

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 8 月 31 日現在

機関番号：13301

研究種目：基盤研究(B) (海外学術調査)

研究期間：2014～2016

課題番号：26303002

研究課題名(和文) 東アジア・東南アジアナノ粒子観測ネットワークの構築

研究課題名(英文) Development of East and Southeast Asia Nanoparticle Monitoring Network

研究代表者

畑 光彦 (Hata, Mitsuhiro)

金沢大学・環境デザイン学系・准教授

研究者番号：00334756

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,700,000円

研究成果の概要(和文)：本研究の目的である1.装置開発と実証,2.共同研究体制の構築,3.大気ナノ粒子の特性分析について,下記の結果を得た。1.粒子径別サンプラを改良し,様々な環境条件(濃度,湿度,温度)の大気ナノ粒子を捕集可能な装置を開発し,実証試験を通して使用方法を検証した。2.国内外の定期観測体制を整備し,東アジアと東南アジアで連携する研究者ネットワークが確立した。3.(1)金沢1サイトの5年以上の連続観測,(2)北陸地方3サイトの2年間の連続観測,(3)10ヶ所以上の短期集中観測(キャンペーン)の段階に分けて議論し,全般に季節変動よりも場所の違いの方が大きく,ローカルな発生源の影響が大きいことを明らかにした。

研究成果の概要(英文)：1. Development of airborne nanoparticle sampling technology: Airborne nanoparticle sampler has been developed and revised by experience of researchers in the network. 2. Development of young researchers collaboration network of researchers: More than 20 researchers from more than 10 countries in East and Southeast Asia has joined in the network to investigate the airborne nanoparticles using common device and procedure of the sampling. 3. Investigation of airborne nanoparticles in East and Southeast Asia: Ambient PM0.1 mass concentration showed larger difference among sites than seasonal change. Particle concentration and chemical components found to be affected from the biomass burning and diesel exhaust which appeared to different size range.

研究分野：大気環境工学

キーワード：大気ナノ粒子 バイオマス燃焼 ディーゼル粒子

1. 研究開始当初の背景

(1) PM2.5 の成果と課題

近年中国で発生した深刻な大気汚染の報道をきっかけに、微小粒子状物質の危険性や、その発生源となる黄砂や焼畑、道路交通等にあらためて目が向けられるようになった。国内ではいささか過剰な報道もあったが、先進国の多くで微小粒子状物質(PM2.5)の環境基準と統一した測定法が策定され、他の国々でも PM2.5 に着目した観測が進められ、情報共有や政策決定が行われるようになったことは、学術的に、また被害防止の意味で大きな進歩であったと言える。

しかし、PM2.5 という粒子径区分は広すぎる。実際に存在するタバコ煙やディーゼル、バイオマスや石炭等燃焼に由来するナノ粒子は、個数基準ではそのほとんどが 0.1 μm 以下のナノ粒子域にあり(図 1)、質量基準でも大部分は 1 μm 未満である。また、ナノ粒子は PM2.5 よりも呼吸器深部に到達する上、燃焼起源の化学成分の割合が高い。したがって、ナノ粒子に着目すれば、健康リスクをより直接的に評価することになる。2.5 μm の粒子とサブミクロン領域、ナノ領域で粒子の挙動は全く異なるため、輸送・健康リスク・排出源対策のどの観点でも、現状の PM2.5 を中心とした議論と並行して、「PM2.5 の次」を考える必要がある。

(2) 大気中ナノ粒子の分級・捕集技術の進歩と観測の開始

ナノ粒子の観測が進んでいないのは、測定と分析に技術的な困難があったためである。まず根本的な問題として、化学成分分析に使える有効な分級・捕集装置がなかった。低圧インパクト(LPI, nano-MOUDI 等)では半揮発性成分の損失が大きく、静電分級装置では流量が少ない。エアロゾル質量分析計(AMS)は粒子径と化学成分をリアルタイムに測定することができる画期的な技術だが、非常に高価かつ大型の設備で、用途が限られている。

