

【資料】2020～2021年度PM_{2.5}成分調査結果の 概況と長期経年変化

熊谷貴美代 齊藤由倫 坂本祥一

The Survey on Chemical Composition of PM_{2.5} — Annual Results in 2020 ~ 2021, and Trend Analysis

Kimiyo KUMAGAI, Yoshinori SAITOH, Shoichi SAKAMOTO

1.はじめに

大気中に浮遊する微小粒子状物質（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}は、自動車排ガスや燃焼施設などの一次発生源や大気中での二次生成など発生源が多岐にわたり、それゆえ多種多様な化合物で構成される。このためPM_{2.5}汚染対策立案および健康影響評価には、粒子濃度だけでなく化学成分の把握が必要とされる。群馬県では大気汚染常時監視測定として2011年度からPM_{2.5}質量濃度の自動測定モニタリング、2013年度からPM_{2.5}成分調査を実施している。後者のPM_{2.5}成分調査は、本県では2019年度までは継続調査地点（前橋）と年度毎に変更する地点の計2地点で実施していたが、2020年度からは継続調査地点のみで調査を実施している。

過去のPM_{2.5}成分調査結果、群馬県内各地のPM_{2.5}組成の状況については、熊谷ら（2019、2020ほか）の報告を参照されたい。本報告では、継続調査地点である前橋における2020および2021年度のPM_{2.5}成分調査結果の概要について取りまとめるとともに、2013年度以降のPM_{2.5}組成の経年変化傾向についても解析した。

2. 調査方法

2.1. 観測概要

調査地点は、大気汚染常時監視局の前橋一般局（衛生環境研究所局）である。前橋局は、県央部の市街地郊外にあり周辺は住宅地と農地である。調査期間は各季節14日間（年間56日）で、環境省が定める調査統一期間に実施した（表1）。ただし一部調査日を追加している。採取時間は10時を起点とする24時間で、PM_{2.5}サンプラー（FRM2025i）を2台設置し、PTFEフィルタおよび石英繊維フィルタ上にそれぞれPM_{2.5}を採取した。

2.2. 分析方法

PM_{2.5}質量濃度（以下、PM_{2.5}濃度）の測定および各種成分分析は、環境省マニュアルに準じた。詳細は既報のとおりである（熊谷ら、2019）。本報で示すPM_{2.5}濃度はフィルタ秤量法による値である。イオン成分は、PTFEフィルタ試料を用いて、超純水で抽出後、イオンクロマトグラフで測定した。炭素成分（有機炭素（OC）、元素状炭素（EC））は、石英繊維フィルタ試料を用いて熱分離光学補正炭素分析計で測定した。バイオマス燃焼の指標成分であるレボグルコサンは、石英繊維フィルタ試料を用いて、溶媒抽出-誘導体化GC/MS法（熊谷ら、2017）により測定した。そのほか無機元素（Al、Feなど64成分）はPTFEフィルタ試料を用いて酸分解-ICP-MS法により測定した。

表1 PM_{2.5}成分調査期間

地点	年度	春	夏	秋	冬
前橋(衛生環境研究所)	2020	2020/5/13~5/27	2020/7/23~8/6	2020/10/22~11/5	2021/1/21~2/4
	2021	2021/5/13~5/28*	2021/7/22~8/7*	2021/10/21~11/4	2022/1/20~2/3

* 採取時間は10時を起点とする24時間 ※追加調査含む

3. 2020, 2021 年度の PM_{2.5} 成分測定結果

3.1. 主要成分の日変化

図 1 に 2020 および 2021 年度の PM_{2.5} 濃度、イオン成分、炭素成分（両者を合わせて主要成分とする）の日ごとの組成変化を示す。

2020 年度の成分調査において、環境基準（日平均値 35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）を超える PM_{2.5} 高濃度日はなかった。成分調査期間中の PM_{2.5} 濃度の四季平均は、9.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であり、最大値は 28.1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (2021/1/21) であった。

