

平成 20～24 年度 調査研究の概要

課題名	【1】環境中の有害大気汚染物質に関する調査研究 —微小粒子状物質 PM2.5 による大気汚染—
担当科名	環境科学部 大気科

研究概要	<ul style="list-style-type: none"> ➤ 健康影響が懸念される微小粒子状物質 (PM2.5) の県内における環境濃度の季節変動や構成成分を分析し、健康影響を削減する方法を探るとともに、発生源推測の手がかりにする。 ➤ PM2.5 に関する科学的知見を集積するために、レボグルコサン (植物質燃焼の指標物質) 等の分析方法や挙動について検討を行う。 ➤ 県内 2ヶ所の環境大気測定局 (長津局, 総社局) にローボリウムエアサンプラーを設置し、大気中の粉じんを捕集する。 ➤ 捕集された粉じんの質量濃度を測定するとともに、その構成成分を分析する。 																																																																
	<ul style="list-style-type: none"> ➤ 浮遊粒子状物質 (SPM) と PM2.5 の質量濃度に係る季節変動の結果から、PM2.5 と SPM はほぼ同じ挙動を示すことが明らかとなった。 ➤ SPM のマニュアル測定と PM2.5 自動測定との相関関係等を検討し、SPM 濃度の測定結果から PM2.5 濃度を推測する可能性を見出した。 ➤ PM2.5 の構成成分 (イオン成分、多環芳香族炭化水素類、金属成分等) の成分分析を行い、初冬にレボグルコサンが上昇することや、有害金属の含有量は極微量であることなどが明らかとなった。 																																																																
	<ul style="list-style-type: none"> ➤ 今後、調査範囲を県全域に広げて詳細な調査が必要となる。 ➤ PM2.5 削減のために、PM2.5 の発生源の情報や大気中での挙動などについて、更なる知見が必要となる。 ➤ PM2.5 の広域的な発生源及び移流経路等について解明するために、西日本の府県との連携が必要である。 																																																																
実施内容	<table border="1" style="width: 100%; border-collapse: collapse;"> <thead> <tr> <th style="width: 30%;">実施内容</th> <th style="width: 10%;">年度</th> <th style="width: 10%;">H20</th> <th style="width: 10%;">H21</th> <th style="width: 10%;">H22</th> <th style="width: 10%;">H23</th> <th style="width: 10%;">H24</th> <th style="width: 10%;"></th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>連続測定 (環境省試行事業)</td> <td></td> <td colspan="5" style="text-align: center;">—————</td> <td></td> </tr> <tr> <td>地域調査</td> <td></td> <td colspan="5" style="text-align: center;">—————</td> <td></td> </tr> <tr> <td> <table border="1" style="width: 100%; border-collapse: collapse;"> <tr> <td style="width: 20%;">計画事業費</td> <td style="width: 10%;">545</td> <td style="width: 10%;">272</td> <td style="width: 10%;">229</td> <td style="width: 10%;">220</td> <td style="width: 10%;">230</td> <td rowspan="3" style="width: 10%; vertical-align: middle;">単位： 千円</td> </tr> <tr> <td> 一般財源</td> <td>545</td> <td>272</td> <td>229</td> <td>220</td> <td>230</td> </tr> <tr> <td> 外部資金等</td> <td></td> <td></td> <td></td> <td></td> <td></td> </tr> </table> </td> <td></td> <td></td> <td></td> <td></td> <td></td> <td></td> </tr> <tr> <td>人件費</td> <td>6,400</td> <td>6,400</td> <td>6,400</td> <td>6,400</td> <td>6,400</td> <td></td> </tr> <tr> <td>総事業コスト</td> <td>6,945</td> <td>6,672</td> <td>6,629</td> <td>6,620</td> <td>6,630</td> <td></td> </tr> </tbody> </table>	実施内容	年度	H20	H21	H22	H23	H24		連続測定 (環境省試行事業)		—————						地域調査		—————						<table border="1" style="width: 100%; border-collapse: collapse;"> <tr> <td style="width: 20%;">計画事業費</td> <td style="width: 10%;">545</td> <td style="width: 10%;">272</td> <td style="width: 10%;">229</td> <td style="width: 10%;">220</td> <td style="width: 10%;">230</td> <td rowspan="3" style="width: 10%; vertical-align: middle;">単位： 千円</td> </tr> <tr> <td> 一般財源</td> <td>545</td> <td>272</td> <td>229</td> <td>220</td> <td>230</td> </tr> <tr> <td> 外部資金等</td> <td></td> <td></td> <td></td> <td></td> <td></td> </tr> </table>	計画事業費	545	272	229	220	230	単位： 千円	一般財源	545	272	229	220	230	外部資金等												人件費	6,400	6,400	6,400	6,400	6,400		総事業コスト	6,945	6,672	6,629	6,620	6,630	
	実施内容	年度	H20	H21	H22	H23	H24																																																										
	連続測定 (環境省試行事業)		—————																																																														
	地域調査		—————																																																														
	<table border="1" style="width: 100%; border-collapse: collapse;"> <tr> <td style="width: 20%;">計画事業費</td> <td style="width: 10%;">545</td> <td style="width: 10%;">272</td> <td style="width: 10%;">229</td> <td style="width: 10%;">220</td> <td style="width: 10%;">230</td> <td rowspan="3" style="width: 10%; vertical-align: middle;">単位： 千円</td> </tr> <tr> <td> 一般財源</td> <td>545</td> <td>272</td> <td>229</td> <td>220</td> <td>230</td> </tr> <tr> <td> 外部資金等</td> <td></td> <td></td> <td></td> <td></td> <td></td> </tr> </table>	計画事業費	545	272	229	220	230	単位： 千円	一般財源	545	272	229	220	230	外部資金等																																																		
計画事業費	545	272	229	220	230	単位： 千円																																																											
一般財源	545	272	229	220	230																																																												
外部資金等																																																																	
人件費	6,400	6,400	6,400	6,400	6,400																																																												
総事業コスト	6,945	6,672	6,629	6,620	6,630																																																												

