

千葉県における有害大気汚染物質等の経年変化

高橋 洋平

1 はじめに

有害大気汚染物質とは、「低濃度であるが長期曝露によって人の健康を損なうおそれのある物質」であり、1996年の中央環境審議会において、「有害大気汚染物質に該当する可能性がある物質」と「その中でも有害性の程度や大気環境の状況等に鑑み健康リスクがある程度高いと考えられる優先取組物質」がリスト化された。さらに、1998年から、大気汚染防止法に基づき、有害大気汚染物質による大気汚染の状況を把握するための調査（以下、「モニタリング調査」とする。）が地方公共団体の努力義務とされており、対象物質は「大気汚染防止法第22条の規定に基づく大気汚染の状況の常時監視に関する事務の処理基準について」に、測定方法は「有害大気汚染物質等測定方法マニュアル」（以下、「測定方法マニュアル」とする。）²⁾にそれぞれ定められている。

当センターでは、有害大気汚染物質等の県内の汚染状況及び経年変化を把握することを目的に、大気保全課の「化学物質大気環境調査」の一環として、毎月モニタリング調査を実施し、毎年度、調査結果をとりまとめ報告している³⁾。しかし、県内全地点平均の経年変化の報告はあるが、県内各地点の長期的な経年変化等に注目した報告は、ほとんどされていない。

そこで、有害大気汚染物質等の経年変化及び濃度変動の要因に関する知見を得ることを目的に、PRTR制度によって得られる各物質の環境中への排出量との関係も含め、解析を行ったので、その結果を報告する。

2 調査方法等

2・1 対象地点及び対象期間

対象地点を表1及び図1-1に、対象期間を図1-2に示す。対象地点は、2022年度まで継続的に同一地点でモニタリング調査が実施されている9地点とした。このうち、市原市岩崎西、君津市久保及び袖ヶ浦市長浦は、東京湾臨海部に位置し、周辺の大規模事業所に

よる影響の把握に適した地点である一方、鴨川市清澄は、清澄山の山中に位置し、近隣に事業所が少なく、特定の発生源による影響を受けにくいいため、バックグラウンドとして適した地点である。

表1 対象地点

地点名	施設名	住所
銚子市小畑新町	銚子市市民センター	銚子市小畑新町7756
館山市亀ヶ原	館山亀ヶ原局	館山市亀ヶ原754
成田市加良部	成田加良部局	成田市加良部5-11
市原市岩崎西	市原岩崎西局	市原市岩崎西1-8-8
君津市久保	君津久保局	君津市久保2-11
袖ヶ浦市長浦	袖ヶ浦長浦局	袖ヶ浦市長浦駅前6-1-4
白井市七次台	白井七次台局	白井市七次台3-22
東庄町石出	東庄町シルバー人材センター	香取郡東庄町石出2692-15
鴨川市清澄	清澄防災無線中継局	鴨川市清澄飛越321-8

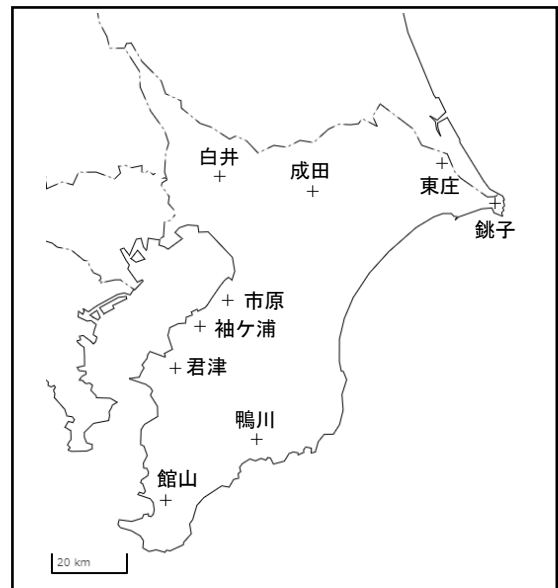
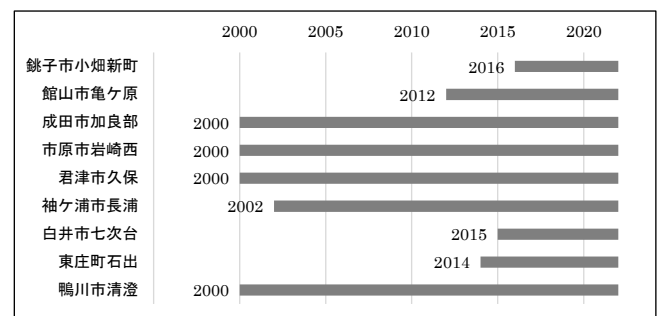
図1-1 対象地点位置図⁴⁾

図1-2 対象期間

2・2 対象物質

表 2 に、対象物質及びその環境基準等を示す。これらの物質について、測定方法マニュアルに従い、月 1 回 24 時間採取を実施し、年平均値を算出した。なお、対象物質のうち、塩化メチルとトルエンは、2010 年度から測定を開始し、対象地点のうち、白井市七次台及び東庄町石出では、表 2 中*の物質のみを対象としている。

表 2 対象物質及び環境基準等

環境基準が設定されている物質

No	物質名	単位	環境基準 ^{注1)}	基準等設定時期
1	ベンゼン*	µg/m ³	3以下	1997年
2	トリクロロエチレン*	µg/m ³	130以下	2018年 ^{注2)}
3	テトラクロロエチレン*	µg/m ³	200以下	1997年
4	ジクロロメタン*	µg/m ³	150以下	2001年

指針値が設定されている物質

No	物質名	単位	指針値 ^{注1)}	基準等設定時期
5	アクリロニトリル*	µg/m ³	2以下	2003年
6	塩化ビニルモノマー*	µg/m ³	10以下	2003年
7	水銀及びその化合物	ngHg/m ³	40以下	2003年
8	ニッケル化合物	ngNi/m ³	25以下	2003年
9	クロロホルム*	µg/m ³	18以下	2006年
10	1,2-ジクロロエタン*	µg/m ³	1.6以下	2006年
11	1,3-ブタジエン*	µg/m ³	2.5以下	2006年
12	ヒ素及びその化合物	ngAs/m ³	6以下	2010年
13	マンガン及びその化合物	ngMn/m ³	140以下	2014年
14	アセトアルデヒド	µg/m ³	120以下	2020年
15	塩化メチル*	µg/m ³	94以下	2020年

環境基準又は指針値が設定されていない物質

No	物質名	単位
16	酸化エチレン	µg/m ³
17	ベンゾ[a]ピレン	ng/m ³
18	ホルムアルデヒド	µg/m ³
19	ベリリウム及びその化合物	ngBe/m ³
20	クロム及びその化合物	ngCr/m ³
21	トルエン*	µg/m ³

注 1) 年平均値

注 2) 1997 年当初に 200µg/m³ と設定されたが、2018 年に改定された

2・3 PRTR 制度に基づく排出量

有害大気汚染物質等の濃度変動が起こる要因の一つとして、対象物質の環境中への排出による影響が考えられる。そのため、排出量と濃度変動の関係や、排出量の経年変化を把握するために、PRTR 制度に基づく排出量を用いることとした。

PRTR 制度とは、「人の健康や生態系に有害なおそれのある化学物質が、事業所から環境（大気、水、土壌）へ排出される量及び廃棄物に含まれて事業所外へ移動する量を、事業者が自ら把握し国に届け出をし、

国が届出データや推計に基づき、排出量・移動量を集計・公表する制度」であり、2001 年 4 月からの集計結果がホームページ上で公表されている。

届出外排出量とは、届出要件を満たさない事業所や家庭及び移動体からの排出量を、国が都道府県単位で推計した値である。

本報告では、本県へ届出された大気への排出量（以下、「届出排出量」とする。）及び本県の届出外排出量を使用した。

なお、対象物質のうち、ヒ素及びその化合物は、ヒ素及びその無機化合物の排出量を使用し、ベンゾ[a]ピレンとベリリウム及びその化合物は除外した。

2・4 解析方法

2・4・1 年間増減率の算出

対象地点における対象物質の濃度傾向を定量的に把握するため、年ごとの増減率（以下、「年間増減率」とする。）を算出した。なお、年間増減率は、各地点において、各物質の最大値を 100 として規格化したデータの傾きであり、年ごとの%単位での増減率として、%/年と表記し算出した。

