

# 栃木県における微小粒子状物質 (PM<sub>2.5</sub>) の 成分及び高濃度化要因の解析 (第4報)

大気環境部

佐藤 翔大 佐藤 安里紗 平野 真弘 向井 重徳 石原島 栄二<sup>1</sup>

(<sup>1</sup> 現県南健康福祉センター)

## 1 はじめに

微小粒子状物質 (PM<sub>2.5</sub>) は、大気中に浮遊する粒径 2.5 $\mu$ m 以下の微細な粒子である。平成 25 年 1 月に、中国で発生した大規模な大気汚染及び国内への越境流入が、大きく報道され、社会問題として関心が高まった。PM<sub>2.5</sub> の発生源は、工場からのばいじん及び粉じん、自動車、船舶からの一次排出、並びに環境中に放出された二酸化硫黄 (SO<sub>2</sub>) や窒素酸化物 (NO<sub>x</sub>) 及び揮発性有機化合物 (VOC) の化学反応等による二次生成等、多岐にわたることが知られている。環境基準は、環境基本法第 16 条において、「人の健康を保護し、及び生活環境を保全する上で維持されることが望ましい基準」と定義されているが、PM<sub>2.5</sub> については、「年平均値が 15 $\mu$ g/m<sup>3</sup> 以下 (長期基準)」であり、かつ、「日平均値 (年間 98% 値) が 35 $\mu$ g/m<sup>3</sup> 以下 (短期基準)」と規定されている。

本県においては、県内の PM<sub>2.5</sub> 濃度の動向を把握するために、「令和元年度 PM<sub>2.5</sub> 大気環境調査結果」(以下「令和元年度調査」という。)<sup>1)</sup> に示すとおり、県内の常時監視測定、四季調査の成分分析及び発生源寄与推定解析を継続して実施している。

近年では、常時監視測定局の全地点において、環境基準をそれぞれ達成するとともに、各測定局の年平均値もゆるやかに減少し、改善の傾向が見られ、全国的にも同様に改善の傾向が報告されている<sup>2)</sup>。しかしながら、日平均値 35  $\mu$ g/m<sup>3</sup> を超過する日 (以下「高濃度日」という。) が、いまだ発生しており、短時間ながら高濃度化する事例も散見される。

本県では、自動測定機によって、1 時間ごと 1 スポットで PM<sub>2.5</sub> を捕集し、水溶性イオン成分を分析し、高濃度化時に特異的又は特徴的な成分を調査している。併せて、PM<sub>2.5</sub> 濃度及びその成分の変化と、気温や湿度、日射量などの気象因子、オキシダント (Ox) 濃度や SO<sub>2</sub> 濃度などの原因物質濃度の経時変化を比較検討することで、時間分解能を高めた解析を試みてきた。

本調査研究第 1 報<sup>3)</sup> では、夏季には硫酸アンモニウムによる高濃度化が顕著であり、その関連因子としての「日射量」、「SO<sub>2</sub> 濃度」及び「Ox 濃度」に着目した硫酸の生成反応スキームから PM<sub>2.5</sub> との関連を述べた。冬季では、硝酸アンモニウムによる高濃度化が顕著であり、「NO<sub>x</sub> 濃度」、「湿度」及び「大気安定度」との関連が示唆された。

第 2 報<sup>4)</sup> では、二次生成の前駆物質に着目した、スコアリングによる PM<sub>2.5</sub> 濃度シミュレーションを行い、二次生成を中心とした高濃度事象の濃度変化を再現した。

第 3 報<sup>5)</sup> では、真岡市役所を対象に、常時監視測定データ 13 項目を用いた重回帰分析による PM<sub>2.5</sub> 濃度の再現について検討を行い、1 時間値及び日平均値とも、観測値をおおむね再現した。

また、花火や渡良瀬遊水地におけるヨシ焼き、野焼きなどによって高濃度化する事例も検討してきており、PM<sub>2.5</sub> の濃度変化を考察するには、いろいろな角度からの視点が求められる。

