

岡山県下における微小粒子状物質の成分の実態について（第2報）

中野温朗，間野遼太，喜多真帆，野村 茂，信森達也，鷹野 洋

【資 料】

岡山県下における微小粒子状物質の成分の実態について(第2報)

Component Analysis of PM2.5 in Okayama Prefecture(No.2)

中野温朗, 間野遼太, 喜多真帆, 野村 茂, 信森達也, 鷹野 洋(大気科)
Atsurou Nakano, Ryouta Mano, Maho Kita, Shigeru Nomura,
Tatsuya Nobumori, Hiroshi Takano(Atmosphere Section)

要 旨

環境大気中の微小粒子状物質(以下「PM2.5」という。)の質量濃度が1時間値 35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 超過を継続した期間を含む平成26年5月27日から6月3日に捕集したPM2.5の成分分析結果を解析した。分析対象とした成分のうちイオン成分がPM2.5平均組成の45%を占め, 同成分のうち SO_4^{2-} と NH_4^+ が主成分となりPM2.5と同様の濃度変動の傾向がみられ, PM2.5と同じ時間帯に最大濃度に達した。炭素成分, 無機元素成分は平均組成の5%, 8%を占め, PM2.5が期間中の最大濃度に達した時間帯には最大濃度にならず, PM2.5に反した濃度変動の傾向をもつ時間帯があった。無機元素成分間にも濃度変動に違いがみられ, PM2.5と最大濃度に達した時間帯に36~60時間の差があった。

[キーワード: 微小粒子状物質, 質量濃度, 成分分析]

[Key words: PM2.5, Mass Concentration, Component Analysis]

1 はじめに

第1報¹⁾では, 環境基準の短期基準を超過した時の微小粒子状物質(以下「PM2.5」という。)の実態解明に資するため, 1時間値 35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 超過を継続した期間(平成26年4月15日~19日)のPM2.5成分の推移を「大気中微小粒子状物質成分測定マニュアル(環境省平成24年4月)」に定められる捕集時間(24時間)より短い6時間間隔で連続して集中的に観測(以下「集中観測」という。)した結果を報告した。本報では, 同様の集中観測を実施した平成26年5月27日18時から6月3日12時までの観測結果を報告する。

2 調査方法

本報の調査方法(地点, 捕集, 成分分析, 解析)はいずれも第1報と同様とした。

3 結果及び考察

3.1 集中観測期間のPM2.5濃度の推移

図1は総社局の自動測定機DKK製FPM-377で観測された環境大気中のPM2.5の質量濃度(以下「PM2.5濃度」という。)の1時間値推移及び日平均値を示す。

PM2.5濃度は5月28日6時頃から増加して15時45 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ をピークに減少傾向になり, 29日5時前後を底に再度増加し始めて12時には35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超過した。その後PM2.5濃度は増減を繰り返しながら概ね35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 超過を6月2日22時まで約4.5日間継続し, 3日12時に10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ まで減少した。日平均値は, 28日29.6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 29日35.2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 30日47.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 31日47.6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 1日41.0 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 2日41.2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 3日14.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ だった。日平均値は29日から2日まで短期基準35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超過した。

3.2 集中観測期間の気象

図2は各日の天気図を示す²⁾。集中観測期間は, 5月28~29日にかけて低気圧が西日本を覆い太平洋上に停滞前線が6月1日までとどまり, 30~1日にかけて移動性高気圧が西日本を通過して2~3日には前線を伴う低気圧が西日本に接近した。なお, 集中観測期間に岡山気象台では降雨は観測されず, 黄砂が28~2日まで6日間連続して観測された³⁾。

