HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	北海道大学苫小牧地方演習林の大気汚染(Ⅱ)
Author(s)	太田, 路一; 川瀬, 清; 石崎, 健二 他
Citation	北海道大學農學部 演習林研究報告, 40(3), 491-527
Issue Date	1983-08
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/21092
Type	departmental bulletin paper
File Information	40(3)_P491-527.pdf

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 (II)*

太田路一** 川瀬　清**
石崎健二*** 前田　豊**

Air Pollution in Tomakomai Experiment Forest of Hokkaido University (II)*

By

Michikazu OTA**, Kiyoshi KAWASE**, Kenji ISHIZAKI***
and Yutaka MAEDA**

目　　次

緒　　言 …… 491
I. 調査方法 …… 492
II. 結果と考察 …… 495
結　　言 …… 523
摘　　要 …… 523
参考文献 …… 524
Summary …… 525

緒　　言

前報[1]では苫小牧地方演習林の大気の汚染状況について基礎的理解がえられた。すなわちイオウ酸化物や窒素酸化物については定点における経時的濃度変化や苫小牧地方演習林を中心とする地域における濃度分布，さらに樹葉中のフッ素濃度とフッ素化合物発生源からの距離との関係などについて，その傾向を知ることができた。

演習林の南端を通過する高速道路が1980年10月に供用されはじめたので，それによる森林大気の汚染状況の変化も考えられたので，今回は1979～1981年の3ヵ年にわたって，やや詳細に汚染状況の調査を継続して実施した。すなわち，高速道路に近いIII局に二酸化イオウ自動測定器と窒素酸化物自動測定器各1台，IV局に窒素酸化物自動測定器1台を設置して測定を行なった。さらに，葉中フッ素濃度測定は，前報では演習林内で採取した葉についてのみ

* 1982年8月31日受理　Received August 31, 1982.
** 北海道大学農学部演習林
Experiment Forests, Faculty of Agriculture, Hokkaido University.
*** 北海道大学工学部
Faculty of Technology, Hokkaido University.

行なったが，今回はフッ素化合物発生源に近い市街地から演習林内部まで，連続的に採取できるタラノキの葉を用いて測定を行なった。また，イタヤカエデについては，前回に引き続きフッ素濃度の測定を行なうと共に，葉中にとり込まれているイオウの含有量についても測定を行なった。

このようにして，前報の結果も含めて4カ年にわたる研究の結果，汚染物質の分布や経時変化については，その傾向が次第に明らかになってきたので，今後とも必要な研究を継続しながら，えられた結果を森林の取り扱いの上に活かしていきたいと考えている。

なお，研究を行なうに当っては，長い間，苫小牧地方演習林の方々に，いろいろなことを通して暖かい御援助をいただいた。ここに心から感謝の意を表する。

I. 調 査 方 法

1. 苫小牧地方演習林の概況

苫小牧地方演習林は前報[1]で述べたように，苫小牧市の近郊に所在する海抜高5～90 mの台地上の丘陵の上に成立した森林である。苫小牧市は新興工業都市であるので，森林を汚染する物質を放出している工場などの数が，次第に増加しているなど，環境は少しずつ変化している。演習林の南端に建設中であった高速道路は1980年10月から供用が開始された。1981年8月23日には台風15号の風雨によって，人工造林地の樹高15 m内外のトドマツ，カラマツ，チョウセンゴヨウが倒壊し，壊滅的打撃を受けた。また測定点を設置した広葉樹林は一時的に樹葉の褐変が目立った。

2. 調 査 方 法

A. 風 向 風 速

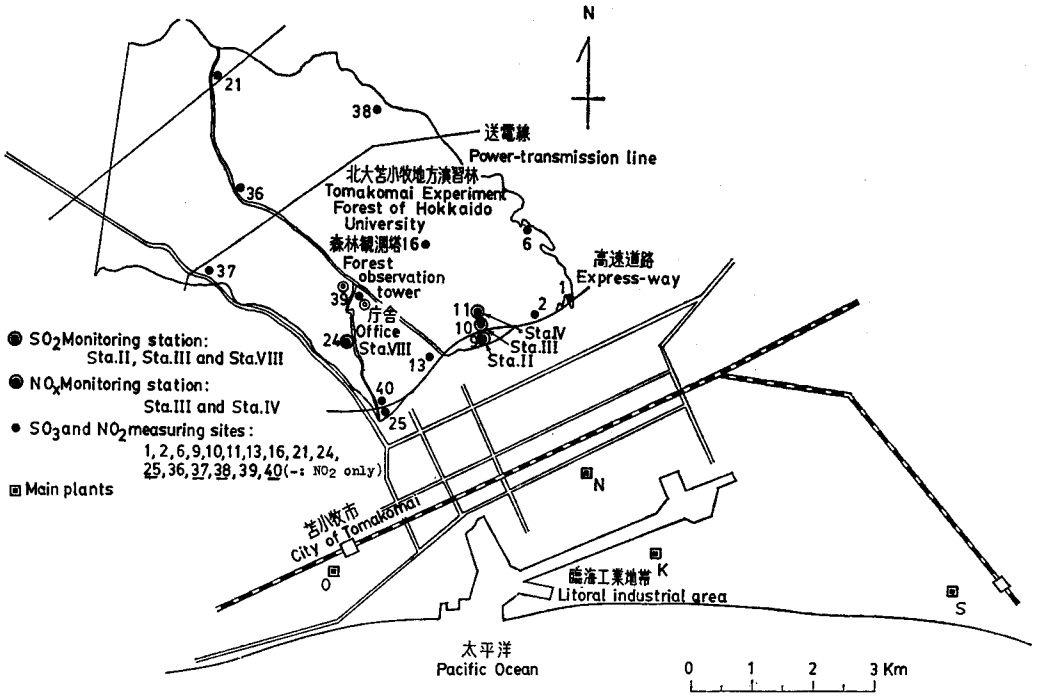
風向風速の測定は前報で報告したII局およびVIII局のほかに，今回はIII局およびIV局でも行なった。III局は高速道路の北側の林縁部から約10 m森林内へ入ったところにあり，IV局はIII局の北側40 mの所にあって，周囲は樹高約8 mの広葉樹二次林である。II局とIII局は高速道路をはさんで約200 m離れている（図-1)。測定は，II, III, IV局では高さ14.5 mに，VIII局では高さ約3 mに設置したプロペラ型風速計によってなされた。

B. イオウ酸化物

測定はII, III, VIII局で行なった。測定器はIIとIII局ではGRH-72型，VIII局ではGRH-2型（いずれも電気化学計器）を用いた。なお，II, III, IV局設置点の高さはほぼ等しく，海抜高約34 m，III, IV局附近の高速道路の路面は海抜高約23 mで，測定局とは11 mの差がある。また，林縁部から道路の切土法面の上端までの距離は約14 mである。

C. イオウ酸化物の汚染度

汚染度の測定は二酸化鉛法（PbO_2法)[5]により実施した。すなわち，素焼円筒に二酸化鉛を塗布した綿布をまきつけて，円筒型のシェルター内に取りつけ，1カ月間大気中に放置して



図—1 SO_x, NO_x 測定地点位置図

Fig. 1. Area of investigation of SO_x and NO_x measurement.

回収し，分析に供した。生成した硫酸鉛の硫酸イオンは塩化バリウムを加えて硫酸バリウムを沈殿させ，東洋濾紙 No. 5 C を用いて濾過後灰化して秤量した。秤量した $BaSO_4$ の量に係数 0.3427 を乗じて SO_3 の量とした。一方，試料と同期間デシケータ内に放置した二酸化鉛塗布綿布をまきつけた円筒を，試料と同様に処理してブランク値を求めた。汚染度はつぎの式から SO_3 μg/100 cm^2/day の単位で求めた。

$$(W_1-W_2)\times\frac{80}{233}\times\frac{100}{a\cdot b}$$

ここで，W_1：ばく露した試料の $BaSO_4$ の量 (μg)

W_2：ブランク値 (μg)

a：PbO_2 を塗布した綿布の面積 (cm^2)

b：ばく露日数 (日)

なお，シェルターは森林全域にわたり 12 地点 (そのうち 6 地点は森林の南端 (図-1)) の地上高約 2 m の高さの樹幹に設置した。調査期間は 1979 年 4～10 月と 1981 年5～10 月である。

D. 窒素酸化物

窒素酸化物の濃度は III 局および IV 局に設置した自動測定装置 (電気化学計器 GPH-74, ザルツマン法) により 1 時間値として測定した。この測定値は硫黄酸化物の測定値と同様，森

林観測塔（図-1）に伝送され集録，整理されている。測定期間は両局とも1979年4月20日から1981年12月31日までである。

E. 二酸化窒素の汚染度

測定はナイトレーション・プレート法[6),7)]によって実施した。すなわち，20%トリエタノールアミン溶液，250～300メッシュのガラスビーズおよびトラガントゴム溶液を混合して調製したペースト状液を内径6 cmのガラス製シャーレ（底に8 cm四角のガラス板を接着したもので，ナイトレーション・プレートと呼ぶ）内にとり，乾燥して固化した。このプレートをプレートホルダーに取りつけ，1カ月間大気中に放置し，回収後分析に供した。捕集したNO_2の分析はつぎのように行なった。すなわち，プレート内の試料を蒸留水60 mℓで300 mℓのビーカー内に洗い落し，湯浴上で2時間加温抽出し，東洋濾紙No. 5 Cを用いて吸引濾過し，濾液と洗液を100 mℓのメスフラスコに入れ蒸留水で100 mℓとした。この液10 mℓを25 mℓのメスフラスコに入れ，ザルツマン試薬[8)]で全量25 mℓとし，よく混和後，室温で20分間放置し試料溶液とした。試料溶液は545 nmで吸光度を測定し，25 mℓ中のNO_2の量（μg/25 mℓ）を検量線より求めた。これと平行してブランク試験を行なった。汚染度はつぎの式からNO_2 μg/100 cm²/dayの単位で求めた。

$$(NO_2\ \mu g/25\ m\ell)\times 10\times\frac{100}{a}\times\frac{1}{b}$$

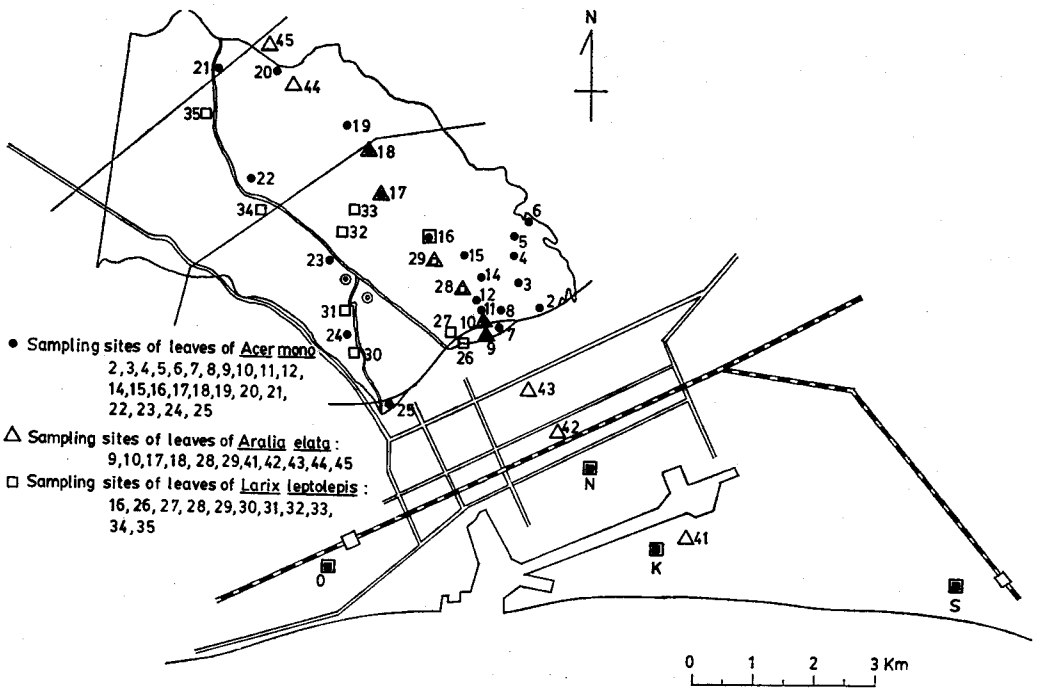
ここで，a：ナイトレーション・プレートの表面積（cm²）

b：ばく露日数（日）

なお，測定地点は森林内全域にわたり16地点を設け，このうち8地点は森林南端部の高速道路周辺に，また他の8地点は高速道路からの遠隔地である森林の北部と両者の中間部に設置した。またプレートホルダーは地上約2 mの高さに設置した。調査期間は1979年7～11月，1980年4～10月および1981年5～10月である。

F. 樹葉中のフッ素

樹種はイタヤカエデ，タラノキ，カラマツの3種類を選び，樹葉はタラノキは地上高1～2 mで，他の2種類は5～6 mで採取した。採取地点はイタヤカエデについては23地点を選び，このうち7地点は森林の南端部に，他の16地点は森林内の各所に設置した（図-2）。タラノキについては発生源から北西方向のほぼ一直線上に11地点を選び，このうち3地点は工場に近い市街地に，他の8地点は森林内に設置した。カラマツについては11地点を選び，このうち2地点は森林の南端部に，他の9地点は森林内に設置した。採取時期はイタヤカエデとカラマツについては開葉後間もない1979年6月29日と落葉まじかの9月27日で，タラノキについては1980年の10月2日である。試料葉は粉砕後灰化し，フッ素の定量[1)]は620 nmを用いて吸光光度法で行なった。



図—2 樹葉の採取地点位置図

Fig. 2. Sampling sites of tree leaves.

