

14. アラスカにおける有害大気汚染物質の測定と発生源寄与の推定

Measurement of Hazardous Air Pollutants in Alaska and Estimates of Source Contributions

○下羽利明[#]・村尾直人^{*}・太田幸雄^{*}・山形定^{*}

[#]NTT アクセスサービスシステム研究所, ^{*}北海道大学

○Toshiaki SHITABA[#], Naoto MURAO^{*}, Sachio OHTA^{*}, Sadamu YAMAGATA^{*}

[#]Access Service System Laboratory, NTT, ^{*}Graduate School of Engineering, Hokkaido University

ABSTRACT ; VOCs and aerosols measurements were conducted at Barrow, Alaska, USA from July, 1999 to July, 2001, to obtain their seasonal variation. Heavy metals, EC and sulfate concentration showed minimum in summer and autumn, and maximum in winter and spring, which is a character of Arctic Haze. Some VOCs (Xylene etc.) also showed the same seasonal variation, which suggest that VOCs are the component of Arctic Haze.

Source contributions of aerosols samples at Barrow were estimated by using a new type of factor analysis, positive matrix factorization (PMF). The PMF analysis identified three factors that indicate three aerosol sources contribute to aerosol concentrations at Barrow. The first factor was considered to represent sea salt, and remaining two factors were considered to represent anthropogenic sources.

To verify a difference in transport pathways between sampling periods, 5day backward trajectories were constructed. In winter and spring, some trajectories indicated long-range transport from emission sources in Eurasia. It was thus considered that long-range transport from emission sources in Eurasia was one of the causes of Arctic Haze at Barrow.

Key Words ; Arctic Haze, aerosols, VOCs, Positive Matrix Factorization

1. 初めに

清浄な地域であると考えられてきた北極圏においても、近年では汚染物質の長距離輸送によるアークティックヘイズや、POPsによる汚染など、種々の汚染が観測されるようになってきている。このようなことから、極域のようなバックグラウンド地域においても、汚染の状態や輸送経路を明らかにしていく事は重要である。

本研究ではアークティックヘイズに注目し、研究を行なった。アークティックヘイズは、1950年代から北極上空に、冬期～春期にかけて確認されるようになった赤褐色の汚染された気塊である。ヘイズの主な成分は人為起源エアロゾルがあり、その発生源はロシアや東欧などのユーラシア地域であると考えられている。そこで本研究では、アメリカ合衆国アラスカ州ポイントバロー (71.32° N, 156.60° W) において、1999年7月～2001年7月の約2年間に渡り、アークティックヘイズの主な成分であるエアロゾル成分、ならびに大気中有害物質であるVOCs成分の通年の測定を行った。さらに、バローでの測定データをもとに、PMF (Positive Matrix Factorization) と呼ばれる統計的な手法を用いて、バローのエアロゾル濃度に対する発生源寄与を推定した。

2. エアロゾル成分の測定

(1) 測定, 分析方法

対象とする成分は、炭素成分、水溶性成分、重金属成分の3つである。炭素成分の捕集には石英繊維

フィルターを、また水溶性成分、重金属成分の捕集にはテフロンフィルターを用いた。サンプルの分析は、炭素成分はカーボンアナライザーで、水溶性成分はイオンクロマトグラフィーで、重金属成分は ICP-MASS で、それぞれ分析を行った。

(2) 期間

測定期間は 1999 年 7 月～2001 年 7 月までの約 2 年間でサンプリング地点は、2. 1 と同じ、アラスカ州のバローにて行った。

(3) サンプリング系

フィルターホルダーに固定された石英繊維フィルターとテフロンフィルターを、2 系を並列に繋ぎ、同時にサンプリングを行った。採気流量は 20mL/min、採気時間は 2 週間で、月に 2 回、行った。

(4) 結果

図 1 は、測定したエアロゾル各成分の濃度を積算で示したものである。黒色純炭素、硫酸などの成分で冬期～春期にかけて濃度の上昇がみられる。これはアークティックヘイズの特徴と一致する。また、バローは北極海に面しているため、海塩起源の粒子の割合は高くなっている。図 2 は、同じくエアロゾル成分である重金属成分の濃度の季節変動を表したものである。各成分で冬期から春期にかけて濃度の上昇がみられる。黒色純炭素粒子やバナジウム、ニッケル、砒素および鉛などの物質は、ボイラー排煙や石炭燃焼による排煙および、自動車排ガスなどに高濃度に含まれる成分であり、人間活動の結果として排出された成分である。重金属成分では、特に鉛、亜鉛で、顕著な濃度変動を示した。

