

佐賀県における有害大気汚染物質調査（平成13～19年度）

池田利記子、光武隆久、関本順之*、成富祐子* (*薬務課)

要旨

平成13から19年度の県内における、有害大気汚染物質の測定結果をまとめた。環境基準値及び指針値が設定されている物質については、全地点で達成していた。また、測定項目間の相関関係は、自動車の影響が考えられる物質間においてやや強い相関が見られた。

キーワード：有害大気汚染物質、揮発性有機化合物（VOCs）、アルデヒド類、ベンゾ[a]ピレン、重金属類

はじめに

平成8年5月の大気汚染防止法改正に伴い、国及び地方公共団体は有害大気汚染物質による大気汚染状況の把握に努めなければならないと定められ、本県では、平成9年10月から県内4地点において有害大気汚染物質のモニタリングを開始し、環境省が定める「優先取組物質」22物質のうち18物質について調査を実施している。前報では測定開始後5ヶ年間の調査結果から環境基準達成状況や自動車排出ガスの影響等について報告したが¹⁾、今回は測定機器を変更した平成13年度から平成19年度までの7ヶ年の測定結果を基に、有害大気汚染物質と大気常時監視項目との相関等について検討を行ったので概要を報告する。

方法

1 調査地点及び調査期間

調査地点を図1に示す。4地点とも測定開始の平成9年から平成14年までは各地域の公的機関の屋上（2～3階建て）において測定していたが、平成15年度からは4地点とも大気常時監視局に変更した。



図1 有害大気汚染物質調査地点

2 試料採取及び分析方法

試料の採取法及び分析法については環境庁「有害大気汚染物質測定方法マニュアル」^{2) 3)}に基づいた。表1に対象物質の採取方法及び測定方法の概要を示す。

3 結果及び考察

調査結果(年平均値)の概要を表2に示した。年平均値は原則として12回の測定結果を平均して算出した。なお、平均値の算出にあたり検出下限値未満の場合は検出下限値の1/2値を用い、検出下限値以上で定量下限値未満の場合は測定値を用いた。

表1 試料採取方法及び分析方法

対象物質		採取方法	分析方法	
1	アクリロニトリル	容器捕集	GC/MS	
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	ホルムアルデヒド	固相捕集	HPLC	
11	アセトアルデヒド			
12	ベンゾ[a]ピレン	フィルター捕集	ICP/MS	
13	水銀	金アマルガム捕集		
14	ニッケル	フィルター捕集		
15	ヒ素			
16	ベリリウム			
17	マンガン			
18	クロム			

表2 佐賀県内及び全国における有害大気汚染物質の調査結果(平成13~19年度の年平均値)

