

香川県における PM_{2.5} 大気環境調査について (VII)Analysis of Airborne PM_{2.5} in Kagawa Prefecture (VII)

佐々木 一貴 大島 千尋 勝間 孝
Kazuki SASAKI Chihiro OSHIMA Takashi KATSUMA

要 旨

香川県における PM_{2.5} の地域特性などの特徴を明らかにするために、平成 24 年度から令和 3 年度に観音寺市役所と香川県農業試験場満濃試験地で、PM_{2.5} 質量濃度、イオン、炭素、無機元素の成分分析調査を行った。

分析結果から、主要成分は硫酸イオン、硝酸イオン、アンモニウムイオン、有機炭素、元素状炭素であった。また、硫酸イオン、硝酸イオン、アンモニウムイオンによって形成される二次生成粒子の寄与が大きいと推測された。観音寺市役所における高濃度汚染は、二次生成粒子である硝酸アンモニウムによる局所的な汚染である可能性が高く、地形的な要因による硝酸エアロゾルの流入が大きく影響していると推測された。

Abstract

In order to identify and understand the characteristics of fine ambient particulate matter (PM_{2.5}) in Kagawa Prefecture, we investigated the concentrations of PM_{2.5}, ions, carbon and inorganic elements in two locations: Kan-onji City Hall and Kagawa Prefecture Agricultural Experiment Station Manno Experimental Field from FY2012 to FY2021.

According to the analysis results, the main common compounds were sulfate ions, nitrate ions, ammonium ions, organic carbon, and elemental carbon. In addition, we think that the contribution of secondarily produced particles formed by sulfate ions, nitrate ions, and ammonium ions was large. The source of the high concentration of pollutants at Kan-onji City Hall is most likely localized contamination by ammonium nitrate, a secondarily produced particle, and we think that it is largely due to the inflow of nitrate aerosols caused by topographical factors.

キーワード：PM_{2.5} 成分分析 二次生成粒子 硝酸アンモニウム 後方流跡線解析

I はじめに

微小粒子状物質(以下、PM_{2.5})は粒径が 2.5 μm 以下で非常に小さく、肺の奥深くまで入り込みやすく、呼吸器系に加えて、循環器系への影響が懸念されている¹⁾。香川県では平成 24 年度より観音寺市役所(以下、観音寺)、香川県農業試験場満濃試験地(以下、満濃)において PM_{2.5} 成分分析調査を実施してきた。観音寺においては、PM_{2.5} の濃度が非常に高く、調査を開始した平成 24 以降、ほぼ毎年全国ワースト 10(年平均値)に該当しており、平成 30 年度は全国ワースト 1 位であった²⁾³⁾。

