

広島市の大気環境におけるPRTR対象物質の現況

小中ゆかり 森本 章嗣 田中 智之^{*1} 市川 恵子
村野勢津子 山水 敏明 片岡 秀雄 國弘 節^{*2}
細末 次郎 堀川 敏勝^{*3}

1999年7月に「特定化学物質の環境への排出量の把握等及び管理の改善の促進に関する法律(以下、「PRTR法」という。)」が制定され、その対象とされた化学物質について、大気中濃度等の現状を把握するため、大気への排出量が多いとされる物質の環境調査を実施した。

大気中濃度は、トルエンが突出して高く、キシレン、エチルベンゼン、ホルムアルデヒドが続いて高い。調査物質の内、トルエン、キシレン、エチルベンゼンの濃度は、PRTR法届出対象の事業所からの排出の影響を直接大きく受け、地点や時期による差が非常に大きい。一方、アルデヒド類、ベンゼン、ジクロロベンゼンの濃度は、移動体(車等)や家庭等PRTR法届出外排出の影響が大きいと考えられ、地点による差は小さい。排出量の多い物質が大気中濃度も高い濃度で検出され、排出量の大気中濃度に与える影響は大きい。

キーワード：PRTR，揮発性有機化合物(VOC)，大気中濃度

はじめに

現在流通している化学物質は、工業的に生産されているものだけで数万種に及ぶといわれており、その生産、使用および廃棄の仕方によっては、人の健康や生態系に影響を及ぼすおそれがある¹⁾。

環境中に排出されている様々な化学物質について、その排出状況を把握することは非常に困難であったが、PRTR法の制定を受け、PRTR制度が稼働し、数百の化学物質についてその排出量を把握できるようになった。PRTR制度では、届出対象事業者は毎年度、一年間の対象化学物質の環境中への排出量等を把握し届出を行う。その結果は、届出対象外事業者(小規模事業者、対象外業種事業者)や移動体(車等)および家庭から排出される届出外排出量(推計値)等とともに、毎年度集計結果が公表されている。

集計結果を排出経路で見ると、大気への排出がその大部分を占め、平成22年度の集計結果^{2),3)}では、届出排出量に占める大気への排出の割合は、全国で91%、広島市で98%であった。

大気へ排出される物質の多くは、常温常圧で空气中に容易に揮発する揮発性有機化合物(以下、

「VOC」という。)である。VOCは、人の健康に影響を与えると共に、浮遊粒子状物質(SPM)や光化学オキシダントの原因の一つにあげられており、その排出源対策等が進められている。

そこで、PRTR法届出対象物質のうち、大気への排出量の多い物質について、その排出状況を把握し、環境中での存在量について評価検討を行い、今後の排出削減対策等の基礎資料とするため本調査を実施した。

本報告では、調査対象物質の大気中濃度の現状を報告するとともに、併せてPRTR制度による排出量等との比較検討を行った。

方 法

1 調査期間と調査地点

(1) 調査期間

平成23年4月～平成24年3月

毎月1回、24時間サンプリングとし、年12回実施した。

(2) 調査地点

有害大気汚染物質モニタリング定点4地点において実施した。調査地点の位置を図1に示す。

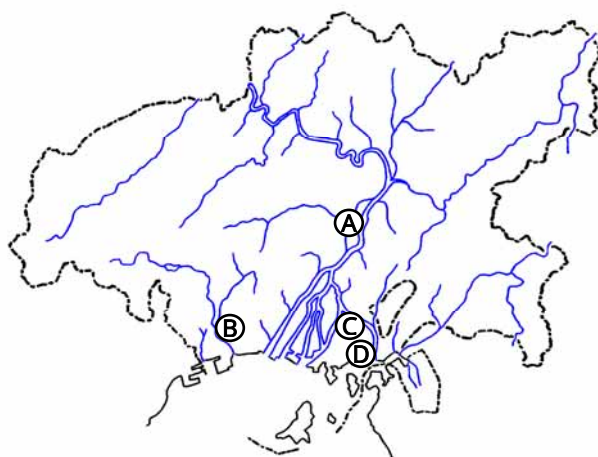
2 調査対象物質と調査方法

(1) 調査対象物質

PRTR法対象物質のうち、平成22年度広島県の

*1:現 健康福祉局保健部食品指導課

*2, 3:退職



調査地点名	住所	地域分類
安佐南区役所(以下「安佐南」という)	安佐南区	一般環境
井口小学校(「井口」)	西区	一般環境
比治山測定局(「比治山」)	南区	沿道
楠那中学校(「楠那」)	南区	発生源周辺

