

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2007～2009

課題番号：19404002

研究課題名（和文）

長期観測に基づく中国北京市の大気環境の実態調査と動態解析による環境評価

研究課題名（英文）

Environmental monitoring and assessment by analyzing the atmospheric environment in Beijing, China, based on a long-term observation

研究代表者

田中 茂 (TANAKA SHIGERU)

慶應義塾大学理工学部・教授

研究者番号：10137987

研究成果の概要（和文）：

近年発展が顕著で歴史的な都市改造が行われている中国北京市において 21 世紀最初の 10 年間の大気環境の動向を定量化することを目的として研究を行った。北京市の大気粉塵濃度は世界主要都市と比較して約 5 倍高く、直近約 10 年間ではほぼ改善されていなかった。2008 年夏季オリンピック開催に伴う諸規制により、粒径 2.5 μm 以上の粗大粒子濃度は 25%減少したが、粒径 2.5 μm 以下の微小粒子濃度に対しては減少効果が認められなかった。

研究成果の概要（英文）：

This research has been achieved in order to quantify the long-term trend of the air quality in Beijing, China where the outstanding and historic development has undergone in the past 10 years at the beginning of the 21st century. The average aerosol concentration in Beijing was approximately five times higher than those observed in several other cities in the world. The air quality in Beijing has not been improved during the past 10 years in terms of the aerosol pollution. Many regulations that have been applied to prevent the air quality in Beijing from the air pollution during the Olympic Games 2008 made the larger aerosols that have the particle size larger than 2.5 μm reduced 25%, however it didn't work well for the reduction of much smaller aerosols that have the particle size smaller than 2.5 μm .

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007 年度	7,100,000	2,130,000	9,230,000
2008 年度	3,200,000	960,000	4,160,000
2009 年度	2,800,000	840,000	3,640,000
年度			
年度			
総計	13,100,000	3,930,000	17,030,000

研究分野：複合新領域

科研費の分科・細目：環境学・環境動態解析

キーワード：環境質定量化・予測、環境分析、大気汚染防止・浄化、東アジア、有害化学物質、有害金属、多環芳香族炭化水素類、エアロゾル

1. 研究開始当初の背景

中国の首都である北京市は、人口 1400 万人を抱える中国の政治、文化、科学技術、教育の中心であり、世界の主要都市の 1 つである。中国内陸部の重慶、成都と言った重工業都市とは異なるが、人口、自動車の集中により深刻な大気汚染が問題となっており、大気粉塵濃度は年平均値で $157\mu\text{g}/\text{m}^3$ と極めて高く、日本の環境基準値である $100\mu\text{g}/\text{m}^3$ を大幅に超えており、東京、大阪、ニューヨーク、ロンドン、シンガポール等の世界主要都市の大気粉塵濃度と比較しても 4-5 倍近く高い状況にある。北京市の大気汚染の原因は、春季の砂漠地域からの黄砂の飛来と言った自然現象も含まれるが、その多くは、生産・生活のエネルギー源としての石炭燃焼、自動車の排気ガスによるところが大きい。また、2008 年には北京市で夏季オリンピックが開催されるので、現在、道路、ビル等の建設を中心に北京市の都市改造が国家を挙げて急ピッチに進められている。2008 年の夏季オリンピックの開催に向けた急激な北京市の都市改造は、北京市の大気汚染に大きな影響を及ぼすであろうことが容易に推測される。

2. 研究の目的

2008 年の夏季オリンピック開催に向け歴史的な都市改造を進めている北京市において、長期的・効率的な大気観測を継続的に行うことで、2001 年から継続的にやってきた観測成果と合わせて、2000 年代の 10 年間の北京市の大気環境の動向を解析し、有効な環境対策を提案できる精度の高い環境影響評価手法の確立を目的とした。

3. 研究の方法

中国北京市清華大学環境科学与工学工程系屋上にて TEOM(Tapered Element Oscillating Microbalance)を用いて大気粉塵濃度(PM10, PM2.5、粒径 10, 2.5 μm 以下の大気粉塵)の測定を行った。また、多環芳香族炭化水素類(PAHs)濃度測定に関しては清華大学及び中国科学院屋上にてローボリュームサンプラーを用いて大気粉塵を捕集し(1 試料につき吸引流量 5 L/min で 1 週間)、高速ソックスレー装置にて抽出し、濃縮、NH₂ カラムによる精製を行い、その後 HPLC-蛍光検出器を用いて 15 種類の PAHs の検出、定量を行った。また大気粉塵を捕集したフィルターから、超純水により水溶性成分を抽出し、抽出液中のイオン成分(F⁻, Cl⁻, NO₃⁻, SO₄²⁻, Na⁺, NH₄⁺, K⁺, Mg²⁺, Ca²⁺)をイオンクロマトグラフィーにより分析した。

