高速道路周辺環境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2報 粒子状物質の拡散性状

Studies on the Distribution and Polycyclic Aromatic Hydrocarbons
of Particulate Substances in the Vicinity of an Expressway
Rep. 2 Properties of diffusion of particulate substances

滋賀医科大学保健管理学教室

喜 多 義 邦

Yoshikuni Kita

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

In order to clarify the dispersion properties of suspended particulate matter (SPM) in the vicinity of the Meishin expressway, a) the relationship between SPM concentration and the traffic volume of each type of automobile was studied, b) the density distribution of each size of particle was compared with that of nitrogen dioxide (NO_2), Which was the most representative gaseous pollutant from mobile sources, and c) the actual concentrations of particles were compared with the concentrations calculated by the Tokyo Metropolitan Government (TMG) dispersion model in which the effect of gravity on the particles was included. The results were as follows;

- 1) A statistically significant and positive correlation were shown only between the traffic volume of large vehicles and the concentrations of fine particles under $1.6 \mu\text{m}$.
- 2) At all the measured points, fine particles under $0.7 \mu\text{m}$ in diameter accounted for 44.8% to 65.8% of the total SPM. It was observed that these particles showed a distinct concentration-distance profile with the increase of the average wind velocity.
- 3) As the particle size became smaller, the correlation coefficient between the concentrations of particles and NO_2 concentrations became larger. In the case of fine particles under $5.4 \mu\text{m}$ in diameter, the coefficient of correlation was extremely high and was statistically significant.
- 4) In the case of fine particles under $5.4 \mu\text{m}$ in diameter, the coefficient of correlation between the measured and calculated concentration of each size of particle was extremely high and was statistically significant. In accordance with the facts described above, it was suggested that the dispersion behavior of fine particles under $1.6 \mu\text{m}$ could be well explained in the same manner as gaseous pollutants, and it was proved that these particles were derived from large vehicles with diesel engines.

Key words: Suspended particulate matter, Meishin expressway, Concentration-distance profile of SPM, Dispersion of SPM

浮遊粒子状物質, 名神高速道路, 浮遊粒子状物質の距離減衰, 浮遊粒子状物質の拡散

緒 言

本研究において, 著者ら¹⁾は高速道路周辺における窒

素酸化物 (NO_x), CO 等のガス状汚染物質および浮遊粒子状物質 (Suspended particulate matter: SPM) の調査を行い, 汚染現況として次の結果を得た。すなわち,

二酸化窒素(NO_2)およびCOについては交通量のピークとなる午後2時から午後6時に著しく高濃度に汚染される可能性を認めたものの、日平均値では概ね環境基準値を満足する濃度であるのに対して、SPMは実施した3回の調査すべてにおいて環境基準値を大幅に超える濃度であり、そして人体への影響が直接的である^{2,3)}とされる $5\mu\text{m}$ 以下の粒子が、全SPM量の70%以上を占めることが明らかとなった。

HoffmanとWynderら⁴⁾により、ディーゼル黒煙粒子中に発癌性物質の存在が確認されて以来、ディーゼル黒煙に関する研究は様々な角度から行われている。Schuetzleら⁵⁾は、ディーゼル黒煙粒子の可溶性有機成分中に100種類を超える有機化合物の存在を確認しており、その後の研究によって、すでに大気中における発癌性物質の指標となっているB(a)pなどの多環芳香族炭化水素(Polycyclic Aromatic Hydrocarbon: PAH)、あるいはAmes試験において代謝酵素系の存在を必要とせず強い変異原性を示すジカルボン酸無水物(Produce a dicarboxylic acid anhydride: PDAA)⁶⁾および芳香族ニトロ化合物(Nitrated-Polycyclic Aromatic Hydrocarbons: Nitro-PAH)^{7,8)}等が同定定量化されている⁹⁻¹²⁾。また、Schuetzleら¹²⁾は、大型ディーゼル自動車の走行テストから、車速および貨物積載量の増加に伴って、更に変異原性の高いDinitro-PAHの濃度が上昇することを報告している。

現在、都市周辺を中心とする生活圏の拡大とともに、高速道路周辺での宅地化が急速に進行しているが、大型ディーゼル自動車の交通量の多い高速道路周辺環境では、直接的あるいは間接的に多大な人体影響を及ぼす可能性のあるSPMに対して、早急な対応策が必要と考えられる。本研究の対象とした名神高速道路草津PA付近においても道路端近位での宅地化の進行とともに居住者が急速に増加している。しかし、高速道路を発生源とするSPMに関する研究は極めて少なく、僅かに伊勢ら¹³⁾の高速道路トンネル部における調査例がみられるのみである。

本報告では、高速道路周辺環境における主要な汚染物質としてSPMをとらえ、同環境におけるSPMの拡散性状を把握するために、交通特性とSPM濃度分布との関係、ガス状汚染物質の距離減衰との差異について検討した。さらに伊勢ら¹³⁾が求めた粒度別混合排出係数をもとに、拡散式(東京都モデル¹⁴⁾)を用いて発生源からの距離に対するSPM濃度を推定し、実測値との整合性について検討したので報告する。

方 法

1. 調査方法

調査地点の概要および調査方法については既に報告した通りである¹⁾が、SPMの拡散性状を更に高い精度をもって把握するため、新たに名神高速道路端より南側610m地点にサンプリングポイントを設け、計4回の調査を追加実施した。調査実施日時は次の通りである。

