

市原岩崎西局におけるPM_{2.5}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_{2.5}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ることから、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C型研究）が継続的に実施されてきた。千葉県環境研究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_{2.5}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年度からはPM_{2.5}をターゲットにした第5期研究（PM_{2.5}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）が開始されることとなり、引き続き参加することとなった。

本共同研究は以下の5つのサブグループが設定されて、参加者はいずれかのグループに属して活動を行っている。

- ①高濃度汚染時のPM_{2.5}観測とデータベース化
- ②レセプターモデルによる発生源種別寄与評価
- ③化学輸送モデルによる地域別寄与評価
- ④季別測定データと長期平均値の関係解析
- ⑤PM_{2.5}に関する他の測定項目や手法による汚染機構解明

当センターではサブグループ①に参加することとし、2014年3月から2015年6月にかけて、PM_{2.5}高濃度予測を元にしたグループで一斉に行う共同採取を実施した。本稿では共同採取の実施状況と採取試料の成分分析結果の一部を報告する。

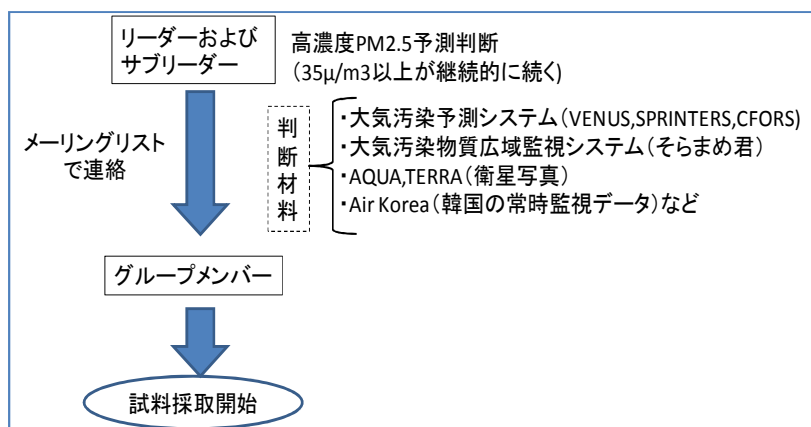


図1 一斉共同試料採取のフロー

2 調査方法

2・1 PM_{2.5}高濃度予測時の一斉共同試料採取

PM_{2.5}濃度が35µg/m³以上継続的に続く状況が想定される場合を高濃度時とし、図1に示したフローで試料採取を開始した。試料採取終了は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た場合、同様の連絡により採取を終了した。

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、緊急的に一斉共同採取の連絡が入って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の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 時間採取を基本とする。ただし高濃度 PM_{2.5}が見込まれないと判断した場合は状況により採取時間を 12～24 時間に延長する。
- ・質量濃度：市原岩崎西局自動測定機（環境省設置，HORIBA APDA-375A）で代用
- ・成分分析
 - ①無機 PTFE フィルター：蛍光 X 線（13 元素：Si, K, Ca, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Ni, Cu, Zn, Pb, Al）
 - 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(大阪市の浅川氏に分析を依頼)

3 結果

3・1 試料採取期間と期間中 PM_{2.5}濃度

結果を表 1 に示した。2014 年 3 月から 2015 年 6 月の間に 14 回の一斉共同試料採取が実施され，期間⑧，⑩を除いた 12 回の試料採取を行った。6 時間平均の最大 PM_{2.5}濃度が最も高く期間も長かった期間⑤は，35 μg/m³ を超過した試料の割合が半分程度を占めたが，他の期間の割合はあまり高くなかった。特に期間⑨以降は，西日本では大陸からの越境汚染の影響を受けたと想定される高濃度事例もあつ

表 1 試料採取期間と期間中 PM_{2.5}濃度

期間	年	開始日	終了日	採取試料数	35 μg/m ³ 超過試料数	期間PM _{2.5} 濃度(μg/m ³)	
						平均値	最大値(6h平均)
①	2014	3/15	3/21	22	2	17.7	44.7
②		3/24	3/31	27	2	22.6	40.0
③		4/15	4/18	14	5	29.2	47.8
④		5/2	5/3	6	1	19.1	36.7
⑤		5/25	6/5	41	20	31.3	67.3
⑥		6/14	6/19	25	6	24.8	52.5
⑦		12/28	12/31	13	4	27.4	48.2
⑨	2015	1/16	1/18	6	0	9.9	20.9
⑪		2/23	2/24	8	0	19.5	32.7
⑫		2/26	2/27	2	0	19.4	26.7
⑬		3/21	3/23	9	0	20.7	34.8
⑭		4/16	4/17	4	1	32.8	41.8

