

〈パブリックコメントの意見の中で引用された文献〉

1. (資料 1-2,p3) NO.8

…1

山神ら (2008), PM2.5 中元素状炭素の自動車排出係数の推計と一般環境における大気中濃度の変動, 大気環境学会誌, 43(5)

2. (資料 1-2,p11) NO.26

…13

和田ら (2009), 固定発生源煙道内PM10/PM2.5質量濃度測定用 multi-stage VIS impactor の分級特性, 粉体工学会誌, 46(6)

— 原 著 —

PM_{2.5} 中元素状炭素の自動車排出係数の推計と一般環境における大気中濃度の変動

山神真紀子*, 鈴木秀男**, 長谷川就一***, 中島寛則*, 平生進吾*, 若松伸司****

Emission Factor Estimate and Ambient Concentration of Elemental Carbon in PM_{2.5}

Makiko Yamagami*, Hideo Suzuki**, Shuichi Hasegawa***, Hironori Nakashima*,

Shingo Hirao* and Shinji Wakamatsu ****

* Nagoya City Institute for Environmental Sciences, 5-16-8 Toyoda, Minami-ku, Nagoya, 457-0841, Japan

** System Design Environmental Data Analysis Laboratory, 5-24-19 Nishi-Ohi, Shinagawa-ku, Tokyo, 140-0015, Japan

*** National Institute for Environmental Studies, 16-2 Onogawa, Tsukuba-shi, Ibaraki, 305-8506, Japan

**** Ehime University, 3-5-7 Tarumi, Matsuyama-shi, Ehime, 790-8566, Japan

Hourly averaged PM_{2.5} and optical black carbon (OBC) were measured from 30 September to 10 October 2003 at roadside of Route 23 in Nagoya City. The average PM_{2.5} concentration was 76.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (n=234). The average OBC concentration was 15.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (n=241). OBC average contribution to PM_{2.5} mass was 22.3%. There was a strong correlation between OBC and the traffic volume for heavy-duty vehicle when a roadside site was downwind of Route 23 and wind velocity was above 3m/s. EC emission factor was estimated at 368 mg/km · vehicle for heavy-duty vehicle using NO_x emission factor, and 261 mg/km · vehicle for heavy-duty vehicle based on dispersion calculation.

Daily averaged PM_{2.5} and elemental carbon (EC) were measured from January 2005 to December 2006 at an urban site in Nagoya city. The average PM_{2.5} concentrations in 2005 and 2006 were 23.1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (n=193), and 24.6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (n=182), respectively. The average EC concentrations in 2005 and 2006 were both 3.2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Average contributions of EC to PM_{2.5} in 2005 and 2006 were 15% and 14%, respectively. The average EC concentrations on weekday and on Sunday were 3.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ and 2.0 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, respectively, and EC on Sunday was 40% lower than that on weekday. The calculated concentrations of monthly average EC by ADMER (Atmospheric Dispersion Model for Exposure and Risk Assessment) at the urban site was similar to the observed concentrations.

Key words: PM_{2.5}, OBC, EC, emission factor

1. はじめに

PM_{2.5}の健康影響については、米国での疫学調査 (Dockery et al., 1993) 等により死亡率等との関連性が認められている。米国では1997年7月にPM_{2.5}に関する環境基準が定められたが、2006年10月に環境基準の一部が改訂され、さらに厳しい基準となっている (若松, 2006; 香川, 2006)。日本国内においては、環境省が行ったPM_{2.5}に関する疫学調査結果 (環境省, 2007a) が2007年7月に公表されたばかりである。

PM_{2.5}の測定に関しては、日本国内では測定例が少なく、米国の標準器であるFRMサンプラーによりPM_{2.5}を採取している自治体は5自治体のみ (西井ら, 2007) となっており、報告例も名古屋市での測定 (中島ら, 2002; 山神ら,

2003), 埼玉県での測定 (米持ら, 2007) 等があるが、これらも数日から1週間ごとのサンプリングとなっており、PM_{2.5}の測定法マニュアル (環境庁, 2000a) に沿った1日ごとのサンプリングによる報告は見られない。

また、炭素成分の分析については、従来行われている熱分離法では有機炭素 (OC) の一部炭化による元素状炭素 (EC) の過大評価が問題となっている。近年、自治体においても、このEC過大評価分を補正することができる熱分離・光学補正法による分析が行われるようになった (小坂ら, 2003) が、測定例はまだ少ない。PM_{2.5}とその成分に関しては、実測データが非常に少ないのが現状である。

さらに、PM_{2.5}の主な発生源のひとつとされている自動車については、微小粒子中の各成分の排出係数は星ら (2002)

*名古屋環境科学研究所 〒457-0841 名古屋南区豊田 5-16-8

** 株式会社システム設計 環境解析研究所 〒140-0015 東京都品川区西大井 5-24-19

***独立行政法人国立環境研究所 〒305-8506 茨城県つくば市小野川 16-2

****愛媛大学 〒790-8566 愛媛県松山市樽味 3-5-7

が推計しているが、報告例はほとんどない。

発生源からの排出量を把握することは、環境行政においては重要なことであるが、実際の走行状態から排出係数を推計するにはトンネル調査が有効であるものの、実際に調査できる場所は限られている。測定が比較的簡単な道路沿道でのフィールド調査から自動車排出係数が推計できれば、排ガス規制により変動する排出係数の把握がしやすくなり、それを基に大気中濃度を推定するモデルの精度が上がることも期待できる。

そこで、本研究ではPM_{2.5}の一次粒子成分のうち寄与の大きいECに着目し、フィールド調査からEC排出係数の推定を行った。また、一般環境中におけるPM_{2.5}をFRMサンプラーにより2年間、計375日間の日平均値を調査し、ECについては熱分離・光学補正法により分析した。また、推定された排出係数を元に拡散モデルにより大気中濃度を推計し、実測値との比較を行った。

2. 方法

2.1 道路沿道におけるPM_{2.5}等の測定

名古屋市は、Fig. 1a に示すように愛知県の西寄りに位置

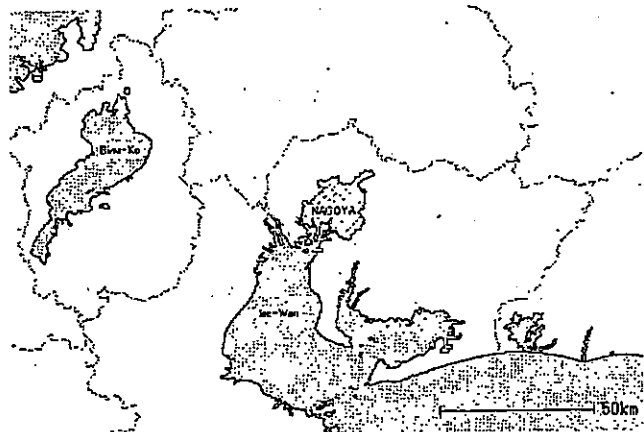


Fig. 1a Map of Nagoya City.

