

市原岩崎西局における PM_{2.5} 高濃度予測に基づく測定

－国立環境研究所 II 型共同研究

PM_{2.5} の環境基準超過をもたらす地域的/広域的汚染機構の解明－

石井克巳 堀本泰秀 市川有二郎

1 はじめに

PM_{2.5} のように地域的にも広域的にも汚染を受けると考えられる大気汚染物質については、共通の手法を用いて全国的な比較検討を行うことが重要であり、国立環境研究所と地方環境研究所による II 型共同研究(研究開始当初は C 型研究)が継続的に実施されてきた。

当センターにおいては、PM_{2.5} と光化学オキシダントを対象とした第 4 期研究(2010～2012 年度)、第 5 期研究(2013～2015 年度)に参加し成果を得てきた。2016 年度からは第 5 期研究を継続・発展させた第 6 期研究(PM_{2.5} の環境基準超過をもたらす地域的/広域的汚染機構の解明:2016～2018 年度)が始まり、引き続き参加している。本共同研究ではいくつかの研究グループが設定されており、当センターではその中の高濃度解析グループに参加し、PM_{2.5} 高濃度予測を元にした一斉共同試料採取とその試料の成分分析を実施した。

2 調査方法

2・1 PM_{2.5} 高濃度予測時の一斉共同試料採取及び成分分析

毎日データ更新されている PM_{2.5} 濃度予測シミュレーション(VENUS 及び SPRINTARS)を元に、複数の地域で日平均環境基準を超過する PM_{2.5} 濃度が想定された場合、連絡担当者(当番制)が共同研究者へメーリングリストによる試料採取情報を提供し、情報を受けた共同研究者は可能な範囲で採取を実施することとした。なお、常時監視成分分析期間(四季ごと、2 週間)は、一斉共同試料採取は休止とした。

一斉共同採取した試料のうち、特に高濃度または広域的な汚染が観測されたケースについて、高濃度事例として成分分析を実施し詳細解析を行うこととした。

2・2 当センターにおける対応

試料採取情報の提供に対し、できるだけ試料を採取する方針で対応した。試料採取及び成分分析条件を以下に示した。

- ・測定地点：当センター本館屋上(市原市岩崎西)
- ・試料採取装置：FRM2025i 2 台
- ・使用フィルター：PTFE および石英
- ・試料採取時間：24 時間採取(10 時開始)
- ・質量濃度：温度 21.5±1.5℃、相対湿度 35±5% の条件下で秤量
- ・成分分析

①無機 PTFE フィルター：

ICP-MS(31 元素:成分分析ガイドライン記載の 30 種から Si を除き、Be、Cd を追加)
蛍光 X 線(1 元素: Si)

②イオン 石英フィルター：IC

③炭素 石英フィルター：

熱分離・光学補正式炭素分析計、TOC 計

④レボグルコサン 石英フィルター：GC-MS、一部試料については、グループ一括の IC-MS による分析(大阪市立環境科学研究所に依頼)

3 結果

3・1 試料採取状況と高濃度事例

高濃度解析グループとしての活動を開始した 2016 年 8 月から 2017 年 3 月までの高濃度予測及び試料採取の日数を表 1 に示した。高濃度予測(全地域)が出さ

表 1 高濃度予測及び試料採取の日数

高濃度予測日数(全地域)	123
高濃度予測日数(関東を含む)	72
試料採取日数	112

れた9割以上の日数で試料採取を実施した。また、高濃度予測（全地域）のうち関東地方を含んだ予測日数は6割程度であった。

一斉共同試料採取を実施した期間のうち、高濃度事例として詳細解析を行うために選んだ期間とPM_{2.5}濃度（当センター敷地内の市原岩崎西局自動測定機の値）を表2に示した。なお、期間の一部には高濃度予測されていないが、その前後として解析対象となっている日も含まれている。

表2 高濃度事例詳細解析対象とした期間

期間	年	開始日 (10時～)	終了日 (～10時)	採取 試料数	期間中のPM _{2.5} 日平均濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	
					平均値	最大値
①	2016	8/12	8/17	5	7.7	9.0
②		8/31	9/3	3	14.9	19.1
③		9/10	9/13	0	8.4	9.2
④		11/3	11/7	4	14.1	20.8
⑤		12/8	12/15	4	13.3	27.7
⑥		12/18	12/23	6	20.3	37.3
⑦	2017	2/13	2/19	4	10.7	20.6
⑧		3/19	3/22	3	24.2	42.3

対象期間のうち、期間⑥および期間⑧において日平均値環境基準を超過する高濃度PM_{2.5}が観測されたことから、この両期間について測定結果を示す。

3・2 PM_{2.5}の全国の状況

高濃度事例における汚染の地域（都道府県スケール）及び経時的な変遷の状況を示すため、PM_{2.5}濃度の常時監視測定局の1時間値が35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超過した局の割合（%）を道府県ごとに色づけて図1に示した。高濃度解析グループ参加自治体が含まれている図中の21道府県は、上から下に向けてなるべく東から西へ並ぶように配置した。1時間値データは大気汚染物質広域監視システム（そらまめくん）の速報値を使用した。