2・4・2 届出排出量等との相関係数の算出

濃度変動の要因に関する知見を得る上で、対象物質の濃度変動と届出排出量の関係を定量的に把握することは重要である。そのため、対象地点における対象物質濃度の年平均値と届出排出量との相関係数を算出した。また、届出外排出量による影響も併せて確認するため、届出排出量に届出外排出量を加えた推計排出量との相関係数も算出した。なお、算出に当たっては、2002～2021 年度の値を使用した。

相関係数を比較した地点は、20 年以上継続して調査を実施している成田市加良部、市原市岩崎西、君津市久保、袖ヶ浦市長浦及び鴨川市清澄の 5 地点とした。

2・4・3 対象物質の経年変化の把握

対象物質の各年度の濃度及び推計排出量を把握するため、全 9 地点における年平均値及び推計排出量の経年変化を確認した。なお、今回は全体的な傾向を把握することを目的としており、特定の年度における濃度上昇等について、詳細な検討及び考察は行っていない。

2・4・4 月別濃度を使用した濃度変動の把握

環境基準等と比較し、比較的高濃度で検出され、近

傍の発生源による影響を強く受けていると考えられる市原市岩崎西のベンゼン、アクリロニトリル、1,2-ジクロロエタン、1,3-ブタジエン及び袖ヶ浦市長浦のベンゼン（以下、「高濃度物質」とする。）について、詳細な濃度変動等を把握するため、各年度の月別濃度（毎月1回、24時間採取）を使用し、経年変化、月別濃度の分布、風向別出現頻度及び風向別濃度を算出し、解析を行った。

3 結果及び考察

3・1 各物質の年間増減率

各物質における年間増減率を表3に示す。値が負の

場合は減少傾向、正の場合は増加傾向であることを表している。なお、測定を行っていない物質は、「-」で示している。

いずれの地点においても、多くの物質で減少傾向を示していた。特に環境基準が定められている4物質（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）やトルエン等は、多くの地点で減少の割合が大きかった。また、市原市岩崎西や君津市久保及び袖ヶ浦市長浦と鴨川市清澄を比較しても、同様の減少傾向が見られたことから、周辺の発生源の有無に寄らず、濃度は概ね減少傾向であることが明らかになった。

表3 各物質の年間増減率

	銚子市 小畑新町	館山市 亀ヶ原	成田市 加良部	市原市 岩崎西	君津市 久保	袖ヶ浦市 長浦	白井市 七次台	東庄町 石出	鴨川市 清澄	%/年
ベンゼン	-7.1	-4.1	-3.1	-1.7	-2.9	-2.4	-3.0	-0.4	-2.2	
トリクロロエチレン	-4.9	0.3	-2.2	-2.5	-2.9	-3.0	-4.9	-4.9	-2.5	
テトラクロロエチレン	-6.3	-3.3	-2.6	-2.4	-3.1	-2.8	-6.6	-4.1	-2.7	
ジクロロメタン	-4.8	-1.2	-1.0	-1.8	-1.1	-1.4	-2.7	-0.8	-0.4	
アクリロニトリル	-4.1	-4.5	-2.3	0.7	-2.3	-1.2	7.4	1.3	-1.7	
塩化ビニルモノマー	5.3	5.3	-1.1	-1.4	-0.1	-0.1	7.6	1.4	-0.9	
水銀及びその化合物	-4.0	-2.9	0.4	-1.8	-1.6	-1.1	-	-	-1.6	
ニッケル化合物	-9.3	-2.6	-2.5	-2.8	-2.4	-2.5	-	-	-2.5	
クロロホルム	-4.6	-4.0	0.0	-0.5	-0.2	-0.1	-4.3	-2.8	0.6	
1,2-ジクロロエタン	-5.6	-0.1	0.5	0.0	-0.1	-0.2	-2.0	-1.9	0.2	
1,3-ブタジエン	-6.1	-6.0	-1.9	-1.2	-1.3	-0.8	-3.2	-3.9	-1.3	
ヒ素及びその化合物	-9.4	3.5	-1.0	-1.0	-1.5	-0.8	-	-	-1.8	
マンガン及びその化合物	-7.5	2.7	-1.4	-0.9	-0.8	-0.6	-	-	-1.4	
アセトアルデヒド	-9.6	0.1	-0.3	-2.0	-1.1	0.0	-	-	-0.7	
塩化メチル	-2.8	-1.4	-1.1	-1.3	-1.3	-1.0	-1.6	-2.2	-1.1	
酸化エチレン	-7.7	-3.6	-0.4	0.0	-0.1	0.5	-	-	-0.5	
ベンゾ【a】ピレン	-7.1	-5.5	-3.0	-1.5	-1.1	-1.2	-	-	-1.5	
ホルムアルデヒド	-6.1	0.2	-1.3	-1.8	-2.0	-0.9	-	-	-2.0	
ベリリウム及びその化合物	-8.1	5.2	-2.0	-2.6	-2.3	-2.5	-	-	-2.5	
クロム及びその化合物	-8.4	4.2	-0.6	0.0	-0.4	0.0	-	-	-0.4	
トルエン	-7.3	-2.6	-3.0	-3.5	-4.0	-5.9	-3.2	-4.9	-4.2	

3・2 届出排出量等との相関関係

各物質の濃度が概ね減少傾向であったことから、その要因を把握するため、5地点（成田市加良部、市原市岩崎西、君津市久保、袖ヶ浦市長浦及び鴨川市清澄）における年平均値と届出排出量等との相関係数を算出した結果を表4に示す。相関係数は、ベンゼンが、成田市加良部、君津市久保、鴨川市清澄の推計排出量で0.9程度、トリクロロエチレンが市原市岩崎西の届出

排出量で0.84、鴨川市清澄の推計排出量で0.85、テトラクロロエチレンが、成田市加良部、君津市久保、袖ヶ浦市長浦及び鴨川市清澄の推計排出量で0.80～0.90程度であり、良好な正の相関関係が見られた。このことから、特定の地点では、年平均値と届出排出量等との間に一定の相関が認められる物質が存在していることが明らかになった。しかし、相関係数が0.40以下と、あまり相関関係が見られない物質も確認された。

相関が弱い要因としては、届出排出量等以外の未把握の発生源による影響や、PRTR 制度に基づく排出量とは傾向が異なる局所的な発生源の影響が示唆された。また、本報告では県内の届出排出量等のみを用いていることから、県外からのより広範囲な影響も考えられ

る。届出排出量と推計排出量を比較すると、推計排出量との相関係数のほうが高くなっている物質もあるが、地点や物質ごとに差異が大きく、届出外排出量を加えたことによる明確な相関への影響は確認できなかった。

表 4 5 地点における届出排出量等と年平均値との相関係数^{注1)}

物質名	成田市加良部		市原市岩崎西		君津市久保		袖ヶ浦市長浦		鴨川市清澄	
	届出	推計	届出	推計	届出	推計	届出	推計	届出	推計
ベンゼン	0.68	0.93	0.72	0.72	0.74	0.90	0.43	0.61	0.88	0.89
トリクロロエチレン	0.50	0.37	0.84	0.68	0.61	0.55	0.72	0.64	0.79	0.85
テトラクロロエチレン	0.93	0.90	0.65	0.60	0.83	0.81	0.82	0.80	0.79	0.90
ジクロロメタン	0.17	0.11	0.48	0.41	0.31	0.27	0.47	0.41	0.07	0.17
アクリロニトリル	0.48	0.48	-0.23	-0.23	0.60	0.61	0.15	0.14	0.23	0.23
塩化ビニルモノマー	0.17	0.16	0.68	0.68	0.12	0.12	0.53	0.53	0.23	0.23
クロロホルム	0.43	0.35	0.20	0.21	0.40	0.36	0.23	0.20	0.43	0.35
1,2-ジクロロエタン	-0.14	-0.14	-0.06	-0.06	-0.03	-0.03	-0.02	-0.01	0.07	0.08
1,3-ブタジエン	0.11	0.29	0.38	0.44	0.17	0.25	0.04	0.07	0.38	0.28
マンガン及びその化合物	0.28	0.51	0.30	0.54	0.35	0.31	0.01	0.31	0.33	0.59
アセトアルデヒド	-0.02	-0.03	0.67	0.75	0.35	0.43	0.03	0.22	0.24	0.42
塩化メチル	0.22	0.22	0.35	0.35	0.40	0.40	0.25	0.25	0.19	0.19
酸化エチレン	0.03	-0.09	-0.10	-0.29	-0.18	-0.28	-0.23	-0.38	0.02	-0.14
ホルムアルデヒド	0.48	0.54	0.55	0.69	0.66	0.69	0.28	0.42	0.56	0.71
クロム及びその化合物	0.27	0.15	-0.15	0.09	0.24	-0.03	-0.10	-0.08	0.27	0.07
トルエン	0.48	0.37	0.63	0.55	0.47	0.59	0.79	0.77	0.60	0.67

