

# 高知県におけるPM<sub>2.5</sub>成分分析結果の特徴について (2013年度から2017年度まで)

尾崎吉純

## The characteristics of the component analysis of PM<sub>2.5</sub> in Kochi Prefecture (From 2013 to 2017)

Yoshizumi Ozaki

【要旨】 2013年度から2017年度までの微小粒子状物質成分分析の結果についてとりまとめた。2013年度は、微小粒子状物質濃度の各季節の平均値は15  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超過したが、2016年度及び2017年度では15  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 未満であった。

微小粒子状物質を構成している成分で濃度の高いものは、四季をとおして硫酸イオン及びアンモニウムイオン、有機炭素、元素状炭素であった。微小粒子状物質濃度と強い相関関係を示した成分は、硫酸イオン及びアンモニウムイオン、亜鉛、ヒ素、鉛、有機炭素、元素状炭素であった。

硫酸イオン濃度は、四季の中では夏季に最も濃度が高かったが、季節によらず10  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超える大幅な濃度の上昇がみられた。鉛及びヒ素濃度は冬季に最も高く、これらの成分が高濃度となった要因の一つとして、大陸起源の石炭燃焼粒子の影響が考えられる。

2013年度及び2015年度に微小粒子状物質濃度が高濃度となった事例について、その要因を検討したところ、越境汚染の影響及び光化学オキシダント濃度の上昇による影響が考えられた。

Key words：微小粒子状物質 PM<sub>2.5</sub> 成分分析 発生源 越境汚染 光化学オキシダント

### 1. はじめに

微小粒子状物質（以下「PM<sub>2.5</sub>」という。）とは、平成21年9月9日付け環境省告示33号において、「大気中に浮遊する粒子状物質であって、粒径が2.5  $\mu\text{m}$ の粒子を50%の割合で分離できる分粒装置を用いて、より粒径の大きい粒子を除去した後採取される粒子をいう」と規定されている。また、告示において、PM<sub>2.5</sub>の環境基準は「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」とされており、その達成期間は、「PM<sub>2.5</sub>による大気汚染に係る環境基準は、維持され又は早期達成に努めるものとする」とされている。

PM<sub>2.5</sub>の健康への影響として、呼吸器系疾患及び循環器系疾患による入院及び受診等とPM<sub>2.5</sub>濃度の日平均値との間に有意な関係が示された疫学研究結果があるが、PM<sub>2.5</sub>の暴露濃度と健康影響との間には一貫した関係性は見出されていない<sup>1)</sup>。

大気粒子には様々な成因があり、発生源から直接排出される粒子である一次粒子生成と、環境大気中で生成される粒子である二次粒子生成に大別される<sup>2)</sup>。PM<sub>2.5</sub>を含む粒子状物質の直接の発生源は様々であるが、人為起源及び自然起源のものに区別される。人為起源の代表例として、工場及び事業場等の固定発生源、自動車及び船舶等の移動発生源がある。

環境省の「大気中微小粒子状物質（PM<sub>2.5</sub>）成分測定マニュアル」では、イオン成分、無機元素、炭素成分、多環芳香族炭化水素、水溶性有機炭素、レボグルコサン、ガス成分の測定について記載されている。

イオン成分は無機成分を構成しており、無機成分の代表例として硫酸塩及び硝酸塩が挙げられる。無機元素は、特定の発生源の指標成分として用いられている。一例を挙げると、Alは土壌粒子、Naは海塩粒子、Mnは鉄鋼工場、Kは廃棄物焼却及

び植物燃焼，Vは石油燃焼の指標元素として知られており，Znは潤滑油の添加物に由来するとされている<sup>2)</sup>。また，炭素成分として有機炭素（以下「OC」という。）及び元素状炭素（以下「EC」という。）の分析が行われている。

本県では，2018年度現在，管轄外の高知市を含めた県下6箇所の大気常時監視局において，PM<sub>2.5</sub>質量濃度の自動測定を行っている。また，PM<sub>2.5</sub>成分分析については，今回の調査地点であるいの町で2012年度から実施している。

本報では，2013年度から2017年度までの本県でのPM<sub>2.5</sub>成分分析の結果をとりまとめ，成分濃度の特徴やPM<sub>2.5</sub>が高濃度となった要因について検討を行った。

## 2. 調査地点及び調査方法

PM<sub>2.5</sub>試料のサンプリングは，高知県中央部から西に9 kmにある吾川郡いの町に設置している

大気常時監視測定局（以下「伊野合同庁舎測定局」という。）で行った。伊野合同庁舎測定局では，1985年7月から大気の常時監視を行っており，現在はPM<sub>2.5</sub>及びSPM, SO<sub>2</sub>濃度の測定を行っている。また，本測定局でのPM<sub>2.5</sub>成分分析は2012年度から行われている。

伊野合同庁舎測定局の位置及び周辺に立地している主な大気汚染物質の排出源を図1に示した。

本測定局の350m南に国道33号線（バイパス）が，200m北には国道33号線（本道）がある。なお，国道33号線（本道）の24時間の交通量は，上下線合計で19,000台であった<sup>3)</sup>。また，半径500m以内には製紙工場8事業場，病院1事業場等が立地している。測定局の西にある製紙工場7事業場にあるボイラーからは，年間でNOx44t（NO<sub>2</sub>換算），SOx54t（SO<sub>2</sub>換算）が，北西の製紙工場からはNOx16t（NO<sub>2</sub>換算）が排出される。

