

# 第29回全国環境研究所 交流シンポジウム 予稿集

平成26年2月13日・14日



独立行政法人 国立環境研究所



第 29 回全国環境研究所交流シンポジウム  
「PM<sub>2.5</sub>の大気汚染動態と健康影響」

平成 26 年 2 月 13 日(木)～14 日(金)

於 国立環境研究所 大山記念ホール

2 月 13 日(木)

(司会: 近藤 美則)

15:00～15:05 開会挨拶

国立環境研究所理事長 住 明正

15:05～15:25 基調講演「PM<sub>2.5</sub>—現状と課題」.....4

国立環境研究所 地域環境研究センター センター長 大原 利真

15:25～17:30 セッション 1: PM<sub>2.5</sub>の測定と動態把握 座長:菅田 誠治 (国立環境研究所)

(1)15:30～15:50 「地環研と国環研による全国的な共同観測からみた PM<sub>2.5</sub>の状況」..... 6

○長谷川 就一 (埼玉県環境科学国際センター)

(2)15:50～16:10 「2012 年に西日本で観測された PM<sub>2.5</sub>高濃度イベントの要因解析」..... 8

○山本 重一<sup>1</sup>、下原 孝章<sup>1</sup>、濱村 研吾<sup>1</sup>、山本 勝彦<sup>2</sup>、日置 正<sup>3</sup>、谷口 延子<sup>3</sup>、  
山崎 敬久<sup>4</sup>、長谷川 就一<sup>5</sup>、三田村 徳子<sup>6</sup>、長田 健太郎<sup>7</sup>、田村 圭<sup>8</sup>、  
家合 浩明<sup>9</sup>、小林 優太<sup>10</sup>、菅田 誠治<sup>11</sup>、大原 利真<sup>11</sup>

(<sup>1</sup> 福岡県保健環境研究所、<sup>2</sup> 大阪府立環境農林水産総合研究所、<sup>3</sup> 京都府保健  
環境研究所、<sup>4</sup> 富山県環境科学センター、<sup>5</sup> 埼玉県環境科学国際センター、<sup>6</sup> 滋賀  
県琵琶湖環境科学研究センター、<sup>7</sup> 山口県環境保健センター、<sup>8</sup> 長崎県環境保健  
研究センター、<sup>9</sup> 新潟県保健環境科学研究所、<sup>10</sup> 島根県保健環境科学研究所、<sup>11</sup>  
国立環境研究所)

(3)16:10～16:30 「2011 年 2 月の広域的な PM<sub>2.5</sub>高濃度エピソードの要因推定」 ..... 10

○山神 真紀子<sup>1</sup>、佐川 竜也<sup>2</sup>、中戸 靖子<sup>3</sup>、長田 健太郎<sup>4</sup>、米持 真一<sup>5</sup>、  
山本 勝彦<sup>3</sup>、山田 大介<sup>6</sup>、芝 和代<sup>7</sup>、山田 克則<sup>8</sup>、菅田 誠治<sup>9</sup>、大原 利真<sup>9</sup>、  
Ⅱ型共同研究グループ

(<sup>1</sup> 名古屋市環境科学調査センター、<sup>2</sup> 出雲保健所、<sup>3</sup> 地方独立行政法人大阪府立  
環境農林水産総合研究所、<sup>4</sup> 山口県環境保健センター、<sup>5</sup> 埼玉県環境科学国際セ  
ンター、<sup>6</sup> 川崎市環境局環境対策部、<sup>7</sup> 愛媛県立衛生環境研究所、<sup>8</sup> 福井県衛生  
環境研究センター、<sup>9</sup> 国立環境研究所)

- (4)16:30～16:50 「炭素同位体を用いた PM<sub>2.5</sub> 中炭素の起源解析」……………12  
○池盛 文数<sup>1,2</sup>、山神 真紀子<sup>1</sup>、早田 葵<sup>2</sup>、本庄 浩司<sup>2</sup>、肥後 隼人<sup>3</sup>、木下 誠<sup>4</sup>、  
中島 大介<sup>5</sup>、兼保 直樹<sup>6</sup>、南 雅代<sup>7</sup>、中村 俊夫<sup>7</sup>  
(<sup>1</sup>名古屋市環境科学調査センター、<sup>2</sup>名古屋大学大学院環境学研究科、<sup>3</sup>福岡市  
博多区保健福祉センター、<sup>4</sup>福岡市保健環境研究所、<sup>5</sup>国立環境研究所、<sup>6</sup>産業技  
術総合研究所、<sup>7</sup>名古屋大学年代測定総合研究センター)
- (5)16:50～17:10 「九州・沖縄地区における微小粒子状物質の化学組成」 ……………14  
○高見 昭憲 (国立環境研究所)
- (6)17:10～17:30 「常時監視データから見た過去4年度のPM<sub>2.5</sub>広域分布状況」 ……………16  
○清水 厚 (国立環境研究所)
- 17:30～17:50 特別報告: 「緊急時環境調査検討:US EPA 視察報告」……………18  
国立環境研究所 環境健康研究センター 総合影響評価研究室 中山 祥嗣
- 18:00～19:45 懇親会 (会場: 国立環境研究所 食堂)

2月14日(金)

9:00～ 9:05 来賓挨拶

環境省総合環境政策局 環境研究技術室長 吉川 和身

9:05～10:25 セッション2 PM<sub>2.5</sub>の発生源とその寄与評価

座長: 田邊 潔 (国立環境研究所)

- (7) 9:05～ 9:25 「リセプターモデルを用いた PM<sub>2.5</sub>の発生源寄与解析」……………20  
○飯島 明宏 (高崎経済大学、国立環境研究所客員研究員)
- (8) 9:25～ 9:45 「兵庫県における PM<sub>2.5</sub>の発生源同定」……………22  
○中坪 良平<sup>1</sup>、常友 大資<sup>2</sup>、松村 千里<sup>1</sup>、平木 隆年<sup>1</sup>、齊藤 勝美<sup>3</sup>、余田 佳子<sup>4</sup>、  
島 正之<sup>4</sup> (<sup>1</sup>ひょうご環境創造協会 兵庫県環境研究センター、<sup>2</sup>兵庫県中播磨県  
民局、<sup>3</sup>富士通クオリティ・ラボ・環境センター、<sup>4</sup>兵庫医科大学)
- (9) 9:45～10:05 「大気微小粒子に対する直噴ガソリン車など各種発生源の寄与」……………24  
○伏見 暁洋 (国立環境研究所)
- (10) 10:05～10:25 「化学輸送モデルを用いた PM<sub>2.5</sub>の発生源解析の現状と課題」……………26  
○森野 悠<sup>1</sup>、茶谷 聡<sup>2</sup>、嶋寺 光<sup>3</sup>、森川 多津子<sup>4</sup>、速水 洋<sup>5</sup>、大原 利真<sup>1</sup>  
(<sup>1</sup>国立環境研究所、<sup>2</sup>豊田中央研究所、<sup>3</sup>大阪大学、<sup>4</sup>日本自動車研究所、  
<sup>5</sup>電力中央研究所)

10:25～11:25 セッション3 PM<sub>2.5</sub>の曝露評価と健康影響

座長: 平野 靖史郎 (国立環境研究所)

- (11) 10:25～10:45 「PM<sub>2.5</sub>の健康影響に関する実験的研究」……………28  
○古山 昭子、藤谷 雄二、平野 靖史郎(国立環境研究所)
- (12) 10:45～11:05 「PM<sub>2.5</sub>の健康影響の疫学的評価手法とその課題」……………30  
○上田 佳代、道川 武紘、新田 裕史(国立環境研究所)
- (13) 11:05～11:25 「国環研における PM<sub>2.5</sub>の健康影響に関する疫学研究」……………32  
○道川 武紘、上田 佳代、新田 裕史(国立環境研究所)

11:25～11:50 総合討論

新田 裕史 (国立環境研究所)

11:50～11:55 閉会挨拶

国立環境研究所理事 原澤 英夫

希望者のみ

13:30～14:30 所内施設見学会を行います。

## PM<sub>2.5</sub> - 現状と課題

大原利眞

(国立環境研究所)

### 1. はじめに

2013年初め、北京周辺における激甚なPM<sub>2.5</sub>汚染に端を発し、その越境汚染影響と考えられる濃度上昇が西日本等で観測されて大きな社会問題となった。本稿では、日本におけるPM<sub>2.5</sub>の現状、中国の大気汚染と日本への越境汚染影響、昨年(2013年)のPM<sub>2.5</sub>問題について概説する。

### 2. 日本におけるPM<sub>2.5</sub>の概況

日本では2009年にPM<sub>2.5</sub>の環境基準が制定され、2010年度から全国の自治体で常時監視測定が開始され、2012年度には有効測定局数が437局まで増加している。2012年度の測定結果(速報値)<sup>1)</sup>によれば、全国の一般局における環境基準達成率は43.5%(自排局では33.9%)となっており、過半数の一般局で環境基準非達成となっている。また、2011年度の結果によると、地域的には西日本で達成率が悪く<sup>2)</sup>、この原因として大陸からの越境汚染や黄砂の影響が考えられる。一方、2001~2010年度にTEOM法により全国で測定されたPM<sub>2.5</sub>平均濃度は経年的に減少傾向にある<sup>2)</sup>。とりわけ、自動車排ガス規制の段階的強化による自排局における濃度減少が大きく、その平均濃度は非都市部の一般局における濃度と同様なレベルになっている。このように、我が国では大気汚染対策によって都市汚染によるPM<sub>2.5</sub>濃度は減少傾向にあり、越境汚染による影響が相対的に増大している可能性が高い。

### 3. 中国における大気汚染

中国における大気汚染物質排出量は、急速な経済成長によって1980年代後半から急増している<sup>3)</sup>。一方、国を挙げて対策に取り組んでいることも事実であり、SO<sub>2</sub>のように減少し始めている物質もある。しかし、多くの物質については、汚染対策の進捗が排出量の増加に追いついていないため、PM<sub>2.5</sub>やオゾンなどによる深刻な大気汚染が発生している。例えば、中国東部のPM<sub>2.5</sub>年平均濃度は60-90 μg/m<sup>3</sup>であり、工業地域では100 μg/m<sup>3</sup>を超えている<sup>4)</sup>。この濃度レベルは日本の環境基準値15 μg/m<sup>3</sup>の4倍以上である。また、2013年には中国東部の広範囲な地域において高濃度のPM<sub>2.5</sub>を含むスモッグが発生し、北京では1時間値の最大で1000 μg/m<sup>3</sup>(1mg/m<sup>3</sup>)近くまで達して、深刻な汚染が報じられたことは記憶に新しい。

### 4. 越境汚染の日本への影響

アジア大陸で発生したPM<sub>2.5</sub>等の大気汚染物質は、大陸の風下に位置する日本列島に長距離輸送され、日本の大気質に大きな影響を及ぼしている。国内の都市域では、この越境汚染に都市汚染が上乘せられて環境基準を超過するようなPM<sub>2.5</sub>の濃度レベルになっていると考えられる。

このようなPM<sub>2.5</sub>による越境汚染の実態は、観測や大気汚染シミュレーションモデルによって徐々に明らかになっている。例えば、2007年1年間を対象として、日本全域でのPM<sub>2.5</sub>濃度に対する東アジア各国の寄与率を計算した東アジアスケールのシミュレーション結果によると、各国からの寄与率は、中国63%、日本28%、韓国7%、その他2%となっており、中国の影響が非常に大きいことがわかる。また、東アジア/日本全域/関東の3地域を対象としたシミュレーションモデルを使用して、2005年度1年間の大阪・兵庫圏、愛知・三重圏、首都圏規制地域と東京23区におけるPM<sub>2.5</sub>に対する越境汚染影響を評価した結果によれば、越境汚染の影響は、大阪・兵庫圏で48%、愛知・三重圏で41%、首都圏規制地域で31%、東京23区で26%であり、相対的に大陸に近い大阪・兵庫圏ではPM<sub>2.5</sub>の約

半分が、また、首都圏規制地域でも約 1/3 が越境汚染由来である可能性がある<sup>5)</sup>。

## 5. 2013 年の PM<sub>2.5</sub> 騒動

2013 年初めの日本の PM<sub>2.5</sub> 汚染について、2013 年 2 月時点で入手可能な観測データとシミュレーション結果をもとに解析した結果は次のとおりである<sup>6)</sup>。

- ① 西日本等で広域的に環境基準値を超える濃度が観測された。しかし、全国の大気環境測定局で測定された 2013 年 1 月の濃度レベルは、過去 2 年間の同時期と較べて大きく上回るものではない。
- ② PM<sub>2.5</sub> 濃度の上昇に関して、西日本で広域的に環境基準を超える濃度が観測されたこと、九州北西の離島でも微小粒子状物質の濃度上昇が観測され硫酸塩粒子が多く含まれていたこと、東アジアスケールのシミュレーション結果などから、越境大気汚染の影響があったものと考えられる。
- ③ 東海や関東北部では、越境汚染と都市汚染が複合して濃度が上昇した可能性がある。

上記①で指摘したように、また、より最近の解析結果<sup>7)</sup>からも明らかになったように、2013 年初めに PM<sub>2.5</sub> 濃度が特に高かった傾向は認められず、ほぼ例年並みであった。従って、2013 年の PM<sub>2.5</sub> 問題は「PM<sub>2.5</sub> 騒動」というべき性格の社会的現象であったと考えるのが適切であろう<sup>8)</sup>。しかし、今回の「騒動」に係らず、PM<sub>2.5</sub> 汚染は人の健康や気候変動に大きな影響を与える環境問題であり、発生原因を科学的に理解し、適切な抑制策を講じることが喫緊の課題となっている。

## 6. おわりに

日本には 1960 年代の深刻な大気汚染を改善してきた実績がある。1960 年代の高度成長期には深刻な大気汚染が各地で発生し、四日市喘息などの公害問題が発生した。当時は今よりも 10 倍程度の PM<sub>2.5</sub> 濃度レベルであったと推測される<sup>9)</sup>。このように大気汚染を改善してきた経験や技術、制度や政策を中国等の開発途上国に移転することは東アジアの大気汚染問題を解決する上で重要な取組みとなるであろう。中国等において大気汚染が減れば、自国での深刻な汚染問題の解決になるのは勿論のこと、日本への越境汚染も減ることになる。

今回の「PM<sub>2.5</sub> 騒動」で見られるように、PM<sub>2.5</sub> 汚染の原因として越境汚染の影響が目が行きがちであるが、足元の国内対策も依然として重要である。例えば、東京都の調査結果によれば、都内の PM<sub>2.5</sub> のうち 1/3 以上は関東地方の工場・自動車などの人為発生源が原因であると推計されている<sup>9)</sup>。国内でしっかりと対策を進め、自分たちの力で汚染を減らすとともに、その技術・経験を他国に移転することによって、その国の汚染を減らし、その積み重ねによって東アジアでの広域汚染、日本への越境汚染も減らすといった道筋を我が国は考える必要がある。

## 参考文献

- 1) 環境省:平成 24 年度 微小粒子状物質 (PM<sub>2.5</sub>) の測定結果 (速報値) について (お知らせ), 平成 25 年 12 月 25 日 (2013). <https://www.env.go.jp/press/press.php?serial=17553>
- 2) 編集企画委員会:知っておきたい PM<sub>2.5</sub> の基礎知識, 日本環境衛生センター発行, pp.90 (2013).
- 3) Ohara, T. et al.: Atmos. Chem. Phys., 7, 4419–4444 (2007).
- 4) China Council for International Cooperation on Environment and Development: CCICED Special Policy Study, Regional Air Quality, Integrated Control System Research, pp.27 (2012).
- 5) 茶谷聡ほか:大気環境学会誌, 46, 101-110 (2011).
- 6) 国立環境研究所:日本国内での最近の PM<sub>2.5</sub> 高濃度現象について (お知らせ) 記者発表, 平成 25 年 2 月 21 日 (2013).
- 7) 環境省:微小粒子状物質(PM<sub>2.5</sub>)に関する専門家会合(第 4 回) 資料 1-2:今年前半の PM<sub>2.5</sub> 濃度と過去との比較結果について (2013).
- 8) 大原利眞:科学, 83, 420-424 (2013).
- 9) 東京都微小粒子状物質検討会:東京都微小粒子状物質検討会報告書, pp.43 (2011).

