

道路沿道における浮遊粒子状物質の高濃度要因の解析

鎌 滝 裕 輝 秋 山 薫 古明地 哲 人
渡 邊 武 春 朝来野 国 彦

要 旨

道路沿道におけるSPMの変動を把握するために、夏期及び冬期において、時間帯別（1日を4分割した）に、粗大粒子（粒径 $10\sim 2\mu\text{m}$ ）及び微小粒子（粒径 $2\mu\text{m}$ 以下）をアンダーセンサンプラーの分級法（段数は、1、4及びバックアップの3段を使用した。）により採取した。

採取した試料について、発生源の推定をするために、粗大粒子及び微小粒子に含まれる成分の分析を行い、各成分の割合の夏期、冬期における時間帯別変動を考察した。更に、各発生源からの寄与の推測や解積を行うために、CMB法（Chemical Mass Balance Method）による発生源寄与率の推定を行った。

一般環境と道路沿道のSPM濃度を比較すると、後者は、夏期の粗大粒子では2倍、微小粒子では2.3倍、冬期の粗大粒子では3.4~4.5倍、微小粒子では1.7~2.2倍であった。道路沿道のSPM濃度の時間帯別変動では、交通量の多い朝夕（7-10時、16-20時）に極大となる二山型であった。

道路沿道における粗大粒子の道路粉じんからの寄与率は、夏期では19.3%、冬期では6.6~21.8%であった。また、微小粒子のディーゼル車からの寄与率は、夏期では41.1%、冬期では16.4~25.6%であった。道路沿道におけるSPMは、様々な発生源からの影響があり、高濃度であることがわかった。

1 はじめに

東京都におけるSPMに関する調査や研究は、1969年度から行われたハイボリューム・エアサンプラー採取による総粉じん量や重金属のモニタリングが初めである。総粉じん量は、1969年度から1974年度ぐらいまで、固定発生源の集じん装置等の普及により減少した。しかし、1975年度以降の総粉じん量は、多少の増減変動を認められるが、ほとんど横ばいで変動していない¹⁾。その要因として、都内保有台数の増加の著しい自動車（特に、ディーゼル車）の影響であることが、明らかになってきた。そこで、道路沿道における期間別のSPMの濃度変動とその成分組成との関係等を解析することにより、ディーゼル車等の寄与を求めたので報告する。

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段階

成に替え、所定流量 28.3 l/min で粗大粒子（粒径 $10\sim 2\mu\text{m}$ ）及び微小粒子（粒径 $2\mu\text{m}$ 以下）の粒径別に行った。

採取した期間は、夏期1990年8月20日から31日と冬期1990年12月27日から31日、12月31日から1991年1月4日、及び1月4日から11日までの4回に分け、日比谷自動車排出ガス測定局（日比谷自排局）で行った。更に、それぞれの期間において1日を7時から10時、10時から16時、16時から20時、20時から7時に4分割して採取を行った。

捕集フィルターとしては、テフロン製フィルターと石英製フィルターを用い、それぞれを別々に装着したアンダーセンサンプラーを1期間について2台並行運転して、後述の分析試料として用いた。

(2) 成分分析

ア 金属等の分析

テフロンフィルター上に捕集した試料の1/4を放射化分析法により分析した。分析は、立教大学原子力研究所

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。分析した元素は、Na, Al, V, Mn, Ca, 及びClの6種類である、短寿命核種(照射3分、冷却5分、測定5分)について測定した。

イ 水溶性成分(陰イオン)

水溶性成分の分析には、Dionex製4000 i イオンクロマトグラフ分析装置を用いた。試料を捕集したテフロンフィルター(1/4)を0.5mlのエタノールで湿浸させた後に20mlの蒸留水を加えて超音波洗浄装置により30分抽出し、0.45μm孔のろ紙でろ過した溶液を分析した。分離カラムにHPIC-AS4Aを用い、溶離液は1.4 mMのNa₂CO₃及び0.7 mMのNaHCO₃と調製した溶液である。流速は1.5ml/minであり、リジェネラント溶液には、25 mMのH₂SO₄を用い、流速は3 ml/minである。分析したイオンは、Cl⁻, NO₃⁻, SO₄²⁻である。

ウ 炭素成分

炭素成分の分析は、加熱炉を増設した熱分解装置を用い、N₂-O₂気流中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、CO₂計により定量した。

