

< 報 文 >

広島県における微小粒子状物質 (PM_{2.5}) の発生源解析* — 2 地点間の比較及び高濃度時の特徴—

竹本 光義**・久保田 光**・渡部 緑**・大原 俊彦**

キーワード ①微小粒子状物質 (PM_{2.5}) ②発生源解析 ③CMB法 ④高濃度要因

要 旨

県中央部に位置する西条と県西部沿岸の大竹でPM_{2.5}を採取し、2地点間の成分分析結果を比較した。西条では自動車による影響を示すアンチモン (Sb)、亜鉛 (Zn) 及び元素状炭素 (EC) の濃度が高く、自動車による影響をより強く受けていると推測された。大竹では、重油燃焼の影響を示すニッケル (Ni) 及びバナジウム (V) の濃度が高く、重油燃焼の影響をより強く受けていると推測された。また、高濃度日では、二酸化硫黄 (SO₂) 濃度が高くなっており、気象データ等を用いて解析した結果、火山由来のSO₂を含んだ気塊が移流してきたものと示唆された。

1. はじめに

わが国では2009年に微小粒子状物質 (PM_{2.5}) に対する大気環境基準 (年平均値15µg/m³以下かつ日平均値35µg/m³以下) が設定され、2019年では、1000か所以上でPM_{2.5}の常時監視が実施されるなど、汚染状況の把握が進められている。

近年、大陸由来の影響が減少してきたことにより、環境基準達成率の改善が見られているが、依然として環境基準未達成の地点も存在しており、瀬戸内海周辺のPM_{2.5}濃度は高い傾向がある^{1),2)}。今後も、大陸由来の影響が減少し、PM_{2.5}の濃度上昇の要因として国内発生源由来の影響が相対的に大きくなると考えられ、PM_{2.5}に対する施策を検討する上で、地域ごとのPM_{2.5}の特徴を把握しておくことは重要である。本県では、2013年度 (平成25年度) からPM_{2.5}の成分分析を行ってきたが、県内1か所での測定にとどまっており、地域ごとの特徴を把握できてはなかった。

そこで本研究では、広島県における一般環境の代表地点として、県中央部の西条盆地市街地に位置する東広島市の西条小学校 (以下、「西条」という。) と県西部沿岸の工業地域に隣接する大竹油見公園 (以下、「大竹」という。) でPM_{2.5}を採取し、成分分析を実施した。また、西条、大竹の2地点における発生源寄与率を推定することで、地域間の発生源寄与の差を評価した。

さらに、調査期間中の高濃度要因についても考察したので報告する。

2. 研究内容及び方法

2.1 PM_{2.5}の採取地点及び採取方法

調査は2019年7月18日から8月1日にかけて、西条と大竹で実施した。調査地点を図1に示す。

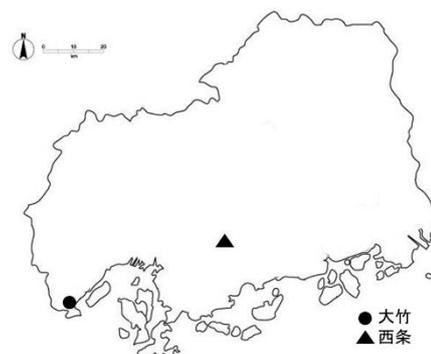


図1 調査地点

西条のPM_{2.5}は、PM_{2.5}インパクタ (東京ダイレック、NL-20-2.5A, 20L/min) を用いたフィルターバック法⁴⁾により採取した。ただし、今回の採取では、ガス成分は捕集対象としなかった。西条のイオン成分及び無機元素分析用のフィルターはPTFEフィルター (ADVANTEC, T080A47A) を使用した。

*Source analysis of particulate matter 2.5 (PM_{2.5}) in Hiroshima Prefecture—Comparison of 2 regions and Characteristics of high-concentration cases—