# 地環研と国環研による全国的な共同観測から見た PM<sub>2.5</sub> の状況

長谷川 就一  
(埼玉県環境科学国際センター)

## 1. はじめに

2009年のPM<sub>2.5</sub>環境基準の告示後、地方自治体はPM<sub>2.5</sub>の質量濃度及び成分分析の常時監視体制の構築を進めているが、広域的にPM<sub>2.5</sub>の実態を把握し、その発生源寄与率を評価した上で、有効な対策を立案することが必要となっている。そこで、地方環境研究所(54機関)と国立環境研究所によるⅡ型共同研究として、2010～12年度に「PM<sub>2.5</sub>と光化学オキシダントの実態解明と発生源寄与評価に関する研究」を実施した。本研究では観測研究グループを形成し、高濃度事例を中心にPM<sub>2.5</sub>の観測による全国的な状況の解析などに取り組んだ。ただ、研究開始時は、PM<sub>2.5</sub>の質量濃度及び成分分析の常時監視体制の整備が始まったばかりで、研究を行うのに必要な観測データが不足していたため、この共同研究を母体として地環研と国環研が参画し、環境省環境研究総合推進費5B-1101「全国の環境研究機関の有機的連携によるPM<sub>2.5</sub>汚染の実態解明と発生源寄与評価」(2011～13年度)によっても観測を進めてきた。本講演ではこの全国的な観測データからみたPM<sub>2.5</sub>の状況について述べる。

## 2. PM<sub>2.5</sub>濃度の季節平均とその地域間比較

推進費による共同観測では、全国的な状況を把握すること、また、各地でのバックグラウンド濃度と都市活動による汚染状況を把握することをねらいとして、観測地点を日本列島の西から東・北までカバーした上で、各地の都市部及び遠隔地を対として配置することを基本に、14の観測地点を置いた。ここで自動測定機(PM-712, 紀本電子)によりPM<sub>2.5</sub>質量濃度の常時観測を行っている。14地点は、周辺の人口や地形などの立地環境を考慮して、大都市、中小都市、遠隔地の3つに分類した。各地点の測定値を3か月ごとに平均し、季節的な傾向を2年余り観察した(図1には1年分を图示)。

周辺に大きな発生源がなく、バックグラウンド濃度が観測されると考えられる遠隔地に着目すると、秋季から春季にかけては西の方が高く、東に行くにつれて低くなる“西高東低”の傾向が見られる。最も西に位置する対馬と最も東に位置する利尻を比較すると、いずれの季節も概ね7～8μg/m<sup>3</sup>程度の差がある。また、この対馬と、関東地方の大都市圏内に位置する埼玉を比較すると、2011年秋季を除いて両者はほぼ同じであり、2013年春季は対馬の方が高い。さらに、春季の全国的な濃度レベルは、秋季や冬季に比べて

5μg/m<sup>3</sup>程度上昇している。一方、夏季は西高東低の傾向は見られず、概ね同程度のレベルである。こうした結果を総観気象の季節の特徴を踏まえて考えると、秋季から春季は、西風による中国大陸からの移流が卓越するため、大陸から近い日本列島の西部ほど越境汚染の影響が大きく、特に春季はそれが高まる

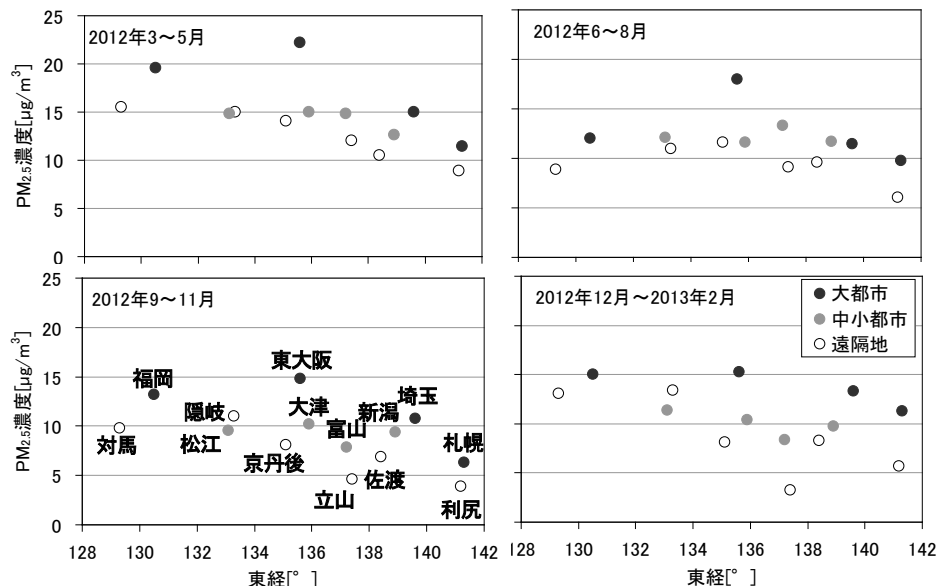


図1 2012年3月～2013年5月のPM<sub>2.5</sub>平均濃度



ことを示唆している。これに対して、夏季は太平洋気団が卓越するため中国大陸からの移流の影響は小さく、顕著な濃度差が見られないと考えられる。

一方、大都市に着目すると、そのバックグラウンド濃度が遠隔地における濃度付近を東西方向に結んだ線上にあると想定すると、季節や地点によって幅に違いはあるものの大都市ではそのバックグラウンド濃度よりも明らかに高い。こうしたバックグラウンド濃度からの上乗せ分は、主にその大都市における発生源による地域汚染の影響であると考えられる。福岡や札幌でのバックグラウンド濃度からの上乗せ分は多くても  $5\mu\text{g}/\text{m}^3$  程度だが、東大阪や埼玉では  $5\sim 10\mu\text{g}/\text{m}^3$  程度と大きい。特に 2011 年秋季はそれが顕著となっている。これらに対して、中小都市では総じてバックグラウンド濃度からの上乗せ分は大都市に比べて小さく、バックグラウンド濃度と同程度である場合も多いことから、地域汚染の影響は比較的小さいと考えられる。

### 3. $\text{PM}_{2.5}$ 高濃度時の主要成分濃度の地域間比較

上述した 14 地点では、ローボリュームサンプラー (FRM-2025, Thermo) を用いたフィルターサンプリングによる  $\text{PM}_{2.5}$  成分濃度の同期観測も各季節に 2 週間実施した。そのうち広域で  $\text{PM}_{2.5}$  が高濃度となった事例を中心に地域間比較を行った。

冬季の高濃度時 (2012 年 1 月 11~16 日) は、 $\text{PM}_{2.5}$  は西高東低の傾向があり、大都市ではバックグラウンド濃度への上乗せが見られたが、 $\text{SO}_4^{2-}$  は地点分類に関係なく一直線的に西高東低の傾向が見られた (図 2)。 $\text{NO}_3$  は対馬で高いが隠岐以東では横ばいであり、そこへ都市部では上乗せが見られた。EC も  $\text{NO}_3$  ほど明らかではないが同様の傾向が見られた。OC は地域差がないが、都市部での上乗せが見られた。冬季 (2013 年 1 月 25 日~2 月 7 日) の平均についても全般的な傾向は各成分とも高濃度時と同様であったが、 $\text{NO}_3$  は弱い西高東低の傾向が見られた。

春季の高濃度時 (2012 年 5 月 7~10 日) も  $\text{PM}_{2.5}$  と  $\text{SO}_4^{2-}$  は冬季の高濃度時と同じ傾向が見られたが、 $\text{NO}_3$  は暖候期のため濃度が低く、地域差の傾向は見られなかった。夏季の高濃度時 (2012 年 7 月 24~31 日) の前半は、 $\text{PM}_{2.5}$  は近畿付近で極大となるものの西高東低の傾向であり、また、都市部は上乗せが見られた。このときの  $\text{SO}_4^{2-}$  は一直線的に西高東低となっていたが、福岡では大きな上乗せがあった。しかし、後半の  $\text{PM}_{2.5}$  は隠岐以東で緩やかに西高東低となっており、 $\text{SO}_4^{2-}$  は富山・佐渡付近で極大となっていたが、埼玉では傾向から外れて低かった (図 2)。このため、夏季は冬季や春季と異なる輸送経路での越境汚染、国内由来による広域汚染などが複合している可能性が示唆される。

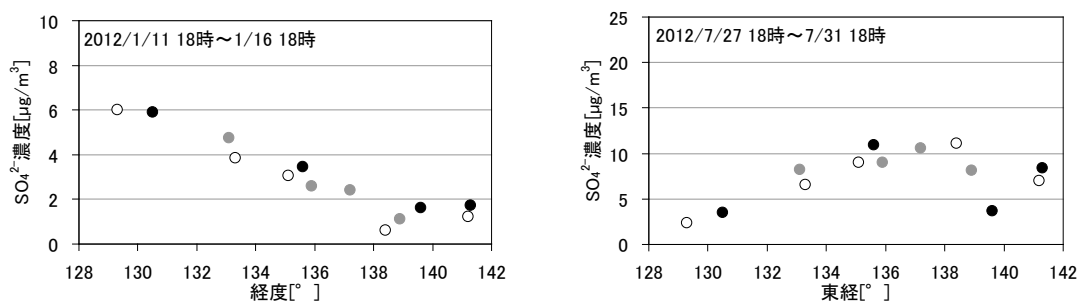


図 2 冬季 (左) と夏季 (右) の高濃度時の  $\text{SO}_4^{2-}$  平均濃度

### 4. おわりに

最近では自治体の  $\text{PM}_{2.5}$  常時監視体制が整ってきたことも合わせ、引き続き II 型共同研究として「 $\text{PM}_{2.5}$  の短期的/長期的環境基準超過をもたらす汚染機構の解明」(2013~2015 年度)を進めている。この中では全国的な共同観測や常時監視による質量及び成分濃度の全国データの解析によって、高濃度時の高時間分解観測、レセプターモデルや化学輸送モデルによる発生源寄与評価、高濃度パターンの地域間比較や季節平均と長期平均の比較検証などに取り組んでいる。

## 2012年に西日本で観測されたPM<sub>2.5</sub>高濃度イベントの要因解析

○山本重一<sup>1</sup>・下原孝章<sup>1</sup>・濱村研吾<sup>1</sup>・山本勝彦<sup>2</sup>・日置正<sup>3</sup>・谷口延子<sup>3</sup>・山崎敬久<sup>4</sup>・長谷川就一<sup>5</sup>・三田村徳子<sup>6</sup>・長田健太郎<sup>7</sup>・田村圭<sup>8</sup>・家合浩明<sup>9</sup>・小林優太<sup>10</sup>・菅田誠治<sup>11</sup>・大原利真<sup>11</sup>

(<sup>1</sup>福岡県保健環境研究所・<sup>2</sup>大阪府立環境農林水産総合研究所・<sup>3</sup>京都府保健環境研究所・<sup>4</sup>富山県環境科学センター・<sup>5</sup>埼玉県環境科学国際センター・<sup>6</sup>滋賀県琵琶湖環境科学研究センター・<sup>7</sup>山口県環境保健センター・<sup>8</sup>長崎県環境保健研究センター・<sup>9</sup>新潟県保健環境科学研究所・<sup>10</sup>島根県保健環境科学研究所・<sup>11</sup>国立環境研究所)

### 1. はじめに

PM<sub>2.5</sub>の時間・空間分布を把握するため、離島と都市をペアとしたエアロゾルの同期観測を実施した。このうち、2012年に西日本を中心とする広域で観測されたPM<sub>2.5</sub>高濃度イベントにおける要因解析について考察した。

### 2. 調査方法

観測は、図1に示す通り対馬、太宰府、隠岐、松江の4地点で、1時間平均濃度をPM<sub>2.5</sub>/PM<sub>c</sub>/OBC自動測定機(紀本電子工業(株)PM-712)で通年測定した。また、成分濃度は1月と5月、7月に自動測定機のPTFE製テープろ紙またはFRM2025で採取しPM<sub>2.5</sub>成分測定マニュアルに準拠して分析した。観測の時間分解能は離島(下線)が12時間、それ以外の都市域が6時間である。後方流跡線はHYSPLITを用いた。



図1 調査地点の位置図

### 3. 結果

2012年1月～12月の対馬、太宰府、隠岐、松江におけるPM<sub>2.5</sub>日平均濃度を図1に示す。4月下旬から5月上旬および7月には全地点でPM<sub>2.5</sub>の断続的な高濃度が高頻度で出現し、日平均値の環境基準である35 μg/m<sup>3</sup>を超過した日が複数回観測された。その他にも1月から3月、11月に一部の地点で35 μg/m<sup>3</sup>を超過していた。これらの高濃度が観測された1月中旬、5月上旬と7月下旬について、その要因の解析を行った。なお、ここでは太宰府の結果について、PM<sub>2.5</sub>の主成分であり越境汚染の指標である硫酸イオン、石炭燃焼の指標であるPb/Zn比〔国内起源：0.2～0.3、大陸起源：0.5～0.6〕、重油燃焼の指標であるV/Mn比〔国内起源：0.21～0.28、大陸起源では低くなる〕に後方流跡線を加えて考察する。

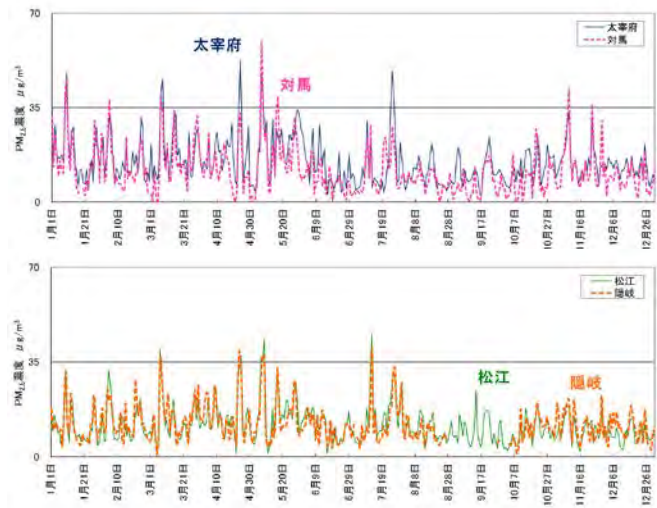


図2 各調査地点におけるPM<sub>2.5</sub>日平均濃度  
[上：太宰府、対馬、下：松江、隠岐]

#### <事例①>2012年1月11日～16日

2012年1月11日～16日の太宰府におけるPM<sub>2.5</sub>濃度、硫酸イオン濃度及びPb/Zn比、V/Mn比の推移を図3上段に示す。PM<sub>2.5</sub>濃度は13日午前から濃度が上昇し、13日の夜から14日午前にかけて時間幅のあるピークを示し、硫酸イオン濃度も類似した推移であった。PM<sub>2.5</sub>が高濃度となった期間

においてPb/Zn比は0.5~0.9と大陸起源より高い数値で推移した。一方、V/Mn比は概ね0.1~0.3程度と国内起源より低く推移していたことから、後方流跡線等と合わせて要因を推測すると、このPM<sub>2.5</sub>高濃度は主に域外の石炭燃焼の影響を受けていたと考えられる。

#### <事例②>2012年5月7日~10日

2012年5月7日~10日の太宰府におけるPM<sub>2.5</sub>濃度、硫酸イオン濃度及びPb/Zn比、V/Mn比の推移を図3中段に示す。PM<sub>2.5</sub>濃度は7日午後と10日早朝にピークがあり、硫酸イオン濃度も類似した推移であった。この事例においてPb/Zn比は0.4程度と国内起源と大陸起源の中間で推移していた。一方、V/Mn比は概ね0.4~1.3程度で5月10日の高濃度時にやや高い傾向が見られた。後方流跡線等と合わせて要因を推測すると、期間を通して域外の石炭燃焼と重油燃焼の影響を受け、5月10日の高濃度時では5月7日より石油燃焼の影響を大きく受けたと考えられる。

#### <事例③>2012年7月24日~31日

2012年7月24日~31日の太宰府におけるPM<sub>2.5</sub>濃度、硫酸イオン濃度及びPb/Zn比、V/Mn比の推移を図3下段に示す。PM<sub>2.5</sub>濃度は25日午後に大きなピーク、30日午後に小さいピークがあり、硫酸イオン濃度も類似した推移であった。この事例においてPb濃度が前2事例と比べて数分の一程度と低く、Pb/Zn比は0.2~0.4と国内起源レベルであった。一方、V/Mn比は変動があるが数値が高いことから、後方流跡線等と合わせて要因を推測すると、地域由来の重油燃焼の影響を受けていたと考えられる。

