

# 市原岩崎西局における PM<sub>2.5</sub> 高濃度予測に基づく高時間分解能測定

## －国立環境研究所Ⅱ型共同研究

### PM<sub>2.5</sub> の短期的/長期的環境基準超過をもたらす汚染機構の解明－

石井克巳 堀本泰秀 市川有二郎

#### 1 はじめに

広域的な影響が考えられる大気汚染物質については、共通の評価指標で全国的な比較検討を行うことが重要であり、国立環境研究所と地方環境研究所によるⅡ型共同研究（研究開始当初はⅢ型研究）が継続的に実施されてきた。当センターにおいても、光化学オキシダントを対象とした第3期研究（2007～2009年度）、PM<sub>2.5</sub>と光化学オキシダントを対象とした第4期研究（2010～2012年度）に参加し、一定の成果を得てきた。2013～2015年度はPM<sub>2.5</sub>をターゲットにした第5期研究（PM<sub>2.5</sub>の短期的/長期的環境基準超過をもたらす汚染機構の解明）が実施され、引き続き参加した。

本共同研究では6つのサブグループが設定され、当センターではサブグループ①（高濃度汚染時のPM<sub>2.5</sub>観測とデータベース化）に参加し、PM<sub>2.5</sub>高濃度予測を元にした一斉共同採取と採取した試料の成分分析を実施した。

#### 2 調査方法

##### 2・1 PM<sub>2.5</sub>高濃度予測時の一斉共同試料採取

グループリーダー及びサブリーダーが濃度予測シミュレーションや衛星画像、中国及び韓国の地上濃度等を総合的に判断し、PM<sub>2.5</sub>濃度が50μg/m<sup>3</sup>以上で12時間継続すると想定された場合、共同研究者へメール送付による試料採取情報を提供した<sup>1)</sup>。情報を受けた共同研究者は採取を実施し、開始時と同様の判断材料で高濃度イベントが終了したと判断されれば、メール送付による連絡が行われ採取終了した。

試料採取においては、常時監視による24時間採取試料の成分分析よりも時間分解能を上げることで高濃度イベントをより詳細に把握することを目標とし、フィルター法による6時間採取を行うことを基本とした。

ただし、試料採取方法については自治体ごとに事情が異なり、また、緊急的な一斉共同採取の場合、対応が難しいケースもあると想定されたため、状況に応じてメンバーの可能な範囲で対応を行うこととした。

##### 2・2 千葉県環境研究センターにおける対応

- ・測定地点：千葉県環境研究センター屋上
- ・試料採取装置：FRM2025i 2台
- ・使用フィルター：PTFEと石英
- ・試料採取時間：6時間採取を基本とし、状況により適宜採取時間を長くする。
- ・質量濃度：当センター敷地内の市原岩崎西局の自動測定機（HORIBA APDA-375A）で代用
- ・成分分析

①無機 PTFE フィルター：

蛍光X線（5元素：Si, K, Ca, Ti, Fe）

ICP-MS（27元素：成分分析ガイドライン記載の30種から蛍光X線による5種を除き、Be, Cdを追加）

②イオン 石英フィルター：IC

③炭素 石英フィルター：

熱分離・光学補正式炭素分析計、TOC計

④レボグルコサン 石英フィルター：IC-MS（分析は大阪市立環境科学研究所の浅川大地氏に依頼）

#### 3 結果

##### 3・1 試料採取期間と期間中PM<sub>2.5</sub>濃度

試料採取を実施した結果とその期間のPM<sub>2.5</sub>濃度について表1に示した。2014年3月から2015年6月の間に15回の一斉共同試料採取が実施され、期間①、⑨、⑩を除いた12回の試料採取を行った。共同研究グループでは、今回の試料採取事例のうち表2に示した6事例について詳細解析を行うこととした。図1には高濃度イベントにおける汚染の地域（都府県スケー

