

名古屋市における微小粒子状物質 (PM_{2.5}) 調査結果

山 神 真 紀 子, 池 盛 文 数

平 生 進 吾, 中 島 寛 則

Measurement of Fine Particulate Matter (PM_{2.5}) in Nagoya

Makiko Yamagami, Fumikazu Ikemori

Shingo Hirao, Hironori Nakashima

名古屋市内の1地点において、米国の標準測定法 (FRM) による微小粒子状物質 (PM_{2.5}) の測定を、2003年度から2008年度にかけて行った。その結果、年平均値は22~26 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ の間で推移し、また98%値は50~64 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ の間で推移しており、2009年9月に告示された環境基準を超える濃度レベルであることがわかった。また、2006年度に採取したPM_{2.5}の成分分析結果では、硫酸イオンが最も高濃度となり、全体の24%を占めた。次いで高濃度となったのは有機炭素で、全体の19%を占めた。また、4~10月は光化学反応による二次生成によって、11~3月は大気の安定化によって高濃度となることが、成分分析の結果から示唆された。PMF法により発生源寄与率を推定した結果、二次生成粒子が50%以上を占め、ディーゼル排気粒子の寄与は18%であった。また、SPM濃度から推定した一般環境中における市内のPM_{2.5}濃度は15~23 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ となり、ほとんどの地点で環境基準を超過する可能性が示唆された。

はじめに

2009年9月9日に環境省より微小粒子状物質 (PM_{2.5}) に関する環境基準が告示され、1年平均値が15 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下であり、かつ、1日平均値が35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下であることとなった。従来、我が国では、粒子状物質の環境基準としては、粒径10 μm 以下 (カットオフ100%) の粒子である浮遊粒子状物質 (SPM) の環境基準が設定されていた。しかし、米国において、より小さい粒径2.5 μm 以下 (カットオフ50%) の粒子であるPM_{2.5}の濃度変動と日別死亡率の変動とが関連すること等が報告され¹⁾、1997年7月にPM_{2.5}に関する環境基準が定められた。また、2006年10月に環境基準の一部が改訂され、さらに厳しい基準となっている。一方、国内では、環境省によってPM_{2.5}に関する疫学調査が実施された²⁾。その結果、米国と同様にPM_{2.5}の濃度変動と日別死亡率との関連が認められ、また、喘息児においては、PM_{2.5}濃度と肺機能の低下に関連が認められている。

名古屋市においては、近年SPM濃度は低下傾向にあ

るものの、年平均値は35~40 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ という高濃度で推移している³⁾という背景があり、2000年度から環境科学研究所において調査研究としてPM_{2.5}の測定法等の検討を開始し、2003年度から大気中微小粒子状物質 (PM_{2.5})測定方法暫定マニュアル (以下、暫定マニュアル)^{4,5)}に従い、米国の標準測定法 (Federal Reference Method, FRM) によるフィルター採取を、市内1地点 (名古屋市南区) で継続的に行ってきた。FRMサンプラーは成分分析の試料採取用サンプラーとしても使用可能であることから、成分分析についても行っている。

そこで、暫定マニュアルに沿って行った2003~2008年度までのPM_{2.5}の測定結果と、2006年度の成分測定結果、それらのデータを用いた発生源寄与率の推定等を行ったので報告する。

方 法

1. 調査地点

調査地点は、名古屋市の南部に位置し、東西に延びる国道23号の北側約110mにある名古屋市環境科学研

究所（南区豊田）の4階建て屋上（地上約15m）で行った（Fig.1）。



Fig.1 測定地点

2. 測定方法

2.1 PM_{2.5} 濃度

PM_{2.5}の採取にはR&P社製FRM Model 2000を2台用いた。流速は16.7 L/minである。採取時間は24±1時間が原則となっており、今回の測定では、9:30から翌日の9:00までの23.5時間採取した。採取は原則として日曜日9:30から金曜日9:00までの週5検体とした。採取後直ちに回収するため、採取終了日が休日や祝日となる場合は採取しなかった。1台にはPTFE製フィルターを、もう1台には石英フィルターをセットした。PM_{2.5}の濃度測定にはPTFE製フィルターが基本となっており、今回の測定では、PALL社製PALLFLEX TK15-G3Mを用いた。採取後のサンプルは、恒温恒湿下で24時間放置した後、秤量し、その後-25℃で保存した。