本報告では、これまでに蓄積された常時監視測定データから、PM<sub>2.5</sub> 高濃度化の特性把握のため、県内における PM<sub>2.5</sub> の季節推移や成分組成の特徴について、経年変化をふまえた考察を行った。加えて、PM<sub>2.5</sub> 濃度と風向風速の関係を視覚的に把握するため、統計ソフトによる、風向風速と自動測定機の PM<sub>2.5</sub> 質量濃度 (1 時間値) との 3 次元散布図の作成を行ったので報告する。

## 2 解析方法

### 2.1 四季調査結果を用いた解析

調査方法及び調査項目については、令和元年度調査<sup>1)</sup> のとおり行った。解析は、四季調査項目のうち、標準測定法<sup>6)</sup> により測定した PM<sub>2.5</sub> の質量濃度、イオン成分濃度及び炭素成分について、平成 25 年度から平成 30 年度までの 6 年分の調査結果を使用した。

解析方法は、第一に、PM<sub>2.5</sub> 高濃度化要因の季節傾向を把握するため、四季調査結果を季節毎に分け、各成分濃度の推移について調査した。

第二に、PM<sub>2.5</sub> 高濃度時に、成分組成に特異性があるかどうかを把握するため、四季調査結果を質量濃度の水準別に分類 (「高」: 25 $\mu$ g/m<sup>3</sup> より大きい、「中」: 15 $\mu$ g/m<sup>3</sup> より大きく 25 $\mu$ g/m<sup>3</sup> 以下、「低」: 15 $\mu$ g/m<sup>3</sup> 以下) し、その季節変動

や成分濃度について調査した。

## 2.2 自動測定機データを用いた解析

### 2.2.1 風向風速とPM2.5濃度等の3次元散布図の作成

本報告では、PM2.5濃度に影響を与える因子の一つとして、風向風速に着目し、風向風速ベクトルとPM2.5濃度との3次元散布図の構築を試みた。

また、PM2.5濃度の動向について、通年で、かつ、時間分解能を高めた解析を行うことを目的として、PM2.5自動測定機の質量濃度の1時間値（以下、「1時間値」という。）を用いた。

なお、1時間値については、標準測定法との等価性が確認されていないため、参考値とされているが、PM2.5濃度変動のリアルタイムでの把握や、濃度上昇に関する注意喚起の判断には、1時間値が用いられることから、これに関する知見を集約することで、PM2.5濃度の動向をより詳細に把握することができると考えられるため、解析に用いた。

解析は、真岡市役所を対象とし、平成24年度から令和元年度までの8年間分の調査結果から、1時間値、風向、風速を抽出し、解析に使用した。これらの3項目の中に欠測又は異常値がある場合には、解析の対象から除外した。

風向と風速については、座標系で表現するために、風速（南北）（ $v_{NS}$ ）と風速（東西）（ $v_{EW}$ ）とし、次式で計算した値を用いた。各データを春季（3月から5月）、夏季（6月から8月）、秋季（9月から11月）、及び冬季（12月から2月）の四季に分け、それぞれを色分けすることで全プロットを表記した。

$$v_{NS} = v_n \cos \theta_n$$

$$v_{EW} = v_n \sin \theta_n$$

$$v_n : n\text{時の風速}$$

$\theta_n$  : n時の風向が北を0度として、時計回りに角度換算した時になす角度

### 2.2.2 統計ソフトRについて

統計ソフトR<sup>8)</sup>は、オープンソースであり、また、フリーソフトウェアの統計解析向けのプログラミング開発実行ソフトウェアである。特徴として、データのグラフ化が容易で、かつ、高度で柔軟な作図処理が可能であることから、本報告の3次元散布図の作成は、全て統計ソフトRを用いて行った。

## 3 解析結果及び考察

### 3.1 四季調査結果の経年変化及び季節変動

平成25年度から平成30年度までの6カ年分の四季調査結果のうち、質量濃度、水溶性イオン成分及び炭素成分の各成分濃度、並びに各季節におけるそれぞれの平均濃度を図1に、それらを季節毎に並び替えて表示した結果を図2にそれぞれ示す。春季、夏季、秋季及び冬季の各四季調査実施期間は、おおむね5月、7月から8月、10月から11月、及び1月から2月にそれぞれ相当する。なお、有機炭素成分（以下「OC」という。）濃度については、質量濃度との関係をより正確にするために、有機粒子への換算係数1.6<sup>9)</sup>を乗じた。