今回、平成 24 年度から令和 3 年度の成分分析の結果から経年変化を比較するとともに、高濃度地域である観音寺の地域特性を踏まえて、高濃度要因について考察した。

II 方法

1 調査地点及び調査期間

図 1 に示す観音寺、満濃の 2 地点で調査を実施した。調査期間は表 1 に示すとおり、各季節で約 2 週間とした。



図 1 調査地点

表1 調査期間

調査年度	採取期間
平成24年度	春:5/9 ~ 5/22 夏:7/26 ~ 8/11 秋:10/23 ~ 11/7 冬:1/22 ~ 2/6
平成25年度	春:5/8 ~ 5/21 夏:7/24 ~ 8/7 秋:10/23 ~ 11/9 冬:1/21 ~ 2/3
平成26年度	春:5/8 ~ 5/21 夏:7/23 ~ 8/5 秋:10/22 ~ 11/4 冬:1/21 ~ 2/3
平成27年度	春:5/7 ~ 5/20 夏:7/22 ~ 8/4 秋:10/21 ~ 11/3 冬:1/20 ~ 2/4
平成28年度	春:5/6 ~ 5/19 夏:7/21 ~ 8/3 秋:10/20 ~ 11/2 冬:1/19 ~ 2/1
平成29年度	春:5/10 ~ 5/23 夏:7/20 ~ 8/2 秋:10/19 ~ 11/1 冬:1/18 ~ 1/31
平成30年度	春:5/9 ~ 5/22 夏:7/19 ~ 8/1 秋:10/17 ~ 10/30 冬:1/17 ~ 1/30
令和元年度	春:5/8 ~ 5/21 夏:7/18 ~ 7/31 秋:10/23 ~ 11/9 冬:1/16 ~ 1/29
令和2年度	春:5/13 ~ 5/26 夏:7/23 ~ 8/5 秋:10/22 ~ 11/4 冬:1/21 ~ 2/3
令和3年度	春:5/13 ~ 5/26 夏:7/21 ~ 8/3 秋:10/21 ~ 11/3 冬:1/21 ~ 2/3

2 試料採取方法

試料採取は各地点にそれぞれサンプラーを設置し、平成24年度から令和2年度はThermo Scientific 2025とThermo Scientific 2025iを、令和3年度はムラタ製作所 スリットジェットエアサンプラ MCAS-SJ-A1を使用した。質量濃度にはPTFE製フィルタ(47mmφ)を用い、イオン、炭素成分捕集用には石英製フィルタ(47mmφ)を用いた。

3 分析方法

分析は環境省で定める方法⁴⁾に従い、質量濃度はフィルタ捕集-質量法(標準測定法)、イオン成分はイオンクロマトグラフ法(DIONEX ICS-1000)、炭素成分はサーマル光学法(DRI Model 2001A)により測定した。

4 後方流跡線解析

後方流跡線解析は、NOAA(National Oceanic and Atmospheric Administration:アメリカ大洋大気庁)にて公開されているHYSPLIT Trajectory Modelを用いて行った。気象データにはGlobal Data Assimilation System(GDAS)のデータを用いた。