PM_{2.5}の測定方法については、「中央環境審議会大気

環境部会微小粒子状物質測定法専門委員会報告」(以下、中環審報告書)で変更となった部分については、暫定マニュアルの測定法で行っているので留意されたい。

2.2 成分分析

炭素成分の分析は、採取後ただちに冷凍保存した石英フィルター（PALL社製；PALLFLEX 2500QAT-UP）を用いて行った。採取したサンプルを、熱分離・光学補正法のSunset社製Carbon Analyzerを用いてIMPROVEプロトコルにより測定した。光学補正は反射光強度によって行った。なお、暫定マニュアル（改訂版）⁵⁾では、採取前に石英繊維フィルターの加熱を行うことが記されている。しかし、石英繊維フィルターは加熱前処理をすることによって活性化し、恒量が難しく有機物の吸着が著しいことがわかっている⁶⁾。一方、加熱前処理をしなくてもブランクろ紙の有機炭素成分のばらつきが非常に小さい⁷⁾ことから、今回の採取には加熱前処理を行わなかった。

また、イオン成分の分析は、PTFEフィルターを超純水で超音波抽出および振とうし、フィルターでろ過して、イオンクロマトグラフ法により行った。

結果と考察

1. PM_{2.5} 濃度の変動

2003年度から2008年度までのPM_{2.5}濃度年平均値をFig.2に示す。年平均値は2003年度に26 μg/m³を記録してから、近年低下傾向にあるものの、2008年度には22 μg/m³となっており、環境基準である年平均値15 μg/m³と比べ、高濃度で推移していた。

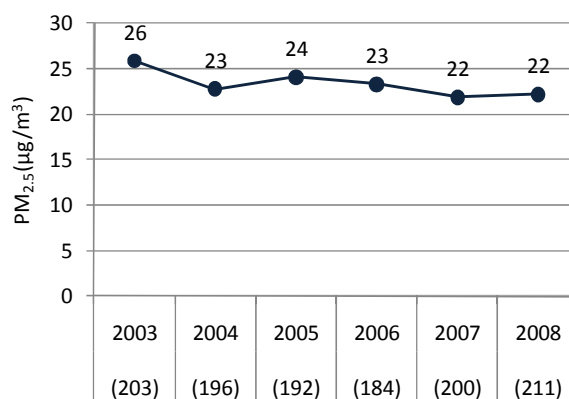


Fig.2 PM_{2.5} 年平均値の推移

括弧内の数値はPM_{2.5}年間検体数を示す。

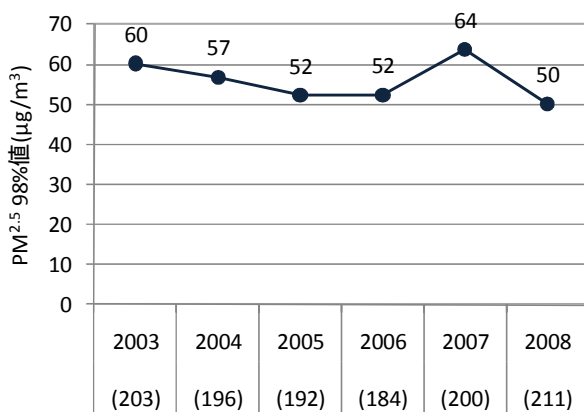


Fig.3 PM_{2.5} 98%値の推移
括弧内の数値は PM_{2.5} 年間検体数を示す。

また、2003年度から2008年度までの PM_{2.5} 98%値を Fig.3 に示す。98%値は 50~64 µg/m³ で推移しており、環境基準である日平均値 35 µg/m³ と比べ、高濃度で推移していた。