図1 調査地点

PRTR 集計結果²⁾より、届出排出量と届出外排出量を合わせた全排出量の上位 12 物質(n-ヘキサンを除く。)を対象とした。対象物質を表 1 に示す。

(2) 調査方法

「大気汚染防止法第 22 条の規定に基づく大気の汚染の状況の常時監視に関する事務の処理基準」の有害大気汚染物質に係る常時監視に準拠して実施した。

測定方法は「有害大気汚染物質測定方法マニュアル⁵⁾」に準拠し、アルデヒド類 2 物質は、大気中のホルムアルデヒド及びアセトアルデヒドの測定方法、その他 10 物質は、大気中のベンゼン等揮

表 1 調査対象物質

NO*	物質名	主な用途 ⁴⁾
12	アセトアルデヒド	酢酸エチルの原料
53	エチルベンゼン	スチレンの原料, 溶剤
80	キシレン	化学物質の原料, 溶剤
104	ジクロロフルオロメタン(HCFC-22)	断熱材の発泡剤, エアコンの冷媒
176	1,1-ジクロロ-1-フルオロエタン(HCFC-141b)	断熱材の発泡剤, 電子機器等の洗浄剤
181	ジクロロベンゼン	防虫剤, 消臭剤
186	ジクロロメタン(塩化メレン)	洗浄剤, 油の除去, 溶剤
297	1,3,5-トリメチルベンゼン	溶剤, 塗料うすめ液
300	トルエン	化学物質の原料, 溶剤
386	プロメタン(臭化メレン)	土壌用殺虫剤
400	ベンゼン	化学物質の原料
411	ホルムアルデヒド	合成樹脂の原料

* PRTR 法対象化学物質物質番号

発性有機化合物(VOCs)の測定方法(容器採取-ガスクロマトグラフ質量分析法)によった。

結果と考察

1 大気中濃度

各調査地点における年平均値, 最大値, 最小値を表 2 に示す。

エチルベンゼン, キシレン, 1,3,5-トリメチルベンゼン, トルエンの年平均値は地点による差が大きい。特に楠那は, 他地点と比較してその値が非常に高く, これら 4 物質の最大値と最小値の差も非常に大きい。

反対に, HCFC-22, ジクロロメタン, プロモメタンの年平均値は地点による差が非常に小さい。

次に, 各地点の年平均値から市内平均濃度を算出し, その濃度を高い物質順に図 2 に示す。

市内平均濃度では, トルエンが突出しており, キシレン, エチルベンゼン, ホルムアルデヒド, アセトアルデヒドと続いている。トルエンは, キシレンのほぼ 2 倍の濃度である。

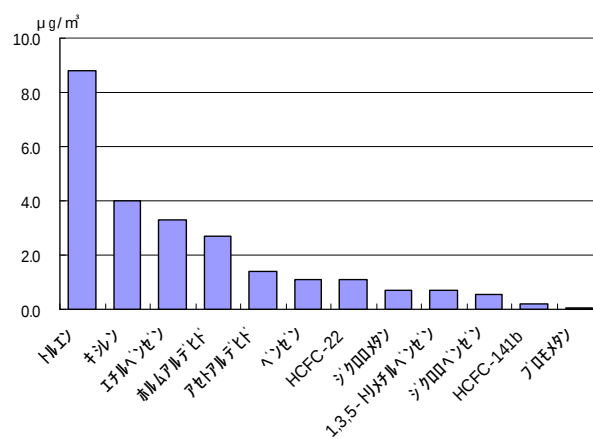


図2 大気中濃度(市内平均濃度)

