

## 高松市郊外における大気中浮遊粒子状物質の 粒径別濃度に関する検討

スナ シゲル ダイ ユウ フジタ ヨウコ アサカワ フ ミユキ  
須那 滋\* 戴 紅\* 藤田 陽子<sup>2\*</sup> 浅川富美雪\*  
キタマド タカコ ヒラオ トモヒロ フクナガ イチロウ ジツナリ フミヒコ  
北窓 隆子\* 平尾 智広\* 福永 一郎\* 實成 文彦\*

**目的** 近年、浮遊粒子状物質 (SPM) のうち、粒径 $2.5 \mu\text{m}$  以下に分布する微粒子画分 (PM<sub>2.5</sub>) の濃度と循環器疾患死亡率あるいは喘息・気管支炎罹患率との間の関連性を指摘する疫学研究が報告され、わが国においても PM<sub>2.5</sub> の健康影響に注目が集まってきた。しかし微粒子汚染の実態はあまり明らかにされていない。著者らは高松市郊外の丘陵部に位置する香川医科大学周辺の屋外大気中の微粒子汚染状況を知ることを目的として、SPM の粒径別測定を試みた。

**方法** 1999年2月から2000年1月の間に、アンダーセンサンプラーによる質量濃度法とパーティクルカウンターによる相対濃度法を用い、SPM の粒径別濃度測定を行った。

**結果** 測定期間を通じてトータルの SPM 濃度 (PM<sub>11</sub>) は $20 \sim 30 \mu\text{g}/\text{m}^3$  であり、PM<sub>11</sub> に占める $2.1 \mu\text{m}$  以下の微粒子画分 (PM<sub>2.1</sub>) の比率は $25 \sim 60\%$  であった。PM<sub>11</sub>, PM<sub>2.1</sub> いずれも、田園地帯からの風向きが主である8月が最も低値で、一方、市街地からの風向きが主である1月、2月の冬季と黄砂飛来時の4月に高かった。パーティクルカウンターによる測定結果では、4月の SPM 濃度は黄砂を含むもや状のエアロゾル飛来時に高く、前線通過時の降雨の後には各粒径の粒子数は急激に減少し、その程度は微粒子ほど大きい傾向にあった。8月の測定期間中は田園地帯の大気が測定地点に流れ込む機会が多かったが、 $1 \mu\text{m}$  以下の微粒子濃度は4月に比べ明らかに低かった。

**結論** 高松市郊外に位置する香川医科大学周辺大気中の微粒子濃度は天候や後背地からの気流に強く影響されることが示唆された。

**Key words** : 浮遊粒子状物質, PM<sub>2.5</sub>, 微粒子汚染, 質量濃度法, 相対濃度法

### I はじめに

大気汚染の指標とされる直径 $10 \mu\text{m}$  以下の浮遊粒子状物質 (SPM) は、大別して、土砂岩石粉塵など自然物質由来で粒子径が比較的大きな画分とディーゼル排気微粒子に代表される排気ガス由来で化学物質を多く含み肺の深部まで到達しうる微粒子画分とから構成されている。近年、この

SPM のうち、粒径 $2.5 \mu\text{m}$  以下に分布する微粒子画分 (PM<sub>2.5</sub>) の濃度と循環器疾患死亡率あるいは喘息・気管支炎罹患率との間の関連性を指摘する疫学研究が報告され<sup>1~4)</sup>、PM<sub>2.5</sub> の健康影響に注目が集まってきた。これに伴い、わが国においても微粒子汚染の実態や健康影響の解明が進められつつあるが、まだ端緒についたばかりで詳しいことはわかっていない。

著者らは高松市郊外の丘陵部に位置する香川医科大学周辺の屋外大気中の微粒子汚染状況を知ることを目的として、1999年2月から約1年間、SPM の粒径別濃度測定を試みた結果を報告する。

\* 香川医科大学衛生・公衆衛生学

<sup>2\*</sup> 倉敷芸術科学大学人間環境科学

連絡先：〒761-0793 香川県木田郡三木町池戸1750-1 香川医科大学人間環境医学講座衛生・公衆衛生学 須那 滋

## II 方 法

### 1. 測定時期と測定地点

1999年2月(下旬), 4月(上旬), 6月(下旬), 8月(上旬), 10月(下旬) および2000年1月(上旬)に香川医科大学基礎臨床研究棟7階(標高約70 m)から屋外大気を1週間連続サンプリングした。なお, わが国の気候の特徴(四季, 梅雨など)を代表していると思われる時期に測定期間を設定した。