第1回調査：昭和61年7月14日(月) 午前8時～午後8時、天候晴れ

第2回調査：昭和61年9月25日(木) 午前8時～午後8時、天候晴れ

第3回調査：昭和61年9月26日(金) 午前8時～午後8時、天候晴れ

第4回調査：昭和61年9月30日(火) 午前8時～午後8時、天候晴れ

調査は午前8時～午後8時にかけての12時間連続測定を行った。

2. SPM濃度の推定

本研究で用いる東京都モデルは、風速 1.0 m/sec 以上かつ道路と風向のなす角 θ が $\theta \geq 22.5^\circ$ のとき線煙源ガウス型ブルームモデルを、風速 1.0 m/sec 以上かつ $\theta < 22.5^\circ$ のときおよび風速が 0.4 m/sec から 0.9 m/sec の弱風時に点煙原ガウス型ブルームモデルを、また風速が 0.3 m/sec 以下および無風時には点煙源パフ式を用いる。また、粒子に対する重力沈降による影響を考慮する場合は、これらの式中の鉛直方向初期拡散幅 H_e に粒子の風下方向への重力落下を表す $H_e - v_s \cdot x/u$ を代入した以下に示す3式を用いた。すなわち、

(1) 風速 1.0 m/sec 以上かつ $\theta \geq 22.5^\circ$ のとき、

$$C = \sqrt{\frac{2}{\pi}} \frac{q_1}{u \delta_z \sin \theta} \exp \left\{ -\frac{1}{2} \left[\frac{z - H_e + v_s x/u}{\delta_z} \right]^2 \right\}$$

を用いる。

ここで、 q_1 は線煙源の排出強度である。 δ_z は鉛直方向拡散パラメーターであり、Pasquill-Gifford安定度分類のA～Gに対応するPasquill-Gifford拡散線図の近似関数¹⁵⁾より求めた。 z は予測地点における鉛直方向の予測高さであり、H-Vの採取口の高さ、すなわち 1 m とした。なお、夜間はPasquill-Gifford安定度分類のEあるいはDに該当するものとした。 u は地表風速であり、夜間および早朝(19時～6時)については地上 5 m の高度に換算した風速を用いた。換算式は次の通りである。

$$u_z = u_s (z/z_s)^p$$

ただし、 u_s は観測風速、 $z=5\text{ m}$ 、 z_s は観測高度であ

り, p は Pasquill の安定度分類にしたがって次の値をとる。すなわち, A~D までは $p=0.3$, E~F までは $p=0.5$ である。

He は線煙源の有効高度であり, 東京都モデルでは Briggs の式²³⁾ および CONCAWE 式²⁴⁾ を用いているが, 走行風によって汚染物質は瞬間的に道路上空に巻き上げられる¹⁶⁾ ものと考えられ, また車種によってその程度は異なるものと考えられることなどから, 本研究では車種別に有効高度を求めた。すなわち, 普通乗用車を 1 m, 小型貨物車を 2 m, 大型貨物車を 3 m として車種別交通量をもとに加重平均値を求めた。

$v_s \cdot x/u$ は前述したように粒子の風下方向への重力沈降を表しており, 式中の v_s は落下終速度を示し, Stokes の式から求めた。なお, 計算に当たり, 粒子は球形とし, また比重は 3.0 とした。

(2) 風速 1.0 m/sec 以上, $\theta < 22.5^\circ$ の時, および風速 0.4 m/sec ~ 0.9 m/sec の時

$$C = \sum \sqrt{\frac{2}{\pi}} \frac{q_p}{u[(\pi/4)x + s_0] \delta_z} \exp \left\{ -\frac{1}{2} \left[\frac{z - \text{He} + v_s x/u}{\delta_z} \right]^2 \right\}$$

を用いる。

ここで, q_p は仮想点煙源の排出強度であり, x は点煙源から予測地点までの距離である。 S_0 は水平方向初期拡散パラメーターで, $S_0 = W/4$ (W は道路の幅員である。) によって求めた。

(3) 風速 0.3 m/sec 以下, および無風時には

$$C = \sum \frac{2\gamma q_p}{(2\pi)^{3/2} [\alpha^2(z - \text{He} + v_s x/u)^2 + \gamma^2 X^2]} \left\{ 1 - \exp \left[-\frac{\alpha^2(z - \text{He} + v_s x/u)^2 + \gamma^2 X^2}{2\gamma^2 \delta_{y0}^2} \right] \right\}$$

を用いる。

ここで, $X = (x^2 + y^2)^{1/2}$, $\delta_{y0} = 5$ m とし, γ は拡散パラメーターで, Tunner 拡散線図の 3.5 (不安定), 4.0 (中立), 4.5 (安定) に対応する値を用いた。

前述したように, Mobile source における SPM は, その発生機構が複雑であり, それらを総合した SPM の排出係数は未だ報告されておらず, また SPM についての環境影響を評価する場合, 粒度分布が重要な因子となることから, 本研究では排出強度の算出に当たり, 伊勢ら¹³⁾ の高速道路トンネル部における調査結果をもとに, SPM の混合排出係数と大型車混入率との関係, および大型車混入率と粒子状物質の粒度分布から各々の大型車混入率に対応する各フラクションの排出係数を概想し, 排出強