表1 一斉共同試料採取期間とPM<sub>2.5</sub>濃度

| 期間 | 年    | 開始日   | 終了日   | 採取<br>試料数 | 35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$<br>超過<br>試料数 | 期間PM <sub>2.5</sub> 濃度 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) |               |
|----|------|-------|-------|-----------|------------------------------------------|-----------------------------------------------------|---------------|
|    |      |       |       |           |                                          | 平均値                                                 | 最大値<br>(6h平均) |
| ②  | 2014 | 3/15  | 3/21  | 22        | 2                                        | 17.7                                                | 44.7          |
| ③  |      | 3/24  | 3/31  | 27        | 2                                        | 22.6                                                | 40.0          |
| ④  |      | 4/15  | 4/18  | 14        | 5                                        | 29.2                                                | 47.8          |
| ⑤  |      | 5/2   | 5/3   | 6         | 1                                        | 19.1                                                | 36.7          |
| ⑥  |      | 5/25  | 6/5   | 41        | 20                                       | 31.3                                                | 67.3          |
| ⑦  |      | 6/14  | 6/19  | 25        | 6                                        | 24.8                                                | 52.5          |
| ⑧  |      | 12/28 | 12/31 | 13        | 4                                        | 27.4                                                | 48.2          |
| ⑩  | 2015 | 1/16  | 1/18  | 6         | 0                                        | 9.9                                                 | 20.9          |
| ⑫  |      | 2/23  | 2/24  | 8         | 0                                        | 19.5                                                | 32.7          |
| ⑬  |      | 2/26  | 2/27  | 2         | 0                                        | 19.4                                                | 26.7          |
| ⑭  |      | 3/21  | 3/23  | 9         | 0                                        | 20.7                                                | 34.8          |
| ⑮  |      | 4/16  | 4/17  | 4         | 1                                        | 32.8                                                | 41.8          |

期間①、⑨、⑪は試料採取実施せず

表2 共同研究グループで詳細解析対象とした事例<sup>1)</sup>

| No. | 高濃度時期              | 最大<br>日平均濃度<br>( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) | 規模  | 汚染タイプ | 黄砂・煙霧<br>の有無 |
|-----|--------------------|---------------------------------------------|-----|-------|--------------|
| ①   | 2014年3月上旬          | 42                                          | 小規模 | 越境    | 煙霧           |
| ②   | 2014年3月中旬          | 79                                          | 中規模 | 越境+地域 | 煙霧           |
| ④   | 2014年4月中旬          | 82                                          | 中規模 | 越境+地域 | 煙霧           |
| ⑤   | 2014年5月上旬          | 52                                          | 中規模 | 越境    | 煙霧           |
| ⑥   | 2014年6月下旬<br>～6月上旬 | 72                                          | 大規模 | 越境+地域 | 黄砂           |
| ⑦   | 2014年6月中旬          | 53                                          | 中規模 | 越境+地域 | 煙霧           |

