

瓦工場周辺におけるフッ化物による大気汚染

—— 単一の工場が環境に及ぼす影響 —— *

中尾 允** ・ 田中文夫** ・ 橋 親男**
深田和美** ・ 林 喬一郎** ・ 斎藤孝一**

1. はじめに

フッ化物による大気汚染は、その植物に対する毒性の強さと蓄積性に関して重視されている。大気中のフッ化物は極微量でも種々の植物に顕著な被害を与え、さらに、フッ化物により汚染された植物を飼料とする動物にも被害が及んでいる¹⁾。

ところで、大気中にフッ化物を排出する主な施設としては、アルミ精練業、リン酸肥料製造業、窯業などがある。このうち、アルミ精練業^{2,3)}とリン酸肥料製造業⁴⁻⁶⁾は工場が大規模で、フッ化物の排出量が多く、環境に及ぼす影響も大きい。総合的な調査が実施されてきた。一方、窯業、特に釉薬粘土瓦製造業は、工場の規模は小さく、個々の工場から排出されるフッ化物量は比較的少ないが、工場は良質な粘土を産出する地域に集中化する傾向が強く、また、その工場群の隣接地には桑園、水田、畑地などがある場合が多いため、局地的ではあるが蚕児や農林作物に被害をもたらす、各地で問題になっている⁷⁻¹¹⁾。

島根県には釉薬瓦製造用トンネル窯が32社67基あるが、近年は強い需要に支えられ、窯の新設および大型化があいつぎ、その生産量は、昭和53年度には年間約15,000万枚に及び、全国生産量の約10%を占めている。一方、昭和47年頃から一部の地域で蚕児および農林作物被害が顕在化したため、昭和48年頃から総合的な調査を開始した。そして、昭和51年度には当面の被害防止を目的として、被害が現実に発生している地域に対し、県条例に基づいて排出規制を実施した。なおその際、被害が顕在化していない地域については、フッ化物に係るクライテリアや個々の発生源の環境汚染への寄与率が未だ十分に解明されていなかったため、県公害対策審議会で継続審議となった。その後、フッ化物に係るクライテリアについては、角田¹⁾が発表した¹⁾が、単一発生源の環境汚染への寄与率についてはほとんど調査されてい

ない。著者ら¹²⁾は、これまでもSF₆ガスによるトレーサー実験を行って寄与率の解明を試みたが、今回、さらにその実態を究明するため、他の発生源からの影響がほとんどない所に位置する工場を調査対象とし、そこから排出されるフッ化物の拡散状況とその植物などに与える影響について調査したので、その結果について報告する。

2. 調査地域および調査対象工場の概要

調査は、地形が比較的平坦で、かつ他の発生源からの影響もほとんどないと思われるM窯業周辺地域で行った。この地域は、図1に示したように、1級河川のT川

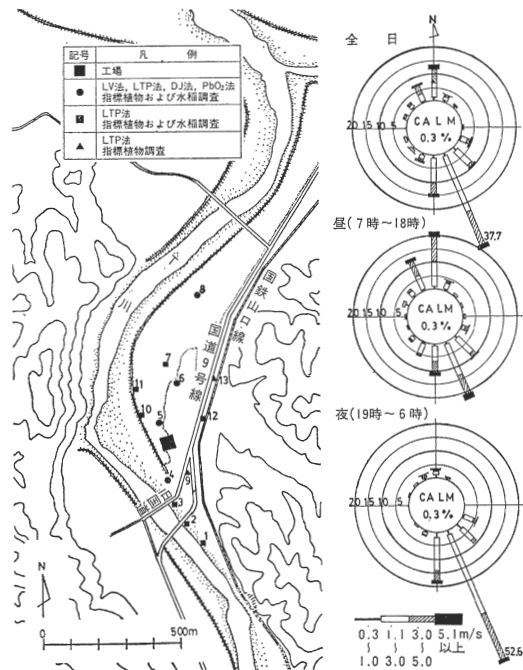


図1 調査地点と風配図

* Fluoride Pollution around Tile Works — Effects of a Single Source on Environment —

** Makoto NAKAO, Fumio TANAKA, Chikao TACHIBANA, Kazumi FUKADA, Kyoichiro HAYASHI, Koichi SAITO (島根県衛生公害研究所) Shimane Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science

流域にあり、東側と西側には高度 200~300 m の山が迫り、T川の流れに沿い南北に開けた地形となっている。また、T川に沿っては国道 9 号線と国鉄山口線が走っており、旧国道沿いには民家が並び、T川両岸は水田地帯となっている。

M窯業は新旧両国道の分岐点に位置し、トンネル窯は 2 基で B 重油を燃料として 釉薬粘土瓦を日産 6,000 枚生産し、窯の排出ガスは 2 基分を合流して高さ 17 m の煙突から未処理のまま大気中に放出している。次に、この工場の特徴としては、①原料土の焼締りが悪いという理由から、台車を送る速度が遅く、フッ素の排出係数（製品 1 トンを焼成する際に排出されるフッ素量）は約 200 gF/t で、他工場の 90~170 gF/t に比べ若干高いこと¹⁸⁾、②排ガスを放出する煙突の高さは 17 m で他工場の 10 m 前後に比較して多少高いこと、があげられる。

3. 調査方法

3・1 気象

風向風速計を工場の屋上に設置し（高度約 10 m）、気象観測を行った。観測期間は昭和 53 年 4 月 27 日から昭和 54 年 2 月 28 日までであった。

3・2 発生源調査

排ガスの測定を 8 月と 10 月の 2 回行った。試料ガスの採取位置は、1 号炉と 2 号炉の排ガスが均一に混合され、かつ整流になっていると思われる煙突の地上約 5 m の場所とした。排ガス中のフッ化物濃度および硫酸化物濃度は、それぞれ JIS K 0105 および JIS K 0103 に準じて行った。なお、フッ化物についてはガス状フッ化物と粒子状フッ化物の分別捕集測定も行った。

3・3 環境大気調査

大気中のフッ化物濃度と硫酸化物濃度は、図 1 に示した地点（地点 No. 13 は 8 月で廃止）で、昭和 53 年 4 月 27 日から昭和 54 年 3 月 28 日まで測定した。大気中フッ化物濃度は、ローボリュウムエアースンプラーを用いるガス状フッ化物と粒子状フッ化物の分別捕集測定法（以下 LV 法と略す）¹⁴⁾、石灰懸濁ろ紙法による相対濃度測定法（以下 LTP 法と略す）¹⁵⁾、ダストジャーを用いる降下ばいじん中の水溶性フッ素量測定法（以下 DJ 法と略す）の 3 つの方法で測定した。なお、DJ 法の水溶性フッ素量は蒸留操作を略し、上澄液を分析用試料溶液とし、TISAB（1）を用いてイオン電極法で測定した。また、大気中硫酸化物濃度は二酸化鉛法¹⁶⁾で測定した。なお、測定周期は、LV 法では約 1 週間、他法では約 1 カ月間とした。