注 1)水銀及びその化合物、ニッケル化合物、ヒ素及びその化合物は、多くの年で届出排出量が 0kg であったため、相関係数は算出していない。

3・3 各物質の経年変化

3・1及び3・2で、全体的に濃度は減少傾向であり、届出排出量等との相関が強い物質もあることが明らかになった。そこで、各年度のより詳細な濃度変動を把握するため、年平均値と推計排出量の経年変化について、環境基準が設定されている4物質を図2に、指針値が設定されている11物質を図3-1及び図3-2に、それ以外の6物質を図4に示す。なお、ベンゼンは、市原市岩崎西で環境基準を超過した年度があったが、それ以外の物質は、環境基準や指針値の超過はなかった。

3・3・1 環境基準が設定されている4物質

ベンゼンについて、市原市岩崎西では、2000年度に7 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 程度と他地点に比べ高い値が観測されていたが、2009年度頃まで減少傾向が続き、2005年度以降は、4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を下回っていた。ただし、2005年度、2011年度及び2016年度に、環境基準である3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$

を超過していた。袖ヶ浦市長浦では、2013年度頃まで2~3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 程度の濃度で推移していたが、2014年度以降は、2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を下回っていた。当該2地点で、環境基準と同程度かそれ以上の濃度が観測された理由は、いずれも臨海部の工業地域近傍に位置しており、周辺の発生源による影響を受けているものと考えられる。他地点では、2005年度頃まで2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 程度の濃度が観測される地点も見られたが、それ以降濃度は減少し、2013年度以降は、概ね1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下の濃度で推移していた。

トリクロロエチレンについて、市原市岩崎西では、2011年度頃まで他地点に比べ高い値が観測されていたが、2012年度以降は、全地点で概ね0.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 程度の濃度で推移していた。

テトラクロロエチレンについて、成田市加良部及び市原市岩崎西では、2000年度に0.8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 程度と他地点に比べ高い値が観測されていたが、その後減少し、

市原市岩崎西で 2005 年度に再度高い値が観測されたが、2010 年度頃まで全地点で概ね減少傾向であった。2010 年度以降は、市原市岩崎西以外の地点で概ね $0.1\mu\text{g}/\text{m}^3$ 下回る濃度で推移していた。

ジクロロメタンについて、成田市加良部及び市原市岩崎西では、2000 年度に $2\mu\text{g}/\text{m}^3$ を、2005 年度には市原市岩崎西で $3\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超える濃度が観測されていた。しかし、その後濃度は減少し、白井市七次台以外の地点では、2012 年度以降は、 $2\mu\text{g}/\text{m}^3$ 下回る濃度で推移していた。白井市七次台は、他地点に比べ高い値が観測されており、近傍のジクロロメタン排出事業所の影響を受けたものと考えられ、減少傾向等は見られていない。

環境基準が設定されている 4 物質の推計排出量は、概ね減少傾向が続いていた。年平均値と推計排出量の良好な正の相関関係が見られた地点があった、ベンゼン、トリクロロエチレン及びテトラクロロエチレンに

ついては、推計排出量の減少が、これらの物質の大気中の濃度減少に影響を与えている要因の一つと考えられる。

推計排出量の減少は、固定発生源からの揮発性有機化合物 (VOC) 排出規制に加えて、事業者による自主的な排出削減の取組の影響が大きいと考えられる。法規制等については、1996 年の大気汚染防止法改正の際に、化学産業等の事業者団体は、ベンゼン、トリクロロエチレン、テトラクロロエチレン及びジクロロメタンを含む 12 物質の削減に向けた自主管理計画を作成し、自主的な排出削減^⑨を行うなどの責務が追加されたことに加え、2006 年から VOC の排出規制が実施され、法規制と自主的取組を組み合わせることで排出量を削減することとなった。法規制が始まる 2006 年度以前から排出量の大幅な減少が見られることから、それ以前から実施されている事業者の自主的取組が、排出量の減少に大きな影響を与えたものと考えられる。

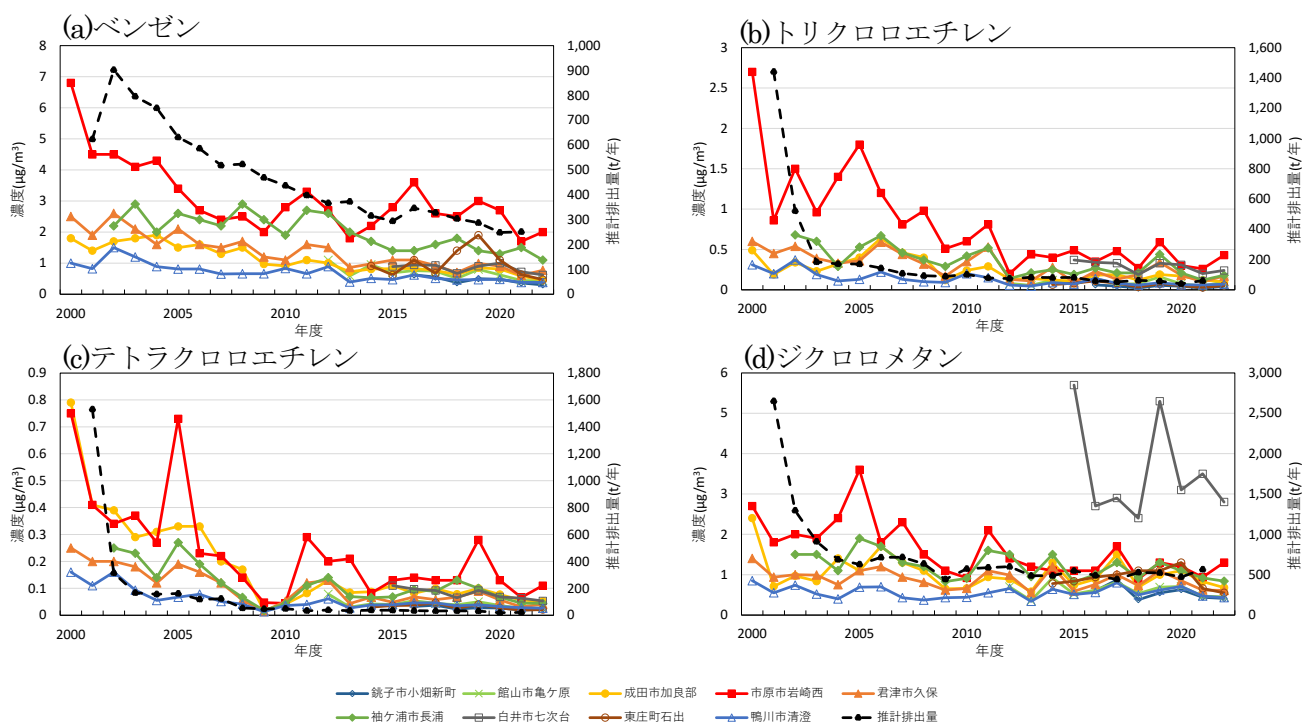


図 2 環境基準が設定されている 4 物質の経年変化

3・3・2 指針値が設定されている 11 物質

アクリロニトリルについて、市原市岩崎西では、2011 年度に指針値と同値である $2\mu\text{g}/\text{m}^3$ の濃度が観測されるなど、年々増加傾向であったが、2013 年度に急激に減少し、それ以降は $1.5\mu\text{g}/\text{m}^3$ を下回る濃度で