**Mitsuyoshi TAKEMOTO, Akira KUBOTA, Midori WATANABE, Toshihiko OHARA (広島県立総合技術研究所保健環境センター) Hiroshima Prefectural Technology Research Institute, Public Health and Environment Center

大竹のPM_{2.5}は大気中微小粒子状物質 (PM_{2.5}) 成分測定マニュアル³⁾に準拠し、大気用ローボリュームサンプラー (ThermoScientific, FRM2000) により採取した。大竹のイオン成分及び無機元素分析用のフィルターはPTFEフィルター (Pa11, Teflo 2.0µm 47mm) を使用した。

炭素成分分析用として、両地点で石英フィルター (東京ダイレック, 2500QAT-UP) を用いた。PM_{2.5}インパクト用の衝突ろ紙として石英フィルター (東京ダイレック, 2500QAT-UP) を用いた。なお、採取用の石英フィルターは、事前に350°Cで1時間焼き出しを行った。

2.2 成分分析

採取したPM_{2.5}は大気中微小粒子状物質 (PM_{2.5}) 成分測定マニュアル³⁾に準じて分析した。西条の炭素成分については、大阪市立環境科学研究センターに分析を依頼した。

2.2.1 質量濃度

質量濃度は、自動測定装置 (東亜DKK, FPM-377) の1時間値を用い、24時間の平均値を算出した。

2.2.2 イオン成分

イオンクロマトグラフ (Metrohm, IC-850) により、以下のイオン成分を測定した。

陰イオン : Cl⁻, NO₃⁻, SO₄²⁻

陽イオン : Na⁺, K⁺, NH₄⁺, Mg²⁺, Ca²⁺

2.2.3 無機元素成分

圧力容器分解装置 (MilestoneGeneral, ETHOS EASY) により酸分解し、ICP質量分析装置 (PerkinElmer, NexIon2000) により、以下の31元素を分析した。

Na, Al, K, Ca, Sc, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, As, Se, Rb, Mo, Sb, Cs, Ba, La, Ce, Sm, Hf, W, Ta, Th, Pb, Cd, Be

2.2.4 炭素成分

熱分離光学補正法による炭素分析計 (Sunset Laboratory Inc. model14L, IMPROVE法) により、以下の成分を分析した。

有機炭素 (OC) : OC=OC1+OC2+OC3+OC4+OCPyro

元素炭素 (EC) : EC=EC1+EC2+EC3-OCPyro

炭素成分は分析の測定条件により、いくつかの温度フラクションに分けられる。有機炭素 (以下、「OC」という。) はヘリウム雰囲気中120°C (OC1), 250°C (OC2),

450°C (OC3), 550°C (OC4) で観測される炭素量と光学補正值 (OCPyro) の総和である。元素炭素 (以下、「EC」という。) は98%ヘリウム+2%酸素雰囲気中550°C (EC1), 700°C (EC2), 800°C (EC3) で観測される炭素量の総和から光学補正值 (OCPyro) を差し引いたものである。

2.3 発生源寄与率及び寄与濃度の推定

各地点の発生源の特徴を把握するため、PM_{2.5}成分分析結果をもとに、ケミカルマスバランス法⁵⁾ (以下、「CMB法」という。) により、発生源寄与率及び寄与濃度を推定した。CMB法は、環境データが各種発生源の組み合わせによるものと仮定し、発生源の寄与率を推定する方法である。

計算には統計数理研究所が開発したCMBK v2.1⁶⁾を使用し、発生源プロファイルは名古屋市環境科学調査センター既報⁷⁾を引用した。また、西条及び大竹のデータは14日間の期間平均を算出し、各測定項目について割合データに変換した。このとき、マスクロージャーモデルから算出した質量濃度Mと、自動測定装置の1時間値から算出した24時間平均質量濃度M_{avg.}の比M/M_{avg.}が0.5以下、または2.0以上となる測定データについては除外した。マスクロージャーモデルは、粒子状物質の質量濃度と、いくつかの主要成分との関係を統計的に求めておき、以後の測定において成分測定データから質量濃度を推定し、測定質量濃度の妥当性が評価できるというものである。本研究では、環境省から提示されている、日本に適したマスクロージャーモデルの質量濃度推定式⁸⁾を用いた。質量濃度推定式を以下に示す。

