

資料

広島県における浮遊粒子状物質の発生源別寄与率の推定

日浦 盛夫, 大原 俊彦, 大原 真由美, 瀬戸 信也, 榊 正司

Contributions of Sources to Suspended Particulate Matter in Hiroshima Prefecture

MORIO HIURA, TOSHIHIKO OOHARA, MAYUMI OOHARA, SINYA SETO and MASAJI SAKAKI

(Received Oct. 25, 2007)

広島県における浮遊粒子状物質 (SPM) の実態を把握するため, 県内5地点で実態調査を行い, 主要な元素・イオンの組成を明らかにした。また, 6種類の発生源 (土壌, 海塩, 重油燃焼, 鉄鋼工業, 廃棄物焼却, 自動車排ガス) と2次生成粒子の寄与率をケミカルマスバランス (CMB) 法を用いて推定した。幹線道路沿道におけるSPM濃度が後背地のそれより高濃度となる現象が見られたが, ケミカルマスバランス法による解析から, 自動車排ガス由来粒子の寄与分の差に相当することが定量的に説明できた。また, 黄砂時には土壌成分の寄与が非常に多くなった。近隣に固定発生源がない地域では, 自動車排ガス, 土壌, 及び2次生成粒子でSPMの80%以上が説明できることがわかった。

キーワード: 浮遊粒子状物質, ケミカルマスバランス, 発生源別寄与率, 2次生成粒子, 自動車排ガス

結 言

大気環境行政の大きな課題である浮遊粒子状物質 (以下「SPM」という。) の削減対策を効果的に実施するためには, その発生源別寄与率を正確に把握することが重要である。SPMの発生源別寄与率の解析にはリセプターモデルのひとつであるケミカルマスバランス法 (以下「CMB」という。) が広く用いられている[1]。しかし, 実際にCMB法を適用する場合, 環境中のSPM成分の調査方法をはじめ, 調査対象地域における代表的な発生源の抽出や計算に使用する指標成分の選択等について具体的に定められたものがないため, その都度地域実態を考慮しながら発生源や指標成分を選択しなければならない。これは煩雑であるばかりか, 使用する指標成分等のパラメーターが異なると計算結果に反映されるため, 調査地点間の結果を直接比較・検討するうえで支障が出る恐れがある。

本研究は広島県内全般で活用できる手法を確立する目的で, 環境試料の採取法, SPM成分の分析, 主要な発生源情報の収集, 及びCMB法による解析という一連の操作について, 実態調査と解析を実施し, 一定の成果を得たので報告する。

調 査 方 法

1 環境調査

環境調査は平成17年4月から平成18年3月まで, 福山

市の3地点 (福山市役所, 南小学校, 曙小学校) で, 毎月1週間にわたりSPMを採取し, 組成を調べた。

平成18年度は, 海田町海田高校及び東広島市河内入野でSPMを四季 (6月, 8月, 11月, 2月) にそれぞれ各1週間調査した。

なお, 試料採取は, 10 μ mカットのサイクロンを装着したローボリウムエアサンプラー (新宅製作所) を用いて, 石英繊維ろ紙に1週間連続採取したものを1検体とした。

2 発生源調査

土壌は, 福山市役所, 南小学校, 曙小学校の3地点における土壌を採取し, 孔径65 μ mメッシュのふるいを通したものをを用いて, 福山地域の土壌成分分析の試料とした。

自動車排ガスは広島熊野道路 (自動車専用道路) の熊野トンネル内で, 環境試料と同様ローボリウムサンプラーを用いて, 7日間のサンプリングを実施した。

3 分析方法

SPMの成分組成は次の方法により分析した。

金属類は圧力容器法[2]を用いて分解したのち, ICP発光分析法により, ナトリウム (Na), カリウム (K), マグネシウム (Mg), カルシウム (Ca), アルミニウム (Al), マンガン (Mn), 鉄 (Fe), 亜鉛 (Zn), バナジウム (V) について測定した。水溶性イオン成分は, 超音波抽出し, イオンクロマトグラフにより, アンモニウム