期間⑥では、12/18午後には千葉・茨城で濃度上昇が始まり、12/19には近畿の一部でも濃度上昇の傾向が見られた。12/20の午前中に全体的に一旦低下傾向を示したが、午後になると北海道と東北の一部、関東～中部（愛知）～近畿で濃度上昇した。このうち関東南部が特に濃度が高かった。12/21～22は関東南部、北海道と東北の一部で高濃度傾向が引き続いたが、中部（愛知）～近畿

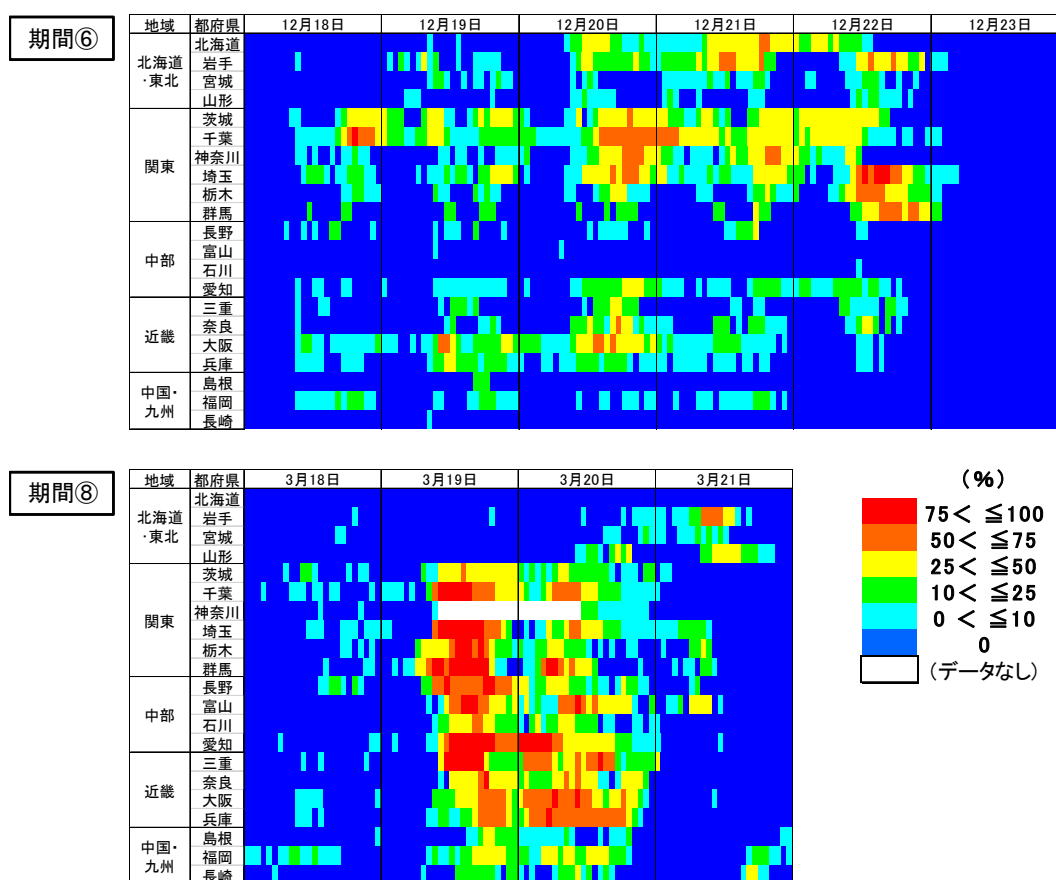
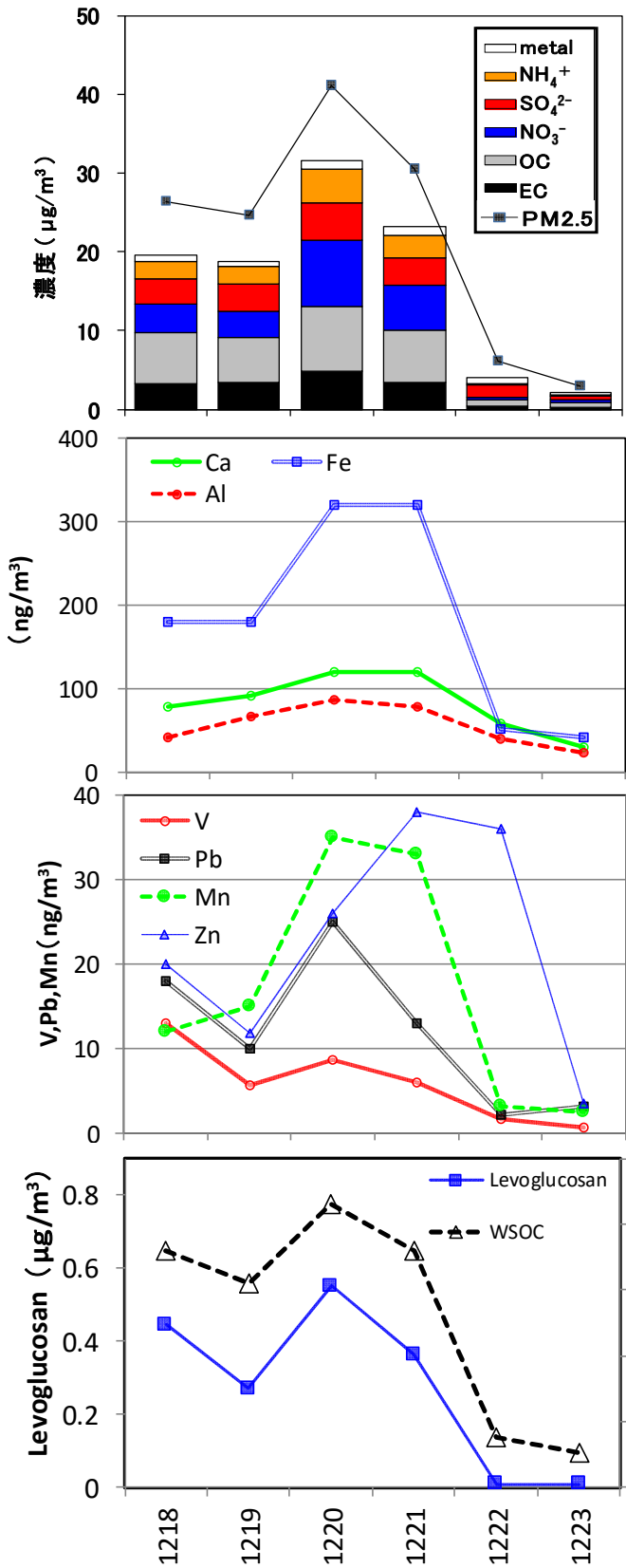