調査研究概要【環境中の有害大気汚染物質に関する調査研究】

センター年報掲載	H20	環境中の大気汚染物質に関する研究（微小粒子状物質 PM2.5 による大気汚染） －第 4 報 冬季におけるイオン成分濃度の特徴－	
	H21	環境中の大気汚染物質に関する研究（微小粒子 PM2.5 による大気汚染） －第 5 報 イオン成分および炭素成分について－	
	H22	環境中の大気汚染物質に関する研究（微小粒子状 PM2.5 による大気汚染） －第 6 報 PM2.5 の自動測定機とマニュアル測定との比較－	
	H22	環境中の大気汚染物質に関する研究（微小粒子 PM2.5 による大気汚染） －第 7 報 PM2.5 の多環芳香族炭化水素類の同時分析法の検討と濃度の特徴－	
	H23	環境中の大気汚染物質に関する研究（微小粒子状物質 PM2.5 による大気汚染） －第 8 報 2 大気測定局における PM2.5 及び SPM の成分分析－	
	H23	環境中の大気汚染物質に関する研究（微小粒子状物質 PM2.5 による大気汚染） －第 9 報 PM2.5 中のレボグルコサン等の分析法と県内の存在状況－	
	H24	PM2.5 に係る平成 24 年度観測結果について <投稿中>	
学会発表	H20	岡山県南部における PM2.5 及び SPM	第 49 回大気環境学会年会
	H21	微小粒子 PM2.5 イオン成分濃度の特徴	第 36 回環境保全・公害防止研究発表会
	H23	PM2.5 中の多環芳香族炭化水素類について	第 57 回中国地区公衆衛生学会
	H23	微小粒子状物質 PM2.5 の自動測定とマニュアル測定の質量濃度比較と成分分析について	第 38 回環境保全・公害防止研究発表会
	H24	PM2.5 中のレボグルコサン等の分析方法と岡山県における存在状況について	第 58 回中国地区公衆衛生学会
	H24	PM2.5 常時監視と並行実施した PM2.5 及び SPM の成分分析	第 39 回環境保全・公害防止研究発表会

環境中の大気汚染物質に関する研究 （微小粒子状物質 PM2.5 による大気汚染）

— 第 8 報 2 大気測定局における PM2.5 及び SPM の成分分析 —

林 隆義, 中桐未知代, 野村 茂, 小川 登, 深見武史, 中桐基晴（大気科）

要 旨

平成 23 年度大気常時監視として微小粒子状物質（PM2.5）の成分分析を開始した総社一般環境大気測定局及び長津自動車排出ガス測定局において、調査期間及び測定項目を拡大するとともに浮遊粒子状物質（SPM）の成分分析も並行して行い、これらの質量濃度やイオン成分、無機成分等の地点間差を比較した。質量濃度の季節変動は、いずれの測定局においても過去の調査と異なり夏季～秋季に低下しており、夏季の大気不安定な状況が原因の一つと考えられた。長津自動車排出ガス測定局の質量濃度はともに総社一般環境大気測定局よりも高値を示したが、2 測定局は同じ変動傾向を示した。イオン成分や金属成分の主要な成分の割合は 2 測定局でほとんど変わらず、明らかな地域差は認められなかったが、長津自動車排出ガス測定局は 8 月を除き Cl^- が高値を示した。同測定局の調査期間における風向は、8 月は西北西が主であったのに対し、それ以外の時期は東北東～北東が主であり Cl^- の特定発生源の存在が推察されるため今後原因を調査する必要がある。

1 はじめに

本県では、平成 21 年度から環境省試行事業として、早島一般環境大気測定局（以下「早島局」という。）において微小粒子状物質（以下「PM2.5」という。）自動測定機による常時監視を開始した。また、平成 22 年度末に長津自動車排出ガス測定局（以下「長津局」という。）、総社一般環境大気測定局（以下「総社局」という。）及び茂平一般環境大気測定局（以下「茂平局」という。）の 3 測定局に PM2.5 自動測定機を整備し、平成 23 年度から計 4 測定局（岡山市及び倉敷市設置分を除く。）において大気汚染防止法に基づく PM2.5 常時監視と長津局及び総社局で成分分析を開始した

本調査では PM2.5 の季節変動やその成分をより詳細に把握するため、調査期間及び測定項目を拡大するとともに浮遊粒子状物質（以下「SPM」という。）の成分分析を行い、その結果をとりまとめたので報告する。

2 結果と考察

2.1 測定地点及び時期における質量濃度と主要成分の割合の比較

各調査時期における PM2.5 と SPM の質量濃度の変動を図 1 に示した。長津局は PM2.5 及び SPM ともに総社局を上回ったが 2 つの測定局の変動は同期しており、バックグラウンドと考えられる総社局の値に自動車排気ガスの影響が加算されていると思われた。しかし、総社局の PM2.5 は平均値においても環境基準値の年平均 $15\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超過しており、住宅地域においても PM2.5 が高い濃度で推移していた。

センター屋上や早島局における過去の結果^{1),2)}では、PM2.5 及び SPM ともに初夏から初冬にかけて上昇し、冬に低下する一山型の傾向を示していたが、今回はこれとは異なり、長津局、総社局ともに 8 月から 10 月にかけて減少し、11 月に若干上昇して 1 月に低下した後、2 月に上昇するという W 型の変動を示していた。8 月に PM2.5 の上昇がみられなかったのは、夏期における不安定な大気状況との関連が疑われた。11 月の上昇は県南部で稲刈り後のワラ焼きが行われたためと考えられるが、10 月の低値の原因については今後のデータの蓄積が必要である。

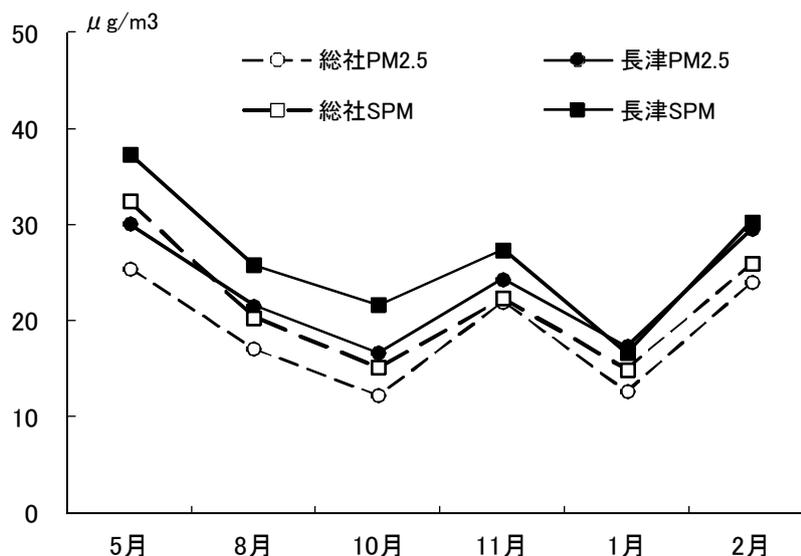


図 1 PM2.5 と SPM の質量濃度の季節変動

次に PM2.5 と SPM についてマニュアル測定における質量濃度の相関を示した（図 2, 3）。

2つの測定局ともに良い相関を示し、また回帰式の傾きもほぼ同じであり、SPM の 8 割程度を PM2.5 が占めていることが確認され、SPM の挙動から PM2.5 の状況を推測可能と思われた。この関係が県全域に適用可能かどうかについては、県北部等での調査を行い、検証する必要がある。

