

【報文】群馬県における粒子状物質質量濃度測定結果と測定値の品質管理

田子 博、梅田真希

Particulate Matter Mass Concentrations in Gunma and Quality control of the monitoring data

Hiroshi TAGO, Maki UMEDA

2014年度における群馬県内8地点のPM2.5質量濃度についてとりまとめた。年平均値は10.2～16.0 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であり、環境基準を達成したのは5地点であった。年平均値は周囲の状況を比較的反映していたのに対し、短期基準に関わる日平均値は高濃度（35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上）事象の発生状況に支配され、環境基準達成のためにはこの高濃度事象の解明、対策が重要である。

また、PM2.5とSPM測定値の比を用いてこれらの測定値の検証を行った。その結果、1地点のSPM計の不具合が疑われたが、事象の発現と検証の間に相当な時間が経過しており、明確な管理状況の問題点は認められなかった。できるだけ迅速にデータの検証を行うことが必要であろう。

Key words : PM2.5, SPM, 環境基準 Environmental standard

1. 緒言

2009年に微小粒子状物質（PM2.5）の環境基準が定められ、各自治体においてその質量濃度常時監視態勢の整備が進められてきた。群馬県においても、測定地点の拡充が順次図られ、2013年度末までには8地点に自動測定装置を配備し、当初計画した監視体制が整った（その他、国設1局、高崎市設2局）。

2014年度には県設置の8地点におけるPM2.5質量濃度（以下、本論ではとくに断りのない限り濃度は質量濃度を示す）の通年測定値が得られ、その結果（年平均値）はSPM等其他の項目とともに群馬県環境白書（群馬県、2015）に公表されている。群馬県内の市街地から山間地まで網羅的にPM2.5濃度が得られ、群馬県内におけるPM2.5濃度分布について考察することが可能となった。

また、この中で前橋局でのSPMとPM2.5濃度の年平均値が、それぞれ13、15（単位は便

宜上筆者が換算し、 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）と報告されている。SPMとPM2.5ではその定義から考えると、SPMの一部がPM2.5であるから、同一環境での濃度は理論的には必ず $\text{SPM} > \text{PM2.5}$ になるはずである。しかしながら、実際の両者の測定においては、試料導入管の形状や材質、粒子を捕集するろ紙の温度や湿度管理が必ずしも同一ではないため、得られた測定値の一部に SPM 濃度 $<$ PM2.5 濃度となる「逆転現象」が起こることは既に確認されている（中村ら、2006、米持と梅沢、2011）。しかしながら、年平均値という長いスパンでこのような「逆転現象」が認められたケースは筆者が知る限りなく、これは測定上何らかの不具合が生じた可能性を疑うべきであろう。今回のケースでは、SPMが過小に、あるいはPM2.5が過大に測定されたと推測される。

