

## 曝露評価に関する知見の整理

### 1. 大気中濃度

#### 1.1. 米国の事例

1999～2001年の3年間にわたるAIRS (Aerometric Information Retrieval System) のデータベース、IMPROVE、米国クライテリアドキュメント (1996 PM AQCD) の資料をもとに、米国のPM<sub>10</sub>、PM<sub>2.5</sub>およびPM<sub>10-2.5</sub>の実態をまとめた。

##### 1.1.1. PM<sub>10</sub>とPM<sub>2.5</sub>の年平均値の推移

1999～2001年の3年間における全米のPM<sub>10</sub>濃度は、年基準値 (50 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) 以下で、測定局全体の中央値は23 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。その全体傾向について述べる。図 1.1.1 に見られるとおり、1992年以降の年平均値の推移は、都市部とその周辺部では減少傾向にあったが農村部では1996年以降は横ばい傾向にあった。この10年間の変化を地域別で見ると、北西部で最も大きく (9.6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ の減少)、中南部で少なかった (1.3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ の差)。

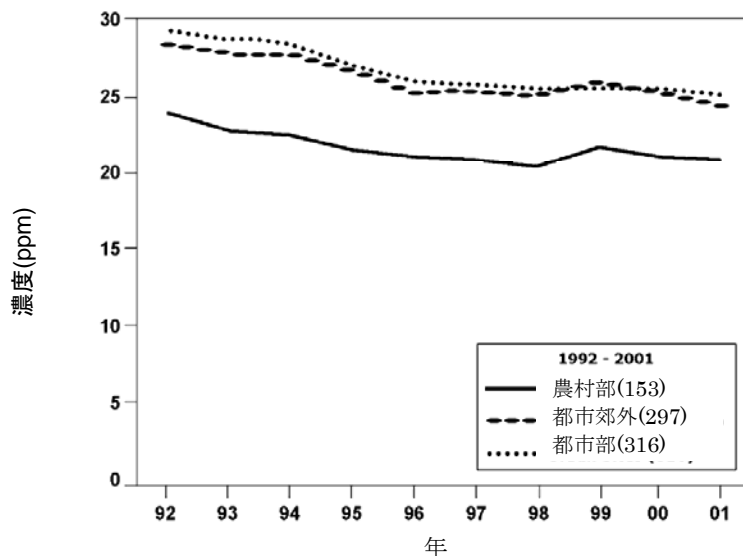


図 1.1.1 1992年から2001年までのPM<sub>10</sub>年平均値の変化

全米全体の都市部およびその周辺部でPM<sub>10</sub>濃度が長期にわたり年々減少傾向を示しているのは、粗大粒子よりも大気中での寿命が長い微小粒子の減少によると考えられている。環境政策における規制効果などが、微小粒子濃度の減少に寄与したものといえる。

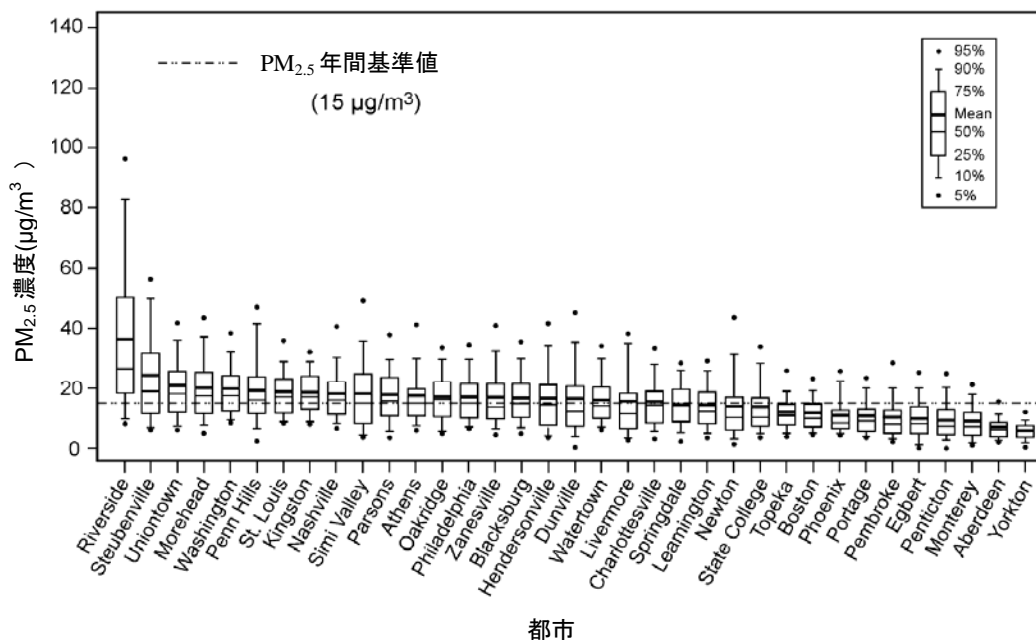


図 1.1.2 1980年代から1990年代前半におけるPM<sub>2.5</sub>の都市ごとの24時間年間平均値とその濃度範囲（米国およびカナダの健康影響調査結果から）。

参考報告：(Bahadori, 2000a)

図 1.1.2 は米国とカナダにおいて1980年代後半に実施したPM<sub>2.5</sub>に関する健康影響調査において得られた観測結果である (Bahadori, 2000a)。Lipfert(1998)は、多くの都市部において1970～1990年の20年間に、PM<sub>2.5</sub>濃度が年間約5%の割合で減少した可能性があることを指摘した。

カリフォルニアを対象とした1990年代のPM<sub>2.5</sub>モニタリング結果によると、例えば、1990～1995年の5年間に、サウスコーストエア盆地では約50%、サンフランシスコ海岸部で約30%、サクラメントの谷地域では約35%、PM<sub>2.5</sub>の年平均濃度が減少している。また、南カリフォルニアでは、1994～1998年の5年間に地域によって差があるものの、硝酸塩、硫酸塩、アンモニウム塩などのPM<sub>2.5</sub>主要成分の減少に伴い、2-37%のPM<sub>2.5</sub>濃度が減少したという記録もある。