$$M = 1.375[SO_4^{2-}] + 1.29[NO_3^-] + 2.5[Na^+] + 1.4[OC] + [EC] + [SOIL]$$

$$[SOIL] = 9.19[Al] + 1.40[Ca] + 1.38[Fe] + 1.67[Ti]$$

M : 質量濃度

各種発生源の計算には、EC, Na, K, Ca, V, Cr, Mn, Fe, Zn, As, Se, Sb, Laの13成分を用いた。OC, SO₄²⁻, NO₃⁻, Cl⁻, NH₄⁺は発生源プロファイルに含まれるが、二次生成由来のものが多く含まれると推定されるため、計算の対象としなかった。有機粒子の値は、一次生成粒子に含まれるOCの値を観測したOC濃度から差し引いたのち、有機粒子の換算係数1.4を掛けて算出した。

2.4 高濃度日における発生源解析

2.3で用いた方法により、1日ごとの発生源寄与率を算出し、高濃度日における発生源解析を行った。高濃度日は、PM_{2.5}が比較的高濃度となった2019年7月25日から28日とした。

2.5 高濃度要因解析

後方流跡線解析, SPRINTARSによるシミュレーション, 自動測定局の常時監視データを活用し, 高濃度要因の解析を行った。

後方流跡線解析は, 気塊の動きを推定し, 移流の影響を評価する解析方法である。本研究では, 流跡線解析モデルとして, アメリカ海洋気象庁 (NOAA) で開示されているHYSPLIT⁹⁾を使用した。解析条件を以下に示す。

起点: 2019年7月25日 UTC 0 時

時間: 72時間

高度: 500m, 1000m, 1500m

気象データ: GDAS (1degree, global, 2000-present)

SPRINTARSは, 九州大学応用力学研究所で計算・運用されている大気シミュレーションのソフトウェアである^{10), 11), 12)}。本研究では, 高濃度日の2019年7月25日におけるPM_{2.5}質量濃度及びSO₂濃度の広域分布を確認した。また, このシミュレーション結果との整合性を確認するため, 広島県が運用している自動測定局の観測データを使用した。

3. 結果および考察

3.1 成分分析値の比較

3.1.1 質量濃度

調査期間中の西条及び大竹におけるPM_{2.5}質量濃度の推移を図2に示す。PM_{2.5}質量濃度は, 自動測定装置の1時間値から24時間の平均値を算出した。質量濃度は, 両地点

とも7月25日に高くなっており, この濃度上昇は広域的なものであったと考えられた。

3.1.2 イオン成分

測定対象のイオン8成分のうち, 特徴的な挙動を示した3成分の分析結果を図3-(a)~(c)に示す。両地点ともSO₄²⁻及びNH₄⁺がイオンの主要成分であり, 同等な濃度レベルであったが, 調査期間中に最も高いPM_{2.5}質量濃度を記録した7月25日では, 大竹の方が高い値を示した。また, Na⁺は期間を通じて大竹で高かった。大竹は沿岸地域に位置しており, 海風により運ばれた海塩粒子の影響でNa⁺が高くなったと推測された。

3.1.3 無機元素成分

無機元素31成分のうち, 特徴的な挙動を示した4成分の分析結果を図4-(a)~(c)に示す。自動車による影響を示すSbやZnは大竹と比べ西条で高く, 西条は自動車による影響をより強く受けていると推測された。一方, 重油燃焼の影響を示すNi及びVは西条と比べ大竹で高く, 大竹は重油燃焼の影響をより強く受けていると推測された。

3.1.4 炭素成分

炭素成分の分析結果を図5-(a)~(b)に示す。西条では, PM_{2.5}質量濃度が上昇した7月25日以降にOCが高い値を示した。また, 自動車排ガスの影響を示すECについては, 期間を通じて西条の方が高い傾向であったことから, 西条は自動車の影響をより強く受けていると推測された。

