

<報 文>

京都府における微小粒子状物質 (PM_{2.5}) 質量濃度と ガス成分濃度について*

高倉尚枝**・谷口延子***・日置 正**・齋藤義弘**

キーワード ①微小粒子状物質 ②大気汚染物質 ③環境基準

要 旨

平成25年度から27年度に府内14局のPM_{2.5}質量濃度を測定したところ、南部一般環境大気測定局の年平均は14.6μg/m³から13.5μg/m³へ、北部一般環境大気測定局及び自動車排出ガス測定局の年平均は、13.0μg/m³から11.9μg/m³、16.6μg/m³から14.0μg/m³へ減少していた。月別変動を見ると、冬季にやや低い傾向があるものの、明確な年内変動は見られなかった。また、ガス成分と比較したところ、月別変動、曜日別変動、日平均値相関係数ともSO₂と最も類似していた。PM_{2.5}質量濃度の年平均値とそれぞれのガス成分の年平均値の相関を年度ごとにとったところ、NO₂は平成25年度から平成27年度にかけて切片にほとんど変化がないにも関わらず、勾配が減少傾向であることから、この3年間のPM_{2.5}質量濃度の年平均値の減少傾向は、NO₂に代表される地域的な人為起源汚染物質の影響が低減した可能性があるとして推測された。

1. はじめに

空気力学的等価粒径2.5μm以下の粒子である微小粒子状物質（以下「PM_{2.5}」という。）については、呼吸器系等に対する健康影響の懸念から¹⁾、平成21年9月に環境基準（年平均値が15μg/m³以下、かつ、日平均値が35μg/m³以下）が設定された。平成22年3月31日に改正された「大気汚染防止法第22条の規定に基づく大気の汚染の状況の常時監視に関する事務の処理基準について」において、PM_{2.5}質量濃度測定を常時監視の中に位置付けるとともに、環境大気常時監視マニュアルを改訂し、常時監視の方法は、標準測定法（フィルタ捕集-質量法）と自動測定機によることとされた。京都府においては、平成24年1月からPM_{2.5}の自動測定機による大気常時監視測定を開始し、現在18局でPM_{2.5}測定を実施している。

本報では、平成25年度から27年度に連続測定した14局の測定結果に基づき、京都府におけるPM_{2.5}の汚染状況及びガス成分との関連について検討したので報告する。

2. 調査方法

2.1 調査地点

調査地点は図1及び表1のとおりである。京都府のPM_{2.5}測定局は18局であるが、25年度途中で測定を開始した井手局、南山城局、26年度に移設した精華局、27年度に長

期欠測のあった城陽局を除いた14局で解析を行った。

京都府は、南北に長い地形で人口は南部地域に集中している。また、南部地域は大阪湾からも近く、大都市近郊地域として都市大気汚染の影響が比較的大きい地域である。北部地域は日本海を北に臨み、南部地域に比べて越境大気汚染の影響を受けやすい²⁾。

2.2 調査期間

平成25年4月1日～平成28年3月31日

2.3 測定方法

測定局ごとの機種は表1のとおりである。これらの測定機は、PM_{2.5}について環境省が標準測定法と等価性を有すると認定した自動測定機である。データについては、京都府大気常時監視テレメータシステムで1時間ごとに収集した。SO₂、NO_x等は、各測定局の大気常時監視データを用いた。

3. 結果及び考察

3.1 測定結果の概要

3年間の年平均値及び日平均値の98パーセンタイル値を南部一般環境大気測定局（向陽、久御山、宇治、田辺、木津、亀岡、以下「南部局」という。）、北部一般環境大気測定局（南丹、綾部、福知山、東舞鶴、宮津、京丹後、

*Mass Concentrations of PM_{2.5} and Gaseous Air Pollutants in Kyoto Prefecture

**Naoe TAKAKURA, Tadashi HIOKI, Yoshihiro SAITO (京都府保健環境研究所) Kyoto Prefectural Institute of Public Health and Environment

