

一般局では都市部が非都市部に比べ濃度が高く、自排局が一般局（都市部）より濃度が高かった。

#### <イオン成分>

- ・イオン成分の割合は、夏季に硫酸イオン濃度が上昇し、硝酸イオン濃度が減少した。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た。
- ・硫酸イオンは、年平均値が年度により濃度の増減がみられ、地域的には西日本の近畿・中国地方や九州地方でやや濃度が高かった。
- ・硝酸イオンは、年平均値が一般局・自排局ともに概ね横ばい傾向であり、一般局では都市部が非都市部に比べて高く、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にあった。
- ・アンモニウムイオンは、年平均値が全体的に横ばい傾向で、都市部でやや濃度が高くなる傾向がみられた。

### ③アンダーセンエアサンプラ（ALV）を用いた大気中粒子状物質粒径別質量濃度測定及び成分濃度分析

#### ○質量濃度粒径分布

- ・微小粒子側の $0.5\mu\text{m}$ と粗大粒子側の $5\mu\text{m}$ の粒径をピークとし、 $1\sim 2\mu\text{m}$ が谷となる二山型の分布を示した。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かった。一般局では、微小粒子、粗大粒子ともに都市部が非都市部より濃度が高く、特に微小粒子側でその差が大きかった。
- ・春季は $4\sim 6\mu\text{m}$ 付近の粒径の濃度がピークとなり、特に九州地方で高かった。他の季節に比べ、春季において粗大粒子側の濃度が高かったのは、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たが、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 $4\mu\text{m}$ 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た。
- ・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た。

#### ○成分別粒径分布

##### <炭素成分>

- ・元素炭素は、 $0.5\mu\text{m}$ 以下の微小粒子側の粒径に偏在し、一般局に比べ自排局で濃度が高かった。
- ・有機炭素は、 $0.6\mu\text{m}$ 付近の粒径をピークに濃度が高くなる傾向を示し、元素炭素と同様、自排局で最も高かった。また、都市部（一般局）及び自排局では、 $4\mu\text{m}$ 付近の粒径も濃度がやや高かった。

##### <イオン成分>

- ・主なイオン成分（硫酸イオン、硝酸イオン、アンモニウムイオン）の粒径分布をみると、微小粒子側の一山型（硫酸イオン、アンモニウムイオン）と微小粒子・粗大粒子の二山型（硝酸イオン）に分類された。
- ・イオン成分は全体的に、自排局と一般局（都市部）は同じような傾向を示し、一般局（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た。
- ・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、九州から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た。
- ・硝酸イオンは、関東地方で微小粒子側の濃度が高くなる傾向を示した。

#### <金属成分>

- ・主な金属成分（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）の粒径分布をみると、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）））と微小粒子・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））に分類された。
- ・鉄、カリウム、バナジウム及びマンガンの微小粒子は、自排局及び一般局（都市部）が一般局（非都市部）に比べ濃度が高かったが、アルミニウム及びナトリウムでは大きな差はみられなかった。また、各成分とも春季に4~6 $\mu$ m付近の粒径で濃度が高かった。

#### ④測定方法によるPM<sub>2.5</sub>質量濃度差等に関する評価

##### ○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、また、PM<sub>2.5</sub>の捕集部を50°Cに加温していることによる半揮発性物質の揮散の影響によって、SASSによるPM<sub>2.5</sub>濃度に対してTEOMのほうが低くなる傾向があった。この濃度誤差はPM<sub>2.5</sub>濃度や半揮発性成分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た。

##### ○PM<sub>2.5</sub>質量濃度の年平均値の推定

本調査で得られたPM<sub>2.5</sub>の測定値には、TEOMによる年間連続測定データと、SASSによる春夏秋冬の年4回各14日間（計56日間）のデータが存在する。各データに関する留意点を踏まえ、PM<sub>2.5</sub>質量濃度の年平均値推定方法として考えられる方法について比較検討した。

その結果、SASSによる年4回各14日間（計56日間）の測定の平均値を年平均値として用いる場合、誤差が概ね $\pm 2\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、変動係数が約10%であり他の推定方法より誤差が小さいこと、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<sub>2.5</sub>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。

#### ⑤測定地点の特性等に関する評価

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。

## (2) 大気中 PM<sub>2.5</sub> 濃度測定・分析方法に関する調査

平成 12 年度に作成された「自動測定機による微小粒子状物質 (PM<sub>2.5</sub>) 質量濃度測定方法暫定マニュアル」及び「フィルタによる微小粒子状物質 (PM<sub>2.5</sub>) 質量濃度測定方法暫定マニュアル」について、作成時以降に集積した知見をもとに改定の検討を行うとともに、「大気中微小粒子状物質 (PM<sub>2.5</sub>) 成分測定マニュアル」についても併せて検討した。

今回のマニュアル改定・作成にあたっては、採取や測定に関わる実操作を記述したマニュアル本体と、記載内容に関する情報を取りまとめた解説の 2 部形式とした。

### ①自動測定機

現在、米国及び欧州連合において PM<sub>2.5</sub> の標準測定法として定められている方法は、フィルタ法による質量濃度測定のみである。

自動測定機については、測定環境や粒子の性状等が異なると測定原理の違いにより測定値に差異がでる場合があるのが現状であり、現在のところ欧米において標準測定法の等価法として認定された自動測定機はない。しかしながら、自動測定機は、質量濃度がリアルタイムで得られる点やコストがかからない点等の長所を有しており、現在国内外において実用化に向けた開発改良が活発に行われている。

