

浮遊粒子状物質の地域別リセプターモデル (CMB法) による発生源の環境への負荷率推定

鎌 滝 裕 輝 秋 山 薫 渡 辺 琢 美
石 井 康一郎 塚 田 泰 久* 風 間 秀 泰*
吉 野 昇**

(*大気保全部 **東京熱供給株)

要 旨

浮遊粒子状物質が大都市のほとんどの測定局で環境基準を越えており、その削減対策のための手法が議論されてきた。その手法を実施に移すためには、実環境において、SPMの粒径を分類した調査を行い、環境データのプロフィールと発生源種データのプロフィールを把握する必要がある。発生源データは、調査にかなりの時間がかかるため、一般には、過去に示されたプロフィールが使用されるが、環境データのプロフィールは、各年ごとに調査することができる。

本調査は、平成4年11月に環境調査を行うとともに、その結果に基づきリセプターモデルとしてCMB法を用い、線形計画法により発生源別負荷率の推定を行ったものである。その調査結果から、全調査地域のSPMの平均濃度及びその構成成分は、23区内の一般環境のプロフィールに類似しており、濃度は、道路沿道、一般環境(23区内)、一般環境(多摩地域)の順に小さくなり、かなりの濃度差があった。また、リセプターモデルとしてはCMB法が有効であり、計算結果は、各地域の構成成分がほとんど変わらないので、各発生源からの環境への負荷率はいずれも人為的発生源の影響が大きいという地域差の小さい結果となった。なお、環境への負荷率の計算に当って、環境データでは過小評価となる有機炭素成分については、測定値を1.4倍とすることにより、補正することができた。

Estimating Contribution Ratio of Sources to Suspended Particulate Matter Using Chemical Mass Balance Method for Regional Difference in Tokyo

Hiroki Kamataki, Kaoru Akiyama, Takumi Watanabe
Kouichirou Ishii, Yasuhisa Tsukada*, Hideyasu Kazama*
and Noboru Yoshino **

*Air Pollution Protection Division

**Tokyo Heat Service Corporation

Summary

In the metropolitans of Japan, as suspended particulate matter (SPM) concentration has exceeded the environmental quality standard in most monitoring stations of atmospheric environment, it's strategy for curtailment method has been debated. To practise this strategy, in field environment, SPM concentration of classified particles diameter is researched, and data profiles of environment and sources are necessary to be understood. In generally, as it takes a long time to measure these, sources profiles are made use from old profiles in 1980, while field data can be analyzed every year. This report was carried out by chemical mass balance (CMB) method to calculate the linear plan method as receptor model for results of

data in November in 1992.

The results of average SPM concentration and components ratio in all the stations resemble the average profile in 23 wards, and SPM concentration was smaller and smaller in roadside, general station and Tama area respectively with some difference in concentrations.

CMB method, as receptor model, was useful in calculation of sources contribution in environment. The results were almost same for sources contribution ratio in all the stations and areas, and the difference was small. In calculation of contribution ratio by CMB method, the underestimation of organic carbon component could be corrected by multiplying by 1.4 times.

1 はじめに

東京都における浮遊粒子状物質 (SPM) 濃度は、ほとんどの測定局で環境基準を達成されておらず、社会的な問題となりつつある。SPMを削減するためには、発生源からの影響の割合を把握することが必要である。また、SPMの発生源は、地域別に異なり様々に存在していることから、地域別のSPMの環境濃度及びその構成成分を測定することにより、地域別特徴について大気保全部と共同して調査を行った。その結果に基づき、リセプターモデルのうちのCMB (ケミカルマスバランス) 法²⁾を利用して、地域別のSPM発生源の環境への負荷率の推定をすることを当所が担当し、解析を行ったので、その検討結果を報告する。

2 調査方法

(1) 調査

SPMの採取は、平成4年11月下旬に5日間連続して行った。使用した装置は、アンダーセン・サンプラー (カスケードインパクト方式によりSPMを粒径別に分級する装置) を3段 (粒径の分級: おおよそ $10\mu\text{m}$ を超えるもの、 $2\mu\text{m}$ を超えて $10\mu\text{m}$ 以下、 $2\mu\text{m}$ 以下) にセットし、流量を $30\text{l}/\text{分}$ (SPMの分級の理論流量は $28.3\text{l}/\text{分}$ であるが、ろ紙が目詰まりし流量が低下するため、採取期間の平均値は理論値とほぼ同じになる。) で行った。

