

R-172-2002

大気中微小粒子状物質・ディーゼル排気粒子に関する 研究の動向と今後の課題

Reviews and Issues of PM_{2.5}・DEP Studies

大気中微粒子状物質(PM_{2.5})・ディーゼル排気粒子(DEP)等の
大気中粒子状物質の動態解明と影響評価プロジェクト

若松 伸司 編

By Shinji WAKAMATSU



独立行政法人 国立環境研究所
NATIONAL INSTITUTE FOR ENVIRONMENTAL STUDIES

序

本報告書は平成 13 年度から開始した重点特別研究『大気中微小粒子状物質 (PM_{2.5})・ディーゼル排気粒子 (DEP) 等の大気中粒子状物質の動態解明と影響評価』(略称:PM_{2.5}・DEP 研究)の一環として出版されるものである。

都市大気中における PM_{2.5} や DEP を中心とした粒子状物質による大気汚染を改善するためには、発生源の正確な把握、環境濃度との関連性の解析、並びに疫学・曝露評価、毒性・影響を行う必要がある。研究分野は広い範囲に及ぶため、効率良く研究を進めるためには、先ず研究の現状や課題を把握し、国立環境研究所の主體的な状況も考慮して重点的に実施すべき研究目標を定めることが必要となる。

このような観点から、PM_{2.5}・DEP 研究プロジェクトでは研究初年度の前半に集中的に研究レビューの会議を重ね国内外の研究の現状を、それぞれの研究参加者の立場で取りまとめ、これを基に今後の課題を展望した。平成 14 年度以降は平成 17 年度末を目途に、本報告書を指針として PM_{2.5}・DEP の動態解明と影響評価に関する研究の蓄積、解析、評価、研究の総合化と取りまとめを順次実施して行くこととしている。

このような背景から、本報告書は PM_{2.5}・DEP 研究の網羅的なレビューを試みたものではないが、既刊のレビュー等とあわせてお読み頂くことにより、研究の現状と課題を明らかに出来るものと考え公表することとした。

本研究を進めるにあたっては、国内外の国公立研究機関、大学、民間、との研究協力が不可欠である。多くの皆様からのご意見を頂ければ幸いである。

平成 14 年 3 月末日

独立行政法人 国立環境研究所

PM_{2.5}・DEP 研究プロジェクトリーダー 若松伸司

目 次

1. PM _{2.5} ・DEP 問題の現状と研究課題	1
1.1 PM _{2.5} ・DEP 研究の背景と国立環境研究所における経緯	1
1.2 国立環境研究所における PM _{2.5} ・DEP 研究の概要と本報告書の役割	2
2. PM _{2.5} ・DEP の物理と化学	4
3. PM _{2.5} ・DEP の測定方法	16
3.1 大気環境中のエアロゾルの測定	16
3.2 炭素成分の分析	21
3.3 電子顕微鏡による個々の粒子の分析	29
3.4 化学組成	33
4. PM _{2.5} ・DEP の環境動態とモデル	39
4.1 PM _{2.5} ・DEP の環境動態と国内外の研究の現状	39
4.2 粒子の沿道拡散シミュレーションモデル	43
4.3 沿道の PM _{2.5} ・DEP に関する風洞による研究	50
4.4 PM _{2.5} ・DEP モデル	60
5. PM _{2.5} ・DEP の発生源と対策	69
5.1 国内外における一次粒子および二次粒子前駆物質の排出インベントリの現状と今後の展望	69
5.2 ディーゼルエンジンからの PM _{2.5} ・DEP の排出実態とその対策	83
5.3 低公害車実験施設の概要と PM _{2.5} ・DEP 研究における活用可能性	88
5.4 交通・物流システム面の対策と対策効果の予測手法	94
6. PM _{2.5} ・DEP の健康影響	100
6.1 毒性学	100
6.2 疫学研究と曝露評価	121
7. 国立環境研究所における PM _{2.5} ・DEP 研究の展望	130

1. PM_{2.5}・DEP 問題の現状と研究課題

若松伸司

1.1 PM_{2.5}・DEP 研究の背景と国立環境研究所における経緯

(1) 研究の背景

微小粒子は肺の深部に侵入、沈着する割合が大きく、発がん性等を有する有害成分の含有率も高い。米国を中心とした疫学研究により、PM_{2.5}（粒径 2.5 μm 以下の微小粒子）の環境濃度と呼吸器・循環器系疾患による死亡や発症との間に有意な相関が認められ、米国においては 1997 年 7 月に PM_{2.5} の環境基準が追加された。わが国においても最近の沿道公害裁判において、大気中浮遊粒子状物質が健康に及ぼす影響が指摘されるなど、大気中微小粒子への関心が高まっている。

中でもディーゼル排気由来の粒子状物質 DEP (Diesel Exhaust Particles) が大都市を中心とした地域において大きな問題となっており、早急な対策が迫られている。ディーゼル排気からは、粒径がナノメートルオーダーの極めて小さな粒子が発生するが、これが環境大気中で凝集したり吸湿性二次生成物が付着することによって粒子径が成長する。またガス状物質として排出された炭化水素成分、窒素酸化物、硫黄酸化物が環境大気中で光化学反応などにより微小粒子状物質となる。環境大気中の微小粒子状物質の健康影響を考えるに当たっては、重量濃度のみならず、粒径分布や個数、化学組成、粒子表面の特性、形態、ガス状物質との相互作用などが重要である。しかしながら、このような分野に関しての知見は少なく、発生源の把握や環境中での動態解明、測定法の開発と評価が必要となっている。

一方、環境汚染物質による人への影響の大きさ、すなわち健康リスク評価の研究も同時に実施しなければならない。また発生源の変化に対応しての毒性の評価に関する研究も継続的に実施する必要がある。

(2) 国立環境研究所における取り組みと PM_{2.5} 研究グループの経緯

(脚注 1)

(JCAP) : 通産省と石油連盟、(社) 日本自動車工業会は JCAP (Japan Clean Air Program) を 1997 年から 2001 年の 5 年間にわたり実施し、自動車からの大気汚染削減のために、エンジン本体の改良と、燃料及び潤滑油の品質改善、の効果に関する研究を行った。このプロジェクトは 2002 年から更に 5 年間にわたり JCAP2 として第二

粒子状大気汚染を理解する為には、ガス状物質も含めての前駆物質の環境動態把握が必要となり総合的な研究が必要となる。国立環境研究所では、光化学大気汚染等のガス状物質を中心とした都市大気汚染の研究を 20 年以上に亘り、継続的に実施しており、平成 12 年度には VOC (揮発性有機化合物) の発生源と環境動態に関する特別研究を終了した。これら、一連の研究により、都市域におけるガス状大気汚染研究のほぼ全過程を終え、残されている大きな研究課題である、大気中微小粒子の研究に取り掛かる態勢を整えた。

大気微小粒子の研究に関しては、平成 12 年 4 月に国立環境研究所の研究者が主体的に集まり、PM_{2.5}・DEP 研究グループを結成し、分野横断的な研究を開始した。国立環境研究所では、平成 2 年 (1990 年) の組織改変に伴い特別研究を実施するプロジェクト研究グループとして、地域環境研究グループが誕生したが、PM_{2.5}・DEP 研究グループの結成は、地域環境研究グループ内での議論に負う所が大きい。平成 13 年 (2001 年) 4 月の独立行政法人化移行時に地域環境研究グループは解散したが、PM_{2.5}・DEP 研究グループの誕生は地域環境研究グループ 10 年間の一つの帰結であると総括できる。

PM_{2.5}・DEP 研究グループの当初の世話人は若松 (大気系)、田邊 (化学系)、森口 (社会系)、西川 (化学系)、新田 (健康系)、小野 (健康系) の 6 名であり、代表役は若松、事務局は新田、渉外は森口が担当した。研究推進に当たっては、行政との密接な連携が必要なため、直ちに、環境省との意見交換を開始し研究協力や予算措置の為の協議を行って来た。

国立環境研究所の独立行政法人への移行時に、六つの重点特別研究プロジェクトが決められたが、その一つとして、『大気中微小粒子状物質 (PM_{2.5}) ・ディーゼル排気粒子 (DEP) 等の大気中粒子状物質の動態解明と影響評価プロジェクト』【略称 : PM_{2.5}・DEP プロジェクト】を平成 13 年度から 5 年間の予定で実施する事となり、研究実施に当たっては PM_{2.5}・DEP 研究グループが中フェーズの継続が予定されている。

(脚注 2)

(地方自治体環境研究機関との協力) : 平成 13 年度から開始した C 型共同研究は複数の地方環境研究機関と国立環境研究所との共同研究の仕組みである。

核となる事が決められた。研究プロジェクトの推進に当たっては、国立環境研究所内のみならず、外部の研究機関や、JCAP (Japan Clean Air Program) (脚注1)、自治体研究機関 (脚注2) 等との研究協力を重視して研究グループの活動を推進して来た。

1.2 国立環境研究所における PM_{2.5}・DEP 研究の概要と本報告書の役割

PM_{2.5}やDEPを中心とした大気中粒子状物質汚染を改善するためには発生源の把握から影響評価を含む一連の研究を実施し、得られた知見を対策評価にまで結びつけて行く必要がある。本重点特別研究においては

- (1) 発生源の把握と対策評価
- (2) 環境濃度との関連性の解析
- (3) 測定方法の確立とモニタリング
- (4) 疫学・曝露評価
- (5) 毒性・影響評価

の5テーマを中心に、研究課題を有機的に結合させ実施する。5年間を目標に研究を実施し、具体的な成果として、エミッションファクター (排出原単位) の推定、環境モニタリングシステムの構築、環境アセスメント技術の評価、環境基準の設定、対策シナリオの評価等に資する情報を提供することを最終的な目的としている。特に、産業界が、対策を実施するに当たって、必要とされる具体的なデータの提供や、環境省が政策を検討する為に必要なシナリオ案を提供したい。

本研究プロジェクトを実施する国立環境研究所の研究者の構成は平成13年度においては、専任9名(内、社会系3名、健康系3名、大気系3名)、併任10名(内、社会系1名、健康系4名、大気系3名、化学系2名)、国立環境研究所フェロー3名程度、派遣職員1名である。国立環境研究所において、大気中微小粒子の研究を総合的に実施するのは初めての試みである。この分野横断的なPM_{2.5}・DEP研究プロジェクトにおいては、これまで、それぞれの専門分野で蓄積されて来た、研究成果を基礎としつつ、更に今求められている課題を積極的に取り込み、短期間に有用な研究成果を上げる事を大きな目標としている。この為には国内外の研究の現状を把握し、我々が取り組むべき研究課題の優先順位を明らかにする

必要がある。研究の初年度に当たって、プロジェクトに参加している研究者が共通の問題意識を持ち、協力し合って研究課題を推進して行く為には不可欠な意見交換を集中的に実施した。この中で、PM_{2.5}・DEP研究のレビューを行い、国立環境研究所の主体的な条件(研究者の構成、研究設備、予算など)を基に今後の研究の方向性を展望した。

本報告書は、その内容を取りまとめたものであり、PM_{2.5}・DEP研究の最新の状況と、我が国において取り組むべき研究課題、並びに、国立環境研究所における今後の研究プロセス等が議論されている。含まれている情報は、国立環境研究所における研究実施者のみならず、PM_{2.5}・DEP研究にご関心のある様々な分野の方々にも役立つと考え、国立環境研究所研究報告として公表する事とした。PM_{2.5}・DEP研究全般を網羅的にレビューしたものではないが、研究の現状や取り組むべき課題を考える上では参考になろう。

大気中微小粒子の環境・健康影響に関しては、横山、内山編(平成12年)が、ディーゼル排気微粒子リスク評価に関してはディーゼル排気微粒子リスク評価検討会報告書(平成12、13年)が詳しいので合わせて御参照いただきたい。

本報告書はプロジェクト研究を開始するに当たっての初期的状況をまとめたものであり、それぞれの研究者により、執筆のスタンスや記述方法、内容の詳しさ等かなりの差異がある。ある者は、基礎的視点から書き起している。ある者は、全体的な研究状況をまとめている。ある者は、特に自分自身に関連する個別的な研究テーマを解説し、また、ある者は国立環境研究所における研究経過や現状を中心に述べている。これがスタート時における生の姿なので、敢えてスタイルは合わせないことにし、それぞれ章や節の著者名を明らかにしている。今後は討議と相互の研究評価を重ね全体的に統一のとれた研究成果を出すことを目指したい。

PM_{2.5}・DEPの研究は国立の環境研究機関のみならず、地方自治体環境研究機関や自動車メーカー、燃料業界関連研究機関、大学の関連研究部門においても重要な課題である。しかしながら、それぞれの組織における取り組みの姿勢や研究アプローチは異なっていると考えられる。

また PM_{2.5}・DEP 研究は発生源から毒性評価までの広い範囲の研究の総合化を必要としており、国立環境研究所内での協力のみならず、現場を持つ、地方自治体環境研究機関や他省庁、業界、大学との交流が必要である。本報告書が、PM_{2.5}・DEP 研究協力構築の一助となれば幸いである。

文献

横山栄二、内山巖雄 編（平成 12 年 12 月）：大気中微粒子の環境・健康影響、財団法人 日本環境衛生センター、pp197。

ディーゼル排気微粒子リスク評価検討会（平成 12 年 9 月）：ディーゼル排気微粒子のリスク評価について（中間とりまとめ）、環境庁、pp238。

ディーゼル排気微粒子リスク評価検討会（平成 14 年 3 月 5 日）：ディーゼル排気微粒子リスク評価検討会平成 13 年度報告、環境省、pp285。

2. PM_{2.5}・DEP の物理と化学

福山 力

2.1 はじめに

前章で述べられたように、近年国際的に大気中の微小粒子状物質 (PM_{2.5})、とりわけ DEP の健康影響に対する関心が高まっている。本章では PM_{2.5}・DEP について、粒径分布と化学組成という最も基本的な属性に着目してこれまでに得られている知見を概観し、それらの特徴、発生源との関連などを記しつつ現在の問題点や今後の研究課題を指摘することとしたい。

最初に本書の主題に関係するいくつかの言葉の定義を記しておくのが適当であろう。

a) PM_x : 空気力学径 $\leq x \mu\text{m}$ であるような粒子を総称して PM_x と呼ぶ。しかしこれは一種理想的な概念上の定義であって、この不等式を正確に満足するような粒子の分級手段は今のところ存在しないので、実際に粒子状物質の濃度等を扱う際には、測定法に結びつけて操作的に定義する方が便利である。現在一般的に使われているのは、「50 % cut 径 (捕集効率が 50 % になる粒径) = $x \mu\text{m}$ と設定した慣性衝突粒子捕集器を通過する粒子を PM_x とする」という定義で、世界に先がけて PM_{2.5} に関する環境基準を制定した米国でもこれを採用している。ただしこの定義に従う場合厳密に言うと、50 % cut 径が等しい捕集器でも捕集効率曲線の形によって得られる PM_x の内容が異なるので非常に精密な議論をするときには注意が必要である。

粒子の大きさを測定する方法としては力学的慣性を利用する他に光散乱による方法が広く普及している。光散乱法により測定される粒径は空気力学径と異なるので、PM_x としてのデータを得るためには換算が必要であることは言うまでもない。

なお、PM_x の質量濃度を単に PM_x という用語法がしばしば用いられる。表現を簡潔にするために本章でも誤解の恐れのない限りこれに従う。

b) 浮遊粒子状物質 (SPM : Suspended Particulate Matter) : わが国の環境基準では、粒径 10 μm 以下の粒子が浮遊粒子状物質と定義づけられており、別に定められた標準測定法を参照すると 100 % Cut 径が 10 μm であるような慣性衝突捕集器を通過する粒子、と決められ

ている。a) で定義された PM_x との対応関係は捕集器の効率曲線に依存するが、PM₇ ~ PM_{7.5} に相当すると言われている。

c) TSP (Total Suspended Particulate Matter) : 大気中に浮遊する粒子全体の総称であるが、ほとんどすべての場合にその質量濃度という意味でこの言葉を用いる。粒子状物質に関わる環境基準を 1987 年まで TSP について設定していた米国においては、やはり操作的に「粒径 0.3 μm の粒子の捕集効率が 99 % 以上であるようなフィルターを Hi-volume air sampler に装着して捕集される粒子」と定義されていた。大気中に浮遊することができる粒径約 50 μm 以下の粒子すべてが含まれると考えてよい。

2.2 都市大気エアロゾルの粒径分布

既に記されたとおり、本書は国立環境研究所における PM_{2.5}・DEP プロジェクトの活動の一環として著されるものである。このプロジェクトは都市大気エアロゾルに関わるさまざまな問題に対処することを主目的としているので、これまでの多くのデータの蓄積に基づいて、この種のエアロゾルに見られる特徴を記すことから始めよう。

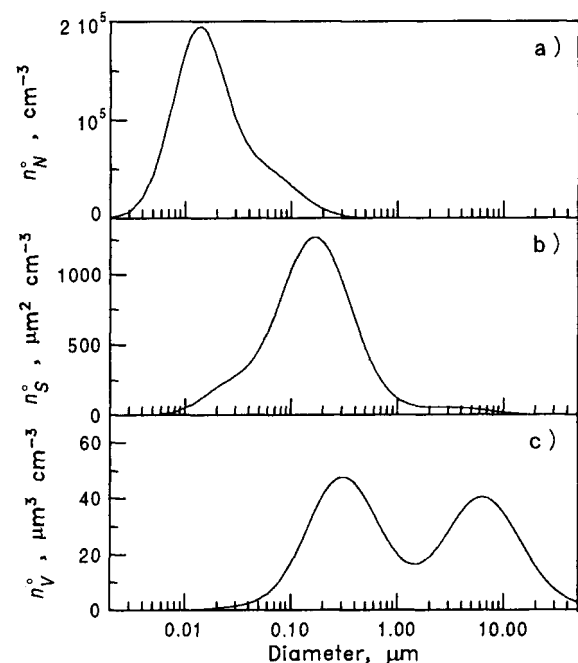


図 2.1 都市大気エアロゾルの典型的な粒径分布 (a) 個数基準 ; (b) 表面積基準 ; (c) 体積基準 (Seinfeld and Pandis, 1998)

図 2.1 に都市大気エアロゾルの典型的な粒径分布を示す (Seinfeld and Pandis, 1998)。通常測定されることが多いのは質量または個数基準の分布であるが、図の (a) が後者に相当し、(c) は前者にほぼ比例する体積基準分布である。これらの分布に着目すると、体積基準分布では supermicron 領域と submicron 領域にそれぞれ1つのピークが見られるのに対して、個数基準分布はさらに小さい $\sim 0.01 \mu\text{m}$ の粒径領域にただ一つのピークを持つのが特徴である。体積基準分布に現れる小粒径側および大粒径側のピークはそれぞれ accumulation mode、coarse mode と呼ばれる。図 2.2 の実線は発生源に近くて濃度が高い場合の体積基準分布 (Seinfeld and Pandis, 1998) で、accumulation mode よりもさらに小粒径領域に nucleation mode と呼ばれる第3のピークが現れている。図 2.1 および 2.2 から、 PM_{10} は coarse mode の大部分を含み、 $\text{PM}_{2.5}$ は accumulation mode + nucleation mode にほぼ対応することがわかる。ただ、細かいことを言えば、coarse mode と accumulation mode を隔てる極小は $2.5 \mu\text{m}$ よりやや小さいことが多いので、「微小粒子」を包括するには $\text{PM}_{2.5}$ より $\text{PM}_{1.5}$ ないし $\text{PM}_{2.0}$ の方が適当かもしれない。例えば図 2.3 に示すように、Keywood ら (1999) が Australia の Brisbane で得た最近の観測結果においても両 mode の間の極小は $2.5 \mu\text{m}$ より小さく約

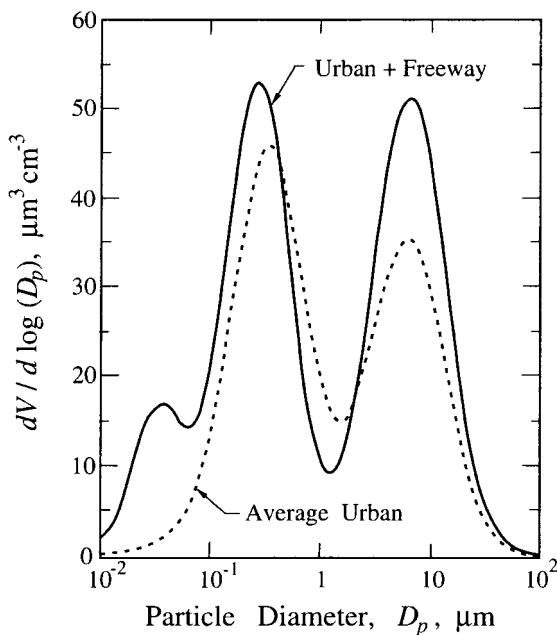


図 2.2 発生源に近い場合の体積基準粒径分布 (実線) (Seinfeld and Pandis, 1998)

$1.4 \mu\text{m}$ である。

Keywood らは Australia の 6 つの都市で得た観測データについて、異なる粒径領域の質量濃度の相関を調べて、 PM_{10} と $\text{PM}_{2.5}$ は 0.98 という高い相関を示すのに対して $\text{PM}_{2.5}$ と $\text{PM}_{10} - \text{PM}_{2.5}$ の相関は低く 0.35 であることを見出した。これは coarse mode が他の 2 つの mode と独立な発生源を持つことを示す有力な証拠である。また 6 都市における $\text{PM}_{2.5} / \text{PM}_{10}$ 比は 0.6 \sim 0.7 の範囲にあって、平均約 0.68 であった。 $\text{PM}_{2.5}$ と PM_{10} が高い相関を持つことおよび両者の比がどのような場合にもほぼ 0.7 程度になることはこれまでの数多くの観測によって経験的によく知られた事実である。これに基づいて、 PM_{10} のデータは得られているけれど $\text{PM}_{2.5}$ は測られていない場合、前者に 0.7 を掛ければかなりの正確さで後者を推定することができる、と言ってよい。これは一種の rule of thumb として記憶しておくに便利である。実際、 PM_{10} が $\text{PM}_{2.5}$ の代わりになり得るということを一つの理由として $\text{PM}_{2.5}$ に関する環境基準の設定を先送りにした Australia のような例もある (Keywood et al., 1999)。しかし、粒子状物質の健康影響に関する多くの研究の結果から、リスクが大きいのは accumulation mode あるいは nucleation mode の粒子であるということは既に確立されているので、濃度の達成目標としての環境基準は $\text{PM}_{2.5}$ について定めるのが妥当であろう。

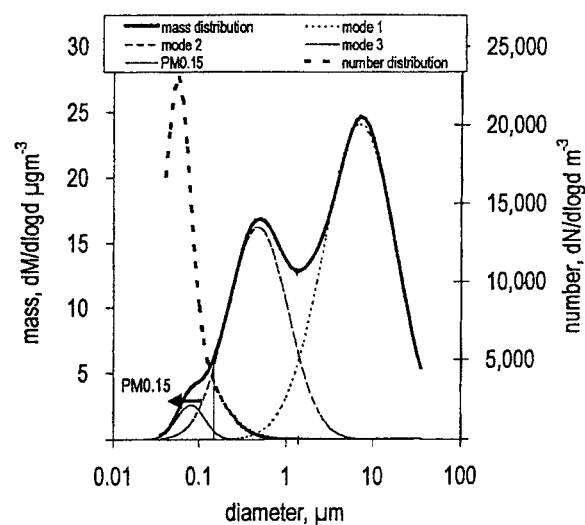


図 2.3 Brisbane, Australia において観測されたエアロゾルの粒径分布 mode 1、2、3 は質量基準分布に 3 個の対数正規分布を当てはめたもの (Keywood et al., 1998)

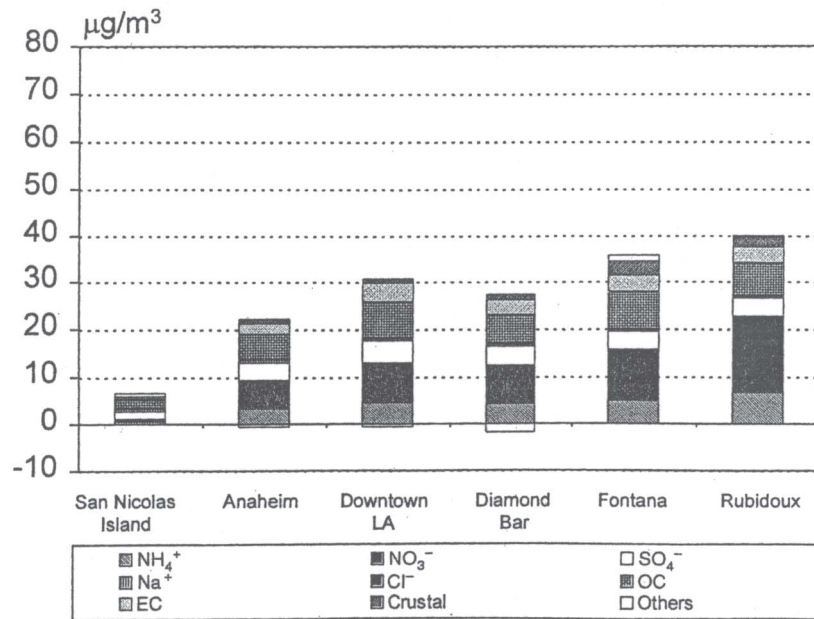


図 2.4 PM_{2.5}の濃度と化学組成 Los Angeles、U.S.A 周辺における観測結果
 “Others” の負の値は測定誤差によるもの (Kim et al., 2000)

何故ならば、PM₁₀を低減することは coarse mode の粒子を減らすことでも実現されるけれど、それは健康影響の観点からはほとんど無意味だからである。

図 2.3 の破線は、粒子が球形であることと密度が 1 g/cm³ であることを仮定して nucleation mode の分布から計算により導いた個数基準の粒径分布である。これは図 2.1(a) に極めて近く、個数基準分布がかなり普遍的な姿を持つことを裏付けている。一方、Keywood らは凝縮核計数器により全個数濃度の測定も行ったが、個数濃度と nucleation mode の質量濃度の間に相関は全く認められなかった。個数基準分布のピーク位置は質量基準分

布の nucleation mode とほぼ一致するものの、質量は粒径の 3 乗に比例するので、質量濃度を支配するのは個数基準分布において大粒径側の裾の部分に対応する少数の粒子であることからこのような結果となるのである。粒子状物質の健康影響を調べる研究ではこれまでほとんどすべての場合質量濃度に基づいて種々の考察が行われてきた。しかし、呼吸器に取り込まれた粒子は最終的には 1 つ 1 つが細胞レベルで生体と接触するのであろうから、個数濃度の視点からの検討も必要である。このことを考えると Keywood らが得た結果は重要なポイントを含んでいることがわかる。すなわち、環境基準を質量濃度だ

表 2.1 光化学エピソードに観測されたエアロゾルの組成 (Kitto and Harrison, 1992)

Date	HNO ₃	NH ₃	NH ₄ ⁺	NO ₃ ⁻	SO ₄ ⁻	H ⁺	SO ₂	Temp. (C ° ave)	R.H. (ave)
Episode A									
7.6.89	18	91	187	66	113	2	44	19	61
13.6.89	215	83	668	109	599	64	495	18	60
14.6.89	332	445	491	67	392	37	168	20	53
15.6.89	80	167	138	16	115	11	747	20.5	55
16.6.89	39	135	70	26	62	18	53	18.5	54
Episode B									
26.6.89	174	96	192	24	204	30	118	17	62
3.7.89	60	192	99	43	83	37	168	16	61
4.7.89	64	188	46	18	31	11	57	18	40
5.7.89	42	204	147	47	104	14	53	20	55
6.7.89	334	206	770	143	629	8	871	16	60

けで考えていると、その基準は達成されても小粒径領域の個数濃度がかえって増加して健康影響は改善されないかむしろ悪化するという事態もあり得るからである (Harrison and Yin, 2000)。ただし、質量が保存量であるのに対して個数は保存されない量である、ということが難しい点で、個数濃度を問題とするときにはどのような条件での値であるかを詳細に示す必要がある。

2.3 都市大気エアロゾルの化学組成

2.3.1 無機成分

PM_{2.5} の化学組成で万国共通に含有割合が多い成分は、硫酸、硝酸、塩化物、アンモニウム、ナトリウム、の各イオンと元素状炭素で、この他実際には混合物であるが有機炭素としてまとめて定量される成分を含めると全質量の 2/3 以上を占めるのが普通である。のこりは多くの無機元素である。米国 Los Angeles 周辺における測定例

を図 2.4 (Kim et al., 2000) に示す。

無機成分で健康影響が大きいと予想されるのは遊離の酸 (H⁺) であるがその測定例は極めて少ない。その理由は、他の成分と異なって H⁺ が非保存量であるからである。大気中に放出され、あるいは大気中で生成した酸性物質は、塩基性物質 (ほとんどがアンモニア) によってたえず中和されるので、H⁺ 濃度は時間的に定常にはなり得ないし、また空間的不均一も大きいと考えられる。その上、粒子状物質の捕集にはフィルターまたはインパクターを用いるのが常法であるが、H⁺ を正確に定量するためには捕集された粒子中の H⁺ が気流中の塩基性気体 (アンモニア) によって中和されないような工夫が必要である。そのためには Annular Denuder (AD) などにより粒子と気相成分を分離する手法が用いられるが、揮発性の酸性物質がある場合にはサンプリングに伴って平衡移動が避けられないので、測定された H⁺ 濃度と実大

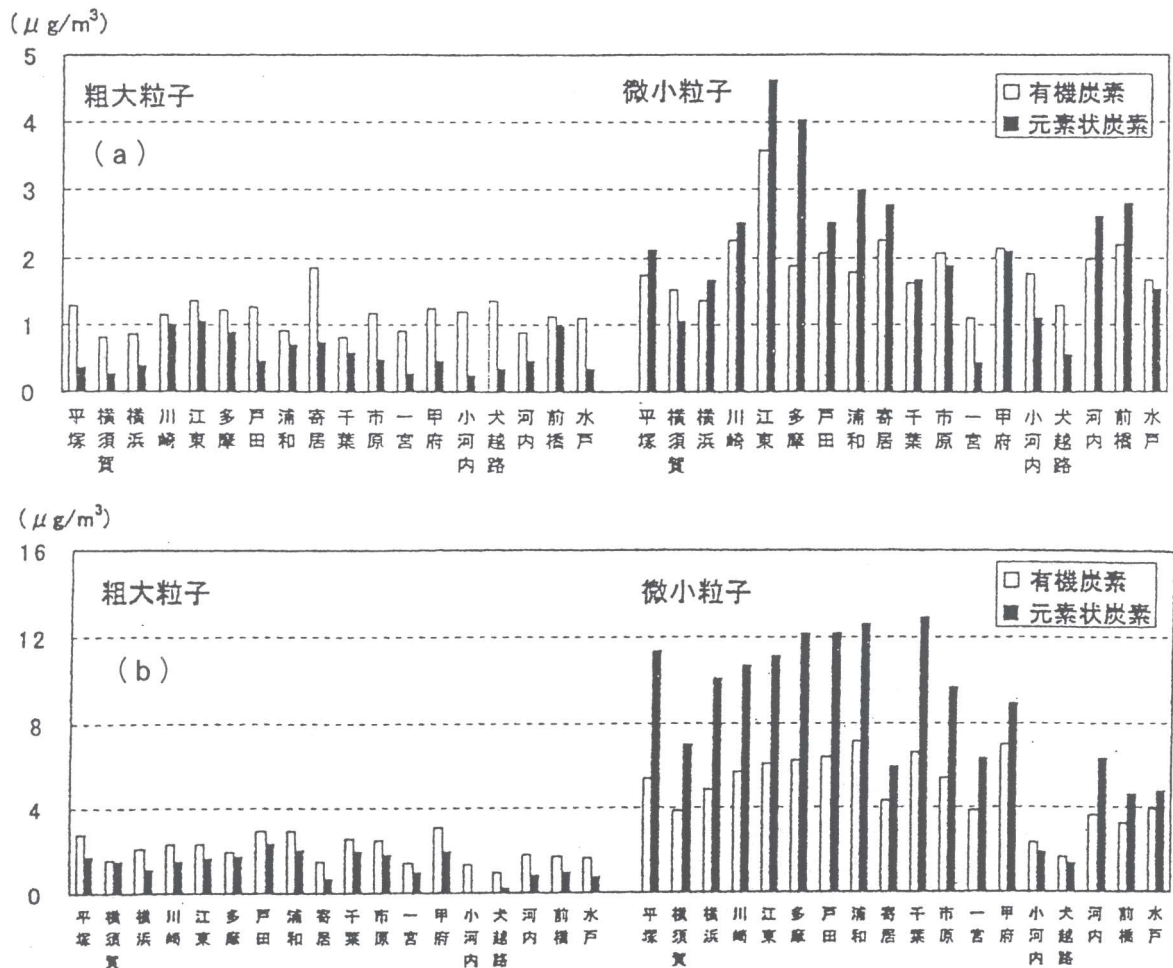


図 2.5 関東地方で観測されたエアロゾルに含まれる炭素成分の粗大・微小粒径別濃度；(a)：夏期、(b)：冬期
微小粒子：粒子 $\leq 2 \mu\text{m}$ ；粗大粒子： $2 < \text{粒径} \leq 11 \mu\text{m}$ (石井、2001)

気中での濃度との対応については注意深い検討が必要である。

数少ない H^+ の測定例の中から、Kitto と Harrison (1992) による England 東部での観測結果を表 2.1 に示す。これは AD を用いた粒子サンプリングで光化学汚染の激しいときに得られたものである。粒子状で存在する酸性物質は主として硫酸と考えられるが、この表のデータは光化学汚染生成時に硫酸イオンのおよそ 10% が遊離の酸であることを示している。最近 Lee ら (1999) は Seoul においてやはり AD を用いた観測を行って、都市大気エアロゾル中の H^+ 濃度と SO_4 および $PM_{2.5}$ の相関を調べ、それぞれ 0.75 および 0.85 という高い値を得ている。

2.3.2 含炭素成分

これまでの数多くの観測例によれば、都市大気エアロゾルで含炭素成分は質量割合にして 30~40% を占めることが知られている。含炭素成分を構成するのは元素状炭素 (EC) と有機物である。有機成分は数百種類にもおよぶ化合物の混合体であるため、ある特定の種類の化合物、例えばあとで記すような多環芳香族化合物、に注目して分析する場合を除いて、個々の成分に分けて定量することはせず、ひとまとめにして炭素量を測定し有機炭素 (OC) と表示することが多い。EC と OC の分別定量には次章で述べられるように熱的な方法や光学的な方法が用いられる。OC の質量から有機成分の質量を導くためには 1.4 という因子をかけることが多い。すなわち、エアロゾルに含まれるごく平均的な有機物は炭素の質量 1 に対してその他の元素 (水素、酸素、窒素など) の質量を合計 0.4 含むと考えるわけである。しかし Turpin ら (2000) はもう少し精密に考えて、水溶性 OC に対しては 3.2、水に不溶の OC には 1.3 という値を用いるのがよいと述べている。都市大気エアロゾルにおける含炭素成分は、粒径別に見ると大部分 $PM_{2.5}$ に含まれることが過去のデータで裏付けられている。ここではわが国の関東地方における最近の観測例として石井ら (2001) が報告した結果を図 2.5 に引用しておこう。

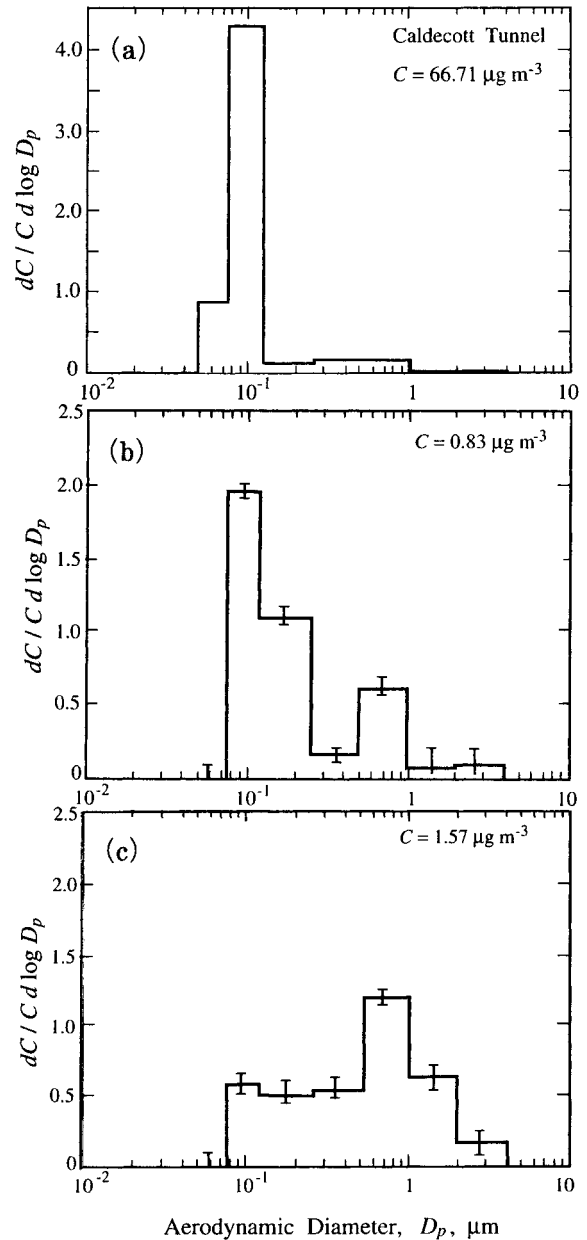


図 2.6 元素状炭素の粒径分布

- (a) Caldecott トンネル (California, U.S.A.) 内の大気
 (b) Upland (同) の環境大気、夏期
 (c) 同、冬期
 (Venkataraman et al., 1994a, b)

(1) 元素状炭素

EC は炭素を含む物質、すなわち化石燃料および植物体、の燃焼に伴って排出される。地球規模ないし大陸規模で見るとは焼畑農業や森林伐採に伴う焼却あるいは自然の森林火災などの寄与もあるけれど、都市大気エアロゾルに着目すれば大部分が化石燃料起源であってしかも移動発生源の寄与が大きい。

EC の粒径分布については多くの報告があるが、発生源から環境大気に至る挙動に関する知見を得た

Venkataraman ら (1994a, b) の研究をまず紹介したい。彼らは車からの排出直後の分布が得られると期待できるトンネル内 (Berkeley) と、滞留時間に伴う変化が現れると思われる環境大気中 (Los Angeles 近郊) とで比較観測を行った。8 段の低圧インパクターによって得られた粒径分布を図 2.6 に示す。トンネル内の分布 (a) がほぼ unimodal で $0.05 \sim 0.1 \mu\text{m}$ の領域に鋭いピークを持つものに対して、環境大気中では (b) のように $1 \mu\text{m}$ を超えて accumulation mode 領域にまで広がった bimodal な分布、あるいは重心がさらに大粒径領域に移した (c) のような分布が見られた。この結果より EC の粒径分布は大気中での滞留時間が長くなるにしたがって (a) \rightarrow (b) \rightarrow (c) のように変化するものと考えられる。この過程についてさらに知見を得るために Venkataraman らは環境大気中で EC を小粒径 ($0.05 \sim 0.5 \mu\text{m}$) と大粒径 ($0.5 \sim 1 \mu\text{m}$) に 2 段分級して捕集し、それぞれの試料を電子顕微鏡で観察したところ、前者は煤粒子、後者は煤粒子の集合体が薄い液状の物質で覆われたものであることを見出した。このことから、EC はまず (a) のように小粒径領域に狭い分布を持って車から一次排出され、その後粒子表面に吸湿性二次生成物が付着することによって粒径が増大して (b) あるいは (c) の分布が形成されるのであろう、と彼らは推測している。他の研究結果を参照すると、二次生成物は硫酸・硫酸塩あるいは有機酸化物と思われる。

次に EC の粒径分布に関する最新の研究例として Hitzenberger と Tohno (2001) の報告を引用しよう。彼らは地理的条件が異なる 2 つの都市における差異を調べるために宇治および Vienna で観測を行ってそれぞれ図 2.7(a) と 2.7(b) のような分布を得た。測定手段は Venkataraman らと同様低圧多段インパクターであるが、宇治では 11 段、Vienna では 7 段のものが使用され、分解能は異なっている。11 月のこのデータでは宇治に比べて Vienna の方がはるかに高濃度になっているけれど、Vienna では冬季に高く夏季に低いという季節変化が見られたのに対して宇治ではそれがなく、14 ヶ月におよぶ観測期間全体を通しての平均値はいずれの場所でも約 $5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ でほとんど差がなかった。宇治および Vienna における分布は双方とも $0.1 \mu\text{m}$ 付近に極小を持つ multimode 構造を示している。上記のように両観測地で

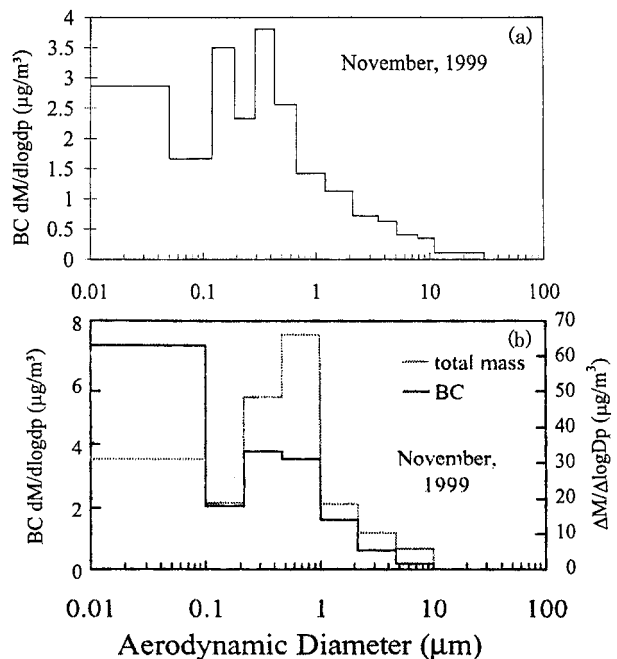


図 2.7 元素状炭素の粒径分布
(a) 宇治、日本
(b) Vienna、Austria
(Hitzenberger and Tohno, 2001)

使用したインパクターの分解能が異なるので、Hitzenberger らはそれを考慮に入れた解析を行って、2 都市における EC の粒径分布は類似したものであるという結論した。また、宇治のデータに対して 3 つの対数正規分布をあてはめたところ、MMD として 0.15 、 0.39 および $4.65 \mu\text{m}$ という値が得られた。ただし質量濃度の大部分は小さいほうの 2 つの mode に含まれ、実質的にほとんど bimodal であった。おそらく最小粒径の mode が排出直後のもので、これが aging によって大粒径領域に移行するのであろう。すなわち宇治における分布は、先に紹介した Venkataraman らの (a)、(b)、(c) に相当する分布が重なったものと見ることができる。実際 Hitzenberger らは、彼らの観測結果が Venkataraman らとよく一致する、という見解を述べている。彼らの報告でもう一つ興味深いのは粒径に対する湿度の効果を調べた点である。もし EC 粒子の少なくとも一部に吸湿性物質が付着ないし取り込まれていわゆる internal mixture となっていれば湿度が高くなると粒径が増大するはずである。そこで MMD と湿度の関係を調べたところ、そのような湿度効果は Vienna の EC にだけ明確に認められた。これより、Vienna の EC 粒子は吸湿性物質と

internal mixture となっているが、宇治ではそうでない、と推測された。Vienna では submicron 粒子の約 50 % が硫酸塩や硝酸塩であることが見出されている (Hitzenberger and Puxbaum、1993) が、今回の観測結果はそれを裏付けるものである。

一般的に言えば、EC の主成分は graphite であるが、ここで紹介した Venkataraman らあるいは Hitzenberger らの研究からわかるように、環境大気中の EC 粒子は決して純粋な炭素というわけではなく、硫酸・硫酸塩あるいは有機酸化物が粒子表面に付着あるいは内部に含まれていることがある。また後で記すように、多環芳香族化合物は EC 粒子に含まれて排出されることが多い。このことは、EC が呼吸器に取り込まれやすい submicron 領域の粒径を持つことを考えあわせると、健康影響を評価する上で重要な要因である。上記のような物質が担持されていると、純粋な炭素である場合に比べて格段に毒性が強くなると考えられるからである。EC を EC としてだけでなく、それに含まれる不純物まで対象として分析する研究がその手段の開発を含めて今後の課題として重

要である。

(2) 有機炭素

有機炭素成分は一次成分と二次成分とに分類される。環境大気エアロゾルの組成分析によってこれらを分別して定量するためには、発生源と結びついた組成上の特徴を利用する必要がある。しばしば用いられるのは次の 2 つの方法である (浮遊粒子状物質対策検討会、1997)。

1) 有機物の極性に着目し、極性物質には一次排出および二次生成双方の寄与があるが、無極性物質はすべて一次排出物であると考え、かつ一次排出物中の極性対無極性の比は一定であると仮定する方法：まず、二次生成がないと考えられる条件で極性および無極性 OC (それぞれ pOC*、nOC*) を測定し、その比を r とすると、

$$r = pOC^*p / nOC^*p$$

ここで添字 p は一次排出を表す。

一般の条件で測定した極性および無極性 OC をそれぞれ

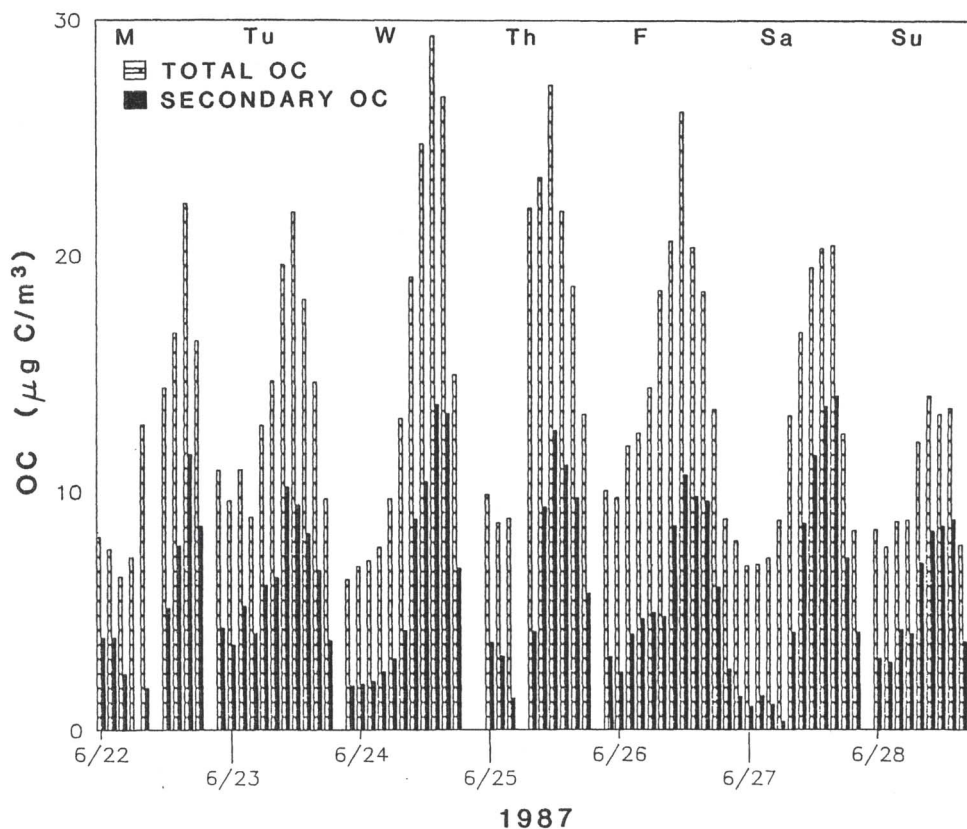


図 2.8 エアロゾル中の二次生成有機成分濃度
Claremont (California, U.S.A.) における観測結果 (Turpin et al., 1995)

れ pOC、nOC とすると

$$pOC = pOCp + pOCs \quad (2.1)$$

$$nOC = nOCp \quad (2.2)$$

添字 s は二次生成を表す。

仮定により $r = pOCp / nOCp$ であるから、式 (2.2) を考慮することにより

$$pOCp = r nOCp = r nOC$$

したがって (2.1) から、

$$pOCs = pOC - pOCp = pOC - r nOC$$

によって二次生成の寄与を求めることができる。

2) 一次排出において有機炭素と元素状炭素の比は一定であると考え、後者を指標として用いる方法；最近では Turpin ら (1995) がこのやり方で二次生成の寄与を推定している：

$$OC = OCp + OCs \quad (2.3)$$

$$OCp = a + bEC \quad (2.4)$$

ここで、a：植物など、EC とは独立の発生源に由来する一次有機成分濃度；

b：EC に伴って放出される一次有機成分と EC との比。

日射、気温、オゾン濃度などに基づいて二次生成がないと判定できる条件のときを選んで EC および OC 濃度を測定し、式 (2.4) をあてはめることにより a と b を決める。季節や時間が異なる種々の条件でこれを行い、それぞれの条件に対して適当と思われる a、b の値を得る。二次生成の寄与がある一般の場合について OC と EC を測定し、そのときの条件に対して最適と考えられる a、b の組を用いて OCp を計算し、(2.3) から

$$OCs = OC - OCp$$

により二次生成有機炭素量を推定する。

このような方法で分別された二次有機成分の推定例を

図 2.8 に示す。これは米国 Los Angeles 近郊の Claremont における夏期の観測結果である。全 OC に占める二次生成 OC の割合は 20～70 % の範囲にあることがわかる。

(a) 一次成分

都市大気エアロゾルにおける一次有機成分の主な発生源は自動車でありその他に化学工業、塗装、暖房、調理などの人為活動の寄与がある。これらによって放出される化学種は アルカン、アルケン芳香族炭化水素およびそれらのアルデヒド、ケトン、酸、ニトロ誘導体である。一次成分の中で、健康影響の点でとくに重要なのは多環芳香族炭化水素 (PAH) およびそのニトロ誘導体であるので、ここではそれらに焦点を絞ることとする。なお、ニトロ誘導体には二次生成の寄与もあるが併せて記す。

これまでに大気中に見出された PAH としては 2 環体 (naphthalene) から 7 環体 (例えば coronene) あるいはそれ以上のものまで 100 種以上が知られている。Baek ら (1991) によれば、2 および 3 環体は大部分が気相に存在し、4 環体は気温等の条件によって気相と粒子状固相に分配され、5 環体以上はほぼすべて固相粒子の形になっている。4 環体以上のものの中には発がん性や変異原性をもつものが多く、健康リスクの点で注意しなければならぬのは粒子状 PAH である (Cautreels and Van Cauwenburghe, 1978; Saiz-Jimnez, 1993)。

都市部における濃度レベルの最近のデータとして London における測定結果 (Kendall et al., 2001) を表 2.2 に示す。これらの例を含めて、世界各地の都市大気に共通に含まれる PAH の化学種は BaA、BaP、CRY、BkF、BghiP などである。PAH は炭素を含む燃料の不完全燃焼により生成され、固定発生源および移動発生源から排出される。都市域では移動発生源の寄与が大きいと言われている。

先に紹介した Venkataraman (1994a, b) らの研究では EC と並んで PAH の粒径分布も測定された。結果の一例として BaA の粒径分布を図 2.9 に示す。トンネル内 (a) と環境大気中 (b) の分布はそれぞれ図 2.6(a)、(b) の EC の分布に類似しているのが特徴的である。これは測定された他の 9 種の PAH についても同様であった。お

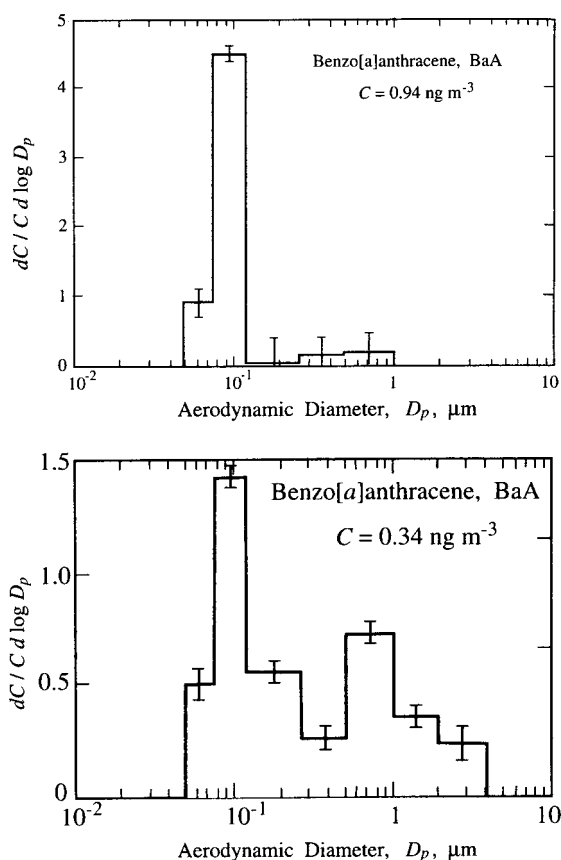


図 2.9 Benzo[a]anthracene の粒径分布
 (a) Caldecott トンネル (California, U.S.A.) 内の大気
 (b) Pico Rivera (同) の環境大気、夏期
 (Venkataraman et al., 1994a, b)

そらく PAH は EC 粒子に付着した形で一次排出され、その粒子が先に記したような過程により成長するために環境大気中での分布が (b) のようになるのであろう。

Venkataraman らが観測を行った Berkeley の Caldecott トンネルには 3 本の通路があり、そのうち 2 本は重量車用、残りの 1 本が軽量車用とされている。Miguel ら (1998) はこのことを利用してこれら 2 種類の車から排出される PAH の濃度および粒径分布の違いを調べた。トンネル内で測定された濃度から燃料消費量あたりの PAH 排出量を推定した結果、当然予想されるように全体的な排出量は重量車の方がはるかに大きく軽量車の十数倍に達するが、PAH 種別に見ると重量車は分子量の小さい PAH だけを排出するのに対して、軽量車は分子量の小さい FLT (M=202) から大きい DBA (M=278) にいたるまでより多くの種類の PAH を排出することがわかった。このような排出パターンの違いは、PHA の発生源を推定する際に有用なデータとなる可能

表 2.2 London における PAH 濃度の観測例 (ng m⁻³)

物質名	略称	観測地点			
		Kendall et al.(2001)		St. Paul's(b)	
		Green(a)	St. Paul's(b)	Green(a)	St. Paul's(b)
		平均値	最大値	平均値	最大値
naphthalene		0.03	0.13	0.04	0.19
acenaphthylene		0.08	0.47	0.13	1.61
acenaphthene		0.05	0.35	0.07	0.68
9H-fluorene		0.16	1.62	0.13	0.61
phenanthrene		0.15	0.69	0.22	1.04
anthracene		0.09	0.54	0.12	0.31
pyrene	PYR	0.18	0.77	0.26	1.15
fluoranthene	FLT	0.06	0.41	0.09	0.41
chrysene	CRY	0.65	6.15	0.97	3.52
benz[a]anthracene	BaA	0.73	6.44	1.16	5.37
benzo[b]fluoranthene		0.33	2.57	0.63	4.16
benzo[k]fluoranthene	BkF	0.36	1.66	0.59	2.29
benzo[a]pyrene	BaP	0.27	1.93	0.55	2.88
indeno[1,2,3-cd]perylene		0.20	1.82	0.44	3.00
benzo[ghi]perylene	BghiP	0.93	6.99	1.78	8.91
dibenz[a,h]anthracene	DBA	0.01	0.13	0.03	0.46
total PAH		4.27	27.87	7.24	32.04

(a) London 北部の住宅・工場混合地域

(b) London 市街の中心部

性がある。また粒径分布を見ると、重量車からの排出量が大きい軽 PAH、すなわち FLT、PYR、CRY、BaA などは Venkataraman らの観測結果とは異なり、トンネル内で既に accumulation mode にまで広がっていることがわかった。トンネル内で観測されたこの粒径領域の PAH は未燃のディーゼル燃料に由来するのではないかと Miguel らは推測している。

健康影響の観点からは PAH 自身だけでなく、関連物質としてそのニトロ化誘導体とくに注意しなければならない。分子内にニトロ基が導入されることにより発がん性や変異原性によるリスクが一層大きくなることが知られているからである。ニトロ化 PAH (NPAH) のうち genotoxicity が高いのは 4 環体以上のもので、これらはほぼ 100% エアロゾル粒子として存在する。これまでに大気中濃度の高いデータが得られているのは 9-nitroanthracene(9NA) および FLT と PYR のニトロ誘導体である。

NPAH の発生過程には、PAH と同様燃焼に伴って生成され排気に含まれて放出される一次排出に加えて、大気中での PAH のニトロ化反応により生ずる二次生成が

あり、この点で PAH よりも複雑である。一次発生源で最も寄与が大きいのはディーゼル自動車であり、その他ガソリン車からも排出され、また固定発生源には石炭燃焼発電所、アルミニウム精錬所などがある。大気中の化学反応による二次生成過程は、親 PAH と OH または NO_3 との気相反応、および、 N_2O_5 あるいは HNO_3 と粒子状の PAH との不均一反応である。過去の研究によれば、不均一反応では直接排出されるのと同じ異性体が生ずるが、気相反応ではそれとは異なる異性体となる、という特徴的な結果が得られている。例えば、粒子状 PYR の不均一ニトロ化により生成するのは 1-nitropyrene (1NP) で、これはディーゼル排気に含まれる主要 NPAH の一つでもある。一方、 NO_2 の存在下での OH と PYR の気相反応では 2NP が生成する。同様に、FLT が不均一反応でニトロ化されるとディーゼル排気中に検出されているのと同じ異性体 3-nitrofluoranthene (3NF) が生成するのに対して、 NO_2 の存在下で OH または NO_3 による気相反応が進めば 2NF が生ずる。

最近 Feilberg ら (2001) は Denmark の都市部と準農村部で観測を行い、9NA、2NF、3NF、1NP、2NP の 5 種類の NPAH を検出した。最高濃度を示したのは都市部の 1NP で $0.13\text{ng}/\text{m}^3$ であった。濃度間の相関分析などから、2NF と 2NP は二次生成、1NP と 3NF は一次排出がそれぞれ主な発生過程であることが示唆された。また 9NA の発生源は都市部と準農村部とで異なっていて、前者では直接排出、後者では二次生成の寄与が大きいと推定された。さらに、大陸方面から汚染気塊の長距離輸送がある場合の濃度の変化を調べ、二次生成される 2NF と 2NP の濃度は長距離輸送の影響を受けて高くなるが、直接排出される 1NP および 3NF は影響されないという興味深い結果を得た。

(b) 二次成分

一次的に排出された気相炭化水素やその類縁物質が大気における化学反応により蒸気圧の低い物質に変化して粒子化するのが二次有機エアロゾルの生成過程である。前駆体の炭化水素は主に炭素数 7 以上の アルケン 5 以上のジアルケンとシクロアルケン 7 以上の芳香族などであり、粒子化をもたらす反応は OH、 HO_2 、 NO_3 などの

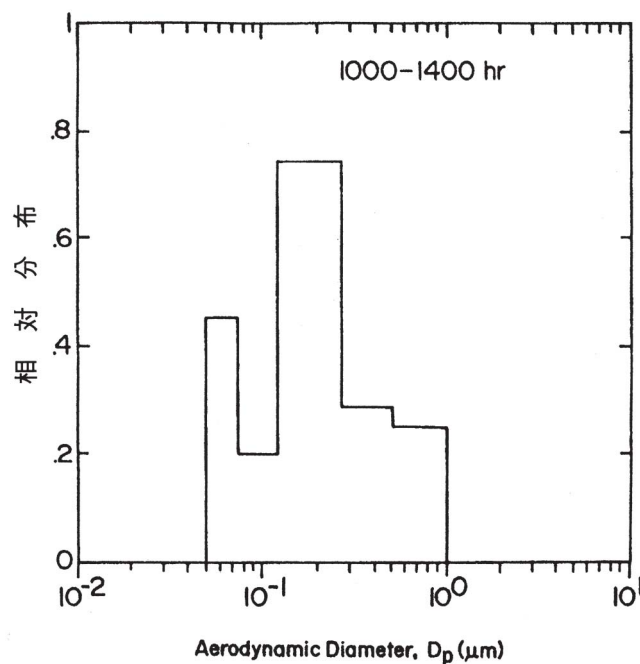


図 2.10 有機硝酸化合物の粒径分布
Claremont, California, U.S.A. における観測結果
(Mylonas et al., 1991)

ラジカル類やオゾン、気相硝酸による酸化反応、凝縮性の生成物はカルボン酸、ジカルボン酸、アルデヒド、ニトロキシ、ニトロ化合物などである。

大気中の二次有機エアロゾルの生成については実験、理論両面にわたって膨大な研究例があり、それらを総合するシミュレーションモデルの構築に関する論文も数多く発表されている。そこで本章では紙数の制限を考慮して、現状における中心的な課題の一つ指摘するにとどめたい。

二次有機エアロゾル生成の関わる化学反応についてはスモッグチャンバーなどを用いた室内実験がメカニズム解明の点で有効性を発揮してきた。しかしそれだけで実環境中での二次生成過程を理解できるわけではないことは言うまでもない。化学反応によって生成する凝縮性有機物は多少とも蒸気圧を持っているので、ある割合で気相と粒子相に分配されることとなり、その分配率の実大気中における値を評価することが、二次生成有機エアロゾルを把握する上で最大の難関となっている。気相から粒子相への移行フラックスを J とすると、これは凝縮性生成物の気相分圧、 p_g 、と粒子相における蒸気圧、 p_p 、との差に比例する：

$$J \propto pg - pp$$

気相・粒子相分配率は $J = 0$ の条件で決まることになるが、ここで難しい問題は、pp が凝縮性生成物それ自体の性質でないという点である。凝縮性生成物の粒子化は均一核形成によるのではなく、既存の粒子への凝縮や吸着という不均一過程により進むためにそのようなことになるのである。既存粒子が液相（ミスト）であれば pp は溶液上の蒸気圧であり、固相（ダスト）であれば吸着平衡圧である。したがって、実大気中でどれだけの二次有機エアロゾルが生成するかを評価するためには、その大気にどのような種類のエアロゾル粒子が既に存在するかを知らなければならない。そして、実大気中の種々雑多な物質を含む多成分系についての溶液蒸気圧や吸着平衡圧に関するデータが必要になる。

上記のような生成過程を考えると、二次有機エアロゾルの質量は既存粒子の表面積にほぼ比例することが期待される。図 2.10 は大部分が二次生成物であると考えられる有機硝酸化合物エアロゾルの粒径分布であるが、 $0.1 \sim 1.0 \mu\text{m}$ の間に極大があって図 2.1 (b) の表面積基準分布と対応している。

2.4 おわりに

以上、PM_{2.5}・DEP プロジェクトの対象である都市大気エアロゾルについて、粒径分布と化学組成という観点で最近の研究を概観した。その過程で今後研究課題として取り上げるべき問題を指摘したが、まとめとしてそれを列挙しておこう。

- 1) $2.5 \mu\text{m}$ という値は適当か？
- 2) 個数濃度と健康影響の関係
- 3) 酸性エアロゾルの測定
- 4) 元素状炭素に含まれる不純物の定量
- 5) 大気汚染物を含む多相系に関する溶液蒸気圧や吸着平衡圧データの取得

これらに付け加えてさらに次の点を指摘したい：

- 6) リスク濃度評価法の確立

粒子状物質の健康影響を考える際、問題となっている物質の存在量を表すために従来はほとんどの場合質量濃度が用いられてきた。しかし影響を支配する量として個

数濃度も考慮する必要があることは上記 2) で指摘したとおりである。今後さまざまな種類の粒子状物質を対象とする削減対策などを効率的に進めるためには、種々の物質のリスクの大きさを定量化して環境濃度との積によって「リスク濃度」というべき量を評価することが重要であろう。

文献

- 石井康一郎、一都七県三市関東 SPM 検討会 (2001) 「南関東における大気エアロゾルのキャラクタリゼーション - 平成 11 年度調査結果の概要」、大気環境学会関東支部 粒子状物質部会 講演会 要旨 pp12-18。
- 浮遊粒子状物質対策検討会 (1997) 浮遊粒子状物質汚染予測マニュアル (東洋館出版社)、pp171-172。
- Baek, S.O., Field, R.A., Goldstone, M.E., Kirk, P.W., Lester, J.N., Perry, R. (1991) "A review of polycyclic hydrocarbons: sources, fate and behavior", *Water, Air Soil Pollut.* 60, 279-300.
- Cautreels, W., Van Cauwenburghe, K. (1978) "Experiments on the distribution of organic pollutants between airborne particulate matter and the corresponding gas phase", *Atmos. Environ.* 12, 1133-1141.
- Feilberg, A., Poulsen, M.W.B., Nielsen, T., Skov, H. (2001) "Occurrence and source of particulate nitro-polycyclic aromatic hydrocarbons in ambient air in Denmark", *Atmos. Environ.* 35, 351-366.
- Harrison, R.M., Yin, J. (2000) "Particulate matter in the atmosphere : which particle properties are important for its effects on health ?", *Sci. Total Environ.* 249, 85-101.
- Hitzenberger, R., Puxbaum, H. (1993) "Comparisons of the measured and calculated specific absorption coefficient for Vienna urban aerosol samples", *Aerosol Sci. Technol.* 18, 323-345.
- Hitzenberger, R., Tohno, S. (2001) "Comparison of black carbon (BC) aerosol in two urban areas - concentrations and size distributions", *Atmos. Environ.* 35, 2153-2167.
- Kendall, M., Hamilton, R.S., Watt, J., Williams, I.D. (2001) "Characterization of selected speciated organic compounds associated with particulate matter in London", *Atmos. Environ.* 35, 2483-2495.
- Keywood, M.D., Ayers, G.P., Gras, J.L., Gillett, R.W., Cohen, D.D. (1999) "Relationship between size segregated mass concentration data and ultrafine particle number concentrations in urban areas", *Atmos. Environ.* 33, 2907-2913.
- Kim, B.M., Teffera, S., Zeldin, M.D. (2000) "Characterization of PM_{2.5} and PM₁₀ in the South Coast Air Basin of Southern California: Part 1 - Spatial Variations", *J. Air Waste Manage. Assoc.* 50, 2034-2044.
- Kitto, A., Harrison, R.M. (1992) "Processes affecting concentrations of aerosol strong acidity at sites in eastern England", *Atmos. Environ.* 26A, 2389-2399.
- Lee, H.S., Kang, C., Kang, B., Kim, H. (1999) "Seasonal variations of acidic air pollutants in Seoul, South Korea", *Atmos. Environ.* 33, 3143-3152.

- Miguel, A.H., Kirchstetter, T.H., Harley, R.A. (1998) "On-road emissions of particulate polycyclic aromatic hydrocarbons and black carbon from gasoline and Diesel vehicles", *Environ. Sci. Technol.* 32, 450-455.
- Mylonas, D.T., Allen, D.T., Ehrman, S.H., Pratsinis, S.E. (1991) "The Sources and Size Distributions of Organonitrates in Los Angeles Aerosol", *Atmos. Environ.* 25A, 2855-2861.
- Saiz-Jimenez, C. (1993) "Deposition of airborne organic pollutants on historic buildings", *Atmos. Environ.* 27B, 77-85.
- Seinfeld, J.H., Pandis, S. (1998) "Atmospheric chemistry and physics — From air pollution to climate change", John Wiley & Sons, pp429-433.
- Turpin, B.J., Huntzicker, J.J. (1995) "Identification of secondary organic aerosol episodes and quantitation of primary and secondary organic aerosol concentrations during SCAQS", *Atmos. Environ.* 29, 3527-3544.
- Turpin, B.J., Saxena, P., Andrews, E. (2000) "Measuring and simulating particulate organics in the atmosphere : problems and prospects", *Atmos. Environ.* 34, 2983-3013.
- Venkataraman, C., Lyons, J.M., Friedlander, S.K. (1994a) "Size distribution of polycyclic aromatic hydrocarbons and elemental carbon 1. Sampling, measurement methods, and source characterization", *Environ. Sci. Technol.* 28, 555-562.
- Venkataraman, C., Friedlander, S.K. (1994b) "Size distribution of polycyclic aromatic hydrocarbons and elemental carbon 2. Ambient measurements and effects of atmospheric processes", *Environ. Sci. Technol.* 28, 563-572.

