

名古屋市内の食品リサイクル施設からの 悪臭苦情事例についての一考察

大野 隆史, 中島 寛則, 池盛 文数, 久恒 邦裕

A Case Study on Complaints about Offensive Odor from a Food Recycling Plant in Nagoya City

Takashi Ohno, Hironori Nakashima, Fumikazu Ikemori, Kunihiro Hisatsune

名古屋市内の食品リサイクル施設周辺で発生している悪臭苦情事例について、周辺環境調査及び排出ガス調査を行い、悪臭の主たる原因物質を特定した。周辺環境調査では、有機物を加熱していることから、「焦げ臭」であるアルデヒド類 7 物質の測定を行い、アセトアルデヒドやプロピオンアルデヒド・ブチルアルデヒド等について、一般環境よりもかなり高濃度で検出し、当該施設からアルデヒド類が排出されている可能性が高いことを確認した。排出ガス調査では、アルデヒド類を含めた特定悪臭物質 16 物質の測定を行い、嗅覚閾値倍数の総和に占める割合から算出して、イソバレラルデヒドが 49%、アセトアルデヒドが 23%、アルデヒド類全体では 99%の悪臭寄与率があることを確認した。また、実際の悪臭官能試験で得られた臭気指数は、嗅覚閾値倍数の総和から求めた臭気指数と比較的良く一致していた。

はじめに

愛知県での悪臭に関する苦情件数は大気汚染・騒音に次いで多く、公害苦情件数全体の約 2 割を占めている¹⁾。全国的に見ても、愛知県の悪臭苦情件数は東京都に次いで多く、名古屋市はその中核をなしており、悪臭問題は人口の密集する都市域に特有の感覚公害となっている²⁾。

名古屋市でも、従来から特定悪臭物質の測定や官能試験による臭気濃度測定等を行ってきて、様々な悪臭苦情に対応してきた。特に「焦げ臭」とされる C2~C5 アルデヒド類については、従来からの溶液捕集法ではなく、固相カートリッジ誘導体捕集法による測定方法を確立し³⁾、その測定方法で焼付塗装工場や印刷工場、食品焙煎工場等の様々な「焦げ臭」発生施設で測定を行い、その排出実態を明らかにしてきた⁴⁾。

今回は名古屋市内の食品リサイクル施設周辺で発生している悪臭苦情事例について、その施設の周辺及びガス排出口で、特定悪臭物質の濃度測定及び悪臭官能試験を実施し、悪臭の主たる原因物質を特定したので報告する。この施設では、食品事業者から回収した食品残渣を加熱・乾燥後、冷却・粉碎して肥料として

リサイクルしており、加熱・乾燥及び冷却過程から悪臭が発生している。

調査方法

1. 周辺環境調査

図 1 に示す、当該施設の東約 30 m の地点①と、敷地境界付近の地点②で調査を行った。悪臭を感知した時に、フレックスサンプラーを用い 20 L テドラーバッグに、悪臭を含む大気を直接採取した。地点①で強い悪臭を感知して試料採取した後、当該施設の直近に移動して地点②で試料採取を行った。

食品残渣等の有機物を加熱していることから、「焦げ臭」であるアルデヒド類の測定を行った。特定悪臭物質のうちのアルデヒド類 6 物質、即ちアセトアルデヒド (以降 AcCHO)、プロピオンアルデヒド (以降 PrCHO)、ノルマルブチルアルデヒド (以降 nBtCHO)、イソブチルアルデヒド (以降 iBtCHO)、ノルマルバレラルデヒド (以降 nViCHO)、イソバレラルデヒド (以降 iViCHO) に、「焦げ臭」としてアルデヒド類を測定する際に同時に高濃度で検出されることの多いホルムアルデヒド (以降 HCHO) を加えたアルデヒド類計 7 物質を測定対象とした。

