

環境大気中の微小粒子状物質 (PM_{2.5}) について

埼玉大学大学院理工学研究科/埼玉県環境科学国際センター 坂本和彦

1 大気粒子状物質の挙動と粒径

大気粒子状物質(PM)は多成分の混合物であり、その発生源や挙動は粒径(D_p)により大きく異なります。そのため、その大気中における挙動や人への健康影響を知るためには、粒子の質量や化学種別の濃度だけでは不十分です。いずれの環境でもPMの粒径別の汚染物質種の同定とその質量濃度の測定(環境基準値との関係で)が必要であり、その有害性が高く、人の健康に与える影響が大きいものほど低濃度での正確な測定と発生制御が重要となってきます。

PMの挙動と粒径の関係(Whitby, 1978)を図1に示します。PMはその生成機構から、発生源から直接大気中へ分散放出される一次発生粒子と、大気中への放出時は気体であるが放出後に化学変化や物理変化をして、二次的に粒子となる二次生成粒子に分類されます。

海水の波しぶきから生成する海塩粒子、強風により巻き上げられる土壌粉じん、火山の爆発によって発生する火山灰などは図1の粗大粒子として存在しており、この粒径の多くは自然起源の一次発生と考えられています。

一方、私たちは社会活動を営むためのエネルギー生産に化石燃料を燃やしたり、自動車を利用しています。これらに伴って大気中へ放出されている煤煙は人為起源の粒子であり、その多くは一次発生の微小粒子として大気中に長期に亘って浮遊しています。

一方、大気中への放出時は炭化水素(HC)、硫黄酸化物(SO₂)、窒素酸化物(NO_x)などのガス状物質であったものが、大気中で太陽光による光化学反応などを受けて揮発性の乏しい極性分子へと変化し、それらが自己凝縮、または既存粒子上へ凝縮し粒子化したものを二次生成粒子と言います。二次生成粒子においても、前駆体が人為起源(燃料燃焼等に伴うSO₂、NO_x、HCの発生など)か自然起源(植物からのイソプレンやテルペン類の発生など)かにより、人為起源と自然起源とに分類されます。これらの粒子は発生形態を反映して、組成、形や粒径が異なり、約2.5 μm以下の微小粒子は呼吸器系奥深くまで吸入され人の健康に影響を与えたり、可視光を吸収・散乱するため、視程障害や地表面の温度にも影響を与えています。

一方約2.5 μm以上の粗大粒子は降雨現象に係わらずに重力沈降により大気中から除去されますが、微小粒子は比較的拡散が遅く、重力沈降の影響も余り受けなため、微小粒子の主たる除去機構である降水がない場合は大気中での滞留時間は長期にわたるため、長距離輸送されたり、問題となる日以前の累積効果による高濃度汚染を引き起こすこともあります。そのため、高濃度汚染の時ほど、人為起源の微小粒子の割合が高くなる傾向にあります。なお、図1における最も小さい粒径範囲のエイトケン粒子領域の粒子は発生後の寿命が極めて短く、その多くは互いに凝集して粒子蓄積領域の微小粒子に変化してしまいます。