4. 研究成果

(1) 中国北京市における長期的な大気観測
まず最初に、本研究における観測地点であ

る清華大学の北京市における代表性について検討した。本研究において清華大学で測定されている PM10 質量濃度と北京市環境保護局(BMEPB)が公表している PM10 質量濃度はほぼ同じ濃度レベルであり、かつほぼ同様の挙動を示した。また、両者の相関を取ると傾きが 0.9977 と非常に 1 に近かったことから、本研究において、清華大学にて測定している PM10 質量濃度は北京市において代表性があると言える。

2001 年 4 月から 2009 年 12 月の期間の中国北京市における PM10 濃度の平均値は $147.0\pm 89.6\mu\text{g}/\text{m}^3$ (n=3113)であり、横浜市日吉と比べて 4-5 倍高いこと、また世界各地と比較しても約 5 倍高いことがわかった。2001 年から 2009 年にかけて PM10 濃度の年平均値は約 $150\mu\text{g}/\text{m}^3$ で推移しており北京市の大気質はほとんど向上していないことがわかった。2005 年 10 月から 2009 年 9 月の期間の北京市における PM2.5 濃度の平均値は $77.4\pm 65.9\mu\text{g}/\text{m}^3$ (n=1164)であり、横浜市日吉における PM2.5 濃度と比較すると約 5 倍高濃度であった。また PM2.5 濃度は PM10 濃度の約 53%の値であることがわかった。PM10 および PM2.5 濃度は過去約 10 年間に於いてほぼ同じ濃度レベルであり、大気汚染に関わる諸対策にもかかわらず、長期的には北京市の大気質が改善されていないことが示された。

(2) 夏季オリンピック開催が北京市の大気環境に与えた影響の評価

a. オリンピック開催に伴う排出規制について

北京市政府は、オリンピック開催時期における大気環境の改善をはかるために、オリンピック開催約一ヶ月前の 7 月 1 日から閉会後の 9 月 20 日にかけて様々な活動に対して一時的な規制措置を講じてきた。この規制は自動車に関するものと、工場その他排出源に関するものに大別できる。

自動車の規制に関しては、交通量の規制を行い、市内を走る自動車の台数を制限するだけでなく、大気汚染物質の排出量の多い自動車に対する交通規制にも重点が置かれた。まず国家排出基準 I (排出ガス基準 Euro 1 に相当)を満たしていないガソリン車、また国家排出基準 III (Euro 3 に相当)を満たしていないディーゼル車は“vehicles with yellow environmental labels”として他の自動車と分けられ通行禁止となった。また、一部(生鮮農産品や必要な生産・生活物資)を除いてトラックや貨物自動車、バイクなどの通行も市内全域または中心部で禁止された。さらに、市内および市外から北京市に乗り入れる車両をナンバープレートの偶奇で分け通行規制を行った。

自動車以外の規制には、火力発電所、鉄鋼精錬所のような大規模施設の規制から工事

現場やガソリンスタンドのような小規模ながら数の多い施設まで多岐にわたっている。まず大気汚染物質の大規模な固定発生源に関しては石炭燃焼を行うものとそれ以外に分けられる。石炭燃焼を行うすべての発生源は厳しい規制を敷かれ、火力発電所は汚染物質の30%の排出削減、そのほかのボイラー施設でも「ボイラー大気汚染物質排出基準 (DB11/139-2007)」という基準が課された。石炭燃焼を行わない排出源に関しては、鉄鋼、石油化学、セメント生産、採石、精錬、建材など多くの分野の工場が汚染物質の30%の排出削減や生産停止などの措置をとられた。また大規模ではないものの施設数が多く総排出量の多い排出源も規制の対象となっている。このようなものには工事現場、市内の道路、ガソリンスタンド、自動車修理、塗装現場などが挙げられる。オリンピック期間中はすべての土木工事が中断され、道路も毎日の吸引清掃と水洗作業が義務付けられた。また、VOC 排出の原因となるため、屋外での吹きつけ塗装や家具生産、自動車修理に関しては排出基準を満たさないところは生産停止の措置がとられた。火力発電・石炭ボイラー・鉄鋼・石油化学・セメント・鉄精錬などの排出源は、工場由来のSO₂の総排出量に対して大きい割合を占めており、これらに汚染物質30%の排出削減もしくは生産停止という措置がとられた。これらの措置が適切に行われていれば、期間中に排出される大気汚染物質の量は大きく減少すると考えられる。

