

名古屋市域における有害大気汚染物質濃度の経年変化*

大野 隆史**・酒井 哲男**・北瀬 勝**・水谷 弘雄**
大場 和生**・山神真紀子**・鬼頭 圭**・中島 寛則**

キーワード ①有害大気汚染物質 ②経年変化 ③相関 ④固定発生源 ⑤移動発生源
⑥光化学反応

要 旨

平成9年10月から平成15年3月にかけての名古屋市域における有害大気汚染物質(19物質)濃度の経年変化について検討した。おおむね全地点・全物質について、濃度減少傾向が認められた。移動発生源からの寄与が大きいベンゼン・1,3-ブタジエン・ベンゾ[a]ピレン等については地点間濃度差が小さくなり、物質間には互いに有意な相関が認められた。固定発生源からの局所的な寄与が大きい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・アクリロニトリル・ニッケル・クロム・マンガン等については地点間濃度差が大きくなり、固定発生源が多く分布する測定局でとくに大きな濃度減少が認められた。

常時監視データとの相関では、移動発生源の寄与が大きい物質についてNO_x等と良好な相関が得られた。また、エチレンオキシドやアルデヒド類については、SPMとの相関がもっともよくなった。

1. はじめに

名古屋市では平成9年10月から、表1および図1に示す市内4カ所の大気汚染常時監視測定局で、「有害大気汚染物質モニタリング指針」に示された19物質について、毎月1回、有害大気汚染物質モニタリング調査を行っている。

その間に、化学物質による環境汚染への対策として、従来の化審法等による物質毎の法規制に加えて、より多くの化学物質について、自主的な管理を改善していくことによって削減していこうというPRTR法が制定された。

今回は有害大気汚染物質の測定開始から5年以

上経過したのを機に、その間の経年変化や、地点間・物質間の相関、常時監視データとの相関等について検討したので、その結果を報告する。

2. 解析対象

有害大気汚染物質モニタリング調査を開始した平成9年10月から平成15年3月までの66カ月のデータを解析対象とした。ただし、常時監視データとの相関については平成14年度のデータを解析対象とした。

調査対象19物質についてのPRTR法での平成14年度の全国の届出排出量および届出外排出量(推

*Long-term Trend of the Concentrations of Hazardous Air Pollutants in Nagoya City

**Takashi OHNO, Tetsuo SAKAI, Masaru KITASE, Hiroo MIZUTANI, Kazuo OHBA, Makiko YAMAGAMI, Kiyoshi KITO, Hironori NAKASHIMA (名古屋環境科学研究所) Nagoya City Institute for Environmental Sciences

計値)を表2に示す^{1,2)}。各物質についての、発生源寄与割合がおおむね把握できる。届出排出量のみならず届出外排出量についても移動体からの排出、家庭からの排出、非対象業種からの排出等そのほとんどは大気への排出である。改めて有害化学物質の環境中への排出は、重金属類を除けば圧倒的に大気への排出が多いことがよくわかる。平成14年度の集計結果は、平成13年度と比べて、取扱下限量の引き下げによって、対象業種からの届出外排出量が大きく減少し、非対象業種からの排出の正確な把握や、タバコの煙による排出、コールドスタート時の増分の加算等によって、より正確な排出量集計になった。

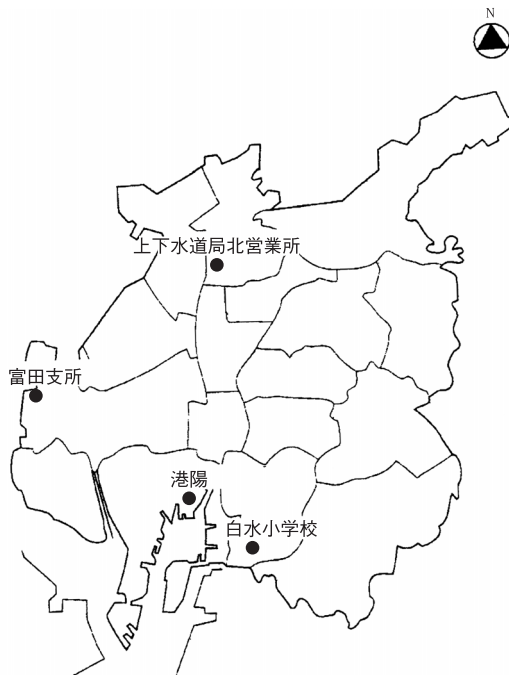


図1 調査地点配置図(名古屋市)

表1 有害大気汚染物質モニタリング調査地点(名古屋市)

常時監視測定局名	所在地	地域分類
富田支所	中川区春田三丁目215	一般環境
港陽	港区港陽一丁目1-65	固定発生源周辺
白水小学校	南区松下町2-1	固定発生源周辺
上下水道局北営業所	北区田幡二丁目4-5	沿道

表2 有害大気汚染物質のPRTR法届出排出量及び届出外排出量(全国, 平成14年度)