図1 PM_{2.5}の1時間値が35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超過した局の割合の推移

期間⑥ (2016/12/18~23)



期間⑧ (2017/3/18~20)

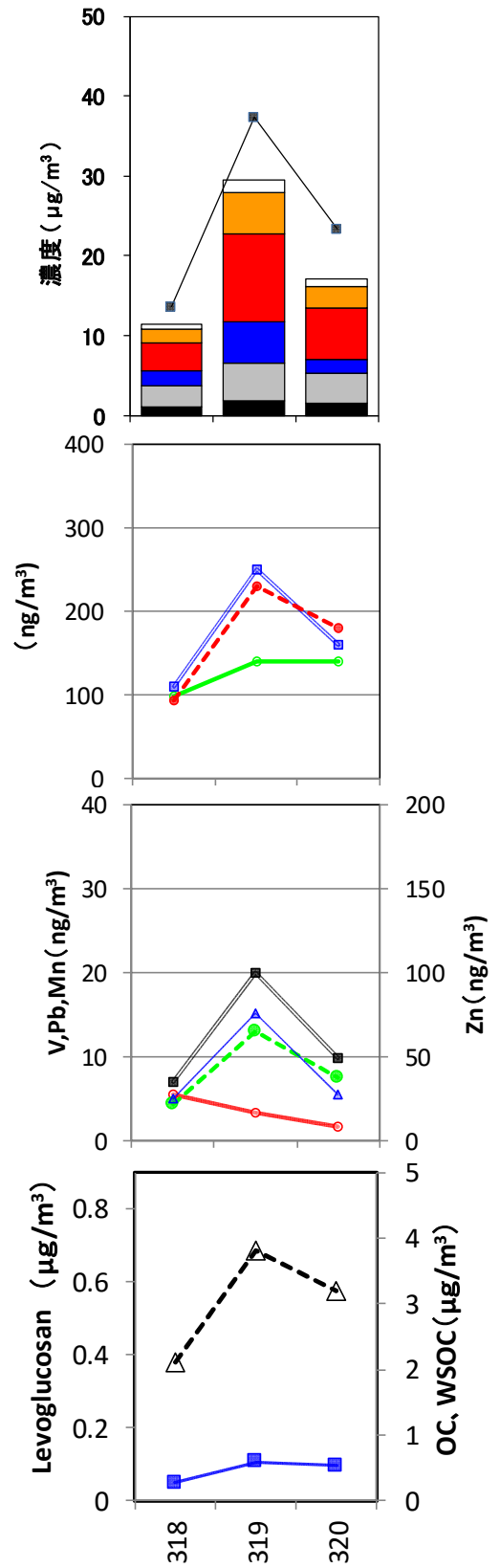


図2 主要な6成分、無機元素7成分及び有機2成分の濃度推移

は濃度が低下し、12/22の午後に埼玉～群馬が特異的に高濃度を示した。12/23に高濃度は全国的に終息した。期間を通すと南関東で全体的に高濃度が継続し、北海道・東北、関東北部および近畿で部分的な濃度上昇が生じていた。日本海側では濃度上昇がほとんど見られなかった。

