

3. 曝露評価に関する知見

3.1. 大気中濃度

3.1.1. 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(<http://www.epa.gov/enviro/html/airs/index.html>)、IMPROVE (Interagency Monitoring of Protected Visual Environments、<http://vista.cira.colostate.edu/IMPROVE/Default.htm>)、米国クライテリアドキュメント(U.S.EPA (1996))の資料をもとに、米国のPM₁₀、PM_{2.5}及びPM_{10-2.5}の実態をまとめた。

3.1.1.1. PM₁₀とPM_{2.5}の年平均値の推移

1999～2001年の3年間における全米のPM₁₀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3.1.1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みると、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)。

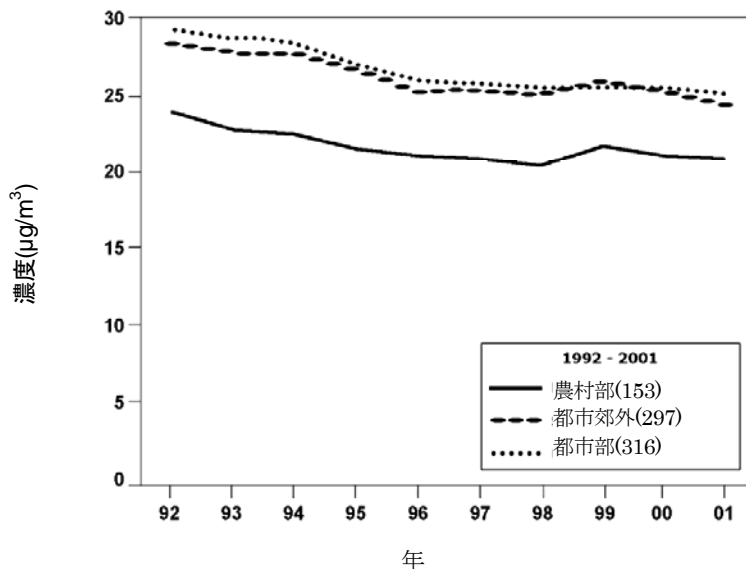


図 3.1.1 1992 年から 2001 年までの PM₁₀ 年平均値の変化(U.S.EPA (2004))

全米都市部及びその周辺部でPM₁₀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等が、微小粒子濃度の減少に寄与したものといえる。

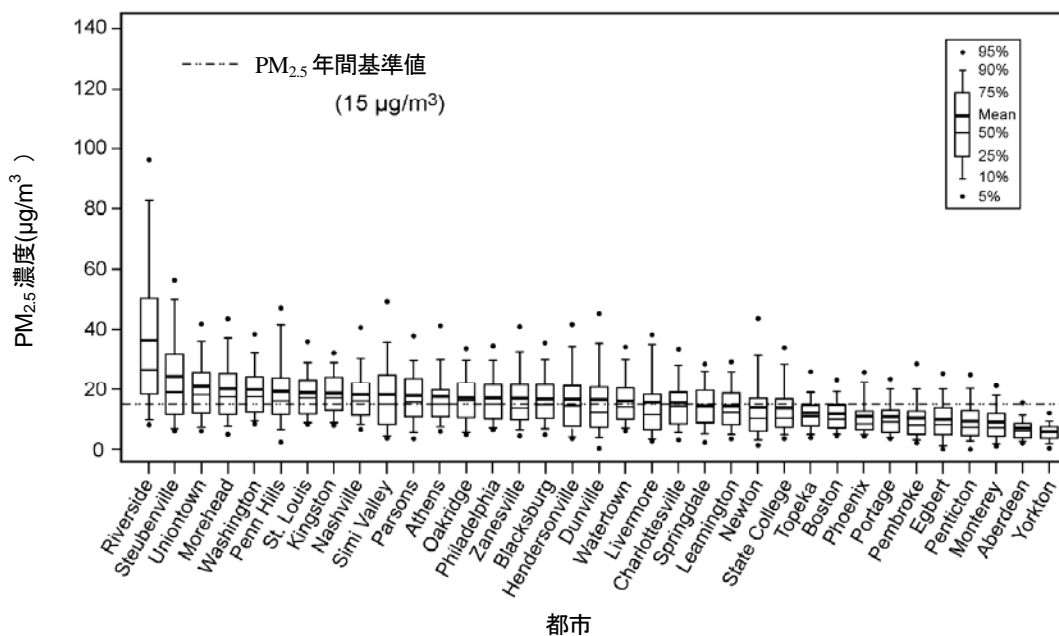


図 3.1.2 1980年代から1990年代前半におけるPM_{2.5}の都市ごとの24時間年間平均値とその濃度範囲（米国及びカナダの健康影響調査結果から）。
参考報告：（U.S.EPA（2004））

図 3.1.2 は米国とカナダにおいて1980年代後半に実施したPM_{2.5}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（U.S.EPA（2004））。Lipfert（1998）は、多くの都市部において1970～1990年の20年間に、PM_{2.5}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_{2.5}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_{2.5}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、アンモニウム塩等のPM_{2.5}主要成分の減少に伴い、2～37%のPM_{2.5}濃度が減少したと報告されている。

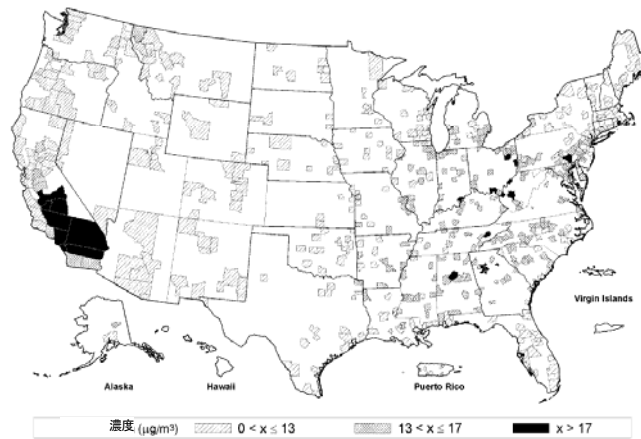


図 3.1.3 1999 年から 2001 年までの PM_{2.5} の年間平均濃度分布(µg/m³)
 情報源： AIRS (Aerometric Information Retrieval System)

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 13µg/m³ であった。その分布を示したのが図 3.1.3 である。カリフォルニアや南東部域の年平均濃度が高く、17µg/m³ を超えている。AIRS データによる全米大都市域の年平均濃度は 6-30µg/m³ の範囲にあり、フィラデルフィア、ワシントン、ナッシュビル等、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 10µg/m³ であり、その分布範囲は 1~50µg/m³ 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} 及び PM₁₀ の濃度は、概して過去十数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 PM₁₀ バックグラウンド濃度は 4~8µg/m³ と推定され、PM_{2.5} バックグラウンド濃度は 2~5 µg/m³ 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 1~4 µg/m³ と推定されている。PM_{10-2.5} については、PM₁₀ 及び 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 7µg/m³、東部で 1 以下から 9 µg/m³ 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 15~30% 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±2.3µg/m³ 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 PM₁₀ 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 2.5µm 以下の部分が 30~50% も占めるという。米国に飛来する黄砂も同様に中央径は 2

～3 μm 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、米国内の森林火災等、野火によりバックグラウンド濃度が押し上げられる。

