

リセプターモデルによる浮遊粒子状物質発生源寄与の算定

芳住 邦雄 渡辺 武春 吉岡 秀俊
 伊瀬 洋昭 朝来野 国彦 田村 健夫
 (大気保全部)
 田口 芳昭 中村 健 吉野 昇
 (大気保全部, 現清掃局) (大気保全部)

1 はじめに

大気環境中の浮遊粒子状物質は、その環境基準達成率が、ガス状汚染物質に比較し極めて低く、行政施策上の重要課題の一つと考えられる。かかる浮遊粒子状物質の削減対策を確立するためには、それへの発生源寄与の評価を行うことが不可欠である。

浮遊粒子状物質に対する各発生源の寄与割合を明らかにするための手法としては、拡散モデルとリセプターモデルが考えられる。拡散モデルでは、排出係数に基づく地域メッシュごとの排出総量データが必要であり、これと気象データ、拡散パラメーター、粒子の生成、変質、除去過程などを考慮に入れた拡散計算によって、環境濃度を推定する。従来、SO_x及びNO_xの総量規制において用いられた手法であり、個々の発生源の寄与が、前述の前提条件の下で個別に算出される利点を有する。また、将来予測が可能である。

一方、リセプターモデルでは、環境中で測定した粒子状物質組成の測定結果に基づき、あらかじめ求められている発生源種別の特性と照合して発生源寄与を推定する手法が用いられる。リセプターモデルの一つであるCEB法 (Chemical Element Balances法, 化学元素収支法) は、環境中の粒子状物質の組成分析値と代表的発生源における化学組成とを用いて物質収支をとる方法であり、環境濃度に対する発生源の寄与を定量的に算出する。気象データ及び拡散パラメーターを必要とせず、単一試料を用いても解析が可能である利点を有している。

こうしたリセプターモデルは、Friedlanderら¹⁾によってはじめられ、従来、米国での研究成果が中心となっていたが、近年は、溝畑ら²⁾の研究を契機に地方自治体での適用例が増加しつつある。

本稿では、当研究所と環境保全部大気保全部が共同で実施した発生源寄与調査に基づいて、リセプターモデル

の取扱いについて概説すると共に、一、二の実施例の結果についてとりまとめて報告する。

2 実験方法

(1) 試料採取

浮遊粒子状物質の採取は、アンダーセンサンプラーの段構成を0段、4段及びバックアップフィルターの3段構成に変え、所定流速28.3ℓ/minで粗大粒子 (直径11~2.1μm) 及び微小粗粒子 (直径2.1μm以下) の粒径別に、昭和62年1月20日~27日の1週間連続して、江東区新砂の環境科学研究所屋上及び多摩市愛宕神社の多摩測定室で捕集した。なお、ここでは測定結果を示していないが、同様時期に、練馬北、大原、世田谷、品川、晴海及び調布の各測定局においてもアンダーセンサンプラーによる試料採取を行った。

捕集フィルターとしてテフロンフィルター及び石英フィルターをそれぞれ別個に装着したアンダーセンサンプラーを2台併行運転して、後述の分析試料として供した。

(2) 組成分析

ア 金属成分

テフロンフィルター上に捕集した試料を、放射化分析法により分析した。武蔵工業大学原子炉において熱中性子照射を行い、ガンマ線スペクトルを測定した。短寿命核種は、1分間照射し、数分後300秒間測定し、中寿命核種は、5時間照射し、数日後1000秒間測定し、さらに長寿命核種は、5時間照射し、数週間後3000秒間測定した。なお、分析操作は日本環境衛生センターに委託した。

イ 水溶性成分

水溶性成分の分析には、Dionex製4000i及び2000i型イオンクロマトグラフを用いた。捕集フィルターの1/4

を0.5m ℓのエタノールで湿浸させた後に10m ℓの蒸留水を加えて1時間振とうさせて抽出試料溶液とした。

陰イオンの分析では、分離カラムにHPIC-AS4Aを用い、溶離液は1.4mMNa₂CO₃+0.7mMNaHCO₃である。流速は、1.5m ℓ/minであり、サプレッサーには、25mMH₂SO₄を用い、流速は3m ℓ/minである。陽イオンの分析においては、分離カラムとして次の二つを用いた。一価陽イオンにはHPIC-CS1であり、溶離液は10mMHClである。二価陽イオンにはHPIC-CS3であり、溶離液は、24mMHCl+4mMジアミノプロピオン酸+4mMヒステジンである。サプレッサーには、共通に70mMテトラメチルアンモニウム溶液を用い、流速は7m ℓ/minである。

ウ 炭素成分

炭素成分の分析は、加熱炉を増設したCHN計(MT-2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にしたのち、熱伝導法により定量した。標準試料には、アセトアニリドを用いた。

熱分解温度を350℃に設定し、350℃で生成したCO₂量から求めた炭素量を有機炭素(Cao)とし、850℃で生成した炭素量を元素状炭素(Cae)とした。

3 実験結果及び考察

CEB法では、ある化学種が発生源から排出された時点から、リセプターにおいて測定されるまでの間にエアロゾルの質量は保存されるとの仮定を用いる。すなわち、P個の発生源から排出された質量M₁, M₂, …, M_pの粒子が、いま、ある測定点に到達しているとする次式が書ける。

$$m = \sum_{j=1}^p M_j \dots\dots\dots (1)$$

ここに、mはこの点におけるフィルター上に捕集された粒子の総質量である。特定の化学種の質量m_iは、次式で与えられる。

$$m_i = \sum_{j=1}^p M_{ij} = \sum_{j=1}^p F'_{ij} M_j \dots\dots\dots (2)$$

ここに、M_{ij}は発生源jに由来する化学種iの質量であり、F'_{ij}はその測定点で捕集された質量における発生源jに由来する化学種iの質量分率である。さらに、発生源と測定点の間において個々の化学成分の質量は保存さ

