

科学研究費補助金研究成果報告書

平成 21年 5月 18日現在

研究種目：若手研究 (B)
研究期間：2007～2008
課題番号：19710003
研究課題名 (和文) 改良型インパクターフィルターによる大気中超微小粒子の分級濃縮捕集と成分組成の評価
研究課題名 (英文) Selective concentration collection of ultrafine particles using an improved impactor filter and evaluation of their chemical components
研究代表者
関口 和彦 (SEKIGUCHI KAZUHIKO)
埼玉大学・大学院理工学研究科・助教
研究者番号：50312921

研究成果の概要：超微小粒子 ($0.1 \mu\text{m}$ 以下の粒子、UFP) は、呼吸により肺の深部まで到達し、様々な健康影響を及ぼすと言われている。そこで、その組成を正確に把握するために、インパクターフィルターを組み込んだ分級濃縮捕集装置の開発、改良を行った。そして、UFPの空間分布に関して調査するために、道路近傍や都市部高層ビルの上層階、さらには、都市部郊外において大気観測を実施した。その結果、UFPの光化学生成や成分の季節変動が確認されただけでなく、UFPが直接発生源のないバックグラウンド大気においても安定に存在していることが明らかとなった。また、UFPの構成成分として、人為起源の指標である EC が、大気中で一様に遍在している可能性も示唆された。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	2,300,000	0	2,300,000
2008年度	1,000,000	300,000	1,300,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,300,000	300,000	3,600,000

研究分野：複合新領域

科研費の分科・細目：環境学・環境動態解析

キーワード：超微小粒子(UFP)、インパクターフィルター、広域大気観測、高層ビル、都市部郊外、炭素成分、イオン成分、拡散移流

1. 研究開始当初の背景

大気中に浮遊する粒径 $0.1 \mu\text{m}$ 以下の粒子状物質は、一般に超微小粒子(Ultrafine particle, UFP)と称され、近年、その環境動態や健康影響に注目が集まっている。ラットへの UFP 吸入曝露試験を行った研究では、呼吸により体内に取り込まれた UFP が、肺胞上皮を通過してリンパ管や血管内に入り込み、循環器障害等を引き起こす可能性が指摘されており、UFP による深刻な健康影響が懸念されている。また、UFP は、個数濃度として浮遊粒子

状物質の大部分を占めることから、UFP の発生過程を含めた環境動態の解明は急務とされる。しかしながら、UFP は、質量濃度としての寄与が小さく、大気圧下において分級が困難な粒径であることから、一般に個数濃度の観測が主流となっており、化学組成について未解明な部分が多い。組成に関する研究は、従来、LPI (Low Pressure Impactor) などの減圧過程を伴う捕集装置が分級捕集のために用いられているが、成分揮発の影響があるなど、依然問題点も指摘されている。また、捕集装

(2) 改良型インパクターフィルターを用いて、UFP の主要な発生源とされている道路近傍大気と自動車影響をあまり受けていない大気（以降バックグラウンド大気と表記）にて大気観測を行った。2007 年度夏季および冬季において、バックグラウンド大気として埼玉大学総合研究棟 10 階ならびに埼玉県環境科学国際センター（埼玉県騎西町）にて、また、一般的な道路近傍大気として、埼玉大学正門前の国道 463 号線沿道を観測地点とした。さらに、2008 年度夏季においてもバックグラウンド大気として、群馬県衛生環境研究所（群馬県前橋市）にて UFP 観測を行い、広域的な UFP の組成を把握することを目指した。また、都市部高層ビル上層階（東京都豊島区“サンシャイン 60”の 6 階および 55 階）においても UFP の観測を行い、鉛直方向の UFP 挙動についても調査した。

(2)-① 図 2 に、夏季における道路近傍大気およびバックグラウンド大気における UFP の主要成分(EC、OC、 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 NH_4^+)濃度を示す。図中において、埼玉大学正門付近の国道 463 号線沿道を roadside、埼玉大学総合研究棟 10 階を 10 F、埼玉県環境科学国際センターを CESS、群馬県衛生環境研究所を Maebashi と表記している。