***Nobuko TANIGUCHI (京都府環境部環境管理課) Environmental Management Division, Kyoto Prefectural Government

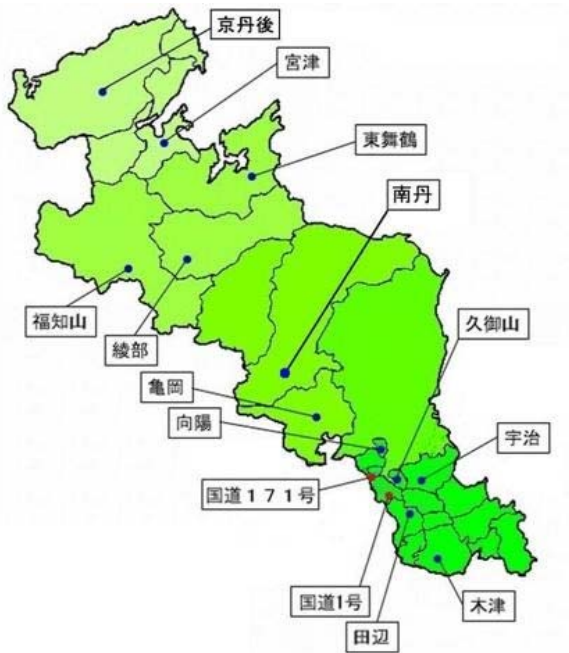


図1 調査地点

表1 調査地点

測定地点	周辺状況	型式	メーカー
向陽	府南西部の都市域で周囲は住宅地である。隣に中規模の商業施設がある。	PM-712	紀本電子工業(株)
久御山	府南部の都市近郊域で近隣には田畑が広がる。東0.4kmに国道1号線、南西0.7kmに府道15号線、東1.1kmに第二京阪道路、北1.4kmに京滋バイパスが走っている。	PM-712	紀本電子工業(株)
宇治	府南東部の都市域で周囲は住宅地である。北0.5kmに繊維工場がある。	PM-712	紀本電子工業(株)
田辺	府南西部の都市域で周囲は住宅地及び商業施設である。南0.1kmに大規模商業施設がある。	PM-712	紀本電子工業(株)
木津	府南端の奈良県に隣接する田園地域で、西0.3kmに国道24号線が走っている。	PM-712	紀本電子工業(株)
亀岡	府中部の田園地域で亀岡盆地に位置し、南西0.6kmに京都縦貫道路、北東0.1kmに国道9号線が走っている。	PM-712	紀本電子工業(株)
南丹	府中部の田園地域で周辺は田畑が広がる。周辺に大きな大気汚染物質発生施設はない。	PM-712	紀本電子工業(株)
綾部	府北部の都市域で周辺は住宅、商業施設、工場が混在している。である。	PM-712	紀本電子工業(株)
福知山	府北部の都市域で、周辺は住宅地である。南0.2kmに鉄道が走っている。	APDA-3750A ^{*1} PM-712 ^{*1}	(株)堀場製作所 紀本電子工業(株)
東舞鶴	府北部の都市域で、日本海に面した舞鶴湾から約1kmの地点であり、周囲は住宅地である。	PM-712	紀本電子工業(株)
宮津	府北部の都市域で、日本海に面した宮津湾から約0.5kmの地点であり、周囲は住宅地である。	PM-712	紀本電子工業(株)
京丹後	府北端の田園地域で、西0.1kmに国道482号線が走っている。周辺に大きな大気汚染物質発生施設はない。	PM-712	紀本電子工業(株)
国道1号	大阪府泉境から約1.5kmの国道1号線に面して立地している。周辺は田園地帯であるが工場も点在する。	PM-712	紀本電子工業(株)
国道171号	大阪府泉境直近の国道171号線に面して立地している。約2.5kmの地点に都市ごみ清掃工場が立地する。	SHARP5030 ^{*2} PM-712 ^{*2}	ThermoFisherScientific 紀本電子工業(株)

