

論文

東京都における浮遊粒子状物質中の炭素成分の粒径分布と季節特性，及び各種発生源粒子の粒径分布の推定

秋山 薫 吉岡 秀俊 芳住 邦雄
(共立女子大学)
渡邊 武春 古明地 哲人 鎌滝 裕輝
朝来野 国彦

要 旨

都心部と郊外の2地点において、浮遊粒子状物質の主要な成分である元素炭素と有機炭素の粒径分布と季節特性について調査した。また、これらの地点に山間部と小笠原を加えた4地点での、各種発生源粒子の粒径分布を推定した。それによれば、元素炭素の粒径分布は二山型かそれに近い分布と考えられた。有機炭素の粒径分布は明確な二山型と認められた。両者とも晩秋の高濃度時には微小側にピークを持つ一山型の分布となるが、これはこの時期における人為起源の影響の大きさを表しているものと考えられる。これらの濃度の季節変化は、両者とも、粗大粒子では小さいのに反して微小粒子は大きく、この粒径範囲の粒子が高濃度現象などに深く関係していることが認められた。次に、各種発生源粒子の粒径分布を見ると、土壌や海塩粒子は粗大側にピークを持つ一山型の分布となり、これらの粒子が自然起源であることを示している。人為起源の粒子では、鉄鋼工業粒子は二山型の分布となったが、重油燃焼、廃棄物焼却及び自動車の各粒子は微小側にピークを持つ一山型の分布であり、その生成過程から予想される特徴を示した。

1 はじめに

大気中に含まれる浮遊粒子状物質の環境基準達成率は、東京都にあっては低い状況が続いており、その改善が求められている。この浮遊粒子状物質は多種の組成から成るばかりか、その発生源も人為起源の他に、自然起源やガス状物質からの二次生成など多様であり、取扱いの困難な対象の1つでもある。したがって、このような対象の低減対策を講ずるためには、その組成と発生源の特性を把握する必要がある。

ここでは、浮遊粒子状物質の主要な成分である炭素成分について元素炭素と有機炭素の粒径分布と季節特性を明らかにすると共に、リセプターモデルを用いて各種発生源粒子の粒径分布についても推定したので報告する。

2 調 査

(1) 炭素成分の粒径分布

ア 試料採取

都心部の環境科学研究所(江東区新砂)と郊外に位置する多摩測定局(多摩市愛宕)の2地点について、アンダーセン・ローボリウムサンプラーを用い、この0~7

段の捕集面及びバックアップフィルターに石英繊維ろ紙(Pallflex QAST 2500)装着して、所定流量の28.3ℓ/分で大気を吸引することによって、粒子状物質を粒径別に捕集した。捕集期間はおおむね1週間であり、1989年5月から1990年3月にかけての1年間に10回ほど調査した。

イ 分析方法

捕集後の石英繊維ろ紙の約1/6を元素炭素と有機炭素の分析に供した。分析は熱的方法で行った。有機炭素は酸素存在下窒素気流中で350℃、5分間に生成したCO₂量から算出し、元素炭素は950℃、5分間に生じるそれから求めた。

(2) 各種発生源粒子の粒径分布の推定

ア 試料採取

粒子状物質の粒径別の捕集は、(1)のアと同様に行った。その際、石英繊維ろ紙の他に、テフロンろ紙(東洋PF 050及びPF 020)を装着した装置を同時に稼働させた。調査地点は、環境科学研究所、多摩測定局、それに山間部の小河内貯水池管理事務所(奥多摩町)と東京から南に約1000Km離れた、洋上に位置する小笠原諸島父島の

表 各種発生 源における排出粒子の元素組成

	アルミニウム	ナトリウム	バナジウム	マンガン	カリウム	元素状炭素	有機炭素
土壌	8.85	0.659	0.0302	0.135	0.796	3.08	1.88
海塩	0.00003	30.42	0.0000058	0.0000058	1.1	0	0
重油燃焼	0.21	1.0	0.92	0.012	0.085	0	0
鉄鋼工業	1.0	1.4	0.013	1.3	1.3	0	0
廃棄物焼却	0.42	12	0.0027	20	20	0	0
自動車	0	0	0.010	0.43	0.43	63.9	20.2

単位：%

亜熱帯農業センター（小笠原村）の4地点である。調査期間は、環境科学研究所と多摩測定局では夏期が1988年7月29日～8月5日、冬期が同年12月5日～9日であり、小河内では夏期が8月23日～9月9日、冬期が12月12日～26日である。小笠原については1台のアンダーセン・ローボリウムサンプラーで捕集するために、9月19日～10月7日がテフロン紙を、10月7日～27日が石英繊維ろ紙を装着して実施した。

