

香川県における PM2.5 大気環境調査について (VI)

Investigation of Airborne PM2.5 Measurements in Kagawa Prefecture (VI)

多田 博幸 池田 光広 橋本 貴世* 横井 浩二
 Hiroyuki TADA Mitsuhiro IKEDA Takayo HASHIMOTO Koji YOKOI

要 旨

香川県における PM2.5 の季節変動などの特徴を明らかにするため、平成 26 年度及び 27 年度に観音寺市役所と香川県農業試験場満濃試験地で、PM2.5 質量濃度に加え、イオン、炭素、無機元素の成分分析調査を行った。

分析結果から、主要なイオン・炭素成分は硫酸イオン、硝酸イオン、アンモニウムイオン、有機炭素(OC)であった。無機元素成分においては、短期環境基準値 $35\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えた高濃度日に鉛/亜鉛濃度比、バナジウム/マンガン濃度比の結果から高濃度汚染の原因が越境汚染によるものか地域的な発生によるものか推察した。その結果、観音寺の高濃度日の多くの原因が地域的な発生によるもので、満濃との比較から硝酸イオンの寄与が大きいことが確認された。

Abstract

In order to investigate the phenomena including seasonal variation of PM2.5 in Kagawa Prefecture, PM 2.5 mass concentrations in addition to carbon and ion analysis for inorganic elements, were investigated in Kanonji City Hall and Kagawa Prefecture Agricultural Experiment Station Manno in fiscal years of 2013 and 2014. As a result of the component analysis, the main common components were found to be sulfate ion, nitrate ion, ammonium ion and organic carbon. As for inorganic elements, the ratios of Pb/Zn and V/Mn concentration were measured on high pollution days exceeding the short-term environment reference value of $35\mu\text{g}/\text{m}^3$, in order to investigate if the origin of the high concentration pollution was foreign or regionally-occurring. As a result, it was determined that the main origin of high concentration pollution in Kanonji was regionally-occurring pollution, as there is a higher contribution of nitrate ion in comparison with Manno.

キーワード：PM2.5 成分分析 イオン 無機元素

I はじめに

微小粒子状物質(以下、PM2.5 と記す。)は粒径が $2.5\mu\text{m}$ 以下と小さいため、呼吸器系の奥深くまで入り込みやすいことから健康への影響が大きいとされている¹⁾。香川県では平成 24 年度から観音寺市役所(以下、観音寺)とブランク地点である香川県農業試験場満濃試験地(以下、満濃)において PM2.5 の成分分析の調査を実施してきた²⁾³⁾⁴⁾⁵⁾。平成 24 年度及び 25 年度の分析結果から、季節や地点を通じて一番多い成分は硫酸イオンであり、硝酸イオンにおいては満濃よりも観音寺で高い傾向にあることが確認されている⁴⁾。

今回は平成 26 年度及び 27 年度の成分分析の結果から、経年変化を比較した。さらに、質量濃度が環境基準であ

る $35\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えた高濃度事例について、鉛/亜鉛濃度比(以下、Pb/Zn 濃度比)とバナジウム/マンガン濃度比(以下、V/Mn 濃度比)から高濃度の要因が越境由来であるか、地域由来であるか推察した。

II 方法

1 調査地点及び調査期間

既報と同様に観音寺と満濃で実施した²⁾³⁾⁴⁾⁵⁾。検体の採取期間は表 1 に示す通り各季節で約 2 週間とし、PM2.5 質量濃度測定用と無機元素濃度測定用に $47\text{mm}\phi$ の PTFE フィルタを用い、イオン・炭素濃度測定用には $47\text{mm}\phi$ の石英繊維フィルタを用いて、それぞれ、吸引流量 $16.7\text{L}/\text{min}$ で毎日 0 時から 24 時間採取した。検体は週 2 回まとめて回収し、分析まで冷凍庫で保存した³⁾。

