

徳島県における微小粒子状物質 (PM_{2.5}) の現状について (Ⅱ. 成分濃度編)

徳島県立保健製薬環境センター

森兼 祥太・林 貴大*・立木 伸治

Current Status of Fine Particulate Matter (PM_{2.5}) in Tokushima Prefecture (II)

Shota MORIKANE, Takahiro HAYASHI, and Shinji TATSUKI

Tokushima Prefectural Public Health, Pharmaceutical and Environmental Sciences Center

要 旨

2014 年度から 2020 年度にかけて徳島県が採取した PM_{2.5} の成分分析結果について、採取期間における質量濃度、各成分濃度の最大値の変動を調査した。採取期間における PM_{2.5} 質量濃度は、特に春季において減少傾向がみられた。高濃度事例における成分濃度については、黄砂日に採取した試料を除き、硫酸イオンが最も大きな割合を占め、次いでアンモニウムイオンもしくは有機炭素 (OC) の順というのが共通しており、秋季や冬季に 35 µg/m³ を超える試料が採取されることはなかった。一方、硫酸イオン濃度の高濃度事例は近年も発生しており、火山性ガスのような自然起源の発生源寄与を切り出す方法を検討するなど、解析手法の改良の必要性が考えられた。

Key words : 微小粒子状物質 PM_{2.5}, 成分分析 component analysis

I はじめに

2011 年 7 月に環境省が「微小粒子状物質 (PM_{2.5}) の成分分析ガイドライン」にて示したように、PM_{2.5} の対策を推進するためには、その質量濃度のみならず成分濃度についても測定を実施することが求められている¹⁾。当センターでは、PM_{2.5} の成分分析を、2014 年度より徳島 (徳島保健所) と脇町 (徳島県西部総合県民局美馬庁舎) にて毎年四季二週間ずつ実施している。その成分分析結果を用いて既報²⁾では、レセプターモデルのひとつである Positive Matrix Factorization (PMF) 解析を行い、本県における PM_{2.5} の発生源寄与率を推定した。本報では、本県のこれまでの PM_{2.5} 成分分析結果について検討した内容を報告する。

II 方法

解析対象データは、大気中 PM_{2.5} 測定マニュアル³⁾に基づき実施した成分分析結果を用いた。その詳細は次のとおり。

1 解析対象

解析対象成分は以下に示す成分と PM_{2.5} 質量濃度とした。

イオン成分 Na⁺, NH₄⁺, K⁺, Mg²⁺, Ca²⁺, Cl⁻, SO₄²⁻, NO₃⁻

無機元素成分 Al, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Ni, Cu, Zn, As, Se, Sb, Ba, Pb

炭素成分 有機炭素 (以下「OC」という。), 元素炭素

2 試料採取地点

徳島 (徳島保健所: 徳島市新蔵町 3 丁目 80 番地)

脇町 (徳島県西部総合県民局美馬庁舎: 美馬市脇町大字猪尻字建神社下南 73 番地)

3 試料採取期間

2014 年度～2020 年度の各年度における測定期間は、表 1 のとおりである。また、採取時間は午前 10 時～翌朝 9 時の 23 時間としたが、2014 年度～2017 年度に徳島で採取した試

表 1 PM_{2.5} 成分分析用試料採取期間

年度	春季	夏季	秋季	冬季
2014	5/8～5/22	7/23～8/6	10/22～11/5	1/21～2/4
2015	5/7～5/21	7/22～8/5	10/21～11/4	1/20～2/3
2016	5/6～5/20	7/21～8/4	10/20～11/3	1/19～2/2
2017	5/10～5/24	7/20～8/3	10/19～11/2	1/18～2/1
2018	5/9～5/23	7/19～8/2	10/18～11/1	1/17～1/31
2019	5/8～5/22	7/18～8/1	10/17～10/31	1/16～1/30
2020	5/13～5/27	7/23～8/6	10/22～11/5	1/21～2/4