期間⑧，⑩は試料採取実施せず

たが，関東では目立った濃度上昇は見られなかった。

図 2 に 2014 年 1 月～2015 年 6 月にかけての市原岩崎西局における PM_{2.5} 日平均値 (2015 年度データは速報値) の推移と，その間に実施された一斉共同試料採取期間を示した。グループとしての一斉共同試料採取の実施体制をとっていた期間中に，日平均で 35 μg/m³ を超過したのは 12 日あったが，そのうち 8 日間については試料採取することが出来た。残りの 4 日間については常時監視成分測定の間に含まれていた。これらは本研究の高時間分解能での採取とは異なり 24 時間の採取ではあるが，本研究の対象期間において 35 μg/m³ 超過の高濃度時試料は網羅して採取されたことになった。

今回の高濃度予測手法は，西日本を中心とした大陸からの越境汚染と推定される高濃度イベントについては，かなり精度良く予測されていた¹⁾。しかしながら，関東都市圏の汚染等地域的な高濃度イベントについては，予測して試料採取を的確に開始することは濃度シミュレーションの精度を考慮すると困難と考えられる。このため高濃度イベント時の PM_{2.5} 観測とデータベース化を進めていくには，自動測定機のテープ試料を利用するなど，常時測定を行っている中で高濃度イベントを捕らえていく方法を検討していく必要があると思われた。

3・2 成分分析

本報では今回の事例の中で最も高濃度事象が顕著であった期間⑤について，成分分析の結果を

示す。図 3 に主要な 6 項目，図 4 に有機成分，図 5 に主な無機成分の濃度推移を示した。なお，図中で結果を示したのは，6 時間採取を実施した 5 月 27 日 0 時から 6 月 5 日 12 時までとした。また，図 5 の無機元素については定量下限値未満のデータも多かったため，検出下限値以上のデータも利用して作図した。

PM_{2.5}濃度は 5 月 28 日から 6 月 2 日頃まで徐々に上昇し，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状況を

($\mu\text{g}/\text{m}^3$)