本報告では、2014年度における県設置の8局におけるPM2.5濃度を取りまとめた。さらに、前述した「逆転現象」について考察し、

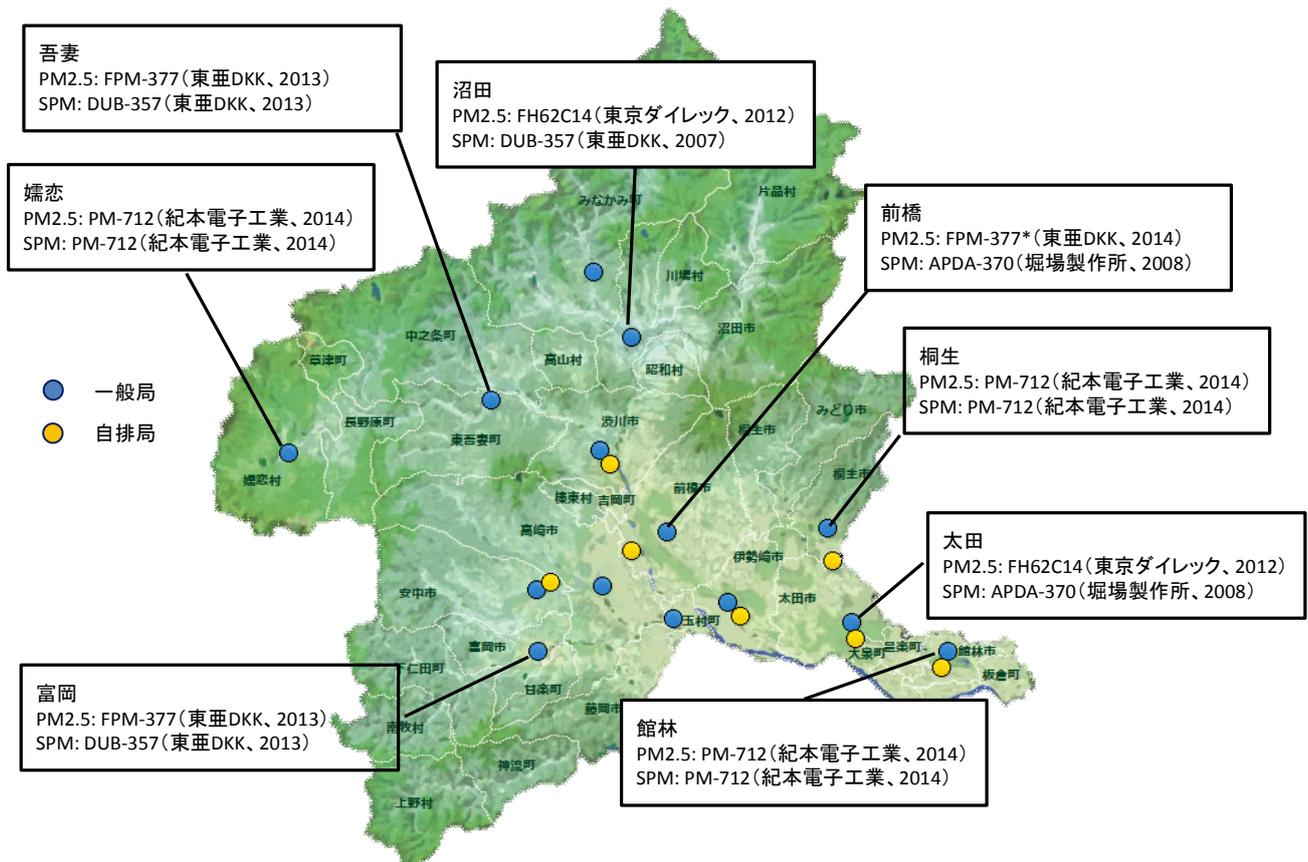


図1 群馬県における常時監視局の配置と粒子状物質の測定機器名
 (群馬県大気汚染情報 HP を元に作成、() 内数値は導入年度) *2014 年度途中で更新

測定値の質を担保するためのデータ確認について記述した。

2. 測定地点と測定機種

今回とりまとめの対象とした 8 台の PM_{2.5} 計の配置を測定機種名とあわせて図 1 に示した。これらの地点では同時に SPM の測定も行っている。前橋の PM_{2.5} 測定装置は 2014 年度途中で更新されたが、同一機種であり、およそ 1 ヶ月間の並行運転でも測定値の違いは認められなかった。

前橋の東～南方向は関東平野が広がっており、人口密度も高く、産業も盛んである。標高は概ね 100 m 以下であり、館林から前橋にかけては関東平野の一部で平坦地である。桐生、太田、館林の 3 地点はいずれも周囲は住宅、商業地の市街地に設置された測定局であり、前橋は周囲が圃場である郊外に設置された測定局である。

富岡も標高は 100 m 程度であるが、小さな丘

陵で関東平野とは区切られている。測定局は市街地にあるが、市の規模は小さく、県東南部の都市とは明らかに状況が異なる。

一方、前橋から北～北西方向は山地が広がっており、人口密度が低い。北部の 3 地点(沼田、吾妻、嬭恋)は概ね標高 400 m 以上に位置し、とくに嬭恋は約 900 m の高原である。嬭恋では光化学オキシダントの挙動が平野部とは異なることも報告されており(一条ら、2013)、群馬県内では首都圏平野部からの大気汚染の影響を比較的受けにくい地点と考えられる。このような群馬県における地形の特徴や測定地点周辺の土地利用状況を考慮すると、8 カ所の測定地点は大まかに以下のように分類される。郊外に分類した 2 地点のうち、前橋は市街地寄り、富岡は中山間地寄りの性質を持つ。