度を求めた。すなわち, まず次式により Total SPM の時間混合排出係数を求めた。

$$Q_{\text{Total SPM}} = 0.021R + 0.74$$

ここで, R は時間大型車混入率である。次に, 求めた時間混合排出係数に時間総交通量を乗じて時間混合排出強度を求めた。さらに, 以下に示した概想式によって各粒度の Total SPM の混合排出強度に占める割合 (%) を求め, 各粒度における時間排出強度を求めた。

$$10.9 \mu\text{m} < D \quad : F_1 = -0.233R + 15.473$$

$$5.4 \mu\text{m} < D \leq 10.9 \mu\text{m} \quad : F_2 = -0.376R + 35.216$$

$$1.6 \mu\text{m} < D \leq 5.4 \mu\text{m} \quad : F_3 = -0.291R + 26.051$$

$$0.7 \mu\text{m} < D \leq 1.6 \mu\text{m} \quad : F_4 = 0.552R + 2.388$$

$$D \leq 0.7 \mu\text{m} \quad : F_5 = 0.352R + 20.908$$

ここで, D は粒径, F_n は各粒度の Total SPM の混合排出強度に占める割合であり, そして R は時間大型車混入率である。

結 果

1. 気象概況および交通量

追加調査された全 4 回の調査の風向頻度および平均風速は, 第 1 回調査が平行風頻度 50.0% (平均風速 1.6 m/sec, 以下は数値のみで示す), 風上風頻度 50.0% (1.2 m/sec) であり, 第 2 回調査が直角風頻度 36.8% (1.3 m/sec), 斜風頻度 60.0% (1.5 m/sec), 風上風頻度 3.2% (0.6 m/sec) であった。第 3 回調査は直角風頻度 27.3% (1.0 m/sec), 斜風頻度 54.5% (1.2 m/sec), 平行風頻度 9.1% (1.0 m/sec), 風上風頻度 9.1% (0.9 m/sec) であり, そして第 4 回調査が斜風頻度 60.0% (1.7 m/sec), 平行風頻度 20.0% (1.1 m/sec), 風上風頻度 20.0% (1.0 m/sec) であった。また, 時間平均総交通量は, 第 1 回調査が 3583.8 台/hr (大型混入率 24.5%), 第 2 回調査が 3635.7 台/hr (27.3%), 第 3 回調査が 3924.6 台/hr (24.6%), 第 4 回調査が 3536.3 台/hr (26.5%) であった。なお, 直角風とは本調査地点の場合 WNW~NNW 風, すなわち風向と道路のなす角 θ が $67.5^\circ \leq \theta \leq 112.5^\circ$ をさし, 斜風とは WSW~WNW および NNW~NNE 風, すなわち $22.5^\circ \leq \theta < 67.5^\circ$ をさす。また, 平行風とは SW~WSW および NNE~NE 風, すなわち $0^\circ \leq \theta < 22.5^\circ$ をさす。

2. SPM フラクション濃度と交通量の相関

SPM の各フラクション濃度と車種別交通量との相関係数を Table 1 に示した。各フラクション濃度を総計した Total SPM 濃度および各フラクション濃度と交通量との相関は, 大型車交通量との間にもみ有意の相関が得られた。Total SPM との間には, 道路端より 290 m 地点

Table 1 Correlation coefficient between the SPM concentration and the traffic volume of each type of vehicle.

Fraction range (μm)	Distance from road edge (m)	Type of vehicle				
		Type 1	Type 2	Type 3	Type 4	T.T.V.
Total SPM	60	0.75*	-0.53	-0.66	-0.20	0.46
	120	0.86*	-0.63	-0.68	-0.32	0.36
	290	0.76*	-0.52	-0.84	-0.21	0.26
	420	0.65	-0.42	-0.64	-0.04	0.35
	610	-0.59	-0.86	0.69	0.33	0.08
More than 10.9	60	0.76*	-0.49	0.08	-0.32	0.35
	120	0.88*	-0.64	-0.05	-0.36	0.25
	290	0.67	-0.47	-0.07	-0.26	0.17
5.4-10.9	60	0.76*	-0.55	0.15	-0.37	0.37
	120	0.91**	-0.70	-0.01	-0.42	0.27
	290	0.40	-0.15	-0.01	-0.02	0.21
1.6-5.4	60	0.35	-0.10	0.51	0.11	0.66
	120	0.62	-0.58	-0.37	-0.24	0.47
	290	-0.10	0.41	0.16	0.24	0.46
0.7-1.6	60	0.80*	-0.68	0.04	-0.34	0.23
	120	0.90**	-0.69	0.01	-0.45	0.28
	290	0.94**	-0.88	-0.35	-0.74	-0.12
Less than 0.7	60	0.76*	-0.49	-0.57	-0.11	0.48
	120	0.83*	-0.59	-0.67	-0.26	0.39
	290	0.76*	-0.52	-0.76	-0.18	0.28

Type 1; large vehicle, Type 2; truck (2-4t), Type 3; private car, Type 4; small truck, small private car or motorcycle, T.T.V; total traffic volume. Significant for correlations at $p < 0.05$ (*) and $p < 0.01$ (**).

まで有意の相関 ($p < 0.05$) が得られた。各フラクシオン濃度については、粒径 $1.6 \mu\text{m} \sim 5.4 \mu\text{m}$ の粒子において有意の相関は認められなかったものの、粒径 $10.9 \mu\text{m}$ 以上の粒子では、道路端より 60 m 地点および 120 m 地点で有意 ($p < 0.05$) の相関が得られた。また、粒径 $5.4 \mu\text{m} \sim 10.9 \mu\text{m}$ の粒子でも同様であり、道路端より 120 m 地点で $r = 0.91$ ($p < 0.01$) の高い相関が得られた。粒径 $0.7 \mu\text{m} \sim 1.6 \mu\text{m}$ および $0.7 \mu\text{m}$ 以下の粒子では、道路端より 290 m 地点においても有意の相関が得られ、特に粒径 $0.7 \mu\text{m} \sim 1.6 \mu\text{m}$ の粒子では、道路端より 120 m 地点および 290 m 地点で相関係数 r がそれぞれ 0.90 ($p < 0.01$) および 0.94 ($p < 0.01$) の高い相関を示した。

