

報 文

市原市における大気中炭化水素濃度の推移

花井 義道 *

Variations of Atmospheric Concentrations of
Hydrocarbons in Ichihara City, Japan

Yoshimichi HANAI *

Synopsis

Atmospheric C₂-C₈ hydrocarbons such as ethylene, propylene, benzene and toluene were measured every once a year during 14 years from 1986 to 1999 at 40 sites in Ichihara city, in Japan. This city consist of three characteristics area as follows. The northern area contains the large petrochemical kombinat along the front of the Tokyo Bay, the central area contains highly populated town, and the southern area contains farm and forest. The obtained data of each area were averaged and compared every year. The average concentrations of almost hydrocarbons, especially ethylene, propylene and styrene in the industrial area were higher than those of the town area, but acetylene was an exception. The median of all data of each year indicate that the concentration of ethylene has been increasing recent two years, on the other hand the concentration of acetylene and benzene have been decreasing from 1990.

1. はじめに

市原市は臨海部にわが国最大級の石油化学工業地帯を擁している。この石油化学コンビナートは1957年から埋立造成され、1968年に五井・市原地区(714ha)、1970年に五井・姉崎地区(1468ha)が完成した。総面積2182haで、市域の面積368km²の5.9%を占めている。主な生産能力(1990年度)は石油精製65.5万バレル/日、電力536万KW/h、エチレン170.5万t/年である。(市原市環境保健部、1985~1999)工業地帯の南東境界を縦断する国道16号線から市の中部にかけは平坦な市街地となっている。首都圏へ通勤する人達の住宅、商店などが多く、北部市街地に市の人口約28万人(1998年)のうち約70%が集中している。中部から南部にかけては丘陵となり、田畑、山林、ゴルフ場などに使われている。

臨海部で原料あるいは製品として取り扱われる多様な揮発性化合物は悪臭など大気汚染の原因となりうる。発生源対策をとるには、まず大気汚染物質の質と量を把握する必要があるため、市

原市環境部は横浜国立大学に調査を依頼した。各工場別に年数回調査した結果は1973年より各年度毎に整理し、報告書としてまとめた(市原市環境保健部、1973~1999)。また報文として製造工程別に大気汚染質の特徴を調べた結果(加藤ら、1979)、低級炭化水素に関して、連続測定機を市街地に設置し時間変動と1982年より85年の市内濃度分布を調べた結果(花井ら、1985)を発表している。

1986年以降にも、炭化水素全般にわたって市原市内濃度分布調査を実施してきた。炭化水素成分分析の長期間にわたる継続的な調査は少なく、これらの調査結果を資料として公表する意味はあると考える。そこで、1986年から99年まで14年間分の測定結果を地域別に整理し、大気中炭化水素濃度の分布と経年変化についてまとめた結果を報告する。

2. 調査地点と日時

本調査期間中の市原市の人口と臨海工場地帯

* 横浜国立大学環境科学研究センター環境危機管理学研究室

Department of Environmental Risk Management, Institute of Environmental Science and Technology,
Yokohama National University
(1999年11月1日受領)

の主要生産能力の推移を表1に示す(市原市環境保健部, 1985~1999)。濃度分布の調査地点は図1に示す市原市内の40個所を選定した。三班に分かれ、車で移動し、午後1時から4時頃にかけて試料大気を採取した。No1~20は臨海工業地帯内で工場敷地外の道路上である。なお工業地帯の採取地点の位置は調査年度によって多少異なる。

No21~31は内房線から南東へ5km以内の市街地で人口密度の高い地域である。No32~40では農地、山林の占める比率が高く、またゴルフ場の数も多い人口密度の低い地域である。いずれも学校、市の施設などの正門付近で大気を採取した。

調査日時と、その時の天候を表2に示す。風向、風速は国設の郡本測定局での値である。

表1 市原市の人口と臨海工業地帯生産能力の推移

年度	人口	石油精製 万バレル/日	電力 万kw/h	エチレン 万t/年
1985	238,133	65.5	568.5	153.6
1986	241,207	65.5	568.5	153.6
1987	244,986	65.5	561.0	153.6
1988	248,721	65.5	536.0	153.6
1989	254,133	65.5	536.0	167.0
1990	258,795	65.5	536.0	170.5
1991	263,419	65.5	536.0	178.8
1992	265,002	65.5	536.0	178.8
1993	268,420	62.8	536.0	141.2
1994	272,782	62.8	548.6	141.2
1995	277,574	62.9	548.6	201.2
1996	278,674	63.3	548.6	201.2
1997	279,434	64.5	548.6	237.8
1998	280,260	64.5	548.6	238.3

表2 炭化水素濃度分布 調査日時と天候 郡本測定局(国設)における風向と風速(m/s)

			13:00	14:00	15:00	16:00	17:00
①	86.3.4	13:04~16:03	曇り E 2.6	E 2.3	ESE 3.9	ESE 5.5	E 3.0
②	87.1.27	13:09~15:55	快晴 NNW 4.0	WNW 1.9	N 1.2	NW 1.7	NNW 1.2
③	88.1.18	14:15~16:50	晴 NNW 4.6	NW 7.6	NW 11.0	NNW 10.5	NNW 10.5
④	89.2.14	13:27~16:40	快晴 NW 7.4	NW 6.5	NW 8.2	NW 5.5	NNW 5.1
⑤	90.2.26	14:02~16:10	曇り ENE 4.0	NE 3.8	N 2.4	NNE 3.3	NNE 2.0
⑥	91.2.26	14:50~17:30	快晴 NW 4.2	WNW 3.8	NW 3.4	WNW 2.4	WSW 1.2
⑦	92.2.25	14:00~16:52	快晴 WNW 9.8	NNW 9.4	NNW 6.7	NW 8.4	NNW 6.0
⑧	93.3.5	13:10~16:22	快晴 SE 2.9	W 4.0	WSW 3.8	SW 4.8	S 5.1
⑨	94.2.14	14:30~17:05	快晴 SW 2.9	SW 3.3	SW 3.2	SW 3.1	SSW 1.7
⑩	95.2.2	14:28~16:55	快晴 N 2.3	ESE 1.4	NNE 1.4	ESE 3.0	E 1.0
⑪	96.2.26	13:45~17:05	晴 C 0.0	NNE 1.1	E 3.0	E 3.9	ESE 4.2
⑫	97.2.21	13:40~16:50	曇り NW 7.8	NNW 5.7	NNW 5.9	NNW 7.5	NNW 9.6
⑬	98.2.10	13:10~16:25	曇り NNE 3.9	NNE 3.6	NW 4.0	N 2.5	N 0.9
⑭	99.3.5	13:08~15:56	曇り SSW 4.9	SSW 6.3	S 6.7	SSW 7.0	SSW 8.9

3. 測定方法

試料空気は電池式ポンプでバック(近江オドエアサービス製)に採取した。バッグはあらかじめボンベの窒素ガスを入れ洗浄した。現場では、1回目の空気は充填後抜いて空にし、2回目の空気を試料とした。採取して研究室に持ち帰ったバッグは測定対象別に以下の方法で分析した。炭素数2~5の低級炭化水素は、脱水、脱炭酸管(炭