春季の 2020/5/13 において、PM_{2.5} 濃度と主要成分濃度の合計値は大きく乖離していた（図 1）。当該試料からは Al (1330 ng/m^3) や Ca (334 ng/m^3) が高濃度で検出されたことから、図 1 に示す通常の主要成分以外に、土壌性粒子がフィルタ上に多く捕集されたことが要因と考えられる。ケミカルマスキロージャモデル（PM_{2.5} 質量濃度と成分濃度との関係性を表すモデル式）により、この日の土壌性粒子濃度は 13.7 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ と推定され、PM_{2.5} 濃度 (23.7 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) のおよそ半分相当していた。風による周辺土壌の巻き上げ影響のほか、同日に新潟などで黄砂現象が確認されていたことから（気象庁）、黄砂が影響した可能性もある。夏季は梅雨明けが 2020/8/1 頃と遅く（気象庁）、その日までは降雨続きだったため PM_{2.5} は低濃度で推移したと考えられる。梅雨明け後の 2020/8/3～5 は晴れて気温も日射量も増加しており、二次生成による SO₄²⁻ と OC の増加によって PM_{2.5} 濃度が上昇した。PM_{2.5} 濃度が最大であった冬季 2021/1/21 において、成分では NO₃⁻ が特に高濃度 (11.3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) で検出された。翌日も NO₃⁻ が高めであった。この 2 日間は風が弱く、気温鉛直プロファイル（気象庁）を見ると接地逆転層が形成されていた。大気汚染物質が地表付近に滞留したことによる地域的な大気汚染の高濃度化と考えられた。

2021 年度についても前年度と同様に日環境基準を超える日はなく、PM_{2.5} 濃度の四季平均

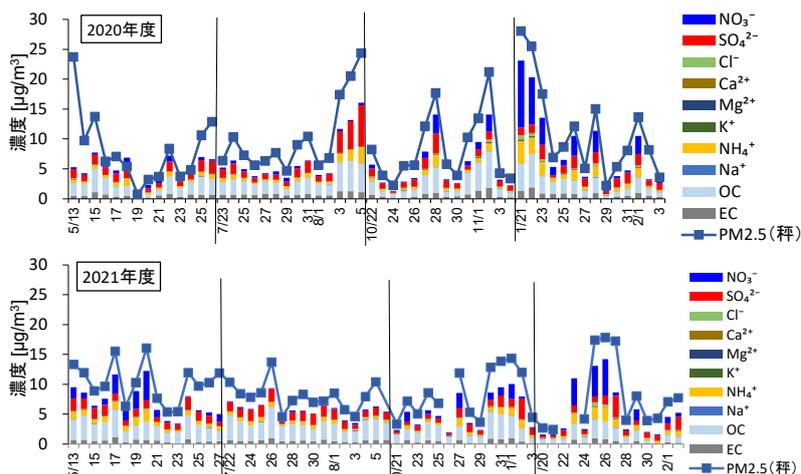


図 1 前橋における 2020 年度（上）および 2021 年度（下）成分調査結果（主要成分）

※ 2021 年度の 2021/10/26 および 2022/1/22-23 の PM_{2.5}、2022/1/31 の OC・EC は欠測

は 8.7 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、最大値は 17.8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (2022/1/26) であり、2020 年度よりも全体的に濃度は低かった。2021 年度夏においては、調査時期には梅雨は明けており（梅雨明けは 2021/7/16 ごろ）、雷雨の一時的な降雨はあったものの晴れの日が多く、全天日射量も平年以上であったが、例年のような PM_{2.5} の増加は見られなかった。Ox 濃度は日最高値 80 ppb 程度であった。2021 年夏季は新型コロナウイルス感染症の感染拡大（第 5 波）も深刻な問題になっていた社会情勢等を考えると、経済活動量の変化が関東圏の広域的な大気環境に影響したのか、今後の成分データもふまえて検証する必要がある。

3.2. 季節別平均組成

図 2 に 2020 および 2021 年度の季節別平均組成を示す。検出下限値未満のデータには検出下限値の 1/2 の値を代入して平均値を算出した。また図 2 では OC だけでなく OC から有機エアロゾル量 (OA) に換算した値も示した。OA 換算係数 1.634 は、ケミカルマスキロージャモデルで使用される係数で、日本国内の測定結果から求められた値（環境省、2019）を採用した。

季節別の質量濃度の大小関係は両年度で異なっていた。しかし、季節ごとの主たる成分は共通しており、春夏は OC (OA)、SO₄²⁻、秋は OC、冬は OC と NO₃⁻ が他の成分よりも高い濃度であった。NO₃⁻ 粒子は半揮発性であり、気温が高いとガス態で存在するため、夏季の NO₃⁻ は低濃度となる。全季節を通して OC は主要成分となっており、実大気中では OA で存在する

