高速道路周辺における粒子状物質の分布と 多環芳香族化合物に関する研究 (第1報) 粒子状物質の汚染現況

Studies on the Distribution and Polyaromatic Hydrocarbons of
Particulate Substances in the Vicinity of an Expressway
Rep. 1 The present conditions of pollution by particulate substances

滋賀医科大学保健管理学教室

喜 多 義 邦・佐々木 武 史

Yoshikuni Kita and Takeshi Sasaki

Department of Health Care and Administration, Shiga University of Medical Science, Otsu

In order to examine the actual conditions of air pollution by suspended particulate matter (SPM) due to diesel exhaust, traffic characteristics, weather conditions and SPM concentrations were measured in the vicinity of Kusatsu Parking Area (Kusatsu P.A.) which is located between Ritto Interchange (Ritto I.C.) and W. Seta I.C. on the Meishin expressway. Concentrations of gaseous pollutants, were also measured in this 24 hours survey which was performed three times at 7 points simultaneously. The results obtained were as follows;

- 1) The total-traffic volume in this section was about 60000/day and the constitution ratios of large vehicles which had diesel engines were higher at night (6 p.m. to 4 a.m.) than in the day, the former ratio was 80 to 90% and the latter was 45 to 50%.
- 2) In the first survey, the concentration of SPM was about $250 \mu\text{g}/\text{m}^3$, a figure derived by the sum of the values in the fractional collection at the roadside. The size distribution curve of SPM showed two peaks; the first was in the fraction below $0.7 \mu\text{m}$ and the second was at about $10 \mu\text{m}$. From the roadside to about 300 m the SPM concentrations decreased with distance from the source of pollution, and the fraction below $0.5 \mu\text{m}$, which has a directly influence on human health, was above 70% in the particle size distribution at every point.
- 3) Daily average values of carbon monoxide (CO) and hydrocarbons (HC as methane) were in the range from 2.0 to 2.2 ppm for CO and 5 to 6 ppm for HC at the roadside.
- 4) Daily average values of nitrogen oxides (NOx) were in the range from 16 to 77 ppb for nitrogen monoxide (NO), 19 to 37 ppb for nitrogen dioxide (NO₂) and 39 to 120 ppb for NOx at the roadside, while, the hourly values of NO₂ rose rapidly with the increase of traffic volume, 90 to 120 ppb of NO₂ being measured from 10 to 12 a.m. when the traffic volume was at its maximum.

Key words: Suspended particulate matter, Diesel exhaust, Traffic characteristics, Meishin expressway, Fractional collection of SPM

浮遊粒子状物質, ディーゼル排出物, 交通特性, 名神高速道路, 浮遊粒子物質の分級捕集

緒 言

高速走行時の車輛から排出される排気ガス中に含まれる汚染質は、急激な加減速の繰り返しの多い通常の都市街路での走行時に比べて、一酸化炭素 (CO) および炭化水素 (HC) 等の不完全燃焼成分が大きく減少し、高温条件下で生成される一酸化窒素 (NO) の排出量が大きく増加する¹⁻³⁾。また、ディーゼルエンジン車に特有な黒煙については、高速走行あるいは貨物積載等の高負荷状態時に、その排出量は大きく増加することが報告されている^{4,5)}。特に、ディーゼル黒煙は、その粒子中に6-ニトロベンツ (a) ピレン等の芳香族ニトロ化合物が多数見出されており⁶⁻¹⁰⁾、粒子状物質としての生体影響のみならず、変異原性を有する汚染質¹¹⁾として注目されており、今後の早急な排出特性の把握と発生源対策の必要性が望まれている。

一方、近年の我国は、高速道路網の拡充とともに、その隣接域での宅地開発が急速に進展しており、かつ、高速道路での貨物車輛通行量が大幅に増加し、大量のディーゼル黒煙の放出による周辺環境への汚染が問題視されている。

これまで、一般の街路環境における自動車排出ガス汚染については多くの調査研究例が報告されている¹²⁻¹⁶⁾が、高速道路を対象としたディーゼル黒煙粒子に関する検討例は極めて少なく、その規制、対策および影響評価のために、実態把握を含めた基礎的知見の整備が望まれている。

著者らは、高速道路周辺でのディーゼル黒煙粒子を中心とする浮遊粒子状物質について、道路から水平方向における汚染実態とその特性を把握、そして主にディーゼル黒煙粒子中に高濃度に存在する多環芳香族炭化水素濃度および窒素酸化物の存在下でニトロ化を受け、更に強い変異原性を有する芳香族ニトロ化合物濃度と粒度分布との関係から、人体影響としての特性を把握するために、名神高速道路周辺での調査を行った。本報告では第一報として、草津 P.A. 付近の高速道路路側および路側から約400 m 以内の7地点における粒子状物質と排気ガス成分の濃度分布状況について測定した結果を報告する。

調 査 方 法

1. 測定地点の概要

滋賀県内をほぼ南北に縦断する名神高速道路 (県内の総延長約83 km) において、国道1号線と国道8号線からの乗り入れにより、栗東 I.C. 以西の交通量が非常に大き

Fig. 1 Geographical features and sampling points.