調査対象物質		測定地点	H13年度	H14年度	H15年度	H16年度	H17年度	H18年度	H19年度	単位: $\mu\text{g}/\text{m}^3$	基準値等
アクリロニトリル	佐賀	0.046	0.031	0.028	0.019	0.021	(0.020)	(0.020)			2※
	鳥栖	0.059	0.029	0.031	0.027	0.027	(0.019)	(0.026)			
	唐津	0.043	0.035	0.022	0.012	0.015	(0.0079)	(0.012)			
	伊万里	0.036	0.035	0.030	0.017	0.022	(0.016)	(0.016)			
全国	0.11	0.11	0.11	0.094	0.083	0.086					
塩化ビニルモノマー	佐賀	0.057	0.060	0.029	0.017	0.038	0.039	0.033			10※
	鳥栖	0.027	0.030	0.025	0.018	0.037	0.035	0.035			
	唐津	0.041	0.049	0.026	0.022	0.044	0.036	0.041			
	伊万里	0.041	0.030	0.026	0.019	0.036	0.028	0.027			
全国	0.065	0.070	0.052	0.059	0.044	0.051					
クロロホルム	佐賀	0.13	0.082	0.092	0.072	0.087	0.071	0.095			18※
	鳥栖	0.14	0.089	0.069	0.073	0.088	0.070	0.084			
	唐津	0.14	0.11	0.083	0.069	0.091	0.062	0.10			
	伊万里	0.13	0.099	0.080	0.070	0.093	0.065	0.09			
全国	0.26	0.27	0.22	0.24	0.37	0.20					
1,2-ジクロロエタン	佐賀	0.11	0.064	0.048	0.044	0.066	0.062	0.10			1.6※
	鳥栖	0.10	0.056	0.047	0.050	0.066	0.064	0.099			
	唐津	0.095	0.11	0.054	0.047	0.065	0.062	0.11			
	伊万里	0.097	0.089	0.052	0.047	0.066	0.060	0.11			
全国	0.11	0.10	0.10	0.12	0.11	0.13					
ジクロロメタン	佐賀	1.4	0.57	1.0	0.98	0.96	0.82	0.61			150
	鳥栖	0.70	0.31	0.66	0.45	0.55	0.57	0.51			
	唐津	0.52	0.26	0.35	0.19	0.25	0.26	0.29			
	伊万里	0.63	0.13	0.30	0.22	0.31	0.35	0.45			
全国	2.8	2.2	2.3	2.3	1.9	2.3					
テトラクロロエチレン	佐賀	0.12	0.11	0.057	0.043	0.051	0.050	0.043			200
	鳥栖	0.12	0.11	0.055	0.048	0.055	0.041	0.044			
	唐津	0.10	0.13	0.041	0.031	0.032	(0.026)	0.031			
	伊万里	0.096	0.13	0.041	0.030	0.033	0.037	0.048			
全国	0.52	0.44	0.37	0.39	0.27	0.29					
トリクロロエチレン	佐賀	0.086	0.074	0.064	0.037	0.085	0.069	0.053			200
	鳥栖	0.17	0.11	0.14	0.084	0.15	0.041	0.083			
	唐津	0.070	0.082	0.029	0.021	0.041	(0.018)	0.030			
	伊万里	0.067	0.082	0.029	0.023	0.063	(0.016)	0.032			
全国	1.1	0.70	0.82	0.79	0.69	0.81					
1,3-ブタジエン	佐賀	0.059	0.064	0.13	0.095	0.13	0.089	0.090			2.5※
	鳥栖	0.085	0.15	0.18	0.16	0.17	0.16	0.15			
	唐津	0.10	0.11	0.18	0.17	0.16	0.35	0.29			
	伊万里	0.066	0.12	0.10	0.10	0.12	0.062	0.088			
全国	0.26	0.20	0.23	0.19	0.17	0.17					
ベンゼン	佐賀	0.51	0.81	1.0	0.76	1.1	0.81	0.95			3
	鳥栖	0.70	1.1	1.1	0.88	1.1	0.94	1.1			
	唐津	0.64	0.82	0.94	0.81	1.0	0.89	1.0			
	伊万里	0.42	0.91	0.89	0.75	1.0	0.63	0.86			
全国	1.9	1.7	1.6	1.6	1.4	1.4					
アセトアルデヒド	佐賀	2.1	1.8	2.5	2.6	3.0	2.4	3.0			5*
	鳥栖	2.6	2.5	2.5	2.2	2.6	2.8	2.8			
	唐津	2.1	1.5	2.0	2.0	2.1	2.3	2.2			
	伊万里	1.8	1.5	1.8	1.7	1.9	1.9	1.8			
全国	2.7	2.5	2.6	2.9	2.8	2.7					
ホルムアルデヒド	佐賀	4.8	2.4	3.4	2.9	3.5	3.8	2.8			0.8*
	鳥栖	4.3	2.8	3.6	2.6	3.3	3.1	2.6			
	唐津	4.6	2.5	2.7	2.5	2.5	3.9	1.8			
	伊万里	3.3	2.2	2.6	2.4	2.5	3.0	1.6			
全国	3.6	3.4	3.0	3.2	3.0	3.1					

単位: ng/m^3

ベンゾ[a]ピレン	佐賀	0.44	0.32	0.31	0.34	0.30	0.30				0.11**
水銀及びその化合物	佐賀	2.3	2.0	2.3	2.3	2.2	2.2				40※
ニッケル化合物	佐賀	4.7	2.7	3.6	4.4	2.5	4.8	9.3			25※
ヒ素及びその化合物	佐賀	1.5	1.7	2.2	1.8	2.0	1.6	5.2			2*
ペリウム及びその化合物	佐賀	(0.035)	(0.028)	0.058	(0.035)	0.045	(0.051)	(0.061)			4*
マンガン及びその化合物	佐賀	12	14	29	21	21	38	34			150**
クロム及びその化合物	佐賀	2.9	1.9	4.2	4.2	3.3	4.6	5.7			0.8*

