

群馬県における大気中 PM_{2.5} 成分調査結果（2016 年度）

熊谷貴美代 梅田真希 齊藤由倫 田子博

The Survey on Chemical composition of PM_{2.5} in Gunma, 2016

Kimiyo KUMAGAI, Maki UMEDA, Yoshinori SAITOH, Hiroshi TAGO

1. はじめに

微小粒子状物質（PM_{2.5}）は、2009 年に環境基準が定められた大気汚染物質である。PM_{2.5}には、自動車排ガス、ボイラー等の燃焼施設、バイオマスの燃焼などの発生源から直接排出される一次粒子だけではなく、大気中で反応生成する二次生成粒子もあり、多種多様な化合物で構成された粒子が含まれている。したがって PM_{2.5} 汚染対策を検討するには、粒子濃度だけでなく化学組成も含めた汚染状況の把握が重要となる。

群馬県では、大気汚染常時監視の PM_{2.5} 成分調査を 2013 年度に開始した。調査は、前橋を固定地点として、年間 2 地点で同時期に実施している。当研究所の PM_{2.5} 研究で 2012 年度に実施した結果も含めると、2015 年度までに調査した地点は、前橋、太田、沼田、富岡、館林（いずれも大気汚染常時監視局一般局）である。これらの結果については、熊谷ら（2014、2016）が報告している。本報では、2016（H28）年度に前橋と嬭恋（一般局）において実施した調査結果について報告する。

表 1 調査地点および期間

地点名	前橋	嬭恋
場所	衛生環境研究所 (前橋一般局)	嬭恋村運動公園 (嬭恋一般局)
採取装置	FRM2025	FRM2025i
調査期間		
春	2016/5/6~20	同左
夏	2016/7/21~8/4	同左
秋	2016/10/20~11/4	同左
冬	2017/1/19~2/2	2017/1/23~2/6 [※]

※ 装置不具合のため期間を変更

2. 調査方法

調査は、前橋と嬭恋において、各季節 14 日間（年間 56 日）の調査日数で、10 時を起点とする 24 時間毎に PM_{2.5} をサンプリングした（表 1）。前橋地点は、市街地郊外にあり、周辺は住宅地と農地である。嬭恋地点は、浅間山の麓に位置し農地と森林が広がる県内のバックグラウンド地点である。

調査方法および分析方法の詳細は、熊谷ら（2016）と同様である。各地点に PM_{2.5} サンプラーを 2 台設置し、PTFE フィルタおよび加熱処理済み石英繊維フィルタ上にそれぞれ PM_{2.5} を採取した。

PM_{2.5} 質量濃度をフィルタ秤量法により測定した後、各種成分を測定した。測定項目は表 2 に示すとおりである。イオン成分は、水抽出ーイオンクロマトグラフ法により、水溶性有機炭素成分（WSOC）は、同じ水抽出液を用いて TOC 計で測定した。炭素成分（有機炭素（OC）、元素炭素（EC））は、熱分離光学補正式カーボンアナライザーで測定した。無機元素成分は、酸分解ーICP-MS 法で測定した。バイオマス燃焼の指標成分であるレボグルコサンは、溶媒抽出ー誘導体化 GC/MS 法で測定した。

表 2 PM_{2.5} 測定項目

項目	成分
質量濃度	—
イオン成分	Cl ⁻ , NO ₃ ⁻ , SO ₄ ²⁻ , Na ⁺ , NH ₄ ⁺ , K ⁺ , Mg ²⁺ , Ca ²⁺
炭素成分	OC, EC
無機元素成分	Na, Al, K, Ca, Sc, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, As, Se, Rb, Mo, Sb, Cs, Ba, La, Ce, Sm, Hf, W, Ta, Th, Pb
その他成分	WSOC, レボグルコサン

なお、本調査では PM_{2.5} の成分測定と同時に二次生成無機粒子の前駆物質であるガス状成分についても測定した。それらの結果については田子ら（2017）が報告している。

3. PM_{2.5} 成分測定結果

3.1. 季節別平均組成

前橋および嬭恋における PM_{2.5} 成分の季節別平均値を表 3 に、季節別平均組成グラフを図 1 示す。ここで図 1 においては OC の値に係数 1.6 を乗じて有機粒子量 (OA) として示した。