*環境森林部 環境管理課

表1 成分分析用試料の採取期間

年度	季節	期間
26	春	5/8~5/21
	夏	7/23~8/5
	秋	10/22~11/4
	冬	1/21~2/3
27	春	5/7~5/20
	夏	7/22~8/4
	秋	10/21~11/3
	冬	1/20~2/4

2 分析方法

成分分析の調査項目は、PM2.5 質量濃度、炭素成分2項目、イオン成分8項目、金属成分29項目を測定した。分析は環境省で定める方法に従い⁶⁾⁷⁾、PM2.5 質量濃度はフィルタ捕集-質量法(標準測定法)、炭素成分はサーマルオプティカル・リフレクタンス法(DRI製2001A)、イオン成分はイオンクロマトグラフ法(DIONEX製ICS-1000)、無機元素成分は酸分解/ICP-MS法(Agilent製7500cx)により実施した。

III 結果及び考察

1 平成26年度及び27年度地点・季節ごとの変化

図1に季節・地点ごとのPM2.5 質量濃度及びイオン・炭素成分濃度の平均値を示す。なお、採取期間は2週間が基本であるが、平成26年度の夏期に満濃で行った調査はサンプラーの不具合により検体数が少ないことから、参考値とする(8月3~5日:欠測)。

(1) PM2.5 質量濃度の季節変化

平成26年度は観音寺・満濃ともに夏に低く、秋から春にかけて高くなる傾向を示した。季節変動の差は満濃に比べ観音寺の方が顕著にあらわれていた。

平成27年度は観音寺・満濃ともに冬に低く、夏に高い傾向であった。平成26年度の結果と比較すると、季節変動は地点間であまり差がなかった。

また、季節、年度を通して、観音寺は満濃よりも高い傾向であった。

(2) イオン・炭素成分濃度の季節変化

成分分析の結果から、地点、季節を通して硫酸イオンが最も高く、他の主要な成分は有機炭素(OC)、アンモニウムイオン、硝酸イオンであった。また、硫酸イオン、硝酸イオンは観音寺が満濃よりも高く、特に硝酸イオンは秋期で地点間の差が大きかった。

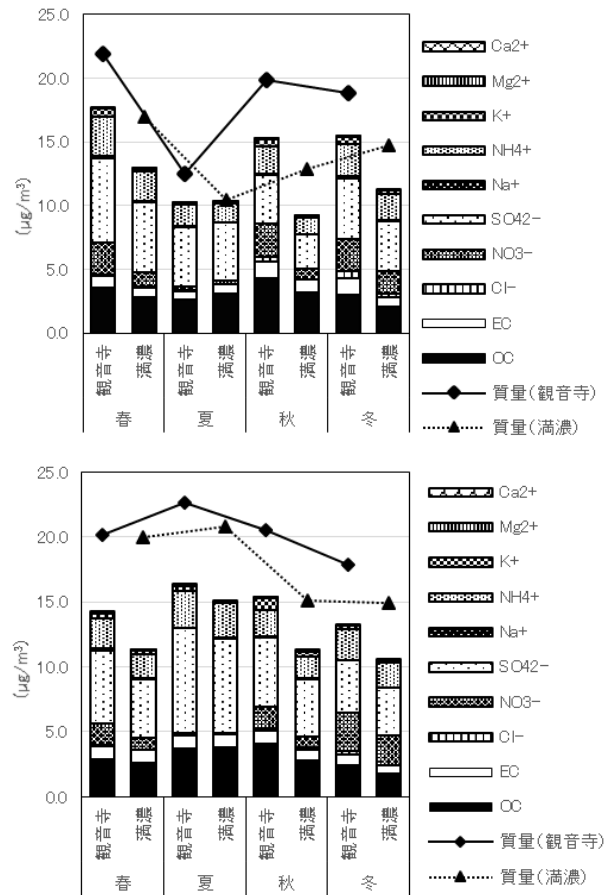


図1 平成26年度(上段)及び27年度(下段)の季節・地点ごとのPM2.5 質量濃度及びイオン・炭素成分濃度

2 高濃度事例における、鉛(Pb)/亜鉛(Zn)濃度比、バナジウム(V)/マンガン(Mn)濃度比の特徴

図2に平成26年度及び27年度における鉛(Pb)、亜鉛(Zn)の各濃度及びPb/Zn濃度比について、図3にバナジウム(V)、マンガン(Mn)の各濃度及びV/Mn濃度比について示す。なお、PM2.5 質量濃度が短期環境基準である35µg/m³を超過した日を高濃度日とした。高濃度日の質量濃度を表2に示す。

