

## ○窒素酸化物等に係る環境基準についての専門委員会報告

昭和47年6月20日  
中央公害対策審議会大気部会窒素酸化物等に係る環境基準専門委員会

「窒素酸化物等に係る環境基準」についての専門委員会は中央公害対策審議会大気部会に次の如く報告する。なお、本報告については、厚生省生活環境審議会公害部会の窒素酸化物等に係る環境基準専門委員会における審議をひきついだものであることを付言する。

### 1 はしがき

ここにいう窒素酸化物等とは窒素酸化物( $\text{NO}_x$ )、光化学オキシダント、オゾン等をいうことにする。

窒素酸化物のうち、人および人の環境への影響を考えて注目すべきものは一酸化窒素と二酸化窒素である。窒素酸化物は土壌微生物の代謝等自然現象としても発生し、これまでの測定によれば二酸化窒素の自然大気中の濃度は、0.003ppm程度以下である。またオゾンは成層圏よりの降下等によって地表面で0.05ppm程度以下存在する。

一酸化窒素( $\text{NO}$ )は火力発電所、炉作業等のいわゆる固定発生源および自動車等のいわゆる移動発生源で高温に空気が熱せられることにより発生し、大気中に放出される。大気中で一酸化炭素は酸化され、二酸化窒素( $\text{NO}_2$ )が生成される。一方、窒素酸化物は上記発生源のほか化学工業における硝化工程等より直接大気中に放出される。上述の諸原因により、窒素酸化物は地域大気汚染及び局所大気汚染をひきおこす。わが国では窒素酸化物による大気汚染は最近10年間に急速に悪化している。

二酸化窒素と炭化水素とに不飽和炭化水素が共存して、太陽光に照射されると、大気汚染物質が二次的に生成される。二酸化窒素の酸化され、硫酸ミストが生成される。この場合光化学反応による大気汚染はさらに悪化された状態となる。

現在一般的に一酸化窒素と二酸化窒素を総合して窒素酸化物と称しているが、窒素酸化物は人の健康への影響は勿論のこと、視程の障害、大気の着色(赤褐色)等を起すのである。

われわれが現在もっている人への影響に関する知識は主として二酸化窒素についてのものであり、一酸化窒素についての知識は未だ不十分であるので、ここでは二酸化窒素についての環境基準に関して勧告することにした。しかし、一酸化窒素については、将来の研究の発展に伴い、一酸化窒素の環境基準の設定に必要な資料の充実に期待したい。

一方、前述の如く、大気中で二酸化窒素と炭化水素の共存のもとで、光化学反応により生成される物質として現在注目されているのは次の如きものである。すなわちオゾン( $\text{O}_3$ )、二酸化窒素、パーオキシアセチルナイトレート(PAN)およびその同族体、過酸化物等の酸化性物質、ホルムアルデヒド、アクロレイン等の還元性物質、エアロゾル、そして影響についての証明は未知であるが、注目されなければならない活性の強い遊離基がある。これ等が総合して起した影響が、一般に光化学オキシダントの影響と称せられている。

光化学オキシダントの影響は粘膜刺激症状、人の呼吸器への激しい影響、その他の臓器、組織への影響等人の健康への影響のほか、ゴムのひび割れ、植物への悪影響、農作物被害、衣類の退色などが観察されている。

われわれは光化学反応によって生成される酸化性物質のうち二酸化窒素を除いたものを光化学オキシダントとする。これは後述する中性ヨウ化カリウム溶液を用いる測定方法によるものであり、この場合の測定値の殆んどはオゾンによるものであることが確認されている。従って、われわれはここでは光化学オキシダントの大部分はオゾンであるとの認識のもとに、光化学反応生成汚染物質の指標としての光化学オキシダントについての環境基準に関して勧告することにした。

### 2 測定方法

窒素酸化物等の測定には窒素酸化物等による地域大気汚染の状態を把握することを可能とする測定方法がとられるべきである。しかし窒素酸化物の発生源に移動発生源があることもあつて、発生源からの直接の影響を受ける汚染状態を測定することが必要な場合もある。

後者の場合であつても、発生源測定というより、影響との関係を明らかにすることに留意すべきである。

#### 2-1 測定場所

窒素酸化物等に係る汚染物質の測定は地域大気汚染、局地大気汚染のいずれであつても、これらの汚染物質による汚染とその傾向の把握、その影響の判定、それらの汚染物質による汚染の防止対策の樹立とその効果の評価に測定結果が有効に利用されるような場所で行なわなければならない。