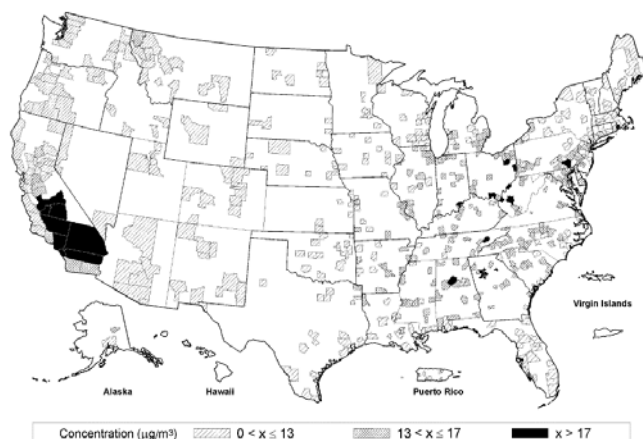


図 1.1.3 1999 年から 2001 年までの  $PM_{2.5}$  の年間平均濃度分布( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )  
 情報源： Aerometric Information Retrieval System (AIRS; U.S. Environmental Protection Agency,

$PM_{2.5}$  の 1999 年から 2001 年までの 3 年間の全米測定局の中央値は  $13\mu\text{g}/\text{m}^3$  であった。その分布を示したのが図 1.1.3 である。カリフォルニアや南東部域の年平均濃度が高く、 $17\mu\text{g}/\text{m}^3$  を超えている。AIRS (Aerometric Information Retrieval System) データによる全米大都市域の年平均濃度は  $6\text{-}30\mu\text{g}/\text{m}^3$  の範囲にあり、フィラデルフィア、ワシントン、ナッシュビルなど東部や西部の大都市部では夏季に最も濃度が高くなる傾向があり、硫酸塩をはじめとする二次生成粒子によるものと考えられている。

そして、 $PM_{10-2.5}$  の年平均濃度の中央値は約  $10\mu\text{g}/\text{m}^3$  であり、その分布範囲は  $1\text{-}50\mu\text{g}/\text{m}^3$  にあった。カリフォルニアをはじめとする西部域でその値が最も大きく、埃の局所的寄与が大きいと考えられる。

多くの都市域における  $PM_{2.5}$  および  $PM_{10}$  の濃度は、概して過去数十年減少傾向にあったが、ここ数年は横ばい状態であるといえる。

バックグラウンド濃度を見ることによっても、都市域の粒子状物質の寄与状況を知ることができる。米国東部の  $PM_{10}$  バックグラウンド濃度は  $4\sim 8\mu\text{g}/\text{m}^3$  と推定され、 $PM_{2.5}$  バックグラウンド濃度は  $2\sim 5\mu\text{g}/\text{m}^3$  と推定された。一方、西部の  $PM_{2.5}$  バックグラウンド濃度は  $1\sim 4\mu\text{g}/\text{m}^3$  と推定されている。 $PM_{10-2.5}$  については、 $PM_{10}$  および  $PM_{2.5}$  のバックグラウンド濃度値から推計し、米国西部で 1 以下から  $7\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、東部で 1 以下から  $9\mu\text{g}/\text{m}^3$  であった。

バックグラウンド粒子には、イベント的であるがサハラダストや黄砂も含まれる。全米の  $15\sim 30\%$  の広い地域にサハラダストが飛来し  $PM_{2.5}$  濃度レベルを約  $8.7\pm 2.3\mu\text{g}/\text{m}^3$  押し上げたという報告、1998 年 4 月に飛来した黄砂によって全米 AIRS の 150 地点の  $PM_{10}$  週間平均濃度が約 3 倍に上昇したという報告がある。米国フロリダに届くサハラダストは粒径  $2.5\mu\text{m}$  以下の部分が  $30\sim 50\%$  も占めるといふ。米国に飛来する黄砂も同様に中央径は  $2\sim 3\mu\text{m}$  である。その他、中央アメリカやメキシコ南部からバイオマス燃焼により生成する粒子状物質が春から夏にかけて飛来するほか、米国内の森林火災など野

火によりバックグラウンド濃度を押し上げられる。

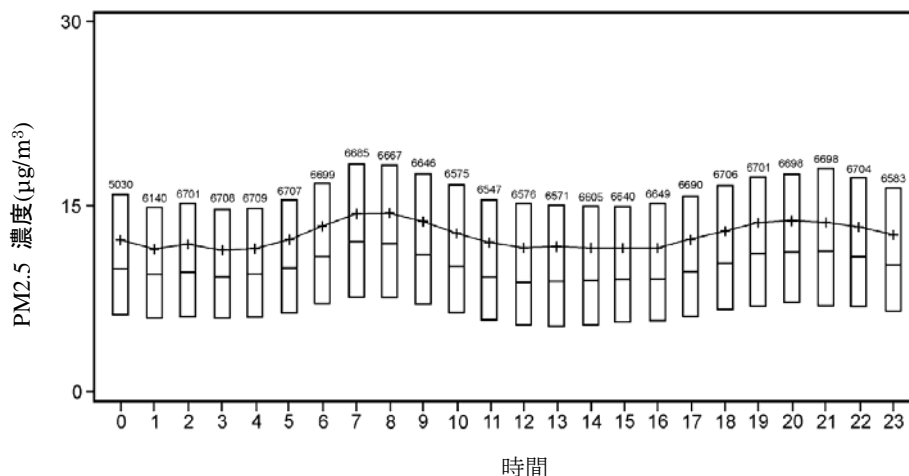


図 3.1.1.4 全米における PM<sub>2.5</sub> 平均濃度の時間値（日内）変動。  
四分位範囲、中央値、平均値(+)で示す。箱ひげ図上の数値は 1999 年の観測回数を表す。  
典拠： Fitz-Simons ら (2000))

### 1.1.2. PM<sub>2.5</sub> の時間値変動（日内変動）

1999 年の AIRS データをもとに PM<sub>2.5</sub> の時間値変動を示した図 1.1.4 から、朝夕に極大値を示す傾向を読み取ることができる。しかし、インレット加熱タイプの TEOM 観測であるため、硝酸アンモニウム塩などを含む半揮発性化合物の消失誤差がデータの中に含まれていることに留意が必要である。また、PM の日内変動は、排出量変化、2 次生成量の変化、地表面付近に形成される混合層の高さおよび空気塊の安定度などによって左右される。

### 1.1.3. PM<sub>2.5</sub> の成分濃度

フィラデルフィアとフェニクス（アリゾナ州）における PM<sub>2.5</sub> および PM<sub>10-2.5</sub> の化学組成を比較した。両地点のデータにおける類似性のみを上げてみると、Al、Si、Fe などの地殻起源元素は、PM<sub>2.5</sub> 濃度よりも PM<sub>10-2.5</sub> 濃度と相関関係が高い。PM<sub>2.5</sub> 中の重金属類（Cr、Ni、Cu、Zn）の濃度は類似しており、Cr と Ni が約 1 ng/m<sup>3</sup> 前後、Cu が 5-10ng/m<sup>3</sup>、Zn が 10ng/m<sup>3</sup> のオーダーにあった。これらの元素は PM<sub>10-2.5</sub> でも同様の濃度レベルにあった。代表例としてフェニクスの大気粉塵の化学成分濃度を表 1.1.1 に示す。