物質名	PRTR 法 物質 番号	届出排出量 (kg/年)					届出外排出量(推計値) (kg/年)					合計 (kg/年)	届出 排出量 比	届出外 排出量 比
		大気	公共用 水域	土壌	埋立	小計	対象業種を 営む事業所	非対象業種 を営む事業 者	家庭	移動体	小計			
ベンゼン	299	1,806,664	20,855	0	2	1,827,521	114,758	826,870	92,495	16,317,950	17,352,073	19,179,594	10	90
トリクロロエチレン	211	6,044,145	3,568	0	0	6,047,713	12,876,066	0	0	0	12,876,066	18,923,779	32	68
テトラクロロエチレン	200	2,323,431	1,912	0	0	2,325,343	5,636,623	0	0	0	5,636,623	7,961,966	29	71
ジクロロメタン	145	25,385,977	20,274	55	0	25,406,306	17,217,262	0	0	0	17,217,262	42,623,568	60	40
アクリロニトリル	7	706,761	65,204	0	0	771,965	13,653	0	30,108	0	43,761	815,726	95	5
塩化ビニルモノマー	77	614,045	15,442	0	120	629,607	0	0	0	0	629,607	100	0	
クロロホルム	95	1,617,835	168,528	0	0	1,786,363	237,512	19,562	62,910	0	319,984	2,106,347	85	15
1,2-ジクロロエタン	116	806,779	4,894	0	0	811,673	20,299	0	0	0	20,299	831,972	98	2
1,3-ブタジエン	268	397,575	5,121	0	0	402,696	0	70,653	113,302	4,269,661	4,453,616	4,856,312	8	92
エチレンオキシド	42	279,119	19,774	0	0	298,893	31,570	185,268	0	0	216,838	515,731	58	42
アセトアルデヒド	11	101,883	51,349	0	0	153,232	13,571	107,840	534,717	9,784,104	10,440,232	10,593,464	1	99
ホルムアルデヒド	310	342,043	68,944	2	1,300	412,289	1,386,579	1,261,958	139,741	25,713,916	28,502,194	28,914,483	1	99
ベンゾ[a]ピレン	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0	0	—	—
ニッケル	231	1,169	8,214	6	12	9,401	344,488	0	0	0	344,488	353,889	3	97
ニッケル化合物	232	6,722	98,648	2	112,679	218,051	55,190	0	0	0	55,190	273,241	80	20
ひ素及びその無機化合物	252	11,370	22,631	0	7,147,683	7,181,684	1,652	0	0	0	1,652	7,183,336	100	0
クロム及び三価クロム化合物	68	13,934	42,532	7	488,018	544,491	145,524	0	0	0	145,524	690,015	79	21
六価クロム化合物	69	694	13,713	2	8	14,417	22,253	20,734	0	0	42,987	57,404	25	75
ベリリウム及びその化合物	294	0	1	0	0	1	555	0	0	0	555	556	0	100
マンガン及びその化合物	311	30,462	1,085,210	362	3,387,310	4,503,344	657,469	0	0	0	657,469	5,160,813	87	13
水銀及びその化合物	175	98	302	0	3,838	4,238	8,250	0	0	0	8,250	12,488	34	66

3. 解析結果

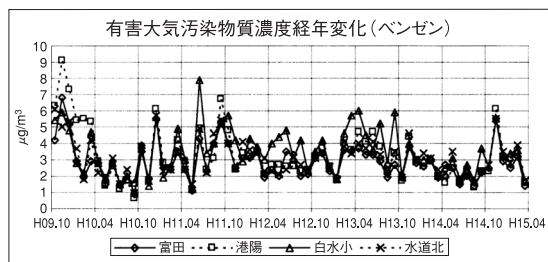
3.1 経年変化

有害大気汚染物質モニタリング調査を開始した平成9年10月からのベンゼン・テトラクロロエチレン・ジクロロメタン・1,3-ブタジエン・アセトアルデヒド・ベンゾ[a]ピレンについての経年変化グラフを図2に示す。検出下限値未満の場合は検出下限値の半分として取り扱った。経年変化グラフの下には、平成9年10月から平成15年3月にかけての実測データについての傾きおよび最大値を100として規格化したデータについての傾きを示す。実測データについての傾きは、月ごとの $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 単位での減少あるいは増加率すなわち $\mu\text{g}/\text{m}^3/\text{月}$ を示し、規格化データについての傾きは、

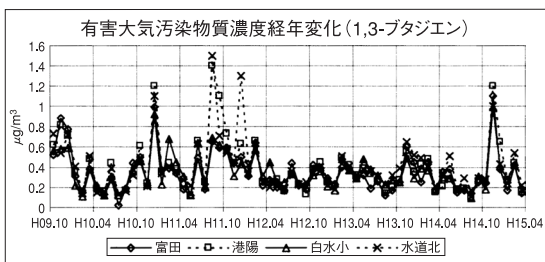
月ごとの%単位での減少あるいは増加率すなわち%/月を示すこととなる。またその値を12倍し年間の減少あるいは増加率として、全19物質についてまとめて表3に示す。

エチレンオキドを除くほぼ全物質・全地点について、この66カ月の間では濃度は減少傾向にあることがわかる。

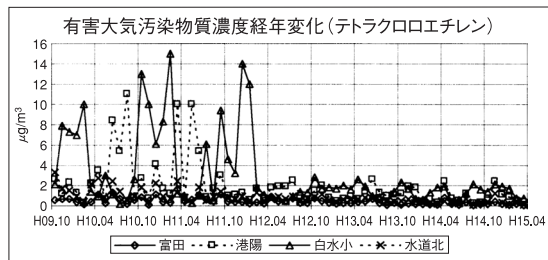
ベンゼンは表2に示すように移動発生源を中心とした発生源が広範に分布しており、地点間の濃度差が小さくなり、市域全体が比較的高濃度であるといえる。年間減少率としては平均で1.7%ほどとなった。とくに当初比較的高濃度であった港陽の減少率が大きく、3.5%ほどの減少率を示した。逆に減少率がもっとも小さかったのは白水



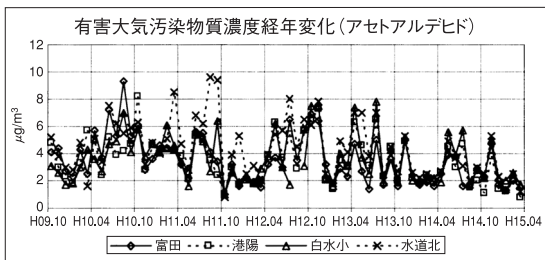
傾き	富田	港陽	白水小	水道北
実測データ	-0.0112	-0.0265	-0.0063	-0.0076
規格化	-0.1228	-0.2912	-0.0694	-0.0835