酸カリ、ソーダライム充填)をとおした後、液体窒素で冷却したGC試料管(C22充填)に濃縮(1l)し、GC/FID(島津GC-4B)、カラムはActivated Alumina TR 60/80 mesh、2m×3mm、ステンレス製で分析した。

炭素数6以上の炭化水素および、沸点が50℃以上の有機成分は大気自動分析装置に接続して測定した。自動分析装置はTenaxGCを充填した濃縮管、GC/FID(Hewlett Packard 5880A)、カ

表 3-1 市原市内濃度分布調査 中央値の経年変化 単位: ppb (n=40)

(年, 月)	(86.3)	(87.3)	(88.1)	(89.2)	(90.2)	(91.2)	(92.2)	(93.3)	(94.2)	(95.2)	(96.2)	(97.2)	(98.2)	(99.3)
エタン	3.5	4.1	4.7	5.1	2.4	5.6	4.2	2.9	2.9	3.8	3.3	2.9	3.7	2.7
プロパン	2.3	4.6	7.1	4.1	3.6	5.5	2.8	2.2	3.0	4.0	2.9	3.7	4.4	1.6
iso-ブタン	0.6	1.4	2.2	1.3	1.6	1.3	1.0	1.0	0.8	1.2	0.8	1.2	1.3	0.8
n-ブタン	1.0	3.0	3.6	2.6	2.8	2.9	1.7	1.5	1.6	1.7	1.3	2.2	2.1	1.1
iso-ペンタン	1.3	1.5	1.6	1.6	1.4	1.7	0.9	1.3	0.8	1.0	0.6	0.9	1.1	0.8
n-ペンタン	0.7	1.3	1.6	1.0	0.7	1.5	1.1	0.7	0.5	0.9	0.3	0.8	0.5	0.4
エチレン	4.1	6.2	6.1	5.6	5.4	10	4.4	3.9	3.3	5.2	3.6	2.3	8.5	9.9
アセチレン	1.6	4.3	2.8	3.3	4.0	2.2	1.9	1.5	1.3	2.1	1.2	0.8	1.2	1.0
プロピレン	0.4	1.6	1.4	1.4	1.6	4.1	1.0	1.1	0.9	1.0	0.6	0.8	1.0	1.8
ベンゼン	1.4	2.4	2.2	6.0	13	8.6	6.4	4.0	3.9	2.2	1.9	2.1	1.9	1.1
トルエン	4.6	5.5	9.2	7.0	15	11	21	9.8	6.2	4.6	4.1	4.5	12	4.9
エチルベンゼン	0.6	0.8	0.9	0.8	1.8	1.2	1.0	1.1	1.0	0.7	0.7	1.1	1.1	0.7
m,p-キシレン	1.7	1.5	1.6	1.2	3.0	1.9	1.1	1.8	1.8	1.2	1.0	1.6	1.5	1.2
o-キシレン	0.5	0.7	0.6	0.5	1.1	0.8	0.7	0.6	0.6	0.4	0.4	0.6	0.4	0.3
スチレン	0.1	0.1	0.3	0.3	0.4	0.3	0.3	0.1	0.1	0.1	0.2	0.2	0.2	0.2

表 3-2 市原市内濃度分布調査 平均値の経年変化 単位: ppb (n=40)

(年, 月)	(86.3)	(87.3)	(88.1)	(89.2)	(90.2)	(91.2)	(92.2)	(93.3)	(94.2)	(95.2)	(96.2)	(97.2)	(98.2)	(99.3)
エタン	3.74	4.20	5.18	6.24	6.34	7.35	5.46	4.62	5.82	9.92	4.70	5.10	9.23	5.08
プロパン	3.31	5.34	9.34	10.2	8.96	6.71	3.91	4.49	9.50	6.66	5.08	4.20	7.10	7.22
iso-ブタン	1.39	1.98	3.46	1.87	4.77	2.94	2.24	2.57	2.50	1.46	4.75	1.72	2.21	2.48
n-ブタン	2.66	4.27	7.22	4.21	8.59	8.86	3.32	4.35	5.46	4.17	7.19	3.15	5.26	5.67
iso-ペンタン	1.55	2.40	3.42	2.79	3.91	2.25	2.37	2.58	1.83	1.29	7.85	1.71	1.82	3.78
n-ペンタン	1.35	2.16	2.80	1.61	2.59	1.79	1.45	1.83	2.41	1.10	5.56	1.31	1.10	2.96
エチレン	14.9	19.2	19.0	19.0	57.3	13.5	19.5	17.1	11.5	12.7	26.0	14.5	20.5	20.9
アセチレン	1.72	4.70	4.04	4.43	5.92	2.79	2.31	2.31	1.61	2.52	1.40	1.01	1.69	1.08
プロピレン	5.27	2.16	7.31	7.14	26.4	5.13	2.26	4.69	22.0	2.53	3.77	2.20	7.77	6.85
ベンゼン	1.82	5.27	3.85	8.43	20.7	11.0	9.92	13.7	7.30	6.75	5.43	3.55	6.85	3.70
トルエン	5.14	11.2	11.6	12.8	16.9	29.3	31.0	11.1	7.70	6.17	13.1	10.1	15.0	5.67
エチルベンゼン	0.89	1.16	1.10	1.21	2.02	1.85	1.18	1.29	1.53	0.76	0.90	1.33	1.26	0.97
m,p-キシレン	1.78	1.75	1.86	1.61	3.23	2.73	1.91	2.00	2.30	1.29	1.14	1.80	1.63	1.25
o-キシレン	0.55	0.82	0.68	0.60	1.36	1.01	0.78	0.74	0.75	0.40	0.44	0.66	0.52	0.37
スチレン	0.11	0.57	0.68	0.83	0.81	0.89	1.10	0.54	0.64	0.19	0.26	0.52	0.82	0.27

表 3-3 市原市内濃度分布調査 最高値の経年変化 単位: ppb (n=40)

(年, 月)	(86.3)	(87.3)	(88.1)	(89.2)	(90.2)	(91.2)	(92.2)	(93.3)	(94.2)	(95.2)	(96.2)	(97.2)	(98.2)	(99.3)
エタン	9.0	7.4	13	18	140	53	40	34	43	200	18	45	130	29
プロパン	14	24	35	160	84	25	15	24	180	46	34	14	40	95
iso-ブタン	19	12	18	9.7	46	43	19	20	57	7.6	120	6.7	16	36
n-ブタン	41	30	36	19	72	180	29	25	120	50	150	17	40	110
iso-ペンタン	7.5	17	18	23	31	7.4	27	17	15	4.3	240	18	11	52
n-ペンタン	8.9	14	15	8.2	22	5.1	7.3	15	54	2.8	180	5.9	8.1	45
エチレン	220	470	470	270	1400	43	370	450	210	110	560	160	200	150
アセチレン	6.0	14	20	13	38	8.3	5.4	26	5.4	14	4.9	4.1	4.9	3.8
プロピレン	98	14	95	110	670	25	21	98	740	42	98	40	200	77
ベンゼン	8.5	90	35	43	120	75	69	290	66	110	110	47	130	42
トルエン	31	210	43	190	51	570	260	35	50	60	320	180	110	14
エチルベンゼン	1.7	7.7	3.2	6.6	5.3	18	4.9	2.6	16	1.7	3.3	4.2	4.4	4.1
m,p-キシレン	5.5	7.8	5.2	7.6	9.8	19	6.2	4.2	12	2.5	3.3	4.3	5.1	3.7
o-キシレン	1.8	2.9	1.7	2.5	4.1	5.3	2.2	2.3	3.6	0.8	1.7	1.4	1.7	1.4
スチレン	0.2	8.2	4.9	14	5.8	9.3	17	6.9	8.9	3.1	2.1	6.3	12	1.6

