

【報文】群馬県の微小粒子状物質質量濃度と

その低濃度域における自動測定機の特性

田子博

Particulate Matter Mass Concentrations in Gunma and its Validity in Low Concentration Range

Hiroshi TAGO

2017年度における群馬県内8地点のPM_{2.5}質量濃度についてまとめた。2016年度に引き続き、県内の全地点で環境基準の達成は維持されていた。年平均値も引き続き低下傾向が見られており、35 µg/m³を超過するような高濃度事象もほとんど見られなかった。

PM_{2.5}自動測定機は機種により特に低濃度域において、標準測定法と比較して低めあるいは高めの値を示す特性が見られた。近年のPM_{2.5}濃度の低下に伴い、この機種による特性の差が実大気中濃度の地域差よりも大きくなる可能性が示された。

Key words : 環境基準 Environmental Standard, 標準測定法 Federal Reference Method, 負値 Negative value

1. はじめに

2017年度における群馬県内8地点のPM_{2.5}質量濃度（特に断りのない限り、濃度は質量濃度の日平均値を指す）をとりまとめた。またデータの妥当性を確認するため、PM_{2.5}/SPM比による検証、および一部地点だが、標準測定法と自動測定機とのPM_{2.5}濃度の比較も行った。

PM_{2.5}濃度は全国的に低下傾向にあり、群馬県も例外ではない。このため、一般的には数µg/m³と言われている自動測定機の「測定下限値」付近での測定が多くなると予想され、この時の測定値の信頼性に問題が出る可能性がある。濃度が低い場合には、その値が多少信頼性を欠いたとしても、濃度が高い時と違って住民の生活や社会にはさほど影響は与えないであろう。しかし、年平均値への影響は否定できず、複数の測定局間で相互比較を行った場合に周辺環境と整合しない結果が得られ（田子ら、2018）、その説明に苦慮する可能性もある。今回はこの点にも焦点を当てて考察を行った。

なお、本報告では日平均の環境基準である

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	DUB-357C(東亜DKK、2016)	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	PM711(紀本電子工業、2015)	FH62C14(東京ダイレック、2012)
沼田	DUB-357C(東亜DKK、2016)	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)
嬭恋	PM712(紀本電子工業、2013)	PM712(紀本電子工業、2013)

35 µg/m³を超過した場合を高濃度、5 µg/m³未満の場合を極低濃度と定義する。

2. 測定地点と測定機種

測定地点については既報（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。2017年度においては機器の更新は行われず、2016

表 2 各地点における環境基準達成状況（2017 年度）

測定局	有効	年平均値	日平均値の 年間 98%値	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	短期基準 超過の有無	環境基準
	測定日数			(日)	(%)			
前橋	363	9.8	24.6	0	0.0	○	○	○
桐生	361	12.4	27.7	0	0.0	○	○	○
太田	359	12.3	26.8	0	0.0	○	○	○
沼田	360	9.8	24.5	0	0.0	○	○	○
館林	362	13.6	30.0	2	0.6	○	○	○
富岡	362	7.9	21.5	0	0.0	○	○	○
吾妻	363	8.9	24.3	0	0.0	○	○	○
嬭恋	363	8.8	23.5	0	0.0	○	○	○

年度末と同じ機器が継続使用されている。

標準測定法（秤量法）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、2017 年度に行った前橋と桐生の結果（n = 111）を用いた。この採取時間は 10 時～翌日 10 時（24 時間）であり、これと比較する自動測定データも当該時間の平均値とした。

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。有効測定日数は最も少ない太田でも 359 日が確保されており、年間を通して良好な測定が行われていた。環境基準は 2016 年度に引き続き 8 局全局で達成された。

年平均値は全体の傾向として、年々低下しており、最も高い館林でも 13.6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ と基準値である 15 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ をある程度の余裕を持って下