(注) 1 年平均値の算出結果が検出下限値未満であった場合は、()内に数値を示した。

2 全国調査の平均値は、一般環境における年平均値を用いた。

3 基準値等の数値のうち、※印は有害大気汚染による健康リスク低減を図るために指針となる数値(指針値)

*印は参考値としてEPA(米国環境保護庁)が設定したユニットリスクに基づく 10^{-6} リスクレベル換算値

**印は参考値としてWHO欧州地域事務局のガイドライン値

3-1 年平均値の濃度推移

1) VOCs

環境基準が設定されている4物質全て、いずれの地点でも、環境基準値を下回っており、全国平均値と比べ低めに推移している。
(図2-1参照)。

指針値が設定されている、アクリロニトリル、塩化ビニルモノマー、クロロホルムについては、いずれも、全国平均値と同様に指針値を大きく下回り、低濃度レベルで推移している(図2-2参照)。1,2-ジクロロエタンは、指針値を下回つてはいるものの、全国平均値と同様に漸増傾向が見られた。1,3-ブタジエンは、指針値を下回つてはいるものの、全国平均値が減少傾向にあるのに対し、平成18、19年度の唐津で、やや高かった。1,3-ブタジエンの発生源が、合成ゴムの原料、オイルホースなど油漏れ止めや密封装置の材料に使われている他、自動車を発生源にすることから、同様に自動車を発生源とするベンゼンやアルデヒド類、アクリロニトリルの月ごとの変化と比べてみたが、同様の挙動は示さなかった。自動車以外の影響を受けたものと推察される。また、唐津以外の地点では、横ばい状態であった。

2) アルデヒド類

アセトアルデヒドについては、EPAの参考値を下回るもののが全国平均値を上回る年度が見られ、横ばい状態で推移している。

ホルムアルデヒドについては、平成19年度

に至る全年度で全国平均値と同様にEPAの参考値を上回っている。(図2-3参照)

3) ベンゾ[a]ピレン、水銀

ベンゾ[a]ピレン、水銀については、佐賀県では平成17年4月から測定を開始している。ベンゾ[a]ピレンの全国平均値は、横ばい状態で、どの年度もWHOの参考値を満たしていない。県内では、平成18年度の唐津地点のみ参考値を達成しているが、その他はこれを達成していない。水銀は、全国平均値と同様、指針値を大きく下回る濃度で横ばい状態で推移している。(図2-3参照)

4) 金属類

ニッケル化合物、ベリリウム化合物、マンガン化合物は、近年では全国平均値と同様、指針値、EPA・WHOの参考値を下回る濃度で横ばい状態である。

ヒ素化合物は、平成15、19年度の佐賀、平成14、19年度の鳥栖、平成14~19年度の唐津、平成13~19年度の伊万里で、EPAの参考値を超過しており、特に平成19年度は全地点で高かった。全国平均値は、参考値前後を推移している。

クロム化合物は、当センターでは、全クロム化合物として測定を行っており、全国平均値と同様、県内4地点でも横ばい状態で推移している。クロムについては、EPAによる六価クロムが参考値としてあげられているが、測定対象が異なるため、直接の比較は困難である。