G. 樹葉中のイオウ

樹種はフッ素の分析に用いたイタヤカエデを選んだ。分析は硫酸バリウム重量法[9]によった。

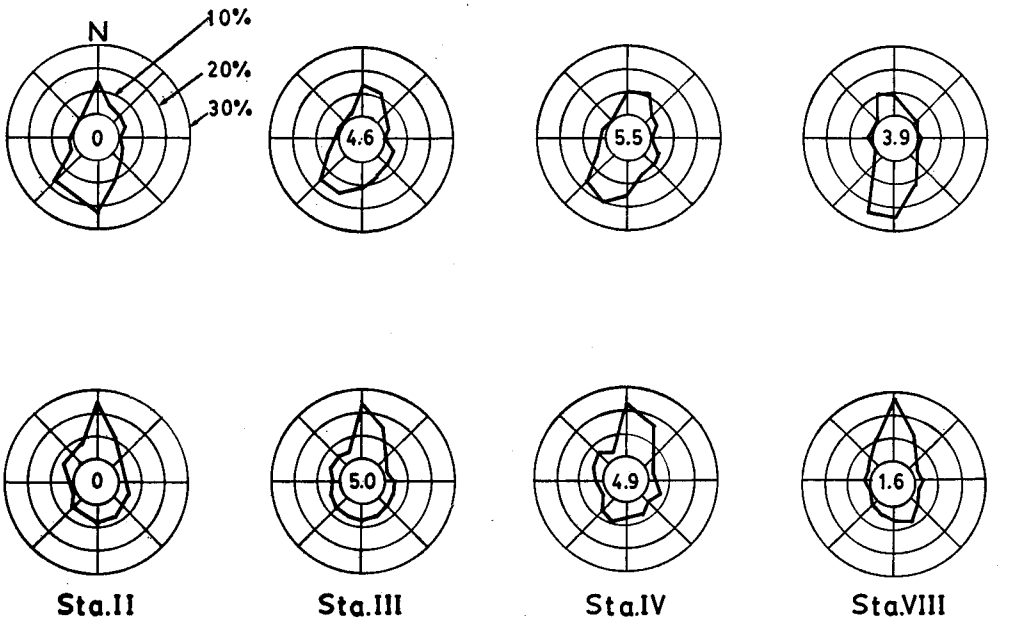
II. 結果と考察

1. 風向風速

風向は図-3～5に示すように，II, III, IV, VIIIの4局とも7月には南よりの風が，また10月には1981年の場合を除いて北よりの風が卓越していた。1981年10月にはすべての風向の風がほぼ同程度にみられた。この3カ年の7月と10月における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。

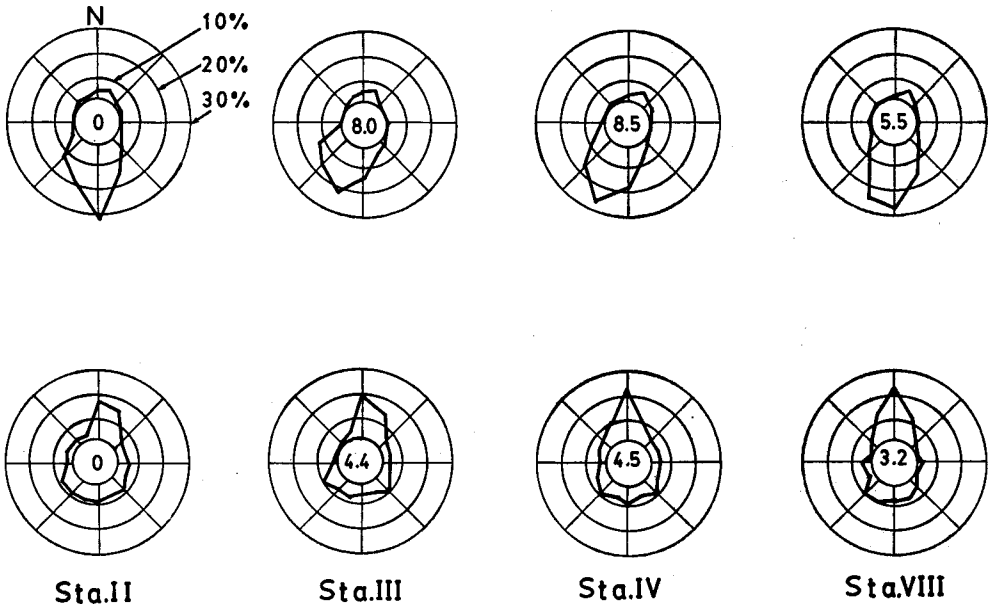
2. イオウ酸化物

二酸化イオウの月平均値は図-6および表-1に示すように，年平均値でみるとII局とVIII局においては，1978年はそれぞれ11と17 ppbで，1979～1981年はそれぞれ8～9と11～12 ppbであったから，濃度が低下していることがわかる。また，II, III, VIII局の3局を比べてみると，調査期間を通じてほぼVIII局がもっとも濃度が高く，ついでII, III局の順になっている。VIII局は林縁部から北へ約1.2 km入っているにもかかわらず(図-1)，高い濃度を示しているのは，前報で述べたように同じく特異的である。同様に，II, III局とVIII局は濃度の



図—3 1979年の7月（上図）と10月（下図）の風配図

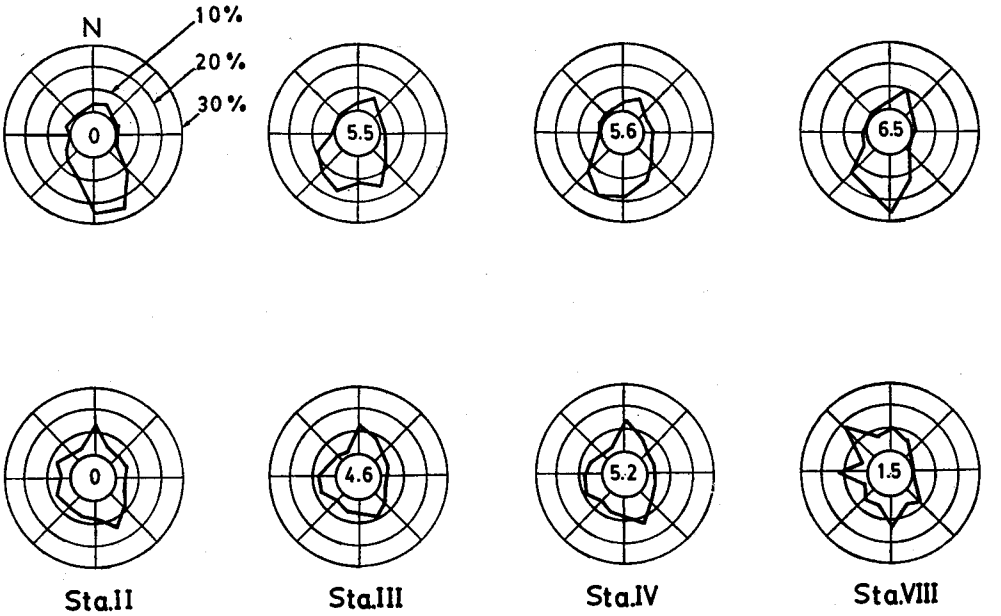
Fig. 3. Wind roses in July (upper) and October (lower), 1979.



図—4 1980年の7月（上図）と10月（下図）の風配図

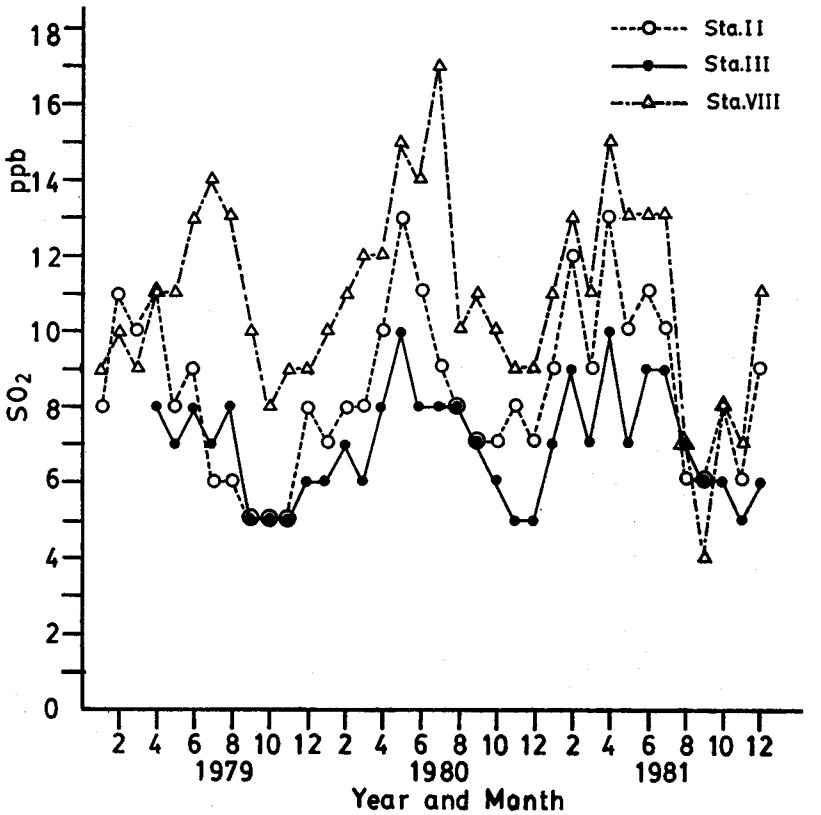
Fig. 4. Wind roses in July (upper) and October (lower), 1980.

月平均値の変化の傾向は似ているが，その絶対値の年度による変化の傾向は必ずしも似ていない。例えば，濃度の時刻別変化をみると（図-7～9），VIII局では1981年が最低なのに，II, III局ではその年が一番高くなっている。III局の濃度がII局と同じになるか，あるいは高くなる



図—5 1981年の7月 (上図) と10月 (下図) の風配図

Fig. 5. Wind roses in July (upper) and October (lower), 1981.



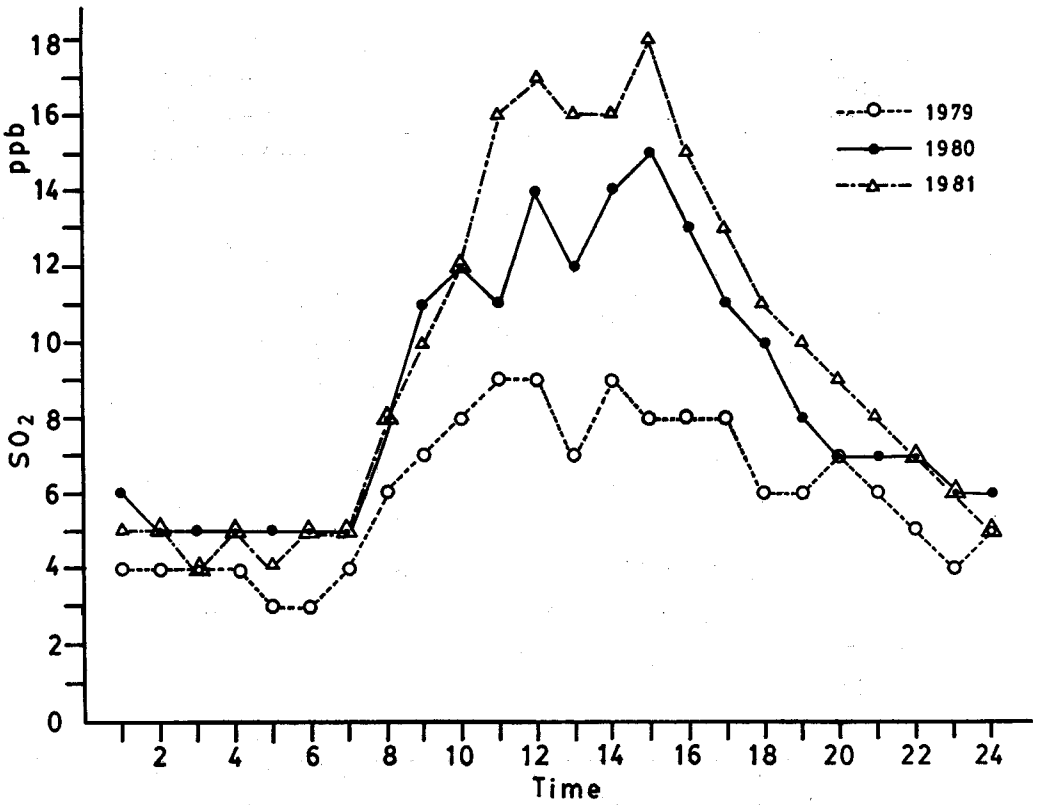
図—6 二酸化イオウ濃度の月平均値の経年変化

Fig. 6. Yearly variations of monthly average concentrations of sulfur dioxide.

表—1 二酸化イオウ

Table 1. Yearly variations of

項目 Concentration category	年・月 Year and Month / 測定局 Monitoring station	1979 1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	Av.
1時間値の最大値 Max. value of hourly average concentration	Sta. II	50	45	49	54	73	65	52	36	24	34	42	53	
	Sta. III				43	50	67	69	55	42	43	43	46	
	Sta. VIII	52	44	59	72	70	97	80	95	55	60	68	61	
月平均値 Monthly average concentration	Sta. II	8	11	10	11	8	9	6	6	5	5	5	8	8
	Sta. III				8	7	8	7	8	5	5	5	6	7
	Sta. VIII	9	10	9	11	11	13	14	13	10	8	9	9	11
1日平均値の最大値 Max. value of daily average concentration	Sta. II	19	21	22	20	18	17	12	10	7	13	13	16	
	Sta. III				10	13	14	15	15	9	14	12	12	
	Sta. VIII	23	16	14	23	24	23	32	23	15	16	17	18	



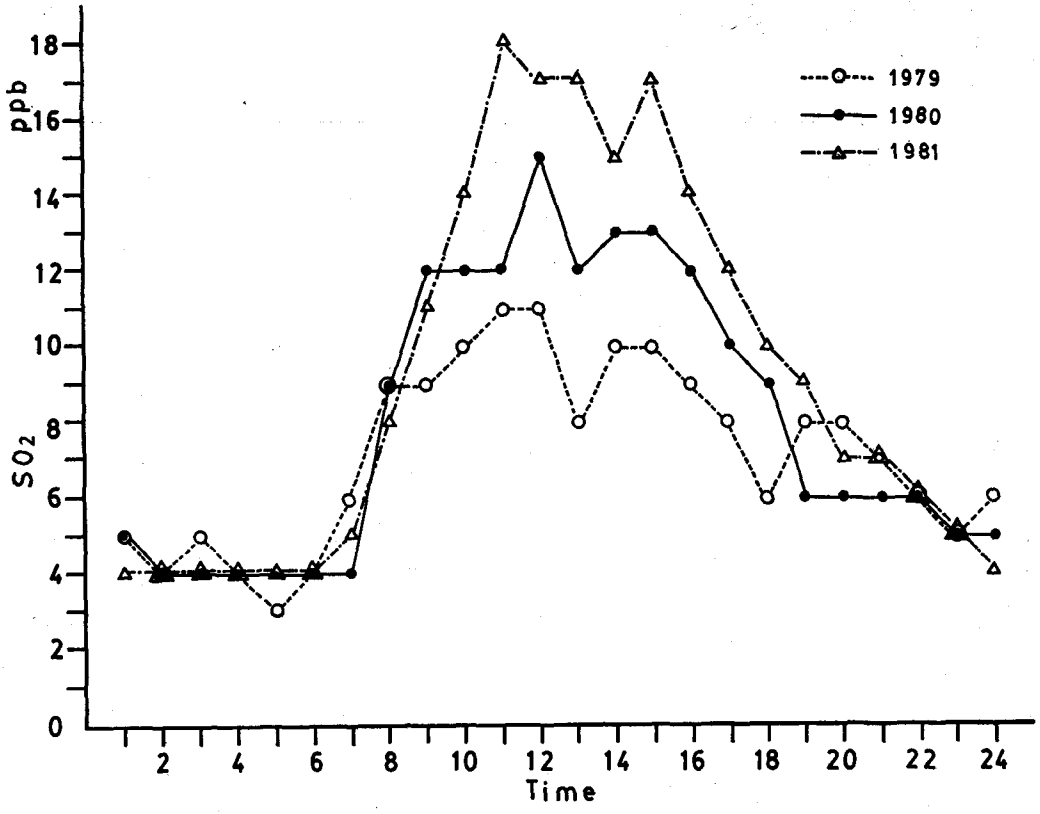
図—7 時刻別SO_2平均濃度の日変化 (II局, 7月)

Fig. 7. Diurnal variations of SO_2 concentrations in July at monitoring station II.

