

大気環境の改善に向けて

2010.6.25

愛媛大学農学部

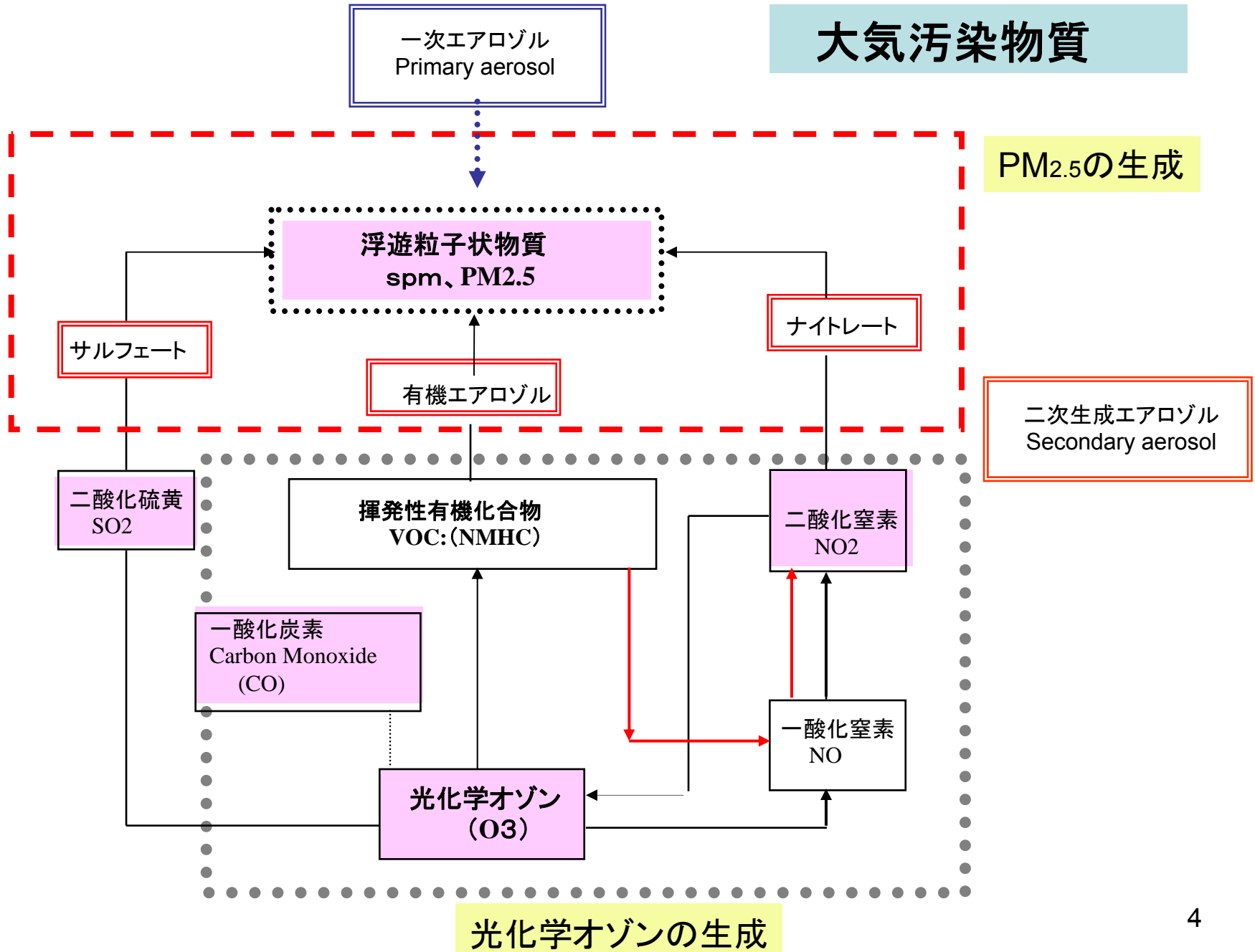
若松伸司

目次

- 1 . 大気汚染物質の生成機構
- 2 . 大気汚染濃度の推移
- 3 . PM_{2.5}について
- 4 . 今後の研究課題

1. 大気汚染物質の生成機構

大気汚染物質



大気汚染現象とモデル

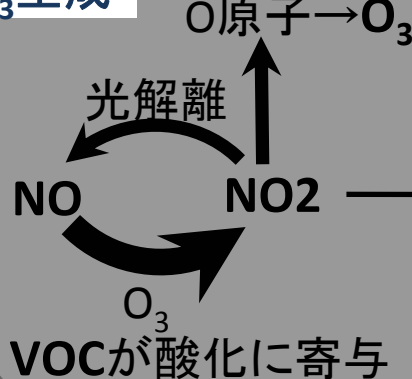
時間経過 →

遠距離からも
輸送される
汚染物質
(マルチスケール大気質予測モデル)

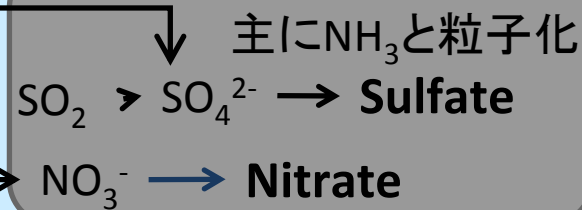
O₃
SO₂
PM

大きな風の流れ
反応に大きく影響する
天候・気温・湿度条件
(気象モデル)

O₃生成



無機二次粒子生成



有機二次粒子生成



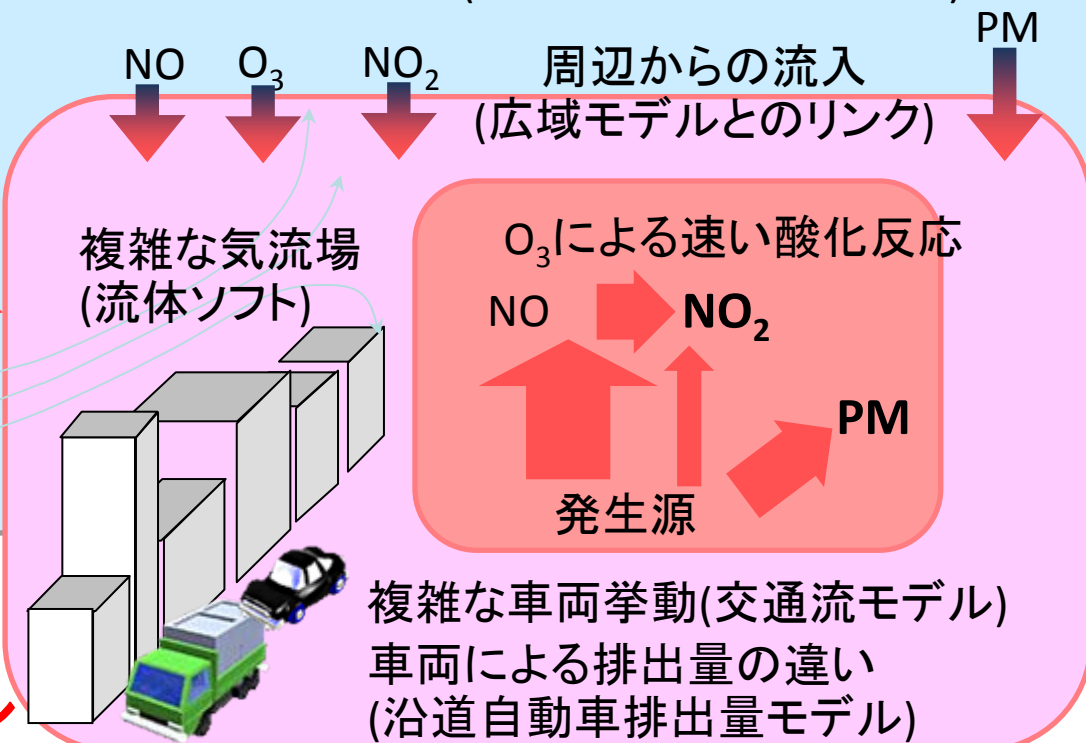
複雑な反応・除去過程(広域大気質予測モデル)



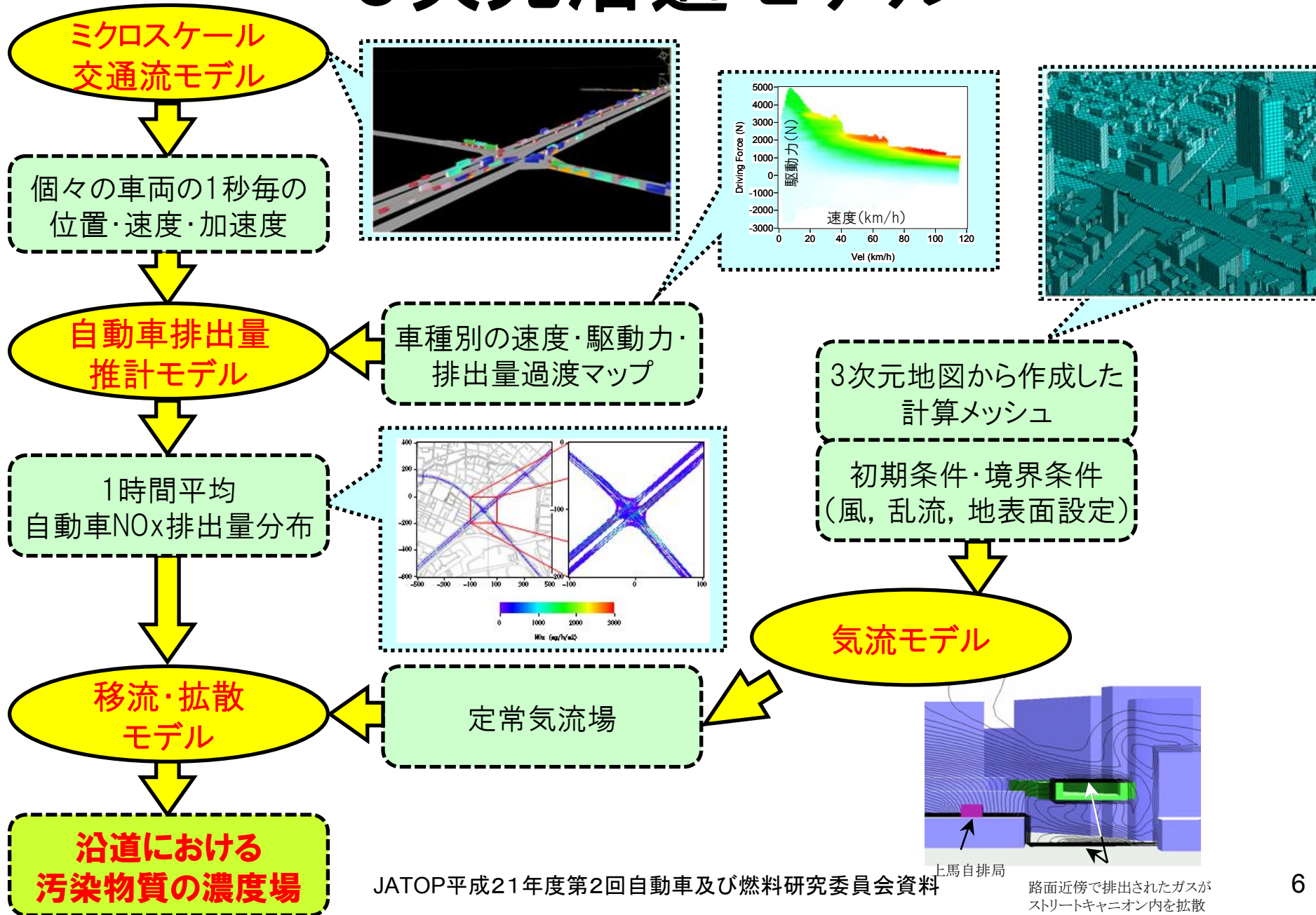
さまざまな
一次汚染物質の
発生源と時空間分布
(排出量データ)

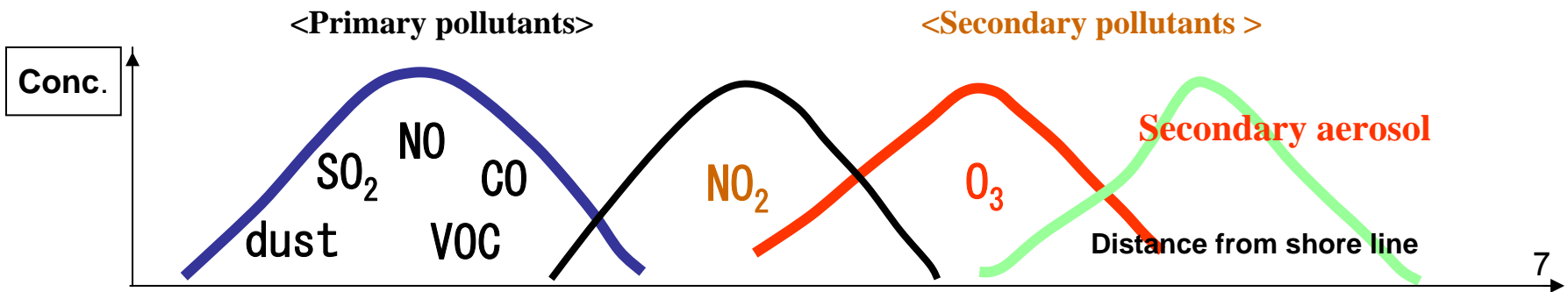
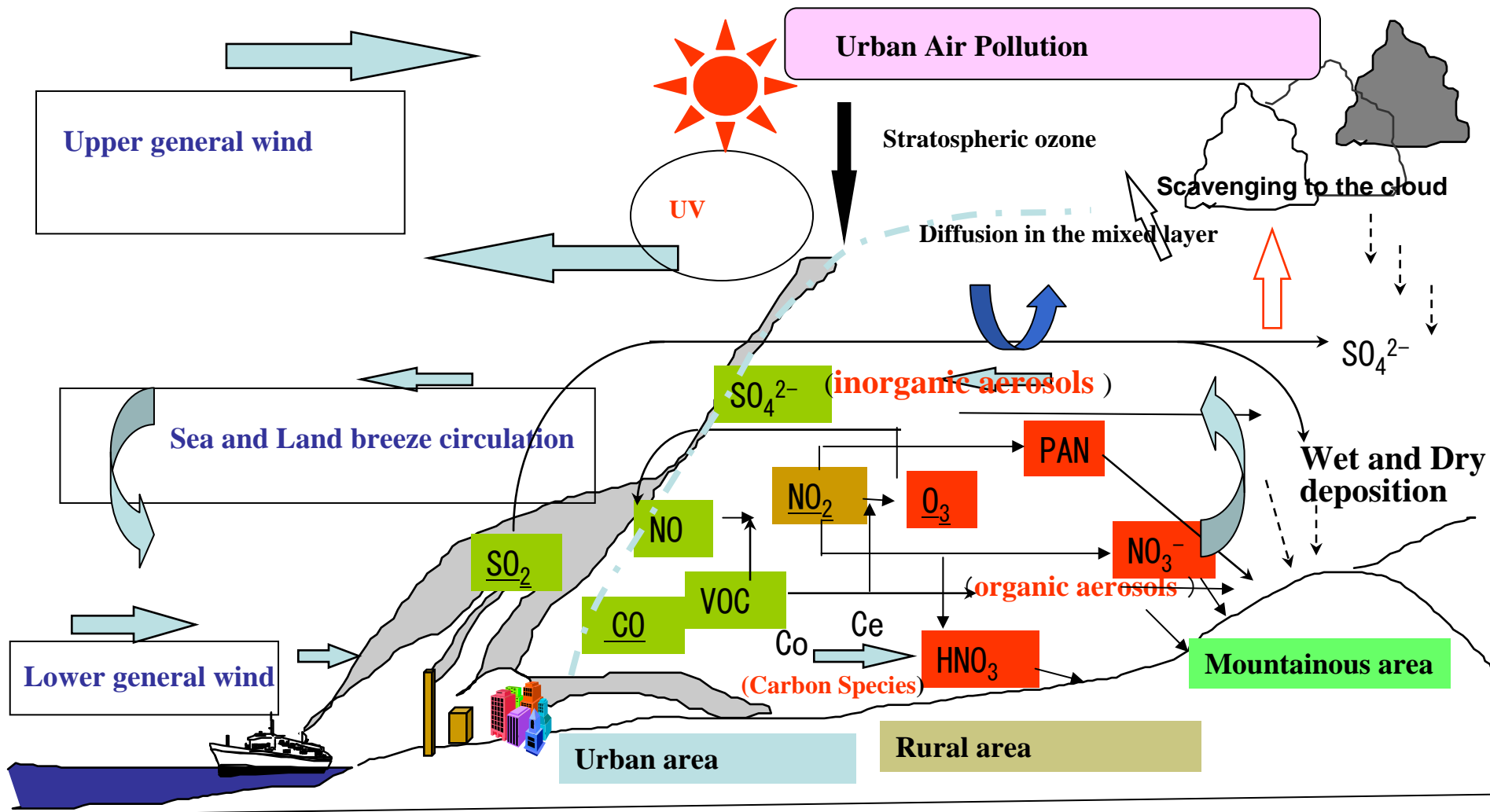
広域モデル

