

[研究報告]

## 騎西・鴻巣地域における秋から初冬期のPM<sub>2.5</sub>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<sub>2.5</sub>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(以下騎西)及び国道17号沿道の鴻巣天神自動車排出ガス測定局(以下鴻巣沿道)でPM<sub>2.5</sub>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。また、TEOMによるPM<sub>2.5</sub>濃度連続自動測定値について、線吸収法によるSPM濃度及びフィルター捕集されたPM<sub>2.5</sub>濃度との比較検討を行った。

騎西と鴻巣沿道でのPM<sub>2.5</sub>濃度には高い相関が見られた。また、元素状炭素を除く主要構成成分の2地点間の濃度差は少なく、鴻巣沿道では自動車から排出される粒子状物質分が騎西での濃度に上乘せされた形であった。

SPM濃度とTEOMによるPM<sub>2.5</sub>濃度を比較した結果、PM<sub>2.5</sub>がSPMの約6割を占めていた。またTEOMとPM<sub>2.5</sub>サンブラの濃度の比較、およびTEOM捕集部の温度設定変更を行ったところ、TEOMでは加温による半揮発性成分の損失があると考えられる結果が得られた。

キーワード:PM<sub>2.5</sub>、SPM、TEOM、半揮発性成分

### 1 はじめに

現在、我が国の都市部における浮遊粒子状物質(SPM)の環境基準達成率は依然低い現状にあり、これは埼玉県においても例外ではない<sup>1)</sup>。近年、SPMの中でも粒径2.5µm以下の粒子(PM<sub>2.5</sub>)が肺ガンあるいは呼吸器系疾患の原因物質として注目されており、米国では環境基準として追加設定された<sup>2)</sup>。我が国では平成12年9月に環境庁(現環境省)から質量濃度(以下濃度)の測定方法が暫定的に示され<sup>3)</sup>、各研究機関での調査研究<sup>4-7)</sup>も行われているが、報告数は少なく、PM<sub>2.5</sub>の汚染実態はまだ十分には分かっていない。

本研究では、これらの現状を踏まえ、一般環境地域における連続自動測定器TEOM(TEOM1400、米国R&P社製、以下TEOM(Tapered Element Oscillating Microbalance))によるPM<sub>2.5</sub>測定値と線吸収法によるSPM測定値との関係、沿道地域と一般環境地域におけるPM<sub>2.5</sub>濃度及び主要構成成分について検討し、本地域におけるPM<sub>2.5</sub>の汚染実態を明らかにすることにより本県のSPM削減対策に資することを目的とした。

また、PM<sub>2.5</sub>構成成分濃度の変動及びTEOM捕集部設定温度の検討を行うことで測定上の問題点も検討した。

### 2 調査

#### 2.1 調査地点

TEOM1台を環境科学国際センターのエコロジ屋上(地上4m、以下騎西)に、またPM<sub>2.5</sub>サンブラ(PartisolPlus2025、米国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)に設置した。なお鴻巣沿道における24時間交通量は平日約5万3千台、休日約4万7千台である<sup>8)</sup>。

#### 2.2 調査方法

TEOMは、常に振動が与えられている秤量素子の先端に、フィルターカートリッジが取り付けられている。インパクトによって分級(2.5µm、50%カット)された粒子がフィルターカートリッジ上に捕集されることによる振動数の変化から質量を

算出するものであり、フィルター振動法の原理を利用したものである。通常、試料捕集部温度は粒子中の水分の影響を除去するために50 に保たれており、瞬時値の1時間平均値が得られる。

PM2.5サンプラの吸引流量は16.7L/minに保たれ、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(2500QAT-UP、47mm)を使用し、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週間単位で行い、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。