2 各物質別の月別変動

大気中濃度の高かった 10 物質について, 調査地点や時期による傾向や特徴を見るため, 地点ごとに物質別月別変動を図 3 に示す。

(1) トルエン

楠那では, 月別の変動が非常に大きく, 特に 5 月, 7 月の濃度が突出して高い。これにより, トルエンの市内平均濃度が押し上げられたものと考えられる。井口でも, 他 2 地点と比較して濃度が高い。地点差が大きく, 地点によっては月別変動の非常に大きい物質である。

PRTR の結果では, 7 割以上が事業所等から, その他車の排気ガスに含まれて排出されている⁴⁾。

表2 各調査地点における年平均値，最大値，最小値

($\mu\text{g}/\text{m}^3$)

物質名	安佐南			井口			比治山			楠那		
	年平均	最大	最小	年平均	最大	最小	年平均	最大	最小	年平均	最大	最小
アセトアルデヒド	1.4	2.5	0.53	1.3	1.9	0.55	1.6	2.4	0.72	1.5	2.2	0.54
エチルベンゼン	2.4	4.4	0.22	1.3	3.2	0.18	1.7	3.2	0.37	7.8	20	0.45
キシレン	2.5	4.6	0.50	1.5	3.6	0.44	2.2	4.5	0.77	10	27	0.53
HCFC-22	1.1	1.7	0.84	1.1	1.7	0.83	1.1	1.7	0.90	1.0	1.4	0.81
HCFC-141b	0.17	0.28	0.12	0.16	0.21	0.11	0.17	0.24	0.13	0.22	0.54	0.12
ジクロロベンゼン	0.53	1.7	0.070	0.63	2.0	0.059	0.48	1.6	0.049	0.51	1.5	0.064
ジクロロメタン	0.72	1.0	0.30	0.68	1.1	0.30	0.71	1.2	0.37	0.73	1.2	0.38
1,3,5-トリメチルベンゼン	0.26	0.41	0.10	0.21	0.36	0.057	0.30	0.60	0.15	2.1	5.2	0.075
トルエン	5.3	8.4	1.8	9.6	21	2.1	5.1	9.2	2.6	15	35	2.5
ブロモメタン	0.050	0.089	0.030	0.054	0.090	0.026	0.052	0.094	0.025	0.051	0.086	0.024
ベンゼン	1.2	2.3	0.66	1.1	2.2	0.57	1.3	2.5	0.78	1.1	2.2	0.56
ホルムアルデヒド	2.6	5.5	0.89	2.5	5.5	0.94	3.0	6.3	1.3	2.7	5.4	0.82

*検出下限値以上定量下限値未満の値は斜体で示す。

(2) キシレン

トルエンと同様，楠那の5月，7月の濃度が突出して高く，月別の変動が非常に大きい。他3地点は同レベルの濃度で推移している。

PRTRの結果では，7割以上が事業所や塗料を使用する工事現場等から，その他車の排気ガスに含まれて排出されている⁴⁾。

(3) エチルベンゼン

キシレンと同じ傾向が見られ，楠那の5月，7月の濃度が突出して高く，月別の変動が非常に大きいものの，他3地点は同レベルの濃度で推移している。濃度的にもキシレンと同レベルである。

PRTRの結果では，約8割が事業所等から，その他車の排気ガスに含まれて排出されている⁴⁾。

(4) アルデヒド類

ホルムアルデヒドとアセトアルデヒドは，共に有害大気汚染物質の優先取組物質である。両物質とも排出源の約9割は車の排気ガスと考えられ⁴⁾，国道2号線沿道の比治山で若干濃度が高いものの，全地点同レベルの濃度で推移し，夏季に高くなる傾向が見られる。ホルムアルデヒドは，アセトアルデヒドのほぼ2倍の濃度である。

