

## 秋田県における大気中の有害金属に関する調査研究

児玉 仁・佐藤 信也・大畑 博正\*

## 要 旨

本県の有害大気染物質調査において、As 濃度の年平均値が他の地点より高い観測地点があることから、当センターでは、As 濃度の高い観測地点に対する各発生源の寄与を明らかにするため、平成 14 年度～平成 16 年度に調査研究を行った。この地点に影響すると考えられる発生源としては、土壌、海塩、自動車排出物、一般廃棄物焼却施設、産業廃棄物焼却施設、製錬所が考えられたが、製錬所については、粉じんの排出位置、排出量、元素濃度などを把握することができないため、既存の手法では各発生源の影響を解析することが困難であった。そこで、当センターでは、製錬所周辺の大気を発生源と見立て、製錬所周辺の大気粉じんを捕集・分析して得られた元素濃度と、他の発生源の粉じんの元素濃度を用いて、レセプターモデルの一つである CMB 法により発生源の寄与を解析した。その結果、As 濃度の高い観測地点における As に関する寄与率が最も大きいのは、製錬所周辺の大気であり、次いで、産業廃棄物焼却施設、一般廃棄物焼却施設であった。

## 1. はじめに

秋田県では、平成 12 年度から県内 4 地点で、有害大気汚染物質である Be, Cr, Mn, Ni, As, Hg のモニタリング調査を実施しており、これまでの調査で大館市の調査地点における As 濃度が他の調査地点と比べて年平均値で数倍高いこと<sup>1)</sup>が把握されていることから、当センターでは、その原因を明らかにする必要があると考えた。

環境濃度と発生源の関係を解析する既存の手法としては、発生源濃度から環境濃度を推定するソースモデルと、環境濃度から発生源を推定するレセプターモデルがある。ソースモデルは、拡散現象を説明する項目が極めて多いことに加え、大館市のように地形が複雑な場合、単純な拡散式では説明できないという難しさがある。一方、レセプターモデルの一つである CMB(Chemical Mass Balance)法<sup>2)</sup>では、観測地点における大気粉じんと各発生源における粉じんの元素濃度さえ把握できれば、比較的容易に発生源の寄与を推定することができる<sup>3)</sup>とされている。しかし、大館市の観測地点については、発生源の一つと考えられる製錬所における粉じんの排出形態が多様であると推定され、排出される粉じんの元素濃度を把握することもできないことから、このモデルについてもこのままでは適用が難しいと考えられた。

そこで、当センターでは、排出される粉じんの元

素濃度を把握できない発生源がある場合については、その発生源の周辺大気を新たな発生源と見立て、大気粉じんを捕集・分析して元素濃度を求めることにより、CMB 法を適用することが可能となることに着目し、大館市の観測地点における As に関する各発生源の寄与を明らかにすることを目的として、平成 14 年度～平成 16 年度に調査研究を行った。

## 2. 方法

大館市の調査地点への影響が予測される発生源として、土壌、海塩、自動車、一般廃棄物焼却施設、産業廃棄物焼却施設、製錬所を選定した。しかし、製錬所から排出される粉じんの元素濃度を把握することができなかったため、CMB 法の使用方法を工夫して解析した。そこで、まず、この点について述べ、次に、他の発生源及び大気中の粉じんの調査・分析方法、CMB 法による解析方法について述べる。

## 2.1 元素濃度が把握できない場合の対応

発生源の一つとして選定した製錬所は、観測地点のある大館市に隣接する小坂町にある。広大な敷地の中に多数の施設があり、煙道や煙道以外からの粉じんの発生も考えられたうえ、当センターには立ち入り権限がないこともあり、粉じんの排出位置や元素濃度など解析に必要な情報を把握することが困難

\* 現山本地域振興局福祉環境部

と考えられた。

そこで、当センターでは、製錬所から排出される粉じんは、製錬所が立地する小坂町の大気中に拡散しており、この大気中の粉じんを捕集・分析することが可能であり、この元素濃度を CMB 法に用いて寄与を解析することができることに着目した。ただし、解析の結果得られた寄与率は、製錬所の寄与ではなく、「小坂町の大気」の寄与であることに注意する必要がある。以上のことから、小坂町の大気を製錬所に替わる発生源と考え、小坂町において大気中の粉じんを捕集して得られる元素濃度をを用いて発生源寄与を解析することとした。

## 2.2 発生源及び大気中の粉じんの調査方法

土壌については、大館市及び小坂町の 15 地点において 29 試料を採取して元素濃度を測定した。一般廃棄物焼却施設については、他市町村の類似規模の 2 施設の飛灰を入手し、産業廃棄物焼却施設については 1 施設の焼却灰を入手して、元素濃度を測定した。海塩、自動車排出粒子の元素濃度については、地域差が少ないと考えられることから文献を引用した<sup>6,7)</sup>。文献に記載のない元素については、含有していないものとしてゼロとして扱った。

