

大気浮遊粒子状物質の元素組成と固定発生源等 からの負荷に関する一考察

鎌 滝 裕 輝 秋 山 薫 吉 岡 秀 俊 三 好 康 彦
白 井 清 嗣

要 旨

当研究所では、これまで発生源のばいじん等に含まれる元素組成と環境中のSPM元素組成とから、発生源別の環境への負荷の割合を求めてきた。その結果、SPMの発生源別負荷率は、自動車が最も大きく、全体の40%以上を占めることがほぼ判明した。しかし、発生源からの負荷を、さらに精度よく調査することは重要な課題である。

本研究は、知見の蓄積の一環として、1996年度の大気中のSPM元素組成を調査し、その結果と過去に調査された固定発生源及び自然界起源物質の元素組成との関係について考察を行ったものである。

調査地点は、継続してデータを収集している都内の環境条件の異なる5地点である。その内訳は、区部を代表する1地点、道路沿道を代表する1地点、郊外を代表する多摩地域2地点、山間地を代表する1地点である。また、調査は、夏期、冬期の2回行い、試料は、中性子放射化分析法により元素組成を測定した。

固定発生源等の環境への負荷の比較は、簡易的な手法であるパターン認識法を参考として考察を行った。

各地域における自動車からの負荷を除いた発生源の負荷の大きさはおおよそ下記のようにであった。

区部の江東では、一般廃棄物焼却>海塩粒子>土壌>鉄鋼工業>重油燃焼の順であった。

道路沿道の八幡山では、一般廃棄物焼却>土壌(道路粉じんを含む)>鉄鋼工業>重油燃焼の順であった。

郊外の多摩では、一般廃棄物焼却>土壌>鉄鋼工業>重油燃焼の順であった。

郊外の福生では、土壌>一般廃棄物焼却>鉄鋼工業≒重油燃焼の順であった。

山間地の小川内では、ほとんどが土壌からの負荷であった。

キーワード：SPM、元素組成、負荷、発生源、放射化分析

A Consideration of Elemental Components of SPM in Tokyo and Contribution to Atmospheric Environment from Stationary Emission Sources

Hiroki Kamataki, Kaoru Akiyama, Hidetoshi Yoshioka, Yasuhiko Miyoshi
and Kiyotsugu Shirai

Summary

In this institute, the contribution ratio of several emission sources to the atmospheric environment has been studied by combining elemental components of stationary sources basin to SPM components. As a

result, it was approximately understood that largest contribution ratio was from traffic vehicles and its value was more than 40%. As the contribution to environment from emission sources is one of the important subjects, there is a need for detailed study.

As a link of accumulation of knowledge, this study was considered with relationship between contribution of stationary and natural sources and elemental components data taken in Tokyo in 1996.

Figure sampling sites are selected from where SPM data and different environmental conditions are annually collected. Sites consist of one city area, one roadside, two suburb areas and one mountain area. Sampling were taken two times, once in summer (July) and the next in winter (December), and elemental components in the samples were measured by nuclear radiometric analysis.

The comparison of contribution of stationary and natural sources to atmospheric environment was based on the simple method of analysis refined to as pattern factor analysis.

The contribution of sources except from traffic vehicles in different sites was approximately in the following order.

Order of contribution in city area (Koto) was "Refuse Incineration > Sea Salt > Soil > Steel Industry > Oil Combustion".

In roadside (Hachimanyama), it was "Refuse Incineration > Soil (including road dust) > Steel Industry > Oil Combustion".

In suburb area (Tama), it was "Refuse Incineration > Soil > Steel Industry > Oil Combustion".

In suburb area (Fussa), it was "Soil > Refuse Incineration > Steel Industry \approx Oil Combustion".

Contribution of sources in mountain area (Ogouchi) was almost from "Soil".

Keywords : SPM, elemental component, contribution, emission source, radiometric analysis

1 はじめに

都内の浮遊粒子状物質 (以下「SPM」という。) の環境基準 (1日の1時間当たりの平均値で $0.1 \text{ mg}/\text{m}^3$ 以下かつ1日に1時間当たり $0.1 \text{ mg}/\text{m}^3$ 以上の濃度が2回以上連続しないこと) ³⁾の達成率は、一般環境測定局の平成6年度実績で2.1%で、ほとんど達成されていない。

当研究所では、環境中のSPMの挙動を解明するため、道路沿道等で調査⁴⁾⁵⁾を行ってきた。その結果、SPMの発生源別負荷率は、自動車が最も大きく、全体の40%以上を占めることが判明した。しかし、一般環境の汚染実態をより正確に把握するためには、一般廃棄物焼却施設など固定発生源の負荷と、自動車など移動発生源の負荷を分けて考察できる調査研究が必要である。そのためには、一般環境におけるSPMの元素組成と、各種発生源から排出された粒子状物質の元素組成データを数多く収集し、環境の汚染状況と発生源からの排出状況との関係を解析することが不可欠である。

