

【5】まとめ及び今後の課題

(1) 大気中 PM_{2.5} 曝露調査

(1. 1) まとめ

(1. 1. 1) 調査結果のまとめ

1. 調査地点の分類について

本調査結果は、表 5.1.1-1 に示す「地理的」及び「都市・非都市」ごとにデータを分類・平均して整理を行った。なお、本調査で分類・整理した調査結果は、限られた測定地点でのデータによるものであり、各地域や一般局・自排局などの傾向を代表したものではないことに留意する必要がある。

表 5.1.1-1 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)	

2. PM_{2.5} (TEOM) 質量濃度・SPM (β線) 質量濃度

- PM_{2.5} (TEOM) の平成 13～平成 18 年度の年平均値の推移をみると、自排局で年々減少している。一般局 (都市部) では平成 13 年～平成 14 年度に減少し、その後横ばいとなっている。また、一般局 (非都市部) はこの 6 年間でほぼ横ばいとなっている。SPM (β線) も近い傾向であるが、PM_{2.5} (TEOM) に比べ減少の幅がやや大きい。
- PM_{2.5} (TEOM) の地域別の傾向は、一般局では各地域ともほぼ横ばいである。自排局については、地域差はあるが全体的には減少している。SPM (β線) の地域別の傾向では関東地方の減少幅が大きくなっている。また、自排局については、全地域で減少傾向にある。
- 月平均値の推移も PM_{2.5} (TEOM)、SPM (β線) とともに同様の傾向を示しており、全国的に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る。一般的にこれらの季節に高濃度となる要因としては、春季から夏季にかけては光化学反応による二次粒子の増加、晩秋から初冬季は安定した気象状況により拡散が抑えられることなどが考えられる。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。
- 時間変動をみると、PM_{2.5} (TEOM)、SPM (β線) とともに朝の 8 時前後及び夜の 19 時前後に濃度が高くなっている。なお、季節別にみると、夏季は他の季節と異なり昼頃の濃度の低下傾向がみられない。

3. PM_{2.5} (SASS) 質量濃度

- 平成 13～平成 18 年度の推移をみると、平成 13 年度から平成 15 年度までは減少傾向を示し、平成 15 年度以降は横ばいとなっている。
- 季節による傾向は地域により差が見られ、関東地方は春季及び秋季に濃度が高くなっており、その他の地域は春季に濃度が高くなっている。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いることも考えられる。

4. 質量濃度 TEOM/SASS 比

- TEOM/SASS 比は、一般局（都市部）及び自排局では夏季に約 1 であり、他の季節に約 0.8 となっている。一般局（非都市部）では春季にやや低いのを除き、他の季節では 1 に近い値を示している。
- TEOM はフィルタ部及び大気導入管を 50℃に加温しているため、半揮発性物質が揮発することから、SASS に比べてやや低めの測定値を示す傾向がある。夏季は外気の気温が高いため半揮発性物質がガス状で存在することが多い。このため TEOM と SASS の質量濃度の差が小さくなったものと思われる。
- 関東地方は秋季及び冬季に他の地域に比べ TEOM/SASS 比が小さくなる傾向を示している。これは、関東地方が他の地域に比べて PM_{2.5} 中に硝酸塩などの揮発性の物質を多く含むため、TEOM の加温により揮発した成分の割合が多いことが要因として考えられる。

5. PM_{2.5} (SASS) 成分濃度

5.1 成分構成

- PM_{2.5} の主要な成分は元素状炭素 (EC)、有機炭素 (OC)、硝酸イオン (NO₃⁻)、硫酸イオン (SO₄²⁻)、アンモニウムイオン (NH₄⁺) 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。
- 都市部では非都市部に比べ、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。

5.2 炭素成分

- 元素状炭素の平成 15～平成 18 年度の年平均値の推移をみると、全体的に減少傾向である。
- 有機炭素は平成 15～18 年度の年平均値の推移をみると、年度ごとにばらつきがあるが、概ね横ばい傾向を示している。有機炭素は化石燃料やバイオマスなどの燃焼で一次粒子として大気中に放出されるものと、揮発性有機化合物 (VOC) 等が光化学反応の過程の中で二次生成されるものがある。一般局（都市部）の有機炭素が一般局（非都市部）に比べ濃度が高くなっている。また、自排局の有機炭素が一般局（都市部）より濃度が高くなっている。