イオン (NH_4^+), 塩素イオン (Cl^-), 硝酸イオン (NO_3^-), 硫酸イオン (SO_4^{2-}) について測定した。炭素成分は元素分析装置 (柳本CHN分析計) により, 有機炭素 (OC: 500°Cまでに揮発する成分) と元素炭素 (EC: 総炭素からOCを引いた成分) の2種類として分析した[3]。

土壌及び自動車排ガス試料は, 環境試料と同様の方法で分析した。

4 ケミカルマスバランス (CMB) モデル

CMBモデルは, リセプターでの多くの化学成分濃度を知ることによって各発生源の寄与を同定できるものである。CMBモデルでは発生源粒子の化学成分濃度パターン (発生源プロファイル) が発生源毎に特徴的であることに着目し, 主要な発生源の排出粒子について, 化学成分濃度を正確に把握できたとき, 環境中で観測されるSPM化学成分濃度は, これらの発生源粒子の化学成分濃度パターンを各発生源からの排出粒子の寄与濃度で重ね合わせたものになる。測定された化学成分の数が発生源の数と同数以上であれば, 各発生源の寄与濃度を求めることができる。

5 発生源別寄与率の解析

CMB法による計算には, 米国で公表されているCMB8をExcel VBAに移植したプログラムCMB8J[4]を用いて計算した。計算は, 表6に示す6種類の発生源に関して, それぞれの発生源を特徴づける6種類の成分を選定して行った。土壌及び自動車排ガスは本調査で求めたものを使用し, その他の発生源については文献値を使用した。二次生成粒子については, SPMの [アンモニウムイオン+硝酸イオン+硫酸イオン] 濃度から各発生源の一次排出寄与濃度を差し引いたものとして算出した。また, 一次排出源と二次生成で説明のつかない部分については未説明分とした。

結果と考察

1 福山地域の調査結果

福山地域におけるSPM濃度及び主な元素とイオン類の分析結果を表1に示した。

SPM濃度は福山市役所における測定値がやや高く, 平均値で15%程度他の2地点を上回っていた。金属類, 水溶性イオン類の各成分は3地点とも同程度の濃度であり, また季節変動もよく似た挙動を示すなど, 調査地点間に明らかな違いは認められなかった。一方, 元素炭素濃度の場合, 図1に示すよう, 市役所は年間通して他の2地点より高濃度で推移している。元素炭素はディーゼル車などの自動車排ガスが主要な発生源であることから, 市役所の場合隣接する国道の影響を大きく受

けていると推測される。

SPM濃度の年間推移は, 3地点とも4月分が最も高濃度であった。これは採取期間中に黄砂が観測されており, その影響が考えられる。

SPM組成の年間平均値を使用して算出した発生源別寄与率を図2に示す。福山市役所では, 自動車排ガスの影響が37%で, 南小学校 (25%) や曙小学校 (23%) と比べて大きい寄与を示した。二次生成粒子も寄与率は大きい, 3地点とも同程度 (28~31%) である。ついで, 土壌, 鉄鋼工業, 廃棄物焼却, 重油燃焼, 海塩の順に寄与率は減少しており, この傾向は調査した3地点で同様であった。

算出した寄与率を使用して, 観測したSPM濃度における発生源別の寄与を濃度で表すことができる (表2)。自動車排ガスの場合, 沿道 (福山市役所: $13\mu\text{g}/\text{m}^3$) と一般環境 (南小学校: $7.7\mu\text{g}/\text{m}^3$, 曙小学校: $6.9\mu\text{g}/\text{m}^3$) の差は5~6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ となるが, これは観測された沿道と一般環境のSPM濃度の差とほぼ一致する。従って, 福山市役所におけるSPM濃度が後背地より高いことは, 自動車排ガス寄与の増加によるものであると定量的に説明できる。

SPMの濃度が最も高かった4月は, 金属類の組成についても他の月と異なることから, 単独で解析した。その結果を表3に示す。4月における自動車排ガスと二次生成粒子の寄与濃度は, 年間平均と同程度であった。一方, 土壌の寄与は3地点とも, 年間平均値に比べてかなり大きいことがわかった。黄砂の主成分は土壌であるから, 黄砂の影響により土壌寄与が上昇し, その分 (約 $15\mu\text{g}/\text{m}^3$) SPMが通常より高濃度になっていたものと推測される。