*1:APDA-3750Aは環境省のモニタリング試行事業で導入。H27.11にPM-712に変更。
*2:SHARP5030は環境省のモニタリング試行事業で導入。H26.3にPM-712に変更。

表2 PM_{2.5}質量濃度測定結果(平成25年度~27年度)

		単位:µg/m ³		
		南部局	北部局	自排局
25年度	日平均値	14.6	13.0	16.6
	98%タイル値	36.6	34.8	38.1
26年度	日平均値	14.2	12.4	15.2
	98%タイル値	33.2	33.0	34.6
27年度	日平均値	13.5	11.9	14.0
	98%タイル値	34.9	29.4	34.2

以下「北部局」という。) , 自動車排出ガス測定局(国道1号, 国道171号, 以下「自排局」という。)の平均値として表2に示す。年平均値は, 南部局は13.5~14.6 µg/m³, 北部局は11.9~13.0 µg/m³, 自排局は14.0~16.6 µg/m³であり, いずれも減少傾向にあった。日平均値の98パーセンタイル値は, 南部局は33.2~36.6 µg/m³, 北部局は29.4~34.8 µg/m³, 自排局は34.2~38.1 µg/m³で, 南部局は横ばい, 北部局及び自排局は減少傾向にあった。

3.2 経月変化

図2に南部局, 北部局, 自排局のPM_{2.5}質量濃度とガス成分の月別平均値を示す。PM_{2.5}質量濃度については, 冬季がほかの季節に比べて低い傾向があるものの明確な季節変動はなく, その年の気象条件等によって年内変動パターンが変化すると考えられた。また, 南部局, 北部局, 自排局ともほぼ同じ傾向で推移していた。北部局は年間を通じて南部局より低く, 秋~冬季はその差が大きいことから南部局は都市大気汚染の影響が北部より大きいと考えられた。

ガス成分のうち3年間の経月変化がPM_{2.5}質量濃度とも似ていると考えられるのは, SO₂であった。NO, NO₂及びOxは, 地域気象の影響が大きいため明確な季節変動がみられ, PM_{2.5}質量濃度とは挙動が異なっていた。

3.3 曜日別変化

図3に南部局, 北部局, 自排局のPM_{2.5}質量濃度とガス成分の曜日別平均値を示す。PM_{2.5}質量濃度については, 火曜日から水曜日と土曜日にやや高い傾向がみられたが曜日による変動は少なかった。2011年度の全国の汚染状況³⁾では, 平日に高濃度, 週末に低濃度となる測定局が多いとされており, 土曜日にやや高いことが異なっているが, 原因は不明である。また, 南部局, 北部局, 自排局ともほぼ同じ週内変動パターンを示していた。曜日別変化が最も似ていると考えられるガス成分はSO₂であり, SO₂についても週内変動は少なかった。NO, NO₂は, 特に自排局で週の半ばに高く週末に低く, Oxは, 逆に週末に高くなる