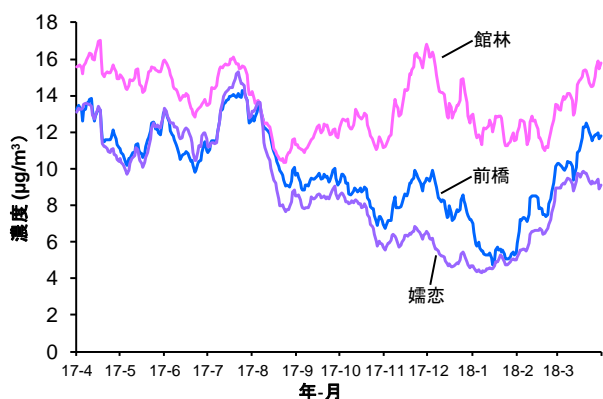


図 1 PM_{2.5} 濃度変化（30 日移動平均）

回っていた。また、2017 年度は年平均値が低下しただけでなく、高濃度日の出現も少なく、館林で 2 日あっただけであった。

濃度の低下は全国的なもので、これを気象条件だけで説明するのは困難であり、前駆物質を含む PM_{2.5} 発生量が低下したと考えるのが妥当と思われる。特に中国における排出量の低下が濃度低下に大きく貢献していると報告されており（鶴野ら、2017）、実際に中国では PM_{2.5} だけでなく SO₂ や NO_x などの排出量も低下している（Fu et al., 2017）。しかしながら、中国が大気汚染規制緩和に踏み切ったという動きもある（例えば日本経済新聞、2018）ため、国内における PM_{2.5} 対策の重要性がなくなっただけではない。

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 30 日移動平均値として図 1 に示す。前橋、館林、嬭恋はそれぞれ郊外、市街地、バックグラウンド（BG）の代表で、他の地点は富岡（後述）を除いて概ねこれらの間の濃度となり、その挙動も同様であった。群馬県内での PM_{2.5} 濃度の季節変動をみると、暖候季には全体的に濃度が高く、秋口に低下する。冬季は都市部での濃度上昇が見られ、こうした濃度変動は 2016 年度にも認められた。非常に荒い見立てであるが、群馬県の PM_{2.5} 濃度は、暖候季は広域汚染と光化学反応による二次生成、寒候季は地域的な一次排出の影響が大きいと考えられる。群馬県内で比較的濃度の高い都市部の環境基準が継続的に達成されるには、

この冬季における濃度上昇を抑えることが重要となる。

図 1 には示していないが、富岡の PM_{2.5} 濃度は嬭恋よりも低い値で推移することが多く、特に低濃度の期間においてはその差が大きくなり、結果として年平均値が嬭恋より低かった（表 2）。富岡は小規模な市であるが、測定地点はその中心部に近く、周辺状況から富岡が BG である嬭恋よりも低い濃度とは考えにくい。つまり、この両地点では周辺状況と PM_{2.5} 濃度の間に「逆転現象」が見られた。この原因については 3.2. で考察する。

県内 8 地点における PM_{2.5} 濃度分布状況を一覧にまとめたものが表 3 である。高濃度日は白抜き文字で示し、それを含む期間および高濃度には達しなかったが、それに近い状況となった期間をイベント A～D として表中に記載した。高濃度日は延べ 2 日間と 2016 年度（20 日）より大幅に少なかった。

高濃度となったイベント B（11/8）、C（12/24）時は関東平野の中央から東寄り（埼玉県東部～茨城県南部）を中心に高濃度となり、群馬県ではそれに近い県東～南部で濃度が上昇した。一方で、そこから遠い県北～西部では低濃度の地点が多く、BG の嬭恋ではほとんど濃度上昇は認められない状況であった。いずれもバイオマス燃焼等の地域的な汚染に、汚染物質が停滞しやすい気象条件が重なって引き起こされた高濃度事象と考えられた（梅田ら、2018、関東地方大気環境対策推進連絡会、2019）。イベント A（5/30～5/31）は西日本を中心に高濃度となった事例で、日本上空で空気が滞留しやすかった気象条件と越境汚染が近接して起こったことが原因と考えられている（森ら、2018）。群馬県内でも BG の嬭恋を含めてほぼ一様に濃度の上昇が認められており、広域汚染を支持している。イベント D（3/28～3/29）については山村ら（2018）が解析を行っており、越境汚染に加え国内の汚染物質が蓄積したことによるものと報告している。このイベントでは東京湾岸周辺での濃度上昇が大きく、3 月としては記録的な暑さとなり、光化学反応による二次生成も促進されたと考えられた（関東地方大気環境対策推進連

表 4 各地点における PM_{2.5}/SPM 比（2017 年度）

	濃度 (μg/m ³)		PM _{2.5} /SPM
	PM _{2.5}	SPM	
前橋	9.8	12	0.84
桐生	12.4	16	0.76
太田	12.3	17	0.71
沼田	9.8	12	0.84
館林	13.6	18	0.75
富岡	7.9	13	0.62
吾妻	8.9	12	0.76
嬭恋	8.8	11	0.78

