

大気中微小粒子状物質汚染の実態調査

星野隆昌 熊谷貴美代 山口直哉 齊藤由倫

Investigation of Fine Particulate Pollution in Atmosphere in Gunma

Takamasa HOSHINO, Kimiyo KUMAGAI, Naoya YAMAGUCHI, Yoshinori SAITOH

1. はじめに

近年、主に欧米諸国において空気中の浮遊粒子状物質(粒径 10 μm 以下) よりも粒径が小さい微小粒子状物質(粒径 2.5 μm 以下、PM2.5)が、肺のより深部に到達するために、喘息の悪化や肺がんなど健康被害をもたらす可能性が強いことが報告され、我が国でも PM2.5 に関わる調査検討会が長年に渡り実施され、その結果 PM2.5 と死亡リスクの増加に関連性が認められたことにより¹⁾、2009年9月に新たに PM2.5 に関わる大気環境基準が定められた²⁾。

環境基準が定められたことで、県は県民の健康の保護及び生活環境の保全のため、これに係る大気汚染常時監視体制を早急に整備することが求められている。しかし、自動測定機の設置および維持管理には高額な費用がかかる。限られた予算を有効に活用するためには、より効率的な監視体制の整備が重要であり、そのためには県内各地の PM2.5 汚染状況を予め把握しておく必要がある。そこで本研究では、今後の PM2.5 の常時監視計画を策定するための基礎データを得ることを目的に、県内における PM2.5 汚染実態調査を実施した。

2. 調査方法

2.1. 調査地点および調査月日

調査地点は、大気汚染常時監視一般局のうち、前橋(衛生環境研究所、前橋市上沖町 378)、伊勢崎(伊勢崎市立南小学校、伊勢崎市上泉町 310)、沼田(沼田市立沼田小学校、沼田市西倉内町 746)の3地点とした(図1)。前橋の周辺は、農地および住宅地が混在する。伊勢崎および沼

田は、それぞれ市街地にあり、周辺は住宅および商業地域である。いずれの地点も、周辺近傍に事業所等の大規模な発生源はない。これらの調査地点を選定した理由は、前橋については、これまでに当所にて、様々な PM2.5 に関する調査研究を実施しており、観測データが多いためである。伊勢崎は、浮遊粒子状物質の年平均質量濃度が県内で最も高いことが多いことから、市街・工業地(人口密集地)の代表として選定した。沼田は、山間地の代表で伊勢崎(前橋)の対照地点として選定した。

調査は、光化学反応が盛んで二次生成による高濃度化が懸念される夏季と、気象的要因(接地逆転層の形成など)により高濃度化しやすい初冬季に実施した。観測期間は、夏季調査が2010年8月23日～9月6日、冬季調査が2010年11月8日～22日で、それぞれ2週間とした。

国土地理院承認 平13経環第567号



図1 調査地点

2.2. 試料の採取

サンプリングは、前橋と伊勢崎はマルチノズ

ルカスケードインパクトサンプラー(MCI)、沼田はローボリュームサンプラー(FRM2025)(PM2.5標準サンプラー)を用いた。MCIでは、大気吸引流速 20 L/min で、粒子を粒径別(2.5 μm 以下、2.5~10 μm、10 μm 以上)に分級捕集した。サンプリング時間は、午前 9 時から 24 時間とし、日曜日にかかるサンプリングは 48 時間とした。FRM2025 では、大気吸引流速 16.7 L/min で、午前 9 時から 24 時間のサンプリングとした。粒子の採取には、炭素成分のブランク値を下げるため、予め 550 °C で 2 時間加熱した「石英繊維フィルター(PALLFLEX, 2500QAT-UP)直径 47 mm」を使用した。

なお、別途 MCI と FRM2025 に対して並行試験を行っており、ほぼ同じ測定値が得られることを確認している。

2.3. 試料の分析

2.3.1. PM2.5 質量濃度

捕集前後に、恒温恒湿室(温度 20 °C, 相対湿度 50 %)にて 24 時間以上静置したものを秤量精度 0.01 mg の精密電子天秤で秤量し、捕集前後の差を PM2.5 質量濃度 (μg/m³) とした。また、PM2.5 を捕集したろ紙を秤量後分割し、次に示す各成分の分析に供した。

2.3.2. 無機イオン成分分析

粒子捕集フィルターの 1/4 片を超純水 20 mL で 15 分間超音波抽出した。抽出液を孔径 0.45 μm の PTFE シリンジフィルターで濾過し、イオンクロマトグラフ(Dionex, DX500)を用いて、陽イオン(Na⁺, NH₄⁺, K⁺, Mg²⁺, Ca²⁺)、陰イオン(Cl⁻, NO₃⁻, SO₄²⁻)をそれぞれ定量した。