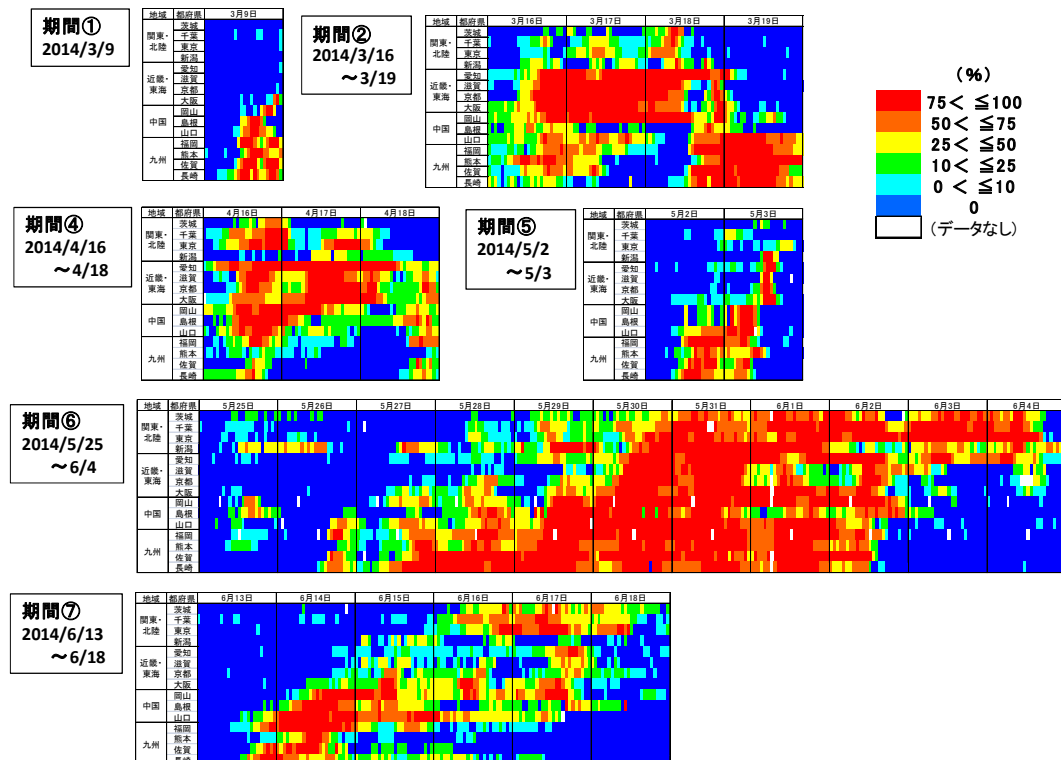


図1 PM<sub>2.5</sub>の1時間値が35  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超過した局の割合の推移

ル) および経時的な変遷の状況を示すため、高濃度観測グループの15自治体に設置された常時監視測定局について、PM<sub>2.5</sub>濃度の1時間値が35  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超過した局の割合(%)を都府県ごとに色づけして示した。図中の都府県は上から下に向けて東から西へ並ぶように配置した。なお、2013年度は時間値データ(確定値)、2014年度は大気汚染物質広域監視システム(そらまめくん)の速報値を使用した。

期間⑥が最も大規模な高濃度汚染事例であり、5/26午後から九州で濃度上昇が始まって徐々に東に広がり、その後全国的に汚染が滞留した。全体的な流れとして汚染物質が西から東にゆっくりと移流した状況が現れており、地域汚染も加わり5～6日間にわたって各地域で高濃度汚染が継続したと推定された。

それ以外で関東地方が高濃度になったのは期間④、⑦であった。期間⑦は期間⑥と同様に西から東へ汚染が移流しているが、期間や範囲は期間⑥と比べると小さかった。期間④の関東地方の高濃度は、西日本とほぼ同時期に生じた期間と移流の影響を受けた部分があると考えられた。他の期間については関東地方ではそれほど高濃度にはならなかった。

### 3・2 成分分析

表2の事例のうち関東地方でも高濃度が観測された期間④、⑥、⑦について、主要な6成分と無機元素8成分の測定期間中の推移を図2に示した。

#### 3・2・1 期間④

主要成分は硫酸イオンとOCでありそれぞれ2〜3割程度を占めた。硫酸イオンは4/16及び4/18にPM<sub>2.5</sub>濃度が上昇した際に同期して上昇している。アンモニウムイオン、硝酸イオン及びECもPM<sub>2.5</sub>濃度と相関が見られ、これら5成分でPM<sub>2.5</sub>濃度の6〜8割程度を占める支配要因となっている。無機元素は、4/16に石油燃焼指標のV、土壌由来成分のSi等の濃度上昇が見られた。4/17にPM<sub>2.5</sub>濃度はいったん低下し、4/18再上昇したが、その際に前述の無機元素の上昇は少なかった。一方、人為的影響を示すPb、Znはある程度上昇しており、4/17前後での汚染のメカニズムが異なっていたことが推察された。また、他自治体のデータでも硫酸イオンが顕著に上昇し、広域的移流の汚染の影響が推察された<sup>1)</sup>が、無機元素による解析では大陸からの越境汚染については明確にはならなかった。

#### 3・2・2 期間⑥

期間⑥は、解析事例の中で最も長期間高濃度が継続しており、越境大気汚染、黄砂、地域大気汚染が複合した事例と考えられた。PM<sub>2.5</sub>濃度は5/28から6/2まで徐々に上昇し、その後減少傾向となった。この間は日中上昇し夜間に低下するサイクルを繰り返しながら、継続的な高濃度を維持した。最大成分は硫酸イオンであり3〜5割程度を占めた。アンモニウムイオン、EC及びOCもPM<sub>2.5</sub>濃度と相関が見られ、これら4成分で高濃度時PM<sub>2.5</sub>濃度の4〜7割程度を占める支配的要因となっている。硝酸イオン濃度は低いが、早朝に高くなるケースが特徴としてみられた。無機元素は土壌由来成分のSi、Ca、Alが日中上昇し夜間に低下する明確なサイクルがあった。黄砂の観測された時期であったことから、日中に上空にあった黄砂の境界層内への取り込みが生じていた<sup>2)</sup>と考えられた。人為的影響の大きいと考えられる元素にも日内サイクルを示すものもあるが、V、Znはサイクルと関連のない濃度変動を示していた。西日本の自治体では石炭燃焼由来と考

