

安定という。逆にこれよりの小さい場合は空気の混合が抑制され、安定という。このような静的な大気安定度 (atmospheric stability 大気の垂直温度分布) によって、煙の拡散のパターンや混合の程度が異なる。

地上付近より、その上層で気温が高くなることがある。このような状態を気温逆転といい、逆転の生じている層を逆転層という。逆転層が発生すると大気汚染物質の拡散が抑制され、高濃度大気汚染の発生と持続をもたらす。生成機構として幾つかのメカニズムが知られているが、代表的のものとして、沈降性逆転と放射性 (接地) 逆転がある。

沈降性逆転は、太平洋高気圧や移動性高気圧の中で空気が乾燥断熱的に下降し昇温することにより、上空に気温の逆転が発生することにより生成する。一般に、地上付近には、乱流や日射による対流があるので、この空気塊は対流の盛んな低層までは達せず、最も低下しても地上から数百メートルの高度に止まる。沈降する空気は極めて安定な逆転層を形成し、この層より下層と、上層の空気の交換は極端に抑制される。

一方、放射性 (接地) 逆転は、地表面からの放射冷却により発生する。比較的、風が弱く、夜間晴天が続くと、地表面は放射により、温度が下がる。このため、地上から上空に向かって冷却が進み、逆転層が形成される。放射性逆転は地上からの高さ 300m 程度までに存在することが多く、接地逆転ともいう。この逆転は、晴天、弱風の夜間に、特に郊外において高い確率で発生する。時間変化を見ると、日没と共に、地表面からの放射で接地層から逆転が始まり、24 時頃まで、逆転層の厚さが増す。これより日の出まで逆転層の強さ (温度差) が増す。日の出と共に地面に接する層から逆転が解消する。

大気粒子の環境大気中での挙動には気象条件と化学反応が大きな影響を及ぼす要因である。気象条件としては、風速、風向、気温、相対湿度、日射量、気温垂直分布、大気安定度、混合層高度、局地気象 (海陸風、不連続線・前線、ヒートアイランド) 等が大気粒子の移動・拡散及び混合に影響する。

大気粒子の立体分布に最も大きな影響を及ぼす気象因子は風速と大気安定度である。風速が弱ければ大気拡散能が小さいため、大気中に生成した一次生成大気粒子の濃度減衰は小さい。また、垂直方向の気温減衰率を大気安定度というが、垂直方向の標準的な気温減衰率より減衰が少ない安定な大気の場合もまた濃度の拡散減衰が小さい。特に気温逆転層が発生した時には、大気の拡散が抑制され大気汚染粒子濃度が高濃度となる。気温逆転とは、例えば、冬に弱風で晴天の夜間に地表面が放射冷却により冷やされて、地上付近の方が、それより上空に比べて気温が低くなるような現象である。このような気象条件が多く発生する年には、SPM 濃度が高くなる。

大気の上層が安定で下層が不安定になっている気象条件時には、煙源からの煙が不安定層で良く混合され、上層には安定層の蓋があるので、大気の拡散が抑制され、大気汚染濃度が高まる。この現象をフュミゲーション (燻し現象) という。空気が海岸から内陸に進入する時には、海上と陸上での表面粗度の違いにより、海岸から内陸方向に内部境界層が発達する。海岸付近の煙突から出た煙は、上空の安定層を、あまり拡散せずに流れ、内陸

に運ばれるが、内部境界層の高度にぶつかると、急激に境界層内に混合・拡散し、地上での高濃度をもたらす。この層に、高煙突からの煙流がとりこまれ、混合により地上付近に達する現象を内部境界層フュミゲーションという。このような状況時には急激な大気粒子濃度の上昇が発生する場合がある。

#### 4.1.2. 局地気象と大気汚染

局地風 (local wind) とは、海陸の分布など地形の影響、あるいはこれによって生じる熱的不均一性が原因となって生成する風である。海陸風、山谷風が代表例としてあげられる。都市や市街地、道路の形状、及び熱的な特性によって、発生する風も局地風の一種と考えられる。都市風、ヒートアイランドへ吹き込む風、市街地風、沿道風なども局地風である。

