

## 東京都における浮遊粒子状物質への リセプターモデルによる発生源寄与の評価

芳住 邦雄 渡辺 武春 石井 康一郎 吉岡 秀俊  
(大気保全部) (大気保全部) (大気保全部) (大気保全部)  
朝来野 国彦 田村 健夫 菅 道彦 吉野 昇  
(大気保全部) (大気保全部) (大気保全部) (大気保全部)

### 1 はじめに

環境大気中に存在する粒子状物質は、健康障害、視程低下あるいは雨水酸性化の要因となり、人間環境の保全に対して看過しえない影響を与えることは従来より指摘されているが、その環境基準達成率がきわめて不充分であることと相まって、近時、行政上の緊要な課題として注目を集めつつある。しかるに、その生成、排出の形態は、固定及び移動発生源からの一次汚染物質が主要なものは限らず、自然起源及び二次生成を含め多岐にわたっており、取扱いが容易でない対象という特徴を有している。こうした粒子状物質による大気汚染対策を確立するためには、第一義的に各種発生源の寄与を適格に評価することが肝要となる。

発生源寄与を解明する手法として、大別すると拡散モデルとリセプターモデルが、現在、多く用いられている。拡散モデルは、まず、排出係数と発生源数に基づき地域ごとに排出総量を求め、これと気象データ、拡散パラメータ、粒子の生成、変質、除去過程などを考慮に入れて拡散計算を行い環境濃度を推定する方法である。この方法によれば、排出量と環境濃度との関係が明らかになり、排出量の将来予測値を用いて環境濃度の予測も可能となる。また、その逆に環境基準を維持するための排出レベルを決定することもできる。しかし、拡散モデルを実際に適用する場合には、土壌の巻上りなど自然起源発生量の見積り、あるいは、人為起源についても全ての発生源について精度よく把握することの困難さなど発生源データの信頼性による影響が大きい。また、二次生成粒子の変換速度の見積りも未だ充分とはいえない現状にある。

リセプターモデルは、環境中で測定したエアロゾルの分析値に基づき、予め求めておいた代表的発生源における粒径分布、化学組成、形態及び分散などの粒子特性を

用いて、環境濃度に対する発生源の寄与を定量的あるいは定性的に推定する方法である。リセプターモデルのうち最も有力なものの一つがCEB法〔Chemical Element Balances法、化学元素収支法、CMB法（Chemical Mass Balances法）、化学質量収支法ともいう。〕であり、Friedlanderらによってはじめられた<sup>1)</sup>。これ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求める方法であり、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。しかし、寄与濃度算出は、発生源種別に得られ、個々の発生源ごとの寄与を評価することは通常できない。また、将来予測は不可能であるなどの限定条件がある。

かかるCEB法の研究は、従来、主として米国で実施されることが多かったが、我が国においても、溝畑らの<sup>2)</sup>研究をはじめとして自治体を中心に適用成果が増加しつつある。<sup>3)-5)</sup>

本報告は、昭和61年度において予備的に実施した結果<sup>6)</sup>を踏まえながら、昭和62年度における当研究所と環境保全部大気保全部の共同調査結果に基づき、東京都内における浮遊粒子状物質への各種発生源寄与をCEB法により明らかにすることを目的としている。

### 2 実験方法

#### (1) 試料採取

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1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10~2μm）及び微小粒子（直径2μm以下）の粒径別に、昭和62年度における4季節、すなわち昭和62年5月、8月