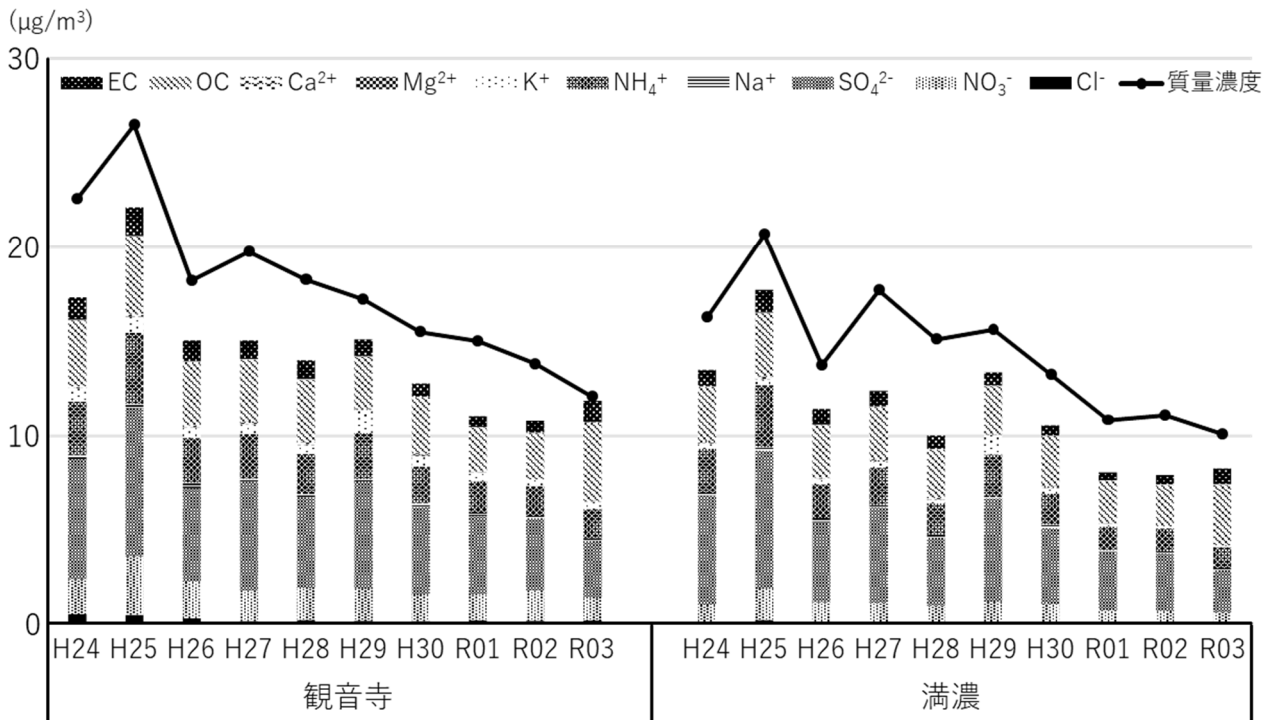


図2 地点別PM_{2.5}濃度推移

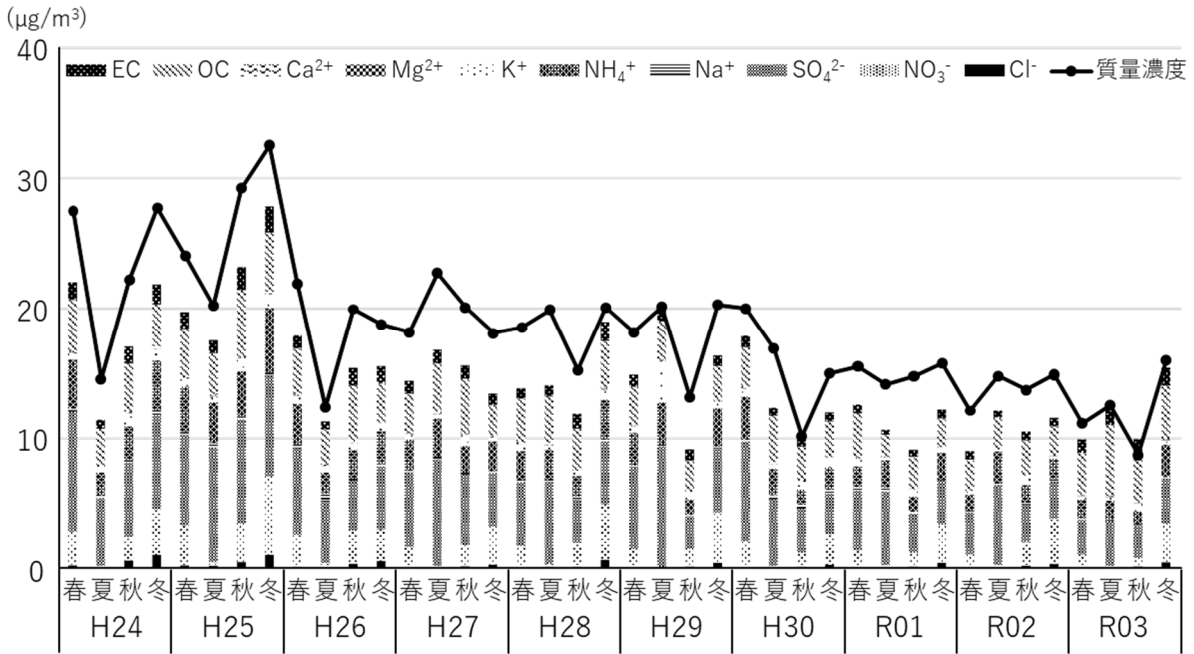


図3 季節別PM_{2.5}濃度推移 (観音寺)