最も代表的な局地風としては海陸風 (sea and land breeze) がある。陸地では気温の日変化が大きいが海上では小さい。このことにより、日中は海から陸へ、夜間は陸から海に向かって吹く風が生じる。これが海陸風である。海陸風などの局地風が存在する場合には、風の進行に伴い弱風域や渦状の循環流が発生し、大気汚染の滞留をもたらす。海風や陸風が進行するに伴って風向の不連続が発生しゆっくり移動する場合が多い。この不連続線は海陸風前線と呼ばれる。海陸風前線の発生する場所で大気汚染濃度が高くなる。純粋な海陸風のスケールは 20 km 程度であるが、これに、他の要因が重なり大規模海風が発生し、大気汚染物質が広域的に運ばれる。日本の場合は、風向が日中と夜間で反対になる現象はかなり内陸にまでおよぶ。この原因として山岳地域の存在があげられる。例えば、関東地域の場合には長野県の松本盆地に発生する熱的な低気圧部に海からの風が吸い込まれ、200km 以上に亘る海風が発生する。これを大規模海風と呼ぶ。この大規模海風の影響で微小粒子は内陸深くまで輸送される。

ヒートアイランド (heat island) 現象もまた、大気汚染に重要な影響を及ぼす局地気象である。都市の気温がその周辺よりも高いことは昔から知られていた。夏季の大気汚染への悪影響が懸念されている。夏季のヒートアイランドと大気汚染については、弱風の発生と、大気汚染物質拡散の抑制、海風の進入の阻止と空気の対流・滞留、低気圧部への汚染物の取り込み、大気汚染発生の促進、海陸風の強さを弱める等の働きがあると考えられる。