市街地：桐生、太田、館林

郊外：前橋、富岡

中山間地：沼田、吾妻

バックグラウンド：嬭恋

表 1 2014 年度 PM2.5 環境基準達成状況

測定局	有効測定日数	年平均値 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	日平均値の 年間98%値 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	日平均値が $35\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えた日数とその割合		長期基準 超過の有無	短期基準 超過の有無	環境基準 (達成○・非達成×)
	(日)			(日)	(%)	(有×・無○)	(有×・無○)	
前橋	357	15.0	38.0	11	3.1	×	×	×
桐生	363	14.6	34.8	6	1.7	○	○	○
太田	350	14.6	33.5	6	1.7	○	○	○
沼田	357	13.2	40.3	11	3.1	○	×	×
館林	363	16.0	36.9	10	2.8	×	×	×
富岡	356	12.4	32.0	5	1.4	○	○	○
吾妻	363	12.2	31.0	4	1.1	○	○	○
嬬恋	360	10.2	27.9	5	1.4	○	○	○

3. 結果と考察

3.1. PM2.5

3.1.1. 環境基準達成状況

PM2.5 の環境基準の達成状況を表 1 に示す。全ての地点において、有効測定日数は 350 日以上が確保されており、測定機器の大きなトラブルはなかった。環境基準は 8 局中 5 局で達成しており、達成率は 62.5 %であった。桐生および太田は長期、短期ともに基準をわずかに下回っているだけであり、年変動を考えると翌年以降安定的に基準を達成できるかは不透明である。沼田については年平均値は基準値未満だったが、日平均値の基準値超過が目立ち、結果として環境基準を達成できなかった。

表 1 から判断すると、PM2.5 濃度の年平均値は概ね周囲の状況を反映しているのに対し、日平均値の 98 %値や $35 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 超過（以下、高濃度とする）日数は必ずしも周囲の状況とは一致しないようである。

3.1.2 群馬県内の PM2.5 濃度分布

各地点の PM2.5 濃度日平均値について、クラスター分析（ウォード法）を行い、その dendrogram を図 2 に示した。これは、各地点の PM2.5 濃度分布の類似性を表している。市街地

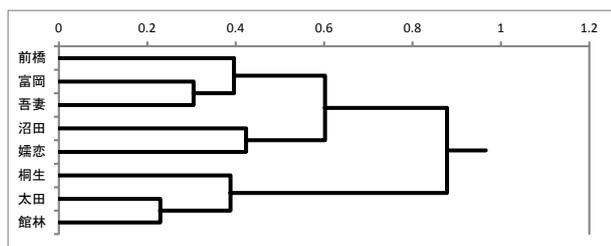


図 2 PM2.5 日平均値クラスター分析結果

に分類した 3 地点の距離が短く、その他にも概ね 2 で行った分類に準じた区分になっていた。図 2 と表 1 から、クラスターの距離が近くなった地点間の年平均値は比較的近接しており、PM2.5 年平均値は概ね周囲の人間活動の状況と一致するという 3.1.1 での記述を支持する結果となった。

しかしながら、前橋の年平均値については館林に次いで 2 番目に高く、郊外としては高かった。郊外といえども前橋は県内 2 位の人口を抱え、産業も富岡や吾妻といった小規模な市や町より盛んであることがその理由の一つに挙げられる。また、前橋はアンモニアガス濃度が非常に高いという特徴（田子と一条、2014）があり、これが PM2.5 濃度上昇に関与する可能性もあるが、現時点では定量的な評価はできていない。

各地点の PM2.5 濃度（日平均値）について、スピアマン相関行列を求めたところ、全地点の組み合わせにおいて、有意な相関が認められた ($p < 0.01$)。これは、PM2.5 濃度の変動がどの地点も類似している、すなわち群馬県の PM2.5 の変動は気象要因も含む広域事象が支配的であることを意味している。ここで、類似しているのはあくまで変動であり、濃度レベルそのものが同じであるという意味ではない点に留意してもらいたい。もちろん、これは統計的なものであり、県内一部の地域での高濃度事象も存在すると考えられる。次節では高濃度事象に焦点を当てる。

3.1.3 高濃度事象の出現状況

まず、どの地点でいつ高濃度事象が起こったかを一覧にまとめ表 2 に示した。表中の数値は PM2.5 濃度日平均値を整数値で示したもので、短期環境基準を超過した場合には網掛けで示し