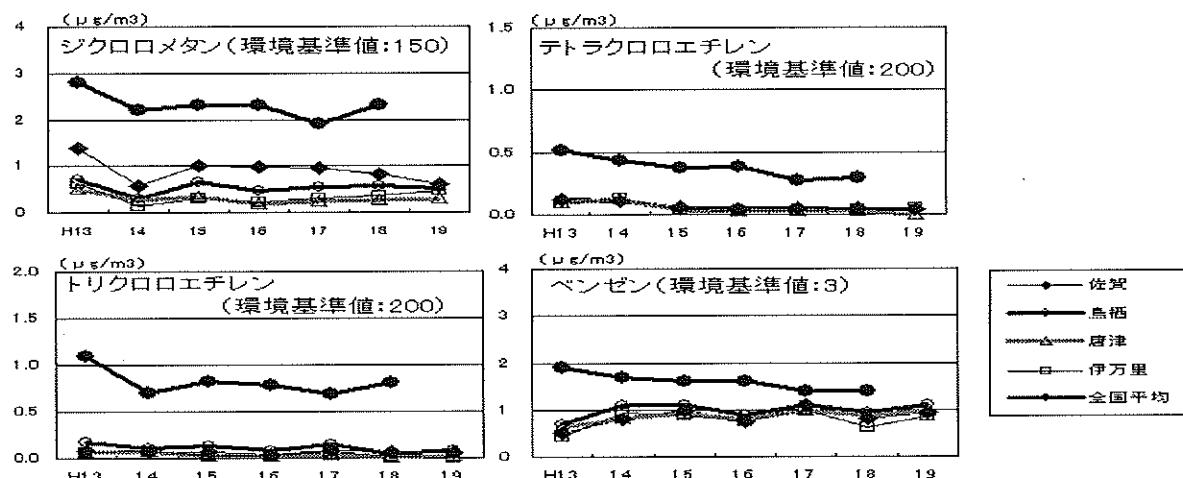


図2-1 ジクロロメタン、テトラクロロエチレン、トリクロロエチレン、ベンゼンの年平均値濃度推移

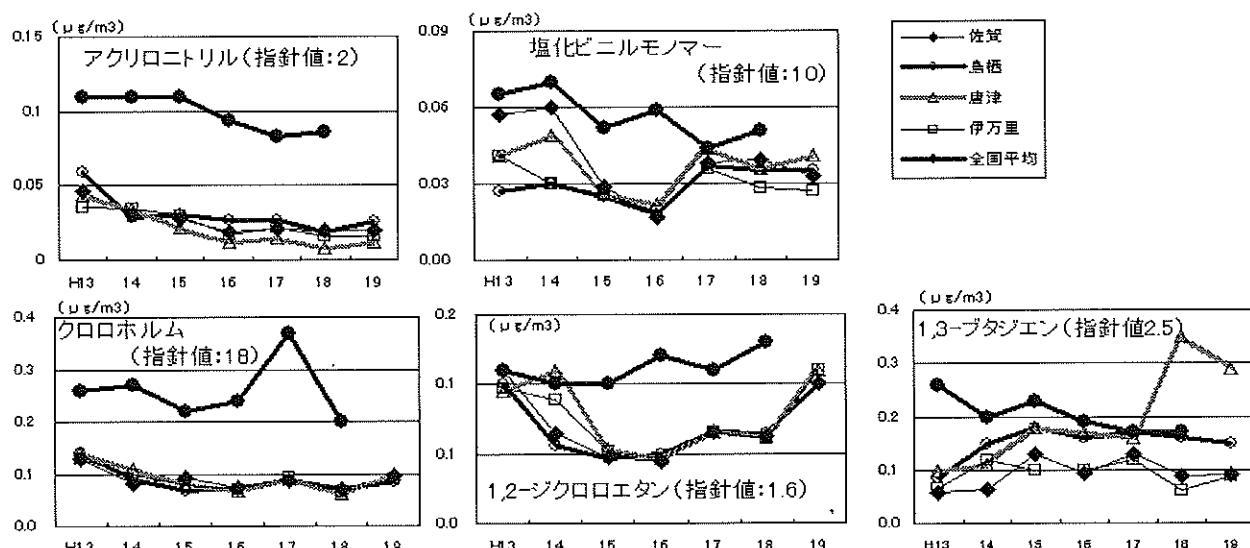


図2-2 アクリロニトリル、塩化ビニルモノマー、クロロホルム、1,2-ジクロロエタン、1,3-ブタジエンの年平均濃度変化

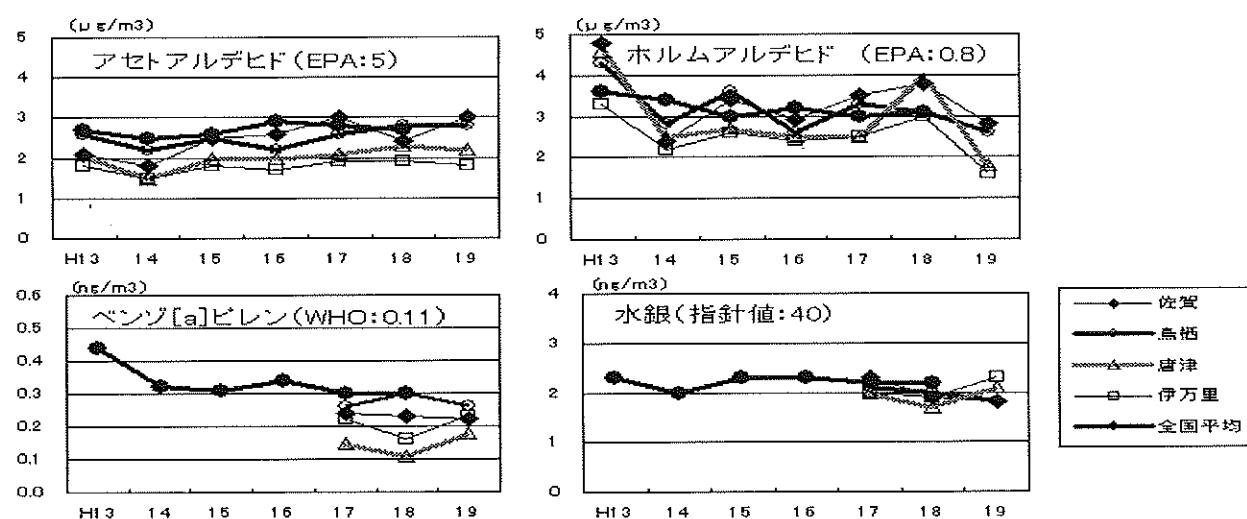


図2-3 アセトアルデヒド、ホルムアルデヒド、ベンゼン[a]ビレン、水銀の年平均濃度推移