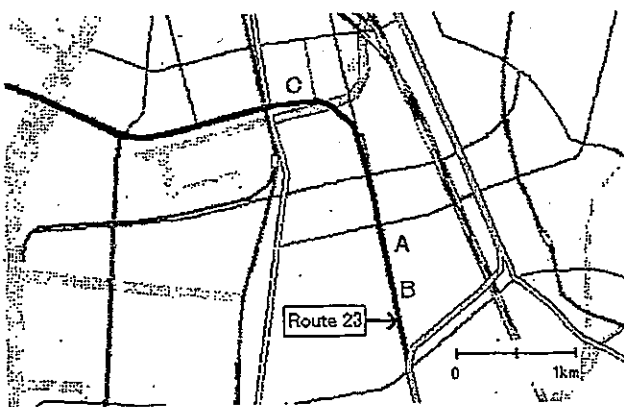


Fig. 1b Map of measurement sites; (A) a Route 23 roadside site, (B) a roadside air pollution monitoring station, and (C) an urban site. Map by Geographical Survey Institute.

し、他県に接する部分はなく、愛知県に属する近郊都市に囲まれている。国道23号は名古屋市南部に位置し、今回の道路沿道測定地点に最も近い地点における国道23号の交通量は、2005年度55,948台/12hr、大型車混入率は35.5%（平日）（名古屋市緑政土木局、2007）と、名古屋市内においては交通量が多く、大型車混入率が高い路線である。

PM_{2.5}の道路沿道測定は、Fig. 1b に示すように、南北に延びる片側4車線の国道23号東側約5mの地点（地点A）において行った。地点A付近の道路は平面構造で、沿道に2階建て住居が比較的多く存在している。最も近い交通信号のある交差点からは約70m離れている。測定期間は、地点Aが道路に対して風下となることが多い秋季を選び、2003年9月30日（火）から10月10日（金）に行った。

B線吸収式粉じん計SPM-613D（紀本電子製）を用いて、PM_{2.5}、SPMおよびPM_{2.5}中のoptical black carbon (OBC)を同時に測定した。また、OBCと元素状炭素(EC)の比較のため、FRM-2000（R&P社製）を用いて石英繊維フィルター（PALLFLEX製；2500QAT-UP）に数時間ごとに合計80時間、15サンプルのPM_{2.5}を流速16.7L/minで採取した。また同地点において、PTIO法（平野ら、1983）による窒素酸化物（NO_x）の測定を数日間ごとに行った。

また、今回のPM_{2.5}の道路沿道測定地点に最も近い自動車排ガス測定局の元塩公園局は、国道23号の東側約10mに位置し、PM_{2.5}の道路沿道測定地点（地点A）から約450m南に位置している（Fig. 1b, 地点B）。地点B付近の道路は緩やかな坂となっており、地点Bは公園の端にある。ここで測定したNO_x濃度データおよび風向風速データをEC排出係数の推定に用いた。風速計設置高さは地表から8mである。

2.2 交通量測定

交通量は2003年10月2日（木）から10月8日（水）までの計7日間に測定した交通量データ（環境情報科学センター、2004）を用いた。交通量測定方法は、ビデオカメラを用いて毎正時10分間、大型車と小型車に分けて（環境庁、2000b）地点Bにて測定された。大型車には、普通貨物自動車、バス、特殊用途自動車が含まれ、小型車には二輪以外の、軽乗用車、乗用車、軽貨物車、小型貨物車、貨客車が含まれる。

2.3 一般環境におけるPM_{2.5}の測定

一般環境測定は、名古屋市の南部に位置し、東西に延びる国道23号の北側約110mにある名古屋市環境科学研究所の4階建て屋上（地上約15m）で行った（地点C）。PM_{2.5}の測定は、FRM2000（R&P社製）を2台設置し、1台はPM_{2.5}質量濃度測定用としてサポートリング付きPTFE製フィルター（PALLFLEX製；TK15-G3M）を用い、もう1台はPM_{2.5}中の炭素分析用として石英繊維フィルター

(PALLFLEX製; 2500QAT-UP) を用いた。

PM_{2.5}の測定は、大気中微小粒子状物質(PM_{2.5})測定方法暫定マニュアル(環境庁, 2000a)に沿って、流速16.7L/min, 原則として9:30から翌日の9:00までの23.5時間採取した。採取は原則として日曜日9:30から金曜日9:00までの週5検体とした。採取後直ちに回収するため、採取終了日が休日や祝日となる場合は採取しなかった。採取後のサンプルを24時間、温度20°C湿度50%の恒温恒湿状態で放置し、その後10μg感量の天秤で秤量した。秤量後のサンプルは、分析までマイナス25°Cの冷凍庫に保存した。

今回の検討には、2005年1月から2006年12月までの計375検体の測定結果を用いた。サンプル回収の都合上、祝日の多い月は若干サンプルが少ないなど各月でサンプル数は同じではなく、また土曜日、日曜日回収のサンプルはほとんどないという曜日に偏りが見られるデータとなっている。

2.4 炭素成分分析

道路沿道における炭素成分の分析は、熱分離・光学補正法のDRIModel2001 Carbon Analyzerを用いてIMPROVEプロトコル(Chow et al, 1993, 長谷川ら, 2005)により測定した。道路沿道で採取したサンプルは、一般環境で採取したものよりかなり黒く、光学補正値がほとんど得られなかった。そのため道路沿道のECは光学補正を行わない値を用いた。

また、一般環境における炭素成分の分析は、熱分離・光学補正法のSunset社製Carbon Analyzerを用いてIMPROVEプロトコルにより測定した。光学補正は反射光強度によって行った。

今回の調査では、炭素成分の分析をサンプルによってDRIとSunsetという異なる装置を用いたので、両者を用いてECのクロスチェックを行った。その結果、DRIでの測定値(C_{DRI})とSunsetでの測定値(C_{Sunset})との間に相関関係が認められ(r²=0.998, n=7), 以下の回帰式が得られた。

$$C_{\text{Sunset}} = (1.23 \pm 0.03) \times C_{\text{DRI}} + (-0.19 \pm 0.21)$$

なお、暫定マニュアル(改訂版)(環境省, 2007b)では、採取前に石英繊維フィルターの加熱を行うことが記されている。しかし、石英繊維フィルターは加熱前処理をすることによって活性化し、恒量が難しく有機物の吸着が著しいことがわかっている(浮遊粒子状物質対策検討会, 1997)。一方、加熱前処理をしなくてもブランクろ紙の有機炭素成分のばらつきが非常に小さい(長谷川ら, 2005)ことから、今回の採取には加熱前処理を行わなかった。

3. 結果および考察

3.1 国道23号沿道におけるPM_{2.5}等の測定結果

2003年9月30日(火)から10月10日(金)までの全期間のPM_{2.5}濃度, SPM濃度, OBC濃度をFig.2に示す。全調査期間におけるPM_{2.5}の平均濃度は76.5μg/m³(n=234), 最大値は211μg/m³, 最小値は6.7μg/m³であった。SPMの平均濃度は85.5μg/m³(n=237), OBCの平均濃度は15.5μg/m³(n=241)であった。PM_{2.5}とSPMの濃度変動は同じように推移し、PM_{2.5}がSPMに占める割合は平均85.7%とかなり高い割合となっていた。また、OBCの濃度変動もPM_{2.5}, SPMとほぼ同様に推移し、濃度変動幅は小さいが変動係数(CV)は63%(n=241)となり、PM_{2.5}の55%(CV, n=234), SPMの50%(CV, n=237)と同程度となった。OBCがPM_{2.5}に占める割合は平均22.3%であった。