いことから、栗東 I.C. と瀬田西 I.C. 間にある草津 P.A. 付近を調査地点に選んだ。この地点は、走行負荷変動の比較的少ない平均的な高速走行区間である。測定地点の概要は、Fig. 1 に示すように、南西から北東に走る名神高速道路を発生源とした。道路端から各測定地点までの距離は、南側 E₁ 地点が60 m、F 地点120 m、G 地点290 m、H₁ 地点425 m、H₂ 地点420 m、そして I 地点が40 m である。北側に設定した E₂ 地点の道路端からの距離は15 m である。また、地上高さ約24 m の建屋屋上に設定した H₁ 地点を除き、他の測定地点は高速道路路面に対してほぼ水平に位置している。

調査実施時期は次の通りで、いずれも24時間測定を行った。

第1回：昭和60年10月23日 (水) 午前10時～24日午前9時、天候晴れ。

第2回：昭和60年10月29日 (火) 午前10時～30日午前9時、天候霧雨。

第3回：昭和60年11月26日 (火) 午後6時～27日午後5時、天候晴れ。

2. 測定項目および測定方法

(1) 気象条件の測定

高速道路端より420 mの地点 H₂ において、プロペラ型自記式風向風速計（光進電機工業製，M-V-110 型，クリーンベン C タイプ）で，地上高さ約20 m における風向風速の連続測定を行った。また，同地点で，毎正時に気温および気湿をアスман温湿計で測定した。

(2) 交通量および車速の測定

本調査では，測定地点の通行車輛数を4車種（大型車，小型貨物車，小型乗用車および軽・自動二輪車）に区分し，高速道路上の横断橋上で毎正時より15分間の走行車輛数を計測し，1時間値に換算した。また，車速は，距離既知の2地点間において，任意の10台の通過時間から求めた。

(3) 各汚染質濃度の測定

浮遊粒子状物質（SPM）は，地点 E₁，F および G の3地点で，ハイボリューム・エアースンプラー（H-V）（紀本電子工業製，H-V，MODEL-120A）に分級装置（紀本電子工業製，CPS-105）を取り付け，石英繊維ろ紙（Whatman，QM-A）上に，吸引流速600 l/min にて5段階分級捕集を行った。各分級ステージの捕集粒子径は，第1段10.9 μm 以上，第2段5.4~10.9 μm，第3段1.6~5.4 μm，第4段0.7~1.6 μm，第5段0.7 μm 以下である。また，地点 E₂，H₁ および H₂ では H-V 法（吸引流速，1.5 m³/min）で SPM を捕集した。更に，SPM 濃度の経時変化をみるために，デジタル粉塵計（CPM カウンター）（柴田化学 MODEL P-5H2，K=0.001 mg/m³）を用い，全地点で毎正時（測定時間1 min）に測定した。

CO 濃度は，全地点で，毎正時にポリエステルバッグに被検空気を採取し，非分散型赤外分析装置（柳本製作所製，SIR-12L）で測定し，また HC 濃度（メタン換算）は，全炭化水素計（島津製作所製，HCM-1B）で測定した。

窒素酸化物濃度（NO，NO₂，NO_x）は，地点 I で，窒素酸化物自動測定装置（紀本電子工業製，MODEL-258，CLD 法）を用いて連続測定した。また，地点 E₁ から地点 H₂ の6地点において，NO および NO₂ をザルツマン法（捕集液25 ml，吸引流速1 l/min，捕集時間1 hr）で測定した。

結 果

1. 気象概況

第1回および第3回調査の天候は，概ね晴れであった

Fig. 2 Direction and velocity of wind. (a) at 1st survey (from 10 a.m. Oct. 23 to 9 a.m. Oct. 24, 1985), (b) at 2nd survey (from 10 a.m. Oct. 29 to 9 a.m. Oct. 30, 1985), (c) at 3rd survey (from 6 p.m. Nov. 26 to 5 p.m. Nov. 27, 1985), (d) during the period from Oct. 15 to Nov. 30, 1985.

が，第2回調査は午前2時から5時にかけて霧雨となり，湿度は終日90%以上を示した。

各調査日の地点 H₂ における風配図を Fig. 2 (a . b . c) に示す。第1回調査では，地点 E₂ 以外の各地点が高速道路より風下となる西南西~北北東の占める比率は14.5%（平均風速1.2±0.8 m/sec）と小さく，第2回調査および第3回調査では，風下比率はそれぞれ32.6%および23.1%とやや高率であった。また，高速道路に対する平行風の比率は，第1回調査29.9%，第2回調査18.7%，第3回調査14.8%と第1回調査で最も高率であった。なお，Fig. 2 (d) は，地点 H₂ での10月15日から11月30日までの連続測定による風配図である。本調査実施時期の風向は，南から南西，すなわち調査地点に対して風上風がやや高率で，平均風速は風下風1.3±0.8 m/sec，平行風1.2±0.8 m/sec，風上風1.1±0.6 m/sec であり，夜間に北方向の風，すなわち風下風が高率となる傾向を認めた。

2. 交通量

Fig. 3 Diurnal variation of total traffic volume in each survey.

Fig. 4 Diurnal variations of the proportion of large vehicles in each survey.

調査実施日の車種別時間交通量(上下線合計)の経時変化を Fig. 3 に, また大型車混入率の経時変化を Fig. 4 に示す。

第1回調査の24時間交通量は54,784台, 第2回調査は63,024台, 第3回調査は59,226台で, この時期の日交通量は概ね6万台前後と考えられる。各調査日の時間交通量の経時変化はほとんど同様で, 午前10時と午後5時にピークをもつ典型的な都市交通のパターン¹⁷⁾である。また, 大型車の日交通量は, 2.7万~3.3万台と調査日による差はなく, 大型車混入率は, 午後10時から翌朝6時までの夜間に70%~90%と高く, 一方, 午前8時から午後6時までの昼間では40%~50%と大きく異なることが認められた。

3. SPM の濃度分布

毎正時に測定した CPM による値と, 24時間捕集による H-V 値を Table 1 および Table 2 に示す。ただし, H-V について, 地点 E₁, F, G では分級式 H-V によって測定していることから, 各分級ステージ濃度の和として示した。

CPM カウンターの日平均カウント数についてみると, 第1回調査で, 路側付近の地点 E₁ の25.3±1.4 cpm から約400 m 離れた地点 H₁ で20.6±1.3 cpm へと僅かに低下する傾向がみられた。第2回調査では, 北側路側の地点 E₂ が最高値 (27.6±1.4 cpm) を示し, 高速道路南側では地点 E₁ および F が23 cpm, その他の地点では17 cpm を示した。第3回調査では, 各測定地点とも他の2回の調査に比べて7~10 cpm 程度の低値を示したが, 路側からの距離によるカウント数の低下傾向は, 他の2回の調査とほぼ同様である。

一方, H-V で測定した24時間値についてみると, 第1回調査では地点 E₁ が最高 (251.6 μg/m³) で, 地点 F および H₁ は約1/2, 地点 G は約1/6に低下した。これに

Table 1 Number of counts measured by CPM counter.