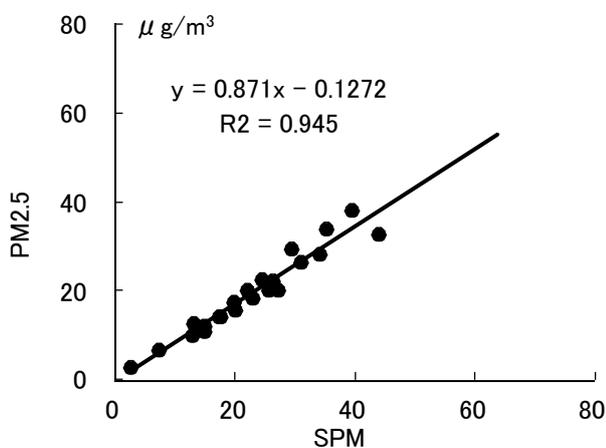


図 2 総社局の SPM と PM2.5 の相関

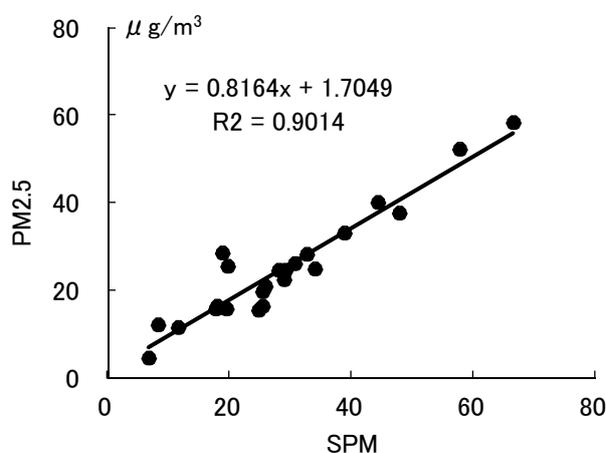


図 3 長津局の SPM と PM2.5 の相関

次に、PM2.5 と SPM の主要な成分である、イオン成分、金属成分及び炭素成分を含むその他成分について、調査時期別にその割合を図 4, 5 に示した。

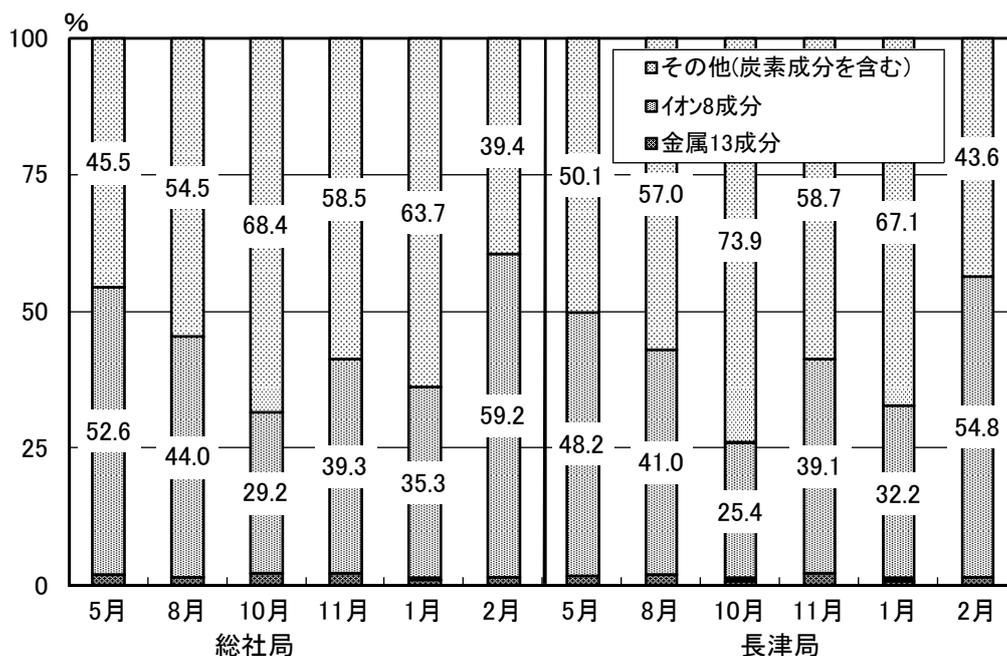


図 4 PM2.5 主要成分の割合

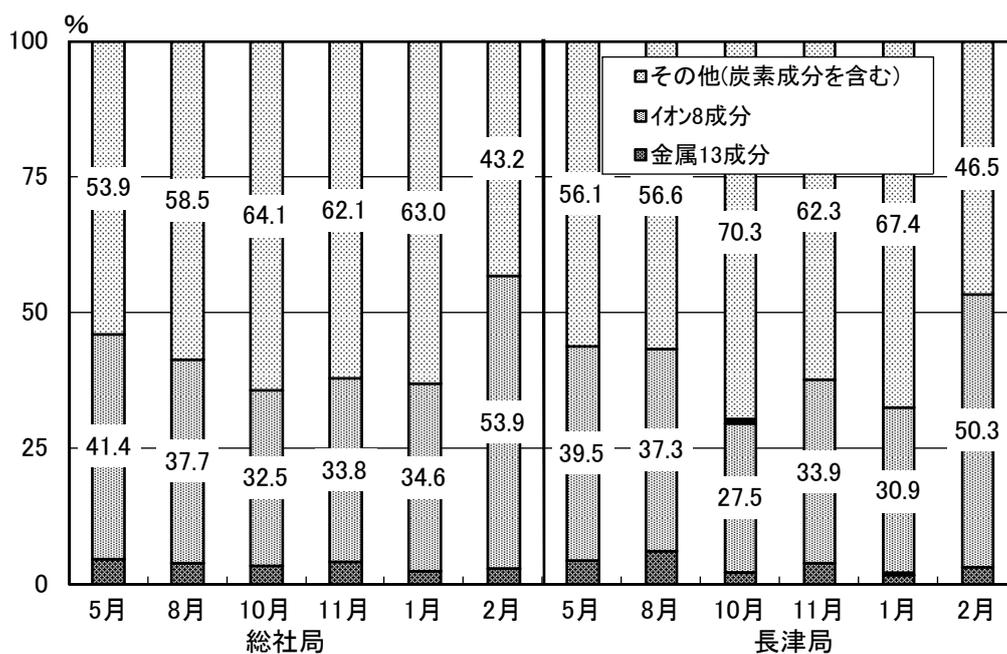


図 5 SPM 主要成分の割合

2つの測定局ともに質量濃度に差はあるものの、調査時期にかかわらず3つの主要な成分の割合に大きな差は認められなかった。金属13成分の割合は2測定局ともにPM2.5で2%程度、SPMで4%程度とSPMの方が多かったが質量全体に占める割合は小さかった。