大館市の観測地点における大気粉じん及び浮遊粒子状物質（大気粉じんのうち粒径 10 μm 以下の粒子）と発生源と見立てた小坂町の大気粉じん及び浮遊粒子状物質については、それぞれ、ハイボリウムエアースンプラー（紀本電子工業(株)製、MODEL-120V）とローボリウムエアースンプラー（新宅機械製作所製、S2型）により、ろ紙（住友化学社製、POREFLON WP-500-50）に捕集し、元素濃度を測定した。ハイボリウムエアースンプラーによる大気粉じん捕集は 24 時間、ローボリウムエアースンプラーによる浮遊粒子状物質の捕集は 7 日間、各々 4 回行った。捕集期間を表 1 に示した。また、大館市と小坂町の大気粉じん等の捕集地点、土壌採取地点及び発生源位置を図 1 に示した。

## 2.3 分析方法

発生源で採取した粉じん及び大気中で採取した粉じんの分析方法は、次のとおりである。粉じんを捕集したろ紙は、50%-Ca(OH)<sub>2</sub>aq の入ったデシケータで調湿し、重量測定を行った。ハイボリウムエアースンプラーあるいは、ローボリウムエアースンプラーで粉じんを捕集したろ紙は、As を除く主要元素分析に用い、残りの一部を As 分析用とした。土壌、

飛灰と焼却灰については、105 °C で乾燥後、50%-Ca(OH)<sub>2</sub>aq の入ったデシケータで恒量とした後に 100 μm の樹脂製メッシュを通過したもの 200 mg を元素分析の試料とした。これらの各試料を硝酸・フッ酸・過酸化水素で分解<sup>8)</sup>して得られた分析用試料溶液について、As 以外の元素濃度を ICP-AES(セイコー電子工業(株)社製;SPS4000)又は ICP-MS(セイコー電子工業(株)社製;SPQ9000)で測定した。As の濃度は、各試料を硫酸・硝酸・過塩素酸で分解<sup>8)</sup>して得られた分析用試料溶液を水素化物発生装置を装備した原子吸光分析装置(Varian Spectr AA-220)で測定した。

これらの機器分析における定量下限値は、混合標準溶液(2000 SPEX Certiprep 社製:XSTC-622)を 1N-硝酸で希釈して、濃度の異なる標準溶液をいくつか調製し、各濃度の標準溶液を 5 回ずつ分析して得られた応答値の平均と標準溶液の調製濃度の関係から検量線を作成し、この検量線を用いて、各濃度における 5 つの応答値を再計算したときの平均値と標準溶液の調製濃度との差が 20%以内、かつ変動率(%)が 20%以内にある最低濃度の標準溶液濃度とした。分析した元素及びその定量下限値を表 2 に示した。なお、ICP-MS では、内部標準物質としてイットリウム(Y)とテレビウム(Tb)を用いた。

## 2.4 CMB 法による発生源寄与の解析方法

CMB 法は、観測地点における大気中の粉じんの元素濃度と各発生源から排出される粉じんの元素濃度を用いて各発生源の寄与を推定する手法で、U.S.EPA においてアプリケーションが公開されている。その最新版が CMB8 であり<sup>4)</sup>測定誤差を考慮した有効分散最小自乗法により、次のようにして最適解を求めるものである。つまり、ある化学種 *i* の発生源 *j* の濃度を  $a_{ij}$ 、環境濃度を  $C_i$ 、発生源 *j* の寄与を  $S_j$  とすると、式 (1) が成り立ち、化学種 *i* の数と発生源 *j* の数が等しければ、この式を連立方程式として一義的に解くことができるが、化学種 *i* の数の方が多い場合には、一義的には解が定まらない。そこで、式 (2) で表される  $\chi^2$  の値を最小にするという条件を加えて(有効分散最小自乗法)式(1)の最適解を求めるものである。

$$C_i = \sum_j a_{ij} S_j \quad (1)$$

$$\chi^2 = \sum_i \left[ \left( C_i - \sum_j a_{ij} S_j \right)^2 / \left( \sigma_i^2 + \sum_j \sigma_{a_{ij}}^2 S_j^2 \right) \right] \quad (2)$$

$\left[ \begin{array}{l} \sigma_i : \text{化学種 } i \text{ の環境濃度の標準偏差} \\ \sigma_{a_{ij}} : \text{発生源濃度 } a_{ij} \text{ の標準偏差} \end{array} \right]$