である。複数の地点で同時に高濃度となる場合が多く、これらをイベント A～H として表中に示した。高濃度日はイベント A (4 月 16～18 日) (橋本ら、2015) および D (5 月 31 日～6 月 4 日) (寺本ら、2015) に集中しており、延べ 59 日ある高濃度日のうち、41 日がこの期間のものであった。この両期間においては全 8 測定地点において高濃度日が出現しており、さらに関東地方大気環境対策推進連絡会の報告書 (関東地方大気環境対策推進連絡会、2016) によると、関東甲信静地域のほぼ全域で高濃度となっていた。同報告書では、この 2 期間の他、6 月 16～18 日、7 月 23～27 日、10 月 31 日～11 月 1 日および 3 月 16～19 日に関東甲信静地方の比較的広い範囲で高濃度事象が発生したとある。イベント E、F および G はこれらの期間に含まれており、群馬県内あるいはその周辺に限定された狭い範囲での高濃度事象はイベント B、C および H のわずか延べ 7 日だけであった。

局所的な汚染の可能性がある延べ 7 日の高濃度日のうち、5 日はイベント C によるものであり、バックグラウンド地点の孺恋を含む県内複数の地点で高濃度となった。この期間においては県東南の市街地 (桐生、太田、館林) よりそれ以外の地点で濃度が高くなっているのが特徴であった。これとは逆にイベント H では基準を超過した館林を含む県東南部で比較的濃度が高かった。イベント B では沼田だけ高濃度となっており、それ以外の 7 地点は似たような濃度であった。イベント B を含む全てのイベントにおいて、高濃度までには至らなかった地点も濃度の上昇が見られ、清浄 (日平均値 $15 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下) というわけではなかった。中にはイベント C の吾妻やイベント H の桐生のように、基準値すれすれのケースもあり、機器の測定誤差を考慮すれば基準値を超過していても不思議ではなかった。

環境基準 (とくに短期基準) 達成の第一歩としてこうした高濃度事象の解析が必要である。このような高濃度事象は全国各地で観測されており、その原因については規模の大きなものを中心に個別の解析が行われている (例えば山神ら、2013、熊谷ら、2014、長谷川ら、2014、橋

本ら、2015、遠藤ら、2015)。その結果、①国外からの越境汚染、②硝酸粒子を中心とする二次粒子の生成、③光化学反応による有機粒子の生成が高濃度事象の主因として報告されている。熊谷ら (2015) は PM_{2.5} 高濃度要因の化学的特徴をグループ分けし、地域別にとりまとめ、九州地方では①が比較的大きな割合であるのに対し、関東では②あるいは③の要因が多いことを示した。

①については直接的な対策はないが、汚染寄与分の国内外の明確な切り分けが必要であろう。②については、硝酸の粒子化は気温や湿度といった気象条件に大きく影響されると考えられるが、急激な硝酸塩粒子の濃度増加に寄与する具体的な気象条件については明確にわかっていない。また、硝酸粒子の前駆体である窒素酸化物濃度との関連性について、定量的評価もできていない。③については、有機粒子の実態がまだ十分に把握されておらず、当然その発生源の割り当てもできていない。以上のように、基準達成のための対策を検討するにはまだ解明すべき点が多く、こうした点にフォーカスした研究 (例えば、高濃度事象時に高時間分解能で成分分析を行う) を推進していく必要がある。

3.2. PM_{2.5} と SPM の比較

粒径が異なるものの同じ粒子を測定する PM_{2.5} 計と SPM 計は基本的に同じ検出器で測定される。群馬県が設置している装置は全て β 線吸収法であり、現在日本国内でもっとも一般的に流通している方式である。しかし PM_{2.5} 計は SPM 計と異なり、温度 21℃、湿度 35% という日本の風土には極めて厳しい条件下で測定した値と等価性を持つことが必須とされているため、各メーカーは温度や湿度のコントロールや補正係数を用いる等の対応をしなければならない。また、SPM より低濃度の領域を測定するため検出器の感度はよりシビアにならざるを得ない。このように、PM_{2.5} 計はデータに影響を与えうる要因が SPM 計より多いため測定誤差やばらつきが大きくなりがちである。板野ら (2016) は PM_{2.5} 計の空試験データをその維持管理に利用する方法を提案しているが、まだ一般的とは言えず、データの質の担保に各自治