3・4 指標植物調査

グラジオラス（品種：スノープリンセス）およびホウ

レン草（品種：次郎丸）を指標植物とし、全調査地点に配置した。グラジオラスは市販のプラスチック製プランター（600(W)×170(H)×180(D)）を用いて栽培した。球根の植付けは 4 月 17 日で、現地栽培期間は 4 月 27 日から 8 月 30 日までであった。肥料は球根植付け時に堆肥と油粕を一括して施した。試料の採取は 7 月 6 日、7 月 27 日、8 月 30 日の 3 回に分けて行った。一方、ホウレン草もグラジオラスと同じプランターで栽培したが、ホウレン草は直根性植物のため、プランターによる栽培には不向であった。種時は 9 月 27 日、現地栽培期間は 10 月 7 日から 1 月 10 日までであった。肥料は播種時に堆肥と油粕を施し、12 月上旬に化成肥料と油粕を追肥した。試料は 12 月 5 日または 6 日と 1 月 10 日の 2 回に分けて採取した。

採取した試料は被害度を測定した^{15,16)}後、葉中フッ素含有量を測定した^{15,17)}。しかし、ホウレン草の可視被害は明瞭でなく、被害の判定が困難であったため、被害度は測定しなかった。

3・5 水稻調査

図 1 に示した 11 地点で、現地農家が慣行によって栽培している水稻を供試試料とし、玄米中および葉身中のフッ素含有量の測定と収量調査を行った。水稻の田植は 5 月 15 日から 20 日の間で、試料採取および収量調査は 9 月 16 日と 18 日に行った。玄米中のフッ素含有量の分析は指標植物と同じように行ったが、葉身は常法¹⁸⁾によらず酸抽出・イオン電極法¹⁹⁾で行った。また、収量調査は収穫期に坪刈調査を行って実収量を調べた。

3・6 土壌調査

水稻調査地点の土壌中総フッ素と水溶性フッ素の含有量を調査した。試料は、田植直前と坪刈調査時の 2 回、表層から約 10 cm の間のものを採取した。また、主な 4 地点では層別フッ素分布調査を行ったが、試料は昭和 54 年 3 月 28 日に表層から 5 cm 間隔で 20 ないし 25 cm の深さまで採取した。風乾細土の分析は、総フッ素量については熱分解・イオン電極法²⁰⁾で、水溶性フッ素量については山田らの方法²¹⁾で行った。

4. 結果および考察

4・1 気象

本調査期間中の風速別風配図を図 1 に示した。全日についてみると、主風向は SSE でその風向頻度は 37.7%、ついで S, N, SE, NNW, ESE の順であった。このうち、S, SSE, SE の 3 方向の頻度を合せると 63.0% と非常に高く、また、N と NNW の風向頻度の合計も 20.1% であった。風速はどの風向とも 1.1~3.0 m/s の風が最も多く、静穏は 0.3% と少なかった。

昼間（7時～18時）の主風向は SSE で、その頻度は 22.9%、ついで N, NNW, S, SE, NNE, NW の順であった。このうち、S, SSE, SE の 3 風向の頻度合計は 45.1%、N と NNW のそれは 34.3% であった。このように、この地域の昼間の風は N 系と S 系とが伯仲しており、風は川に沿って吹き上がったたり、吹き下がったりしている。一方、夜間（19時～6時）は SSE が卓越し、その風向頻度は 52.6% にもなり、ついで S, SE, ESE, N の順であった。このように、夜間の風は特異的で、S, SSE, SE の 3 風向の頻度合計は実に 81.0% にもなり、夜間の風はほとんど常時、川に沿って吹き下がっている。また、風速は全日の場合と同様、昼夜ともに 1.1～3.0 m/s が多く、静穏は 0.3% と少なかった。

4・2 発生源調査

排ガスの測定結果を表 1 に示した。排ガス中フッ化物の分別捕集測定の結果、排ガス中のフッ化物から粒子状のものは検出されず、ほとんどのものがガス状のものであった。なお、このことは別の調査でも確認されている¹⁴⁾。したがって、瓦工場から排出されるフッ化物の大部分は、植物に対する毒性の極めて強いガス状のものであるため、農林作物被害防止対策などを推進するに当りこのある点を十分に留意する必要がある。

排ガス中のフッ化物濃度は、1 回目の調査時には 17.6 mgF/m³N であったものが、第 2 回目の調査時には 4.5 mgF/m³N となり、1 回目の調査時に比べ約 1/4 になっ

ていた。そして、フッ素排出量も、1 回目は 241 gF/h であったものが、2 回目は 103 gF/h で 1 回目の 1/2 以下であった。この原因として考えられることは、①原土・釉薬中のフッ化物の組成と含有量の変動、②焼成温度・台車速度などの操炉方法の変動、③生産量の変動、④排ガス測定ミス、などがある。このうち、①～③については工場からの聴取調査の結果、表 1 に示したとおり変動はないようであった。そこで、排出係数からフッ素排出量を試算してみると、①51年度にこの工場の 2 号炉について求めた排出係数は 203 gF/t、②本調査時の原材料使用量は 36.8 t/day（平均水分量 18%）、③その焼成減量は約 6.5% と推定されることから、フッ素排出量は

$$203(\text{gF/t}) \times 36.8(\text{t/day}) \times \left(1 - \frac{18}{100}\right) \times \left(1 - \frac{6.5}{100}\right) \\ = 5,728 \text{ gF/day} = 239 \text{ gF/h}$$

となる。この値は 1 回目の調査時排出量 241 gF/h とほぼ同じである。また、54年度に行った排ガス測定結果では 20.4 mgF/m³N となっている。以上のことから、2 回目の調査時の測定値は通常の操業時のフッ化物濃度とは考え難く、測定方法などに問題があったのではないかと推察されるが、その詳細は明らかではない。

以上のように、この工場の煙突から排出されるフッ化物濃度は約 20 mgF/m³N、その排出量は約 240 gF/h で、そのほとんどはガス状フッ化物であった。また、硫酸化物濃度は約 200 ppm で、その排出量は 3～4 m³N/h であった。ところで、島根県下で稼動しているトンネル窯を類型化し、その代表的な窯について行った排ガス調査の結果¹⁴⁾によると、①フッ化物濃度は 9.2～30.4 mgF/m³N（平均値 23.6 mgF/m³N）で、その排出量は 49～300 gF/h（平均値 182 gF/h）、②硫酸化物濃度は 39～340 ppm（平均値 214 ppm）で、その排出量は 0.41～3.04 m³N/h（平均値 1.39 m³N/h）であった。この結果と本調査対象工場の測定結果とを対比すると、本調査対象工場の硫酸化物排出量が多いほかはほぼ同じである。したがって、本調査対象工場は 2 基のトンネル窯の排ガスを合流して排出しているが、工場の煙突から放出されるガスは、島根県下の他のトンネル窯の排ガスと質的、量的に大差ないと考えてよいであろう。