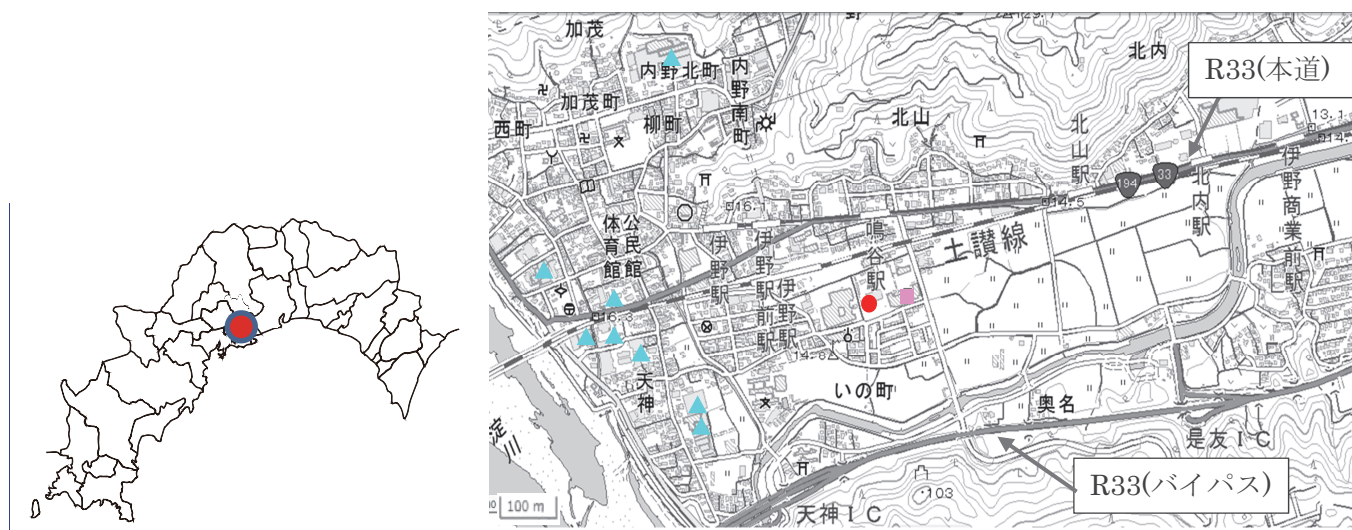


図1 測定地点の位置及び周辺に立地している主な大気汚染物質の排出源  
 (凡例 ● (測定地点)、▲ (製紙工場)、■ (病院) を表す)

2013年度から2017年度のPM<sub>2.5</sub>成分分析は，委託調査により行われており，本報はこれらの調査結果をとりまとめる形で作成した。各年度の測定期間を表1に示す。

PM<sub>2.5</sub>試料は，ムラタ計測器サービス株式会社製のスリットジェットエアサンプラ（MCAS-SJ）を用い，30L/minの流量で採取を行った。PTFEろ紙に採取した試料は無機成分の，石英ろ紙に採取した試料は，イオン成分及び炭素成分の分析に供

した。

無機元素成分は，ICP質量分析法によりNa及びAl, K, Ca, Sc, V, Cr, Fe, Ni, Zn, As, Sb, Pbの分析を行った。

イオン成分は，イオンクロマトグラフ法によりSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>及びNO<sub>3</sub><sup>-</sup>, Cl<sup>-</sup>, Na<sup>+</sup>, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>, K<sup>+</sup>, Ca<sup>2+</sup>, Mg<sup>2+</sup>の分析を行った。

炭素成分は，サーマルオプテカル・リフレクタンス法（熱分離・光学補正法，IMPROVEプロトコ

ル, DRI製モデル2001) により, OC及びECの各フラクション (OC1, OC2, OC3, OC4, EC1, EC2, EC3), 熱分解量有機炭素 (OCpyro) の分析を行い, 2-1, 2-2式からOC及びEC質量濃度を算出した。

$$[OC] = [OC1+OC2+OC3+OC4+OCpyro] \quad (2-1式)$$

$$[EC] = [EC1+EC2+EC3-OCpyro] \quad (2-2式)$$

いずれの成分も検出下限値未満の成分濃度は, 検出下限値の1/2の値を用いた。なお, これ以降, 成分濃度については「濃度」と表記する。

表1 各年度の測定期間

| 年度   | 春季        |           | 夏季        |          | 秋季         |            | 冬季        |           |
|------|-----------|-----------|-----------|----------|------------|------------|-----------|-----------|
|      | 開始年月日     | 終了年月日     | 開始年月日     | 終了年月日    | 開始年月日      | 終了年月日      | 開始年月日     | 終了年月日     |
| 2013 | 2013/5/13 | 2013/5/26 | 2013/7/24 | 2013/8/6 | 2013/10/28 | 2013/11/10 | 2014/1/23 | 2014/2/5  |
| 2014 | 2014/5/8  | 2014/5/21 | 2014/7/23 | 2014/8/5 | 2014/10/22 | 2014/11/4  | 2015/1/21 | 2015/2/3  |
| 2015 | 2015/5/8  | 2015/5/21 | 2015/7/22 | 2015/8/4 | 2015/10/21 | 2015/11/3  | 2016/1/20 | 2016/2/2  |
| 2016 | 2016/5/6  | 2016/5/19 | 2016/7/21 | 2016/8/3 | 2016/10/20 | 2016/11/2  | 2017/1/19 | 2017/2/1  |
| 2017 | 2017/5/10 | 2017/5/23 | 2017/7/20 | 2017/8/2 | 2017/10/19 | 2017/11/2  | 2018/1/18 | 2018/1/31 |