質量濃度の平均濃度は冬季で最も高く、16.7 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。次いで秋季、春季、夏季の順に高く、それぞれ、14.4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、14.2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 及び14.0 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であり、ほぼ同程度であった。PM2.5質量濃度の経年変化は、平成26年度及び平成27年度を除き、春季か冬季のいずれかの濃度が最も高くなる傾向にあり、おおむね10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ から20 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ の間で推移していた。なお、平成26年度で最も濃度の高かった秋季は、OC濃度が全期間で最も高く、炭素成分の排出や大気中での二次生成の影響が示唆された。加えて、平成27年度で最も濃度の高かった夏季は、硫酸イオン（ $\text{SO}_4^{2-}$ ）濃度が全期間で最も高く、調査期間中における平均気温も28.2 $^{\circ}\text{C}$ と高かったことから、前駆物質である二酸化硫黄（ $\text{SO}_2$ ）からの、大気中における二次生成の影響が示唆された。

また、全期間の各季節の各成分の平均濃度を比較すると、夏季では $\text{SO}_4^{2-}$ 、秋季ではOC、冬季では硝酸イオン（ $\text{NO}_3^-$ ）及び塩化物イオン（ $\text{Cl}^-$ ）濃度が他季に比べて高く、各季節を代表する成分であることが示唆された。春季は、 $\text{NO}_3^-$ を除き、夏季とほぼ同様の傾向を示した。