本講演では、微小粒子状物の環境基準設定の経緯、健康影響と環境基準や組成と測定法について概説し、今後の課題について要約します。

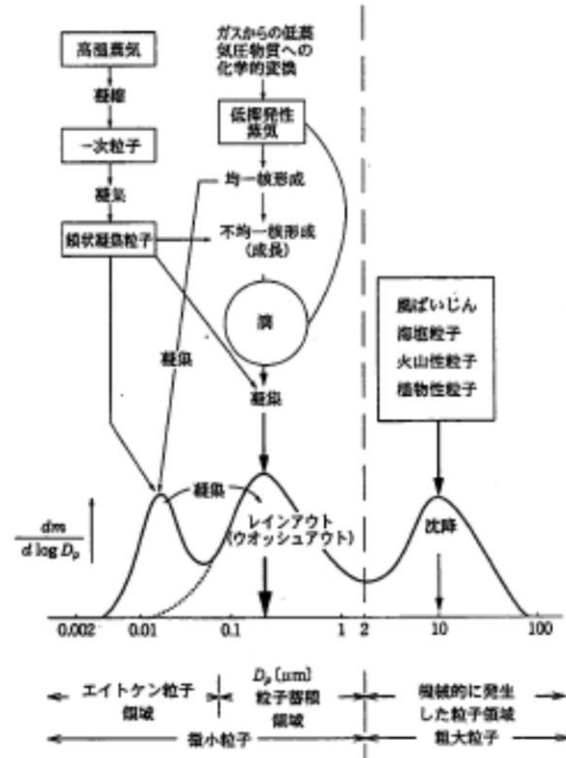


図1 大気粒子状物質の挙動と粒径の関係(Whitby, 1978)

2 微小粒子状物質の環境基準設定の経緯

PM は、粒径に応じて呼吸器系の各部位に沈着し、人の健康に影響を与えます。そのため、我が国では浮遊粒子状物質(SPM:10 µm 以下の粒子)について環境基準が定められ、1974 年の測定開始以来の継続測定局における SPM 濃度は 1980 年頃までは低下していきました。しかし、1990 年代に入っても環境基準の達成率は低く、大都市地域、特に交通過密な道路沿道の汚染は深刻な状況にあり、SPM や後述の微小粒子状物質の健康影響が懸念されていました。そのため、大都市における大気汚染の改善は緊急の課題となり、自動車排ガス規制の強化(単体規制、NO_x・PM 法、八都府市による使用過程ディーゼル車に関する運行規制)が実施されてきました。

このような時期に、6 都市研究(Dockery ら、1993)に代表される疫学調査により、微小粒子状物質(PM_{2.5}: 2.5 µm 以下の微小粒子)濃度と死亡率などの健康影響との関係が報告され、米国ではそれまでの 10 µm 以下の浮遊粒子状物質(PM₁₀)の環境基準(年平均値 50 µg/m³、24 時間平均値 150 µg/m³)より低い濃度で生ずる PM_{2.5}による健康影響を考慮した PM_{2.5}の環境基準(年平均値 15 µg/m³、24 時間平均値 65 µg/m³)が 1997 年に設定されました。また、2006 年に改定が行われ、24 時間平均値が 35 µg/m³に強化されました。ここでいう PM_{2.5}と PM₁₀の 2.5 と 10 は、粒径がそれぞれ 2.5、10 µm で 50%がカットされた 2.5、10 µm 以下の粒子を表しています。なお、我が国の SPM の環境基準では 10 µm で 100%カットであり、およそ PM₇に相当すると考えられます。

わが国でも、1999 年以来環境省において「微小粒子状物質暴露影響調査研究」が開始され、2008 年 4 月に 8 年にわたる研究成果が「微小粒子状物質は総体として人々の健康に影響を与えることが疫学知見ならびに毒性学知見から支持される。」と要約され、中央環境審議会大気環境部会に報告されました。同報告を受けて、○定量的リスク評価手法の検討、○測定精度の改良、○曝露情報の整理、が求められ、同部会の専門委員会として、微小粒子状物質リスク評価法専門委員会(第 1 回平成 20 年 6 月)が設置されました。同専門委員会においては、「微小粒子状物質は様々な成分を含んだ混合物であり、混合物に対する評価手法が 確立されていないことから、米国や WHO 等において微小粒子状物質の環境目標設定値の根拠となった微小粒子状物質の定量的なリスク評価手法について、文献調査や現地調査を通じて、○基礎的な考え方、○解析に用いる信頼できる疫学知見の抽出の考え方、○定量的解析手法、を整理」とともに、「これらの情報を活用し、短期及び長期曝露に関する疫学知見、曝露情報やその他の情報も踏まえて、リスク評価に係る基礎的な考え方及び評価手法の検討」がなされ、報告書がまとめられました。