### 2. 測定地点の地形, 測定期間の気象条件等

当大学は香川県高松市南東の田園地帯丘陵部に位置する(図1)。測定地点での各測定時期の午前10時から午後10時の間の気流観測結果では, 冬季である1999年2月と2000年1月は常時北西~西の市街地方向から5~10 m/sのやや強い風が吹く日が多く, 4月と10月は北西~西からの1~5 m/sの穏やかな風の日が多かった。また, 6月の梅雨時は北西~西からの0~1 m/s程度のわずかな気流が観測される日が多かった。これに対し8月は, 南東~南の讃岐山脈山麓田園地帯の方向から1~10 m/sの通常穏やかで時折やや強い風が吹く日が多かった。

測定方法: アンダーセンサンプラー(DYLEC-柴田科学)に28.3 L/minの流速で空気を導入し, グラスファイバークフィルター(ADVANTEC GB

100R 80 mmφ)上に粒径別粉塵を捕集した。室温で1昼夜乾燥後, 電子直示天秤(Mettler AE163, 読み取り限度: 0.1または0.01 mg)にて重量を測定し粉塵質量濃度を求めた。4月と8月にはパーティクルカウンター(リオンKC-01A型)により, 粒径別粒子数(個/L)を30分間隔で併行連続測定した。

## III 結 果

### 1. アンダーセンサンプラーによる粒径別質量濃度分布

アンダーセンサンプラーによる粒径別質量濃度測定結果を図2に示した。各測定結果において3.3~2.1 μmの画分と2.1~1.1 μmの画分を境とした二峰性の粒径分布が観察された。このことから, 粒径2.1 μm以下を微粒子画分とした。微粒子画分ではいずれの結果においても0.65~1.1 μmに濃度のピークがみられたが, ピーク濃度は各月でかなり大きな変動を示した。また, 測定に用いたアンダーセンサンプラーは11 μmカットの性能であるため, 11 μm以下全画分合計をトータルのSPM(PM11)とした。PM11は, 年間を通じておおむね20~30 μg/m<sup>3</sup>であり, 6月, 8月が低値であった(表1)。次に, 2.1 μm以下の微粒子画分(PM2.1)は, 約4~20 μg/m<sup>3</sup>の範囲の濃度であったが, この中で6月が10.3 μg/m<sup>3</sup>, 8月が4.4

図1 香川医科大学周辺地図



図2 大気中浮遊粒子状物質 (SPM) の粒径別質量濃度分布における季節差

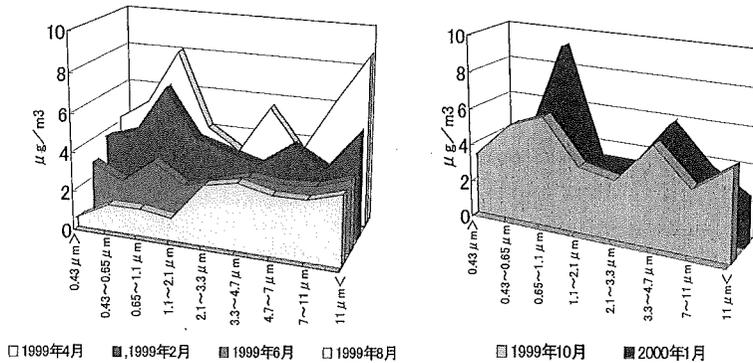


表1 アンダーセンサンプラーによる大気中 SPM 濃度 (PM 11) と微粒子画分濃度 (PM 2.1)

		1999年2月	1999年4月	1999年6月	1999年8月	1999年10月	2000年1月
PM 11	( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	33.1	40.3	22.2	16.9	35.3	33.8
PM 2.1	( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	18.5	21.7	10.3	4.4	18.2	20.3
PM 2.1/PM 11	(%)	55.9	53.9	46.4	26.2	51.7	60.0

$\mu\text{g}/\text{m}^3$  と低値であり、その他の月は  $20 \mu\text{g}/\text{m}^3$  前後の濃度であった (表1)。また、PM2.1がPM11に占める比率をみると、8月(26.2%)以外は50%前後の値を示した。