表 3 各地点における PM2.5/SPM 比

	濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)		PM2.5/SPM
	PM2.5	SPM	
前橋	15.0	13	1.15
桐生	14.6	20	0.73
太田	14.6	19	0.77
沼田	13.2	17	0.78
館林	16.0	20	0.80
富岡	12.4	16	0.78
吾妻	12.2	14	0.87
嬭恋	10.2	13	0.78

体は苦慮していると思われる。

PM2.5 の測定値の妥当性を確認する一つの方法として PM2.5/SPM 比 (PM2.5 の値を SPM の値で除したものを) を求めることが考えられる。環境省の資料 (環境省、2008) では SPM 濃度から PM2.5 濃度を推定する方法としてこの比を 0.7 としている。この比は大気汚染物質の状況によって変動すると考えられるが、先行研究における報告値 (根津と坂本、2002、中村ら、2006、喜多ら、2014) から、平均すると概ね 0.6 ~ 0.9 の範囲であると思われる。年平均値を用いて群馬県におけるこの比を求めると表 3 のようになる。前橋を除いて PM2.5/SPM 比は 0.73 ~ 0.87 であり、先行研究と一致した値となった。前橋はこの比が 1 を越えており、冒頭で述べたように測定上のトラブルを疑う必要がある。

そこでさらに詳細な状況を見るため、月平均値から PM2.5/SPM 比を求め、これを時系列に示したのが図 3 である。前橋では 9 月以降、一貫して 1 を越えていた。表 3 から前橋における SPM の年平均値は中山間地の吾妻より低く、

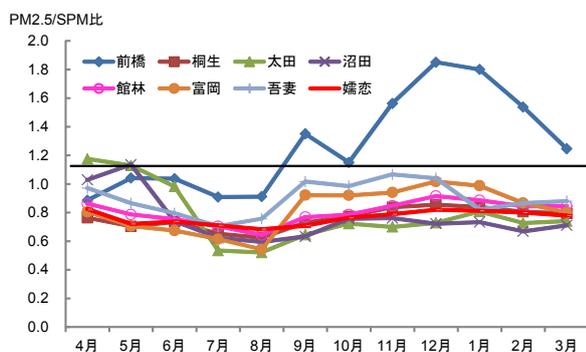


図 3 各地点における PM2.5/SPM 比の経月変化

バックグラウンドの嬭恋と同レベルである。また、データは示していないが、9 月以降、前橋の SPM 濃度は県内最低で推移しており、周囲の状況から考えて前橋の SPM 濃度が低く測定された可能性が高い。このことから SPM 計の不具合が疑われたが、機器の維持管理作業報告書では、月 1 回行われていた等価膜による校正結果を含めて異常は報告されていなかった。このため、前橋の SPM 測定値を欠測扱いするまでの明確な根拠を特定できず、当該測定値は確定値となった。

別の面からこの SPM 測定値を検証するため、前橋局から南東に直線距離で約 1.3 km 離れた場所にある前橋東局 (前橋市設置) の SPM 測定値を用いて PM2.5/SPM 比を求めたところ、年間の平均値は 0.74 と他局とほぼ同等な値が得られ、SPM の濃度も県内の市街地の値と同等であった。以上、装置の明確な異常が認められないながらも、前橋局の SPM 測定値には疑問を挟む余地がある。このため、当該装置の処遇に苦慮したが、2015 年秋に同型式の装置を別の測定局から移設し、データの推移を見守ることとした。

図 3 で 4、5 月の太田、5 月の沼田、11 月の吾妻も PM2.5/SPM 比が明らかに 1 を越えていたが、いずれも校正結果を含め、機器の異常は報告されていなかった。とくに 5 月の沼田における PM2.5 濃度は他地点と比較して高めに推移しており、前述したイベント B に至っていた (ただし、イベント B の原因は不明)。先の前橋の事例も含め、異常な状況が発覚するまでのタイムラグが大きく、リアルタイムで機器の状況の把握ができなかったこともその不具合を明確にできなかった一因であろう。今後は、状況を迅速に把握し、これを適切な測定装置の維持管理に生かす必要がある。

もちろん、PM2.5/SPM 比はデータ検証のための一つの参考情報に過ぎない。図 3 において、桐生、館林、嬭恋ではこの比が 1 を越えることはなかった。これら 3 地点は同じ機種であり、PM2.5 と SPM をバーチャルインパクトによって同一の装置で測定する方式を採用している。このため、完全に別個の装置で測定している他地点より逆転現象が起きにくいと思われる。