推移していた。他地点では、概ね $0.2\mu\text{g}/\text{m}^3$ 程度の低濃度で推移していた。

塩化ビニルモノマーについて、市原市岩崎西では、2000 年度は $10\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超える濃度が観測されていたが、2003 年度までに急激に減少し、それ以降は概ね

2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を下回る濃度で推移していた。他地点では、0.1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を下回る濃度で推移していた。

水銀及びその化合物について、2000年度に全地点で2ngHg/m³程度の濃度が観測され、2018年度以降も、概ね2ngHg/m³を下回る濃度で推移していた。各地点における濃度差が見られていないことから、近傍の排出量の影響はあまり受けていないと考えられる。また、水銀に関する水俣条約が2017年8月に発効されたことを受け、大気汚染防止法が改正され、2018年4月から水銀大気排出規制が実施された。全国的な排出規制により、人為由来の排出量は減少することが予想される。2020年度に多くの地点で、わずかに濃度が減少しているが、規制後のデータ数がまだ少ないため、明確な傾向は不明である。引き続きモニタリングを続け、規制による濃度変化について把握していく必要がある。

ニッケル化合物について、2010年度頃まで各年度における濃度差が大きいですが、2013年度から2014年度にかけて全地点で濃度が減少しており、2017年度以降は、概ね5ngNi/m³を下回る濃度で推移していた。

クロロホルムについて、市原市岩崎西では、他地点に比べ高い値が観測されており、2022年度も1.2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 程度の濃度が観測されていた。他地点では、2018年度以降、概ね0.2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を下回る濃度で推移していた。

1,2-ジクロロエタンについて、市原市岩崎西では、他地点に比べ高い値が観測され、各年度における濃度差が大きいですが、2004年度と2016年度に指針値の1.6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ に近い値となっていた。他地点では、概ね

0.4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を下回る濃度で推移していた。

1,3-ブタジエンについて、市原市岩崎西では、他地点に比べ高い値が観測され、年度による変動が大きいですが、2013年度に2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ の濃度が観測されていた。他地点は概ね0.2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を下回る低濃度で推移していた。

ヒ素及びその化合物について、いずれの地点も2008年度頃及び2019年度頃をピークに濃度が増加するなど、類似した傾向を示していた。

マンガン及びその化合物について、市原市岩崎西では、他地点と比較し、やや高い濃度で推移しているが、鴨川市清澄以外の地点では年度による変動が大きかった。

アセトアルデヒドについて、成田市加良部で2011年度に高い濃度が観測されているが、それを除くと、いずれの地点も年度による大きな濃度変動は見られず、2010年度頃に若干減少し、その後は概ね2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を下回る濃度で推移していた。

塩化メチルについては、いずれの地点も濃度差はあまり見られず、年度による濃度変動は小さかった。当該物質は、成層圏オゾン破壊物質でもあり、その排出は人為的なものだけでなく、自然起源由来の割合も多いとされ、大気中の半減期も4~40年との報告⁷⁾もある。この大気中での半減期の長さや自然由来の排出のため、地点間の濃度差は少なく、濃度の変動も少ないと考えられる。

推計排出量は、多くの物質で減少傾向であったが、ヒ素及びその化合物は年度ごとの差が大きく、塩化メチルはほとんど排出がない年度も見られた。

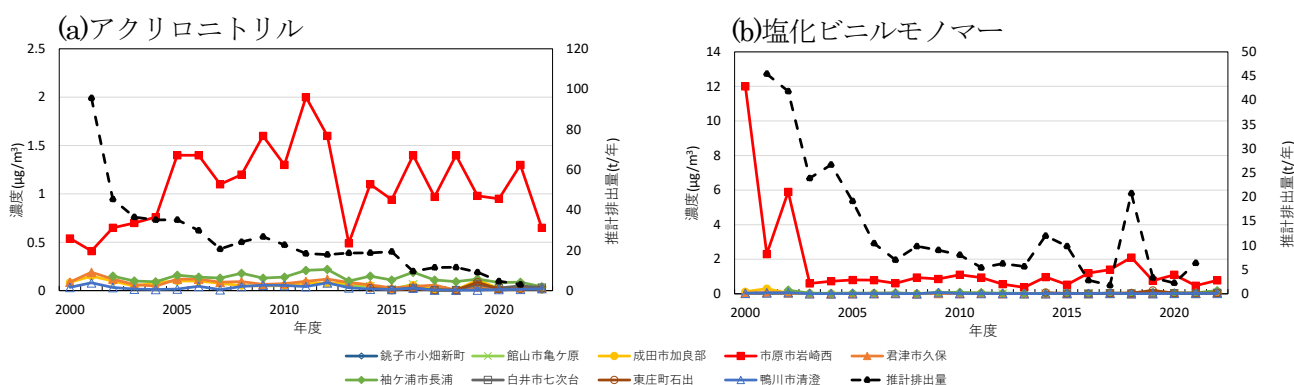


図 3-1 指針値が設定されている 11 物質の経年変化

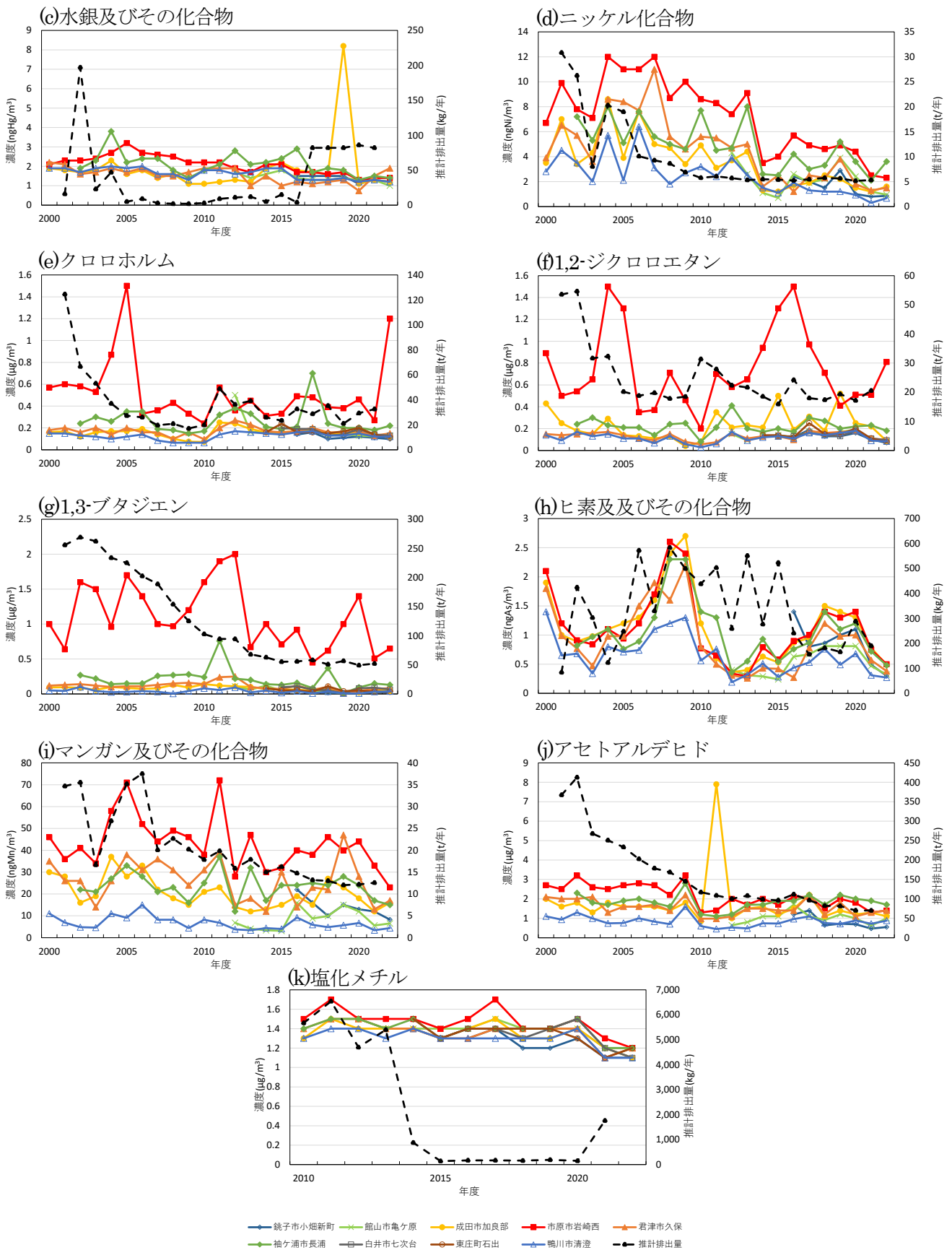


図 3-2 指針値が設定されている 11 物質の経年変化
 なお、(c)、(d)、(h)、(i)、(j)の物質については、白井市七次台及び東庄町石出では測定していない。