総社局で行っている風向, 風速の観測では27~2日にかけて類似した傾向が示された。風向は午前中(6~12時)に東北東, 日中(12~18時)に南や南南西, 夜中

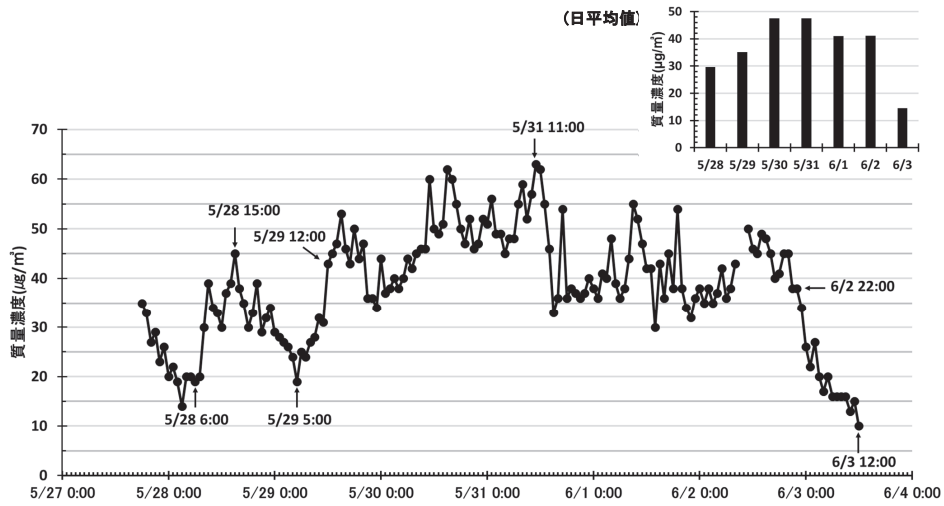


図1 PM2.5濃度の1時間値推移及び日平均値

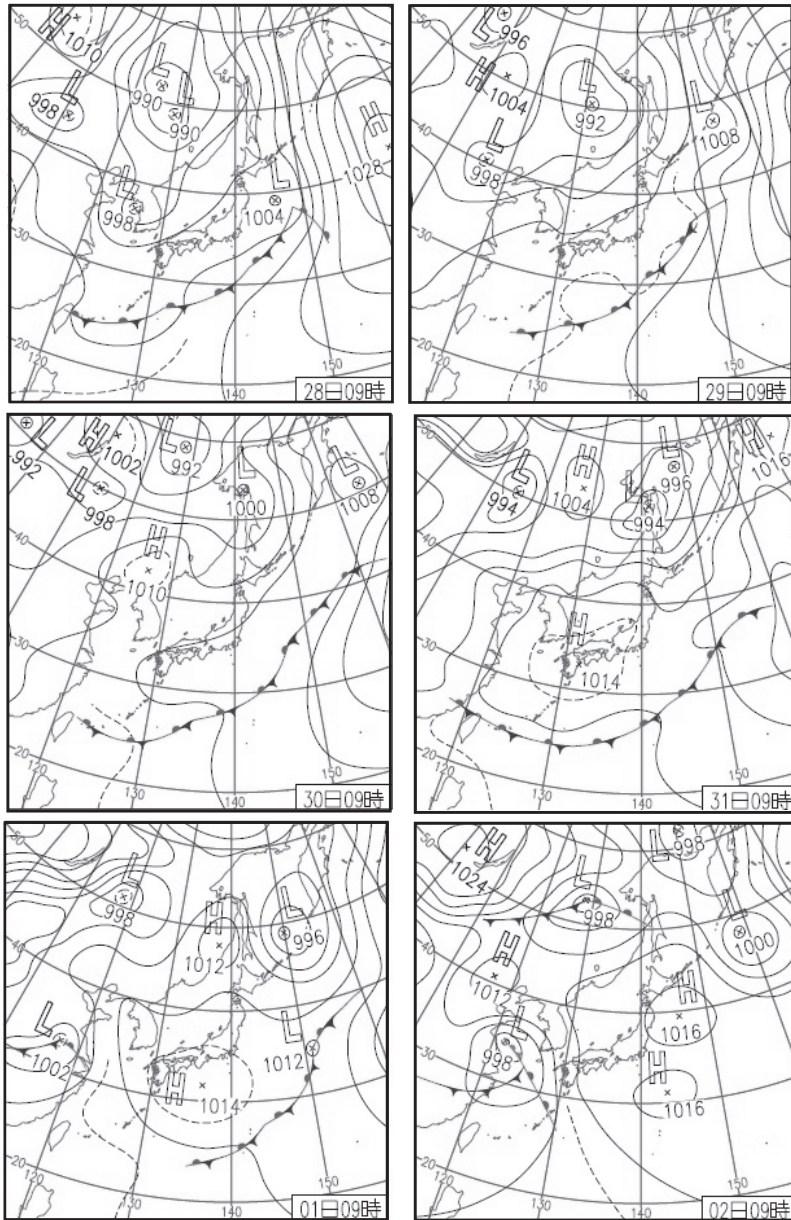


図2 天気図

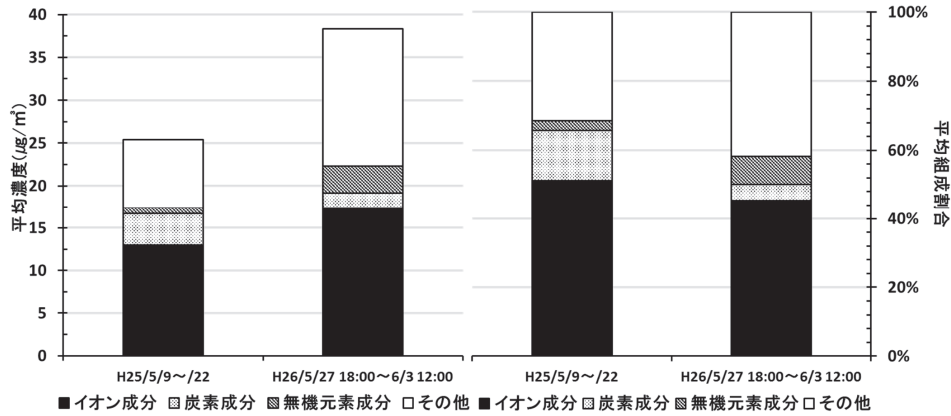


図 3-1 平均濃度及び平均組成割合(全体)