*現 徳島県危機管理環境部環境管理課

料については、午前10時～翌朝9時30分の23時間30分採取とした。

4 試料採取方法および分析方法

採取装置として、脇町では、ムラタ計測器サービス株式会社製 MCAS-SJA を用い、30 L/min の流量で採取した。徳島では、2014 年度～2017 年度は Thermo Fisher Scientific 社製 FRM-2000 を用い、16.7 L/min の流量で採取し、2018 年度～2020 年度は脇町と同機種同条件で採取した。PTFE 製フィルタに採取した試料を無機元素成分に用い、石英製フィルタに採取した試料をイオン成分と炭素成分分析にそれぞれ用いた。

試料の前処理、分析方法は、大気中 PM_{2.5} 成分測定マニュアル³⁾に則り実施した。

Ⅲ 結果および考察

図1に、表1の採取期間におけるPM_{2.5}質量濃度の推移を箱ひげ図で示した。箱の上端が75%値、中線が中央値、下端が25%値、バーの上端が最大値、下端が最小値、×印が平均値を表している。PM_{2.5}質量濃度が他の季節より高くなる春季において減少傾向にあることが分かる。また、夏季や秋季において、高濃度日の試料が外れ値（箱の上下端から箱の縦幅の1.5倍の幅をとった位置より遠くにある値）として処理される割合が増えているのは、高濃度日が減少した結果と推測した。いずれかの地点で35 μg/m³を超える高濃度試料を採取した、高濃度事例の一覧を表2に、各高濃度事例におけるPM_{2.5}中の主要な成分測定結果を図2に示す。硫酸イオンが最

も大きな割合を占め、次いでアンモニウムイオンもしくはOCの順というのが共通していた。

これらの高濃度事例の中で、他の事例と大きく異なる特徴を示したのが事例4である。PM_{2.5}質量濃度と解析対象成分の濃度の合計値との差を、その他の成分として示したが、この割合が異常に高かった。期間中、5月8日に徳島地方気象台による黄砂観測記録があり、前日の5月7日と合わせ西日本の広い範囲で黄砂の観測記録がある。徳島における高濃度は、黄砂飛来の影響と考えられ、他の高濃度事例と比べ、硫酸イオンやアンモニウムイオンの上昇の程度は小さかった。土壌中の存在比が大きい元素は、他の日と比べ高濃度を示したため、金属成分の割合が大きくなっているが、金属成分はもともとPM_{2.5}質量濃度に占める割合は小さく、高濃度の主要因とまではいえない。ケイ素や酸素等の成分は、当センターが保有している機器では分析できず、成分濃度合計に含められていないが、その他の成分がこれほどに高い値を示した理由については、今後検証が必要であると考えられる。

図3に、硝酸イオン濃度の推移を示した。硝酸イオンは、徳島において脇町よりも高いものの、都市部や瀬戸内のPM_{2.5}高濃度地点と比べると低く、近年、県内において冬季に高濃度が発生していない理由として推測される。成分分析用試料採取開始当初、徳島での試料採取は毎日フィルタを交換していたが、脇町では採取装置のオートチェンジャー機能を利用して3日あるいは4日に1回フィルタ交換、回収を行っていたため、負のアーティファクトにより脇町の硝酸イオン濃度