3. SPM 濃度の距離減衰

SPM の測定は 24 時間ないし 12 時間の連続測定を行ったことから、風向および風速階級によって各々の距離減衰の傾向を比較することはできない。従って、ここでは風向頻度および各風向頻度における平均風速によって表現し、本調査にて最も典型的な傾向を示したと思われる実測例について距離減衰の傾向を比較する。

Fig. 1, Fig. 2, Fig. 3 は、それぞれ直角風頻度 36.8% 時、直角風頻度 27.3% 時、そして平行風頻度 50.0% 時の各フラクシオンにおける距離減衰である。道路端から 60 m 地点における各フラクシオン濃度は、直角風頻度 36.8% 時で最も高く、次いで直角風頻度 27.3% 時、平行風頻度 50.0% 時の順となった。各風向頻度について、道路端より 60 m 地点から 120 m 地点までの各フラクシオンにおける減衰率は、直角風頻度 36.8% 時において、粒径 $10.9 \mu\text{m}$ 以上の粒子が 90.9%、粒径 $5.4 \mu\text{m} \sim 10.9 \mu\text{m}$ の粒子が 92.8%、粒径 $1.6 \mu\text{m} \sim 5.4 \mu\text{m}$ の粒子が 82.5%、粒径 $0.7 \mu\text{m} \sim 1.6 \mu\text{m}$ の粒子が 88.9%、そして粒径 $0.7 \mu\text{m}$ 以下の粒子が 56.4% と、粒径 $5.4 \mu\text{m}$ 以上の粒子で顕著な距離減衰の傾向が認められた。直角風頻度 27.3% 時では、粒径 $10.9 \mu\text{m}$ 以上の粒子が 83.6% であり、粒径 $5.4 \mu\text{m} \sim 10.9 \mu\text{m}$ の粒子が 53.8%、粒径 $1.6 \mu\text{m} \sim 5.4 \mu\text{m}$ の粒子が 43.0%、粒径 $0.7 \mu\text{m} \sim 1.6 \mu\text{m}$ の粒子が 39.5%、そして粒径 $0.7 \mu\text{m}$ 以下の粒子では 44.6% となり、粒径 $0.7 \mu\text{m}$ 以下の粒子を除き、粒度が大きくなるに従って距離減衰の増加傾向が認められた。平行風頻度 50% 時で

Fig. 1 Concentration-distance profile of each size of particle in the fifth survey. The distribution of wind directions (average wind velocity) was as follows: Perpendicular wind, 36.8% (1.3 m/sec); oblique wind, 60.0% (1.5 m/sec). $\circ$; particles over 10.9 μm in diameter, $\bullet$; 5.4–10.9 μm , $\triangle$; 1.6–5.4 μm , $\blacktriangle$; 0.7–1.6 μm , $\square$; under 0.7 μm .

は、粒径10.9 μm 以上の粒子が89.0%, 粒径5.4 μm ~ 10.9 μm の粒子が32.4%, 粒径1.6 μm ~ 5.4 μm の粒子が74.4%, 粒径0.7 μm ~ 1.6 μm の粒子が96.9%, そして粒径0.7 μm 以下の粒子が64.6%であり、粒度と距離減衰との間に明確な傾向は認められなかった。

4. SPM フラクシオン濃度と窒素酸化物濃度との相関

SPM およびガス状汚染物質の濃度分布状況から両者の拡散性状を比較するため、SPM と同時測定された二酸化窒素 (NO_2) 濃度を用い、両者の相関係数を求め、Table 2 に示した。なお、結果 2 で述べたように、SPM の拡散性状はフラクシオンによって異なることが示唆されたことから、各フラクシオンごとに相関を求めた。

各フラクシオンにおける相関係数 r は粒径10.9 μm 以上の粒子において $r=0.39$ と低い値であったが、粒径10.9 μm 以下の粒子では相関係数 r は0.7以上となり有意 ($p<0.01$) の相関が認められた。また、粒径が小さくなるに従って相関係数が上昇する傾向を示し、特に粒径5.4 μm 以下の粒子において、相関係数 r は0.9に近い値

Fig. 2 Concentration-distance profile of each size of particle in the sixth survey. The distribution of wind directions (average wind velocity) was as follows: Perpendicular wind 27.3% (1.0 m/sec); oblique wind, 54.5% (1.2 m/sec); parallel wind, 9.1% (1.0 m/sec). $\circ$; particles over 10.9 μm in diameter, $\bullet$; 5.4–10.9 μm , $\triangle$; 1.6–5.4 μm , $\blacktriangle$; 0.7–1.6 μm , $\square$; under 0.7 μm .

Table 2 Regression statistics comparing the concentration of each size of particle and nitrogen dioxide NO_2 .

Fraction range (μm)	Statistical parameters		
	r	a	b
More than 10.9	0.39	0.37	16.14
5.4–10.9	0.73**	0.60	11.39
1.6–5.4	0.90**	0.57	10.10
0.7–1.6	0.89**	0.66	11.05
Less than 0.7	0.96**	0.12	9.63
Total SPM	0.95**	0.08	9.04

r ; Correlation coefficient, a ; Regression coefficient and b ; Intercept (ppb). Significant for correlations at $p<0.01$ (**).