サンブラでは同時に気温、湿度、気圧等の値が測定、保存され、積算流量とともに、RS232Cインターフェースを経て取り出すことができる。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、湿度にて24時間恒量後に秤量し、1週間平均のPM2.5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、水溶性イオン(Na<sup>+</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、K<sup>+</sup>、Mg<sup>2+</sup>、Ca<sup>2+</sup>、Cl<sup>-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>)、有機炭素(OC)、元素状炭素(EC)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ィー(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(MT-5、柳本製作所製)を用い、有機炭素はヘリウム雰囲気下600、元素状炭素は酸素、ヘリウム混合雰囲気下950 での分析値から求めた。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2000年9月14日から2001年1月31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。

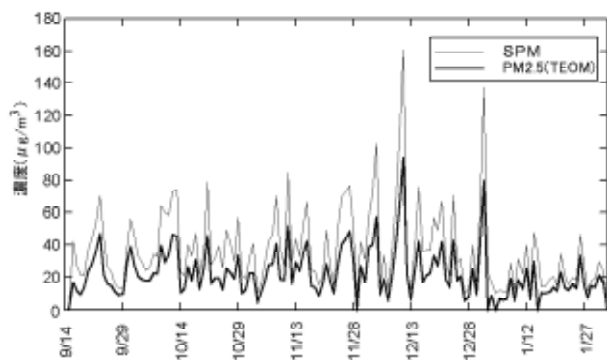


図1 SPM濃度、PM2.5濃度の推移

図1から2つの測定値が同じ挙動を示すことが分かる。期間中の日平均値の最高値は12月10日に出現しており、SPMで161.0 μg/m<sup>3</sup>、PM2.5で94.4 μg/m<sup>3</sup>であった。

図2に調査期間中のSPM濃度及びPM2.5濃度(日平均値)の関係を示す。両測定値は高い相関を示しており、相関係数(r)は0.984であった。また、この期間中のSPM濃度とPM2.5濃度の間には式(1)の関係が得られた。

$$PM2.5(\mu g/m^3) = 0.585 \times SPM(\mu g/m^3) + 0.897 \quad (1)$$

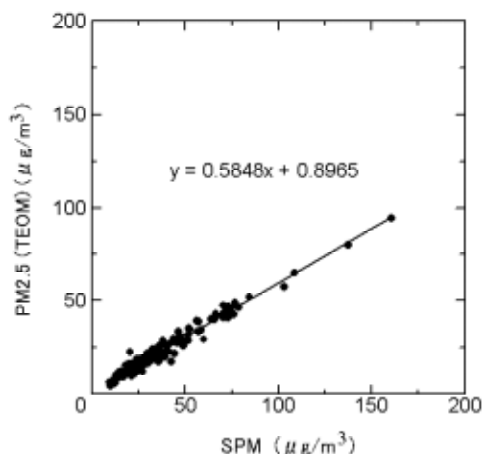


図2 SPM濃度とPM2.5濃度の関係

#### 3.2 騎西・鴻巣沿道間の比較

##### 3.2.1 質量濃度

図3、図4に騎西及び鴻巣沿道における2000年9月14日午前10時から2001年2月1日午前10時までの期間中の1週間毎のPM2.5濃度及び同期間中のSPM濃度の平均値の推移を示す。