調査地点は、一般環境 (23区内) 6地点 (環境科学研究所、練馬、中央、品川、世田谷、足立)、一般環境 (多摩地域) 3地点 (多摩、調布、小平) 及び道路沿道 2地点 (大原、梅島) で行った。

(2) 分析⁴⁾

捕集ろ紙は、テフロン製と石英製の2種類を使用し、同時に採取した。

ア 金属成分

テフロン製ろ紙 (円形) の $1/4$ を放射化分析法 (照射は立教大学原子力研究所で行い、 γ 線スペクトルはゲルマニウム検出装置で計測した。) により計測し、単位体積当たりの濃度を算出した。

イ イオン成分

テフロン製ろ紙 (円形) の $1/4$ を微量のエタノールで湿浸させ、 20ml の蒸留水を加えて、超音波抽出し、上澄み液をろ過後、イオンクロマトグラフ法 (Dionex社製4000i型イオンクロマトグラフ分析装置) により、分析を行った。

ウ 炭素成分

加熱炉を増設した熱分解装置を使用し、酸素気流中で反応させ酸化炉で CO_2 にして赤外線吸収分析装置により定量した。熱分解温度 350°C の設定で定量され、計算された炭素を有機炭素 (以下、「Cao」という。) とし、引き続き設定温度 900°C で定量・算出された炭素を元素状炭素 (以下、「Cae」という。) とした。

3 結果と考察

表1~4に、本調査で測定した環境への負荷率を算出するのに必要なSPM濃度とその構成成分濃度を示す。

表1は、すべての地域の平均値のデータである。粗大粒子と微小粒子を比較して、明らかに、微小粒子の方に多いものは、Cae、塩化物イオン (Cl^-)、硫酸イオン (SO_4^{2-})、硝酸イオン (NO_3^-)、アンモニウムイオン (NH_4^+)、等人為的影響の大きい成分である。

表2は、23区内の一般環境におけるデータである。23区内は後述の道路沿道と多摩地域の一般環境の中間的な値であり、多摩地域より人為的影響の大きいことがわかる。

表3は、道路沿道におけるデータである。SPM濃度

及び微小粒子中のCae成分濃度が高いことから、ディーゼル車等の自動車からの影響が大きいと推測される。

表4は、多摩地域におけるデータである。

発生源の環境への負荷率を求めるために、リセプターモデルとしてCMB法を用い、解析手法として線形計画法を利用した⁵⁾⁶⁾。

表5に本調査で用いたCMB法に関する多くの文献で使用されている発生源データ（一部東京都のデータを含

む）を示す⁶⁾⁷⁾。

CMB法は、環境中のSPMの構成成分のプロフィールを、表5に示す各発生源の成分組成のプロフィールと各発生源の環境への負荷率とに分解し、その解を求める手法として線形計画法を利用したものである。線形計画法は、環境プロフィールを各発生源プロフィールと環境負荷率とに分解する際に、最もバランスよく、かつ負荷率を正の値とする最適値を求める最良の方法の1つであ

表1 環境データ（全平均）

項目 SPM含有成分	SPM Dp ≤ 10 μm (μg/m ³)	粗大粒子 2 μm < Dp ≤ 10 μm (μg/m ³)	微小粒子 Dp ≤ 2 μm (μg/m ³)
SPM	78.3	21.4	56.9
Ca	0.938	0.763	0.175
Na	0.852	0.544	0.308
Al	0.819	0.700	0.119
K	0.524	0.134	0.390
Mn	0.047	0.017	0.030
V	4.8×10 ⁻³	1.6×10 ⁻³	3.2×10 ⁻³
Sc	1.8×10 ⁻⁴	1.6×10 ⁻⁴	0.2×10 ⁻⁴
Fe	1.026	0.784	0.242
Cae	24.6	3.7	20.9
Ca _o	5.2	1.3	3.9
Br	0.033	0.003	0.030
Cl ⁻	5.05	1.05	4.00
NO ₃ ⁻	5.91	1.25	4.66
SO ₄ ²⁻	2.00	0.36	1.64
Na ⁺	0.72	0.42	0.30
K ⁺	0.61	0.07	0.54
NH ₄ ⁺	2.58	0.14	2.44
Mg ²⁺	0.10	0.08	0.02
Ca ²⁺	0.66	0.55	0.11