b. 大気粉塵濃度

2001年から2009年における7-9月のPM10の濃度すべての平均値は117.4±25.9μg/m³ (n=738)であった。ここから各年7-9月におけるPM10の濃度の平均値を比較する。Fig. 1を見ると2001年より2007年まではPM10濃度は平均値に近い値で推移していることがわかる。しかし2008年になると平均値は88±25μg/m³ (n=82)と25%も濃度減少し、この差は統計的に有意であった。

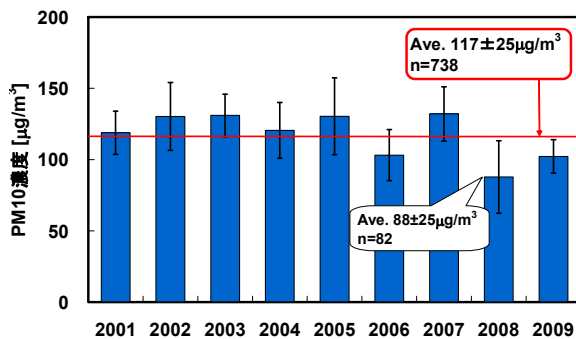


Fig.1 中国北京市 PM10 濃度(7-9 月の平均値)

一方、2008年7-9月におけるPM2.5濃度の

平均値は58.5±35.9μg/m³ (n=82)であり、2007年の同期間の平均値59.8±38.69μg/m³ (n=75)と比較して2%低かったが、統計的に有意な差はなかった。従って北京市政府が北京オリンピック期間前後に行った数々の規制は、PM10濃度を25%減少させるのには成功したがPM2.5濃度に対しては減少効果が認められなかった。

c. 大気粉塵中水溶性イオン成分濃度

Table 1 に北京市大気粉塵中水溶性イオン成分濃度の測定結果を示す。2008年の規制期間(7-9月)と他年(2005-2007年)規制期間での濃度の平均値を比較すると、他年規制期間55.4±21.3μg/m³ (n=26)に対して規制期間35.4±15.2μg/m³ (n=9)と濃度が37%減少していた。二つの濃度の間には統計的に有意な差があり、2008年夏季オリンピックの規制期間中にTSP(全大気粉塵)中のイオン成分濃度が減少しているということがわかった。そこで次にTSP中の主要なイオン成分に注目して個別に検討を行った。Ca²⁺に関しては、他年規制期間の平均濃度9.54±3.30μg/m³ (n=26)に対して規制期間の平均濃度は3.48±1.24μg/m³ (n=9)であり、65%も濃度が減少していることが判った。大気中のCa²⁺の発生源としては主に土壌、セメント工場および建設現場、自動車走行時に削られる道路のコンクリート・アスファルトなどが挙げられる。オリンピック期間には大規模に工場の稼働規制が行われるとともに市内の交通量に制限がかけられており、これらの規制によりCa²⁺を含む粉塵の大気への飛散量が抑えられたため、Ca²⁺濃度が下がったと考えられる。また、SO₄²⁻濃度に関して規制期間と他年規制期間を比較すると、他年規制期間の濃度31.9±15.9μg/m³ (n=26)に対して規制期間の濃度が17.7±8.6μg/m³ (n=9)と46%も低いことが判った。これらの減少はCaSO₄の減少によるものであると推定できた。都市域におけるCaSO₄の発生源の多くはセメント粉塵等の人為発生源であると考えられるため、オリンピック期間の規制がCaSO₄の濃度の減少に寄与したと考えられる。