イ 分析方法

炭素成分の分析は(1)のイと同様に、アルミニウム、ナトリウム、バナジウム及びマンガンの金属成分の分析は放射化分析法で、硝酸イオン、硫酸イオン及びアンモニウムイオン、それにカリウムのイオン成分の分析はイオンクロマトグラフ法で行った。

3 結果と考察

(1) 炭素成分の粒径分布

環境科学研究所と多摩測定局における元素状炭素(Cae)と有機炭素(Cao)の粒径分布と季節変化を図1に示した。元素状炭素の粒径分布は両地点とも、晩秋から初冬にかけての高濃度時と春から秋にかけての数例を除けば、むしろ二山型、あるいはそれに近い分布型であった。この微小側のピークについては元素状炭素の主要な発生源であって、この粒径範囲が特に顕著な自動車等の人為起源の影響と予想されるが、粗大側についても土壌などの自然起源だけでは説明できないことから、自動車等に由来するものが少なからずあるものと考えられ

る。このように、元素状炭素の粒径分布を年間を通して眺めた場合には二山型かそれに近い分布がうかがわれることから、晩秋から初冬にかけて現れる高濃度時の微小側にピークを持つ一山型の分布は、この時期における自動車等の人為起源の影響がいかに大きいかを表しているものと考えられる。また、春先(3月)における $11\mu\text{m}$ 以上の大粒径粒子のピークの増大は、黄砂の影響が現れているものと思われる。

次に、有機炭素の粒径分布を見ると、晩秋の高濃度時を除けば、両地点とも明確な二山型であった。元素状炭素の場合と同様に、微小側のピークは人為起源の影響と予想され、粗大側のそれは自然起源の他に、人為起源の影響も無視出来ないものと考えられる。晩秋の高濃度時に一山型の分布となることから、元素状炭素の場合と同様に、この時期の人為起源の影響の大きさがうかがわれる。また、春先に $11\mu\text{m}$ 以上の粒子のピークが高いのも黄砂の影響と考えられる。

(2) 炭素成分の季節変化

元素状炭素濃度の粒径別の季節変化を図2に示した。粒径が $2.1\mu\text{m}$ 以上の、いわゆる粗大粒子は両地点とも、晩秋の高濃度時にもそれ程高くなるはず、年始期の低濃度時にも余り低くはならないなど、 $2.1\mu\text{m}$ 以下の微小粒子に比較して季節変化が極めて小さいことが認められた。この粗大粒子はおおむね自然起源の土壌粒子と考えれば、特別の気象条件でない限りは年間を通して変わらないものと推定された。 $11\mu\text{m}$ 以上の粒子で春先が高い理由は先にも触れたように黄砂の影響と考えられる。図

