

ノート

## 浮遊粒子状物質の大気汚染について(3) 発生源(ディーゼル自動車)寄与について

塚田 進, 西山 亨, 小山 善丸

### Current Condition of Air Pollution By Suspended Particulate Matter (SPM) ( ) - Evaluation of Source Contribution from Diesel Vehicles -

Susumu TSUKADA, Tooru NISHIYAMA, and Yoshimaru KOYAMA

粒子状物質の発生源寄与率を推定するため、ケミカルマスバランス法 (Chemical Mass Balance Method) という解析手法を用いてディーゼル自動車による寄与率を2つの異なる発生源データを使用して推定した結果、浮遊粒子状物質 (SPM) では、それぞれ幹線道路近傍で平均 17.5%と 29.0%、一般住宅地で平均 12.6%と 22.3%、バックグラウンドで平均 7.5%と 11.9%であった。また、微小粒子 (PM2.5) では、それぞれ幹線道路近傍で平均 36.4%と 36.1%、一般住宅地で平均 22.6%と 27.4%、バックグラウンドで平均 12.7%と 16.9%であった。

使用する発生源データによって推定結果が大きく変動することから、今後はデータの精度向上がいつそう望まれる。

キーワード：発生源寄与、ケミカルマスバランス法、幹線道路近傍、微小粒子 (PM2.5)

#### はじめに

前々報<sup>1)</sup>では、自動車 NO<sub>x</sub>・PM 法の対象地域である県北部地域において、汚染の程度が異なる3つの地点 (幹線道路近傍、一般住宅地、バックグラウンド) で浮遊粒子状物質 (SPM) (粒径 10μm以下) のうち粒径の小さい微小粒子 (PM2.5) (粒径 2.5μm以下) の濃度について報告した。

また、前報<sup>2)</sup>では、同地点における浮遊粒子状物質 (SPM) や微小粒子 (PM2.5) 中の炭素成分、金属成分、イオン成分等の含有成分について報告した。

今回は、浮遊粒子状物質 (SPM) と微小粒子 (PM2.5) のそれぞれの濃度に影響を与える発生源の寄与度 (発生源寄与率) について試算した結果を報告する。

#### 調査方法

##### 1. 調査地点

前報と同様に、表1に示すとおり汚染の程度が異なる3地点 (幹線道路近傍、一般住宅地、バックグラウンド) で調査を行った。

##### 2. 発生源寄与率の推定

粒子状物質の発生源寄与率を推定する方法として、ケミカルマスバランス法 (Chemical Mass Balance Method: 以下「CMB法」という。) という解析手法が用いられている<sup>3-5)</sup>。

CMB法は、各種発生源から排出される粒子状物質の含有成分組成 (発生源データ) と大気中の粒子状物質濃度及びその含有成分から発生源寄与濃度・寄与率を推定する方法で、今回は早狩ら<sup>6)</sup>が開発したCMB8Jソフトを用いて解析を実施した。

また、発生源寄与率を簡易に推定する方法として、元素状炭素 (EC) の測定結果から寄与率を推定する方法についても実施した<sup>7)</sup>。

なお、CMB法では使用する種々のデータ (発生源データや推計に利用した粒子中の含有成分項目及び2次生成粒子の推計方法) により報告されている。今回は、ディーゼル排気微粒子低減対策総合調査 (1998年度環境庁報告)<sup>8)</sup> (以下「A法」という。) と山神ら (名古屋市環境科学研究所報)<sup>9)</sup> (以下「B法」という。) の発生源データ及び解析手法を用いた。