Ⅲ 結果と考察

1 測定地点・季節ごとの変化

図2に平成24年度から令和3年度のPM_{2.5}質量濃度及びイオン、炭素成分濃度の推移を示す。図3、図4にそれぞれの地点における季節ごとの濃度推移を示す。ただし、令和3年度秋期観音寺は、秤量設備不具合により、質量濃度が14日間すべて欠測だったため、常時監視自動測定機のデータを用いた。平成28年度秋期満濃と令和3年度秋期満濃は、採取装置不具合または秤量設備不具合により、質量濃度が14日間すべて欠測となっている。

平成24年度から令和3年度にかけて、イオン、炭素い

ずれの成分についても全体的に減少傾向にあった。季節変化をみると、調査初期の頃は季節ごとの濃度変動が大きい傾向にあったが、全体的なPM_{2.5}濃度減少に伴い、季節間の変動が徐々に小さくなっていることがわかる。

成分分析の結果から、平成26、27年度についてまとめた報告⁵⁾にもあるが、いずれの調査期間についても、硫酸イオン (SO_4^{2-})、硝酸イオン (NO_3^-)、アンモニウムイオン (NH_4^+)、有機炭素 (OC)、元素炭素 (EC) が高い傾向にあった。また、これら5成分のうち、 SO_4^{2-} はいずれの季節でも高いが、特に夏期に高い傾向にあった。 NO_3^- は夏期にはほとんど存在せず、冬期に高濃度になる傾向がみら

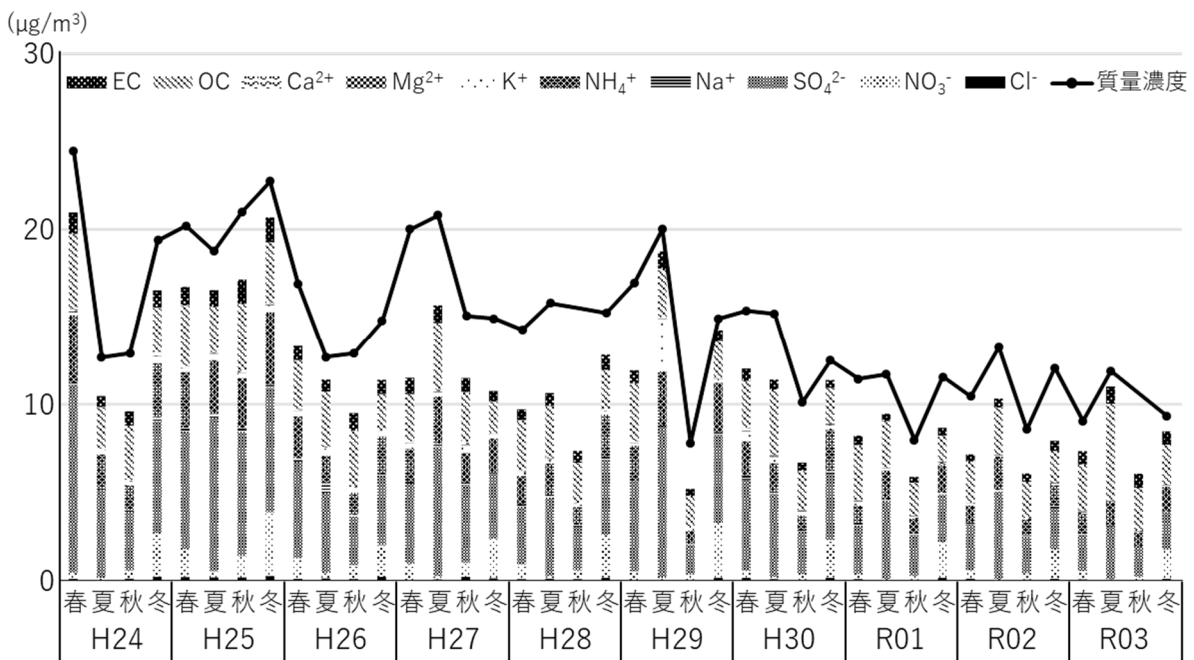


図4 季節別PM_{2.5}濃度推移 (満濃)

