

道路沿道および後背地における大気中ナノ粒子について

－冬季及び夏季の粒径分布調査－

石井克巳 藤谷雄二* 竹内和俊

(* : (独) 国立環境研究所)

1 はじめに

これまで大気汚染の主要な問題として取り組まれてきた浮遊粒状物質 (SPM) については環境改善が進んでおり、2007 年度以来、千葉県内の全測定局の環境基準が達成されている。一方、人体に対する有害性はより微細な粒子ほど大きいことが指摘されており、SPM よりも微小な粒子である PM_{2.5} の環境基準が 2009 年 9 月に制定された。

さらに近年は、より微細なナノサイズの粒子(ナノ粒子)が肺胞を通過して脳などの器官に沈着し、より高い有害性を示すとの報告¹⁾ が注目されている。また、ナノテクノロジーの進展に伴ってナノサイズの素材であるナノマテリアル開発が進められており、ナノマテリアルの健康影響評価や安全性確認も同時に行われている^{2) 3) 4)}。

大気中に存在するナノ粒子の発生源としてはディーゼル車排ガスが考えられており⁵⁾、道路沿道は発生源が生活圏に近く存在するため健康への影響がもっとも懸念される場であるが、汚染実態については未把握な部分が多い。そこで千葉県内の交通量の多い幹線道路とその後背地を対象とし、ナノ粒子の汚染状況把握することを目的に調査を実施した。本稿では野田市内の国道 16 号を対象に冬季および夏季調査における汚染状況を比較・解析した結果を報告する。

2 調査方法

2・1 調査地点および期間

図 1 に調査地点を示す。国設野田宮崎自動車排出ガス測定局 (以下、野田宮崎自排局) は、千葉県北西部

の野田市内に位置し、県内の主要幹線道路である国道 16 号に隣接する沿道に設置されている。1 日交通量は、表 1 に示したように平日において約 4 万 5 千台あり、大型車混入率が 4 割を超えている。後背地としては、近隣に位置する野田一般環境大気測定局 (以下、野田一般局) を選定した。

調査期間は、以下のとおりとした。

冬季調査：2010 年 1 月 14 日～2 月 5 日

夏季調査：2010 年 7 月 23 日～8 月 23 日

2・2 測定装置

粒子の個数濃度と粒径分布の測定は SMPS (Scanning Mobility Particle Sizer ; TSI 社製 3034,

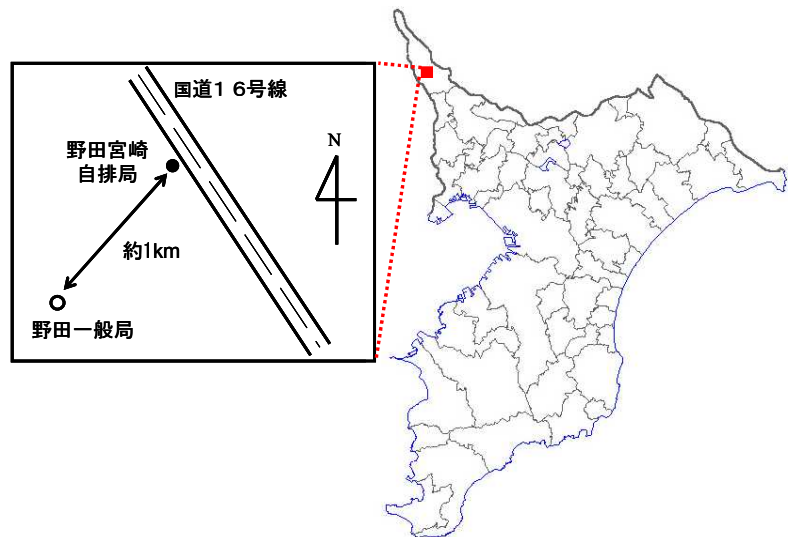


図 1 調査測定局の位置関係概略

表 1 対象道路の交通量

	1日交通量 (台)	大型車 混入率 (%)
平日	45122	41.2
休日	42034	11.8

(平成17年度道路交通センサス)

測定粒径範囲 10~487nm, 54ch) を使用し, 各調査地点に設置した。SMPS については正確に標準として校正する方法は未だに確立されていない。このため, 各調査を通して特定の 1 台の SMPS を基準機とし, 他の SMPS については基準機と 1~2 日程度の並行測定を実施して機差補正を行った上で測定データとした。測定データは 3 分間に 1 回スキャンして上記の粒径範囲について粒径分布が得られるが, 基本的な解析は 1 時間値にまとめて行った。

また, SMPS までの試料大気導入は, 銅管 (外径 8mm, 内径 6mm) を使用し, 採取時のナノ粒子の管内沈着等の損失をできるだけ抑えるために設置に必要な最小限の長さ (2m) に統一した。