### 3. 結果及び考察

#### 3.1 5年間のPM<sub>2.5</sub>濃度の特徴

2012年度から2016年度までの伊野合同庁舎測定局及び一般環境大気測定局 (全国平均), 自動車排出ガス測定局 (全国平均) のPM<sub>2.5</sub>濃度の年平均値を表2に示した<sup>4)</sup>。伊野合同庁舎測定局の年平均値は, 2013年度は全国平均と同じレベルであったが, その他の年度は全国平均と比較して低く, 2015及び2016年度は10 µg/m<sup>3</sup>未満であった。

表2 伊野合同庁舎測定局及び一般大気環境測定局 (全国平均), 自動車排出ガス測定局 (全国平均) のPM<sub>2.5</sub>濃度の年平均値

| 年度   | PM <sub>2.5</sub> 濃度の年平均値 (µg/m <sup>3</sup> ) |            |            |
|------|--|------------|------------|
|      | 伊野合同庁舎測定局                                      | 全国平均 (一般局) | 全国平均 (自排局) |
| 2012 | 12.5   | 14.5       | 15.4       |
| 2013 | 15.8   | 15.3       | 16.0       |
| 2014 | 13.9   | 14.7       | 15.5       |
| 2015 | 9.5  | 13.1       | 13.9       |
| 2016 | 8.8  | 11.9       | 12.6       |

また, 伊野合同庁舎測定局及び環境省が本県梶原町に設置している国設梶原酸性雨測定所 (以下「梶原」という) における2016年度のPM<sub>2.5</sub>濃度を図2に示した<sup>5)</sup>。梶原は, 高知県中央部から西北西50kmに位置し, 標高720mに設置されている。測定局の属性は, バックグラウンドである。伊野合同庁舎測定局のPM<sub>2.5</sub>濃度は, 梶原と同等の濃度レベルにあることが多かった。これらのことから, 伊野合同庁舎測定局周辺は清浄な地域であると言える。

各測定期間でのPM<sub>2.5</sub>及び各成分の平均濃度を

図3に示した。2013年度は, 四季全てでPM<sub>2.5</sub>濃度が15 µg/m<sup>3</sup>を超過していたが, 2016年度, 2017年度では15 µg/m<sup>3</sup>未満であった。PM<sub>2.5</sub>濃度への越境寄与が2015年頃から急速に減少しているとの報告があり<sup>6)</sup>, 2016年度以降に本県のPM<sub>2.5</sub>濃度が15 µg/m<sup>3</sup>を超過しなくなったことと時期が重なっていた。

各年度の四季でのPM<sub>2.5</sub>濃度に対する各成分濃度の割合を図4に示した。PM<sub>2.5</sub>を構成している成分で濃度の高いものは, 四季を通してSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>, OC, ECであった。SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度はPM<sub>2.5</sub>濃度の30%から50%を占めており, 四季の中で夏季に最も高かった。

各測定日のPM<sub>2.5</sub>及び各成分濃度を図5に示した。PM<sub>2.5</sub>濃度は, 2013年度に2回35 µg/m<sup>3</sup>を超過していた。また, 30 µg/m<sup>3</sup>を超過した日は5年間で11回みられたが, 2013年度と2015年度のみみられた。PM<sub>2.5</sub>濃度が30 µg/m<sup>3</sup>を超過した日で, 各成分濃度が特徴的であった測定日については詳細を3.4で示す。