また、ある化学種  $i$  について発生源  $j$  が環境濃度に与える寄与を  $P_{ij}$  とすると、式 (3) のように表すことができることから、特定の元素に関する発生源寄与は、式 (3) により評価することとした。

$$P_{ij} = a_{ij} S_j / \sum_j a_{ij} S_j \quad (3)$$

さらに、このようにして得られた各発生源の寄与率について、捕集された粉じんの粒径範囲、調査時の気象なども考慮して吟味することとした。

寄与率の計算は、元素濃度 (mg/kg) を早狩ら<sup>45)</sup>の CMB 解析ソフト (CMB8J) に入力して行った。計算に用いた元素は、濃度が全て定量できた元素に限定し、ハイポリウムエアースンプラーによる調査では、Na, Mg, Al, Ca, Ti, Mn, Fe, Ni, Cu, Zn, Ga, As, Sr, Zr, Sn, Sb, Ba, Pb の 18 元素、ローポリウムエアースンプラーによる調査では、Na, Mg, Al, Ca, Ti, Fe, Zn, As, Sn, Sb, Ba, Pb の 12 元素であった。

表 1 大気粉じんおよび浮遊粒子状物質の捕集期間

捕集方法	捕集期間	大館市		小坂町	
		試料名	捕集時間	試料名	捕集時間
ハイポリウム エアースンプラー	H16年10月4日～5日	HV-1	15:15～15:15	-	-
	H16年10月5日～6日	HV-2	16:40～16:40	-	-
	H16年10月19日～20日	HV-3	11:45～11:45	HV-5	13:40～13:40
	H16年10月26日～27日	HV-4	12:20～12:20	-	-
ローポリウム エアースンプラー	H16年10月5日～12日	LV-1	16:30～12:50	-	-
	H16年10月12日～19日	LV-2	12:50～11:45	LV-5	13:30～13:30
	H16年10月19日～26日	LV-3	11:50～12:10	LV-6	13:45～13:45
	H16年10月26日～11月2日	LV-4	12:30～12:30	-	-

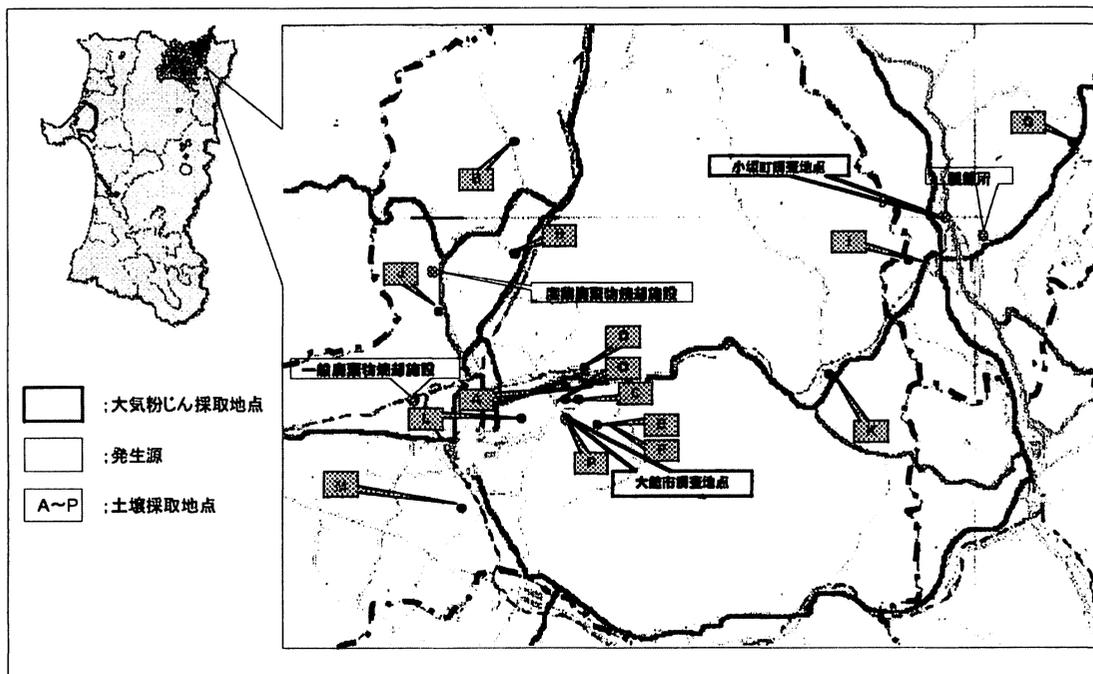


図 1 大気粉じん等の捕集地点と土壌採取地点および発生源位置

### 3. 結果と考察

#### 3.1 発生源の濃度

大館市内の土壌中の元素濃度の調査結果は、表 3

のとおりであった。海塩中の元素濃度 (表 4) は、海水中の元素の存在度<sup>7)</sup>を用いて算出したものである。一般廃棄物焼却施設の飛灰及び産業廃棄物焼却施設の焼却灰中の元素濃度の分析結果は、表 5 のとおりで