えられる汚染が観測され、大陸からの越境汚染が考えられた<sup>1)</sup>。市原のV、Znは地域独特の変動を示しており、広域汚染に地域汚染が加わった状況が示唆された。

#### 3・2・3 期間⑦

PM<sub>2.5</sub>濃度は、6/16から6/19まで日中上昇し夜間に低下するサイクルで高濃度を継続した。最大成分は硫酸イオンであり3〜5割程度を占めた。アンモニウムイオン、EC及びOCもPM<sub>2.5</sub>濃度と相関が見られ、これら4成分で高濃度時PM<sub>2.5</sub>濃度の5〜8割程度を占める支配的要因となっている。無機元素のFeは期間⑥と同程度の濃度を示したが、土壌由来成分は日内サイクルあるものの濃度は低かった。他の自治体では石炭燃焼由来と考えられるAs、Pbが西から東に移流する状況が観測され、大陸からの越境汚染が考えられた<sup>1)</sup>。市原のVは日内サイクルを示しているが他地域では見られず、地域汚染が加わった状況が推察された。

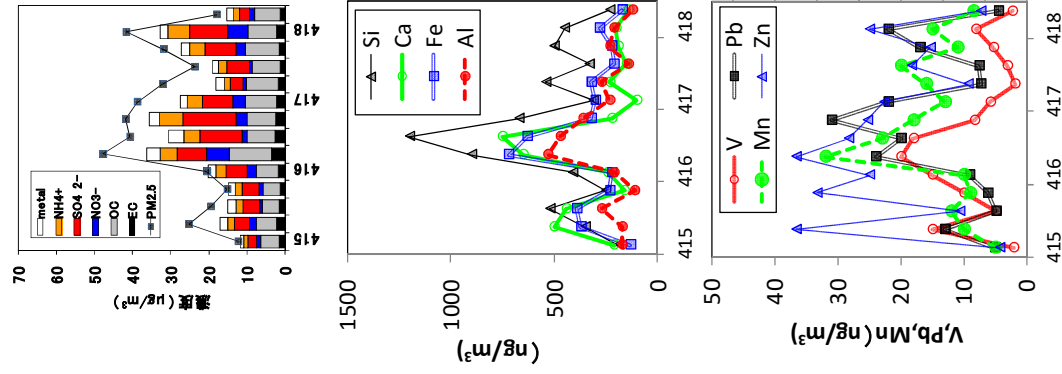
## 4 まとめ

高濃度予測に基づいた全国的な6時間の高時間分解能での一斉共同試料採取という新たな試みの事例解析の実績が本調査で得ることができた。特に短期基準超過に対する対策を検討する際に、これら的高濃度事象の蓄積が有用であると考えられる。しかしながら、今回の手法は越境汚染と推定される高濃度事象については、精度良く予測されたが、関東特有の地域汚染については予測困難であった。今後は自動測定機のテープ試料利用など常時測定を行っている中で高濃度事象を捕らえていく方法も検討する必要がある。