表2 高濃度日の質量濃度

	高濃度日		質量濃度(µg/m³)
	年度	日付	
観音寺	H26	5/14	38.32
		5/18	37.21
		10/26	39.97
	H27	5/15	43.74
		7/31	36.78
		10/22	36.39
		10/24	40.97
H28	1/28	37.09	
	2/1	45.09	
満濃	H27	8/3	37.12
		8/4	39.08
	H28	2/1	42.68

(1) Pb、Znの各濃度及び、Pb/Zn濃度比

有鉛ガソリンを用いている地域では、普遍的に存在するZnに対して、相対的にPb濃度が高くなるため、有鉛ガソリンの指標としてPb/Zn濃度比が用いられている。また、中国大陸において主なエネルギー供給源は石炭であり、石炭中にPbが含まれることから、長距離輸送の指標として用いられている。日本では有鉛ガソリンの使用は禁止されており、日本の都市域でのPb/Zn濃度比は α 約0.2~0.3程度、大陸からの越境起源の場合は0.5~0.6程度とされている⁸⁾⁹⁾。

Pb/Zn濃度比が高い値を示したのは観音寺で平成26年5月18日の0.45、平成27年7月31日の0.46、平成28年2月1日の0.52であった。満濃においては平成27年8月3、4日が各々、0.66、0.59、平成28年2月1日が0.53であった。その他の高濃度日は0.2~0.3程度であった。

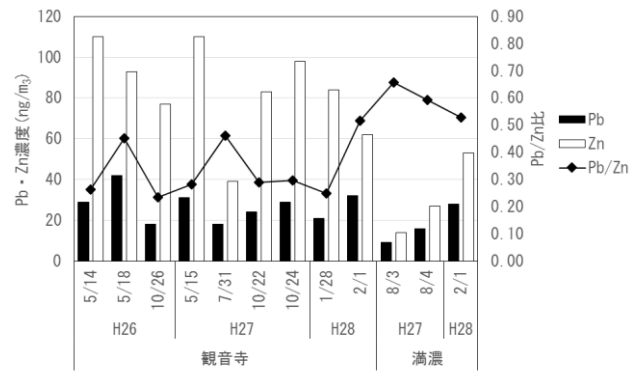


図2 平成26年度及び27年度の高濃度日におけるPb及びZn濃度、Pb/Zn濃度比

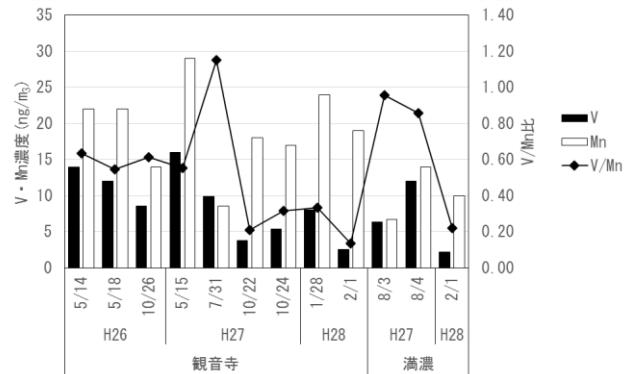


図3 平成26年度及び27年度の高濃度日におけるV及びMn濃度、V/Mn濃度比

表3 Pb/Zn濃度比、V/Mn濃度比の特徴

	Pb/Zn濃度比	石炭燃焼由来の可能性		V/Mn濃度比	石油燃焼由来の可能性
日本の都市大気	0.2~0.3	-	日本の都市大気	0.21~0.28	-
大陸由来	0.5~0.6	高	地域由来	0.28<	高