かあるいは0.9以上となり極めて高い相関が得られた。また、Total SPM についても $r=0.95$ と極めて高い相関が得られた。すなわち、粒径が小さくなるに従ってよりガ

Fig. 3 Concentration-distance profile of each size of particle in the fourth survey. The distribution of wind directions (average wind velocity) was as follows: Parallel wind, 50.0% (1.6 m/sec). ○—; particles over 10.9 μm in diameter, ●—; 5.4–10.9 μm , △—; 1.6–5.4 μm , ▲—; 0.7–1.6 μm , □—; under 0.7 μm .

ス状物質の拡散挙動に近くなることを示唆すると同時に、粒径5.4 μm 以下の粒子においては、ほぼガス状物質と同じ拡散挙動を示すものと考えられた。

5. SPM フラクション濃度の推定

Table 3 は、各フラクションにおける実測値と推定値との相関係数である。表中のAはガス状物質として扱った場合の相関係数であり、Bは、各フラクションの中心粒径を代表値として重力沈降による影響を考慮した場合の相関係数である。

粒子の重力沈降による影響を考慮しなかった場合、Total SPM における相関係数は $r=0.84$ と極めて高い相関係数が得られた。また、各フラクションにおける相関係数についてみると、粒径5.4 μm 以上の粒子において有意の相関は認められなかったが、粒径5.4 μm 以下の粒子においてはそれぞれ危険率1%以下で有意の相関が認められ、粒径が小さくなるに従って相関係数の増加傾向が認められた。また、回帰係数については、粒径10.9 μm 以上の粒子および粒径0.7 μm 以下の粒子においてやや過小評価の傾向を示し、その他のフラクションにお

Table 3 Regression statistics comparing measured and estimated concentrations of SPM.

Fraction range (μm)		Statistical parameters		
		r	a	b
A	More than 10.9	0.67	0.67	16.58
	5.4—10.9	0.56	1.53	46.95
	1.6—5.4	0.72**	1.28	20.28
	0.7—1.6	0.72**	2.69	33.87
	Less than 0.7	0.87**	0.87	4.58
	Total SPM	0.84**	1.43	42.68
B	More than 10.9	0.67	0.61	12.44
	5.4—10.9	0.56	1.55	46.25
	1.6—5.4	0.76**	1.70	18.79
	0.7—1.6	0.72**	2.69	33.87
	Less than 0.7	0.87**	0.87	4.58
	Total SPM	0.84**	1.42	38.08

A; These results were obtained with the concentrations calculated by the TMG dispersion model. B; These results were obtained with the concentrations calculated by the TMG dispersion model in which the effect of gravity on the particles was included. r; Correlation coefficient, a; Regression coefficient and b; Intercept ($\mu\text{g}/\text{m}^3$). Significant for correlations at $p < 0.01$ (**).

いては過大評価の傾向を示した。特に、粒径0.7 μm ～1.6 μm の粒子において、過大評価の傾向は2倍以上となった。

一方、重力沈降による影響を考慮した場合の相関係数は、考慮しない場合に比べて、粒径1.6 μm ～5.4 μm の粒子において若干の増加傾向を示したが、その他のフラクションにおいては同値となった。また、回帰係数については、10.9 μm 以上の粒子および Total SPM において若干低値となるもののほぼ相関係数と同様の傾向を示した。

結果2で示した各風向頻度に対応する推定値の距離減衰を Fig. 4, Fig. 5, Fig. 6 に示した。なお、実線は重力沈降による影響を考慮しなかった場合の結果であり、波線は重力沈降による影響を考慮した場合の結果である。道路端から60 m 地点における各フラクション濃度は、直角風頻度27.3%時で最も高く、次いで直角風頻度36.8%時、平行風頻度50.0%時の順となり、また平行風頻度50.0%時の濃度は、前二者の5分の1以下と極めて低値となった。

次に、道路端より60 m 地点から120 m 地点までの各フラクションにおける減衰率について検討する。まず重力

Fig. 4 Estimated concentration-distance profile of each size of particle by TMG dispersion model using the dispersion conditions of the fifth survey. The distribution of wind directions (average wind velocity) was as follows: Perpendicular wind 36.8% (1.3 m/sec); oblique wind, 60.0% (1.5 m/sec). The solid and broken lines show the concentrations calculated by The TMG dispersion model and the model in which the effect of gravity on the particle was included. $\circ$ —; particles over $10.9\ \mu\text{m}$ in diameter, $\bullet$ —; 5.4 – $10.9\ \mu\text{m}$, $\triangle$ —; 1.6 – $5.4\ \mu\text{m}$, $\blacktriangle$ —; 0.7 – $1.6\ \mu\text{m}$, $\square$ —; under $0.7\ \mu\text{m}$.

沈降による影響を考慮しない場合、各フラクシオンの濃度は同一の拡散式によって計算されることから、同一の拡散条件下における各フラクシオンの減衰率に差は生じない。従って、各風向頻度間で距離減衰を比較すると、直角風頻度36.8%時では44.4%，直角風頻度27.3%時では45.1%，そして平行風頻度50.0%時では49.9%となり、直角風頻度36.8%時および27.3%時と大差はないが、しかし、平行風頻度50.0%時で距離減衰の傾向は最も顕著となった。一方、重力沈降による影響を考慮した場合について、各風向頻度における各フラクシオンの減衰率を示すと、直角風頻度36.8%時では、粒径 $10.9\ \mu\text{m}$ 以上の粒子が48.7%，粒径 $5.4\ \mu\text{m}$ ～ $10.9\ \mu\text{m}$ の粒子が45.3%，粒径 $1.6\ \mu\text{m}$ ～ $5.4\ \mu\text{m}$ の粒子が44.6%，粒径 $0.7\ \mu\text{m}$ ～ $1.6\ \mu\text{m}$ の粒子が44.4%，粒径 $0.7\ \mu\text{m}$ 以下の粒子が