(5) ベンゼン

有害大気汚染物質モニタリングの優先取組物質の一つである。排出源の8割以上は車の排気ガスと考えられ⁴⁾，沿道の比治山で若干濃度が高いものの，地点による差は小さい。

(6) HCFC-22

全地点，同レベルの濃度で推移し，月別の変動も大きくない。

既報⁶⁾で述べたが，代替フロン⁶⁾の代表的な物質であり，古くから使用されておりその生産量も多く，フロン類の中でもその濃度は高い。近年，横

ばいから微増傾向にある。

(7) ジクロロメタン

有害大気汚染物質モニタリングの優先取組物質の一つである。全地点，同レベルの濃度で推移し，月別の変動も大きくない。

PRTRの結果では，すべて事業所等から排出されている⁴⁾。

(8) 1,3,5-トリメチルベンゼン

キシレン，エチルベンゼンと比較すると濃度は低いものの，楠那の5月，7月の濃度が突出して高く，月別の変動が非常に大きい。他3地点は濃度は低く，年間を通してほぼ一定である。

排出源の約5割が事業所，その他約5割が車の排気ガスとされており⁴⁾，楠那は事業所等の影響が大きく，他3地点は車の排気ガスの影響が大きいものと考えられる。

(9) ジクロロベンゼン

o-, m-, p-体の3つの異性体が存在するが，大気中で検出される異性体は大部分 p-ジクロロベンゼンである。p-ジクロロベンゼンは，衣類の防虫剤やトイレの消臭剤に使われており，主な排出源は家庭と考えられる。PRTR 排出量もその需要量を基に，届出外排出量として全量家庭からの排出として推計されている⁴⁾。濃度は，使用時期と気温の影響が大きいものと考えられ，夏季に高濃度で検出されている。

3 各調査地点にみる調査結果

事業所等からの排出の影響を大きく受けると考えられるトルエン，キシレン，エチルベンゼン，ジクロロメタン，1,3,5-トリメチルベンゼンの5物質について，各調査地点での傾向を見るため，地点別の月別変動を図4に示す。また，地点別に各物質間の相関係数を表3に示す。