表4 平成26年度及び27年度の観音寺（上段）及び満濃（下段）における高濃度要因のまとめ

【観音寺】

高濃度日	Pb/Zn濃度比	石炭燃焼由来の可能性	V/Mn濃度比	石油燃焼由来の可能性	越境由来の影響	地域由来の影響	越境+地域由来の影響
H26/5/14	0.26		0.64	高		○	
5/18	0.45	高	0.55	高			○
10/26	0.23		0.61	高		○	
H27/5/15	0.28		0.55	高		○	
7/31	0.46	高	1.15	高			○
10/22	0.29		0.21				
10/24	0.30		0.32	高		○	
H28/1/28	0.25		0.33	高		○	
2/1	0.52	高	0.14		○		

【満濃】

高濃度日	Pb/Zn濃度比	石炭燃焼由来の可能性	V/Mn濃度比	石油燃焼由来の可能性	越境由来の影響	地域由来の影響	越境+地域由来の影響
H27/8/3	0.66	高	0.96	高			○
8/4	0.59	高	0.86	高			○
H28/2/1	0.53	高	0.22		○		

(2) V、Mnの各濃度及び、V/Mn濃度比

バナジウムは重油に燃焼によって発生するため、土壌に普遍的に存在するMnに対して、相対的にV濃度が高くなるため、重油の燃焼量を表す指標として考えられている。日本における大気エアロゾル中のV/Mn濃度比は微小粒子で0.21~0.28とされており、石油の燃焼の寄与が高くなるとV/Mn濃度比は高くなる。なお、中国では石炭が燃料として用いられているため、V/Mn濃度比は0.054と小さいことから、V/Mn濃度比の上昇は日本国内の地域的な発生に由来するものと考えられている⁸⁾。

V/Mn濃度比は観音寺、満濃ともに高濃度日のほとんどの日で0.32~1.15と高い値を示した。

(3) 地域発生由来(石油燃焼)か越境汚染由来(石炭燃焼)かの分類

地域由来か越境由来かを判断するための数値を表3に示す。これに基づき、Pb/Zn濃度比及びV/Mn濃度比から高濃度要因を推察し、表4にまとめた。

平成26年度、5月14日、10月26日は、V/Mn濃度比が高いことから、地域的な石油燃焼の影響が考えられた。5月18日は、Pb/Zn濃度比とV/Mn濃度比の両方が高いことから、越境汚染と地域発生の両方の影響が考えられた。

平成27年度、観音寺において5月15日、10月24日、1月28日は、V/Mn濃度比が高いことから、地域的な石油燃焼の影響が考えられる。10月22日は、Pb/Zn濃度比とV/Mn濃度比ともに低く、石炭燃焼由来、石油燃焼由来以外の原因が考えられた。7月31日は、Pb/Zn濃度比とV/Mn濃度比の両方が高いことから、越境汚染と地域発生の両方の影響が考えられた。2月1日は、Pb/Zn濃度比が高く、V/Mn濃度比が低いことから、越境汚染の影響が考えられた。満濃において8月3、4日は、Pb/Zn濃度比とV/Mn濃度比の両方が高いことから、越境汚染と地域発生の両方の影響が考えられた。2月1日は、同日の観音寺と同じくPb/Zn濃度比が高く、V/Mn濃度比が低いことから、越境汚染の可能性が考えられた。

3 高濃度日における成分組成比較

高濃度日において、イオン・炭素成分濃度の組成比較を観音寺、満濃で行った。その結果を図4に示す。夏期と越境汚染の可能性が考えられた2月1日を除いて、硝酸イオンの占める割合が満濃より観音寺の方が高い事が確認された。既報の通り、観音寺が他の地点と比べ高濃度である要因は硝酸イオンの地域的な発生が影響していると考えられる⁴⁾。