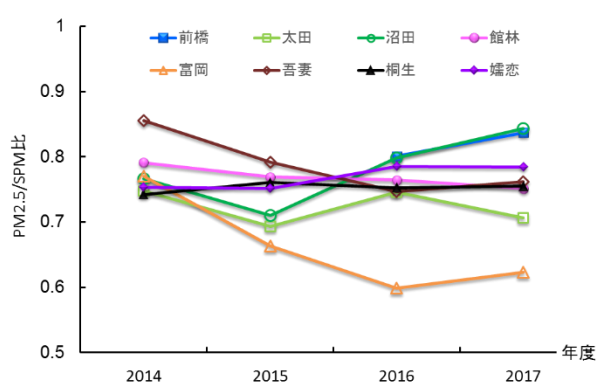


図 2 PM_{2.5}/SPM 比の推移

絡会、2019)。

以上から、2017 年度の高濃度事象 4 事例のうち 3 事例は地域汚染によって引き起こされており、国内における対策の必要性が改めて示された。

3.2. 測定値の妥当性検討

2017 年度の各地点における PM_{2.5} および SPM 濃度の年平均値と、ここから求めた PM_{2.5}/SPM 比を表 4 に、その推移を図 2 に示した。なお、2014、2015 年度の前橋においては SPM 計の不具合が確認（田子ら、2016）されたため、これらは図 2 から除いてある。著者らは前報（田子ら、2018）で、富岡における PM_{2.5} 濃度の値が低く測定された可能性を指摘した。2016 年度同様、2017 年度も富岡における値は PM_{2.5}/SPM 比、年平均値の両方ともに低い状況（表 4）が継続していた。装置の運転状況および周辺の状況にも変わりはないことが確認されている。

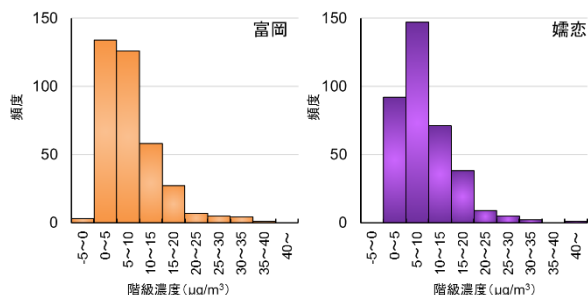


図3 PM_{2.5}濃度日平均値のヒストグラム (2016年度)

富岡におけるPM_{2.5}の測定値を検証するために、PM_{2.5}/SPM比が最も小さかった2016年度の富岡と比較対象として孺恋のデータを詳細に検討した。図3は富岡と孺恋の日平均値のヒストグラムである。10 µg/m³を越える濃度域では両地点の分布は似ていたが、富岡では0~5 µg/m³の階級が最も多くなっている点が大きく異なっていた。さらに、孺恋では見られなかった日平均値がマイナス（以下、負値）となる事例も散見された。図には示していないが、富岡と同じ機種を使用し、比較的濃度の低い地域である吾妻も富岡と似た濃度分布を示した。

次に日平均値が負値を含む極低濃度となった日（富岡：135日、孺恋：97日）を抽出し、その1時間値の分布状況を図4に示した。両地点において分布の形は似ているが、富岡の方がピークが低濃度（マイナス）側に寄っている。1日あたりの負値出現数も富岡（平均4.1個）の方が孺恋（平均1.4個）より有意に（ $p < 0.01$ ）多かった。負値の出現は自動測定機の