季節内で比較すると、年度により変動が大きいものの、各季節の平均濃度でみられた各成分の特徴が、より明瞭となった。

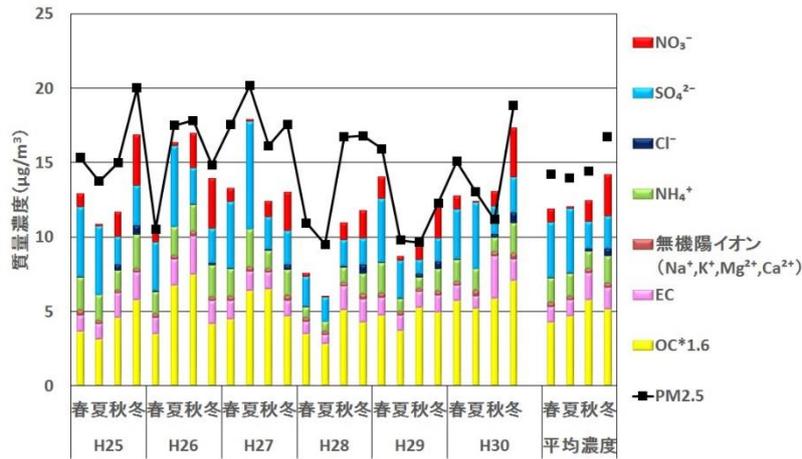


図1 真岡市役所屋上で採取したPM2.5中の成分濃度の経年変化（水溶性イオン成分及び炭素成分）

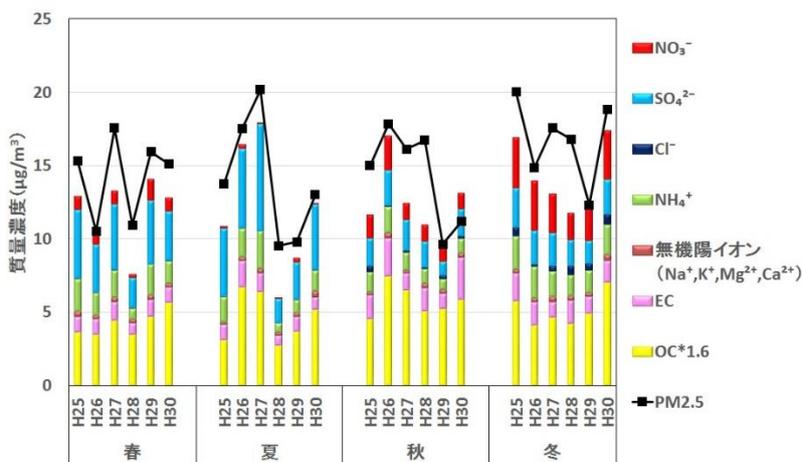


図2 真岡市役所屋上で採取したPM2.5中の成分濃度（四季毎）

表1 PM2.5濃度水準別の観測日数

濃度水準 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )		PM2.5濃度水準			計
		低 ~15( $\leq 15$ )	中 15~25( $\leq 25$ )	高 25~(>25)	
日数	春季	56	21	6	83
	夏季	48	22	11	81
	秋季	60	17	7	84
	冬季	62	17	4	83
	計	226	77	28	331

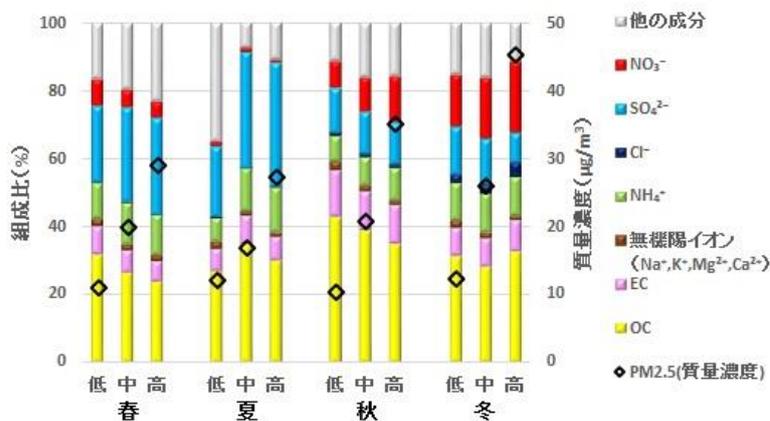


図3 真岡市役所屋上で採取したPM2.5の濃度水準別の組成比

### 3.2 四季調査結果の濃度水準別の変化

図1の結果について、質量濃度の水準別に「高」「中」「低」の3段階に分けた場合の各観測日数を表1に、各水準におけるPM2.5質量濃度、並びに水溶性イオン及び炭素成分の組成比を図3にそれぞれ示す。なお、他の報告<sup>10)</sup>から花火大会があった日のデータは、特定のイオンが著しく上昇することが分かっているため、解析から除外した。

「低」の観測日数は夏季でやや少なかった。また、「高」の観測日数は、夏季の11日が最も多く、冬季の4日が最も少なかった。夏季は、後に述べるPM2.5濃度分布からも、秋季や冬季に比べPM2.5濃度が高く、自動測定機の結果と、ある程度対応していた。

各季節の質量濃度を濃度水準別に比較すると、「低」の質量濃度は、ほぼ同程度であったが、「中」及び「高」では、夏季で最も低く、冬季で最も高かった。なお、本県における冬季の質量濃度については、マスクロージャーモデル<sup>19)11)</sup>により算出された理論的な質量濃度に比べ高めに出る傾向があることから、真にPM2.5濃度が他季に比べて高濃度化しているかどうかに関しては、更に検討する必要がある。

組成比は、前に述べたような、夏季における $\text{SO}_4^{2-}$ 、秋季におけるOC、冬季における $\text{NO}_3^-$ 及び $\text{Cl}^-$ が、他季に比べ大きく、特に夏季における $\text{SO}_4^{2-}$ 及び冬季における $\text{NO}_3^-$ では、濃度水準が「低」から「高」へ上昇することで、それらの組成比もそれぞれ、16%及び5%程度上昇していた。しかし、それらを除くと、季節間での差異はみられるものの、各季節内での濃度水準による組成比の傾向はほぼ同様であった。したがって、本県におけるPM2.5高濃度化のうち、二次生成についてみると、特定の成分や排出源の変化による濃度上昇は起こらないことが示唆され、気象等の他の要因による影響が考えられた。