表2に推計に使用した発生源データを、表3に生成粒子の推計方法を示した。推計に利用した粒子中の含有成分項目及び2次

表1 調査地点

地 点	備 考
1 幹線道路近傍	自動車排出ガス測定局（国道23号線沿い）
2 一般住居地	一般環境大気汚染常時監視局
3 バックグラウンド	保健環境研究所屋上

表2 CMB法に利用した発生源データ

単位：%

発生源データ1							
成分	道路堆積物 実測値	海塩粒子 実測値	鉄鋼業 実測値	石油燃焼 実測値	廃棄物焼却 実測値	自動車 実測値	タイヤ&ブレーキ 実測値
Na	1.04	30.4	1.36	1	12	0.1	0.92
Al	5.25	0.000029	0.999	0.21	0.42	0.24	4.9
K	1.02	1.1	1.32	0.085	20	0.09	0.806
Ca	5.45	1.17	4.51	0.085	1.1	0.2	1.2
Br	0.00089	0.19	0.0144	0.00085	0.083	0.0038	0.017
Sc	0.00125	0.0000001	0.000132	0.000009	0.000046	0.000036	0.00023
Ti	0.45	0.0000029	0.1	0.074	0.09	0.019	0.3
V	0.012	0.0000058	0.0125	0.46	0.0027	0.00096	0.011
Cr	0.04	0.0000002	0.316	0.021	0.085	0.0012	0.034
Mn	0.115	0.0000058	2.2	0.012	0.033	0.0044	0.141
Fe	5.77	0.000029	15.7	0.46	0.61	0.11	7.66
Co	0.002	0.0000015	0.0044	0.0031	0.0021	0.00007	0.002
Ni	0.0084	0.0000015	0.29	0.49			0.026
Cu	0.184	0.0000017	0.37	0.0001	0.36		0.87
Zn	0.21	0.0000029	5.15	0.04	2.6	0.047	0.3
As	0.00092	0.0000029	0.0103	0.0023	0.015	0.00028	0.01
Se	0.0002	0.000012	0.00511	0.0048		0.002	
Rb	0.0037	0.00035	0.00768	0.0002	0.026	0.00019	0.0034
Ag	0.00016	0.0000087	0.00542		0.015		0.0042
Cd	0.00045	0.0000002	0.0252	0.024	0.05		0.0084
Sb	0.0031	0.0000014	0.009	0.00069	0.061	0.00047	0.42
Ba	0.053	0.000086	0.05	0.1	0.039	0.002	1.88
La	0.0021	0.0000009	0.000975	0.004	0.00077	0.00011	0.00075
Ce	0.0054	0.0000012	0.00687	0.07	0.017	0.00021	0.0024
Sm	0.00028	0.0000001	0.0000212	0.00076	0.000046	0.000013	0.000043
Pb		0.0000001	1.44	0.033	1.7		
Th	0.00051	0.000002	0.00004	0.000038	0.00005	0.000011	0.00025
EC	4.78	0.0000028	0.5	75	0.5	76.6	51.7
OC	8.26					10.7	8.7
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	0.016					0.77	3.4
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	0.018					0.78	0.48
Cl <sup>-</sup>	0.061	55.1	3.41	0.092	27		1.73
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	0.097	0.0097					
発生源データ2							
成分	道路堆積土壌	海塩粒子	石油燃焼	鉄鋼工業	都市ごみ焼却	廃棄物焼却	ディーゼル車
EC	3.36		22.77	0.5	1.64	4.355	65
OC	5.12		2.72		1.49	9.83	20
K	1.4	1.1	0.023	1.32	2.83	16.885	0.43
Na	1.19	30.42	1.65	1.36	3.32	11.967	
Fe	6.1	0.000029	2.23	15.7	0.397	1.186	
Zn	0.203	0.0000029	0.07	5.15	0.735	3.024	0.56
Al	4.72	0.00003	0.129	0.999	1.67	0.786	
Ca	4.33	1.2	0.079	4.51	29.3	3.459	
Mn	0.157	0.0000053	0.008	2.2	0.0355	0.016	0.023
V	0.083	0.0000058	0.538	0.0125	0.0016	0.0001	0.01

出典：1・・・ディーゼル排気微粒子低減対策総合調査(1998年度環境庁)

2・・・名古屋市内における大気中PM2.5調査結果、名古屋市環境科学研究所報(2003)

表3 発生源寄与率推計に利用した粒子中含有成分及び  
2次生成粒子推計法

	推計に利用した粒子中の含有成分				2次生成粒子推計法
A法	Na	Cr	As	La	OC、SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> 、NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> 、Cl <sup>-</sup> 、NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> の実測値から一次粒子と想定される分を差し引いた値
	Al	Mn	Se	Ce	
	K	Fe	Rb	Sm	
	Ca	Co	Ag	Pb	
	Sc	Ni	Cd	Th	
	Ti	Cu	Sb		
	V	Zn	Ba		
B法	EC	Na	Al	V	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> 、NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> 、Cl <sup>-</sup> 、NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> の合計量
	OC	Fe	Ca		
	K	Zn	Mn		