2008 年 12 月に、環境大臣から中央環境審議会に微小粒子状物質に係る環境基準の設定について諮問がなされ、同大気環境部会に「微小粒子状物質環境基準専門委員会」と「微小粒子状物質測定法専門委員会」が設置され、それ以来精力的に検討が進められました。同部会において、PM_{2.5}の環境基準の指針値ならびにその測定法の提案、答申案の審議を経て、2009 年 9 月 3 日の同部会において承認され、環境大臣への答申がなされ、同 9 日に表 1 に示す PM_{2.5}環境基準が設定されました。

表 1 微小粒子状物質の環境基準について

物質	環境上の条件	測定方法
微小粒子状物質	1 年平均値が 15 µg/m ³ 以下であり、かつ、1 日平均値が 35 µg/m ³ 以下であること	濾過捕集による質量濃度測定方法又はこの方法によって測定された質量濃度と等価な値が得られると認められる自動測定機による方法

備考 微小粒子状物質とは、大気中に浮遊する粒子状物質であって、その粒径が 2.5 µm の粒子を 50%の割合で分離できる分粒装置を用いて、より粒径の大きい粒子を除去した後に採取

3 PM_{2.5}の健康影響と環境基準

環境基準専門委員会は、当時収集可能な国内外の科学的知見から総合的に判断し、地域の人口集団の健康を適切に保護することを考慮して微小粒子状物質に係る環境基準設定に当たっての指針値として、長期基準の指針値 年平均値 15 µg/m³ 以下、短期基準の指針値 日平均値 35 µg/m³ 以下を提案しました。

長期基準の知見の評価に基づき、国内外の長期曝露研究から一定の信頼性を持って健康リスクの上昇を検出することが可能となる濃度を、健康影響が観察される濃度水準として、「①国内の死亡の

知見：20 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、②国外の死亡の知見：15～20 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、③国内の死亡以外の知見：25 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、④国外の死亡以外の知見：15 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ と整理し、「1 我が国における微小粒子状物質の健康リスクは 20 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下ではみられず、循環器疾患に対する健康リスクの状況は米国とは異なっているものの、人種差や微小粒子状物質の成分の差によって健康影響が異なることは明らかではない。2 微小粒子状物質の健康影響は、想定されるメカニズムに関連する多くの毒性学知見や疫学知見によって支持されるものであり、その知見の質や量から科学的信頼性は年々増加している。3 国内知見を重視して考えると指針値を検討するための出発点は 20 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であるが、知見が充実している国外知見から健康影響が観察される濃度水準 15 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ にも考慮すべきである。4 以上のことから、主要な観点として内容と疫学知見から抽出した健康影響が生ずることが確からしい濃度水準及びこれらに固有な不確実性があることにも考慮して総合的に評価した結果、長期基準として年平均値 15 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ が最も妥当である」と判断したものです。

一方短期基準については、「1 短期曝露による健康影響がみられた国内外の複数都市研究から導かれた 98 パーセンタイル値は 39 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えると考えられた。2 日死亡、入院・受診、呼吸器症状や肺機能などに関して、有意な関係を示す単一都市研究における 98 パーセンタイル値の下限は 30～35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ の範囲と考えられた。健康影響がみられた疫学研究における 98 パーセンタイル値は、年平均値 15 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ に対応する国内の PM_{2.5} 測定値に基づく 98 パーセンタイル値の推定範囲に含まれていた。」ことから、「曝露濃度分布全体を平均的に低減する長期平均濃度の基準（長期基準）と高濃度領域の濃度出現を減少させる短期平均濃度の基準（短期基準）を併せて、設定することで、長期影響及び短期影響に関して地域の人口集団の健康の適切な健康の保護が図られる。」と判断したものです。これは、長期基準の指針値である年平均値 15 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ と併せて、日平均値 35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を短期基準の指針値とすれば、高濃度出現による短期影響の健康リスクを低減することが可能と考え、この値を短期基準としたものです。