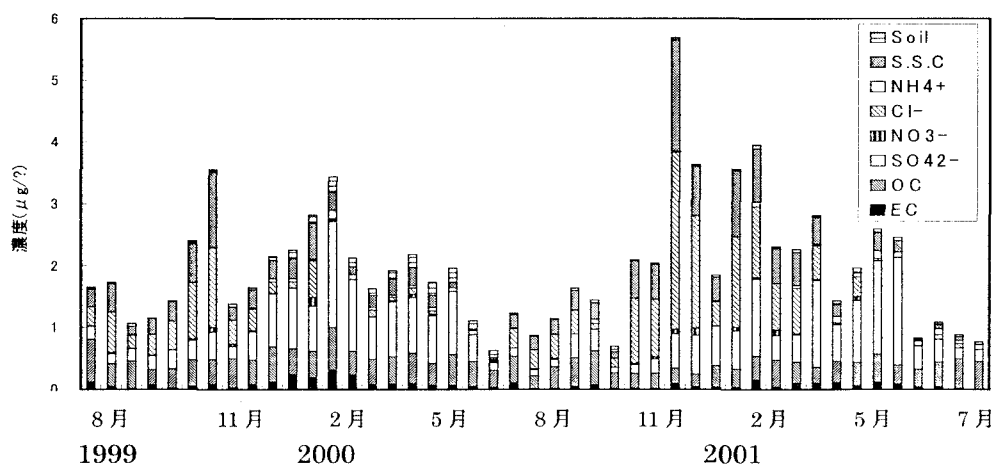


図 1 バローにおけるエアロゾル濃度の季節変化

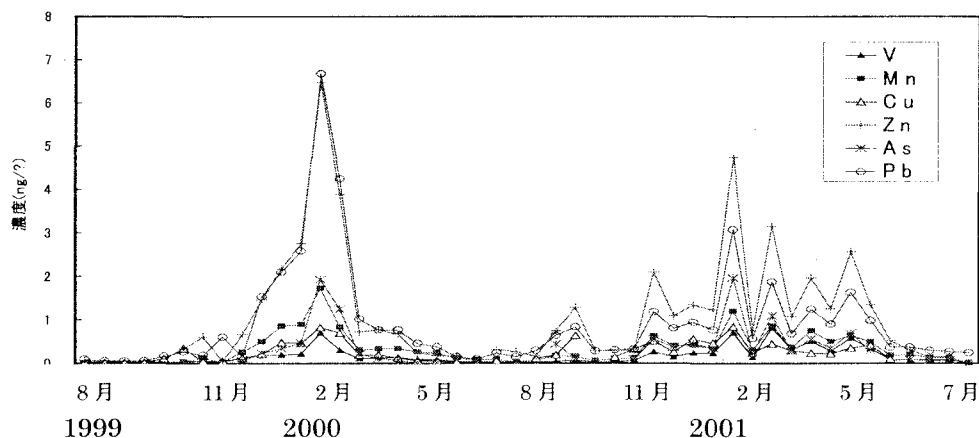


図 2 バローにおける重金属成分の季節変化

3. VOC 成分の測定

(1)測定、分析方法

測定、分析は、吸着捕集加熱脱離法を用いて行った。本法では、ガラス管に炭素系の吸着剤が三層に渡って充填された、マルチベッド型捕集管 (Carbotrap317;SUPELCO)にポンプで空気を吸引することにより、試料を採取した。捕集された試料を試料導入装置TCT-4020 (CHROMPACK)にセットし加熱脱離、極低温部で二次濃縮を行い、その後極低温部を急激に加熱し、試料を GC に注入し成分の分離を行い、質量分析装置で検出を行う。