## 結 果

### 1. A法による発生源寄与率の推定結果

#### 1) 浮遊粒子状物質の発生源寄与率

図1に、幹線道路近傍における浮遊粒子状物質（SPM）の発生源寄与率の代表例を、表4にディーゼル自動車による浮遊粒子状物質への地点別平均寄与率を示した。なお、図1中に示した数値は寄与率（単位：％）を、表題の後に記したカッコ内の数値は、採取期間（年月日）を示す。

（050128は2005年1月28日を表す。以下、同じ）  
表4から、ディーゼル自動車排ガスによる浮遊粒子状物質の平均寄与率は、幹線道路近傍で17.5%、一般住宅地で12.5%、バックグラウンドで7.5%であった。

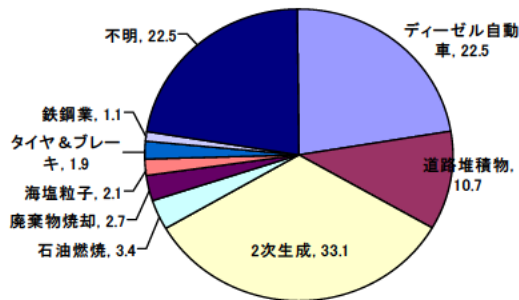


図1 線道路近傍のSPM寄与率 (050128-050214)

表4 A法によるディーゼル自動車排ガスによる  
浮遊粒子状物質（SPM）への平均寄与率

地点	平均寄与率 (%)	測定回数
幹線道路近傍	17.5 (9.6~22.5)	6
一般住宅地	12.6 (8.9~16.3)	2
バックグラウンド	7.5 (6.1~9.5)	3

2) 微小粒子 (PM2.5) の発生源寄与率

図 2-1～図 2-4 に、幹線道路近傍における微小粒子 (PM2.5) の四季別発生源寄与率を、表 5 にディーゼル自動車による微小粒子 (PM2.5) への地点別寄与率を示した。

表 5 から、ディーゼル自動車排ガスによる微小粒子への平均寄与率は、幹線道路近傍で 36.4%、一般住宅地で 22.6%、バックグラウンドで 12.7%であった。

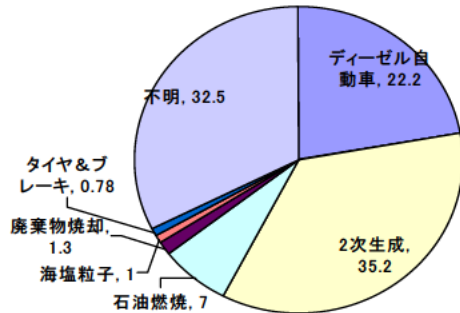


図 2-1 幹線道路近傍の PM2.5 寄与率 (050509-050523)

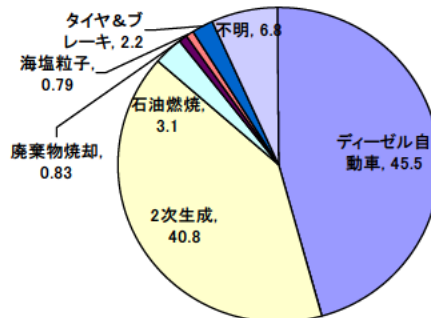


図 2-2 幹線道路近傍の PM2.5 寄与率 (050802-050815)

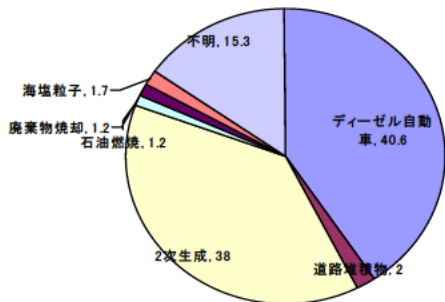


図 2-3 幹線道路近傍の PM2.5 寄与率 (051114-051204)

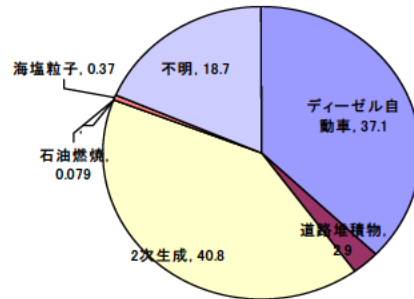


図 2-4 幹線道路近傍の PM2.5 寄与率 (051209-051222)