3. PM2.5・DEP の測定方法

3.1 大気環境中のエアロゾルの測定

内山政弘

(1) はじめに

この節ではエアロゾルの粒径の測定方法について述べる。エアロゾルの物理的性質としては、大きさ、形、質量、色などが考えられるが、もっとも基礎的な性質である大きさの測定に限ってもその測定は困難である。ハイドロゾルが熱力学的に準安定状態であるのに対し、エアロゾルは過渡的状态、分散質と分散媒が非平衡関係にある；あるいはせいぜい動的な平衡にある；と考えられるからである。

このエアロゾル測定の困難さはエアロゾルの日本語訳＝「煙霧体」の言葉に含まれる霧（粒）の測定を想定するともっとも判りやすい。霧の分散質は数ミクロンの水滴であり、分散媒は空気＋水蒸気である。H₂Oの大半は気相側（水蒸気）にありその極一部が過渡的に液相となっている。系は準安定状態にないので、系の温度あるいは湿度が変化すると霧の粒径分布は速やかに変化する。大雑把に言って0.1 Kの温度変動で霧粒の粒径変化の時定数は0.1秒以下である。従って、霧の測定系は事実上熱源を持つことが許されない。

更に、エアロゾル粒子と媒質との動的平衡を決める過程は、通常は粒子周囲の分子拡散層内における分子拡散と考えられる。この粒子周囲の分子拡散層厚さは近似的にエアロゾルの粒径および媒質との相対速度で決定される。従って、粒子と媒質の相対速度が変化すればその粒径は速やかに、かつ不可逆的に変化する。一般にフィルターやインパクター（後述）での捕集などのように媒質と粒子の相対速度を大きく変化させる捕集方法では粒子の形状に関する情報は不可逆的に失われる。

このようにエアロゾル計測は媒質と過渡的（動的）な平衡系にある粒子の計測という意味で、単なる粒子計測（粉体計測）とは一線を画す。

大気環境計測は各測定者間のデータ相互利用が前提であるから、測定原理が広く理解され、かつ入手が可能なもの（原理が簡明で自作が容易なもの、あるいは市販品）でなければ意味がない。ここでは、大気環境中のエアロゾルの測定に相応しいと思われる測定器について述べ、

実験室以外では動作させることが困難なものあるいは特定の場合にのみエアロゾルの物理量に比例すると考えられる量を測定することにより粒子の計測と見なす測定法は除外する。

ここで述べる測定方法は新しいものではない。大気エアロゾルの測定方法にこの数十年間で本質的な進歩はみられていない。実際、フリードランダーによる著名な教科書の第一版と第二版において測定方法の記述に本質的な変化はみられない（Friedlander、1977、1st Ed.; 2000、2nd Ed）。また、日本人の著者による優れた総説があり（中谷茂、内藤恵吉、1981）、更に詳しい解説はそちら参照されたい。

(2) リモートセンシングによる方法

上述した様に一般大気中のエアロゾルの測定にはエアロゾルが存在している非平衡系を乱さない必要があるが、系を乱さない測定法としてはライダーがある。

ライダーはパルスレーザー光を大気中へ発射し、エアロゾルによるミー散乱光を測定する。レーザーを送信した時間から信号を受信するまでの時間遅れから距離が求まり、受信光強度からレーザーの光路に沿った散乱係数の分布から一定の仮定の基でエアロゾルの空間分布が得られる。一般大気環境測定では測定により人的被害を及ぼすことは許されないが、最近、目への安全性が高い超小型・多波長スキヤニングライダーが可能となりつつある。（阿保真、2001）このようなライダーが沿道などの都市環境で使用可能となれば大気エアロゾル計測に大きく進展させると考えられる。

(3) サンプルングによる方法

エアロゾルを測定部にサンプルングするタイプの計測器でエアロゾルの非平衡性を厳密に考慮した計測器は事実上存在していない。

濃度分布の測定にはまず特定の粒径（あるいは質量）で分級した後にその粒径範囲の個数濃度を測定するのが一般的である。分級する方法としては、(a) 粒径による拡散係数の違いを利用する；(b) 媒質の流速を変化させ粒子の流体力学的な抵抗力(*)を利用して分級する；(c) 粒子を帯電させた後電場の中に導き、クーロン力と粒子の流体力学的な抵抗力の組み合わせで分級する；(d) クーロン力と粒子の運動量との組み合わせで分級する；な

どの方法がある。

エアロゾル分級に特徴的なこととして流体力学的な抵抗力を用いると、粒子の質量に依存せずその(球)相当径で分級出来ることが挙げられる。

分級した後の粒子の粒子个数計測としては、(i) 光を照射し、粒子からの散乱光強度を測定する；(ii) バランスに捕集して重量を測定する；(iii) 帯電したエアロゾルにより運ばれる電荷を、電流として測定する；(iv) 放射線を照射し、エアロゾルの質量による放射線の吸収量を測定する；などの方法がある。

以下に典型的な分級方法と測定方法述べる。

分級法

(b) 媒質の流速を変化させ粒子の流体力学的な抵抗力を利用する分級

様々な変形があるがインパクターを図3.1.1に示す。図に示した様に流跡線の急激な変化に添えない粒子がフィルターに沈着し捕集される。前述したようにインパクターに捕集した粒子の重量測定、顕微鏡による个数、形態観測等を行う。

(c) 帯電粒子のクーロン力と粒子の流体力学的抵抗力の組み合わせでの分級

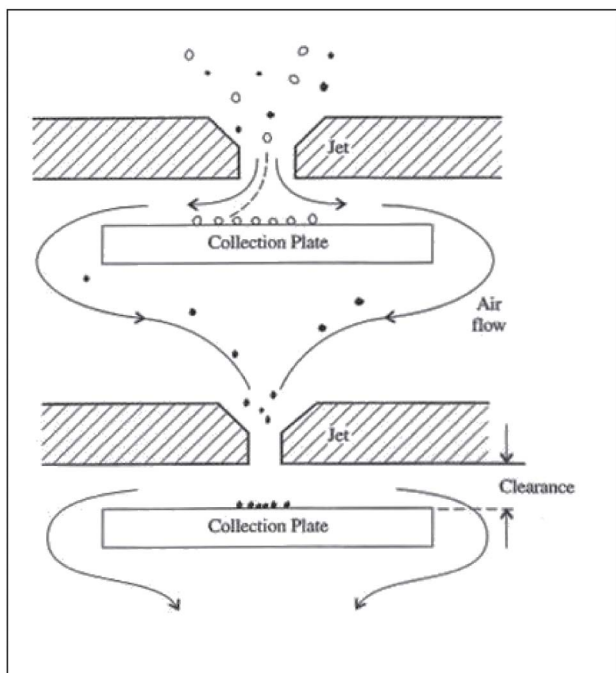


図 3.1.1. Schematic diagram of impactor
(S.K. Friedlander, 2000, 'Smoke, Dust, and Haze'
2nd Ed. Oxford Univ. Press)

このタイプの分級器は Differential Mobility Analyzer (DMA) として知られている。図3.1.2に示したように帯電した粒子の内、ある範囲の流体力学的抵抗力(粒子移動動に反比例)を持つ粒子(=一定の粒径範囲)の粒子のみが分級され分級器の外に取り出される。この様に一定の粒径範囲の粒子を外部的に取り出せるので、後段にさまざまな測定器を置くことが可能であり多用される。

(d) 粒子を帯電させ電場の中に導き、クーロン力と粒子の運動量との組み合わせでの分級

上述(d)を利用するエアロゾル計測法として最近、eEhara(1996)によりエアロゾル粒子の質量が測定可能な「粒子質量分析法」が開発された。この方法では電荷を与えた粒子を高速回転する同軸円筒状電極に導入し、粒子に働く遠心力と静電気力のバランスを利用する。電荷が同一であれば、質量の大きい粒子には遠心力が強く働くため外側の電極に捕捉され、逆に質量の小さい粒子

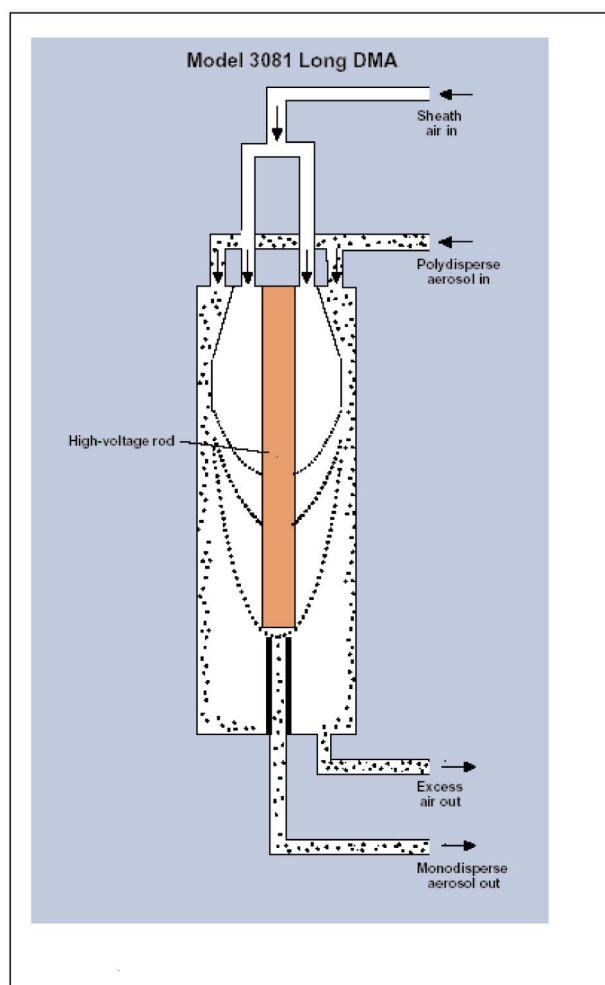


図 3.1.2. Schematic diagram of DMA

は内側電極に捕捉される。従って特定の質量をもった粒子のみを選択的に取り出すことができる。

(4) 粒子の測定法

(i) 光の散乱による方法

光を照射してその散乱光を測定する方法は単位時間での散乱光パルス数により粒子個数（濃度）が、散乱光強度で粒径を測定することが出来る。従って、この方法では分級を行わずにエアロゾルの粒径分布が測定可能となる（→ レーザーパーティクルカウンター）。更にこの方法の応用として、DMA により分級された粒子を測定するために開発された CPC（Condensation Particle Counter）がある。光散乱による粒子径の計測では、照射する光の波長より小さい粒子からの散乱光は微弱となり測定が困難となる。CPC では分級された粒子を過飽和の箱に導き、凝縮核として機能させ、測定波長より大きな粒子に成長させ後に光散乱で測定する。現在の市販装置では 30nm の粒子測定可能である。図 3.1.3 に市販品の模式図を示す。

(ii) バランスに捕集しての重量測定

インパクション等により粒子をバランスの上に捕集して測定する方法では高感度なバランスが必要となる。通常

QCM や TEOM が用いられる。図 3.1.4 に TEOM の模式図を示す（Lewtas、1979）。

テーパー管に粒子が付着することにより、管の固有振動数が変化するが、その変化を検出することにより付着した粒子の質量を検出する。QCM も TEOM も媒質の水蒸

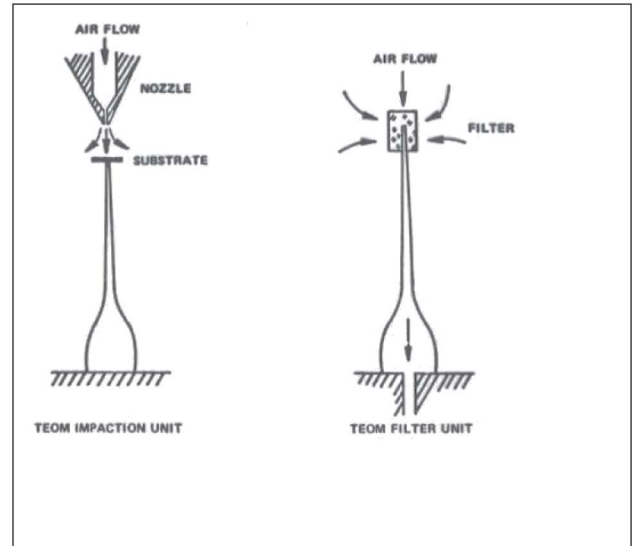


図 3.1.4. Schematic diagram of TEOM (Proceedings: Advances in Particle Sampling and Measurement Daytona Beach, FL. October 1979、264-275)

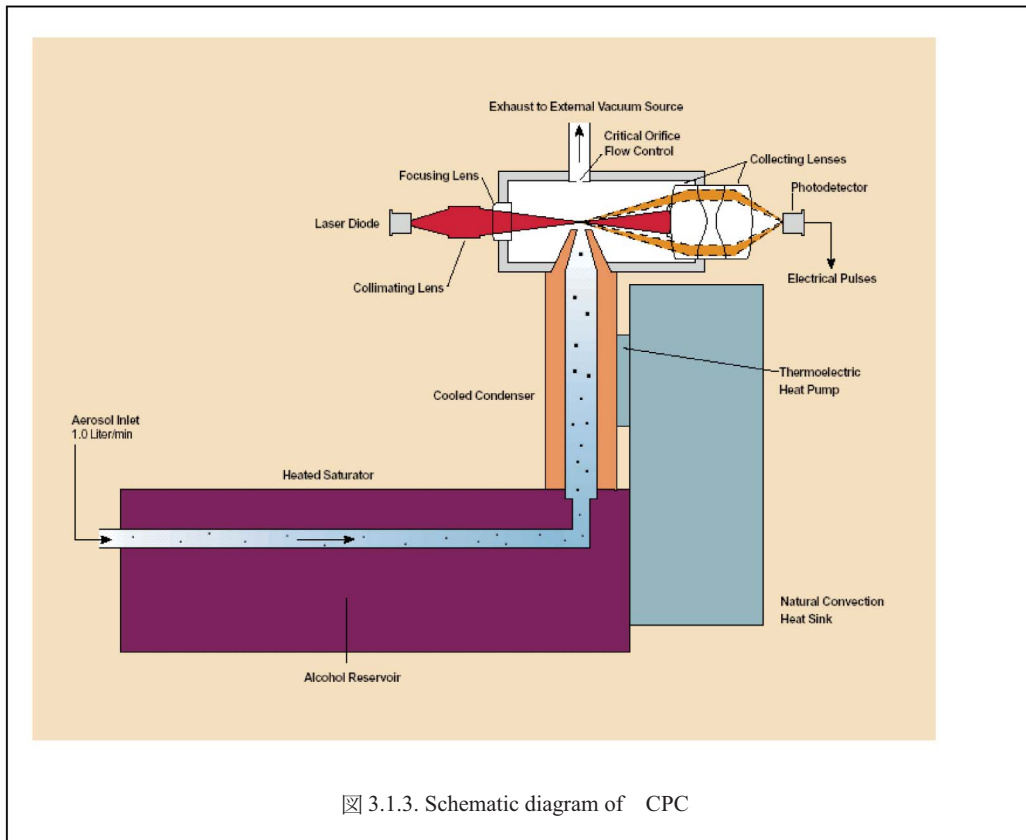


図 3.1.3. Schematic diagram of CPC

気濃度変動に敏感なことが知られており、通常は二個を対にして使い、片方には媒質のみを流し、媒質の水蒸気濃度変化を補償するように構成する。

大気環境エアロゾルの計測器としては光の散乱強度と流体力学的抵抗力を利用したものが多用されるが、これらにより測定される粒径はそれぞれ、光学径、空気動力学径と呼ばれる。勿論これらの径が同一であるべき理由は存在しない。粒子の健康影響に最も関連が深い肺深部への取り込まれ易さは空気動力学径に依存すると考えられるが、大気環境中の粒子の連続測定法としてはレーザーパーティクルカウンターによる方法が最も簡便であるから、これら二種類の粒径の関係を測定する方法は重要である。

粒径の測定を測定光の波長程度 (0.3μ) 以上に限定すれば、同一の粒子に対してこれら二つの径を測定することも可能となっている。

Aerosol Time-of-Flight Spectrometer (TOF)

図 3.1.5 にそのような測定器である TOF の原理を示す (TSI model 3312)。ノズルから吐出する粒子はその流体力学的抵抗力 (空気動力学径) の違いにより異なる速度を持つことになる。この速度は一定の間隔で平衡に照射されているレーザーからの散乱光パルスの時間差から測定され、空気動力学径が求まる。また散乱光パルスの大きさから光学径が測定出来る。測定結果の例も図 3.1.5 に示す。疫学調査では重量濃度測定が要請されるが、こ

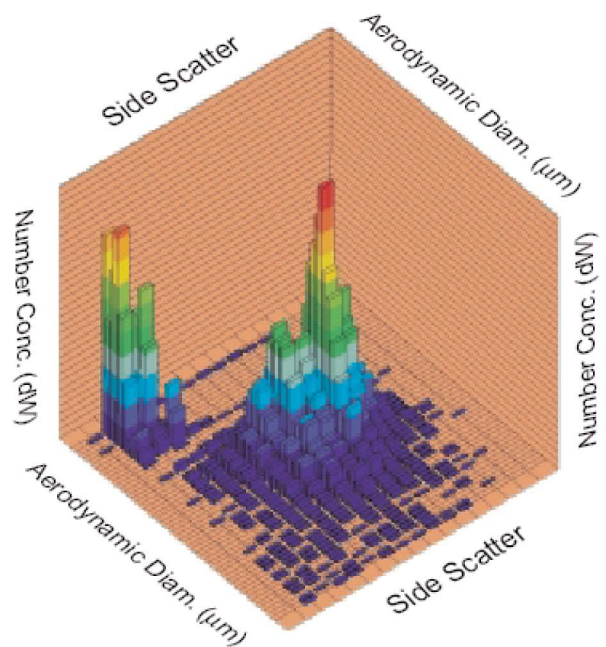
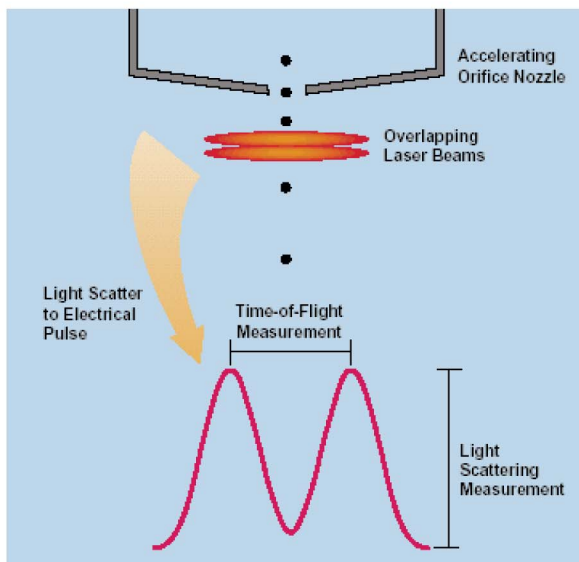


図 3.1.5. Schematic diagram of TOF

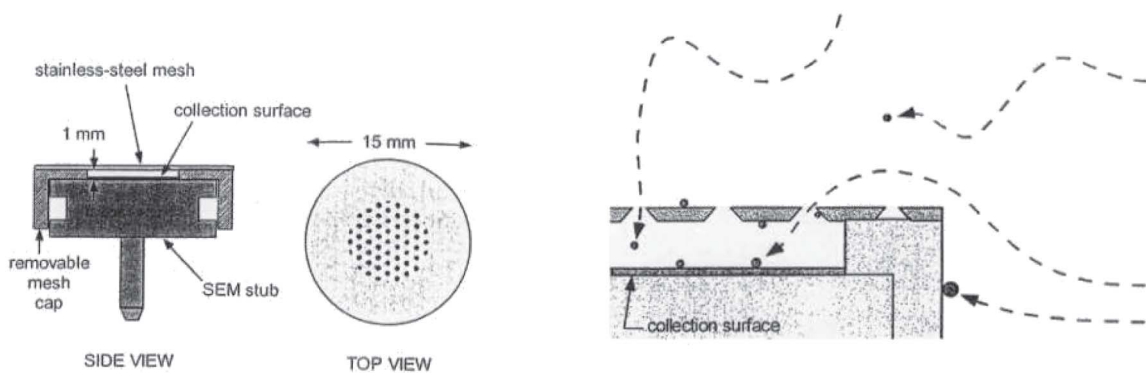


図 3.1.6. Schematic of deposition into passive sampler with horizontal mean wind velocity
(J. Wager and D. Leith, 2001, Aerosol Science and Technology 34, 186-192)

の測定機器と前述した「粒子質量分析法」との組み合わせで、同一の粒子に対して、光学径、空気動力学径、質量の測定が可能となる。

(5) パッシブサンプラー

大気エアロゾル計測の目的の一つとして、粒子濃度と健康影響との関連が挙げられる。疫学調査には軽量かつ堅牢なエアロゾル測定器（捕集器）が必須であり、粒子の拡散を利用した図 3.1.6 に示したようなパッシブサンプラーの開発も試みられている（Wager & Leith, 2001）。風洞を利用したその特性も評価されているが、ガスと違いエアロゾルの輸送が複雑なこともあり、実用に供する段階とは言い難い。

図 3.1.7 に最近の一般的な都市大気エアロゾル計測器を示す。意図的にデニューダー(**)で汚染物質の気相濃度を動かし、ある特定の雰囲気での粒子として計測を行っている。

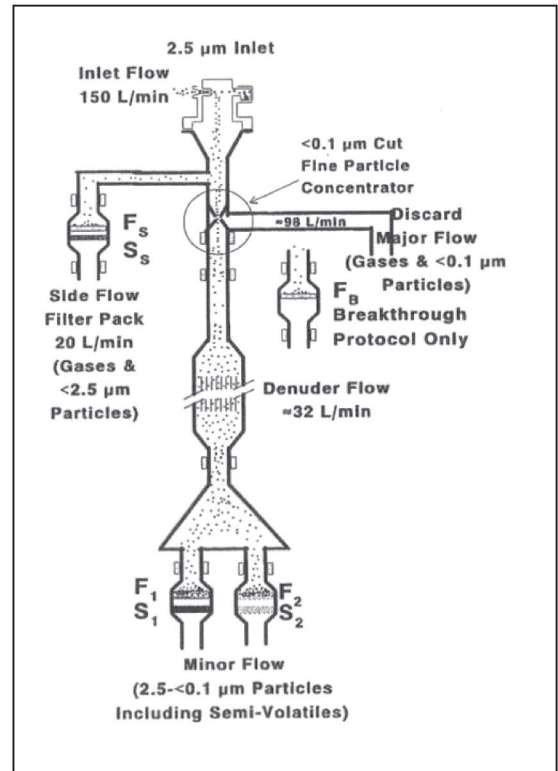


図 3.1.7 一般的な都市大気エアロゾル計測器

文献

K.Ehara,C.R.Hagwood and K.J.Coakley, 1996,Novel Method to Classify Aerosol Particles According to Their Mass-to-charge Ratio,J.Aerosol Sci.,27,217-234
 J.Lewtas,Y.Pang,D.Booth,S.Reimer,D.J.Eatough and L. A. Cundel, 2001, Comparison of Sampling Methods for Semi-Volatile Organic Car-bon Associated with PM2.5,Aerosol Science and Technology, 34,9-22,
 S.K.Friedlander,1977 & 2000,'Smoke,Dust,and Haze'2nd Ed.Oford Univ.Press
 H.Patashinck,G.Rupprecht,A New Real-time Aerosol Mass Monitoring Instrumet:TEMO, 1980, Proceedings: Advances in Particle Sampling and Measurement Daytona Beach, FL. October

(J. Lewtas, Y.Pang, D.Booth, S.Reimer, D.J. Eatough and L.A.Cundel, 2001, Aerosol Science and Technology, 34, 9-22)

1979, 264-275
 J. Wager and D. Leith, 2001, Passive Aerosol Sampler, Aerosol Science and Technology 34, 186-192
 阿保真、2001、第 21 回レーザーセンシングシンポジウム予稿集、84-85、'紫外スキャニングライダーによる大気境界層内の物質動態解析'
 中谷茂、内藤恵吉、1981、気象研究ノート第 142 号。

* 抵抗力 = $\nu r / (6 \pi \mu a)$;ここで νr : 粒子と媒質の相対速度、
 a: 粒子半径、 μ : 粘性係数
 ** デニューダー
 粒子の拡散係数はガスの拡散係数に比して 1/100 ~ 1/10000 であ

る。従って特定のガスを十分な速度で吸収する壁面を有するチューブを通すことにより、エアロゾルの粒子個数損失を許容範囲に抑えてエアロゾル周囲のガス濃度を減少させる機器。

3.2 炭素成分の分析

長谷川 就一

3.2.1 元素状炭素と有機炭素

大気エアロゾルの炭素成分は、無機炭素と有機炭素 (Organic Carbon; OC) に大別される。このうち、無機炭素は元素状炭素 (Elemental Carbon; EC) と炭酸塩炭素 (Carbonate Carbon; CC) からなるが、一般大気環境では炭酸塩炭素の存在割合はごく小さい。したがって、通常は元素状炭素と有機炭素を対象に分析を行う。

元素状炭素 (EC) は、すす (Soot)、黒色炭素 (Black Carbon; BC)、光吸収炭素 (Light-absorbing Carbon) などとも呼ばれており、これらはほぼ同義として使われているが、一般には測定法との関係で使い分けられていることが多い。

すす粒子は、高温での燃焼によって生成し、1500 °C 以下の温度では、芳香族炭化水素が芳香族環の縮重合 (凝縮) により、速やかに炭素結晶子を形成してできる。ただしこの結晶子は黒鉛 (Graphite) のように規則正しい配列は示さない (図 3.2.1)。また、1500 °C 以上では芳香族炭化水素は熱分解して CH_x 、 C_2H_x などのフラグメントを生じ、これらが縮重合することによってより大きな不飽和結合の分子を形成し、さらにこれらの分子の縮重合によって粒子が生成する。このため、すす粒子にはモル比で 10 % 程度の水素を含んでいる。また、すす粒子は 0.01~0.1 μm 程度の小球が鎖状に連なって 0.1~1 μm 程度の集合体をなしている (図 3.2.1) が、その表面に有

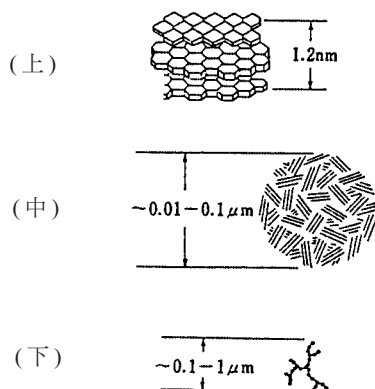


図 3.2.1 (上) すすの結晶子、(中) すすの球粒子、(下) すす粒子 (球粒子の鎖状集合体) (太田幸雄、1990。大気エアロゾル。大気の化学、123-145、学会出版センター)

機物や硫酸などが吸着していることもある。したがって、すす粒子は本来、元素状炭素と有機炭素の両方を含んでいるとも言える。

一方、有機炭素には、発生源から直接排出されるもの (一次生成) と、大気中での光化学反応によりガス状炭化水素から粒子化したもの (二次生成) があり、その成分は多種多様にわたっている。一次生成による多環芳香族炭化水素類やアルカン類・アルケン類炭化水素、二次生成によるジカルボン酸などの人為起源の粒子のほか、植物から放出されるテルペン類から生成する粒子などの自然起源の粒子もある。

3.2.2 測定法の概略

元素状炭素と有機炭素の分析に広く用いられているのは、熱分離法である。熱分離法は、元素状炭素と有機炭素の熱に対する安定性 (揮発温度) のちがいを利用して両者を分離し、適切な検出器を用いて定量する方法である。通常、二酸化炭素 (CO_2) に酸化させて非分散型赤外分析計 (ND-IR) を用いるか、または、二酸化炭素を還元してメタン (CH_4) に変換し、水素炎イオン化検出器 (FID) を用いて定量する。

一方、元素状炭素については、黒鉛のように“黒い”ため光をよく吸収することを利用して、光の吸収率、あるいは透過率の変化から濃度を求める光学法もある。黒色炭素や光吸収炭素などの呼称は、こうした性質に由来する。この方法は感度がよく、経時変化のモニタリングに適しているため、近年このタイプのモニタリング装置が数多く開発され、用いられている。

この他、元素状炭素が光を吸収することを利用した測定法として光音響法がある。また、有機炭素の測定法として、ベンゼン、メタノール等を用いた溶媒抽出法がある。

3.2.3 熱分離法による炭素分析

(1) 試料の採取

一般に、熱分離法による炭素成分の分析に供する捕集用フィルターには、石英繊維フィルターが用いられる。しかし、石英繊維フィルターはガス状有機物の吸着を伴うため、正のアーティファクトを引き起こす。特に、予

め捕集前に 600～900℃程度で加熱してフィルター上の炭素成分を除去するのが一般に行われているが、逆に加熱処理によって石英が活性化し、吸着能力が高まってしまう。一方で、捕集中に粒子状有機物の一部が揮発する可能性もあり、負のアーティファクトとなる。この両者の大小関係によって、結果として粒子状有機炭素を過大評価するか過小評価するかが決まる。

Eatough et al. (1990) は、デニューダー、石英繊維フィルター、含浸フィルターを組み合わせた3つの捕集系の比較から、負のアーティファクトが支配的であると結論付けている。一方、Turpin et al. (1994) は、正のアーティファクトが認められるため、テフロンフィルターの下流に石英繊維フィルターをセットし、この石英繊維フィルターで分析された分を吸着したガス状有機物として補正に用いることを薦めている。しかし、Chow et al. (1996) は、この方法で補正をおこなったところ、分析した試料のうちの3分の1について有機炭素濃度が負になってしまったと述べている。そこで、吸着を起こさないアルミニウム板を捕集板としたカスケードインパクターを用いて同時に捕集した試料を分析し、前述の補正方法による値と比較したところ、およそ3分の1の試料についてはよい一致を示した。このため、インパクターの分析から補正した値が、より正しいものであるとしているが、さらに検討をする必要があるとも述べている。また、Fitz (1990) は、石英繊維フィルターを吸着材としたデニューダーを用いてガス状有機物を除去して捕集する方法を提案している。

ただし、こうしたアーティファクトの粒子濃度に対する寄与は、場所や時季によっても異なり、採気時間にも関係すると思われる。例えば、吸着による正のアーティファクトの寄与は、粒子状物質濃度 (PM_{2.5}) の低いところで顕著であり (Chow et al.,1996)、採気時間が長ければその寄与は小さくなる (Turpin et al.,1994)。また、補正方法の選択には、コストや捕集・分析の手間も考慮する要素となる。一方で、捕集前に石英繊維フィルターを加熱処理しない、または加熱処理した上で有機ガスを通気して吸着飽和させる方法も考えられ、ブランク値が一樣であれば最も現実的な方法となる可能性もある。こうした点も含めて、最適な方法を検討する必要がある。

(2) 熱分離法と熱光学法

熱分離法によって、元素状炭素と有機炭素の分離をおこなう際、電気炉などを用いて試料を常温から昇温する方法と、試料を分離温度になった状態で導入する方法がある。また、電気炉と検出器がつながっている装置であれば、試料を常温から段階的に昇温していく方法もある。この場合は、元素状炭素、有機炭素、それぞれをさらに分けて測定することができる。これらの方法の条件設定の要素として、分離温度、加熱時間、昇温速度、加熱雰囲気などが挙げられる。しかし、これらの分離条件は、各機関によって広範にわたっており、それぞれの装置固有の設定と考えられる。

しかし、各機関の値を比較する際には、各々の測定値を慎重に吟味する必要がある。不活性ガス雰囲気では、加熱温度が低い場合には有機炭素の残留、加熱温度が高い場合には有機炭素の炭化 (pyrolysis, charring) が起こり、いずれの場合でも元素状炭素を過大評価することになる。一方、活性ガス雰囲気では、こうした有機炭素の炭化は起こりにくいが、元素状炭素は比較的低い温度で燃焼し始めるため、有機炭素の残留が考えられる。しかし、全炭素 (Total Carbon; TC)、すなわち元素状炭素と有機炭素の総和については大きな差異は生じないことから、元素状炭素と有機炭素をいかに分離するか、ということが問題となる。

熱分離法は、元素状炭素と有機炭素を迅速かつ簡便に分離・定量できる利点を持っている。そこで、熱分離法と有機炭素の炭化を補正する光学法を組み合わせた、熱光学法 (Thermal Optical Method) が考案された。熱光学法は、試料となるフィルターの透過率あるいは反射率を監視しながら、熱分析のように段階的に昇温していく方法である。昇温にともなって透過率あるいは反射率が低下し、それらが再び初期値に戻るまでの分を有機炭素の炭化によるものとして、有機炭素に算入することで補正を行う。したがって、この熱光学法が現時点では真値に最も近い分析結果をもたらす測定法と考えられる。

ただし、元素状炭素と有機炭素は、測定対象によって両者の割合や有機炭素の成分は異なることから、いずれの方法においても熱分離条件は測定対象によって異なるべきものと考えられる。ディーゼルエンジン、重油ボイ

ラーなどの発生源粒子の場合、その発生源特性が一定であれば、各発生源に応じた分離条件を設定することは可能であるが、大気エアロゾルの場合は様々な発生源からの寄与を受けており、また、その寄与の割合も、時間的、空間的に変動する。したがって、元素状炭素と有機炭素を完全に分離することは非常に困難であることに留意する必要がある。

(3) DRI カーボンアナライザー

本研究プロジェクトでは、新たに熱光化学法に基づいた炭素分析装置を導入した。この装置は、米国砂漠研究所 (Desert Research Institute; DRI) が開発したもので、DRI Model 2001 OC/EC Carbon Analyzer (以下、DRI カーボ

ンアナライザー) と称する (図3.2.2)。この装置については、Chow et al. (1993) に詳しく述べられている。表3.2.1にDRIカーボンアナライザーの仕様、図3.2.3にフローチャートをそれぞれ示す。ただし、今回導入した装置は、Chow et al. (1993) よりも改良された、新しい世代 (4代目) の装置であり、それまで反射率のみであったのに加えて、透過率による補正もできるようになった。

この装置で用いられる測定の方法は、IMPROVE (Interagency Monitoring of Protected Visual Environment) 方式と呼ばれている (Chow et al., 2001) (図3.2.4)。この方式によってこれまでに10万以上のPM_{2.5}ならびにPM₁₀の試料が分析されてきた。



図3.2.2 DRIカーボンアナライザー

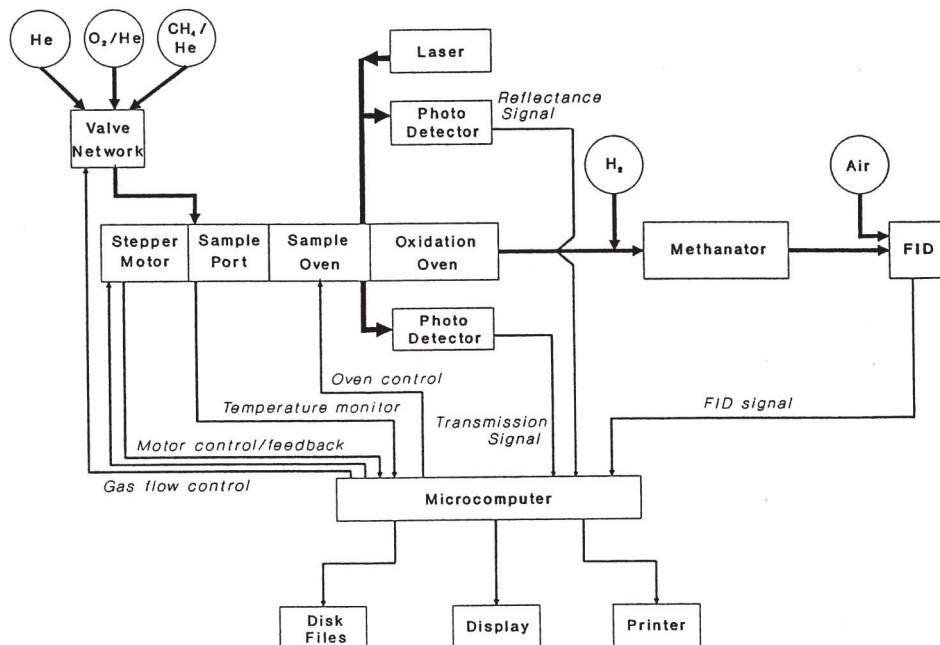


図3.2.3 DRIカーボンアナライザーのフローチャート (Chow et al., 1993、一部改定)

表 3.2.1 DRI カーボンアナライザーの仕様*

試料	材質	石英繊維フィルター (Pallflex 2500QAT-UP など)
	大きさ	直径 5/16inch(0.516cm ²)
分析時間		15-70 分
温度	酸化炉	900 °C
	メタナイザー	420 °C
	FID	125 °C
レーザー		He-Ne, 633nm
測定範囲		0.05-750 μg carbon/cm ²
最小検出限界	total OC	0.82 μg/cm ²
	high-temperature OC	0.81 μg/cm ²
	total EC	0.19 μg/cm ²
	high-temperature EC	0.12 μg/cm ²
	TC	0.93 μg/cm ²
分析精度		5% 以下 (TC で 10 μg/filter を含む一様な試料の場合)
EC と OC の分離の精度		測定された TC の 5% 以下
EC と OC の分離の正確さ		5-10%
EC と OC の分離の再現性		10 秒以内

* : DRI Model 2001 OC/EC Carbon Analyzer Instruction Manual, Atmoslytic Inc., 2001 に基づき作成

一方、IMPROVE 方式とは別に、NIOSH (National Institute of Occupational Safety and Health) 方式という測定条件もある (図 3.2.5)。NIOSH 方式は、US-EPA によって national PM_{2.5} speciation network によって得られた石英繊維フィルター試料の分析への適用が評価されている。

しかし、この 2 つの方式の測定条件 (熱分離温度、透過・反射率による補正) は異なっているため、Chow et al. (2001) は同一試料による両方式の比較をおこなった。この結果、NIOSH 方式の元素状炭素は IMPROVE 方式のそれに比べて半分程度であった。これは、NIOSH 方式では不活性ガス (ヘリウム) 雰囲気、850 °C で分析されたものを有機炭素として算入していることによるものと考えられる。この間の透過・反射率は増加していることから、この部分はむしろ元素状炭素とみるべきであり、仮にこれを元素状炭素に算入した場合、両方式の分析結果はよい一致を示すことがわかった。しかし、透過・反射率による補正については、両方式ともに透過率による補正の方が反射率によるものよりも大きく、特に非常に“黒い”試料についてはその差が大きかったことから、こうした補正もすべての試料に対して有効とは限らない。

(4) R&P カーボンモニター

本研究プロジェクトでは、DRI カーボンアナライザーの他に、Series 5400 Ambient Carbon Particulate Monitor (Rupprecht & Patashnick Co., Inc. 製、以下、R&P カーボンモニター) という炭素分析装置を導入した。

これは、主にシャシーダイナモメータによる自動車排ガス中の粒子状物質の炭素成分の分析を目的として導入したものであるが、本来は一般大気環境の連続モニタリング用の装置である。図 3.2.6 に R&P カーボンモニターの流路概念図を示す。インパクターあるいはサイクロンによって PM₁₀ や PM_{2.5} などに粒径分離された粒子を慣性衝突により捕集し、350 °C および 750 °C にて空气中で燃焼させ、発生した二酸化炭素 (CO₂) を ND-IR によって定量する。捕集・分析系が 2 つあり、一方では捕集、他方では分析をおこない、これを交互に切り換えることで、連続モニタリングを可能にしている。このため、近年この装置を用いた炭素成分の測定が各方面で増えている。ただし、熱分離については、前述した温度設定は製品案内に記載されているものであり、実際には温度を任意に設定でき、また 4 段階まで設定することが可能となっている。石英繊維フィルターを使用しないため、有機ガスの吸着は小さいと考えられるが、慣性衝突による捕集分離径が 0.14 μm であるため、その分過小評価していることが考えられる (McMurry, 2000)。

3.2.4 光学法による炭素成分測定

(1) 測定原理

ある波長の放射が、大気中を微小距離 ds だけ進む間に、放射強度 I が dI だけ変化したとすると、その変化量は、

$$dI = -\sigma_{ext} I ds$$

と表される。ここで、 σ_{ext} は体積消散係数 [m⁻¹] である。有限の光路長 S [m] を考えると、

$$I = I_0 \exp(-\sigma_{ext} S)$$

となる。これを Beer の法則 (Beer-Bouguer-Lambert の法則) という。この式を書き換えると、

$$\sigma_{ext} = (I / I_0) \ln(I / I_0)$$

となる。ここで、 I / I_0 は透過率であり、また I / I_0 は、フィルター上への採気体積を V 、フィルター上の捕集面積を A とすると、 A / V に等しい。放射強度 I の変化 (減衰) が、粒子の吸収のみによるものと仮定すれば、上式は、

$$\sigma_{abs} = (I / I_0) \ln(I / I_0)$$

となる。さらに、体積吸収係数 σ_{abs} は、単位体積の空気

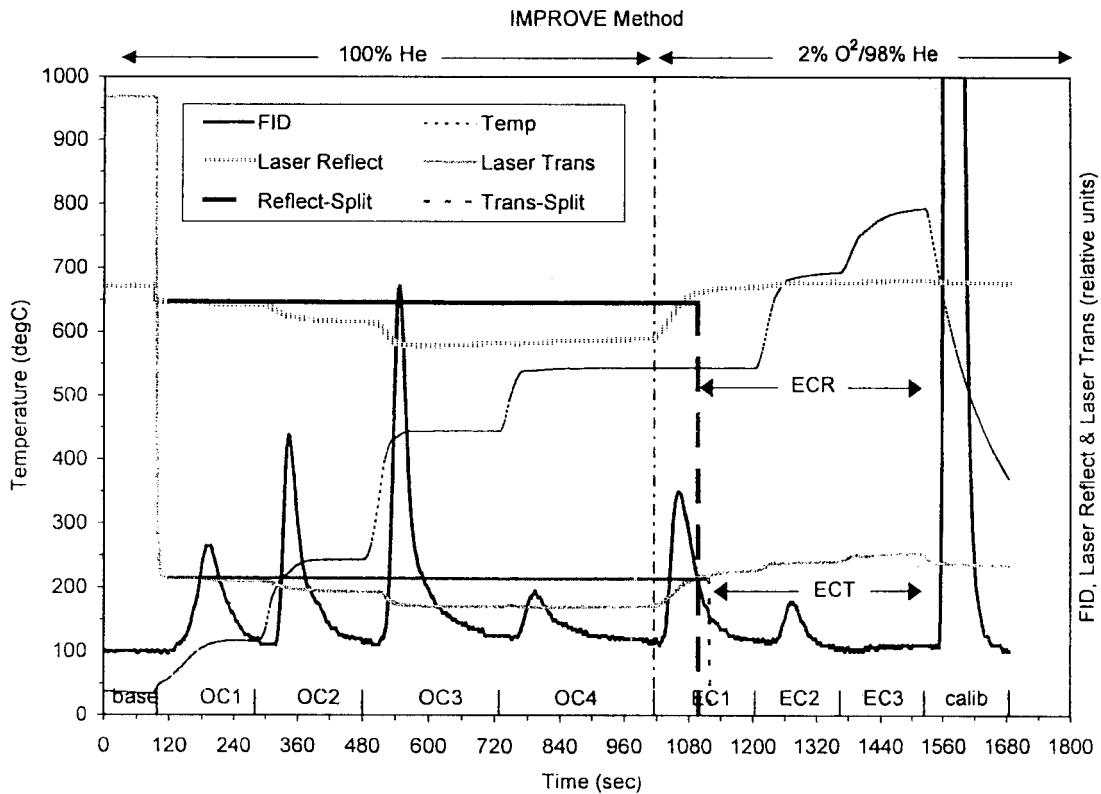


図 3.2.4 IMPROVE 方式による炭素成分分析の FID の応答 (FID)、温度 (Temp)、反射率 (Laser Reflect) および透過率 (Laser Trans) の経時変化 (Chow et al., 2001)。ヘリウム雰囲気中で 120℃ (OC1)、250℃ (OC2)、450℃ (OC3)、550℃ (OC4)、および酸素・ヘリウム混合雰囲気中で 550℃ (EC1)、700℃ (EC2)、850℃ (EC3) の計 7 段階で分析する。また、分析の最後に一定濃度・一定量の CH₄ を分析し、FID の各ピークを正規化している。Reflect-Split および Trans-Split は、それぞれ反射率および透過率が初期値に回復したあとの元素状炭素 (ECR および ECT) を決定する、FID の応答の分割点である。この分割点は、流路の中で FID に達するまでの時間遅れを考慮している。

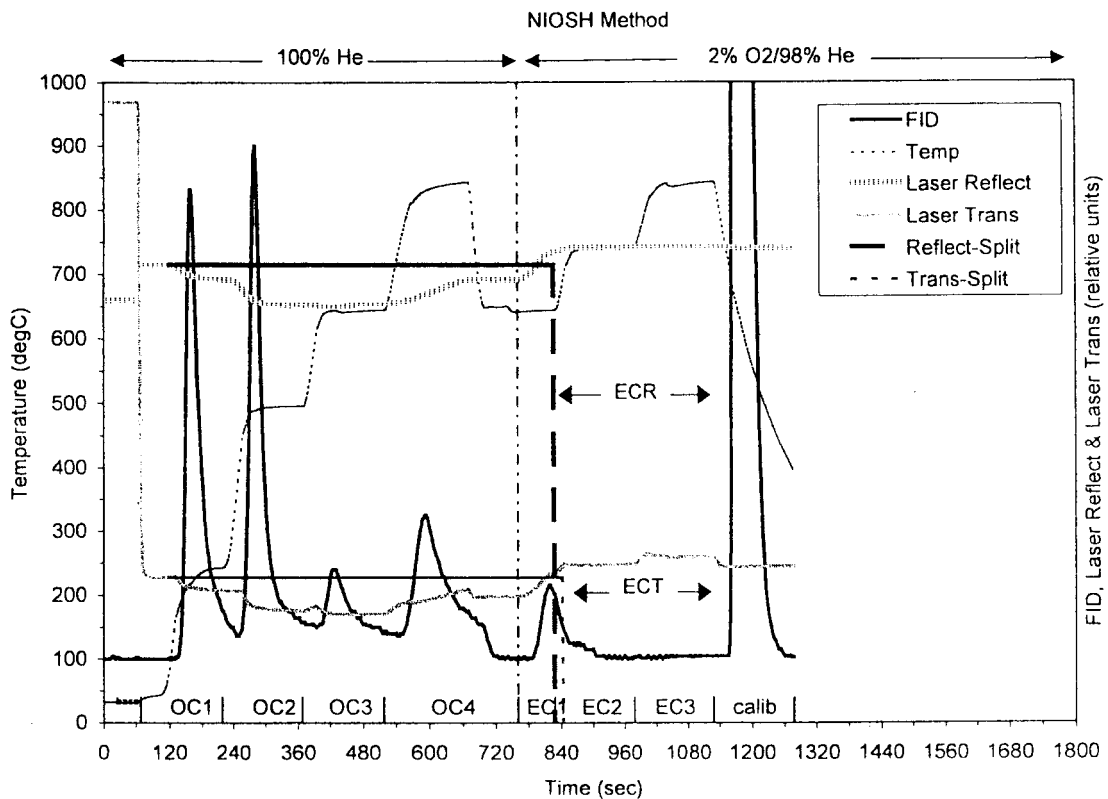


図 3.2.5 NIOSH 方式による炭素成分分析の FID の応答 (FID)、温度 (Temp)、反射率 (Laser Reflect) および透過率 (Laser Trans) の経時変化 (Chow et al., 2001)。ヘリウム雰囲気中で 250℃ (OC1)、500℃ (OC2)、650℃ (OC3)、850℃ (OC4)、および酸素・ヘリウム混合雰囲気中で 650℃ (EC1)、750℃ (EC2)、850℃ (EC3) の計 7 段階で分析する。

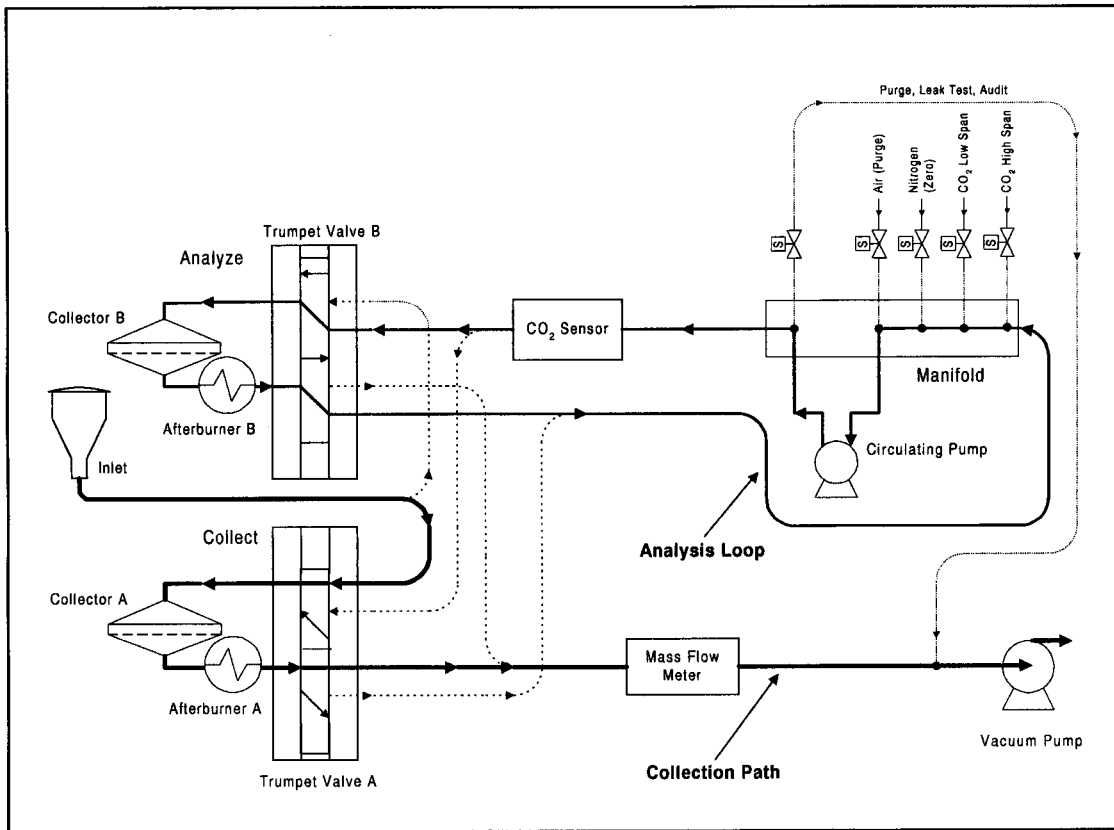


図 3.2.6 R&P カーボンモニターの概念図 (Series 5400 Ambient Carbon Particulate Monitor Operating Manual, Revision A, Rupprecht & Patashnick Co., Inc., 1996)。この図では、Aラインが捕集、Bラインが分析になっているが、これらを交互に切り換えることで連続測定をおこなう。

に含まれる粒子の吸収断面積の総和であるから、吸収性粒子の質量濃度 M_{abs} [g/m^3] (単位体積の空気に含まれる粒子の質量) との間に次の関係が成り立つ。

$$M_{abs} = \sigma_{abs} / k_{abs}$$

ここで、 k_{abs} は質量吸収係数 [m^2/g] であり、単位質量の粒子の吸収断面積を表す。したがって、質量吸収係数を仮定すれば、フィルターの透過率、採気体積、捕集面積を測定することで、吸収性粒子の濃度を求めることができる。

(2) 積分球法と積分板法

フィルターの透過率を実際に測定する方法は、積分球法 (Integrating Sphere Method; ISM) が基本となっている。これは、光が拡散反射するように内面にコーティングを施した球 (積分球) の中心に試料を置いて光を照射し、透過および散乱した光を検出するものである (図 3.2.7)。そして、この積分球法を簡略化したのが、積分板法 (Integrating Plate Method; IPM) である。これは、透過および散乱した光をオパールガラスによって集光するものである (図 3.2.8)。Aethalometer は、積分板法を

改良して捕集と測定を同時にできるようにしたものであり、元素状炭素の連続モニタリング装置として市販され、近年普及してきている。

しかし、この光学法によって元素状炭素の質量濃度を求めるには、いくつか問題がある。まず、吸収性粒子は

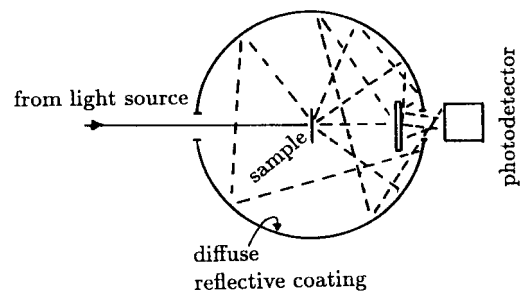


図 3.2.7 積分球法の概念図 (Horvath, 1993)

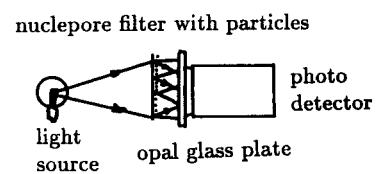


図 3.2.8 積分板法の概念図 (Horvath, 1993)

元素状炭素だけでなく、例えば土壤粒子は弱いながら光を吸収する。ただし、土壤粒子は比較的粒径が大きいことから、PM_{2.5} 領域では一般には土壤粒子の寄与は小さい。また、元素状炭素は吸収の波長依存性は小さいが、土壤粒子はそれに比べて大きいことから、測定波長によって影響の度合いが異なる。次に、体積吸収係数を質量濃度に変換する際に用いる質量吸収係数は、10m²/g という値が用いられることが多い。しかし、質量吸収係数は、元素状炭素の粒径分布と複素屈折率に依存するため、実際の一般大気環境では一定ではなく、3.8 ~ 17.0m²/g の値が報告されている (Horvath,1993)。したがって、標準粒子によって校正をおこなっている場合も、大気エアロゾルと標準粒子とでは粒径分布と複素屈折率が異なるため、必ずしも最適な校正方法とは言えない。

さらに、フィルターに捕集した粒子を測定しようとすることによる問題がある (McMurry,2000)。積分板法では、実際には粒子の後方散乱光が検出されないために減衰分として測り込まれるため、それを吸収と見なしてしまう。このように、測定された光の減衰は粒子の吸収のみによるものとしている仮定が成り立たない。また、吸収性の粒子は同時に散乱も起こすことから、フィルター上への捕集量が増加するにつれ、吸収性粒子に散乱された光が、非吸収性粒子またはフィルター自身に散乱され、再び吸収性粒子に入射して吸収を受けることが起こりうる。したがって、過大評価の大きさは、吸収性粒子と非吸収性粒子の比率 (体積消散係数に対する体積吸収係数の比) に依存し (Horvath, 1997)、また、フィルターの選択によっても異なる (Hitzenberger,et al.,1993;Campbell et al.,1995;Clarke,et al.,1996;Campbell and Cahill,1996)。

なお、光を利用している装置のうち、反射率を測定しているものもある。この場合も光の減衰が吸収のみによるものであれば、すなわち、フィルターに拡散反射板を密着させるなどして反射率を測定していれば、上述のような問題点はあるものの、透過率の場合と同様の原理で測定することが可能である。しかし、そうでない場合は、単に「黒さ」を測っていることになり、何らかの方法で作成された反射率と質量濃度との関係式を用いて求めていることになる。この場合は、この関係式が妥当であるかが問題となる。

光学法には以上のような課題があることから、濃度の絶対値については十分に検討する必要がある。しかし、濃度の変動はほぼ元素状炭素に比例することから、連続モニタリングが容易であるという利点を生かして、多地点におけるフィールド観測などに利用することが考えられる。

3.2.5 各測定法の比較

以上のように、各測定法には一長一短があり、決定的な測定法はないのが現状である。このため、各測定法を、実験室で発生させた試験エアロゾルや、大気エアロゾルの並行測定によって比較することが、多くの研究者によっておこなわれている。

Hitzenberger et al.(1999) は、積分球法、Aethalometer、熱分離法を、試験エアロゾルと大気エアロゾルに関して比較している。大気エアロゾルに関する結果を見ると、積分球法と熱分離法との比較では、ばらつきはあるものの、1 : 1 に対応している。一方、Aethalometer と熱分離法との対応は、Aethalometer において仮定する質量吸収係数の値によって異なる。

Hansen and McMurry (1990) は、熱分離法と Aethalometer とを比較し、両者はほぼ 1 : 1 に対応している。また、Berghmans et al. (1996) は、Aethalometer (GIV、AE-10M)、ベータ線計付属の反射率測定、R&P カーボンモニターを比較し、Aethalometer と R&P カーボンモニターはよく対応している。

Rouss et al. (1993) は、試験エアロゾルによる測定から、Aethalometer の応答は吸収性物質と非吸収性物質の質量比に依存することを示した。

Chow et al. (1993) は、DRI カーボンアナライザーによる分析値 (透過率および反射率による補正) を、Aethalometer、光音響法、溶媒抽出法などとの比較をまとめている。反射率による補正をした分析値と Aethalometer との比較では、Aethalometer が 1 割程度大きい結果となっている。また、あらかじめ溶媒抽出した試料、および溶媒抽出しない試料の分析値 (ともに透過率による補正) と光音響法との比較では、概ね 1 割以内でよい対応を示している。しかし、各測定法が含む問題を詳細に議論しており、明確な結論を出すには至っていない。

ない。また、Allen et al. (1999) は、DRI カーボンアナライザーによる分析値（反射率による補正）と Aethalometer (Magee Scientific Inc., AE-9) とを比較し、両者は非常に高い相関でほぼ 1 : 1 に対応している。

このように、様々な比較がなされているが、Chow et al. (1993) が述べているように、いまだに結論が出ているとは言い難い。しかし、McMurry (2000) は、光音響法は熟練と複雑な装置を必要とし、また、市販されていないことから、モニタリングには不向きではあるものの、浮遊した状態で吸収を測定できるので、これが最善の測定法であると述べている。

3.2.6 本研究プロジェクトにおける課題

炭素分析の測定法を総合的に見て、現時点で最も確からしい値を与えるのは、DRI カーボンアナライザーであると考えられる。ただし、熱分離条件の妥当性の確認をおこなうため、IMPROVE 方式に沿って様々な大気エアロゾルや発生源粒子を分析し、場合によっては IMPROVE 方式に改良を加える。特に、有機炭素の炭化の補正について、透過率、反射率のどちらに基づいておこなうのが適切なのか、溶媒抽出法と熱分離法とを組み合わせるなどの方法によって検討する。そして、DRI カーボンアナライザーによる分析値を基準として、他の測定法 (R&P カーボンモニター、Aethalometer) との比較をおこない、適切な測定条件や補正方法を決定する。

以上のように、各測定法による値の互換性を十分に確保した上で、フィールド観測やシャーシダイナモ実験に適用する。

文献

Allen, G.A., Lawrence, J., Koutrakis, P., 1999. Field validation of semi-continuous method for aerosol black carbon (aethalometer) and temporal patterns of summertime hourly black carbon measurements in southwestern PA. *Atmospheric Environment* 33, 817-823.

Berghmans, P., Pauwels, J., Roekens, E., Bogaert, R., 1996. Comparison of methods for the concentration measurement of black (carbonaceous) aerosol in ambient air. *Journal of Aerosol Science* 27, S689-S690.

Campbell, D., Cahill, T., 1996. Response to "Comment on Measurement of aerosol absorption coefficient from Teflon filters using integrating plate and integrating sphere techniques by D. Campbell, S. Copeland, and T. Cahill" by Antony Clarke, John

Ogren, & Robert Charlson. *Aerosol Science and Technology* 24, 225-229.

Campbell, D., Copeland, S., Cahill, T., 1995. Measurement of aerosol absorption coefficient from Teflon filters using integrating plate and integrating sphere techniques. *Aerosol Science and Technology* 22, 287-292.

Chow, J.C., Watson, J.G., Crow, D., Lowenthal, D.H., Merrifield, T., 2001. Comparison of IMPROVE and NIOSH carbon measurements. *Aerosol Science and Technology* 34, 23-34.

Chow, J.C., Watson, J.G., Lu, Z., Lowenthal, D.H., Frazier, C.A., Solomon, P.A., Thuillier, R.H., Magliano, K., 1996. Descriptive analysis of PM_{2.5} and PM₁₀ at regionally representative locations during SJVAQS/AUSPEX. *Atmospheric Environment* 30, 2079-2112.

Chow, J.C., Watson, J.G., Pritchett, L.C., Pierson, W.R., Frazier, C.A., Purcell, R.G., 1993. The DRI thermal/optical reflectance carbon analysis system: Description, evaluation and applications in U.S. air quality studies. *Atmospheric Environment* 27A, 1185-1201.

Clarke, A., Ogren, J., Charlson, R., 1996. Comment on "Measurement of aerosol absorption coefficient from Teflon filters using integrating plate and integrating sphere techniques" by D. Campbell, S. Copeland, and T. Cahill. *Aerosol Science and Technology* 24, 221-224.

Eatough, D.J., Wadsworth, A., Eatough, D.A., Crawford, J.W., Hansen, L.D., Lewis, E.A., 1990. A multiple-system, multi-channel diffusion denuder sampler for the determination of fine-particle organic material in the atmosphere. *Atmospheric Environment* 27A, 1213-1219.

Fitz, D.R., 1990. Reduction of the positive organic artifact on quartz filters. *Aerosol Science and Technology* 12, 142-148.

Hansen, A.D.A., McMurry, P.H., 1990. An intercomparison of measurements of aerosol elemental carbon during the 1986 Carbonaceous Species Method Comparison Study. *Journal of the Air and Waste Management Association* 40, 894-895.

Hitzenberger, R., 1993. Absorption measurements with an integrating plate photometer calibration and error analysis. *Aerosol Science and Technology* 18, 70-84.

Hitzenberger, R., Jennings, S.G., Larson, S.M., Dillner, A., Cachier, H., Galambos, Z., Rouc, A., Spain, T.G., 1999. Intercomparison of measurement methods for black carbon aerosols. *Atmospheric Environment* 33, 2823-2833.

Horvath, H., 1997. Experimental calibration for aerosol light absorption measurements using the integrating plate method - Summary of the data. *Journal of Aerosol Science* 28, 1149-1161.

Horvath, H., 1993. Atmospheric light absorption - A review. *Atmospheric Environment* 27A, 293-317.

McMurry, P.H., 2000. A review of atmospheric aerosol measurements. *Atmospheric Environment* 34, 1959-1999.

Rouss, K., Dlugi, R., Weigl, C., Hanel, G., 1993. Intercomparison of different aethalometers with an absorption technique: Laboratory calibrations and field measurements. *Atmospheric Environment* 27A, 1221-1228.

Turpin, B.J., Huntzicker, J.J., 1994. Investigation of organic aerosol sampling artifacts in the Los Angeles Basin. *Atmospheric Environment* 28, 3061-3071.

3.3 電子顕微鏡による個々の粒子の分析

長谷川 就一

3.3.1 はじめに

フィルターに粒子を捕集して化学分析をおこなうバルク分析は、捕集された全粒子の平均としての化学成分が得られるものの、個々の粒子に関する知見は失われている。これに対して、顕微鏡を用いた粒子の分析は、個々の粒子の形態（大きさ、形状）や成分を調べることができる。

電子顕微鏡には、走査型電子顕微鏡 (Scanning Electron Microscope; SEM) と透過型電子顕微鏡 (Transmission Electron Microscope; TEM) がある。粒子の観察には両方とも適用でき、目的に応じて使い分ける。SEM の場合は、ニュークリポアフィルターや金属箔などに捕集した試料を用いることができ、粒子表面の状態や三次元構造の情報を得ることができる。一方、TEM の場合は、コロジオンやポリビニールホマールといったプラスチック支持膜やカーボン支持膜を張ったグリッドに捕集し、粒子による電子線の透過性のちがいをみることができる。

ただし、SEM および TEM は、試料を真空下におこななければならないため、硝酸塩や揮発性有機物、水分などの蒸気圧の高い物質を直接観察することはできない (McMurry, 2000)。しかし、環境制御型電子顕微鏡 (Environmental Scanning Electron Microscope; ESEM) は、5Torr 程度の低真空で観察をおこなうことができるため、含水試料の観察、加熱による形態変化の観察などが可能である。これを利用して、ディーゼル起源のすす粒子に水が凝結・蒸発する様子をリアルタイムに観察した例もある (Haug et al., 1994)。

以下では、主に TEM を用いた分析方法について述べる。

3.3.2 粒子の形態観察

電子顕微鏡では、個々の粒子の形態、すなわち、大きさや形状を観察することができる。粒子の形状には、成分との関連性を有するものもあるため、個々の粒子の大きさと成分との関係を把握することができる。形状からすべての粒子の成分がわかるわけではないが、いくつか

特徴的なものを挙げる。すす粒子 (元素状炭素) は、0.01 ~ 0.1 μm 程度の小球が鎖状あるいは糸くず状に連なった形状をしている (図 3.3.1)。また、これらが凝集して 1 μm 程度の複雑な形状の集合体をなしていることもある。海塩粒子は、主に塩化ナトリウム (NaCl) から成るため立方体の結晶をなしている (図 3.3.2)。ただし、他の海塩成分が含まれていて明瞭な立方体でないことがある。硫酸粒子 (硫酸ミスト、 H_2SO_4) は、中心の大きな液滴の周囲に微小な液滴が放射状に存在する、サテライト構造を示す (図 3.3.3)。また、硫酸粒子がアンモニアガスによって中和された硫酸アンモニウム粒子は、比較的球形に近い形状を示す。

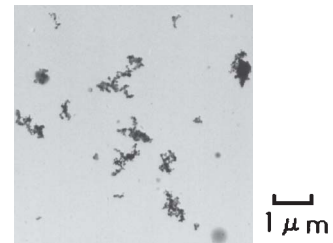


図 3.3.1 すす粒子の電子顕微鏡写真

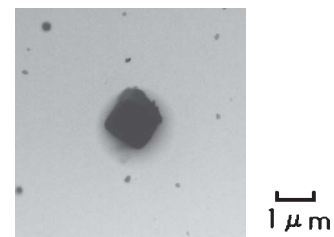


図 3.3.2 海塩粒子 (中央の粒子) の電子顕微鏡写真

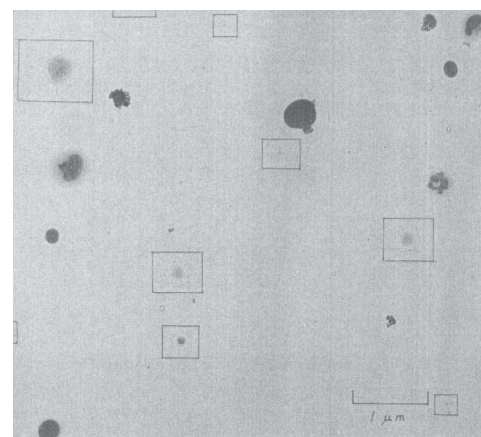


図 3.3.3 硫酸粒子 (□で囲まれた粒子) の電子顕微鏡写真 (武田ら、1985)。中心に平坦な結晶と考えられる物質を持ち、その周囲に多数の小球からなるサテライト構造を示している。

3.3.3 EDX 分析法

電子顕微鏡に付属されているエネルギー分散型X線分析器を用いて、粒子に照射された電子線から発生する特性X線を検出することで、粒子に含まれる元素の定性および定量をおこなうものである。ベリリウム型の検出器は、ナトリウム (Na) 以上の元素の分析が可能で、炭素 (C) や酸素 (O) などの軽元素の分析が困難だが、UTW型やウィンドレス型の検出器はこれら軽元素の分析も可能である。

この EDX 分析法は、次節以降で述べる分析法と併用することができるので、粒子の組成を知る上で非常に有用な方法である。

ただし、粒子の捕集に用いるグリッドや膜、フィルターなどの材質の選択に注意しなければならない (McMurry, 2000)。こうした材質に多く含まれている元素 (銅、炭素、アルミニウムなど) や、膜の補強や導電処理のために使われる元素 (炭素、白金など) は信号が大きくなり、粒子に含まれるものとの区別ができない。これらの元素は粒子中の元素として重要なものが多いことから、試料を採取する際に検討する必要がある。

3.3.4 試薬薄膜法

試薬薄膜法は、粒子を捕集する支持膜の表面に、あらかじめ粒子中の特定の成分と反応する試薬を塗布または真空蒸着させ、反応後の特徴的な形状から、目的とする

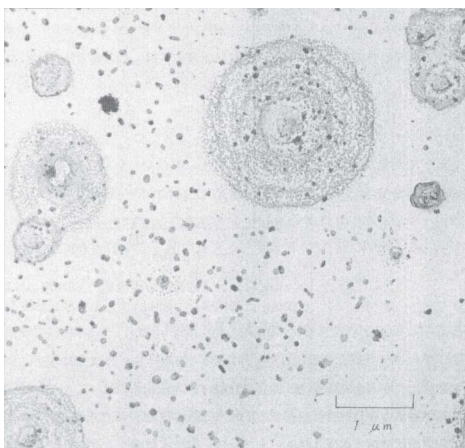


図3.3.4 塩化バリウム薄膜と反応し、リーゼガング環を生じた硫酸塩粒子の電子顕微鏡写真 (武田ら, 1985)。オクタノール蒸気雰囲気にて24時間放置した後に得られた。図3.3.3と同一視野に関するもの。

成分の有無を調べる方法である (Bigg et al., 1974)。目的とする成分が真空においても安定であれば、捕集後に試薬を真空蒸着させることもできる。

硫酸イオン (SO_4^{2-}) の検出には、塩化バリウム二水和物 ($\text{BaCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$) を試薬として用いる。この場合は、塩化バリウムが吸湿性であるため、真空蒸着されて微細な結晶構造になっているのが、潮解と再結晶により粗い結晶になってしまうことから、捕集後に蒸着をおこなう方がよい。オクタノール蒸気雰囲気にて試薬との反応を進行させると、硫酸バリウムが生成し、粒子のあったところを中心にして同心円状のリーゼガング環 (Liesegang's Ring) を生じる (図3.3.4)。

硝酸イオン (NO_3^-) の検出には、ニトロン ($\text{C}_{20}\text{H}_{16}\text{N}_4$) を用いる。硝酸塩は蒸気圧が高いため、あらかじめニトロンを真空蒸着させる。また、電子顕微鏡による観察は、オクタノール蒸気雰囲気にて試薬との反応を進行させた後に限られる。反応後にはニトロン-ナイトレート針状結晶を生じる。

なお、硫酸イオンと硝酸イオンを同時に検出できる複合薄膜が開発されており、両者の内部混合を調べることができる (Qian et al., 1991)。

この他、塩化物イオン (Cl^-) の検出には硝酸銀 (AgNO_3)、アンモニウムイオン (NH_4^+) の検出にはテトラフェニルほう酸ナトリウム ($\text{NaB}(\text{C}_6\text{H}_5)_4$) を用い、それぞれ AgCl の析出、テトラフェニルほう酸アンモニウムのハロー構造の析出を生じる。

また、銀 (Ag) や銅 (Cu) などの金属薄膜は、硫酸イオン、塩化物イオンなどを含む酸性成分ならびに中性塩により腐食されることを利用して、腐食の有無や程度からこれらの成分を把握することができる (下原ら, 1993)。

以上のような薄膜法により粒子の成分を検出するには、膜厚、蒸着時の真空度、薄膜の保存状態などをそれぞれ最適にする必要がある。また、電子顕微鏡による観察時に電子線の照射をなるべく弱くして、粒子の性質の変化を小さくする。

3.3.5 透析法

粒子の内部混合状態を調べる方法として、コロジオン

膜が半透膜であることを利用した透析法がある (Mossop,1963;Okada,1985;Okada et al., 2001;Hasegawa and Ohta,2002)。コロジオン膜を張った電顕グリッドを、粒子が捕集されている面を上にして 40 °Cの蒸留水の水面に3時間程度浮かべると、粒子に含まれている水溶性物質はコロジオン膜を通過して蒸留水側に移動し、粒子から除去される。そこで、水透析前と水透析後に、同じ視野について電子顕微鏡により観察することで、水溶性物質を区別できる (図 3.3.5)。また、ベンゼンなどの有機溶媒を用いて透析をおこなうことで、有機物を区別できる。これにより、すす粒子や鉱物粒子などの不溶性物質との内部混合状態を調べることができる。ただし、透析前に観察することによって、電子線の照射を受けて粒子の溶解性が変化する可能性がある (Okada et al.,2001) ため、透析後のみ観察をおこなう方法もある。

3.3.6 加熱処理

耐熱性の一酸化ケイ素 (SiO) 膜を用いて、加熱処理と

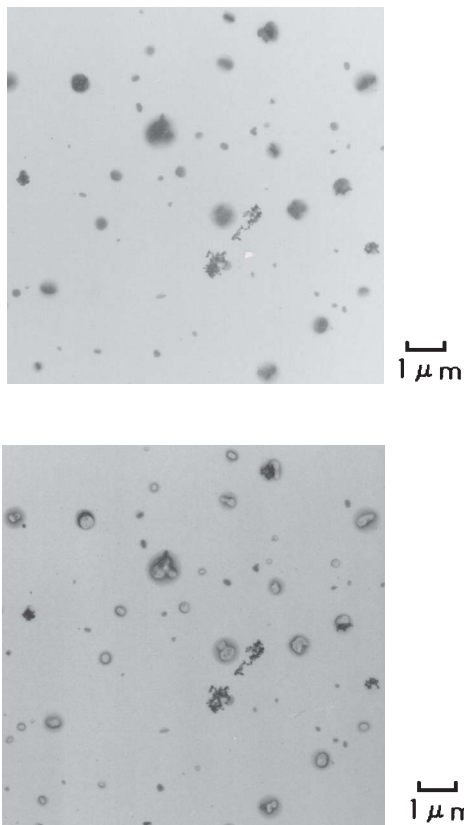


図 3.3.5 (上) 大気エアロゾルの水透析前の電子顕微鏡写真
(下) 同一視野に関する水透析後の電子顕微鏡写真

電子顕微鏡観察を段階的におこない、粒子の形態の変化を見ることで、成分や内部混合状態を推定することができる (広田、1970; 武田ら、1985)。これは熱分析法でおこなわれているように、成分による揮発温度のちがいを利用するものであり、適切な温度設定をすることで、硫酸塩、硝酸塩、有機炭素、元素状炭素などの粒子の主要な成分の内部混合状態を把握することが期待できる。

3.3.7 本研究プロジェクトにおける課題

PM_{2.5} や DEP を含めた粒子状物質の健康影響の観点から、質量濃度よりも個数濃度がより影響との関連が強い可能性が指摘されている。このことは、バルク分析のみではなく、個々の粒子の分析も重要であることを意味している。すなわち、個々の粒子の存在状態、特に、内部混合状態 (組成) について把握することが重要であると思われる。DEP の主要な成分である元素状炭素 (すす粒子) の健康影響は、それ自身でなく、それに吸着し内部混合している硫酸塩や有機物などの寄与が大きい可能性がある。また、粒子の酸性度と健康影響との関連も指摘されている。また、粒子の変質過程や滞留時間、除去過程などに対しても、個々の粒子に関する知見は重要なものとなる。こうしたことから、バルク分析と合わせて、特に、元素状炭素、有機物、硫酸ミストといった成分を中心に個々の粒子の分析をおこなっていくべきであると考えられる。

文献

- Bigg, E.K., Ono, A., Williams, J.A., 1974. Chemical tests for individual submicron aerosol particles. *Atmospheric Environment* 8, 1-13.
- Hasegawa, S., Ohta, S., 2002. Some measurements of the mixing state of soot-containing particles at urban and non-urban sites. *Atmospheric Environment* (accepted).
- Huang, P.-F., Turpin, B.J., Pihlo, M.J., Kittelson, D.B., McMurry, P.H., 1994. Effects of water condensation and evaporation on diesel chain-agglomerate morphology. *Journal of Aerosol Science* 25, 447-459.
- McMurry, P.H., 2000. A review of atmospheric aerosol measurements. *Atmospheric Environment* 34, 1959-1999.
- Mossop, S.C., 1963. Stratospheric particles at 20km. *Nature* 199, 4891, 325-326.
- Okada, K., 1985. Number-size distribution and formation process of submicrometer sulfate-containing particles in the urban atmosphere of Nagoya. *Atmospheric Environment* 19 743-757.

