

道路沿道環境における微小粒子状物質（PM_{2.5}）及びナノ粒子に及ぼす要因に関する調査研究

公益社団法人 大気環境学会
沿道 PM_{2.5}・ナノ粒子研究会

【調査の目的】

道路沿道大気における微小粒子状物質（PM_{2.5}）やナノ粒子（以降、PM_{2.5}等）の改善を図るためには、周辺のバックグラウンド大気の影響と自動車排気の影響とを区別して把握し、その寄与に応じた適切な対策を講ずる必要がある。特に、ディーゼル車からの元素状炭素粒子（EC）の寄与が著しく減少している状況においては、ECに加えて、これまで寄与が少ないと考えられていた有機成分やイオン成分、その他の元素等の粒子を構成する各成分に対する自動車の寄与を明確にすることが重要である。また、今後、PM_{2.5}等の環境改善策を検討するためには、これまでの各種対策の効果を評価し、改善効果の高い対策を講ずることが必要である。

さらに、道路沿道大気環境改善策を検討するためには、上記の沿道環境の現状把握に加えて、自動車からのPM_{2.5}等の汚染物質排出量を車種や年式ごとに精度良く把握し、その排出寄与に応じて、削減計画を立案する必要がある。自動車からの汚染物質排出量は、排気対策が高度になるに従い、排気浄化装置の劣化や冷間始動時の排出増加などの影響が大きくなりつつある。現在は、基本排出量（市場における標準的な新車の排出量）に対する排出補正という形で、基本排出量に付加されているが、推計を実施している機関により、その補正量が異なるなど、不確実性が高いため、今後の対策を講ずる上で障害になると推察される。

以上のような現状を踏まえ、本研究では、道路沿道のPM_{2.5}等の環境改善策を検討するための基礎資料を提供することを目的とし、道路沿道におけるPM_{2.5}等を構成する各成分を分析して粒径区分毎に自動車の寄与を把握することに加え、これまでの道路沿道における粒径分布や組成についての観測結果を解析し、排出量推計結果と併せて各種削減対策の効果を評価する。

さらに、自動車からの排出量推計について、これまで未把握のガソリン車由来のPM_{2.5}排出量を推計・追加することに加え、排気浄化装置の劣化等の不確実性の高い排出補正についても検討を加える。特に、排出量推計に際しては、その透明性や利害関係者の同意が必要であるが、これらの要件を確保するため、自動車排出量推計の専門家に加えて、行政、自動車業界等の関係者を含めた自動車排出量推計手法検討ワーキンググループ（以下「排出量推計WG」という。）を設置して検討を行い、今後の基準となりうる排出量推計手法を提示する。

【調査の方法】

本調査研究は、

- ・道路沿道におけるPM_{2.5}等に及ぼす要因解析
- ・自動車からのPM_{2.5}排出量推計

の2課題から構成され、平成26年度から平成28年度の3ヵ年計画で実施する。

以下に各研究課題の調査方法について述べる。

1. 平成 26 年度

1.1 道路沿道における PM_{2.5} 等に及ぼす要因解析

1.1.1 道路沿道におけるナノ粒子を含む微小粒子の粒径分布測定（連続測定）

川崎市臨港警察署前交差点において、PM_{2.5} 質量濃度および粒径 0.5-20μm の粒径別粒子数の連続測定を開始する。ナノ粒子やガス成分については、沿道 PM_{2.5}・ナノ粒子研究会のメンバーである国立研究開発法人国立環境研究所（以下「国環研」という。）が同地点で実施している観測データを活用して、ナノ粒子を含めた広範囲の大気粒子についてのデータを蓄積する。さらに、環境省から国環研が委託された「自動車から排出される粒子状物質の粒子数等排出特性実態調査」業務によって蓄積されたデータを解析し、粒径区分毎に自動車排気の影響を把握する。

1.1.2 沿道大気および後背地における粒径別エアロゾル試料を用いた自動車排気由来の寄与率の推定

平成 27 年 1 月頃に川崎市臨港警察署前交差点とその後背地において、粒径別に粒子を捕集し、その構成成分を分析して、発生源寄与率推定の基礎データを得る。

1.2 自動車からの PM_{2.5} 排出量推計

1.2.1 ガソリン車からの PM 排出量データ収集

国内外の文献、調査資料をもとにガソリン車からの PM 排出データを収集、整理する。

1.2.2 排出量推計手法の検討

幹線道路及び細街路の走行量の車種別走行量配分や貨物車の走行時車両重量別・年式別・車種別走行係数等の、主に交通や車両の保有等に関する項目についての検討を行う。

2. 平成 27 年度

2.1 道路沿道における PM_{2.5} 等に及ぼす要因解析

2.1.1 道路沿道におけるナノ粒子を含む微小粒子の粒径分布測定（連続測定）

前年度に引き続き、川崎市臨港警察署前交差点において、PM_{2.5} 質量濃度および粒径 0.5-20μm の粒径別粒子数の連続測定を行い、データを蓄積する。

2.1.2 沿道大気および後背地における粒径別エアロゾル試料を用いた自動車排気由来の寄与率の推定

前年度と同様に、交差点および後背地において平成 27 年 8 月頃、平成 28 年 1 月頃の 2 回、粒径別の粒子捕集を行い、発生源寄与推定のための粒径毎の組成データを蓄積する。

2.2 自動車からの PM_{2.5} 排出量推計

2.2.1 ガソリン車からの PM 排出係数の設定

前年度収集したデータを解析し、ガソリン車の PM 排出係数を設定する。

2.2.2 排出量推計手法の検討

環境条件による排出量の補正、排気浄化装置の劣化や高排出車による排出補正など、主に排出量の補正方法についての検討を行う。

3. 平成 28 年度

3.1 道路沿道における PM_{2.5} 等に及ぼす要因解析

3.1.1 道路沿道におけるナノ粒子を含む微小粒子の粒径分布測定（連続測定）

前年度に引き続き、川崎市臨港警察署前交差点において、PM_{2.5} 質量濃度および粒径 0.5-20μm の粒径別粒子数の連続測定を平成 28 年 9 月まで継続し、データを蓄積する。

3.1.2 沿道大気および後背地における粒径別エアロゾル試料を用いた自動車排気由来の寄与率の推定

前年度と同様に、交差点および後背地において平成 28 年 8 月頃、粒径別の粒子捕集を行い、発生源寄与推定のための粒径毎の組成データを蓄積する。

3.1.3 データの解析

約 2 年間の連続測定および集中観測データに、別途実施された交差点の気象要素、粒径 10 nm から 0.5μm の間の粒径別粒子数、ガス（NO, NO₂, CO, SO₂）データを集約する。粒径別粒子数データ、粒径別試料や PM_{2.5} 試料の成分毎濃度などのデータを用いて、発生源寄与を解析し、沿道および後背地の大気環境に及ぼす自動車の寄与を明らかにする。

3.2 自動車からの PM_{2.5} 排出量推計

平成 26, 27 年度に検討した結果をもとに、ガソリン車を含めた自動車からの PM_{2.5} 排出量を推計する。さらに、推計手法についての検討結果を取りまとめる。

【調査の結果】

1. 道路沿道における PM_{2.5} 等に及ぼす要因解析

図 1 に調査区域周辺図を示す。

川崎市池上新町にある川崎臨港警察署前交差点（以降、池上あるいは交差点と呼ぶ）を中心に測定を行った。当該交差点は、東西に産業道路があり、南北には川崎駅と工場地帯を結ぶ道路が直交し、さらに産業道路に重層して首都高の高架道路がある。この交差点の北側には、住宅街が広がっている。南西側には池上新田公園が面しており、その一角の交差点に近い場所に観測小屋がある。この観測小屋は国環研が 2003 年に設置し、それ以来



図 1 調査区域周辺図

来大気質のモニタリングを行っているもので、この観測小屋を利用した。この観測小屋から産業道路沿いを西に 100 m ほど行ったところに自排局（池上新田公園前）がある。また、産業道路から直交距離で 160 m 離れた所に中留公園（以降、中留あるいは後背地と呼ぶ）があり、その一角

にも夏季の集中観測として2015年7月23日から8月24日まで、また冬季の集中観測として2016年1月7日から2月8日まで観測小屋を設置して測定を行った。測定項目は常時監視測定項目に加え、粒径別の粒子数(10 - 20000 nm)である。なお、2011年に池上の交通量調査を行ったところ、平日5日間の平均として24時間の総交通量は52,000台、大型車混入率は25%であった。本稿では、夏季の比較として、昨年度の2015年1月7日から2月9日に行われた冬季の集中観測の結果も合わせて示す。

1.1 道路沿道におけるナノ粒子を含む微小粒子の粒径分布測定(連続測定)

解析した観測データは池上の2014年11月1日から2015年8月31日のデータとした。粒径別の粒子数は走査型モビリティパーティクルサイザー(Scanning Mobility Particle Sizer : SMPS)および空気力学的粒径分布測定装置(Aerodynamic Particle Sizer : APS)によって測定した。SMPS、APSは3分間で1データを取得し、他の装置による測定項目は1分毎にデータを習得した。これらのデータを1時間平均して解析に用いた。PM_{2.5}の連続測定装置はベータ線吸収方式であり、標準測定法との等価性を有する装置として評価された機種を用いた。その装置は屋外に設置し、SPMインレットを地面から3mの高さになるように設置した。その下流にPM_{2.5}カットのVSCサイクロンを経て測定部に導入した。それ以外の装置への試料空気の導入は、最長2.7mの銅管、タイゴンチューブ、テフロンチューブ等を用い、取り込み口を外に突きだして採気した。同じ測定項目の場合は、池上と中留で同じ材質、管径、長さを揃えた。