また、2003年度から2008年度までの PM_{2.5} 濃度の月平均値および月平均値の平均を Fig.4 に示す。月平均値は3月から6月にかけて高く、11、12月にも高濃度となっていた。しかし、月平均値の変動は年度によって異なり、明確な季節変動は示していなかった。

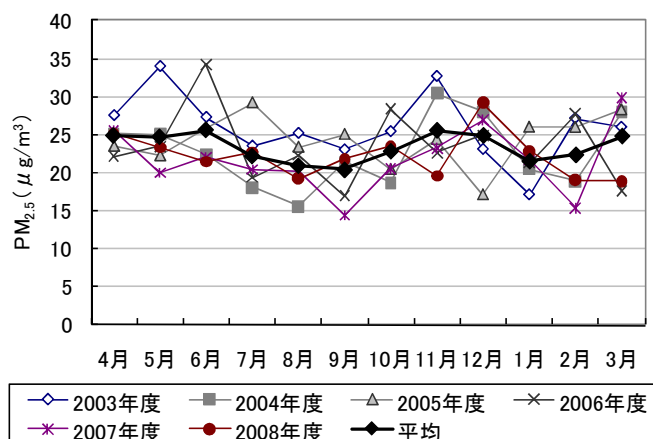


Fig.4 2003~2008年度における PM_{2.5} 濃度の月平均値の変動

2. 成分濃度

2006年度の1年間にサンプリングした184検体を成分分析した結果を、環境省が行った2004~2008年度の平均値の成分組成比⁸⁾とともに Fig.5 に示す。2006年度の名古屋市の平均値は、硫酸イオン (SO₄²⁻) が占める割合が最も高く 24%であった。この値は都市部（一般局；n=10）の値とほぼ同じであった。

次いで高いのは有機炭素（OC）の19%であった。

この値は、環境省調査のどの平均値よりも高く、地点別の最高値（20%）に近い値となっており、OC濃度自体も高濃度となっていることから、地域的な発生源の影響でOCの占める割合、OC濃度ともに高まっている可能性がある。

OCは有機エアロゾルのうちの炭素を示すので、有機エアロゾルの総量としては酸素や水素を含む有機化合物（OM）として評価する必要がある。マスキロージャーモデルとして、OM/OC比は1.4が使用されてきた²⁾が、最近の研究では1.6~2.1が提唱されている⁹⁾。そこで、最新の値の最低値である1.6を用いて名古屋市におけるOMの組成比を計算すると31%となり、PM_{2.5}に占める割合は大きい。

また、元素状炭素（EC）は13%で、一般環境としては組成比が高い。これは、観測した地点が国道23号の北側約110mと比較的近いことが影響していると推定される¹⁰⁾。