2009年に申請者らは慣性フィルタを開発し、強い減圧や荷電をかけることなくナノ粒子を分離することに世界で初めて成功した。申請者らは慣性フィルタ技術を組み込んで 5~500L/min の広い流量範囲で微小粒子状物質(PM2.5)と大気中ナノ粒子(PM0.1)を含む粒子径別分級捕集ができるエアサンプラを 4 種類以上開発し、試作装置の検証を兼ねて 2013 年現在、金沢・埼玉に加え中国・タイ・カンボジアの合計 4 カ国 8 ヶ所で観測を開始し、道路交通起源粒子や、黄砂時期に飛来する粒子の成分組成が PM2.5 と PM0.1 で異なることを確認していた。

2. 研究の目的

本研究の目的は「東アジア・東南アジアの大気中ナノ粒子の現状把握とリスク評価」である。大気中ナノ粒子の現状は先進国・途上国を問わずほとんど明らかになっていない。現状の大気中ナノ粒子の観測は、揮発損失が顕

著な LPI で捕集したものがほとんどであり、有用な化学成分データが非常に少ない。「慣性フィルタ」を利用したサンプラならば、安価で簡便、小型でインフラの制約が少ないため、基本的な大気観測の知識があれば、短期間のトレーニングとわずかな予算で、どこでも容易に調査することができる。「東アジア・東南アジアの広い範囲でナノ粒子のデータを同時に調査し、現状把握を行う」ため、本研究は、以下の具体的な到達目標を設定した。

- (1) 十分に検証された、詳細な大気中ナノ粒子観測プロトコルの策定
- (2) 東アジア・東南アジア 8 カ国 20 サイトに及ぶ、大気中ナノ粒子観測サイト・研究者ネットワークの構築
- (3) 非同期定点観測による、20 サイト×7 2 回(2 年間)の大気中ナノ粒子の濃度・成分データの収集
- (4) 同期集中観測による、高濃度イベント(中国の石炭燃焼、東南アジアのバイオマス燃焼等)の検討
- (5) 得られた結果から、ナノ粒子の現状とリスクについての議論を行い、ワークショップで公表
- (6) 発展研究としての、ナノ粒子個人曝露と、発生源イベントリの予備的な検討

3. 研究の方法

(1) 研究遂行体制と定点観測体制の構築

研究遂行体制

研究代表者と研究分担者の計 5 名はコアメンバーとして、海外サイトの拠点構築、秤量および化学成分分析、共通で議論する各テーマのとりまとめなどを担当した。国内外の連携研究者と研究協力者は、観測サイトの構築と定期観測の実施が主要な役割である。ネットワークのメンバーは過去に共同研究の実績がある者と、その紹介を受けた者であり、全員に本研究についての説明と議論を行って同意を得た。研究協力者でサイト担当のないメンバー 7 名はオブザーバーに相当し、装置の検証や改良、観測プロトコルの議論、各地での現地観測、結果の解釈のため、各分野に詳しい研究者に協力を依頼した。

観測プロトコルの策定

大気中ナノ粒子の環境負荷を評価・議論するための具体的な方針と作業内容(観測プロトコル)を詳細に策定した。大気中ナノ粒子観測の経験のあるメンバーが微小粒子状物質と大気中ナノ粒子の観測方法と結果に関する資料をとりまとめて議論し、標準作業手順(SOPs)を定め、さらに、本申請研究の議論として、観測期間・サンプリング時間の設定と、分析する化学成分、議論のためのデータ共有方針についてもワークショップで議論して決めた。

標準作業手順(SOPs)には、用語の定義、装置の原理から装置のメンテナンス方法まで

詳細に記し、経験のない者でも短時間のトレーニングで作業ができるように整備した。地域によっては電源の安定性、寒冷時や猛暑時の機材安定性の確保が困難であることもあり、フィードバックを受けて改訂した。

観測期間については、議論の結果、「粒子径別サンプリングを使用した月3回」「7日間の毎週観測」「7日間の隔週観測」など、各研究者の状況に応じてフレキシブルな期間設定を行った。

黄砂の飛来を含む中国からの越境汚染や、東南アジアでの野焼きや森林・泥炭火災などの影響を議論するため、関連サイトを選択して3回の集中観測(キャンペーン)を計画し、そのうち2回を実施し、3回目を2017年度に計画中である。