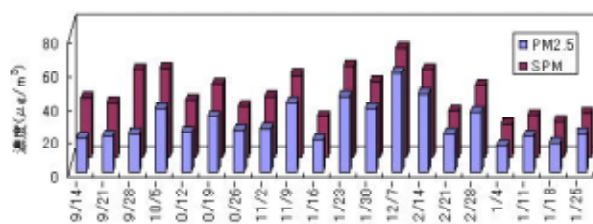


図3 騎西におけるSPM濃度、PM2.5濃度

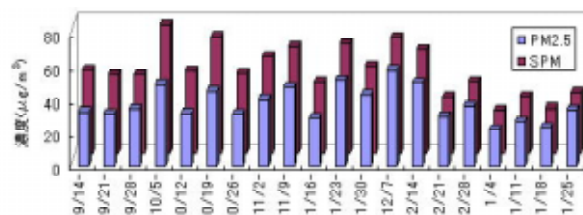


図4 鴻巣沿道におけるSPM濃度、PM2.5濃度

SPM濃度は騎西においては12月7日から12月14日の1週間で最も高く、またPM2.5濃度もこの期間が最も高かったが、鴻巣沿道におけるSPM濃度は10月5日から12日の1週間が最も高かった。しかしながら、PM2.5濃度では騎西と同様に12月7日からの1週間で最も高く、10月5日からの1週間は主に自動車走行に伴う道路からの巻き上げによる粗大粒子の寄与が増加したものと推測される<sup>9)</sup>。また1月に入るとSPM濃度及びPM2.5濃度は低下したが、SPM中に占めるPM2.5の割合は増加する傾向が見られた。また同じサンプリング期間における2地点のPM2.5濃度の関係を図5に示す。

2地点間の濃度には高い相関( $r=0.943$ )が見られた。鴻巣沿道でのPM2.5濃度は騎西におけるPM2.5濃度に自動車走行による汚染分が上乗せされた形であり、回帰式の定数項 $3.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ が自動車走行による平均的な上乗せ分であると考えられる。

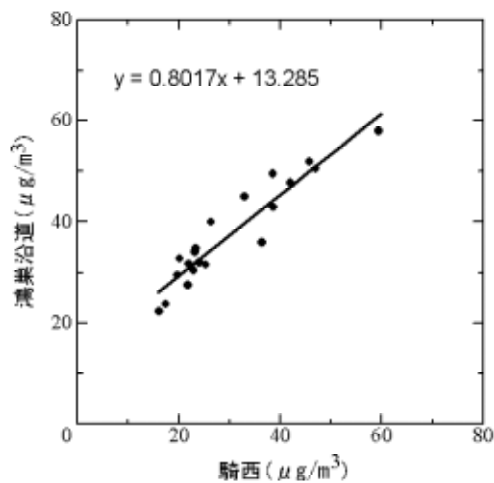


図5 PM2.5濃度の2地点間の関係

### 3.2.2 主要構成成分濃度

フィルター上に捕集された粒子の分析結果を地点別に示したものが図6、図7である。

各成分を比較すると、両地点ともに最も多いのが炭素成分である。特に元素炭素(EC)の濃度が高い比率を占めており、騎西では20%から39%、鴻巣沿道では22%から49%であった。ナトリウムイオン( $\text{Na}^+$ )、カリウムイオン( $\text{K}^+$ )、マグネシウムイオン( $\text{Mg}^{2+}$ )、カルシウムイオン( $\text{Ca}^{2+}$ )は微量であった。

さらに、2地点とも塩化物イオン( $\text{Cl}^-$ )、硝酸イオン( $\text{NO}_3^-$ )のアニオンと、これに対応するカチオンであるアンモニウムイオン( $\text{NH}_4^+$ )及び有機炭素(OC)が、期間中PM2.5濃度が最大であった12月7日からの1週間に最大値を示し、主にこれら4成分の増加が、PM2.5濃度を押し上げていたといえる。次に各成分毎の地点間の関係を図8に示す。 $\text{K}^+$ 、 $\text{Cl}^-$ は騎西の方がやや濃度が高い傾向が見られたが、 $\text{Ca}^{2+}$ 、 $\text{Mg}^{2+}$ 、 $\text{NO}_3^-$ は鴻巣沿道の方がやや高く、特にECは鴻巣沿道が騎西に比べて平均60%程度高濃度であった。

