

千葉県における浮遊粒子状物質中の金属成分濃度の推移について

堀本泰秀 内藤季和

1 はじめに

千葉県では、大気中の浮遊粒子状物質について、1974年度からローボリウムエアサンプラー法による調査を実施しているところである。

また、浮遊粒子状物質に含まれる金属成分については、1980年度から測定を始め、1982年度から現在の10項目（Al等）の測定を行っており、長期間にわたる金属成分の通年の測定データを収集している。

浮遊粒子状物質の金属成分については、その発生源の指標となることが知られていることから、当該調査を解析することにより、浮遊粒子状物質の発生源影響の推移について検討したものである。

2 方法

2・1 概要

千葉県の大気環境調査報告書¹⁾に記載されている「浮遊粒子状物質調査（ローボリウムエアサンプラー法）」の結果をとりまとめ、解析を行った。

当該調査では、浮遊粒子状物質（以下、「SPM」という。）をローボリウムエアサンプラーで約1か月間採取しており、採取を毎月行っているため、SPM及び金属成分の年平均濃度が得られている。



図1 対象測定地点

2・2 対象期間

1982年度～2013年度

2・3 対象測定地点

解析対象としたのは、対象期間において継続的に測定を行っている図1の①千葉市千葉港／幸町、②船橋市湊町、③館山市北条、④松戸市根本、⑤柏市柏、⑥君津市久保及び⑦富津市下飯野の7地点とした。

なお、①千葉市千葉港／幸町については、2006年10月までは千葉市役所（千葉市千葉港1-1）で、11月以降は、千葉市総合保健医療センター（千葉市幸町1-3-9）に変更したもので、それぞれの距離は約500mと近く、地理的条件はほぼ同等と考えられたため、同一の地点として解析を行った。

2・4 解析方法

SPM及び金属成分の全対象測定地点の年平均濃度を算出し、それを全地点平均濃度として、経年推移を解析することとした。

また、経年推移において、特筆すべきことが確認された場合は、月別及び測定地点毎の濃度について詳細に解析し、考察することとした。

2・5 測定値の取扱い

検出下限値未満の測定値の取扱いについては、大気環境調査報告書と同様に、すべての月間値が下限値未満であった場合は、全地点平均値算出には用いないこととした。また、後年度に修正されたデータがあった場合は、修正後のデータを採用した。

3 結果・考察

3・1 全地点平均濃度の経年推移

SPMの全地点平均濃度の経年推移を図2に示す。1994年度をピークに、それ以降は減少傾向を示していた。

金属成分の全地点平均濃度の経年推移については、測定対象の10項目について、高濃度グループ（0.05

～0.7 $\mu\text{g}/\text{m}^3$; Al, Fe, Zn), 中濃度グループ (0.01～0.05 $\mu\text{g}/\text{m}^3$; Mn, Ni, Cu, Pb) 及び低濃度グループ (0.001～0.009 $\mu\text{g}/\text{m}^3$; V, Cr, Cd) に分けて, 図3～5に示す。