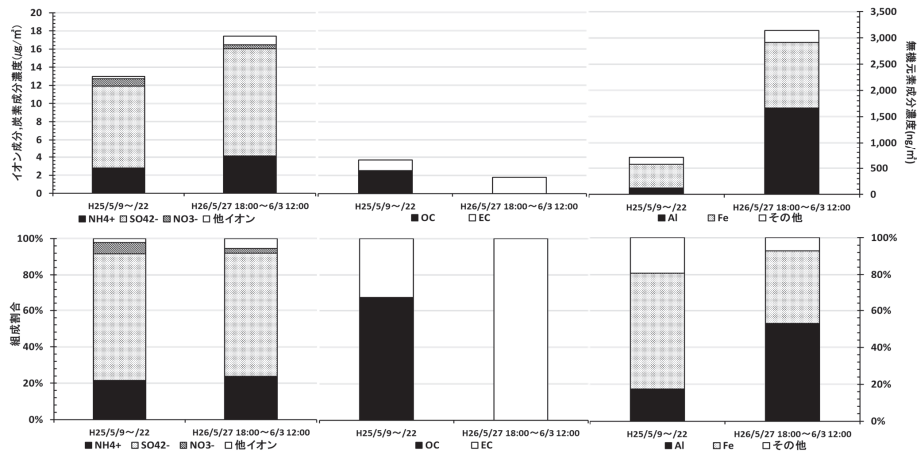


図 3-2 平均濃度及び平均組成割合(成分)

から早朝(18~6時)に西や北西が卓越していた。平均風速は日中(2.2m/s)で午前中、夜中や早朝(0.9~1.2m/s)より大きくなった。2日以降は東北東の風向が卓越した。

3.3 PM2.5 成分の平均濃度と平均組成割合

図 3-1、3-2 は集中観測期間及び平成 25 年度春期常時監視期間(平成 25 年 5 月 9~22 日、以下「常時監視期間」という。)の PM2.5 の平均濃度と平均組成割合を示す。常時監視期間は春期の大気環境を表す参考例に示した。集中観測期間の各時間帯の PM2.5 濃度の平均値は 37.9µg/m³であり、イオン成分が濃度 17µg/m³で全体組成の 45%を占め、炭素成分 1.8µg/m³、5%、無機元素成分 3.1µg/m³、8%、その他 16µg/m³、42%であった(その他は分析対象の 3 成分に分類されないもの等を含む)。

常時監視期間の各観測日の PM2.5 濃度の平均値は 25.4µg/m³であり、イオン成分 13µg/m³(組成割合 51%)、炭素成分 3.7µg/m³(同 15%)、無機元素成分 0.71µg/m³(同 3%)、その他 8.0µg/m³(同 31%)であった。集中観測期間は常時監視期間よりイオン成分の濃度は増加したもの

の割合が低下した一方で、無機元素成分の濃度は 4 倍以上、割合は 2 倍以上増加した。有機炭素(OC)が定量下限値未満だったため元素状炭素(EC)のみの観測結果となって、炭素成分の濃度、割合は減少した。

集中観測期間のイオン成分のうち SO_4^{2-} 、 NH_4^+ の平均濃度の合計は 16µg/m³であり、同成分の 94%を占めた。 SO_4^{2-} 、 NH_4^+ は集中観測期間に常時監視期間(12µg/m³、92%)と比較して濃度は増加したが、イオン成分に占める割合は同程度の結果だった。 NO_3^- の平均濃度は 0.43µg/m³で、イオン成分の 3%を占めて常時監視期間(0.80µg/m³、6%)より低下した。

無機元素成分のうち Al の平均濃度は 1.7µg/m³で常時監視期間(0.12µg/m³)の 14 倍増加し、Fe の平均濃度 1.2µg/m³と合計すると同成分の 94%(常時監視期間 80%)を占めた。Fe は無機元素成分の 39%を占めて常時監視期間の同割合 63%から低下した一方で、Al の同割合は常時監視期間の 17%から 55%に増加した。集中観測期間は他の元素の濃度も全体的に増加したが、Al 濃度が

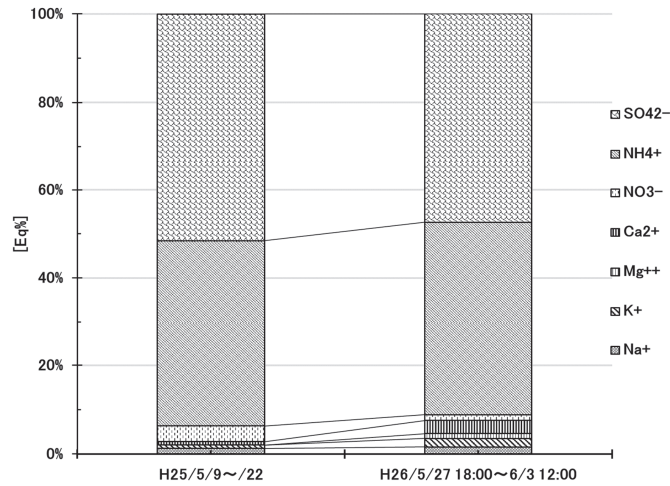


図4 イオン組成(当量比)