#### 4. まとめ

2012年1月中旬、5月上旬及び7月下旬に西日本の広域でPM<sub>2.5</sub>高濃度が観測された。太宰府における観測結果から、いずれの事例とも越境大気汚染の指標となる硫酸イオン濃度が高かったが、7月下旬の事例では成分比より地域由来と考えられ、後方流跡線等と合わせると地域汚染の影響が大きいことが推測された。この時期に硫酸イオンの前駆物質である二酸化硫黄の高濃度が西日本の各地で観測されており、気象状況からこの高濃度の二酸化硫黄が微小な硫酸塩を形成し、大気中に浮遊、滞留しやすい状況下にあったことが、PM<sub>2.5</sub>の主な高濃度の要因と考えられる。

#### 謝辞

本研究は環境省環境総合推進費【5B-1101】により実施した。

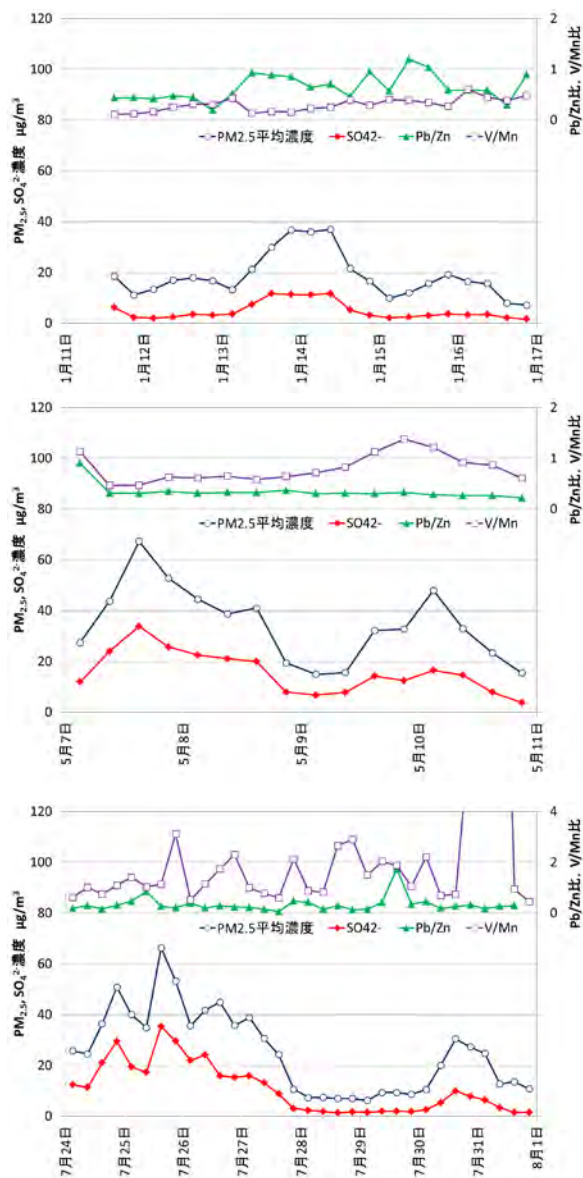


図3 太宰府におけるPM<sub>2.5</sub>濃度、硫酸イオン濃度、Pb/Zn比及びV/Mn比  
 上：2012年1月11日~1月16日  
 中：5月7日~5月10日  
 下：7月24日~7月31日

## 2011年2月の広域的なPM<sub>2.5</sub>高濃度エピソードの要因推定

○山神真紀子<sup>1</sup>・佐川竜也<sup>2</sup>・中戸靖子<sup>3</sup>・長田健太郎<sup>4</sup>・米持真一<sup>5</sup>・山本勝彦<sup>3</sup>・山田大介<sup>6</sup>・  
芝 和代<sup>7</sup>・山田克則<sup>8</sup>・菅田誠治<sup>9</sup>・大原利真<sup>9</sup>・II型共同研究グループ

(<sup>1</sup>名古屋市環境科学調査センター・<sup>2</sup>出雲保健所・<sup>3</sup>地方独立行政法人大阪府立環境農林水産総合研究所・<sup>4</sup>山口県環境保健センター・<sup>5</sup>埼玉県環境科学国際センター・<sup>6</sup>川崎市環境局環境対策部・<sup>7</sup>愛媛県立衛生環境研究所・<sup>8</sup>福井県衛生環境研究センター・<sup>9</sup>独立行政法人国立環境研究所)

### 1. はじめに

2011年2月4日から7日にかけて、九州から関東の広い範囲にわたり、高濃度のPM<sub>2.5</sub>が観測された。PM<sub>2.5</sub>の高濃度は2月4日には西日本を中心に観測され、その後、高濃度地域が拡大し、特に関東を中心に高濃度となった。各地で採取されたPM<sub>2.5</sub>の成分分析データ、後方流跡線解析、衛星データ、化学輸送モデル等を用いて、どのように高濃度が広がったのか検討を行った<sup>1)</sup>。

### 2. 調査方法

PM<sub>2.5</sub>の成分データは、埼玉、川崎、名古屋、大阪において各自治体が測定した4地点と、環境省による平成22年度微小粒子状物質曝露影響実測調査 (<http://www.env.go.jp/air/osen/pm/monitoring/data/h22.html>) の札幌、仙台、茨城、新潟、岡山、宮崎の6地点、計10地点のイオン成分および炭素成分の値を用いた。

### 3. 結果と考察

2011年2月4日朝から日本海側の地点でPM<sub>2.5</sub>の急激な濃度上昇が見られ、高濃度ピークに時間差が見られた。また、国内で最も早く高濃度ピークが観測された佐賀よりも3時間前に、韓国 Busan でPM<sub>10</sub>の高濃度ピークが観測され、前日の3日には中国の大気汚染指数 (APD)が沿岸部から西部までの広い範囲で高かった。2月4日には、地球観測衛星 Aqua に搭載されている MODIS により、黄海から対馬海峡、日本海にかけて、高濃度のエアロゾルの存在が確認された。この時点の後方流跡線の解析結果は、黄海から韓国を経由して気塊が流入していることを示しており、これらのことから、2月3日に中国で観測された高濃度の粒子状物質が東方に輸送され、翌日4日に韓国付近を通過して2月4～5日(期間①)に国内に到達したことにより、国内でPM<sub>2.5</sub>が高濃度となったことが推定される。

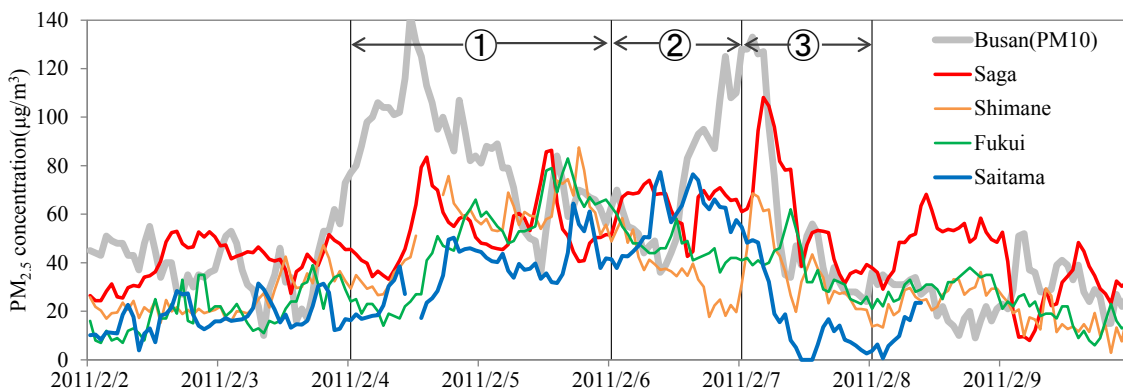


図1 PM<sub>2.5</sub>濃度および Busan における PM<sub>10</sub>濃度の経時変化

2011年2月1日から8日までの4地点における、フィルター採取したPM<sub>2.5</sub>濃度の変動とPM<sub>2.5</sub>の成分組成の変動を図2に示す。PM<sub>2.5</sub>の成分組成は、西日本の宮崎、岡山では高濃度時とその前後

で変動がほとんどない。一方、名古屋、埼玉では、PM<sub>2.5</sub>濃度の上昇に伴って、硫酸イオン、硝酸イオン、アンモニウムイオンの成分比率が上昇していた。

2月6日(期間②)は関東の埼玉、茨城でPM<sub>2.5</sub>が高濃度となり、特に埼玉では、硫酸イオン濃度と硝酸イオン濃度が全期間全地点を通じて最高濃度となっていた。Ox濃度も高濃度で推移していたことから、硫黄酸化物や窒素酸化物の酸化が進み、硫酸イオンや硝酸イオンが増加したと考えられる。

2月7日(期間③)ではPM<sub>2.5</sub>濃度もすべての成分濃度も西から東に従って減少する傾向を示し、特に、硫酸イオンにおいて、その傾向は顕著であった。この期間は風が強く、都市汚染の影響が小さかったため、越境汚染の影響が明瞭に表れたと考えられる。

期間①～③およびこれらの期間前後の2月1、2、3、8日(以下、期間A)におけるPM<sub>2.5</sub>中の硫酸イオンと硝酸イオンとの関係を図3に示す。

大規模な越境汚染が確認された期間Aでは、NO<sub>3</sub>/SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>比は地域によって偏りが見られた。関東では平均1.3(n=9)と高く、全期間を通して最も高い値となった。宮崎では平均0.19(n=4)と低く、その他の地域は平均0.80(n=22)で、宮崎と関東の中間の値となった。

都市汚染の影響が最も小さく、越境汚染の影響が明瞭な期間③では、NO<sub>3</sub>/SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>比はこの期間中、全体的に最も低い値を示し、平均0.22(n=9)であった。相関も高く(r=0.93)、どの地域もNO<sub>3</sub>/SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>比がほぼ均一な組成であったことがわかる。また、この値は、期間Aの宮崎の値に近く、宮崎は大規模な越境汚染が来る前でも、越境汚染の影響が大きい地点であると言える。一方、越境汚染と都市汚染の両方の影響が見られた期間①と②ではNO<sub>3</sub>/SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>比は期間③よりも高く、期間Aにおける関東よりも低い値となった。

#### 参考文献

- 1) 山神真紀子他：2011年2月上旬に観測された広域的なPM<sub>2.5</sub>高濃度エピソードの要因推定，大気環境学会誌，48，196-205(2013)

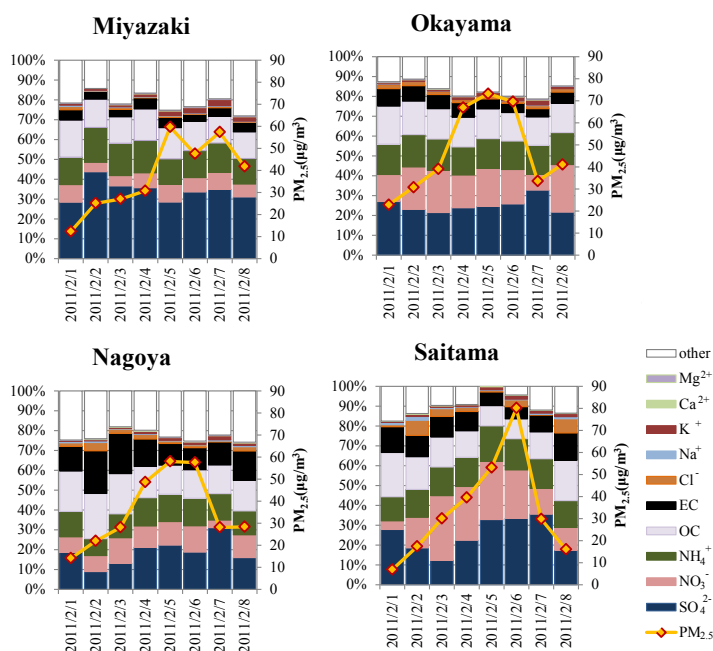


図2 PM<sub>2.5</sub>の成分組成の変動

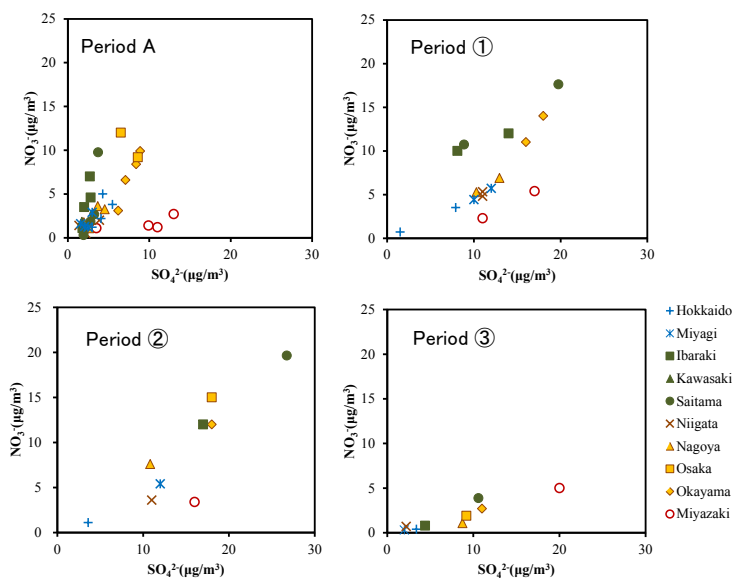


図3 PM<sub>2.5</sub>中のSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>とNO<sub>3</sub><sup>-</sup>との関係

## 炭素同位体を用いた PM<sub>2.5</sub> 中炭素の起源解析

○池盛文数<sup>1,2</sup>・山神真紀子<sup>1</sup>・早田葵<sup>2</sup>・本庄浩司<sup>2</sup>・肥後隼人<sup>3</sup>・木下誠<sup>4</sup>・中島大介<sup>5</sup>・兼保直樹<sup>6</sup>・南雅代<sup>7</sup>・中村俊夫<sup>7</sup>

(<sup>1</sup>名古屋市環境科学調査センター・<sup>2</sup>名古屋大学大学院環境学研究科・

<sup>3</sup>福岡市博多区保健福祉センター・<sup>4</sup>福岡市保健環境研究所・<sup>5</sup>国立環境研究所・<sup>6</sup>産業技術総合研究所・<sup>7</sup>名古屋大学年代測定総合研究センター)

### 1. はじめに

炭素成分は PM<sub>2.5</sub> の主要構成要素として知られているが、その発生源は多様性に富んでいるため起源を知ることは非常に難しく、様々なアプローチによる研究が行われている。近年、同位体元素を用いた環境動態に関する研究が進められており、その中でも、炭素の安定同位体 (<sup>13</sup>C) や放射性同位体 (<sup>14</sup>C) をマーカーにした研究が報告されている。関心の高い話題として、大陸からの越境輸送が挙げられるが、『何が』、『どのような発生源』から排出され、輸送されているかにより、エアロゾルの組成が違っているため、起源を知るために手掛かりとなるマーカーを測定する必要がある。<sup>13</sup>C によっても大陸からの影響を示す報告がなされている<sup>1)</sup>。我々は炭素同位体 (<sup>13</sup>C、<sup>14</sup>C) を用いたこれまでの研究で、(1) シベリア森林火災による植物起源炭素の輸送について (名古屋)、(2) 冬季に東アジア大陸からの化石燃料起源炭素の輸送について (福岡)、示唆する結果を得たので、本講演で発表する。

### 2. 方法

試料採取に関して、(1)は、FRM2000 (R&P 社製) を用いて、23.5 時間、流速 16.7 L/min で名古屋市環境科学調査センター屋上にて石英繊維ろ紙およびテフロンろ紙に採取した。採取期間は 2003 年 4 月~2004 年 3 月 (n=173) である。(2)は、福岡市保健環境研究所屋上にて、ハイボリュームエアサンプラーに PM<sub>2.5</sub> 分粒装置を装着し、流速 700L/min で石英繊維ろ紙に捕集した。サンプリングは基本一週間毎に行ったが、一部、1 日~4 日でサンプリングした。採取期間は、2012 年 4 月~2013 年 3 月である。成分測定は、イオンクロマトグラフ法によりイオン成分、TOC 計により水溶性有機炭素 (water-soluble organic carbon:WSOC) を測定した。また、熱分離・光学補正法の Sunset 社製 Carbon Analyzer を用い、IMPROVE プロトコルにより有機炭素 (OC)、元素炭素 (EC) を測定した。 $\delta^{13}\text{C}$  は安定同位体比質量分析計 (Finnigan MAT252) を用いて測定した。<sup>14</sup>C 濃度は、名古屋大学のタンデム加速器質量分析計 (High Voltage Engineering Europe 社製 Model 4130-AMS) を用いて測定し、pMC (% Modern Carbon)、また、pMC から BC (Biomass-derived Carbon)、FC (Fossil-fuel-derived Carbon) を計算した。同位体分析測定は、全炭素 (TC) 中の値である。また(1)については、月毎に数日分を採取順に合わせ (n=26)、測定試料とした。(2)については、一週間毎のサンプル毎に行い、1 日~3 日のサンプルに関しては、合わせて一週間分として測定試料とした。

