

2. 環境大気中の未規制物質に関する調査研究(第3報)

—福井・坂井地区におけるアンモニア、ホルム アルデヒド濃度継続調査結果—

正通寛治 坪内 彰 吉川昌範
高田敏夫 内田利勝 有賀 紀

I 緒 言

大気汚染物質の多様化およびエネルギーの転換にともない、環境大気中の未規制物質調査は、今後益々重要になって来るものと考えられる。福井県においては、前報¹⁾²⁾で述べた目的から55年度に福井・坂井地区におけるアンモニア、ホルムアルデヒドの調査を行った。その結果、同地区におけるこれら2物質の濃度は、バックグラウンド濃度と同程度であることが認められている。

本報では、前年度に引き続き実施した、福井・坂井地区における環境大気中のアンモニア、ホルムアルデヒド濃度の継続調査結果について報告する。

II 調査方法

1. 調査地点

調査は、前報同様図-1に示した福井県一般環境大気測定局 三国局、福井局、センター局の3地点において実施した。

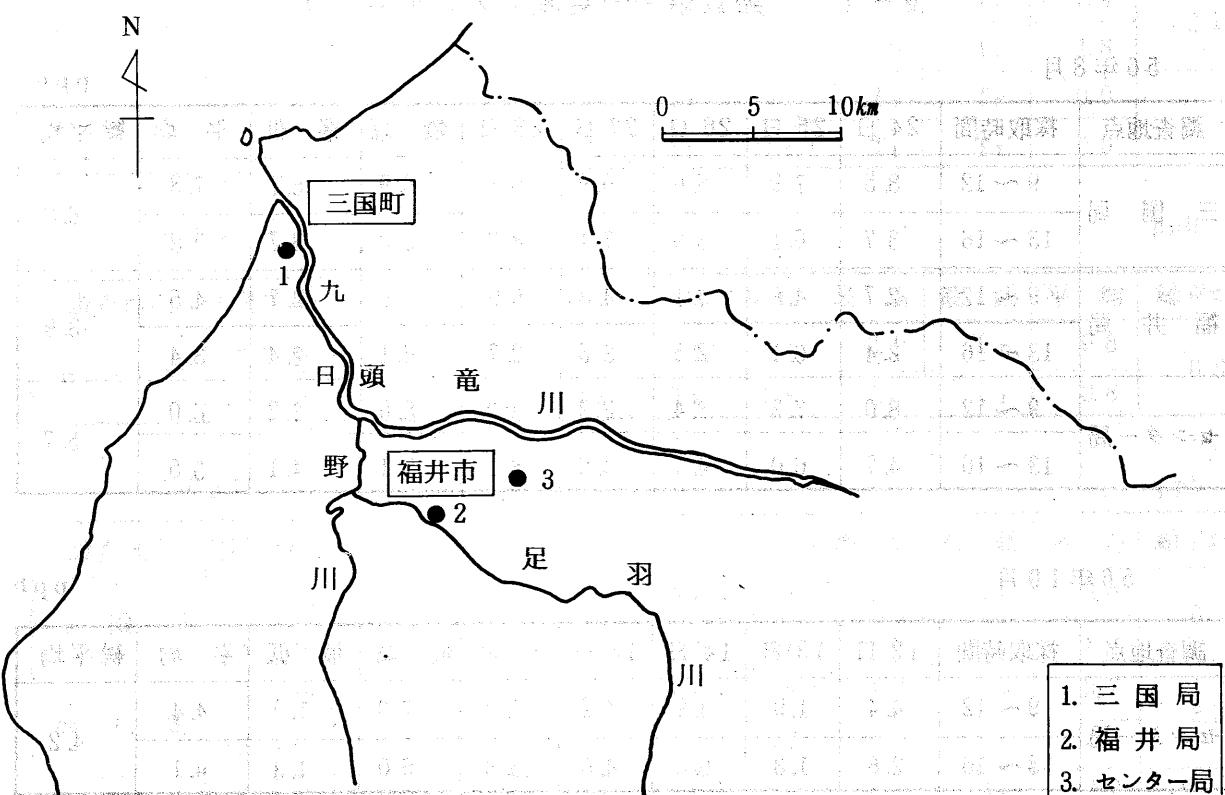


図-1 調査地点図

2. 試料採取期日

(夏季) 昭和56年 8月 24日 ~ 28日

(秋季) 〃 10月 12日 ~ 16日(センター局のみ)

(冬季) 昭和57年 2月 22日 ~ 26日(センター局のみ)

(春季) 〃 4月 19日 ~ 23日(センター局のみ)

上記期間の各日、午前(9~12時 AMと略)、午後(13~16時 PMと略)の2回試料採取を行った。

3. 試料採取方法

アンモニア(NH_3)、ホルムアルデヒド(HCHO)の2物質とともに、前報同様インピンジャー法により試料採取を行った。

4. 分析方法

定量は、前報同様アンモニアがインドフェノール法、ホルムアルデヒドがAHMT(4-アミノ-3-ヒドロキシ-5-メルカプト-1,2,4-トリアゾール)法にて行った。

III 結果と考察

1. 各地点の濃度

各地点における試料採取期日別調査結果一覧表を表-1、2に、濃度推移グラフを図-2、3に掲げた。

表-1 調査結果一覧表(アンモニア)