表 1.1.1 フェニックスにおける PM<sub>2.5</sub>、PM<sub>10-2.5</sub> の化学組成濃度(ng/m<sup>3</sup>)  
およびそれらと粉塵重量濃度との相関関係

\* 括弧の値は蛍光 X 線定量値で表した分析の不確か性を表す。

n = 164	Conc (ng/m <sup>3</sup> ) ± SD (unc)	r	n = 164	Conc (ng/m <sup>3</sup> ) ± SD (unc)	r
PM <sub>2.5</sub>	11.2 ± 0.6 (0.6) × 10 <sup>3</sup>	1	PM <sub>10-2.5</sub>	27.6 ± 14.8 × 10 <sup>3</sup>	1
Al	125 ± 77 (30)	0.23	Al	1879 ± 979 (547)	0.92
Si	330 ± 191 (48)	0.35	Si	5350 ± 2825 (1347)	0.92
P	11 ± 7.8 (5.7)	0.52	P	37 ± 20 (17)	0.58
S	487 ± 254 (40)	0.16	S	131 ± 47 (26)	0.77
Cl	19 ± 44 (3.0)	0.13	Cl	208 ± 204 (24)	0.28
K	110 ± 63 (9.2)	0.67	K	561 ± 298 (62)	0.92
Ca	129 ± 72 (11)	0.51	Ca	1407 ± 755 (124)	0.9
Ti	11 ± 7.1 (2.7)	0.44	Ti	130 ± 71 (20)	0.9
V	0.7 ± 2.0 (2.2)	-0.28	V	2.0 ± 2.0 (1.5)	0.51
Cr	0.6 ± 0.9 (0.7)	0.41	Cr	2.6 ± 1.7 (0.7)	0.76
Mn	5.7 ± 4.3 (0.7)	0.64	Mn	29 ± 16 (3.0)	0.91
Fe	177 ± 113 (16)	0.8	Fe	1211 ± 674 (133)	0.9
Co	-0.4 ± 1.0 (1.0)	-0.01	Co	1.2 ± 2.2 (1.9)	0.38
Ni	0.6 ± 0.9 (0.5)	0.38	Ni	1.8 ± 1.4 (0.7)	0.7
Cu	5.2 ± 6.1 (1.5)	0.69	Cu	10.3 ± 9.0 (1.5)	0.58
Zn	17 ± 14.7 (1.8)	0.64	Zn	25 ± 16 (3.2)	0.64
As	1.9 ± 3.2 (0.6)	0.5	As	0.6 ± 0.8 (0.6)	0.41
Se	0.4 ± 0.8 (0.4)	0.4	Se	-0.02 ± 0.3 (0.3)	0.21
Br	3.8 ± 2.0 (0.6)	0.57	Br	0.8 ± 0.6 (0.4)	0.48
Pb	6.6 ± 6.6 (1.0)	0.69	Pb	4.6 ± 3.8 (1.1)	0.59

情報源： Zweidinger ら (1998) が収集したデータに基づいて算出

Pb に関しては、時代による違いが非常に大きく、原因としては、かつて自動車燃料に Pb が添加剤として入っていたことが挙げられる。例えば、フィラデルフィアの大気粉塵中の Pb 濃度は、2000 年に約 5ng/m<sup>3</sup> であったが、1990 年代前半にはそれより約 3 倍高い濃度を示しており、1982 年には 250ng/m<sup>3</sup> であったという観測記録がある。また、フェニックスにおいても同様に、2000 年には約 3 ng/m<sup>3</sup> であったが、その 1990 年には 39ng/m<sup>3</sup> であったという観測記録もある。最近の研究では、Pb、Cu、Cd、Zn などの金属類の発生源はビル表面の風化、自動車ブレーキ、タイヤ、エンジンオイル、潤滑油など多岐にわたるといわれている。

超微粒子に関する化学組成データは非常に少ないが、カリフォルニアで調査した Cass(2000) らの報告によれば、有機化合物 (組成比で 32-67%)、元素状炭素 (3.5-17.5%)、硫黄(1-18%)、硝酸イオン (0-19%)、アンモニウムイオン (0-9%)、金属酸化物 (1-26%) などであった。また、金属元素についていえば、蓄積モードの方が超微小粒子モードよりもはるかに金属元素の存在割合が高い。

表 1.1.2 米国の代表的な地点における PM<sub>2.5</sub> の主要成分濃度(2001 年 10 月～2002 年 9 月)

( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )

*区分	地点名	n	PM <sub>2.5</sub> (FRM Mass)			Elemental Carbon			Organic Carbon			Ammonium		Sulfate		Nitrate				
			平均	最大-最小	1.0	平均	最大-最小	0.26	平均	最大-最小	<0	平均	最大-最小	平均	最大-最小	平均	最大-最小			
3	Burlington(VT)	201	10.0	61.0	1.0	0.26	0.84	—	2.5	31.4	<0	1.1	6.8	—	2.8	18.8	0.17	1.3	8.8	—
3	Philadelphia(PA)	262	14.2	86.8	2.1	0.66	2.3	—	3.1	50.5	<0	2.0	11.4	—	4.4	30.5	0.020	2.1	8.7	0.050
2	Atlanta(GA)	183	—	—	—	0.90	3.5	—	4.3	11.2	0.8	1.3	4.2	—	4.8	15.2	0.88	0.70	3.5	0.16
1	Detroit(MI)	189	16.6	53.1	2.6	0.68	3.7	—	3.2	11.2	<0	2.2	9.3	0.009	4.6	24.4	0.040	3.1	15.2	0.004
3	Chicago(IL)	139	15.7	42.7	3.6	0.61	1.6	—	2.8	7.4	0.31	1.9	8.8	0.17	4.2	21.2	0.56	2.0	10.2	0.12
1	St. Louis(MO)	324	15.6	52.1	3.8	0.72	2.7	—	3.5	11.5	—	1.9	7.2	0.14	4.3	20.6	0.64	2.3	14.0	0.20
3	Houston(TX)	229	12.4	21.9	5.9	0.30	1.1	—	2.2	12.1	—	1.2	8.8	—	3.5	26.0	0.030	0.68	5.8	0.040
2	Minneapolis(MN)	163	10.3	33.4	1.8	0.39	1.8	—	2.6	9.9	—	1.2	6.0	—	2.4	8.9	0.24	2.3	16.4	0.098
3	Boulder(CO)	161	9.5	26.9	2.1	1.0	4.4	0.15	3.2	13.8	0.28	0.79	4.3	0.009	1.6	5.9	0.29	1.5	7.9	0.14
1	Phoenix(AZ)	275	9.9	32.1	3.3	0.75	5.0	—	4.0	21.0	<0	0.5	2.6	—	1.3	3.8	—	1.1	6.9	0.008
3	Seattle(WA)	314	8.2	29.1	1.9	0.60	2.7	—	2.6	11.0	—	0.47	2.0	—	1.3	4.6	0.14	0.67	2.9	0.12
2	Sacramento(CA)	265	9.4	78.0	3.0	0.66	8.4	—	5.2	54.1	0.18	0.74	7.4	0.009	1.3	4.1	0.06	2.3	23.4	—
1	Reverside-Rubidoux(CA)	161	28.6	78.2	2.6	1.20	4.3	0.12	6.0	13.0	0.38	4.8	16.8	—	3.7	10.0	0.28	12.3	40.3	0.18