図2に個数濃度(PN)、PM_{2.5}濃度の時系列を示す。本解析期間の交差点(池上)における個数濃度およびPM_{2.5}の平均値は 2.9×10^4 個 cm⁻³、16.4 μg m⁻³であった。後背地(中留)は冬季(1-2月)と夏季(7-8月)の集中観測期間のみの計測である。後背地における夏季の集中観測期間の個数濃度およびPM_{2.5}の平均値は 1.4×10^4 個 cm⁻³、20.8 μg m⁻³であり、その時の交差点における平均濃度は 2.2×10^4 個 cm⁻³、20.1 μg m⁻³であった。冬季のPNは、後背地に比べて交差点での濃度が4倍程度高い結果であったが、夏季は2倍程度の差に収まっている。一方、PM_{2.5}はPNに比べ交差点と後背地の濃度差は小さかったが、夏季は後背地で逆に濃度が高い結果となった。図3に個数粒径分布(10-500 nm)の時系列を示す。色が黒ほど濃度が高いことを示す。交差点では4月くらいまで粒径10-30 nmの範囲で比較的濃度が高い状態が続き、夏にかけて低下している。7月になると比較的大きな粒径(100 nm前後)で濃度が高い傾向にある。後背地では冬季に比べて夏季で濃度が高く、特に粒径100 nmの粒子濃度が高い。夏季の100 nm付近の粒子の濃度増加は二次生成による影響と考えられる。図4に集中観測期間2015年1-2月および7-8月のPM_{2.5}濃度、NO_x濃度、個数濃度の交差点(池上)と後背地(中留)の濃度差の日内変動を示した。なお、NO_x濃度は沿道においてはディーゼル車の指標となる。昨年度の報告書で記したように、朝方は交通量のパターンと同期して各汚染物質濃度も増加し、午後は大気境界層の発達の影響を受けた日内変動となっていると考えられる。夏季の特徴としては、NO_xでは二地点間で濃度差がみられるが、PNではNO_xほど大きな差がみられない。これは夏季の気温の上昇で自動車から排出された揮発性の粒子が蒸発し、交差点でのPN濃度が減少したからと推察される。一方、夏季のPM_{2.5}は交差点と後背地の濃度差はほとんどみられない。これについては風向別の解析データで考察する。

風向のデータをみると、冬季は北風が卓越し、交差点では交差点からの風の場合が多く、後背地では北方の住宅街を通過してきた風を受ける状況であった。夏季の交差点では0-45度すな

わち交差点からの風と、真逆の風（180-225 度）が卓越していた。後背地では 45-240 度と大きくばらついているが、いずれにしてもその方角は産業道路側からの風が卓越することになる。図 5 に風向別に $\text{PM}_{2.5}$ および PN の濃度を平均して比較した結果を示す。表示の度数から ± 45 度に入るデータを用いて平均した。興味深いことに交差点においては、南風（180 度）の場合に $\text{PM}_{2.5}$ が高くなる傾向にあった。交差点の南側は公園であるが、その先に製鉄所、港があることから、それら（自動車以外の発生源）の影響を受けた可能性がある。 SO_2 についても同様の解析を行ったところ、やはり南風の場合で濃度が高い結果であった。先に示したように、夏季の $\text{PM}_{2.5}$ 濃度は交差点と後背地で濃度差が小さい結果であった。これは、南あるいは南東の風が卓越した後背地においては、自動車以外の発生源の影響を強く受けており、自動車の影響が見えづらくなっていたものと考えられる。冬季は大部分の時間帯が北風であったことから、南にある自動車以外の発生源のフィルター試料への影響は限定的と考えられるが、風向別に整理すると夏季と同様の傾向が見えてくる。一方、PN については、冬季は道路上で発生したナノ粒子の影響が大きく、交差点では交差点からの風の場合の方が高濃度であった。後背地でも同様である。夏季も交差点では NO_x としては交差点からの風の場合の方が高濃度であるため、ディーゼル車の影響を受けていたと考えられるが、PN でも南風の場合が高濃度である。道路上で発生したナノ粒子がすぐさま揮発するため、他の発生源由来の粒子の影響が冬季より顕著になるからと考えられる。これらの解析から、道路上だけではなく、交差点の南に自動車以外の大きな粒子状物質の発生源があり、その影響を受ける場合があること、特に、風向きの関係から夏季の $\text{PM}_{2.5}$ 、PN は、交差点であってもその影響を強く受けることが示唆された。