分析する化学成分は、炭素成分、水溶性成分、多環芳香族炭化水素類を予定しており、報告書作成時点で主な定期観測の炭素成分と、集中観測の炭素・水溶性成分の分析を終了し、論文発表のために結果を整理している。

上記で得られたナノ粒子の濃度・成分データの取扱いには、慎重を期する必要がある。不確定な情報を外部に出さず、また研究者同士で成果公表の方法でトラブルを起こさないため、国境を超えたデータの公開範囲と公開方法について統一したルールを定めた。現時点は、生データを閉じたネットワークで共有して各自で分析できるようにし、外部への発表の際にコアメンバーで議論して決める。ただし、各サイトで収集した試料データのみの外部発表については、科研のルール(謝辞の明示)に従う限りコアメンバーの同意を必須とはしない。また、ナノ粒子の環境負荷に関わる話題を議論するため、同時観測する成分(ガス状成分等)、公開されている気象および大気汚染物質のデータ、発生源のインベントリーデータ、各国の環境基準と法令等共同で情報と資料の収集も進め、情報を共有した。

観測プロトコル草案を英語で作成し、内容を検討するため打合せを行った。構成メンバーの実行体制と準備状況をメール等で確認して内容を検討した。

機材の準備

粒子径別サンプリングを各サイトへ送付し、サイト担当者が観測プロトコルに従って非同期定期観測を行った。捕集用のフィルタとして炭素成分分析用の石英繊維石英繊維フィルタ(2500 QAT-UP)とPAHs等分析用のフッ素樹脂処理ガラス繊維フィルタ(T60A20)、慣性フィルタカートリッジおよび充填用ステンレス繊維を購入し、原則全てのフィルタの秤量・前処理を経てから金沢大学から各サイトへ発送した。大量のフィルタ類の秤量・前処理を行う必要があるため、金沢大学大学院生2名を作業補助にあてた。直接対応が必要な場合、観測中サイトを訪問し、装置状態の確認や整備、観測内容の議論を行った。



図1 試作したシェルター



図2 焼結金属板をリテーナーに使用したバックアップフィルタホルダ

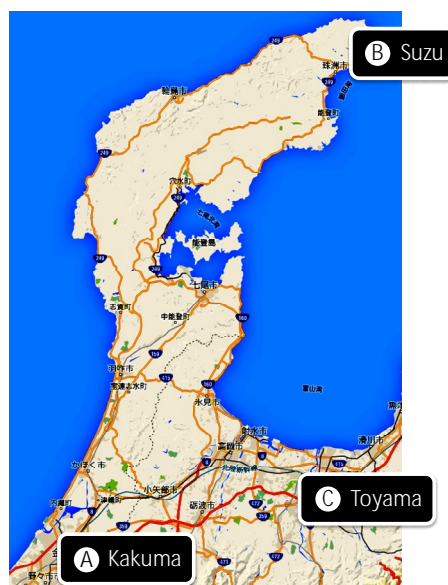


図3 北陸の定期観測地点
(角間, 珠洲, 富山)



図4 2回目集中観測の観測地点

(3) 観測の実施と議論

定期観測の実施

観測プロトコルに従って、準備ができた観測可能サイトから順次定期観測を開始した。観測が終わったフィルタ試料のうち、PM_{2.5}等の秤量設備を持たないサイトは、試料を金沢大学に送り、金沢大学で秤量を行った。金沢大学で試料を保管し、主に炭素成分を分析した。観測時期の気象データや、周辺大気観測点の大気質データを合わせたデータを、メンバー間で共有した。

定期観測地点のうち、特に図3に示した北陸の3地点を「北陸ナノ粒子観測ネットワーク」とし、粒子径別サンブラとシェルターの試験運用、ナノ粒子観測結果に及ぼす季節変動のサイト立地条件の検討などを行った。

集中観測（キャンペーン）の実施

定期観測の他に、越境汚染が懸念される高濃度イベントに合わせて同期集中観測を2回行った。1回目は2014年10～11月に、2回目は2016年3～4月に行っている。図4に2回目の観測点の位置を示した。1回の観測期間は約2週間としたが、濃度や実施の都合などがサイトによって異なるため、完全な同期観測とはしなかった。