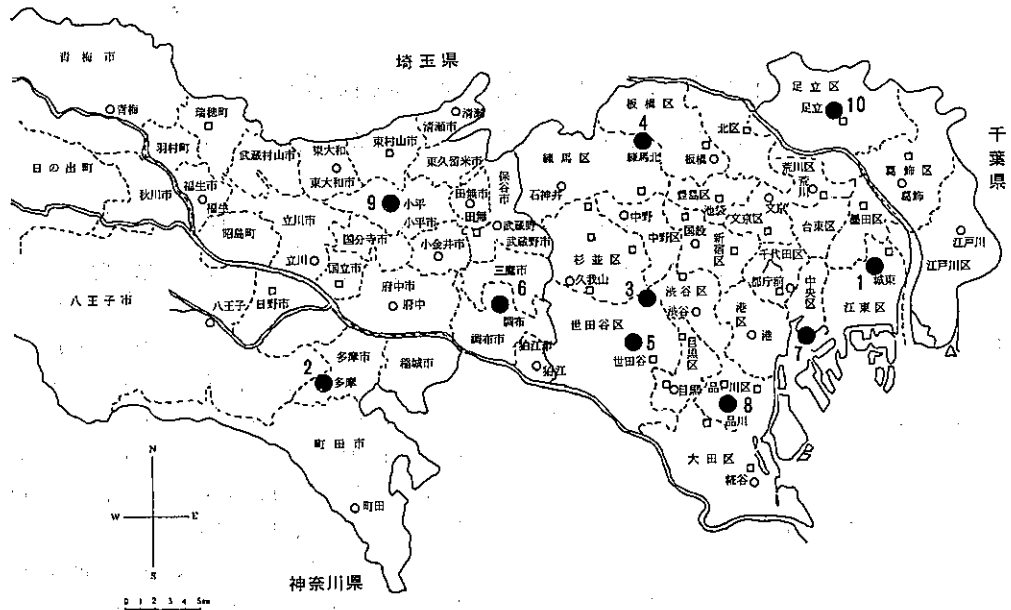


図1 東京都における浮遊粒子状物質採取地点

- |            |          |          |           |           |
|------------|----------|----------|-----------|-----------|
| 1. 環境科学研究所 | 2. 多摩測定局 | 3. 大原測定局 | 4. 練馬北測定局 | 5. 世田谷測定局 |
| 6. 調布測定局   | 7. 晴海測定局 | 8. 品川測定局 | 9. 小平測定局  | 10. 足立測定局 |

11月及び昭和63年1月にそれぞれ1週間にわたり試料採取を行った。測定場所は、図1に示したように春期及び秋期には、環境科学研究所、多摩測定局、大原測定局、練馬北測定局、晴海測定局、品川測定局、世田谷測定局、足立測定局、小平測定局、調布測定局の10か所、夏期及び冬期には環境科学研究所、多摩測定局、大原測定局、練馬北測定局の4か所である。なお、このうち大原のみが自動車排出ガス測定局である。

捕集フィルターとしては、テフロンフィルター及び石英フィルターを用い、それぞれを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。

浮遊粒子状物質の環境基準にかかわる測定においては、大気中に浮遊する粒子状物質を適当な方法により粒径 $10\mu\text{m}$ をこえる粒子を除去できる濾過捕集方法が標準方法とされている。こうした標準サンプラーの一つとして多段型分粒装置があり、この装置では、粒径 $10\mu\text{m}$ は50%カットオフ粒径ではなく、限界粒子径として捉えられている。50%カットオフ粒径 $7\mu\text{m}$ であるアンダーセンサンプラーの第1段を用いた場合と前述の限界粒子径 $10\mu\text{m}$ の多段型分粒装置による捕集特性の間には、我が

国各地でのフィールド試験においておおむね良好な一致をみられることが、環境庁委託報告書に記載されている。したがって、本研究で用いたアンダーセンサンプラーの構成による粒子捕集は、環境基準という浮遊粒子状物質に対応しているものと結論できる。

(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、これらの分析操作の一部は、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0.5mlのエタノールで湿浸させた後に10mlの蒸留水を加えて1時間振盪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1.4mMNa<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>+0.7mMNaHCO<sub>3</sub>である。流速は1.5ml/minであり、サブレッサーには25mMH<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>を用い、流速は3ml/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+4mMHヒスチジンである。サブ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7ml/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-O<sub>2</sub>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CO<sub>2</sub>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ドを用いた。

熱分解温度を350°Cに設定し、350°Cで生成したCO<sub>2</sub>量から求めた炭素量を有機炭素(Cao)とし、850°Cで生成した炭素量を元素状炭素(Cae)とした。