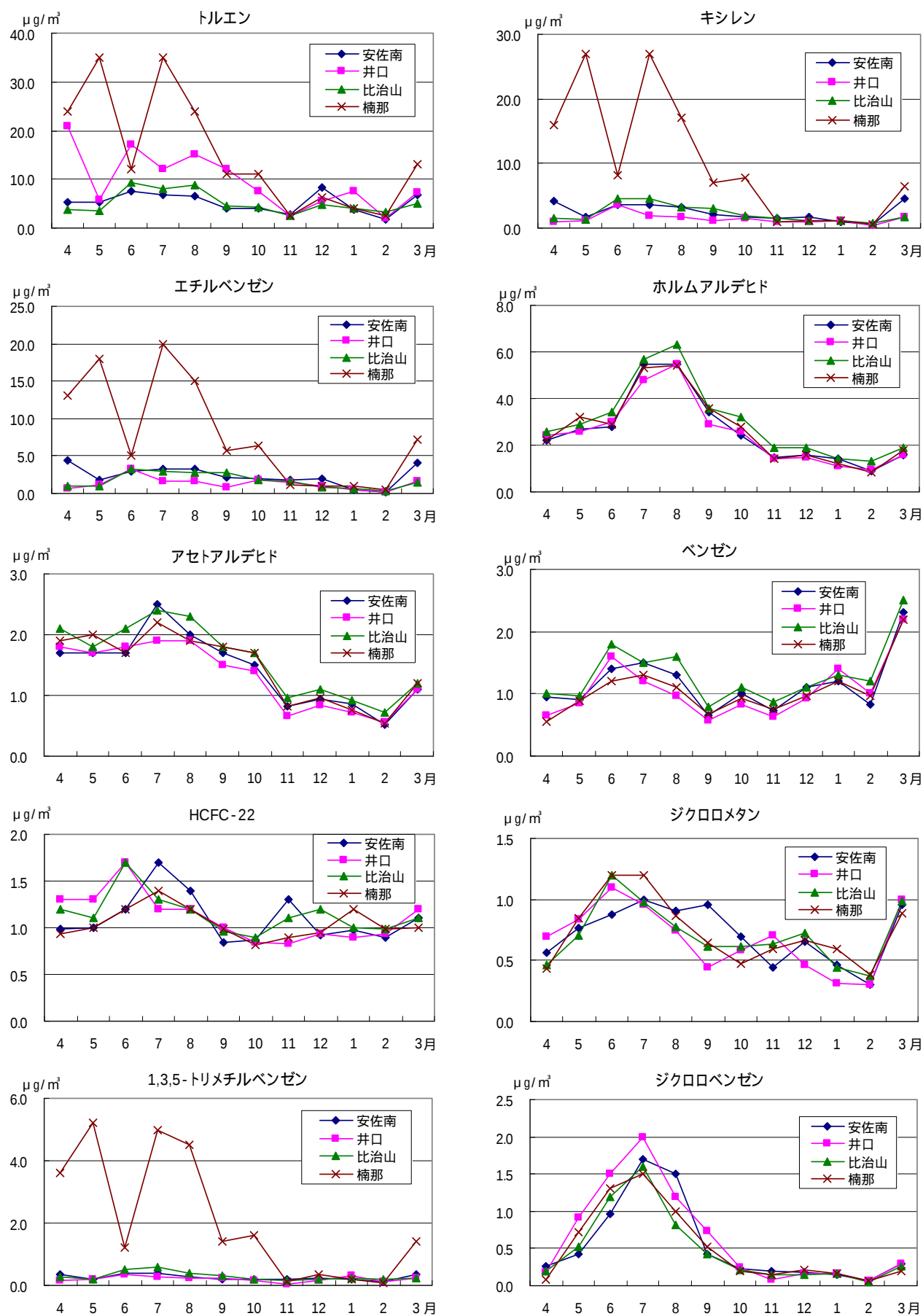


図3 物質別月別変動

(1) 安佐南

5 物質ともその月別変動は似ているが、特にキシレンとエチルベンゼンはその挙動が相関係数 0.968 で酷似し、濃度も同レベルである。

エチルベンゼンとキシレンは混合溶剤として用いられることが多いために排出特性が類似しており、環境濃度は一定の比になる傾向があるといわれている⁷⁾。同じ排出源からの影響が示唆される。

一方、トルエン、キシレン、エチルベンゼンの各物質と 1,3,5-トリメチルベンゼンとの相関も比較的高い。トルエン、キシレン、エチルベンゼンは、事業所等その他、車の排気ガスの影響も比較的大きいものと思われる。

(2) 井口

トルエンが他物質に比べて突出して高く、月別変動が非常に大きいのが特徴的である。キシレンとエチルベンゼンは、その月別変動は相関係数 0.945 で酷似しており、濃度も同レベルである。同じ排出源からの影響が示唆される。

一方、安佐南と比較して、トルエン、キシレン、エチルベンゼンの各物質と 1,3,5-トリメチルベンゼンとの相関が相対的に低く、また、近くに主幹道路がなく住宅街に位置していることから、トルエン、キシレン、エチルベンゼンへの車の排気ガスの影響は小さいものと思われる。

(3) 比治山

5 物質ともその月別変動は似ているが、特にキシレンとエチルベンゼンは、月により濃度比に差があるものの、相関係数 0.956 で酷似している。

安佐南と同じく、トルエン、キシレン、エチルベンゼンの各物質と 1,3,5-トリメチルベンゼンとの相関が比較的高く、トルエン、キシレン、エチルベンゼンは、事業所等その他、車の排気ガスの影響が比較的大きいものと思われる。

(4) 楠那

ジクロロメタンを除く 4 物質は、各物質間の相関が非常に高く月別変動は酷似している。また、濃度も他地点に比べて非常に高く、この 4 物質は同一の排出源からの影響と考えられる。各物質の月別データを基準値化した月別変動を図 5 に示す。4 物質の挙動パターンはほぼ一致し、排出源が同一であることが裏付けられた。一方、ジクロロメタンは別排出源であることが明らかとなった。

