

<報 文>

大阪市内における降下ばいじんの長期観測*

船坂邦弘**・増田淳二**

キーワード ①降下ばいじん ②長期観測 ③不溶性物質 ④溶解性物質 ⑤傾向検定

要 旨

大阪市内の降下ばいじん量について長期的な観測結果を考察した。過去に比べて急激ではないが、不溶性物質量は最近15年間のスケールでも単回帰による減少傾向が確認された。一方で、溶解性物質量は減少傾向が明確ではなくなってきており、不溶性物質量の降下ばいじん量に対する比率もこれらの結果を反映していた。近年の傾向を詳細に把握するには、降雨中の成分分析など越境汚染の影響も視野に入れた検討が必要と思われる。

1. 緒 言

降下ばいじんは大気中の汚染物質のうち自己の重量により、または雨によって沈降するばい煙、粉じんその他の不純物を表すものであり¹⁾、簡便な手法により捕集することが可能である。降下ばいじん調査は、古くは1906年(明治39年)頃より英国で開始された²⁾。国内においては、産業化に伴う煤煙への関心が高まり、1911年(明治44年)に大阪で煤煙防止研究会が結成され、1913-1914年(大正2-3年)に日本で初めての降下ばいじん測定が行われた³⁾。その後、第一次世界大戦の戦渦により中断されたが、再び煙害への懸念が拡がり、1924-1925年(大正13-14年)に測定が行われた。1928年(昭和3年)からは大阪市立衛生試験所(現：大阪市立環境科学研究所)が継続的な測定を開始した。図1は当時の降下ばいじん測定の様子を示しており、英国製のデポジットゲージ(Deposit Gauge, 以下 DG と略す)に倣い、亜鉛板を加工して四平方尺(0.606m×0.606m)の漏斗

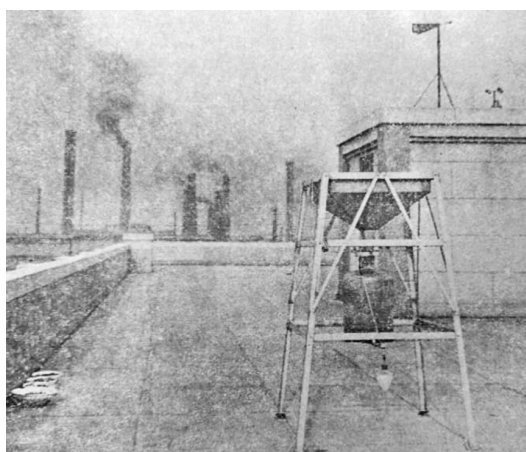


図1 降下ばいじんの採取⁴⁾

大正12-13年頃に撮影。英国式デポジットゲージが設置され、周囲では煙突からの煙が立ち上がっている様子が分かる

を作製し、受器には25Lのガラス瓶を設置したとされている。当初は捕集した降下ばいじんのうち、ろ過物の重量(すなわち不溶性物質質量)のみが測定されていた。藤原ら⁴⁾は大正時代の測定結

*Long-term Observation of Dust Fall in Osaka City

**Kunihiro FUNASAKA, Junji MASUDA (大阪市立環境科学研究所) Osaka City Institute of Public Health and Environmental Sciences

果について比較検討を行っており、その原著を図2に示す。大正年間に福島方面(九条)、船場方面(中之島)、天王寺方面で大きく増加しており、平均でも十数年の間にはばいじん量が増加したと記述している。なお、現在の単位への換算を試みると、1913-1914年の平均値14.9 [ton/(km²・month)]から1924-1925年の16.3 [ton/(km²・month)]へ9.4%の増加があったものと推定される。さらに、測定結果を英国各都市のそれと比較しており(図3)、大阪旧市ではロンドンやグラスゴーよりも高く、マンチェスターやリバプールに匹敵する濃度であったことが示されている⁵⁾。

その後は、第二次世界大戦と産業復興を経ながら現在までほぼ継続的に調査が行われ、最初の測定が行われてから約100年、継続的な調査が開始されてから約90年に達しようとしている。本稿で