逆に、この機種では適切な維持管理がなされていない場合、PM2.5、SPM 両方の濃度値が「適切な」比率を保ったまま不正確になることも考えられる。この機種の場合は、他地点との挙動の類似性等、別の面からデータの確認をする必要があるだろう。

図 2 と同様のクラスター分析を日毎に算出した PM2.5/SPM 比について行った結果が図 4 である（前橋は除外）。SPM 計に関しては機種間の差がないという仮定の下であるが、PM-712（桐生、館林、嬭恋）グループ、FH62C14（太田、沼田）グループおよびFPM-377（富岡、吾妻）グループの 3 グループに分類された。距離も離れており、周囲の状況も大きく異なる地点が測定機種という括りで同じグループに分類された。

PM2.5/SPM 比で地域の特徴や機種の特性を考察するのが適当か、その数値にどこまでの意味があるのかどうかは議論の余地が大いにあるだろう。また、今回の結果は群馬県の 2014 年度という限られたデータによるものであり、図 4 は偶然の産物かも知れない。しかしながら、山川ら（2016）も PM2.5 濃度の機種依存性の可能性を示唆している。たとえ等価性評価をクリアした機種で測定された値であっても、現状では PM2.5 濃度を解析する際には、測定機種の情報も考慮しておいた方が良さそうである。

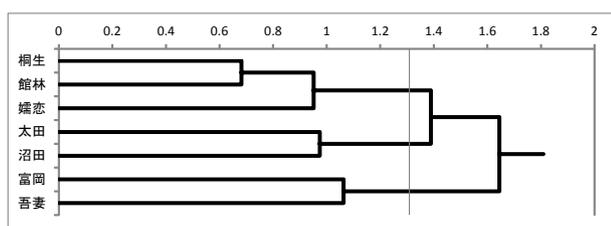


図 4 PM2.5/SPM 比のクラスター分析結果

4. 結 言

2014 年度の群馬県設置 8 地点における PM2.5 環境基準達成率は 62.5 %であった。年平均値は概ね測定地点周辺の状況を反映していたのに対し、短期間に高濃度となる事象は主として少なくとも関東地方規模の広域汚染によるもので、

このため短期基準の達成ができない状況であった。自動車の PM2.5 濃度への寄与割合は大きく、約 2 割と試算されている（板橋と速水、2016）。したがって、自動車の低燃費化や電化が促進されれば、ベースとしての PM2.5 濃度の低下はもう少し期待できるだろう。よって、環境基準達成への鍵は高濃度イベントによる短期基準超過への対策である。このための取り組みとして、国立環境研究所と地方環境研究所の共同研究が行われており、群馬県もこれに参画し、高濃度事象の解析を進めている。

PM2.5/SPM 比を用いて測定値の品質管理を試みたところ、前橋における SPM 計の不具合が強く疑われた。しかしながら、機器の維持管理報告書からは当該機器の故障という確証が得られなかった。このため、欠測処理にするのに十分な証拠がなく、この状態で欠測処理を施すことは場合によってはデータ隠蔽を疑われる恐れがあり、一見矛盾したデータを公表せざるを得なかった。

群馬県では少なくとも 1 回/週のデータチェックと 1 回/月の機器管理委託業者からの報告を受け、測定値の品質管理に努めている。とくにデリケートな面を持つ PM2.5 計による測定値の品質を保つためには、データチェックの際に PM2.5/SPM 比の確認や他地点との相互比較を行い、一定期間異常な値となった場合には機器の臨時点検等の対応が必要となると思われる。各自自治体で測定された値は公表され、誰でも利用可能である。実際に、疫学やシミュレーションモデルの専門家がこの値を疑いもなく利用して研究を行っていることが筆者の知る範囲でも認められた。測定値の不正確さはこれらの研究結果を大きく歪曲させてしまい、ひいては PM2.5 対策のシナリオを狂わすことにもなりかねない。質の高い測定値を提供することは当然であるが、こうした分野の専門家とも積極的に情報交換し、正しい PM2.5 対策へ繋げていきたい。