### 3.3 三次元散布図

#### 3.3.1 概要

平成24年度から令和元年度までの、 $v_{EW}$ 、 $v_{NS}$ 及び1時間値との三次元散布図を、春季、夏季、秋季及び冬季の四季毎に、それぞれ西及び南の2方向から見た図を図4から図11に、同時期における風配図及びPM2.5濃度階級別分布を図12から図19に示す。南から見た図で説明すると、東西方向(x軸)には $v_{EW}$ 、南北方向(y軸)には $v_{NS}$ 、東西方向と南北方向の軸の交点から垂直方向(z軸)には1時間値をそれぞれプロットしている。

各三次元散布図と風配図は、各季節ともおおむね対応しており、春季及び夏季では、南北に広く分布する風配の様子が、秋季及び冬季については、北に風配が偏る様子が、三次元散布図からも確認できた。

#### 3.3.2 春季

春季は、後に述べる夏季と同様、 $20\mu\text{g}/\text{m}^3$ までの濃度レベルで分布の大半を占めていた(図13)。特徴としては、 $v_{NS}$ のうち、北北西～北～北北東及び南南東方向からの $2\text{m}/\text{s}$ 程度の微風に加え、 $4\text{m}/\text{s}$ を超えるような比較的強い風が吹いていても、1時間値が $40\mu\text{g}/\text{m}^3$ 近くまで上昇する時間が散見された。既報<sup>12)</sup>では、春季における土壌成分の巻き上げの影響によるPM2.5濃度の上昇が示唆されており、強風下でもPM2.5濃度が上昇する現象と整合性があり、PM2.5のような微小粒子も、こうした気象条件の影響を受けることが支持された。

また、後に述べる夏季と同様に、他季にもみられる北方向からの微風時に加え、南方向の風の時にも、PM2.5濃度がある程度上昇していることが分かった。

#### 3.3.3 夏季

夏季は、春季とほぼ同様の濃度分布で、秋季及び冬季に比べ、 $5\mu\text{g}/\text{m}^3$ 付近の濃度分布が少なかった(図15)。 $v_{NS}$ のうち、北北西～北～北北東及び南南東方向からの $2\text{m}/\text{s}$ から $3\text{m}/\text{s}$ の風の場合、1時間値が上昇する様子が三次元散布図からみられた。後に述べる冬季に比べ、ある程度風速があっても濃度が上昇することが示唆されたことから、本県においては、夏季に、ある程度広い範囲で、同様のPM2.5濃度雰囲気である可能性が示唆された。

また、春季で述べた、南方向の風の場合におけるPM2.5濃度の上昇は夏季にもみられ、春季に比べ、ピークが増大していた。したがって、夏季においては、南方向の風によるPM2.5濃度上昇の影響がより強まる可能性が示唆された。

#### 3.3.4 秋季

秋季は、春季及び夏季に比べ、濃度分布がやや低濃度側にシフトしていた(図17)。特徴として、風配図ではみられなかったが、平常時には北に加え、南東方向の風の場合も1時間値がある程度分布している様子が三次元散布図からみられた。 $v_{NS}$ のうち、北からの風が $2\text{m}/\text{s}$ 程度吹く場合に1時間値の上昇がみられ、後に述べる冬季に近い濃度上昇の傾向を示した。

#### 3.3.5 冬季

冬季は濃度分布が更に低濃度側にシフトしていたが、 $40\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えるような高濃度側の分布も他に比べ、やや増加していた(図19)。秋季と同様に、 $v_{NS}$ のうち、北からの風が $2\text{m}/\text{s}$ 程度吹く場合に1時間値の上昇がみられ、濃度の上昇幅は秋季よりも大きかった。関東地域においては、気温の低くなるこの時期に、接地逆転層の形成により、大気の拡散が抑制されることが知られており、このような気象状況を反映したものと推察された。