3 リセプターモデルによる発生源寄与の算定方法

CEB法では、ある化学種が発生源から排出された時点から測定点であるリセプターにおいて測定されるまでの間に粒子状物質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M<sub>1</sub>, M<sub>2</sub>, ..., M<sub>p</sub>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。

$$m = M_1 + M_2 + \dots + M_p \quad \dots\dots\dots (1)$$

ここに、mはこの測定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<sub>i</sub> (i = Al, Na, ...)は、次式で与えられる。

$$\left. \begin{aligned} m_i &= M_{i1} + M_{i2} + \dots + M_{ip} \\ &= F'_{i1}M_1 + F'_{i2}M_2 + \dots + F'_{ip}M_p \end{aligned} \right\} \dots (2)$$

ここに、M<sub>ij</sub> (j = 1, 2, ..., p)は、発生源jに由来する化学種iの質量であり、F'<sub>ij</sub>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。

$$\left. \begin{aligned} F'_{i1} &= F_{i1} \\ F'_{i2} &= F_{i2} \\ &\vdots \\ F'_{ij} &= F_{ij} \end{aligned} \right\} \dots\dots\dots (3)$$

ここに、ダッシュの付されていないF<sub>ij</sub>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、沈降などが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 ≤

表1 各種発生源における元素比率<sup>4), 6)</sup>

単位 %

発生源	Ca	Na	Al	K	Mn	V	Sc	Fe	Cae	Cao	Br
グローバル土壌	5.7	1.4	6.7	2.7	0.076	0.011	0.0012	3.6	0	0	0
東京都内土壌	2.28	0.659	8.85	0.796	0.135	0.0302	0.00291	7.48	3.94	1.63	0.0064
道路粉塵	6.9	1.08	6.83	0.97	0.135	0.019	0.0019	7.40	4.00	0.72	0.00043
海塩	1.2	30.42	3.0×10 <sup>-5</sup>	1.1	5.3×10 <sup>-6</sup>	5.8×10 <sup>-6</sup>	1.0×10 <sup>-7</sup>	2.9×10 <sup>-5</sup>	0	0	0.19
重油燃焼	0.085	1.0	0.21	0.085	0.012	0.92	9.0×10 <sup>-6</sup>	0.46	0	0	0
鉄鋼工業	4.5	1.4	1.0	1.3	2.2	0.013	1.3×10 <sup>-4</sup>	15.7	0	0	0.014
廃棄物焼却	1.1	12	0.42	20	0.033	0.0027	4.6×10 <sup>-5</sup>	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 <sup>-5</sup>	2.0×10 <sup>-5</sup>	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 線形計画法による発生源寄与算定の代数式

1. 制約式

$$\begin{aligned}
 &F_{Ca-グローバル土壤} \cdot M_{グローバル土壤} + F_{Ca-都内土壤} \cdot M_{都内土壤} + \dots + F_{Ca-ディーゼル自動車} \cdot M_{ディーゼル自動車} \leq m_{Ca} \\
 &F_{Na-グローバル土壤} \cdot M_{グローバル土壤} + F_{Na-都内土壤} \cdot M_{都内土壤} + \dots + F_{Na-ディーゼル自動車} \cdot M_{ディーゼル自動車} \leq m_{Na} \\
 &\vdots \\
 &F_{CaO-グローバル土壤} \cdot M_{グローバル土壤} + F_{CaO-都内土壤} \cdot M_{都内土壤} + \dots + F_{CaO-ディーゼル自動車} \cdot M_{ディーゼル自動車} \leq m_{CaO} \\
 &F_{Br-グローバル土壤} \cdot M_{グローバル土壤} + F_{Br-都内土壤} \cdot M_{都内土壤} + \dots + F_{Br-ディーゼル自動車} \cdot M_{ディーゼル自動車} \leq m_{Br}
 \end{aligned}$$

2. 目的関数

$$G(M_j) = M_{グローバル土壤} + M_{都内土壤} + \dots + M_{ガソリン自動車} + M_{ディーゼル自動車}$$

n (nは化学種の数)であれば、式についての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<sub>j</sub>が求められる。