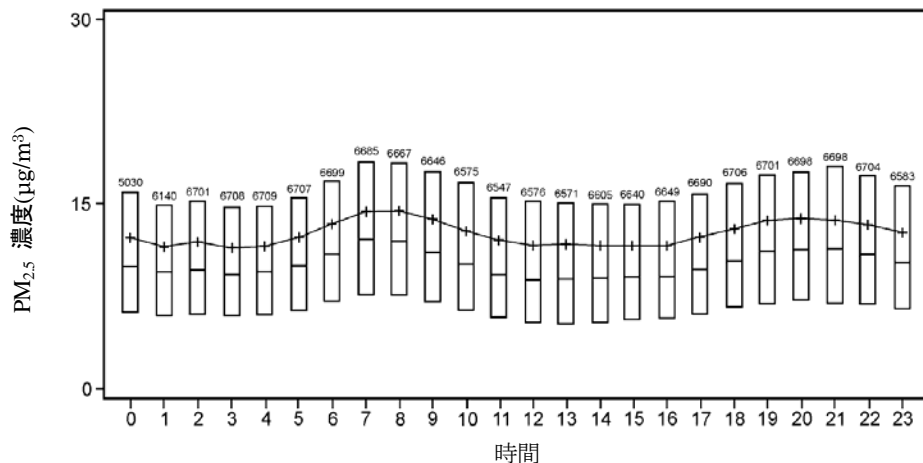


図 3.1.4 全米における PM_{2.5} 平均濃度の時間値（日内）変動。
四分位範囲、中央値、平均値(+)で示す。箱ひげ図上の数値は 1999 年の観測回数を表す。
情報源：Fitz-Simons ら (2000)

3.1.1.2. PM_{2.5} の時間値変動（日内変動）

1999 年の AIRS データをもとに PM_{2.5} の時間値変動を示した図 3.1.4 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等を含む半揮発性物質の消失誤差がデータ中に含まれていることに留意が必要である。また、PM_{2.5} の日内変動は、排出量変化、二次生成量の変化、地表面付近に形成される混合層の高さ及び空気塊の安定度等によって左右される。

3.1.1.3. PM_{2.5} の成分濃度

フィラデルフィア(ペンシルベニア州)とフェニックス(アリゾナ州)における PM_{2.5} 及び PM_{10-2.5} 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 等の地殻起源元素は、PM_{2.5} 濃度よりも PM_{10-2.5} 濃度と相関関係が高い。PM_{2.5} 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/m³ 前後、Cu が 5～10ng/m³、Zn が 10ng/m³ のオーダーにあった。これらの元素は PM_{10-2.5} でも同様の濃度レベルにあった。代表例としてフェニックスの大気粉じんの化学成分濃度を表 3.1.1 に示す。

表 3.1.1 フェニックスにおける PM_{2.5}、PM_{10-2.5} の化学組成濃度(ng/m³)
 及びそれらと粉じん質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	濃度 (ng/m ³) ± 標準偏差(unc)	相関係数	n = 164	濃度 (ng/m ³) ± 標準偏差(unc)	相関係数
PM _{2.5}	11.2 ± 0.6 (0.6) × 10 ³	1	PM _{10-2.5}	27.6 ± 14.8 × 10 ³	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、時期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じん中の Pb 濃度は、2000 年に約 5ng/m³ 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/m³ 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/m³ であったが、1990 年には 39ng/m³ 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 等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、潤滑油等、多岐にわたるといわれている。

超微小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 (EC) (3.5~17.5%)、硫黄(1~18%)、NO₃⁻ (0~19%)、NH₄⁺ (0~9%)、金属酸化物 (1~26%) 等であった。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。

代表地点において SASS 等によって捕集した PM_{2.5} 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、NH₄⁺、SO₄²⁻、NO₃⁻ 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、EC や有機炭素 (OC) よりもはるかに濃度が低いことがわかった。OC/ EC の比は、約 4~6 となる地点が多い。SO₄²⁻ と NO₃⁻ 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、(NH₄)₂SO₄ 及び NH₄NO₃ で存在していることが示唆されている。なお、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 等、土壌起源や海塩起源と思われる元素が、PM_{2.5} においても主要金属類であることである。

3.1.2. 日本の事例

日本では、環境省が平成 13~18 年にかけて、PM_{2.5} 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 3.1.3 の分類に基づく地点で測定を実施した(環境省 (2007))。SPM は β 線式粉塵濃度計で、PM_{2.5} は 50°C 加熱方式 TEOM による連続測定 (平成 13~18 年) を行った。

表 3.1.3 調査地点の分類

地理的な分類	都市・非都市による分類
<p>(一般局)</p> <ol style="list-style-type: none"> 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) <p>(自排局)</p> <ol style="list-style-type: none"> 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) 近畿地方(大阪府、兵庫県) 	<ol style="list-style-type: none"> 1. 都市部 (一般局) <p>取手市取手市役所測定局(茨城県)、太田市綿打中学校測定局(群馬県)、蓮田市蓮田測定局(埼玉県)、戸田市戸田・蕨測定局(埼玉県)、市川市真間小学校(千葉県)、板橋区氷川測定局測定局(東京都)、川崎市国設川崎測定局(神奈川県)、名古屋市鳴海配水場測定局(愛知県)、守口市大日測定局(大阪府)、堺市金岡測定局(大阪府)、大阪市国設大阪測定局(大阪府)、神戸市垂水測定局(兵庫県)、尼崎市国設尼崎測定局(兵庫県)、倉敷市玉島測定局(岡山県)、福岡市吉塚測定局(福岡県)</p> 2. 非都市部 (一般局) <p>札幌市西測定局(北海道)、仙台市長町測定局(宮城県)、涌谷町国設笹岳測定局(宮城県)、上越市深谷測定局(新潟県)、日向市旧日向保健所測定局(宮崎県)</p> 3. 自排局 <p>取手市消防本部消防署(茨城県)、入間市国設入間自排測定局(埼玉県)、市川市塩浜体育館(千葉県)、野田市国設野田測定局(千葉県)、千代田区国設霞ヶ関測定局(東京都)、横浜市浅間下測定局(神奈川県)、川崎市池上新田公園前測定局(神奈川県)、厚木市国設厚木測定局(神奈川県)、稲沢市稲沢測定局(愛知県)、名古屋市元塩公園測定局(愛知県)、飛島村国設飛島測定局(愛知県)、守口市大庭浄水場(大阪府)、大阪市出来島小学校測定局(大阪府)、四條畷市国設四條畷測定局(大阪府)、尼崎市武庫川測定局(兵庫県)、尼崎市国設尼崎自排局(兵庫県)</p>

※都市部・非都市部による分類はPM_{2.5}濃度の程度により分類した。比較的濃度の高い地点を都市部とし、濃度の低い地点を非都市部とした。

(環境省 (2007)に基づき作成)

β 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_{2.5}の化学成分を測定するためにSASSによる14日間の捕集を季節ごとにTEOMと並行測定が行われた。SASSの方がTEOMよりも米国のFRM (Federal Reference Method、PM_{2.5}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)