試料空気の採取は、人の呼吸する面の高さで行なわれるべきであり、原則として、地上1.5m以上10m以下の高さで行なうものとする。

なお光化学オキシダントの測定値は窒素酸化物についての補正を行なう必要があるので、光化学オキシダントの測定場所では窒素酸化物の測定を行なう必要がある。

#### 2-2-1 窒素酸化物の測定

##### 2-2-1.1) 一般的事項

二酸化窒素の測定は連続測定を行なうことが望ましく、また測定結果の整理にあつては、1時間を単位として整理するものとする。測定装置の目盛範囲は大気中の二酸化窒素の濃度により選択するが、一般には数ppbから2ppm程度が測定可能であるものが適当である。

なお、窒素酸化物による汚染の状態を明らかにしておくため、環境測定は二酸化窒素にとどまらず、一酸化窒素についても行なつて、整理しておくことが望ましい。

##### 2-2-1.2) 標準方法

窒素酸化物の濃度の測定は、ザルツマン試薬を用いる分光光度法に基づく測定法を標準方法とする。ただし、これと等価の測定結果が得られることを示し得る他の方法を用いてもよい。

#### 2-2-2 光化学オキシダントの測定

##### 2-2-2.1) 一般的事項

一般にオキシダントは中性ヨウ化カリウム溶液からヨウ素を遊離する酸化性物質の総称である。この反応を利用して、光化学オキシダントを測定している。

光化学オキシダントの測定は連続測定を行なうことが望ましく、また測定結果の整理にあつては、1時間を単位として整理するものとする。

測定装置の測定可能な濃度範囲は数ppbから1ppm程度のものが適当である。

## 2-2-2. 2) 標準方法

光化学オキシダントの測定は、中性ヨウ化カリウム溶液を用いる吸光光度法に基づく測定法を標準方法とする。ただし、これと等価の測定結果が得られることを示し得る他の方法、例えば電量法を用いてもよい。

標準方法においてはオキシダント測定値を二酸化窒素濃度について補正する。また本法では、二酸化いおう等の還元性物質の影響を受けるので、その妨害を除去するため、三酸化クロム含浸濾紙（スクラバー）を使用する。この場合、大気中の一酸化窒素が二酸化窒素に酸化され、オキシダント測定値に影響するので、一酸化窒素濃度についても補正する必要がある。

窒素酸化物濃度について補正したオキシダント濃度の大部分はオゾンによるものとみなされる。

## 2-2-3 オゾンの測定

すでに述べたように光化学オキシダントを標準方法で測定した場合、その大部分はオゾンであり、オゾンの測定を直接行うことが望ましいことは明らかである。現在オゾンの測定方法として利用可能なものとして、エチレンとの反応を利用した化学発光法があり、これは二酸化いおう、二酸化窒素の影響を受けずに、オゾンを選択的に測定することができる方法である。現在実用化されつつあるので、今後の実地の経験をつみ重ねることによつて、標準方法として採用されることを期待したい。

## 2-3 付言

窒素酸化物等に係る大気汚染による汚染状況および影響の判断のために将来の研究調査の資料の充実を図ることが必要であるので、一酸化窒素、オゾンの選択的測定方法が実用化されつつある現状にかんがみ、これ等の測定方法が上述の標準方法とともに利用されることを強く希望したい。

光化学オキシダントの発生機構にかんがみ炭化水素の測定がすみやかに日常業務として、実施されることを強く希望する。

## 3 人に対する影響

### 3-1 窒素酸化物の影響

一酸化窒素の影響については、その実験手法の困難さのためあつて、未だ充分な知見は得られていない。動物を極端に高濃度の一酸化窒素に曝露すると、中枢神経系の障害に原因が求められる麻痺、けいれんがみられる。また血球素との親和性が強く、試験管実験で一酸化炭素の数百倍であるとされており、一酸化窒素血球素およびメトヘモグロビンの生成が著しい高濃度の動物実験において認められている。人に対しては充分な知識はないが、将来の研究の進展によつて、一酸化窒素は二酸化窒素よりも重視せねばならないことになるかもしれないと考える。

二酸化窒素は浮遊粒子状物質の存在の有無と関係なく、呼吸器深部に容易に到達する性質をもっている。一方浮遊粒子状物質と共存するとき、気道の気流抵抗の増加という生体反応でみると二酸化窒素と浮遊粒子状物質は相加作用をもつことが人の実験で確かめられている。

従つて、二酸化窒素は古くより呼吸器刺激ガスとして知られ、その中毒は職業病として注目されてきた。動物実験でも、職業病でも高濃度の急性二酸化窒素中毒による死因

は肺水腫等であり、慢性影響では慢性気管支炎、肺気腫の発病が憂慮されている。

人は二酸化窒素0.12ppmで臭いを感知する。この嗅覚値は二酸化いおうが共存する場合は低くなる。

二酸化窒素16.9ppm10分間で人の気道の気流抵抗に有意の上昇がみられる。また気流抵抗の増加という反応でみると二酸化いおうと二酸化窒素は相加的作用が認められる。