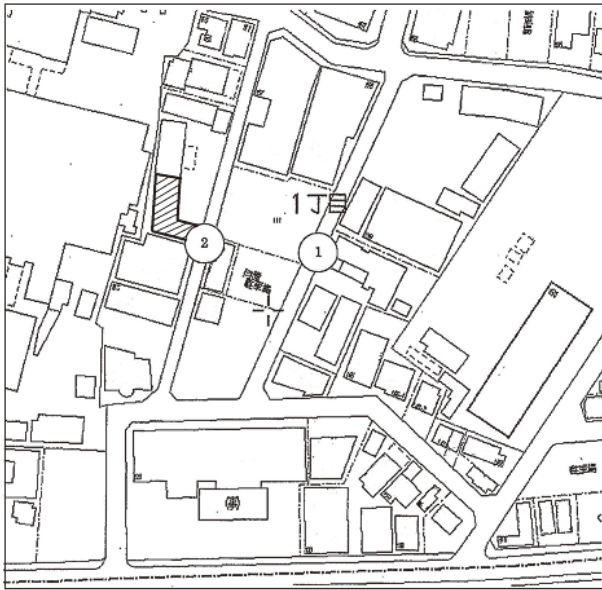


図 1 調査地点（周辺環境調査）

2. 排出ガス調査

試料採取については、当該施設のガス排出管に試料採取口がないため、ガス排出管上端部にテフロン製試料採取管を針金で固定して鉤状に掛け、試料採取管と地上に設置した試料採取箱をテフロンチューブで繋ぎ、試料採取箱を陰圧にすることによって、試料採取箱内に取り付けた 20 L テドラーバッグ中に、ガス排出管内の排出ガスを間接採取した。

上述のアルデヒド類 7 物質に加え、窒素化合物として 1 物質（アンモニア）、硫黄化合物として 4 物質（硫化水素・メチルメルカプタン・硫化メチル・二硫化メチル）、脂肪酸類として 4 物質（プロピオン酸・ノルマル酪酸・イソ吉草酸・ノルマル吉草酸）の計 16 物質を測定対象とした。

排出ガスについては、悪臭官能試験（三点比較式臭袋法）も実施した。

3. 分析方法

「悪臭物質の測定の方法」（昭和 47 年 5 月 30 日環境庁告示第 9 号，改定：平成 5 年 9 月 8 日環境庁告示第 72 号）に定める方法に準じて測定を行った。

但し、アルデヒド類の測定では、分析上の煩雑さを避けるため、分離定量はガスクロマトグラフ（以降 GC）ではなく、液体クロマトグラフ（以降 LC）で行った。LC による分離定量では、iBtCHO と nBtCHO のピークが重なるため、両者の和として算出した。

LC による分析条件は以下の通りである⁵⁾。また、カルボニル化合物の捕集に用いた DNPH 捕集管も併せて示す。

使用カラム：Inertsil ODS-3 粒子径：5 μm
4.0 mm ID×250 mm
移動相：アセトニトリル：水=70：30
流量：1.0 mL/min
試料注入量：20 μL
カラム温度：40℃
検出器：吸光光度検出器（波長：360 nm）
DNPH 捕集管：Waters 社製 Sep-Pak DNPH-Silica Plus-Short Body

また、悪臭分析を外部委託で実施する場合等においては、定量下限値は一律に敷地境界規制基準値の 1/10 とされることが多いが、これはあくまで目標定量下限値であり、具体的に採気量の検討等を含めた定量下限値の算出を行っている例はあまり見受けられない。そこで今回は、「有害大気汚染物質測定方法マニュアル」に定める方法に従って⁵⁾、具体的な検出下限値・定量下限値の算出も行った。