- Okada, K., Ikegami, M., Zaizen, Y., Makino, Y., Jensen, J.B., Gras, J.L., 2001. The mixture state of individual aerosol particles in the 1997 Indonesian haze episode. *Journal of Aerosol Science* 32, 1269-1279.
- Qian, G.W., Tanaka, H., Yamato, M. and Ishizaka, Y., 1991. Multiple thin film method for simultaneous detection of sulfate and nitrate ions in individual particles and its application to atmospheric aerosols. *Journal of Meteorological Society of Japan* 69,629-640.
- 下原孝章、大石興弘、右田譲、宝来俊一、1993。大気中の酸性降水物の動態と沈着評価 (1) —薄膜法による火山噴出成分の沈着評価—、*大気汚染学会誌* 28, 295-307。
- 広田昭一、1970。電子顕微鏡試料技術集、*日本電子顕微鏡学会関東支部*、14-15。
- 武田喬男、岩坂泰信、岡田菊夫、1985。大気環境とその変動をさぐる。名古屋大学水圏科学研究所、405-407。

3.4 化学組成

西川 雅高

3.4.1 粒径別化学計測と発生源化学組成

大気エアロゾル中の粒径別化学組成についての報告は、古くから多数ある。その多くは、アンダーセンサンプラーによる捕集を行い、その化学組成を解析したものである。それらの結果から、0.4～10 μm の範囲のエアロゾルは、だいたい 2 μm を境にして微小粒子群と粗大粒子群に大別され、人為起源（燃焼由来および二次生成粒子）か自然起源かを区別する判定方法の一つとなってきた。例えば、藤村ら（1978）は、コンビナート周辺のエアロゾルを微小粒子群と粗大粒子群に分けてモニタリングを行い、亜鉛、鉛等の重金属類が周辺の人為活動由来によると断定した。また、溝畑ら（1980）は、大阪府堺市の大気エアロゾル粒径別化学組成データを CMB 法による発生源推定を行なった。PM_{2.5} 以上の粗大粒子群は、実測値と推定値がよく一致したが、微小粒子群は両者の差が大きく推定の困難さを認識させる結果であった。その後、溝畑（1986）は、堺市大阪市内のエアロゾル中に存在する希土類元素の粒径別濃度を測定し、La や Ce が自動車排気ガス用触媒由来と推定した。このような無機化学成分の分析法は、石英濾紙やポリエチレンフィルムを装着したアンダーセンサンプラーによる捕集試料を、そのまま中性子放射化分析法あるいは蛍光 X 線法によって分析を行うか、あるいは酸分解処理後、溶解した金属元素を、原子吸光法、ICP/AES 法、ICP/MS 法等によって定量される。一方、有機化合物については、分級捕集用に石英濾紙やガラス繊維濾紙を用い、ヘキサン、ベンゼン、ジクロロメタン等の有機溶媒による抽出後、HPLC 法や GC/MS 法によって定量するのが一般的である。

PM_{2.5} の化学組成を明らかにする目的の一つは、発生源の特定や寄与率の推定である。J.G.Watson et al.(2001) は、コロラド州北西部の Yampa Valley で捕集した PM_{2.5} 発生源別化学組成を報告した。その PM_{2.5} 粒子の発生源試料の詳細を表 3.4.1 に、その化学組成を表 3.4.2 に示す。エアロゾル系物質のサンプリングは、テフロン濾紙（金属成分用）および石英濾紙（イオン成分と炭素分別用）を用いた PM_{2.5} 分離濾過捕集を、ガス状

物質のサンプリングは、アルカリ含浸濾紙と酸含浸濾紙を用いた。6種類の発生源別化学組成を比較すると、粒子状炭素含有率（EC + OC）が大きく異なった。石炭火力発電所系（1~10%）、道路粉塵を含む土壌ダスト系（5~10%）、森林火災系（>50%）、薪ストーブ系（>60%）、石炭ストーブ系と自動車排気系（>95%）の順に全炭素含有率が高かった。OC/TC は、石炭火力発電所系では施設の形式によってかなりばらつきが大きく、平均的値を得るのは難しかった。薪ストーブ系と石炭ストーブ系の OC/TC は、比較的似ており、0.81 と 0.73 であった。森林火災系の比は、0.94 と全発生源の中で最も高い値となった。自動車排気系では全粒子重量の 95% を EC と OC が占めており、OC/TC は、平均で 0.58 であった。これは、J.G.Watson et al.(1994) の報告値、ガソリン自動車排気系で 0.69、ディーゼル排気系で 0.55、あるいは、Las Vegas の沿道で観測した値 0.48~0.67(Av. 0.59) と比べても妥当なものであった。無機元素に着目すると、カリウムが地質系と植物燃焼系の生成粒子で際違った違いを見せた。全カリウムに対する水溶性カリウムの割合は、土壌系では 0.1 程度しかないが、木材燃焼系では 0.9 にもなり、木材燃焼系のよい指標となることを指摘した。

3.4.2 化学計測の今後の方向性

PM_{2.5} の試料は、インパクター法かフィルター法によって捕集される。変質や揮散しやすい成分が多く、試料の安定保存法の確立が望まれる。他節でも記述されているように、PM_{2.5} において重要な成分である炭素系粒子について、その分別測定法の確立も急がれる課題である。EC と OC の炭素分別法については、3.2 節に記述されているので参照されたい。

PM_{2.5} に存在する粒子群中には、前述したように CMB 法の推定値と実測値の一致率が低い二次生成粒子が多く存在する。また、K.Willeke et al.(1975) が指摘したように、この粒径範囲の粒子群は粒子寿命が短い特徴もあり、あるがままの状態（粒子形状と化学形態）を把握することが今日的研究課題となっている。そのために、リアルタイム化学成分計測機器として ATOFMS が開発されたが、今のところ、全てのマスフラクションの親となる化合物を特定できるまでには至っていない。

表 3.4.1 コロラド州 Yampa Valley で集めた PM_{2.5} 発生源試料の概要

試料 ID	概 要
	石炭火力発電所排気系
MZCG2PPC	Craig2 号炉 (TrapPer 石炭、湿式脱硫装置と静電式除塵装置付き施設)
MZCG3PPC	Craig3 号炉 (Colowyo 石炭、石灰式乾式脱硫装置、バグフィルター付き施設)
MZHD2PPC	Hayden2 号炉 (Seneca 石炭、アンモニア注入塔、静電式除塵装置付き施設)
MZHD1PPI	Haiden1 号炉
MZHDPPC	Haiden1 号炉と 2 号炉の混合物
MZPPC	Craig2 号炉、3 号炉、Hayden2 号炉、1 号炉の混合物
	薪ストーブ残滓系
MZRWC	松材、もみ、ポプラ材を使用する暖炉とストーブ残滓系
	石炭ストーブ残滓系
MZRCC	TrapPer 石炭使用のストーブと Seneca 石炭使用の暖炉からの混合残滓
	森林火災系
MZFFIREC	杜松 (juniper) と松 (pinion pine) の燃焼物 (この地域の植生は両者 80% を占める)
	地熱温泉系
MZGSC	5 カ所の温泉地域で無臭時に大気試料を捕集
MZGS2C	5 カ所の温泉地域で硫化水素臭がする時に大気試料を捕集
	自動車排気系
MZMVCG1C	Craig 市内で朝 8~9 時に捕集
MZMVCG2C	同上地域で 9~3 時に捕集
MZMVCG3C	同上地域で 14~18 時に捕集
MZMVCGC	同上地域の朝、昼、午後に捕集した試料の混合物
MZMVSBC	Steamboat Spring のハイウェイと一般道路の交差点で午前中に捕集
MZMVC	沿道で 3 捕集した 12 試料の混合物
	土壌ダスト系
MZCPVRDC	Craig 市内で自動車排気系試料を集めた近くの舗装道路ダスト
MZSPVRDC	Steamboat Spring で自動車排気系試料を集めた近くの舗装道路ダスト
MZPVRDC	Craig と Steam Spring で集めた試料の混合物
MZUPRDC	市内 2 カ所の未舗装の道路ダスト
MZSOILC	後背地 4 カ所の土壌試料
MZGEOLC	以上の土壌系試料各種を混ぜたもの

P.J.Silva et al.(2000) らが報告しているように一部の有機酸や海塩核などの特定が可能 (例えば図 3.4.1) となっており、今後、特定できる成分数の増加が待たれる。

個別粒子の化学形態計測も、今後ますます重要となる分野である。分析電子顕微鏡による個々の粒子計測については、3.3 節で紹介されている。最近、TOFSIMS が、個々の粒子の化学形態分析法として注目を集めている。Y-J Zhu et al.(2001) は、TOF-SIMS による Salt Lake City で捕集した PM_{2.5} 粒子の表面計測から、Li、Na、Al、Cr、Mn、Fe、Cu、Zn 等の重金属類だけでなく PAH 類も検出した。今後、粒子表面での化学反応の追跡に威力を発揮すると思われる (例えば、図 3.4.2)。

原ら (1983) によれば、微小粒子群中に多く存在する塩化アンモニウム粒子や硝酸アンモニウム粒子の生成率は、気温など大気条件に左右される。このように、PM_{2.5} 以下の微小粒子群中には、動的に不安定な粒子が多く存在する。そして、自動車排気中に、動的に不安定な粒子が多く存在することは言うまでもない。したがって、発生源からの粒子動態変化やガス-粒子化生成反応機構を解明するような研究では、粒子に限らずガス

成分についても三次元的高密度測定を行う必要がある。

その新たなガス成分計測法として次の 2 種類の方法が期待されている。

一つは、できるだけコンパクトな短時間計測システムを開発し、その高密度多点配置によってリアルタイムにデータを集積すればよい。これは、個々のモニタリング装置をいかに小型化できるかにかかっている。丸尾ら (1998) は、従来のザルツマン法を改良したセンサーを組み込んだ装置 (図 3.4.3) を開発した。その巣箱サイズの装置を用い、大気中の NO₂ ガスの濃度変化を 1 時間以下の時間分解能で数日間連続計測を行った。例えば、このようなモバイル型小型計測器を沿道の両側に数百個単位で多点配置することによって三次元的な高密度濃度分布観測が可能となる。今後、他ガスへの広がりや一層の高感度化が可能となれば PM_{2.5} の二次生成機構の解明にとって有益な計測法になる。

もう一つは、オープンパス型計測法である。光源から照射される特定波長光の吸収量を計測することによって、目的ガスの大気中濃度を測定する方法である。この方式の装置は、使用波長によって赤外領域 (IR) と紫外領域

表 3.4.2 発生源試料中の PM2.5 化学組成 (重量%)

	Coal-Fired Boiler				Residential				Forest Fire				Geothermal Springs	
	MZCG3PPC	MZHD2PPC	MZHD1PP1	MZHD0PPC	MZPPC	Wood Combustion MZRWCC	Coal Combustion MZRCOC	MZFFREC	MZGSC	MZGS2C				
Cl ⁻	0.35384 ± 0.17562	1.33 ± 0.42786	1.12 ± 0.37290	1.88 ± 0.12290	1.03 ± 0.66587	0.25772 ± 0.11421	0.19005 ± 0.08502	0.20704 ± 0.12969	17.56 ± 20.20	22.73 ± 24.23				
NO ₃ ⁻	0.16142 ± 0.10439	0.78706 ± 0.72350	0.32640 ± 0.36990	0.14900 ± 0.12403	0.36313 ± 0.54564	0.07352 ± 0.01885	0.31474 ± 0.30759	0.02808 ± 0.02615	12.55 ± 16.30	15.72 ± 19.44				
SO ₄ ²⁻	22.75 ± 6.32	12.67 ± 3.09	2.87 ± 0.40980	10.00 ± 4.89	15.20 ± 8.25	0.91387 ± 0.36094	3.32 ± 2.82	0.13322 ± 0.06289	23.57 ± 26.63	32.39 ± 33.31				
K ⁺	0.25584 ± 0.06885	0.03999 ± 0.02838	0.11110 ± 0.04090	0.08815 ± 0.00474	0.14298 ± 0.10844	1.40 ± 1.16	0.47416 ± 0.55147	0.12034 ± 0.09586	1.69 ± 2.93	2.54 ± 3.59				
NH ₄ ⁺	2.82 ± 1.70	0.12016 ± 0.08251	1.50 ± 0.38460	9.17 ± 2.43	3.15 ± 3.62	0.12710 ± 0.01998	1.41 ± 1.28	0.11050 ± 0.09518	14.74 ± 20.02	20.33 ± 24.25				
OH ⁻	2.24 ± 2.68	2.63 ± 2.11	34.09 ± 3.58	0.49460 ± 0.19725	5.20 ± 10.24	51.37 ± 11.72	69.49 ± 19.19	46.88 ± 15.64	23.22 ± 29.05	0.000 ± 344.46				
EC	8.08 ± 4.31	1.17 ± 1.20	4.30 ± 0.82160	0.39440 ± 0.22082	4.09 ± 4.41	12.39 ± 4.20	26.08 ± 15.64	3.23 ± 1.80	2.58 ± 20.50	0.000 ± 24.14				
Na	1.59 ± 0.50749	0.09273 ± 0.32980	0.38610 ± 0.87420	0.00000 ± 0.14054	0.70327 ± 0.62948	0.00535 ± 0.03287	0.03330 ± 0.08829	0.01225 ± 0.04477	4.31 ± 10.07	6.46 ± 12.19				
Mg	2.05 ± 0.49569	0.21933 ± 0.05950	1.15450 ± 0.22140	0.00000 ± 0.06442	0.45807 ± 0.60485	0.01241 ± 0.01921	0.06424 ± 0.06778	0.01545 ± 0.01484	1.41 ± 1.74	1.93 ± 2.08				
Al	4.16 ± 2.7852	1.80 ± 0.50567	10.31 ± 0.66610	5.42 ± 2.90	3.83 ± 2.57	0.02457 ± 0.02176	0.09710 ± 0.08458	0.06198 ± 0.04481	3.57 ± 3.97	4.69 ± 4.80				
Si	7.98 ± 6.2650	3.12 ± 0.84224	16.02 ± 1.00	2.99 ± 1.67	6.81 ± 4.03	0.00129 ± 0.00515	0.00274 ± 0.01720	0.00729 ± 0.00825	6.85 ± 7.54	9.72 ± 9.22				
P	0.14805 ± 0.03757	0.04447 ± 0.04597	0.57210 ± 0.06350	0.10700 ± 0.04313	0.15117 ± 0.15717	0.17957 ± 0.13196	1.50 ± 1.41	0.07922 ± 0.02134	8.55 ± 1.22	0.000 ± 1.22				
S	8.80 ± 1.46	5.64 ± 2.36	1.71 ± 0.11770	2.64 ± 0.97354	5.91 ± 3.18	0.12841 ± 0.08885	0.09048 ± 0.06556	0.17361 ± 0.10029	0.000 ± 1.021	1.77 ± 1.64				
Cl	0.00000 ± 0.16467	0.70189 ± 0.23296	0.00000 ± 0.10110	1.97 ± 0.02866	0.60445 ± 0.79650	0.93414 ± 1.13	0.53279 ± 0.78662	0.14820 ± 0.12271	1.30 ± 1.35	2.82 ± 2.62				
K	0.79573 ± 0.06174	0.17875 ± 0.04726	0.58130 ± 0.06880	0.33740 ± 0.13223	0.49753 ± 0.29911	0.30984 ± 0.03247	0.21436 ± 0.40479	0.36931 ± 0.57139	2.09 ± 2.16	0.067 ± 4.24				
Ca	3.47 ± 0.28413	14.67 ± 6.84	4.12 ± 0.26730	1.44 ± 0.50643	6.49 ± 6.57	0.00000 ± 0.01347	0.00488 ± 0.03438	0.00152 ± 0.02253	0.045 ± 3.551	0.087 ± 1.75				
Ti	0.19558 ± 0.09683	0.08990 ± 0.07159	0.77030 ± 0.25920	0.24190 ± 0.08471	0.23031 ± 0.20447	0.00000 ± 0.00816	0.00112 ± 0.01416	0.00009 ± 0.00929	0.938 ± 1.468	0.073 ± 0.432				
V	0.0528 ± 0.06136	0.01044 ± 0.03290	0.06750 ± 0.14210	0.01290 ± 0.02008	0.01457 ± 0.06270	0.00000 ± 0.00261	0.00000 ± 0.00328	0.00005 ± 0.00220	0.048 ± 0.361	0.073 ± 0.300				
Cr	0.11100 ± 0.01075	0.00687 ± 0.00740	0.00520 ± 0.03310	0.00525 ± 0.02022	0.00803 ± 0.01315	0.00000 ± 0.00221	0.00426 ± 0.00766	0.00052 ± 0.00163	0.022 ± 0.251	0.033 ± 0.300				
Pb	0.10359 ± 0.01697	0.01665 ± 0.00775	0.02450 ± 0.01810	0.01025 ± 0.02005	0.05081 ± 0.04694	0.00174 ± 0.00211	0.00426 ± 0.00766	0.00052 ± 0.00163	1.52 ± 1.61	2.00 ± 1.94				
Mn	3.07 ± 0.17441	0.99861 ± 0.32503	2.93 ± 0.18360	1.39 ± 0.38615	2.10 ± 1.03	0.01671 ± 0.02586	0.06712 ± 0.11390	0.01801 ± 0.01964	0.007 ± 0.158	0.011 ± 0.189				
Fe	0.00183 ± 0.04753	0.00054 ± 0.01656	0.00000 ± 0.04650	0.00060 ± 0.02161	0.00102 ± 0.03626	0.00000 ± 0.00075	0.00000 ± 0.00241	0.00000 ± 0.00108	0.020 ± 0.166	0.030 ± 0.199				
Co	0.00740 ± 0.00199	0.00328 ± 0.00255	0.00350 ± 0.01460	0.00225 ± 0.00083	0.00474 ± 0.00494	0.00000 ± 0.00056	0.00018 ± 0.00148	0.00000 ± 0.00101	0.017 ± 0.155	0.011 ± 0.184				
Cu	0.1147 ± 0.00367	0.00514 ± 0.00227	0.06470 ± 0.01140	0.00605 ± 0.00163	0.01381 ± 0.01829	0.00042 ± 0.00074	0.00118 ± 0.00151	0.00025 ± 0.00098	0.029 ± 0.184	0.049 ± 0.220				
Zn	0.3396 ± 0.00961	0.01514 ± 0.00338	0.08830 ± 0.01260	0.02465 ± 0.00884	0.02948 ± 0.01743	0.03010 ± 0.01592	0.01556 ± 0.01592	0.00292 ± 0.00337	0.000 ± 0.147	0.000 ± 0.175				
Ga	0.00000 ± 0.00984	0.00000 ± 0.00739	0.00000 ± 0.03480	0.00445 ± 0.00197	0.00089 ± 0.01333	0.00000 ± 0.00147	0.00058 ± 0.00373	0.00000 ± 0.00233	0.018 ± 0.177	0.027 ± 0.212				
As	0.00000 ± 0.02224	0.00000 ± 0.00624	0.00000 ± 0.03790	0.00000 ± 0.01799	0.00000 ± 0.02655	0.00000 ± 0.00155	0.00058 ± 0.00488	0.00031 ± 0.00282	0.006 ± 0.090	0.042 ± 0.109				
Se	0.34250 ± 0.08122	0.00000 ± 0.00388	0.22010 ± 0.01980	0.38420 ± 0.06378	0.23585 ± 0.17654	0.00000 ± 0.00070	0.00412 ± 0.00459	0.00000 ± 0.00123	0.028 ± 0.081	0.042 ± 0.109				
Br	0.01888 ± 0.01038	0.03282 ± 0.02609	0.01730 ± 0.01200	0.08855 ± 0.04621	0.03687 ± 0.03272	0.00089 ± 0.00059	0.00047 ± 0.00566	0.00121 ± 0.00103	0.006 ± 0.079	0.010 ± 0.095				
Rb	0.00319 ± 0.00415	0.00120 ± 0.00366	0.00400 ± 0.01470	0.00205 ± 0.00344	0.00245 ± 0.00984	0.00063 ± 0.00048	0.00060 ± 0.00152	0.00007 ± 0.00103	0.027 ± 0.094	0.041 ± 0.112				
Sr	0.17482 ± 0.01348	0.06034 ± 0.01973	0.17910 ± 0.01720	0.07940 ± 0.01720	0.11263 ± 0.06031	0.00019 ± 0.00068	0.00087 ± 0.01524	0.00131 ± 0.00194	0.000 ± 0.106	0.000 ± 0.127				
Y	0.00000 ± 0.00593	0.00069 ± 0.00444	0.00000 ± 0.02040	0.00000 ± 0.00187	0.00000 ± 0.01188	0.00000 ± 0.00081	0.00000 ± 0.00210	0.00000 ± 0.00143	0.006 ± 0.124	0.009 ± 0.148				
Zr	0.00736 ± 0.00945	0.00242 ± 0.00579	0.00000 ± 0.01820	0.01330 ± 0.00537	0.00942 ± 0.00687	0.00000 ± 0.00093	0.00023 ± 0.00249	0.00000 ± 0.00166	0.043 ± 0.237	0.065 ± 0.283				
Pd	0.00000 ± 0.01231	0.00000 ± 0.00939	0.00000 ± 0.04330	0.00000 ± 0.00330	0.00000 ± 0.01663	0.00000 ± 0.00173	0.00000 ± 0.00444	0.00000 ± 0.00304	0.261 ± 1.40	0.278 ± 1.67				
Mo	0.00743 ± 0.03872	0.00584 ± 0.03056	0.00000 ± 0.12920	0.00090 ± 0.01037	0.00491 ± 0.05070	0.00034 ± 0.00449	0.00185 ± 0.01273	0.00000 ± 0.00828	0.145 ± 1.63	0.128 ± 1.87				
Ag	0.00888 ± 0.036419	0.00245 ± 0.03558	0.02560 ± 0.15060	0.00185 ± 0.01183	0.00722 ± 0.05915	0.00087 ± 0.00540	0.00025 ± 0.01523	0.00013 ± 0.00978	0.016 ± 1.64	0.024 ± 1.96				
Cd	0.00267 ± 0.04553	0.00000 ± 0.03604	0.01580 ± 0.15060	0.00070 ± 0.0112	0.00278 ± 0.05935	0.00058 ± 0.00540	0.00089 ± 0.01531	0.00010 ± 0.00988	0.210 ± 1.98	0.316 ± 3.91				
In	0.00398 ± 0.05432	0.00035 ± 0.04360	0.02450 ± 0.18380	0.00000 ± 0.01440	0.00917 ± 0.10665	0.00000 ± 0.00680	0.00182 ± 0.01843	0.00194 ± 0.01202	0.105 ± 2.44	0.158 ± 2.91				
Sb	0.02958 ± 0.08756	0.00561 ± 0.05212	0.02900 ± 0.22630	0.00860 ± 0.01754	0.01540 ± 0.13144	0.00132 ± 0.00841	0.00240 ± 0.02763	0.00049 ± 0.01755	0.061 ± 2.95	0.000 ± 3.40				
Sn	0.00000 ± 0.07842	0.00000 ± 0.06147	0.02930 ± 0.27340	0.00010 ± 0.02068	0.00983 ± 0.15875	0.00000 ± 0.00999	0.00240 ± 0.02763	0.00008 ± 0.01755	4.70 ± 11.62	3.01 ± 13.90				
Ba	1.02 ± 0.13991	0.20259 ± 0.15782	0.00000 ± 0.99020	0.33550 ± 0.09716	5.3514 ± 0.43718	0.06832 ± 0.03643	0.01112 ± 0.10126	0.00108 ± 0.06520	2.18 ± 13.76	6.27 ± 16.44				
La	0.00000 ± 0.01408	0.02141 ± 0.28118	0.00000 ± 1.28	0.00295 ± 0.09534	0.00701 ± 0.49281	0.00532 ± 0.03643	0.00186 ± 0.13175	0.00000 ± 0.06538	0.044 ± 0.249	0.066 ± 0.299				
Hg	0.00358 ± 0.01123	0.00000 ± 0.01089	0.00320 ± 0.03910	0.00000 ± 0.00396	0.00000 ± 0.02853	0.00000 ± 0.00236	0.00025 ± 0.00524	0.00000 ± 0.00335	0.000 ± 0.198	0.000 ± 0.236				
Au	0.00000 ± 0.01147	0.00000 ± 0.00845	0.00000 ± 0.00477	0.00055 ± 0.00441	0.00186 ± 0.01512	0.00000 ± 0.00152	0.00028 ± 0.00404	0.00000 ± 0.00271	0.004 ± 0.195	0.007 ± 0.232				
Tl	0.00093 ± 0.01124	0.00045 ± 0.00631	0.00000 ± 0.03750	0.00235 ± 0.00477	0.00098 ± 0.01487	0.00005 ± 0.00152	0.00000 ± 0.00398	0.00000 ± 0.00268	0.071 ± 0.267	0.106 ± 0.319				
Pb	0.02527 ± 0.03589	0.00000 ± 0.01222	0.00000 ± 0.05970	0.00605 ± 0.03280	0.00403 ± 0.04365	0.00000 ± 0.00221	0.00000 ± 0.00148	0.00087 ± 0.00378	0.005 ± 0.193	0.008 ± 0.231				
U	0.00000 ± 0.01066	0.00021 ± 0.00807	0.00000 ± 0.00324	0.00020 ± 0.00324	0.00013 ± 0.03169	0.00000 ± 0.00148	0.00000 ± 0.00148	0.00000 ± 0.00256	0.005 ± 0.193	0.008 ± 0.231				
SO ₂	21297.1 ± 12557.9	6100.32 ± 3330.54	5721.43 ± 347.794	2074.78 ± 199.369	11336.0 ± 11438.3	0.00000 ± 0.54262	161.00 ± 252.84	0.29500 ± 0.13700	2262.14 ± 2273.14	3065.29 ± 2780.87				
NH ₃	9.75 ± 8.05	7.33 ± 5.68	3385.60 ± 264.61	491.12 ± 384.45	1449.28 ± 1861.70	0.00000 ± 1054.86	440.88 ± 1054.86	0.00000	0.000	0.000				

表 3.4.2 発生源試料中の PM2.5 化学組成 (重量%)

Element	Motor Vehicle										Geological									
	MZMVGC1C	MZMVGC2C	MZMVGC3C	MZMVGC4C	MZMVGC5C	MZMVGC6C	MZMVGC7C	MZMVGC8C	MZMVGC9C	MZMVGC10C	MZSPVRDC	MZMPVRDC	MZUPVRDC	MZSOILC	MZGEOLC					
Cl ⁻	2.46 ± 1.32	3.32 ± 1.97	1.72 ± 0.29662	2.50 ± 1.38	1.39 ± 0.43338	2.22 ± 3.12	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.07647 ± 0.05792	0.04859 ± 0.03997	0.06187 ± 0.05212	0.05894 ± 0.05017	0.06289 ± 0.05030					
NO ₃ ⁻	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.03151 ± 0.05458	0.03151 ± 0.05458	0.06187 ± 0.05212	0.04228 ± 0.04972	0.03222 ± 0.04878					
SO ₄ ²⁻	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.04942 ± 0.05478	0.04942 ± 0.05478	0.09576 ± 0.06899	0.13031 ± 0.11503	0.09156 ± 0.06866					
NH ₄ ⁺	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.08162 ± 0.02112	0.08844 ± 0.00535	0.10522 ± 0.07009	0.10825 ± 0.02240	0.08654 ± 0.03343					
K ⁺	58.95 ± 13.03	57.58 ± 7.95	69.47 ± 17.18	62.00 ± 12.80	38.76 ± 2.37	56.19 ± 53.63	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.14111 ± 0.05499	0.12776 ± 0.03841	0.14749 ± 0.07138	0.12489 ± 0.04810	0.13346 ± 0.04798					
OC	38.05 ± 12.55	36.18 ± 5.31	28.65 ± 16.67	35.28 ± 11.87	58.43 ± 2.44	41.07 ± 20.64	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	7.73 ± 2.21	7.05 ± 3.44	4.63 ± 2.17	6.06 ± 2.58	6.49 ± 2.55					
EC	0.00000 ± 0.00000	0.69920 ± 0.87712	0.55313 ± 0.50539	0.41711 ± 0.59853	0.00000 ± 0.00000	0.31283 ± 1.58	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	1.12 ± 0.30935	0.43681 ± 0.31744	0.43520 ± 0.14103	0.94372 ± 1.48	0.77696 ± 0.84365					
Na	0.04220 ± 0.07309	0.00000 ± 0.00000	0.16887 ± 0.16244	0.07036 ± 0.11715	0.05910 ± 0.10236	0.06754 ± 0.28070	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.42887 ± 0.10410	0.38835 ± 0.08261	0.40861 ± 0.09397	0.29763 ± 0.24827	0.30994 ± 0.19761					
Mg	0.05917 ± 0.04535	0.00330 ± 0.00572	0.10797 ± 0.16123	0.05681 ± 0.09528	0.00000 ± 0.00000	0.04251 ± 0.28434	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.59821 ± 0.11607	0.54178 ± 0.11506	0.57050 ± 0.10805	0.73029 ± 0.15846	0.62108 ± 0.15413					
Al	0.01017 ± 0.00185	0.00807 ± 0.00401	0.02983 ± 0.05046	0.04626 ± 0.07176	0.18087 ± 0.09327	0.07984 ± 0.48300	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	4.93 ± 0.52860	4.13 ± 0.7324	4.53 ± 0.53389	4.38 ± 0.98839	4.46 ± 0.65991					
Si	0.00463 ± 0.00803	0.06283 ± 0.07656	0.04597 ± 0.01816	0.03781 ± 0.04729	0.00837 ± 0.00927	0.03904 ± 0.48300	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	22.10 ± 2.31	18.17 ± 0.90285	20.13 ± 2.86	16.95 ± 3.35	18.11 ± 3.48					
P	0.00000 ± 0.00000	1.85 ± 3.21	0.65587 ± 1.48	0.90269 ± 1.94	0.33213 ± 0.31702	0.78005 ± 1.68	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.06983 ± 0.01492	0.08678 ± 0.02849	0.07831 ± 0.02287	0.07572 ± 0.01196	0.07672 ± 0.01745					
S	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.06087 ± 0.06893	0.04368 ± 0.06057	0.03920 ± 0.02564	0.04254 ± 0.28133	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.22293 ± 0.01391	0.19687 ± 0.03787	0.20980 ± 0.03787	0.08442 ± 0.03438	0.15245 ± 0.03769					
Cl	0.06887 ± 0.10506	0.07713 ± 0.07398	0.06887 ± 0.06893	0.06497 ± 0.06844	0.00507 ± 0.00978	0.04989 ± 0.18705	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.01470 ± 0.04041	0.00000 ± 0.03614	0.00735 ± 0.03934	0.00033 ± 0.03590	0.00379 ± 0.03565					
K	0.11470 ± 0.10333	0.05260 ± 0.03420	0.00000 ± 0.00000	0.05577 ± 0.07372	0.01040 ± 0.01801	0.04443 ± 0.21583	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	2.60 ± 0.31948	2.29 ± 0.14174	2.45 ± 0.27735	1.85 ± 0.18038	2.11 ± 0.42069					
Ca	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	3.03 ± 0.25318	3.63 ± 0.55570	3.33 ± 1.62	3.33 ± 1.62	3.16 ± 1.05					
Na	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.52288 ± 0.04417	0.61827 ± 0.06513	0.57058 ± 0.07216	0.46502 ± 0.13866	0.49788 ± 0.12254					
Mg	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00881 ± 0.03602	0.02780 ± 0.02011	0.01831 ± 0.02999	0.02008 ± 0.02193	0.01721 ± 0.02712					
Al	0.01263 ± 0.02188	0.00950 ± 0.01645	0.00857 ± 0.00818	0.01023 ± 0.01441	0.00487 ± 0.00660	0.00892 ± 0.08516	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00993 ± 0.00956	0.01658 ± 0.00420	0.01276 ± 0.00714	0.01244 ± 0.00609	0.01162 ± 0.00746					
Si	0.00257 ± 0.00338	0.01523 ± 0.02442	0.01673 ± 0.01458	0.01151 ± 0.01583	0.00700 ± 0.00121	0.00881 ± 0.05722	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.08512 ± 0.00829	0.10277 ± 0.01178	0.09895 ± 0.00943	0.12617 ± 0.05594	0.10514 ± 0.03434					
Fe	0.01667 ± 0.02741	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00558 ± 0.01604	0.00000 ± 0.00000	0.00417 ± 0.18029	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	5.82 ± 0.53228	6.24027 ± 0.23697	4.38 ± 0.09379	4.95 ± 2.11	5.39 ± 1.34					
Co	0.00133 ± 0.00231	0.00000 ± 0.00000	0.03017 ± 0.05225	0.01050 ± 0.03003	0.00123 ± 0.00214	0.00818 ± 0.03771	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00117 ± 0.08872	0.00082 ± 0.09473	0.00100 ± 0.09178	0.00014 ± 0.08011	0.00055 ± 0.08421					
Ni	0.01830 ± 0.02564	0.00867 ± 0.00577	0.00053 ± 0.00092	0.00850 ± 0.01529	0.00000 ± 0.00000	0.00638 ± 0.03918	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00042 ± 0.00325	0.00713 ± 0.00102	0.00378 ± 0.00370	0.00241 ± 0.00228	0.00288 ± 0.00239					
Cu	0.03243 ± 0.04146	0.01543 ± 0.01038	0.00557 ± 0.00964	0.01714 ± 0.02496	0.00537 ± 0.00605	0.01420 ± 0.04000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00486 ± 0.00089	0.00642 ± 0.00076	0.00564 ± 0.00102	0.00389 ± 0.00137	0.00516 ± 0.00145					
Zn	0.02547 ± 0.03556	0.07057 ± 0.05294	0.04333 ± 0.03552	0.04646 ± 0.04146	0.02880 ± 0.01064	0.04204 ± 0.04288	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.05597 ± 0.01178	0.04310 ± 0.00393	0.04953 ± 0.00749	0.01680 ± 0.00215	0.03325 ± 0.01779					
Ga	0.00310 ± 0.00537	0.00787 ± 0.01328	0.00110 ± 0.00191	0.00396 ± 0.00778	0.00000 ± 0.00000	0.00287 ± 0.03388	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00150 ± 0.00466	0.00054 ± 0.00343	0.00102 ± 0.00409	0.00000 ± 0.00426	0.00095 ± 0.00404					
As	0.00160 ± 0.00144	0.00103 ± 0.00179	0.01197 ± 0.01180	0.00487 ± 0.00804	0.00247 ± 0.00035	0.00437 ± 0.03844	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00063 ± 0.00721	0.00051 ± 0.00439	0.00057 ± 0.00597	0.00134 ± 0.00499	0.00112 ± 0.00438					
Se	0.00757 ± 0.00475	0.01313 ± 0.01548	0.02313 ± 0.00185	0.00781 ± 0.00944	0.00080 ± 0.00075	0.00581 ± 0.02141	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00023 ± 0.00273	0.00024 ± 0.00208	0.00025 ± 0.00243	0.00000 ± 0.00253	0.00112 ± 0.00240					
Br	0.00737 ± 0.00806	0.03350 ± 0.02607	0.03233 ± 0.00717	0.03113 ± 0.02426	0.01300 ± 0.00330	0.02860 ± 0.02807	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00248 ± 0.00223	0.00107 ± 0.00191	0.00176 ± 0.00207	0.00161 ± 0.00186	0.00183 ± 0.00192					
Rb	0.0107 ± 0.00185	0.00467 ± 0.00428	0.00033 ± 0.00098	0.00511 ± 0.00323	0.00000 ± 0.00000	0.00188 ± 0.01848	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.01543 ± 0.00231	0.01265 ± 0.00077	0.01404 ± 0.00214	0.01118 ± 0.00090	0.01272 ± 0.00202					
Sr	0.01087 ± 0.00706	0.00467 ± 0.00515	0.00000 ± 0.00000	0.00511 ± 0.00323	0.00000 ± 0.00000	0.00383 ± 0.02027	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.04228 ± 0.04980	0.08198 ± 0.00578	0.05210 ± 0.01181	0.02338 ± 0.00185	0.03785 ± 0.01689					
Y	0.00283 ± 0.00386	0.00000 ± 0.00000	0.00187 ± 0.00323	0.00160 ± 0.00283	0.00000 ± 0.00000	0.00120 ± 0.02427	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00350 ± 0.00213	0.00349 ± 0.00190	0.00350 ± 0.00202	0.00268 ± 0.00319	0.00320 ± 0.00233					
Zr	0.00227 ± 0.00241	0.00113 ± 0.00196	0.00078 ± 0.00127	0.00138 ± 0.00182	0.00050 ± 0.00087	0.00116 ± 0.02837	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.02027 ± 0.00196	0.02049 ± 0.00146	0.02038 ± 0.00146	0.01033 ± 0.00130	0.01672 ± 0.00444					
Mo	0.01003 ± 0.01053	0.00000 ± 0.00000	0.00127 ± 0.00114	0.00377 ± 0.00701	0.00000 ± 0.00000	0.00283 ± 0.05134	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00155 ± 0.00681	0.00316 ± 0.00514	0.00235 ± 0.00603	0.00184 ± 0.00569	0.00182 ± 0.00598					
Pd	0.01340 ± 0.01820	0.06840 ± 0.11501	0.03600 ± 0.06235	0.03660 ± 0.07001	0.02837 ± 0.02703	0.03629 ± 0.32025	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.02281	0.00162 ± 0.01705	0.00081 ± 0.02019	0.00330 ± 0.02023	0.00160 ± 0.01988					
Ag	0.00973 ± 0.01686	0.07320 ± 0.12679	0.02550 ± 0.04417	0.03814 ± 0.07346	0.02820 ± 0.02482	0.03416 ± 0.37311	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00155 ± 0.02571	0.00051 ± 0.01935	0.00103 ± 0.02275	0.00030 ± 0.02343	0.00174 ± 0.02255					
Cd	0.01327 ± 0.01760	0.10130 ± 0.17546	0.07127 ± 0.12344	0.06138 ± 0.11476	0.00907 ± 0.01570	0.04630 ± 0.38163	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00764 ± 0.02586	0.00189 ± 0.01948	0.00478 ± 0.02289	0.00000 ± 0.02352	0.00298 ± 0.02269					
In	0.00833 ± 0.01443	0.13703 ± 0.23735	0.02893 ± 0.03426	0.09008 ± 0.13983	0.01977 ± 0.02091	0.04925 ± 0.46000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.00000	0.00000 ± 0.0000										

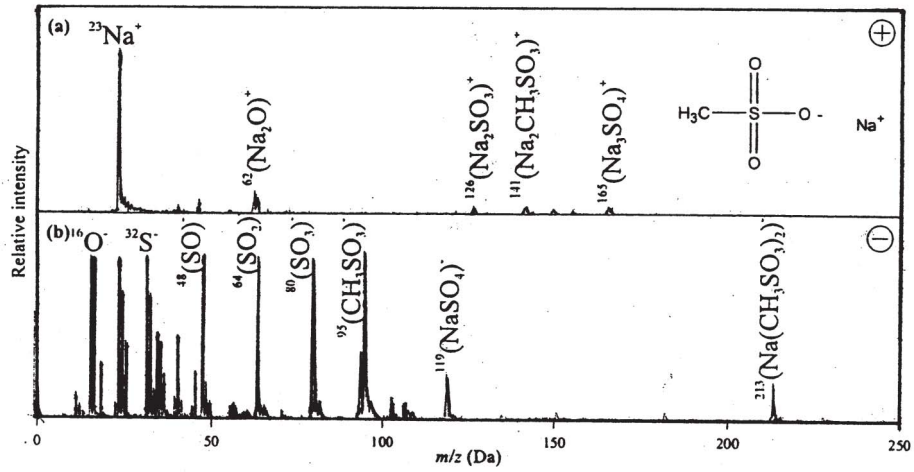


図 3.4.1 メタルスルホン酸塩の TOFMS スペクトル (上図：正イオン、下図：負イオン)

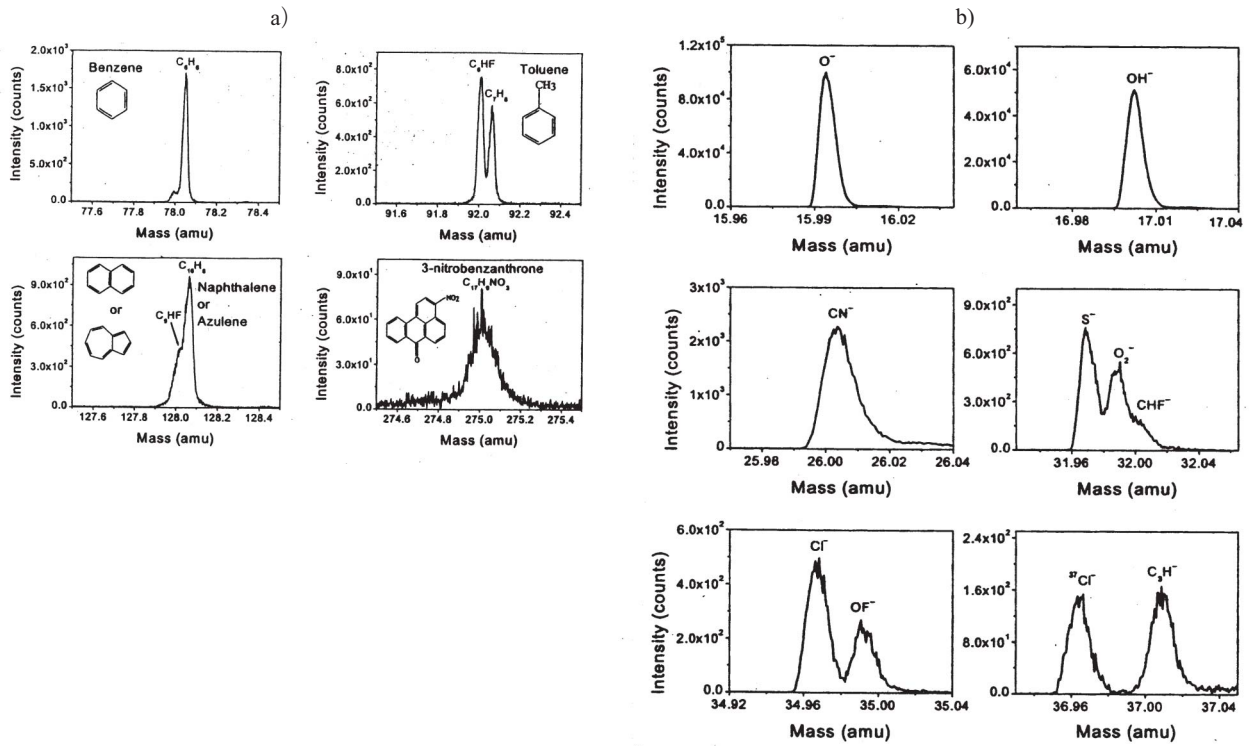
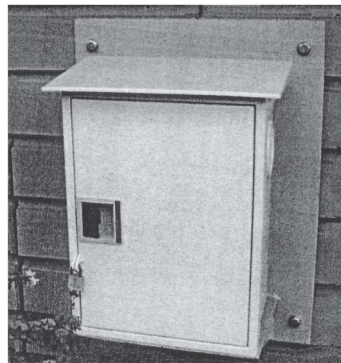
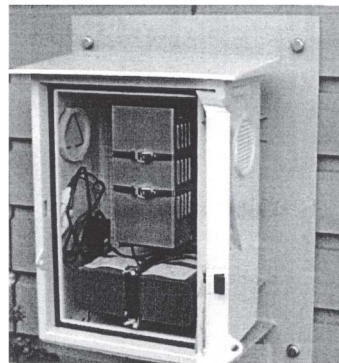


図 3.4.2 Salt lake City で捕集した PM_{2.5} 試料の TOFMS スペクトル (a: 正イオン、b: 負イオン)



(外観)



(内部)

図 3.4.3 超小型 NO₂ センサーを組み込んだ観測装置

(UV)に分けられる。表3.4.3は、両方式による測定可能ガス成分と期待される感度をまとめたものである。現在の市販装置（IR法、UV法とも）でも、数百m離れた空間の大気中濃度変動を数十秒～数分の時間分解能で観測することができる。このような装置を発生源に対し3次元方向に配置することによって目的成分の動態変化をリアルタイムに追跡することが可能となる。しかし、二次生成粒子に関与する対象成分種類を増やすこと、および測定値の精度や感度をさらに高めることが今後の課題であろう。

表3.4.3 オープンパス型装置の測定成分と検出限界例

	IR方式	UV方式
NH ₃	3 ppbv	2 μg/m ³
NO ₂		1
HONO		1
O ₃	1	3
SO ₂	14	1
CH ₄	23	
C ₂ H ₄	10	
C ₆ H ₆	6	3
C ₆ H ₅ (CH ₃)	14	3
C ₆ H ₄ (CH ₃) ₂	9	3

IR方式：光路長200mの場合
UV方式：光路長500mの場合

文献

- Silva, P.J. and K.A.Prather(2000): Interpretation of Mass Spectra from Organic Compounds in Aerosol Time-of-Flight Mass Spectrometry. *Anal. Chem.*, 72, 3553-3562.
- Watson, J.G., J.C.Chow and J.E.Houck(2001): PM2.5 chemical source profiles for vehicle exhaust, vegetative burning, geological material, and coal burning in Northwestern Colorado during 1995. *Chemosphere*, 43, 1141-1151.
- Watson, J.G., J.C.Chow, D.H.Lowenthal, L.C.Pritchett, C.A.Frazier, G.R.Neuroth and R.Robbins(1994): Differences in the carbon composition of source profiles for diesel- and gasoline-powered vehicles. *Atmos. Environ.*, 28, 2493-2505.
- Willeke, K. and T.Whitby(1975): Atmospheric Aerosols: Size Distribution Interpretation. *J. Air Poll. Control Assoc.*, 25, 529-534.
- Zhu, Y-J., N.Olson and T.P.Beebe, Jr.(2001): Surface Chemical Characterization of 2.5- μm Particulates (PM2.5) from Air Pollution in Salt Lake City Using TOF-SIMS, XPS, and FTIR. *Environ. Sci. Technol.*, 35, 3113-3121.
- 丸尾容子、大山 孝、林孝好、田中 融、白濱将人、滝川義明、工藤 浩、菅野 淳、間山秀信 (1999): 大気レベル二酸化窒素濃度測定システムの開発 (II)。第 40 回大気環境学会年会講演要旨集、354。
- 原 宏、本多浩一、長良健次、後藤敦子 (1983): 大気中の塩化物イオンおよび硝酸イオンエアロゾルの粒度分布の季節変動、*日化誌*、1221-1225。
- 溝畑 朗 (1986): 大気エアロゾル粒子中の希土類元素と発生源。 *エアロゾル研究*、1, 274-285。
- 溝畑 朗、真室哲雄 (1980): 堺における大気浮遊粒子状物質中の諸元素の発生源の同定 (II)。 *大気汚染学会誌*、15、225-233。
- 藤村 満、橋本芳一、野上祐作、石井邦彦 (1978): 粒子状物質および微量元素の粒度別挙動、 *大気汚染学会誌*、13、280-288。

4. PM_{2.5}・DEP の環境動態とモデル

4.1 PM_{2.5}・DEP の環境動態と国内外の研究の現状

4.1.1 最近のPM_{2.5}に関する動態観測の研究例の紹介

酒巻 史郎

微小粒子による健康被害や視程障害の懸念から米国においては、1997年7月に粒径2.5ミクロン以下の粒子(PM_{2.5})に対する新規規制値が設定されたが、そのPM_{2.5}の環境動態についてはまだ未解明な点が多く、現在、動態に関する知見の蓄積が進められている最中である。ここでは、米国の新規規制値の設定に前後して、最近実施・報告されたPM_{2.5}関連のフィールド観測結果のいくつかを紹介し、今後の研究展開を考えたい。

1997年4月より99年10月にかけてテネシー州及びその周辺8地点でPM_{2.5}を測定したTannerらの測定結果では、その年平均値は14～20 μg/m³であり、都市及びその近郊の測定点の全てで年基準値(15 μg/m³)を超えており、下回ったのは田園地域の1地点にすぎなかった。しかし、日平均値が日基準値(65 μg/m³)を超えることはなかった。また、その季節変動は夏に高く、冬に低かった。田園地点でのPM_{2.5}はその半分が硫酸イオンであり、1/3が有機炭素成分であった。全体として、硫酸アンモニウムが3～5割であり、約1/3が有機成分であった。一方、都市域でのPM_{2.5}はその約4割が有機成分で、硫酸イオンは3割前後であった。PM_{2.5}の日変動は朝方のラッシュアワー時に高い傾向を示し、一次粒子であるエレメンタルカーボン等の濃度も高くなっていた。

Chuersuwanらはニューヨーク市の南に隣接するニュージャージー州内の4都市でTEOM(tapered element oscillating microbalances)を使用してPM_{2.5}を1997年7月から翌98年6月までの1年間に渡って連続測定した結果を報告している。その観測結果では、PM_{2.5}の濃度は5月から10月にかけて高く、11月から4月が低くなる、上記のTannerらの結果と同様な季節変動が認められていた。そして7月に観測された日平均値の最高濃度は4地点とも日基準値(65 μg/m³)を超え、また都市域にある3地点の年平均値も年基準値(15 μg/m³)を超える結果となっていた。また4地点間では人口が密集して工業化されている地点の方が年平均値が1～

3 μg/m³高くなっていた。一日の中でPM_{2.5}は、交通量を反映して、朝、夕にピークとなる日変動を示した。このような地域発生源の影響の他に、高濃度が出現した夏場での4地点間の測定結果の相関性が高かったことからPM_{2.5}やその前駆体の大規模輸送の影響が大きいことが推測された。夏場の高濃度が出現時には同時に測定しているオゾンもPM_{2.5}と同一の挙動を示しており、PM_{2.5}が光化学反応で二次的に生成していることも推測され、ニュージャージーでは大陸内部もしくは大都市からの大規模輸送と輸送中の光化学二次生成がPM_{2.5}の高濃度エピソードに重要な影響を与えていると考えられた。また、一時間最高値と日平均値のずれから日基準値による対策は急性な健康被害を起こすかもしれない高濃度の短時間暴露に対して十分では無いかもしれないとの懸念が示された。

Christoforouらは微小粒子のトレンドを知る目的でカリフォルニア州大気資源局やカリフォルニア工科大学が1980年代から行っている微小粒子の測定結果を解析し、南カリフォルニアのロスアンゼルス近辺では80年代から90年代始めにかけては微小粒子は減少傾向にあることを報告した。その測定した微小粒子の主成分は硫酸アンモニウム、硝酸アンモニウムや含炭素エアロゾルであったが、この期間の硫酸イオンの減少は強力なSO_x放出抑制政策を反映した結果であり、また含炭素エアロゾル中の元素状炭素の減少は新型ディーゼルエンジンや改質ディーゼル燃料の導入等のディーゼル排出物の抑制政策の結果を反映したものと指摘した。一方、含炭素エアロゾル中の有機エアロゾルは自動車排気ガス対策が取られているにもかかわらず、元素状炭素のように減少していなかったが、このことは排ガス対策の効果が、人口や交通量の増加で相殺されているものと推定した。ロスアンゼルス地区での微小粒子の季節変動は海風が入り込む夏場に低く、大気が滞留する冬場に高くなる傾向であった。また、高濃度時では硝酸アンモニウムが微小粒子の過半を占めていたことから、硝酸エアロゾルの正確な測定法とその抑制の必要性が強調されている。

Wooらは1998年8月から99年8月にかけてアトランタにおいて3種類の測定器を使用して3nmから2 μmの粒子を粒径別に測定した結果を報告している。その測定

結果では粒子の大部分は50nmより小さく、2.5nm ぐらいの超微粒子個数が最大であった。測定した粒子を年平均で見ると、個数濃度の89%が100nm (0.1 μm) 以下の粒子であり、26%が10nm 以下の粒子であった。一方、体積濃度では、100nm 以上の粒子が83%を占めていた。100nm 以下の粒子個数は冬よりも夏に小さくなる傾向であった。また、2 μm 以下の粒子の個数濃度と体積濃度や個数濃度と表面積濃度との間には相関は認められなかった。このことから、もし健康被害に対して超微粒子が利いているならば、PM_{2.5} の環境基準が達成されるように政策決定されても人間の健康を守れないことが懸念された。1 週間単位での微粒子の変動を調べると、週日に微粒子濃度が高く、週末に低くなる傾向が認められた。また、1 日の中では10nm 以上の粒子個数濃度は交通量の増減と対応して朝8 時頃にピークを示し、また午後6 時以降に濃度が増加する傾向があった。一方、10nm 以下の粒子個数濃度は太陽光強度と対応して日中にピークとなっていた。また、この13 ヶ月の測定期間中において個数濃度がピークとなる3つの超微粒子が観測された。そのひとつとして、春及び夏に粒径3～10nm の粒子濃度が特異に高くなることが23 日間観察され、これら超微粒子は光化学2 次粒子生成の結果であると考えられた。また、粒径10～35nm の粒子は冬期に18 日ピーク濃度を示し、これらは固定発生源もしくは移動発生源起因のものと考えられた。また、粒径35～45nm の粒子はピーク濃度を示すのが9 月と4 月に8 日間観測された。この場合のピーク濃度を示す時間は夜遅い時が多く、またその際にSO₂ やNO_x 等のガス濃度も同時に増加していた。この粒子の生成過程については直接触れてはいないが、10nm 以下の粒子の場合と同じく、光化学由来生成のもの長距離輸送によるものと推測される。

Pakkanen らは1996 年6 月より97 年6 月の期間、ヘルシンキ市内外でやはり0.1 μm 以下の超微粒子を測定した。その報告では市内(490ng/m³) よりも市外(520ng/m³) の方がやや超微粒子濃度が高く、PM_{2.5} に占める割合(重量比)は市内7%、市外8.5%であった。また超微粒子中の40 種類以上の化学成分の分析も同時に行っており、その結果ではサルフェート、アンモニウム、ナイトレート、カルシウムイオンが主成分であった。ただし、測定

成分の超微粒子に占める割合は15～20%に過ぎず、残りは水分(10%)と炭素成分(70%)であると推定している。またこのヘルシンキでは金属成分の内、Ba、Ca、Mg、Sr は超微粒子が自動車排ガス由来であることを示し、Fe、Co、Mo、Ni は重油燃焼由来を示すものとしている。

以上はごく限られた論文の紹介に過ぎないが、アメリカではPM_{2.5} に対する新基準値が策定されたにもかかわらず、かなりの地域でその年間基準値を上回っているのが現況であり、更に揮発性成分を過小評価する傾向がある現行のEPA 推奨の測定方法を見直してPM_{2.5} をより正確に測定する方法を確定することが求められている。しかしカリフォルニアでのトレンド解析の結果に現れているように原因物質に対する有効な制御政策が実施されればそれに対応して環境中の微粒子濃度の低下とその質の変化をもたらすことが可能となろう。今後日本においても有効な対策を講じるためにはPM_{2.5} の正確な測定とそれによる地域特性によって異なる各地域毎の環境動態の解明が必要であり、また発生源の特定のためにもその成分分析も必要となろう。更に、健康影響をより視野に入れるならば、重量ベースではPM_{2.5} の1～2割に過ぎないが、個数ベースでは8割前後を占める粒径0.1 μm 以下の超微粒子の動態解明を進める必要があり、超微粒子の環境計測法を確立していかなければならない。

4.1.2 PM_{2.5}・DEP の環境動態把握の諸課題

若松伸司

PM_{2.5}・DEP の環境動態の把握に関する研究は、不十分である。その原因として最も大きいのが測定法の問題である。環境中のPM_{2.5}・DEP の重量、粒径分布、個数、組成を計測する方法が不十分であるため実態の把握が十分になされていない。さらに発生源の把握に関しても十分な情報が得られていないため、発生源が環境に及ぼす影響評価を行うモデルの検証も殆どなされていない。このような課題に対しての研究の推進が必要であるが、しかしながら不十分ながら現在までに得られている情報から得られる知見をまとめて、実態が、どこまで分かっているのか？何が優先的に、また重点的に実施しなければならない課題なのか？を明らかにすることも重要で

ある。ここでは、環境動態把握の研究の現状と幾つかの課題を述べる。

(1) 測定の問題

測定条件として、サンプリング位置、配管影響、粒径カット特性などに関する検討が必要である。測定方法の問題として、PM_{2.5}・DEP の測定原理、温度影響、湿度影響などに関する検討が必要である。米国におけるPM_{2.5}等測定装置の比較実験結果 Environmental Technology Verification Report(August 2001)が出版されたが、我国における調査研究も必要である。PM_{2.5}・DEP プロジェクトにおいてはPM_{2.5}測定装置の並行比較試験を実施している。

(2) 炭素成分の分析の問題点

炭素成分の発生源測定と環境測定の不一致が、発生源推定作業のネックとなっている。有機炭素と元素炭素成分の分離分析技術の現状とPM_{2.5}・DEP プロジェクトにおける取り組みについては3.2章で詳細に紹介する。

(3) 発生源把握の問題

シャシーダイナモ調査、トンネル調査、沿道調査、車載型計測、マクロ推計調査、など各種の手法を基に、エミッションファクターや曝露量の推計を行う必要がある。シャシーダイナモ実験においては、定められた環境条件や走行モード条件を基にエミッションファクターが測定されるが、実際の走行においては、走行状態には大きな幅があり、また積載量や、車の整備状態にもおおきな差がある。寒い朝のスタート時には、触媒が温まっていないため、定常走行時に比べて、大気汚染物質の発生量に大きな差が出る。国立環境研究所ではこの点についての実験を予定している。

(4) 沿道大気汚染

PM_{2.5}・DEP の濃度が最も高い沿道での大気拡散の把握が必要である。国立環境研究所においては、風洞実験や数値モデル研究により、多くの研究成果を上げて来た。風洞実験に関しては、4.3章で詳しく紹介する。

沿道・都市から広域までの研究のリンクが必要でありJCAP2 の計画での沿道スケールの数値モデル開発研究との協力を予定している。

(5) 都市大気汚染とヒートアイランド

都市スケールのPM_{2.5}・DEP 問題の切り口としてここ

では、ヒートアイランドと大気汚染を取り上げたい。

ヒートアイランドと大気汚染との関連性は、都市の大気環境研究の大きな関心事である。都心には周辺よりも気温の高いヒートアイランドが出来るが、この部分に海風が進入すると、ヒートアイランドと海陸風の相互作用により風の収束域付近で高濃度大気汚染が発生することが、夏季の航空機観測により明らかとなった。

フィールド観測データ解析およびモデル解析の結果、今年度新たに解明されたメカニズムを以下に示す。

①、海風は前線を伴って内陸へと進入するが、海風前線位置から海側では、ヘッドの部分に渦が出来、これが大気汚染物を閉じこめ高濃度となっている。②、海風前線が内陸に移動し、ヒートアイランドの中心に達すると、高温で気圧が低くなっているため、高濃度の部分は上空に持ち上げられる。③、これと共に内陸への進入速度も弱まり、海風の進入が停滞する。④、ヒートアイランドの中心に向かって地上付近の大気汚染物質が継続的に供給されるので、ヒートアイランドの中心付近で粒子状物質の壁が形成される持続する。

このようなメカニズムでヒートアイランドもPM_{2.5}濃度の上昇と持続をもたらす。

(6) 浮遊粒子状物質濃度の経年変化

浮遊粒子状物質の環境基準は多くの地点で満足されていないが、環境濃度は経年的に低下の傾向にある。特に平成11年度における濃度の低下は顕著であった。平成11年は夏季には北太平洋高気圧気の配置が北偏し東北地方沖に中心があった為、日本列島全体が亜熱帯的な夏となり、一般風が強く太平洋からのバックグランド濃度の低い空気が流れ込み、大気汚染濃度は低濃度で推移した。PM_{2.5}・DEP の環境濃度のトレンド解析にあたっては気象要因の評価が重要である。

文献

- R. L. Tanner W. J. Parkhurst " Chemical composition of fine particles in the Tennessee valley region " J. Air & Waste Manage. Assoc. 50 p.1299-1307 (2000)
- N. Chuersuan, B. J. Turpin, C. Pietarinen " Evaluation of time-resolved PM_{2.5} data in urban /suburban areas of New Jersey " J. Air & Waste Manage. Assoc. 50 p.1780-1789 (2000)
- C. S. Christoforou, L. G. Salmon, M. P. Hannigan P. A. Solomon,

- G. R. Cass " Trends in fine particle concentration and chemical composition in southern California " J. Air & Waste Manage. Assoc. 50 p.43-53 (2000)
- K. S. Woo, D. R. Chen, D. Y. H. Pui, P. H. McMurry " Measurement of Atlanta aerosol size distributions: Observations of ultrafine particle events " Aerosol Science and Technology 34 p.75-87 (2001)
- T. A. Pakkanen, V-M. Kerminen, C. H. Korhonen, R. E. Hillamo, P. Aarnio, T.Koskentalo, W. Maenhaut " Urban and rural ultrafine (PM0.1) particles in the Helsinki area " Atmospheric Environment 35 p.4593-4607 (2001)

4.2 粒子の沿道拡散シミュレーションモデル

松本幸雄

はじめに

この節では $PM_{2.5}$ ・DEP のような粒子の沿道拡散シミュレーションモデル（以下、沿道拡散モデル）を紹介する。実際には対象を粒子に特定した沿道拡散モデルは見当たらず、多くのモデルでは非反応性大気汚染物質の一つとして CO 等とともに扱われている。また、殆どの沿道拡散モデルにおいて、粒子の大気中の生成や変成を考慮していない。従って、この節でも粒子の大気中の生成・変成過程は考慮していない。

初めに、粒子と汚染気体の大気中における挙動の違いを大まかに紹介し、次に最近約 20 年間の研究を概観し、最後に今後の課題について述べる。

4.2.1 大気中における粒子の挙動

粒子が大気中で二次的に変成しないとしたときの粒子と汚染気体との違いを簡単に述べる。

(1) 平均自由行程と粒子半径

大気中での粒子と汚染気体の挙動の相違は、空気分子の衝突による効果、および大気中から離脱する沈着過程（物質に付着したり（乾性沈着）、水滴に吸収されたり（湿性沈着）して最終的に大気中から離脱する過程）において顕著である。

粒子と空気分子との相互作用は、粒子半径 (r) と空気分子の平均自由行程 (λ) との大小関係により変わり、分子運動論的領域 ($r \ll \lambda$)、連続体力学的領域 ($r \gg \lambda$)、と中間領域 ($r \sim \lambda$) とに分類される。分子運動論的領域では、粒子は断続的に空気分子の衝突を受けることにより移動し、気体分子運動論によって表される。一方、連続体力学的領域では、粒子は空気という流体中に浮かぶ物体として挙動し、粒子への空気分子の衝突は粘性として現れる。空気の主成分である窒素分子の平均自由行程が標準状態で $\lambda \sim 0.067 \mu\text{m}$ であるのに対し、沿道で対象とする粒子の大きさは $0.001 \mu\text{m}$ から $100 \mu\text{m}$ 程度まであることを考えると、空気中の粒子の挙動は粒子の大きさにより大きく変わる可能性がある。

(2) 拡散係数

分子運動論的領域において粒子の分子拡散は気体状汚染物質のそれと異なるが、沿道汚染では乱流によってかき混ぜる効果が拡散の主体と考えられる。また、連続体力学的領域では物質の拡散は乱流効果が圧倒的である。結果的に、粒子の拡散は全領域にわたって乱流拡散が主と想定され、気体状物質の拡散と同じとして扱われることが多い。

しかし、連続体力学的領域の乱流拡散係数には（動）粘性抵抗と重力の効果が無視できなくなる。この効果が拡散係数に及ぼす程度を粒子の運動方程式によるシミュレーションにを用いて評価した報告によると、粒径が大きくなると鉛直方向の拡散が気体状物質に比べて進まず、発生源付近で汚染が大きいことが示唆されている（溝口ら 1985）。

(3) 重力沈降

連続体力学的領域では、気体分子との相互作用は粒子に粘性として働く。気体分子と粒子表面の相対速度が 0 となる仮定のもとで、速度 V で動く半径 d の球に働く抵抗力 F の大きさは、Stokes の法則 ($F = 3 \pi \eta V d$ η は粘性係数) として与えられる。粒子が小さくなり、大きさが空気の平均自由行程に近くなると、気体分子が粒子の表面で「すべる」効果が無視できなくなり、 F を Cunningham らの補正係数 $C (> 1)$ で割ることにより補正する。

こうして求められた抵抗力を用いて、密度 ρ の粒子に働く重力と浮力および粘性をバランスさせることにより、粒子の沈降速度 (V_g) が次の式で求められる（例えば Hinds 1982）。

$$V_g = \rho d^2 g C / (18 \eta) : (g \text{ は重力加速度})$$

ここで粒子の密度 ρ が空気の密度に比べて非常に大きいことを用いている。これによると沈降速度は粒子の密度に比例するが空気の密度には依存しない。表 4.2.1（次ページ）に密度 1 g/cm^3 の球形粒子の重力沈降速度を示した。

重力沈降が無視できないとき、この効果は排出された

表 4.2.1 20℃ 1気圧における密度 1 g/cm³ の粒子の重力沈降速度

粒径 (μm)	重力沈降速度 (mm/ 秒)
0.001	6.9×10^{-6}
0.01	7.0×10^{-5}
0.1	0.00088
1	0.035
10	3.1
100	250

粒子の煙流の主軸が風下に向かって下降する形でとりいられる。例えば、解析解モデル（後出）における、固定発生源からの粒子の濃度式(Plume 式)における排出源の高さ h を $(h - xV_g/u)$ (x は風下距離、 u は平均風速) で置き換える（例えば、環境庁 1997）。大粒径粒子のとき移流距離によってはこの効果は無視できないが、沿道大気汚染の場合には通常問題にすることはない。

(4) 沈着の効果

粒子や気体が拡散により移動したのち、大気中で水分に吸収されたり地上付近で一部は地面や草木などに沈着するが、この過程は気体や粒子の種類によって多様である。（詳報は、大喜多 1980）。非反応性気体の場合だけでなく一般に汚染物質の沿道拡散モデルでは沈着を考慮しないモデルが多いが、粒子については沈着過程を考慮できるモデルもある（CALINE 3、4 後出）。

以上の大気中粒子の挙動をまとめると、環境中での二次的な反応を考慮しない範囲では沿道周辺の粒子拡散モデルは（汚染物質による排出量の違いを除けば）非反応性気体状汚染物質の扱いと基本的に同じである。ただし、粒子の場合、地表付近の沈着を必要に応じて考慮する場合もある。特に大粒径粒子については粘性と重力を必要が生じる。

4.2.2 粒子を扱う沿道拡散モデル

気体状汚染物質の沿道濃度予測モデルの開発は米国、日本、欧州において 1960 年代後半から行われており、詳細な解説が既に報告されている（例えば、林（りん）岡本、塩沢 1991）。本稿では、粒子を対象物質の一つとして取り扱う沿道拡散モデルについて紹介する。

沿道拡散モデルを含めて大気汚染モデルは、発生源や

気象や周辺構造などの具体的な条件に対して汚染物質濃度を「解」として与える。この解が、具体的な関数形(数式) で与えられる「解析解モデル」と、関数型はわからないが数値で求められる「数値解モデル」（あるいは「数値モデル」）とがある。

粒子状物質に限らず沿道大気汚染のモデルの開発は歴史的には解析解モデルと数値解モデルとで同じころに始まった。しかし、米国、欧州、日本において、少なくとも環境評価に実用的に用いられるモデルとしては、道路上の自動車からの発生に対して解析解モデルが主流であり続けた。その理由は、コンピュータの能力が十分でなかった時には解析解モデルのほうが計算量の点で数値解モデルよりも有利ということもあるが、何よりも、トレーサー実験に対するいくつかのモデルの同時検証において解析解モデルが数値解モデル以上の予測性能を示したという歴史的事実が大きい（Sistla et al. 1979、Rao et al. 1980、Rao et al. 1986）。

しかし、数値解モデルには、解析解モデルに比べて色々な状況に適用できる汎用性がある。例えば、現実の場合では、風速が鉛直方向に変化しているのに対し、解析解モデルの基本形であるガウス型モデルでは、ある一点の風速で全体の風速を代表するのでモデル計算と現実の風速の対応に無理がある。一方、数値解モデルでは風上の風速と大気温度プロファイルを与えれば風速の鉛直分布が計算できて拡散の鉛直方向の変化にも対応できる。また、汚染物質の化学反応や自動車に起因する熱的・機械的乱流の効果も解析解モデルより自然に取り入れることが可能であり、複雑な地形や高層建築物や複雑な道路形態の場合にも適用できる。

モデルの開発に国境はないといえるかもしれないが、現実には沿道大気汚染の状況の国による違いから、モデルの開発も国ごとに特徴ある進展をしてきた。また、上述の通りモデルを分類するのに、解析解モデルと数値解モデルは良い指標と考えられる。これらのことから以下では、国ごとに、解析解モデルと数値解モデルとに分けて略記する。

4.2.3 米国における粒子の沿道拡散モデル

米国では HIWAY (EPA, Zimmerman and Thompson

1975)、GM (GM 社、Chock 1978)、CALINE2 (カリフォルニア州、Ward et al. 1977)、AIRPOL (バージニア州 Carpenter and Clemena 1975) (以上、解析解モデル)、DANARD (Danard 1972)、MROAD(Kirsh and Marson 1975)、RAGLAND (Ragland and Pierce 1975)、ROADS (Pitter 1976) (以上、数値解モデル) などが知られている。これらはいずれも 1970 年代の終わりまでに開発されたものである。以下においてその後の約 20 年の進展について、簡単に紹介する。

(1) 解析解モデル (米国)

「CALINE 3」

アメリカにおいて開発された沿道拡散モデル CALINE 3(California Line Source Dispersion Model) (Benson 1979、1992) は、開発の年代は古いですが、現在でも EPA が公式に推奨する 8 個の大气拡散モデルのうち、唯一の沿道拡散シミュレーションモデルである。このモデルはカリフォルニア州運輸局により開発されたガウス型拡散方程式を基礎にする解析解モデルであり、高速道路や幹線道路周辺で反応性のない汚染質である CO と粒子に適用できる。

道路を有限長のセグメントに分けて個々のセグメントからの寄与を風に直角な線源で代表し、ガウス型プルームで足し合わせることで、沿道 (150m 以内) の濃度を計算する。道路上では一様な汚染質の発生と乱流を仮定する (混合ゾーンモデル Mixing Zone Model)。また、混合ゾーンでは、車の運動による機械的な乱流と高温の排出ガスによる熱乱流とを取り入れる。混合ゾーンの外側では拡散により希釈してゆくとし、水平方向と垂直方向の拡散係数はモデル式で与える。沈着過程は、沈着速度を沈降速度と等しいとして入力することにより考慮できるが、CO の場合、沈着は無視されている。また、あまり複雑な周辺地形はとり扱えない。

モデルの検証は拡散実験に関する 3 つのデータベース (General Motors Data Base、Stanford Research Institute Data Base、Los Angeles Data Base) を用いて行われた。

「HIWAY2」

EPA が開発した非反応性汚染物質 (粒子も想定) につ

いての高速道路専用のガウス型沿道拡散モデルである (Petersen 1980)。いろいろな交差道路や切り通しなども扱えるが、余りに複雑な地形にある道路や建物や大樹の影響は取り扱えない。

「CALINE 4」

CALINE 3 に改良を加えたもので、CO と粒子だけでなく化学反応を伴う窒素酸化物も扱える (Benson 1984、1992)。NO、NO₂、O₃ の反応については、排出された NO が車道上の混合ゾーンで環境大気と十分混合された後に塊として拡散するとし、塊の中で反応の進行を計算する (Discrete Parcel Model)。また、交差点、駐車場 (コールドスタートなどの車の使用モードも含めて)、高架、掘割も扱えるように改良し、キャニオン (後述) の内部もある程度は扱える。さらに、鉛直方向や水平方向の拡散と自動車に起因する乱流の効果を改善した。

(理由は不明であるが、このモデルはカリフォルニア州が管理しており EPA の推奨モデルに含まれていない。)

「SRI モデル」 (ストリートキャニオンモデル)

上に述べた沿道拡散モデルは、比較的平坦な地形にある道路を想定し、両側が高層建築物に囲まれた道路周辺におけるいわゆるストリートキャニオンを想定していない。

高層建築群に囲まれた道路での自動車排気の拡散モデルでは道路上の気流のモデルが重要である。建物上層の風が道路と平行のときは、道路に平行で比較的一様な気流が流れるが、上層風が道路と直角に近いときにはストリートキャニオン内に循環的な風がふく。Johnson らは (Johnson et al, 1973)、この状況で風上の CO 濃度が風下より高濃度になる市街地実験について、(拡散方程式によらず) ボックスモデル的に直感的に定式化した。このストリートキャニオンモデルは (わが国ではモデルの提唱者の所属 Stanford Research Institute にちなんで SRI モデルと呼ぶことが多い)、CO の実測の特徴をよく説明した。簡便であるがストリートキャニオン内の濃度分布の特徴をよく表現しているので現在でも用いられる。

SRI モデルの検証実験の例として、わが国の都市でトレーサーガスを用いて詳細な比較を行い SRI モデルの係

数について議論した報告をあげておく(林(りん)、岡本、山田ら 1991)

(2) 数値解モデル (米国)

1980年代以後に開発された数値解沿道拡散モデルで代表的なのはROADWAYである。また、それ以後、大きな進展は見られない。

「ROADWAY」

これは高速道路周辺の大气汚染に対する有限差分を用いた数値解モデルである(Eskridge and Catalano 1987)。ガウス型モデルに比べて色々な状況に適用できる汎用性がある。このモデルでは風上2高度の風速と温度を与えると、境界層相似理論から風の場合とわず拡散の場合の鉛直方向の変化を計算する。カーム(無風)や微風も取り扱える。開発者らの作成した理論(Eskridge and Hunt 1979、Eskridge and Thompson 1982、Eskridge and Rao 1983、1986)を用いて自動車の通過した跡の渦が風場と乱流の場に与える効果を取り入れている。対象項目は、非反応性汚染物質のほかに、反応性の物質(NO、NO₂、O₃)も扱える。ただし、地表面や建物の表面での沈着はいずれの汚染物質についても無視している。

モデルの限界としては、車の速度が風の速度より大きいという仮定を置いていることや、風のうねりを考慮していないこと(道路に平行な風の場合この効果が顕著と考えられる)などがある。また、道路から200m以内の領域しか取り扱わないので、道路から離れた地域の汚染の議論はできない。

4.2.3 日本における粒子の沿道拡散モデル

(1) 解析解モデル (日本)

わが国では線状排出煙源の解析解モデルの研究は、ガウス型拡散式から出発して、拡散パラメータの鉛直方向の変動をとり入れた非ガウス型モデルにいたるまで詳細に行われている(例えば、池田ら 1982、1983、1984)。このような蓄積を背景に、JEA沿道汚染モデルが作成された。

「JEAモデル、JEA修正モデル」

わが国の拡散モデルとしては、1975年に環境庁によってCOとNO₂、NOを対象に解析解モデルが公表された。当初、排出源は点煙源と面煙源のみであったが、1982年に線煙源モデルによる沿道拡散モデル(JEAモデル Japan Environment Agency)が追加された(環境庁 1982)。基本的にはNO_xに着目した非反応性汚染物質のモデルで、NO₂、NOの取り扱いが化学反応を直接用いるのではなく、NO_xとNO₂の配分比を常時監視データによる統計的關係から推定する。1997年に粒子についても適用範囲を広げた(環境庁 1997)。また、当初は地表面からの発生を想定していたが、高架道路のように地上高のある発生源についても対応できるように修正された(JEA修正モデル、環境庁 1997)。

沿道拡散については、線源から排出される汚染物質の拡散を、有風のときは非ガウス型プルーム式で、無風(約1m/秒以下)のときはパフ式で発生源について重ね合わせるモデルである。ここで「非」ガウス型というのは、本来のガウス型モデルの前提とことなる現実の状況に対応して、種々の経験則に基づく修正が行われている意味である。例えば、理論的には風速と拡散係数が定数のときにガウス型プルームの濃度分布が得られるのであるが、現実にはこれらには高度方向の変化があるので、この効果を取り入れるよう修正した結果である。また、本来のプルームでは濃度の風速(u)依存性は、 u^{-1} に比例するのに対し、風速(u)の小さいときに経験則に照らして $u^{-0.5}$ に比例するよう修正されている。これは、自動車による熱排気や機械的乱流の効果が相当するとされるが、理論的に評価されたものではない。このように経験則を取り入れて修正した結果、排出された汚染物質の質量が拡散の過程で保存されないというような矛盾もJEAモデルは抱えることになった。(岡本 2001)。

JEAモデルはわが国で環境予測にあたって利用可能なほぼ唯一の「モデル」であるが、アメリカやヨーロッパのモデルと違って、JEAモデルは考え方を数式や表で示した「本」にとどまり公開されたソフトウェアとしては存在しない。このことがモデル利用上の制約となる場合もある。

(2) 数値解モデル (日本)

わが国のビル街の沿道 3 次元数値解モデルとしては日本機械学会の APPS モデルが端緒をなす (近藤 1973)。

しかし、米国同様、わが国でも実用的なモデルとしては解析解モデルが優勢で、NO₂ をターゲットにした JEA モデル (解析解モデル) が公表されたこともあって、しばらくは沿道拡散モデル開発に目立った動きはなかった。

1990 年ころから、複雑な道路構造や高層建築の密集した市街地を取り扱える数値モデルの開発の動きが生じた。これは、改善の兆しのない NO₂ 汚染の状況を打開するための国内の動きを反映したものと考えられる。大気汚染研究全体はともかくとして、沿道拡散の分野に限っていえば最近約 10 年間の日本の研究は世界的にも高い水準を保っているといえる。

以下に紹介するモデルは粒子を特に意識したものではないが、非反応性気体のモデルであるから粒子の場合も基本的には応用できると考えられる。

森口らは、定常状態における有限差分法による市街地の 2 次元および 3 次元沿道拡散モデルを開発し、ストリートキャニオン現象の再現を含めて、野外トレーサーガス実験や風洞実験とのよい一致を報告している (森口ら 1995、森口・上原 1995)。森口らのモデルでは、熱的な保存則や自動車に由来する乱流の効果は取り入れていない。また、乱流については混合距離モデルを採用している。

国領らは、類似の状況で (ただし、乱流モデルを $k - \epsilon$ モデルに進めて) 市街地の風速・拡散場の計算をおこなう環境評価への適用を試みている (現代企画社 2000)。

ストリートキャニオンにおける拡散は建物の構造や配列に大きく依存するが、同一な建物高だけでなく複雑な建物の配置も含めて乱流モデルに $k - \epsilon$ モデルを用いて拡散を計算し、トレーサー実験で評価した研究がある (Huang ら 2000)。

また、吉川らは、やはり類似の条件で、しかし、乱流の扱いに LES (Large Eddy Simulation) モデルを採用して、市街地の風と濃度の場を計算し、市街地模型を用いた風洞実験の結果と比較している (吉川ら 2001)。吉川らは、また、数値拡散モデルを、道路上の車両一台ごとの挙動を評価した交通流モデルと結合する試みも行っ

ている (吉川ら 1996)。

ここまでのモデルでは、熱対流効果が取り入れられていないが、吉川らは、路面の日照に起因する熱対流の効果を検討し (Boussinesq 近似)、ストリートキャニオン内の自動車の走行風効果を、拡散係数の増分として取り入れた沿道拡散モデルを開発し、ストリートキャニオンにおけるトレーサーガス実験による評価を行っている。 (吉川ら 1997)

以上のように日本のモデルは、乱流の取り扱いを高度にすると同時に、熱伝達や車による熱乱流、機械的乱流を取り入れることにより現実的な状況を再現する方向へ向かっている。

一方、林らは、以上の有限差分法とはことなる粒子法により高層建築物のある市街の拡散シミュレーションモデル開発を試み (林 (りん) ら 1993)、この方法でストリートキャニオンにおける 2 次元数値モデルを開発し、解析解の SRI モデルと同程度の精度を持つことを確認した (Okamoto et al. 1996)。

視点を変えて気象についていうと、従来の沿道拡散モデルは与えられた局所的気象のもとで解を求めるのに対し、更に大きいメソスケール気象との関連で解けるのが望ましい。大気汚染ではないが、このようなモデル化が都市の熱環境において試みられており (近藤ら 2000) 今後の一つの方向を示唆するといえる。

4.2.4 ヨーロッパにおける粒子の沿道拡散モデル

(1) 解析解モデル (ヨーロッパ)

「GRAM」

ヨーロッパにおいて、NO_x や PM₁₀ の大気基準超過率と都市路構造の関係を解明する目的で行政的に用いるガウス型の解析解モデルとして GRAM モデル (Greenwich Review of Air Quality Method) が開発された (Fisher 2000)。

このモデルはコンピュータの非専門家がパソコン上で日常的に使うことを想定して使いやすさを追求しており、ヨーロッパ諸国において沿道住民の健康リスク評価に用いられている。特に、長期的な環境評価に用いるために、(安定で風が弱いときなど) 高濃度汚染の可能性の高い状況の再現にウエイトをおいている。年平均や大気基準

超過率を評価することにおいては、先行する精巧なモデル(例えばCLINE 4)と同程度の精度と評価している。GRAMは、簡便性を追求するとはいえ、CLINE 4と同様に自動車による熱フラックスと乱流を考慮に入れている。また、ストリートキャニオンも扱える。

(2) 数値解モデル(ヨーロッパ)

ドイツにおいて、高速道路の拡散数値解モデルとして乱流にLESモデルを用いたモデルが開発された。地上の連続線源から発生する汚染物質の風下での影響を調べるために、NO、NO₂、SO₂、O₃、粒子についてマイクロおよびメソスケールの拡散計算を行い、航空機も含めた大規模調査と比較している。ただし、反応や沈着の過程について文献からは詳細は明らかでない(Graf et al. 1990)。

4.2.5 今後の課題

以上述べた粒子の沿道拡散モデルの現状をふまえ、今後、数値解モデルを中心に精度の向上をはかるための課題を列記する。

(1) 自動車の排出量データの精度向上：(本稿ではふれなかったが)沿道拡散モデルの精度を向上するためには排出量の精度向上が必須であり、そのためには、排気口からの気体、粒子についての排出量データの精度向上とともに交通流モデルの精度向上を進める必要がある。

(2) パラメータの精度向上：数値解モデルの基礎になる物理的、化学的方程式を書き下せたとしても、そこに含まれるパラメータや境界条件、沈着速度などの知見が深まらなければモデル精度は向上しない。近年開発の進んだ高時間分解能測定装置や小型測定機による空間的高密度測定等を用いるなどしてパラメータの精度向上をはかる必要がある。

(3) 大気中での粒子の二次的生成と変成のモデルの確立：粒子の二次生成や変成については(ここでは取り上げなかったが)、物理・化学プロセスを明らかにし、パラメータも含めて方程式で正確に表現できるようにする必要がある。このためにも粒子中多成分の高時間分解能分析法の開発に期待するところが大きい。

(4) 乱流の取り扱いの高度化と効率化：数値解における

乱流の扱いは、混合距離モデルから $k - \epsilon$ モデル、LESへと進んできている。このような高度化を進める方向はさらに追求するとして、計算の効率化の面からは、同時に、粒子法や格子気体法など新しい手法による乱流計算の高精度化も検討する必要がある。

(5) より大局的な気象データとのリンク：従来の沿道拡散モデルでは与えられた沿道の局所的気象条件下で解を求めるが、局所的気象がより大局的な気象から生成されることを考慮したモデル化の検討を進めることも必要である。

当研究プロジェクトでは、以上のことを念頭に研究を進めている。

文献

- Benson P. E. (1992) A review of the development and application of the CALINE3 and CALINE4 models. Atmospheric Environment 26B, 379-390
- Benson P. E. (1979) CALINE3 - A versatile dispersion model for predicting air pollutant levels near highways and arterial streets. PB Report PB-80-220841, 184p
- Benson P. E. (1984) CALINE4 - A dispersion model for predicting air pollutant concentrations near roadways. PB Report PB-85-211498, 278p
- Carpenter W. A. and Clemena G. G. (1975) Analysis and comparative evaluation of AIRPOL-4. Virginia Highway and Transportation Research Council Report, VHTRC 75-55, Charlottesville, VA
- Chock D. P. (1978) A simple line-source model for dispersion near roadways. Atmospheric Environment 12, 823-829
- Danard M. B. (1972) Numerical modeling of carbon monoxide concentrations near highways. Journal of Applied Meteorology 11, 947-957
- Eskridge R. E. and Catalano J. A. (1987) ROADWAY: A numerical model for predicting air pollutants near highways. User's guide PB Report PB-87-171906, 149p
- Eskridge R. E. and Hunt J. C. R. (1979) Highway modeling. Part I: Prediction of velocity and turbulence fields in the wakes of vehicles. Journal of Applied Meteorology 18, 387-400
- Eskridge R. E. and Rao S. T. (1983) Measurement and prediction of traffic-induced turbulence fields near roadways. Journal of Applied Meteorology 22, 1431-1443
- Eskridge R. E. and Rao S. T. (1986) Turbulent diffusion behind vehicles: Experimentally determined turbulence mixing parameters. Atmospheric Environment 20, 851-860
- Eskridge R. E. and Thompson R. S. (1982) Experimental and theoretical study of the wake of a block-shaped vehicle in a shear-free boundary flow. Atmospheric Environment 16, 2821-2836
- Fisher B., E., A. (2000) Clarifying the relationship between urban road structure and air quality exceedences using a training mod-

- el. Air Pollution Modeling and Its Application XIII, edited by S. E. Gryning and E. Batchvarova, Kluwer Academic/Plenum Publishers 457-465
- Graf J., Paffrath D., Roesler F. and Schumann U. (1990) Experimental and numerical study of the dispersion and transport of automobile exhaust gases from highways. *Sciences of the Total Environment* 93, 323-330
- Hinds W. (1982): *Aerosol Technology*, John Wiley (日本語訳 早川一也監訳 (1985) エアロゾルテクノロジー 井上書店)
- Huang H., Akutsu Y., Arai M. and Tamura M. (2000) A two-dimensional air quality model in an urban street canyon: evaluation and sensitivity analysis. *Atmospheric Environment* 34, 689-698
- Johnson W. B., Ludwig F. L., Dabberdt W. F. and Allen R. J. (1973) An urban diffusion simulation model for carbon monoxide. *Journal of the Air Pollution Control Association* 23(6), 490-498
- Kirsh J. W. and Mason B. F. (1975) Mathematical models for air pollution studies involving the Oregon I205 highway project. *Systems, Science and Software Report*, SSS-R-76-2744, La Jolla, CA
- Okamoto S, Lin F., Yamada H. and Shiozawa K. (1996) Evaluation of a two-dimensional numerical model for air quality simulation in a street canyon. *Atmospheric Environment* 30, 3909-3915
- Petersen W. B. (1980) User's guide for HIWAY-2 A highway air pollution model. PB Report PB-80-227556, 84p
- Pitter R. L. (1976) User's manual ROADS, PSMOG, VIS1. Oregon Graduate Center, Beaverton, Oregon
- Ragland K. W. and Pierce J. J. (1975) Boundary layer model for air pollutant concentrations due to highway traffic. *Journal of the Air Pollution Control Association* 25, 48-51
- Rao S. T., Sistla G., Eskridge R. E. and Petersen W. B. (1986) Turbulent diffusion behind vehicles: Evaluation of roadway models. *Atmospheric Environment* 20(6), 1195-1103
- Rao S. T., Sistla G., Keeman M. T. and Wilson J. S. (1980) An evaluation of some commonly used highway dispersion models. *Journal of the Air Pollution Control Association* 30(3), 239-246
- Sistla G., Samson P., Keenan M. and Rao S. T. (1979) A study of pollutant dispersion near highways. *Atmospheric Environment* 13, 669-685
- Ward C. E., Ranzieri A. J. and Sirely E. C. (1977) CALINE 2 - An improved microscale model for the dispersion of air pollutants from a line source. *Federal Highway Administration Report*, FHWA-RD-77-74, Washington, D. C.
- Zimmerman J. R. and Thompson R. S. (1975) User's guide for HIWAY, a highway air pollution model. EPA-650/4-74-008
- 池田有光 (1982) 平坦な地表面近くの拡散の数式モデル、*大気汚染学会誌* 17(2), 155-160
- 池田有光、岩井英人、長藤雅則、平岡正勝 (1983) 道路近傍の大気汚染濃度の予測手法に関する研究 (I) 一道路に直交風時のシミュレーション、*大気汚染学会誌* 18(4), 329-338
- 池田有光、三島智成、長藤雅則、平岡正勝 (1984) 道路近傍の大気汚染濃度の予測手法に関する研究 (II) 一道路に全風向時のシミュレーション、*大気汚染学会誌* 19(1), 20-27
- 大喜多 敏一 (1980) エロゾルの生成から消滅に至る機構、*産業公害* 16(10,27-39)
- 岡本真一 (2001) *大気環境予測講義、ぎょうせい*
- 環境庁大気保全局大気規制課編 (1982) *窒素酸化物総量規制マニュアル、公害研究対策センター*
- 環境庁大気保全局大気規制課監修 (1997) *浮遊粒子状物質汚染予測マニュアル、東洋館出版社*
- 現代企画社 (2000) *平成 11 年度自動車排出ガス対策検討調査 (東京都) 報告書*
- 近藤次郎 (1973) 自動車排ガスによる大気汚染の研究、*日本機械学会誌*、76、619-627
- 近藤裕明、村上周三ら (2000) ヒートアイランド現象の解析とその対策技術の総合的評価のための Software Platform の開発、*日本建築学会大会学術講演梗概集* 1101-1102
- 溝口次夫、池田有光、若園 淳 (1985) 地上付近での浮遊粉じんの拡散、*国立環境研究所報告*、77号、165-146
- 森口祐一、松岡 譲、原沢秀夫 (1995) 風速場・濃度場の差分法による市街地沿道大気拡散モデル (I) - 数値解法と 2 次元道路直交風モデル、*大気汚染学会誌* 30(1)、1-19
- 森口祐一、上原 清 (1995) 風速場・濃度場の差分法による市街地沿道大気拡散モデル (II) - 3 次元問題への適用および風洞模型実験結果との比較によるモデルの検証、*大気汚染学会誌* 30(1)、20-37
- 林 復基、岡本真一、塩沢清茂 (1991) 自動車排出ガスによる大気汚染予測モデルについて、*大気汚染学会誌* 26(5), 292-319
- 林 復基、岡本真一、山田浩明、小林恵三、北林興二、塩沢清茂 (1991) 都市内道路でのエアートレーサー拡散実験と SRI ストリートキャニオンモデルの検証、*大気汚染学会誌* 26(4), 235-245
- 林 復基、山田浩明、塩沢清茂、岡本真一 (1993) 都市部道路における自動車排出ガスの拡散シミュレーションモデルの開発、*第 34 回大気汚染学会講演要旨集*、384
- 吉川康雄、上原 清、林 誠司 (2001) 交差点周辺のながれと拡散に関する実験的研究 その 4 数値計算による周辺市街地の濃度分布、*第 42 回大気環境学会年会講演要旨集*、406
- 吉川康雄、国見 均、石澤静雄 (1997) 都市内幹線道路における大気質予測シミュレーションシステムの構築 (第 1 報、大気拡散モデルの開発)、*日本機械学会論文集 (B 編)* 63 巻 611 号 2507-2514
- 吉川康雄、国見 均、貴志泰久、香月伸一、石澤静雄 (1996) 都市内幹線道路沿線における大気質予測シミュレーションシステムの構築 交通流モデルとの結合、*日本機械学会全国大会講演論文集* 第 3 巻 699-700