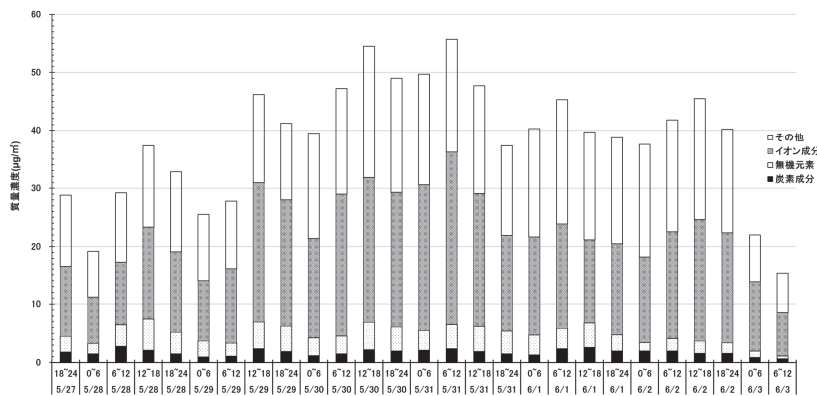


図5 成分濃度の推移

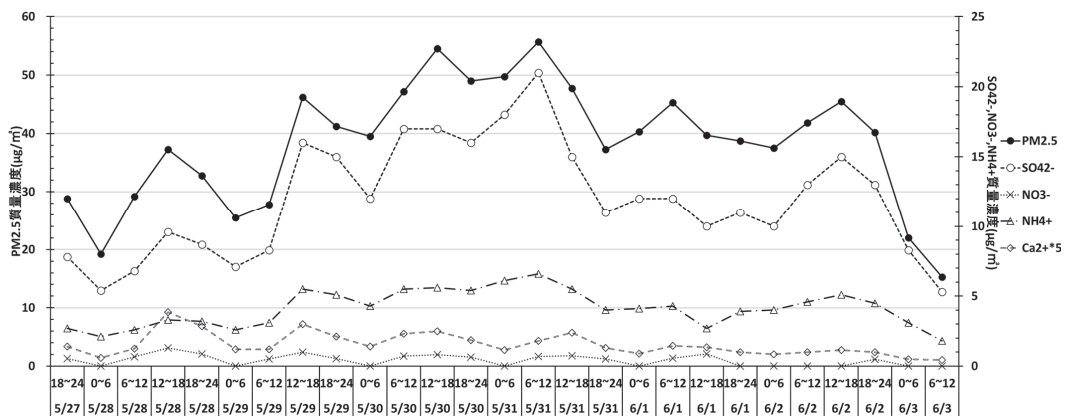


図6 イオン成分濃度の推移

他元素と比較して大幅に増加していた。Al濃度増加については3.2で述べた黄砂移流との関連性が考えられた⁴⁾。

図4は集中観測期間と常時監視期間のイオン成分の平均当量比を示す。平均当量比は集中観測期間で常時監視期間よりSO₄²⁻は低下し、NH₄⁺は同程度だったのに対して、Ca²⁺やK⁺、Mg²⁺は2倍以上増加していた。集中観測期間には平均当量比の構成に変化はあったが、SO₄²⁻、NH₄⁺がイオン成分の平均濃度に占める割合は変わらず、Ca²⁺

やK⁺、Mg²⁺の影響は限定的だった。Ca²⁺当量の増加については土壌粒子との関連性が考えられた^{5、6)}。

3.4 集中観測期間の各成分の濃度、組成割合の推移

図5は集中観測期間の成分濃度の推移、図6はイオン成分濃度の推移、図7はアメリカ海洋大気庁NOAA HYSPLIT Trajectory Model⁷⁾による後方流跡線、図8は九州大学と国立環境研究所の運用する化学天気予報システム(CFORS)⁸⁾による硫酸塩エアロゾル推定分布を示す。