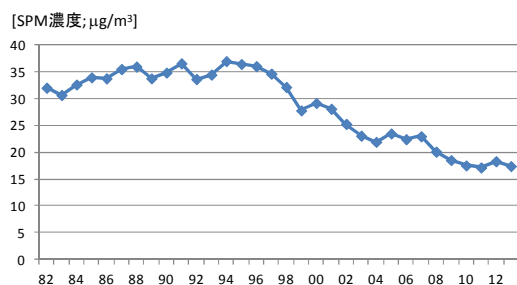


図2 SPMの全地点平均濃度の推移

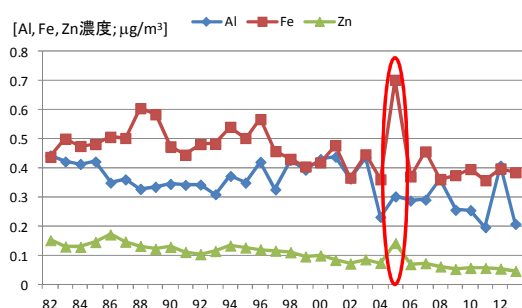


図3 高濃度グループの全地点平均濃度の推移

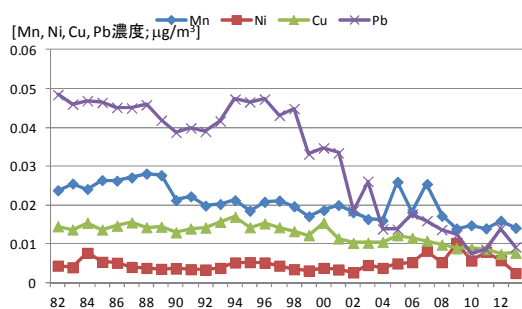


図4 中濃度グループの全地点平均濃度の推移

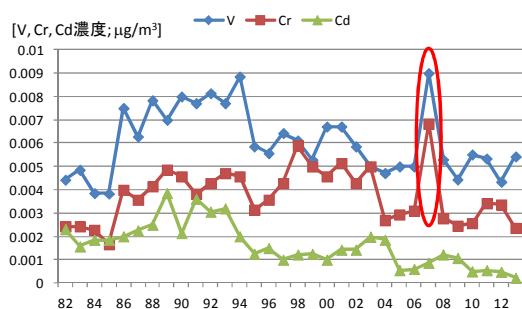


図5 低濃度グループの全地点平均濃度の推移

図3のとおり, 高濃度グループの金属成分のうち, Znは対象期間中に減少傾向を示していたが, Al及びFeについては, 明確な傾向は示していなかった。

2005年度にFe及びZnの濃度が上昇しているが, これは③館山市北条, ⑥君津市久保及び⑦富津市下飯野において同物質が高濃度となったためである。

図4のとおり, 中濃度グループの金属成分のうち, Cu及びPbは, 1994年度をピークに, それ以降は減少傾向を示していた。

Mnについては, 1988年度をピークに, それ以降は減少傾向にあると考えられるが, Niについては明確な傾向は示していなかった。

2005年度及び2007年度にMn濃度が上昇しているが, 2005年度は③館山市北条, ⑥君津市久保及び⑦富津市下飯野において, 2007年度は主に①千葉市幸町において同物質が高濃度となったためである。

図5のとおり, 低濃度グループの金属成分のうち, Cdについては1991年度以降減少傾向を示していたが, V及びCrについては明確な傾向は示していなかった。

2007年度にV及びCrの濃度が上昇しているが, これは主に①千葉市幸町において同物質が高濃度となったためである。

なお, Cdは, 検出限界値未満のデータが多かった。

3・2 考察

3・2・1 経年推移が減少傾向にあった金属成分

Mn, Cu, Zn, Cd及びPbについては, 対象期間中のある時期から減少傾向に転じており, また, これらの減少は全測定地点で共通していた。

SPMの金属成分の主要な発生源は, 表1のとおりとされている。

図6に示すCu, Zn, Cd及びPbに共通する発生源として廃棄物焼却が挙げられるが, 1997年度に廃棄物の処理及び清掃に関する法律施行規則が改正され, 廃棄物焼却に係る規制が強化された影響が推察された。

1997年度改正では, 焼却施設の構造基準が見直され, ばいじんを十分に除去することができる集じん器の設置等が必須となるとともに, 構造基準を適応される焼却施設の範囲が広がった。

そのため, 1997年度以降, 廃棄物焼却施設から排出

される粒子状物質の量が減少し、それが当該金属成分の減少傾向に表れたものと推察された。

表1 SPMの金属成分の主要な発生源

金属成分	発生源
Al ²⁾	土壌, 道路粉じん
V ²⁾	石油燃焼
Cr ²⁾	鉄鋼工業, 廃棄物焼却
Mn ²⁾	鉄鋼工業
Fe ²⁾	道路粉じん, ブレーキ粉じん, 鉄鋼工業
Ni ²⁾	鉄鋼工業, 石油燃焼
Cu ²⁾	ブレーキ粉じん, 鉄鋼工業, 廃棄物焼却
Zn ²⁾	タイヤ粉じん, 鉄鋼工業, 廃棄物焼却
Cd ³⁾	廃棄物焼却
Pb ⁴⁾	廃棄物焼却