2. パーティクルカウンターによる粒子数濃度測定結果

4月1日～7日および8月2日～8日のパーティクルカウンター計測による粒子数濃度の推移を粒径別に図3に示した。

4月の測定期間中の高松地域は、黄砂に見舞われることが多かった。移動性気圧配置も関係して、黄砂を含むと思われる(堆積塵により判断した)もや状のエアロゾルが市街西部から低く垂れ込め、やがて市街地全体を覆い、以後西風に乗り、当大学にまで達する状況が観察された。

SPMの濃度はエアロゾル飛来時に高く、 $0.3 \sim 0.5 \mu\text{m}$  で  $200,000$  個/L にまで達した。一方、前線通過時の降雨の後には、各粒径の粒子数は顕著に減少した。その程度は微粒子ほど大きい傾向にあり、 $0.3 \sim 0.5 \mu\text{m}$  では、降雨前約  $100,000$  個/L が降雨後は  $1,000$  個/L まで減少した。また、SPM計測値を粒径別に1週間の平均値でみると(図3)、 $0.3 \sim 0.5 \mu\text{m}$  の粒子が圧倒的に多く約  $60,000$  個/L であり、ついで  $0.5 \sim 1.0 \mu\text{m}$  が  $7,000$  個/L、 $1.0 \sim$

$2.0 \mu\text{m}$  が  $900$  個/L、 $2.0 \sim 5.0 \mu\text{m}$  が  $150$  個/L であった。

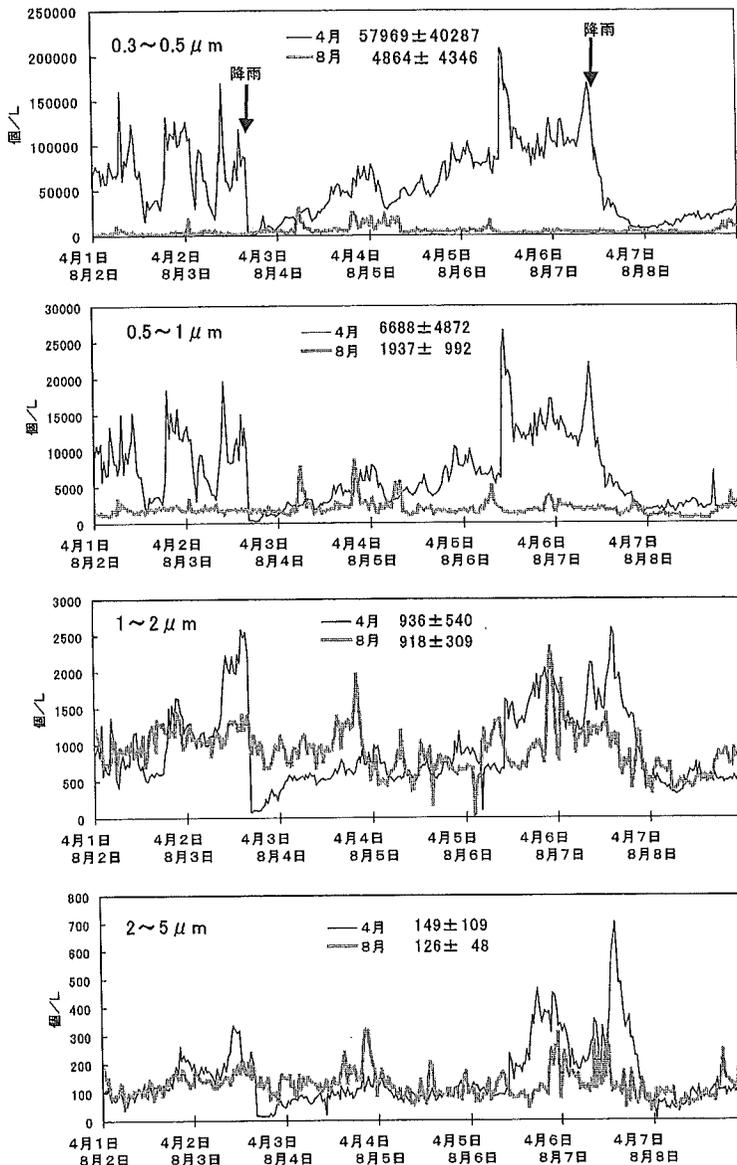
8月の測定期間中は、南東～南の讃岐山脈山麓田園地帯の方向からの風が主であった。粒子数濃度の推移を粒径別にみると、 $0.3 \sim 0.5 \mu\text{m}$  および  $0.5 \sim 1.0 \mu\text{m}$  の微粒子画分が4月に比べ明らかに低い計測値を示した(図3)。SPM計測値を粒径別に1週間の平均値でみると(図3)、 $0.3 \sim 0.5 \mu\text{m}$  の粒子が平均約  $5,000$  個/L であり、 $0.5 \sim 1.0 \mu\text{m}$  が  $2,000$  個/L、 $1.0 \sim 2.0 \mu\text{m}$  が  $900$  個/L、 $2.0 \sim 5.0 \mu\text{m}$  が  $125$  個/L であり、 $1.0 \mu\text{m}$  以下の微粒子濃度は4月に比べ明らかに低かった。