2・3 その他調査項目

測定データの解析にあたり以下のデータも利用した。

- ・気象及び大気汚染物質濃度：野田宮崎自排局および野田一般局の測定データ
- ・対象道路の交通量等：千葉県警トラフィックカウンター(交通量)および平成 17 年度道路交通センサス(車種構成)

3 結果

3・1 並行測定

基準機とした 1 台の SMPS 測定データ (3 分毎) を基に, 他の SMPS の各粒径域毎の個数濃度をプロットして回帰直線を求めて個数濃度を補正した。機差は粒径 (D_p) の小さい領域が比較的大きい傾向があった。今回は測定粒径域のうち, 回帰直線の傾きが 0.5 以上 2 以下かつ相関係数が 0.95 以上であった粒径域を解析対象とした。この結果, 冬季調査は全ての粒径域 (10 ~ 487nm) が解析対象と

なったが, 夏季調査は 17~487nm に絞られたため, 両季調査を比較する場合は, 必要に応じて夏季調査に合わせた粒径域で解析を行うこととした。

3・2 個数濃度分布

図 2 に各調査期間の平均粒径分布を示す。横軸は D_p の対数値, 縦軸は正規化個数濃度 ($dN/d\log D_p$) で示されている。なお, 本稿では野田宮崎自排局および野田一般局のデータを比較する際には, 両局の差を厳密にとるために, 両局の 1 時間値が揃った場合を有効データとして取り扱った。

両季とも野田宮崎自排局の方が野田一般局よりも全体的に個数濃度が高くなっており, ディーゼル車排ガスの影響が現れていると考えられた。特に, 冬季の野田宮崎自排局において, ナノ粒子の粒径域である 50nm 以下の粒径の個数濃度が高くなる傾向が特徴として見られた。野田宮崎自排局の粒径分布のピークは, 夏季では 20~50nm にかけてブロードな形となっているが, 冬季では 16nm と小さい粒子径側へシフトした明確なピークが現れ, ピーク高が夏季の約 3 倍の値を示した。この冬季における野田宮崎自排局の粒径分布は, 高橋らが首都圏幹線道路で長期観測を行った結果⁶⁾に近いものとなった。

