

資料

広島市の道路沿道における大気微小粒子 (PM_{2.5}) の特性

後田 俊直, 調枝 勝幸

Characteristics of Ambient Fine Particles (PM_{2.5}) at the Site near the Road in Hiroshima City

TOSHINAO USHIRODA and KATSUYUKI CHOSHI

(Received Dec. 3, 2002)

広島市内の国道2号線沿道において、2001年7～8月(夏期)及び2002年1～2月(冬期)に粒径2.5 μm以下の大気微小粒子 (PM_{2.5}) の調査を行った。

PM_{2.5}の質量濃度は平均23 μg/m³ (夏期24 μg/m³, 冬期21 μg/m³) であり、SPMの質量濃度の8割近くを占め、SPMの濃度変動は主にPM_{2.5}により支配されていた。主要成分のひとつである炭素成分はPM_{2.5}の約4割(夏期: 35%, 冬期: 39%)を占め、そのうち約6割が元素状炭素(EC), 約4割が有機炭素(OC)であった。PM_{2.5}の濃度変動は炭素成分、特にディーゼル排ガス粒子由来といわれているECの影響が大きいものと考えられた。PM_{2.5}は、冬期には移動性高気圧に覆われ、晴天・弱風のとき高濃度となった。NO_x, SO₂等との相関が高く、自動車の影響を強く受けていると考えられた。夏期には、太平洋高気圧に覆われ海陸風が出現するとき高濃度となった。オキシダントとの相関が高く、光化学反応が大きく関与していると考えられた。

キーワード: PM_{2.5}, 浮遊粒子状物質, 元素状炭素, 道路沿道

緒 言

わが国では、大気中に浮遊する粒子状物質のうち粒径が10 μm以下のものを浮遊粒子状物質 (SPM) として環境基準が定められている。最近の疫学的研究では、SPMよりさらに小さい粒径 2.5 μm以下の微小粒子 (PM_{2.5}) が大きな健康影響をヒトにもたらすことが指摘され [1], 新たな指標としてPM_{2.5}が注目され始めた。また、PM_{2.5}には発がん性のある有毒な有機化合物や重金属などを含んでいることも分かってきた [2]。

米国では、環境保護庁 (EPA) によって、それまでの10 μm以下のPM₁₀の基準のほかにPM_{2.5}の新基準が1997年に導入された。日本でも環境省が1997年に測定方法確立調査を開始し、モニタリングや疫学研究等が本格化してきている。

PM_{2.5}の性状は、ディーゼル排ガス粒子やNO_x, SO₂, 炭化水素が大気中で反応して粒子化した二次生成粒子が主要成分であるといわれている [3]。このため、道路沿道は主要発生源のひとつであり、従来から測定されてきたSPMの常時監視データにおいても道路沿道にある自動車排ガス測定局は一般環境大気測定局と比べて高濃度となっている [4]。

そこで、今回、PM_{2.5}の道路沿道での現況を把握するため、広島市内の自動車交通量の多い国道2号線沿道で調査を行い、若干の知見が得られたので報告する。

方 法

1 調査期間

夏期: 2001年7月27日～8月30日

冬期: 2002年1月25日～2月22日

2 調査地点

広島市にある広島県保健環境センターにおいて調査を行った本調査地点(図1)は国道2号線沿道にあり、建設省道路交通センサス(平成11年度)のデータでは1日の自動車通行台数は、平日約70,000台、休日約54,000台である。

なお、気象及びガス状汚染物質のデータは近隣の常時監視測定局(比治山, 皆実小学校)及びアメダス広島のものを用いた。窒素酸化物 (NO_x), 一酸化窒素 (NO) 及び非メタン炭化水素 (NMHC) は比治山測定局, 風向・風速, 二酸化硫黄 (SO₂) 及び光化学オキシダント (Ox) は皆実小学校測定局, 気温, 湿度, 降水量及び日射量はアメダス広島のデータを用いた。