<報文> 京都府における微小粒子状物質（PM_{2.5}）質量濃度とガス成分濃度について

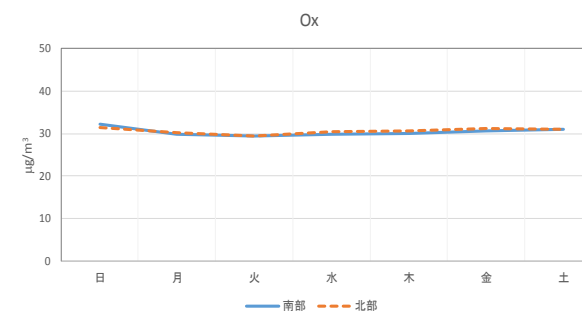
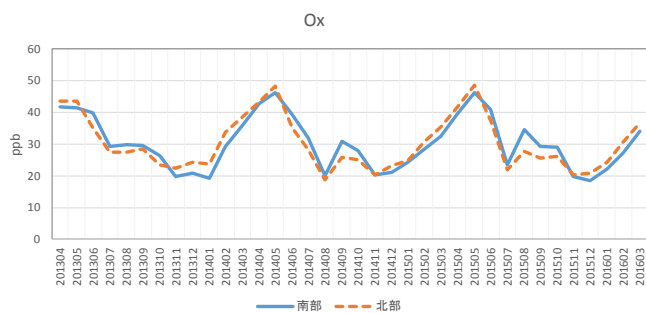
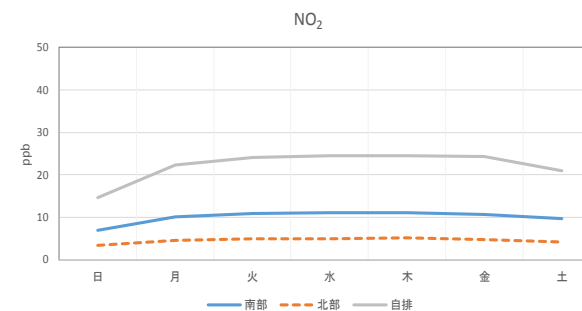
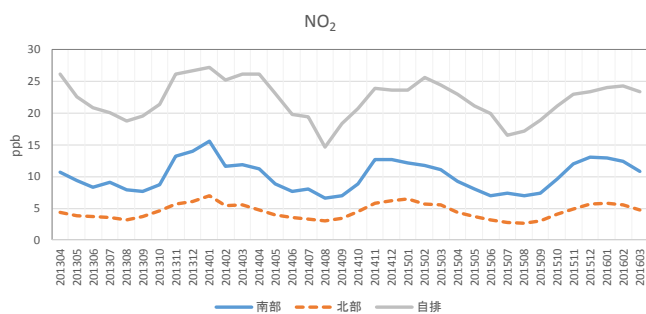
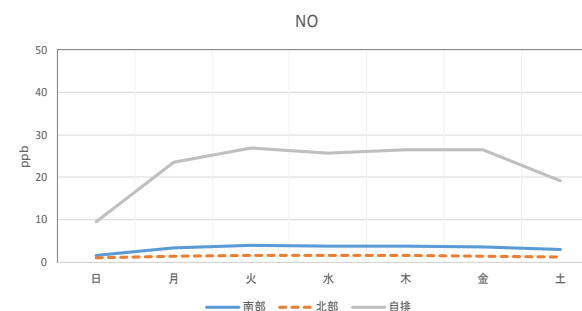
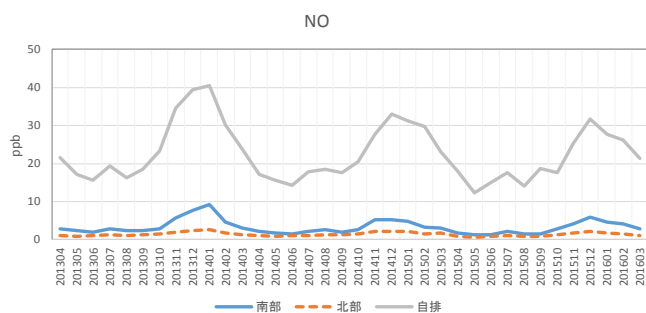
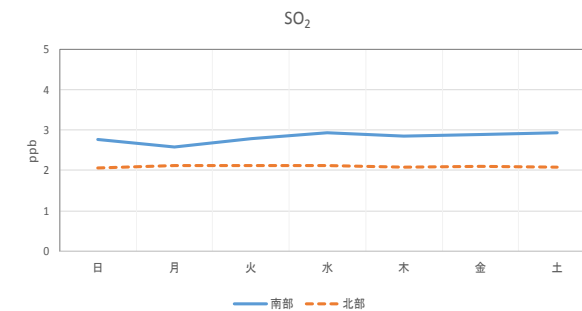
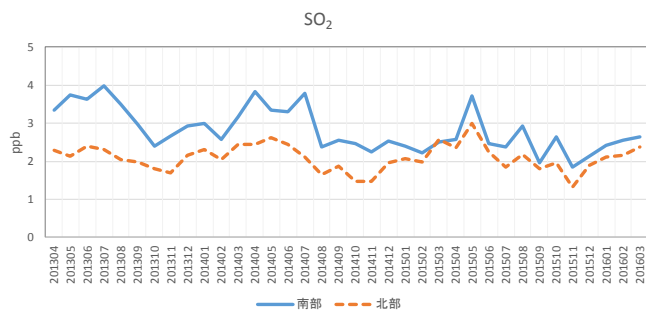
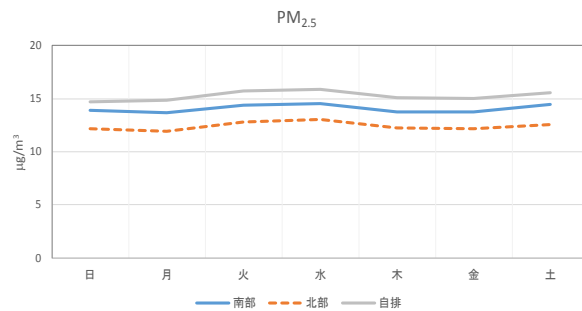
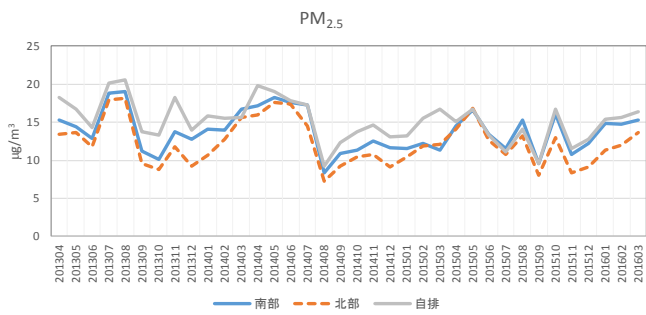