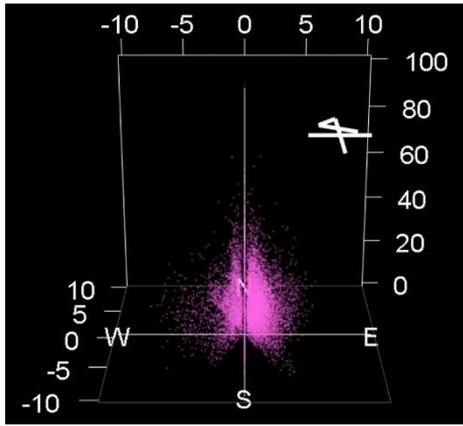


図4 春季の三次元散布図（南からみた場合）

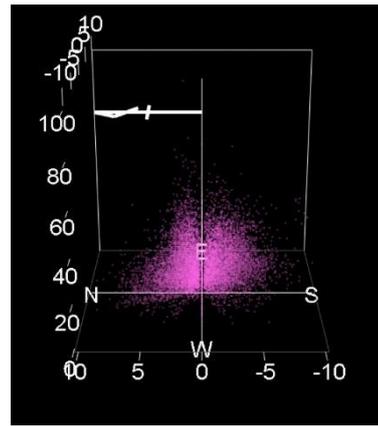


図5 春季の三次元散布図（西からみた場合）

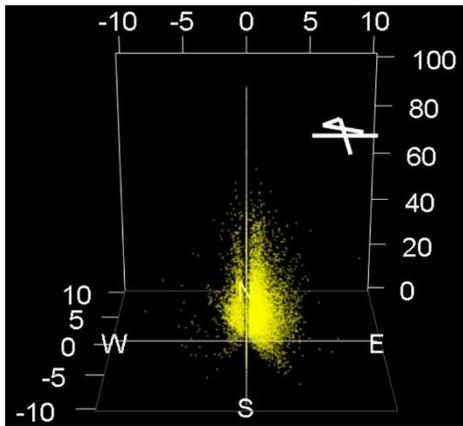


図6 夏季の三次元散布図（南からみた場合）

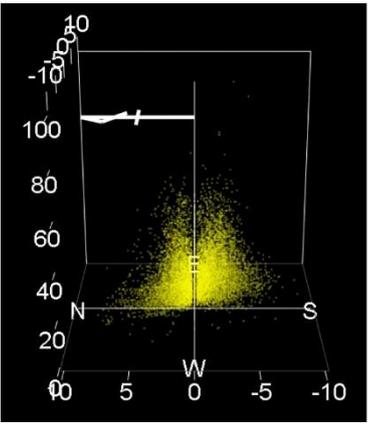


図7 夏季の三次元散布図（西からみた場合）

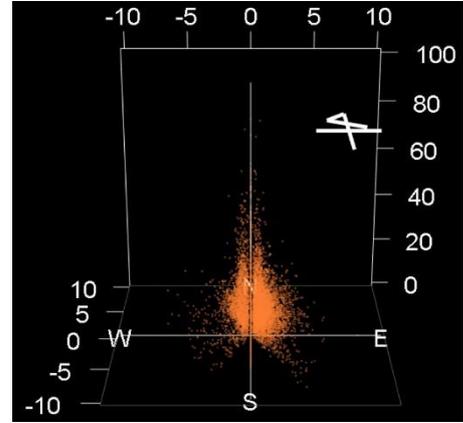


図8 秋季の三次元散布図（南からみた場合）

