

自動測定機テープろ紙を用いた PM_{2.5} 高濃度時の成分分析調査

(2017～2021 年度)

石井克巳

1 調査目的

2009年9月の微小粒子状物質 (PM_{2.5}) の環境基準制定に伴い、地方公共団体の常時監視測定局で自動測定機を用いた測定が開始され、さらに効果的な PM_{2.5} 発生源対策を進める目的で四季ごと、各季2週間の成分調査も実施されている。しかしながら、この成分調査の期間は年間の約15%しかカバーしておらず、PM_{2.5} 高濃度時の成分を把握するには十分でない面がある。また、1検体の捕集時間が24時間に規定されているため、高濃度汚染メカニズムの解明に必要な短時間の成分変動の情報までは得ることが難しい。

一方、自動測定機では1時間毎にテープろ紙に PM_{2.5} を採取し、年間を通じて質量濃度のみ測定を行っている。試料採取したテープろ紙は通常その後には使用されず廃棄されているが、テープろ紙に採取された試料を利用して、時間分解能を高めた高濃度汚染の詳細解析も行われている¹⁾。千葉県においても PM_{2.5} 高濃度時の詳細な成分変動を把握するため、2017年度から県内2か所の常時監視測定局のテープろ紙を収集して高濃度時の成分分析を実施している^{2~4)}。本報では2017～2021年度の高濃度事例とその要因となった気象についての概要を報告する。

2 調査方法

2・1 調査地点

図1に示した八千代高津局 (以下「八千代」という。)、館山亀ヶ原局 (以下「館山」という。) の2地点とした。八千代と館山は、それぞれ千葉県内における都市部と非都市部の調査地点として選定した。

2・2 調査対象期間

2017年4月～2022年3月に、上記調査地点のいずれかあるいは両方において連続する任意の24時間の PM_{2.5} 平均濃度が1日平均値の環境基準である 35µg/m³ を超過した事例を対象とし、前後を含めて期間設定した。

2・3 調査方法

2・3・1 試料採取

- ・自動測定機：KIMOTO PM-712
- ・テープろ紙：KIMOTO KFT-730

テープろ紙は、巻き取りによる試料採取面 (以下「スポット」という。) からの裏移りや揮発成分の損失等を防止するため、試料採取用と同じテープろ紙をカバーテープとして装着した。PM_{2.5} 高濃度が観測された際には、できるだけ速やかにテープろ紙の回収を行い、分析までの間は-30℃で冷凍保存した。

2・3・2 成分分析

- ・分析対象成分：水溶性イオン (Cl⁻, NO₃⁻, SO₄²⁻, C₂O₄²⁻, Na⁺, NH₄⁺, K⁺, Mg²⁺, Ca²⁺)



図1 調査地点

・分析方法：イオンクロマトグラフ法

・抽出方法：1時間分の試料として、セラミックはさみでテープロ紙上のスポットを中心に11mm幅でカバーテープごと切り取り、さらにスポットを中心にして半分に切り取ってスポットの1/2を水溶性イオンの分析試料とした。切り取った試料はカバーテープも合わせてPTFEフィルター付きバイアル(Mini-UniPrep, Whatman)に入れ、0.5mLの超純水を加えて30minの超音波処理を行った後抽出し、分析溶液とした。

・分析に使用したスポット数：1時間毎にスポットを抽出して分析することを基本とした。ただし、対象とした高濃度時よりも明らかにPM_{2.5}濃度が低い時間帯については、2～4時間のスポットをまとめて抽出して1試料とした。