期間⑧では、3/19午後から関東～九州で濃度上昇が始まり高濃度を示した。3/20は中部～近畿で高濃度が継続し、関東は3/19深夜から3/20早朝にかけて一旦低下してから日中に再び上昇した。3/20午後から夕方以降全国的に濃度低下し、東北での一部地域的な濃度上昇を除いて3/21に高濃度は終息した。期間⑧は関東～九州にかけて1日から1日半程度の高濃度が継続した事象であった。

3・3 成分分析

期間⑥、⑧について、主要な6成分(EC, OC, 硝酸イオン, 硫酸イオン, アンモニウムイオン, 無機元素の総計), 無機元素7成分(Al, Ca, Fe, V, Pb, Mn, Zn)及び有機2成分(WSOC, レボグルコサン)の期間中の濃度推移を図2に示した。なお、期間⑧については、解析対象の4日間のうち試料採取を実施した3日間の結果を示した。

3・3・1 期間⑥(2016/12/18～23)

期間内でPM_{2.5}濃度の高かった12/18～21では、主要な6成分でPM_{2.5}濃度の8割程度を占めた。その中でもOC濃度が最も高く20～25%を占め、次に濃度の高かった硝酸イオンは13～20%を占めた。この期間に成分の構成比には大きな変動はなかったが、最もPM_{2.5}濃度が高くなった12/20に硝酸イオン濃度比が最大値を示した。冬季においては夜間の高湿度条件下によるHNO₃生成からPM_{2.5}粒子が生成される機構が考えられている¹⁾。期間中には相対湿度90%以上の高湿度の状況があり、同様の現象が起こったことが推測された。

無機元素のうちAl, Ca, Fe, Pb, Mnは期間を通してPM_{2.5}とある程度の相関が見られ、これら元素の指標とされる土壌、道路粉じん、鉄鋼業の影響を受けていることが推察された。また、Vについては最も濃度の高かった12/18を除けばPM_{2.5}と良い相関があり、指標とされる石油燃焼の影響もを受けていると考えられた。

有機成分のWSOCとレボグルコサンは期間を通してPM_{2.5}と良い相関があり、レボグルコサン濃度は12/18～21に200ng/m³以上の高濃度を示した。レボグルコサンが指標として考えられているバイオマス燃焼の影響を受けていることが示唆された。

3・3・2 期間⑧(2017/3/18～20)

期間を通して主要な6成分でPM_{2.5}濃度の8割程度を占めた。その中でも硫酸イオン濃度が最も高く25～29%を占め、硝酸イオン、アンモニウムイオンと合わせて5割前後を占めた。成分としてはOCが2番目に濃度が高く13～20%を占めた。この期間に成分の構成比には大きな変動はなかったが、PM_{2.5}濃度の最も高かった3/19に硫酸イオン濃度比が最大値を示した。図1に示したようにPM_{2.5}は関東から九州の広範囲で濃度が高くなっており、広域的な汚染の影響が示唆された。

無機元素のうちAl, Fe, Pb, Mn, Znは期間を通してPM_{2.5}の濃度変動との一致性が見られ、これら元素の指標とされる土壌、道路粉じん、鉄鋼業の影響を受けていることが推察されたが、期間⑥と比較するとAl以外の元素濃度は低めであった。Vについては最もPM_{2.5}濃度の高かった3/19に濃度が上がらず石油燃焼の影響は少なかったと推察された。

有機成分のWSOCは期間⑧に近いレベルの濃度があったが、レボグルコサンは期間を通してあまり濃度は高くなく、バイオマス燃焼の影響は期間⑧に比べると少なかったと考えられた。

4 今後の予定

本共同研究は高濃度予測に基づき全国で20自治体以上が一斉共同試料採取を行っている。今後2018年度まで高濃度時試料採取と成分分析を蓄積し、データを集約した後、高濃度事象のメカニズムの解明に向けた全国レベルでの解析を行う。

1) 長谷川就一, 米持真一, 山田大介, 鈴木義浩, 石井克巳, 齊藤伸治, 鴨志田元喜, 熊谷貴美代, 城裕樹: 2011年11月に関東で観測されたPM_{2.5}高濃度の解析. 大気環境学会誌, 49, 242-251(2014).