

[研究報告]

騎西・鴻巣地域における春から夏期を中心としたPM_{2.5}汚染実態

米持真一 梅沢夏実 松本利恵 武藤洋介

要 旨

騎西・鴻巣地域におけるPM_{2.5}の汚染実態を明らかにするために、環境科学国際センター及び国道17号線沿道の鴻巣天神自動車排出ガス測定局でPM_{2.5}を捕集し、質量濃度(以下濃度)及び主要構成成分の比較検討を行った。前報では秋から初冬期における検討内容を報告したが¹⁾、本報では春から夏期における汚染実態について検討を行った。また、TEOM捕集部の設定温度を変更した際の測定値についても検討を行った。

騎西と鴻巣沿道でのPM_{2.5}濃度について、主風向別に回帰式を求めた結果、濃度には高い相関が見られた。また、鴻巣沿道における濃度の騎西に対する年間平均上乘せ分は約8 µg/m³であった。春から夏を中心とする期間では6月下旬に高濃度が出現した。鴻巣沿道における元素状炭素は騎西の平均約2倍であった。

また、TEOM捕集部温度における半揮発性成分の損失を抑えるためには、捕集部温度を少なくとも30 以下に下げることが分かった。

キーワード：PM_{2.5}、SPM、TEOM、半揮発性成分

1 はじめに

我が国における浮遊粒子状物質(SPM)の環境基準達成率は低く、特に首都圏における自動車NO_x法²⁾特定地域では、平成10年度は一般環境測定局(一般局)で14.7%、自動車排出ガス測定局(自排局)で3.1%であった。また、埼玉県では一般局で3.6%、自排局では0%と低率であった。

しかしながら、平成11年度は全国的に環境基準達成率が向上し、首都圏の自動車NO_x法特定地域では一般局で63.1%、自排局で53.5%³⁾、埼玉県では一般局で82.1%、自排局で61.1%と大幅な改善が見られ、平成12年度もこの傾向が継続していた⁴⁾。

SPMは粒径10 µm以下の粒子状物質の総称であるが、その粒径分布は約2.5 µmを境に、大きく粗大粒子と微小粒子に偏在していることが知られており、概ね粗大粒子が自然起源、微小粒子は人為起源と考えられている。

近年米国では、粒径2.5 µm以下の微小粒子(PM_{2.5})の健康影響を考慮して、環境基準が追加設定⁵⁾され、国内でも各機関で調査研究が始められているが、埼玉県においても彩の国青空再生戦略の一環でPM_{2.5}のモニタリングが開始された。

このような中、しばしばSPM高濃度が発生する埼玉県北部

地域のPM_{2.5}汚染実態の詳細な把握は重要なものであり、環境科学国際センターでは、平成12年度に騎西・鴻巣地域をモデルとして、通年の調査を開始した。

大気安定度が高まることにより汚染物質の滞留が生じる初冬期はSPM高濃度期の一つであり、SPMに対するPM_{2.5}の寄与が大きかったことを前報¹⁾で報告した。本報では夏期を中心とする光化学大気汚染に起因したSPM高濃度期のPM_{2.5}の寄与及び主要成分について、初冬期との対比を含めた形で報告する。また、TEOMの計測条件についても検討を行ったので報告する。

2 調査

2.1 調査地点

TEOM(TEOM1400、R&P社製)1台を環境科学国際センターのエコロッジ屋上(地上4m、以下騎西)に、またPM_{2.5}サンブラ(PartisolPlus2025、R&P社製)2台を騎西及び騎西から南西方向約4.5kmに位置する国道17号線の沿道西側の鴻巣天神自動車排出ガス測定局コンテナ上(地上4m、以下鴻巣沿道)にそれぞれ設置した。また測定地点の位置関係を参考図に示した。

2.2 調査方法

TEOMはフィルター振動法の原理により、PM2.5の質量濃度を連続的に測定するものであり、瞬時値の1時間平均値を得ることができる。また、粒子の水分の影響を除去するために、試料捕集部は50℃に加熱してある。

PM2.5サンブラは、TEOMと同様のカット特性を有するインパクタにより分級された粒子がフィルター上に捕集される。フィルターは石英繊維フィルター(PALLFLEX2500QAT-UP、47mm)を使用し、使用に際しては温度20℃、相対湿度50%の恒温恒湿室内で24時間恒量としたものを用いた。サンプリングは1週間を基本単位として行い、毎週朝10時に自動的にフィルターが交換され、大気中の粒子を捕集した。