表 4-1 市原市炭化水素濃度分布調査 地域別平均値の経年変化 単位：ppb

調査日	エタン			プロパン			iso-ブタン		
	工業地帯	市街地	農地・山林	工業地帯	市街地	農地・山林	工業地帯	市街地	農地・山林
86. 3. 4	4.1	3.5	3.2	4.4	2.4	2.1	1.9	1.2	0.4
87. 1.27	4.2	4.2	4.4	5.5	5.3	5.1	1.8	2.6	1.6
88. 1.18	6.0	4.6	4.1	12.2	8.2	4.3	4.9	2.7	1.3
89. 2.14	6.9	6.0	5.2	15.1	6.8	3.9	1.8	2.2	1.5
90. 2.26	10.6	2.4	1.6	13.7	5.0	1.6	7.0	2.9	2.1
91. 2.26	8.3	7.0	5.8	6.9	6.4	5.0	4.3	1.6	1.5
92. 2.25	6.5	4.4	4.4	4.4	3.9	2.8	1.8	4.1	1.1
93. 3. 5	4.5	4.0	2.4	5.7	2.6	4.2	3.8	1.6	1.0
94. 2.14	7.2	3.0	2.8	16.3	2.7	2.7	4.3	0.8	0.5
95. 2. 2	16.0	3.7	3.3	9.8	3.4	3.2	1.7	1.5	0.9
96. 2.26	6.5	3.2	2.6	7.6	2.9	2.0	8.8	0.9	0.6
97. 2.21	7.1	3.1	3.1	4.1	3.8	5.0	1.5	1.9	2.0
98. 2.10	14.9	3.9	3.1	10.4	4.8	2.5	3.0	1.7	1.0
99. 3. 5	7.6	2.6	2.6	13.0	1.2	1.7	4.3	0.6	0.6
全平均値	7.88	3.96	3.48	9.22	4.24	3.29	3.63	1.88	1.16
比率	2.3	1.1	1.0	2.8	1.3	1.0	3.1	1.6	1.0

調査日	n-ブタン			iso-ペンタン			n-ペンタン		
	工業地帯	市街地	農地・山林	工業地帯	市街地	農地・山林	工業地帯	市街地	農地・山林
86. 3. 4	4.0	1.9	0.7	1.4	2.0	1.4	1.7	1.4	0.50
87. 1.27	4.7	4.5	3.0	2.4	2.7	2.0	2.3	2.5	1.59
88. 1.18	10.3	5.6	2.4	4.6	2.4	1.2	4.0	1.9	1.18
89. 2.14	4.6	4.5	3.1	2.5	3.7	2.3	1.7	1.8	1.23
90. 2.26	13.4	3.4	4.3	5.0	2.0	3.8	3.6	1.2	2.04
91. 2.26	12.7	3.1	2.8	2.5	2.0	2.1	1.9	1.6	1.78
92. 2.25	2.6	6.0	1.7	2.0	4.2	0.8	1.3	2.2	0.96
93. 3. 5	6.4	2.7	1.8	3.1	1.6	1.0	2.8	1.1	0.51
94. 2.14	9.5	1.6	1.1	3.0	0.7	0.5	4.3	0.5	0.47
95. 2. 2	5.9	3.0	1.6	1.4	1.5	0.8	1.2	1.1	0.84
96. 2.26	13.4	1.1	0.9	15.0	0.8	0.5	10.8	0.5	0.21
97. 2.21	3.3	3.3	2.7	1.6	2.5	0.9	1.5	1.1	1.07
98. 2.10	8.3	2.9	1.4	2.5	1.3	0.9	1.7	0.6	0.48
99. 3. 5	10.5	0.9	0.8	6.9	0.7	0.6	5.6	0.4	0.4
全平均値	7.83	3.16	2.03	3.85	2.01	1.35	3.17	1.27	0.95
比率	3.9	1.6	1.0	2.8	1.5	1.0	3.3	1.3	1.0

調査日	エチレン			アセチレン			プロピレン		
	工業地帯	市街地	農地・山林	工業地帯	市街地	農地・山林	工業地帯	市街地	農地・山林
86. 3. 4	24.9	5.2	4.4	1.7	2.0	1.4	9.8	0.6	0.3
87. 1.27	31.3	8.0	6.1	4.7	4.4	5.2	2.4	2.2	1.6
88. 1.18	31.6	6.8	5.7	3.8	4.6	4.0	13.3	1.4	1.2
89. 2.14	28.4	13.9	5.6	2.8	8.1	3.5	12.2	3.0	1.5
90. 2.26	109.0	7.5	4.0	5.9	6.5	5.2	50.1	4.1	0.8
91. 2.26	12.2	18.6	10.2	2.7	3.6	2.1	5.1	6.0	4.1
92. 2.25	34.3	5.4	4.0	1.9	3.1	2.3	3.2	1.6	1.0
93. 3. 5	30.9	4.1	2.4	3.2	1.4	1.3	7.8	2.3	0.7
94. 2.14	19.5	4.7	2.2	1.4	2.3	1.3	43.4	0.7	0.4
95. 2. 2	20.2	5.3	4.5	1.8	3.8	2.9	4.1	1.1	0.7
96. 2.26	49.3	3.2	2.0	1.6	1.6	1.0	7.0	0.6	0.4
97. 2.21	26.2	3.0	2.5	1.0	1.3	0.7	3.7	0.7	0.7
98. 2.10	31.8	10.1	8.0	1.2	2.8	1.5	14.3	1.6	0.8
99. 3. 5	31.8	11.0	8.8	1.1	1.1	1.0	12.3	1.3	1.6
全平均値	34.4	7.62	5.04	2.47	3.33	2.38	13.48	1.93	1.13
比率	6.8	1.5	1.0	1.0	1.4	1.0	12.0	1.7	1.0