3・3・3 環境基準又は指針値が設定されていない6物質

酸化エチレンについて、市原市岩崎西では、他地点に比べ高い値が観測され、2015年度にピークが観測されていたが、2015年度以降は、減少傾向であった。他地点では、 $0.1\mu\text{g}/\text{m}^3$ 程度で推移していた。

ベンゾ[a]ピレンについて、鴨川市清澄を除いて、2000年度頃は $0.5\text{ng}/\text{m}^3$ 程度の濃度であったが、2017年度以降は、 $0.4\text{ng}/\text{m}^3$ を下回るの濃度で推移していた。鴨川市清澄では、2000年度から $0.2\text{ng}/\text{m}^3$ 程度で推移していた。当該物質は、自動車の排ガス等⁸⁾に含まれているが、鴨川市清澄は山中に位置し、自動車の影響を受けにくい場所に位置しているため、他地点よりも2000年度から濃度が低かったと考えられる。

ホルムアルデヒドについて、年度による濃度差が大きいが、2018年度以降は全地点で $3\mu\text{g}/\text{m}^3$ を下回っていた。

ベリリウム及びその化合物について、2001年度には、 $0.08\text{ngBe}/\text{m}^3$ を超える地点が見られたが、2010年度頃から変動が小さくなり、全地点で概ね $0.02\text{ngBe}/\text{m}^3$ を下回るの濃度で推移していた。

クロム及びその化合物について、市原市岩崎西が他地点と比較して濃度が高く、2011年度に濃度が増加しており、近年も2019年度をピークに濃度が増加していたが、それ以降は減少を続けていた。袖ヶ浦市長浦も、市原市岩崎西より濃度は低いが、類似した傾向を示していた。他地点は、概ね $5\text{ngCr}/\text{m}^3$ を下回る濃度で推移していた。

トルエンについて、館山市亀ヶ原や成田市加良部で時折高い値が観測されるが、基本的に大きな濃度変動は見られず、概ね $10\mu\text{g}/\text{m}^3$ を下回る濃度で推移しており、2020年度以降、やや減少傾向となっていた。

推計排出量は、全ての物質で減少傾向であったが、トルエンは減少の割合が小さかった。

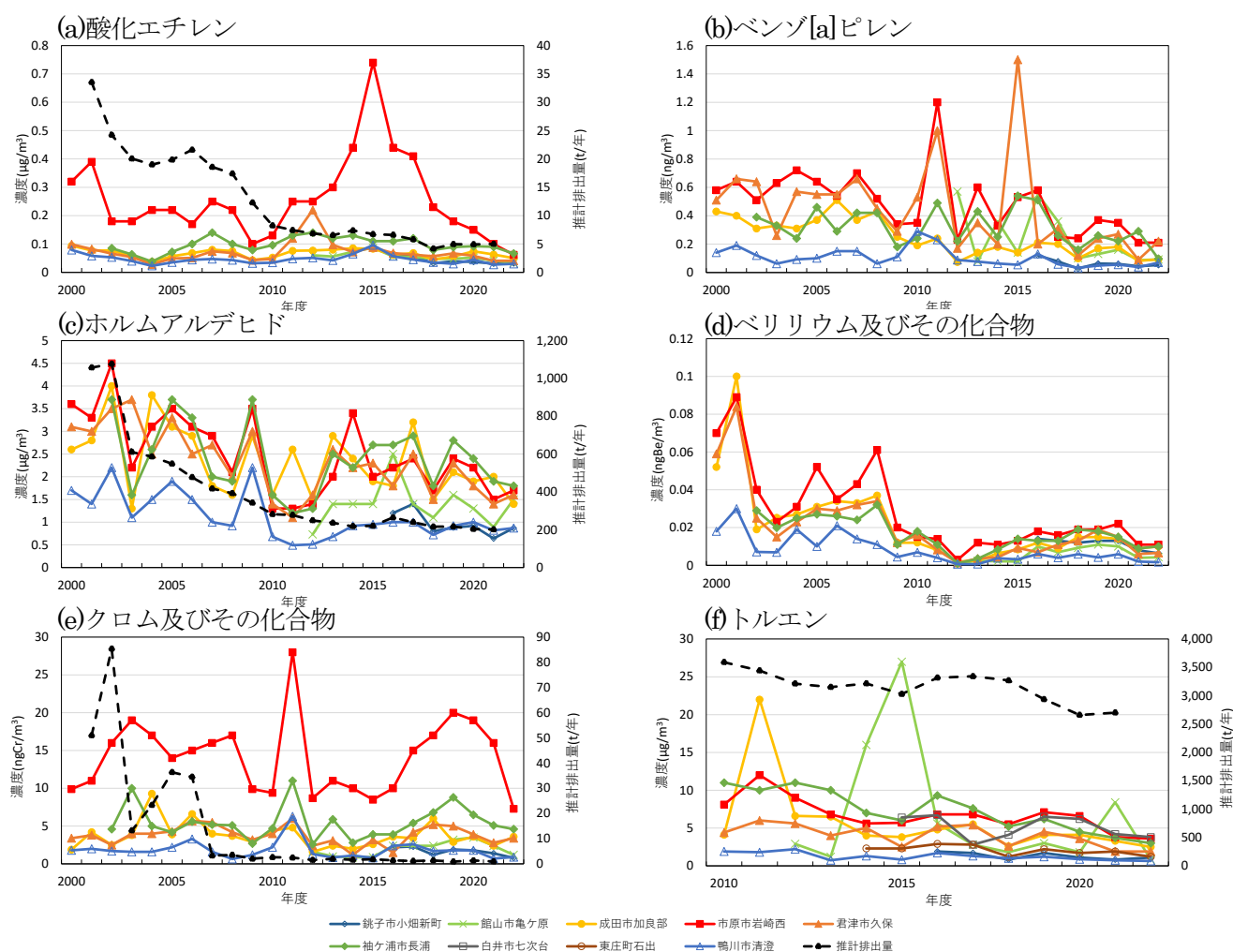


図4 環境基準又は指針値が設定されていない6物質の経年変化
なお、(a), (b), (c), (d), (e)の物質については、白井市七次台及び東庄町石出では測定していない。

3・4 月別濃度を使用した濃度変動

3・3で、年平均値と推計排出量の経年変化を見たところ、環境基準等と比較し、比較的高濃度で検出され、また地点特有の傾向を示している物質が見られた。そのため、より詳細な濃度変動を評価するため、市原市岩崎西及び袖ヶ浦長浦の高濃度物質について、経年変化、月別濃度の分布及び風向による濃度変動を確認した。