2 海田町, 東広島市の調査結果

この調査は, 福山地域で確立した手法を用いて, 異なる地域環境に適用し問題点の有無等を検討するために実施した。海田町海田高校は一般環境測定地点であるが国道2号線から約50mの距離にあり, 自動車排ガスの影響が大きい地点である。一方, 東広島市河内入野は周囲に工場等が少なく, SPM濃度は県内でもっとも低い地点のひとつである。

環境調査の結果は表4に示すように, 海田高校のSPM濃度とそのほとんどの成分濃度は, 河内入野より2割~4割程度高い値を示した。年平均値を用いて, CMB法で発生源別寄与率を算出した結果を図3に示す。また, 発生源別寄与を濃度に換算した値を表5に示す。福山地域と同様に, 自動車排ガスと二次生成粒子が大きな寄与を占めていることがわかる。SPM濃度が最も低い河内入野の場合でも, 二次生成粒子の寄与濃度は $8.1\mu\text{g}/\text{m}^3$ と, 海田高校 ($9.6\mu\text{g}/\text{m}^3$) や福山地域 ($8\sim 10\mu\text{g}/\text{m}^3$) と同

表1 福山市における浮遊粒子状物質と成分組成濃度

(福山市役所)

	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	1月	2月	3月	平均
SPM	53	31	36	37	30	30	24	22	25	38	45	45	35
Na	1.00	0.49	0.70	0.57	0.62	0.75	0.55	0.31	0.51	0.59	0.35	0.52	0.58
K	0.88	0.39	0.53	0.32	0.42	0.25	0.24	0.21	0.21	0.34	0.39	0.47	0.39
Mg	0.47	0.09	0.10	0.07	0.10	0.09	0.09	0.05	0.08	0.11	0.09	0.16	0.12
Ca	1.34	0.39	0.47	0.32	0.30	0.32	0.26	0.21	0.28	0.33	0.35	0.47	0.42
Al	1.88	0.33	0.30	0.21	0.35	0.13	0.15	0.14	0.16	0.22	0.21	0.48	0.38
Mn	0.05	0.03	0.03	0.02	0.02	0.02	0.02	0.01	0.02	0.03	0.03	0.03	0.03
Fe	1.95	0.79	0.91	0.60	0.54	0.63	0.54	0.37	0.27	0.48	0.86	0.69	0.72
Zn	0.17	0.11	0.13	0.10	0.07	0.09	0.10	0.12	0.08	0.16	0.29	0.16	0.13
V	0.0104	0.0053	0.0077	0.0077	0.0057	0.0065	0.0042	0.0024	0.0022	0.0037	0.0072	0.0064	0.0058
NH ₄ ⁺	1.66	2.17	3.41	3.70	3.24	1.67	0.88	1.03	1.61	3.07	3.47	4.33	2.52
Cl ⁻	0.31	0.02	0.02	0.01	0.01	0.04	0.09	0.19	0.51	1.23	1.05	0.20	0.31
NO ₃ ⁻	4.23	0.67	0.40	0.54	0.37	0.99	0.94	1.53	2.18	5.59	5.23	4.33	2.25
SO ₄ ²⁻	6.50	7.55	11.80	12.03	10.94	5.95	3.83	2.48	4.52	5.85	3.77	8.66	7.53
EC	8.7	6.5	7.7	7.9	6.8	6.9	6.9	5.3	6.8	9.6	8.9	8.5	7.5
OC	2.5	3.8	4.0	4.0	3.6	3.9	4.4	4.4	3.8	2.3	4.8	3.9	3.8

(南小学校)