表 4-2 市原市炭化水素濃度分布調査 地域別平均値の経年変化 単位：ppb

調査日	ベンゼン			トルエン			エチルベンゼン		
	工業地帯	市街地	農地・山林	工業地帯	市街地	農地・山林	工業地帯	市街地	農地・山林
86. 3. 4	2.3	1.4	1.3	4.2	4.8	8.1	0.7	0.6	1.0
87. 1.27	8.1	2.9	2.0	17.9	5.4	3.6	1.5	0.9	0.7
88. 1.18	6.4	1.6	1.1	17.1	6.4	5.8	1.4	1.0	0.7
89. 2.14	8.7	6.4	10.3	18.2	7.2	8.3	1.6	0.8	0.9
90. 2.26	25.6	16.7	14.6	18.1	17.6	13.6	2.4	2.1	1.1
91. 2.26	13.1	9.0	8.7	42.5	20.4	10.9	2.5	1.3	1.2
92. 2.25	10.0	6.6	10.7	32.5	23.5	37.0	1.5	1.0	0.8
93. 3. 5	23.8	4.2	3.0	12.8	10.1	8.8	1.7	1.0	0.8
94. 2.14	11.5	3.5	1.9	9.3	6.6	5.5	2.1	0.8	1.1
95. 2. 2	11.2	2.6	1.5	7.3	5.7	4.1	0.8	0.9	0.5
96. 2.26	9.0	1.8	1.9	22.2	3.8	4.1	1.1	0.6	0.9
97. 2.21	4.9	2.7	1.6	18.6	5.9	4.1	1.5	1.3	1.3
98. 2.10	12.0	1.9	1.5	18.9	11.5	10.5	1.5	1.1	1.0
99. 3. 5	6.8	0.7	0.5	7.6	4.1	3.4	1.4	0.6	0.4
全平均値	10.95	4.42	4.32	17.7	9.49	9.13	1.53	1.00	0.88
比率	2.5	1.0	1.0	1.9	1.0	1.0	1.7	1.1	1.0

調査日	m,p-キシレン			o-キシレン			スチレン		
	工業地帯	市街地	農地・山林	工業地帯	市街地	農地・山林	工業地帯	市街地	農地・山林
86. 3. 4	1.8	1.6	1.8	0.58	0.53	0.52	0.11	0.10	0.10
87. 1.27	2.0	1.8	1.1	0.92	0.85	0.55	1.05	0.10	0.10
88. 1.18	2.2	1.6	1.3	0.78	0.63	0.52	0.92	0.57	0.26
89. 2.14	1.9	1.2	1.5	0.71	0.47	0.52	1.37	0.36	0.24
90. 2.26	3.4	3.9	2.2	1.31	1.77	1.05	1.20	0.55	0.27
91. 2.26	3.4	2.1	2.0	1.29	0.82	0.82	1.46	0.41	0.22
92. 2.25	2.2	1.8	1.5	0.87	0.75	0.63	1.93	0.37	0.16
93. 3. 5	2.4	1.7	1.4	0.98	0.55	0.44	0.97	0.11	0.10
94. 2.14	3.1	1.7	1.5	1.00	0.53	0.47	1.17	0.11	0.12
95. 2. 2	1.4	1.5	0.9	0.43	0.42	0.31	0.28	0.12	0.10
96. 2.26	1.2	1.0	1.2	0.50	0.35	0.42	0.36	0.16	0.14
97. 2.21	1.9	1.8	1.7	0.68	0.65	0.63	0.81	0.29	0.13
98. 2.10	1.8	1.6	1.3	0.55	0.58	0.40	1.40	0.27	0.21
99. 3. 5	1.6	1.1	0.7	0.49	0.28	0.20	0.37	0.20	0.14
全平均値	2.17	1.73	1.43	0.79	0.66	0.53	0.96	0.27	0.16
比率	1.5	1.2	1.0	1.5	1.2	1.0	5.9	1.6	1.0