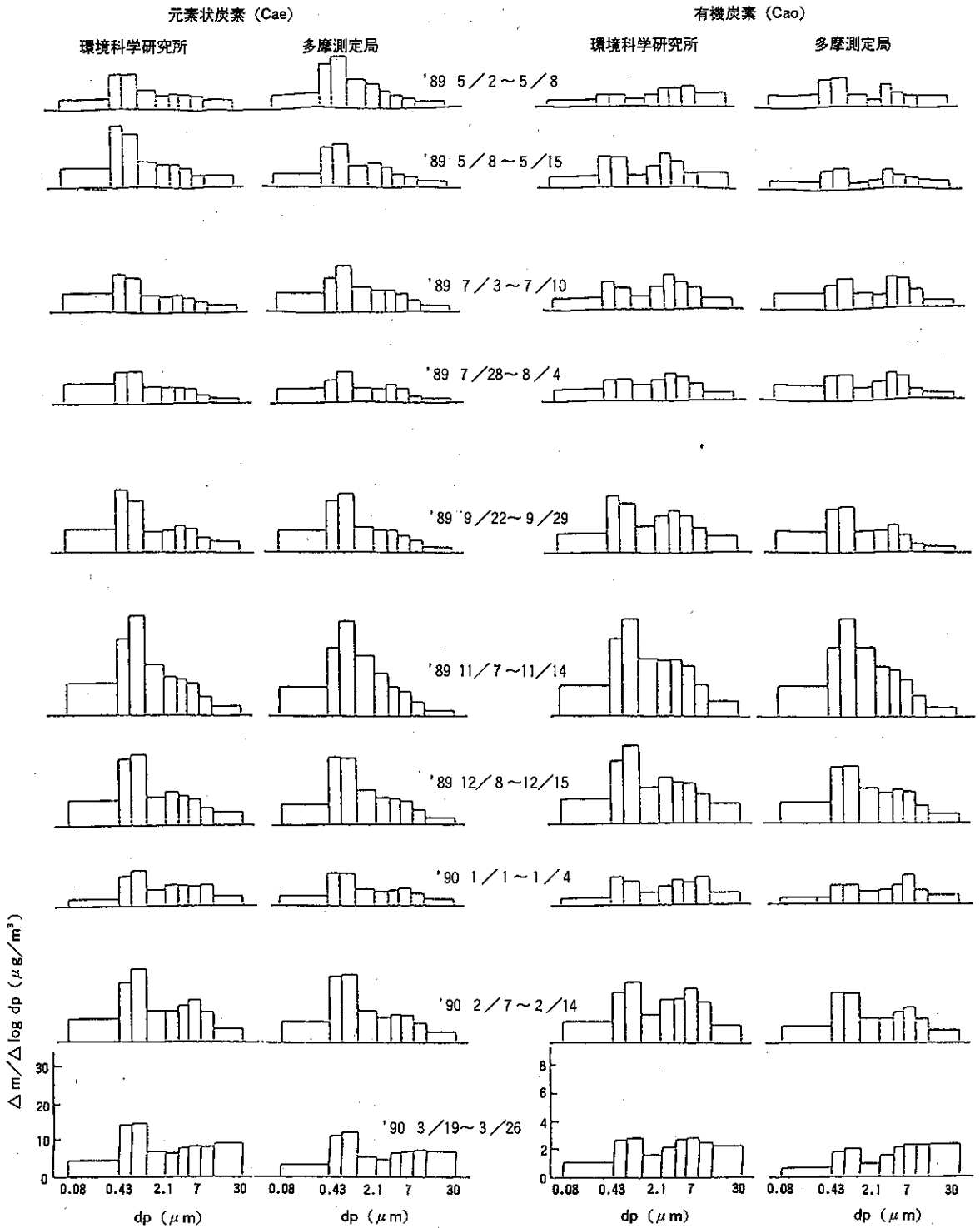


図1 炭素成分の粒径分布

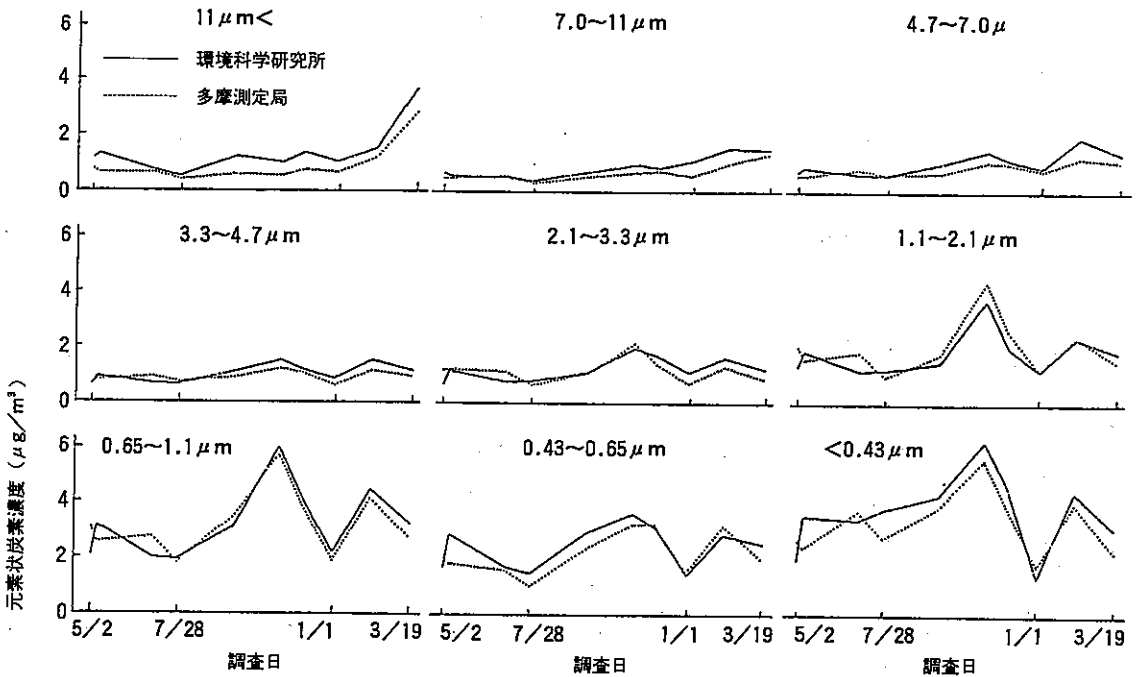


図2 粒径別の元素状炭素濃度の季節変化

によれば、黄砂の影響は比較的大きな粒径範囲に限られるものと推測される。微小粒子については季節変化が大きく、この範囲の粒子が高濃度現象や、逆に年始期や夏期の濃度の低い時期などに強く関係していることが認められた。また、都内においては自動車の走行台数が極めて減少する年始期には、元素状炭素濃度が前後の調査期に比較して著しく低下するところから、自動車は元素状炭素の大きな発生源となっていることが確認された。

