

氏名	加藤進
生年月日	
本籍	三重県
学位の種類	博士(工学)
学位記番号	博甲第444号
学位授与の日付	平成13年9月28日
学位授与の要件	課程博士(学位規則第4条第1項)
学位授与の題目	Proposal for the Evaluation of Air Pollution in developing Countries, case of China and the Philippines (発展途上国(中国・フィリピン)における大気汚染把握手法の提案)
論文審査委員(主査)	金岡千嘉男(工学部・教授)
論文審査委員(副査)	上田一正(工学部・教授) 大谷吉生(工学部・教授) 田崎和江(理学部・教授) 古内正美(工学部・助教授)

学位論文要旨

To overcome the shortage both in budget and human resources, use of passive sampler and high volume air sampler, which are inexpensive, simple and portable structures, has been proposed as appropriate measuring devices of gaseous air pollutants and aerosols for developing countries. However, there are no feasibility study reports on it in those countries.

Hence, the reliability of the passive sampler was confirmed by the parallel measurements with active sampler at completely different types of air pollution dominated cities of Shenyang in China and Quezon city in Philippines. Shenyang is a coal-based industrialized city with a sever winter and thus air pollution has been caused by the coal burned exhaust gases. Contrary, Quezon City is a tropical city with the heavy traffic. Based on the feasibility study, effective concentration conversion factors for NO_2 and SO_2 has been proposed. Ground level aerosol samples were also collected by a high volume air sampler in the same cities. The concentrations of TSP, SO_4^{2-} and Pb were found noticeably high in Shenyang because of the lead refinery. On the contrary, the high TSP and Pb levels in Quezon were found because of an exhaust gas from vehicles. Finally, the principle component analysis was applied to the normalized data sets of TSP, NO_3^- and SO_4^{2-} not only this study but also other reported ones collected in eastern Asian and Japanese cities. Air pollution of these cities has been evaluated by first principle component (Z_1) with accumulated proportion 88.9%.

$$Z_1 = 0.560 \cdot \text{TSP} + 0.588 \cdot \text{NO}_3^- + 0.538 \cdot \text{SO}_4^{2-}$$

1. はじめに

東アジアを始めとする発展途上国（以下途上国という）の環境改善支援のために、わが国は数々の ODA 支援を実施している。しかし、支援対象国に派遣された専門家が日本に帰国すると、環境汚染質分析の実務が停止し、技術移転した大気モニタリング体制が中断することをこれまでに体験してきた。多くの理由がこの現象の原因として考えられようが、技術的な面から考えると、最近の途上国支援のキーワードである適地適正な環境汚染質分析技術が支援国に移転されていないためと思われる。

適地適正な環境分析・評価技術を移転するためには、支援国の状況を詳細に把握しておく必要がある。一般に、途上国の環境分析部署の特徴として；

- ① 圧倒的な人材不足
- ② 予算不足
- ③ 測定器の維持管理が不十分

が挙げられる。さらに上の条件を考慮した上で、

- ④ 数的評価にたえる精度をもつ分析結果を提供

できる手法の導入が途上国の持続的な環境モニタリング体制の確立には不可欠と考えた。本研究では、アジアの途上国が、移動発生源と固定発生源からの深刻な大気汚染問題に陥っていることを勘案し、環境汚染質として大気環境に存在しヒトの健康状況に大きな影響を与える NO_x および SO_2 、エアロゾルを取り上げて、上にのべた条件を満たす分析手法を提案、実践および技術移転を図ると共に、提案した手法から自国の大気汚染状況を自国間あるいは各国間で比較できる手法を開発した。

2. 研究の目的

本研究では、東アジアの途上国の代表として中国遼寧省の省都瀋陽市とフィリピン、ケソン市を取り上げた。瀋陽市は中国東北部の重工業都市であり、自国のエネルギー生産は硫黄分の多い石炭に依存している。市内に集積する工場群にはきわめて効率の悪い大気汚染防止設備しかなく、当該地区の住民は TSP（総浮遊粉塵）や SO_2 汚染に晒されている。省政府のモニタリングネットワークは十分とは言えず、住民の大気汚染による健康影響防止のためには、簡易分析による SO_2 濃度測定法の移転による詳細なモニタリング網の構築とエアロゾル成分を明らかにし、その発生源の推定および低減対策が省政府の課題である。