Table 1 北京市大気粉塵中イオン成分濃度

μg/m ³	規制期間 ^{a)} n=9		他年規制期間 ^{b)} n=26		規制期間/ 他年規制期間
	Ave.	± S.D.	Ave.	± S.D.	
NH ₄ ⁺	7.59	± 3.73	3.76	± 2.33	2.02
Ca ²⁺	3.48	± 1.24	9.54	± 3.30	0.36
NO ₃ ⁻	5.48	± 2.07	6.93	± 3.64	0.79
SO ₄ ²⁻	17.68	± 8.62	31.86	± 15.88	0.55
Total	35.41	± 15.24	55.37	± 21.26	0.64

a) 2008年6月27日～2009年9月19日

b) 2005年7月1日～2005年9月23日
2006年6月30日～2006年8月4日
2007年6月29日～2007年9月21日

d. 多環芳香族炭化水素類(PAHs)濃度

2004年10月から2007年9月までの期間におけるΣPAHs(測定された15種類のPAHs濃度の総和)の平均値は129±181ng/m³(n=134)であった。ここで北京市の大気粉塵中PAHs濃度には極めて大きな季節変動があり、暖房期(11/15-3/15)におけるΣPAHsの平均値は304±247ng/m³(n=240)であるのに対し、非暖房期(5/15-9/15)では30.1±21.8ng/m³(n=41)と約10倍の差となっている。夏季オリンピックは非暖房期に行われたので、このPAHsの季節変動を考慮して過去のデータとの比較を行った。

Table 2に規制期間(2008/6/27-9/19, n=9)と前年度規制期間(2007/6/29-9/21, n=12)を比較したものを示した。これより、ΣPAHsに関しては両期間においてほとんど違いがなかった。しかし5環、6環、7環のPAHsを見ると前年度に比べ減少しているように見える。各環数毎に考えると、Σ5-ring PAHs濃度は規制期間で5.8±2.0ng/m³(n=9)、前年度規制期間で8.5±2.5ng/m³(n=12)となっており、規制期間では32%減少していると言える。同様にΣ6-ring PAHs濃度は規制期間で3.4±1.1 ng/m³(n=9)、前年度規制期間で5.7±1.6 ng/m³(n=12)となっていて規制期間では40%減少していると言え、また同様にΣ7-ring PAHs濃度は規制期間で0.3±0.1 ng/m³(n=9)前年度規制期間で0.9±0.6 ng/m³(n=12)となっており、67%の減少であった。

Table 2 北京市大気粉塵中 PAHs 濃度

PAHs	環数	PAHs concentrations in TSP [ng/m ³]				
		規制期間		前年度規制期間		
		Ave. ± S.D.	n	Ave. ± S.D.	n	
PHE	3-ring	8.9 ± 2.4	9	7.3 ± 2.4	12	1.22
ANT		0.1 ± 0.03	9	0.2 ± 0.07	12	0.89
FLT		5.5 ± 1.4	9	4.9 ± 2.2	11	1.13
PYR		3.7 ± 1.8	9	3.0 ± 0.8	12	1.24
TPL	4-ring	0.6 ± 0.2	9	0.5 ± 0.2	9	1.01
TPB		2.6 ± 0.8	9	1.8 ± 0.4	12	1.44
BaA		0.5 ± 0.2	9	0.7 ± 0.3	12	0.75
CHR		2.6 ± 1.5	9	2.5 ± 0.6	12	1.03
BeP		1.5 ± 0.5	9	2.0 ± 0.7	12	0.73
BbF	5-ring	2.5 ± 0.9	9	3.7 ± 1.1	12	0.67
BkF		0.8 ± 0.3	9	1.1 ± 0.3	12	0.67
BaP		1.0 ± 0.4	9	1.6 ± 0.5	12	0.64
BghiP	6-ring	1.7 ± 0.5	9	2.9 ± 0.8	12	0.58
IND		1.7 ± 0.6	9	2.8 ± 0.9	12	0.59
COR	7-ring	0.3 ± 0.1	9	0.9 ± 0.6	12	0.34
ΣPAHs		34.0 ± 6.7	9	35.4 ± 8.5	12	0.96

以上のように、規制期間と前年度規制期間とを比較した場合、ΣPAHs濃度では有意な差は見られなかったが、高分子量PAHsである5-7環のPAHsが前年度に比べ、濃度の減少およびPAHsに占める割合の減少が有意にみられた。高分子量PAHsは自動車の排気ガスが主な発生源とされており、北京市政府が行っ