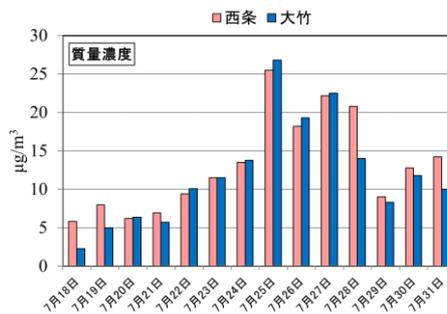


図2 2019年7月18日~8月1日における質量濃度の推移 (軸ラベルは採取開始日)

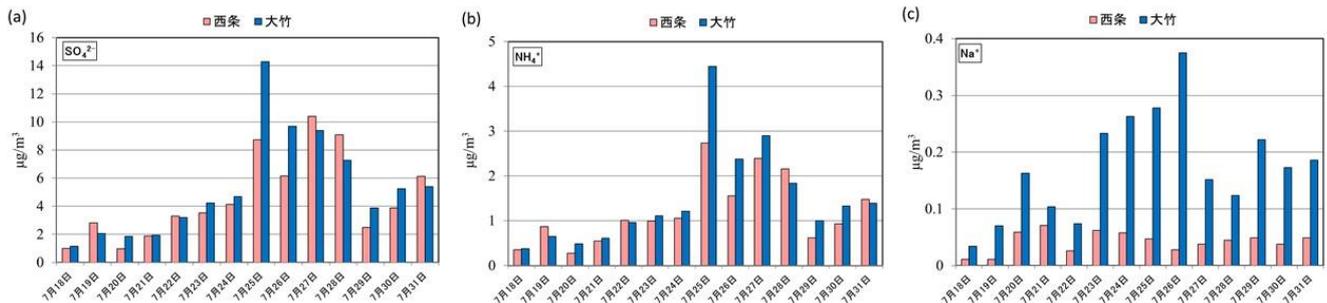


図3 2019年7月18日~8月1日におけるイオン成分の分析結果 (a) SO₄²⁻, (b) NH₄⁺, (c) Na⁺

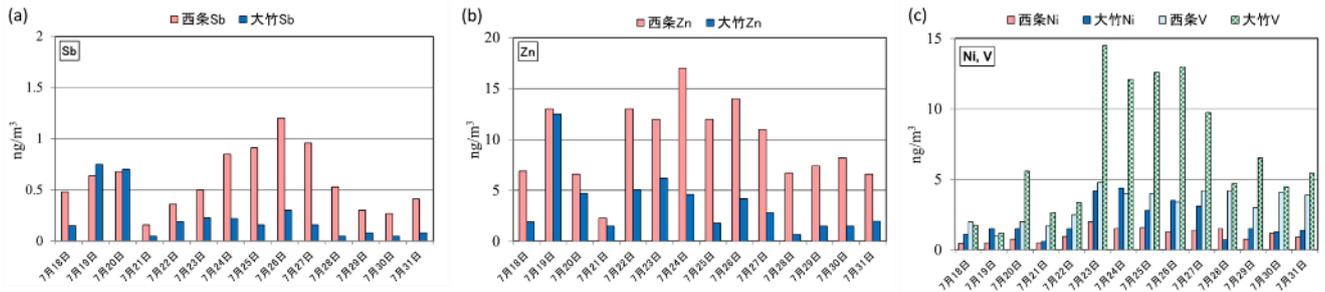


図4 2019年7月18日～8月1日における無機元素成分の分析結果 (a)Sb, (b)Zn, (c)Ni 及び V

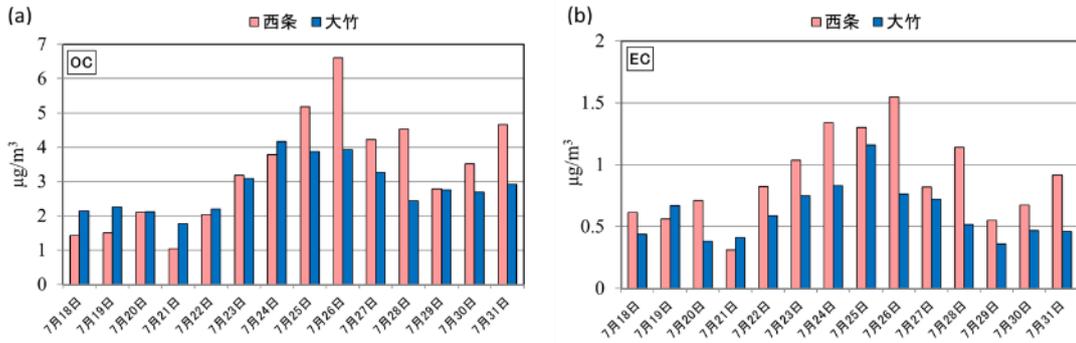


図5 2019年7月18日～8月1日における炭素成分の分析結果 (a)OC, (b)EC

3.2 発生源寄与率及び寄与濃度の推定

西条及び大竹における発生源解析の結果を図6に示す。発生源寄与率の和が100%とならないのは、計算誤差によるものである⁵⁾。西条と大竹の発生源寄与率を比較すると、西条では自動車排出ガスの寄与が大きかった。一方、大竹では重油燃焼の寄与が大きかった。このことは、成分分析結果の特徴とよく一致していた。なお、名古屋市元塩公園の成分分析データについて、2.3の方法で発生源解析を行い、既報⁶⁾と比較した結果、主要な発生源については報告値と同等の値となり、2.3の方法は妥当なものであったと確認できた。

3.3 高濃度日における発生源解析

CMB法により、1日ごとの発生源寄与濃度を算出した結

果を図7に示す。西条では7月25日から28日にかけてPM_{2.5}濃度が上昇しており、この間、二次生成粒子(有機粒子, SO₄²⁻, NO₃⁻, Cl⁻, NH₄⁺)やブレーキ粉じん等の自動車に関連する項目の寄与濃度が増加した。その要因としては、近傍の幹線道路が考えられ、幹線道路上の自動車の影響を強く受けたと考えられた。

大竹では7月25日から27日にかけてPM_{2.5}濃度が上昇しており、この間、二次生成粒子、重油燃焼、海塩粒子の寄与濃度が増加した。またこの時、両地点ともに硫酸イオンが上昇していたが、大竹の硫酸イオンがより高くなった。その要因としては、大竹の沿岸工業地域にあると考えられ、ボイラー燃焼や船舶による燃料燃焼に由来する硫酸イオンが観測されたためと考えられた。

