

【報文】 群馬県における粒子状物質質量濃度 測定結果と測定値の品質管理 (2)

田子博、梅田真希、熊谷貴美代

Particulate Matter Mass Concentrations in Gunma and Quality control of the monitoring data (2)

Hiroshi TAGO, Maki UMEDA, Kimiyo KUMAGAI

2015 年度における群馬県内 8 地点の PM_{2.5} 質量濃度についてとりまとめた。年平均値は 9.5~15.2 μg/m³ であり、環境基準を達成したのは 7 地点であった。広範囲に及ぶ高濃度 (35 μg/m³ 以上) 事象の発生が少なく、短期基準に関しては全ての地点で基準を達成し、県内半分の地点では高濃度となった日が皆無であった。また、標準測定法と自動測定機による PM_{2.5} 質量濃度の比較を行った。限られたデータではあるが、自動測定機による値は標準測定法による値より有意に高かった。

Key words : PM_{2.5}, SPM, 環境基準 Environmental standards

1. 緒言

前報 (田子と梅田、2016) において、著者らは 2014 年度における県設置 8 測定局の PM_{2.5} 質量濃度 (以下、本論ではとくに断りのない限り濃度は質量濃度) をとりまとめた。さらに、PM_{2.5}/SPM 比 (PM_{2.5} の値を SPM の値で除した) から測定値の妥当性を検証し、前橋局における SPM 計の不具合の可能性を指摘した。

本報告では、2014 年度と同様に 2015 年度の群馬県内 8 地点における PM_{2.5} 濃度を取りまとめた。さらに、PM_{2.5}/SPM 比による検証に加え、標準測定法と自動測定機との PM_{2.5} 濃度の比較も合わせて行った結果について述べる。

2. 測定地点と測定機種

測定地点については前報 (田子と梅田、2016) と同じ 8 地点 (局) であり、周囲の状況にも大きな変化はない。表 1 に各地点における PM_{2.5} 計および SPM 計の機種名を示した。

なお、前橋に設置した SPM 計は前報 (田子

と梅田、2016) と同機種 (同時期導入) であるが、他局から移設したもので、2014 年度の装置とは別の個体である。

標準測定法による PM_{2.5} 濃度測定は PM_{2.5} 成分分析に付随して行ったもので、本報告においては 2014 (前橋、富岡) および 2015 年度 (前橋、館林) の結果 (n=219) を用いた。方法の詳細は熊谷ら (2016) の報告に記載の通りである。

表 1 粒子状物質測定機種一覧

測定局名	SPM	PM _{2.5}
	測定機器(メーカー、設置年度)	測定機器(メーカー、設置年度)
前橋	APDA-370(堀場製作所、2008)	FPM-377(東亜DKK、2014)
桐生	PM712(紀本電子工業、2013)	PM712(紀本電子工業、2013)
太田*	APDA-370(堀場製作所、2008) PM711(紀本電子工業、2015)	FH62C14(東京ダイレック、2012)
沼田	DUB-357(東亜DKK、2007)	FH62C14(東京ダイレック、2012)
館林	PM712(紀本電子工業、2013)	PM712(紀本電子工業、2013)
富岡	DUB-357(東亜DKK、2013)	FPM-377(東亜DKK、2013)
吾妻	DUB-357(東亜DKK、2013)	FPM-377(東亜DKK、2013)
嬬恋	PM712(紀本電子工業、2013)	PM712(紀本電子工業、2013)

*2015/11/2 装置更新

表 2. 各地点における環境基準達成状況 (2015 年度)

測定局	有効測定日数	年平均値 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	日平均値の 年間98%値 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	日平均値が $35\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えた日数とその割合		長期基準 超過の有無 (有×・無○)	短期基準 超過の有無 (有×・無○)	環境基準 (達成○・非達成×)
	(日)			(日)	(%)			
前橋	363	11.9	28.4	1	0.3	○	○	○
桐生	363	13.8	32.2	0	0.0	○	○	○
太田	359	14.0	31.5	2	0.6	○	○	○
沼田	354	11.7	28.1	0	0.0	○	○	○
館林	360	15.2	32.2	5	1.4	×	○	×
富岡	325	10.6	27.8	0	0.0	○	○	○
吾妻	358	10.6	28.1	1	0.3	○	○	○
嬭恋	338	9.5	25.7	0	0.0	○	○	○