沿道モデル



3次元沿道モデル

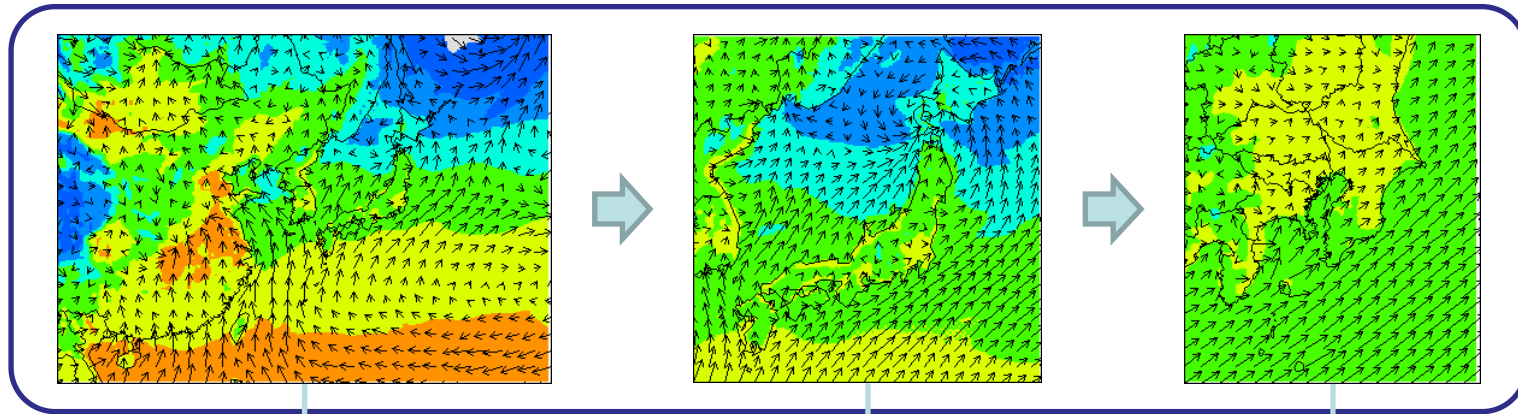




広域大気シミュレーション

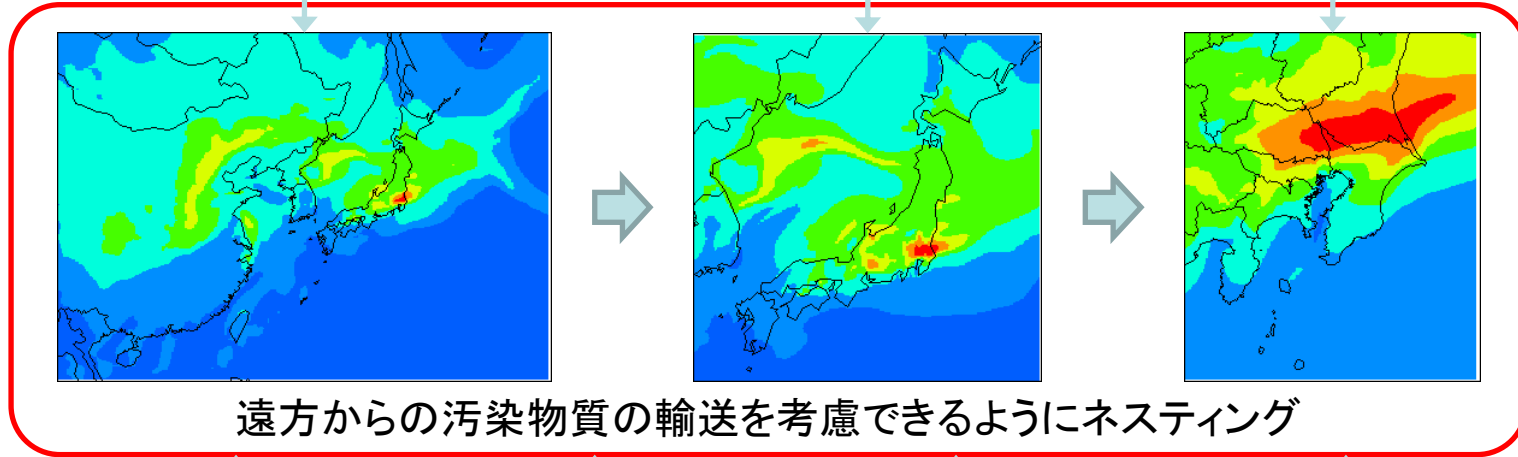
気象モデル

風速、風向、
気温など、
時々刻々の
気象要素の
変化を計算



大気質モデル

風による輸送、
光化学反応
などによる
汚染物質濃度の
時々刻々の
変化を計算



排出量データ

自動車



特殊
自動車



自動車以外
(船舶、家庭、工場など)

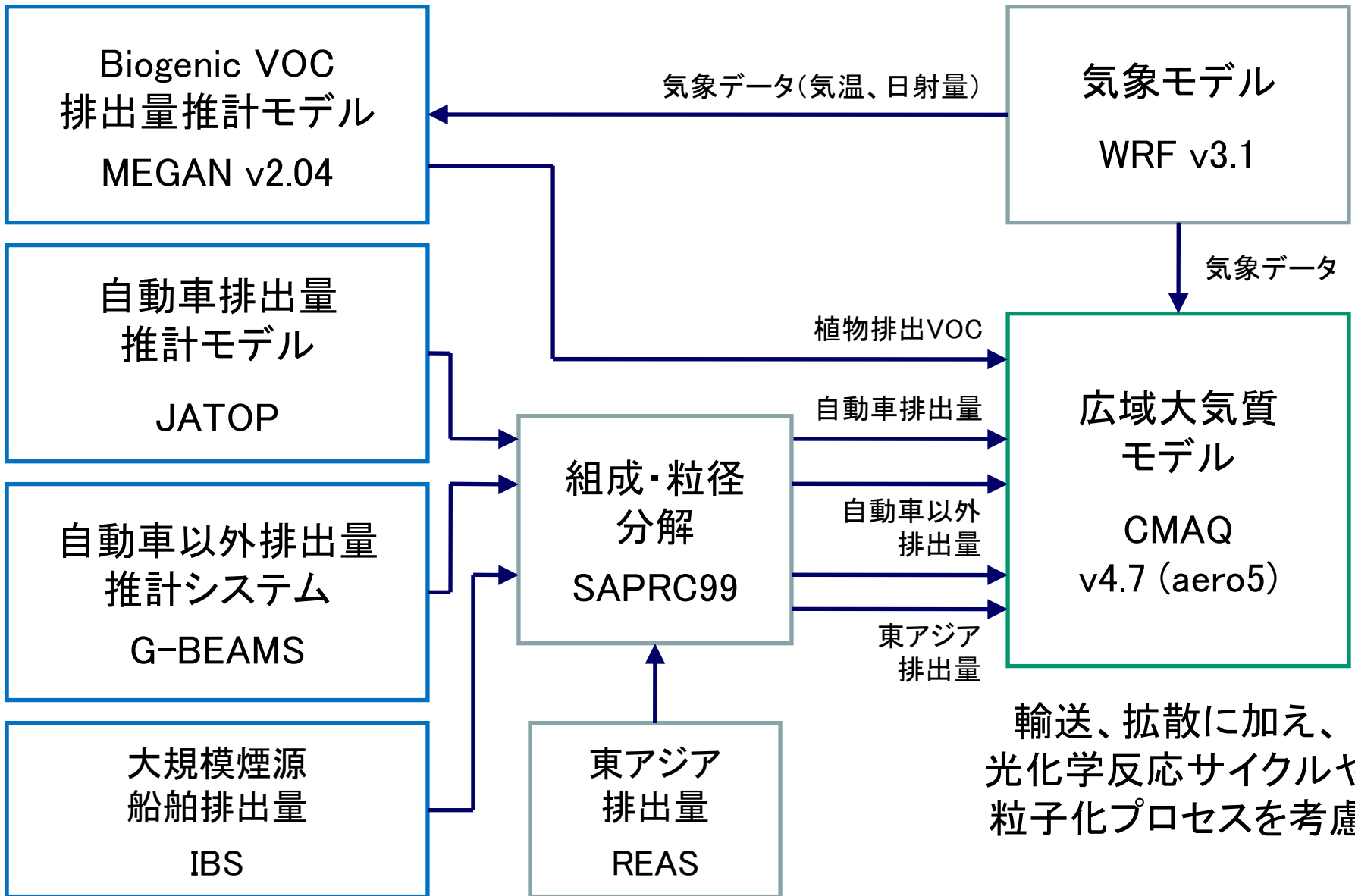


植物からの
VOC排出



3次元大気シミュレーションの構成例

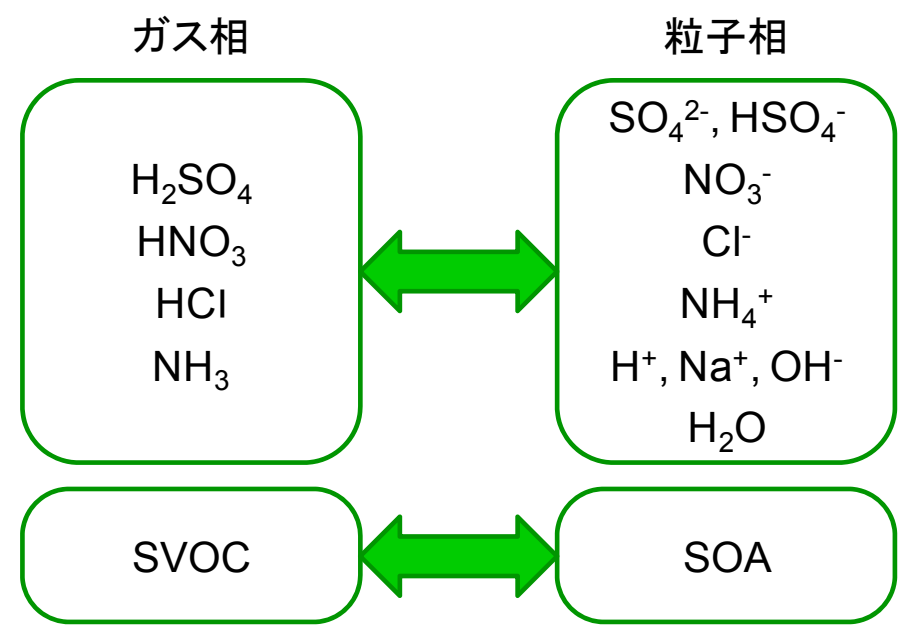
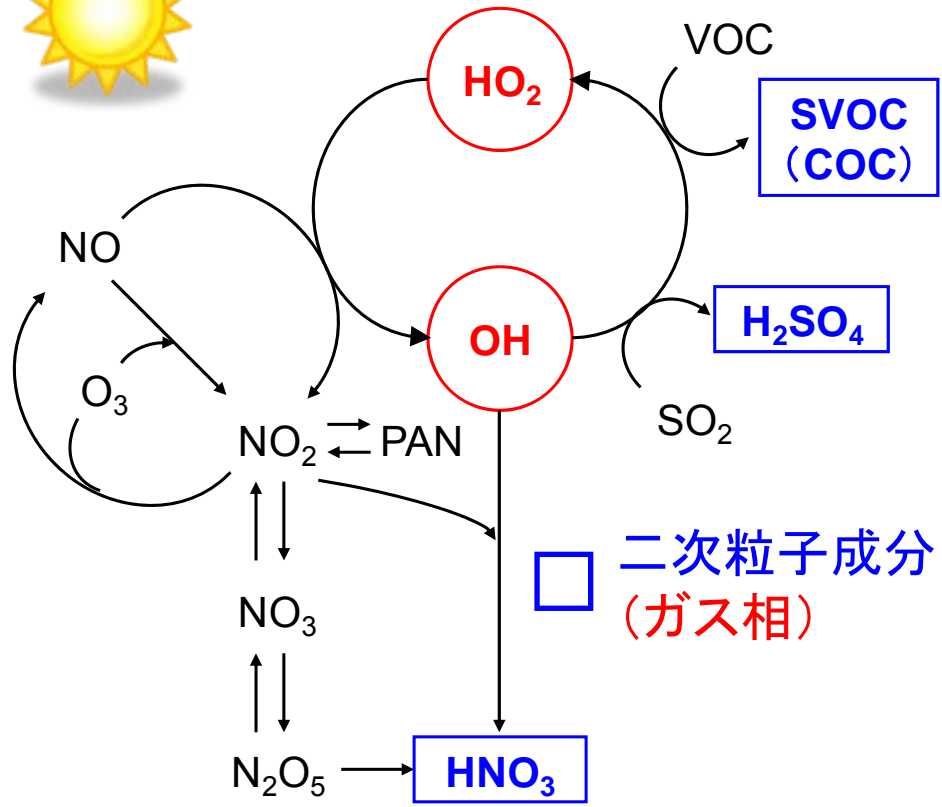
JATOP平成21年度第2回自動車及び燃料研究委員会資料2010/3/9



