

佐賀県における有害大気汚染物質調査 (平成9～13年度)

土井由紀子 溝上鈴子(*)

要 旨

平成9年10月から14年3月の佐賀県における揮発性有機化合物 (VOC) 及びアルデヒド類について一般環境濃度を調査した結果、モニタリング開始当初に1測点でベンゼンが環境基準値を若干超過していたが、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は全測点でこれを達成していた。また、アクリロニトリルが1測点で、ホルムアルデヒドが全測点でEPA参考値を超過していたが、その他の物質は参考値を下回っていた。自動車からの排出が考えられる物質について調査項目濃度間の相関分析を行ったところ、ベンゼンとアクリロニトリル、アセトアルデヒドとホルムアルデヒドの間に有意な相関が認められた。さらに大気常時監視局・鳥栖局の窒素酸化物 (NOx)、浮遊粒子状物質 (SPM) 及び光化学オキシダント (Ox) のデータを用いて相関分析を行ったところ、アセトアルデヒドとSPM (危険率1%)、ホルムアルデヒドとSPM (危険率5%) に有意な相関が認められ、またアセトアルデヒドとOx (危険率1%)、ホルムアルデヒドとOx (危険率5%) との間にも有意な相関が認められた。物質及び地点毎に汚染寄与の程度は異なるが、鳥栖局におけるアルデヒド類の主な発生源としては自動車よりも光化学反応による寄与が大きいことが推定された。

キーワード：有害大気汚染物質、揮発性有機化合物 (VOC)、
アルデヒド類、移動発生源、自動車、光化学反応

はじめに

平成8年度の大気汚染防止法の一部改正に伴い、環境庁から有害大気汚染物質234物質がリストアップされ、このうち22物質が早急に対策を立てるべき物質として優先取組物質に指定された。これにより、平成9年度から全国の各自治体において優先取組物質を中心とした有害大気汚染物質モニタリングが開始され、現在のところベンゼン、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環境基準値が設定されている。

佐賀県においても平成9年度から16物質のモニタリングを開始し、現在も継続しているところであるが、今回は平成9年10月から平成14年3

月までの揮発性有機化合物及びアルデヒド類の県内調査結果についてまとめ、さらにこれらによる汚染原因解明の一資料とすべく調査項目濃度間の関係についてとりまとめた結果を報告する。

調査方法

1. 調査対象物質

① 揮発性有機化合物 (9物質)

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

② アルデヒド類 (2物質)

アセトアルデヒド、ホルムアルデヒド

(*)：現衛生薬業センター

(2) その他のVOC及びアルデヒド類

環境基準値が設定されていないVOC5物質及びアルデヒド類2物質について、EPAの指針値を参考値として比較すると、アクリロニトリルは平成9年度の伊万里でわずかに超

え、ホルムアルデヒドは調査した全ての地点で参考値を超過していたが、それ以外の物質は下回っていた。また、全国平均値(一般環境)よりも、概ね低い値で推移している(表1)。

表1 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9~13年度の平均値)