\* 1: 地理的な分類を考慮して選択、2: PM<sub>10</sub> リスク管理都市、3: PM<sub>2.5</sub> と PM<sub>10</sub> のリスク管理都市

\*\* 無機系炭素(Elemental Carbon)、有機系炭素(Organic Carbon)は、TOT 法(thermal optical transmittance method)(NIOSH 法)で測定した。

\*\*\* EPA クライテリアドキュメント付録 3B から抜粋作成した。

表 1.1.2 は、2001 年 10 月から 2002 年 9 月の 1 年間、カテゴリごとに選択された 13 代表地点において SASS などによって捕集した PM<sub>2.5</sub> 試料の主要成分濃度をまとめたものである。炭素については TOT 法 (Thermal optical transmittance method、NIOSH 法) で、アンモニウムイオン、硫酸イオン、硝酸イオンはイオンクロマトグラフ法によるものである。炭素種で注目すべきことは、炭酸塩も同時測定しているが全地点全試料において定量できず、元素状炭素や有機系炭素よりもはるかに濃度が低いことがわかった。有機系炭素 (OC) /元素状炭素 (EC) の比は、約 4~6 となる地点が多い。硫酸イオンと硝酸イオンのイオン当量とアンモニアのイオン当量が概ね釣り合っている地点が多く、硫酸アンモニウムおよび硝酸アンモニウムで存在していることが示唆されている。なお、金属類について表中に記していないが、どの金属元素も表中の主要成分濃度よりも 1 桁以上低かった。金属類において特徴的なことは、Ca、Fe、Al、Si、Na など土壌起源や海塩起源と思われる元素が、PM<sub>2.5</sub> においても主要金属類であることである。

#### 1.1.4. PM<sub>2.5</sub> の空間分布

1999 年の AIRS 調査データを用いて PM<sub>2.5</sub> 濃度変化に関する地点間の相関を調べた結果、多くの都市域では 100km を超える範囲レベルで PM<sub>2.5</sub> 濃度に相関関係が認められた。ただし、濃度の相関性が高いということは、広範囲にわたって PM<sub>2.5</sub> 濃度が均一であるということではなく、時間値レベルでの変動に関連性があるということである。その相関の認められる地域範囲の広さは、東部の方が西部よりも広い結果となった。地形的な要因が影響しており、東部地域は都市部から周辺部へ平坦な地形であるのに対し、西部地域の多くの都市は山岳に囲まれている。そのため、西部地域では PM<sub>2.5</sub> の一次物質も前駆物質の拡散や反応場の条件が、東部地域ほど広範囲に均一でないことによる。

#### 1.2. 日本の事例

日本では、環境省が平成 13~18 年にかけて、PM<sub>2.5</sub> 及び大気環境基準の対象となっている浮遊粒子状物質 (SPM) を対象とし、表 1.2.1 の分類に基づく地点で測定を実施した。SPM は  $\beta$  線式粉塵濃度計で、PM<sub>2.5</sub> は 50°C 加熱方式 TEOM による連続測定 (2001~2006 年、平成 13~18 年) を行った。

表 1.2.1 調査地点の分類

地理的な分類	都市・非都市による分類
(一般局) 1. 北海道 2. 東北地方(宮城県) 3. 甲信越地方(新潟県) 4. 関東地方(茨城県、埼玉県、千葉県、東京都、神奈川県) 5. 東海地方(愛知県) 6. 近畿・中国地方(大阪府、兵庫県、岡山県) 7. 九州地方(福岡県、宮崎県)	1. 一般局(都市部) 茨城県、埼玉県、千葉県、東京都、 愛知県、大阪府、兵庫県、岡山県、福岡県 2. 一般局(非都市部) 北海道、宮城県、新潟県、宮崎県 3. 自排局 茨城県、埼玉県、千葉県、東京都、 神奈川県、愛知県、大阪府、兵庫県
(自排局) 8. 関東地方(茨城県、埼玉県、千葉県、東京都、神奈川県) 9. 東海地方(愛知県) 10. 近畿地方(大阪府、兵庫県)	

$\beta$ 線式粉塵濃度計やTEOMのような連続測定装置ではないが、PM<sub>2.5</sub>の化学成分を測定するためにSASSによる14日間の捕集を季節毎にTEOMと並行測定が行われた。SASSの方がTEOMよりも米国のFRM(PM<sub>2.5</sub>の基準ろ過捕集法)に近い方法である。これらSASSと50℃加熱方式TEOMの装置特性の相違を把握したうえで、日本と米国の大気中の粉塵濃度を比較する必要がある。

#### (SASSとTEOMの比較)

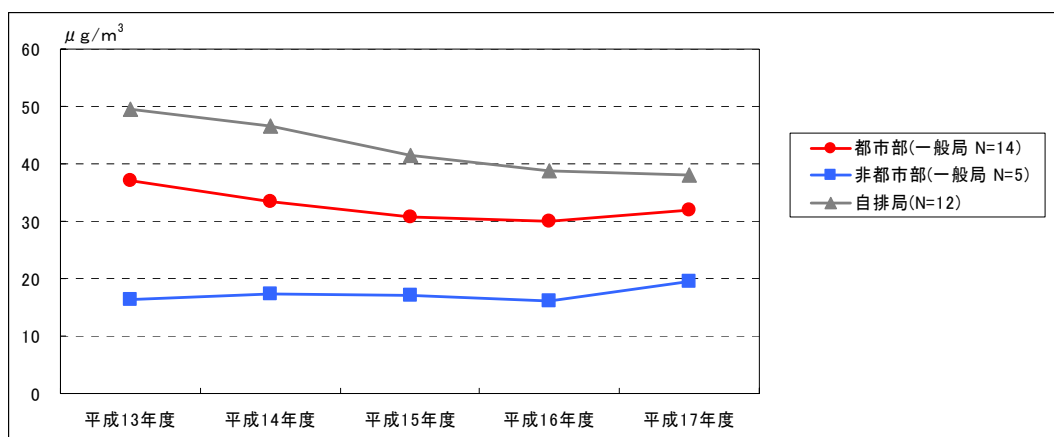
平成13-18年に季節ごとに行った並行測定によるTEOM/SASS比は、要約すると一般局(都市部)及び自排局では夏季に約1、他の季節に約0.8となった。その理由としては、TEOMは粒子状物質中に含まれている水分を蒸発させるためフィルタ部及び大気導入管を50℃で加温しており、PM<sub>2.5</sub>中に含まれている水分以外の半揮発性物質(硝酸塩、低沸点の有機化合物など)も同時に揮散することにより、SASSに比べてやや低めの測定値を示す傾向があるためと考えられる。この濃度差はPM<sub>2.5</sub>濃度や半揮発性成分(硝酸アンモニウムや有機炭素等)濃度が高いほど顕著であり、また気温が低い時期ほど差が大きくなる傾向が見られる。また、TEOMは、試料大気湿度が急激に変化した場合には、湿度の増加に対しては正、湿度の減少に対しては負の誤差を与える傾向が見られる。