あった。自動車排出粒子中の元素濃度の文献値<sup>8)</sup>は、表 6 のとおりである。小坂町内の大気粉じん及び浮遊粒子状物質による大気中の元素濃度(ng/m<sup>3</sup>)は、表 7 及び表 8 のとおりで、大気粉じん及び浮遊粒子状物質の元素濃度(mg/kg)は、表 9 及び表 10 のとおりであった。

### 3.2 大館市における環境測定結果

大館市の大気粉じん及び浮遊粒子状物質による大気中の元素濃度(ng/m<sup>3</sup>)は、表 11 及び表 12 のとおりで、大気粉じん及び浮遊粒子状物質中の元素濃度(mg/kg)は、表 13 及び表 14 とおりであった。

表 2 測定元素と定量下限値

元素	濃度(μg/mL)	元素	濃度(μg/mL)
Na	0.010	Rb	0.001
Mg	0.010	Sr	0.001
Al	0.010	Zr	0.001
Ca	0.010	Mo	0.001
Ti	0.010	Ag	0.001
Mn	0.010	Cd	0.001
Fe	0.010	Sn	0.001
Co	0.001	Sb	0.001
Ni	0.001	Cs	0.001
Cu	0.010	Ba	0.001
Zn	0.010	W	0.005
Ga	0.005	U	0.001
As	0.002	Pb	0.001

\* Mg,Al,Ca,Ti,Mn,Fe,Cu,Znは、ICP-AESにおける値  
Na,Asは、AAにおける値  
その他は、ICP-MSにおける値

表 3 土壌の元素濃度 (mg/kg)

	Na	Mg	Al	Ca	Ti	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	Ga	As
平均 (n=29)	11000	6900	58000	11000	3400	880	34000	6.7	9.1	62	250	3.7	9.0
標準偏差	(± 4800)	(± 3300)	(± 12000)	(± 8500)	(± 910)	(± 250)	(± 12000)	(± 3.3)	(± 4.8)	(± 68)	(± 190)	(± 6.3)	(± 8.8)
	Rb	Sr	Zr	Mo	Ag	Cd	Sn	Sb	Cs	Ba	W	Pb	U
平均 (n=29)	18	76	110	<1.3	<1.3	<1.3	4.5	4.3	2.0	400	<1.3	92	<1.3
標準偏差	(± 10)	(± 34)	(± 40)	-	-	-	(± 5.6)	(± 8.3)	(± 0.79)	(± 300)	-	(± 69)	-

表 4 海塩中の元素濃度 (mg/kg)<sup>7)</sup>

	Na	Mg	Al	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	Ga
海水中の存在量 (mg/l)	11000	1300	0.01	400	0.001	0.002	5.E-05	0.002	0.01	0.0005	0.0005	0.0006	0.001	0.0005
海塩中の元素濃度 (mg/kg)	310000	38000	0.29	12000	0.029	0.058	0.001	0.058	0.29	0.015	0.015	0.017	0.029	0.015
	As	Rb	Sr	Zr	Mo	Ag	Cd	Sn	Sb	Cs	Ba	W	Pb	U
海水中の存在量 (mg/l)	0.001	0.12	8.0	-	0.01	0.003	5.5E-05	0.003	<0.0005	0.001	<0.09	1.0E-04	0.003	0.002
海塩中の元素濃度 (mg/kg)	0.029	3.5	230	-	0.29	0.087	0.002	0.087	<0.015	0.029	<2.6	0.003	0.087	0.058

表 5 一般廃棄物焼却施設の飛灰及び産業廃棄物焼却施設の焼却灰の元素濃度 (mg/kg)

	Na	Mg	Al	Ca	Ti	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	Ga	As
一般廃棄物焼却施設 飛ばい (2施設の平均値)	61000	8800	16000	140000	2700	25	3500	7.5	26	410	5100	87	160
産業廃棄物焼却施設 焼却灰	18000	11000	37000	85000	79000	4800	36000	14	120	6800	4000	<1.3	10000
	Rb	Sr	Zr	Mo	Ag	Cd	Sn	Sb	Cs	Ba	W	Pb	U
一般廃棄物焼却施設 飛ばい (2施設の平均値)	4.1	200	14	5.7	7.7	60	250	460	2.1	230	3.7	1600	<1.3
産業廃棄物焼却施設 焼却灰	50	210	240	19	2.7	1.4	860	660	<1.3	59000	110	3800	<1.3

表 6 自動車排出粒子中の元素濃度 (mg/kg)<sup>8)</sup>

	Na	Al	V	Cr	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	Sb	Cs	Pb
自動車排出粒子の元素濃度	270	1500	2.4	16	36	4100	1.8	39	190	1500	2.1	640	37000

表7 小坂町の大気粉じんによる大気中の元素濃度 (ng/m<sup>3</sup>)