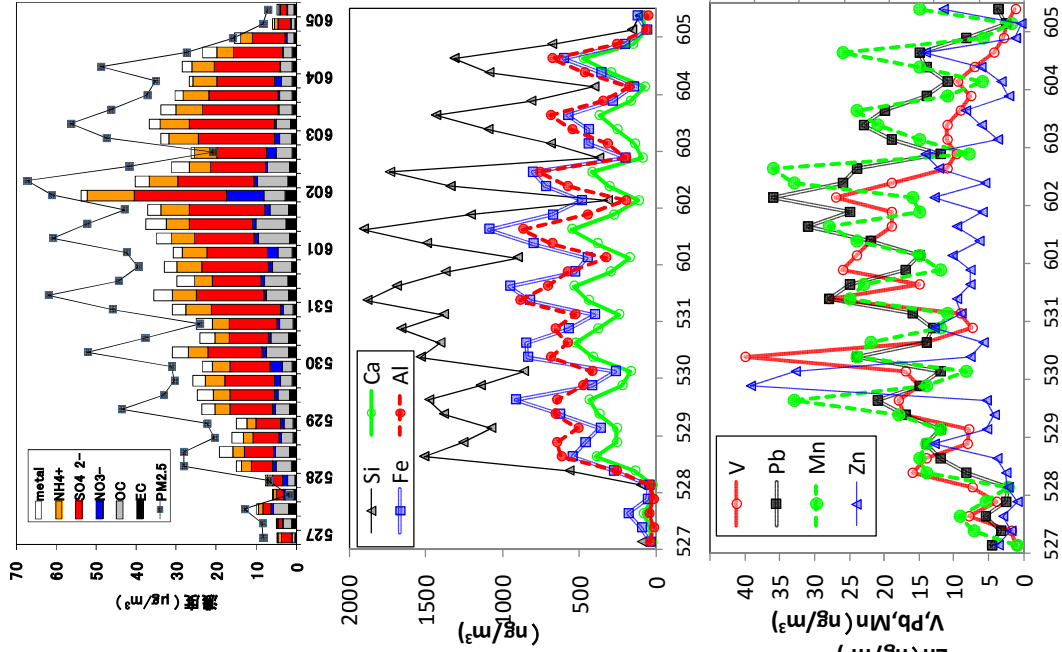
#### 引用文献：

- 1) 菅田誠治編：Ⅱ型共同研究第5期（平成25-27年度）報告書\_PM<sub>2.5</sub>の短期的/長期的環境基準超過をもたらす汚染機構の解明。（2016）。
- 2) 鶴野伊津志，Xiaole Pan，板橋秀一，弓本桂也，原由香里，栗林正俊，山本重一，下原孝章，田村圭，緒方美治，長田和雄，上口友輔，山田早紀，小林拓：九州北部で2014年5月下旬から1週間継続した黄砂と高濃度大気汚染現象のオーバービュー．大気環境学会誌，51，44〜57（2016）。

期間④



期間⑥



期間⑦

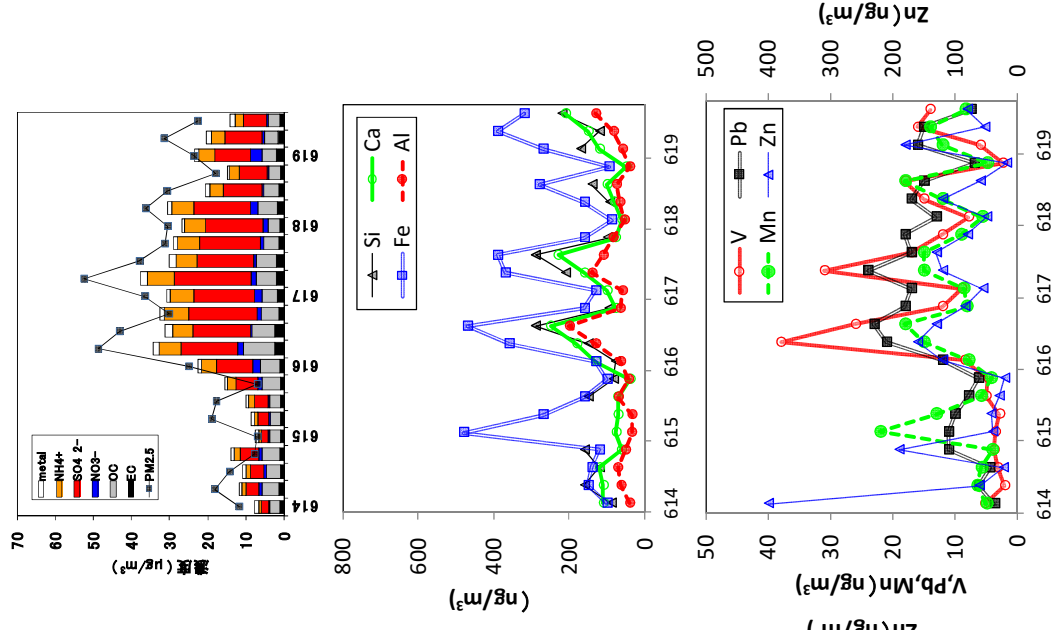


図 2 主要6成分と無機元素8成分の濃度推移  
(無機元素は検出下限値以上のデータを使用して作図)