4.3 沿道のPM2.5・DEPに関する風洞による研究

上原 清

4.3.1 国内外の研究の現状

風洞実験は、フィールド観測のように天候・その他の影響を受けずに種々の実験条件を整え、一つ一つの要因の影響を詳しく調べることができる。丹念に実験を積み重ねることによって、現象をさまざまな角度から観察し、より深く理解することができる。もちろんそのためには相似性に対する十分な配慮や実験の再現性、測定精度の確保が前提となるが、過去には風洞実験の精度を確認するフィールド観測も多く行われ、実用的な予測手法としての信頼性は高い。そうした理由から、今までに大気汚染に関する数多くの風洞実験が行われてきた。

沿道大気汚染に関する研究としては Kennedy and Kent (1976) の実市街地の縮尺模型を用いた沿道 CO 濃度を予測する実験が最も古い。Kennedy は、道路にはりめぐらせたニクロム線を発熱させ各部の温度上昇から沿道濃度を推定している。ニクロム線にごく近い部分の高熱による浮力影響が懸念されるが、それでも、実測した CO の分布と風洞実験の結果を比べ、ほぼ満足すべき結果を得ている。彼は風洞による沿道大気汚染濃度予測が有効であることをはじめて実証した。

Kennedy が実市街地の縮尺模型を用いたのに対して、Wedding and Cermak (1977) は市街地を単純形状に理想化したブロック模型（以下、街区模型）を用いて実験を行った。Wedding らは道路の上り下り2車線にそれぞれ線源（道路方向にガスが一樣に吐出されるように工夫したトレーサーガス噴出し用のパイプ）をおき、道路を取り囲む建物壁面の濃度分布と建物屋根面の形状との関連を調べた。

Hoydysh and Dabberdt (1988) も街区模型を用いた実験を行っている。Hoydysh らはストリートキャニオン内部に放出した Soap bubble の軌跡を画像解析し、ストリートキャニオン内部にキャビティ渦ができることを確認した。さらに両側の建物の高さを非対称に変化させ、そのときの建物壁面の濃度分布を測定した。その後、Dabberdt and Hoydysh (1991) は街区の寸法比および風向の街区壁面の濃度に対する影響を調べているが、いずれも建物壁面の濃度分布を測定しただけでストリート

キャニオン内部の濃度は測っていない。次に、Hoydysh and Dabberdt (1994) は交差点の濃度分布を調べている。交差点の濃度を測定するという着眼は今までになかったものであるが、交差点周辺の汚染ガス排出を再現するために、線源ではなく点源を用いている。交差点近くの濃度分布は、交差点の風上側に伸びる道路からの寄与をどう再現するかによって結果が大きく変わる可能性があり、実験条件として適正とはいえない。

森口と上原(1993、1995A、1995B)らは数値シミュレーションとの比較のために広範な条件の道路構造における沿道濃度分布を風洞において測定し、特にストリートキャニオン内部に高架道路が設置される影響等について興味深い結果を得ている。

孟と老川(1997)は特殊な加工を施した熱線風速計(SFP)を用いて、千鳥に配置した街区模型模型間の流れを測定し、街区模型間にキャビティ渦ができることを風速測定によって実証した。模型配置が通常の街区模型とは異なり、模型が互い違いになっているのでストリートキャニオンがスパン方向に分断され不連続な構造になっている。それにもかかわらず、ストリートキャニオンにはキャビティ渦が生じている。不連続なストリートキャニオンでも軸方向にキャビティ渦が連なり、その2次元の連続性の強いことを示唆する興味深い結果である。

Rafailidis (1997) はレーザー流速計を用いてストリートキャニオン上空のプロファイルを測定したが、内部の測定は行っていない。

Klein and Plate (1999) はストリートキャニオン内部の濃度に対する上流側の街区の存在影響を調べた。Klein et al. (2001) はさらに、ストリートキャニオン内部の流れをレーザー流速計を用いて測定し、乱れのプロファイルをフィールド観測値と比較している。また、上り下りの車線上のチェーンにつけた小板を動かして自動車の走行風を模擬し、濃度分布に対する影響を調べている。Klein らはこの実験で、対面通行の自動車通行を模擬した場合の濃度分布が模擬しない場合の分布と大きく変わらない結果を示した。

以上を概観すると、ストリートキャニオンの流れと拡散に関する断片的な研究は多いが、市街地低層部の流れ場全体を見据え、その全貌を明らかにしようとした系統

的研究はない。国立環境研究所では 1989 年より沿道の
 大気汚染濃度分布と流れ場の関連について一連の研究を
 行い、ストリートキャニオン流れと沿道大気汚染をより
 深く理解するための資料を蓄積してきた。以下にその概
 略を述べる。

4.3.2 環境研究所における研究成果

(1) 実験装置および方法

a. 風洞

国立環境研究所の大気拡散風洞 (Ogawa et al., 1981)
 を用いた (図 4.3.1)。測定部の寸法は縦 2m、横 3m、高
 さ 2m、長さ 24 m であり、測定部に大気安定度を再現す
 るために気流温度 (10 ~ 90 °C) と床面 (0 ~ 110 °C) の
 温度を調節できる。

b. 相似則

流れ場に関する相似条件 (Snyder, 1972) を満たすた
 めに、模型の風上側 12m にわたって縦横 10cm 高さ 5cm
 のブロック (粗度) を並べた (図 4.3.2)。これによって大
 都市における風速の鉛直分布 (崔、神田 1990) に近い接
 近流 (U (平均風速) $\propto Z$ (高さ)^{1/3}) を再現し、流れ場
 に関する相似条件を満たした。風洞の基準風速は 1.5ms^{-1}
 とした。大気安定度の相似条件としてバルクリチャード
 ソン数 (Rb) の一致を考慮した。実験条件のうち最も強
 い安定成層 (逆転層, $Rb=0.78$) は冬期の夜間に、最も強
 い不安定成層 ($Rb=-0.21$) は夏期日中の気象条件に相当
 するものとする (Uehara, 2000)。

c. 街区模型

道路幅・建物の高さ・大気安定度などの影響を観察し
 やすくするために、街並みを単純な形状のブロック (街
 区模型) で置き換えた。交差点周辺市街地の濃度分布を
 調べる実験では、縦横 10cm、高さ 5cm の模型を前後
 10cm の間隔で均等に配置して街区模型とした。スト
 リートキャニオン内部の流れと拡散を調べる実験では、
 一辺 10cm の立方体を一つの街区に見立て、風洞の主流
 と直交する道路幅を 10cm、主流と平行な道路幅を 5cm
 とする模型配列を基本形状とした (図 4.3.3)。街区模型
 の先頭から 5 列目の道路を測定対象とし、道路幅を
 L (道路幅) / H_S (基準街区高さ) = $1/2 \sim 6$ に、道路風上 (H_U)
 または風下 (H_D) 建物高さを (H_U or H_D) / $H_S = 0 \sim 2$ にそれ
 ぞれ変化させた。

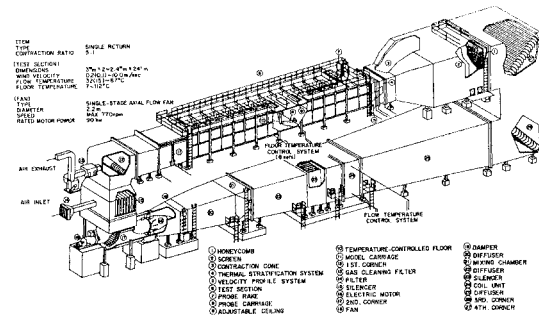


図 4.3.1 国立環境研究所大気拡散 (温度成層) 風洞

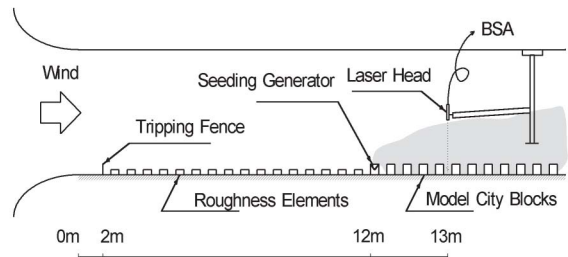


図 4.3.2 粗度と模型の設置状況

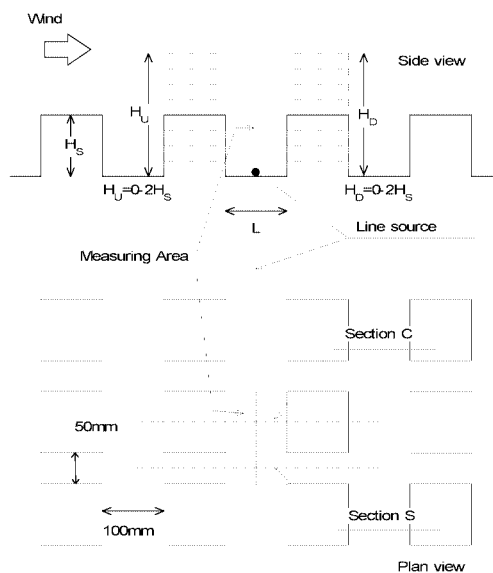


図 4.3.3 街区模型の配置方法

d. 流れ場の測定方法 (上原ほか 1997A)

トラバース装置に取り付けたレーザー流速計によって
 ストリートキャニオン内部の流れを成分 (u : 流れ方向、
 v : スパン方向、 w : 鉛直方向) ごとに測定した。

e. 濃度分布の測定方法 (上原ほか 1997B)

自動車排ガスに模するため、模型床面に置いたパイプ
 (線源、直径 5mm) からトレーサーガス (C_2H_6 : 20% + N_2 :
 80%) を排出した。街区模型をもちいた実験においては、
 軸方向に一様にガスが出るよう線源を調整した。ケース
 スタディにおいてはトレーサーガスの排出条件をできる

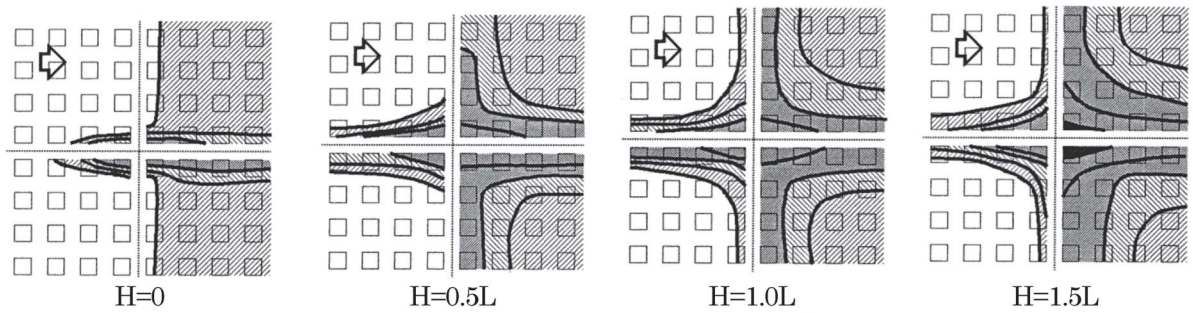


図 4.3.4 a) 交差点周辺街区の高さによる濃度分布の変化 (風向: O) H: 街区高さ、L: 道路幅

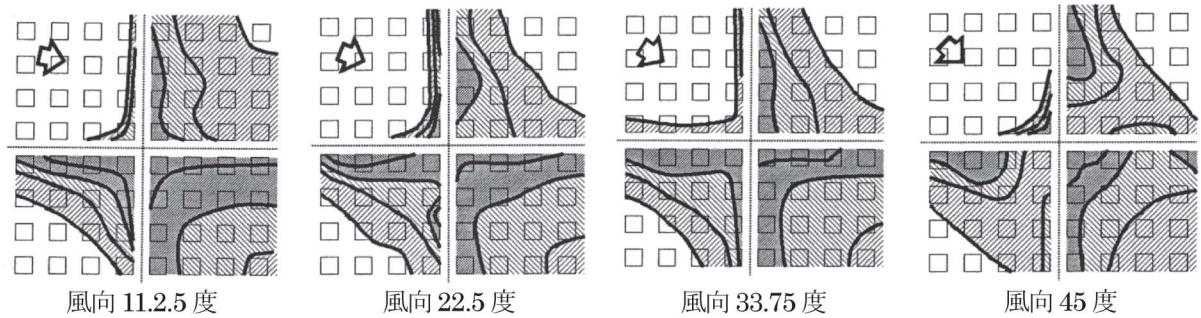


図 4.3.4 b) 風向による濃度分布の変化 H: 街区高さ = L: 道路幅の場合

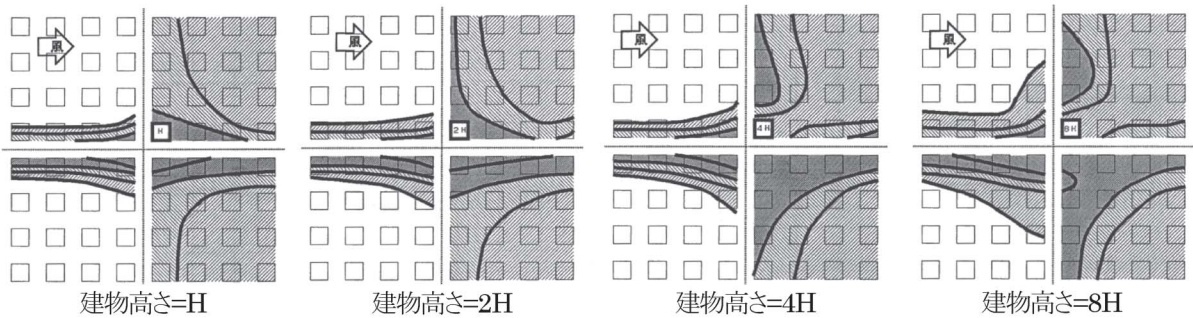


図 4.3.4 c) 交差点の一角の建物高さが変化したときの濃度分布 H: 周辺街区高さ

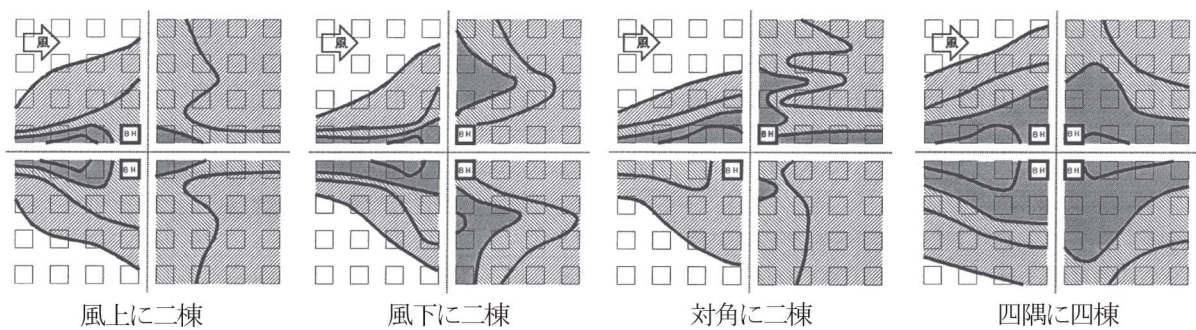


図 4.3.4 d) 交差点に複数の大きな建物がある場合の濃度分布

だけ実物に近づけるために、交通流シミュレーションによって交差点周辺の道路各車線からの汚染排出量 (NO_x 換算) の分布を求め、各線源からのトレーサガス排出分布をそれにあわせた。トラバース装置に取り付けた直径 3mm の細管からサンプリングガスを採取し 9 チャンネル炭化水素分析計によって濃度を測定した。

なお、PM_{2.5}・DEP は粒子状物質なので従来風洞実験

で調べてきたガス状物質と同じに取り扱えるかが懸念されるが、その心配はない。なぜなら、これらの微小粒子状物質の大気中での自由落下速度はおおむね毎秒 1mm 以下であり、その挙動は風に乗って流されるほかの大気汚染ガスと同じと考えられるからである。

(2) 街区模型を用いた風洞実験の結果 (上原ほか 1993、上原 1996)

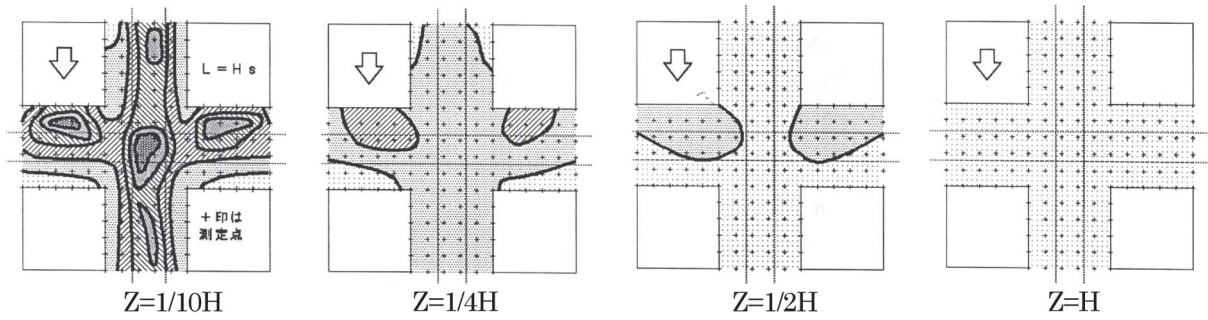


図 4.3.5 a) 交差点内部濃度分布の測定高さによる変化 Z: 測定高さ H: 街区高さ

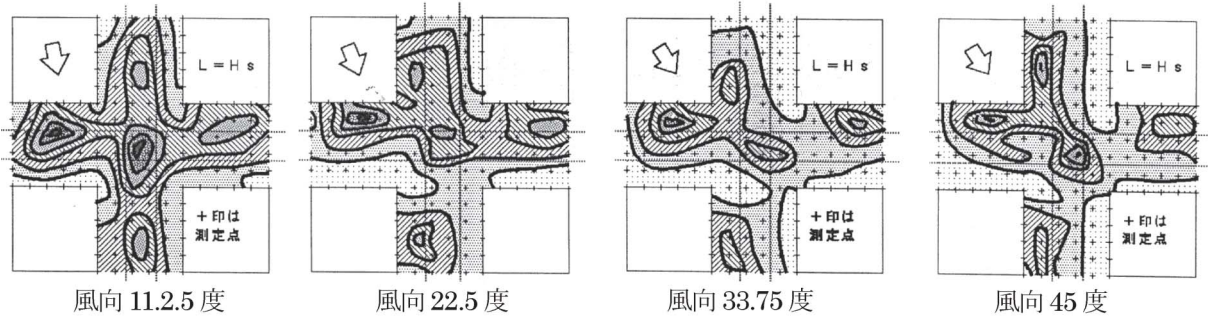


図 4.3.5 b) 交差点内部濃度分布の風向による変化

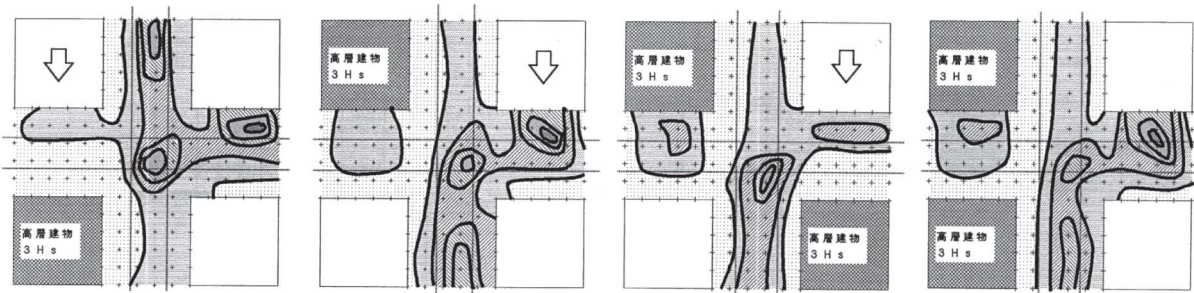


図 4.3.5 c) 交差点内部濃度分布に対する周辺建物の影響

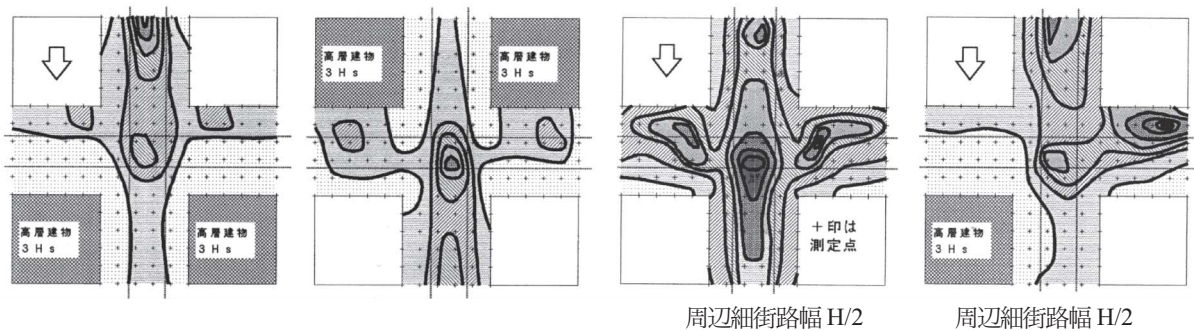


図 4.3.5 c) 交差点内部濃度分布に対する周辺建物の影響

a. 交差点周辺市街地の濃度分布

周辺市街地建物の高さによる交差点周辺濃度の変化を図 4.3.4 a) に、風向 0 度～45 度に対する変化を図 4.3.4 b) に、一様な高さの街区からなる交差点の一角が、周辺街区高さ 2、4、8 倍と高くなったときの変化を図 4.3.4 c) に、交差点に複数の高層建物がある場合の濃度を図 4.3.4 d) に示す。それぞれの図については、多く説明を

要しないが、①図 4.3.4 a) において道路周辺の建物高さが道路幅と同じかそれ以上になったとき沿道の汚染が逆流して風上側でも濃度が検出されること、②高濃度が生じるのは道路から 1 ブロック以内の範囲に限られること、③交差点周辺の建物が高くなるとその建物の近くでは濃度が低下するが、遠くでは逆に濃度が高くなることなどが注目すべき点である。大きな建物の建設によってその

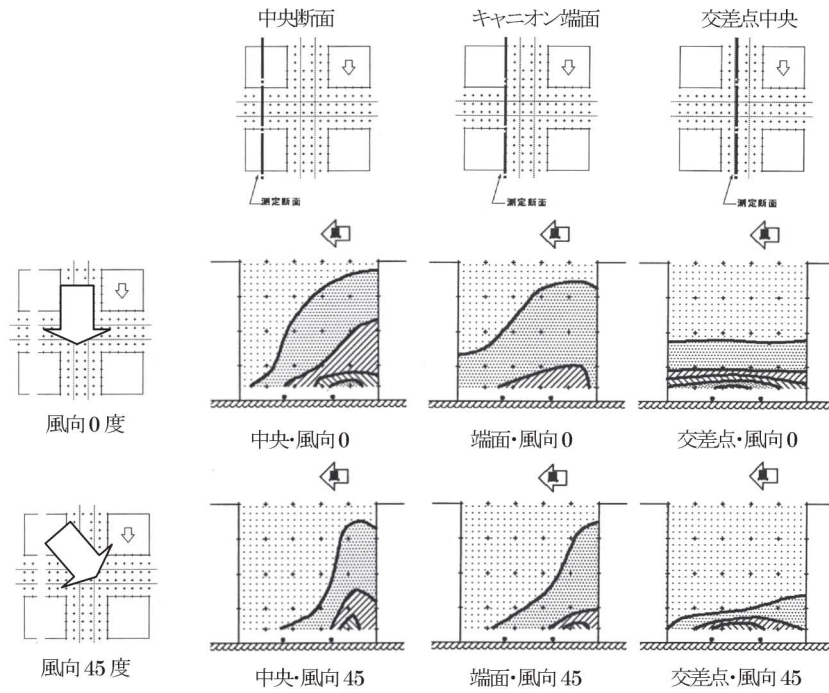


図 4.3.6 道路鉛直断面の濃度分布

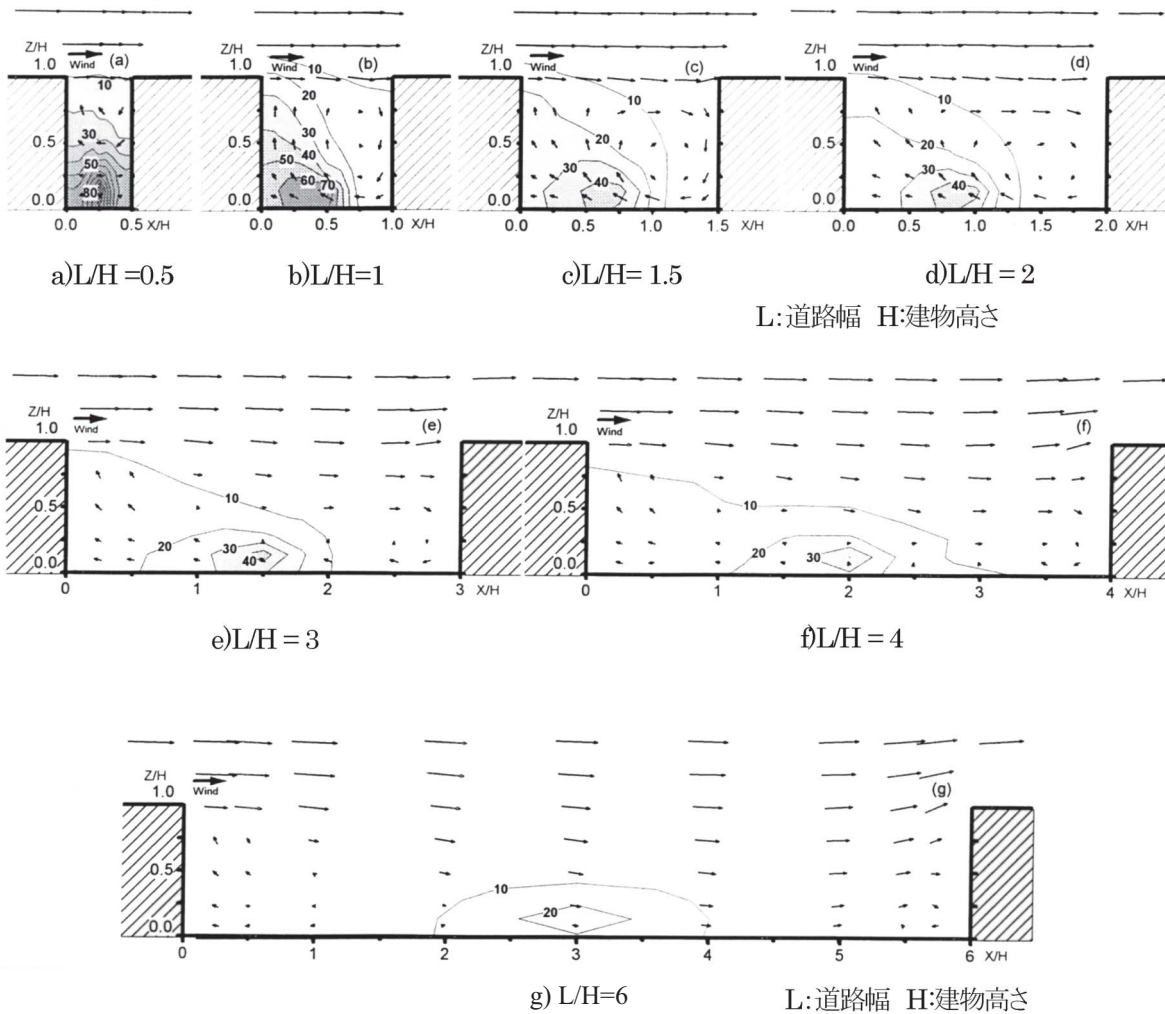


図 4.3.7 道路幅によるストリートキャニオン内部の流れと濃度分布の変化

近傍には強い風が吹くようになるが、市街地全体としては風の抵抗を増し風速を弱めるのが③の原因である。

b. 交差点内部の濃度分布

測定高さによる交差点内部濃度の変化を図4.3.5 a)に、風向による変化を図4.3.5 b)に、交差点周辺の建物の影響による変化を図4.3.5 c、d)にしめす。ただし図4.3.5 d)の右側2つの図は、中央で交差する幹線道路を除いた周辺市街地の道路幅が1/2になったときの濃度である。

c. 交差点周辺の道路鉛直断面濃度分布

街区中央の鉛直断面では、ストリートキャニオン内部にできるキャビティ渦によって、道路から発生した汚染が風上街区の背面に吹き寄せられている(図4.3.6)。キャビティ渦の存在影響は交差点中央部まではおよんでいないが、街区端でもキャビティ渦の影響が強く、また、風向が45度に傾いてもキャビティ渦が存在することは注目に値する。Dabberdt and Hoydysh (1991)は風向60度近くまでキャビティ渦はなくなると報告している。

d. ストリートキャニオン内部の流れと濃度分布

・道路幅による流れと濃度分布の変化(上原ほか1998、上原ほか1999)

道路幅と街区高さがおなじ時($L/H=1$)、ストリートキャニオンの内部には安定した渦(キャビティ渦)ができる。道路中央から排出されたトレーサーガスはキャビティ渦の逆流によって風上に吹き寄せられ、風上側の道路の濃度が高くなる(図4.3.7 b))。道路が狭い時キャビティ渦は前後の建物に制限されて十分に発達できないので($L/H=0.5$ 、図4.3.7 a))、ストリートキャニオン内部の風速は低く、濃度は高くなる。キャビティ渦は道路幅が $L/H=1.0\sim 2.0$ の時に最も安定し、強くなる(図4.3.7 b、c、d))。

道路幅が建物高さの3倍くらい($L/H\sim 3$)のときには、キャビティ渦は前後に動きやすく不安定になる。しかし、ストリートキャニオンの内部にいくつもの渦ができるほどのゆとりはない。キャビティ渦は風下の建物前面で不安定に滞留し(図4.3.7 e))、それが壊れると風上建物背後から新しいキャビティ渦が供給される。こうした過程が不規則に繰り返される。

さらに道路幅が大きくなる($L/H>4$)と渦は風上建物の背後から次々と放出され、風下建物前面にぶつかる

(図4.3.7 f))。一部の渦は風下建物前面に滞留するがすぐに壊れる。

・道路両側の建物高さによる濃度の変化(上原ほか、2001)

道路風下側の建物(H_D)が周辺街区(H_S)よりも高い時、ストリートキャニオンのキャビティ渦は強くなる(図4.3.8 a、b))。これは建物前面壁に沿う下降流によって、

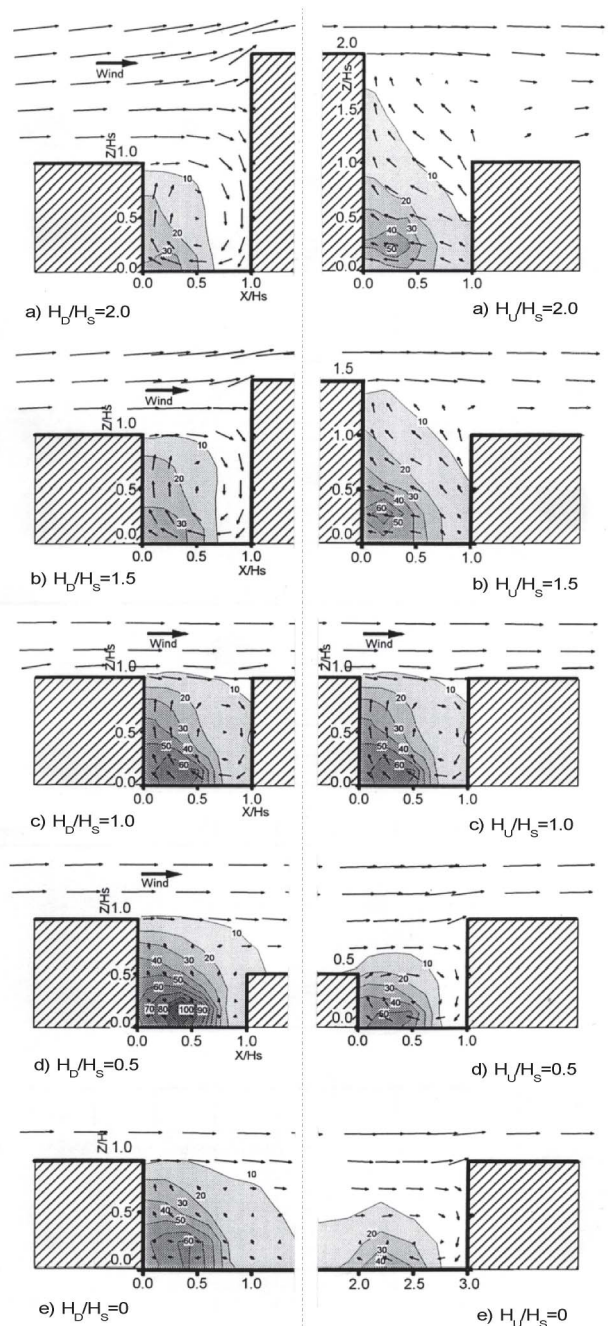


図 4.3.8

図 4.3.9

道路前後の建物高さによるストリートキャニオン内部の流れと濃度分布の変化

紙面を節約するために左図の風下建物の半分を、右図の風上建物野半分をそれぞれ切り取り、二つを前後につなぎ合わせるようにして表示している

キャビティ渦が加速されるからである。強いキャビティ渦が生じているときには渦の軸方向の連続性が強まるためストリートキャニオン内の流れの二次元性が強くなる。このためにストリートキャニオンの切れ目で風が前後に通り抜けやすく見える道路断面にもキャビティ渦が生じやすくキャニオン断面との濃度差は小さくなる。

風下建物が周辺街区よりも低い時にはキャビティ渦はできず、ストリートキャニオン内部の風速は低く停滞気味となり、濃度は高い(図4.3.8 d、e)。

道路の風上側の建物 (H_U) が周辺の建物や風下側の建物より高い時、ストリートキャニオンにはキャビティ渦はできない(図4.3.9 a、b)。流れは全体として単独建物周辺の流れに似て、その背後では建物に向かう流れが生じる。地上の大気汚染物質は風上建物壁面に沿って逆流上昇し、建物上端近くから風下に放出される。その様子は煙突効果と似ている。

ストリートキャニオン低部ではキャビティ渦の有無にかかわらず逆流が生じており、道路風上側の濃度は風下より常に高い。

・大気安定度による流れと濃度分布の変化(上原ほか1997A、1997B)

大気が不安定の時には浮力による上下方向の気塊の混合が激しい。このためにキャニオン上方の速い流れからストリートキャニオン内部への運動量の伝達が盛んになり、キャビティ渦が加速される。結果、ストリートキャニオン内部の汚染は強く攪拌され、濃度は中立のときよりも低下する(図4.3.10 d)。このことは、同時にストリートキャニオン内部の上下温度差を小さくして不安定度を弱める。不安定成層は上下温度差がある程度以上大きくなると、浮力による攪拌が強まるためにそれ以上強

くはなりにくい。逆に、安定が強い時にはキャニオン上部からの運動量伝達が小さくキャビティ渦の勢いが弱まるので、さらに強い上下温度差の形成が促される。安定成層条件がある程度以上に強くなると、上下の温度差がストリートキャニオン内部の風速を弱め、それがさらに強い温度成層を作り出すという正方向の帰還がかかる。結果、地上付近の風速は非常に弱く濃度は高くなる。このように、地上付近の風速がほとんど無風にまで落ち込んでしまうような強い安定成層条件下では他の温度条件のときと比べて濃度分布パターンが上下に圧縮されたような形になる(図4.3.10 a)。冬期夜間の NO_2 濃度が高くなるのはこうした気象条件によるものと考えられる。

(3) 実市街地の縮尺模型を用いた実験の結果(上原ほか2000)

実市街地では街区模型によって再現するような理想的形状のストリートキャニオンは少ない。むしろ、道路の片側だけに建物がある；道路の両側の建物高さが極端に異なる；道路や空き地によって建物列が分断されている、等の不定形な道路のほうが多い。ここでは実在する市街地の縮尺模型を用いた事例研究を行い、1) 現実の市街地における沿道大気汚染の現状を把握し、2) 理想化した模型を用いた実験との違いを調べた。

測定対象として最近数年間の自動車排ガス測定局測定結果で NO_2 またはSPM濃度が高く、道路構造が特異でない交差点を選定し縮尺1/300の模型を製作した。交差点では北西(NW)から南東(SE)へ抜ける国道(幅：約35m、交差点部で中央車線が掘割からトンネルになっている)と北東(NE)から南西(SW)にとおる国道(幅：約30m、平面と高架道路の2重構造になっている)が交

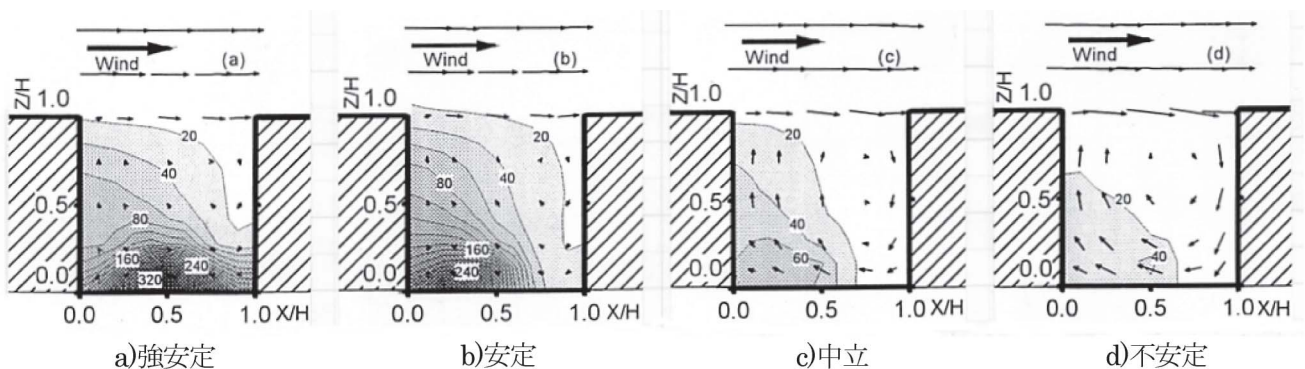


図4.3.10 大気安定度によるストリートキャニオン内部の流れと濃度分布の変化

わっている。沿道周辺市街地における5～6階建て以上の中層建物は幹線沿道に集中しており、後背側の建物はほとんど2階建て住宅である。なお、本実験は現在も継続中であり、ここでは整理を終えたところまでを述べている。

a. 交差点周辺市街地の濃度分布

交差点を中心にして、半径150mの範囲を約2.5mのメッシュ間隔で面的に測定した。測定高さは実寸法で地上1.5m、6.5m、10.2m、20mに相当する。測定点数は一風向につき約600点である。測定高10.2mは交差点近くにある既設自動車排ガス測定局のサンプリング高さで

あり、測定高20mは交差点を南西から北東にとる高架道路よりも若干高い位置にある。実験風向は現地において出現頻度の高いN、SE、S、SSW、NNWの5風向とし、自動車排ガス測定局を含めた数箇所については観測値との年平均値の比較を行うために16方位の実験を行っている。実験は現況に加えて、高架道路からのトレーサーガス排出がない場合、また、風向SEについては高架道路そのものがない場合の実験も行っている。

風向SEの時、風は交差点で交わる幹線道路の一方(NW=SE、幅35m)に平行で、もう一方の幹線道路(NE=SW、幅30m、地上+高架道路の二重構造)と直交

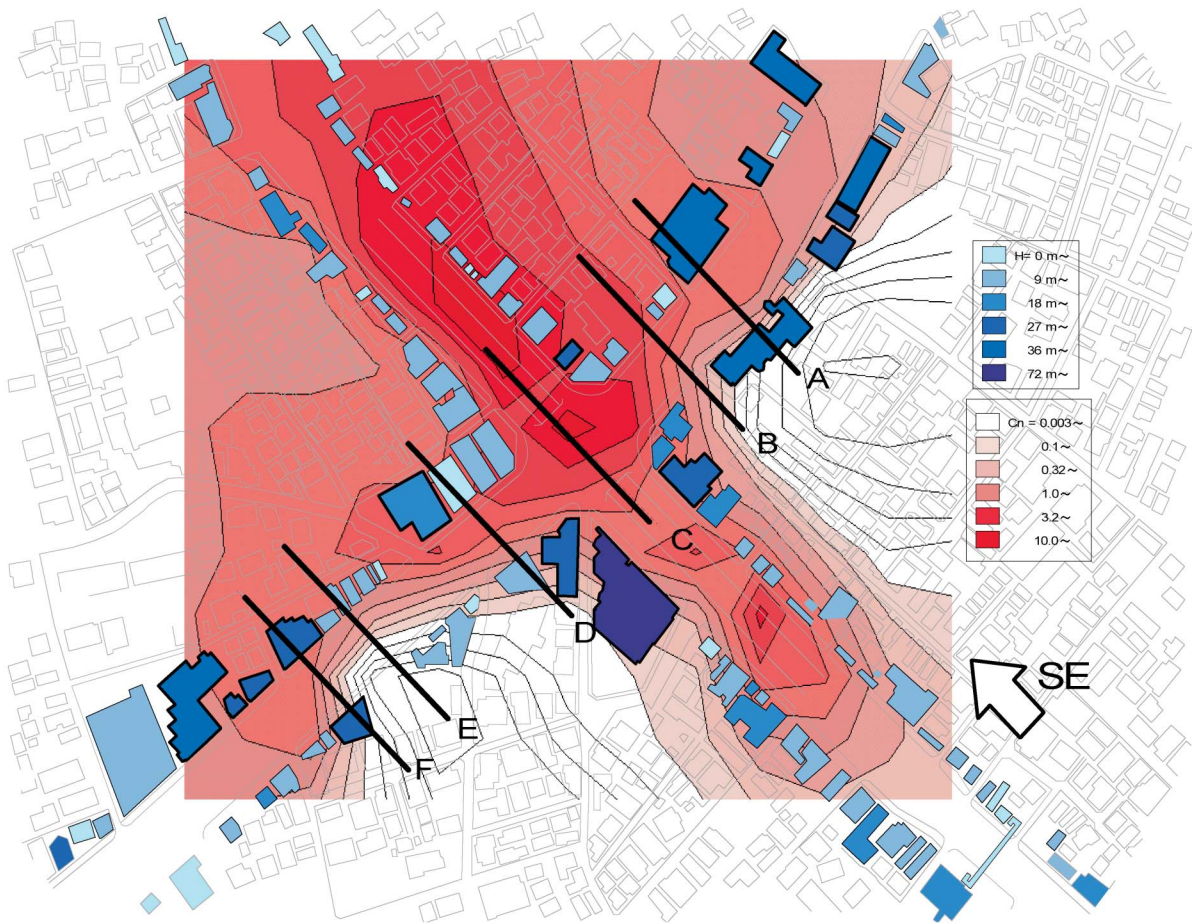


図 4.3.11 実在交差点周辺の濃度分布 (測定高さ 1.5m 実物換算)

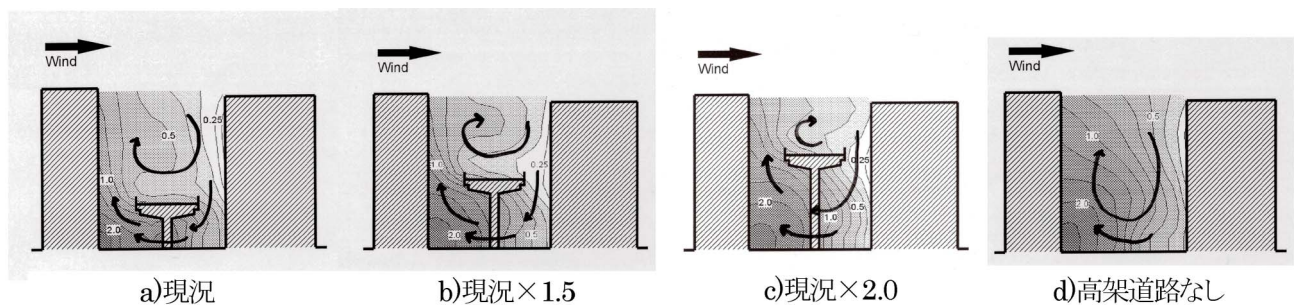
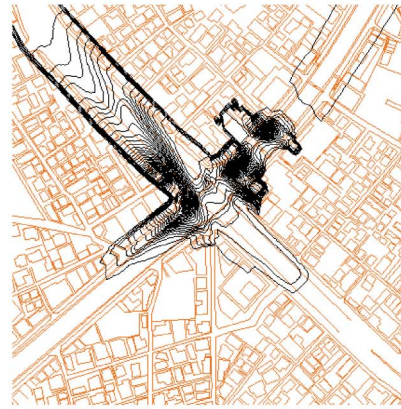


図 4.3.12 高架道路の高さおよびその有無によるストリートキャニオン断面Aにおける濃度の変化



(a) 風洞実験の結果



(b) 数値計算の結果
(日産自動車動力環境研究所による)

図 4.3.13 風洞実験と数値計算による濃度分布予測結果の比較
(風向 SE、右下から左上の方向)

する。現地における自動車排ガス測定局の観測値はこの風向のときに最も高い。地上の高濃度は交差点近傍で掘割となっている NW=SE 道路の中央部分に現れ、次いで、風と直交する NE=SW 道路の風下に広がる (図 4.3.11)。

本事例の場合、高さ 30m 以上の比較的大きな建物は NE=SW 道路沿道に多く、これらの建物近傍で局所的な濃度の偏りが生じている。

交差点南東側の高さ 70m の建物の影響はさらに大きい。風向 SE の時、この建物側面から交差点にかけた道路上ではビル風による風速増加が見られる。建物前面道路における濃度上昇が小さいのはこのためと考える。逆に、交差点 NW 側の道路に対しては、70m 建物と交差点周囲の建物および高架道路などが全体として通風を阻害する。このために高濃度が生じるものとする。

交差点 SW 側の自動車排ガス測定局を含む一角の濃度が比較的高いのも、70m 建物あるいはその西側に隣接する 30m 建物の風下の弱風域にあるためであり、風向 SE のとき既設自動車排ガス測定局で高濃度が生じている原因の一つと考えられる。

b. 二重構造 (平面+高架道路) の道路断面における濃度分布

高架道路がストリートキャニオン内部の濃度分布に及ぼす影響を調べるために、高架道路の高さを a) 現況、b) 現況の 1.5 倍、c) 現況の 2 倍、d) 高架道路なし、の 4 段階に変えて道路断面内部の濃度分布と流れ場を詳しく調べる。ここでは A 断面 (道路の両側に比較的大きな建

物 ($H > 40m$) がある場合) の濃度分布測定結果だけを示す。

ストリートキャニオン断面の流れは高架道によって上下に分断されている。そのため、高架道の上と下では濃度分布パターンが異なっている (図 4.3.12 a ~ c)。高架道の下では緩やかな逆流によって汚染が風上に運ばれ、その一部が建物壁面に沿って上昇する。高架道の上にはキャビティ渦ができており、下から上昇してきたトレーサーガスを巻き込み上方に放散する。どの条件の時にも、風下建物の前面壁に低濃度の層ができています。ここから、ストリートキャニオン内部へ新鮮空気が流入している。以上のことから、図 4.3.12 の矢印で示すような流れパターンが生じていると推定できる。

高架道の存在によって地上の風速が低下することが推察されるが、現況 (図 4.3.12 a) と高架道路なし (図 4.3.12 d) の分布を比べると、地上付近の濃度分布には大きな差がない。高架道路の高さが変化した場合 (図 4.3.12 b, c) も同様であり、予想に違う。これについては次の二つの理由が考えられる。

第一には、ストリートキャニオン内への新鮮空気の流入は風下建物の壁面近くの比較的薄い層によって行われるので、高架道の存在影響を強く受けない。このために、ストリートキャニオン全体の換気量が高架道の存在によって大きく低下しない。

第二には、建物側面下部からの汚染物質の流出が高架道路の存在によって増加し、このために地上付近の風速低下による濃度上昇が相殺されるためである。

c. 風洞実験による数値シミュレーション結果の検証

このケーススタディは、(財)石油産業活性化センター内のJCAP(大気改善のための自動車・燃料の技術開発)大気モデル研究グループとの共同で行ったものであり、その一環として数値シミュレーションによる沿道大気汚染予測手法の検討が行われた。乱流モデルとしてはLES(Large eddy simulation)を用い、日産自動車総合研究所動力研究所で実施された。風洞実験の結果と数値シミュレーションの結果を比較すると、濃度分布の大局はおおむね一致しているといえるが、ピンポイントでは濃度予測値に風洞実験との大きな差が随所に見られる。

4.3.3 今後の予定

前節においては、高架道路に覆蓋された道路の濃度分布を測定したが、従来から調べてきたストリートキャニオンの流れよりもさらに複雑な流れ場によって沿道大気汚染物質の拡散が行われていることがわかった。今後は高架道路に覆蓋された沿道大気汚染についてさらに詳しく調べていく予定である。

文献

Kennedy I.M. and Kent J.H. , 1976: Wind tunnel modeling of CO dispersal in city streets. *Atmospheric Environment* 11,541-547
Wedding J.B., Lonbardi D.J, and Cermak J.E. , 1977: A wind tunnel study of gaseous pollutants in city street canyons. *J.Air Pollut. Control Ass.* 27(6), 557-566
Hoydysh W.G., and Dabberdt W.F. , 1988:Kinematics and dispersion characteristics of flows in asymmetric street canyons. *Atmospheric Environment* 22,2677-2689
Dabberdt W.F., and Hoydysh W.G. , 1991: Street canyon dispersion: sensitivity to block shape and entrainment. *Atmospheric Environment* 2.5A,1143-1153
Hoydysh W.G., and Dabberdt W.F. , 1994:Concentration fields at urban intersections: fluid modeling studies. *Atmospheric Environment* 28,1849-1860
Moriguchi Y., and Uehara K., 1993: Numerical and experimental simulation of vehicle exhaust gas dispersion for complex urban roadways and their surroundings, *Journal of Wind Engineering and Industrial Aerodynamics*, 46 & 47 (1993) 689-695
森口祐一、上原清、1995:風速場と濃度場の差分解析による市街地沿道大気拡散モデル(II)、大気環境学会誌 第30巻第1号、20-37
森口祐一、上原清、1995:道路と沿道構造が自動車排ガス拡散に与える影響の評価 ―数値計算および風洞実験による道路直交風時の検討―、大気環境学会誌 第30巻第4号、284-296
孟、老川、1997:建物群内における流れと拡散に関する実験

的研究 その1流れ場の測定、大気環境学会、32(2)、136-147
Rafailidis S., 1997: Influence of building areal density and roof shape on the wind characteristics above a town, *Boundary-Layer Meteorology* 85, 2.55-271
P. K. Klein, E. J. Plate, 1999: Wind tunnel study of concentration fields in street canyons, *Atmospheric Environment* 33, 3973-3979
P. K. Klein, E. Fedorovich, M.W. Rotach, 2001: A wind tunnel study of organized and turbulent air motions in urban street canyons, *Journal of Wind Engineering and Industrial Aerodynamics*, 89, 849-861
Y. Ogawa, P. G. Dioso, K. Uehara and H. Ueda, 1981: A wind tunnel for studying the effects of thermal stratification in the atmosphere, *Atmospheric Environment* vol. 15, No.5, pp. 807-821
Snyder W. H. , 1972: Similarity Criteria for the Application of Fluid Models to the Study of Air Pollution *Meteorology, Boundary-Layer Meteorology* 3, 113-134.
崔恒、神田順、平成2年10月:風過重評価のための平均風速と乱れの強さの鉛直分布特性、日本風工学会誌 第45号、23-43
Kiyoshi Uehara, Shuzo Murakami, Susumu Oikawa, Shinji Wakamatsu, 2000: Wind tunnel experiments on how thermal stratification affects flow in and above urban street canyons, *Atmospheric Environment* 34, pp. 1553-1562
上原清、村上周三、老川進、若松伸司、1997:温度成層流中のストリートキャニオン内の流れに関するLDVを用いた風洞実験―市街地における汚染物の拡散に関する実験的研究 その2、日本建築学会計画系論文集 第492号、39-46
上原清、村上周三、老川進、若松伸司、1997:温度成層流中のストリートキャニオン内の濃度分布に関する風洞実験―市街地における汚染物の拡散に関する実験的研究 その3、日本建築学会計画系論文集 第499号、9-16
上原清、若松伸司、森口祐一、1993年:市街地における排ガス拡散に関する風洞実験、国立環境研究所資料、F-47-'93/NIES
上原清、1996:交差点周辺の汚染濃度分布に関する風洞実験―市街地における汚染物の拡散に関する実験的研究 その1、日本建築学会計画系論文集 第485号、2.5-34
上原清、村上周三、老川進、若松伸司、1998:温度成層下のストリートキャニオン内部流れに対する道路幅の影響に関する風洞実験―市街地における汚染物の拡散に関する実験的研究 その4、日本建築学会計画系論文集 第510号、37-44
上原清、村上周三、老川進、若松伸司、1999:ストリートキャニオン内部の大気汚染物質拡散に対する道路幅および大気安定度の影響に関する風洞実験―市街地における汚染物の拡散に関する実験的研究 その5、日本建築学会計画系論文集 第524号、45-52
上原清、村上周三、若松伸司、池澤正、2001年:高さの異なるストリートキャニオン内の流れと拡散に関する風洞実験―市街地における汚染物の拡散に関する実験的研究 その6、日本建築学会計画系論文集 第541号、37-42
吉川康雄、上原清、林誠司、2001年:交差点周辺の流れと拡散に関する実験的実験 その4数値計算による周辺市街地の濃度分布、大気環境学会年会、406

4.4 PM_{2.5}・DEP モデル

4.4.1 数値モデルについて

菅田誠治

(1) 本節の位置づけ

他の環境問題と同様、PM_{2.5}・DEP の動態把握にあたって、数値シミュレーションの役割は非常に大きなものがある。観測データとの比較検証によりある程度以上の現実再現性を持つことを前提として、PM_{2.5} の物理化学的機構の解明、数日先までの予測、対策効果のシミュレーション等の数値実験といった広範な用途が期待されている。

(2) 大気質モデリングの基礎

大気質モデリングの出発点は物質の濃度変化を記述する方程式であり、考慮する物質の濃度をCで表すとしたとき、次のように模式的に表すことができる。

$$\partial C / \partial t = A + E + T - R + O + D \quad (\text{式1})$$

左辺は個々の位置における濃度の時間変化を表し、右辺の各項は物質の濃度変化に関わるそれぞれの過程による寄与を表す。A は移流（大気の流れによる輸送）による濃度変化で風速ベクトルと濃度の関数、E は物質の排出による増加、T は反応・変質による生成・消滅、R は沈着等による除去、O は移流で表されない物質輸送、例えば積雲対流等による輸送の効果、D は乱流拡散による増減である。この式は右辺の移流項を左辺に移すことによって次のようにも記述できる。

$$dC/dt = E + T - R + O + D \quad (\text{式2})$$

右辺の各項の意味は式1と同じであり、左辺は移動する大気塊とともに動いて見たときの濃度の時間変化である。

(3) オイラー型モデルとラグランジュ型モデル

上の二つの方程式は、個々の位置の濃度に着目するか、大気塊を追跡したときの濃度に着目するかの違いを除けば、本質的に同じ方程式である。このどちらかを解けば濃度の時間変化が計算できる。どちらの方程式を出発点とするかによって、数値モデルは2つに大別される。式1を出発点とするオイラー型、式2を出発点とするラグランジュ型である。

・オイラー型数値モデル

興味の対象となる領域を東西南北高度の三方向に格子で分割してやり、それぞれの格子点において物質濃度等

の変数を定義し、式1を連立させて解くタイプである。この方法は、天気予報に用いられる数値モデルが風や温度を求めている方法と本質的に同じである。このときA項は隣同士の格子間で風によってやり取りされる濃度を表す。解くためには全ての格子における風・温度等の気象データが必要である。

この方法は、領域内の全ての地点に対して万遍なく格子を切るので、関連する全てのプロセスを包括的にモデリングするのに適しているという利点がある。一方、裏返しの欠点として、必要とされる計算機の技術・能力の点においてラグランジュ型よりも高いものが必要とされることが挙げられるが、近年では計算機資源の急速な進歩によりこれは高い垣根とはいえなくなっている。

・ラグランジュ型数値モデル

式2は大気の動きに沿った物質の濃度変化を表しているため、注目する大気塊の軌跡を求める必要がある。これは風のデータがあれば、求めることができる。よって右辺の寄与、すなわち変質・沈着等を計算すれば濃度変化を求めることができる。これは、オイラー型数値モデルと比較して計算機資源の面で一般的に容易である。その他の利点としては、個々の排出源、または受容域に着目した計算が出来るという点がある。排出源からの大気塊の軌跡、または、受容域へと至る大気塊の遡った軌跡（バックトラジェクトリー）に着目することになる。

以上のように物質濃度の時間変化を計算する手法は二つに大別できるが、物質濃度の数値計算は必ずしもその時間変化を計算するとは限らない。濃度の定常性を仮定して平均的・統計的な物質分布の性質を調べようとする手法も重要である。沿道スケールの計算では、建物の形状等の非常に複雑な条件を計算に含める必要があり、計算を軽くするために定常計算は依然重要な方法の一つである。

本稿では、その目的からオイラー的な数値手法が適切と思われるため、以下では基本的にオイラー的な数値手法に限って記述することとする。

(4) 大気質モデルの歴史

1970年代後半から米国とカナダの間で酸性雨問題の共同研究が始まったところから、数値モデルの重要性が主張されるようになった。1980年前後の初期のモデルは、

上述するところのラグランジュ型数値モデル、または解析的・統計的な定常モデルが主流であった。これらを第一世代のモデルと呼ぶことができる。

1980年代にはオイラー型のモデルの開発が本格化した。この時代の代表的なモデルの一つとして RADM (Regional Acid Deposition Model) を挙げることができる。米国チェサピーク湾の水質に関して米国 EPA で行われている研究においては RADM が大気の評価モデルとして現在も使われている。この RADM を初めとするオイラー型のモデルは第二世代のモデルと呼ぶことができる。この世代は現在でも現役であり、現在の基本的な各物理・化学過程の数値モデル上の手法はある程度確立されている世代である。

現在のモデルを第三世代と呼ぶならば、その特徴は第二世代のモデルからの個々の計算手法の革命的進歩というよりも、包括的、総合的モデリングを行っていることであると言える。まず、対象となる物質・現象を一つに限定しない。第二世代のモデルが酸性雨、光化学オキシダントといったようにそれぞれ対象を限定していたのに対して、酸性雨、光化学オキシダント、浮遊粒子状物質等、数値モデルで扱う全ての問題をまとめて扱うことを目指している。次に、考慮すべき物理・化学過程をなるべく多く取り込んでいる。移流、拡散、気相反応、乾性沈着、液相反応、湿性沈着、エアロゾル生成・反応、積雲対流による鉛直拡散等第二世代で培われた手法を全て取り込むことを目指している。さらに対象とする空間スケールについてもネスティング（モデルを異なる解像度で連立させて走らせる方法）を用いて一辺数千キロの大陸スケールから一辺数十キロの都市スケールまでをまとめて扱う。

(5) モデルに必要な入力データとその流れ

大気質モデルを用いて計算するために、多くの入力データを必要とし、それらはいくつかの種類に分けられる。以下のデータはモデルの格子構成に合わせた三次元または二次元のフォーマットである必要がある。

a. 物質発生量データ

気体および粒子状物質の発生量データである。発生量は、扱う物質によっては気象データ等に依存させる必要がある。このような場合は発生量データを計算するプロ

グラムを発生量計算の数値モデルとして別途用意する必要がある。

b. 気象データ

必要な気象データには風、気温、気圧、水蒸気量、降水量、雲水量等がある。これらを観測データから直接入力できれば最も望ましいのであるが、大気質モデルへの入力は最低でも 1-2 時間間隔の必要があるために観測データでは不十分である。また、雲水量や土壌水分量は観測データ自体が非常に少ない。また、風や気温のデータも海上では非常に少ない。よって観測データを入力とするには無理があるので、気象データとして気象モデルの計算結果を用いることが一般的である。気象モデルについては後述する。

c. 地形・地表面関係データ

必要なデータには標高、土壌成分、植生、土地利用、土壌水分量等がある。これらは大気質モデルの入力としてだけでなく気象モデルへの入力データとしても重要である。また、黄砂等の場合は発生源モデルへの入力としても非常に重要である。

d. 物理化学過程基礎データ

これは、モデルの内部での計算で係数として使われている基礎データである。例えば、化学反応の反応係数、地表面状態に応じた乾性沈着速度、雲水が存在したときの物質の溶け込みの率等がある。基本的にはモデル内部で用意されている値を用いることができるが、これらの新規データがあればそれを採用することによりモデルの改良につなげることができる。

入力データとしては以上のように 4 種類に大別できる。また、計算結果の検証のために必要なデータとしては物質濃度の観測データが挙げられる。これは格子状のデータでなくてもポイントデータで良い。

以上のようなデータの流れを図 4.4.1 に示す。この図については次節と次々節で補足する。

(6) 気象モデルについて

大気質モデルへ入力する詳細な気象データを得るために用いられる気象モデルは、原理的には天気予報に用いられる数値モデルと同じものであり、移流、拡散、放射過程、地表面過程、積雲対流、大規模凝結等の物理過程を計算する。気象モデルは計算の範囲に応じて、全球を

計算する大気大循環モデル (GCM : General Circulation Model) と呼ばれるタイプと、大陸以下のスケールを計算する地域気象モデルと呼ばれるタイプに分類できる。大気質という観点に限れば、一般的には自国の大気質を興味を中心とするために地域気象モデルが用いられる場合が多いが、今後は放射とのフィードバックの問題を取り上げたり、大気質問題のグローバル化を取り上げる局面で GCM を用いる場合も多くなってくると考えられる。代表的な地域気象モデルにはペンシルバニア州立大学と米国国立大気研究センター (NCAR : National Center for Atmospheric Science) が共同開発している Mesoscale Model 5 (MM5) とコロラド州立大学が開発した Regional Atmospheric Modeling System (RAMS) の二つが挙げられる。

入力データとしては客観解析気象データと呼ばれる現業天気予測モデルに観測データを同化させて計算した一種の観測データを用いて、現実の気象に対応する計算を行う。また、地表面関係のデータ、特に土地利用・植生のデータも重要な境界条件である。

(7) オンラインとオフライン

気象モデルと大気質モデルを別々に走らせるか同時に走らせるかは計算システムとして重要な事項の一つであり、それぞれオフライン型とオンライン型のシミュレーションシステムと呼ばれている。オフライン型とオンライン型はそれぞれ異なる特徴・長所・短所を持つ。以下にそれらをまとめる。

オフライン型：

- ・ 気象モデルは大気質モデルに先立って計算を行う。計算された気象データは一時間程度かそれより長い間隔のデータとして一旦ハードディスクに保存される。大気質モデルは保存された気象データを読み込みつつ計算を行う。
- ・ 大気質モデルの計算結果は気象モデルの計算に全く影響を与えないため、温暖化物質等の分布の変化によるフィードバックは考慮されない。
- ・ 別々にモデルを走らせることにより、同じ気象場を用いて異なった設定での大気質モデルランを行うこと等が比較的容易にできる。
- ・ 気象モデルの計算は数分から数十分の計算時間

間隔で計算され出力されているが、そのすべてを一旦保存し利用することは非現実的である。

- ・ オンライン型に比べて大きなハードディスク容量を必要とするが、メモリは小さくて済む。

オンライン型：

- ・ 気象モデルと大気質モデルは同時に計算を行う。気象データは計算される毎に大気質モデルに引き渡されて計算に使われる。また、大気質モデルの計算結果も大気質モデルに引き渡すことも可能であり、その場合は物質分布の変化と放射の変化によるフィードバックを考慮していることになる。
- ・ 同時にモデルを走らせるために、同じ気象場を用いて異なった設定での大気質モデルランを行う場合には同じ気象計算を繰り返すことになってしまう。
- ・ オフライン型に比べて必要なハードディスク容量は少ないが、メモリは多く必要である。

図 4.4.1 では、気象モデルの計算により得られた気象データは大気質モデルへと引き渡されているが、大気質モデルの計算により得られたデータが気象モデルへと引き渡される矢印は破線となっている。オフライン型のモデルではこの矢印は含まれていないが、オンライン型のモデルではこの矢印を含めて大気質と気象のフィードバックを含めることが可能である。

(8) 本プロジェクトにおける数値モデリングシステム 本プロジェクトにおける大気質モデルとしては米国

大気質計算におけるデータの流れ

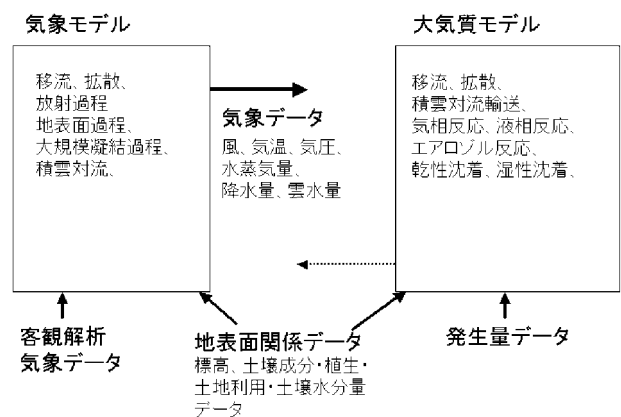


図 4.4.1 大気質モデル計算に必要なデータの流れを表す図

CB-IV (CMAQ仕様)反応種リスト

Nitrogen Species	Atomic Species	Hydrocarbons	Operators	Species added for aerosols
NO	O	PAR	XO2	SULAER
NO2	O1D	ETH	XO2N	TOLAER
HONO	Odd Hydrogen Species	OLE	Products of organics	XYLAER
NO3		TOL		CSLAER
N2O5	OH	XYL	OPEN	TERPAER
HNO3	HO2	ISOP	ISPD	TERP _b
PNA	Carbon oxides	Organic nitrogen	Species added for aqueous chemistry	Ammonia
O3				CO
H2O2	Carbonyls and phenols	Organic Radicals	FACD	
Sulfur Species			FORM	C2O3
	SO2	ALD2	ROR	PACD
SULF	MGLY	CRO	UMHP	
	CRES			

図 4.4.2 CB-4 化学メカニズムを用いる際の気相反応における反応種のリスト。枠で囲まれているのは排出量を与える物質である

EPA が最近約 10 年間開発を続けている大気質モデリングシステム CMAQ(Community Multiscale Air Quality system) を、気象モデルとしては前述の地域気象モデルの中から RAMS を用いる計画である。この両者をオフラインで繋げる。RAMS については文献 (Pielke et al. 1992) を参考にして頂きたい。ここでは CMAQ の概要について述べる。これらの説明は最近の他の大気質モデルにも多くの場合つながるものである。

個々のモジュールや要素ごとに簡単に説明する。

・領域・空間解像度

空間解像度(格子間隔)としては 100km 程度から 1km 程度までが実際に使用可能である。大きな適用領域としては、東アジアと北米大陸を含む領域で北太平洋を超えるエアロゾル輸送の解析に使用した例がある。

・ネスティング

1 way(大きな領域の結果を小さな領域の計算に用いる方法、逆方向にも結果を与えるのが 2 way)の多重ネスティングが可能である。これにより大陸スケールから都市スケールまでを通して扱うことが可能である。

・初期条件

各物質について水平一様の初期分布、または前に行った計算結果の任意の時間からリスタートが可能である。

・側面境界条件

物質ごとに東西南北のそれぞれの側面境界の鉛直プロファイルの規定する。

・地表面

都市域、農地、水など 11 種類の土地利用の割合をそれぞれの格子で与える。

・気象データ

地域気象モデルの計算結果を用いる。デフォルトで想定されている地域気象モデルは MM5 であるが当研究所と CMAQ 開発チームの共同研究 (Sugata et al. 2001) により RAMS を用いることが可能である。

・気相反応

必要に応じて化学メカニズム (現在は CB-4 または RADM-2 から) を選択することができる。自分で設定した化学メカニズムを用いることも容易である。例えば CB-4 を選択した場合の反応種を図 4.4.2 に示す。

・液相反応

CB-4 や RADM-2 を拡張し、液相反応も含まれるようになっていく。

・エアロゾルスキーム

考慮されるエアロゾルは Sulfate, Nitrate, Ammonium, Primary organic, Anthropogenic secondary organic, Biogenic secondary organic, Elemental carbon, Sea salt, Unspecified anthropogenic, Soil の 10 種類。0.1 μm 未満、0.1 – 2.5 μm 、2.5 – 10 μm の 3 モードの正規対数分布を用いた modal メソッドにより計算されている。

・排出量データ

排出量データとして与える物質は図 4.4.2 中で枠に囲まれ示されている。

・対流性雲による混合

対流性の雲が存在している格子では雲底高度から雲頂高度まで瞬時に鉛直混合が起きるようになっていく。

・化学解法スキーム

QSSA または SMV GEAR 法の選択が可能。

・移流スキーム

PPM(Piecewise Parabolic Method) または Bott Scheme が選択可能

・移流補正スキーム

MM5 や RAMS 等の気象モデルでは、厳密な意味での質量保存が成り立っていない。このために単なる移流では物質の保存性が壊れる結果となる。これを防ぐために、CMAQ では独自の移流補正スキームを開発・採用している点が長所のひとつである。

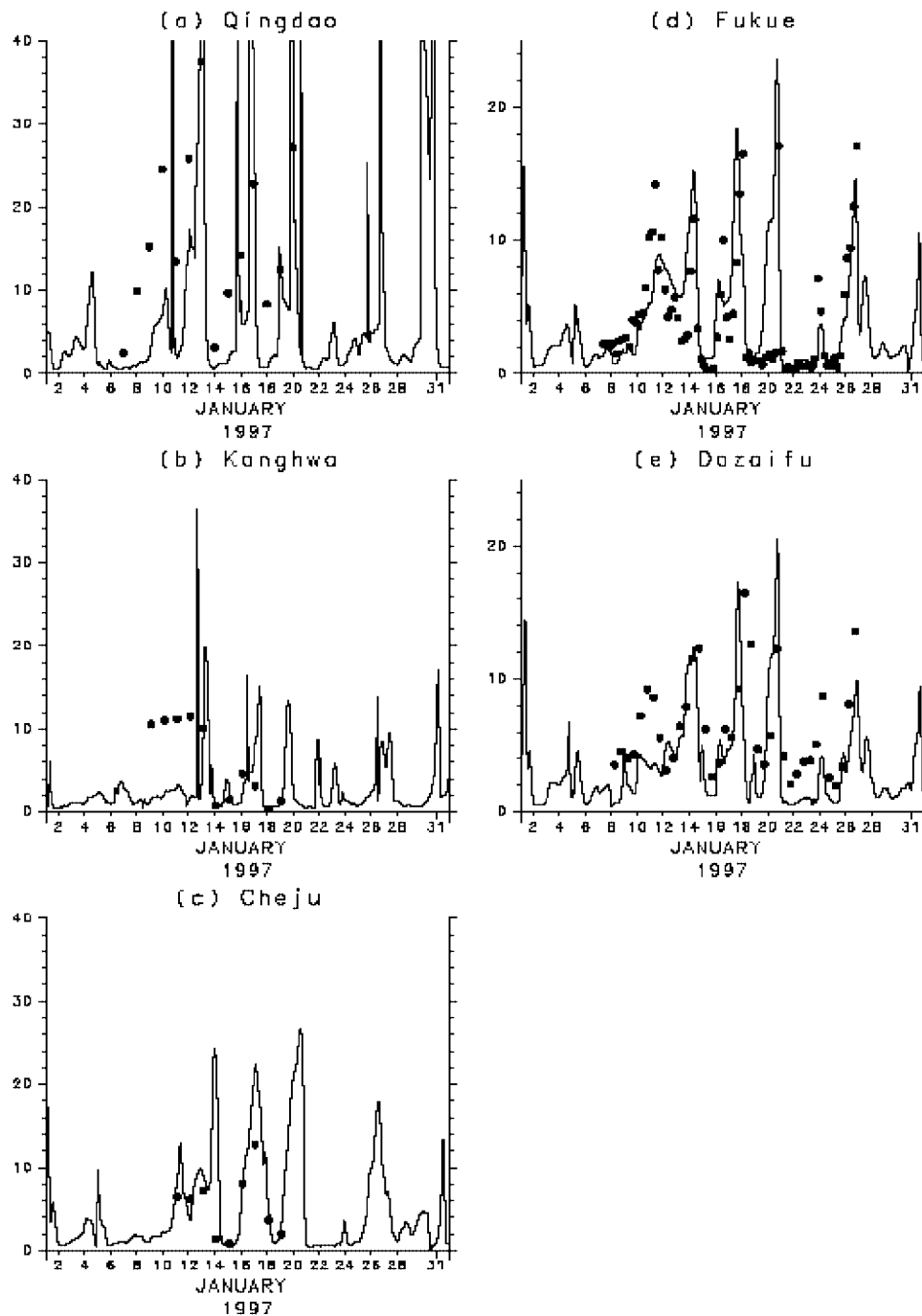


図4.4.3 中国・韓国日本の5地点における硫酸エアロゾル濃度の地上観測（黒点）とCMAQの地上第一層における硫酸エアロゾル濃度（実線）の一月間の変動を比較したもの 単位は $\mu\text{g}/\text{m}^3$

・鉛直拡散スキーム

K-theory による鉛直拡散を用いている。

(9) 計算結果の例

日本、朝鮮半島、中国東半部を含む領域において、1997年1月1ヶ月間を対象として1996年12月27日から1997年1月31日までRAMSとCMAQの計算を行った。計算範囲は回転ポラーステレオ座標上で東経 130° 北緯 35° を中心とする 4000km 四方であり、格子

間隔は 80km である。格子数は 50×50 グリッドである。

RAMSの鉛直座標は約 18km をトップとする23層で σ - z 座標系を用いている。地上に近い6層の高度は順に 47.7 、 157.3 、 288.7 、 446.5 、 635.8 、 862.9 m である。用いたオプションは、非静力学、簡単化したKuo積雲パラメタリゼーション、Meller-Yamadaレベル2.5鉛直拡散スキーム、Louis (1979)の地表面フラックス等である。経緯度 2.5 度間隔・一日四回のECMWFデータのナッジ

ング(引き戻し)を境界条件として現実的な気象場を得られるようにした。ナッジングの強さ(e-folding time)は側面境界で600秒と最も強く、端から5グリッドは徐々にナッジングを弱め、それより中央の領域では半日とした。

CMAQの鉛直座標はトップ高度は同じだが、下層6層より高い高度ではRAMSから一つおきに間引いた14層である。用いたオプションは、移流にPPM、化学メカニズムにCarbon Bond 4(CB-4)、化学ソルバーにQSSAである。

排出量についてはGEIA(Global Emissions Inventory Activity)、Streets(2001)、Piccot et al.(1992)、Murano et al.(1995)、Zhao and Wang(1994)等から得たデータをポーラステレオ座標系80kmメッシュに変換して用いた。排出の鉛直プロファイルは格子ごと・各時刻ごとに、気象インターフェースMCIPで判定される境界層高度より下の高度で混合比が一定になるように与えた。

図4.4.3に非海塩硫酸エアロゾル濃度の時系列について地上観測と比較して、CMAQの結果を示す。青島、済州島、Kanghwa、五島列島の福江、大宰府の5地点である。図を見ると、間欠的に訪れる硫酸エアロゾルの濃度ピークをモデルはおおむね再現している。青島では過小傾向にあるもののピークの時期はきちんと再現されている。また、済州島、福江、大宰府では非常に良い観測との対応を示している。

