

# 大気汚染物質に関する環境基準と研究サイドからの観点

## A viewpoint from a research side to the national ambient air quality standards in Japan

兼保直樹\*  
Naoki Kaneyasu

### ABSTRACT:

National Ambient Air Quality Standard (NAAQS) on the air pollutants are closely related to the measurement technologies, more specifically the instruments used to detect the pollutants, as well as the social situation at the time of establishment. In this article, the technical aspects of standards for the particulate pollutants and circumstances that affected the establishment of NAAQS are discussed. The difficulty to achieve the NAAQS for Photochemical Oxidants (roughly equivalent to ozone) in Japan is also referred briefly.

Keywords: NAAQS, aerosol, SPM, PM<sub>2.5</sub>, photochemical oxidant, ozone

### 1. はじめに

大気中の汚染物質に対して定められている環境基準 (人の健康の保護及び生活環境の保全のうえで維持されることが望ましい基準) は、実際には測定技術 (より端的には測定機器) と不可分の関係にあり、また制定された時代の社会情勢 (諸外国の動向、世論) などの周辺事情にも影響を受けている。なかには、より望ましい形が考えられるものの変更が難しい基準、あるいは達成が事実上できなくなったものなどがある。本稿では、粒子状物質と光化学オキシダントに関して、環境基準にまつわる上記の問題を紹介する。

### 2. 大気中の粒子状物質とサイズ

#### 2.1 空気動力学径と環境基準

大気中に浮遊する粒子状の物質 (大気エアロゾルと呼ばれる) に対して、わが国で環境基準値が定められているものとしては浮遊粒子状物質 (Suspended Particulate Matter : SPM) と微小粒子状物質 (Particulate Matter smaller than 2.5 micrometer in aerodynamic diameter : PM<sub>2.5</sub>) がある。SPM は空気動力学径 (aerodynamic diameter :  $D_a$ ) が 10  $\mu\text{m}$  以下、PM<sub>2.5</sub> は  $D_a$  が 2.5  $\mu\text{m}$  以下の粒子を、また慣用的にはその質量濃度を示す用語である。空気動力学径とは、重力沈降や慣性衝突といった空気中での粒子の運動力学的な挙動を基に定義された粒径であり、幾何的なサイズとは異なる (球形の水滴のみ一致する)。

ただし、重力沈降式、サイクロン、インパクターなどの空気粒子の空気動力学的性質を利用した分級器 (粒子をサイズによって分別) は、ある粒径でス

テップ関数のように完璧に粒子を分けることはできず、実際には目的の  $D_a$  より大きな粒子も多少は通過させ、また目的より小さな粒子でも多少はトラップしてしまう。そこで、米国の環境基準 (National Ambient Air Quality Standard : NAAQS) で定める PM<sub>10</sub> および PM<sub>2.5</sub> では、50%の数の粒子が透過する  $D_a$  すなわち  $D_p(50)$  で分級器の性能を規定している。

#### 2.2 SPM は「PM<sub>7</sub>相当」なのか?

SPM の定義は  $D_a$  が 10  $\mu\text{m}$  以下であるが、この「以下」が微妙な部分で、100%分離が達成される粒径 (限界粒径) が 10  $\mu\text{m}$  とされている。ただし、100%分離を達成する  $D_a$  で分級器の性能を規定しようとすると、寝た形の S 字を描く分級特性の場合と、鋭く立ち上がるステップ関数に近い分級特性を持つ場合とでは異なった粒子質量濃度の測定結果となる。そのため、分級特性をより明確に定めるためには  $D_p(50)$  を達成する  $D_a$  が何  $\mu\text{m}$  であるかというデータが必要となる。なお、厳密には S 字カーブの傾きすなわち分離のシャープさを示すデータも必要だが、ここではその議論は省略する。