謝 辞

機器の維持管理情報も含め本報告で使用した

前橋東局を除く全データは群馬県環境保全課から入手した。また、前橋東局の SPM データは前橋市から提供を受けた。関係各位に感謝します。

文 献

- 遠藤昌樹、浅川大地、熊谷貴美代、山神真紀子、橋本貴世、小泉英誉、武田麻由子、牧野雅英、花岡良信、梶田奈穂子、長谷川就一、菅田誠治、2015: 2014年7月におけるPM2.5高濃度事例の解析、第56回大気環境学会年会講演要旨集、426.
- 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、2014: 2011年11月に関東で観測されたPM2.5高濃度の解析、大気環境学会誌、**49**、242-251.
- 橋本貴世、山神真紀子、武田麻由子、熊谷貴美代、寺本佳宏、宮田朋子、長谷川就一、菅田誠治、2015: 2014年4月におけるPM2.5高濃度事例の解析、第56回大気環境学会年会講演要旨集、425.
- 一条美和子、齊藤由倫、熊谷貴美代、田子博、2013: 近年における群馬県内の光化学オキシダントに関する考察、群馬県衛生環境研究所年報、**45**、30-37.
- 板橋秀一、速水洋、2016: 2010年度を対象としたトレーサー法によるわが国の微小粒子状物質の発生源寄与評価、大気環境学会誌、**51**、197-217.
- 板野泰之、山神真紀子、長谷川就一、田子博、長田健太郎、鈴木義浩、秋山雅行、山川和彦、菅田誠治、2016: PM2.5自動測定機の維持管理のための空試験データの活用、大気環境学会誌、**51**、190-195.
- 関東地方大気環境対策推進連絡会、2016: 平成26年度浮遊粒子状物質合同調査報告書、pp. 61-92.
- 喜多真帆、中野温朗、野村茂、信森達也、鷹野洋、2014: 自動測定機を用いたPM2.5とSPM及びその他の物質の相関について、岡山県環境保健センター年報、**38**、1-5.
- 熊谷貴美代、山神真紀子、橋本貴世、野口邦雅、木下誠、長谷川就一、菅田誠治、2014: 2014年2月におけるPM2.5高濃度事例の解析、第55回大気環境学会年会講演要旨集、401.
- 熊谷貴美代、田子博、山神真紀子、寺本佳宏、橋本貴世、牧野雅英、木下誠、佐久間隆、長谷川就一、菅田誠治、2015: 全国PM2.5成分測定結果から見た高濃度日における地域別化学組成の特徴(第2報)、第56回大気環境学会年会講演要旨集、281.
- 群馬県、2015: 平成27年度版環境白書、p. 95.
- 環境省、2008: 大気汚染に関わる粒子状物質による長期曝露調査結果、中央環境審議会第25回大気環境部会資料、<http://www.env.go.jp/council/former2013/07air/y070-25b.html> (2016年7月15日アクセス)
- 中村栄一、菅原隆一、高橋正人、加賀谷秀樹、2006: 宮城県におけるPM2.5自動測定結果について(2)、宮城県保健環境センター年報、**24**、91-93.
- 根津豊彦、坂本和彦、2002: 大気中微小粒子(PM2.5)質量濃度の測定、大気環境学会誌、**37**、A1-A12.
- 田子博、一条美和子、2014: 前橋における酸性雨調査、群馬県衛生環境研究所年報、**46**、33-37.
- 寺本佳宏、遠藤昌樹、熊谷貴美代、長谷川就一、宮田朋子、花岡良信、山神真紀子、橋本貴世、中島亜矢子、菅田誠治、2015: 2014年5,6月におけるPM2.5高濃度事例の解析、第56回大気環境学会年会講演要旨集、279.
- 山神真紀子、佐川竜也、中戸靖子、長田健太郎、米持真一、山本勝彦、山田大介、芝和代、山田克則、菅田誠治、大原利眞、2013: 2011年2月上旬に観測された広域的なPM2.5高濃度エピソードの要因推定、大気環境学会誌、**48**、196-205.
- 山川和彦、早崎将光、長谷川就一、板野泰之、鈴木義浩、山神真紀子、田子博、長田健太郎、秋山雅行、菅田誠治、2016: PM2.5測定法に関する研究、第57回大気環境学会年会講演要旨集、86-89.
- 米持真一、梅沢夏実、2011: 環境基準の設定を

踏まえた大気中微小粒子状物質の特性解明、
埼玉県環境科学国際センター報、**11**、112.