3.2 EC濃度とOBC濃度との関係

石英繊維フィルターに採取し分析したEC濃度と、各フィルター採取期間中における平均OBC濃度との関係をFig.3に示す。

比較を行った期間におけるECの平均濃度は28.2μg/m³(n=15), OBCは22.3μg/m³(n=15)となり、EC濃度がOBC濃度よりも全体的に高い値となった。しかしFig.3に示すように、両者には相関関係が認められ、一次回帰式として(1)式が得られた。

$$C_{\text{EC}} = (1.01 \pm 0.18) \times C_{\text{OBC}} + (5.71 \pm 4.13)$$

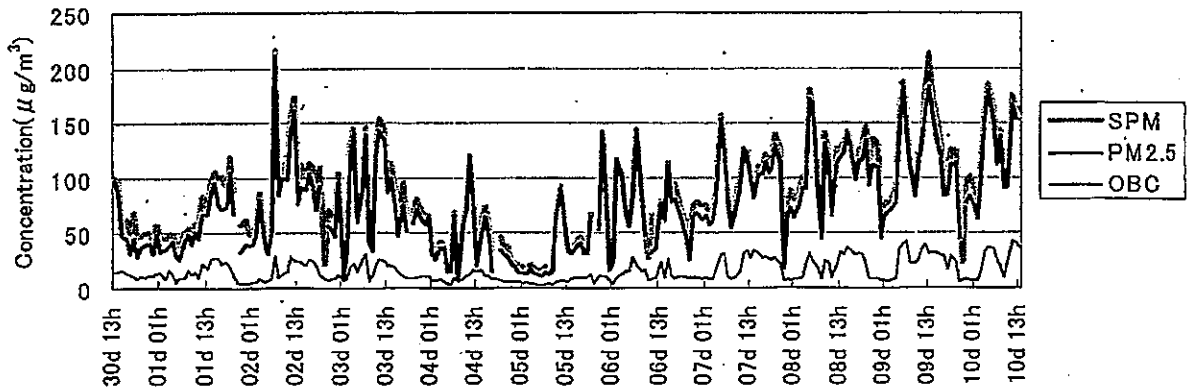


Fig. 2 PM_{2.5}, optical black carbon (OBC) and SPM concentrations at the site (A) from 30 September to 10 October 2003.

$$(r^2=0.71, n=15) \quad \text{---(1)}$$

ここで、

C_{EC} ; EC 濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)

C_{OBC} ; OBC 濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)

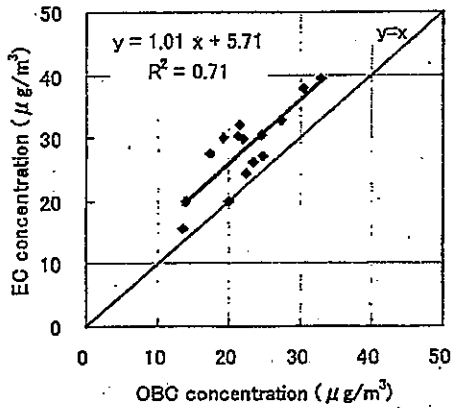


Fig. 3 Relationship between OBC and EC concentrations at the site (A).

3.3 $\text{PM}_{2.5}$, OBC と交通量との関係

時間ごとの総交通量, 大型車交通量, $\text{PM}_{2.5}$ 濃度, OBC 濃度の変化を Fig.4, Fig.5 に示す。なお, 平日の値は 2003 年 10 月 2 日 (木), 3 日 (金), 6 日 (月), 7 日 (火), 8 日 (水) の 5 日間の平均値と, その期間内の最大値, 最小値を示した。また, 10 月 4 日 (土) と 5 日 (日) の値も併せて示した。

平日の総交通量は平均 56,641 台/12hr (90,626 台/24hr) で, 平日 5 日間の最大値と最小値の差は小さく, 交通量に大きな変動はない。総交通量は午前 1 時から 5 時台が最も少なく, 午前 8 時から 9 時台にかけて最も多くなっている (Fig.4a)。

一方, 平日の大型車交通量は平均 19,674 台/12hr (31,739 台/24hr) で, 大型車混入率は平均 39.5%であった。大型車交通量は午前 1 時から直線的に交通量が伸び, 午前 7 時台にピークが見られるが, 午前 8 時台と 9 時台に交通量が半減する谷が見られる (Fig.4b)。

$\text{PM}_{2.5}$ 濃度と OBC 濃度の時間変動は, 平日 5 日間の最大値と最小値の差が大きいものの, 平均値では午前 1 時台か

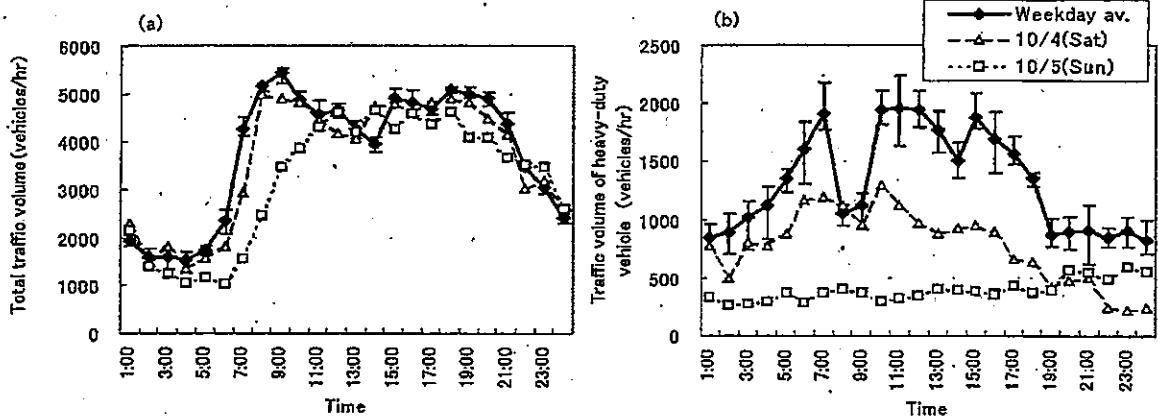


Fig. 4 Diurnal variations of (a) total traffic volume and (b) traffic volume of heavy-duty vehicle at the site (B) for the days 2-8 October 2003. Vertical bars indicate the maximum and minimum traffic volume on weekday.

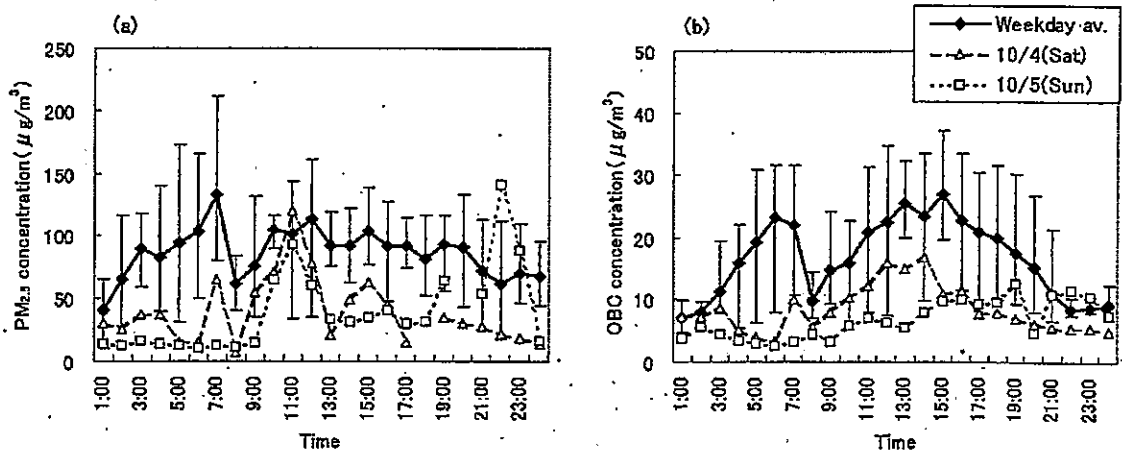


Fig. 5 Diurnal variations of (a) $\text{PM}_{2.5}$ and (b) OBC concentrations at the site (A) for the days 2-8 October 2003. Vertical bars indicate the maximum and minimum concentration on weekday.