3. 結果と考察

3.1. PM_{2.5} 濃度

3.1.1. 環境基準達成状況

PM_{2.5} の環境基準の達成状況を表 2 に示す。富岡と嬭恋を除く地点では 350 日以上の有効測定日数が確保されており、これらの地点では測定機器の大きなトラブルはなかった。一方、富岡では 9 月中旬から 10 月中旬、嬭恋では 4 月中旬から 5 月中旬のいずれも約 1 ヶ月間、測定機の不具合により欠測となった。環境基準は 8 局中 7 局で達成しており、達成率は 87.5 % であった。短期基準は全ての局で達成し、館林のみ長期基準をわずかに超過していた。

2015 年度は全国的にも PM_{2.5} 濃度が低く、 $35\mu\text{g}/\text{m}^3$ 超過（以下、高濃度とする）事象も少なかった。群馬県内では半数の 4 局において高濃度日は 0 であった。広域にわたる高濃度事象がほとんどなかったため、年平均値と日平均値の年間 98% 値は良い相関を示しており、周囲の人間活動の状態がそのまま PM_{2.5} 濃度に反映されていた。2015 年度の全国的な低濃度について、環境省（2017）は気象条件や中国の PM_{2.5} 濃度の低下、国内における原因物質発生量の減少を原因として発表しているが、それぞれの定量的な寄与率はわかっていない。

3.1.2. 濃度変化と高濃度出現状況

代表的な県内 3 地点における PM_{2.5} 濃度の変化を図 1 に示す。PM_{2.5} 濃度は日々の変動が大きく、日平均値そのままでは年間の変動が見にくいいため、図 1 は 30 日の移動平均をとったものである。前橋は郊外、館林は市街地、嬭恋は山間地（バックグラウンド）を代表しており、これら以外の 5 地点は概ね館林と嬭恋の間におさまる濃度レベルであった。濃度変動は図に示

していない 5 地点も含めてほぼ一致しており、ベースとなる嬭恋にその地点における局地的な影響（必ずしもその地域で発生した汚染物質とは限らない）が上乘せされていると考えられた。

県内 8 地点における PM_{2.5} 濃度を一覧にまとめたものが表 3（章末掲載）である。高濃度が記録された場合には網掛けで示し、その期間をイベント A～E として表中に記載してある。前述したように、高濃度事象は非常に少なく、延べ 9 日間（2014 年度は 58 日）しかなかった。同時に高濃度となったのは多くとも 2 地点、その期間は長くとも 2 日間で、高濃度の範囲や時間も小規模であった。

イベント B、C および E の期間は広範囲の高濃度事象が観測されており（中島ら、2016、木戸ら、2016）、地域汚染に加え越境汚染の影響も少なからず受けていた。この期間以外にも、4 月下旬から 5 月上旬（西山ら、2016）や 6 月中旬（池田ら、2016）にも広域汚染が観測されており、群馬県内でもその影響は認められるものの、高濃度事象までには至らなかった。

イベント D の期間は群馬県内の都市部を中心に濃度が上昇した。この期間は関東地方の広い範囲で PM_{2.5} 高濃度事象が発生しており（関東地方大気環境対策推進連絡会、2017）、

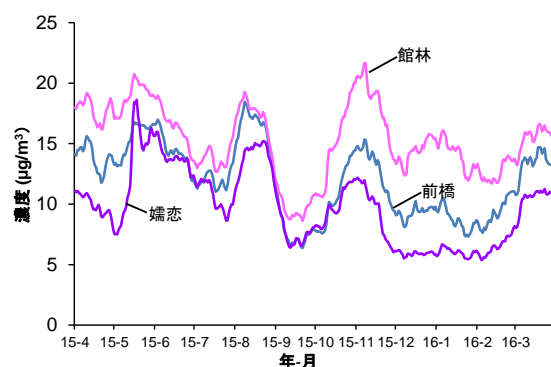


図 1 PM_{2.5} 濃度変化 (30 日移動平均)

田中ら（2016）は東京湾付近の高濃度について解析し、この原因を大気拡散されにくい気象条件下における都市汚染と報告している。実際、バックグラウンド地点である嬬恋は清浄（日平均値 15 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下）であり、この報告を支持するものであった。

