order to confirm the existing circumstances of an air environment and an air pollution injury to trees within the forest and then in order to develop a better perspective of the extent and severity of this problem around the forest.

1. The ambient levels of SO_2 concentrations of both measuring stations of II and VIII were 11 and 17 ppb as an annual average, respectively. Also, the relatively high level of SO_2 concentration at both those stations was observed, when prevailing winds were from southward direction in summer (Figs. 6, 7). And SO_2 concentration peaks at both those stations also occured during daylight hours (Figs. 8, 9). These observations may suggest that some adverse effects on trees in the forest will occur.

2. The highest ambient level of relative NO_2 value, 1.25 $\mu g/100\ cm^2/day$ as an annual average, was observed at the measuring sites of I, II, III, IV, VII and IX (Fig. 1) around the construction sites of the expressway, the lowest one, 0.41 $\mu g/100\ cm^2/day$ at the remote measring sites of X, XI, XII, XIII and IX, and the medium one, VIII, XIV and XVI. Its monthly average variations showed occurrences of its high values in February, July and November. Also this same occurrence was observed on SO_2 monthly average variations.

3. Of the seven species of wood foliage collected within the forest, the fluorine contents of *Kalopanax pictus*, *Prunus sargentii*, and *Acer mono* were affected by the distance from the emission source of the fluoride and collecting time of wood foliage. For instance, very high fluorine content of *Kalopanax pictus* was observed at the collecting site nearest from the source (Table 3 and Figs. 11, 12 and 13), and also the fluorine contents of its foliage collected in September were 2 to 3 times higher compared with those of its foliage collected in June.