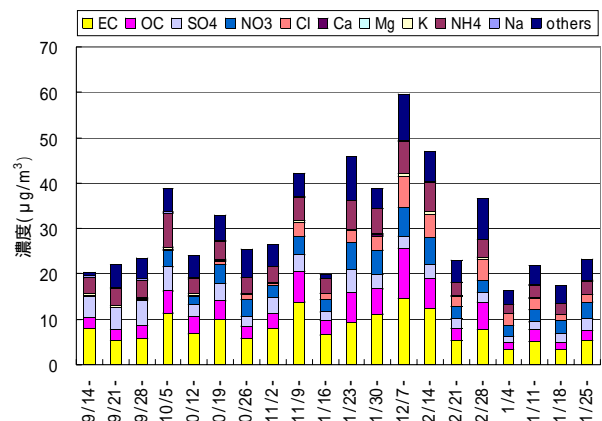


図6 騎西におけるPM2.5構成成分濃度

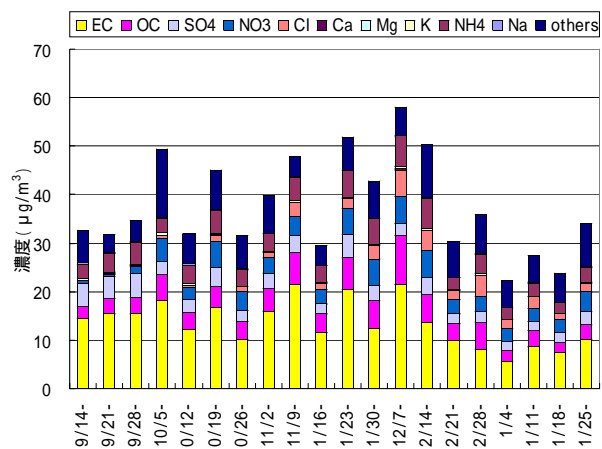


図7 鴻巣沿道におけるPM2.5構成成分濃度

大気中に浮遊する粒子状物質濃度は、気温、湿度、風向、風速また大気安定度等の気象的影響を大きく受けるため、異なる地点における測定結果の比較にはこれらを十分考慮する必要があるが、これらの2地点は約4.5km離れた場所に位置し、地形的にも気象条件の差はほとんどないと考えられるため、これら2地点間の濃度差は発生源の影響を直接反映していると考えられる。

国道17号線は県内を南北に貫く幹線道路である。平日24時間交通量に占める貨物自動車の割合は約42%<sup>9)</sup>で、首都圏から北関東、上信越地方への物流において重要な存在である。今回顕著な差が見られたECについては、国道17号線を走行する自動車、特に貨物等を中心とするディーゼル自動車からの排ガスによる影響を強く受けているものと思われる。また、他の成分に大きな濃度差が見られないことから、鴻巣沿道においては、騎西・鴻巣地域における地域的な汚染特性に自動車からの排出ガス起源と考えられるEC分が上乗せされた形であるといえる。