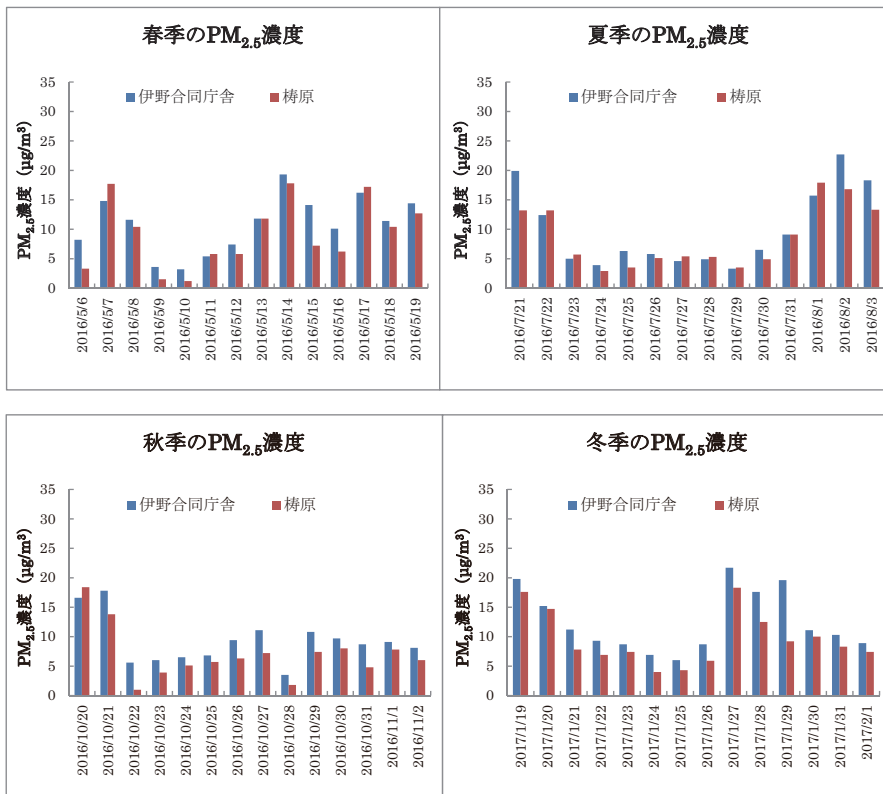


図2 伊野合同庁舎測定局及び国設梶原酸性雨測定所の2016年度のPM<sub>2.5</sub>濃度

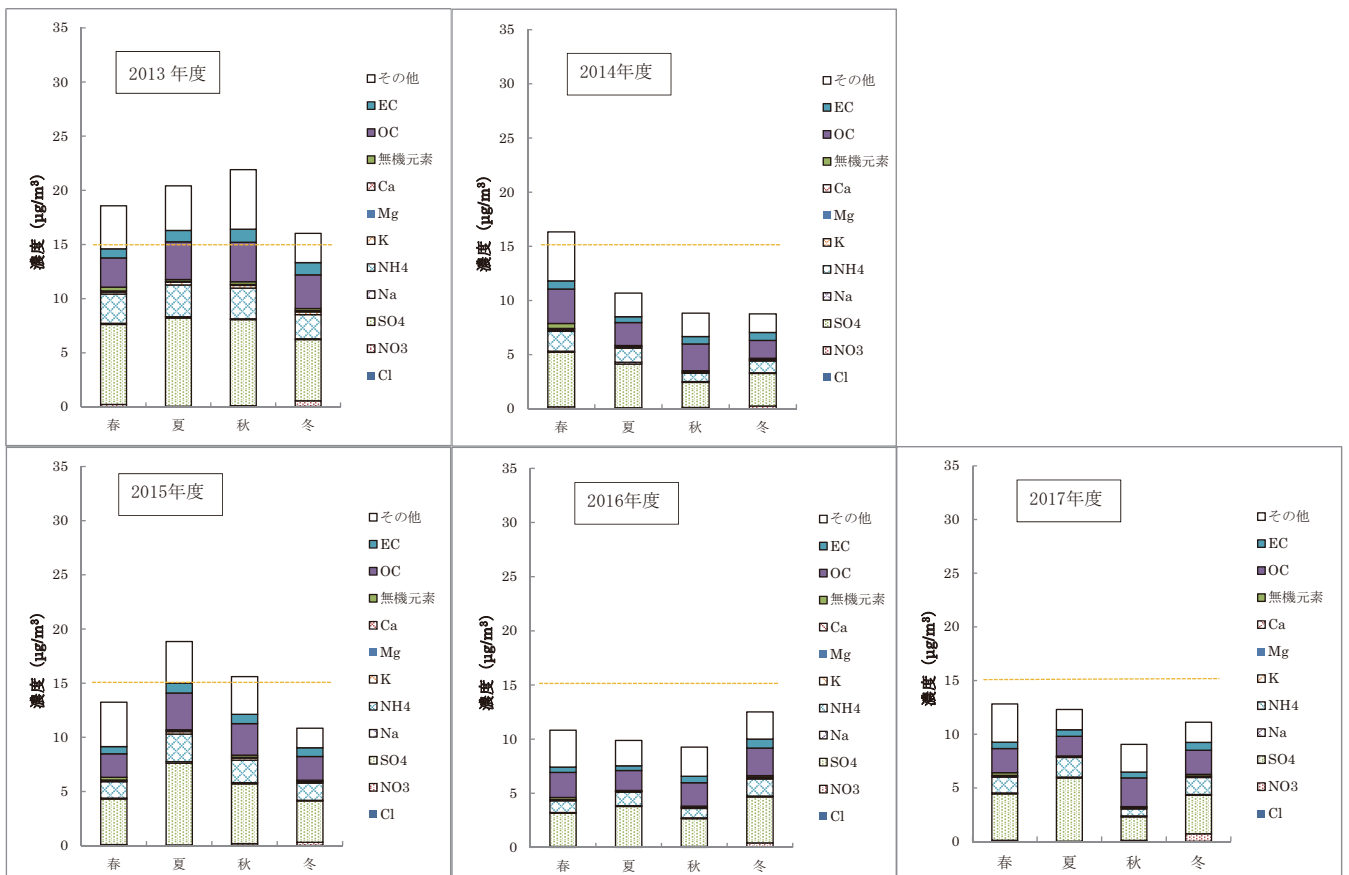