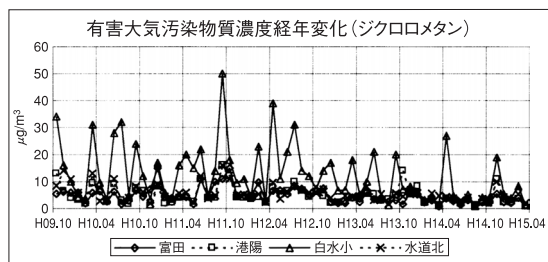
傾き	富田	港陽	白水小	水道北
実測データ	-0.0017	-0.0025	-0.0013	-0.0014
規格化	-0.1137	-0.1636	-0.0834	-0.0916



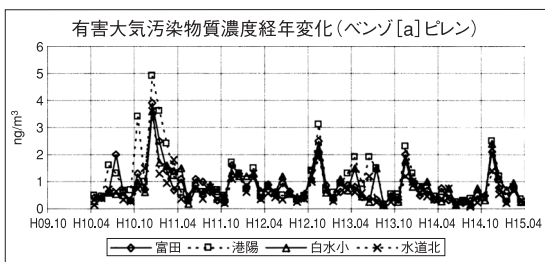
傾き	富田	港陽	白水小	水道北
実測データ	-0.0085	-0.0474	-0.0803	-0.0219
規格化	-0.0569	-0.3159	-0.5353	-0.1460



傾き	富田	港陽	白水小	水道北
実測データ	-0.0378	-0.0261	-0.0126	-0.0345
規格化	-0.3934	-0.2714	-0.1315	-0.3596



傾き	富田	港陽	白水小	水道北
実測データ	-0.0606	-0.0401	-0.1846	-0.0569
規格化	-0.1212	-0.0801	-0.3691	-0.1138



傾き	富田	港陽	白水小	水道北
実測データ	-0.0111	-0.0136	-0.0049	-0.0081
規格化	-0.2258	-0.2767	-0.1003	-0.1643

図2 有害大気汚染物質濃度経年変化(H09.10~H15.03)

表3 有害大気汚染物質の年間増減率(H09.10~H15.03)

物質名	単位	富田	港陽	白水小	水道北	平均	備考
ベンゼン	$\mu\text{g}/\text{m}^3/\text{年}$ %/年	-0.134 -1.47	-0.318 -3.49	-0.076 -0.83	-0.091 -1.00	-0.155 -1.70	
トリクロロエチレン	$\mu\text{g}/\text{m}^3/\text{年}$ %/年	-0.284 -1.13	-0.238 -0.95	-0.627 -2.51	-0.296 -1.19	-0.361 -1.45	
テトラクロロエチレン	$\mu\text{g}/\text{m}^3/\text{年}$ %/年	-0.103 -0.68	-0.569 -3.79	-0.964 -6.42	-0.263 -1.75	-0.474 -3.16	
ジクロロメタン	$\mu\text{g}/\text{m}^3/\text{年}$ %/年	-0.727 -1.45	-0.481 -0.96	-2.215 -4.43	-0.683 -1.37	-1.026 -2.05	
アクリロニトリル	$\mu\text{g}/\text{m}^3/\text{年}$ %/年	-0.016 -0.23	-0.005 -0.07	-0.309 -4.35	-0.028 -0.39	-0.089 -1.26	
塩化ビニルモノマー	$\mu\text{g}/\text{m}^3/\text{年}$ %/年	-0.004 -0.12	-0.015 -0.43	-0.001 -0.03	-0.020 -0.58	-0.010 -0.29	
クロロホルム	$\mu\text{g}/\text{m}^3/\text{年}$ %/年	-0.041 -0.89	-0.021 -0.46	-0.060 -1.32	-0.080 -1.73	-0.050 -1.10	
1,2-ジクロロエタン	$\mu\text{g}/\text{m}^3/\text{年}$ %/年	-0.063 -7.20	-0.035 -4.04	-0.021 -2.36	-0.031 -3.55	-0.037 -4.29	
1,3-ブタジエン	$\mu\text{g}/\text{m}^3/\text{年}$ %/年	-0.020 -1.36	-0.029 -1.96	-0.015 -1.00	-0.016 -1.10	-0.020 -1.36	
エチレンオキシド	$\mu\text{g}/\text{m}^3/\text{年}$ %/年	0.001 0.30	0.013 5.43	0.021 8.95	-0.003 -1.06	0.008 3.41	H12.04から 測定開始
アセトアルデヒド	$\mu\text{g}/\text{m}^3/\text{年}$ %/年	-0.453 -4.72	-0.313 -3.26	-0.152 -1.58	-0.414 -4.32	-0.333 -3.47	
ホルムアルデヒド	$\mu\text{g}/\text{m}^3/\text{年}$ %/年	-0.649 -2.95	-0.152 -0.69	0.125 0.57	-0.527 -2.39	-0.301 -1.37	
ベンゾ[a]ピレン	$\text{ng}/\text{m}^3/\text{年}$ %/年	-0.133 -2.71	-0.163 -3.32	-0.059 -1.20	-0.097 -1.97	-0.113 -2.30	H10.04から 測定開始
ニッケル化合物	$\text{ng}/\text{m}^3/\text{年}$ %/年	-1.386 -0.14	-8.844 -0.91	-32.932 -3.40		-14.387 -1.48	
ひ素及びその化合物	$\text{ng}/\text{m}^3/\text{年}$ %/年	-0.041 -0.50	-0.020 -0.25	-0.067 -0.82		-0.043 -0.52	
クロム及びその化合物	$\text{ng}/\text{m}^3/\text{年}$ %/年	-1.779 -0.09	-13.518 -0.71	-53.581 -2.82		-22.959 -1.21	
ベリリウム及びその化合物	$\text{ng}/\text{m}^3/\text{年}$ %/年	-0.023 -6.91	-0.022 -6.75	-0.020 -6.09		-0.022 -6.58	初期はNDが 多く参考
マンガン及びその化合物	$\text{ng}/\text{m}^3/\text{年}$ %/年	-2.594 -0.59	-4.873 -1.11	-14.416 -3.28		-7.294 -1.66	
水銀及びその化合物	$\text{ng}/\text{m}^3/\text{年}$ %/年	-0.127 -3.09	0.191 4.66	-0.199 -4.85		-0.045 -1.09	H12.10以降の 減少率