本研究では、都内5地点のSPM中の元素組成について調査し、そのデータを基に、各測定地点の自動車から排

出される物質を除く元素組成の特徴を把握することにより、固定発生源及び自然界起源物質の環境への負荷について検討したので、報告する。

2 調査及び分析法

(1) 環境調査

都内の環境調査は、夏期：1996年7月29日～8月5日、冬期：1996年11月25日～12月2日の2回行い、地点は、図1に示した4地点である。試料の採取は、アンダーセン・サンプラー (SPMを粒径別に採取し、各ステップの粒径カット特性は50%である。) を用い、粒径が $7 \mu\text{m}$ 以上のもの (ステップ No.1)、 $2 \mu\text{m}$ から $7 \mu\text{m}$ 以下のもの (ステップ No.4) 及び $2 \mu\text{m}$ 以下のもの (ステップ No.B) の3ステップに分けて採取をした (アンダーセン・サンプラーにおける $7 \mu\text{m}$ のカット特性は、環境基準で定められている浮遊粒子状物質の粒径 $10 \mu\text{m}$ に対応するものと考えられている。)。採取はテフロンろ紙 ($80 \text{ mm}\phi$) を装着し、流量 $28.3 \text{ l}/\text{min.}$ で行なった。

(2) 試料分析

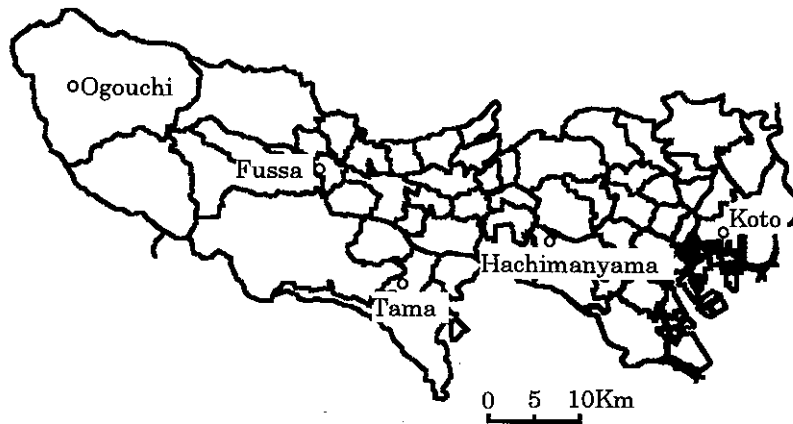


図1 都内におけるSPM採取5地点

採取した試料は、立教大学原子力研究所の原子炉で中性子照射後、生成した各原子の短寿命放射性核種から放出された γ 線スペクトルを測定する中性子放射化分析法により、Br, V, Cu, Mn, Ti, Al, Ca, Cl, Na元素の定量を行った。各元素については、単位体積当たりの原子の個数に比例するモル濃度(重量濃度を原子量で割ったもの)を求めた。

3 結果及び考察

(1) 地域別SPM中元素組成の比較検討

ア 5地点のSPM濃度

各調査地点⁶⁾の特徴は、江東(都市部)、八幡山(道路沿道)、多摩及び福生(郊外)、小河内(山間地)で、それぞれ異なる発生源からの負荷が考えられる。

各地点のSPM濃度の範囲は、夏期 $35.3\sim 60.2\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、冬期 $25.6\sim 66.3\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ で、1995年度関東浮遊粒子状物質合同調査⁵⁾と比べると、夏期では関東の調査結果 $42.5\sim 94.0\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ に対して低く、冬期では $14.1\sim 64.0\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ に対してわずかに高い状況であった。

中性子放射化分析法では、Br, V, Cu, Mn, Ti, Al, Ca, Cl, Na元素が短寿命核種を生成し同時測定が可能である。これらの元素は、環境中の様々な発生源を推定するための指標として使用されている⁷⁾。

東京近郊の都市では、Brは自動車・一般廃棄物焼却等、Vは重油燃焼、Cuは混合起源、Mnは鉄鋼工業、Tiは土壌やハイテク産業、Al, Caは土壌や道路からの巻き上げ粉じん、Clは一般廃棄物焼却及び混合起源、Naは海塩粒子及び混合起源からの指標と考えられている¹⁷⁾(表1)。そ

のため、各元素を各種発生源のトレーサと考えて、その負荷の度合いを考察することができる。

イ 粒径別季節別のBr, V, Cu, Mn, Ti元素組成

元素組成については、9元素のうち求めたモル濃度が低いもの(Br, V, Cu, Mn, Ti元素のモル濃度 $\approx 10^{-9}\ \text{mol}/\text{m}^3$)と高いもの(Al, Ca, Cl, Na元素のモル濃度 $\approx 10^{-7}\ \text{mol}/\text{m}^3$)に分類し考察を行った。