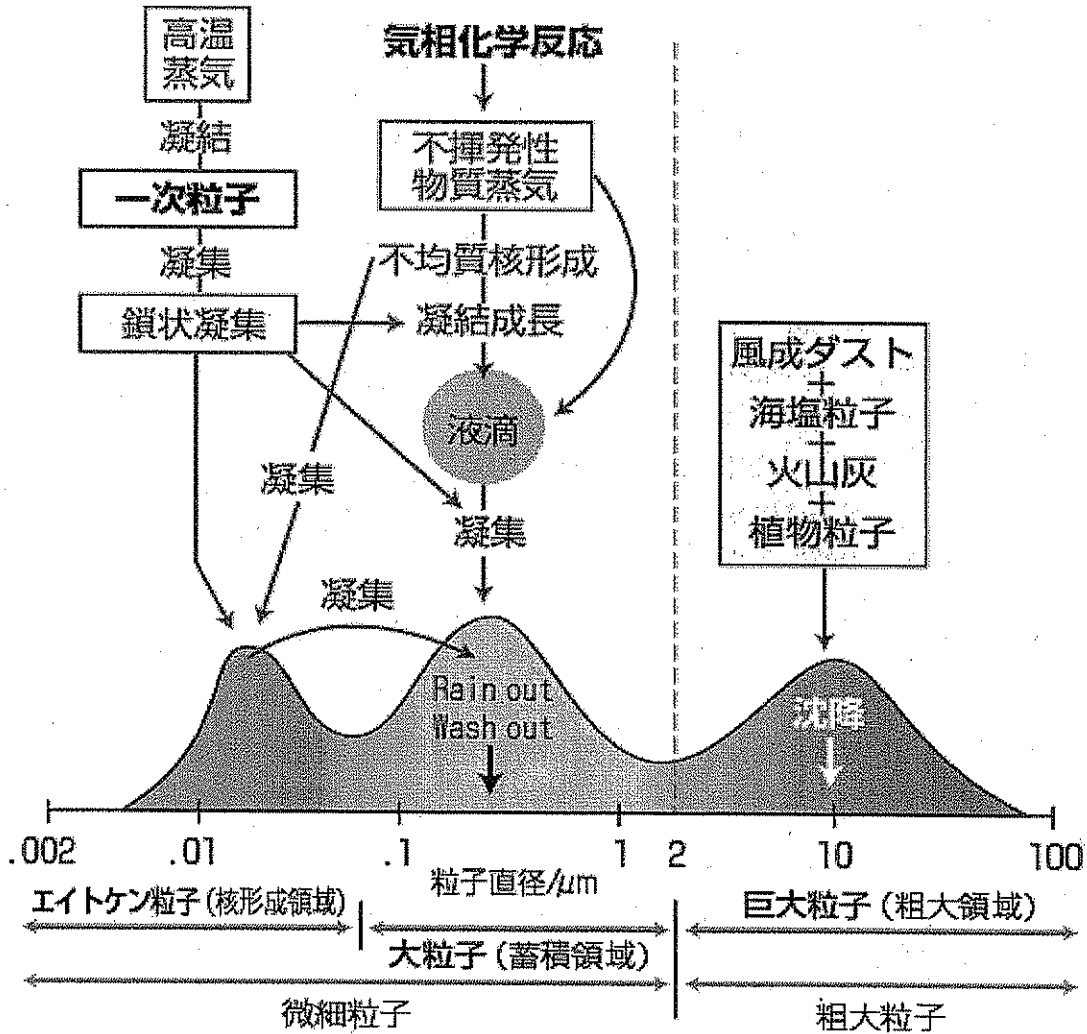
#### 4.2. 沈着

大気粒子の除去過程には、①降雨や降雪等による除去、②拡散や泳動、慣性衝突等による除去、③重力沈降による除去等が挙げられる。①の降水による除去を湿性沈着、②、③の過程を乾性沈着と呼ぶ。化学的、物理的に反応・変質した粒子はこれら湿性と乾性の沈着により、環境大気中から除去され消失する (図 4.2.1)。

降雨等の湿性沈着は、粒子が降水に取り込まれて大気から除去される過程であり、地表面の性状による影響をほとんど受けないが、乾性沈着の場合には粒子が地表面と接触してそこに捕捉される過程であることから、沈着面の種類や性状に依存し、さらには粒子の大

きさや風速、大気の流れ等の気象条件の影響を受ける。

発生源近傍では、沈着・除去過程の中でも乾性沈着の比率が大きく、発生源から離れるに従って、湿性沈着の比率が高まるのが一般的である。



Whitby et. al. (1980)

図 4.2.1 粒子状物質の大気中からの除去

#### 4.3. 滞留

大気粒子の大気での滞在時間には、気象条件と高さが大きく影響する。大気粒子が地表付近にある場合は乾性沈着により、降水がある場合は湿性沈着により大気中から除去される比率が高まる。対流圏での大気粒子の寿命は4~5日から一週間程度であると言われていたが、成層圏では、一週間以上にわたり存在する事もある。超微小粒子や粗大粒子の大気中での半減期は数分から数時間であるのに対し、蓄積モード粒子は数日から数週間に亘り大気中に存在し、自然や人間に様々な影響を及ぼすと考えられる。

#### 4.4. その他

微小粒子は大気中での滞留時間が長いので、様々なスケールの気象影響を受ける。すなわち、総観規模 (Synoptic scale meteorology、地球規模、大陸規模)、領域規模 (Regional scale meteorology)、都市規模 (Urban scale meteorology、都市スケール)、局所規模 (Local scale meteorology、沿道や煙突周辺など) の気象学が大気汚染気象学 (Air pollution meteorology) の全分野を構成する。地球の空気の流れは、赤道低圧帯における強い上昇気流と成層圏への流れ、成層圏から対流圏への空気の動き (春季における  $O_3$  の下降、Stratospheric folding)、低気圧や寒冷前線に伴う地上からの輸送 (黄砂現象)、熱帯低気圧、局所的な熱低気圧、温帯低気圧、移動性高気圧等に伴う空気の流れ、等があり、微小粒子は、広域的には、この空気の流れの中で、輸送される。

気象現象には竜巻のような時間的・空間的スケールの小さなものからブロッキング高気圧のように大規模かつ長期にわたる現象まで様々なスケールの現象がある。このうち空間的スケールが数 10 km から数千 km の現象は中規模現象と呼ばれており、数日から 1 週間程度継続する。梅雨前線に伴う低気圧や台風などがこれに該当する。こうした中規模現象の影響を考えれば 2 週間程度以上の継続した測定が必要であると言える。

### 5. 発生源

#### 5.1. 粒子状物質の発生源

発生源の情報は、地域における微小粒子状物質の発生実態を把握できるとともに、微小粒子状物質の汚染構造を解析する上での基礎資料となるため、整理する必要がある。実質的には、シミュレーションモデルの構築作業を通じてインプット情報の確認と個別情報の精度を高めることが必要である。

発生源としては、人為起源と自然起源に大別され、人為起源には、固定発生源 (工場・事業場等) と移動発生源 (自動車、船舶、航空機等) がある。自然発生源としては、土壌起源、海塩粒子等がある。

また、農耕や遊牧に起因するもののほか、砂漠化した地域からの土壌飛散や森林火災等のように、人為起源か自然発生源か区別の難しい場合もある。さらに、都市地域において見られるようなコンクリート構造物からの飛散、自動車走行に伴うタイヤ摩耗や道路堆積物の飛散、農耕地域で見られる野焼き等、発生量の把握が難しい発生源も数多く存在する。