(10) 大阪府における大気質計算について

以上で概要を説明したシステムを、大阪府における地上および航空機観測の解析に活用する計画を進めている。

この計算と対応する地上観測および飛行機観測について簡単に述べる。まず地上観測は大阪府内の約70地点で行われている観測であり、観測項目は地点によって違うが、ほとんどの地点で計測されているのはSO₂、NO、NO₂、光化学オキシダント、浮遊粒子状物質、風向風速である。また飛行機観測は2001年3月19-21、23日の4日間大阪市上空で行われたものであり、SO₂、NO、NO₂、PM_{2.5}、PM₁₀の観測が行われた。

現在進行中である計算の設定について説明する

- ・計算期間：現時点では飛行機観測に対応する2001年3月15日から24日までの10日間を計算している。最終

的には3月の一ヶ月間、場合によっては1月からの3ヶ月間を想定している。

- ・計算領域：図4.4.4に示すような東アジア域、日本周辺域、大阪周辺域の3段階のネスティングによって計算する。水平解像度として順に125km、25km、5kmを用

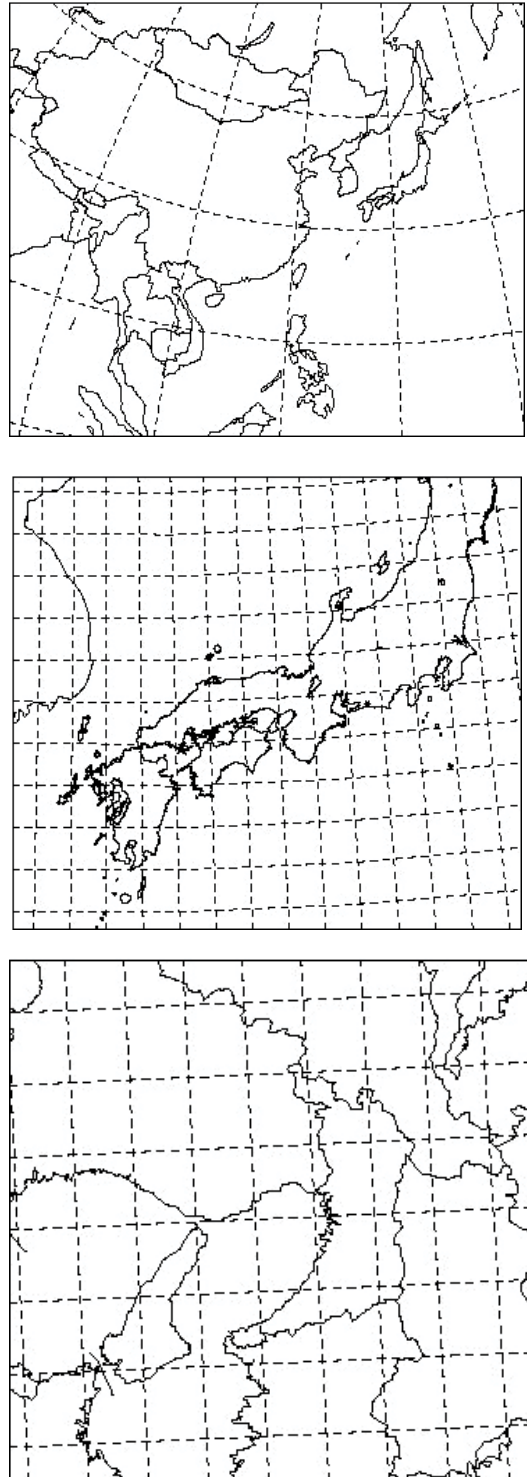


図4.4.4 計算領域を示す図。上からアジア域、日本域、大阪周辺。水平解像度は受けから順に125km、25km、5kmである

いる。この領域および解像度の選択については今後の検討の余地がある。

・排出量データ：東アジア域および日本域については前述の全球1度メッシュデータを引き続き使用する。大阪周辺域の計算に関しては、環境省作成の2次メッシュデータ(10kmメッシュ相当)をポーラステレオ座標系に変換して使う。変換プログラムは開発済である。

・気象データ：前述したように地域気象モデル RAMS を用いる。現在図 4.4.4 の領域で計算を行い、計算結果の検証を行っているが、5kmメッシュの計算で海陸風が現実的に再現できていない等の欠点があることがわかっている。この原因としてまず考えられるのは、まずデータ同化に用いている客観解析データが2.5度緯度経度メッシュ(約250kmメッシュ相当)のデータであるということがある。5kmメッシュの局地風を再現するのはRAMSの内部計算のみに依存するので現実的計算を精度良く行うことは難しい。もう一つ考えられる原因としては境界条件として与えている海面水温のデータの不十分がある。用いているデータは月別の1度緯度経度メッシュのデータであり、大阪湾や瀬戸内海等での細か

い分布が再現できていない。海陸風等の現象にはこれらの小スケールの水温分布が重要である可能性がある。以上二つの要因を中心に現在解析検討を行っている。

文献

- Louis, J.-F., A parametric model of vertical eddy fluxes in the atmosphere. *Boundary-Layer Meteorol.*, 17, 187-202, 1979
- Murano, J., S. Hatakeyama, T. Mizuguchi, and N. Kubo, Gridded ammonia fluxes in Japan, *Water Air and Soil Pollution*, 85, 1915-1920, 1995
- Piccot, S., S.D. Wataon, and J.W. Jones, A global inventory of volatile organic compound emissions from anthropogenic sources, *J. Geophys. Res.*, 97D9, 9897-9912, 1992
- Pielke, R.A., W.R. Cotton, R.L. Walko, C.J. Tremback, M.E. Nicholls, M.D. Moran, D.A. Wesley, T.J. Lee and J.H. Copeland, A comprehensive meteorological modeling system-RAMS, *Meteor. Atmos. Phys.*, 49, 69-91, 1992
- Streets, D., web site of the Ace-Asia and Trace-P Modeling and Emission Support System, http://www.cgrer.uiowa.edu/ACCESS/ACCESS_index.htm, 2001
- Sugata, S., D. Byun, and I. Uno, Simulation of sulfate aerosol in East Asia Using Models-3/CMAQ with RAMS meteorological data, *Air Pollution Modeling and Its Application XIV*, Gryning and Schiermeier eds., 267-275, 2001
- Zhao, D. and A. Wang, Estimation of anthropogenic ammonia emissions in Asia, *Atmos. Environ.*, 28, 689-694, 1994

4.4.2 モデルの利用

若松伸司

都市 PM_{2.5}・DEP は反応や、気象が同時に進行する複雑なプロセスの下で生成、移動、消滅する為、発生源と環境中での挙動を理解するためには、非線形モデルの利用が必要となる。このモデルにはガスからエアロゾルへの転換を含める必要があり、光化学大気汚染モデルのモジュールも含まれる。我国の PM_{2.5}・DEP 濃度は米国に比べてベース値が高いが、これには自然起源や大陸方面からの移流の影響も大きいと考えられる。モデルの利用に当たっては、モデルの領域や境界条件の合理的な設定が必要となる。PM_{2.5}・DEP モデルは未だ開発途上にある。モデル開発のポイントとして以下の項目が上げられる。

(1) モデルの範囲と対象物質：

広域—都市—街区—沿道、それぞれのスケールの現象は相互に関連し合っている。全体を統合的に扱うモデルの枠組みが必要である。対象物質としてはガス状成分や一次エアロゾル成分に加えて、二次生成エアロゾル成分のモジュールの開発が必要である。成分別、粒径別、の予測が必要であるが、個別の要素を総て組み込むのは難しいのでガス状物質の取り扱いにおいて、炭化水素成分に用いられたカーボンボンドメカニズムのような取り扱いをエアロゾル成分に対しても必要があろう。

(2) モデルの検証の為にフィールド観測の実施：

フィールド観測によりモデルの検証を行う必要がある。地上のデータのみならず立体的な情報が必要であるため、航空機等を用いた観測を実施しなければならない。PM_{2.5}・DEP プロジェクトでは2000年12月から2001年3月にかけて環境省が補正予算で実施した、関東地域における冬季の立体分布観測、関西・九州地域における春季の航空機観測のデータベースを基に、モデル検証の作業を開始している。

(3) 発生源情報の高度化：

モデルの相互比較や性能評価の実施に当たっては、共通の発生源データベースを構築し、これをメンテナンス

して行く必要がある。

(4) 研究協力：

JCAP2 においては、共通に利用出来るモデルツールの開発を主要な目的としている。特に沿道大気汚染モデル開発を目指している。JCAP2 との役割分担や相互研究協力が必要である。PM_{2.5}・DEP プロジェクトにおいては、広域から都市域までをカバーする三次元モデルとして米国 EPA の MODELS3 を利用する事としている。このモデルの内容と我国における適用例については菅田が前節で解説している。

以上に述べた、オイラー型モデルでは PM_{2.5}・DEP の時間変化を予測・評価することが出来るが、これに対して、年平均的な値の予測を目的とする手法として定常型モデルがある。総量規制タイプのモデルであり、硫黄酸化物濃度や窒素酸化物濃度予測の延長線上に浮遊粒子状物質汚染予測マニュアルが出来ている。ここでは、その概要と、利用に当たっての留意点、今後の検討課題などを述べる。

定常型モデルでは、気象区分毎に濃度分布を計算し、気象条件の出現頻度により重み付けを行って、年平均濃度や濃度出現頻度分布を重ね合わせの手法により推計する。浮遊粒子状物質の中でも、二次生成粒子に関しては、化学反応による時間変化を評価しなければならないので、時間発展型の数値モデルの利用が必要となるが、年平均値ベースの評価においては、より簡易な手法も利用出来る。

粒子状物質対策マニュアルでは、ガス状物質の粒子化を評価するに当たって、指数近似モデルと統計モデル二つの手法が述べられている。指数近似モデルではガス状物質から粒子状物質への変換率を昼夜別、大気安定度別に仮定すると共に、ガス—粒子平衡を考慮しなければならない物質に関しては存在率を仮定している。このモデルは、長期平均型（定常型）モデルの中で拡散式に組み込み解析型モデルとして用いられている。一方、統計モデルでは、オキシダント濃度や湿度をパラメータとして、粒子化率や、硫酸イオン、硝酸イオンの濃度がガス状物質濃度から推計される。この他に、重回帰モデルに

よる粒子成分濃度の推計も行われる。いずれのモデルも実測データを基にしている為、現状の年平均的な濃度の解釈には有用であるが、発生源の種類や分布、都市構造などが変わった場合の将来推計には不十分である。また、短時間の濃度変動や局所的な高濃度現象の解析・評価には不向きである。このモデルは基本的には自治体ベースの地域大気汚染総量削減対策ツールと理解すべきモデル

であり、単独の事業が環境に及ぼす影響を評価・解析するような、環境アセスメントのツールとして利用する場合には、適用範囲や適用条件に対しての吟味が必要である。(浮遊粒子状物質対策検討委員会(1997年12月):浮遊粒状物質予測マニュアル、東洋館出版社、pp398。参照)

5. PM_{2.5}・DEP の発生源と対策

5.1 国内外における一次粒子および二次粒子前駆物質の排出インベントリの現状と今後の展望

南齋 規介、田邊 潔

5.1.1 排出インベントリの概要

PM_{2.5}、DEP などの粒子状物質（一次粒子）に関する排出源別の排出量を把握することは、問題の現状を把握するために不可欠である。精度よく推計すれば排出規制や道路・交通政策などによる抑制効果を定量的に評価することができ、効率的な排出削減策の立案やその検証において有用な指標となる。また、経済成長、産業構造変化に伴う排出量の増減を予測する上でも、現況を示す排出インベントリ（目録）が必要である。

大気中微小粒子の半ばを占めるとされる二次粒子については、その前駆物質に関するインベントリを整備することによって、環境動態モデルによる汚染予測とメカニズムの解明を通じて、より効果的な対策の策定や汚染予測が可能となる。このように一次粒子および二次粒子前駆物質のインベントリは大気環境を考える上で極めて重要であり、わが国を含め多くの国々でその構築、整備が進められている。

大気汚染物質排出インベントリの作成には、個々の発生源からの排出量を調査して積算する方法が用いられる場合もあるが、原単位法とよばれる、排出係数（活動量あたりの排出量）に活動量をかけて間接的に推計する方法によることが多い。例えば、発生が燃焼由来の場合、産業別、燃料種別などに燃料消費量を活動量とした排出係数を作成し、エネルギー統計等から燃料消費量を調査し、対応する排出係数を乗ずることによって排出量を計算する。原単位法は比較的容易に排出量を推計することができるが、用いる排出係数の代表性や活動量との対応には十分注意する必要がある。特に、排出係数については情報が限られていることが多く、諸外国の値や一つの測定結果に基づく係数を利用することもあるのが実情である。このとき、国や地域、時間や季節の違いによる値の相違を把握することが推計精度の確保において重要である。その他、排出規制の有無やレベル、PM_{2.5}や二次粒子の前駆物質である NO_x や SO_x の排出については集

じん、脱硝、脱硫装置などの設置状況や技術レベルなどを反映させる必要がある。

現在、欧米各国と比較すると、わが国には一次粒子および二次粒子前駆物質に関する排出インベントリは十分整備されていない。そこで、わが国におけるこれらの排出インベントリの現状を整理した上で、諸外国での整備状況をレビューし、今後の排出インベントリの構築手法等について検討する。

5.1.2 わが国における排出インベントリの現状

(1) 実測調査に基づく排出量

わが国では PM_{2.5} のような粒径別の粒子状物質（PM）の排出インベントリは整備されていないが、一次粒子を対象とした PM 排出量については、その推計結果がこれまでに幾つか報告されている。環境白書（環境庁、1999）には「大気汚染物質排出量総合調査」（通称 MAP 調査）の結果から、固定発生源からのばいじん排出量が 1995 年で 101,763t と記されている。

MAP 調査では、大気汚染防止法第 2 条第 2 項で規定された「ばい煙発生施設」を設置する工場や事業所の施設（電気事業法およびガス事業法に規定されたばい煙発生施設、鉱山保安法により規定される施設、都道府県の条例によって規制の対象とされている施設を含む）合計約 202,000 施設を対象として排出量の個別調査を行っている。施設ごとの排ガス処理設備の有無、方式なども調査されていることから、ある規模以上の事業所からの排出についてはわが国の実状を反映した統計調査結果といえる。なお、MAP 調査は同時に、NO_x および SO_x の排出量も調査しており、1995 年の総排出量はそれぞれ $424,383 \times 10^3 \text{m}^3$ 、 $247,847 \times 10^3 \text{m}^3$ と報告している（株式会社 数理計画、1999）。

(2) 発生源別の排出推計

固定発生源だけでなく移動発生源からの排出量を含んだ推計には、浮遊粒状物質総合対策検討会（浮遊粒状物質総合対策検討会、1999）による結果がある。関東地方と関西地方を対象に表 5.1.1 のように、発生源別にそれぞれ総計で 26,870t、12,294t と推計している。このうち自動車からの PM 排出は平成 6 年度の交通量データを用

表 5.1.1 関東、関西地域における PM および二次粒子前駆物質の排出量

地域	発生源	大気汚染物質					
		SO _x	NO _x	PM等	HCl	凝縮性ダスト, タイヤ粉じん等	HC
関東	工場	53,274	113,293	7,631	8,606	6,340	305,042
	自動車	19,200	131,062	17,255	-	2,588	62,038
	船舶	14,980	15,188	1,843	-	-	-
	航空機	169	4,710	-	-	-	-
	民生	655	18,801	141	-	-	-
	全発生源	88,278	283,054	26,870	8,606	8,928	367,080
関西	工場	9,208	27,768	3,518	2,219	1,804	179,858
	自動車	7,481	52,638	7,554	-	1,133	25,751
	船舶	6,260	8,674	1,198	-	-	-
	航空機	10	1,333	-	-	-	-
	民生	4	7,794	24	-	-	-
	全発生源	22,963	98,207	12,294	2,219	2,937	205,609

※浮遊粒子状物質総合対策検討会(1999)より引用

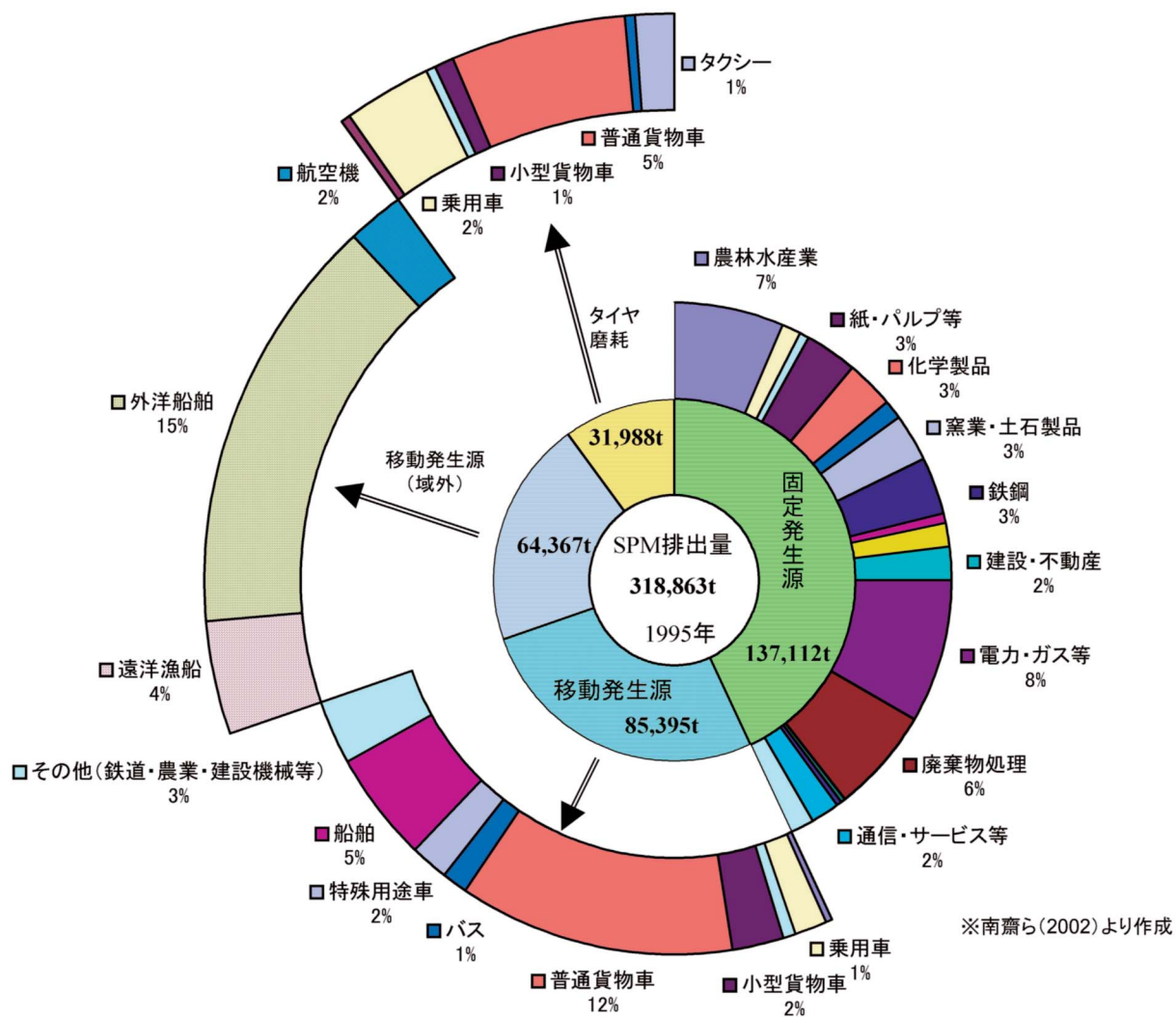


図 5.1.1 わが国の発生源別に見た SPM 排出割合

表 5.1.2 わが国の部門別に見た発生源別（燃料種）
SPM 排出量

部門	発生源別SPM排出量 (t)			
	石炭系	石油系	天然ガス系	その他
農林水産業	0	27,243	0	8,419
鉱業	7	361	0	3
食料品	2	3,248	98	38
繊維製品	4	1,773	38	7
紙・パルプ等	565	4,877	37	4,829
化学製品	881	7,733	170	21
石油・石炭製品	1,203	2,809	0	38
窯業・土石製品	3,486	5,265	153	272
鉄鋼	8,635	1,689	172	7
非鉄金属・金属製品	116	1,750	142	58
機械・機器・他製品	94	3,935	356	269
建設・不動産	1	12,017	1,284	213
電力・ガス等	19,017	7,009	228	166
廃棄物処理	5	1,454	64	17,806
商業・金融・保険	0	1,482	5	87
運輸	2	118,540	20	23,844
通信・サービス等	633	9,784	385	1,728
家計消費支出	0	7,004	65	5,219
合計	34,649	217,974	3,217	63,022

※南齋ら（2002）より作成

いた解析から、それぞれ17,255t（関東）、7,554t（関西）と推定している。さらに、煙突等から排出された直後に排ガスが急速に冷却されて生じる凝縮性ダストやタイヤ粉じんによる排出を考慮し、PM とは別に関東地方で8,928t、関西地方で2,937tと見積もっている。

一方、わが国の活動すべて^{注1)}を対象とした報告として1995年の産業連関表をベースにした推計がある（南齋ら、2002）。約400の産業活動別に約20種類の化石燃料消費量をそれぞれ求め、排出係数を乗じて排出量を推計している。固定発生源に関する排出係数は主にMAP調査を基に作成し、家庭暖房や野焼きなど非事業所系の発生源には文献等から排出係数を引用している。移動発生源は自動車、船舶、航空機、鉄道、農業機械および建設機械を考慮し、自動車からの排出量については速度域別の排出係数を用いて算出している。

総排出量は図5.1.1のようにSPM^{注2)}として318,863tと推計されている。その内訳は固定発生源から137,112t、移動発生源からタイヤ磨耗による発生分を含めて181,750tで、移動発生源には外洋輸送船舶、航空機および遠洋漁船からの排出分64,367tが含まれている。固定発生源では電力・ガス等部門が総排出量の8%にあたる

注1) わが国すべての活動とは、日本国内の活動（日本国民による活動が否か問わないが外国公館、外国軍隊は除かれる）および外国での日本公館、日本企業が運用する船舶、航空機の活動（用船、用機も含む）を意味する。

26,366tを、廃棄物処理部門が6%の19,224tをそれぞれ排出しており、寄与が大きいことが示されている。各部門の排出起源を燃料種別に見ると、表5.1.2のように移動発生源での消費が多い軽油やC重油など石油系燃料からの排出が大きいことがわかる。一方、農林水産業、紙パルプ業や廃棄物処理業ではその他に該当する野焼きや回収黒液、廃棄物の燃焼によるSPM排出量が少なくな

いことを示している。また同時に、二次粒子の前駆物質としては、NO_xおよびSO_xの排出量を見積もっている。推計方法はSPMと同様であるが、特有の発生源として電気炉からのNO_x、金属鉱石起源のSO_x排出量を考慮している。総排出量はそれぞれNO_xが3.5Mt、SO_xが1.9Mtと推定している。

(3) 地域・時間分布を考慮した排出推計

SPM排出量の地域分布を示したものとして、計量計画研究所による関東地方を対象とした大気モデル入力用データがある（財団法人計量計画研究所、1998）。おおよそ5km四方のグリッド別に夏季冬季のSPM排出量を一時間ごとに推計している。事業所からの排出にはMAP調査の結果を用い、MAP調査では捕捉されない硫酸塩を対象とした凝縮性ダストの排出量を、全ダスト濃度を変数とした推定式を用いて算出し、これを別途加算している。自動車からの排出は車種別速度域別の排出係数を用いて推定し、タイヤ磨耗および巻上げによる排出量も考慮している。また、船舶、住宅、中小事業所からの排出および海塩粒子の発生分も含め、二次粒子の前駆物質であるNO_x、SO_x、HC、HClおよびNH₃の排出量も同スケールで整備されている。

(4) 自動車起源の排出推計

わが国では移動発生源からの排出量の中でも自動車起源の排出量は特に詳細に推計されている。環境省では（株式会社野村総合研究所、1998）自動車に関するPM、NO_x、HCおよびCOを対象とした速度域別の排出係数

注2) このSPMとは環境基準という粒径10μm以下の浮遊粒子状物質とは必ずしも一致していないが、移動発生源や固定発生源の燃焼施設における集じん後の排出は浮遊状態の粒子が多いことから「SPM排出量」と記している。

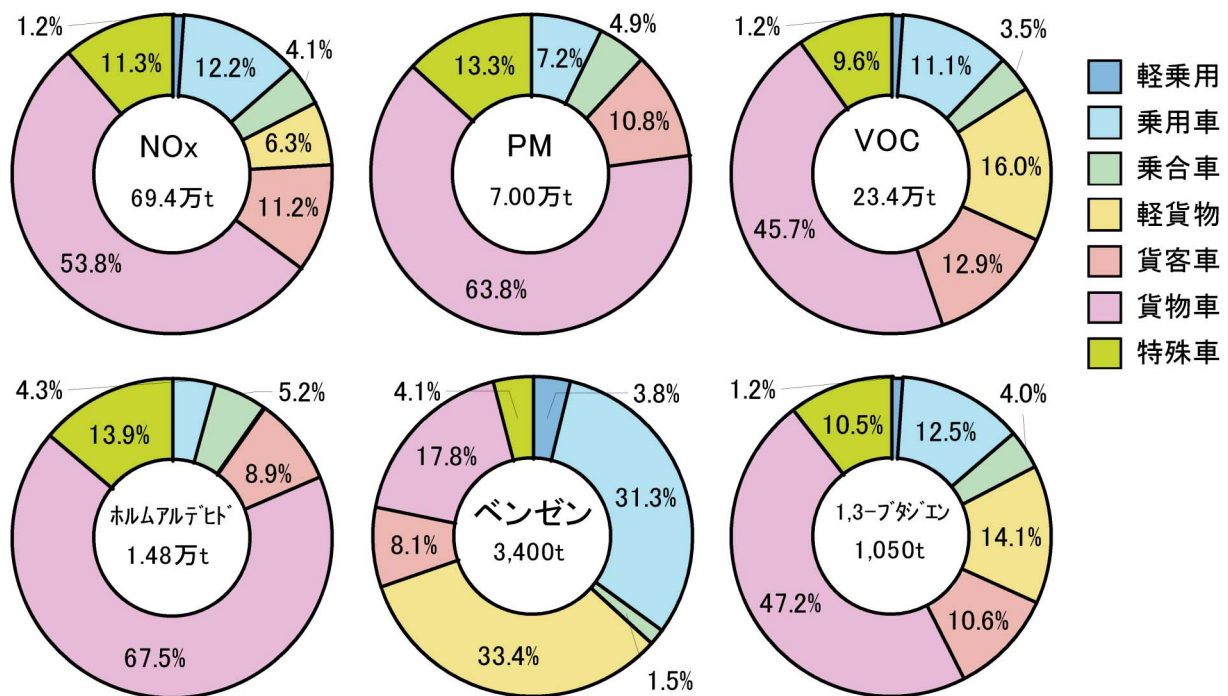
を車種別に作成し、道路交通センサスにより推定した車種別の速度域別走行割合と自動車輸送統計年報による走行距離を用いて各汚染物質の排出量を推計している。平成6年度を対象とした推計結果としてPMを58,902t、NO_xを549,726t、HCを251,478t、COを1,911,713tと報告している。道路外の陸上移動発生源からのPM排出量については、産業機械が2,877t、建設機械が5,201t、農業機械が626tと見積もられた例がある（環境庁、1995）。

自動車からの大気汚染物質排出推計をさらに精緻化した研究として国立環境研究所による報告がある（独立行政法人 国立環境研究所、2001）。推計精度を向上するため、道路交通センサスを用いて昼間12時間の走行量と夜間を含む24時間の走行量の比（昼夜率）が道路種別、沿道状況、車種によって異なることを新たに考慮し、8車種別の夜間交通量を推計している。さらに、道路交通センサスからは得られない細街路における走行量を、自動車輸送統計では網羅されない一部の車種分（消防車や非貨物特殊車等）を含めて算出している。また、普通貨物車については自動車輸送統計年報などから重量区分別の走行量を求めている。これらの値と20車種別に速度

の関数として定めた排出係数からPMおよび二次有機粒子の前駆物質であるVOC（揮発性有機化合物）の排出量を算出している。

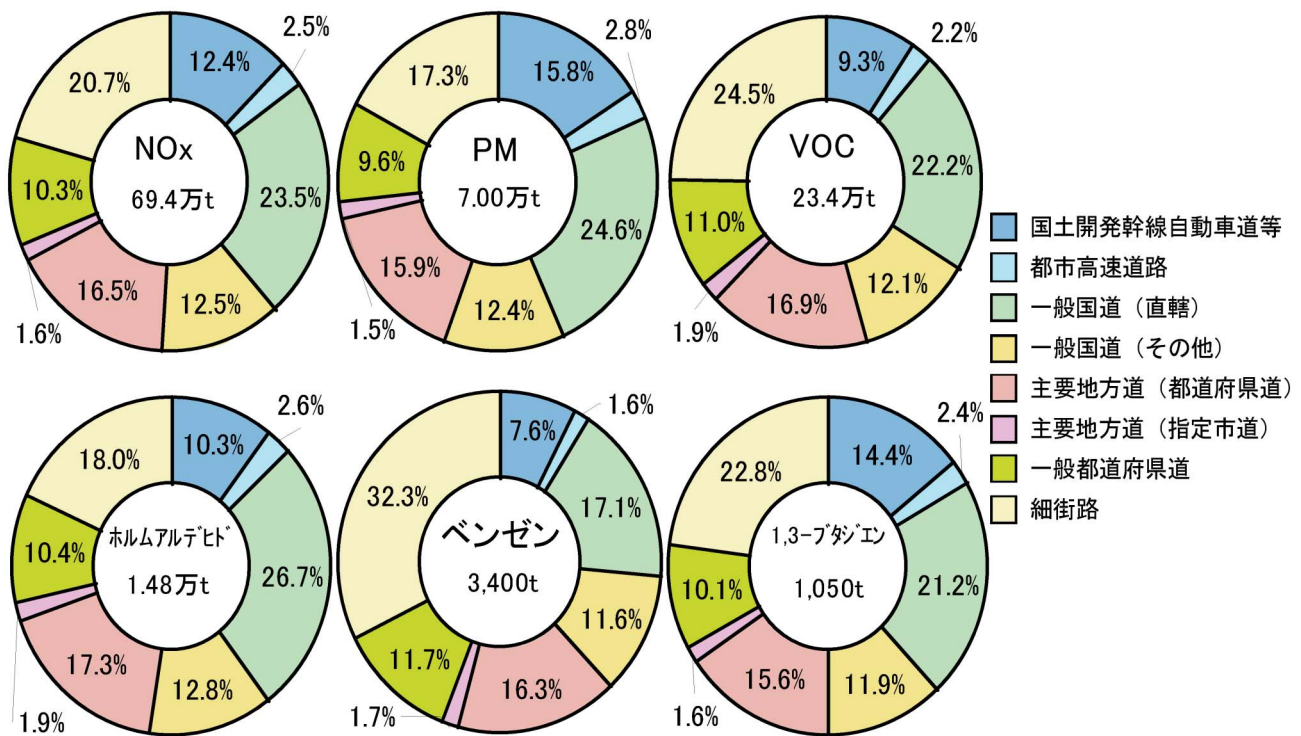
平成9年を対象にした7車種別の推計結果を図5.1.2に、道路種別の推計結果を図5.1.3に示す。総排出量はPMが7万t、ベンゼンが3,400t、ホルムアルデヒドが1.48万t、1,3-ブタジエンが1,050tと推計されている。PMについては、貨物車からの排出が63.8%を占め、特殊車、貨客車がそれぞれ13.3%、10.8%と続く。一方、道路種別では一般国道（直轄+その他）でおよそ30%のPMが排出されていることがわかる。

また、この研究では固定発生源からのVOC排出量についても、塗料、ガソリンスタンドにおける受入、給油ロスなどの主要なものについて、物質別に地域分布を含めた推定が行われている。塗料溶剤関連から約90.9万t、ガソリンスタンドにおける受入、給油ロスが約11.9万t、印刷インキ・溶剤関連から約17.8万tの排出があると推定されている。



※独立行政法人 国立環境研究所(2001)より引用

図 5.1.2 わが国の物質別車種別排出比率



※独立行政法人 国立環境研究所(2001)より引用

図 5.1.3 わが国の物質別道路種別排出比率

5.1.3 米国における排出インベントリの現状

わが国と比較して欧米諸国は排出インベントリの整備が進んでいる。OECD では環境データ (OECD、1999) の中でPMを含め、大気汚染物質に関する排出インベントリをまとめているが、そのなかでも特に米国EPA (環境保護庁) のデータ整備が充実していることがわかる。

EPA は発生源別の排出量を原単位法により推算し、1940 年からの大気汚染物質排出量の変化を報告している。以下に米国における排出インベントリの整備状況をまとめる。

(1) 排出係数の整備

EPA では排出量の推計に用いる排出係数として「AP-42, Fifth Edition (Supplements A, B, C, D, E, F)」を整備している (US EPA、1995a)。AP-42 は様々な大気汚染物質、温室効果ガス、残留性有機汚染物質 (POPs) などに関する広範な排出係数がまとめられており、Volume I には固定発生源、Volume II には移動発生源に関する値が掲載されている。一般にPMは粒径別に扱われていることが多いが、現在のところ、PM₁₀、

PM_{2.5} に関する排出係数は固定発生源の Volume I にのみ整備されている。

排出係数にはその値の信頼度が示されており、算出方法や文献が明らかにされている。排出係数は業種、炉種、燃料種別に作成されており、特にPMに関する排出係数は、詳細なものではさらに、集じん装置ごとに粒径別 (0.625、1.00、1.25、2.5、6、10、15 μm) の値を知ることができる。二次粒子の前駆物質としてはSO_x、NO_x、NH₃等だけでなく、VOC (人為起源) についても成分別に係数が整備されている。

また、AP-42 は他の排出係数情報 (文献値など) を加えてソフトウェア化 (FIRE) され、利便性の高い形にされている (US EPA、2000a)。FIRE では発生源を詳細に分類してSCC (Source Classification Code) を設定しており、排出係数のSCCによる検索、汚染物質名、CAS ナンバーまたは対策技術名による検索も可能である。PMに関する排出係数はSCCと63種の集じん装置および使用される燃料種との実在する組み合わせで作成されている。現在ではPM_{2.5}に関する排出係数 (Filterable、Primary) は288種類、凝縮性ダストに相当する排出係数

(Condensable) は216種類整備されている。

一方、粒子の化学成分に着目した情報を EPA ではソフトウェア SPECIATE にまとめている (US EPA、1999a)。SPECIATE は発生源を選択すると粒径別 (2.5、10、30 μm) に化学成分別の重量濃度を表示する。炭素成分は元素状炭素 (EC) と有機系炭素 (OC) に分かれているが、OC の詳細な成分はわからない。またガス状有機化合物 (Total Organic Compound) についても成分別の重量濃度データがあり、塗装、印刷といった固定発生源だけでなく、自動車排ガスの組成も示されている。

PM の粒径分布に関するデータとして、各集じん装置の捕集特性をデータ化し、集じん前の排出量 (PM または PM_{10}) を入力すると、 PM_{10} 、 PM_6 および $\text{PM}_{2.5}$ の排出量を計算するソフトウェア (PM Calculator) も開発されている (US EPA、2000b)。ここでは、SCC と集じん技術を選択すると、AP-42 をベースとした捕集特性から粒径別に排出量が計算される。

先にも述べたが、AP-42 の移動発生源を対象とした Volume2 には、粒子に関する排出係数はまだ掲載されておらず、 NO_x 、 SO_x 、CO および HC などのガス状物質の排出係数のみが示されている。これらの排出係数は標準値であり、MOBILE5 (US EPA、1994) というモデルを用いて走行状態などに合わせた値を算出する。このモデルでは排出係数の温度補正や VOC の場合には排気管以外からの発生なども詳細に推計されるが、近年発表された MOBILE6 (US EPA、2001a) ではさらに改良が加えられている。

粒子を対象にした排出係数推計モデルには PART5 が用いられている (US EPA、1995b)。推計対象は、Pb (ディーゼル車では対象外)、硫酸塩、PM (PM から粒径別比率等の係数で他の粒子状成分排出係数を求める構造、ガソリン車では PM ではなく炭素粒子だけ) の他、巻き上げ、タイヤ、ブレーキ摩耗などによる粒子の発生を含んでいる。ディーゼル車からの硫酸塩排出係数は軽油中の硫黄含有量から算出する (古い車では SO_2 排出係数からも算出、また 1993 年以降の低硫黄軽油についての硫酸塩発生係数を今後考慮に入れていく予定とされている)。PM 排出係数は車種年式別の標準データを与えて推計するが、車速による変化は考慮していない。PM 排

出係数から硫酸塩排出係数を引き、車種によって 0.18 ~ 0.51 の比率をかけて OC の排出係数を求め、残りを EC 排出係数とするようになっている。DEP の粒径別比率は、全ての粒子が 10 μm 以下、92% が 2.5 μm 以下とされており (有鉛ガソリン車では 1/3 程度が 10 μm 以上、排気粒子以外ではタイヤ磨耗による粒子を除いて粒径が粗い方が多い設定になっている)、粒径別排出係数は PM 排出係数にこの比率をかけて求めている。

カリフォルニア州では、MOBILE モデル、PART5、地域別排出量計算を組み合わせた EMVI モデルシステムを用いて道路交通からの汚染物質の排出推定を一連の作業で行っている (California EPA、1996)。

(2) 活動量の推定

汚染物質の排出量は発生源種類別に排出係数と対応する活動量を掛け合わせて算出される。EPA ではこの活動量をエネルギー統計、ビジネスパターンや農業センサスなどを用いて推定し、移動発生源については、交通量モニタリング、マクロ推計、交通モデルによる分布推定などから求めた自動車交通の活動量を用いている。ただし、自然起源の VOC については別途推計モデル BEIS2.3 により算出している (US EPA、1998)。推計手法の詳細は「Procedure Document for National Emission Inventory, Criteria Air Pollutants 1985-1999」に発生源別に記述されている (EPA、2001b)。

(3) PM および二次粒子前駆物質の排出量

米国の大気汚染物質に関する排出量の推計結果は「National Air Pollutants Emission Trends」で報告されている (EPA、2000c)。それには、 PM_{10} 、 $\text{PM}_{2.5}$ の他、CO、Pb、 NO_x 、VOC、 SO_2 、 NH_3 の排出量が詳細な発生源別に 1940 年から 1999 年まで推計値が掲載されている (ただし、 $\text{PM}_{2.5}$ 、 NH_3 は 1990 年、Pb は 1970 年から)。なお、各年の排出量は 1990 年を基準とし、エネルギーや経済統計の変動から排出量を補正して推算している。

推計結果の一例として、1995 年の各種汚染物質の発生源別の内訳と PM_{10} に対する $\text{PM}_{2.5}$ の重量比を表 5.1.3 に示す。 PM_{10} は総計で 2,707 万 t、 $\text{PM}_{2.5}$ については 718 万 t の排出と推定されている。また、 NO_x 、 SO_x および

表 5.1.3 米国における PM₁₀、PM_{2.5} および二次粒子前駆物質の排出量 (1995 年)

発生源	PM ₁₀	PM _{2.5}	PM _{2.5} /PM ₁₀	NO _x	SO _x	VOC
	(1000t)	(1000t)				
燃料燃焼 (電力など公共施設)	268	107	0.40	6,384	12,080	44
燃料燃焼 (産業)	302	203	0.67	3,144	3,357	206
燃料燃焼 (その他)	610	589	0.97	1,298	793	823
化学工業	67	42	0.63	158	286	660
金属工業	212	134	0.63	98	530	125
石油精製	40	22	0.56	110	369	642
その他の産業プロセス	511	256	0.50	399	403	450
溶剤利用	6	5	0.88	3	1	6,183
貯蔵と輸送	109	42	0.39	6	2	1,652
廃棄物処理とリサイクル	287	247	0.86	99	47	1,067
自動車 (舗装道路)	293	231	0.79	7,826	304	5,701
自動車・機械 (非舗装)	456	403	0.88	5,128	999	2,699
自然発生	1,146	172	0.15	0	0	14
その他	22,766	4,725	0.21	267	10	551
合計	27,070	7,179	0.27	24,921	19,181	20,817

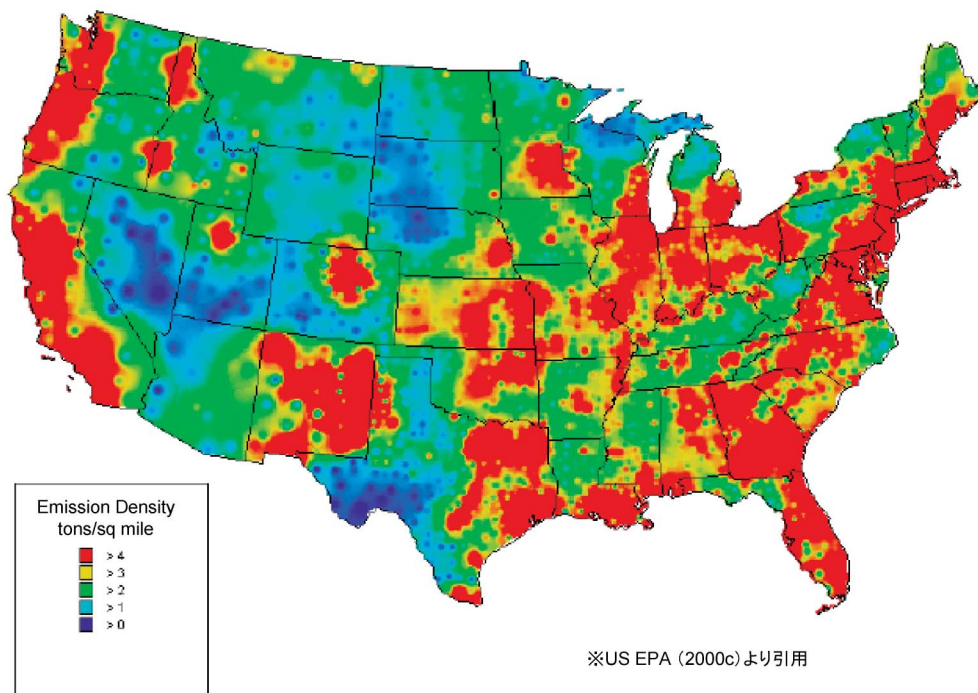
※US EPA (2000c) より引用

VOC については 2,492 万 t、1,918 万 t、2,082 万 t とそれぞれ報告されている。

PM に着目すると、その他の発生源の寄与が大きいですが、これは道路の巻き上げによる排出が含まれているためである。PM₁₀ では 1,036 万 t と全体の 38 %、PM_{2.5} では 304 万 t の 42 % を占める。自動車 (舗装道路) からの排出量は PM₁₀ で 29 万 t、PM_{2.5} で 23 万 t であり、このうちディーゼル車による排出はそれぞれ 19 万 t (PM₁₀) と 17 万 t を占める (道路交通による DEP 排出量を 11 万 t とする別推計例もある (US EPA、1999b))。また、人為発生

源に加え、自然起源として風食による発生量を計上しており、1995 年で 115 万 t (PM₁₀)、17 万 t (PM_{2.5}) と全体の 4 % および 2 % になっている。しかし、1996 年では 531 万 t (PM₁₀)、80 万 t (PM_{2.5}) と大きく変動しており、偶発的な事象に大きく依存するこれらの量を年間排出量として含めることには問題があると付している。

その他の燃料起源は暖炉の木材燃焼による PM_{2.5} の排出量が大きいため、PM₁₀ に対する PM_{2.5} の割合が高い部門となっている。また、わが国の推計では十分に考慮されていない、産業プロセスにおける非燃焼起源による排



※US EPA (2000c) より引用

図 5.1.4 米国の PM_{2.5} 地域別排出量

表 5.1.4 カナダにおける PM₁₀、PM_{2.5} および二次粒子前駆物質の排出量 (1995 年)

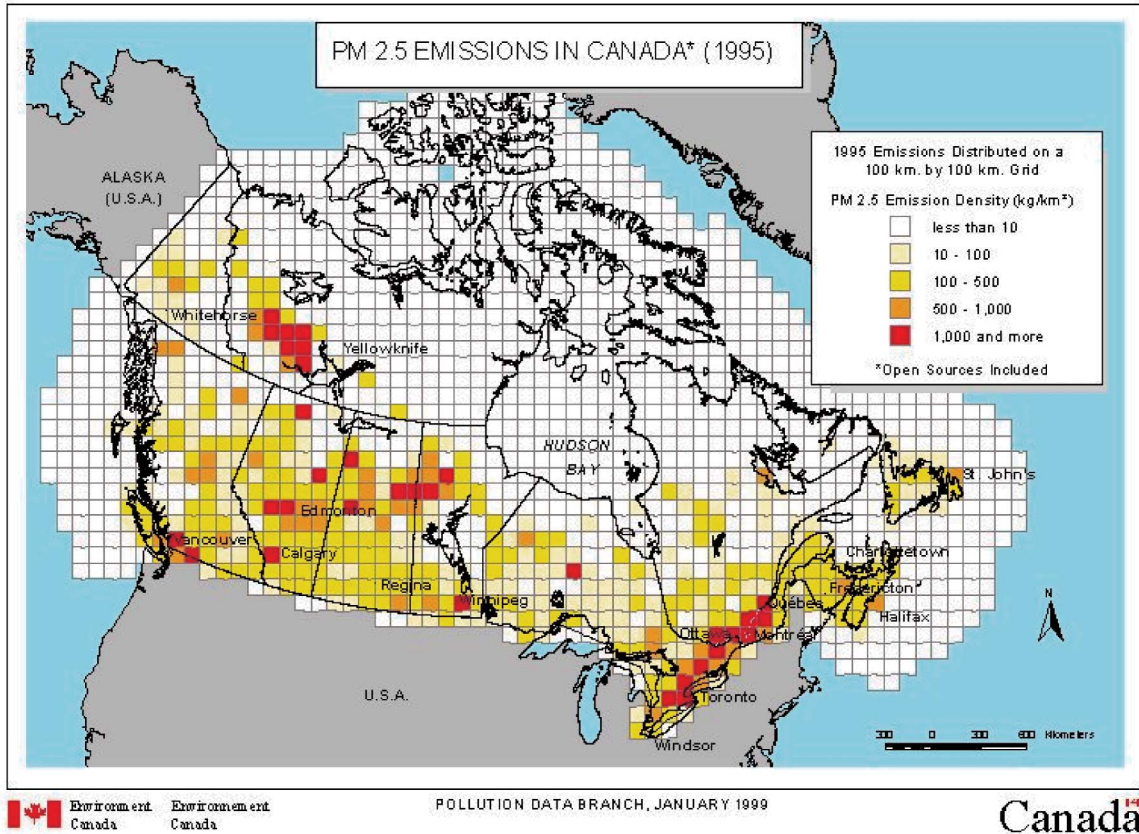
発生源	PM ₁₀	PM _{2.5}	PM _{2.5} /PM ₁₀	NO _x	SO _x	VOC
	(1000t)	(1000t)		(1000t)	(1000t)	(1000t)
電力業	35	19	0.53	255	534	3
その他の産業	287	172	0.60	620	1,950	941
産業以外の燃焼起源	144	138	0.96	78	32	404
自動車 (舗装道路)	42	37	0.88	787	51	562
その他の輸送	54	47	0.86	503	85	172
廃棄物焼却	1	1	0.78	3	1	6
その他	14	9	0.64	1	0	550
農耕と風食	848	21	0.02	0	0	0
その他の野外発生源	3,945	1,076	0.27	217	1	937
合計	5,371	1,519	0.28	2,464	2,654	3,575

※ Environment Canada(2002) より引用

出量が大きな値を示している。とりわけセメント製造や石材加工からのPM_{2.5}の排出量は3.8万t、2.6万tと高く、わが国においても非燃焼プロセス由来のPM_{2.5}排出量に着目する必要があると示唆される。

EPA による排出量の推計結果は部門別の報告だけでなく図 5.1.4 のように地域別の排出量も行われている。さらに、詳細な地点別の排出量が EPA-AIRData として公開されている (US EPA, 2001c)。固定発生源について

は施設名、所在地、排出量や全体への寄与率を公開しており、移動発生源については、郡ごとに集計した結果を知ることができ、すべてのデータがインターネット上から入手可能である。加えて、EPA では排出係数、SCC に対応した地域別の活動量データが組み込まれ、対象地域、年月を選択すると発生源別に排出量を計算するソフトウェア ASEM (Area Source Emissions Model) を開発中である (Randy et al., 2000)。ASEM により、各地域



※Environment Canada(2002)より引用

図 5.1.5 カナダの PM_{2.5} 地域別排出量

別に排出係数や活動量の変化による排出量の増減を容易に見積もることができる。

5.1.4 カナダにおける排出インベントリの現状

カナダの環境省 (Environment Canada) では、PM、PM₁₀、PM_{2.5}、SO_x、NO_x、VOC および CO の部門別排出量を経年で推定し、ホームページ上で公開している (Environment Canada, 2002)。排出量は原単位法で推計し、発生源は SCC により分類し、SCC ごとに各汚染物質の排出係数を設定している。排出係数は、主要な発生プロセスについては文献やヒアリングに基づいて、カナダ独自の係数を作成し、補完的に米国 EPA の AP-42 を用いている。各発生プロセスの活動量は、州や業界からの統計表に基づき、地域別、時間別に推定している。

表 5.1.4 に 1995 年の PM₁₀、PM_{2.5}、NO_x、SO_x および VOC 排出量を示す。PM₁₀ は 537 万 t、PM_{2.5} は 152 万 t と推計され、NO_x、SO_x および VOC はそれぞれ 246 万 t、265 万 t、358 万 t となっている。PM の内訳を見ると、その他の野外発生源 (Other open source) に該当する山火事と道路巻き上げによる発生分が大きく寄与しており、両発生源の合計は 324t (PM₁₀)、102 万 t (PM_{2.5}) とそれぞれ全量の 61%、67% を占める。交通による PM₁₀ の排出は 9.6 万 t でそのうちディーゼル車は 3.4 万 t、ガソリン車が 0.8 万 t、タイヤ・ブレーキによる発生が 0.4 万 t である。一方、PM_{2.5} の交通総排出量は 8.3 万 t でディーゼル車が 3.1 万 t、ガソリン車が 0.6 万 t を占める。

また、図 5.1.5 のような地域別の PM_{2.5} の排出分布も作成しており、各州の詳細な分布も別途推計されている。

5.1.5 欧州における排出インベントリの現状

(1) 排出係数の整備

EU では 1985 年より CORINE (CO-ordination d'INformation Environnementale) プログラムのもと、CORINAIR (CORe INventory of AIR emissions) プロジェクトとして排出インベントリの整備が行われてきた。1995 年からは EEA (European Environment Agency) を中心とした CORINAIR の中で排出推計のためのソフトウェアがいくつか開発されている。その一つであるソフトウェア CollectER には「EMEP/CORINAIR Guidebook

表 5.1.5 欧州諸国における PM₁₀、PM_{2.5} 排出量 (1993 年)

国名	PM ₁₀	PM _{2.5}	PM _{2.5} /PM ₁₀
	(1000t)	(1000t)	
アルバニア	8	4	0.5
オーストリア	41	24	0.6
ベルギー	84	49	0.6
ブルガリア	140	85	0.6
スイス	25	15	0.6
旧チェコスロバキア	520	270	0.5
旧東ドイツ	380	240	0.6
旧西ドイツ	430	250	0.6
ドイツ	810	490	0.6
デンマーク	56	33	0.6
スペイン	190	110	0.6
フィンランド	34	21	0.6
フランス	400	240	0.6
イギリス	280	160	0.6
ギリシャ	57	34	0.6
ハンガリー	110	65	0.6
アイルランド	23	13	0.6
イタリア	290	170	0.6
ルクセンブルグ	6	4	0.7
ノルウェー	21	13	0.6
ポーランド	1,000	560	0.6
ポルトガル	35	20	0.6
ルーマニア	230	140	0.6
旧ソ連 (欧州該当地域)	5,400	2,900	0.5
スウェーデン	36	22	0.6
旧ユーゴスラビア	300	180	0.6
合計 (旧ソ連除く)	4,696	2,722	0.6

※TNO (1997) より引用

on Emission Inventories」による大気汚染物質、温室効果ガス、重金属、POPs を対象とした合わせて約 7000 個の排出係数がデフォルトとして組み込まれている (EEA, 1999)。発生源を SNAP (Selected Nomenclature for Air Pollution) コードで区分し、SNAP、燃焼施設、燃料種および汚染物質の組み合わせで排出係数が作成されている。これに対応する活動量を乗じることによって排出量を計算することができる。

一方、イギリスでは 1970 年から 1996 年までの年間 PM₁₀、PM_{2.5}、PM₁ および PM_{0.1} 排出量をそれぞれ推定している (UK, 1999)。固定発生源の推計方法は PM₁₀ の排出量を求め、発生源別の粒径分布を乗じて PM_{2.5} 以下を推定している。PM₁₀ に関する排出係数は US EPA の AP-42 を、粒径分布は AP-42 とオランダの TNO 環境科学研究所 (TNO) の値を (TNO, 1997) 用いており、自国の活動量データに乗じている。

移動発生源からの排出に特化したものとして、COPERT II (COMputer Programme to calculate Emissions from Road Transport) というガス状汚染物質及び PM の道路交通による排出量推計システムが開発されている (EEA, 1997)。対策年次、車種、汚染物質別排出係数が車速の関数で与

えられており、国、道路種、車種別交通量比率及び車速の例も与えられていて、排出量推計ができるようになっている。また、NMHCの組成(例えば、ディーゼル車でベンゼン2%、1,3-ブタジエン2%など、微量成分の排出量計算に利用できる)、アンモニア等の排出係数等も与えられている。PMはDEPのみが推計対象とされている。現在ではPAHs(多環芳香族炭化水素)やPOPsを対象として加え、排出係数を改訂したCOPERT IIIが公開されており(EEA、2000a)、各国の排出推計に用いられている。

例えば、イギリスの自動車起源の排出推計は、COPERT IIを中心にPM₁₀の排出係数を作成し、AP-42とTNOの粒度分布からPM_{2.5}以下の粒子に関する排出係数を求めている。排出量はこの排出係数と交通センサスから得た11の道路種別、8車種別の年間走行距離を用いて計算する。

(2) PMおよび二次粒子前駆物質の排出量

国別またはEU全体における大気汚染物質や温室効果ガスの排出量は「Emissions of atmospheric pollutants in Europe, 1980-1996」(EEA、2000b)で物質別に報告されている。ただし、PMについてはTNOによる結果を引用している(TNO、1997)。TNOでは欧州各国のPM(10、2.5、0.1)の排出推計を独自に行い、発電、産業燃焼、非産業燃焼、産業プロセス(非燃焼)、道路、その他の輸送、農業、廃棄物処理の8種の発生源別に26の国を対象に報告している。表5.1.5に各国のPM₁₀およびPM_{2.5}排出量の合計値を示す。基本的にプロセスごとに一律の

排出係数を用いているため、PM₁₀に対するPM_{2.5}の割合が各国共通しておおよそ0.6を示している。また、総排出量を0.5°×1°のグリッド上に配分した結果も示している。

イギリスにおけるPMおよび二次粒子前駆物質の排出推計結果を道路輸送、運輸(道路以外)、燃焼施設、生産プロセス、鉱業、廃棄物処理に発生源を大きく区分して表5.1.6に示す。1995年では総計で一次粒子がPM₁₀で22万t、PM_{2.5}で14.3万tと見積もっており、自然起源、農業起源は含んでいない。また、NO_xの排出は215万t、SO_xは235万t、VOCが204万tと推定している。

部門別に見ると、PM₁₀では道路輸送が全体の26%に相当する5.7万t、エネルギー生産部門が18%の4万tと続き、PM_{2.5}では道路輸送が33%の4.7万t、生産プロセスによるものが21%の3万tとなっている。PM_{2.5}では生産プロセスによる発生寄与が高いことが特徴的である。

また、図5.1.6のように1km×1kmメッシュで推計したPM₁₀に関する地域分布を作成している。道路輸送からの排出は車種別に速度分布を仮定し、交通センサスから道路別に推計している。発電所や大きな工場などの主要な固定発生源は点源として、その他は人口や労働者数、土地利用形態などから面源として排出量を求めている。

その他の排出推計結果としてEU15ヶ国の道路交通によるPM₁₀排出量がある。総量は約35万tで、うちディーゼル車が約24万t、ガソリン車が約7.5万t、排気以外が約3.5万tと推計されている(財団法人石油産業活性化センター、1999)。さらに、ドイツの交通由来の総PM排出量は6.4万tの内、道路交通が4.2万tでこの

表5.1.6 イギリスにおけるPM₁₀、PM_{2.5}および二次粒子前駆物質の排出量(1995年)

発生源	PM ₁₀	PM _{2.5}	PM _{2.5} /PM ₁₀	NO _x	SO _x	VOC
	(1000t)	(1000t)		(1000t)	(1000t)	(1000t)
燃焼起源(発電・エネルギー生産)	40	20	0.50	595	1723	10
燃焼起源(商業・住宅)	34	16	0.47	104	126	40
燃焼起源(産業)	20	13	0.65	171	304	6
プロセス起源(産業)	32	30	0.94	6	101	1192
鉱業・砕石	24	7	0.29	0	0	0
建設	4	1	0.25	0	0	0
自動車(ガソリン)	12	9	0.75	448	51	687
自動車(ディーゼル)	40	36	0.90	582		
タイヤ磨耗	1	0	0.00	0	0	0
ブレーキ磨耗	4	2	0.50	0	0	0
その他の輸送・機械	4	3	0.75	233	45	64
廃棄物処理	7	6	0.86	8	2	37
合計	220	143	0.65	2145	2351	2036

※UK(1999)より引用

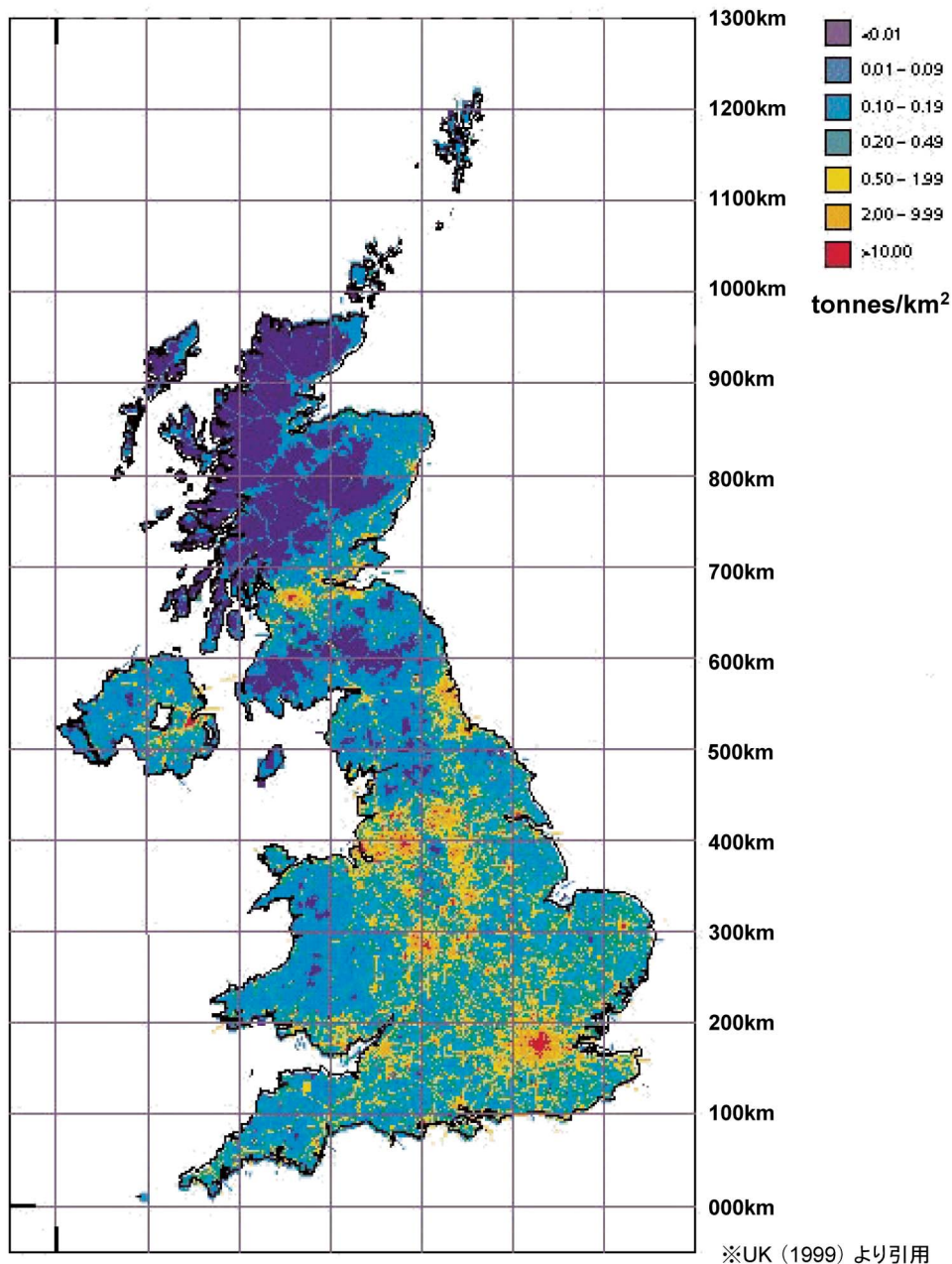


図 5.1.6 イギリスの PM₁₀ 地域別排出量 (1996)

うち大型貨物による排出が 3.0 万 t と報告がある (Umweltbudesamt, 1998)。

5.1.6 わが国の排出インベントリに関する今後の展望

PM_{2.5} を中心とする浮遊粒子状物質汚染に関してわが国の排出インベントリ整備には多くの課題が残されている。

まず第一に、排出係数の収集、整備が必要である。固定発生源、移動発生源ともに、PM_{2.5} に関する排出係数はわが国にはほとんど存在しないのが現状である。固定

発生源では MAP 調査の対象施設に対してはばいじん排出量が把握されているものの、粒径分布に関する知見はほとんどない。また、粒子の組成に関する情報も同様である。例えば、発電や鉄鋼といった主要な発生源については粒径分布、粒子組成の実測調査を行い、他の発生源については諸外国のデータを利用して粒径別、組成別の排出係数を推定することが必要と考えられる。このとき、わが国と他国との対策技術の相違等を考慮する重要性は 5.1.1 で触れた。

二次粒子前駆物質についても NO_x、SO_x が MAP 調査

対象施設については排出係数が把握され、HCl、NH₃ など排出推計が可能な程度の文献情報はあるものの、データベース化などの必要性は残された課題である。さらに、有機二次粒子の前駆物質となると VOC などについては個別にマクロ推計がいくつかなされている程度であり、成分別の排出係数やインベントリの整備が望まれる。

移動発生源については、特に寄与の大きい自動車の排出係数を精度高く求めることが課題である。例えば、台上試験から求めた排出係数や補正式等と、実走行状態のデータとの違いが問題にされる。米国においても自動車トンネル調査で実測した排出係数と、交通情報と排出係数推計モデルから算出された値の比較が行われ、ガス状汚染物質の MOBILE モデルによる推計値は±数 10 % (Pirson WR et al, 1996; Gertler A et al, 1997) の誤差が、PM_{2.5} の EMFAC7C モデル (カリフォルニア EMVI モデルシステムの一部) による推計値は 0.6 ~ 3 倍程度 (Ingalls M. N., 1989) 実測値と異なるなどの報告がされている。このような違いの原因として、台上試験に供される車両と一般車両の違い (US EPA, 1992)、台上試験における運転モードと実走行状態の違い、整備不良車の存在などが考えられる。モデルによる推計には限界もあるが、これらの誤差をチェックし、推計精度を上げる努力をする必要がある。また、わが国においては自動車からの HC の成分別排出係数や EC、OC の排出に関する情報が少なく、整理もされてないため、これらの測定、データベース化が必要である。近年、自動車トンネル調査による VOC 成分別排出係数推計 (桜井ら、2000 ; 2002) が試みられており、PM 成分別排出係数推計への応用が期待される。

次に、排出係数に乗ずる活動量であるが、これは地域別の推計が課題である。わが国では活動量を推定する主要な社会統計は全国値または都道府県別でまとめられていることが多く、そのままでは EPA で作成しているような排出分布を求めることはできない。一方、MAP 調査では発生日点を記録しているものの、対象施設に限られている。非調査対象施設は小規模であることが多いため、集じん装置などの対策設備が設置されていない場合や、都市ガスや LPG などの粒子の発生が少ない燃料種ではなく、石炭系燃料を主に使用している場合には排出

量が多いことなどが懸念される。周辺住民への環境影響という視点からは、たとえ全排出量への寄与は小さくてもこれらの発生源を無視することはできない。全活動量を示す統計情報と MAP 調査に加え、地理情報システム (GIS) 用に公表されている事業所統計データなどを用いて、小規模発生源からの排出量も含めた包括的な排出分布の推定システムの開発が望まれる。

自動車からの排出推定も同様で、排出係数と掛け合わせる交通データを、既存のデータ等から推計する段階でもかなりの誤差が生じる。これまでのわが国の排出量推計 (株式会社 野村総合研究所、1998) では、排出係数と交通データから積算された全国レベルでの CO₂ 排出量が、燃料消費量から求まる CO₂ 排出量より約 30 % 低く、推計の難しさが論じられている。この差を詳細に見ると、軽油、普通貨物車で特に大きく、仮に CO₂ 排出量が燃料消費量と矛盾しないように貨物車の等価慣性重量を補正すると、ディーゼル貨物車からの排出量が当初の推定値より相当大きくなる。このようなチェックと、推計方法の改良によって、推計精度を上げる努力が今後も必要である。一方、特に東京都では、単位面積当たりの DEP 排出量が大きく (DEP は 0.4 万 t、巻き上げ等は 0.6 万 t と推計 (東京都自動車公害防止計画、1999))、環境汚染が進んでいることが伺われ、固定発生源同様、地理的な分布を含めた詳細な排出量推計が必要であると考えられる。また、自動車交通に関連した広範な PM 発生量推計、道路外移動発生源の広範なカバー等にも努める必要があり、関連する排出係数も精度を高めなければならない。

このほか、固定発生源については PM に関する未推計の燃焼発生源が存在する。例えば、小型焼却炉からの排出や未把握の野焼き等に伴うの排出があげられる。CMB (Chemical Mass Balance) 法による発生源の推定からも未把握の OC 粒子の存在が示唆されており (溝畑、2000)、未推計の燃焼発生源が低温不完全燃焼による OC の発生が多いと考えられることと一致している。OC 粒子が野焼きに代表されるバイオマス系の燃焼によるものか、化石燃料系によるものかを識別する炭素の同位体に着目した解析手法 (Currie L.A., 1999) も提案されており、今後、未把握 OC 発生源の特定が実測調査か

らも進められると考えられる。加えて、諸外国の推計ではセメント製造や石材加工等からのプロセス起源によるPM_{2.5}の排出量が無視できない大きさになっている。先に紹介したわが国のPM排出推計に関する研究事例では、燃焼由来の排出量が中心的に推計されてきた。これらの推計の基礎データとされているMAP調査ではプロセス起源の排出量は捕捉されないため、この点についてもわが国の実態を確認する必要がある。

さらに、近年ディーゼル車等から排出されるダイオキシン等の微量有害物質に関する知見が集積されつつある(e.g. Marklund S. et al., 1990)。その多くは組成データであり、定性的な情報も多い。今後、固定発生源も含め、これらの有害物質に関する地域分布を含めた排出推計を進めていく必要がある。主要な数百程度の有害物質については、PRTR (Pollutant Release and Transfer Register: 汚染物質排出・移動登録)の導入によって、一定規模以上の事業所からの排出・移動量の報告、国による群小・移動発生源からの排出・移動量の都道府県別推計が進められており、請求によって個別事業所データも開示される(環境省、2001)。しかし、報告データや推計データの精度、群小・移動発生源からの排出・移動量の詳細地域分布、対象事業所や推計対象の限定による排出・移動量把握率など、そのデータを排出インベントリとして利用する場合には注意も必要である。また、PRTRは主に有害物質の適切な管理による排出削減や周辺住民とのリスクコミュニケーションを促すことなどを目的としているため(環境省、2001)、例えば二次粒子前駆物質としてのVOC、一次粒子としての金属成分、環境モデルで必要とされる総排出量などの観点からは、そのデータは排出インベントリとして不完全である。PRTRデータのインベントリとしての価値を高めるには、排出量の実測、排出原単位と活動量分布に基づく推計などとのクロスチェックによる精度の担保などが必要であり、またMAP調査や他の排出インベントリとの総合・補完化などの検討も望まれる。

最後に、こうした技術的課題とは別に発生源に関する情報整備についての制度的・組織的側面の課題についても触れておく。欧米諸国でわが国に比べて排出インベントリの整備が進んでいることを先に述べたが、その背景

として、越境大気汚染問題への対応のために国際的に比較可能な透明性の高い排出量データ整備の必要性が認識されていたこと(とくに欧州)、政府の情報公開が早くから進んでいたこと(とくに米国)が挙げられる。

わが国においても、PRTRの導入によって、発生源からの排出量の個別報告データを得る機会が拡大したが、排出量の体系的把握という観点からは、このことが必ずしも状況改善につながっていない。すなわち、PRTRがさまざまな環境汚染物質の排出量の体系的把握の一部として位置づけられているケース(例:オランダ)は少なく、有害性の高い特定の化学物質の管理を目的とした制度とされている場合が多い。わが国でもPRTR導入時に、こうした化学物質以外に対象物質を広げるべきとの意見もあったが、フロン類が含まれるようになったものの、いわゆる「古典的大気汚染物質」は制度の対象外となっている。

一方、温室効果ガスについては、国際条約の要請からインベントリ整備への制度的対応が強化されつつある。固定燃焼発生源、蒸発発生源、自動車排ガスなどに関する技術的な推計手法において多くの共通点を有しながらも、「古典的大気汚染物質」はPRTRで対象とされるような化学物質と、温室効果ガスとの狭間にあって、インベントリ整備に関する制度面・組織面での対応に進展は見られていない。個別事業所に対する統計調査の拡充に対して、統計制度の面から制約が課されていること、環境行政組織が「問題」ごとに区分され、統計としてインベントリを整備するような横断的な組織が不十分なことなどの制度的・組織的な制約がある中、少なくとも推計手法などの技術的情報の蓄積と公開に関して、関係機関のさらなる連携が望まれる。

文献

- California EPA Air Resources Board, Methodology for Estimating Emissions From On-Road Motor Vehicles.
- Currie L.A. (1999), RECENT HISTORY AND FUTURE CHALLENGES OF 14C AEROSOL RESEARCH, Proceedings of the International Workshop on Frontiers in Accelerator Mass Spectrometry, Jan. 6-8, Tsukuba, Japan.
- EEA (1997), COPERT II Computer Programme to calculate Emission from Road Transport, Methodology and Emission Factors, EEA ETC/AEM Technical Report No 6, European Environment Agency.