SASSに比べ、TEOMには以上のような装置特性による誤差要因が生じるが、SASS測定値を基準として補正することによってかなり改善される。SASSの年間平均許容誤差は、1~3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ の範囲(概ね、 $\pm 2\mu\text{g}/\text{m}^3$ )であり、TEOM補正值の誤差もこれに近い。

### 1.2.1. SPMとPM<sub>2.5</sub>の年変動

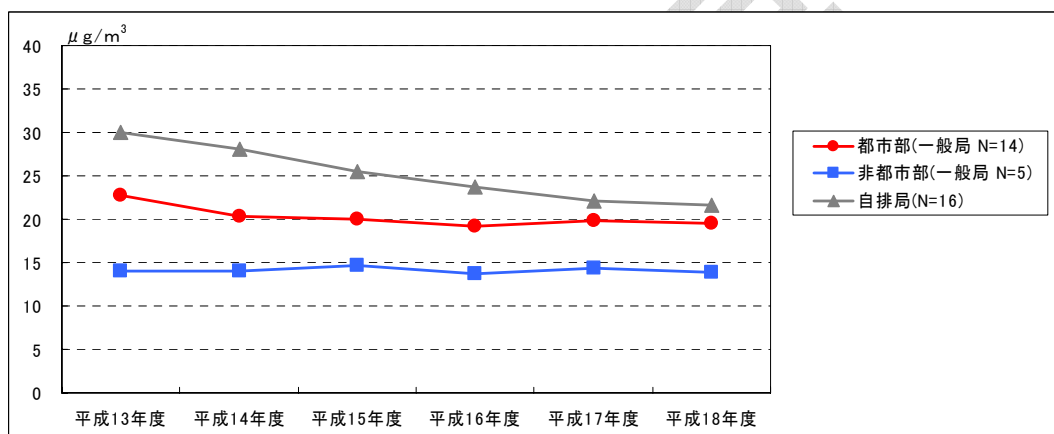
SPM( $\beta$ 線)質量濃度の年変動を図1.2.1に示す。平成13~平成17年度の推移をみると、都市部の一般局及び自排局で減少傾向がみられ、特に自排局での減少割合が大きい結果となった。一般局のこの減少傾向は、関東地方が他地域に比べ顕著であった。これに比して、自排局の減少には地域差が見られなかった。

PM<sub>2.5</sub>(TEOM)の質量濃度の年変動を図1.2.2に示す。平成13~平成18年度の推移をみると、自排局で年々減少している。都市部の一般局では平成13年度から平成14年度にかけて減少しているが、その後は横ばいとなっている。非都市部の一般局はこの6年間でほぼ横ばいとなっている。地域別の傾向をみても、一般局はほぼ横ばいの傾向であった。自排局の減少傾向については、地域的差異は認められなかった。



※N=調査地点数

図1.2.1 SPM(β線)質量濃度の年変動(1)



※N=調査地点数

図 1.2.2 PM<sub>2.5</sub>(TEOM)質量濃度の年変動(1)

### 1.2.2. SPM と PM<sub>2.5</sub> の月間変動 (季節変動)

SPM (β線)の質量濃度の月変動を図1.2.3 に示す。全国的には春季から夏季にかけて(4～7月)または晩秋から初冬季(11月頃)に濃度が高くなる傾向にあり、12月～2月頃に低くなる傾向にあった。その傾向には地域的な特徴が認められ、また、関東地方の一般局及び自排局、東海地方の自排局では11月頃の初冬季も夏季と同程度の濃度で高くなり、近畿・中国地方及び九州地方では、春季から夏季(4～7月)が高くなった。

一般に、高濃度になる要因としては、春季から夏季にかけては光化学反応が活発に行われることによる二次粒子の生成、また、他の季節に比べ黄砂が春季に多く観測されるため、その影響を受けて濃度が高くなることもある。一方、11月は、大気境界層が安定形成され大気汚染物質の拡散抑制作用が顕著になった結果と考えられる。

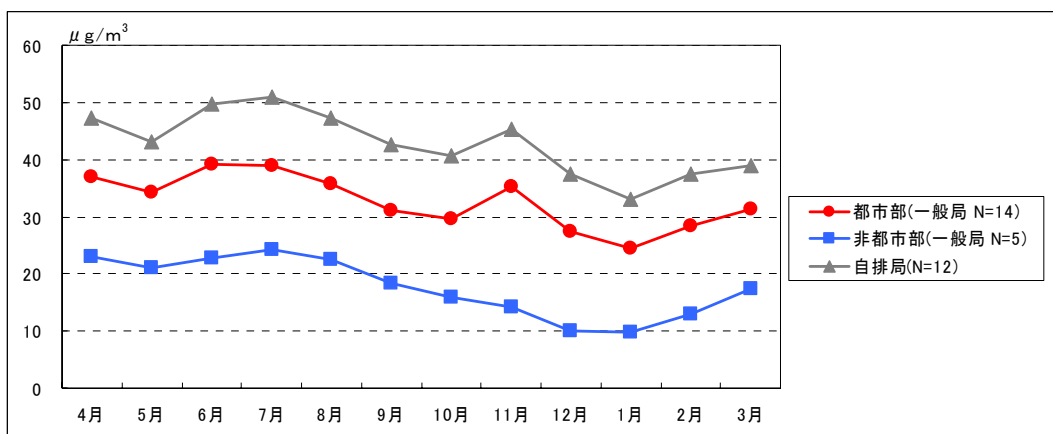
PM<sub>2.5</sub> (TEOM)の質量濃度の月変動を図1.2.4に示す。月変動をみると、全国的には春季から夏季にかけて(4～7月)または晩秋から初冬季(11月頃)に濃度が高くなる傾向にあり、12月～2月頃に低くなる傾向にある。また、地域によって傾向が異なっている。北海道、東北地方は全国的に見て濃度が低く、年間をとおして月平均濃度が15μg/m<sup>3</sup>を下回ることが多い。また、春季が1年で最も高くなるものの濃度の変動幅は小さい。