れた。

SO_4^{2-} 、 NO_3^- は、それぞれ硫酸化物 (SO_x)、窒素酸化物 (NO_x) が大気中で反応し、粒子化した二次生成粒子である⁶⁾⁷⁾。実際に、 SO_4^{2-} 、 NO_3^- と NH_4^+ の当量濃度を比較すると、両者はほぼ等しく、硫酸アンモニウム、硝酸アンモニウムとして二次生成粒子を形成していると考えられた。過去に実施した PMF モデルによる発生源解析でも、硫酸系二次生成粒子は全体を通して寄与が大きく、特に夏期に高い寄与を示し、硝酸系二次生成粒子は冬期の寄与が非常に大きいという結果になった⁸⁾⁹⁾。

2 主要成分の地点間比較

主要 5 成分のうち、二次生成粒子に高い寄与を示していると考えられた NO_3^- 、 SO_4^{2-} 、 NH_4^+ の日別濃度について、観音寺と満濃の相関プロット作成し、地点間の比較を行った¹⁰⁾。相関プロットにおける各成分の一次近似式の傾きを表 2 に示す。図 5 には、質量濃度の年平均値が全国ワースト 1 位となった平成 30 年度と直近の令和 3 年度の結果を示す。相関プロットは、2 地点間の測定値の差が小さいほど 1 : 1 の直線付近にデータがプロットされる。表 2 に示すように、調査年度によって多少の変動はあるものの、全体的に傾きが 1 より小さくなっており、観音寺のほうが高濃度になっていることがわかる。また、図 5 に示すように、 SO_4^{2-} 、 NH_4^+ については概ね 1 : 1 の直線付近にプロットされており、地点間の差はそこまで大きくなかった。平成 30 年度と令和 3 年度以外の調査年度についても、地点間プロットは同様の傾向を示していた。 NO_3^- については、 SO_4^{2-} 、 NH_4^+ の傾きが 0.7~0.9 程度であるのに対し、 NO_3^- の傾きは 0.4~0.6 程度であり、観音寺において NO_3^- の影響が非常に大きいことがわかる。また、地点間プロットについても、観音寺側に大きく偏っており、観音寺と満濃で大きな地域差がみられた。

観音寺には、大規模な NO_x 発生源がないことから、地形的・気象的要因による硝酸エアロゾルの流入が主な発生源と推測される。過去の研究¹¹⁾¹²⁾¹³⁾においても、観音寺における $\text{PM}_{2.5}$ の高濃度化と海陸風との関係について言及

されている。夜間から朝方にかけて東風（陸風）が、日中においては西風（海風）が主風向となっており、東風が吹く夜間に $\text{PM}_{2.5}$ 濃度の上昇が確認されている。 $\text{PM}_{2.5}$ は、気温が低く湿度が高い場合には、大気中での化学反応により硝酸塩 (NO_3^-) の二次生成が促進されることが知られており¹⁴⁾、観音寺に吹き込む東風が硝酸系二次粒子の濃度上昇に寄与していると推測される。

また、平成 30 年度において、 NO_3^- 濃度が高くなっていた日について、後方流跡線解析を行った。後方流跡線解析は、気象データを用いて空気塊の移動軌跡を解析したものであり、空気塊がどのような経路で観測地点まで運ばれたのかを推測することができる。図 6 に、観音寺の NO_3^- と NH_4^+ の濃度が、満濃よりも明らかに高くなっていた日の後方流跡線解析結果を示す。比較として、同じ調査時期の高濃度ではない日の後方流跡線解析結果を図 7 に示す。図 6 と図 7 を比較すると、どちらも 3 日間遡って解析しているが、図 7 は後方流跡線が大陸まで達しているのに対して、図 6 は瀬戸内海域を滞留していることがわかる。瀬戸内海域は周囲を山地に囲まれているため、流入した大気が滞留する特徴を持っている。このことから、大気が滞留しやすい瀬戸内海域に硝酸エアロゾルを含む大気が滞留し、観音寺に流入していると推測される。