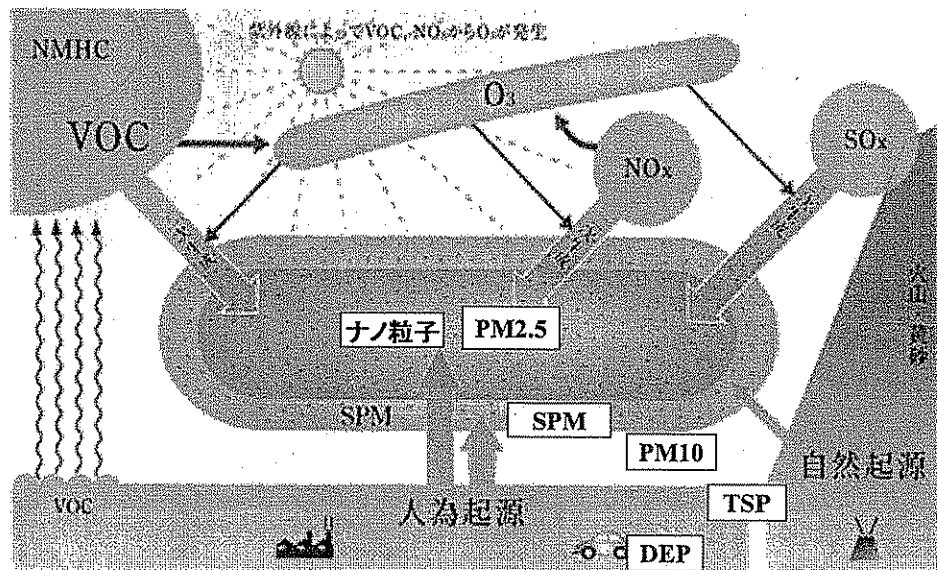


図 5.1.1 粒子状物質の発生源

## 5.2. 人為起源

### 5.2.1. 固定発生源

固定発生源としては、ボイラー、焼却炉等のばい煙を発生する施設や、コークス炉、鉱物の堆積場等の粉じんを発生する施設等があげられる。その他、個々の発生源を特定することが困難である、一般家庭、小型ボイラー等があげられる。

発生源の把握のためには、環境省による大気汚染物質排出量総合調査等を用いて、必要な情報を整理する必要がある。整理すべき基礎的情報を下記に示す。

- ① 発生源の種類 (ばい煙発生施設、一般粉じん発生施設等)
- ② 煙突の高さおよび位置
- ③ 排出量
- ④ 使用燃料
- ⑤ 処理装置の有無 等

排出量を算出するには、ばい煙発生施設の主要な施設 (ボイラー、焼却炉等) について、施設規模毎、使用燃料毎に微小粒子状物質の排出係数を文献調査等により導出し、その排

出係数毎に施設数を乗ずることにより行う。

### 5.2.2. 移動発生源

移動発生源としては、自動車、船舶、航空機等があげられる。

発生源情報を把握するためには、国土交通省等による統計調査および地方自治体に対するアンケート結果を活用し、発生源の種類（例 自動車：約 8 種類、船舶：約 7 種類、航空機：4 種類）ごとに、必要な情報を整理する必要がある。整理すべき基礎的情報を下記に示す。

- ① 発生源毎の排出係数
- ② 使用燃料
- ③ 道路座標、交通量
- ④ 港湾位置、入港隻数
- ⑤ 空港位置、航空機発着回数 等

### 5.3. 自然起源

自然発生源としては、土壌粒子、海塩粒子、火山噴煙等があげられる。特に、四方を海に囲まれた我が国では、海岸線に沿って都市が発達していることから、季節特有の風系により飛散する海塩粒子の影響を多分に受けていることから注意が必要である。

### 5.4. 越境移流

国外より越境移流する代表的な粒子状物質として、黄砂が挙げられる。中国内陸部のタクラマカン砂漠、ゴビ砂漠や高度高原などの乾燥、半乾燥地域で風によって巻き上げられた鉱物・土壌粒子は偏西風によって運ばれ、しばしば日本にまで飛来する。黄砂と一般に呼ばれる現象は、このような鉱物・土壌粒子が大気中に多量に巻き上げられ、徐々に下降する現象を指し、そのような鉱物・土壌粒子そのものを黄砂と呼ぶこともある。

大気中微小粒子状物質濃度に及ぼす黄砂の寄与はSPMに及ぼす影響に比べて相対的に小さいが、黄砂構成粒子の粒径は黄砂発生地域からの距離により異なり、輸送距離が長い場合には微小粒子の比率が大きいケースもある。