56年8月

ppb

| 調査地点 | 採取時間 | 24日 | 25日 | 26日 | 27日 | 28日 | 最高 | 最低 | 平均 | 総平均 |
|-------|-------|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|
| 三国局 | 9~12 | 8.5 | 7.9 | 6.6 | 9.9 | 6.1 | 9.9 | 6.1 | 7.8 | 6.8 |
| | 13~16 | 3.7 | 6.1 | 3.9 | 7.1 | 8.0 | 8.0 | 3.7 | 5.8 | |
| 福井局 | 9~12 | 2.7 | 4.8 | 3.1 | 4.8 | 6.9 | 6.9 | 2.7 | 4.5 | 3.9 |
| | 13~16 | 2.4 | 6.1 | 2.6 | 3.3 | 2.7 | 6.1 | 2.4 | 3.4 | |
| センター局 | 9~12 | 8.0 | 7.2 | 3.4 | 3.2 | 8.0 | 8.0 | 3.2 | 6.0 | 5.7 |
| | 13~16 | 4.7 | 6.0 | 4.1 | 4.6 | 8.1 | 8.1 | 4.1 | 5.5 | |

56年10月

ppb

| 調査地点 | 採取時間 | 12日 | 13日 | 14日 | 15日 | 16日 | 最高 | 最低 | 平均 | 総平均 |
|-------|-------|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|
| センター局 | 9~12 | 4.4 | 1.9 | 3.9 | 4.9 | 7.0 | 7.0 | 1.9 | 4.4 | 4.2 |
| | 13~16 | 2.6 | 1.3 | 6.0 | 4.6 | 5.8 | 6.0 | 1.3 | 4.1 | |

57年2月

ppb

| 調査地点 | 採取時間 | 22日 | 23日 | 24日 | 25日 | 26日 | 最高 | 最低 | 平均 | 総平均 |
|-------|-------|------|-----|-----|-----|-----|------|-----|-----|-----|
| 三国局 | 9~12 | 9.5 | 6.9 | 6.9 | 6.1 | 6.0 | 9.5 | 6.0 | 7.1 | 7.1 |
| | 13~16 | 11.6 | 8.5 | 5.6 | 5.1 | 4.4 | 11.6 | 4.4 | 7.0 | |
| 福井局 | 9~12 | 7.3 | 6.9 | 5.7 | 3.5 | 4.6 | 7.3 | 3.5 | 5.6 | 5.9 |
| | 13~16 | 7.1 | 8.0 | 7.1 | 3.7 | 5.5 | 8.0 | 3.7 | 6.3 | |
| センター局 | 9~12 | 8.2 | 5.8 | 4.4 | 2.2 | 3.3 | 8.2 | 2.2 | 4.8 | 5.2 |
| | 13~16 | 8.0 | 4.8 | 7.5 | 3.5 | 3.8 | 8.0 | 3.5 | 5.5 | |

57年4月

ppb

| 調査地点 | 採取時間 | 19日 | 20日 | 21日 | 22日 | 23日 | 最高 | 最低 | 平均 | 総平均 |
|-------|-------|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|
| センター局 | 9~12 | 3.6 | 5.2 | 8.9 | 7.3 | 5.8 | 8.9 | 3.6 | 6.2 | 5.7 |
| | 13~16 | 3.7 | 5.7 | 6.2 | 3.4 | 7.4 | 7.4 | 3.4 | 5.3 | |

表-2 調査結果一覧表(ホルムアルデヒド)

56年8月

| 調査地点 | 採取時間 | 24日 | 25日 | 26日 | 27日 | 28日 | 最高 | 最低 | 平均 | 総平均 |
|-------|-------|-----|-----|-----|-----|-----|-----|----|-----|-----|
| 三国局 | 9~12 | 2.4 | 2.5 | 2.4 | Tr | 2.6 | 2.6 | Tr | 2.0 | 1.5 |
| | 13~16 | Tr* | 2.8 | 2.1 | Tr | Tr | 2.8 | Tr | 1.0 | |
| 福井局 | 9~12 | 2.7 | 3.6 | 2.8 | Tr | 2.7 | 3.6 | Tr | 2.4 | 2.1 |
| | 13~16 | Tr | 2.3 | 3.6 | Tr | 3.3 | 3.6 | Tr | 1.8 | |
| センター局 | 9~12 | Tr | Tr | Tr | Tr | Tr | Tr | Tr | 0.0 | 0.0 |
| | 13~16 | Tr | Tr | Tr | Tr | Tr | Tr | Tr | 0.0 | |

56年10月

ppb

| 調査地点 | 採取時間 | 12日 | 13日 | 14日 | 15日 | 16日 | 最高 | 最低 | 平均 | 総平均 |
|-------|-------|-----|-----|-----|-----|-----|-----|----|-----|-----|
| センター局 | 9~12 | Tr | 2.1 | Tr | Tr | 1.7 | 2.1 | Tr | 0.8 | 0.8 |
| | 13~16 | Tr | 2.3 | Tr | Tr | 1.8 | 2.3 | Tr | 0.8 | |

57年2月

ppb

| 調査地点 | 採取時間 | 22日 | 23日 | 24日 | 25日 | 26日 | 最高 | 最低 | 平均 | 総平均 |
|-------|-------|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|
| 三国局 | 9~12 | Tr | Tr | 2.6 | Tr | Tr | 2.6 | Tr | 0.5 | 0.8 |
| | 13~16 | 2.5 | Tr | 2.5 | Tr | Tr | 2.5 | Tr | 1.0 | |
| 福井局 | 9~12 | 3.1 | 4.4 | 5.0 | 3.1 | 2.8 | 5.0 | 2.8 | 3.7 | 3.3 |
| | 13~16 | 2.7 | 2.3 | 4.0 | 2.5 | 2.7 | 4.0 | 2.3 | 2.8 | |
| センター局 | 9~12 | 2.3 | 2.3 | 3.8 | 2.8 | Tr | 3.8 | Tr | 2.2 | 2.4 |
| | 13~16 | 3.0 | Tr | 3.4 | 3.8 | 2.4 | 3.8 | Tr | 2.5 | |