今回の暫定マニュアル改定にあたっては、現在国内で市販され一定の使用実績のある検出原理による自動測定機について、主に以下の点を中心に、国内外における技術動向及び測定データ等を勘案しつつ記述内容の検討を行った。なお、改定にあたっては、平成 12 年の暫定マニュアル策定以後新たに集積された知見や情報等についてできるだけ記載するように努めた。

#### <改定の主要ポイント>

質量濃度算出に用いる大気流量の表示条件／試料大気導入口の設置高さ／測定範囲／校正・点検の項目と頻度／判断基準と異常時のデータ取り扱い 等

### ②フィルタ法

今回の暫定マニュアル改定にあたっては、フィルタ法について、主に以下の点を中心に、米国等における標準測定法の規定内容、国内外における技術動向及び規格規定動向等を勘案しつつ記述内容の検討を行った。なお、改定にあたっては、平成 12 年の暫定マニュアル策定以後新たに集積された知見や情報等についてできるだけ記載するように努めた。

#### <改定の主要ポイント>

質量濃度算出に用いる大気流量の表示条件／秤量条件／試料大気導入口の設置高さ／ラボブランク・トラベルブランクの取り扱い／マスクロージャーモデルを用いた質量濃度結果の地域代表性検証に関する検討／測定範囲 等

### ③成分測定

微小粒子状物質の性状、生成由来等の検討において、その構成成分の把握は有用であ

ることから、大気中微小粒子状物質の成分（イオン成分、炭素成分、金属成分及び多環芳香族炭化水素成分）に関する採取及び分析を行う場合の参考として活用されることを想定し、今回新たにPM<sub>2.5</sub>の成分測定マニュアルを暫定的に作成した。

### （3）PM<sub>2.5</sub>個人曝露量実測方法に関する調査

わが国における環境大気中PM<sub>2.5</sub>濃度と個人曝露濃度との関係を把握するために、個人サンプラの捕集特性や調査法について検討し、PM<sub>2.5</sub>個人曝露濃度測定法について、現段階において実施可能な測定方法を提示した。

サンプラについては、24時間を測定単位として、これに適合するポンプとフィルタホルダの選定を行った。ポンプの条件としては、重量や大きさの点で吸引量が2L/min程度の吸引量とし、フィルタホルダは正確にPM<sub>2.5</sub>を分級捕集できることとした。これに該当するサンプラとして、3種類の既製サンプラを候補とし、沿道や一般の環境での並行測定試験を繰り返して捕集性能などの比較を行った。その結果、基準として用いたFRM測定値との相関や価格等の観点で1種類のサンプラを選定し、内部付着の解消や圧損対策の改良を加えた上で、疫学ワーキンググループにおける個人曝露調査で用いることとした。

## 疫学ワーキンググループ検討結果報告 (概要)

### 1. 調査目的

わが国における微小粒子状物質の健康影響に関する疫学的知見を得るため、諸外国の疫学研究等を参考に、複数の研究手法を組み合わせた疫学調査を複数の地域で実施し、微小粒子状物質の長期間及び短期間曝露による呼吸器系及び循環器系への影響について検討した。

### 2. 調査項目

#### (1) PM<sub>2.5</sub>個人曝露調査

PM<sub>2.5</sub>個人曝露量と大気中PM<sub>2.5</sub>濃度との関連性について検討することを目的として、(3)の長期影響調査対象地域(全国7地域)に住む調査対象の一部世帯を対象に、PM<sub>2.5</sub>測定用個人サンプラを用いて、家屋内外のPM<sub>2.5</sub>濃度及びPM<sub>2.5</sub>個人曝露濃度測定を実施した。

#### (2) 短期影響調査

大気中PM<sub>2.5</sub>への短期的な曝露と呼吸器系及び循環器系との関連性について検討するため、死亡、受診、症状及び機能変化などの各種健康影響指標に着目した疫学調査を実施した。

##### ①日死亡との関連性に関する検討

日死亡とPM<sub>2.5</sub>濃度との関連性を調査するため、一般大気環境でのPM<sub>2.5</sub>濃度を継続的に測定している全国20地域を対象に、平成14～16年の人口動態調査死亡データ及び大気中PM<sub>2.5</sub>等濃度測定データに基づき、解析モデルとして国際的に用いられているGAM (Generalized Additive Model) 等を用いて(気温等の影響を調整)、全死亡(外因死を除く)・呼吸器疾患・循環器疾患等の死因別に、地域毎のPM<sub>2.5</sub>単位濃度増加当たりの日死亡リスクの増加量を推定した。

##### ②呼吸器系症状との関連性に関する検討

呼吸器系症状と粒子状物質濃度との関連性を調査するため、協力が得られた地域、病院や小学校を対象に、大気中PM<sub>2.5</sub>濃度と呼吸器系に関する受診及び呼吸機能との関連性に関する調査を実施した。

##### ○呼吸器系に関する受診との関連性

###### 1) PM<sub>2.5</sub>濃度と喘息による夜間急病診療所の受診との関連性解析

喘息による夜間急病診療所の受診者を対象に、統計モデルを用いて(気温等の影響を調整)、受診時刻前の時間帯毎の大気中PM<sub>2.5</sub>単位濃度増加当たりの受診リスクのオッズ比を推計し、大気中PM<sub>2.5</sub>濃度と喘息受診との関連性について検討した。

##### ○呼吸機能との関連性