

中央環境審議会大気環境部会
微小粒子状物質環境基準専門委員会報告（案）

平成21年7月

目 次

はじめに

1. 微小粒子状物質の特性及び人の生体内での挙動	1-1
1.1. 粒子状物質の特性	1-1
1.1.1. 粒径分布	1-1
1.1.2. 生成機構	1-4
1.1.3. 化学組成	1-5
1.1.4. 発生源	1-7
1.2. 人の生体内での挙動	1-8
1.2.1. 生体内沈着	1-9
1.2.2. 生体内動態	1-14
1.3. 微小粒子状物質の粒径	1-15
1.4. 参考文献	1-17
2. 環境大気中濃度	2-1
2.1. 我が国における環境大気中濃度の現状	2-1
2.1.1. 微小粒子状物質曝露影響調査等による調査結果	2-4
2.1.2. 国設酸性雨測定所等における調査結果	2-9
2.2. 日本と米国の環境大気中濃度の相違	2-20
2.3. 参考文献	2-23
3. 微小粒子状物質の健康影響に関する定性的評価	3-1
3.1. 毒性学知見に基づく影響メカニズム	3-1
3.1.1. 呼吸器系への影響	3-2
3.1.2. 循環器系（心血管系）への影響	3-3
3.1.3. 免疫系その他への影響	3-4
3.1.4. 発がん影響	3-5
3.1.5. 粒子状物質の成分と健康影響の関係	3-6
3.1.6. 粒径と健康影響の関係	3-6
3.1.7. 粒子状物質に対する感受性	3-6
3.1.8. 共存大気汚染物質による影響	3-6
3.2. 微小粒子状物質の健康影響に関する疫学知見	3-7
3.2.1. 短期曝露影響（死亡）	3-8
3.2.2. 短期曝露影響（死亡以外）	3-15

3.2.3. 長期曝露影響（死亡）	3-20
3.2.4. 長期曝露影響（死亡以外）	3-23
3.2.5. 粒径と健康影響の関係	3-27
3.2.6. 粒子状物質の成分と健康影響の関係	3-28
3.3. 微小粒子状物質の有害性	3-29
3.3.1. 疫学知見に基づく因果関係の評価	3-29
3.3.2. 循環器疾患への影響に関する国内外の相違に関する考察	3-32
3.3.3. エンドポイントごとの有害性評価	3-35
3.4. まとめ	3-37
3.5. 参考文献	3-38
4. 微小粒子状物質の健康影響に関する定量的評価	4-1
4.1. 定量的評価の考え方	4-1
4.2. 定量的評価に関する疫学知見の抽出の考え方	4-3
4.3. 定量的評価に資する長期曝露影響に関する疫学知見	4-5
4.3.1. 死亡をエンドポイントとした知見	4-5
4.3.2. 死亡以外のエンドポイント	4-17
4.4. 定量的評価に資する短期曝露影響に関する疫学知見	4-25
4.4.1. 死亡をエンドポイントとした知見	4-25
4.4.2. 死亡以外のエンドポイント	4-30
4.4.3. 米国等の短期曝露影響の知見における PM _{2.5} 濃度	4-30
4.5. 定量的評価において考慮すべき観点	4-33
4.5.1. 感受性が高い者・脆弱性を有する者に対する影響	4-33
4.5.2. 濃度－反応関係における不確実性	4-34
4.5.3. その他の考慮すべき観点	4-36
4.6. 曝露量－影響関係を示す毒性学知見	4-37
4.6.1. ヒト志願者実験	4-38
4.6.2. 動物実験	4-40
4.7. 参考文献	4-42
5. 環境基準の設定に当たっての指針値に関する検討	5-1
5.1. 長期基準及び短期基準の必要性	5-1
5.2. 長期基準の考え方と知見の評価	5-2
5.3. 短期基準の考え方と知見の評価	5-7
5.4. 長期基準及び短期基準の指針値	5-9
5.4.1. 主要な観点	5-9

5.4.2. 長期基準の指針値	5-11
5.4.3. 短期基準の指針値	5-12
5.4.4. 指針値の提案	5-12
5.5. 参考文献	5-13
6. 環境基準達成状況の評価	6-1
6.1. 環境基準達成状況の評価	6-1
6.2. 微小粒子状物質に係る環境基準達成状況の評価	6-1
6.3. 黄砂時等の特異的現象に関する評価への考慮	6-2
7. まとめと今後の課題	7-1
7.1. まとめ	7-1
7.2. 調査研究に関する今後の課題	7-3
7.3. 参考文献	7-5

中央環境審議会大気環境部会微小粒子状物質環境基準専門委員会委員名簿

微小粒子状物質環境基準専門委員会審議経過

参考1 微小粒子状物質濃度変動に関する統計学的特性について

参考2 黄砂による影響について

略語一覧

はじめに

本専門委員会では、「微小粒子状物質健康影響評価検討会報告書」(環境省, 2008)、「微小粒子状物質の定量的リスク評価手法について」(微小粒子状物質リスク評価手法専門委員会, 2008。以下「微小粒子状物質リスク評価手法専門委員会報告」という。)に加え、現時点で利用可能な微小粒子状物質等に係る国内外の科学的知見を踏まえ、微小粒子状物質の特性及び人の体内中の挙動、環境大気中濃度、健康影響に関する定性的評価及び定量的評価、環境基準設定に当たっての指針値、環境基準達成状況の評価の手法等について審議を行ってきたが、このほど、その成果を取りまとめたので、ここに報告する。

1. 微小粒子状物質の特性及び人の生体内での挙動

1.1. 粒子状物質の特性

粒子状物質は、硫酸塩、硝酸塩、炭素成分、金属成分、土壌成分等から構成される混合物であり、発生源も多様である。粒子状物質の粒径分布、生成機構、化学組成、発生源は、それぞれ次のとおりである。

1.1.1. 粒径分布

環境大気中に存在する粒子状物質の粒径は、その大部分が $0.001 \sim 100 \mu\text{m}$ の範囲内にある。

環境大気中の粒子状物質の粒径分布には 3 つのピークが存在する。主に、破碎過程において生成され、 $5 \sim 30 \mu\text{m}$ にピークを持つ粗大粒子領域、主に凝縮や凝集(粒子同士の衝突合体)によって形成され、 $0.15 \sim 0.5 \mu\text{m}$ にピークを持つ蓄積領域、主に燃焼過程から発生する粒子で、 $0.015 \sim 0.04 \mu\text{m}$ にピークを持つ核形成領域がある。本報告では、粗大粒子領域に存在する粒子を粗大粒子又は粗大粒子状物質、蓄積領域及び核形成領域に存在する粒子を微小粒子又は微小粒子状物質という。微小粒子状物質のうち、特に小さい粒子の定義は研究領域により異なるが、大気環境に関する分野では、微小粒子状物質のうち粒径が $0.1 \mu\text{m}$ 以下の粒子は超微小粒子(Ultrafine particles)とされている(図 1.1.1.1)。

日本では粒子状物質に関して、 $10 \mu\text{m}$ 以下の粒子状物質を対象として浮遊粒子状物質(SPM:Suspended Particulate Matter)の環境基準が設定されており、その測定に当たっては、大気中に浮遊する粒子状物質から、あらかじめ粒径 $10 \mu\text{m}$ を超える粒子を除去したうえで、粒径 $10 \mu\text{m}$ 以下の粒子をろ過捕集により採取する方法が採られている。一方、米国では、 $10 \mu\text{m}$ の粒子を 50 %の割合で分離することができる分粒装置を用いて、より粒径の大きい粒子を除去した後に採取される粒子で構成される PM_{10} に加えて、 $2.5 \mu\text{m}$ の粒子を 50 %の割合で分離することができる分粒装置を用いて、より粒径の大きい粒子を除去した後に採取される微小粒子で構成される $\text{PM}_{2.5}$ の環境基準が設定さ

i 粒径:大気中の粒子状物質の粒径を表す単位として空気動力学径がある。これは、対象とする粒子状物質と同一の終末沈降速度を有する単位密度(1 g/cm^3)の球形粒子径をいう。実際の粒子の形状と密度は様々であるため、粒径について、一般に単位密度(1 g/cm^3)の球形粒子とみなして空気動力学径の単位が用いられていることから、本報告においても、粒径は空気動力学径によるものとする。

れている。PM₁₀からPM_{2.5}を除外した粗大粒子をPM_{10-2.5}という(図 1.1.1.2)。なお、本報告では、大気環境濃度測定によって粒子状物質を測定した場合や当該測定結果を用いた疫学研究、濃縮した粒子状物質を用いた毒性学研究においては、各調査研究において使用されている粒子状物質の指標(PM_{2.5}、PM₁₀、SPM 及び PM_{10-2.5}等)で表示した。

また、環境大気中の微小粒子状物質は、個数濃度分布において、粒径が0.01~0.02 μm 付近にピークを有する単峰型分布を示し、表面積濃度分布において、0.1~0.2 μm 付近にピークを有する単峰型分布を示し、質量(体積)濃度分布において、1~2 μm 付近に谷を有する二峰型分布を示している。(図 1.1.1.3)

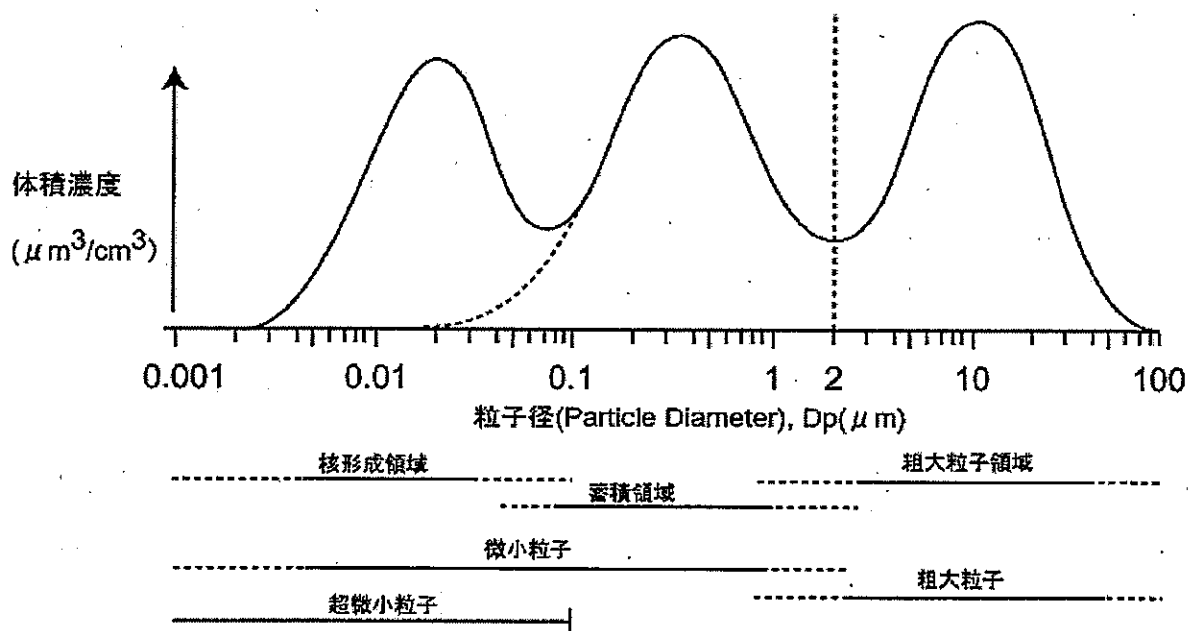


図1.1.1.1 環境大気中粒子状物質の粒径分布 (概念図)

(Whitby, 1978を改変・和訳)

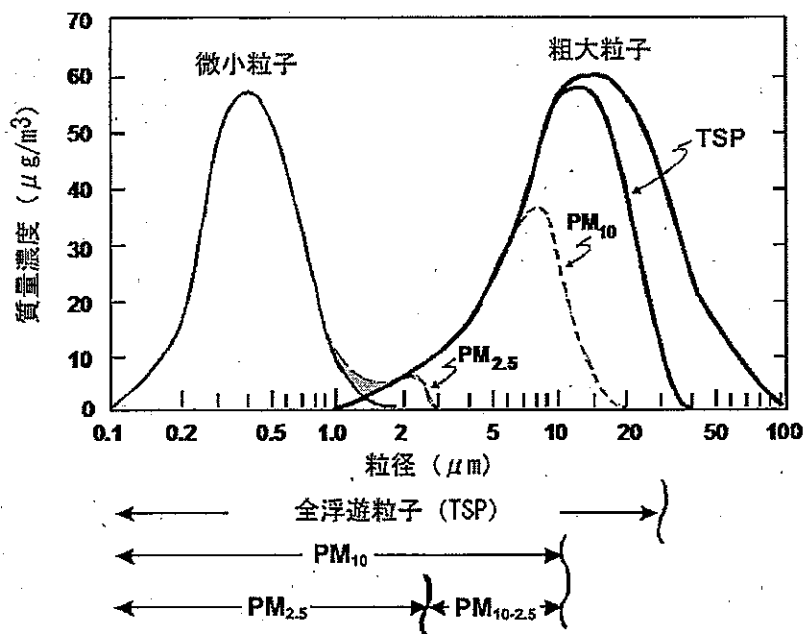


図1.1.1.2 環境大気中粒子状物質の粒径分布 (PM_{2.5}・PM₁₀)
(Wilson and Suh, 1997 を引用・和訳)

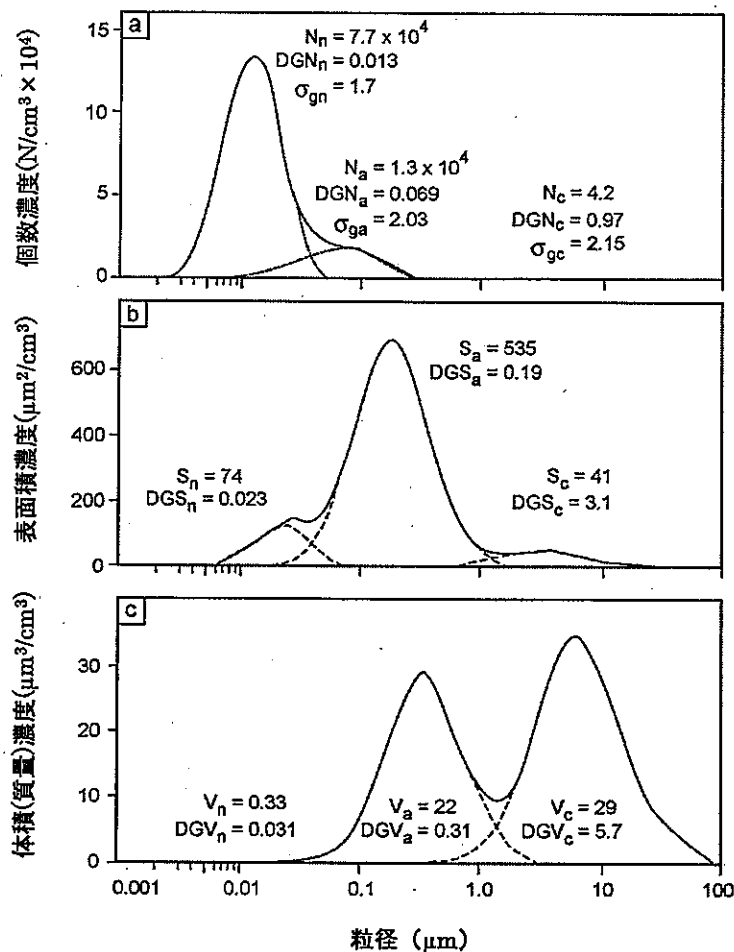


図1.1.1.3 粒子状物質 (n:核形成領域,a:蓄積領域,c:粗大粒子領域) の
粒子数・表面積濃度・体積(質量)濃度分布

上図:個数分布と各領域の平均個数濃度 (N)・幾何平均粒径(DGN)・標準偏差(σ_g)

中図:表面積分布と各領域の平均表面積濃度 (S)・幾何平均粒径(DGS)

下図:体積分布と各領域の平均体積濃度 (V)・幾何平均粒径(DGV)

(Whitby, 1978を引用・和訳)

1.1.2. 生成機構

一次生成粒子は、土砂の巻き上げ等自然現象によるものがあるが、人為起源の発生源からは、堆積物等の破碎や研磨等による細粒化や物の燃焼等に伴って排出される。堆積物の破碎や研磨等によって発生した粒子状物質は粗大粒子領域に主に分布している。一方、物の燃焼に伴って排出された粒子状物質は、微小粒子領域に主に分布している。