図2 月別平均値（平成25年度～27年度）

図3 曜日別平均値（平成25年度～27年度）

表3 各局間のPM_{2.5}質量濃度日平均値の相関係数(平成25年度~27年度)

p<0.01

	向陽	久御山	宇治	田辺	木津	亀岡	南丹	綾部	福知山	東舞鶴	宮津	京丹後	国道1号	国道171号
向陽		0.94	0.98	0.92	0.93	0.93	0.93	0.93	0.92	0.87	0.90	0.85	0.95	0.92
久御山			0.94	0.93	0.89	0.97	0.87	0.87	0.88	0.88	0.84	0.85	0.94	0.90
宇治				0.94	0.95	0.93	0.92	0.93	0.92	0.87	0.90	0.84	0.95	0.93
田辺					0.90	0.92	0.87	0.87	0.87	0.84	0.83	0.81	0.91	0.88
木津						0.89	0.88	0.87	0.86	0.82	0.85	0.80	0.91	0.88
亀岡							0.88	0.90	0.89	0.90	0.86	0.88	0.91	0.88
南丹								0.92	0.91	0.87	0.90	0.85	0.88	0.87
綾部									0.97	0.92	0.96	0.90	0.88	0.86
福知山										0.90	0.94	0.89	0.90	0.87
東舞鶴											0.92	0.94	0.82	0.81
宮津												0.94	0.84	0.83
京丹後													0.80	0.78
国道1号														0.92
国道171号														

傾向がみられ、曜日別変化においても、NO、NO₂及びOxはPM_{2.5}質量濃度と挙動が異なっていた。

3.4 各局間の相関

各局間の3年間のPM_{2.5}質量濃度日平均値の相関係数は、表3に示すように0.78~0.98で、すべての局間で高い相関を示していた。特に、南部局及び自排局は、南部各局及び自排各局との相関が高く、北部局は北部各局との相関が高くなっており、PM_{2.5}は広域的な汚染の影響が大きいと考えられた。