4・3 環境大気調査

環境大気測定結果の総括したものを表 2 に示した。

4・3・1 LTP 法による大気中フッ化物相対濃度測定

LTP 法による測定値（以下 LTP 値と略す）の年平均値は地点 No. 7 が最も高く 66 μgF/dm²/month で、その LTP 値は 38～123 μgF/dm²/month の範囲であった。他地点の年平均値は 10～30 μgF/dm²/month で、LTP 値は 6～63 μgF/dm²/month の範囲を変動していた。工

表 1 発生源調査結果

調査年月日		昭和53年 8月9日	昭和53年 10月25日	
施設の 状況	生産量(枚/日)	6,096	5,930	
	焼成温度(°C)	1号炉	1,160	1,220
		2号炉	1,175	1,200
重油使用量(l/h)	1号炉	89.0	91.8	
	2号炉	60.5	63.2	
排ガス 測定結果	排ガス温度(°C)	134	122	
	排ガス流速(m/s)	7.1	11.3	
	排ガス中水分量(%)	5.5	4.5	
	湿り排ガス量(m ³ N/h)	14,500	23,900	
		空気比	6.5	4.8
フッ 化物	ガス状(mgF/m ³ N)	17.6	4.5	
	粒子状水溶性(〃)	—	<0.1	
	粒子状難溶性(〃)	—	<1.0	
	総フッ素(〃)	—	4.5	
	排出量(gF/h)	241	103	
硫酸 化物	濃度(ppm)	204	176	
	排出量(m ³ N/h)	2.8	4.0	

表2 環境大気測定結果

地点番号	工場からの 方向と距離 方向 距離(m)	53年												54年				最大	最小
		項目*	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	1月	2月	3月	平均					
No. 1	SSE 390	LTP	21	15	36	16	—	17	20	20	7	17	14	21	18	36	7		
No. 2	SSE 300	LTP	30	28	63	28	58	33	28	28	14	29	28	46	35	63	14		
No. 3	S 210	LTP	34	25	56	26	58	35	33	33	18	37	32	52	37	58	18		
No. 4	S 140	LTP	28	27	40	18	28	31	31	31	20	48	35	42	32	48	18		
		LV	0.188	0.144	0.201	0.150	0.126	0.065	0.079	0.062	0.128	0.095	—	—	0.124	0.201	0.062		
		DJ	—	9.3	<0.8	—	7.4	3.8	9.3	8.8	14.3	23.3	10.3	23.3	9.6	23.3	<0.8		
		PbO ₂	0.14	0.09	0.12	0.07	0.13	0.10	0.13	0.11	0.19	0.15	0.21	0.13	0.13	0.21	0.07		
No. 5	NNW 80	LTP	21	52	36	26	17	16	21	21	20	30	28	21	26	52	16		
		LV	0.076	0.116	0.145	0.103	0.064	0.047	0.052	0.057	0.076	0.087	—	—	0.083	0.145	0.047		
		DJ	—	9.2	<0.8	—	—	10.5	8.6	7.2	14.0	16.2	4.4	16.2	8.8	16.2	<0.8		
		PbO ₂	0.11	0.17	0.11	0.10	0.09	0.08	0.11	0.15	0.18	0.16	0.15	0.16	0.13	0.18	0.09		
No. 6	NNE 200	LTP	8	29	27	15	12	9	19	19	16	22	—	14	17	29	8		
		LV	0.103	0.061	0.067	0.056	0.038	0.036	0.051	0.049	—	0.057	—	—	0.058	0.103	0.036		
		DJ	—	5.0	<0.8	—	<0.8	3.3	—	3.4	8.0	6.8	2.9	6.8	3.7	8.0	<0.8		
		PbO ₂	0.08	0.09	0.16	0.07	0.07	0.07	0.09	0.14	0.15	0.12	0.13	0.12	0.11	0.16	0.07		
No. 7	N 310	LTP	56	123	63	51	38	62	100	89	73	76	65	66	123	38			
No. 8	NNE 560	LTP	12	27	26	13	—	13	24	24	17	29	22	16	20	29	12		
		LV	—	0.165	0.136	0.049	0.037	0.036	0.053	0.046	—	0.062	—	—	0.073	0.165	0.036		
		DJ	—	4.7	<0.8	—	—	6.1	9.5	8.6	17.5	14.0	6.1	14.0	8.3	17.5	<0.8		
		PbO ₂	0.09	0.11	0.08	0.08	—	0.09	0.12	0.14	0.17	0.12	0.14	0.12	0.11	0.17	0.08		
No. 9	SE 150	LTP	12	17	25	21	15	8	11	7	17	13	13	14	25	7			
No. 10	NW 130	LTP	18	28	39	25	9	14	21	13	21	25	20	21	39	9			
No. 11	NNW 240	LTP	27	42	26	21	14	23	23	18	23	30	22	24	42	14			
No. 12	ENE 160	LTP	8	14	24	11	6	9	12	12	20	13	10	13	24	6			
No. 13	NE 290	LTP	11	14	19	10	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—			
対照	松江保健所	LTP	9	10	10	16	8	8	—	—	5	6	8	9	16	5			

* 単位 LTP法: $\mu\text{gF}/\text{dm}^2/\text{month}$, LV法: $\mu\text{gF}/\text{m}^3$, DJ法: $\text{kgF}/\text{km}^2/\text{month}$, PbO₂法: $\text{mgSO}_2/\text{day}/100\text{cm}^2\text{PbO}_2$

場からの方向別では、主風向の風下になる NNE~NW と SSE~S の方向にあたる地点が高くなっていたが、他方向の地点は低く、対照地点に近い値であった。

LTP 値の主風向方向の距離減衰状況を図 2 に示した。工場から SSE~S の方向においては、春季から秋季の間は工場から 200~300 m の所に、冬季は 100 m 付近に最高値が出現していた。一方、NNE~NNW の方向では、全季節とも工場から 300 m 付近にそれが出現していた。ところで、各調査地点は工場のある所より約 7 m 低い水田地帯に設定されており、また煙突の実高は 17 m であることから、LTP 値の最高値出現地点は、主風向風下で調査地点のある所から煙突の頂口までの高さの約 10 倍離れた場所にあるように思われた。

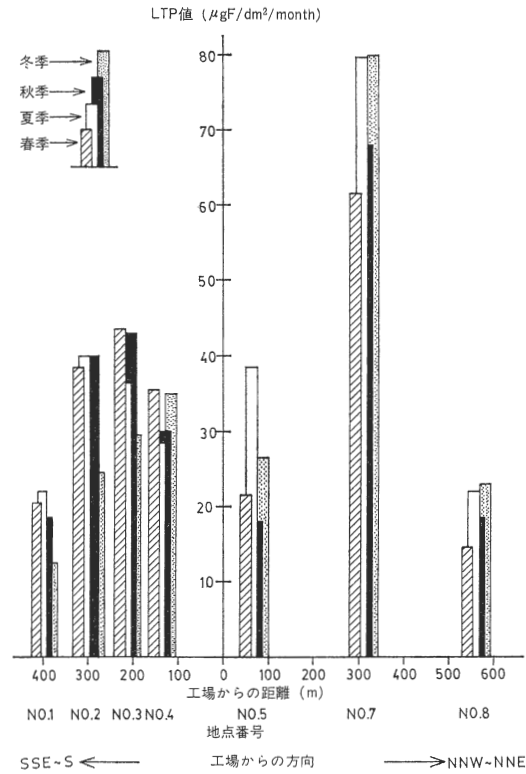


図 2 LTP 値の距離減衰

表 3 LV 法による大気中総フッ化物濃度測定結果 (単位: µgF/m³)

