

平成14年度 自動車排出ガス実態調査

堀本泰秀 中西基晴 吉成晴彦 水上雅義 竹内和俊 鎌形香子

1 目的

有害大気汚染物質として揮発性有機化合物(VOCs)が注目されている。中でも、ベンゼンはその発癌性が指摘されているが、環境基準の達成率は低く、このため各種発生源の影響を把握することが重要な課題である。一方、自動車は有害大気汚染物質の非意図的な発生源の一つでベンゼンだけではなく、1,3-ブタジエンなどの主たる発生源とも考えられている。そこで本調査では、自動車排ガスの影響が強いトンネル内を測定の場合として採用し、大気濃度の殆どが自動車由来であると考えられる一酸化炭素(CO)を指標としてこれらVOCsの解析を試みた。

なお、本調査で使用したトンネルは1998年に行われた「平成9年度 化学物質環境リスクアセスメント調査」¹⁾のトンネルと同一であり、測定値を比較する

事により2000年に行われたガソリン中のベンゼン含有量削減の効果についても評価を試みた。

2 調査・研究の具体的な方法

2・1 調査地点

自動車排ガスの影響が強い千葉駅前地下トンネルを調査地点とし、トンネル内及びトンネル出入口周辺(対照測定地点)で測定を行った(図1)。調査対象トンネルは、対向各一車線で車線を隔てる壁が無い構造であった。トンネル中腹にはジェットファンがあり、対照測定地点側から空気を吸入し、逆側のトンネル出入口から排気することにより、換気を行っていた。一日の交通量は約20000台、大型車混入率は10%以下であった。

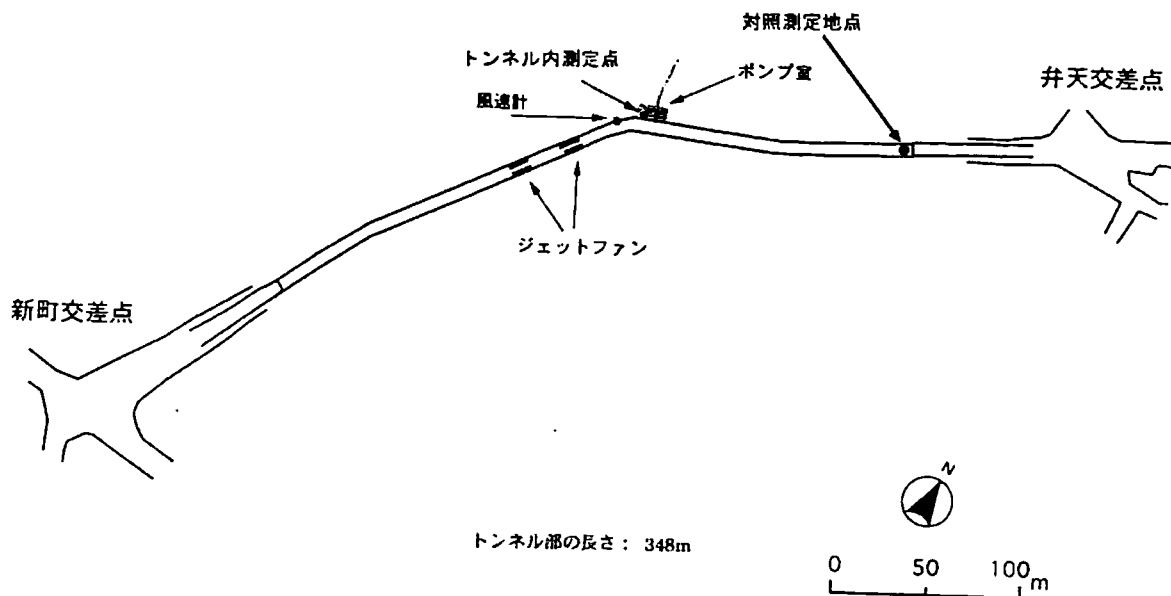


図1 千葉駅前トンネル(文献¹⁾より引用、一部改変)

2・2 調査日時

平成14年9月9日10時～10日10時

2・3 調査方法

表1に測定項目および分析法を示す。試料大気のサンプリングは2時間のあいだ、50Lのテドラーバッグに等速度で吸引することによって行った。その後、現場で2Lの真空瓶に詰め替えを行いVOCs用の試料とした。COおよびNOxは、テドラーバッグに残った試料を自動測定機で測定し、2時間の平均濃度とした。交通量は、4時間毎に15分間、バックグラウンド測定点で道路交通を撮影し、2時間交通量の推測を行った。

