

新規開発超微小粒子測定装置を用いた大気中超微小粒子の 地域特性および発生源距離別環境動態に関する調査研究

A research study on regional characteristics and atmospheric behavior of ultra-fine particles according to the distance from the emission source using a newly developed Ultra-Fine Particle Counter

プロジェクト代表者：関口 和彦（大学院理工学研究科・助手）
Kazuhiko Sekiguchi (Graduate School of Sci. and Eng., Research Associate)

1 はじめに

大気中に存在する粒子状物質は、粒径数十 μm から数 nm まで連続的に分布しているが、最近では、特に粒径の小さな超微小粒子 (UFP) (一般に粒径が $0.1 \mu\text{m}$ 以下とされるが、ここでは便宜上 $0.3 \mu\text{m}$ 以下を UFP と称する) について、その発生過程や環境動態が注目されている。UFP は、微小粒子全体に対する質量濃度の寄与は小さいが、個数あるいは表面積では大気中粒子の大部分を占めている。また、今後のディーゼル車を中心とした黒煙排出対策による粒径 $2.5 \mu\text{m}$ 以下の粒子 ($\text{PM}_{2.5}$) の濃度低下が期待される一方で、ディーゼルエンジンの改良によって UFP の排出が増加する可能性も指摘されている。さらに、健康影響の観点から、呼吸の際に人体に取り込まれた UFP が肺胞上皮を通過して肺間質からリンパ管や血管内に運び込まれ、循環器系障害を引き起こす可能性があるなど、UFP による深刻な生体影響が懸念されている。

本研究では、これまでの産学官の連携により開発を行ってきた UFP と $\text{PM}_{2.5}$ の粒径別個数濃度を同時に連続モニター可能な装置である Ultra-Fine Particle Counter (UFPC) を用いて、気象条件や $\text{PM}_{2.5}$ 中成分濃度等と関連付けた大気中 UFP の動態調査を行うことを目的としている。

2 実験方法

大気中 UFP の広域動態を調査するため、2004 年 7 月から 8 月にかけて目黒、さいたま、騎西の 3 地点において $\text{PM}_{2.5}$ と UFP 数濃度の連続測定を行った。観測期間、地点および使用装置の概要を図 1 にまとめる。数濃度の測定には、SMPS (Scanning Mobility Particle Sizer) および UFPC を用いた。また、2003 年 3 月に川崎市の道路端およびさいたまの 2 地点において同様の測定を実施しており、この数濃度データとの比較も行った。また、さいたま (2004 年 7 月から 8 月：夏期)、川崎 (2003 年 6 月から 7 月：夏期、2004 年 2 月：冬期) においては、TEOM (Tapered Element Oscillating Microbalance) による $\text{PM}_{2.5}$ 質量濃度測定と各種自動測定装置による $\text{PM}_{2.5}$ 中成分濃度測定も同時に行った。

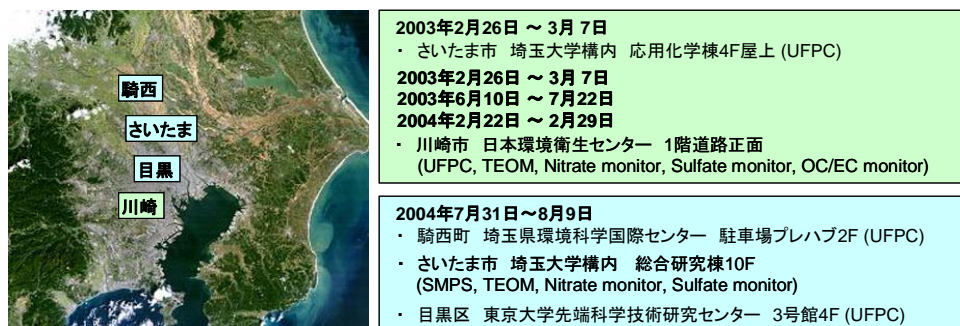


図 1 観測期間、地点および使用装置

3 結果および考察

3.1 大気中における UFP 数濃度の挙動

2003 年冬期のさいたまおよび川崎（道路端）における粒径別粒子数濃度の推移を図 2 に示す。それぞれ粒径 $0.01 \sim 0.3 \mu\text{m}$ の粒子（以降 UFP と記す）の数濃度に注目すると、短時間での細かい濃度変動は見られるものの、観測期間を通して $10^3 \sim 10^5 /\text{cm}^3$ を中心に比較的安定に推移している。それに対し、粒径 $0.3 \mu\text{m}$ 以上の 4 粒径範囲の粒子については、互いに同様の濃度推移を示しており、UFP の数濃度よりも大きな濃度変動が見られた。また、粒径 $0.3 \sim 0.5 \mu\text{m}$ の粒子の数濃度は、平均で UFP の数濃度の約 100 分の 1 程度であり、UFP の数濃度に対してわずかな割合であったことから、UFP が数濃度として大気中粒子状物質の大部分を占めるということが確認された。