熱分解温度を350℃に設定し、生成したCO₂量から求めた炭素量を有機炭素(Cao)とし、900℃で生成したCO₂量から求めた炭素量を元素状炭素(Cae)とした。

3 結果と考察

採取した粉じん濃度を表1に示した。測定地点の環研は東京都環境科学研究所(東京都江東区)であり、一般環境の地点として、日比谷自排局(日比谷通りから4 m、交差点から5 mの地点)との比較対象とした。環研の粉じん濃度は、粗大粒子、微小粒子ともに日比谷自排局の粉じん濃度よりもかなり低い。環研と日比谷自排局との比較から、粉じんの主な発生源の一つは道路であることが明かとなった。季節別においては、環研で夏期の微小粒子と粗大粒子との比(微小粒子/粗大粒子)がほとんど1であるのに対し、冬期ではその比が2以上であった。このことは、冬期の大気質の高濃度状態に起因していると考えられる。

これに対して、日比谷自排局の微小粒子と粗大粒子との比は、冬期がやや高いが、冬期、夏期ともに、ほぼ1~2程度であった。これは、環研のように、冬期の大気質の高濃度状態の影響が小さいことから、道路からの寄与は大きいことが明かとなった。

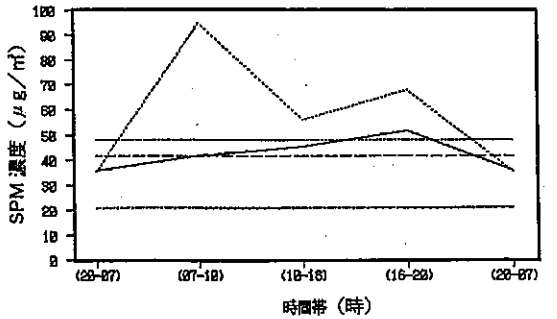
SPM濃度の時間帯別変動を図1-1~4に示す。Coasは粗大粒子、Fineは微小粒子、Hは日比谷自排局、Kは環研、aは平均値をそれぞれ示す。夏期(8/20-31)の日比谷自排局の時間帯別変動では、粗大粒子の濃度は16-20時で最大となる一山型を示し、微小粒子の濃度では7-10

表1 日比谷自排局と環研における粉じん濃度

	粉じん濃度 μg/m ³				粉じん濃度 μg/m ³		
	粗大粒子	微小粒子	微少/粗大		粗大粒子	微小粒子	微少/粗大
8/20-31				12/31-1/4			
環 研	20.8	21.1	1.01	環 研	10.7	52.8	4.93
日比谷AVG	41.6	48.1	1.15	日比谷AVG	48.5	91.3	1.88
(07-10)	41.8	47.5	1.13	(07-10)	74.8	107.4	1.44
(10-16)	45.3	53.4	1.18	(10-16)	44.0	73.4	1.67
(16-20)	51.7	62.8	1.22	(16-20)	50.9	89.7	1.76
(20-07)	35.9	40.0	1.11	(20-07)	42.9	97.2	2.27
12/27-31				1/4-11			
環 研	10.6	24.1	2.27	環 研	7.4	23.2	3.14
日比谷AVG	35.9	53.4	1.49	日比谷AVG	25.9	42.3	1.63
(07-10)	56.4	94.8	1.68	(07-10)	45.0	66.1	1.47
(10-16)	38.0	56.1	1.48	(10-16)	25.9	36.3	1.40
(16-20)	54.8	68.0	1.24	(16-20)	31.7	45.1	1.42
(20-07)	22.4	35.5	1.59	(20-07)	18.5	38.0	2.05

*環研, 日比谷 AVG は, 各期間の平均を示す。

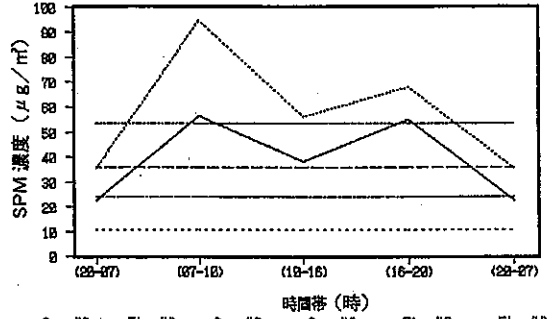
**測定開始時間及び終了時間は, 概ね午前10時である。



— Coas(H) — Fine(H) ... Coas(K)a — Coas(H)a — Fine(K)a — Fine(H)a

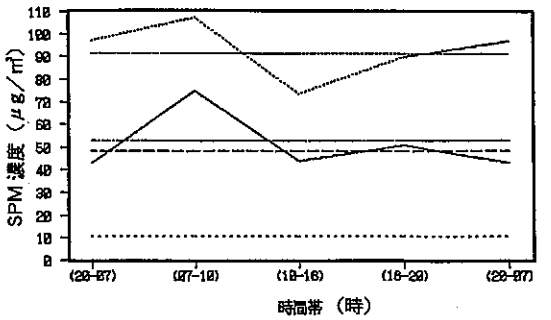
Coas:粗大粒子、Fine:微小粒子、H:日比谷、K:環研、a:平均

図 1-1 SPM濃度の時間帯別変動 (8/20-31)