粒径別の有機炭素濃度の季節変化は図3に示した。有機炭素濃度の季節変化は、元素状炭素と比較して粗大粒子についても若干認められるが、微小粒子ほどではなかった。11 μ m以上の粒子で春先が高いことも、微小粒子で年始期が低いことも元素状炭素の場合と同様の理由と考えられる。

(2) 各種発生源粒子の粒径分布の推定

環境科学研究所、多摩測定局及び小河内の夏期と冬期、並びに小笠原における各種発生源粒子の粒径分布を、環境での分析値から発生源寄与を予測する手法としてのリセプターモデルの1つである化学元素収支(CEB)法を用いて線形計画法で求め、図4に示した。こ

こで、粒径分布の推定にあたっては、発生源としては土壌、海塩、重油燃焼、鉄鋼工業、廃棄物焼却及び自動車の6種とし、算定に用いる元素はアルミニウム、ナトリウム、バナジウム、マンガン、カリウム及び元素状炭素とした。なお、算定にあたって、各種発生源粒子と実測の二次生成粒子の濃度の和は、環境での浮遊粒子状物質の実測濃度を越えないようにした。これら各種発生源における排出粒子の元素組成は表の通りである。有機炭素については、寄与率の計算上過剰となる部分を二次生成粒子として扱うことから表に示しておいた。この土壌の値は、芳住や吉岡らが都内の表層土壌から求めた実測値^{(4), (5)}である。ただし、元素状炭素と有機炭素の値は、筆者が別途都内土壌から求めた実測値(n=12)である。海塩、重油燃焼、鉄鋼工業及び廃棄物焼却の値は、溝畑⁽⁴⁾が示した値である。自動車の値は、芳住らが使用した値を、その計算結果であるディーゼル自動車とガソリン自動車の発生源寄与率の比で案分した値である。なお、小河内の夏期及び冬期の調査時期は環境科学研究所や多摩測定局での調査時期と異なること、また小笠原については金属成分やイオン成分と炭素成分の調査期間に差があ