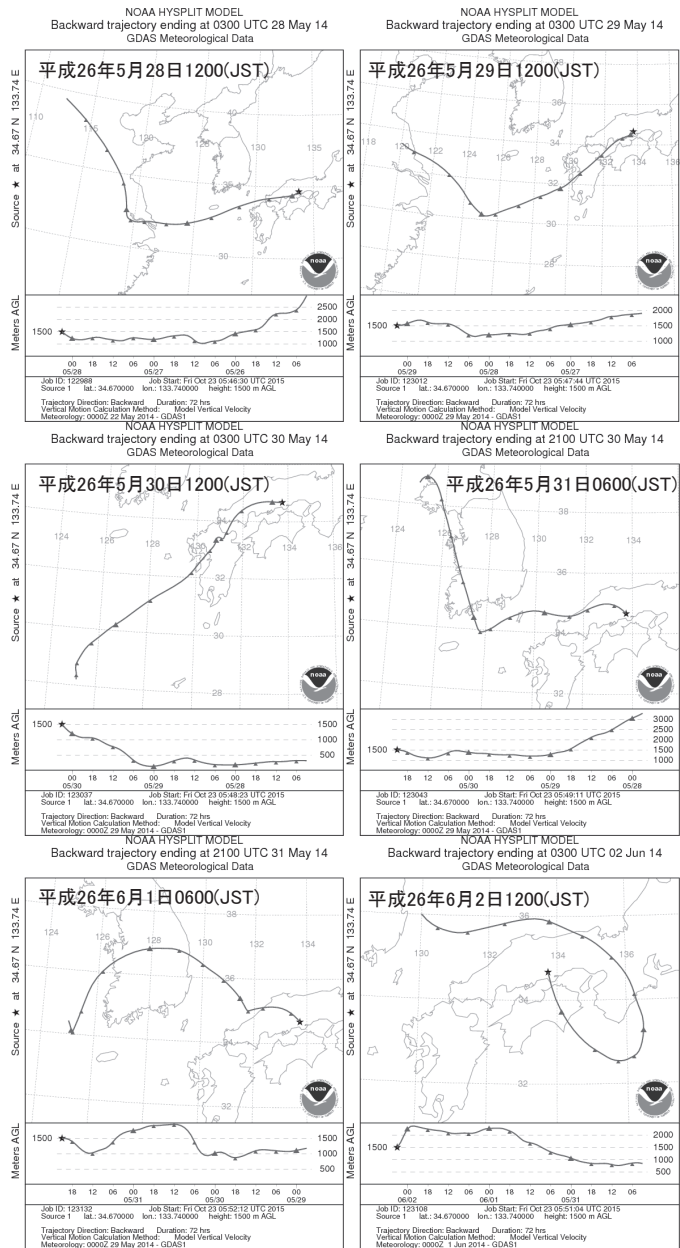
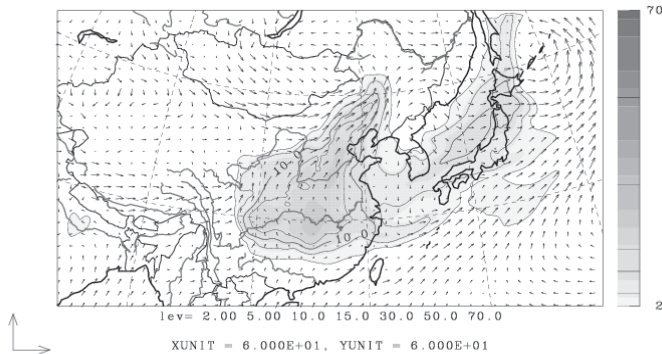


図7 後方流跡線

U-V&Sulfate m/s&ug/m³ JST
2015/05/31.06:00:00



©九州大学応用力学研究所(RIAM)/国立環境研究所(NIES)
図8 硫酸塩エアロゾル推定分布

SO₄²⁻濃度は5.3～21μg/m³(組成割合23～38%), NO₃⁻濃度は0～1.3μg/m³(同0～3%)の範囲で推移した。SO₄²⁻は5月27日18時以降PM2.5と同様の濃度変動の傾向をもってPM2.5が最大濃度(55.7μg/m³)になった31日6～12時に最大濃度21μg/m³(組成割合38%)まで増加した。31日12時以降, SO₄²⁻濃度は減少又は横ばい傾向で推移した後6月2日12～18時にもピーク(15μg/m³)を示した。NO₃⁻は28日12～18時に最大濃度1.3μg/m³(3%)まで増加したが, 別の時間帯では定量下限値未満に低下するなどSO₄²⁻より低く狭い濃度範囲で変動した。(図5, 6)

NH₄⁺濃度は1.8～6.6μg/m³(組成割合7～14%)の範囲で推移した。NH₄⁺はPM2.5と同様の濃度変動の傾向をもって31日6～12時に最大濃度6.6μg/m³(組成割合12%)まで増加し, 同時帯のSO₄²⁻と併せるとPM2.5の組成割合50%を占めるに至った。なお, 集中観測期間の各時間帯で観測されたSO₄²⁻, NH₄⁺の合計組成割合が30%を下回ることにはなかった。31日12時以降, NH₄⁺は減少又は横ばい傾向で推移した後SO₄²⁻と同様に2日12～18時にもピーク(5.1μg/m³)を示した。その他にSO₄²⁻, NH₄⁺には各日の6～12時や12～18時に濃度上昇する傾向がみられた。

NH₄⁺以外の陽イオンの中で高い平均濃度を示したCa²⁺は0.09～0.77μg/m³(組成割合0～2%)の範囲で推移した。Ca²⁺濃度は28日12～18時に最大に達し, 29, 30, 31日の12～18時にもそれぞれピークをもって増減した。

31日6時, 1日6時に総社局の上空に流入した大気の後方流跡線は朝鮮半島から中国地方を通過していた。(図7)30～1日の間は朝鮮半島や九州, 四国, 中国地方, 瀬戸内海を經由した後方流跡線が多くみられ, これらの地域の気象環境が観測結果に影響を及ぼした可能性があった。

CFORSでは集中観測期間に継続的な硫酸塩エアロゾルの分布が予測されており, その分布は大陸から日本にかけての地域を覆っていた。SO₄²⁻, NH₄⁺濃度が最大になった時間帯の31日6時においても硫酸塩エアロゾルの影響下にあったことが予測されていた。(図8)

図9は炭素成分濃度の推移を示す(OCは定量下限値未満だったため表記せず)。EC濃度は0.66～2.8μg/m³(組成割合3～10%)の範囲で推移し, PM2.5と同様に29

日12～18時や31日6～12時にピークをもって変動した。ECは28日6～12時に最大濃度2.8μg/m³(10%)に達し, 2日12～18時前後を減少傾向で推移したなどPM2.5の濃度変動に一致しない時間帯もあった。ECの平均濃度1.8μg/m³(5%)は, 常時監視期間の平均濃度1.2μg/m³(5%)と同程度の結果だった。