は、降下ばいじんの長期観測結果について過去の動向を探るとともに、近年の傾向について若干の考察を行った。

2. 方 法

2.1 調査期間、調査地点および試料採取方法

大阪市において降下ばいじんの継続的な調査を開始した1928年から2012年までの85年間の測定結果⁶⁻¹³⁾を対象とした。観測が長期にわたるため年度によって調査地点の増減はあるが、原則、欠測日数が年間暦日数の25%未満である場合の結果について資料を再編した。文献から得られた調査地点の区域とその数を表1に示す。試料の採取は、測定開始時点から1957年まではすべての測定点でDG法を採用していたが、1958年以降はより簡便なダストジャー(Dust Jar, 以下DJと略す)法を

故に今若シ次表ノ如ク大正二、三年ト同一ノ方面ニ於ケル成績ノミヲ摘記シ比較スル時ハ過去十年以前ニ比シ、吾ガ大阪市ノ煤煙量ガ如何ニ増加セシカヲ確カメ得ルノデアル。

	大正二、三年調査	大正十三、四年調査
福島方面(九条)	50.93 瓦	76.16 瓦
西九条方面	129.89 瓦	105.95 瓦
天満方面(堀川)	126.28 瓦	85.28 瓦
難波方面	66.84 瓦	68.67 瓦
築港方面	31.93 瓦	38.58 瓦
船場方面(中之島)	24.54 瓦	82.06 瓦
天王寺方面	28.83 瓦	49.84 瓦
平均	65.61 瓦	71.65 瓦

(備考) 四平方尺上一ヶ年降下煤塵量瓦ニテ示ス、括弧内ハ余等ノ行ヒタル調査場所

図2 測定初期の降下ばいじん量(不溶解性物質)の比較⁴⁾

大正2-3年と大正13-14年の調査結果について、同一方面で測定したばいじん量を比較している。地域にもよるが、平均でばいじん量の増加を確認している。単位は、[g/(四平方尺・年)]

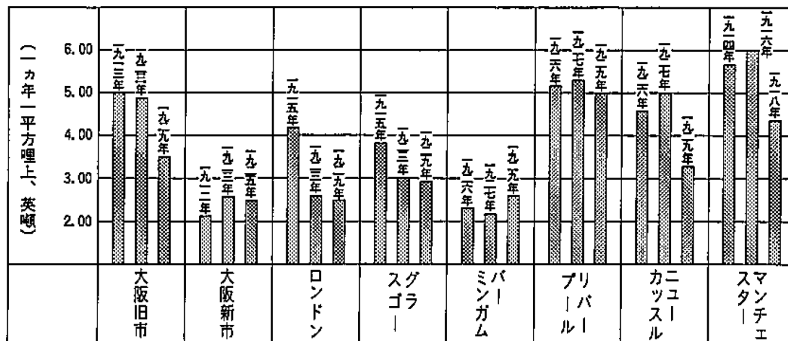


図3 大阪市と英国各都市における降下ばいじん量の比較⁵⁾

単位：[英トン/(四平方尺・年)]

表1 大阪市内における降下ばいじんの調査地点とその数

調査年度	調査地点数	調査区域
1928-1942	8-28	築港方面(現港区)、春日出方面(現此花区)、九條方面(現西区)、西九條方面(現此花区)、天六方面(現北区)、船場方面(現中央区)、難波方面(現中央区)、海老江方面(現福島区)、今里方面(現東成区)、十三方面(現淀川区)など
1943-1954	1	北区
1955-1967	5-15	北区、此花区、西区、大正区、東成区、西淀川区、東淀川区、東住吉区、生野区、城東区、西成区、阿倍野区、住吉区、旧東区、旧南区
1968-1998	15	北区、此花区(2地点)、西区、大正区(2地点)、西淀川区、淀川区、東淀川区、生野区、旭区、城東区、住之江区、平野区、西成区
1999-2004	10	北区、此花区、大正区(2地点)、西淀川区、淀川区、旭区、城東区、平野区、西成区
2005-2012	4	城東区、西淀川区、平野区、大正区、天王寺区(2005-2007のみ)