一方, 野田一般局における両季の結果を比較すると, 粒径分布としては野田宮崎自排局のように大きな違いは

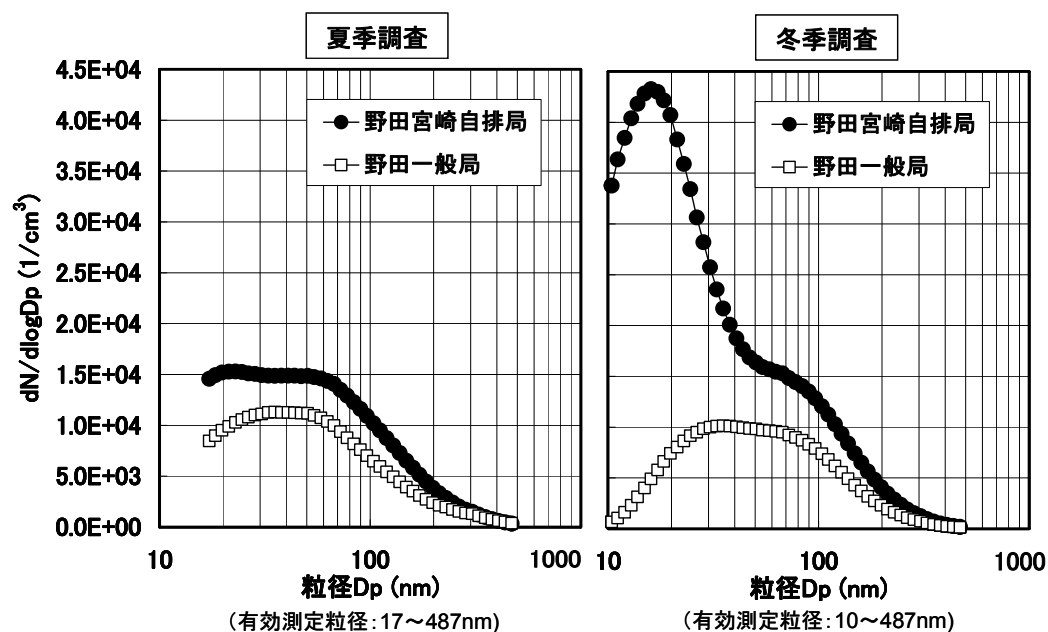


図 2 冬季および夏季調査における平均粒径分布

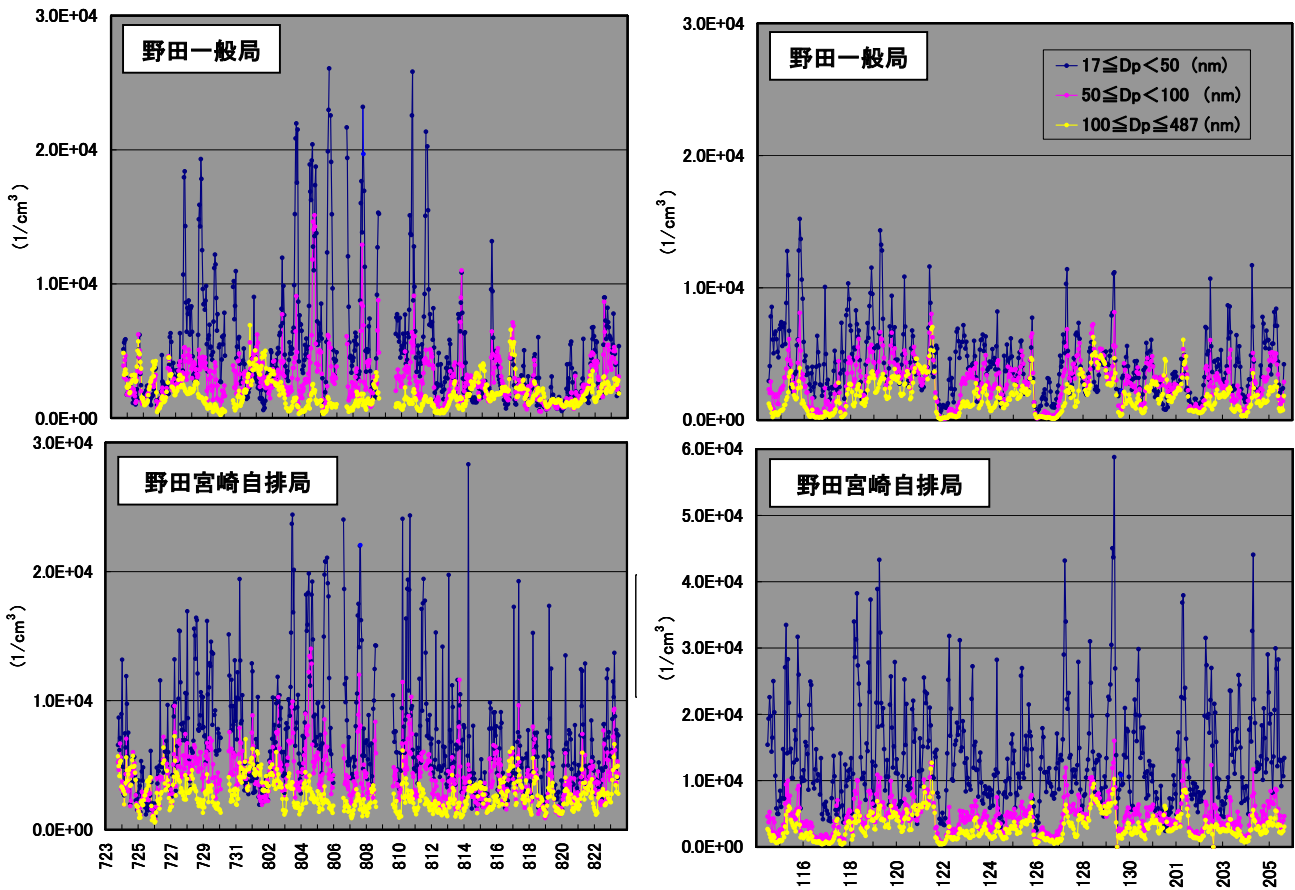


図3 3つの粒径域における個数濃度の経時変化

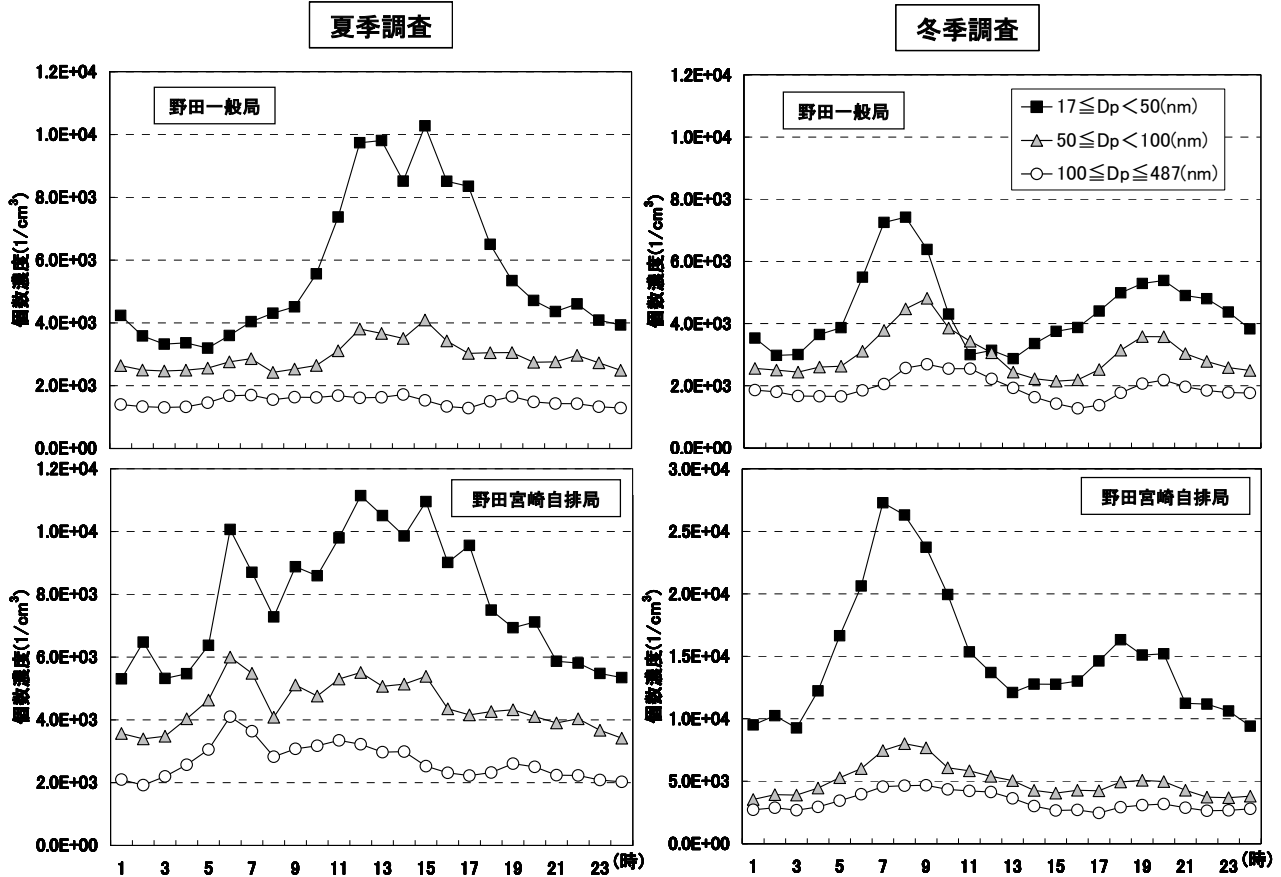


図4 3つの粒径域における個数濃度の時間平均値(平日)

見られなかった。両季とも粒径分布のピークは、30～40nm にかけてブロードな形となっており、ピーク高もほぼ同レベルとなっていた。

3・3 経時変化

粒径を $17\text{nm} \leq D_p < 50\text{nm}$, $50\text{nm} \leq D_p < 100\text{nm}$, $100\text{nm} \leq D_p \leq 487\text{nm}$ の3つの領域に分け、各領域内の単位体積あたりの総個数濃度($1/\text{cm}^3$)の1時間値を求め、経時変化として図3に示した。粒径がより小さい領域の方が総個数濃度は高くなっている。図2では冬季の野田宮崎自排局のみナノ粒子領域に明確な大きいピークを持つ粒径分布となったが、経時変化を見ると

冬季の野田宮崎自排局の $17\text{nm} \leq D_p < 50\text{nm}$ の個数濃度のベースとピーク高が特に高くなっていることがわかる。また、 $17\text{nm} \leq D_p < 50\text{nm}$ は時間単位での個数濃度の変動幅も大きく、短時間に影響を受けやすい領域であると考えられる。