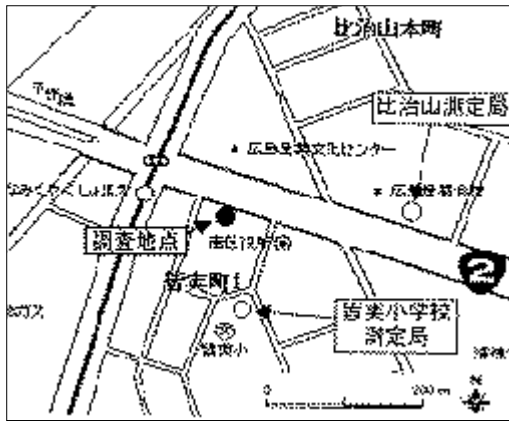


図1 調査地点

3 採取方法

PM2.5の採取及び質量濃度の測定は、「PM2.5質量濃度測定方法暫定マニュアル」[5]に準じて行った。すなわち、PM2.5サンプラー(紀本電子工業製PM2.5-DX型)を用いて大気吸引量16.67 l/minで24時間のサンプリングを行った。なお、ろ紙は石英繊維ろ紙(Pallflex 2500QAT-UP)を用いた。

また、PM2.5とSPMとの関連性を調べるためSPMの同時測定も行った。SPMはローボリウムサンプラー(新宅機械製作所製S2型)を用いて大気吸引量20 l/minで同様に24時間のサンプリングを行った。

4 分析方法

捕集後のろ紙は半分に分割し、それぞれ総炭素(以下「TC」という)及び元素状炭素(以下「EC」という)の分析に供した。炭素量の測定には柳本製作所製元素分析計

MT-2型を用い元素状炭素と有機炭素(以下「OC」という)は熱分離法により分離定量した。酸素-ヘリウム雰囲気下で850以上、5分間の燃焼で発生する炭酸ガス量から求めた炭素量をTC量、ヘリウム雰囲気下で600、5分間の前処理した後、同様の分析を行い、これをEC量とした。OC量はTC量からEC量を差し引きして求めた。

結果及び考察

1 質量濃度

夏期及び冬期のPM2.5及びSPMの最大値、最小値及び平均値を表1に示す。夏期と冬期の季節による差はほとんどなかった。米国のPM2.5の新基準値は年平均値15 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、24時間平均値65 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ と定められている[6]。今回の調査日数は夏期と冬期の計62日間であるが参考として新基準値との比較を行った。調査期間中のPM2.5の最大値は49 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ でありの基準値を下回ったが、平均値は23 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (夏期24 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、冬期21 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)でありの基準値を上まわった。

SPMに対するPM2.5の割合は77%(夏期82%、冬期71%)と高い割合を示した。

夏期及び冬期におけるPM2.5及びSPMの質量濃度の経日変化をそれぞれ図2及び図3に示す。PM2.5とSPMは類似の変化を示した。

表1 PM2.5及びSPMの最大値、最小値及び平均値

	PM2.5			SPM		
	最大値	最小値	平均値	最大値	最小値	平均値
夏期(n=34)	49	8	24	58	15	29
冬期(n=28)	46	5	21	60	12	30

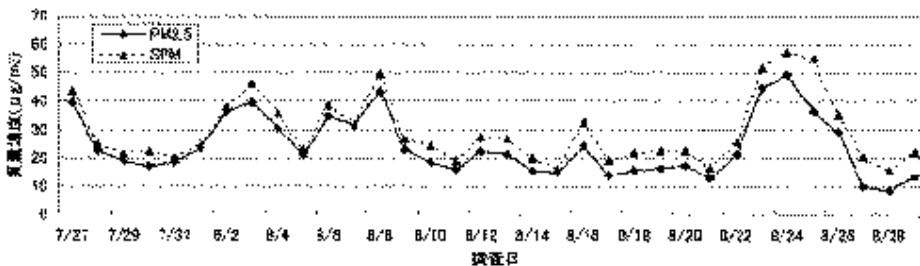


図2 PM2.5及びSPMの質量濃度の経日変化(夏期)

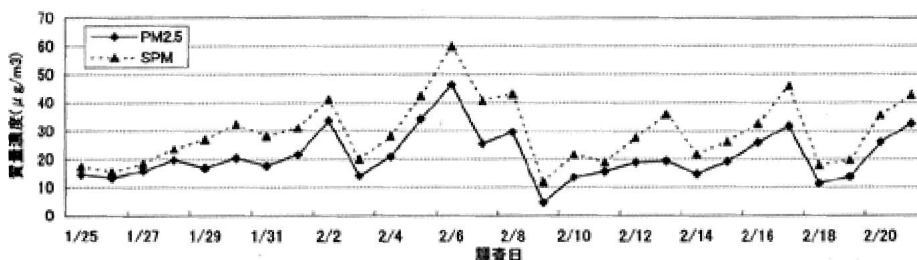


図3 PM2.5及びSPMの質量濃度の経日変化(冬期)