Sampling point	1st survey			2nd survey			3rd survey		
	Max. (cpm)	Min. (cpm)	Mean (S.D.) (cpm)	Max. (cpm)	Min. (cpm)	Mean (S.D.) (cpm)	Max. (cpm)	Min. (cpm)	Mean (S.D.) (cpm)
E ₁	42.0	13.0	25.3(1.4)	56.0	12.0	23.5(1.6)	29.0	10.0	15.1(1.3)
E ₂	—	—	—	45.0	15.0	27.6(1.4)	42.0	10.0	20.7(1.6)
F	36.0	12.0	23.8(1.3)	38.0	11.0	23.8(1.4)	—	—	—
G	44.0	14.0	21.8(1.4)	32.0	10.0	17.3(1.6)	18.0	7.0	10.6(1.3)**
H ₁	29.0	13.0	20.6(1.3)	32.0	9.0	17.6(1.6)	16.0	7.0	11.1(1.3)*
H ₂	—	—	—	32.0	10.0	17.2(1.6)	15.0	7.0	11.3(1.3)*

Significantly different from the means of SPM at point E₁, *: $p < 0.05$; **: $p < 0.01$.

Table 2 The concentrations of SPM measured by the H-V method.

Sampling point	1st survey (g/m)	2nd survey (g/m)	3rd survey (g/m)
E ₁ *	251.6	84.1	52.9
E ₂	—	43.2	114.3
F*	132.9	80.4	17.1
G*	89.4	52.0	43.5
H ₁	139.4	50.6	45.0
H ₂	—	72.9	39.1

*: At these sampling points, we measured the fractional concentrations of SPM by High volume air sampler with an attached corrector of particulate diameter separation (CPS).

Fig. 5 Relationship between SPM concentration measured by the CPM counter method and by the H-V method.

対して、第2回調査および第3回調査では、各地点とも第1回調査に比べて大幅に低い値を示した。第3回調査では、高速道路から離れた地点F、G、H₁およびH₂では約17~45 µg/m³であり、測定地点間に大差は認められなかった。

次に、同一地点におけるCPMの日平均カウント数値とH-Vによる24時間値とをプロットすると、Fig. 5に示したように、相関係数は $r=0.5417$ ($n=15$)で有意な相関が得られた。

4. SPMの粒度分布

第1回調査において、地点E₁、FおよびGで分級式H-Vにより捕集されたSPMの粒度分布、および各分級ス

Fig. 6 Size distribution curve of SPM and constitution ratios of each fraction. Results are shown using data from the first survey. a: ~0.7 µm; b: 0.7~1.6 µm; c: 1.6~5.4 µm; d: 5.4~10.9 µm; e: 10.9 µm~.

テージの濃度の全SPM量に占める比率をFig. 6に示す。路側により近い地点E₁では、粒子径1 µm以下および10 µm付近に明らかなピークをもつパターンが認められるが、地点FおよびGの場合は1 µm以下の微小粒子の領域にのみピークを認めたことから、これらの地点までに、大型粒子は地表面へ急速に沈降するものと考えられる。

また、各分級ステージの濃度の全SPM量に占める比率をみると、0.7 µm以下の粒子は、地点E₁が53.1%、地点Fが57.3%、地点Gが55.3%と高率であるが、他のステージでは、8.7~14.3%といずれも低率であった。すなわち、人体への影響が直接的である^{11,18)}とされる5 µm以下の微小粒子についてみると、地点E₁で72.4%、地点Fで78.0%、地点Gで75.3%といずれも全SPM量の70%以上を占めている。特に、路側から120 m離れた地点Fで最も高率であることが認められた。

一方、第2回調査および第3回調査では、第1回調査でみられたような明らかな傾向は認められなかった。

5. SPMの発生源からの影響

路側付近の地点E₁と、地点F、G、H₁、およびH₂でのCPMによる測定値間の相関を求めると、Table 3の通りである。

第1回調査においては、地点FおよびH₁と、路側付近の地点E₁との間に、危険率1%以下で有意の正の相関が認められ、第2回調査では、地点Fを除く他の3地点で、危険率1%以下で有意の正の相関が認められた。第

Table 3 Correlation coefficients of SPM concentrations between point E₁ and other points. (by CPM counter)

Sampling point	1st survey r ²	2nd survey r ²	3rd survey r ²
F	0.648**	0.516	—
G	0.271	0.686**	0.894**
H ₁	0.562**	0.817**	0.557**
H ₂	—	0.646**	0.516*

Significant correlations at $p < 0.05$ (*) and $p < 0.01$ (**).

