

大気浮遊粒子状物質の発生源からの寄与（第2報）

Contributions from Release Sources of Airborne Particulate Matter (II)

田村 章
Akira TAMURA

山本 務
Tsutomu YAMAMOTO

藤田 淳二
Junji FUJITA

増井 武彦
Takehiko MASUI

三好 健治
Kenji MIYOSHI

平成2～4年度の香川県下5地域（計15地点）において、大気浮遊粒子状物質（以下SPM）濃度は、28.2～44.6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 範囲であり、平均濃度は、36.2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。このSPMの炭素成分・金属類・水溶性イオン類の測定結果により、CMB法を用い、各発生源からの寄与を試算した。全域の寄与率は、自然発生源11.9%、固定発生源13.2%、ディーゼル自動車35.5%、2次生成粒子38.4%、不明部分1.0%と求まった。各5地域においても、ディーゼル自動車と2次生成粒子からの寄与が大きく影響していた。

はじめに

大気中に浮遊している粒子状物質のほとんどが、健康障害の原因になり得るとされ、昭和47年に「浮遊粒子状物質に係る環境基準」が設定された。しかし、SPMは、環境基準の達成率が低く、その対策が急がれている。そこで、SPMに対する発生源からの寄与を推定し評価することが求められている。その評価法の一つとして、CMB（Chemical Mass Balance）法¹⁾がある。この方法により日本国内で各発生源からのSPMへの寄与が試算^{2)～5)}されている。

前報において、平成2・3年度の金属成分濃度より、自然起源、人工起源を試算した。本報では、新たに、炭素成分、水溶性イオン類の測定結果を加え、CMB法により、香川県下のSPMに対する各発生源からの寄与を試算したので、その結果について報告する。

調査方法

1. 調査期間

平成2年4月～5年3月

2. 調査地点

前報⁶⁾に示した高松地域（高松市役所・福岡町・東ハゼ町・勝賀中・高松町・朝日町・直島町）、中讃地域（坂出市役所・坂出瀬居町・丸亀市役所）、西讃地域（観音寺市役所・観音寺市池之尻）、東讃地域（大内町）、内陸地域（善通寺市役所・満濃町）の5地域計15地点である。

3. 捕集方法

新宅機械製作所製FKS型10 μm カットサイクロン付きローポリウムエアサンプラーを用い、15測定地点とも約15日間の捕集周期で同時測定を行った。ろ紙は、東京ダイレック株式会社PAALLFLEX FILTERS 2500QAT-UPを用いた。

4. 分析方法

(1) SPM濃度

捕集したろ紙を、温度20°C、相対湿度50%の恒温恒湿室内で48時間以上保存し秤量した。その秤量値を吸引流量で除いた値をSPM濃度とした。

(2) 炭素成分

元素分析装置（CHNコーグ・柳本MT-3型）を用い、He-O₂気流下、白金製ホルダー上の試料を一定温度に5分間保ち、揮発、燃焼、分解による生成物を酸化炉でCO₂にした後、熱伝導法により定量した。試料は、ろ紙をベルトポンチで22mmの円型に切り取り、白金ホルダー内に折りたたんで詰めた。SPM重量は、切り取った面積より計算で求めた。標準試料には、アンチピリンを用いた。

(3) 金属類

ろ紙を直径47mmの円型試料とするため、ベルトポンチで切り取り、(株)島津製作所製SFX-1200型蛍光X線分析装置を用い、Na, Al, V, Pb, Fe, Zn, Ca, Mn, Cu, を定量した。

(4) 水溶性イオン類

SO₄²⁻、NO₃⁻は、イオンクロマトグラフ法により、NH₄⁺は、インドフェノール法により分析した。

(5) CMB法¹⁾

CMB法は、各発生源を特徴づける指標成分を選び、

大気中の粒子状物質の成分濃度の測定データから、捕集地点における各発生源の寄与を求めるものである。表1に示した各種発生源における元素比率は芳住ら⁷⁾の文献値を用いた。最適解は、線形計画法により試算した。

表1 各種発生源における元素比率

発生源	Ca	Na	Al	Mn	V	Fe	Cu	Pb	Zn	総炭素
土 壤 粒 子	5.7	1.4	6.7	0.076	0.011	3.6	0.04	0.0058	0.029	0
海 塩 粒 子	1.2	30.42	0.00003	0.0000053	0.0000058	0.000029	0.0001	0	0.0000029	0
重 油 燃 焼	0.085	1.0	0.21	0.012	0.92	0.46	0	0.033	0.04	0
鉄 鋼 工 業	4.5	1.4	1.0	2.2	0.013	15.7	0.37	1.4	0.52	0
廃 棄 物 焼 却	1.1	12	0.42	0.033	0.0027	0.62	0.36	1.7	0.26	8.4
ガソリン自動車	0	0	0.07	0.0113	0.000043	0.71	0	3.7	0.15	56.4
ディーゼル自動車	0	0	0	0.023	0.01	0	0	0	0	85