Br, V, Cu, Mn, Tiの5元素の各測定地点の夏期、冬期における粒径別モル濃度を図2～9に示した。

粒径 $7\ \mu\text{m}$ 以上及び粒径 $7\ \mu\text{m}$ の以下 $2\ \mu\text{m}$ 以上の場合(図2～5)では、江東、多摩、福生、小河内の4地点において、ほぼ $\text{Br} < \text{V} < \text{Cu} < \text{Mn} < \text{Ti}$ の順にモル濃度が高くなる傾向を示した。これに対して、八幡山では、Tiに次いでCuが高い特徴的なグラフを示した。

粒径 $2\ \mu\text{m}$ 以下の場合(図6～図7)は、図6(夏期)で、江東を除く4地点でCuを頂点とする一山型のモル濃度分布を示した。江東は、Mnが5元素中最も高い。図7(冬期)では、Brを除き、夏期と類似した傾向を示した。

ウ Br, V, Cu, Mn, Ti元素の地点別特徴

江東では、粒径 $2\ \mu\text{m}$ 以下でMnの負荷が他地点に比べ大きく、Mn発生源の負荷を受けていることが考えられる。八幡山では、粒径 $2\ \mu\text{m}$ 以上の場合にCuの負荷が他地点に比べ大きく、Cu発生源の負荷が考えられる。八幡山、多摩、福生では、夏期、粒径 $2\ \mu\text{m}$ 以下のSPMからBrが検出され、SPM中のトータルした5元素の組成は、粒径 $2\ \mu\text{m}$ 以上のSPMに含まれる元素組成と同じ傾向を示した。図8～図9に示した小河内のトータルの元素組成も、粒径 $2\ \mu\text{m}$ 以上のSPMの元素組成と同じ傾向を示した。

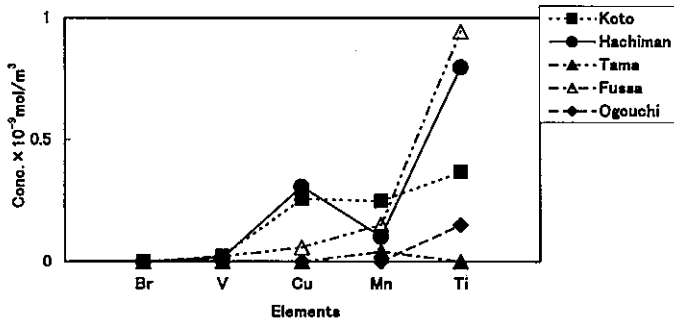


図2 粒子状物質(粒径>7μm)の微量元素モル濃度(夏期)

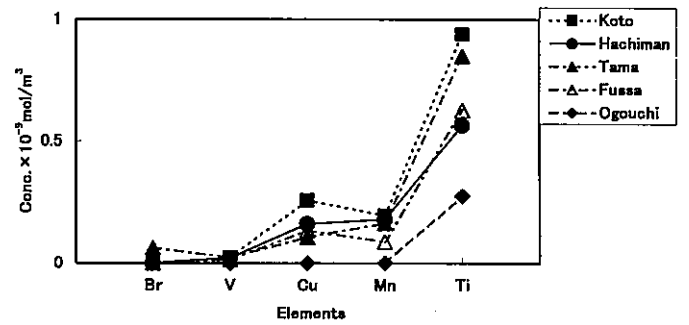


図3 粒子状物質(粒径>7μm)の微量元素モル濃度(冬期)

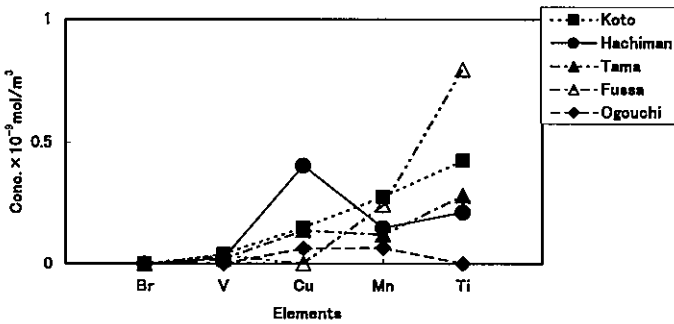


図4 粒子状物質(7≥粒径2μm)の微量元素モル濃度(夏期)