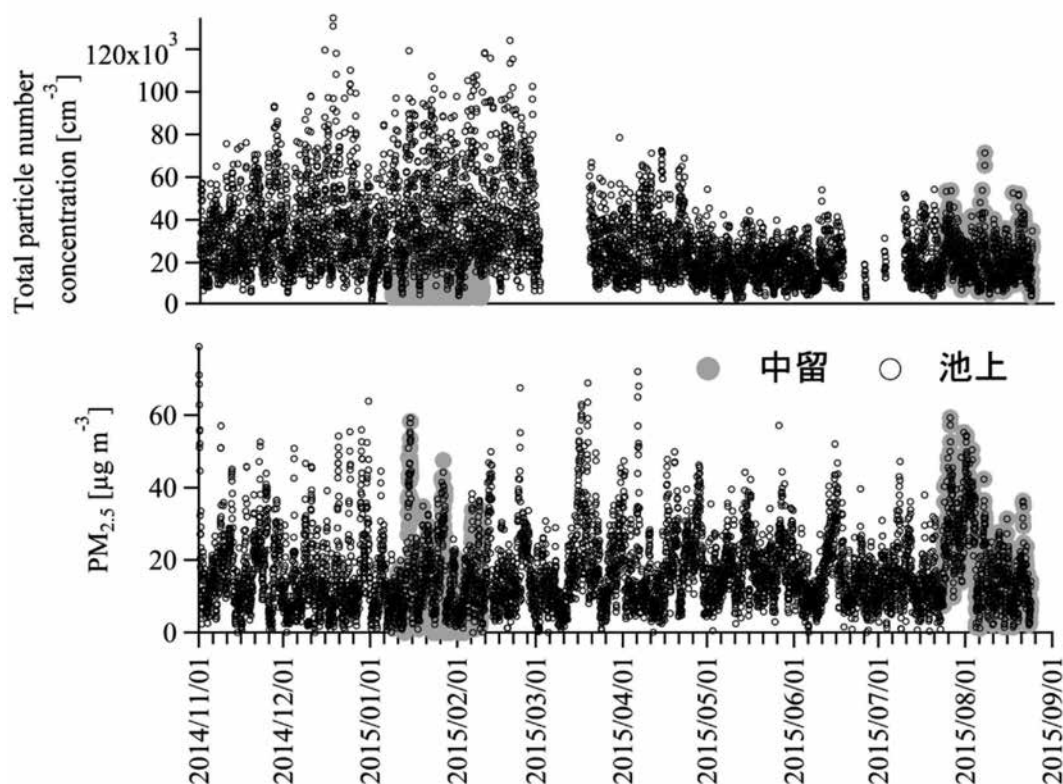


図2 川崎臨港警察署前交差点および中留公園（後背地）における個数濃度および $\text{PM}_{2.5}$

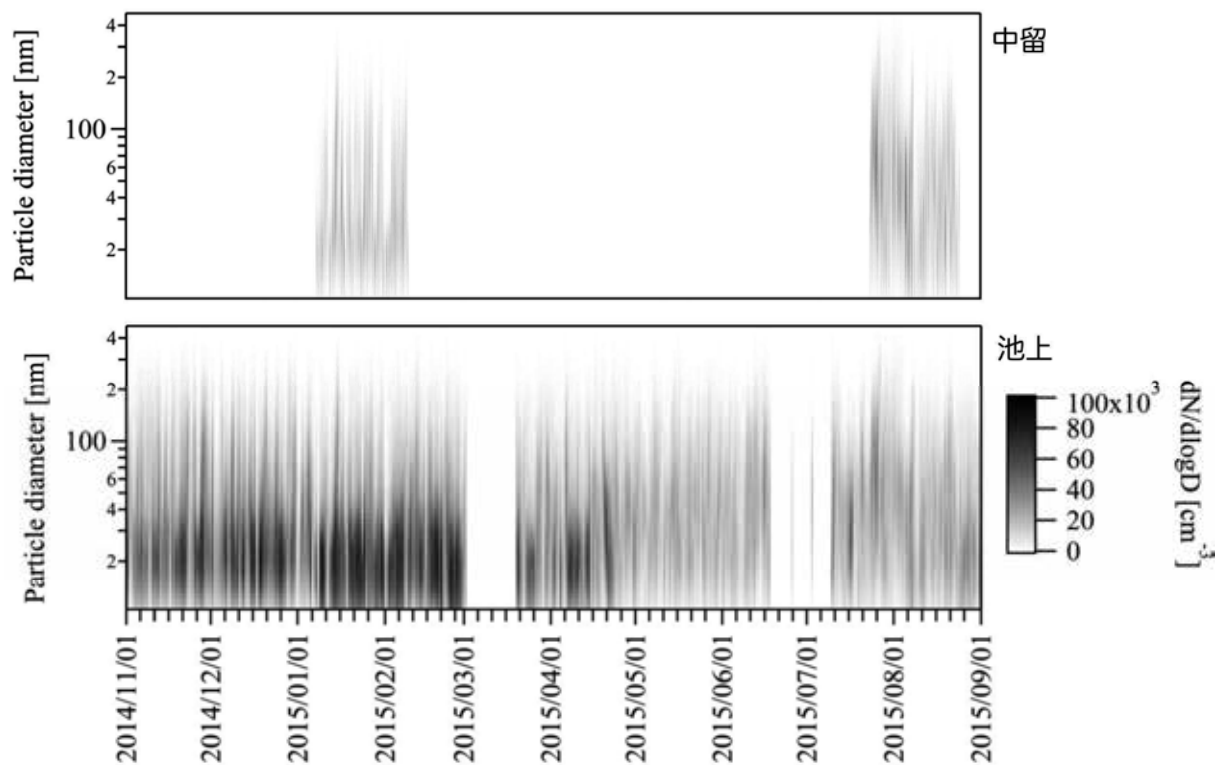


図3 川崎臨港警察署前交差点および中留公園（交差点）における個数粒径分布

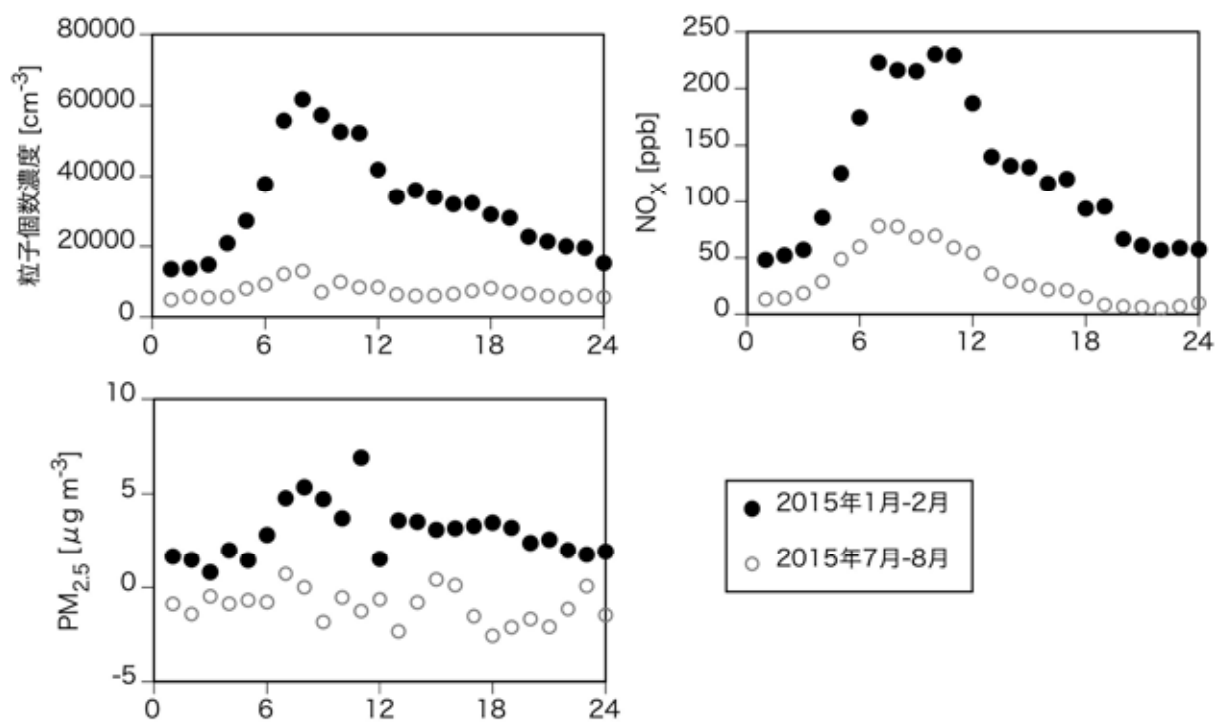


図4 交差点と後背地の濃度差 日内変化 2015年1-2月および7-8月

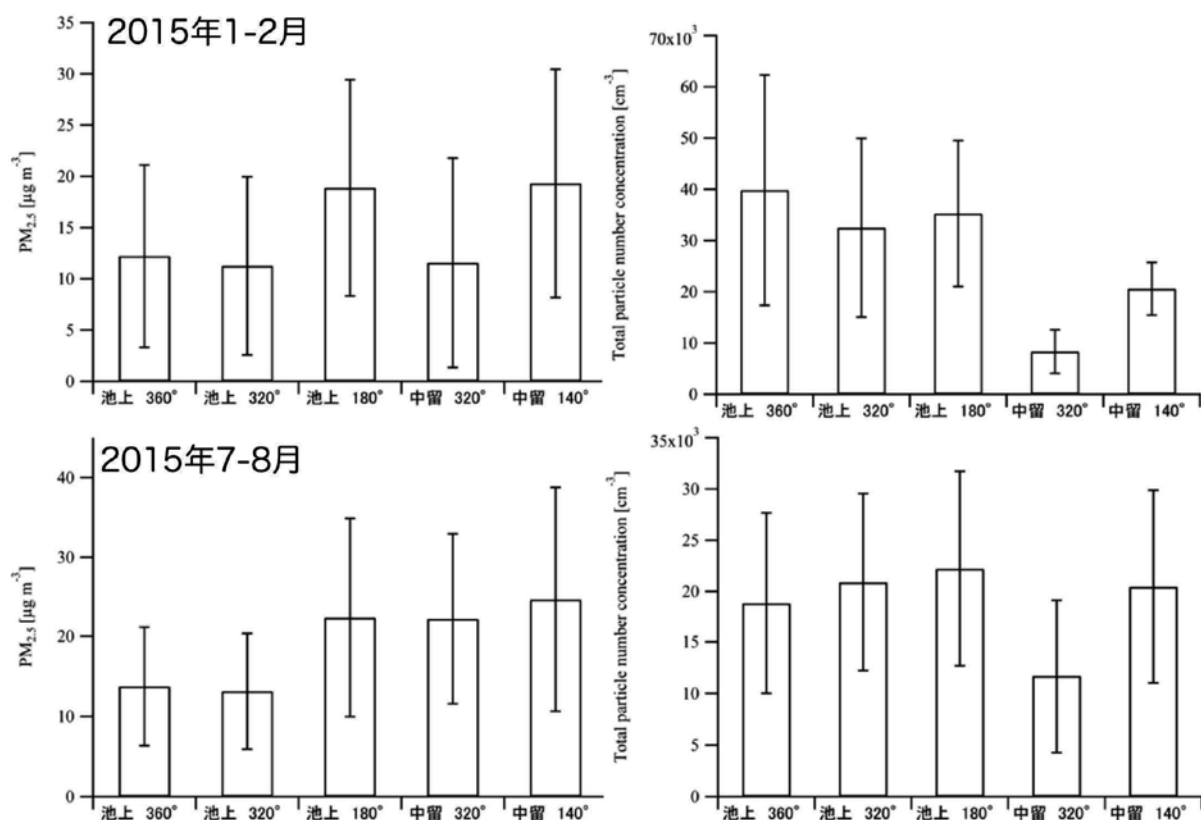


図5 PN・PM_{2.5}の風向との関係

1.2 沿道大気および後背地における粒径別エアロゾル試料を用いた自動車排気由来の寄与率の推定

本年度の粒子の捕集は2015年8月3日(月)-7日(金)、2016年1月18日(月)-22日(金)に池上(交差点)と中留(後背地)で同時に行った。本稿では、夏の結果と昨年度の冬季の結果と合わせて示す。図6に捕集方法、捕集メディア、分析項目を示す。本研究ではPM_{2.5}の捕集はFRM サンプラー(Thermo 社製あるいはR&P 社製、Model 2000)を各場所に2台ずつ、計4台用いて行った。本体は屋外に設置し、SPM インレットを地面から3mの高さになるように設置した。その下流にPM_{2.5}カットのVSC サイクロンを経てフィルターに捕集した。サンプリング開始時刻は11時、終了時刻は次の日の10時半とし、23.5時間、16.7 L min⁻¹で採気した。粒径別試料の採取は、低圧多段分級インパクター(NanoMoudi II、Model 125B、MSP 社製)を各場所に2台ずつ、計4台用いて行った。本装置の50%カット径は、10、18、32、56、110、180、290、560、1000、1800、2100、6200、9900 nmであり、バックアップフィルターと合わせて、14粒径区分の試料が捕集できる。8月3日13時に捕集を開始し、96時間後の8月7日13時に終了した。その間、10.2 L min⁻¹で採気した。NanoMoudi IIは室内に設置し、銅管(長さ2.6 m、内径6 mmφ)を用いて屋外大気を吸引し試料を採取した。

図6に示すように、FRM サンプラーとNanoMoudi IIのバックアップフィルターにはテフロンフィルター(47mmφ、TFH-47R、HORIBA)および石英繊維フィルター(47mmφ、Pallflex 2500QAT-UP、Pall)を用いた。NanoMoudi IIのインパクション面の捕集材には金ホイル(47 mmφ、厚さ17 μm、三菱マテリアル)およびポリカーボネートフィルター(47 mmφ、Nuclepore Track-Etch Membrane

Filtration Products、Whatman) を用いた。金ホイルはアセトンで洗浄した後、サンプリングに使用した。石英繊維フィルターは、ガス状成分の余分な吸着を避けるため、加熱処理せずそのままサンプリングに用いた。インパクション部やフィルター押さえリング、ノズル部等はサンプリング前に有機溶媒で洗浄した。粒子質量は、テフロン、石英、金ホイルを用いて採取した試料の粒子質量を、サンプリング前後の捕集材の秤量値の差から算出した。秤量は温度 21.5℃、相対湿度 35% に調整されたチャンバー (CHAM-1000、HORIBA) 内で、電子天秤 (UMX2、Mettler Toledo、最小表示 0.1μg) を用いて行った。1 つのサンプルにつき 2 回秤量を行い、その平均値を秤量値とした。ただし、2 回の秤量値の差が 2 μg (テフロン)、4 μg (石英)、0.5 μg (金ホイル) を超えた場合には再度秤量を行い、許容誤差以下となった 2 つの秤量値を平均した。石英繊維フィルターのサンプルはチャンバー内で 24 時間以上恒量したが、金ホイルのサンプルは、捕集材自身の吸湿性は無視し得るため、秤量前の恒量は行わなかった。炭素分析は金ホイル、石英繊維フィルター試料で行った。元素状炭素 (EC) と有機炭素 (OC) の分析は、熱分離・光学補正式炭素分析計 (DRI Model 2001 Carbon Analyzer、以下「Carbon Analyzer」) を用いて行った。Carbon Analyzer では段階的に試料を加熱し、揮発温度の差を利用して EC と OC を分離・定量する。分析中に試料の反射光・透過光をモニターすることで、OC の炭化を補正することができるが、金ホイルサンプルに対しては正確な光学補正ができないため補正は行わなかった。分析条件には IMPROVE プロトコル (OC1: 120° C、OC2: 250° C、OC3: 450° C、OC4: 550° C (以上、He 雰囲気)、EC1: 550° C、EC2: 700° C、EC3: 800° C (以上、2%O₂/98%He 雰囲気)) を用いた。なお、OC = OC1 + OC2 + OC3 + OC4、EC = EC1 + EC2 + EC3、TC = OC + EC とする。NanoMoudi II のインパクターサンプルは、ブランクを一定にするためまずホイルを 28 mm φ に打ち抜き、その一部を扇状に切り取り分析し、面積比に基づき各ステージの定量値を算出した。NanoMoudi II のバックアップフィルターサンプルは、8 mm φ に打ち抜き分析し、面積比に基づき定量値を算出した。水溶性のイオン成分はテフロンフィルターおよびポリカーボネートフィルターの試料をイオンクロマトグラフィーにより分析した。元素成分はテフロンフィルターおよびポリカーボネートフィルターの試料を Particle Induced X-ray Emission (PIXE) 法により定量した。図 7 に粒子質量濃度に対する主成分の化学組成を示す。交差点と後背地で大きくかわるところは冬季のナノ粒子領域の EC、元素の粒径 560-1800 nm である。小粒径側で炭素成分が卓越する傾向にあることが分かる。また、PM_{2.5} 試料では、季節場所によらず炭素成分としては 2 割ほど占めているが、冬季の沿道では EC の割合が比較的高い傾向にある。