### 3. 結果

(1) シベリア森林火災による植物起源炭素の輸送について (名古屋)

2003 年 4 月~2004 年 3 月に名古屋で採取した PM<sub>2.5</sub> について、春期は OC、PM<sub>2.5</sub> 質量濃度が高濃度となった。特に 5 月は 2003~2007 年で最も OC が高濃度であった<sup>2)</sup>。また <sup>14</sup>C 濃度より 5 月と 6 月前半に特異的に pMC が高く、BC が高濃度になる結果を得た<sup>3)</sup> (図 1)。各日の OC、OC/EC を見ると、

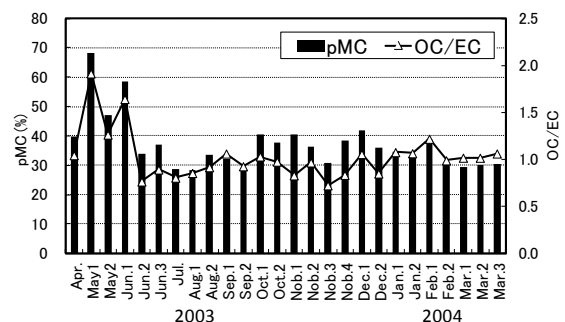


図1 pMCとOC/ECの変動

BCが高い期間中、OCは高濃度でOC/ECは高い傾向があった(図2)。また、後方流跡線解析より、OC/ECが高い日は東シベリアからの気塊が流れ込んでいた。2003年にはシベリアにおいて大規模な森林火災が発生したことが知られており、日本国内でも兼保ら<sup>4)</sup>により、森林火災より発生したエアロゾルが富士山の山頂で観測されている。バイオマス燃焼の指標とされるK<sup>+</sup>は、OC/ECやOCと同じような濃度上昇は見られなかった。森林火災は粒子だけでなくVOCも発生することが知られているため、これらの二次生成粒子が到達し、pMCとOC/ECの上昇に寄与した可能性が考えられる。

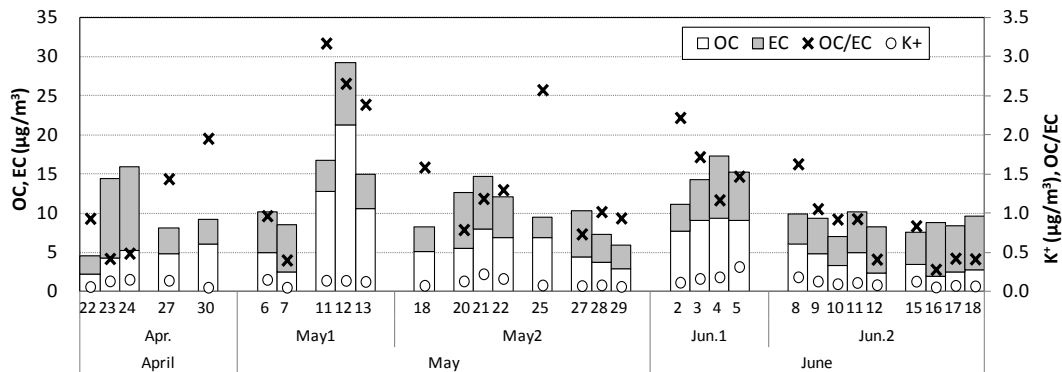


図2 OC、EC、OC/EC、K<sup>+</sup>の変動

(2) 冬季に東アジア大陸からの化石燃料起源炭素の輸送について(福岡)

東アジア大陸に近い福岡の有機炭素に関して、4月から10月の温暖な期間を除いた季節には大陸からの影響が大きいことが報告されている<sup>5)</sup>。今回の測定結果について、冬季(12月~2月)において、越境汚染のマーカールと考えられる硫酸イオン(SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>)とFCは良い相関関係であり(r=0.79, p<0.001, n=14)、また高濃度であった。川島らは大陸からの石炭燃焼由来粒子(-23.3%)により秋田の冬季ECのδ<sup>13</sup>C値が高くなることを報告している<sup>1)</sup>が、福岡のδ<sup>13</sup>C(TC)も1月より上昇しており、石炭燃焼起源の炭素成分が、冬季福岡のFC濃度ならびにδ<sup>13</sup>C値を高くしたことが示唆される<sup>6)</sup>。また、夏季よりも冬季において、WSOCとFCでより良い相関が見られたため(夏:r=0.68, p<0.05, n=12, 冬:r=0.92, p<0.001, n=14)、輸送中に生成した二次粒子が冬季FC中に含まれる可能性が示唆された。有機物が輸送中に酸化されている貴重な知見であると考えられるが、WSOCの<sup>14</sup>C濃度、δ<sup>13</sup>Cの測定や、二次粒子生成の指標となる有機成分の測定などを行って、より詳細な知見を得たい。

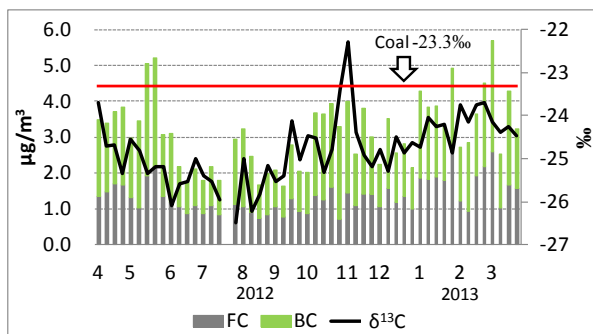


図3 FC、BC、δ<sup>13</sup>Cの変動

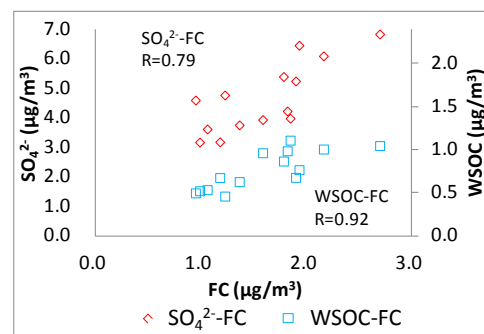


図4 FCとSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>およびWSOCの相関関係

参考文献

- 1) Kawashima, H. et al. Atmospheric Environment 46 (2012) 568-579
- 2) 山神真紀子他, 大気環境学会誌 46(2011) 139-147
- 3) 池盛文数他, 名古屋大学加速器質量分析計業績報告書 (XXII) 162-168
- 4) Kaneyasu, N. et al. Journal of Geophysical Research 112, D13214. doi:10.1029/2007JD008544.
- 5) Kaneyasu, N. et al. Atmospheric Environment (in press)
- 6) 早田葵, 修士論文 (2014)

# 九州・沖縄地区における微小粒子状物質の化学組成

高見昭憲

(国立環境研究所)

## 1. はじめに

東アジア地域、特に中国は経済的発展が著しく、窒素酸化物など大気汚染物質の放出量が増加している。国内の大気汚染物質（二酸化硫黄、窒素酸化物など）は減少傾向にあるが、九州地区では春季にしばしば高濃度のオゾンが観測されている。同時に、粒子状物質（Particulate matter; PM）に含まれる硫酸塩、有機物なども高濃度になることがあり、その要因として、海外からの移流の寄与が挙げられている。国環研では2003年から沖縄で微小粒子状物質（PM）の観測を始め、近年では長崎、福岡において観測を行っている。今回の発表では、九州・沖縄地区におけるPM<sub>2.5</sub>など微小粒子状物質の化学組成について観測結果を中心に紹介する。

## 2. 観測場所と方法

観測場所は、沖縄本島北端の辺戸岬、長崎県福江島、および、福岡市にある福岡大学である（図1）。これらの場所で、エアロゾル質量分析計（Aerosol Mass Spectrometer; AMS）を用いた微小粒子の化学組成の高感度・高時間分解能を行った。AMSは大気中を浮遊する微小粒子を四重極質量分析計で分析し、粒子の化学組成と粒径を高い時間分解能（最高で10Hz、通常は10分）で測定できる装置である（Jayne et al. 2000）（図2）。AMSは大気中の粒子を吸引し、エアロダイナミックレンズにより粒子ビームを生成する。粒子は600°Cに加熱された蒸発器で気化し分子状になる。分子は電子衝撃法でイオン化され、四重極質量分析計で分析される。600°Cで気化しない土壌粒子、金属、BCなどは分析できない。チョッパーと検出器の間の飛行時間（Time-of-Flight）を測定し、粒子直径（真空中の空力学的直径）を計算する。

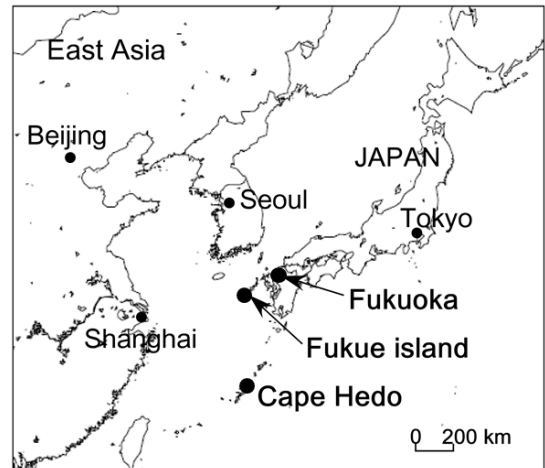


図1 観測場所（沖縄県辺戸岬、長崎県福江島、福岡県福岡市）

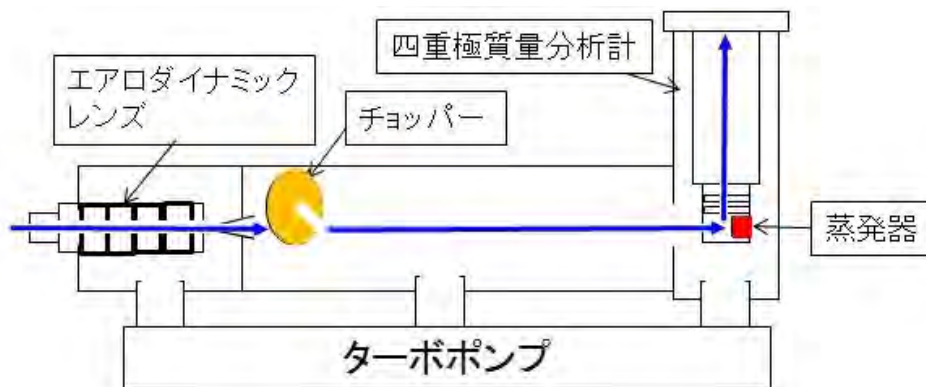


図2 エアロゾル質量分析計の模式図



### 3. 結果と考察

長崎県福江島において AMS で測定した春季の粒子状物質の観測結果について紹介する。図 3 に 2003 年春季に AMS を用いて測定した微小粒子 (PM<sub>1</sub>) の観測結果を示す (Takami et al. 2005)。3 月 25 日ごろは質量濃度が高く硫酸塩も 25  $\mu\text{g m}^{-3}$  を超えている。一方で 3 月 29 日ごろには相対的に有機物濃度が高くなっているのが特徴的である。後方流跡線の軌跡を検討した結果、硫酸塩濃度が高い時は中国大陸から気塊が来ており、有機物濃度が高い時には韓国や日本から気塊が来ていることが明らかになった。2012 年、2013 年にも長崎福江島で同様の観測を行ったが、2013 年の観測が著しくほかの年の観測結果と異なっていたわけではなかった。

沖縄辺戸岬では 2003 年秋から約 10 年間 Tapered Element Oscillating Microbalance

(TEOM) を用いた PM<sub>2.5</sub> の観測を行った。その観測結果によるとこの 10 年間では平均濃度として 15  $\mu\text{g m}^{-3}$  程度で推移しており、著しい増加や減少は見られなかった。辺戸岬でも AMS を用いた観測を行い、微小粒子中では硫酸塩、有機物が主要な化学成分であった。春季にしばしば硫酸塩の高濃度イベントを観測したが、これは前線が東シナ海を通過し、そのあとに高気圧が侵入してくる場合に、空気塊が中国沿岸部から輸送され、高濃度の硫酸塩が観測されることが明らかとなった。(Takami et al. 2007)

福岡大学での観測では、硫酸塩のほかに硝酸塩も観測されており、越境大気汚染と都市内で発生した汚染が混合していることを示唆していた。TEOM による PM<sub>2.5</sub> の観測によると、福岡と長崎福江の濃度変動が類似しており、これは大規模な越境大気汚染が北部九州地区の PM<sub>2.5</sub> の濃度変動を支配していることを示唆していた。

### 4. まとめ

九州・沖縄地区における PM<sub>2.5</sub> など微小粒子状物質の化学組成について、AMS や TEOM を用いた観測結果を中心に紹介した。九州・沖縄地区では春季に高濃度の硫酸塩が観測される。また、北部九州地区 (福岡や長崎) での PM<sub>2.5</sub> 濃度の変動は類似している。これらの現象は、越境大気汚染の影響を受けていると考えられる。

### 参考文献

- Jayne, J. T., Leard, D. C., Zhang, X., Davidovits, P., Smith, K. A., Kolb, C. E., Worsnop, D. R., (2000) Development of an aerosol mass spectrometer for size and composition analysis of submicron particles. *Aerosol Science and Technology* 33, 49–70, doi:10.1080/027868200410840.
- Takami, A., T. Miyoshi, A. Shimono, and S. Hatakeyama (2005), Chemical composition of fine aerosol measured by AMS at Fukue Island, Japan during APEX Period, *Atmos. Environ.*, 39(27), 4913–4924, doi:10.1016/j.atmosenv.2005.04.038.
- Takami, A., T. Miyoshi, A. Shimono, N. Kaneyasu, S. Kato, Y. Kajii, and S. Hatakeyama (2007), Transport of anthropogenic aerosols from Asia and subsequent chemical transformation, *J. Geophys. Res.*, 112, D22S31, doi:10.1029/2006JD008120.