一般に、高濃度になる要因としては、春季から夏季にかけては、紫外線など光エネルギーが強いため、光化学反応が活発になりやすく、二次粒子が生成されやすくなることが高濃度



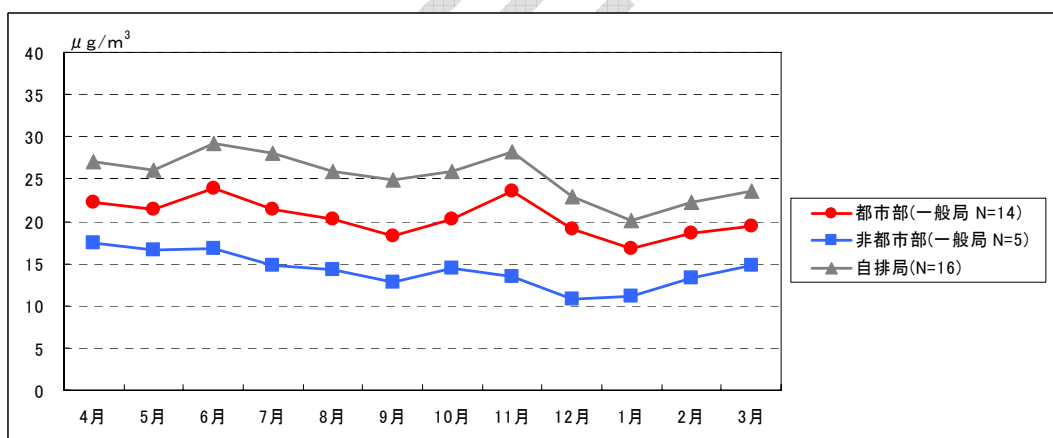
の要因として考えられる。また、春季は他の季節に比べ黄砂が多く観測されるため、黄砂の影響を受けて濃度が高くなることも考えられる。ただし、黄砂のピーク粒径は $4\mu\text{m}$ 程度であるため、SPMに比べ、 $\text{PM}_{2.5}$ に対する影響はかなり小さい。11月、大気境界層が形成されることによると考えられる。

SPMと $\text{PM}_{2.5}$ の全国的な季節変動はよく似ており、その要因も同じと見てよい。



※N=調査地点数

図1.2.3 SPM(β線)質量濃度の月変動(平成13~17年度の平均値) (1)



※N=調査地点数

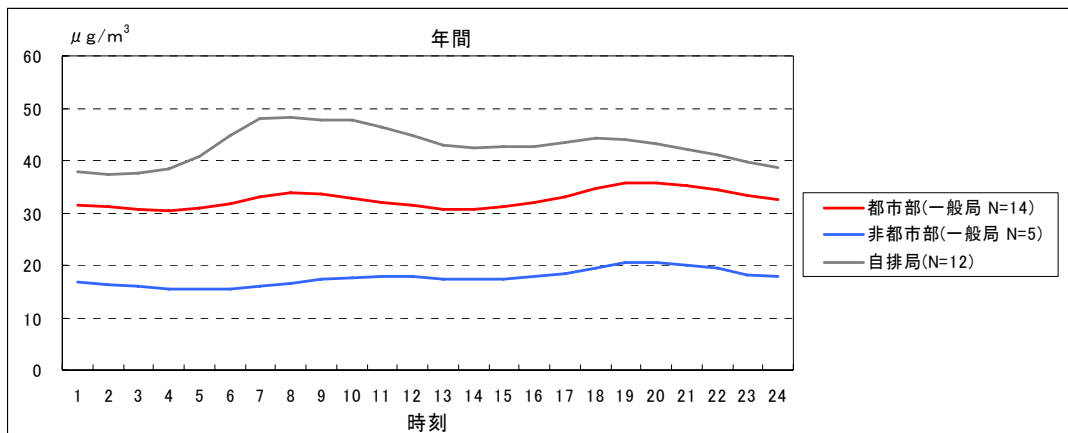
図1.2.4  $\text{PM}_{2.5}$ (TEOM)質量濃度の月変動(平成13~18年度の平均値) (1)

### 1.2.3. SPM と $\text{PM}_{2.5}$ の時間変動

SPM (β線) の質量濃度の時間変動を図1.2.5に示す。時間変動をみると、一般局(都市部)は朝の8時前後及び夜の19時前後に濃度が高く、自排局は午前中に濃度が高くなっていた。一般局の中でも非都市部では、夜の19時前後に緩やかに濃度が高くなっている。地域別の傾向は一般局、自排局ともにみられなかった。

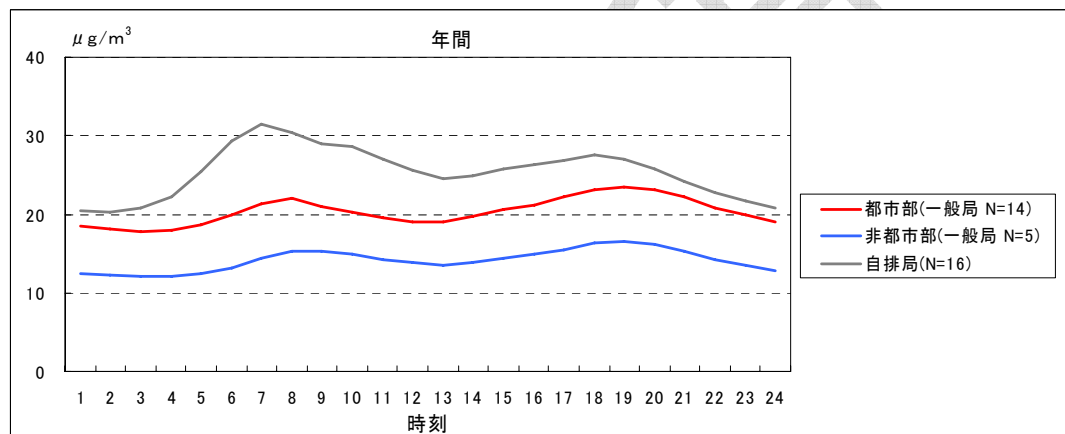
$\text{PM}_{2.5}$  (TEOM) の質量濃度の時間変動は図1.2.6に示すとおりであり、一般局および自排局とも、朝の8時前後及び夜の19時前後に濃度が高くなっており、自排局の方が朝の濃度の変動がより大きい。一般局、自排局ともに明確な地域差はみられなかった。