捕集後のフィルターは速やかに回収し、サンプリング前と同じ温度、湿度において24時間恒量後に秤量し、PM2.5の週平均濃度を求めた。秤量後、フィルターは-40℃遮光条件下で冷凍保存し、必要に応じて切り出して、水溶性イオン(Na⁺、NH₄⁺、K⁺、Mg²⁺、Ca²⁺、Cl⁻、NO₃⁻、SO₄²⁻)、有機炭素(Cor)、元素状炭素(Cel)を分析した。

水溶性イオンは20mlの超純水中で15分間超音波抽出したものをイオンクロマトグラフ(IC-20、日本ダイオネクス製)で定量した。炭素成分はCHNコーダー(MT-5、柳本製作所製)を用い、Corはヘリウム雰囲気下600℃、Celは酸素、ヘリウム混合雰囲気下950℃での分析値から求めた。またSPM濃度は埼玉県大気汚染常時監視測定局(鴻巣天神自排局、騎西特性局)における線吸収法による測定値を用いた。

3 結果と考察

3.1 TEOMによるPM2.5測定結果

図1に騎西における2001年2月1日から2001年9月10日のSPM濃度とPM2.5濃度の日平均値の推移を示す。日平均値はSPM、PM2.5とも1時間値の欠測が4時間以上ある日は欠測として扱った。

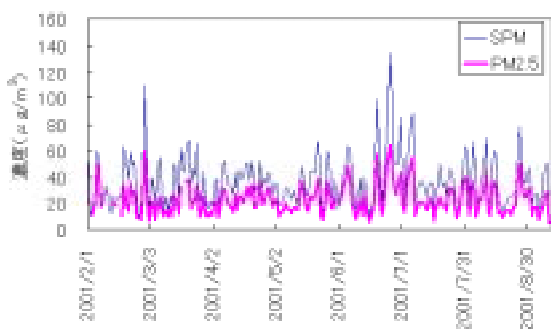


図1 騎西におけるSPM濃度、PM2.5濃度(TEOM)の推移

図1から2つの測定値が同様の挙動を示すことが分かる。期間中の日平均値の最高値はSPM、PM2.5ともに6月25日

に出現しており、PM2.5濃度は64.3 μg/m³であった。また、この期間におけるSPM濃度及びPM2.5濃度(日平均値)の関係を図2に示すが、秋から初冬期と同様に両測定値には高い相関がみられ、相関係数(r)は0.935(n=221)であった。またSPM濃度とPM2.5濃度の関係は式(1)に示すとおりで、PM2.5はSPMの55%以上を占めた。

$$PM2.5(\mu g/m^3) = 0.554 \times SPM(\mu g/m^3) + 1.53 \quad (1)$$

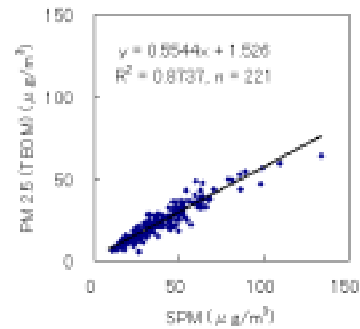


図2 騎西におけるSPM濃度とPM2.5濃度(TEOM)の関係

図3にTEOMによるPM2.5濃度測定を開始した2000年5月から2001年12月までの日平均値の濃度範囲と月平均値の推移を示す。2001年は2000年に比べて、夏期、初冬期ともに高濃度日の濃度レベルが低かった。

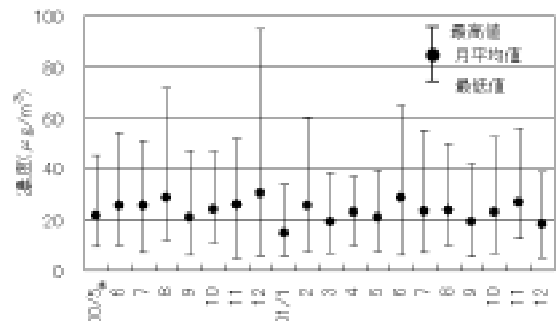


図3 PM2.5の月平均値及び月最高・最低濃度の推移 (* 00年5月の測定日数は19日)

3.2 騎西・鴻巣沿道間の比較

3.2.1 質量濃度

図4に騎西及び鴻巣沿道における2001年2月1日午前10時から2001年9月10日午前10時までの、1週間毎のPM2.5サンブラによる濃度及びSPM濃度の推移を示す。また、両地点の最高値、最低値及び平均値を表1に示す。