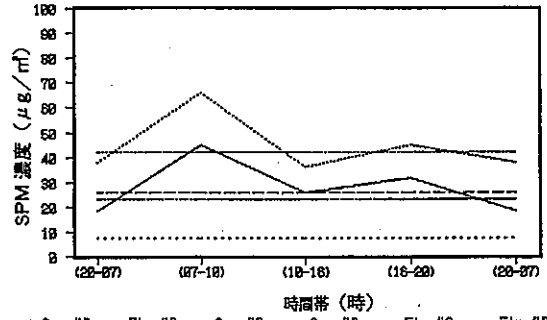
— Coas(H) — Fine(H) ... Coas(K)a — Coas(H)a — Fine(K)a — Fine(H)a

図 1-2 SPM濃度の時間帯別変動 (12/27-31)



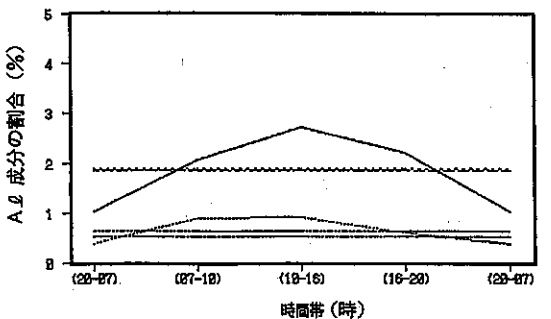
— Coas(H) — Fine(H) ... Coas(K)a — Coas(H)a — Fine(K)a — Fine(H)a

図 1-3 SPM濃度の時間帯別変動 (12/31-1/4)



— Coas(H) — Fine(H) ... Coas(K)a — Coas(H)a — Fine(K)a — Fine(H)a

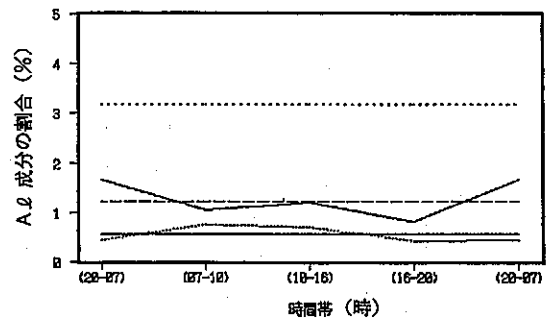
図 1-4 SPM濃度の時間帯別変動 (1/4-11)



— Coas(H) — Fine(H) ... Coas(K)a — Coas(H)a — Fine(K)a — Fine(H)a

Coas:粗大粒子、Fine:微小粒子、H:日比谷、K:環研、a:平均

図 2-1 SPM中のAl成分の割合の時間帯別変動 (8/20-31)



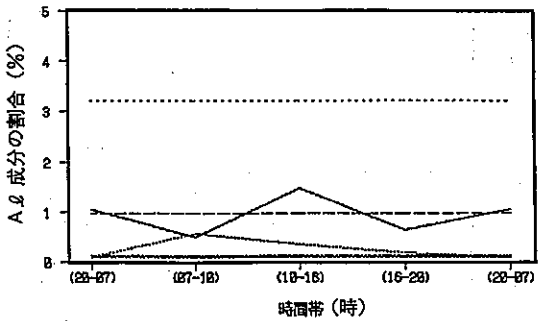
— Coas(H) — Fine(H) ... Coas(K)a — Coas(H)a — Fine(K)a — Fine(H)a

図 2-2 SPM中のAl成分の割合の時間帯別変動 (12/27-31)

時、16-20時で極大となる二山型で7-10時の方が最大となる変動を示した。また、微小粒子の方が濃度が高く、道路からの影響が大きいことがわかった。冬期(12/31-1/4の微小粒子の変動を除いて)では、粗大粒子、微小粒子の濃度ともに、7-10時、16-20時(7-10時の方が高い)