	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	1月	2月	3月	平均
SPM	57	27	35	33	30	26	21	17	22	31	39	37	31
Na	2.15	0.30	0.52	0.41	0.56	0.45	0.67	0.29	0.49	0.50	0.36	0.28	0.58
K	0.82	0.32	0.46	0.26	0.75	0.20	0.29	0.22	0.29	0.34	0.37	0.41	0.39
Mg	0.44	0.07	0.09	0.06	0.12	0.06	0.11	0.03	0.05	0.09	0.07	0.12	0.11
Ca	1.30	0.35	0.54	0.20	0.26	0.30	0.43	0.20	0.34	0.33	0.33	0.39	0.41
Al	1.69	0.26	0.36	0.11	0.35	0.17	0.30	0.16	0.28	0.26	0.21	0.41	0.38
Mn	0.05	0.02	0.03	0.02	0.01	0.02	0.02	0.01	0.01	0.02	0.03	0.03	0.02
Fe	1.76	0.71	0.83	0.56	0.45	0.74	0.58	0.23	0.27	0.41	0.80	0.66	0.67
Zn	0.14	0.10	0.09	0.10	0.06	0.10	0.09	0.11	0.07	0.14	0.27	0.14	0.12
V	0.0094	0.0049	0.0067	0.0072	0.0054	0.0063	0.0043	0.0022	0.0019	0.0037	0.0073	0.0062	0.0055
NH ₄ ⁺	1.57	1.98	3.04	3.84	3.18	1.63	0.91	1.03	1.39	2.70	3.22	4.49	2.41
Cl ⁻	0.29	0.06	0.01	0.02	0.02	0.03	0.04	0.15	0.38	0.84	0.86	0.16	0.24
NO ₃ ⁻	3.68	0.68	0.43	0.54	0.29	0.91	0.74	1.47	1.92	5.26	5.10	4.38	2.12
SO ₄ ²⁻	7.55	6.21	9.34	10.76	10.19	5.59	4.04	2.45	4.19	5.48	4.07	9.60	6.62
EC	5.3	4.4	5.3	4.6	3.7	3.8	4.1	3.9	3.4	6.4	6.0	5.5	4.7
OC	3.8	3.2	3.1	3.5	2.8	3.0	3.6	3.6	3.4	3.4	4.5	3.8	3.5

(曙小学校)

	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	1月	2月	3月	平均
SPM	47	27	34	31	31	26	21	19	19	31	36	35	30
Na	0.70	0.40	0.49	0.38	0.61	0.78	0.53	0.24	0.48	0.61	0.44	0.32	0.50
K	0.62	0.33	0.40	0.23	0.33	0.27	0.24	0.23	0.29	0.42	0.38	0.37	0.34
Mg	0.34	0.06	0.08	0.05	0.12	0.13	0.11	0.06	0.08	0.13	0.10	0.10	0.11
Ca	0.97	0.31	0.38	0.18	0.37	0.47	0.30	0.19	0.36	0.50	0.45	0.36	0.40
Al	1.30	0.18	0.21	0.07	0.26	0.22	0.16	0.13	0.29	0.39	0.34	0.35	0.32
Mn	0.04	0.02	0.03	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02	0.01	0.03	0.04	0.03	0.02
Fe	1.41	0.61	0.89	0.52	0.56	0.99	0.63	0.33	0.24	0.60	0.89	0.57	0.69
Zn	0.12	0.09	0.09	0.09	0.06	0.10	0.07	0.09	0.08	0.14	0.22	0.12	0.11
V	0.0088	0.0055	0.0088	0.0079	0.0061	0.0079	0.0048	0.0026	0.0020	0.0043	0.0075	0.0063	0.0060
NH ₄ ⁺	1.47	2.12	3.07	3.47	3.15	1.32	0.87	1.14	1.52	2.18	2.75	3.25	2.19
Cl ⁻	0.21	0.05	0.17	0.01	0.01	0.01	0.01	0.09	0.23	0.52	0.47	0.10	0.16
NO ₃ ⁻	2.13	0.73	0.04	0.11	0.13	0.47	0.67	1.32	2.08	4.35	4.34	2.81	1.60
SO ₄ ²⁻	4.91	8.28	9.56	7.91	7.66	3.88	3.76	2.94	4.66	4.69	3.83	6.81	5.74
EC	4.9	4.1	4.7	3.7	3.7	3.5	4.1	4.3	3.6	5.5	5.3	4.8	4.3
OC	3.3	3.3	3.7	3.1	3.9	3.7	3.9	3.1	2.5	3.6	4.7	3.0	3.5

注 EC: 元素状炭素 OC: 有機炭素

(単位: μg/m³)