結果及び考案

1. SPM濃度

SPMは、各発生源からの粒子で構成されているが、SPM濃度を把握することは重要である。SPM濃度は、昭和54年度から調査しており、経年変動は少なく横ばい状態であった。表2に2～4年度の地域別SPM濃度を示した。各地域のSPM濃度は、28.2～44.6μg/m³の範囲であり、平均濃度は、36.2μg/m³であった。高松地域・中讃地域・西讃地域は、ほぼ同様のSPM濃度となった。内陸地域において、満濃町は、海岸線から約20Kmのところ、周辺に民家もなく、環境は、静穏な地域にもかかわらず、24.3～28.0μg/m³のSPM濃度となった。このことから、県下のバックグラウンドは、25μg/m³程度と考えられた。図1に3年間のSPM濃度の出現頻度をみるため、度数分布図を作成した。最も出現頻度が高かったのは、35μg/m³程度のSPM濃度であり、わずかではあるが、70μg/m³以上のSPM濃度も出現した。図2に、全域における、月別SPM濃度の推移を示した。8月、9月、10月、1月は低めのSPM濃度となったが、極端に高濃度が出現する月はなかった。

表2 各地域の年度別SPM濃度 (μg/m³)

	2年度	3年度	4年度
高松地域	36.7	42.1	32.7
中讃地域	35.6	42.1	32.0
西讃地域	35.2	44.6	33.3
東讃地域	38.4	37.8	28.2
内陸地域	28.8	34.2	28.9

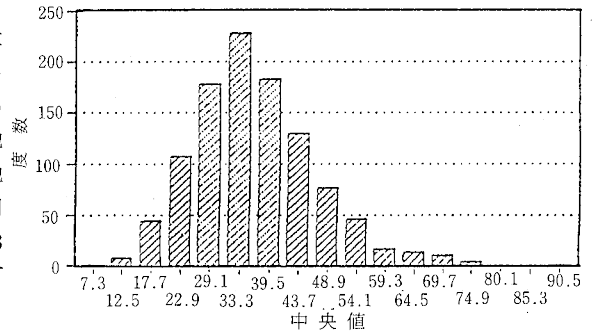


図1 SPM濃度の度数分布

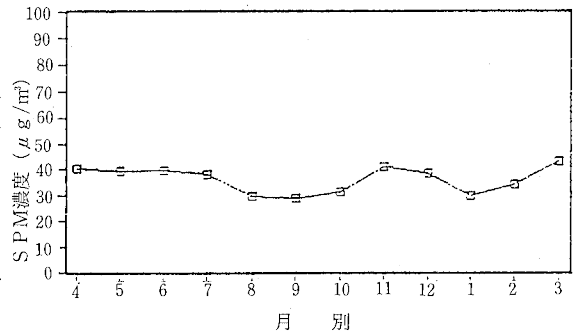


図2 SPM濃度の月別推移

2. 炭素成分

S P M中の炭素成分については、有機炭素および元素状炭素の両者について把握すればよいが、これら両者の明確な分離温度は得られない報告⁷⁾もあり、現在のところ、分析者により分析のための温度条件は、まちまちに設定されているので、有機炭素と元素状炭素を合わせた総炭素のみ測定した。

炭素成分は、S P M中の主要成分である。表3に、平成4年度における各地域の炭素成分割合を示した。地点別では、24.1～35.4%の割合でS P M中に炭素成分が含

まれていた。全地点の平均では、30.9%であった。図3に全地点における炭素成分割合の月別推移を示した。4～7月・2月・3月と割合がやや小さくなるが、極端にS P M中の炭素成分割合が大きくなる月もなく、30%前後の割合で推移した。

3. 金属類

表4に、各地域における金属類の測定結果を示した。S P M中の金属類の占める割合は、約5%であった。各地域とも年度によって大きく変動した金属類は認められなかった。