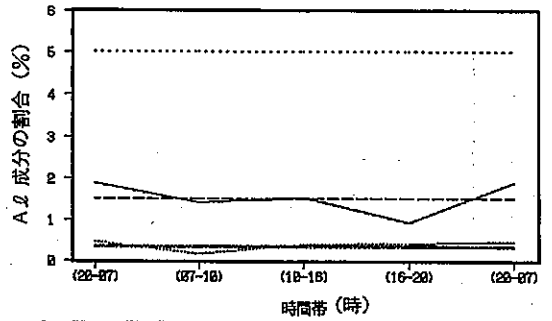
で極大となる二山型の変動を示した。12/31-1/4の微小粒子の変動は、7-10時が最大となる一山型の変動を示した。SPM濃度の影響は、道路の交通量が多くなる朝夕が大きいことがうかがえる。

SPM中のAl成分の割合の時間帯別変動を図2-1~4



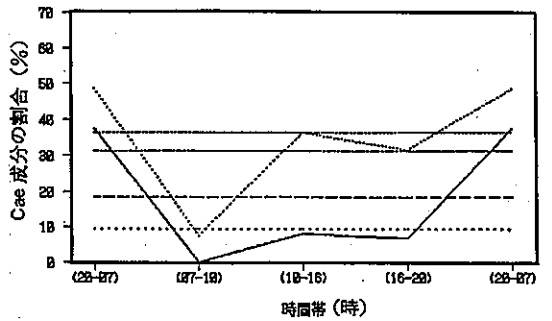
— Coes(H) — Fine(H) ... Coes(K)a — Coes(H)a — Fine(K)a — Fine(H)a

図 2-3 SPM 中の Al 成分の割合の時間帯別変動 (12/31-1/4)



— Coes(H) — Fine(H) ... Coes(K)a — Coes(H)a — Fine(K)a — Fine(H)a

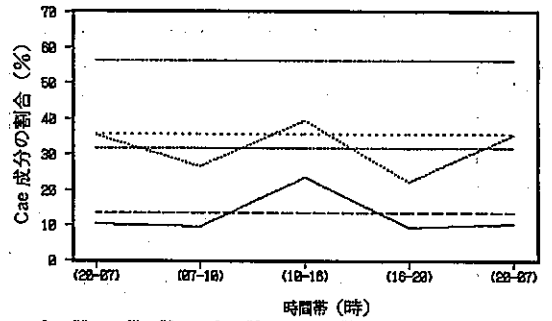
図 2-4 SPM 中の Al 成分の割合の時間帯別変動 (1/4-11)



— Coes(H) — Fine(H) ... Coes(K)a — Coes(H)a — Fine(K)a — Fine(H)a

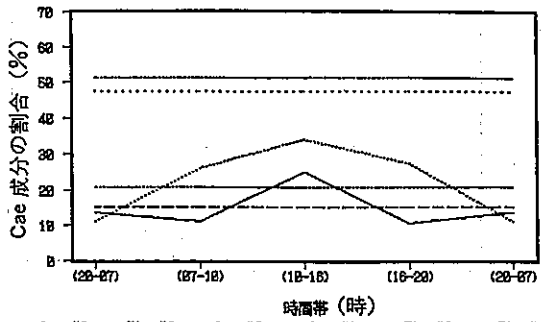
Coes: 粗大粒子, Fine: 微小粒子, H: B比谷, K: 環研, a: 平均

図 3-1 SPM 中の Cae 成分の割合の時間帯別変動 (8/20-31)



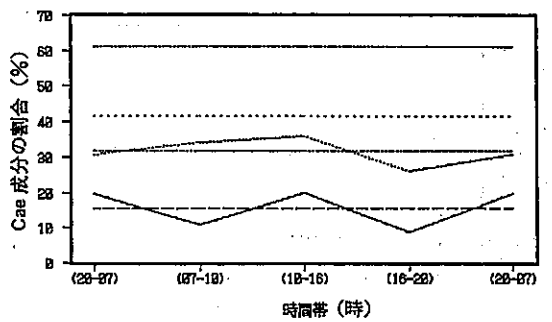
— Coes(H) — Fine(H) ... Coes(K)a — Coes(H)a — Fine(K)a — Fine(H)a

図 3-2 SPM 中の Cae 成分の割合の時間帯別変動 (12/27-31)



— Coes(H) — Fine(H) ... Coes(K)a — Coes(H)a — Fine(K)a — Fine(H)a

図 3-3 SPM 中の Cae 成分の割合の時間帯別変動 (12/31-1/4)



— Coes(H) — Fine(H) ... Coes(K)a — Coes(H)a — Fine(K)a — Fine(H)a

図 3-4 SPM 中の Cae 成分の割合の時間帯別変動 (1/4-11)