本報告では、F<sub>ij</sub>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9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。表1の分類は、粒子状物質を排出する典型的な発生源によって構成されているものとして、従来より用いられることの多いものである。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<sup>3)</sup>に倣い線形計画法を用いた。この方法では、表2に示したように1次不等式で示した制約式を満たす非負変数M<sub>グローバル土壤</sub>、……、M<sub>ディーゼル自動車</sub>のうち目的関数を最大化するものを求める問題に帰結される。この場合には、溝畑らが用いている最小二乗適合法<sup>2)</sup>と異なり解に負の値が現われて解積に窮することはないという利点がある。

なお、二次生成粒子には、寄与算定の計算上余剰となった有機炭素(Cao)と硫酸根、硝酸根及びアンモニウムイオンの和を割り振った。

4 結果及び考察

図2は、各発生源種別による大気環境中の浮遊粒子状物質への寄与を季節ごとに、粗大粒子(直径10~2μm)及び微小粒子(直径2μm)の粒径別に示した。表1の発生源種別に挙げたグローバル土壤、東京都内土壤及び道路粉塵からの寄与は、いずれも広義の土壤に由来する

ものであり、とりまとめて土壤として示した。

春期及び秋期では、図1に示した10か所の測定地点で得られた寄与濃度の平均値を示し、夏期及び冬期では、環境科学研究所、多摩測定局、大原測定局及び練馬北測定局の4か所の測定地点で得られた寄与濃度の平均値を示した。

粒子状物質の総重量濃度は、夏期が最も低く春期がそれに次いでおり、秋期、冬期では高濃度となっている。これは、夏期には大気の運動が活発であり、一方、冬期にかけて大気安定度が増加するための一般的な特性と対応していると考えられる。粒径別では、いずれの場合にも粗大粒子よりも微小粒子のほうが高濃度であり、都市大気の特徴として自然起源よりも人為起源のほうがより大きな影響を与えていることをうかがわせる結果となっている。

次に、個々の発生源種別ごとの寄与濃度の特性について論議する。まず、土壤は、いずれの場合にも粗大粒子側の濃度が微小粒子側に比較して圧倒的に高濃度となっている。土壤粒子の発生は、地表の土壤層が風力により物理的に破碎されて舞い上ることによるのであろうからWhitly<sup>8)</sup>が論じたように微小粒径範囲には分布せず、粗大粒子側に集中することになるとみられる。おおよそ6~23μg/m<sup>3</sup>程度の濃度であり、季節的には冬期に特に高濃度となっている。これは風速が大きく乾燥度が比較的高い冬期に舞い上り量が増加することによるのかも示れない。

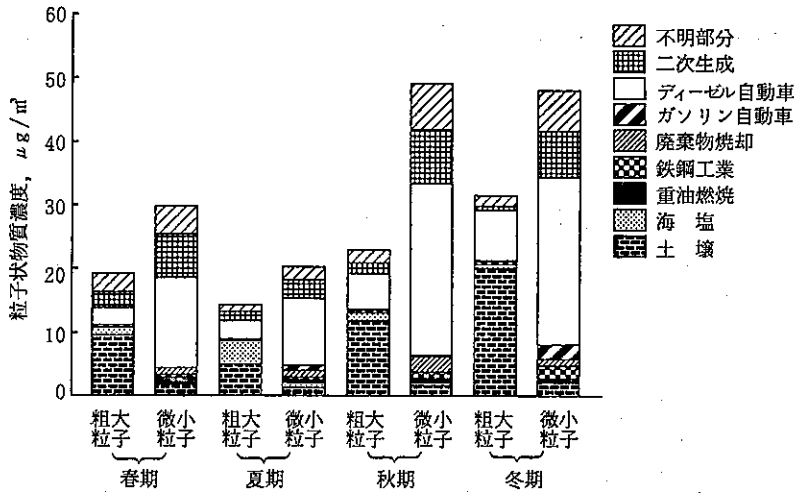


図2 東京都における浮遊粒子状物質への季節別発生源寄与濃度

海塩粒子も、土壌粒子と同様に粗大粒径側への偏りが大きい。海塩粒子は、海水の飛沫などの物理的過程によって生じることによるのであろう。季節的には、夏期に  $4\mu\text{g}/\text{m}^3$  程度と高くなり、冬期には  $1\mu\text{g}/\text{m}^3$  弱と低くなる傾向がみられる。夏期には南からの海風が季節風として卓越し、冬には逆に北からの陸風が強くなるためと思われる。