4 考察

4・1 時間平均値

図4に3つに区分した粒径範囲の総個数濃度の時間別平均値を示した。なお、図4～7では、交通量の影響を明確にするために平日のみのデータを使用した。

冬季調査では野田宮崎自排局において、早朝の時間帯に個数濃度の増加が見られ、特に $17\text{nm} \leq D_p < 50\text{nm}$ での増加が顕著である。午後から深夜にかけては夕方の時間帯が若干増加傾向を示すが、変動幅は比較的小さかった。野田一般局では、野田宮崎自排局と同様に早朝の時間帯に個数濃度の増加が見られるが増加幅は小さく、ピークも1時間ほど遅く現れていた。

夏季調査では野田宮崎自排局において、早朝の時間帯に $17\text{nm} \leq D_p < 50\text{nm}$ の個数濃度の増加が見られるが、冬季調査のように明瞭に現れておらず、午後にも若干の濃度上昇が見られ15時がピークとなっていた。野田一般局においては、早朝の時間帯に個数濃度の増加は見られず、15時がピークとなっている。このバックグラウンド濃度の上昇により、野田宮崎自排局においても15時にピークを示すことになった。また、 $50\text{nm} \leq D_p < 100\text{nm}$ の領域でも同じ時間帯での個数濃度上昇が見られた。図2の野田一般局の冬季と夏季調査の平均粒径分布は結果として大きな違いが見られなかった

