

大気中の微小粒子(PM2.5)測定への TFH フィルタの適用に関する研究

学位論文内容の要旨

大気中に浮遊している粒子のうち、粒径が $10\ \mu\text{m}$ 以下のものを浮遊粒子状物質 (SPM) と呼ぶ。SPM は健康に悪影響を及ぼすことから、我が国では 1972 年に大気環境基準が設定された。さらに最近米国において、疫学調査に基づき SPM よりも粒径の小さい $2.5\ \mu\text{m}$ 以下の微小粒子 (PM2.5) が健康に悪影響を及ぼすことが指摘されている。以上のことから、今後大気中の PM2.5 の濃度の正確な測定が必須である。

通常、大気中に浮遊している粒子濃度の測定は、粒子をフィルタ上に吸引ろ過捕集し、捕集前後のフィルタの重量を秤量して捕集粒子の質量を求め、それを採気量で割ることによって求められている。これまでに SPM の大気中濃度の測定においては、使用を推奨されるフィルタが存在している。しかし、より粒径の小さい PM2.5 の濃度測定においては、以下のような問題点が残されていた。すなわち (1) SPM の環境基準に関する質量濃度測定はほとんどが β 線吸収法自動測定機により行われてきた。しかし PM2.5 はより低濃度であるため、これまで使用されてきたフィルタを装着した β 線吸収法自動測定機では精度が不十分であり、より低濃度の測定を可能にするフィルタの開発が望まれている。(2) PM2.5 は有害な微量成分を多く含むことから、その化学組成を明らかにすることが重要な課題である。(3) これまで大気中の PM2.5 について、その各種成分の濃度分布と空間・時間変動および各種発生源からの寄与率を明確にした研究は極めて少ない。それゆえ PM2.5 の年間測定を行ってその実態を明らかにする必要がある。

そこで本研究では、まず PM2.5 の捕集用フィルタとして、“重量が軽いこと”、“帯電性が小さいこと” および “吸湿性が小さいこと”、さらに “ β 線吸収法にも使用できる強度を有していること” のすべてを満たしたものを開発した。すなわち、PTFE フィルタと通気性の不織布から成る補強層から構成された新しいフィルタ (本研究において TFH フィルタ (TFH-01 および TFH-47) と名づけた) を開発した。次に、この TFH-01 フィルタを 1 時間値測定用の β 線吸収法自動測定機に装着し、また TFH-47 フィルタを日平均値測定用のローボリュームエアサンプラー FRM-LV に装着して PM2.5 濃度測定の実測試験を行った。その結果を基に、この TFH フィルタを用いた PM2.5 測定の暫定マニュアルへの適用性を検討した。

さらに、京都市内において 2007 年 5 月から 2008 年 5 月の 1 年間にわたり、TFH フィルタおよび石英繊維フィルタをローボリュームエアサンプラに装着し、PM2.5 の大気サンプリングを行っ

た。得られた試料フィルタについて、イオンクロマトグラフによるイオン成分分析、PIXE による元素分析および TOR(光反射補正式炭素熱分析法) による炭素成分分析を行って、それらの成分の大気中濃度の年間変動を明らかにした。次に、これらの PM2.5 の各種成分の実測値を用いて、統計解析 (PMF 法) と後退流跡線解析を行い、京都における PM2.5 の変動を決める因子とその寄与率の推定を行った。

本研究の成果は以下の通りである。今回開発した TFH-01 を β 線吸収法自動測定機に装着して 1 時間値の連続測定実験を行った結果、この β 線吸収法自動測定機は PM2.5 の自動測定機としての要件である「標準測定法と同等な測定値もしくは良好な相関を持つこと」および「低濃度 ($2 \mu\text{g}/\text{m}^3$) から高濃度 (数 $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$) まで安定した測定値が得られること」、「1 時間平均値の測定が可能であること」を満たすことが確認された。また TFH-47 をローボリュームエアサンプラー FRM-LV に装着し、24 時間の連続大気捕集を行い、PM2.5 の 1 日平均値を測定したが、得られた結果は暫定マニュアルに示されている標準測定法での測定値と良く一致した。これらのことから TFH フィルタは、 β 線吸収法自動連続測定機による PM2.5 の 1 時間値の測定およびローボリュームエアサンプラを用いた PM2.5 の日平均値の測定、両方に使用可能なフィルタであることが明らかとなった。

