

## 有害大気汚染物質モニタリング調査結果について

服部達明・吉川英一・田中博子・西村政則・五十嵐恵子

### 要 約

有害大気汚染物質モニタリング調査については、平成9年10月から順次、優先取組物質の環境モニタリングを開始し、現在は19物質について県内7地点、月1回の調査を行っているところである。今回は、これまでの調査結果を取りまとめるとともに、物質相互の相関や季節変動についての検討を行った。環境基準等が定められている項目のうち、これまでに基準を超過したのは、平成10～12年度の栗東(道路沿道)のベンゼンのみであった。

### 1. はじめに

有害大気汚染物質とは、ただちに健康被害を及ぼすことはないものの、長期暴露による健康への影響が懸念される物質で大気汚染の原因となるものとして大気汚染防止法で定義されている。中央環境審議会では、有害大気汚染物質に該当する可能性のある物質として234物質のリストを作成し、さらにその中の22物質については、優先的に対策を講じるべき物質として「優先取組物質」に指定している。

これらの規定に基づき、当センターでは平成9年10月から順次、優先取組物質の環境モニタリングを開始し、現在は19物質について県内7地点、月1回の調査を行っているところである。今回は、平成17年度までの調査結果を取りまとめるとともに、物質相互の相関や季節変動について検討したので報告する。

### 2 調査概要

#### 2.1 調査地点および調査期間

調査地点および調査期間は表1のとおりであり、平成9年に4地点で調査を開始した後、3地点を追加して7地点にするとともに地点の移動が2カ所あって現在に至っている。

これらの地点で月1回の頻度で調査を行ってい

る。サンプリング時間は24時間である。

#### 2.2 調査対象物質

表2に示す19物質を調査対象としている。

本報告では、アクリロニトリル、塩化ビニルモノマー、クロロホルム、1,2-ジクロロエタン、ジクロロメタン、テトラクロロエチレン、トリクロロエチレン、1,3-ブタジエン、ベンゼンの9物質を「VOC類」と呼び、また、アセトアルデヒド、ホルムアルデヒドを「アルデヒド類」と呼ぶ。

調査が始まった平成9年10月から実施していた項目は、VOC類、アルデヒド類、金属類(水銀を除く。)であり、酸化エチレン、ベンゾ[a]ピレン、水銀はその後段階的に調査を開始している。

一般環境の調査地点は基本的に全項目を実施しているが、道路沿道・発生源周辺の調査地点では実施していない項目もある。

#### 2.3 分析方法

環境省「有害大気汚染物質分析マニュアル」に基づいて行っており、その概要を表2に示す。

### 3. 調査結果

調査結果および統計解析では、平成17年度までの測定データにおいて各地点各項目ごとに年平均

表1 調査地点一覧

地点名	設置場所	調査種別	調査期間
東近江	県立八日市南高校	一般環境	平成9年10月～
(旧)長浜	県立長浜北星高校	一般環境	平成9年10月～平成17年10月
(新)長浜	滋賀県調理短期大学校	一般環境	平成17年11月～
草津	県立湖南農業高校	一般環境	平成13年10月～
堅田	大津市立堅田中学校	一般環境	平成13年10月～
今津	高島県事務所	一般環境	平成13年10月～
栗東	湖南消防本部	道路沿道	平成9年10月～平成15年3月
自排草津	湖南地域振興局	道路沿道	平成15年4月～
湖南	湖南市市民学習交流センター別館	発生源周辺	平成9年10月～

表2 調査項目およびサンプリング・分析法

	項目名	サンプリング法	分析法
1	アクリロニトリル	キャニスター採取	GC/MS分析
2	塩化ビニルモノマー		
3	クロロホルム		
4	1,2-ジクロロエタン		
5	ジクロロメタン		
6	テトラクロロエチレン		
7	トリクロロエチレン		
8	1,3-ブタジエン		
9	ベンゼン		
10	アセトアルデヒド	DNPH-silicaカートリッジ	溶媒抽出－高速液体クロマトグラフ分析
11	ホルムアルデヒド		
12	酸化エチレン	ORB078（臭化水素酸含浸ガラスファイバー）	溶媒抽出－GC/MS分析
13	ベンゾ[a]ピレン	ハイブリウムエアサンプラーによるフィルター捕集	溶媒抽出－高速液体クロマトグラフ分析
14	水銀及びその化合物（ガス状）	金アマルガム捕集	加熱酸化冷原子吸光分析
15	ニッケル化合物	ハイブリウムエアサンプラーによるフィルター捕集	酸分解－ICP発光分析
16	クロム及びその化合物		
17	ベリリウム及びその化合物		
18	マンガン及びその化合物		
19	ヒ素及びその化合物		