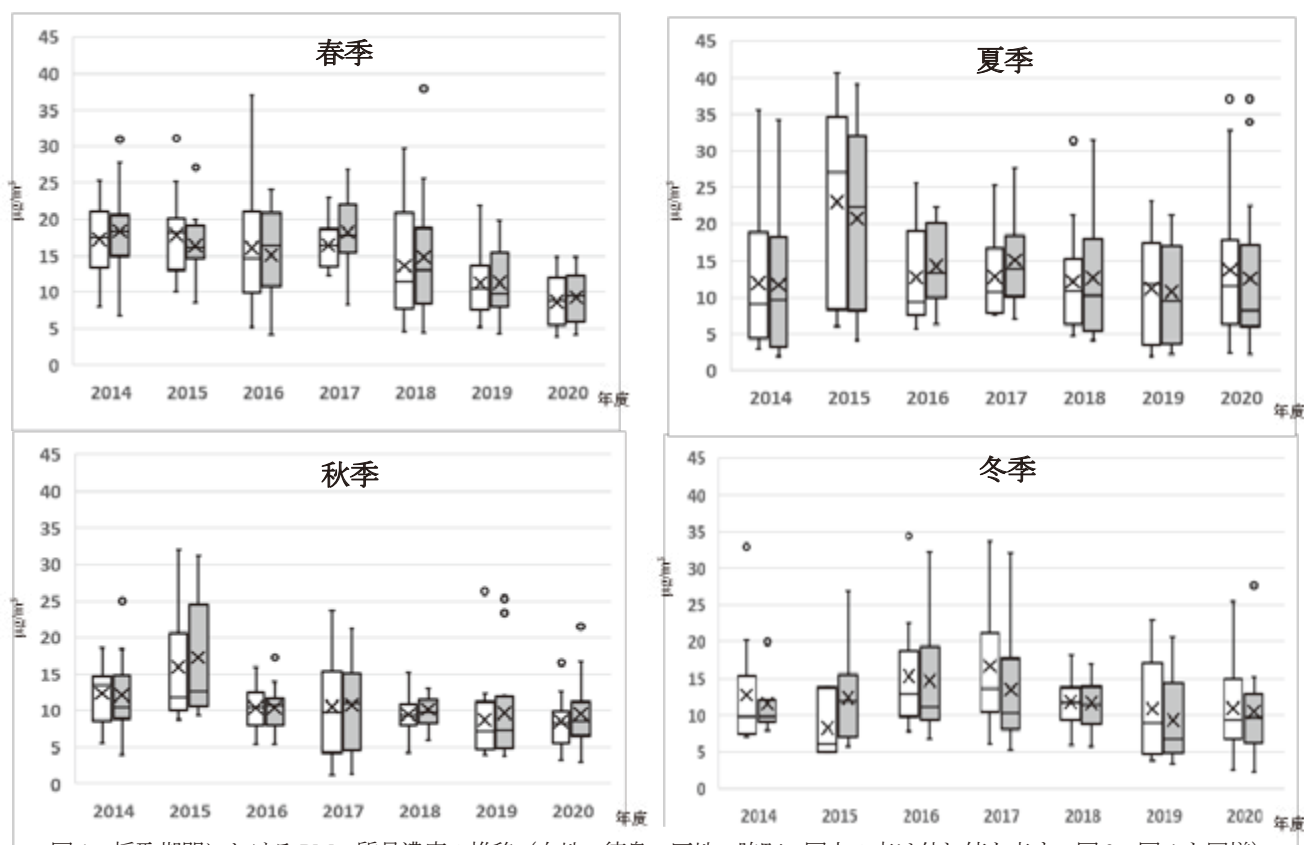


図1 採取期間におけるPM_{2.5}質量濃度の推移（白地：徳島、灰地：脇町、図上の点は外れ値を表す、図3、図4も同様）

表2 採取期間におけるPM_{2.5}高濃度事例一覧

高濃度事例	採取年月日	備考
1	2014/7/26	脇町の炭素成分は欠測
2	2015/7/31	脇町の炭素成分は欠測
3	2015/8/3	脇町の炭素成分は欠測
4	2016/5/8	徳島の炭素成分は欠測
5	2018/5/17	
6	2020/8/6	

を過小評価している懸念があった。しかし、2018年度に徳島でもオートチェンジャー機能を利用するように変更してから、徳島の硝酸イオン濃度には顕著な変化は見られないため、この影響は軽微と評価して試料採取を実施している。

表3は、硝酸イオン以外のイオン成分濃度の最大値の一覧である。ナトリウムイオン濃度や塩化物イオン濃度については、徳島において脇町より最大値が大きい傾向にあるが、これは徳島が海に近いことに由来すると推測した。

一方、カリウムイオン濃度は脇町においてより値が大きかった。これらの結果は、既報²⁾で行ったPM_{2.5}発生源寄与解析にて、徳島において海塩粒子の寄与割合が脇町より大きく、脇町においてバイオマス燃焼の寄与割合が徳島より大きいと推定した結果と整合している。硫酸イオン濃度については、最大値を示した日が、表2と図2で示した高濃度事例と一致することが多く、硫酸イオン濃度の減少は高濃度事例の減少に直結すると期待されるが、火山噴火の影響によると推測される事例6のようなケースもあれば、降雨がなかったにも関わらず平均湿度87%と非常に高湿度であったことにより、硝酸イオン濃度の上昇が重なったと考えられる事例5のようなケースもあり、今後についての予測は難しい。