57年4月

ppb

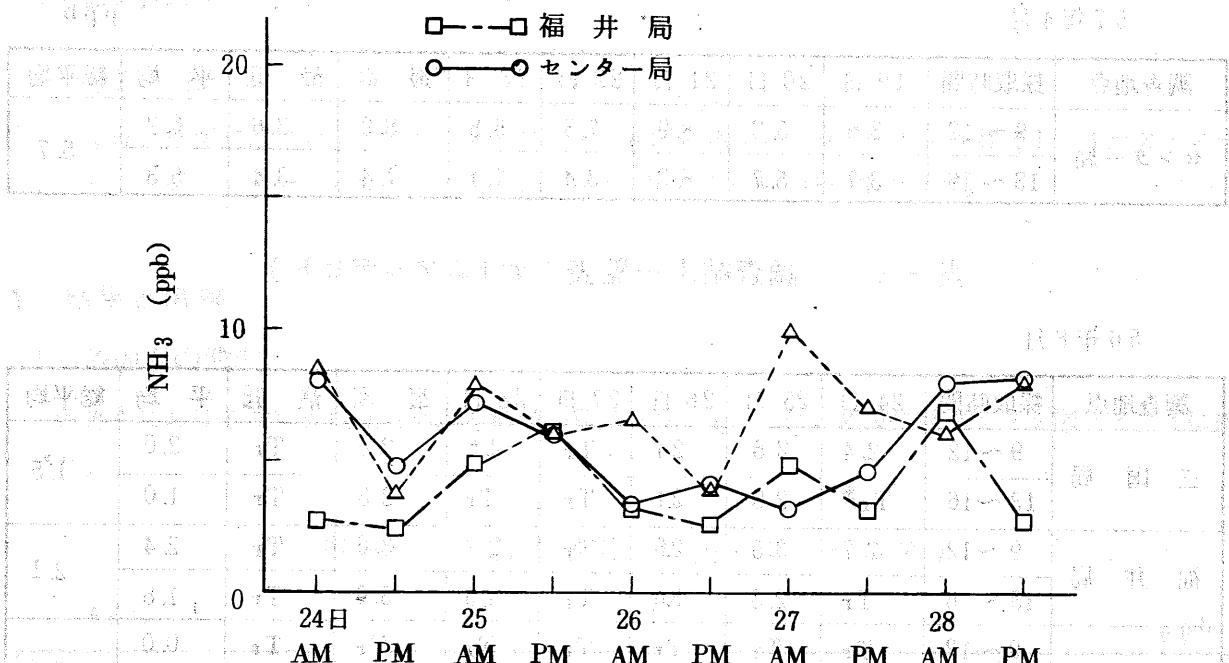
| 調査地点 | 採取時間 | 19日 | 20日 | 21日 | 22日 | 23日 | 最高 | 最低 | 平均 | 総平均 |
|-------|-------|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|
| センター局 | 9~12 | 3.1 | 2.9 | 2.0 | 2.4 | 1.5 | 3.1 | 1.5 | 2.4 | 1.7 |
| | 13~16 | Tr | Tr | 1.6 | 1.9 | 1.5 | 1.9 | Tr | 1.0 | |

* Tr は 1.5 ppb 未満であり、平均値算出の時は 0.0 ppb とした。

(56年8月)

△---△三国局

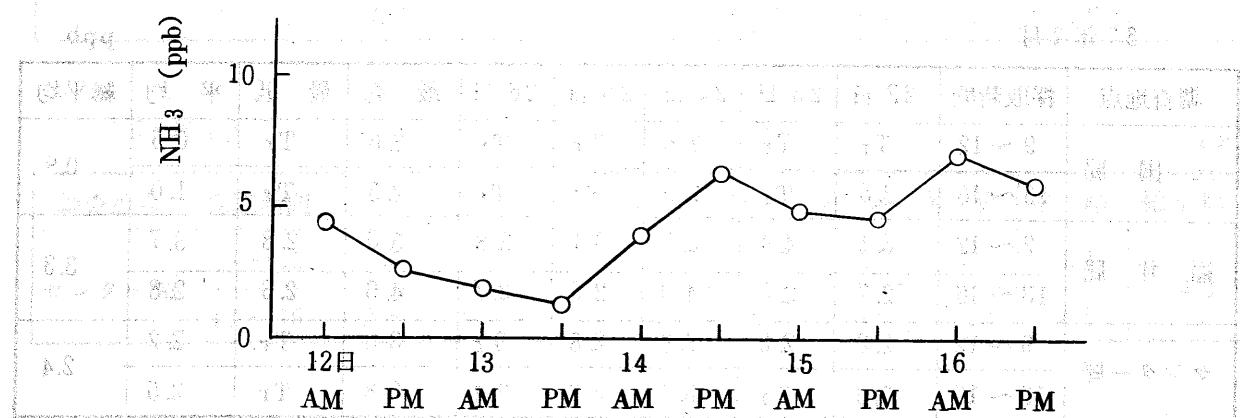
□---□福井局



(56年10月)

センター局

NH₃ (ppb)