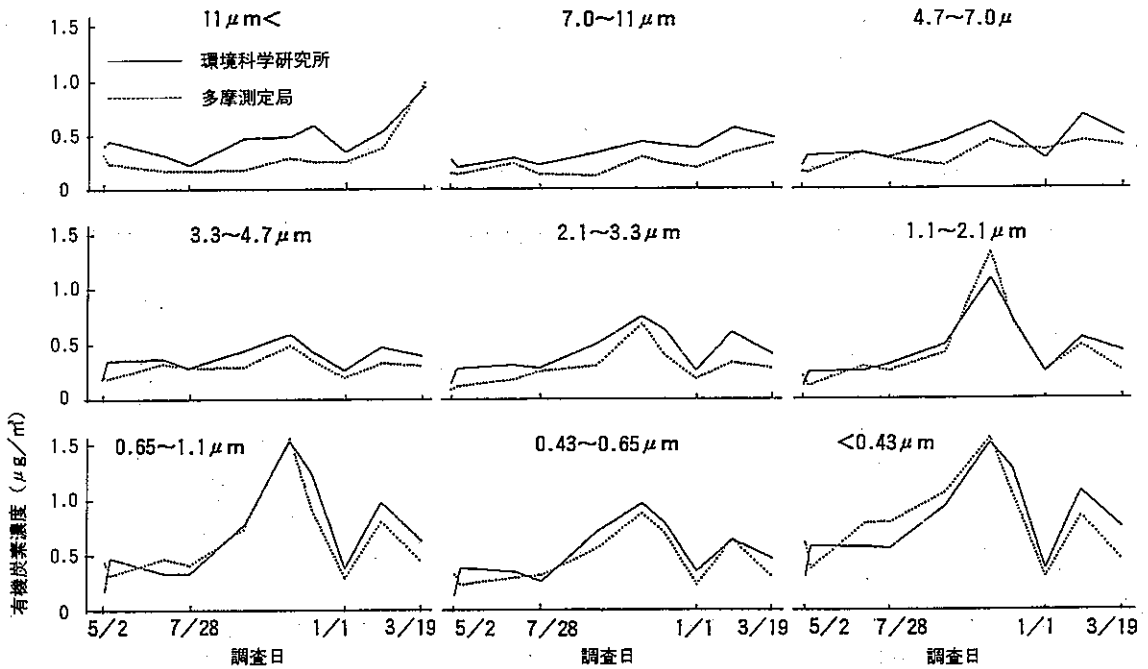


図3 粒径別の有機炭素濃度の季節変化

ることは先に示したところである。ところで、この算定における各種発生源の寄与率と実測の硝酸イオン、硫酸イオン及びアンモニウムイオンの寄与率を加えた、説明された寄与率の和は、30~40%の範囲が2例、40~50%が6例、50~60%が13例、60~70%が9例、70~80%が9例、80~90%が11例、そして90~100%が13例であった。

図4から、土壌粒子の粒径分布はおおむね粗大側にピークを持つ一山型の分布となっており、この粒子が自然起源であり、物理的な過程から生ずることを示している。濃度について見ると、土壌粒子は季節的には冬期が高濃度であり、地域的には都心から離れるにしたがって濃度が低くなる傾向となった。同じく自然起源の海塩粒子も粗大側にピークを持つ一山型の分布と考えられ、この粒子の特徴を良く表している。海塩粒子の濃度は、夏期と冬期で余り変わらないが、環境科学研究所では南方向の風の卓越する夏期の方が高い値となった。地域的には沿岸部が高く、山間部が低い。海に囲まれた小笠原では高い値となった。重油燃焼粒子の粒径分布は、自然起源の粒子の粒径分布とは異なり、微小側にピークを持つ

一山型の分布を示し、この粒子が人為起源であり、燃焼という化学反応を経て生成することと良く一致する。夏期の環境科学研究所における粗大側のピークについては今後検討する必要がある。この粒子の濃度について見ると、夏期と冬期の季節差は余り見られない。地域的には発生源から離れるにしたがって低くなる傾向が認められた。鉄鋼工業粒子の粒径分布は、この粒子が人為起源であるにもかかわらず、粗大側にも小さなピークが見られる、二山型の分布となった。また、小笠原では粗大側にピークのある一山型の分布となった。鉄鋼工業粒子の濃度は、他の粒子濃度に比較して環境科学研究所や多摩測定局では、夏期の低濃度が目立った。また、発生源から遠ざかるにつれて減少し、多摩測定局の夏期や山間部では低い濃度であった。廃棄物焼却粒子の粒径分布は、微小側にピークを持つ一山型の分布であり、この粒子が化学過程を経て生成する人為起源の粒子であることがうかがわれる。小河内の夏期と小笠原では粗大側にもピークが見られた。濃度について見ると、夏期と冬期とは余り変わらないが、0.43 μm以下の粒子に限っては冬期の濃度が著しく高い値となった。地域的には都心部から山