3 調査結果

3・1 高濃度事例の対象期間と高濃度の状況

表1 高濃度事例の対象期間と高濃度の状況

No.	年	対象期間	地点*	24h平均の最大値 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上の 時間数	高濃度時の 主成分イオン**	高濃度の状況*** (広域的)	高濃度の 状況 (千葉県)
①	2017	12/7～8	A	41.1	13	①NO ₃ ⁻ ②NH ₄ ⁺ ③Cl ⁻	関東南部	南房総、長生・夷隅地域の 一部を除いた県全域
			B	10.0	0			
②		12/21～25	A	45.3	34	①NO ₃ ⁻ ②NH ₄ ⁺ ③Cl ⁻ , SO ₄ ²⁻	◎関東、○東海～ 九州北部の都市部	全県的(北西部中心)
			B	23.9	4			
③		1/15～17	A	39.9	25	①NO ₃ ⁻ ②NH ₄ ⁺ ③Cl ⁻	◎関東、○東海～ 九州北部の都市部	県北西部
			B	14.0	0			
④		2/9～11	A	39.8	30	①NO ₃ ⁻ ②NH ₄ ⁺ ③SO ₄ ²⁻ ④Cl ⁻	◎関東、○東海～ 九州北部の都市部	県北西部
			B	21.3	0			
⑤	2018	3/26～30	A	51.0	55	八千代①②③ 館山①③ ①SO ₄ ²⁻ ②NO ₃ ⁻ ③NH ₄ ⁺	全国的	県全域(特に北西部が高 濃度)
			B	39.0	34			
⑥		4/2～5	A	36.8	15	①SO ₄ ²⁻ ②NH ₄ ⁺ ③NO ₃ ⁻	関東～瀬戸内	県全域(特に北西部が高 濃度)
			B	28.5	4			
⑦		12/21～24	A	42.6	25	①NO ₃ ⁻ ②NH ₄ ⁺ ③Cl ⁻ , SO ₄ ²⁻	関東	県北西部
			B	15.5	1			
⑧		1/29～2/1	A	38.4	14	①NO ₃ ⁻ ②NH ₄ ⁺ , Cl ⁻ , SO ₄ ²⁻	◎関東、○東海～ 瀬戸内の都市部	県北西部と北東部
			B	18.2	0			
⑨	2019	5/25～28	A	37.0	15	①SO ₄ ²⁻ ②NH ₄ ⁺	全国的(特に関東～ 近畿)	県全域(特に北西部が高 濃度)
			B	32.4	13			
⑩		12/1～2	A	36.7	16	①NO ₃ ⁻ ②NH ₄ ⁺ ③Cl ⁻ , SO ₄ ²⁻	関東	県北西部
			B	10.8	0			
⑪		5/1～3	A	34.1	9	①SO ₄ ²⁻ ②NH ₄ ⁺	全国的(特に関東)	県全域
			B	40.9	13			
⑫	2020	8/7～8	A	18.1	0	①SO ₄ ²⁻ ②NH ₄ ⁺	全国的	県南部と県北西部の東 京湾沿い
			B	40.3	18			
⑬		12/28～30	A	36.3	14	①NO ₃ ⁻ ②NH ₄ ⁺ ③Cl ⁻ , SO ₄ ²⁻	関東	県北西部と北東部
			B	12.6	0			
⑭	2021	1/20～23	A	42.8	22	①NO ₃ ⁻ ②NH ₄ ⁺ ③Cl ⁻ ④SO ₄ ²⁻	◎関東、○東海～ 瀬戸内の都市部	県南部の一部を除いた 県全域
			B	19.2	1			

備考)* 地点 A:八千代、B:館山

** 質量濃度の大きい成分を抜粋し、濃度の大きいものから番号付けした。同程度の濃度の成分は同番号を付した。

*** 複数地域の表記があり、特に高濃度となった地域があれば◎を付け、○の地域と区別して表記した。

PM_{2.5} 高濃度事例の対象となった期間とその時の高濃度の状況及び主成分イオンについて、経時的に並べてまとめたものを表 1 に示す。期間全体で 14 事例が対象となったが、2021 年度は対象となる事例がなかった。時季としては春季が 4 事例、夏季が 1 事例、冬季が 9 事例観測され、秋季の事例はなかった。

事例数の多い冬季は、関東で地域的に高濃度となるケースが多かった。成分としては NO₃⁻ が一番多く、カウンターイオンである NH₄⁺ が次に多くなっていた。Cl⁻ も比較的高い濃度となるケースが多かった。冬季の次に事例数の多かった春季は、全国規模で高濃度が観測されていた。成分としては SO₄²⁻ が主体であり、カウンターイオンである NH₄⁺ が次に多くなっていた。八千代では NO₃⁻ も比較的高い濃度となるケースもあった。

24h 平均の最大値が 35µg/m³ 以上となったのは、都市部の八千代では 12 事例あった。一方、非都市部の館山でも 3 事例観測され、そのうち⑩と⑪の 2 事例は館山の方が八千代よりも高濃度となった。特に⑪は八千代の濃度が上昇せず館山だけが高濃度となった特異な事例であった。この⑪の期間の前後では全国的に高濃度が観測され、要因として小笠原諸島の西之島の噴煙の影響が指摘されており⁵⁾、館山の方が八千代よりも強く影響を受けたと推測された。

3・2 高濃度時の気象状況

PM_{2.5} 高濃度を発生させる可能性のある気象要因について、高濃度事例の対象期間中、特に高濃度となっていた時間帯に見られた気象状況についてまとめたものを表 2 に示す。3・1 で示したように冬季と春季の件数が多く、分析したイオン成分組成、気象要因及び汚染範囲等がそれぞれの季ごとに似た傾向があった。このため類似事例については季ごとにまとめて表した。なお、表の作成にあたり気象関係等のデータは、気象庁(天気、天気図、日照時間、日射量、高層気象)、大気常時監視データ(PM_{2.5} 質量濃度、風向・風速、気温、湿度)、AD-Net(ライダー)及び NOAA-HYSPLIT(後方流跡線)を参照し、高濃度時に表中の気象要因