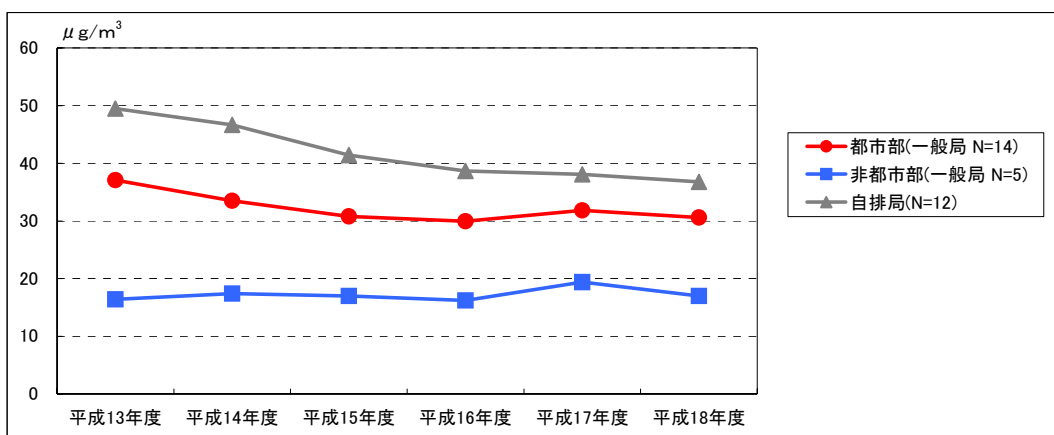
平成13～18年に季節ごとに行った並行測定によるTEOM/SASS比は、要約すると一般局(都市部)及び自排局では夏季に約1、他の季節に約0.8となった。その理由としては、TEOMは粒子状物質中に含まれている水分を蒸発させるためフィルタ部及び大気導入管を50℃で加温しており、PM_{2.5}中に含まれている水分以外の半揮発性物質(硝酸塩、低沸点の有機化合物等)も同時に揮散することにより、SASSに比べてやや低めの測定値を示す傾向があるためと考えられる。この濃度差はPM_{2.5}濃度や半揮発性物質(NH₄NO₃やOC等)濃度が高いほど顕著であり、また気温が低い時期ほど差が大きくなる傾向が見られる。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。

3.1.2.1. SPMとPM_{2.5}の年変動

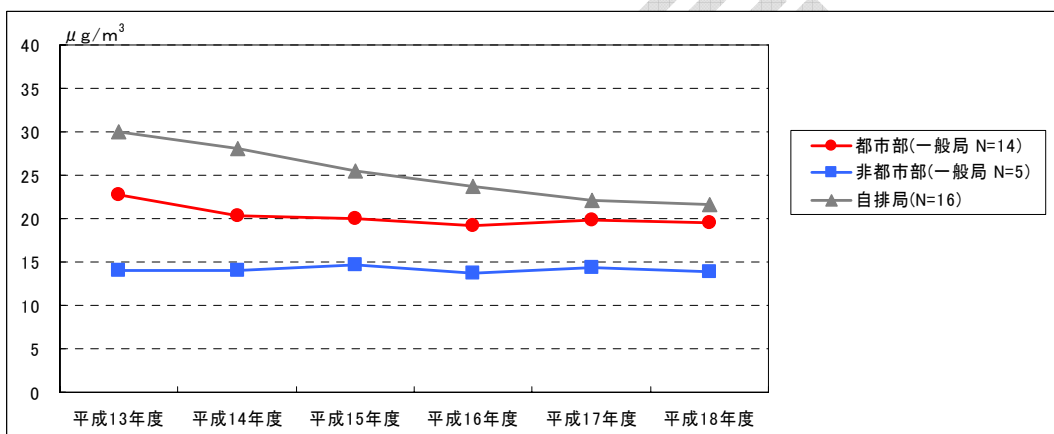
SPM(β 線)質量濃度の年変動を図3.1.5に示す。平成13～17年度の推移をみると、都市部の一般局及び自排局で減少傾向がみられ、特に自排局での減少割合が大きい結果となった。一般局のこの減少傾向は、関東地方が他地域に比べ顕著であった。これに比して、自排局の減少には地域差が見られなかった。

PM_{2.5}(TEOM)の質量濃度の年変動を図3.1.6に示す。平成13～18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3.1.5 SPM(β線)質量濃度の年変動 (環境省 (2007))



※N=調査地点数

図3.1.6 PM_{2.5}(50°C加熱方式TEOM)質量濃度の年変動 (環境省 (2007))

3.1.2.2. SPM と PM_{2.5} の月間変動 (季節変動)

SPM (β線) の質量濃度の月変動を図 3.1.7 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。

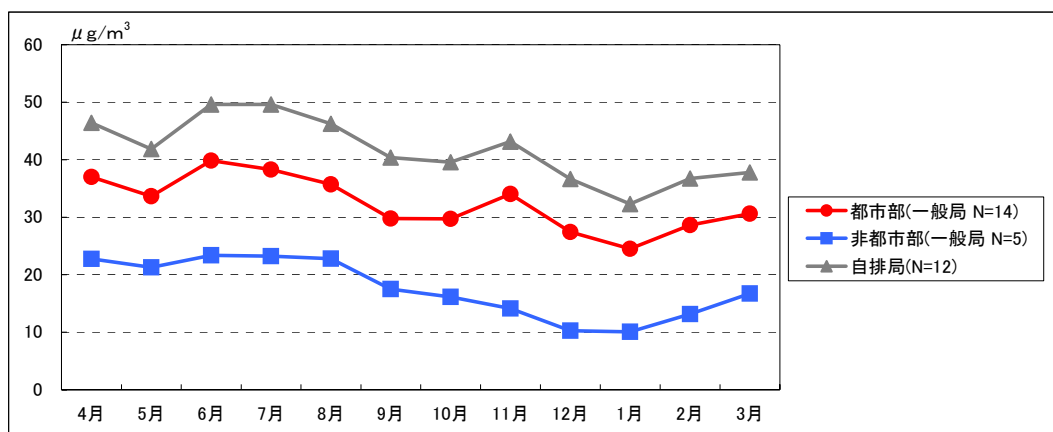
一般に、高濃度になる要因としては、春季から夏季にかけては光化学反応が活発に行われることによる二次粒子の生成、また、他の季節に比べ黄砂が春季に多く観測されるため、その影響を受けて濃度が高くなることもある。一方、11 月は、大気境界層が安定形成され大気汚染物質の拡散抑制作用が顕著になった結果と考えられる。

PM_{2.5} (TEOM) の質量濃度の月変動を図 3.1.8 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/m³ 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。