重油燃焼粒子の粒径分布は、前述の土壌及び海塩粒子が自然起源の物理過程をへて生成するのとひきかえ、人為起源の燃焼という化学過程をへて生成するために、微小粒径側に圧倒的に偏って存在している。一般に均一化学反応によって生じる粒子は、初期にクラスターを形成しその後の粒成長を経由するために微小粒径側に分布することになることが従来より知られている<sup>7)</sup>。重油燃焼粒子の季節的な変動は必ずしも明瞭ではなく、 $0.4\sim 0.8\mu\text{g}/\text{m}^3$  程度の比較的低い濃度となっている。

鉄鋼工業粒子も、その粒径分布は微小粒子側に多く存在しており、前項と同様に化学過程をへて生成することがうかがわれる。季節的には春期及び夏期に低く、秋期及び冬期に高く  $0.6\sim 2.6\mu\text{g}/\text{m}^3$  程度の濃度範囲にある。

廃棄物焼却粒子は、清掃工場等におけるゴミの焼却という化学反応過程を経由して生成するため粒径分布は微小粒子側に圧倒的に偏在している。濃度範囲は、 $1\sim 2.5$

$\mu\text{g}/\text{m}^3$  程度であり秋期に高濃度となっている。

ガソリン自動車からの粒子は、かつてオクタン価向上剤としてアルキル鉛がレギュラーガソリンに添加されていた当時は、大きな問題であったが、わが国の現状では無鉛化の推進により加鉛ガソリンは総販売量の数%に低下しておりその影響は小さなものとなっている。寄与濃度として  $0.2\sim 2.2\mu\text{g}/\text{m}^3$  と見積られており、粒径分布は微小粒径に偏在している。

ディーゼル自動車からの粒子は、軽油の不均一燃焼による未燃焼の元素状及び有機炭素成分から主として構成されており、粒径分布は微小粒子側に偏ることになる。本報告でこれまで論じてきた発生源種別に比較してその寄与濃度は非常に高く、秋期及び冬期には  $30\mu\text{g}/\text{m}^3$  を越える値にまで達している。粗大粒子側にも相当量の寄与が算定されたが、ディーゼル排気粒子本来の粒径分布から観るとやや過大にすぎる見積りという感は否めない。アンダーセンサンプラー自体の分級特性、ディーゼル排気粒子の粗大粒子への付着などがその要因とも考えられるが、今後さらに検討すべき課題と言える。

二次生成粒子の算定は、リセプターモデルにおける物質収支に基づくものではなく、実測の二次生成成分である硫酸根、硝酸根及びアンモニウムイオンに前述の物質収支計算で使われずに残った有機炭素成分との合計をあてた。二次生成粒子は各種発生源からガス状物質として

排出された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。SO<sub>2</sub>は硫酸根に、NO<sub>x</sub>は硝酸根に、アンモニアガスはそれらの酸性粒子の中和剤として、炭化水素は、光化学反応等で凝縮性の有機炭素となりそれぞ

れ粒子に変換すると考えられている。粒径分布は、微小粒子側に偏っているが、粗大粒径側にもかなりの濃度があり、塩素分析値の算定導入問題と共に今後の吟味が必要とされよう。

表3 指標元素のリセプターモデル計算における有用比率  
(各元素の計算値/実測値)