また、京都市内における上記の観測で得られた PM2.5 中の各成分濃度を用い、PMF 法ならびに後退流跡線解析を用いて、京都市における PM2.5 の変動を決める因子とその寄与率の推定を行った。今回の解析においては、因子数を 8 個としたとき、測定結果と PMF 法による推測値とが最も良く一致した。最も寄与率が高かったのは因子 7 の硫酸アンモニウム粒子で 39% の寄与率であった。その次に高かったのはガソリン自動車粒子の 18% で、一方、ディーゼル自動車粒子は 8% であり、ガソリン自動車による寄与率の方がディーゼル自動車排ガスよりも寄与率が高かった。また、ガソリン自動車とディーゼル自動車を合わせると 26% と大きな寄与率となった。後退流跡線解析により、中国大陸域からの影響が大きい因子として、黄砂と中国大陸地域の都市大気汚染微粒子が上げられ、それらの寄与が 16%、中国大陸地域からの金属粒子による寄与が 3% となった。その他の人為起源による発生源として、硝酸イオン粒子が 8%、廃棄物燃焼により排出された微粒子が 16% の寄与率を示した。一方、自然起源の粒子としては、土壌粒子が 4% の寄与率を示した。すなわち、京都市内における PM2.5 は 96% が人為活動に由来するものであることが明らかとなった。

以上のように本研究では、大気中の微小粒子 (PM2.5) の測定のために、重量が小さく、吸湿性が小さくて、秤量や計測誤差が小さく、さらに強度があり、帯電性が少ない TFH フィルタを開発した。この TFH フィルタを、PM2.5 の 1 時間値測定用の β 線吸収法連続測定機、および日平均値測定用の FRM-LV に装着して京都市内で 1 年間にわたり実測試験を行い、TFH フィルタの PM2.5 の測定への適用が適切であることを明らかにした。

学位論文審査の要旨

主 査 教 授 太 田 幸 雄
副 査 教 授 五十嵐 敏 文
副 査 准教授 村 尾 直 人

学 位 論 文 題 名

大気中の微小粒子 (PM2.5) 測定への TFH フィルタの適用に関する研究

大気中に浮遊している粒子のうちで粒径が $10\ \mu\text{m}$ 以下のものを浮遊粒子状物質 (SPM) と呼ぶ。この SPM は健康に悪影響を及ぼすことから我が国では 1972 年に大気環境基準が設定された。さらに最近では米国において、疫学調査に基づき SPM よりも粒径の小さい $2.5\ \mu\text{m}$ 以下の微小粒子 (PM2.5) が健康に悪影響を及ぼすことが指摘されている。以上のことから、今後大気中の PM2.5 の濃度の正確な測定が必須である。通常、大気浮遊粒子の濃度は、粒子をフィルタ上に吸引し過捕集し、捕集前後のフィルタの重量を秤量して捕集粒子の質量を求め、それを採気量で割ることにより求められる。これまで SPM の大気中濃度の測定においては、使用を推奨されるフィルタが存在している。しかし、より粒径の小さい PM2.5 の濃度測定においては以下のような問題点が残されていた。すなわち (1) SPM の環境基準に関する質量濃度測定はほとんどが β 線吸収法自動測定機により行われてきた。しかし PM2.5 はより低濃度であるため、これまで使用されてきたフィルタを装着した β 線吸収法自動測定機では精度が不十分であり、新しいフィルタの開発が望まれている。(2) PM2.5 は有害な微量成分を多く含むことから、その化学組成を明らかにすることは重要な課題である。(3) これまで大気中の PM2.5 について、その各種成分の濃度分布と空間・時間変動および各種発生源からの寄与率を明らかにした研究は極めて少ない。それゆえ PM2.5 の年間測定を行ってその実態を明らかにする必要がある。