動物実験では0.5ppm4時間曝露で、肺細胞への影響がみられ、0.5ppm数カ月間曝露で細気管支炎、肺気腫の発症が認められる。

動物実験では二酸化窒素に曝露すると肺炎桿菌、インフルエンザウイルスに対する感受性が高まること、生存期間の短縮、生菌排除能の減弱等が指摘されている。例えば0.5ppm12カ月曝露で肺炎桿菌に感染させると致死率増大、生菌排除能減弱が認められている。

二酸化窒素10ppm1日2時間曝露で、インフルエンザウイルスを感染させると間質性肺炎像がみられ、その病理学的所見は曝露日数の増加により高度となる。また0.5ppm6カ月間曝露すると末梢気管支の上皮細胞の反応性増殖が認められ、肺気腫を軽度で認めることができる。これにインフルエンザウイルスを感染させると肺炎像は高度となり、かつ末梢気管支上皮細胞の腺腫様増殖がみられるようになる。この腺腫様増殖には注目せねばならない。

二酸化窒素が気管支喘息の発症の原因となる可能性が動物実験では示されている。また、一酸化炭素が共存するとき一酸化炭素血球素の生成が高まること動物実験で報告されている。

地域住民に対し現在程度の濃度で急性又は慢性の影響が、どの程度出現しているかの研究は少ない。

米國で二酸化いおう汚染が殆どなく二酸化窒素及び硝酸塩汚染のある地区の学童のインフルエンザ感染率及び欠席率の上昇が報告されている。この場合の二酸化窒素濃度は0.062~0.109ppm、浮遊硝酸塩は3.8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 又はそれ以上であつた。チェコスロバキヤで二酸化いおう汚染と二酸化窒素汚染の共存する地区の学童についての調査が行なわれている。

すでに述べたように二酸化窒素は二酸化いおうと相加作用があることに注目せねばならない。わが國の現状からみて二酸化窒素のみの汚染は例外的局所汚染にすぎない。多くの場合は両者は共存するのであるから、二酸化窒素の環境基準に関する検討は二酸化いおうの存在を無視して行なうことはできない。

わが國の慢性気管支炎の有症率の疫学調査は最近数年間に多くの知見を提供している。この知見の中でまず40才以上の成人の慢性気管支炎の有症率は、非大気汚染地区で約3%であることに注目することにする。東京都の男子自治体職員慢性気管支炎の有症率（1968~1971）は、二酸化いおうの24時間間平均濃度の年間平均値が0.05ppm以下の地区における持続的“せき”と“たん”（単純性慢性気管支炎）の有症率が5%以上を示しており、この場合の二酸化窒素の24時間平均濃度の年間平均値は0.042ppm以上であつた。

また1970年より1971年の冬季に行なわれた全園6ヶ所の30才以上の家庭の主婦の持続性“せき”と“たん”の有症率調査によれば、有症率と二酸化窒素濃度は高い水準の関連性を示した。この時の二酸化窒素濃度は調査月間をさむ3ヶ月にわたり各月8~72時間の測定が行なわれた。持続性“せき”と“たん”の有症率が4%をこえた地域の二酸化窒素濃度は1時間値の上述の測定期間中での平均濃度で0.029ppmであつた。なお、成人女子の有症率は成人男

子に比へ、低位にあることが広く認められている。

### 3-2 光化学オキシダントの影響

光化学オキシダントの影響については、窒素酸化物の影響に類似している。そして窒素酸化物による影響より強いことに注目する必要がある。

光化学オキシダントの大部分がオゾンであるのでオゾンの影響をみると次の如くである。

動物実験でみるかぎり、オゾンは上気道摂取率は低く、容易に呼吸器深部に到達する。1 ppm 4時間暴露で、暴露後20時間後に軽度の肺水腫がみられ、長期間暴露で、気管支炎、細気管支炎、肺気腫、肺線維症、腺腫がみられる。0.25～0.5 ppm、3時間暴露で気流抵抗上昇がみられる。1 ppm 1時間暴露で肺細胞の構成蛋白質の変化を推定せしめる影響が認められる。運動負荷した動物においてオゾンの毒性は増加する。

オゾンにおける細菌感染の感受性増加は二酸化窒素と同様であり、0.08 ppm 3時間ですでに認められている。また気管支喘息の発症の原因となる可能性は二酸化窒素よりも、より強いことが動物実験では認められている。

一方、動物実験では急性暴露に対して耐性の出現が認められるが、慢性暴露については不明である。

人に対するオゾン暴露実験では、急性暴露で、0.1 ppm 1時間までは明らかな影響は認められず、0.5～1.0 ppm、1～2時間で気道抵抗増加、肺の一酸化炭素拡散能低下、肺活量低下が認められ、かつ運動負荷によりこれらの症状が悪化する。以上は平均的な反応であるが、個人差があり、感受性の高い者の存在に注意せねばならないことが指摘されている。