調査対象物質	測定地点	単位: $\mu\text{g}/\text{m}^3$					基準値等
		H9年度	H10年度	H11年度	H12年度	H13年度	
アクリロニトリル	佐賀	0.057	(0.031)	(0.038)	0.040	0.046	0.1*
	鳥栖	0.072	(0.031)	0.063	0.055	0.059	
	唐津	0.070	(0.025)	(0.034)	0.042	0.043	
	伊万里	0.12	(0.030)	(0.038)	0.047	0.036	
	全国	0.21	0.21	0.17	0.15	0.14	
塩化ビニルモノマー	佐賀	0.028	(0.031)	(0.040)	0.070	0.057	2.3*
	鳥栖	0.044	(0.029)	(0.048)	0.049	0.027	
	唐津	(0.0080)	(0.029)	0.063	0.057	0.041	
	伊万里	(0.013)	(0.031)	(0.027)	0.053	0.041	
	全国	0.19	0.22	0.17	0.16	0.11	
クロロホルム	佐賀	0.13	0.079	0.080	0.088	0.13	0.4*
	鳥栖	0.11	0.099	0.11	0.12	0.14	
	唐津	0.13	0.071	0.11	0.19	0.14	
	伊万里	0.11	0.066	0.10	0.15	0.13	
	全国	0.36	0.46	0.34	0.35	0.29	
1,2-ジクロロエタン	佐賀	0.021	0.053	0.052	0.063	0.11	0.4*
	鳥栖	0.022	0.061	0.077	0.052	0.10	
	唐津	0.031	0.027	0.072	0.068	0.095	
	伊万里	(0.017)	0.029	0.065	0.071	0.097	
	全国	0.24	0.23	0.16	0.19	0.14	
ジクロロメタン	佐賀	1.2	0.42	0.80	1.6	1.4	150
	鳥栖	0.99	0.55	0.59	1.1	0.70	
	唐津	1.0	0.35	0.37	0.84	0.52	
	伊万里	1.1	0.34	0.35	2.1	0.63	
	全国	3.9	3.9	2.5	2.9	2.8	
テトラクロロエチレン	佐賀	0.10	0.051	0.048	0.057	0.12	200
	鳥栖	0.10	0.070	0.075	0.065	0.12	
	唐津	0.083	0.043	0.058	0.079	0.10	
	伊万里	0.086	0.041	0.048	0.087	0.096	
	全国	0.90	1.0	0.78	0.70	0.52	
トリクロロエチレン	佐賀	0.14	0.039	0.070	0.056	0.086	200
	鳥栖	0.14	0.073	0.12	0.30	0.17	
	唐津	0.093	0.020	0.038	0.048	0.070	
	伊万里	0.30	0.097	0.047	0.046	0.067	
	全国	1.2	1.5	1.5	1.2	1.1	
1,3-ブタジエン	佐賀	(0.010)	(0.020)	(0.020)	(0.0050)	0.059	0.04*
	鳥栖	(0.010)	(0.020)	(0.020)	(0.0050)	0.085	
	唐津	(0.010)	(0.020)	(0.020)	(0.0050)	0.10	
	伊万里	(0.010)	(0.020)	(0.020)	(0.0050)	0.066	
	全国	0.36	0.36	0.32	0.32	0.33	
ベンゼン	佐賀	2.4	0.75	0.70	1.5	0.51	3
	鳥栖	2.4	1.1	1.1	1.5	0.70	
	唐津	3.0	0.93	1.2	2.1	0.64	
	伊万里	3.2	0.90	1.2	1.9	0.42	
	全国	3.0	3.0	2.1	2.0	1.9	
アセトアルデヒド	佐賀	2.5	3.9	1.8	2.3	2.1	5*
	鳥栖	2.3	3.5	2.1	3.1	2.6	
	唐津	2.8	4.1	2.6	2.8	2.1	
	伊万里	2.6	3.7	2.0	2.2	1.8	
	全国	3.4	3.1	2.7	2.7	2.7	
ホルムアルデヒド	佐賀	2.4	2.9	2.0	3.6	4.8	0.8*
	鳥栖	2.1	3.9	2.6	4.1	4.3	
	唐津	2.3	3.9	2.4	3.2	4.6	
	伊万里	2.6	3.0	2.1	3.2	3.3	
	全国	4.0	3.6	3.1	3.5	3.6	

(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USEPA(米国環境保護庁)が設定したユニットリスクに基づく 10^{-5} リスクレベル換算値

(3) 移動発生源からの排出が考えられる物質間の相関

中央環境審議会大気部会排出抑制専門委員会における分類で、「移動発生源やその他の非意図的発生源からの排出量が無視できないと考えられる物質」として、ベンゼン、アセトアルデヒド、ホルムアルデヒド、1,3-ブタジエン、アクリロニトリル及びクロロホルムが分類されている。そこで県内の4調査地点におけるこれらの物質間の相関について検討した。その結果を表2に示す(但し1,3-ブタジエンについては殆どが検出下限値未満だったため除外し、その他の物質についても検出下限値未満だったデータは除外することとした)。

表2 県内調査地点における各物質間の相関係数

		佐賀市	鳥栖市	唐津市	伊万里市
ベンゼン	アクリロニトリル	0.787**	0.262	0.516*	0.588**
	クロロホルム	0.367	0.179	0.147	0.043
	アセトアルデヒド	0.170	0.258	0.304	-0.087
	ホルムアルデヒド	0.086	0.050	-0.010	-0.047
アクリロニトリル	クロロホルム	0.586*	0.025	0.318	0.086
	アセトアルデヒド	0.072	-0.424	0.170	0.188
	ホルムアルデヒド	-0.144	-0.489	-0.192	-0.057
クロロホルム	アセトアルデヒド	0.172	0.453*	0.080	0.223
	ホルムアルデヒド	0.142	0.403*	0.218	0.491*
アセトアルデヒド	ホルムアルデヒド	0.428*	0.725**	0.536**	0.411*

** p<0.01 * p<0.05

表2に示すとおり、佐賀市及び伊万里市においてベンゼンとアクリロニトリルの間に有

意な相関が認められ、また鳥栖市及び唐津市においてアセトアルデヒドとホルムアルデヒドの間に有意な相関が認められた(共に危険率1%)。さらに、ベンゼンとアクリロニトリル(唐津市)、アセトアルデヒドとホルムアルデヒド(佐賀市、伊万里市)、アクリロニトリルとクロロホルム(佐賀市)、クロロホルムとアセトアルデヒド(鳥栖市)及びクロロホルムとホルムアルデヒド(鳥栖市、伊万里市)との間に危険率5%で有意な相関が認められた。これらの物質は工業的にも使用されるものの、クロロホルム以外は自動車の排ガスにも含まれており³⁾、調査した一般環境4地点においても自動車排ガスの影響がみられたものと考えられる。しかし、アクリロニトリルや1,3-ブタジエンは自動車排ガスに含まれる一方でABS合成ゴムの原料に使用されること、またクロロホルムやアルデヒド類に関しても樹脂原料等に使用されること等を考えると、自動車排ガス以外の汚染源の影響も考えられ、その汚染寄与の程度は物質及び地点毎に異なることが考えられる。

