

群馬県における無機ガス調査 2018

田子博 梅田真希* 齊藤由倫 熊谷貴美代

Inorganic Gases Monitoring in Gunma, FY 2018

Hiroshi TAGO, Maki UMEDA*, Yoshinori SAITOH, Kimiyo KUMAGAI

1. はじめに

二酸化硫黄、硝酸、アンモニア等の無機ガス類は大気中で反応して粒子化するため PM_{2.5} の前駆物質の一つである。このため、我々は PM_{2.5} 成分分析の常時監視に合わせてこれらの無機ガス類のモニタリングを行っている。ここでは 2018 年度の測定結果を中心に報告する。

2. 調査方法

無機ガスの採取は PM_{2.5} の成分分析常時監視と同一地点、期間（表 1）であり、2018 年度は前橋および吾妻一般局で行った。前橋一般局（以下、前橋）は前橋市（人口約 334,000 人）郊外の群馬県衛生環境研究所敷地内で、周囲には田畑が広がっている。吾妻一般局（以下、吾妻）は東吾妻町（人口約 14,000 人）の中心部に近い東吾妻町立東吾妻中学校の南西端にある。周辺は小規模な畑および住宅地があり、PM_{2.5} に直接影響を及ぼす固定発生源は存在しない。また、南東 150 m に国道 145 号線（10,000 台/日）があり、これに沿って各種店舗が点在している典型的な農村都市の様相を示している。

調査は既報（田子ら、2016）と同様の方法（FP 法）で行った。測定項目は、二酸化硫黄、硝酸、アンモニア、塩化水素のガス状物質と粒子状物質（全粒径）である。ここでは二酸化硫黄、硝酸ガス、アンモニアガス（以降、これらをまとめて無機ガスと呼ぶ）を中心に論ずる。濾紙交換は PM_{2.5} 採取装置の点検時に行い、その間隔は 2~4 日間であった。吾妻については 10 ライングローバルサンプラー GS-10（東京ダイレック）を用い、全自動にてサ

表 1 サンプルング期間とサンプル数

季節	期間	サンプル数
春	2018/5/9-23	6
夏	2018/7/19-8/2	5
秋	2018/10/18-11/1	5
冬	2019/1/17-1/31	5

ンプルングした。濾紙交換日時は前橋と吾妻で揃えてある。その他、詳細については既報（田子ら、2016）に記述したとおりである。

3. 結果

3.1. 地点・季節別濃度

前橋、吾妻における無機ガスおよび対応する粒子濃度を季節別の平均値として図 1 に示した。これらの平均濃度は大気吸引量を加味した加重平均として求めた。

SO₂、SO₄²⁻は暖候期（春～夏）に高く寒候期（秋～冬）に低かった（図 1 上）。SO₄²⁻はほとんど地域差が認められず、関東およびその周辺地域と比較しても同様の濃度（全国環境研協議会、2018）であった。SO₂ は前橋で高いが、冬季のみ吾妻の方が高かった。前橋と比較して寒冷地である吾妻では、暖房による影響が大きいこともあるが、吾妻測定地点の北西約 30 km には噴火警戒レベル 2（測定当時）の草津白根山があり、冬季観測期間は北～西風が卓越していたため、火山の影響が表れている可能性が考えられる。春～秋については、前橋は吾妻の約 2 倍の濃度であり、これは周辺の人間活動の違いもあるが、関東南部からの移流の影響が前橋では吾妻より顕著に表れたと考えられる。