得られた結果の議論と、成果公表

年度内に得られた結果について議論し、ナノ粒子の次年度へ向けた方針をまとめるための国際ワークショップを2013年度にバンコクで、2014年度に金沢で1度ずつ開催した他、2017年度にはタイ・ハジャイで今後についてのワークショップの開催を予定している。アジアエアロゾル会議やエアロゾル科学・技術研究討論会で共同研究者と小規模な打ち合わせを行ってきた。これらの会合で、大気中ナノ粒子の測定方法・健康影響・気候影響・発生源寄与・越境汚染等の各項目について議論した。

4. 研究成果

(1) 研究遂行体制と定点観測体制の構築

観測プロトコルは、実施期間中に二度改訂されたが、装置の状態確認やブランクフィルタの扱いなどを含めると書類のみで使用者がミスなくサンプリングを行える状態には至らない。当初ネットワークのコア機能はすべて金沢大学にあったが、研究期間中にタイ国内の研究者の連携が進み、秤量や分析の一部を行い自立して活動できるだけの経験者が育成されたため、東南アジアのナノ粒子ネットワークとして、タイ・プリンスオブソンクラ大学に拠点を設置した。この拠点を通じてマレーシアやインドネシアの研究者が加わり、タイ北部の森林火災やインドネシアの泥炭火災など、越境大気汚染を引き起こす情報について連携し、引き続き調査を行う体制が確立された。

粒子径別サンブラの技術開発としては、入口形状、内部構造、配管構成の変更、シェルターの試作などを行った。気温上昇や直射日光が半揮発性成分の損失を招くことから、シェルター（図1）を試作し、東京・大阪・金沢・珠洲の4ヶ所でテストを行った。現状では、下部に設置したポンプの騒音と熱の懸念があり、現在改良版の試作を進めている。

炭素分析等のためには、フィルタ上への均一な捕集が不可欠であるため、PM_{0.1}を捕集するバックアップフィルタのリターナーへ四度にわたる改訂を試みた結果、既存のカスケード・バーチャル・インパクト（CAVI, Szymanskiら開発、東京ダイレック（株）よりVI-PM_{2.5}として発売中）に使用されている焼結金属板を参考に試作したものの（図2）が十分な性能を発揮し、これをすべての粒子径別サンブラに使用できるようアタッチメントを開発し、試作品を全サイトに配布した。また、さらなる低圧損化に向けた慣性フィルタの複合・最適化と、PM_{0.1}以上の各ステージに捕集されたフィルタも均一に補修できるよう、Szymanski氏と共同開発でCAVIに慣性フィルタを追加した新型サンブラの設計・試作を進めている。

(3) 観測の実施と議論

定期観測の結果

定期観測結果の例として、北陸3地点（(A)金沢大学角間キャンパス（角間）、(B)金沢大学里山里海自然学校内大気観測・能登スーパーサイト（NOTOGRO）（珠洲）、(C)富山高等専門学校本郷キャンパス（富山）の位置を図3に、結果を図4に示した。（A）（B）（C）の3地点は中能登農道橋（ツインブリッジのと）付近を中心とする半径約60kmの円周付近に位置し、（A）（B）はほぼ同じ緯度のまま東西に約50km離れており、（B）（C）はほぼ同じ経度のまま南北に約90km離れている）で観測されたナノ粒子（PM_{0.1}）濃度の月別変動を図3に示す。3地点のPM_{0.1}月別濃度変動を示す。5月に値が最大となり、10月に再度ピークが

訪れ、冬に最小値を示す特徴は、ここに示していないが3地点に共通の傾向であり、総浮遊粒子(TSP)濃度も同様の傾向を示した。春先の黄砂飛来、10月のキャンパス周辺での野焼き、冬の降雨や降雪などの影響が現れていると考えられる。3地点の相違点としては、(C)富山の濃度が全般に高いこと、(B)珠洲の9~11月の濃度上昇が他の2地点より高いことなどが挙げられる。(C)富山のみ高速道路の近くにあること、また(B)は周辺の農地が多いことから、野焼きなど、それぞれローカルな発生源の影響を受けたのではないかと推察された。