アンモニウムイオン（NH₄⁺）は10%と若干低めであったが、硝酸イオン（NO₃⁻）が都市部としては低いことが影響していると推定される。

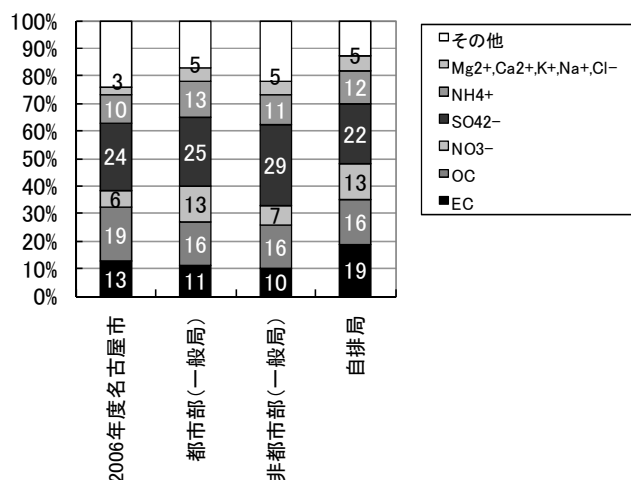


Fig.5 名古屋市での PM_{2.5} 成分組成（2006 年度）と国内データ（2004-2008 年度）の比較⁸⁾

これらの成分濃度の年平均値を Fig.6 に示す。

2006年度のEC濃度の年平均値は2.9 µg/m³であったが、2006年の米国の主要都市における値¹¹⁾と比較すると、米国のEC濃度は0.4~1.5 µg/m³となっており、名古屋市のECの値は米国の高濃度地点の約2倍となっている。また、名古屋市のOC濃度の年平均値は4.5 µg/m³であったが、米国のOC濃度2~5 µg/m³と同程度であった。また、名古屋市のSO₄²⁻濃度の年平均値は5.7 µg/m³であったが、米国でSO₄²⁻濃度が高

濃度である東部の $2.6 \sim 4.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ よりも高濃度となっている。

また、 $\text{PM}_{2.5}$ 濃度が $35 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えた日を高濃度日とした場合、2006 年度に測定した 184 日中に高濃度日は 33 日（18%）あった。高濃度になった時期を 4～10 月と 11～3 月に分け、時期別の高濃度時の成分濃度も Fig.6 に併せて示す。

4～10 月の高濃度日で濃度が高くなった成分は SO_4^{2-} 濃度および NH_4^+ 濃度で、この時期に光化学反応が活発になるため、二次生成により高濃度になったことが推定される。一方、11～3 月の高濃度日は、特に偏りもなくどの成分も高濃度になっており、大気安定化されることにより、汚染物質が拡散しにくくなって高濃度となっていることが推定される。

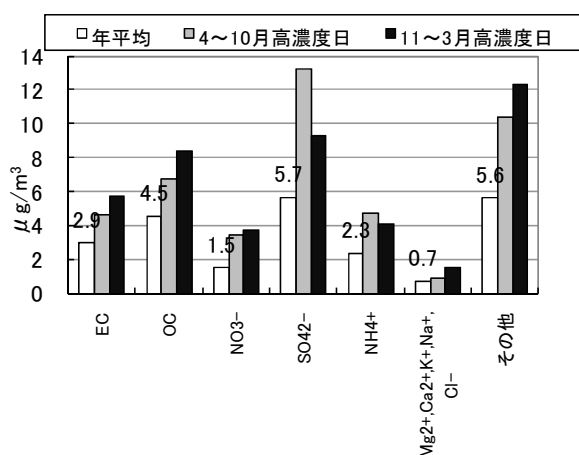


Fig.6 2006 年度における $\text{PM}_{2.5}$ の成分濃度と $35 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上の高濃度日における成分の特徴

3. Positive Matrix Factorization (PMF 法) による発生源寄与率の推定

2006 年度の全データ ($n=184$) を用いて、Positive Matrix Factorization (以下、PMF 法) により発生源寄与率の推定を行った¹²⁾。PMF 法はリセプターモデルのひとつで、1990 年代にフィンランドの Paatero 博士により開発され、2005 年にアメリカ合衆国環境保護庁 (EPA) により無償プログラムが公開された (<http://www.epa.gov/heasd/products/pmf/pmf.html>)。PMF 法は他のリセプターモデルと同様に、多成分の濃度データを必要とし、また、同一地点における時系列データが必要である。発生源プロファイルが必要としないため、近年国内においても発生源推定に使用されている^{13,14)}。