(2)期間

2000 年 3 月～2001 年 8 月までの期間、バローにおいて、月 1 回程度のサンプリングを実施した。サンプリング流量は 200mL/min, 採気時間は 1 時間である。また、2001 年 7 月末に、実際に現地での野外サンプリングも実施した。

(3)サンプリング系

サンプリング系は捕集管、除湿管、流量計、ポンプから構成される。捕集管入り口に除湿管を接続し、出口側に流量計、ポンプを接続する。VOCs のサンプリング系を図 3 に示す。この系をサンプリングを依頼している NOAA/CMDL の施設内に設置し、サンプリングを行った。この施設の周りには、ツンドラ平原が広がっており、ローカルな汚染を受けにくい地域に位置する。また、地上から約 10m に位置する大気を取り入れ口から大気を取り入れている。

(4)結果

分析の結果のうち、いくつか特徴的であった VOCs の濃度の季節変動を図 4 に示す。Ethylbenzen, p,m-Xylene, Styrene, 1,4-Dichlorobenzen などの物質は、冬期から春期にかけて濃度が上昇する傾向が見られた。これらの成分は、主に自動車排ガスや燃焼などの人為起源によるものである。この傾向は、次章に示す重金属成分や黒色純炭素、硫酸成分などの人為起源のエアロゾル成分にも見られる濃度の変動と一致し、また、アークティックヘイズに特徴的な傾向でもある。このことから、アークティックヘイズ中の VOCs の存在が示唆された。また、Chloroform のように、年間を通してほぼ一定の濃度で推移するものや、これらの傾向とは関係なく増減する物質もあった。