二次生成粒子は、硫黄酸化物(SO_x)、窒素酸化物(NO_x)、塩酸(HCl)及び揮発性有機化合物(VOC)等のガス状大気汚染物質が、主として環境大気中での化学反応により

蒸気圧の低い物質に変化して粒子化したものである。生成した粒子は更に凝縮及び凝集を繰り返してより大きな粒子に成長していく。

1.1.3. 化学組成

環境大気中に存在する粒子状物質の化学組成は、無機成分(硫酸塩、硝酸塩及び塩化物等)、炭素成分[有機炭素(OC)、元素状炭素(EC)及び炭酸塩炭素(CC)等]、金属成分及び土壌成分等に分類される。

無機成分の硫酸塩粒子や硝酸塩粒子は微小粒子領域に、海塩粒子や炭酸塩粒子は粗大粒子領域に多く含まれる。その濃度や存在割合は地域、発生源、気象条件、季節等により大きく変化する。粒子が気体に変化しない元素状炭素、硫酸塩等は、環境大気中での滞留時間が長いⁱⁱため微小粒子状物質の成分として普遍的に存在している。

主要成分の生成機構、環境大気中の挙動等は次のとおりである。

1.1.3.1. 硫酸塩

硫酸塩の生成については、二酸化硫黄(SO_2)が環境大気中で水と反応するとともに、OH ラジカルⁱⁱと反応し、亜硫酸(H_2SO_3)や硫酸(H_2SO_4)となる。さらに、アンモニア(NH_3)と反応し、硫酸アンモニウム $[(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4]$ 及び $\text{H}(\text{NH}_4)\text{SO}_4$ を生成する。環境大気中に存在する粒子状物質には、硫酸と硫酸塩が共存する。アンモニアは二酸化硫黄よりも 60 倍近く水に溶けやすいので、二酸化硫黄が無ければ、水との反応等により環境大気中から除去されるが、硫酸粒子がある場合には、硫酸アンモニウムとなって長距離輸送される。

1.1.3.2. 硝酸塩

窒素酸化物は硫黄酸化物と比較すると、水と反応しにくいため、硫酸塩粒子とは挙動が異なる。一酸化窒素(NO)はオゾン(O_3)や RO_2 ラジカルⁱⁱⁱと反応し、二酸化窒素(NO_2)になる。日中には、光解離してオゾンが発生させるが、これと共に OH ラジカルと反応して硝酸イオン(NO_3^-)を生成する。硝酸は、日中ばかりではなく夜間にも生成する。この硝酸は、アンモニアと反応して硝酸アンモニウム(NH_4NO_3)を生成する。硝酸塩は粒子状

ⁱⁱ OH ラジカル：ヒドロキシルラジカル。活性酸素種の一種で不安定で非常に強い酸化力をする。

ⁱⁱⁱ RO_2 ラジカル：アルキルペルオキシラジカル。R はアルキル基 (CH_3 ; C_2H_5 など) を示す。

物質であるが、温度が上がると再び硝酸とアンモニアになり、ガス状大気汚染物質と粒子状物質の間で可逆的に変化する。環境大気中に塩化ナトリウム(NaCl)が存在する時は、塩化ナトリウムと硝酸が反応して硝酸ナトリウム(NaNO_3)粒子が生成する。

1.1.3.3. 炭素成分

炭素成分には、化石燃料等の燃焼に伴って発生する、ほとんど炭素のみから構成されている元素状炭素、未燃の燃料や潤滑油及びその不完全燃焼物質から構成される一次生成有機炭素並びに人為起源(トルエン等)及び自然起源(テルペン類等)の揮発性有機化合物からいわゆる光化学反応等に伴って生成される二次生成有機炭素並びに土壌やアスファルトの破碎・磨耗成分に含まれている炭酸塩炭素に分類される。

元素状炭素は主として微小粒子として存在し、有機炭素のうち一次生成有機炭素又は光化学反応等による二次生成有機炭素は微小粒子として存在しているが、有機炭素を含むタイヤ磨耗成分や花粉等は主として粗大粒子として存在している。また、ディーゼル排気粒子等に含まれている多環芳香族炭化水素やそのニトロ体等は炭素粒子等に着して微小粒子として存在している。

揮発性有機化合物は、OH ラジカル、オゾン等と化学反応を起こし、揮発性の低い含酸素有機化合物を生成し、それらが自ら凝縮して新しい粒子状物質が生成されたり、又は環境大気中にある既存の粒子状物質の表面上で凝縮したりして、既存の粒子状物質が成長していく。

1.1.3.4. 金属成分

粒子状物質に含まれる金属成分にはアルミニウム(Al)、ナトリウム(Na)、鉄(Fe)、カリウム(K)、銅(Cu)、鉛(Pb)、亜鉛(Zn)、バナジウム(V)及びマンガン(Mn)等がある。このうち、アルミニウムは土壌粒子、ナトリウムは海塩粒子、マンガンは鉄鋼工場、カリウムは廃棄物焼却及び植物燃焼、バナジウムは石油燃焼を主な由来とする元素として知られており、亜鉛は潤滑油の添加物に由来するとされている。カリウムやバナジウム等の燃料燃焼起源の金属成分は、高温で揮発した後に凝縮粒子化したものであり、球形の微小粒子として存在している。

1.1.4. 発生源

環境大気中粒子状物質の発生源は、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、船舶及び航空機等)がある(図1.1.4.1)。

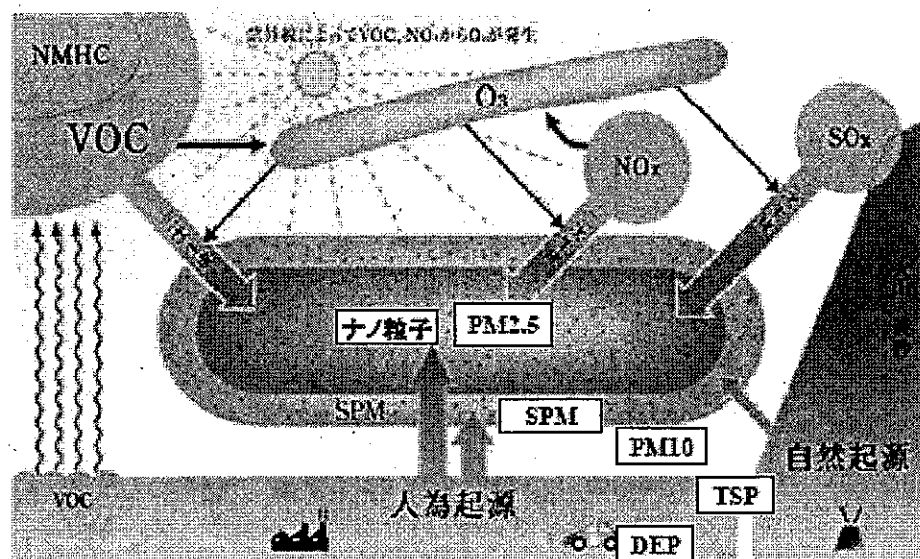


図1.1.4.1 粒子状物質の発生源

(出典：国立環境研究所 環境儀)

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る。

移動発生源としては、自動車、船舶、航空機等がある。

自然発生源としては、土壌、海洋、火山等があり、それぞれ土壌粒子、海塩粒子、火山噴煙等を発生させる。特に、四方を海に囲まれ、海岸線に沿って都市が発達している日本では、季節特有の風系により飛散する海塩粒子に留意する必要がある。

国外から越境移流する代表的な粒子状物質として、黄砂がある。大陸内部の砂漠や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。日本においては、黄砂は一般的に3月～4月に多く観測されるが、11月にも観測される場合がある。なお、長距離輸送過程において汚染大気塊と混合され、黄砂粒子上に大気汚染物質を付着して運ばれる場合もある。

微小粒子及び粗大粒子の生成過程、成分、発生源等の内容を表1.1.4.1に記す。

表1.1.4.1 微小粒子と粗大粒子の生成過程等の内容

	微小粒子		
	超微小粒子	蓄積領域粒子	粗大粒子
生成過程		燃焼、高温処理、大気反応	大きな固体/小滴の破壊
生成方法	核形成 凝縮 凝集	凝縮 凝集 粒子内又は粒子上での気体の反応 気体が溶けて反応した霧と雲滴の蒸発	機械的崩壊（破碎、粉碎、表面の擦過） しぶきの蒸発 粉じんの浮遊 粒子内外における気体との反応
成分	硫酸塩 元素状炭素 金属化合物 大気温度での飽和蒸気圧がきわめて低い有機化合物	硫酸塩、硝酸塩、アンモニウム塩、酸性大気粒子 元素状炭素 多岐にわたる有機化合物 金属【鉛(Pb)、カドミウム(Cd)、バナジウム(V)、ニッケル(Ni)、銅(Cu)、亜鉛(Zn)、マンガン(Mn)、鉄(Fe)】等の化合物 粒子結合水	浮遊土壌や道路粉塵 石炭、油、木材の非管理状態の燃焼によるフライアッシュ 硝酸(HNO ₃)/塩酸(HCl)/二酸化硫黄(SO ₂)と粗大粒子の反応からの硝酸塩/塩化物/硫酸塩 地殻元素【ケイ素(Si)、アルミニウム(Al)、チタン(Ti)、鉄(Fe)】の酸化物 炭酸カルシウム(CaCO ₃)、硫酸カルシウム(CaSO ₄)、塩化ナトリウム(NaCl)、海塩、花粉、カビ、真菌孢子、植物や動物の断片 タイヤ、ブレーキパット、道路摩耗破片
水への溶解度	おそらく蓄積領域粒子より可溶性は低い	高可溶性、吸湿性、潮解性	非潮解性、非吸湿性
発生源	燃焼 環境大気中での二酸化硫黄(SO ₂)と一部の有機化合物の変化 高温による変化	石炭、オイル、ガソリン、ディーゼル燃料、精錬・製鉄等の人為起源 生物由来有機物（例：テルペン）等の自然起源	工場のばいじんと道路や街路土壌の再浮遊 廃棄した土からの浮遊（例：農業、鉱山、舗装してない道路） 生物起源
環境大気中での半減期	数分から数時間	数日から数週間	数分から数時間
除去過程	蓄積領域粒子に成長 雨滴に拡散	雲滴を形成し、降雨（レインアウト） 乾性沈着	落下による乾性沈着 雨滴による洗浄（ウォッシュアウト）
移動距離	<1 km から数 10 km	数 100 km から数 1000 km	<1 km から数 10 km

(Wilson and Suh, 1997 を引用・和訳・一部修正)

1.2. 人の生体内での挙動

粒子状物質の沈着^{iv}は、粒子状物質の物理的及び化学的性状、気道の解剖学的要

^{iv} 沈着：呼吸器系に吸入された粒子が気道粘膜若しくは肺胞に接着すると、再び気流に戻ることはなく、この状態を沈着したという。

因、呼吸パターン、曝露濃度や期間等の多くの因子に依存している。気道、肺胞腔内に沈着した粒子状物質は粘液線毛上皮系を始めとするクリアランス(clearance)機構によって、その多くが排除される。

生体内に吸入された粒子状物質の気道や肺組織への沈着と沈着した後の生体内における動態は次のとおりである。

1.2.1. 生体内沈着

1.2.1.1. 呼吸器への沈着メカニズム

呼吸器系は鼻、咽頭、喉頭、気管、気管支、肺から構成される。構造的には、①鼻から咽頭、喉頭までの「上気道」領域、②気管から気管支、細気管支を経て終末細気管支に至る「下気道」領域、③移行部である呼吸細気管支及び肺胞道、肺胞囊からなる「肺胞」領域の3つの領域に分けて考えることができる。(図 1.2.1.1)

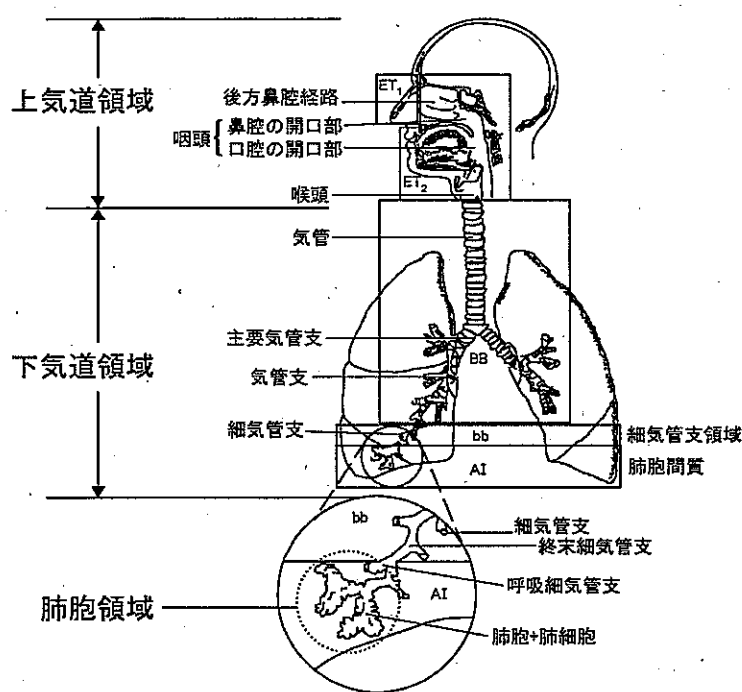


図1.2.1.1 ヒトにおける呼吸器系の構造

(U.S.EPA, 2004を引用・改変・和訳)

粒子状物質の呼吸器系への沈着部位や沈着量を決定する要素として、粒子の粒径、形状、表面の性状、密度のほか吸湿性、水溶性等の物理・化学的性状や気道の構造、気道内での気流の状態や呼吸のパターン(口呼吸か鼻呼吸、呼吸回数や一回換気量等

の換気因子)等がある。

呼吸器に吸入された粒子状物質は、環境大気中に浮遊していたときと同様の運動を続けようとするが、その肺内への侵入深度は空気動力学径だけでなく、個人の呼吸状態にも依存する。安静呼吸で、気道各部位の粘膜及び肺胞に沈着する粒子状物質の割合は、図 1.2.1.2 のとおりである。この曲線は Weibel の解剖学的気道計測に基づいて推定されており、その結果は実験結果とほぼ一致することが報告されている。

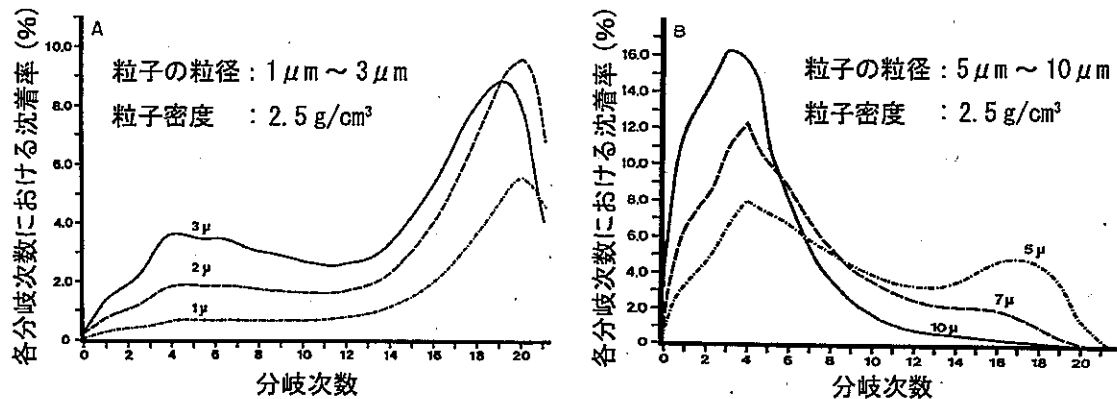


図1.2.1.2 Weibelのモデルを用いた球状粒子の気道への分布比率

平均気流速度(体積速度): $500\text{ cm}^3/\text{s}$ 、一回換気量: 700 ml 、呼吸回数: $15.8/\text{min}$
(Gerrity *et al.*, 1979 を引用・和訳)

生体内に吸入された粒子は、主として慣性による衝突(inertial impaction)、沈降(sedimentation)、遮り(interception)、粒子荷電、拡散(ブラウン運動)によって、呼吸器内の部位に沈着する。(図 1.2.1.3)