2.3.3. 水溶性有機炭素(WSOC)成分分析

全有機炭素計(島津製作所、TOC 計)を使用し、2.3.2 の超純水抽出液を分取し、抽出液中の全炭素を定量した。

2.3.4. 炭素成分(OC,EC)分析

DRI Model 2001 カーボンアナライザを用いて、サーマルオプティカル・リフレクタンス法により、有機炭素(Organic carbon; OC)と元素炭素(Elemental carbon; EC)を測定した。フィルターは直径 8 mm にくり抜いたものを用いた。

分析条件は IMPROVE 方式とした。

3. 結果および考察

3.1. PM2.5 質量濃度

表 1 に PM2.5 平均質量濃度、図 2、3 に夏季・冬季における PM2.5 質量濃度変動をそれぞれ示す。

PM2.5 平均質量濃度は、前橋で 21.1 μg/m³、伊勢崎 23.8 μg/m³、沼田 14.6 μg/m³であった。前橋において 2008 年にも同様の手法で夏季・冬季の PM2.5 調査を行っておりそのときの結果(平均 23.2 μg/m³)と本調査結果は同程度であった。前橋や伊勢崎は、環境基準年平均値 15 μg/m³ を超える濃度レベルであった。沼田は、前橋や伊勢崎に比べて若干低い濃度であったが、平均値は 15 μg/m³ 付近となっており、沼田でも環境基準を超過する可能性がある。夏季では伊勢崎で、冬季では伊勢崎と前橋で環境基準日平均値の 35 μg/m³ を超過する濃度が観測された。夏季と冬季では、平均濃度としては夏季のほうが高かった。

市街地である前橋と伊勢崎における PM2.5 質量濃度はほぼ同じであり、その変動パターンも夏季と冬季の両季とも概ね同様であった(図 2,3)。山間地の沼田は、市街地の前橋や伊勢崎よりも低いことが多いが、夏季では伊勢崎、前橋と同レベルの濃度になる日が観測された(8/31、9/1)。このときの沼田の光化学オキシダント濃度は、前橋と同じくらいの高濃度となっていた。この沼田での光化学オキシダント高濃度は、県内都市部や南関東都市圏からの移流によると考えられた。PM2.5 についても、光化学オキシダントと同様に、移流によって上昇したものと考えられ、気象条件によっては県北の山間部においても、PM2.5 質量濃度が上昇することが示された。

冬季では、前橋と伊勢崎で、環境基準日平均値の 35 μg/m³ を超えた日が 3 日あったが、このうち、11/12 と 11/13 は黄砂の飛来があり、その影響と考えられた。黄砂粒子の粒径は 4 μm 付近といわれているが、一部 2.5 μm

以下の粒子も含まれており、濃度が高くなったと考えられた。なお、前橋と伊勢崎では、2.5～10 μm の粗大粒子も同時に採取しており、この日は粗大粒子も高い濃度であった。残りの

11/8 の高濃度は、冬によくみられる気象的な要因（接地逆転層の形成により、大気の上下拡散が起こりにくくなる現象）が影響していると考えられた。

表 1 夏季と冬季における PM2.5 質量濃度

地点	夏			冬			全体
	平均	(最大-最小)	n	平均	(最大-最小)	n	
		[$\mu\text{g}/\text{m}^3$]			[$\mu\text{g}/\text{m}^3$]		平均
							[$\mu\text{g}/\text{m}^3$]
前橋	23.7	(13.2-34.4)	12	18.5	(3.7-40.4)	12	21.1
伊勢崎	24.9	(14.5-37.8)	12	22.7	(4.6-46.9)	12	23.8
沼田	16.6	(9.0-27.7)	14	12.1	(ND-32.9)	11	14.6

n : 試料数

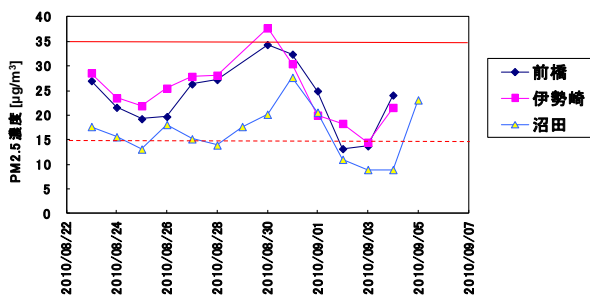


図 2 夏季の PM2.5 質量濃度変動

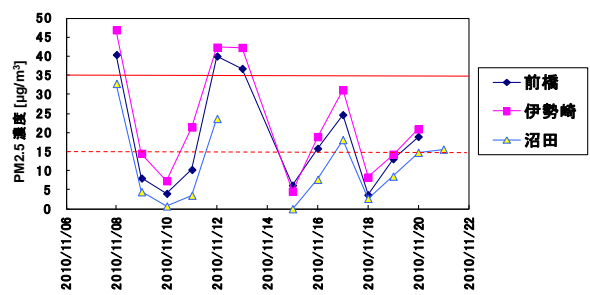


図 3 冬季の PM2.5 質量濃度変動

(実線は環境基準日平均値、破線は環境基準年平均値)