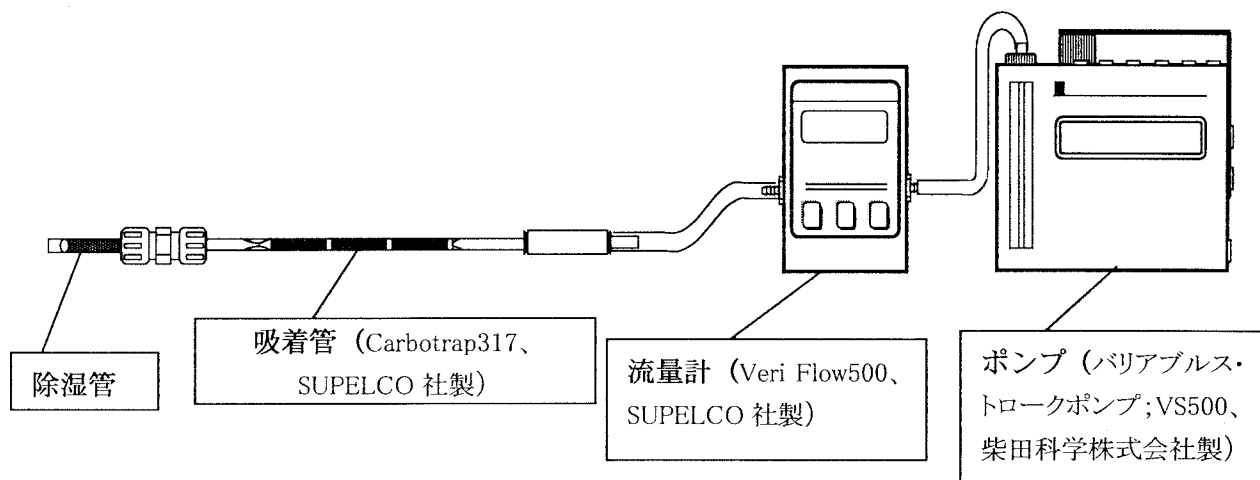


図 3. VOCs サンプリング系概略図

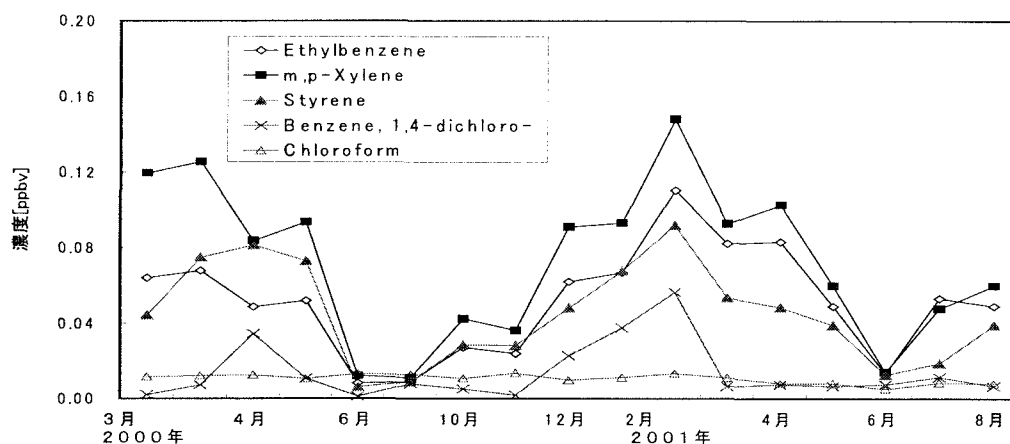


図 4 バローにおける VOCs 濃度の季節変化(顕著な季節変動を示した成分)

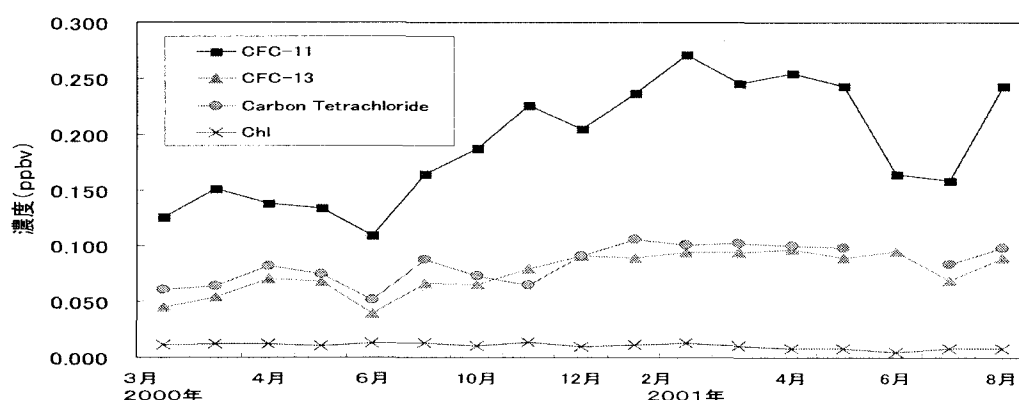


図 5 バローにおける VOCs 濃度の季節変化(濃度の季節変動がほとんど無かった、または独自の変動を示した成分)

4. Positive Matrix Factorization (PMF) を用いた発生源寄与の推定

(1) 解析手法について

前節のバローでのエアロゾル成分の測定データに対し、PMF と呼ばれる統計的な解析手法¹⁾を用い、バローの大気中エアロゾルの発生源寄与を推定した。この手法は、測定データマトリクスから、発生源プロファイル(組成)や発生源寄与濃度を推定するレセプターモデルの 1 つである。

(2) 結果・考察

解析の結果、バローのエアロゾル濃度は、海塩の影響を強く受ける発生源(Sea Salt)、人為的な燃焼を表すと考えられる2つの発生源(Anthropogenic1、2)の3つの発生源ファクターから成るものと考えた。発生源プロファイル、寄与濃度を図 4-1、図 4-2 に示す。また、各サンプリング時期における、バローからの後方流跡線による解析を行なった結果を図 4-3 に示す。

Anthropogenic1 の寄与が卓越する時期においては、ユーラシア地域など遠方からの気塊の流入が確認され、これと発生源プロファイルとを考慮すれば、Anthropogenic1 は長距離輸送による人為汚染物質を表したファクターであると考えられる。それに対し、Anthropogenic2 の寄与が卓越する晩冬～春先においては流跡線が遠方からやってくる頻度は少なく、気塊の輸送も特徴的であるとは言えなかった。このことから Anthropogenic2 は、局所的な燃焼(灯油、ガソリンなど)を表していることが考えられる。早春期に寄与濃度が卓越するのは、気塊の輸送の違いに加え、日照時間の増加とともに大気中での光化学反応が活発になる事も起因していると考えられる。