3・4・1 月別濃度の分布及びその経年変化

高濃度物質の月別濃度の分布及びその経年変化を確認するため、各年度の月別濃度の最小値、最大値及び四分位数並びに各年度の平均値を結んだ平均線について、市原市岩崎西のベンゼン、アクリロニトリル、1,2-ジクロロエタン及び1,3-ブタジエンを図5-1に、袖ヶ浦市長浦のベンゼンを図5-2に示す。なお、四分位範囲の1.5倍を上下限とし、それを超える値は、図中の丸印で示している。また、近傍の発生源の排出量との関係を見るために、市原市及び袖ヶ浦市における高濃度物質の届出排出量（以下、「市内排出量」とする。）を算出し、それぞれの経年変化を図6-1及び図6-2に、高濃度物質の年平均値と市内排出量との相関係数を表5に示す。なお、気象条件によっては、近隣市の発生源による影響も想定されるが、今回は各市内のみを対象とした。

3・4・1・1 市原市岩崎西

ベンゼンについて、平均値は減少傾向であったが、年度による濃度差が大きく、2013年度は、75%値が $3\mu\text{g}/\text{m}^3$ を下回り、年間を通して比較的低濃度が観測されていたが、2019年度は、75%値が $4\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超える高濃度が観測されていた。特に環境基準を超過した2016年度は、中央値が $4\mu\text{g}/\text{m}^3$ 程度であり、年間を通して高濃度が多く観測されていた。

アクリロニトリルについて、平均値は2011年度をピークとした増加傾向が見られていたが、2013年度にかけて減少し、その後は $1\sim 1.5\mu\text{g}/\text{m}^3$ 程度で推移していた。75%値も同様に2013年以降減少し、それ以前と比較し傾向が変化していた。中央値は概ね $1\mu\text{g}/\text{m}^3$ を下回る濃度で推移していたが、月別濃度では、年度によって $4\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超える顕著な高濃度が単発的に見られていた。

1,2-ジクロロエタンについて、月別濃度は年度によって顕著な高濃度が単発的に確認されており、2022年度も $6\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超える高濃度が観測され、減少傾向は見られなかった。しかし、中央値は $1\mu\text{g}/\text{m}^3$ を下回る濃度で推移しており、四分位範囲も狭い年が多いことから、顕著な高濃度を除くと低濃度で推移していた。

1,3-ブタジエンについて、中央値は概ね $1\mu\text{g}/\text{m}^3$ 下回る濃度で推移していたが、四分位範囲は2012年度まで広く、75%値が $3\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超える年もあり、高濃度が観測される頻度が多かった。しかし、2013年度以降は、四分位範囲が狭くなり、高濃度が観測される頻度は少なくなっていた。このことから、2013年度前後で発生源に変化が生じたと考えられるが、月別濃度では $3\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超える単発的な高濃度が2022年度も観測されていた。

市内排出量は、いずれの物質も概ね減少傾向が続いていたが、相関係数を見ると、ベンゼンは0.70と比較的良好な正の相関関係が見られている一方、アクリロニトリル、1,2-ジクロロエタン及び1,3-ブタジエンでは、年平均値との相関関係はほぼ見られなかった。市内排出量を使用しても、相関係数の向上が見られなかったことや顕著な高濃度が観測されていることから、高濃度物質の濃度変動は、より局所的な発生源やPRTR制度では未把握の発生源による影響を強く受けているものと考えられる。

3・4・1・2 袖ヶ浦市長浦

2013年度頃までは、75%値が $4\mu\text{g}/\text{m}^3$ 程度であり、四分位範囲も広い年度が多く、月別濃度の濃度差が大きかった。しかし、2015年度以降、四分位範囲が狭くなり、75%値及び25%値の濃度がともに減少傾向となっていたことから、2015年度前後で、発生源に変化が生じたものと考えられる。

市内排出量は、2013年度頃をピークとした増加傾向が見られたが、2016年度にかけて急激に減少していた。この傾向は、年平均値の濃度変動と一致していたが、相関係数は低く、要因は不明であった。また、市原市岩崎西と比較して、月別濃度での単発的な高濃度はほとんど観測されておらず、同じ臨海部に位置している地点ではあるが、傾向は異なっていた。