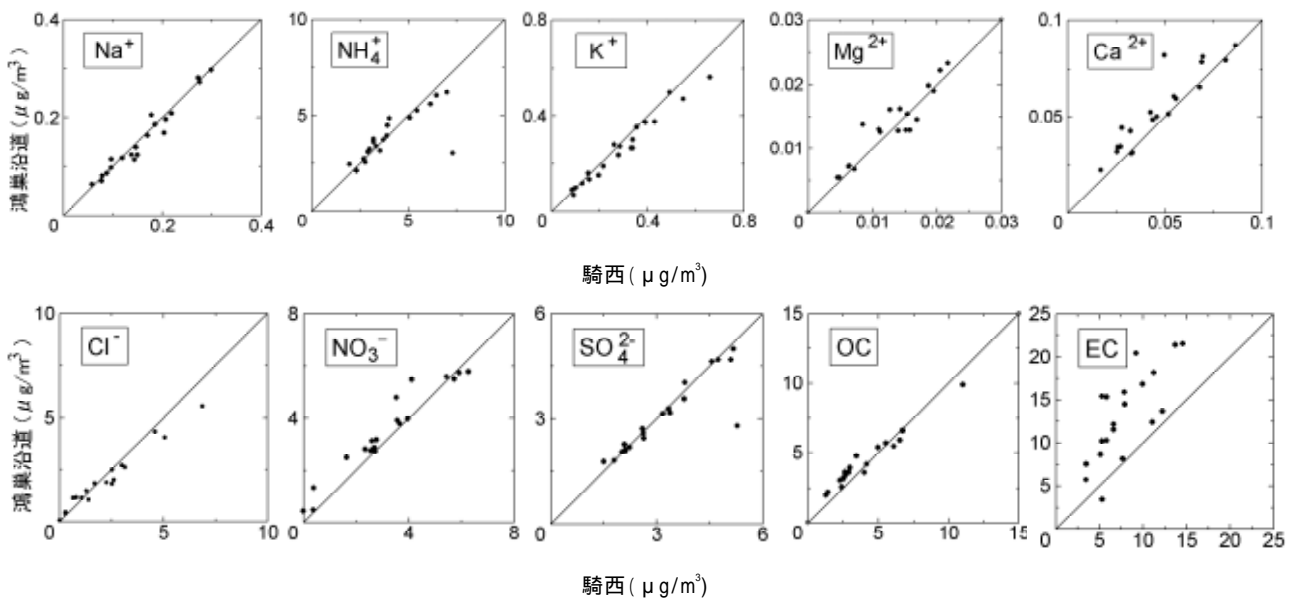


図8 各成分濃度の地点間の比較

### 3.2.3 Cl<sup>-</sup>とNO<sub>3</sub><sup>-</sup>の濃度変動の特性

図9、図10に期間中の週平均気温及びPM2.5に占めるCl<sup>-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>の濃度比の変化を示す。騎西、鴻巣沿道ともにCl<sup>-</sup>については気温の低下とともに濃度比が増加する傾向が見られ、またNO<sub>3</sub><sup>-</sup>については平均気温約20℃以上の10月5日までの週にはほとんど存在しないが、それ以降の期間では、濃度比はほぼ一定であった。

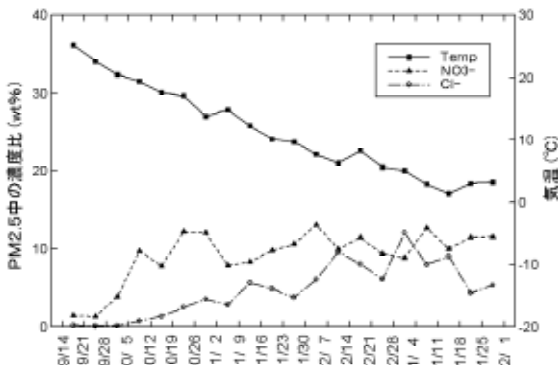


図9 測定期間中の気温と濃度比(騎西)

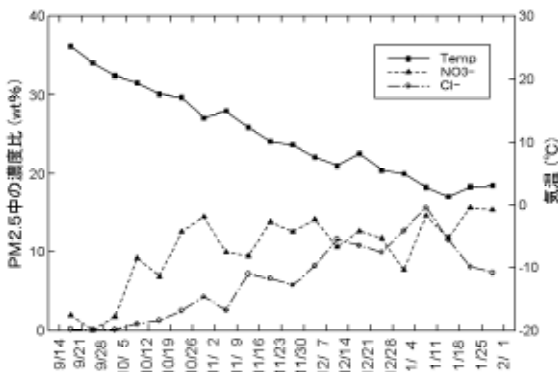
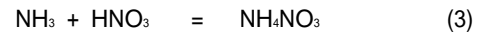


図10 測定期間中の気温と濃度比(鴻巣沿道)

微小粒子中に2次粒子として含まれるCl<sup>-</sup>は主に塩化水素(HCl)として大気中に排出され、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>はそのほとんどが二酸化窒素(NO<sub>2</sub>)の酸化反応により生成するが、これらと大気中のアンモニアガス(NH<sub>3</sub>)との中和反応によって式(2)、式(3)に示すように、塩化アンモニウム(NH<sub>4</sub>Cl)、硝酸アンモニウム(NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>)が生成する。