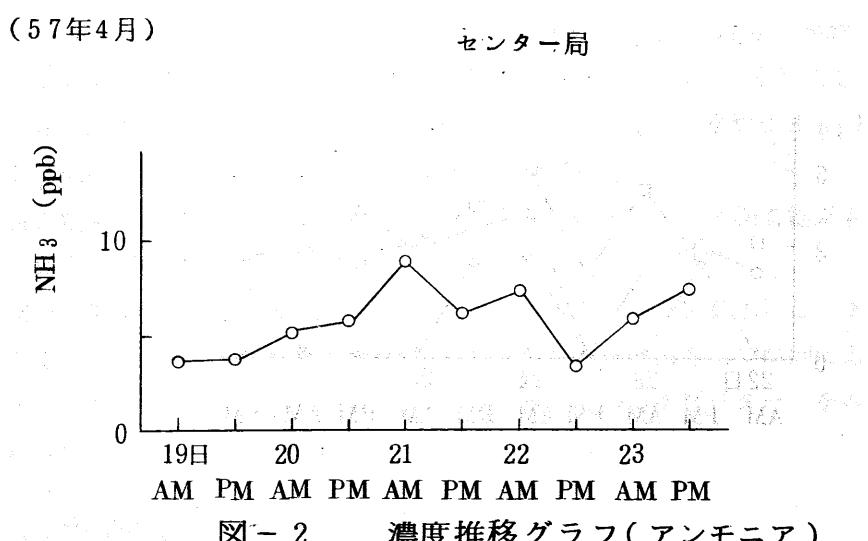
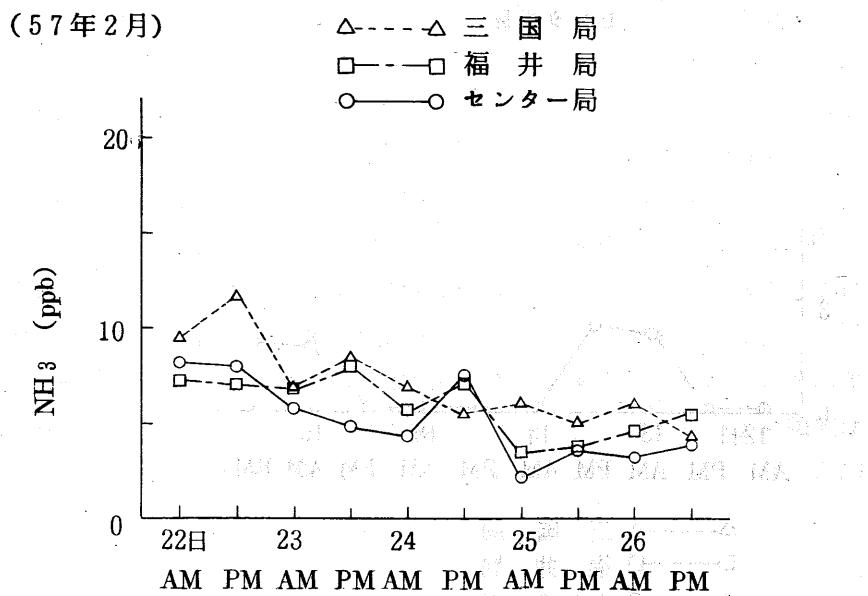
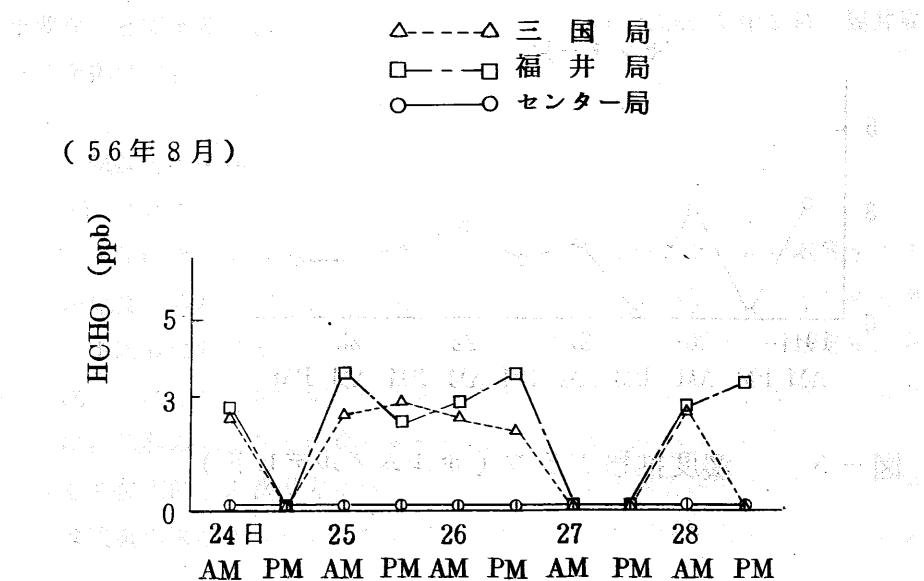
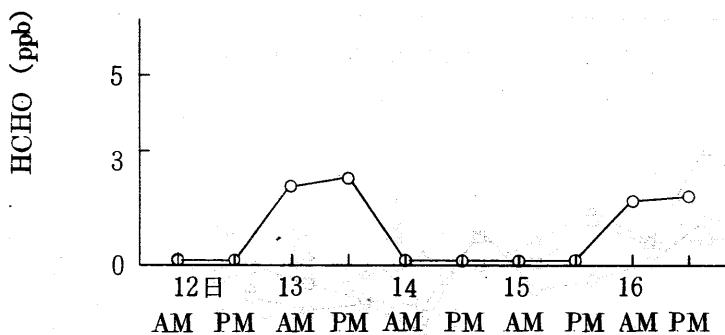


図-2 濃度推移グラフ(アンモニア)



(56年10月)