一方、フィリピンのケソン市は大規模な固定発生源がない行政の中心地で、政府関連の省庁ビルが立ち並ぶ地区である。しかしながら、官庁街に隣接する国道等は猛烈な交通渋滞が朝早くから夜遅くまで継続する。そのために、当該地区の住民は、これらの移動発生源からの深刻な TSP や NO_x 汚染に晒されている。最近フィリピン政府は、環境白書（1990-1995 年）を公表したが、問題となっている NO_x 濃度に関するデータは記されていない。したがって、同国へは、大気汚染防止を図る上で NO_x 濃度測定の簡易測定技術の移転と TSP が移動発生源寄与であることを関係各省庁に認識させる（最終的に日本の車検制

度等の導入等) ことが喫緊の課題であるといえる。

3. 研究方法

これまでに述べた大気汚染質測定装置には NO_x や SO_2 等のガス状物質にたいして、インピンジャー法、自動測定機(乾式、湿式)およびパッシブサンプラー法が考えられる。本研究では、自動測定機は高価で維持管理が困難であることから対象とせず、簡単で安価に面的な測定をカバーできるインピンジャー法とパッシブサンプラーを NO_x と SO_2 について取り上げた。また、粒子状物質についても、ロウボリュームエアサンプラー、ハイボリュームエアサンプラー、 β 線吸収式粉塵計、アンダーセンサンプラー等の測定手法の中で、構造が簡単で安価、しかも 1 回の測定から多くのエアロゾルに関する情報の獲得が可能なハイボリュームエアサンプラー(以下ハイボルという)を取り上げた。

大気汚染質にはさまざまな分類法があるが、1次粒子(発生源から直接大気に放出されるもの:ダスト等)と2次粒子(発生源から放出された NO_x や SO_2 が大気中の複雑な輸送過程のなかで光化学反応を受けて NO_3 や SO_4^{2-} にかわる)もその一つである。1次粒子のダストと2次粒子の NO_3 や SO_4^{2-} もハイボルでは同時に捕集できるメリットがあり、大気汚染を総合的に評価できる手法と考えられる。

4. 研究成果

4.1 インピンジャー法とパッシブサンプラーからみた瀋陽市の大気汚染 (SO_2)

1994年10月に瀋陽市を訪問し、インピンジャー法で、重汚染(鉄西)地区、中汚染地区と対照(ホテル)地区で SO_2 濃度を測定した。その結果、順に1時間値として 121ppb, 21ppb, 7ppb を得た。また、パッシブサンプラー(長期型小川サンプラー)を設置し、日本と同じ気象条件では、問題なく使用が可能であることを確認した。冬期にも日本の係数を用いて SO_2 濃度をパッシブサンプラーで求めると重汚染地区では 100-168ppb という結果を得た。そこで、1995年12月に、インピンジャー法でパッシブサンプラーを校正し、低温期の濃度換算係数: α を得た。 SO_2 濃度の計算式を有次元式で示すと;

$$\text{SO}_2(\text{ppb}) = 100 \times \alpha \times W_{\text{SO}_2} / T \quad (1)$$

T: 暴露時間(min), W_{SO_2} : エlementに捕集された SO_2 量(μg)

$$\alpha = 265 \text{ppb} \cdot \text{min} / \mu\text{g} \quad (12-2 \text{月}), \quad \alpha = 232 \text{ppb} \cdot \text{min} / \mu\text{g} \quad (\text{その他の月})$$

である。各汚染地区にある学校にパッシブサンプラーを5個配置し、1年間長期モニタリングを実施した。12月~2月は冬期の、残りの月は日本濃度換算係数で SO_2 濃度を求めた。その結果、

- 1) 3つの地区はともに春期~夏期(3-9月)になると SO_2 濃度が低下
- 2) 冬期には3地区共に SO_2 濃度が増加
- 3) 冬期では重汚染地区 > 中汚染地区 > 対照地区の順に濃度が低下
- 4) 年平均濃度は順に、79、33、24ppb