濃度の経年変化

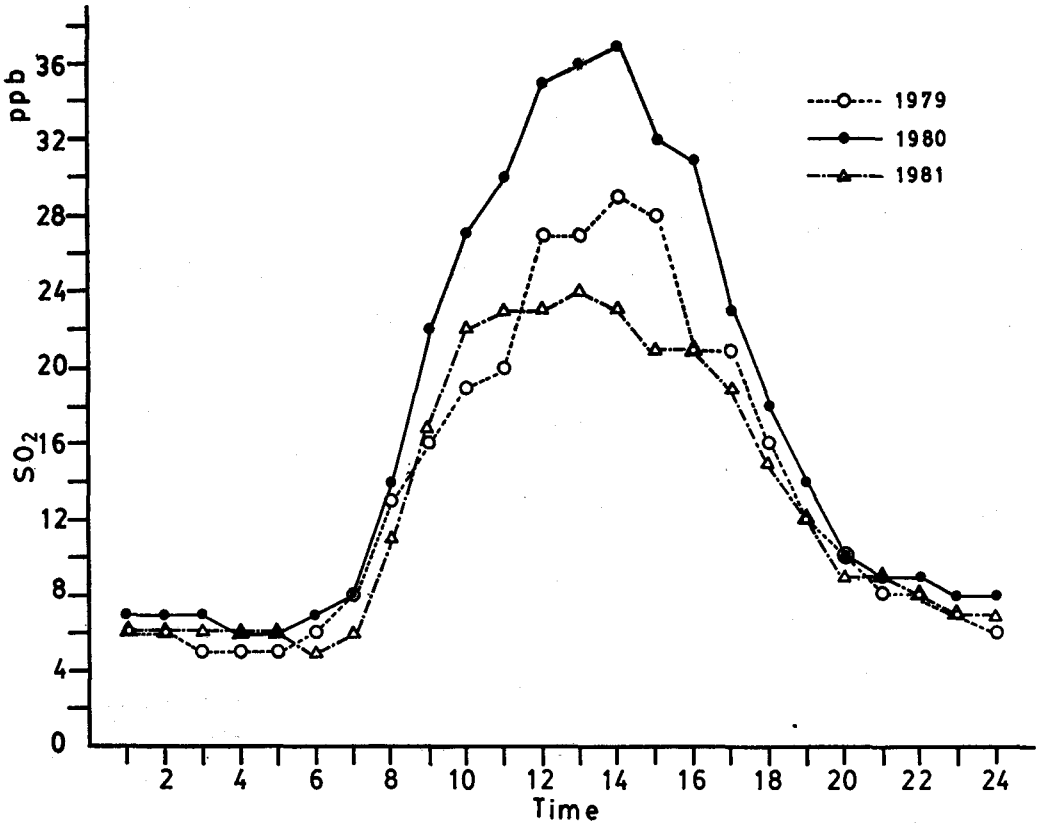
sulfur dioxide concentrations (ppb)

1980													1981											
1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	Av.	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	Av.
40	55	45	46	79	64	54	61	70	79	48	47		82	97	65	99	84	57	57	40	33	140	140	98	
34	47	38	41	67	63	72	65	59	73	40	38		68	62	48	130	67	52	61	65	42	127	139	78	
55	54	56	79	76	116	73	96	91	61	49	61		68	68	79	120	87	56	81	80	24	55	80	180	
7	8	8	10	13	11	9	8	7	7	8	7	9	9	12	9	13	10	11	10	6	6	8	6	9	9
6	7	6	8	10	8	8	8	7	6	5	5	7	7	9	7	10	7	9	9	7	6	6	5	6	7
10	11	12	12	15	14	17	10	11	10	9	9	12	11	13	11	15	13	13	13	7	4	8	7	11	11
13	15	15	19	24	16	15	15	14	14	14	12		16	20	17	26	28	22	18	14	11	29	19	19	
12	12	13	16	19	15	14	15	15	13	11	10		13	16	13	20	22	17	17	15	11	19	17	16	
19	19	19	24	26	35	25	24	26	23	15	16		21	24	19	26	28	22	27	31	7	11	15	36	



図—8 時刻別 SO_2 平均濃度の日変化 (III 局, 7月)

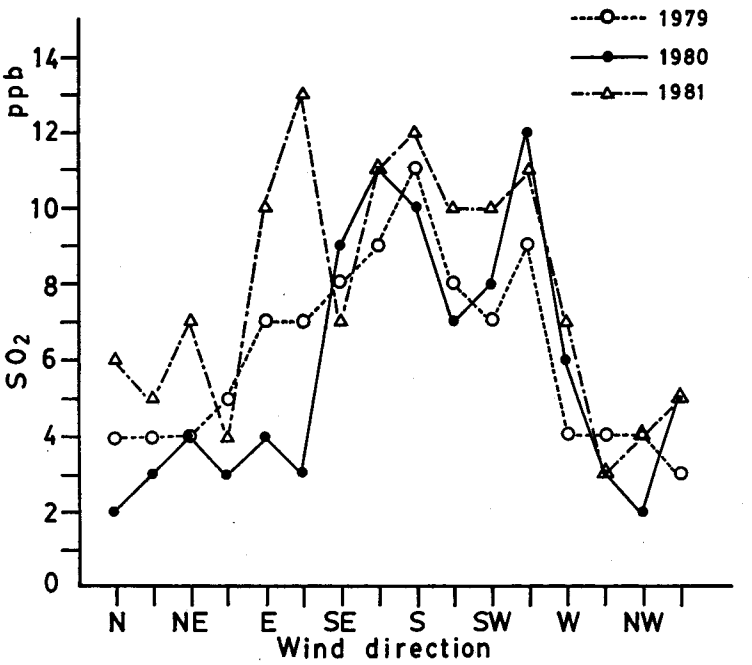
Fig. 8. Diurnal variations of SO_2 concentrations in July at monitoring station III.



図—9 時刻別 SO_2 平均濃度の日変化 (VIII 局, 7月)

Fig. 9. Diurnal variations of SO_2 concentrations in July at monitoring station VIII.

月をみると，1979年では7～11月で，1980年と1981年では8月と9月である。前に述べたように，一般的傾向としてはII局の方がIII局よりも濃度が高いことから，このことは特異的である。この理由としてはつぎのことが考えられる。すなわち，① 局地的な気象条件の差違でIII局の濃度がII局に比べてこの時期に特異的に高くなる。また，② 測定局の周囲の樹木の配置あるいは樹葉の繁り方の密度がII局とIII局では極端に異なっていることにより汚染大気の気塊の浸入状況が異なり濃度の逆転が起こる。また③ 妨害ガスの有無，例えばアンモニアガスは測定値にマイナスの影響を与える[10]。① の理由は両局の7月の風配図 (図-3～5) がほぼ同じであることから不自然であると考えられる。② については，1979年で落葉時期の10月および11月でもこのことがみられるので必ずしも妥当でない。③ については，II局の南側の都市部は準工業地帯であるので浸入する大気中に妨害ガスが共存している可能性はあるが，測定値に特異性が現われるのは特定の時期に限られているのでなお検討の必要がある。したがって，この問題については今後の検討課題であろう。高速道路の供用開始前後を比較してみると，濃度の月平均値の経年変化をみるかぎりでは，明らかな相違はみられない。また，風向との関係



図—10 風向別SO_2平均濃度 (III 局, 7月)

Fig. 10. Average concentrations of sulfur dioxide for wind directions in July at monitoring station III.

をみると 図-10 および 表2～4 に示したように，高速道路の開設による地形変化の影響あるいは高速道路上の自動車の排ガスによると思われる影響はとくに認められない。ただし，1981 年の場合，風向 E～ESE の時の濃度が他の年の場合と比べてきわめて高い値を示している。これは 図-11 をみると，ほぼ同じ風向の NEN～E の時にもきわめて高い値を示しているので一般風の汚染気塊によるものと思われる。また，VIII 局でも 図-12 に示すように，他の局の場合と同じように南よりの風の時に高い濃度を示している。したがって，濃度の経年変化に見られる年度間の相違は都市部を含めた全体としての汚染の場の年度による違いを反映したものと考えられる。濃度の時刻別変化をみると 図-7～9 に示すように，年度により多少の相違がみられるが，3 局とも 6 時前後から急激に増加して，II 局と III 局では 11 時前後と 15 時前後に 2 つのピークを示し，VIII 局では 14 時にピークを示している。なお，II 局と III 局では濃度のピークが 2 つ認められるが，このうち第 2 のピークは 1978 年にはみられなかった[1]。しかし，VIII 局の場合は 1978 年と同じ傾向を示している。

イオウ酸化物の汚染度の測定結果を 図-13 および 表-5 に示す。森林内における汚染度の分布をみるために，都市部に隣接する南端林縁部，森林の北部および両者の中間部の 3 地域に分けて検討する。各年度とも南端の林縁に近いほど汚染度が高い傾向を示している。3 地域の平均値をみると，森林の北部および中間部の汚染度は年による変化は小さいが，南端の林縁部では 1980 年の 5～10 月の平均値は 136 μg/100 cm^2/day で，1981 年は 178 μg であるから約

表—2 風向・風速別二酸化イオウの平均濃度

Table 2. Average concentrations of sulfur dioxide for wind directions and wind velocities (1979) (ppb)

月 Month	測定局 Monitoring Station	風向 Wind direction / 風速 Wind velocity m/s	N	NNE	NE	ENE	E	ESE	SE	SSE	S	SSW	SW	WSW	W	WNW	NW	NNW	Calm	Av.
July	Sta. II	Calm																		5
		0.3~3.4	4	4	4	3	5	5	6	7	6	7	6	6	7	4	3	3		5
		3.5~6.5	4	5	6			5	10	8	7	6	9	3	3	4		3		6
		6.6~	4							8	10									7
		Av.	4	5	4	3	5	5	8	8	7	6	8	5	6	4	3	3		6
	Sta. III	Calm																	5	5
		0.3~3.4	5	4	4	5	7	7	8	9	11	9	9	8	4	4	4	3		8
		3.5~6.5	4	4	3			10	9	10	11	4	6	9		3		5		6
		6.6~	4																	4
		Av.	4	4	4	5	7	7	8	9	11	8	7	9	4	4	4	3		7
	Sta. VIII	Calm																	8	8
		0.3~3.4	9	9	14	5	17	13	16	15	14	2	12	11	7	5	6	6		10
		3.5~6.5	15	13					6	15	22	15								14
		6.6~																		
		Av.	12	11	14	5	17	13	11	15	18	9	12	11	7	5	6	6		12
Oct.	Sta. II	Calm																		
		0.3~3.4	3	3	3	4	3	5	10	11	8	10	7	4	5	5	5	2		5
		3.5~6.5	3	4	3	3	3	7	8	13	9	8	11	6	4	4	4	3		6
		6.6~	2	4					7	11	7	8	9					2		7
		Av.	3	4	3	3	3	6	8	12	8	8	10	5	4	4	4	2		5
	Sta. III	Calm																	3	3
		0.3~3.4	2	3	3	3	5	5	14	15	11	8	7	12	4	3	2	3		5
		3.5~6.5	3	4	4	3		8	8	13	15	7	9	11	3	4	3	2		6
		6.6~	2						4	5			9					1		3
		Av.	3	3	3	3	5	6	11	13	12	7	8	11	4	3	3	2		5
	Sta. VIII	Calm																	8	8
		0.3~3.4	5	7	6	9	6	20	11	16	12	10	11	6	19	6	5	4		10
		3.5~6.5	6	6						11	9	11	11			6	6	5		4
		6.6~	4															3		4
		Av.	5	7	6	9	6	20	11	14	11	11	11	6	19	6	6	4		6

表—3　風向・風速別二酸化イオウの平均濃度

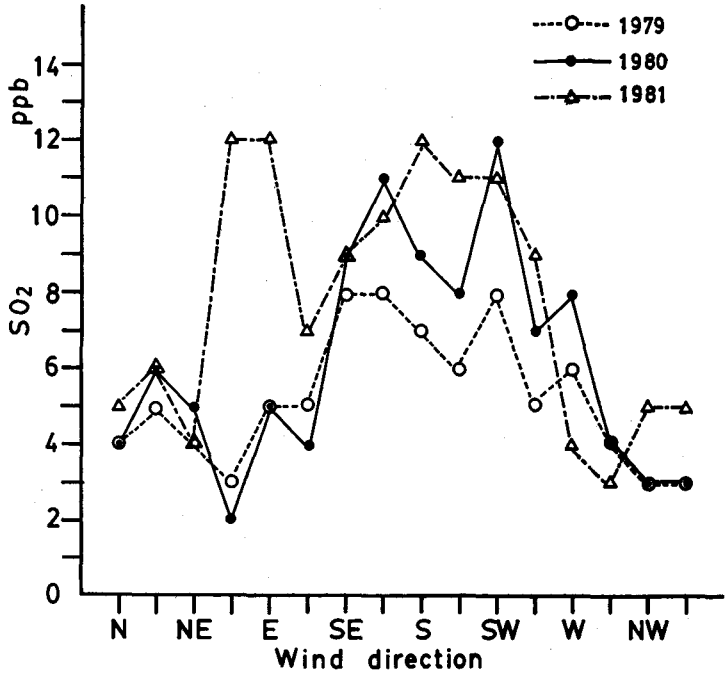
Table 3. Average concentrations of sulfur dioxide for wind directions and wind velocities (1980)　(ppb)

月 Month	測定局 Monitoring station	風向 Wind direction / 風速 Wind velocity m/s	N	NNE	NE	ENE	E	ESE	SE	SSE	S	SSW	SW	WSW	W	WNW	NW	NNW	Calm	Av.
July	Sta. II	Calm																		
		0.3～3.4	4	5	5	2	5	4	8	12	7	5	7	8	8	4	3	3		6
		3.5～6.5	3	6					10	11	9	8	14	6				5		10
		6.6～							6	9	17	16	7							11
		Av.	4	6	5	2	5	4	9	11	9	8	12	7	8	4	3	3		9
	Sta. III	Calm																	6	6
		0.3～3.4	2	4	4	3	4	3	10	11	10	7	6	8	7	3	2	5		7
		3.5～6.5	2	3					7	10	12	7	10	14	5					10
		6.6～																		
		Av.	2	3	4	3	4	3	9	11	10	7	8	12	6	3	2	5		8
	Sta. VIII	Calm																	5	5
		0.3～3.4	7	12	7	16	6	13	20	9	14	20	14	8	8		4	4		11
		3.5～6.5								15		27	12							18
		6.6～																		
		Av.	7	12	7	16	6	13	20	12	14	24	13	8	8		4	4		15
Oct.	Sta. II	Calm																		
		0.3～3.4	5	7	5	7	4	7	9	8	6	9	7	6	3	6	4	5		6
		3.5～6.5	5	4	4	4	4	8	12	13	14	12	9	4	3	4	4	4		8
		6.6～	4						7	13	10	14	8	4						8
		Av.	5	6	5	6	4	8	9	11	12	11	8	5	3	5	4	4		7
	Sta. III	Calm																	5	5
		0.3～3.4	3	4	4	3	4	5	5	7	11	15	9	5	4	3	4	3		6
		3.5～6.5	4	4	3			5	10	10	14	9	15	7	3	3	4	2		6
		6.6～	4						6					4						5
		Av.	4	4	4	3	4	5	6	8	12	13	11	6	3	3	4	3		6
	Sta. VIII	Calm																	5	5
		0.3～3.4	7	7	9	4	8	8	18	14	14	14	8	5	7	11	6	6		9
		3.5～6.5	14	5					19	27	14	18	7	6	6			5		12
		6.6～																		
		Av.	11	6	9	4	8	8	19	21	14	16	8	6	7	11	6	6		11