2009 年、わが国でも米国に 12 年遅れて PM<sub>2.5</sub> の環境基準が制定され、こちらは  $D_p(50) = 2.5 \mu\text{m}$  の分級器を用いるとして米国とほぼ同じものとなった。そうすると、米国など多くの国で採用されている PM<sub>10</sub> と国内の SPM のデータの比較の必要性から、SPM は PM<sub>x</sub>相当としてはどの程度であるかという話題が出るようになる。そして、いつの頃からか解説記事などで SPM は「PM<sub>7</sub>相当」であるとの記述がみられるようになった。この話の根拠については筆者もか

\*国立研究開発法人 産業技術総合研究所, National Institute of Advanced Industrial Science and Technology  
研究グループ長, Group Leader, 博士 (工学), Ph.D (Engineering)  
(公社) 大気環境学会, Japan Society for Atmospheric Environment

なり探してみたが、唯一それらしいものとしてはローボリューム・エアサンプラーの旧 JIS 規格である Z8814:1994 内に重力沈降型分級装置の特性図で  $D_p(50) \approx 7 \mu\text{m}$  と目視で読めるものがある (兼保ら, 2012)。しかし、筆者の知る限り SPM 自動測定器に重力沈降型分級装置を用いている(いた)ものはない。

一方、平成 25 年度環境省委託事業の一環として藤村 (2014) が行った研究では、3 社の SPM 用サイクロンの  $D_p(50)$  は  $5 \mu\text{m}$  前後でいずれも  $7 \mu\text{m}$  より小さい (表 1)。どうやら「PM<sub>7</sub>相当」は研究者間に伝わる都市伝説のようなものと言えそうである。

表 1 各社サイクロンの分粒試験結果のまとめ

機種	今回の試験結果		メーカーデータ
	$D_{50}(\mu\text{m})$	$D_{20}/D_{80}$	$D_{50}(\mu\text{m})$
A 社	5.7 ~ 5.9	1.7 ~ 1.9	6.0
B 社	4.6 ~ 4.7	2.0 ~ 2.1	7.2
C 社	4.9 ~ 5.3	1.8	6.4

藤村 満, SPM 計用 10 $\mu\text{m}$  カット・サイクロン及び集合採気分配管の分級特性試験, 第 55 回大気環境学会年会講演要旨集, 480 (2014) より転載

### 2.3 SPM はガラパゴスの指標だが

SPM の環境基準が制定されたのは今から 45 年前の 1973 年であり、これは米国で PM<sub>10</sub> の NAAQS 制定に 14 年先行するものである。それだけ 1960~1970 年代の国内の公害問題は深刻なものであったともいえるが、呼吸器官への透過粒径を考慮した環境基準をこのような早い時点で制定したのは画期的なことであった。しかし、制定が早かったことの裏返しとして分級器の特性への考慮が不十分で、結果として、測定器メーカーにより SPM の分級器の特性が微妙に異なるものとなってしまった。

これは、環境基準の制定当時の研究状況では仕方のないことであるが、現在においては、国として SPM 分級器に対する  $D_p(50)$  の基準を定めることが必要なのではないだろうか。あるいは、他国では一切使われていないガラパゴス的な指標となっている SPM をいっそ捨ててしまい、PM<sub>10</sub> に移行してはどうか、という考え方もあるかもしれない。しかし、米国の PM<sub>10</sub> よりかはるかに長い期間行われてきた

SPM 測定は、長い時間軸で行われる疫学や環境研究にとって欠くべからざる貴重なデータ資源であり、その連続性を捨てることは得策ではない。ガラパゴスには、他では得ることができない貴重な知見が数多く埋もれているものである。

実際のところ、SPM 分級器の  $D_p(50)$  が  $5 \mu\text{m}$  付近で  $\pm 1 \mu\text{m}$  程度ずれていたところで、ほとんどの状況では測定値に意味のあるほどの差は現れない。ただし、粗大粒子が支配的となる黄砂のときにはこの差が問題となる。黄砂の質量粒径分布のモードが  $4 \mu\text{m}$  付近にあるためである。もっとも、「黄砂は大気汚染物質なのか」というそもそも論がある。とは言うものの、黄砂に収着した各種の汚染物質による生体影響への懸念、あるいは微細な SiO<sub>2</sub> そのものの影響についても疫学的な解析が報告されており (Kanatani et al., 2010)、悩ましい課題ではある。