以上、4月、8月の測定結果全体を通じて SPM 濃度の経時変動は大きく、天候や風向に強く影響されることがうかがわれた。

IV 考 察

SPMは土砂、岩石など自然由来成分と化石燃料等の人工燃焼で生じた排気ガス由来成分などから構成されているが、空気中に長時間滞留し気管から人体に侵入後肺に沈着し、さまざまな健康上の弊害をもたらす。近年、化石燃料の使用量増大に伴い排気ガス由来の成分による大気汚染が地球規模で広がる中、ディーゼル排気微粒子に代表さ

図3 粒径別粒子数濃度連続測定と平均粒子数濃度 (mean±SD, n=336) —1999年4月と8月の比較



れるPM2.5による大気汚染問題が注目されるようになって来た。PM2.5のような微粒子は肺深部の肺胞まで到達する。沈着した微粒子の可溶成分は瞬時にあるいは徐々に溶解し、肺組織に直接的な影響をもたらすとともに循環血流にのり全身組織に運ばれる。残留した不溶成分は排出されることがなく半永久的に肺胞に留まる。このため、微粒子による肺への影響は多彩で、負荷は長期にわたることが想像され、人への健康影響が大きいことが

推測される。PM2.5の健康影響については1990年代の始め頃から指摘されるようになり<sup>1-4)</sup>、その後関連の疫学調査や大気微粒子汚染の実態調査が、米国を中心に世界各国で行われるようになってきた。しかし、わが国においては、PM2.5の汚染実態に関する報告は少ない。また、微粒子汚染の季節差などについて年間を通じて検討した例もみられない。そこで、著者らは季節ごとの微粒子汚染状況を知ることが目的として、約1年間、大

気中 SPM 濃度を粒径別に検討した。

SPM の粒径別測定にはアンダーセンサンプラーなどインパクターを利用して SPM を分別捕集し、各分画の質量濃度を求める方法<sup>5,6)</sup>や、光散乱を利用し粒径別に粒子を計数する相対濃度法<sup>7,8)</sup>が多く用いられている。また、近年は $\beta$ 線吸収方式により相対濃度を求める方法<sup>9)</sup>も開発されている。このうち、SPM を直接分別捕集する質量濃度法は秤量によるため、十分な粉塵量の確保には長時間を要する。このため、ある一定期間中の平均濃度を知ることはできるが、その期間の変動状況はわからない。一方、光散乱による相対濃度法はリアルタイム測定が可能で SPM の経時変動を容易に知ることができる。しかし、粉塵の絶対量は不明である。

今回の測定では SPM の粒径分布を季節ごとに比較することが主たる目的であったので、アンダーセンサンプラーによる質量濃度法を用いた。また、4月と8月には SPM の粒径別経時変動を連続的に観測する目的で、パーティクルカウンターによる相対濃度法を併用した。なお、SPM は空気中に浮遊する $10\mu\text{m}$ 以下の粒子として定義されているが、使用したアンダーセンサンプラーは $11\mu\text{m}$ カットの性能であるため、 $11\mu\text{m}$ 以下の全画分を SPM とした。したがって、得られた SPM 測定値を通常の $10\mu\text{m}$ カット装置による測定値と比較する場合には注意を要するが、くいちがいの程度はごくわずかで無視できると考える。