(平成17年度末現在)

値が得られた年度のデータのみを用いて計算を行った。また、検出下限値未満の測定値については、検出下限値の2分の1の値として平均値等の計算を行った。

表3に各調査項目の結果の概要を示す。(新)長浜の地点については年平均値が得られていないので表から除いている。

調査対象項目のうち、環境基準値が定められているのは表4の4物質である。また、環境基準の設定には至っていないものの、大気モニタリングの評価や事業者による排出抑制努力の目標となるべき値としての指針値が設定されたものが4物質ある。環境基準値および指針値（以下、「環境基準値等」と呼ぶ。）は年平均値で評価することとされている。図1に環境基準値等が設定されてい

る物質の年平均値の経年変化を示す。これまでの調査で環境基準値等を超過したのは、道路沿道の調査地点である栗東においてベンゼンの項目で平成10～12年度に観測されたもののみである。この時期は、全国的に道路沿道で環境基準を超えていた。その後、同地点の濃度は低下傾向で推移したが、調査地点の移動で栗東におけるデータは平成14年度までしか得られていない。栗東の後継として道路沿道の調査地点となった自排草津は栗東に比べて高い濃度を示しているが、環境基準を超えるには至っておらず、平成15年以降2.6 μg/m<sup>3</sup>前後で横ばいの状態が続いている。大気中ベンゼンの主要な発生源は、ガソリン中に含まれているベンゼンが自動車の排気ガスとして大気中に放出されるものであり、大気中ベンゼン濃度が低下した

表3 調査結果の概要

項目名	単位	平均値								最小値 ~ 最大値
		東近江	(旧)長浜	草津	堅田	今津	栗東	自排草津	湖南	
		一般環境	一般環境	一般環境	一般環境	一般環境	道路沿道	道路沿道	発生源 周辺	
アクリロニトリル	μg/m <sup>3</sup>	0.09	0.10	0.12	0.10	0.08	0.09	0.18	0.16	0.004 ~ 1.8
塩化ビニルモノマー	μg/m <sup>3</sup>	0.04	0.07	0.04	0.04	0.06	0.05	0.03	0.05	0.0015 ~ 1.4
クロロホルム	μg/m <sup>3</sup>	0.14	0.24	0.19	0.21	0.14	0.18	0.18	0.52	0.015 ~ 4.5
1,2-ジクロロエタン	μg/m <sup>3</sup>	0.10	0.12	0.12	0.13	0.12	0.10	0.15	0.11	0.002 ~ 0.55
ジクロロメタン	μg/m <sup>3</sup>	1.7	1.5	1.4	1.4	0.76	3.8	1.6	2.7	0.02 ~ 11
テトラクロロエチレン	μg/m <sup>3</sup>	0.21	0.18	0.27	0.24	0.13	0.37	0.24	0.25	0.0035 ~ 1.8
トリクロロエチレン	μg/m <sup>3</sup>	0.30	0.30	0.42	0.25	0.17	0.35	0.29	2.35	0.01 ~ 14
1,3-ブタジエン	μg/m <sup>3</sup>	0.23	0.28	0.20	0.17	0.10	0.58	0.59	0.18	0.02 ~ 1.2
ベンゼン	μg/m <sup>3</sup>	1.5	1.7	1.2	1.5	0.92	2.8	2.6	1.4	0.12 ~ 6
アセトアルデヒド	μg/m <sup>3</sup>	2.2	1.9	2.5	2.1	2.2	2.7	2.9	2.2	0.05 ~ 23
ホルムアルデヒド	μg/m <sup>3</sup>	4.4	3.4	4.3	4.3	3.0	4.5	5.1	3.6	0.5 ~ 63
酸化エチレン	μg/m <sup>3</sup>	0.07	0.08	0.09	0.08	0.06	-	-	0.08	0.0025 ~ 0.22
ベンゾ[a]ピレン	ng/m <sup>3</sup>	0.32	0.28	0.31	0.34	0.17	0.57	0.41	0.32	0.02 ~ 3.5
ベリリウム	ng/m <sup>3</sup>	0.019	0.026	0.008	0.014	0.011	-	-	-	0.00125 ~ 0.26
クロム	ng/m <sup>3</sup>	1.7	1.7	1.4	1.2	0.57	-	-	4.4	0.025 ~ 20
ニッケル	ng/m <sup>3</sup>	2.7	3.6	1.6	1.6	0.84	-	-	3.5	0.055 ~ 27
ヒ素	ng/m <sup>3</sup>	0.84	0.77	0.82	0.67	0.50	-	-	-	0.007 ~ 11
マンガン	ng/m <sup>3</sup>	14	14	11	13	6.1	-	-	-	0.06 ~ 88
水銀	ng/m <sup>3</sup>	1.9	2.1	2.1	2.3	3.2	-	-	2.3	0.96 ~ 11