地点番号	年平均値	月平均値		測定値	
		最高	最低	最高	最低
No. 4	0.124	0.201	0.062	0.220	0.046
No. 5	0.083	0.145	0.047	0.198	0.031
No. 6	0.058	0.103	0.036	0.225*	0.029
No. 8	0.069	0.136	0.036	0.161**	0.031

総フッ化物の成分: ガス状 0.053 0.081
 粒子状水溶性 0.004 <0.004
 粒子状難溶性 0.168 0.080

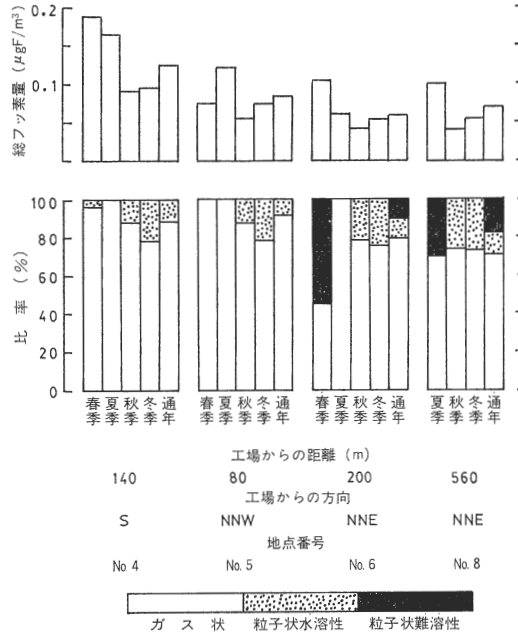


図 3 大気中フッ化物濃度と成分比率

の比率は工場に近いほど高く、かつ気温の高い季節ほど高くなる傾向が認められた。次に、粒子状フッ化物の内容についてみると、地点 No. 6 の春季と地点 No. 8 の夏季以外は粒子状フッ化物の大部分は水溶性のものであった。ところで、地点 No. 6 の春季と地点 No. 8 の夏季に粒子状難溶性フッ化物の比率が異常に高くなったのは、それらの期間中にそれぞれ 1 回だけ異常に高い難溶性フッ化物を検出したためである。この異常値は、両地点が畑地内に設定されていたこと、異常値が 1 回だけ検出されたことから、それらの測定期間中に畑地に投下された、例えば石灰などのような難溶性フッ化物を多量に含む農業用資材がフィルターに捕集されたためと推定された。

瓦工場周辺の大気中粒子状フッ化物の主な由来として

は、上述のような特別な場合を除くと、風によって大気中に吹き上げられた土壌とトンネル窯から排出されたガス状フッ化物の粒子状フッ化物への転化が考えられよう。しかし、前者は次の理由により大気中粒子状フッ化物の由来とは考え難い。すなわち、後述のように、この地域の水田土壌中の総フッ素量は 338~553 ppm であるが、そのうち水溶性フッ素量は 0.5~3.7 ppm にすぎない。これに対し、大気中粒子状フッ化物はその大部分が水溶性のもので、難溶性のものが多量に検出されたのは 2, 3 枚の粉じん捕集用フィルターだけで、他のほとんどのフィルターからは検出されていないという理由による。後者は、工場から排出されたガス状フッ化物が大気中を拡散する過程あるいは試料採取の過程で、他の物質と反応したり、浮遊粉じんに付着または吸着し、粒子状フッ化物に転化するものである。ここで、この転化が試料採取過程によるものと仮定すれば、大気中ガス状フッ化物濃度は工場に近いほど高いという測定結果から考えると、粒子状フッ化物も当然工場に近いほど高くなるのが予想される。しかし、その実測値は各地点とも ND~0.01 $\mu\text{gF}/\text{m}^3$ 程度で、工場からの距離による差異はほとんど認められていない。したがって、以上のことから、工場より排出されたガス状フッ化物は、その反応性が高いため、大気中を拡散する過程で他の物質と反応したりあるいは浮遊粉じんなどに付着または吸着し、その一部は粒子状フッ化物に転化するものと推察される。

4.3.3 その他

DJ 法による降下ばいじん中の水溶性フッ素量と PbO_2 法による硫黄酸化物の測定を LV 法と同じ 4 地点で行った。その結果は表 2 のとおりであった。DJ 法による降下ばいじん中の水溶性フッ素量の年平均値は、地点 No. 6 では 3.7 $\text{kgF}/\text{km}^2/\text{month}$ であったが、他の 3 地点では 8.3~9.6 $\text{kgF}/\text{km}^2/\text{month}$ でほぼ同じ値を示していた。 PbO_2 法による硫黄酸化物汚染度の年平均値は全地点ともほぼ同じで、0.11~0.13 $\text{mg SO}_3/\text{day}/100 \text{ cm}^2 \text{ PbO}_2$ であった。

4.4 指標植物調査

4.4.1 グラジオラスによる調査

調査結果を表 4 に示した。葉中フッ素含有量は現地栽培期間が長いほど高く、葉の成長・成熟ともなう葉中フッ素濃度の希釈よりは、葉への吸収・蓄積が大きかった。部位別には、葉の上部 1/2 が下部 1/2 より数倍高く、葉の先端部へのフッ素の集積が認められた。また、葉の先枯現象は軽度ではあったが、大部分の地点で認められ、その程度は第 4 葉より第 3 葉の方が大きかった。葉中(上部 1/2)フッ素含有量と被害度との距離減衰の状況を図 4 に示した。これは図 2 の LTP 値と同じパターンを示しているが、図 6 の水稻とは異なっている。これについては 4.5.3 で詳しく述べる。