HNO₃ は特に夏季で前橋 > 吾妻となってい

*現 西部森林環境事務所

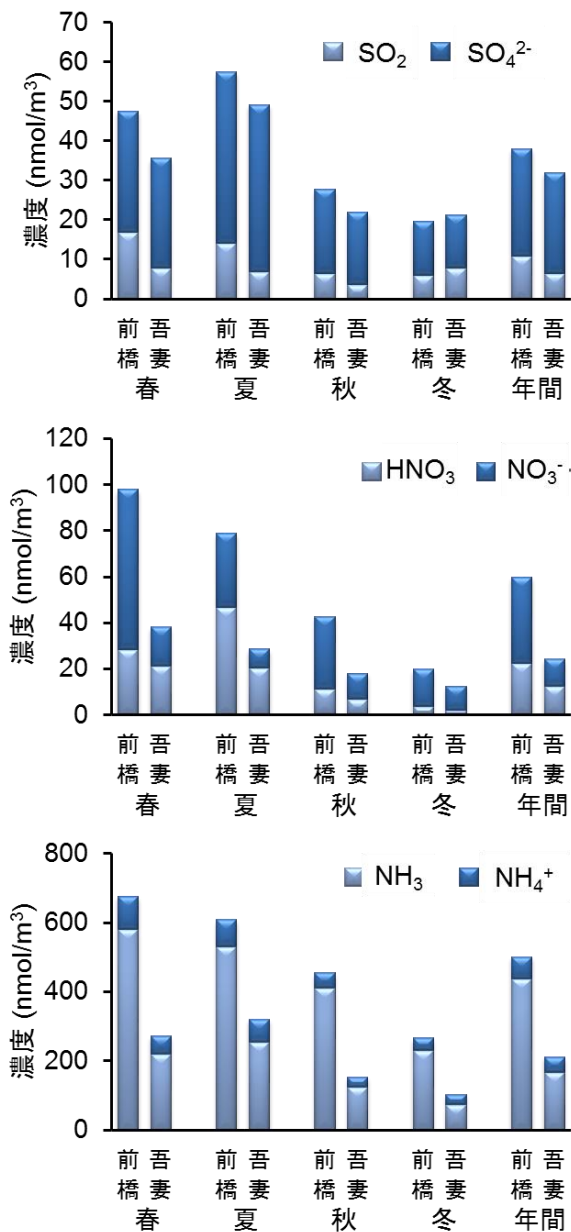


図1 季節別ガス/粒子濃度

上：SO₂+SO₄²⁻、中：HNO₃+NO₃⁻ 下：NH₃+NH₄⁺

た(図1中央)。全国環境研協議会(2018)および環境省(2018)のデータからHNO₃とその前駆物質であるNO_x濃度の相関は必ずしも高くないが、前橋のNO_x濃度は吾妻の2倍程度(自動測定機による常時監視結果)で推移していることから、図1の結果は不自然ではない。

NH₃は両地点間で顕著な差が見られ(図1下)、吾妻のNH₃(年平均値：167 nmol/m³)は前橋(年平均値：437 nmol/m³)と比較すれば半分以下であった。しかし、2016年度の全国の中央値が82.7 nmol/m³(全国環境研協議会、2018)であることを考えると、吾妻でも

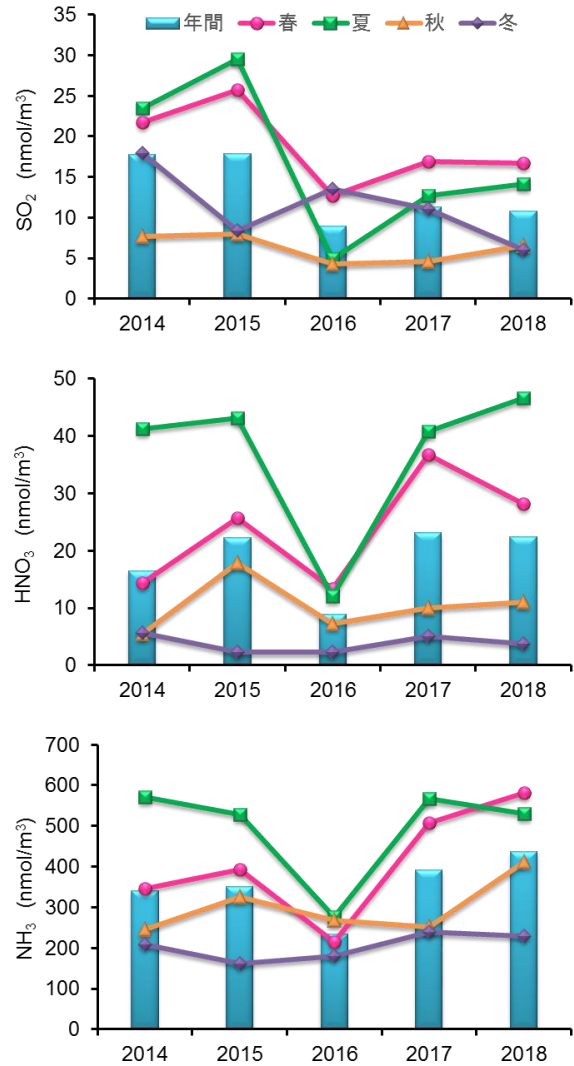


図2 2014~2018年度における無機ガスの季節別濃度推移(前橋)

上：SO₂、中：HNO₃、下：NH₃

その2倍以上であり、決して低いわけではなかった。季節変動は両地点ともに暖候期に高く、寒候期に低くなっており、農業の影響が大きい地域の典型的なものであった。また、他の物質と異なり、季節を通してガスでの存在割合が高かった。

3.2. 無機ガスの経年変化

図2には前橋における季節別無機ガス濃度を2014~2018年度の5年分、年平均値とともに示した。2018年度はいずれも過去4年間の変動の範囲内の濃度と考えられた。SO₂に関しては2016年度以降、特に夏季における濃度低下が比較的大きく、このため年間平均値も低下したように見える。しかし、我々が別に行っている通年観測の値からはそのような傾向は