4 PM_{2.5}の組成と測定法

PM_{2.5} 環境基準の設定に伴う課題として、1. 大気汚染の状況を的確に把握するための監視測定体制の整備の促進と、体系的な成分分析が必要、2. 固定発生源や移動発生源に対するこれまでの粒子状物質全体の削減対策の着実な推進、3. 微小粒子状物質や原因物質の排出状況の把握、排出インベントリーの作成、大気中の挙動や二次生成機構の解明、4. 近隣諸国等との間での大気汚染メカニズム等に係る共通理解の促進と汚染物質削減に係る技術協力の推進、が挙げられています。

都市部一般環境測定局と自動車排ガス測定局の PM_{2.5} 濃度は急激に近づいており、一次発生粒子の主要成分であった自動車排ガス由来のスス(元素状炭素: EC)濃度が急激に低下しており、2008 年度ではその差は 1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 程度となっています(図 2)。また、存在状態が変化しやすいものや吸湿性の高いものから構成されている二次生成無機成分と高極性成分をも含む有機粒子の割合が PM_{2.5} の 7、8 割を占めていることがわかります。このような結果は、PM_{2.5} をフィルタ上に採取し高い再現性をもってその質量を測定するには、粒径の分離条件、吸引流量、試料採取中ならびに秤量の前後における温度・湿度など、多くの条件を厳密に定義する必要があることを示唆しています。これらを考慮して、表 1 に示したろ過捕集からなる標準法、それに対する等価法としての自動測定機の基本的な条件や等価性の評価方法がまとめられました。また、これには、これまでの多くの疫学データや測定データの存在、適切な分級装置の存在なども考慮されています。

都市部一般環境測定局と自動車排ガス測定局の PM_{2.5} 濃度は急激に近づいており、一次発生粒子の主要成分であった自動車排ガス由来のスス(元素状炭素: EC)濃度が急激に低下しており、2008 年度ではその差は 1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 程度となっています(図 2)。また、存在状態が変化しやすいものや吸湿性の高いものから構成されている二次生成無機成分と高極性成分をも含む有機粒子の割合が PM_{2.5} の 7、8 割を占めていることがわかります。このような結果は、PM_{2.5} をフィルタ上に採取し高い再現性をもってその質量を測定するには、粒径の分離条件、吸引流量、試料採取中ならびに秤量の前後における温度・湿度など、多くの条件を厳密に定義する必要があることを示唆しています。これらを考慮して、表 1 に示したろ過捕集からなる標準法、それに対する等価法としての自動測定機の基本的な条件や等価性の評価方法がまとめられました。また、これには、これまでの多くの疫学データや測定データの存在、適切な分級装置の存在なども考慮されています。

図 2 に示したように、最近の都市部における PM_{2.5} の年平均値は環境基準値を超過しています。しかし、これまでの長期的な粒径別組成の研究は、微小粒子の濃度低下が主として SPM の濃度低

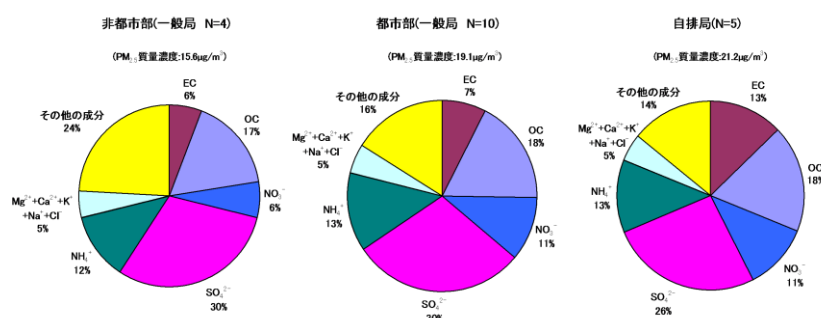


図 2 PM_{2.5}の成分別組成(2008年度の平均値)

下をもたらしたことを明らかにしており(高橋ら, 2008)、これまでの対策がPM_{2.5}削減対策としても有効であったことを示唆していますが、次のようにこれまで重視されていなかったバイオマス由来の粒子状物質もそのPM_{2.5}への寄与割合や発生過程に対する調査が必要となっています。