無機元素成分濃度は0.49～5.4μg/m³(組成割合3～14%)の範囲で推移した(図5)。無機元素成分は28日12～18時に最大濃度5.4μg/m³(同14%)に達した以降増減を繰り返した。無機元素成分にはSO₄²⁻, NH₄⁺と同様に各日の6～12時や12～18時に濃度上昇する傾向がみられた。

図10は無機元素成分の一例としてMn, Al, Vの濃度推移, 図11はCFORSで予測された土壌性ダストの推定分布を示す。

Mn, Alは28日12～18時に, Vは29日12～18時に最大濃度150, 2600, 14ng/m³にそれぞれ達した(最大組成割合に達したのはMn, Alが28日12～18時だったのに対して, Vは28日6～12時だった)。PM2.5濃度は28日12～18時や29日12～18時にピークを示したものの, 31日6～12時に最大に達しており, Mn, Al, VはPM2.5より36～60時間前に最大濃度に達していた。Mnは28, 29日の方が30日以降より濃度上昇したが, Al, Vは30日以降でも28, 29日と同程度に濃度上昇した時間帯がみられた。Mnについては28日12～18時の方が29日12～18時の約2倍高い濃度を示した。

28日12時に総社局の上空に流入した大気の後方流跡線は大陸内陸から東シナ海, 中国地方西部を經由していた。また, 29日12時の後方流跡線は大陸沿岸から東シナ海, 九州中部, 瀬戸内海を經由して, 28日12時のものより南方面の経路だった(図7)。CFORSでは両時間帯に土壌性ダストの分布が西日本に予測され, 經由した各地域の環境に影響された大気や土壌粒子が移流していた可能性があった。(図11)

PM2.5濃度にピークがみられた時間帯の30日12時, 31日6時や1日6時にもCFORSでは土壌性ダストの分布が西日本に予測されていた。30～1日にかけて, Mnは減少又は横ばい傾向, Alは12～18時に増加傾向, Vは6～12時に増加傾向で濃度が変動した。Alのピーク濃度は30日>31日>1日で推移したが, Vにはこの