ら直線的に濃度が増加し、午前8時台に谷になるという、大型車交通量と同じ傾向の変動が見られた(Fig.5)。

そこで、PM_{2.5}濃度と大型車交通量、OBC濃度と大型車交通量の関係を Fig.6 に示す。PM_{2.5}と大型車交通量との相関係数(r)は0.63 (n=176)、OBCと大型車交通量との相関係数(r)は0.68 (n=181)となり、ともに有意な相関が得られた。

3.4 OBCと風向風速との関係

大型車交通量との有意な相関が得られたOBCについて、風向風速との関係についてさらに詳しく検討した。測定地点が国道23号に対して風下となる風向S~NNWの場合について、風速2m/s未満 (Fig.7a)、風速2m/s以上3m/s未満 (Fig.7b)、風速3m/s以上 (Fig.7c) の3区分に分けて示した。

風速が大きい区分ほど大型車交通量とOBC濃度の相関が高くなっており、また、OBC濃度の大型車交通量による回帰直線の傾きは風速2m/s未満で0.0150と大きいのにに対し、風速2m/s以上3m/s未満で0.0109、風速3m/s以上で

0.0115と後二者では小さくかつ同程度である。

風速が小さい場合は、周辺および当該道路で発生したOBCが長時間滞留して測定地点への寄与が大きくなること、および、風向の変動が比較的多くなり、当該道路の直接寄与について、風下だけでなく風上が混在するためにOBCが低濃度となる場合もあることから、風速が小さい区分ほどOBC濃度と大型車交通量との間の相関が低くなったことが考えられる。

一般に、風速が小さい場合は排ガスの拡散は平均的な流れ場による移流よりも優勢であり、パフモデルが適用できる。後述のように、発生源高さ付近の風速は風速測定値の1/2程度と推定され、風速2m/s程度未満ではパフモデルが適用できるが、傾きが大きいのは、平均的な流れ場の移流による希釈効果が小さいこと、および、周辺ならびに当該道路で発生したOBCの滞留により濃度が高くなるためと考えられる。

一方、風速が大きい場合は平均的な流れ場による移流の希釈効果が優勢であり、プルームモデルが適用できる。プ

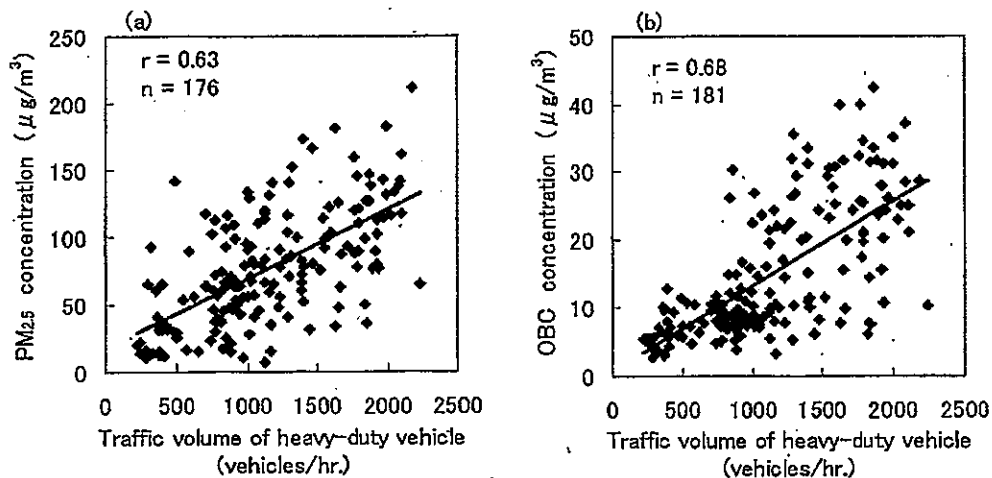


Fig. 6 (a) Relationship between the traffic volume of heavy-duty vehicle and PM_{2.5} concentration. (b) Relationship between the traffic volume of heavy-duty vehicle and OBC concentration.

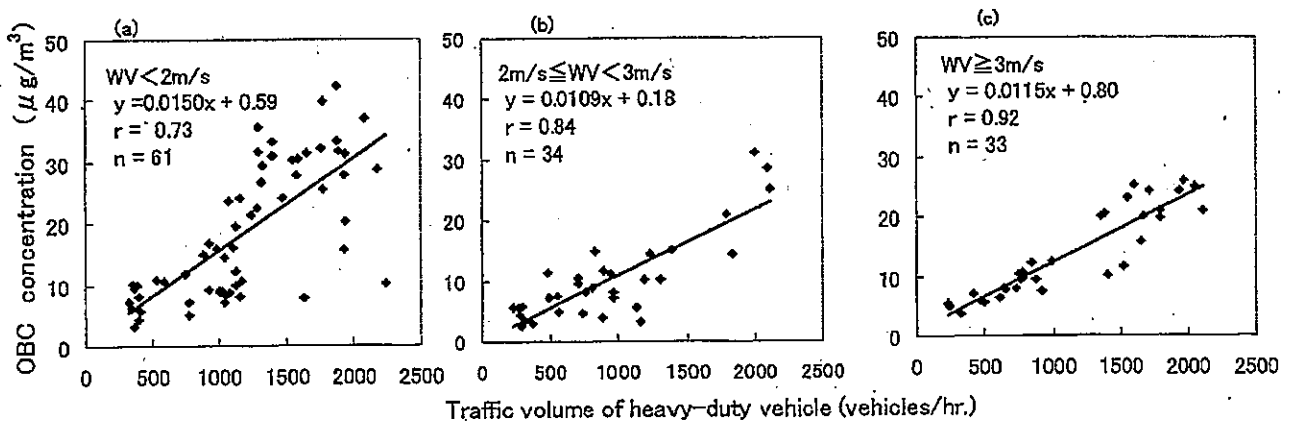


Fig. 7 Relationship between the traffic volume of heavy-duty vehicle and OBC concentration under downwind condition with wind velocity of (a) < 2 m/s, (b) 2-3 m/s, (c) ≥ 3 m/s.