ことを考えると、図2に示すとおりPM_{2.5}に占める割合はかなり大きくなる(3~6割)。したがって現状のPM_{2.5}対策にはOAの対応が重要である。

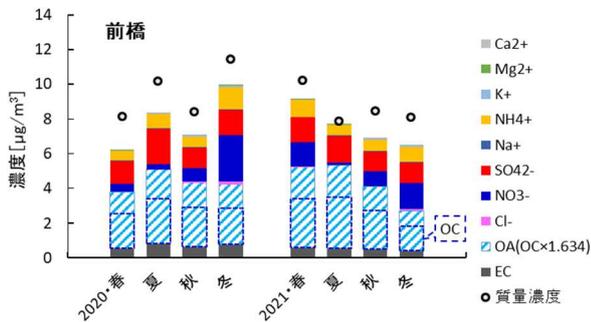


図2 2020, 2021年度の季節別PM_{2.5}平均組成

4. PM_{2.5}組成の経年変化

4.1. 主要成分の経年変化

前橋におけるPM_{2.5}組成の経年変化(2013~2021年度)を図3に示す。この図にはPM_{2.5}常時監視データ(通年測定)から得られた年平均値(環境基準の評価に使用する値)も合わせて示した。成分調査は通年調査ではないため、年の代表性に注意が必要である。しかし、常時監視データの年平均値の経年変化に対して、多少の差異はあるが成分調査の質量濃度もほぼ同じ挙動をとっていることから、図3の成分組成の経年変化は、PM_{2.5}年平均値の変化を反映していると捉えて差し支えないと考えられる。

図3のPM_{2.5}濃度の減少に対して、同じく減少傾向が見られる成分は、SO₄²⁻、NH₄⁺、ECであった。SO₄²⁻は、2013年度3.6µg/m³から2021年度には1.3µg/m³に減った。NH₄⁺はSO₄²⁻やNO₃⁻と塩を形成するため、それらの存在量に依存する。ECは、2013年度の1.1µg/m³から2021年度には0.5µg/m³まで半減した。ECの主要な発生源の一つに自動車排ガスが挙げられるが、自動車排ガス規制の強化や近年の低公害車の普及によって排出量が減少した結果と推察される。一方で、OCは2013~2015年度の3.1~3.3µg/m³から2016年度は2.3µg/m³に減少したがその後は横ばいで推移している。NO₃⁻も2014年度以降は1µg/m³前後で推移し、増減傾向は見られなかった。

図4に季節別のPM_{2.5}成分組成の経年変化を示す。図4を見ると、SO₄²⁻は秋冬よりも春夏季

の方が濃度は高くなる季節変動を示すが、その春夏季において減少傾向が強かった。これは2020、2021年度と連続して低濃度だったことも関係する。SO₄²⁻は越境汚染によっても増加するが、国内の発生源としては重油燃焼が主な発生源の一つとして考えられている。そこで重油燃焼の指標であるバナジウム(V)の経年変化を調べた。図5にV濃度とV/Mn比の季節別経年変化を示す。Mnは鉄鋼業の指標とされるが土壌にも含まれる成分で、地殻のV/Mn比は0.17である(M.J.Winter)。秋や冬はV/Mn比は地殻組成に近い値であるのに対し、春および夏は2019年度まではV濃度もV/Mn比も秋冬に比べて高く、重油燃焼の寄与が示唆されるが、2020、2021年度は秋冬と同程度の値に減少していた。重油燃焼発生源の影響が抑えられたことがSO₄²⁻の低下に寄与した可能性がある。重油燃焼発生源に関して、2020年1月に船舶燃料の硫黄分規制が強化された。群馬県は東京湾から約100km離れているが、暖候期は南風の卓越により沿岸地域の大气汚染の影響を受ける。COVID-19パンデミックの影響による船舶航行数の変化にも着目する必要があるが、船舶燃料規制の影響有無については、今後、近隣県の