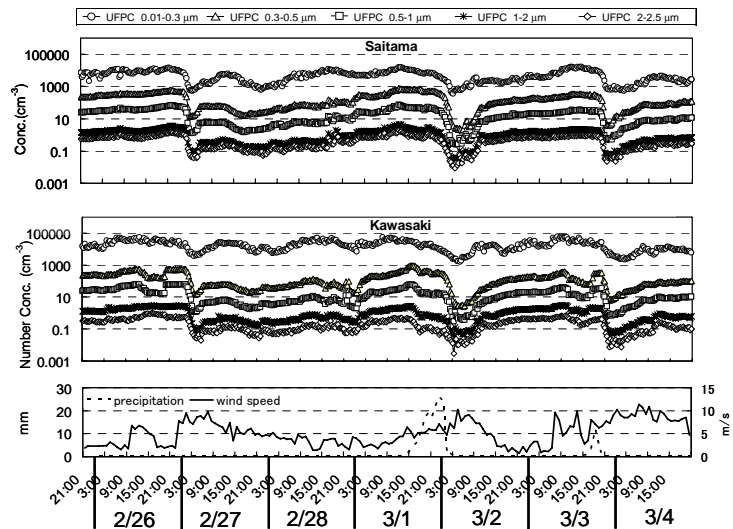


図 2 さいたま、川崎（道路端）における粒子数濃度の変化と風速、降水量との関係（2003 年冬期）

3.2 気象因子による影響

図 2 に示した風速および降水量については、川崎の測定地点付近の観測局で得られたものであり、測定期間中の天候は、広域的に似通った気象条件を示していた。

風速および降水量と粒子数濃度の推移の関係に注目すると、風速 10 m/s 程度の強い風および降雨が観測された期間に粒径 $0.3 \mu\text{m}$ 以上の粒子数濃度が大幅に減少していることが確認できる。粒径 $0.3 \mu\text{m}$ 以上の粒子の大幅な濃度減少は、強風による希釈効果や沈着の促進、および降雨への湿性沈着（ウォッシュアウト）の影響を受けたものであると言える。その一方で、UFP の数濃度は、強風や降雨が観測された期間においても、粒径 $0.3 \mu\text{m}$ 以上の粒子ほど大幅な濃度減少を示していない。このことから、UFP は、粒径 $0.3 \mu\text{m}$ 以上の粒子に比べ、強風や降雨による沈着の影響を受けにくいことが示唆された。

3.3 UFP の広域にわたる濃度推移

図 2 のさいたまおよび川崎の 2 地点における粒子数濃度推移をみると、都市部道路近傍に位置し、自動車排ガス影響を強く受けると考えられる川崎の測定地点の方が、直接排ガス影響を受けないさいたまの測定地点よりも UFP 個数濃度が高い濃度レベルで推移していることが分かる。それに対し、 $0.3 \mu\text{m}$ 以上の粒子は、両地点において顕著な個数濃度差は見られず、UFP が発生源の影響を強く受けていることが示唆された。また、その一方で、全体的な日変化の傾向は両地点でほぼ同様であったことから、UFP は、安定に推移する粒径範囲と発生源の影響を強く受ける粒径範囲に分かれる可能性が示唆された。この傾向は、道路近傍においては、Accumulation モード

の他に Nuclei モードが観測されるという最近の報告からも理解できる結果である。

さらに、広域における UFP の濃度推移を把握するため、2004 年夏季の目黒、さいたま、騎西における粒径別粒子数濃度の推移を図 3 に示す。図 3 から、目黒 さいたま間、さいたま 騎西間の距離がそれぞれ 30 km 程度離れているにもかかわらず、3 地点で似通った傾向を示していることがわかる。