人に対するオゾンの長期暴露では0.2 ppm以下は明らかな影響が工場労働者には認められず、0.3 ppmで鼻及び咽頭刺激があり、0.5 ppm 1日3時間、1週間6日、12週間暴露で肺換気能の低下が認められている。

また、0.02 ppmで人はオゾンの臭いを感じる。

以上が実験室の研究結果であるが、現実に光化学オキシダントが発生し、かつ他の大気汚染物質が存在するときの住民に対する影響は次の如くである。

米国における研究によれば0.05 ppm 4時間で植物被害がみられ、短時間0.1 ppm以上で眼の刺激症状が出現し、喘息患者の発作頻度がピーク濃度0.13 ppmで増加する。それは大体1時間平均濃度で、0.05～0.06 ppmに相当する。また慢性呼吸器疾患の症状悪化が1時間平均濃度0.2～0.7 ppmで出現するが、1時間平均濃度0.06 ppmでは出現しないとの報告もある。運動選手(クロスカントリー競技)の記録が出発前1時間の平均濃度0.03～0.30 ppmで統計学的に有意に低下する。

わが国での光化学オキシダントの地域住民への影響の報告は未だ充分ではない。光化学オキシダント濃度0.10 ppm程度で農作物、植物への被害、眼の刺激症状の訴えが市民より自治体当局へ報告されている。オゾンの動物実験でみられたように運動時の影響は無視できないものがあり、運動中の学生の被害報告がしばしば行なわれている。昭和46年夏大阪府下南部地域において、いわゆる光化学スモッグ発生時に運動中の選手にはげしい眼および呼吸器刺激症状と臨床検査の異常所見を伴う患者が発生した。

その際のそれぞれの汚染物質の濃度は1時間値でオゾンが0.2 ppm以上、二酸化いおうが0.05 ppm以上、硫酸ミストが6～10 μg/m<sup>3</sup>、二酸化窒素0.05 ppmであつた。

### 3-3 付言

二酸化窒素、オゾン、および光化学オキシダントの人の生活環境に与える影響は、不快、臭気、視程障害のほか、

ゴムのひび割れ、植物被害等があることに注目する必要がある。

また、二酸化窒素、オゾンおよび光化学オキシダントの影響はまず第一義的に呼吸器、ことに肺に認められるので、その影響に注目して述べてきた。しかし、これ等の汚染物質は濃度と暴露時間との積の値如何によつては、血液、大脳、心臓、肝臓、腎臓等の諸臓器への影響、さらに発癌性、突然変異等の作用が憂慮されていることを指摘しておきたいと思う。

### 4 むすび

地域環境大気中の二酸化窒素、光化学オキシダントの年間を通じて常に維持されるべき濃度条件について、われわれは前述の測定方法と人の健康への影響の資料にもとづき次の通り提案する。

(1) 二酸化窒素については、その影響とくに慢性影響が憂慮されていること、さらに二酸化いおうとの相加作用があることに注目して1時間値の24時間平均値0.02 ppm以下であること。

(2) 光化学オキシダントについては、短時間暴露の影響を防止するというに注目して1時間(平均)値0.06 ppm以下であること。

この報告は現在までに得られた資料にもとづいて、われわれが行なつた検討の結果であり、二酸化窒素と光化学オキシダントの判定条件の提案である。

測定方法と影響についての研究の進歩、ことに一酸化窒素、炭化水素およびオゾン、その他の光化学反応物質の影響および複合汚染の影響に関する資料の充実と環境濃度測定方法の進歩のための努力が必要である。

これ等の研究の進歩、人および人に関係ある諸対象への影響の評価、判定条件、そして健康の認識と評価の変化に伴い、今後定期的に検討を加え、その結果に応じて改訂されるべきものである。

窒素酸化物等に係る環境基準専門委員会名簿

鈴木 武夫	中央公害対策審議会委員(委員長)
荒木 峻	東京都立大学工学部教授
大平 俊男	東京都公害研究所大気部長
川村 清	気象研究所地球化学部第1研究室長
鈴木 伸	千葉大学工学部教授
外村 正治	国立衛生試験所環境化学部長
外山 敏夫	慶応義塾大学医学部教授
中島 泰知	大阪府立公衆衛生研究所労働衛生課長
藤井 徹	大阪府公害監視センター調査室長
八巻 直臣	工業技術院公害資源研究所公害第2部長
横山 栄二	国立公衆衛生院労働衛生学部職業性疾患室長
渡辺 弘	兵庫県公害研究所長