表1 測定項目及び分析方法

測定項目	分析方法
交通量	ビデオ録画
一酸化炭素	非分散赤外分光法
窒素酸化物	化学発光法
VOCs	GC/MS法

なお、VOCs用試料は研究センターに持ち帰り、VOCs連続測定装置²⁾に導入することにより分析を行った。

2・4 解析方法

トンネル内の大気汚染物質濃度から対照測定地点濃度を差し引き、算出された“差”を補正濃度とし、補正濃度のすべてが自動車由来であると仮定して解析を行った。

解析は、最初に補正CO濃度を独立変数、各種VOCsを従属変数として切片ありの回帰分析($y = ax + b$)を行った。帰無仮説 $b = 0$ が5%の危険率で棄却できる場合は、そのままの値を採用した。帰無仮説 $b = 0$ が5%の危険率で棄却できない場合は、改めて切片なしの回帰分析を行い、回帰係数を求めた。

3 調査結果

相関分析を行い、補正COと相関係数が0.9以上の物質を対象に結果の検討を行った。なお、スチレンは試料大気中の水分の除去に使用したNafionドライヤーへの吸着が確認されたため、欠測とした。測定結果を表2および表3を示す。トンネル内の解析対象物質濃度は、対照測定地点濃度とくらべて一様に高く、自動車排気ガスがこれらの発生源である事を示していた。

表2 一酸化炭素および窒素酸化物の測定結果

物質名	トンネル内濃度			対照測定地点濃度		
	Ave. [†]	Max. [†]	Min. [†]	Ave. [†]	Max. [†]	Min. [†]
一酸化炭素	9.0	19	1.1	1.4	2.5	0.29
窒素酸化物	0.68	1.4	0.11	0.10	0.19	0.017

† 単位はppm

表3 有害大気汚染物質の測定結果

物質名	トンネル内濃度			対照測定地点濃度		
	Ave. [†]	Max. [†]	Min. [†]	Ave. [†]	Max. [†]	Min. [†]
優先取組物質						
ベンゼン	40	83	6.0	6.3	11	1.2
1,3-ブタジエン	5.7	10	1.2	1.0	1.7	0.15
アクリロニトリル	0.42	0.74	0.076	0.12	0.26	0.054
上記以外の有害大気汚染物質						

n-ヘキサン	28	56	3.5	4.7	7.6	0.96
トルエン	140	270	26	25	43	8.8
エチルベンゼン	24	45	3.6	4.6	9.6	1.4
o-キシレン	27	52	3.4	4.0	7.2	0.83
m,p-キシレン	72	140	9.2	11	20	2.4
1,3,5-トリメチルベンゼン	9.8	17	1.3	1.4	2.3	0.30
1,2,4-トリメチルベンゼン	32	55	4.6	5.1	8.0	1.1

† 単位は $\mu\text{g}/\text{m}^3$

3・1 交通量及びCO濃度の変化

トンネル内および対照測定地点の一酸化炭素濃度および交通量の推移を図2に示す。他の大気汚染物質もCOとほぼ同様の推移を示していた。

図2から交通量とCO濃度が相関関係にある事が見てとれ、サンプリングを行った2時間でトンネル内の空気は置換されたと考えられる。なお、本調査の交通量は測定誤差などを考慮すると「化学物質環境リスクアセスメント調査」のものと同様であった。

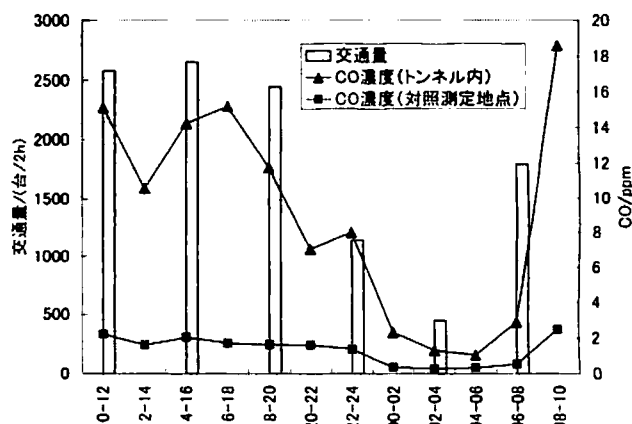


図2 一酸化炭素濃度および交通量の推移

3・2 回帰分析の結果

補正 CO 濃度および補正 VOCs 濃度で回帰分析を行った。結果を表4に示す。決定係数 R^2 が 0.95~0.99 の範囲にあり、補正 CO 濃度と非常に強い相関を示していた。一例として、BTX 類の散布図を図3に示す。また、大半の汚染物質は回帰分析の切片が 0 であり、トンネル内で CO 濃度が増加しなければ、VOCs 濃度が増加しないだろうという論理的要請を満たす。

調査地点である千葉駅前トンネルは市街地にあり、トンネル内を通る自動車の車速、車種構成比などが市街地とほぼ同様であることから、CO 濃度から市街地の各種汚染物質濃度の推測が可能であると考えられる。