小学校であった。ベンゼンは移動発生源からの寄与が大きく、ガソリン中には数%オーダーで含まれており、最近規制が強化されたもののなお%オーダーで含まれていることに変わりはなく、広範な発生源が広く分布している状況にある。そのため常時監視では自動車排ガス測定局として位置付けられており、実際に道路からの距離も近い港

陽の減少率が最大となったものと考えられる。

沿道測定局の上下水道局北営業所では採気口位置を変更している。そのためデータの連続性に問題があり、それほど大きな減少率にはならなかった。また、前述のガソリン中のベンゼン含有率の規制によってベンゼン濃度が下がっているのかについては、月に1日の測定ということもありかつ

他の有害大気汚染物質も同じように減少していることから定かではなく、定量的な評価は難しいものと考えられる。

近傍の固定発生源からの局所的な高濃度汚染が示唆される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、アクリロニトリルについては、地点間濃度差が大きくなった。全地点で濃度減少を示し、とくに白水小学校での減少率が大きくなった。固定発生源が周辺にとくに多く分布しているのは白水小学校であり、周辺固定発生源でのPRTR, Responsible Care等の化学物質削減に対する取り組みが大きな減少率をもたらしたものと考えられる。

地点間濃度差が小さく、特定の発生源の寄与が小さいと考えられる塩化ビニルモノマー、クロロホルム等については、減少はしているものの比較的小さい減少率であった。クロロホルムについては冷房用冷却水に用いる水道水からの揮散等の影響か、かつて比較的高濃度が散見された上下水道局北営業所での減少率が最大となった。

1,3-ブタジエンも表2に示すように、移動発生源からの寄与が大きいいため地点間濃度差は小さくなり、ベンゼンと同じように港陽での減少率が最大となった。ベンゼンとは移動発生源からの寄与が大きいということで共通しており、地点ごとの減少率の大小の傾向も港陽>富田支所>上下水道局北営業所>白水小学校の順で一致しており、減少率自体もおおむね一致している。経年変化グラフを見ても平成10年4月~10月に低濃度であったことや、平成10年12月、平成11年6月・9月、平成14年11月のピーク等がベンゼンの場合と一致しており、月ごとの濃度変動パターンが、よく類似した経年変化グラフとなった。

エチレンオキシドについては19物質中唯一4地点中3地点で濃度上昇傾向が認められた。エチレンのオゾン等による酸化でエチレンオキシドが生成することから、最近のOx濃度の上昇に象徴されるとくに都市域における光化学反応活性の増加の影響が示唆される。

アルデヒド類は炭化水素類の酸化等の光化学反応により生成する寄与が大きい物質のため、気温が高くて紫外線強度も大きく光化学反応活性の高まる春~夏季に高濃度となる傾向が認められた。

また、表2に示すように移動発生源からの寄与も大きく、ベンゼンや1,3-ブタジエンのように地点間濃度差が小さくなった。アセトアルデヒドは全地点で減少傾向にあり、平均減少率は3.5%ほどであった。ホルムアルデヒドは白水小学校を除いて減少傾向にあり、平均減少率としては1.4%ほどで、アセトアルデヒドの方がホルムアルデヒドよりも大きな減少率を示した。

このようにアルデヒド類の濃度が減少傾向にあるのは、排ガス規制等でアルデヒド類生成の元となる大気中炭化水素濃度が減少してきていること等が影響しているものと考えられる。また、炭素数が少なく光化学反応活性も高いホルムアルデヒドの方が減少率が小さく、また白水小学校のみとはいえ増加傾向も認められたことは、最近のOx濃度の上昇に象徴されるとくに都市域における光化学反応活性の増加の影響が示唆される。また、ベンゼンや1,3-ブタジエンと同じように、移動発生源からの寄与が大きいものの経年変化グラフの濃度変動パターンはベンゼンや1,3-ブタジエンとは必ずしも一致しなかった。これはベンゼンや1,3-ブタジエンが移動発生源から一次的に排出されるものがほとんどであるのに対して、アルデヒド類の場合は炭化水素類の酸化等の光化学反応で生成するものの寄与も大きいためであると考えられる。

ベンゾ[a]ピレンはディーゼル車を中心とする移動発生源からの寄与が大きいことから、地点間濃度差が小さくなった。移動発生源からの寄与が大きいということでベンゼンや1,3-ブタジエン等と共通しており、ベンゼンや1,3-ブタジエンの場合と同様に港陽での減少率が最大となった。地点ごとの減少率の大小の傾向も、港陽>富田支所>上下水道局北営業所>白水小学校の順で一致した。経年変化グラフで見ると、ベンゼンや1,3-ブタジエンの場合に認められた平成10年12月、平成12~14年の各11月のピークはベンゾ[a]ピレンの場合も一致して認められた。ベンゼンや1,3-ブタジエンとは移動発生源からの寄与が大きいということで共通しており、やはり同じように月ごとの濃度変動パターンもおおむね一致しているといえる。ただ、ベンゼンや1,3-ブタジエンで認められた春~夏季のピークは検出されず、初冬季