3.5 ガス成分との相関

図4にPM_{2.5}質量濃度とガス成分との相関係数(日平均値 p<0.01のみ)を示す。ガス成分の中で、最もPM_{2.5}質量濃度との相関が高かったのはSO₂であった。次にPM_{2.5}質量濃度との相関が高かったのはNO₂、Oxであったが、Oxに比べてNO₂は局による相関係数の差が大きく、南部局の方が北部局より相関係数が大きい傾向にあった。

これは、PM_{2.5}とNO₂が、ともに都市大気汚染の影響を受けやすいためと考えられる。

さらに、月別の相関係数について検討を行った。図5に、PM_{2.5}質量濃度とガス成分との月別相関係数(日平均値 p<0.01のみ)を示す。南部局、北部局とも年間を通じてSO₂との相関が高かった。次に相関が高いのは、7月、8月のOx、南部局と自排局の12月~4月のNO₂であった。

SO₂は、他のガス成分に比べ年間を通じてPM_{2.5}質量濃度との相関が高かったが、特に北部局では2月~5月に、南部局では2月~4月と7月~9月にPM_{2.5}質量濃度との相関が高くなっていた。この理由として春季は大陸からのPM_{2.5}とSO₂の輸送⁴⁾、夏季は光化学反応によるSO₂→硫酸イオン生成の亢進が考えられる。

夏季にPM_{2.5}質量濃度とOxの相関が高いのは、夏季のOx高濃度時に光化学二次生成が促進され、硫酸イオン等の二次生成粒子が高濃度になる⁵⁾ためと考えられる。

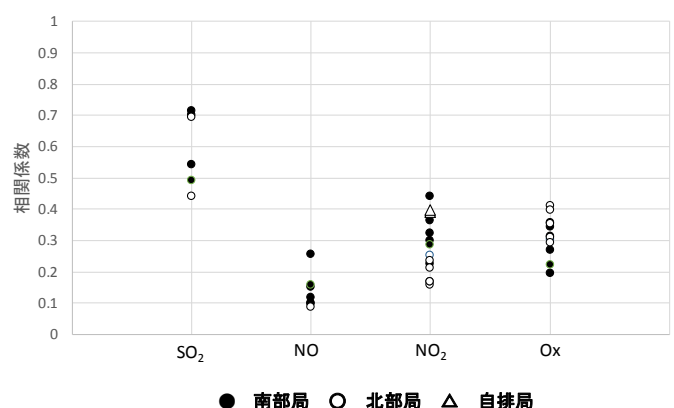


図4 PM_{2.5}質量濃度とガス成分との相関係数(平成25年度~27年度)

南部局と自排局では、12月~4月にNO₂との相関が高かった。寒候期には、地域的に発生する窒素酸化物や炭化水素類から二次生成する硝酸イオンやOCによってPM_{2.5}が高濃度になることが知られている⁶⁾が、南部局及び自排局は北部局に比べてNO₂濃度が高く、NO₂が関与して生成される硝酸イオン等が高濃度になるためと推測される。硝酸ガスと硝酸塩のガス-粒子平衡は、暖候期にはガス態に傾き、寒候期は粒子態に傾くため、冬季を中心に硝酸塩のPM_{2.5}質量濃度への影響が高くなったためと考えられた。

また、NOについては夏季に、Oxについては冬季に負の相関がみられた。NOはOxの主成分であるO₃と反応して速やかにNO₂とO₂になる⁷⁾ため、夏季はPM_{2.5}質量濃度とOxが高いときにNOが低く、冬季はPM_{2.5}質量濃度とNOが高いときにOxが低くなることから、負の相関がみられたと考えられる。これは、NOについては自排局、Oxについては南部局の方が負の相関が大きかったこととも整合する。