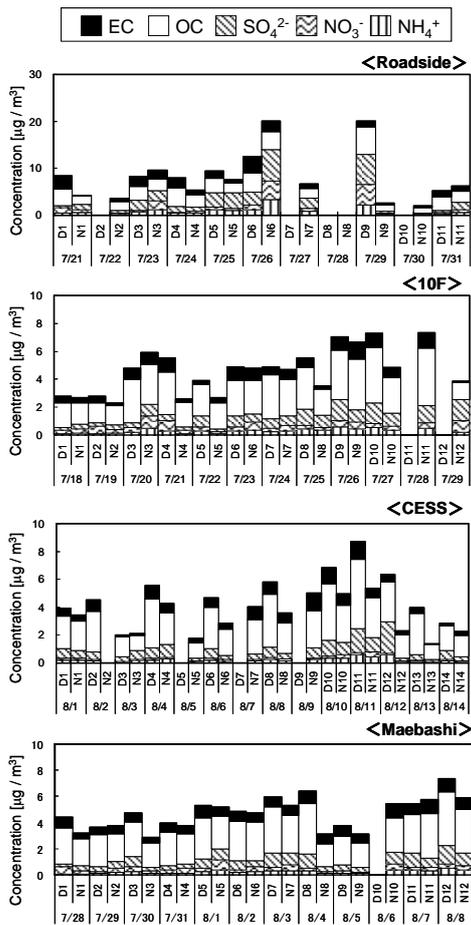


図2 夏季における各観測地点でのUFP主要成分濃度

図 2 より、大気中の UFP の主要な成分は、OC、EC といった炭素成分であることが分かった。また、道路近傍大気とバックグラウンド大気では寄与している組成が異なり、道路近傍大気中では UFP 中でイオン成分の寄与が高く、バックグラウンド大気中では OC 成分の寄与が高いことも分かった。夏季のイオン成分では、全体的に、硫酸イオン(SO_4^{2-})濃度が最も高くなっており、これは光化学生成の影響を示唆するものであった。

(2)-② 夏季および冬季の各観測地点における日中の平均成分濃度を図 3 に示す。季節別にみても、冬季のバックグラウンド大気中では、夏季の UFP 中に見られなかった塩化物イオン(Cl^-)や硝酸イオン(NO_3^-)、OC1 成分が観測され、これは、冬季は低温であるため、温度依存の高い NH_4NO_3 、 NH_4Cl といった塩類や揮発性の OC が揮発せずに UFP 中に含まれていたと考えられた。

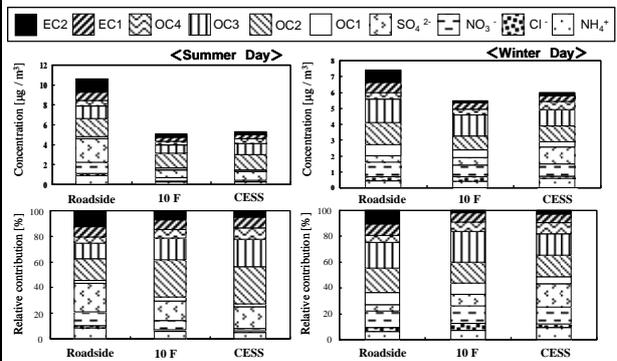


図3 日中におけるUFPの季節別平均成分濃度とその寄与率

(2)-③ 都市部高層ビルで観測した夏季および冬季における UFP 成分 (EC、WSOC、非水溶性有機炭素 (WIOC、OC から WSOC の値を引くことで算出)、 NH_4^+ 、 NO_3^- 、 SO_4^{2-}) の高度別平均濃度を図 4 に示す。

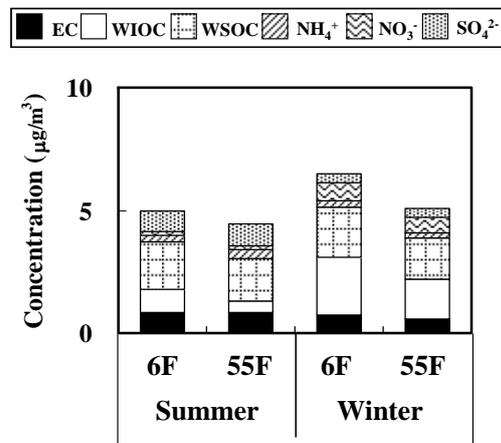


図4 高層ビルにおけるUFP平均成分濃度

図4より、夏季の6階と55階の全濃度がほぼ同程度であることが明らかとなった。これは、夏季の太陽光により大気が暖められ、上下混合が活発に起こっていたものと考えられる。

また、同地点においてPM_{2.5} (50%カットオフ径として2.5 μm以下の粒子) 観測も並行して行っていたことから、PM_{2.5}とUFPの主要な組成成分の平均割合を図5に示す。