また、黄砂が大気境界層内を輸送される場合が多く、この場合には黄砂に大気汚染物質が付着する。日本においては、黄砂は一般的に 3 月～4 月に多く観測され、11 月にも観測される場合がある。その他、大気汚染物質（SO<sub>x</sub>、CO、光化学オキシダント）が輸送されて来る場合もある点にも留意が必要である。

## 6. 環境動態

大気粒子の環境動態は、時間的にも空間的にも広い範囲に及んでおり、時間的には、数

分から 100 年以上のオーダー、空間的には数 m から地球全体の規模を含む。環境動態には、発生源の分布と強さ、気象条件、化学反応条件が複合的に影響を及ぼす。

### 6.1. 大気微小粒子濃度の日内変化

大気微小粒子の時間・空間変化には発生源条件、気象条件、化学反応条件が同程度に影響を及ぼす。多くの都市では、ラッシュアワー時間帯に粒子状物質の発生量が多くなるので、特に、沿道大気汚染測定局では朝夕に大気微小粒子濃度のピークが発生する。この時間帯においては一次大気汚染物質の寄与が大きい。早朝や夕方には、接地逆転層や風などの大気が拡散しにくい安定な気象条件が発生する事も濃度を上昇させる要因となる。

一方、日中には、混合層が発達し、日射量が強くなり、気温も上昇するので、光化学反応が起こり、二次生成微小粒子が発生する。特に夏季には、この影響が大きい。

粒子状物質は、他の大気汚染物質 (SO<sub>2</sub>、NO<sub>2</sub>、CO、光化学オキシダント) とは異なり、単独の化学物質ではなく混合物であるが、朝夕と日中では、その内容が異なる。

### 6.2. 大気微小粒子濃度の週内変化

平均的には大気微小粒子濃度は平日の方が高い。平日と祝祭日における発生源の構成や強さには大きな違いがあり、この事が大気環境濃度に影響を及ぼす。一般に祝祭日においては、生産活動が低下するので、大型車の走行が少なくなり、このため沿道大気汚染濃度は低減する。

一方、光化学オキシダント濃度は都市域において週末に高くなる事があり、ウィークエンドオゾンと呼ばれている。これには、光化学 O<sub>3</sub> の生成と消滅のバランスや原因物質である炭化水素と NO<sub>x</sub> の比率、原因物質の地域的な分布等、複雑な要因が関係しており、都市によって現れ方が異なる。また同じ都市でも地域によっても違いがある。(神成 2007)

### 6.3. 大気微小粒子濃度の季節間変化

冬季と夏季とでは、大気微小粒子生成に及ぼす気象条件に違いがあるので微小粒子の構成物質が大きく異なる。冬季において高濃度が発生する主要因は接地逆転層 (地上数十 m から 2~300m 程度) の発生と弱風であるのに対し、夏季においては沈降性逆転層内 (地上 2~4km 程度) における活発な空気の混合と光化学反応が主要要因である。この為、冬季には接地層付近に存在する炭素状成分を主体とした一次生成微小粒子が主構成要素であるのに対し、夏季には二次生成微小粒子が主構成要素となる。冬季に微小粒子濃度が高濃度になる時には炭素粒子や無機粒子が多いのに対し、夏季には有機粒子が多く存在する。有機粒子の中に占める二次粒子の比率は特に夏季に高くなり、最大で 70% に達する。最近の季節変化の特徴としては、冬季の高濃度の出現が少なくなって来た事や、夏季における有機粒子の比率が相対的に増加している事が上げられる。

一方、春季には黄砂飛来による SPM の上昇があり、この事が特に日本の西部地域での

SPM 環境基準未達成の大きな要因となっている。黄砂飛来時には微小粒子濃度の上昇も認められる。

#### 6.4. 大気微小粒子濃度の経年変化

経年変化には、気象条件と発生源条件が影響を及ぼす。1999年に年間だけ SPM 濃度が全国的に多く低減したが、その主要因は夏季における気圧配置パターンが通常の年とは大きく異なり、北太平洋高気圧の中心が仙台沖まで北上して強風が卓越した為であった。一方、1999年以降、SPM 濃度は明瞭に低減の傾向にあり、この背景としては、首都圏を中心としたディーゼル車規制や、自動車 NO<sub>x</sub>・PM 法規制、ダイオキシン対策特別措置法による対策等が効果を上げたと考えられる。