PM_{2.5}質量濃度年平均値とそれぞれのガス成分の年平均値の相関を年度ごとにとると、図6に示すようにNO₂のみ3年を通じて相関があった(p<0.05)。

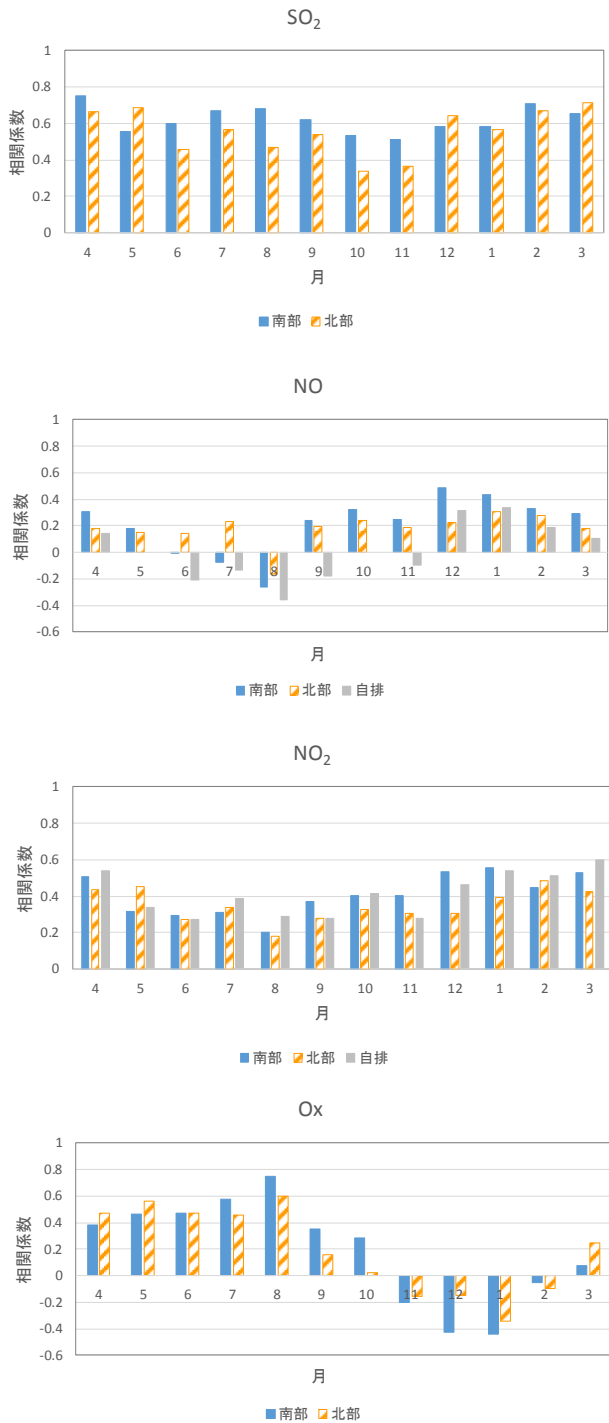


図5 PM_{2.5}質量濃度とガス成分との月別相関係数 (平成25年度～27年度)

PM_{2.5}質量濃度年平均値とNO₂年平均値との回帰式の切片は、11.8～12.2μg/m³であり、変動が少なかった。

NO₂は、主に地域的な発生源に起因する汚染物質であり、京都府において地域的な人為起源汚染物質の影響がない場合のPM_{2.5}質量濃度は12μg/m³程度であるとも考えられる。