表 2 高濃度時の気象状況

汚染タイプ (時季、 範囲)	No.	年	対象期間	汚染タイプ (高濃度の広がり)			総観気象			地域気象				
				越境	国内 広域 (移流)	地域	前線・低気圧 の通過・接近	移動性 高気圧 周回流	高気圧の停 滞	海陸風 (地域風)	・逆転層 ・混合層高度 の低下	・弱風 ・滞留 (大気安定)	風の収束	強い日射 (光化学反応)
冬季・ 都市地 域型	①	2017	12/7~8			○	○			○	○			○
	②	2017	12/21~25		○	○	○		○	○	○			○
	③	2018	1/15~17		○	○	○			○	○	○		○
	④	2018	2/9~11		○	○	○		○	○	○			○
	⑦	2018	12/21~24			○	○			○	○			○
	⑧	2019	1/29~2/1		○	○	○		○	○	○			○
	⑩	2019	12/1~2			○	○			○	○	○		○
	⑬	2020	12/28~30			○	○			○	○	○		○
	⑭	2021	1/20~23			○	○		○	○			○	
春季・ 広域 型	⑥	2018	4/2~5	○	○	○	○		○	○	○		○	
	⑨	2019	5/25~28	○	○	○		○	○	○	○		○	
	⑪	2020	5/1~3	○	○	○		○	○	○	○		○	
混合型	⑤	2018	3/26~30	○	○	○			○	○	○	○	○	○
その他	⑫	2020	8/7~8	○	○			○	○		○		○	

が生じていることが確認されれば影響の程度には関係なく表中に「○」を付した。

冬季の高濃度事例は、汚染範囲が地域的で特に都市部に多いことから「冬季・都市地域型」と分類して表記した。気象状況としては、「前線・低気圧の通過・接近」、「逆転層、混合層高度の低下」、「弱風、滞留（大気安定）」及び「高湿度（不均一反応）」が全ての事例で確認された。事例によっては「風の収束」、「高気圧の停滞」も確認された。

春季の高濃度事例は、汚染範囲が冬季に比べて広域的なことが多いことから⑤以外の3つの事例については「春季・広域型」と分類して表記した。気象状況としては、「高気圧の停滞」、「弱風、滞留（大気安定）」、「強い日射（光化学反応）」及び「逆転層、混合層高度の低下」が全ての事例で確認された。それら以外に「移動性高気圧周回流」も多くの事例で確認された。

⑤については、春季の事例であり上記3つの春季高濃度事例と同様に汚染範囲が広域的であったが、八千代において「冬季・都市地域型」の特徴である高濃度 NO_3^- も期間全体を通して見られたことから「混合型」と分類して表記した。気象状況としては、「高気圧の停滞」の他、冬季・都市地域型の特徴である「高湿度（不均一反応）」、「春季・広域型」の特徴である「強い日射（光化学反応）」を含めて6つの地域気象項目全てが確認された。

夏季の高濃度事例⑫は、3・1で記したように西之島の噴煙の影響を受けたやや特異な事例のため「その他」と分類して表記した。気象状況としては、「移動性高気圧周回流」、「高気圧の停滞」、「逆転層、混合層高度の低下」及び「強い日射（光化学反応）」が確認された。

4 まとめ

2017年4月～2022年3月に発生した $\text{PM}_{2.5}$ 高濃度事例について、 $\text{PM}_{2.5}$ 自動測定機テープろ紙試料を利用した1時間単位に時間分解能を高めたイオン成分分析を行い、高濃度事象の要因となった気象と合わせて解析を行った。期間全体で14の高濃度事例があり、高濃度時の成分、気象要因及び汚染状況等の解析から、「春季・広域型」、「冬季・都市地域型」及び「混合型」と分類される定型的な高濃度事例が大半を占めた。

$\text{PM}_{2.5}$ 濃度は低下傾向が継続しており、千葉県においては2020年度以降全ての測定局で環境基準を達成している。本調査においても2021年1月を最後に高濃度事例が観測されず、今後も現在の濃度低下傾向は継続していくと推察される。一方、気象要因や地域的な汚染等によって $\text{PM}_{2.5}$ 高濃度が発生する可能性も残されており、その際には本調査で得られた高濃度化要因が高濃度発生時の解析の参考となるものと考えられる。

引用文献

- 1) 辻昭博, 日置正: 大気エアロゾル中のイオン成分および無機元素成分の粒径別高時間分解能観測による黄砂と人為起源物質の越境輸送の詳細解析. 大気環境学会誌, 48, 82-91 (2013).
- 2) 石井克巳: 自動測定機テープろ紙を用いた $\text{PM}_{2.5}$ 高濃度時の成分分析調査. 千葉県環境研究センター年報 (平成30年版)
- 3) 石井克巳: 自動測定機テープろ紙を用いた $\text{PM}_{2.5}$ 高濃度時の成分分析調査 (2). 千葉県環境研究センター年報 (令和元年版)
- 4) 石井克巳: 自動測定機テープろ紙を用いた $\text{PM}_{2.5}$ 高濃度時の成分分析調査 (3). 千葉県環境研究センター年報 (令和2年版)
- 5) 中込和徳, 町田哲, 掛川英男: 2020年8月上旬の $\text{PM}_{2.5}$ 広域高濃度事象における長野県内の汚染状況. 全国環境研会誌, 46, No.2, 56-61 (2020).