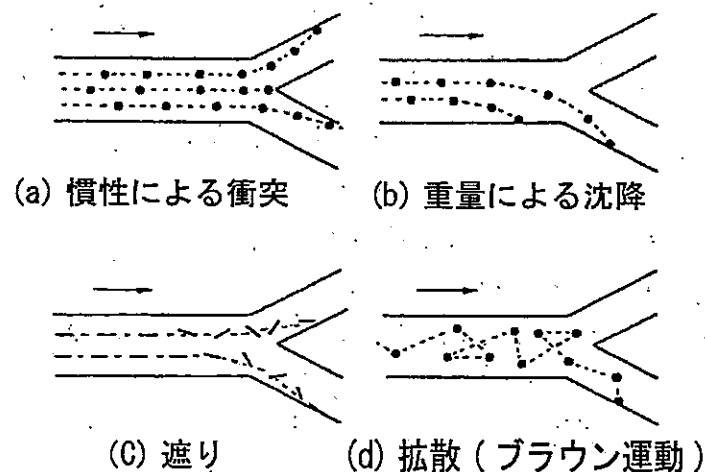


図1.2.1.3 気道における粒子沈着様式

(Parkes, 1994を引用・和訳)

粒子状物質の沈着に関しては、気道各部位における吸入大気の流速が重要な要素となるが、Weibel の気道分岐次数による積算気道断面積を図 1.2.1.4 に示す。

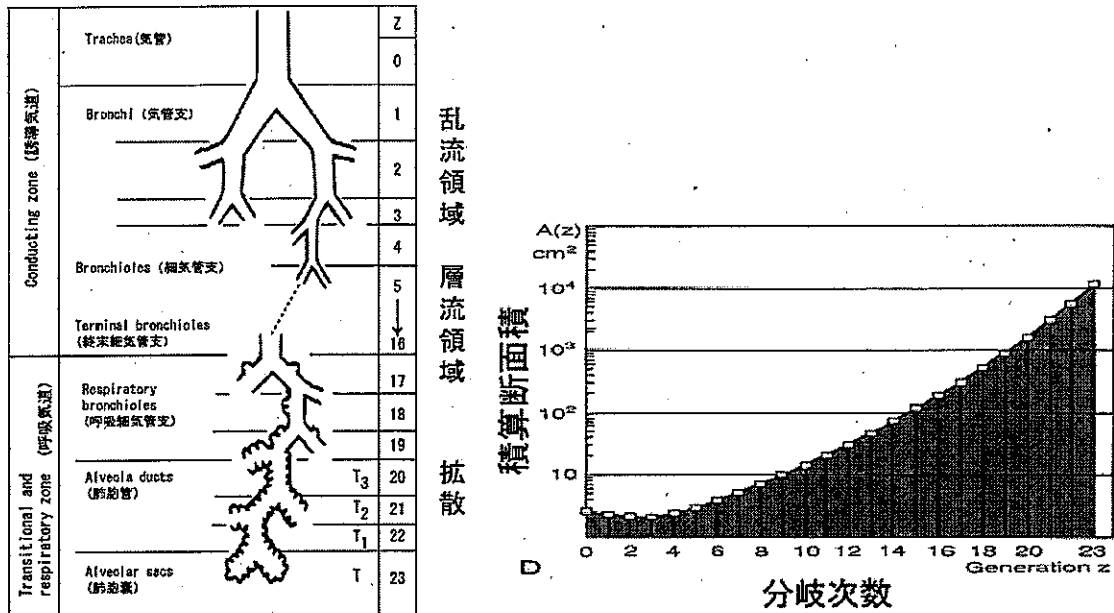


図1.2.1.4 分岐次数による気道の積算断面積

(Weibel, 1963を引用・和訳)

この資料を基に、気道分岐次数の気流速度(線速度)を算定すると、気管及び中枢気道の気流は乱流領域、小気道の気流は層流領域、肺泡レベルではもはや気流としてではなく、ブラウン運動による拡散が支配的になる。

1.2.1.2. 粒径と沈着部位等

ヒトの体に吸入された粒子状物質は、粒径に応じて呼吸器部位へ沈着する。その沈着過程は、これまでに実験系に基づく結果(図 1.2.1.5)と、モデルを用いて推測された結果(図 1.2.1.6)として示されている。実験系及びモデル推測の結果は、粒径に応じて沈着率が二峰型分布を示している等、同様の傾向を示している。

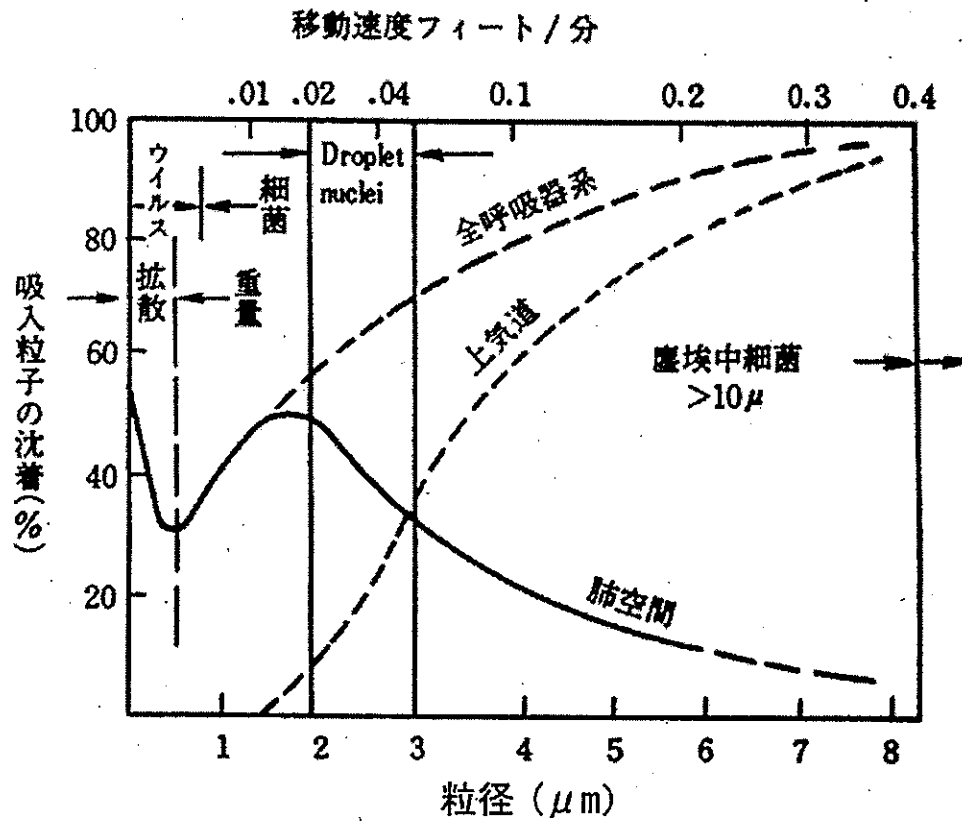


図1.2.1.5 吸入粒子の粒径と呼吸器系への沈着率

粒径 2 μm より小さい吸入粒子の沈着率は 30～60 %で、ほとんど肺空間（肺泡領域）に沈着する。粒径 3 μm より大きい粒子では上気道に沈着する吸入粒子が多くなり、肺空間まで達する粒子は減少する。

(Hatch, 1961を引用・和訳)

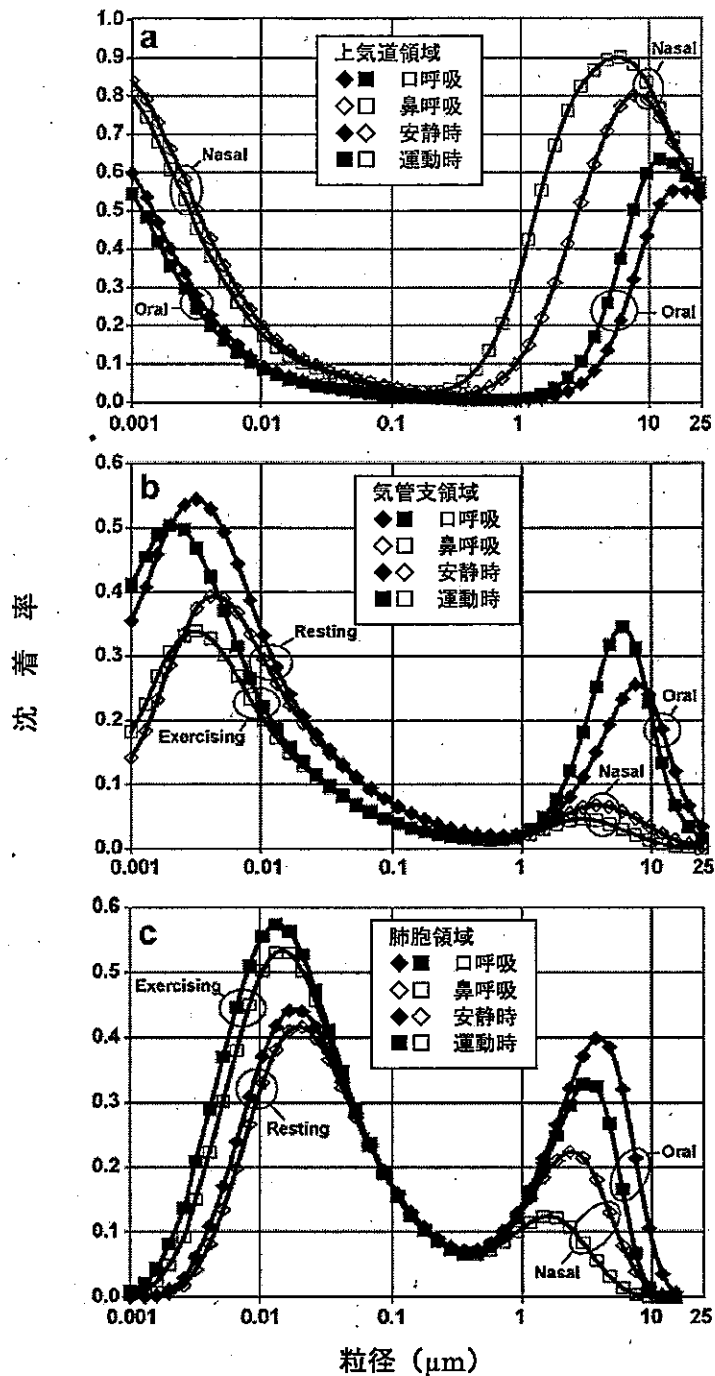


図1.2.1.6 安静時及び運動時において鼻呼吸、口呼吸した際の粒径による沈着率
(上段図：上気道領域、中段図：気管支領域、下段図：肺泡領域、0.01 μm未満の推定値は不確実であるが動向を表すものとして示す。)

(U.S.EPA, 2004を引用・和訳)

口及び鼻呼吸ごとの上気道領域、下気道領域、肺泡領域における粒子沈着をモデルによって推計したところ、粒子状物質の沈着率の傾向として、上気道領域では 0.01~1 μm の粒子(鼻呼吸)及び 3 μm までの粒子(口呼吸)は沈着率が低く、下気道領域では

0.05～2 μm までの粒子(口呼吸)、0.05 μm より大きい粒子(鼻呼吸)の沈着率が低く、肺胞領域では0.1～1 μm 、0.001 μm 付近の粒子、10 μm 以上の粒子の沈着率が低くなっている。

また、微小粒子領域の粒子は肺内に沈着しにくいものの、一部の粒子は肺内で保持されている時に沈着されるものも存在し、呼吸器内の湿度の影響を受けて膨潤化して沈着するものも存在する。高湿度条件下では、核形成領域及び蓄積領域の粒子は1 μm を超えるまで成長し、気道分岐部における粒子の沈着を増大させる。このことから、吸湿性が気道内における粒子状物質の沈着機構に影響を及ぼすことにも留意が必要である。

1.2.1.3. 生物学的因子の影響

生物学的因子(性別、年齢、呼吸器系疾患の有無)の沈着への影響に関し、①男女間に明確な差があるとは言えないこと、②小児は成人と比較すると、単位表面積あたりに沈着する粒子量に差はみられないが、肺の表面積あたりの呼吸数や分時呼吸量が大きく、吸入粒子に対してリスクが大きいとも考えられること、③呼吸器系疾患の存在は、気道構造と換気パラメータに影響し健常人とは異なった沈着パターンを生じさせ、COPD(慢性閉塞性肺疾患; Chronic Obstructive Pulmonary Disease)患者では気道閉塞により全肺、特に気管支領域での沈着が増加すること、以上の3点が示唆された。

1.2.1.4. 共存大気汚染物質の影響

吸気中にオゾンや二酸化硫黄等の共存大気汚染物質が存在する場合、これらの刺激物質による気管支収縮は、下気道への粒子状物質の沈着を増加させる可能性がある。

1.2.2. 生体内動態

1.2.2.1. 粒子状物質のクリアランスのメカニズム

沈着した粒子状物質は呼吸器系がもつ種々の自浄作用によって除去されるか、又はそれぞれの領域における固有の機序により別の部位(呼吸器の別な領域又は呼吸器外)に移動する。これを粒子状物質のクリアランスと呼ぶ。これらの粒子状物質のクリアランス機序は吸収(気道分泌液及び細胞内における粒子状物質の溶解による吸収)と非吸収(粒子状物質のまま輸送)に分けられる。

くしゃみ、鼻汁、せき、たん、嚥下、粘液線毛輸送、肺胞マクロファージ等による貪食と貪食後の移動、間質への浸透、血流中への移行、リンパ系への移行等の機構がある。

肺胞領域に沈着した粒子状物質は、貪食と輸送という二つの機構により除去されるが、肺胞領域に沈着した粒子状物質は一般に、粘液線毛輸送で排出される気道に沈着した粒子状物質より滞留時間が長い。

気道及び肺に沈着する粒子状物質の成分には、数秒から数分で溶解するものも、数時間から数日かけて溶解するものもあるが、何ヶ月又は何年も肺に残るほど溶けにくい成分もある。生体内持続性は、時間をかけて蓄積する不溶性の粒子状物質にとって重要である。

超微小粒子の動態に関しては、他の粒子と異なった役割や作用を有することが示唆されているが、その動態・クリアランスや循環血液中への移行経路は解明されていない。

1.2.2.2. 生物学的因子等の影響

生物学的因子(性別、年齢)の動態への影響に関して、性別や年齢による差については、これまで知見が得られていない。

肺胞領域のクリアランスは、吸入刺激物質の短期及び長期曝露により変化し、個別の刺激物質や曝露期間により影響を受ける。

1.3. 微小粒子状物質の粒径

微小粒子は、粗大粒子と比較して、大気中に長期間滞留し、一定地域内ではより均一に存在し、屋内にも侵入しやすく、生体内に吸入された粒子は肺胞領域にまで侵入しやすく、燃焼等に伴う人為発生源の寄与率が高い特徴を有し、粒径のみならず生成過程や組成が粗大粒子と異なる特徴を有する。

粒子状物質の質量(体積)濃度分布では、微小粒子と粗大粒子の1~2 μm 付近に谷を有する二峰型分布を示すが、この粒径の付近において、微小粒子と粗大粒子が共に存在する粒径の範囲が存在する。その一方、大気環境中の微小粒子状物質を測定するには、微小粒子と粗大粒子をある粒径において区分する必要がある。この際、微小粒子の特性や生体内の挙動の特徴を踏まえ、微小粒子の大半を包含することができる粒径で微小粒子と粗大粒子を区分することが適当である。

粒子状物質に関する微小粒子と粗大粒子を区分する粒径は次に示した理由から 2.5

μm として、PM_{2.5}(粒径が 2.5 μm の粒子を 50 %の割合で分離できる分粒装置を用いて採取される微小粒子)を微小粒子状物質の指標とすることが適当である。

- ① 高湿度等の条件において微小粒子が膨潤化した状況も含めて、PM_{2.5}は微小粒子の大半を包含できること。
- ② PM_{2.5}は米国等で多くの健康影響に関する研究論文や測定データが蓄積されていること。
- ③ PM_{2.5}の大気環境濃度測定結果はヒトへの曝露量とみることができる知見が蓄積されていること。

1.4. 参考文献

- Gerrity, T.R., Lee, P.S., Hass, F.J., Marinelli, A., Werner, P. & Lourenco, R.V. (1979) Calculated deposition of inhaled particles in the airway generations of normal subjects. *Journal of Applied Physiology*, 47, 867-873.
- Hatch, T.F. (1961) Distribution and deposition of inhaled particles in respiratory tract. *Bacteriological Reviews*, 25, 237-240.
- Parkes, W. (1994) *Aerosols: their deposition and clearance. Occupational Lung Disorders*(3rd edition). Butterworth-Heinemann Ltd.: Oxford. 38 p.
- U.S.EPA. (2004) Air quality criteria for particulate matter. EPA.U.S. Environmental Protection Agency. Washington, DC. EPA/600/P-99/002aF
- Weibel, E.R. (1963) *Morphometry of the human lung*. Academic Press Inc.: New York. 151 p.
- 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 the Air and Waste Management Association*, 47, 1238-1249.