この結果については、都市部で発生した VOC 等のガス状汚染物質が内陸部へと輸送される過程で、

光化学反応により粒子状物質へと変化していたことによる可能性が考えられる。また、さいたまと川崎の道路端で似通った UFP 数濃度の推移を示した図 2 の結果を考慮すると、道路端などの発生源から拡散し、広域にわたる移流に寄与するような UFP が、大気バックグラウンドとしてある程度の濃度で存在していることが示唆される。

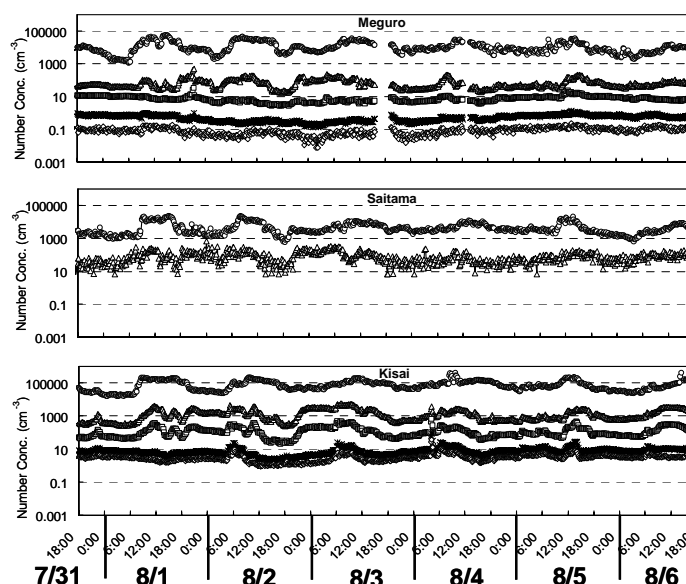


図 3 目黒、さいたま、騎西における粒子数濃度の変化 (2004 年夏季)

3.2 UFP 個数濃度および PM_{2.5} 質量濃度と PM_{2.5} 中成分濃度との関係

UFP 個数濃度および PM_{2.5} 質量濃度と PM_{2.5} 中成分濃度との関係を明らかにするため、濃度相関をとった結果について図 4 に示す。比較するデータは、川崎の測定地点において夏季および冬期に測定されたものであり、炭素成分の測定周期である 3 時間平均値を用いた。

図 4 から、元素状炭素(EC)は、PM_{2.5} 質量濃度よりも UFP 個数濃度との間で相関が高いことがわかる。EC 発生源から直接排出される一次排出粒子であり、今回の測定地点が道路沿道であることから、そのほとんどは自動車排ガス由来のものであると考えられ、これと相関が高かったことは、今回測定した UFP もそのほとんどが自動車排ガス由来であったと考えることができる。また、そのほとんどが二次生成粒子である硝酸塩(Nitrate)、硫酸塩(Sulfate)においては、PM_{2.5} 質量濃度とは高い相関を示したが、UFP 個数濃度とは全く相関が見られなかった。その一方で、有機炭素(OC)とは EC ほどではないが相関が認められたことで、UFP 中には、燃料由来または道路近傍における局所的な二次生成粒子が含まれる可能性が示唆された。また、PM_{2.5} 質量濃度については、硫酸塩、炭素成分と良い相関が得られたことから、PM_{2.5} 質量濃度の変動に関係なくこれら成分が安定な割合で存在していることが示唆された。その一方で、硝酸塩とは相関が見られず、道路近傍での PM_{2.5} 質量濃度の変動に対する硝酸塩の寄与は小さい可能性が指摘された。

さらに、これらの結果を一般大気における傾向と比較するため、2004年夏期のさいたまにおける同様の相関図（測定したPM_{2.5}中成分は硝酸塩、硫酸塩のみ）を図5に示した。夏期のさいたまの測定地点においては、川崎の測定地点よりもUFP数濃度とPM_{2.5}中硫酸塩濃度との間に若干ではあるが関係が見られた。このことから、一般大気中においては、道路端などの発生源近傍の大気とは異なり、光化学反応によるUFPの二次生成が重要になることが示唆された。

