

川崎市における浮遊粒子状物質の発生源 寄与率の算定

Estimation of Source Contributions to Suspended Particulate Matter in Kawasaki City

早坂孝夫	Takao	HAYASAKA
小池順一	Jun-ichi	KOIKE
井上康明	Yasuaki	INOUE
黒沢芳則	Yoshinori	KUROSAWA
佐藤静雄	Shizuo	SATOH
中村清治*	Seiji	NAKAMURA

1 はじめに

川崎市内の浮遊粒子状物質濃度（SPM濃度）は漸次減少傾向にあるものの、その環境基準を満たしていない。これは、SPMの発生源として各種（固定、移動、自然発生源）存在し、各々の排出実態の把握が困難であること、ガス状物質からの変換による二次生成粒子の存在も大きいことSPMを削減する効果的施策がとれなかったからである。

そこでSPM削減対策を行うため、環境（リセプター）と発生源（ソース）との関係を明らかにする必要がある。現在実際に行われている手法を大別すると拡散モデルとリセプターモデルがある。

拡散モデルは排出係数に基づく地域ごとの排出総量データを求め、これと気象データ、拡散パラメータ、粒子の生成等を考慮にいたれた拡散計算を行って環境濃度を推定する方法である。拡散モデルの長所は、排出量と環境濃度との関係を数式を用いて説明することが出来、排出量の将来予測値を用いた環境濃度の予測を、可能にすることが出来る。

しかし、拡散モデルを適用するさいには土壌の舞い上がり等の自然発生源をはじめ、全ての発

源についての排出量を正確に把握する必要があり、多くの困難を伴う。

一方リセプターモデルは、環境中で測定したSPMの含有成分の分析値に基づき環境濃度に対する発生源の寄与を推定する方法である。中でもケミカルエレメントバランス法（CEB法）が広く用いられている^{1) 2)}。この方法は、類似した化学組成を持った発生源について区別できないことや、二次生成粒子の発生源について解明できない等の問題点があるものの、発生源寄与を定量的に把握することができる。

川崎市環境保全局公害部ばいじん対策検討委員会のワーキンググループ内で作業を進めてきた発生源寄与調査に基づき³⁾、CEB法を用いた発生源寄与率の推定を行ったので報告する。

2 実験方法

2.1 試料採取

SPMの採取は、サイクロンローポリウムエアースンプラーを用いて流速20 l/minで吸引し、各月の第3週から第4週にかけて約1週間2台併行運転して行つた。捕集ろ紙として石英繊維及びメンブランフィルター（47mmφ）をそれぞれ用い

* 川崎市環境保全局公害部大気課

た。

試料採取地点は、川崎市公害研究所屋上、中原区役所屋上、麻生測定所屋上の3ヶ所である。

2.2 組成分析

ア) 金属成分

メンブランフィルター上に捕集した試料中の鉄(Fe)、マンガン(Mn)、バナジウム(V)の各元素について蛍光X線分析装置を用いて分析した⁴⁾。後に硝酸-過塩素酸-フッ酸による湿式分解後原子吸光法によってナトリウム(Na)、アルミニウム(Al)、カリウム(K)、カルシウム(Ca)、鉛(Pb)を分析した⁵⁾。

イ) 水溶性成分

石英繊維ろ紙上に捕集した試料の1/4をイオン交換水を用いて超音波抽出したのち、硫酸イオン(SO₄²⁻)及び硝酸イオン(NO₃⁻)についてはイオンクロマトグラフィー分析を行い、アンモニウムイオン(NH₄⁺)については比色法(インドフェノール法)によった。

ウ) 炭素成分

石英繊維ろ紙上に捕集した試料の1/4をHe気流630℃下で揮発・熱分解させたのち、更に試料をHe + O₂気流950℃下で酸化分解した物質中の炭素を元素状炭素(Cel)として分析した⁶⁾。

2.3 CEB法

ア) CEB法の基本式

ある地域における環境大気中の元素iの濃度C_iは次式で表わされる。

$$C_i = \sum m_j x_{ij}$$

C_i : 環境大気中の元素iの濃度 (μg/m³)
 m_j : 発生源jから排出された粒子のその地域における大気中濃度 (μg/m³)
 X_{ij} : 発生源jから排出された粒子中の元素iの割合

この式においてC_iとX_{ij}が既知であり、かつ発生源jから排出された粒子がある地域に到着するまでに、粒子に含まれた元素iが逸散しない指標元素を選択すればm_jを算出できる。

m_j算出の連立方程式の解は線形計画法に従った。

イ) 環境データ

環境データとして市独自のSPM調査結果を用いた⁸⁾。指標元素はNa, Al, K, Ca, V, Mn, Fe, Pb, Celの9元素である。二次粒子としては、NO₃⁻・NH₄⁺及び予想されるSO₄²⁻の値と実測値との差それらを合わせた濃度とした。