に示す。粗大粒子中に高い割合の Al 成分の変動は、夏期の 8/20-31 では、10-16 時に最大となる一山型になり、冬期では、12/27-31, 12/31-1/4, 及び 1/4-11, の粗大粒子において、すべて 20-7 時、10-16 時に極大となる二山型

であった。しかし、夏期、冬期ともに数%の変動であり、差が少ないことから、道路粉じんの舞い上がりによる影響は一日中あることがうかがえられる。

SPM 中の Cae 成分の割合の時間帯別変動を図 3-1~4

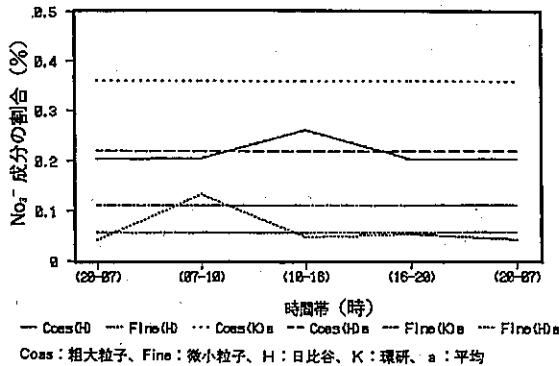


図 4-1 SPM 中の NO_3^- 成分の割合の時間帯別変動 (8/20-31)

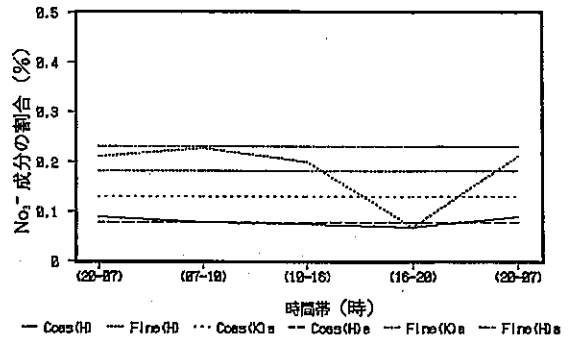


図 4-2 SPM 中の NO_3^- 成分の割合の時間帯別変動 (12/27-31)

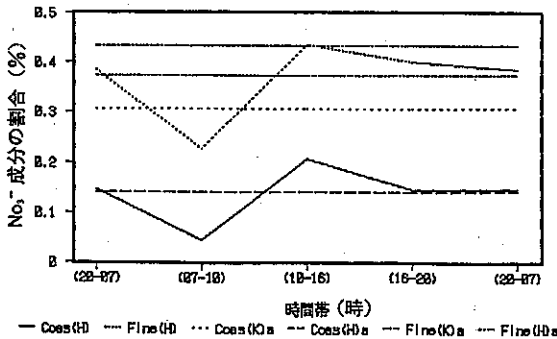


図 4-3 SPM 中の NO_3^- 成分の割合の時間帯別変動 (12/31-1/4)

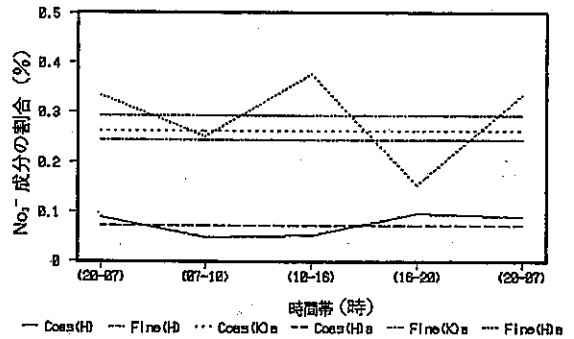


図 4-4 SPM 中の NO_3^- 成分の割合の時間帯別変動 (1/4-11)

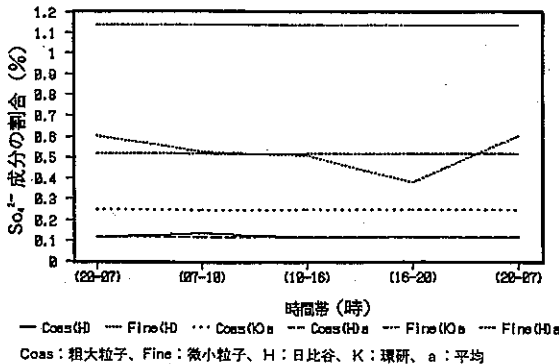


図 5-1 SPM 中の SO_4^{2-} 成分の割合の時間帯別変動 (8/20-31)