図 8 に 2015 年 1 月の結果、図 9 に 2015 年 8 月の結果を示す。2015 年 1 月の質量、EC、OC は昨年度も報告したが、夏季との比較のため再掲する。NanoMoudi II は 4 つの粒径区分にまとめて示した。10-56 nm はナノ粒子領域、100-320 nm はディーゼル排気に含まれる微粒子 (DEP) が最も含まれている粒径領域であり、微小粒子の小粒径側、560-1800 nm は微小粒子の大粒径側の粒径領域、3200-10000 nm は粗大粒子として区切った。先の風向別の解析から、冬季の交差点と後背地の比較は、都市バックグラウンド (後背地: 中留) と自動車の影響を強く受けている状態 (交差点: 池上) の比較となっている。一方、夏季のサンプリング期間中は、南風が卓越しており、交差点と後背地の両地点とも自動車以外の発生源の影響を受けた状況であり、交差点と後背地の比較により自動車の影響を明確に比較している状況になっているとは言い難い。夏季の結果は冬季と同様、いずれの地点も微小粒子が最も濃度が高く、粗大粒子、ナノ粒子の順であった。FRM

サンプラーによる捕集結果はフィルターメディア別に示しているが、テフロンフィルターと石英繊維フィルターの結果はほぼ同等であった。夏季のPM_{2.5}の平均濃度は交差点、後背地それぞれ19.2 µg m⁻³、18.1 µg m⁻³であり、いずれの試料も環境基準を下回っていた。全体的に交差点/後背地比が下がる中で、元素の560-1800 nm 領域だけは冬季と同様に濃度比が大きい結果となった。

いずれの試料でも検出されている鉄を基準に、元素の地殻構成比から各元素の濃縮係数を算出した。図10はその値の交差点と後背地の比を示したものである。元素は粒径560-1800 nmで交差点で濃度が顕著になっていたが、その粒径領域で濃縮係数でも比が1倍以上になった元素は、チタン、コバルト、ニッケル、銅、水銀であり、両季節とも1以上の比となっていた。また、他の粒径領域で、両季節共通して比が1以上となった元素は、ケイ素(100-320 nm)、チタン(PM_{2.5})、マンガン(100-320 nm、3200-10000 nm)、銅(100-320 nm、3200-10000 nm、PM_{2.5})、モリブデン(100-320 nm、PM_{2.5})であった。また、両季節で再現性はないものの、アルミ、クロム、亜鉛、鉛は2倍以上となる結果であった。特にモリブデンは両季節で2倍以上であった。図10中で他の粒径範囲に値がないのは、交差点では測定されたが、後背地では検出下限以下だったことに起因する。モリブデンは地殻の構成比としては1.5 ppmと小さいが、エンジンオイルに含まれている元素である。また、粉じんの再飛散実験による内部データ(国立環境研究所特別研究、2008)によると、道路の巻き上げ粉じんには、クロム、ニッケル、銅、亜鉛、モリブデン、鉛が土壤に比べて5倍以上含まれていた。また近年のブレーキ摩耗粉じんには鉄、銅、亜鉛が検出されているという報告(萩野ら、大気環境学会要旨集、2013)がある。いずれの発生源での測定でも、粗大粒子だけでなく、PM_{2.5}でもこれらの元素が検出されている。交差点と後背地の比較から、交差点では排気由来と考えられるモリブデンや、巻き上げ粉じんやブレーキ摩耗粉じん等の非排気由来と考えられる多くの元素種の濃度がエンリッチしていることが分かった。また、他の発生源の影響を受けている中でも微量元素では自動車の影響が見えたと言える。