であることがわかった。あとで述べる TSP との複合汚染を各地区とも受けており、特に重汚染地区は SO₂ 濃度が、ひとの呼吸器系の健康に影響を示すか示さないかの境界領域にあることが明らかとなった。また、中国医科大学（中汚染地区）で、6:00-8:00am（早朝）、11:00-1:00pm（昼間）、および 10:00-12:00pm（深夜）の各 2 時間インピンジャー法で 1996 年 1 月から 6 月まで SO₂ 濃度を測定した。その結果、昼間の測定時間中の SO₂ 濃度は比較的 low、特に冬期には早朝あるいは深夜に SO₂ 濃度の増加が認められる場合が多く、逆転層の出現による SO₂ の拡散制限のためと思われた。

4.2 インピンジャー法とパッシブサンプラーからみたケソン市の大気汚染 (NO_x)

1997 年と 2000 年に首都圏 (NCR) のケソン市ピサヤス通りに面する環境天然資源省 (DENR) の敷地内 (道路から 6m) とピサヤス通りがケソンサークル道路と交叉する水・土壌研究所の敷地内 (交差点から 9m) でザルツマン法による NO_x 測定を実施した。

フィリピン政府は、NO₂ 濃度に関する信頼できるデータを公表していない。本研究によって初めてその濃度レベルが明らかにされた。すなわち、インピンジャー法による時間観測 (交叉点) によって交通渋滞が著しい早朝 7 時には、300ppb にも NO 濃度が達した。昼間には 50~100ppb まで低下するが、夕刻の渋滞に向かってその後ゆっくりと NO 濃度が上昇することがわかった。これに対して、NO₂ 濃度は 50ppb 前後であり、比較的一定している傾向を示した。同時に行ったパッシブサンプラーの暴露試験から、熱帯地区の NO₂ に対する日平均濃度の計算式を有次元式で示すと

$$\text{NO}_2(\text{ppb}) = \alpha \times (I - I_0) \quad (2)$$

I: 暴露エレメントの発色液の $\lambda = 540\text{nm}$ の吸光度 (Abs)

I₀: ブランクエレメントの発色液の $\lambda = 540\text{nm}$ の吸光度 (Abs)

α : 5ppb・日/Abs (改良天谷式)、 α : 71ppb・日/Abs (フィルターバッジ NO₂)

である。DENR の敷地では 2000 年 4 月 24 日から 4 月 29 日の短期モニタリング結果によれば NO₂ 濃度は 30-50ppb であった。

4.3 エアロゾルからみた瀋陽市とケソン市の大気汚染

表 1 に瀋陽市、ケソン市、比較のために、四日市市等のエアロゾル濃度 (平均値) を示した。表 1 から、途上国の大気環境は公害が著しかった 1970 年代の日本と酷似しているといえる。ハイボルによるエアロゾル捕集方法は共通しているので、測定結果の比較に問題点がない利点がある。

表 1 から瀋陽市では、冬期 (12 月) に家庭からの暖房用石炭燃焼の寄与によって TSP 濃度が 2 倍となり、SO₄²⁻濃度も 7 倍増加していることがわかる。同時に、同市のエネルギー生産は石炭依存系なので重油燃焼に基づく大気汚染指標の V 濃度は低くなっている。

Pb 濃度が高いのは、測定点近くにある瀋陽冶煉廠 (溶解炉) の寄与と考えられる。この傾向は、内陸の重工業都市成都市と類似している。これに対して、周りに大きな固定発生源の

表1 各都市のエアロゾル濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)

	測定年	TSP	NO_3^-	SO_4^{2-}	Pb	Mn	Fe	V	出典
瀋陽市	1997	388	4.4	7.9	0.877	0.37	6.18	0.012	加藤
同(冬)	1995	666	11	51	1.7	0.69	23	0.003	加藤
ケソン市	1997	216	1.77	5.1	0.43	0.18	6.1	0.028	加藤
同市	2000	238	2.18	5.6	0.10	0.11	4.3	0.027	加藤
成都市	1990	324	8.8	34	0.58	0.37	7.2	0.016	橋本
四日市市	1992	75	4.8	7.2	0.05	0.2	1.1	0.018	吉岡
川崎市	1972	360	2.6	34.9	1.27	0.70	15.8	0.25	日環セ