常時監視成分測定

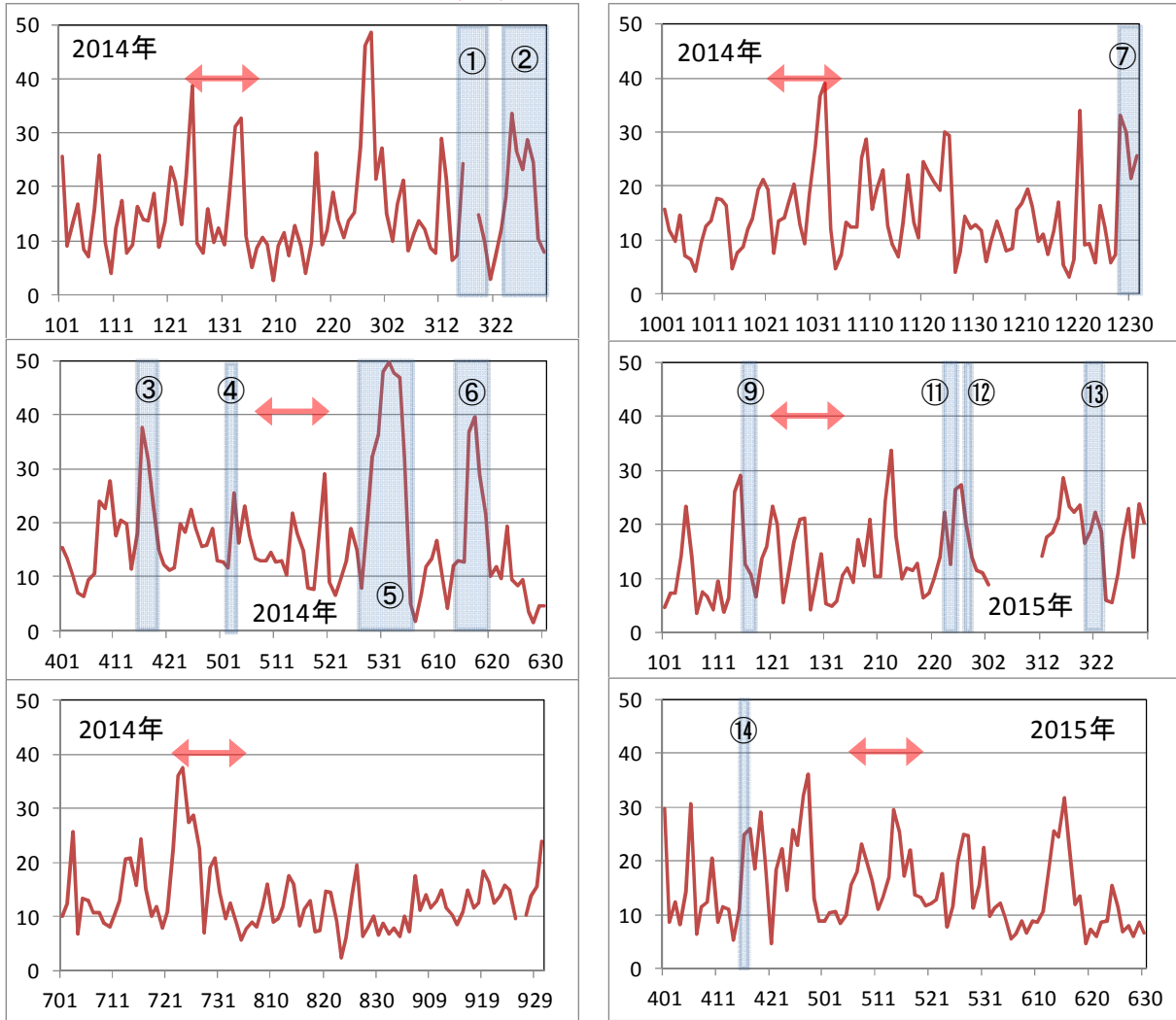


図2 市原岩崎西測定局 $\text{PM}_{2.5}$ 日平均値の推移と一斉共同試料採取期間

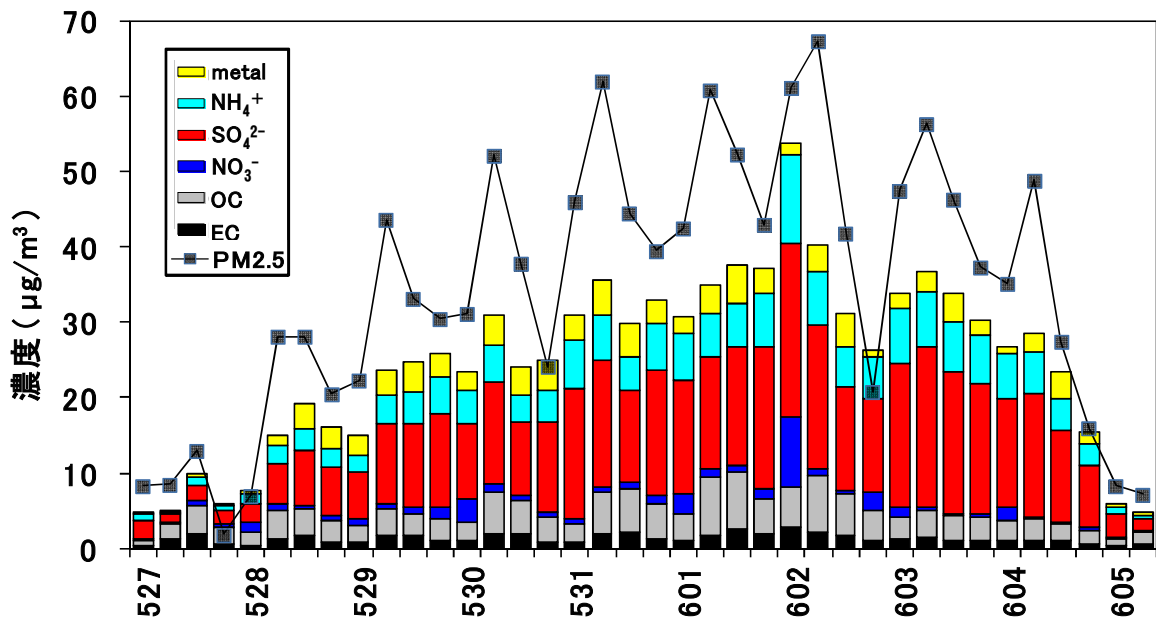


図3 期間⑤の主な成分濃度推移

長時間維持した。最大成分は硫酸イオンであり 3～5 割を占めた。硝酸イオン濃度は低いが高朝に高くなるケースが特徴としてみられた。OC,EC は変動は大きくないが、PM_{2.5} 濃度に連動する傾向があった。レボグルコサンは全体的に低濃度であったが、WSOC、シュウ酸は PM_{2.5} の高濃度期間の後半により濃度が高くなった。光化学オキシダント濃度は、日内の時間最高値が期間前半で 60～80ppb、期間後半で 90～110ppb を示し、WSOC、シュウ酸と PM_{2.5} 濃度の相関が見られることから、光化学反応による二次粒子の生成が活発で、期間中に汚染が滞留していたことが高濃度が持続した一因と推察された。