3.2. PM2.5 の化学組成変動

図 4 及び図 5 に夏季及び冬季における PM2.5 の化学組成変動を示す。なお、有機炭素 (OC) は有機物量に換算するため、OC に 1.6 を乗じている³⁾。

図 4 及び図 5 中の折れ線グラフは PM2.5 の総量を示すので、本来ならば化学成分の合計値と一致するはずである。しかしながら、実際には分析できなかった成分や分析誤差等の影響を除くことができず、必ずしも成分濃度の合計が PM2.5 の総量と一致していない。今後、分析精度の向上が必要と考えている。

夏季については、いずれの地点も有機物が最も多く、次いで SO_4^{2-} 、 NH_4^+ であった。

冬季については、いずれの地点も有機物が最も多く、次いで SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 NH_4^+ であった。夏季では、伊勢崎で NO_3^- が他の 2 地点よりも高い濃度であったが、冬季では、3 地点とも NO_3^- が SO_4^{2-} と同程度に検出された。

よって、PM2.5 の主成分は有機物及び SO_4^{2-} であることから、PM2.5 濃度の上昇には有機物等が影響していることが考えられた。これらは、3 地点とも同様であった。

自動車由来の一次粒子成分である EC は、3

地点とも低濃度で濃度変動幅も小さかった。

有機物は、燃焼発生源から直接排出される一次粒子と、光化学反応によって生成する二次粒子が存在する。WSOC は、二次粒子の指標として使われているが、一部自動車排出ガスや野焼き等からも直接排出される。OC、WSOC 及びその比を表 2 に示す。3 地点の夏季の WSOC/ OC 比は 0.72~0.86 で平均すると概ね 8 割程度、冬季のそれは 0.59~0.78 で平均すると概ね約 7 割程度であり、若干夏季の WSOC/ OC 比が冬季のそれよりも高くなっている。これは夏季において、光化学反応の活性化により二次粒子の生成が増加することで、OC 中の WSOC の割合が増加するためと考えられた。

表 2 で前橋における WSOC/ OC 比はむしろ冬季が高い。そこで、前橋における濃度変動を詳細に検討してみた(図 6)。最初に、WSOC と OC の濃度変動を夏季と冬季の連続でみると、両季もその変動はよく似ており、OC の上昇時には WSOC 濃度も増加していた。ただし、冬季の WSOC および OC の濃度変動は、燃焼発生源から排出される EC の濃度変動によく似ているのに対し、夏季についてはそれらの関連性があまりないように見える。これらのことから、有機物の変動は、冬季は光化学オキシダント濃度が低いことも考慮すると二次粒子よりも EC とともに燃焼発生源からの一次粒子に、夏季は二次粒子に支配されている可能性が高い。

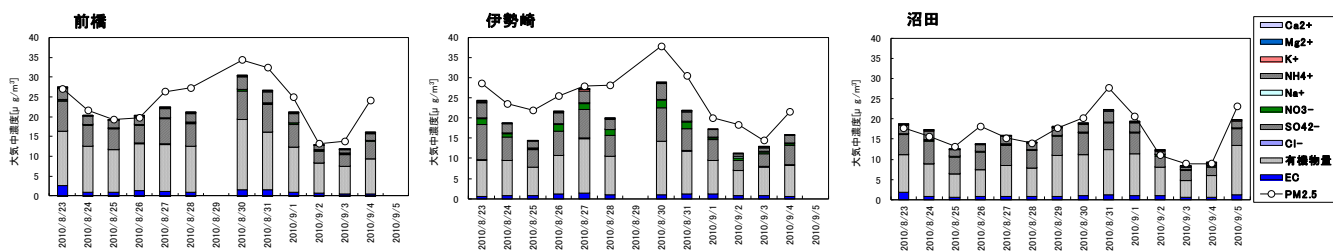


図 4 各地点における PM2.5 質量濃度変動と化学組成(夏季)