図 5 は、7 月 27 日に採取した試料について求めた葉中(上部 1/2)フッ素含有量、LTP 値および被害度の間の相

表 4 グラジオラスによる調査結果

生育期間	4/27 ~ 7/6			4/27 ~ 7/27					4/27 ~ 8/30		
	LTP 値 ($\mu\text{gF}/\text{dm}^2/\text{day}$)	葉中 F* (ppm)		LTP 値 ($\mu\text{gF}/\text{dm}^2/\text{day}$)	葉中 F* (ppm)		被害度 (%)		LTP 値 ($\mu\text{gF}/\text{dm}^2/\text{day}$)	葉中 F* (ppm)	
上部 1/2		下部 1/2	上部 1/2		下部 1/2	第 3 葉	第 4 葉	上部 1/2		下部 1/2	
No. 1	0.62	1.1	0.6	0.65	1.5	1.2	9	3	0.62	2.1	1.3
No. 2	0.97	2.1	0.6	1.23	4.2	0.9	15	13	1.15	5.5	2.6
No. 3	1.01	1.8	0.8	1.21	3.4	1.3	11	10	1.12	2.9	1.7
No. 4	0.92	1.4	0.8	1.02	2.8	1.1	13	12	0.91	3.5	1.3
No. 5	1.11	2.1	0.5	1.13	2.1	0.9	17	16	1.06	3.5	1.6
No. 6	0.55	1.4	0.6	0.63	2.8	1.2	15	12	0.59	2.7	1.7
No. 7	2.76	2.4	0.8	2.61	5.8	1.5	24	16	2.36	9.2	4.9
No. 8	0.60	1.2	0.8	0.66	2.4	1.7	11	10	0.60	3.8	2.1
No. 9	0.47	1.2	<0.5	0.55	6.1	1.6	16	8	0.59	2.8	1.6
No. 10	0.73	1.4	0.7	0.86	1.6	0.9	5	7	0.85	5.2	3.1
No. 11	1.10	1.8	0.7	1.05	2.1	0.9	17	15	0.95	5.1	2.8
No. 12	0.35	1.1	0.6	0.45	1.9	0.9	7	10	0.43	5.9	3.6
No. 13	0.41	0.8	0.7	0.46	1.7	0.9	7	7	0.43	4.8	2.8
対 照	0.34	0.8	0.5	0.33	1.3	<0.5	—	—	0.38	—	—

* 乾物当り

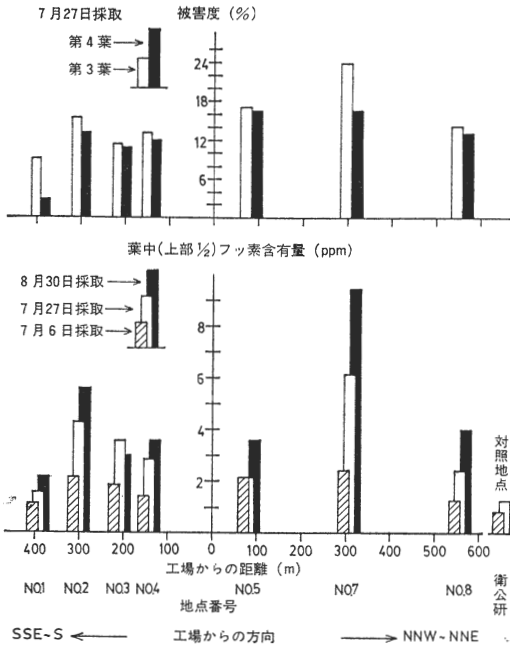


図4 グラジオラスの葉中(上部1/2)フッ素含有量と被害度の距離減衰

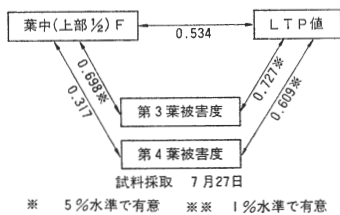


図5 グラジオラス相関図

関性を示したものである。葉中(上部1/2)フッ素含有量と第3葉の被害度および第3葉・第4葉の被害度とLTP値との間には高い相関性が認められるが、葉中(上部1/2)フッ素含有量とLTP値との間にはそれほど高い相関は認められない。しかし、葉中(上部1/2)フッ素含有量とLTP値との相関係数は、7月6日に採取した試料については0.813で1%の危険率で、また、8月30日に採取したのものについては0.676で2%の危険率でそれぞれ有意であった。以上のように、本調査の結果でもこれまでの調査結果^{15,22)}と同様、LTP値、葉中(上部1/2)フッ素含有量および被害度の3者間には有意な相関性が認められ、グラジオラスは大気中フッ化物の指標植物として有用であることが再確認された。

4.4.2 ホウレン草による調査

森山ら¹⁶⁾は、アルミ精練工場周辺で指標植物にホウレン草を用いて調査した結果、LTP値と葉中フッ素含有量および被害度の間には有意な相関が認められ、ホウレン

草は指標植物として有用であったと報告している。そこで、本調査でもグラジオラスが使用できない秋季～冬季の間の指標植物としてホウレン草を用いた。

その結果は表5のとおりである。可食部中のフッ素含有量は、グラジオラスと同じように、現地栽培期間が長いほど高くなっていった。しかし、フッ素含有量とLTP値との相関係数はグラジオラスのそれに比べ小さく、12月6日に採取したものでは0.565、1月10日に採取したものでは0.461であった。また、可視被害も、別に調査した瓦工場密集地域の一部で油浸状の被害らしきものが観察されたが、本調査地域では発現しなかった。このように、本調査には栽培方法や分析部位などに問題点はあるが、ホウレン草はフッ素蓄積性はあるものの、可視被害はグラジオラスのように顕著でないため、指標植物としては使用し難いように思われた。

表5 ホウレン草による調査結果

生育期間	10/7～12/5		10/7～1/10	
	LTP値 ($\mu\text{gF}/\text{dm}^2/\text{day}$)	可食部F* (ppm)	LTP値 ($\mu\text{gF}/\text{dm}^2/\text{day}$)	可食部F* (ppm)
地点番号				
No. 1	0.60	—	0.46	9.8
No. 2	1.00	—	0.81	7.8
No. 3	1.11	3.7	0.92	13.3
No. 4	1.02	4.3	0.89	6.8
No. 5	0.62	7.0	0.63	16.9
No. 6	0.45	3.9	0.53	10.1
No. 7	2.64	7.4	2.76	16.9
No. 8	0.60	5.5	0.56	8.8
No. 9	0.30	2.8	0.28	5.4
No. 10	0.57	3.8	0.51	17.6
No. 11	0.75	3.9	0.70	10.7
No. 12	0.35	5.2	0.31	8.3
対 照	0.22	2.4	0.21	—

* 乾物当り

4.5 水稲調査

4.5.1 玄米中および水稲葉身中フッ素含有量

測定結果を表6に示した。玄米中フッ素含有量は0.5～2.2ppmの範囲にあり平均1.2ppmであった。なお、玄米中フッ素含有量の通常値は0.5～1.5ppmとされているが¹⁾、本調査の結果では工場からSSE～S方向の4地点(地点No.1～No.4)で1.5ppmをこえていた。次に、水稲葉身中のフッ素含有量は葉位によって異なり、全地点ともおおむね上位の葉が高く、止葉では0.9～12.3ppm(平均5.2ppm)、第2葉では1.0以下～9.2ppm(平均4.2ppm)、第3葉では1.0以下～8.5ppm