4 まとめ

本研究の結果から以下の知見を得た。

- UFPは、個数濃度として大気中粒子状物質の大部分を占め、郊外よりも都市部道路端において、安定かつ高い個数濃度を示す。
- UFPは、0.3 μm以上の微小粒子と比べ風や雨による沈着の影響を受けにくい。
- 広域にわたる移流に寄与するようなUFPが存在している可能性がある。
- 道路端のUFPは、特にECと高い相関を示すことから、自動車排ガス由来の一次排出粒子が主であるといえ、OCとの関係から、燃料や潤滑油由来の局所的な二次生成も寄与していると考えられる。
- 一般大気中のUFPは、道路端よりも硫酸塩との間に良い相関を示すことから、主として光化学二次生成によるものと考えられる。

5 今後の展望

本研究により得られた結果を踏まえ、新たに開発中の超微小粒子分級捕集装置を用いた大気中UFPの捕集を行い、成分分析を行うことで、UFP中に存在する成分を特定し、その成分を中心に、より身近な空間に測定対象を移行させる。具体的には、道路端などの発生源からの距離別、もしくは高度別にUFPおよびPM_{2.5}の数濃度の測定および組成分析を行い、UFPの空間的な広がりを調査する予定である。

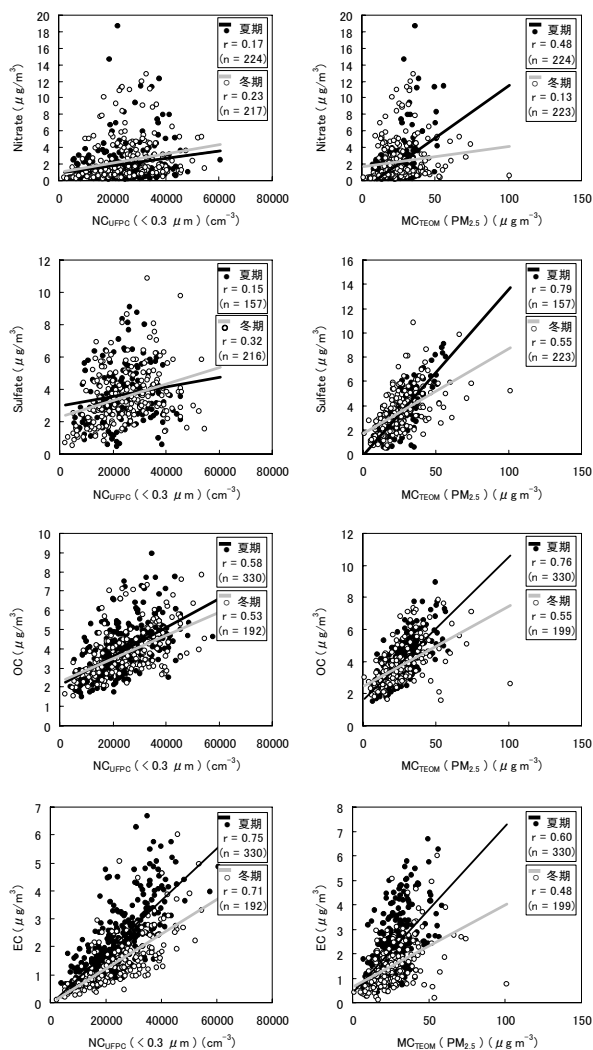


図4 UFP数濃度およびPM_{2.5}質量濃度とPM_{2.5}中成分濃度との関係(川崎)

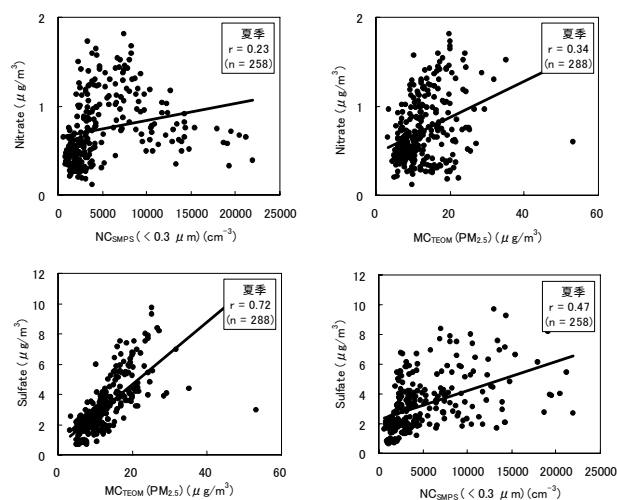


図5 UFP数濃度およびPM_{2.5}質量濃度とPM_{2.5}中成分濃度との関係(さいたま)