2. 環境大気中濃度

2.1. 我が国における環境大気中濃度の現状

我が国における微小粒子状物質の環境大気中濃度については、2001 年度から 2008 年度にかけて、環境省が実施した微小粒子状物質曝露影響調査等において、一般環境大気測定局（以下「一般局」という。）及び自動車排出ガス測定局（以下「自排局」という。）（表 2.1.1、図 2.1.1）において測定を実施している。本報告において、50℃加熱方式 TEOMⁱによる連続自動測定、SASSⁱⁱによる年 4 回（2 週間）の試料採取により得られた試料を用いた質量濃度及び成分濃度の測定結果を示した（環境省，2007）。

また、環境省が実施する酸性雨調査の一環として、2003 年度から利尻、隠岐の 2 地点、2006 年度から落石岬の 1 地点を加えて 3 地点の国設酸性雨測定所で TEOM により測定している。2008 年度からは、環境省が、PM_{2.5}濃度に人為起源に由来する粒子状物質（以下「人為起源由来粒子」という。）の影響が少ないと考えられる地域について、内陸、離島、岬といった地理的特徴を有する計 8 地点を選定し、成分濃度を含めた測定を行うことを目的として SASS により測定を実施している。本報告において、これら人為起源由来粒子の影響が少ないと考えられる地域において測定したものを、バックグラウンド濃度ⁱⁱⁱに近い数値として示した。

i TEOM：Tapered Element Oscillating Microbalanceの略。自動測定の一種で、固有の振動数で振動している円錐状の秤量素子の先端にフィルタが取り付けられ、フィルタ上に捕集された粒子状物質の質量の増加に伴い、素子の振動周波数が減少する原理を用いた測定法。

ii SASS：Speciation Air Sampling Systemの略。フィルタ採取法の一種で、同時に多チャンネルで試料採取を行うことができるため、成分分析試料採取用に用いられることが多い大気サンプラであり、各成分（イオン成分、炭素成分）の測定が可能である。

iii バックグラウンド濃度：人為起源以外の発生源に由来する濃度。

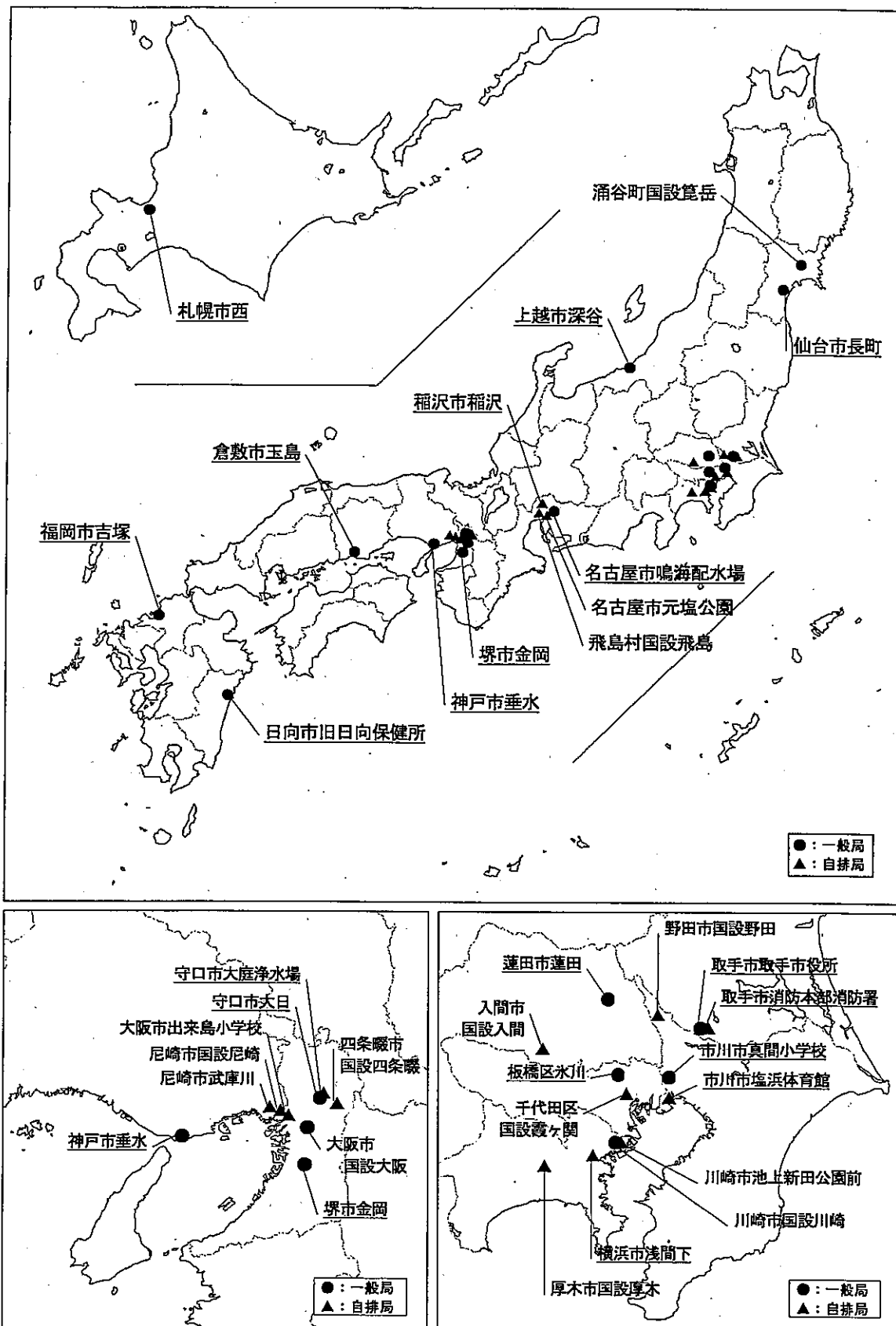
表2.1.1 調査地点の分類

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) (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) 近畿地方(大阪府、兵庫県)	1. 都市部(一般局) <u>取手市取手市役所測定局(茨城県)</u>、<u>蓮田市蓮田測定局(埼玉県)</u>、<u>市川市真間小学校(千葉県)</u>、<u>板橋区氷川測定局(東京都)</u>、<u>川崎市国設川崎測定局(神奈川県)</u>、<u>名古屋市鳴海配水場測定局(愛知県)</u>、<u>守口市大日測定局(大阪府)</u>、<u>堺市金岡測定局(大阪府)</u>、<u>大阪市国設大阪測定局(大阪府)</u>、<u>神戸市垂水測定局(兵庫県)</u>、<u>倉敷市玉島測定局(岡山県)</u>、<u>福岡市吉塚測定局(福岡県)</u> 2. 非都市部(一般局) <u>札幌市西測定局(北海道)</u>、<u>仙台市長町測定局(宮城県)</u>、<u>浦谷町国設箕岳測定局(宮城県)</u>、<u>上越市深谷測定局(新潟県)</u>、<u>日向市旧日向保健所測定局(宮崎県)</u> 3. 自排局 <u>取手市消防本部消防署(茨城県)</u>、<u>入間市国設入間自排測定局(埼玉県)</u>、<u>市川市塩浜体育館(千葉県)</u>、<u>野田市国設野田測定局(千葉県)</u>、<u>千代田区国設霞ヶ関測定局(東京都)</u>、<u>横浜市浅間下測定局(神奈川県)</u>、<u>川崎市池上新田公園前測定局(神奈川県)</u>、<u>厚木市国設厚木測定局(神奈川県)</u>、<u>稲沢市稲沢測定局(愛知県)</u>、<u>名古屋市元塩公園測定局(愛知県)</u>、<u>飛鳥村国設飛鳥測定局(愛知県)</u>、<u>守口市大庭浄水場(大阪府)</u>、<u>大阪市出来島小学校測定局(大阪府)</u>、<u>四條畷市国設四條畷測定局(大阪府)</u>、<u>尼崎市武庫川測定局(兵庫県)</u>、<u>尼崎市国設尼崎自排局(兵庫県)</u>

※1 都市部・非都市部による分類はPM_{2.5}濃度の程度により便宜上分類した。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。

※2 全測定局において、TEOMにより測定を実施。また、測定局のうち下線を付したものは、更にSASSによる測定も実施した測定局である。

(環境省, 2007に基づき作成)



※1 全測定局において、TEOMにより測定を実施。また、測定局のうち下線を付したものは、更にSASSによる測定も実施した測定局である。

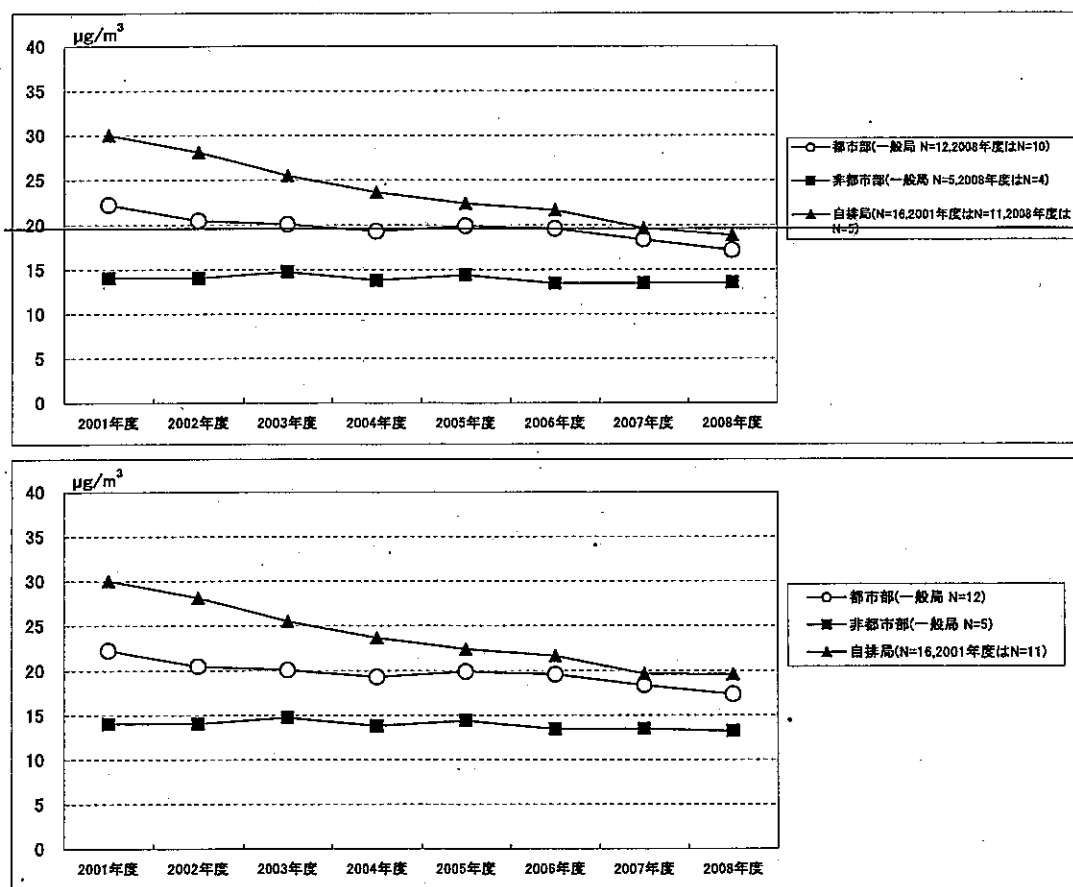
※2 地図引用：「CraftMAP」 (<http://www.craftmap.box-i.net/>)

図2.1.1 調査地点の位置図

2.1.1. 微小粒子状物質曝露影響調査等による調査結果

2.1.1.1. 質量濃度

PM_{2.5}の質量濃度の連続測定は50℃加熱方式TEOMを用いて行った。質量濃度の年平均値の経年変化結果(2001～2008年度)を図2.1.1.1に示した。



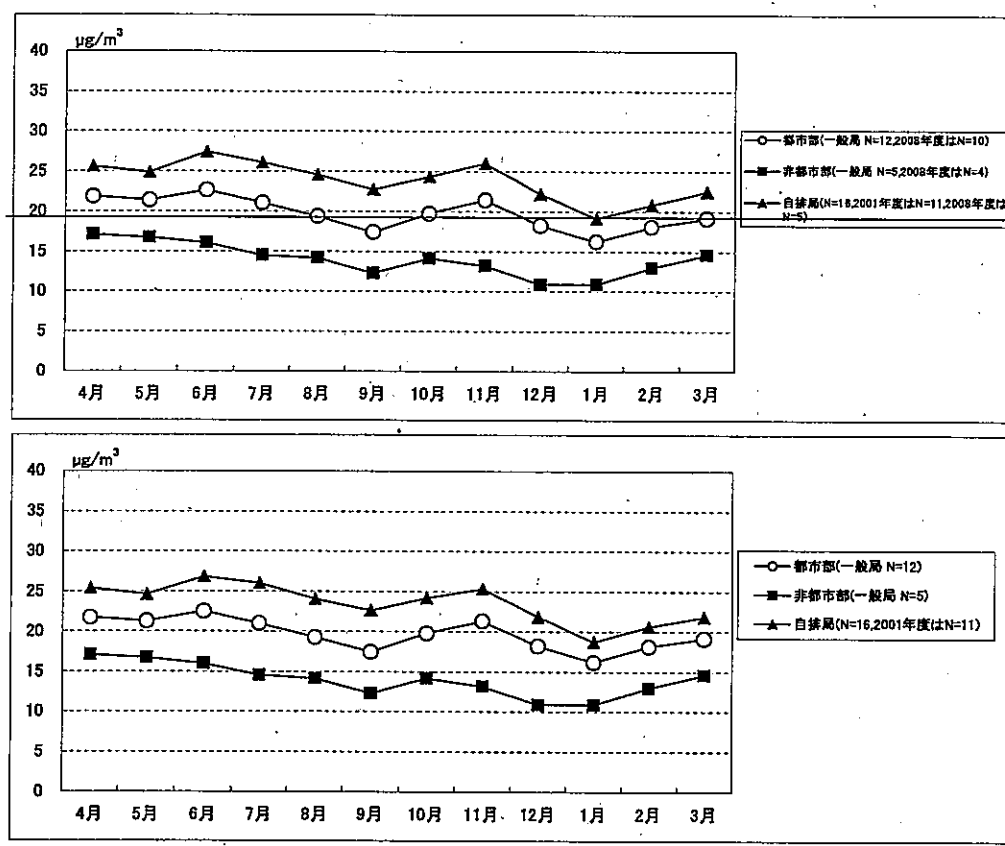
※N＝調査地点数

図2.1.1.1 PM_{2.5}(50℃加熱方式TEOM)質量濃度の年平均値の経年変化

PM_{2.5}質量濃度は自排局で経年的に顕著な濃度低下がみられ、都市部一般局では調査初期の濃度低下の後に横ばいを経て最近では再び濃度低下の傾向にあり、非都市部一般局では全体にわたって横ばいであった。

PM_{2.5}質量濃度の月平均値の変化(図2.1.1.2)は、全国的には春季から夏季にかけて(4～7月)、晩秋から初冬季(11月頃)に高くなる傾向にあり、12月から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、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)に高くなった。

一般に、PM_{2.5}が高濃度になる要因としては、春季から夏季にかけて光化学反応が活発に行われ二次粒子の生成量が増加することが挙げられる。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月に濃度が高くなっている現象は、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。



※N＝調査地点数

図2.1.1.2 PM_{2.5}(50℃加熱方式TEOM)質量濃度の月平均値の変化
(2001～2008年度の月平均値の平均)