表—4 風向・風速別二酸化イオウの平均濃度

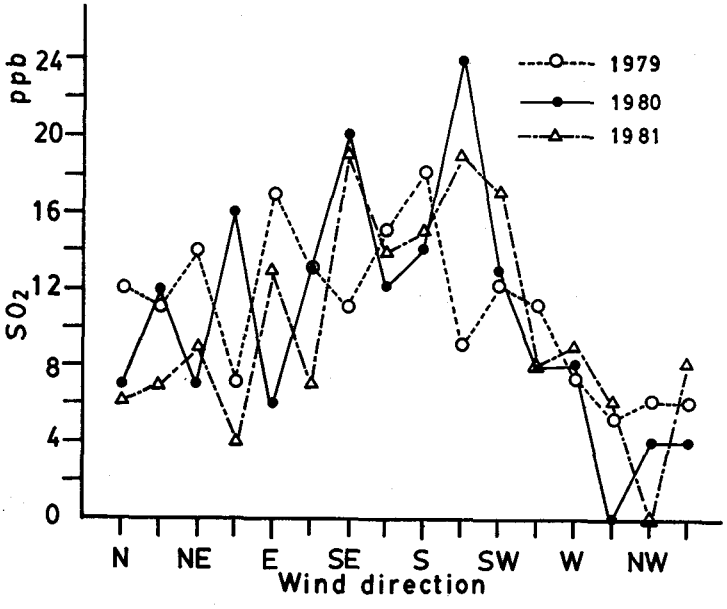
Table 4. Average concentrations of sulfur dioxide for wind directions and wind velocities (1981) (ppb)

月 Month	測定局 Monitoring station	風向 Wind direction / 風速 Wind velocity m/s	N	NNE	NE	ENE	E	ESE	SE	SSE	S	SSW	SW	WSW	W	WNW	NW	NNW	Calm	Av.
July	Sta. II	Calm																		
		0.3~3.4	4	6	4	12	12	7	9	13	7	11	5	8	4	3	5	5		8
		3.5~6.5	6	8				7	11	11	13	11	12	12						11
		6.6~							3	3		3								3
		Av.	5	6	4	12	12	7	9	10	12	11	11	9	4	3	5	5		10
	Sta. III	Calm																	5	5
		0.3~3.4	5	4	7	4	10	13	9	13	12	10	7	8	8	3	4	5		10
		3.5~6.5	8	6	9				3	7	14	11	13	13	4					10
		6.6~																		
		Av.	6	5	7	4	10	13	7	11	12	10	10	11	7	3	4	5		9
	Sta. VIII	Calm																	8	8
		0.3~3.4	6	7	9	4	13	7	19	14	15	14	17	8	9	6		8		10
		3.5~6.5		7								23								23
		6.6~																		
		Av.	6	7	9	4	13	7	19	14	15	19	17	8	9	6		8		17
Oct.	Sta. II	Calm																		
		0.3~3.4	5	5	4	4	7	16	11	21	16	10	6	7	6	5	3	7		7
		3.5~6.5	3	4	4	6	5	4	39	17	16	11	8	5	4	4	4	4		7
		6.6~	8				3		9	13	10	8	3	4		6	4			9
		Av.	4	5	4	4	6	13	15	15	14	10	6	5	4	4	4	5		8
	Sta. III	Calm																	3	3
		0.3~3.4	3	3	2	3	2	7	8	20	18	13	9	4	3	3	3	3		6
		3.5~6.5	4	5	6		5		12	8	10	6	7	5	3	4	4	4		6
		6.6~	3	2					6	14		2		4	3					4
		Av.	3	3	3	3	2	7	8	11	13	10	8	4	3	3	4	3		6
	Sta. VIII	Calm																	7	7
		0.3~3.4	5	6	6	5	7	30	12	15	13	13	9	5	6	5	5	6		9
		3.5~6.5	7	7	7			21	15	14	7	7	7	6	6		8	7		9
		6.6~		5									6							6
		Av.	6	6	7	5	7	26	14	15	10	10	8	6	6	5	7	7		8



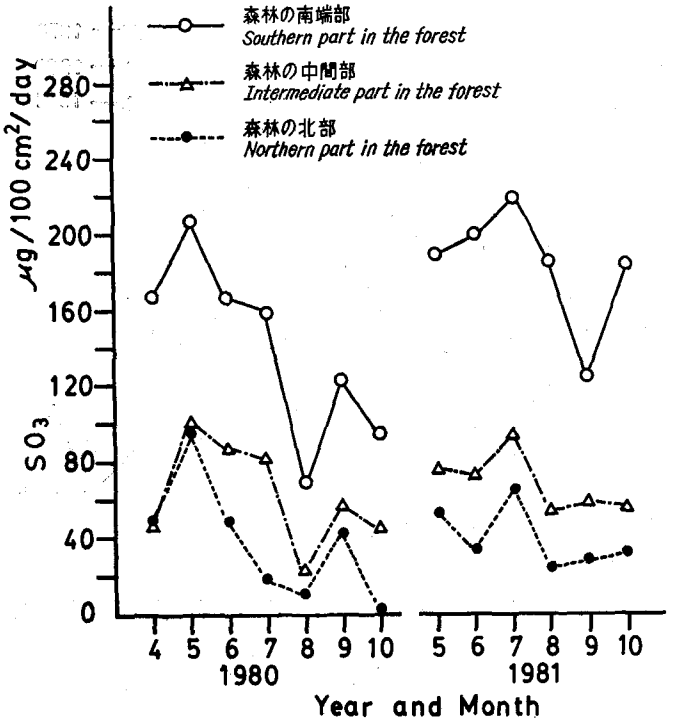
図—11 風向別 SO_2 平均濃度 (II 局, 7 月)

Fig. 11. Average concentrations of sulfur dioxide for wind directions in July at monitoring stotion II.



図—12 風向別 SO_2 平均濃度 (VIII 局, 7 月)

Fig. 12. Average concentrations of sulfur dioxide for wind directions in July at monitoring station VIII.



図—13 イオウ酸化物汚染度（二酸化鉛法）の経年変化

Fig. 13. Yearly variations of relative SO_3 values (PbO_2 method).

表—5 イオウ酸化物汚染度（二酸化鉛法）の経年変化

Table 5. Yearly variations of relative SO_3 values (PbO_2 method)

(SO_3 μg/100 cm²/day)

測定点 Measuring sites	年・月 Year and Month	1980								1981						
		4	5	6	7	8	9	10	Av.	5	6	7	8	9	10	Av.
森林の南端部 Southern part in the forest	1	166	229	177	170	80	134	101	151	182	205	246		151	198	196
	2	166	254	288	269	70	143	109	186	302	266	285	220	137	208	236
	9	264	232	159	209	131		106	184	180	197	281	155	118	173	184
	10	102	161	143	96	51	92	73	103	141	141	152	143	91	117	131
	11	60	147	63	57	11	75	58	67	109		93				101
	13	245	218	163	144	68	170	114	160	217	192	256	218		218	220
	Av.	167	207	166	158	69	123	94	142	189	200	219	184	124	183	178
森林の北部 Northern part in the forest	21	36	58	39	38	2	30	tr.	29	47	25	62	21	29	27	35
	36	57	130	58	tr.	18	54	6	46	57	41	67	28	27	34	42
	Av.	47	94	49	19	10	42	3	38	52	33	65	25	28	31	39
森林の中間地点 Intermediate part in the forest	6	56	106	55	71	tr.	62	45	56	90	78	109	50	50	48	71
	16		74	52	74	41	42	27	52	75	63	73	23	39	48	54
	24	49	95	192	87	10	69	78	83	65	77	97	66	60	67	72
	39	32	123	84	93	38		31	67	74		93	78	87	60	78
	Av.	46	100	88	81	22	58	45	63	76	73	93	54	59	56	69
総平均	Mean	112	152	123	109	43	87	62	99	128	129	151	100	79	109	118

表—6　窒素酸化物濃度の経年変化

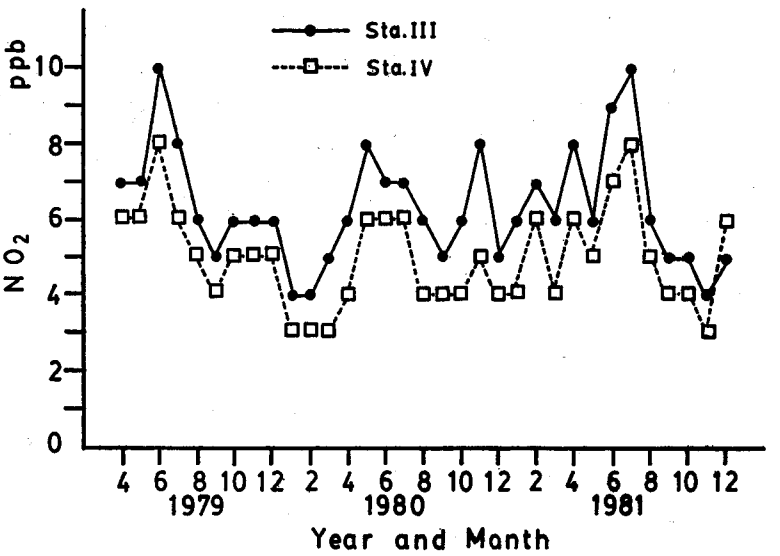
Table 6. Yearly vairations of nitrogen oxides concentrations　(ppb)

項目 Concentration category	窒素酸化物 Nitrogen oxides	測定局 Monitoring Station	年・月 Year and Month	1979												1980												1981											
				4	5	6	7	8	9	10	11	12	Av.	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	Av.	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	Av.
1時間値の最大値 Max. value of hourly average concentration	NO_x	Sta. III		37	71	60	62	62	63	94	95	92		54	55	78	64	46	42	51	38	51	45	104	76		66	55	44	57	35	51	59	31	49	54	99	89	
		Sta. IV		34	49	53	51	55	51	77	85	79		51	51	69	55	40	41	46	32	38	33	83	67		58	45	30	53	33	52	44	26	51	46	75	53	
	NO_2	Sta. III		27	52	39	39	32	27	45	40	41		33	30	37	42	35	33	30	23	33	29	41	41		31	39	32	47	29	33	37	21	25	30	39	49	
		Sta. IV		26	38	35	34	29	25	38	37	37		32	29	34	39	28	35	26	21	25	21	35	38		31	36	23	43	27	29	33	21	23	28	31	32	
	NO	Sta. III		12	19	21	34	30	36	49	56	51		21	31	41	22	19	17	21	16	28	21	63	39		35	25	20	21	11	26	32	16	28	30	60	40	
		Sta. IV		13	14	19	28	27	29	39	48	44		19	29	35	18	15	13	20	13	24	13	48	29		34	19	14	19	10	31	22	14	48	23	44	25	
1日平均値の最大値 Max. value of daily average concentration	NO_x	Sta. III		16	16	20	19	16	12	17	18	25		13	11	14	17	16	14	15	13	16	14	24	20		17	23	16	22	17	28	21	14	15	15	19	16	
		Sta. IV		13	13	16	15	15	11	13	15	21		11	9	11	14	13	12	13	10	11	10	18	16		13	18	10	19	15	20	17	12	12	12	14	20	
	NO_2	Sta. III		12	14	17	16	10	8	13	14	16		10	9	11	13	13	11	12	10	13	11	15	14		13	16	12	18	13	15	16	10	9	12	11	10	
		Sta. IV		10	10	14	11	12	8	10	12	14		8	8	9	11	11	11	11	8	10	8	12	12		11	14	9	16	12	14	14	10	8	10	9	16	
	NO	Sta. III		3	3	4	6	5	5	6	6	9		3	3	4	4	5	4	4	3	4	3	9	6		5	7	4	4	4	14	6	4	5	6	9	7	
		Sta. IV		3	3	3	5	4	4	3	5	7		3	2	2	3	3	2	3	2	2	2	6	2		4	3	2	3	3	7	4	2	4	2	5	5	
月平均値 Monthly average concentration	NO_x	Sta. III		9	8	12	9	8	7	8	8	8	9	5	5	6	7	10	9	9	8	7	7	11	7	7	7	10	8	10	7	12	13	8	7	7	6	8	9
		Sta. IV		8	7	10	8	7	5	5	6	6	7	3	4	4	5	7	7	7	5	5	5	6	5	5	5	7	5	7	5	8	10	6	5	5	4	7	6
	NO_2	Sta. III		7	7	10	8	6	5	6	6	6	7	4	4	5	6	8	7	7	6	5	6	8	5	5	6	7	6	8	6	9	10	6	5	5	4	5	6
		Sta. IV		6	6	8	6	5	4	5	5	5	6	3	3	3	4	6	6	6	4	4	4	5	4	4	4	6	4	6	5	7	8	5	4	4	3	6	5
	NO	Sta. III		2	2	3	2	2	2	2	2	2	2	1	1	1	1	2	2	2	2	2	1	3	2	2	2	2	2	2	2	3	3	2	2	2	3	2	
		Sta. IV		2	2	2	2	2	1	1	1	1	2	0	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	2	1	1	1	1	1	

1.3倍に増加している。しかし，II局およびIII局におけるイオウ酸化物濃度の平均値は両年の間ではほとんど差がないから，南端の林縁部における汚染度の年による増減については，風速の影響なども含めて今後検討する必要がある。汚染度の年変化をみると，そのパターンは図-6に示した自動測定器で測定した二酸化イオウ濃度の場合によく似た傾向を示しており，主な汚染源が苫小牧市の都市部にあることを示している。