注1：最小値、最大値は全地点の毎月の測定値を対象としている。

注2：検出下限値未満のものは、検出下限値の2分の1として平均値を計算している。

表4 環境基準値および指針値

項目	種別	基準値
ベンゼン	環境基準	3 μg/m <sup>3</sup> 以下
トリクロロエチレン	環境基準	200 μg/m <sup>3</sup> 以下
テトラクロロエチレン	環境基準	200 μg/m <sup>3</sup> 以下
ジクロロメタン	環境基準	150 μg/m <sup>3</sup> 以下
アクリロニトリル	指針値	2 μg/m <sup>3</sup> 以下
塩化ビニルモノマー	指針値	10 μg/m <sup>3</sup> 以下
水銀	指針値	40ng/m <sup>3</sup> 以下
ニッケル	指針値	25ng/m <sup>3</sup> 以下

注：基準値は年平均値として評価する。

のは、ガソリン中のベンゼン含有率が3%から1%に規制強化されたことが大きな原因と考えられる。

道路沿道の調査地点では、ベンゼンに限らず1,3-ブタジエン、アルデヒド類、ベンゾ[a]ピレンなどの自動車関連項目の濃度が高めとなっている。また、工業団地の発生源周辺で調査している湖南の地点では、トリクロロエチレンなど工場で使用している物質の影響を受けて高濃度となっている項目がある一方、一般環境と変わらない項目

も多く存在する。

## 4. 考察

### 4.1 季節変動

環境基準値等が設定されている物質（ニッケルを除く）について一般環境調査地点での月別の平均値を図2に示す。データ個数がそれほど多くないので、かなりばらついた値となっているが、全体としては季節変動は明白でないものが多い。その中で若干季節変動の特徴を表してい