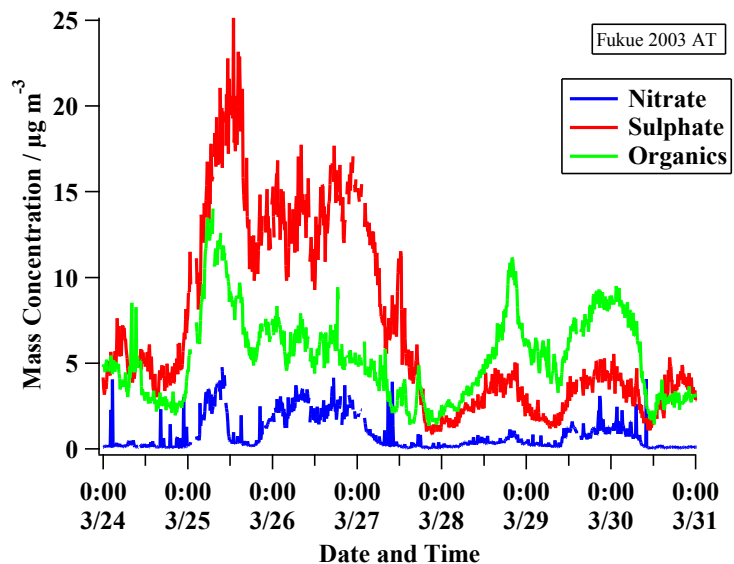


図 3 : 長崎福江島での観測結果

# 常時監視データから見た過去4年度のPM<sub>2.5</sub>広域分布状況

清水厚  
(国立環境研究所)

## 1. はじめに

2010年度から現在までに全国の大気汚染常時監視測定局において計測されたPM<sub>2.5</sub>重量濃度(確定値およびそらまめデータ)を利用して、(1)統計的に見た濃度分布の特徴、(2)これまでに見られた全国的な濃度上昇イベントの実態、について報告する。

## 2. 利用データと手法

2010/11年度については公開されている確定値、12年度については国立環境研究所環境情報部情報整備室に集約された準確定値、13年度についてはそらまめに掲載されたデータ(14年1月29日まで)を独自にアーカイブしたものを利用した。以後の議論では1日20時間以上観測データが存在する局のみで計算した日平均値を利用する。この際、環境基準適用除外局は除いている。4年間に測定局数が増えているため、全データを利用した統計結果は後年度の影響が強い。一方測定局の地理分布が変わった点については、継続局(2010年から2012年度までに毎年250日以上の有効データがあった局)データのみを利用した場合と全局のデータを利用した場合とで月平均値や35ug/m<sup>3</sup>以上となった局の割合などに大きな差がないことが第4回PM<sub>2.5</sub>専門家会合において報告されているため、ここでは全局のデータを利用した結果を示す。また以下で西日本は近畿以西、東日本は中部(三重県を含む)以東とした。

## 3. 濃度分布の統計的な特徴

一般大気環境測定局(一般局)における4年分の日平均値全てのデータを利用して1ug/m<sup>3</sup>刻みでヒストグラムを作成したものが図1である。15—65ug/m<sup>3</sup>の範囲で概ね片対数の分布となっており、その傾きには東西日本で差がある。またモードは西日本の方がわずかに高く、70ug/m<sup>3</sup>を越えるデータは西日本のものが殆んどである。これを累積頻度分布で表示すると図2となり、東西日本での分布の差は低濃度から見え始めている。短期のPM<sub>2.5</sub>環境基準では地点毎の98パーセンタイル値を見るが、全データの98パーセンタイルを見ると西日本では41ug/m<sup>3</sup>、東日本で35ug/m<sup>3</sup>であり、各地点毎に毎年これと同じような分布が見られるものではないとしても短期基準を達成することが困難であることを示唆している。長期基準である15um/m<sup>3</sup>についても、この範囲内に収まるデータが西日本では60%未満(つまり40%以上のデータは15ug/m<sup>3</sup>以上)となっている。なお同様の頻度分布で見る限り、一般局と自動車排出ガス測定局(自排局)との間での差は小さかった。また年度毎の変化を調べると、高濃度の出現頻度については漸減傾向が見られた(いずれも図は省略)。

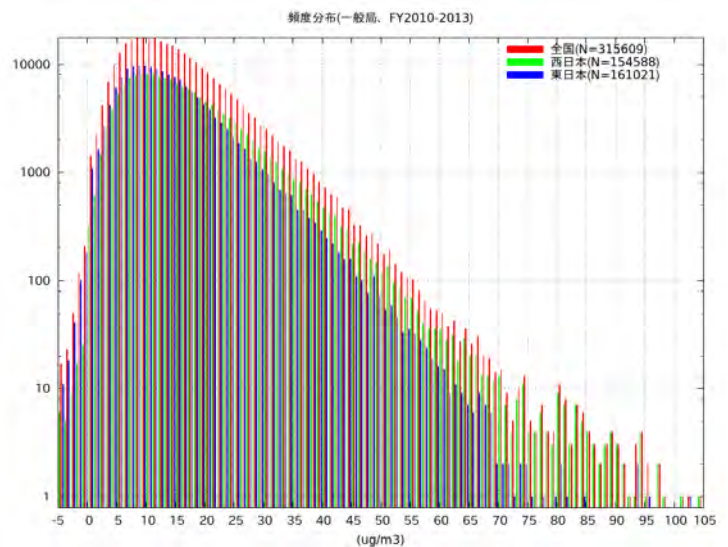


図1:一般局におけるPM<sub>2.5</sub>日平均値の出現頻度分布。

#### 4. 全国的なPM<sub>2.5</sub>上昇イベント

日平均値が 35ug/m<sup>3</sup> を超過した地点数が全国の測定局に占める割合(超過率)が高かった日を PM<sub>2.5</sub> 広域上昇日として表 1 にまとめた。過去 4 年度でもっとも超過率が高かった日は 2010 年 5 月 5 日で、超過率は 86%であった。ただしこの日の全国平均濃度は他の上昇日に較べて高い訳ではなく、70ug/m<sup>3</sup> を越えた地点もなかった。2 番目に超過率が高かった 2011 年 5 月 2 日は平均濃度がこれまでで最も高く、70ug/m<sup>3</sup> を越えた地点も翌 5 月 3 日に次いで多いなど、上昇イベントの中でも大規模なものであったと言える。また黄砂観測地点数から見られる通り、この期間は黄砂の影響が強かった。超過率上位 20 日の内訳を見ると、そのうち 15 日は前後どちらかの日がやはり 20 位以内に入っており、全国的に高濃度となった場合にはその影響は長時間持続することが分かる。また 20 位中、黄砂観測が報告された日は 9 日を占め、極端な濃度上昇に黄砂の与える影響が大きいことが示された。

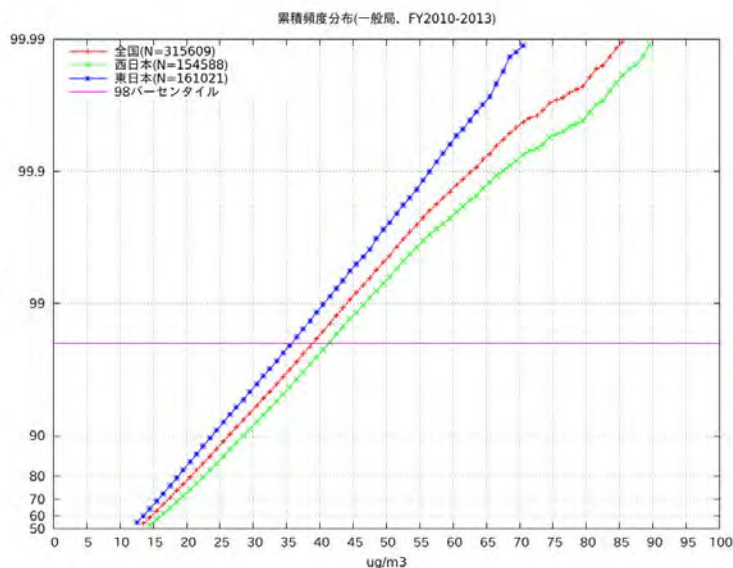


図 2: 一般局における PM<sub>2.5</sub> 日平均値の累積頻度分布。

表 1: 超過率が高かった 20 日のまとめ。超過率の単位は%、平均濃度の単位は ug/m<sup>3</sup>。黄砂地点数は全国 60 の気象官署中その日に黄砂を観測した地点数、イベントは表内で 2 日以上連続した日について分類したもの。

年月日	有効局	35超過率	70超過率	全国平均濃度	黄砂地点数	イベント
20100505	43	86.0	0.0	41.3	26	A
20110502	100	85.0	20.0	51.7	42	B
20130811	445	80.7	0.0	40.4	0	C
20110205	45	77.8	11.1	50.8	0	D
20110206	45	77.8	11.1	51.3	0	D
20101113	43	74.4	2.3	45.3	29	E
20130810	447	72.7	0.0	40.0	0	C
20101114	44	68.2	0.0	41.4	28	E
20120509	303	65.3	0.7	39.8	0	
20130309	397	64.2	0.5	39.1	30	
20111013	138	63.8	0.0	37.2	0	F
20130809	445	61.1	0.0	34.6	0	C
20100521	44	59.1	2.3	39.5	23	
20110207	43	58.1	2.3	39.2	0	D
20120424	303	58.1	0.3	35.6	21	
20111011	137	57.7	0.0	35.6	0	F
20111012	139	54.7	0.0	35.0	0	F
20110503	101	54.5	21.8	45.1	37	B
20100504	43	53.5	0.0	36.4	31	A
20101108	42	52.4	0.0	31.8	0	

## 緊急時環境調査検討：US EPA 視察報告

鈴木規之・○中山祥嗣・平山修久

(国立環境研究所・緊急時環境調査体制検討タスクフォース)

### 1. 緊急時環境調査体制検討タスクフォースの活動について

有害物質やその影響についての平常時の環境監視体制はすでに確立されてきた。しかし、東日本大震災後の非常時緊急調査の経験から、非常時・緊急時の迅速な体制の不備が認識され、国・地方自治体とともに地方環境研究所と国立環境研究所との間で非常時・緊急時の対応体制の必要性が認識された。このため、平成 25 年 2 月に国立環境研究所内の関連する複数の研究センターからなる緊急時緊急調査体制整備検討タスクフォースチームを組織し、現在検討を行っているところである。

### 2. これまでの検討状況

タスクフォースでは、非常時緊急調査、特に有害物質やその影響に関する非常時緊急調査について、以下のように課題を整理した。

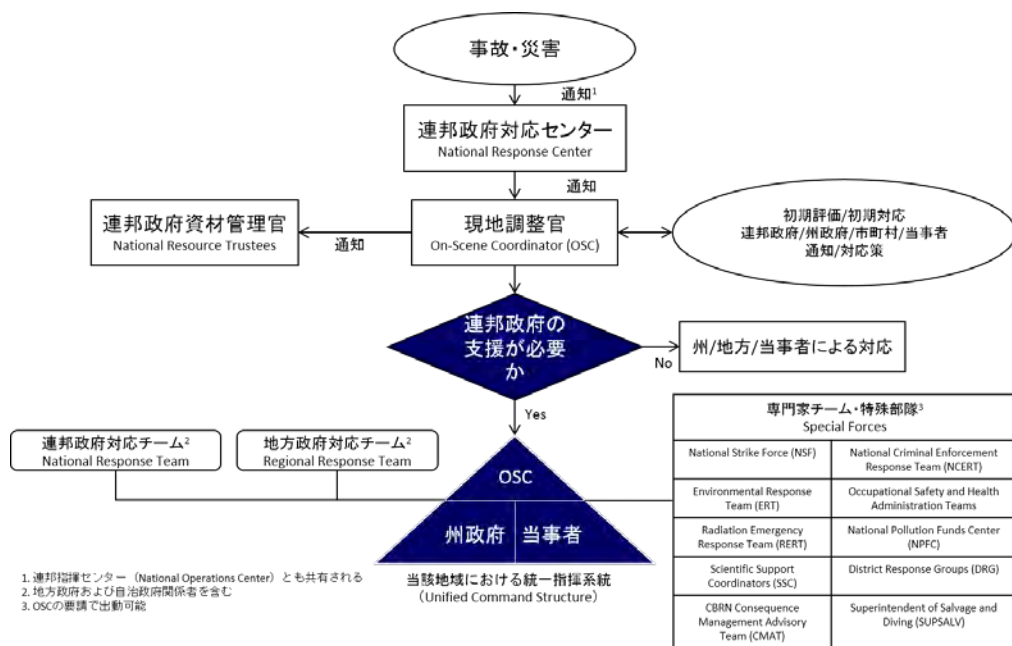
- 調査すべき物質に関して、物質リスト、毒性、用途、使用状況、使用場所などの情報整備
- 調査の方法について、非常時における試料採取方法、分析法、対象物質・感度・試料適応、機器などの体系的構築
- 調査の体制について、地方自治体・地方環境研究所、国立環境研究所や国などの協力関係、役割、情報共有、人のネットワークの構築
- 調査結果の評価の考え方、現地や市民への説明の考え方などの検討
- 地方自治体・地方環境研究所等における過去の事故事例の経験や知見の情報集積と自治体・国にまたがる経験共有の重要性
- 国外における緊急時調査、体制の調査の必要性

### 3. 米国環境保護庁（US EPA）視察

上記検討を受けて、日本における緊急時環境調査体制整備のために、国外における体制やシステムの調査を行うこととなったが、かねてより環境省を通じて福島第一原子力発電所事故に関する協力関係にあった米国環境保護庁（EPA）より、視察協力申し出があったため、2013 年 11 月 4 日から 7 日にかけて EPA 本庁および EPA 所管研究所の視察を行った。

米国では、連邦石油・有害物質汚染事故対応計画（National Oil and Hazardous Substances Pollution Contingency Plan あるいは National Contingency Plan: NCP）の元に各政府各省庁の役割が定められている。NCP のもとでの緊急時対応体制を図に示す。

大小の事故・災害に関する情報は一箇所（連邦政府対応センター：National Response Center）に集められ、連邦政府の支援が必要かどうか判断される。連邦政府の支援が必要ないと判断された場合には、州政府、地方政府または当事者に対応がゆだねられる。連邦政府の支援が必要と判断された場合（州境を超えるなど一定レベル以上の事故・災害の場合は自動的に）は、全米に配置された EPA（または沿岸警備隊）職員である現地調整官（OSC）を頂点とし、州政府や当事者を含んだ統一指揮系統が構築される。また、現地調整官が必要に応じてさまざまな政府機関、軍組織などの動員を要請し、それらの指揮を行う体制がとられている。大小どのような緊急時でも、現地調整官を中心として、地方、州、連邦レベルでの対応体制を即座に構築できる体制が組み立てられている。



(EPA 提供資料の日本語訳)

#### 4. 考察

今回の視察では、9.11 テロや炭疽菌テロから、ハリケーン被害、竜巻や洪水災害への対応など、緊急調査体制およびそれにもとづいた先進的な活動を学んだ。

米国では、過去の事例とそれに対する対応を記録し科学的に検証することで、徐々に現在の緊急対応体制を構築してきた。国家緊急事態対応計画 (NCP) のもと、発生した事態に対応して、複数の省庁、研究所、州、地方行政機関などから構成される体制が柔軟に構築され、主導官庁が情報や資源を調整しつつ調査を進める体制が作られている。緊急時にこのような横断的チームを迅速に構築するために全米に配置された現地調整官 (OSC) が重要な役割を果たしている。現地調整官を中心にした平時からの政府や研究機関内の関係者間の信頼構築活動が、小さな事態の継続的経験や実地訓練により進められている点が印象的であった。何よりも、緊急時に現地調整官が電話一本で専門家から信頼の得られる情報を得ることができ、かつ過去に学び次の緊急時に備えた具体的な研究・技術開発を専門家とともに両方向の関係構築を行っていることは注目に値する。

また、EPA は全米数か所で、州や地方政府機関では対応しきれない技術的支援を行う複数の組織 (数十人規模の研究者、技術者組織) を整備している。それらの組織では、緊急時環境調査方法や現場投入可能な分析機器などの開発が行われており、さらに人的資源や移動実験室なども常備されている。これらもまた事例の継続的経験で維持されており、学ぶべき点であると思われる。

米国においては、緊急事態に対して、最大の事態の場合大統領直轄で活動し、より小さな事態の場合にはより小さな形で活動するという、柔軟な組織構成を可能にする体制が構築されている (統一指揮系統、Unified Command System)。そこで最も重要視されているのは、市民に対して緊急時の環境状況を統一見解で発表、共有する仕組みである。そのための情報収集活動も組織的に行われており、政府機関やその代表者の発言が混乱しないような組織と仕組みを作り上げている点は、非常に参考になった。また、メディアや市民とのコミュニケーションに慣れていない現場対応スタッフや、緊急事態時の広報担当者に対して、リスクコミュニケーションに関する支援を行っている点も注目される。

今後は、米国以外の国のシステムも参考にしながら、日本における緊急環境調査体制において、国立環境研究所が諸関係機関とともに果たすべき役割について、検討・研究を進めていきたい。

国立環境研究所・緊急時環境調査体制検討タスクフォース

鈴木規之、中島大介、今泉圭隆、松崎裕司、平山修久、高澤嘉一、中山祥嗣

# リセプターモデルを用いた PM<sub>2.5</sub> の発生源寄与解析

飯島 明宏

(高崎経済大学・国立環境研究所客員研究員)

## 1. はじめに

PM<sub>2.5</sub> に係る環境基準が告示され、質量濃度および成分濃度の全国的な常時監視体制が構築されつつある。平成 24 年度の PM<sub>2.5</sub> 環境基準達成率は一般局で 43.5%、自排局で 33.9% と低い。有効な対策の立案には、発生源寄与に関する知見の集積が不可欠である。リセプターモデルは、任意の地点で観測された成分組成や濃度変動を基に、その観測点に影響を及ぼしたであろう各種発生源の寄与濃度を統計的に推定するツールである。本報では、環境省環境研究総合推進費（5B-1101）『全国環境研究機関の有機的連携による PM<sub>2.5</sub> 汚染の実態解明と発生源寄与評価』において得られた観測データに対し、正値行列因子分解（PMF）モデルを適用した事例を紹介する。