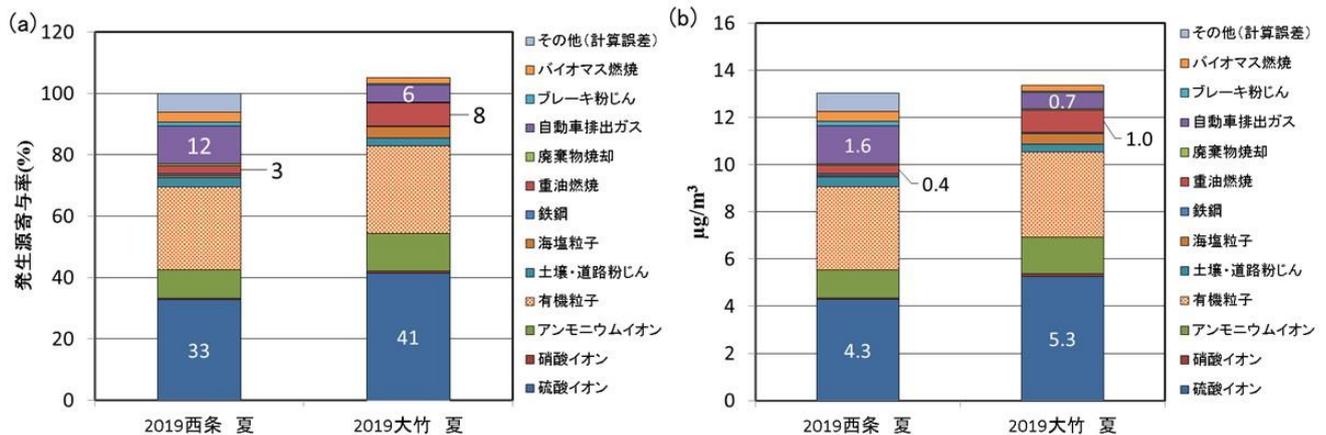


図6 CMBK v2.1による期間平均の(a)発生源寄与率及び(b)寄与濃度

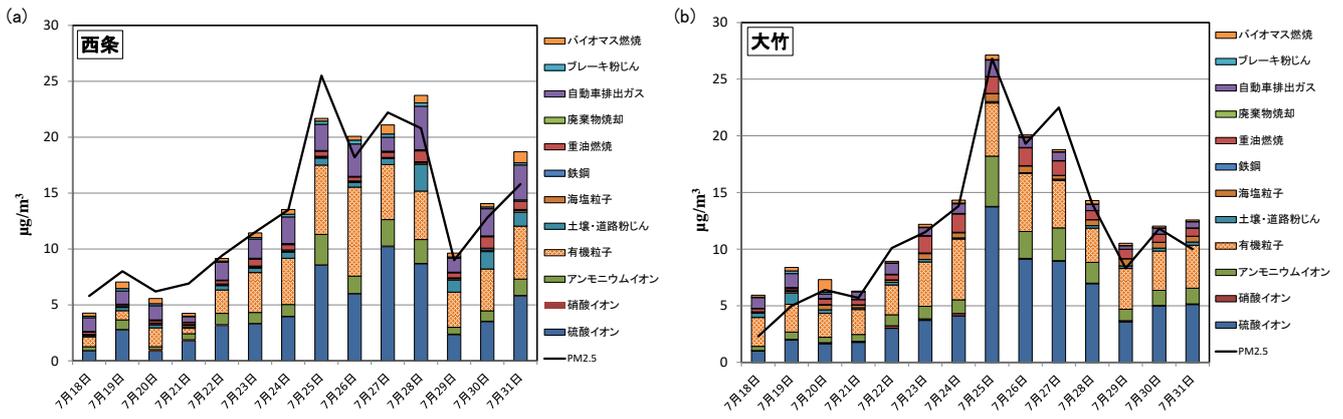


図7 CMBK v2.1による1日ごとの発生源解析結果 (a)西条, (b)大竹

3.4 高濃度要因解析

3.4.1 後方流跡線解析

7月25日を起点とした後方流跡線解析の結果を図8に示す。西条, 大竹へ到達した気塊はともに九州を通過していると推定された。九州地方は桜島や阿蘇山, 雲仙岳といった活火山があるため, SO₂等の火山性ガスを含んだ気塊が到達したと考えられた。