ウ) 発生源データの選択

今回の計算に用いた発生源は、従来から粒子状物質の排出量が多いと考えられているもの、ある

表1 CEB法で対象とした発生源と発生源に由来する粒子状物質の元素組成

単位 (%)

元 素	海塩粒子	土壌粒子	道路粉塵	鉄鋼業	石油燃焼	焼却炉	ガソリン車	ディーゼル車
Na	30.42	0.3	1.10	1.4	3.0	1.7	0.027	0
Al	0.00003	9.4	6.20	1	0.079	0.97	0.15	0
K	1.1	0.015	0.04	1.3	0.064	14.6	0.12	0.43
Ca	1.2	1.2	5.1	4.5	0.370	8.73	0	0
V	0.0000058	0.04	0.023	0.013	0.74	0.0002	0.00024	0.01
Mn	0.0000058	0.15	0.16	2.2	0.0083	0.0094	0.0036	0.023
Fe	0.000029	8.2	8.6	15.7	0.96	1.1	0.41	0
Pb	0.0000087	0	0.04	1.4	0.016	1.14	3.7	0.02
Cel	0	0	2.3	0	31.7	2.84	30.1	52

いは環境中の粒子状物質への寄与が大きいと考えられている。海塩粒子²⁾、土壌粒子⁹⁾、道路粉じん⁷⁾、鉄鋼業²⁾、石油燃焼¹⁰⁾、焼却炉¹⁰⁾、ガソリン自動車²⁾、ディーゼル自動車⁹⁾、の8種類とし、表1に示した。

3 結果および考察

市内3地点(田島・中原・麻生)での昭和58年度～昭和60年度の浮遊粒子状物質濃度及び各成分分析結果(表2～表4)と各種発生源データ(表1)を基に、CEB法により浮遊粒子状物質の発生源寄与率を算出した。用いた環境データは夏期を代表する8月と冬期を代表する12月それに各年

度毎の12ヶ月の年平均濃度である。その発生源寄与の計算結果を表5～表7に示した。表中の空欄は寄与率が計算上表示されなかったためである。

年平均について3地点での寄与率の結果をみると、一次発生源の中では、土壌由来(土壌と道路粉じんを合わせたもの)とディーゼル車の寄与が大きく見積もられた。

全粒子中での寄与率は土壌由来20～24%の範囲であった。

全粒子中での寄与率はディーゼル車24～36%の範囲であった。

表2 発生源寄与率算定に用いた環境データ (田島)

単位 $\mu\text{g}/\text{m}^3$

昭和		SPM	Na	Al	K	Ca	V	Mn	Fe	Pb	Ce1	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	NH ₄ ⁺
58年度	8月	32	0.87	0.37	0.38	0.44	0.014	0.078	0.88	0.073	3	7.1	0.5	0.7
	12月	57	0.51	0.74	0.52	0.81	0.021	0.071	0.96	0.14	12	4.4	3.2	2.1
	年平均	50.6	0.87	0.70	0.49	0.92	0.022	0.097	1.3	0.12	7.8	6.7	2.9	1.8
59年度	8月	30	1.2	0.52	0.34	0.76	0.019	0.059	1.5	0.053	5	5.5	1.5	0.62
	12月	88	0.81	0.86	0.72	1.2	0.018	0.14	1.7	0.22	18	5.4	4.2	6.4
	年平均	47.2	0.83	0.66	0.38	0.94	0.018	0.082	1.4	0.096	8.2	5.4	2.9	2.2
60年度	8月	23	0.70	0.46	0.19	0.92	0.017	0.082	1.7	0.036	4	3.6	0.2	0.1
	12月	59	0.41	0.75	0.45	1.1	0.016	0.068	1.2	0.10	15	5.2	5.9	3.7
	年平均	41.6	0.62	0.66	0.32	1.0	0.017	0.086	1.4	0.074	6.4	4.1	3.3	1.7

表3 発生源寄与率算定に用いた環境データ (中原)