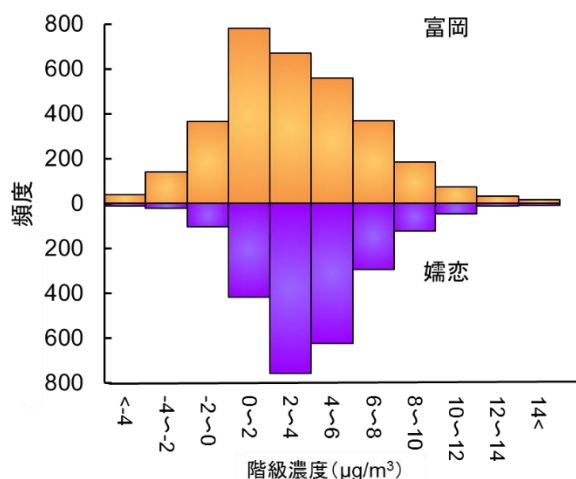


図4 日平均値が極低濃度時における1時間値の分布

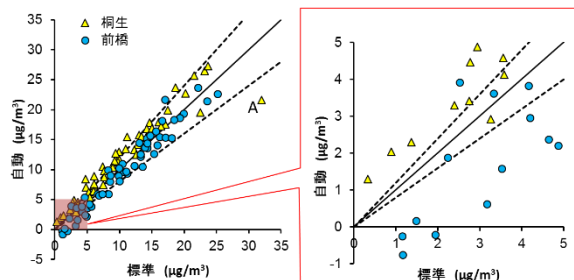


図5 標準測定法と自動測定機によるPM_{2.5}濃度の比較

測定精度を反映している（板野ら、2015）と考えられるため、極低濃度域においては富岡の機器の測定精度は孺恋のそれよりもやや劣るかもしれない。また、標準測定法との等価性が担保されているならば、負値の出現と同程度の正方向の誤差を含んだ時間値も出現しているはず（板野ら、2015）であるが、図4からはそのような傾向は認められない。したがって、日平均値が極低濃度である場合においては、富岡で使用している個体は等価性が認められない可能性もある。

3.3. 標準測定法と自動測定機の比較

季節毎に行われたPM_{2.5}成分分析（2017年度は前橋と桐生で実施）期間のPTFEフィルターの質量測定（標準測定法）と自動測定機から求めた質量濃度を比較し、地点別にプロットしたのが図5である。なお、図5右は図5左における極低濃度域を拡大したものである。また、図の実線は標準法と自動測定機の値が一致した場合、点線は自動測定機が標準法より20%大きい（小さい）場合をそれぞれ示している。

標準法と自動測定機の値は概ね一致（図5左）しており、これまでの結果（田子ら、2017、田子ら、2018）とは異なり、両者に有意差は認められなかった。大きく外れたA点（桐生の春期）については、強風下での測定値であった。桐生における測定点は小学校校庭の隅にあり、この強風時にはちょうど風下にあっていた。このため、校庭からの土壌粒子の影響を直接受けたと考えられた。こうした状況では両者の値に乖離が生じることはこれまでと同様（田子ら、2018）であり、土壌の

巻き上げの影響が大きい状況下では分級器の構造上、必ずしも測定値が一致しないのはやむを得ないのかもしれない。

全体としては標準法と自動測定機の測定値に有意差は認められなかったが、濃度が低い場合、標準法も測定精度的に難しい領域ではあるが、プロットの分布は前橋と桐生で系統的な違いが見られた(図5右)。この図から前橋は標準法の測定値より低濃度側に、桐生は高濃度側に自動測定機の測定値が分布していることがわかる。前橋と富岡、桐生と嬭恋はそれぞれ同じ測定機を使用している(表1)。前節での議論を踏まえると、富岡、吾妻に加え前橋においても少なくとも濃度が低い時には測定値が低めに示される傾向があることがわかった。つまり、東亜 DKK 社製の装置で測定している全ての地点が同じ傾向を示したことから、これを測定機種種の「特徴」と考えることは不自然ではないだろう。

一方で、桐生で使用している紀本電子社製の装置は前橋の装置とは逆に極低濃度時には高めの値を示している。桐生と同じ装置で測定している嬭恋の測定値が高めに示されている可能性も十分に考えられる。

これまで述べてきた、極低濃度では東亜 DKK 社製は低めの、紀本電子社製は高めの測定値が示される傾向は、環境省が行った空試験の結果(環境省、2018)からも支持されている。同試験によると、空試験を行った結果、平均の指示値は東亜 DKK 社製と紀本電子社製でそれぞれ、 $-1.82 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、 $0.37 \mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。この空試験は各メーカーの平均値であるが、群馬県が装置の維持管理の一貫で2019年1月～2月に行った空試験結果も同傾向(富岡： $-0.72 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、嬭恋： $0.45 \mu\text{g}/\text{m}^3$)であった。測定に全く誤差を含まなければ、 $0 \mu\text{g}/\text{m}^3$ となるはずなので、非常に単純に考えれば、富岡の装置は嬭恋の装置より $1\sim 2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 程度低い値を示すことになる。両地点の年平均値の差は $0.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$ であるので、この濃度の逆転現象は装置の特徴で説明しうる。