調査結果及び考察

1. 周辺環境調査

図 2 に周辺環境調査における LC クロマトグラム例を、表 1 に周辺環境調査の結果を示す。表 1 に示す濃度単位は ppb である。

一般環境での測定で必ず検出されるカルボニル化合物としては、HCHO と AcCHO 以外には、汎用溶剤であるアセトン、メチルエチルケトン（以降 MEK）、メチルイソブチルケトン（以降 MIBK）や、トルエンの酸化生成物であるベンズアルデヒド（以降 PhCHO）、キシレンの酸化生成物であるトルアルデヒド（以降 TolCHO）が挙げられ、ごくまれに PrCHO が検出されることもある。MEK と i/nBtCHO はごく近接して検出されるが、一般環境で i/nBtCHO が検出されることはほとんどなく、今回のように例外的に検出されたとし

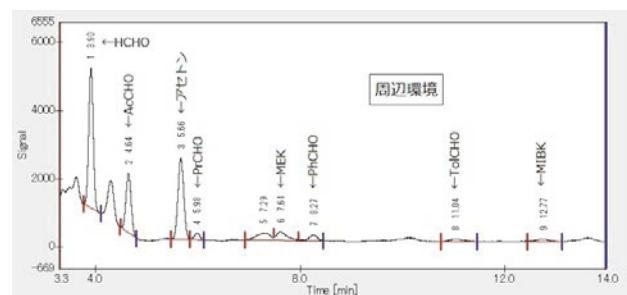


図 2 LC クロマトグラム（周辺環境調査）

表 1 調査結果（周辺環境調査）

悪臭物質	地点①	地点②	検出下限値
HCHO	13.9	12.5	1.1
AcCHO	5.7	4.8	0.37
PrCHO	0.74	0.66	0.30
i/nBtCHO	0.65	ND (0.44)	0.50
iVlCHO	ND	ND	0.10
nVlCHO	ND	ND	0.20

単位: ppb

ても、MEK のテーリング上に重なる形で検出される。

GC では MEK と i/nBtCHO は syn-・anti-の異性体を含めて 6 本のピークがきれいに分離するが、LC の通常の分析条件では syn-・anti-の異性体分離はおろか、3 本のピークまでもが約 0.15 分内に全て重なる。

有害大気汚染物質環境監視調査では、HCHO と AcCHO について、毎月 1 回市内 5 地点で測定を行っており、H28 年度は HCHO が 0.75～6.3 ppb（平均：2.6 ppb, n=60）、AcCHO が 0.37～2.3 ppb（平均：1.0 ppb, n=60）という濃度レベルであった⁶⁾。当該施設周辺では、HCHO・AcCHO とともに、市内一般環境年平均値の 5 倍ほど、市内一般環境年最高値の 2 倍ほどの高濃度であった。また一般環境ではほとんど検出されない PrCHO や BtCHO が 2 検体ともに検出されたことから、当該施設からいわゆる「焦げ臭」としてのアルデヒド類が排出されている可能性が高いことが示唆された。

また、当該施設の敷地境界にある地点②よりも、30 m ほど離れた地点①の方が、やや高濃度で検出された。試料採取時間が 10 分ほどずれており、かつ悪臭の発生強度や移流の状況も異なっていた可能性が高いこと等から生じた差異であろうと考えられる。このことは、現場で試料採取を行った者の感覚とも一致していた。即ち、まず悪臭のひどい地点で試料採取を行い、その後悪臭レベルとしては下がった感覚があったものの、敷地境界に移動して試料採取を行ったとのことであった。

2. 排出ガス調査

図 3 に排出ガス調査における LC クロマトグラム例を、表 2 に排出ガス調査の結果を示す。表 2 に示す濃度単位は ppm である。アルデヒド類は 2 検体について分析を行ったが、VlCHO 等に比較的大きな濃度差が認められたので、両者の平均を取ることはせず、2 検体別々に表記した。表 2 には得られた濃度を嗅覚閾値⁷⁾で除して算出した嗅覚閾値倍数及びその和も示す。嗅覚閾値倍数の算出の際、アルデヒド類については 2 検