### 2.4 黄砂と PM<sub>2.5</sub>

黄砂や海塩粒子がともに粗大粒子であることから、わが国での PM<sub>2.5</sub> の環境基準導入と測定体制の整備により、自然起源物質の影響を排除し、人為起源の汚染物質のみの影響をより明確に示すデータが得られるようになることが期待された。それは、人為起源の汚染物質と土壌粒子・海塩粒子の質量粒径分布は  $D_a \approx 2 \mu\text{m}$  付近に谷を持つ二山に別れることが知られているからである。

しかし、 $D_p(50) = 2.5 \mu\text{m}$  での分離は土壌粒子、特に黄砂の影響を除去するという意味では思ったほど有効ではなかった。やや古いデータであるが、図 1 に 2010~2011 年に長崎市において測定された SPM/PM<sub>2.5</sub> 濃度比と国立環境研究所の偏光 Mie ライダー測定値 (こちらは大村に設置) から解析されたダスト光消散係数の関係を示す。図の上部に離れてデータ点が打たれている 4 回の顕著な黄砂イベントでは、SPM/PM<sub>2.5</sub> 濃度比が 3 程度となっている。また、カスケードインパクトによる過去の研究では、黄砂イベント時の PM<sub>7</sub>/PM<sub>2.5</sub> 濃度比は 2.2~3.2 となっていた (兼保ら, 2012)。顕著な黄砂イベントでは SPM 計での計測値で 200  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  程度以上の濃度は容易に出現するため、PM<sub>2.5</sub> 濃度としてはその 1/3 の 70  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  前後に相当する。これは、現在国内で測定される PM<sub>2.5</sub> 濃度の 1 時間値としても高いランクのも

のとなり、汚染物質と自然起源物質を分離するという意図においては有効とは言えない。

特に、国内において社会的関心が高い問題であるアジア大陸からの大気汚染物質の長距離輸送は、黄砂の輸送と前後して、あるいは同時に生ずることが多いため、両者の切り分けを全国に張り巡らされた常時監視局のデータのみで実現できるかもしれないとの期待は叶えられなかった。これは、黄砂の粒径分布が  $D_a = 2.5 \mu\text{m}$  よりさらに小さい粒径まで裾を引いているためである。この裾の端の部分は黄砂全体の質量濃度の割合としては小さいものの、質量粒径分布が  $D_a = 0.3 \sim 0.7 \mu\text{m}$  付近にある汚染物質系の粒子との比較では、大きな質量濃度となってしまう。

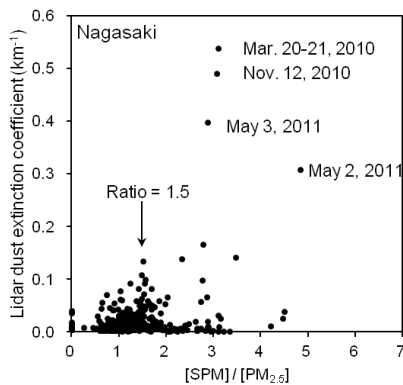


図1 Comparison of daily averaged lidar dust extinction coefficients and [SPM] / [PM<sub>2.5</sub>] concentration ratios at Nagasaki from Oct. 2009 to May 2011. 兼保ら, 大気環境学会誌, 47 (6), 285-291 (2012) より転載。

研究の現場からは、人為起源の汚染物質と黄砂・海塩粒子の質量粒径分布の境は  $D_a = 2.5 \mu\text{m}$  よりもやや小さい粒径にあることから、 $D_p(50) = 2.0$  または  $1.5 \mu\text{m}$  あたりで分離した基準および測定器とした方が大気中の現象をクリアに捉えられ、意味があると考えられる。PM<sub>2.0</sub>あるいはPM<sub>1.5</sub>というわけである。