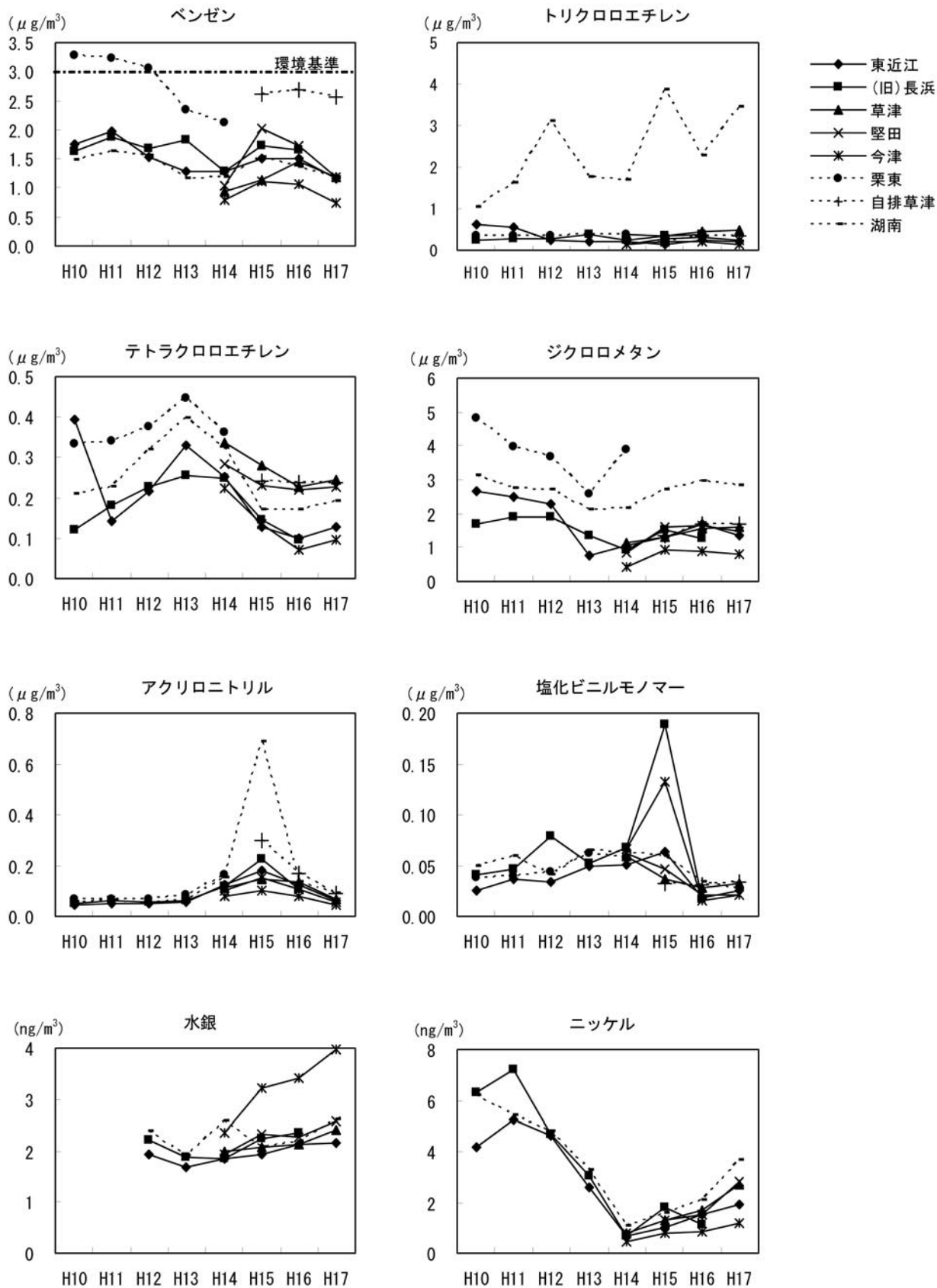


図1 年平均値の経年変化

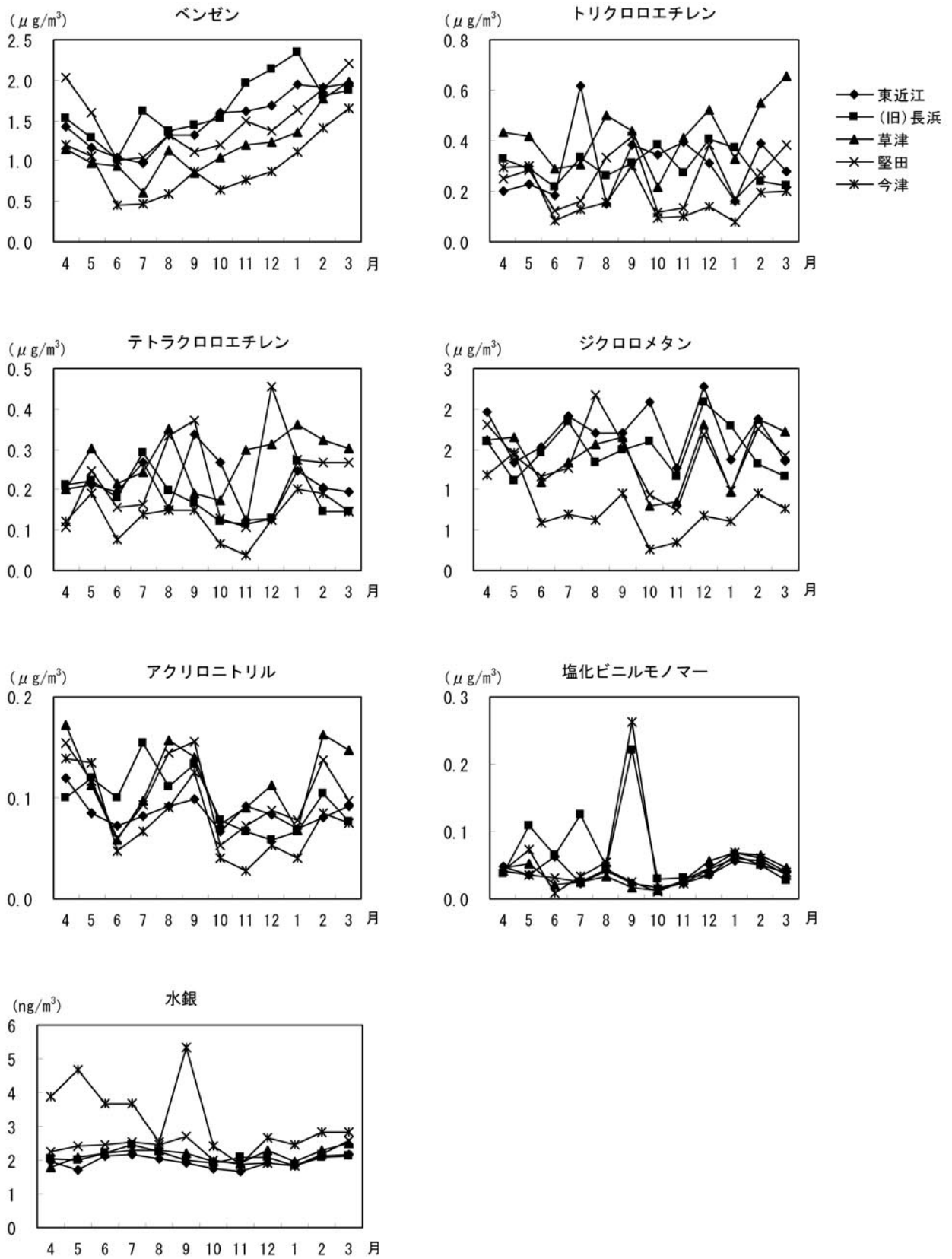


図2 月別平均値 (一般環境調査地点)

表5 項目間の相関

地点：東近江

	クロロム	1,2-ジクロロエタン	ジクロロメタン	テトラクロロエチレン	トリクロロエチレン	1,3-ブタジエン	ベンゼン	アセトアルデヒド	ホルムアルデヒド	酸化エチレン	ベンゾ[a]ピレン	クロム	ニッケル
1,2-ジクロロエタン	0.67												
ジクロロメタン	0.43	0.15											
テトラクロロエチレン	0.39	0.23	0.38										
トリクロロエチレン	0.19	0.05	0.47	0.48									
1,3-ブタジエン	0.33	0.24	0.43	0.10	0.12								
ベンゼン	0.38	0.18	0.60	0.23	0.34	<b>0.72</b>							
アセトアルデヒド	0.26	0.12	0.39	0.16	0.24	0.10	0.10						
ホルムアルデヒド	-0.05	-0.06	0.16	-0.04	-0.03	0.01	-0.17	0.59					
酸化エチレン	0.06	0.02	0.27	0.08	0.22	0.16	0.16	0.43	0.26				
ベンゾ[a]ピレン	0.29	0.36	0.25	0.15	0.21	0.65	0.65	0.06	-0.11	0.11			
クロム	0.16	0.12	0.31	0.30	0.34	-0.02	0.28	0.27	-0.02	0.16	0.19		
ニッケル	0.03	-0.08	0.31	0.08	0.37	0.02	0.27	0.16	0.06	0.20	0.15	0.62	
ヒ素	0.13	0.16	0.18	0.05	0.04	0.33	0.38	0.04	-0.12	0.18	0.40	0.36	0.28
マンガン	0.20	0.15	0.25	0.23	0.23	0.00	0.27	0.17	-0.12	0.07	0.24	<b>0.86</b>	0.51
水銀	0.16	0.08	0.42	0.04	0.39	0.11	0.29	0.34	0.14	0.25	0.38	0.04	0.16