表1 春期から夏期におけるPM2.5濃度 (μg/m³)

地点	最高値	最低値	平均値
騎西	39.4	14.5	24.3
鴻巣沿道	55.2	19.9	32.3

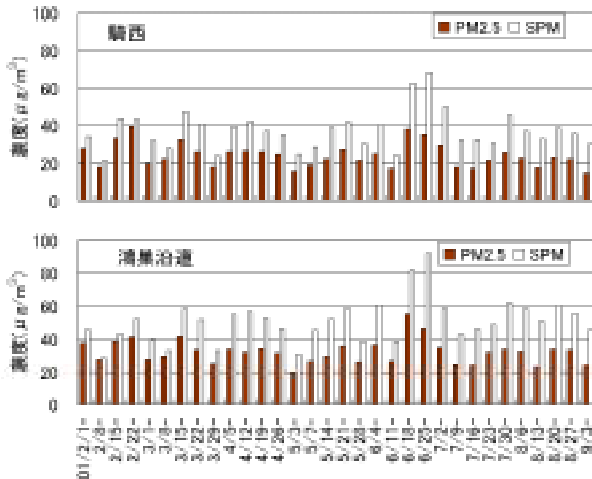


図4 SPM濃度、PM2.5濃度(PM2.5サンプラ)の推移

最高値、最低値ともに鴻巣沿道が高く、また濃度変動も鴻巣沿道の方が大きかった。

梅雨期から夏期を中心とする期間では、PM2.5濃度は騎西、鴻巣沿道ともに6月18日から25日の1週間が最も高く、ついで、翌週の6月25日から7月2日が2番目に高かった。SPM濃度もこの2週にわたって高濃度となった。また、騎西では2月22日から3月1日の週にもPM2.5が高濃度となった。

2001年は平年より早い7月1日に関東地方の梅雨明けの発表があった。このため、6月下旬には太平洋高気圧に覆われる、いわゆる梅雨の中休みとなる日があり⁶⁾、光化学オキシダント濃度がしばしば上昇した。また、県内では、6月26日に2001年の光化学オキシダント1時間値の最高値が県南西部で観測されたほか⁷⁾、18日、27日及び29日も光化学スモッグ注意報が発令されており、光化学反応の促進によって、SPM、PM2.5ともに濃度が上昇したものと推測された。

鴻巣沿道における調査期間中のPM2.5最低濃度は5月3日から7日の期間でみられた。この期間は5月の連休であり、社会活動の変化によるものと推測される。また、お盆休みを含む8月13日から20日においても、前後の週と比べてPM2.5濃度は大きく低下した。

図5に過去1年間の全測定結果(n=52)を用い、2地点間のPM2.5濃度の関係を示した。年間を通して、2地点間の濃度には高い相関が見られた。また主風向別に求めた回帰式を表2に示す。

表2 主風向別回帰式

主風向	回帰式	相関係数
南西系	$y = 0.85x + 10.9$ (n=36),	r=0.958
北東系	$y = 1.26x + 3.51$ (n=15),	r=0.959

騎西においては、国道17号線の影響は直接受けないと考えられるのに対して、鴻巣沿道においては風向が北東系の

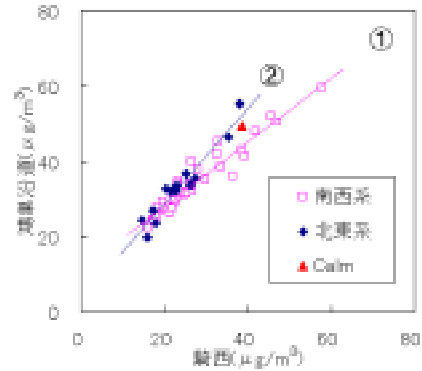


図5 PM2.5濃度の2地点間の関係 (南西系(SE~NW)、北東系(NNW~ESE))

時にPM2.5サンプラーが国道17号線の風下側となり、自動車走行の影響を強く受けたと考えられた。また、回帰直線の傾きも > となった。

また、年平均濃度は騎西で26.6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、鴻巣沿道で34.3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であり、少なくとも年平均値の差7.7 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ が鴻巣沿道における自動車走行による年間を通した平均上乘せ分と考えられた。