表 5 A法によるディーゼル自動車排ガスによる微小粒子 (PM2.5) への平均寄与率

地点	平均寄与率 (%)	測定回数
幹線道路近傍	36.4 (22.2～45.5)	4
一般住宅地	22.6 (13.6～30.4)	4
バックグラウンド	12.7 (7.8～22.1)	4

2. B法による発生源寄与率の推定結果

1) 浮遊粒子状物質の発生源寄与率

図 3 に、幹線道路近傍における浮遊粒子状物質 (SPM) の発生源寄与率の代表例を、表 6 にディーゼル自動車による浮遊粒子状物質への地点別平均寄与率を示した。

表 6 から、ディーゼル自動車による浮遊粒子状物質への平均寄与率は、幹線道路近傍で 29.0%、一般住宅地 22.3%、バックグラウンドで 11.9%であった。

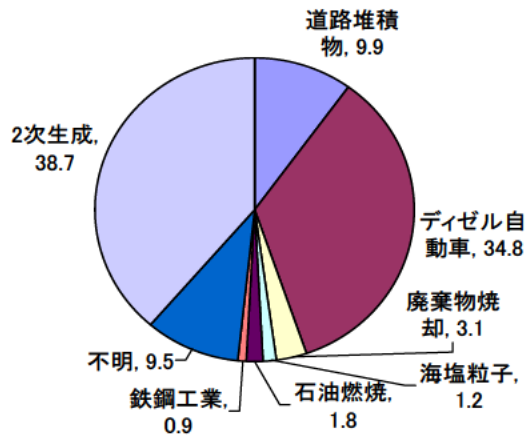


図3 幹線道路近傍のSPM寄与率 (050303-050314)

表6 B法によるディーゼル自動車排ガスによる浮遊粒子状物質 (SPM) への平均寄与率

地点	平均寄与率 (%)	測定回数
幹線道路近傍	29.0 (12.9~40.8)	6
一般住宅地	22.3 (17.9~26.8)	2
バックグラウンド	11.9 (7.7~15.3)	3

2) 微小粒子 (PM2.5) の発生源寄与率

図4-1~図4-4に、幹線道路近傍における微小粒子 (PM2.5) の四季別発生源寄与率を、表7にディーゼル自動車による微小粒子 (PM2.5) への地点別寄与率を示した。

表7より、ディーゼル自動車は排ガスによる微小粒子への平均寄与率は、幹線道路近傍で36.1%、一般住宅地で27.4%、バックグラウンドで16.9%であった。

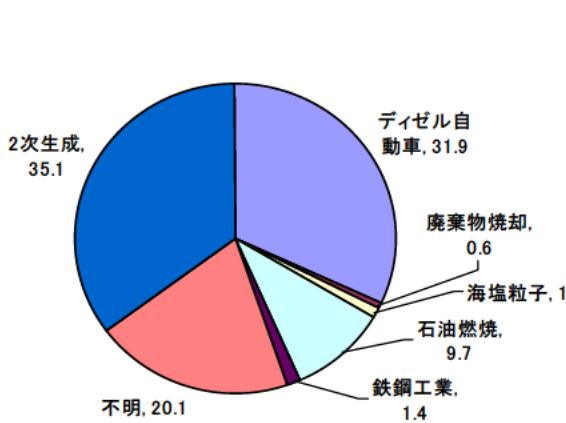


図4-1 幹線道路近傍のPM2.5寄与率 (050509-050523)

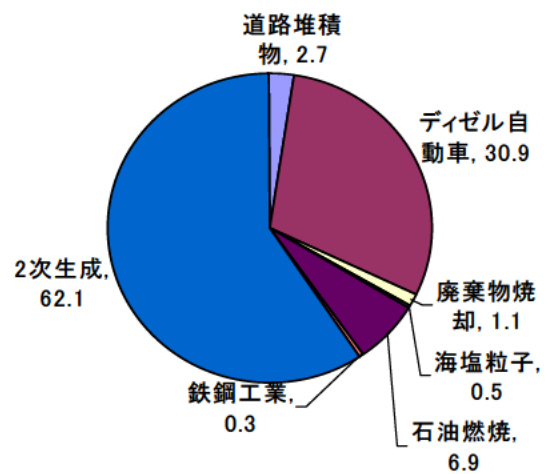


図4-2 幹線道路近傍のPM2.5寄与率 (050802-050815)