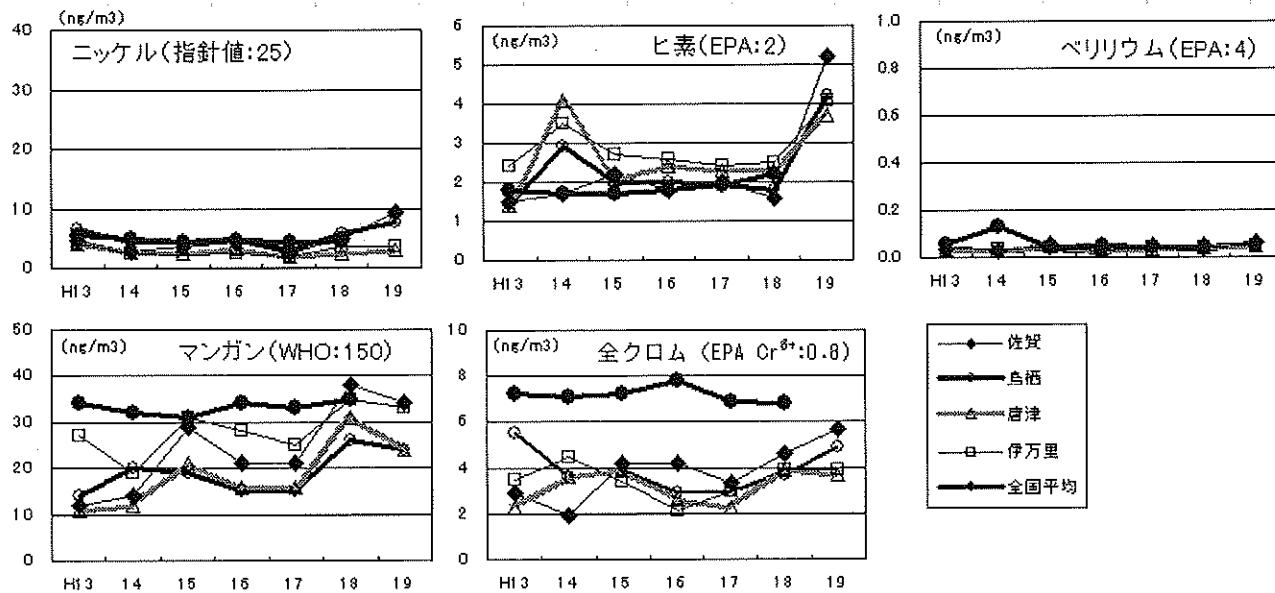


図2-4 ニッケル化合物、ヒ素化合物、ペリリウム化合物、マンガン化合物、全クロム化合物の年平均濃度推移

3-2 測定項目間の相関

調査地点ごとの特性を把握するため、各測定項目間の相關行列を表3に示した。前報からの継続的な変化を見るために、同様の検討項目に、1,3-ブタジエン、大気常時監視項目のSO₂を加え、県内4地点の各物質間の相関を検討した。なお、SO₂については、地点ごとの試料採取時間と同時間の大気常時監視データを用いた。