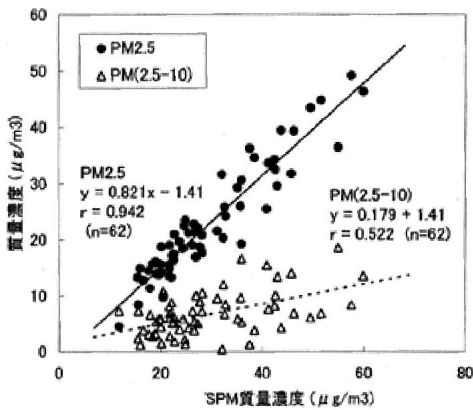


図4 SPMとPM2.5及びPM(2.5-10)の散布図

次にSPMとPM2.5及び粒径2.5~10μmの粗大粒子(以下「PM(2.5-10)」という。)の散布図を図4に示す。SPMとPM(2.5-10)の相関(相関係数: $r = 0.522$)に対して、SPMとPM2.5には高い正の相関(相関係数: $r = 0.942$)があった。以上のことからSPMの濃度変動は主にPM2.5により支配されていると考えられた。

2 炭素成分

自動車から排出される粒子は炭素成分が多くを占め、ディーゼル車では排ガス粒子の成分はECが60~70%、OCが10数%といわれている[7]。また、大気微小粒子中のECは主にディーゼル排ガス粒子に由来すると考えられており、大気中の化学反応による増減がないため、ECはディーゼル排ガス粒子の指標となる[7, 8]。

夏期及び冬期の炭素成分の最大値、最小値、平均値及びPM2.5中に占める割合(含有率)を表2に示す。夏期と冬期の季節による差はほとんどなかった。炭素成分含

表2 炭素成分の最大値 最小値 平均値及びPM2.5中の含有率

		[単位: μg/m³]			
		最大値	最小値	平均値	含有率(%)
夏期 (n=34)	総炭素(TC)	12.4	4.7	7.7	35
	元素炭素(EC)	8.8	2.9	4.3	22
	有機炭素(OC)	4.9	1.4	3.0	14
冬期 (n=28)	総炭素(TC)	14.9	3.9	7.3	39
	元素炭素(EC)	10.0	1.9	5.0	24
	有機炭素(OC)	4.9	1.0	2.3	14

含有率(%) = PM2.5中の炭素成分濃度 / PM2.5の質量濃度

表3 PM2.5質量濃度と炭素成分の相関係数

	総炭素(TC)	元素炭素(EC)	有機炭素(OC)
夏期(n=34)	0.796	0.759	0.543
冬期(n=28)	0.952	0.926	0.758

有率の平均値は夏期35%、冬期39%であり、そのうちの約6割がEC、残りの約4割がOCであった。

夏期及び冬期における炭素成分濃度の経日変化を図5及び図6に示す。また、PM2.5と炭素成分の相関係数を表3に示す。PM2.5と炭素成分は類似の変化を示し、高い正の相関があった。特にECと高い相関があり、PM2.5の濃度変動はディーゼル排ガス粒子由来といわれているECの影響が大きいものと考えられた。

図7及び図8にPM2.5質量濃度と炭素成分含有率の関係を示す。PM2.5が高濃度になるほど炭素成分の割合が低くなる傾向が見られた。OCは夏期、冬期ともこの傾向が見られたが、ECでは冬期にはこの傾向が弱い。夏期には含有率の低下が顕著であった。また、表3より夏期は冬期と比べPM2.5と炭素成分の相関が低くなっており、夏期の高濃度時には炭素成分以外の成分の影響が大きくなるものと考えられた。この炭素以外の成分については後で考察する。