5.3 イオン成分

- イオン成分の割合をみると、夏季には硫酸イオンの濃度が上昇し、硝酸イオンの濃度が減少している。これは、気温の高い夏季には揮発性の高い硝酸塩がガス化する一方で、光化学反応が活性化し、二次生成されて粒子状になった硫酸塩が増加したためと考えられる。
- 硫酸イオンの平成 13～平成 18 年度の年平均値の推移をみると、年度により濃度の増減がみられる。地域的な傾向としては、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いる。硫酸イオンの基となる、二酸化いおう (SO₂) の国内における主な発生源としては、工場や船舶、発電所等の人為由来のもの他、火山や海水などの自然由来のもの等がある。近年では東アジア地域からの越境輸送も指摘されている。
- 硝酸イオンの平成 13～平成 18 年度の年平均値の推移をみると、一般局、自排局ともに概ね横ばい傾向である。硝酸イオンは、一般局の都市部における濃度が非都市部に比べて高くなっており、地域別でみると関東地方では他の地域に比べ濃度が高くなる傾向がある。都市部と非都市部の濃度の差は、非都市部では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_x) の排出量が小さいことが要因として考えられる。
- アンモニウムイオンの平成 13～平成 18 年度の年平均値の推移をみると、全体的に横ばい傾向

である。アンモニウムイオンは都市部でやや濃度が高くなる傾向がみられる。アンモニアの発生源は自然発生源や畜産、人間活動、産業活動などが考えられる。

・ 塩化物イオンの平成13～平成18年度の年平均値の推移をみると、平成13～平成14年度の間は減少しており、その後は横ばいとなっている。塩化物イオンは、一般局では都市部の方が非都市部より濃度が高くなっている。また、地域別にみると関東地方は他の地域に比べ濃度が高くなっている。

5.4 PM_{2.5}に対する黄砂の影響について

・ 黄砂観測時にはSPM(β線)の濃度が大きく増加し、PM_{2.5}(SASS)の質量濃度も増加傾向にある。硝酸イオン及び硫酸イオンは黄砂の観測と濃度に明瞭な関係はみられない。カルシウムイオンは黄砂観測時に濃度が高くなっているが、PM_{2.5}(SASS)の質量濃度に対するカルシウムイオンの濃度の割合では大きな差はみられない。

5.5 関東地方及び近畿・中国地方の高濃度日の成分解析

・ 関東地方では黄砂の影響を受けることが多い春季を除き、秋季にPM_{2.5}(SASS)が高濃度になる傾向がある。高濃度日の炭素・イオン成分構成をみると、元素状炭素の割合が減少する一方で、イオン成分、特に硝酸イオンの割合が高くなっている。

・ 近畿・中国地方では春季を除き、冬季にPM_{2.5}(SASS)の濃度がやや高くなっている。高濃度日の炭素・イオン成分構成をみると、元素状炭素の割合が減少する一方で、イオン成分やその他の物質(Other)の割合が高くなっている。イオン成分としては、硫酸イオンが高くなる日や、硝酸イオンが高くなる日などがみられた。

※Other：SASS質量濃度から炭素及びイオン成分濃度を引いたもの

6. 微小粒子状物質の粒径分布(ALV)

6.1 粒子状物質質量濃度の粒径分布

・ 各粒径別の質量濃度をみると、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を示している。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ている。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、特に微小粒子側で差が大きくなっている。

・ 春季は4～6μm付近の粒径の濃度がピークとなっており、特に九州地方で高くなっている。粗大粒子は、土壌や海塩等、自然界からの粒子や物理的磨耗により飛散した粒子が該当する。他の季節に比べ、春季において粗大粒子側の濃度が高くなっているのは、風による土壌や堆積物の巻き上げなど局所的な要因も考えられるが、春季は他の季節に比べ黄砂が観測される日数が多く、また、日本で観測される黄砂のピーク粒径は4μm前後といわれていることから、黄砂の影響を受けたことも考えられる。

・ 関東地方は秋季に他の地域と比べて微小粒子側の濃度がやや高くなる傾向を示している。

6.2 炭素成分の粒径分布

・ 元素状炭素は0.5μm以下の微小粒子側の粒径に偏在している。また、一般局に比べ自排局で濃度が高くなっている。

・ 有機炭素は0.6μm付近の粒径をピークに濃度が高くなる傾向を示しており、元素状炭素と同様、自排局で最も高くなっている。また、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やや高くなっている。

6.3 イオン成分の粒径分布

・ イオン成分の粒径分布をみると、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

・ イオン成分は全体的に、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る傾向を示している。

・ 硫酸イオンとアンモニウムイオンは九州地方で濃度が高くなっており、九州から調査地域が東に行くにつれて微小粒子側の濃度が低くなる傾向を示している。硝酸イオンは関東地方では微小

粒子側の濃度が高くなる傾向を示している。塩化物イオンは全体的に粗大粒子側に多く分布しているが、微小粒子側では関東地方の濃度がやや高くなっている。また、硝酸イオン、塩化物イオンは、秋季及び冬季に微小粒子側の濃度が高くなっており、季節により粒径分布の傾向が異なる。