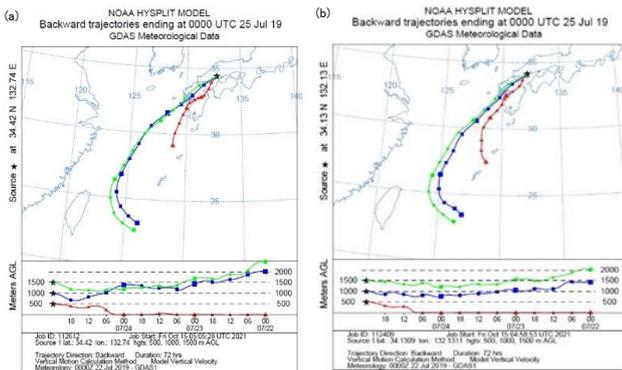


図8 後方流跡線解析の結果 (a)西条, (b)大竹

3.4.2 SPRINTARSによるシミュレーション結果

SPRINTARSによるSO₂濃度のシミュレーション結果を図9に示す。

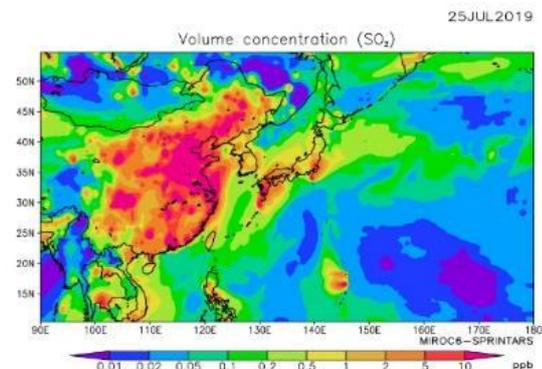


図9 SPRINTARSによるシミュレーション結果 (SO₂)
SPRINTARSアーカイブより引用

7月25日の日本周辺のSO₂濃度は, 大陸や九州地方を中心に高濃度になっており, 3.4.1で述べたように, 九州地方は火山の影響により, SO₂濃度が高い状態であったことが示唆された。

3.4.3 自動測定局の常時監視データ

3.4.1及び3.4.2において, 九州地方のSO₂濃度が高い気塊が移流していることが示唆されたことから, 実際にSO₂濃度が上昇していたか, 常時監視データを確認した。大竹油見公園局舎の常時監視データを図10に示す。自動測定局のSO₂濃度は通常時は1~2ppb程度であるが, PM_{2.5}が高濃度となった7月25日には10ppbを超える値となっていた。SO₂は大気中で水と反応するとともに, 気相ではOHラジカルと反応し, H₂SO₃やH₂SO₄となった後, NH₃と反応し粒子化することで長距離輸送される¹³⁾。このことから, この期間のPM_{2.5}の濃度上昇は, 火山由来のSO₂を含む気塊が移流する間にNH₃とSO₂が粒子化し, 観測されたものと考えられた。また, SO₂が高濃度に観測された現象は, 移流経路中に存在するNH₃より過剰のSO₂が移流してきたためと推測されるが, NH₃の常時監視は行っていないため, 粒子化により消費されたNH₃について詳細な解析はできなかった。

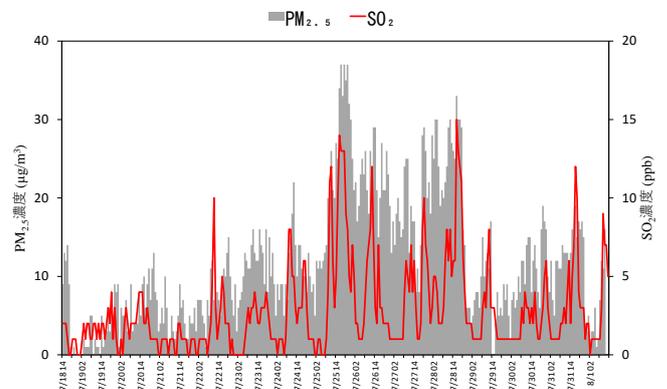


図10 常時監視データ (大竹油見公園)

4. まとめ

県内のPM_{2.5}の特徴を把握することを目的とし、広島県における一般環境の代表地点として、県中央部に位置する西条と県西部沿岸の大竹でPM_{2.5}を採取し、成分分析及び発生源解析を行った。

CMB法による発生源解析を行った結果、西条では自動車排出ガスの寄与率が高く、大竹では重油燃焼の寄与率が高かった。高濃度日では、2地点間で共通し、二次生成粒子が増加していた。また、西条ではプレーキ粉じん等の自動車に関する項目の寄与が、大竹では重油燃焼及び海塩粒子の寄与が増加していた。