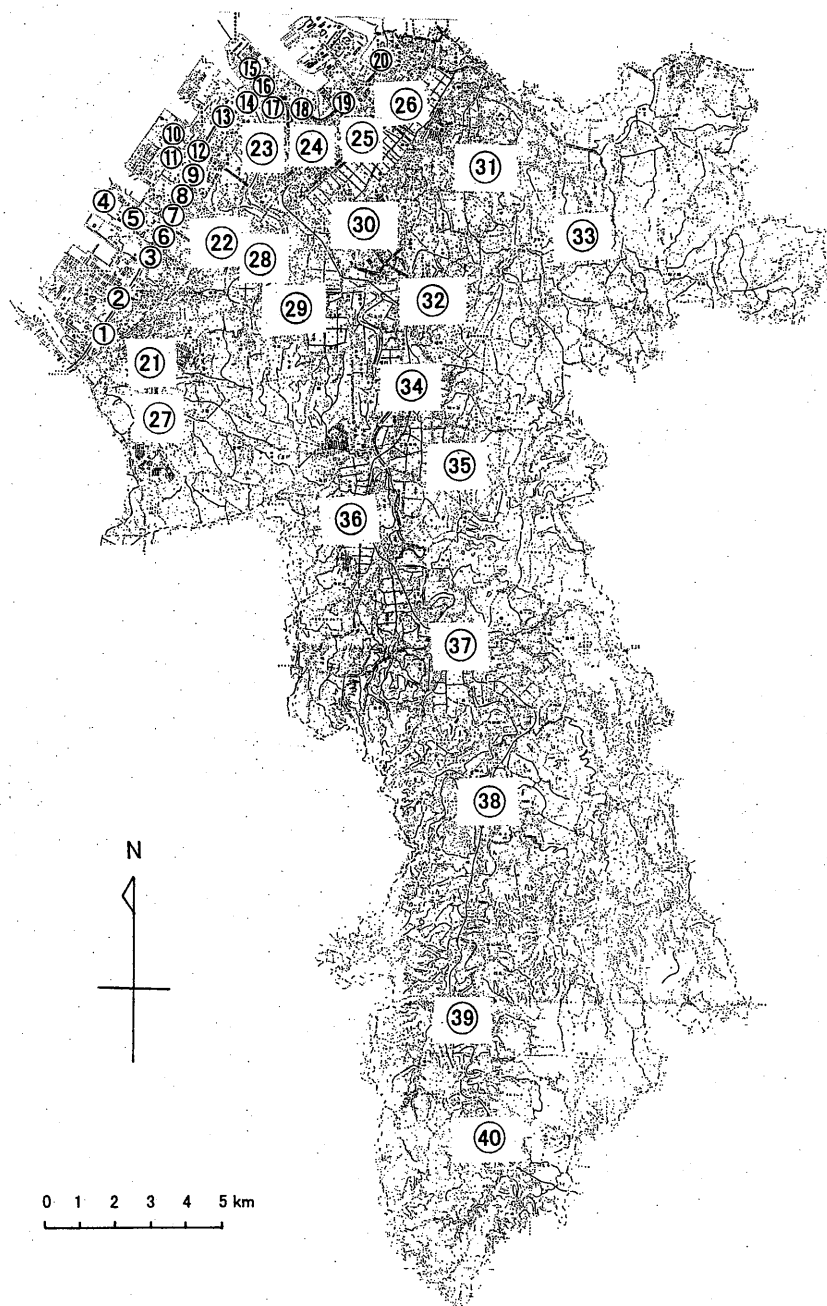


図1 市原市内濃度分布調査地点図

調査地点の区分 ①～②① 工業地帯 ②①～③① 市街地 ③②～④① 農地・山林

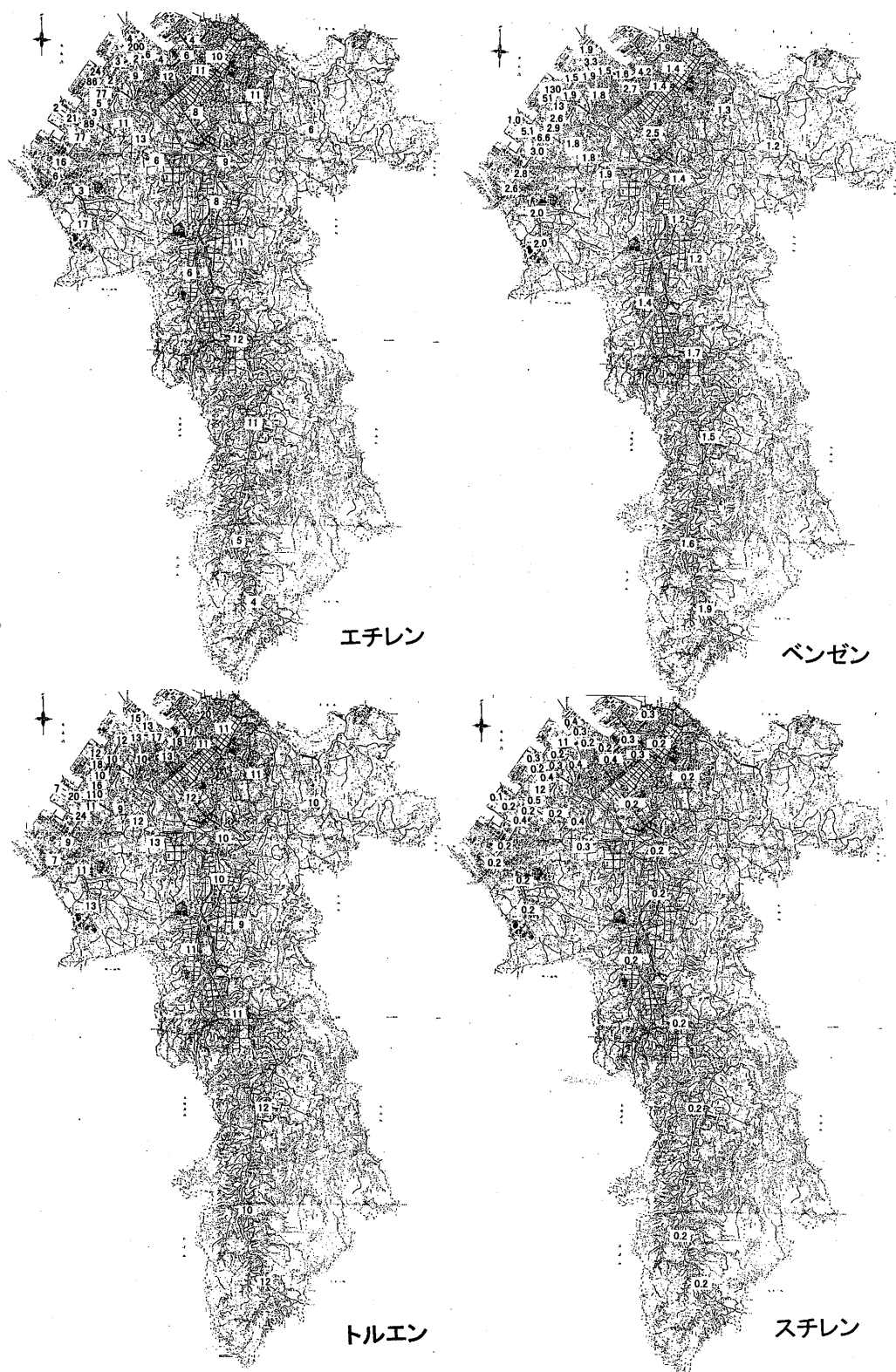


図2 市原市内炭化水素濃度分布図 1998年2月10日 単位 ppb

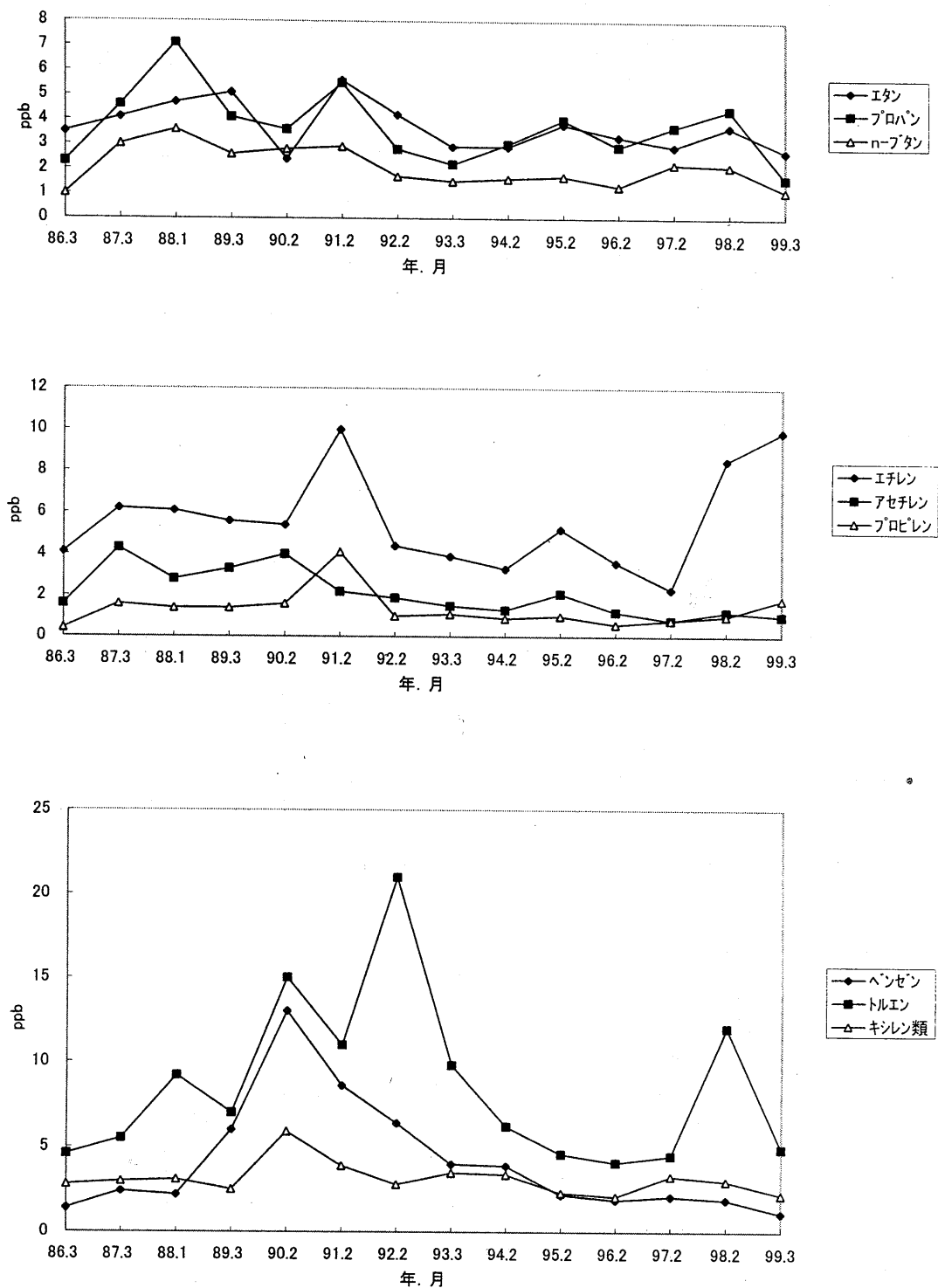


図3 市原市炭化水素濃度分布調査 中央値の経年変化

注 キシレン類はエチルベンゼンとキシレン各異性体の合計値

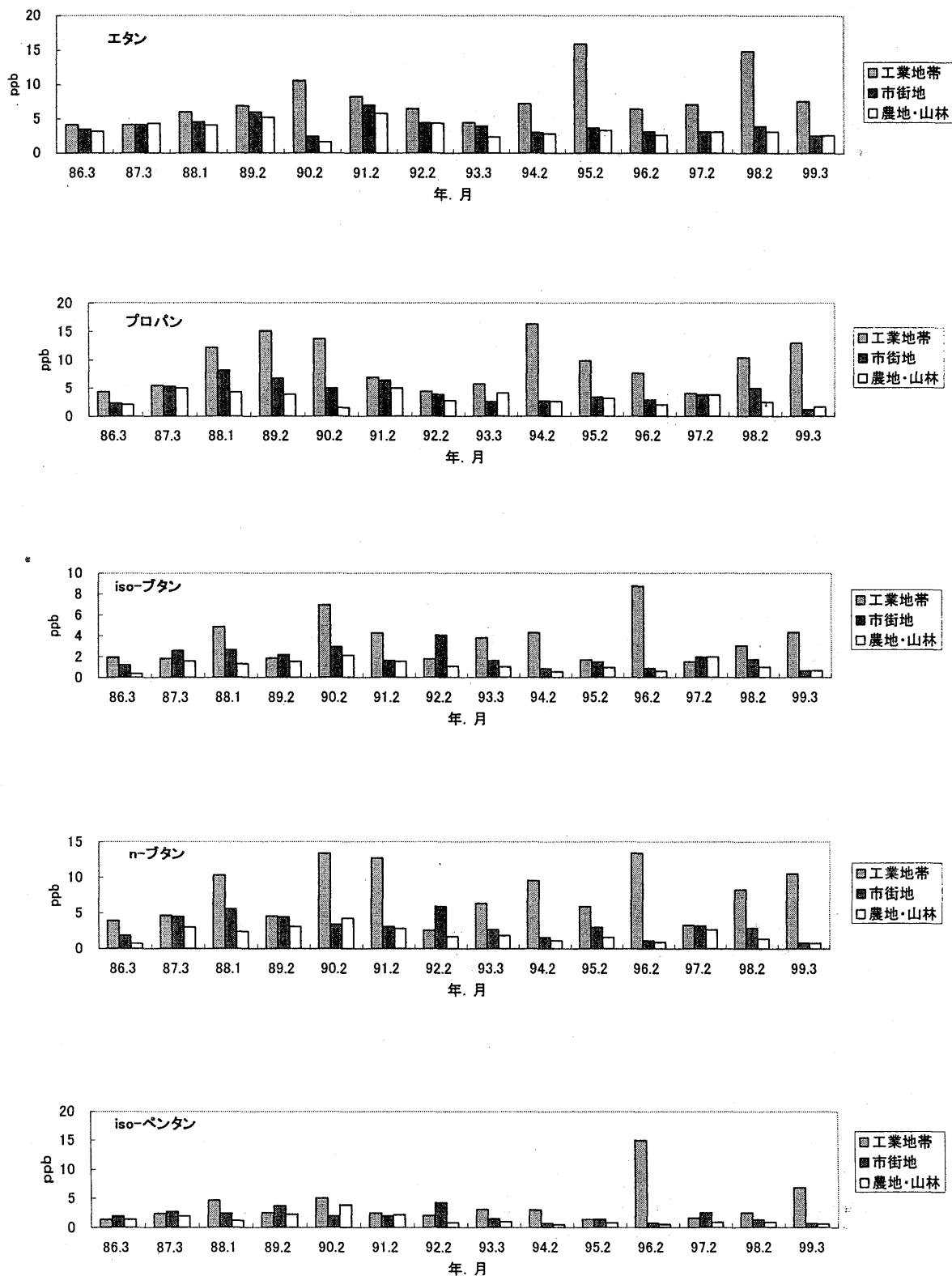