2.1.1.2. 成分濃度

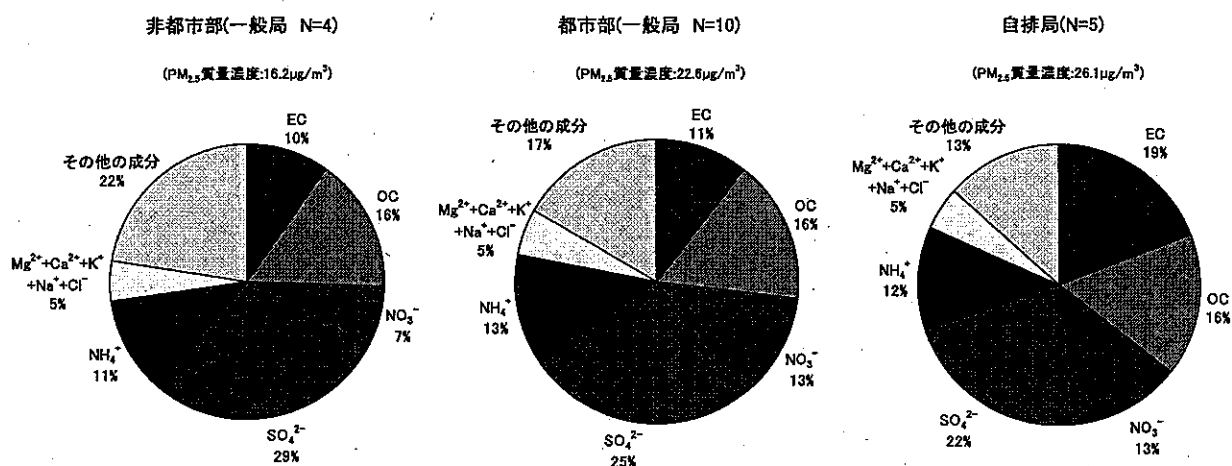
PM_{2.5}の成分濃度に関して SASS により得られた年間 4 回の 2 週間の試料の分析結果をまとめたものが図 2.1.1.3～2.1.1.6 である。

2004 年度から 2008 年度までの平均値の結果(図 2.1.1.3)によると、一般局では硫酸イオン(SO₄²⁻)の占める割合が最も多かった。自排局でも硫酸イオンの占める割合が最も多く、ついで元素状炭素の割合が多かった。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硝酸イオンの占める割合が多くなっていた。有機炭素やアンモニウムイオン

(NH_4^+)、塩化物イオン(Cl^-)等は、一般局や自排局等の違いによる大きな差はみられなかった。炭素・イオン成分濃度と $\text{PM}_{2.5}$ (SASS)の質量濃度の差を土壌粒子や水分等で構成されるその他の物質「その他の成分」として表示すると、非都市部(一般局)、都市部(一般局)、自排局の順にその他の成分の割合が小さくなっていた。

2004年度から2008年度にかけての $\text{PM}_{2.5}$ の成分濃度をみると、経年的に元素状炭素濃度が減少していた(図 2.1.1.6)。また、各構成成分の割合(図 2.1.1.3、図 2.1.1.4、図 2.1.1.5)を比較すると、粒子成分の中で元素状炭素濃度の占める割合が減少していた。この傾向は、SPM 環境基準達成のための自動車排出ガス対策等各種施策の実施により燃焼由来粒子の排出削減が進んだことにより、元素状炭素濃度が顕著に減少したためと考えられる。一方、硫酸イオン濃度等が横ばいのため、これらの成分の占める割合が増加している傾向にあった。

また、2008年度の各地点の成分濃度(図 2.1.1.7)によると、地域によってばらつきはあるものの、有機炭素の占める割合が15~20 % ($2.4 \sim 4.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$)、元素状炭素は4~20 % ($0.6 \sim 4.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$)、硫酸イオンは25~34 % ($4.1 \sim 6.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$)、硝酸イオンは4~15 % ($0.7 \sim 3.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$)であり、硫酸イオン濃度は神戸市、倉敷市、福岡市等の西日本地域で比較的高くなっていた。



※その他の成分：質量濃度から炭素及びイオン成分濃度を引いたもの

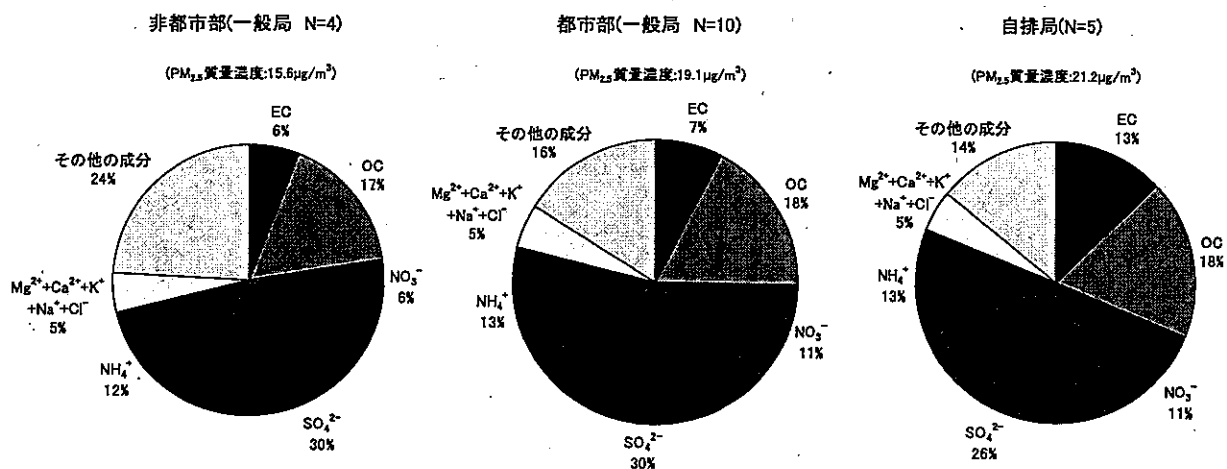
※N=調査地点数

※炭素成分濃度は熱分離熱分解補正法 (Thermal Optical Reflectance method) による

※定量下限値未満の値も使用した

※SASS秤量条件：温度20~23 °C (24時間にわたり ± 1.5 °C、設定21.5 °C)、相対湿度30~40 % (24時間にわたり ± 5 %、設定35 %)

図2.1.1.3 $\text{PM}_{2.5}$ (SASS)炭素・イオン成分等の割合
(2004~2008年度の平均値：一般局・自排局)



※その他の成分：質量濃度から炭素及びイオン成分濃度を引いたもの

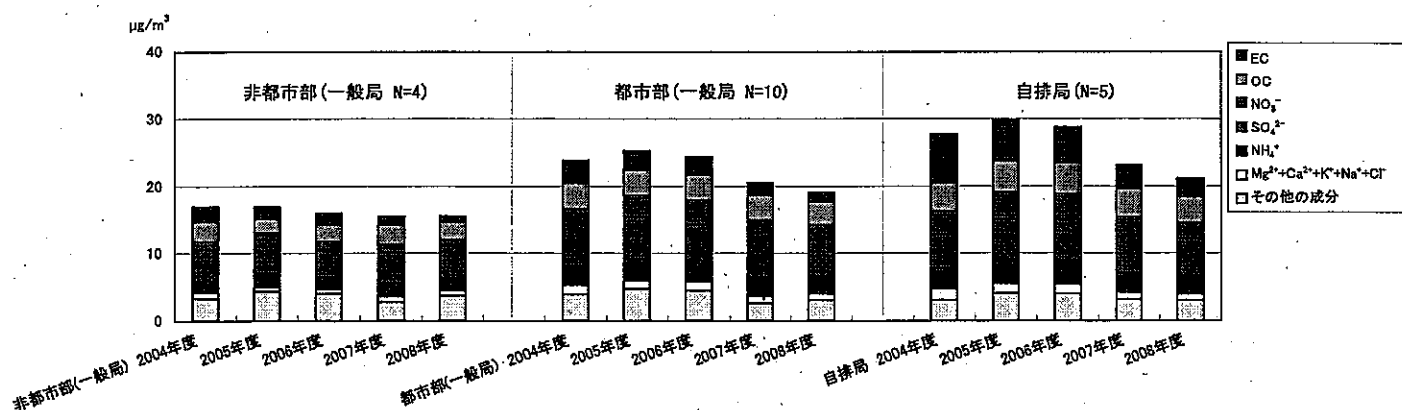
※N＝調査地点数

※炭素成分濃度は熱分離熱分解補正法 (Thermal Optical Reflectance method) による

※定量下限値未満の値も使用した

※SASS秤量条件：温度20～23℃(24時間にわたり ±1.5℃、設定21.5℃)、相対湿度30～40%
(24時間にわたり ±5%、設定35%)

図2.1.1.4 PM_{2.5}(SASS)炭素・イオン成分等の割合
(2008年度の平均値：一般局・自排局)



※その他の成分：質量濃度から炭素及びイオン成分濃度を引いたもの

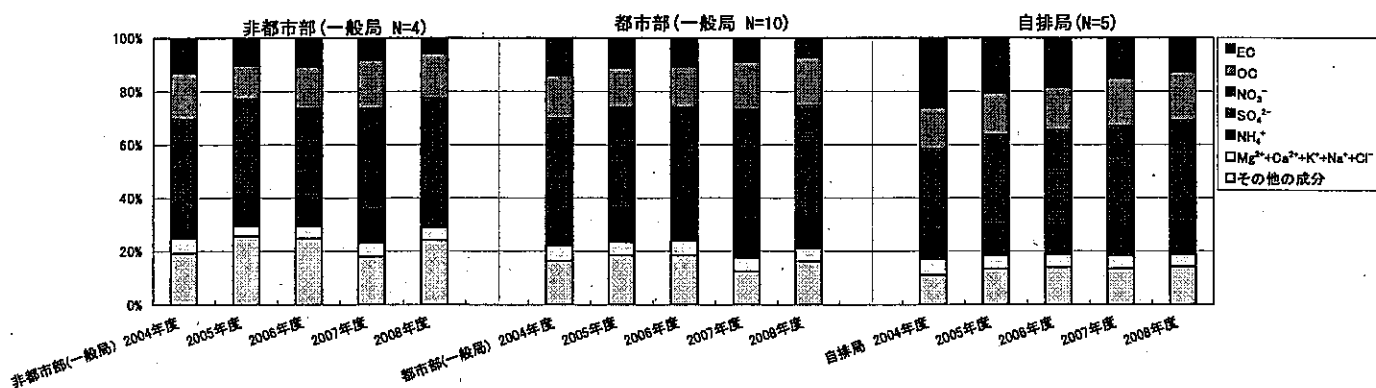
※N＝調査地点数

※炭素成分濃度は熱分離熱分解補正法 (Thermal Optical Reflectance method) による

※定量下限値未満の値も使用した

※SASS秤量条件：温度20～23 °C(24時間にわたり ± 1.5 °C、設定21.5 °C)、相対湿度30～40 %
(24時間にわたり ± 5 %、設定35 %)

図2.1.1.5 PM_{2.5}(SASS)炭素・イオン成分等濃度
(2004～2008年度の年変動：一般局・自排局)



※その他の成分：質量濃度から炭素及びイオン成分濃度を引いたもの

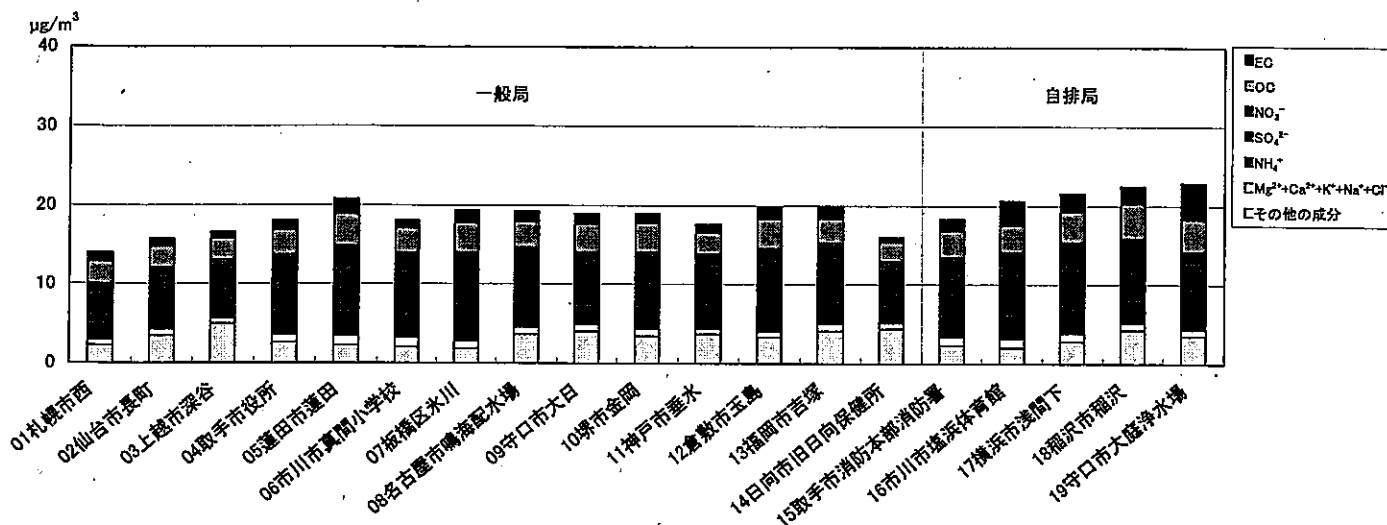
※N＝調査地点数

※炭素成分濃度は熱分離熱分解補正法 (Thermal Optical Reflectance method) による

※定量下限値未満の値も使用した

※SASS秤量条件：温度20～23 °C(24時間にわたり ± 1.5 °C、設定21.5 °C)、相対湿度30～40 %
(24時間にわたり ± 5 %、設定35 %)

図2.1.1.6 PM_{2.5}(SASS)炭素・イオン成分等の割合
(2004～2008年度の年変動：一般局・自排局)



※その他の成分：質量濃度から炭素及びイオン成分濃度を引いたもの

※炭素成分濃度は熱分離熱分解補正法 (Thermal Optical Reflectance method) による

※定量下限値未満の値も使用した

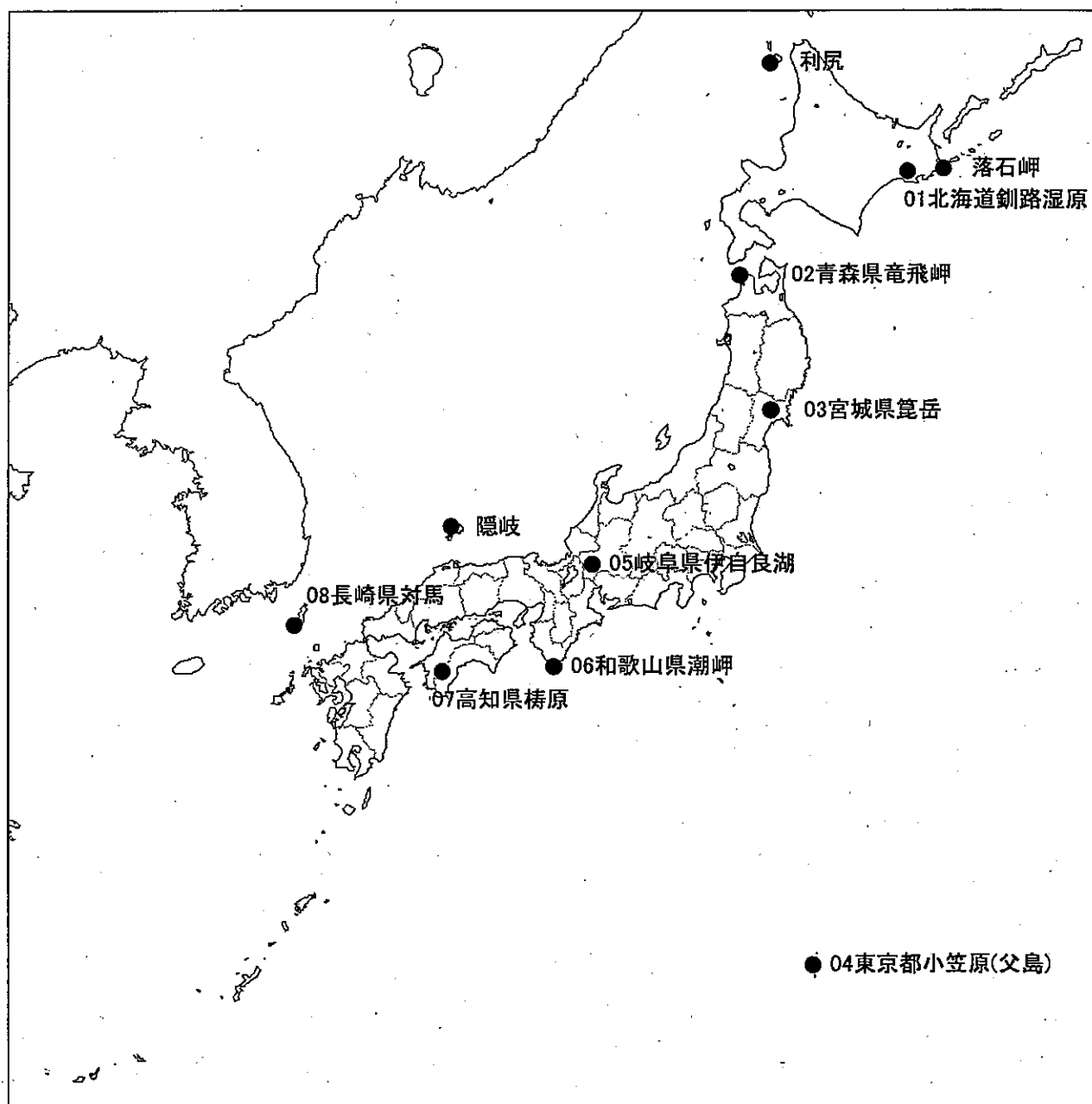
※SASS秤量条件：温度20～23 °C(24時間にわたり ±1.5 °C、設定21.5 °C)、相対湿度30～40 %
(24時間にわたり ± 5 %、設定35 %)