採取地点	採取時期	粒径	Ca	Na	Al	K	Mn	V	Sc	Fe	Cae	Cao	Br
環境科学研究所	春	微小	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	0.963	0.822	1.000	1.000	0.464
多摩測定局	春	微小	1.000	1.000	1.000	1.000	0.845	1.000	2.521	1.000	1.000	0.688	1.000
大原測定局	春	微小	1.000	1.000	1.000	0.819	0.937	1.000	2.278	0.940	0.989	1.000	0.604
練馬北測定局	春	微小	0.549	1.000	1.000	1.000	0.930	1.000	1.723	1.000	1.000	0.867	1.000
世田谷測定局	春	微小	1.000	1.000	1.000	0.759	0.823	1.000	1.205	0.559	1.000	0.721	1.000
調布測定局	春	微小	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.553	0.833	1.000	0.591	1.000
晴海測定局	春	微小	1.000	1.000	0.900	1.000	0.387	1.000	1.326	0.337	1.000	0.777	1.000
品川測定局	春	微小	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	0.894	0.703	1.000	0.920	1.000
足立測定局	春	微小	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.311	0.765	1.000	0.983	1.000
小平測定局	春	微小	0.758	1.000	1.000	1.000	0.843	1.000	0.919	1.000	1.000	0.589	1.000
環境科学研究所	春	粗大	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	0.973	0.744	1.000	0.812	1.000
多摩測定局	春	粗大	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.279	0.930	1.000	0.518	1.000
大原測定局	春	粗大	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.113	0.457	1.000	0.567	1.000
練馬北測定局	春	粗大	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.126	0.585	1.000	0.485	1.000
世田谷測定局	春	粗大	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	0.811	0.614	1.000	0.548	1.000
調布測定局	春	粗大	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.188	0.804	1.000	0.470	1.000
晴海測定局	春	粗大	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.322	0.837	1.000	0.549	1.000
品川測定局	春	粗大	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	0.917	0.852	1.000	0.608	1.000
足立測定局	春	粗大	1.000	1.000	0.971	1.000	1.000	1.000	1.319	0.924	1.000	0.789	1.000
小平測定局	春	粗大	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.365	0.829	1.000	0.503	1.000
環境科学研究所	夏	微小	1.000	1.000	1.000	1.000	0.849	1.000			1.000	1.000	
多摩測定局	夏	微小	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000			0.963	1.000	
大原測定局	夏	微小	0.990	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000			0.925	1.000	
練馬北測定局	夏	微小	1.000	1.000	1.000	1.000	0.764	1.000			1.000	1.000	
環境科学研究所	夏	粗大	0.960	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000			1.000	0.500	
多摩測定局	夏	粗大	1.000	1.000	0.678	1.000	1.000	1.000			1.000	0.608	
大原測定局	夏	粗大	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000			1.000	0.519	
練馬北測定局	夏	粗大	0.965	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000			1.000	0.304	
環境科学研究所	秋	微小	1.000	1.000	1.000	1.000	0.539	1.000	1.749	0.394	1.000	0.373	1.000
多摩測定局	秋	微小	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	0.969	0.785	1.000	0.813	1.000
大原測定局	秋	微小	0.954	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	0.473	0.622	1.000	0.861	1.000
練馬北測定局	秋	微小	0.736	1.000	1.000	1.000	0.295	1.000	0.371	1.000	1.000	0.774	1.000
世田谷測定局	秋	微小	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.863	0.829	1.000	0.761	1.000
調布測定局	秋	微小	0.977	1.000	1.000	0.992	1.000	1.000	0.428	0.465	1.000	0.791	1.000
晴海測定局	秋	微小	1.000	1.000	1.000	1.000	0.860	1.000	0.989	1.000	1.000	0.719	1.000
品川測定局	秋	微小	1.000	1.000	1.000	0.854	1.000	1.000	0.431	0.626	1.000	0.743	1.000
足立測定局	秋	微小	0.937	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	0.327	0.816	1.000	0.876
小平測定局	秋	微小	0.640	1.000	1.000	0.795	1.000	1.000	0.549	1.000	0.760	1.000	1.000
環境科学研究所	秋	粗大	0.919	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	0.709	0.262	1.000	0.643	1.000
多摩測定局	秋	粗大	1.000	1.000	0.876	1.000	0.579	1.000	0.851	1.000	1.000	0.641	1.000
大原測定局	秋	粗大	1.000	1.000	0.960	1.000	1.000	1.000	1.400	0.853	1.000	0.700	1.000
練馬北測定局	秋	粗大	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.161	0.872	1.000	0.556	1.000
世田谷測定局	秋	粗大	0.988	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.009	0.520	1.000	0.489	1.000
調布測定局	秋	粗大	1.000	1.000	0.811	1.000	1.000	1.000	0.888	0.715	1.000	0.532	1.000
晴海測定局	秋	粗大	0.776	1.000	1.000	1.000	0.574	1.000	1.276	1.000	1.000	0.692	1.000
品川測定局	秋	粗大	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.152	0.550	1.000	0.438	1.000
足立測定局	秋	粗大	0.911	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	0.989	0.993	1.000	0.652	1.000
小平測定局	秋	粗大	1.000	1.000	0.815	1.000	0.984	1.000	0.981	1.000	1.000	0.535	1.000
環境科学研究所	冬	微小	1.000	1.000	1.000	1.000	0.813	1.000			1.000	1.000	
多摩測定局	冬	微小	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000			1.000	1.000	
大原測定局	冬	微小	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000			1.000	1.000	
練馬北測定局	冬	微小	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000			1.000	1.000	
環境科学研究所	冬	粗大	0.923	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000			1.000	0.798	
多摩測定局	冬	粗大	1.000	1.000	0.907	1.000	0.981	1.000			1.000	0.874	
大原測定局	冬	粗大	1.000	1.000	1.000	0.670	1.000	1.000			1.000	0.805	
練馬北測定局	冬	粗大	1.000	1.000	1.000	0.525	1.000	1.000			1.000	0.727	