ないケソン市では、Fe、V、 NO_3^- および SO_4^{2-} 濃度が低い。しかし、移動発生源寄与と思われるTSP濃度が高くなっている。Pb濃度は1997年では $0.43\mu\text{g}/\text{m}^3$ であったが、政府の強力な行政指導（無鉛化ガソリン使用）によって現在では $0.10\mu\text{g}/\text{m}^3$ まで低下している。この値はWHOガイドラインの1/10の濃度である。このように、エアロゾルの測定結果の比較から、当該地区の固定あるいは移動発生源の状況を考察するうえでの有用な情報の抽出が可能である。

4.4 エアロゾルによる大気汚染評価法

4.4.1 主成分得点からの比較

これまでに述べたエアロゾルの特徴を利用して大気汚染を客観的に評価するために統計的手法を導入した。すなわち、表1からもわかるように汚染の評価は、1つの汚染質からの評価では不十分である。そこで、代表的な汚染質TSP（1次粒子）と燃焼寄与をあらわす NO_3^- および SO_4^{2-} （2次粒子）の3個を取り上げ、複合指標による汚染の評価を試みた。データとしては表1のほかに、日本の離島（佐渡島等）、過去の四日市市等、中国の諸都市のエアロゾルデータ（合計20個）に主成分分析を実施し、第一主成分を求めた。第一主成分の累積寄与率は88%で、(3)式に示すようにサイズファクターが抽出されたので、第一主成分得点(Z_1)によって各都市のエアロゾルからみた大気汚染の数量的な評価が可能となった。

$$Z_1 = 0.560 (\text{TSP 濃度}) + 0.538 (\text{SO}_4^{2-} \text{濃度}) + 0.588 (\text{NO}_3^- \text{濃度}) \quad (3)$$

その結果、対象とした20都市のなかで、瀋陽市は9位（夏）と19位（冬）に、ケソン市は7位（1997年）と8位（2000年）に分類されることとなり、単一項目ではなく大気汚染を代表する複合項目による各都市間の数量的な比較が可能となることを示した。

4.4.2 EF法による発生源推定

大気汚染防止政策の策定には、エアロゾルの起源を推定し、発生源に対する排出規制が不可欠である。発生源変寄与を推定する代表的な手法として、現在CMB法がよく利用されている。しかし、途上国への技術移転あるいは発生源データの不備を考慮し、ここでは簡

単な EF 法 (Enrichment Factor) を採用した。すなわち、Al をベース金属として TSP 中の金属 Xi について (Xi/Al) を求め、地殻の元素 Xi についても同様の比を求め、

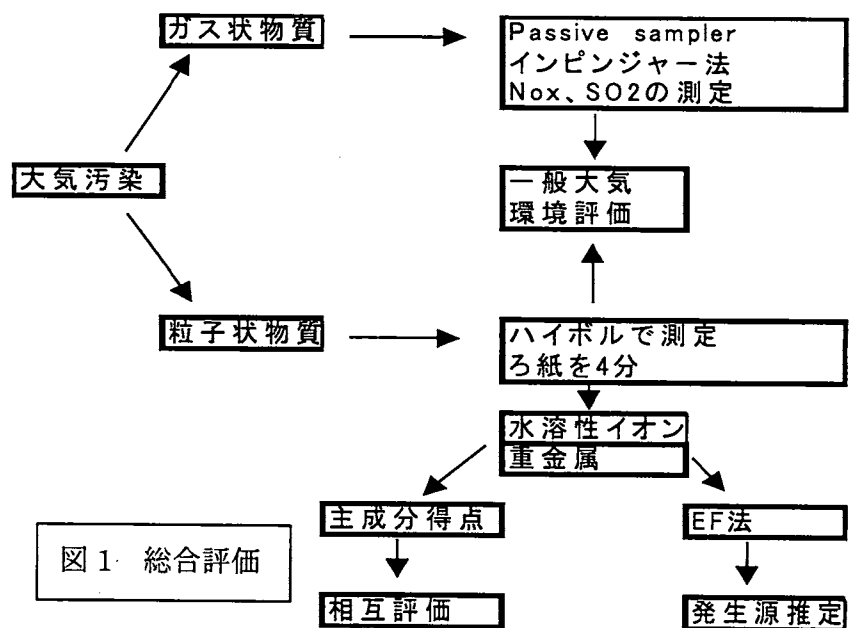
$$EF = \{Xi/Al\}_{TSP} / \{Xi/Al\}_{crust} \quad (4)$$