ただし、Dpは粒子の粒径であり、数値の単位は単位体積中の重量を示す。

表2 環境データ（一般環境：23区内）

項目 SPM含有成分	SPM Dp ≤ 10 μm (μg/m ³)	粗大粒子 2 μm < Dp ≤ 10 μm (μg/m ³)	微小粒子 Dp ≤ 2 μm (μg/m ³)
SPM	77.7	21.8	55.9
Ca	0.940	0.792	0.148
Na	0.957	0.640	0.317
Al	0.768	0.657	0.111
K	0.496	0.153	0.343
Mn	0.055	0.020	0.035
V	5.3×10 ⁻³	1.6×10 ⁻³	3.7×10 ⁻³
Sc	1.4×10 ⁻⁴	1.2×10 ⁻⁴	0.2×10 ⁻⁴
Fe	0.990	0.815	0.175
Cae	23.9	3.7	20.2
Ca _o	4.9	1.2	3.7
Br	0.030	0.003	0.027
Cl ⁻	5.48	1.33	4.15
NO ₃ ⁻	6.57	1.60	4.97
SO ₄ ²⁻	2.02	0.46	1.56
Na ⁺	0.81	0.51	0.30
K ⁺	0.59	0.07	0.52
NH ₄ ⁺	2.62	0.13	2.49
Mg ²⁺	0.11	0.09	0.02
Ca ²⁺	0.71	0.59	0.12

ただし、Dpは粒子の粒径であり、数値の単位は単位体積中の重量を示す。

る。

本検討では、表5に示す8発生源についての11の含有成分割合から、11元1次連立方程式をつくり、線形計画法により、目的関数を最大にする解を得た。

なお、2次生成（イオン成分）粒子については、硫酸イオン(SO₄²⁻)、硝酸イオン(NO₃⁻)、アンモニウムイオン(NH₄⁺)の和（[二次生成]=[SO₄²⁻]+[NO₃⁻]+[NH₄⁺]）とした。

表3 環境データ（道路沿道）

項目 SPM 含有成分	SPM Dp ≤ 10 μm (μg/m ³)	粗大粒子 2 μm < Dp ≤ 10 μm (μg/m ³)	微粒子 Dp ≤ 2 μm (μg/m ³)
SPM	103.6	28.3	75.3
Ca	1.370	1.005	0.365
Na	0.855	0.535	0.320
Al	1.050	0.880	0.170
K	0.655	0.100	0.555
Mn	0.054	0.020	0.034
V	5.3×10 ⁻³	2.1×10 ⁻³	3.2×10 ⁻³
Sc	2.1×10 ⁻⁴	1.8×10 ⁻⁴	0.3×10 ⁻⁴
Fe	1.590	1.195	0.395
Ca _e	37.5	5.9	31.6
Ca _o	7.1	1.6	5.5
Br	0.038	0.004	0.034
Cl ⁻	6.74	1.09	5.65
NO ₃ ⁻	7.97	1.12	6.85
SO ₄ ²⁻	2.35	0.36	1.99
Na ⁺	0.83	0.49	0.34
K ⁺	0.64	0.10	0.54
NH ₄ ⁺	3.52	0.25	3.27
Mg ²⁺	0.11	0.09	0.02
Ca ²⁺	0.79	0.65	0.14

ただし、Dpは粒子の粒径であり、数値の単位は単位体積中の重量を示す。

図1～3に表1の環境データ全平均からCMB法を利用して、発生源別の環境への負荷率を求めた結果を示す。

図1は、SPM（10μm以下の粒子状物質）の発生源別の環境への負荷率であり、自然界発生源（土壌系、海塩）は、17.7%、人為的発生源（固定、自動車、二次生成）は、48.9%、計算されない不明分は、33.4%と人為発生源の影響が大きいことがわかる。

図2は、粗大粒子（2μmを超えて10μm以下の粒子

表4 環境データ（一般環境：多摩地域）

項目 SPM 含有成分	SPM Dp ≤ 10 μm (μg/m ³)	粗大粒子 2 μm < Dp ≤ 10 μm (μg/m ³)	微粒子 Dp ≤ 2 μm (μg/m ³)
SPM	62.6	16.0	46.6
Ca	0.643	0.543	0.100
Na	0.640	0.357	0.283
Al	0.770	0.667	0.103
K	0.490	0.117	0.373
Mn	0.029	0.011	0.018
V	3.5×10 ⁻³	1.4×10 ⁻³	2.1×10 ⁻³
Sc	2.4×10 ⁻⁴	2.2×10 ⁻⁴	0.2×10 ⁻⁴
Fe	0.720	0.447	0.273
Ca _e	17.3	2.4	14.9
Ca _o	4.5	1.1	3.4
Br	0.035	0.003	0.032
Cl ⁻	3.05	0.46	2.59
NO ₃ ⁻	3.21	0.64	2.57
SO ₄ ²⁻	1.73	0.15	1.58
Na ⁺	0.49	0.22	0.27
K ⁺	0.62	0.05	0.57
NH ₄ ⁺	1.89	0.08	1.81
Mg ²⁺	0.06	0.05	0.01
Ca ²⁺	0.47	0.38	0.09