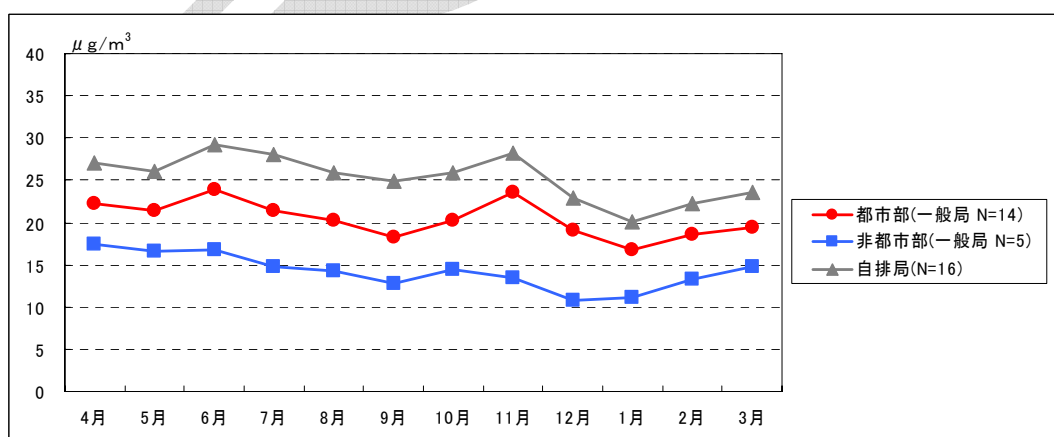
一般に、高濃度になる要因としては、春季から夏季にかけては、紫外線等、光エネルギーが強いため、光化学反応が活発になりやすく、二次粒子が生成されやすくなることが考えられる。また、春季は他の季節に比べ黄砂が多く観測されるため、黄砂の影響を受けて濃度が高くなることも考えられる。ただし、黄砂のピーク粒径は $4\mu\text{m}$ 程度であるため、SPMに比べ、 $\text{PM}_{2.5}$ に対する影響はかなり小さい。11月は、大気境界層が形成されることによると考えられる。

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3.1.7 SPM(β線)質量濃度の月変動 (環境省 (2007))
(平成13~18年度の平均値)



※N=調査地点数

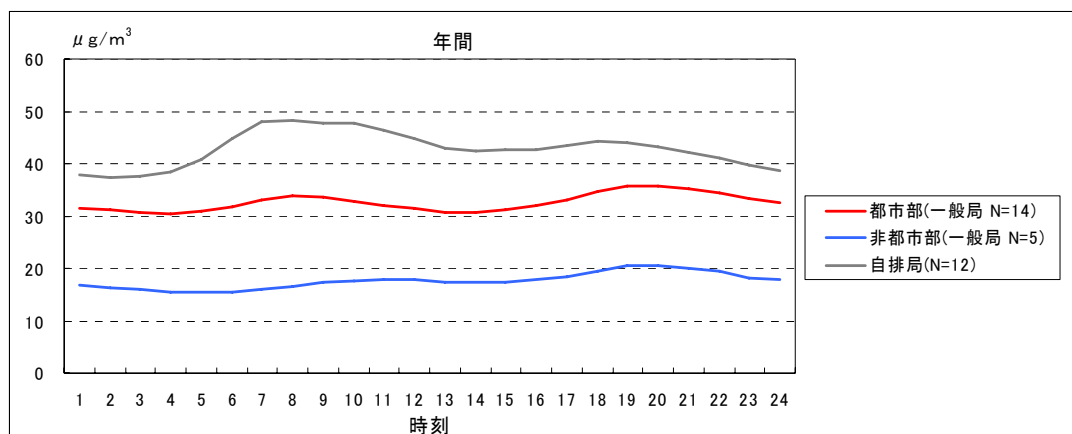
図3.1.8 $\text{PM}_{2.5}$ (50°C加熱方式TEOM)質量濃度の月変動 (環境省 (2007))
(平成13~18年度の平均値)

3.1.2.3. SPM と PM_{2.5} の時間変動

SPM (β線) の質量濃度の時間変動を図 3.1.9 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った。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。

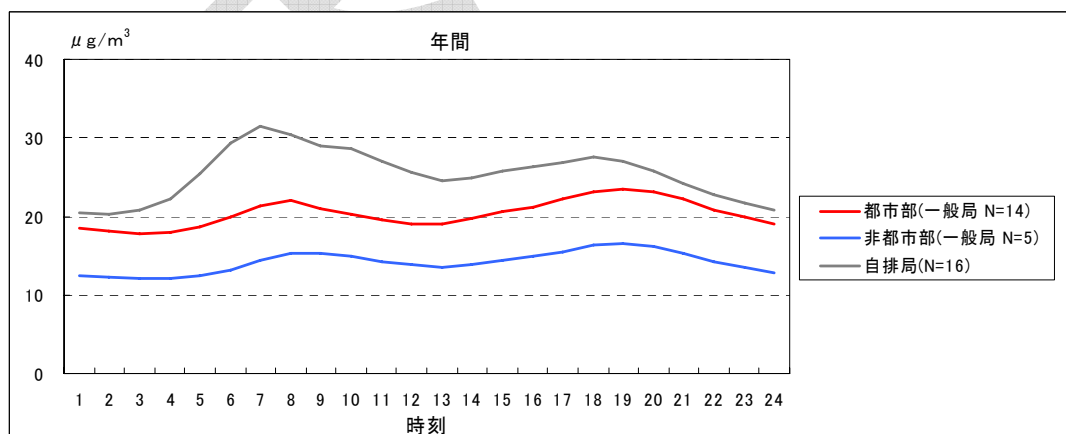
PM_{2.5} (50°C加熱方式 TEOM) の質量濃度の時間変動は図 3.1.10 に示すとおりであり、一般局及び自排局とも、朝の 8 時前後及び夜の 19 時前後に濃度が高くなっており、自排局の方が朝の濃度の変動がより大きい。一般局、自排局ともに明確な地域差はみられなかった。

SPM と 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3.1.9 SPM(β線)質量濃度の時間変動 環境省 (2007)
(平成13~17年度の平均値)



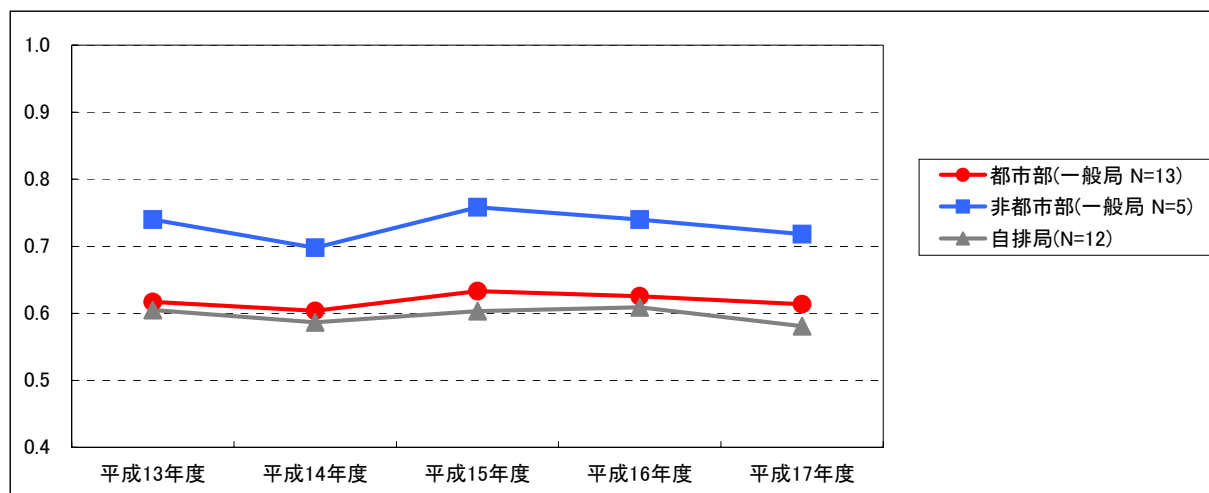
※N=調査地点数

図3.1.10 PM_{2.5}(50°C加熱方式TEOM)質量濃度の時間変動 環境省 (2007)
(平成13~18年度の平均値)