3回調査では、地点Gにおいて相関係数0.8941と高い正の相関 ($p < 0.01$) が認められ、地点H₁およびH₂でもそれぞれ相関係数0.5569および0.5157と、危険率1%ないし5%以下で有意の正の相関が認められた。また、第3回調査において、NO、NO₂、NO_xおよびHCは、路側に近いほどより高い相関を示す傾向が認められた。従って、これらの地点での濃度変動は、路側濃度の変動と概ね対応しており、高速道路通行車輛によるSPMの影響が直接に及んでいることが考えられる。

6. COおよびHCの濃度分布

各調査日について測定したCO、HC濃度の結果はTable 4に示す通りで、路側付近の地点E₁のCO濃度

は、いずれの調査日とも日平均値が2.0~2.2 ppmとほぼ一定の値を示したが、一方、北側路側付近のE₂地点では1.3ないし1.5 ppmと、E₁地点に比し僅かに低値を示した。路側から離れた他の地点では、第1回調査で地点F、Gの1.8 ppmを除き、1.0~1.3 ppmとほぼ同様である。また、第1回調査地点H₁において、地点E₁との間にそれぞれ危険率1%以下で有意の差が認められた。同様に、第2回調査の地点G、第3回調査の地点H₁およびH₂においても、地点E₁との間に危険率5%以下で有意の差が認められた。

次に、HCの路側付近の濃度は、第2回調査および第3回調査で、高速道路の北側地点E₂および南側地点E₁の濃度に大差なく、本調査での路側付近のHC濃度は、ほぼ4.9~5.8 ppmであると考えられる。地点F以降の後背地のHC濃度は、第1回調査地点Fにおいて、地点E₁のHC濃度に対して危険率5%以下で有意に低値を示したが、地点H₁およびH₂のHC濃度は、地点E₁のHC濃度と一致した。また、第2回調査および第3回調査では、いずれも地点E₁とその他の後背地点との間に顕著な濃度差はなく、ほぼ一様に分布していることが考えられた。

また、図示はしていないが、COおよびHCの経時変動について検討したところ、COについては、第2回調査および第3回調査で、午後6時から翌朝6時にかけて4~

Table 4 The concentrations of CO and HC.

Sampling point	1st survey			2nd survey			3rd survey		
	Max. (ppm)	Min. (ppm)	Mean(S.D.) (ppm)	Max. (ppm)	Min. (ppm)	Mean(S.D.) (ppm)	Max. (ppm)	Min. (ppm)	Mean(S.D.) (ppm)
CO									
E ₁	4.9	1.3	2.2(1.6)	23.6	1.2	2.2(2.2)	5.0	1.0	2.0(1.6)
E ₂	—	—	—	2.0	1.1	1.5(1.3)	4.0	0.5	1.3(1.9)
F	5.2	1.3	1.8(1.6)	1.6	0.8	1.1(1.3)**	5.0	0.4	1.2(2.2)
G	3.8	0.6	1.8(1.7)	1.9	0.6	1.2(1.3)*	4.0	0.1	1.0(2.4)
H ₁	2.2	0.6	1.2(1.5)**	1.4	0.8	1.1(1.3)**	4.0	0.6	1.2(1.7)*
H ₂	—	—	—	11.5	0.6	1.3(2.1)	4.0	0.4	1.2(2.1)*
HC									
E ₁	6.2	5.3	5.7(1.1)	6.5	4.5	5.1(1.1)	6.4	5.1	5.8(1.1)
E ₂	—	—	—	5.8	4.6	4.9(1.1)	6.3	5.2	5.8(1.1)
F	5.9	4.9	5.4(1.1)*	7.5	4.6	5.1(1.1)	6.2	5.2	5.7(1.1)
G	7.2	5.1	5.7(1.1)	5.6	4.5	4.9(1.1)	6.4	5.2	5.7(1.1)
H ₁	6.9	5.1	5.7(1.1)	5.2	4.6	4.9(1.0)	6.4	5.2	5.8(1.1)
H ₂	—	—	—	5.8	4.6	4.9(1.1)	6.3	5.1	5.7(1.1)

Significantly different from the means of CO and HC concentrations at point E₁, *: $p < 0.05$; **: $p < 0.01$. CO: NDIR method, HC: THC method (as methane).

5 ppm の顕著な濃度上昇がいずれの測定地点においても認められた。これに対して、HC はいずれの測定地点においても顕著な変動は認められなかった。

7. 窒素酸化物の濃度分布

地点 I で CLD 法により測定した 1 時間平均値の日平均値を Table 5 に、また他の地点での Saltzman 法による 1 時間平均値の日平均値を Table 6 に示す。前者では、第 2 回調査の日平均値は第 1 回調査でのそれに比べてかなり高く、NO/NO_x 比についても、第 1 回調査での 0.10 に対して、第 2 回調査では 0.35 と高率となった。

高速道路の南側路側付近の地点 I における窒素酸化物の経時変化は、第 1 回調査において NO が極めて低濃度であったため特徴的な傾向は認められなかったが、NO_x については、Fig. 7 に示すように午後 4 時から増加傾向を示し、午後 6 時に 45 ppb のピークに達した。第 2 回調査では、NO_x は午後 3 時から午前 0 時にかけてピークが認められ、午前 0 時から午後 2 時にかけて顕著な濃度減少が認められた。

次に、Saltzman 法による地点 E₁ の日平均値は、第 1 回調査で、NO が 17.4 ppb、NO₂ が 26.8 ppb、NO_x が 44.8

Table 5 Concentrations of Nitrogen oxides measured by the CLD method at point I.

Nitrogen oxide	1st survey			2nd survey		
	Max. (ppb)	Min. (ppb)	Mean(S.D.) (ppb)	Max. (ppb)	Min. (ppb)	Mean(S.D.) (ppb)
NO	10.0	0.0	1.4(1.8)	44.0	3.0	16.5(1.9)
NO ₂	36.0	4.0	12.4(1.8)	47.0	17.0	29.3(1.4)
NO _x	45.0	4.0	13.1(1.9)	83.0	20.0	46.5(1.5)

Table 6 Concentrations of nitrogen oxides measured by the Saltzman method.