図3 各測定期間でのPM<sub>2.5</sub>及び各成分の平均濃度（破線は、PM<sub>2.5</sub>濃度の環境基準（1年平均値）を表す）



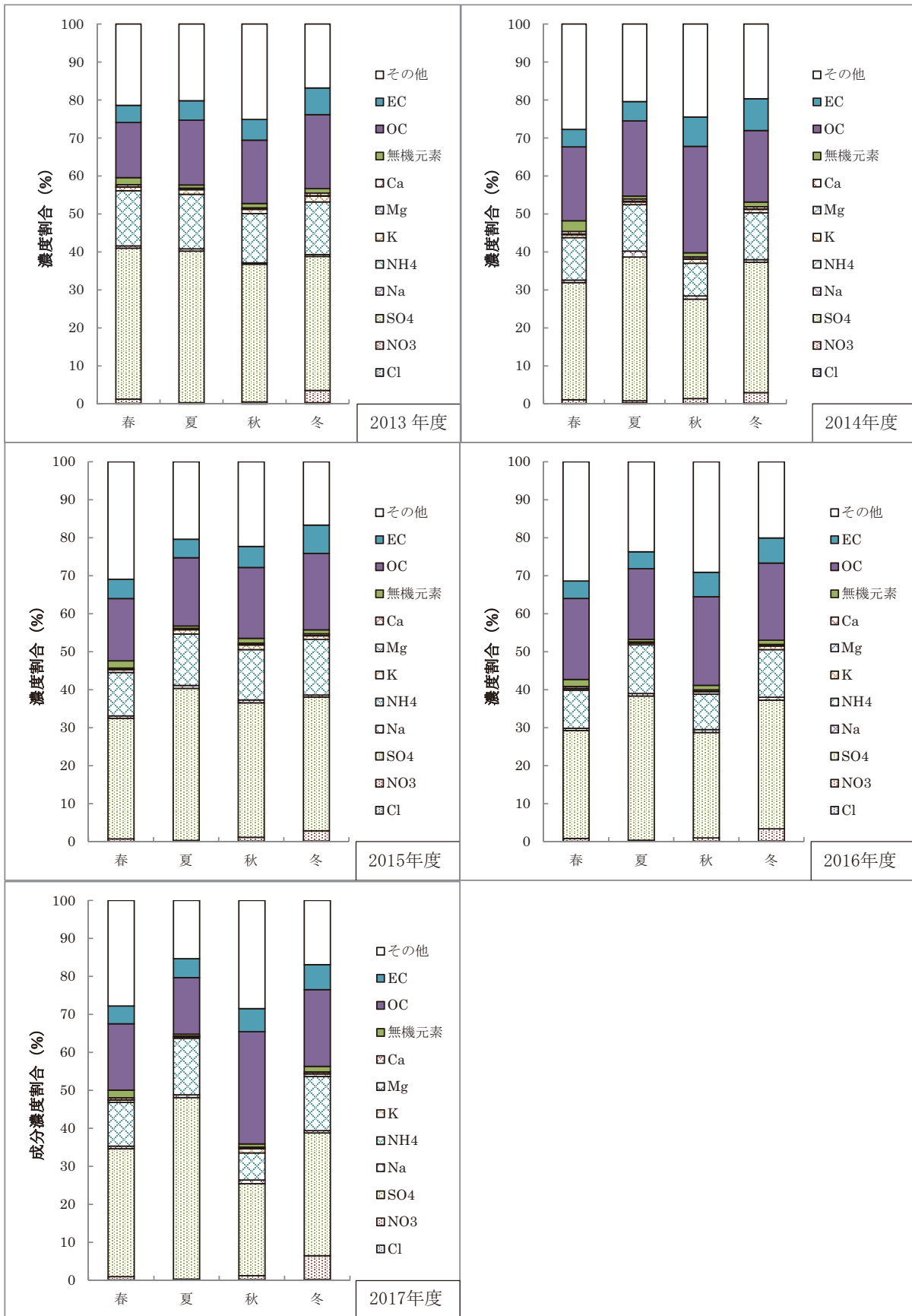
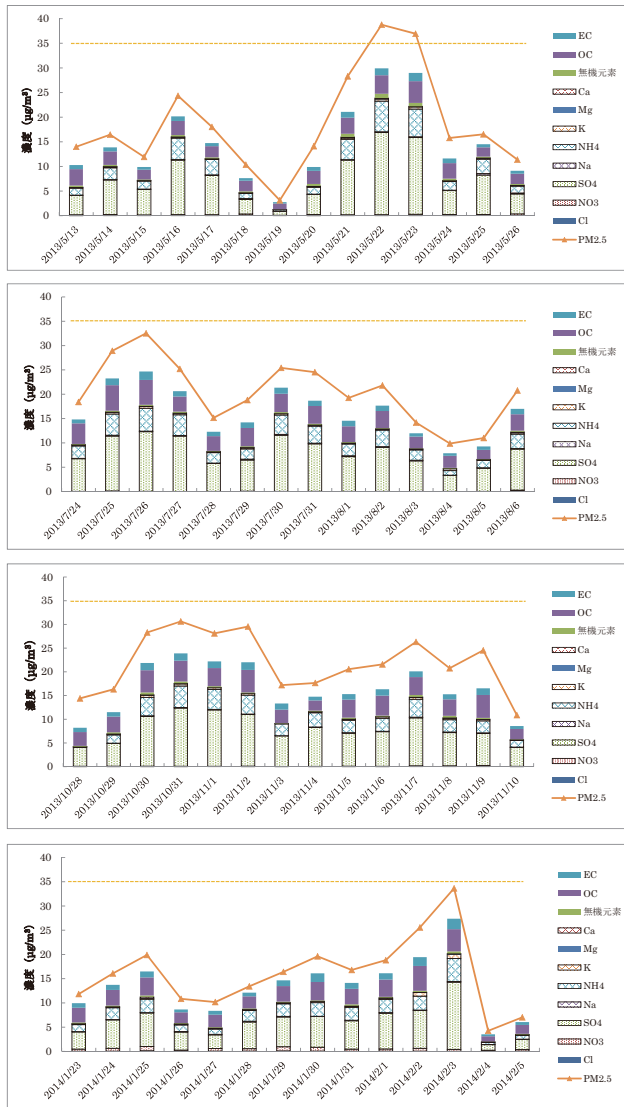