解析の結果、 $\text{PM}_{2.5}$ の発生源数は 7 と推定され、成分組成から、それらの発生源は、硫酸 rich 二次生成

粒子、硝酸 rich 二次生成粒子、ディーゼル排気粒子、非燃焼系有機炭素、気温低下に起因する粒子、廃棄物燃焼、海塩粒子と推定された。なお、気温低下に起因する粒子としたファクターのプロファイルには、硝酸イオン、塩化物イオン、低温で検出される OC1 が含まれ、冬季に寄与濃度が上昇する傾向が見られた。以上のことから、このファクターは気温が低下することによって粒子化するものと推定し、気温低下に起因する粒子とした。これらの発生源寄与率を Fig.7 に示す。最も寄与率が高い発生源は硫酸 rich 二次生成粒子で、平均 39%を占めた。次いで、ディーゼル排気粒子の 18%、硝酸 rich 二次生成粒子の 17%、非燃焼系有機炭素 10%、気温低下に起因する粒子 9%となった。二次生成粒子の寄与率が高く、合計で 50%以上を占めた。

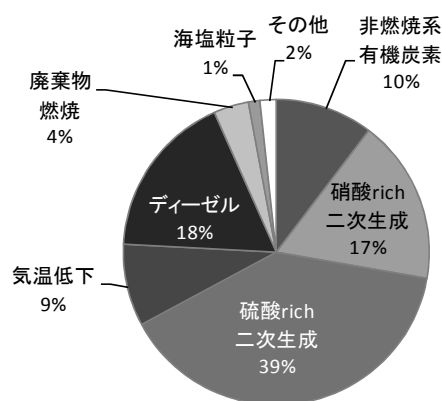


Fig.7 2006 年度における $\text{PM}_{2.5}$ 発生源寄与率

4. SPM 濃度から推定した $\text{PM}_{2.5}$ 濃度

環境省が行った $\text{PM}_{2.5}$ の疫学調査において、SPM 濃度から $\text{PM}_{2.5}$ 濃度を換算するため、 $\text{PM}_{2.5}/\text{SPM}$ 比を 0.7 として $\text{PM}_{2.5}$ 濃度を推計している¹⁵⁾。ここで、 $\text{PM}_{2.5}/\text{SPM}$ 比は概ね 0.6~0.8 の間にあるとされている。名古屋市内で過去に行ったアンダーセンサンプラーを用いて採取した微小粒子（粒径 $2.1 \mu\text{m}$ 以下）の測定では、微小粒子/SPM 比は、市内 3 地点で 0.7~0.8 であった¹⁶⁾。微小粒子（粒径 $2.1 \mu\text{m}$ 以下）濃度と FRM を用いた $\text{PM}_{2.5}$ 濃度の比はほぼ 1 : 1 であることから¹⁷⁾、名古屋市内も環境省調査と同様の範囲内の $\text{PM}_{2.5}/\text{SPM}$ 比であると仮定して $\text{PM}_{2.5}$ 濃度を推計した。2008 年度の一般環境局の SPM 濃度から $\text{PM}_{2.5}$ 濃度を推計した結果を Fig.8 に示す。

$\text{PM}_{2.5}/\text{SPM}$ 比を 0.7 とした場合には、推計した $\text{PM}_{2.5}$ 濃度の年平均値は $15 \sim 23 \mu\text{g}/\text{m}^3$ となり、市内 15 局中 14 局で環境基準の 1 年平均値である $15 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を超え

ることが予測された。また、 $PM_{2.5}/SPM$ 比を最も低い 0.6 とした場合でも、15 局中 11 局で $15 \mu g/m^3$ を超えることが予測された。

$PM_{2.5}$ はその粒径が小さいことから、拡散や重力沈降の影響を受けにくく、大気中に数日から数週間存在する。そのため比較的広い範囲で均一に存在するとされており、地点間の濃度差が小さいと考えられる。