表3に示すとおり、全地点のSO₂とSPM間に、唐津以外の3地点のNO、NO₂と1,3-ブタジエン間に、そして、全地点のNO、NO₂とベンゼン間、アセトアルデヒドとホルムアルデヒド間に1%水準で有意な相関が見られた。また、全地点の1,3-ブタジエンとベンゼン間で1%水準の有意な相関が見られた。以上の物質は、自動車の排気ガスに含まれる物質であり、自動車の影響が強いと考えられた。しかし、唐津については、1,3-ブタジエンとベンゼン間の相関係数は、他の地点より低い値を示しており、平成

18、19年度の1,3-ブタジエンが他の地点よりやや高かったことなどから、唐津では自動車以外の影響もあるように推察される。

前報では、鳥栖調査地点におけるアルデヒド類とSPMに1%水準で有意な相関が見られたが、今回は全ての調査地点では有意な相関は見られなかった。しかし、全地点のNO、NO₂とベンゼン間にも相関が見られるため、やはり自動車の影響が強いものと考えられる。

前報では、鳥栖以外の地点でのアルデヒド類の発生源は光化学反応による寄与が大きいと推定されたが、今回の検証ではその傾向は見られなかった。オキシダント生成には、VOCsやアルデヒド類等の反応時間や気象条件等が複雑に絡んでいることから、今回のような、試料採取時間と同時間の大気常時監視データとの検証からは、読みとることはできなかった。

表3 調査地点ごとの測定項目間の相関行列

佐賀市

	SO2	NO	NO2	Ox ave	Ox Max	SPM	アクリロニトリル	クロロホルム	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
SO2	1.000											
NO	0.081	1.000										
NO2	0.282**	0.818*	1.000									
Ox ave	0.45***	-0.459***	-0.268*	1.000								
Ox Max	0.654***	-0.145	0.141	0.804**	1.000							
SPM	0.691***	0.140	0.256*	0.310**	0.552**	1.000						
アクリロニトリル	0.290*	0.160	0.253*	0.014	0.140	0.191	1.000					
クロロホルム	0.243*	0.034	0.006	0.051	0.161	0.350***	0.549***	1.000				
1,3-ブタジエン	0.343***	0.755***	0.738***	-0.300*	0.006	0.296*	0.393***	0.228	1.000			
ベンゼン	0.473***	0.642***	0.718***	-0.031	0.238*	0.534***	0.422***	0.309***	0.799***	1.000		
アセトアルデヒド	0.361***	-0.173	-0.079	0.064	0.249*	0.349***	0.133	0.212	0.121	0.012	1.000	
ホルムアルデヒド	0.193	-0.339***	-0.348***	-0.04	0.069	0.213	0.108	0.137	-0.098	-0.234*	0.747***	1.000

鳥栖市

	SO2	NO	NO2	Ox ave	Ox Max	SPM	アクリロニトリル	クロロホルム	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
SO2	1.000											
NO	0.008	1.000										
NO2	0.237*	0.752***	1.000									
Ox ave	0.327***	-0.427	-0.147	1								
Ox Max	0.473***	-0.199	0.137	-0.867***	1.000							
SPM	0.473***	0.093	0.16	0.292*	0.384***	1.000						
アクリロニトリル	0.340***	0.257*	0.320***	-0.098	0.029	0.237*	1.000					
クロロホルム	0.243*	-0.118	-0.008	0.074	0.115	0.507***	0.513***	1.000				
1,3-ブタジエン	0.108	0.727***	0.713***	-0.256*	0.002	0.146	0.380***	0.079	1.000			
ベンゼン	0.257*	0.682***	0.748***	-0.1	0.109	0.398***	0.535***	0.227	0.764***	1.000		
アセトアルデヒド	0.300*	-0.106	-0.039	0.113	0.299*	0.322***	0.179	0.341***	0.038	-0.002	1.000	
ホルムアルデヒド	0.274*	-0.309***	-0.344***	-0.006	0.085	0.164	0.122	0.291*	-0.212	-0.224	0.644***	1.000