表3 各地域におけるS P M中の炭素成分割合

地域	地点	割合(%)	平均(%)
高松地域	高松市役所	33.5	32.1
	福岡町	35.2	
	東ハゼ町	31.5	
	勝賀中	31.7	
	高松町	32.7	
	朝日町	31.7	
	直島町	28.4	
中讃地域	坂出市役所	35.4	31.3
	瀬居町	30.0	
	丸亀市役所	28.6	
西讃地域	観音寺市役所	29.4	29.4
	池之尻	29.4	
東讃地域	大内町	34.6	34.6
内陸地域	善通寺市役所	29.6	26.9
	満濃町	24.1	

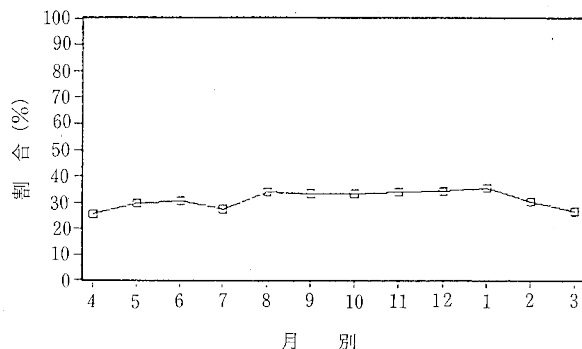


図3 炭素成分割合の月別推移

表4 各地域における金属類の測定結果

		(μg/m ³)								
		Ca	Na	Al	Mn	V	Fe	Cu	Pb	Zn
高松地域	2年度	0.250	0.589	0.247	0.034	0.011	0.696	0.043	0.065	0.207
	3年度	0.219	0.581	0.228	0.034	0.014	0.627	0.035	0.056	0.177
	4年度	0.311	0.588	0.255	0.032	0.015	0.710	0.032	0.066	0.254
中讃地域	2年度	0.230	0.647	0.254	0.023	0.011	0.607	0.025	0.054	0.125
	3年度	0.231	0.657	0.247	0.032	0.015	0.547	0.028	0.045	0.138
	4年度	0.250	0.605	0.243	0.020	0.015	0.513	0.021	0.058	0.144
西讃地域	2年度	0.215	0.581	0.264	0.015	0.007	0.400	0.015	0.043	0.082
	3年度	0.199	0.570	0.260	0.013	0.009	0.435	0.014	0.040	0.076
	4年度	0.237	0.381	0.212	0.015	0.008	0.335	0.014	0.051	0.083
東讃地域	2年度	0.185	0.585	0.253	0.020	0.005	0.450	0.014	0.025	0.078
	3年度	0.165	0.590	0.250	0.027	0.005	0.420	0.013	0.030	0.072
	4年度	0.190	0.467	0.245	0.021	0.008	0.350	0.013	0.038	0.074
内陸地域	2年度	0.194	0.472	0.235	0.014	0.005	0.365	0.012	0.036	0.070
	3年度	0.180	0.484	0.223	0.021	0.008	0.375	0.014	0.037	0.078
	4年度	0.231	0.404	0.233	0.015	0.007	0.370	0.014	0.049	0.087

4. 水溶性イオン類

S PM中の水溶性イオン類は、2次生成粒子由来のものとして取り扱われている。2次生成粒子は、各発生源からガス状物質として排出されるものが大気中での反応により粒子化したものの総称である。SO₄は硫酸根に、NO₃は硝酸根に、アンモニアガスは粒子の中和剤として、それぞれの粒子に変換すると考えられている。表5に、各地域の水溶性イオン類の測定値を示した。水溶性イオン類は、S PM中に10.0~14.8 μg/m³の濃度であり、特にSO₄²⁻の濃度が大きく7.5~10.4 μg/m³であった。

5. CMB法による各発生源からの寄与

表6に、CMB法により試算した各発生源からの寄与濃度および寄与率を示した。寄与が特に大きかったのは、各地域ともディーゼル自動車・2次生成粒子であり、寄与率がともに30%を超えていた。次いで、土壌粒子からの寄与率が10%前後であり、廃棄物焼却が6.3~9.4%であった。ガソリン自動車からの寄与がなくなったことについては、表1に示した各種発生源における元素比率及び元素の種類に問題があると考えられるが、現在のところ検討中である。図4に、全地域を合計した発生源寄与率を示した。自然発生源として土壌粒子・海塩粒子、固定発生源として重油燃焼・鉄鋼工業・廃棄物焼却を合わせたものとする、自然発生源からの寄与率は11.9%、固定発生源13.2%、ディーゼル自動車35.5%、2次生成粒子38.4%、不明部分1.0%と求まった。ディーゼル車の寄与率は、東京⁹⁾では、約40%であり、ディーゼルエンジンのNO_x削減開発と同様に、S PM削減開発が急がれるところである。