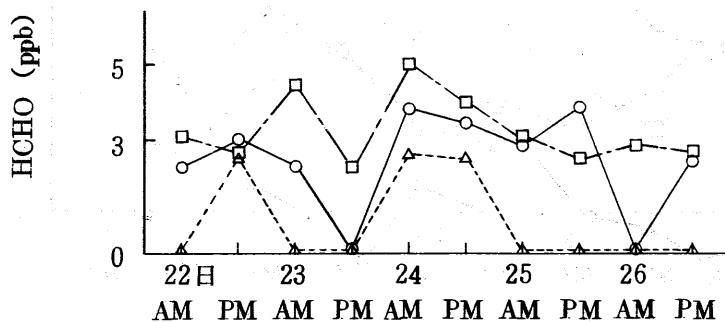
センター局



(57年2月)

△---△ 三国局
□---□ 福井局
○---○ センター局

(57年2月)



(57年4月)

センター局

(東京測定)

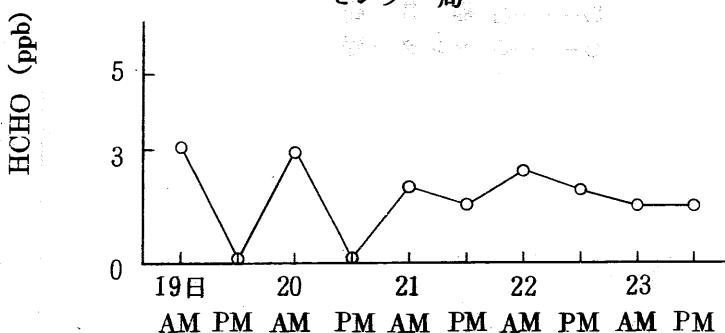


図-3 濃度推移グラフ(ホルムアルデヒド)

(1) アンモニア

表-1に示したように、福井・坂井地区3地点のアンモニア濃度は、3地点同時調査を実施した56年8月、57年2月においては、三国局が3.7～11.6 ppb、平均7.0 ppb、福井局が2.4～8.0 ppb、平均4.9 ppb、センター局が2.2～8.2 ppb、平均5.5 ppbであり、また、センター局のみ調査を行った56年10月は、1.3～7.0 ppb、平均4.2 ppb、57年4月は、3.4～8.9 ppb、平均5.7 ppbであった。

調査結果は、他地域における調査例³⁾⁴⁾⁵⁾との比較から、前報¹⁾同様バックグラウンドと同程度の値であった。また、本調査結果を前報の結果と比較すると、3地点ともに本調査結果の方がやや低い値を示した。これは、気象条件の差異によるものと推察される。

調査結果を地点別にみると、三国局がやや高い濃度を示したが、その差は小さく、前報と同様の傾向であった。次に、午前と午後の濃度差についてみたが、一定の傾向は認められなかった。

図-2には3地点の濃度推移パターンを表わしたが、56年8月、57年2月とも特に一定の傾向はみられなかった。

(2) ホルムアルデヒド

福井・坂井地区3地点のホルムアルデヒド濃度は、3地点同時調査を実施した56年8月、57年2月においては、三国局が、Tr(1.5 ppb未満)～2.8 ppb 平均1.2 ppb、福井局が、Tr～5.0 ppb 平均2.7 ppb、センター局が Tr～3.8 ppb 平均1.2 ppbであり、また、センター局のみ調査を行った56年10月は、Tr～2.3 ppb 平均0.8 ppb、57年4月はTr～3.1 ppb 平均1.7 ppbであった(表-2参照)。

調査結果を他地域における調査例³⁾⁶⁾⁷⁾⁸⁾と比較すると、本調査結果も前報²⁾同様バックグラウンド濃度と同程度の値であった。

調査結果を地点別にみると、前報同様福井局がやや高い値を示した。また、午前と午後の値を比較すると、福井局においておおむね午前の方がやや高い値を示す傾向にあった。

次に、56年8月、57年2月における3地点の濃度推移パターンをみたが、特に一定の傾向は認められなかった(図-3参照)。

2. 大気汚染物質等との関係

大気中アンモニア、ホルムアルデヒドの挙動を知るうえで、他の汚染物質等との関係をみると重要なことである。図-4に、56年8月 三国局及び57年2月 福井局を例にとった濃度推移グラフを掲げた。

(1) 気温との関係

1) アンモニア

大気中アンモニアは、季節別にみた場合夏季により高い濃度を示す傾向にあるとの報告例⁹⁾¹⁰⁾¹¹⁾が見受けられる。これは土壤中バクテリアの作用が助長されるためと考えられている。

本調査におけるアンモニアと気温との関係をみるために、各季節毎の平均濃度と平均気温¹⁾²⁾を図-5に示したが、前報同様季節(すなわち、気温)による濃度差はみられなかった。このように、気温の高くなる時期に濃度が高くなる傾向が認められないこと、前報で述べたように積雪時と非積雪時との濃度差がほとんどないこと(本調査期間においては、降雪が少なく積雪時の調査は実施出来なかった。)およびアンモニアの大規模発生源がないことから、福井・坂井地区にお

山本船(56年8月)、山本・福井・三国局の測定結果によれば、NH₃はAMとPMの間に大きな差があるが、NO₂はAMとPMでほとんど差がない。HCHOはAMとPMで大きな差がある。SO₂はAMとPMで大きな差がある。SPはAMとPMで大きな差がある。NMHCはAMとPMで大きな差がある。TempはAMとPMで大きな差がある。OxはAMとPMで大きな差がある。NOはAMとPMで大きな差がある。