イベント A も D と似た状況（原因は未解析）であるが、その規模は小さく、東京、千葉、埼玉を中心（関東地方大気環境対策推進連絡会、2017）としたものであった。以上から、2015 年度に群馬県内での高濃度事象は、いずれも関東～全国規模の高濃度事象の一部として観測されたものであった。

3.2. $\text{PM}_{2.5}$ と SPM の比較

前報（田子と梅田、2016）と同様に、2015 年度の年平均値ベースで $\text{PM}_{2.5}/\text{SPM}$ 比（ $\text{PM}_{2.5}$ の値を SPM の値で除したものを求めた結果を表 4 に示した。前橋を除いて $\text{PM}_{2.5}/\text{SPM}$ 比は 0.66～0.82 と一般的な値であった。しかしながら、前橋ではこの比が前年に引き続き 1 を越えており、SPM 計を入れ換えたにもかかわらず改善が見られなかった。前橋市設である前橋東局の SPM 値（群馬県、2016）を用いてこの比を求めると 0.66 となり、他地点並みの値になったことや、SPM の年平均値がバックグラウンドの嬬恋よりも低いことから、前回同様、前橋における SPM 値が疑われた。当該 SPM 計に関しては、機器の異常は報告されておらず、前橋局へ移設される前には他局において正常な測定値を示していたため、機器本体以外に原因が存在する可能性が大きくなった。

原因として考えられたのが試料導入管である。SPM 計の試料導入管については、マニュアル（環境省、2010）に水平方向の長さをできるだけ短くなるようにという記述はあるものの、 $\text{PM}_{2.5}$ のように厳格な基準は存在せず、ある程度は現場の裁量に任されている。前橋局は測定項目が多いのにも関わらず手狭であり、SPM 計の設置位置に制約が生じていた。このため試料導入管を長く引き回さざるを得ず、粒子状物質が管に付着してしまった可能性があった。嬬島（2016 年全環研関東甲信静支部大気専門部会にて報告、未発表）は $\text{PM}_{2.5}$ の採取に際して

試料導入管を水平方向に引き回したところ、濃度が従来の直管型の 6 割程度になったと報告している。SPM においても同様に、水平方向に設置された試料導入管による影響は無視できないであろう。

当該 SPM 計が更新時期を迎えていたこともあり、2016 年 7 月に SPM 計を更新した。この際に、SPM 計の試料導入管をできるだけ短く、かつ、水平方向には配置しないように局舎内の全機器のレイアウトを見直した。こうした措置によりそれ以降、速報値ではあるが $\text{PM}_{2.5}/\text{SPM}$ 比が恒常的に 1 を越える現象は解消されている。また、SPM の測定値も近隣局と同等の値となった。

表 4 各地点における $\text{PM}_{2.5}/\text{SPM}$ 比

地点	濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)		$\text{PM}_{2.5}/\text{SPM}$
	$\text{PM}_{2.5}$	SPM	
前橋	11.9	11	1.08
桐生	13.8	18	0.77
太田	14.0	20	0.70
沼田	11.7	16	0.73
館林	15.2	20	0.76
富岡	10.6	16	0.66
吾妻	10.6	13	0.82
嬬恋	9.5	13	0.73

(2015 年

度)

3.3. 標準測定法と自動測定機の比較

季節毎に行われている $\text{PM}_{2.5}$ 成分分析期間においては、PTFE フィルター、石英フィルターの質量測定、および自動測定機の 3 種類の方法で $\text{PM}_{2.5}$ 濃度を求めることができる。このうち、PTFE フィルターの質量測定から $\text{PM}_{2.5}$ 濃度を求める方法が標準測定法と定められおり、自動測定機はこれと等価性があることが求められる。ただし、大気中の粒子は濾紙に捕集された瞬間から変質（濾紙上における揮発や生成、以下アーティファクト）が起こるため、標準測定法による値が実際の大气中での $\text{PM}_{2.5}$ 濃度を正しく反映しているとは限らない。