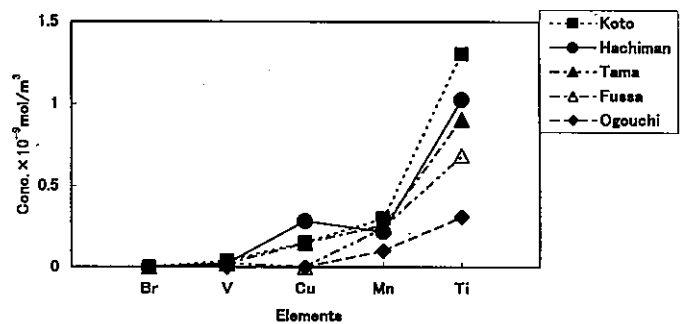


図5 粒子状物質(7≥粒径2μm)の微量元素モル濃度(冬期)

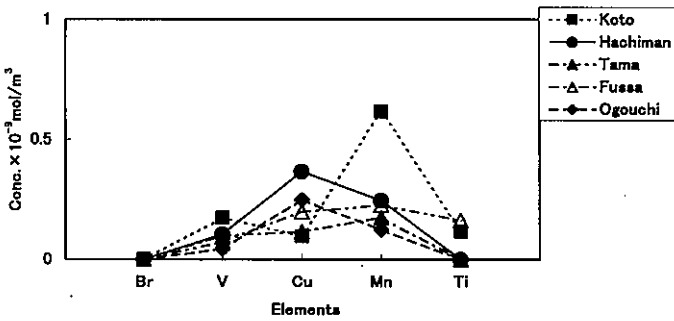


図6 粒子状物質(2μm≥粒径)の微量元素モル濃度(夏期)

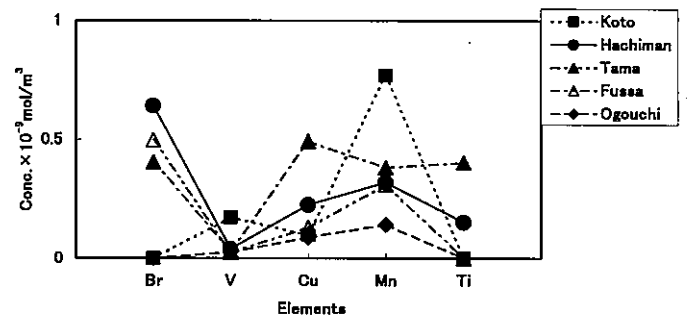


図7 粒子状物質(2μm≥粒径)の微量元素モル濃度(冬期)

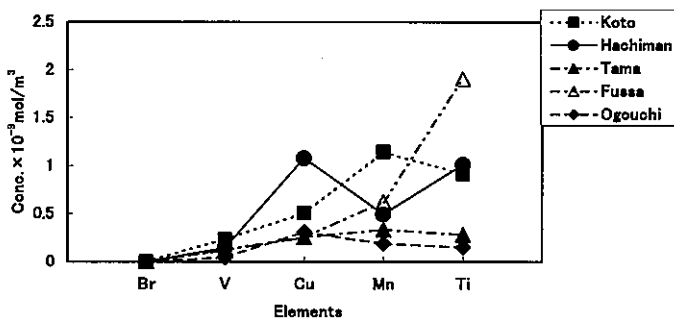


図8 粒子状物質(トータル)の微量元素モル濃度(夏期)

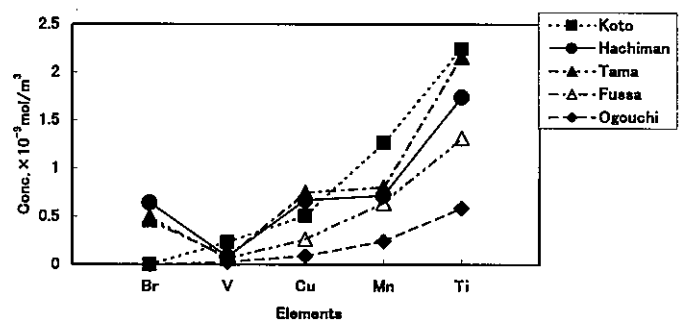


図9 粒子状物質(トータル)の微量元素モル濃度(冬期)

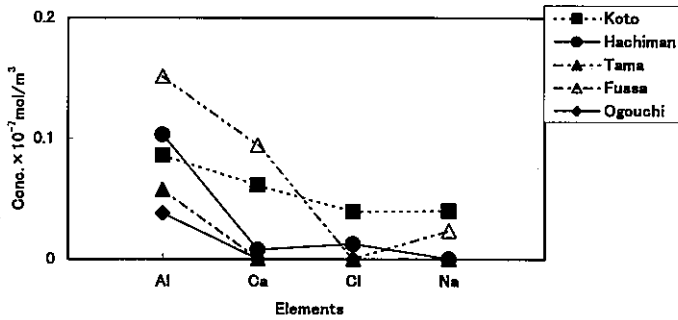


図10 粒子状物質(粒径 $>7\mu\text{m}$)の元素モル濃度(夏期)