表6 水稲調査結果

地点番号	品 種	フッ素含有量 (ppm)				
		玄米*	葉 身**			
			止葉	第2葉	第3葉	第4葉
No. 1	近畿33号	1.6	4.1	3.6	3.8	3.2
No. 2	近畿33号	1.6	7.1	6.4	5.7	5.6
No. 3	日本晴	2.2	12.3	9.2	8.5	7.8
No. 4	農林44号	1.5	7.3	6.7	3.7	3.3
No. 5	近畿33号	1.0	6.6	5.3	3.4	3.3
No. 6	ヤマビコ	1.0	4.3	4.1	4.8	4.7
No. 7	日本晴	1.2	6.0	3.7	5.2	3.9
No. 8	日本晴	0.8	0.9	<1.0	<1.0	<1.0
No. 10	ヤマビコ	0.9	4.4	3.3	3.0	3.2
No. 11	しまねにしき	1.0	2.3	2.2	2.3	2.1
No. 12	日本晴	0.5	1.4	1.2	1.3	1.7

* 風乾当り

** 乾物当り

(平均 3.8 ppm), 第4葉では 1.0 以下~7.8 ppm (平均 3.5 ppm) であった。

このように、上位の葉ほどフッ素摂取量が多いのは次の理由によるものと考えられる。植物の大気汚染物質の摂取量は、第1義的には汚染物質の濃度とそれに接している時間の積、すなわち暴露係数に支配されることが知られている²¹⁾。しかしながら、水稲各葉の出葉時期と葉身中フッ素含有量の測定値とを対比すると、暴露係数の大小が葉身中フッ素含有量の葉位による差異を生じさせた主因とは考えられず、むしろ、松岡²²⁾が水稲の二酸化硫黄摂取に関して考察しているように、各葉の気孔開度の差異によるものと考えべきであろう。すなわち、水田における水稲は群落状態におかれており、下位の葉は上位の葉によって光を遮られて受光量が減少するため、下位の葉ほど気孔の開度は小さくなり、それによって大気中フッ化物の摂取量も減少するものと考えられる。

4・5・2 玄米中フッ素含有量と葉身中フッ素含有量および LTP 値との関係

玄米中フッ素含有量と葉身中フッ素含有量との関係を見ると、各葉位についての相関係数はいずれも 0.8 以上で 1% の危険率で有意となり、両者には高い相関性が認められた。なお、別の高濃度汚染地域で行った調査結果によると、低濃度域では両者は 1 次比例の関係にあるが、高濃度域では前者は後者の対数値と 1 次比例の関係にあることが認められ、大気中フッ化物の水稲葉身への蓄積性は非常に高いが、玄米への蓄積はそれほど大きくないことが明らかになっている。これについては別に報告する予定である²⁴⁾。

次に、玄米中フッ素含有量と LTP 値の関係をみると、工場から SSE~S 方向の 4 地点(地点 No. 1~No. 4)では水稲栽培期間中の LTP 値は 23~41 $\mu\text{gF}/\text{dm}^2/\text{month}$ であったが、そこで採取された玄米のフッ素含有量は 1.5~2.2 ppm で、通常値の上限とされている 1.5 ppm をこえていた。これに対し工場から N 方向の地点 No. 7 では期間中の LTP 値は 63 $\mu\text{gF}/\text{dm}^2/\text{month}$ であったにもかかわらず、玄米中フッ素含有量は 1.2 ppm であった。同様に、NW~NNE 方向の他地点でも玄米中フッ素含有量は 1.5 ppm をこえていなかった。このように、工場から SSE~S 方向の地点で採取した玄米だけが 1.5 ppm をこえていたが、これはこの地域の風系に関連があるように思われる。そこで、水稲栽培期間中の風向頻度をみると、工場から SSE~S 方向は、水稲の気孔が閉じてフッ素の摂取がほとんどないと考えられる夜間の風向頻度は非常に低い反面、気孔が開いてフッ素摂取の多い昼間の頻度が高いため、LTP 値が低いわりには水稲のフッ素摂取量は多くなり、これに対し、NW~NNE 方向は、夜間の風向頻度が極めて高いため、LTP 値が高いわりには水稲のフッ素摂取量は低い、ことが明らかになった。

以上のように、大気中フッ化物が水稲に及ぼす影響を評価する場合は、昼間のフッ化物濃度に注目することが重要である。そのため、大気中フッ化物濃度の測定方法としては自動測定機のような測定周期の短かいものが適している。しかし、LTP 法のような測定周期が約 1 カ月にも及ぶ方法で水稲影響を評価しなければならない場合は、気象観測データなどによってその測定値のもつ意味を吟味する必要がある。

4・5・3 玄米中および葉身中フッ素含有量の距離減衰

図 6 に距離減衰の状況を示した。これは図 2 の LTP 値のそれとは異なるパターンを示した。LTP 値は工場から N 方向 310 m の地点 No. 7 で最高になったのに対し、玄米中と葉身中のフッ素含有量は LTP 値とは逆の S 方向が高く、地点 No. 3 で最高値を示した。一方、水稲と共に調査したグラジオラスの場合は、図 4 に示したように、LTP 値と同じパターンを示し、水稲の場合と異なった。

このように、水稲とグラジオラスとの葉中フッ素含有量の距離減衰パターンが異なることは、両者の大気中フッ化物摂取機構が異なることを示唆しているように思われる。すなわち、水稲は 4・5・2 で述べたように大気中フッ化物を主として気孔から吸収するいわゆる気孔型であるのに対し、グラジオラスは、葉中フッ素含有量が LTP 値と同じような距離減衰パターンを示したことか

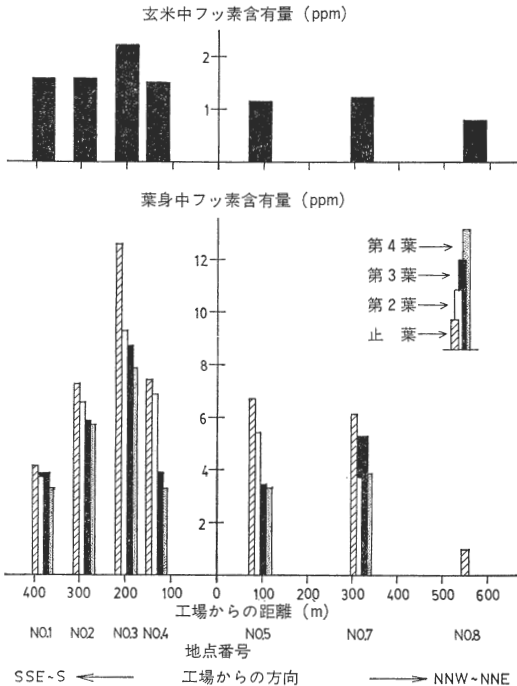


図6 水稲葉身中および玄米中フッ素含有量の距離減衰

ら、気孔からの吸収のほか大気中フッ化物がクチクラ層を浸透して葉中に摂取されるいわゆるクチクラ型と称されるものであろう²⁵⁾と推定された。

4・5・4 収量調査

大気汚染物質が農作物の生育・収量に及ぼす影響については、可視障害の場合には、光合成器管が汚染物質によって不可逆的に破壊されるため、悪影響が顕著に現われるが、不可視障害の場合には、光合成能力などの障害が可逆的であり、かつその程度も小さいため、影響を定量的に把握することは困難であるといわれている²³⁾。また、農作物の生育・収量は汚染物質のほか品種、栽培管理技術、土壌、気象、病虫害などによっても影響される。ところで、本調査は現地の農家がそれぞれの慣行によって栽培した水稲を供試試料としたため、品種が不統一で、その栽培管理技術、土壌なども異なるため、本調査の坪刈調査結果から大気中フッ化物の水稲の生育・収量への影響を評価することはかなり困難と思われる。しかし、図7に示した収量調査結果とLTP値との関係を見ると、同一品種の試料が少ないため明確ではないが、各品種ともLTP値が高くなるほど総重、わら重、粗もみ重、精玄米重のいずれも低くなる傾向がうかがわれ、大気中フッ化物が水稲の生育・収量に悪影響を与えているように懸念された。