3.1.2.4. PM_{2.5}/SPM

PM_{2.5} (50°C加熱方式 TEOM) /SPM (β線) 比の年変動を図 3.1.11 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_{2.5}/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_{2.5}の本質的な粒子特性とは考えられない。



※N=調査地点数

図3.1.11 PM_{2.5}(50℃加熱方式TEOM)/SPM (β線) 比の年変動 環境省 (2007)

3.1.2.5. PM_{2.5}の成分濃度

SASS法により得られた試料の化学分析結果をまとめたものが図3.1.12である。

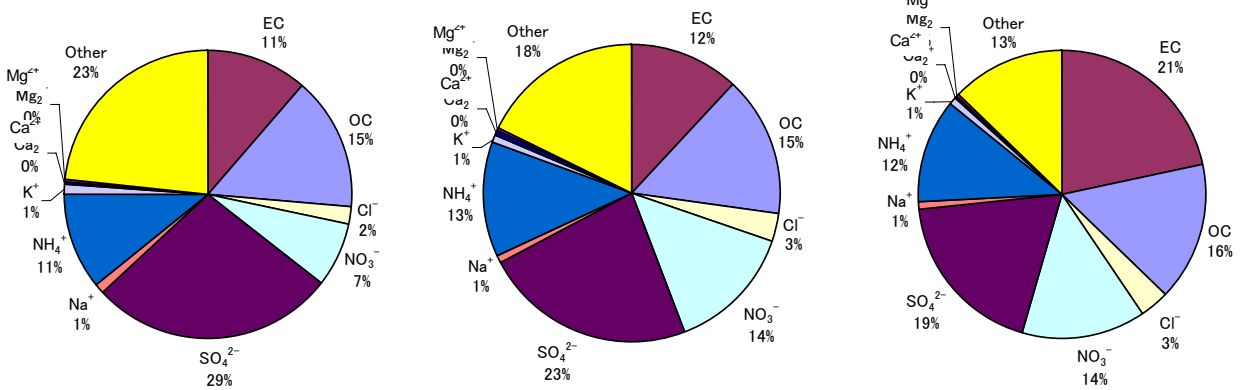
PM_{2.5}の主要な成分はEC、OC、NO₃⁻、SO₄²⁻、NH₄⁺である。一般局ではSO₄²⁻の占める割合が最も多く、自排局ではECの占める割合が最も多い。一般局のうち都市部と非都市部を比較すると、都市部では非都市部よりNO₃⁻の占める割合が多くなっており、非都市部では都市部よりSO₄²⁻の占める割合が多くなっている。OCやNH₄⁺、Cl⁻は、一般局や自排局等の違いによる大きな差はみられない。炭素・イオン成分の積み上げ値とPM_{2.5} (SASS)の質量濃度の差をその他の影響「Other」として表示すると、非都市部(一般局)→都市部(一般局)→自排局の順にOtherの割合が小さくなる。人為発生源の寄与率が高い区分のPM_{2.5}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SO₄²⁻の割合が増加し、NO₃⁻及びCl⁻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NH₄Cl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。

非都市部(一般局 N=4)

都市部(一般局 N=10)

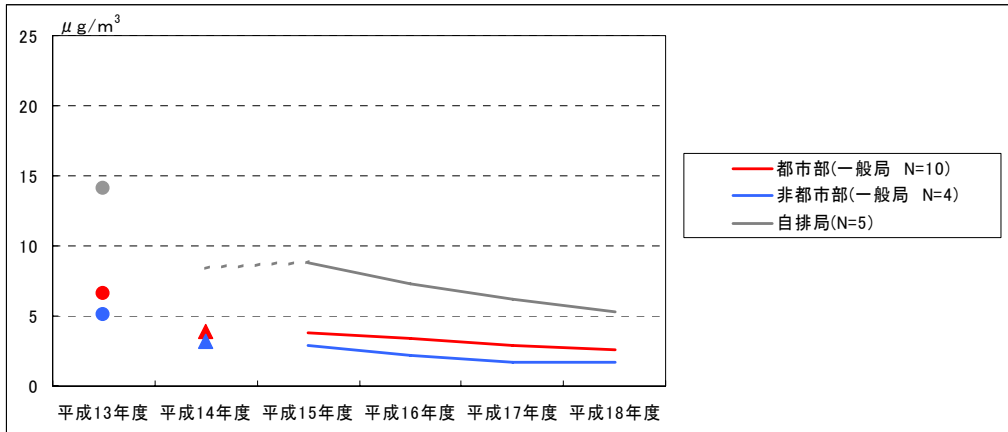
自排局(N=5)



※Other : 質量濃度から炭素及びイオン成分濃度を引いたもの
 ※炭素成分濃度は IMPROVE 法による。

図3.1.12 PM_{2.5}(SASS)炭素・イオン成分の割合(平成16~18年度の平均値)

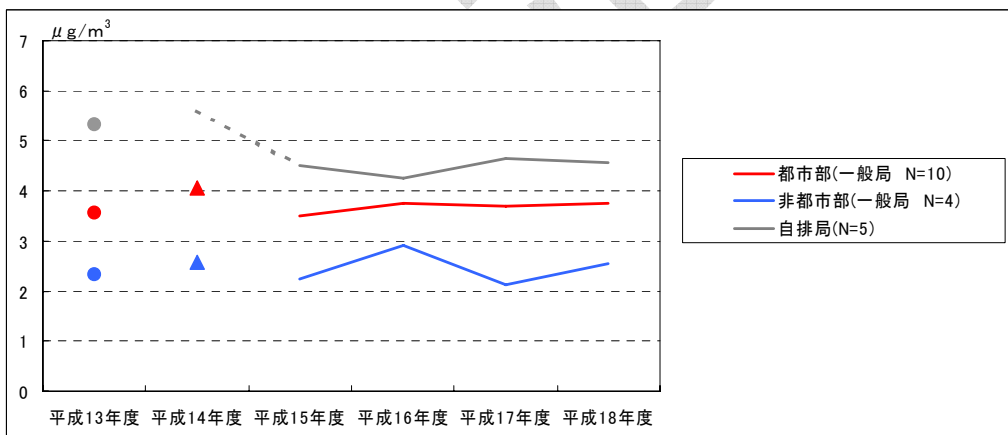
EC の濃度変化は、図 3.1.13 に示すとおり、都市部、非都市部、自排局とも減少傾向を示しており、中でも自排局の減少傾向が最も著しい。なお、平成13年度から平成14年度にかけて濃度が大きく低下しているが、これは炭素の分析方法が熱分離法から IMPROVE 法に変更されたためである。熱分離法は有機炭素の熱分離過程において、その一部が炭化し、試料中に残留することにより OC を過少に、EC を過大に評価してしまう恐れがあることが指摘されており、レーザー光補正を行う IMPROVE 法に比べ EC の濃度が高く、OC の濃度が低くなる傾向にある。



- ※1 N=調査地点数
- ※2 ○：全地点熱分離法により分析
- ※3 △：一部の地点で熱分離法により分析
- ※4 マークなし：IMPROVE法により分析
- ※5 熱分離法で分析を行った年度についてはマークのみとし、折れ線は表示していない。
- ※6 平成14年度は比較的濃度が高い近畿地方（自排局）が欠測のため、年平均値の推移に影響が考えられることから点線とした。