集中観測の結果

2回目の集中観測の結果の例として、国内サイトで捕集された粒子の粒子径別濃度を図6に、海外サイトの結果を図7に示す。ナノ粒子の質量濃度は国内 2.7~5.9 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ に対し、東南アジアでは 7.7-18.9 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ と2~3倍高かった。粒子径別に炭素分析を行った結果、ナノ粒子は比較的 soot-EC が高く、1~2.5 μm の範囲で char-EC が高かった。タイ国内の農業に由来するバイオマス燃焼の影響を調査した結果、1~2.5 μm の粒子成分との連動が示唆されたため、今後本ネットワークで引き続き調査を進めることになった。

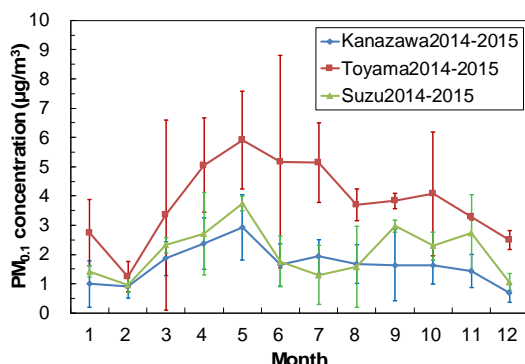


図5 北陸地域のナノ粒子濃度の月別変動

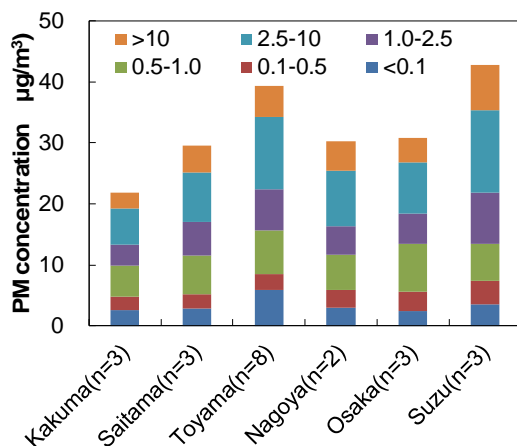


図6 集中観測から得られた国内サイトの粒子径別濃度の例

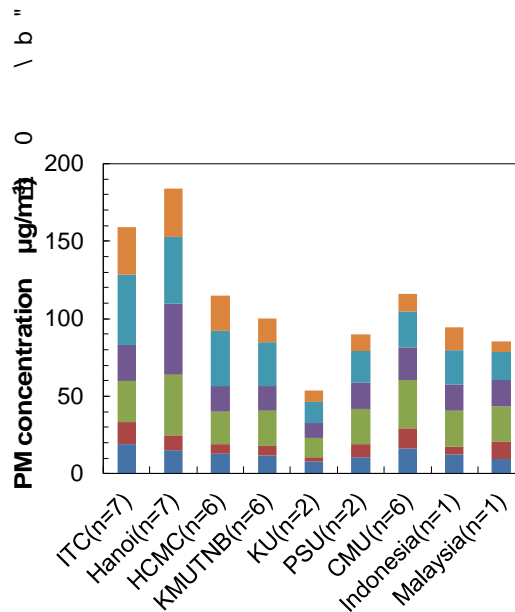


図7 集中観測から得られた海外サイトの粒子径別濃度の例

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計11件)

Zhang Tong, Tianren Zhao, Hideaki Takahashi, Mitsuhiro Hata, Akira Toriba, Takuji Ikeda, Yoshio Otani, Masami Furuuchi, High Volume Air Sampler for Environmental Nanoparticles Using a Sharp-Cut Inertial Filter Combined with an Impactor, Measurement Science and Technology, 28, 25801, 2017, doi: 10.1088/1361-6501/aa53a5

Worradorn Phairuang, Mitsuhiro Hata, Masami Furuuchi, Influence of agricultural activities, forest fires and agro-industries on air quality in Thailand, Journal of Environmental Sciences, 52, 85-97, 2017, doi:10.1016/j.jes.2016.02.007