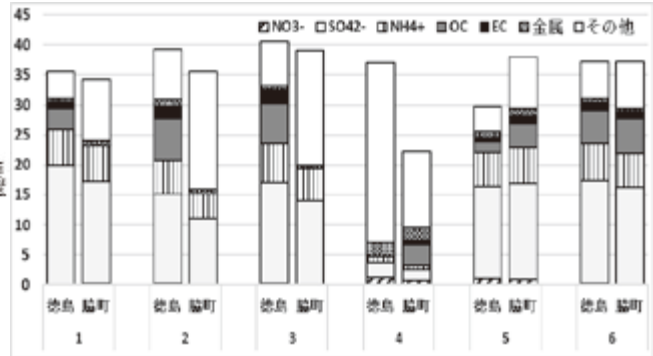


図2 高濃度事例におけるPM_{2.5}中の主要な成分測定結果

越境汚染によるものや気象要因以上に、火山噴火の影響を見積もって高濃度予測をすることは困難であると考えられ、PM_{2.5}に関する問題は過去のものとは決めつけず対応を続けていく必要性が示唆された。

既報²⁾では、徳島において脇町よりも重油燃焼由来の寄与が大きいと推定していた。図4に、バナジウム（以下V）濃度の推移を示す。V濃度は、徳島において脇町よりも高い傾向にあったものの、2020年1月より、船舶の燃料規制が始まった影響を受けて2019年度冬季以降、V濃度のレベルは明らかに低下が見られた。この規制により硫酸イオン濃度の減少も期待されたが、硫酸イオン濃度が高い日は事例6のように観測されている。2020年夏季の試料は、先に述べた火山噴火の影響や、月間日照時間歴代最高を記録したように気温や日射量の影響も加味する必要がある、この1年間だけで結論を出すのは早計と考えられる。火山性ガスのような自然起源の発生源寄与を切り出す方法を検討したうえで、2020年1月以