認められておらず（坂本ら、2019）、本調査では特に夏季においてサンプリング期間の偏りの可能性がある。

図2からNH₃は増加傾向にあり、これは通年調査でも同様であった（坂本ら、2019）。大気中NH₃濃度の上昇は世界的にも中国、米国中西部、西欧州等、農業が盛んな地域で観測されており（Warner et.al, 2017）、その原因はNH₃排出量の増加ではなく、SO₂あるいはNO_xの濃度低下による影響が大きいという報告（Butler et. al, 2016, Warner et. al, 2017, Liu et. al, 2018）がなされている。日本の場合、2013頃年までは大気中NH₃濃度は減少傾向（横山ら、2019、坂本ら、2019）で、その要因は排出量の減少（横山ら、2019）と報告されている。我々の観測でも2013年前後からNH₃濃度が増加に転じているが（坂本ら、2019）、最近10年ほどの日本の状況を考えると、中国のようにSO₂やNO_x濃度が急激に低下しているわけではないため、NH₃濃度増加の原因をSO₂やNO_x濃度低下だけに求めることは難しいと思われる。効果的なPM_{2.5}削減のためにはSO₂やNO_xだけでなく、NH₃の削減も重要であり（Fu et al., 2017）、NH₃の挙動には今後も注視していく必要がある。

PM_{2.5}濃度は低下傾向にある（関東地方大気環境対策推進連絡会、2019、田子ら、2019）にもかかわらず、その前駆体とされる無機ガス濃度には低下傾向は認められていない。また、PM_{2.5}中の特定の成分が減少したわけではなく、各成分が全体的に減少している（熊谷ら、2019）。つまり無機ガス濃度は減少していないのに、PM_{2.5}中のSO₄²⁻やNO₃⁻は若干減少しており、この減少が何に起因するかは今のところ未解明のまま残っている。

4. まとめ

前橋および吾妻において大気中無機ガスの測定を行った。両地点は直線距離で30 km程度しか離れていないが、吾妻は関東平野から外れており、都市規模も異なることから、概ね前橋の濃度が高い結果となった。PM_{2.5}濃度が低下しているのとは対照的に無機ガス濃度は横ばいあるいは増加傾向であった。これにつ

いては通年調査とともにその推移を注視していきたい。

文 献

- Butler, T., Vermeylen, F., Lehmann, C.M., Likens, G.E. and Puchalski, M. 2016. Increasing ammonia concentration trends in large regions of the USA derived from the NADP/AMoN network. *Atmos. Environ.* **146**:132-140.
- 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 SO₂ and NO_x Emissions Reduction in East China. *Environ. Sci. Technol. Lett.* **4** (6):221-227.
- 環境省. 2018. 平成28年度大気汚染状況報告書. p 232-261.
- 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. p 108-118. <http://kanto-spm.org/results/> (2019年7月9日閲覧)
- 熊谷貴美代, 齊藤由倫, 田子博. 2019. 群馬県におけるPM_{2.5}成分の地域特性と経年変化. 群馬県衛生環境研究所年報, **51**:27-32.
- Liu, M., Huang, X., Song, Y., Xu, T., Wang, S., Wu, Z., Hu, M., Zhang, L., Zhang, Q., Pan, Y. and Zhu, T. 2018. Rapid SO₂ emission reduction significantly increase tropospheric ammonia concentrations over the North China Plain. *Atmos. Chem. Phys.* **18**:17933-17943. <https://doi.org/10.5194/acp-18-17933-2018>. (2019年7月16日閲覧)
- 坂本祥一, 田子博. 2019. 2014~2018年度前橋における酸性雨調査. 群馬県衛生環境研究所年報, **51**:50-53.
- 田子博, 木村真也, 一条美和子, 齊藤由倫, 熊谷貴美代. 2016. 群馬県における無機ガス調査. 群馬県衛生環境研究所年報, **48**:38-43.
- 田子博. 2019. 群馬県の粒子状物質質量濃度とその低濃度域における信頼性. 群馬県衛生環境研究所年報, **51**:20-25.
- Warner, J.X., Dickerson, R.R., Wei, Z., Strow, L.L., Wang, Y., and Liang, Q. 2017. Increased atmospheric ammonia over the world's major

agricultural areas detected from space. *Geophys Res Lett.* **44(6)**:2875-2884.

横山新紀, 山口高志, 藍川昌秀, 向井人史. 2019. 日本におけるアンモニアガスおよび粒子状アンモニウム濃度の長期変化, 大気環境学会誌. **54**:75-83.

全国環境研協議会. 2018. 第 6 次酸性雨全国調査報告書 (平成 28 年度). 全国環境研会誌. **43 (3)**:79-119.