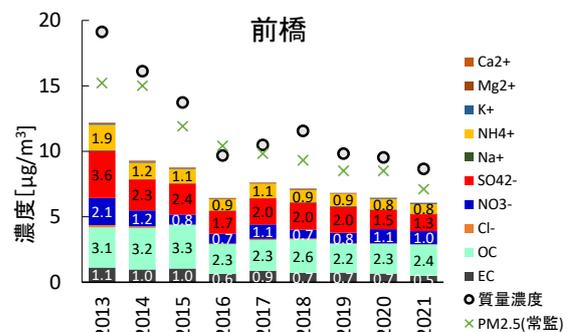


図3 2013~2021年度PM_{2.5}平均組成の変化

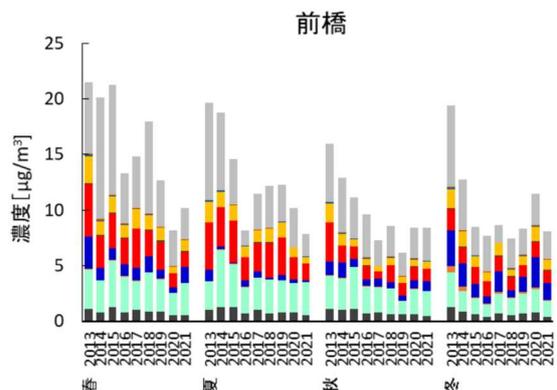


図4 前橋における季節別のPM_{2.5}組成経年変化
※凡例は図3と共通。ただしグレーはOthersを示す。

PM_{2.5} 成分データと比較するなどして検証する必要がある。

図 4 において EC は全季節で同程度の減少傾向であった。EC の排出量は年間を通じて大きな変動はないと考えられる。図 3 の年平均で横ばい推移であった OC については、秋に若干減少傾向が見られる程度で、春も夏も他の成分よりも高い濃度で横ばいに推移していた。

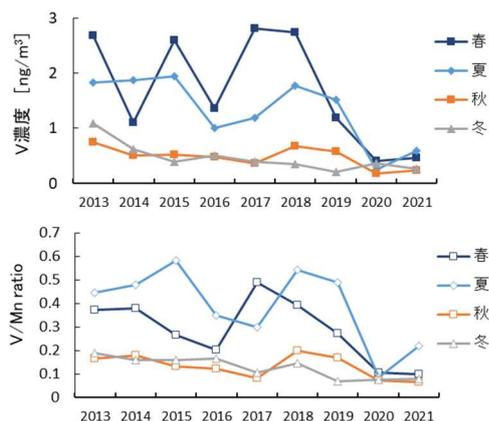


図 5 V 濃度および V/Mn 比の季節別経年変化

4.2. OC と EC の関係

OC の発生源には、一次排出と二次生成がある。一次排出の発生源として、化石燃料やバイオマス燃焼起源があり、一次 OC は EC と共に排出される。そこで、各年度の OC と EC の関係を季節別にプロットした (図 6)。冬季 (図 6 右) に関してはほぼ同一の直線上にプロットされ、一次 OC が多くを占めていたと推察された。2013 年度に比べ最近では OC も EC も低濃度側にシフトしているが、存在比には大きな違いは見られなかった。一方で夏季 (図 6 左) ではばらつきが大きく、冬季の回帰直線よりも上側に多くプロットされた。すなわち夏季は EC に対して OC が多く大気中に存在することを示している。PM_{2.5} の有機マーカー多成分測定から、夏季は二次有機エアロゾルが増加することが分かっており (熊谷ら、2022)、この部分は、二次 OC に相当すると考えられる。

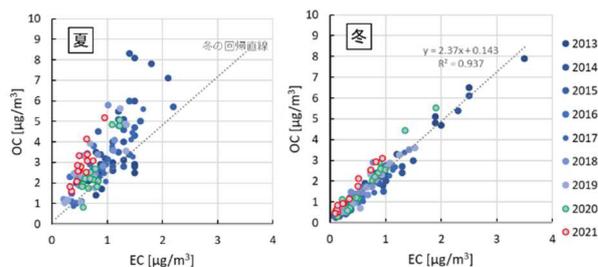


図 6 夏および冬における年度毎の OC と EC の関係

4.3. レボグルコサンの経年変化

バイオマス燃焼の指標成分であるレボグルコサンは、秋冬に高い濃度で検出される。調査開始以来その傾向は変わらない。図 7 に秋冬季のレボグルコサン (Lev) 濃度および OC に対する炭素ベースの含有率 (Lev-C/C) の出現範囲の経年変化を示す。春夏季については図示しないが Lev 平均値は 40 ng/m³ 以下であり、データ範囲も 100 ng/m³ を超えることは少ないが、秋冬季については、図 7 に示すとおり数 100 ng/m³ のデータが散見される。近年の Lev 平均値は 100 ng/m³ 以下で推移しており、また 2013~14 年度に比べると 400 ng/m³ 以上の極端な高濃度は減っている状況であったが、Lev-C/OC 比で見ると明瞭な経年変化は見られていない。