	ヒ素	マンガン
マンガン	0.48	
水銀	0.11	0.05

地点：湖南

	クロロム	1,2-ジクロロエタン	ジクロロメタン	テトラクロロエチレン	トリクロロエチレン	1,3-ブタジエン	ベンゼン	アセトアルデヒド	ホルムアルデヒド	酸化エチレン	ベンゾ[a]ピレン	クロム	ニッケル
1,2-ジクロロエタン	0.22												
ジクロロメタン	0.08	0.07											
テトラクロロエチレン	0.12	0.29	0.46										
トリクロロエチレン	-0.08	0.22	0.28	0.12									
1,3-ブタジエン	0.13	0.35	0.40	0.31	0.32								
ベンゼン	0.18	0.26	0.46	0.35	0.19	0.67							
アセトアルデヒド	0.06	0.14	0.39	0.31	0.43	0.04	0.11						
ホルムアルデヒド	0.05	0.09	0.18	0.12	0.41	-0.09	-0.17	0.54					
酸化エチレン	-0.13	0.09	0.27	0.14	0.38	0.06	0.05	0.54	0.51				
ベンゾ[a]ピレン	0.13	0.18	0.31	0.18	0.02	0.51	0.43	0.12	-0.12	-0.04			
クロム	-0.04	0.09	0.36	0.21	0.03	0.14	0.18	0.07	-0.03	0.09	0.44		
ニッケル	-0.09	-0.02	0.30	0.15	0.04	0.06	0.24	-0.01	-0.10	0.21	0.26	0.67	
水銀	0.06	0.12	0.16	0.16	0.10	-0.04	0.18	0.46	0.14	0.35	0.09	0.10	0.14

地点：自排草津

	クロロム	1,2-ジクロロエタン	ジクロロメタン	テトラクロロエチレン	トリクロロエチレン	1,3-ブタジエン	ベンゼン	アセトアルデヒド	ホルムアルデヒド
1,2-ジクロロエタン	0.54								
ジクロロメタン	<b>0.71</b>	0.46							
テトラクロロエチレン	0.64	0.23	<b>0.78</b>						
トリクロロエチレン	0.67	0.37	<b>0.90</b>	<b>0.87</b>					
1,3-ブタジエン	0.29	0.03	0.47	0.59	0.46				
ベンゼン	0.58	0.29	0.59	0.63	0.62	<b>0.74</b>			
アセトアルデヒド	0.66	0.48	0.57	0.34	0.42	0.15	0.30		
ホルムアルデヒド	0.45	0.35	0.35	0.25	0.21	0.17	0.18	<b>0.78</b>	
ベンゾ[a]ピレン	0.27	0.27	0.37	0.35	0.45	0.20	0.45	0.04	-0.16

ると考えられるのは、ベンゼンと塩化ビニルモノマーであり、いずれも夏から秋にかけて低濃度になり、冬から春に高くなっている。季節変動の要因としては気象条件や当該物質の反応性が考えられるが、この2種以外の項目が季節変動を示さないことから紫外線強度等の気象条件に加えて当該物質の反応性が影響していると考えられる。正確な評価を行うためにはさらに継続調査をするとともに情報を集積する必要がある。

#### 4. 2 調査項目間の相関

項目間の相関をとることが可能な比較的検出頻度の高かった16項目について、一般環境、道路沿道、発生源周辺の代表地点として、それぞれ東近江、自排草津、湖南について項目間相関を計算したものを表5に示す。ここで、相関係数0.7以上のものを二重枠で示した。ベンゼンと1,3-ブタジエンはともに自動車排ガス関連物質であり、各地点で比較的高い相関係数があり、かつ、地点間のばらつきも少

ないという特徴を示している。一方、トリクロロエチレン、テトラクロロエチレン、ジクロロメタンなどの工業系の事業所で使用されている物質間では、非常に高い相関の地点がある一方、ほとんど相関のない地点もあり、地点間のばらつきが大きい。これらは、局所的な使用実態に依存していると言える。