Sampling point	1st survey			2nd survey			3rd survey		
	Max. (ppb)	Min. (ppb)	Mean(S.D.) (ppb)	Max. (ppb)	Min. (ppb)	Mean(S.D.) (ppb)	Max. (ppb)	Min. (ppb)	Mean(S.D.) (ppb)
NO									
E ₁	31.4	7.2	17.4(1.6)	51.5	0.0	7.0(4.1)	37.5	8.9	19.5(1.6)
E ₂	—	—	—	41.7	0.1	16.8(2.9)	200.8	19.9	77.8(2.1)**
F	10.2	4.9	7.5(1.3)**	27.9	5.1	13.0(2.0)	29.2	3.1	7.4(1.9)**
G	16.9	3.7	9.2(1.6)**	108.4	4.9	16.7(2.1)	61.1	4.3	13.6(2.7)
H ₁	18.4	5.0	8.7(1.6)**	16.1	3.7	6.9(1.6)	96.8	4.0	16.1(2.4)
H ₂	—	—	—	16.5	5.1	8.7(1.5)	71.4	5.1	12.3(2.2)
NO ₂									
E ₁	90.0	9.4	26.8(1.9)	42.6	0.0	7.5(3.6)	45.2	4.3	13.4(1.9)
E ₂	—	—	—	39.3	14.3	19.8(1.4)*	122.4	14.7	37.0(1.7)**
F	35.3	8.0	16.9(1.6)	49.8	4.2	19.6(2.0)*	85.6	8.2	14.9(2.0)
G	36.6	4.9	15.8(1.7)*	103.2	23.3	34.0(1.5)**	104.1	3.5	11.7(2.5)
H ₁	29.4	10.1	18.0(1.5)	29.6	8.9	19.5(1.4)*	95.0	3.2	20.9(2.5)
H ₂	—	—	—	36.6	13.5	23.9(1.3)**	47.7	16.7	24.1(1.4)*
NO _x									
E ₁	118.5	16.5	44.8(1.8)	68.1	0.0	14.9(4.6)	82.7	17.8	34.4(1.5)
E ₂	—	—	—	81.0	14.4	39.4(1.6)	323.2	46.1	120.9(1.7)**
F	45.1	12.9	24.6(1.5)**	74.8	9.7	33.7(1.9)	114.8	11.9	22.5(2.0)
G	49.8	8.6	25.3(1.6)*	211.6	35.3	51.9(1.6)*	165.2	10.8	26.6(2.5)
H ₁	44.4	15.7	26.9(1.5)*	38.8	13.5	26.9(1.4)	140.7	7.2	38.4(2.4)
H ₂	—	—	—	48.6	18.9	32.9(1.3)	119.1	24.7	37.8(1.6)

Significantly different from the means of the individual nitrogen oxide concentrations at point E₁, *: $p < 0.05$,

** : $p < 0.01$. Results are shown with values measured by the Saltzman method.

Fig. 7 Diurnal variation of NO_x concentration measured by the CLD method at point I.

ppbであった。これに対して、第2回調査では、NOが7.0 ppb, NO_2 が7.5 ppb, NO_x が14.9 ppbと、他の2調査日における各窒素酸化物濃度の1/2~1/3程度であった。同様に、地点E₂でも第2回調査は第3回調査の各窒素酸化物の濃度に比べて1/2~1/5程度であった。また、第3回調査において、地点E₂と地点E₁との間に、いずれの窒素酸化物にも危険率1%以下で有意の差が認められたが、このことは路側からの距離による影響と考えられる。

地点F以降の後背地点における成績は、第1回調査でNOがいずれの測定地点においても10 ppb以下で、地点E₁との間に危険率1%以下で有意な差が認められたことから、路側からの距離による濃度低下の傾向が伺われた。また、 NO_2 および NO_x は、それぞれ16~18 ppb, 24~27 ppbの範囲にあり、いずれの地点でも地点E₁より低値を示すが、地点Gの NO_2 を除き、有意な差は認められなかった。一方、第2回調査における後背地点の成績は、いずれの測定地点も地点E₁より高く、地点E₁の成績と比較すると、地点FのNO、地点Gの NO_x 、地点H₁の NO_2 について危険率5%以下で有意な差が認められ、また地点Gの NO_2 、地点H₂の NO_2 について危険率1%以下で有意な差が認められたが、各測定地点間の窒素酸化物濃度の変動は著明であった。第3回調査については、地点E₁のNO濃度に対して地点Fは危険率1%以下で有意に低い、他の後背地点のNO濃度とは大差なかった。これに対して、 NO_2 では路側からもっとも離れた地点H₂において逆に高値を認め、危険率5%以下で有意な差が認められた。 NO_x については、いずれの後背地点も地点E₁の濃度と大差なかった。

Fig. 8 Changes of NO/NO_2 ratio by distance from road edge. Results are shown with data measured by the Saltzman method.

また、路側からの距離による NO/NO_2 比の変動はFig. 8に示すように、第1回調査および第3回調査において約120 mの地点(地点F)で急速に低下するが、それ以降の地点では路側付近の比率と大差なかった。一方、第2回調査では、路側地点から約420 mの地点(地点H₁)までその勾配はほぼ一致し、直線的な低下傾向を示した。

8. ガス状汚染物質の発生源からの影響

各ガス状汚染物質の日平均値について、各調査ごとの、および各地点ごとの相関係数と、その相関係数に対する検定結果をTable 7に示す。

第1回調査では、地点FでNOの相関係数が0.3648とやや低値を示したものの、すべての窒素酸化物で危険率5%ないし1%以下で有意な相関が得られた。道路端から最も遠距離にある地点H₁では、 NO_2 および NO_x に危険率1%以下で有意な相関が得られ、特に NO_2 は0.8209と最も高い相関を示した。第2回調査では、いずれも相関係数は低値であり、有意な相関は認められなかった。これに対して、第3回調査では、地点Fですべての物質に、地点Gで NO_2 、COおよびHCに、地点H₁でNOを除くその他の物質に、また地点H₂で NO_2 、 NO_x およびHCにそれぞれ危険率5%ないし1%以下で有意な相関が認められた。特に、HCではいずれの測定地点においても相関係数が0.7以上、危険率1%以下の高い相関が認められた。

Table 7 Correlation coefficients of gaseous pollutants between point E₁ and other points.