以上の特徴から、発生源周辺だけでなく広域的に影響が出ることが予想されるため、早急な実態把握調査と、発生源対策につながる調査が必要である。

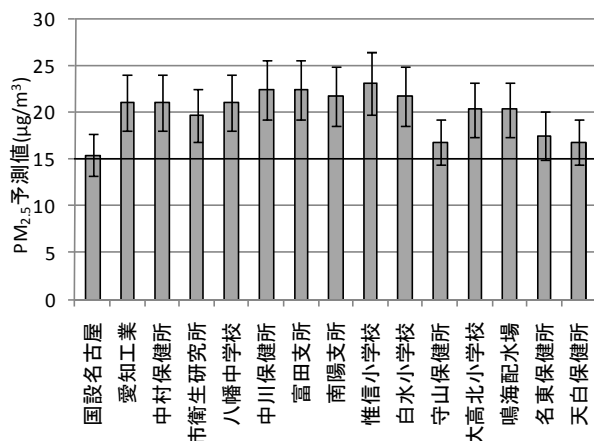


Fig.8 2008 年度 SPM 年平均値から推計した $PM_{2.5}$ 濃度年平均値 (係数 0.7 ± 0.1)

文 献

- 1) Dockery, D.W., Pope, C.A., Xu, X.P., Spengler, J.D., Ware, J.H., Fay, M.E., Ferris, E.G : An association between air-pollution and mortality in 6 United-States cities, New England Journal of Medicine, 329, 1753-1759 (1993)
- 2) 環境省：微小粒子状物質曝露影響調査報告書 (2007)
- 3) 名古屋市環境局：平成 19 年度大気環境調査報告書 (2008)
- 4) 環境庁：大気中微小粒子状物質($PM_{2.5}$)測定方法暫定マニュアル (2000)
- 5) 環境省：大気中微小粒子状物質($PM_{2.5}$)測定方法暫定マニュアル (改訂版) (2007)
- 6) 浮遊粒子状物質対策検討会：浮遊粒子状物質汚染予測マニュアル, 初版, 東洋館出版社, p.357(1997)
- 7) 長谷川就一, 若松伸司, 田邊潔：同一大気試料を用いた熱分離法および熱分離・光学補正法による粒子状炭素成分分析の比較, 大気環境学会誌,

- 40(5), 181-192 (2005)
- 8) 環境省：中央環境審議会大気環境部会微小粒子状物質環境基準専門委員会報告 (案) (2009)
- 9) 竹川暢之：有機エアロゾル総量の分析法, エアロゾル研究, 23(3), 157-162 (2008)
- 10) 山神真紀子, 鈴木秀男, 長谷川就一, 中島寛則, 平生進吾, 若松伸司： $PM_{2.5}$ 中元素状炭素の自動車排出係数の推計と一般環境における大気中濃度の変動, 大気環境学会誌, 43(5), 273-283 (2008)
- 11) 環境省：中央環境審議会大気環境部会微小粒子状物質環境基準専門委員会 (第 4 回) 資料 2-1
- 12) 山神真紀子, 中島寛則：名古屋市における $PM_{2.5}$ の有機炭素と元素状炭素の濃度変動, 第 48 回大気環境学会年会講演要旨集, 383 (2007)
- 13) 岩本真二, 松枝隆彦, 大野健治, 飛石和夫, 安武大輔, 桜木建治：大気中ダイオキシン類の発生源寄与推定方法の検討 - Positive Matrix Factorization 法及び Chemical Mass Balance 法の適用 -, 環境化学, 16(3), 403-413 (2006)
- 14) 萩野浩之, 高田智至, 國見均, 坂本和彦：PMF 法を用いた有機エアロゾル質量スペクトルの事例解析, 大気環境学会誌, 43(3), 161-172 (2008)
- 15) 環境省：中央環境審議会大気環境部会微小粒子状物質環境基準専門委員会 (第 5 回) 資料 2-3
- 16) 山神真紀子, 酒井哲男, 北瀬勝, 大場和生：名古屋市における大気中微小粒子濃度について, 名古屋市環境科学研究所報, 30, 23 (2000)
- 17) 山神真紀子：第 26 回酸性雨講演会・情報交換会講演要旨集 (2008)

このページ削除