図 3.1.13 PM_{2.5} (SASS) 元素状炭素 (EC) の年変動

OC の変化は概ね横ばい傾向を示した (図 3.1.14)。なお、平成 13 年度から 14 年度にかけて濃度が増加しているが、これは炭素の分析方法が熱分離法から IMPROVE 法に変更されたためである。



- ※1 N=調査地点数
- ※2 ○：全地点熱分離法により分析
- ※3 △：一部の地点で熱分離法により分析
- ※4 マークなし：IMPROVE法により分析
- ※5 熱分離法で分析を行った年度についてはマークのみとし、折れ線は表示していない。
- ※6 平成14年度は比較的濃度が高い近畿地方（自排局）が欠測のため、年平均値の推移に影響が考えられることから点線とした。

図 3.1.14 PM_{2.5} (SASS) 有機炭素 (OC) の年変動

EC 及び 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。このことから、EC 及び OC は自動車由来の

粒子の寄与割合が大きいことが示唆される。

SO₄²⁻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。

NO₃⁻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NO_x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。

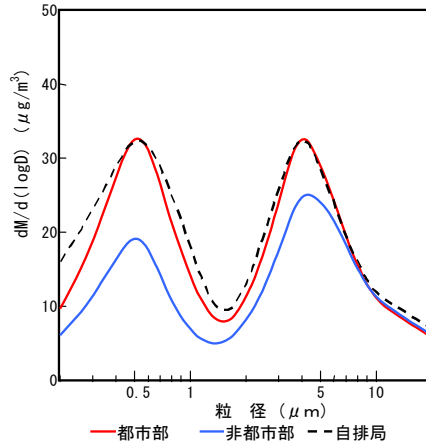
PM_{2.5}の主要な金属イオン成分の化学分析結果について、表 3.1.4 に示す。この結果は、全国 16 カ所（札幌、仙台、蓮田、板橋、横浜、伊那、堺、神戸、倉敷、福岡等）においてサンプリングした試料を、中性子放射化分析法により元素分析したものであり、平成 13～18 年度における年 4 回（各季）の測定値を平均化したものである。

表3.1.4 PM_{2.5}金属イオン成分(平成13～18年度の平均値)



3.1.2.6. 粒子状物質質量濃度の粒径分布

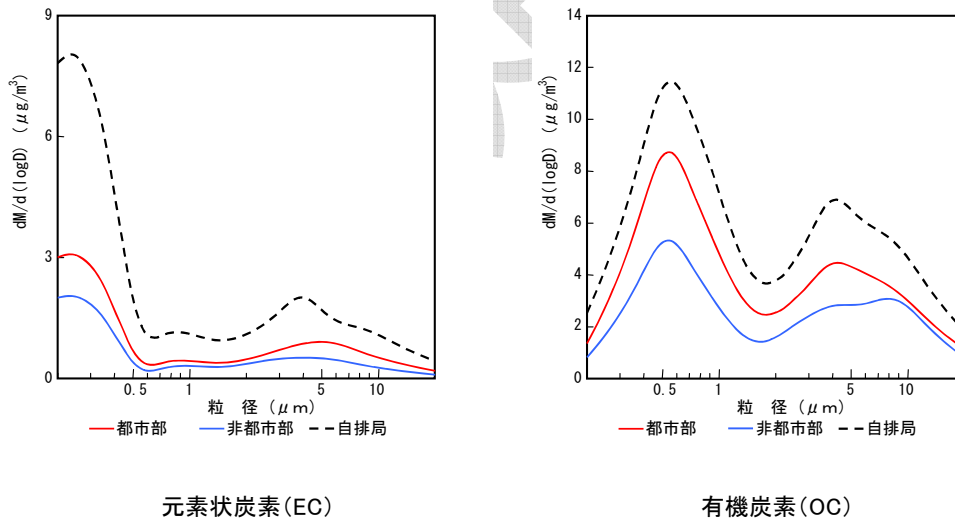
平成 13～18 年度に観測した粒子状物質質量濃度の全平均粒径分布を図 3.1.15 に示す。粒径分布をみると、微小粒子側の 0.5μm と粗大粒子側の 5μm の粒径をピークとし、1～2μm が谷となる二峰型の分布となり、自排局では微小粒子側の粒径の濃度が一般局に比べやや高くなった。一般局の都市部と非都市部での比較では微小粒子、粗大粒子ともに都市部の方で濃度が高くなっており、特に微小粒子側でその差が大きくなっている。



※ 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3.1.15 粒子状物質(ALV ; Andersen Low Volume Sampler)
質量濃度の粒径分布(平成13～18年度の平均値)(1)

PM_{2.5} の主要成分である炭素成分について、その粒径分布を図 3.1.16 に示す。EC は 0.5 μm 以下の微小粒子側の粒径に偏在し、OC は 0.6 μm 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 4 μm 付近の粒径でも濃度がやや高くなる傾向がある。



元素状炭素(EC)

有機炭素(OC)

※ 「3.3～4.7 μm 」～「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3.1.16 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、成分ごとに粒径分布をみると、以下のように分類される。

- ・微小粒子側の単峰型：SO₄²⁻、NH₄⁺
- ・微小粒子と粗大粒子の二峰型：NO₃⁻

- ・微小粒子と粗大粒子の二峰型（粗大側に多く分布）：Cl⁻

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Cl⁻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が自排局及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単峰分布型元素（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峰分布型元素（K、V、（Mnは自排局と都市部域で））である。

3.1.3. 米国と日本のデータの特徴

以上の情報をもとに、大気中濃度について、米国と日本の質量濃度や成分濃度に関するデータを整理して、それぞれの国のデータの特徴を記述する。なお、以下の理由から、両国のデータを一概に比較することは困難である。

- ① 米国のデータは日本のように、測定地域について都市部、非都市部、自排局のような区分を行っておらず、金属成分に関するデータも一地域のものでしかない。
- ② 米国のデータはフィルタ法により測定されたものであるが、日本のデータは自動測定法であるTEOMで測定されたものであり、加熱により水分の影響を除去するため、半揮発性物質が消失する等の影響を受けている。
- ③ 米国のデータは中央値、日本のデータは平均値と代表値の指標が異なる。

3.1.3.1. 質量濃度について

米国のPM₁₀、PM_{2.5}及びわが国のSPM、PM_{2.5}について整理したところ、表3.1.5に示すとおり、これまでの測定結果では、全体的に日本のPM_{2.5}濃度は、米国に比べて高い傾向にある。この差は、排出源別寄与濃度の違い、バックグラウンド濃度の違い、都市構造の違い等にもよるものと推察される。

ただし、前述のとおり、日米間では測定地域の区分や測定法に違いがあること、代表値の指標が異なる等のため、質量濃度の違いについて比較することは現時点では困難である。

表 3.1.5 PM₁₀/SPM、PM_{2.5}の濃度に関する米国と日本の特徴

	PM ₁₀ /SPM(μg/ m ³)	PM _{2.5} (μg/ m ³)
米国(1999-2001)※	23	13
日本(2001-2006)		
自排局	40-50	22-30
都市部 (一般局)	30-40	20-23
非都市部 (一般局)	17-20	14-15