### 2.5 PM<sub>2.5</sub>の”2.5”はどこから

それでは、米国はなぜ  $D_p(50) = 2.5 \mu\text{m}$  で切った環境基準を1997年に採用したのか。衆目の一致するところは、Dockery et al. (1993) のハーバード6都市研究で死亡率と比較されたのがPM<sub>2.5</sub> サンプラーによって得られたエアロゾル濃度であったためである。そこで、Dockery et al. (1993) が1974年に開始した

研究のなかで使用したサンプラーが何であったのかを調べてみると、論文には ”Size-selective aerosol samplers were placed at these sites in the late 1970s; data were collected for two classes of particle: fine particles (aerodynamic diameter <2.5 micrometers) and inhalable particles (aerodynamic diameter, <15 micrometers before 1984 and <10 micrometers starting in 1984).” と機種名は記されていない。Dockery et al. (1993) の研究を再解析したKrewski et al. (2005) には、”The audit team classified the dichotomous sampler data into four epochs defined by the inlet size cutoff (15  $\mu\text{m}$  or 10  $\mu\text{m}$ ), ...” とあり、使われたサンプラーは dichotomous (2粒径分別) sampler であり、上端のカットオフ径を15  $\mu\text{m}$  から途中で10  $\mu\text{m}$  に変更可能であったことがわかる。

1975~1978年の時点では、米国では Beckman 社と Sierra Instrument 社が dichotomous sampler を開発していたが、市販されていたのは Sierra Instrument 社のものであり (U.S. EPA, 1978)、1978年に同社の Model 200 を使用したフィールド観測も報告されている (Stevens et al., 1980)。Model 200 シリーズは分級器として  $D_p(50) = 2.5 \mu\text{m}$  のバーチャル・インパクターを採用していた。また、その後継機である Sierra-Andersen 社 Model 241 は本来の15  $\mu\text{m}$  カット・インレットを10  $\mu\text{m}$  カットのものに交換することができる (Nagda et al., 1986)。

以上より、ハーバード6都市研究で使用されたのは Sierra Instrument 社の Model 200 あるいはその前後のモデルである可能性が高い。当時、 $D_p(50) = 2 \mu\text{m}$  のサイクロンを使用したマニュアル・サンプリングによる研究例もいくつも報告されていたが、市販の機器として入手と運用が比較的容易であったと考えられる Sierra Instruments 社の機器の仕様が、そのまま後の NAAQS の元となったというのがあるところである。

わが国でも、環境省は1990年代に国内各メーカーとともに  $D_p(50) = 2.0 \mu\text{m}$  カットを想定したサイクロンやバーチャル・インパクターの検討を行っていたが (環境省・環境技術協会, 2006)、ガラパゴス規定となってしまった SPM の轍を踏まないことも考慮してか、微小粒子状物質の環境基準としては米国と同じPM<sub>2.5</sub>を採用した。

このような経緯から、行政あるいは環境基準とし

ては PM<sub>2.5</sub> で行くにしても、研究としてはそれだけでよいのだろうか。幸い、埼玉県環境科学国際センターでは PM<sub>1.0</sub> の長期サンプリングを行っており、並行して取得している PM<sub>2.5</sub> と質量濃度および組成の比較を進めている。顕著な黄砂イベント時のデータがどのようなか、期待される場所である。

### 3. 光化学オキシダントと対流圏オゾン

現在、わが国で PM<sub>2.5</sub> が環境基準を超過する状況は年を追うごとに少なくなってきており、大気汚染常時監視局（一般局）での2015年度の環境基準達成率は74.5%であった。一方、同年度の光化学オキシダントの環境基準（1時間値が60 ppb以下であること）の達成率は一般局で0%である。このように、社会における関心と、実際の環境基準の達成状況はあまり関連していない。光化学オキシダントはその大部分がオゾンであることから、以下ではオゾンのみとして話を進めるが、この環境基準は行政上の政策目標として達成を目指すのは非常に困難、あるいは事実上不可能なものとなっている。