単位 $\mu\text{g}/\text{m}^3$

昭和		SPM	Na	Al	K	Ca	V	Mn	Fe	Pb	Ce1	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	NH ₄ ⁺
58年度	8月	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*
	12月	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*
	年平均	40.5	0.71	0.74	0.38	0.70	0.010	0.038	0.80	0.071	8.3	6.1	2.9	1.8
59年度	8月	30	0.91	0.60	0.38	0.42	0.0098	0.036	0.77	0.058	5	4.6	1.3	0.63
	12月	76	0.39	0.80	0.54	0.80	0.013	0.081	1.2	0.15	19	4.2	5.3	5.0
	年平均	42.6	0.64	0.68	0.36	0.60	0.0097	0.048	0.94	0.072	7.3	4.9	2.8	1.9
60年度	8月	22	0.68	0.62	0.26	0.64	0.0057	0.029	0.63	0.030	4	4.1	0.2	0.7
	12月	58	0.30	0.99	0.39	1.8	0.0053	0.042	0.86	0.080	13	4.1	5.6	5.0
	年平均	43	0.54	0.67	0.33	0.82	0.0083	0.049	0.86	0.066	8	3.8	3.1	1.9

* : 欠測

表4 発生源寄与率算定に用いた環境データ (麻生)

単位 $\mu\text{g}/\text{m}^3$

昭和		SPM	Na	Al	K	Ca	V	Mn	Fe	Pb	CeI	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	NH ₄ ⁺
58年度	8月	31	0.63	0.29	0.41	0.20	0.0061	0.023	0.46	0.061	4	6.8	0.58	1.3
	12月	44	0.34	0.59	0.39	0.41	0.0096	0.029	0.60	0.070	8	3.4	2.9	1.3
	年平均	36.5	0.54	0.61	0.36	0.58	0.0083	0.033	0.63	0.063	6	5.8	2.4	1.7
59年度	8月	24	0.53	0.48	0.26	0.27	0.0045	0.043	0.59	0.048	8	6.4	0.7	0.9
	12月	72	0.43	0.78	0.51	0.68	0.0090	0.040	1.2	0.15	16	3.4	4.9	4.5
	年平均	36	0.47	0.60	0.29	0.51	0.0077	0.036	0.80	0.062	6.8	5.0	2.7	1.9
60年度	8月	25	0.64	0.57	0.28	0.45	0.0076	0.024	0.55	0.032	3	3.2	0.0	0.4
	12月	58	0.36	0.80	0.40	0.87	0.0083	0.050	0.87	0.10	11	5.6	9.2	4.7
	年平均	34	0.42	0.59	0.26	0.56	0.0070	0.032	0.62	0.056	5	4.1	3.9	1.6

表5 浮遊粒子状物質への発生源寄与率算定結果 (田島)

単位 %

昭和	月	海塩粒子	土壌粒子		鉄鋼業	石油燃焼	焼却炉	ガソリン車	ディーゼル車	二次粒子	合計
			土壌	道路粉塵							
58年度	8月	5.9	6.5	6.3	10.0	5.0	5.0	0.68	14.0	23.0	76.4
	12月	0.17	3.0	15.4	—	3.9	5.1	4.7	34.4	13.0	79.7
	年平均	2.4	—	20.5	4.3	4.8	5.2	2.8	23.7	19.0	82.7
59年度	8月	9.2	—	25.9	6.7	7.3	5.6	0.05	26.1	22.2	103
	12月	0.71	—	14.4	3.9	1.8	4.1	3.6	35.3	15.5	79.3
	年平均	3.0	—	20.9	6.0	4.0	3.8	1.6	28.9	19.7	87.9
60年度	8月	7.6	—	30.6	9.8	8.5	—	—	26.9	14.2	97.6
	12月	—	—	19.6	1.8	2.4	3.6	2.3	45	22.8	97.5
	年平均	2.0	—	23.8	7.4	4.3	3.6	0.49	25.4	19.7	86.7

表6 浮遊粒子状物質への発生源寄与率算定結果 (中原)

単位 %

昭和	月	海塩粒子	土壌粒子		鉄鋼業	石油燃焼	焼却炉	ガソリン車	ディーゼル車	二次粒子	合計
			土壌	道路粉塵							
58年度	8月	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*
	12月	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*
	年平均	3.3	11.8	10.8	—	1.9	5.0	2.9	35.9	23.3	94.9
59年度	8月	6.8	15.0	7.9	3.5	2.9	6.5	1.6	28.6	18.1	90.9
	12月	—	1.2	14.5	1.2	1.2	2.8	3.6	44.5	16.7	85.7
	年平均	2.4	5.5	16.4	1.7	1.8	4.5	2.2	29.6	19.9	84.0
60年度	8月	7.1	21.6	11.6	—	1.5	6.5	1.4	32.4	19.0	101.1
	12月	0.08	6.5	10.5	—	—	3.3	2.4	41.1	23.3	87.2
	年平均	1.8	3.5	19.2	—	1.4	4.1	2.5	32.4	18.1	83.0