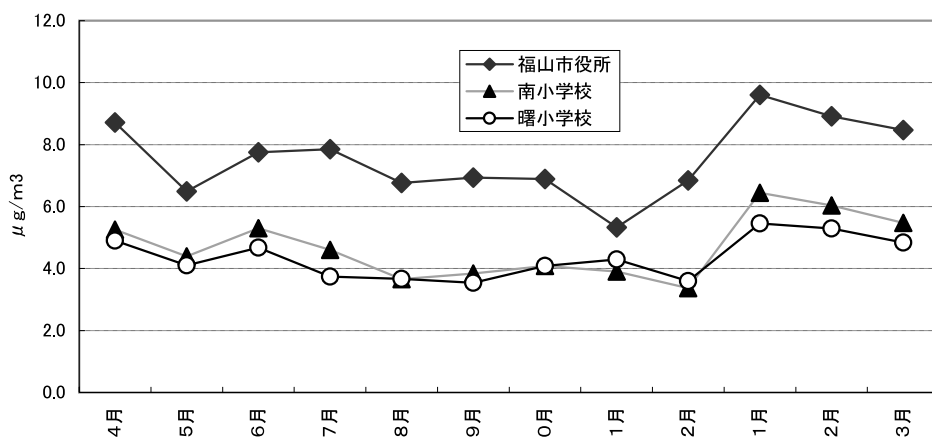


図1 福山地域におけるSPM中の元素状炭素濃度

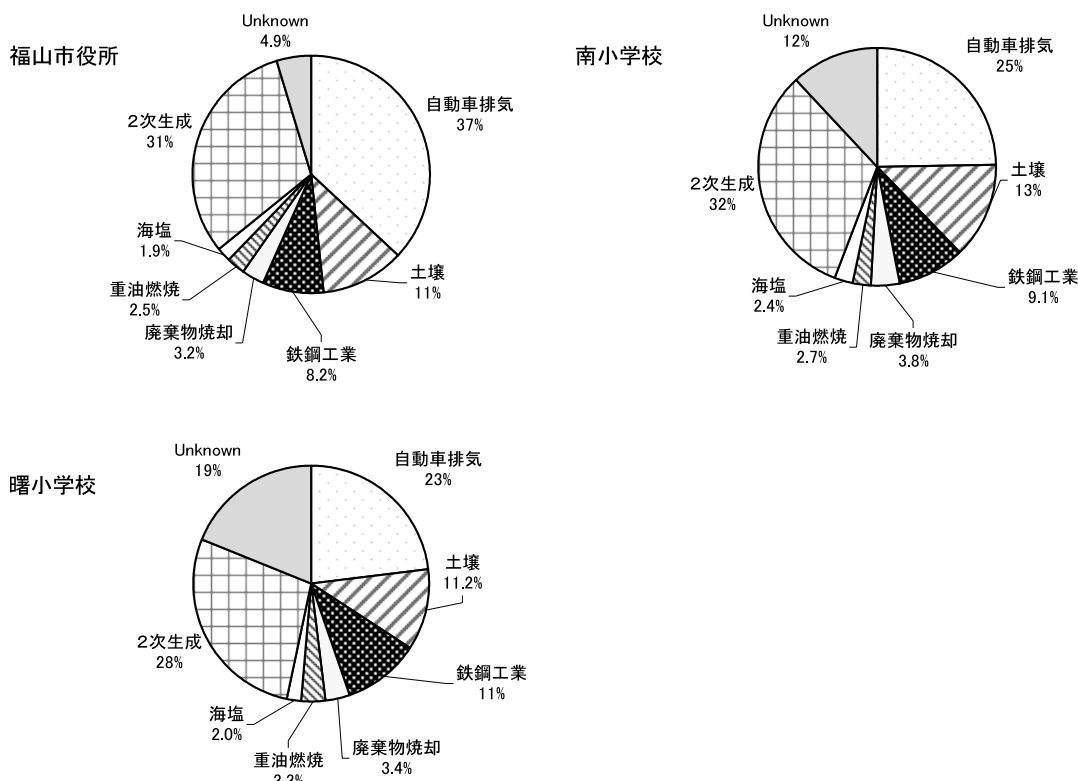


図2 福山市地域における発生源別寄与率

表2 福山地域のSPM濃度に対する発生源別寄与濃度

	市役所	南小学校	曙小学校
SPM濃度 (年平均値)	35	31	30
自動車排気	13	7.7	6.9
土壌	4.0	4.0	3.4
鉄鋼工業	2.9	2.8	3.2
重油燃焼	1.1	1.2	1.0
海塩	0.9	0.8	1.0
廃棄物焼却	0.7	0.8	0.6
二次生成	11	10	8.3
Unknown	1.7	3.7	5.7