図2.1.1.7 PM_{2.5}(SASS)炭素・イオン成分等濃度
(2008年度年平均値：一般局・自排局)

2.1.2. 国設酸性雨測定所等における調査結果

2.1.2.1. 質量濃度

我が国における人為起源由来粒子の影響が少ないと考えられる地域におけるPM_{2.5}の濃度測定については、TEOMを用いた質量濃度測定として2003年度から2地点、2006年度からは3地点で実施してきた。また、SASSを用いた質量濃度及び成分濃度測定として、2008年度に年4回各2週間の四季調査を8地点で実施した(図2.1.2.1、表2.1.2.1)。



地図引用：CraftMAP (<http://www.craftmap.box-i.net/>)

図2.1.2.1 国設酸性雨測定所等の位置図

表2.1.2.1 国設酸性雨測定所等における測定状況

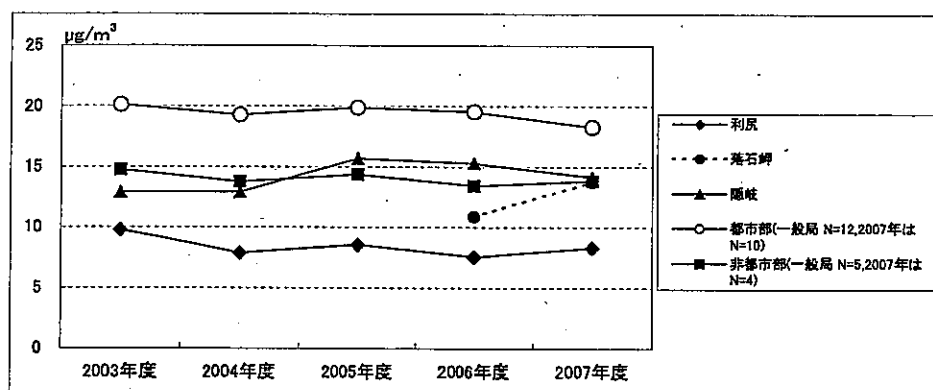
調査場所		海浜地域		離 島		山地・森林・原野地域	
項目	調査地点 (PM _{2.5} 質量濃度[μg/m ³])	調査期間	調査地点 (PM _{2.5} 質量濃度[μg/m ³])	調査期間	調査地点 (PM _{2.5} 質量濃度[μg/m ³])	調査期間	
PM _{2.5} 質量濃度	02 青森県竜飛岬 (四季平均: 9.0) (夏 季: 5.9) (秋 季: 6.7) (冬 季: 12.2) (春 季: 11.0)	夏季: 2008年 8月27日 ~ 9月10日 秋季: 2008年11月11日 ~ 11月25日 冬季: 2009年 1月17日 ~ 1月31日 春季: 2009年 3月16日 ~ 3月31日	04 東京都小笠原 (父島) (四季平均: 6.0) (夏 季: 3.9) (秋 季: 3.1) (冬 季: 6.5) (春 季: 10.5)	夏季: 2008年 8月27日 ~ 9月10日 秋季: 2008年11月 7日 ~ 11月21日 冬季: 2009年 1月17日 ~ 1月31日 春季: 2009年 3月16日 ~ 4月 4日	01 北海道釧路湿原 (四季平均: 7.2) (夏 季: 4.2) (秋 季: 6.0) (冬 季: 9.3) (春 季: 9.2)	夏季: 2008年 8月27日 ~ 9月10日 秋季: 2008年11月 7日 ~ 11月22日 冬季: 2009年 1月17日 ~ 1月31日 春季: 2009年 3月16日 ~ 3月30日	
	06 和歌山県潮岬 (四季平均: 10.9) (夏 季: 10.8) (秋 季: 8.6) (冬 季: 11.8) (春 季: 12.6)	夏季: 2008年 8月27日 ~ 9月10日 秋季: 2008年11月 7日 ~ 11月21日 冬季: 2009年 1月17日 ~ 1月31日 春季: 2009年 3月16日 ~ 3月30日	08 長崎県対馬 (四季平均: 11.8) (夏 季: 5.7) (秋 季: 11.4) (冬 季: 15.5) (春 季: 14.5)	夏季: 2008年 8月27日 ~ 9月10日 秋季: 2008年11月 7日 ~ 11月24日 冬季: 2009年 1月17日 ~ 2月 1日 春季: 2009年 3月16日 ~ 3月30日	03 宮城県釜戸 (四季平均: 10.4) (夏 季: 7.3) (秋 季: 9.1) (冬 季: 12.3) (春 季: 12.8)	夏季: 2008年 8月27日 ~ 9月10日 秋季: 2008年11月 7日 ~ 11月21日 冬季: 2009年 1月17日 ~ 1月31日 春季: 2009年 3月16日 ~ 3月30日	
					05 岐阜県伊自良湖 (四季平均: 9.3) (夏 季: 10.6) (秋 季: 7.7) (冬 季: 7.5) (春 季: 11.2)	夏季: 2008年 8月27日 ~ 9月10日 秋季: 2008年11月 7日 ~ 11月21日 冬季: 2009年 1月17日 ~ 1月31日 春季: 2009年 3月16日 ~ 3月30日	
					07 高知県梼原 (四季平均: 9.2) (夏 季: 7.9) (秋 季: 7.2) (冬 季: 8.7) (春 季: 13.0)	夏季: 2008年 8月27日 ~ 9月10日 秋季: 2008年11月 7日 ~ 11月21日 冬季: 2009年 1月19日 ~ 2月 2日 春季: 2009年 3月16日 ~ 3月30日	
備考 (地点の選定)	50 ℃ 加熱方式 TEOM	北海道落石岬 (年間平均: 10.9~13.8)	年間: 2006年 4月 ~ 2008年 3月	北海道利尻 (年間平均: 7.6~9.8) 島根県隠岐 (年間平均: 12.9~15.7)	年間: 2003年 4月 ~ 2008年 3月 年間: 2003年 4月 ~ 2008年 3月	—	
		各種発生源から離れた海浜地域を対象とした。		大規模発生源から離れており、海に囲まれている離島を 対象とした。		大規模発生源から離れ、火山、温泉等の特別な自然発生源 の影響も少ないと考えられる山地・森林・原野地域を 対象とした。	

※SASS調査期間のうち14日間で測定を行った

※SASS秤量条件: 温度20~23℃(24時間にわたり ± 2℃、設定21℃)、相対湿度30~40%(24時間にわたり ± 5%、設定35%)

※北海道落石岬は独立行政法人国立環境研究所地球環境研究センターによる測定

TEOMによるPM_{2.5}質量濃度は、隠岐では13～16 µg/m³の範囲内で推移し、非都市部一般局とおおむね同等の濃度となっていた。利尻では非都市部一般局よりも濃度は低く、8～10 µg/m³の範囲内で推移していた。落石岬では2年分の測定結果によると、11～14 µg/m³の範囲内で推移していた。



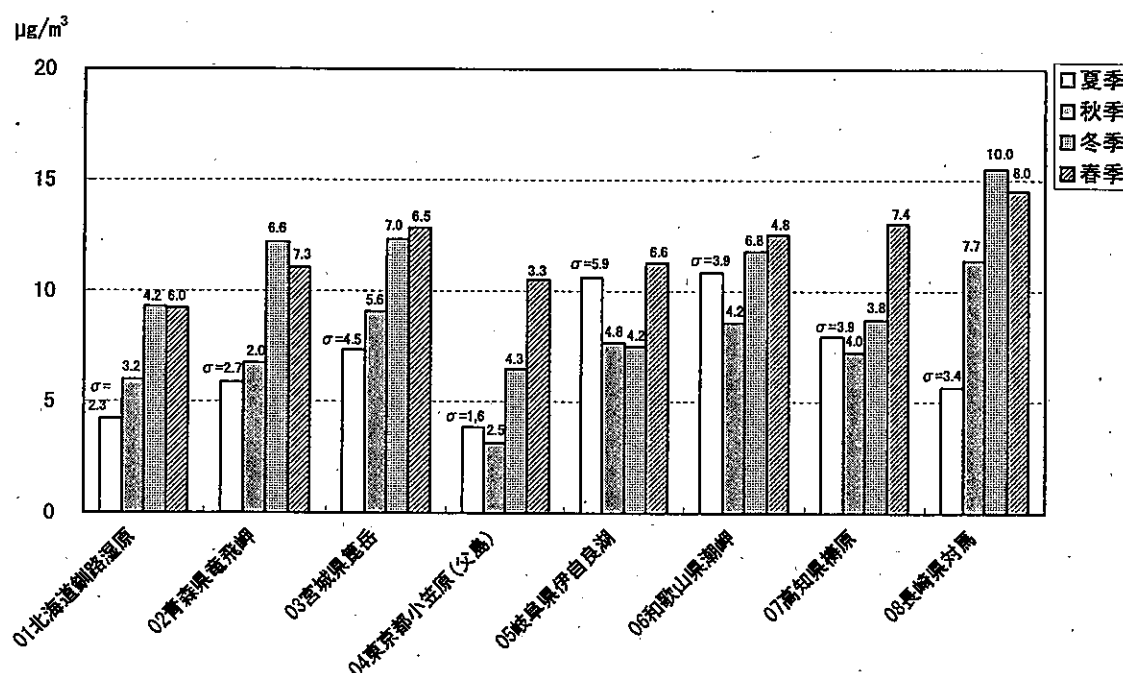
※N=調査地点数

※落石岬は独立行政法人国立環境研究所地球環境研究センターによる測定

図2.1.2.2 PM_{2.5}(50℃加熱式TEOM)質量濃度の年平均値の経年変化
(2003～2007年度：利尻、隠岐、落石岬)

SASSによる2008年度におけるPM_{2.5}質量濃度(四季調査)の測定結果を図2.1.2.3に示した。

この結果によると、各地点の質量濃度は3～15 μg/m³、年平均値では6～12 μg/m³の範囲で推移していた。ほとんどの地域で夏季・秋季に比べ、冬季・春季に濃度が高くなる傾向がみられた。



※SASS秤量条件：温度20～23℃(24時間にわたり±1.5℃、設定21.5℃)、相対湿度30～40%
(24時間にわたり±5%、設定35%)

※グラフ上の値はσ=14日間の測定結果による標準偏差

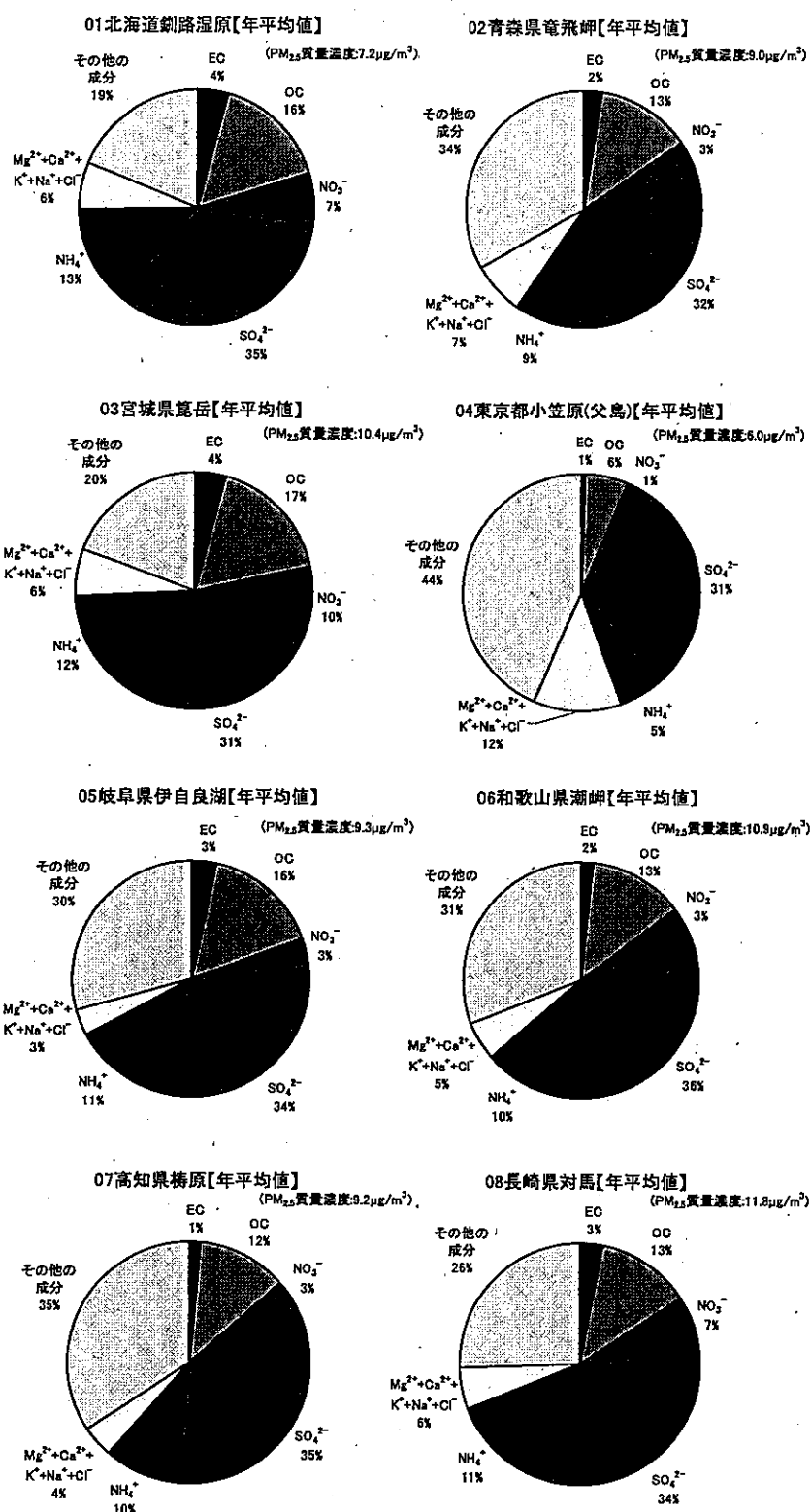
図2.1.2.3 PM_{2.5}(SASS)質量濃度(2008年度夏季・秋季・冬季・春季の平均値)

2.1.2.2. 成分濃度

人為起源由来粒子の影響が少ないと考えられる地域において、2008年度夏季、秋季、冬季及び春季に SASS により測定した炭素・イオン成分等の割合や濃度を図 2.1.2.4～2.1.2.7 に示した。

2008年度の年平均値による各成分の割合について、各地点の測定結果を概観すると、これらの地域におけるPM_{2.5}は、硫酸イオン(31～36 %、1.9～4.1 µg/m³)、有機炭素(6～17 %、0.3～1.8 µg/m³)、アンモニウムイオン(5～13 %、0.3～1.3 µg/m³)、その他の土壌粒子や水分等で構成されるその他の成分(19～44 %、1.3～3.4 µg/m³)を主要な成分として構成されていた。一方、人為起源由来の成分であると考えられる元素状炭素及び硝酸イオンの割合は少ないことが確かめられた。

季節ごとに見ると、硫酸イオンは夏季に割合が多くなる地点が多く、有機炭素は秋季に割合が多くなる地点が多い。また、全地点において、硝酸イオンの割合が夏季に低くなる傾向があった。硫酸イオンや硝酸イオンの季節的な濃度変動は、夏季に日射量が強く光化学反応が活発に行われるため、二次生成粒子である硫酸塩が多く生成されることや、揮発性の高い硝酸アンモニウムや塩化アンモニウム(NH₄Cl)等がガス化することと関連していると考えられる。