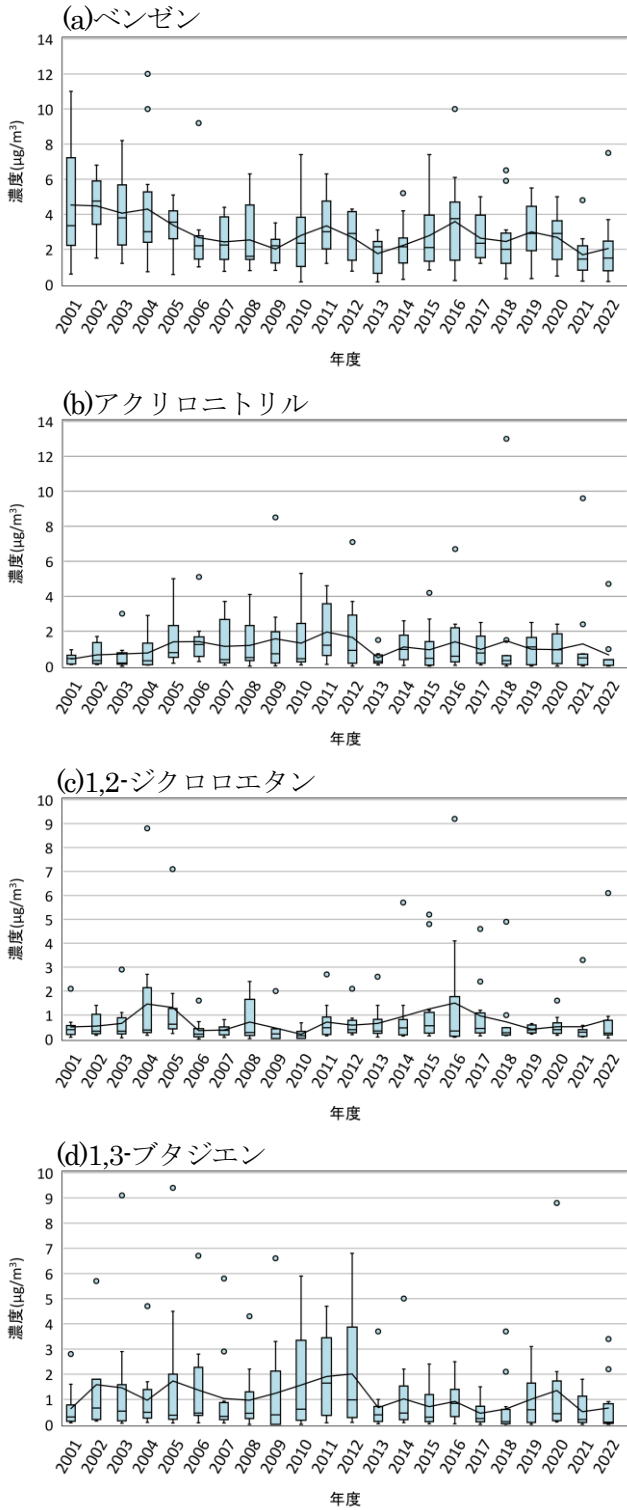


図 5-1 市原市岩崎西における月別濃度の分布及びその経年変化

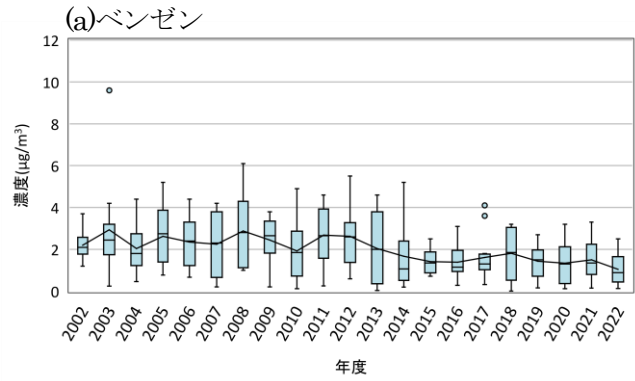


図 5-2 袖ヶ浦市長浦における月別濃度の分布及びその経年変化

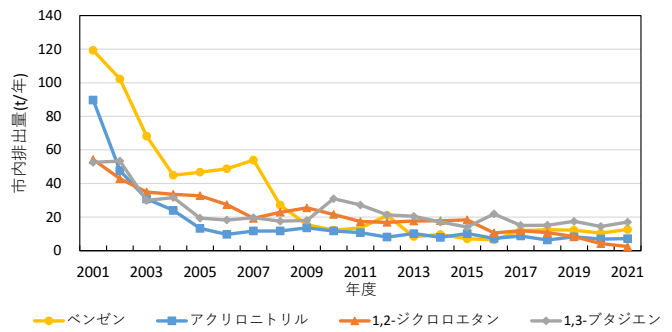


図 6-1 市原市における高濃度物質の市内排出量の経年変化

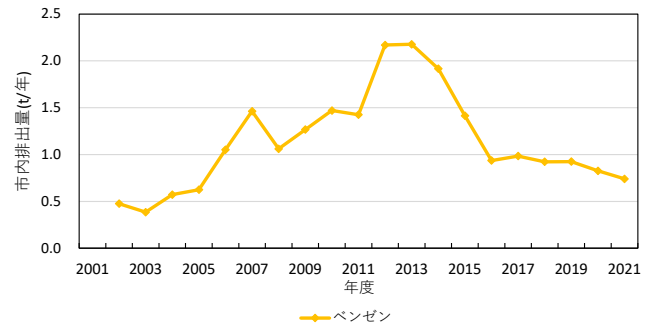


図 6-2 袖ヶ浦市における高濃度物質の市内排出量の経年変化

表 5 各市における高濃度物質の年平均値と市内排出量の相関係数

地点名	物質名	相関係数
市原市岩崎西	ベンゼン	0.70
	アクリロニトリル	-0.42
	1,2-ジクロロエタン	-0.14
	1,3-ブタジエン	0.14
袖ヶ浦市長浦	ベンゼン	0.01

3・4・2 風向による濃度影響

3・4・1で、高濃度物質の経年変化及び月別濃度の分布を確認した。固定発生源からの影響を受けている場合、濃度は調査時の風向にも影響を受けることが予想される。そのため、風向による濃度影響を把握するため、風向別出現頻度を表 6-1 及び表 6-2 に、風向別濃度グラフを図 7-1 及び図 7-2 に示す。

算出方法は、月別濃度及び測定時の主風向を使用し、各風向における平均濃度を求めた。また、濃度変動を把握するため、市原市岩崎西では、2001～2012年度及び2013～2022年度の期間、袖ヶ浦市長浦では、2002～2014年度及び2015～2022年度の期間、それぞれにおける風向別濃度も併せて示した。なお、市原市岩崎西では、風速 0.2m/s 以下、袖ヶ浦市長浦では、風速 0.4m/s 以下を静穏 (Calm) として、グラフから除外しており、期間内で特定の風向の結果がなかった場合は、グラフで空欄としている。

本報告では主風向のみを使用しているが、実際の測定は 24 時間採取であり、様々な風向が混合されたものであるため、短時間の高濃度が観測された場合は、その際の風向と主風向で誤差が生じる可能性がある。

3・4・2・1 風向別出現頻度

風向別出現頻度は、いずれの地点においても、最大値と最小値で 10%以上の差が生じていた。市原市岩崎西では、N 及び NE、袖ヶ浦市長浦では、ENE、ESE、NNW 等の頻度が多かった。各期間における出現頻度の変化を見ると、市原市岩崎西では、大きな変化は見られなかったが、袖ヶ浦市長浦では、2015～2022 年度で、E、SSW 等の頻度が増加し、SW、WSW 等の頻度が減少していた。このことから、高濃度物質等における年平均値について、市原市岩崎西では、風向の出現頻度の変化による影響は小さく、一方、袖ヶ浦市長浦では、2015 年度以降、E、SSW 等の影響が増加し、SW、WSW 等の影響は減少したと考えられる。

3・4・2・2 風向別濃度

市原市岩崎西のベンゼンについて、いずれの期間においても、WSW～NNW の風向で濃度が高い傾向が見られた。これは、当該方向に位置する臨海部の

大規模事業所による影響を受けたものと考えられる。2001～2012 年度は、NW の風向で特に濃度が高く、 $8\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えていた。一方で、2013～2022 年度は、2001～2012 年度と比べ、ENE～SE 及び WSW～WNW の風向で濃度が減少していた。

市原市岩崎西のアクリロニトリルについて、2001～2012 年度は、SW～WNW の風向で濃度が高い傾向が見られ、特に WNW の風向で $4\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えていた。一方で、2013～2022 年度は、2001～2012 年度と比べ、SW 及び WNW の風向で濃度に変化は見られなかったが、WSW～W の風向で濃度が減少しており、この減少が当該物質の年平均値が 2013 年以降減少傾向となっている要因の一つであると考えられる。

市原市岩崎西の 1,2-ジクロロエタンについて、いずれの期間においても、WSW の風向で顕著な高濃度が見られ、当該方向の発生源による影響を強く受けていたと考えられる。このことは、当該物質の濃度変動において、顕著な高濃度が単発的に発生している要因の一つであると考えられる。

市原市岩崎西の 1,3-ブタジエンについて、2001～2012 年度は、WSW～WNW の風向で $3\mu\text{g}/\text{m}^3$ 程度の高い濃度が観測されていたが、2013～2022 年度は、2001～2012 年度と比べ、WSW 及び WNW の風向で濃度が大きく減少しており、 $2\mu\text{g}/\text{m}^3$ を下回っていた。このことは、当該物質の年平均値が 2013 年以降減少傾向となっている要因の一つであると考えられる。

袖ヶ浦市長浦のベンゼンについて、2002～2014 年度は、主に NNE～NNW、ENE 及び SE の風向で $3\mu\text{g}/\text{m}^3$ 程度の高い濃度が観測されていたが、2015～2022 年度は、2002～2014 年度と比べ、当該風向での濃度は減少しており、 $3\mu\text{g}/\text{m}^3$ を下回っていた。このことは、当該物質の年平均値が 2015 年以降減少傾向となっている要因の一つであると考えられる。さらに、E の風向別出現頻度が増加していたことから、E の濃度減少が年平均値に、より影響を与えたと考えられる。

市原市岩崎西と袖ヶ浦市長浦での風向別濃度の変化を比較すると、市原市岩崎西は風向による濃度差が大きく、特定の発生源による影響をより強く受けているため、袖ヶ浦市長浦と比べ、顕著な高濃度が

観測されていると考えられる。

表 6-1 各期間における風向別出現頻度 (市原市岩崎西)

期間\風向	N	NNE	NE	ENE	E	ESE	SE	SSE	S	SSW	SW	WSW	W	WNW	NW	NNW
2001-2022	16%	7%	13%	6%	5%	5%	11%	6%	7%	8%	3%	3%	2%	1%	2%	4%
2001-2012	16%	8%	14%	5%	6%	5%	12%	5%	6%	7%	2%	2%	2%	1%	4%	4%
2013-2022	16%	6%	12%	7%	5%	5%	9%	8%	8%	8%	5%	3%	1%	1%	0%	5%

表 6-2 各期間における風向別出現頻度 (袖ヶ浦市長浦)

期間\風向	N	NNE	NE	ENE	E	ESE	SE	SSE	S	SSW	SW	WSW	W	WNW	NW	NNW
2002-2022	10%	3%	2%	11%	11%	14%	5%	3%	2%	6%	11%	3%	1%	0%	3%	11%
2002-2014	10%	4%	1%	11%	7%	14%	8%	4%	2%	3%	14%	5%	1%	0%	1%	10%
2015-2022	9%	2%	4%	11%	17%	13%	1%	1%	2%	11%	7%	1%	1%	1%	5%	13%