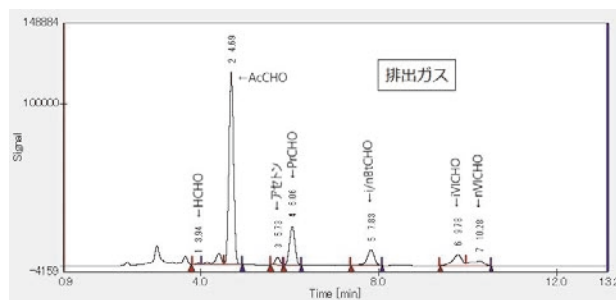


図 3 LC クロマトグラム（排出ガス調査）

体の平均濃度で算出し、BtCHO の嗅覚閾値についてはイソ体とノルマル体の嗅覚閾値の平均とした。

硫黄化合物 4 物質については全く検出されなかったが、アンモニアについては 62 ppm というかなりの高濃度で検出され、脂肪酸類についてはプロピオン酸とノルマル酪酸が検出された。

アルデヒド類については全物質検出され、AcCHO が約 2 ppm、PrCHO が約 0.5 ppm、i/nBtCHO が約 0.3 ppm、i/nVlCHO が約 0.2～0.3 ppm ほどの、かなりの高濃度で検出された。BtCHO や VlCHO 等の、炭素数の大きなアルデヒド類が比較的高濃度で検出され、特に VlCHO は極めて高濃度で検出された。これまでの測定事例でも、コーヒー焙煎等の比較的複雑な化学組成の有機物を加熱する場合に、VlCHO 等の炭素数の大きな (C5) アルデヒド類が多く検出され、かつノルマル体よりもイソ体の方が多い傾向は認められていたが⁴⁾、今回の検出された濃度はこれまでの測定事例と比べても、特異的に高濃度であった。

また、酸化分解過程で併せて生成すると考えられるホルムアルデヒドが、これまでの測定事例では⁴⁾、少なくともアセトアルデヒドの半分以上の濃度で検出される場合がほとんどであったものが、今回の測定ではホルムアルデヒドは 0.005 ppm ほどという、アセトアルデヒドの 1/500 ほどの低濃度であったことも特異的であったと言える。

三点比較式臭袋法等の悪臭官能試験では、嗅覚閾値以下の濃度になるまでの希釈倍率から臭気濃度を算出することから解るように、一般に悪臭物質濃度を嗅覚閾値で除した値（嗅覚閾値倍数）の、各悪臭物質についての総和が臭気濃度に相当する。今回は臭気濃度で約 6000 に達した。

今回の排出ガスの悪臭に最も寄与していた悪臭物質は、アルデヒド類の中で最も嗅覚閾値の小さい iVlCHO で $2904/5990 \times 100 = 49\%$ の寄与率、次いで

表 2 調査結果（排出ガス調査）

悪臭物質群	悪臭物質	濃度		検出下限値	嗅覚閾値	閾値倍数	
窒素化合物	アンモニア	62		0.088	1.5	41	41
硫黄化合物	硫化水素	ND		0.0007	0.00041	0	0
	メチルメルカプタン	ND		0.0007	0.000070	0	
	硫化メチル	ND		0.0005	0.0030	0	
	二硫化メチル	ND		0.0005	0.0020	0	
アルデヒド類	ホルムアルデヒド	0.006	0.003	0.0011	0.50	0	5924
	アセトアルデヒド	2.1	2.0	0.00036	0.0015	1364	
	プロピオンアルデヒド	0.53	0.52	0.00030	0.0010	524	
	イソブチルアルデヒド	0.27	0.32	0.00049	0.00051	584	
	ノルマルブチルアルデヒド						
	イソバレールアルデヒド	0.25	0.34	0.00010	0.00010	2904	
	ノルマルバレールアルデヒド	0.16	0.29	0.00020	0.00041	548	
脂肪酸類	プロピオン酸	0.0023		0.00051	0.0057	0	25
	ノルマル酪酸	0.0046		0.00048	0.00019	24	
	イソ吉草酸	ND		0.00042	0.000078	0	
	ノルマル吉草酸	ND		0.00040	0.000037	0	
単位：ppm						総和	5990