を計算する。ここで、EF が 1 に近ければその元素は自然寄与、1 よりも大きければ人為寄与と判定する。地殻の各元素分布濃度としてはクラークの報告等を参考とした。ケソン市と瀋陽市のエアロゾルのデータに本法を適用すると、Pb と Cu が人為寄与 (瀋陽市冶煉廠) であり、ケソン市では Pb (燃料中) と Zn (移動発生源中の燃料中やタイヤ) が人為寄与であることがわかり、瀋陽市では固定発生源対策またケソン市では移動発生源対策の重要性が示唆された。

5. 結論

以上のことは、図 1 に示すように総括できる。すなわち、途上国の大気汚染のうちで SO₂ や NO_x によるガス状物質による汚染をインピンジャー法あるいはパッシブサンプラーで精度よく、かつ安価である

ことを生かして面的に簡易測定・評価することが可能である。一方、TSP 等の粒子状物質は、ハイボルで採取が可能であり、従来途上国で実施されている TSP のみの測定から、途上国が現有する原子吸光光度計で重金属濃度をおよびイオンクロマトグラフで水溶性イオン濃度を測定することによ



って、エアロゾルからみた大気汚染を主成分分析によって、TSP, SO₄²⁻および NO₃⁻の複合指標から評価することが可能とし、同時に国を超えた数量的比較を可能とせしめることを明らかにした。さらに、エアロゾル重金属の濃度に対して、地殻中の Al を基準とした EF 法を適用することによって、その起源を推定できることを明らかにし、人為寄与か自然寄与かの判別が可能となることを示した。以上の考察は、今後途上国への技術移転の指針として、あるいは大気環境改善施策の構築に大きく寄与・貢献するものと確信する。

学位論文審査結果の要旨

当該論文に対する個別審査後、平成 13 年 8 月 1 日の口頭発表における質疑応答の結果を踏まえ、協議の結果、次のとおり判定した。

大気汚染の大部分の原因である NO_x や SO_2 等のモニタリング手法としてインピンジャー法とパッシブサンプラー法を提案し、東アジア諸国における濃度換算計数求めるために、極低温下の石炭ベースの重工業都市中国瀋陽市 (SO_2) と亜熱帯のフィリピンで主たる発生源が移動発生源であるケソン市 (NO_2) で、濃度換算係数をインピンジャー法との並行測定から求め、瀋陽市の冬期の SO_2 濃度換算係数とケソン市の乾期の NO_2 濃度換算係数を提案し、得られた濃度換算係数を用いてモニタリングを実施し、手法の有効性を確認した。

総浮遊粒子状物質 (TSP) の測定にはハイボリュームエアサンプラーを利用した。従来から途上国で実施されている TSP 濃度測定に加えて、同じろ紙から現状の測定機器でエアロゾル成分の分析を実施し、これらの TSP, NO_3 と SO_4 濃度と重金属濃度から主成分分析と濃縮係数法によってエアロゾルからみた大気汚染を評価・比較できることを示した。

本論文は、以上のように大気汚染が著しい東アジアの諸都市の環境改善を図るために、当該国の予算的、人的不足を考慮し、現状あるいは小額の支援でも持続的な大気環境モニタリング遂行を可能とする測定法及び評価方法を提案したものであり、博士 (工学) の学位を受けるに値するものと判断する。