## 2. 方法

本報で紹介する解析では、2012 年夏（7/25-31）および 2013 年冬（1/23-2/8）に行われた集中観測において得られた成分濃度データのうち、項目が揃っている対馬、福岡、京丹後、滋賀、東大阪のデータを利用している。観測および成分分析の詳細については既報<sup>1)</sup>を参照されたい。

用いた PMF モデルは、EPA PMF 3.0 である。まず、マスクロージャーモデルを用いて外れ値をスクリーニングした。続いて、任意の因子数を与えて解析を実行し、Q 値および残差分析の結果を参照しつつ不確かさパラメータを調整した。以上のプロセスを繰り返し、因子数および計算条件の最適化を行った。

## 3. 結論および考察

### 3.1. 因子プロファイルの発生源割り当て

計算条件を検討した結果、因子数 6 で最適解が得られた。分解された 6 因子のプロファイルを図 1 に示す。以下、各因子の指標成分に注目して発生源の候補を考察していく。

- Factor 1 : K<sup>+</sup> に指標性が見られる。K<sup>+</sup> は一般にバイオマス燃焼の指標とされている。
- Factor 2 : SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、OC、Soot-EC、V 等に指標性が見られる。Sulfate の影響を表す因子であるが、OC、Soot-EC、V の存在は前駆体ガスが重油燃焼に由来する可能性を示唆している。

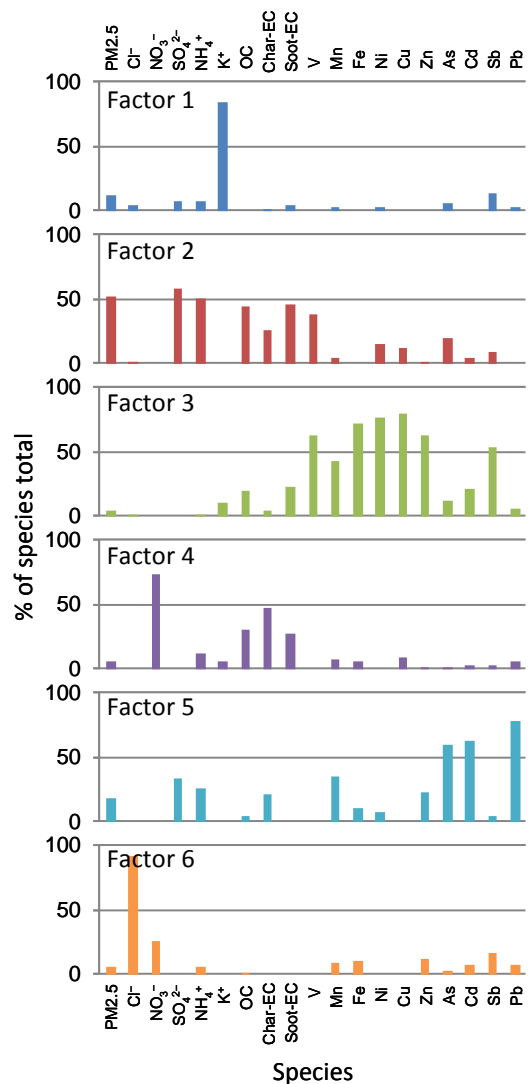


図 1 分解された 6 因子のプロファイル

- Factor 3 : 多種の金属元素に指標性が見られる。個別の発生源を推定することは困難であるが、ここでは工業由来の因子と位置付けることにする。
- Factor 4 :  $\text{NO}_3^-$ 、OC、Char-EC、Soot-EC に指標性が見られる。Nitrate の影響を表す因子であるが、OC、Char-EC、Soot-EC の存在から自動車の影響を含む因子と読みとることもできる。
- Factor 5 :  $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NH}_4^+$ 、Char-EC、As、Cd、Pb 等に指標性が見られる。Factor 2 と同様に Sulfate の影響を表す因子であるが、Char-EC、As、Cd、Pb の存在は前駆体ガスが石炭燃焼に由来する可能性を示唆している。
- Factor 6 : Cl<sup>-</sup>、 $\text{NO}_3^-$  に指標性が見られる。半揮発性を有する  $\text{PM}_{2.5}$  の影響を表す因子と読み取れる。

### 3.2. 因子寄与濃度の推移

図 2 に 2012 年夏季および 2013 年冬季の調査期間における後方流跡線（福岡を起点に計算）の分布と因子寄与濃度の推移（福岡と東大阪）を示す。夏季調査では、福岡に流入した気塊は太平洋から九州上空を經由（東大阪では瀬戸内海から大阪湾を經由）していた。 $\text{PM}_{2.5}$  高濃度化の要因は、全ての地点で因子 2 の寄与濃度の増大によるものであった。一方、冬季調査では、福岡に流入した気塊は大陸から東シナ海を經由（東大阪では朝鮮半島から日本海を經由）していた。夏季調査と異なり、因子 2 に加えて因子 5 の寄与濃度の増大が  $\text{PM}_{2.5}$  の高濃度化に影響していた。また、その傾向はより西方に位置する福岡や対馬で顕著であった。一方、大都市に位置する東大阪では因子 3 や因子 6 の影響も重要であった。このことから、都市域では近傍の発生源も重要な寄与体であることが確認された。

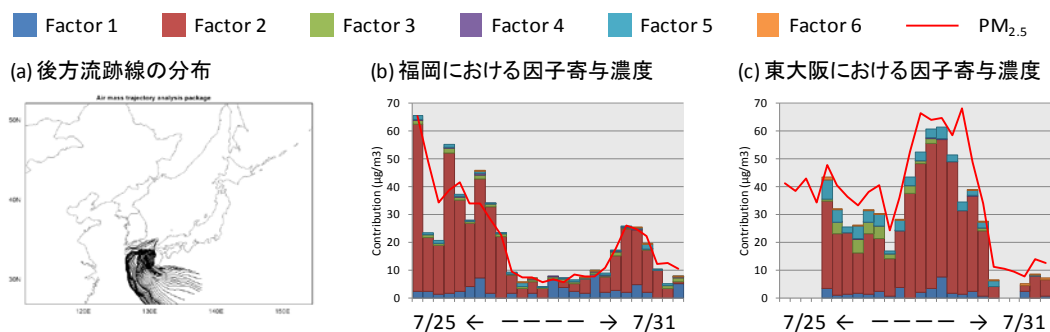


図 2 2012 年夏季 (7/25-7/31) の因子寄与濃度の推移

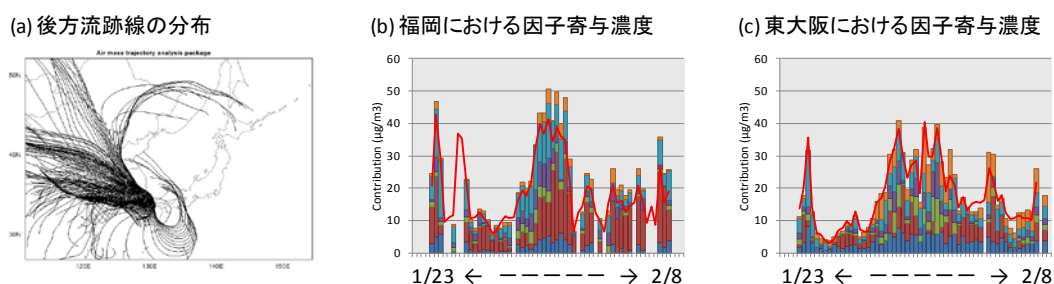


図 3 2013 年冬季 (1/23-2/8) の因子寄与濃度の推移

【謝辞】 本研究は、環境省環境研究総合推進費（5B-1101）『全国的环境研究機関の有機的連携による  $\text{PM}_{2.5}$  汚染の実態解明と発生源寄与評価』において実施されたものである。記して謝意を表す。

#### 参考文献

- 1) 菅田誠治 他: 第 53 回大気環境学会年会講演要旨集, p.419, 2012.

# 兵庫県における PM<sub>2.5</sub> の発生源同定

○中坪良平<sup>1</sup>・常友大資<sup>2</sup>・松村千里<sup>1</sup>・平木隆年<sup>1</sup>・齊藤勝美<sup>3</sup>・余田佳子<sup>4</sup>・島正之<sup>4</sup>  
(<sup>1</sup>ひょうご環境創造協会 兵庫県環境研究センター・<sup>2</sup>兵庫県中播磨県民局・  
<sup>3</sup>富士通クオリティ・ラボ・環境センター・<sup>4</sup>兵庫医科大学)

## 1. はじめに

大気中微小粒子状物質 (PM<sub>2.5</sub>) の環境基準達成率は低く、低減対策に資する発生源情報の収集は喫緊の課題である。本研究では、兵庫県における PM<sub>2.5</sub> の発生源同定を目的とし、兵庫県内の 2 地点で捕集した PM<sub>2.5</sub> の成分濃度データを用いて、レセプターモデルの一種である Positive Matrix Factorization (PMF) による解析を行い、PM<sub>2.5</sub> に寄与を及ぼす発生源因子を抽出するとともに、気塊の後方流跡線を用いて遠方の発生源位置を推定する手法である Potential Source Contribution Function (PSCF) による解析を行った。



図1 PM<sub>2.5</sub> の捕集地点  
(a)須磨、(b)飾磨

## 2. 方法

### 2.1 PM<sub>2.5</sub> の捕集

PM<sub>2.5</sub> の捕集は、神戸市須磨区の兵庫県環境研究センター屋上（地上高約 25m、以下「須磨」と称す）と、姫路市飾磨区の姫路市飾磨市民センター屋上（地上高約 20m、以下「飾磨」と称す）の 2 地点で行った（図1）。捕集期間は、2011 年 5 月～2013 年 2 月にかけて 24 時間周期の連続捕集を各季節 20 日間ずつ実施した。須磨では、

FRM-Plus2025 (Thermo 社、流速 16.7L/min) を使用し、PTFE フィルタ (Whatman 社 PM<sub>2.5</sub> フィルタ) 及び石英繊維フィルタ (PALL 社 2500QAT-UP) に捕集した。飾磨では、分級流速が 10.0L/min に設計されたマルチノズルカスケードインパクト (東京ダイレック社) を NILU フィルタフォルダに装着し、PTFE フィルタ (Pall 社 Teflo 又は Whatman 社 PM<sub>2.5</sub> フィルタ) 及び石英繊維フィルタ (同上) に捕集した。

### 2.2 質量濃度及び成分濃度の測定

質量濃度は秤量法 (Sartorius 社、SE2-F、条件：温度 21.5±1.5℃、相対湿度 35±5%)、炭素成分 (2 項目) は IMPROVE 法 (Sunset Laboratory 社)、イオン成分 (8 項目) はイオンクロマトグラフィー (DIONEX 社、ICS-2100)、無機元素成分 (29 項目) は誘導結合プラズマ質量分析 (ICP-MS) 法 (Thermo 社、X series 2) により測定した。

### 2.3 PMF 及び PSCF による解析

PMF には、米国環境保護庁の EPA-PMF3.0 を使用した。PMF では外れ値の再現が難しいため、各日の成分濃度データをマスクロージャーモデルにより検証した。検証の結果、須磨は 145 日間、飾磨は 134 日間の成分濃度データを採用し、両地点のデータを同一のマトリクスとして PMF に用いた。PSCF に用いる後方流跡線は、NOAA-HYSPLIT モデルを使用し、観測地点上空 500m、1000m 及び 1500m を起点に、1 時間毎の後方流跡線を 3 元法により 120 時間遡って作成した。なお、気象データには NCEP-GDAS の 1 度グリッドデータを使用した。下式により定義される PSCF 値を計算し、地図上に示した<sup>1)</sup>。

$$PSCF_{ij} = m_{ij} / n_{ij}$$

$n_{ij}$ : 全ての後方流跡線が任意の範囲 (緯度:  $i \sim i+0.5$  度、経度:  $j \sim j+0.5$  度) を通過した回数

$m_{ij}$ : 因子寄与濃度が上位 25% の後方流跡線が任意の範囲 (同上) を通過した回数



### 3 結果及び考察

#### 3.1 PMFによる発生源因子の抽出

PMFにより、土壌・製鋼業、塩酸・硝酸系二次粒子、海塩、硫酸系二次粒子、自動車、石炭燃焼、重油燃焼を表すと考えられる7つの因子が抽出された。図2に、各因子の寄与濃度の季節別積み上げグラフを示した。硫酸系二次粒子は、両地点で春季と夏季に高くなった。一方、石炭燃焼は、須磨では冬季に最も高く、飾磨では夏季に最も高くなった。また、重油燃焼は、飾磨に比べて須磨で高くなり、石炭燃焼と重油燃焼は、調査地点周辺の発生源の影響を受けている可能性が示唆された。

#### 3.2 PSCFによる発生源位置の推定

図3に、因子プロファイルにSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の負荷が大きかった因子のうち、石炭燃焼を表す因子のPSCF値の分布を示した。石炭燃焼のPSCF値は、須磨では中国東部の山東半島周辺で高くなり、中国の人為活動の影響を受けている可能性が示唆された。一方、飾磨では日本南部の海上で高くなった。石炭燃焼を表す因子は、飾磨では夏季に最も高くなる傾向があり（図2）、海上での高値は、季節的な影響を受けていると考えられた。PSCF値は、因子寄与濃度が高濃度時の潜在的な発生源の位置を示しており、飾磨では、中国からの影響以外にも、高濃度になる要因の存在が推測された。

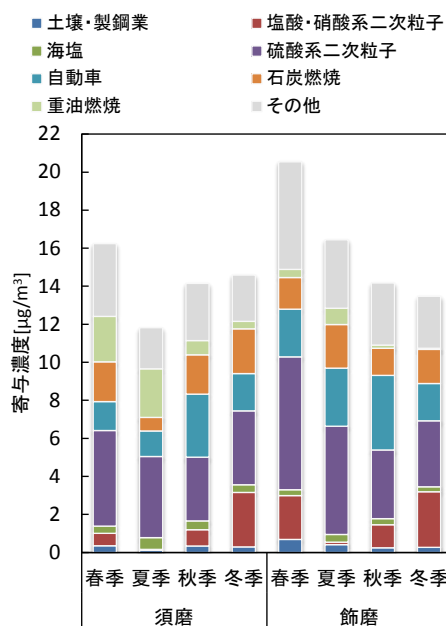


図2 因子寄与濃度の季節別の積み上げグラフ

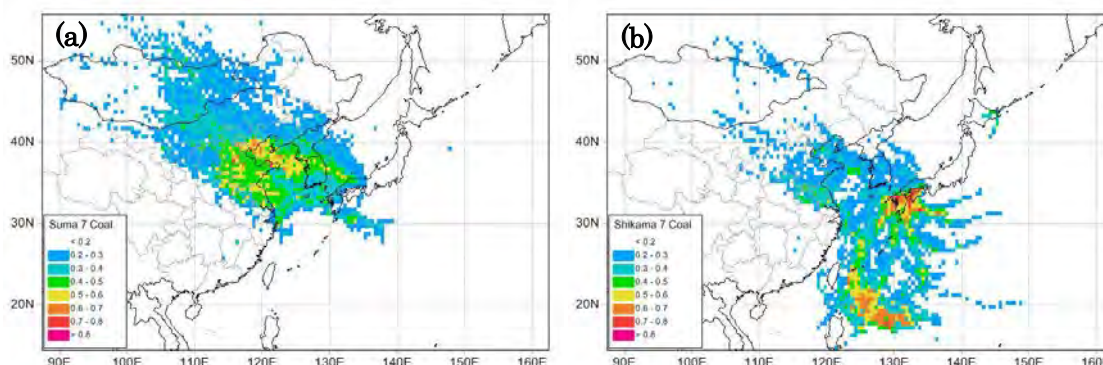


図3 石炭燃焼を表す因子のPSCF値の分布図 ((a)須磨、(b)飾磨)

#### 4. まとめ

兵庫県内の2地点で捕集したPM<sub>2.5</sub>の成分濃度データを用いてPMFによる解析を行い、7つの発生源因子を抽出した。両地点とも硫酸系二次粒子の寄与が最も大きかったが、自動車や重油燃焼など地点間で寄与濃度に差のみられる因子もあった。また、PSCFによる解析から、石炭燃焼を表す因子は、飾磨では、中国からの影響以外にも高濃度になる要因の存在が推測された。

#### 5. 謝辞

本研究の一部は、環境省・環境研究総合推進費（課題番号：C-1005）の支援を受けて実施した。

#### 参考文献

- 1) Wang, Y.Q., Zhang, X.Y. and Draxler, R. : GIS-based software that uses various trajectory statistical analysis methods to identify potential sources from long-term air pollution measurement data. Environmental Modelling & Software. 24, 938-939 (2009)