桜井 健治, 関口 和彦, 王 青躍, 古内 正美, 畑 光彦, 慣性フィルターサンプラーを用いた大気中超微小粒子捕集時における有機ガス吸着量の評価, エアロゾル研究, 29, 119-123, 2014, https://www.jstage.jst.go.jp/article/jar/29/2/29_119/_article/-char/ja/

〔学会発表〕(計38件)

趙 天任, ホンティアブ スラパー, 畑 光彦, 松木 篤, 古内正美, 東アジア都市域における大気中ナノ粒子特性の考察, 第33回エアロゾル科学・技術研究討論会, 2016年08月31日~2016年09月02日, 大阪府立大学(大阪府堺市)

Mitsuhiro Hata, Masami Furuuchi, Surui Dong, et al. Ambient Nanoparticles Characterization by East and Southeast Asia Nanoparticle Monitoring Network, 9th Asian Aerosol Conference (AAC2015) (国際学会), 2015年06月24日~2015年06月27日, 金沢東急ホテル(石川県金沢市)

〔その他〕

ホームページ

<https://www.researchgate.net/project/East-Asia-Nanoparticle-Monitoring-Network-EA-Nanonet>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

畑 光彦 (HATA, Mitsuhiko)
金沢大学・環境デザイン学系・准教授
研究者番号：00334756

(2) 研究分担者

古内 正美 (FURUUCHI, Masami)
金沢大学・環境デザイン学系・教授
研究者番号：70165463

関口 和彦 (KAZUHIKO, Sekiguchi)
埼玉大学・理工学研究科・准教授
研究者番号：50312921

鳥羽 陽 (TORIBA, Akira)
金沢大学・薬学系・准教授
研究者番号：50313680

松木 篤 (MATSUKI, Atsushi)
金沢大学・環日本海域環境研究センター・
准教授
研究者番号：90505728

(3) 連携研究者

大谷 吉生 (Otani, Yoshio)
金沢大学・自然システム学系・教授
研究者番号：10152175

柿本 健作 (KAKIMOTO, Kensaku)
大阪府立公衆衛生研究所・衛生化学部・研
究員
研究者番号：40435889

吉川 文恵 (YOSHIKAWA, Fumie)
富山高等専門学校・機械システム工学科・
准教授
研究者番号：40397188

山下 信義 (YAMASHITA, Nobuyoshi)
国立研究開発法人産業技術総合研究所・環
境管理研究部門・上級主任研究員
研究者番号：40358255

唐 寧 (TOU, Nei)
金沢大学・環日本海域環境研究センター・
准教授
研究者番号：90372490

(4) 研究協力者 (一部)

池盛 文数 (IKEMORI, Fumikazu)
名古屋市環境科学調査センター・研究員

西村理恵 (NISHIMURA, Rie)
大阪府環境農林水産総合研究所・研究員

TEKASAKUL, Perapong
タイ・プリンスオブソンクラ大学・准教授

LIMPASENI, Wongpun
タイ・チュラロンコーン大学・客員教授

CHETIYANUKORNKUL, Thaneeya
タイ・チェンマイ大学・講師

THONGYEN, Thunyapat
タイ・カセサート大学・講師

SUWATTIGA, Panwadee
タイ・キングモンクット工科大学北バンコ
ク校・講師

SZYMANSKI, Wladyslaw W.
オーストリア・ウィーン大学・客員教授

HUL, Seingheng
カンボジア・カンボジア工科大学・講師

HANG, Peou
カンボジア・アンコール遺跡整備公団・副
総裁

KUNAIFI, Kunaifi
インドネシア・国立イスラム教スルタンシ
ヤリフカシムネギリ大学・講師

DUNG, Nghiem Trung
ベトナム・ハノイ理工大学・環境理工学部
長

HO, Bang Quoc
ベトナム・ベトナム国立大学・大気環境部
門長

LATIF, Mohd Talib
マレーシア, マレーシア国民大学, 教授

LIU, Liuxin Gang
中国・北京師範大学・准教授

TSAI Chuen-Jinn
台湾・国立交通大学・教授

Kyung Hwan Kim
韓国・韓国科学技術研究所・研究員