- EEA (1999) , CollectER Installation and User Guide, Technical Report 31, European Environment Agency.
- EEA (2000a) , COPERT III Computer programme to calculate emissions from road transport, Methodology and emission factors (Version 2.1) , EEA ETC/AEM Technical report No 49, European Environment Agency.
- EEA (2000b) , Emissions of atmospheric pollutants in Europe 1980-1996, Topic report No 9, European Environment Agency.
- Environment Canada (2002) , Criteria Air Contaminant Emission Summaries, Environment Canada homepage, http://www2.ec.gc.ca/pdb/ape/cape_home_e.cfm
- Gertler A.W., Wittorff D. N., McLaren R., Belzer W., Dann T. (1997) , Characterization of Vehicle Emission in VanCouver BC During the 1993 Lower Fraser Valley Oxidant Study, *Atmospheric Environment*, **31**, 2107-2112.
- Ingalls M.N. (1989) , On-Road Vehicle Emission Factors from Measurements in a Los Angeles Area Tunnel, pp.89-137, 82nd Annual Meeting and Exhibition of AWMA, Proceedings, Anaheim, California, June 2.5-30.
- Marklund S., Anderson R., Tyskland M., Rappe C., Egeback K. E., Bjorkman E., Grigoriadis V. (1990) , Emissions of PCDDs and PCDFs in gasoline and diesel fueled cars, *Chemosphere*, **20**, 553-561.
- OECD (1999) , OECD Environmental Data Compendium 1999.
- Pierson W. R., Gertler A.W., Robinson N. F. et al (1996) , Real-world automotive emissions-summary of studies in the Fort McHenry and Tuscarora mountain tunnels, *Atmospheric Environment*, **30**, 2233-2256.
- Randy P. Strait, Charles C. Monroe, Thompson G. Pace III (2000) , EPA's Area Source Emissions Model, National Emission Inventory Workshop "Solving Advanced Problems in the Emissions Field", Workshop Presentation, October 10 - 11.
- TNO (1997) , Particulate Matter Emissions (PM10, PM2.5, PM<0.1) in Europe in 1990 and 1993, TNO Report TNO-MEP-R96/472.
- UK (1999) , DEPARTMENT of the Environment, Transport and the Regions, the Welsh Office, the Scottish Office and the DEPARTMENT of the Environment (Northern Ireland) , Source Apportionment of Airborne Particulate Matter in the United Kingdom, ISBN 0-7058- 1771-7.
- Umweltbundesamt (1998), Traffic Emissions (Trends) 1998, WWW at Umweltbundesamt.
- US EPA (1992) , Procedures for Emission Inventory Preparation, Volume IV , Mobile Sources, EPA420-R-92-009.
- US EPA (1994) , User's Guide to MOBILE5, EPA-AA-TEB-94-01, <http://www.epa.gov/otaq/m5.htm>
- US EPA (1995a) , Compilation of Air Pollutant Emission Factors, AP-42, Fifth Edition, Volume I&II, <http://www.epa.gov/ttn/chief/ap42/index.html>
- US EPA (1995b) , Draft User's Guide to PART5: A Program for Calculating Particle Emissions From Motor Vehicles, <http://www.epa.gov/otaq/part5.htm>
- US EPA (1998) , Biogenic Emissions Inventory System, <http://www.epa.gov/ttn/chief/emch/models/beis/index.html>
- US EPA (1999a) , SPECIATE 3.1, <http://www.epa.gov/ttn/chief/software/speciate/index.html>
- US EPA (1999b), EPA Office of Air and Radiation, Analysis of the Impact Control Programs on Motor Vehicle Toxics Emissions and Exposure in Urban Areas and Nationwide, Volume I , EPA420-R- 99-029.
- US EPA (2000a) , Factor Information REtrieval (FIRE) , <http://www.epa.gov/ttn/chief/software/fire/index.html>
- US EPA (2000b) , PM Calculator Version 2.0.2, <http://www.epa.gov/ttn/chief/software/PMcalc/index.html>
- US EPA (2000c) , National Air Pollutant Emission Trends: 1900-1998, EPA454/R-00-002, <http://www.epa.gov/ttn/chief/trends/index.html>
- US EPA (2001a) , Draft User's Guide to MOBILE6.0, EPA420-D-01-003, <http://www.epa.gov/otaq/m6.htm>
- US EPA (2001b) , Procedures Document for National Emission Inventory, Criteria Air Pollutants 1985-1999, EPA-454/R-01-006
- US EPA (2001c) , AIRData, <http://www.epa.gov/air/data/>
- 株式会社 数理計画 (1999) , 大気汚染物質排出量総合調査、平成9年度環境庁委託業務結果報告書。
- 株式会社 野村総合研究所 (1998) , 自動車排出ガス原単位および総量に関する調査、環境庁委託。
- 環境庁 (1995) , 未規制自動車からの排出実態調査報告書、未規制自動車からの排出実態調査検討会。
- 環境庁 (1999) , 環境白書 (各論)。
- 環境省 (2001) , PRTR データを読み解くための市民ガイドブック、平成12年度パイロット事業の結果から、環境省総合環境政策局環境保健部環境安全課。
- 財団法人 計量計画研究所 (1998) , 大気モデル入力データ作成業務報告書、財団法人 石油産業活性センター、石油基盤技術研究所委託調査。
- 財団法人 石油産業活性化センター (1999) , 欧州エキスパートとのワークショップ報告書 (平成11年度技術開発基盤等整備事業)、PEC-1999JC-10。
- 桜井健郎、田邊 潔、森口祐一、若松伸司、針谷謙一 (2000) , 市街地の車道トンネルにおける自動車起源揮発有機性化合物の組成、大気環境学会誌、**35**, 343-354。
- 桜井健郎、田邊 潔、森口祐一、若松伸司、星純也、石井康一郎、中村 健、泉川碩雄 (2002) , 高速道路トンネル交通車両からの揮発性有機化合物の排出係数、大気環境学会誌、**37**, 1, 47-74。
- 東京都自動車公害防止計画 (概要版) (1999) , ホームページ掲載資料。
- 独立行政法人 国立環境研究所 (2001) , 都市域におけるVOCの動態解明と大気室に及ぼす影響評価に関する研究 (特別研究 平成10～12年度)、国立環境研究所特別研究報告書。
- 南齋規介、森口祐一、東野 達 (2002) , 産業連関表による環境負荷原単位データブック (3EID) - LCAのインベントリデータとして -、独立行政法人 国立環境研究所地球環境研究センター。
- 浮遊粒子状物質総合対策検討会 (1999) , 浮遊粒子状物質総合対策に係る調査および検討結果報告書。
- 溝畑 朗 (2000) , 大気微小粒子の性状と発生源、空気清浄、**38**, 3, 16-23

5.2 ディーゼルエンジンからのPM2.5・DEPの排出実態とその対策

小林 伸治

5.2.1 ディーゼルエンジンにおける燃焼と汚染物質の生成

ディーゼルエンジンは自動車用エンジンとして広く使用されているガソリンエンジンと比較して、燃料消費が少なく耐久性があるなど環境面での優れた特徴を有している反面、NO_xや粒子状物質の排出が多く、その低減が強く求められている。これらの特徴の多くはディーゼルエンジンの作動原理に由来している。

ディーゼルエンジンの最大の特徴は、吸入空気の圧縮による高温・高圧を利用した燃料の自発着火による燃焼方式を採用していることである。これを起点として様々な特色が派生して現れる。

図 5.2.1 はガソリンエンジンとディーゼルエンジンにおける燃料供給及び燃焼方式の相違を模式的に示したものである。最近市場に投入された直接噴射式のガソリンエンジンを除けば、ほとんどのガソリンエンジンでは、燃焼室の外で燃料と空気を均一に混合してからシリンダに供給し、電気火花を用いて着火、燃焼させている。

これに対し、ディーゼルエンジンでは空気だけを圧縮して高温・高圧となった雰囲気中に燃料を噴射し、自発着火を行わせる。そのため、燃焼室内の燃料と空気の混合が不均一な状態で燃焼が進行する。この不均一性により

不完全燃焼による黒煙の発生等、ディーゼル燃焼の欠点が生ずる。一方、このような燃焼方式では、ガソリンエンジンのように燃料の量に合わせて空気の量を制御する必要がないため、スロットルバルブが不要となり、低負荷時の空気絞り損失が軽減され、ディーゼルエンジンの熱効率が高い要因の一つとなっている。

燃料を完全に燃焼させるためには、短時間の内に燃料と空気の混合を行う必要があるが、燃料噴射から燃焼開始までの時間は 1/1000 秒以下であり、極めて短い。この混合時間の短さによっても、燃料と空気との混合の不完全が生じ、黒煙が発生する一因となっている。

黒煙の排出を防ぐためには、一旦生成した黒煙をシリンダ内で再燃焼させる必要があるが、そのためには、黒煙の酸化反応を促進することが必要である。酸化反応速度を速めるためには、燃焼室内の余剰空気との混合促進に加えて、高い温度で燃焼させることが効果的である。しかしながら、黒煙の再燃焼を促進するための方法は、逆に窒素酸化物の生成を促す結果となり、黒煙と窒素酸化物排出のトレードオフが生じる原因となっている。

5.2.2 排出ガス規制の動向

日本におけるディーゼル車の排出ガス規制は昭和 47 年に黒煙の規制が導入され、昭和 49 年 9 月に CO、HC、NO_xに関する本格的な排出ガス規制が開始された。その後、大気中の二酸化窒素 (NO₂) の低減を目的に NO_x の規制が段階的に強化されてきたが、大都市部や道路沿道

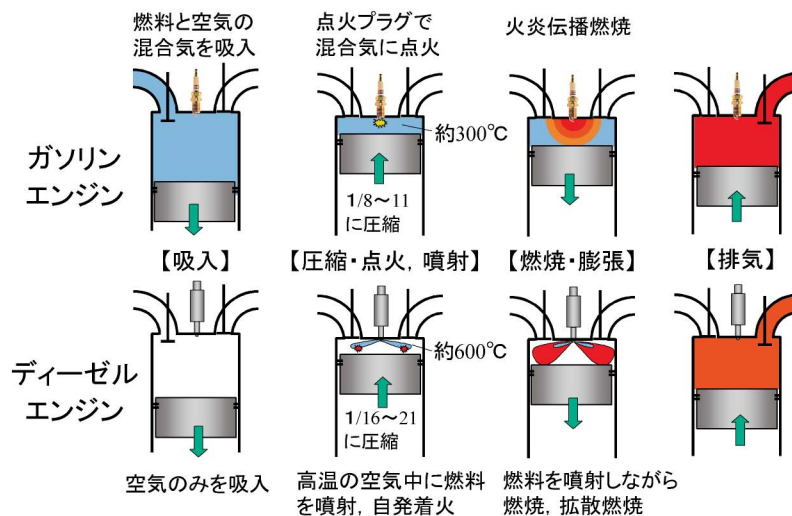


図 5.2.1. ガソリンエンジンとディーゼルエンジンの燃料供給及び燃焼方式の比較

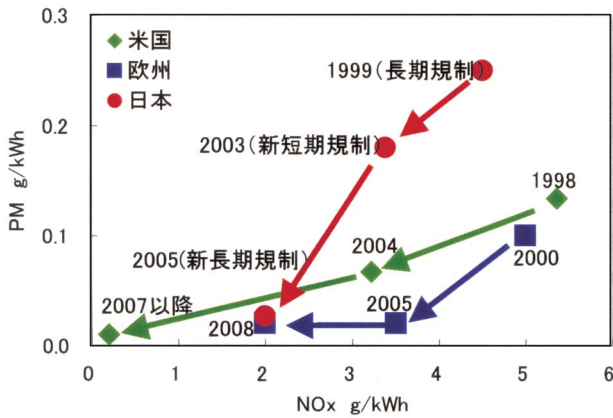


図 5.2.2 日米欧における大型ディーゼル車の排出ガス規制

での環境改善が思わしくないことから、平成元年に環境庁中央公害対策審議会（現中央環境審議会）は新しい排出ガス低減目標（短期及び長期目標）を答申した。それに合わせて、試験方法も見直され、従来の排出ガス濃度の規制から排出量の規制に変更された。また、排気煙に関してはスモークメータ（フィルタ黒化度）による黒煙規制のみであったが、粒子状物質（PM）の排出量規制が追加された。

米国や欧州においても 1990 年代後半から 21 世紀にかけて、わが国と同様の厳しい排出ガス規制が計画され、現在その導入が進められている。図 5.2.2 は大型車に関する日米欧の規制値を比較したものである。試験方法（走行パターン等）が異なるため、規制値の単純な比較は難しいが、わが国では NO_x、欧米では PM に対して厳しい規制値が設定されている。

現在、わが国ではさらに厳しい規制（新長期規制）の検討が行われている。欧米においても同様な検討が実施されており、将来的にはガソリンエンジンと同レベルの規制が導入されるものと予想される。

5.2.3 排出ガスの低減対策

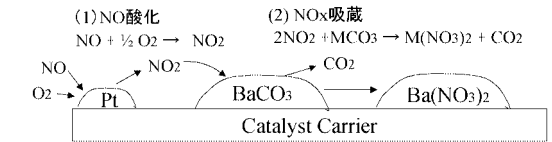
ディーゼルエンジンの排出ガス低減対策は、

- a) エンジン自体の改良による方法
- b) 後処理による方法
- c) 燃料・潤滑油の改善による方法

の 3 つの方法に大別できる。

以下に、それぞれについて、排出ガス低減に対する考え方や具体的な技術について概要を述べる。

Lean Condition



Rich Condition

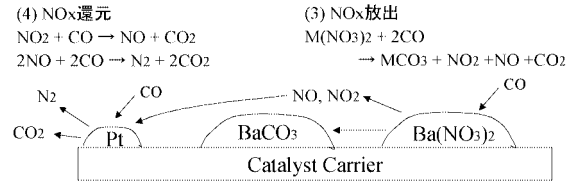


図 5.2.3 NO_x 吸蔵還元触媒の動作原理

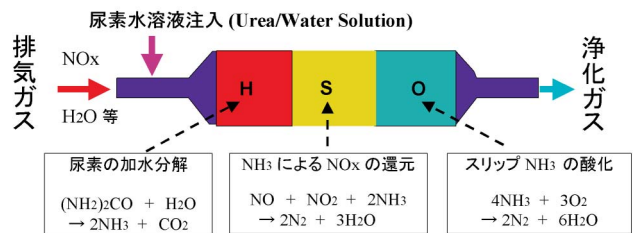


図 5.2.4 SCR (Selective Catalytic Reduction) 触媒
 (石油産業活性化センター、2000)

1) エンジン改良及び後処理による NO_x 低減対策

NO_xの低減対策はエンジンの燃焼室内における生成を抑制する方法と排出されたNO_xを後処理する方法の2つに大別できる。

エンジンの燃焼室内での NO の生成速度は燃焼ガスの温度と酸素濃度により支配される。すなわち、NO_xを低減するためには、燃焼温度又は酸素濃度を下げる方法がとられる。

燃焼温度を下げる方法としては、燃料噴射時期の遅延、インタークーラによる吸気の冷却などがあり、実用に供されている。

排気ガス再循環 (EGR) は、空気に比べて比熱の大きい排気ガスの一部を吸気に戻し、吸入空気と混合して燃焼室内に再導入するもので、燃焼温度と酸素濃度の両方の低下による NO_x 低減効果を狙った手法である。高温の排気ガスをそのまま吸気に戻すホット EGR と、より一層の NO_x 低減を目的に排気ガスを熱交換器により冷却した後、吸気に戻すクールド EGR が実用化されている。EGR はエンジン単体による NO_x 低減手法のなかでも最も効果的な手法である。しかしながら、EGR によ

る酸素濃度や燃焼温度の低下は、PM の排出を増加させることになる。特に、酸素不足になり易い高負荷の条件下では EGR の適用が難しく、適用範囲は低中負荷に限定される。

後処理による方法は、NO_x 浄化触媒が最も代表的な方法であり、NO_x を吸蔵して炭化水素により還元する吸蔵還元触媒 (図 5.2.3)、アンモニアや尿素を還元剤として用いる SCR 触媒 (図 5.2.4) などが開発されている。そのほか、プラズマにより NO_x を分解する方法などが検討されている。しかしながら、ディーゼルエンジンは高負荷で長時間使用されることが多く、高い信頼・耐久性を要求されるため、実用に耐えうる排気後処理装置の開発は困難を究めている。

2) エンジン改良及び後処理による PM 低減対策

PM は炭素状物質、可溶性の有機物 (SOF)、燃料中の硫黄から生成されるサルフェートとその結合水などから構成されている。

炭素状物質の低減には、その生成を抑制することに加え、一旦生成したすすを燃焼の後期において再燃焼させることが重要である。これらを実現するためには、燃料あるいは生成したすすを空気と良く混合させることが重要で、ターボチャージャー等の過給器の採用や多弁化などによる吸入空気増大、小噴孔ノズルによる噴霧内への空気導入量の増大、燃焼室内のむだ容積の低減による空気利用率の向上、高圧噴射や燃焼室形状の改良による乱れ混合の増大などの対策が実施されている。そのほか、燃料噴射ノズルを燃焼室の中心に配置し、燃料を均一に分散して局所的に燃料過濃な箇所が生じないようにすることも PM の生成抑制に効果的である。

SOF は未燃焼の燃料と潤滑油に起因する成分から構成されている。燃料に起因する成分に対しては、燃焼室壁面への燃料付着や噴射ノズルの後だれを少なくするなどの方策がとられている。潤滑油に起因するものに対しては、ピストンリングやライナーを改良して潤滑油消費量を低減することが主な対策である。

PM の後処理方法としては、SOF 低減対策としては酸化触媒が効果的である。酸化触媒では、燃料中の硫黄分

から生成されるサルフェートの生成を抑制することが課

題であり、燃料の低硫黄化が必要である。

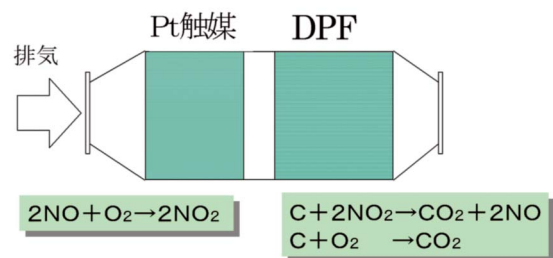
炭素状物質の低減対策としては、粒子をフィルタで捕集する DPF (Diesel Particulate Filter) が主なものである。DPF では捕集したフィルタの再生方法や耐久・信頼性の確保が課題として残されている。

最近では、フィルタに捕集された PM を連続的に再生する連続再生式 DPF が開発されつつある。図 5.2.5 は、DPF の前段に設置した酸化触媒により、エンジンから排出された NO を NO₂ に変換し、生成した NO₂ により DPF に集積されたすすを連続的に酸化する方式の連続再生式 DPF である。また、図 5.2.6 のように DPF 自体に触媒を担持したタイプの連続再生式 DPF も開発されている。図 5.2.7 は連続再生式 DPF の浄化性能に及ぼす燃料中の硫黄分の影響を調べた結果であるが、数 10ppm 以下の低硫黄軽油との組み合わせが必須であることを示している。

このほか、図 5.2.8 に示すような NO_x と PM の同時低減を目指したシステムも開発され、実用化に向けて研究開発が続けられている。

3) 燃料・潤滑油性状の改善による排出ガス低減

ディーゼルエンジンの排出ガスは、燃料性状と密接な関係にあることは良く知られている。排出ガス規制が厳しくなるに従い、エンジン改良や後処理による排出ガス対策に加えて燃料面での対策が必要になっている。特に、現在世界各国で検討されている次期の厳しい排出ガス規制に対応するためには、NO_x 浄化触媒や連続再生式の DPF 等の後処理装置の採用が必要になると考えられており、そのためには燃料中の硫黄分の低減が必須の条件



- 前段の触媒で排気中のNOをNO₂に変換
- 後段のフィルターに捕集したすすをNO₂で酸化

図 5.2.5 連続再生式 DPF

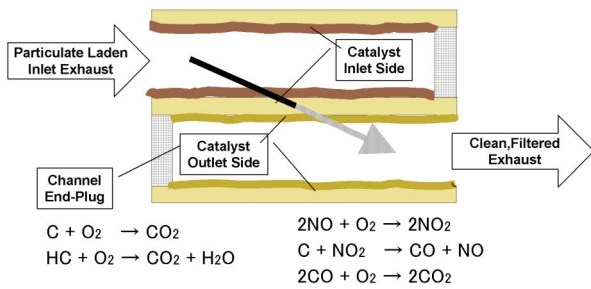


図 5.2.6 連続再生式DPF
(Engelhard 社)

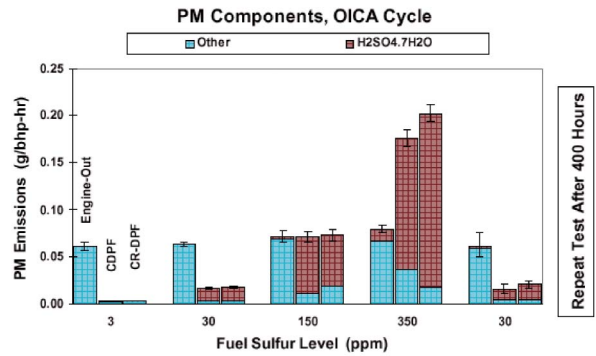


図 5.2.7 連続再生式 DPF の浄化性能に及ぼす燃料中の硫黄分の影響 (US DOE, 2001)

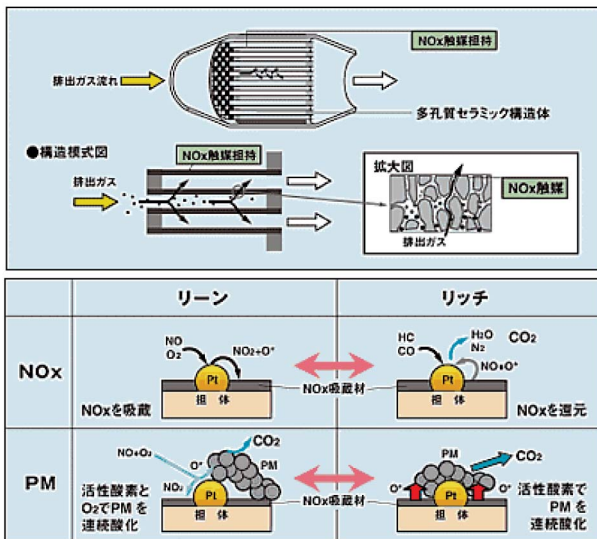


図 5.2.8 NO_x と PM の同時低減後処理システム
(トヨタ自動車, 2000)

となっている。

軽油の低硫黄化は世界的な傾向であり、世界の主要国では既に 0.05% 以下の低硫黄化が達成されている。最近では、触媒や連続再生式 DPF の採用を見込んで、50ppm 以下の低硫黄軽油の導入が検討されている。

硫黄分以外には、燃料の自己着火性の指標であるセタン価、芳香族炭化水素の含有率、蒸留特性等が排出ガスに影響を及ぼす性状因子として知られている。燃料中の芳香族炭化水素は、PM の排出に影響を与えることに加えて、ベンゼンや PM 中の PAH など、未規制の有害大気汚染物質に及ぼす影響が大きいといわれており、カリフォルニア州では多環芳香族の規制が導入されている。

また、潤滑油も PM 中の SOF 分に影響を及ぼすため、その物理的及び化学的特性や添加剤の影響などが検討されている。さらに、EGR や DPF、触媒等の後処理技術

の採用に伴い、それに対応した潤滑油の開発も重要な課題である。

5.2.4 ディーゼルエンジンから排出される微小粒子の挙動

これまで、ディーゼルエンジンから排出される PM は単位距離当たり又は単位出力当たりの排出重量で規制が行われてきた。

前述したように、エンジンの改良や後処理技術の進展により、重量排出量は近い将来かなり低減できる見通しである。しかしながら、PM_{2.5} に対する関心の高まりと同期して、ディーゼルエンジンから排出される粒子の粒径と個数濃度に対して関心が注がれるようになってきた。

欧米におけるこれまでの研究によれば、計測手法が確立されていないため、研究者により結果にばらつきはあるものの、ディーゼルエンジンからナノ粒子と呼ばれる直径数十 nm 以下の微粒子が排出されることが確認されている。

一般にディーゼル車の PM は排気ガスを希釈トンネルに導入し、空気による希釈を行った後、希釈排ガスを採取して測定するが、ナノ粒子の粒径分布や個数濃度は希釈空気の温度や湿度、希釈率、希釈してから採取されるまでの混合時間等の影響を受けることが報告されている。(図 5.2.9、図 5.2.10) ディーゼルエンジンから排出されるナノ粒子は、燃焼により生成されるカーボン粒子、排気中の VOC やサルフェートの凝縮物から構成されていると考えられており、その中の揮発性成分が空気との混

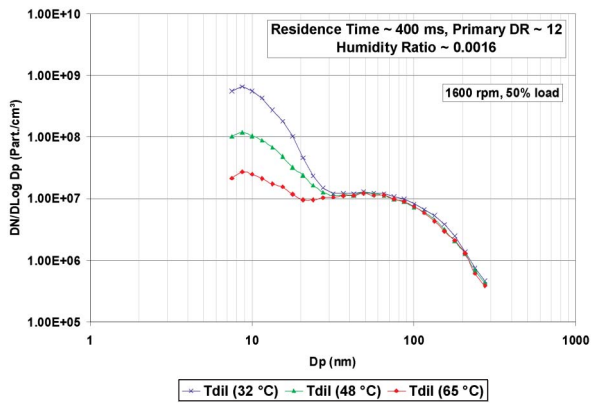


図 5.2.9 ナノ粒子生成に及ぼす希釈空気温度の影響 (Kittelson, 2000)

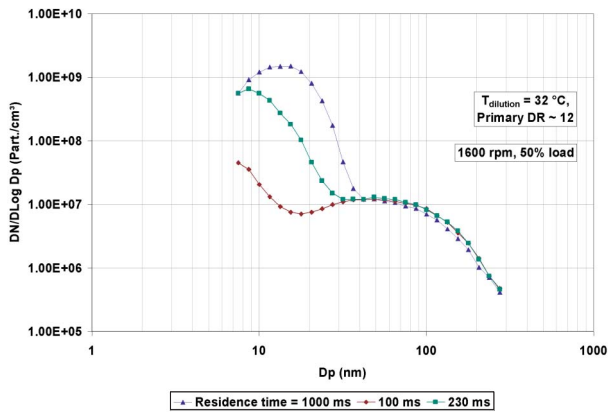


図 5.2.10 ナノ粒子生成に及ぼす滞留時間の影響 (Kittelson, 2000)

合状態により変化することが、計測値の変動する原因と考えられている。

このようなナノ粒子の生成・排出だけでなく、一般に排気管から排出された粒子などが一般環境に広がって汚染していく間の挙動には不明な点が多く、現在重要な研究分野になりつつある。

文献

(財) 石油産業活性化センター、第 2 回 JCAP 成果発表会資料、2000

トヨタ自動車、DPNR によるディーゼルエンジンの環境対策、<http://www.toyota.co.jp/thd2000/env.html>

Engelhard 社資料、DPX TM Soot Filter

D., Kittelson, Nano Particle Emissions from Internal Combustion Engine, The Royal Society Discussion Meeting Ultra Fine Particles in the Atmosphere, 2000

The U.S. Department of Energy, Diesel Emission Control -Sulfur Effects (DECSE) Program Final Report: Diesel Oxidation Catalysts and Lean-NOx Catalysts, June 2001

5.3 低公害車実験施設の概要と PM2.5・DEP 研究における活用可能性

近藤 美則

5.3.1 施設建設の背景

沿道大気汚染対策として自動車排ガス規制等が厳しくなっている。それに伴い、粒子状物質 (PM : Particulate Matter) や発ガン性の指摘されるディーゼル排気粒子 (DEP : Diesel Exhaust Particle) 等の削減には、DPF (Diesel Particulate Filter) 等の後処理技術の導入等の対策がとられつつある。DPF 等の導入により重量規制されている PM は、重量としては減少する一方 PM が微粒子化し、粒径のより小さい粒子 (ナノ粒子) の個数は増加する可能性が指摘されている。

また、エネルギー問題や地球温暖化問題への対策として自動車の燃費向上が求められ、それに対応する形でハイブリッド車等の新形式の車両が登場しつつある。ハイブリッド車等は、アイドリング停止、エネルギー回生、電池に蓄えた電気のみで走行可能等、これまでのエンジン自動車と大きく異なった特長・構造を持っている。従来エンジン車とこれらの車両を正確に評価することが求

められている。

これらの課題に対応するためには、これまでの規制や試験方法について基礎から改めて考え直す必要がある。本施設の目的は、電気自動車、ハイブリッド車等のいわゆる低公害車から、ガソリン車や大気汚染の大きな要因として注目されているディーゼル車までの多様な車種について、モータ付き車両の回生エネルギー量の評価や燃費を含む動力性能、自動車から排出される様々なガス状及び粒子状物質の排出実態等を、実際の使用条件を再現して明らかにすることである。

5.3.2 施設の概要

低公害車実験施設の概要を図 5.3.1 に、導入した設備一式を環境実験室、シャシーダイナモメータ設備、排出ガス測定装置、DEP 特性解析装置設備、DEP 特性評価設備、車載型実車計測設備等に分けて図 5.3.2 及び表 5.3.1 に示す。

これまで公表されている自動車の燃費や排ガス量等にかかる数値は、大半が決められた特定の条件下において計測されたものであり、実際の温度や道路の状況等を反映させた条件のもとで求められた数値ではない。たとえ

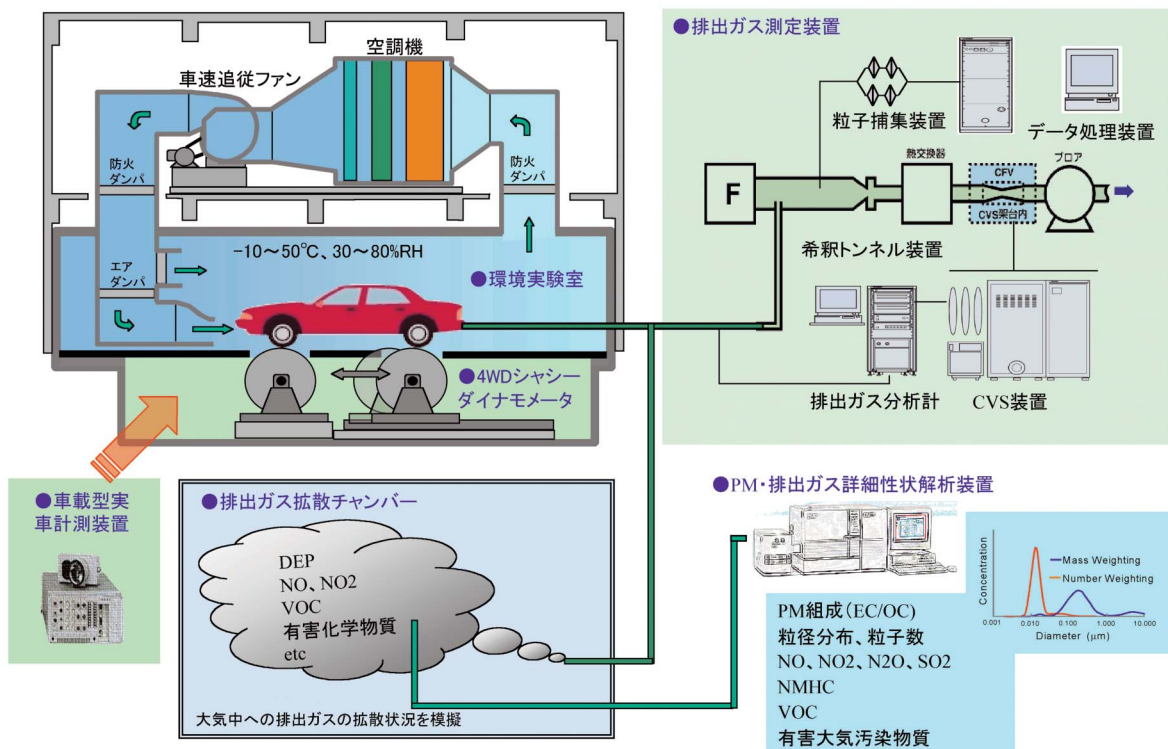
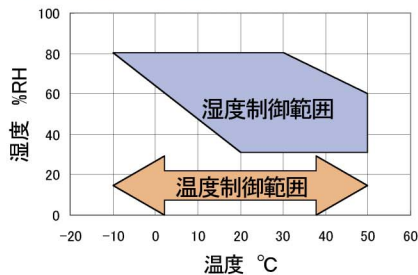


図 5.3.1 実験施設の概要

■環境実験室

試験室寸法	6m(W) × 14.1m(L) × 3.5m(H)
温度範囲	-10 ~ +50℃ ±1℃
湿度範囲	30 ~ 80%RH ±5%

●環境条件設定範囲



■シャシーダイナモメータ

項目	仕様
方式	ローラダイナモ方式4WDダイナモメータ
動力計	交流電気動力計
連続定格	吸収:150kW 駆動:130kW 70~200km/h(1ローラ当り)
過負荷定格	吸収:240kW 駆動:220kW 70km/h(1ローラ当り)
ローラ	直径:1219.2mm (48in)
	幅 :975mm(内幅:800mm、外幅:2750mm)
	材質:アルミニウム
	許容軸荷重:20kN
速度	0~200km/h
等価慣性重量	0.7~3.5ton
ホイールベース	1850~3500mm

■排出ガス測定装置

●ガソリン車用CVS装置

流量測定方式	CFV方式
流量範囲	3.5~20m3/min

●ガソリン車用希釈分析計

測定成分	分析方式
CO	NDIR
CO2	NDIR
THC	FID
NOx	CLD
CH4	GC-FID

●ディーゼル車用希釈トンネル装置

流量測定方式	CFV方式(熱交換器付)
流量範囲	5~45m3/min
備考	2段希釈トンネル付

●ディーゼル車用希釈分析計

測定成分	分析方式
CO	NDIR
CO2	NDIR
THC	FID(加熱型)
NOx	CLD(加熱型)
CH4	GC-FID

●直接分析計

測定成分	分析方式
CO(L)	NDIR
CO(H)	NDIR
CO2	NDIR
O2	磁気式
THC	FID(加熱型)
NOx	CLD(加熱型)

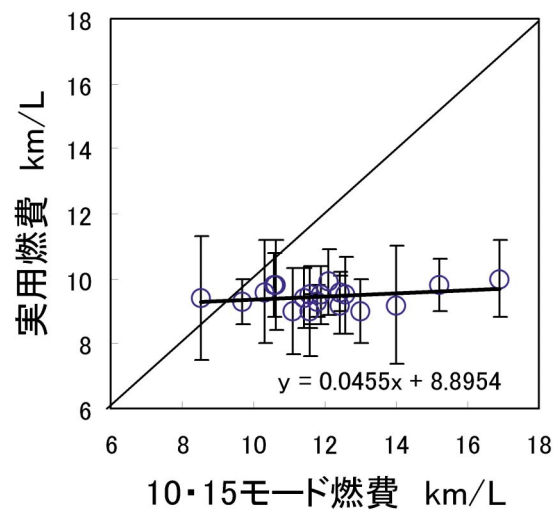
図 5.3.2 各設備の仕様

ば、自動車のカatalogにある 10.15 モード走行燃費とは、国土交通省の定めた新型自動車の試験方法（資料 1998）（TRIAS : Traffic Safety and Nuisance Research Institute's Automobile Type Approval Test Standard）において、車両の周辺空気の温度を 25℃±5℃に設定し、車両を充分暖機した状態にし、10.15 モード走行を行った時の値を示しているに過ぎない。排ガスの排出係数についても、走行モードとしては実走行モード等をもとにしてはいるが、試験温度は 25℃、道路は勾配なし等の条件下で計測した値である。ところが、実際の使用状況を鑑みると、エンジンスタート直後の走行開始、急発進・急加速、山坂道を登坂、エアコン等補機類の使用等、様々な利用条件の違いがあり得る。

それにも関わらず、前述の限られた条件下の試験で得られた値により車両を評価、特に環境面の評価を行うことやその試験結果を基に車両に税制上の優遇措置を講じること等は、山坂道等の道路状況や夏冬の温度差、運転方法の個人差等、実際の使用条件によって、燃費は大きく変動するとの広く知られた事実から、十分ではない。

また、TRIAS による試験で低燃費を示したとしても、実際の使用状況での燃費が同じような割合で向上してい

10・15モード燃費と実用燃費
2000ccAT車



出典 : <http://auto.ascii24.com/auto24/e-nenpi/>
2000年11月度 2000ccAT車ランキングベスト20

図 5.3.3 10.15 モード燃費と実用燃費の関係

表 5.3.1 PM/DEP 関連測定機器のリスト

設備名称	装置名称	仕様
DEP 特性解析装置設備 ガス成分分析、粒子の粒子径・組成・成分解析等のディーゼル排気の定性的・定量的評価のための設備		
粒子状物質測定装置		
	SMPS	分級範囲：0.01 ～ 1.0 μm 濃度範囲：2 ～ 10 ⁶ /particles/cm ³
	ELPI	分級範囲：0.03 ～ 10 μm ステージ数：12 段
	ローボリュームサンブラ	
	ロープレッシャーインパクタ	
ガス状物質測定装置		
	有害物質測定装置	自動車排ガス中の揮発性有機化合物を測定 (GC/MS)
	炭素成分測定装置	C2 ～ C12 までの炭化水素類を水素炎イオン化検出法で測定 (GC)
	アルデヒド分析装置	デニューダ式試料捕集装置付高速液体クロマトグラフ (HPLC) 連続的捕集、DNPH 法により自動分析 バッグ又は大気中から試料を自動で採取・分析
連続モニタリング装置		
	フィルタ振動式 PM 測定装置	濃度範囲：5 μg/m ³ ～ 5g/m ³
	ベータ線式 PM 測定装置	測定レンジ：0 - 1000/5000 μg/m ³
	EC/OC 測定装置 (カーボンモニタ)	粒子捕集方式：インパクタ方式 測定方式：加熱燃焼方式
	NMHC 測定装置	測定成分：CH ₄ 、NMHC、THC 測定方式：選択燃焼式+水素炎イオン化検出法 (FID) 又はガスクロマトグラフ法 (GC) 測定レンジ：一般大気及び沿道大気濃度の範囲 測定周期：連続又は 6 分以下
	BTX 測定装置	測定成分：ベンゼン、トルエン、キシレン 測定方式：ガスクロマトグラフ法 測定レンジ：0 - 50/250ppb 測定周期：15 分以内
	NO _x 測定装置	測定成分：NO、NO ₂ 、NO _x 測定方式：化学発光法 測定レンジ：一般大気及び沿道大気濃度の範囲
	CO 測定装置	測定成分：CO 測定方式：非分散型赤外分析法 測定レンジ：一般大気及び沿道大気濃度の範囲
	N ₂ O 測定装置	測定成分：N ₂ O 測定方式：非分散型赤外分析法 測定レンジ：0 - 0.2/50ppm
	SO ₂ 測定装置	測定方式：紫外線蛍光法 測定レンジ：一般大気及び沿道大気濃度の範囲
有害化学物質及び温暖化物質評価設備 ディーゼル排ガスの一部を高倍率希釈して DEP 及び排ガスを捕集・評価するための設備		
	精製空気供給装置	HC、NO _x 、CO 濃度 < 0.1ppm 供給空気流量 ≤ 22m ³ /min 供給空気温度 T _{DAR} ：10 ≤ T _{DAR} ≤ 30 °C
	高希釈倍率サンブラ	流量範囲：1m ³ /min ハイボリュームサンブラ兼用
DEP 特性評価設備 DEP の大気条件での生成過程を模擬することを目的とした設備		
	排出ガス分割採取装置	分割率：1/100 程度
	粒子評価チャンバ	内容積：35m ³ 以上 チャンバ内温度 T _c ：10 ≤ T _c ≤ 30 °C
車載型実車計測設備 車両利用時における車両情報及び利用実態を把握するための設備		
	車両動態計測装置	車両情報 (速度、加減速度、走行位置：GPS、排ガス濃度：NO _x 等) 利用実態 (利用時間、走行時間等)

ると言い難いことも図 5.3.3 から明らかである。燃費において生じている問題以上の問題が、自動車排ガスについて起きていると推測することは、排出量がエンジンの

負荷に大きく依存することから想像に難くない。

そのためこの施設には、現実の使用状況を再現するために種々の工夫を導入した。実際の車両の使用状況を明

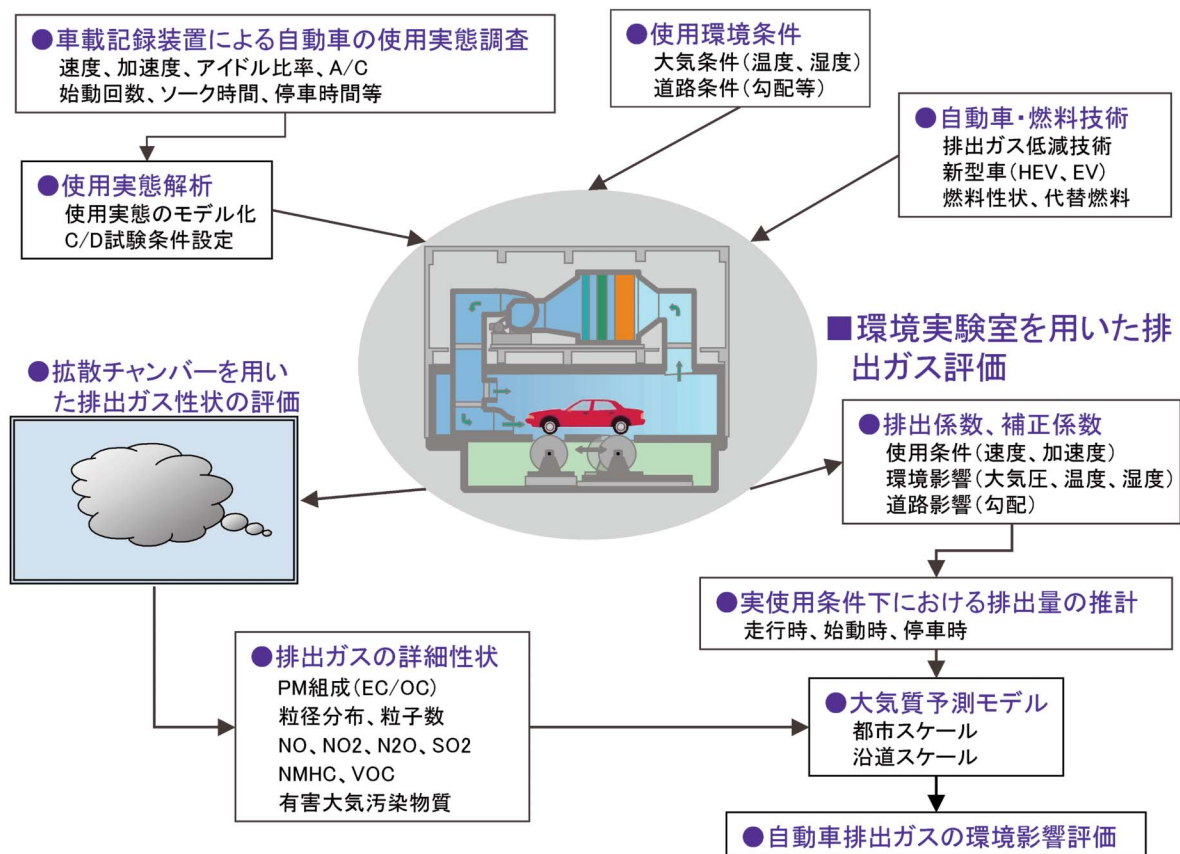


図 5.3.4 施設を活用した研究の例

らかにするための車載型実車計測設備、試験時の温度・湿度を実使用環境に近づけるための環境実験室とその空調設備、山坂道や高架道路等の道路勾配を模擬できるように設計したシャーシダイナモメータ設備である。また、自動車排ガスの分析としては一般的な排ガス及び排出粒子の計測設備に加えて、自動車排ガスが大気中に瞬間的に拡散する状態を再現・計測するための高希釈倍率サンプル、排ガスの時間的空間的な動態を模擬するための拡散チャンバ等を装備した。これらの設備は、現在重量規制されている PM が DPF や触媒などにより微粒子化され、重量としては減少するが粒子個数としての変化が予測できないことから、今後どのような問題が発生する可能性があるかを明らかにするために設計・開発・導入した設備である。さらに排ガスの計測用に環境大気用の計測装置を導入し、排気管から出た自動車排ガスを計測するとの視点からではなく、環境中で拡散・希釈された大気汚染計測の視点から自動車排ガスの評価を行うことができる施設となっている。

5.3.3 低公害車実験施設の活用による研究

実験施設に導入した設備を活用して行いたいと考えている種々の研究の例を図 5.3.4 に示す。これらの研究は大きく分けると、自動車の使用実態を把握するための調査・解析、この調査結果をもとに実使用状況を模した正確な排ガス及び排気粒子の計測、各種自動車や排ガス対策等技術の評価、ナノ粒子や有害大気汚染物質などの未把握の排出源データの収集、これらの汚染物質の環境中での挙動の解明、排出モデルや環境モデルの構築など、広範なものである。これらのうち、本施設活用の基礎データともなる自動車の使用実態の調査及び解析は既に着手しており、これまでの結果の概要を次項に述べる。

5.3.4 自動車の実使用状況の調査と結果の解析

自動車の実使用状況の調査は、平成 11 年から調査方法・計測器の検討をはじめ、平成 12 年 3 月から計測器を一般のドライバーの協力を得て車両に搭載し、データの収集と結果の解析を進めてきた。

この背景には、規制によって車両単体ではクリーン化

が進んでいるが、環境基準達成率などをみるとそれほど
の改善がなく、その理由の一つとして、交通量の増加や
車両の高級化・大型化と共に、規制のもととなっている
排ガスや燃費の試験法が自動車の使用実態を反映してい
ないと疑われていることがある。

従来、試験に用いる走行モード（走行実態）の計測に
は大がかりな装置と車両の改造が必要であり、データ取
集に手間や困難が伴った。そこで、簡便な計測器で使用

状況や走行モードを明らかにする方法を検討し、営業車
の運行管理に使われていた全球測位システム（GPS：
Global Positioning System）を利用した計測器を転用する
ことにした。この計測器を数台の車両に取り付けて、時
系列位置情報の形で使用実態のデータを収集し、得られ
たデータを解析して従来の走行モードの計測と精度等を
比較検討した。さらに、運転方法の個人差が燃費等に及
ぼす影響について解析を行った。

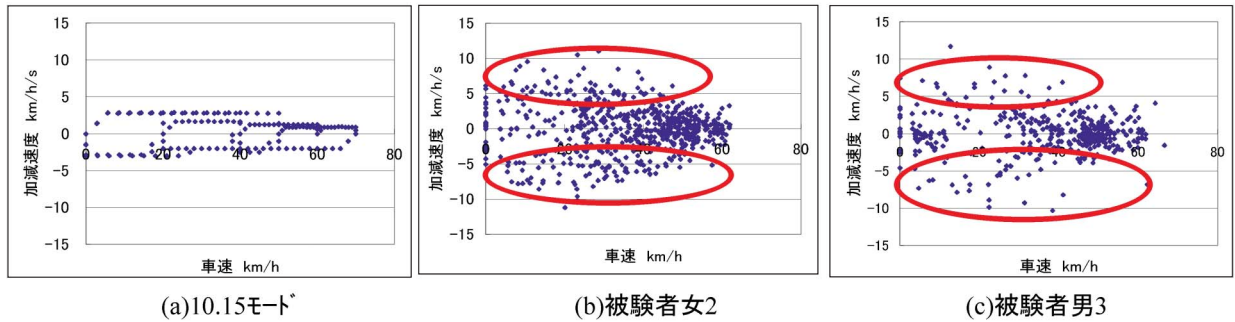


図 5.3.5 10.15 モードと実走行における車速と速度の関係

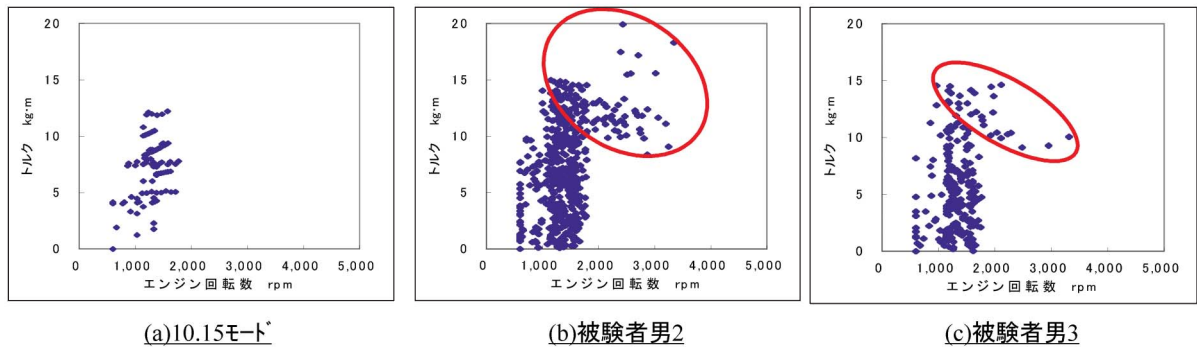


図 5.3.6 走行時の必要トルクとエンジン回転数

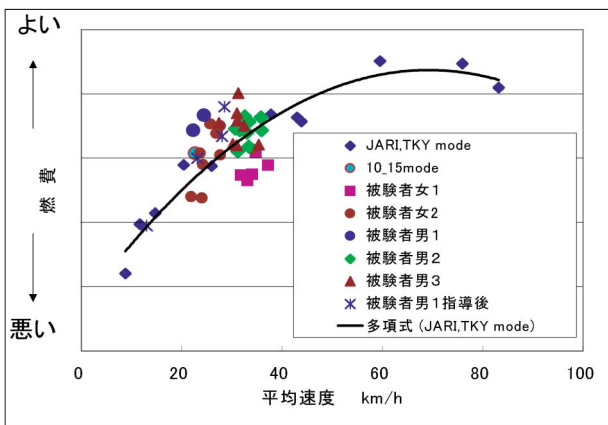


図 5.3.7 平均速度と燃費の関係
(曲線は(財)日本自動車研究所(JARI)及び
東京都環境科学研究所(TKY)で求められた
平均速度と燃費との関係の近似式)

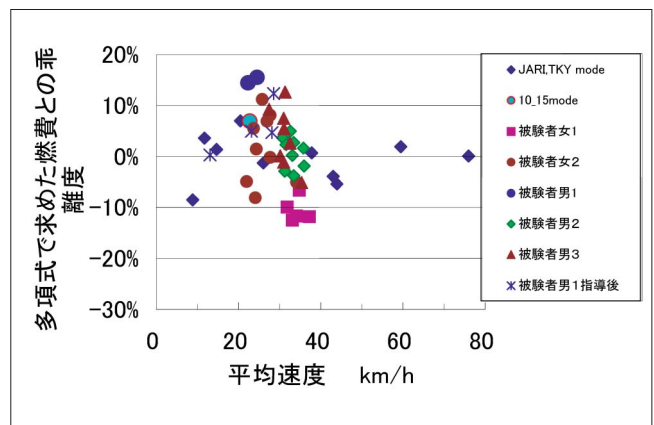


図 5.3.8 (財)日本自動車研究所及び東京都環境科学研究所
で求められた平均速度と燃費との近似式からのずれ

その結果の一部を図5.3.5～図5.3.8に示す。つくば周辺の走行データであるとの制限はあるが、1) この測定方法で走行実態を把握することが十分可能であること、2) 実走行では従来の試験モードに比べて2倍以上大きな加減速度の走行を行うとともに、エンジン回転域を広く使用すること、3) 運転方法の個人差で3割、同一人物でも2割程度の燃費変動があり得ることなどが明らかとなった(近藤ら2001)。

なお、高層ビルや高架道路等が複雑に絡み合った大都市等の地域では、GPS 衛星からの電波が受信しづらいため適用が困難なこと、利用時間や移動距離の短い車両の利用(ショートトリップ)については、GPS 衛星を補足するまでの時間やGPS 計測における精度上の誤差等により把握が難しい等、この方法にはまだ改善の余地が

ある。

今後は、計測器を多くの車両に取り付けて詳細な使用実態の把握に努めるとともに、ショートトリップの把握手法の検討を行う予定である。さらに、低公害車実験施設を活用してその車両の走行状況を再現し、燃費性能の評価や排ガス等の排出実態を正確に把握したい。

文献

運輸省自動車交通局技術安全部審査課・交通安全公害研究所自動車審査部監修；新型自動車審査関係基準集、TRIAS 5-3-1996、702-725、1998

近藤美則、小林伸治、森口祐一、田邊潔：実走行データを用いた燃費・CO₂ 排出量とドライバーの運転特性との関係による解析、エネルギー・資源学会第20回研究発表会講演論文集、399-404、2001

5.4 交通・物流システム面の対策と対策効果の予測手法

松橋 啓介、森口 祐一

5.4.1 はじめに

交通部門は、PM_{2.5}・DEP 発生源の中でも主要な人為発生源の一つである。本節では、交通部門の中でもDEP への寄与が特に高い貨物輸送および物流に関連する対策と効果予測手法に関して、現状と課題の整理を行う。

5.4.2 交通公害対策と効果予測のフレーム

対策の現状と課題の整理にあたって、交通公害対策と効果予測のフレームを示す。森口ら (1993) による広域交通公害シミュレーションシステム (RTPSS: Regional Traffic Pollution Simulation System) の構造を再整理して、図5.4.1 に示すフレームを作成した。

交通公害対策においては、環境中の大気汚染物質濃度を環境基準値以下に抑制するために、排出量の削減、特に走行距離あたりの排出量を削減するための単体規制が主に行われてきた。しかし、環境基準達成状況が芳しくないことから、交通量そのものの削減や曝露時の影響低減等の対策も必要となっている。

排出量削減策には、上述の通り、車両の排気ガスについて、走行距離あたり（重量車についてはエンジン出力

あたり）の大気汚染物質の排出量を規制するいわゆる単体規制がある。わが国では、大気汚染防止法により自動車排出ガスの量の許容限度を定め、道路運送車両法に基づく保安基準で自動車排出ガスの規制に必要な型式認定の審査等の事項を定めている。一方、低公害車普及促進策は、汚染物質の排出量が少ない自動車の割合を増やす施策である。なお、高濃度の大気汚染の発生を避ける対策の一つとして、排気ガスが滞留しない建築物および道路の設計をする方法もあるが、大気汚染の根本的解決のためには排出量の削減が重要である。

尼崎公害訴訟の判決を受けて、激甚な高濃度にさらされる地域については、交通量削減による対策の必要性が認識されるようになった。区間交通量を削減する対策には、直接的な通行規制の他、バイパス整備や迂回ルート of 通行料値下げなどによって交通量の分散を誘導する対策などがある。

ただし、新規のバイパス整備は、全体として自動車の利用条件を改善し、新たな道路交通需要を喚起する結果につながる恐れがある。そのため、交通需要管理 (TDM : Transportation Demand Management) の重要性が指摘されている。経済協力開発機構 (OECD) においても環境に配慮した持続可能な交通 (EST: Environmentally Sustainable Transport) の政策ガイドラインが承認されるなど (OECD、2001)、自動車交通需要を抜本的に低減

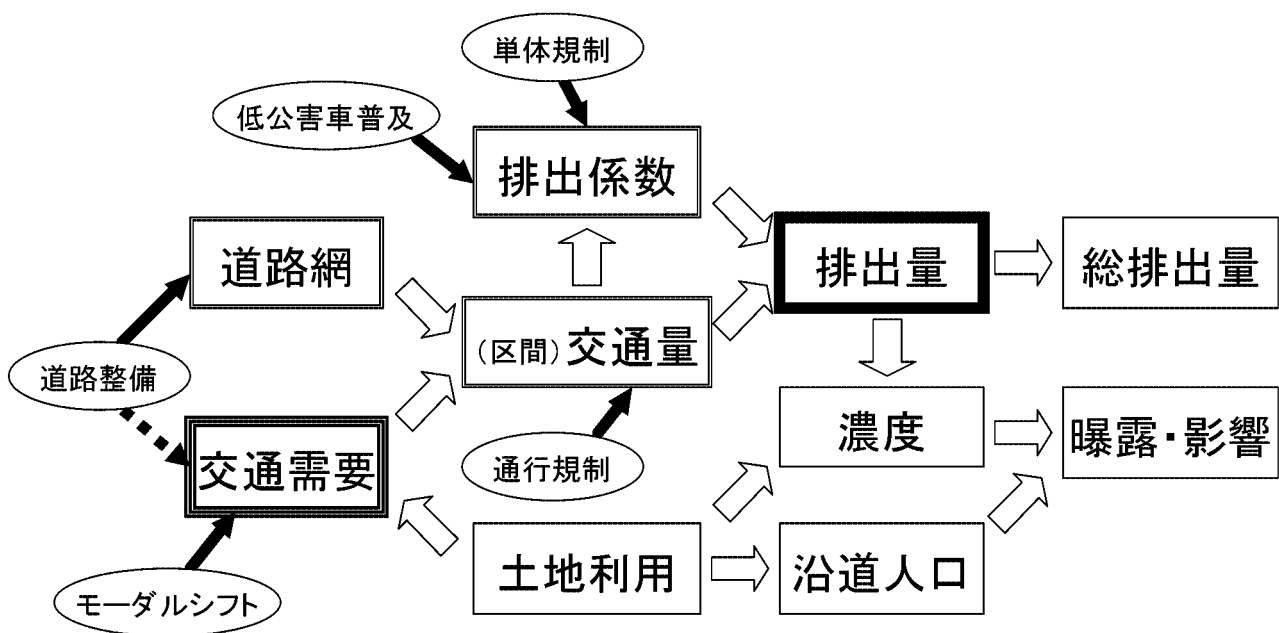


図5.4.1 交通-環境シミュレーションの基本構造 (森口ら (1993) を加工)

させるために土地利用計画や経済的誘導策の導入を検討する必要性が国際的に認められてきている。

高濃度の汚染地域では健康影響を低減させるために曝露を回避することも重要な対策である。具体的には、沿道に緩衝緑地帯を設けたり、浄化施設を設置するなどの対策が取られている。なお、曝露人口を根本的に減らすために、幹線道路と住宅系土地利用を隣接させないよう都市計画によって解決をはかる方法もある。

5.4.3 交通・物流面の対策

前節で示した交通と環境の基本的なフレームを踏まえて、交通・物流面の対策を整理する。なお、単体規制等の車両側の対策と燃料性状等に関する対策については、5.2 節で述べており、ここではその他の交通量削減等に関する対策やその方法について述べる。

1) 経済的手法による対策

対策の方法には、直接規制の他に税・課徴金などの経済的手法がある。経済学者の多くは、税や課徴金による誘導策は、社会的に見て費用効率的な公共政策を行う上で直接規制よりも適した手段であると主張している。たとえば自動車利用者が引き起こす環境影響や交通事故などの社会に対する悪影響を費用換算したものを社会的費用と呼び、税や課徴金によって社会的費用を輸送費用に反映させて利用者に負担させることで、適正な利用が図られ、結果として必要な水準まで環境影響を低減することができると考えられている。課税の一つの考え方は、排出一単位あたりの費用を算出して、その定額を課税するというピグー的課税である。そのためには、あらゆる損害を貨幣価値によって算定する必要がある。しかし、すべての影響について貨幣価値を決定することは現実的では無く、したがって課金額の決定と根拠付けが非常に困難になるという根本的な問題をピグー的課税は有している。そのため、他方では、所定の方法が達成されるまで税率を変えていくポーモル＝オーツのアプローチが提案されている（石、1999）。

税や課徴金が自動車利用に与える影響は、賦課する段階によって異なる。自動車関連税制には、購入時の取得税、保有時の重量税と自動車税、使用時の燃料課税がある。理論的には、大気汚染物質の排出量が燃料消費にほ

ぼ比例する場合には、燃料課税を行うことで望ましい環境の状態が達成されることとなる。しかし実際の購入車種選択時においては、使用年数全体の燃料費の総額は購入時の車両金額および諸費用の総額に比較して過小評価される傾向があることが指摘されている。さらに、車両は一度購入されると廃車になるまで影響を及ぼしつづけることから、大気汚染改善の目標を達成するためには、使用時の燃料課税だけでなく、購入時の諸費用となる取得税や保有に対して課される重量税、自動車税のグリーン化を併せて行うことがより効果的であることが指摘されている。

なお、低公害車の普及を目標として平成13年4月から導入された自動車税制のグリーン化では、環境負荷の小さい自動車の自動車取得税・自動車税を軽減する措置が取られており、そのうち自動車税については、環境負荷の大きい古いディーゼル車の増税と併せて税収の総額を一定とする税収中立の考え方を採用している。

2) 交通流に関する対策

渋滞解消と平均走行速度の向上による環境改善効果を理由の一つとして、環状道路の整備や立体交差化等によるボトルネック解消が推進されている。同じ車両であっても走行速度によって汚染物質排出量が異なり、速度が一定かつ中程度の方が一般的に走行距離あたりの排出量が削減される傾向にあるためである。

交通流に対する経済的手段としては、ロードプライシングが検討されている。たとえば尼崎市の国道43号・阪神高速道路や東京都の環状7号線以内など大気汚染の深刻な特定の区間および地域が検討対象となっている。前者の場合、高速道路の特定区間の料金調整によって貨物車の走行経路を誘導するものであるため、新たな設備等が少なく済み、導入が比較的容易である。それに対して、面的な地域を対象とする後者の場合、効率的課金システムの確立、迂回交通への対応などの問題点が指摘されている（東京都環境局、2001）。なお、直接的な規制として、東京都、埼玉県、千葉県は、PMの排出が特に多い車両の走行禁止を打ち出している。

交通流対策にあたっては、『鉛と鞭』のバランスが肝要である。バイパスの整備により通過交通が迂回し、渋滞長が減少することで、局所的な汚染は幾分か緩和され

る。しかし、都市全体を見渡すと、ボトルネックを一つ解消しても、次の場所にボトルネックが移動するだけに終わるおそれがある。また、交通流を改善するために追加的な道路整備を行うと、地域の交通ポテンシャルを向上させる点でのメリットもあるが、同時に新規の交通需要を喚起し、以前と同程度の渋滞を引き起こすおそれがある。このような事態を回避するため、個別対策の実施に当たっては、TDM 施策との整合性をチェックする必要がある。

3) 自動車交通需要の低減策

図 5.1.2 の PM 排出量を見ると、寄与の大きい貨物車の交通需要を低減させることが、効率的な対策であると考えられる。しかし、旅客輸送における自動車交通需要の低減も、交通流の円滑化を介して環境負荷の低減にある程度貢献すると考えられる。自動車交通需要を抑制する方法には、主に効率化とモーダルシフトの二つがある。物流面の効率化については、次項で述べる。

公共交通機関等へのモーダルシフトの必要性が永らく言われ続けている。しかし、個別の交通行動の決定においては利便性やコスト面からの優位性で交通手段が決められるため、自動車の利便性やコストが代替交通手段より優っている限りモーダルシフトが進まないのは当然である。たとえば、社会実験でパークアンドライド推進の試みが見られるが、自動車低減効果の確認にはいたらなかった事例が報告されている（国土交通省道路局、2001）。札幌市のパークアンドライドの例では、利用者の従前の交通手段の大半は徒歩・自転車・バスと地下鉄の乗り継ぎであり、パークアンドライド支援策が末端交通手段の自動車利用を促進する結果となったことが土木計画学研究発表会（2001、高知）の討論の中で指摘された。

近年では、自動車による交通需要を抑制するために、公共交通を利用しやすいように沿線に比較的密度の高い開発を行う公共交通指向型開発（TOD: Transit Oriented Development）など、効率的な輸送を可能とするための多面的な条件整備が必要と考えられるようになってきている（たとえば、（財）運輸政策研究機構、1999）。

また、交通手段の意思決定において、駐車場の入手可能性および駐車料金が影響を与えることが指摘されてい

る。特に旅客輸送で代替交通手段がある場合には、都心部の駐車場の総量規制や、駐車場設置に対する事業者への課徴金の導入などの方法によって、自動車交通需要の削減が可能になると考えられている。なお、駐車料金が高い場合、路上駐車が増加するおそれがあるため、パーキングメータの設置、取り締まりの効率化、自動車乗り入れ禁止区域の設定、周辺部代替駐車場の整備などを組み合わせる必要がある。

4) 物流の効率化

DEP のように重量貨物車の寄与の大きい物質の排出量を削減するためには、物流の効率化が重要である。自家用トラックは比較的積載率が低く輸送効率が悪い傾向にあるのに対して、営業用トラックは、専門業者としてのノウハウを活用して集約化や積合せによる高効率化が達成される。

輸送効率を向上させるために、卸売り、運輸、倉庫などの流通・物流施設を都心に集中立地させると、交通渋滞および局所的な大気汚染の悪化が懸念される。そのため、必ずしも都心に立地する必要のない積み替え施設を郊外に集約移転させる目的で、1966 年に流通市街地整備法が定められ、物流センターの整備が進められている。

幹線輸送だけでなく、地域配送の効率化を目指す取り組みも各地で行われている。福岡天神や西新宿では、各約 40 事業者が参加して、地域共同輸送が行われている。各社個別に行っていた配送を、拠点で配送先別に積み替えて共同配送とすることで、配送車両の大幅な削減が可能となり、参加企業の総走行距離は約 7 割減少したと報告されている（鹿島、1997）。この事例では、地域の貨物輸送全般に対して約 15 % のシェアを占めるに至っている。しかし同時に、共同化が行われるのは配送業務のみに偏り、集荷は共同化が困難なことが指摘されている。集荷には営業活動が伴うため、共同化になじまないと考えられている。さいたま新都心でも同様の取り組みが始められたが、同様の問題点があることが指摘されている（谷口ら、2001）。

5) 沿道対策等

沿道対策には、高濃度汚染対策と曝露対策の二つの側面がある。環境施設帯は、緩衝緑地として周辺土地利用と道路との隔離に役立つと同時に、大気浄化のために植

樹などがされる。他に高濃度汚染大気を浄化する対策として土壌や光触媒による NO_x 浄化システム等が試用されている。また、都市内を通過する主要幹線道路については、道路を地下化もしくはシェルター化し、汚染を換気施設で浄化することで大気汚染物質の環境中への排出量を削減することができる。しかし、この方法はコストが非常に高くなる点が問題である。

6) その他

他に、対策の進め方では、事業者や自動車メーカーに対する総量規制や自主規制の効果が期待される。PM_{2.5}・DEP は、特定の車両からの排出量の寄与が高いことが報告されていることから、違反車両や整備不良車両の検査・取り締まりなどにも一定の効果が期待される。

5.4.4 対策効果の予測と課題

図 5.4.2 に、排出量削減に寄与する対策とその削減効果の推計に必要な要素およびモデルを整理した。図 5.4.1 に示したように、排出量は排出係数に交通量を乗じて求めることができる。より詳細な推計を行うためには、車種の他に、燃料種別、登録年、走行速度を考慮する必要がある。マクロ推計では、道路交通センサスの混雑時平均旅行速度を走行速度に用いるが、区間道路あたりの排出量を正しく推計するためには、道路網と区間交通量から、交通流モデルを介して、平均走行速度を求める必要がある。さらに、5.3 節の自動車排ガス測定施設や車載計測研究の成果を通じて、走行実態に応じた排出

係数式を得ることができれば、より正確・詳細な排出量推計が可能となる。走行動態の把握は、交通流シミュレーション（マイクロシミュレーション）の改善にも役立つことが期待される。マイクロシミュレーションは、車両毎の走行時の挙動をシミュレーションして信号制御等の改善に役立てられていたが、計算機能力の発達に伴い、より大規模なネットワークの交通量予測への拡張が試みられている。なお、職住立地選択、活動選択、目的地選択、時間選択を含めた個人の交通行動に関するシミュレーションをマイクロシミュレーションと呼ぶこともある（(社)交通工学研究会、2000）。

一方、道路整備や土地利用規制、モーダルシフト促進施策などによる排出量削減効果を予測するためには、古典的な四段階推定法などによる交通量推計が依然として利用されている。四段階推定法は、市町村や町丁字等の地域（以下、ゾーン）単位のデータを元にして、ゾーンの発生集中交通量、ゾーン間の分布交通量、交通機関別の分担交通量、ルート別の配分交通量の四段階で交通量を推計する手法である。配分交通量推計には、実測の交通量と速度を元に定式化された Q-V 式を用いた容量制約付分割配分法が多く用いられている（(社)交通工学研究会、2001）。（財）石油産業活性化センター、2000）。しかし、走行速度の現況再現性はあまり高くなく、パラメータの設定によって結果はいかようにも変化しうることが指摘されている（土木学会、2001）。

PM_{2.5}・DEP 問題に対する交通・物流システム面の対

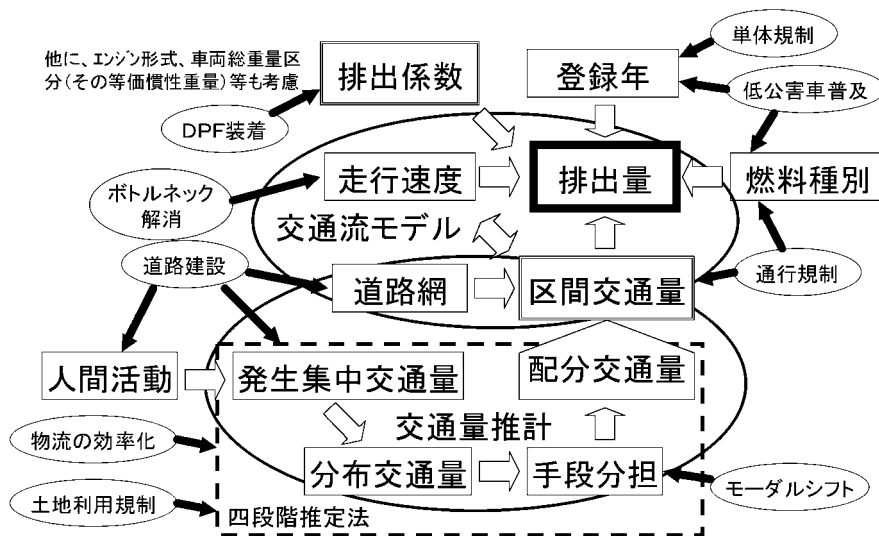


図 5.4.2 排出量削減効果予測モデル

策を検討する際には、問題の種類に応じた対策シナリオと対策効果予測方法を採用することとなる。沿道レベルの排出実態を把握するためには、交通流モデルが必要となる。通行規制等の効果予測を地域レベルで行うためには、交通量推計が必要となる。現状では、この両者の組み合わせによって対策効果の把握を行うことが妥当であろう。なお、今後のPM_{2.5}・DEP研究によってナノ粒子による健康影響などの新しい知見が得られれば、新たな対策やその効果の把握が必要となる可能性もある。

5.4.5 対策における今後の展望

輸送を効率的に行うために、土地利用を都市部に高密度に集積させるコンパクトシティの考え方が注目を集めている。一方で、地域大気汚染防止の観点からは、交通量の過度の集中を避けることも求められる。交通に起因する環境影響を低減するために交通計画と土地利用計画を統合的に計画する必要性が指摘されている。そのためには、土地利用変化が起きた場合の交通発生量からPM_{2.5}・DEP排出の地域分布までを推計・予測する必要がある。

曝露人口を根本的に減少させるためには、主要幹線道路と住宅系の土地利用を空間的に十分に分離することが効果的であると考えられる。しかし、わが国では、道路建設に伴ってロードサイド店舗が誘致され、新たな住宅団地開発が行われるケースが多い。道路建設に係る土地収用や費用負担の仕組みを見直さない限り、郊外部でも沿道大気汚染が解決困難な環境問題となるおそれがある。

貨物輸送・物流面の対策は、旅客輸送に比較して、相対的に効果が得られにくく、導入が困難な可能性がある。たとえば、産業界・トラック業界は、輸送活動そのものを経済活動としているため、ジャストインタイムや宅配便などのサービスの低下や、コスト増加につながる規制強化に対する反発が非常に強い。また、鉄道貨物や内航船からトラック輸送へ進んだモーダルシフトを逆方向に戻すためには、施設整備にコストがかかる恐れがある。他の分野にもまして、対策の導入にあたって国民的な合意が必要となると考えられる。そのため、PM_{2.5}・DEPの動態解明と影響評価による問題の見極めが重要である。道路特定財源の見直しをめぐって、自動車関連税の使

途について議論されている。現行の自動車関連税制は、受益者負担、道路損傷負担金、担税力、資産課税といった観点から課税されているものであるため、必ずしもすべてを道路整備に利用すべきものでもない。軽自動車や商用車に関しては、税制等における軽減措置が取られているため、現状の車種構成に影響を与えている。たとえば、軽油はガソリンよりも税負担が少ないことから、乗用車にディーゼル車が増えていることが指摘されている。産業振興に加えて環境影響にも配慮して両面から税制を整理し直す必要があると考えられる。

モーダルシフトの成功の鍵は、代替交通手段が自動車に対して相対的な利便性を示すことができるか否かにかかっている。政策としてモーダルシフトを促進するならば、ドイツのように自動車利用者からの税収に財源を求めて代替交通手段の建設や運営に補助金を出すことで、状況は大きく変化すると考えられる。近年、少量多頻度の輸送に適したトラック輸送のシェアが増加傾向にあったが、今後はロジスティクス技術の向上を生かして、共同輸配送や鉄道や内航船へのモーダルシフトにも期待がされる。

文献

- 森口祐一・西岡秀三・清水浩(1993)広域的な道路交通公害対策による環境改善効果の予測システムの開発。土木計画学研究・論文集、11、279-286。
- OECD(2001) The EST Guidelines。
<http://www.oecd.org/env/ccst/test/>
- 環境庁大気保全局(1999)日本の自動車環境対策。
- 石弘光(1999)環境税とは何か。岩波新書、600。
- 東京都環境局(2001)東京都ロードプライシング検討委員会報告書。
- 国土交通省道路局(2001)社会実験実施結果の総括(平成11,12年度)。<http://www.mlit.go.jp/road/>。
- (財)運輸政策研究機構(1999)交通モード間の交通需要誘導策に関する調査研究報告書。運政機構資料100002。
- 鹿島茂(1997)都市内物流システムと共同集配送。物流・沿道環境・立体道路、地域科学研究会。
- 谷口栄一・根本敏則・小谷道泰・山田忠史・飯田祐三・家田仁・福田敦・佐野可寸志・加藤浩徳・高橋洋二・苦瀬博仁・兵頭哲朗(2001)都市圏物流のモデル化・政策・評価。土木計画学研究・講演集、24。
- (社)交通工学研究会(2000)やさしい交通シミュレーション。丸善。
- (社)交通工学研究会(2001)交通工学ハンドブック。丸善。
- (財)石油産業活性化センター(2000)将来自動車交通流の推計

調査. 平成 11 年度技術開発基盤等整備事業.
土木学会土木計画学研究小委員会交通調査技術検討小委員会
(2001) 都市交通調査を考える。土木計画学シンポジウム、

38.