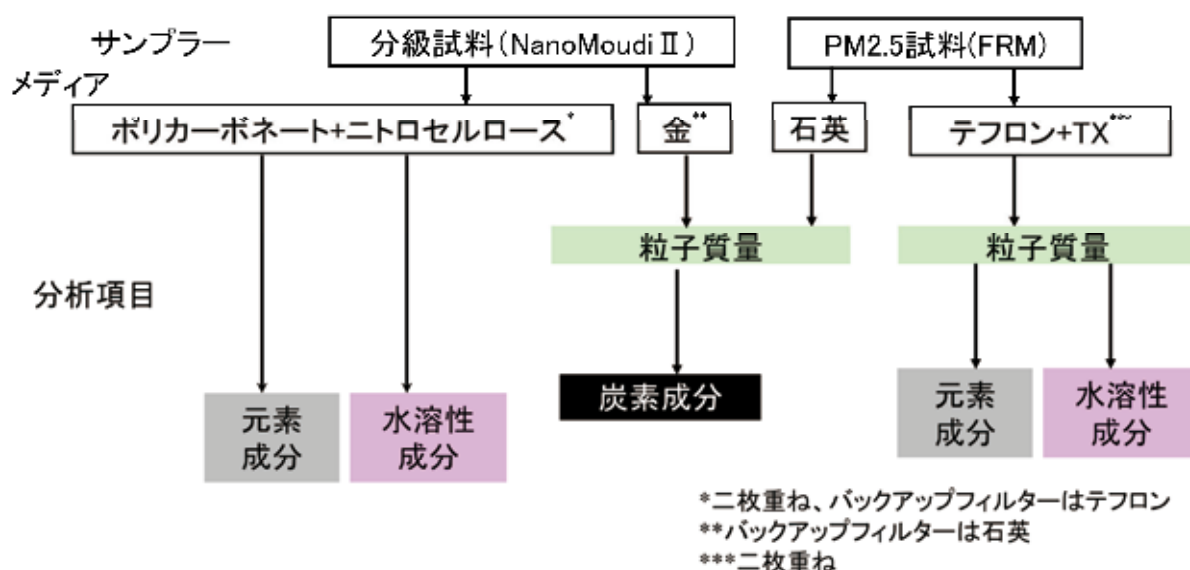


図6 サンプラー、捕集メディアおよび分析項目

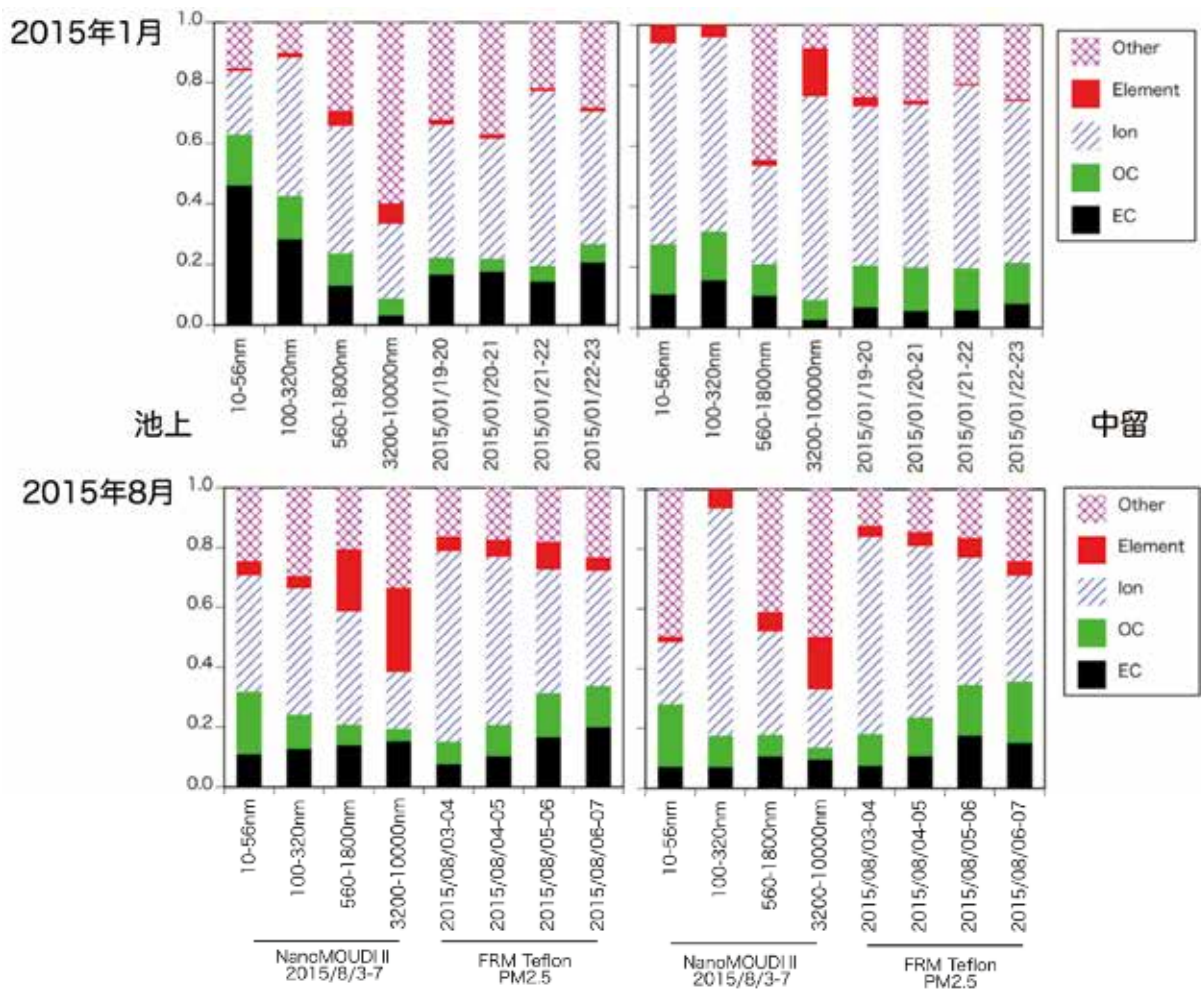


図7 化学組成 2015年1月、8月

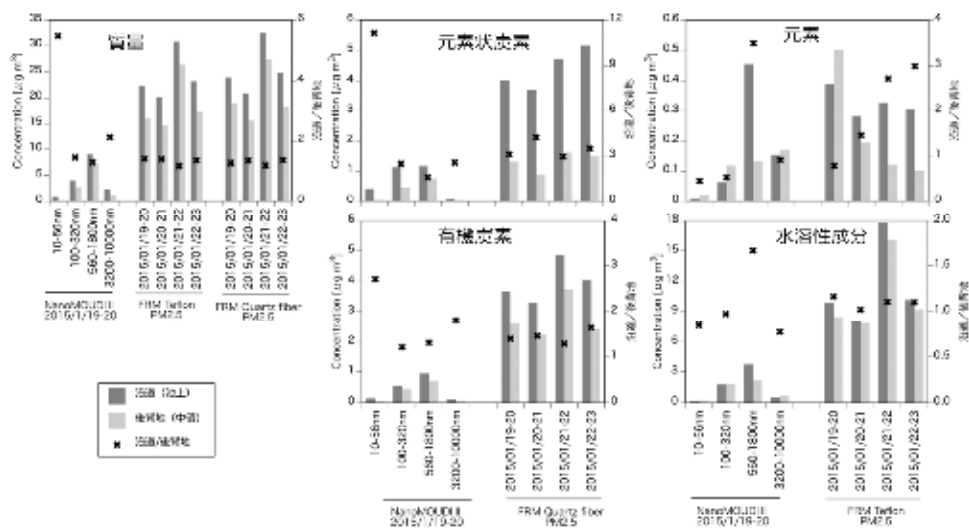


図8 濃度比較 2015年1月

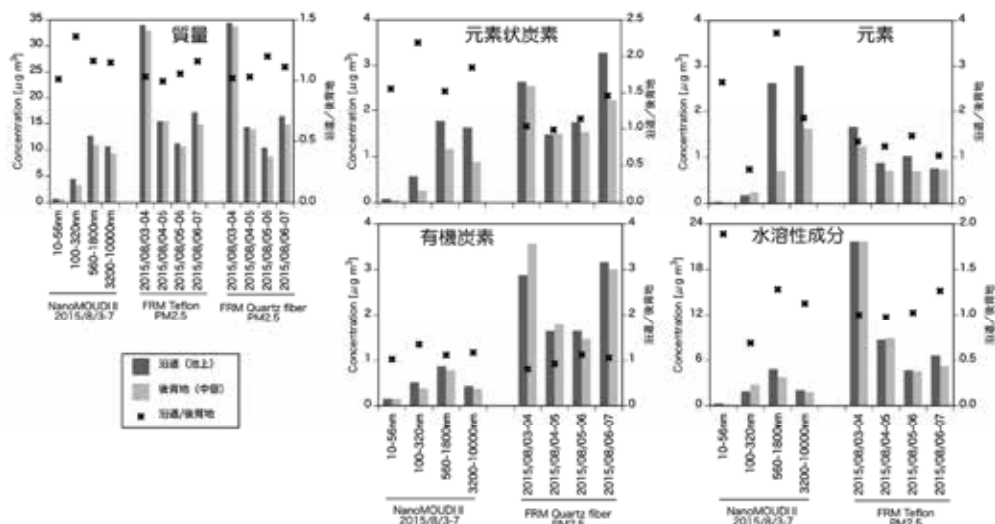


図9 濃度比較 2015年8月

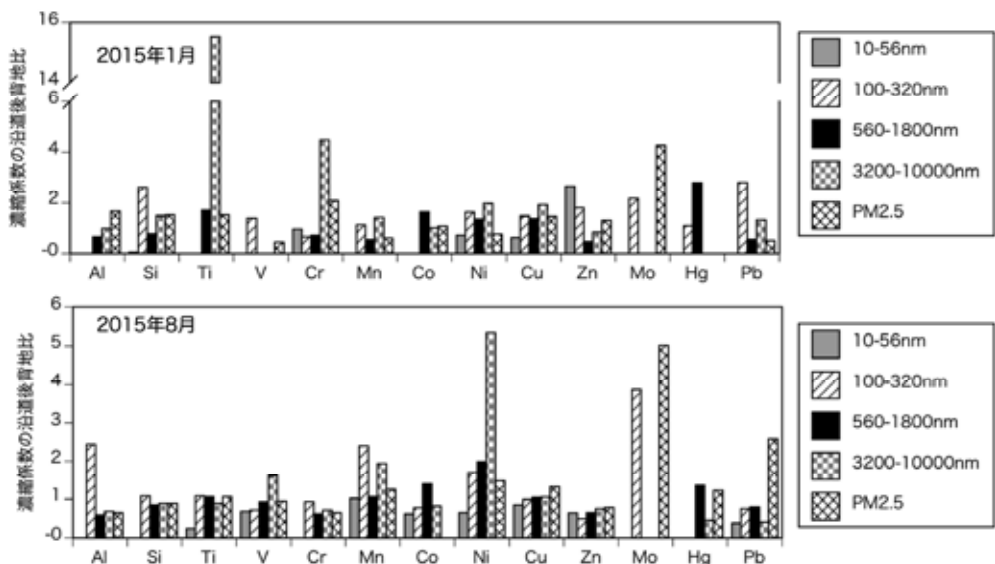


図10 地殻構成比に対する濃縮係数の交差点と後背地の比較 2015年1月、8月

次に、長期的な大気濃度の変動の要因について考察した。図11に交差点における普通貨物の交通量および排出ガス規制車別構成率を示す。これは、環境省が実施している自動車交通環境影響総合調査で行われているナンバープレート調査から2002-2013年の神奈川県、東京都、千葉県、埼玉県の約150地点におけるディーゼル普通貨物車の排ガス規制年別の走行量情報を解析して得た。なお、全ディーゼル車に占める普通貨物ディーゼル車の割合はおよそ70%である。観測地点に近い情報は川崎区池上町産業道路であるが、2009-2013年の情報に限られるため川崎区池上町産業道路における2004年以降のディーゼル普通貨物に占める各規制年別の構成率は、川崎区池上町産業道路の情報(2009-2013年)と神奈川県の情報(2004-2013年)の比較から推定した。2004年以降のディーゼル普通貨物24時間交通量の経年変化は、2011年の交通量で規格化した川崎区池上町産業道路の経年変化(2009-2013年)と全ての地点の経年変化(2004-2013年)との比較から得た。この相対経年変化を2011年に実施した本交差点での交通量調査で得られた普通貨物走行量の実測値に掛け合わせて各年の実走行量を試算した。車両台数としては微減の傾向であり、年を追う毎に新規の規制に対応した車両に入れ替わっていることが分かった。

図 12 に各規制年別に排出係数を設定し、ディーゼル普通貨物車の排ガス規制年別の走行量をかけあわせて 2005 年の PM 排出量を 1 としたときの相対的な経年変化を大気濃度の経年変化とともに示す。なお、排出係数の推計は PM_{2.5} 排出量推計 WG で行った。大気濃度は本交差点において、国環研が取得したデータを用いた。大気濃度としては、粒径 50 nm 以下の個数濃度の年間平均値、EC はカスケードインパクタで捕集された各粒径範囲の濃度であり、主に夏季、冬季一週間ずつのサンプリングで得られた平均値である。2003 年から測定が開始されているが、PN、EC の情報が他の年度と直接比較できない状態のため 2005 年を基点とした。2005 年から 2006 年にかけて交通量の大幅な減少に伴い PM 排出量が大幅に落ちているが、ディーゼル車が主な発生源である EC の大気濃度も大きく低下しており、PM 排出量に追従しているように見える。一方、2008 年以降の個数濃度は横ばい傾向であり、排出量の傾向とは明らかに異なる。これは排ガス規制が粒子質量ベースなのに対して、個数ベースとしては規制しきれていないことを示すものと考えられる。また、排出量データと大気質データの関係の長期トレンドを初めて明らかにした。使用過程車のリアルワールドでの運転条件で排出される排ガスの大気質への影響をみるために、未規制物質を含めた大気質の監視を継続することの重要性を示している。PM の排出係数が比較的大きい長期規制対応車両の構成比が依然として高いこともあり、今後の傾向を引き続き注視していく必要がある。