ブルームモデルでは濃度は風速に反比例するが、風速 2m/s 以上 3m/s 未満の区分における傾きは風速 3m/s 以上の区分と同程度である。風速 2m/s 以上 3m/s 未満の区分においては、地表付近の風速が比較的小さく、風向の変動に伴い OBC が測定された風向の風下以外および鉛直にも拡散して希釈されたことが考えられ、定常風を前提としたブルームモデルは適用できないと考えられる。

3.5 排出係数の推定

3.5.1 NO_x濃度を用いた排出係数の推定

前述のように、大型車交通量と OBC 濃度の相関が最も高くなっている測定風速が 3.0 m/s 以上で、国道 23 号に対して道路沿道地点が風下となる 33 時間を対象とし、自動車からの EC 排出係数を求めるため、兼保ら (2002a) の手法を参考に、以下のように検討を行った。

まず、道路沿道における 1 時間毎の EC 濃度を (1) 式の関係から求めた。

道路近傍においては、自動車排ガス中の EC 排出量: NO_x 排出量の比が、大気中の EC 濃度: NO_x 濃度の比と等しいと仮定すると、以下の式が成り立つ。

$$C_{EC} : C_{NO_x} = E_{EC} : E_{NO_x}$$

$$E_{EC} = C_{EC} \times E_{NO_x} / C_{NO_x} \quad (2)$$

ここで、

- C_{EC}; 道路沿道における EC 濃度 (μg/m³)
- C_{NO_x}; 道路沿道における NO_x 濃度 (μg/m³)
- E_{EC}; 自動車由来の EC 排出量 (g/km・h)
- E_{NO_x}; 自動車由来の NO_x 排出量 (g/km・h)

今回、道路沿道測定地点における NO_x の 1 時間毎の連続測定データ (C_{NO_x}) が無い。そこで、道路沿道測定地点 (Fig.1b, 地点 A) と自動車排ガス測定局 (同, 地点 B) において PTO 法による NO_x 測定を行い、自動車排ガス測定局地点の NO_x 濃度に対する、道路沿道測定地点の NO_x 濃度の平均濃度比 1.37 (n=3) を求めた。Fig.1 に示すように、道路沿道測定地点 (地点 A) は自動車排ガス測定局 (地点 B) との距離が約 450m と比較的近く、道路周辺の建物状況に大きな差がないことから、両地点の気象条件を均一と見なし、この平均濃度比 1.37 を自動車排ガス測定局で測定した 1 時間毎の NO_x 濃度にかけることにより、道路沿道測定地点における 1 時間毎の NO_x 濃度を推定した。その結果、推定した NO_x 濃度と EC 濃度との相関係数は 0.72 (n=33) となった。

また、大型車としては普通貨物自動車、バス、特殊用途自動車の 3 種、小型車としては軽乗用車、乗用車、軽貨物車、小型貨物車、貨客車の 5 種が含まれる (下式の各引数の添字 j に対応) ため、以下の式から各車種の交通量 (台/hr) を時間毎に求めた。

$$N_j = N_h \times P_{hj}$$

N_j; 各車種の交通量 (台/hr) [j=1,2,3 (大型車)]

N_h; 大型車交通量 (台/hr)

P_{hj}; 大型車の各車種の構成比率 [j=1,2,3 (大型車)]

$$N_j = N_h \times P_{hj}$$

N_j; 各車種の交通量 (台/hr) [j=4,5,6,7,8 (小型車)]

N_h; 小型車交通量 (台/hr)

P_{hj}; 小型車の各車種の構成比率 [j=4,5,6,7,8 (小型車)]

なお、大型車、小型車の各車種の構成比率 (P_{hj}, P_{sj}) は、道路沿道測定地点に最も近い地点における車種別交通量データ (名古屋市緑政土木局, 1998) から求めた。時間毎による構成比率データがないため、構成比率は一定とした。

時間毎の自動車由来の NO_x 排出量 (E_{NO_x}) は以下の式から求めた。

$$E_{NO_x} = \sum_{j=1}^8 (F_{NO_{xij}} \times N_j) \quad (3)$$

F_{NO_{xij}}; 走行速度別 (i)・車種別 (j) NO_x 排出係数 (g/台・km)

走行速度別・車種別 NO_x 排出係数 (F_{NO_{xij}}) は名古屋市環境局 (2002) の値を用いた。また走行速度は走行速度調査結果 (名古屋市環境局, 2004) から、時間ごとに異なる 46~70km/h の値を用いた。

(2), (3) 式から、1 時間毎の自動車由来の EC 排出量 (E_{EC}) (g/km) を求めた。この値を目的変数とし、大型車交通量、小型車交通量を説明変数としてステップワイス法による重回帰分析を行った (F_{in}=0.05, F_{out}=0.10)。その結果、説明変数として大型車交通量が残り、以下の関係式が得られた。

$$E_{EC} = (0.368 \pm 0.021) \times N_h + (-55.3 \pm 27.0)$$

(r²=0.905, n=33)

この式から大型車の EC 排出係数は 368 mg/km・台と推定された。

3.5.2 拡散計算による排出係数の推定

次に、上記のように NO_x の濃度および排出係数を用いず、拡散計算により EC の排出係数の推定を行った。

自動車から排出される仮想物質を想定し、車種ごとの排出係数を 1g/km・台とし、1 時間ごとの交通量および気象条件に基づき、1 時間ごとの沿道における仮想物質濃度を拡散計算で求めた。得られた濃度に任意物質の実際の排出係数を掛けると当該道路による寄与濃度になることが期待され、したがって、OBC 測定濃度を目的変数、拡散計算で得られた仮想物質濃度を説明変数とした回帰分析を行うと、回帰係数は OBC の排出係数の推定値を意味することになる。拡散計算方法は、「道路環境影響評価の技術手法」の標準予測手法のブルームモデルとした。

発生源の配置は道路中央 (センターライン) とした。風速測定高さは地表から 8.0m であり、発生源高さを 1.0m とし、風速を $U_{12} = U_{11} * (h_2/h_1)^p$ で発生源高さに変換した。ベキ指数 p は、市街地の標準値 1/3 (財団法人道路環境研究所, 2000) とした。この結果、発生源高さの風速は測定された風速の (1/3)^p=0.5 倍となる。

風速 2m/s 以上 3m/s 未満の区分は 3.4 章の検討から、解

析対象として除外した。測定風速が3.0m/s以上の区分では、OBC濃度と大型車交通量の相関が高く、当該道路で測定時間中に発生した排ガス濃度の拡散計算による推定精度が比較的高いと考えられる。

そこで、測定風速が3.0m/s以上で道路沿道地点が風下となる33時間を対象として大型車の寄与の回帰分析を行い、下記の回帰式が得られた。測定濃度と拡散計算で得られた濃度の関係をFig.8に示す。

$$C_{OBC} = (0.258 \pm 0.026) \times C_A^* + (2.28 \pm 1.30) \quad (r^2=0.76, n=33) \quad \text{---(4)}$$

ここで、

C_A^* : 拡散計算で得られた仮想物質濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)

回帰係数からOBCの大型車の排出係数は258 mg/km・台と推定され、また定数項は当該道路以外の寄与を表すと考えられる。また、小型車も含めて同様の解析を行ったが小型車の寄与は分離できなかった。