6. PM_{2.5}・DEPの健康影響

6.1 毒性学

6.1.1 はじめに

小林隆弘

大気中で粒径が2.5 μmより小さく0.3 μm近辺にピークを持つ微小粒子はPM_{2.5}と呼ばれディーゼル粒子(DEP)や硫酸塩など人為起源の成分を多く含んでいる。PM_{2.5}のうちDEPは発がん作用があることで問題となってきた。発がんに関する報告は多いが、動物実験で見られる粒子の過負荷による発がんの問題をどのように評価するかが問題となっている。DEPには喘息やアレルギー性鼻炎や結膜炎などのアレルギー関連疾患を増悪させる作用があることや、比較的低濃度でも作用が見られることから問題となっている。また、精子産生能などの生殖機能への影響についても比較的低濃度で観察されることから詳細な検討が必要とされている。さらに、国際的にも大きな問題となってきたのがPM_{2.5}の大気環境中濃度が高いと死亡率が増加するという疫学調査の結果である。米国や米国以外の国々の調査でも一貫して同様の結果が観察されている。高感受性群として循環や呼吸機能に疾患がある者、老人、新生児などが挙げられている。動物実験におけるPM_{2.5}吸入による死亡率上昇の再現、影響の機構の解明などの科学的知見の充実が求められている。また、数が多く表面積の大きい0.1 μm以下の超微小粒子の健康影響の問題も今後出てくるものと思われる。本報告では毒性・影響が問題となっているディーゼル粒子(DEP)を含むディーゼル排気についてまとめた。

6.1.2 沈着と動態

小林隆弘

(1) 沈着

a. 実験的研究による沈着量

粒子が気道に沈着することに関わる要因は以下に挙げるように多数ある。気道の形態、換気特性(呼吸の速度、換気の体積)、物理的な過程(拡散、衝突、沈降、など)や粒子の物理、化学的な特性(粒子径、形、密度、静電的性質)などがある。

ディーゼル排気(DE)の直径は約0.2 μmである。吸入

した粒子の沈着を¹³¹Baを含むバリウムと¹⁴Cを含むn-ヘキサデカンを混入させたディーゼル燃料を燃焼させた気道への沈着が検討されている。また、⁶⁷Ga₂O₃粒子を吸入させ気道への沈着が検討されている。Chanら(1981)は、F344ラットを用い沈着効率を検討し、¹³¹Baから15±6%(10%肺胞、5%気管、気管支)、肺組織の試料に含まれる¹⁴Cから17±2%(11%肺胞、6%気管、気管支)であることを見いだした。Wolffら(1982)は、全身曝露で気道の沈着量を検討した。F344ラットを用い直径0.1 μmの⁶⁷Ga₂O₃粒子を1日5時間曝露を行った。吸入した粒子のおおよそ15%が沈着した。Wolffら(1984)は、F344ラットに直径0.1 μmの⁶⁷Ga₂O₃粒子を30 min曝露を行った。鼻咽頭、気管支、肺への沈着はそれぞれ9、5、11%であった。Wolffら(1987)は、F344ラットに直径0.1 μmの⁶⁷Ga₂O₃粒子および直径2.0 μmの¹³⁴Csを融合させたアルミノ珪酸粒子をディーゼル排気(粒子濃度が0、0.35、3.5、7 mg/m³にて1日7時間、1週5日間で24ヶ月間曝露した。肺での沈着はほとんどどの濃度でも変わらなかった。粒子濃度が0、0.35、3.5、7 mg/m³において⁶⁷Ga₂O₃粒子では9.2、12.6、11.6、10.7%であった。また、¹³⁴Cs-FAPではそれぞれ、6.6、7.7、5.4、8.1%であった。Heyderら(1986)は、鼻への沈着は0.4 μm以下ではきわめて少ないと報告している。Raabeら(1982)は、吸入した空力学的な直径の中央値として、おおよそ1、3、5、10 μmの目の粗い不溶性粒子の局所沈着については5種の小型の齧歯類(CF1マウス、ゴールデンシリアンハムスター、Fischer 344ラット、Hartley系モルモット、ニュージーランドラビット)で行った。直径0.05 μmのエアロゾルについても研究した。放射性同位体¹⁶⁹Ybで標識したアルミノ珪酸塩に融合させ(2.46 g/cm³)、様々な大きさの気管支、咽頭、気管、胃腸の組織から放射アッセイで沈着量を測定したところ、鼻部から咽頭にかけて3 μm以上の粒子の沈着が高く、5 μm以上の粒子では90%以上が同部位に沈着していることが明らかになった。反対に肺では大きな粒子は存在が見られなかった。0.2-0.3 μmの粒子の肺への沈着はマウス、ハムスター、ラット、モルモット、家兎ではそれぞれ45、7.5、13、32、13%であった。

以上のように、ラットやモルモットを使った場合、概

ねDEPの合計の10から20%が沈着する。一方ヒトの場合、0.2 μm の粒子の肺胞沈着効率は10から20%であると報告されている。

b. モデルを使った沈着の推定

形態計測にもとづいた呼吸器の解剖学的モデルや粒子の物理・化学的な特性と動力学的な挙動や呼吸パターンを考慮した沈着の推定が行われている。

Schum ら (1980) は、ほ乳動物の肺、気道へのエアロゾル沈着の理論的推定を行った。沈着の算出は 1) ほ乳類の気管支に見られる非対称分枝パターンの反映された解剖学的モデル、2) 粒子のサイズと濃度を含む吸入粒子の物理化学的特徴、3) 肺の機能 (換気量と呼吸の速度を含む吸入パターン)、に依存するとした。粒子の密度を 1.0 g/cm^3 としたとき、直径が $2 \mu\text{m}$ の粒子の場合このモデルによる鼻部、気管 - 気管支部、肺での沈着はそれぞれ 38.2、5.97、10.87% であった。直径が $0.32 \mu\text{m}$ の粒子の場合このモデルによる鼻部、気管 - 気管支部、肺での沈着はそれぞれ 2.5、1.63、5.88% であった。また、直径が $0.06 \mu\text{m}$ の粒子の場合このモデルによる鼻部、気管 - 気管支部、肺での沈着はそれぞれ 4.7、3.05、11.27% であった。

Yeh ら (1980) は、シリコンゴムを使った詳細な形態計測的測定に基づくヒトの肺気道モデルを使い吸入した粒子の沈着に応用した。Tidal volume が 750 cm^3 の場合、直径が $2 \mu\text{m}$ の粒子の場合このモデルによる鼻部、気管 - 気管支部、肺での沈着はそれぞれ 45.4、3.93、17.8% であった。直径が $0.2 \mu\text{m}$ の粒子の場合このモデルによる鼻部、気管 - 気管支部、肺での沈着はそれぞれ 0、3.3、14.8% であった。直径が $0.06 \mu\text{m}$ の粒子の場合このモデルによる鼻部、気管 - 気管支部、肺での沈着はそれぞれ 0、9.8、34.4% であった。

Yu ら (1978) は、気道に沿った粒子の沈着を一定の呼吸 (吸入、停止、呼出、停止) から計算した。Tidal volume が 750 cm^3 の場合、直径が $2 \mu\text{m}$ の粒子の場合このモデルによる鼻部、気管 - 気管支部、肺での沈着はそれぞれ約 45、7、20% であった。直径が $0.2 \mu\text{m}$ の粒子の場合このモデルによる鼻部、気管 - 気管支部、肺での沈着はそれぞれ 0、2.5、19% であった。直径が $0.06 \mu\text{m}$

の粒子の場合このモデルによる鼻部、気管 - 気管支部、肺での沈着はそれぞれ 0、11、45% であった。

Yu ら (1987) は、若いヒトのDEPの沈着パターンの予想を数学モデルを利用して行った。DEPの物理的な特性と動力学的な挙動、組織学的データと形態学的な測定を基にしたヒトの新生児から大人までの解剖学的な肺モデルを用いた。

DEPの全および肺胞沈着量は子供は大人に比較し30、20%高かった。若者におけるDEPの沈着は成人と類似したパターンが見られた。MMADが $0.2 \mu\text{m}$ の粒子では20歳でこのモデルによる鼻部、気管 - 気管支部、肺での沈着はそれぞれ4、4、7.5%であった。

以上、 $0.2 \mu\text{m}$ 近辺($0.2\text{-}0.32 \mu\text{m}$)の粒子では鼻部、気管 - 気管支部、肺での沈着はそれぞれ0-4%、1.63-4%、5.88-19%、また、 $0.06 \mu\text{m}$ の粒子では鼻部、気管 - 気管支部、肺での沈着はそれぞれ0-4.7%、3.05-11%、11.27-45%の範囲での推算値が報告されている。

(2) 動態

a. 粒子状物質の動態

肺に沈着したDEPは粘液線毛運動やマクロファージの貪食によって肺外にクリアランスされる。沈着したもののからクリアランスされたものを除いたものが滞留している粒子となる。肺胞からの主にマクロファージによると考えられるDEPのクリアランスは粘液線毛運動によるクリアランスよりも非常に遅い。 ^{131}Ba や ^{14}C で放射能標識したDEPを用いた研究において、ラットでは粘膜線毛運動、マクロファージによるクリアランスによる半減期はそれぞれ1日および60および80日と推定されている。粒子の肺負荷が高くなるにつれ滞留半減期が長くなる。これはマクロファージの貪食できる粒子の容積が限られていることからクリアランスは低下すると考えられている。このことはラットに TiO_2 微粒子を曝露した場合においても見いだされている(Ferinら、1978)。

肺あたり1 mg以上の粒子の肺負荷で滞留半減期の2倍対数と肺負荷のあいだには直線関係が認められる。肺負荷が肺あたり1から60mgに増加した場合肺胞クリアランスは100から600日に遅延する。同様に他の動物においても肺の過負荷による肺胞クリアランスの遅延が起

きることが認められている。また、肺の負荷のおよそ1-20%が肺から肺のリンパ節に移動する。

b. 粒子状物質に吸着した物質の動態

気管支および肺胞における多環芳香族炭化水素の滞留について比較すると、気道と毛細血管との間の拡散のための平均距離は肺胞や細気管支でそれぞれ0.5 μm 、5 μm 以上であり気管支の方がながいことや、PAHが高好脂性であることが肺胞と気管支でのPAHの滞留の差を生むと考えられている。モデルやビーグル犬を用いた実験では、BaPなどのPAHは気管支に数時間滞るが、肺胞には1~3分であることが示されている。この滞留の差から、気管支壁でBaPの濃度が高いことや、代謝生成物の形成の増加に結びつき、ヒトの肺ガンがPAHの沈着が吸入した量のわずかな割合であるにもかかわらず細い気管支に優先して起きることとなる可能性が示唆された(Gerdeら、1991; Gerdeら、1993a)。

DEPに付着したPAHの移行と代謝には肺と肝ミクロゾームが重要である。粒子のない状態では遊離したBaPのかなりの量がミクロゾームによって代謝されBaP-9、10-diolになった。BaPがDEPに吸着した場合、ラット肺と肝臓のミクロゾームはBaPの1-2%を代謝するにすぎなかった。これらのことは、DEPに付着したPAHの代謝には吸着した粒子からの放出が重要であることを示している(Leungら、1988)。異なる粒子径の粒子に吸着したBaPの溶解に関係すると思われるが15-30 μm の炭素粒子に吸着したBaPは炭素粒子が除去されるのと同じ比率で肺から除去され、0.5~1.0 μm の炭素粒子に吸着したBaPは肺から炭素粒子の除去よりも4倍も早く除去された。(Creasiaら、1976)。また、粒子は吸着したBaPの気道での滞留を増加させるだけでなく、胃、肝臓、腎臓においてBaPとその代謝物の量を増加させることや糞として体外に排出させることも示唆されている(Mitchellら、1982)。

DEP中のニトロピレン(NP)の挙動についても検討されている。NPは粒子に吸着されていると多くは糞中にいくこと、NPのみの場合は尿中にいくこと(Sunら、1983; Bondら、1986)、粒子に吸着しているものの方が純粋なエアロゾルのものに比べ肺に長く滞留している

こと(Wolffら、1989)が報告されている。

文献

- Bond, J.A., Sun, J.D., Mitchell, C.E., Dutcher, J.S., Wolff, R.K., McClellan, R.O. (1986). DEPosition, metabolism and excretion of ^{14}C -1-nitropyrene coated on diesel particles as influenced by exposure concentration. *Toxicol Appl Pharmacol* 85:102-117.
- Creasia, D.A., Poggenburg, J.K., Nettesheim, P, Jr. (1976). Elution of benzo[a]pyrene from carbon particles in the respiratory tract of mice. *J Toxicol Environ Health* 1:967-975.
- Ferin, J., Feldstein, M.L. (1978). Pulmonary clearance and hilar lymph node content in rats after particle exposure. *Environ Res* 16:342-352.
- Gerde P, Medinsky A, & Bond J.A. (1991a). The retention of polycyclic aromatic hydrocarbons in the bronchial airways and in the alveolar region. A theoretical comparison. *Toxicol Appl Pharmacol*, 107: 239-252.
- Gerde P, Muggenburg B.A., Sabourin p J, Harkema J.R., Hotchkiss J.A., Hoover M.D., & Henderson R.F. (1993a). Disposition of polycyclic aromatic hydrocarbons in the respiratory tract of the beagle dog. The conducting airways. *Toxicol Appl Pharmacol*, 121: 319-327.
- Heyder J, Gebhart J, Rudolf G, Schiller C.F., & Stahlhofen W. (1986). DEPosition of particles in the human respiratory tract in the size range 0.005-15 μm . *J Aerosol Sci*, 17: 811-825.
- Leung, H-W., Henderson, R.F., Bond J.A., Mauderly, J.L., McClellan, R.O. (1988). Studies on the ability of rat lung and liver microsomes to facilitate transfer and metabolism of benzo[a]pyrene from diesel particles. *Toxicology* 51 : 1-9.
- Mitchell, C.E. (1982). Distribution and retention of benzo[a]pyrene in rats after inhalation. *Toxicol Lett* 11:35-42.
- Raabe, O.G. (1982). DEPosition and clearance of inhaled aerosols. In: Witschi, H, ed. *Mechanisms in respiratory toxicology*. Boca Raton, FL: CRC Press; pp. 27-76.
- Schum, M., Yeh, H.C. (1980). Theoretical evaluation of aerosol DEPosition in anatomical models of mammalian lung airways. *Bull Math Biol* 42: 1-15.
- Sun, J.D., Wolff, R.K. and Aberman, H.M.(1983) : Inhalation of 1-nitropyrene associated with ultrafine insoluble particles or as a pure aerosole. A comparison of DEPosition and biological fate. *Toxicol. Appl. Pharmacol.* 69, 189-198.
- Wolff, R.K., Griffis, L.C., Hobbs, C.H., McClellan, R.O. (1982). DEPosition and retention of 0.1 μm $^{67}\text{Ga}_2\text{O}_3$ aggregate aerosols in rats following whole body exposures. *Fundam APPI Toxicol* 2:195-200.
- Wolff, R.K., Henderson, R.F., Snipes, M.B., et al. (1987). Alterations in particle accumulation and clearance in lungs of rats chronically exposed to diesel exhaust. *Fundam Appl Toxicol* 9: 154- 166.
- Wolff, R.K., Kanapilly, G.M., Gray, R.H., McClellan, R.O. (1984). DEPosition and retention of inhaled aggregate $^{67}\text{Ga}_2\text{O}_3$ particles in beagle dogs, Fischer-344 rats, and CD-1 mice. *Am. Ind. Hyg. Assoc. J.* 45: 377-81.
- Wolff R.X., Sun L.D., Barr E.B., Rothenberg S.J., Yeh H.C. (1989). Lung retention and binding of [^{14}C] -1-nitropyrene

- when inhaled by Fisher 344 rats as a pure aerosol or adsorbed to carbon black particles. *J Toxicol Environ Sci.*, 26: 309-325.
- Yeh, H.C., Schum, G.M. (1980). Models of human lung airways and their application to inhaled particle DEPosition. *Bull Math Biol* 42:461-480.
- Yu, C.P.(1978). Exact analysis of aerosol DEPosition during steady breathing. *Powder Technology* 21: 55-62.
- Yu, C.P., Diu, C.K., Soong, T.T. (1981). Statistical analysis of aerosol DEPosition in nose and mouth. *Am Ind Hyg Assoc J* 42:726-733.
- Yu, C.P., X.u., G.B. (1987). Predicted DEPosition of diesel particles in young humans. *J Aerosol Sci* 18:419-429

6.1.3 発がん影響

平野 靖史郎

呼吸器内に沈着した粒子状物質の発がん実験に関してはある程度の報告がなされているが、必ずしも一致した結果が得られているわけではない。粒子状物質中に含まれる重金属や多環芳香族化合物など、いわゆる発がん物質による作用と考えるのが一般的ではあるが、粒子状物質が肺胞内に沈着し滞留することそのもの（主として物理的的刺激）が発がんにつながるという報告もある。

(1) 発がん機構

有害化学物質による発がんは多段階説が一般的に受け入れられており、①イニシエーション、②プロモーション、③プログレッションの3段階に分けて考えるのが普通である。すなわち、まず正常細胞にイニシエーターと呼ばれる物質が作用することにより遺伝子に何らかの変化が起こり潜在的癌細胞となり、これら潜在的癌細胞にプロモーターと呼ばれる物質が作用することにより細胞が良性腫瘍化する。さらに何らかの刺激が加わることにより、細胞接着因子などの発現が起こり転移可能な悪性腫瘍へと変化するという考え方である。イニシエーターには、都市粒子状物質やタバコ煙に含まれるベンツピレン (B[a]P) など多環芳香族化合物が含まれる。プロモーターとしてはクロトン油成分であるホルボールエステルが代表的なものであるが、プロモーション作用を持つと考えられている環境有害化学物質も少なくない。

(2) ディーゼル排気粒子による発がん性

ディーゼル排気粒子 (DEP) の発がん実験は比較的多くなされている。しかし、実験結果は必ずしも一致しておらず、また用いた動物の種類によっても結果が異なっ

ている。ラットでは、ほとんどの研究例において DEP 吸入や気管内投与によって肺腫瘍の増加が見られているのに対し、マウスやハムスターでは一致した結果が得られていない。

Ishinishi ら(1986a、1986b)は、F344 ラットを DEP に 30 ヶ月間吸入曝露させ、濃度依存的に肺における腺癌や扁平上皮癌を認めている。Mauderly ら (1987、1996) は、F344 ラットを 0.35、3.5、7.1 mg/m³ の濃度の DEP に 1 日 7 時間、週 5 日、30 ヶ月吸入曝露させ、それぞれの濃度において、肺腫瘍発生率が 1.3、3.6、12.8% と明らかな量-影響関係を報告している。しかし、彼らがほぼ同じプロトコールで行った CD-1 マウスを用いた実験では、このような量-反応関係は見られなかった。同様に、Heinrich ら (1989) は、Wistar ラットと NMRI マウスに、DEP の他二酸化チタンや炭粉を吸入曝露させ、肺腫瘍の発生を観察した。高濃度の DEP、二酸化チタンや炭粉を曝露したラットにおいて肺腫瘍が多く見られたのに対し、マウスでは曝露と肺腫瘍の発生との間に用量依存的な関係は見られなかった。Brightwell ら(1989)は、2 年間のラットとハムスターを用いた DEP 吸入曝露を行ったが、ラットにおいて量-反応的に腫瘍の発生が見られたのに対し、ハムスターでは明らかな腫瘍発生増加は見られなかったと報告している。

一方、DEP の一定期間以上の曝露期間と肺腫瘍の発生率とは特に関係は無さそうである。Iwai ら (2000) は、F344 ラットに 3.5 mg/m³ の DEP を 1 日 17 時間、一週間当たり 3 日で 3、6、9、12 ヶ月吸入曝露させ、30 ヶ月までの肺腫瘍発生率を調べたが、9 ヶ月曝露で最も高い腫瘍発生を認めている。これらのことは、ある一定期間の DEP の曝露が、肺腫瘍の発生に十分であることを示唆している。

DEP の発がん実験では、DEP 中の B[a]P やニトロピレン、ジニトロピレンといった多環芳香族化合物に着目した実験も行われている一方で、Nikura ら (1995) の実験に見られるように、洗浄した DEP 粒子や炭素粒子のみによっても DEP と比べ遜色なく肺腫瘍が発生するという報告もある。ただし、有機溶媒で洗浄した DEP 粒子においても、重金属化合物などの発がん物質が含まれている可能性はある。このことは、米国における PM₁₀

中の銅などの重金属化合物が肺の傷害を起こす主たる成分であるという報告からも示唆される (Frampton ら、1999、Kennedy ら、1998)。一方、二酸化チタンや炭粉の曝露により肺癌が発生するという実験結果は、肺における粒子の過剰負荷そのものが、物理的な刺激により肺の細胞を癌化させるということを示唆しており、これらが DEP の発がん作用を複雑なものにしている。

(3) その他の粒子状物質の吸入による発がん実験

呼吸器における発がん性が確認あるいは疑われている粒子状物質の例を下表に示した。

一般に 5 価の砒素より 3 価砒素の方が毒性が高い。

化合物	化学式	許容濃度 (mg/m ³)
亜砒酸	As ₂ O ₃	0.2 mg As/m ³ (日本産業衛生学会勧告値)
クロム酸	CrO ₄ ²⁻	0.01 mg Cr/m ³ (日本産業衛生学会勧告値)
二硫化三ニッケル	Ni ₃ S ₂	1 mg Ni/m ³ (日本産業衛生学会勧告値)
酸化カドミウム	CdO	0.05 mg Cd/m ³ (日本産業衛生学会勧告値)
ベリリウム	Be	0.002 mg Be/m ³ (日本産業衛生学会勧告値)
アスベスト	—	2 本/ml (労働基準)

ヒトにおいては砒素の発がん性が確認されているが、動物実験では発がん性があるとは認識されていない数少ない化合物である。砒素のメチル化は代謝過程における解毒作用と考えられていたが、最近では、代謝中間物質であるモノメチル亜砒酸 (monomethyl arsonous acid) が、三価の無機砒素より毒性が高いことが報告され、メチル化が砒素の解毒よりむしろ活性化を行っていると考えられている (Petrick ら, 2001、Styblo ら, 2000)。

肺のクロムあるいはニッケル濃度は加齢と共に上昇することが知られている (Kollmeier ら, 1985)。クロム酸は強い刺激性を持つほか、DNA に直接作用して塩基置換を起こすことにより発がん性を持つと考えられている。六価のクロムは鼻中隔穿孔や腫瘍を起こすことが知られているが、溶解度の比較的低いカルシウム塩の発がん性が特に高いことが知られている (Glaser ら, 1986、Leonard ら, 1980)。

ニッケル化合物では、気体であるニッケルカルボニルの他、二硫化三ニッケルに発がん性が認められているが、酸化ニッケルや硫酸ニッケルには発がん性が認められていない (Oller ら, 1997)。硫酸ニッケルは、二硫化三ニッケルに比べ急性毒性は高いが発がん性がないことから、ニッケルによる発がんには、徐々に肺胞域で粒子状のニッケルが溶解し、肺に持続的な刺激を与えることが必要であると考えられている。このことは、多段発がん説を裏付けるものでもある。一方酸化ニッケルの溶解度は極めて低く、急性毒性低くも発がん性も示さないものと考えられている。

酸化カドミウムは作業現場以外では、喫煙によって呼吸器内に沈着することが知られている。酸化カドミウムによる発がんは、Takenaka ら (1983) のラットを用いた実験により明らかとなった。

ベリリウムは、呼吸器に沈着した後、T リンパ球が関与する反応によりベリリウム肺を引き起こし、さらには肺癌も起こすことが知られている。最近、主要組織適合抗原である HLA-DPB の遺伝多型とベリリウム肺の罹患率との関係が示された (Richeldi ら, 1993、Lympany ら 1996)。このことは、遺伝的にベリリウムに対し感受性の高い人と低い人が存在することを意味している。

アスベストはクロシドライトやアモサイトなどのような角閃石族と、クリソタイルに代表される蛇紋岩族に分けられる。古いビルの解体に伴い飛散することが知られているが、繊維状の粒子であるため、数十ミクロンの長さのものまで肺胞域に沈着する場合がある。発がん機構は明らかではないが、肺癌の他、肺や胸壁の漿膜にできる癌である中皮腫を起こすことが特徴的である。また、アスベストは喫煙との相乗作用が良く知られている物質でもある。喫煙による肺癌のリスクが約 10 倍、アスベスト曝露による肺癌のリスクが約 5 倍であるのに対し、喫煙とアスベストの作用により肺癌のリスクが約 50 倍にも上昇することが報告されている (Cotes ら, 1987)。

文献

Brightwell J, Fouillet X, Cassano Zoppi AL, Bernstein D, Crawley F, Duchosal F, Gatz R, Perczel S and Pfeifer H. (1989) Tumours of the respiratory tract in rats and hamsters following chronic inhalation of engine exhaust emissions. *J Appl Toxicol* 9: 23-31.

- Cotes JE, and Steel J. (1987) Work-related lung disorders. pp197-231, Blackwell Scientific Pub. Oxford.
- Frampton MW, Ghio AJ, Samet JM, Carson JL, Carter JD and Devlin RB.(1999) Effects of aqueous extracts of PM(10) filters from the Utah valley on human airway epithelial cells. *Am J Physiol* 277: L960-967.
- Glaser U, Hochrainer D, Kloppel H and Oldiges H. (1986) Carcinogenicity of sodium dichromate and chromium (VI/III) oxide aerosols inhaled by male Wistar rats. *Toxicology* 42: 219-232.
- Heinrich U, Mohr U, Fuhst R and Brockmeyer C.(1989) Investigation of a potential cotumorogenic effect of the dioxides of nitrogen and sulfur, and of diesel-engine exhaust, on the respiratory tract of Syrian golden hamsters. *Res Rep Health Eff Inst*: 1-27.
- Ishinishi N, Kuwabara N, Nagase S, Suzuki T, Ishiwata S and Kohno T.(1986a) Long-term inhalation studies on effects of exhaust from heavy and light duty diesel engines on F344 rats. *Dev Toxicol Environ Sci*: 13329-13348.
- Ishinishi N, McCellan RO, Albert RE, Bates R, Hashimoto M, Iwai K, Koizumi A, Kondo J, Rosenkrantz HS, Saito T and et al.(1986b) Round table discussion: Toxicological effects of emissions from diesel engines--health effects and future problems of diesel exhaust. *Dev Toxicol Environ Sci*: 13505-13525.
- Iwai K, Adachi S, Takahashi M, Moller L, Udagawa T, Mizuno S and Sugawara I.(2000) Early oxidative DNA damages and late development of lung cancer in diesel exhaust-exposed rats. *Environ Res* 84: 255-264.
- Kennedy T, Ghio AJ, Reed W, Samet J, Zagorski J, Quay J, Carter J, Dailey L, Hoidal JR and Devlin RB.(1998) Copper-Dependent inflammation and nuclear factor-kappaB activation by particulate air pollution. *Am J Respir Cell Mol Biol* 19: 366-378.
- Kollmeier H, Witting C, Seemann J, Wittig P and Rothe R. Increased chromium and nickel content in lung tissue. *J Cancer Res Clin Oncol* 110: 173-176, 1985.
- Leonard A and Lauwerys RR.(1980) Carcinogenicity and mutagenicity of chromium. *Mutat Res* 76: 227-239.
- Lympny PA, Petrek M, Southcott AM, Newman Taylor AJ, Welsh KI and du Bois RM. (1996)HLA-DPB polymorphisms: Glu 69 association with sarcoidosis. *Eur J Immunogenet* 23: 353-359.
- Mauderly JL, Banas DA, Griffith WC, Hahn FF, Henderson RF and McClellan RO.(1996) Diesel exhaust is not a pulmonary carcinogen in CD-1 mice exposed under conditions carcinogenic to F344 rats. *Fundam Appl Toxicol* 30: 233-242.
- Mauderly JL, Jones RK, Griffith WC, Henderson RF and McClellan RO. (1987)Diesel exhaust is a pulmonary carcinogen in rats exposed chronically by inhalation. *Fundam Appl Toxicol* 9: 208-221.
- Nikula KJ, Snipes MB, Barr EB, Griffith WC, Henderson RF and Mauderly JL.(1995) Comparative pulmonary toxicities and carcinogenicities of chronically inhaled diesel exhaust and carbon black in F344 rats. *Fundam Appl Toxicol* 25: 80-94.
- Oller AR, Costa M and Oberdorster G.(1997) Carcinogenicity assessment of selected nickel compounds. *Toxicol Appl Pharmacol* 143: 152-166.
- Patrick JS, Jagadish B, Mash EA and Aposhian HV.(2001) Monomethylarsonous acid (MMA(III)) and arsenite: LD(50) in hamsters and in vitro inhibition of pyruvate dehydrogenase. *Chem Res Toxicol* 14: 651-656.
- Richeldi L, Sorrentino R and Saltini C.(1993) HLA-DPB1 glutamate 69: a genetic marker of beryllium disease. *Science* 262: 242-244.
- Styblo M, Del azo LM, Vega L, Germolec DR, LeCluyse EL, Hamilton GA, Reed W, Wang C, Cullen WR and Thomas DJ.(2000) Comparative toxicity of trivalent and pentavalent inorganic and methylated arsenicals in rat and human cells. *Arch Toxicol* 74: 289-299.
- Takenaka S, Oldiges H, Konig H, Hochrainer D and Oberdorster G.(1983) Carcinogenicity of cadmium chloride aerosols in Wistar rats. *J Natl Cancer Inst* 70: 367-373.

6.1.4 気道炎症

古山昭子

呼吸器系の入り口である気道や、膨大な表面積を持つ肺胞に沈着した粒子状大気汚染物質は、気道上皮細胞の線毛運動、およびに肺胞マクロファージの貪食活性を介して排除される。しかしながら、多量のディーゼル排気や DEP の曝露は、肺胞マクロファージの増加、好中球・好酸球・リンパ球の浸潤、上皮細胞の壊死、浮腫、粘液産生細胞・気道上皮細胞・肺胞上皮細胞の増生、肺胞間質の線維化などを典型的組織像とする炎症を誘導する（ディーゼル排気微粒子リスク評価検討会、2000）。DEP は培養気道上皮細胞の線毛運動を有意に低下させ（Bayram ら、1998）、活性化された肺胞マクロファージのサイトカイン産生を抑制し（Yang ら、1997）、株化肺胞マクロファージのアポトーシスを誘導する（Hiura ら、1999）。このため DEP の排除は遅くなり、DEP の長期間もしくは繰り返し曝露は、持続的な刺激となって、組織傷害と修復が混在する慢性炎症を呈する原因となると考えられる。

炎症には様々なメディエーターが関与している。DEP と培養したラットの肺胞マクロファージは、多様な炎症誘導能を持つサイトカインである IL-1 を産生する（Yang ら、1999）。ヒト培養気道上皮細胞に DEP を添加すると、好中球や好酸球の浸潤を誘導するケモカインである IL-8、白血球の増殖や活性化をおこす GM-CSF や、白血球の接着因子のリガンドとなる ICAM-1 の産生を増強する（Bayram ら、1998、Ohtoshi ら、1998）。DEP と培養した株化ヒト培養気道上皮細胞では IL-8 や GM-CSF、

IL-1 β の産生 (Boland ら、1999)、急性期タンパクを誘導する IL-6 (Steenberg ら、1998)、白血球を活性化する RANTES (Hashimoto ら、2000) の産生も報告されている。株化ヒト培養気道上皮細胞にディーゼル排気を曝露した結果も、IL-8 と組織修復やサイトカイン誘導能を持つ TGF- β 1 遺伝子発現を誘導することを示している (Abe ら、2000)。これらのメディエーターの放出はヒトでも報告されており、0.3mg/m³ のディーゼル排気を 1 時間曝露した正常人の気道上皮組織や気道洗浄液中の細胞には、白血球を活性化する GRO- α と IL-8 の転写活性の亢進が認められている (Salvi ら、2000)。ラットへの DEP 曝露初期には、好中球や好酸球の浸潤を誘導する LTB₄ と気道収縮や血管透過性を亢進する PGF₂ α の増加が観察される (Henderson ら、1988)。これらのメディエーターの放出が引き金となり、白血球やリンパ球の炎症部位への浸潤と活性化が起こる。DEP の点鼻投与後に IL-2、IL-4、IL-5、IL-6、IL-10、IL-13、IFN- γ (Diaz - Sanchez ら、1998)、RANTES、MIP-1 α 、MCP-3 Diaz - Sanchez ら、2000) 産生の亢進が報告されているように、集積したリンパ球からの連鎖的なサイトカイン・ケモカインの産生が促されることにより、DEP が慢性気道炎症発症に関与すると推測される。

ディーゼル排気の気道炎症誘導メカニズムとして、最初に注目されたのは活性酸素である。活性酸素除去剤の PEG-SOD を前処理してから、マウスに DEP を気管内投与すると、好酸球浸潤と気道過敏性の亢進が抑えられる (Sagai ら、1996)。NOS 阻害剤の投与も DEP 投与による呼吸抵抗の上昇を抑制し (Lim ら、1998)、反対に、NO 合成の原料となる L- アルギニンを飲ませながら DEP を気管内投与すると、好酸球浸潤と粘液産生細胞の増生がより亢進する (Takano ら、1999)。これらの結果から、DEP を貪食した肺胞マクロファージや DEP 自身から放出される O²⁻、H₂O₂、 \cdot OH や NOS からの NO、ONOO⁻ などの活性酸素種が気道炎症誘導に関与していると示唆される。

ディーゼル排気の気道炎症誘導物質の候補とされているのが、PAHs である。ディーゼル排気から粒子を除いたガス成分をラットへの曝露すると、炎症病変の軽減が認められる (Kato ら、2000)。DEP を分画し、培養気管

支上皮細胞の GM-CSF 産生を比較すると、DEP、DEP 抽出物、DEP 抽出残渣のうち DEP 抽出物が最も活性が高く、IL-8 遺伝子の発現もベンゼン分画が最も高い (Boland ら、2000)。また、DEP 中の PAHs を正常人末梢単核球と培養すると IL-8 と RANTES の産生は亢進し、それに依存して白血球の遊走が活性化されるが、MCP-1 産生は減少する (Fahy ら、1999)。さらに、PAHs 中のピレンは正常人末梢単核球の IL-4 産生を亢進するが、他のアントラセン、フルオランテン、フェナントレンでは転写は活性化されないことから (Bömmel ら、2000)、PAH 種でサイトカイン産生誘導能が異なることが示唆される。

一方、DEP のサイトカイン産生に関与する細胞内シグナル伝達系についても検討されている。DEP を投与した培養気道上皮細胞には、サイトカイン遺伝子の活性化に関与する p38 MAP kinase の発現が見られ、MAP kinase 阻害剤、抗酸化剤で IL-8 と RANTES 産生が抑制される (Hashimoto ら、2000)。また、DEP による培養気道上皮細胞からの GM-CSF 産生亢進は、活性酸素除去剤やチロシンリン酸化阻害剤で抑制される (Boland ら、2000)。さらに、DEP 曝露した培養気道上皮細胞では、転写因子である NF- κ B を活性化するが、AP-1 は活性化されず、この NF- κ B による IL-8 の遺伝子発現は抗酸化剤で抑制される (Takizawa ら、1999)。以上の結果から、DEP を貪食した肺胞マクロファージや DEP 中の PAHs が気道上皮細胞で代謝されることにより産生増加した活性酸素が、細胞内シグナル伝達系や核内転写因子を活性化することにより、サイトカイン産生を亢進させるという炎症誘導機構が存在すると示唆される。

大気中粒子状物質の毒性影響と毒性発現機構は、ディーゼル排気および DEP を用いた実験で知見が蓄積されてきているが、近年一般大気中粒子状物質の曝露影響についても報告がなされてきている。Utah の大気中粒子状物質はラット肺に好中球を浸潤させる。株化ヒト培養気道上皮細胞にこの粒子を添加すると IL-6 と IL-8 を産生し、ICAM-1 を発現する (Kennedy ら、1998)。このサイトカイン産生は NF- κ B の活性化を介しており、SOD や抗酸化剤、遷移金属キレーターなどで抑制されるので、粒子中の銅イオンが影響発現に関わっ

ていると考察している。また、ヒト末梢単核球と PM_{2.5} と PM_{10-2.5} の水溶性抽出物を培養すると特に PM_{10-2.5} の抽出物で IL-6 と IL-8 の産生が亢進した (Monn and Becker, 1999)。これは粒子状物質に含まれていた、強い免疫修飾機能を持つグラム陰性菌の細胞壁成分である LPS の影響であった。このように、PM_{2.5} 曝露の影響評価をする上で、多環芳香族炭化水素や金属などの本来の成分の他に、LPS や抗原が含まれる可能性を考慮する必要があると考えられる。

これまででは、粒子状大気汚染物質とアレルギー性呼吸器疾患に注目して、サイトカイン・ケモカイン産生をマーカーとした報告が多くされてきた。今後、呼吸・循環器疾患との関連に注目して、神経伝達物質・アラキドン酸代謝物・線溶系・組織修復に関与する増殖因子などについての検索も必要になるとと思われる。さらに、ディーゼル排気曝露、DEP 気管内投与、およびに培養細胞への曝露などの実験系をうまく使い分けて、細胞毒性とサイトカイン・ケモカイン産生などを誘導する粒子状大気環境汚染物質中の原因成分とその誘導機構を特定することが、気道炎症をはじめとする健康影響を軽減するために重要である。

文献

- Abe S, Takizawa H, Sugawara I and Kudoh S. (2000) Diesel exhaust (DE)-induced cytokine expression in human bronchial epithelial cells. A study with a new cell exposure system to freshly generated DE in vitro. *Am J Respir Cell Mol Biol* 22: 296-303.
- Bayram H, Devalia JL, Khair OA, Abdelaziz MM, Sapsford, RJ, Sagai M. and Davies RJ. (1998) Comparison of ciliary activity and inflammatory mediator release from bronchial epithelial cells of nonatopic nonasthmatic subjects and atopic asthmatic patients and the effect of diesel exhaust particles in vitro. *J Allergy Clin Immunol* 102, 771-782:
- Bömmel H, Li-Weber M, Serfling E and Duschl A. (2000) The environmental pollutant pyrene induces the production of IL-4. *J Allerg Clin Immunol* 105: 96-802.
- Boland S, Baeza-Squiban A, Fournier T, Houcine O, Gendron MC, Ch'evrier M, Jouvenot G, Coste A, Aubier M and Marano F. (1999) Diesel exhaust particles are taken up by human airway epithelial cells in vitro and alter cytokine production. *Am J Physiol* 276 L604-613.
- Boland S, Bonvallot V, Fournier T, Baeza-Squiban A, Aubier M and Marano F. (2000) Mechanisms of GM-CSF increase by diesel exhaust particles in human air epithelial cells. *Am J Physiol Lung Cell Mol Physiol* 278: L25-32.
- Diaz-Sanchez D, Tsien A, Casillas A, Dotson AR and Saxon A. (1996) Enhanced nasal cytokine production in human beings after in vivo challenge with diesel exhaust particles. *J Allerg Clin Immunol* 98: 114-123.
- Diaz-Sanchez D, Jyrala M, Ng D and Saxon A. (2000) In vivo nasal challenge with diesel exhaust particles enhances expression of the CC chemokines RANTES, MIP-1 alpha, and MCP-3 in humans. *Clin Immunol* 97: 140-145.
- ディーゼル排気微粒子リスク評価検討会 (2000) ディーゼル排気粒子のリスク評価について 155-159.
- Fahy O, Tscicopoulos A, Hammad H, Pestel, J, Tonnel AB and Wallaert B. (1999) Effects of diesel organic extracts on chemokine production by peripheral blood mononuclear cells. *J Allergy Clin Immunol* 103(6): 1115-24.
- Hashimoto S, Gon Y, Takeshita I, Matsumoto K, Jibiki I, Takizawa H, Kudoh S and Horie T. (2000) Diesel exhaust particles activate p38 MAP kinase to produce interleukin 8 and RANTES by human bronchial epithelial cells and N-acetylcysteine attenuates p38 MAP kinase activation. *Am J Respir Crit Care Med*. 161: 280-285.
- Henderson RF, Pickrell JA, Jones RK, Sun JD, Benson JM, Mauderly JL and McClellan RO. (1988) Response of rodents to inhaled diluted diesel exhaust: biochemical and cytological changes in bronchioalveolar lavage fluid and in lung tissue. *Fundam Appl Toxicol* 11: 546-567.
- Hiura TS, Kaszubowski MP, Li N and Nel AE. (1999) Chemicals in diesel exhaust particles generate oxygen radicals and induced apoptosis in macrophages. *J Immunol* 163: 5582-5591.
- Kato A, Nagai A, Kagawa J. (2000) Morphological changes in rat lung after long-term exposure to diesel emissions. *Inhal Toxicol* 12(6): 469-90.
- Kennedy T, Ghio AJ, Reed W, Samet J, Zagorski J, Quay J, Carter J, Dailey L, Hoidal JR and Devlin RB. (1998) Copper-Dependent inflammation and nuclear factor-kappa B activation by particulate air pollution. *Am J Respir Cell Mol Biol* 19(3): 366-78.
- Lim HB, Ichinose T, Miyabara Y, Takano H, Kumagai Y, Shimojo N, Devaria JL and Sagai M. (1998) Involvement of superoxide and nitric oxide on airway inflammation and hyperresponsiveness induced by diesel exhaust particles in mice. *Free Radical Biol Med* 25: 635-644.
- Monn C. and Becker S. (1999) Cytotoxicity and induction of proinflammatory cytokines from human monocytes exposed to fine (PM 2.5) and coarse particles (PM 10-2.5) in outdoor and indoor air. *Toxicol Appl Pharmacol* 155 (3): 245-252.
- Ohtoshi T, Takizawa, H, Okazaki H, Kawasaki S, Takeuchi N, Ohta K and Ito K. (1998) Diesel exhaust particles stimulate human airway epithelial cells to produce cytokine relevant to airway inflammation in vitro. *J Allergy Clin Immunol* 101: 778-785.
- Sagai M, Furuyama A and Ichinose T. (1996) Biological effects of diesel exhaust particles (DEP). III. Pathogenesis of asthma-like symptoms in mice. *Free Radical Biol Med* 21: 199-209.
- Salvi SS, Nordenhall C, Blomberg A, Rudell B, Pourazar J, Kelly FJ, Wilson S, Sandstrom T, Holgate ST and Frew AJ. (2000) Acute exposure to diesel exhaust increase IL-8 and GRO-a production in healthy human airways. *Am J Respir Crit Care Med* 161: 550-557.
- Steenberg PA, Zonnenberg JAJ, Dormans JAMA, Joon PNT, van

- Bree L, Scheepers PTJ and Van Loveren H. (1998) Diesel exhaust particles induced release of interleukin 6 and 8 by (primed) human bronchial epithelial cells (BEAS 2B) in vitro. *Exp Cell Res* 24: 85-100.
- Takano H, Lim HB, Miyabara Y, Ichinose T, Yoshikawa T and Sagai M. (1999) Manipulation of the L-arginin-nitric oxide pathway in airway inflammation induced by diesel exhaust particles in mice. *Toxicology* 139: 19-26.
- Takizawa H, Ohtoshi T, Kawasaki S, Kohyama T, Desaki M, Kasama T, Kobayashi K, Nakahara K, Yamamoto K, Mastushima K and Kudoh S. (1999) Diesel exhaust particles induce NF- κ B activation in human bronchial epithelial cells in vitro: Importance in cytokine transcription. *J Immunol* 162: 4705-4711.
- Yang HM, Ma JY, Castranova V and Ma JK. (1997) Effect of diesel exhaust particles in the release of interleukin-1 and tumor necrosis factor-alpha from rat alveolar macrophages. *Exp Lung Res* 23: 269-284.
- Yang HM, Barger MW, Castranova V, Ma JKH, Yang JJ and Ma JYC. (1999) Effects of diesel exhaust particles (DEP), carbon black, and silica on macrophage responses to lipopolysaccharide: evidence of DEP suppression of macrophage activity. *J Toxicol Environ Health*: 58, 261-278.

6.1.5 呼吸機能

鈴木 明

換気力学的観点から呼吸機能について研究した報告はかなり多いが、一般的なものがほとんどで有意な文献は少ない。ここでは、呼吸機能との関連が比較的明確なディーゼル排気ガス (DE) 曝露の影響について主に概説する。

DE 曝露が呼吸機能におよぼす影響については、急性、亜慢性あるいは慢性曝露をラット、ハムスター、ネコ、モルモット、サルに行った結果が報告されている。曝露期間が異なるため濃度と曝露期間をともに考慮した比較が必要である。

Pepelko ら (1980) は、DE 曝露が呼吸器系に及ぼす影響を明らかにするため、雄ネコを 14 倍希釈した DE に 20 時間/1 日で、28 日間曝露し、呼吸機能の検討を行った。曝露後に呼吸機能：肺容積と最大呼気流量 (MEF)、肺活量 (VC) が 25% および 10% のときの MEF などを測定し、VC が 10% のときの MEF に有意な機能的変化を認めた。

また、Abraham ら (1980) は、低濃度急性の DEP 曝露が覚醒しているヤギの呼吸機能に及ぼす影響について検

討した。DEP は流動化床 (ベッド) のダスト発生器によってエアロゾル化され、ダスト質量濃度レンジは 400 ~ 500 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ で質量平均空気力学的直径 (MMAD) は 2.8 μm であった。覚醒ヤギに 30 分間、プレキシグラスヘルメット法で DEP を吸入させた。DEP は曝露の前の値と比較して肺抵抗、エアロゾルカルバコールに対する気道反応、静的肺コンプライアンス、気道粘液速度に影響を与えない事が報告された。

Vinegar ら (1980, 1981a, b) は、Chinese ハムスターに 6.0 mg/m^3 の粒子を含む DE を 26 週間 (8 時間/日、7 日/週、8,736 $\text{mg} \times \text{h}/\text{m}^3$) 曝露すると、肺活量、肺重量、肺残気量、CO₂ 拡散能が低下し静的 deflation volume の増加を認めた。同様の影響が、12.0 mg/m^3 の粒子を含む DE の 26 週間 (8 時間/日、7 日/週、17,472 $\text{mg} \times \text{h}/\text{m}^3$) 曝露でも起きる事を報告している。

しかし、Gross ら (1981) は、雄性 F344 ラットに 1.5 mg/m^3 の DEP を含む DE に 38 週間 (20 時間/日、5.5 日/週) 曝露しても呼吸機能に有意な影響はみられないが、87 週間 (20 時間/日、5.5 日/週) 曝露すると、機能的残気量が増加することを認めた。さらに、40% および 20% FVC における最大呼気流量と FEV_{0.1} は DE 曝露した動物では増加することを見だし、この変化は機能的残気量の増加と互いに相反する可能性がある事を指摘している。

Heinrich ら (1982) は、Wistar ラットに 3.9 mg/m^3 の粒子を含む DE に 104 週間 (7 ~ 8 時間/日、5 日/週、14,196 ~ 16,224 $\text{mg} \times \text{h}/\text{m}^3$) 曝露し、呼吸速度、1 分換気量、コンプライアンス、気道抵抗に影響がないことを報告した。

Brightwell ら (1986) は、F344 ラットに 0.7、2.2、6.6 mg/m^3 の粒子を含む DE に 104 週間 (16 時間/日、5 日/週、5,824、18,304、54,912 $\text{mg} \times \text{h}/\text{m}^3$) 曝露すると 6.6 mg/m^3 の場合では呼吸機能に濃度依存的な影響があることを見いだした。

Heinrich ら (1986a) は、Syrian ハムスターに 4.24 mg/m^3 の粒子を含む DE に 120 週間 (19 時間/日、5 日/週、48,336 $\text{mg} \times \text{h}/\text{m}^3$) 曝露すると気道抵抗に著しい増加が見られることを報告した。

MacClellan ら (1986) は、F344 ラットを 0.35、3.5、

7.1 mg/m³のDEPを含むDEに130週間(7時間/日、5日/週)曝露し、7.1 mg/m³の曝露で、12か月後、全肺気量(total lung capacity, TLC)、動的肺コンプライアンス(Cdyn)、FVC、CO 拡散機能の低下を報告した。また、24か月曝露で、3.5 mg/m³でも同様の影響があることを見いだした。

Lewisら(1989)は、F344ラットに2.0 mg/m³のDEPを含むDEを104週間(7時間/日、5日/週)曝露し、呼吸機能には有意な影響はみられないことを報告している。同様の条件(2.0 mg/m³のDEPを含むDE、7時間/日、5日/週、104週間、7,280 mg × h/m³)でサルを用いた実験(Lewisら、1989)では25%の肺活量のところでの努力性呼気流量の減少を報告している。

なお、吸入実験では、曝露濃度と曝露期間をともに考慮する指標として濃度×期間を用いる事が多い。これによるとGrossらの結果は355 mg × h/m³の曝露の結果であり、Lewisらの結果は、7,280 mg × h/m³の結果であることから曝露濃度と期間に依存した影響が出ている可能性がある。

まとめ(呼吸機能への影響)

急性曝露の場合、DEそのものの曝露では6 mg/m³の濃度で、4週間曝露しても呼吸機能に影響が認められないという報告がある。一方、紫外線を照射した6 mg/m³のDEの曝露では、DEPの細胞傷害毒性が活性酸素種によることが報告(Sagaiら、1993)され、DEP由来の活性酸素種が炎症誘導に関与していると考えられている。実際、低濃度DEPの気管内投与を繰り返すと粘液産生細胞の過形成、粘液分泌の増加、肺胞内や細気管支粘膜下への好酸球の集積、気道過敏性の亢進等がみられ、サイトカインの増加が報告されている。呼吸機能の変化は、このような気道の変化に伴う事が多いので、気道炎症や気道過敏症と関連させて考える必要がある。

これらサイトカインの産生を増強するものとしては、以前から内因性刺激物質として、TGFβ、IL-1α、IL-1β、TNFαなどが知られている。DEPのこれらに及ぼす作用メカニズムについては、試験管内試験でヒトの培養細胞、特に気道上皮細胞への影響について検討したものが多いが、現在の所、呼吸機能変化と必ずしも結びついていな

い。

Bayramら(1998a)は、ヒトの気道を介した疾病発症に及ぼすDEPの影響を検索するために、ヒト気道上皮細胞をDEPの存在下で培養し種々の炎症反応指標の変動を調べた。線毛運動の抑制を50と100 μg/mlのDEP(MMAD 0.4 μm)で認めた。

これまでに、亜慢性曝露の場合、0.21から4.4 mg/m³のDEPを含むDE(0.21、1.0、4.4 mg/m³)にラットを曝露(7時間/日、5日/週、19週間)したときにおいても、呼吸パターン、動的な肺の機能、肺の体積、努力性呼気量、CO 拡散機能などを指標とした呼吸機能に影響がないことが報告されている。

また、慢性曝露の場合、0.7 mg/m³以下の粒子を含むDEは呼吸機能には影響を及ぼさないと考えられる。1.5 mg/m³のDEPを含む38週間曝露(20時間/日、5.5日/週)の時点では呼吸機能には有意な影響はみられないが、87週間(20時間/日、5.5日/週)曝露した場合、機能的残気量が増加することと40%および20%FVCにおける最大呼気流量とFEV0.1が増加することが見いだされた。この変化は機能的残気量の増加と相反する可能性があるが、影響が観察された最低の濃度である。一方、ラットでは2.0 mg/m³の粒子を含むDEに104週間曝露(7時間/日、5日/週)した時点で呼吸機能には有意な影響はみられないが、同様の条件(2.0 mg/m³の粒子を含むDE、7時間/日、5日/週、104週間、7,280 mg × h/m³)でサルを用いた実験では25%の肺活量のところでの努力性呼気流量の減少したことと40%の全肺気量のところでの努力性呼気流量の減少が報告されている。しかし、肺容積、拡散能または換気の分布(ventilation distribution)には影響が見られない。それ以上の濃度の慢性曝露では概ね呼吸機能に影響がでてくるという報告があるが3.9 mg/m³のDEPを含むDEに吸入曝露(104週間、7~8時間/日、5日/週、14,196~16,224 mg × h/m³)しても影響が見られないという報告もある。これらのことから慢性曝露では1.5から2.0 mg/m³の粒子を含むDEは呼吸機能に影響を及ぼす可能性が示唆される。

文献

- Abraham W. M., Chong S. Kim, Ph.D., Adolph J. Januszkiewicz, B.S., Atthew Welker, B.S., Maryann Mingle, B.S., 1980. Effects of a Brief Low-Level Exposure to the Particulate Fraction of Diesel Exhaust on Pulmonary Function of Conscious Sheep. *Arch. Environ. Health*, 35, 77-80.
- Bayram H., Devalia J. L., Khair O. A., Abdelaziz M. M., Sapsford R. J., Sagai M., Davies R. J. (1998a). Comparison of ciliary activity and inflammatory mediator release from bronchial epithelial cells of nonatopic nonasthmatic subjects and atopic asthmatic patients and the effects of diesel exhaust particles in vitro. *J. Allergy Clin. Immunol.*, 102, 771-782.
- Brighrwell J., Fouileet X., Cassano-Zoppi AL., Gatz R., Duchosal F. (1986) Neoplastic and functional changes in rodents after chronic inhalation of engine exhaust emissions. *Developments in Toxicology & Environmental Science*. 13, 471-485.
- Gross K.B. (1981). Pulmonary function testing of animals chronically exposed to diluted diesel exhaust. *J. Appl. Toxicol.* 1, 116-123.
- Heinrich U., Peters L., Funcke W., Pott F., Mohr U., and Stober W. (1982). Investigation of toxic and carcinogenic effects of diesel exhaust in long-term inhalation exposure of rodents. *Developments in Toxicology & Environmental Science*. 10, 225-242.
- Heinrich U., Pott F., and Rittinghausen S. (1986a). Comparison of chronic inhalation effects in rodents after long-term exposure to either coal oven flue gas mixed with pyrolyzed pitch or diesel engine exhaust. *Developments in Toxicology & Environmental Science*. 13, 441-457.
- Heinrich U., Muhle H., Takenaka S., Ernst H., Fuhst R., Moht U., Pott F., and Stober W. (1986b). Chronic effects on the respiratory tract of hamsters, mice and rats after long-term inhalation of high concentrations of filtered and unfiltered diesel engine emissions. *J. Appl. Toxicol.* 6, 383-395.
- Lewis T. R., Green F. H. Y., Moorman W. J., et al. (1989). A chronic inhalation toxicity study of diesel engine emissions and coal dust, alone and combined. *J. Am. Coll. Toxicol.* 8, 345-375.
- MacClellan R. O. (1987) Health effects of exposure to diesel exhaust particles. *Ann. Rev. Pharmacol. Toxicol.* 27, 279-300.
- Pepelko W. E., and Peirano W. B. (1980). Health effects of exposure to diesel engine emissions: a summary of animal studies conducted by the U.S. Environmental Protection Agency, *J. Am. Coll. Toxicol.* 2, 253-306.
- Sagai M., Saito H., Ichinose T., Kodama M., and Mori Y. (1993). Biological effects of diesel exhaust particles. 1. In vitro production of superoxide and in vivo toxicity in mouse. *Free Radical Bio. Med.* 14, 37-47.
- Vinegar A., Carson A. I., and Pepelko W. E. (1980). Pulmonary function changes in Chinese hamsters exposed six months to diesel exhaust. In: Pepelko W. E., Danner R. M., Clarke N. A., eds. *Health effects of diesel engine emissions: proceedings of an intentional symposium*.
- Vinegar A., Carsoih A., Pepelko W. E. (1981a). Effect of six months of exposure to two levels of diesel exhaust on pulmonary function of Chinese hamsters. *Fed. Proc.* 40, 593.
- Vinegar A., Carson A., and Pepelko W. E. (1981b). Pulmonary

function changes in Chinese hamsters exposed six months to diesel exhaust. *Environ. Int.* 5, 369-371.

6.1.6 上気道への影響

藤巻 秀和

鼻部を中心とする上気道へのPMの影響については、スギ花粉症の発症との関連から精力的に研究が行われている。というのは、スギ花粉症の罹患率の増加と車両通行量の増加との間の正の相関が疫学的に指摘されたことが発端となっているからである。

上気道における反応において免疫学的には、鼻粘膜上皮や粘膜固有層に存在するリンパ球や肥満細胞が鼻アレルギーの病態発症に重要な役割を担っている。花粉などの抗原に感作されると抗原提示細胞・上皮細胞やリンパ球の活性化がおり、サイトカインやケモカインなどの情報伝達分子を介して局所的に抗原特異的なIgE抗体産生の誘導が起こり、肥満細胞上でのIgE受容体を介した反応によりヒスタミンやロイコトリエンなどの各種メディエーターが放出されて即時型の反応であるくしゃみ、鼻水、鼻閉がみられる。このときには、肥満細胞からのヒスタミンによる知覚神経刺激による反射的反応や交感神経系経由での血管拡張も関与している。また、引き続き数時間後に出現する鼻閉を中心とした遅発型の反応も鼻アレルギーの病態として重要視されている。

実験動物を用いて粒子状物質と花粉症発症との関連は、マウスのアレルギーモデルで検討された。まず最初に花粉症とディーゼル車からの排気粒子 (DEP) に着目して、マウスの鼻部に花粉抗原 (JCPA)、あるいは実験動物を用いたアレルギー反応モデルでよく用いられる卵白アルブミン (OVA) 抗原とをDEPの濃度をいろいろかえて点鼻投与し抗原特異的IgE抗体の産生が誘導されるか否か研究された。その結果、1 μ g のDEPを抗原と共に点鼻投与することによってIgE産生の誘導がみられることが明らかとなった (Takafuji ら、1987)。

次に、DEPの点鼻によるこのIgE産生の増強効果がどのようなメカニズムで行われているか検索したところ、Tリンパ球のうちのCD4陽性でTh2タイプに分類される細胞から産生されるインターロイキン4 (IL-4) とよばれる情報伝達因子の増加が関与していることが明らかと

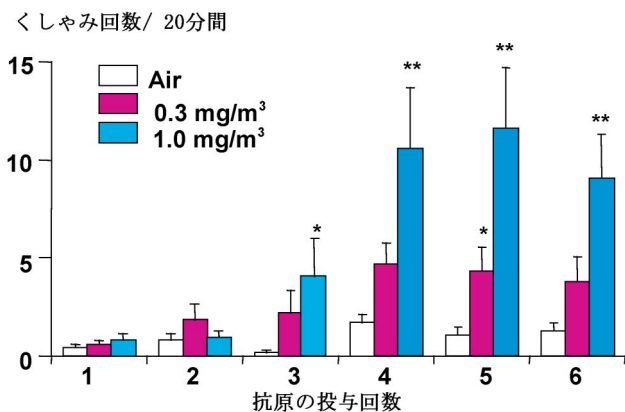


図 6.1.1 DE 曝露と繰り返し抗原投与によるくしゃみ反応の亢進

なった (Fujimaki ら、1995)。なお、DEP によるこのような作用は、ディーゼル排気ガス曝露でも観察されている (Fujimaki ら、1997)。

DEP の点鼻投与による IgE 産生の増強効果は、通常的环境下で遭遇するカビ抗原を用いたときにも観察されている (Ohyama ら、1998)。DEP によるのと同様の IgE 抗体産生増強効果は、関東ローム粉やフライアッシュなどの組成成分の異なる粒子状物質の曝露でも認められている (Maejima ら、1997)。

花粉症の発症には、IgE 抗体の産生が誘導された後は肥満細胞からのメディエーター遊離が重要なポイントとなってくる。DEP の点鼻投与、あるいはディーゼル排気ガス曝露による鼻粘膜における肥満細胞への影響についての報告はみられない。しかしながら、マウスの骨髄

由来培養肥満細胞の活性化への DEP の影響を調べると、抗原-IgE 系での肥満細胞の活性化が DEP を添加することによりさらに増強することが IL-4 と IL-6 産生の亢進をとうして認められている (Saneyoshi ら、1997)。

鼻アレルギーの発症の病態である、くしゃみ、鼻水、鼻閉への DEP やディーゼル排気ガス曝露の影響については、モルモットのアレルギーモデルで検討されている。DEP のみを懸濁した状態で点鼻投与したモルモットではヒスタミンによる鼻腔内圧、血管透過性、鼻汁分泌物の増加が DEP を点鼻することにより亢進することが明らかにされている (Kobayashi & Ito、1995)。

モルモットへの 1 mg/m³ や 3.2 mg/m³ のディーゼル排気ガス曝露を行った実験では、排気ガス曝露のみではくしゃみ、鼻水、鼻閉などは観察されなかった。しかしながら、3 時間の短期曝露と 28 日間の亜急性曝露でも、1 mg/m³ や 3.2 mg/m³ のディーゼル排気ガス曝露でヒスタミンによる鼻腔内圧、血管透過性、鼻汁分泌物の増加は亢進する結果が得られており、さらに上皮層への好酸球の集積もみられている (Kobayashi ら、1997、1998)。最近、モルモットを用いたディーゼル排気ガス曝露実験においては、より環境濃度に近い濃度である 0.3 mg/m³ の 5 週間曝露と抗原の点鼻投与を行った実験でくしゃみ回数 (図 6.1.1) と鼻汁量の有意な増加、鼻粘膜上皮および上皮下の好酸球の集積がみられている。

スギ、ヒノキ、ブタクサなどの花粉によるアレルギー

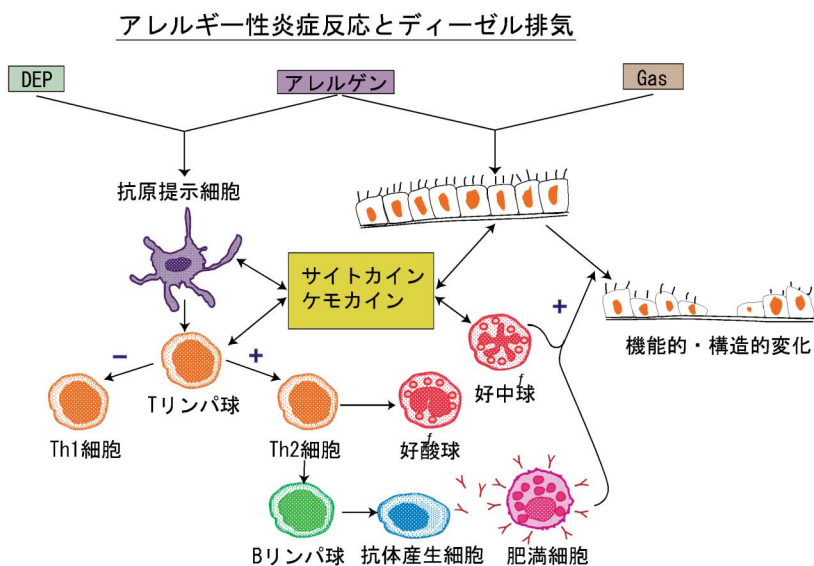


図 6.1.2

の反応の場は鼻であり、ダニ、かび、ハウスダストなどのアレルゲンに対する反応の場が下気道であることは、それぞれのアレルゲンの大きさが反応の場を決定する要因のひとつであることを示唆している。これまでの PM のアレルギー反応への影響についての報告では、PM それ自体がアレルゲンとして反応を誘導する報告はみられず、アレルゲンに対する鼻粘膜、およびその近傍のリンパ節での反応を増強することにより影響を与えていると考えられる。

残されている課題で今後検討しなければならないことは、アレルギー性炎症反応とディーゼル排気ガス曝露との関連を示した図 6.1.2 にみられるように PM 中の DEP とディーゼル排気ガス中のガス状物質との影響の違い、およびそれぞれの上気道におけるアレルギー反応への影響の程度が把握できていないことを明らかにすることである。また、多くの研究報告でみられた影響が清浄空気の中で生活すると回復する影響か、回復不可能な影響かを評価することである。さらに、遺伝子レベルでの影響機構が明らかになってきており、それらのマーカーを用いた感度の良い方法を開発することも今後の課題のひとつであろう。

文献

- Fujimaki H, Saneyoshi K, Nohara O, Shiraishi F, Imai T (1995). Intranasal instillation of diesel exhaust particulates and antigen in mice modulated cytokine productions in cervical lymph node cells. *Int Arch Allergy Immunol*, 108, 268-273.
- Fujimaki H, Saneyoshi K, Shiraishi F, Imai T, Endo T (1997). Inhalation of diesel exhaust enhances antigen-specific IgE antibody production in mice. *Toxicology*, 116, 227-233.
- Kobayashi T, Ito T (1995). Diesel exhaust particulates induce nasal mucosal hyperresponsiveness to inhaled histamine aerosol. *Fundam Appl Toxicol*, 27, 195-202.
- Kobayashi T, Ikeue T, Ito T, Ikeda A, Murakami M, Kato A, Maejima K, Suzuki T (1997). Short-term exposure to diesel exhaust induces nasal mucosal hyperresponsiveness to histamine in guinea pigs. *Fundam Appl Toxicol*, 38, 166-172.
- Kobayashi T, Ikeue T, Ikeda A (1998). Four-week exposure to diesel exhaust induces nasal mucosal hyperresponsiveness to histamine in guinea pigs. *Toxicol Sci*, 45, 106-112.
- Kobayashi T (2000). Exposure to diesel exhaust aggravates nasal allergic reaction in guinea pigs. *Am J Respir Crit Care Med*, 162, 352-356.
- Maejima K, Tamura K, Taniguchi Y, Nagase S, Tanaka H (1997). Comparison of the effects of various fine particles on IgE antibody production in mice inhaling Japanese cedar pollen al-

lergens. *J Toxicol Environ Health*, 52, 231-248.

Ohyama K, Taguchi K, Suzuki T (1998). Adjuvant activity of diesel exhaust particles in production of specific antibodies to fungi allergen in mice. *Ann Rep Tokyo Metr Res Lab P.H.*, 49, 232-236.

Saneyoshi K, Nohara O, Imai T, Shiraishi F, Moriyama H, Fujimaki H (1997). IL-4 and IL-6 production of bone marrow-derived mast cells is enhanced by treatment with environmental pollutants. *Int Arch Allergy Immunol*, 114, 237-245.

Takafuji S, Suzuki S, Koizumi K, Tadokoro K, Miyamoto T, Ikemori R, Muranaka M (1987). Diesel exhaust particulates inhaled by the intranasal route have an adjuvant activity for IgE production in mice. *J Allergy Clin Immunol*, 79, 639-645.

6.1.7 下気道

高野裕久

浮遊粒子状物質の中でも DEP や DE が下気道傷害、特に炎症性下気道傷害を惹起するという研究報告は多い。

(1) 非アレルギー性下気道傷害

DEP や DE は、それ単独でも下気道に炎症性傷害を惹起しうる。Henderson ら (1998) は F344 ラットと B6C3F1 マウスに 3.5 mg/m^3 の DE を一日 7 時間、週 5 日、1 7 日間吸入曝露すると、催炎症性の脂質メディエーターであるプロスタグランジンやロイコトリエンが増加し、マウスではマクロファージや好酸球などの炎症に関与する細胞が気管支肺胞内に浸潤することを確認している。Ichinose ら (1998) は、0、0.3、1.0、 3.0 mg/m^3 の DE を ICR 系マウスに 8 ヶ月吸入曝露し、 1.0 mg/m^3 以上の濃度で下気道粘膜下へのリンパ球の浸潤や無線毛細胞の増殖や肥大が有意に増加することを観察している。Kato (2000) らは、Wistar 系ラットに 0.21、1.2、 3.1 mg/m^3 の DE を 6-12 ヶ月間吸入曝露し、下気道や肺組織に肺胞マクロファージ、肥満細胞、形質細胞、好中球、リンパ球等が曝露期間の延長と共に増加することを示している。 1.2 mg/m^3 の DE から粒子を除いたガス成分のみを曝露した時には炎症細胞浸潤はほとんど認められなかったことから、DEP の粒子とそれらを貪食するマクロファージが下気道の炎症形成に重要と考えている。

DE の吸入曝露は、これらの炎症性傷害以外にも多くの変化を実験動物の下気道にもたらすことが過去に数多

く報告されている。下気道に見られる所見としては、肺胞マクロファージの集合体増加、細気管支や肺胞のII型上皮細胞の過形成、肺間質の浮腫、繊維化、肺の気腫性変化等が列挙できる。これらの形態学的変化に関する無影響量は、一日7-20時間、週5-5.5日、104-130週の吸入曝露に関しては、カニクイザルで2 mg/m³、ラットで0.11-0.35 mg/m³、モルモットで0.25 mg/m³と報告されている。

非アレルギー性下気道傷害のメカニズムを明らかにするために、DEPの気管内投与を用いた検討も行われている。Sagaiら(1993)はDEPをリン酸緩衝液に懸濁しICR系マウスに気管内投与している。LD50は0.6 mgであり、スーパーオキシド消去酵素が死亡率を低下させることから、スーパーオキシドとそれに由来する活性酸素種が傷害性を主に発揮すると考えている。Ichinoseら(1995)は0.8 mgのDEPを同様にマウスに気管内投与し、好中球の著明な浸潤を伴う肺水腫が惹起されることを見いだしている。同量の活性炭粒子の気管内投与では肺胞マクロファージの集積のみで好中球の浸潤や肺水腫は極めて軽微であったことから、肺傷害におけるDEPに含まれる粒子以外の構成成分、多環芳香族炭化水素等の重要性に言及している。さらに、Sagaiら(1996)はICR系のマウスに、0.1-0.2 mgのDEPを週に一度16週間に渡り気管内投与し、下気道周囲への好酸球の浸潤、粘液産生細胞の増生、気道反応性の亢進が惹起されることを報告している。Limら(1998)によれば、これらのマウスにおいては活性酸素生成系の酵素であるNADPH Cyt P-450 reductase活性が増加し、活性酸素消去系の酵素であるスーパーオキシドデヒドロゲナーゼが低下していることから、酸化的ストレスの増強が病態形成に関与すると思われる。一方、Takanoら(1999)は活性酸素の一種である一酸化窒素の合成気質であるL-arginineがDEPの繰り返し気管内投与による下気道炎症を増悪し、誘導型一酸化窒素合成酵素の阻害剤が気道炎症を軽減することから、一酸化窒素、特に誘導型一酸化窒素合成酵素に由来する一酸化窒素が病態形成に深く関与すると考えている。

気道炎症の項に詳細は述べられているが、DEPやそれに含まれる多環芳香族炭化水素は気道上皮細胞や肺胞

マクロファージなどの様々な細胞に作用し、炎症に関わるサイトカインやケモカイン、あるいは細胞接着分子といった活性タンパクを産生することが報告されている。大気中の浮遊粒子状物質にも粒子と共に芳香族炭化水素は含まれており、浮遊粒子状物質による下気道の炎症性傷害はこういったタンパク質の発現を介してもたらされている可能性が強い。DEPの抽出成分が、炎症性タンパクを誘導する転写因子の活性化を誘導することも明らかにされている。

(2) アレルギー性下気道傷害

下気道のアレルギー性傷害は気管支喘息に代表される。気管支喘息は、好酸球やリンパ球を主体とし肥満細胞などの多くの炎症性細胞が関与する気道炎症を本態とし、気道反応性の亢進、粘液産生細胞の増生と粘液産生増加、アレルギー特異的免疫グロブリン、特にIgE、IgG1の上昇等により特徴づけられる疾患と考えられている。浮遊粒子状物質であるDEPやDEは気管支喘息を悪化しうることがいくつかの動物モデルで証明されている。Takanoら(1997)(1998a)はICR系マウスに0.1 mgのDEPを週に一度、9-12週気管内投与し、3週毎に気管内投与した卵白アルブミン(アレルギー：1 µg)によるアレルギー性喘息モデルに及ぼす影響を検討している。アレルギーとDEPの併用気管内投与は、各々の単独投与に比較し、好酸球やリンパ球の気管支粘膜下への浸潤と粘液産生細胞の増生を著明に増悪し、気道反応性も有意に亢進させた。喘息の効果細胞と考えられている好酸球を活性化するIL-5やGM-CSFといったサイトカインは併用群で有意に上昇し、好酸球の浸潤程度は局所のIL-5の発現と非常によく相関していた。また、IgG産生と関連するIL-2の発現も併用群の肺で顕著に増加していた。これらの結果とアレルギー性鼻炎モデルにおける結果(上気道の項参照)をあわせると、DEPはアレルギー依存時にいくつかの炎症性サイトカインの発現を増強するが、特に、Th2というタイプに属するリンパ球から産生されるIL-5やGM-CSFの発現を修飾することによりアレルギー性気道炎症を増悪していると考えられる。

Miyabaraら(1998a,b,c)は、数系統のマウスに一日12時間、週7日、5週間、3 mg/m³のDEを曝露し、卵白

表 6.1.1 粒子状物質、DEP とその成分が増悪する炎症・アレルギー反応

(ヒトにおける知見)		
1 DEP 点鼻 (0.3mg)	ヒト	非特異的 IgE 増加
2 DEP 点鼻 (0.3mg)	ヒト	IL-2、IL-4、IL-5、IL-6、IL-13、IFN 増加
3 DEP 点鼻 (0.3mg)	ヒト	アレルギー併存下にアレルギー特異的 IgE、IgG4 増加、Th2 サイトカイン増加
4 DE (0.3mg/m ³)	ヒト	肺胞洗浄液中の好中球、B リンパ球、ヒスタミン増加 組織の肥満細胞、リンパ球、接着分子の増加
(培養細胞における知見)		
1 DEP 抽出 PAH (50ng/well)	ヒトリンパ球	非特異的 IgE 産生増加
2 フェナントレン (1-2ng/ml)	ヒトリンパ球	非特異的 IgE 産生増加
3 DEP (50µg/ml)	ヒト気道上皮	IL-8、GM-CSF、s-ICAM-1 増加、線毛運動低下
4 DEP (10-100µg/ml)	喘息患者上皮	IL-8、GM-CSF、s-ICAM-1 増加 RANTES 増加、繊毛運動低下
5 BaP	ヒト気道上皮	IL-8、GM-CSF 増加
6 DEP (1-50µg/ml)	ヒト気道上皮	IL-8 産生増加、NFκB 活性化 アンチオキシダントによる抑制
7 DEP (20µg/ml)	ヒト皮膚細胞	IL-1 産生増加
8 DEP (10-100µg/ml)	ヒト気道上皮	IL-8、RANTES 産生増加 P38MAP kinase 活性化 アンチオキシダントによる抑制
9 DEP	ヒト気道上皮	GM-CSF 産生 チロシンキナーゼ阻害剤が抑制 DEP 抽出物に高活性
10 ビレン (-200µg/ml)	ヒトリンパ球	IL-4 産生亢進
(動物実験における知見)		
1 DE (3-6mg/m ³)	マウス	アレルギー特異的 IgE 増加、脾臓細胞の IL-4、IL10 産生増加
2 DEP (20-2000µg/body、腹腔内、点鼻)	マウス	アレルギー特異的 IgE 増加
3 ビレン (10µg/body、腹腔内)	マウス	アレルギー特異的 IgE 増加
4 carbon black (100µg/body、皮下)	マウス	リンパ球増殖反応増強
5 DEP (10-1000µg/body、経口)	マウス	経口トレランスの抑制
6 DEP (-50µg/body、点鼻)	マウス	コラーゲン関節炎の増悪、アレルギー特異的 IgG2a 抗体の産生増強 リンパ球増殖反応亢進
7 DEP (-100µg/body、気管内)	マウス	アレルギーによる好酸球性気道炎症、粘液産生、気道過敏性を増悪 肺の IL-5、IL-2 産生増強 IgG1、IgE 産生亢進
8 DE (0.3-3mg)	マウス	アレルギーによる好酸球性気道炎症、粘液産生、気道過敏性を増悪 肺の IL-5、GM-CSF 産生増強 IgG1、IgE 産生亢進
9 DEP (点鼻) carbon black (点鼻) 土壌粒子 (点鼻) fly ash (点鼻)	マウス	アレルギー特異的 IgE 増加

アルブミンの腹腔内投与による感作の後、ミストとして吸入チャレンジし、以下の検討を試みている。DE とアレルギーの併用吸入曝露は、各々の単独曝露に比較し、下気道粘膜下への好酸球浸潤、粘液産生細胞増生、アレルギー特異的 IgE および IgG1 産生、IL-5、IL-4、GM-CSF、IL-2 の肺における発現を有意に増強していた。中でも、IL-5 は気道の好酸球浸潤レベルと、IL-2 は IgE および IgG1 抗体価と非常によく相関していた。DE によるアレルギーに関連する好酸球浸潤の増悪は、1mg/m³ の DE 曝露によってもたらされることも彼らは報告している。Ichinose (1998) と Takano ら (1998b) は ICR 系マウスに 1 日 12 時間、毎日、34-40 週間、0、0.3、1.0、3.0mg/m³ の DE を曝露し、16 週目から 3 週に一度、卵白アルブミンをミストとして吸入曝露する実験をおこなっている。アレルギーと DE の併用曝露群では他群に比較し下気道粘膜下への好酸球浸潤、リンパ球浸潤、粘液産生細胞増生が増悪しており、1.0 mg/m³ 以上で有意であった。また、無線毛上皮の増殖と上皮細胞の肥大は 0.3 mg/m³ の DE 曝露群でも有意に増加していた。気道反応性の亢進や IL-5 の増強も併用曝露群で他群に比較し強く、3.0 mg/m³ の DE 曝露で有意な差が観察された。

上述のように、粒子状物質である DEP は下気道のアレルギー性傷害である気管支喘息を増悪する。一般に、アレルギー性疾患は、アレルギーの抗原提示細胞による認識に始まり、リンパ球、特に Th2 タイプのリンパ球の活性化が続いて惹起される。これらのリンパ球は IL-5、IL-4、GM-CSF 等の生理活性を持つタンパク質（サイトカインやケモカイン）を産生し、リンパ球自らのみならず喘息の病態形成の主因である好酸球や肥満細胞などの数多くの炎症性細胞を活性化する。活性化された B リンパ球はアレルギー特異的免疫グロブリンを生成し、好酸球や肥満細胞の表面に固着し、アレルギーとの遭遇によりこれらの細胞を脱顆粒させる。これらの細胞には炎症や血管透過性や気道収縮に関わる種々の生理活性物質が含有されているため、脱顆粒は結果として気管支喘息をはじめとするアレルギー反応あるいは疾患として表現される。粒子状物質、DEP やその成分が上述の過程のいくつかを修飾しうることは、ヒト、実験動物、細胞等を

用いた研究で証明されている。これらの研究の内容を表 6.1.1 に示した。

文献

- Henderson RF, Picirell JA, Jones RK, et al. (1998) Response of rodents to inhaled diluted diesel exhaust: biochemical and cytological changes in bronchoalveolar lavage fluid and in lung tissue. *Fundam Appl Toxicol* 11, 546-567.
- Ichinose T, Furuyama A, Sagai M. (1995) Biological effects of diesel exhaust particles (DEP) II. Acute toxicity of DEP introduced in lung by intratracheal instillation. *Toxicology* 99, 153-167.
- Ichinose T, Takano H, Miyabara Y, et al. (1998) Long-term exposure to diesel exhaust enhances antigen-induced eosinophilic inflammation and epithelial damage in the murine airway. *Toxicol Sciences* 44, 70-79.
- Kato A, Nagai A, Kagawa J (2000) Morphological changes in rat lung after long-term exposure to diesel emissions. *Inhalation Toxicol* 12, 469-490.
- Lim HB, Ichinose T, Miyabara Y, et al. (1998) Involvement of superoxide and nitric oxide on airway inflammation and hyperresponsiveness induced by diesel exhaust particles in mice. *Free Radic Biol Med* 25, 635-644.
- Miyabara Y, Ichinose T, Takano H, et al. (1998a) Diesel exhaust inhalation enhances airway hyperresponsiveness in mice. *Int Arch Allergy Immun* 116, 124-131.
- Miyabara Y, Ichinose T, Takano H, et al. (1998b) Effects of diesel exhaust on allergic airway inflammation in mice. *J Allergy Clin Immunol* 102, 805-812.
- Miyabara Y, Takano H, Ichinose T, et al. (1998c) Diesel exhaust enhances allergic airway inflammation and hyperresponsiveness in mice. *Am J Respir Crit Care Med* 157, 1138-1144.
- Sagai M, Ichinose T, Furuyama A. (1996) Biological effects of diesel exhaust particles. III. Pathogenesis of asthma-like symptoms in mice. *Free Radic Biol Med* 21, 199-209.
- Sagai M, Saito H, Ichinose T, et al. (1993) Biological effects of diesel exhaust particles. I. In vitro production of superoxide and in vivo toxicity in mouse. *Free Radic Biol Med* 14, 37-47.
- Takano H, Ichinose T, Miyabara Y, et al. (1998a) Inhalation of diesel exhaust enhances allergen-induced eosinophil recruitment and airway hyperresponsiveness in mice. *Toxicol Applied Pharmacol* 150: 328-337, 1998.
- Takano H, Ichinose T, Miyabara Y, et al. (1998b) Diesel exhaust particles enhance airway responsiveness following allergen exposure in mice. *Immunopharmacol Immunotoxicol* 20, 329-336.
- Takano H, Lim HB, Miyabara Y, et al. (1999) Manipulation of the L-arginine-nitric oxide pathway in airway inflammation induced by diesel exhaust particles in mice. *Toxicology* 139, 19-26.
- Takano H, Yoshikawa T, Ichinose T, et al. (1997) Diesel exhaust particles enhance antigen-induced airway inflammation and local cytokine expression in mice. *Am J Respir Crit Care Med* 156, 36-42.

6.1.8 循環機能

鈴木 明

文献は比較的少なく、最近の DEP の影響研究では、*in vitro* の研究が多く、*in vivo* の研究は少ない。また、PM_{2.5} の影響研究では、*in vivo* の研究が数件報告されているに過ぎない。ここでは *in vitro* の研究と *in vivo* の研究に分けてレビューした。

a. *In vitro* の研究

Sakakibara ら (1994) は、雄モルモットの心筋摘出標本を使い、 $10^{-5} \sim 10^{-3}$ g/ml の DEP 溶液の心筋に対する反応実験を行い、 5×10^{-4} g/ml 以上の DEP 溶液の濃度において、負の変力作用が生じ心停止に至る事、およびこの DEP の作用は、atropine、propranolol、verapamil、diltiazem、diphenhydramine、indomethacin、catalase を前投与しても抑制されなかった事を報告した。

Ikeda ら (1995) は、1、10、100 μ g/ml の DEP 溶液を用いて、SD 系ラットの胸部大動脈摘出標本実験を行った。そして、10 μ g/ml 以上の DEP は phenylephrine によって収縮させた血管の acetylcholine による弛緩作用を抑制し、この DEP の弛緩抑制作用は SOD によって一部阻害された事を報告している。

同様に、Muto ら (1996) は、1、10、30、100 μ g/ml の DEP を雄の New Zealand White ウサギの胸部大動脈摘出標本に使用し、30 および 100 μ g/ml の DEP は phenylephrine によって収縮させた血管の acetylcholine による弛緩作用を抑制し、100 μ g/ml の DEP は血管からの NO の産生を阻害する事を報告した。

b. *In vivo* の研究

Minami ら (1999) は、Hartley 系雄モルモットに DEP の静脈内投与を行い、DEP 溶液の累積投与によって不整脈が誘発され、最終的には A-V block により死亡した。不整脈誘発濃度は 75.53 ± 11.65 mg/ml で、致死濃度は 132.0 ± 7.22 mg/ml である事を報告した。

Gordon ら (2000) は、雄の F344 系ラットに PM を 132 \sim 919 μ g/m³、a single 3 時間曝露と 6h/ 日、3 日間の曝露を行い、132 μ g/m³ 濃度では、心拍数は曝露後 6 時間において軽度な増加を、184 μ g/m³ 濃度では曝露後 3 時

間において軽度な増加を示す事を報告している。また、同上の動物に monocrotaline(40mg/kg) i.p し、肺動脈高血圧および心筋症様病態を作出した後に、曝露群において HR の軽度な増加を認めている。さらに、Bio-F1B 系シリアンハムスター 雄の心拍数、波形ともに曝露群との間に有意な変化を認めなかった。Bio To-2 系シリアンハムスター 雄 (spontaneous cardiomyopathy) の 8 ヶ月齢と 10 ヶ月齢の個体を用いたが、それぞれ曝露群との間に有意な差は認めなかった。

Godleski ら (2000) は、犬 (nomal) に 93.7 \sim 1055.8 μ g/m³ の CAPs を 6 時間/日、3 日間曝露すると、曝露群における HF、LF 成分は有意に高値を示し、心拍数は減少傾向を示し、曝露群の T 波の波形にはばらつきが多く、逆転するものも認められる事を報告した。また、冠動脈結紮 (coronary occlusion) の犬では、4.2 \sim 27.4 μ g/m³ 曝露群の HF 成分は有意に高値を示し、nomal 犬の曝露群の HF 成分よりも増加する傾向がみられ、その時、T 波が大きくなったり小さくなったりとばらつき、control 群に比べ、ST の上昇が有意に早くなった。曝露群の曝露後における ST segment は曝露前よりも有意に上昇したが、心拍数には大きな変化を認めなかった。

Toda ら (2001) は、雄の Wistar 系ラットに、麻酔下で、5、50、120 mg/ml/head の DEP 溶液を静脈内に投与し、50 mg/ml/head 以上の濃度の DEP 溶液では、投与開始直後から一過性の血圧の低下を認め、この血圧低下反応は atropine、propranolol の前投与によって抑制される事を報告している。

呼吸器に対する影響は一般的に認識されているが、循環器に対する影響は研究が始まったばかりと言える。

文献

- Godleski J., R. L. Verrier, P. Koutrakis and P. Atalano. Mechanisms of morbidity and mortality from exposure to ambient air particles, HEI research report 91(2000).
- Gorden T., C. Nadziejko, L. C. Chen and R. Schlesinger. Effects of concentrated ambient particles in rats and hamsters: An exploratory studies, HEI research report 93 (2000).
- Ikeda M., Suzuki M., Watarai Ken., Sagai M., and Tomita T. (1995). Impairment of endothelium, DEPaendent relaxation by diesel exhaust particles in rat thoracic aorta. Jpn. J. Pharmacol. 68, 183-189.
- Minami M., Endo T., Hamaue N, Hirafuji M., Mori Y., Hayashi H.,

- Sagai M. and Suzuki A. (1999). Electrocardiographic changes induced by diesel exhaust particles (DEP) in guinea pigs. Res. Comm. Mol. Pathol. Pharmacol. 105, 67-76.
- Muto E., Hayashi T., Yamada K., Esaki T., Sagai M., and Iguchi A. (1996). Endothelial-constitutive nitric oxide synthase exists in airways and diesel exhaust particles inhibit the effect of nitric oxide. Life Sci. 59: 1563-1570.
- Sakakibara M., Sagai M., Minami M., Endo T., Hirafuji M., Murakami S., Mori Y. and Sagai M. (1994). Biological effects of Diesel exhaust particles (DEP) on isolated cardiac muscles of guinea pigs. Res. Comm. Mol. Pathol. Pharmacol., 86, 99-110.
- Toda N., Tsukue N., Birumachi J., Sagai M., Suzuki A. and Tsubone H. (2001). Effects of diesel exhaust particles on blood pressure in rats. Toxicol. Environ. Health 63:429-435.