試料名	吸引量 (m <sup>3</sup> )	粉じん量(g)	Na	Mg	Al	Ca	Ti	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	Ga	As
HV-5	1436	0.0717	760	210	1200	670	64	27	1100	<1.0	8.6	650	390	4.2	61
試料名	吸引量 (m <sup>3</sup> )	粉じん量(g)	Rb	Sr	Zr	Mo	Ag	Cd	Sn	Sb	Cs	Ba	W	Pb	U
HV-5	1436	0.0717	1.1	5.1	2.8	1.6	18	10	34	84	<0.2	19	<1.0	730	<1.0

表8 小坂町の浮遊粒子状物質による大気中の元素濃度 (ng/m<sup>3</sup>)

試料名	吸引量 (m <sup>3</sup> )	浮遊粒子状 物質質量(g)	Na	Mg	Al	Ca	Ti	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	Ga	As
LV-5	202	0.0050	590	78	320	150	16	6.9	180	<3.0	<0.6	41	120	<0.6	10
LV-6	190	0.0044	730	110	220	180	15	8.3	210	<3.0	2.8	86	95	<0.6	16
試料名	吸引量 (m <sup>3</sup> )	浮遊粒子状 物質質量(g)	Rb	Sr	Zr	Mo	Ag	Cd	Sn	Sb	Cs	Ba	W	Pb	U
LV-5	202	0.0050	<0.6	1.5	0.9	<0.6	8.4	2.9	9.6	23	<0.6	4.2	<3.0	210	<0.6
LV-6	190	0.0044	<0.6	1.7	<0.6	<0.6	48	2.6	8.2	23	<0.6	4.5	<3.0	180	<0.6

表9 小坂町の大気粉じん中の元素濃度 (mg/kg)

試料名	Na	Mg	Al	Ca	Ti	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	Ga	As	Sr	Zr	Sn	Sb	Ba	Pb
HV-5	15000	4200	23000	13000	1300	540	22000	170	13000	7800	84	1200	100	55	690	1700	380	15000

表10 小坂町の浮遊粒子状物質中の元素濃度 (mg/kg)

試料名	Na	Mg	Al	Ca	Ti	Fe	Zn	As	Sn	Sb	Ba	Pb
LV-5	24000	3200	13000	6000	630	7400	4700	420	390	910	170	8600
LV-6	31000	4900	9700	7900	660	9000	4100	690	360	1000	200	7700
LV-5,6の平均	28000	4100	11000	7000	650	8200	4400	560	380	960	190	8200

表11 大館市の大気粉じんによる大気中の元素濃度 (ng/m<sup>3</sup>)

試料名	吸引量 (m <sup>3</sup> )	粉じん量 (g)	Na	Mg	Al	Ca	Ti	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	Ga	As
HV-1	1452	0.0134	520	140	320	250	23	6.3	260	<1.0	4.1	56	24	0.2	1.8
HV-2	1427	0.0040	230	77	204	200	17	5.0	190	<1.0	1.8	130	32	0.2	2.2
HV-3	1426	0.0716	610	370	1300	730	90	27	1000	<1.0	7.5	410	100	1.1	4.2
HV-4	1427	0.0271	730	230	720	710	54	13	510	<1.0	2.4	79	19	0.6	0.2
試料名	吸引量 (m <sup>3</sup> )	粉じん量 (g)	Rb	Sr	Zr	Mo	Ag	Cd	Sn	Sb	Cs	Ba	W	Pb	U
HV-1	1452	0.0134	<0.2	1.5	0.6	<0.2	<0.2	0.8	2.0	3.5	<0.2	2.6	<1.0	38	<1.0
HV-2	1427	0.0040	<0.2	1.1	0.6	0.2	1.4	0.6	2.5	5.8	<0.2	4.0	<1.0	65	<1.0
HV-3	1426	0.0716	1.2	4.8	3.3	0.7	1.5	1.5	4.0	6.6	<0.2	16	<1.0	68	<1.0
HV-4	1427	0.0271	0.5	3.1	1.5	0.3	8.7	<0.2	0.7	1.0	<0.2	8.1	<1.0	4.8	<1.0

表 12 大館市の浮遊粒子状物質による大気中の元素濃度 (ng/m<sup>3</sup>)