#### 6.5. 大気微小粒子濃度の統計的特性

日本においては微小粒子に関する統計的なデータは不十分であるが、SPM に関しては、平均値と頻度分布の解析が行われている(神成と若松(2004))。解析結果によれば、高濃度の低下傾向よりも、平均値の低下傾向の比率が小さい。この事は平均値と 2%除外値の関係が経年的に変化して来ている事を示している。

気象は周期的に変化するので野外調査での環境動態把握には、この周期よりも長い期間の観測が必要となる。例えば、春季には低気圧と移動性高気圧の 1 サイクルが 1 週間程度の事が多いので、平均的な状況を知るためには少なくとも 2 週間程度の期間に亘る統計値取得が望ましい。

National Council on Radiation Protection and Measurements. Deposition, Retention and Dosimetry of Inhaled Radioactive Substances. Report No.125.

Natusch, D.F., Wallace, J.R. & Evans, C.A., Jr. (1974). Toxic trace elements: preferential concentration in respirable particles. Science, 183, 202-204.

Whitby, K.T. (1978). The physical characteristics of sulfur aerosols. Atmospheric Environment, 12, 135-159.

Wilson, W.E. & Suh, H.H. (1997). Fine particles and coarse particles: concentration relationships relevant to epidemiologic studies. Journal of Air & Waste Management Association, 47, 1238-1249.

Yeh, H.C., Phalen, R.F. & Raabe, O.G. (1976). Factors influencing the deposition of inhaled particles. Environmental Health Perspectives, 15, 147-156.

神成陽容 & 若松伸司. (2004). SPM 年平均濃度と 2%除外値の関係の近年の変遷. 大気環境学会誌, 39, 246-255.



## 7. 大気中濃度測定方法

### 7.1. 粒子状物質の測定方法

現在、我が国においてはSPM濃度の環境基準が1時間値及び1時間値の1日平均値で定められており、1時間ごとの測定が可能なβ線吸収法、光散乱法及び圧電天秤法が環境基準を評価する自動測定法として定められている。しかし、これら自動測定機の校正や試験はフィルタ法による測定との並行試験によって行われている。また、米国において定められているPM<sub>2.5</sub>環境基準は、フィルタ法による測定を標準測定法(FRM)として日平均値及び年平均値が定められており、フィルタ捕集による質量測定法は質量濃度測定方法の基本となる測定方法であると考えられる。

一方、PM<sub>2.5</sub>の測定においても現行のSPMと同様、時間変動をリアルタイムに確認できる自動測定機が有用であるが、米国ではこれまでのところ、FRM及びFRMと同等の性能を有するとされる連邦等価法(FEM)に認定された自動測定機はないことから、諸外国において、PM<sub>2.5</sub>の各種自動測定機の開発や改良が活発に行われている状況にある。

なお、大気環境中の微小粒子状物質(PM<sub>2.5</sub>)濃度に関して調査を行う場合の参考として活用されることを目的として、平成12年に大気中微小粒子状物質(PM<sub>2.5</sub>)質量濃度測定マニュアル(環境庁(2000))が作成されている。さらに、平成19年には同マニュアル作成以降に収集されたPM<sub>2.5</sub>計測技術に関する情報等をもとに、同マニュアルの改訂版(環境省(2007))が作成され、併せて成分測定マニュアル(環境省(2007))も作成されたところである。

### 7.2. 粒径別測定方法

大気粉じんは、さまざまな発生源から生じ、広範な形態学的、化学的、物理的、熱学的な性質を持っている。大気粉じん中には、無機イオン、金属化合物、炭素元素、有機化合物、地殻化合物など、様々な起源の粒子が存在する。そのような粒子群は、空気力学径に従いサイクロンやインパクタによって分離測定・捕集される。

米国では、PM<sub>10</sub>、PM<sub>2.5</sub>のそれぞれの分離径を対象としたモニタリングが実施されている。PM<sub>10</sub>を測定するためのFRM(Code of Federal Regulations(2001b)、Code of Federal Regulations(2001a))では、粒子を透過効率50%、空気力学的直径(Da)10±0.5µmで慣性作用を利用して分離することがサンプラの規格として定義されている。