図4 各年度の四季でのPM<sub>2.5</sub>濃度に対する各成分濃度の割合

①2013年度



②2014年度

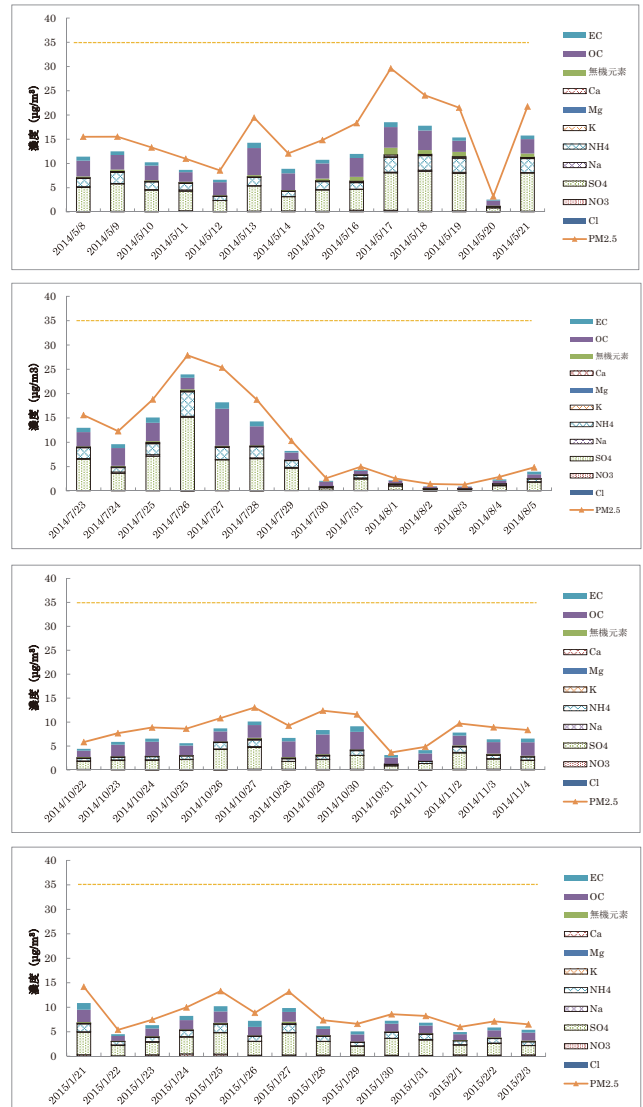
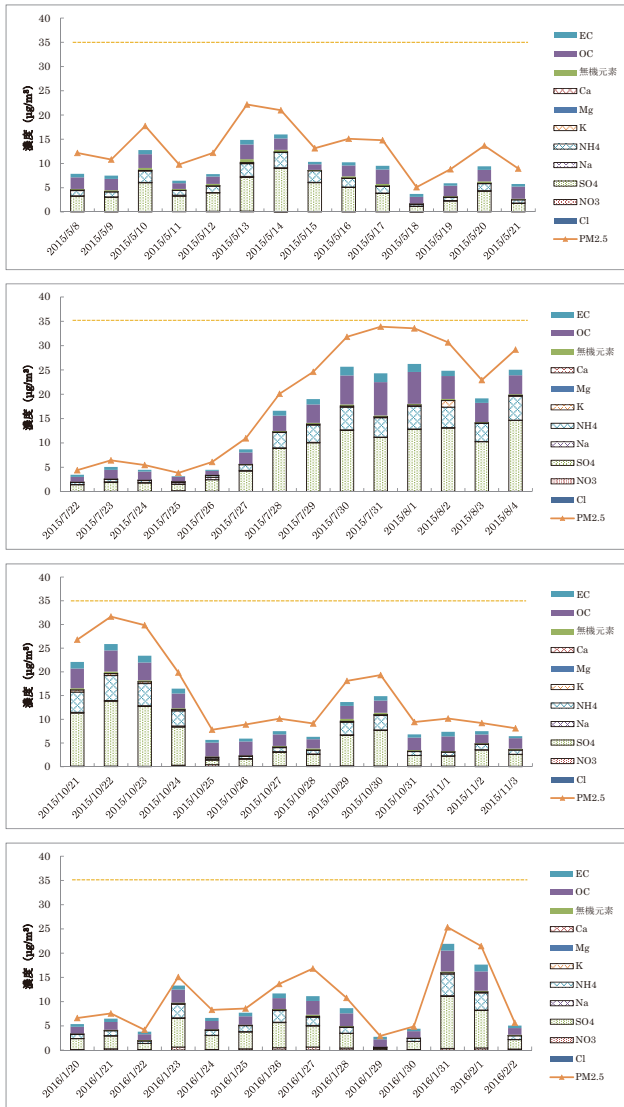