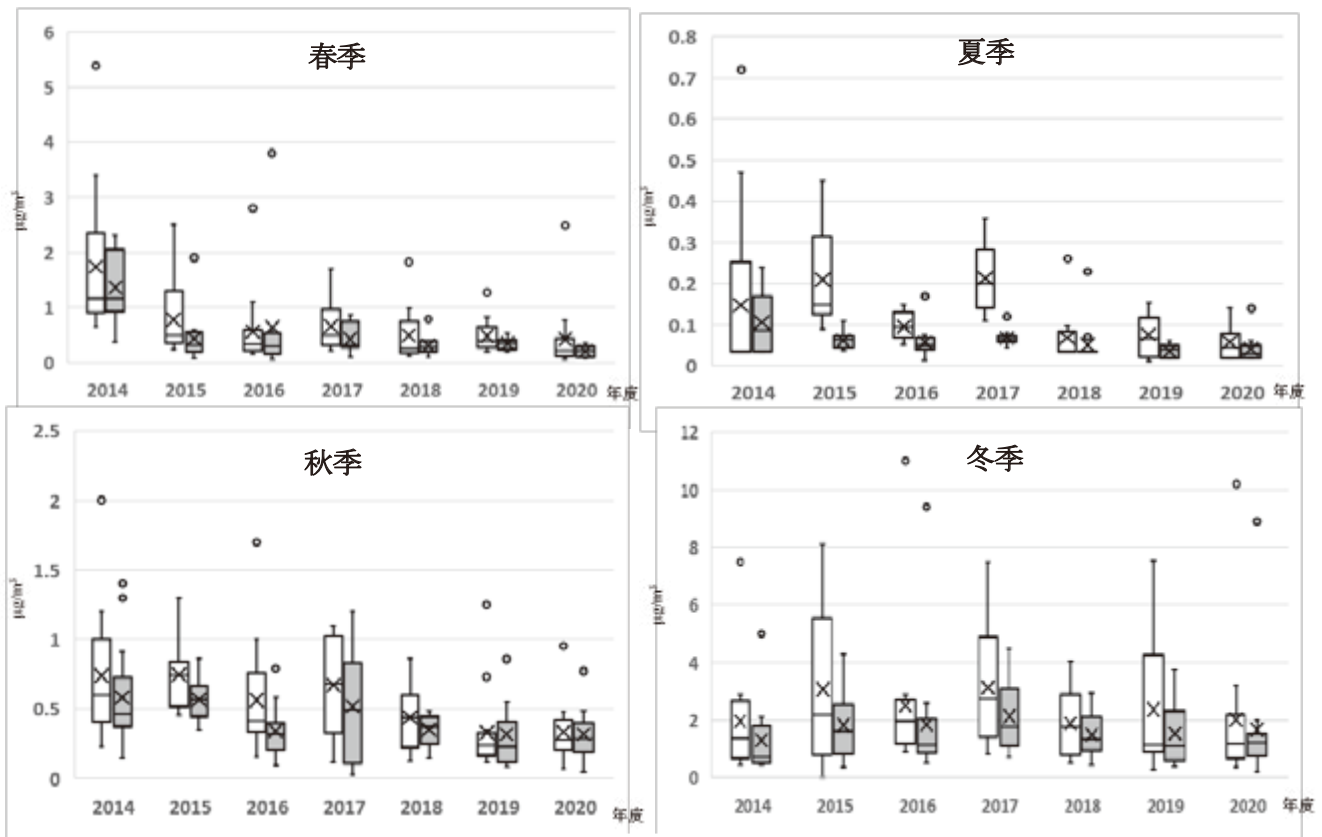


図3 採取期間における硝酸イオン濃度の推移（白地：徳島、灰地：脇町）

降のデータを用いて再度発生源寄与解析を実施するなど、今後の解析方法については、より工夫する必要性が考えられた。

Ⅳ まとめ

2014 年度から 2020 年度の間で、県内 2 地点で採取した PM_{2.5} の成分分析結果を用いて、解析を行った。

採取期間における PM_{2.5} 質量濃度は、特に春季において減少傾向がみられた。高濃度事例における成分濃度については、黄砂日に採取した試料を除き、硫酸イオンが最も大きな割合を占め、次いでアンモニウムイオンもしくは OC の順というのが共通していた。秋季や冬季に 35 µg/m³ を超える試料が採取されたことはなかった。

船舶の燃料規制に伴い 2019 年度冬季以降、V 濃度は顕著に減少したものの、硫酸イオンを主とする高濃度事例は 2020 年度にもみられた。

当センターとしては、今後も、県内の PM_{2.5} の成分分析を通して、PM_{2.5} に関する現況把握と、PM_{2.5} 対策に資するデータの蓄積を継続するとともに、今後の解析方法については、火山性ガスのような自然起源の発生源寄与を切り出す方法を検討するなど、解析手法の改良にも取り組んでいきたい。

謝辞

試料採取にあたり、西部総合県民局保健福祉環境部（美馬）環境担当の皆様にご多大な協力を賜りました。記して深く感謝の意を示します。

参考文献

- 1) 環水大大発第 110729001 号：「微小粒子状物質（PM_{2.5}）の成分分析ガイドライン」について、平成 23 年 7 月 29 日（2011）
- 2) 森兼祥太，高瀬由里，林貴大，他：徳島県における PMF 法による微小粒子状物質（PM_{2.5}）の発生源寄与率の推定，徳島県立保健製薬環境センター年報，**10**，20-25（2020）
- 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 年 8 月 20 日現在）