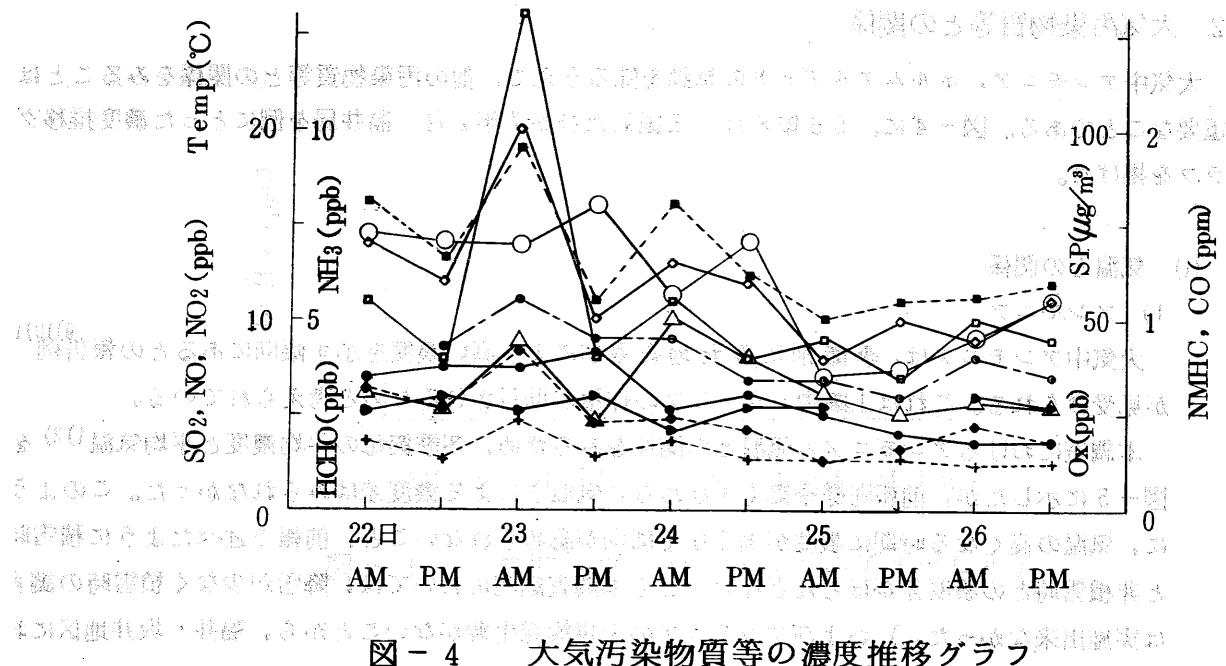
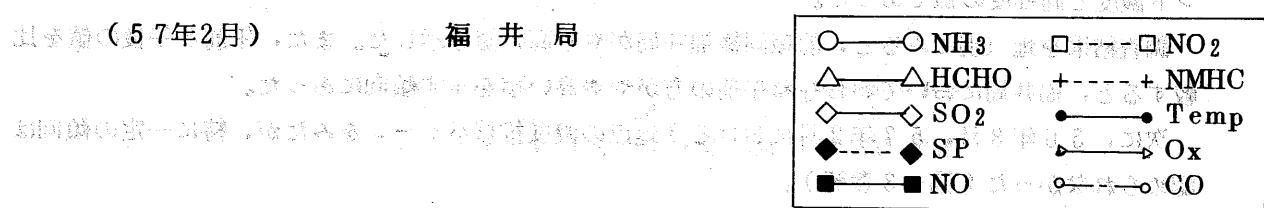
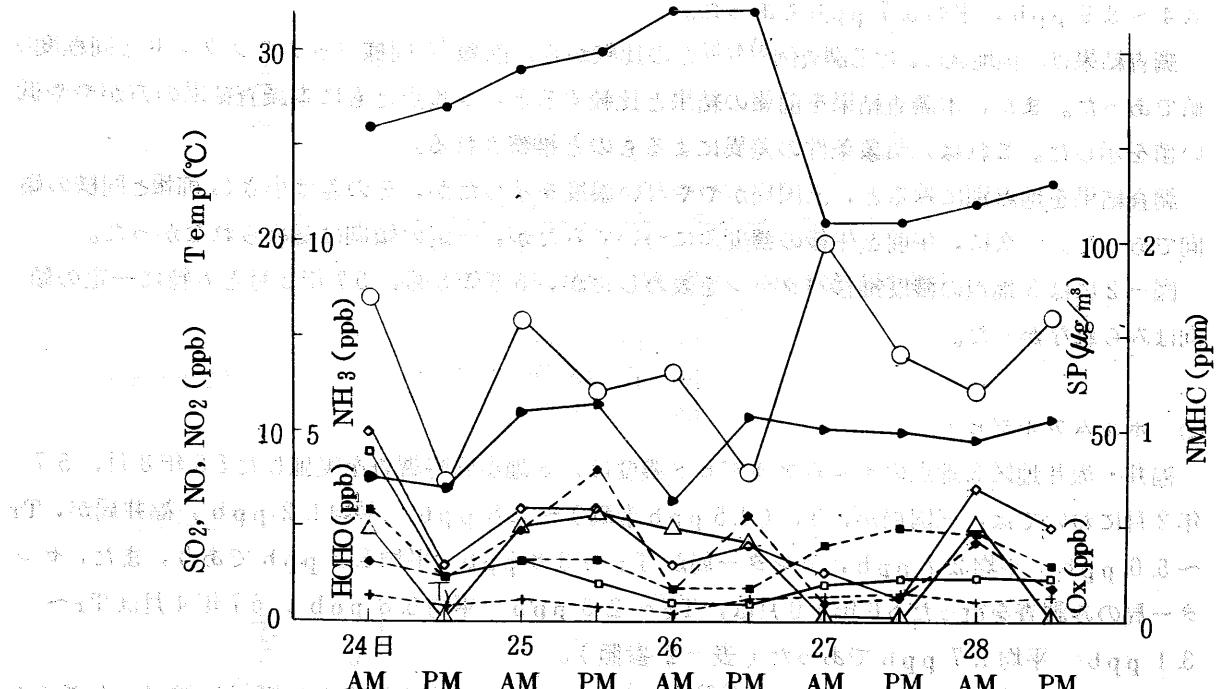