ただし、Dpは粒子の粒径であり、数値の単位は単位体積中の重量を示す。

状物質)について各発生源からの環境への負荷率(全地点平均粗大粒子)を示したものである。自然界発生源36.0%、人為的発生源33.8%、不明分30.2%と自然界発生源の影響が大きいことがわかる。

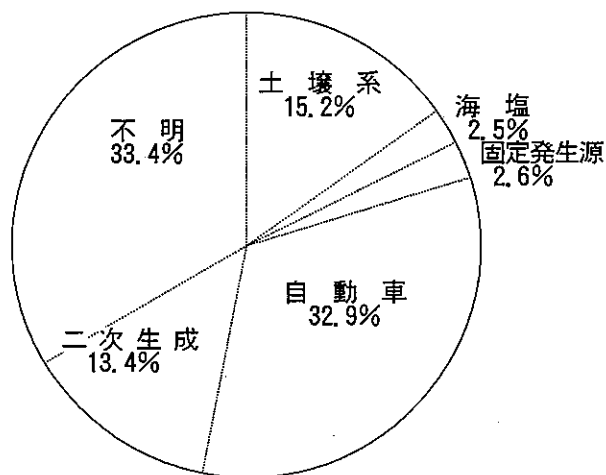


図1 各発生源の環境への負荷率
(環境データ：全地点平均 SPM)

図3は、微小粒子(2μm以下の粒子状物質)について、各発生源からの環境への負荷率(全地点平均微小粒子)を示したものである。自然界発生源3.4%、人為的発生源54.0%、不明分42.6%と人為的発生源の影響が大

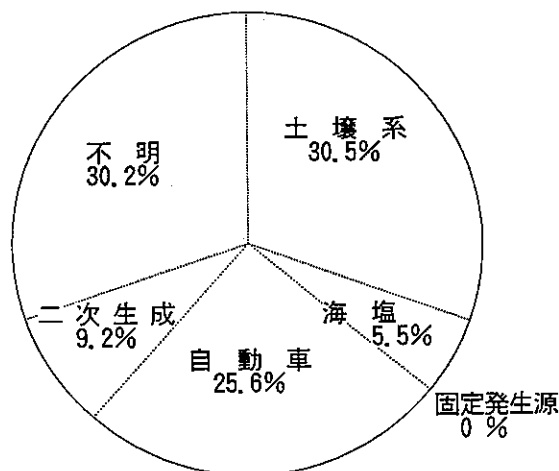


図2 各発生源の環境への負荷率
(環境データ：全地点平均粗大)

表5 発生源データ

発生源別 含有成分	土 壌 (%)	道路粉じん (%)	海 塩 (%)	重油燃焼 (%)	鉄 鋼 (%)	廃棄物燃焼 (%)	ガソリン車 (%)	ディーゼル車 (%)
Ca	5.7	6.9	1.2	8.5×10^{-2}	4.5	1.1	0	0
Na	1.4	1.08	30.42	1.0	1.4	12	0	0
Al	6.2	6.83	3×10^{-5}	2.1×10^{-1}	1.0	4.2×10^{-1}	7×10^{-2}	0
K	2.7	9.7×10^{-1}	1.1	8.5×10^{-2}	1.3	20	4.44×10^{-1}	4.3×10^{-1}
Mn	7.6×10^{-2}	1.35×10^{-1}	5.3×10^{-6}	1.2×10^{-2}	2.2	3.3×10^{-2}	1.13×10^{-2}	2.3×10^{-2}
V	1.1×10^{-2}	1.9×10^{-2}	5.8×10^{-6}	9.2×10^{-1}	1.3×10^{-2}	2.7×10^{-3}	4.3×10^{-5}	1×10^{-2}
Sc	1.2×10^{-3}	1.9×10^{-3}	1×10^{-6}	9×10^{-6}	1.3×10^{-4}	4.6×10^{-5}	2×10^{-5}	0
Fe	3.6	7.40	2.9×10^{-5}	4.69×10^{-1}	15.7	6.2×10^{-1}	7.1×10^{-1}	0
Ca _e	0	4.00	0	0	0	6.7	30.1	65.0
Ca _o	0	7.2×10^{-1}	0	0	0	1.7	26.3	20.0
Br	0	4.3×10^{-4}	1.9×10^{-1}	0	1.4×10^{-2}	8.3×10^{-2}	5.95	1.7×10^{-2}