6.1.9 生殖機能に対する影響および環境ホルモン作用

鈴木 明

近年、生殖機能に対する影響と、いわゆる環境ホルモン作用があるらしいことが分かってきた。そのため、DEP 中のエストロゲン作用物質と抗エストロゲンおよび抗アンドロゲン作用物質の化学物質の分析、同定が *in vitro* の実験系を用いて多くなりつつある。ここでは *in vitro* の研究と *in vivo* の研究に分けてレビューした。

a. *in vitro* の研究

Fredricsson ら (1993) は、ヒトの精子を試験管内で DEP 抽出液と接触させると、精子の運動能力が 25% 低下しその量がフタル酸エステル類の 1/10 と少ない事を見出した。

Meek ら (1998) は、DEP のジクロロメタン抽出物 0.046 ~ 460 ng/μl を使用して、MCF-7 ヒト乳ガン細胞等で DEP 抽出物が Ah 受容体を活性化したり、エストロゲン受容体への結合ならびに遺伝子発現を増加させる事を認めた。

Taneda ら (2000) は、DEP 懸濁液および DEP のヘキサン、ベンゼン、ジクロロメタン、メタノールおよびアンモニア抽出物を、ヒトエストロゲン受容体発現酵母細胞に曝露し、DEP 懸濁液はエストロゲン活性はみられなかったが、抗エストロゲン活性がみられた事と DEP 抽出液はエストロゲン活性がみられなかったが、ベンゼン、ジクロロメタンおよびメタノール抽出液は抗エストロゲン活性を示した事を報告した。

また、Taneda ら (2001, 2002) と Mori ら (2002) は

同様な DEP 抽出分画で、エストロゲン作用と、抗エストロゲン作用物質を見出した。

b. *in vivo* の研究

Lee ら (1980) は、SD 系雄ラットに総炭化水素濃度として 14.2 ppm の DE を 20 時間/日、42 日間、10 週令から曝露し、前立腺の Aryl hydrocarbon hydroxylase 活性が 4.5 倍に増加するが、精巣では変化がない事を報告した。

Pereira ら (1981) は、A 系雄マウスに 6 mg/m³ の DEP を 8 時間/日、31 ~ 39 週間曝露し、精子頭部の異常を調べたが変化が無い事を報告した。

Pepelko と Periano (1983) は、CD-1 系雌雄マウスに 12 mg/m³ (light duty engine; LD) 交配前に 100 日間、(曝露 8 時間/日、7 日/週) 曝露したが、繁殖能力、生存率に著しい変化がない事を報告した。

Pepelko と Periano (1983) は、優勢的致死因子を持つ T 系雄マウスに、6 mg/m³ の DEP を 8 時間/日、7 日/週、7 週間曝露し、優勢的致死因子に影響無かったが、卵巣黄体数が顕著に減少した事を報告した。

Quinto と DeMarinis (1984) は、C57BL/6 系雄マウスと C3H 系雄マウスに、50, 100, 200 mg/kgBW の DEP を 5 日間連続腹腔内注射をして、精子数の減少、睪丸重量の減少、精子奇形等があったことを報告している。

Pepelko と Periano (1983) は、SD 系雌ラットに 6 mg/m³ (heavy duty engine; HD) の DEP を 8 時間/日、7 日/週の曝露では、胎児死亡率、吸収胎児率、胎児の体重等に変化無かったが、ニュージーランド系雌白ウサギでは、妊娠 5 ~ 16 日目或いは 6 ~ 18 日目に同量の DEP を曝露すると、胎児死亡率は 2 倍となり、吸収胎児数は 40% 増加するが、対照群との間に有意差が無かった事を報告している。

Lewis ら (1989) は、F-344 系雄ラットに 2 mg/m³ の DEP を 7 時間/日、5 日/週で 6 ヶ月曝露すると、無処置正常雌マウスとの交配で胎児の着床胚子と着床前胚子の喪失が認められたと報告した。

Lewis ら (1989) は、カニクイザルに 2 mg/m³ の DEP を 7 時間/日、5 日/週で、2 年間曝露し、精子の運動性と運動速度に変化無いと報告した。

Watanabe と Oonuki (1999) は、妊娠 19 日目の雌ラットに 5.63 mg/m³ の DEP (NO₂ 4.16 ppm, NO 8.10 ppm) を 6 時間/日、5 日/週、3 ヶ月間曝露し、生まれた子供(雄)の生殖能の低下と血清中のテストステロンとエストラジオール濃度増加、および卵胞刺激ホルモン (FSH) 濃度の低下を観察した。

Yoshida ら (1999) は、ICR 系雄マウスに 0.3, 1.0, 3.0 mg/m³ の DEP を 12 時間/日、7 日/週、1 ~ 10 ヶ月間吸入曝露 (6 週齢より曝露) し、0.3 mg/m³ より濃度依存的に精子産生能力が有意に低下し 6 ヶ月目で最も顕著であるが、精巣重量の変化なしと報告した。また、精巣ライディッヒ細胞の形態的な顕著な変化と LH 受容体の mRNA 発現の低下を認めた。

Tsukue ら (2001) は、Fischer 344 ラットに、0.3, 1.0, 3.0 mg/m³ の DEP を 12 時間/日、7 日/週、8 ヶ月間吸入曝露 (13 ヶ月齢より曝露) し、0.3 mg/m³ 群で前立腺、凝固線、胸腺および副腎重量の有意な減少と 3.0 mg/m³ 群で前立腺、精囊および凝固線重量の有意な増加を認めた。また、0.3 および 1.0 mg/m³ 群で血清黄体形成ホルモン (LH) およびテストステロン濃度が増加し、3.0 mg/m³ 群で精巣中のテストステロン濃度は有意に増加したが、精巣重量および精子数は変化なかったことを報告している。

Watanabe と Kurita (2001) は、妊娠 7 から 20 日目のラットに、5.63 mg/m³ (NO₂ 4.16 ppm, NO 8.10 ppm) の DEP を 6 時間/日、5 日/週、3 ヶ月間曝露し、曝露群で雌雄胎子の生殖突起肛門間距離が有意に延長し、精巣、卵巣および胸腺重量が減少する事を報告した。さらに、テストステロンおよびプロジェステロン値は、曝露にもかかわらず妊娠中のため増加したが、全曝露群で有意に高い値を示した。

生殖機能への影響と環境ホルモン作用については現象学的研究の段階であると言える。

文献

- Fredricson B., Moller L., Pousette A., and Westerholm R. (1993). Human sperm motility is affected by plasticizers and diesel particle extracts. *Pharmacol. Toxicol.* 72, 128-113.
- Lee I. P., Suzuki K., Lee S. D., et al. (1980). Aryl hydrocarbon hydroxylase induction in rat lung, liver, and male reproductive organs following inhalation exposure to diesel emission. *Toxicol. Appl. Pharmacol.* 52, 181-184.

- Lewis T. R., Green F. H. Y., Moorman W. J., et al. (1989). A chronic inhalation toxicity study of diesel engine emissions and coal dust, alone and combined. *J. Am. Coll. Toxicol.* 8, 345-375
- Mori Y., Shinji Taneda, Hideyuki, Hayashi, Akiyo Sakushima, Kazuyuki Kamata, Akira K. Suzuki, Shin Yoshino, Masakatsu Sakata, Masaru Sagai and Koh-ichi Seki: Estrogenic activities of chemicals in diesel exhaust particles, *Biol. Pharm. Bull.* 25, 145-146. (2002)
- Pepelko W. E., and Peirano W. B. (1983). Health effects of exposure to diesel engine emissions: a summary of animal studies conducted by the U.S. Environmental Protection Agency, s Health Effects Research Laboratories at Cincinnati, Ohio. *J. Am. Coll. Toxicol.* 2, 253-306
- Pereira W. E., Sabharwal P. S., Gordon L., et al. (1981). The effect of diesel exhaust on sperm-shape abnormalities in mice. *Environ. Int.* 5, 459-460.
- Quinto I., and De Marinis E. (1984). Sperm abnormalities in mice exposed to diesel particulate. *Mutar. Res.* 130, 242.
- Taneda S., H. Hayashi, A. Sakushima, K. Seki, A.K. Suzuki, K. Kamata, M. Sakata, S. Yoshino, M. Sagai and Y. Mori (2001) Estrogenic and anti-estrogenic activities of two types of diesel exhaust particles, *Toxicology*, 170, 153-161.
- Taneda S., H. Hayashi, A. Sakushima, K. Seki, K. Kamata, A.K. Suzuki, M. Sakata, S. Yoshino, M. Sagai and Y. Mori. (2002). Estrogenic and anti-estrogenic activities of acidic, phenolic and neutral fractions of hexane extract of diesel exhaust particles, *Environmental Sciences*, 9, 188-193.
- Tsukue, N., Toda, N., Jin, W. Z., Sagai, M., Birumachi, J., Watanabe, G., Taya, K., Tsubone, H., and Suzuki, A. K. (2001). Diesel exhaust (DE) affects the regulation of testicular function in male Fischer 344 rats. *J. Toxicol. Environ. Health A* 63: 101-112.
- Watanabe N., and Oonuki Y. (1999). Inhalation of diesel engine exhaust affects spermatogenesis in growing male rats. *Environ. Health Perspect.* 107, 539-544.
- Watanabe, N., and Kurita, M. (2001). The masculinization of the fetus during pregnancy due to inhalation of diesel exhaust. *Environ. Health Perspect.* 109: 111-119.
- Yoshida S., Sagai M., Oshio S., Umeda T., Suganuma M., Ihara T. and Takeda K. (1999). Exposure to diesel exhaust affects the male reproductive system of mice. *Intl. J. Andrology*.

6.1.10 まとめ

小林隆弘

本報告ではディーゼル粒子 (DEP) を含むディーゼル排気の毒性・影響について粒子の沈着と動態、発がんおよび非発がん影響についてまとめた。

動物実験のデータをヒトに外挿する場合に考慮すべき重要な要因の一つに粒子の沈着と動態 (ドシメトリー) がある。ディーゼル排気粒子 (DEP) の直径は約 0.1 ~ 0.3

μm であり、鼻での沈着はきわめて少なく、実験小動物では吸入した粒子の概ね 10～20% が肺に沈着する。一方、ヒトの場合、0.2 μm の粒子の肺胞沈着効率は 10～20%、DEP の場合 50% であることが報告されている。

肺に沈着した DEP は粘液線毛運動や肺胞マクロファージの貪食によって肺外に排出（クリアランス）される。沈着した粒子のうち排出されずに残ったものが滞留した粒子となる。ラットの粘液線毛運動によるクリアランスの半減期は 1 日、肺胞マクロファージによるそれは 60～80 日と推定され前者に比べ非常に遅い。

ヒトの場合は、一般的に粒子の肺胞クリアランスはげっ歯類より非常に長い。これらのことから、げっ歯類を用いた実験の吸入曝露量をヒトに外挿するときには 2～3 倍あるいは、おおよそ 4 倍する必要があることが示唆されている。

発がん影響

変異原性に関してはディーゼル車排気粒子には代謝活性を必要としない直接変異原物質が多く含まれ、その大部分は強変異原性を示す物質を多く含む芳香族化合物や芳香族ケトン等のニトロ誘導体であることは明らかである。

動物実験ではラットにおける DEP の吸入または経気道投与と肺腫瘍との関連は明らかであるが、他の動物では肺発がんとの関連を示唆する一致した見解はない。DEP の成分に着目した検討の結果は、含まれる PAH とニトロ PAH が肺発がんの原因として重視すべきであることを示した。ガス状成分に関しては本報告の検討対象ではないが、一部に肺発がんの促進作用を示唆する報告があるものの、除粒子吸入実験の成績はガス状成分が肺発がんの主要な原因とはならないことを証明している。

非発がん影響

組織病理学的な無影響レベルとして、7～20 時間/日、5～5.5 日/週の頻度で 104～130 週曝露の条件で、カンクイザルでは 2 mg/m^3 、ラットでは 0.11～0.35 mg/m^3 、モルモットでは 0.25 mg/m^3 であった。この組織学的にみた影響が病態や機能にどのような影響があるかについての検討が必要とされる。

気道炎症に関しては、組織標本中での粒子を貪食したマクロファージの集合体の増加がハムスターで 0.4 mg/m^3 の粒子濃度（16 時間/日、6 日/週、30 カ月）で観察されている。また、気管支肺胞洗浄液中のマクロファージの増加についても 0.75 mg/m^3 の粒子濃度（20 時間/日、5.5 日/週、12 カ月）での増加が観察されている。これらの変化が炎症を誘導する可能性があることや比較的低濃度で影響がみられることから、病態との関連とその機構について今後検討していく必要がある。

アレルギー関連疾患に関しては、抗原（OA）を腹腔内注射して感作したマウスにディーゼル排気曝露をおこないつつながら、OA を吸入させ惹起させる喘息様病態モデルでは気道粘膜下への好酸球浸潤と粘液産生細胞の増生が OA+ ディーゼル排気群でのみディーゼル排気粒子濃度に依存して増加し、1.0 mg/m^3 以上で対照群より有意に増加することが観察されている。なお DEP の点鼻投与などによって IgE 抗体の増加を報告した研究は多いが、DEP による IgE 合成は鼻粘膜のリンパ組織（NALT、nasal-associated lymphoid tissue）の刺激による可能性が考えられる。またアレルギー性鼻炎様病態はディーゼル排気粒子濃度に依存して 0.3 および 1.0 mg/m^3 で有意に増悪することが観察された。

生殖や発生におよぼす影響については、ICR 系雄マウスに 0.3、1.0、3.0 mg/m^3 のディーゼル排気曝露（12 時間/日、1～10 カ月間）を行うと 1 日当たりの精子産生能力は低下したこと、精巣組織の男性ホルモンを産生するライディヒ細胞の形態異常が観察された。これらの影響は除粒子群でも、若干弱まる傾向はあるが、明瞭に認められていることから、ディーゼル排気のガス状成分のほうが粒子状成分より内分泌系攪乱に寄与しているとした報告がある。

その他の影響については、影響が認められたとしても、曝露濃度は 1.5～2 mg/m^3 以上の比較的高い濃度で観察されているものが多い。

6.1.11 国立環境研究所における毒性・影響評価研究の展望

微小粒子状物質が呼吸 - 循環機能におよぼす影響について、主に次の 3 課題を中心に検討を行う。

(1) 正常および病態モデル動物を用いた微小粒子状物質曝露が呼吸-循環機能におよぼす影響の検討

呼吸器や循環器に疾患を持った人々が微小粒子状物質の曝露に対して高感受性であることの科学的根拠を与えることが目的。病態モデルとしては高血圧-、肺高血圧-、心筋炎-、心不全-ラットなどの病態モデル動物を用いディーゼル排気、ディーゼル粒子などを曝露し、心電図などの心機能や肺機能への影響を生理学的観点から検討する。また、その機構を明らかにするため、微小粒子状物質の肺や血管に及ぼす影響を遺伝子およびタンパクの発現など分子レベルで解析する。

(2) 微小粒子状物質曝露が呼吸器の感染による傷害に及ぼす影響の検討

微小粒子状物質の曝露に対して高感受性である老人や慢性閉塞性肺疾患患者は呼吸器感染の影響を受けやすく、感染による肺炎等のため死亡する可能性もある。微小粒子状物質の曝露が感染による肺炎等の影響を重篤化する

可能性があるか検討するとともに、その機構について明らかにする。

ディーゼル排気、ディーゼル粒子などを曝露し、エンドトキシンや感染などによる肺での炎症におよぼす影響について検討する。また、その機構を明らかにするため、微小粒子状物質が LPS 等に対する反応に影響を与える因子に関する遺伝子発現や蛋白レベルでの解析を行う。

(3) 運転条件等による排出微小粒子状物質の毒性スクリーニング手法の検討

地域、車の運転条件、各粒径における粒子状物質の毒性がどのように変動するかについて、一次的なスクリーニング手法の開発が求められている。そこで、細胞を用いた *in vitro* での微小粒子状物質の毒性と *in vivo* での炎症との相関が高い指標を検討し毒性スクリーニング手法として開発する。

6.2 疫学研究と曝露評価

新田 裕史

6.2.1 はじめに

国際的に大気中の粒子状物質、特に微小粒子の健康影響に関する関心が高まっている。その最も大きな背景には、米国において 1997 年に環境基準が改定されて、PM_{2.5} と呼ばれる粒径が 2.5 μm 以下の粒子の環境基準として年平均値 15 μg/m³、24 時間値 65 μg/m³ を追加したことがあげられる。また、我が国ではディーゼル排気粒子 (DEP; Diesel Exhaust Particles) の健康影響に関する社会的な関心が高まり、その規制についての具体的な取り組みが開始されている。

多くの環境汚染物質、ひいては大気汚染物質の中で特に PM_{2.5} や DEP に対する関心が高まっていることは、その健康影響に対する懸念が他の汚染物質よりも大きいことが基となっている。その健康影響に関する知見は疫学研究や実験研究によってもたらされてきた。そこで、PM_{2.5} および DEP の健康影響に関する知見を概括し、最近の研究動向、特に疫学研究の動向について述べてみたい。

6.2.2 PM_{2.5} の健康影響に関する研究

最近の PM_{2.5} 研究をリードしてきた米国では、粒子状物質の環境基準は 1971 年に初めて定められ、その後 1987 年に改定され、さらに 1997 年に再改定された (表 6.2.1)。1971 年の環境基準はハイポリウムエアサンプラーで測定される TSP (Total Suspended Particle) について定められたものである。1987 年には 10 μm 以下 (50 % カットオフ、すなわち 10 μm の粒子が 50 % 捕集されるような特性曲線を持つ粒子。) の粒子、いわゆる PM₁₀ について定められた。1997 年の新しい環境基準の特徴は、PM₁₀ に加えて PM_{2.5} の環境基準が新たに追加されたことと環境基準達成の評価基準が変更されたことである。TSP では粒径について定められていなかったが、実質的には約 40 μm 以下の粒子が捕集されていたと考えられている。したがって、米国の粒子状物質の環境基準は 40 μm から 10 μm、さらに 2.5 μm と徐々に細かい粒子を視野に入れて改定されてきたといえる。

一方、我が国では昭和 47 年 (1972 年) に浮遊粒子状物質 (SPM) の環境基準が設定された。浮遊粒子状物質は「大気中に浮遊する粒子状物質のうち、粒径 10 ミクロン

表 6.2.1 米国の粒子状物質環境基準の変遷

		1次基準	評価基準
初回	短期基準 24時間平均	260 μg/m ³	TSP 年一回を越えないこと
	長期基準 年平均	75 μg/m ³	TSP 幾何平均
改定前	短期基準 24時間平均	150 μg/m ³	PM ₁₀ 年一回を越えないこと
	長期基準 年平均	50 μg/m ³	PM ₁₀ 算術平均
新提案	短期基準 24時間平均	150 μg/m ³	PM ₁₀ 24時間値の年間98パーセントイルの3年平均が越えないこと
	長期基準 年平均	50 μg/m ³	PM ₁₀ 3年平均
	短期基準 24時間平均	50 μg/m ³	PM _{2.5} 24時間値の年間98パーセントイルの3年平均が越えないこと
	長期基準 年平均	15 μg/m ³	PM _{2.5} 3年平均
最終規則	短期基準 24時間平均	150 μg/m ³	PM ₁₀ 24時間値の年間99パーセントイルの3年平均が越えないこと
	長期基準 年平均	50 μg/m ³	PM ₁₀ 3年平均
	短期基準 24時間平均	65 μg/m ³	PM _{2.5} 24時間値の年間98パーセントイルの3年平均が越えないこと
	長期基準 年平均	15 μg/m ³	PM _{2.5} 3年平均

表 6.2.2 年平均値の微小粒子指標濃度 (PM_{2.5}、SO_{4²⁻}、H⁺) と各健康影響のリスク (U.S.EPA、1996)

健康影響指標	微小粒子指標濃度	PM ^a 単位増加当たりの リスク上昇	PM 濃度平均値 (μg/m ³)の 都市間範囲
成人における全死亡率上昇		相対リスク (95% 信頼区間)	
Six City ^b	PM _{15/10}	1.42 (1.16-2.01)	18-47
	PM _{2.5}	1.31 (1.11-1.68)	11-30
	SO _{4²⁻}	1.46 (1.16-2.16)	5-13
ACS Study ^c (151 U.S. SMSA)	PM _{2.5}	1.17 (1.09-1.26)	9-34
	SO _{4²⁻}	1.10 (1.06-1.16)	4-24
子供における気管支炎増加		オッズ比 (95% 信頼区間)	
Six City ^d	PM _{15/10}	3.26 (1.13、 10.28)	20-59
Six City ^e	TSP	2.80 (1.17、 7.03)	39-114
24 City ^f	H ⁺	2.65 (1.22、5.74)	6.2-41.0
24 City ^f	SO _{4²⁻}	3.02 (1.28、 7.03)	18.1-67.3
24 City ^f	PM _{2.1}	1.97 (0.85、 4.51)	9.1-17.3
24 City ^f	PM ₁₀	3.29 (0.81、 13.62)	22.0-28.6
Southern California ^g	SO _{4²⁻}	1.39 (0.99、 1.92)	—
子供における肺機能低下			
Six City ^{d,h}	PM _{15/10}	有意差なし	20-59
Six City ^e	TSP	有意差なし	39-114
24 City ^{i,j}	H ⁺ (52 nmoles/m ³)	-3.45% (-4.87、 -2.01) FVC	—
24 City ⁱ	PM _{2.1} (15 μg/m ³)	-3.21% (-4.98、 -1.41) FVC	—
24 City ⁱ	SO _{4²⁻} (7 μg/m ³)	-3.06% (-4.50、 -1.60) FVC	—
24 City ⁱ	PM ₁₀ (17 μg/m ³)	-2.42% (-4.30、 -0.51) FVC	—

^aTSP は100 μg/m³当たり、PM₁₀ と PM₁₅ は50 μg/m³ 当たり、PM_{2.5} は25 μg/m³当たり、SO_{4²⁻}は 15 μg/m³ 当たり、H⁺は 100 nmole/m³当たり

^bDockery et al. (1993)

^cPope et al. (1995)

^dDockery et al. (1989)

^eWare et al. (1986)

^fDockery et al. (1996)

^gAbbey et al. (1995a、 b、 c)

^hRaizenne et al. (1996)

^jPollutant data same as for Dockery et al. (1996)

(μm) 以下のもの」と定義されており、我が国では当初から比較的微小な粒子に焦点を当てて環境基準を設定してきたといえる。

米国では 1987 年の基準見直しで空気力学径が 10 μm 以下の新たな粒径の指標、PM₁₀ を導入したが、健康影響に関する知見および微小粒子と粗大粒子の物理的、化学的性質の根本的な違いから、PM₁₀ のうち微小粒子と粗大粒子の二つの粒子画分を別に扱い、それぞれの基準

を設定すべきであるとして PM_{2.5} の環境基準を追加したと説明されている。微小粒子がそれまでの基準値以下のレベルで見られる死亡、疾病等の健康影響に関連する粒子成分をより代表している可能性を示唆したものである。具体的には、長期曝露の影響として取り上げられている指標は (表 6.2.2)、成人の死亡率の上昇、子供の気管支炎の増加、子供の肺機能低下などである。短期曝露による影響については (表 6.2.3)、急性死亡、入院増加、呼

表 6.2.3 24 時間値の微小粒子指標濃度 (PM_{2.5}、SO₄⁻、H⁺) と各健康影響のリスク (U.S.EPA、1996)

	汚染物質指標	相対リスク(却信頼区間) PM 増加25 µg/m ³ 当たり	PM 濃度 平均 (最低/最高)†
急性死亡			
Six City ^A			
Portage、 WI	PM _{2.5}	1.030 (0.993、 1.071)	11.2 (±7.8)
Topeka、 KS	PM _{2.5}	1.020 (0.951、 1.092)	12.2 (±7.4)
Boston、 MA	PM _{2.5}	1.056 (1.038、 1.0711)	15.7 (±9.2)
St. Louis、 MO	PM _{2.5}	1.028 (1.010、 1.043)	18.7 (±10.5)
Kingston/Knoxville、 TN	PM _{2.5}	1.035 (1.005、 1.066)	20.8 (±9.6)
Steubenville、 OH	PM _{2.5}	1.02.5 (0.998、 1.053)	29.6 (±21.9)
入院増加			
Ontario、 CAN ^B	SO ₄ ⁻	1.03 (1.02、 1.04)	最低/最高 = 3.1-8.2
Ontario、 CAN ^C	SO ₄ ⁻	1.03 (1.02、 1.04)	最低/最高 = 2.0-7.7
	O ₃	1.03 (1.02、 1.05)	
NYC/Buffalo、 NY ^D	SO ₄ ⁻	1.05 (1.01、 1.10)	NR
Toronto、 CAN ^D	H ⁺ (Nmol/m ³)	1.16 (1.03、 1.30)*	28.8 (NR/391)
	SO ₄ ⁻	1.12 (1.00、 1.24)	7.6 (NR、 48.7)
	PM _{2.5}	1.15 (1.02、 1.78)	18.6 (NR、 66.0)
呼吸器症状増加			
Southern California ^F	SO ₄ ⁻	1.48 (1.14、 1.91)	R = 2-37
Six Cities ^G (Cough)	PM _{2.5}	1.19 (1.01、 1.42)**	18.0 (7.2、 37)***
	PM _{2.5} Sulfur	1.23 (0.95、 1.59)**	2.5 (3.1、 61)***
	H ⁺	1.06 (0.87、 1.29)**	18.1 (0.8、 5.9)***
Six Cities ^G (Lower Resp. Symp.)	PM _{2.5}	1.44 (1.15-1.82)**	18.0 (7.2、 37)***
	PM _{2.5} Sulfur	1.82 (1.28-2.59)**	2.5 (0.8、 5.9)***
	H ⁺	1.05 (0.2.5-1.30)**	18.1 (3.1、 61)***
	PM _{2.5}	0.0012 (0.0043)***	0.41 - 73
	SO ₄ ⁻	0.0042 (.00035)***	0.12 - 12
	H ⁺	0.0076 (0.0038)***	2.0 - 41
Denver、 CO ^P (Cough、 adult asthmatics)			
肺機能低下			
Uniontown、 PA ^E	PM _{2.5}	PEFR 23.1 (-0.3、 36.9) (per 25 µg/m ³)	2.5/88 (NR/88)

文献:^ASchwartz et al. (1996a) ^BBurnett et al. (1994) ^CBurnett et al. (1995)

^DThurston et al. (1992、 1994) ^ENeas et al. (1995) ^FOstro et al. (1993)

^GSchwartz et al. (1994) ^POstro et al. (1991)

† () 内は24時間値 PM の最低/最高、 (± S.D)は標準偏差、 (10、 90)は10パーセントイルと90パーセントイル。NR は報告なし。

*100 nmoles/m³当たり変化

**PM_{2.5} は20 µg/m³当たり、PM_{2.5} 中 Sulfur は5 µg/m³当たり、H⁺は25 nmole/m³当たり

***50パーセントイル (10、 90パーセントイル)。

吸器症状増加、肺機能低下である。

米国の PM_{2.5} の環境基準の設定にあたっては、大部分

は疫学研究に関する知見を根拠としている。このような

疫学研究の中で最も有名なハーバード大学の研究グルー

ブによる Six City Study は 1974 年に開始されている。この研究開始当初から当時環境基準が定められていた TSP だけではなく、PM₁₀ ないし PM₁₅ や PM_{2.5} の測定を実施して、微小粒子の健康影響を視野に入れた研究計画を立てており、その成果が約 20 年後に現れたともいえる。

大気汚染の健康影響を評価するものとして呼吸器に対する影響以外にもこれまでいろいろな指標が用いられてきた。死亡もそのひとつである。1952 年に起こった有名なロンドン・スモッグ事件による死者は 4000 人にも上り、高齢で呼吸器系や循環器系の疾患を持っていた人の死亡が多かったと報告されている。死亡の直接の原因となった大気汚染物質が何であったかは明確にはなっていないが、二酸化硫黄と粒子状物質の相乗作用と考えられている。一方で、近年の先進国における通常の大気汚染レベルでは死亡を引き起こすことはないという考えが一般的であったといえる。しかし、米国での研究やその後のヨーロッパをはじめいくつかの国の大都市での研究によって、毎日の死亡数と大気汚染濃度、特に粒子状物質濃度との間に統計的な相関がみられることが報告されるようになった。これらの解析では呼吸器系および循環器系の疾患による死亡との関連性が指摘されており、ロンドン・スモッグ事件での死亡者の特性と類似した結果となっている。一連の解析では PM_{2.5} 濃度が 25 μg/m³ 上昇すると死亡が 2～3 % 増加すると見積もられている。推定されている過剰死亡が本当に大気汚染によって引き起こされているのか、また微小粒子が大きく寄与しているかなどについては非常に議論があるが、米国の 20 都市にデータを解析した最近の報告でも従来の知見を支持する解析結果が出されている。

現在、このような疫学研究から示された知見を説明するための医学的・生物学的メカニズムの解明のために種々の実験研究が実施されているが、少なくとも米国での PM_{2.5} の環境基準提案の根拠となったものは大部分が疫学研究に依るものである。しかもこれらの知見は従来大気汚染の健康影響の指標として用いられてきた慢性気管支炎やぜん息の有症率ではなく、死亡という重大な事象との関連性が注目され、それとの係わりとして循環器系への影響が注目されている点に、最近の微小粒子による大気汚染の問題の特徴がある。

6.2.3 DEP の健康影響に関する研究

PM_{2.5} の健康影響に関する知見とは異なり、DEP の健康影響については疫学研究とともに実験研究による知見が重要な要素となっており、これまでわが国をはじめとして世界的に多くの知見が蓄積されている。DEP の健康影響についてはまずその発がん性が注目された。すでに 1950 年代には DEP 抽出物がマウスの皮膚がんを引き起こすことが見いだされている。1970 年代になって、発がん性に関する実験研究が進展すると同時に疫学研究も実施されるようになってきた。

PM_{2.5} に関する研究では地域住民を対象としたものがほとんどであったのに対して、DEP の健康影響に関する疫学研究は主に労働環境での曝露に係わる職業集団を対象としている。対象となっている職業集団はトラックやバス運転手・整備士、ディーゼル機関車の機関士・整備士などの運輸・交通関係の従業者である。肺がんに関する主要な疫学研究ではディーゼル排気に曝露していない集団の肺がん発症率（ないし死亡率）を 1 としたときのディーゼル排気曝露群の発症率（死亡率）の比を示している。多くの研究でディーゼル排気曝露群の肺がん相対リスクが 1.2～1.5 程度であることが示されている。

それらの知見は平成 12 年 9 月に出された環境庁「ディーゼル排気微粒子リスク評価検討会」中間報告に詳しく整理されているので、ここではごく簡単に述べることにしたい。発がん性に関しては、「強く示唆する」と結論されている。

さらに、DEP の健康影響についてはアレルギー・免疫影響など非発がん性に関する知見が主として実験研究から報告されている。疫学研究では DEP 曝露による肺機能の低下など急性影響に関するものがほとんどであり、慢性影響に関する知見は少なく、かつ結果の一貫性も十分ではない。これは DEP に関する疫学研究の多くが職業集団を対象としていたために、交絡因子の影響などを強く受けて、DEP の健康影響評価を困難にしていたことが挙げられる。一方、地域住民を対象とした研究では、DEP 曝露による影響と他の粒子やガス状大気汚染物質による影響を識別することは方法論上大きな難点がある。すなわち、地域住民を対象とした疫学研究では DEP そ

のものへの曝露量を評価することが最大の課題となっている。

4. PM_{2.5}とDEPの健康影響に関する疫学研究の課題

PM_{2.5}とDEPはともに微小粒子の範疇に含まれるものであるが、これまで述べたように蓄積されている健康影響の関する知見の内容、量ともに異なっている。したがって、両者の健康影響評価の最終的な目標は一致するものの、当面の課題についてはやや違いがある。

①PM_{2.5}の健康影響に関する疫学研究

PM_{2.5}の健康影響については、第一に米国の各都市だけではなく世界各国の都市でみられる日死亡率（すなわち急性死亡健康影響に関する）との統計的な相関が真に因果関係を反映したものか否か、PM_{2.5}のどの成分・粒径がより死亡に関与しているか、そのメカニズムは何か、どのような人が高感受性であるかということが課題となっている。わが国では統計的関連性の有無に関する研究自体が不十分であるため、まずその点から解析を進める必要がある。わが国では人口動態統計が整備され、総務省の許可を得てこれらの解析のために死亡データを用いることが可能である。また、大気汚染の常時監視局は全国に約2000カ所あり、国際的にみて数多くの地点の大気汚染物質濃度が入手可能である。したがって、これまでPMと急性死亡との関連性が報告されている国々よりも時間・空間的に詳細な解析が可能であると考えられる。一方、統計的な解析ではそれが真に因果関係を反映したものか否かの検討は困難である。そのためには、死亡状況や死亡者の背景因子の聞き取り調査に基づく大気汚染との関連性の解析が必要である。第二に、PM_{2.5}の慢性影響に関する疫学研究は国際的にも非常に限られている。そのため、急性影響とは異なる影響メカニズムが存在するかなど多くの疑問点が解明されていない。慢性影響を評価するためには長期的な調査研究が不可欠であるが、その実施のためにはおおくの困難がある。

②DEPの健康影響に関する疫学研究

DEPの健康影響については、エンジン改良・排気ガス制御技術が人への曝露、健康影響に変化をもたらした

か（もたらすか）という点が重要な課題である。これは、DEPの健康影響に関する疫学上の知見が過去の職業曝露に係わるものであるために、現在の環境中でのDEPの健康リスク評価における意義と今後のエンジン改良や排気制御技術の進展が健康リスク軽減にどのような寄与をもたらすかというふたつの点に係わる。第二の課題は多くの環境汚染物質のリスク評価に共通するものであるが、動物実験および職業曝露という高濃度曝露のデータをどのように低濃度のリスク評価に外挿するかということである。

PM_{2.5}とDEPの健康影響に関する知見の蓄積の程度を比較するとDEPの方がかなり優っている。環境庁検討会の中間報告からも示されるようにDEPのリスク評価は最終段階の一手前までできているといえる。一方、PM_{2.5}についてはリスク評価のまだ入り口にある。PM_{2.5}の成分の相当部分をDEPが占めているとすれば、ガス状成分も含むディーゼル排気の大気動態の解明、計測技術、曝露量評価手法の進展によって、PM_{2.5}の健康影響がより明確になることも期待できる。したがって、今後は個別の課題に取り組みながら、発生源対策から影響評価に至る総合的な研究が望まれる。

6.2.4 粒子状物質の曝露量評価

(1) 曝露評価とは何か

曝露 exposure という用語は環境汚染物質と人との接触を示すものである。大気汚染物質の場合には、空気を媒体として汚染物質が人と接触することを指している。いいかえれば、曝露濃度は人が吸おうとしている空気に含まれる当該汚染物質の濃度のことである。粒子状物質の場合には呼吸器系への沈着率が粒径によって異なることが健康影響を評価する上で重要な要素となっているように、曝露された汚染物質は呼吸器系に侵入し、気管・気管支、肺胞領域で上皮細胞と接触し、さらには細胞膜を通過して体内にとりこまれる。汚染物質によっては、肺以外の組織・臓器に取り込まれるものもある。これらの過程は、一般に用量 dose という用語が用いられ、実際的には直接的に健康影響と結びつけられるものである。しかし、ここでは曝露 exposure のみを扱い、ドジメトリと呼ばれる用量 dose に関わる問題は考慮しないこ

とにする。

(2) 曝露評価の目的と方法

大気汚染物質の曝露評価の目的は大きく2つに分けることが出来る。ひとつは疫学研究の実施上で必要とされる曝露評価であり、もうひとつはリスク評価・リスク管理において必要とされる曝露評価である。

a. 疫学研究における曝露評価

大気汚染は基本的に地域的な現象であるので、その健康影響に関する疫学研究は大気汚染度の異なる複数の地域における健康影響指標を比較することが通例である。疫学研究における曝露評価は研究対象者の個人曝露量を評価することが基本となる。しかし、このことは、研究対象者全員の個人曝露量を直接に測定することが不可欠であることを意味しない。一般に、疫学研究における曝露評価の最終的な目標は、曝露の程度によって分類された研究対象集団の誤分類を最小にすることである。例えば、研究対象者全員の長期的な曝露量を沿道からの距離で評価した場合の誤分類と一部の研究対象者についての短時間の個人曝露量の直接測定により評価した場合の誤分類のどちらが大きいかは一概には判断できない。後者には、時間変動と対象者の標本抽出の誤差等が含まれるからである。真の個人曝露量と相関を持つ指標を見いだすことができれば、その指標によって曝露評価を行うことができる。例えば、喫煙の影響を検討する疫学研究において曝露指標として喫煙本数を用いるのはその例である。もちろん、真の個人曝露量とその曝露指標との相関関係の大きさ・特性は、曝露の誤分類、バイアス等、疫学データの解析において種々の問題をもたらす場合がある。このことは研究の目的が短期影響の評価か長期影響の評価かでも異なってくる。

大気汚染は曝露媒体が空気という開放系であるという特質から、その個人曝露量の評価はしばしば困難となる。通常、曝露評価に関して我々が入手できる資料は外気環境中の固定測定局のデータのみである場合が多い。我が国のみならず、国際的にも固定測定局の大気汚染データを用いた疫学研究が数多く実施されてきたが、これらの研究は以下の仮定の上に成り立っている。

* 長期影響評価の場合は、固定測定局の大気汚染濃

度平均値（通常は、年単位以上）は当該測定局周辺の調査対象住民の平均曝露量と相関していること。

* 短期影響評価の場合は、固定測定局の大気汚染濃度の短期変動（日単位など）は当該測定局周辺の調査対象住民の平均曝露量の変動と相関していること。

一般には、真の個人曝露量は未知であるので、この仮定が妥当性を持っていることを示すためにはいくつかの裏付けとなるデータや根拠を提示する必要がある。言い換えれば、長期影響評価および短期影響評価のそれぞれの観点で、個人曝露量の変動要因とその大きさはどの程度かを示し、その要因の中で固定測定局の測定値がどのような寄与を占めているかを明らかにすることが必要である。また、どれぐらい詳細なデータや根拠を示す必要があるかは求められる影響評価の精度、信頼性に関わっているし、個人曝露量の変動要因が疫学研究でいうところの交絡因子となっている可能性があるかないかにも関わっている。さらに、研究の目的が定量的な影響評価に重点がある場合には、上記の仮定において、単に「相関している」だけでなく、「両者の関連性の関数のパラメータの推定値（直線関係を前提とすれば、その傾きの推定値）」を示す必要が生じてくる。したがって、疫学研究における曝露評価のためには、これらの点を考慮して、曝露評価の計画を立てなければならない。

固定測定局の測定値と個人曝露量の関連性を検討するためには、固定測定局の測定値と一部対象者の居住環境屋外の濃度の関連性の検討、対象地域内の対象汚染物質の空間・時間分布の推定、一部の対象者居住環境での屋内および屋外の濃度測定、ならびに一部の対象者の個人曝露量の測定を組み合わせ、ある場合には何らかのモデルを適用して、その全体像にアプローチする必要がある。

計画立案の際に考慮すべき具体的内容は以下のようなものである。これらは必要とされる個人曝露評価の精度に依存して決定されるものである。

① 個人曝露量の直接測定

- * 対象者選定方法
- * 対象者数
- * サンプルング頻度、期間
- * 測定機器

表 6.2.4 最近の PM 個人曝露濃度調査

文献名	調査地域、年度	測定対象者数、測定単位 (頻度・期間)	測定結果	使用した測定機器
Dockery ら (1981)	米国、1975～ 1976年	37名、12時間ないし24 時間 (6日毎、4カ月間)	RSP の個人曝露量の変動の約48%を屋外 濃度によって説明できた。	サイクロン+ 1.8LPM ポンプ
Sexton ら (1984)	米国、1982年	48名、24時間 (1日おき、 2週間)	RSP 個人曝露量は屋外濃度とほとんど関 連性がなかった。	サイクロン+ 1.8LPM ポンプ
Spengler ら (1985)	米国、1981年	101名、24時間	RSP 個人曝露量と環境大気測定局の濃度 との相関係数は全体では0.07(n=22.5)で あった。	サイクロン+ 1.8LPM ポンプ
Morandi ら (1988)	米国、1981年	30名、48時間 (4カ月間)	環境大気測定局の測定値は RSP 個人濃度 の良い予測値とはなっていなかった。	TSI 製ピエゾバ ランス
Liroy ら (1990)	米国、1988年	14名、24時間 (2週間)	対象者毎の PM ₁₀ 個人曝露量と屋外 PM ₁₀ 濃度の相関係数は0.8～0.9であった。	インパクター+ 4LPM ポンプ
宮崎ら (1996)	大阪市、1990～ 1995年	幹線道路沿道住民、各年 度主婦8～10名、24時間 ないし48時間 (1～4回)	PM _{2.5} の個人曝露濃度は外気の PM _{2.5} 濃度 よりも一般に低く、1日ないし2日間その 測定値に関する両者の相関係数は0.75 (n=78) であった。	柴田科学器械製 TR サンプラー改 良型
Tamura ら (1996)	東京都板橋区、 1990年	幹線道路沿道住民、10 名、48時間	PM ₁₀ の個人曝露濃度と屋外 PM ₁₀ 濃度の 相関係数は0.875 (n=10) であった。	柴田科学器械製 TR サンプラー改 良型
	東京都板橋区、 1992年	幹線道路沿道住民、7名、 4日ないし3日 (16週)	PM ₁₀ の個人曝露濃度と屋外 PM ₁₀ 濃度の 相関係数は0.83であった。	柴田科学器械製 TR サンプラー改 良型
Ozkaynak ら (1996)	米国、1990年	178名、12時間 (1日)	PM ₁₀ の個人曝露量と屋外の相関係数は昼 間では0.3、夜間では0.6、全体では0.37で あった。	インパクター (PEM) +4LPM ポンプ
Monn ら (1997)	スイス、1996年	10名、48時間	PM ₅ の個人曝露量と屋外 PM ₁₀ 濃度との相 関は非常に小さかった。	サイクロン
Janssen ら (1998)	オランダ、1994 年	37名、24時間 (1週間毎、 約2カ月間)	PM ₁₀ の個人曝露量と屋外 PM ₁₀ 濃度の相 関係数は0.5であり、受動喫煙があった日 を除くと0.71であった。	インパクター+ 4LPM ポンプ
Janssen ら (1999)	オランダ、1994 年	子供13名、24時間 (1週 間毎、約2カ月間)	PM ₃ の個人曝露量と屋外 PM _{2.5} 濃度の相関 係数は0.86 (n=13) であり、受動喫煙が ある子供を除くと0.92 (n=9) であった。	サイクロン+ 4LPM ポンプ
Lachenmyer ら (2000)	米国、1997～ 1998年	10名、48時間 (1997年夏 9週間、1998年冬8週間)	PM _{2.5} 個人曝露量と PM _{2.5} 屋外濃度との相 関係数は夏期では0.35、冬期では0.6であ った。	インパクター (PEM) +4LPM ポンプ
Oglesby ら (2000)	スイス、1997年	50名、48時間	PM _{2.5} 個人曝露量と PM _{2.5} 屋外濃度との相 関係数は0.07であった。	サイクロン
Janssen ら (2000)	オランダおよび フィンランド、 1998/1999年	心疾患患者41名、24時間 (2週間毎、約6カ月間)	対象者毎に PM _{2.5} の個人曝露量と屋外 PM _{2.5} 濃度の相関係数をみると、その中央 値はオランダでは0.79、フィンランドで は0.7であった。	サイクロン+ 4LPM ポンプ
Ebelt ら (2000)	カナダ、1998年	COPD 患者16名、24時間 (1.5週おき7回)	対象者毎に PM _{2.5} の個人曝露量と屋外 PM _{2.5} 濃度の相関係数をみると、その中央 値は0.48であり、全体では0.15であった。 また、粒子中の硫酸塩濃度の相関係数は 対象者毎の相関係数の中央値では0.96、 全体では0.87であり、高い相関を示して いた。	インパクター (PEM) +4LPM ポンプ

*LPM:Liter Per Minute (毎分吸引量、リットル)

② 屋内および屋外の濃度測定

- * 対象家屋選定方法
- * 対象家屋数
- * サンプルング頻度、期間
- * 測定機器

③ 対象地域内の空間分布の測定

- * 測定地点の配置方法
- * 測定地点数
- * サンプルング頻度、期間
- * 測定機器

b. リスク評価・管理における曝露評価

リスク評価・管理においては、しばしば曝露レベル別の人口数（割合）を知ることが重要となる。例えば、環境基準を超える地域に居住する人口数はどれぐらいか、またその年齢分布はどのようなものかなどへの回答を与える必要がある。このような場合には、個々人の曝露量に関するデータ (individual exposure) が得られればもちろん、このような質問に答えることは容易である。しかしながら、individual exposure が得られなくとも、曝露推計モデルを用いてある集団の曝露分布 (population exposure) を推計することは可能である。

曝露推計モデルはいくつか提案されている。代表的なものは生活行動時間分布と微小空間濃度推計モデルを組み合わせた時間荷重モデルである。生活行動時間とはどれぐらいの割合の人口が、どれぐらいの時間、どのような空間で生活しているかという情報である。微小空間濃度推計モデルはそれぞれの空間での濃度を推計するモデルである。一般的には大気拡散モデルにおけるボックスモデルと同様のモデルであり、地域（屋外）の空間濃度推計、屋外 - 屋内関連性モデル、屋内発生源モデルを組み合わせたモデルとなっている。

(3) 粒子状物質の個人曝露評価に関する知見

粒子状物質の健康影響ではこれまでの疫学研究とは異なり、短期影響が特に強調されている。このため、最近の研究では個人曝露量の短期変動と屋外の測定値との関連性を中心に知見が報告されている（表6.2.4）。

各調査の測定デザイン、測定機器等はさまざまであり、結果も一致していない。対象者についても非喫煙者のみ

の調査や喫煙者を含む調査もある。一般的には、ある個人、特に、非喫煙者の場合に時系列的にみた屋外濃度と個人曝露量との相関はかなり高いといえる。一方、複数の対象者における断面調査では、両者の関連性を報告しているものもあるが、ほとんど相関をみとめない報告もある。これらの調査の対象者数は多くの場合数名から数十名と少なく、対象者の属性や生活行動のばらつきによる影響が結果に大きく左右していることが考えられる。また、硫酸塩濃度については個人曝露濃度と屋外濃度の相関が重量濃度よりもかなり高いとの報告もあり、粒子中の特定成分についての検討が重要であることを示唆するものと考えられる。

時系列的にみた場合の相関が高いことは、疫学研究で示されている環境大気測定局のPM₁₀ないしPM_{2.5}の日平均と死亡や入院、受診数との統計的な関連性が実際の曝露を反映したものである可能性を支持するものと考えられる。

(4) 今後の課題

今後は、重量濃度のみならず種々の成分についても、個人曝露量の変動要因、すなわち個人間変動と個人内変動それぞれについてその規定要因を解明していく必要がある。そのためには個人間変動および個人内変動のいずれについても、さまざまな地域で生活行動の異なる対象者についての調査を実施する必要がある。

文献

- Abbey, D. E.; Lebowitz, M. D.; Mills, P. K.; Petersen, F. F.; Beeson, W. L.; Burchette, R. J. (1995a) Long-term ambient concentrations of particulates and oxidants and development of chronic disease in a cohort of nonsmoking California residents. In: Phalen, R. F.; Bates, D. V., eds. Proceedings of the colloquium on particulate air pollution and human mortality and morbidity; January 1994; Irvine, CA. Inhalation Toxicol. 7: 19-34.
- Abbey, D. E.; Ostro, B. E.; Fraser, G.; Vancuren, T.; Burchette, R. J. (1995c) Estimating fine particulates less than 2.5 microns in aerodynamic diameter (PM_{2.5}) from airport visibility data in California. J. Exp. Anal. Environ. Epidemiol. 5: 161-180.
- Abbey, D. E.; Ostro, B. E.; Petersen, F.; Burchette, R. J. (1995b) Chronic respiratory symptoms associated with estimated long-term ambient concentrations of fine particulates less than 2.5 microns in aerodynamic diameter (PM_{2.5}) and other air pollutants. J. Exp. Anal. Environ. Epidemiol. 5: 137-159.
- Burnett, R. T.; Dales, R. E.; Raizenne, M. E.; Krewski, D.; Summers, P. W.; Roberts, G. R.; Raad-Young, M.; Dann, T.; Brook, J. (1994) Effects of low ambient levels of ozone and sulfates on the frequency of respiratory admissions to Ontario hospitals. En-

- viron. Res. 65: 172-194.
- Burnett, R. T.; Dales, R.; Krewski, D.; Vincent, R.; Dann, T.; Brook, J. R. (1995) Associations between ambient particulate sulfate and admissions to Ontario hospitals for cardiac and respiratory diseases. *Am. J. Epidemiol.* 142: 15-22.
- Dockery DW, Spengler JD. Personal exposure to respirable particulates and sulfates. *J Air Pollut Control Assoc* 1981;31:153-9.
- Dockery, D. W.; Cunningham, J.; Damokosh, A. I.; Neas, L. M.; Spengler, J. D.; Koutrakis, P.; Ware, J. H.; Raizenne, M.; Speizer, F. E. (1996) Health effects of acid aerosols on North American children: respiratory symptoms. *Environ. Health Perspect.* 104: 500-505.
- Dockery, D. W.; Pope, C. A., III; Xu, X.; Spengler, J. D.; Ware, J. H.; Fay, M. E.; Ferris, B. G., Jr.; Speizer, F. E. (1993) An association between air pollution and mortality in six U.S. cities. *N. Engl. J. Med.* 329: 1753-1759.
- Dockery, D. W.; Speizer, F. E.; Stram, D. O.; Ware, J. H.; Spengler, J. D.; Ferris, B. G., Jr. (1989) Effects of inhalable particles on respiratory health of children. *Am. Rev. Respir. Dis.* 139: 587-594.
- Ebelt ST, Petkau AJ, Vedal S, Fisher TV, Brauer M. Exposure of chronic obstructive pulmonary disease patients to particulate matter: relationships between personal and ambient air concentrations. *J Air Waste Manag Assoc* 2000;50:1081-94.
- Janssen NA, Hoek G, Brunekreef B, Harssema H, Mensink I, Zuidhof A. Personal sampling of particles in adults: relation among personal, indoor, and outdoor air concentrations. *Am J Epidemiol* 1998;147:537-47.
- Janssen NA, Hoek G, Harssema H, Brunekreef B. Personal exposure to fine particles in children correlates closely with ambient fine particles. *Arch Environ Health* 1999;54:95-101.
- Janssen NA, Hoek G, Harssema H, Brunekreef B. Personal sampling of airborne particles: method performance and data quality. *J Expo Anal Environ Epidemiol* 1998;8:37-49.
- Janssen NA, de Hartog JJ, Hoek G, Brunekreef B, Lanki T, Timonen KL, et al. Personal exposure to fine particulate matter in elderly subjects: relation between personal, indoor, and outdoor concentrations. *J Air Waste Manag Assoc* 2000;50:1133-43.
- Koenig, J. Q.; Larson, T. V.; Hanley, Q. S.; Rebolledo, V.; Dumler, K.; Checkoway, H.; Wang, S.-Z.; Lin, D.; Pierson, W. E. (1993) Pulmonary function changes in children associated with fine particulate matter. *Environ. Res.* 63: 26-38.
- Lachenmyer C and Hidy GM. Urban Measurements of Outdoor-Indoor PM_{2.5} Concentrations and Personal Exposure in the Deep South. Part I. Pilot Study of Mass Concentrations for Nonsmoking Subjects. *Aerosol Science and Technology* 2000, 32: 34-51.
- Lioy PJ and Waldman JM. The personal, indoor and outdoor concentrations of PM-10 measured in an industrial community during the winter. *Atmospheric Environment*. 1990, 24B(1): 57-66.
- Monn C, Fuchs A, Hogger D, Junker M, Kogelschatz D, Roth N, et al. Particulate matter less than 10 microns (PM₁₀) and fine particles less than 2.5 microns (PM_{2.5}): relationships between indoor, outdoor and personal concentrations. *Sci Total Environ* 1997;208:15-21.
- Morandi MT, et al. A comparative study of respirable particulate microenvironmental concentrations and personal exposures. *Environmental Monitoring and Assessment*, 1988, 10-2:105-122.
- Neas, L. M.; Dockery, D. W.; Koutrakis, P.; Tollerud, D. J.; Speizer, F. E. (1995) The association of ambient air pollution with twice daily peak expiratory flow rate measurements in children. *Am. J. Epidemiol.* 141: 111-122.
- Oglesby L, Kunzli N, Roosli M, Braun Fahrlander C, Mathys P, Stern W, et al. Validity of ambient levels of fine particles as surrogate for personal exposure to outdoor air pollution--results of the European EXPOLIS-EAS Study (Swiss Center Basel). *J Air Waste Manag Assoc* 2000;50:12.51-61.
- Ostro, B. D.; Lipsett, M. J.; Mann, J. K.; Krupnick, A.; Harrington, W. (1993) Air pollution and respiratory morbidity among adults in Southern California. *Am. J. Epidemiol.* 137: 691-700.
- Ostro, B. D.; Lipsett, M. J.; Wiener, M. B.; Selner, J. C. (1991) Asthmatic responses to airborne acid aerosols. *Am. J. Public Health* 81: 694-702.
- Ozkaynak H, Xue J, Spengler J, Wallace L, Pellizzari E, Jenkins P. Personal exposure to airborne particles and metals: results from the Particle TEAM study in Riverside, California. *J Expo Anal Environ Epidemiol* 1996;6:57-78.
- Pope, C. A., III; Thun, M. J.; Namboodiri, M. M.; Dockery, D. W.; Evans, J. S.; Speizer, F. E.; Heath, C. W., Jr. (1995) Particulate air pollution as a predictor of mortality in a prospective study of U.S. adults. *Am. J. Respir. Crit. Care Med.* 151: 669-674.
- Raizenne, M.; Neas, L. M.; Damokosh, A. I.; Dockery, D. W.; Spengler, J. D.; Koutrakis, P.; Ware, J. H.; Speizer, F. E. (1996) Health effects of acid aerosols on North American children: pulmonary function. *Environ. Health Perspect.* 104: 506-514.
- Schwartz, J.; Dockery, D. W.; Neas, L. M. (1996a) Is daily mortality associated specifically with fine particles? *J. Air Waste Manag. Assoc.* 46: 927-939.
- Schwartz, J.; Dockery, D. W.; Neas, L. M.; Wypij, D.; Ware, J. H.; Spengler, J. D.; Koutrakis, P.; Speizer, F. E.; Ferris, B. G., Jr. (1994) Acute effects of summer air pollution on respiratory symptom reporting in children. *Am. J. Respir. Crit. Care Med.* 150: 1234-1242.
- Sexton K, et al. Personal exposure to respirable particles: A case study in Waterbury, Vermont. *Atmospheric Environment* 1984, 18(7) : 1385-1398.
- Spengler JD, et al. Personal exposures to respirable particulates and Implications for air pollution epidemiology. *Environ. Sci. Technol* 1985, 19:700-707.
- Tamura K, et al. Estimation of levels of personal exposure to suspended particulate matter and nitrogen dioxide in Tokyo. *Environmental Sciences*, 1996, 4(1): 037-051.
- Thurston, G. D.; Ito, K.; Hayes, C. G.; Bates, D. V.; LipPMann, M. (1994) Respiratory hospital admissions and summertime haze air pollution in Toronto, Ontario: consideration of the role of acid aerosols. *Environ. Res.* 65: 271-290.
- Thurston, G. D.; Ito, K.; Kinney, P. L.; LipPMann, M. (1992) A multi-year study of air pollution and respiratory hospital admissions in three New York State metropolitan areas: results for 1988 and 1989 summers. *J. Exposure Anal. Environ. Epidemiol.* 2: 429-450.
- U.S. Environmental Protection Agency. (1996) Air quality criteria for particulate matter, EPA report no. EPA-600/P-95/001cF.
- Ware, J. H.; Ferris, B. G., Jr.; Dockery, D. W.; Spengler, J. D.; Stram, D. O.; Speizer, F. E. (1986) Effects of ambient sulfur oxides and suspended particles on respiratory health of preadolescent children. *Am. Rev. Respir. Dis.* 133: 834-842.
- 環境庁ディーゼル排気微粒子リスク評価検討会(2000).ディーゼル排気微粒子のリスク評価について(中間とりまとめ).宮崎 武二、他. 沿道周辺住宅の室内空気汚染. 大阪市立環境科研報告. 1996,58: 7-17

7. 国立環境研究所におけるPM_{2.5}・DEP研究の展望

若松伸司

PM_{2.5}・DEPをめぐる国内外の研究現状を整理し、国立環境研究所における今後の研究の進め方を考えたい。PM_{2.5}やDEPに関する研究は、発生源、測定、環境動態、人への影響評価、発生源対策シナリオの評価など、総ての分野において極めて不十分である。国立環境研究所のPM_{2.5}・DEP研究プロジェクトにおいても全研究分野をカバーすることは難しい。ここでは、各研究分野について今後、必要とされる課題のポイントを簡潔にまとめ、国立環境研究所の主体的な条件を踏まえつつ具体的な研究の方向性を展望する。

7. 1 今後、必要とされる課題のポイント

(1) 発生源に関しては、PM_{2.5}や、その前駆体、DEP等のエミッションファクターを様々な手法で調査し、出来るだけ実態に即した、発生量の推計を行う必要がある。具体的にはシャーシダイナモ試験、車載型計測調査、トンネル・沿道調査などを併用し、得られた結果を相互に比較することにより、正確な実発生量を求め、マクロ的推計調査と合わせて面的分布を把握しなければならない。発生源対策の総合的な評価手法は未開拓の分野である。大気環境質、健康影響、利便性、経済性、などを踏まえた都市計画、交通計画が今後の大きな課題である。

(2) 測定方法に関しては、発生源調査、環境測定、毒性評価実験などに統一的に利用出来る測定方法の確立が課題である。重量のみならず、粒径分布、組成、形態などの情報が不可欠である。特にDEPに関しては、有機炭素と元素炭素成分の測定方法の統一がなされなければならない。これと共に環境モニタリングシステムの検討が必要であり、リモート計測技術の積極的な利用を図るべきである。また、局所的な高濃度出現地域などにおける環境動態を把握する為には高時間分解、高密度測定システムの開発が必要である。

(3) 環境動態に関しては、実態把握の為の調査とモデル検証の為の調査観測が継続的に必要である。環境大気中のライフタイムが長いPM_{2.5}に関しては、沿道一都

市一地域など、それぞれのスケールの汚染現象が相互に関連し合っているため、重層的な理解が必要である。顕在化している中国大陸からの影響評価や、外国の諸都市との比較評価研究も日本におけるPM_{2.5}・DEPの実態を解明するためには必要である。研究の実施に当たっては、野外観測、風洞実験、モデル研究の有機的な連携が不可欠である。

(4) 疫学調査研究は、DEPに関しては環境省の調査を中心に日本での知見が集積されつつあるが、PM_{2.5}については殆どデータが得られていない。データの収集に当たっては、測定方法や発生源把握、環境動態予測等の問題もある。曝露量の正確な把握が疫学調査データ解析の前提となるからである。

(5) 毒性評価研究に関しては曝露実験を中心に知見が集積されつつあるが、曝露ガスの粒径分布や組成、酸性度などの曝露実験条件の精査とガスと粒子を分離曝露した場合の影響評価、動物実験結果の人への適用性評価などが課題である。人への影響評価を検討するに当たっては、花粉やダニなどの他の要因との複合影響評価や、間歇的、短期的な高濃度曝露と平均的、長期的曝露の関連性評価なども、今後の大きな検討課題である。

7. 2 国立環境研究所における研究

国立環境研究所では、これまで大気汚染研究を継続的に実施して来たが、その多くはガス状物質に関するものであり、粒子に関する研究は必ずしも十分ではなかった。そこで、平成13年度からPM_{2.5}・DEP研究を開始した。ここでは、平成13年度の計画と進捗状況を示し、レビュー等の知見を基に次年度以降の研究計画を述べる。平成13年度は『発生源把握・対策と環境動態解明研究』および『リスク評価研究』の二分野の研究を中心に実施したが、前節でも述べたように、測定方法や曝露量推計は両者共通の課題であるため密接な協力態勢をとりつつ研究を行っている。

平成13年度当初の研究計画の概要は以下の通りである。
『発生源把握・対策と環境動態解明研究』

(1) 発生源把握のための実験手法および調査手法を検討する。実走行状態での発生源特性を明らかにする。DEP 排出量の地域分布推計システムを設計する。(2) 環境動態把握のための予備的調査と風洞実験解析手法を検討する。数値モデル解析手法を検討する。地方自治体環境・公害研究機関との共同研究を実施し大気汚染のトレンド解析を行う。(3) 測定法の確立の為の基礎的な検討を行う。モバイル型モニタリングシステムを開発する。

『リスク評価研究』(4) 地理情報システムの利用した曝露量推計モデルの開発を行う。(5) ディーゼル排気全体の呼吸-循環器系への影響を明らかにする。

平成 13 年度の具体的な研究目標としては、それぞれの研究分野における研究の現状と問題点を明らかにし、総合的に議論を深め最新の知見を取りまとめ、この結果を基に今後重点的に実施する具体的な研究内容を明らかにすること、(本報告書の出版)これと共に緊急に取り組むべき課題に関する基礎実験や解析手法開発、予備的な観測や実験装置の製作を実施することとし、具体的には以下の項目に関しての目標を定め、研究を推進してきた。

- (1) シャシーダイナモ実験施設を完成させ、実験手法を検討する。
- (2) トンネル調査や沿道調査データを用いて実走行状態での発生源特性を把握する。
- (3) 交通・物流データをもとにした DEP 排出量の地域分布推計システムを設計する。
- (4) 都市・沿道大気汚染の動態把握のための予備的調査と解析を行う。
- (5) 複雑な道路構造地域における風洞実験・解析手法を検討する。
- (6) 広域・都市数値モデル解析手法を検討する。
- (7) 地方自治体環境・公害研究機関との共同研究を実施しトレンド解析を行う。
- (8) 有機炭素成分と元素炭素成分の測定手法を検討する。
- (9) ガス状成分、粒子状物質計測モバイル型モニタリングシステムを検討する。
- (10) 疫学・曝露評価研究のための地理情報システ

ムの利用方法を明確化する。

(11) PM/DEP 曝露量と健康影響評価のための曝露量推計モデルを開発する。

(12) DE (ディーゼル排気) 全体の呼吸-循環器系への影響を解明する。

12 月現在までの 9 ヶ月間の研究期間において、ほぼ計画に従って研究が実施されている。

(1) に関しては、実験装置の基本性能試験が終わり、実験が可能な段階にある。

(2、3、4、5、6) に関しては VOC 特別研究を発展的に継承し実施している。

(7) に関しては地方自治体環境研究所との共同研究 (C 型) として実施している。

(8) に関しては機器構成を終了し性能評価を実施している。

(9) に関しては基礎的な検討は終了したが実用化に向けて予算確保が課題。

(10) に関しては DEP 分布に必要な GIS システムへの入力データを整備した。

(11) 疫学調査データ解析に関しても環境省と協力して実施中。

(12) に関しては特別研究の最終年度として結果を取りまとめ中。

研究予算および研究協力の展望：本研究の初年度である平成 13 年度は主に二つの特別研究「空中浮遊粒子 (PM2.5) 特別研究：平成 11—13 年度」、「都市域 PM2.5 特別研究：平成 13—15 年度」の推進予算費用他として、運営交付金 5000 万円が交付された。

この二つの特別研究は、PM2.5・DEP 研究プロジェクトの中で、発生源の把握と対策評価の研究、測定方法・モニタリングの研究、疫学・曝露評価の研究と共に、平成 13 年度から統合的に実施することとなっているが、「空中微粒子 (PM2.5) 特別研究」は平成 13 年度まで 3 年間にわたり計画的に実施して来た研究であるため、最終年度である平成 13 年度には 3 年間の研究成果を取りまとめ平成 14 年度の中頃を目途に国立環境研究所報告・SR シリーズとして公表することとしている。これと共

に、所内の平成13年度奨励研究として「覆蓋された沿道大気環境濃度予測に関する風洞実験研究」予算が250万円認められ、本重点特別研究の関連課題として研究を実施している。また年度途中で、本研究プロジェクトに関連する研究課題として、環境技術開発推進費（環境省の競争的資金）「車載型機器による実走行時自動車排ガス計測・管理システムの実証」が、新規課題として新たに採択され、平成13年度国立環境研究所に対する実質予算として約4500万円が配分された。また疫学データの解析研究も新課題として追加され関連予算として環境省から約1000万円の請負予算が配分された。この他に平成14年度からは、（環境省の競争的資金）「地域密着研究：川崎市における沿道大気汚染対策研究」が開始される予定である。（平成14年度国立環境研究所に対する実質予算として約2,500万円程度を予定。）PM_{2.5}・DEPの課題は日本のみならず世界的な関心事であるため、国際的な研究交流や共同研究が必要となっている。この為、文部科学省の科学技術振興調整費、国際リーダーシップ予算において「環太平洋地域の巨大都市の大気汚染相互比較研究」を平成13年度から2年間にわたり実施することになっている。（国立環境研究所に対する実質予算として平成13年度は約800万円、平成14年度は約1,000万円程度を予定している。）

7.3 研究の構成と今後の研究展望

先にも述べたように、平成13年度研究実施期間中に、当初研究予定課題の他に幾つかの研究課題が追加されている。国立環境研究所におけるPM_{2.5}・DEP研究の全体構成と研究協力の関連性を図7-1に示す。

この課題の他に、曝露評価に関する環境省のプロジェクト（小林、新田、小野）や、所内の途上国研究、中国プロジェクト（田村）、地球環境研究推進費、中国の黄砂関連研究：（西川、菅田）、大気エアロゾルに関する科研費特定領域研究（若松、菅田）、などとの協力を積極的図ることとしている。

今後の研究推進に当たって環境省などとの協力が必要な課題を以下に具体的に示す。

- (1) 移動発生源研究としては、自動車発生源の多角的な把握が必要である。本研究プロジェクトにおいては、ガス状物質、及び粒子状物質の発生量を幾つかの異なる手法で推計し、発生源把握の精度向上をめざしている。具体的には、マクロ推計、シャシーダイナモ実験、排ガス高希釈実験、トンネル調査、沿道大気調査、車載型自動車排ガス計測装置を用いた実測を実施することとしているが、今後特に環境省との協力が必要な発生源研究としては、リアルワールドでの自動車からの発生動態把握、道路巻き上げ影響評価、タイヤ磨耗の影響評価、二輪車、オフロード、などの未規制自動車からの発生量把握、船舶からの発生源把握（航行、停泊、荷役時における発生、及び、漁船）、航空機からの発生源（民間の大型と小型、自衛隊など）把握が上げられる。
- (2) 固定発生源に関しては石油精製関連、未把握発生源（小型焼却炉など）の把握が上げられる。発生源推定、環境動態、曝露評価を組み合わせた対策効果の総合評価モデルの開発と利用、低公害車実験施設（シャシーダイナモ装置）を活用した自動車排ガス計測関連の調査研究、三宅島などの火山を含めた自然起源発生源把握と影響調査、大陸寄与の発生量調査なども重要な課題である。
- (3) 大気汚染モデル開発調査としては、広域モデル～都市モデル～沿道モデルの開発と活用、ガス～エアロゾル～沈着プロセスの解明、大気中粒子状物質の環境動態モデル（とくに二次粒子関係）の開発、数値モデルおよび簡略モデルの開発と利用、風洞モデルの開発と利用が上げられる。
- (4) ヒートアイランドとダストとの関連性は、都市の大気環境研究の大きな関心事である。都心には夏季に気温の高い地域が形成され、この部分に海風が進入すると、大気汚染の濃度が上昇することが、航空機観測データ解析により明らかとなっている。ヒートアイランドと海陸風の相互作用により収束

域付近で高濃度大気汚染が発生し、ガスと共にPM_{2.5}の濃度も上昇する。快適な都市空域圏環境の創造のための総合的な調査研究が必要である。

- (5) 大気中粒子状物質の計測手法に関しては、発生源、沿道、一般環境のナノ粒子の測定、DEP計測手法、成分分析、炭素成分のうちの有機炭素と元素状炭素の分離測定方法の確立、モバイル測定装置の開発、大気汚染モニタリングの測定技術評価、オープンパスによる測定方法の評価、大気汚染トレンド解析などが上げられる。
- (6) 影響評価に関しては、疫学調査、動物実験を基にしたリスク評価検討・解析が継続的に必要である。曝露評価研究としてはデータベースを用いた、曝露量推計研究の実施が上げられる。PM_{2.5}・DEPと花粉症やダニアレルギー等との複合影響評価の研究を他省庁とも協力して実施することが望まれる。
- (7) PM_{2.5}による大気汚染は大気中での寿命時間が長いこと、中国大陸を含む広域的な理解が必要である。環境省、国立環境研究所では中国を対象に多くの研究プロジェクトを実施している。アジア、中国の研究プロジェクトとの協力が必要である。環太平洋を中心とした諸外国との研究交流、情報交換は、我国のPM_{2.5}・DEPの特徴を浮き彫りにさせる為にも極めて有用である。

本研究プロジェクトにおいては環境省以外の省庁、大学、地方自治体、業界との研究協力や情報交換も積極的に進めることにしている。

(JCAPとの協力)

研究の推進に当たっては、業界を含む外部研究組織との研究協力が不可欠である。特に自動車からの発生量の把握や対策シナリオの検討に当たっては、燃料業界、自動車業界との情報交換や研究交流が重要である。通産省と石油連盟と自動車工業会はJCAP(Japan Clean Air

Program)を1997年から2001年の5年間にわたり実施し、自動車からの大気汚染削減のために、エンジン本体の改良と、燃料及び潤滑油の品質改善、の効果に関する研究を行った。国立環境研究所では、VOC特別研究の実施にあたり、JCAPと密接な研究協力を行い、主に大気汚染モデルの開発研究とこれに関連する発生源情報の精査、並びに、モデル検証のための共同フィールド観測を実施した。このプロジェクトは2002年から更に5年間にわたりJCAP2として第二フェーズの継続が予定されている。PM_{2.5}・DEP研究プロジェクトの推進に当たっては、引き続きJCAP2との積極的な研究協力を実施する。この中で、特に、発生源情報や、モデル評価の為にデータベースの共有を図る。

(地方自治体環境研究機関との協力) :

現場を抱えている、地方自治体の環境研究機関との研究協力の強化をはかる。平成13年度から開始したC型共同研究は複数の地方環境研究機関との共同研究の仕組みである。この研究協力においては、現在、富山県、福井県、長崎県、岐阜県、名古屋市、滋賀県、京都府、兵庫県、鳥取県、島根県、山口県、徳島県、香川県、愛媛県、福岡市、長崎県、秋田県、の17の自治体が参加し、平成13年度までは、主に広域的なオゾン長期トレンドの研究を実施しているが、この課題に加えて、PM_{2.5}・DEPの測定や、実態把握に関する研究を追加実施したい。また、平成14年度からは、地域密着研究として川崎市ほかとの研究協力が、環境省からの予算を得て実施することが決められている。この研究では、国立環境研究所は平成14年度には風洞実験と、現地調査を分担することとなっているが、沿道大気汚染の実態を、より詳細に把握する為に、高密度、高時間分解モニタリングシステムの開発利用、並びに沿道大気汚染数値モデルの開発利用を新たな研究課題として追加したい。

7.4 おわりに

国立環境研究所のPM_{2.5}・DEP研究プロジェクト(重点6. 大気中微小粒子状物質(PM_{2.5})・ディーゼル排気粒子(DEP)等の大気中粒子状物質の動態解明と影響評価)においては、この報告書で議論された内容を参考に今後

の具体的な研究課題を検討し、平成 14 年度以降の研究を実施して行く予定である。平成 13 年度の国立環境研究所内の PM2.5・DEP 研究プロジェクトメンバーは専任9名、併任10名、NIES フェロー3名、派遣職員1名であるが、これ以外の所内の研究者も本報告書作成に参加している。本研究プロジェクトは外部に対してオープンであり、研究所内外の新たな研究者の参加も協議の上、可能である。本研究プロジェクトとの共同研究や研究交流をご希望の場合は、以下の研究者にコンタクトいただきたい。

(全般的課題)

交通公害対策研究：森口 (PM2.5・DEP 研究プロジェクト 渉外担当)

都市大気保全研究：若松 (PM2.5・DEP 研究プロジェクト リーダー)

測定研究：福山

疫学評価研究：新田 (PM2.5・DEP 研究プロジェクト 事務局担当)

臨床疫学研究：高野

毒性評価研究：小林 (PM2.5・DEP 研究プロジェクト サブリーダー)

地域密着研究：松本

(個別的課題)

発生源調査、(マクロ推計)：南齋、(発生源—環境、実測調査)：田邊、(トンネル調査)：櫻井

自動車発生源対策技術、JCAP2 プロジェクト：小林
シャシーダイナモ実験、車載型測定システム：近藤

交通計画、都市計画：松橋

風洞実験：上原

数値モデル：菅田

炭素成分分析、粒子形態観察：長谷川

フィールド調査：(ガス) 酒巻、(粒子) 内山

粒子組成評価、中国粒子対策：西川

中国疫学調査、個人曝露調査：田村、小野

動物曝露実験：鈴木、藤巻、戸田

発がん影響：平野

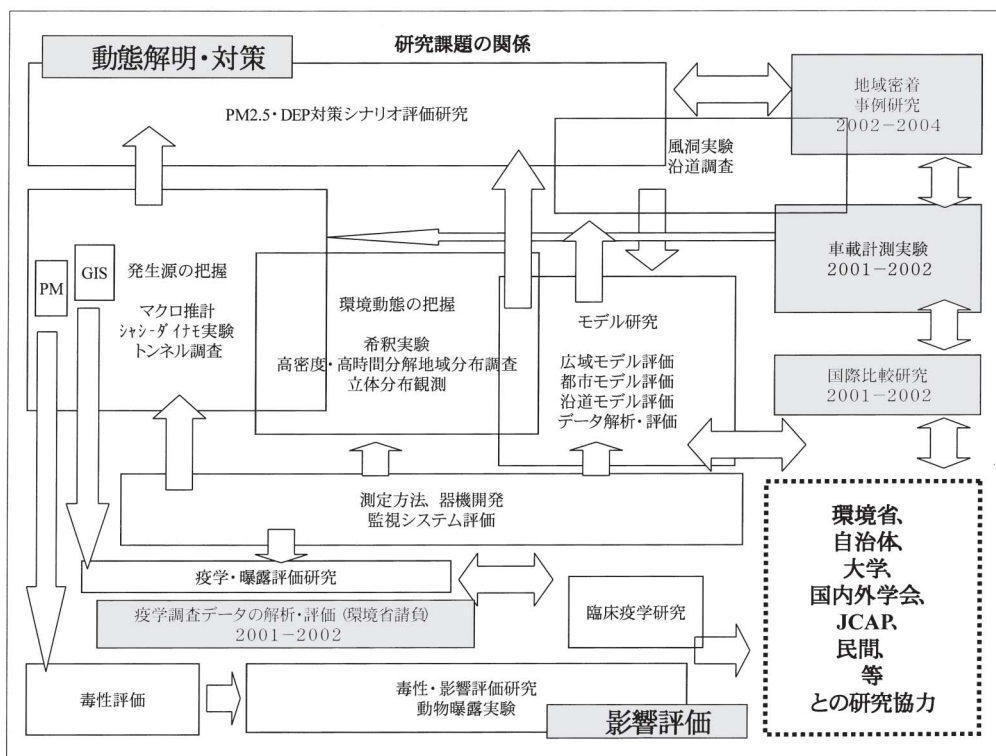
非発がん影響、毒性評価試験：古山

連絡先住所

〒305 - 8506

茨城県つくば市小野川 16 - 2 独立行政法人国立環境研究所

PM2.5・DEP 研究プロジェクト (研究本館3階308室)



PM2.5・DEP 研究プロジェクトメンバー一覧

氏名	職名	併任者所属
若松 伸司	プロジェクトリーダー	
小林 隆弘	サブリーダー(併任)	環境健康研究領域・上席研究官
■交通公害防止研究チーム		
森口 祐一	総合研究官(併任)	社会環境システム研究領域・資源管理研究室
近藤 美則	主任研究員	
松橋 啓介	研究員	
田邊 潔	(併任)	化学環境研究領域・計測管理研究室
小林 伸治	派遣研究員	
■都市大気保全研究チーム		
若松 伸司	総合研究官(併任)	
上原 清	主任研究員	
酒巻 史郎	(併任)	大気圏環境研究領域・大気反応研究室
菅田 誠治	(併任)	大気圏環境研究領域・大気物理研究室
長谷川 就一	ニース・ポスドク・フェロー	
■エアロゾル測定研究チーム		
福山 力	総合研究官	
内山 政弘	(併任)	大気圏環境研究領域・大気動態研究室
西川 雅高	(併任)	化学環境研究領域・計測技術研究室
■疫学・曝露評価研究チーム		
新田 裕史	総合研究官	
小野 雅司	(併任)	環境健康研究領域・疫学国際保健研究室
田村 憲治	(併任)	環境健康研究領域・疫学国際保健研究室
■毒性・影響評価研究チーム		
高野 裕久	総合研究官(併任)	環境ホルモン・ダイオキシン研究プロジェクト・病態生理研究チーム
鈴木 明	主任研究員	
古山 昭子	主任研究員	
戸田 典子	ニース・ポスドク・フェロー	
美留町 潤一	科学技術特別研究員	
柳沢 利枝	ニース・アシスタント・フェロー	環境ホルモン・ダイオキシン研究プロジェクト・病態生理研究チーム
■主任研究官		
松本 幸雄	主任研究官	
■その他、研究協力者		
藤巻 秀和	室長	環境健康研究領域・生体防御研究室
平野 靖史郎	室長	環境健康研究領域・健康指標研究室
南齋 規介	ニース・ポスドク・フェロー	環境ホルモン・ダイオキシン研究プロジェクト・総合化研究チーム

RESEARCH REPORT FROM
THE NATIONAL INSTITUTE FOR ENVIRONMENTAL STUDIES, JAPAN

No. 172
国立環境研究所研究報告 第172号
(R-172-2002)

【平成14年2月13日編集委員会受付】
【平成14年3月5日編集委員会受理】
平成14年3月29日発行

発行 独立行政法人 国立環境研究所

〒305-8506 茨城県つくば市小野川16番2
電 話 50 022843 (ダイヤルイン)

印刷 有限会社 アレス
〒305-0032 茨城県つくば市竹園2-8-11

Published by the National Institute for Environmental Studies
16-2 Onogawa, Tsukuba, Ibaraki 305-8506 Japan
March 2002

本報告書は再生紙を使用しています。