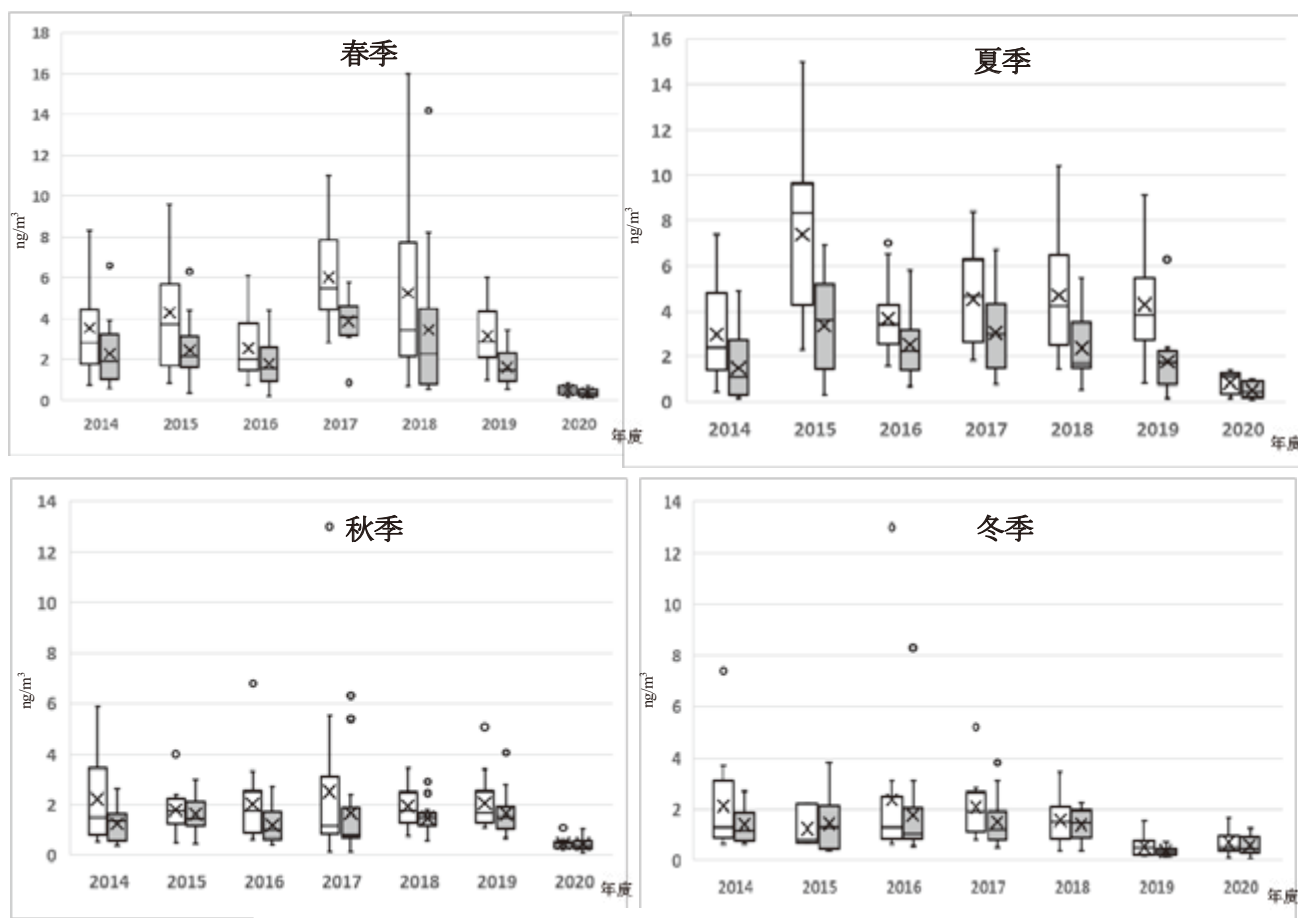


図 4 採取期間におけるベンゼン濃度の推移（白地：徳島，灰地：脇町）

表3 採取期間における各年度、各季節におけるイオン成分濃度の推移（硝酸イオンを除く）

年度	季節	地点	Cl ⁻	SO ₄ ²⁻	Na ⁺	NH ₄ ⁺	K ⁺	Mg ²⁺	Ca ²⁺
2014	春	徳島	0.42	10	2	4	0.39	0.064	0.64
		脇町	0.12	10	1.2	3.9	0.43	0.065	0.36
	夏	徳島	0.6	20	0	5.9	0.21	0.15	0.39
		脇町	0.033	17	0.34	5.9	0.22	0.04	0.078
	秋	徳島	0.13	4.8	0.21	2	0.34	0.024	0.19
		脇町	0.14	7.3	0.25	2.9	0.46	0.048	0.11
	冬	徳島	0.54	6.6	0.19	5.3	0.31	0.026	0.25
		脇町	0.35	6.7	0.14	4.2	0.33	0.02	0.14
2015	春	徳島	0.25	9.7	0.59	4.2	0.25	0.075	0.19
		脇町	0.05	7.8	0.23	3.3	0.3	0.048	0.33
	夏	徳島	0.13	17	0.63	6.4	0.26	0.066	0.12
		脇町	0.018	14	0.21	5.3	0.49	0.038	0.062
	秋	徳島	0.33	11	0.42	4.1	0.43	0.057	0.21
		脇町	0.19	12	0.27	4.6	0.49	0.041	0.1
	冬	徳島	0.61	10	0.2	5.8	0.36	0.029	0.099
		脇町	0.3	8.6	0.11	4.1	0.4	0.019	0.054
2016	春	徳島	0.14	7.8	0.63	2.8	0.14	0.073	0.56
		脇町	0.036	7.8	0.12	2.9	0.19	0.036	0.29
	夏	徳島	0.038	11	0.4	4.2	0.24	0.048	0.092
		脇町	0.0045	9.5	0.099	3.5	0.22	0.018	0.06
	秋	徳島	0.38	6.5	0.51	2	0.17	0.057	0.19
		脇町	0.039	7.4	0.25	2.6	0.22	0.037	0.088
	冬	徳島	0.79	8.2	0.35	5.8	0.3	0.05	0.12
		脇町	0.66	7.7	0.23	4.9	0.34	0.049	0.16
2017	春	徳島	0.13	8.5	0.23	3.4	0.19	0.045	0.17
		脇町	0.059	7.4	0.13	2.9	0.29	0.046	0.17
	夏	徳島	0.027	12	0.33	4.4	0.16	0.032	0.052
		脇町	0.0058	14	0.12	4.8	0.16	0.016	0.11