図-4 大気汚染物質等の濃度推移グラフ

けるアンモニアの主な発生源は、人間や動物の排泄物によるものであり、土壤バクテリアによる生成は少ないものと推察される。

2) ホルムアルデヒド

大気中ホルムアルデヒドは、光化学反応による生成のため、夏季に、より高い値を示すとされている^{6) 13) 14) 15)}が、本調査結果においては、前報²⁾同様季節（すなわち気温）による濃度差はみられなかった（図-5 参照）。また、各季節においても、各地点とともに、気温との間に一定の傾向は認められなかった（図-4 参照）。

(2) 気温以外の項目との関係

二酸化イオウ (SO_2)、浮遊粉じん (SP)、一酸化窒素 (NO)、二酸化窒素 (NO_2)、非メタン炭化水素 (NMHC)、オキシダント (Ox)、一酸化炭素 (CO)、風向、風速、湿度、降雨との関係について検討を行った（図-4 参照）。

1) アンモニア

SO_2 、SP、NO、 NO_2 、NMHC、Ox、CO、HCHO、風向、風速、湿度との間に一定の傾向は認められなかった。

降雨との関係については、ウォッシュアウト効果のため、降雨時には濃度が低下すると考えられたが、8月27日 AM、PMにみられるように、継続的な降雨の場合も濃度の低下は認められなかった。この結果は、前報および他の報告例^{3) 9)}と同様の傾向であった。

2) ホルムアルデヒド

上記大気汚染物質のうち、ホルムアルデヒドと類似の濃度推移パターンを示したのは、56年8月三国局（図-4 参照）、57年2月福井局（図-4 参照）、57年4月センター局におけるNO、 NO_2 、 SO_2 、SP、NMHC、CO（福井局のみ測定）であり、その傾向は57年2月福井局の場合が最も明瞭であった。この結果および1-(2)で述べたように、他地点に比べやや高い濃度を示す傾向にある福井局において、57年2月は、より高い値を示したことから次のことが推察される。すなわち、57年2月は、汚染物質が滞留し易い気象状況と福井局が市街地に位置することによる汚染物質が拡散しにくい状況との複合された影響のため、ホルムアルデヒドが、より高い濃度を示し、その濃度推移パターンがNO、 NO_2 などと類似しているのであろう。

また、(1)-(2)に記したように、気温との関係が認められないこと、およびオキシダントとの関係もないことから、前報同様福井・坂井地区のように比較的汚染されていない地域においては

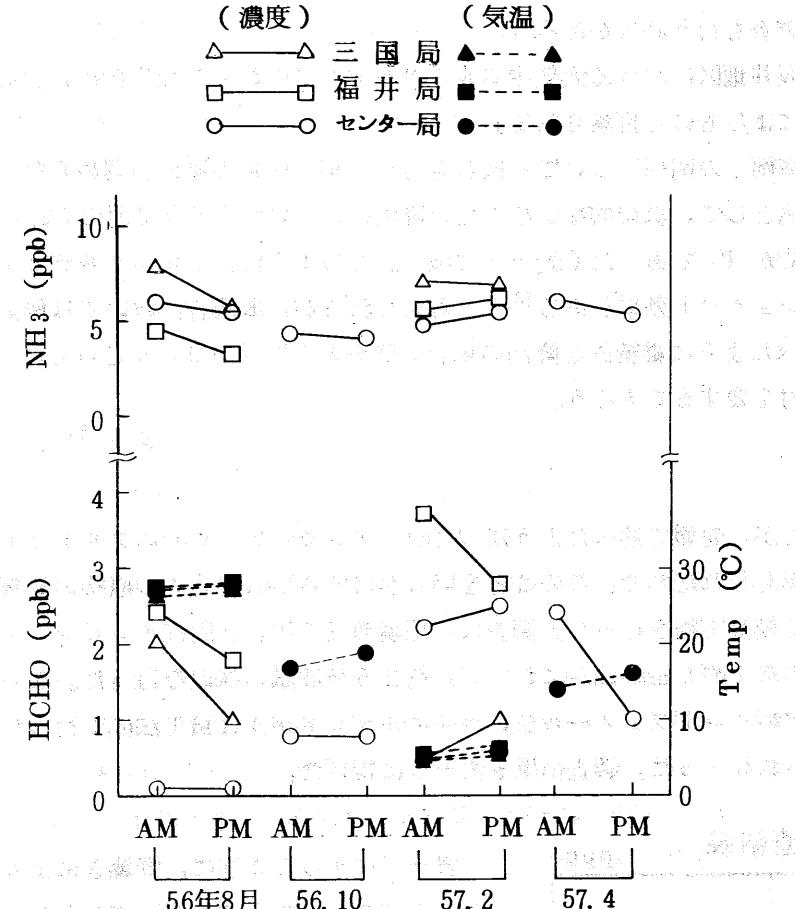


図-5 平均濃度と平均気温の関係

光化学反応によるホルムアルデヒドの生成は少ないと考えられた。なお、前報同様調査期間中にはみられなかつたが、稀に出現するオキシダント高濃度時（例えば、100 ppb以上）のように、光化学反応が活発な時の調査も行う必要があろう。