NH<sub>4</sub>Cl、NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>は解離圧が高く、粒子とガスが平衡状態にあり、気温や湿度の影響で粒子としての存在割合が変化することが知られている<sup>10)</sup>。このことは夜間などの比較的気温が低い時間帯にフィルター上に捕集された粒子が、昼間の気温の上昇により再揮散する可能性も示している<sup>11)</sup>。

これに対して冬期は低温であるために、これらの半揮発性物質は粒子の状態が存在しやすく、さらにフィルター上に捕集後もサンプリング期間中十分に保存されるものと考えられる。

### 3.3 測定法の比較

騎西においては、TEOM及びPM2.5サンプラの双方でPM2.5濃度の測定を行った。図11に1週間毎のPM2.5測定値及び測定値の差を示す。

図11で「フィルター捕集」はPM2.5サンプラによりフィルター上に捕集された粒子状物質の濃度、「TEOM」は1時間値の1週間平均値である。両測定値は9月28日からの週末にはほぼ同じ値を得ているが、その後徐々に差が増加している。これまでの検討からも、半揮発性物質の粒子化及び再揮散に

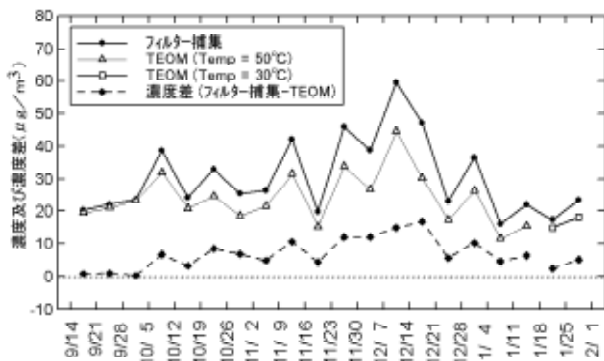


図11 騎西における測定値の比較

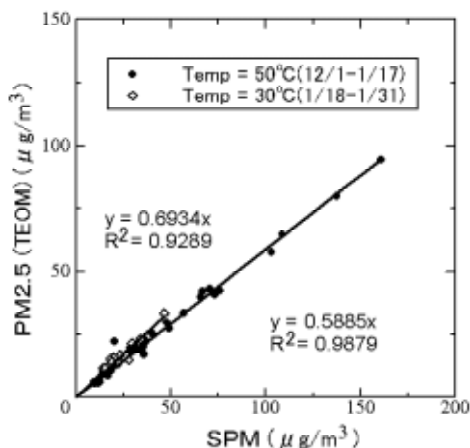


図12 TEOM測定値の捕集部温度依存性

対する温度の影響が示唆されたが、本現象についても同様の説明ができると考えられる。TEOMは水分の影響を抑えるために、導入部以降を50 に加温しているのに対し、PM2.5 サンプラでは捕集部の温度は外気温+5 以内に保たれている。

図9から平均気温が約20 以上である9月28日からの週末では、これら半揮発性物質の捕集量がほとんどないことから、この温度の影響はTEOMでもPM2.5 サンプラでも同様に生じていると思われる。しかしながら、11月以降は平均気温が10 以下と低く、PM2.5 サンプラ内のフィルター上へは粒子として存在する半揮発性物質が捕集され、かつ十分に保存されるのに対し、TEOM内部では9月と同様に高温によるガス化及び再揮散が生じている。この温度差によって濃度に差が生じてきたと考えられる。

このTEOM捕集部の温度の影響を確認するために、1月18日から1月31日の2週間、TEOM捕集部の温度を30 に下げて測定を行い、通常の50 である測定値との比較を行った。TEOM捕集部の温度が50 である通常の測定条件での測定値は、外気温との温度差を考慮して12月1日～1月17日のものを用いた。比較に際してはいずれも期間中同じ条件で測定されているSPM濃度との関係で評価した。この結果を図12に示す。図12から、導入部以降の温度を30 に設定した時の測定値とSPM濃度の比は、50 における測定値との比