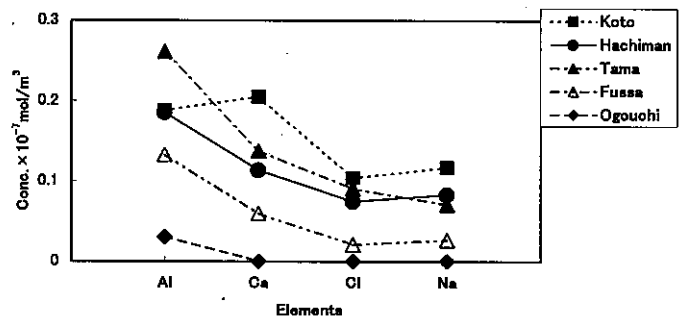


図11 粒子状物質(粒径 $>7\mu\text{m}$)の元素モル濃度(冬期)

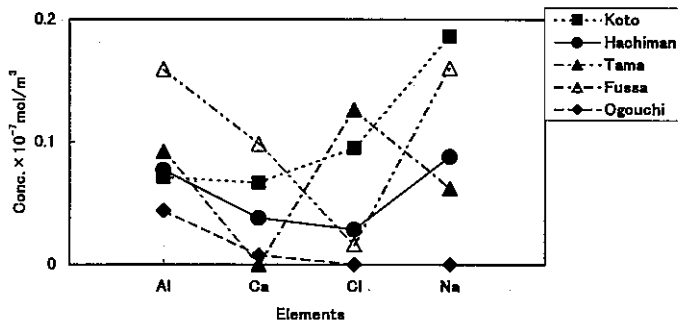


図12 粒子状物質($7\mu\text{m} \geq \text{粒径} > 2\mu\text{m}$)の元素モル濃度(夏期)

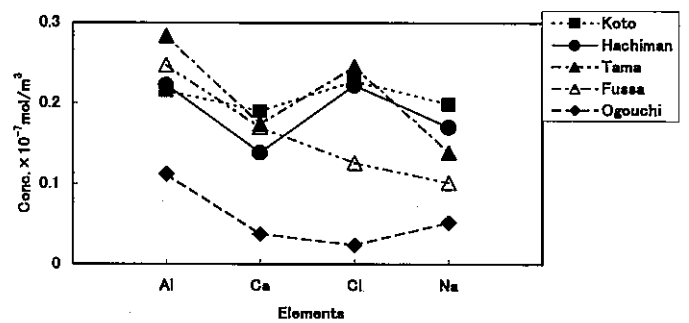


図13 粒子状物質($7\mu\text{m} \geq \text{粒径} > 2\mu\text{m}$)の元素モル濃度(冬期)

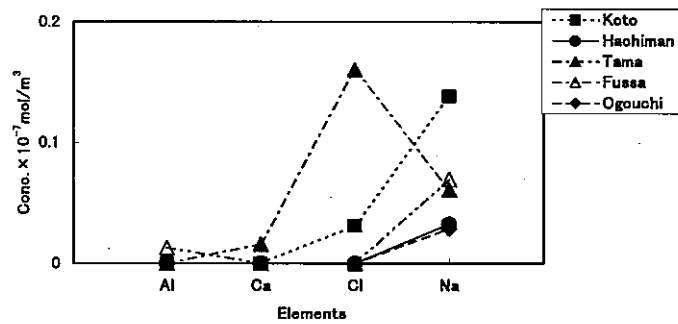


図14 粒子状物質($2\mu\text{m} \geq \text{粒径}$)の元素モル濃度(夏期)

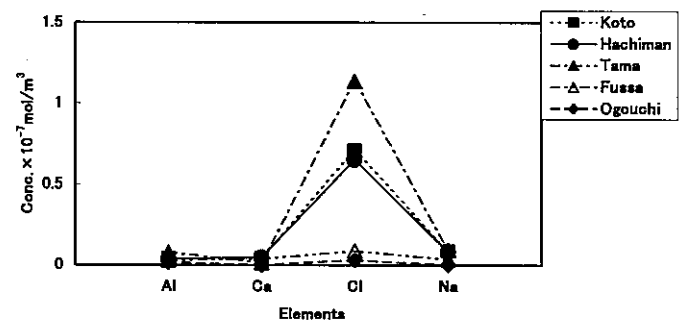


図15 粒子状物質($2\mu\text{m} \geq \text{粒径}$)の元素モル濃度(冬期)