前述の(1)式を用いて(4)式をECの式に変換すると、

$$C_{EC} = (0.261 \pm 0.054) \times C_A^* + (8.0 \pm 4.4)$$

この式から、ECの排出係数は261 mg/km・台と推定され、前節で求めた排出係数の0.71倍にあたる。

拡散計算を用いる手法では、NO_x等排出係数が既知の汚染物質のデータを必要とせず、また車種混入率、加減速等を含む実走行状態、ハイエミッタ車の存在等の排出実態を反映した排出係数を推定できる特徴がある。ただし、大気拡散計算手法の精度が十分高い保証のない場合が多いので、NO_x等排出係数が既知の物質濃度、トレーサガスの放出、その他の手法で補足する等の慎重な配慮が必須である。参考に今回の調査データに基づき、EC排出係数と同様にNO_x排出係数を拡散計算を用いる手法で推定したところ、大型車の排出係数は1.36g/km・台と推定された。この路線の車種構成比および平均速度から計算したNO_x排出係数は3.13g/km・台と推定され、拡散計算により求めた値はこの値の0.43倍となった。両者の推定値はやや異なるものの、後者の推定で使用した車種別NO_x排出係数および車種構成比率にも誤差が伴うことを考慮すると、拡散計算による手法の有効性が示唆されたと言えよう。また、拡散計算を用いる手法は排出係数の絶対値の推定精度が十分高くない場合でも、同一地点の経年変化の把握手法としては有効であると考えられる。

今回のようにフィールドで自動車排出係数を推計した報告は、兼保ら(2002a) 408 mg/km・台や、星ら(2002)がトンネルで測定した値160 mg/km・台がある。今回の調査は2003年に行われており、兼保ら(2002a)の調査が行われた1997年から6年経っていることから、規制の効果で今回推計した値の方が小さくなったことが考えられる。一方、星ら(2002)の調査は2001年に行われているが、トンネルでの調査は、走行速度の変動が小さいことや、対象道路以外の影響が小さいことから、今回求めた排出係数はトンネ

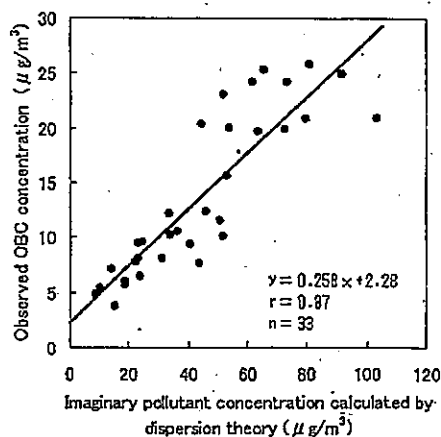


Fig. 8 Relationship between observed OBC concentration, and imaginary pollutant concentration calculated by dispersion theory with emission factor 1g/km-vehicle.

ル調査の値よりも大きくなったと考えられる。

3.6 一般環境におけるPM_{2.5}およびECの測定結果

名古屋市内の一般環境である名古屋市環境科学研究所 (Fig.1b, 地点C) で採取したPM_{2.5}、ECの日平均濃度の年平均値および月平均値をTable1に示す。測定期間は2005年1月から2006年12月まで、2005年は193日間、2006年は182日間の測定を行った。

一般環境中におけるPM_{2.5}濃度は、2005年では6.4~70.9 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ で、年平均値は23.1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、2006年では3.8~77.7 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ で、年平均値は24.6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。PM_{2.5}濃度の月平均値は、3月および6、7月に比較的高濃度となっているが、明瞭な季節変動は見られなかった。

一方、EC濃度は、2005年では0.7~8.8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ で、年平均値は3.2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、2006年では0.4~10.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ で、年平均値は3.2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。EC濃度の月平均値は、7月および11月が比較的高濃度となっていた。6、7月のPM_{2.5}の高濃度は、光化学反応が活発になることによる二次生成粒子の増加と、南風が卓越するため測定地点の南側に位置する国道23号から拡散されてくる自動車排気粒子による増加の両面の影響と推測される。また、11月のECの高濃度は、逆転層の出現日数が多く、大気が安定であるためと推測される。PM_{2.5}、ECともに2005年と2006年では年平均値に有意な差は見られなかった。

また、PM_{2.5}に占めるECの割合 (EC/PM_{2.5}比) もTable1に併せて示す。EC/PM_{2.5}比では0.02~0.42で、年平均値は0.15、2006年では0.05~0.36で、年平均値は0.14であった。EC/PM_{2.5}比の月平均値は3~5月に低く、12月および9~12月に高くなる傾向を示した。次に、曜日別のPM_{2.5}およびEC濃度の平均値をFig.9に示す。PM_{2.5}は、月曜日から金曜日の平均濃度は24.0~28.1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、平日の平均濃度は24.7 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であるのに対し、日曜日の平均濃度は20.1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ となり、平日に対し日曜日には約20%PM_{2.5}濃度が低くな

った。一方、ECは、月曜日から金曜日の平均濃度は3.3~3.6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、平日の平均濃度は3.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であるのに対し、日曜日の平均濃度は2.0 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ となり、平日に対し日曜日には約40%EC濃度が低くなった。日曜日に平日よりもEC濃度が低下することは、セントルイスで測定された結果 (Bae et al., 2004) でも示されており、平日0.75 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ に対して日曜日0.6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ となり、約20%の低下となっている。また、ヘルシンキでのBlack Carbon (BC) の測定結果 (Pakkanen et al., 2000) では、平日1.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ に対して日曜日1.0 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ となり、約30%の低下となっている。本研究ではそれらの結果よりも大きい約40%の低下となった。

平日に比べ日曜日には、ECの発生源と考えられる自動

車の交通量や固定発生源からの排出量が少なくなると推定される。ECの主な発生源である大型車交通量については、2005年における名古屋市内の県道以上の24時間走行台キロは、平日の2926千台キロに対し、休日(日曜日)は848千台キロとなっており(名古屋市緑政土木局, 2007)、平日に対して約70%低下している。このような排出量の低下により曜日による偏りを生じていると推定される。

3.7 排出係数を用いた一般環境濃度の推定

3.5章で推計したEC排出係数によって大気中のEC濃度を再現できるか確認するため、求めたEC排出係数を用いて、産総研一曝露・リスク評価大気拡散モデル

Table1 Statistics of yearly and monthly $\text{PM}_{2.5}$, EC and EC/ $\text{PM}_{2.5}$ ratio from Jan 2005 to Dec 2006 at the site (C).