イオン成分の割合はPM2.5の方がSPMよりも若干高いものの、平均して40%程度とPM2.5質量の多くを占めていた。また、炭素成分を含むその他成分の割合については2つの測定局間で明確な差は見られなかったが、長津局は総社局に比べて自動車排出ガスの影響を強く受けると考えられることから、現在凍結保存しているろ紙の炭素成分を分析し、詳細な解析を行う必要がある。

2.2 水溶性イオン成分分析結果

水溶性イオン 8 成分について PM_{2.5} 及び SPM の測定局別のイオン当量比を図 6 及び図 7 に示す。

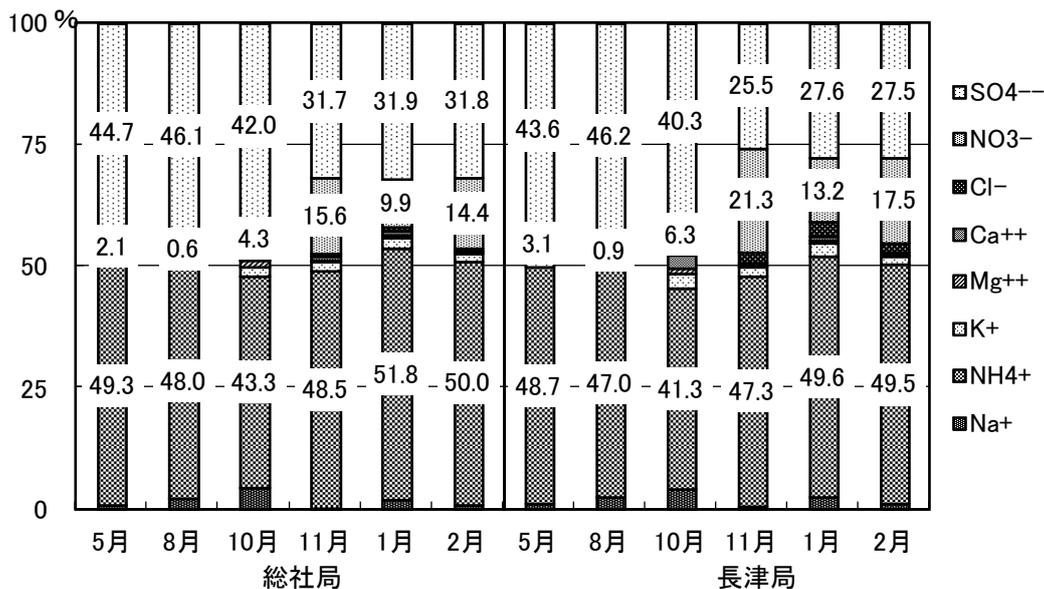


図 6 PM_{2.5} イオン当量比

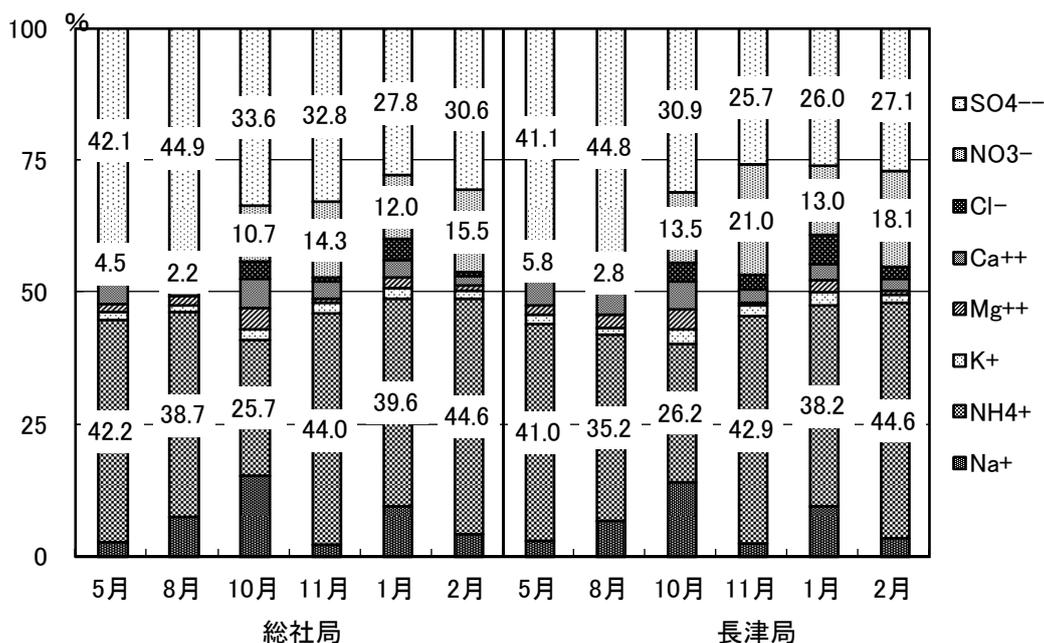


図 7 SPM イオン当量比

2つの測定局ともに PM_{2.5}, SPM のいずれも NH₄⁺, NO₃⁻, SO₄²⁻が主成分を占め、夏に NO₃⁻の当量比が低く、秋にから冬にかけて増加する傾向は過去の調査結果と同様であった。