(単位: $\mu\text{g}/\text{m}^3$)

表3 4月におけるSPM濃度と発生源別寄与 (福山地域)

	市役所	南小学校	曙小学校
SPM濃度	53	57	47
自動車排気	14 (27%)	8.1 (14%)	7.6 (16%)
土壌	22 (40%)	20 (34%)	15 (31%)
二次生成	10 (19%)	11 (19%)	7.0 (15%)
その他	7.0 (13%)	18 (32%)	18 (38%)

注 () 内は寄与率

(単位: $\mu\text{g}/\text{m}^3$)

表4 海田町と東広島市の浮遊粒子状物質と成分組成濃度 (海田町海田高校)

	春 6月	夏 8月	秋 11月	冬 2月	平均
SPM	60	18	17	25	30
Na	0.45	0.34	0.77	0.43	0.50
K	0.61	0.11	0.19	0.24	0.29
Mg	0.17	0.08	0.07	0.12	0.11
Ca	0.48	0.07	0.26	0.23	0.26
Al	0.59	0.05	0.44	0.30	0.36
Fe	1.08	0.33	0.28	0.73	0.61
Mn	0.05	0.02	0.01	0.06	0.04
Zn	0.19	0.05	0.09	0.21	0.14
V	0.006	0.001	0.000	0.001	0.002
NH ₄ ⁺	5.20	1.10	1.20	1.50	2.25
Cl ⁻	0.09	0.01	0.12	0.13	0.09
NO ₃ ⁻	0.77	0.19	1.80	2.00	1.19
SO ₄ ²⁻	16.0	5.50	4.30	5.30	7.78
EC	10.3	4.77	3.67	5.32	6.01
OC	4.53	2.43	2.94	3.37	3.32

(東広島市河内入野)

	春 6月	夏 8月	秋 11月	冬 2月	平均
SPM	45	15	10	15	22
Na	0.11	0.36	0.62	0.26	0.34
K	0.38	0.14	0.13	0.17	0.20
Mg	0.07	0.08	0.06	0.07	0.07
Ca	0.13	0.04	0.03	0.09	0.07
Al	0.23	0.05	0.14	0.20	0.16
Fe	0.49	0.28	0.11	0.26	0.29
Mn	0.02	0.01	0	0.01	0.01
Zn	0.08	0.04	0.03	0.04	0.05
V	0.002	0.001	0.000	0.000	0.001
NH ₄ ⁺	4.30	1.10	0.90	1.20	1.88
Cl ⁻	0	0	0.12	0	0.12
NO ₃ ⁻	0.27	0.09	0.87	0.77	0.50
SO ₄ ²⁻	12.0	5.70	3.40	3.90	6.25
EC	7.68	3.25	2.68	3.94	4.39
OC	5.50	3.08	2.45	2.79	3.45

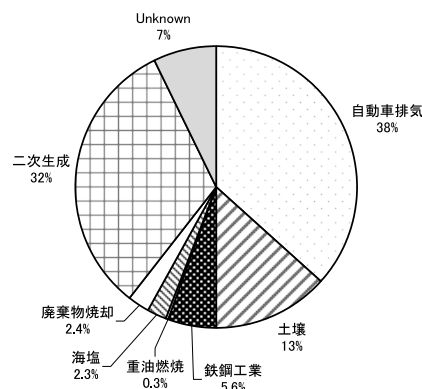
注 EC: 元素炭素 OC: 有機炭素 (単位: $\mu\text{g}/\text{m}^3$)

表5 海田町と東広島市のSPM濃度に対する発生源別の寄与

		海田高校	河内入野
SPM濃度 (平均値)		30	22
発生源別内訳	自動車排気	11	8.0
	土壌	4.0	1.7
	鉄鋼工業	1.7	0.3
	重油燃焼	0.1	0.0
	海塩	0.7	0.5
	廃棄物焼却	0.7	0.7
	二次生成	9.6	8.1
	Unknown	2.1	2.2