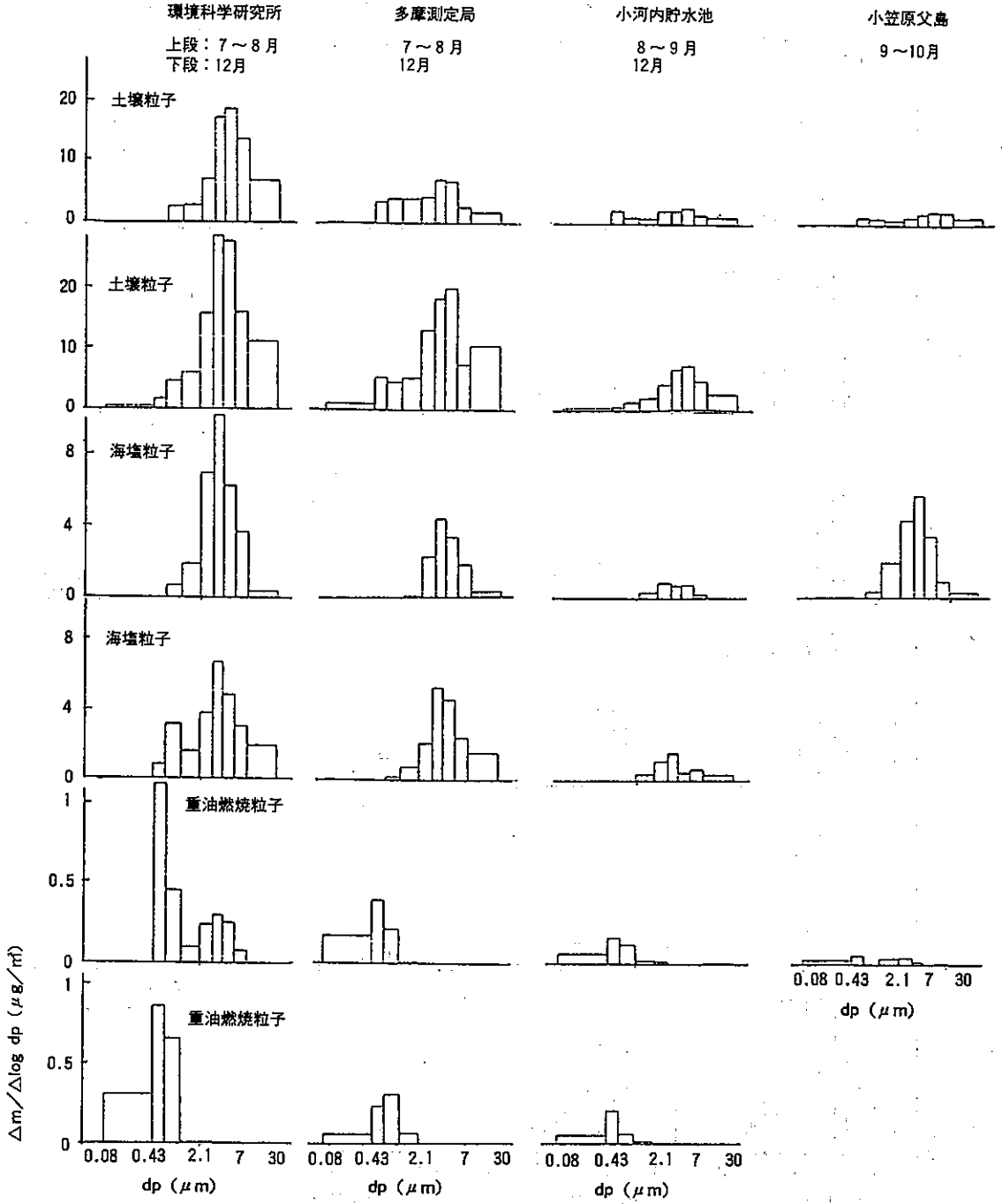
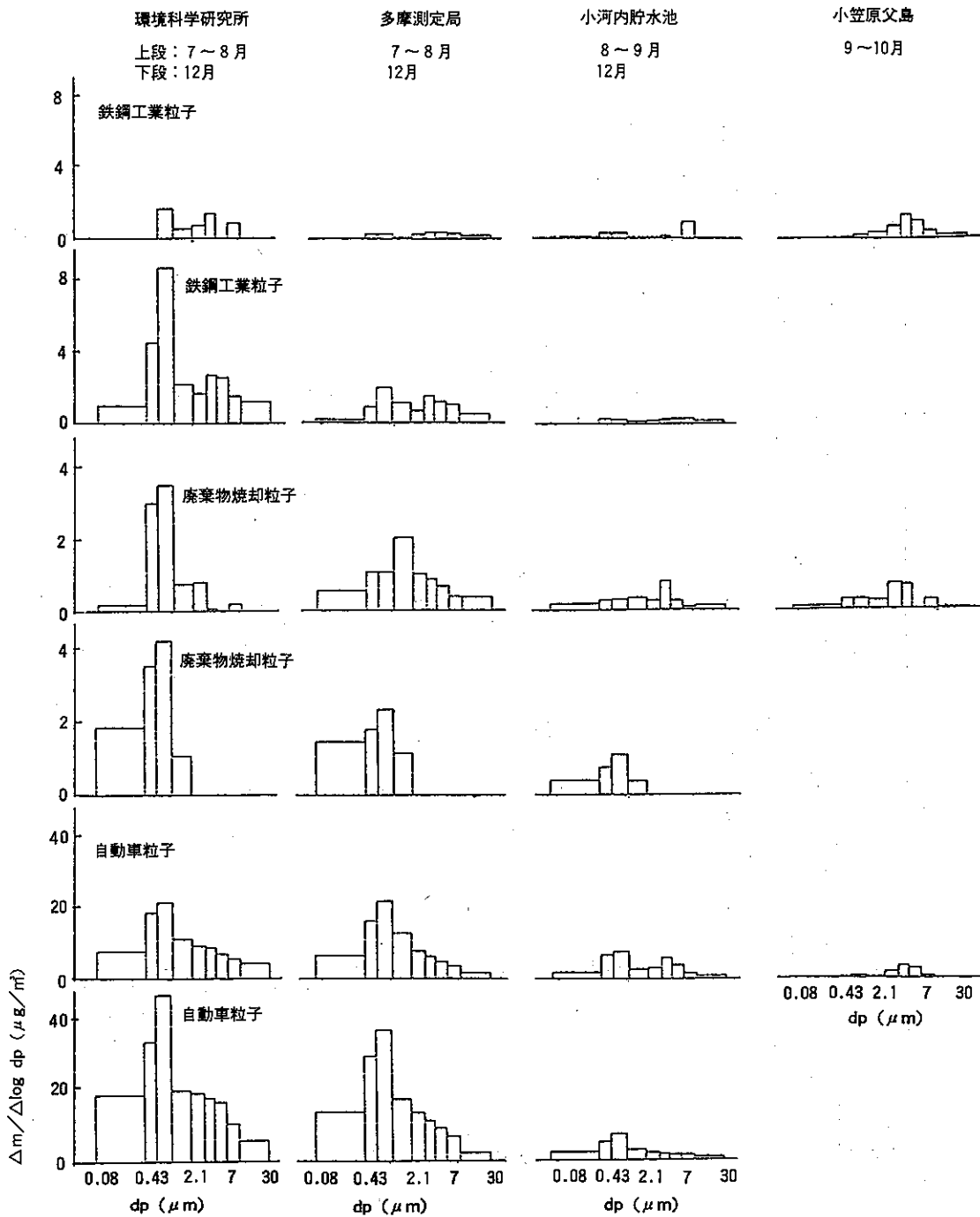