高濃度要因の解析を行った結果、西条、大竹へ到達した気塊はともに九州地方を通過していると推定された。九州地方は桜島や阿蘇山、雲仙岳といった活火山があるため、SO₂濃度が高い傾向がある。高濃度期間では、SO₂濃度が通常時よりも高くなっており、火山由来のSO₂を含んだ気塊が移流してきたものと考えられた。この気塊に含まれるSO₂は移流に伴い、NH₃と反応しPM_{2.5}を生成したと推測されるが、NH₃の常時監視は行っていないため、消費されたNH₃について詳細な解析はできなかった。今後、NH₃の観測も必要である。

5. 謝辞

本研究は、国立環境研究所と地方環境研究所によるII型共同研究「光化学オキシダントおよびPM_{2.5}汚染の地域的・気象的要因の解明」(2019~2021年度)の研究の一環として取り組んだ結果である。II型共同研究メンバーに謝意を表す。炭素成分の分析を行っていただいた大阪市立環境科学センターの浅川様、発生源解析検証用のデータをご提供いただいた名古屋市環境科学調査センターの山神様、SPRINTARSのシミュレーション結果を引用させていただいた九州大学応用力学研究所の竹村様に謝意を表す。

6. 引用文献

- 1) 大原利眞, PM_{2.5}問題の3年間を振り返る, 大気環境学会誌, **51**, (3), A47-A50, 2016
- 2) PM_{2.5}越境問題は終焉に向かっているのか?, 大気環境学会誌, **52**, (6), 177-184, 2017
- 3) 環境省: 微小粒子状物質の成分分析 大気中微小粒子状物質 (PM_{2.5}) 成分測定マニュアル, <https://www.env.go.jp/air/osen/pm/ca/manual.html> (2021.10.11アクセス)

- 4) 環境省: ガス成分の測定方法第2版, https://www.env.go.jp/air/manual_8.pdf (2021.10.11アクセス)
- 5) 微小粒子状物質健康影響評価検討会報告書, 平成20年4月, 3.2.5 発生源寄与濃度の推定 (レセプターモデル) p.3-37 http://www.env.go.jp/air/report/h2001/mat03_2.pdf (2021.10.11アクセス)
- 6) 統計数理研究所: 学術研究リポジトリ https://ismrepo.ism.ac.jp/?action=pages_view_main&active_action=repository_view_main_item_detail&item_id=32744&item_no=1&page_id=13&block_id=21 (2021.10.11アクセス)
- 7) 山神真紀子, 久恒邦裕, 池森文数, 微小粒子状物質 (PM_{2.5}) の発生源寄与率の推定, 名古屋市環境科学調査センター年報, **1**, 20-25, 2012
- 8) 微小粒子状物質 (PM_{2.5}) 測定方法暫定マニュアル p.13, <http://www.env.go.jp/air/report/h19-03/manual/m04.pdf> (2021.10.11アクセス)
- 9) アメリカ海洋気象庁 (NOAA), <https://www.ready.noaa.gov/hypub-bin/trajtype.pl?runtype=archive> (2021.10.11アクセス)
- 10) Takemura, T., H. Okamoto, Y. Maruyama, A. Numaguti, A. Higurashi, and T. Nakajima, 2000: Global three-dimensional simulation of aerosol optical thickness distribution of various origins. *Journal of Geophysical Research*, **105**, 17853-17873.
- 11) Takemura, T., T. Nakajima, O. Dubovik, B. N. Holben, and S. Kinne, 2002: Single-scattering albedo and radiative forcing of various aerosol species with a global three-dimensional model. *Journal of Climate*, **15**, 333-352.
- 12) Takemura, T., T. Nozawa, S. Emori, T. Y. Nakajima, and T. Nakajima, 2005: Simulation of climate response to aerosol direct and indirect effects with aerosol transport-radiation model. *Journal of Geophysical Research*, **110**, D02202, doi:10.1029/2004JD005029
- 13) 環境省: 資料2-1 粒子状物質の特性について, <http://www.env.go.jp/council/former2013/07air/y078-02/mat02-1.pdf> (2021.10.11アクセス)