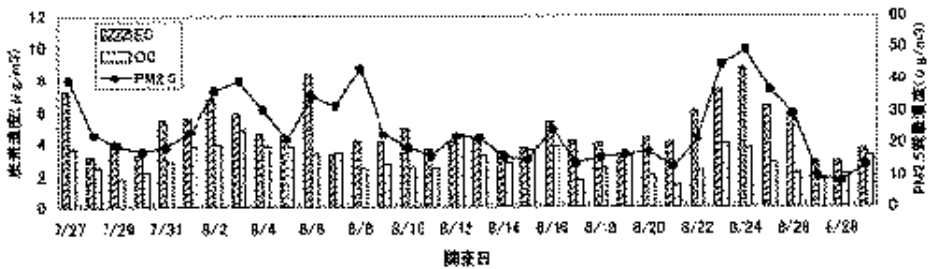


図5 PM2.5中の炭素濃度の経日変化(夏期)

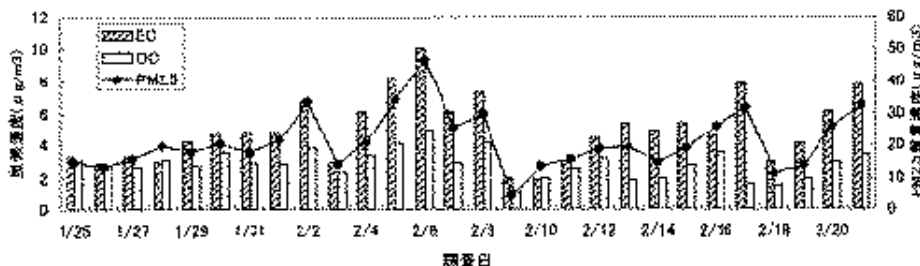


図6 PM2.5中の炭素濃度の経日変化(冬期)

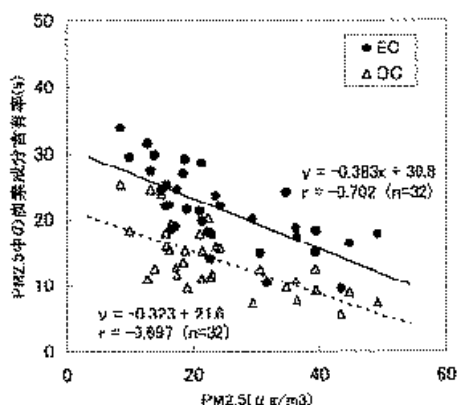


図7 PM2.5中の炭素成分の割合(夏期)

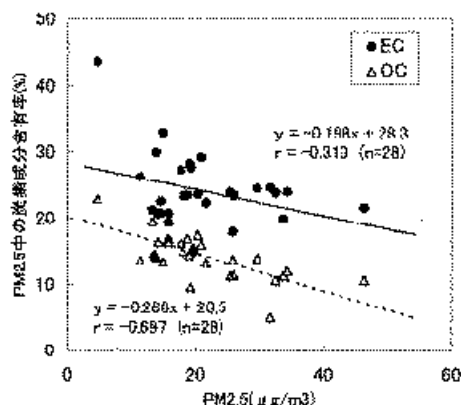


図8 PM2.5中の炭素成分の割合(冬期)

表4 PM2.5及びSPM中の炭素成分と偏在率

		[単位: μg/m ³]		偏在率(%)
		PM2.5	SPM	
夏期 (n=34)	総炭素(TC)	7.7	9.0	86
	元素状炭素(EC)	4.8	5.0	97
	有機炭素(OC)	3.0	4.1	75
冬期 (n=28)	総炭素(TC)	7.8	8.5	92
	元素状炭素(EC)	5.0	5.4	92
	有機炭素(OC)	2.8	3.2	92

偏在率(%) = PM2.5中の炭素成分濃度 / SPM中の炭素成分濃度

表5 PM2.5と気象及びガス状汚染物質の相関係数

	夏期 (n=34)	冬期 (n=28)
風速	-0.204	-0.632
気温	0.204	0.603
湿度	0.274	0.221
日射量	0.151	-0.186
SO ₂	0.417	0.898
NO _x	0.443	0.811
NO	0.348	0.809
Ox	0.548	-0.562
NMHC	0.376	0.842

次に、SPMとの関連性について、炭素成分におけるSPMに対するPM2.5の割合(偏在率)を表4に示す。SPM中の炭素の約9割(夏期86%、冬期92%)がPM2.5中に存在しておりEC及びOCともにPM2.5に極端に偏在していた。