AcCHO で $1364/5990 \times 100 = 23\%$ の寄与率，その他のアルデヒド類が各々9～10%ほどの寄与率となり，アルデヒド類を全て合計すると， $5924/5990 \times 100 = 99\%$ の圧倒的な悪臭寄与率となった。

アンモニアはかなりの高濃度で検出されたものの，嗅覚閾値が大きいため $41/5990 \times 100 = 0.7\%$ ほどの悪臭寄与率に留まった。ノルマル酪酸等についても比較的高濃度で検出され，嗅覚閾値も小さいものの，アルデヒド類に埋もれる結果となり， $24/5990 \times 100 = 0.4\%$ ほどの悪臭寄与率に留まった。

別途行われた三点比較式臭袋法による悪臭官能試験では36という臭気指数が得られており，今回得られた閾値倍数の総和（臭気濃度）から臭気指数を算出すると， $10 \log 5990 = 37.8$ となり，両者は比較的良く一致していたと言える。

3. 検出下限値

検出下限値については，「有害大気汚染物質測定方法マニュアル」に定める方法に従って算出した⁵⁾。即ち，検量線最下限の標準溶液を5回以上分析し，その標準偏差の3倍を大気中濃度に換算した値を検出下限値，その標準偏差の10倍を大気中濃度に換算した値を定量下限値とした。但しアルデヒド類のうち，HCHOとAcCHOについてはブランク値が存在するので，ブランク値を5回以上分析し，その標準偏差の3倍を大

気中濃度に換算した値を検出下限値，その標準偏差の10倍を大気中濃度に換算した値を定量下限値とした。表1及び2に，算出した検出下限値を示す。大気中濃度に換算する際の採気量については，アンモニアが15L，硫黄化合物が1L，アルデヒド類が20L，脂肪酸類が25Lとした。

今回このように検出下限値の算出を，個別の特定悪臭物質について行った理由としては，嗅覚閾値が小さく敷地境界規制基準値が厳しい物質を測定する場合，その規制基準値の1/10である目標定量下限値をクリアできない場合が想定されたからである。例えばiVICHOは敷地境界規制基準値が3ppbなので，目標定量下限値は0.3ppbとなる。表1及び2に示すように，今回得られたiVICHOについての検出下限値は0.10ppbで，定量下限値は $0.10 \times 10/3 = 0.33$ ppbとなり，目標定量下限値の0.3ppbをかるうじてクリアできたという結果であった。目標定量下限値をクリアするためには，予め採気量の検討等を含めた，分析法の再検討が必須であることが解る。

文 献

- 1) <http://www.pref.aichi.jp/soshiki/toukei/0000087807.html>
- 2) <http://www.env.go.jp/air/akushu/h27report.pdf>
- 3) 大野隆史, 神谷明男, 水谷弘雄: カートリッジ捕集法による低級脂肪族アルデヒド類の測定方法の検討, 第 32 回大気汚染学会講演要旨集, p.487 (No.8306) (1991)
- 4) 大野隆史, 水谷弘雄: 各種悪臭排出施設からの低級脂肪族アルデヒド類の排出特性, 第 46 回大気環境学会年会講演要旨集, p.317 (1K1130) (2005)
- 5) 環境省水・大気環境局大気環境課: 有害大気汚染物質測定方法マニュアル, 平成 20 年 10 月, 平成 21 年 3 月, 平成 22 年 3 月, 平成 23 年 7 月
- 6) 名古屋市環境科学調査センター: 平成 28 年度 有害大気汚染物質モニタリング調査結果報告書, 平成 29 年 5 月
- 7) 永田好男, 竹内教文: 三点比較式臭袋法による臭気物質の閾値測定結果, 日本環境衛生センター所報, 17, 77-89 (1990)