#### 4. 3 発生源周辺調査地点におけるPRTRデータとの関連性

発生源周辺の調査地点としてモニタリングしている湖南において、調査をしている16項目について一般環境濃度との比率を計算してみた。データは平成16年度のものを用い、一般環境濃度は東近江地点と草津地点の平均値を用いた。その結果を表6に示す。トリクロロエチレン、クロム及びその化合物、クロロホルムが一般環境に比べて特に高くなっていることがわかる。ここで、湖南工業団地地域におけるPRTR制度による排出量報告値を集計して排出実態のあるものについて平成16年度の年間排出量を表6の右欄に示した。年間取扱量が1t以上の事業所に対して報告が義務づけられている。発生源と調査地点との距離によってその影響度合いは変わるので、排出量と調査地点における大気中濃度は単純に比例するものではないが、やはり、最も排出量の多いトリクロロエチレンは大気中濃度も高濃度となっている。クロロホルムについては、排出量は多くないのに大気中濃度が高くなっていることから、PRTR制度に

表6 湖南におけるPRTR排出量との関連性

	大気中濃度 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )			排出量合計 (年間・kg)
	湖南	一般環境	湖南/ 一般環境	
アクリロニトリル	0.13	0.13	100%	
塩化ビニルモノマー	0.03	0.03	100%	
クロロホルム	0.50	0.16	313%	
1,2-ジクロロエタン	0.11	0.11	100%	
ジクロロメタン	3.0	1.7	176%	11900
テトラクロロエチレン	0.17	0.17	100%	18
トリクロロエチレン	2.30	0.35	657%	37935
1,3-ブタジエン	0.17	0.22	77%	
ベンゼン	1.4	1.5	93%	44
アセトアルデヒド	2.6	2.6	100%	
ホルムアルデヒド	3.8	3.7	103%	656
酸化エチレン	0.08	0.08	100%	
ベンゾ[a]ピレン	0.00036	0.00040	90% (対象外)	
クロム	0.0035	0.0013	269%	1.2
ニッケル	0.0021	0.0016	131%	
水銀	0.0022	0.0021	105%	

※大気中濃度、排出量はいずれも平成16年度のもの。

※一般環境濃度は東近江と草津の平均を用いている。

表7 予測濃度と実測濃度の比較

	モデルによる濃度 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )			実測濃度
	バックグラウンド	濃度上昇分	予測濃度	
ジクロロメタン	1.7	0.39	2.1	3.0
トリクロロエチレン	0.35	4.0	4.4	2.3

はかからない小規模な発生源が調査地点近傍に存在する可能性が示唆される。クロムについても同様の可能性があるほか、大気中濃度が低く少しの排出量でも影響を与えることや金属成分であるという特徴から、非意図的なものも含めた種々の粉じんの飛散による影響の可能性が考えられる。

次に、排出量の多かったトリクロロエチレンとジクロロメタンの2物質について、大気拡散モデルとPRTTRデータを用いて本調査地点における予測濃度の計算を行った。拡散モデルは産業技術総合研究所が開発したMETI-LISを用いた。大気中濃度および排出量のデータは上記と同じく平成16年度のものを用いた。ここでは、拡散モデルを用いて工業団地内の発生源からの濃度上昇寄与分を計算し、それをバックグラウンドとしての一般環境濃度に加える方法で算出した。その結果を表7に示す。一般的にこういった算定をする場合、届出排出量の割合が高く、大気中濃度の高い物質が良い結果を得られると言われている。届出排出量ですべての発生源を把握できるわけではないので、PRTTRデータのみから濃度予測をするのは完全ではないが、一定の結果は得られるものであり、今後これを調査等にどう活用していくかを検討する必要がある。

## 5. まとめ

(1)有害大気汚染物質モニタリング調査について平成10年度から平成17年度までの結果をとりまとめた。

(2)環境基準値等が定められている項目のうち、これまでに基準を超過したのは、平成10～12年度の栗東のベンゼンのみで、現在では、すべての地点で基準以下である。ベンゼン濃度の減少にはガソリン中のベンゼン含有率の規制が強化されたことが大きく影響していると考えられる。

(3)季節変動については、ベンゼンと塩化ビニルモノマーにその傾向が見られた。当該物質の大気中での反応性が影響していると思われる。

(4)項目間の相関では、ベンゼンと1,3-ブタジエン等にコンスタントな相関が見られた。また、有機溶剤系のように地点ごとに特徴的な相関を持つものもあった。

(5)PRTTRデータを行政や大気調査の中でどのように活用していくかが今後の課題である。

## 参考文献

環境庁大気保全局大気規制課(1997)：有害大気汚染物質測定方法マニュアル。