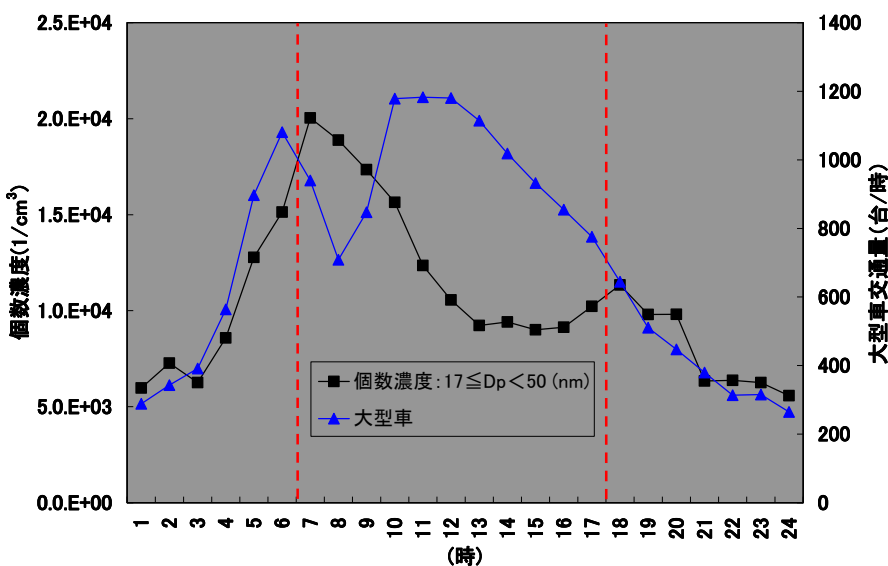


図5 冬季調査における個数濃度(野田宮崎自排局と野田一般局の差)と大型車交通量の時間平均値(平日)

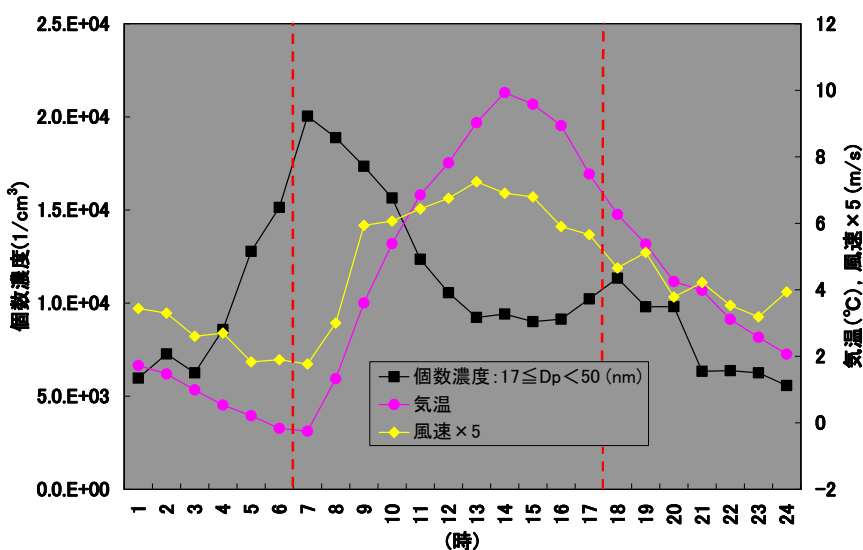


図6 冬季調査における個数濃度(野田宮崎自排局と野田一般局の差)と気象項目の時間平均値(平日)

が、時間帯ごとに個数濃度変化を観察すると異なった状況であることが判明した。

4・2 交通量との関係（冬季）

個数濃度に影響を与える要因としては、自動車排気ガスの影響が考えられるが、微小粒子の発生源としては特に大型車の影響が大きい⁷⁾ことが想定される。そこで、自動車排気ガスの影響をより明確にするために、 $17\text{nm} \leq D_p < 50\text{nm}$ について野田宮崎自排局から野田一般局(バックグラウンド)の個数濃度を差し引き、大型車交通量の時間別平均値と合わせて図5に示した。なお、大型車交通量はトラフィックカウンター(交通量)および道路交通センサス(大型車混入率)を用いて算出した。

野田宮崎自排局の方が野田一般局よりもかなり高い個数濃度になっているので、差として示した個数濃度は野田宮崎自排局の濃度傾向がほぼそのまま示され、早朝にピークを示してしている。大型車交通量はある程度個数濃度と対応関係を示しており、時間帯としては深夜から早朝(1~6時, 18~24時)が良い相関関係となっている。この時間帯の野田宮崎自排局の個数濃度変化には、大型車交通量の動向の影響が大きいと考えられた。

その一方で、それ以外の時間帯(図5点線内側)においては大型車交通量との対応関係がやや離れる傾向が見られた。大型車交通量は6時に一度ピークがあり7,8時はいったん減少してから再度増加し10~12時にピークを示した後は減少を続ける。個数濃度は7時にピークを示した後12時までは減少し、それ以降から17時まではほぼ一定値となっている。理由として、この時間帯においては大型車交通量以外の要因による個数濃度に対する影響の増大があったためと推定された。