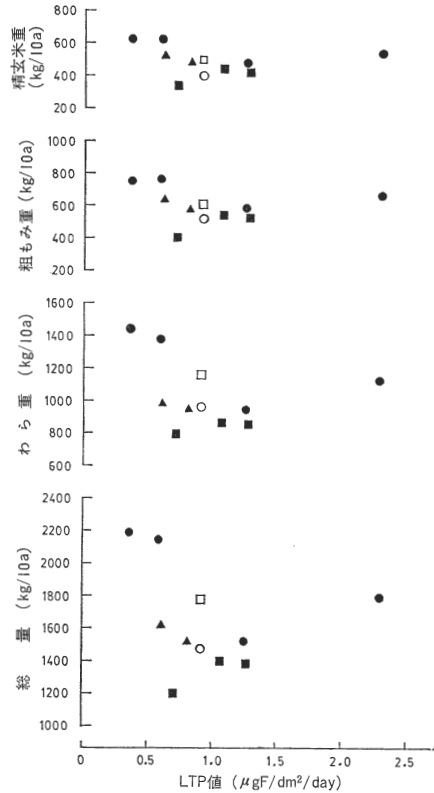


図7 LTP値と収量との関係

LTP法測定期間 4月26日～10月6日
 品種：● 日本晴、○ 農林44号、■ 近畿33号、□ しまねにしき、▲ ヤマビコ

ところで、勝見ら²⁶⁾は水稲のフッ化水素暴露実験で、本調査地域の 大気中フッ化物濃度 より約10倍高い平均1.4 ppbの濃度で51日間昼間だけの暴露を分けつ期以降継続した結果、可視被害を含む生育障害はほとんどみられず、玄米収量は対照区と差がなかったと報告している。また、新潟県²⁷⁾は勝見らと同じレベルないしそれ以下の環境濃度にあるアルミ精練工場周辺で行った調査の結果、大気中フッ化物は水稲収量に影響を与え難いとされている。

このように、純ガスによる暴露実験やアルミ精練工場周辺でのフィールド調査の結果からは、本調査地域のような低い大気中フッ化物濃度では水稲の生育・収量への悪影響は考えられない。しかし、瓦工場からはフッ化物のほかにその約10倍の硫酸化物や約2倍の窒素酸化物なども排出されているので¹⁴⁾、瓦工場排ガスの水稲の生育・収量に及ぼす影響については、フッ化物だけでなく他の汚染物質との複合的な影響も考慮しなければならないであろう。今後、この問題については複合汚染の観点からの専門的な調査研究が必要である。

4・6 土壌調査

瓦工場周辺では大気汚染に起因する土壌汚染も懸念されている。著者²⁷⁾が昭和52年に島根県下の瓦工場周辺地域で行った水田土壌中フッ素含有量調査の結果によると、本調査対象地域の水田土壌中総フッ素含有量は358～528 ppm (平均 398 ppm) で、他地域の103～368 ppm に比べ高いことが注目されたが、これはこの地域の土壌中の雲母鉱物含有量が他地域に比べ高いためと推定されている。

本調査の結果でも水田土壌中総フッ素量は338～553

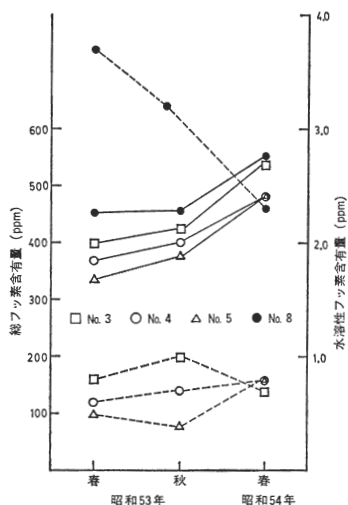


図8 水田土壌中(深さ0～10 cm)の総フッ素含有量(実線)と水溶性フッ素含有量(点線)の経時変化

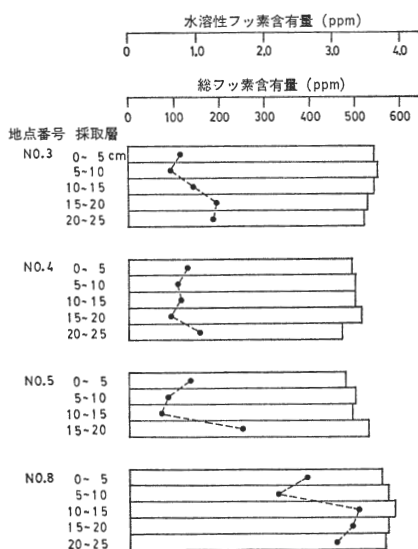


図9 水田土壌中総フッ素含有量()と水溶性フッ素含有量(●●●)の分布

ppm と高く、そのうち水溶性のものは0.5～3.7 ppm であった。水田土壌中フッ素含有量の推移を図8に示した。各地点とも水溶性フッ素量は増加していないが、総フッ素量の増加は著しく、水稻栽培期間中では約20 ppm、年間では約120 ppm増加していた。この原因としては大気汚染、水質汚濁、農業用資材などが考えられるが、本調査ではその詳細を明らかにすることはできず、今後の検討課題である。

水田土壌中のフッ素の分布状況を図9に示した。総フッ素量は表層より下層の方が高く、作土層と鋤床との境界付近に集積し、さらにそれより深くなると減少するような傾向がみられた。水溶性フッ素量も総フッ素量と同じような傾向が認められたが、0～5 cmの層が5～10 cmの層より高いのが特徴的であった。

5. まとめ

単一の瓦工場の環境汚染への寄与率を把握するため、他の発生源からの影響がほとんどなく、地形も平坦で、かつ地域の風系も比較的単純な場所に位置する瓦工場を調査対象として、排ガスの拡散状況とその植物に与える影響などの実態調査を行った。その結果を要約すると以下のとおりである。

1) 煙道排ガス中のフッ化物濃度は約20 mgF/m³Nでその排出量は約240 gF/hで、そのほとんどはガス状フッ化物であった。

2) LTP値の最高値出現地点は、主風向風下で調査地点のある所から煙突の頂口までの高さの約10倍離れた場所にあるように思われた。

3) 大気中フッ化物に占めるガス状フッ化物の比率は70～90%で、ガス状フッ化物の比率が高いことが注目された。この比率は工場に近いほど高く、かつ気温の高い季節ほど高くなる傾向が認められた。また、粒子状フッ化物の大部分は水溶性のものであった。