3 PM2.5と気象及びガス状汚染物質との関係

調査期間中の広島地方の気象概況は次のようであった[9~11]。

夏期調査期間

7月下旬から8月上旬にかけては太平洋高気圧に覆われ晴天が続いた。8月6日以降は前線が停滞し、雲の多い天気となり、9~10日は雨となった。中旬ははじめ前線の停滞により雲の多い天気であったが、その後太平洋高気圧に覆われ晴天の日が続いた。20~21日は台風の影響で雨となり、その後晴天が続くが気圧の谷の影響で26日朝と30日は雨となった。

冬期調査期間

1月下旬は26~27日朝にかけて低気圧の影響で雨、27日以降は冬型の気圧配置が続き、一時雪の天気であった。2月上旬は8日まで気圧の谷が短い周期(2月3、5、7日)で通過したが、天気の崩れは小さく、高気圧に覆われ晴れの日が多かった。中旬は冬型の気圧配置となる日が多く、9~12日は強い冬型となり、時々雪が降った。15日から冬型は緩み16日は移動性高気圧に覆われよく晴れた。17日に弱い雨が降り、18日は強い冬型になった。20日からは移動性の高気圧に覆われ晴れの天気となった。

PM2.5と気象及びガス状汚染物質の相関係数を表5に示す。また、PM2.5の経日変化(図2及び図3)と気象概況からPM2.5の濃度変化の要因を考察した。

冬期の気象要素では風速と負の相関($r = -0.632$)、気温と正の相関($r = 0.603$)が認められた。冬期の気温の高い日、つまり移動性高気圧に覆われると空気の沈降と晴天・弱風状態での放射冷却により大気が安定化する[12]。このため道路沿道では自動車から発生した汚染物質が道路付近に滞留・蓄積し、高濃度になるものと思われる。逆に冬型の気圧配置による強風により汚染物質は速やかに拡散されPM2.5濃度は低下するものと思われる。本調査期間においては、冬型の気圧配置と移動性高気圧に覆われる期間が交互に繰り返されており、PM2.5の濃度変動もこれに対応しているように思われた。次にガス状汚染物質との相関をみると、自動車からの排出が多いSO₂($r = 0.898$)、NO_x($r = 0.811$)、NO($r = 0.809$)及びNMHC($r = 0.842$)と高い正の相関があった。経日変化の一例としてPM2.5とNO_xについて図9に示す。PM2.5とNO_xは類似の濃度変動を示した。SO₂、NO及びNMHCについても同様の濃度変動がみられ、PM2.5が自動車の影響を強く受けているものと考えられた。

夏期の調査では、8月の中旬はPM2.5は低濃度となっており、盆休みによる人為的な負荷の低減の影響が反映されていることが考えられた。また、8月9~10日、20~21日、26日には降雨により粒子が捕捉(Wash out)され濃度が低下したものと考えられた。他の気象要素との

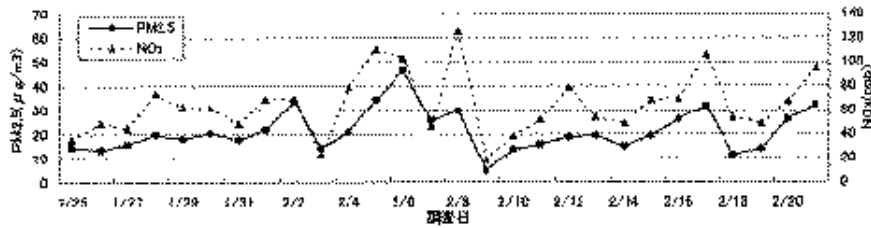


図9 PM2.5とNOxの経日変化(冬期)

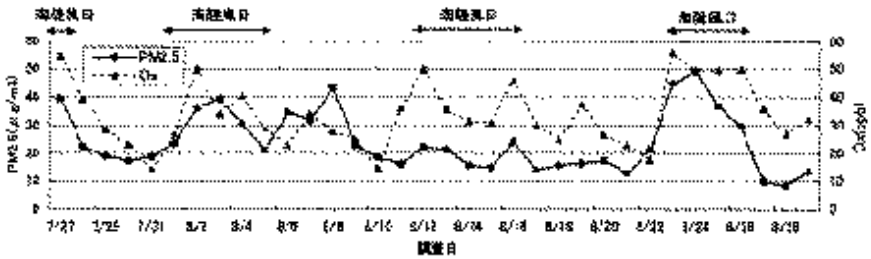


図10 PM2.5とOxの経日変化(夏期)