4・3 気象項目との関係（冬季）

気象項目は大型車交通量以外で個数濃度に影響を与える要因として想定される。図6に図5で示した $17\text{nm} \leq D_p < 50\text{nm}$ の個数濃度

の時間平均値に合わせて、気象項目である気温と風速を合わせて示した。ナノ粒子は低沸点成分を主体として構成されていると考えられる^{8) 9)}ため、冬季に気温が低下すると個数濃度は増加する傾向が確認されている¹⁰⁾。また、風速は大気拡散状態を示す一つの指標として考えられる。

深夜から早朝にかけて気温、風速ともに低下し安定したナノ粒子の存在しやすい状態を保持しているが、8時から気温、風速ともに急激に上昇へ転じているため、ナノ粒子の揮散による消失や拡散による濃度減少が起こりやすくなったと考えられる。この時刻は図5で大型車交通量との対応のずれ始めとほぼ一致し、その後18時頃までは大型車交通量と比較して低い水準の個数濃度が観察されている。

以上のことから、冬季の道路沿道において深夜から早朝にかけてはナノ粒子が安定して存在する気象状況があるため、主たる排出源である大型車交通量と相関がよい個数濃度が観測される。一方、気温・風速の上昇する午前中から夕方にかけては、これら気象要因の影響を受けやすくなった形で道路沿道でのナノ粒子が観測されたと推察された。

4・4 交通量との関係（夏季）

図7に $17\text{nm} \leq D_p < 50\text{nm}$ について野田宮崎自排局から野田一般局(バックグラウンド)を差し引いた個数濃度と大型車交通量の時間別平均値を示した。時間帯

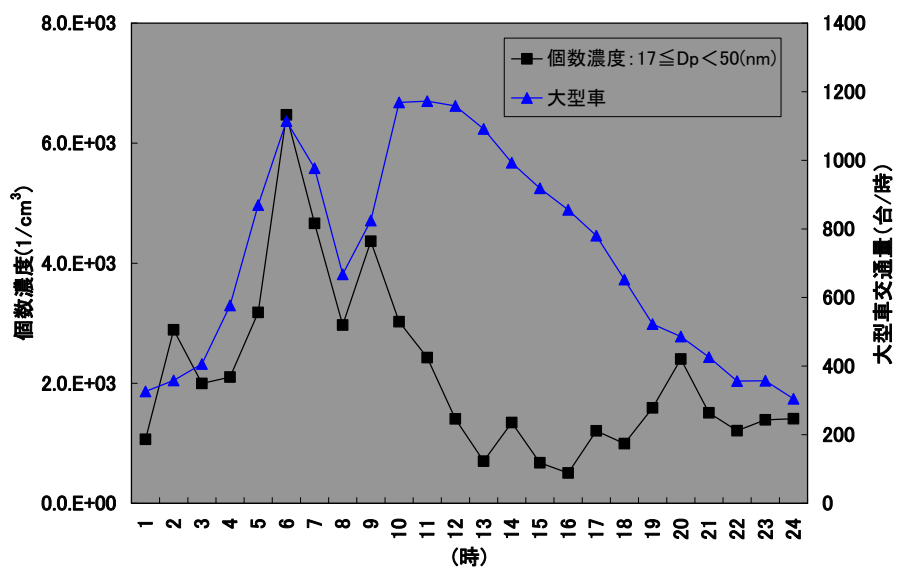


図7 夏季調査における個数濃度(野田宮崎自排局と野田一般局の差)と大型車交通量の時間平均値(平日)

としては深夜から午前中（3～9時）が良い対応関係となっている。ただし、夏季調査においては低沸点成分の揮散によるナノ粒子の消失が進んだ状態で観測されていると考えられ、冬季と比較すると数分の1の濃度レベルとなっている。10時以降は大型車交通量との対応関係が乖離する傾向が見られ、日中は図4で示したように野田一般局の濃度が野田宮崎自排局の濃度に近くなるため差が非常に小さくなる傾向がある。このことは冬季と異なりバックグラウンドにおいて気温や風速とは別の要因がナノ粒子濃度に影響を与えていると推察される。