本研究では、これらの問題点の解決を目指して、まず PM2.5 の捕集用フィルタとして、“重量が軽いこと”、“帯電性が小さいこと” および “吸湿性が小さいこと”、さらに “ β 線吸収法にも使用できる強度を有していること” のすべてを満たしたものを開発した。すなわち PTFE フィルタと、通気性の不織布から成る補強層から構成された新しいフィルタ (本研究において TFH フィルタ (TFH-01 および TFH-47) と名づけた) を開発した。次にこの TFH-01 フィルタを 1 時間値測定用の β 線吸収法自動測定機に、また TFH-47 フィルタを 1 日平均値測定用のローボリュームエアサンプラ (FRM-LV) に装着し、PM2.5 濃度測定の実験を行った。その結果を基に、この TFH フィルタを用いた PM2.5 測定の暫定マニュアルへの適用性を検討した。

さらに、京都市内において 2007 年 5 月から 2008 年 5 月の 1 年間にわたり、TFH-47 フィルタおよび石英繊維フィルタを FRM-LV に装着し、PM2.5 の大気サンプリングを行った。得られた試料

フィルタについて化学成分分析を行い、それらの成分の大気中濃度の年間変動を明らかにした。次に、これらの PM2.5 の各種成分の実測値を用いて、統計解析 (PMF 法) と後退流跡線解析を行い、京都における PM2.5 の変動を決める因子とその寄与率の推定を行った。

本研究により以下の成果が得られている。今回開発した TFH-01 を β 線吸収法自動測定機に装着して 1 時間値の連続測定実験を行ったところ、この測定結果は PM2.5 の自動測定機としての要件である「標準測定法と同等な測定値もしくは良好な相関を持つこと」および「低濃度 ($2 \mu\text{g}/\text{m}^3$) から高濃度 (数 $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$) まで安定した測定値が得られること」、「1 時間平均値の測定が可能であること」を満たすことが確認された。また TFH-47 を FRM-LV に装着し、24 時間の連続大気捕集を行い、PM2.5 の 1 日平均値を測定したが、得られた結果は暫定マニュアルに示されている標準測定法での測定値と良く一致した。以上のことから、今回開発された TFH フィルタは、 β 線吸収法自動連続測定機による PM2.5 の 1 時間値の測定およびローボリュームエアサンプラを用いた PM2.5 の 1 日平均値の測定の両方に使用可能な、実用的なフィルタであることを明らかにした。

また、京都市内における観測で得られた PM2.5 中の各成分濃度を用い、PMF 法ならびに後退流跡線解析を用いて、京都市における PM2.5 の変動を決める因子とその寄与率の推定を行った。今回の解析においては、因子数を 8 個とした時に測定結果と PMF 法による推測値とが最も良く一致した。最も寄与率が高かったのは因子 7 の硫酸アンモニウム粒子で 39 パーセントの寄与率であった。その次に高かったのはガソリン自動車粒子の 18 パーセントで、一方、ディーゼル自動車粒子は 8 パーセントであり、ガソリン自動車による寄与率の方がディーゼル自動車排ガスよりも寄与率が高かった。また、ガソリン自動車とディーゼル自動車を合わせると 26 パーセントと大きな寄与率となった。後退流跡線解析により、中国大陸域からの影響が大きい因子として黄砂と中国大陸地域の都市大気汚染微粒子が上げられ、それらの寄与が 16 パーセント、中国大陸地域からの金属粒子による寄与が 3 パーセントとなった。その他の人為起源による発生源として、硝酸イオン粒子が 8 パーセント、廃棄物燃焼により排出された微粒子が 16 パーセントの寄与率を示した。一方、自然起源の粒子としては、土壌粒子が 4 パーセントの寄与率を示した。すなわち、京都市内における PM2.5 は、96 パーセントが人為活動に由来するものであることを明らかにしている。

これを要するに、著者は、大気中の PM2.5 の測定のために TFH フィルタを新たに開発し、実測試験を行って、この TFH フィルタが β 線吸収法自動測定機を用いた 1 時間値測定および FRM-LV を用いた 1 日平均値測定の双方に十分に適用可能であることを明らかにしたものであり、大気環境保全工学の発展に寄与するところ大なるものがある。よって著者は、北海道大学博士 (工学) の学位を授与される資格あるものと認める。