楠那の 1,3,5-トリメチルベンゼンは、他 3 地点とは異なり、排出源である事業所等の影響を非常に大きく受けている。

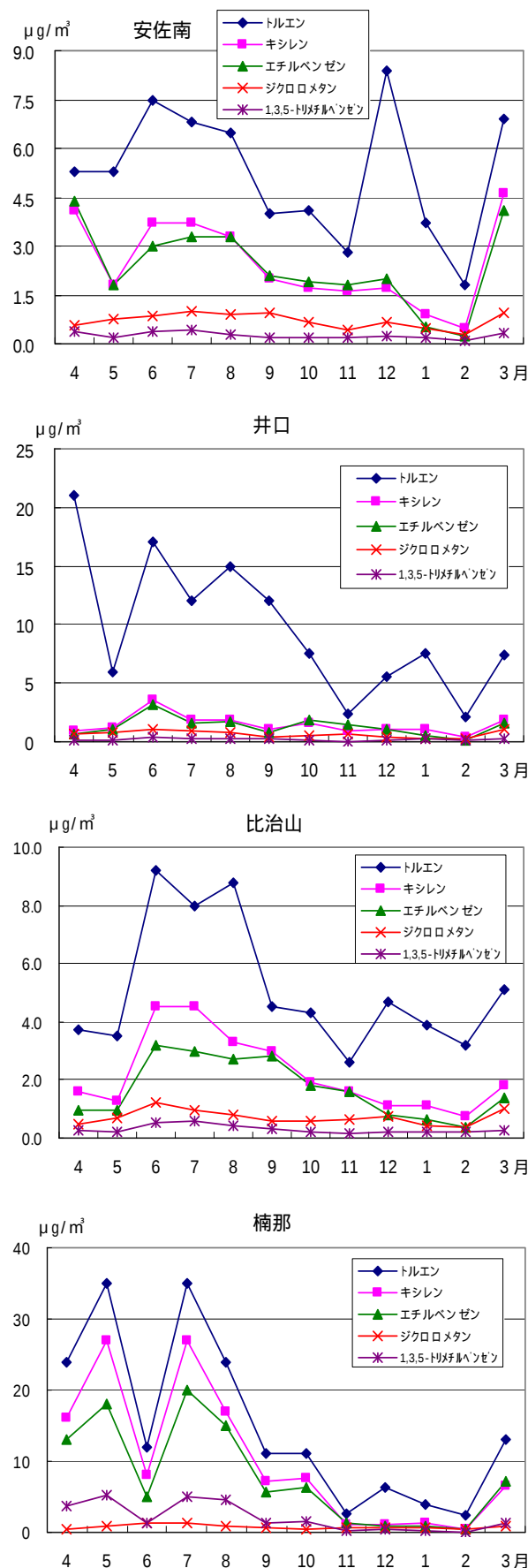


図 4 地点別月別変動

表 3 各物質間の相関係数

安佐南					
トルエン					
キシレン	0.659				
エチルベンゼン	0.639	0.968			
ジクロロメタン	0.663	0.677	0.632		
1,3,5-トリメチルベンゼン	0.752	0.914	0.853	0.637	
井口					
トルエン					
キシレン	0.487				
エチルベンゼン	0.348	0.945			
ジクロロメタン	0.402	0.756	0.779		
1,3,5-トリメチルベンゼン	0.540	0.730	0.499	0.418	
比治山					
トルエン					
キシレン	0.872				
エチルベンゼン	0.786	0.956			
ジクロロメタン	0.770	0.745	0.690		
1,3,5-トリメチルベンゼン	0.890	0.937	0.800	0.684	
楠那					
トルエン					
キシレン	0.994				
エチルベンゼン	0.989	0.985			
ジクロロメタン	0.515	0.516	0.499		
1,3,5-トリメチルベンゼン	0.983	0.979	0.990	0.445	

■:0.9 以上

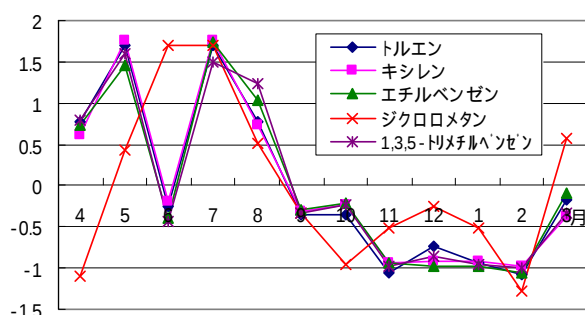


図 5 楠那の月別変動(基準値化)