3.2.2 主要成分濃度

2001年2月1日から2001年9月10日の期間に騎西及び鴻巣沿道で捕集されたPM2.5の主要成分の分析結果を図6に示した。

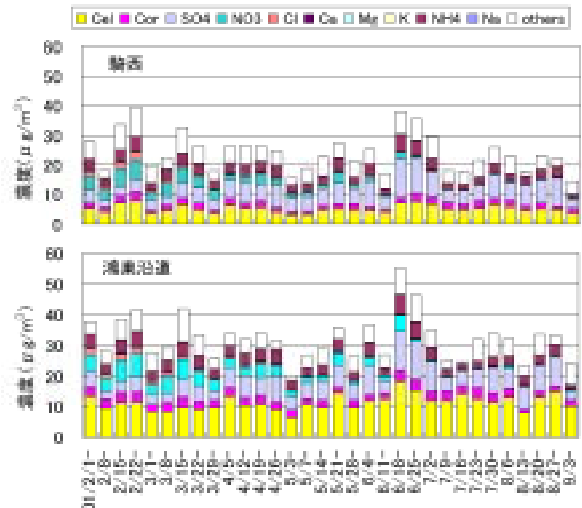


図6 PM2.5主要成分濃度の推移

各成分を比較すると、高い比率を占めていたのが、炭素成分、硫酸イオン(SO_4^{2-})、アンモニウムイオン(NH_4^+)であり、高濃度期であった6月18日から6月25日及び6月25日から7月2日の週は、ガス状物質から主に光化学反応で二次生成した SO_4^{2-} の濃度上昇が見られた。

PM2.5中の割合では、Corが騎西で5%から12%、鴻巣沿道で5%から14%、Celは騎西で16%から27%、鴻巣沿道で31%から58%を占めていた。SO₄²⁻は騎西で9%から43%、鴻巣沿道で8%から32%を占めていた。また、NH₄⁺は騎西で7%から17%、鴻巣沿道で8%から32%を占めていた。

他の成分については、塩化物イオン(Cl⁻)は5月下旬以降ほとんど見られず、硝酸イオン(NO₃⁻)は6月下旬以降はほとんど見られなかった。ナトリウムイオン(Na⁺)、カリウムイオン(K⁺)、マグネシウムイオン(Mg²⁺)、カルシウムイオン(Ca²⁺)は期間を通して低濃度であった。

鴻巣沿道においてPM2.5濃度の低下が見られた5月3日から7日及び8月13日から20日ではCelの濃度低下が顕著であった。Celはディーゼル排気ガスの指標とされる成分である。国道17号線の平日24時間交通量に占める貨物自動車の割合は約42%であり⁹⁾、長期休暇を含むこれらの期間では国道17号線を走行する貨物自動車の減少などの走行車種構成の変化が生じたためと考えられる。

図7にNH₄⁺、NO₃⁻、SO₄²⁻、Cor、Celの騎西及び鴻巣沿道両地点間での比較を主風向別に示した。

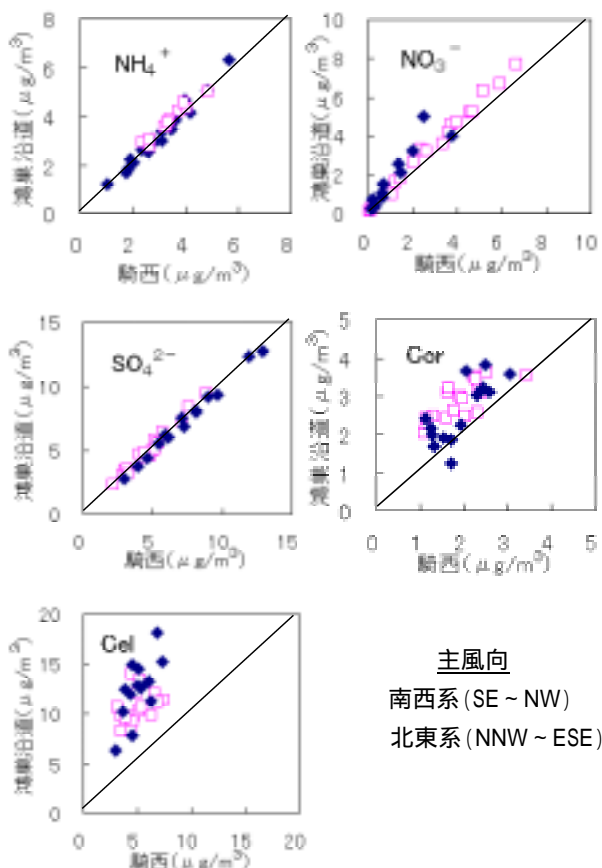


図7 各成分濃度の騎西、鴻巣沿道間の比較

夏期を中心とする期間に濃度が高かったSO₄²⁻やNH₄⁺では地点間に濃度差は見られなかったが、Celは鴻巣沿道の方が平均で約2倍高濃度であり、Cor、NO₃⁻も鴻巣沿道の方