標準測定法と自動測定機による $\text{PM}_{2.5}$ 濃度の関係を季節別に図 2 に示した。図中の直線より上にプロットがあれば、標準測定法と比較し

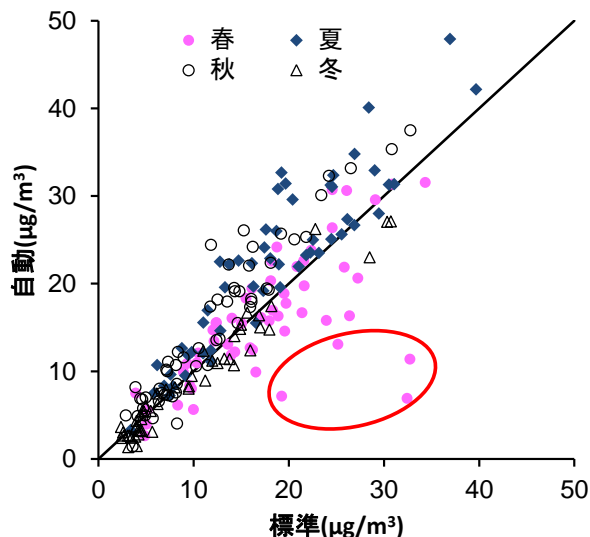


図 2 標準測定法と自動測定機による PM_{2.5} 濃度の比較

て自動測定機の値が高く、下であれば低いことを示す。直線の下に大きく外れた 4 点（丸で囲んだ点）は全て 2014 年前橋の春のデータであり、標準測定法による PM_{2.5} 濃度は自動測定機より大幅に高いだけでなく、前橋東局の SPM 濃度よりも高かった。この時は強風が観測されており、粗大粒子の一部がカットされずに標準測定法のサンプラーで採取された可能性が考えられた。

図 2 から冬季は両者の値が比較的一致している一方で、夏季では自動測定機による値が標準測定法より高めに示される傾向が認められた。濾紙上に捕集された粒子の揮発というアーティファクトを考えた場合、捕集面積が大きく、捕集時間も長い標準測定法は気温の高い夏季にはその影響が大きいと考えられる。これに対し、自動測定機は捕集面積が小さいことに加え、1 時間という短いサイクルで捕集－測定を繰り返しているため、アーティファクトの影響が最小限に抑えられていると推察される。このようなことを踏まえて自動測定機は標準測定法と等価性があるように設計されているが、非常に複雑であるアーティファクトの影響を完全に補正することは困難であろう。

自動測定機の等価性が認められる条件の一つに図 2 のプロットから求めた回帰直線の傾きが 1 ± 0.1 になることがある。図 2 から回帰直線の傾きを求めると 0.99 となり、わずかではある

が自動測定機が低めに出る傾向を示した（本来は装置毎に算出しないと意味がない）。しかし、これは前述した丸で囲んだ 4 点（図 2）の影響が大きく、この 4 点を除外して計算すると 1.07 で、逆に自動測定機が高めになった。

群馬県で稼働している自動測定機は全て等価性が認められている機種であるため、上記結果は当然とも言える。しかし、図 2 に示した標準測定法と自動測定機の測定値（丸で囲んだデータは除く）について、平均値を求めると、それぞれ 14.5、15.6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であり、自動測定機の測定値が有意に高かった。限られたデータからの結果であるが、環境基準の達成という観点からすれば、この測定法の違いによる影響は大きい。現実性を無視すれば、測定を自動測定機から標準測定法に変えるだけで県内における PM_{2.5} 環境基準は全て達成ということもありえる。また、測定機種（場合によっては個々の装置）毎に、標準測定法との測定値の差について何らかの傾向がある可能性も考えられ、これについては今後データを蓄積し考察したい。参考までに石英フィルターの質量測定から平均値を求めると 14.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ となり、標準測定法との有意差は認められなかった。

4. 結 言

2015 年度の群馬県設置 8 地点における PM_{2.5} 環境基準達成率は 87.5 %であった。年平均値は概ね測定地点周辺の状態を反映しており、バックグラウンド濃度にその地域特有の汚染が上乘せされている状況であった。群馬県内の PM_{2.5} 高濃度事象は全て関東～全国規模の高濃度事象の一部として観測されたものであった。2015 年度の高濃度事象は全国的に見ても小規模なものが多く、短期基準に関しては県内全局で環境基準が達成された。

3.1.1 に記述した環境省が発表した 3 つの PM_{2.5} 低濃度要因として、中国での PM_{2.5} 濃度については 2012 年末から一部都市域で、2016 年初頭からは全域で PM_{2.5} 環境基準の適用が開始されたことから、今後も濃度低下が期待できる。また、国内発生量の減少については、明確な政策との関連が示されていないが、電気自動車の普及等、自動車からのさらなる発生量の減