きいことがわかる。

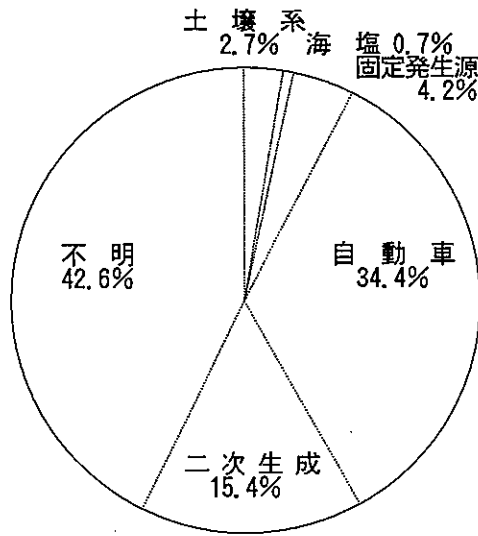


図3 各発生源の環境への負荷率 (環境データ：全地点平均微小)

次に、発生源から排出された後、環境中で採取された時に損失の大きい有機炭素成分を後述の理由Kより測定値の1.4倍とした環境データを用いCMB法を利用して、各発生源の環境への負荷率を求めた結果を図4～6に示す。

図1～3と図4～6を比較すると、図1の自動車の負荷率が図4では、約1.5倍になり、図3と図6でも約1.6倍負荷率が増加しているが、図2と図5では、ほとんど変化は見られない。このことは、微小粒子中の有機炭素成分を過少評価したために、自動車を含めた人為的発生源の環境への負荷率を過小評価したことを意味している。

有機炭素の補正值は、できるだけ不明分が少なくなる値を選定する必要がある。参考として、図7～9には、地域別のSPM発生源の環境への負荷率(全地点平均SPM)を、有機炭素成分を測定結果の1倍、1.4倍、2倍とした場合の結果を示す。

図7と図8では、明らかに図8の方がディーゼル車からの環境への負荷率が、上昇していることがうかがえる。しかし、図8と図9では、あまり変化がなく、かつ不明分も図8の方が少ない等のことから、有機炭素成分の評価は、測定値の1.4倍程度が妥当であることがわかる。

したがって、有機炭素成分を測定値の1.4倍とした場合の浮遊粒子状物質(SPM、粗大粒子、微小粒子)の地域別・発生源別の環境への負荷率を表6に示す。

また、図8から地域別の相違をみると、道路沿道の負

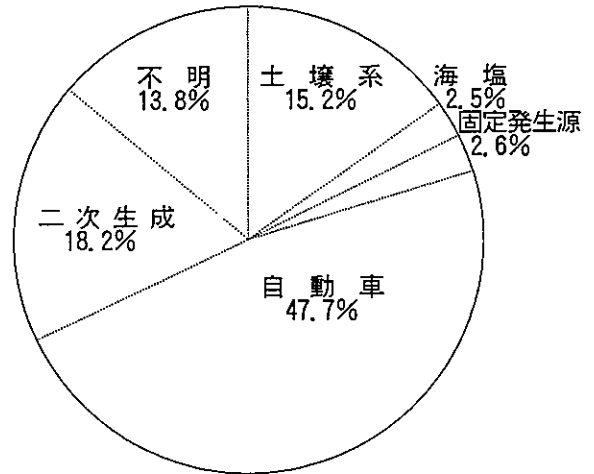


図4 各発生源の環境への負荷率 (環境データ：全地点平均SPM) (有機炭素成分濃度×1.4倍)

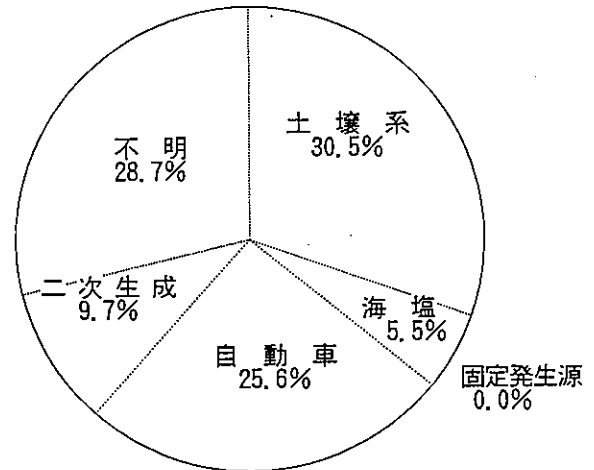


図5 各発生源の環境への負荷率 (環境データ：全地点平均粗大) (有機炭素成分濃度×1.4倍)