輸送、拡散に加え、
光化学反応サイクルや
粒子化プロセスを考慮

光化学反応サイクルと二次粒子生成

平成21年度第2回自動車及び燃料研究委員会資料JATOP2010/3/9



二次粒子成分の生成過程は複雑であり、濃度低減策を検討するためには、大気中の諸過程を考慮した3次元大気シミュレーションが必要

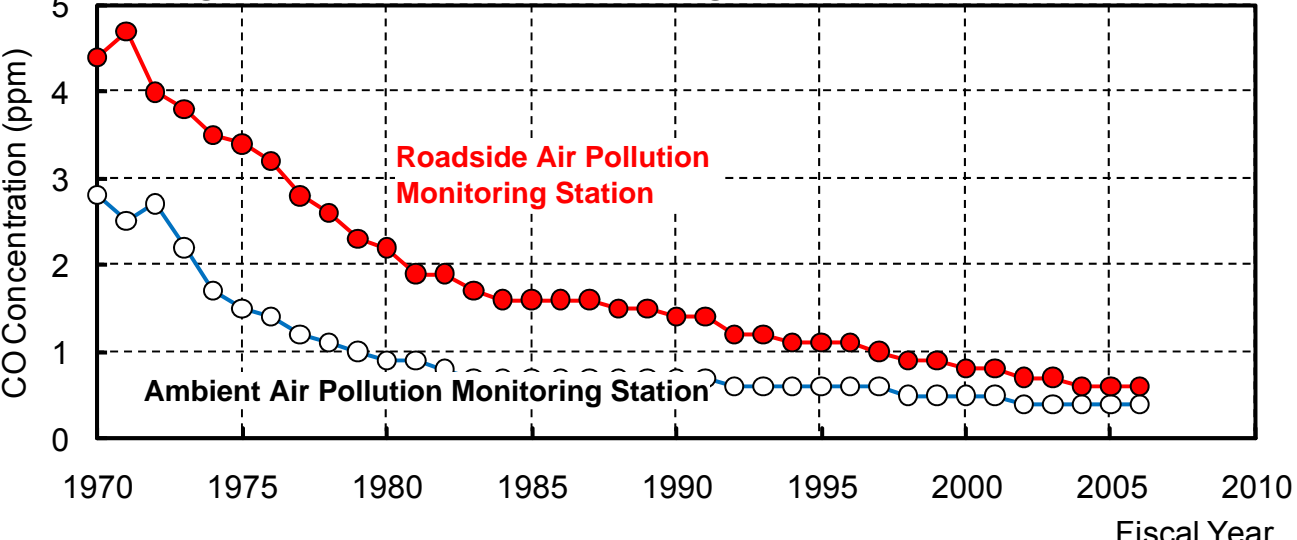
SVOC :
 Semi-volatile Organic Compounds
COC :
 Condensable Organic Compounds
SOA (有機二次粒子) :
 Secondary Organic Aerosol

2. 大気汚染濃度の推移

Japanese Environmental Quality Standards for Ambient Air Carbon Monoxide (CO)

Environmental Standards	Daily mean of one-hour values should be 10 ppm(12mg/m ³) or less, and 8-hour mean of one-hour values 20 ppm(23mg/m ³) or less.
Official measurement method	Nondispersive infrared analyzer method (<i>JIS B 7951</i>)
Environmental Standards Evaluation	Of the mean daily values obtained over one year, those within the top 2% (equivalent to the values of seven days, if daily measurements are taken for 365 days) are excluded (2% exclusion value) and the highest remaining values are compared with the environmental standard. If the measurement values exceed the environmental standard on more than two consecutive days, they are judged as nonattainment.

Changes in the Annual Averages of CO Concentrations



Number of monitoring stations and EQS achievement rate

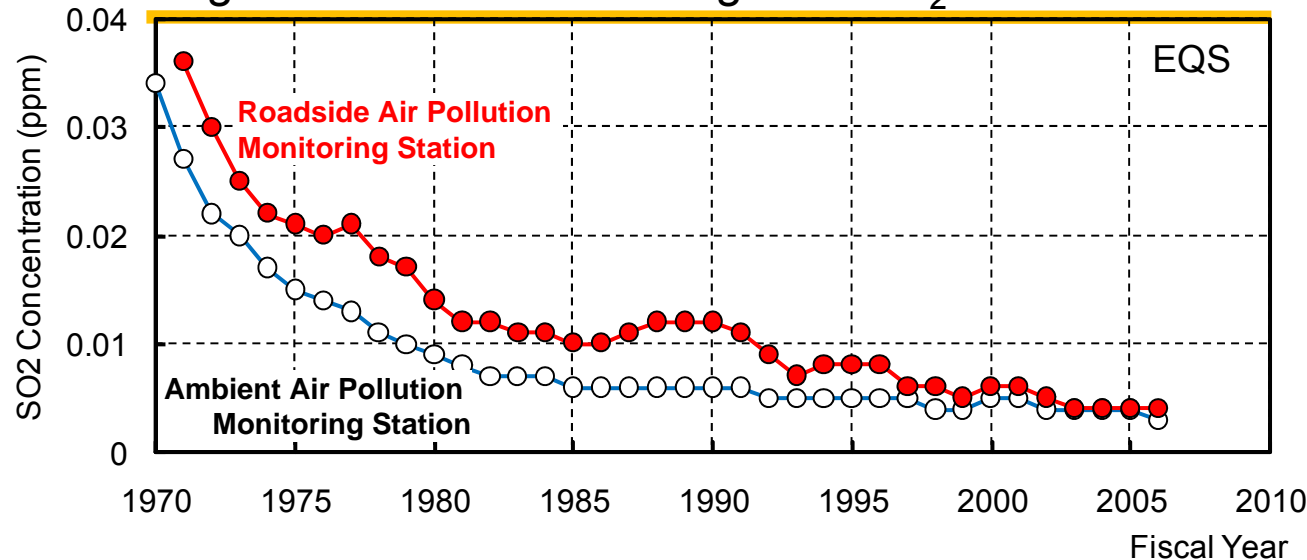
Ambient Air Pollution Monitoring Station
 JAPAN: 86/86 (100%)
 TOKYO: 11/11 (100%)

Roadside Air Pollution Monitoring Station
 JAPAN: 294/294 (100%)
 TOKYO: 17/17 (100%) (2006)

Japanese Environmental Quality Standards for Ambient Air Sulfur Dioxide (SO₂)

Environmental Standards	Daily mean of one-hour values should be 0.04 ppm(105μg/m ³) or less, and one-hour mean value 0.1 ppm (262μg/m ³) or less.
Official measurement method	Conductometric method or ultraviolet fluorescence method (<i>JIS B 7952</i>)
Environmental Standards Evaluation	Of the mean daily values obtained over one year, those within the top 2% (equivalent to the values of seven days, if daily measurements are taken for 365 days) are excluded (2% exclusion value) and the highest remaining values are compared with the environmental standard. If the measurement values exceed the environmental standard on more than two consecutive days, they are judged as nonattainment.

Changes in the Annual Averages of SO₂ Concentrations

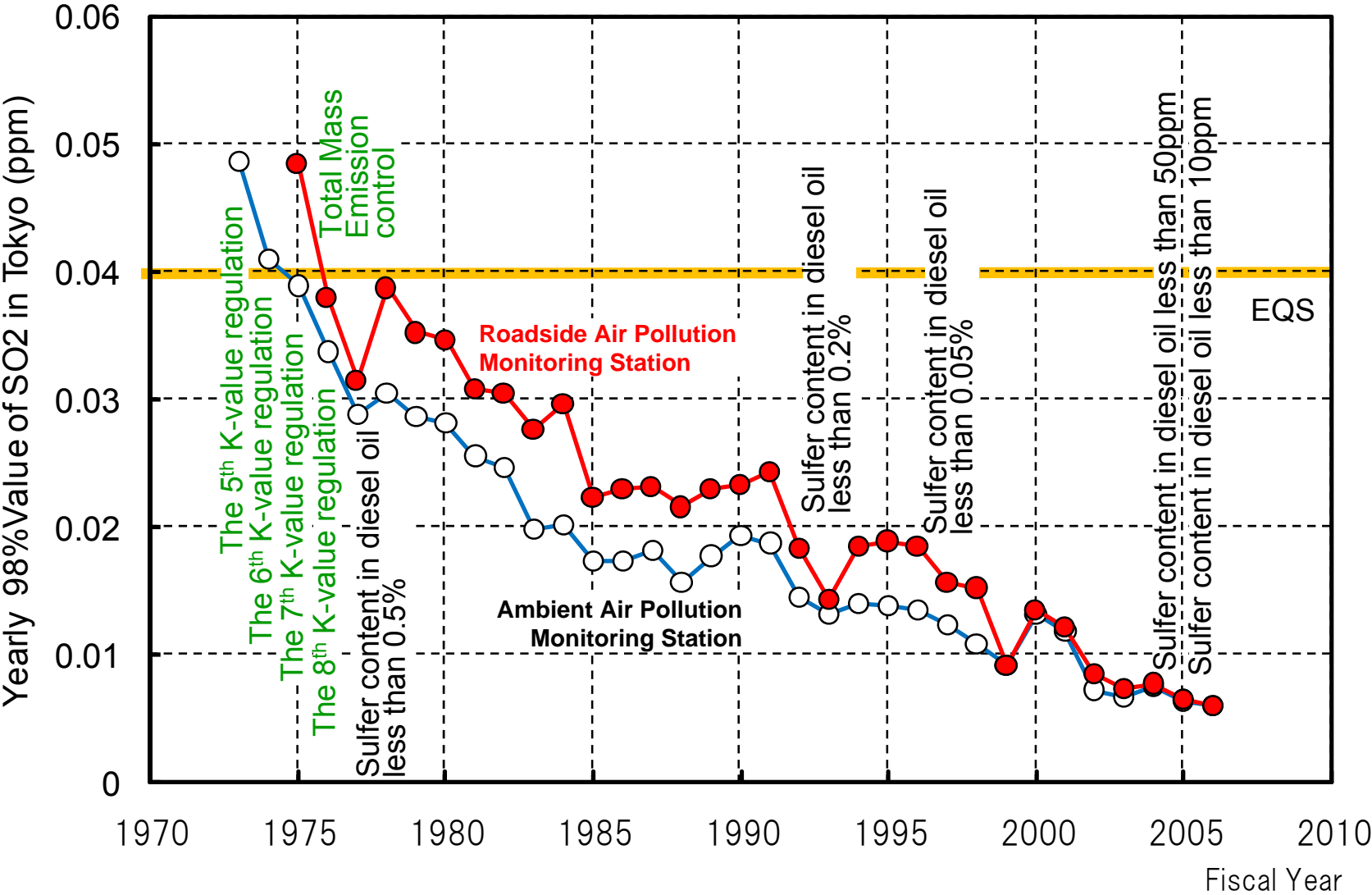


Number of monitoring stations and EQS achievement rate

Ambient Air Pollution Monitoring Station
 JAPAN: 1263/1265 (99.8%)
 TOKYO: 20/20 (100%)

Roadside Air Pollution Monitoring Station
 JAPAN: 86/86 (100%)
 TOKYO: 5/5 (100%) (2006)

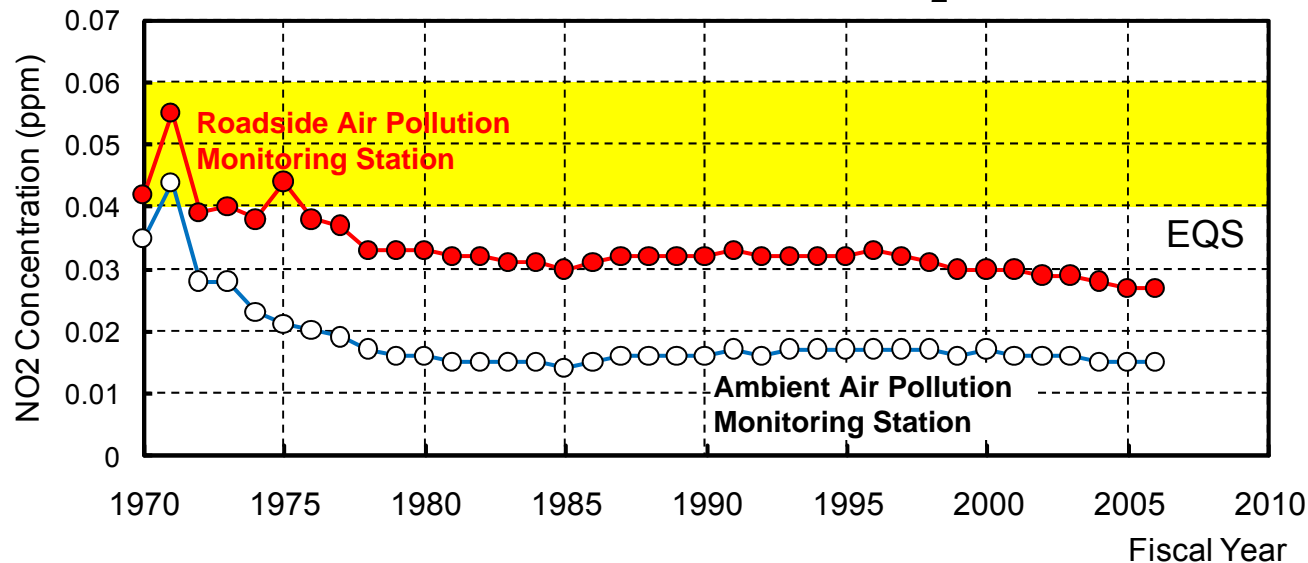
History of Regulation and SO₂ Level in Air



Japanese Environmental Quality Standards for Ambient Air Nitrogen Dioxide (NO₂)

Environmental Standards	Daily mean of one-hour values should be within 0.04 -0.06 ppm (75-113 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) or less.
Official measurement method <i>(JIS B 7953)</i>	(1) Colorimetry employing Saltzman reagent (with Saltzman's coefficient being 0.84). (2) Chemiluminescent method using ozone.
Environmental Standards Evaluation	From the mean daily values obtained over one year, those within the lower 98% are selected and compared with the environmental standard.