SPMと $\text{PM}_{2.5}$ の全国的な時間値変動の傾向は類似しており、変動要因も同じとみてよい。



※N=調査地点数

図1.2.5 SPM(β線)質量濃度の時間変動(平成13~17年度の平均値) (1)

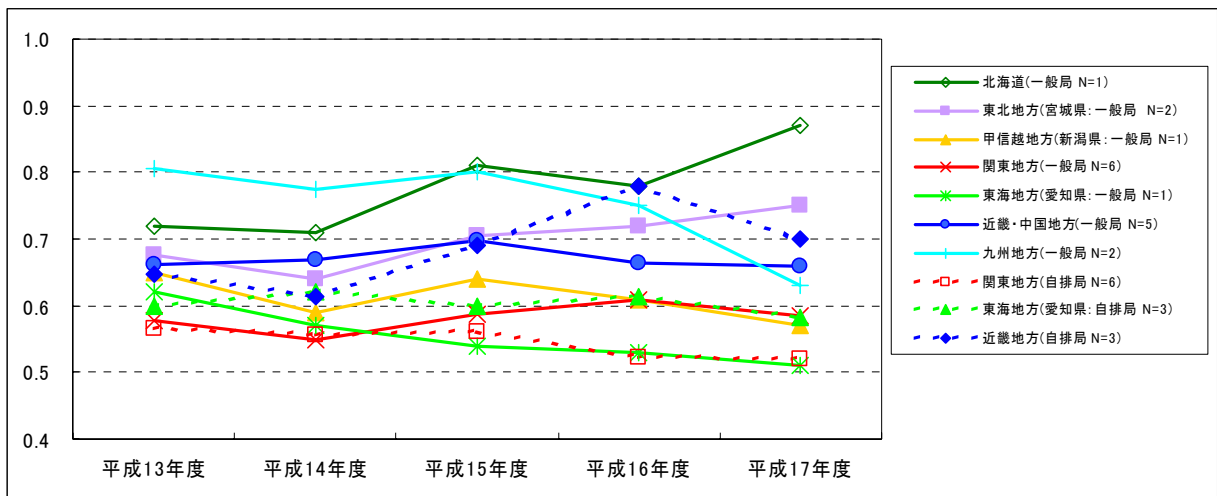


※N=調査地点数

図1.2.6 PM<sub>2.5</sub>(TEOM)質量濃度の時間変動(平成13~18年度の平均値)

#### 1.2.4. PM<sub>2.5</sub>/SPM

PM<sub>2.5</sub> (TEOM) /SPM (β線) 比の年変動を図 1.2.7 に示す。平成 13~17 年度の推移は、地域や年度によって違いがあるが、概ね 0.5~0.8 の間にあった。その比の月別変化は、7~8 月頃に PM<sub>2.5</sub>/SPM 比が最も低くなる傾向にあったが、地域差は認められなかった。高温多湿の夏季におけるそれぞれの測定機器 (方法) の違いによるものと思われ、SPM と PM<sub>2.5</sub> の本質的な粒子特性とは考えられない。



※N=調査地点数

図1.2.7 PM<sub>2.5</sub>(TEOM)/SPM (β線) 比の年変動

### 1.2.5. PM<sub>2.5</sub>の成分濃度

SASS法により得られた試料の化学分析をまとめたものが図1.2.8である。

PM<sub>2.5</sub>の主要な成分は元素状炭素(EC)、有機炭素(OC)、硝酸イオン(NO<sub>3</sub><sup>-</sup>)、硫酸イオン(SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>)、アンモニウムイオン(NH<sub>4</sub><sup>+</sup>)である。一般局では硫酸イオンの占める割合が最も多く、自排局では元素状炭素の占める割合が最も多い。一般局のうち都市部と非都市部を比較すると、都市部では非都市部より硝酸イオンの占める割合が多くなっており、非都市部では都市部より硫酸イオンの占める割合が多くなっている。有機炭素やアンモニウムイオン、塩化物イオンは、一般局や自排局などの違いによる大きな差はみられない。炭素・イオン成分の積み上げ値とPM<sub>2.5</sub>(SASS)の質量濃度の差をその他の影響「Other」として表示すると、非都市部(一般局)→都市部(一般局)→自排局の順にOtherの割合が小さくなる。人為発生源の寄与率が高い区分のPM<sub>2.5</sub>は、上述成分で十分に説明できる割合が多いことを示している。

季節別の成分の割合をみると、一般局、自排局ともに夏季には硫酸イオンの割合が増加し、硝酸イオン及び塩化物イオンの割合が減少した。これは、気温の高い夏季には揮発性の高い硝酸塩や塩化アンモニウム等がガス化し、夏季気温程度で安定な硫酸塩が相対的に増えたためである。

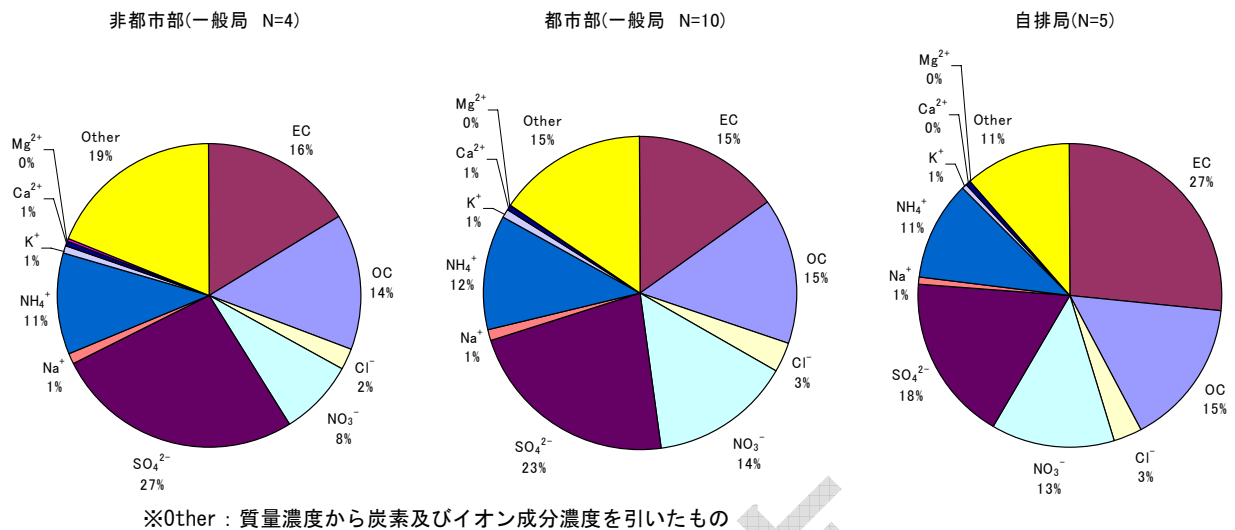


図1.2.8 PM<sub>2.5</sub>(SASS)炭素・イオン成分の割合(平成13～18年度の平均値)