Fig. 5 Estimated concentration-distance profile of each size of particle by TMG dispersion model using the dispersion conditions of the sixth survey. The distribution of wind directions (average wind velocity) was as follows: Perpendicular wind, 27.3% (1.0 m/sec); oblique wind, 54.5% (1.2 m/sec); parallel wind, 9.1% (1.0 m/sec). The solid and broken lines show the concentrations calculated by the TMG dispersion model and the model in which the effect of gravity on the particles was included. $\circ$ —; particles over $10.9\ \mu\text{m}$ in diameter, $\bullet$ —; 5.4 – $10.9\ \mu\text{m}$, $\triangle$ —; 1.6 – $5.4\ \mu\text{m}$, $\blacktriangle$ —; 0.7 – $1.6\ \mu\text{m}$, $\square$ —; under $0.7\ \mu\text{m}$.

44.4%であり、そして Total SPM では45.0%であった。直角風頻度27.3%時では、順に49.4%，46.0%，45.3%，45.1%，45.1%，45.8%となり、また平行風頻度50.0%時では、同様に51.6%，50.3%，50.0%，49.9%，49.9%，50.1%となり、各フラクシオンの減衰率は、粒径 $10.9\ \mu\text{m}$ 以上の粒子で最も大きく、また各風向頻度における減衰率は平行風頻度50%時において全てのフラクシオンとも最大を示した。

考 察

SPMの拡散性状は、粒子の大きさや比重によって異なる。Mobile sourceに由来するSPMは、路面上堆積物やタイヤ粉塵などの粒子と、燃烧過程で生成される炭化水素化合物、窒素化合物および硫黄化合物などに、その

Fig. 6 Estimated concentration-distance profile of each size of particle by the TMG dispersion model using the dispersion conditions of the fourth survey. The distribution of wind directions (average wind velocity) was as follows: Parallel wind, 50.0% (1.6 m/sec). The solid and broken lines show the concentrations calculated by the TMG dispersion model and the model in which the effect of gravity on the particles was included. ○—; particles over 10.9 μm in diameter, ●—; 5.4–10.9 μm , △—; 1.6–5.4 μm , ▲—; 0.7–1.6 μm , □—; under 0.7 μm .

発生機序によって二分できる。前者は、粉碎や摩耗などによって生成されたSPMであり、そのほとんどが粗大粒子領域に存在するものと考えられる。一方、後者は、人為発生源からの一次粒子や大気中において粒子化した二次粒子であり微小粒子領域に存在するものと考えられる^{25,26)}。

一般に、数10 μm 以上の大粒子は重力の影響が顕著となり¹⁷⁾、数 μm 以下の微細な粒子は気体と同様の拡散挙動を示すようになることが知られている^{18,19)}。すなわち、路面上堆積物などの比較的粒子径の大きい粒子は、重力沈降による影響によって短時間で地表面へ沈着することから、後背地への影響は比較的狭い範囲に局限されるものと考えられるが、燃焼過程で生成された粒子については、生体に対する自身の持つ直接的、間接的毒性や、広範囲な拡散によって、周辺環境に対する影響は大きいものと考えられる。したがって、本研究において調査されたSPMの粒度分布が0.7 μm 以下の微細な粒子領域で高濃度に分布していることが認められたことから、高速道路周辺環境においては、SPMによる広範囲かつ重大な環境影響が予想される。

高速道路における伊勢ら¹³⁾の調査において、発生源におけるSPMの粒度分布は大粒子側に著しく偏位しており、0.7 μm 以下の粒子のTotal SPMに占める割合はお

よそ30%以下であることを報告している。

一方、本調査において、最も道路端に近い60 m地点における粒度分布は、微細な粒子の側に著しく偏位しており、また0.7 μm 以下の粒子のTotal SPMに占める割合は、44.8%～65.8% (平均54.1%)と伊勢ら¹³⁾の発生源における粒度分布と異なる結果が得られた。これは、道路端の近位における砂塵などの大粒子浮遊粉塵の重力沈降による大気からの除去を示すものと同時に、ディーゼル黒煙粒子の90%以上が1 μm 以下の微細な粒子で占められていること²²⁾、更に、結果において示したように、大型車交通量と1.6 μm 以下の粒子の濃度との間に、道路端より290 m離れた地点においても極めて高い相関が認められたことなどから、高速道路周辺環境におけるSPMは、発生量およびその粒度分布ともにディーゼル車の交通量の影響を強く受けているものと考えられる。また、例示したSPMの各フラクション濃度実測値の距離減衰において、路側から60 m地点のTotal SPM濃度は500 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上となり、環境基準を大幅に超える濃度が測定された。高速道路を対象にしたSPMに関する調査報告は少なく、本調査結果を客観的に評価する資料は極めて乏しい。しかし、伊勢らの調査¹³⁾において、発生源濃度と考えられるトンネル内Total SPM濃度は、昼間が3.96 mg/m^3 、夜間が1.34 mg/m^3 と極めて高濃度であり、またこの結果から算出されたTotal SPMの混合排出係数を用いて本調査の実測地点に該当する路側からの各距離について濃度推定を試みたところ、Total SPM濃度は、直角風ないし斜風頻度の多い場合 (Fig. 4, 5)、路側から60 m地点においてそれぞれ867.4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ および1218.4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ となり、実測値と同様に極めて高濃度となることが予測できる。