少が期待できる。逆に国内の発生量を増大させる要因としては、原子力発電所の停止に伴う火力発電の増加が考えられるが、これまでのところその直接的な影響は認められていない。これらの点から特別な対策なしに、近い将来、群馬県において環境基準達成率 100 % も不可能ではないと思われる。しかし、気象条件に恵まれない場合には、環境基準の高い達成率が維持されとは限らない。当面は濃度推移を注視するとともに、成分分析結果の解析を進めることで、より有効な PM_{2.5} 削減手段を探索したい。

PM_{2.5}/SPM 比を用いて測定値の品質管理を試みたところ、2014 年度に引き続いて 2015 年度も前橋における SPM 測定値が疑わしかった。試料導入管の設置の仕方に原因があると考え、配管を含む装置の入れ替えを行った 2016 年 7 月以降では、妥当な PM_{2.5}/SPM 比が得られ、近隣の SPM 濃度とも一致している。

標準測定法と自動測定機の測定値について、強風下という特殊な気象条件を除くと、自動測定機の値は標準測定法よりも有意に高く、とくに夏季においてその傾向が強かった。

謝 辞

粒子状物質の測定データは群馬県環境保全課（一部、前橋市環境政策課）が測定・公表しているものを利用した。また、機器の更新ならびに維持管理情報についても、同課から情報の提供を受けた。関係各位に感謝します

文 献

池田光広、中島亜矢子、山本真緒、中坪良平、寺本佳宏、山神真紀子、牧野雅英、木戸瑞佳、武田麻由子、熊谷貴美代、長谷川就一、遠藤昌樹、小野寺甲仁、松岡靖史、菅田誠治。2015 年 6 月における PM_{2.5} 高濃度事例の解析。第 57 回大気環境学会年会講演要旨集, 2016; p 351.

関東地方大気環境対策推進連絡会。平成 27 年度浮遊粒子状物質合同調査報告書, 2017; pp. 62-102.

環境省。平成 27 年度大気汚染の状況。2017.

<http://www.env.go.jp/press/files/jp/105329.pdf>
(2017 年 4 月アクセス)。

環境省水・大気環境局。環境大気常時監視マニュアル第 6 版。2010.

木戸瑞佳、中島亜矢子、山本真緒、寺本佳宏、山神真紀子、牧野雅英、武田麻由子、熊谷貴美代、長谷川就一、菅田誠治。2015 年 2、3 月における PM_{2.5} 高濃度事例の解析。第 57 回大気環境学会年会講演要旨集, 2016; p 354.

熊谷貴美代、一条美和子、齊藤由倫、田子博。大気中微小粒子状物質 (PM_{2.5}) の成分調査結果。群馬県衛生環境研究所年報, 2014; **46**: 27-32.

熊谷貴美代、齊藤由倫、木村真也、梅田真希、田子博。群馬県における PM_{2.5} 成分測定結果 (2014~2015 年度)。群馬県衛生環境研究所年報, 2016; **48**: 28-34.

群馬県。平成 28 年度版環境白書, 2016; p 81.

中島亜矢子、池田光広、山本真緒、中坪良平、寺本佳宏、梶田奈穂子、山神真紀子、牧野雅英、木戸瑞佳、花岡良信、熊谷貴美代、遠藤昌樹、佐久間隆、長谷川就一、菅田誠治。2015 年 10 月における PM_{2.5} 高濃度事例の解析。第 57 回大気環境学会年会講演要旨集, 2016; p 352.

西山亨、中島亜矢子、池田光広、山本真緒、中坪良平、山神真紀子、木戸瑞佳、武田麻由子、長谷川就一、菅田誠治。2015 年 4、5 月における PM_{2.5} 高濃度事例の解析。第 57 回大気環境学会年会講演要旨集, 2016; p 350.

田子博、梅田真希。群馬県における粒子状物質質量濃度測定結果と測定値の品質管理。群馬県衛生環境研究所年報, 2016; **48**: 19-27.

田中清敬、速水洋、三浦和彦、板橋秀一、齊藤伸治、齋野広祥。2015 年 12 月 9、10 日の東京湾付近における PM_{2.5} 高濃度イベントの解析。第 57 回大気環境学会年会講演要旨集, 2016; p 188.