Sampling point	1st survey r ²	2nd survey r ²	3rd survey r ²
NO			
F	0.365*	0.000	0.459*
G	0.658**	0.001	0.317
H ₁	0.230	0.039	0.317
H ₂	—	0.015	0.261
NO ₂			
F	0.601**	0.180	0.498*
G	0.491*	0.072	0.412*
H ₁	0.821**	0.153	0.475*
H ₂	—	0.032	0.377*
NOx			
F	0.576**	0.034	0.660**
G	0.658**	0.033	0.277
H ₁	0.664**	0.051	0.517**
H ₂	—	0.172	0.728**
CO			
F	0.212	0.061	0.408*
G	0.427*	0.006	0.562**
H ₁	0.137	0.094	0.361*
H ₂	—	0.036	0.253
HC			
F	0.180	0.008	0.958**
G	0.137	0.124	0.913**
H ₁	0.025	0.209	0.794**
H ₂	—	0.130	0.906**

Significant correlations at $p < 0.05$ (*) and $p < 0.01$ (**). Results of nitrogen oxides are shown with values measured by the Saltzman method.

考 察

自動車の走行で発生する SPM は、路面堆積物の走行風による大気中への飛散やタイヤトレッド部の路面との摩擦によって生じるゴム粉塵、およびディーゼル黒煙などが主な物質として挙げられる^{19,20)}。これらは、いずれも大型ディーゼル車の高速走行での発生量が大きく、特にディーゼル黒煙については、高速かつ貨物の積載で排出量が増加し、排ガス温度の上昇によってディーゼル黒煙の粒度分布は微小方向へ移行する²¹⁾ことが報告されている。従って、終日、大型貨物車輛の高速での通行量の多い高速道路沿道環境においては、一般道路の沿道環境に比べて、高濃度の SPM に曝露されていることになる。名神高速道路での本調査対象区間の交通量は約 6 万

台/日で、その約半数は大型車輛である。また、我国の大型車輛におけるディーゼル車の構成比は約95%である²²⁾ことから、大型車輛のほとんどはディーゼル車であると考えられる。日本道路公団の59年度資料²³⁾によると、本調査で対象とした栗東 I.C. から瀬田西 I.C. 間の月別日平均総交通量は、8月および1、2月に若干の変動を示すものの概ね6.3万台前後であり、大型車輛の月別日平均交通量は1.7万台とほぼ一定である。また、本調査の実施時期である10月および11月の日平均総交通量は、それぞれ62,820台、67,621台で、今回の調査時の交通量とほぼ一致した。しかし、本調査での大型車輛の通行台数は約3万台と、日本道路公団の資料の約2倍に達していた。この顕著な差は、日本道路公団では、大型車輛として、特殊大型車輛、車輛総重量8t以上あるいは積載総重量5t以上の車輛、および4車軸トレーラーとし、それ以外を普通車輛として区分しているのに対して、本調査では、排出ガス特性の異なるエンジン型式に着目した車種区分で計測したことが原因となっている。すなわち、本調査では、ディーゼル車の構成比の著しく高率な大型貨客車輛²²⁾および2t以上4t未満の小型貨物車輛を大型車輛とし、普通乗用車および2t未満の小型貨物車輛を普通車として計測した。なお、京都市衛生局²⁴⁾は、本調査対象区間と大津 I.C. を挟む京都東 I.C. 付近において、本調査と同様の車種区分による計測から、日総交通量7万台、大型車混入率約50%を認めており、今回の調査成績とほぼ一致している。

伊瀬ら²⁵⁾は、高速道路における SPM の発生源調査から、混合排出係数の推定式を示し、大型車混入率41.5%時の SPM の混合排出係数を910 mg/km 台と推定し、SPM の混合排出係数は、大型車混入率とよく相関することを認めている。この混合排出係数と推定式に本調査における平均時間交通量を適用すると、SPM の推定発生源濃度は約5.7 mg/m³となる。一般道路沿道における実測値 (35~150 μg/m³)^{20,26)}に比べて、この推定値は38~160倍となっている。今回の調査で、高速道路端から水平方向60 m の地点 E₁ における24時間 SPM 濃度は約53~250 μg/m³で、この推定値のほぼ1/22~1/110となる。測定地点が高速道路の風下、および高速道路と平行の風向きとなる場合の比率が約40%であったことを考慮しても、路側付近では SPM の急激な濃度減少が生じていることが考えられる。

また、地点 E₁ における粒度分布は、5 μm 以下の微小粒子が総量の70%以上を示していること、および後背地点でも同様の傾向が認められたこと、さらには京都市衛

Fig. 7 Diurnal variation of NO_x concentration measured by the CLD method at point I.

ppbであった。これに対して、第2回調査では、NOが7.0 ppb, NO_2 が7.5 ppb, NO_x が14.9 ppbと、他の2調査日における各窒素酸化物濃度の1/2~1/3程度であった。同様に、地点E₂でも第2回調査は第3回調査の各窒素酸化物の濃度に比べて1/2~1/5程度であった。また、第3回調査において、地点E₂と地点E₁との間に、いずれの窒素酸化物にも危険率1%以下で有意の差が認められたが、このことは路側からの距離による影響と考えられる。