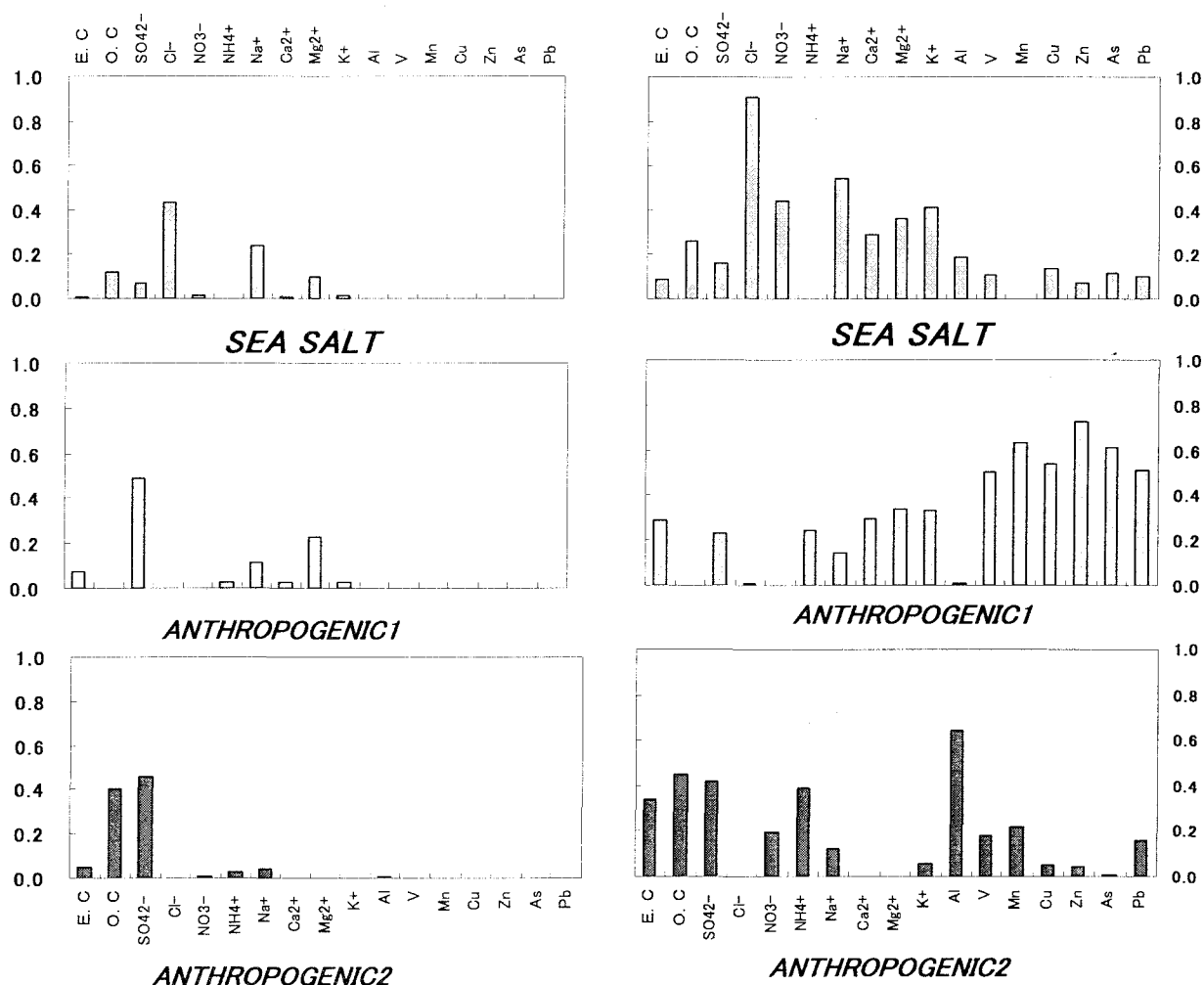


図 6. PMF 解析より得られた 3 つの発生源の発生源組成比 (左: 絶対表示 [g/g], 右: 相対表示 [-])