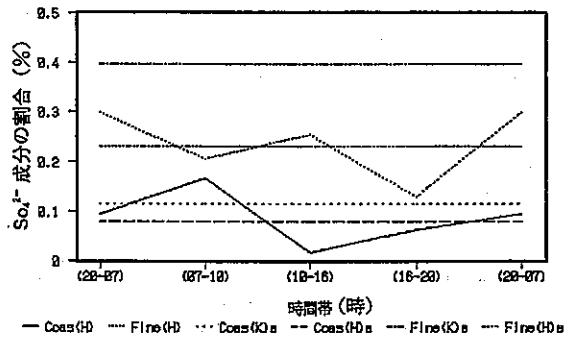


図 5-2 SPM 中の SO_4^{2-} 成分の割合の時間帯別変動 (12/27-31)

に示す。微小粒子中に高い割合の Ca 成分の変動は、夏期の 20-7 時、10-16 時に極大となる二山型であった。また、粗大粒子も割合は小さいが同様の傾向であった。冬期では、12/27-31、及び 1/4-11 の微小粒子、粗大粒子と

もに夏期同様の二山型であった。12/31-1/4 の微小粒子は 10-16 時に最大となる一山型であった。夏期、冬期ともに、日中、夜間ともにディーゼル車の活動があったことがうかがえる。

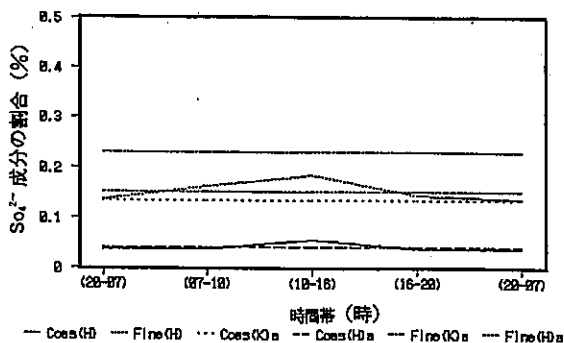


図 5-3 SPM 中の SO_4^{2-} 成分の割合の時間帯別変動 (12/31-1/4)

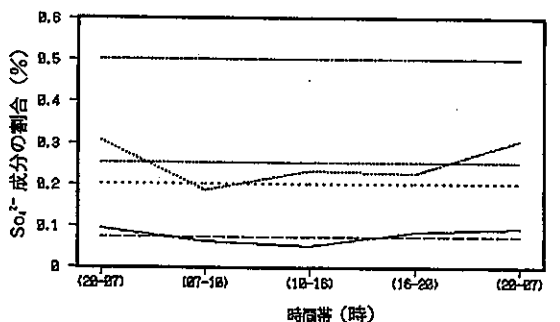


図 5-4 SPM 中の SO_4^{2-} 成分の割合の時間帯別変動 (1/4-11)

SPM 中の NO_3^- 成分の割合の時間帯別変動を 図 4-1~4 に示す。夏期、冬期ともに SPM 中の割合は、0.5% 以下で同程度の割合であった。しかし、夏期の平均気温は、27℃前後であり、 NO_3^- 粒子が昇華、気化をするので、実際の NO_3^- 成分の夏期における SPM 中の割合は更に高いと考えられる。また、夏期、冬期ともに夜間に対して日中の割合がやや高く、更に、冬期では粗大粒子に対して微小粒子の割合の方が高くなっていることから、全体的な影響は郊外地域に比べて小さいが、自動車からの影響とともに二次生成粒子による影響も大きいことがうかがわれる。

SPM 中の SO_4^{2-} 成分の割合の時間帯別変動を 図 5-1~4 に示す。夏期における日比谷自排局の微小粒子の割合は、冬期の 2 倍程度であり、粗大粒子では、ほとんど同程度であった。このことは、夏期における大気中の反応により生成された SO_4^{2-} 粒子の二次生成粒子の影響が大きいことがうかがわれる。

表 2 各発生源からの寄与率の推定 (%)