地点F以降の後背地点における成績は、第1回調査でNOがいずれの測定地点においても10 ppb以下で、地点E₁との間に危険率1%以下で有意な差が認められたことから、路側からの距離による濃度低下の傾向が伺われた。また、 NO_2 および NO_x は、それぞれ16~18 ppb, 24~27 ppbの範囲にあり、いずれの地点でも地点E₁より低値を示すが、地点Gの NO_2 を除き、有意な差は認められなかった。一方、第2回調査における後背地点の成績は、いずれの測定地点も地点E₁より高く、地点E₁の成績と比較すると、地点FのNO、地点Gの NO_x 、地点H₁の NO_2 について危険率5%以下で有意な差が認められ、また地点Gの NO_2 、地点H₂の NO_2 について危険率1%以下で有意な差が認められたが、各測定地点間の窒素酸化物濃度の変動は著明であった。第3回調査については、地点E₁のNO濃度に対して地点Fは危険率1%以下で有意に低い、他の後背地点のNO濃度とは大差なかった。これに対して、 NO_2 では路側からもっとも離れた地点H₂において逆に高値を認め、危険率5%以下で有意な差が認められた。 NO_x については、いずれの後背地点も地点E₁の濃度と大差なかった。

Fig. 8 Changes of NO/NO_2 ratio by distance from road edge. Results are shown with data measured by the Saltzman method.

また、路側からの距離による NO/NO_2 比の変動はFig. 8に示すように、第1回調査および第3回調査において約120 mの地点(地点F)で急速に低下するが、それ以降の地点では路側付近の比率と大差なかった。一方、第2回調査では、路側地点から約420 mの地点(地点H₁)までその勾配はほぼ一致し、直線的な低下傾向を示した。

8. ガス状汚染物質の発生源からの影響

各ガス状汚染物質の日平均値について、各調査ごとの、および各地点ごとの相関係数と、その相関係数に対する検定結果をTable 7に示す。

第1回調査では、地点FでNOの相関係数が0.3648とやや低値を示したものの、すべての窒素酸化物で危険率5%ないし1%以下で有意な相関が得られた。道路端から最も遠距離にある地点H₁では、 NO_2 および NO_x に危険率1%以下で有意な相関が得られ、特に NO_2 は0.8209と最も高い相関を示した。第2回調査では、いずれも相関係数は低値であり、有意な相関は認められなかった。これに対して、第3回調査では、地点Fですべての物質に、地点Gで NO_2 、COおよびHCに、地点H₁でNOを除くその他の物質に、また地点H₂で NO_2 、 NO_x およびHCにそれぞれ危険率5%ないし1%以下で有意な相関が認められた。特に、HCではいずれの測定地点においても相関係数が0.7以上、危険率1%以下の高い相関が認められた。

対して濃度減少の傾向が認められた。また、人体に対して直接的な影響を及ぼすとされる粒径 $5\mu\text{m}$ 以下の粒子は、路側付近で全 SPM 濃度の70%以上を占めており、この傾向は他の後背地点でも同様であった。

3) 路側付近の CO 濃度の日平均値は、 $2.0\sim 2.2$ ppm, HC 濃度の日平均値は $5\sim 6$ ppm であり、顕著な濃度変動は認められなかった。

4) 路側付近の窒素酸化物濃度の日平均値は、NO が $16\sim 77$ ppb, NO₂ が $19\sim 37$ ppb, NO_x が $39\sim 120$ ppb であり、NO₂ については環境基準の下限値に相当する濃度であった。しかし、交通量のピークとなる午前10時～12時にかけて、NO₂ 濃度の1時間値は $90\sim 120$ ppb となり、急激な濃度上昇を認めた。

謝 辞

本研究を遂行するにあたり、常に御指導、御助言をいただいた京都大学工学部助教授西田耕之助先生に深く感謝致します。また、多大なる御協力をいただいた日名清也君、増田淳二君をはじめとする京都大学工学部附属環境微量汚染制御施設西田研究室の諸氏に厚く感謝致します。

なお、本研究は、文部省科学研究助成費（課題番号：60480188）の補助によって行われたものであり、要旨の一部は、第56回および第57回日本衛生学会総会（1986年）において発表した。また、データの解析は京都大学大型計算機センターを利用した。

文 献

- 1) 西田耕之助：交通機関排気ガスの分析, p. 45-49, 講談社, 東京 (1971).
- 2) 芳住邦雄, 井上浩一, 塚田登紀子, 大平俊男：自動車排出ガスおよび測定方法の基礎的特性, 大気汚染研究, **11**, 16-25 (1976).
- 3) 中村 健：平均車速による排出係数, 空気清浄, **19**, 64-74 (1981).
- 4) 福岡三郎, 飯田靖雄, 舟島正直, 古明地哲人, 茅島正資, 小林温子, 鈴木正次, 梅原秀夫, 泉川碩雄, 石黒辰吉：小型ディーゼル車からの汚染物質排出実態, 東京都公害研究所年報1981, 10-20, (1981).
- 5) 灘原壮一, 菊池 正, 古谷圭一, 脇坂和見, 木内武美, 大西克成：小型ディーゼルエンジン粒子状排出物の変異原性, B(a) P 含量とエンジン負荷との相関, 大気汚染学会誌, **17**, 394-398 (1982).
- 6) 河合昭宏, 後藤純雄, 塩崎卓哉, 松下秀鶴：多環芳

香族炭化水素の変異原性に及ぼすディーゼル排ガス暴露の影響, 大気汚染学会誌, **18**, 496-507 (1983).