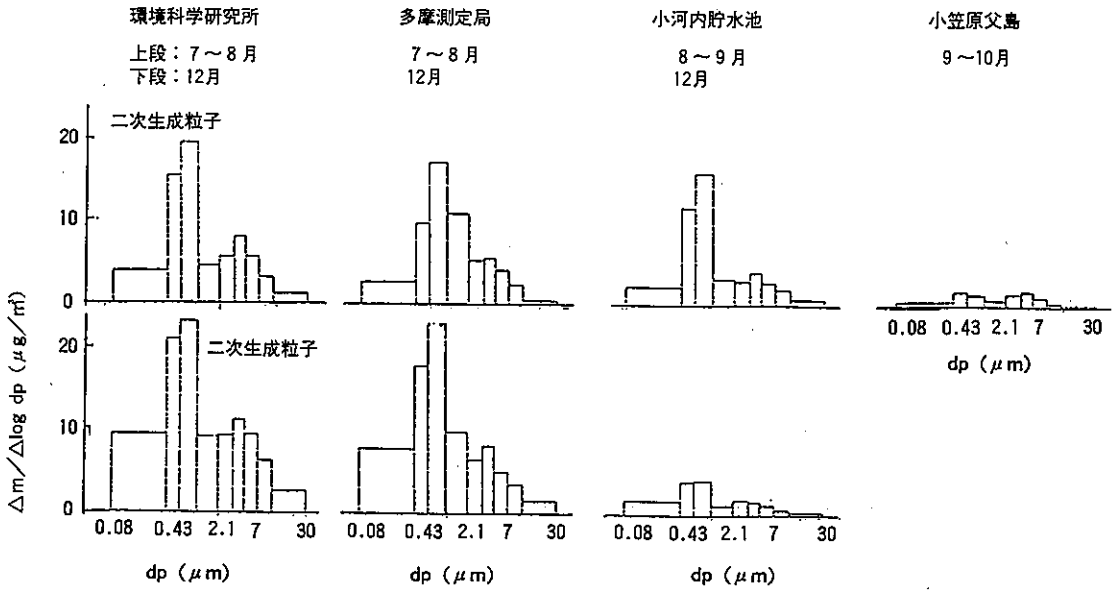