前橋、嬭恋の PM_{2.5} 濃度は全期間平均でそれぞれ 9.7、6.5 μg/m³ であり、嬭恋は前橋の約 7 割の値であった。今回の調査では、両地点とも春の濃度が最も高く、冬の濃度が最も低かった。PM_{2.5} 成分組成をみると、両地点とも OA の占める割合が最も大きく、次いで SO₄²⁻、NH₄⁺ であった。前橋では、NO₃⁻ の濃度も比較的高かった。ディーゼル車排気粒子の主成分として問題視されていた EC は、前橋で 0.64 μg/m³ と低く、嬭恋ではこれよりもさらに低く 0.37 μg/m³ であった。これまでの調査から、PM_{2.5} の組成は季節によって異なることが分かっている。光化学反応が活性化する暖候期には、二次生成による OA や SO₄²⁻ が増加する傾向があり、寒候期には半揮発性成分の粒子化によって NO₃⁻ が増加する傾向がある。また寒候期にはバイオマス燃焼発生源の影響などにより OA が増加することがある（熊谷ら、2016）。継続測定している前橋の結果を見ると、寒候期の NO₃⁻ は例年（例えば 2015 年度冬季平均；1.2 μg/m³）ほどの濃度増加は見られず、季節別平均では春が最も高

い値だった。バックグラウンド地点の嬭恋では NO₃⁻ は四季を通じて低濃度であり、前橋とは異なる結果であった。嬭恋で NO₃⁻ が低濃度なのは、前駆ガスの濃度レベルが関係していると考えられる（田子ら、2017）。

3.2. 各成分の濃度変動

図 2 に PM_{2.5} 及び主要成分の濃度変動を示す。成分調査期間中に環境基準（日平均値 35 μg/m³）を超えるような高濃度はなかった。

成分毎に見ると、SO₄²⁻ は春や夏の一部の期間を除き地点差があまりなく、広域的に同程度の濃度で広域的に分布していることが多かった。NO₃⁻ は、前橋だけで濃度が増加することがあり、一方、バックグラウンドの嬭恋では低濃度で推移した。NO₃⁻ は、SO₄²⁻ と異なり地域的な汚染であることが確認された。NH₄⁺ は、SO₄²⁻ と NO₃⁻ のカウンターイオンであるため、それらの濃度変動に依存していた。OC および EC は、

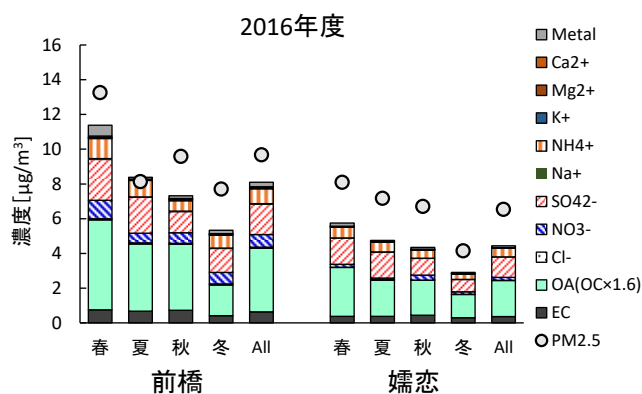


図 1 季節毎の PM_{2.5} 平均組成

(有機粒子量 (OA) = OC × 1.6 として算出)

表 3 2016 年度 PM_{2.5} 成分測定結果 (イオン、炭素成分季節別平均値)

[μg/m ³]	PM _{2.5}	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻	Na ⁺	NH ₄ ⁺	K ⁺	Mg ²⁺	Ca ²⁺	OC	EC
前橋											
春	13.3	0.057	1.1	2.3	0.055	1.2	0.041	0.016	0.087	3.2	0.75
夏	8.1	0.066	0.56	2.1	<0.033	1.0	0.036	<0.012	0.025	2.4	0.67
秋	9.6	0.059	0.61	1.2	0.038	0.60	0.076	<0.012	0.036	2.4	0.73
冬	7.7	0.056	0.67	1.4	<0.033	0.75	0.041	<0.012	0.038	1.1	0.41
年間	9.7	0.059	0.73	1.7	0.035	0.87	0.048	<0.012	0.047	2.3	0.64
嬭恋											
春	8.1	0.015	0.17	1.5	<0.033	0.61	0.023	<0.012	0.029	1.8	0.37
夏	7.2	0.036	0.089	1.5	<0.033	0.57	<0.015	<0.012	<0.019	1.3	0.37
秋	6.7	<0.015	0.28	1.0	<0.033	0.45	0.034	<0.012	<0.019	1.3	0.43
冬	4.2	<0.015	0.14	0.70	<0.033	0.30	0.019	<0.012	<0.019	0.84	0.30
年間	6.5	0.018	0.17	1.2	<0.033	0.48	0.022	<0.012	<0.019	1.3	0.37