6.4 金属成分の粒径分布

- 金属成分(アルミニウム、ナトリウム、鉄、カリウム、バナジウム、マンガン)の微小粒子(<2.1 μm)の平成13～平成18年度の年平均値の推移をみると、アルミニウムは平成14年度に濃度が高くなっている。その他の項目は、年度により増減はあるものの、概ね横ばい傾向となっている。
- 一般局、自排局の分類による微小粒子(<2.1 μm)の濃度を比較すると、鉄、カリウム、バナジウム、マンガンは、自排局及び都市部の一般局が非都市部の一般局に比べ濃度が高くなっているが、アルミニウム、ナトリウムでは大きな差はみられない。
- 金属成分の粒径分布をみると、以下のように分類される。
 - 粗大粒子側の一山型：アルミニウム、ナトリウム、鉄、マンガン（一般局（非都市部））
 - 微小粒子と粗大粒子の二山型：カリウム、バナジウム、マンガン（一般局（都市部）・自排局）
- アルミニウムは、CMB法では土壌粒子の指標成分として利用され、ナトリウムは海塩粒子の指標成分として利用される。これらの自然由来の指標成分として利用される項目は都市部、非都市部による濃度の差はほとんどみられない。
- 鉄はCMB法では鉄鋼工業の指標成分として利用されており、非都市部でやや濃度が低くなっている。
- カリウムは廃棄物焼却の指標として用いられることが多いが、植物燃焼の指標でもあり野焼きなどの影響について地域的・季節的な影響の考慮が必要である。粒径分布をみると、微小粒子側、粗大粒子側ともに都市部で高くなっている。
- バナジウムは重油に多く含まれており、石油燃焼の指標成分として利用されている。粒径分布をみると、都市部の一般局及び自排局の傾向に差はなく、非都市部の一般局で微小粒子側、粗大粒子側ともに濃度が低くなっている。
- マンガンは鉄鋼工業の指標成分として用いられることが多い。粒径分布をみると、都市部の一般局及び自排局は二山型の分布を示しており、非都市部の一般局では、微小粒子側の濃度が低くなっている。
- 各成分とも春季に4～6 μm 付近の粒径で濃度が高くなっている。他の季節に比べ、春季において粗大粒子側の濃度が高くなっているのは、前述のとおり、風による土壌や堆積物の巻き上げなど局所的な要因の他、黄砂の影響を受けたことも考えられる。

7. 測定方法によるPM_{2.5}質量濃度差の評価

本調査では、PM_{2.5}質量濃度の測定にSASSとTEOMの2種の測定方法を用いているが、測定原理が異なるために同時に並行測定したPM_{2.5}の測定結果に差が見られる。その差は季節による違いが大きく、それぞれの装置の特徴を理解した上で得られた濃度を評価する必要がある。また長期的推移を調べる場合などで年平均値を評価する場合、1年間に対する調査期間の割合で年平均値としての精度が異なり、調査期間が長く季節間の偏りが少ないほどよい。

本調査でのTEOMは1年間を自動運転で連続測定しているのに対し、SASSは四季に分けて各季節14日間の測定であるため、測定機器による誤差、調査期間による誤差について整理した。

7.1 TEOMが持つ誤差

TEOMデータには、吸引流量の変動等の測定器の性能に基づく誤差として、測定値の2%程度の誤差が見込まれる。また、TEOMではPM_{2.5}の捕集部を50℃に加温していることによる半揮発性物質の揮散の影響がみられ、SASSによるPM_{2.5}濃度に対してTEOMのほうが低くなる傾向がある。この濃度誤差はPM_{2.5}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。

7.2 PM_{2.5}質量濃度の年平均値の推定

PM_{2.5}質量濃度の年平均値を得る場合、本調査によるPM_{2.5}の測定値には、TEOM法による年間連続測定データと、SASS法による春夏秋冬の年4回、各14日間のデータが存在する。それぞれ

に留意点があり年平均値の推定法について検討を行った。検討を行った推定法は以下のとおり。

7.2.1 SASS のデータを基にした TEOM データによる推定

- ① TEOM と SASS の差を気温及び湿度で補正する方法
- ② SASS と TEOM の比を用いて補正する方法

7.2.2 SASS データによる年平均値の推定

比較検討の結果、SASS による年 4 回各 14 日間（56 日間）の測定の平均値を年平均値として用いる場合の年平均推定精度は、概ね $\pm 2\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、変動係数で 10%であり、他の推定方法より誤差が小さく、さらに SASS は米国の標準法に近い方法であり国際的な比較が可能であること、環境アセスメントでは年 4 回各 2 週間の測定で大気汚染物質の年平均値の推定が可能とされていること等を考慮し、PM_{2.5} 質量濃度の年平均値を推定する場合は、SASS の年間 56 日間の平均値をそのまま用いる方法が適当と考えられた。