れると仮定すると次式となる。

$$F'_{ij} = F_{ij} \dots\dots\dots (3)$$

ここに、F_{ij}は、発生源で測定された発生源jから排出される化学種iの質量分率である。こうした仮定は、CEB法に限らず、通常拡散モデル及びその他のリセプターモデルでも用いられるわけであるが、この仮定が成り立つかどうかは、化学種の物理的及び化学的性質あるいは大気中における凝縮、蒸発、化学反応、沈降などなどの程度生じるかに依存している。

もし、測定点に影響を与えるすべての発生源種別であるp種の発生源の排出化学組成比率が既知であり、p<n(nは化学種の数)であれば、式(2)についてのn元連立方程式が得られ、それを解くことによって発生源寄与M_jが求められる。

本報告では、F_{ij}に相当する値として表1に示した発生源データを用いて、8種の発生源種別についての11種の化学種により11元連立方程式を得た。この連立方程式を解くにあたっては、内藤の使用した方法³⁾に倣い線形計画法を用いた。この方法では、溝畑らが用いている最小二乗適合法²⁾と異なり、解に負の値が現われることはないという利点がある。

表2にこのような算定手法による発生源寄与を、環境科学研究所及び多摩測定室での測定結果に基づいて示した。グローバル土壌及びローカル土壌については、合算して土壌寄与として示した。

どちらの地点においても、粗大粒子における土壌、微小粒子におけるディーゼル車の寄与が際立って大きいことがわかる。それらに次ぐのが、微小粒子の二次生成であり、固定発生源である重油燃焼、鉄鋼工業及び廃棄物焼却の寄与は、小さなものであることが認められる。また、都心部にある環境科学研究所でディーゼル車の、郊外にある多摩測定室で土壌及び二次生成の寄与が相対的に高く、それぞれの地域的な特徴がうかがわれる。

全体としてのCEB法による説明力は、67~77%であり、これまでのわが国での報告に比較して、おおよそ10%程度低めの感があるが、ほぼ、妥当な発生源寄与率であると思われる。今後、さらに説明精度向上のための要因を検討する必要がある。

リセプターモデルによる発生源寄与算定の事業は、昭和62年度においても環境科学研究所と大気保全部の共同事業として継続中であり、その総合的成果を待つて本報

表1 各種発生源における元素比率

単位 %

発生源	Ca	Na	Al	K	Mn	V	Sc	Fe	Cae	Cao	Br
グローバル壤	5.7	1.4	6.7	2.7	0.076	0.011	0.0012	3.6	0	0	0
ローカル壤					(各地点実測値)						
海塩	1.2	30.42	3.0×10^{-5}	1.1	5.8×10^{-6}	5.8×10^{-6}	1.0×10^{-7}	2.9×10^{-5}	0	0	0.19
重油燃焼	0.085	1.0	0.21	0.085	0.012	0.92	9.0×10^{-6}	0.46	0	0	0
鉄鋼工業	4.5	1.4	1.0	1.3	2.2	0.013	1.3×10^{-4}	15.7	0	0	0.014
廃棄物焼却	1.1	12	0.42	20	0.033	0.0027	4.6×10^{-5}	0.62	6.7	1.7	0.083
ガソリン自動車	0	0	0.07	0.444	0.0113	4.3×10^{-5}	2.0×10^{-5}	0.71	30.1	26.3	5.95
ディーゼル自動車	0	0	0	0.43	0.023	0.01	0	0	65.0	20.0	0.017

表2 粒子状物質への発生源寄与算定結果

地 点 粒 径	環境科学研究所				多摩測定局			
	粗 大 11~2.1 μ m		微 小 2.2 μ m以下		粗 大 11~2.1 μ m		微 小 2.1 μ m以下	
発 生 源	寄与濃度 μ g/ m^3	寄与率 %	寄与濃度 μ g/ m^3	寄与率 %	寄与濃度 μ g/ m^3	寄与率 %	寄与濃度 μ g/ m^3	寄与率 %
土 壤	10.26	44.0	2.14	4.8	12.50	49.4	2.24	5.1
海 塩	0.49	2.1	0.71	1.6	0.09	0.4	0.16	0.4
重油燃焼	0.08	0.4	0.66	1.5	0	0	0.18	0.4
鉄鋼工業	0	0	0.42	0.9	0.38	1.5	0	0
廃棄物焼却	—	—	0.77	1.7	—	—	0.78	1.8
ガソリン自動車	0.04	0.2	0.11	0.2	0	0	0.19	0.4
ディーゼル自動車	5.06	21.7	22.95	51.0	4.31	17.0	17.99	41.3
二 次 生 成	1.09	4.7	6.88	15.3	0.81	3.2	7.73	17.7
合 計	17.01	73.0	34.62	76.9	18.09	71.5	29.26	67.1
実 測 濃 度	23.3	—	45.0	—	25.3	—	43.6	—

告を中間報告として、今後、季節的及び広域的特性を含めた最終報告をとりまとめる予定である。

参 考 文 献

1) Friedlander, S.K. : Chemical Element Balances and Identification of Air Pollution

Sources, *Environ. Sci. Tech.*, 7, 235 (1973)

2) 溝畑朗他 : 堺における大気浮遊粒子状物質中の諸元素の発生源の同定 (I) および (II), 大気汚染学会誌, 15, 198 & 225 (1980)

3) 内藤季和他 : 千葉県浮遊粒子状物質の起源の推定, 千葉公研報告, 15, 1 (1983)