表 2 地点間プロットにおける一次近似式の傾き

	NO_3^-	SO_4^{2-}	NH_4^+
H24	0.411	0.861	0.760
H25	0.567	0.915	0.820
H26	0.478	0.802	0.733
H27	0.563	0.876	0.848
H28	0.417	0.704	0.680
H29	0.612	0.925	0.872
H30	0.426	0.842	0.724
R01	0.562	0.741	0.742
R02	0.387	0.828	0.746
R03	0.509	0.751	0.676

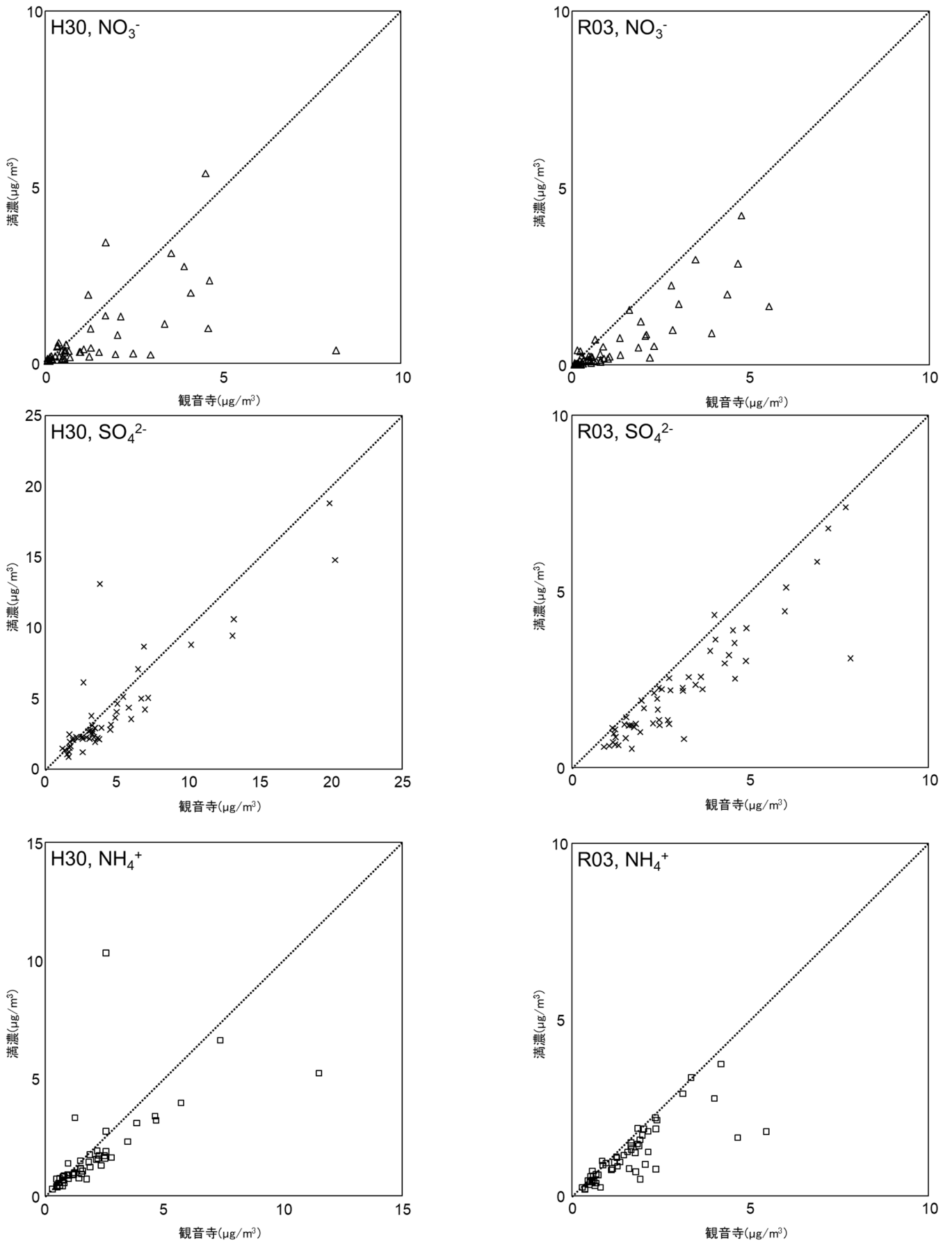


図5 観音寺-満濃 地点間プロット

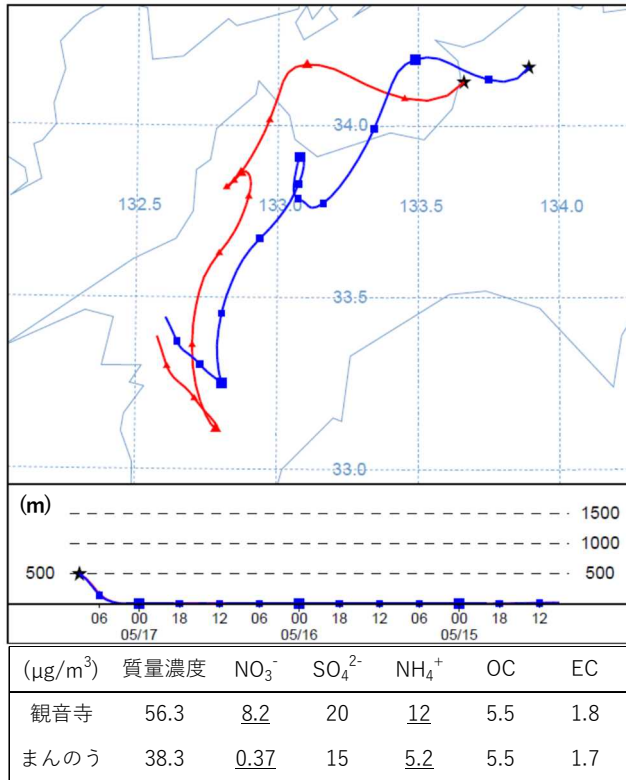


図6 後方流跡線解析

(平成30年5月17日 ▲: 観音寺、■: 満濃)

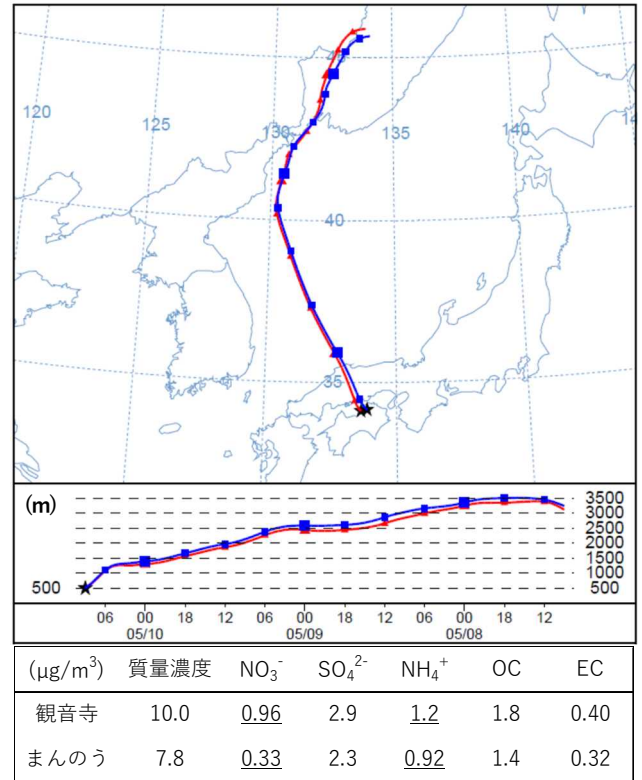


図7 後方流跡線解析

(平成30年5月10日 ▲: 観音寺、■: 満濃)