Changes in the Annual Averages of NO₂ Concentrations



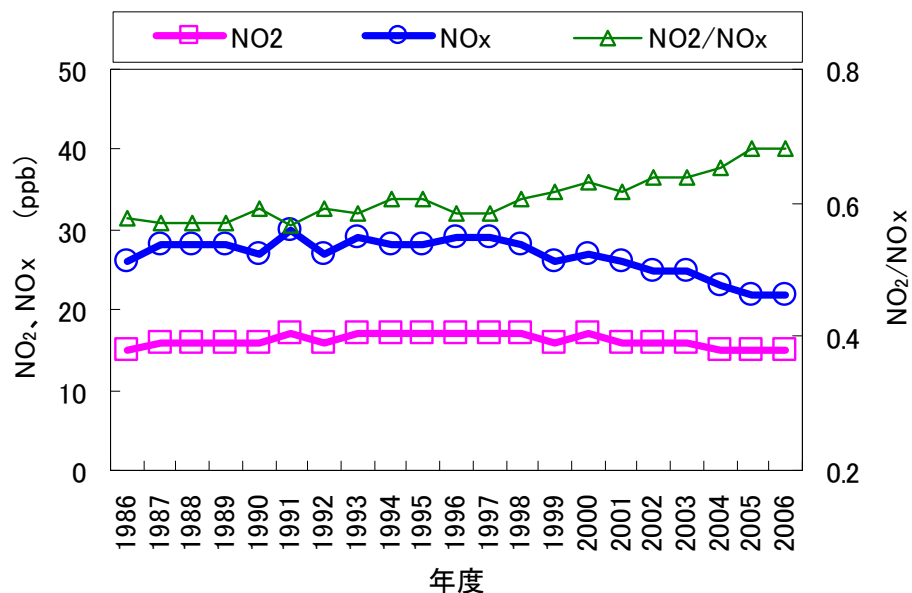
Number of monitoring stations and EQS achievement rate

Ambient Air Pollution Monitoring Station
 JAPAN: 1397/1397(100%)
 TOKYO: 43/43 (100%)

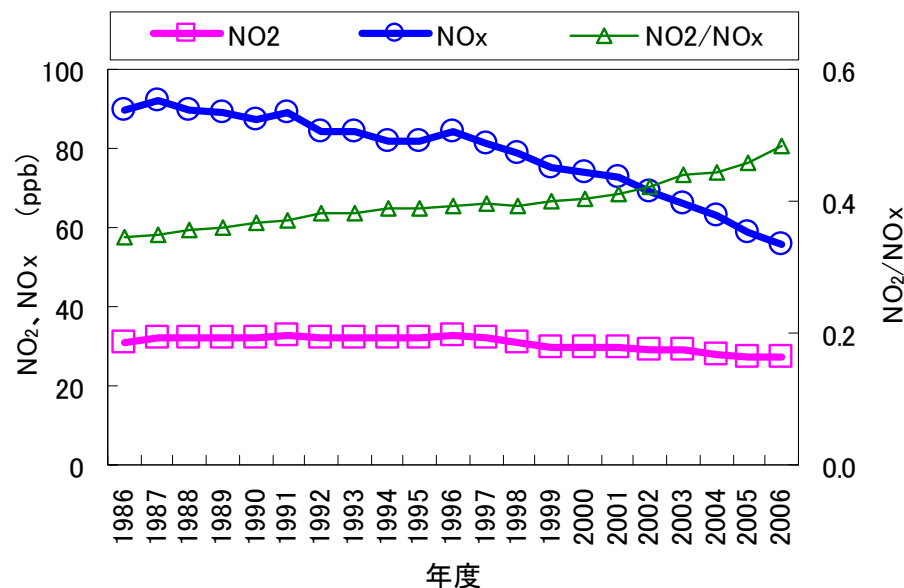
Roadside Air Pollution Monitoring Station
 JAPAN: 400/441(90.7%)
 TOKYO: **21/34 (61.8%)** (2006)

NO_x、NO₂年平均濃度の推移(全国)

一般環境大気測定局



自動車排出ガス測定局



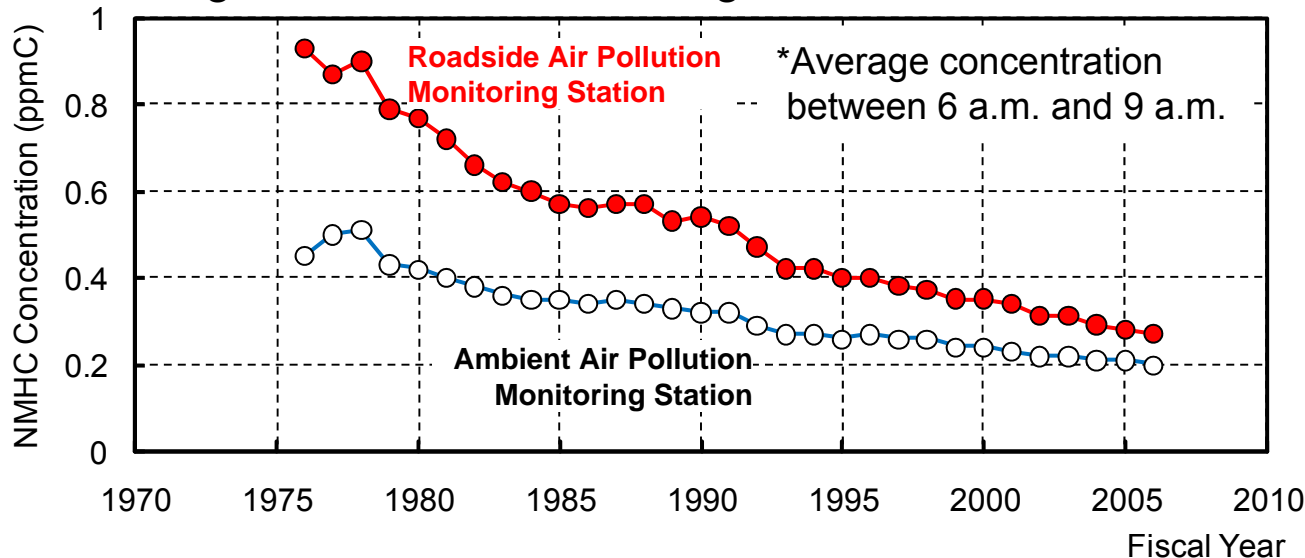
一般、自排局とも、NO_xは、90年代後半から減少傾向

NO₂は、横ばい(NO₂/NO_xが増加傾向)

Guideline for Non Methane Hydrocarbon (NMHC) Levels in the Atmosphere for Prevention of Photochemical Oxidant Formation

Environmental Guideline	Hydrocarbon levels should be determined by measuring the non-methane hydrocarbons. The three-hour (6 - 9 a.m.) average concentration should be within the range of 0.20 - 0.31 ppmC (equivalent to the value in terms of ppm obtained by adding up the figures gained through the carbon molecules multiplied by the number of carbon atoms per molecule).
Official measurement method	Gas chromatograph, repeated continuous measurement, peak area detection, using FID method. (JIS B 7956)

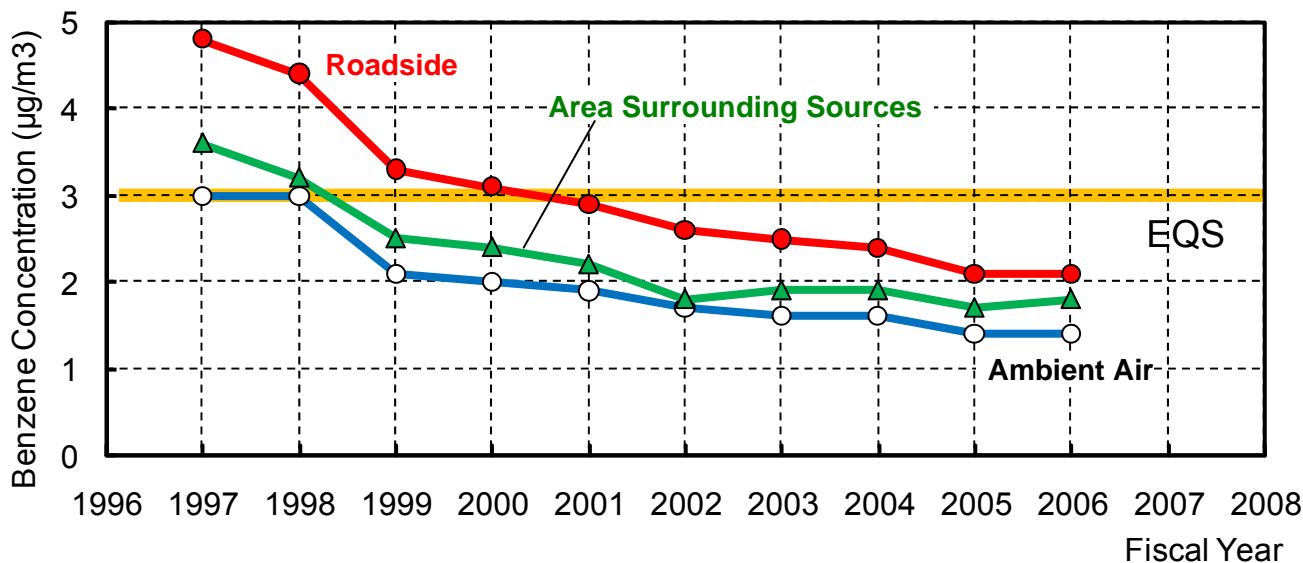
Changes in the Annual Averages* of NMHC Concentrations



Japanese Environmental Quality Standards for Ambient Air Benzene

Environmental Standards	Annual average shall not exceed 0.003 mg/m ³
Official measurement method	Preference method: gas chromatograph-mass spectrometer (sample gas should be collected with a canister or tube) or equivalent method. Monitoring using the canister batch, the official method, records the 24-hour mean concentration once a month.

Changes in the Benzene Concentrations



Number of monitoring points and EQS achievement rate

Ambient Air

JAPAN: 247/247 (100%)

TOKYO: 11/11 (100%)

Area Surrounding Sources

JAPAN: 83/86 (96.5%)

TOKYO: 17/17 (100%)

Roadside

JAPAN: 108/118 (91.5%)

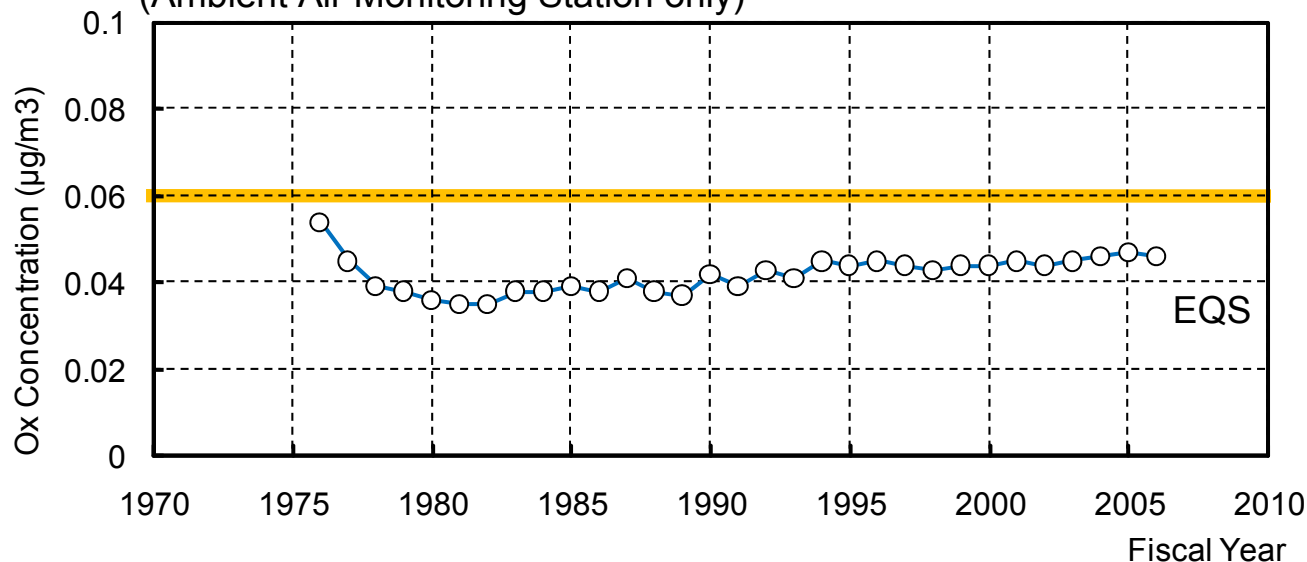
TOKYO: 17/17 (100%)

(2006)

Japanese Environmental Quality Standards for Ambient Air Photochemical Oxidants (Ox)

Environmental Standards	One-hour mean value should be 0.06 ppm or less.
Official measurement method <i>(JIS B 7957)</i>	(1) Absorption spectrophotometry using a neutral potassium iodide solution (2) Coulometry (3) <u>Ultraviolet absorption spectrometry</u> (4) Chemiluminescent method using ethylene
Environmental Standards Evaluation	If the one-hour mean value exceeds 0.06 ppm, it is judged not to have attained the standard.

Changes in Ox Annual Mean of Daily Maximum value
(Ambient Air Monitoring Station only)

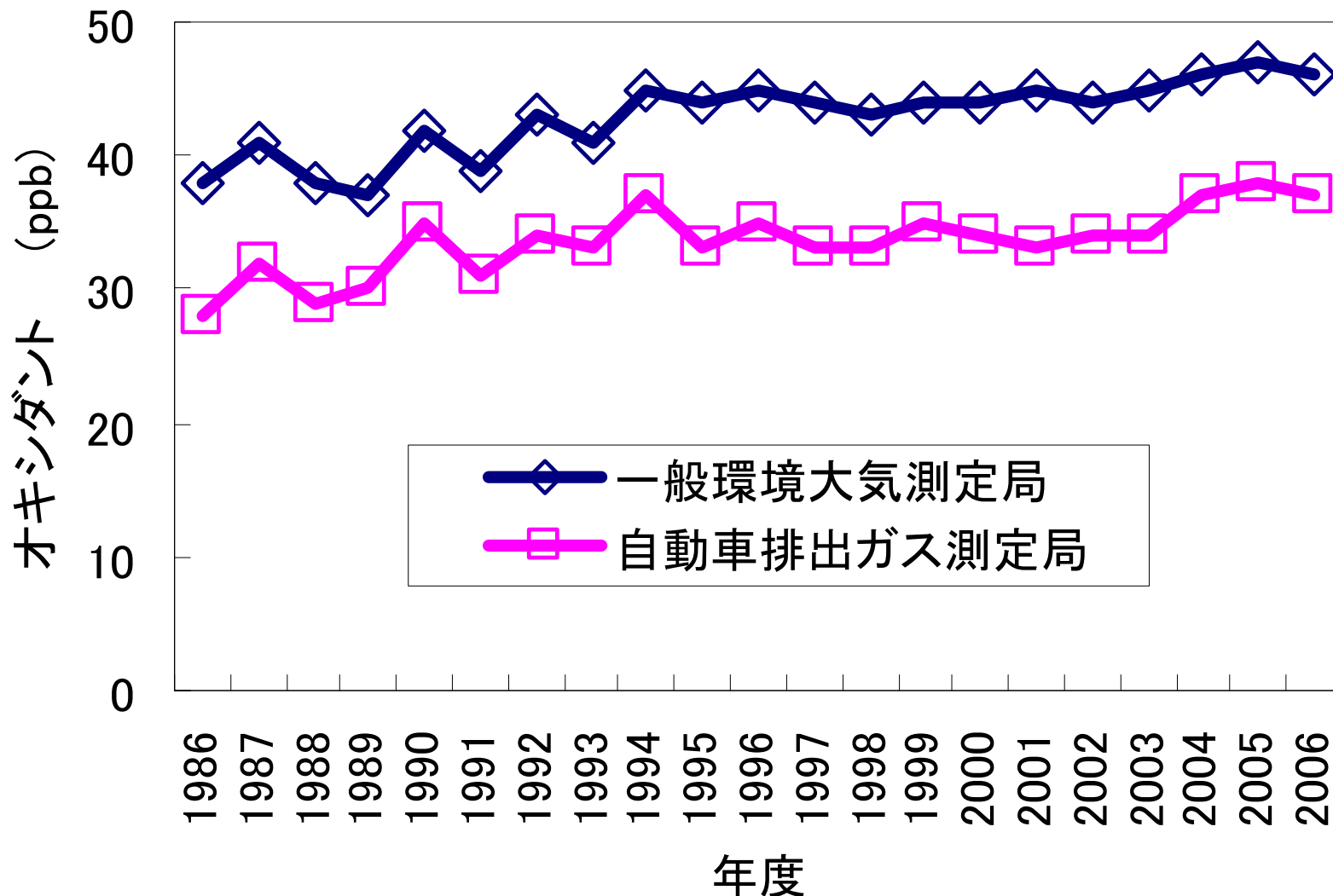


Number of monitoring stations and EQS achievement rate

Ambient Air Pollution Monitoring Station
 JAPAN: 1/1145 (0.1%)
 TOKYO: 0/23 (0%)