導入し、1地点のみをDG法として、併行測定を行った。2005年以降はすべての地点でDJ法による調査を行った。なお、1968-1969年にかけてDJ法とDG法の併行測定が行われた結果、DG法の値はDJ法のその1.1-1.3倍であった⁸⁾と報告されている。

2.2 調査項目

DG法・DJ法とも、原則1カ月間の降下ばいじんの捕集を行ったのち、各項目を測定した¹⁾。ただし、DJ法では試料を密栓後、冷却保存して3カ月分をまとめて処理した。試料中に異物がある場合はこれを除去したのちに試料全量をあらかじめ恒温恒湿条件(気温20℃、相対湿度50%)下で秤量したろ紙(ADVANTEC、定量ろ紙No.5 C、セルロース、110mmφ)を用いて捕集容器の壁面を洗浄しながら吸引ろ過した。ろ紙はその後、105℃で2時間加熱処理を施した後、先の恒温恒湿条件下で秤量し、重量差から不溶解性物質を算出した。ろ液のうち500mLを採取し、あらかじめ恒温恒湿条件下で秤量したガラスシャーレに移して穏やかに加温し、蒸発乾固後再び同条件下でシャーレを秤量して溶解性物質を測定した。この他、不溶解性物質に含まれる重金属(Fe、Pb、Mn、Ni、Cr)濃度、タール量、灰分量などの測定も実施しているが、本稿では省略する。なお、本法による検出下限(3σ)は、不溶解性物質で

0.048 [ton/(km²・month)]、溶解性物質で0.077 [ton/(km²・month)]であった。

2.3 長期的な減少傾向の検定

降下ばいじんに含まれる不溶解性物質、溶解性物質および不溶解性物質の降下ばいじん量に対する比率について、調査期間別の変動傾向の検定を行った。手法は気象分野で用いられる時系列データに対するt検定およびMann-Kendall検定によった¹⁴⁻¹⁵⁾。

3. 結果と考察

3.1 大阪市内における降下ばいじん量経年変化

降下ばいじんの測定結果より1928年から2012年までの市内全測定地点の年平均値(以下、全市内平均値とする)を算出し、**図4**に経年変化として示す。不溶解性物質と溶解性物質の和で表される降下ばいじん量は、第二次世界大戦後の産業立て直しとともに増加し、1957年(昭和32年)に最大となる25.2 [ton/(km²・month)]を記録した。その後は大幅な減少に転じ、1981年には総量が5 [ton/(km²・month)]を下回り、1989年まで緩やかな減少傾向が確認される。1990年から2000年までは、増減を繰り返す横ばいの状況であったが、2001年から現在にかけて漸減している。戦前の溶解性物質についての資料は乏しいが、1937-1940年(昭和12-15年)にかけて試料ろ液の分析が試みられている⁶⁾。当時の文献値により、天六方面(北区衛生研究所)における4年間の平均値を計算したところ、不溶解性物質9.3 [ton/(km²・month)]、溶解性物質9.5 [ton/(km²・month)]、降下ばいじん総量18.8 [ton/(km²・month)]、不溶解性物質の降下ばいじん量に対する比率は0.49と見積もられた。これらの値は戦後の1950年頃の状況に相当する。

次に降下ばいじん濃度と規制等との関係を振り返る。緒言で述べたように、ばいじん計の作製と測定が大阪市内で行われたのは1913年であったが、継続的な調査は実施されなかった。藤原¹⁶⁾によると、明治から大正にかけて大気汚染防止運動が高まる状況は大きく4度あったが、度重なる戦争によって、いずれも継続的な発展には至らなかったようである。煤煙に関する規制については、1927年に煤煙防止調査委員会が結成された後