光化学オキシダントの環境基準は、都市大気汚染である“光化学スモッグ”を想定していたのは明らかである。一方、国内の都市域から離れた遠隔地の地上で測定されたオゾン濃度は、2010年代半ばの時点では沖縄県与那国島や岩手県綾里で春季の極大値は50 ppb付近となっている（気象庁、2017）。これらの地点で測定されているのは、その場で排出されたNO<sub>x</sub>および炭化水素類の光化学反応によって生成されたものというより、より広域的な対流圏オゾンである。

対流圏オゾンには、人為起源のNO<sub>x</sub>および炭化水素類により生成されたもののみならず、自然起源のNO<sub>x</sub>（雷や森林火災など）と炭化水素類（森林起源）からの光化学生成や、成層圏からの流入などによるものも含まれる。日本付近での対流圏オゾンは、1973年に光化学オキシダントの環境基準が制定された時点と較べて年々上昇しており、春季の場合には50 ppbに対して環境基準の許容するマージンは10 ppbしか残っていない。したがって、中国などアジア大陸起源の光化学オゾンの長距離輸送や春季の成層圏オゾンの流入がわずかに増えただけでも、国内での原因物質とは関係なく1時間値が60 ppbを簡単に超

過する。しかも、1回の超過で基準は不達成となる。

これでは、国内での原因物質削減努力の意欲が減退し、環境改善の指標としての意味も薄まってしまふ。そこで、環境省は中央環境審議会微小粒子状物質等専門委員会が提言した新たな指標（日最高8時間平均値の年間99パーセンタイル値の3年平均値）の公開なども行っているが（環境省、2017）、環境基準値そのものを変えることは、NO<sub>x</sub>のときに世論の強い反発を受けた経緯からも容易ではないだろう。

### 引用文献

- Dockery, D.W., Pope, C.A., 3rd, Xu, X., Spengler, J.D., Ware, J.H., Fay, M.E., Ferris, B.G., Jr., Speizer, F.E. An association between air pollution and mortality in six U.S.cities. *N. Engl. J. Med.*, 329, 1753-1759 (1993).
- Stevens, R. K., Dzubay, T. G., Shaw, R. W., McClenny, W. A., Lewis, C. W., Wilson, W. E., Characterization of the aerosol in the Great Smoky Mountains, *Environ. Sci. Technol.*, 14 (12), 1491-1498 (1980).
- Kanatani, T., Ito, I., Al-Delaimy, W. K., Adchi, Y., Mathews, W. C., Ramsdell, J. W.: Desert dust exposure is associated with increased risk of asthma hospitalization in children, *Am. J. Respir. Crit. Care Med.*, 182, 1475-1481 (2010).
- 兼保直樹, 杉本伸夫, 清水 厚, 山本重一, 河本和明, ライダー観測によるダストの推定とエアロゾル地上観測によるエアロゾル質量濃度の比較, 大気環境学会誌, 47 (6), 285-291 (2012).
- 環境省, 環境白書 (平成29年度版), 400pp. (2017).
- 環境省・環境技術協会, 環境大気常時監視マニュアル第4版, 6章:浮遊粒子状物質自動測定器, 6.5 その他の測定方法(参考), (3)微小粒子分級法 <http://www.env.go.jp/air/osen/manual1/> (2006).
- 気象庁, 地上オゾン, [http://ds.data.jma.go.jp/ghg/kanshi/ghgp/o3\\_trend.html](http://ds.data.jma.go.jp/ghg/kanshi/ghgp/o3_trend.html) (2017).
- Krewski, D., Burnett, R.T., Goldberg, M., Hoover, K., Siemiatycki, J., Abrahamowicz, M., White, W. Reanalysis of the Harvard Six Cities Study, part I: validation and replication. *Inhalation Toxicology*, 17, 335-342 (2005).
- Nagda, N. L., Dector, H. E., Koontz, M. D., Guidelines for monitoring indoor air quality, Hemisphere Publishing, pp.270, New York (1986).
- U.S. EPA, Dichotomus Sampler – A practical approach to aerosol fractionation and collection, United States Environmental Protection Agency, EPA-600-2-78-112 (1978).