に比べて10%以上高い事が分かった。このことからTEOM捕集部における半揮発性物質の損失が示唆された。

#### 4 まとめ

2000年9月14日から2001年1月31日の間、騎西及び鴻巣沿道においてPM2.5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濃度の連続自動測定値から、秋から初冬期ではSPMの約6割をPM2.5が占めていることが分かった。
- 2) PM2.5 サンプラによる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。また、主要構成成分は元素状炭素を除けばほぼ同じ濃度であったが、自動車走行の影響の大きい鴻巣沿道における元素状炭素濃度は騎西より約6割高かった。
- 3) 9月と10月以降の期間とではPM2.5中に占める  $Cl^-$ 、 $NO_3^-$  の比率に顕著な差が見られ、半揮発性成分の粒子化及び再揮散への温度の影響が示唆された。
- 4) 騎西におけるTEOMによる測定値とPM2.5 サンプラによる捕集量の比較を行ったところ、気温が低くなるにつれ、TEOMの測定値の方がやや低くなる傾向が見られた。またTEOMの捕集部温度設定を30 に変更したところ、測定値が10%以上増加したことから、TEOM捕集部における半揮発性物質の損失が示唆された。

#### 文 献

- 1) 平成12年度埼玉県環境白書 (2001), 埼玉県, 34.
- 2) Federal Register: Vol.62, No.138, Part , EPA, 40 DFE Part 50, National Ambient Air Quality Standards for Particulate Matter, Final Rule, July 18, 1997.
- 3) 大気中微小粒子状物質(PM2.5)質量濃度測定方法暫定マニュアル, 環境庁大気保全局(現環境省), 平成12年9月.
- 4) 本間克典 (1999) 大気環境中の微小粒子"PM2.5"の計測について, 環境と測定技術, **26**(8), 74-83.
- 5) 名古屋俊士, 長谷川虎信, 白井忠 (1999) TEOMの基本的特性と都市大気中のPM2.5の挙動, 第40回大気環境学会年会講演要旨集, 323.
- 6) 小坂浩, 小山太一郎, 吉村陽, 玉置元則 (1999) PM2.5測定法の検討, 第40回大気環境学会年会講演要旨集, 553.
- 7) 坂本和彦 (1999) 大気中微小粒子の測定と問題点, 環境と測定技術, **26**(12), 75-83.
- 8) 平成11年度道路交通センサス, 建設省道路局 (現国土交通省), 国道17号北本市宮内と鴻巣市箕田における平日24時間交通量から推計.
- 9) 小川和雄 (1998) 自動車排ガス中PM削減対策による沿道大気中SPM濃度の低減, 埼玉県公害センター研究報告, **25**, 1-6.

10) 指宿堯嗣 (2000) 浮遊粒子状物質による環境問題と今後の研究開発, 資源と環境, **9**, 1-11.

11) 押尾敏夫, 井上智博 (2000) SPMの保存性調査, 第41回大気環境学会年会講演要旨集, 236.

## **Research on Regional Pollution by PM2.5 in Kisai-Konosu Area in Autumn - Early Winter**

**Shin-ichi YONEMOCHI, Natsumi UMEZAWA, Rie MATSUMOTO and Yosuke MUTO**

### **Abstract**

In order to elucidate the regional pollution by PM2.5 in Kisai-Konosu area, mass concentration and major chemical contents were monitored by using a TEOM(Tapered Element Oscillating Microbalance) and PM2.5 samplers at the Center for Environmental Science in Saitama (CESS) and the Konosu-Tenjin air quality monitoring point of roadside area. Mass concentration at two points showed a good correlation. Chemical contents of PM2.5 on each same sampling days, except for elemental carbon (EC), which is exhausted especially from diesel trucks, were almost same in species and their concentrations. Mass concentration by the TEOM accounted for about 60% of SPM measured by the absorption method of  $\lambda$  - ray. The loss of semivolatile contents under high temperature condition was suggested by comparing the results of the two PM2.5 measuring methods and changing the preset temperature of the TEOM.

**Key words:** PM2.5, SPM, TEOM, Semivolatile contents