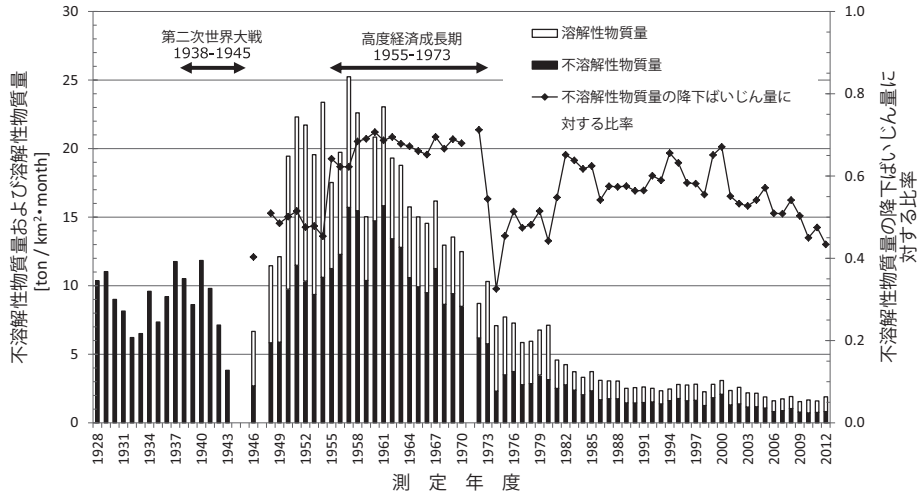


図4 大阪市内における降下ばいじんの経年変化(全市内平均値)

1928-1957年はDG法、1958年以降はDJ法による。1943-1954年は、北区(衛生研究所屋上)のみで測定を実施した。1967年以前は1月-12月の平均値、その後は4月-翌年3月の平均値を示す

の1932年に煤煙防止規則(大阪府令)が公布されている。図4では1937年から1943年までに不溶性物質が順次減少していった(1940-1941年を除く)が、当時の規制の効果は不明であり、戦時中の工場疎開による影響が大きかったと考えられている¹⁷⁾。その後は、1962年に煤煙規制法が、1968年に大気汚染防止法が制定され、公害問題に対する関心とともに大幅な減少につながったことが推察される。固定発生源の窒素酸化物に対しては、1973年に第一次規制が行われて以降、規制値の見直しを進める一方で、小型ボイラー等についてもNO_x排出濃度ガイドラインが作成された。また、1992年には自動車NO_x法が制定され、その後、2001年に粒子状物質も含めた自動車NO_x・PM法へと改正された。また、2003年には首都圏を中心にディーゼル車走行規制が行われて以降は、粒子状物質濃度の低下につながった。これらの対策により、降下ばいじん量はわずかずつではあるが、減少したものと考えられる。

図4には不溶性物質量の降下ばいじん量に対する比率も併せて示している。1946-1954年と1973-1980年は比率が低く、その原因と傾向は明らかではないが、1982年以降は測定年度により変動はあるものの漸減傾向が示唆される。

3.2 不溶性物質と溶解性物質の推移

測定結果の詳細が残っている1978-2012年まで

のデータを基に、不溶性物質および溶解性物質量の3カ月ごとの全市内平均値を図5に示す。全市内平均値は、両者とも1990年頃までに大きく減少し、その後は横ばいもしくは漸減状態で推移している。不溶性物質量が上昇している期間が周期的にみられるが、このうち多くは図中の縦補助目盛で示すように4-6月期の測定値に相当しており、黄砂を含む風送ダストの影響を大きく受けたためと推定される。近年では、1997年、2000年、2002年が顕著であった。表1に示したように、測定地点とその数は長期にわたる観測の間に廃止や変更があるため、1978-2012年の期間にほぼ継続して調査を行った一般大気環境測定局3地点(大正区・平尾小学校局、城東区・聖賢小学校局、平野区・摂陽中学校局)の平均値(以下、継続3地点平均値)の推移も併せて図示した。測定期間によっては市内平均値の方が継続3地点平均値よりもやや不溶性物質量が高い場合がみられるものの、長期的な傾向は類似していた。なお、2009年半ば頃からは、溶解性物質量が不溶性物質量を上回る場合が顕著にみられる。このことは近年の特徴といえる。