の大気安定によってもたらされる高濃度ピークのみが一致した。このことはガス状物質と粒子状物質の違いが出たものと考えられる。すなわち、春～夏季の大気汚染物質の高濃度は光化学反応の絡んだガス状物質中心の高濃度であるのに対し、初冬季を中心とする高濃度は大気安定・逆転層形成等によるガス状・粒子状物質の両方を含んだ高濃度となるため、ベンゾ[a]ピレンについては初冬季を中心とした冬型高濃度のみが検出されたものと考えられる。

重金属類のうちニッケル化合物・クロムおよびその化合物・マンガンおよびその化合物については、近傍の固定発生源からの局所的な高濃度汚染があり、地点間濃度差が大きくなった。これらの重金属類は全地点で濃度減少を示し、特定の固定発生源が周辺に多い白水小学校でとくに大きな減少率となった。

逆に特定の発生源からの寄与が小さく、地点間濃度差が小さくなったひ素およびその化合物は、減少はしているものの小さな減少率となった。

ベリリウムおよびその化合物も地点間濃度差が小さくなった。測定開始初期には分析法の違いから高い検出下限値であったため見かけ上大きな減少率となったが、平成12年度以降についてみると平均で1.5%ほどの減少率であった。ベリリウムは4月に他の月の10倍ほどの特異的な高濃度で検出されることが多い。春先に中国大陸から飛来する黄砂はカルシウム・マグネシウム等のアルカリ土類金属が特異的に高濃度で検出されることが報告されており³⁾、同族のベリリウムは黄砂の影響で4月に特異的な高濃度で検出されたものと考えられる。

水銀について、平成12年10月以降の増減について見てみると、港陽では増加したものの富田支所と白水小学校では減少した。全体として濃度減少傾向にあることについては、水銀の主要な発生源である廃棄物焼却炉からの排出が一連のダイオキシン対策によって副次的に減少したことおよび乾電池等での水銀使用削減が着実に進んでいること等が影響しているものと考えられる。

3.2 地点間および物質間相関

平成9年10月から平成15年3月にかけての66カ月の測定データについて、ベンゼン・テトラクロ

ロエチレン・アクリロニトリル・1,3-ブタジエン・ベンゾ[a]ピレンについての調査地点間の相関表を表4に、富田支所についての調査物質間の相関表を表5に示す。有意水準0.1%以下の危険率で有意な相関は***で示す。また、表5では4地点すべて(重金属類については3地点すべて)で、有意水準0.1%以下の危険率で有意な相関を示したものに下線を付した。

表4に示す調査地点間の相関ではほとんどの場合有意な相関関係が成り立つものの、特定の固定発生源の影響が大きいと考えられる白水小学校で相関が悪くなる場合が散見された。テトラクロロエチレン・アクリロニトリル・ニッケル化合物

表4 調査地点間相関表

ベンゼン n=66				
	富田	港陽	白水小	水道北
富田	1	***	***	***
港陽	0.880	1	***	***
白水小	0.766	0.715	1	***
水道北	0.901	0.848	0.766	1
テトラクロロエチレン n=66				
	富田	港陽	白水小	水道北
富田	1	***		***
港陽	0.609	1		***
白水小	0.075	-0.146	1	
水道北	0.743	0.463	0.111	1
アクリロニトリル n=66				
	富田	港陽	白水小	水道北
富田	1	***		***
港陽	0.754	1		***
白水小	0.344	0.148	1	***
水道北	0.653	0.429	0.541	1
1,3-ブタジエン n=66				
	富田	港陽	白水小	水道北
富田	1	***	***	***
港陽	0.886	1	***	***
白水小	0.882	0.890	1	***
水道北	0.785	0.883	0.777	1
ベンゾ[a]ピレン n=60				
	富田	港陽	白水小	水道北
富田	1	***	***	***
港陽	0.860	1	***	***
白水小	0.843	0.811	1	***
水道北	0.810	0.802	0.792	1

*** : p<0.001

・クロムおよびその化合物・マンガンおよびその化合物等で、白水小学校は他の調査地点とはまったく関連しない突発的な高濃度となり、他の調査地点との間で有意な相関が得られなかった。それらの物質については、近傍の特定の固定発生源の影響を受けていることを裏づけている。

調査物質間の相関では、表には示していないがやはり特定の固定発生源の影響が大きい白水小学校で有意な相関が少なくなった。移動発生源からの寄与が共通して大きいと考えられるベンゼン、1,3-ブタジエン、ベンゾ[a]ピレンについては経年変化グラフの濃度変動パターンが類似していたことから分かるように、4地点すべてで有意な相関が得られた。この三者間ほどのような組み合わせでも、すべて有意な相関が得られた。

表5に示すように、4地点すべてで有意な相関が得られたのは他にトリクロロエチレン・クロロホルム、アセトアルデヒド・ホルムアルデヒド、ニッケル化合物・クロムおよびその化合物、クロムおよびその化合物・マンガンおよびその化合物の組合せであった。アセトアルデヒドとホルムアルデヒドは同じアルデヒド類で、同じ挙動をするのはごく当然のことといえる。重金属類についても周辺の特定の固定発生源の影響が共通して大きく、地点間濃度差の大きかったニッケル化

物、クロムおよびその化合物、マンガンおよびその化合物の三者間で有意な相関が得られた。

3.3 常時監視データとの相関

図3に平成14年度の有害大気汚染物質モニタリング調査データのうち、ベンゼン・1,3-ブタジエン・アセトアルデヒド・ベンゾ[a]ピレンの測定結果と、常時監視データ(NO・NO₂・SPM)との散布図を示す。また、その相関係数をまとめて表6に示す。常時監視データとしては、4調査地点共通で測定しているものがNO_xとSPMのため、NO・NO₂・SPMの3項目について、有害大気汚染物質モニタリング調査データとの相関を見た。常時監視データは、各々の有害大気汚染物質を測定した時間についての平均濃度を算出して解析に用いた。