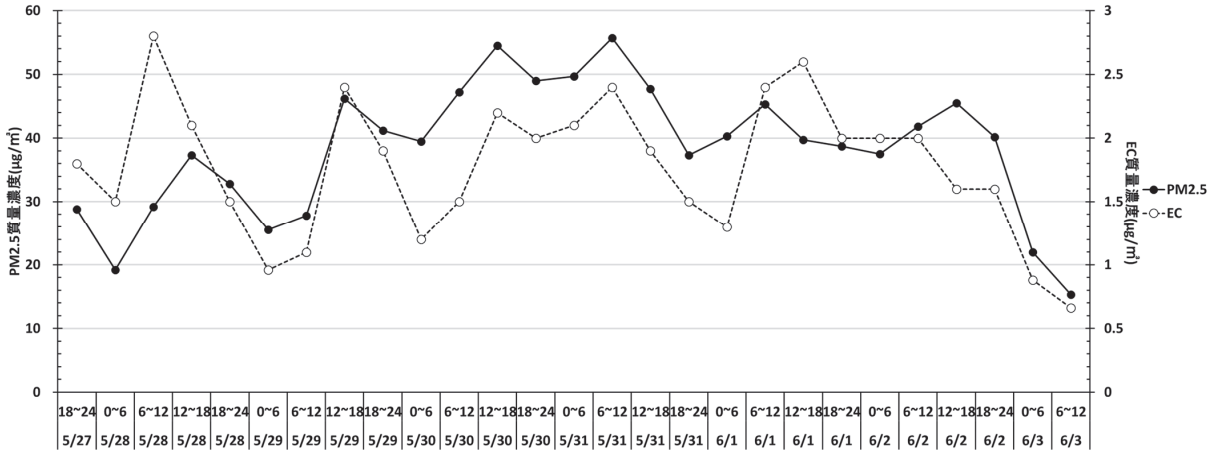


図9 炭素成分濃度の推移

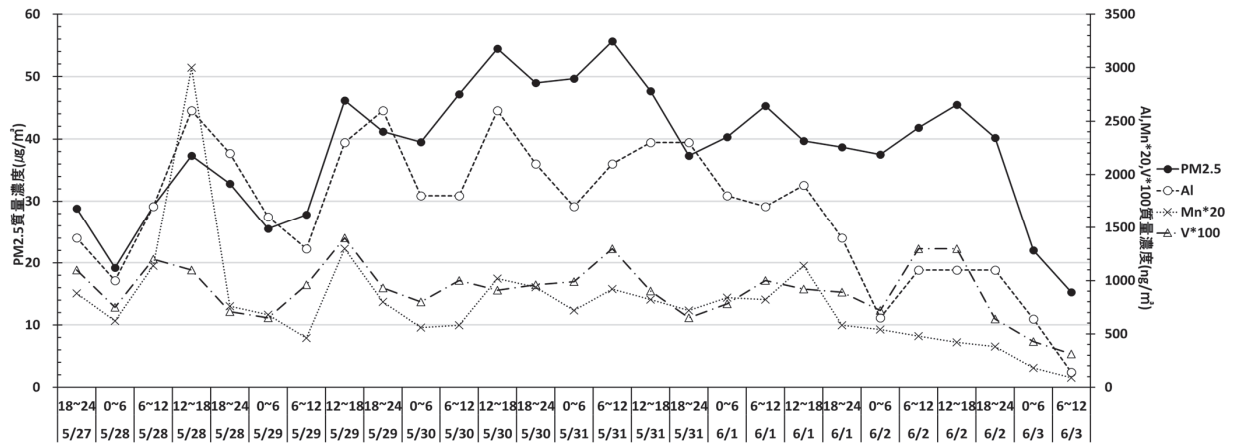
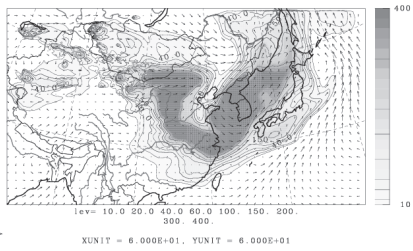


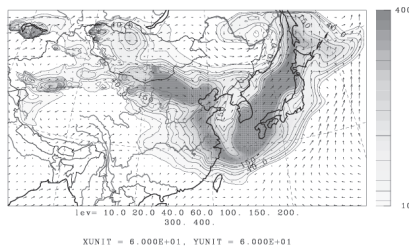
図10 無機元素成分濃度の推移

U-V&Dust total m/s&µg/m3 JST
2014/05/28.12:00:00



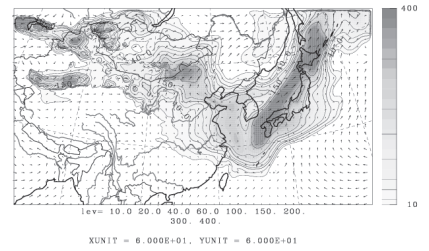
◎九州大学応用力学研究所(RIAM)/国立環境研究所(NIES)

U-V&Dust total m/s&µg/m3 JST
2014/05/29.12:00:00



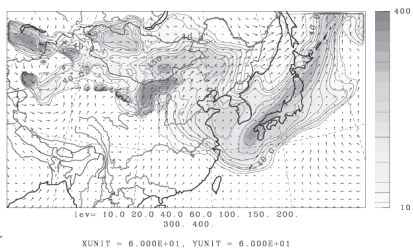
◎九州大学応用力学研究所(RIAM)/国立環境研究所(NIES)

U-V&Dust total m/s&µg/m3 JST
2014/05/30.12:00:00



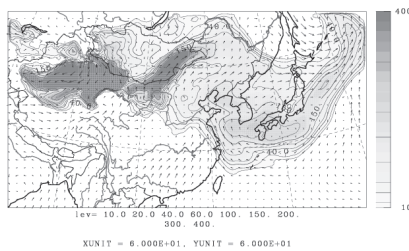
◎九州大学応用力学研究所(RIAM)/国立環境研究所(NIES)

U-V&Dust total m/s&µg/m3 JST
2014/05/31.06:00:00



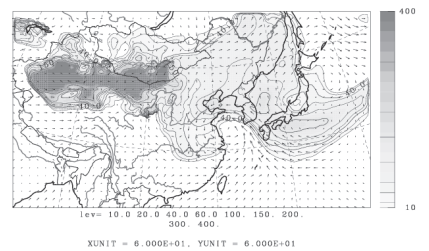
◎九州大学応用力学研究所(RIAM)/国立環境研究所(NIES)

U-V&Dust total m/s&µg/m3 JST
2014/06/01.06:00:00



◎九州大学応用力学研究所(RIAM)/国立環境研究所(NIES)

U-V&Dust total m/s&µg/m3 JST
2014/06/02.12:00:00



◎九州大学応用力学研究所(RIAM)/国立環境研究所(NIES)