3.3 不溶性物質量の降下ばいじん量に対する比率の推移

図6は不溶性物質量の降下ばいじん量に対する比率の3カ月ごとの変動を示している。1999年

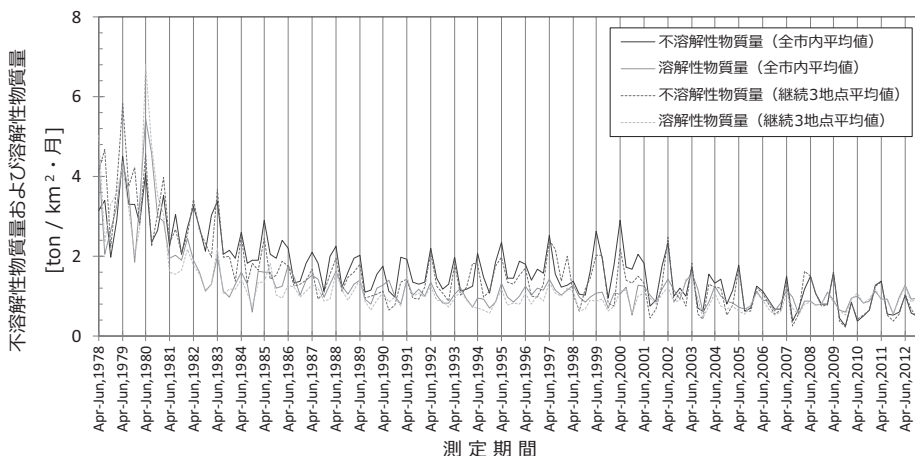


図5 全市内平均値と継続3地点平均値の3カ月ごとの推移(1978-2012)

大正区では2005-2007年度は未測定。城東区における1983年1-3月および2012年7-9月、大正区における1988年1-3月、1998年4-6月および2010年4-6月は欠測である。

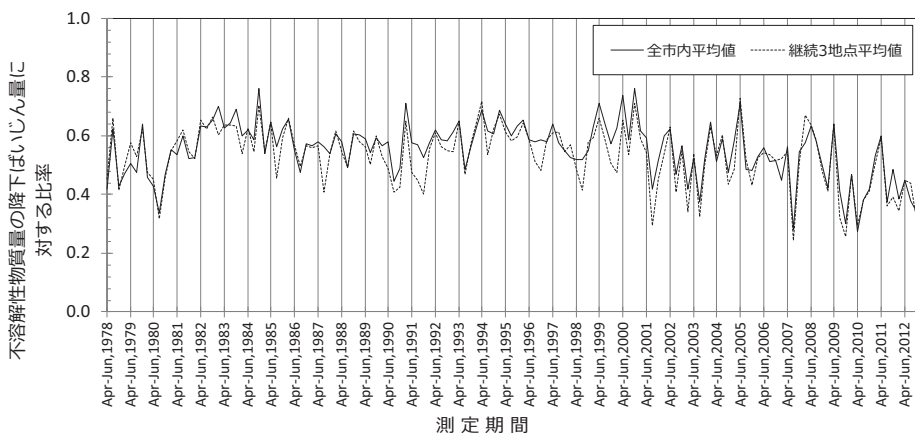


図6 不溶性物質質量の降下ばいじん量に対する比率の3カ月ごとの変化(1978-2012)

大正区では2005-2007年度は未測定。城東区における1983年1-3月および2012年7-9月、大正区における1988年1-3月、1998年4-6月および2010年4-6月は欠測である

と2000年の4-6月期はやや市内平均値の方が継続3地点平均値より高かったが、2002年以降は両平均値とも比較的類似した傾向で推移している。なお、2001年から2002年にかけての比率の減少傾向は、鳥取市内でも報告されている¹⁸⁾。

不溶性物質はアルミニウムや鉄などを多く含むことから、測定局周辺における土壌の巻き上げ、工場・事業場からの発じん¹⁹⁾の他、黄砂を含む風送ダストによる影響も受ける。一方、溶解性物質は硫酸イオンやアンモニウムイオンに代表されるように、湿性大気汚染あるいは酸性雨²⁰⁾との

関わりも深い。エアロゾルの沈降速度とガス状物質の降水への取り込みを考慮すると、ガス状物質の方が大気中での滞留時間は長いので、溶解性物質として取り込まれやすいことが推定される。図4および図6における1970年代の比率の低下要因は明確ではないが、当時の状況を考慮すると、固定発生源における亜硫酸ガス(SO₂)や浮遊粒子状物質(SPM)の対策が急激に進む中でこれらの濃度が大きく低下し²⁰⁾、結果的に降下ばいじんの“質”、すなわち成分組成が一時的に変化したためと思われる。