(単位: $\mu\text{g}/\text{m}^3$)

海田町海田高校



東広島市河内入野

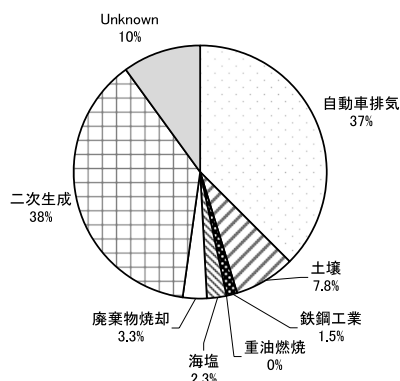


図3 海田町及び東広島市における発生源別寄与率

表6 発生源データ

	土壌 ¹⁾	海塩 ²⁾	自動車排気 ³⁾	重油燃焼 ^{4, 5)}	鉄鋼 ⁴⁾	廃棄物焼却 ^{4, 5)}
Al	82.500	0.0003	1.470	2.100	9.990	4.200
EC	9.430		536.000	500.000	5.000	50.000
Fe	34.800	0.0003	9.210	4.600	157.000	6.100
V	0.049	0.006	0.018	4.600	0.125	0.027
Na	29.400	304.000	5.860	10.000	13.600	120.000
K	23.800	11.000	1.880	0.850	13.200	200.000
NH ₄ ⁺	0.046	—	8.440	12.100	—	13.500
NO ₃ ⁻	1.786	—	17.200	—	—	—
SO ₄ ²⁻	0.212	78.000	26.600	268.000	144.000	88.900

注1) 福山市内における実測値 2) 文献5 3) 広島熊野道路における実測値 4) 文献6 (単位: $\mu\text{g}/\text{mg}$)
 5) 水溶性イオン類については, 保健環境センター資料 (1993, 浮遊粒子状物質発生源推定調査結果報告書) による

程度の濃度レベルであり、二次生成粒子の広域性が示唆される。

付近に工場等がほとんどない河内入野では、鉄鋼工業や重油燃焼等の固定発生源の寄与濃度は、 $1.0\mu\text{g}/\text{m}^3$ 程度と算出されており、実態を反映する結果が得られた。

ま と め

浮遊粒子状物質に対する移動発生源の寄与率を精度良く求める一連の手法について検討し、その成果を用いて実態調査並びにCMB法による寄与率推定をおこなった。

福山地域の調査で、幹線道路沿道とその後背地の調査からSPM濃度の違いを、移動発生源の寄与率の差から説明することができた。SPM濃度に及ぼす黄砂の影響について、土壌由来粒子として、定量的に算定することができた。さらに、観測されたSPM濃度の9割が主要な6種類の発生源及び2次生成粒子推定量により説明できることがわかった。

また、海田町と東広島市河内入野を対象として、福山調査で確立した調査手法や発生源・指標成分にかかるパラメーターを用いて発生源別寄与率を算出したところ、

自動車交通量や固定発生源の現状を反映した結果が得られた。このことから、本研究で確立したSPMの発生源別寄与率の推定手法は広島県全域に適用することが可能と考えられる。

文 献

- [1] 環境庁大気保全局大気規制課監修：浮遊粒子状物質汚染予測マニュアル，浮遊粒子状物質対策検討会，pp. 267-284，東洋館出版社。
- [2] 環境庁大気保全局大気規制課監修：有害大気汚染物質測定の実際，有害大気汚染物質測定の実際編集委員会編，pp. 286-290 (2000)。
- [3] 後田俊直，広島県保健環境センター研究報告，No12，pp. 53-58 (2004)。
- [4] 早狩進・花石竜治：環境データ解析用表計算マクロの紹介と解析例（Ⅱ）—CMB法解析マクロ—，大気環境学会誌，39-45 (2001)。
- [5] 化学大辞典，共立出版，1960，vol 2
- [6] 環境省環境管理局，2001，粒子状物質総量削減計画に係る粒子状物質実態調査報告書