次に、SPMの各フラクションの拡散性状を説明するため、その距離減衰を示し、そして各フラクション濃度とNO₂濃度との相関を求めた。各フラクション濃度の距離減衰では、粒径0.7 μm ～1.6 μm および粒径0.7 μm 以下の粒子において、その距離減衰は、直角風頻度27.3% (1.0 m/sec) 時、直角風頻度36.8% (1.3 m/sec) 時、そして平行風頻度50% (1.6 m/sec) 時の順に顕著となった。米山ら²⁰⁾は、NO₂による汚染を予測するに当たって、その濃度分布は風速および道路端からの距離に支配されることを認めており、また中村ら²¹⁾は、NO₂の距離減衰に与える影響としては風向よりも風速がはるかに大きく、風速が増すに従って距離減衰の傾向も顕著になることを認めている。すなわち、本研究において、平均風速の上昇に伴う減衰率の上昇傾向が認められたことが

ら、これらの指摘に一致するものと考えられ、また、 NO_2 との相関において、粒径が小さくなるに従って相関係数が上昇する傾向を認め、さらに粒径 $5.4\text{ }\mu\text{m}$ 以下の粒子で極めて高い有意の相関係数が得られたことから、この粒径以下においては、ガス状汚染物質の拡散挙動に極めて近い挙動を示すものと考えられる。

また、粒子状物質の拡散性状をさらに詳細に把握するため、本研究で定めた各測定地点に対応する発生源からの距離におけるSPMの各フラクション濃度を予測手法として比較的扱い易い東京都モデルを用いて推定し、実測値との整合性について検討した。また、SPMをガス状物質として取り扱った場合と各粒子に働く重力沈降の効果を考慮した場合の拡散モデルの予測特性についても検討した。

結果2に例示した直角風頻度36.8%時、直角風頻度27.3%時、および平行風頻度50.0%時のそれぞれに対応する条件下でSPM濃度の推定を行った。その結果、重力沈降による影響を考慮した場合の各フラクションの濃度分布は、粒径 $10.9\text{ }\mu\text{m}$ 以上の粒子において重力沈降の影響を考慮した場合に比べ、やや低値となった。しかし、それ以下の粒子においては、粒径が小さくなるに従って両者の濃度差は減少し、粒径 $5.4\text{ }\mu\text{m}$ 以下の粒子については殆ど同濃度となることが認められた。また、各フラクションの道路端より60m地点から120m地点までの減衰率も同様の傾向を示した。さらに、Table 3に示したように、重力沈降による影響を考慮した場合においてもその予測特性は重力沈降の効果を考慮しない場合と大差ないことから、本研究の予測対象とした範囲において、SPMとして定義される $10.0\text{ }\mu\text{m}$ 以下の粒子については、拡散モデルによる重力沈降の影響は殆ど表現されないものと考えられる。従って、ガス状汚染物質の拡散を予測するために用いられる東京都モデルにより推定された各フラクション濃度と実測濃度との間において、粒径 $5.4\text{ }\mu\text{m}$ 以下の粒子に相関係数0.7以上の有意の相関が認められ、また同粒径以下の粒子において NO_2 濃度との間に極めて高い相関が得られたことから、粒径 $5.4\text{ }\mu\text{m}$ 以下の粒子の拡散挙動は、ガス状汚染物質と同様に説明することができるものと考えられる。池田ら¹⁰⁾は、粒子状物質の大気中における伝搬過程に関する研究において、数 μm 以下の粒子に対しては、粒子を気体として扱っても誤差は小さいことを報告しており、本研究結果は実際の立場から池田ら¹⁰⁾の報告を裏付けるものであり、さらに本研究結果から、その粒径は、極めて気体に近い拡散挙動を示すことが示唆された $5.4\text{ }\mu\text{m}$ 以下の粒子である

うと考えられる。

結 語

高速道路から発生するSPMの拡散性状を把握するために、交通特性との関係、ガス状汚染物質との比較、更に東京都モデルを用いてSPMの濃度推定を行い、その整合性について検討し、以下の結論を得た。

1) SPMフラクション濃度と車種別交通量との相関は、大型車交通量との間にもみ有意の相関が認められ、とくに $1.6\text{ }\mu\text{m}$ 以下の粒子と大型車交通量との間には、道路端より290m離れた地点においても極めて高い相関性を有することが認められた。

2) 粒径 $0.7\text{ }\mu\text{m}$ 以下の粒子のTotal SPMに占める割合は44.8%~65.8% (平均54.1%)と最も高く、その距離減衰は、平均風速の増加に従って、その傾向が顕著となり、ガス状汚染物質の示す距離減衰と同様の傾向を示すことが認められた。

3) SPMの実測値と NO_2 との相関において、粒径が小さくなるに従って相関係数が高くなる傾向を示した。特に粒径 $5.4\text{ }\mu\text{m}$ 以下の粒子において極めて高い相関係数がえられ、SPM濃度の分布状況は NO_2 と極めて似ていることが示唆された。

4) また、SPMの各フラクションにおける実測結果と推定結果との間に、粒径 $5.4\text{ }\mu\text{m}$ 以下の粒子において極めて高い相関が認められたことから、 $5.4\text{ }\mu\text{m}$ 以下の粒子についてはガス状物質と同様にその拡散挙動を説明することができるものと考えられる。また、本研究の予測対象とした範囲では、各粒子に働く重力沈降による影響は殆ど無視できるものであった。