図11 土壌性ダスト推定分布

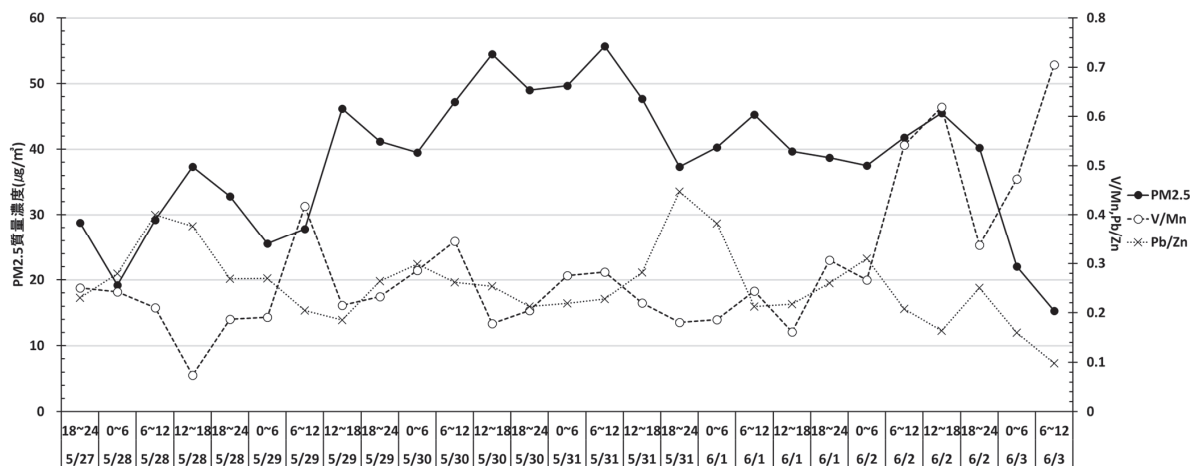


図 12 無機元素成分濃度比の推移

傾向はみられなかった。

PM2.5 が最も高濃度で推移していたのは、28、29日の大陸方面から大気に移流した時間帯ではなく、30、31日の朝鮮半島や九州、中国地方などを経由した大気に移流した時間帯だった。

PM2.5 濃度がピークをもって増減した2日0～24時の時間帯で、Mnは減少し、Alは増加又は横ばいで推移し、Vは29日12～18時と同程度まで濃度上昇していた。2日12時の後方流跡線は西日本を周回しており(図7)、2日のPM2.5の挙動は28、29日より国内の大気環境の影響を受けた可能性があった。

3.5 無機元素成分の濃度比の推移

図12は無機元素成分の濃度比の推移を示す。第1報と同様に石油燃焼の指標にV/Mn比(国内0.21～0.28, 国外0.054)、石炭燃焼の指標にPb/Zn比(国内0.2～0.3, 国外0.5～0.6)を利用して、それぞれ濃度比の変動を調べた。

PM2.5濃度のピークがある5月28日12～18時前後にV/Mn比は0.07～0.24、Pb/Zn比は0.27～0.4の範囲で変動しており、28日に国外由来の影響を受けた可能性が示唆された。3.4で述べたように28日に流入した大気は国外の土壌粒子も含んでいた可能性が考えられ、石油燃焼や石炭燃焼に伴って発生した無機元素も同様に移流していた可能性があった。

PM2.5濃度が35μg/m³を超過した29日12時～2日6時の多くの時間帯で、V/Mn比、Pb/Zn比はともに概ね0.2～0.3の範囲にあり、国内由来の影響を受けていた可能性があった。また、V/Mn比は2日12～18時をピークに0.34～0.62の範囲で増減して同時間帯の

PM2.5濃度の増減に対応して推移したなど参照した指標と関連付けが困難な挙動もみられた。

4 まとめ

5月27日～6月3日の集中観測において、PM2.5濃度は概ね1時間値35μg/m³超過を29日12時から2日22時まで約45日間継続し、6時間平均濃度は31日6～12時に最大(55.7μg/m³)に達した。

この期間のPM2.5濃度に対してイオン成分は平均組成の45%を占め、そのうちSO₄²⁻、NH₄⁺が主成分となりPM2.5と同様の濃度変動を示す傾向がみられ、PM2.5と同じ時間帯(31日6～12時)に最大濃度に達した。炭素成分は平均組成5%を占め、ECはPM2.5が最大濃度に達する前の時間帯(28日6～12時)に最大濃度まで増加し、PM2.5に反した濃度変動の傾向をもつ時間帯があった。無機元素成分は平均組成8%を占め、大陸方面からの大気の流れや土壌性ダストの分布が予測された28日12～18時に最大濃度5.4μg/m³(組成割合14%)まで増加した。Mn、Al、VはPM2.5より36～60時間前の時間帯(28日12～18時、29日12～18時)に最大濃度まで増加した。PM2.5が最も高濃度で推移した30～1日にかけて、Mnは横ばい又は減少傾向、Alは12～18時に増加傾向、Vは6～12時に増加傾向で濃度が変動したなど無機元素成分間にも濃度変動に違いがみられた。

文 献

- 1) 中野温朗, 間野遼太, 喜多真帆, 野村 茂, 信森達也, 鷹野 洋:岡山県下の微小粒子状物質の成分の実態について, 岡山県環境保健センター年報 39, 1-9, 2015
- 2) 気象庁ホームページ:日々の天気図
<http://www.data.jma.go.jp/fcd/yoho/hibiten/index.html>
- 3) 気象庁ホームページ:各種データ・資料
<http://www.jma.go.jp/jma/menu/menureport.html>
- 4) 黄砂実態解明調査報告書(平成 15 ~ 24 年度):環境省 平成 26 年 3 月
- 5) 杉山広和, 信森達也, 前田 泉:環境中の大気汚染物質に関する研究(微小粒子 PM2.5 による大気汚染)-第 3 報-, 岡山県環境保健センター年報 32, 11-16, 2008
- 6) 微小粒子状物質 (PM2.5) の成分分析ガイドライン:環境省 平成 23 年 7 月
- 7) HYSPLIT - Hybrid Single Particle Lagrangian Integrated Trajectory Model
http://ready.arl.noaa.gov/HYSPLIT_traj.php
- 8) 東アジア域の黄砂・大気汚染物質分布予測:九州大学/国立環境研究所 化学天気予報システム
<http://www-cfors.nies.go.jp/~cfors/index-j.html>