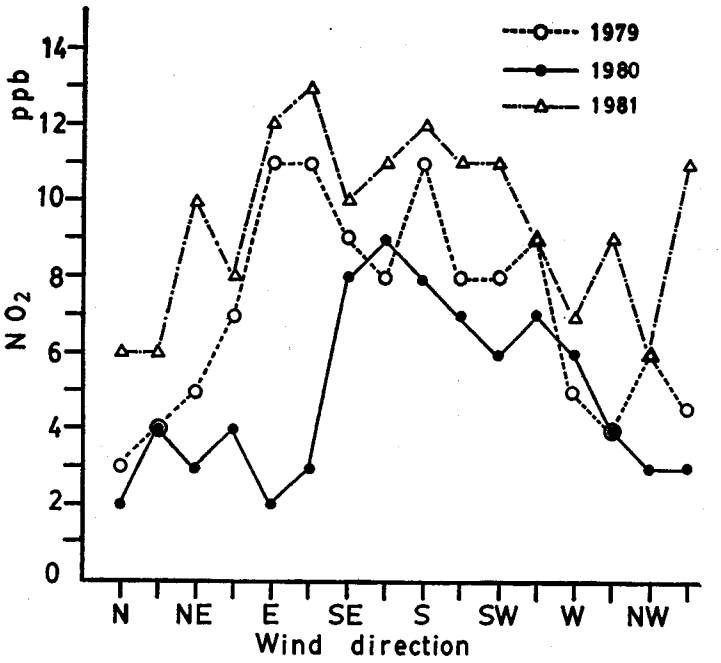
3. 窒素酸化物

III局およびIV局の二酸化窒素濃度の年平均値は表-6に示すように，それぞれ5～7 ppb，4～6 ppbの範囲であった。また，月平均値には図-14に示すように，季節的変化がみられる。すなわち，1979年では6～7月に，1980年では5～7月に，1981年では6～7月の夏季に高い濃度がみられる。同様の傾向はやや弱いが一酸化窒素についてもみられる。ところで，大都市では窒素酸化物の濃度は冬季に高いという報告があり[11~13]，また苫小牧市の中心の都市部についても同様の報告がある[14]。すなわち，苫小牧市の都市部では1980年の5～7月の夏季に濃度が低く，11～1月の冬季に濃度が高くなっている。しかし，苫小牧市の測定局のうちで演習林の北端（森林内）にある測定局では，季節による濃度の大きな変化はとくに見られず，都市周辺部の測定局では，むしろ，都市部とは反対の傾向を示しているものもある。つぎに，III局とIV局の濃度を比較すると，調査全期間にわたり，二酸化窒素，一酸化窒素の濃度ともIII局の方がやや高くなっている。この両局の濃度のわずかの差は両局の近くを走っている高速道路上の自動車の排ガス中の窒素酸化物が林縁から林内に移動する間に種々のプロセスで除去されることによるものと考えられている[11),15)~17)]。除去プロセスとして主要なものに，光化学反応，



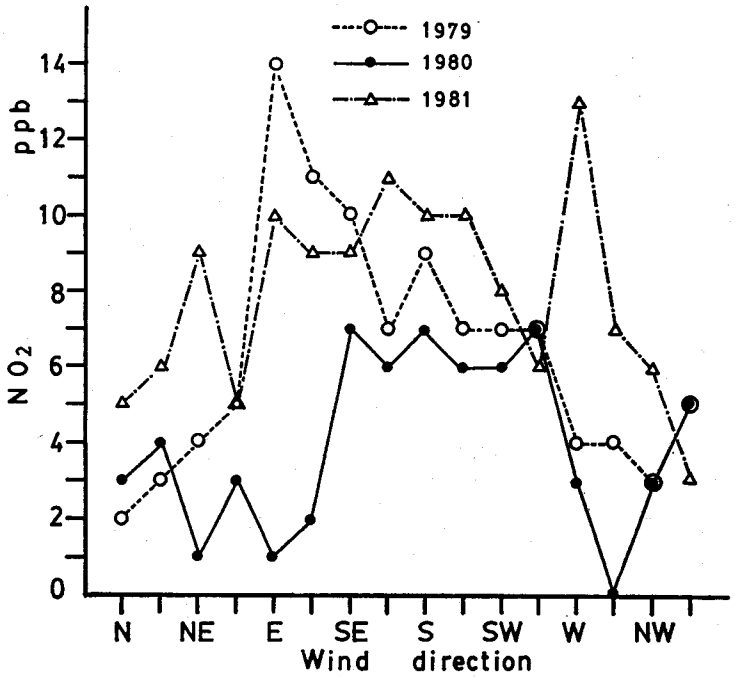
図—14 二酸化窒素の月平均値の経年変化

Fig. 14. Yearly variations of monthly average concentrations of nitrogen dioxide.



図—15 風向別 NO_2 平均濃度 (III 局, 7 月)

Fig. 15. Average concentrations of nitrogen dioxide for wind directions in July at monitoring station III.



図—16 風向別 NO_2 平均濃度 (IV 局, 7 月)

Fig. 16. Average concentrations of nitrogen dioxide for wind directions in July at monitoring station IV.

表—7　風向・風速別二酸化窒素の平均濃度

Table 7. Average concentrations of nitrogen dioxide for wind directions and wind velocities (1979)　(ppb)

月 Month	測定局 Monitoring Station	風向 Wind direction / 風速 Wind velocity m/s	N	NNE	NE	ENE	E	ESE	SE	SSE	S	SSW	SW	WSW	W	WNW	NW	NNW	Calm	Av.
July	Sta. III	Calm																	8	8
		0.3～3.4	4	5	5	8	11	11	9	9	12	9	10	8	5	5	6	6		9
		3.5～6.5	2	3	3	5		14	10	7	7	5	7	9		3		4		5
		6.6～	2																	2
		Av.	3	4	5	7	11	11	9	8	11	8	8	9	5	4	6	5		7
	Sta. IV	Calm																	7	7
		0.3～3.4	3	5	5	5	14	11	10	7	10	8	7	8	4	4	3	5		7
		3.5～6.5	2	2	3					6	6	5	6	5						4
		6.6～																		
		Av.	2	3	4	5	14	11	10	7	9	7	7	7	4	4	3	5		6
Oct.	Sta. III	Calm																	6	6
		0.3～3.4	4	6	5	3	6	8	13	15	12	16	13	10	3	1	2	3		7
		3.5～6.5	5	6	2	7		9	7	7	7	12	9	10	1	1	1	3		6
		6.6～	4						5	4								1		4
		Av.	5	6	5	4	6	8	10	10	10	14	10	10	2	1	1	3		6
	Sta. IV	Calm																	4	4
		0.3～3.4	3	4	4	2	5	5	8	9	11	10	9	7	2	1	1	2		5
		3.5～6.5	3	4	3			4	4	5	6	8	7	6	1	1		0		4
		6.6～	3		2					3	2	5	5							3
		Av.	3	4	4	2	5	5	6	7	9	9	8	7	2	1	0	1		5

表—8　風向・風速別二酸化窒素の平均濃度

Table 8. Average concentrations of nitorgen dioxide for wind directions and wind velocities (1980) (ppb)

月 Month	測定局 Monitoring Station	風向 Wind direction / 風速 Wind velocity m/s	N	NNE	NE	ENE	E	ESE	SE	SES	S	SSW	SW	WSW	W	WNW	NW	NNW	Calm	Av.
July	Sta. III	Calm																	6	6
		0.3～3.4	2	4	3	4	2	3	7	9	8	7	6	8	6	4	3	3		7
		3.5～6.5	1	2					9	8	7	6	6	6	4					6
		6.6～																		
		Av.	2	4	3	4	2	3	8	9	8	7	6	7	6	4	3	3		7
	Sta. IV	Calm																	5	5
		0.3～3.4	3	4	1	3	1	2	8	8	8	6	6	8	4		3	5		6
		3.5～6.5		4					7	4	4	5	6	5	2					5
		6.6～																		
		Av.	3	4	1	3	1	2	7	6	7	6	6	7	3		3	5		6
Oct.	Sta. III	Calm																	6	6
		0.3～3.4	3	6	4	8	7	6	4	9	9	12	9	6	6	2	2	4		6
		3.5～6.5	4	4	2			14	12	6	8	7	10	7	3	1	1	2		5
		6.6～	3						6					2	2					5
		Av.	4	5	4	8	7	7	7	8	9	10	9	6	4	2	2	3		6
	Sta. IV	Calm																	4	4
		0.3～3.4	3	4	3	6	5	4	3	5	8	8	6	3	4	1	1	3		4
		3.5～6.5	3	3	1				6	4	6	6	5	4			1	1		3
		6.6～	2						5					1						3
		Av.	3	4	2	6	5	4	5	5	7	7	6	3	2	1	1	2		4

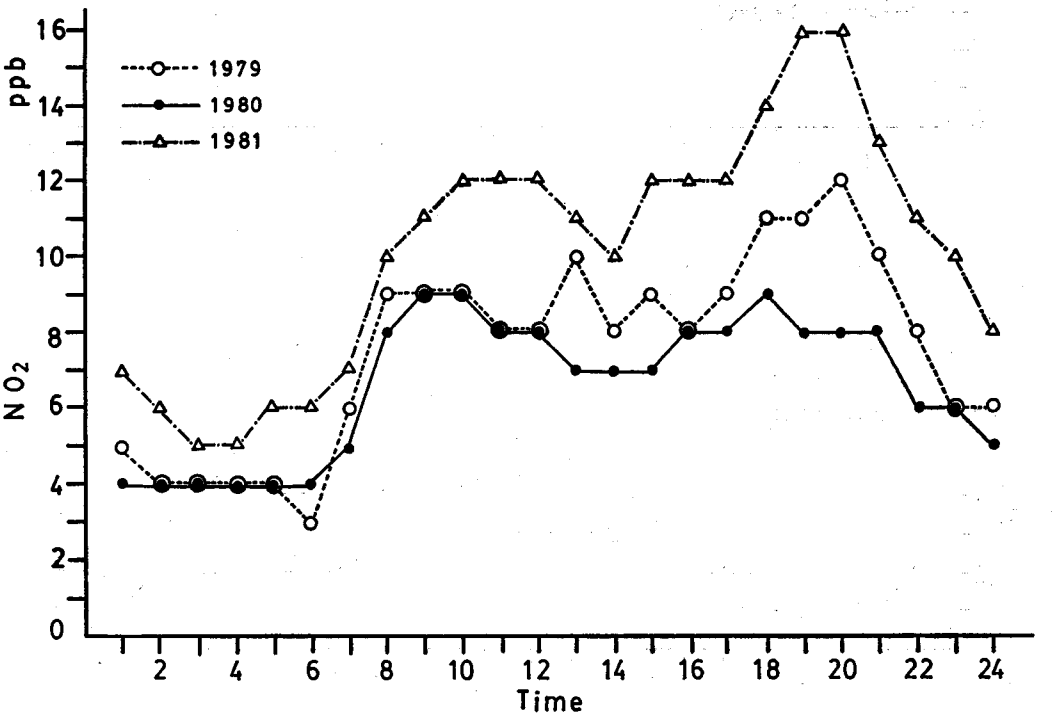
表—9 風向・風速別二酸化窒素の平均濃度

Table 9. Average concentrations of nitrogen dioxide for wind directions and wind velocities (1981) (ppb)

月 Month	測定局 Monitoring Station	風向 Wind direction / 風速 Wind velocity m/s	N	NNE	NE	ENE	E	ESE	SE	SSE	S	SSW	SW	WSW	W	WNW	NW	NNW	Calm	Av.
July	Sta. III	Calm																	9	9
		0.3~3.4	5	6	12	8	12	13	13	13	12	12	12	10	7	9	6	11		11
		3.5~6.5	7	7	4				5	6	9	7	9	8	4					7
		6.6~																		
		Av.	6	6	10	8	12	13	10	11	12	11	11	9	7	9	6	11		10
	Sta. IV	Calm																	7	7
		0.3~3.4	4	6	10	5	10	9	10	11	10	10	9	5	13	7	6	3		9
		3.5~6.5	6	5	2				6	11	9	9	6	8						7
		6.6~																		
		Av.	5	6	9	5	10	9	9	11	10	10	8	6	13	7	6	3		8
Oct.	Sta. III	Calm																	5	5
		0.3~3.4	2	5	4	4	5	7	10	12	11	14	12	10	6	3	3	3		7
		3.5~6.5	3	3	4		3		6	6	6	8	7	6	3	2	2	2		4
		6.6~	1	1					2	5		2		3	2					2
		Av.	3	4	4	4	4	7	7	7	8	11	10	6	4	3	2	2		5
	Sta. IV	Calm																	3	3
		0.3~3.4	2	3	3	3	3	3	5	10	10	11	7	6	4	2	2	2		5
		3.5~6.5	2	2					4	5	4	7	6	2	2		1	1		3
		6.6~	1						1	2		2				3				1
		Av.	2	2	3	3	3	3	4	6	6	9	6	3	3	1	1	2		4

樹木等植物による吸収，吸着，附着および地表面への沈着によるものなどが考えられる。二酸化窒素の濃度と風向との関係を樹木の生長期の7月についてみると，図-15, 16および表-7～9に示すように，各年共通して濃度の高い風向はSSW～SSEの南よりの風である。これはIII局とIV局に共通している。1980年7月における濃度は全般的に1979年，1981年のそれにくらべて低く，風向Eの時の濃度はとくに低い。これは1980年7月には高速道路の舗装工事がほぼ完了し，建設車両の往来がほとんどなくなった時であるが，1979年7月は土木・舗装工事が盛んなときで，建設車両の往来がはげしく，また1981年7月は高速道路の供用開始後で，月合計84,000台の通過交通量[18]があったことにより，窒素酸化物の量に差がついたと考えられる。なお，風向Eにおける濃度が高いのは，イオウ酸化物の場合と同様，両局の南に東西に走っている高速道路に沿った風の影響と考えられる。

つぎに，全風向について風速別平均濃度をみると，7月と10月では両月とも風速の0.3～3.4 m/sのときに高い濃度を示している。また，静穏のときには比較的高い濃度を示している。これは二酸化イオウの場合には高い風速のときにも高濃度を示しているのと異なっている。この相違は汚染物質の主な発生源が二酸化イオウの場合は測定局と離れた所に大きな発生源 (O, K工場) があるために，静穏時には濃度が低くなるが，窒素酸化物は都市部の自動車のほかに，

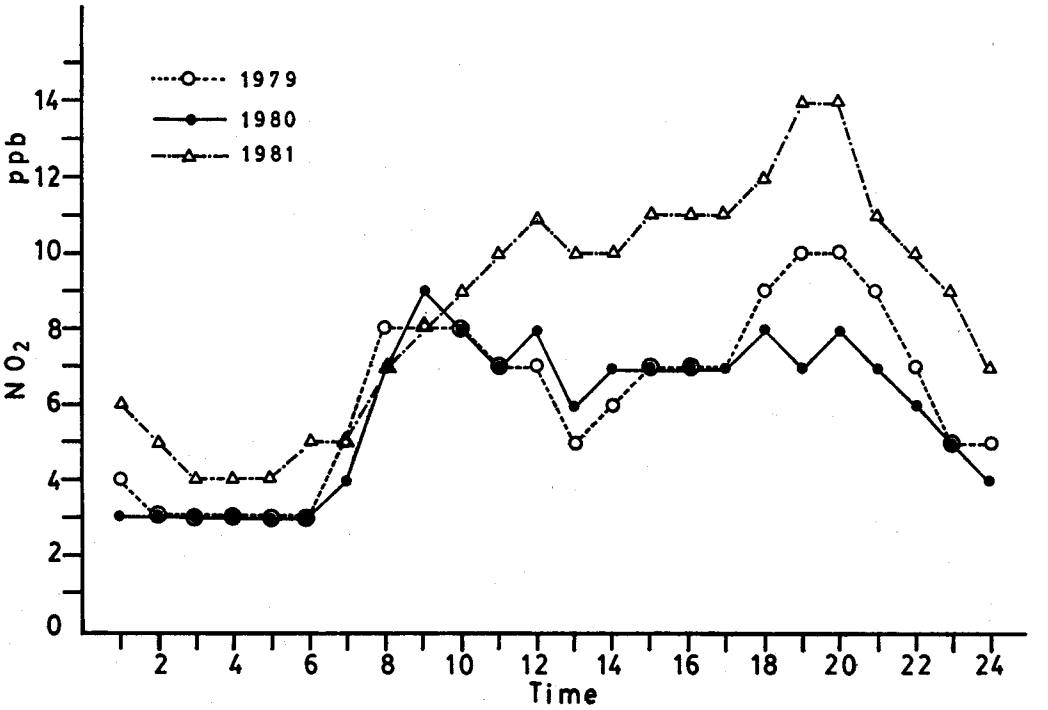


図—17 時刻別NO_2平均濃度の日変化 (III局，7月)

Fig. 17. Diurnal variations of NO_2 concentrations in July at monitoring station III.