# 大気微小粒子に対する直噴ガソリン車など各種発生源の寄与

伏見 暁洋

(国立環境研究所)

## 1. はじめに

大気中の微小粒子 ( $PM_{2.5}$ : 粒径  $2.5\mu m$  の粒子を 50% カットした粒子) は人の健康に悪影響を及ぼすと考えられている。日本では 2009 年 9 月に  $PM_{2.5}$  に対する環境基準が定められたが、 $PM_{2.5}$  濃度は基準値を超過しているところが多く、その起源や動態の把握が急がれている。 $PM_{2.5}$  は様々な起源をもつ複雑な混合物であり、大気中に粒子状で直接排出される一次粒子のほか、大気中での反応でガス成分から生成される二次生成粒子が大きな割合を占める。しかし二次生成粒子の起源や生成メカニズムは特に有機物に関して複雑で、いまだに不明な点が多く残されている。これまで、大気中の粒子状物質に対する各種発生源の寄与を推定するため、粒子中の金属元素や炭素成分 (元素状炭素と有機炭素) の測定結果を用いたケミカルマスバランス法 (CMB 法、統計的手法の一つ) がしばしば用いられてきた。

本稿ではまず、CMB によって推定された発生源別寄与が最近約 20 年の間にどう変化してきたかを概観する。その後、微小粒子の主要な発生源である自動車についての最近の重要なトピックである『直噴ガソリン車からの粒子排出』に関して、我々の研究成果を紹介する。

## 2. CMB 法に基づく発生源寄与率の推移

CMB による推定結果によると、東京やその郊外において、 $PM_{2.5}$  や浮遊粒子状物質 (粒径  $10\mu m$  の粒子を 100% カットした粒子) に対する自動車排気粒子 (大半がディーゼル車起因) の寄与率は 1984~1985 年には 55% であったが<sup>1)</sup>、1997~1998 年には 24~37% に減少し<sup>2)</sup>、2007 年夏季には 12% まで低下した<sup>3)</sup>。このように、自動車排気粒子の寄与率は年々低下してきているが、それでも一次粒子の発生源の中では最大の寄与を示す重要な発生源である。一方、二次生成粒子 ( $SO_4^{2-}$ ,  $NO_3$ ,  $Cl$ ,  $NH_4^+$  等) の寄与率は、1984~1985 年に 17%、1997~1998 年に 15~27%、2007 年夏季に 50% と推定されており<sup>1~3)</sup>、自動車排気粒子とは対照的に年々増加する傾向が伺える。

## 3. 最近の直噴ガソリン車からの微小粒子の排出

近年、ハイブリッド車と同等の燃費性能を示す筒内直接燃料噴射式のガソリン車 (直噴ガソリン車) が、欧州や日本の市場に投入され始めた。ところが、直噴ガソリン車からは、従来のガソリン車 (ポート噴射ガソリン車) では問題視されなかった粒子状物質の排出が確認されている。直噴ガソリン車からの粒子排出については、欧州での粒子規制に対応した研究は行われてきたが、大気環境への影響や毒性を考えるうえで重要な化学組成に関する研究や、粒子の排出抑制策を検討する際に欠かせない粒子の起源に関する研究はあまり報告されていない。そこで我々は、最近の直噴ガソリン車を対象に、粒子状物質の排出量や粒径分布、化学組成、起源等を明らかにすることを目的に研究を行った<sup>4~7)</sup>。

排出ガス試験は 2011 年式直噴ガソリン乗用車 2 台 (国内及び欧州メーカー製各 1 台) と、比較のため 2007 年式ポート噴射ガソリン車 (国産直噴ガソリン車と同じ車種) の計 3 台を対象に行った。具体的には、排気粒子に関して、(1) 個数濃度と粒径分布の測定、(2) 重量の計測、(3) 化学組成 (炭素成分、元素、イオン、有機成分) の分析のほか、(4) 国産直噴ガソリン車については粒径別に組成分析を行った。さらに起源推定のため、(5) ガソリンとエンジンオイルの化学組成分析も行った結果、以下のことがわかった。

(1) 国産直噴ガソリン車からの粒子個数の排出係数は、ポート噴射ガソリン車の約 20 倍であり、欧州産直噴ガソリン車は、ポート噴射ガソリン車の約 100 倍であった。参考までに、粒子個数の排出係数を欧州の規制値と比較すると、直噴ガソリン車 (国産及び欧州産) は、2017 年実施予定

の規制値を上回っていた。

- (2) 粒子重量の排出係数についても、直噴ガソリン車（国産車、欧州産車）はポート噴射ガソリン車より多いが、希薄燃焼方式の直噴ガソリン乗用車に対する国内規制値よりは低い値だった。
- (3) 排気粒子の主成分は元素状炭素（いわゆるスス）であり、国産ポート噴射ガソリン車では粒子重量の約7割、国産直噴ガソリン車では約8割、欧州産直噴ガソリン車では約9割以上を占めた。
- (4) 国産直噴ガソリン車からの排気粒子中の有機炭素や元素に対して、エンジンオイルの寄与は10～30%程度であり、大半はガソリン燃料起源と推定された。よって、粒子の主成分である元素状炭素に対してもガソリン燃料の寄与が大きいと推測された。

全国の自動車からの粒子排出量は、2010年にはディーゼル車が100%を占めると推計されているが、ポート噴射ガソリン車が全て直噴ガソリン車に置き換わるという極端なケースを仮定し、今回の実験から得られた欧州産直噴ガソリン車の排出係数に基づき2020年の排出量を見積もると、3割強を直噴ガソリン車が占めると推定された。

#### 4. おわりに

微小粒子の発生源解析のためのツールとしてCMBは有用であるが、元素や炭素成分によるCMBでは、有機物を主体とする粒子の発生源（野焼きや調理等）や二次有機粒子に関しては推定精度が下がる。よって、こういった発生源の指標になる有機成分を発生源や大気環境で測定したり、それらに基づくCMB解析を進めることが重要である。

自動車は依然として重要な発生源であり、排気対策の強化や新型車への代替によりディーゼル車からの排出が減ってくると、ガソリン車からの粒子排出も無視できなくなることが予想される。直噴ガソリン車については、より詳細な排出実態調査や環境影響評価、追加的な排気対策の必要性など、環境影響の未然防止の観点から、様々な研究や対策が求められる。また、従来型ガソリン車からの一次粒子・二次粒子に関しても、その排出量推計や環境影響評価について、最新の知見をふまえた再検討が必要と思われる。

#### 謝 辞

直噴ガソリン車に関する研究は、国立環境研究所の近藤美則博士、高見昭憲博士、小林伸治博士、田邊潔博士、齊藤勝美博士、藤谷雄二博士と共同で実施した。排気ガス試験は(株)堀場テクノサービスの今野秀徳氏に、フィルター試料の秤量と炭素分析は国立環境研究所の千葉真紀氏にご協力頂いた。これらの方々に謝意を表す。

#### 参考文献

- 1) 芳住邦雄・渡辺武春・石井康一郎・吉岡秀俊・朝来野国彦・田村建夫・菅道彦・吉野昇：東京都における浮遊粒子状物質へのリセプターモデルによる発生源寄与の評価。東京都環境科学研究所年報1989, 3-10 (1989)。
- 2) 溝畑朗：PM<sub>2.5</sub>問題の背景と課題。エアロゾル研究, 16, 34-36 (2001)。
- 3) 高橋克行・伏見暁洋・森野悠・飯島明宏・米持真一・速水洋・長谷川就一・田邊潔・小林伸治：北関東における微小粒子状物質のレセプターモデルと放射性炭素同位体比を組み合わせた発生源寄与率推定。大気環境学会誌, 46, 3, 156-163 (2011)。
- 4) 国立環境研究所記者発表：最近の直噴ガソリン乗用車からの微粒子排出状況。(2013年12月16日)。  
<http://www.nies.go.jp/whatsnew/2013/20131216/20131216.html>
- 5) 近藤美則・小林伸治・伏見暁洋・齊藤勝美・藤谷雄二・高見昭憲・田邊潔：直噴ガソリン乗用車の粒子状物質排出特性一個数濃度と走行条件との関係。自動車技術会2013年春季大会, 前刷集85-13, 11-14, 433-20135505 (2013)。
- 6) 伏見暁洋・齊藤勝美・小林伸治・近藤美則・藤谷雄二・高見昭憲・田邊潔：直噴ガソリン乗用車の粒子状物質排出特性一粒径別化学組成と形態。自動車技術会2013年春季大会, 前刷集85-13, 15-18, 434-20135506 (2013)。
- 7) 小林伸治・近藤美則・伏見暁洋・藤谷雄二・齊藤勝美・高見昭憲・田邊潔：直噴ガソリン乗用車の粒子状物質排出特性。自動車技術会論文集, 43, 5, 1009-1014, 20124641 (2012)。

# 化学輸送モデルを用いた PM<sub>2.5</sub> の発生源解析の現状と課題

○森野悠<sup>1)</sup>、茶谷聡<sup>2)</sup>、嶋寺光<sup>3)</sup>、森川多津子<sup>4)</sup>、速水洋<sup>5)</sup>、大原利真<sup>1)</sup>

<sup>1)</sup>国立環境研究所、<sup>2)</sup>豊田中央研究所、<sup>3)</sup>大阪大学、<sup>4)</sup>日本自動車研究所、<sup>5)</sup>電力中央研究所

## 1. はじめに

PM<sub>2.5</sub>の発生源対策に向けて、発生源解析や二次生成機構の解明などの研究が必要とされている<sup>1)</sup>。これらの研究においては、非線形の粒子生成過程やマルチスケールの輸送を計算できるシミュレーションモデル(化学輸送モデル、CTM)が果たす役割は大きい。ただ、CTMによる濃度計算結果は入力データ(境界濃度・排出量など)、気象データ(風系・気温・水蒸気量など)、物理・化学過程の計算モジュール、計算領域やグリッド設定など、多くの要因によって支配されるために不確実性が大きいという問題がある。本発表では、CTMを用いた発生源解析の手法、およびCTMの課題である不確実性の評価事例について示す。

## 2. CTMを用いた発生源解析手法

大気シミュレーションでは、物理化学法則を基にして大気中の風の流れ、降水、物質の排出・輸送・化学反応と粒子化・地表面沈着などをコンピューター上の仮想空間で模擬して、時々刻々の大気微量成分などの3次元分布を計算する。CTMを用いた大気シミュレーションの利点として、物質の放出源(ソース)と大気濃度(レセプター)を定量的に関係づけられることが挙げられる。

CTMによる発生源解析手法には、CTMに入力する発生源強度の変化に対する大気濃度の応答を調べる感度解析法と、対象物質に対して発生源セクターや生成地域別にタグ付けするタグトレーサー法などがある。これまで、国内のPM<sub>2.5</sub>発生源寄与を見積もる方法としては、その簡便さから主に感度解析法が採用され、地域別・発生源セクター別などの寄与評価に役立てられてきた<sup>2)</sup>。一方、国立環境研究所などの研究グループは、タグトレーサー法を用いて一次粒子の発生源解析を実施し、放射性炭素の測定結果やレセプターモデルの計算結果と比較して、排出インベントリや二次粒子モデルの妥当性を評価してきた<sup>3)</sup>。なお、近年ではタグトレーサー法を用いた二次生成粒子の発生源解析手法(例えば、Particulate source apportionment technology、PSAT法)なども開発されている<sup>4)</sup>。CTMを用いた発生源解析の際には、これらの解析手法がそれぞれ発生源に関して異なる情報を引き出していることに留意し、目的に応じて適切な手法を選択する必要がある。

## 3. CTM計算結果の検証

既に述べたとおり、CTMを用いた発生源解析においてはCTM計算結果の不確実性が問題となる。CTM計算性能の明確な評価基準がないために、一般的な検証は困難であり、精度検証には様々な指標や解析を併用することが望ましいと考えられる<sup>5)</sup>。CTM計算性能の一般性を評価する方法の1つに、CTMの相互比較が挙げられる。筆者らは、2007年夏季の関東地方を計算対象として、4研究機関で実施されたCTM計算結果を相互比較し、その一般性や不確実性を評価した<sup>6),7)</sup>。その結果、全てのCTMがO<sub>3</sub>濃度とその経時変動を比較的良く再現していたが、PM<sub>2.5</sub>濃度を過小評価し、郊外においてはその経時変動の再現性も低いことが明らかとなった。この相互比較で得られた問題意識を受けて、筆者らは環境省環境研究総合推進費の研究課題「わが国都市部のPM<sub>2.5</sub>に対する大気質モデルの妥当性と予測誤差の評価(平成22~24年度、代表:速水洋氏)」の枠組みの基で、モデルの相互比較と種々の感度実験を行った<sup>8),9)</sup>。この研究プロジェクトでは、CTMの予測精度を明らかにするために、数値モデルだけでなく、大気モニタリングや発生源モデルの研究者の相互連携の基で実施された。ここでは、CTM研究に関連して得られた知見を以下にまとめる。

- 2010年冬季、2011年夏季の関東地方を対象としたCTMの計算結果は、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度をほぼ再現するが、NO<sub>3</sub>を過大評価、有機エアロゾル(OA)濃度を過小評価していた。入力条件を揃えた複数のCTM計算結果の相違は、NO<sub>3</sub>、OA濃度とも10%以内であった。
- NO<sub>3</sub>濃度はガス成分(HNO<sub>3</sub>とNH<sub>3</sub>)の乾性沈着速度とNH<sub>3</sub>発生量に対する感度が高く、これらの値の設定によって再現性が大きく変化した。
- OAは、凝縮性ダストを考慮することで平均的な過小評価は大きく改善された。ただ、日変化の再現に問題が残されていることから、OAモデルや排出インベントリのさらなる精緻化が必要である。

これらの研究結果から、排出量データ作成の観点からはNH<sub>3</sub>排出量や凝縮性ダストの動態について更なる研究が必要と考える。また、モデル改良の観点からは、乾性沈着モデルの検証やOAモデルの精緻化が必要である。OAモデルについては、ここ10年間で揮発性基底関数(VBS)モデルを始め様々なモデルが開発されて、その濃度再現性は向上してきた<sup>10),11)</sup>。OAは多種の有機成分の集まりであることから、実測から得られる発生源情報などと合わせてモデルを検証していく必要がある。

## 引用文献

- 1) 環境省, 微小粒子状物質の環境基準の設定について(答申)(2009).
- 2) Ikeda et al., *J. Air Waste. Manage.* (印刷中).
- 3) Morino et al., *Environ. Sci. Technol.*, 44, 8581–8586 (2010).
- 4) Koo et al., *Environ. Sci. Technol.*, 43, 6669–6675 (2009).
- 5) 岡本・速水, *大気環境学会誌*, 42, A23–33 (2007).
- 6) 森野ら, *大気環境学会誌*, 45, 212–226 (2010).
- 7) Morino et al., *Asian J. Atmos. Environ.*, 4, 150–156 (2010).
- 8) Chatani et al., *Aerosol. Air Qual. Res.*, 14, 396–405, (2014).
- 9) Shimadera et al., *J. Air Waste. Manage.* (印刷中).
- 10) Dzepina et al., *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 5681–5709, (2009).
- 11) Shrivastava et al., *J. Geoph. Res.*, 118, 3328–3342 (2013).