図5 各測定日でのPM<sub>2.5</sub>及び各成分濃度（破線は、PM<sub>2.5</sub>濃度の環境基準（1日平均値）を表す）

③2015年度



④2016年度

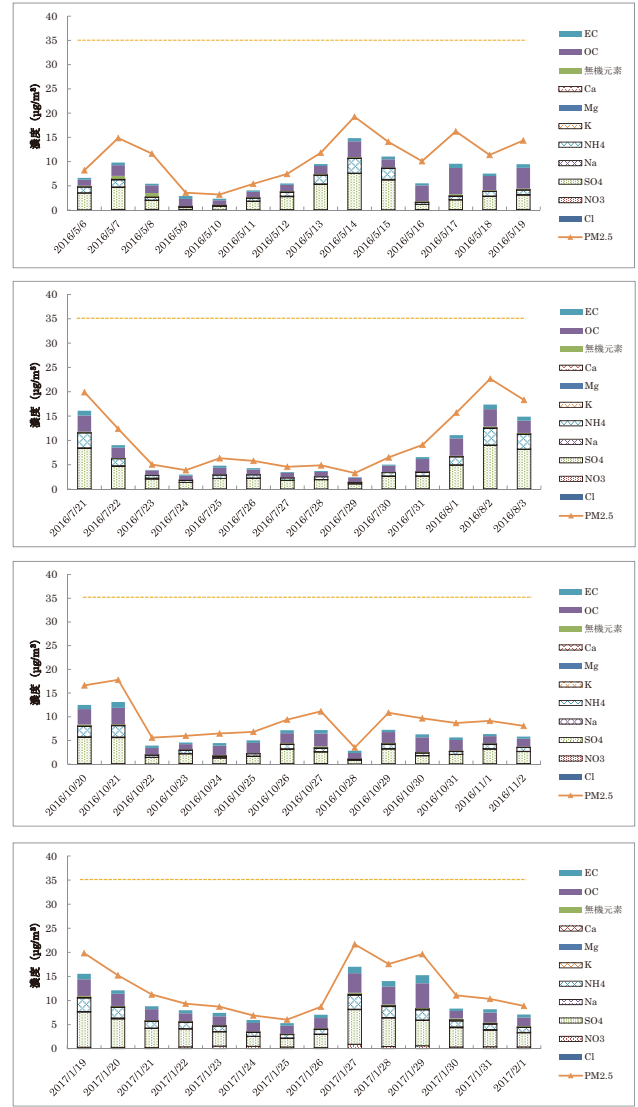


図5 各測定日でのPM<sub>2.5</sub>及び各成分濃度（破線は、PM<sub>2.5</sub>濃度の環境基準（1日平均値）を表す）

⑤2017年度

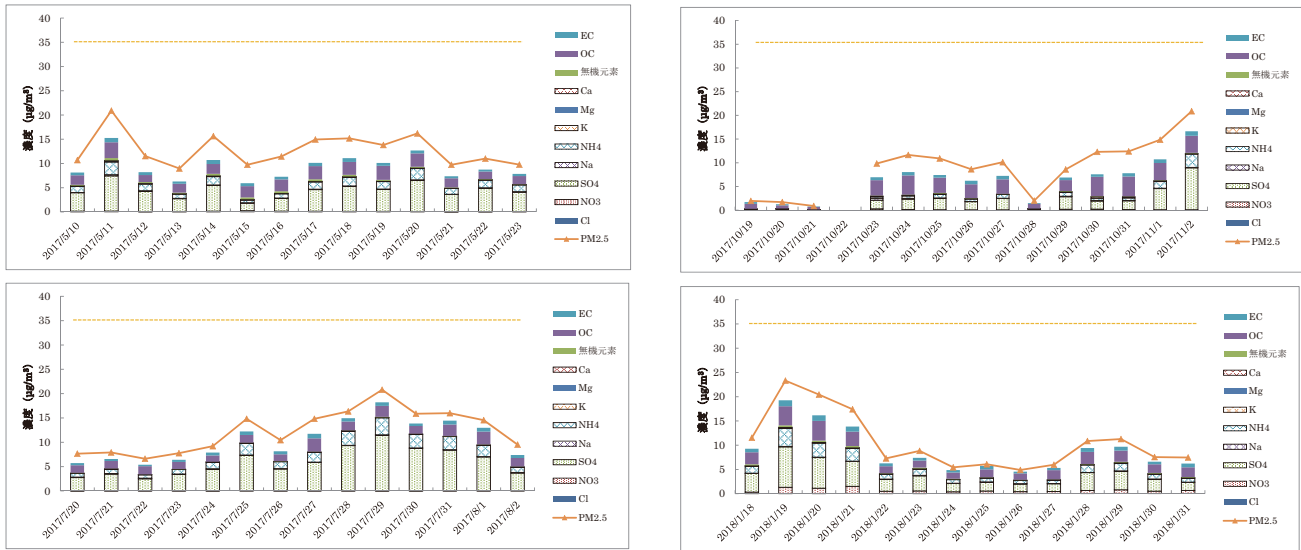


図5 各測定日でのPM<sub>2.5</sub>及び各成分濃度（破線は、PM<sub>2.5</sub>濃度の環境基準（1日平均値）を表す）

表4 5年間の四季でのPM<sub>2.5</sub>及び各成分の濃度における平均値及び最大値

|                            |                               | 春 季    |        | 夏 季    |        | 秋 季    |        | 冬 季    |        |
|----------------------------|-------------------------------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|
|                            |                               | 平均     | 最大     | 平均     | 最大     | 平均     | 最大     | 平均     | 最大     |
| µg/m <sup>3</sup>          | PM <sub>2.5</sub>             | 14.4   | 38.8   | 14.4   | 33.9   | 12.9   | 31.7   | 11.7   | 33.6   |
|                            | 無機元素 (ng/m <sup>3</sup> )     |        |        |        |        |        |        |        |        |
|                            | Na                            | 103    | 313    | 124    | 492    | 96.5   | 373    | 77.9   | 201    |
|                            | Al                            | 151    | 771    | 32.9   | 159    | 52.7   | 196    | 58.1   | 240    |
|                            | K                             | 114    | 446    | 101    | 1360   | 135    | 360    | 122    | 821    |
|                            | Ca                            | 80.3   | 343    | 39.6   | 171    | 47.3   | 155    | 53.6   | 267    |
|                            | Sc                            | 0.0345 | 0.156  | 0.0297 | 0.055  | 0.0226 | 0.21   | 0.0177 | 0.0267 |
|                            | V                             | 2.57   | 8.2    | 3.02   | 7.32   | 1.38   | 3.91   | 1.38   | 3.87   |
|                            | Cr                            | 0.74   | 3.74   | 0.501  | 2.38   | 0.639  | 2.55   | 0.848  | 4.44   |
|                            | Fe                            | 122    | 543    | 38.2   | 100    | 65.6   | 181    | 58.5   | 165    |
|                            | Ni                            | 1.14   | 3.65   | 1.12   | 2.76   | 0.532  | 1.49   | 0.851  | 3.7    |
|                            | Zn                            | 15.9   | 54.7   | 15.8   | 59.1   | 15.8   | 47.4   | 13.9   | 35.6   |
|                            | As                            | 1.17   | 4.45   | 1.03   | 3.47   | 1.06   | 3.72   | 1.39   | 5.25   |
|                            | Sb                            | 0.462  | 1.19   | 0.948  | 19.2   | 0.539  | 1.68   | 0.664  | 3.54   |
|                            | Pb                            | 6.58   | 27     | 4.58   | 18.6   | 6.59   | 28.5   | 6.76   | 33.9   |