4・5 Ox濃度との関係（夏季）

夏季の大気中では日中に光化学反応による二次粒子の生成が生じ、大気中粒子数の増加を引き起こすと考えられる。

そこで光化学反応の指標としてオキシダント(Ox)濃度を用いて、野田一般局における日中（11～16時）の

Ox濃度と粒子の個数濃度（一部粒径抜粋）の関係を図8に示した。Dp=212.9nmはOx濃度と個数濃度に正の相関が見られる。一方、Dp=17.2nmでは、Ox濃度が上昇すると逆に個数濃度が減少する傾向が見られる。粒径の大きさを追って見ると、概ねDp=100nmを境に正の相関が明確に現れ始め、これよりも大きい粒径範囲での光化学反応による二次粒子の生成が示唆された。一方、Dp<50nmでは正の相関は見られず、Ox濃度が60ppmを超えると個数濃度が大幅に減少していた。このことからDp<50nmの粒子については、光化学反応時に消費される、もしくは生成した二次粒子に何かの形で取り込まれるため個数濃度が減少することが推察される。その一方で図4に示したように、日中にナノ粒子の個数濃度が上昇する傾向があることから、日中でOx濃度が高くない場合に、Dp<50nmの粒子が大気中に蓄積し個数濃度を維持・上昇させるメカニズムが存在することも推定された。

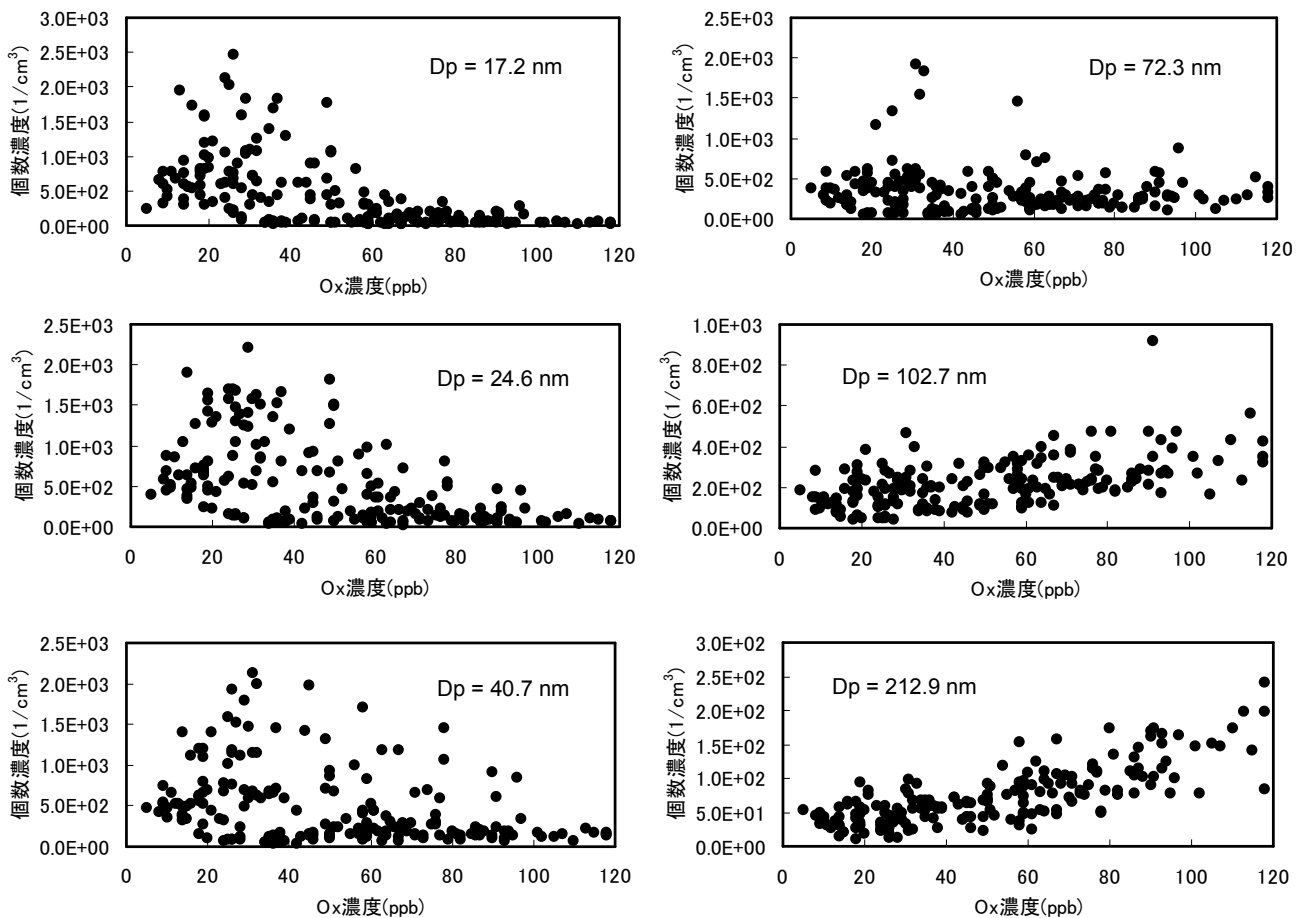


図8 日中(11-16時)のOx濃度と個数濃度の関係
(野田一般局、一部粒径抜粋)