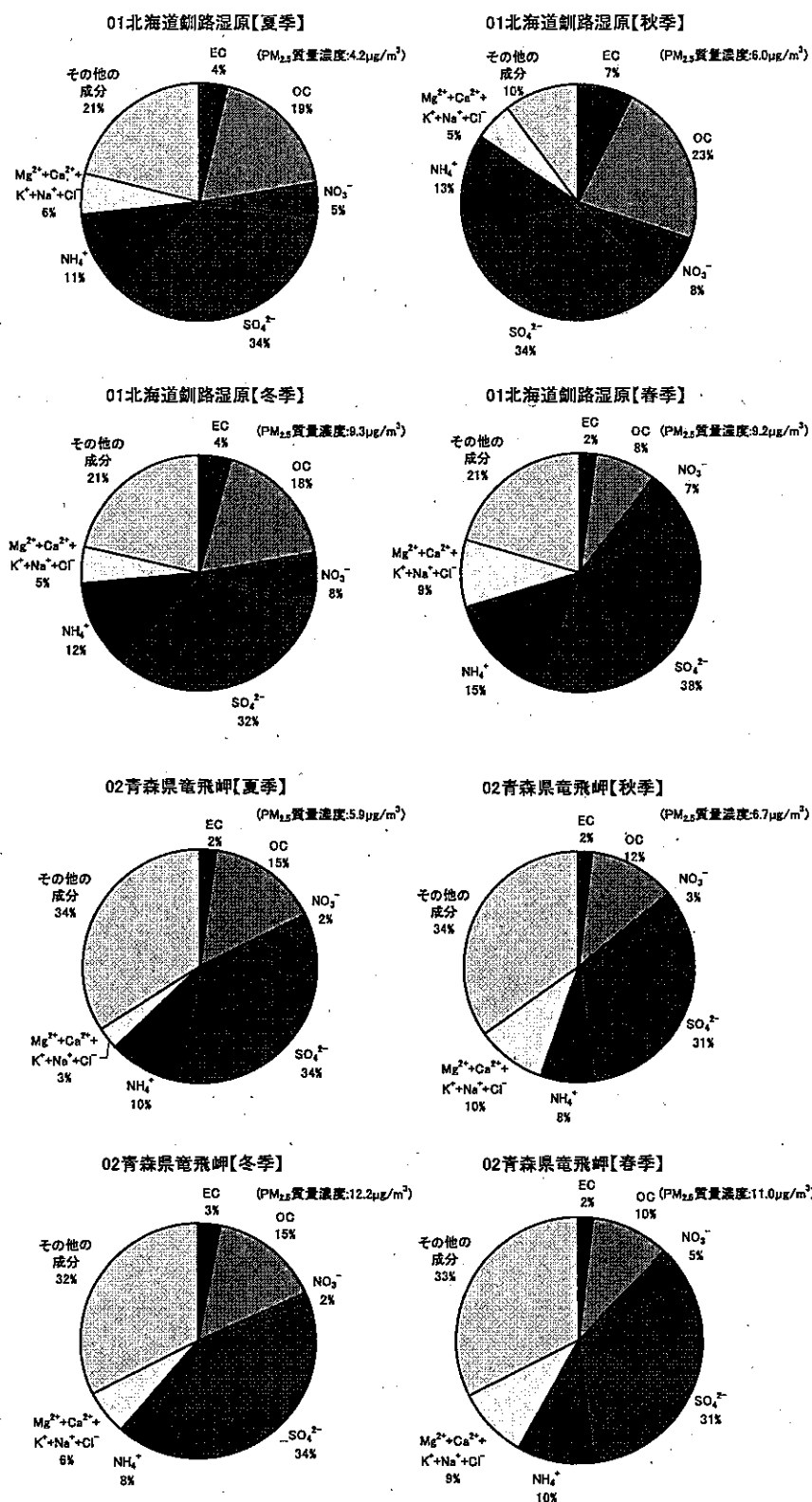
※その他の成分：質量濃度から炭素及びイオン成分濃度を引いたもの

※炭素成分濃度は熱分離熱分解補正法 (Thermal Optical Reflectance method) による

※定量下限値未満の値も使用した

※SASS秤量条件：温度20～23℃(24時間にわたり ±1.5℃、設定21.5℃)、相対湿度30～40%
(24時間にわたり ±5%、設定35%)

図2.1.2.4 PM_{2.5}(SASS)炭素・イオン成分等の割合
(2008年度夏季・秋季・冬季・春季の年平均値)



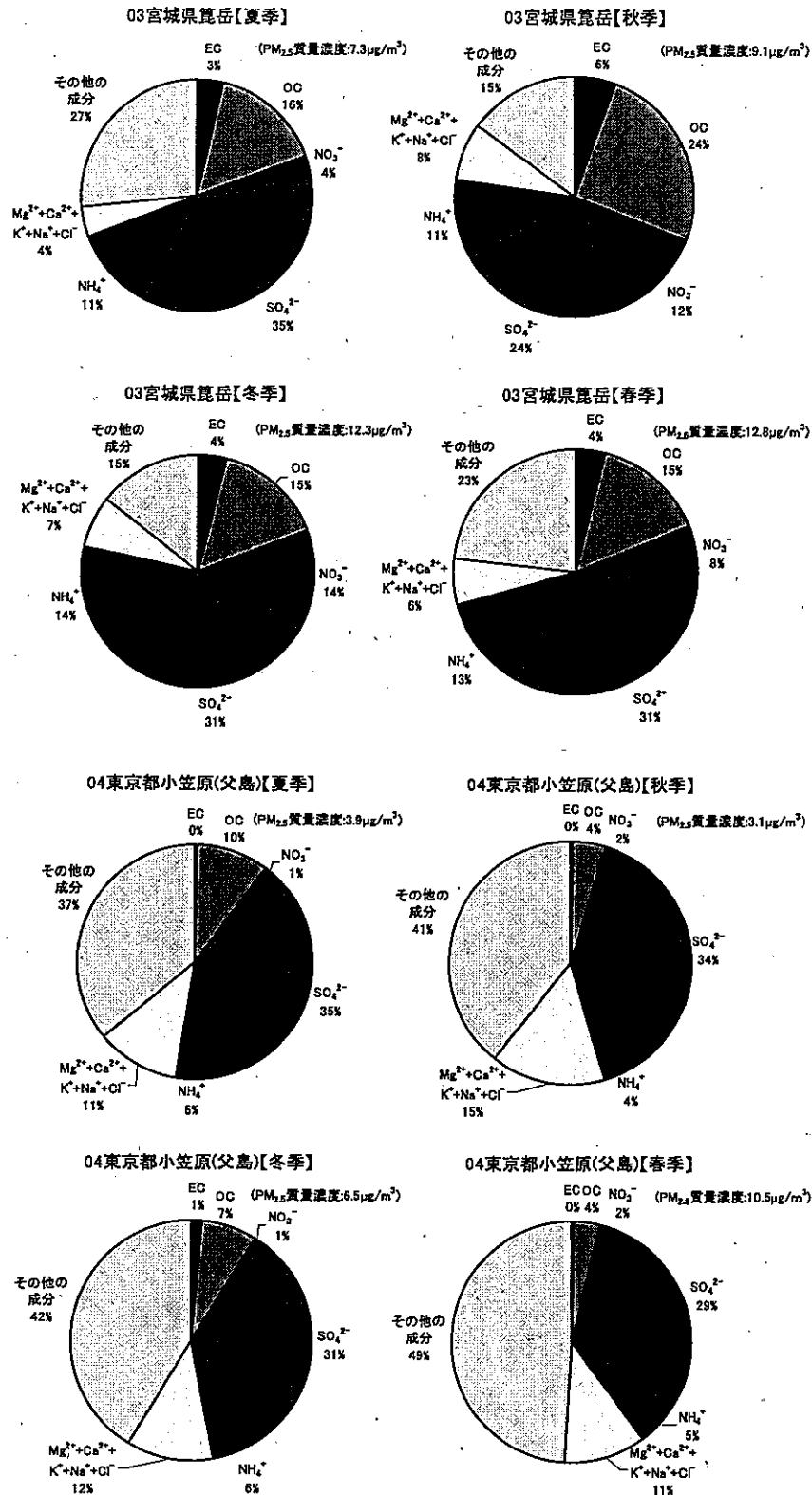
※その他の成分：質量濃度から炭素及びイオン成分濃度を引いたもの

※炭素成分濃度は熱分離熱分解補正法 (Thermal Optical Reflectance method) による

※定量下限値未満の値も使用した

※SASS秤量条件：温度20～23℃(24時間にわたり ±1.5℃、設定21.5℃)、相対湿度30～40%
(24時間にわたり ±5%、設定35%)

図2.1.2.5(1) PM_{2.5}(SASS)炭素・イオン成分等の割合
(2008年度夏季・秋季・冬季・春季の季節ごとの平均値)



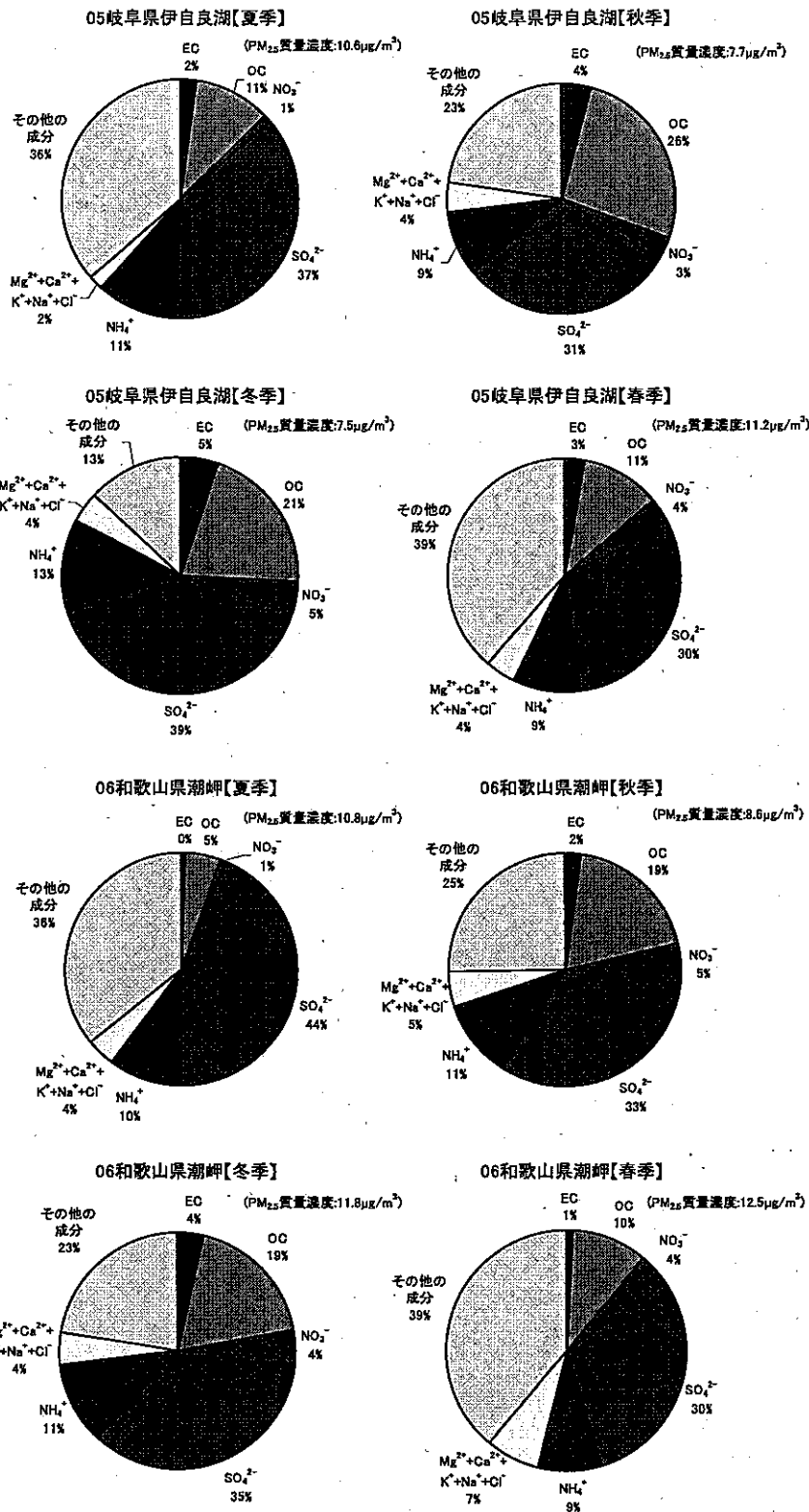
※その他の成分：質量濃度から炭素及びイオン成分濃度を引いたもの

※炭素成分濃度は熱分離熱分解補正法 (Thermal Optical Reflectance method) による

※定量下限値未満の値も使用した

※SASS秤量条件：温度20～23℃(24時間にわたり ±1.5℃、設定21.5℃)、相対湿度30～40%
(24時間にわたり ±5%、設定35%)

図2.1.2.5(2) PM_{2.5}(SASS)炭素・イオン成分等の割合
(2008年度夏季・秋季・冬季・春季の季節ごとの平均値)



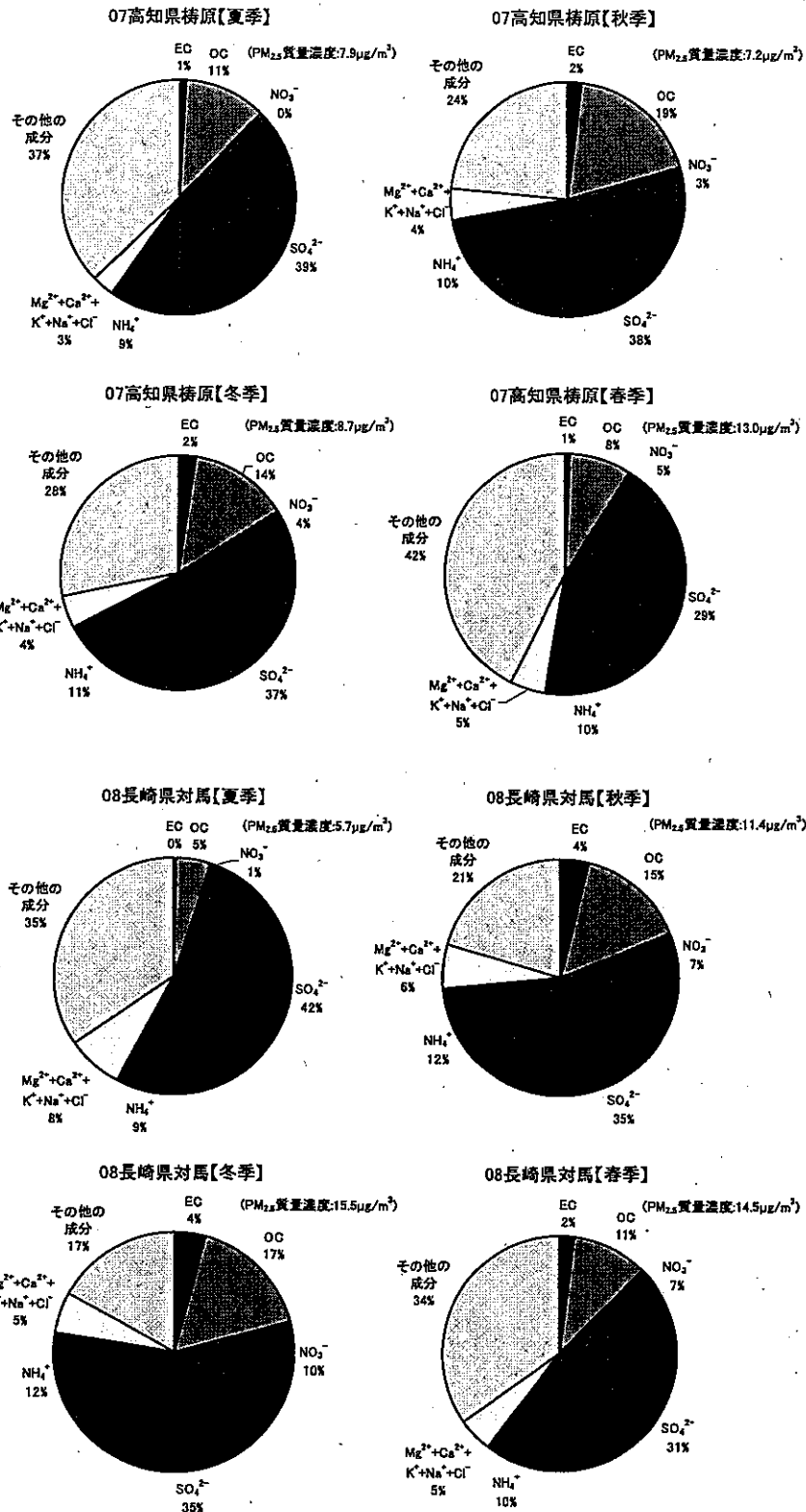
※その他の成分：質量濃度から炭素及びイオン成分濃度を引いたもの

※炭素成分濃度は熱分離熱分解補正法 (Thermal Optical Reflectance method) による

※定量下限値未満の値も使用した

※SASS秤量条件：温度20～23℃(24時間にわたり ±1.5℃、設定21.5℃)、相対湿度30～40%
(24時間にわたり ±5%、設定35%)