(2006)

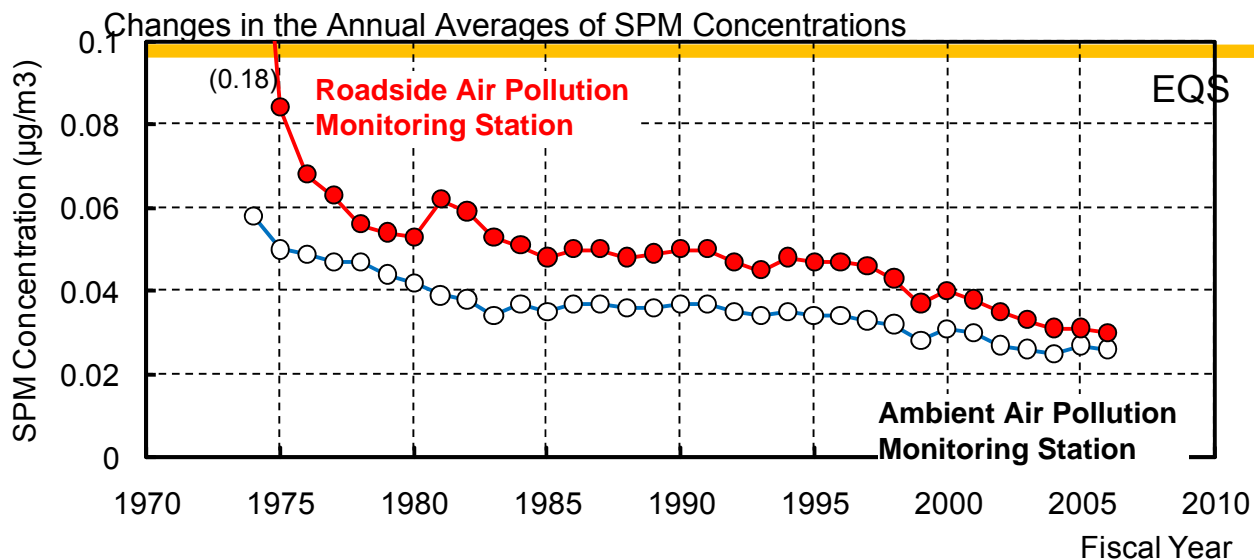
オキシダントの年平均濃度の推移(全国)



出典: 環境省 大気汚染状況について (<http://www.env.go.jp/air/osen/index.html>) のデータをもとに作成

Japanese Environmental Quality Standards for Ambient Air Suspended Particulate Matter (SPM)

Environmental Standards	Daily mean of one-hour values should be 0.10 mg/m^3 or less, and one-hour mean value 0.20 mg/m^3 or less.
Official measurement method <i>(JIS B 7954)</i>	(1) Weight concentration measuring methods based on filtration collection (2) Light scattering method (3) Piezoelectric microbalance method (4) β -ray attenuation method that yields values having a linear relation with the values of the (1)~(3) methods.
Environmental Standards Evaluation	Of the mean daily values obtained over one year, those within the top 2% (equivalent to the values of seven days, if daily measurements are taken for 365 days) are excluded (2% exclusion value) and the highest remaining values are compared with the environmental standard. If the measurement values exceed the environmental standard on more than two consecutive days, they are judged as nonattainment.



Number of monitoring stations and EQS achievement rate

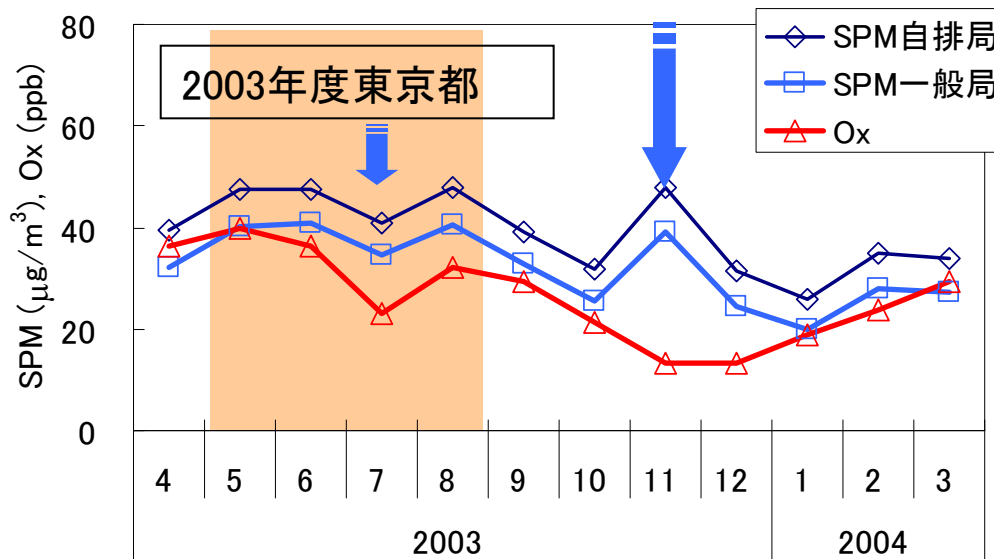
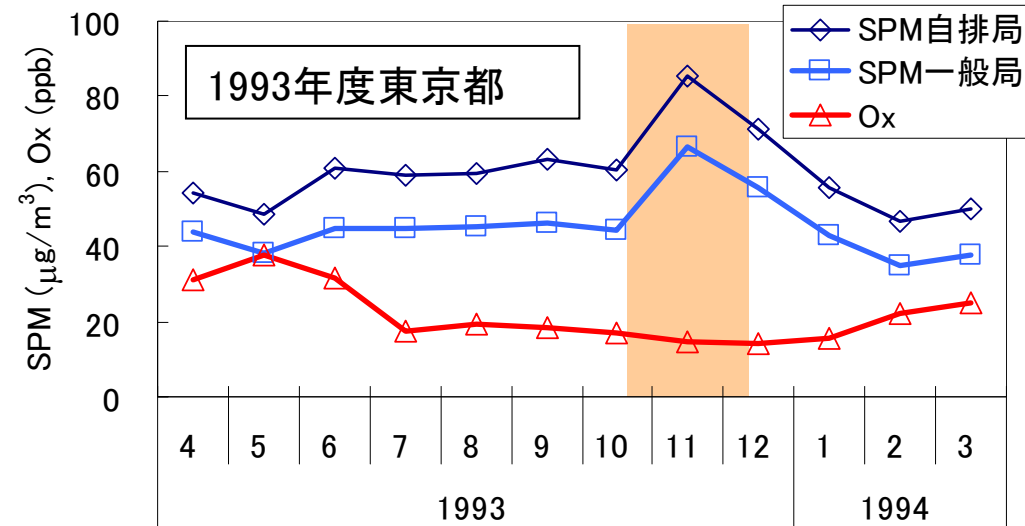
Ambient Air Pollution Monitoring Station
JAPAN: 1363/1465
(93.0%)

TOKYO: 45/46 (97.8%)

Roadside Air Pollution Monitoring Station

JAPAN: 388/418 (92.8%)
(2006)

大気環境の変化



90年代

–SPM

- 初冬季に高濃度
- 一次粒子 (DEP等) の寄与大

最近の状況

–一次粒子 (DEP等)

- 規制強化により急速に低減
- 初冬季の高濃度は改善傾向

–SPM濃度

- 夏季と初冬季が同レベル
- Oxと同様の变化
- 沿道と一般環境との差が減少



光化学反応により生成された
二次粒子の寄与増加

古典的大気汚染物質の全体的な動向

- ガス; CO, SO₂, NO₂, O_x
- 粒子: SPM

<最近の特徴>

CO, SO₂は減少、

NO₂は横這い、

(NO_xは最近は減少、NO_x=NO+NO₂)

O_xは悪化

SPMは、減少、構成に変化(冬季の濃度減少)

NO₂について

- ・NO₂は、有害ガスである。VOCsと共に光化学オキシダントO_x(主にオゾン)の原因物質

<最近の特徴>

1990年代にはDiesel車からのNO₂は、あまり下がっていなかった。

最近では減少している。

最近は、NO_xに占めるNO₂の割合が増加している。

Oxについて

- ・NO_xとVOCsが原因で、生成する二次生成大気汚染物質。
(殆どがオゾン)
- ・米国のロスアンゼルスで1940年代から、
日本では1970年代から今日に至るまで改善されていない。
世界的にも、多くの都市で発生している。
- ・OxとNO_x、VOCs の関係は、非線形なので
改善は、なかなか難しい

<最近の特徴>

- ・平均濃度が増加傾向。
- ・高濃度の出現も増加傾向。
- ・日本国外からの移流の顕在化。
(春季に顕著だが、その他の季節でも全国的に影響あり)

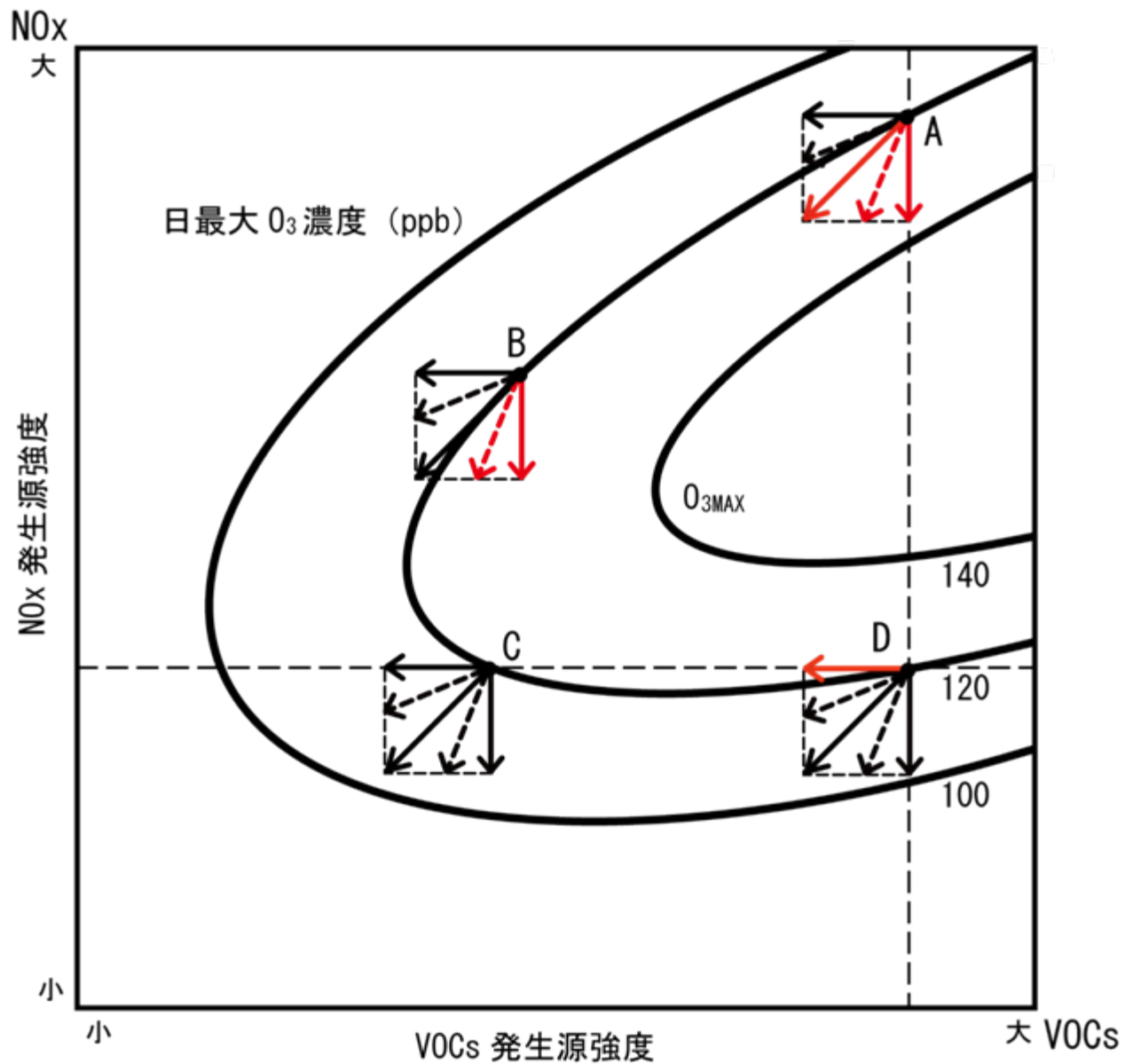


図 日最大 O₃ 濃度と NOx, VOCs 発生源強度との関係 (概念図)

3. PM_{2.5}について

PM_{2.5}

大気中の粒子状物質が
人の健康に与える影響に関して、

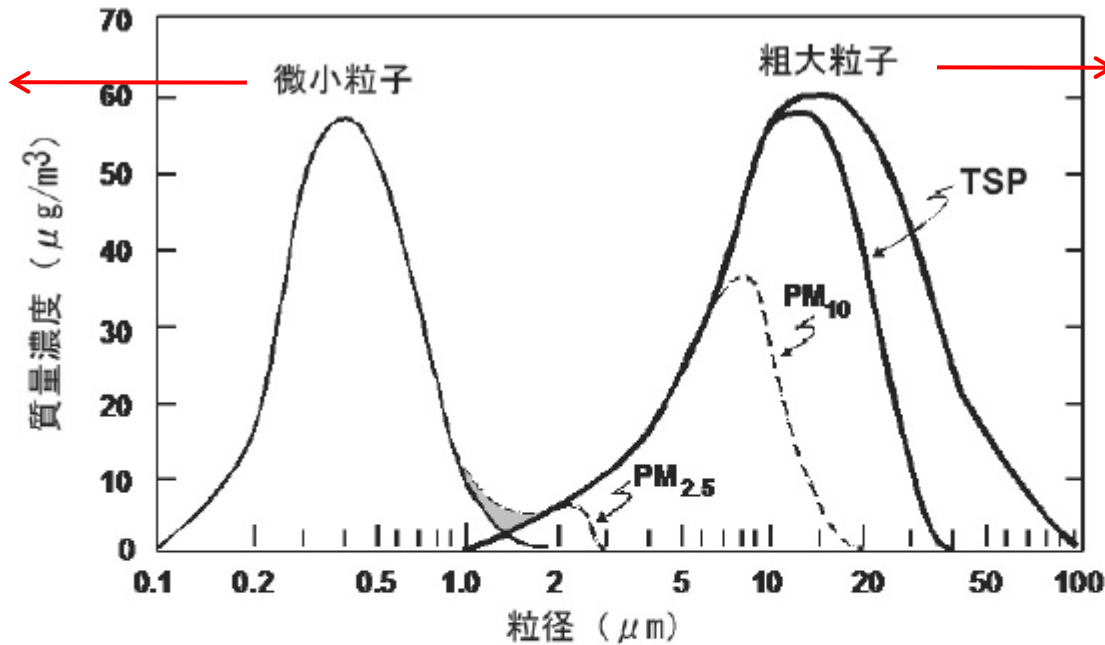
PM_{2.5}と呼ばれる微小成分が
とくに有害と疑われることが
米国を中心とした疫学調査により報告されている。