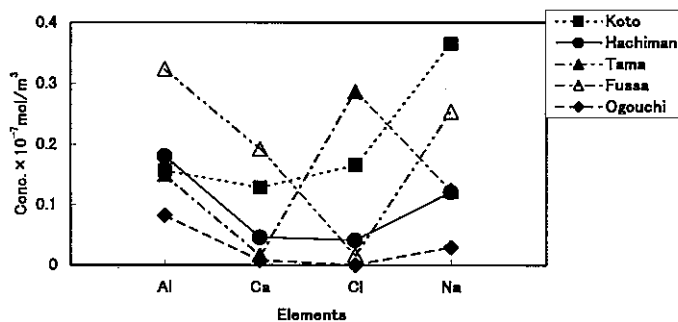


図16 粒子状物質(トータル)の元素モル濃度(夏期)

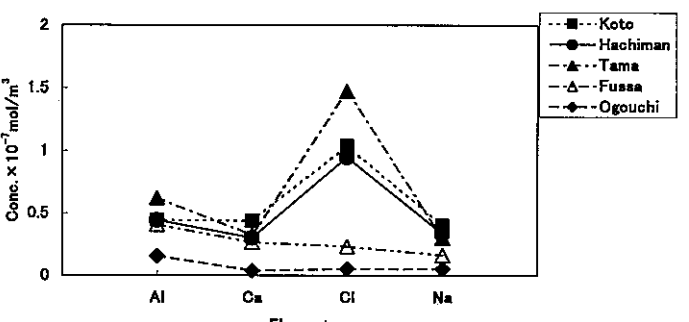


図17 粒子状物質(トータル)の元素モル濃度(冬期)

エ 粒径別季節別のAl, Ca, Cl, Na元素組成

Al, Ca, Cl, Naの4元素の各測定地点の夏期, 冬期の粒径別モル濃度分布を図10~17に示した。

図10~図11で粒径7 μ m以上のSPMは, 5地点共にAlのモル濃度が高く, Al>Ca>Cl>Naの順に少なくなる傾向を示した。

図12~図13で粒径2 μ m以上7 μ m以下のSPMでは, Na, Clのモル濃度が増加し, Uの字型または, ジグザグ型の元素組成を示した。

夏期の図14では, 粒径2 μ m以下のSPMの元素組成が, 多摩を除く4地点でAl<Ca<Cl<Naの順にモル濃度が増加する傾向を示したが, 多摩ではClの濃度が高かった。冬期の図15では, 江東, 八幡山, 多摩でClの濃度が特に高かった。

オ Al, Ca, Cl, Na元素組成の地点別特徴

夏期, 多摩を除く4地点では, 粒径2 μ m以上のSPM中のAl, Naの濃度が高く, Al, Naの発生源の負荷が考えられる。多摩では, 粒径2 μ m以下のSPMからClが検出された。

冬期は, 江東, 八幡山, 多摩のトータルの元素組成をみると, 粒径2 μ m以下のSPMのCl濃度が高く, Cl発生源の負荷が, 特に大きいことがわかった。福生, 小河内ではトータルの元素分布では, 粒径2 μ m以上のSPMの元素組成の負荷が大きく, また, Al, Naの発生源の負荷を

受けていると考えられる。

(2) 各地点における固定発生源及び自然界起源の負荷分析した元素組成をパターン認識法²⁾, クラスタ分析や因子分析等から発生源の負荷の割合を求めることが可能である⁹⁾⁹⁾。ここでは, 簡易的な手法であるパターン認識法を参考として, 各種発生源の指標元素組成(表1, 図18, 19)と環境の元素組成(図8, 9, 16, 17)をモル濃度で比較し, グラフのパターンとモル濃度の大きさから発生源の負荷の大小について考察を行った。

また, 現在の東京における発生源の元素組成は過去のデータとは若干異なるが, ほぼ同様であると考えて比較した。

生活環境におけるSPMの負荷は, 固定発生源の煙突から排出されるばいじんによるものと, 移動発生源(特に自動車)から直接排出されるものや巻き上げ及びタイヤの摩耗により発生したばいじんなどの間接的なものがある。ここでは, 測定した元素の特性から, 固定発生源(一般廃棄物焼却, 鉄鋼工業, 重油燃焼)と自然界起源(海塩粒子, 土壌)からの負荷を中心に考えた。