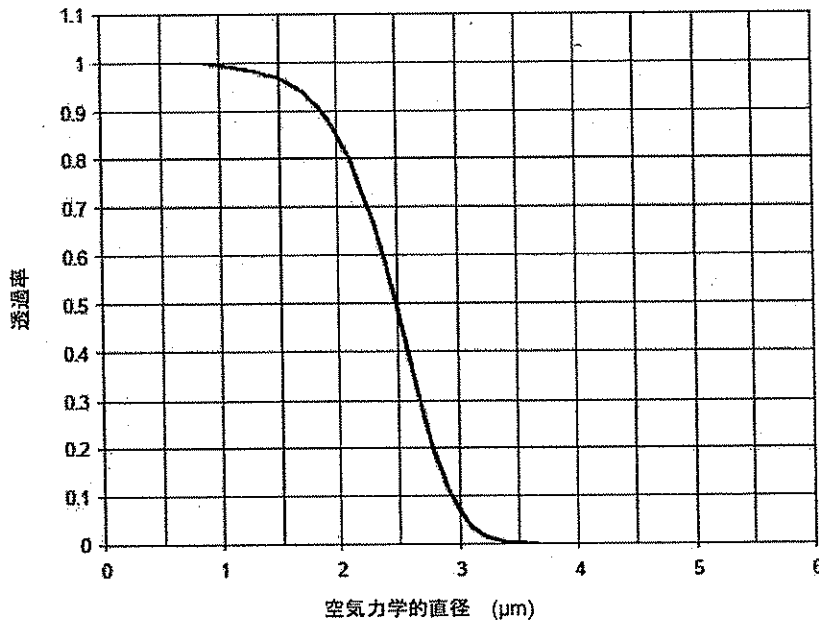


図 7.2.1 PM<sub>2.5</sub>分粒装置の透過率特性  
 米国 FRM WINS (Well Impactor Ninety-Six) インパクトタ  
 (U.S.EPA (2000)より引用和訳)

機器メーカーは、複数による 24 時間の並行フィールドテストで、大気中濃度が  $80\mu\text{g}/\text{m}^3$  以下の場合、測定値間のはらつきが  $\pm 5\mu\text{g}/\text{m}^3$  以内に入ること、 $80\mu\text{g}/\text{m}^3$  を超える場合はそのばらつきは平均値の 7% 以内におさまることを実証するよう規定されている。一方、PM<sub>2.5</sub> を測定するための FRM サンプラは、大気吸引口のあとに PM<sub>10</sub> と PM<sub>2.5</sub> のインパクトタを直列にして FRM 本体につないだ導入部と粒子収集効率が 99.7% 以上の 47mm ポリテトラフルオロエチレン(以降「PTFE」と表記)製フィルタ捕集部から成る。サンプリングの持続時間は 24 時間で、その間の捕集試料の温度と周辺気温との差は  $5^\circ\text{C}$  以内とされている。試料を採取した後、試料は温度  $20\sim 23^\circ\text{C}$  ( $\pm 2^\circ\text{C}$ )、相対湿度  $30\sim 40\%$  ( $\pm 5\%$ ) の範囲で 24 時間エージングを行う。フィルタの質量測定は、同じ温度と相対湿度の条件下で行うこととされている。周辺相対湿度 30% 以下で行われたサンプリングについては、秤量において、相対湿度 20% まで許容されている (Code of Federal Regulations (2001b))。

我が国では、大気中微小粒子状物質 (PM<sub>2.5</sub>) 成分測定暫定マニュアル (環境省 (2007)) の中で、その捕集方法が記述されている。その中で、試料大気の導入口、分粒器、大気導入管、デニューダ、フィルタ保持部、流量制御部、吸引ポンプ、表示記録部および温度計部などが定められている。特に分粒器は、サイクロン式、バーチャルインパクトタ式またはオイル無しタイプインパクトタ式で、米国 EPA 連邦標準法 (WINS インパクトター式による) で定めた分級特性

と同等の性能をもつものと規定されている。大気流量については、世界的動向に対応し実流量とされている。従来、20℃、1気圧換算方式を用いていたため、過去のデータとの比較においては換算が可能となるよう、気象成分も同時に記録しておくことが望ましい。秤量条件は、21.5℃±1.5℃、相対湿度50±5%と規定されている。湿度に関する検証実験では、35%から50%へ湿度を上げた場合、最大で5μg/m<sup>3</sup>程度の質量変化が生じるとの結果が得られている。近年は、吸湿性、潮解性を有する二次粒子の占める割合が相対的に高くなっており、湿度変化がPM<sub>2.5</sub>の質量濃度に及ぼす影響が大きくなっている。米国における標準法では、それらの湿度影響を排除するために、温度21.5±1.5℃、相対湿度35±5%と規定されている。EUでは、温度20℃±1℃、相対湿度50±5%であるが、相対湿度を米国基準に移行する動きも見られる。