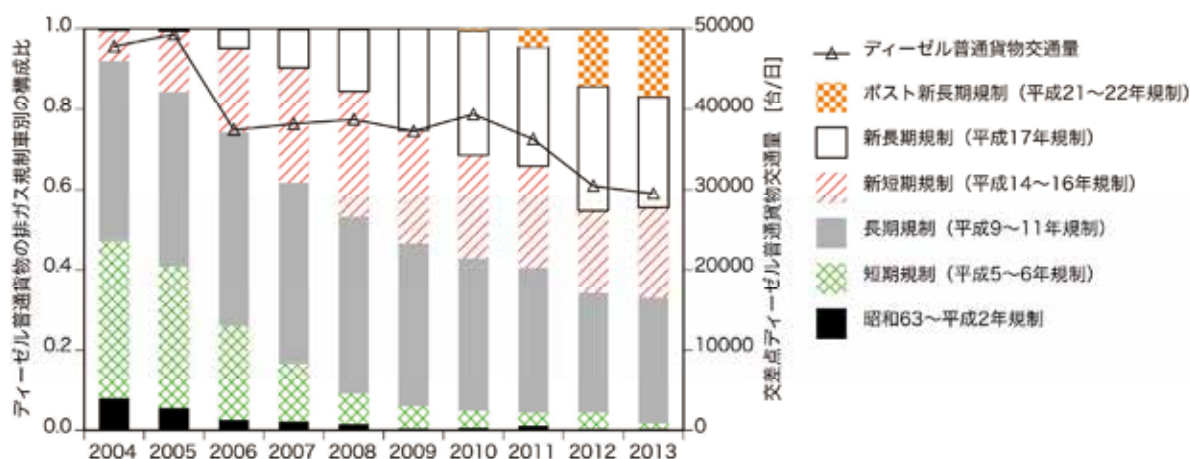


図 1 1 交差点における普通貨物の交通量および排出ガス規制車別構成率

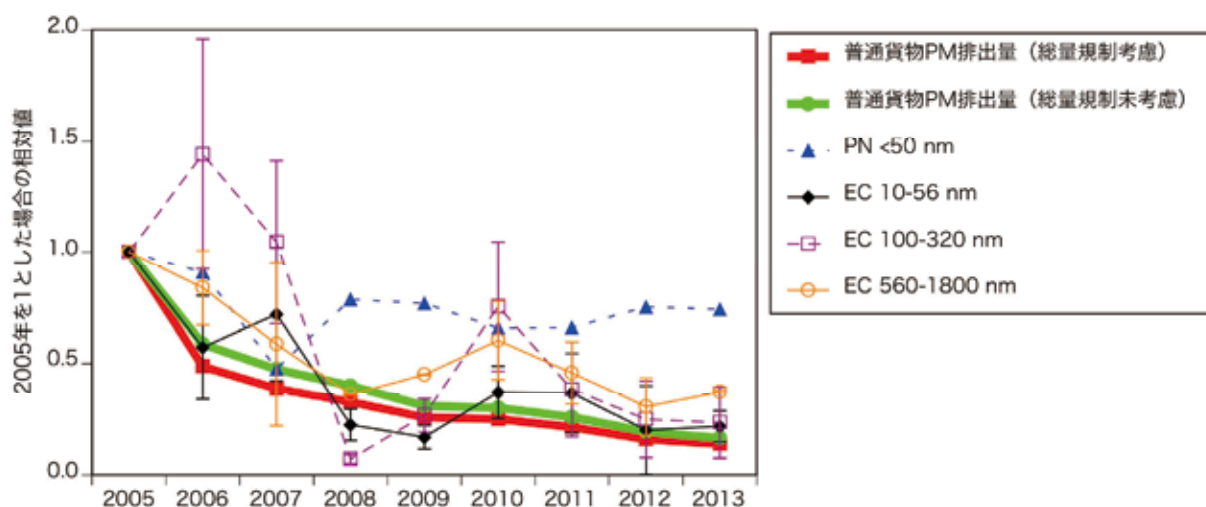


図 1 2 交差点における長期データ比較

2. 自動車からの PM_{2.5} 排出量推計

2.1 ガソリン車からの PM 排出係数の設定

昨年度は、ガソリン車からの PM 排出係数を設定するための排出データを得るため、国内外のガソリン車からの排出データの調査を実施した。

調査の結果、わが国では、国土技術政策総合研究所が道路の環境影響評価を目的として設定した排出係数、海外では、米国カリフォルニア大気資源局（ARB：Air Resource Board）の排出量推計モデル EMFAC において使用されているものは、排出係数が旅行速度ごとに定義されていることに加えて、比較的新しい車両についての排出係数が設定されているなど、ガソリン車からの PM 排出係数の設定に際し、ベースデータとして使用可能であることが判明した。

国土技術政策総合研究所の排出係数は、乗用車、軽量貨物車、中量貨物車、重量貨物車の 4 車種に設定しているが、中量と重量貨物車は同じ排出係数が設定されている。また、排出ガス規制に対しては、2005 年までの車両と 2005 年以降の車両に分けて設定されている。

一方、EMFAC では、年式ごとにきめ細かく排出係数が設定されているが、車種別には、乗用車を基本として、MDV(GVW: 2.7-3.8t)位の車両まで、ほぼ同じレベルの排出係数が設定されている。そのほか、近年、燃費向上を目的に、筒内直接噴射式のガソリンエンジンを搭載した乗用車（以降、直噴ガソリン車とも呼ぶ。）が市場に投入され、従来のガソリン車に比べて、PM 排出が多いことが懸念されていることから、将来直噴ガソリン車が増加することを予測し 2004 年ごろに一旦ほぼゼロに低下した排出係が徐々に増加するように設定されている。

以上の状況を踏まえ、本研究では、国土技術政策総合研究所と EMFAC の排出係数を基本とし、それに加えて国環研から提供されたガソリン車からの PM 排出データ等を参考に、次年度実施予定の PM 排出量推計に用いる排出係数を設定することにした。

我が国のガソリン車は、軽自動車、乗用車、軽量貨物車などが主体であることから、乗用車についての排出係数を設定して、これらの車種については、同一の排出係数を割り当てることにする。また、PM 排出は排出ガス規制の影響が大きいことから、排出ガス規制のレベル別に設定することが望ましいと考えられるが、排出ガス規制区分ごとに設定するために必要十分なデータがないため、以下のような考えのもとに規制区分ごとの排出係数を設定した。一般的なポート噴射ガソリン車（以下、FPI 車）から排出される PM は、混合気が過濃な条件下で生成されることが考えられることから、同様な条件下で生成される CO の排出と似た挙動を示すものと考えられるため、該当する規制区分のデータが無いときは、データ存在する規制区分の排出係数に CO の排出低減率を乗じて求めた。

図 13 に我が国のガソリン乗用車の CO 排出係数の経年変化を示すが、これをもとに、2000 年まで、2000～2005 年、2005 年以降の 3 期間に分けて PM 排出係数を設定することにした。

具体的には、国土技術政策総合研究所の 2005 年までの排出係数と EMFAC の 2000 年の排出係数の平均を 2000 年の排出係数、国土技術政策総合研究所の 2005 年以降の排出係数と EMFAC の 2005 年の排出係数の平均を 2005 以降の排出係数とした。2000～2005 年の排出係数は、2000 年の排出係数に CO の 2000 年から 2005 年への削減率を乗じて求めた。

2005 年以降について、別途、国環研から提供された排出データをもとに回帰分析を行い、直噴ガソリン車の排出係数(EF_GDI)を設定した。このようにして設定した排出係数を図 14、図 15 に