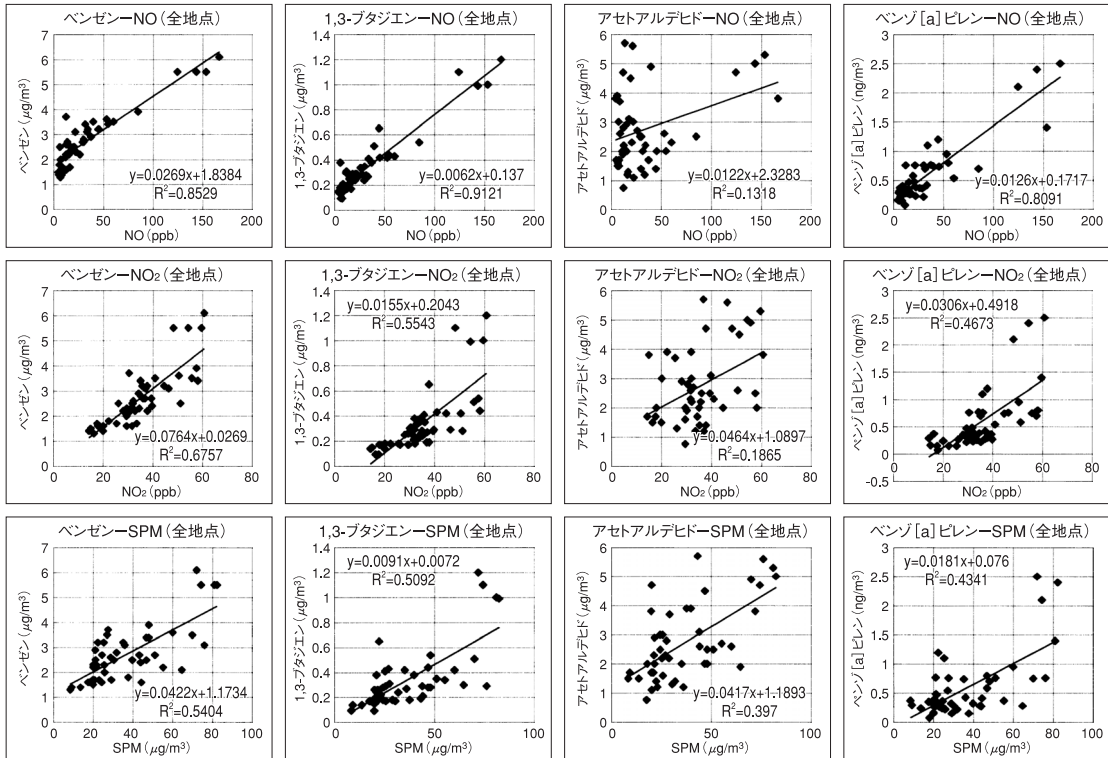
常時監視データのNO・NO₂・SPMのうち、もっとも自動車排ガスからの寄与の指標と見なせるのは、自動車排ガスとして一次排出されるNOであり、次いでNO₂、SPMの順となる。SPMは二次生成等の複雑な因子が絡むため、直接的な自動車排ガスに対する検出力は弱くなる。そのため、移動発生源からの寄与が大きいベンゼン、1,3-ブタジエン、ベンゾ[a]ピレンについてはNOとは相関係数でいずれも0.9以上のもっとも良好な相関を示し、次いでNO₂で0.7~0.8程度の相関

表5 調査物質間相関表(富田支所)

富田支所

	ベンゼン	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	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	エチレンオキシド	アセトアルデヒド	ホルムアルデヒド	ベンゾ[a]ピレン	ニッケル	ひ素	クロム	ベリリウム	マンガン
ベンゼン	1	***	***	***	***		***	***					***					
トリクロロエチレン	0.735	1	***	***	***		***	***					***					
テトラクロロエチレン	0.431	0.569	1	***				***			***					***		***
ジクロロメタン	0.575	0.632	0.496	1			***	***	***									
アクリロニトリル	0.495	0.421	0.354	0.272	1													
塩化ビニルモノマー	0.191	0.126	0.070	0.222	0.214	1												
クロロホルム	0.509	0.533	0.324	0.456	0.152	0.111	1	***										
1,2-ジクロロエタン	0.196	0.441	0.512	0.415	0.343	0.203	0.270	1			***	***						***
1,3-ブタジエン	0.835	0.696	0.289	0.614	0.296	0.260	0.589	0.068	1				***					
エチレンオキシド	-0.165	-0.227	0.012	-0.022	0.156	-0.122	-0.123	0.059	-0.251	1								
アセトアルデヒド	0.127	0.312	0.427	0.192	0.339	0.088	0.114	0.437	0.097	-0.207	1	***						
ホルムアルデヒド	0.091	0.266	0.383	0.295	0.374	0.162	0.139	0.668	0.036	-0.139	0.671	1						
ベンゾ[a]ピレン	0.472	0.420	0.275	0.377	0.067	0.053	0.334	-0.193	0.575	-0.225	0.310	-0.008	1					
ニッケル化合物	-0.117	-0.041	0.374	-0.036	0.140	-0.086	-0.054	0.324	-0.245	0.334	0.314	0.319	0.080	1		***		***
ひ素及びその化合物	-0.046	-0.136	-0.021	-0.033	-0.039	-0.111	0.057	0.069	-0.052	0.220	0.006	0.025	0.110	0.100	1			
クロム及びその化合物	-0.012	0.006	0.402	0.054	0.079	-0.082	0.084	0.469	-0.144	0.156	0.262	0.391	-0.071	0.707	0.176	1		***
ベリリウム及びその化合物	0.221	0.264	0.252	0.063	0.204	-0.094	0.317	0.173	0.207	0.058	0.210	-0.005	0.258	0.151	0.096	0.103	1	
マンガン及びその化合物	0.020	0.040	0.425	0.049	0.094	-0.156	0.201	0.378	-0.044	0.295	0.230	0.324	-0.009	0.603	0.325	0.832	0.237	1
水銀及びその化合物	0.049	-0.171	-0.174	-0.323	0.067	0.002	-0.059	-0.117	-0.033	-0.073	0.054	-0.006	-0.115	0.083	0.003	0.159	0.117	0.191