試料名	吸引量 (m <sup>3</sup> )	浮遊粒子状 物質量(g)	Na	Mg	Al	Ca	Ti	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	Ga	As
LV-1	177	0.0023	170	47	110	120	12	6.7	140	<3.0	<0.6	<5	27	<0.6	1.8
LV-2	228	0.0048	410	77	130	170	11	6.1	150	<3.0	<0.6	<5	20	<0.6	1.2
LV-3	223	0.0043	680	120	140	180	13	7.5	170	<3.0	<0.6	25	20	<0.6	1.7
LV-4	203	0.0022	160	52	120	120	10	<5	130	<3.0	<0.6	<5	17	<0.6	1.3
試料名	吸引量 (m <sup>3</sup> )	浮遊粒子状 物質量(g)	Rb	Sr	Zr	Mo	Ag	Cd	Sn	Sb	Cs	Ba	W	Pb	U
LV-1	177	0.0023	<0.6	<0.6	<0.6	<0.6	<0.6	<0.6	1.9	3.6	<0.6	5.0	<3.0	34	<0.6
LV-2	228	0.0048	<0.6	0.8	0.6	<0.6	<0.6	<0.6	1.4	2.0	<0.6	5.4	<3.0	25	<0.6
LV-3	223	0.0043	<0.6	1.3	0.6	<0.6	2.9	<0.6	1.4	2.5	<0.6	4.9	<3.0	27	<0.6
LV-4	203	0.0022	<0.6	<0.6	0.8	<0.6	<0.6	<0.6	1.3	2.5	<0.6	4.5	<3.0	19	<0.6

表 13 大館市の大気粉じん中の元素濃度 (mg/kg)

試料名	Na	Mg	Al	Ca	Ti	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	Ga	As	Sr	Zr	Sn	Sb	Ba	Pb
HV-1	57000	15000	35000	27000	2400	680	28000	440	6100	2600	24	200	160	60	220	380	290	4100
HV-2	82000	28000	73000	70000	6000	1800	69000	640	46000	12000	89	770	390	220	900	2100	1400	23000
HV-3	12000	7400	27000	15000	1800	530	20000	150	8200	2000	22	80	96	65	80	130	330	1400
HV-4	38000	12000	38000	37000	2900	680	27000	130	4200	1000	32	10	160	78	36	52	430	250

表 14 大館市の浮遊粒子状物質中の元素濃度 (mg/kg)

試料名	Na	Mg	Al	Ca	Ti	Fe	Zn	As	Sn	Sb	Ba	Pb
LV-1	13000	3600	8100	8900	900	10000	2100	140	140	270	390	2600
LV-2	20000	3600	6000	8100	510	7000	1000	60	66	93	250	1200
LV-3	35000	6200	7500	9300	680	8800	1100	90	73	130	250	1400
LV-4	15000	4800	11000	11000	900	12000	1600	120	120	230	420	1700

### 3.3 CMB 法による発生源寄与率の解析結果

大館市の大気粉じん(表 13)に対する発生源寄与率の算出は、発生源濃度として表 3, 表 4, 表 5 に示した土壌, 海塩, 一般廃棄物焼却施設及び産業廃棄物処理施設のデータと, 表 9 に示した小坂町の大気粉じんデータを用い CMB&J により行った。解析結果は, 図 2 のとおりで, 試料名 HV-3 及び HV-4 のように北方向の風向頻度が低い時には, 土壌の寄与率が 3/4 を占めるのに対して, 試料名 HV-1 のように北方向の風向頻度が高いときには, 土壌の寄与率が減り小坂町の大気粉じんの寄与率が高まった。特に, 試料名 HV-2 については, この傾向が著しいが, これは, HV-2 の調査中に降水があったことから, 土壌の舞上がりや抑制されたため, 微小粒子が多い人為由来の発生源の寄与が高くなっ

たものと考えられる。

北よりの風向頻度が高いときに, 小坂町の大気粉じんの寄与率が高いことのみを根拠として, 小坂町の大気が大館市の観測地点に影響していると推定することはできない。確かに, 過去に製錬所に由来する煙害があったとの報告<sup>9)</sup>もあり, 谷に沿って拡散・流下した小坂町の大気粉じんが大館盆地に出たところで北風によって観測地点方向に運ばれた, と考えることもできるが, CMB 法では, 元素濃度の類似している他の発生源の存在を否定できないからである。小坂町の大気の影響の有無については, 別途, 何らかの方法で確認する必要があると考えている。

また, 大館市の浮遊粒子状物質(表 14)に対する発生源寄与率の算出は, 発生源濃度として表 3, 表 4, 表 5 に示した土壌, 海塩, 一般廃棄物焼却施

設及び産業廃棄物焼却施設のデータと、表 10 に示した小坂町の浮遊粒子状物質データを用い CMB8J により行った。解析結果は、図 3 のとおりで、ハイポリウムエアースンプラーによる捕集に比べて期間

が長いことから、平均化された寄与率を示していると考えられる。また、浮遊粒子状物質は粒径が 10 μm 以下であるため、粗大粒子の割合が多い土壌の粒子の影響が、小さくなる傾向が認められる。