がやや濃度が高い傾向が見られた。CelとNO₃⁻は主風向が北東系の期間に濃度が上昇する傾向が見られるが、これは測定局が国道17号線の南西側に位置しているためと考えられた。

3.2.3 主要成分濃度変動の特性

図8に騎西における測定期間中のPM2.5中のCl⁻、NO₃⁻、SO₄²⁻、NH₄⁺、Cor、Celの割合と平均気温及びオゾン(O₃)濃度の推移を示した。また、図9に騎西特性局におけるSO₂、NO、NO_x及び平均風速(WS)の推移を示した。

各成分を見ると、PM2.5中のNH₄⁺、Cor、Celの割合はほぼ一定であるのに対し、Cl⁻は5月28日以降、NO₃⁻は6月25日以降に濃度が急激に低下した。NO及びNO_x濃度は3月1日以降ほぼ一定であり、O₃濃度は4月12日の週以降しばしば高濃度が出現しているのに対し、平均気温は徐々に上昇し、6月25日以降には25℃前後かそれ以上となったことから、高温によって半揮発性であるNH₄Cl、NH₄NO₃の生成が抑えられ、またフィルター上から揮散損失したと考えられる。これに対し(NH₄)₂SO₄は揮発性は低く、主にSO₂ガスから光化学反応によってSO₄²⁻の生成が促進されたものと考えられる。

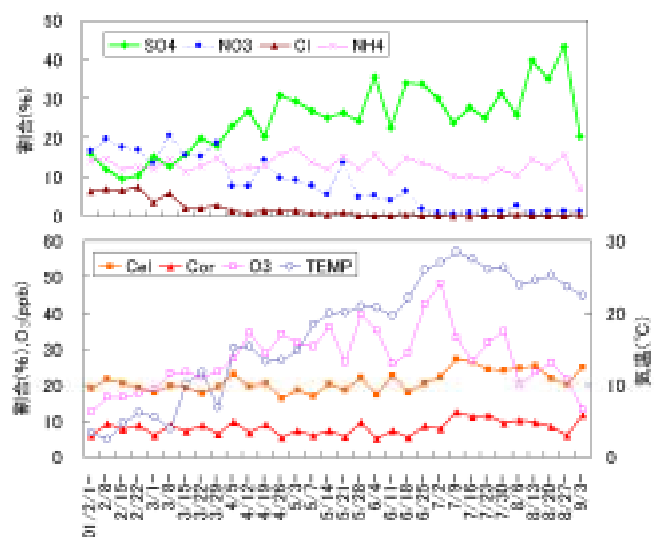


図8 騎西における主要成分の割合の推移

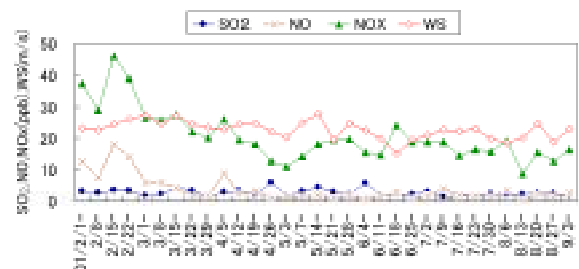


図9 騎西特性局における大気汚染物質濃度の推移

3.3 測定法の比較

前報に示したが、TEOMでは粒子中の水分の影響を除く

ために捕集部を50 に加温しており、外気温が低い場合にはPM2.5サンプリング捕集部とTEOM捕集部の温度差に起因する測定値の差が大きくなることが分かった¹⁾。

図10に2000年9月から2001年9月までの各期間において、TEOM測定値から求めた平均濃度(PM2.5t)のPM2.5サンプリングによるフィルター捕集量から求めたPM2.5濃度(PM2.5f)に対する割合(PM2.5t/PM2.5f)と、期間中の平均気温の推移を示した。

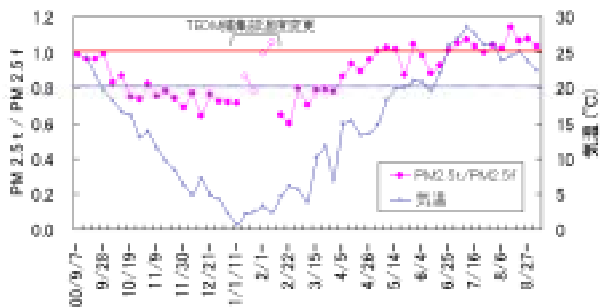


図10 TEOM測定値と気温の関係

(PM2.5tはTEOM測定値の平均値、PM2.5fはサンプリングでフィルター捕集したPM2.5から算出した平均値)