*** : p<0.001

図3 常時監視データ(NO・NO₂・SPM)との相関

係数, SPMでも0.7程度の相関係数が得られた。いずれも, やはり移動発生源からの寄与が大きいことを証明している。

近隣の固定発生源からの寄与が大きい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, アクリロニトリル等については, NO・NO₂・SPMの項目間での相関の差異は認められなかったが, おおむね近隣の固定発生源が多く分布するほど相関は悪くなり, 白水小学校での相関がもっとも悪くなり, 次いで港陽, 次いで富田支所・上下水道局北営業所という順になった。近隣の固定発生源の影響がもっとも小さいと考えられる富田支所・上下水道局北営業所については, 物質によっては0.9ほどの良好な相関係数が得られる場合もあった。常時監視データ, 有害大気汚染物質モニタリング調査データともに大気安定度等の気象要因が最大の濃度決定の要因として共通しているためと考えられる。

光化学反応活性が高く, 光化学反応等によって二次的に生成するものの寄与も大きいと考えられ

るアセトアルデヒド, ホルムアルデヒド, エチレンオキシド等については, いずれの項目についてもよい相関は得られなかったが, 二次生成の寄与割合の大きいSPMとの相関がもっともよくなり, SPM, NO₂, NOの順に相関が悪くなった。

重金属類についても, いずれの項目についてもよい相関は得られなかったが, 粒子状物質として測定しているため, SPMとの相関がもっともよくなり, SPM, NO₂, NOの順に相関が悪くなった。

4. まとめ

- ① 平成9年10月から15年3月にかけての, 名古屋地域における有害大気汚染物質(19物質)濃度の経年変化については, エチレンオキシドを除くほぼ全物質・全地点について, 濃度は減少傾向にあることが認められた。
- ② ベンゼン・1,3-ブタジエン・ベンゾ[a]ピレンについては, 移動発生源からの寄与が大きく, 地点間濃度差は小さくなり, 類似した濃度変動パターンを示した。