4) 工場から排出されたガス状フッ化物は、その反応性が高いため、大気中を拡散する過程で他の物質と反応したりあるいは浮遊粉じんなどに付着または吸着し、その一部は粒子状フッ化物に転化するものと推定された。

5) グラジオラスは大気中フッ化物の指標植物として有用であることが再確認された。しかし、ホウレン草はフッ素蓄積性は認められるものの、フッ化物に対する感受性が低いため、指標植物としては使用し難いように思われた。

6) 水稻葉身中のフッ素含有量は上位の葉ほど高かった。この現象は次のように解釈された。水田における水稻は群落状態におかれており、下位の葉は上位の葉によって光を遮られて受光量が減少するため、下位の葉ほど

気孔の開度は小さくなり、それによって大気中フッ化物の摂取量も減少するものと考えられた。

7) LTP法は昼夜の別なく大気中フッ化物を沓紙表面で接触捕集するものであるが、水稻は気孔から大気中フッ化物を摂取するため、その摂取量は昼間の大気中フッ化物濃度によって変動する。そのため、LTP値で水稻影響を評価する場合は、気象データなどによってLTP値のもつ意味を吟味しなければならないことが痛感された。ちなみに、LTP値が23~41 $\mu\text{gF}/\text{dm}^2/\text{month}$ でも玄米には1.5~2.2 ppmのフッ素が含まれていた。

8) 水稻は大気中フッ化物を主として気孔から摂取するいわゆる気孔型であるのに対し、グラジオラスは気孔からの摂取のほか大気中フッ化物がクチクラ層を浸透して葉中に摂取されるいわゆるクチクラ型と称されるものと推定された。

9) 坪刈りによる水稻収量調査の結果、水稻栽培期間中のLTP値が高いほど総重、わら重、粗もみ重、精玄米重のいずれも低くなる傾向がうかがわれ、大気中フッ化物が水稻の生育・収量への悪影響を及ぼしていることが懸念されたが、他の調査研究の結果では、本調査地域の大気中フッ化物濃度レベルでは水稻への悪影響はないとされている。しかし、瓦工場からはフッ化物のほかにもその約10倍の硫酸化合物と約2倍の窒素化合物が排出されているため、水稻影響については、今後さらに複合汚染の観点からの専門的な調査研究が必要と思われた。

10) 水田土壌中の総フッ素含有量は338~553 ppmと高いが、そのうち水溶性のものは0.5~3.7 ppmであった。また、総フッ素含有量の増加は著しく、水稻栽培期間中では約20 ppm、年間では約120 ppmにもなっていたが、この原因は明らかにすることはできず、今後の検討課題である。

終りに、本調査に協力された益田保健所ならびに益田農業改良普及所の関係職員各位に深謝する。

なお、本報の一部要旨は第6回環境保全・公害防止研究発表会(1979年、環境庁)において発表した。

一引用文献一

- 1) 角田文男, 桜井四郎, 板井一好, 中屋重直: フッ化物に係るクライテリア(昭和53年度環境庁委託業務)。
- 2) 菅井隆一: 大気汚染研究, Vol. 10, No. 4, pp. 199~209, 1975。
- 3) 新潟県: 直江津地域の大気汚染調査報告書(第5報), 昭和53年3月。
- 4) 森本謙光, 江阪 忍, 北沢弘一郎, 小西 勉, 山口順子, 迫田吉之助: 京都府衛公研年報, No. 18, pp. 86~94, 1973。
- 5) 山川和彦, 江阪 忍, 迫田吉之助, 龍 次郎, 木幡欣一: 京都府公害研年報, No. 4, pp. 65~70, 1975。
- 6) 山川和彦, 山田 豊, 江阪 忍, 迫田吉之助: 京都府

- 衛公研年報, No. 22, pp. 68~74, 1977。
- 7) 中川吉弘, 松田昭三, 原 正道, 小山太八郎, 高田巨啓: 兵庫県公害研究所研究報告, No. 2, pp. 11~17, 1971。
- 8) 大気騒音部大気科: 埼玉県公害センター年報, No. 1, pp. 79~92, 1974。
- 9) 桐元俊武, 西川孝蔵, 北村守次, 川島栄吉: 全国公害研会誌, Vol. 2, No. 2, pp. 111~119, 1977。
- 10) 正通寛治, 坪内 彰, 内田利勝, 小玉博英, 安井 新: 全国公害研会誌, Vol. No. 4, 1, pp. 22~28, 1978。
- 11) 田村良三, 金田和子, 谷中隆明, 森山 登, 渋谷信雄: 新潟公害研報告, No. 4, pp. 14~17, 1979。
- 12) 田中文夫, 深田和美, 中尾 允, 木村俊博: 島根衛公研所報, No. 19, pp. 65~72, 1977。
- 13) 中尾 允, 田中文夫, 深田和美, 斎藤孝一: 第4回フッ素化学討論会講演予稿集, pp. 8~9, 1978。
- 14) 島根県: フッ素化合物発生源等調査結果報告書(昭和54年度環境庁委託業務)。
- 15) 中尾 允, 田中文夫, 橋 親男: 島根衛公研所報: No. 20, pp. 166~173, 1978。
- 16) 森山 登, 金田和子, 水島好夫, 菅井隆一, 藤枝義丸: 新潟公害研報告, Vol. 1, pp. 32~39, 1976。
- 17) 羽田美樹子, 角田文男: 日本公衛誌, Vol. 19, No. 9, pp. 449~456, 1971。
- 18) 山添文雄, 真弓洋一: 農技研報 B, No. 27, pp. 1~60, 1975。
- 19) 勝見 太, 山田正美, 坂東義仁: 日土壌肥誌, Vol. 49, No. 5, pp. 367~371, 1978。
- 20) 島根県: 有害物質追加設定調査報告書(昭和51年度環境庁委託業務)。
- 21) 山田秀和, 服部共生: 日土壌肥誌, Vol. 48, No. 7, 8, pp. 253~261, 1977。
- 22) 中尾 允, 田中文夫: 島根衛公研所報, No. 19, pp. 146~148, 1977。
- 23) 松岡義浩: 植物指標による大気汚染状況の評価手法に関する調査報告書(昭和52年度環境庁委託業務)。
- 24) 中尾 允, 田中文夫, 橋 親男: 島根衛公研所報, No. 21, 投稿中。
- 25) 日本生態学会環境問題専門委員会編: 「環境と生物指標1—陸上編—」p. 16, 共立出版, 東京, 1975。
- 26) 勝見 太, 坂東義仁, 山田正美: 日本土壌肥料学会講演要旨集, Vol. 23, p. 161。
- 27) 中尾 允: 島根衛公研所報, No. 19, pp. 149~151, 1977。