大気中の粒子状物質の粒径分布

(微小粒子状物質環境基準専門委員会報告より)

主に物の
燃焼に伴う
排出や
二次生成

炭素粒子
硫酸塩粒子
硝酸塩粒子



主に堆積物の
破砕や
研磨等による
機械的な発生

土壌粒子
海塩粒子

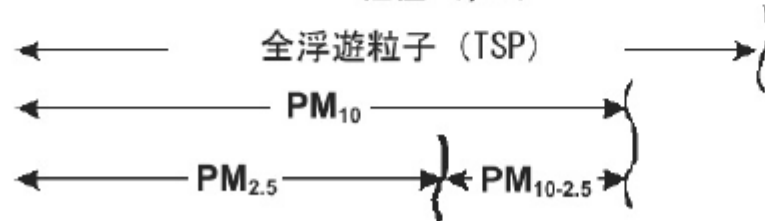
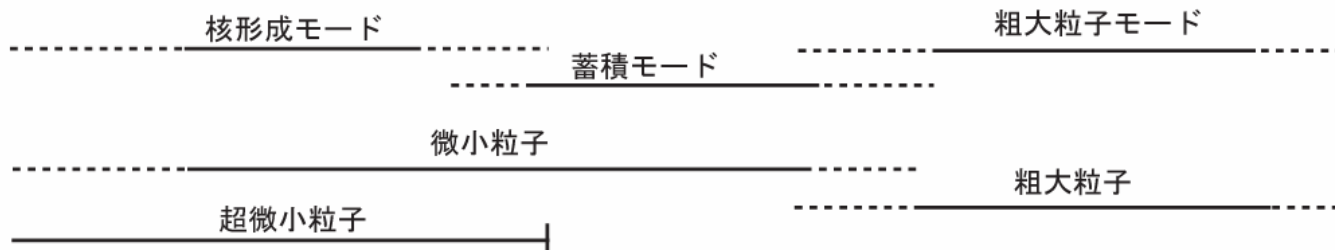
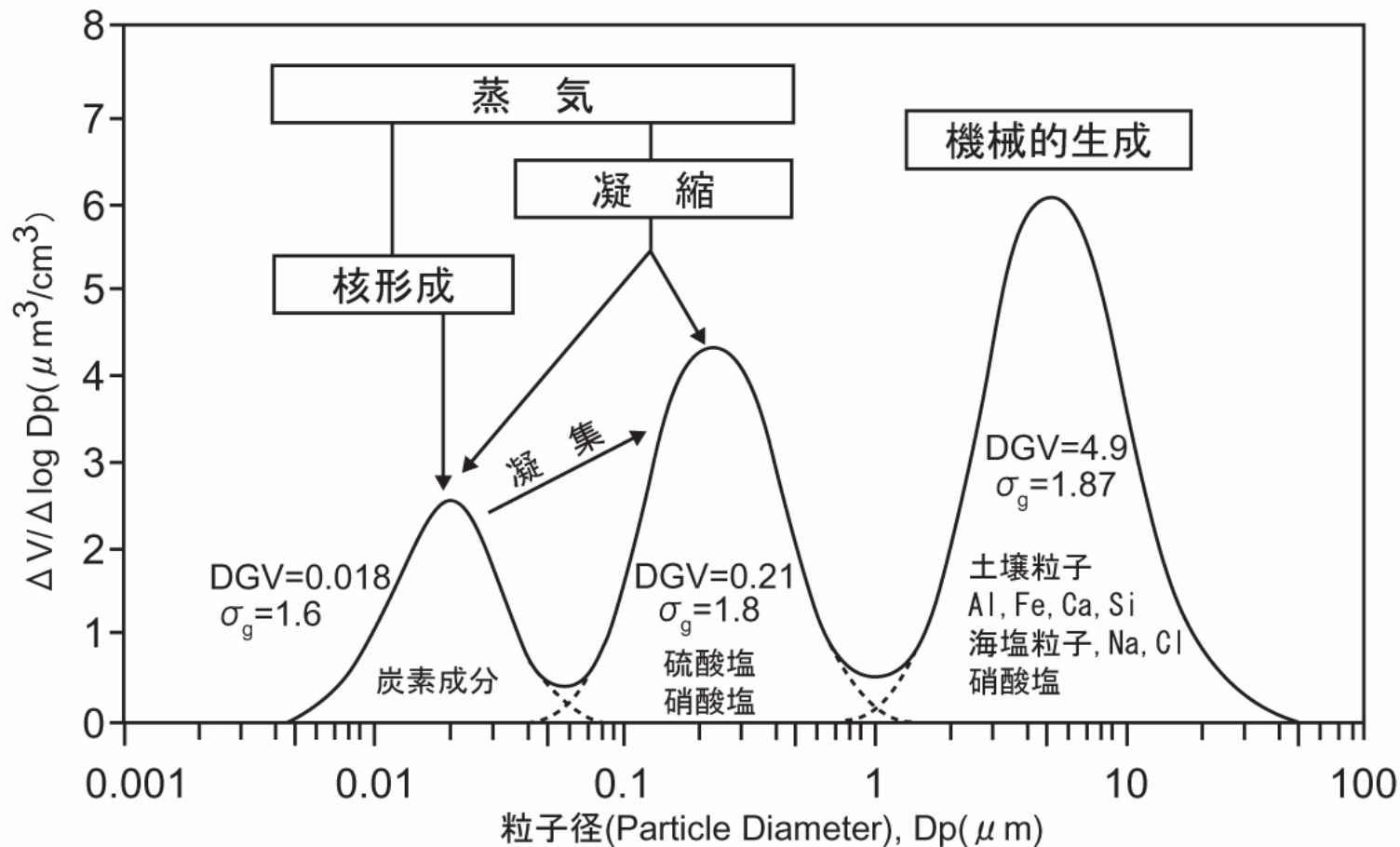


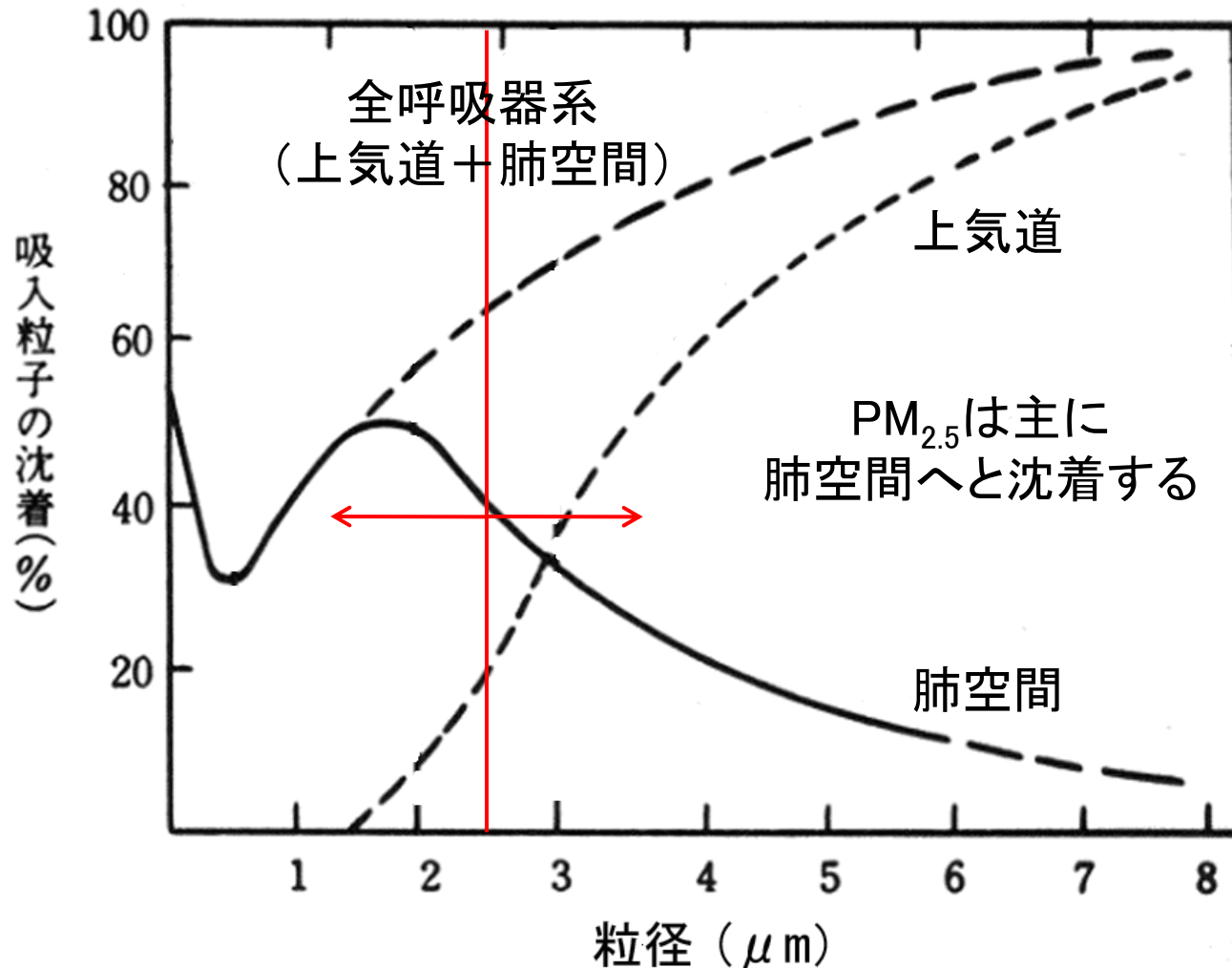
図1.1.1.2 環境大気中粒子状物質の粒径分布 (PM_{2.5}・PM₁₀)

(Wilson and Suh, 1997 を引用・和訳)



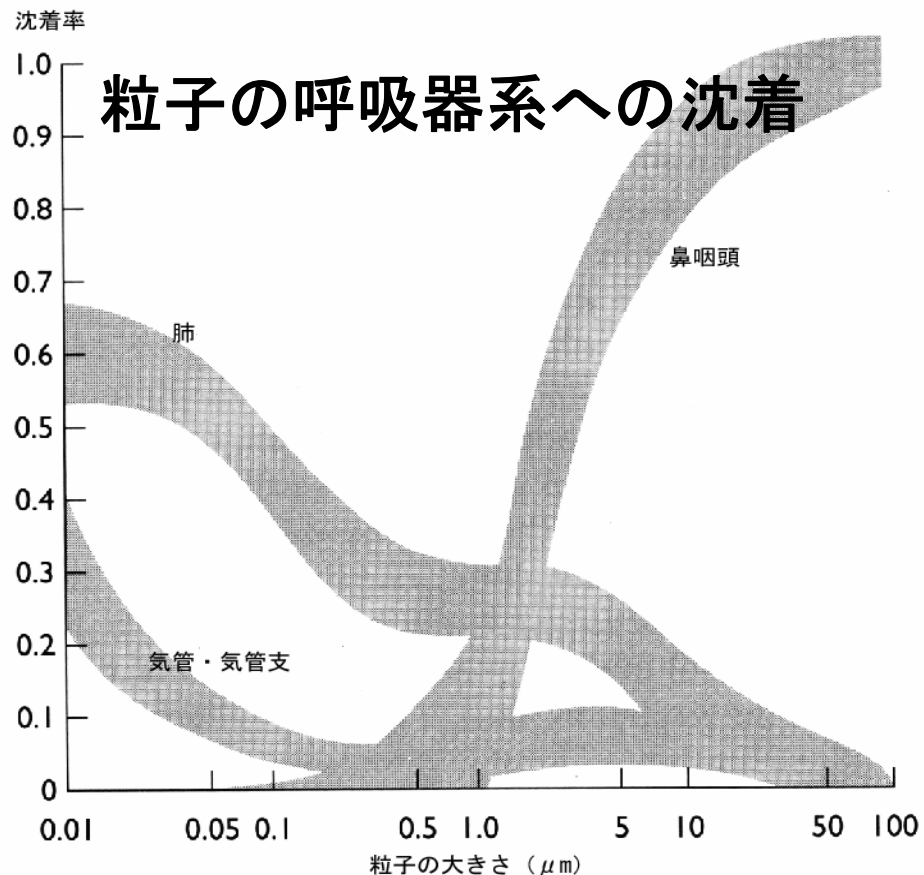
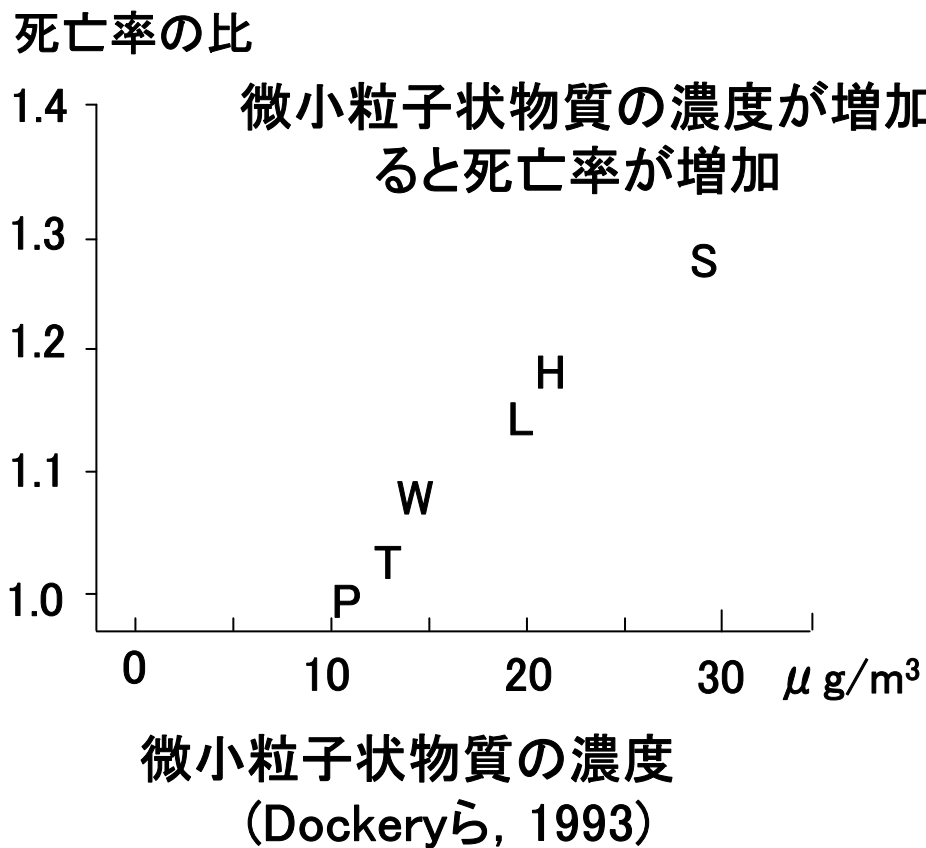
粒子の粒径と呼吸器系への沈着率