SPM については 2 測定局ともに Na⁺, Mg²⁺, 及び Ca²⁺の当量比が PM_{2.5} の当量比よりも大きく、粗大粒子 (>粒径 2.5μm) である海塩粒子の捕集によるものと推察された。

また、2 測定局間の Na⁺, Mg²⁺及び Ca²⁺の当量比の差は少なく、海塩粒子の影響は 2 測定局とも同程度と考えられた。しかし Cl⁻当量比については、PM_{2.5} 及び SPM とともに長津局が高い傾向を示した。特に海塩粒子の影響が少ないと考えられる PM_{2.5} で Cl⁻当量比が、8月を除き、顕著に総社局よりも高値を示した。

幹線道路沿道である長津局は総社局よりも NO_x 濃度が高く、PM_{2.5} 中の NO₃ も若干高いことから、NO_x の影響によるクロロロスにより Cl⁻ 当量比は低値を示すものと予測されたが、これに反して 8 月以外は総社局よりも高値であった。

8 月の Cl⁻ については、高温により揮散して総社局との差がなくなったと推察されるが、その他の時期で Cl⁻ が高い原因を調べるため、長津局における各調査期間における風向を確認したところ、8 月の主な風向は西南西であったが、それ以外の時期では、北東から東北東であった（図 8）。今後、Cl⁻ が高値となる原因としてその発生源（廃棄物焼却施設等の状況）について調査する必要があると思われる。