以上から、 $\text{PM}_{2.5}$ の濃度低下に伴い、周辺状況の差よりも測定機種差の方が測定値に及ぼす影響が大きくなり、これが富岡と嬭恋にお

ける濃度の逆転現象として顕在化した可能性が高いことがわかった。

4. 結 言

2017年度も2016年度に引き続き、群馬県が装置を設置している全8地点で $\text{PM}_{2.5}$ は環境基準を達成した。高濃度事象は激減し、延べ2日とこれまでで最も少なかった。冬季において都市部を中心に地域汚染と思われる濃度上昇があり、これを抑制することが環境基準達成を継続する上で重要と思われた。

富岡と嬭恋における $\text{PM}_{2.5}$ 濃度の逆転現象は2016年度に引き続き、2017年度でも認められた。測定値の精査と空試験結果から、特に低濃度時において、富岡の測定機は低めの、嬭恋の測定機は若干高めの数値を示すという特徴があることがわかった。その特徴による影響が $\text{PM}_{2.5}$ 濃度の低下に伴い顕在化し、地点間の差よりも強くなった結果、濃度の逆転現象が起こったと考えられた。

謝 辞

粒子状物質の測定データは群馬県環境保全課が測定・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

- Fu, X., Wang, S., Xing, J., Zhang, X., Wang, T. and Hao, J. 2017. Increasing Ammonia Concentrations Reduce the Effectiveness of Particle Pollution Control Achieved via SO_2 and NO_x Emissions Reduction in East China. *Environ. Sci. Technol. Lett.*, **4** (6):221-227.
- 板野泰之, 日置正, 菅田誠治, 大原利眞. 2015. $\text{PM}_{2.5}$ 質量濃度測定データを用いた自動測定機による時間値の測定精度評価の試み. 大気環境学会誌, **50**:123-129.
- 環境省. 2018. 微小粒子状物質($\text{PM}_{2.5}$)質量自動測定機の運用について(別紙). <http://www.env.go.jp/air/osen/pm/ca/180327C/besshi.pdf>. (2019年7月9日閲覧)

- 関東地方大気環境対策推進連絡会. 2019. 平成29年度微小粒子状物質合同調査報告書. 62-70.
- 森育子, 梅津貴史, 木戸瑞佳, 牧野雅英, 石川千晶, 北見康子, 飯島史周, 梅田真希, 長谷川就一, 堀本泰秀, 武田麻由子, 中込和徳, 西山亨, 中坪良平, 高林愛, 久恒邦裕, 山村由貴, 山口新一, 菅田誠治. 2017年5月におけるPM_{2.5}高濃度事例の解析②. 第59回大気環境学会年会講演要旨集, 2018:327.
- 日本経済新聞電子版 2018年12月3日付け. <https://www.nikkei.com/article/DGXMZO38474010T01C18A2FF2000/> (2019年7月9日閲覧).
- 田子博, 梅田真希. 2016. 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. **48**:19-27.
- 田子博, 梅田真希, 熊谷貴美代. 2017. 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). 群馬県衛生環境研究所年報. **49**:34-39.
- 田子博, 梅田真希, 熊谷貴美代. 2018. 群馬県における粒子状物質質量濃度 2016. 群馬県衛生環境研究所年報. **50**:21-26.
- 梅田真希, 吉田勤, 北見康子, 飯島史周, 長谷川就一, 堀本泰秀, 木戸瑞佳, 牧野雅英, 池盛文数, 西山亨, 高林愛, 西村理恵, 中坪良平, 金津雅紀, 中川修平, 中村悦子, 土肥正敬, 菅田誠治. 2018. 2017年11月におけるPM_{2.5}高濃度事例の解析①. 第59回大気環境学会年会講演要旨集. 328.
- 鵜野伊津志, 王哲, 弓本桂也, 板橋秀一, 長田和雄, 入江仁士, 山本重一, 早崎将光, 菅田誠治. 2017. PM_{2.5}越境問題は終焉に向かっているのか? 大気環境学会誌, **52**:177-184.
- 山村由貴, 松本弘子, 山口新一, 金津雅紀, 中坪良平, 山本真緒, 西村理恵, 山本真緒, 寺本佳宏, 池盛文数, 木戸瑞佳, 石井克巳, 長谷川就一, 熊谷貴美代, 飯島史周, 北見康子, 石川千晶, 梅津貴史, 菅田誠治. 2018. 2018年3月におけるPM_{2.5}高濃度事例の解析. 第59回大気環境学会年会講演要旨集. 379.