京都府で最も人為汚染の影響が少ないと考えられる南

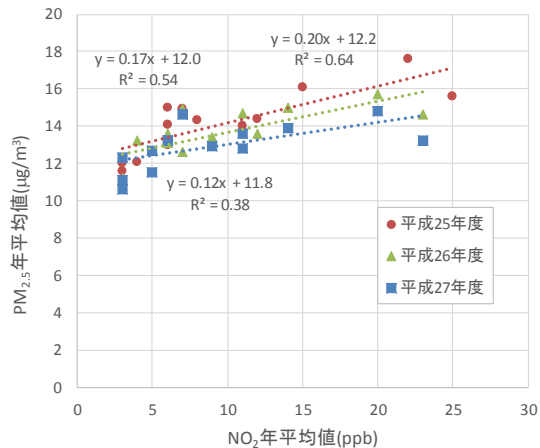


図6 PM_{2.5}-NO₂年平均値相関図 (平成25年度～27年度)

山城局 (三重県との県境付近) の平成26～27年度のPM_{2.5}質量濃度年平均値が、11.3～12.3 μg/m³であり、遠隔測定局で地域汚染の影響が少ないと考えられる和歌山県潮岬は10.9μg/m³である⁸⁾ことは、この考え方を支持するものであるが、詳細は今後の検討課題である。

また、平成25年度から平成27年度にかけて切片にほとんど変化がない (12.2μg/m³～11.8μg/m³) にも関わらず、勾配が減少傾向 (0.20μg/m³ (NO₂1ppbあたり) から0.12 μg/m³ (NO₂1ppbあたり) と4割減少) であることから、この3年間のPM_{2.5}年平均値の減少傾向は、NO₂に代表される地域的な人為起源汚染物質の影響が低減した可能性があるかと推測された。

4. まとめ

- (1) PM_{2.5}質量濃度の年内変動パターンは年によって異なっており、気象条件等の影響で年ごとに変化すると考えられた。
- (2) 経月変化や曜日別変化は、南部局、北部局、自排局とも似た傾向で推移しており、各局間の相関係数も高いことから、PM_{2.5}は広域汚染の影響が大きいと考えられた。
- (3) PM_{2.5}質量濃度とガス成分と比較したところ、SO₂との挙動が近く、越境大気汚染の影響が大きいと考えられた。
- (4) 各局のPM_{2.5}質量濃度年平均値とガス成分を比較したところ、NO₂の年平均値と3年間を通じて相関があり、切片は、どの年度も12μg/m³程度であったが、勾配は0.20 μg/m³ (NO₂1ppbあたり) から0.12μg/m³ (NO₂1ppbあたり) に減少していた。

5. 謝辞

関係の皆様にはPM_{2.5}自動測定機の設置及び常時監視業

務の実施にあたりひとかたならぬお世話になり、心より感謝いたします。

6. 引用文献

- 1) 環境省：微小粒子状物質曝露影響調査報告書，2007
- 2) 高倉尚枝，谷口延子，平澤幸代，辻明博，日置正，藤波直人：丹後地域におけるSO₂，SPM高濃度事例の検討．京都府保健環境研究所年報，**56**，65-71，2011
- 3) 板野泰之，大原利眞，山神真紀子，大野隆史，長田健太郎，武直子，菅田誠治：2011年度の連続測定結果に基づく全国的なPM_{2.5}汚染の状況解析．大気環境学会誌，**48**，(3)，154-160，2013
- 4) 河村秀一，日置正，藤波直人：2007年度における京都府内のSPM高濃度事例の解析結果．全国環境研究会誌，**34**，141-152，2009
- 5) 東京都環境科学研究所：微小粒子状物質 (PM_{2.5}) 等の二次生成機構に関する研究報告書，2011
- 6) 長谷川就一，米持真一，山田大介，鈴木義浩，石井克己，齋藤伸治，鴨志田元喜，熊谷貴美代，城裕樹：2011年11月に関東で観測されたPM_{2.5}高濃度の解析．大気環境学会誌，**49**，(6)，242-251，2014
- 7) 環境省光化学オキシダント調査検討会：光化学オキシダント調査検討会報告書，131，2012
- 8) 中央環境審議会大気環境部会：微小粒子状物質環境基準専門委員会報告，2-10，2009