PM2.5t/PM2.5fは概ね11月中旬から3月下旬にかけて0.8以下となった。この期間における平均気温は約15 以下であった。

TEOM捕集部の温度による測定値の変化を調べるため、気温の十分低い11月中旬から2月中旬にかけて、TEOM捕集部設定温度を2週間毎に変化させた。前報では捕集部を30 に設定した際に、測定値が10%以上高くなることを報告したが¹⁾、今回は20 での結果を含めて図11に示した。また、設定温度と平均気温及びSPM濃度に対するPM2.5fの割合(PM2.5f/SPM)を表3に示した。

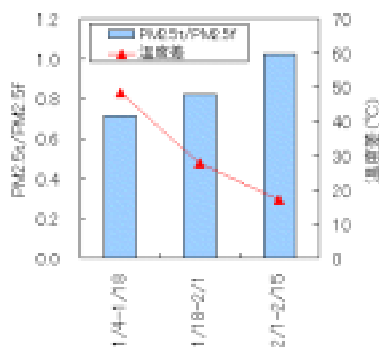


図11 TEOM捕集部温度変更による測定値の変化

(温度差 = TEOM捕集部温度 - 平均気温)

表3において、1月4日から2月15日の期間では平均気温及びPM2.5f/SPMはほぼ一定であり、同じ条件下でPM2.5t/PM2.5fの比較が可能と考えられた。図11からTEOM捕集部温度を低下させ、TEOM捕集部と外気温の差を小さくするほどPM2.5t/PM2.5fの値は大きくなり、設定温度20 でほぼ1.0

となることが分かった。

表3 TEOMにおける設定温度、気温とPM2.5f/SPM

期間	設定温度	平均気温	PM2.5f
	()	()	/SPM
2001年1月4日～1月18日	50	1.5	0.85
2001年1月18日～2月1日	30	2.4	0.85
2001年2月1日～2月15日	20	2.9	0.83

今回はPM2.5サンプリングによる捕集を1週間単位で行っているが、PM2.5t/PM2.5fの値を0.8～1.2の範囲にするためには、少なくともTEOM捕集部温度を30 まで下げる必要があることが分かった。

4 まとめ

2001年2月1日から2001年9月10日の間、騎西及び鴻巣沿道においてPM2.5の濃度及び主要構成成分の調査を行ったところ、以下の結果を得た。

- 1) 騎西におけるTEOMによるPM2.5濃度とSPM濃度には高い相関が見られ、PM2.5はSPMの約55%を占めていた。
- 2) PM2.5サンプリングによるPM2.5捕集量には騎西と鴻巣沿道の間で高い相関が見られた。主要成分では炭素成分、 SO_4^{2-} 、 NH_4^+ が高い比率を占めた。 Cl^- は4月以降、 NO_3^- は7月以降ほとんど見られなかった。また、鴻巣沿道における CaI 濃度は、騎西より平均約2倍高かった。鴻巣沿道における自動車走行による年平均上乗せ分は約 $8 \mu g/m^3$ であった。
- 3) 2001年の夏期における高濃度は、梅雨の中休みである6月18日から25日及び6月25日から7月2日の週に出現し、光化学反応の促進によるものと考えられる結果が得られた。また、鴻巣沿道では、5月連休及び8月盆休みの、交通量や走行車種構成に変化があると考えられる期間に濃度低下が見られた。
- 4) TEOM測定値は捕集部における半揮発性成分の損失の影響を受けていると考えられるが、PM2.5t/PM2.5f値は11月中旬から3月にかけて0.8以下であった。また、TEOM捕集部における半揮発性成分の損失を抑えるためには、捕集部温度を少なくとも30 まで下げる必要があることが分かった。

文献

- 1) 米持真一，梅沢夏実，松本利恵，武藤洋介 (2001) 騎西・鴻巣地域における秋から初冬期のPM2.5汚染実態，埼玉県環境科学国際センター報，1，100-105.
- 2) 自動車から排出される窒素酸化物の特定地域における総量の削減等に関する特別措置法(平成4年12月1日施行)，環境省.
- 3) 平成12年度大気汚染状況について，環境省.