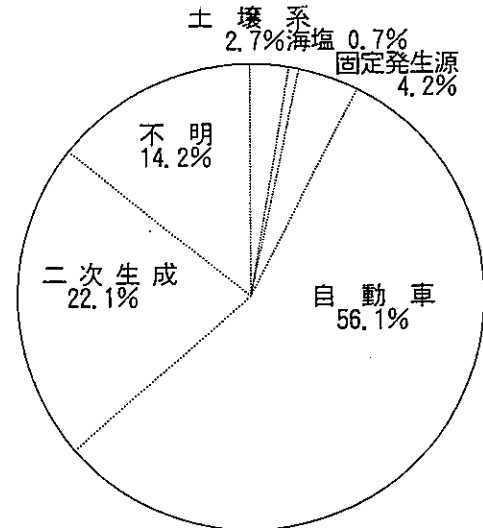


図6 各発生源の環境への負荷率 (環境データ：全地点平均微小) (有機炭素成分濃度×1.4倍)

荷率は、他に比較して、ディーゼル車からの影響がやや大きく、土壌系の影響がかなり小さいことがうかがえるが、測定誤差や計算誤差等を全体的に考慮すると、東京

都におけるSPM発生源の環境への負荷率は、全地域共に都市域型の人為的発生源の影響の大きい結果となった。

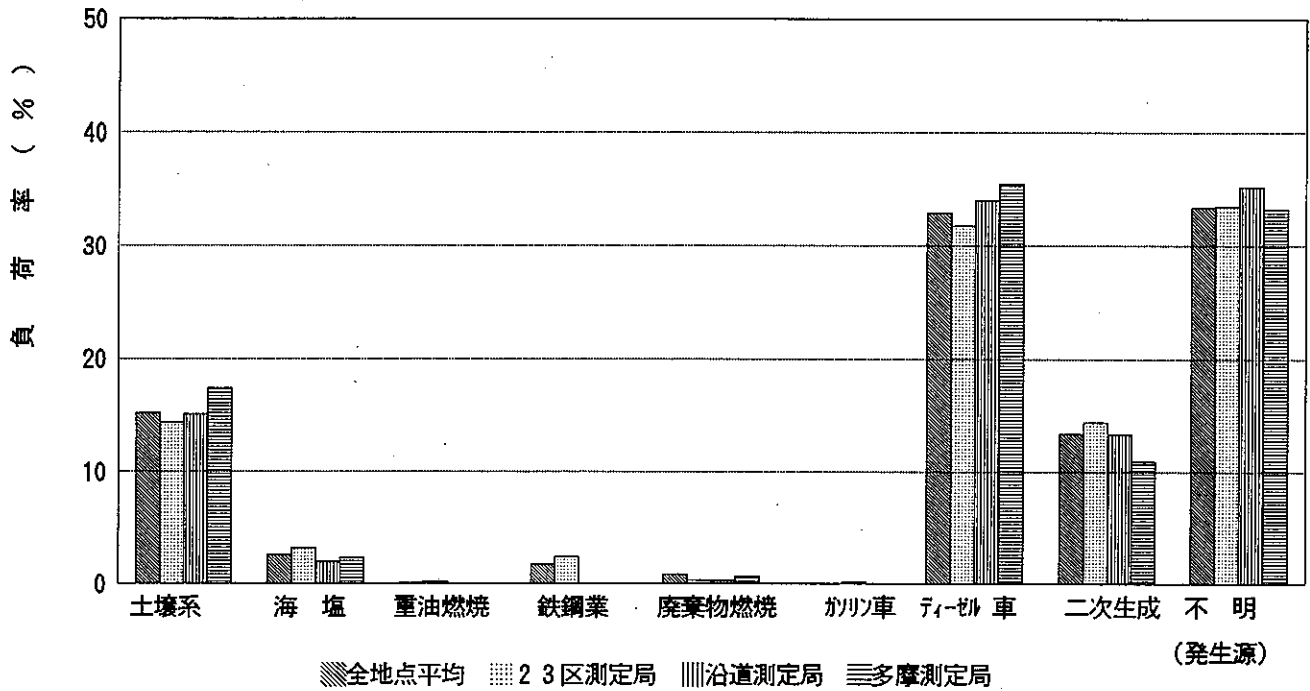


図7 地域別の各発生源の環境への負荷率
(有機炭素成分×1の場合)