無機元素では Si, Fe, Ti 等土壌由来の影響が大きい元素が高濃度で観測された。期間⑤の前半は黄砂が全国的に観測された時期と重なっており、黄砂を含めた越境汚染の影響が考えられた。また、複数の無機元素で PM_{2.5} 濃度と同様な日中上昇し夜間に低下するサイクルが見られた。この期間は大気気塊が滞留しやすい状況であったことから、大気境界層内の昼夜の大気の動きによる汚染物質の動向を反映した可能性が考えられた。

一方、Zn のように昼夜サイクルは目立たず散発的に高濃度を示す事例があり、成分によってはよりローカルな汚染源の影響を受けたことも推定された。

このように高時間分解能測定により、24 時間採取では均一化してしまう日内での汚染状況の変化を把握できたと考えられた。一方、期間⑤以外の期間では長時間にわたる高濃度事象は見られなかったが、今回の全国的な一斉採取のデータを今後集積することで時間的、空間的な PM_{2.5} の動態の解明につながると考えられる。

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型共同研究として実施いたしました。関係者の皆様に厚く御礼申し上げます。

引用文献

1) 長田健太郎, 山本重一, 齊藤伸治: PM_{2.5} の予測

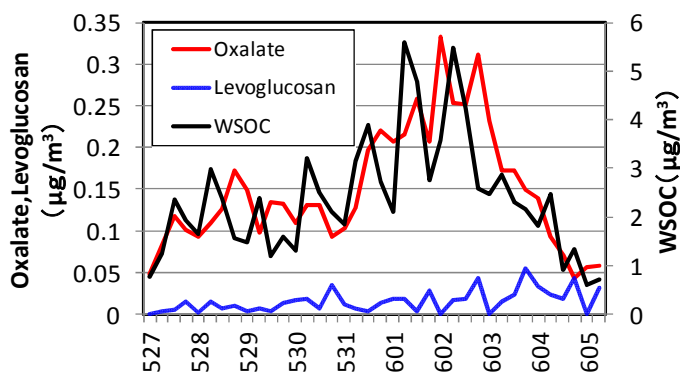


図4 期間⑤の有機成分濃度推移

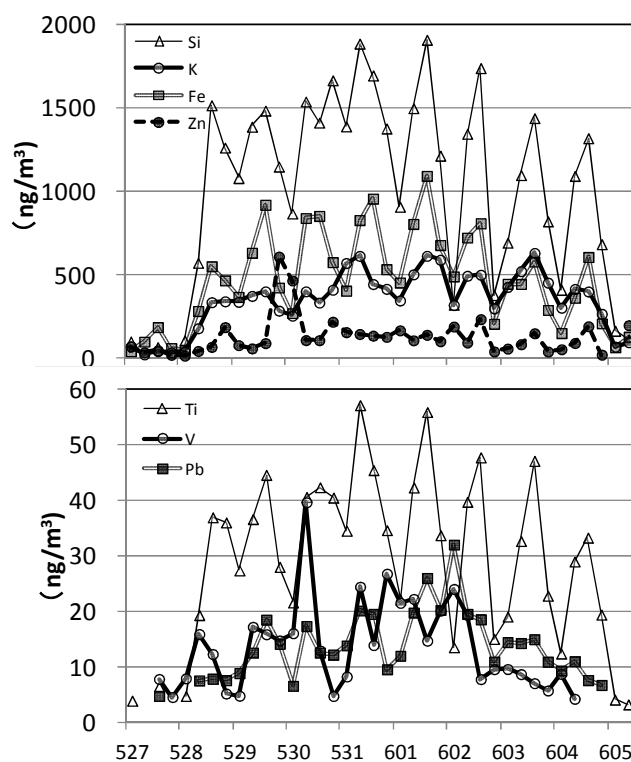


図5 期間⑤の主な無機成分濃度推移

手法と高濃度パターンについて. 第 56 回大気環境学会講演要旨集, 428 (2015).