固定発生源のデータは, 過去に調査された結果¹⁰⁾¹¹⁾から求めた元素組成を図18及び図19とその他の発生源の元素組成を表1に示した。

環境におけるトータルのSPM元素組成のデータとして, 図8, 9, 16, 17のデータを用い, 発生源の元素組成と

表1 固定発生源及び自然界起源から排出される元素の一例¹⁾⁷⁾¹⁰⁾¹¹⁾¹³⁾

固定発生源	Br $\times 10^{-6}$ mol/g	V $\times 10^{-6}$ mol/g	Cu $\times 10^{-6}$ mol/g	Mn $\times 10^{-6}$ mol/g	Ti $\times 10^{-6}$ mol/g	Al $\times 10^{-3}$ mol/g	Ca $\times 10^{-3}$ mol/g	Cl $\times 10^{-3}$ mol/g	Na $\times 10^{-3}$ mol/g
土壌粒子	-	2.16	-	13.83	108.60	2.30	1.42	0.02	0.61
海塩粒子	11.26	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.30	15.54	13.23
重油燃焼	0.11	180.60	-	2.18	15.40	0.08	0.02	0.04	0.43
鉄鋼工業	1.75	2.55	362.00	400.45	173.00	0.37	1.12	7.62	0.61
一般廃棄物焼却	10.39	0.53	56.60	6.01	18.70	0.16	0.27	7.62	5.22

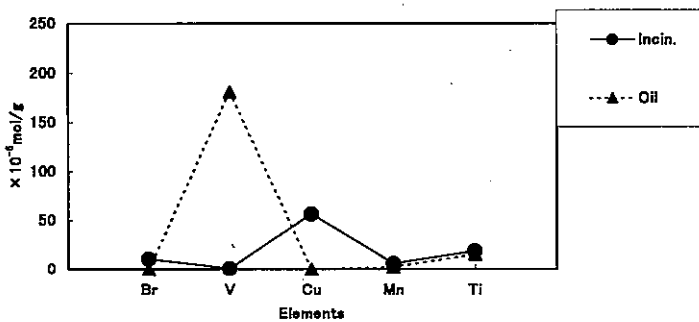


図18 発生源ばいじん(トータル)の微量元素モル濃度

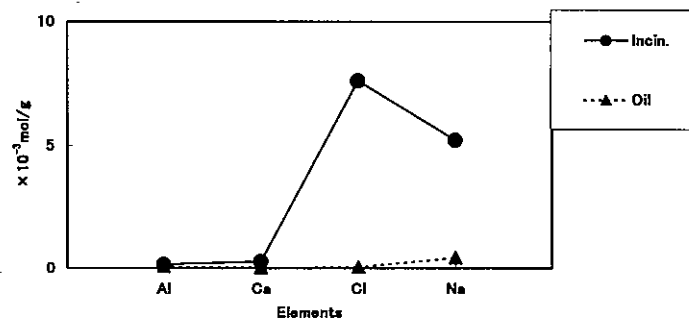


図19 発生源ばいじん(トータル)の元素モル濃度

して、表1のデータ及び図18,19を参考とし、前出の指標元素と発生源との関係から考察を行った。

ア 江東(都市部)の特徴

図8及び図9に示すとおりVが他の元素に比べて多く、図18に示した重油燃焼(Oil)の負荷がうかがえる。また、図16及び図17に示すように、土壌成分の指標であるAlが検出されたため土壌の負荷も認められた。図17に示すように、NaよりClが多く検出され、図19に示す一般廃棄物焼却(Incineration)でも同様の傾向が認められるので、一般廃棄物焼却の負荷も考えられる。それらの負荷の大きさは、図8,9,16,17の元素組成のモル濃度の大きさと一致するため、一般廃棄物焼却(Cl等) > 海塩粒子(Na) > 土壌(Al等) > 鉄鋼工業(Mn等) > 重油燃焼(V)の順と考えられる。

イ 八幡山(道路沿道)の特徴

図8及び図9に示すとおり、微量元素組成ではCu, Tiから複合的な負荷がみられる。図16及び図17では、江東より負荷は小さいが類似した発生源の負荷がみられる。それらの負荷の大きさは、一般廃棄物焼却 > 土壌(道路粉じんを含む) > 鉄鋼工業 > 重油燃焼の順と考えられる。

ウ 多摩(郊外)の特徴

多摩では、図16及び図17と図19との比較から一般廃棄物焼却の負荷がみられる。さらに、グラフから、それらの負荷の大きさは、一般廃棄物焼却 > 土壌 > 鉄鋼工業 > 重油燃焼の順と考えられる。

エ 福生(郊外)の特徴

福生では、夏期の図8及び図16から土壌成分の指標Al等が高いことから、土壌からの負荷が大きい。冬期では、図9及び図17の各元素の濃度が、江東、八幡山、多摩よりも低く、グラフの傾向は山間地の小河内に類似し、都市部からの汚染の負荷が小さいことがわかった。さらに、グラフから、それらの負荷の大きさは、土壌 > 一般廃棄物焼却 > 鉄鋼工業 = 重油燃焼の順と考えられる。

オ 小河内(山間地)の特徴

小河内では、SPM中の元素濃度が都市部、道路沿道や郊外に比べて低く、ほとんどが土壌関係からの負荷であることがわかる。重金属濃度は、区部と比較すると数分の1程度であり、この傾向は、十数年継続している¹²⁾。