(微小粒子状物質環境基準専門委員会報告より)



吸入粒子の粒径と呼吸器系への沈着率

空気動力学径(比重が1で球形の粒子に相当する直径)が
 2.5 μm 以下の粒子の年平均濃度や硫酸塩濃度と死亡率との間には
 優位な統計的関連性が認められ慢性的な健康影響が明らかとされている。
 我が国における疫学調査結果においても健康影響との関連性が示された。



我が国では、
環境省検討会報告2008年(平成20年4月)において
PM_{2.5}の健康影響が認められるとの報告がなされ
環境基準値として

国内、国外知見の充実度、
不確実性等を総合的に評価し、
年平均値15 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ が妥当とし、

2009年(平成21年9月9日)に
微小粒子状物質に係る環境基準が告示された。

微小粒子状物質に係る環境基準

微小粒子状物質に係る環境基準は、次のとおりとする(2009年9月9日、環境省)。

1年平均値が $15\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下であり、かつ、1日平均値が $35\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下であること。



答申(2009年9月3日、中央環境審議会)

微小粒子状物質は、発生源から直接排出される一次生成粒子のみならず、大気中の光化学反応、中和反応等によって生じる二次生成粒子で構成される。また、我が国では、都市地域のみならず人為発生源由来粒子の影響が少ないと考えられる地域においても硫酸塩や土壌粒子等の粒子が相当程度含まれており、海外からの移流分も影響していると推察されるなど、微小粒子状物質の発生源は多岐にわたり、大気中の挙動も複雑である。

このため、微小粒子状物質やその原因物質の排出状況の把握及び排出インベントリの作成、大気中の挙動や二次生成機構の解明等、科学的知見の集積について、地方公共団体、研究機関と連携を取りながら、関係事業者の協力を得つつ、実施する必要がある。

その上で、大気汚染の状況を踏まえながら、より効果的な対策について検討する必要がある。

この中で、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、
粒径が $2.5 \mu\text{m}$ 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
採取される粒子と定義された。

環境基準値は

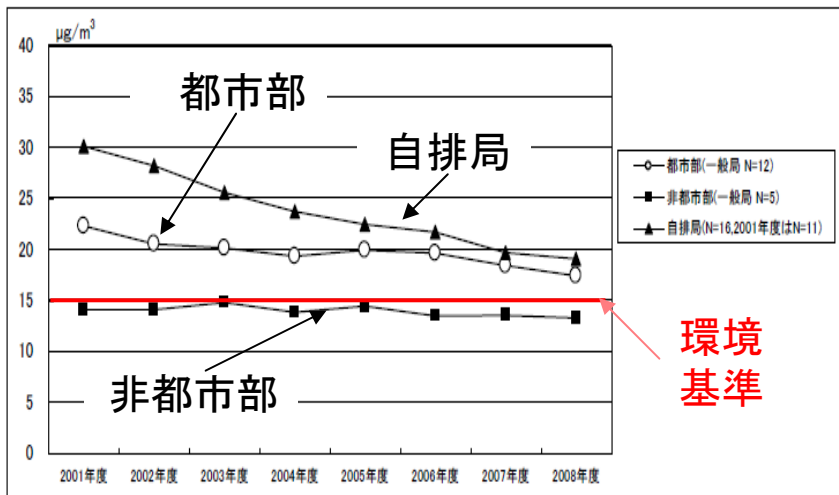
年平均値が $15 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下かつ
1日平均値が $35 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下であり、

測定方法は濾過捕集による質量濃度測定方法
又は、これと等価な値が得られる
自動測定機による方法とされている。

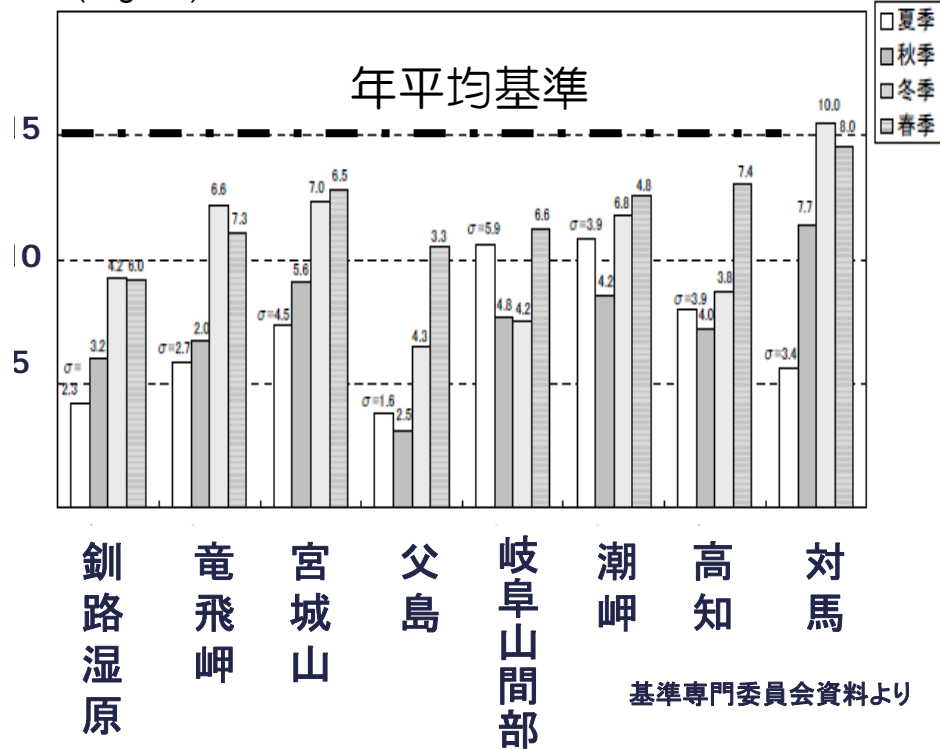
PM_{2.5}の濃度推移と組成

平成21年度第2回自動車及び燃料研究委員会資料 2010/03/09 JATOP 大気研究WG

PM_{2.5}($\mu\text{g}/\text{m}^3$)



PM_{2.5}($\mu\text{g}/\text{m}^3$)



※N=調査地点数

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

自排局と都市部の差が、年々縮小

年平均値の変化(全国平均)

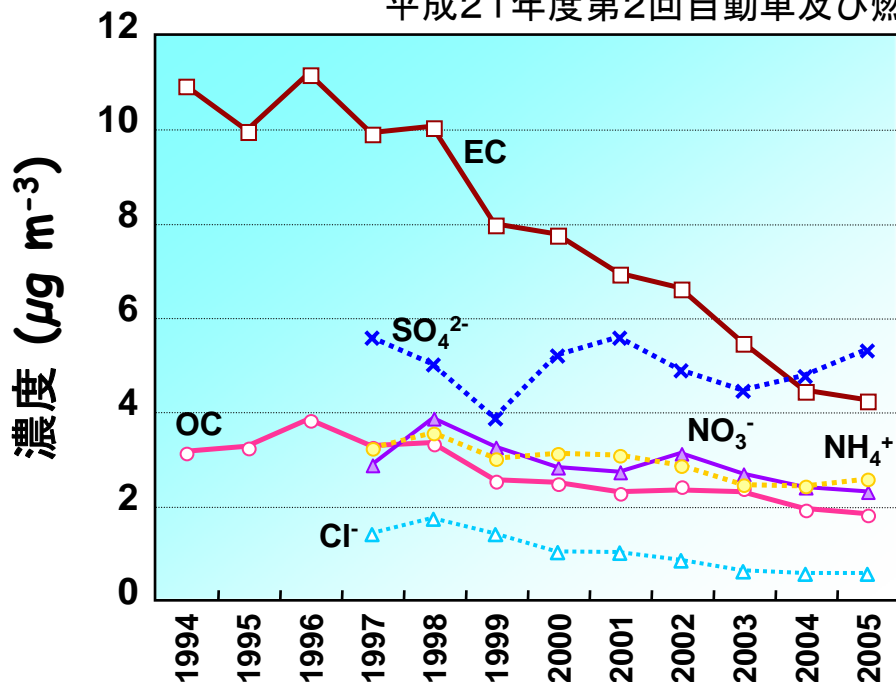
離島でも、環境基準に近い値を示す

離島や山間部の平均値(季節)