た規制によってオリンピック期間中に北京市を走行する自動車台数が減少し、高分子量PAHs濃度が減少したと考えられる。

(3) PMF (Positive Matrix Factorization)法を用いた北京市大気粉塵中PAHsの発生源の推定

2004/10/1-2007/3/9の期間の北京市大気粉塵中PAHsの測定結果を基にPMF法によりPAHs発生源の推定を行った。PMF法は発生源データがなくとも観測地点における多数の測定値およびその誤差から発生源データおよびその発生源からの寄与を同時に推定できる方法であり、本研究では米国環境保護局(US EPA)が公開しているEPA PMF 1.1を用い、11種類のPAHsを推定に用いる指標とし、発生源の数を6つとして推定した。推定結果をFig. 2に示す。推定の結果得られた発生源Profileの特徴と実際の発生源データの比較および推定寄与濃度変動から、EPA PMFにより得られた各Factorはそれぞれ以下の発生源を示していると考えられた。Factor 1: 石炭燃焼1、Factor 2: 廃棄物燃焼、Factor 3: ディーゼル自動車排気、Factor 4: ガソリン自動車排気、Factor 5: その他、Factor 6: 石炭燃焼2。この結果より、北京市大気粉塵中PAHsの発生源は、暖房期では石炭燃焼を始めとする固定発生源から約80%、非暖房期では自動車排気などの移動発生源から約40%となった。従って中国北京市では季節によってPAHsの発生源の寄与が大きく異なることが判った。

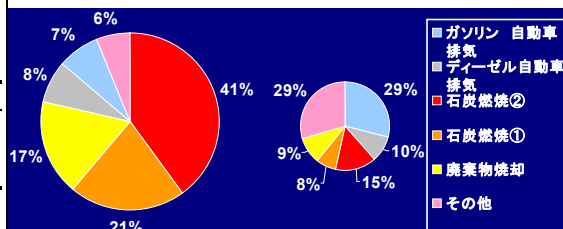


Fig.2 EPA PMFによる北京市大気粉塵中PAHs発生源寄与率の推定結果

またEPA PMFにより得られた推定値と実測値の比較を行うことで推定結果の精度を検討した。Fig. 3に指標成分に用いた11種類のPAHsの総和の濃度(Σ11PAHs)の推定値と実測値の相関を示す。得られた直線は傾き0.915、r²値は0.966であり実測値に対して約9割の推定値と高い精度で推定が行われていることがわかった。さらに、各PAHs成分について得られた直線の傾き、r²値について見ると、Σ11PAHsと同様、それぞれのPAHs成分についても傾きINDを除き、0.604-1.048、r²値0.614-1.000が得られ、非常に高い精度で推定されたといえる。

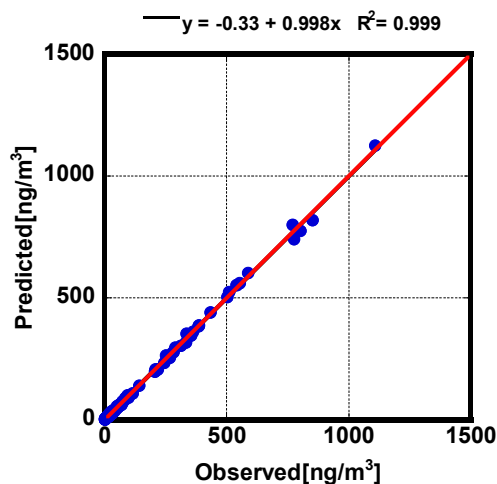


Fig. 3 EPA PMFにより得られたΣ11PAHs濃度の推定値と実測値の相関

(4) まとめ

近年発展が顕著で歴史的な都市改造が行われている中国北京市において 21 世紀最初の 10 年間の大気環境の動向を定量化することを目的として研究を行った。北京市の大気粉塵濃度は約 $150\mu\text{g}/\text{m}^3$ であり世界主要都市と比較して約 5 倍高く、直近約 10 年間ではほぼ改善されていなかった。2008 年夏季オリンピック開催に伴う諸規制により、粒径 $2.5\mu\text{m}$ 以上の粗大粒子濃度は 25%減少したが、粒径 $2.5\mu\text{m}$ 以下の微小粒子濃度に対しては減少効果が認められなかった。2008 年の規制期間(7-9 月)と他年(2005-2007 年)規制期間での濃度の平均値を比較すると、他年規制期間 $55.4\mu\text{g}/\text{m}^3$ に対して規制期間 $35.4\mu\text{g}/\text{m}^3$ と濃度が 37%減少していた。また多環芳香族炭化水素類に関しては、規制期間と前年度規制期間とを比較した場合、全濃度では有意な差は見られなかったが、高分子量 PAHs である 5-7 環の PAHs が前年度に比べ、濃度の減少および PAHs に占める割合の減少が有意にみられた。これらは諸規制の効果と考えられた。最後に、PMF 法により北京市大気粉塵中 PAHs 発生源の推定を行った。その結果、北京市大気粉塵中 PAHs の発生源は、暖房期では石炭燃焼を始めとする固定発生源から約 80%、非暖房期では自動車排気などの移動発生源から約 40%となり、季節によって PAHs の発生源の寄与が大きく異なることが判った。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 5 件)