相関は認められなかった。また、冬期に相関の高かったガス状汚染物質との相関は低くなっていたが、O_xと正の相関 ($r=0.548$) がみられた。一般に夏期には南高東低型の気圧配置が多く、太平洋高気圧に覆われ暑い気象で持続する。このような条件では大気は安定し海陸風が生じやすく、O_xの上昇が見られるなど大気中の化学反応が活発になりやすい [12]。PM2.5とO_xの経日変化を図10に示す。PM2.5とO_xは類似の濃度変動を示した。特に海陸風日にO_xは高濃度となることが多く、O_xの上昇によりPM2.5も高濃度になる傾向が見られた。このことから夏期のPM2.5の濃度上昇には光化学反応が大きく関与していると考えられた。PM2.5の主要成分としては、ディーゼル排ガス粒子の他、ガス状で排出された物質が大気中の光化学反応等により粒子転換した二次生成粒子がある [3]。夏期の高濃度時にはこの二次生成粒子の寄与が大きくなるものと推測された。今回の調査では、炭素成分を除く残りの約6割の成分については未解明であり、今後はこの成分を解明していくことも必要である。

ま と め

道路沿道にてPM2.5の実態調査を行った結果、次のことがわかった。

- 1) PM2.5の質量濃度は、平均23 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (夏期:24 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 冬期: 21 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)であり、SPMの77%(夏期: 82%, 冬期: 71%)を占めた。また、SPMとPM2.5の挙動は類似しており、その相関も高く、SPMの濃度変動は主にPM2.5により支配されていた。
- 2) 炭素成分はPM2.5の約4割(夏期: 35%, 冬期: 39%)を占め、そのうち約6割がEC、約4割がOCであった。PM2.5と炭素成分の挙動は類似していた。

特にECとの相関が高く、PM2.5の濃度変動はディーゼル排ガス粒子由来といわれているECの影響が大きいものと考えられた。

また、SPM中の炭素成分は、著しく微小粒径側に偏っており、ほぼ90%がPM2.5に含まれていた。

- 3) PM2.5は、冬期には移動性高気圧に覆われ、晴天・弱風のとき高濃度となった。自動車由来のガス状汚染物質との相関が高く、PM2.5は自動車の影響を強く受けているものと考えられた。

夏期には、太平洋高気圧に覆われ、海陸風が出現するとき高濃度となった。自動車由来のガス状汚染物質との相関は低くなり、O_xとの相関が高くなった。光化学反応により生成される二次生成粒子の影響が強くなるものと推測された。

文 献

- [1] 岩井和郎：浮遊粒子状物質の健康影響に関する研究の動向，大気環境学会誌，32，323-330 (1997)
- [2] 横山栄二，内山巖雄編，大気中微小粒子の環境・健康影響，(財)日本環境衛生センター，(2000)，112-122
- [3] 笠原三紀夫：粒子状大気汚染の現状と今後の課題，大気環境学会誌，37，96-107，(2002)
- [4] 広島県：環境白書，平成13年度版
- [5] 環境庁大気保全局企画課：大気中微小粒子状物質 (PM2.5) 質量濃度測定方法暫定マニュアル，平成12年9月
- [6] W.E.Wilson：The U.S.Environmental Protection Agency Promulgates New Standards for Fine Particles，大気環境学会誌，33，A67-A76 (1998)
- [7] 溝畑 朗：大気環境学会・日本エアロゾル学会合

- 同セミナー - 大気中の微小粒子PM2.5の発生と影響 - 要旨集, 42-52 (2000)
- [8] 兼保直樹, 吉門 洋, 近藤裕昭, 守屋 岳, 鈴木基雄, 白川泰樹: 組成別SPMシミュレーション・モデルの開発と初冬期高濃度大気汚染への適用 (), 大気環境学会誌, 37, 167-183 (2002)
- [9] 広島地方気象台: 広島県の気象, 平成13年報
- [10] 広島地方気象台: 広島県の気象, 平成14年 1月
- [11] 広島地方気象台: 広島県の気象, 平成14年 2月
- [12] 岩本真二, 下原孝章: 浮遊粒子状物質の高濃度と気象要因との関係, 大気環境学会誌, 28, 330-340 (1993)