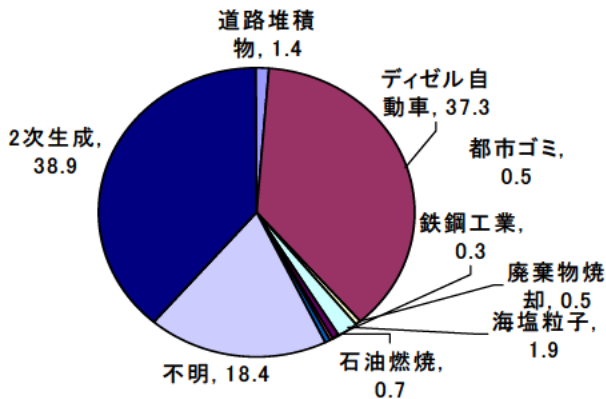


図 4-3 幹線道路近傍のPM2.5 寄与率 (051124-051204)

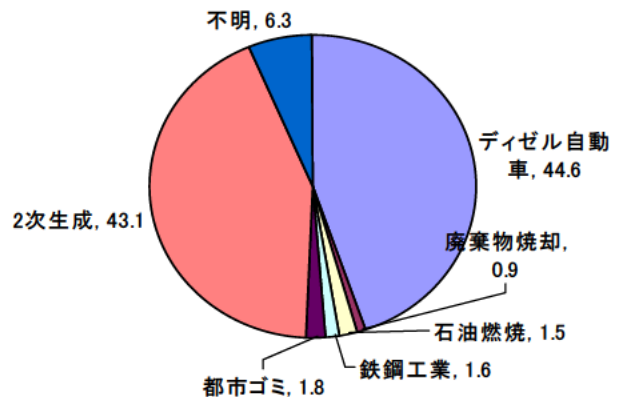


図 4-4 幹線道路近傍のPM2.5 寄与率 (051209-051222)

表 7 B法によるディーゼル自動車排ガスによる微小粒子(PM2.5)への平均寄与率

地点	平均寄与率 (%)	測定回数
幹線道路近傍	36.1 (30.9~44.6)	4
一般住宅地	27.4 (7.9~41.1)	4
バックグラウンド	16.9 (7.6~33.1)	4

### 3. 元素状炭素 (EC) 濃度からの寄与率の推定

元素状炭素 (EC) を指標元素としてディーゼル自動車による粒子状物質への寄与率を推定したものを図 5 に示した。

この場合、EC の排出源は、大部分がディーゼル自動車によるもの (ディーゼル車排出ガス中の EC 含有率 (68%<sup>10)</sup>) と仮定しているた

め、推定されたディーゼル自動車による粒子状物質への寄与率は最大に見積もった値となる。

なお、データは微小粒子 (PM2.5 (FRM 採取装置による。)) の値を使用した。

図 5 より、幹線道路近傍におけるディーゼル自動車による平均寄与率は、44.5%であった。

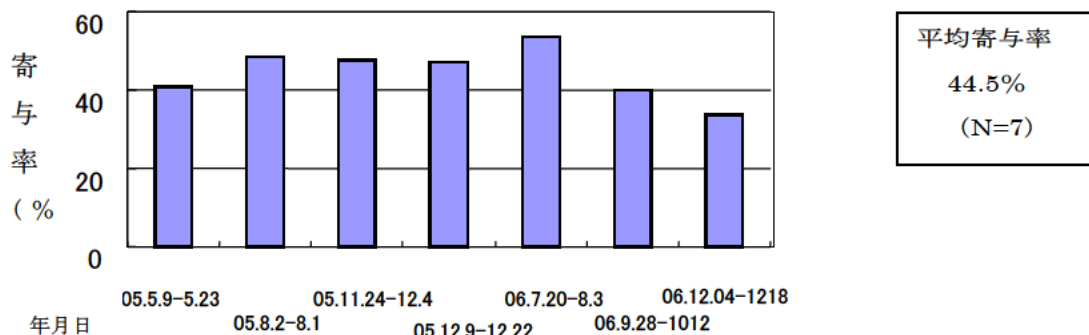


図 5 幹線道路近傍におけるディーゼル自動車による微小粒子 (PM2.5) への寄与率

## まとめと考察

自動車 NO<sub>x</sub>・PM 法の規制対象地域である県北勢地域において、ディーゼル自動車から排出される粒子状物質が環境大気中の浮遊粒子状物質 (SPM) と微小粒子 (PM<sub>2.5</sub>) の濃度への影響 (発生源寄与率) を試算した結果、次のとおりであった。