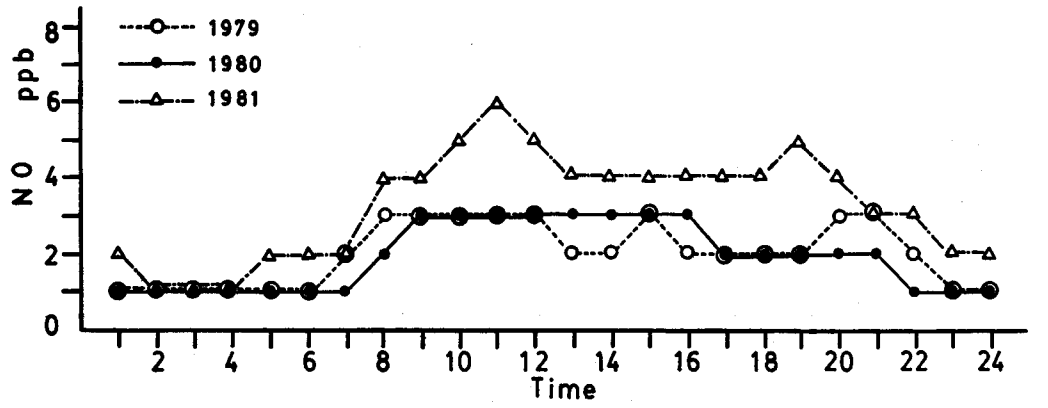
至近の高速道路を走る自動車も主な発生源であるため，高濃度の状態で測定されるものと考えられる。

時刻別濃度の変化をみると，二酸化窒素では図-17, 18に示すように，1979年および1981年では両局とも6時頃から急激に濃度が増加し，それぞれ9時前後と12時前後に第1の山が



図—18 時刻別 NO_2 平均濃度の日変化 (IV局, 7月)

Fig. 18. Diurnal variations of NO_2 concentrations in July at monitoring station IV.

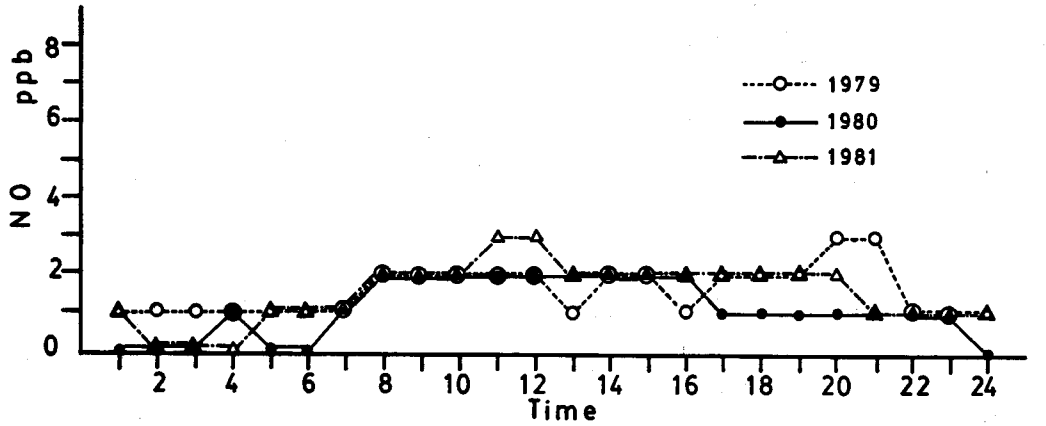


図—19 時刻別NO平均濃度の日変化 (III局, 7月)

Fig. 19. Diurnal variations of NO concentrations in July at monitoring station III.

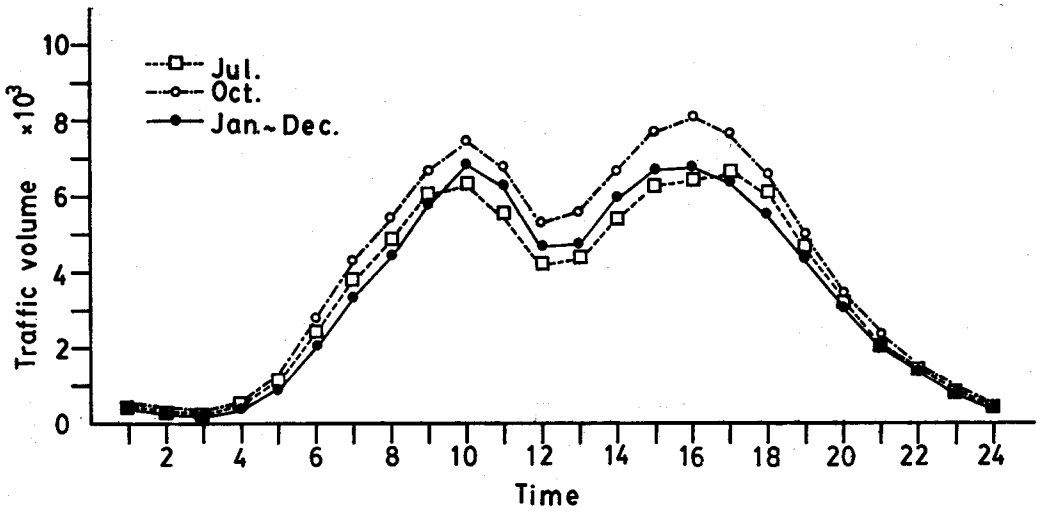
あらわれ，以後多少の増減はあるが徐々に増加し，19時過ぎ頃に第2の一番高い山があらわれ，以後急激に減少している。1980年の場合は他の場合と異なり，第2の山がかすかにみられるが明らかでない。一酸化窒素の場合は図-19，20に示すように傾向は二酸化窒素に似ているが変化はきわめて少ない。 時刻別濃度の変化を高速道路の1981年7月の交通量を示した図-21と照合すると，両者の山には2～3時間のズレがあり必ずしも対応がよくない。

つぎに，NO_x (NO_2+NO) 濃度と NO_2 濃度との比 NO_2/NO_x と時刻との関係をみると，III局 (図-22), IV局 (図-23) のいずれの場合も夕方から明け方にかけて大きく，12時前後が最低となっている。つぎに，III局とIV局をくらべてみると，いずれの年も，日中は発生源に近く林縁に近いIII局の値が小さい。 この原因として考えられることは，すでに述べた光化学反



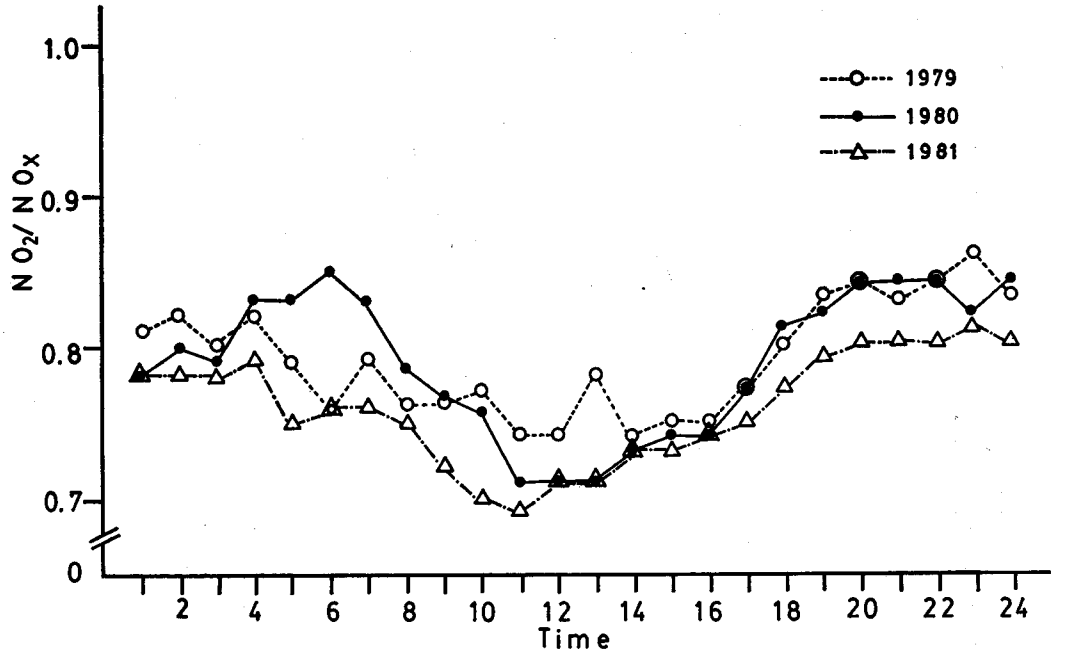
図—20 時刻別NO平均濃度の日変化 (IV局，7月)

Fig. 20. Diurnal variations of NO concentrations in July at monitoring station IV.



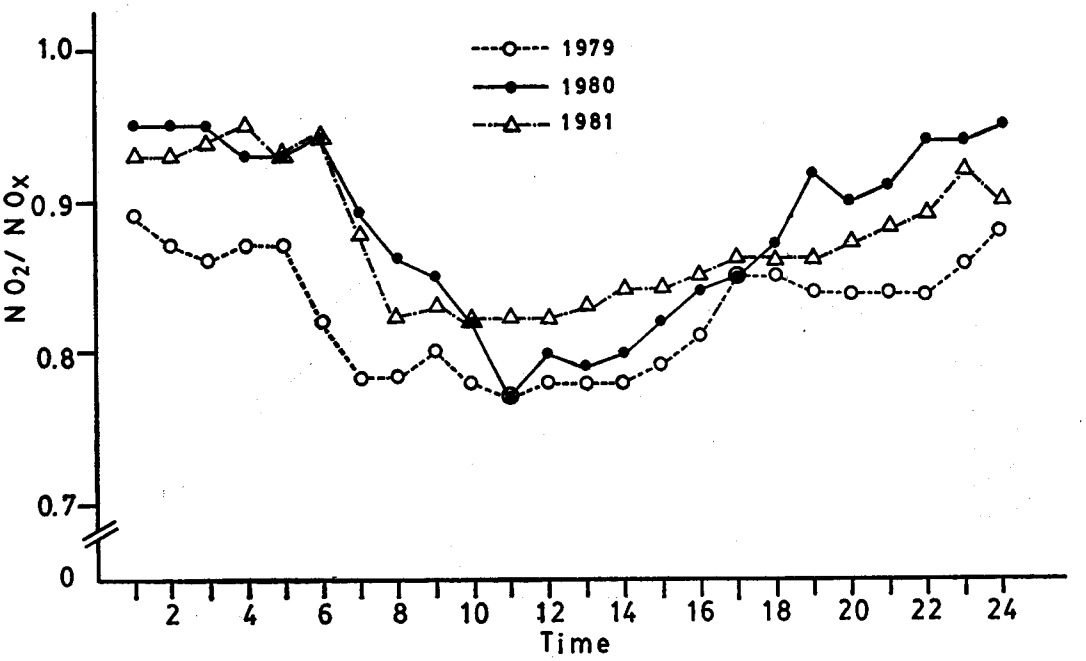
図—21 交通量の日変化 (1981)

Fig. 21. Diurnal variations of traffic volume (1981).



図—22 NO_2/NO_x 比の日変化 (III 局, 7月)

Fig. 22. Diurnal variations of ratios of NO_2/NO_x in July at monitoring station III.

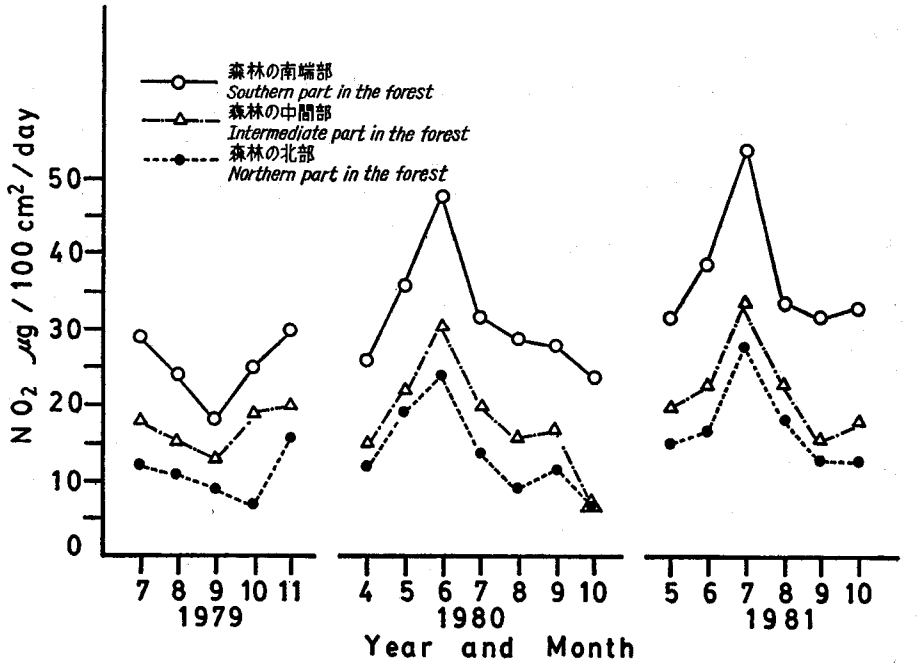


図—23 NO_2/NO_x 比の日変化 (IV 局, 7月)

Fig. 23. Diurnal variations of ratios of NO_2/NO_x in July at monitoring station IV.

応，植物による吸収，吸着，附着等および地表面における沈着が考えられるが，夜間においてIII局のこの比の値がIV局に比べて高くなることについては検討を要する。

二酸化窒素汚染度の調査は，今回はアルカリ濾紙法[1]よりも捕集量の高いナイトレーション・プレート法を採用した。測定結果を図-24および表-10に示す。いずれの年度も森林の南端部の高速道路周辺が最高で，森林北部の高速道路からの遠隔地がもっとも低く，中間部では両者の中間の価を示した。この傾向は前回の場合とまったく一致しており，1978年から1981年にわたる4年間は同一傾向を示した。汚染度の年変化をみると図-14に示した自動測定器による二酸化窒素の変化の傾向とほぼ一致している。このナイトレーション・プレート法は自動測定器による測定結果との対応がよいので，プレートの設置場所，気象条件などを充分考慮した上で使用すると好結果がえられる。



図—24 二酸化窒素汚染度 (ナイトレーションプレート法) の経年変化

Fig. 24. Yearly variations of relative NO_2 values (N. P. method).