図4 推定された発生源粒子の粒径分布



推定された発生源粒子の粒径分布



推定された発生源粒子の粒径分布

間部へと濃度が低くなる傾向であった。浮遊粒子状物質への寄与濃度の最も高い、自動車粒子の粒径分布は、微小側にピークを持つ一山型の分布であり、人為起源の粒子の特徴を示した。小河内の夏期と小笠原では、廃棄物焼却粒子の場合と同様に粗大側にもピークが認められた。濃度について見ると、環境科学研究所と多摩測定局では夏期よりも冬期の方が高濃度であるが、小河内は夏期が若干高い値となった。これは、小河内では冬期の高濃度現象の影響が少ないのに反して、夏期には自動車走行台数の増加が著しいことに由来すると考えられる。

硝酸イオン、硫酸イオン及びアンモニウムイオンの実測値に、寄与率の計算上過剰となった有機炭素成分を加えた二次生成粒子の粒径分布も図4に示してある。粒径分布は粗大側にもピークの見られる二山型であった。この粒子の濃度は、夏期は地点間の差が余り見られず、冬期は環境科学研究所と多摩測定局とはほとんど変わらないが、山間部は低い値となった。夏期と冬期を比較すると、環境科学研究所と多摩測定局では冬期が若干高いが、小河内は夏期の濃度が高く、二次生成が活発に起きているものと考えられる。

4 まとめ

浮遊粒子状物質の主要な成分である炭素成分の内、元素炭素の粒径分布は、東京都にあっては二山型か、それに近い分布と考えられた。晩秋の高濃度時に見られる微小側にピークを持つ一山型の分布は、高濃度時における自動車等の人為起源の影響の大きさを反映しているものと考えられる。このことは、明確な二山型の粒径分布と言える有機炭素の場合にも見られた。炭素成分濃度の季節変化は、元素炭素、有機炭素とも、2.1 μm以上の粗大粒子については変化が少ないか、あってもわずかであった。これに反し、微小粒子は大きく変化し、この粒径範囲の粒子が晩秋の高濃度現象にも、年始期や夏期などの濃度の低くなる時期にも、深く関わっていることが認められた。

各種発生源粒子の粒径分布は、土壌や海塩などの自然起源の粒子については粗大側にピークを持つ一山型の分布となり、物理的過程から生じる粒子の特徴を示した。一方、化学過程を経て生成すると考えられている、人為起源の粒子である重油燃焼、廃棄物焼却及び自動車の各粒子は、微小側にピークを持つ一山型の分布であり、その生成過程から予想される特徴を示した。しかし、鉄鋼工業粒子は人為起源の粒子とみなされるが、二山型の分

布であった。また、小河内や小笠原などの低濃度の場合に見られる粗大側のピークについては、今後の検討課題である。

参考文献

- 1) 秋山薫ら：東京都における浮遊粒子状物質中の炭素成分の粒径分布と発生源寄与の推定，東京都環境科学研究所年報1991，p.71.
- 2) 秋山薫ら：東京都内における浮遊粒子状物質中の炭素成分の粒径分布，東京都環境科学研究所年報1990，p.63.
- 3) 吉岡秀俊ら：東京都における粒子状物質中のAl, Mn, V, Na及びClの粒径分布，同上，p.59.
- 4) 芳住邦雄ら：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，東京都環境科学研究所年報1989，p.3.
- 5) 吉岡秀俊ら：環境大気における粒子状物質中の金属成分への土壌寄与，同上，p.75.
- 6) 溝畑朗ら：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，p.198，及びp.225（1980）.

Size Distribution and Seasonal Characteristics of Carbon Components, and the Estimation of Size Distribution of Particles Originating in the Main Sources in Ambient particulate Matter in the Tokyo Metropolitan Area

Kaoru Akiyama, Hidetoshi Yoshioka, Kunio Yoshizumi, Takeharu Watanabe, Tetsuhito Komeiji, Hiroki Kamataki, and Kunihiro Asakuno

(Abstract)

We investigated on size distribution and seasonal characteristics of elemental carbon and organic carbon, main components in ambient particulate matter in two points, namely in the center of the city and the suburbs in the Tokyo metropolitan area. And we estimated size distribution of particles originating in the main sources in four points, namely in the mountains and the Ogasawara Islands(Chichijima) in addition to the above two points. According to the result, we found that size distribution of elemental carbon was bi modal or closely bi modal and that size distribution of organic carbon was clearly bi modal. Though both became mono modal in the period of high concentration of ambient particulate matter in lately autumn, it was showed that the effect of anthropogenic sources was great in this period. As seasonal variations of these concentrations were big in side of fine particles against a little in the side of coarse particles, we recognized that particles of the limit of this particle size was deeply related to the high concentration phenomena. Next looking over size distribution of

particles originating in the main sources, size distribution of particles originating in soil and marine aerosol were mono modal having a peak in the side of coarse particles. We recognized that these particles were originated in natural sources. Though Size distribution of particles originating in iron and steel industry, one of anthropogenic sources was bi modal, each size distribution of particles originating in fuel oil combustion, refuse incineration and automobile exhaust was mono modal having a peak in the side of fine particles. We recognized that they showed a characteristics of particles expecting from the generating process.