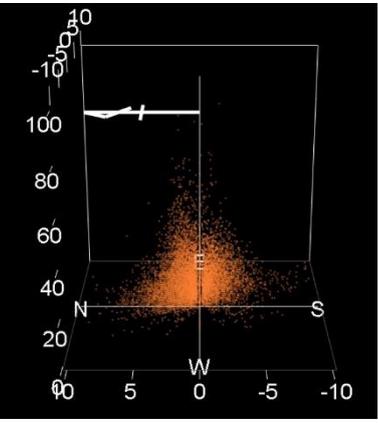


図9 秋季の三次元散布図（西からみた場合）

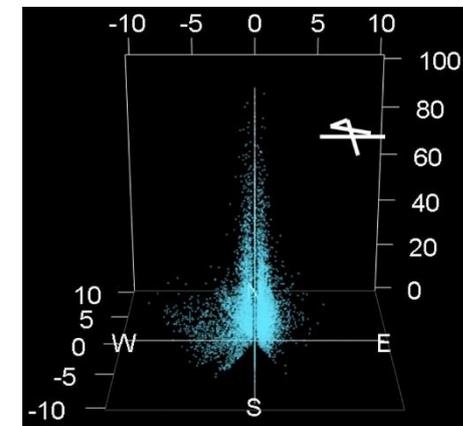


図10 冬季の三次元散布図（南からみた場合）

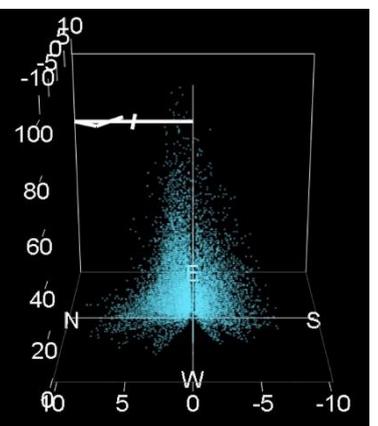


図11 冬季の三次元散布図（西からみた場合）

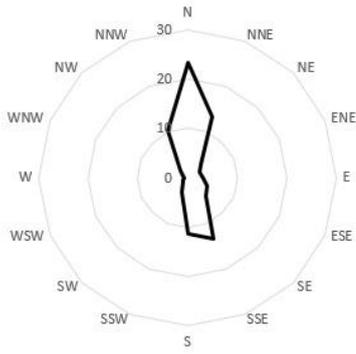


図12 春季の風配図

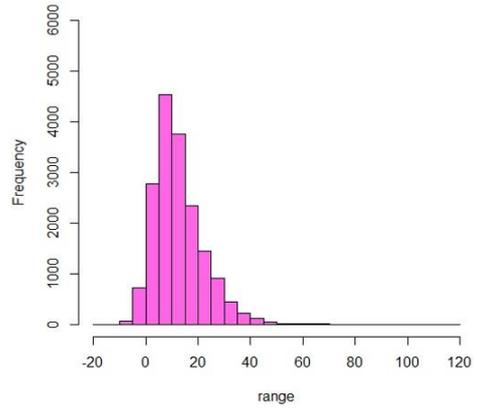


図13 春季の階級別分布 (PM2.5濃度1時間値)