今回CMB法を用い、各発生源からの寄与を試算したが、CMB法に用いるデータは、発生源の選択および発生源から排出される粒子の成分組織の把握が適切であったかどうかにかかっている。したがってCMB法の妥当

表5 各地域における水溶性イオン類の測定結果 (μg/m³)

地域	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	NH ₄ ⁺
高松地域	9.03	0.51	2.12
中讃地域	8.61	0.60	2.39
西讃地域	10.41	1.75	2.60
東讃地域	7.86	1.05	2.27
内陸地域	7.49	0.39	2.16

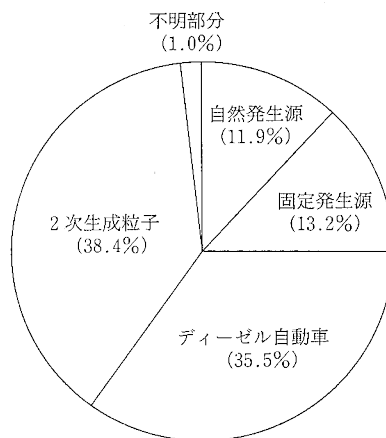


図4 香川県下における発生源寄与率

表6 各種発生源寄与算定結果

	高松地域		中讃地域		西讃地域		東讃地域		内陸地域		全国平均	寄与率 (%)
	寄与濃度	寄与率	寄与濃度	寄与率	寄与濃度	寄与率	寄与濃度	寄与率	寄与濃度	寄与率		
土壌粒子	3.3	10.1	3.3	10.3	2.9	8.7	2.8	9.9	3.2	11.1	10.0	41.9 自然発生源
海塩粒子	0.7	2.1	0.6	1.9	0.2	0.6	0.5	1.8	0.1	0.3	1.9	
重油燃焼	1.4	4.3	1.5	4.7	0.7	2.1	0.7	2.5	0.6	2.1	3.1	13.2 固定発生源
鉄鋼工業	1.9	5.8	0.4	1.3	1.1	3.3	0.0	0.0	0.3	1.0	2.3	
廃棄物焼却	2.3	7.0	3.0	9.4	2.1	6.3	2.2	7.8	2.6	9.0	7.8	
ガソリン自動車	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	
ディーゼル自動車	12.1	37.0	11.5	35.9	11.3	33.9	11.3	40.1	8.9	30.8	35.5	
2次生成粒子	11.7	35.8	11.6	36.3	14.8	44.4	11.2	39.7	10.0	34.6	38.4	
不明部分	—	—	0.1	0.2	0.2	0.6	—	—	3.2	11.1	1.0	

単位：寄与濃度 (μg/m³)
寄与率 (%)

性を確かめる方法が必要である。その方法として、鈴木ら⁹⁾の主要成分にもとづき各種粒子の濃度を求める報告がある。今後、CMB法、多変量解析法のうち因子分析法や重回帰分析法、また、これらの組み合わせた方法を併用していくことが、発生源寄与の試算には重要と考えられた。

ま と め

本県におけるSPMに対する各発生源からの寄与率を発生源別に指標元素を選定し、CMB法を用い試算した。その結果の要約は次のとおりである。

1. 各地域のSPM濃度は28.2~44.6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であり、平均濃度は36.2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。
2. 各地域の炭素成分の割合は26.9~34.6%であり、全地点の平均は、30.9%であった。
3. SPM中の金属類の占める割合は約5%であった。
4. 水溶性イオン類は、SPM中に10.0~14.8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。
5. 各発生源からの寄与率は、自然発生源11.9%、固定発生源13.2%、ディーゼル自動車35.5%、2次生成粒子38.4%、不明部分1.0%と求まった。

文 献

- 1) 岩本慎二：公害と対策，25，14，1415（1989）
- 2) 鈴木正雄，新井久雄：横浜市公害研究所報，10，43（1985）
- 3) 内藤季和，飯豊修司，他：千葉県公害研究所研究報告，15，1（1983）
- 4) 加藤拓紀，田淵修二，他：北海道公害防止研究所報15，25（1988）
- 5) 才本光穂，伊藤正敏，北川良雄：山口県公害センター年報，7，35，（1981）
- 6) 田村 章，山本 務，他：香川県環境研究センター所報，16，21（1991）
- 7) 芳住邦雄，渡辺武夫：東京都環境科学研究所年報3（1989）
- 8) 新井久雄：横浜市公害研究所報，10，5（1985）
- 9) 鈴木正雄，新井久雄：横浜市公害研究所報，10，51（1985）