不明部分は、フィルター上に捕集された総粒子状物質重量のうちこれまで論じた発生源種別に割り振れなかったものであり、水分、未把握発生源などに帰せられるべきものと考えられる。

表3には、本報告で用いた全測定試料についてのリセプターモデルにおける各指標元素濃度の実測値と寄与算定計算に有用なものとして用いられた濃度値の比率である。この比率が1であれば実測濃度はすべて各発生源に完全に割り振ることができ、1より小さい場合には剰余があり、1より大きい場合には不足していたことを意味する。表3の結果をみると若干の例外を除いて1ないし1に非常に近い値であることがわかる。有機炭素(Cao)で剰余が多いが、これはすでに述べたように二次生成粒子によるものと解釈しうる。一方、元素状炭素についてはほぼすべての比率とも1となっており、各発生源種別に完全に割り振れたことが示されている。Feでは若干過剰でありScでは不足している傾向があり、土壌寄与の見積りに若干の検討の余地が残されていることがうかがえる。

本研究で用いた発生源による説明力は、おおよそ80~95%の範囲にあったが、算定精度の向上のための検討は今後も引き続き必要とされよう。しかしながら、全体としては表3に示した比率は、前述のとおり1に近く、粒子組成分析の実測値は表1に従って各発生源にはほぼ完全に割り振れており、他の発生源に振りむける余地はないことになる。総粉塵秤量精度の向上、発生源データの整