なお，年平均値で二酸化窒素の濃度が10 ppb以下のレベルでは植物に影響を与えることはないと考えられている[7]が二酸化イオウと二酸化窒素が共存している都市大気のレベルで，植物の生長が低下するという野外の研究例[19]があるので，とくに森林の南端部における植物への影響については，今後とも注意していく必要がある。

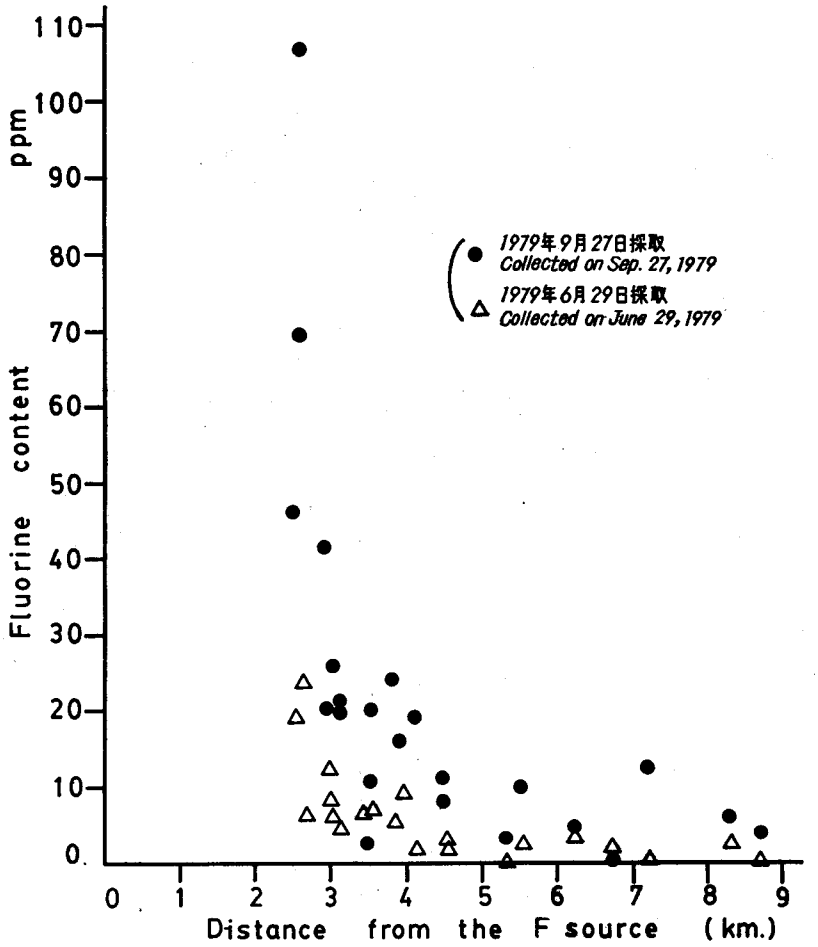
4. 樹葉中のフッ素およびイオウ濃度

前報では7種類の樹葉を採取し，フッ素をとり込みやすい，含有率の高い樹種を選定することができた。今回はその中から目的にかなう樹種としてイタヤカエデを選び，フッ素の汚染

表—10 二酸化窒素汚染度 (ナイトレーション・プレート法) の経年変化

Table 10. Yearly variations of relative NO_2 values (Nitration plate method) (NO_2 μg/100 cm²/day)

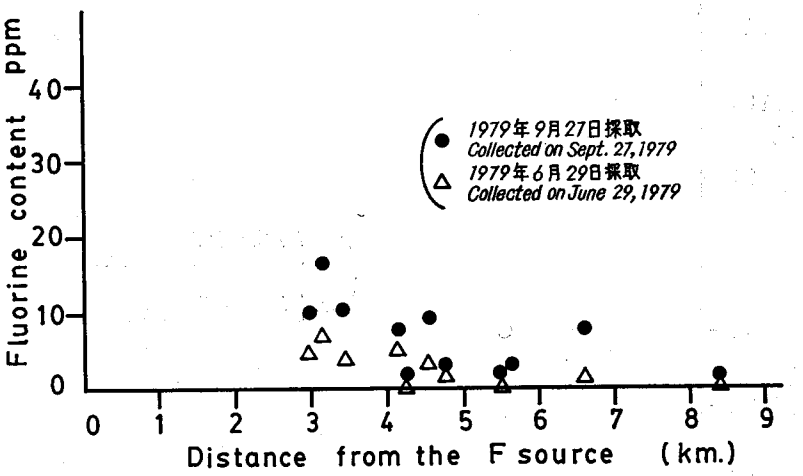
測定点 Measuring sites	年・月 Year and Month	1979						1980								1981						
		7	8	9	10	11	Av.	4	5	6	7	8	9	10	Av.	5	6	7	8	9	10	Av.
森林の南端部 Southern part in the forest	1	30	21	21		34	27	28		55	33	28	28		34	39	44	51		37	36	41
	2	36	25	18	29	36	29	27		50	39	33	26	21	33	37	44	54		43	39	43
	9	32	28	22	32	36	30	29	39	49	36	39	34	27	36	31	40	58	39	26	37	39
	10	26	28	14	24	23	23	28	38	43	27	29	21	27	30	27	36	48	32	34	25	34
	11	22	17	13	22	26	20	22	26	38	23	21	20	26	25	27	31	43	28	26	25	30
	13	37	30	25	30	31	31	28	49	55	35	28	37		39	29	44	69			37	45
	25	19	17	15	13	27	18															
	40							20	28	44	29	27	32	18	28	32	37	57	38	26	34	37
	Av.	29	24	18	25	30	25	26	36	48	32	29	28	24	32	32	39	54	34	32	33	38
森林の北部 Northern part in the forest	21	8	9	8	4	15	11	10	17	21	11		12	tr.	12	14	15	26	16	15	14	17
	36	17	13	10	14	18	14	13	22	28	15	9	14	6	15	15	21	30	21	13		20
	38	10		8	3	16	9		17	24	17		11	16	17	15	16	29	16	12	12	17
	Av.	12	11	9	7	16	11	12	19	24	14	9	12	7	14	15	17	28	18	13	13	18
森林の中間地点 Intermediate part in the forest	6	17	15	13	19	23	17	16	27	35	23	18	19	2	20	20	23	36	20	17	19	23
	16	16	13	10	15	16	14		19	26	18	15	15	4	16	17	18	31		15	14	19
	24	16	12	11	19	22	16	17	24	29	15	7	18	6	17	24	22	29	20	15	18	21
	37	23	18	16	21	20	20	12	19	31	23	24	14	20	20	19	23	34	22	17	19	22
	39							14	21	35	23	18	21	4	19	18	28	39	28	17	20	25
	Av.	18	15	13	19	20	17	15	22	31	20	16	17	7	18	20	23	34	23	16	18	22
総平均	Mean	22	19	15	19	25	20	18	26	34	22	18	19	13	21	24	29	42	25	22	25	28



図—25 イタヤエカデの葉中フッ素濃度と発生源からの距離

Fig. 25. Fluorine contents of leaves of *Acer mono* collected at various distances from the fluoride source (N plant in Fig. 1).

状況をさらに詳細に調査した。また，前報では調査対象地は森林内にかぎられたが，今回は都市部でも採取でき，フッ素のとり込みの高かったハリギリと同じウコギ科のタラノキを選んで，フッ素の発生源に至近の距離から，森林内の諸点にいたるまでの汚染状況の調査を行なった。また，苫小牧地方演習林の代表的造林木であるカラマツも試料に加えた。樹葉の採取は前報と同じく完全にほぼ開葉する6月と落葉直前の9月に行なった。測定の結果を図-25～27および表-11に示す。これによると，イタヤカエデの場合6月29日に採取した葉のうち，発生源から3km以上離れた18地点の葉中のフッ素濃度は10 ppm以下であったことから，自然状態の下で完全に開葉したイタヤカエデの葉は10 ppm以下のフッ素含有率であると考えられる。しかし，発生源から3km以内の4地点ではすでに6月29日に11～24 ppmの範囲の比較的高い値を示しており，落葉直前の9月27日には同地点で20～107 ppmの範囲のきわめて高い値となっている。18地点のいずれにおいても落葉直前の葉が，開葉期のものより明らかに濃

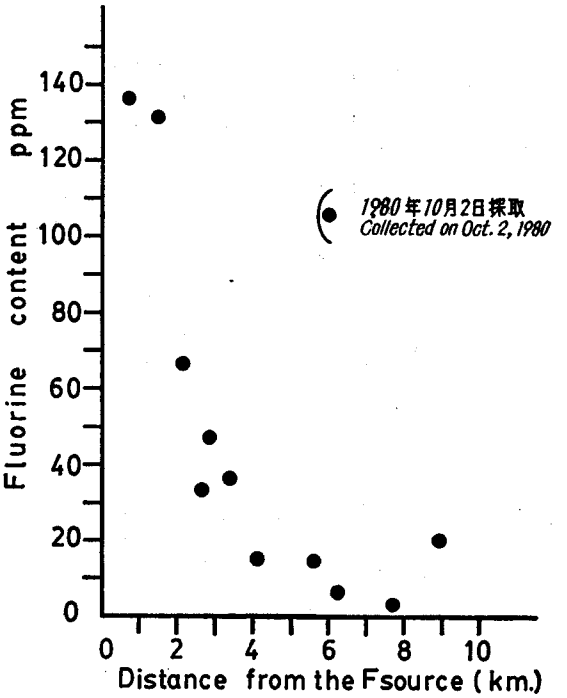


図—26 カラマツの葉中フッ素濃度と発生源からの距離

Fig. 26. Fluorine contents of leaves of *Larix leptolepis* collected at various distances from the fluoride source.

度が高く，発生源に近い地点ほどその傾向が大きい。その傾向は9月27日に採取した葉についてみると，とくにはっきりしている。さらに，カラマツについても同一傾向がみられるが，イタヤカエデと比較すると，とり込み量は少ない。タラノキは発生源の至近距離からも採取できたが，至近距離の地点も含めて，距離が近いほど含有率が高くなる傾向がはっきりあらわれている。

つぎに，イタヤカエデ葉中のイオウ濃度の測定結果を図-28および表-11に示す。葉のイオウ含有率は0.1～0.3%の範囲であったが，都市部に近いほど高い傾向がみられる。そこで都市部に近い高速道路周辺で5地点，高速道路から3km以上離れた北部遠隔地で4地点で6月および9月に採取した葉のイオウ含有率を表-12に示した。9月の高速道路周辺のPbO_2法による汚染度が北部遠隔地の4～5倍高いにもかかわらず，表-12によ



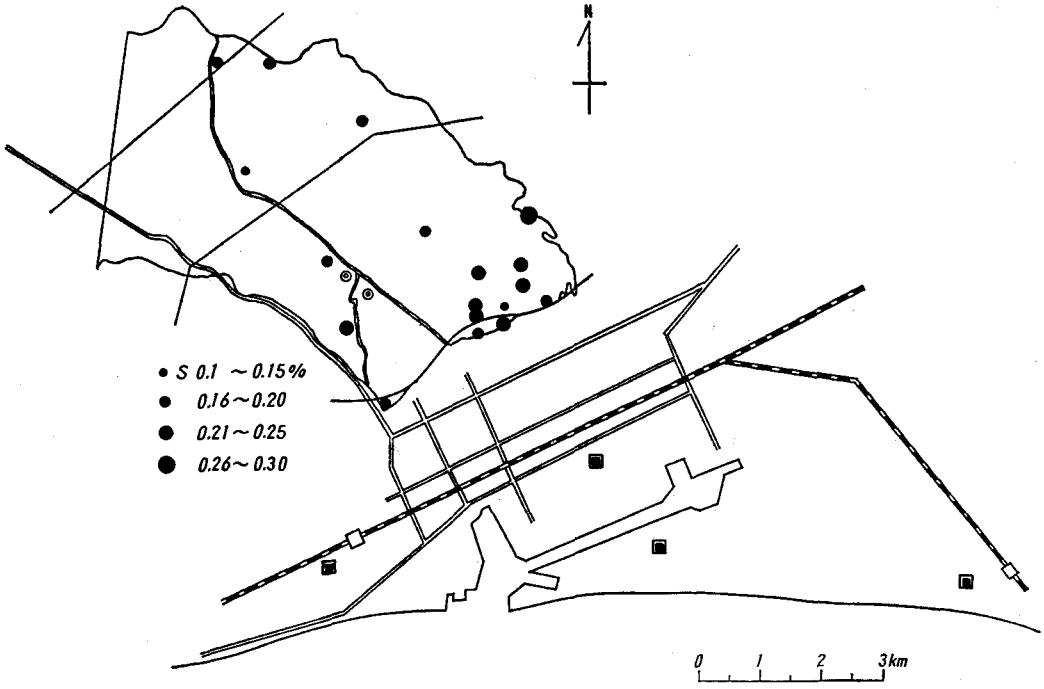
図—27 タラノキの葉中フッ素濃度と発生源からの距離

Fig. 27. Fluorine contents of leaves of *Aralia elata* collected at various distances from the fluoride source.

表—11 樹葉中のフッ素とイオウの濃度

Table 11. Contents of fluorine and total sulfur of tree leaves

樹種 Wood species	採集地点 Sampling sites	N工場からの方位と距離 Direction and distance from N plant		フッ素濃度 F content (ppm)		イオウ濃度 S content (%)	
				採取月・日 Sampling date (1979)			
		Direction	Distance (km)	June 29	Sep. 27 (Oct. 2, 1980)	June 29	Sep. 27
イタヤカエデ *Acer mono*	2	NNW	2.6	19	46	0.163	0.193
	3	〃	3.2	11	20	0.198	0.231
	4	〃	3.6	7	21	0.227	0.256
	5	〃	3.9	5	24	0.195	
	6	〃	4.2	2	20	0.154	0.302
	7	〃	2.7	24	107	0.190	0.232
	8	〃	3.0	8	20	0.116	0.103
	9	〃	2.7	6	70	0.199	0.188
	10	NW	3.0	12	42	0.175	0.222
	11	〃	3.1	6	26	0.201	0.257
	12	〃	3.2	5	21		
	14	NNW	3.6	7	11	0.156	0.238
	15	〃	4.0	9	17	0.206	
	16	NW	4.6	3	12	0.224	0.179
	17	〃	5.6	3	10		
	18	〃	6.3	3	5		
	19	〃	6.8	1	tr.	0.169	0.197
	20	〃	8.4	2	6	0.165	0.173
	21	〃	8.8	tr.	4	0.103	0.193
	22	〃	7.3	tr.	13	0.128	0.154
	23	〃	5.4	tr.	3	0.180	0.175
	24	WNW	4.6	2	8	0.211	0.222
	25	〃	3.5	7	2	0.159	0.167
タラノキ *Aralia elata*	41	ESE	2.1		(67)		
	42	NW	0.7		(137)		
	43	〃	1.5		(131)		
	9	〃	2.7		(34)		
	10	〃	2.9		(47)		
	28	〃	3.5		(36)		
	29	〃	4.2		(15)		
	17	〃	5.6		(15)		
	18	〃	6.3		(7)		
	44	〃	7.8		(3)		
	45	〃	8.7		(21)		
カラマツ *Larix leptolepis*	26	NW	3.0	5	10		
	27	〃	3.2	7	16		
	28	〃	3.5	3	10		
	29	〃	4.2	5	8		
	16	〃	4.6	3	9		
	30	WNW	4.3	tr.	2		
	31	〃	4.8	2	2		
	32	NW	5.6	tr.	2		
	33	〃	5.7	3	3		
	34	〃	6.7	1	8		
	35	〃	8.5	tr.	1		



図—28 イタヤカエデの葉中のイオウ濃度の分布

Fig. 28. Distribution of total sulfur contents of leaves of *Acer mono*.