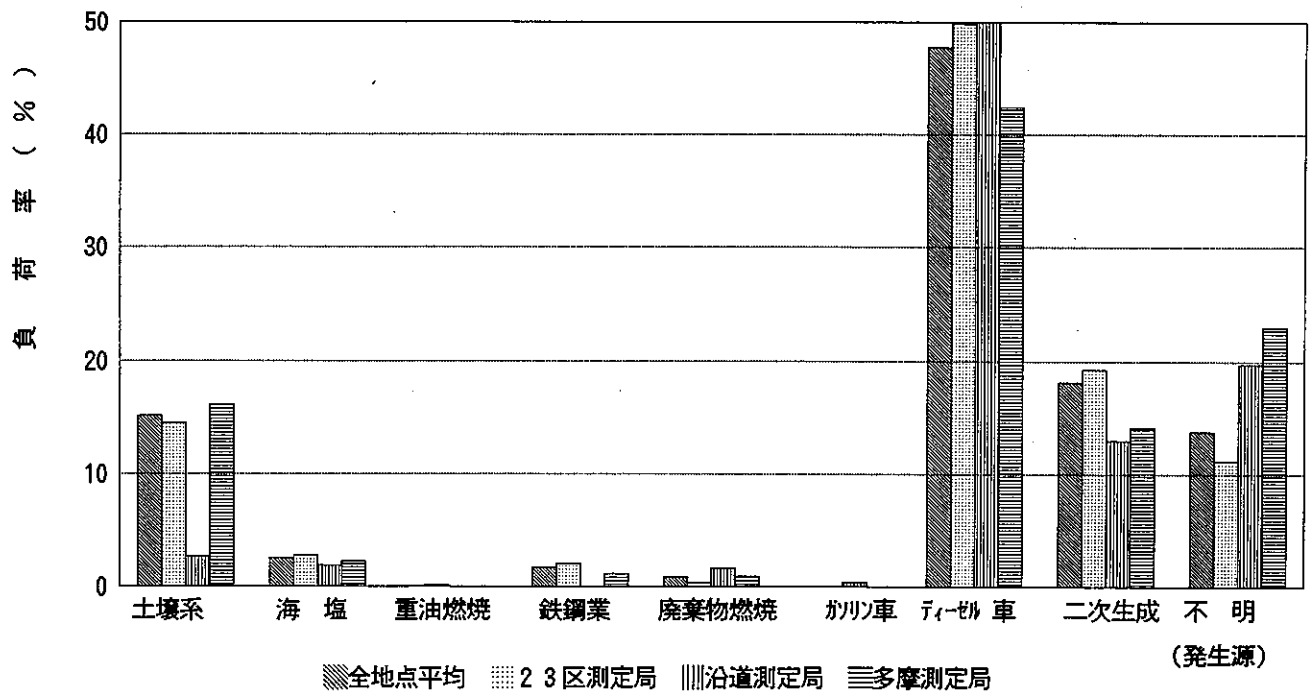


図8 地域別の各発生源の環境への負荷率
(有機炭素成分×1.4の場合)