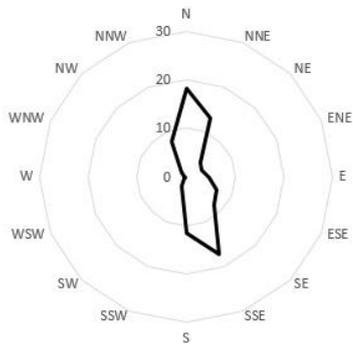


図14 夏季の風配図

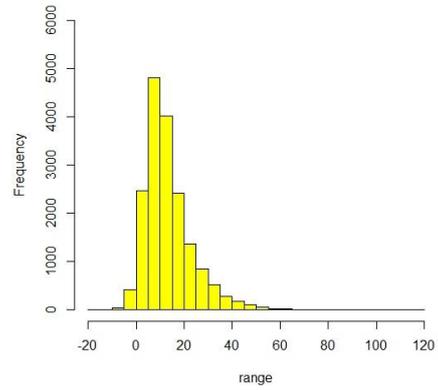


図15 夏季の階級別分布

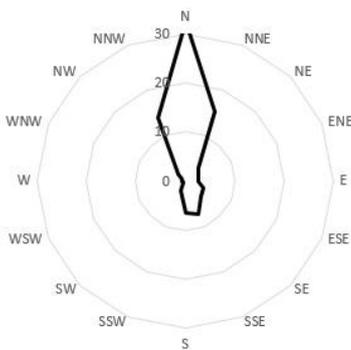


図16 秋季の風配図

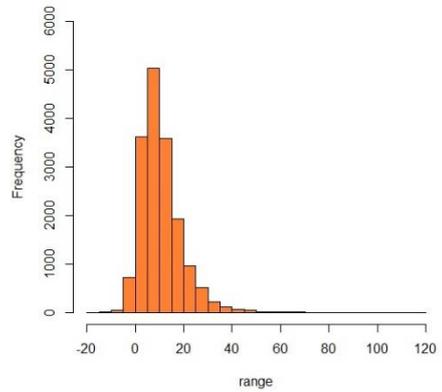


図17 秋季の階級別分布

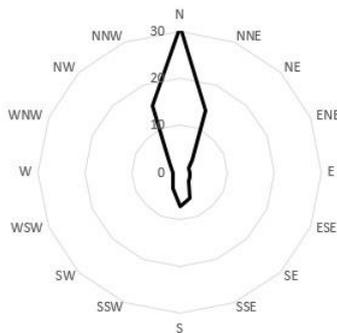


図18 冬季の風配図

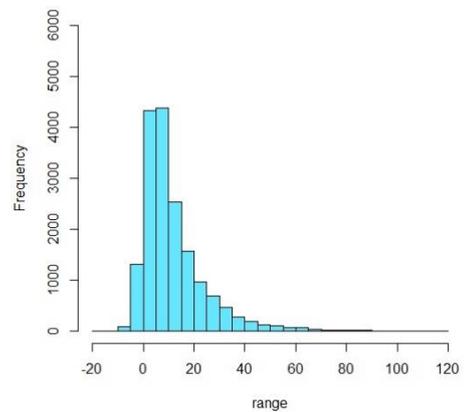


図19 冬季の階級別分布

#### 4 まとめ

平成25年度から平成30年度までの四季調査結果を用いて、経年変化や季節変動について考察した結果、夏季では $\text{SO}_4^{2-}$ 、秋季ではOC、冬季では $\text{NO}_3$ 及びCl濃度が他季に比べて高く、各季節を代表する成分であることが示唆された。また、濃度水準別の解析では、各季節内での濃度水準による組成比の差異はあまりみられず、本県におけるPM2.5高濃度化は、特定の成分の増加ではなく、同様の排出源による影響が示唆され、気象等の他の要因による影響が考えられた。

加えて、平成24年度から令和元年度までの、真岡市役所における大気環境常時監視データを用いて、風向風速とPM2.5濃度1時間値三次元散布図の作成を試みた。得られた三次元散布図は、同地点及び同時季における風配図及び濃度分布の状況をおおむね反映しており、より直感的に、PM2.5濃度と風向風速の関係を図示できた。また、この三次元散布図から、春季及び夏季は、他季に比べ南方向の風によって、PM2.5濃度が上昇することが示唆された。なお、風配が集中しているものについて、プロットの濃淡による分布状況の表現については、課題が残り、データ数の精査等により、改善が期待できると考えられた。

今後は、各常時監視測定地点におけるPM2.5濃度と風向風速との関係について図示し、PM2.5濃度のより詳細な動向、風向風速による濃度上昇メカニズム、及び光化学オキシダント等の他成分との移流傾向の差異について調査を行う予定である。

#### 5 参考文献

- 1) 栃木県保健環境センター年報、25、-、2020.
- 2) 平成29年度 大気汚染状況報告書、環境省、2019.
- 3) 栃木県保健環境センター年報、22、46-55、2017.
- 4) 栃木県保健環境センター年報、23、58-65、2018.
- 5) 栃木県保健環境センター年報、24、88-93、2019.
- 6) 環境省水・大気環境局大気環境課、環境大気常時監視マニュアル（第6版）、平成22年3月
- 7) Kim, E.; Hopke P.K., Source Apportionment of Fine Particles in Washington, DC, Utilizing Temperature-Resolved Carbon Fraction. Journal of Air & Waste Management Association 54, 773-785 (2004)
- 8) The Comprehensive R Archive Network, <https://cran.r-project.org/>
- 9) 環境省、微小粒子状物質( $\text{PM}_{2.5}$ )成分測定マニュアルに関するQ&A(2018)
- 10) 飯島ら、花火・ヨシ焼きによる汚染影響について、大気環境学会誌、第53巻、第3号A48-49、2018.
- 11) 環境省、微小粒子状物質曝露影響調査報告書(2007)
- 12) 栃木県保健環境センター年報、24、138-144、2019.