唐津市

	SO2	NO	NO2	Ox ave	Ox Max	SPM	アクリロニトリル	クロロホルム	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
SO2	1.000			*								
NO	0.243*	1.000										
NO2	0.296*	0.810***	1.000									
Ox ave	0.410*	-0.414***	-0.280*	1								
Ox Max	0.548***	-0.196	0.022	0.888***	1							
SPM	0.706***	0.182	0.207	0.458***	0.590***	1						
アクリロニトリル	0.236	0.178	0.228	-0.104	0.044	0.096	1					
クロロホルム	0.307*	0.195	0.272*	-0.037	0.132	0.405***	0.635***	1				
1,3-ブタジエン	-0.059	0.235**	0.238*	-0.083	-0.059	-0.053	-0.161	0.087	1			
ベンゼン	0.443***	0.659***	0.756***	-0.045	0.178	0.419***	0.284*	0.365***	0.397***	1		
アセトアルデヒド	0.084	0.229	0.327***	-0.216	0.006	0.250*	-0.053	0.217	0.235*	0.239*	1.000	
ホルムアルデヒド	-0.023	0.006	0.028	-0.179	-0.076	0.086	-0.009	0.101	0.051	-0.056	0.752***	1.000

伊万里市

	SO2	NO	NO2	Ox ave	Ox Max	SPM	アクリロニトリル	クロロホルム	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
SO2	1.000											
NO	0.135	1.000										
NO2	0.188	0.801***	1.000									
Ox ave	0.197	-0.366***	-0.195	1								
Ox Max	0.306*	0.06	0.253*	0.797***	1							
SPM	0.658***	0.112	0.224	0.372***	0.609***	1						
アクリロニトリル	0.237	0.290*	0.363***	-0.211	0.013	0.201	1					
クロロホルム	0.293*	0.117	0.134	-0.036	0.232	0.451***	0.570***	1				
1,3-ブタジエン	0.074	0.687***	0.703***	-0.307***	0.073	0.13	0.444***	0.152	1			
ベンゼン	0.294*	0.749***	0.805***	-0.056	0.323***	0.389***	0.552***	0.363***	0.750***	1		
アセトアルデヒド	0.122	-0.264*	-0.323***	-0.307***	-0.236*	0.205	0.163	0.252*	-0.136	-0.235*	1.000	
ホルムアルデヒド	0.121	-0.124	-0.041	-0.145	0.074	0.258*	0.345***	0.338***	0.112	0.042	0.66***	1.000

* : 5%水準で有意な相関あり

** : 1%水準で有意な相関あり

まとめ

- ①ベンゼン、テトラクロロエチレン、トリクロロエチレン及びジクロロメタンについては、いずれも環境基準値を達成していくおり、横ばい傾向であった。
- ②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、1,3-ブタジエンは、全調査地点で指針値を達成していた。
- ③ホルムアルデヒドは、全調査地点で EPA 参考値を超えていた。
- ④ベンゾ [a] ピレンは、平成 18 年度の唐津以外は、平成 17 年の調査開始以降 3 ヶ年とも WHO 参考値を超えていた。
- ⑤水銀は、平成 17 年の調査開始以降の 3 ヶ年で、全調査地点で指針値を達成していた。
- ⑥金属類のヒ素は、全調査地点で EPA 参考値を達成しない年度が多く、特に平成 19 年度の全調査地点で高かった。また、クロム化合物（全クロム化合物）は、横ばい傾向であった。ニッケル化合物、ベリリウム化合物、マンガン化合物は、指針値、参考値を下回っていた。
- ⑦測定項目間の相関関係からは、自動車からの影響が考えられる物質間において、やや強い相関が見られた。

参考文献

- 1) 佐賀県環境センター所報 第16号 (平成 12・13 年度)
- 2) 環境庁大気保全局大気規制課：有害大気汚染物質測定方法マニュアル (1997)
- 3) 環境庁大気保全局大気規制課：有害大気汚染物質測定方法マニュアル (1999)
- 4) 環境省：環境省ホームページ、有害大気汚染物質モニタリング調査結果、
<http://env.go.jp/air/osen/monitoring/>