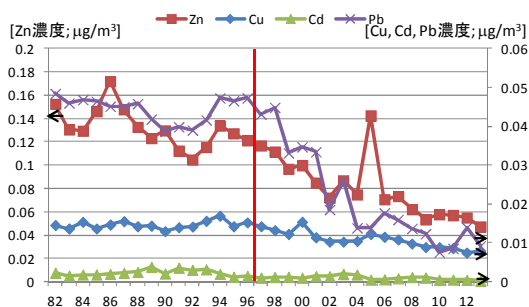


図6 廃棄物焼却由来の金属濃度の推移

金属濃度のピークが規制の強化された時期と一致しないのは、気象要因等に起因する年度毎の変動の影響で不鮮明になったためと考えられた。

なお、坂田らは、Zn, Cd 及び Pb の主要な発生源が清掃工場であり、2000～2003年の大気中濃度の減少は、清掃工場からの排出量減少に起因していると報告している。⁵⁾

併せて、東京都内の清掃工場のばいじん排出量は1997年から2001年にろ過式集じん器等の設置比率が上昇したことにより約1/5となったと推計している。⁵⁾

なお、Pb 及び Pb 化合物の PRTR 届出移動量を確認すると、PRTR 制度が開始した2001年度以降、減少傾向にあり、廃棄物として処理される Pb 等の量の減少も寄与した可能性がある。

Mn については、表1のとおり鉄鋼工業由来とされているが、鉄鋼工業については、ダイオキシン類対策として1997年に大気汚染防止法施行令が改正され、その後、2000年にはダイオキシン類対策特別措置法が施行され、電気炉及び焼結炉に排出基準が適用されたが、他に主だった規制はなく、対象期間中に減少傾向を示していた原因は明確にはならなかった。

3・2・2 特定の年度のみ濃度が上昇した金属成分 3・2・2・1 2005年度 (Mn, Fe 及び Zn)

2005年度に Mn, Fe 及び Zn の全地点平均濃度が上昇したのは、③館山市北条、⑥君津市久保及び⑦富津市下飯野における濃度上昇による。

Mn については、周辺に PRTR 届出事業所(届出業種：機械修理業)が存在し、大気への届出排出量の推移を確認したが、2005年度においては特段増加していなかった。

Mn, Fe 及び Zn に共通する発生源として鉄鋼工業が挙げられるが、これらは土壌及び道路粉じん(以下、「土壌等」という)にも含有されていることが知られている。

別報⁶⁾に記載したとおり、土壌等の Fe/Al 比は0.72～1.1であるが、対象期間における Fe/Al 濃度比の平均は表2のとおりであり、2005年度は他の年度と比べて高めの Fe/Al 濃度比を示していた。

表2 Fe/Al 濃度比の平均値

地点名	2005年度	全対象期間
③館山市北条	3.5	1.3
⑥君津市久保	5.0	1.7
⑦富津市下飯野	12	2.6
全地点平均	2.3	1.4

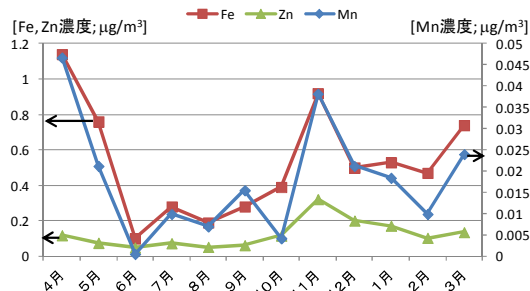


図7 ③館山市北条の月別濃度(2005年度)