8/20-31	日比谷C	日比谷F	日比谷T	環研C	環研F	環研T
鉄鋼業	1.1	1.1	1.1	2.6	2.7	2.8
石油燃焼	0	1.1	0.6	1.4	5.6	3.5
海塩	9.3	2.9	5.8	24.4	4.2	14.2
ガソリン車	0.7	0	0	0	0	0
ディーゼル車	21.8	41.1	32.5	11.2	22.4	16.9
道路粉じん	19.3	4.2	11.2	27.4	7.3	17.2
二次生成	0.3	0.6	0.9	0.6	1.3	1.9
合計	52.5	51.0	52.1	67.6	43.5	56.5
12/27-31	日比谷C	日比谷F	日比谷T	環研C	環研F	環研T
鉄鋼業	0.9	1.1	1.0	2.2	3.8	3.1
石油燃焼	0	0	0	0	0	0
海塩	2.2	2.2	2.2	5.0	2.5	3.2
ガソリン車	9.3	0	22.0	43.9	16.8	31.1
ディーゼル車	0	18.4	0	0	49.4	26.1
道路粉じん	6.6	6.0	8.2	38.0	1.9	17.4
二次生成	0.2	11.2	11.4	0.3	13.1	13.4
合計	19.2	36.9	36.9	89.4	87.6	84.3
12/31-1/4	日比谷C	日比谷F	日比谷T	環研C	環研F	環研T
鉄鋼業	0.1	0	0	0.6	0	0
石油燃焼	0	0	0	0	0	0
海塩	3.4	0.9	1.7	8.1	1.4	2.7
ガソリン車	11.1	0	3.4	22.2	0	2.8
ディーゼル車	8.0	25.6	20.0	22.5	27.1	68.4
道路粉じん	14.1	1.3	6.4	46.2	0	2.1
二次生成	0.2	13.7	13.9	0.4	19.8	20.2
合計	36.9	41.5	45.4	100	46.3	96.2
1/4-11	日比谷C	日比谷F	日比谷T	環研C	環研F	環研T
鉄鋼業	0.3	0.7	0.7	2.1	5.4	5.3
石油燃焼	0	0.2	0.2	0	0.8	0.5
海塩	2.3	0.9	1.7	6.5	3.2	4.0
ガソリン車	12.7	0	0	0	0	0
ディーゼル車	4.3	21.4	28.7	18.0	67.1	55.9
道路粉じん	21.8	2.6	11.3	72.9	2.2	20.6
二次生成	0.2	11.5	11.7	0.5	13.2	13.7
合計	41.6	37.5	54.3	100	92.9	100

*ただし、Cは粗大粒子、Fは小粒子、Tはトータルをそれぞれ示す。

*測定開始時間及び終了時間は、概ね午前10時である。

夏期、冬期の日比谷自排局及び環研の各発生源からの寄与率の推定を表 2 に示す。寄与率の算出には、6種の発生源種別について7種の化学種により7元1次連立方程式を得て、更に、内藤の使用した方法に倣い線形計画法により行った。この解法の特徴は、解に負の値を示さないようになっていることである。また、短所は負の値を示さないように決定することから、類似した化学種の寄与による発生源が2種あるとどちらかの寄与に大きく傾くこともあるためデータの解釈には注意を払った。表 2 の夏期では、日比谷自排局、環研ともに微小粒子中のディーゼル車からの寄与率は、粗大粒子中のはほぼ2倍大きくなっており、また、粗大粒子中の道路粉じんからの寄与率は、微小粒子のほぼ4倍になっている。また、ディーゼル車の寄与率は、粗大、微小粒子ともに日比谷自排局では、環研の寄与率のほぼ2倍であり、道路からの影響が大きいことが推測される。冬期においては、日比谷自排局に対して、環研の各発生源からの寄与率の合計が大きいので、発生源からの影響についてかなり説明がなされている。日比谷自排局の寄与率の合計は50%未満であり、発生源からの影響を半分程度しか説明がなさ

れなかった。寄与率の合計が低いことは、おそらく、主発生源であるディーゼル車、ガソリン車のデータが、東京都の現状とはかなり異なってきたことが原因の一つであると思われる。しかし、道路沿道におけるSPMの影響は、粗大粒子で道路粉じんからの寄与率(6.6~21.8%)が大きく、微小粒子でディーゼル車からの寄与率(16.4~41.1%)が大きいことが明らかとなった。

更に、二次生成粒子では、分析を行ったNO₃⁻成分、SO₄²⁻成分、及びCl⁻成分のうちNa⁺成分の等モル濃度を除いた量をそれぞれ加えた合計量のSPM中の割合を寄与率とした。二次生成粒子による寄与率は、夏期において、Cl⁻粒子、NO₃⁻粒子の昇華、気化による影響で低くなっている。冬期では、各期間ともに、微小粒子の寄与率(11.2~13.7%)の方が粗大粒子の寄与率(0.2%)に比較してかなり大きいことがわかった。一般環境における微小粒子中の二次生成の寄与率は17.3%であり、粗大粒子中では7.0%であることから、道路沿道におけるSPM中の粗大粒子では、二次生成による影響はほとんどないが、微小粒子では、かなり影響があることが明らかとなった。