これらのことから、福井・坂井地区における大気中ホルムアルデヒドのおもな発生源は、自動車排ガスや工場等のごみ焼却によるものと推察される。

次に、風向、風速、湿度、降雨との関係についても検討を行つたが、一定の傾向が認められたのは降雨の場合である。その例として、継続的なかなり強い降雨のみられた56年8月27日は午前、午後ともに3地点すべてがTrであった（表-2参照）。このように、ホルムアルデヒドはアンモニアと異なりウォッシュアウト効果がある¹⁶⁾と考えられるが、本調査においては例数が少なく、また、前報²⁾で述べたように継続的な降雨の場合、降雨との関係がほとんどみられなかつたことから今後さらに検討を要するであろう。

3. 野焼きの影響調査

本調査においてはみられなかつたが、前報で述べたように大気中アンモニア、ホルムアルデヒド濃度は、野焼きの影響を受けると考えられたので、このことを明らかにするため、野焼きの直接の影響について検討することを目的として模擬実験を行つた。調査は、環境濃度の場合と同様インピングジャー法を用い、野焼き（乾燥わら）の風下約5mの地点において、約25分間試料採取を行つた。なお、定量は環境濃度同様、アンモニアがインドフェノール法、ホルムアルデヒドがAHMT法にて行ったが、この方法に対する妨害は認められなかつた。調査結果を表-3に掲げた。

表-3 野焼きの影響調査結果

ppb

| 回数 | 物質 | アンモニア | ホルムアルデヒド |
|----|----------|-------|----------|
| 1回 | アンモニア | 175 | 452 |
| 2回 | ホルムアルデヒド | 168 | 410 |

表-3に示したように、野焼きによりアンモニア、ホルムアルデヒドがかなり発生し、環境濃度に影響を及ぼすことが確認された。このように、野焼きによりアンモニアが発生するのは、わら等の高温乾燥による有機物質の分解のため、一方、ホルムアルデヒドが生成するのは、不完全燃焼のためと考えられる。

IV 結語

福井・坂井地区における環境大気中アンモニア、ホルムアルデヒドの継続調査結果の概要是、次のとおりであった。

- 各地点の大気中アンモニア濃度の平均値は、夏季が、三国局6.8、福井局3.9、センター局5.7 ppb、冬季が、三国局7.1、福井局5.9、センター局5.2 ppb、センター局のみ調査を行つた秋季が4.2 ppb、春季が5.7 ppbであり、前報同様バックグラウンド濃度と同程度の値が得られた。
- 各地点の大気中ホルムアルデヒド濃度の平均値は、夏季が、三国局1.5、福井局2.1、センター局0.0 ppb、冬季が、三国局0.8、福井局3.3、センター局2.4 ppb、センター局のみ調査を行つた秋季が0.8 ppb、春季が1.7 ppbであり、前報同様バックグラウンド濃度と同程度の値が得られた。
- 各地点の濃度推移パターンをみたが、アンモニア、ホルムアルデヒドとも、特に一定の傾向は認められなかつた。
- 大気中アンモニア濃度に季節差はみられず、他の大気汚染物質との間にも一定の関係は認められない。

なかった。また、降雨時に低濃度を示す傾向はみられず、アンモニアのウォッシュアウト効果は小さいと考えられた。これらの結果から、福井・坂井地区におけるアンモニアの主な発生源は、人間や動物の排泄物によるものと推察された。

5. ホルムアルデヒドもアンモニア同様、季節による濃度差はみられなかった。この傾向は前報と同様である。また、他の大気汚染物質との関係から、福井・坂井地区におけるホルムアルデヒドの主な発生源は、自動車排ガスや工場等のごみ焼却によるものと推察された。

6. 大気中のアンモニア、ホルムアルデヒド濃度に、野焼きが影響すると考えられたので、模擬実験を行ったところ、このことを確認することができた。なお、本調査時においては、野焼きの実績はなく、その影響例はみられなかった。

参考文献

- 1) 正通寛治他：本報，10，92(1980)
- 2) 正通寛治他：本報，10，103(1980)
- 3) 環境庁大気保全局・湿性大気汚染調査検討会：昭和53年度湿性大気汚染調査結果報告書（昭和54年3月）
- 4) 近本武次他：京都府衛公研年報，(23)，135(1978)
- 5) 全国公害研協議会：山岳・森林・原野における大気汚染のバックグラウンド調査（昭和52年3月）
- 6) 松村年郎他：公害と対策，15，(12)，7(1979)
- 7) 近本武次他：京都府衛公研年報，(23)，96(1978)
- 8) 原田 朗：大気のバックグラウンド汚染，共立出版P.6 (1973)
- 9) 国分信英他，公害と対策，6，(4)，13(1970)
- 10) H. EGNÉR, et al., : Tellus, 7, 134(1955)
- 11) 鳴田好孝他：第21回大気汚染学会講演要旨集，120(1980)
- 12) 新良宏一郎他訳：大気汚染の測定，化学同人 P. 166(1973)
- 13) 早福正孝他：東京都公害研究所年報，76(1981)
- 14) W. S. CLEVELAND, et al., : Atmos Environ, 11, 357(1977)
- 15) 松村年郎他：PPM, 13, (3), 2(1982)
- 16) 安部喜也他：第20回大気汚染学会講演要旨集，288(昭和54年)