年間を通じて PM11 は $20\sim 30\mu\text{g}/\text{m}^3$ であり、香川県が県内測定局で実施している SPM 測定値(月平均値)<sup>10)</sup>とほぼ一致していた。また、粒径別質量濃度分布では、各測定結果において $3.3\sim 2.1\mu\text{m}$ の画分と $2.1\sim 1.1\mu\text{m}$ の画分を境として二峰性の粒径分布が観察され、SPM が $2\sim 3\mu\text{m}$ 付近で微粒子画分と粗粒子画分に分割できることが判明した。微粒子画分 PM2.1 は、年間を通じて約 $4\sim 20\mu\text{g}/\text{m}^3$ の濃度であったが、6月と8月が低値で、1月、2月、4月、10月に高い傾向がみられた。また、PM11の濃度レベルにおいても同様の傾向にあった。これは、6月は降雨が多く8月は測定地点の風向が南東～南の田園地帯の方向からの気流が主であったこと、一方1月、2月の冬季や4月、10月は主に西～北西からの気流で、大気は市街地の上空を通過して測定地点に運ばれてく

るため、市街地の汚染を取り込む可能性があること、冬季には大気の逆転層形成がおこり大気汚染物質の拡散が行われにくいことなどが原因していると考ええる。このほか、SPM 濃度が最も高かった4月は黄砂の影響が考えられる。今回測定されたトータルの SPM 濃度や微粒子画分濃度は、冬季の東京で観測された PM10, PM2.5<sup>11)</sup>の $1/5\sim 1/10$ 程度の濃度レベルであることから、この地域の SPM 汚染は低いと考えられた。しかしながらアンダーセンサンプラーによる粒径別分布では、微粒子画分が顕著に認められ、自動車排気ガスなどによる微粒子汚染の影響がうかがわれた。また、微粒子濃度の変動には天候や後背地からの気流がかなり関与することも示唆された。

パーティクルカウンターによる測定結果では4月の測定期間中は黄砂を含むと思われるもや状のエアロゾルが大きく影響し、SPM 濃度はエアロゾル飛来時に高かった。一方、前線通過時の降雨の後には各粒径の粒子数は急激に減少し、その程度は微粒子ほど大きい傾向にあった。これは $1\mu\text{m}$ 以下の微粒子で起こりやすいレインアウト現象や $1\mu\text{m}$ 以上の粗い粒子で起こるウォッシュアウト現象を示していると思われる<sup>12)</sup>。

8月の測定期間中は、南東～南の讃岐山脈山麓田園地帯の方向からの風が主であった。このため、自動車排気ガスなど人工燃焼成分をあまり含まない大気が測定地点に流れ込む機会が多く、 $1\mu\text{m}$ 以下の微粒子濃度は4月に比べ明らかに低くなったものと思われる。

以上、4月、8月の測定結果全体を通じて、SPM 濃度は天候や風向に強く影響され、経時変動が大きいことが明らかとなった。特に PM2.5 のような微粒子の評価を行うときにはこのような経時変動の大きさも考慮に入れなければならないように思われた。なお、今回のパーティクルカウンターによる測定では $0.3\mu\text{m}$ 以下の粒子の濃度変動は捉えていないが、最近、 $0.1\mu\text{m}$ 以下の超微粒子 (ultrafine particles) による健康影響が無視できないことを指摘する報告<sup>13)</sup>もみられる。超微粒子の場合 PM2.5 のように質量濃度により評価する方法は不可能であり、粒子数による相対濃度評価が重要となってくる。超微粒子の実態解明は今後検討すべき課題と考える。

(受付 2001.12.21)  
(採用 2002. 4.19)