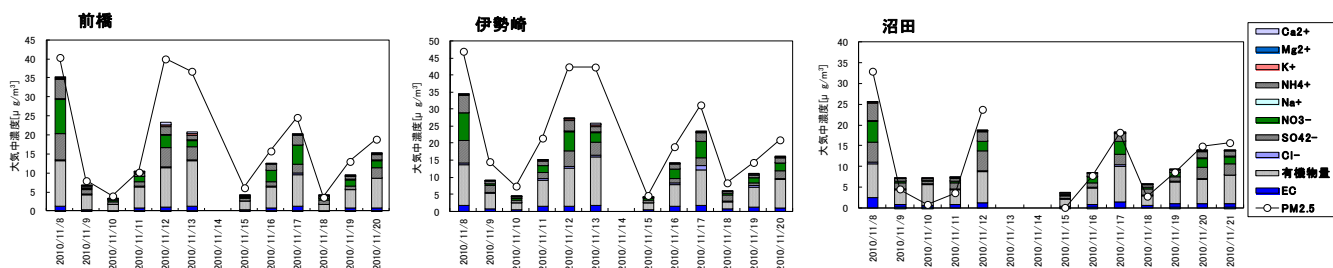


図 5 各地点における PM2.5 質量濃度変動と化学組成(冬季)

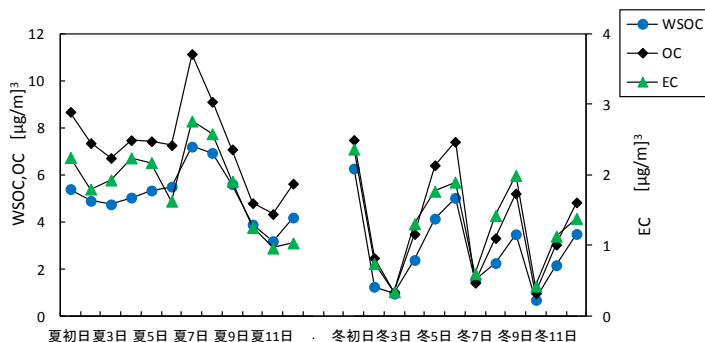


図 6 夏季と冬季の OC、WSOC および EC 濃度変動(前橋)

表2 有機炭素濃度(OC)、水溶性有機炭素濃度(WSOC)とWSOC/OC比

	夏季				冬季			
	EC	OC	WSOC	WSOC/OC 比	EC	OC	WSOC	WSOC/OC 比
	[$\mu\text{g}/\text{m}^3$]	[$\mu\text{g}/\text{m}^3$]	[$\mu\text{g}/\text{m}^3$]	Ratio	[$\mu\text{g}/\text{m}^3$]	[$\mu\text{g}/\text{m}^3$]	[$\mu\text{g}/\text{m}^3$]	Ratio
前橋	1.88	7.25	5.16	0.72	1.28	3.92	2.79	0.74
伊勢崎	1.79	5.74	4.91	0.85	1.64	4.53	2.69	0.59
沼田	1.63	5.14	4.38	0.86	1.17	3.24	2.35	0.78

文献

4. まとめ

2010年の夏季と冬季に、前橋、伊勢崎及び沼田の県内3地点でPM2.5の実態調査を実施したところ、次のことが把握できた。

○ PM2.5年間(夏季と冬季)平均質量濃度は、前橋で $21.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、伊勢崎 $23.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、沼田 $14.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ であり、前橋と伊勢崎は環境基準年平均値 $15 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を超える濃度レベルで、沼田は環境基準と同程度であった。

○ 夏季と冬季で、平均質量濃度としては夏季のほうが高く、夏季は伊勢崎で、冬季は伊勢崎と前橋で環境基準日平均値の $35 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を超過する濃度が観測された。

○ 前橋と伊勢崎のPM2.5の質量濃度変動パターンは、夏季も冬季も概ね同様であった。

○ 沼田の質量濃度は、前橋や伊勢崎よりも低いことが多いが、夏季には伊勢崎、前橋と同レベルの濃度になる日もあった。

○ 夏季について、3地点におけるPM2.5のもっとも多い成分は、有機物であり、次いで SO_4^{2-} 、 NH_4^+ であった。

○ 冬季について、3地点におけるPM2.5のもっとも多い成分は、有機物であり、次いで SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 NH_4^+ であった。

○ PM2.5中の有機物は、燃焼発生源から直接排出される一次粒子と、光化学反応によって生成する二次粒子が存在し、その変動は、夏季は二次粒子に、冬季は一次粒子に支配されている可能性が高い。

- 1) 環境省：微小粒子状物質健康影響評価検討会報告書、2008.
- 2) 環境省：微小粒子状物質による大気汚染に係る環境基準、平成21年環境省告示第33号、2009.
- 3) 熊谷貴美代、田子博、飯島明宏、小澤邦壽、坂本和彦：群馬県平野部および山岳部における微小粒子状物質の季節特性、大気環境学会誌、**45(1)**、10-20、2010.