4 大気中濃度と PRTR 排出量との比較

広島市における平成 22 年度 PRTR 集計結果^{2), 3)}において、大気への届出排出量を量の多い物質順に図 6 に示す。また、その物質順に、各区別の届出排出量も併せて示す。

届出排出量上位 3 物質のトルエン、キシレン、エチルベンゼンは、大気中濃度(市内平均濃度)の上位 3 物質に一致し(図 2 参照)、続くジクロロメタン、1,3,5-トリメチルベンゼンを加えた 5 物質の届出排出量は、全届出排出量約 1281 トンの 9 割以上を占める。これらの物質は、事業所等からの排出量が、直接大気中濃度へ大きな影響を与えている。しかし、トルエンの濃度はキシレンの約

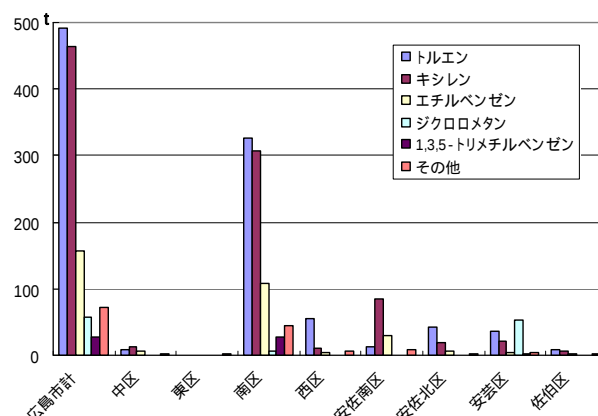


図 6 大気への届出排出量(広島市)

2 倍であり、エチルベンゼンも含め、その濃度と届出排出量の比とは大きく異なっている。届出外排出量や各物質の分解性等の影響が考えられる。

地区別では、南区からの届出排出量が突出しており、全届出排出量の約 6 割を占める。これが大きく寄与し、楠那での各物質の濃度が高いことが裏付けられる。また、井口ではトルエンの濃度が特に高かったが、西区のトルエンの届出排出量が他物質に比べて多いのは特徴的である。

一方、その他アルデヒド類、ベンゼン等の 7 物質は、前述の 5 物質に比べ届出排出量が僅かであるか、届出がない物質であるが、大気中で検出されている(図 2 参照)。これらの物質は届出外排出量の上位物質であり²⁾、届出事業所以外の排出源の影響が大きい。主な排出源は、アルデヒド類、ベンゼンは移動体(車等)、ジクロロベンゼンは家庭と推計され⁴⁾、広島市でもかなりの量が排出されているものと推察される。また、代替フロン⁵⁾の HCFC-22 や HCFC-141b は生産が削減されているものの、使用製品の廃棄・回収等に伴い、届出対象外事業所から排出されているものと考えられる。

届出と届出外の排出量を合わせた全排出量と大気中濃度(図 2 参照)を比較検討するため、広島市の届出外排出量が未公表のため、広島県の平成 22 年度 PRTR 排出量(届出排出量と届出外排出量の合計)²⁾をその排出量の多い物質順に図 7 に示す。

PRTR 排出量の上位 12 物質はすべて大気中で検出され、その排出量と大気中濃度の間には、順位等異なる点があるものの概ね相関がみられる。

しかし、トルエンの大気中濃度は、明らかに PRTR 排出量から推測されるよりはるかに高く、キシレンとエチルベンゼンの濃度比も PRTR 排出量の比とはかなり異なる。