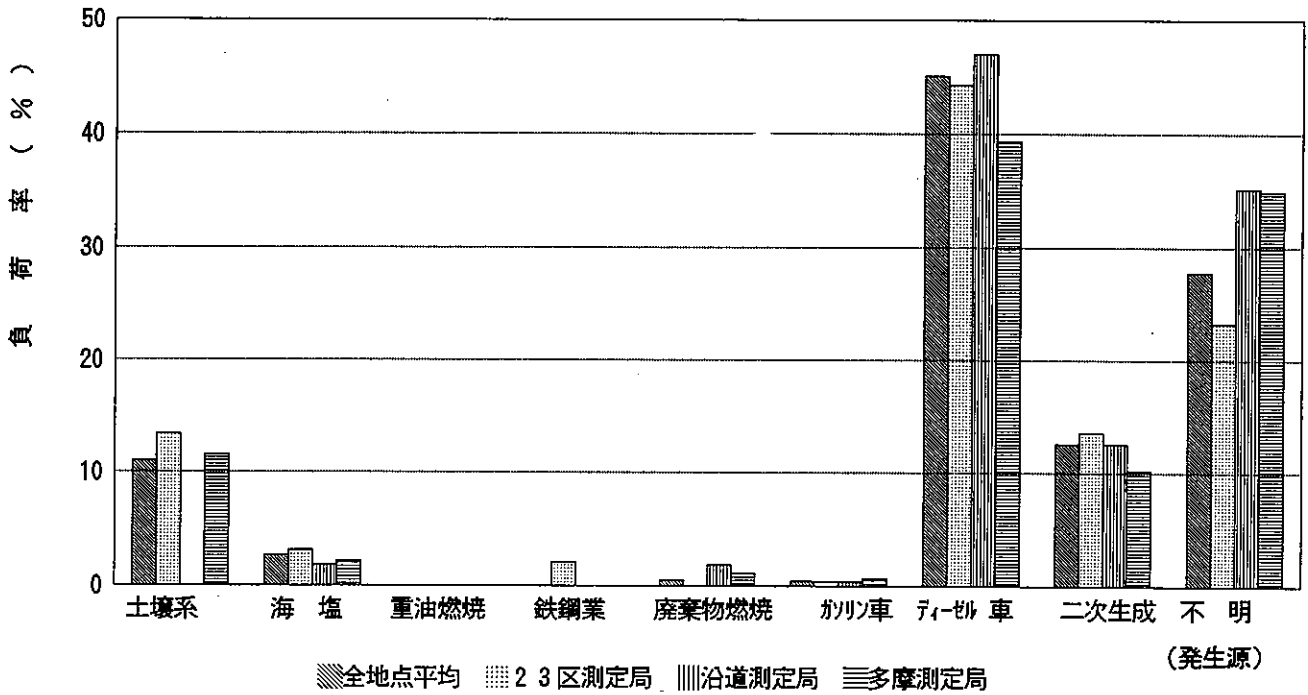


図9 地域別の各発生源の環境への負荷率
(有機炭素成分×2の場合)

表6 各発生源の環境への負荷率

%	全平均			23区内			道路沿道			多摩地域		
	SPM	粗大粒子	微小粒子	SPM	粗大粒子	微小粒子	SPM	粗大粒子	微小粒子	SPM	粗大粒子	微小粒子
自動車	47.7	25.6	56.1	49.8	26.7	58.1	60.7	31.4	59.6	42.4	21.2	48.8
固定源	2.6	0.0	4.2	2.5	0.0	3.7	1.6	0.0	2.7	2.0	0.0	4.3
二次生成	18.2	9.7	22.1	19.3	10.2	22.7	13.0	6.0	15.6	14.2	4.9	17.4
土壌系	15.2	30.5	2.7	14.5	28.5	2.7	2.7	21.6	0.0	16.2	39.1	1.7
海塩	2.5	5.5	0.7	2.8	5.1	0.8	1.9	0.7	0.3	2.2	5.8	0.7
不明	13.8	28.7	14.2	11.1	29.5	12.0	20.1	40.3	21.8	23.0	29.0	27.1

注：有機炭素成分は、測定値の1.4倍で算出した。

4 まとめ

上記の結果から、次のことが明らかとなった。

(1)道路沿道のS P Mの濃度及びその構成は、自動車の影響を大きく受けており、23区内の一般環境は多摩地域の一般環境より道路沿道に近いプロフィールである。また、濃度は、道路沿道、一般環境(23区内)、一般環境(多摩地域)の順に小さくなり、かなりの濃度差があった。

(2)S P Mの各発生源からの環境への負荷率の計算では、リセプターモデルとしてCMB法が有効であり、様々な解析方法の中では、計算値が正值となる線形計画法の結果が活用し易い。計算結果は、各地域のS P Mの構成成分が、ほとんど変わらないので、負荷率は地域差の小さい結果となった。粗大粒子は自然発生源の影響が大きく、微小粒子は人為的発生源の影響が大きいことがわかった。

(3)S P Mの各発生源の環境への負荷率の計算では、環境データを直接使用すると過小評価となる有機炭素成分について、測定値の1.4倍とすることにより、補正することができた。

最後に、本調査に協力して頂いた方々に感謝致します。

参考文献

- 1) 東京都環境保全局大気保全部大気監視課編：平成5年度大気汚染常時測定結果概要，環境保全関係資料2-1-大71,p61~73(1995)。
- 2) M.S.Miller et.al. : A Chemical Element Balance for Pasadena Aerosol, J. Colloid Interface Sci., **39**, p165 ~176(1972)。
- 3) S.K.Friedlander : Chemical Element Balance and Identification of Air Pollution Source, Environ. Sci. Tehnol., **7**, p235~240(1973)。
- 4) 鎌滝裕輝ら：沿道における浮遊粒子状物質の特性，東京都環境科学研究所年報，**1993**, p3~6(1995)。
- 5) 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。
- 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**, p3~10(1989)。
- 7) 溝畑 朗，真室 哲雄：堺市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)，大気汚染学会誌，**15**, p198~206(1980)。