※米国データは、中央値を示している

3.1.3.2. 成分について

米国及び日本における OC/EC、SO₄²⁻及び NO₃⁻の成分濃度の整理を行ったところ、米国と日本とでは、OC/EC 比について大きな違いが見られるが、SO₄²⁻及び NO₃⁻については、表 3.1.6 の示したように比較的同等な値を示している。

ただし、前述のとおり、日米における測定地域の区分や測定法に違いがあることから、成分濃度の違いについて比較することは現時点では困難である。

表 3.1.6 粒子状物質の成分に関する米国と日本の特徴

	OC/EC	SO ₄ ²⁻ (%)	NO ₃ ⁻ (%)
米国(2001-2002)※		4-6	22
日本(2001-2006) 自排局		0.6	18
都市部(一般局)		1.0	23
非都市部(一般局)		0.9	27

※カテゴリーごとに選択された13代表地点の測定値より算出 (表3.1.2より)

3.1.3.3. 金属成分について

金属成分については、表 3.1.2 にまとめた米国 13 都市のデータの単純な算術平均値を用いた (表 3.1.7)。ただし、都市分類の定義が異なり、サンプリング手法及び分析手法も異なることから、金属成分の違いについて比較することは困難である。

表3.1.7 粒子状物質の金属成分に関する米国と日本の特徴

	Al※3	K	V	Mn	Fe	Ca	Cu	Zn	Cr
米国(2001-2002)※1	47	76	3	4	99	77	5	15	2
日本(2001-2006)※2	118	212	4.5	10	188	88	14	81	2.2

※1 カテゴリーごとに選択された13代表地点の測定値より算出 (表3.1.2より)

※2 日本の全国16カ所における平成13～平成18年度における平均値

※3 単位は全てng/m³

前述のとおり、手法の違い等から濃度の単純比較は出来ないが、米国と日本の組成比の特徴は以下の通りである。例に挙げたこれら 8 金属元素について、代表的地殻元素である Al を基準にその相対濃度比を求めると、表 3.1.8 のようになる。

表3.1.8 粒子状物質の金属元素の組成比に関する米国と日本の特徴

	K/Al	V/Al	Mn/Al	Fe/Al	Ca/Al	Cu/Al	Zn/Al	Cr/Al
米国(2001-2002)	1.6	0.06	0.09	2.1	1.6	0.11	0.32	0.04
日本(2001-2006)	1.8	0.04	0.08	1.6	0.75	0.12	0.69	0.02

Al 相対濃度比が日米で大きく違っていないことから、PM_{2.5} の微量金属の組成的な差はあまりないと言える。

未定稿

3.2. 発生源影響

3.2.1. 粒子状物質の排出量推計

3.2.1.1. 排出量推計対象物質

大気中微小粒子の評価を行うためには、各種発生源から排出される粒子状物質（一次粒子）の排出量を把握することに加えて、大気中粒子の約半分を占める二次粒子の原因となる前駆物質に関する排出量を把握する必要がある。

粒子状物質に関する排出量の推計に当たって、排出量を把握することが望ましい物質としては、表 3.2.1 のような物質が挙げられる。

表 3.2.1 各種発生源と主な排出量推計対象物質

発生源区分			排出量						
			PM	NO _x	CO	SO _x	NM _{VOC}	NH ₃	HCl
燃焼系発生源	固定	大規模固定煙源	○	○	○	○	○	○	○
		中小事業所	○	○	○	○	○		
		家庭	○	○	○	○	○		
		小型焼却炉	○	○	○	○	○		○
	移動発生源	自動車(4輪)	○	○	○	○	○	○	
		自動車(2輪)	○	○	○	○	○		
		船舶	○	○	○	○	○		
		航空機	○	○	○	○	○		
		建機	○	○	○	○	○		
		産業機械	○	○	○	○	○		
		農業	野焼き	○	○	○	○	○	
		農機	○	○	○	○	○		
	HC蒸発発生源	工業系	精油所・油槽所					○	
石油化学工場							○		
給油所							○		
塗装							○		
印刷							○		
接着剤使用工程							○		
ゴム用溶剤							○		
その他工業用溶剤							○		
クリーニング溶剤							○		
移動発生源		自動車(4輪)					○		
		自動車(2輪)					○		
	建機、産機、農機					○			
自然	植物起源					○			
その他発生源	農業	畜産						○	
		化学肥料の施肥						○	
	工業系	肥料等製造施設						○	
		都市活動	下水処理施設					○	
		浄化槽					○		
		人の発汗・呼吸					○		
		ペット					○		
	自然	土壌	○						
		海塩粒子	○						
		火山	○			○			
		山火事	○	○	○		○		
		雷		○					
	移動発生源	巻き上げ	○						
タイヤ磨耗		○							

3.2.1.2. 発生源別排出量の推計法

各種発生源からの大気汚染物質排出量を算出する方法としては、排出量の実態調査をもとに排出量を算出する方法と原単位法と呼ばれる排出係数に活動量に乗じて間接的に推計する方法とがある。

実態調査に基づく排出量の算出では、環境省が実施している大気汚染物質排出量総合調査(<http://www.env.go.jp/air/osen/kotei/h16/index.html>、以下、マップ調査)が良く知られている。この調査では、全国の都道府県、指定都市、中核市及び大気汚染防止法に定める政令市を対象に、大気汚染防止法に基づき届出されたばい煙発生施設、一般粉じん発生施設、特定粉じん発生施設等を対象として、ばいじん、NO_x、SO_x排出量の個別調査を行っている。この調査は、ある規模以上の事業所からの排出量の実態を反映したものであるが、大気汚染に係わる全ての発生源を網羅している訳ではないことに加えて、二次粒子の前駆物質である NMVOC (Non-Methane Volatile Organic Compounds)、NH₃、HCl 等については調査対象外である。そのため、大気環境評価予測モデルの入力データとしての排出インベントリの作成には、実態調査に基づく方法と原単位法が併用されている。

原単位法では、単位活動量当たりの排出係数を設定し、各種統計資料等より求めた活動量に乗じて排出量を算出するが、特に我が国では、排出係数の情報は少なく、数少ない測定値や諸外国における値を使用しているのが実状であり、その代表性や活動量との対応については、注意が必要である。

以下にこれまで、我が国で実施されてきた主な発生源についての排出量推計法の概要を述べる。

3.2.1.2.1. 大規模固定発生源

マップ調査で捕捉されている大規模固定発生源については、マップ調査値をもとに、以下のような方法で推計されている。

- ・ 粒子状物質 (TSP、SPM(又は PM₁₀)、PM_{2.5}) : TSP はマップ調査のばいじん排出量を採用。SPM(又は PM₁₀)、PM_{2.5} については、文献値をもとに粒径ごとに区分。
- ・ NO_x、SO₂ : マップ調査値を採用。
- ・ NMVOC、CO : マップ調査の燃料使用量に、施設種別・燃原料種別の平均排出係数に乗じて算出。排出係数は、文献値をもとに設定。
- ・ NH₃ : NH₃ による脱硝を行っている施設について、文献値等をもとに排ガス中の濃度を設定、マップ調査の排ガス量に乗じて推計。
- ・ HCl : 廃棄物焼却炉について、文献値等をもとに排ガス中の濃度を設定、マップ調査の排ガス量に乗じて推計。
- ・ 凝縮性ダスト : 凝縮性ダストは、硫酸イオン (SO₄²⁻) 等の水溶性成分や有機物等から構成されているが、発生源ごとの相違が大きく、測定が難