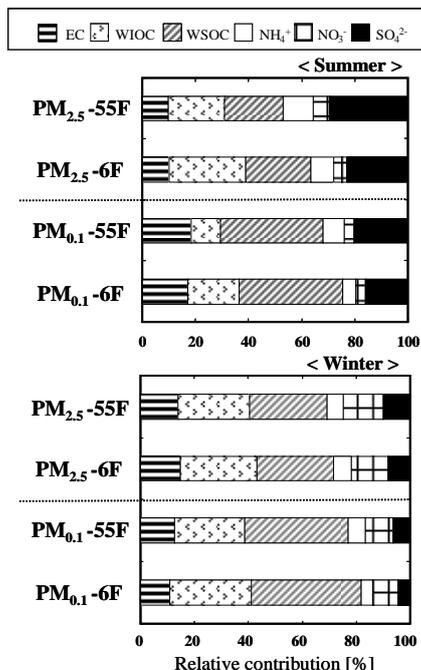


図5 高層ビルにおけるUFPおよびPM_{2.5}平均成分濃度の割合

夏季におけるUFPは6階、55階ともにWSOCおよびSO₄²⁻の割合が高く、光化学生成の影響がでているものと考えられる。冬季におけるUFPは、イオン成分に着目すると、夏季で割合の高かったSO₄²⁻よりも、NO₃の割合の方が高い結果となった。季節によりNO₃の割合とSO₄²⁻の割合の傾向が逆転するというこの結果は、PM_{2.5}の季節および高度別観測で報告されており、UFPにおいても、同様の傾向が得られることが分かった。UFPの空間分布の季節別観測結果から、UFPは気象条件の影響を顕著に受けることが示唆された。

高度別のUFPの組成は、季節によらず、55階よりも6階でWIOCの割合が高かったが、冬季はその差が顕著ではなかった。これは、55階よりも6階の方が発生源の一次排出の影響を強く受けていた一方で、冬季は、上空での光化学粒子生成割合が低下するために、夏季に比べ相対的に上空に移流したWIOCの粒子寄与割合が高くなったためと考えられる。また、イオン種については、55階において3つのイオン種をあわせた成分割合が高いことが明らかとなった。これはPM_{2.5}と同様の

傾向を示すものであった。イオン成分については、季節によってSO₄²⁻やNO₃⁻といったイオンの種類の割合に違いがあるものの、6階よりも55階の方で成分割合が高く、長い時間を経て、二次生成により粒子が形成されたためであると言える。

(2)④ ECは、化石燃料やバイオマスなどの炭素を含む物質の不完全燃焼により発生し、大気中での反応が生じないことから、発生源からの一次排出の指標とされる。このECが、都市部高層や郊外の大気中にも存在し、広域的に分布していることが確認された。

特に、高度別のUFP中でのEC濃度は、6階と55階でほぼ同じであり、観測期間中の経時変化の挙動も、季節に関係なく濃度差がなかった(図6)。このことから、大気の上下混合が起こりにくい冬季においても、UFPのECは拡散により、容易に上空に到達し、高度に関係なく平均的な濃度で観測されたものと考えられる。

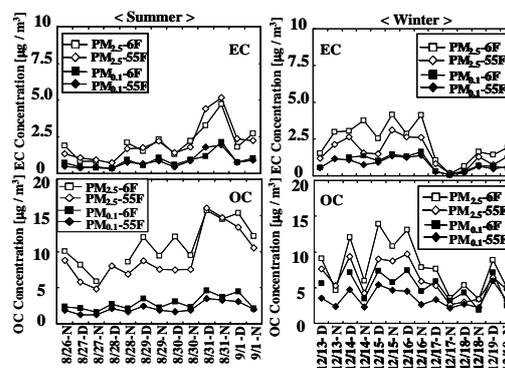


図6 高度別観測におけるOC、ECの経時変化

また、バックグラウンド大気中のEC成分を見てみると(図3)、夏季および冬季で季節変動がほとんどなく、異なる地点および期間で実施した埼玉大学総合研究棟10階ならびに埼玉県環境科学国際センターにおいても、EC濃度が同程度であることが分かった。これらのことから、UFPのEC成分は大気中で一様に遍在している可能性が示唆された。

道路近傍大気とバックグラウンド大気とではEC濃度が異なったが、道路近傍大気では、EC中のEC1成分とEC2成分が同程度、もしくは若干EC2成分の比率が高く、バックグラウンド大気では、EC中のEC1成分の比率が高くなり、特に冬季に顕著であることが確認された。このことから、道路近傍とバックグラウンド大気では、寄与しているEC発生源が異なる可能性が示唆される。なお、PM_{0.1}中の成分に関してPositive Matrix Factorization (PMF)解析を行ったところ、ECをEC1成分とEC2成分の別々の因子に分けることができ、UFP成分の指標の1つになり得る可能性が示唆された。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計6件)