図 4-1 市原市炭化水素濃度 地域別平均値の経年変化

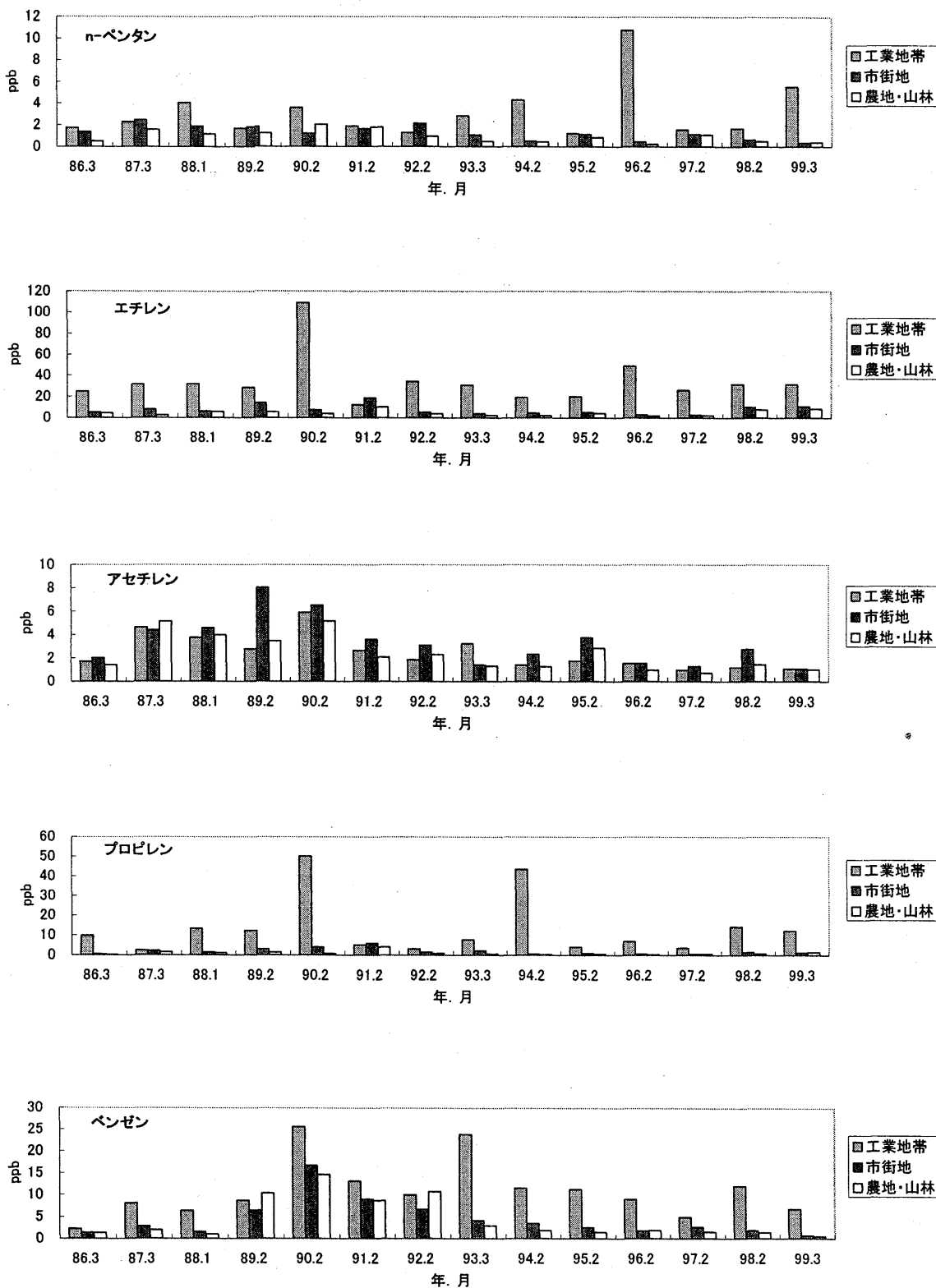


図 4-2 市原市炭化水素濃度 地域別平均値の経年変化

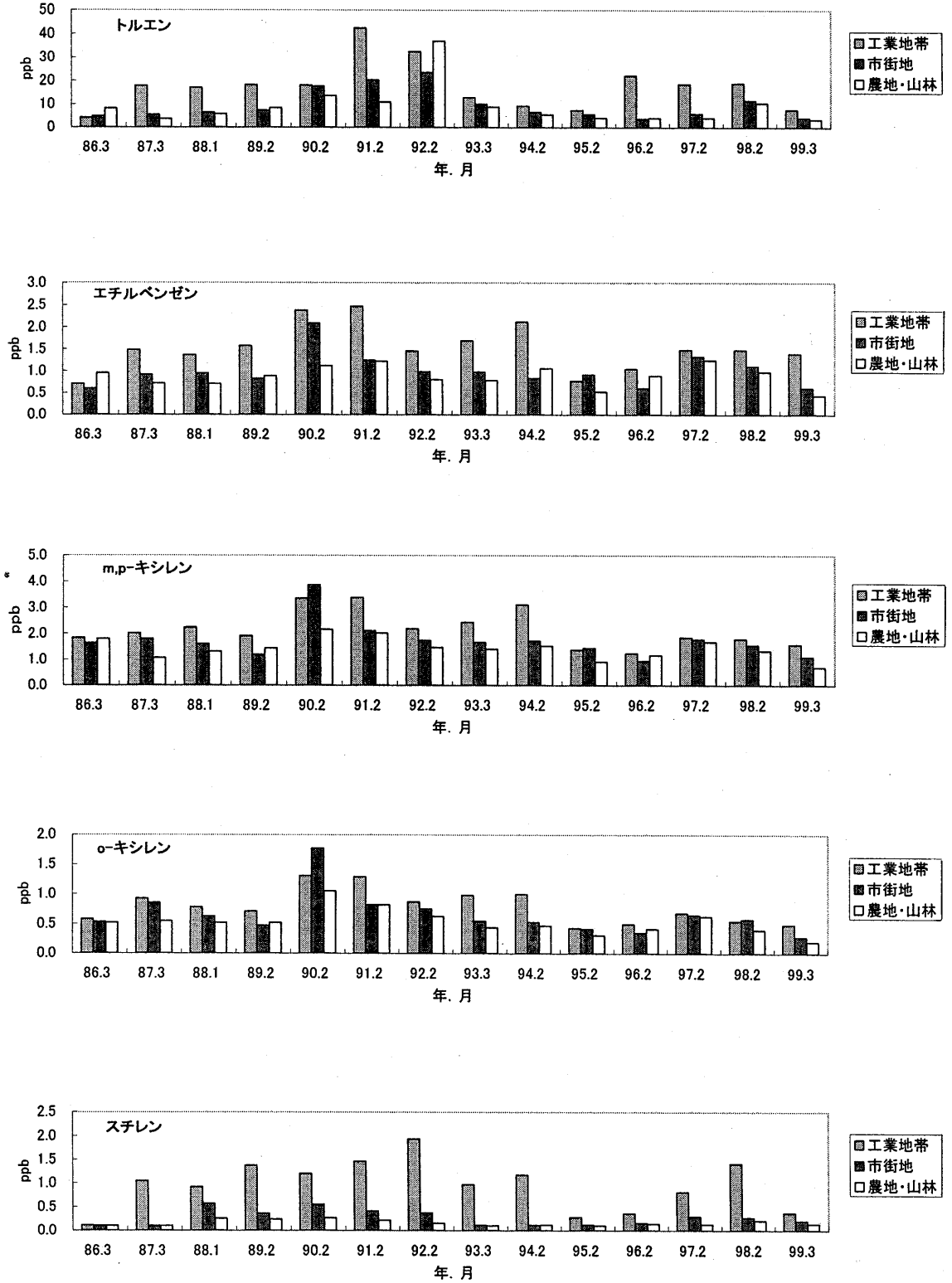


図 4-3 市原市炭化水素濃度 地域別平均値の経年変化

ラム Cross linked 5% phenyl methyl silicone, 50m×0.31mm×1μmで構成されている(花井、1984)。

3. 調査結果と考察

各年度の調査報告書には工場別の調査結果、市内全域の分布調査の全測定値、統計値、代表的な成分の濃度分布図が記載されている。濃度分布図の例として1998年のエチレン、ベンゼン、トルエン、スチレンについて図2に示す。測定値の単位はppbで地図上に示した。

1986年より1999年にかけての濃度分布調査の各成分、各地点における測定値は膨大な数になるため、ここでは統計値(n=40)の推移を示す。表3-1と図3に中央値を、表3-2に平均値を、表3-3に最高値を示す。

次に、前述した図1の調査地点番号よりNo1~20を工業地帯(n=20)、No21~31を市街地(n=11)、No32~40では農地、山林(n=9)として市内を3つに区分し、それぞれの地域の平均値を求めた。地域別平均値の経年変化を表4と図4に示す。以上の結果を成分別に見る。