- 7) Pitts, J.N., Jr., Lokensgard, D.M., Harger, W., Fisher, T.S., Mejia, V., Schuler, J.J., Scorziell, G. M. and Katzenstien, Y.A.: Mutagens in diesel exhaust particulate, identification and direct activities of 6-nitrobenzo(a) pyrene, 9-nitroanthracene, 1-nitropyrene, and 5H-phenanthro-(4, 5-bcd) pyran-5-one, Mut. Res., **103**, 241-249 (1982).
- 8) Salmeen, I., Durisin, A.M., Prater, I.J., Riley, T. and Schuetzle, D.: Contribution of 1-nitropyrene to directacting Ames assay mutagenicities of diesel particulate extracts, Mut. Res., **104**, 17-23 (1982).
- 9) Xu, X.B., Nachtman, J.P., Jin, Z.L., Wei, E.T. and Rappaport, S.M.: Isolation and Identification of Mutagenic Nitro-PAH in Diesel-Exhaust Particulates, Anal. Chim. Acta., **136**, 163-174 (1982).
- 10) Choudhury, D.R.: Characterization of polycyclic ketones and quinones in diesel emission particulates by gas chromatography/mass spectrometry, Environ. Sci. Technol., **16**, 102-106 (1982).
- 11) 藤江喜美子：大都市における大気浮遊粒子状物質に関する研究, 大気汚染研究, **10**, 92-106 (1975).
- 12) Hara, K. and Senda, I.: Prediction of CO concentration with Traffic Volume, Sci. Engi. Rev. Doshisha Univ., **21**, 226-240 (1980).
- 13) 北村洋子, 四十物良一, 松浦 勉, 氏家愛子, 加藤憲治, 加藤謙一, 菊池 格, 加藤信男：道路周辺での自動車排ガス関連物質 (NO₂, BaP) による大気汚染への影響—泉市における調査結果について—, 宮城県保健環境センター年報, **2**, 159-163 (1984).
- 14) 池田有光, 岩井英一, 長藤雅則, 平岡正勝：道路近傍の大気汚染濃度の予測手法に関する研究(1)—道路に直交風時のシミュレーション—, 大気汚染学会誌, **18**, 329-338 (1983).
- 15) 中村 貢, 平野耕一, 沖津正樹, 大田正雄, 鈴木正雄, 米山悦夫, 佐藤静雄, 井上 勇, 石塚謙一, 三村美登利, 森 久緒, 鈴木英世, 中村清治, 市橋正之：自動車排気ガスによる道路周辺での大気汚染に関する研究（第2報）—窒素酸化物の濃度分布調

- 査一, 横浜市公害研究所報, **3**, 5-13 (1978).
- 16) 中村 貢, 米山悦夫: 自動車排出ガスによる道路周辺での大気汚染に関する研究 (第4報) —道路近傍における窒素酸化物濃度と逆転層の影響—: 横浜市公害研究所報, **5**, 27-36 (1980).
- 17) 西田耕之助, 本多常夫, 鈴鹿 孝, 安藤忠夫: 高速道路の料金収納における排気ガス汚染の実態について, 官公庁公害専門資料, **6**(3), 65-80 (1971).
- 18) 生活環境審議会, 浮遊粉じん環境基準専門委員会: 浮遊粒子状物質による大気汚染の環境基準設定のための資料 (昭和46年6月), 大気汚染研究, **8**, 1-55 (1973).
- 19) 北林興二: 道路近傍における粉じん濃度の解析—自動車走行に伴う排出量の推定—, 大気汚染学会誌, **17**, 362-369 (1982).
- 20) 足立義雄, 吉川良行, 小澤栄師: 道路周辺における浮遊粒子状物質の実態, 土木技術資料, **27**, 432-437 (1985).
- 21) 中央公害対策審議会大気部会自動車公害専門委員会: 「自動車排出ガス許容限度長期設定方策について」に関する説明資料 (1977).
- 22) 運輸省地域交通局: 自動車保有車両数 No12, p. 2-3, 財自動車検査登録協会, 東京 (1985).
- 23) 日本道路公団資料: 昭和59年度名神高速道路区間別交通量表.
- 24) 京都市衛生局公害対策室: 騒音規制法第17条に係る自動車騒音および振動規制法第16条に係る道路交通振動の測定調査報告書, p. 8, 京都市衛生局公害対策室, 京都 (1984).
- 25) 伊瀬洋昭, 朝来野国彦, 渡辺武春, 小野塚春吉, 菅邦子, 泉川碩雄, 舟島正直, 石黒辰吉: 粒子状物質等汚染物質の発生源寄与に関する調査—トンネル調査による大型ディーゼル車の排出実態の検討—, 京都公害研究所年報1981, 46-53 (1981).
- 26) 環境庁: 環境白書, p. 161-171, 大蔵省印刷局, 東京 (1986).
- 27) 鈴木忠男: ディーゼル機関より排出される粒子状物質の測定, 自動車研究, **2**, 2, 45 (1980).
- 28) 足立義雄, 森 寛昭, 藤城泰行, 田原嘉和, 吉川良行: 道路走行時における自動車の排出ガス量に関する研究, 土木研究所報告, **164**, 115-160 (1984).
- 29) 草津市福祉経済部生活環境課: 草津市の公害, p. 70-73, 草津市, 滋賀 (1985).
- 30) 秋元 肇: 大気中における窒素酸化物の化学的挙動, 第26回大気汚染学会講演要旨集, 91-99 (1985).
- 31) Dwmore, W.B., Molina, M.J., Watson, R.T., Golden, D.M., Hampson, R.F., Kulylo, M.J., Howard, C.J. and Ravishankara, A.R.: Chemical Kinetics and Photochemical Data for Use in stratospheric Modeling, Evaluation Number 6, September (1983).

(受付 1987年4月4日 受理 1987年8月27日)