1. Okuda, T., Okamoto, K., Tanaka, S., Shen, Z.X., Han, Y.M., Huo, Z.Q. (2010)

Measurement and source identification of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in the aerosol in Xi'an, China, by using automated column chromatography and applying positive matrix factorization (PMF), *Sci. Total Environ.* **408** (8), 1909-1914. (査読有)

2. Shen Z.X., Cao, J.J., Arimoto, R., Han, Z.W., Zhang, R.J., Han, Y.M., Liu, S.X., Okuda, T., Nakao, S., Tanaka, S. (2009) Ionic composition of TSP and $\text{PM}_{2.5}$ during dust storms and air pollution episodes at Xi'an, China, *Atmospheric Environment* **43** (18), 2911-2918. (査読有)
3. 奥田知明, 黒田寿晴, 奈良富雄, 岡本和城, 岡林佑美, 直井大輔, 田中茂, He, Kebin, Ma, Yongliang, Jia, Yingtao, Zhao, Qing (2009) 自動化カラムクロマトグラフィー装置の開発と浮遊粒子状物質中多環芳香族炭化水素類の定量への応用, *分析化学* **58** (4), 287-292. (査読有)
4. Okuda, T., Katsuno, M., Naoi, D., Nakao, S., Tanaka, S., He, K., Ma, Y., Lei, Y., Jia, Y. (2008) Trends in hazardous trace metal concentrations in aerosols collected in Beijing, China from 2001 to 2006, *Chemosphere* **72** (6), 917-924. (査読有)
5. 奥田知明, 中尾俊介, 田中茂, Z.X. Shen, K. He, Y. Ma, Y. Lei, Y. Jia (2007) 中国西安市及び北京市における大気粉塵中水溶性イオン成分濃度の特徴, *地球化学*, **41** (4), 113-123. (査読有)

[学会発表] (計 4 件)

1. 奥田知明, 田中茂, 賀克斌, 馬永亮, 趙晴 (2009) オリンピック開催に伴う中国北京市大気粉塵濃度の変化, 第 50 回大気環境学会年会、慶應義塾大学 (横浜市)、2009 年 9 月 16 日。
2. Okuda, T., Tanaka, S., He, K., Ma, Y., Shen, Z.X. (2008) Current Status of Urban Air Pollution in China and Japan. *5th KOSAE-JSAE Joint International Symposium*, Kanazawa, Japan, September 17th, 2008 [invited].
3. 奥田知明, 直井大輔, 田中茂, K. He, Y. Ma, Y. Lei, Y. Jia (2007) PMF 法による中国北京市大気粉塵中多環芳香族炭化水素類 (PAHs) の発生源の推定, 第 48 回大気環境学会年会、岡山理科大学 (岡山市)、2007 年 9 月 5 日。
4. 松林麗子, 奥田知明, 田中茂, K. He, Y. Ma, Y. Lei, Y. Jia (2007) 中国北京市、西安市、および重慶市における降水中イオン成分濃度の特徴, 第 48 回大気環境学会年会、岡山理科大学 (岡山市)、2007 年 9 月 5 日。

〔図書〕（計0件）

〔産業財産権〕

○出願状況（計0件）

○取得状況（計0件）

〔その他〕

なし

6. 研究組織

(1) 研究代表者

田中 茂 (TANAKA SHIGERU)

慶應義塾大学・理工学部・教授

研究者番号：10137987

(2) 研究分担者

奥田 知明 (OKUDA TOMOAKI)

慶應義塾大学・理工学部・講師

研究者番号：30348809

(3) 連携研究者