year	month	n	$\text{PM}_{2.5}$ ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)			EC ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)			EC/ $\text{PM}_{2.5}$		
			Mean	Max	Min	Mean	Max	Min	Mean	Max	Min
2005	1-12	193	23.1	70.9	6.4	3.2	8.8	0.7	0.15	0.42	0.02
	1	13	20.4	37.2	8.1	3.1	7.4	1.1	0.15	0.22	0.08
	2	19	18.9	35.7	6.4	2.8	6.3	0.8	0.15	0.22	0.10
	3	18	28.0	61.1	6.4	3.5	7.7	1.2	0.13	0.20	0.09
	4	17	24.1	39.1	9.8	3.1	6.5	1.2	0.13	0.20	0.07
	5	17	22.1	46.2	8.6	2.6	6.5	1.0	0.13	0.20	0.06
	6	22	25.9	46.8	7.2	3.3	5.5	1.3	0.15	0.42	0.06
	7	11	29.7	50.2	11.5	4.0	8.1	1.8	0.14	0.26	0.08
	8	17	23.4	36.0	10.0	2.7	5.4	0.7	0.12	0.22	0.02
	9	9	25.1	49.2	8.5	3.4	4.8	0.8	0.15	0.33	0.07
	10	19	20.5	42.8	7.7	3.5	6.7	1.3	0.17	0.25	0.10
	11	15	24.4	70.9	8.9	3.8	8.8	1.7	0.18	0.29	0.12
12	16	17.1	28.7	7.5	3.1	5.7	1.0	0.18	0.26	0.12	
2006	1-12	182	24.6	77.7	3.8	3.2	10.5	0.4	0.14	0.36	0.05
	1	18	26.0	77.7	4.0	3.2	10.5	0.4	0.13	0.20	0.09
	2	11	26.0	52.1	6.4	3.9	7.7	1.3	0.16	0.21	0.08
	3	16	28.3	52.8	7.9	3.3	6.2	0.9	0.13	0.31	0.06
	4	18	21.4	41.9	7.5	2.4	5.4	1.0	0.11	0.17	0.07
	5	12	21.9	48.5	3.8	2.4	4.3	1.0	0.13	0.26	0.06
	6	16	34.2	54.9	17.5	3.6	5.4	2.1	0.11	0.16	0.06
	7	14	19.4	44.6	9.8	3.2	8.9	1.4	0.17	0.24	0.09
	8	16	22.3	39.2	9.2	2.7	4.3	1.5	0.13	0.18	0.07
	9	12	17.0	30.6	7.5	2.9	5.3	1.2	0.18	0.36	0.10
	10	18	28.4	60.9	4.7	3.4	7.1	1.2	0.13	0.25	0.05
	11	16	22.6	69.2	7.2	3.5	7.4	1.1	0.17	0.32	0.06
12	15	24.9	51.9	4.9	3.8	7.9	0.6	0.15	0.20	0.09	

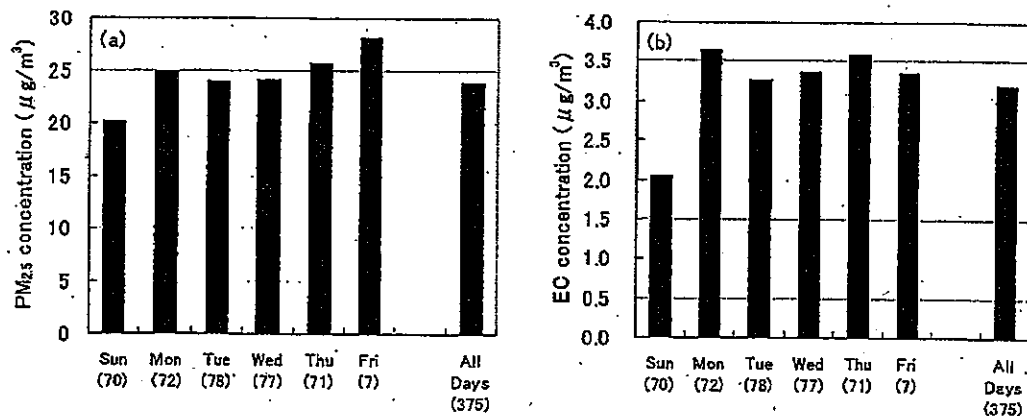


Fig. 9 Average of (a) $\text{PM}_{2.5}$ and (b) EC concentrations with the number of samples from Jan 2005 to Dec 2006 at the site (C).

(AIST-ADMERver.2.02) (東野ら, 2003) により, 名古屋市における自動車から排出される大気中の EC 濃度を推定した。ここでは EC 排出係数は大型車を 368 mg/km・台とした。

大気中濃度を推定する対象年を 2005 年とした。ADMER には 1998 年を基準とした交通量データが内蔵されている。1998 年には交通量調査が行われていないため, 直近の 1997 年の交通量データ (名古屋市緑政土木局, 1998) を基準とし, 大型車・小型車別に 1997 年に対する 2005 年の交通量比を道路交通センサス (名古屋市緑政土木局, 2007) から求めた。ADMER で用いる排出係数の単位は g/sec/(1000 台・km/h) となっているため, 3.5 章で求めた EC 排出係数を単位変換し, さらに交通量比を乗じて, 大型車; 0.088g/sec/(1000 台・km/h) とした。大気安定度の推定は, 2005 年のアメダス局の地表風速データと気象官署の全天日射量および雲量を用いて決定した。

また, 乾性沈着速度については, 粒子状物質の乾性沈着速度は粒径に依存し (Garland et al., 2001), 粒径 0.1~1 μ m の粒子の沈着速度は, 理論計算では 0.1cm/s 以下とされている (Slim, 1982)。また, 沈着速度は地表面の状態によって異なり, 構造が単純な表面では理論値に近くなるこ

と (松田ら, 2007) から, 兼保ら (2002b) と同様に 0.1cm/s とした。バックグラウンド濃度は, 3.6 章の環境濃度測定 の最小値 0.4 μ g/m³ を用いた。

以上のパラメータを用いて, 5 \times 5km メッシュで 2005 年 1 月~12 月について月毎に EC の大気中濃度を推定した。なお, EC 推定濃度は Sunset 法に合わせるため, 2.4 章の C_{DR1} による C_{Sunset} の回帰式で変換した値とした。推定値の内, PM_{2.5} の採取を行っている名古屋市環境科学研究所 (Fig.1(b), 地点 C) が含まれているメッシュの計算値と, 実測値を比較したものを Fig.10 に示す。その結果, EC の濃度レベルはほぼ一致した。また, 6, 7 月の実測値の高濃度を除いて, 計算値の EC 濃度変動は実測値の変動と類似したものとなった。6, 7 月の高濃度については, Fig.11 に示すように南系の風が卓越しており, この時期, 測定地点 (地点 C) が国道 23 号の風下となる。今回のモデルでは 5 \times 5km メッシュで推計を行っており, 局所的な高濃度が再現されなかった結果, 6, 7 月の実測値と合わなかったと推定される。

また, モデルでは自動車からの排出分のみを計算しているが, 実際には自動車だけでなくその他の移動発生源や固定発生源が存在すると考えられる。今回モデルで計算した年平均値は 3.6 μ g/m³ となった。一方, 実測値はサンプリングが原則として日曜日 9:30 から金曜日 9:00 までの週 5 検体としているため, 曜日に偏りのある年平均値となっているが, 2005 年の年平均値は 3.2 μ g/m³ となり, ほぼ同レベルとなった。しかし, 実際にはその他の発生源から排出される EC も存在し, SPM 中の EC については, 自動車からの排出量が全体の約 90% を占め, 固定発生源や他の移動発生源からの排出量は約 10% 程度と推計されている (兼保ら, 2002a)。今回発生源としてモデルに加えなかったこれら他の移動発生源や固定発生源からの EC 排出量を加えると, モデルによる計算値は今回推定した値よりも若干高くなると予想される。

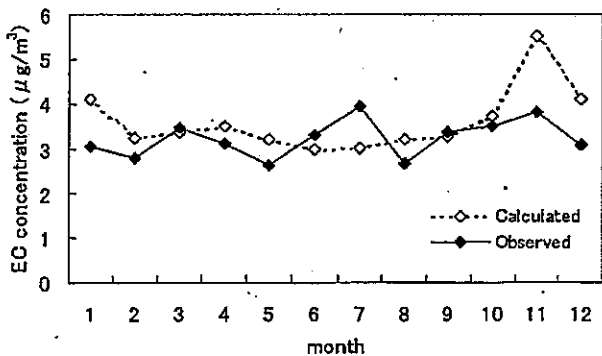


Fig. 10 Monthly average of the observed and calculated EC concentrations at the site (C) in 2005.