3.4 長期的な経年変化に対する傾向検定結果

表2は継続3地点における調査期間別の時系列に対するt検定の結果であり、単回帰分析による相関係数(R)および傾き(slope)として示している。1978年-2012年(35年間)および1983年-2012年(30年間)の検定結果は、不溶解性物質質量・溶解性物質質量ともに時系列に対して負の係数を持つ有意な直線関係($R=0.41-0.69$, $n=120-140$, $p<0.001$)となった。しかしながら、1993-2012年(20年間)、1998-2012年(15年間)の場合は、不溶解性物質質量のみが有意相関となっており、このことは不溶解性物質質量の降下ばいじん量に対する比率の検定結果にも反映されていた。また表3には、同じく時系列に対するMann-Kendall検定の結果をTau値とともに示した。不溶解性物質質量は35年間、30年間、25年間、20年間で強い減少傾向を、15年間では弱い減少傾向を示したが、溶解性物質質量は、t検定結果と同様35年間および30年間の検定結果のみが有意であった。

以上のことから、30年以上のスケールでみた場合、長期的な減少傾向は、不溶解性物質質量、溶解性物質質量および不溶解性物質の降下ばいじん量に

対する比率のすべてで確認されたが、2003-2012年(10年間)や2008-2012年(5年間)の比較的短い調査期間では減少傾向を明確に示すことはできなかった。これは、過去において規制等による大気汚染物質の対策が降下ばいじん量の大幅な削減につながった一方で、近年は対策が困難になってきたことを意味すると思われる。

とくに溶解性物質質量については、近年は減少傾向にあるとはいえ、その要因を詳細に把握するにはPM_{2.5}や酸性雨などと同様、越境汚染も視野に入れた試料の成分分析が重要と考えられる。

ま と め

大正時代に開始された大阪市内の降下ばいじんの測定結果を振り返るとともに、1928-2012年までの85年間における経年変化について考察した。降下ばいじん量の全市内平均値は1957年をピークに大幅な減少となったが、1990年代以降は横ばいもしくは漸減状態で推移していた。1978年以降の時系列変化に対して傾向検定を行ったところ、不溶解性物質質量は最近15年間でも有意な減少傾向にあったが、溶解性物質質量の減少は明確ではなかつ

表2 継続3地点における時系列に対するt検定の結果

項目	開始年度	終了年度	調査年数	n	slope	R
不溶解性物質質量	1978	2012	35	140	-0.0654	0.69 ***
	1983	2012	30	120	-0.0346	0.53 ***
	1988	2012	25	100	-0.0300	0.42 ***
	1993	2012	20	80	-0.0494	0.53 ***
	1998	2012	15	60	-0.0487	0.42 ***
	2003	2012	10	40	-0.0398	0.27
	2008	2012	5	20	-0.0780	0.29
溶解性物質質量	1978	2012	35	140	-0.0500	0.56 ***
	1983	2012	30	120	-0.0130	0.41 ***
	1988	2012	25	100	-0.0073	0.23 *
	1993	2012	20	80	-0.0024	0.06
	1998	2012	15	60	-0.0010	0.02
	2003	2012	10	40	0.0151	0.20
	2008	2012	5	20	0.0430	0.34
不溶解性物質質量の 降下ばいじん量に 対する比率	1978	2012	35	140	-0.0032	0.32 ***
	1983	2012	30	120	-0.0049	0.41 ***
	1988	2012	25	100	-0.0055	0.38 ***
	1993	2012	20	80	-0.0099	0.51 ***
	1998	2012	15	60	-0.0100	0.38 **
	2003	2012	10	40	-0.0159	0.40 *
	2008	2012	5	20	-0.0297	0.39

各開始年度の4-6月期を基準とし、終了年度までの経過年月に対して係数を決定した。
nはデータ数を示す。*** $p<0.001$, ** $p<0.01$, * $p<0.05$