基準専門委員会資料より

PM_{2.5}の成分変化

平成21年度第2回自動車及び燃料研究委員会資料 2010/03/09 JATOP 大気研究WG



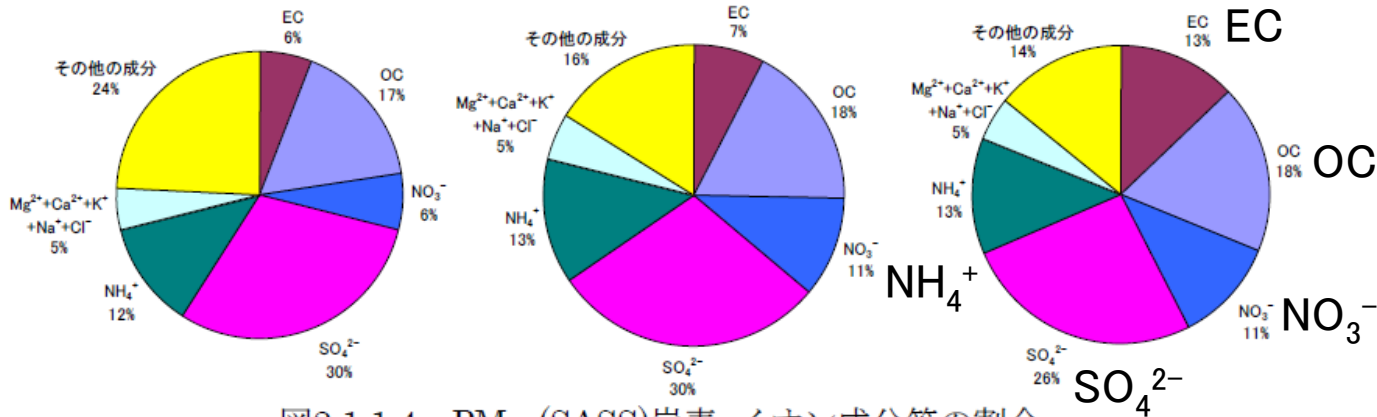
- ECは年々減少
- SO₄は、ほぼ横ばい
- OC、NO₃、NH₄は漸減

測定場所: 東京都九段(ビル屋上)
 EC: 元素状炭素(主にすす)
 OC: 有機炭素

非都市部

都市部

自排局



自動車に関連している成分

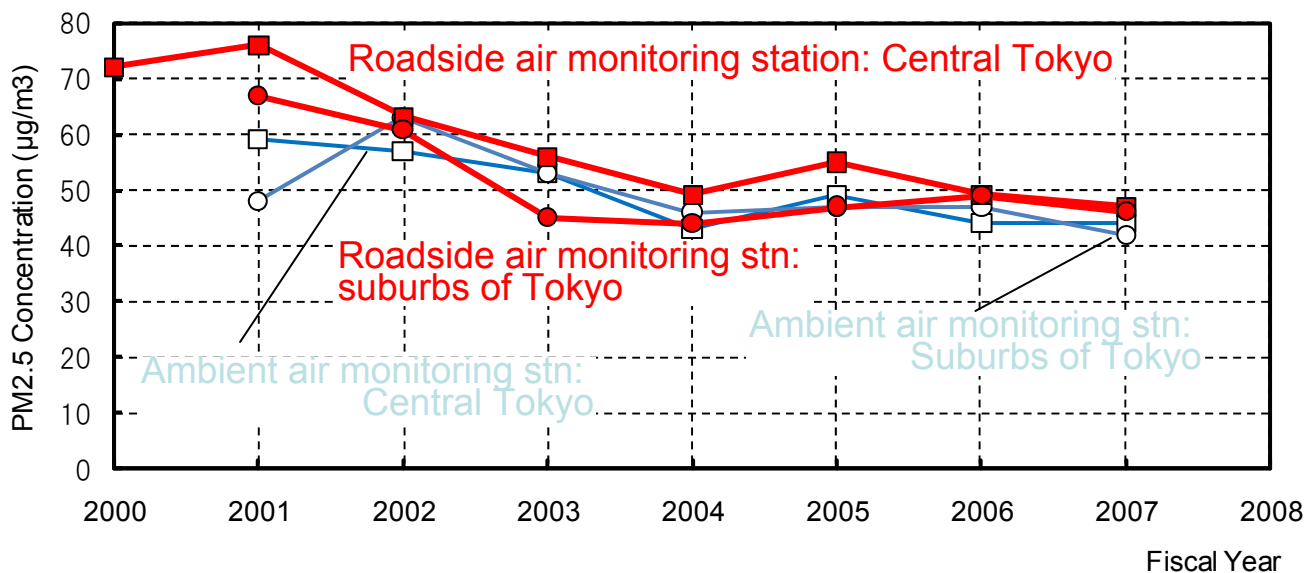
- EC
- OC
- NO₃

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

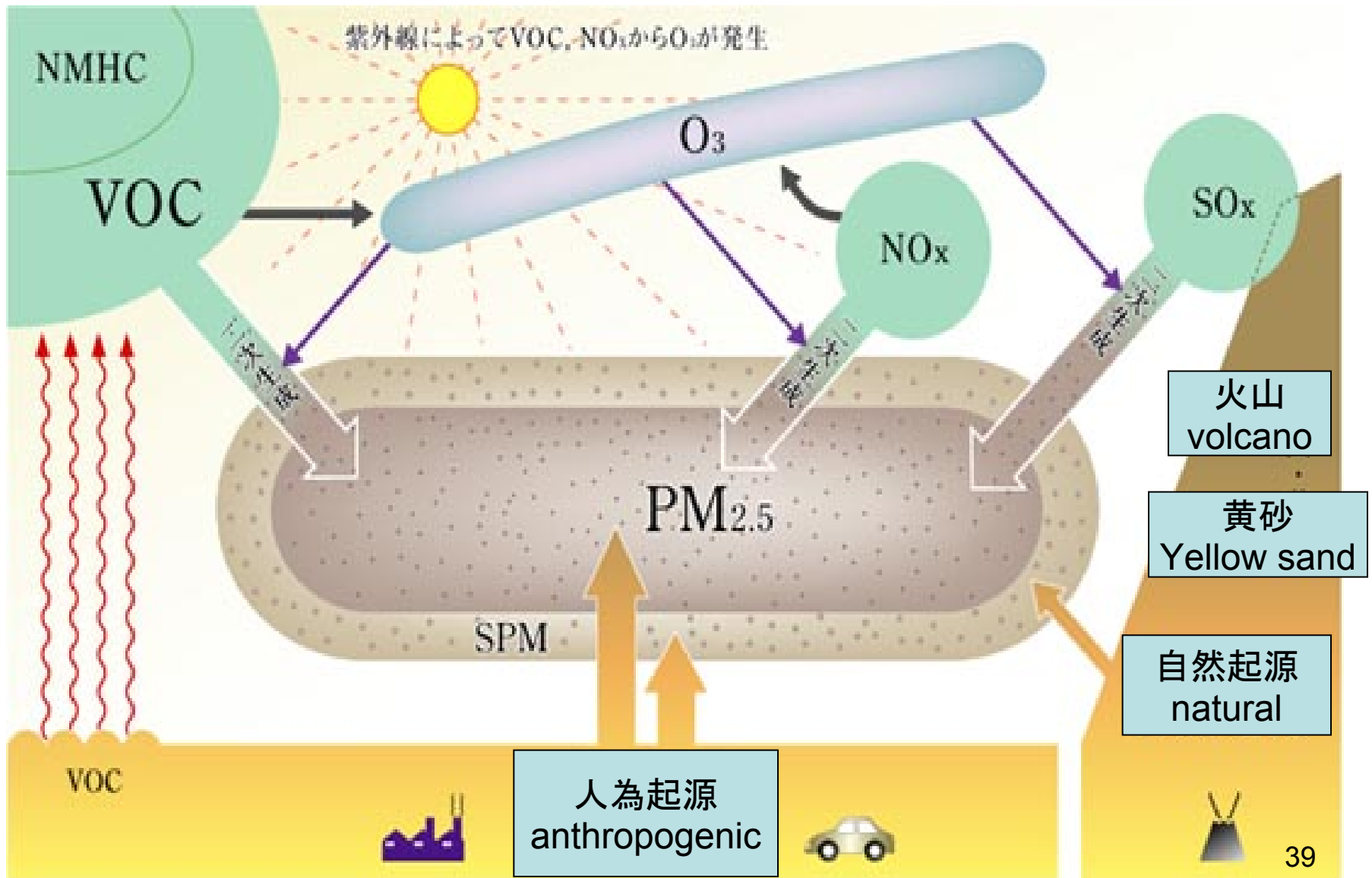
PM_{2.5} Monitoring are Started because of an Adverse Affect on Human Health

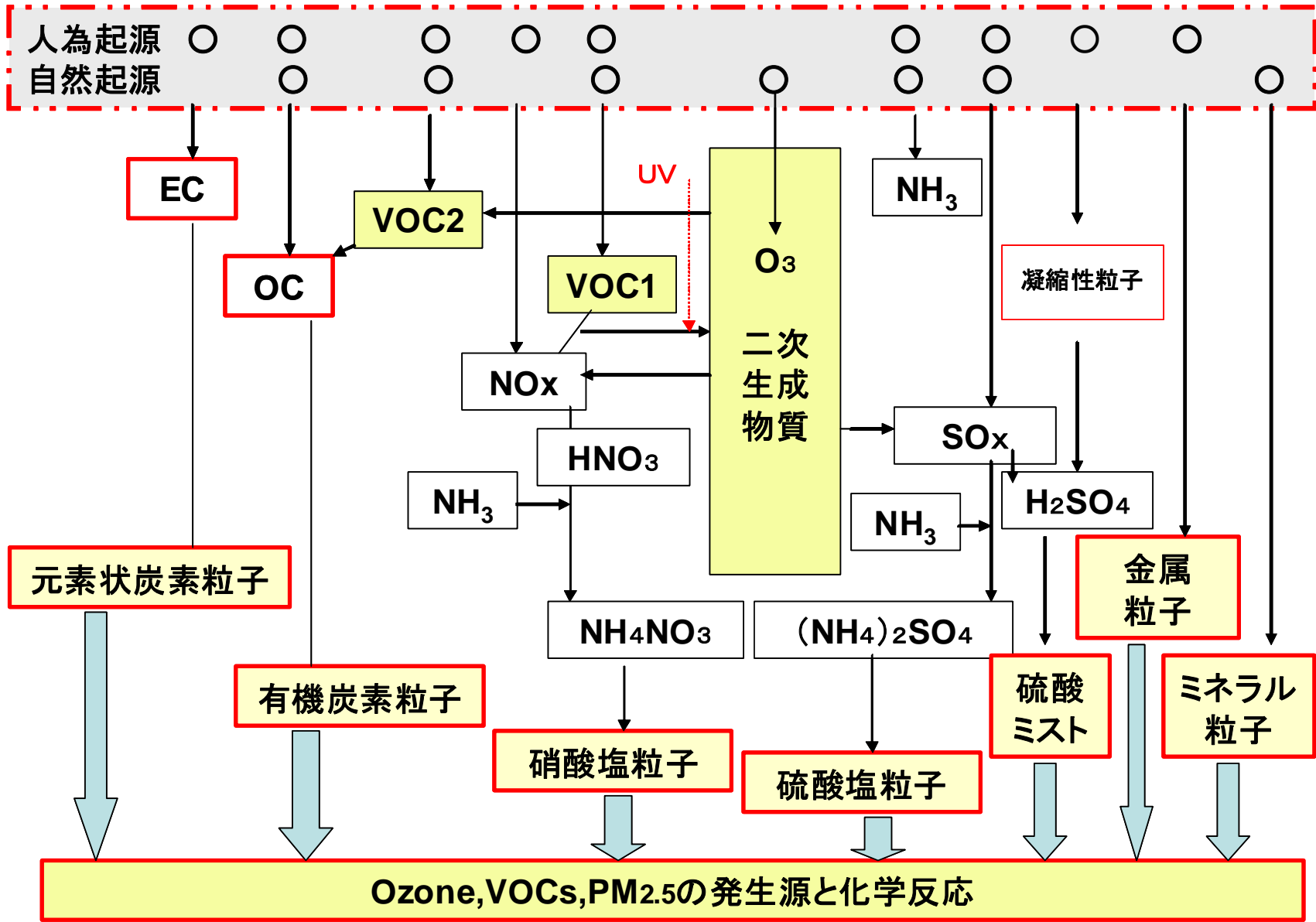
Method for continuous measuring (mass) :
TEOM (Tapered Element Oscillating Microbalance)
β-ray attenuation method

Changes in PM_{2.5} Concentrations at Tokyo



PM_{2.5}の生成メカニズム





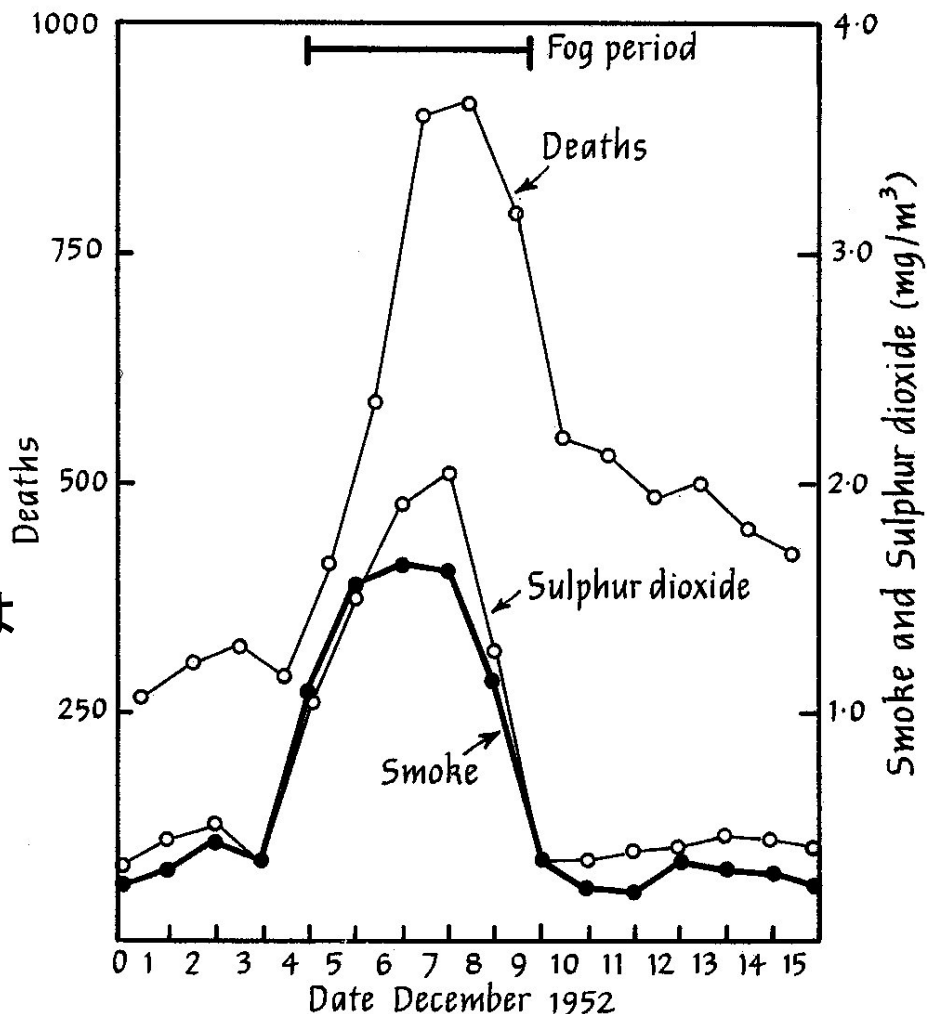
<日本における調査研究の経緯>

米国のPM10の環境基準設定より
約10年前の1973（昭和48年）に日本では、
浮遊粒子状物質（SPM）の環境基準が設定された。

日本の環境基準物質である
浮遊粒子状物質（SPM）の測定で
は空気動力学径が $10\mu\text{m}$ 以上の粒子が100%カットされるが、
米国のPM10やPM2.5ではカット特性が50%であるため
SPMをPM10と同じ基準で表した場合は
PM7程度である。

1952年の
ロンドンスモッグ事件時や
1945年に顕在化した
ロスアンゼルススモッグ発生時の
大気混濁の状況から

微小粒子状物質が
人の健康に
急性的悪影響を
もたらす可能性が高いことは
昔から経験的に良く知られていた。



SO₂ 1 mg/m³=0.35 ppm

ロンドンスモッグ事件



東京の冬の大気汚染



東京の夏の大気汚染



メキシコの大気汚染

高濃度大気汚染発生時には
粒子状物質濃度が高く
大気は混濁している

4. 今後の研究課題

PM_{2.5}の研究今後の課題

- ・PM_{2.5}の時刻変化の把握
等価的測定・自動測定
(時刻変化、空間分布)
- ・PM_{2.5}組成の把握
成分分析
(無機粒子成分、炭素成分、金属成分など)
- ・モデルの活用
(発生源・気象・反応)

＜PM_{2.5}の時刻変化把握の必要性＞

大気微小粒子の時間・空間変化には発生源条件、気象条件、化学反応条件が同程度に影響を及ぼし時々刻々と変化する。多くの都市では、ラッシュアワーの時間帯に粒子状物質の発生量が多くなるので沿道大気汚染測定局では朝夕に大気微小粒子濃度のピークが発生し、一次大気汚染物質の寄与が大きい。

早朝や夕方には、接地逆転層や凧等の大気が拡散しにくい安定な気象条件が発生する事も濃度を上昇させる要因となる。

一方、日中には、混合層が発達し、
日射量が強くなり、気温も上昇するので、
光化学反応が起こり、
二次生成微小粒子が発生する。

特に夏季には、この影響が大きい。
このような動態を把握し
発生源対策を実施して行く為には
一日平均値の情報だけでは不十分であり
時間値を把握する必要がある。

<成分把握の必要性>

- ・発生機構の把握
(地域的な特徴は？季節的な特徴は？)
- ・モデルとの比較と検証、モデルの活用
(発生源と環境との因果関係の定量的な把握)
- ・健康影響の要因の把握
(どの成分が健康に影響を及ぼしているのか？
地域的な違いはどの程度か？)

PM_{2.5}の粒径・組成と成分分析

粒子状物質は単独の化学物質ではなく
硫酸塩、硝酸塩、炭素成分、ミネラル成分
等から構成される混合物である。

このため、物理的・化学的な性質や発生源も様々であり、
粒径や組成は広い範囲に亘る。
硫酸塩粒子、硝酸塩粒子は微小粒子領域に、
海塩粒子や炭酸塩粒子は粗大粒子領域に多く含まれる。

炭素成分は核形成モードに、
(NH₄)₂SO₄、NH₄NO₃ は蓄積モードに存在するが、
NaNO₃ は粗大粒子モードにも存在する。

これまでの疫学調査では
質量濃度との関連性の把握が中心であったが、

健康影響の評価を更に深めて行く為には
組成の情報が不可欠である。

今後は、

粒径分布や化学組成と
健康影響との関連性把握が
大きな課題である。

PM_{2.5}の慢性影響の因果関係の証明には長い年月に亘る測定研究と疫学研究との協力が必要となる。

新たな測定方法の開発には時間を要するが、今後、継続して進められるべきであり、1時間値の成分濃度や酸性度の測定が望まれる。

成分濃度や1時間濃度が得られる新たな測定方法に対応した新たな疫学調査は、これまでに知られていなかった、情報を提供してくれる。

かつての米国6都市研究で行われたような、測定・モニタリング手法の開発と、疫学調査研究の協力が行わなければならない。

<モデリングの活用>

光化学オゾンに関しては、モデルも構築は出来ている
今後は発生源の把握が課題。

PM_{2.5}に関しては

沿道大気汚染のような局所性への配慮と
越境大気汚染のような広域性への配慮の
両面が必要である。
また高度分布や地域分布の情報も必要となる。

おわりに

PM_{2.5}は人の健康に悪影響を及ぼすのみならず、
植物生態系にも影響を及ぼすと考えられる。

影響はオゾン等のガス状大気汚染物質、
酸性降下物と複合的に作用するだろう。

また視程障害や景観悪化などの
社会生活にも影響を及ぼしQOLの低下をもたらす。

更に、PM_{2.5}は地球気候システムの変動にも
直接的、間接的に大きく関わっている。
その影響の仕方や大きさは組成分布と粒子径分布、
並びにそれらの立体分布や地域分布に大きく依存する。

**PM_{2.5}の測定方法、
モニタリング方法、
モデリング、
発生源把握
短期的・長期的影響評価に関する
疫学的知見の蓄積、
生態系への影響評価等々、
多くの分野での調査・研究の進展と相互協力が必要である。**

**PM_{2.5}大気汚染問題は地域性と広域性の両面を併せ持つので、
日本国内の地域間比較研究や国際間の比較研究の推進が
今後の今後の大きな課題である。**

**PM_{2.5}大気汚染問題の総合的な理解と対策推進の為に
国内研究協力、国際研究協力を推進することが、急務と考える。**