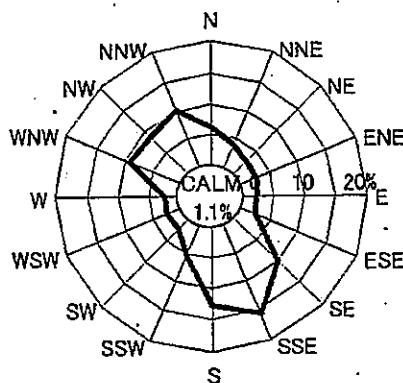


Fig. 11 Wind rose at Nagoya Local Meteorological Observatory from June to July 2005.

4. 結論

本研究では, 名古屋市における国道 23 号沿道において, PM_{2.5} および OBC の測定を行った。その結果, 道路沿道での PM_{2.5} および OBC の変動は大型車交通量の変動と相関があり, 大型車の寄与が大きいと考えられることがわかった。NO_x 排出係数を用いる手法では EC の排出係数は大型車に対して 368 mg/km・台と推定され, また, 拡散計算を用いる手法では EC の排出係数は大型車に対して 261 mg/km・台と推定され, これらの推定値は文献値と同程度であった。

一般環境中における一日ごとの PM_{2.5} と EC の測定を行った結果, EC は平日に濃度が高いのに対し, 日曜日には平日よりも約 40% 濃度が低下しており, 曜日による平均濃度の差が明らかとなった。

求めた EC の排出係数を用い, ADMER を用いて 2005 年

の大気中濃度を月別に推定した結果、計算値の EC 濃度変動は実測値の変動と類似したものとなった。

道路沿道における OBC 測定値から EC の発生源を主に大型車とみなし、NO_x の排出との関係および大気拡散計算によって排出係数を推定し、ADMER による地域の発生量の推定および大気拡散計算によって、一般環境の濃度を予測することができることが示された。

5. おわりに

本研究では、PM_{2.5}、特にそれに含まれる EC に着目し種々の検討を行ったが、本研究で用いられた一連の手法は、自動車から発生する他の排出係数データが存在しない汚染物質への適用が期待される。

今後同様の調査を行うことによって、今後変動すると予想される EC の排出係数の把握、および環境中濃度の長期的変動の要因を把握することができると考えられる。

(本研究の一部は、2004 年度第 45 回大気環境学会年会上において発表した。)

謝辞

本研究の一部は、平成 15 年度～17 年度名古屋市調査研究および国立環境研究所との共同研究「自動車起源の PM_{2.5} に関する研究」により行った。

本研究を行うにあたり、ご協力いただきました紀本電子工業 (株) 戸矢崎保雄氏、環境情報科学センターの皆様にご感謝致します。

(受稿日 2008. 3. 13) (掲載決定日 2008. 5. 28)

文献

- Bae, Min-Suk, Schauer, J.J., DeMinter, J.T., Turner, J.R. (2004) Hourly and Daily Patterns of Particle-Phase Organic and Elemental Carbon Concentrations in the Urban Atmosphere, *Journal of the Air & Waste Management Association*, 54, 823-833
- Chow, J.C., Watson, J.G., Pritchett, L.C., Pierson, W.R., Frazier, C.A., Purcell, R.G (1993) The DRI thermal/optical reflectance carbon analysis system: description, evaluation and applications in U.S. air quality studies, *Atmospheric Environment*, 27A, 1185-1201
- Dockery, D.W., Pope, C.A., Xu, X.P., Spengler, J.D., Ware, J.H., Fay, M.E., Ferris, E.G (1993) An association between air-pollution and mortality in 6 United-States cities, *New England Journal of Medicine*, 329, 1753-1759
- 浮遊粒子状物質対策検討会 (1997) 浮遊粒子状物質汚染予測マニュアル、初版、東洋館出版社、p.357
- Gardand, J.A. (2001) On the size dependence of particle deposition, *Water, Air and Soil Pollution : FOCUS 1* : 323-332
- 長谷川就一, 若松伸司, 田邊潔 (2005) 同一大気試料を用いた熱分離法および熱分離・光学補正法による粒子状炭素成分分析の比較, *大気環境学会誌*, 40(5), 181-192
- 東野晴行, 北林興二, 井上和也, 三田和哲, 米澤義堯 (2003) 曝露・リスク評価大気拡散モデル(ADMER)の開発, *大気環境学会誌*, 38(2), 100-115
- 平野耕一郎, 前田祐行 (1983) NO, NO₂ 個人サンプラーに対する温湿度の影響と補正方法について, *横浜市公害研究所報*, 8, 13-21
- 星純也, 石井康一郎, 井原真理子, 小島茂喜, 桜井健郎, 森口祐一, 田邊潔, 若松伸司 (2002) 自動車トンネルを利用した排出ガス調査 (III), *東京都環境科学研究所年報*, 12-19
- 香川順 (2006) 米国の粒子状物質に係る環境基準の改定提案の概要, *大気環境学会誌*, 41(5), A55-A68
- 兼保直樹 (2002a) 組成別 SPM 濃度シミュレーションモデルの開発と初冬季高濃度大気汚染への適応 (I), *大気環境学会誌*, 37(3), 167-183
- 兼保直樹 (2002b) 組成別 SPM 濃度シミュレーションモデルの開発と初冬季高濃度大気汚染への適応 (II), *大気環境学会誌*, 37(5), 302-319
- 環境情報科学センター (2004) 平成 15 年度局地的大気汚染の健康影響に関する調査研究
- 環境庁 (2000a) 大気中微小粒子状物質(PM_{2.5})測定方法暫定マニュアル
- 環境庁 (2000b) 騒音に係る環境基準の評価マニュアル, pp.60-65.
- 環境省 (2007a) 微小粒子状物質曝露影響調査報告書
- 環境省 (2007b) 大気中微小粒子状物質(PM_{2.5})測定方法暫定マニュアル (改訂版), 第 5 章(1), p.12
- 小坂浩, 吉村陽, 小山太八郎 (2003) 大気中 Elemental Carbon(EC)濃度の長期モニタリング (I)-分析法の検討, 第 44 回大気環境学会年會講演要旨集, p.628
- 松田和秀, 高橋章, 林健太郎, 反町篤行 (2007) 東アジアにおける乾性沈着フィールド研究, *大気環境学会誌*, 42(5), 261-270
- 名古屋市緑政土木局 (1998) 名古屋市一般交通量概況平成 9 年度全国道路・街路交通情勢調査報告書 (道路交通センサス)
- 名古屋市緑政土木局 (2007) 名古屋市一般交通量概況平成 17 年度全国道路・街路交通情勢調査報告書 (道路交通センサス)
- 名古屋市環境局 (2002) 窒素酸化物・粒子状物質排出量調査報告書
- 名古屋市環境局 (2004) 自動車騒音常時監視地点における交通量調査委託調査報告書
- 中島寛則, 酒井哲男, 北瀬勝, 山神真紀子 (2002) 名古屋