# PM<sub>2.5</sub> の健康影響に関する実験的研究

○古山昭子・藤谷雄二・平野靖史郎  
(国立環境研究所 環境リスク研究センター)

## 1. はじめに

肺胞領域への沈着率が高い微小粒子状物質 (PM<sub>2.5</sub>) は、疫学研究でその濃度増加が心不全や肺がんの死亡リスクを増加させること、さらに呼吸疾患や循環器・冠動脈疾患発症と関連があることが報告されて久しい。以来、PM<sub>2.5</sub> がこれら疾患を発症させるメカニズムを明らかにするために実験的研究において様々なアプローチがとられているが、正確なメカニズム解明には至っていない。粒径に注目して PM<sub>2.5</sub> とひとくくりにはしているが、その起源は燃焼生成物や揮発性有機化合物の二次生成粒子など様々で物理学的性状も化学組成も異なる物質の混合物であるために、分析・同定が難しい点もメカニズム解明を遅らせている原因のひとつである。Concentrated Ambient Particles (CAPs) 曝露装置 (図 1) は大気中の PM<sub>2.5</sub> (粒径 2.5~0.1 $\mu$ m) を濃縮して高濃度の吸入曝露をおこなうことを目的に作られた<sup>1)</sup>。諸外国においては CAPs のヒトボランティア実験<sup>2)</sup>や動物実験<sup>3)</sup>の報告がなされているが、粒子濃度、気圧低下と騒音の制御が難しい。そこで我々は、道路沿道における PM<sub>2.5</sub> の主たる発生源であるディーゼル排気に注目した。IARC は 2012 年にディーゼル排気をヒトに肺がんを発症させる発がん物質として評価しなおしている<sup>4)</sup>。本講演では、本研究所でのナノ粒子を多く含むディーゼル排気の慢性曝露実験による発がんと循環器への影響評価を中心に PM<sub>2.5</sub> の実験的研究について紹介する。

## 2. 方法と結果

本研究所におけるディーゼル排気曝露実験用曝露チャンバーを図 2 に示す。ディーゼル排気曝露には長期規制対応の 8L の 6 シリンダーディーゼルエンジンを無負荷の高回転域 (回転数 2000rpm、エンジントルク 0Nm) で運転し、平均モード径約 27nm の粒子を発生させた<sup>5)</sup>。曝露には肺腺腫高発生マウスである AJ-Jms 雌マウスを用いた。マウスを Specific Pathogen Free 条件下で全身曝露チャンバーに導入して自由摂食・飲水下で吸入曝露を行い、各群 100 匹に清浄空気、低濃度 (粒子濃度約 30 $\mu$ g/m<sup>3</sup>)、高濃度 (粒子濃度約 100 $\mu$ g/m<sup>3</sup>)、高濃度除粒子排気を 22 時から 3 時、1 日 5 時間、週 5 日間曝露した。18 ヶ月曝露終了後に採血、臓器重量の測定、がん部と非がん部正常組織に分けた組織採取を行い、血清生化学的検討、酸化 DNA 損傷測定、遺伝子発現測定、病理組織学的検討に用いた。

曝露時のディーゼル排気中には発がん性があるホルムアルデヒドが 220 $\mu$ g/m<sup>3</sup> (室内環境指針値 100 $\mu$ g/m<sup>3</sup>)、ベンゼンが 10 $\mu$ g/m<sup>3</sup> (年平均環境基準値 3 $\mu$ g/m<sup>3</sup>)、大気中粒子中に検出され発がん性が疑われるベンゾピレンや 1-ニトロピレンがそれぞれ約 20 $\mu$ g/g と 0.5 $\mu$ g/g の濃度で検出された<sup>6)</sup>。ディーゼル排気を曝露したマウスの肺には、炎症による炎症性細胞集積と肺胞壁肥厚、肺実質細胞の増殖、気管支・肺接合部の細胞増殖、肺気腫、臓側胸膜肥厚、肺腺腫、肺腺がんなどが認められた。炎症と肺気腫は高濃度群で有意に発生率が高く、低濃度群と除粒子群で増加する傾向にあった。肺腫瘍が発生した個体の割合は高濃度群で有意に高く、除粒子

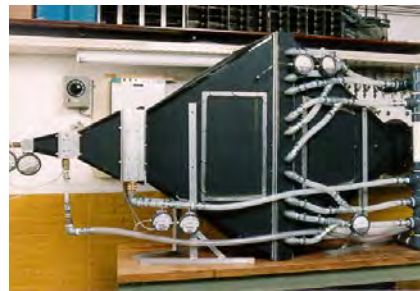


図 1 CAPs 装置の外観



図 2 ディーゼル排気曝露チャンバー

群でも増加した。全肺腫瘍数と大きな腫瘍の割合も高濃度群で有意に多く、低濃度群と除粒子群でも増加した。DNAの酸化的損傷の指標である8OHdGの測定では、正常な肺組織において高濃度群と除粒子群で有意な増加が認められた。

エンドセリンは強力な血管収縮物質であるとともに、血管透過性の亢進、血管や心筋細胞の肥大化、繊維化を促進して、高血圧・動脈硬化・心不全・心肥大に関与する生理活性物質である。曝露により心臓でのエンドセリンの遺伝子発現が除粒子群で有意に増加、高濃度群で増加傾向にあった。心筋梗塞マーカーである血清中の心筋型クレアチニンキナーゼが除粒子群・高濃度群において増加し、心不全マーカーである心房性ナトリウム利尿ペプチドの遺伝子発現の増加が高濃度群で認められた。

### 3. 結論

長期規制対応ディーゼル排気の18ヶ月曝露で肺腺腫が多発する系統のマウスで肺腫瘍の発生が増加し、粒子成分の除去で肺腫瘍の発生が低下したことから、ナノ粒子を多く含むディーゼル排気粒子とガス状排気にそれぞれ発がん性がある可能性が明らかになった。循環器疾患に関しては心不全に関連する幾つかのマーカーに変化はあったが、曝露により心不全が増加する結果は得られなかった。

### 4. 今後の課題

現在、本研究所ではディーゼル排気由来の二次生成粒子に注目して曝露実験をおこなっている。心不全は冠動脈疾患、心筋梗塞や高血圧などの末期症状として心筋が傷害を受けた結果起こる心臓の機能障害であり、炎症や代謝・血管機能・自律神経の失調などの様々な要因が関与しているため、PM<sub>2.5</sub>曝露による生体影響に関するメカニズムの解明はたいへん複雑である。近年の実験的研究では、妊娠中およびに発達初期のディーゼル排気曝露が成人の循環器疾患やアレルギーを悪化させる可能性があることが報告されている。それも含めた影響メカニズムの解明とともに、健康影響を強く示す成分の分析とその物質を減少させる対策を同時にすすめることにより、PM<sub>2.5</sub>による健康リスクを減らすことが重要であると考えている。

### 参考文献

- 1) Sioutas, C, Koutrakis, P, Burton, RM. A technique to expose animals to concentrated fine ambient aerosols. *Environ. Health Perspect.* 103, 172-177. (1995).
- 2) Gong H Jr, Sioutas C, Linn WS. Controlled exposures of healthy and asthmatic volunteers to concentrated ambient particles in metropolitan Los Angeles. *Res Rep Health Eff Inst.* 118, 1-36. (2003).
- 3) Kamal AS, Rohr AC, Mukherjee B, Morishita M, Keeler GJ, Harkema JR, Wagner JG. PM<sub>2.5</sub>-induced changes in cardiac function of hypertensive rats depend on wind direction and specific sources in Steubenville, Ohio. *Inhal Toxicol.* 23(7):417-430. (2011).
- 4) [http://www.iarc.fr/en/media-centre/pr/2012/pdfs/pr213\\_E.pdf](http://www.iarc.fr/en/media-centre/pr/2012/pdfs/pr213_E.pdf)
- 5) Fujitani Y, Hirano S, Kobayashi S, Tanabe K, Suzuki A, Furuyama A, Kobayashi T. Characterization of dilution conditions for diesel nanoparticle inhalation studies. *Inhal Toxicol.* 21 (3): 200-209. (2009).
- 6) Fushimi A, Hashimoto S, Ieda T, Ochiai N, Takazawa Y, Fujitani Y, Tanabe K. Thermal desorption - comprehensive two-dimensional gas chromatography coupled with tandem mass spectrometry for determination of trace polycyclic aromatic hydrocarbons and their derivatives. *J Chromatogr A.* 24:1252:164-170. (2012).
- 7) Weldy CS, Liu Y, Chang YC, Medvedev IO, Fox JR, Larson TV, Chien WM, Chin MT. In utero and early life exposure to diesel exhaust air pollution increases adult susceptibility to heart failure in mice. *Part Fibre Toxicol.* 26;10(1):59. (2013).

## PM<sub>2.5</sub>の健康影響の疫学的評価手法とその課題

○上田佳代・道川武紘・新田裕史  
(国立環境研究所 環境健康研究センター)

### 1. はじめに

個人ではなく集団を対象として疾病の発生の頻度や曝露の分布状況を観察する疫学研究は、動物などの実験的検討と異なり、現実世界での曝露による健康影響を評価することができ、研究対象となる集団全体のリスクを評価することが可能である。

粒子状物質の健康影響を評価するための疫学研究は、曝露から健康影響が発現するまでの時間によって、二つに分類される。短期曝露影響は、その曝露時間が数時間～数日間で、用いられる健康影響の指標は、その発現の日時が比較的はっきりしている死亡、急性疾患の発症などになる。長期曝露は、数か月や数年と想定され、対応する健康アウトカム（エンドポイント）指標は、死亡や急性疾患の発症以外に、がんの発生など発症時期が必ずしも正確に特定することができない疾患や、長期間にわたり変化していく肺機能の変化などが用いられる。たとえば、PM<sub>2.5</sub>濃度が高い日やその翌日に喘息の発作による入院が増えるかどうかを調べる場合には短期曝露影響を想定しており、日々のPM<sub>2.5</sub>濃度と入院数を比較する必要がある。一方、大気汚染物質濃度の高い地域に住む人々の肺がん死亡が、低い濃度の地域と比べて多いかどうかを調べる場合、肺がんで死亡した前日のPM<sub>2.5</sub>濃度ではなく、死亡する前の数年間のPM<sub>2.5</sub>曝露（長期曝露）を考える必要がある。

短期曝露影響と長期曝露影響とでは、用いる研究デザインや統計手法が異なる。2013年1～2月のPM<sub>2.5</sub>高濃度事象で懸念された健康影響は、短期曝露を想定しているため、本発表では、短期曝露影響評価の疫学的評価手法について説明するとともに、それらに伴う課題について述べる。

### 2. PM<sub>2.5</sub>の短期曝露影響の疫学的評価手法

PM<sub>2.5</sub>短期曝露による健康影響を評価するための疫学研究をデザイン場合、PM<sub>2.5</sub>により引き起こされるであろう健康アウトカムをまず考える必要がある。すべての人は、呼吸をしている限りPM<sub>2.5</sub>に曝露されるが、現在の日本の大気汚染レベルでは、そのほとんどは自覚症状を伴うことは少なく、医療機関への受診・入院を伴う疾患の発症や死亡まで至るのは、集団の中のごく一部と考えられる。小さな影響を検出するためには、数千、数万以上を研究対象者とする必要がある。死亡に関する情報は、人口動態統計調査により把握されており、それをういた研究が報告されている<sup>1)</sup>。一方、疾患発症に関する情報は、各医療機関単位では整っているものの、全国的な（複数の医療機関にまたがる）データベースの整備はまだ十分とはいえない状況である。

環境因子への曝露による健康影響を定量的に評価する上では、適切な曝露評価の実施が必須である<sup>2)</sup>。PM<sub>2.5</sub>への曝露は、個人が滞在する場所（屋内か、屋外か）や、呼吸の状態、局所の発生源（例えばタバコ煙）により個人のばらつきがあると考えられ、個人レベルでの曝露評価をすることが理想である。しかし、数千、数万以上を対象とする疫学研究では、個人曝露を評価することは現実的でないため、対象集団が居住する地域での環境モニタリング値を代替値として用いることが多い。

健康アウトカムの数（例えば日死亡数）の変動は、PM<sub>2.5</sub>濃度だけでなく、短期間に変動する他の因子（交絡）にも影響を受ける。短期曝露影響評価の交絡因子としては、季節変動、長期トレンド、曜日、気温などの気象条件、他の大気汚染物質が挙げられる。疫学研究ではこれらの因子を統計的手法により調整する。



### 3. まとめ：疫学評価の課題

上記手法を用いて注意深く行われた疫学研究により得られた結果であっても不確実性が伴う。前述のアウトカム評価や曝露評価に伴う不確実性だけでなく、共存大気汚染物質とその相互作用も不確実性の原因となりうる。また、疫学研究で曝露と健康アウトカムとの間に関連性（相関関係）が認められたとしても、それらに因果関係があるとかどうかを判定するためには、影響メカニズムとの妥当性や整合性も含めた総合的な観点からの評価が必要である<sup>3)</sup>。

PM<sub>2.5</sub>の健康影響に関して、国内の疫学知見の不足が指摘されており、特に低濃度地域での影響評価、粒子成分に着目した健康影響評価、循環器疾患に対する影響評価が望まれる<sup>3)</sup>。一方、2013年の高濃度事象をきっかけに設定された注意喚起のための暫定的な指針では、健常者だけでなく、高感受性者の「健康影響が出現する可能性が高くなると予測される濃度水準」に着目した疫学研究の必要性が改めて強調されている。

#### 参考文献

- 1) Ueda K, Nitta H, Ono M, Takeuchi A. Estimating mortality effects of fine particulate matter in Japan: A comparison of time-series and case-crossover analyses. *J Air Waste Manage. Assoc.*;59:1212-1218 (2009)
- 2) 微小粒子状物質リスク評価手法専門委員会. 微小粒子状物質の定量的リスク評価手法について (2008)
- 3) 環境省. 微小粒子状物質環境基準専門委員会報告(2009)

## 国環研における PM<sub>2.5</sub> の健康影響に関する疫学研究

○道川武紘、上田佳代、新田裕史

(国立環境研究所 環境健康研究センター 環境疫学研究室)

2009年にPM<sub>2.5</sub>の環境基準が設定された際、微小粒子状物質環境基準専門委員会は、『今般の評価において示された様々な不確実性の減少に努めるため、死亡や死亡以外の様々なエンドポイントを対象に、感受性の高い者・脆弱性を有する者も含めた地域集団を対象とした国内知見の充実を図り、我が国における微小粒子状物質の環境大気中濃度の測定及び曝露による健康影響の現状を把握する必要がある。』と今後必要な研究に関して報告した<sup>1)</sup>。本講演では、これを受けて国環研が日本における知見を蓄積していくことを目標として実施しているPM<sub>2.5</sub>の健康影響に関する疫学研究を紹介する。

### 1. 循環器疾患との関連

海外での知見と同様に、本邦でも短期的なPM<sub>2.5</sub>曝露と心疾患死亡との関連が指摘された<sup>2)</sup>。しかしながら、PM<sub>2.5</sub>曝露との関連およびその影響の大きさを明確にするためには、循環器疾患（心筋梗塞や脳卒中）による“死亡”ではなく、その“発症”をとらえて評価する事が望ましい。そこで国環研では、大学医学部や医療機関と共同して、日本ではほとんど知見がないPM<sub>2.5</sub>曝露と循環器疾患“発症”との関連を調べている。また、PM<sub>2.5</sub>曝露に脆弱な集団の有無（例えば高齢者で影響が出やすい、基礎疾患があると影響が出やすい等）を明らかにしていきたいと考えている。

### 2. 呼吸器疾患との関連

本邦では主に小児を対象として検討されている。ぜん息発作による救急受診をアウトカム（エンドポイント）にした研究ではPM<sub>2.5</sub>曝露との関連は示されなかったが<sup>3)</sup>、対象者数が少なく統計学的なパワーが十分ではなかった可能性も指摘されている。そこで国環研では、必要な対象者数を計算しそれに基づく対象者数を確保した上で、PM<sub>2.5</sub>濃度変化と日々の呼吸器症状との関連を検討するパネル調査を開始したので進捗を報告する（福岡市との共同研究）。

### 3. 新しい課題（周産期への影響）

近年、妊娠女性のPM<sub>2.5</sub>曝露が胎児の成長・発達（低出生体重、早期産など）に影響する可能性が指摘されている<sup>5)</sup>。日本においてはほとんど知見がないため、国環研が中心となり調査を進めている環境省事業「子どもの健康と環境に関する全国調査（エコチル調査）」の中で検討していくべき課題と考えている。

## 参考文献

- 1) 環境省：微小粒子状物質環境基準専門委員会報告、2009.
- 2) Ueda K, Nitta H, Ono M. Effects of fine particulate matter on daily mortality for specific heart diseases in Japan. *Circ J* 2009;73:1248-1254.
- 3) Yamazaki S, Shima M, Ando M, Nitta H. Modifying effect of age on the association between ambient ozone and nighttime primary care visits due to asthma attack. *J Epidemiol* 2009;19:143-151.
- 4) Yamazaki S, Shima M, Yoda Y, et al. Association of ambient air pollution and meteorological factors with primary care visits at night due to asthma attack. *Environ Health Prev Med* 2013;18:401-406.
- 5) Shah PS, Balkhair T; Knowledge Synthesis Group on Determinants of Preterm/LBW births. Air pollution and birth outcomes: a systematic review. *Environ Int* 2011;37:498-516.

# *MEMO*