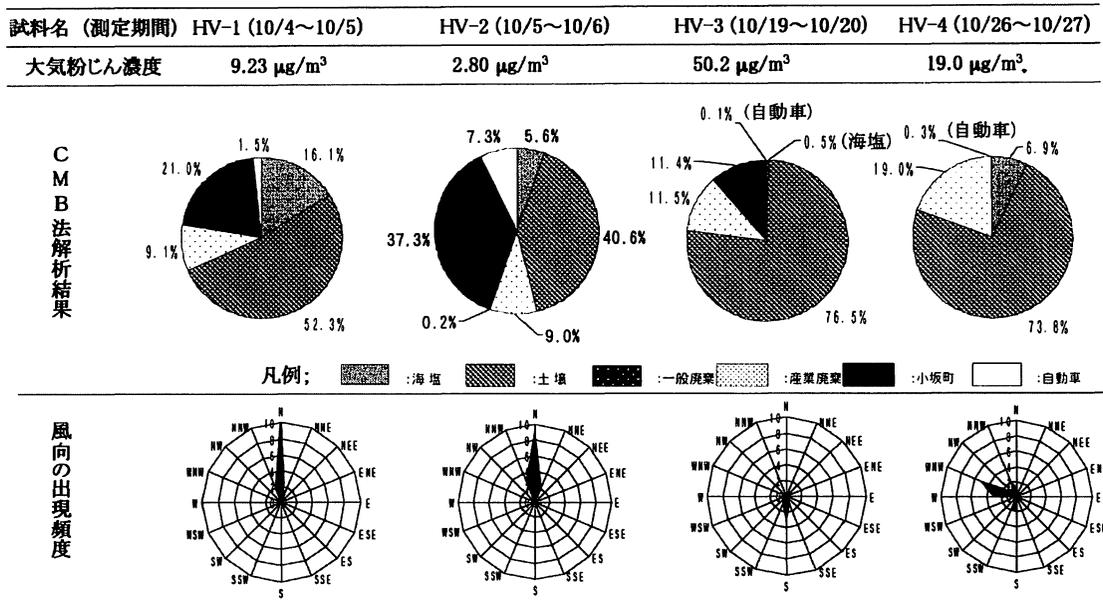


図 2 大館市でハイポリウムエアースンプラーにより捕集した大気粉じんにおける発生源寄与率の解析結果

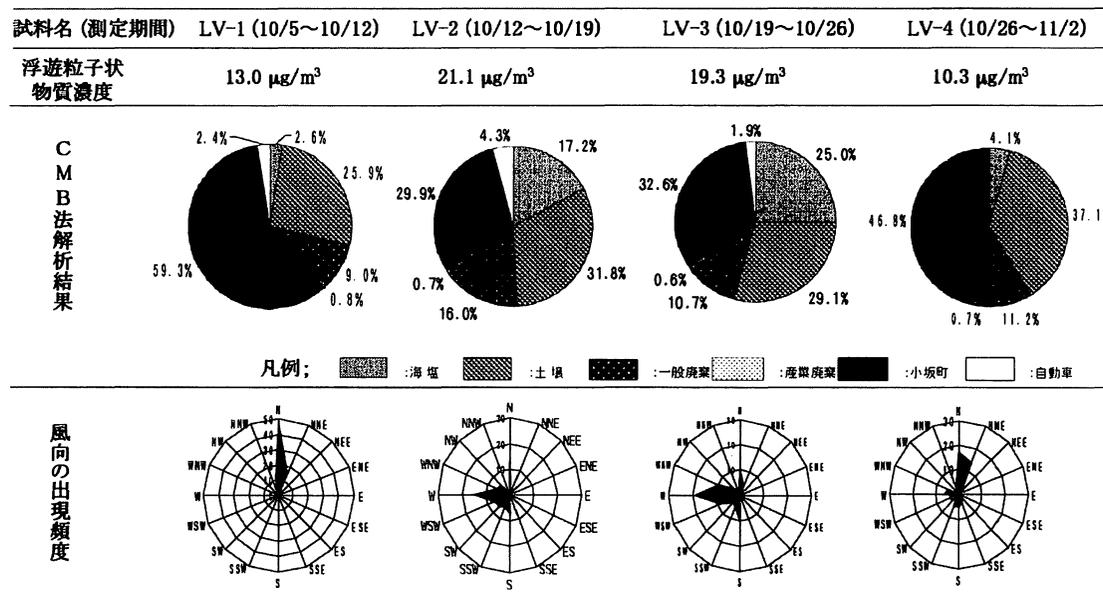


図 3 大館市でローポリウムエアースンプラにより捕集した浮遊粒子状物質における発生源寄与率の解析結果

### 3.4 As に関する発生源寄与率の推定

節 2.4 の式 (3) により、大気粉じん中の As 濃度に関する主な各発生源寄与率を求めた結果を表 15 及び表 16 に示した。ハイポリウムエアースンプラーによる大気粉じんでは、試料名 HV-3 のような降水