※ 検出下限値未満の値には、検出下限値の 1/2 を与えて平均値を算出した。

春～秋は前橋>嬭恋となっていて、冬は同程度であった。これらの結果から、前橋では、バックグラウンド濃度に地域汚染が上乘せされている状況が見てとれる。

バイオマス燃焼の指標であるレボグルコサンの濃度変動(図3)を見ると、秋および冬の濃度変動とOCの変動が一致しており、OCに対するバイオマス燃焼の影響が考えられる。一方で、春夏のOC発生源に関しては、二次生成や化石燃料燃焼などバイオマス燃焼以外の要因が考えられる。

3.3. 事例解析

次に特徴的な濃度変動を示した日について述べる。

2016年5月7～8日は、東北から九州の広い範囲で黄砂が観測されていた(気象庁)。気象庁の観測(目視観測)では、本県は黄砂が観測されていなかったが、前橋ではPM_{2.5}濃度は増加しており、AlやCaなどの土壌成分が増加していたことから、黄砂の影響があったと考えられる。また石炭燃焼の指標とされるAsやPbも比較的高い値となっていたことから、越境汚染の影響も多少含まれていた可能性がある。嬭恋ではこれらの元素の濃度上昇は見られなかった。

2016年5月16日に前橋においてPM_{2.5}が比較的高い値を示し、SO₄²⁻、NO₃⁻、NH₄⁺成分が大きく増加していた。この日は平均風速が0.8 m/sと春の他の日(1.4～2.2 m/s)よりも低かったことから、大気拡散が起こりにくい状況下で、NH₄(SO₄)₂やNH₄NO₃の二次生成無機粒子が増加しPM_{2.5}の値が高くなった。

2016年10月20日は嬭恋でSO₄²⁻が最大値を示し、前橋でも同程度のSO₄²⁻が観測された。この日は、SO₄²⁻とともに石炭燃焼の指標であるAs、Pbが高くなっていた。後方流跡線解析(NOAA HYSPLIT Model)を行ったところ、東アジア大陸から気塊が輸送されており、越境汚染の影響を受けていたと推察される。

2016年10月30日は、前橋で秋の期間中でPM_{2.5}が最大となった日である。この日は、前橋においてOCとともにレボグルコサン(図4)が増加しており、バイオマス燃焼の影響が強ま