各成分の年変化について概略をまとめる。

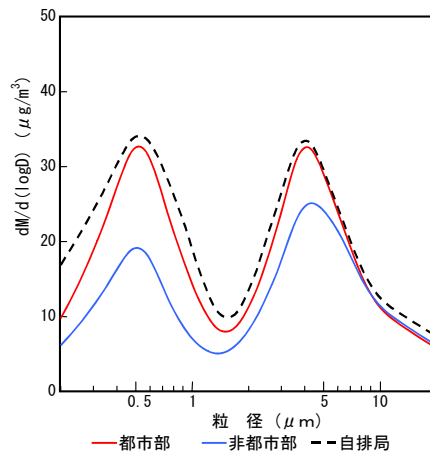
元素状炭素 (EC) の濃度変化は、どのカテゴリーでも減少傾向であり、自排局の減少傾向が最も著しい。有機炭素 (OC) の変化は概ね横ばい傾向を示した。ECおよびOCとも、自排局、一般局 (都市部)、一般局 (非都市部) の順に濃度が低い傾向は、どの年度においても同じであった。

硫酸イオン (SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>) の濃度変化は、一般局と自排局では濃度に大きな差は見られず、都市部と非都市部の違いをみると、都市部の方でやや濃度が高くなる傾向がある。地域による差をみると、西日本の近畿・中国地方や九州地方でやや濃度が高くなっており、東アジア地域からの越境輸送が原因のひとつと考えられる。

硝酸イオン (NO<sub>3</sub><sup>-</sup>) の濃度変化は、一般局、自排局ともに概ね横ばい傾向であった。都市部 (一般局) と自排局での濃度差よりも都市部 (一般局) と非都市部 (一般局) の濃度差が大きく、自動車や工場等から物 (化石燃料等) の燃焼によって発生する窒素酸化物 (NO<sub>x</sub>) の濃度差の大小に対応しているようである。地域別に見ると、関東地方の一般局、自排局がいずれも他の地域に比べ高濃度となっており、人為発生源に起因していることが示唆される。

### 1.2.6. 粒子状物質質量濃度の粒径分布

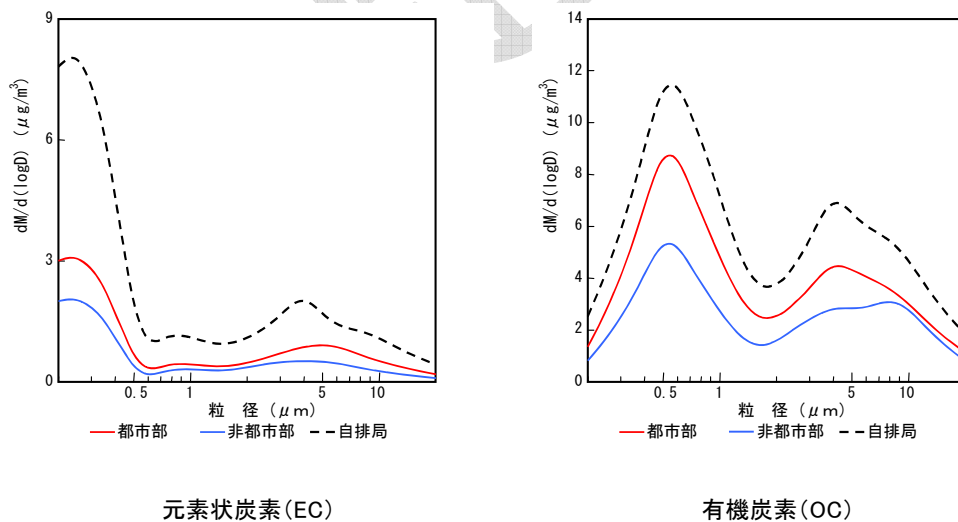
平成13～18年度に観測した粒子状物質質量濃度の全平均粒径分布を図1.2.9に示す。粒径分布をみると、微小粒子側の0.5μmと粗大粒子側の5μmの粒径をピークとし、1～2μmが谷となる二山型の分布となり、自排局では微小粒子側の粒径の濃度が一般局に比べやや高くなった。一般局の都市部と非都市部での比較では微小粒子、粗大粒子ともに都市部の方で濃度が高くなっており、特に微小粒子側でその差が大きくなっている。



※ 調査地点数(都市部(一般局): 9 非都市部(一般局): 2 自排局: 5)

図1.2.9 粒子状物質(ALV)質量濃度の粒径分布(平成13~18年度の平均値)(1)

PM<sub>2.5</sub>の主要成分である炭素成分について、その粒径分布を図1.2.10に示す。元素状炭素(EC)は0.5μm以下の微小粒子側の粒径に偏在し、有機炭素(OC)は0.6μm付近にピークをもつ濃度分布形を示す。都市部の一般局及び自排局では4μm付近の粒径でも濃度が高くなる傾向がある。



※ 「3.3~4.7μm」~「11<μm」の粒径については平成14年度のみ調査を実施

※ 調査地点数(都市部(一般局): 9 非都市部(一般局): 2 自排局: 5)

図1.2.10 粒子状物質(ALV)炭素成分濃度の粒径分布(平成14~18年度の平均値)

イオン成分については、成分毎に粒径分布をみると、以下のように分類される。  
 ・微小粒子側の一山型：硫酸イオン、アンモニウムイオン

- ・微小粒子と粗大粒子の二山型：硝酸イオン
- ・微小粒子と粗大粒子の二山型（粗大側に多く分布）：塩化物イオン

全体的に、自排局と都市部の一般局は同じような傾向を示しており、非都市部は塩化物イオンの粗大側を除いて濃度が低くなっている。

金属成分については、Fe、K、V、Mnが自排局および都市部域が非都市部に比べ濃度が高く、人為発生源の寄与が高いことを裏付け、Al、Naがカテゴリー別の差が見られない成分である結果が得られたのだが（全国どこでも均一）、その粒径分布には次のような元素ごとの特徴が見られた。粗大粒子側に主に存在する一山分布型元素（Al、Na、Fe、（Mnは非都市部域のみ））と微小粒子側と粗大粒子側の二山分布型元素（K、V、（Mnは自排局と都市部域で））である。

未定稿