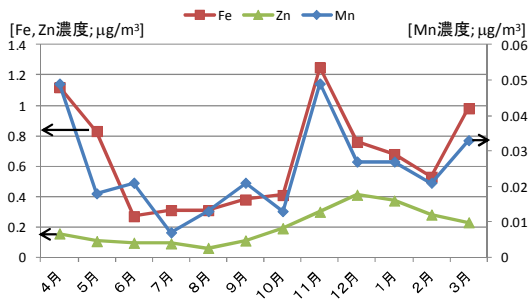


図8 ⑥君津市久保の月別濃度（2005年度）

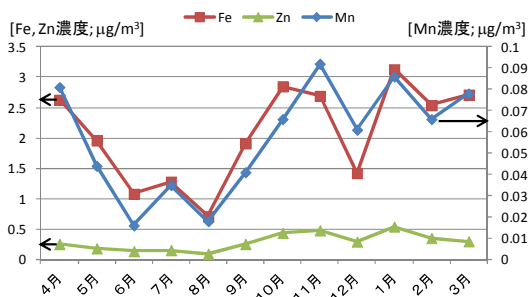


図9 ⑦富津市下飯野の月別濃度（2005年度）

また、図7～9に示すとおり、鉄鋼工業由来とされている金属がほぼ同時に上昇しており、Fe/Al比から土壌以外の発生源の影響が示唆されたことから、2005年度は鉄鋼工業の影響を受けたと推察された。

3・2・2・2 2007年度（V, Cr及びMn）

2007年度にV, Cr及びMnの全地点平均濃度が上昇したのは、①千葉市幸町における濃度上昇による。

この濃度上昇は、図10に示すとおり、2007年4月の測定において、5月以降と比べて約10倍の濃度が測定されたことに起因しており、千葉市担当者にお問い合わせを行ったが、高濃度となった原因は明確とならなかった。

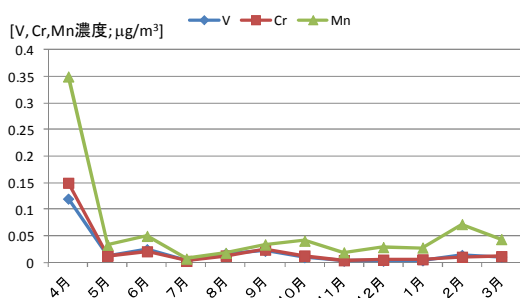


図10 ①千葉市幸町の月別濃度（2007年度）

4 まとめ

1992年度から2013年度に実施された浮遊粒子状物質調査（ローボリウムエアサンプラー法）の結果をとりまとめたところ、以下について確認された。

- ①SPM濃度は減少傾向にあった。
- ②SPM中のZn, Cu, Cd及びPb濃度は減少傾向にあり、廃棄物焼却施設の規制強化や廃棄物として処理される当該金属量の減少の影響と推察された。
- ③2005年度のMn, Fe及びZn濃度の上昇は、鉄鋼工業の影響と推察された。

このように大気中の粒子状物質の金属成分については、発生源影響を推察するのに有用であることから、微小粒子状物質を含む大気中の粒子状物質について、通年の成分組成の把握に努めることが重要であると考えられた。

引用文献

- 1) 千葉県環境生活部大気保全課：大気環境報告書（昭和57年度～平成25年度）。（1981～2015）。
- 2) 環境省：大気中微小粒子状物質（PM2.5）成分測定マニュアル。（2013）。
- 3) 溝畑 朗，真室哲雄：堺における大気浮遊粒子状物質中の諸元素の発生源の同定（I）．大気汚染学会誌，15(5)，20～28p(1980)。
- 4) 高橋克行，伏見暁洋，森野 悠，飯島明宏，米持真一，速水 洋，長谷川就一，田邊 潔，小林伸治：北関東における微小粒子状物質のレセプターモデルと放射性炭素同位体比を組み合わせた発生源寄与率推定．大気環境学会誌，46(3)，156～163p(2011)。
- 5) 坂田昌弘，丸本幸治：首都圏西部における微量金属の湿性沈着量の経年変化と水銀の降水への取り込み．環境化学，14(3)，555～565p(2004)。
- 6) 堀本泰秀，内藤季和：千葉県における降下ばいじん中の金属成分濃度の推移について．千葉県環境研究センター年報(2015)。