った結果と考えられる。

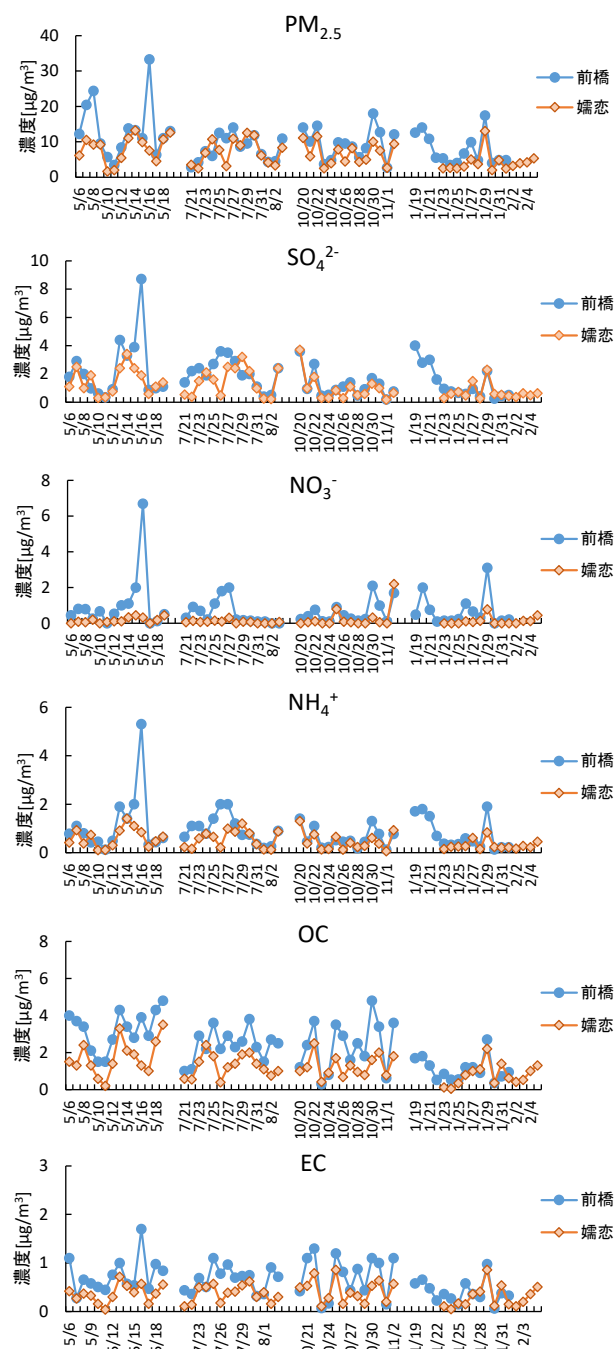


図2 PM_{2.5}および主要成分の濃度変動

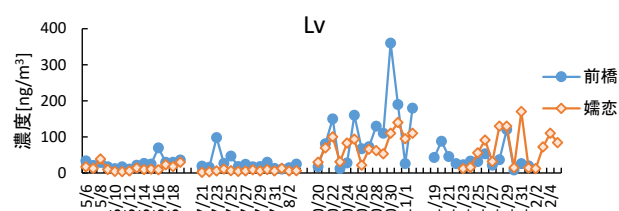


図3 PM_{2.5}中のレボグルコサン濃度変動

4. PM_{2.5}組成の経年変化

固定調査地点である前橋について、年間のPM_{2.5}平均組成の経年変化と質量濃度年平均値の推移を図4に示す。ここではOCはOAに変換せずそのまま図示していることに注意されたい。PM_{2.5}成分調査は、先述のとおり各季節2週間で実施しており、その期間の気象状況や高濃度イベントの発生状況によって必ずしもその年度の平均的な状況を示しているとは限らないため、自動測定機による通年測定で得られたPM_{2.5}年平均値（環境基準の長期評価に用いる値）を併せて示した。また参考データとして、前橋における2005年度、2009年度のPM_{2.1}測定結果（熊谷、2013）も示した。

成分調査期間のPM_{2.5}濃度はPM_{2.5}年平均値と比べると、年度によって若干の差はあるが、両者は概ね一致した。自動車排ガス規制が強化された頃の2005年度に比べると近年の濃度は低くなっている。2009年も含め2012年度以降は横ばいで推移し、2015、2016年度と2年連続で低下した。PM_{2.5}組成は、いずれの年度も主要成分はOC、EC、SO₄²⁻、NO₃⁻、NH₄⁺の5成分であった。2005年度と比較するとEC、SO₄²⁻、NO₃⁻が低下したことは明確であるが、近年は特定の成分が減少するような明確な傾向は見られておらず、2016年度も各成分が全体的に低い値となっていた。このことを考えると、2016年度は気象条件の影響で低かった可能性もある。実際に濃度が低下傾向にあるのかについては、今後の経年変化を注視していく必要がある。

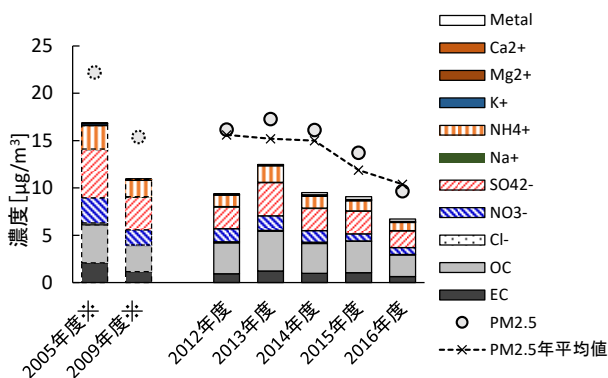


図4 前橋におけるPM_{2.5}平均組成の推移

図中の○プロットはPM_{2.5}成分調査で得られたPM_{2.5}質量濃度、×プロットは通年測定によるPM_{2.5}年平均値。

文献

- 気象庁，黄砂観測結果，http://www.data.jma.go.jp/gmd/env/kosahp/kosa_data_index.html
- 熊谷貴美代. 群馬県におけるPM_{2.5}汚染の特徴, 安全工学, 2013; **52**: 401-407.
- 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.
- 田子博, 梅田真希, 齊藤由倫, 熊谷貴美代. 群馬県における無機ガス調査 2016. 群馬県衛生環境研究所年報, 2017; **49**: 51-54.