質量が12、13、14の¹²C、¹³C、¹⁴Cが炭素同位体として存在し、現代炭素と呼ばれる¹⁴Cの半減期は約5730年であることが分かっています。この¹⁴Cは、植物を燃焼した際に発生する一次発生炭素粒子や植物由来の揮発性有機化合物(VOC)から二次生成した炭素粒子に含まれていますが、化石燃料にはほとんど含まれていません。そのため、PM_{2.5}中の炭素成分の同位体炭素分析を行えば、植物由来の炭素の存在割合を推定することができます。植物燃焼の指標物質レボグルコサンの測定(萩野ら, 2006)や炭素同位体分析(Takahashi et al., 2007)から、冬季の都市部や都市近郊地域において、4割程度のバイオマス由来の炭素成分の存在が報告されています。

したがって、PM_{2.5}環境基準の設定に伴う課題として挙げた1-4を着実な推進が重要です。

5 今後の課題

季節別自然起源/人為起源の割合の把握

冬季の都市部や都市近郊地域において、バイオマス由来の炭素成分の高い寄与は既に前節で述べましたが、夏季においてもそれらの調査が必要です。関東地域での夏季調査において、化学質量分析(CMB)と化学輸送モデル(CTM)を用いた一次排出EC、OCに占める前橋でのバイオマス由来の割合は約10、40%であり、化石燃料由来二次生成OCの寄与が高く、バイオマス由来の寄与は低く、かつ比較的緩やかな日内変化を示すことが報告されています(Morino et al., 2010)。これらの結果は高濃度時に占める有機粒子の発生過程が季節による異なることを示唆しています。

気液相にまたがるVOCからの半揮発性有機粒子の生成機構の解明

これまでに測定されて来た前駆体VOCだけでは二次生成有機粒子を説明できていません。そのため、極性有機粒子を発生する野焼き等の寄与とともに、これまでの気相での光化学酸化に加えて、気液相にまたがる自然起源ならびに人為起源VOCからの未同定半揮発性有機粒子の生成機構に関する研究が必要とされています。

各種発生源の排出インベントリに関する系統的な整備・改定

効果的な削減対策の推進には、これまで考えられていた発生源以外にバイオマス由来の粒子発生に関わる発生源(一次発生粒子/二次性粒子前駆体として自然起源を含むVOC)の把握、ならびにそれらを含む各種発生源の排出インベントリに関する系統的な整備が必要です。

高時間分解能データの整備と化学輸送モデル(CTM)の改良

PM_{2.5}の現状把握ならびに将来予測には、現状を再現し得るCTMが必要であり、その検証には高い時間分解能をもつフィールド測定データが必要であり、これらを利用して対策効果を予測するCTMの改良を進めていくことが重要です。

広域連携によるフィールド調査の推進

東京都における総合研究では都内の発生源対策によるPM_{2.5}低減には限界があり広域での取り組みの必要性を示唆しており、個別自治体の枠を超えかつ国との連携によるフィールド調査が必要と考えられます。さらに、国外からの越境汚染も考慮する必要があります。

健康影響とPM_{2.5}低減対策

最近の国立環境研究所の研究において、人工的に光化学スモッグを引き起こして生成させた二次生成有機粒子の毒性(酸化ストレス)はディーゼル排気粒子や大気粒子より強いことが報告されています。この結果は、総体としてのPM_{2.5}削減対策以外に、選択的な前駆体VOCの制御などが今後の対策として重要になる可能性を示唆しています。

PM_{2.5}の環境基準の設定以前に開始された「東京都の微小粒子状物質(PM_{2.5})に関する総合研究」において、ここで挙げた課題のいくつかに関わる調査研究も行われ、環境行政に多くの有益な情報が提供されてきました。東京都は欧州の一国にも相当し得る財政規模を持っており、少子高齢化が進む中でより重要性を増しつつある呼吸器系・循環器系への健康影響低減のために、国や近隣自治体と連携して今後のPM_{2.5}や光化学オキシダント対策を睨んだ調査研究を引き続き推進していくことを期待します。