示す。なお、中・重量貨物車については、他に適切なデータが存在しないため、国土技術政策総合研究所の排出係数もとに、排出ガス規制の影響を考慮して設定することにした。

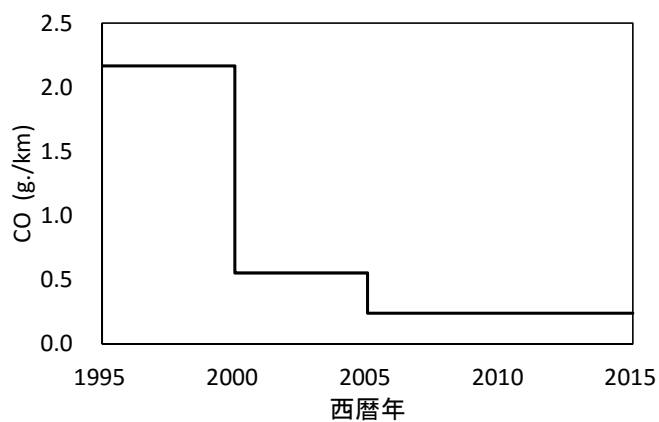


図 13 我が国におけるガソリン乗用車の CO 排出係数の経年変化（時速 20km/h）

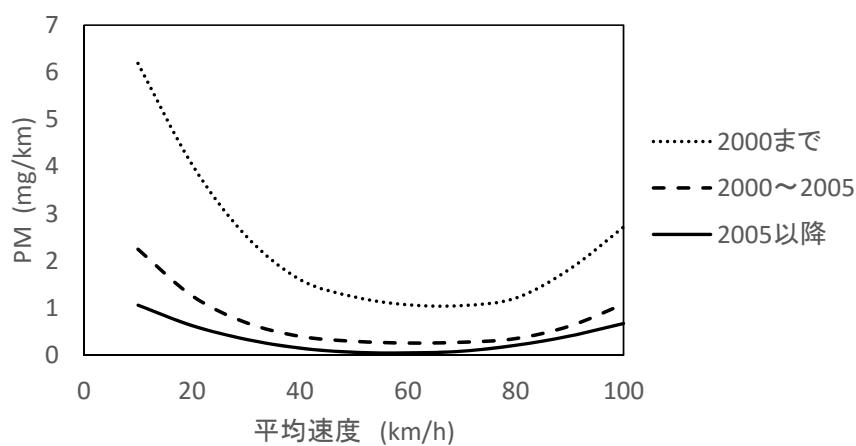


図 14 ガソリン乗用車の PM 排出係数（PFI 車）

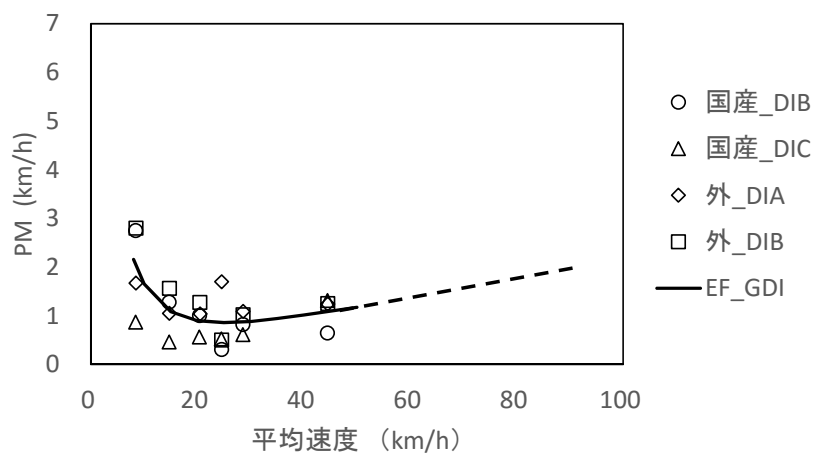


図 15 ガソリン乗用車の PM 排出係数（直噴ガソリン車）

2.2 排出量推計手法の検討

昨年度に引き続き、現状の排出量推計手法の課題を明確にするため、排出量推計 WG において検討を行った。

実環境における自動車排出量推計としては、これまで、化学輸送モデルへの入力データ作成を目的に実施されてきた自動車と石油業界の一連の共同研究プロジェクト JCAP (Japan Clean Air Program)、JCAP II、JATOP (Japan Auto Oil Program)、JATOP II によるものが広く知られている。この推計では、走行時の排出量に加えて、始動時や蒸発ガスの排出量、触媒の劣化や故障、環境条件による排出補正など、実環境における排出量の推計が実施されてきた。近年、環境省が実施している自動車排出ガスの推計においても、始動時の排出量に加えて触媒の劣化や環境条件による排出補正がなされるようになり、JATOP II の推計と比較可能な状況になった。

図 16 は、環境省と JATOP II との排出量推計値を、環境省推計値 (MOE) を基準として、比較したものである。G_RE、G_ST はそれぞれ、ガソリン車の走行時及び始動時排出量、D_RE、D_ST はディーゼル車の走行時及び始動時排出量を示す。図から明らかなように、CO、THC、NOx の順に相違が大きく、PM、CO₂ の相違は、それに比べて小さい結果となっている。

このような状況を踏まえ、平成 27 年度は、主に、始動時排出量、走行時排出量、蒸発ガス排出量について、推計手法や使用データなど、推計値に大きな影響を及ぼす因子について検討した。検討に当たっては、環境省推計と JATOP II 推計との乖離の要因を明らかにするため、実際に推計を実施している実務担当者から説明を受け、それをもとに、排出量推計 WG において、推計手法の課題を明らかにするとともに、今後、推計精度の向上を図る上での課題抽出を主眼に検討を実施した。さらに、海外における排出量推計の現状についても調査を行った。

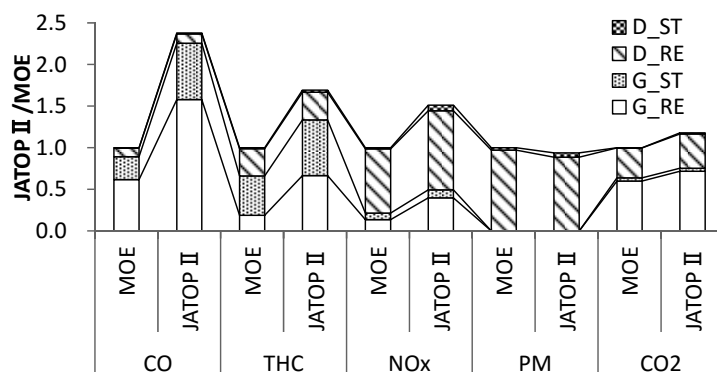


図 16 環境省 (MOE) と JATOP II との排出量推計値の比較

注) D_ST : ディーゼル車の始動時排出量、D_RE : ディーゼル車の走行時排出量、
G_ST : ガソリン車の始動時排出量、G_RE : ガソリン車の走行時排出量

2.2.1 始動時排出量推計

始動時の排出量は、始動回数 1 回当たりの排出量として定義された排出係数に車両 1 台当たりの始動回数と保有台数を乗じて求める。排出係数は、同一走行モードの冷間時排出量と暖気後排出量との差として定義される。さらに、排出係数は、始動時の温度や湿度による補正、エンジン停止から始動までの停車時間に応じたソーク時間補正、経年劣化による補正などが加えられる。

(1) 環境省推計と JATOP II 推計の主な相違点と排出量推計の課題

排出量推計 WG における検討の結果、始動時における環境省推計と JATOP II 推計との間には、以下のような相違点があることが判明した。

- ・活動量（始動回数）

両者とも同じデータを使用（H17 OD データの解析による始動回数データ）

- ・排出係数

排出係数は両者に大きな相違はない

環境省：ポスト新長期車（D）の EF を設定（N 数は少ない）

JATOP II：ポスト新長期は、新長期の値に規制値の削減率を乗じて設定

NO₂ の EF を設定

- ・経年劣化補正

環境省：経年劣化補正なし

JATOP II：走行距離に応じた劣化補正を実施

- ・ソーク時間補正

環境省：全ての成分に同じ補正係数を適用

JATOP II：成分毎（THC、CO、NO_x、CO₂）に補正係数を設定

- ・温度、湿度補正

補正式及び補正に用いる係数は、両者とも同じ（JCAP の手法を適用）

環境省：県別、季節別、時間帯別気温、湿度を用いて補正

新短期以降の車両は補正なし

JATOP：3 次メッシュごとの月平均時間値データを用いて補正

全ての車両に補正を適用

以上の結果から、両者の推計手法や排出係数、活動量データ、各種補正係数には、大きな相違が認められないことから、推計した排出量に相違が生じた原因は、補正に用いる温度データやソーク時間補正係数の相違、経年劣化補正の有無に起因していることが推察された。

その他、排出量推計 WG において検討した結果、以下のような課題が指摘された。

- ・排出係数については、リアルワールドにおける状況との相違の確認、排出係数設定に使用したデータ数が少なく、代表性に問題がある。
- ・その他、今後、WLTC 等のコールド、ホットを一体化したモードが採用されるとコールドのデータ自体が無くなるので、何らかの対応が必要。
- ・活動量は、都市と地方では、使用実態が異なるので、地域差の考慮を検討する必要がある。
 - ・排出係数や補正係数、活動量データなど、推計に使用しているデータが古く、更新の必要がある。

2.2.2 走行時排出量推計

走行時の排出量は、一般に、単位走行距離当たり排出量として定義された排出係数(g/km/台)に走行量(台・km)を乗じて算出する。更に、排出係数は、温度・湿度などの環境条件や経年劣化、故障等による高排出車の排出補正などが加えられる。

(1) 環境省推計と JATOP II 推計の主な相違点と排出量推計の課題

排出量推計 WG における検討の結果、始動時における環境省推計と JATOP II 推計との間に

は、以下のような相違点があることが判明した。

- ・排出係数

両者とも環境省排出原単位をもとに設定

平均速度の設定法に相違（JATOP が多少低速度）

重量車の車両重量設定法に相違

- ・活動量

昨年度報告（両者の差異は少なく、排出量への影響は少ない）

- ・温度、湿度補正

補正手法、補正式（係数）は、同一（JCAP の手法を適用）

環境省：県別、季節別、時間帯別気温、湿度を用いて補正

新短期以降の車両は補正なし

JATOP：3 次メッシュごとの月平均時間値データを用いて補正

全ての車両に補正を適用

- ・経年劣化補正

両者とも JATOP の手法に準じた方法で補正

- ・高排出車補正

環境省：未考慮（リモートセンシングデバイス：RSD）等のデータを蓄積し検討中）

JATOP：RSD データを元に設定した高排出車割合を用いて補正

以上の結果から、両者の推計手法や排出係数、活動量データ、各種補正係数には、大きな相違が認められないことから、推計した排出量に相違が生じた原因は、温度補正に用いる温度データの相違や高排出車補正の有無に起因していることが推察された。

その他、排出量推計 WG において検討した結果、以下のような課題が指摘された。

- ・排出係数については、現状は CD 試験データをもとに設定されているが、リアルワールドとの乖離が考えられるので、今後、車載計測(PEMS)データの活用を検討する必要がある。
- ・経年劣化補正については、今後、後処理装置の付いたディーゼル車が主流になるため、劣化補正の精度を上げる必要がある。また、ガソリン車についても、古いデータが多く、更新が必要。しかしながら、補正係数の更新には、膨大な工数と予算を要すると考えられることから、データの収集が課題となる。
- ・化学輸送モデルの入力として使用するためには、規制成分だけでなく、NH₃、NO₂/NO_x 比率、NMHC 成分、PM 成分（EC,OC、SO₄ 等）の排出ガスの詳細な成分データの整備を行う必要がある。

2.2.3 蒸発ガス排出量推計

蒸発ガス排出量には、エンジン停止直後に排出されるホットソークロス、走行中のランニングロス、車両が駐車している時に温度変化により生ずる燃料タンクの呼吸により排出される呼吸ロス（Diurnal Breathing Loss：DBL）があり、我が国では、JCAP、JATOPにおいて、排出量推計が実施されている。最近では、交通安全環境研究所においても、簡便な手法を開発し推計がなされているが、ここでは、JATOP II の手法をもとに推計の課題を検討し、以下のような課題が指摘された。