	秋	徳島	0.42	3.6	0.56	1.5	0.76	0.064	0.22
		脇町	0.14	3.8	0.37	1.5	0.74	0.045	0.053
	冬	徳島	1	9.2	0.91	5.1	0.29	0.043	< 0.28
		脇町	0.27	9.7	0.18	4.8	0.31	0.028	< 0.22
2018	春	徳島	0.0828	15.5	0.243	5.64	0.171	0.044	0.077
		脇町	0.043	16.2	0.248	5.9	0.188	0.049	0.158
	夏	徳島	0.036	10.8	0.304	3.94	0.124	0.035	0.104
		脇町	0.021	9.44	0.256	3.51	0.14	0.034	0.061
	秋	徳島	0.0428	4.54	0.297	1.74	0.154	0.0421	0.107
		脇町	0.0569	4.79	0.253	1.86	0.17	0.0341	0.078
	冬	徳島	0.239	4.22	0.166	2.64	0.189	0.0225	0.091
		脇町	0.182	4.4	0.152	2.16	0.234	0.0196	0.078
2019	春	徳島	0.388	5.58	0.794	2.17	0.184	0.0786	0.097
		脇町	0.208	4.98	0.536	1.93	0.164	0.0495	0.099
	夏	徳島	0.033	10.6	0.266	3.78	0.109	0.0166	0.029
		脇町	< 0.024	8.86	0.0849	3.07	0.178	0.0035	0.111
	秋	徳島	0.101	6.88	0.182	2.51	0.279	0.0334	0.172
		脇町	0.051	5.65	0.145	2.06	0.305	0.0377	0.175
	冬	徳島	0.44	7.62	0.224	4.19	0.221	0.011	0.043
		脇町	0.34	7.57	0.168	3.75	0.209	0.0057	0.051
2020	春	徳島	0.087	5.67	0.283	2.25	0.124	0.042	0.172
		脇町	0.034	6.28	0.202	2.22	0.156	0.0308	0.106
	夏	徳島	0.016	17.2	0.359	6.1	0.107	0.0457	0.0507
		脇町	0.011	16.2	0.108	5.7	0.132	0.0203	0.07
	秋	徳島	0.051	3.72	0.274	1.29	0.183	0.0306	0.084
		脇町	0.062	5.54	0.145	2.18	0.257	0.0226	0.14
	冬	徳島	0.531	4	0.332	4.61	0.151	0.0489	0.342
		脇町	0.629	3.72	0.312	4.05	0.218	0.0453	0.286