上記の検討結果を踏まえ、長期疫学調査で用いる曝露データについては SASS データによる年平均の推定値を用いることとした。

8. 測定地点の特性等に関する評価

PM_{2.5} 調査研究の実施にあたり、調査実施者が得られた質量濃度測定値の地域代表性の有無を判断する際の検証法(異常値判定法)について検討を行った。

フィルタ法による質量濃度の地域代表性検証手法としては、成分分析値を用いた質量濃度推定手法モデル(Chemical mass closure model)が一般に知られており、検証法の検討では本法を基に日本の気候風土に合致したモデルの構築を行った。

策定した検証法を SASS 調査結果に適応した結果、約 9 割が検証法における判定基準内にあり、SASS 調査結果は概ね各地点を代表しているものと判断された。

また、上記の検証法については、今回の「フィルタによる微小粒子状物（PM_{2.5}）質量濃度測定方法暫定マニュアル」改定版において、「質量濃度の代表性検証法」として解説に掲載することとした。

(1. 2) 今後の課題

(1. 2. 1) 調査地点・期間の追加と見直し

- ・ 曝露濃度の継続的な把握の観点から、本調査における調査地点での測定・分析は来年度以降も可能な限り継続することを基本とすることが適当である。
- ・ 本調査の結果から、PM_{2.5} の地域間の濃度差が小さくなる傾向が見られる。よって、大気中曝露濃度の全国的な傾向をより詳細に把握するために、都市部・非都市部、地域性等の分類や、光化学反応が活発に行われる地域等を考慮して、随時、調査地点の追加・見直しも行う必要がある。
- ・ 季節によっては、高濃度時において質量濃度や成分組成に特徴的な傾向を示すことから、高濃度が予想される季節（関東における初冬季など）に成分分析の調査などを重点的に行うなどの調査手法も今後の検討課題である。
- ・ フィルタ法により年平均値等を算定する際の採取頻度に関する設定については、今後さらに詳細な調査検討を行う必要がある。

(1. 2. 2) 調査項目の見直し等

1. 粒径

- ・ 本調査の質量濃度の連続測定では、PM_{2.5} のみを対象としていたが、欧米における動向なども勘案しつつ、必要に応じて粗大粒子の測定も併せて実施し、大気中粒子状物質全体に占める各粒径の割合や粒径間の比較について検討を行う必要がある。

2. 成分

- ・ 大気中濃度の変動要因や発生源別影響度等の適切な把握・評価のためには、成分組成（炭素成分、イオン成分、金属成分）に関するデータが不可欠であり、評価に必要な成分組成に関する分

析を継続して実施することが必要である。

- 各種発生源からの影響評価を行う場合、炭素成分を人為的由来の影響と植物等自然由来の影響に分けて検討することは有効な手段といえる。将来的には、炭素成分の組成の解明を目的とした成分分析も検討課題の一つである。
- 微小粒子状物質の健康影響の特性に関する欧米等との比較検討を行う際、大気中微小粒子状物質の特性（質量濃度、成分組成等）の違いを把握しておくことは重要であり、今後、国内での曝露データ蓄積に加え、欧米等における粒子状物質の質量濃度や成分組成に関する情報収集を図る必要がある。

3. 測定機の評価・検討

- 微小粒子状物質の測定機は、本調査で使用したもの（TEOM、SASS、ALV）以外に β 線等の測定原理の異なるものがある。最新の動向を踏まえつつ、測定原理の異なる複数の測定機を用いて並行測定を行い、各測定機の特徴を把握して評価する必要がある。
- 近年では、微小粒子状物質に含まれる元素状炭素の割合が低下する一方で、二次生成粒子の割合が増加している。二次生成粒子は生成過程や組成が様々であることから、近年実用化が進められているエアロゾル質量分析計（Aerosol Mass Spectrometer : AMS）等を活用し、時間単位での成分分析結果を蓄積することも検討課題の一つである。

4. 発生源インベントリ等のデータ収集・整理

- PM_{2.5}の地域差や季節変動を解析する上で、また、発生源別寄与度を解析するためには、発生源モデル及びレセプターモデルを総合的に活用することが重要である。このため、今後は粒子状物質に係る各種発生源インベントリ及び発生源プロファイルの整備検討が重要になると考えられる。その際、国内の発生源だけでなく、東アジア地域からの越境輸送も考慮する必要がある。
- 二次生成粒子による汚染を解析するために、揮発性有機化合物（VOC）などの二次生成粒子の前駆物質に関する発生源インベントリの整備も重要である。