以上の結果より、高速道路から排出されるSPMの組成および排出量は大型ディーゼル車の交通量に依存し、またガス状汚染物質と同様の拡散挙動を示す極めて微細な粒子がそのほとんどを占めていることから、その環境影響は著しく広範囲に及ぶものと考えられる。

謝 辞

本研究を実施するにあたり、常に御指導御助言をいただいた滋賀医科大学教授佐々木武史先生、京都大学工学部助教授西田耕之助先生並びに滋賀医科大学助手山川正信先生に深く感謝の意を表します。また、多大なる御協力を頂いた大迫政浩氏、小橋俊文氏をはじめとする京都大学工学部付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58回日本衛生学会総会(1988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) 喜多義邦, 佐々木武史: 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, 日衛誌, **42**, 973-984 (1987).
- 2) 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).
- 3) 生活環境審議会, 浮遊粉塵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).
- 4) Hoffman, D. and Wynder, E.L.: Chemical Analysis and Carcinogenic Bioassays of Organic Particulate Pollutants, Air Pollution Vol. 2, 2nd ed., p.187-247, Academic Press, Inc., New York (1968).
- 5) Schuetzle, D., Lee, F.S.-C., Prater, T.J. and Tejada, S.B.: The Identification of Polynuclear Aromatic Hydrocarbon (PAH) Derivatives in Mutagenic Fractions of Diesel Particulate Extracts, Intern. J. Environ. and Chem., **9**, 93-144 (1981).
- 6) Rappaport, S.M., Wang, Y.Y., Wei, E.T., Sawyer, R., Watkins, B.E. and Rapoport, H.: Isolation and Identification of a Direct-Acting Mutagen in Diesel-Exhaust Particulates, Environ. Sci. and Technol., **14** (12), 1505-1509 (1980).
- 7) Schuetzle, D., Riley, T.L., Prater, T.J., Salmeen, I. and Harvey, T.M.: The Identification of Mutagenic Chemicals Species In Air Particulate Samples, Analytical Techniques in Environmental Chemistry II, J. Albaiges, ed., Pergamon Press, Oxford, England, 259-280 (1982).
- 8) Schuetzle, D.: Sampling of vehicle emissions for chemical analysis and biological testing, Environ. Health Perspect., **47**, 65-80 (1983).
- 9) Schuetzle, D., Riley, T.L., Prater, T.M., Harvey, T.M. and Hunt, D.F.: Analysis of Nitrated Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Diesel Particulates, Anal. Chem., **54**, 265-271 (1982).
- 10) Tong, H.Y. and Karasek, F.W.: Quantitation of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Diesel Exhaust Particulate Matter by High-Performance Liquid Chromatography Fractionation and High-Resolution Gas Chromatography, Anal. Chem., **56**, 2129-2134 (1984).
- 11) Hagemann, R., Virelizier, H., Gaudin, D. and Pesneau, A.: Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Exhaust Particles Emitted from Gasoline and Diesel Automobile Engines, Toxic. and Environ. Chem., **5**, 227-236 (1982).
- 12) Schuetzle, D. and Perez, J.M.: Factors Influencing The Emissions of Nitrated-Polynuclear Aromatic Hydrocarbons (Nitro-PAH) from Diesel Engines, J. Air Pollu. Cont. Associ., **33**, 751-755 (1983).
- 13) 伊勢洋昭, 朝来野国彦, 渡辺武春, 小野塚春吉, 菅邦子, 泉川硯雄, 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—, 東京都公害研究所年報, **1981**, 46-53 (1981).
- 14) 東京都公害局: 自動車公害ハンドブック pp.154-163 (1976).
- 15) 環境庁大気保全局大気規制課: 浮遊粒子状物質汚染の解析・予測, p.246-250, 日本環境衛生センター, 東京 (1987).
- 16) 上田 寿: 直線状道路上を走る自動車から放出される汚染物質の分布, 大気汚染学会誌, **13**, 213-222 (1978).
- 17) 横山長之, 北林興二: 浮遊粒子状物質の拡散, 産業公害, **17**, 356-363 (1981).
- 18) Hinze, J.: Turbulence, 2nd ed., 460-471, McGraw Hill Inc., New York (1959).
- 19) 池田有光, 若園 淳, 志々目友博, 平岡正勝: ラグランジュの手法による粒子状物質の大気中伝搬過程のモデル化に関する考察, 大気汚染学会誌, **19**, 421-429 (1984).
- 20) 米山悦夫, 中村 貢: 道路周辺地域の窒素酸化物濃度とその予測, 第19回大気汚染学会講演要旨集, p.432 (1978).
- 21) 中村 貢, 平野耕一郎, 沖津正樹, 太田正雄, 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），横浜市公害研究所報，3，5-13（1978）。
- 22) Lipkea, W.H., Johnson, J.H. and Vik, C.T.: The Physical and Chemical Character of Diesel Particulate Emissions Measurement Techniques and Fundamental Considerations, SAE Special Publication, p. 430 (1978).
- 23) Briggs, G.A.: Plume Rise, U.S. Atomic Energy Commission, Division of Technical Information, (1969).
- 24) Brummage, K.G.: The Calculation of Atmospheric Dispersion from a Stack, Atmospheric Environment, 2 (1968).
- 25) 環境庁大気保全局大気規制課：浮遊粒子状物質汚染の解析・予測，p. 2-22，日本環境衛生センター，東京（1987）。
- 26) 笠原三紀夫，高橋幹二，島田 学：大気中粒子状物質の発生源の同定と寄与率の推定，大気汚染学会誌，19，337-358（1984）。
- （受付 1988 年 4 月 11 日 受理 1988 年 6 月 21 日）