表3 継続3地点における時系列に対する Mann-Kendall 検定の結果

項目	開始年度	終了年度	調査年数	n	Tau	
不溶性物質質量	1978	2012	35	140	-0.52	***
	1983	2012	30	120	-0.37	***
	1988	2012	25	100	-0.29	***
	1993	2012	20	80	-0.37	***
	1998	2012	15	60	-0.28	**
	2003	2012	10	40	-0.16	
	2008	2012	5	20	-0.14	
溶解性物質質量	1978	2012	35	140	-0.44	***
	1983	2012	30	120	-0.26	***
	1988	2012	25	100	-0.12	
	1993	2012	20	80	-0.021	
	1998	2012	15	60	0.023	
	2003	2012	10	40	0.22	*
	2008	2012	5	20	0.30	
不溶性物質質量の 降下ばいじん量に 対する比率	1978	2012	35	140	-0.21	***
	1983	2012	30	120	-0.27	***
	1988	2012	25	100	-0.24	***
	1993	2012	20	80	-0.36	***
	1998	2012	15	60	-0.26	**
	2003	2012	10	40	-0.28	**
	2008	2012	5	20	-0.23	

Tau は Mann-Kendall 検定による τ 値を表す。n はデータ数を示す。

*** p < 0.001, ** p < 0.01, * p < 0.05

た。近年の傾向を詳細に把握するには、酸性雨調査等による長期的な成分組成の変動解析も待たれるところである。

謝 辞

大阪市環境局(旧環境保健局)をはじめ、多数の方が携わったデータを扱う機会を得たことおよび作業に協力いただいた方々に感謝します。また、今回、データを収集するに当たり、大正年間や戦時中の厳しい時代も環境調査を継続された諸先輩方に敬意を表します。

一引用文献一

- 1) 日本薬学会編：衛生試験法・注解, p.991, 金原出版, 2005
- 2) 庄司 光, 田中新吾：降下煤塵の測定方法並に測定成績, 日本衛生化学会誌 **11**, 227-247, 1939
- 3) 伊東彊白：大阪の大気中の塵埃：日本學術振興會災害科學研究所, p. 92, 1940
- 4) 藤原九十郎, 萩野秀壽, 岡本芳太郎：都市ノ煤塵ト其ノ防止問題, 国民衛生 **3**, 1077-1095, 1927

- 5) 大阪市公害対策史(叻地球環境センター, p.7, 1994
- 6) 大阪市立衛生試験所事業成績概要, 1928-1941
- 7) 大阪市立生活科學研究所事業成績概要, 1942-1949
- 8) 大阪市立衛生研究所報告, 1950-1973
- 9) 大阪市立環境科學研究所報告, 1974-1978
- 10) 大阪市環境保健局：大気汚染濃度測定結果, 1979-1999
- 11) 大阪市都市環境局：大気汚染濃度測定結果, 2000-2005
- 12) 大阪市環境局：大気汚染濃度測定結果, 2006-2007
- 13) 大阪市環境局：環境データ集, <http://www.city.osaka.lg.jp/kankyo/page/0000144206.html>, 2008-2012
- 14) 鈴木啓助：中部山岳地域における気象観測の現状とその意義, 地学雑誌 **122**, 553-570, 2013
- 15) 東 博紀, 越川 海, 木幡邦男, 村上正吾, 水落元之：伊勢湾における気温・風速の長期変動傾向とそれに伴う流動・水質の変化, 海岸工學論文集 **55**, 1041-1045, 2008
- 16) 藤原九十郎：大気汚染防止運動の回顧 第二次大戦後の防止活動瞥見, 生活衛生 **11**, 93-101, 1967
- 17) 藤原九十郎：大気汚染防止運動の回顧, 生活衛生 **10**, 144-146, 1966
- 18) 鳥取県衛生環境研究所報, http://www.pref.tottori.lg.jp/secure/782385/annual_report_vol43_3_10.pdf, 2002
- 19) 藤田慎一：電中研レビュー, **43**, <http://criepi.denken.or.jp/research/review/No43/chap-1.pdf>, 2001
- 20) 大阪市環境白書：<http://www.city.osaka.lg.jp/kankyo/cmsfiles/contents/0000020/20909/19-33.pdf>, 2008