なお、NO_x を指標として回帰分析を行った場合も、大半の物質で切片 0、決定係数 R^2 が 0.94~0.99 という結果が得られた。

表4 VOCsの測定結果及び回帰分析の結果

物質名	回帰係数*		決定係数* R^2
	傾き†	切片‡	
優先取組物質			
ベンゼン	4.3±0.2	—	0.983
1,3-ブタジエン	0.49±0.04	1.0±0.4	0.985
アクリロニトリル	0.039±0.002	—	0.975
上記以外の有害大気汚染物質			
n-ヘキサン	3.0±0.1	—	0.987
トルエン	14.1±0.8	—	0.975
エチルベンゼン	2.5±0.2	—	0.954
o-キシレン	2.9±0.2	—	0.964
m,p-キシレン	7.7±0.5	—	0.962
1,3,5-トリメチルベンゼン	1.05±0.06	—	0.973
1,2,4-トリメチルベンゼン	3.0±0.3	4±3	0.976

* COとの回帰分析の結果。±の右側の数字は95%信頼区間を表す
† 単位は($\mu\text{g}/\text{m}^3$)/(ppm)、‡ 単位は $\mu\text{g}/\text{m}^3$

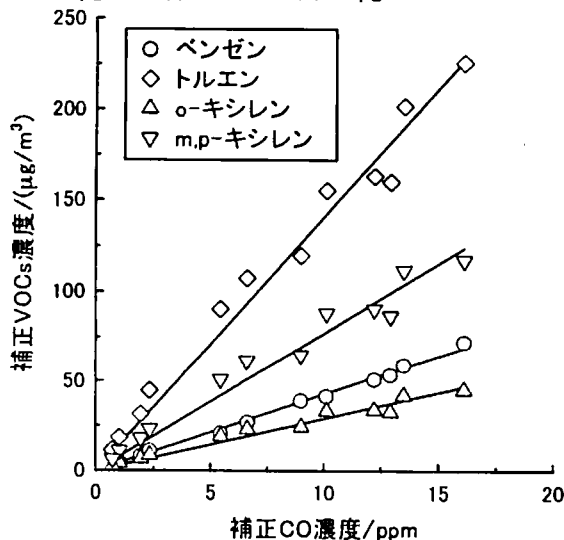


図3 COとBTX類の関係

3・3 他の調査との比較

3・3・1 リスクアセスメント調査(1998年実施)との比較

平成10年3月に千葉駅前トンネルで行われた調査と本調査の結果を比較することにより、ガソリン中のベンゼン含有量削減の影響評価を試みた。図3のCOとベンゼンの関係より回帰係数が減少していることが見てとれる。両調査は、交通量もCO濃度もほぼ同程度であることから、自動車から排出されるベンゼンの量が減少したことが示唆された。

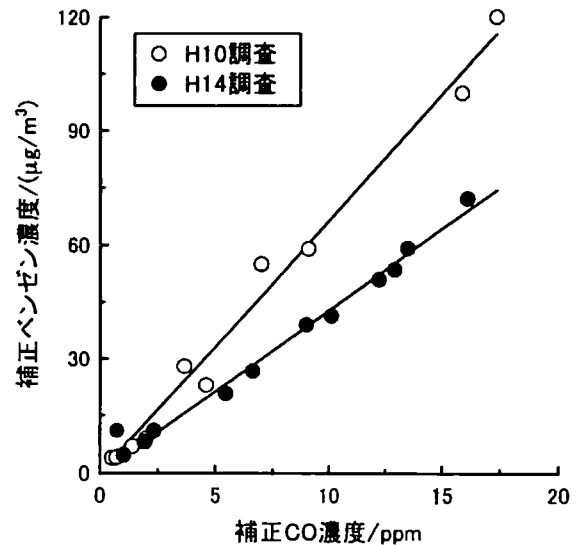


図4 COとベンゼンの関係

図4にBTEX類の回帰係数の推移を示す。ベンゼン、トルエンの回帰係数が大きく減少しているのに対し、エチルベンゼン、キシレンはほぼ同様の値で、減少率はそれぞれ36, 24, 10, 12%であった。ベンゼンの減少が顕著であることから、ガソリン中のベンゼン含有量削減が自動車排ガス中のベンゼン排出量の減少に影響を与えたものと思われる。