しいため、合理的に推計された例は少ない。これまで、水溶性成分が主体であるとして、SO₂排出量に対する硫酸塩の割合を設定して推計した例がある。

3.2.1.2.2. 中小事業所・小型焼却炉・民生等

マップ調査では把握されていない中小の事業所や家庭で使用されている小規模燃焼機器からの排出量が推計対象である。排出量推計方法としては、これまで、

- ① 燃料種類（都市ガス、LPG、灯油、A重油等）ごとに燃料消費量と排出係数を乗じて算出する方法
- ② 燃焼機器の設置台数に機器別の排出係数を乗じて算出する方法

の2通りの方法が行われている。大気環境評価モデルの入力データ等、地域別の排出量を推計する必要がある場合には、地域別の燃料消費量の把握ができることから①の方法が採用されている。

活動量である燃料消費量については、総合エネルギー統計（資源エネルギー庁長官官房総合政策課編、年刊）やガス事業統計（資源エネルギー庁ガス市場整備課編、月刊）等、エネルギーに関する各種統計資料をもとに地域別の消費量が推計されている。

排出係数については、一般には、我が国の既存調査資料をもとに設定されるが、適切なデータが無い時には、諸外国の同様な機器についての排出係数を参考に設定されることもある。

3.2.1.2.3. 移動発生源

(1) 自動車

- ・ 走行時排出量：走行量と排出係数（単位距離当たりの排出量）を乗じて算出する。走行量は、幹線道路については、国土交通省の全国道路街路交通情勢調査（国土交通省道路局 以下、道路交通センサス）等に基づく平日、休日別走行量や交通モデルによる推計値等が使用される。道路交通センサスの調査対象外の細街路における走行量については、一般に、自動車輸送統計（国土交通省総合政策局情報管理部）における全道路走行量推計値と幹線道路走行量の差分を細街路走行量としている。排出係数は、環境省や地方自治体の実測データをもとに設定している車種別、規制年別、平均旅行速度別の排出係数が使用される。平均旅行速度は、道路交通センサスの混雑時旅行速度や交通量をもとにした平均旅行速度推定モデルの推定値、交通モデルの結果等が使用される。
- ・ 蒸発ガス：最近では、停車中や走行中に排気管以外から発生するガソリ

ン蒸気の排出量も推計されるようになっている。以下の3つの排出要因について排出量が推計されている。

DBL (Diurnal Breathing Loss) : 駐車中の、温度変化等によるタンク内気体の呼吸に起因する蒸発ガス

HSL (Hot Soak Loss) : エンジン停止直後に発生する蒸発ガス

RL (Running Loss) : 走行時に発生する蒸発ガス

排出量は、実測データを基に設定された排出係数や排出モデルを用い、環境条件(気温)、燃料の蒸気圧を考慮して推計されている。

- ・ タイヤ摩耗、巻き上げ粉じん

タイヤ摩耗及び巻き上げ粉じんは、走行時の排気ガスと同じように、排出係数(単位距離当たりの排出量)を乗じて算出する。排出係数は、長い間、浮遊粒子状物質汚染予測マニュアル(環境庁大気保全局大気規制課監修(1997))に示されている値が使用されてきたが、排出量を的確に把握するため、最近、環境省の調査(財団法人日本環境衛生センター(2006))において、検討がなされ、新しい排出係数の試算が行われている。

(2) 船舶

船舶からの排出量については、陸上に近い港湾区域における排出量が推計されてきたが、最近では、大気環境モデルへの入力を考慮し、港湾区域外の洋上での排出を含めた従来よりも広範囲の推計がなされている。排出量推計方法としては、

① 燃料消費実績を用いて燃料当たりの排出係数により排出量を推計する方法

② 船舶活動量と活動量当たりの排出係数から算出する方法

の2つがあるが、地域別の排出量を推計する場合には、港湾区域内の活動量をもとにした推計が行われている。

港湾区域内の活動量は、各港の港湾統計や港湾統計年報(国土交通省総合政策局情報管理部、年刊)から求めている。排出係数については、国内における各種調査結果や諸外国における排出係数データをもとに、主機、補機エンジン別に設定された値が使用されている。

(3) 航空機

航空機については、これまで、主要な空港における離着陸時と、ある一定の高度までの排出量が推計されている。排出量は、空港別、機種別の発着機数に、機種別、LTO サイクル(Landing and Take-off: アプローチ、アイドリング、離陸、上昇の4モード)別の排出係数を乗じて求める。空港別、機種別発着機数は、航空輸送統計年報(国土交通省総合政策局情報管理部、年刊)、新東京国際空港公団資料等の統計資料のデータを用いている。機種別、LTO サイクル別の排出係数は、諸外国の排出係数を参考に設定されている。

(4) 建設、産業、農業機械

建設機械、産業機械、農業機械からの排出量は、各機械の保有台数、稼働状況（仕事量）、排出係数（仕事量当たりの排出量）を乗ずることにより求めている。

活動量（保有台数、稼働状況）については、経済産業省、国土交通省、農林水産省等の関連する省庁の統計データや地方自治体の調査データ等から推定している。排出係数は、環境省調査（環境省（1995））で設定された値が使用されている。

ガソリンエンジンを使用している機械からは、ガソリン蒸気の蒸発があり、自動車と同様の手法で推計出来ると考えられるが、我が国では、これまで、排出量が推計された例は見あたらない。

3.2.1.2.4. 固定蒸発発生源

固定発生源からの NMVOC の排出は、

- ① 製油所、油槽所、給油所等での燃料の漏出
- ② 石油化学基礎品製造、塗料製造、印刷インキ製造、カーボンブラック製造等の工業プロセス
- ③ 塗装工程、印刷工程、接着剤、金属表面処理、ゴム用溶剤、クリーニング等の有機溶剤の使用

に伴い発生するもの等について、推計が行われている。

推計は、基本的に、活動量に排出係数を乗じて算出するが、排気の処理装置があるものについては、設置率と処理率から除去量を求め、排出量を補正する。活動量は、石油系燃料の生産量と出荷・販売量、石油化学製品の生産量、塗料や接着剤の出荷量等であるが、燃料については、石油資料月報(石油連盟、月刊)やエネルギー生産需給統計年報(通産省調査統計部資源エネルギー統計調査室、年刊)、石油化学製品については、化学工業統計年報(経済産業省経済産業政策局調査統計部、年刊)、塗料や接着剤については、化学工業統計や各業界団体の資料やヒアリング調査結果等から求められている。

排出係数は、燃料、石油化学製品製造、塗料製造等については、新しいデータが無く、1970年代に資源エネルギー庁の実測結果をもとに設定された値や諸外国の値を参考に設定されてきた。

環境省は、VOC の排出抑制対策の進捗状況を把握するため、VOC 排出インベントリの整備を進めており、平成 19 年度において、平成 12 年度のデータを対象に作成したインベントリの見直しを行うとともに、その精度等を向上させたインベントリ（平成 17 年度のデータを使用）を作成している。ここでは、発生源の定義を明確にするとともに、推計に使用するデータや大気排出率の見直しを行い、大気中に排出される VOC について、発生源品目別の排出量を推計している。今後は、このような新しい知見の活用が望まれる。