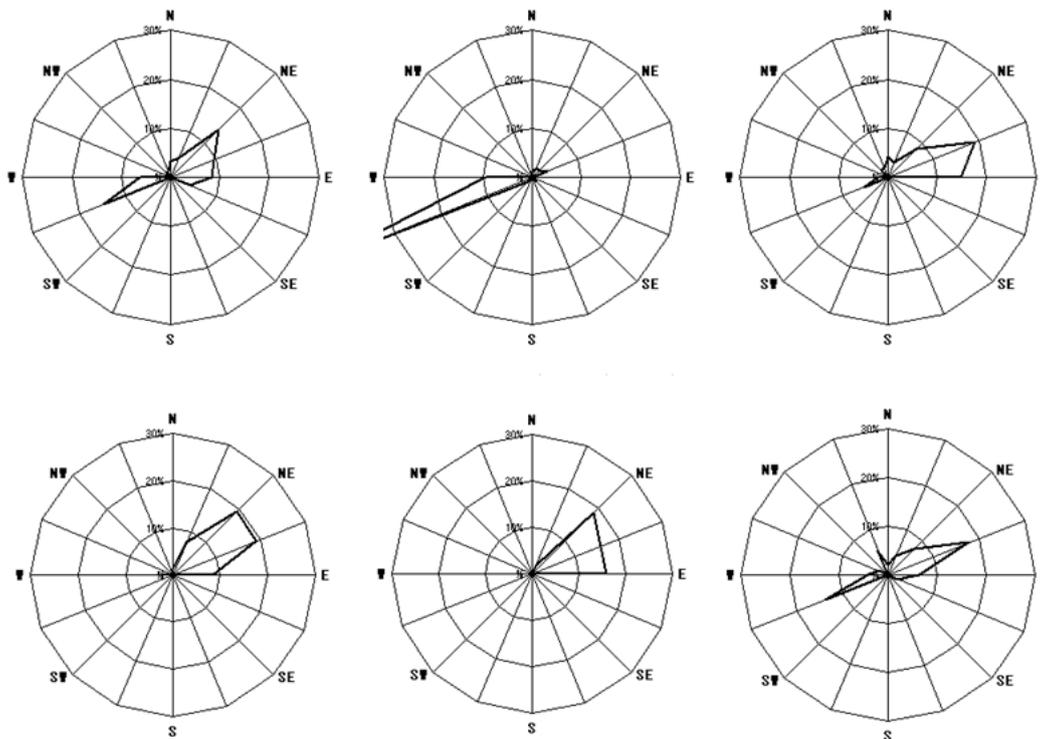


図8 調査期間における長津局の風配図

2.3 金属成分分析結果

PM_{2.5} 及び SPM の調査時期別の金属 13 成分の結果を示す(図 9, 10)。

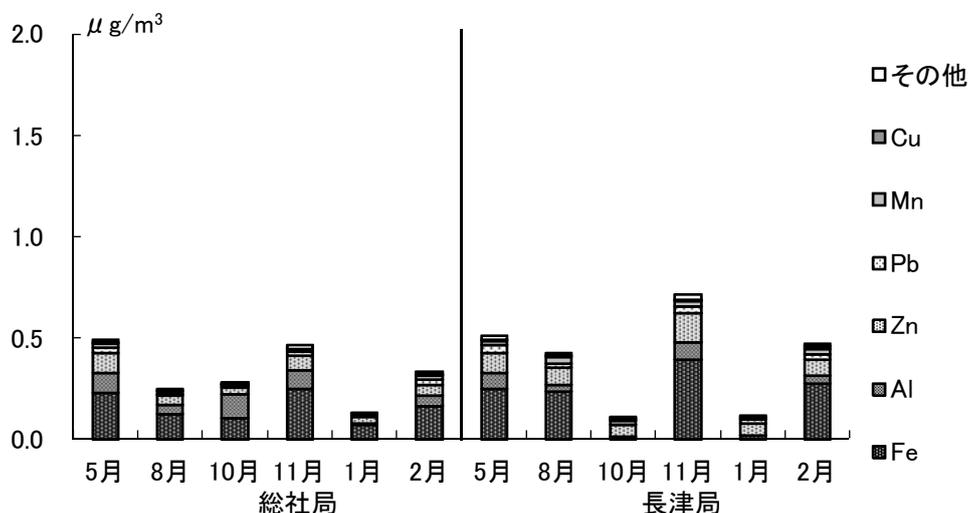


図9 PM_{2.5} 金属成分

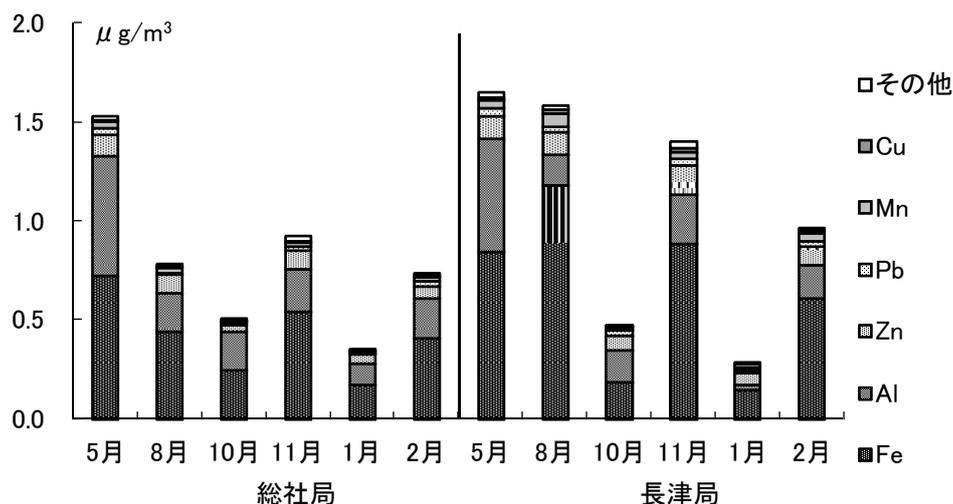


図 10 SPM 金属成分

金属成分の合計濃度は、長津局が総社局よりも高い値を示すものの、平均的には $\text{PM}_{2.5}$ で $0.4\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、SPM で $1.0\mu\text{g}/\text{m}^3$ 程度であり粒子全体質量に占める割合はわずかであったが、その変動は質量濃度の変動とほぼ同期しており、Fe, Al, Zn の 3 元素が、金属成分の大部分を占めていた。しかし、ブランク値が高い元素等では定量が困難なものもあり、発生源究明のため正確に金属成分分析を測定するには、分析試料の質量を増やすかブランク値の小さい PTFE ろ紙による捕集の必要性が感じられた。

3 まとめ

平成 23 年度、 $\text{PM}_{2.5}$ 常時監視を開始した一般環境大気測定局の総社局及び自動車排出ガス測定局の長津局において、四半期毎、年 4 回の常時監視成分分析に、調査研究による 2 回の成分分析期間を追加し、 $\text{PM}_{2.5}$ のイオン成分、無機金属成分等の分析を実施するとともに、SPM についても同様に並行して採取分析した結果、以下のとおりであった。

- 1) 質量濃度は $\text{PM}_{2.5}$ 、SPM とともに長津局が総社局よりも常に高値を示したが、調査時期による変動傾向は同じであった。しかし、総社局の $\text{PM}_{2.5}$ の平均値においても環境基準値（年平均 $15\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）を超過しており、住居地域での高濃度の状況が確認された。
- 2) 過去のセンター屋上や早島局での調査とは異なり、夏季～秋季に $\text{PM}_{2.5}$ が高値を示す状況が認められなかった。これは、夏季における大気不安定な状況との関連性が疑われた。
- 3) マニュアル測定では 2 測定局とも $\text{PM}_{2.5}$ と SPM の間に良い相関が認められ、一次回帰式の傾きが 0.8 程度と、SPM の質量濃度の約 8 割が $\text{PM}_{2.5}$ であることが確認できた。このことから、SPM の測定により $\text{PM}_{2.5}$ の状況が一定程度推測できるものと考えられた。
- 4) 2 測定局における、 $\text{PM}_{2.5}$ と SPM の主要成分（金属成分、イオン成分及びその他成分）の割合については、大きな差は認められなかった。
- 5) 2 測定局とも SPM では海塩粒子の影響が認められたが、その影響割合には 2 測定局間で大きな差は認められなかった。
- 6) 長津局の $\text{PM}_{2.5}$ では、8 月を除くと Cl^- 当量比が総社局よりも高値であった。風向は 8 月以外は主に東北東～北東であり、今後この方向について Cl^- 当量比が高値となる原因（廃棄物焼却施設等の状況）を調査する必要があると思われる。

- 7) 金属 13 成分は、2 測定局ともに PM2.5 及び SPM の質量濃度の 2-4%と少なく、Fe, Al, Zn の 3 成分が大部分を占めていた。石英繊維ろ紙を用いた金属成分分析は、捕集粒子の質量濃度が低い場合、ブランクが高い元素等の定量が困難であった。分析試料の質量を増やしブランクの低い PTEF ろ紙を使用するために、平成 24 年度からは PM2.5-LV は 2 台／1 測定局体制とすることとした。

環境中の大気汚染物質に関する研究 (微小粒子状物質 PM2.5 による大気汚染)

—第 9 報 PM2.5 中のレボグルコサン等の分析法と県内の存在状況—

中桐未知代, 林 隆義, 野村 茂, 小川 登, 深見武史, 中桐基晴 (大気科)

要 旨

本県ではこれまでに浮遊粒子状物質及び微小粒子状物質について質量濃度, イオン成分, 無機元素成分, 炭素成分及び多環芳香族炭化水素の分析を行ってきた。平成 23 年度は, より詳細な微小粒子状物質の科学的知見を収集するため, それらに加えてレボグルコサン, ジカルボン酸類の分析を行い, 県内の挙動を調査した。レボグルコサンとジカルボン酸類の多環芳香族炭化水素類との同時分析は不可能であったが, GC/MS による同時測定は可能であった。今回の調査では, レボグルコサンは初夏・初春に大陸からの影響, 夏季から初冬にかけて地域の産業活動からの影響を受けていると考えられた。

1 はじめに

微小粒子状物質 (以下「PM2.5」という。) は人の健康影響が懸念されている粒径 $2.5\mu\text{m}$ 以下の微小粒子で, 平成 21 年 9 月に環境基準が定められた。本県では平成 21 年度から PM2.5 の質量濃度を連続測定しているが, 環境基準を超過している状況が続いている。

PM2.5 の削減対策を進めるためには PM2.5 及びその前駆物質の大気中の挙動等に関する知見や, 発生源の特定が必要不可欠であるが, その知見は十分でない。このため本県ではこれまでに, 質量濃度に加えイオン成分, 無機元素成分, 炭素成分 (一部) 及び多環芳香族炭化水素類 (以下「PAHs」という。) の成分分析を実施し報告した。

従来知見を踏まえ, より詳細な PM2.5 の科学的知見を集積するため, 今回は GC/MS による分析が可能なレボグルコサン及びジカルボン酸について PAHs との同時分析を検討し, 平成 23 年度に県内で採取した試料についてこれらの分析を実施し, 知見を得たので報告する。