のない日が続いたときや、無風に近い状態又は試料名 HV-1 や HV-2 のように北寄りの風の頻度が高いときに、小坂町の大気粉じんの寄与率が 80% から 90% と高かった。ローポリウムエアースンプラーによる浮遊粒子状物質では、小坂町の浮遊粒子状物質

の寄与率が 60%～80%、産業廃棄物焼却施設の寄与率が 20%～30%、一般廃棄物焼却施設の寄与率が約 10%で、捕集期間による違いはほとんどなかった。ハイボリウムエアースンプラーによる大気粉じんに関する解析結果と比較すると、小坂町の寄与率が 20%～30%減少し、産業廃棄物焼却施設の寄与率がゼロから約 20%に増加した。これは、ローボリウムエアースンプラーにより捕集される浮遊粒子状物質は、粒径 10 μm 以上の粒子がカットされていることから、土壌など粗大粒子の寄与率が小さく

なり、相対的に人為由来の発生源寄与率が大きくなること、さらに、産業廃棄物焼却施設の焼却灰中の As 濃度が桁違いに大きいことから、この影響が顕著に現われたものと考えられる。

なお、小坂町の大気中の As 濃度は大館市のそれと比較して高いが、その発生源については本調査研究の対象とはしていない。これには、様々な発生源が寄与していると考えられ、今後、詳細な調査が必要であると考えている。

表 15 大館市の大気粉じん中 As における発生源寄与率の解析結果

		HV-1	HV-2	HV-3	HV-4
発生源 寄与率 (%)	小坂町大気粉じん	93.2	92.2	84.9	0.0
	一般廃棄物	5.1	2.8	10.9	81.6
	産業廃棄物	0.0	4.2	0.0	0.0
	土壌	1.7	0.7	4.2	18.4

表 16 大館市の浮遊粒子状物質中 As における発生源寄与率の解析結果

		LV-1	LV-2	LV-3	LV-4
発生源 寄与率 (%)	小坂町浮遊粒子状物質	76.9	62.5	69.1	73.8
	一般廃棄物	3.3	9.3	6.3	4.9
	産業廃棄物	19.3	27.1	23.6	20.3
	土壌	0.5	1.1	1.0	0.9

#### 4. まとめ

- 1) 大館市の観測地点における大気粉じんに対する発生源寄与は、北寄りの風向頻度が高いときには、土壌の寄与率が 41～52%で製錬所が立地する小坂町の大気の寄与率が 21～37%であった。風向頻度が西寄り、またはほとんど無風のときには、土壌の寄与率が 74～77%、一般廃棄物焼却施設の寄与率が 12～19%であった。
- 2) 大館市の観測地点における浮遊粒子状物質に対する発生源寄与は、小坂町の大気の寄与率が 33～59%で特に北寄りの風向頻度が高いときに高く、土壌の寄与率が 26～37%、西寄りの風向頻度が高いときに海塩の寄与率が 17～25%であった。
- 3) 大館市の観測地点における大気粉じん中の As に対する寄与は、北寄りの風向頻度が高いとき及びほとんど無風のときには小坂町の大気の寄与率が 85～93%、残りを一般廃棄物焼却施設の寄与率が占め、西寄りの風向頻度が高いとき

には一般廃棄物焼却施設の寄与率が 82%、残りを土壌の寄与率が占めた。

- 4) 大館市の観測地点における浮遊粒子状物質中の As に対する寄与は、小坂町の大気の寄与率が 63～77%、産業廃棄物焼却施設の寄与率が 19～24%、一般廃棄物焼却施設の寄与率が 3～9%を占めた。

#### 参考文献

- 1) 環境白書，平成 13 年版～平成 16 年版，秋田県，2001～2004.
- 2) <http://www.epa.gov/scram001/>
- 3) 浮遊粒子状物質汚染予測マニュアル，(株)東洋館出版社，pp. 267-282, 1997.
- 4) 早狩 進，花石 竜治：環境データ解析用計算マクロの紹介と解析例（II），大気環境学会誌，**36**, (1), 39-45, 2001.

- 5) <http://www.jomon.ne.jp/~hayakari/>
- 6) 化学大事典編集委員会, 化学大事典, 共立出版, (2), p. 250, 1791.
- 7) Q.Wang ,the Doctoral dissertatin(Dr.Eng.), Graduate School of Science & Engineering, Saitama, Japan, pp. 104-118, 1995.
- 8) 有害大気汚染物質測定の実際編集委員会編：有害大気汚染物質測定の実際, (財)日本環境衛生センター, pp. 215-267, 1997.
- 9) 小田康徳：明治四十一年十一月 小坂鉦山鉦害調査復命書, 人間科学研究, 4, 電気通信大学, 2002.