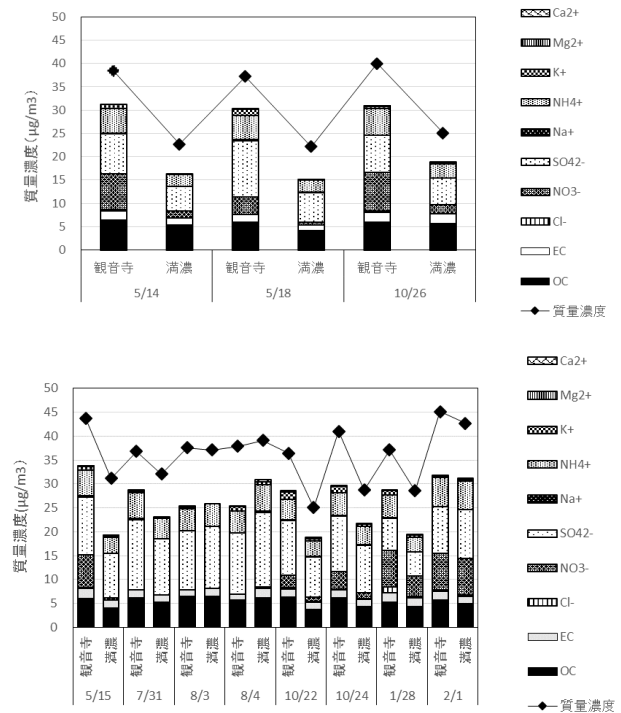


図4 平成26年度(上段)及び27年度(下段)の高濃度日のPM2.5質量濃度及びイオン・炭素成分濃度

V まとめ

平成26年度及び27年度の成分分析結果から、観音寺、満濃ともに主要なイオン・炭素成分は硫酸イオン、硝酸イオン、アンモニウムイオン、有機炭素(OC)であった。

無機元素成分においては、Pb/Zn濃度比、V/Mn濃度比の結果から高濃度汚染の原因が越境汚染によるものか地域的な発生によるものか推察したところ、観音寺では高濃度日の多くが地域的な発生による影響がある事が確認された。

また、高濃度日における成分組成の結果から硝酸イオンの成分が満濃に比べ高く、高濃度を助長している要因であることが確認された。

平成24年から27年度までの成分分析の結果から、各年度の特徴を把握してきたが、観音寺の高濃度の要因は硝酸イオンの寄与が大きく、重要な因子であることが確認されている。今後も継続して成分分析を行い、ブランク地点である満濃だけでなく、他の高濃度になりやすい地点との比較をし、香川県における高濃度の特徴を包括的に把握しなければならない。また、高濃度日については、気象条件等、他の要因も考慮し、高濃度になりやすい条件について解明していきたい。

文献

- 1) 環境省: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), (2008)
- 2) 橋本ら:香川県におけるPM2.5大気環境調査について(第1報),香川県環境保健研究センター所報,11,40-44, (2012)
- 3) 橋本,香川県におけるPM2.5大気環境調査について(Ⅱ),香川県環境保健研究センター所報,12,49-55, (2013)
- 4) 橋本,香川県におけるPM2.5大気環境調査について(Ⅲ),香川県環境保健研究センター所報,13,48-51, (2014)
- 5) 橋本,香川県におけるPM2.5大気環境調査について(Ⅳ),香川県環境保健研究センター所報,13,52-57, (2014)
- 6) 環境省水・大気環境局:環境大気常時監視マニュアル第6版(平成22年3月), (2010)
- 7) 「大気中微小粒子状物質(PM2.5)成分測定マニュアルの策定について」(平成24年4月19日環水大大発第120419002号環水大自発第120419001号環境省水・大気環境局大気環境課長自動車環境対策課長通知)
- 8) 日置正ほか:松山、大阪、つくばで観測した浮遊粉じん中金属元素濃度比による長距離輸送と地域汚染特性の解析,大気環境学会誌,44,2,91-101, (2009)
- 9) 日置正:京都府における微小粒子状物質(PM2.5)モニタリングの実際と起源解析の試み,日中環境産業,48,10,27-37, (2012)