1) 発生源寄与率の推定を CMB 法により実施したところ、ディーゼル自動車による浮遊粒子状物質 (SPM) への寄与率は、幹線道路近傍で A 法では平均 17.5%、B 法では平均 29.0% であった。また、一般住宅地で A 法では平均 12.6%、B 法では平均 22.3% であり、バックグラウンドで A 法では平均 7.5%、B 法では平均 11.9% であった。浮遊粒子状物質 (SPM) への寄与率の推定では、A 法と B 法で大きな差異がみられた。

2) ディーゼル自動車による微小粒子 (PM<sub>2.5</sub>) への寄与率は、幹線道路近傍で A 法では平均 36.4%、B 法では平均 36.1% であった。

また、一般住宅地で A 法では平均 22.6%、B 法では平均 27.4% であり、バックグラウンドで A 法では平均 12.7%、B 法では平均 16.9% であった。微小粒子 (PM<sub>2.5</sub>) への寄与率の推定では、A 法と B 法で比較的良好な結果が得られた。

3) 微小粒子 (PM<sub>2.5</sub>) 中の元素状炭素 (EC) 濃度から、ディーゼル自動車の最大の発生源寄与率を推定したところ、幹線道路近傍で平均 44.5% であった。

4) 種々の発生源データを使用して CMB 法による発生源寄与率の推定を行った結果、微小粒子 (PM<sub>2.5</sub>) では A 法と B 法とも比較的良好な結果が得られたが、浮遊粒子状物質 (SPM) では比較的大きな差異がみられた。

これは粒径の差異によるものと考えられ、さらに精度の高い結果を得るためには粒径を考慮した正確な発生源データの数値を得ることが重要と思われる。

5) また、微小粒子 (PM<sub>2.5</sub>) の人体への健康影響が懸念されていることから、今後も継続して微小粒子 (PM<sub>2.5</sub>) 濃度の測定を実施するとともに微小粒子 (PM<sub>2.5</sub>) に多く含まれる多環芳香族炭化水素類等の有害物質の調査研究も併せて進めていく必要がある。

## 文 献

- 1) 塚田 進ほか：浮遊粒子状物質の大気汚染について ( ) , 三重県保健環境研究所年報, 第 8 号 (通巻第 51 号) , 67-73(2006)
- 2) 塚田 進ほか：浮遊粒子状物質の大気汚染について ( ) , 三重県保健環境研究所年報, 第 9 号 (通巻第 52 号) , 41-48(2007)
- 3) S.K.Friedl, A. J. Anderson: Chemical element Balances And identification of Air pollution sources , Environ , Sci. Technol . 7 , 235-240 ( 1973 )
- 4) 溝畑 朗ほか：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 ( ) , 大気汚染学会誌, 15 , 198-206 ( 1980 )
- 5) 笠原三紀夫ほか：大気中粒子状物質の発生源の同定と寄与率の推定 , 大気汚染学会誌, 19 , 337-358 ( 1984 )
- 6) 早狩 進ほか：環境データ解析用表計算マクロの紹介と解析例 ( ) , 大気環境学会誌, 36 , 39-45 ( 2001 )
- 7) 吉岡 理ら：大気中粒子状物質の動態 (第 2 報) , 三重県環境科学センター研究報告 , 11 , 33-48(1991)
- 8) 環境庁：ディーゼル排気微小粒子低減対策総合調査報告書(1998)
- 9) 山神真紀子ほか：名古屋市における大気中 PM<sub>2.5</sub> 調査結果, 名古屋市環境研究所報, 33, 21-28(2003)
- 10) 溝畑 朗：粒子状物質における自動車の寄与, 第 26 回大気汚染学会 (講演要旨集) , p 133 ( 1982 )