表7 浮遊粒子状物質への発生源寄与率算定結果 (麻生)

単位 %

昭和	月	海塩粒子	土壌粒子			鉄鋼業	石油燃焼	焼却炉	ガソリン車	ディーゼル車	二次粒子	合計
			土 埃	道路粉度								
58年度	8月	5.8	5.6	5.8	3.1	1.8	0.8	3.7	21.2	25.4	73.2	
	12月	0.3	10.4	5.0	-	1.5	5.0	2.5	32.1	14.3	71.1	
	年平均	2.3	12.4	7.2	-	1.8	5.7	2.7	28.3	23.7	84.1	
59年度	8月	5.0	16.7	5.6	3.5	0.6	4.9	2.2	62.0	30.3	130.8	
	12月	1.2	-	17.2	0.9	0.6	0.2	4.9	38.8	15.5	79.3	
	年平均	1.9	5.4	17.7	1.2	1.6	4.2	2.5	32.9	24.0	91.4	
60年度	8月	5.4	20.1	5.3	-	2.6	6.6	1.2	20.2	10.6	72.0	
	12月	0.3	8.6	8.5	-	0.8	3.6	3.3	33.6	30.9	89.6	
	年平均	2.0	12.2	8.7	-	1.5	4.3	2.9	25.1	25.0	81.7	

(一) : 演算上算定されなかった。

全粒子中での寄与率は二次粒子18~25%の範囲であった。地点別にみると二次粒子の寄与率は市内の北部に行くに従い若干高めになる傾向がみられた。

人為的な発生源(鉄鋼業・焼却炉・石油燃焼)からの寄与率を合わせると臨海工業地域に隣接した田島が14~15%であるのに対し、内陸の中原・麻生が6~8%であった。

海塩粒子の寄与率は2~3%であり、海に近い田島と内陸の麻生とでは若干の地域差がみられ、田島の方が高めであった。

夏期(8月)と冬期(12月)とでは寄与率に変化がみられた。3地点で調査期間中全て冬期と比べて夏期に寄与率が高くなった発生源は、海塩粒子、鉄鋼業、石油燃焼であった。中でも海塩粒子の寄与率は夏期5~9%に対し冬期0~0.7%であった。夏期は主風向が南寄りの風であり、市内では海から内陸に向かって吹く風である。このことから海塩粒子は東京湾、鉄鋼業及び石油燃焼は京浜工業地帯の中核である市内臨海工業地帯からの影響と考えられる。土壌由来、焼却炉、二次生成の発生源も相対的に冬期と比べて夏期に寄与率が高くなる傾向がみられた。反対に夏期と比べて冬期に寄与率が高くなる傾向がみられたのはディーゼル車とガソリン車であった。

今回用いたCEB法による各種発生源からの浮遊粒子状物質への寄与率の和は80~90%であった。

文 献

- 1) Friedlander, S. K: Chemical Element Balances and Identification of Air Pollution Sources, Environ. Sci. Technol., 7, 235-240 (1973)
- 2) 溝畑朗, 真室哲雄; 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(1), 大気汚染学会誌, 15, 198-206
- 3) 川崎市: 粒子状物質に関する中間報告書(1986)
- 4) 早坂孝夫, 柴田幸雄, 井上康明, 林久緒, 黒沢芳則: 蛍光X線分析法による市内浮遊粒子状物質の多元素分析調査結果, 川崎市公害研究所年報, 11, 13-21 (1985)
- 5) 中村清治, 柴田幸雄, 松尾清孝, 井上俊明, 黒沢芳則, 市橋正之: 原子吸光法による煤塵中の金属分析法の研究, 川崎市公害研究所年報, 10, 24-29 (1983)
- 6) 林久緒, 井上康明, 早坂孝夫, 黒沢芳則, 佐藤静雄: 元素分析法を用いた浮遊粉塵中の炭素等のぶんせきほう, 大気汚染学会誌, 20, 349-

361 (1985)

7) 内藤季和：千葉県における事例，第27回大気汚染学会講演要旨集，199 - 200 (1986)

8) 川崎市：よりよい環境をめざして，昭和60年度川崎市公害白書 (1985)

9) 神奈川県：横浜市，川崎市，横須賀市：神奈川県臨海地区大気汚染調査報告書 (昭和58年度)

10) 柴田幸雄，井上俊明，松尾清孝，林久緒，黒沢芳則，志水正樹，中村清治：固定発生源から排出される煤塵の成分組成について，川崎市公害研究所年報，11，59 - 71 (1984)