3.1 エチレン

工業地帯の表4に示す全平均値(1986~1999)が最も高かった成分はコンビナートの代表的生産品目であるエチレンであった。エチレンを生産する企業は住友化学工業、出光石油化学、三井化学、丸善石油化学の4社で、これらのプラント風下と、エチレンの供給を受けてポリエチレンを生産する協和油化、チッソ石油化学などの風下で高い値となることが多かった。ただし、高濃度の地域は局地的であり、工業地帯では海風が吹き込むため、図2に示すとおり、バックグラウンドに相当する低い値の地点も多い。しかし、表3-3に示すように最高値は中央値に比べ極めて高い値となるため、91年の例外を除き、工業地帯の平均値は高い値となった。表4の全平均値の工業地帯の農地・山林に対する比率は6.8、市街地は1.5であった。

エチレン濃度の経年変化について表3-2の平均値について見ると、90年に57.3ppbと最も高かった。これは表3-3の最高値1400ppbと極端に高い値の影響を受けたためである。異常に高い値の影響を受けない中央値について表3-1、図3を見ると、91年が10ppbと最も高かった。以後低い値が続いたが、98年8.5ppb、99年9.9ppbと再び濃度が高くなってきた。この傾向は表4の市街地および農地・山林の地域的 평균値の経年変化からも見て取れる。エチレンの生産能力は表1に示すように97年より増加している。ただし表2に示すように98年はN系だが、99年はS系と逆になっている。99年は市街地および農地・山林の方が工業地帯の風上となる。このことは濃度を高くしてい

る要因が市原市以外にあることを示している。最近の市内全域におけるエチレン高濃度の傾向が一時的な現象か否かは、さらに継続して調べるしかない。

3.2 プロピレン

プロピレンは表4の全平均値の工業地帯の農地・山林に対する比率が12と、測定成分のなかで最も高かった。表3-3に示すとおり最高値は90年670ppb、94年740ppbなど中央値と比べかなり高い値となった。ポリプロピレンを生産する住友化学工業、出光石油化学、三井化学、チッソ石油化学のプラント風下で高い値となるが多かった。プロピレン濃度の経年変化について表3-1の中央値について見ると、91年に4.1ppbと高かった以外は1.0ppb前後で大きな変化は認められない。

3.3 アセチレン

アセチレンは工業地帯で特に高い値となることはなく、また主な発生源が自動車排ガスであるため、表4に示すとおり全平均値は市街地のほうが工業地帯より高かった。図3の中央値の経年変化については91年以降低下する傾向が見られる。特にエチレンに対する濃度比は著しく下がってきている。

3.4 ベンゼン

図2の濃度分布図に示すようにベンゼンは工業地帯で局地的に高濃度となる。特に宇都興産付。近の風下で50ppbを超えた事例が多くあった。こうした試料の採取時には強いオリゴマー臭が感じられ、臭気成分として1,3-ブタジエンの2量体の1,5-シクロオクタジエンが数ppb程度検出された。合成ゴム製造工程からの漏洩と考えられる。しかし、高濃度の範囲は限定されており、東京湾から吹き込む海風のバックグラウンド値および市街地での値に寄与する主な発生源は自動車排ガスと考えられる。表3のベンゼンの中央値、表4の市街地の平均値を見ると90年以降、ベンゼン濃度は減少する傾向が認められる。

3.5 トルエン

トルエンは芳香族炭化水素のなかで最も濃度レベルの高い成分であり、図2の濃度分布図、表4が示すように市街地、農地・山林地帯でも、他の成分に比べ高い値となっている。これはガソリン中のトルエンの含有量が多く、また自動車排ガスが大気汚染の主な発生源となっているためである。工業地帯で局地的に高濃度となる地点はJ S R(旧日本合成ゴム)付近の風下で、100ppbを超える事例が多くあった。経年変化について表3の中央値を見ると、90年から92年にかけてと98年の値が高かった。

3.6 エチルベンゼン、キシレン

エチルベンゼンとキシレン異性体は図4に示すとおり、ほぼ同じ濃度比で推移している。表3-3の最高値も異常に高い値はなく、表4の工業地帯での平均値も市街地よりやや高い程度であった。経年変化について表3-1を見ると、中央値はいずれの成分も90年の値が高かったが、他はほぼ同程度の値で変化は認められない。

3.7 スチレン

スチレンの一般的な大気の濃度レベルは低く、表3-1の中央値は0.1~0.4ppbの範囲であった。工業地帯では図2の濃度分布図に示すように局地的に高くなる地点がある。ポリスチレンを生産している電気化学工業、日立化成、大日本インキ化学工業、ABS樹脂を生産している東レなどの工場風下である。ここでは特有の臭気を感じられるが、スチレン閾値は低く、表3-3に示すように特別高い値にはならない。

3.8 エタン

エタンの表3-1の中央値の濃度範囲は2.4~5.6ppbと変動は小さく、経年的な傾向は認められない。工業地帯では宇部興産、協和油化の風下で高くなる場合が多かった。

3.9 プロパン

プロパンの表3-1の中央値は88年に7.1ppbと最も高く、以後ほぼ同レベルで推移し、99年には1.6ppbと最も低くなった。工業地帯では極東石油、協和油化、住友化学工業の風下で高くなる場合が多かった。

3.10 ブタン

ブタンのiso-とn-の異性体の中央値の濃度変動は小さく、経年的な傾向は認められない。工業地帯では日立化成、極東石油工業の風下で高くなる場合が多かった。

3.11 ペンタン

ペンタンのiso-とn-の異性体の中央値は92年以降、低いレベルで推移している。ガソリンに含まれる揮発性成分で工業地帯では極東石油工業、東レの風下で高くなる場合があった。

4. おわりに

市街地において工場地帯特有の臭気を感じられることはほとんど無く、調査結果でもプラントから漏洩する炭化水素による汚染は局地的な場所に限定されていた。市街地における炭化水素の濃度レベルは自動車排ガスの影響を受けている一般的な都市のレベルと大差はない。通常のプラントの操業状態では市街地の空気汚染を悪化させる程の影響を与えていない。だが一方、石油化学プラントでは可燃性ガスによる火災、爆発事故などの危険があり、そうした場合は深刻な被害を起こしかねない。継続的な調査によって大気中炭化水素各成分のレベルを把握し、もし異常に高い値が測定された場合は漏洩防止のための対策をとる必要があるだろう。本調査結果はそうしたプラントの安全管理の点においても意味があると思う。

謝辞

本調査は市原市環境部環境保全課の全面的な協力によって継続することができました。試料の採取などに協力していただいた職員の皆様に感謝いたします。

引用文献

- 市原市環境保健部 1985~1999. 環境白書
- 市原市環境保健部 1973~1987. 市原市悪臭調査報告書
- 市原市環境保健部 1988~1999. 市原市炭化水素類調査報告書
- 加藤龍夫・花井義道・川口幸男 1979. 石油化学コンビナートの空気汚染質の分析調査. 横浜国大環境研紀要, 5: 3-24.
- 花井義道・加藤龍夫 1985. 市原市における大気中エチレンの分布と変動. 横浜国大環境研紀要, 12: 1-9.
- 花井義道・加藤龍夫・神馬高彦 1984. 大気中芳香族炭化水素の光化学反応実験の自動化と反応性の評価. 横浜国大環境研紀要, 11: 1-15.