2 結果と考察

2.1 PM2.5 及び SPM 中の PAHs 及びレボグルコサン

PM2.5 と SPM 中の PAHs の結果を図 1 に示す。総社局及び長津局のいずれも Benzo(b)fluoranthene が最も多く, 次いで Fluoranthene, Benzo(a)pyrene が多かった。また, PAHs 各々の相対的な割合はほぼ同じであったことから, 3 環以上の PAHs では生成過程や大気中での挙動が似ていると考えられた。PAHs の総量は総社局・長津局とも PM2.5 と SPM でほぼ同じであったが, 総社局は初夏と初春に多く, 長津は夏季と初冬が多かった。

次に, PM2.5 と SPM 中のレボグルコサン濃度の経日変化を図 2 に示す。秋季から冬季にかけて, レボグルコサンの濃度が高くなり, PM2.5 の質量濃度とほぼ同じ挙動を示した。レボグルコサンはバイオマス燃焼の指標物質であり, 特にボイラー (木くず), 野焼き, 喫煙所, 地下街において顕著に検出されることが知られていることから, この季節の PM2.5 質量濃度には周辺地域において秋期から冬期に実施されるワラ焼きなどの野焼きが大きく寄与していると考えられる。

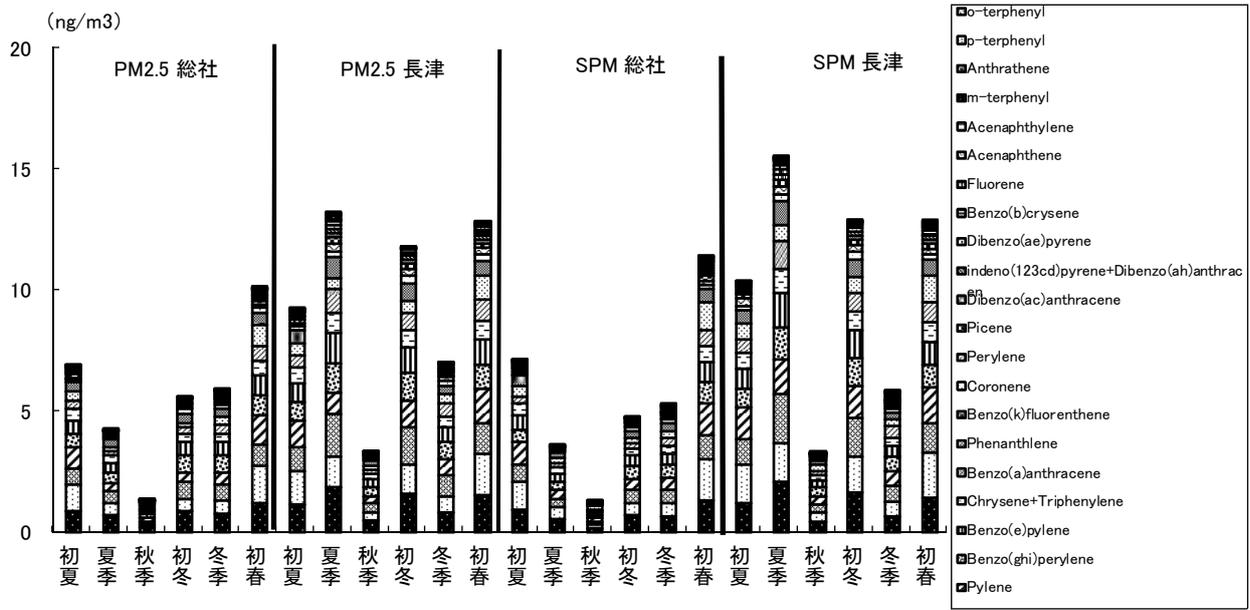


図 1 PM_{2.5} 及び SPM 中の PAHs 濃度

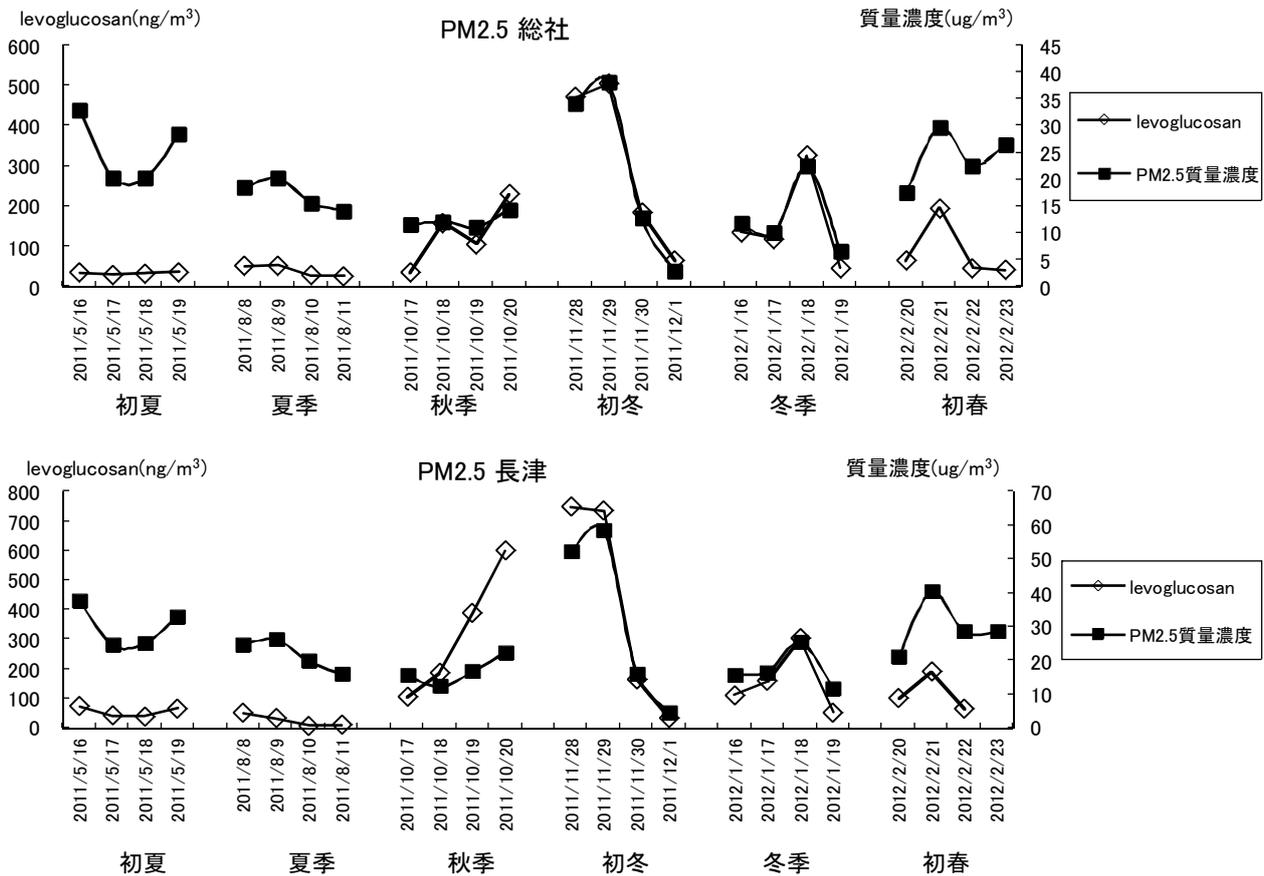


図 2 レボグルコサン濃度の経日変化（上段：総社局，下段：長津局）

2.2 HYSPLIT Model を用いた後方流跡線解析