4 まとめ

(1) 各地点の粒径別元素組成分布の特徴

江東では、粒径2 μm 以下のSPMで、Mnの濃度が高く、八幡山では、粒径2 μm 以上のSPMで、Cuの濃度が高かった。八幡山、多摩、福生では、夏期の粒径2 μm 以下のSPMからBrが検出され、トータルの元素組成では、粒径2 μm 以上のSPM元素組成の負荷が大きかった。小河内も、粒径2 μm 以上のSPM元素組成の負荷が大きかった。

また、夏期において多摩を除く4地点で、粒径2 μm 以上の粒子のAl, Naの濃度が高く、多摩では、夏期で粒径2 μm 以下のSPMからClが検出された。冬期は、江東、八幡山、多摩で、粒径2 μm 以下のSPMのCl濃度が、特に高いことがわかった。福生、小河内のトータルの元素組成では、粒径2 μm 以上のSPMの負荷が大きく、Al, Naの濃度が比較的高く、自然界の負荷が支配的であった。

(2) 各地域の発生源からの負荷

発生源の指標元素と環境の元素組成を比較する簡易的なパターン認識法を参考として、発生源の環境への負荷の大きさを求めた。

各地域のSPM汚染に対する発生源の負荷の大きさは、おおよそ下記のものであった。

区部の江東では、一般廃棄物焼却 > 海塩粒子 > 土壌 > 鉄鋼工業 > 重油燃焼の順であり、夏期、冬期の差はほとんどなかった。

道路沿道の八幡山では、ほとんど元素組成が江東と類似しており、一般廃棄物焼却 > 土壌(道路粉じんを含む) > 鉄鋼工業 > 重油燃焼の順であったが、江東より低い状況であった。

郊外の多摩では、一般廃棄物焼却 > 土壌 > 鉄鋼工業 > 重油燃焼の順であったが、冬期に比べて夏期の方が各元素ともやや低かった。

郊外の福生では、土壌・巻き上げ粉じん > 一般廃棄物焼却 > 鉄鋼工業 = 重油燃焼の順であったが、多摩よりも土壌の負荷が大きかった。

山間地の小河内は、ほとんどが土壌からの負荷であり、人為的な影響が低かった。

以上のとおり、おおよそではあるが、都内代表的地点における固定発生源(一般廃棄物焼却、重油燃焼、鉄鋼工業)及び自然界起源(土壌、海塩粒子)のSPMへの負荷の大きさを知ることができた。

今後は、各種発生源からのSPMの挙動をさらに詳細に

把握するため、各種発生源からの排出元素の把握と一般環境におけるメカニズムを明確にし、最新データをできる限り収集して、様々な発生源からのSPMへの負荷を広域的に把握していく研究を進めることが必要である。

12) 東京都環境科学研究所編：浮遊粒子状物質等データ集，平成8年3月(1996)。

13) 溝畑 朗：都市大気エアロゾル粒子の性状と発生源の同定に関する基礎的研究，昭和56年8月(1981)。

引用文献

- 1) 鎌滝裕輝ら：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，東京都環境科学研究所年報1995，p.18～26(1995)。
- 2) P.D.Gaarenstroom *et.al.*：Application of Pattern and Factor Analysis for Characterization of Atmospheric Particulate Composition in Southwest Desert Atmosphere, *Environ. Sci. Technol.*, 11,p.795～800(1977)。
- 3) 東京都編：東京都浮遊粒子状物質削減計画，p.3～13(平成8年4月)。
- 4) 鎌滝裕輝ら：道路沿道における浮遊粒子状物質の高濃度要因の解析，東京都環境科学研究所年報1992，p.54～61(1992)。
- 5) 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，p.3～6(1993)。
- 6) 鎌滝裕輝ら：大気浮遊粒子状物質と発生源ばいじん中の元素組成について，第38回大気環境学会年会講演要旨集，p.620(1997)。
- 7) 一都三県公害防止協議会編：平成7年度関東浮遊粒子状物質合同調査結果報告書，p.25～27，p.51～56，平成9年3月(1997)。
- 8) Eduardo de Miguel *et.al.*：Origin and Patterns of Distribution of Trace Elements in Street Dust：Unleaded Petrol and Urban Lead，*Atmos. Environ.*, 31，p.2733～2740(1997)。
- 9) Subrato Sinha and S. P. Banerjee：Characterization of Haul Road Dust in an Indian Opencast Iron Ore Mine，*Atmos. Environ.*，31，p.2809～2814(1997)。
- 10) 真室哲雄ら：都市廃棄物焼却炉より放出される浮遊粒子の元素組成，大気汚染学会誌，14，p.12～18(1979)。
- 11) 真室哲雄ら：ボイラより放出される浮遊粒子の元素組成，大気汚染学会誌，14，p.32～39(1979)。