## 文 献

- 1) Dockery DW, Pope CA 3rd, Xu X, Spengler JD, Ware JH, Fay ME, Ferris BG Jr, Speizer FE. An association between air pollution and mortality in six U.S. cities. *N Engl J Med* 1993; 329: 1753-1759.
- 2) Koenig JQ, Larson TV, Hanley QS, Rebolledo V, Dumler K, Checkoway H, Wang SZ, Lin D, Pierson WE. Pulmonary function changes in children associated with fine particulate matter. *Environ Res* 1993; 63: 26-38.
- 3) Abbey DE, Ostro BE, Petersen F, Burchette RJ. Chronic respiratory symptoms associated with estimated long-term ambient concentrations of fine particulates less than 2.5 microns in aerodynamic diameter (PM<sub>2.5</sub>) and other air pollutants. *J Expo Anal Environ Epidemiol* 1995; 5: 137-159.
- 4) Ostro B. Fine particulate air pollution and mortality in two Southern California counties. *Environ Res* 1995; 70: 98-104.
- 5) RS Maheskumar, PCS Devara, P Ernest Raj, G Pandithurai, KK Dani, GA Momin. Comparison of atmospheric aerosol properties inferred from direct and remote-sensing techniques. *Atmospheric Environment* 2001; 35: 2895-2905.
- 6) Monn C, Becker S. Cytotoxicity and induction of proinflammatory cytokines from human monocytes exposed to fine (PM<sub>2.5</sub>) and coarse particles (PM<sub>10-2.5</sub>) in outdoor and indoor air. *Toxicology and Applied Pharmacology* 1999; 155: 245-252.
- 7) LW Richards, SH Alcorn, C McDade, T Couture, D Lowenthal, JC Chow, JC Watson. Optical properties of the San Joaquin Valley aerosol collected during the 1995 integrated monitoring study. *Atmospheric Environment* 1999; 33: 4787-4795.
- 8) JL Gras, MD Keywood, GP Ayers. Factors controlling winter-time aerosol light scattering in Launceston, Tasmania. *Atmospheric Environment* 2001; 35: 1881-1889.
- 9) CT Chang, CJ Tsai, CT Lee, SY Chang, MT Cheng, HM Chein Differences in PM<sub>10</sub> concentrations measured by  $\beta$ -gauge monitor and hi-vol sampler. *Atmospheric Environment* 2001; 35: 5741-5748.
- 10) 香川県生活環境部環境局環境安全課, 平成11年度大気汚染調査結果, 香川県, 2000.
- 11) K Saitoh, K Sera, K Hirano, T Shirai. Chemical characterization of particles in winter-night smog in Tokyo. *Atmospheric Environment* 2002; 36: 435-440.
- 12) Committee on medical and biologic effect of environmental pollutants, National Research Council. *Airborne Particles*. University Park Press. 1979; 和田攻ほか訳, 環境汚染物質の生体への影響18 気中粒子状物質, 東京: 東京化学同人, 1986: 89-91.
- 13) Tuch Th, Mirme A, Tamm E, Heinrich J, Heyder J, Brand P, Roth Ch, Wichmann HE, Pekkanen J, Kreyling WG. Comparison of two particle-size spectrometers for ambient aerosol measurements. *Atmospheric Environment*. 2000; 34: 139-149.

## LEVELS OF AIRBORNE DUST BY PARTICLE SIZE IN A SUBURB OF TAKAMATSU, JAPAN

Shigeru SUNA\*, Hong DAI\* Yoko FUJITA<sup>2\*</sup>, Fumiyuki ASAKAWA\*,  
Takako KITAMADO\*, Tomohiro HIRAO\*, Ichiro FUKUNAGA\*, and Fumihiko JITSUNARI\*

**Key words :** Suspended particulate matter (SPM), PM<sub>2.5</sub>, Particle contamination, Air pollution

**Purpose** In recent years, attention has been paid to the influence of the particle fraction  $\leq 2.5 \mu\text{m}$  in diameter (PM<sub>2.5</sub>) among suspended particulate matter (SPM) on health. However, the present status of particle contamination in Japan has hitherto not been adequately clarified.

To determine particle contamination in the outdoor air around Kagawa Medical School located on a hill in the suburb of Takamatsu City, we measured SPM according to diameter between February 1999 and January 2000.

**Methods** Mass concentrations of SPM were determined using an Andersen air sampler and light scattering counts were measured using a particle counter at the same site.

**Results** Of the entire year, the total SPM concentration (PM<sub>11</sub>) was 20–30 mg/m<sup>3</sup>, and the particle fraction  $\leq 2.1 \mu\text{m}$  in diameter (PM<sub>2.1</sub>) accounted for 25–60%. Both the PM<sub>11</sub> and PM<sub>2.1</sub> concentrations were the lowest in August when the wind blew mainly from rural areas, but high in January and February when the wind blew mainly from urban areas and April when yellow sand was wind borne from China.

The SPM particle count in April was markedly high when a misty aerosol containing yellow sand was extent. The SPM count for each diameter class rapidly decreased after rainfall during passage of storm fronts, but this was especially marked for smaller diameters. During the measurement period in August, air from rural areas often passed the measurement point, and the particle concentration  $\leq 1 \mu\text{m}$  in diameter was markedly lower than that in April.

**Conclusion** The results suggest that the SPM levels around Kagawa Medical School located in the suburb of Takamatsu City are associated with seasonal climate and the wind direction from which the prevailing blew.

---

\* Department of Hygiene and Public Health, Faculty of Medicine, Kagawa Medical University

<sup>2\*</sup> Human-Environmental Science Research Laboratory, College of Liberal Arts and Science, Kurashiki University of Science and the Arts