表—12 高速道路周辺と遠隔地におけるイタヤカエデ葉中のイオウ濃度 (%)

Table 12. Sulfur contents of leaves of *Acer mono* at around the express way and sites far from the express-way (%)

高速道路周辺 Around the express way			北部遠隔地 Northern sites far from the way		
採取地点 Sampling sites	採取した月 Sampling month		採取地点 Sampling sites	採取した月 Sampling month	
	6 Jun.	9 Sept.		6 Jun.	9 Sept.
2	0.163	0.193	19	0.169	0.197
7	0.190	0.232	20	0.165	0.173
8	0.116	0.103	21	0.103	0.193
9	0.199	0.188	22	0.128	0.154
10	0.175	0.222	平均 Av.	0.141	0.179
平均 Av.	0.168	0.188			

るとイタヤカエデ葉中のイオウ濃度は1.1倍高いにすぎない。さらに葉中のイオウは遠隔地で6月開葉期に，すでに0.103～0.169%，平均0.141%含有されており，汚染度の高い高速道路周辺の0.116～0.199%，平均0.168%との差は0.027%と小さく，落葉直前 (9月) の含有率の高い時期でもその差は0.009%ときわめて小さい。したがって，イタヤカエデ葉中のイオウ濃度によって汚染度を判定することはこの程度の汚染レベルではきわめて困難である。

結　　言

前報の調査から引き続き今回の調査にいたるまで，すなわち1978年から1981年まで連続して4年間にわたる調査研究によって，苫小牧地方演習林の森林大気の汚染と汚染物質の樹葉へのとり込みの状況が一部明らかになった。これと平行して行なうことを考えていた植物に及ぼす影響調査は行なうことができなかったが，Smithのいう生態系に及ぼす影響の分類[20]によると，汚染の進んでいる南端部の森林は，彼のいうClass IIに移行しているのではないかと思われる。

苫小牧地方演習林では，ここ20年くらいの間に，南端部にかぎらず，林木の枯損が目立ってきたので，1970年頃から大気汚染の実態調査の手はじめにイオウ酸化物の測定を始め，1974年からは自動測定器によるイオウ酸化物の測定を開始し，1976年からは6年間にわたり，日本道路公団から演習林に“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”が委託されたので，研究は急速に進捗した。すなわち，苫小牧市における主要大気汚染物質と考えられるSO_x, NO_x, HFによる演習林ならびにその周辺における汚染の実態の概要を明らかにすることができた。しかし，森林に対しては大気汚染ばかりでなく，気候，土壌，地形なども含め，いろいろなものが複雑に関連しながら影響を与えるので，今後は植物の観察をはじめ，各種調査研究を地道に継続しながら，とくに汚染物質の発生源に対しても関心を強めていく所存である。

摘　　要

1980年10月に演習林の南端を通過する高速道路の供用が開始され，それによる森林大気の汚染状況の変化も考えられたので，1978年の調査[1]に引き続いて1979～1981年の3カ年にわたって，さらに詳細に汚染状況の調査を行なった。すなわち，演習林内の3測定局での自動測定器による二酸化イオウの測定，2測定局での自動測定器による窒素酸化物の測定，さらに演習林内の全域にわたってナイトレーション・プレート法による二酸化窒素とPbO_2法によるイオウ酸化物の汚染度の測定を行なった(図-1)。また，市街地および演習林全域で採集した樹葉中のフッ素およびイオウの濃度も測定した(図-2)。

1. イオウ酸化物

(1) II, IIIおよびVIII局の二酸化イオウ濃度の年平均値は7～12 ppbの範囲で，1978年に比べるとこの2，3年は減少している。VIII局の濃度は3局のなかで一番森林の奥に設置されているにもかかわらず一番高い濃度を示していることは特異的である。

(2) 3局の濃度の経年変化のパターンはほぼ同じで，開葉期直前あるいは開葉期に高い濃度を示した。

(3) 濃度の時刻別平均値の日変化は7月ではII, III局で午前11時前後と午後3時前後の

2つのピークが，VIII局で午後2時にピークがみとめられた。

(4) 濃度と風向風速の関係は，3局とも各年度の7月では卓越風である南よりの風の時，また，風速3.4～6.5 m/sの時に高い濃度がみられた。

(5) 高速道路上の自動車排ガスの影響は濃度の経年変化をみるかぎりとくに認められず，濃度の年度の相違は都市部の汚染状況の変化によるものと考えられる。

(6) イオウ酸化物の汚染度は森林の南端に近いほど高い傾向を示した。また，汚染度の年変化のパターンは二酸化イオウ濃度の場合とよく似た傾向を示した。

2. 窒素酸化物

(1) 二酸化窒素濃度の年平均値はIIIおよびIV局でそれぞれ，5～7 ppb，4～6 ppbの範囲であった。濃度の経年変化に季節的変化がみられ，5～7月の夏季に比較的高い濃度がみられ，この傾向は都市部の場合と異なっていた。

(2) 濃度と風向風速の関係は，2局とも各年度の7月では卓越風である南よりの風の時，また，風速0.3～3.4 m/sの時に高い濃度がみられた。

(3) 濃度の時刻別平均値の日変化は，各年度とも日中と夕方に，高い濃度を示す山がみられた。これらの濃度の山は交通量の山と2～3時間のズレがあり必ずしも対応がよくなかった。

(4) NO_2/NO_x 比と時刻の関係は，いずれの年も日中は発生源に近いIII局の値がIV局よりも小さい。III局で高速道路の供用開始後の1981年の値が最低を示していることは，供用が開始されたためと思われる。

(5) 二酸化窒素の汚染度はいずれの年も森林の南端に近いほど高い傾向がみられ，年変化の傾向は二酸化窒素の濃度の傾向とほぼ一致していた。

3. 樹葉中のフッ素濃度

イタヤカエデについては，明らかに発生源からの距離が近い地点ほど含有率が高い。また，発生源から3 km以内では6月で11～24 ppm，9月では20～107 ppmの範囲のきわめて高い値となっている。カラマツについても同一傾向がみられるが，イタヤカエデと比較すると，とり込み量が少ない。タラノキについては，都市部においても発生源に近い距離の地点ほど含有率が高くなる傾向がはっきりあらわれている。

4. イタヤカエデ樹葉中のイオウ濃度

濃度は0.1～0.3%の範囲であったが，都市部に近いほど高い傾向がみられる。また，時間の経過と共に含有率が高くなる傾向がみられる。PbO_2 法によるイオウ酸化物の汚染度との関係は，この森林大気の汚染レベルではっきりした傾向を示さなかった。

参考文献

1) 太田路一・川瀬 清・石崎健二・前田 豊：北海道大学苫小牧地方演習林の大気汚染．北大演研報，37, 287-306 (1980).

2) GUDERIAN, R.: Air Pollution, Phytotoxicity of Acidic Gases and its Significance in Air Pollution Controll, Springer-Verg, Berlin, Heidelberg, New York (1977).

3) GUDERIAN, R. and KUEPPERS, K.: Response of Plant Communities to Air Pollution, In Proceedings of the Symposium on Effects of Air Pollutants on Mediterranean and Temperate Forest Ecosystems. Riverside, California, June 22-27, 1980.
4) LEGGE, ALLAN H.: Primary Productivity, Sulfur Dioxide, and the Forest Ecosystem, an Overview of a Case Study. ibid.
5) 山懸 登・大喜多敏一: 環境汚染分析法 6. 硫黄酸化物, 大日本図書, 86-90 (1974).
6) 窒素酸化物簡易測定法研究会: 昭和51年度環境における大気汚染物質の分布量に関する研究 (窒素酸化物相対濃度測定法に関する研究), (昭和52年3月).
7) 松原広志・他4名: 神奈川県臨海地区における窒素酸化物の分布について (III) —ナイトレーション・プレート法. 大気汚染学会誌, **13**, 104 (1978).
8) 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).
9) 農林水産技術会議: 大気汚染による農林作物被害の測定方法に関する研究, 23-30 (1973).
10) 大喜多敏一: 環境汚染分析法 6. 硫黄酸化物, 大日本図書, p. 76 (1974).
11) TAYLOR, O. C., THOMPSON, C. R., TINGEY, D. T. and REINERT, R. A.: Oxides of Nitrogen in "Responses of Plants to Air Pollution" ed. by J. B. MUDD and T. T. KOZLOWSKI, 121-139 (1975), Academic Press, New York.
12) 原田 朗: 都市の大気汚染, pp. 45-65. 河村武編 "都市の大気環境", 東京大学出版会 (1979).
13) 環境庁: 二酸化窒素に係る判定条件等についての専門委員会報告. 大気汚染学会誌, **13**, 26-104 (1978).
14) 苫小牧市環境部: 環境の現況と対策. 昭和56年版, pp. 39-42.
15) 佐藤静雄・他11名: 主要幹線道路周辺における NO_x の拡散について. 大気汚染学会講演要旨集, p. 106, 昭和53年.
16) MOORE, J. W. and MOORE, E. A.: Environmental Chemistry, 229-237 (1976). Academic Press, New York.
17) BENNETT, JESSE H. and HILL, A. CLYDE: Interaction of Air Pollutants with Canopies of Vegetation in "Responses of Plants to Air Pollution" ed. by J. B. MUDD and T. T. KOZLOWSKI, 273-306 (1975). Academic Press, New York.
18) 日本道路公団: 苫小牧西料金所交通量月報.
19) TINGEY, D. T., REINERT, R. A., DUNNING, J. A. and HECK, W. W.: Vegetation Injury from the Interaction of NO_2 and SO_2, Phytopathology **61**, 5106-5111 (1971).
20) SMITH, W. H.: Air Pollution Effects on the Structure and Function of the Temperate Forest Ecosystem. Environ. Pollut., **6** (2), 111-129 (1974).
21) 垰田 宏: 大気汚染が植物に与える影響とその調査方法. 日本生態学会誌, **23** (2), 81-89 (1974).

Summary

The express-way passing through the southern part of the forest, was opened for traffic in October, 1980. The influence of emissions from the vehicles on the express-way on the forest has been one of major concerns of Tomakomai Experiment Forest, Hokkaido University.

This concern led to the more detailed research on the air environment over the forest in the three years period of 1979-1981, continued from the study[1] in 1978.

The following field measurements were conducted:

(1) SO_2 measurements at the three monitoring stations by the continuous automatic analyser (Fig. 1).

(2) NO_x measurements at the two monitoring stations by the continuous automatic analyser (Fig. 1).

(3) Measurements of relative NO_2 values by the nitration plate method and relative SO_2 values by the PbO_2 method all over the forest (Fig. 1).

(4) Measurements of contents of fluorine and sulfur in tree leaves which were sampled

all over the forest and also in the urban areas (Fig. 2).

The following results were obtained:

1. The concentration of SO_2 and relative value of SO_3

(1) The annual average ambient levels of SO_2 concentration at the monitoring stations of II, III, and VIII were in the range of 7-12 ppb which was lower than those in 1978[1]. It is noticeable that the highest level of SO_2 concentration was observed at the monitoring station of VIII, despite that it was located in the forest farthest from the southern forest border among these three stations (Table 1).

(2) The annual variation patterns were almost the same at these three stations and also the relatively high SO_2 concentrations were observed at just before the leaf developing period or in the season in which the leaves were fully grown (Fig. 6).

(3) Two peaks of SO_2 concentration at both stations of II and III were observed in July around 11 A. M. and around 3 P. M. (Fig. 7 and 8) and also one peak at the monitoring station of VIII at 2 P. M. (Fig. 9).

(4) The relatively high SO_2 concentrations at these three stations were observed in the southward prevailing winds in July (Fig. 10-12) and also at the wind speed of 3.5～6.5 m/s (Table 2).

(5) Apparent influences of vehicle's emission from the express-way on annual variations of SO_2 month-average concentration were not observed and thus far, it seems that the differences among each annual variation of SO_2 month-average concentration would attribute to the variations of the air environmental cricumstances in the urban areas.

(6) The apparent tendency was shown that the nearer the measuring sites of relative SO_3 values were to the southern forest border, the higher their values were. Also, the annual variation patterns of relative SO_3 values showed the almost similar tendency to those of SO_2 concentration (Fig. 13 and Table 5).

2. The concentration and relative value of NO_x

(1) The annual average levels of NO_2 concentrations of both stations of III and IV, were in the range of 5～7 and 4～6 ppb respectively (Table 6). The annual variations of NO_2 month-average concentration showed the seasonal variations and relatively high concentrations were observed in summer season of May-July (Fig. 14), but this tendency was different from those[11~14] in the urban areas.

(2) The relatively high NO_2 concentrations were observed in the case of southward prevailing winds in July (Fig. 15, 16 and Table 7～9) and also at the wind speed of 0.3～3.4 m/s (Table 7).

(3) Two peaks of NO_2 concentration, one in the daytime and another in the evening, were observed at both stations of III and IV every year (Fig. 17 and 18). The times at which such peaks occurred, did not always show good accordance with those of traffic volume peaks, having time lags of 2 or 3 hours each other.

(4) The ratios of NO_2/NO_x at the monitoring station of III (Fig. 22) which was nearer to the emission sources (vehicles) were lower than those at the monitoring station of IV (Fig. 23) every year and also every hour. It seems that the lowest ratios of NO_2/NO_x in 1981 in which the express-way was already open to traffic, would attribute to vehicle's emissions from the express-way.

(5) The apparent tendency was showed that the nearer the measuring sites of relative NO_2 values (Fig. 24) were to the southern forest border, the higher their NO_2 values were.

The annual variation patterns of relative NO_2 values showed the almost similar tendency to those of NO_2 concentrations.

3. The fluorine contents of the tree leaves of *Acer mono*, *Larix leptolepis*, and *Aralia elata* were measured. For *Acer mono* (Fig. 25), the apparent tendency was showed that the nearer the sampling sites of the leaves were to the fluoride emission sources, the higher their fluorine contents were. The very high contents of fluorine of the leaves were observed within 3 km from the fluoride emission sources; fluorine contents of 11～24 ppm in June and those of 20–107 ppm in September. For *Larix leptolepis* (Fig. 26), the above tendency was also observed, but compared with those of *Acer mono*, the fluorine accumulated in the leaves was less. For *Aralia elata* (Fig. 27), the apparent tendency was showed that the nearer the sampling sites of the leaves in the urban areas were to the fluoride emission sources, the higher their fluorine contents were.

4. Measurements of sulfur contents of tree leaves were made for *Acer mono* which were collected for the fluorine content measurements. The sulfur contents were in the range of 0.1～0.3% (Table 11), showing relatively apparent tendency that the nearer the sampling sites of the leaves were to the urban areas, the higher they were (Fig. 27, Table 12). Also, another tendency was observed that the sulfur contents became higher with the lapse of time.

The close relation between the sulfur contents and the relative SO_2 values could not be observed at the present stage of air pollution of SO_2 in the forest.