表 6 常時監視データとの相関係数

測定物質	測定地点	n	NO	n	NO ₂	n	SPM
ベンゼン	富田	12	0.957 ***	12	0.883 ***	12	0.879 ***
	港陽	12	0.966 ***	12	0.808 ***	12	0.779 ***
	白水小	11	0.872 ***	11	0.818 ***	12	0.583 *
	水道北	12	0.953 ***	12	0.888 ***	12	0.743
	全地点	47	0.924 ***	47	0.822 ***	48	0.735 ***
トリクロロエチレン	富田	12	0.976 ***	12	0.819 ***	12	0.790 ***
	港陽	12	0.897 ***	12	0.594 *	12	0.676 *
	白水小	11	0.886 ***	11	0.657 *	12	0.299
	水道北	12	0.968 ***	12	0.764 **	12	0.601 *
	全地点	47	0.653 ***	47	0.501 ***	48	0.445 **
テトラクロロエチレン	富田	12	0.381	12	0.535	12	0.679 *
	港陽	12	0.564	12	0.414	12	0.689 *
	白水小	11	0.291	11	-0.188	12	-0.085
	水道北	12	0.806 **	12	0.678 *	12	0.784 **
	全地点	47	0.334 *	47	0.256	48	0.386 **
ジクロロメタン	富田	12	0.825 ***	12	0.936 ***	12	0.905 ***
	港陽	12	0.929 ***	12	0.698 *	12	0.853 ***
	白水小	11	0.443	11	0.345	12	0.664 *
	水道北	12	0.925 ***	12	0.756 **	12	0.796 **
	全地点	47	0.478 ***	47	0.400 **	48	0.652 ***
アクリロニトリル	富田	12	-0.026	12	0.140	12	0.448
	港陽	12	-0.138	12	-0.024	12	0.313
	白水小	11	-0.206	11	0.003	12	-0.074
	水道北	12	0.290	12	0.616 *	12	0.756 **
	全地点	47	-0.111	47	0.040	48	0.173
塩化ビニルモノマー	富田	12	0.839 ***	12	0.661 *	12	0.837 ***
	港陽	12	0.884 ***	12	0.865 ***	12	0.877 ***
	白水小	11	0.755 **	11	0.895 ***	12	0.719 **
	水道北	12	0.138	12	0.596 **	12	0.488
	全地点	47	0.578 ***	47	0.588 ***	48	0.597 ***
クロロホルム	富田	12	0.962 ***	12	0.749 **	12	0.850 ***
	港陽	12	0.739 **	12	0.689 **	12	0.572
	白水小	11	0.343	11	0.307	12	-0.003
	水道北	12	0.286	12	0.313	12	0.104
	全地点	47	0.567 ***	47	0.539 ***	48	0.372 **
1,2-ジクロロエタン	富田	12	0.158	12	0.530	12	0.375
	港陽	12	0.109	12	0.659 *	12	0.442
	白水小	11	-0.017	11	0.436	12	0.318
	水道北	12	0.253	12	0.624 *	12	0.403
	全地点	47	0.076	47	0.462 **	48	0.340 *
1,3-ブタジエン	富田	12	0.961 ***	12	0.790 **	12	0.873 ***
	港陽	12	0.965 ***	12	0.703 *	12	0.722 **
	白水小	11	0.967 ***	11	0.749 **	12	0.652 *
	水道北	12	0.964 ***	12	0.838 ***	12	0.830 ***
	全地点	47	0.955 ***	47	0.745 ***	48	0.714 ***
エチレンオキシド	富田	12	0.258	12	0.438	12	0.752
	港陽	12	-0.044	12	0.027	12	0.446
	白水小	10	0.309	10	0.153	11	0.434
	水道北	12	-0.170	12	-0.313	12	-0.233
	全地点	46	0.044	46	0.091	47	0.282
アセトアルデヒド	富田	12	0.493	12	0.308	12	0.626 *
	港陽	12	0.224	12	0.401	12	0.457
	白水小	11	0.306	11	0.490	12	0.574
	水道北	12	0.526	12	0.556	12	0.787 **
	全地点	47	0.363 *	47	0.432 **	48	0.630 ***
ホルムアルデヒド	富田	12	0.254	12	0.276	12	0.486
	港陽	12	-0.057	12	0.206	12	0.395
	白水小	11	-0.207	11	-0.045	12	0.255
	水道北	12	0.344	12	0.409	12	0.715 **
	全地点	47	0.009	47	0.127	48	0.435 **
ベンゾ[a]ピレン	富田	12	0.989 ***	12	0.774 **	12	0.830 ***
	港陽	12	0.967 ***	12	0.673 **	12	0.718 **
	白水小	11	0.950 ***	11	0.772 **	12	0.576 *
	水道北	12	0.946 ***	12	0.873 ***	12	0.838 ***
	全地点	47	0.899 ***	47	0.684 ***	48	0.659 ***
ニッケル化合物	富田	12	0.083	12	0.274	12	0.540
	港陽	12	0.072	12	0.557	12	0.731 **
	白水小	11	0.601	11	0.286	12	0.158
	全地点	35	0.230	35	0.286	36	0.391 *
	富田	12	0.041	12	0.451	12	0.675 *
ひ素及びその化合物	港陽	12	0.146	12	0.437	12	0.680 *
	白水小	11	0.474	11	0.673 *	12	0.705 *
	全地点	35	0.212	35	0.547 ***	36	0.654 ***
	富田	12	-0.089	12	0.219	12	0.469
	港陽	12	-0.048	12	0.493	12	0.569
クロム及びその化合物	白水小	11	0.664 *	11	0.169	12	0.054
	全地点	35	0.230	35	0.232	36	0.314
	富田	12	-0.129	12	0.019	12	0.297
	港陽	12	-0.020	12	0.122	12	0.385
	白水小	11	-0.097	11	0.000	12	0.201
ベリリウム及びその化合物	全地点	35	-0.076	35	0.081	36	0.301
	富田	12	0.168	12	0.412	12	0.771 **
	港陽	12	0.155	12	0.468	12	0.753 **
	白水小	11	0.182	11	0.033	12	0.099
	全地点	35	0.143	35	0.344 *	36	0.490 **
水銀及びその化合物	富田	12	-0.074	12	-0.076	12	0.175
	港陽	12	0.309	12	0.295	12	0.240
	白水小	11	0.577	11	0.152	12	0.001
	全地点	35	0.181	35	0.240	36	0.274

*** : p<0.001で有意な相関係数
 ** : p<0.01で有意な相関係数
 * : p<0.05で有意な相関係数

- ③ 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・アクリロニトリル・ニッケル・クロム・マンガンについては、固定発生源からの寄与が大きく、地点間濃度差は大きくなり、固定発生源が周辺に多く分布している測定局での減少率が大きくなった。化学物質削減に対する取り組みの成果と考えられる。
- ④ アルデヒド類については、移動発生源からの寄与が大きく、光化学反応活性の高まる春～夏季に高濃度となる傾向が認められた。
- ⑤ 地点間相関ではほとんどの場合有意な相関関係が成り立つものの特定の固定発生源の影響が大きいと考えられる測定局で、相関が悪くなる場合が散見された。
- ⑥ 物質間相関では特定の固定発生源の影響が大きい測定局で有意な相関が少なくなった。また、移動発生源からの寄与が共通して大きいと考えられるベンゼン・1,3-ブタジエン・ベンゾ[a]ピレンについては、全地点で互いに有意な相関が得られた。重金属ではニッケル・クロム・マンガで、互いに有意な相関が得られた。
- ⑦ 常時監視データとの相関では移動発生源からの寄与が大きいベンゼン・1,3-ブタジエン・ベンゾ[a]ピレンについては、NOで0.9以上>NO₂>SPMの順でよい相関が得られた。近傍の固定発生源からの寄与が大きい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・アクリロニトリルについては、近傍の固定発生源が多く分布するほど相関は悪くなった。また、光化学反応活性の高いエチレンオキシド・アルデヒド類については、二次生成の寄与割合が大きいSPMとの相関がもっともよくなった。

—引用文献—

- 1) 経済産業省製造産業局化学物質管理課，環境省環境保健部環境安全課：平成14年度 PRTR データの概要 —化学物質の排出量・移動量の集計結果—，平成16年3月
- 2) 経済産業省製造産業局化学物質管理課，環境省環境保健部環境安全課：平成14年度 PRTR 届出外排出量の推計方法等の概要，平成16年3月
- 3) 山神真紀子，北瀬勝，中島寛則，酒井哲男：名古屋市における黄砂観測時の大気エアロゾルについて，第44回大気環境学会年会講演要旨集，p. 627(3B1000)，2003