4 まとめ

日比谷自排局のSPM濃度の環研SPM濃度に対する割合は、夏期の粗大粒子で2倍、微小粒子で2.3倍であり、冬期の粗大粒子で3.4~4.5倍、微小粒子で1.7~2.2倍であった。道路沿道におけるSPM濃度は、一般環境の2倍高い値であった。

道路沿道のSPM濃度の時間帯別変動では、交通量の多い朝夕(7-10時、16-20時)に極大となる二山型であった。

粗大粒子中のAl成分割合の時間帯別変動では、夏期、冬期ともに数%の変動に留まり、一日中道路粉じんによる影響があった。

微小粒子中のCa_s成分割合の時間帯別変動では、夏期において7-10時における割合が減少していることから、早朝のディーゼル車の交通量が少ないことがわかった。また、冬期の12/27-31、1/4-11では、時間帯別変動は30%前後であり、一日中ディーゼル車の影響があったが、12/31-1/4では、夜間に割合が10%にまで低下した

ことから、夕から夜間ではディーゼル車の交通量が少ないことがわかった。

微小粒子中のNO₃⁻成分、SO₄²⁻成分の割合では、夏期、冬期ともに日中に高くなり、二次生成粒子の影響がうかがわれた。更に、捕集後損失の少ないSO₄²⁻成分の割合では、夏期に冬期のはぼ2倍になり、二次生成粒子による影響が大きいことがわかった。

各発生源からの寄与率の推定では、ガソリン車とディーゼル車からの影響が交錯しているが、微小粒子におけるもっとも影響の大きい発生源はディーゼル車(寄与率16.4~41.1%)であり、粗大粒子における影響の大きい発生源は道路粉じん(寄与率6.6~21.8%)であることがわかった。おわりに、今後の課題として推定できなかった部分や道路沿道の地点特性等を解明するため、様々な調査方法や解析方法を試みる必要もある。

参考文献

- 1) 東京都環境科学研究所編：浮遊粒子状物質等測定データ集，平成4年3月。
- 2) 環境庁編：環境白書，大蔵省印刷局(1992)
- 3) 原宏ら：大気中の塩化物イオンおよび硝酸イオンエアロゾルの粒度分布の季節変動，日本化学会誌，p. 1221~1225，(1983)。
- 4) 古明地哲人：乾性、湿性降下物中化学成分と降下量の地点特性，東京都環境科学研究所年報1991，p. 78-83。
- 5) 芳住邦雄ら：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，p. 58-60。
- 6) 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. 3-10。
- 7) 千葉県公害研究所編：浮遊粒子状物質発生源寄与率調査(中間報告)，昭和61年9月，昭和62年7月。
- 8) 笠原三紀夫：粒子状物質による大気汚染問題，p. A53-A64，大気汚染学会誌，27(1992)。
- 9) 横浜市公害研究所編：浮遊粉じんの発生源推定に関する調査研究報告書，p. 69-125，1989年3月。

Analysis of Factors of High Concentration Suspended Particulate Matters
in Roadside Ambience

Hiroki Kamataki, Kaoru Akiyama, Tetsuhito Komeiji,
Takeharu Watanabe and Kunihiko Asakuno

(Abstract)

To grasp the changing of SPM on roadside ambience, coarse particles (diameter is about 10 to $2\mu\text{m}$.) and fine particles (diameter is under about $2\mu\text{m}$.) were sampled to divided size by Andersen Air Sampler with three dividing steps (No.1,4 and backup) by a time-frame (4 parts a day) in summer and winter.

Samples were analyzed elements of include coarse and fine particles to presume a few sources, and considered with changing elements proportion by a time-frame in summer and winter. Moreover, source contribution rate by chemical mass balance (CMB) method was presumed to explain contribution from a few sources.

In summer SPM concentration of roadside ambience was twice in coarse particles and 2.3 times in fine particles than that of ambient environment. In winter it was 3.4-4.5 times in coarse and 1.7-2.2 in fine than ambient environment SPM. The chang of SPM concentration by a time-frame indicated the graph of double peaks type when vehicle volume was large in morning (between 7-10 o'clock) and in evening (between 16-20 o'clock).

The contribution rate by road dust in coarse particles on roadside ambience was 19.3% in summer and 6.6-21.8% in winter. And the contribution rate by diesel vehicle in fine particles on roadside was 41.1% in summer and 16.4-25.6% in winter.

It was found that SPM on roadside ambience has been influenced from several sources and that it's concentration was higher than that of ambient environment.