- ・蒸発ガス排出量推計モデルは、SHED（Sealed Housing for Evaporative Determination）による蒸発ガス試験データを基にした蒸発ガス発生モデルが使用されているが、リアルワールドとの検証は十分か？
- ・燃料タンク温度は蒸発ガス発生量を左右する重要因子であり、現状は、気温や気温に時間遅れを考慮した値が使用されているが、路上駐車と室内駐車では、燃料タンク温度が異なる可能性があり、検討の余地がある。
- ・燃料タンクの充填率や駐車時間の分布は、キャンスタが破過して蒸発ガスが外気に排出されるまでの時間を左右する重要な因子であるが、いずれも、アンケート調査をもとに設定されている。また、データが古く、代表性にも問題があると考えられるので、更新が必要。
- ・その他、我が国では、米国では考慮されている液体燃料の漏れ（リキッドリーク）や経年劣化補正が未考慮である。これらは、整備状況などの使用実態とも関係するため、わが国の実情を考慮して、推計に取り入れるかどうかを検討する必要がある。

2.2.4 排出量推計の海外動向

日米欧の自動車排出量推計の手法について調査したところ、欧州の手法は、我が国と同様、平均速度の関数として定義された排出係数を用いる手法が主流であったが、米国 EPA は、最近、従来の平均速度ベースの排出係数を用いた Mobile モデルに替えて、新しい考え方を取り入れた MOVES（Motor Vehicle Emission Simulator）を採用した。

MOVES は、走行時の出力を車両重量当たりの出力で除した VSP（Vehicle Specific Power）の関数として定義された排出係数を用いている。MOVES では、図 17 に示すような速度と VSP の区分ごとに設定された排出係数と図 18 に示すような道路区間ごとの速度と VSP の時間割合および総運転時間とから排出量を算定するものである。

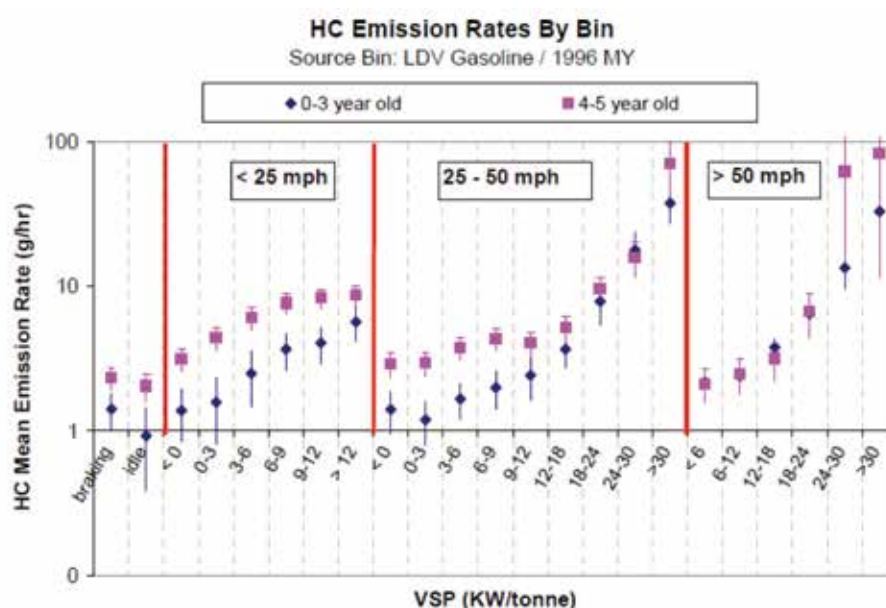


図 17 MOVES における排出係数の例（LDV、HC）

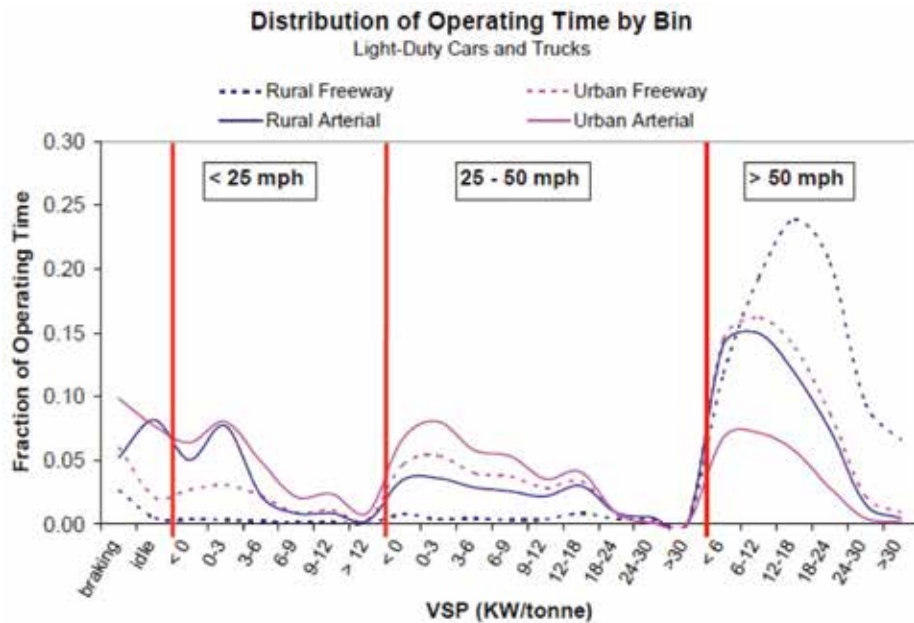


図 18 道路種別ごとの速度と VSP の時間割合

MOVES は、これまでの排出量推計手法に比べて、以下のような特色を有している。

- ・道路の縦断勾配の影響を考慮可能（わが国では、未考慮）
- ・走行モード（アイドル、加速、定常、減速比率）の変化に対応可能
- ・広域から局所の排出量推計に対応

アイドル比率などの走行モード比率は、ハイブリッド車やアイドルストップ車の増加、ITS の普及などにより、今後、大きく変化することが予想されるため、将来に交通事情を考慮すると、今後の排出量推計に有益と考えられる多くの機能が備わっている。

しかしながら、道路の情報や排出係数の設定には、時間分解能の高い排出データが必要になるなど、我が国に適用するためには、推計に必要なデータの整備などの課題が残されているが、情報通信の進歩により、実際に走行中の車両からの位置や速度情報などのデータ（いわゆるプローブデータ）が蓄積されつつある状況を考慮すると、我が国でも検討の余地があると考えられる。なお、米国 EPA は、MOVES をの開発に約 10 年間を費やしていることから、長期的な視野を持って開発を進める必要があると考えられる。

参考文献

- 1) 国土技術政策総合研究所資料 No.671 号、道路環境影響評価等に用いる自動車排出係数の算定根拠（平成 22 年度版）、平成 24 年 2 月
- 2) 国土技術政策総合研究所資料 No.141 号、自動車排出係数の算定根拠、平成 15 年 12 月
- 3) EMFAC2014 UPDATE, v1.0.7、California Environmental Protection Agency Air Resource Board, May 15, 2015
- 4) EMEP/EEA air pollutant emission inventory guidebook – 2013
- 5) 環境省平成 23 年度「自動車排出ガス原単位及び総量算定検討調査報告書」、平成 24 年 3 月、数理計画、

- 6) JPEC-2011AQ-06、JATOP 技術報告書「大気改善研究 自動車排出量推計」、平成 24 年 3 月、石油エネルギー技術センター
- 7) 第 54 回大気環境学会年会講演要旨集、3G0900、平成 25 年 9 月
- 8) MOVES、<http://www.epa.gov/otaq/models/moves/>
- 9) J. Koupal 他, U.S. EPA' s MOVES2010 vehicle emission model: overview and considerations for international application

【まとめ】

本調査研究は、

- ・道路沿道における $PM_{2.5}$ 等に及ぼす要因解析
- ・自動車からの $PM_{2.5}$ 排出量推計

の 2 課題から構成されている。

道路沿道における $PM_{2.5}$ 等に及ぼす要因解析では、昨年度に引き続き、川崎市の道路沿道とその後背地において、ナノ粒子を含む微小粒子の粒径分布や微小粒子状物質 ($PM_{2.5}$) 濃度の測定を実施した。

2015 年冬季と夏季の集中観測で得られた交差点と後背地のデータを風向別に解析したところ、交差点の南に自動車以外の大きな PM の発生源があり、その影響を受ける場合があること、特に、南風が卓越する夏季の $PM_{2.5}$ は交差点であってもその影響を強く受けることが示唆された。その状況でも微量元素に着目すると、交差点では排気由来のモリブデンとともに、非排気由来の巻き上げ粉じんやブレーキ粉じん等からの元素等、多くの元素種の濃度がエンリッチしていることが分かった。さらに、2005 年から 2013 年にわたる普通貨物ディーゼル車の PM 排出量データと大気質データの傾向を解析し、大気中の EC 濃度はディーゼル普通貨物車の PM 排出量に追随したが、PN は追従しないという異なる傾向を初めて明らかにした。PM の排出係数が比較的大きい長期規制対応ディーゼル車の構成比は依然として高いこともあり、引き続き大気質モニタリングが必要であることを示した。次年度は交差点での連続観測、夏季の集中観測を行う予定である。また、粒径別化学成分データを利用した発生源寄与解析を行う予定である。

自動車からの $PM_{2.5}$ 排出量推計については、昨年度、調査、収集したガソリン車からの PM 排出係数データをもとに、年式ごと、燃焼方式ごとに排出係数を設定した。次年度、これらのデータを用いて、ガソリン車を含む自動車からの $PM_{2.5}$ の排出量推計を行う予定である。

排出量推計手法についての検討では、自動車排出量推計の専門家や行政、自動車業界等の関係者から構成される自動車排出量推計手法検討 WG を設置し、始動時排出量、走行時排出量、蒸発ガス排出量推計の手法や使用データなどについての妥当性や課題を検討し、時間や空間分解能の相違による温度補正などの影響が大きいこと、更には、補正係数等のデータ更新が必要であることなど、様々な課題があることが分かった。さらに、海外の排出量推計手法の動向についても調査し、今後の自動車排出量推計に有益な手法が開発されていることが把握できた。

今後、これまでに得られた情報をもとに、自動車排出量推計手法検討 WG において対応策を検討し、合理的な推計手法を提案していく予定である。