IV まとめ

平成24年度から令和3年度の成分分析結果から、主要成分は硫酸イオン、硝酸イオン、アンモニウムイオン、有機炭素、元素炭素であった。また、硫酸イオン、硝酸イオン、アンモニウムイオンによって形成される二次生成粒子がPM_{2.5}の高濃度化に関与しており、夏期は硫酸系二次粒子が、冬期は硝酸系二次粒子の寄与が大きかった。

観音寺と満濃の地域差をみると、全体的に観音寺が高濃度であった。特にNO₃⁻は、他の成分と比べて地域差が大きく、局所的な汚染が確認された。

観音寺における高濃度汚染は、二次生成粒子である硝酸アンモニウムによる局所的な汚染である可能性が高く、その要因は、閉鎖性海域である瀬戸内海域の地形的影響による硝酸エアロゾルの流入と推測された。

PM_{2.5}の成分分析調査が開始された当初から、PM_{2.5}濃度は少しずつ減少してきている。大陸からの越境汚染についても、2015年頃から減少しているとの報告¹⁵⁾もあり、今後のPM_{2.5}汚染については、局所的な汚染の寄与が相対的に高まると考えられる。今後も成分分析調査を継続し、高濃度汚染発生要因について解明していきたい。

文献

- 1) 環境省:微小粒子状物質健康影響評価検討会報告書(平成20年4月), (2008)
- 2) 環境省:平成30年度 大気汚染物質(有害大気汚染物質を除く)に係る常時監視測定結果, (2020)
- 3) 環境省:平成28年度 大気汚染状況について(一般環境大気測定局, 自動車排出ガス測定局の測定結果報告), (2018)
- 4) 環境省:大気中微小粒子状物質(PM_{2.5})成分測定マニュアル(2019年5月), (2019)
- 5) 多田博幸, 池田光広, 橋本貴世, 横井浩二:香川県におけるPM_{2.5}大気環境調査について(VI), 香川県環境保健研究センター所報, 15, 42-46, (2016)
- 6) 坂本和彦:これまでの粒子状物質による大気汚染への取り組みと課題, 化学物質と環境, 163, 14, (2020)
- 7) 熊谷貴美代:群馬県におけるPM_{2.5}汚染の特徴, 安全工学, 52(6), 401-407, (2013)
- 8) 池田光広:PMF法による香川県におけるPM_{2.5}発生源解析, 香川県環境保健研究センター所報, 16, 35-39, (2017)

- 9) 佐々木一貴, 藤田麻梨子, 勝間孝:PMF 法による香川県における $PM_{2.5}$ 発生源解析(第2報), 香川県環境保健研究センター所報, 20, 41-46, (2021)
- 10) 熊谷貴美代, 齊藤由倫, 田子博: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, (2019)
- 11) 細川欣秀, 藤井裕士:観音寺市役所局における微小粒子状物質 ($PM_{2.5}$) の解析, 香川県環境保健研究センター所報, 13, 86-97, (2014)
- 12) 橋本貴世:香川県における $PM_{2.5}$ 大気環境調査について(V), 香川県環境保健研究センター所報, 14, 44-56, (2015)
- 13) 藤田麻梨子, 勝間孝, 佐々木一貴, 稲井宏樹:香川県における $PM_{2.5}$ の経年変化について, 香川県環境保健研究センター所報, 20, 71-80, (2021)
- 14) 環境省:微小粒子状物質($PM_{2.5}$)と野焼き行為との関連について(通知), 別添2 気象状況, (平成30年3月27日)
- 15) 鶴野伊津志, 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: $PM_{2.5}$ 越境問題は終焉に向かっているのか?, 大気環境学会誌, 52(6), 177-184, (2017)