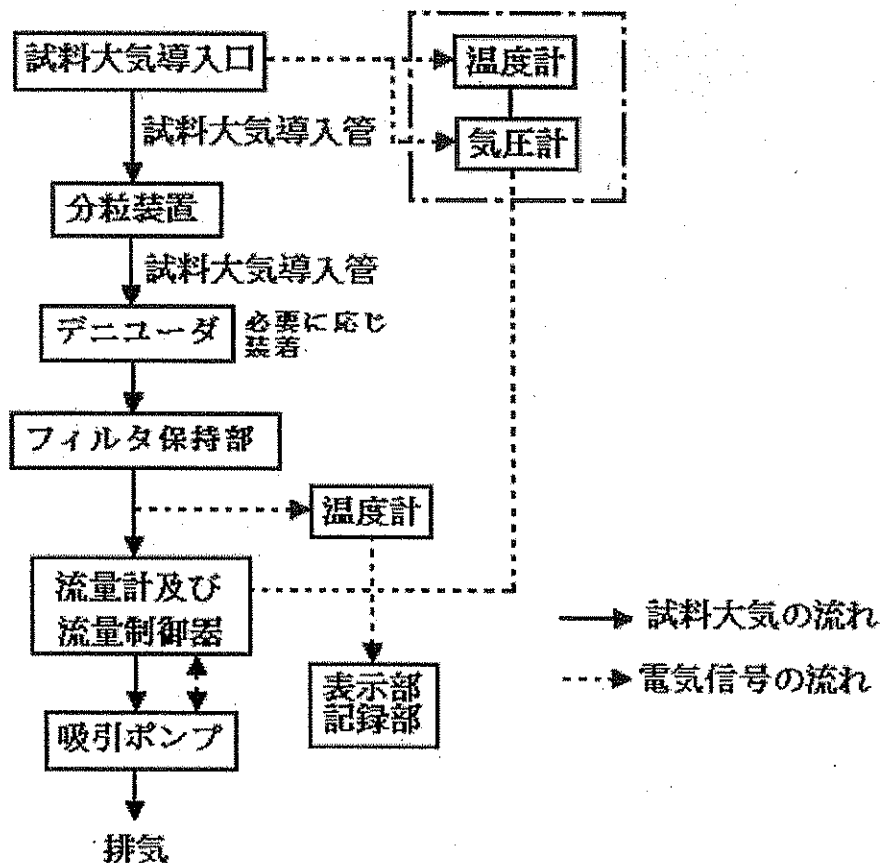


図 7.2.2 フィルタ法による採取装置の基本構成(環境省 (2007))

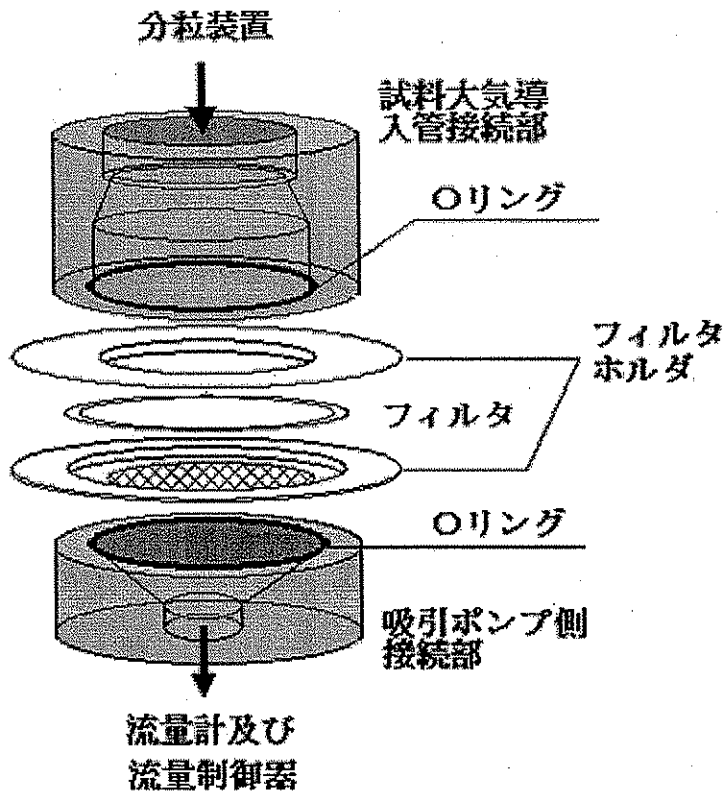


図 7.2.3 フィルタ保持部の図解(環境省 (2007))