5 まとめ

ナノ粒子の汚染状況把握することを目的に SMPS による粒径分布の測定を冬季及び夏季に行った。対象は幹線道路沿道として野田宮崎自排局と後背地として野田一般局を選定した。

冬季の野田宮崎自排局において、ナノ粒子の粒径域である 50nm 以下の粒径の個数濃度が特に高くなる傾向が見られた。時間帯としては早朝に濃度ピークがあり、大型車交通量の増大による発生源からの排出量の増加の影響が考えられた。一方、日中は気温の上昇、風速の増大の影響も受け、大型車交通量とややかい離れた低めの個数濃度が観察された。

夏季の野田宮崎自排局においてはナノ粒子の低沸点成分の揮散が考えられるため、冬季と比較すると数分の 1 の濃度レベルとなっていた。冬季と異なり野田一般局の個数濃度は日中に上昇した。概ね $D_p=100\text{nm}$ 以上の粒径で個数濃度と光化学反応の指標である Ox 濃度と正の相関が見られ、二次粒子の生成による個数濃度の増加が示唆された。一方、ナノ粒子の粒径域では正の相関は見られず、Ox 濃度が 60ppm を超えると個数濃度が大幅に減少していた。このことは、日中の高 Ox 濃度による光化学反応の際に個数濃度が減少し、低 Ox 濃度時は個数濃度を維持・上昇させるメカニズムの存在も推定された。

謝辞

本調査の実施にあたり、(独)国立環境研究所の小林伸治氏、(財)日本環境衛生センターの高橋克行氏には多大なるご協力をいただきました。ここに記して御礼申し上げます。

文献

- 1) 武田健, 押尾茂, 菅又昌雄: ディーゼル排ガスが胎児の脳・生殖系に及ぼす危険性. 科学, 76, 739~744 (2006).
- 2) ナノ材料環境影響基礎調査検討会: 工業用ナノ材料に関する環境影響防止ガイドライン, 環境省, 55 p (2009).
- 3) ナノマテリアル製造事業者等における安全対策のあり方研究会報告書, 経済産業省, 24 p (2009).
- 4) ナノマテリアルの安全対策に関する検討会報告書, 厚生労働省, 27 p (2009).
- 5) 吉田隆: 自動車排出ナノ粒子および DEP の測定と生態影響評価. 第 1 版, エヌ・ティー・エス, 239 p (2005).
- 6) 高橋克行, 長谷川就一, 伏見暁洋, 藤谷雄二, 田邊潔, 小林伸治: 幹線道路沿道における大気中ナノ粒子の粒径分布の長期観測. 第 48 回大気環境学会講演要旨集, 552 (2007).
- 7) 箕浦宏明: さまざまな交通環境における沿道大気中の微小粒子濃度. 大気環境学会誌, 42 (2), 118~128 (2007).
- 8) 小林伸治, 長谷川就一, 高橋克行, 伏見暁洋, 近藤美則, 田邊潔: ディーゼル車からの微小粒子の排出特性と道路沿道大気中における挙動. エアロゾル研究, 21 (4), 305~311 (2006).
- 9) 伏見暁洋, 長谷川就一, 藤谷雄二, 高橋克行, 斉藤勝美, 田邊潔, 小林伸治: 加熱脱着 GC/MS によるディーゼル排気および大気中ナノ粒子の有機成分分析. エアロゾル研究, 23 (3), 163~171 (2008).
- 10) 石井克巳, 竹内和俊: 道路沿道地域における微小粒子の実態把握に関する調査研究(②ナノ粒子). 千葉県環境研究センター年報, 8, 78~79 (2008).

Atmospheric nanoparticles at roadside and in the hinterland
– Investigation of size distribution in winter and summer –

Katsumi ISHII, Yuji FUJITANI, Kazutoshi TAKEUCHI

SPM よりも微小な粒子である PM_{2.5} の環境基準が 2009 年 9 月に制定された。より微細なナノ粒子は肺胞を通過して脳などの器官に沈着し、より高い有害性を示すとの報告が注目されているが大気中の汚染実態については未把握な部分が多い。そこで千葉県内の交通量の多い幹線道路とその後背地を対象とし、ナノ粒子の汚染状況把握することを目的に冬季と夏季に粒径分布を測定した。

その結果、冬季の道路沿道においてナノ粒子の個数濃度が特に高くなる傾向が見られた。早朝に濃度ピークがあり、大型車交通量の増大による発生源からの排出量の増加の影響が考えられた。夏季は冬季と比較すると道路沿道での個数濃度は数分の 1 のレベルとなっていた。また、後背地では D_p=100nm 以上の粒径で個数濃度と Ox 濃度と正の相関が見られ、二次粒子の生成による個数濃度の増加が示唆されたが、ナノ粒子は Ox 濃度が 60ppm を超えると個数濃度が大幅に減少し、日中の高 Ox 濃度による光化学反応の際に個数濃度が減少するメカニズムの存在も推定された。