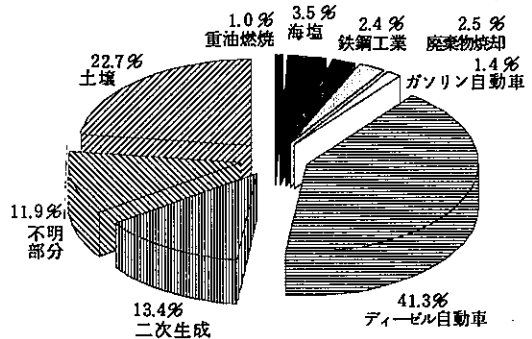


図3 東京都内における浮遊粒子状物質全体に対する発生源寄与率

備、分析精度の向上などが求められる課題である。

表4は、年間を通して延べ28回の測定結果についての算定の全平均値である。リセプターモデルによる発生源寄与の説明力は、平均値として粗大粒子で91.2%、微小粒子で86.3%にまで達したわけである。最大の寄与として粗大粒子のうち52.5%は土壌粒子に、微小粒子の53.1%はディーゼル自動車にそれぞれ依っていることがわかる。全粒径範囲にわたって各発生源種別の寄与率を求めたものが図3である。概括的にみると、ディーゼル自動車の寄与は約4割でありきわめて大きなものと言える。土壌が2割強、二次生成が1割強と次いでいる。海塩、廃棄物焼却、鉄鋼工業、ガソリン自動車、重油燃焼がこの順で、それぞれ数%となっている。

これらの結果は、南関東の他自治体で行っている同種の見積りと比較すると、計算の前提条件に若干の相違はあるが、神奈川県公害センターでは、自動車粉塵の寄与が39%~45%<sup>5)</sup>であり、千葉県公害研究所ではディーゼル車の寄与を3~5割としており<sup>4)</sup>、類似した結果といえる。また、これらの算定においても、重油燃焼及び鉄鋼工業の寄与は、数%以下となっている。

表4 東京都内における浮遊粒子状物質への粒径別発生源寄与の全測定地点での年間平均値

粒 径	発 生 源	粗 大 10~2 μm		微 小 2 μm以下	
		寄与濃度 μg/m <sup>3</sup>	寄与率 %	寄与濃度 μg/m <sup>3</sup>	寄与率 %
	土 壌	11.60	52.5	1.73	4.7
	海 塩	1.69	7.6	0.39	1.1
	重 油 燃 焼	0.07	0.3	0.54	1.5
	鉄 鋼 工 業	0.39	1.8	1.00	2.7
	廃 棄 物 焼 却	0.08	0.4	1.39	3.8
	ガソリン自動車	0.00	0.0	0.83	2.3
	ディーゼル自動車	4.77	21.6	19.48	53.1
	二 次 生 成	15.45	7.0	6.33	17.3
	合 計	20.13	91.2	31.67	86.3
	不 明 部 分	1.97	8.8	5.03	13.7
	実 測 濃 度	22.1	100.0	36.7	100.0

#### 4 まとめ

環境科学研究所と環境保全局大気保全部の共同調査として実施した東京都内10ないし4か所における4季節にわたる浮遊粒子状物質の組成分析結果に基づき、浮遊粒子状物質への発生源寄与の評価を行った。算定方法としては、近時、注目を集めつつあるリセプターモデルの一つであるCEB法を用い、土壌、海塩、重油燃焼、鉄鋼

工業、廃棄物焼却、ガソリン自動車、ディーゼル自動車、二次生成による寄与を見積った。

その結果、東京都内の浮遊粒子状物質への寄与は、固定発生源からの寄与はいずれも数%程度と小さく、移動発生源であるディーゼル自動車が約4割できわめて大きく、次いで自然起源である土壌が2割強、二次生成が1割強を占めることが明らかとなった。これらの成果は、粒子状物質による大気汚染から大気環境を保全し、都市の快適性を確保するための今後の施策にとって有用なものである。

#### 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) 及び (II), 大気汚染学会誌, 15, 198 & 225 (1980)
- 3) 内藤季和他: 千葉県の浮遊粒子状物質の起源の推定, 千葉公研報告, 15, 1 (1983)
- 4) 千葉県公害研究所: 浮遊粒子状物質発生源寄与率調査 (中間報告), 昭和59年12月, 昭和61年9月, 昭和62年7月
- 5) 小山恒人他: 自動車走行に伴う浮遊粉塵汚染の実態, 第28回大気汚染学会講演要旨集 4305 (1988)
- 6) 芳住邦雄他: 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, 東京都環境科学研究所年報, 1988, 58 (1988)
- 7) 財団法人環境衛生センター: 浮遊粒子状物質等に係る測定法基準設定調査研究報告書 (昭和47年度環境庁委託), 昭和48年3月
- 8) Whitby, K.T.: The Physical Characteristics of Sulfur Aerosols, *Atmos. Environ.*, 12, 135 (1978)