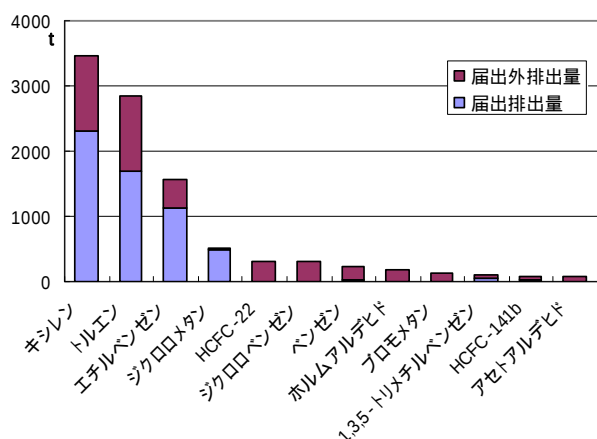


図7 広島県のPRTR排出量

また、車の排気ガスからの排出の影響が大きいとされるホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、ベンゼンの大気中濃度は、エチルベンゼンに続いて高く、PRTR排出量の順より上位であり、その濃度も排出量に比べ相対的に高い。

これらは、全県と都市域の市では、事業所の業種の違いや車の台数等の届出外排出量の各種推計要因が大きく異なることが影響しているものと思われる。

まとめ

PRTR法対象化学物質について、その大気中濃度の測定結果をまとめ、大気環境の現状を把握するとともに、その排出源等についてPRTR排出量と比較し検討を行った。

トルエン、キシレン、エチルベンゼン等は、事業所等からの大気への排出量が非常に多く、直接大気中濃度に影響を与えるため、特定の排出源の影響を受け易く、地点ごと、時期ごとに濃度差が大きい。個別の排出源への削減対策が重要となる。

一方、アルデヒド類、ベンゼン、ジクロロベンゼン等は、特定の大きな排出源の影響を受けず、大気中濃度も季節的に気温等の影響は受けるものの地点による差は小さい。濃度は広域的に均一化されており、その対策も広範囲に考えていく必要がある。

特にアルデヒド類、ベンゼン等車の排気ガスからの排出の影響が大きい物質は、広島市域において大気中濃度が高く、その対策も重要である。

大気中濃度とPRTR排出量との間には相関があり、排出量を基に大気中濃度を概ね推定できる。しかし、大気中濃度は、排出量に加え、各物質の

分解性、排出源からの距離、気象、地形等により影響を受けるため、これらの要素も考慮していかなければならない。現状を更に詳細に把握するためにも、今後も大気環境調査を継続し、各要素の影響も検討していきたいと考えている。

また、VOCは光化学オキシダントの原因物質であり、長期的な調査により、その排出削減効果を確認し削減対策の一助としたい。特にトルエン、キシレンはオゾン生成への寄与が大きいといわれており⁷⁻⁹⁾、各物質によるオキシダント生成への寄与やリスク等についても今後検討していきたい。

一方、PRTR排出量についても、広島市における各排出推計要因を検討し、届出排出量に加えて、届出外排出量も把握していければと考えている。

文献

- 1) 平成23年度版 化学物質と環境:環境省環境保健部環境安全課
- 2) 環境省:PRTR:化管法ホームページ(PRTRインフォメーション広場)
<http://www.env.go.jp/chemi/prtr/risk0.html>
- 3) 広島市ホームページ:平成22年度PRTRデータの集計結果について
<http://www.city.hiroshima.lg.jp/www/content/0000000000000/1330671676369/index.html>
- 4) 環境省:化学物質ファクトシート 2011年度版
- 5) 環境省環境水・大気環境局大気環境課:有害大気汚染物質測定方法マニュアル(平成23年3月)
- 6) 広島市における大気中フロン類の濃度について、広島市衛生研究所年報, 29, 66~75(2010)
- 7) 埼玉県における揮発性有機化合物の地域的時間的濃度変動の特徴と光化学オキシダントとの関係, 大気環境学会誌, 47(3), 127~134(2012)
- 8) 大気中VOCの光化学反応性について-新潟県におけるオゾン生成への影響について, 新潟県保健環境科学研究所・新潟市衛生環境研究所平成21年度調査研究発表会要旨集, 29(2010)
- 9) 愛知県内の大気中揮発性有機化合物(VOC)の濃度について, 34, 1~9(2006)