図2.1.2.5(3) PM_{2.5}(SASS)炭素・イオン成分等の割合
(2008年度夏季・秋季・冬季・春季の季節ごとの平均値)



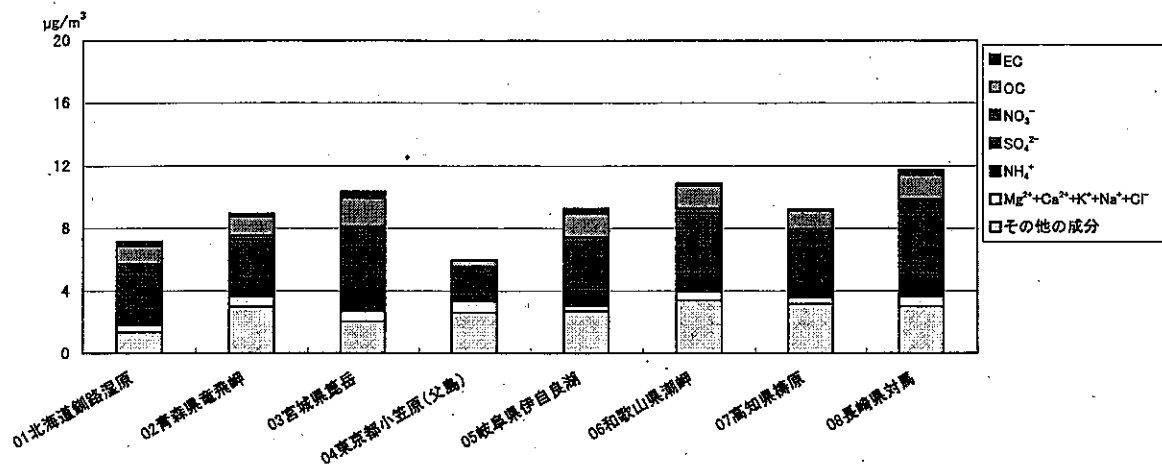
※その他の成分：質量濃度から炭素及びイオン成分濃度を引いたもの

※炭素成分濃度は熱分離熱分解補正法 (Thermal Optical Reflectance method) による

※定量下限値未満の値も使用した

※SASS秤量条件：温度20～23℃(24時間にわたり ±1.5℃、設定21.5℃)、相対湿度30～40%
(24時間にわたり ±5%、設定35%)

図2.1.2.5(4) PM_{2.5}(SASS)炭素・イオン成分等の割合
(2008年度夏季・秋季・冬季・春季の季節ごとの平均値)



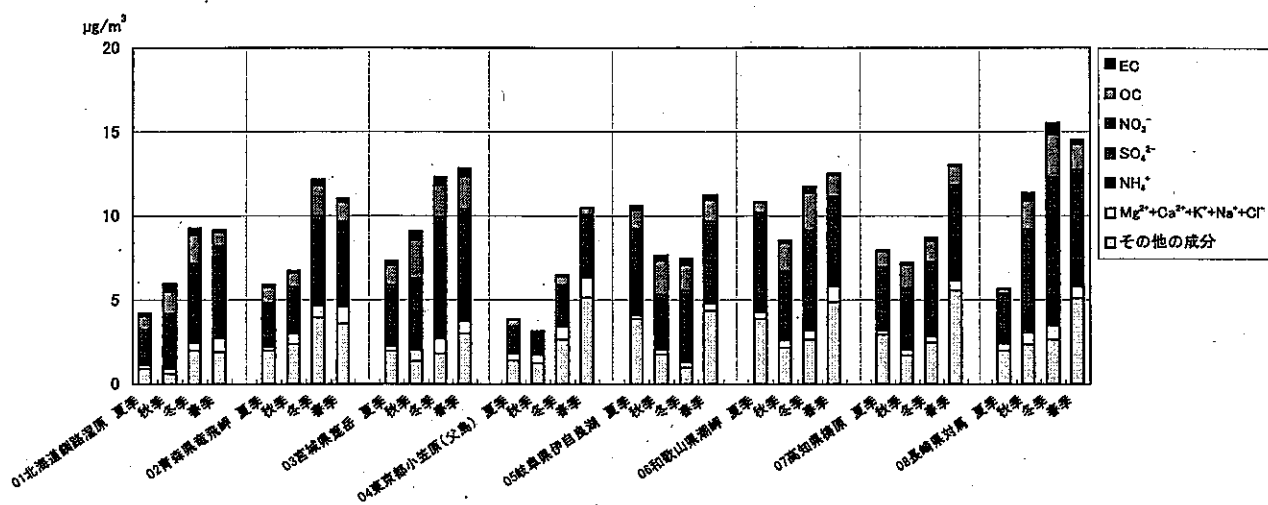
※その他の成分：質量濃度から炭素及びイオン成分濃度を引いたもの

※炭素成分濃度は熱分離熱分解補正法 (Thermal Optical Reflectance method) による

※定量下限値未満の値も使用した

※SASS秤量条件：温度20～23℃(24時間にわたり ±1.5℃、設定21.5℃)、相対湿度30～40%
(24時間にわたり ±5%、設定35%)

図2.1.2.6 PM_{2.5}(SASS)炭素・イオン成分濃度
(2008年度の年平均値(四季調査))



※その他の成分：質量濃度から炭素及びイオン成分濃度を引いたもの

※炭素成分濃度は熱分離熱分解補正法 (Thermal Optical Reflectance method) による

※定量下限値未満の値も使用した

※SASS秤量条件：温度20～23℃(24時間にわたり ±1.5℃、設定21.5℃)、相対湿度30～40%
(24時間にわたり ±5%、設定35%)

図2.1.2.7 PM_{2.5}(SASS)炭素・イオン成分濃度
(2008年度夏季・秋季・冬季・春季の季節ごとの平均値)

2.2. 日本と米国の環境大気中濃度の相違

環境大気中濃度の状況に関しては、日本と米国では、発生源、バックグラウンド濃度、都市構造の違い等により、差異が生じていると考えられる。これら日米間における相違について検討するため、日本と米国における微小粒子状物質の環境大気中の濃度について、特に成分濃度の測定結果に着目して整理を行った。整理に当たっては、日本において近年、元素状炭素の割合が減少してきているように、環境大気中の状況が変化してきたことや、日米で用いられていた測定法の相違もあることから、成分濃度の過去からの変遷について日米の測定結果を比較することは困難であるため、入手可能な直近の測定結果に基づき整理を行った。

なお、米国の測定局は交通量の多い道路から一定の距離を置いて設置することが規則として定められていることから、両国の測定値を比較するに当たり、本報告では日本の都市部における測定結果として、一般局の測定結果を用いた。

微小粒子状物質の環境大気中の状況について、日本と米国において、一般大気環境及び人為起源由来粒子の影響が少ないと考えられる地域において測定した成分濃度から、以下の傾向が示された。

- 日本の一般大気環境においては、2008年度に一般局において測定した14地点におけるデータからみると、地域によってばらつきはあるが、有機炭素が15～20 % (2.4～4.0 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)、元素状炭素は4～10 % (0.6～2.0 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)、硫酸イオンは26～34 % (4.1～6.1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)、硝酸イオンは4～15 % (0.7～3.1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)となっていた。
- 日本の人為起源由来粒子の影響が少ない地域における成分濃度は、硫酸イオンが31～36 % (1.9～4.1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)を占め、この他、土壌粒子や水分等で構成されるその他の成分、有機炭素、アンモニウムイオンが主要な成分として構成されていた。
- 米国の主要な都市の測定局の結果(図2.2.1)からみると、地域によってばらつきはあるものの、有機炭素が14～35 % (2～5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)と高い割合を示した。一方で、元素状炭素は3～12 % (0.4～1.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)と低い傾向にあった。硫酸イオンは、米国東部では19～30 % (2.6～4.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)であるのに対し、西部では7～17 % (1～2.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)であり、西部において低い傾向にあった。硝酸イオンやその他の成分は都市によって異なっていた(図2.2.1)。
- 米国において、人為起源由来粒子が比較的影響していない地域の測定局におけ

る測定結果（表2.2.1）に基づいて算出されたPM_{2.5}のバックグラウンド濃度は、東部地域において5 µg/m³、西部地域において4 µg/m³であった。これらの濃度には、有機炭素や硫酸イオンの成分も含まれているが、それらの濃度はそれぞれ1～2 µg/m³であった。なお、砂漠地域において、測定された濃度から水分を除いた濃度を1～2 µg/m³と推定している（U.S.EPA, 1996）。

これらの測定結果を参考に、日米のPM_{2.5}の成分を比較すると、硫酸イオンに関しては寄与度・濃度ともに日本の方が地域にかかわらず高い傾向にある。日本の人為起源由来粒子の影響が少ない地域においても、硫酸イオンが31～36 % (1.9～4.1 µg/m³)と比較的高い割合を占めており、火山や大陸からの輸送等、長距離輸送に起因する硫酸イオンも存在すると考えられる。

都市地域における元素状炭素濃度も米国の都市に比べ日本の方が高い。有機炭素濃度や硝酸イオンの成分濃度は日本、米国ともに、それぞれ都市によって違いがあり、一概に比較することはできない。その他の成分の濃度については土壌成分や水分等によって一定量存在するとともに、黄砂などの自然現象によっても濃度は更に高くなるとも考えられる。

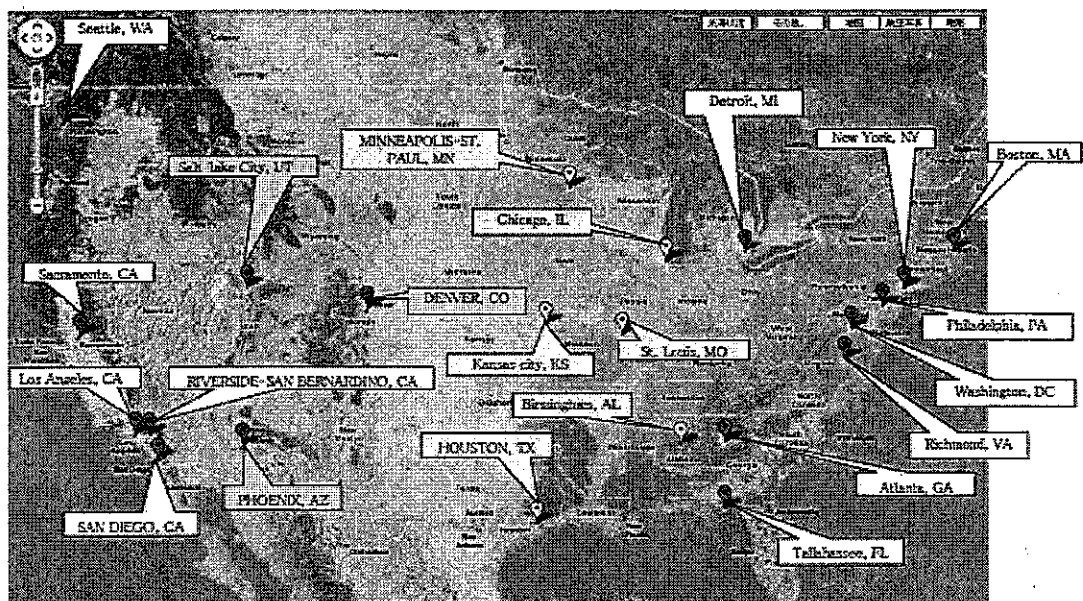


図2.2.1 米国の都市域におけるPM_{2.5}測定地点

注:都市名ラベルのうち、中部及び山岳部のみ色付けをした。地図出典:google map (<http://maps.google.co.jp/>)

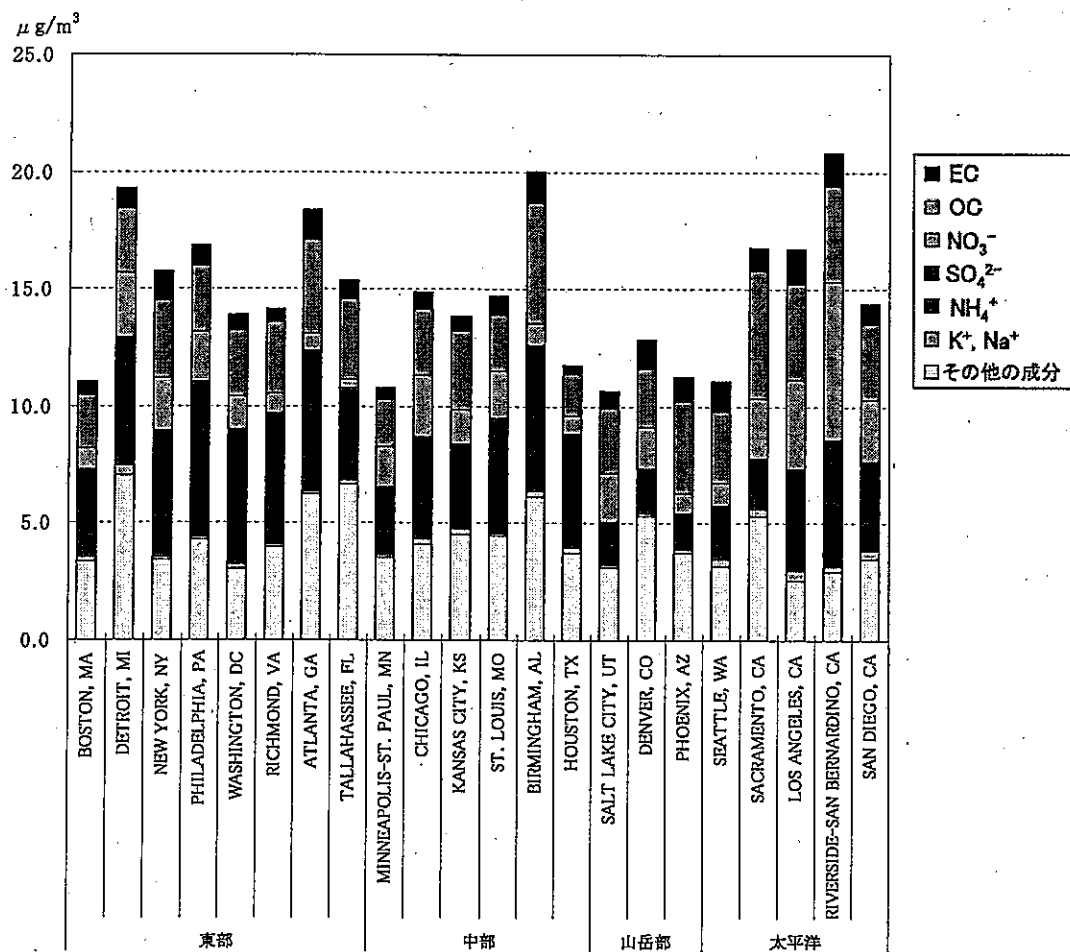


図2.2.2. 米国の都市におけるPM_{2.5}成分濃度 (2006年度通年)

表2.2.1 米国の人為起源由来粒子が比較的影響していない地域の測定結果
(U.S.EPA, 1996を引用・和訳)

地域名	地域区分	地域数	サイト数	年間平均濃度の地域平均値 (μg/m³)				
				PM _{2.5}	硫酸アンモ ニウム	有機物	PM _{10-2.5}	PM ₁₀
Northwest ^{a)}	西部	7	15	<u>3.55</u>	0.88	1.63	4.46	8
Southwest ^{b)}	西部	2	5	<u>3.91</u>	1.28	1.38	5.62	9.5
Transitional to East Region ^{c)}	東部	3	5	<u>5.15</u>	1.97	2.01	6.54	11.7

注 a) は、Cascades (1), central Rocky Mt. (5), Grate Basin (1), N. Rocky Mt. (1), Sierra Nevada (1), Sierra Humboldt (2), Colorado Plateau (4)が対象
b) は、Colorado Plateau (3), Sonora Desert (2)が対象
c) は、West Texas(2), South Dakota(1), boundary Waters(2)が対象
() は各地域の測定局の数を示す。

2.3. 参考文献

U.S.EPA. (1996) Air quality criteria for particulate matter. Volume I of III. National Center for Environmental Assessment-RTP Office. Research Triangle Park, NC. EPA/600/P-95/001aF
環境省. (2007) 微小粒子状物質曝露影響調査報告書.