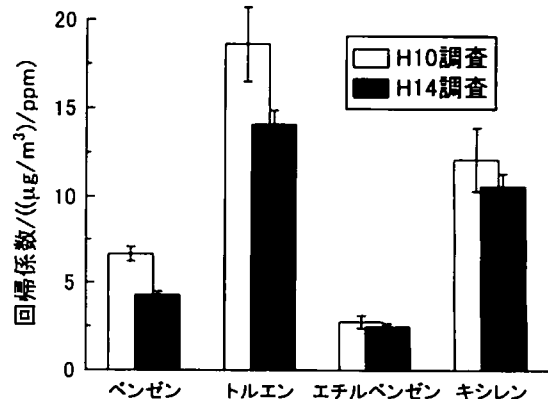


図5 回帰係数の比較

文献³⁾によると、ガソリン中のベンゼンは、プレミアムガソリンで平均1.7%から0.5%へ、レギュラーガソリンで2.2%から0.8%に低減され、低減率はそれぞれ71%、64%で本調査の回帰係数の削減率より大きい。このことは、ガソリン自動車より排出されるベンゼンが、ガソリン中に含まれているベンゼンが未燃焼のまま排出されるものと、アルキルベンゼン類が熱分解され、ベンゼンとして排出されるものの2種類存在すること⁴⁾から説明される。すなわち、アルキルベンゼン類の熱分解により供給されるベンゼンが一定量存在するため、ガソリン中のベンゼン含有量削減率が排ガス中のベンゼン排出量削減率と一致しない。

参考にガソリン中の有害物質含有量（業界平均）を表5に示す。この表からもガソリン組成と比べて排ガス中のベンゼン排出量が高いことが見てとれる。

表5 ガソリン中の有害物質濃度(文献⁵⁾より、単位:wt%)

	ベンゼン	トルエン	キシレン	エチルベンゼン
レギュラーガソリン	0.64	9.1	6.1	1.4
プレミアムガソリン	0.51	20.8	8.5	1.7

3・3・2 有害化学物質高濃度地域調査（2001年度実施）との比較⁶⁾

有害化学物質高濃度地域調査（以下、高濃度地域調査）は自排局および一般局でCOおよびVOCsの測定を行い、回帰係数を求めた調査である。この調査は2001年に行われているため、ガソリン中のベンゼン含有量削減以降の調査である。

自排局および一般局の2地点のデータを使用したベンゼンの回帰係数は4.38 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)/ppmであり、本調査の結果4.3 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)/ppmとほぼ同様であった。高濃度地域調査の測定値は県内の自排局及び一般局で測定されおり、県内の道路沿道及び後背地の状況を比較的良く反映しているものと考えられる。従って、今回のトンネルにおける調査とあわせると、千葉県におけるCO濃度とベンゼン濃度の回帰係数は4.3～4.4 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)/ppm程度と考えられる。

なお、本調査で得られた回帰係数4.3 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)/ppmから試算すると、自動車排出ガス測定局で一酸化炭素濃度が0.8ppmを越えていると、ベンゼン濃度が環境基準(3.0 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)以上の値を示している事が予想される。

4 まとめ

千葉駅前トンネルを利用してVOCsの測定を行った結果、

- (1) COを指標としたVOCsの市街地における排出係数を求めた。
- (2) 「リスクアセスメント調査」と比較する事により、ベンゼン発生量の削減を確認した。
- (3) 「高濃度地域調査」と合わせると千葉県内のベンゼンの排出係数は4.3～4.4 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)/ppm程度であることがわかった。
- (4) ベンゼン高濃度地域で、一酸化炭素およびベンゼン濃度を測定することにより、各汚染源の寄与率を求められ、対策の為の基礎資料とすることが期待される。

本調査より、千葉駅前地下トンネルは調査の場として適切であることが分かったので、平成15年度調査では本調査の測定項目に加えアルデヒド類およびアンモニア類の排出実態を調べたいと考えている。また冬期に調査を行うことにより、夏期と冬期の燃料性状変化による有害大気汚染物質の排出実態の変化を確認したいと考えている。

参考文献：

- 1) 千葉県環境部：平成9年度化学物質環境リスクアセスメント調査報告書(1998)。
- 2) 中西基晴、水上雅義：固体吸着-加熱脱着-GC/MS法による大気中VOCs連続自動測定法の検討、第42回大気環境学会講演要旨、p.307,(2001)。
- 3) 小俣達雄：ガソリンの低ベンゼン化技術。環境と測定技術、Vol.26, No.9, p.69-76,(1999)。
- 4) Bronwyn L. Duffy, Peter F. Nelson : Non-Methane Exhaust Composition In The Sydney Harbour Tunnel: A Focus On Benzene And 1,3-Butadiene. Atmospheric Environment Vol. 30, p.2759-2768, (1996)。
- 5) 経済産業省・環境省：PRTR排出量等算出マニュアル 第2版(2003)。
- 6) 竹内和俊、中西基晴、水上雅義、吉成晴彦：有害化学物質高濃度地域調査(揮発性有機化合物, VOCs)。千葉県環境研究センター年報 2001, p.99-101, (2002)。