- ① 工藤慎治, 関口和彦, 都市部高層ビルにおける超微小粒子の炭素成分挙動, 大気環境学会誌, 42, 369-376 (2007), 査読有
- ② 関口和彦, 石川信幸, 安原正博, 坂本和彦, 大谷吉生, 並木則和, インパクトフィルタの性能評価と大気中超微小粒子測定への応用, エアロゾル研究, 23, 278-288 (2008), 査読有
- ③ K. Sekiguchi, K. H. Kim, S. Kudo, K. Sakamoto, Y. Otani, T. Seto, M. Furuuchi, F. Yoshikawa, K. Ehara, M. Hirasawa, N. Tajima and T. Kato, Evaluation of multichannel annular denuders for a newly developed ultrafine particle sampling system, Aerosol and Air Quality Research, 9, 50-64 (2009), 査読有
- ④ R. Ortiz, K. Enya, K. Sekiguchi and K. Sakamoto, Experimental testing of an annular denuder and filter system to measure gas-particle partitioning of semivolatile bifunctional carbonyls in the atmosphere, Atmos. Environ., 43, 382-388 (2009), 査読有
- ⑤ 畑光彦, 白雲鶴, 吉川文恵, 福本将秀, 大谷吉生, 関口和彦, 田島奈穂子, 古内正美, 金沢外環状道路近傍とトンネル内で採取されたナノ粒子の特性, 日本海域研究, 40, 31-36 (2009), 査読無
- ⑥ 畑光彦, 白雲鶴, 古内正美, 福本将秀, 大谷吉生, 関口和彦, 田島奈穂子, 金沢角間地区におけるナノ大気エアロゾル粒子の現状と各種粒子捕集装置の粒子分級特性の比較検討, 日本海域研究, 40, 135-140 (2009), 査読無

[学会発表] (計8件)

- ① 関口和彦, 工藤慎治, 安原正博, 坂本和彦, 大谷吉生, 都市部超微小粒子の高度別観測, 第24回エアロゾル科学・技術研究討論会, 2007年8月10日, 国立保健医療科学院(和光)
- ② K. Sekiguchi, S. Kudo, M. Yasuhara, Y. Otani and K. Sakamoto, Sampling and analysis of atmospheric ultrafine particles at the upper and lower floors of a high-rise building in the urban area, Abstracts of the 5th Asian Aerosol Conference, 2007年8月27日, Kaohsiung, Taiwan
- ③ 関口和彦, 工藤慎治, 坂本和彦, 高層ビル上層階における超微小粒子の観測, 第48回大気環境学会年会, 2007年9月6日, 岡山理科大学(岡山)
- ④ 関口和彦, 金庚煥, 坂本和彦, 大谷吉生, 瀬戸章文, 古内正美, 吉川文恵, 榎原研正, 平澤誠一, 田島奈穂子, 加藤孝晴, 新規超微小粒子捕集システム開発のための

多重管デニューダー性能評価, 第25回エアロゾル科学・技術研究討論会—国際シンポジウム, 2008年8月21日, 金沢大学(金沢)

- ⑤ 白雲鶴, 古内正美, 大谷吉生, 塚脇真二, Hang P., Sieng S., Limpaseni W., Takasakul P., 関口和彦, 田島奈穂子, アジア地域の都市大気中ナノ粒子濃度と多環芳香族化合物の特性, 第25回エアロゾル科学・技術研究討論会, 2008年8月22日, 金沢大学(金沢)
- ⑥ L. Bao, K. Sekiguchi, Q. Wang and K. Sakamoto, Chemical characterization of water-soluble organic acids in size-segregated particles at roadside and suburban sites, 第25回エアロゾル科学・技術研究討論会, 2008年8月22日, 金沢大学(金沢)
- ⑦ 白雲鶴, 古内正美, 大谷吉生, 畑光彦, 中村早紀子, 福本武秀, 関口和彦, 田島奈穂子, 道路近傍で採取されたナノ粒子中の多環芳香族化合物の特性, 第25回エアロゾル科学・技術研究討論会—国際シンポジウム, 2008年8月22日, 金沢大学(金沢)
- ⑧ 関口和彦, 工藤慎治, 安原正博, 坂本和彦, 大谷吉生, 都市部および郊外における超微小粒子成分の観測, 第25回エアロゾル科学・技術研究討論会—国際シンポジウム, 2008年8月22日, 金沢大学(金沢)

6. 研究組織

研究代表者

関口 和彦 (SEKIGUCHI KAZUHIKO)

埼玉大学・大学院理工学研究科・助教

研究者番号：50312921