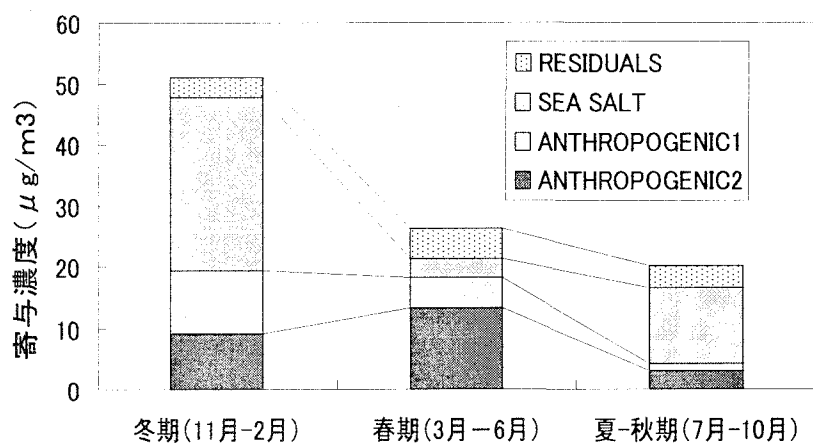


図 7. 季節ごとの各発生源寄与濃度 (積算表示)

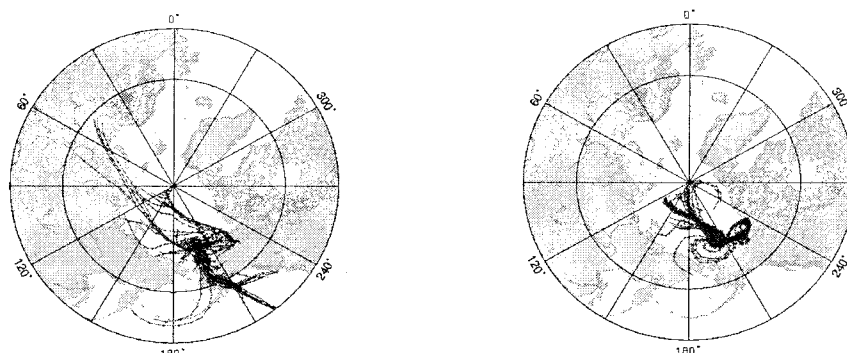


図 10. バローからの後方流跡線解析の結果（左：2000 年 2 月 5 日～17 日，
右：2000 年 5 月 13 日～26 日）

5. まとめ

アラスカ州ポイントバローにおけるエアロゾル成分、VOCs 成分の 2 年間に渡る測定を行なった。人為起源のエアロゾル成分と幾つかの VOCs 成分は、冬期に濃度が増加する同様の濃度変化を示し、アークティックヘイズ中には VOCs 成分も含まれていることが示唆された。

バローのエアロゾル測定データに対する PMF による解析により、バローの大気中エアロゾルに寄与する 3 つの発生源、発生源寄与を得た。

参考文献

- 1) A.V.POLISSAR・P.K.HOPKE：Comparative Application of Multiple Receptor Methods To Identify Aerosol Sources in Northern Vermont, Environmental Science Technology, 2001, 35, 4622－4636
- 2) ALEXANDER V.POLISSAR・PHILIP K.HOPKE・JOYCE M.HARRIS：Source Regions for Atmospheric Aerosol Measured at Barrow, Alaska, Environmental Science Technology, 2001, 35, 4214－4226
- 3) A.V.Polissar・P.K.Hopke・P.Paatero・Y.J.Kaufmann・D.K.Hall・B.A.Bodhaine・E.G.Dutton・J.M.Harris：The aerosol at Barrow, Alaska：long-term trends and source locations, Atmospheric Environment, 33 (1999) 2441－2458
- 4) 竹内和之：アラスカにおける有害大気汚染物質の測定，北海道大学大学院修士論文（2001）
- 5) 蓼内こずえ：北極圏大気汚染を対象とした流跡線解析，北海道大学卒業論文（2002）
- 6) RICHARD L.RIOT・PAUL R.WISHINSKI・ALEXANDER V.POLISSAR・PHILIP K.HOPKE：Comparative Application of Multiple Receptor Methods To Identify Aerosol Sources in Northern Vermont, Environmental Science Technology, 2001, 35, 4622－4636