総社局と長津局のレボグルコサン及び全体的な PAHs が似た挙動を示したことから、測定地点周辺の局所的な発生源の影響だけでなく、他地点からの移流など、広域的な影響が各成分に影響していることも考えられるため、採取期間中の後方流跡線解析（NOAA HYSPLIT Model）を行い、その結果を図 3 に示した。

初春と初夏は移動性高気圧が西から東に通過しており、中国大陸を経由する大気塊が測定地点に流れていた。このことから初夏から初夏の PAHs の高濃度には大陸からの移流の影響を受けている可能性が示唆された。夏季の調査期間中は広く高気圧に覆われており、移流は南側からであった。長津局だけ PAHs の高濃度が見られたこともふまえると、これは局所的な汚染と考えられる。レボグルコサンが低濃度であったこと、採取期間中は南西からの風が卓越していたことから、移動発生源や固定発生源の影響が考えられる。初冬は大気塊が日本付近を漂っていたことと、レボグルコサンが高濃度であったことから、調査地点の周辺地域で季節的に盛んなワラ焼きによる局所的な影響を大きく受けられていると考えられた。

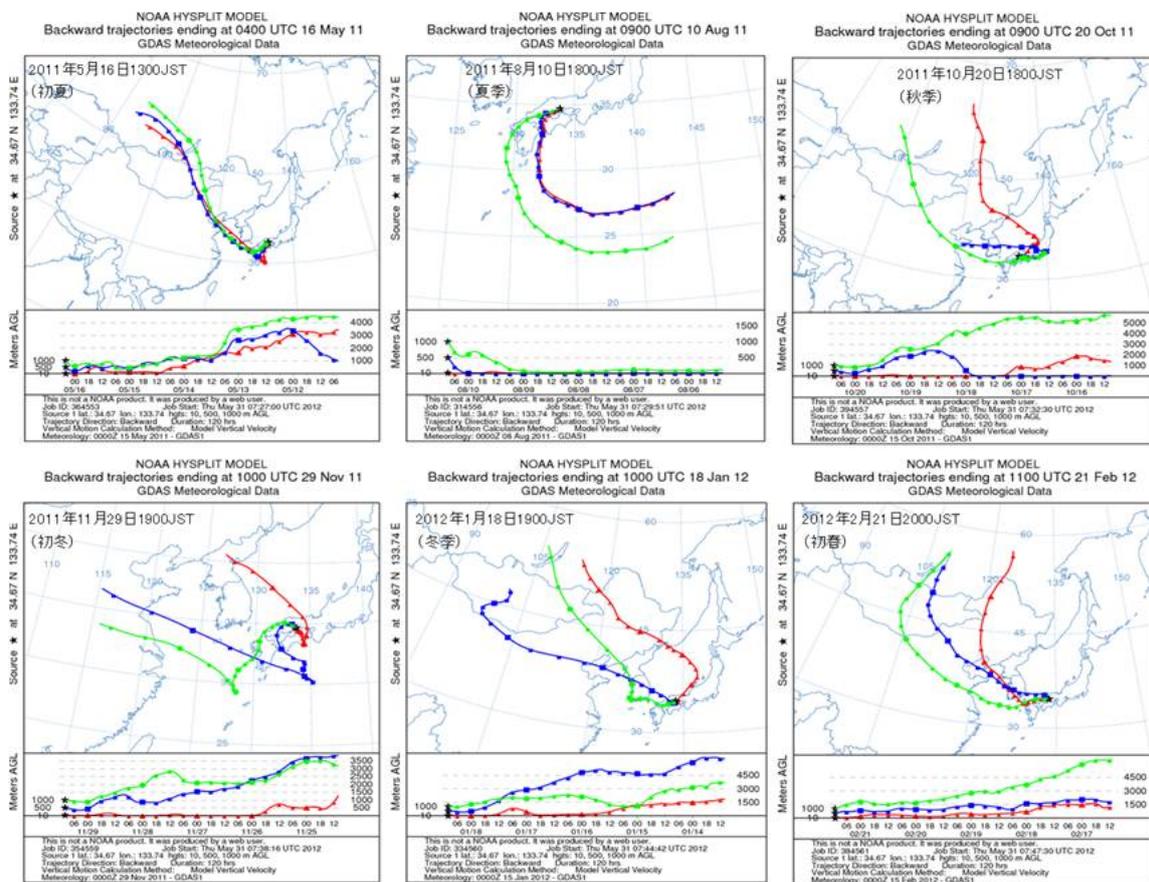


図3 採取期間中の後方流跡線（NOAA）結果

3 まとめ

総社局及び長津局で延べ 24 日間 PM_{2.5} 及び SPM を捕集し、PAHs、レボグルコサン及びジカルボン酸の分析法の検討、測定を行ったところ次に示す結果を得た。

- 1) PM_{2.5} 及び SPM 中の PAHs とレボグルコサンの測定結果から、初夏と初春には大陸からの影響も受けている可能性が示唆されたが、夏季や初冬には地域の環境から局所的な影響を受けていると考えられた。
- 2) PM_{2.5} 削減対策を進めるためには、より詳細な発生源情報や大気中での挙動等の知見が必要であることから、レセプターモデル等での解析も必要となる。