今回の4調査地点の中で大気常時監視測定局と同一地点でサンプリングを行っている鳥栖市(鳥栖局:一般環境測定局)において、NOx及びSPMのデータを用いて各物質間の相関を検討した結果を表3に示す。

表3 鳥栖市(鳥栖局)における各成分間の相関係数

	ベンゼン	アクリロニトリル	クロロホルム	アセトアルデヒド	ホルムアルデヒド	NO	NO ₂	SPM
ベンゼン	1.000							
アクリロニトリル	0.262	1.000						
クロロホルム	0.179	0.025	1.000					
アセトアルデヒド	0.258	-0.424	0.453*	1.000				
ホルムアルデヒド	0.050	-0.489	0.403*	0.725**	1.000			
NO	0.166	0.190	0.207	-0.076	-0.186	1.000		
NO ₂	0.300	-0.018	0.238	0.308	0.075	0.647**	1.000	
SPM	-0.153	-0.224	0.115	0.615**	0.478*	-0.164	0.288	1.000

** p<0.01 * p<0.05

表3に示すとおり、アルデヒド類とSPMとの間に有意な相関が認められたが、ベンゼンやNO_x等、移動発生源（おもに自動車）から典型的に排出される物質⁴⁾⁵⁾の間では比較的相関が低い結果となった。アセトアルデヒドとホルムアルデヒドは共に自動車、特に大型車の低速走行時の排出量が多いと報告されている³⁾が、一方で光化学反応による生成も知られている⁶⁾。そこで光化学反応の指標として、鳥栖局におけるO_xのデータを用い、アルデヒド類との相関を調べた（表4）。採取期間におけるO_xの1時間値の24時間平均値（O_x平均値）とアルデヒド類濃度との間には有意な相関が認められなかったが、O_xの1時間値の24時間最大値（O_x最大値）とアセトアルデヒドとの間に危険率1%で、またO_x最大値とホルムアルデヒドとの間に危険率5%で有意な相関が認められた。アルデヒド類に関してはベンゼンやNO_xとの相関性は低くO_xとの相関性が高い結果となり、さらに調査地周辺でアルデヒド類の固定発生源は確認されていないことを考慮すると、アルデヒド類の発生源としては光化学反応による寄与が大きいことが考えられる。

表4 鳥栖市におけるアルデヒド類と光化学オキシダントとの相関

	アセトアルデヒド	ホルムアルデヒド
O _x 平均値	0.222	0.185
O _x 最大値	0.518***	0.414*
	*** p<0.01	* p<0.05

6. まとめ

① 環境基準が設定されているベンゼン、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、調査期間5年間のうち平成9年度の伊万里においてベンゼン

ンが環境基準値を若干超過したものの、その他は県内4地点全てにおいてこれを達成していた。

② 平成9年度の伊万里におけるアクリロニトリル及び全測点におけるホルムアルデヒドがEPA参考値を超過していたが、その他の環境基準未設定項目は参考値を下回っていた。

③ 佐賀市及び伊万里市においてベンゼンとアクリロニトリルの間に、また鳥栖市及び唐津市においてアセトアルデヒドとホルムアルデヒドの間に危険率1%で有意な相関が認められた。

④ 鳥栖市において自動車から排出される可能性のある物質間での相関性を算出した結果、アセトアルデヒドとSPMの間に危険率1%で有意な相関が、またホルムアルデヒドとSPMとの間に危険率5%で有意な相関が認められた。

⑤ 鳥栖市においてアルデヒド類とO_x最大値との間に有意な相関が認められ、アルデヒド類の主な発生源としては自動車よりも光化学反応による寄与が大きいことが推定された。

7. 文 献

- 1) 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）
- 2) 環境省環境管理局大気環境課：平成9～13年度地方公共団体等における有害大気汚染物質モニタリング調査結果について（1998～2002）
- 3) 吉野昇ら：自動車からの微量化学物質の排出状況と環境濃度への影響について、東京都環境科学研究所年報、141～152（1998）
- 4) 桜井健郎ら：市街地の車道トンネルにおける自動車起源揮発性有機化合物の組成、大気環境学会誌、35(6)、343～354（2000）
- 5) 秋山賢一：自動車から排出される有害大

気汚染物質と分析法、大気環境学会誌、35(6)、
A73-A84 (2000)

6) 坂本和彦ら：夏季における大気中脂肪族
アルデヒドと芳香族アルデヒドの一次排出と
二次生成、環境化学、3(4)、729-737 (1993)