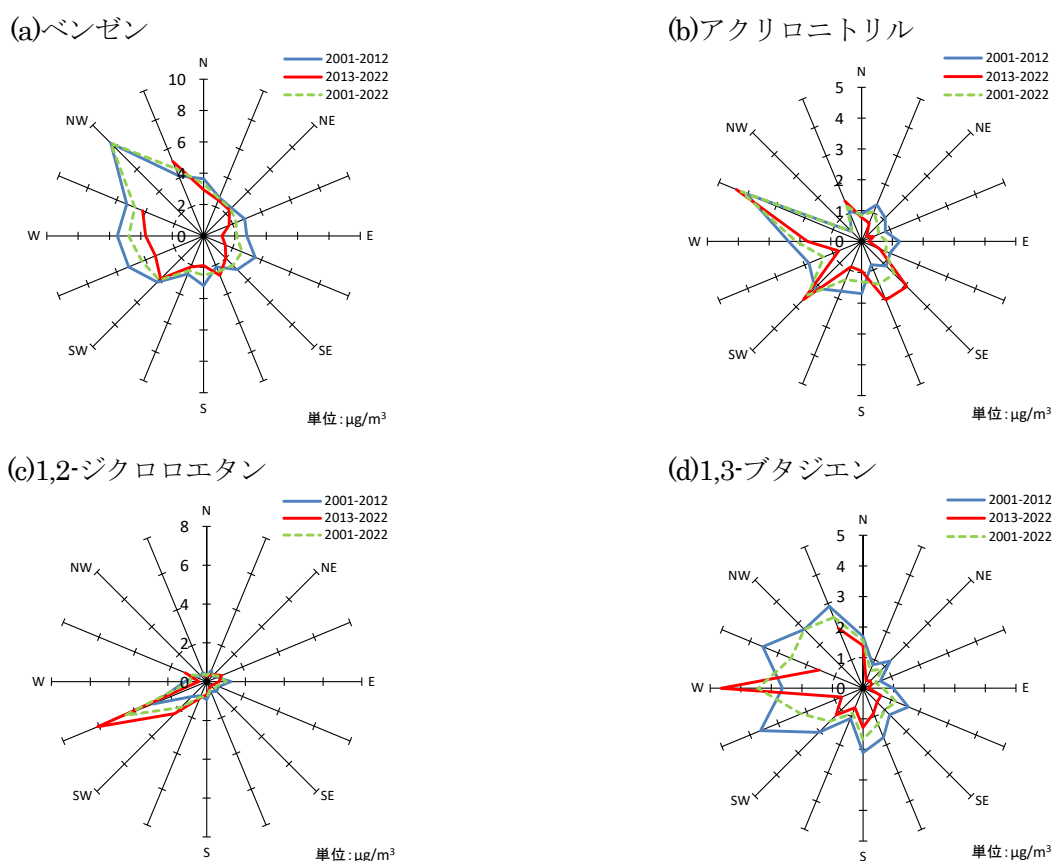


図 7-1 市原市岩崎西の風向別濃度グラフ

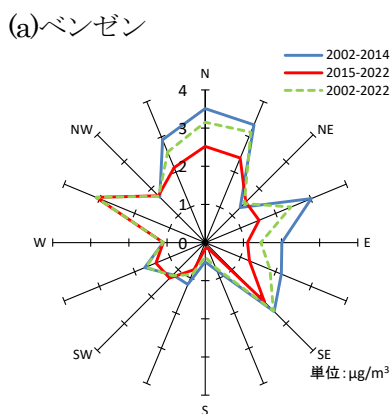


図 7-2 袖ヶ浦市長浦の風向別濃度グラフ

4 まとめ

本研究では、千葉県内の 2000～2022 年度のモニタリング調査結果及び PRTR 制度に基づく排出量を使用し、対象物質の濃度推移等について解析を行い、以下のことが明らかになった。

1. 年間増減率から、各地点において、多くの物質で年平均値は減少傾向であった。特に環境基準が設定されている 4 物質等については、大きな減少が見られた。
2. 年平均値と届出排出量等との相関係数を算出した結果、相関係数が 0.80 以上と良好な正の相関関係が見られた物質がある一方、相関係数が 0.40 以下と、弱い相関関係もしくはほとんど相関がない物質も見られた。届出排出量と推計排出量を比較すると、地点や物質ごとに差異が大きく、明確な相関への影響は見られなかった。
3. 年平均値の経年変化から、ベンゼンは、市原市岩崎西で環境基準を超過した年度があったが、それ以外の物質は、環境基準や指針値の超過はなかった。推計排出量については、多くの物質で減少傾向が見られた。
4. 高濃度物質について、各年度の月別濃度及び市内排出量を使用し解析を行った結果、市原市岩崎西のベンゼンは、2000 年度と比較し年平均値は減少したが、近年でも 2019 年度は、75%値が $4\mu\text{g}/\text{m}^3$ を上回るなど、高濃度が観測される割合が多い年度も見られた。ベンゼン以外の物質については、中央値は概ね $1\mu\text{g}/\text{m}^3$ を下回る濃度で推移していたが、月別濃度では、顕著な高濃度が単発的に見られていた。
5. 市原市の市内排出量は、いずれの物質も概ね減少傾向が続いていたが、相関係数を見ると、ベンゼンは比較的良好な正の相関関係が見られている一方、それ以外の物質では、年平均値との相関関係はほぼ見られなかった。
6. 袖ヶ浦市長浦のベンゼンについては、2015 年度以降、四分位範囲が狭くなり、75%値及び 25%値の濃度がともに減少傾向となっていた。また、市原市岩崎西と比較して、月別濃度での単発的な高濃度はほとんど観測されていなかった。市

内排出量との相関関係は、市原市岩崎西と異なり、ほぼ見られなかった。

7. 高濃度物質について、風向別濃度を算出した結果、風向により大きな濃度差が生じており、特に市原市岩崎西で顕著であった。また、約 10 年の期間に分けて、濃度傾向を確認した結果、特定の風向において濃度が減少した物質も見られた。

県内の有害大気汚染物質等の濃度変動の要因及び各種対策の効果等を適切に把握するためには、継続的な調査に加え、各発生源の位置、排出量等を把握し、その変化や影響を明らかにしていくことが重要である。さらに、県内の各市が行っている調査結果や、近隣都県のデータを使用し、より広域な濃度変動を把握していくことも必要となる。また、地点によっては、局所的な発生源の影響を強く受けている可能性があり、この要因を解明するためには、気象条件や季節変動等を踏まえた、より詳細な解析を継続して行っていく必要がある。

引用文献

- 1) 環境省：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について。(2022) .
- 2) 環境省：有害大気汚染物質等測定方法マニュアル。(2023) .
- 3) 高橋洋平，堀本泰秀，石原 健，阿部徳子：化学物質大気環境調査，千葉県環境研究センター年報。(2022) .
- 4) 国土交通省国土地理院:地理院地図。
<https://maps.gsi.go.jp>(2023 年 10 月時点).
- 5) 環境省：PRTR インフォメーション広場。
<https://www.env.go.jp/chemi/prtr/notification/index.html> (2023 年 10 月時点) .
- 6) 環境省：事業者による有害大気汚染物質の自主管理の促進。https://www.env.go.jp/page_00365.html (2023 年 10 月時点) .
- 7) 環境省：化学物質の環境リスク評価 第 3 巻。
<https://www.env.go.jp/chemi/report/h16-01/index.html> (2023 年 10 月時点) .

8) 環境省：化学物質の環境リスク評価 第5巻.

<https://www.env.go.jp/chemi/report/h18-12/>

(2023年10月時点) .

Long-term Trends of Hazardous Air Pollutants and Other Substances in Chiba

TAKAHASHI Yohei

千葉県における有害大気汚染物質等の長期的傾向を明らかにするために、県内の2000～2022年度の有害大気汚染物質等の調査結果及びPRTR制度に基づく排出量を使用し、県内9地点における各物質の濃度推移等について解析を行った。年間増減率から、各地点において、多くの物質で年平均値は減少傾向であり、特に環境基準が設定されている4物質等については、大きな減少が見られた。年平均値とPRTR届出排出量等との相関係数を確認すると、相関係数が0.80以上と良好な正の相関関係が見られた物質がある一方、相関係数が0.40以下と、弱い相関関係もしくはほとんど相関がない物質も見られた。環境基準等と比較し、比較的高濃度で観測される物質について、月別濃度を使用し解析を行ったところ、顕著な高濃度による影響を受けている物質も見られた。風向別濃度から、風向により大きな濃度差が生じており、特定の方向に位置する発生源の影響を強く受けていることが示唆された。

キーワード : hazardous air pollutants, substances requiring priority action, Pollutant Release and Transfer Register