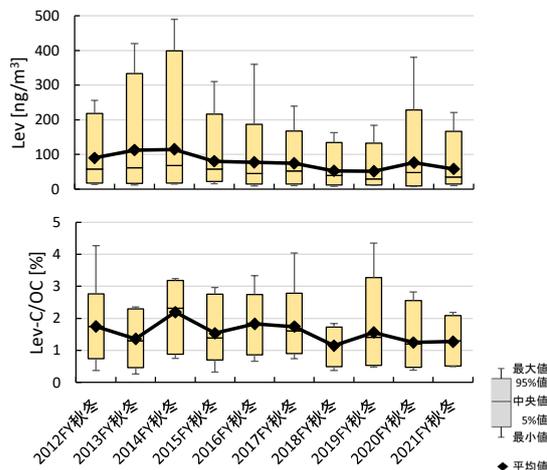


図 7 秋冬季におけるレボグルコサン (Lev) 濃度および OC 含有率 (Lev-C/OC) の経年変化

4.まとめ

前橋において実施した 2020、2021 年度の PM_{2.5} 成分調査結果について概況をとりまとめた。2 カ年ともに日基準を超過する高濃度は見られず全体的に低濃度であった。2020 年度に

については、春夏期の多雨など気象条件が影響したと考えられるが、2021年度に関しては、低濃度となり得る気象条件ではなかったにもかかわらず濃度は低めであった。季節別組成は、これまでと同様の傾向であり、暖候期はOA (OC) とSO₄²⁻、寒候期はOA (OC) とNO₃⁻との濃度が高かった。全季節でOAの割合が高く、PM_{2.5}対策におけるOAの削減が重要と考えられた。

2013～2021年度の前橋における経年変化について、PM_{2.5}濃度は減少傾向であり、成分測定の結果も同様であった。個々の成分に着目すると、ECやSO₄²⁻において減少傾向が認められたが、NO₃⁻やOCは2013年度に比べると減少したものの、ここ最近では横ばい傾向であった。季節別の経年変化やOCとECの関係から、二次生成OC、すなわち二次有機エアロゾルの影響が大きいことが示された。

最近のPM_{2.5}環境基準達成率は100%となったが(群馬県、2021)、環境基準未達であっても健康リスクの増加を指摘する報告(Zhao et al., 2020)があること、WHOは2021年9月にAir Quality GuidelineにおいてPM_{2.5}の指針値を年平均10 µg/m³から5 µg/m³に、日平均25 µg/m³から15 µg/m³にそれぞれ引き下げたことを考えると(WHO, 2021)、本県のPM_{2.5}濃度レベルはその水準をクリアできていないため、引き続きPM_{2.5}モニタリングの取り組みは必要であろう。また、2020年2月から始まったCOVID-19感染症拡大に伴う社会情勢の変化が大気環境にどのように影響したのか、あるいは発生源対策の効果なのか、今後も調査を継続し検証していく必要がある。

文献

環境省. 2019. 大気中微小粒子状物質 (PM_{2.5}) 成分測定マニュアルに係る精度管理解説. pp.35-37.

気象庁. 気象庁ホームページ, <https://www.jma.go.jp/jma/menu/menureport.html>

群馬県. 2021. 令和三年度版環境白書. pp.150-151.

熊谷貴美代, 田子博, 齊藤由倫, 工藤慎治, 飯島明宏, 2017. PM_{2.5}発生源寄与解析の高度

化を目指した誘導体化-GC/MS法による有機マーカー多成分測定法の確立. 全国環境研究会誌, **42**(2): 10-15.

Kumagai, K. and Iijima, A. 2018. Characterization and Source Apportionment Studies of PM_{2.5} using Organic Marker -based Positive Matrix Factorization. *Global Environmental Research*, **22**: 13-20.

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.

熊谷貴美代, 齊藤由倫, 坂本祥一, 木村真也. 2020. 2019年度PM_{2.5}成分調査結果と経年変化, 群馬県衛生環境研究所年報, **52**: 68-72.

熊谷貴美代, 齊藤由倫, 田子博, 飯島明宏, 渡邊雅子, 佐藤圭, 森野悠. 2022. 2018年夏季の関東郊外における人為起源・植物起源二次有機エアロゾルマーカーの挙動. *エアロゾル研究*, **37**: 117-126.

Mark J. Winter. "Abundance in Earth's Crust" <https://www.webelements.com/periodicity/abundance/crust/> (2022.8.30アクセス)

World Health Organization. 2021. WHO global air quality guidelines: particulate matter (PM_{2.5} and PM₁₀), ozone, nitrogen dioxide, sulfur dioxide and carbon monoxide.

Zhao B., Johnston F. H., Salimi F., Kurabayashi M., Negishi K. 2020. Short-term exposure to ambient fine particulate matter and out-of-hospital cardiac arrest: a nationwide case-crossover study in Japan. *Lancet*, **4** (1): 15-23.