| イオン成分 (µg/m <sup>3</sup> ) | Cl <sup>-</sup>               | 0.0149 | 0.0858 | 0.0165 | 0.183  | 0.0138 | 0.136  | 0.027  | 0.129  |
|                            | NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>  | 0.13   | 0.347  | 0.0424 | 0.114  | 0.11   | 0.354  | 0.427  | 1.46   |
|                            | SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> | 4.8    | 16.7   | 5.87   | 15.1   | 4.11   | 13.7   | 4.02   | 13.9   |
|                            | Na <sup>+</sup>               | 0.0901 | 0.288  | 0.116  | 0.494  | 0.0852 | 0.352  | 0.0716 | 0.185  |
|                            | NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>  | 1.72   | 6.23   | 1.98   | 5.03   | 1.44   | 5.25   | 1.59   | 4.74   |
|                            | K <sup>+</sup>                | 0.101  | 0.402  | 0.126  | 1.34   | 0.136  | 0.418  | 0.123  | 0.852  |
|                            | Mg <sup>2+</sup>              | 0.0192 | 0.0637 | 0.0174 | 0.063  | 0.0152 | 0.0396 | 0.0132 | 0.0746 |
| Ca <sup>2+</sup>           | 0.0752                        | 0.282  | 0.0418 | 0.181  | 0.0468 | 0.1538 | 0.0577 | 0.264  |        |
| 炭素成分 (µg/m <sup>3</sup> )  | OC                            | 2.52   | 5.58   | 2.53   | 7.59   | 2.77   | 4.82   | 2.34   | 5.13   |
|                            | EC                            | 0.671  | 1.66   | 0.714  | 1.81   | 0.778  | 1.61   | 0.845  | 2.15   |



表3 PM<sub>2.5</sub>及び各成分濃度の相関関係

|                               | PM <sub>2.5</sub> | Al      | Sc      | V       | Cr      | Fe       | Ni       | Zn      | As      | Sb      | Pb      | Cl <sup>-</sup> | NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> | SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> | Na <sup>+</sup> | NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> | K <sup>+</sup> | Mg <sup>2+</sup> | Ca <sup>2+</sup> | OC      | EC   |  |  |
|-------------------------------|-------------------|---------|---------|---------|---------|----------|----------|---------|---------|---------|---------|-----------------|------------------------------|-------------------------------|-----------------|------------------------------|----------------|------------------|------------------|---------|------|--|--|
| PM <sub>2.5</sub>             | 1.00              |         |         |         |         |          |          |         |         |         |         |                 |                              |                               |                 |                              |                |                  |                  |         |      |  |  |
| Al                            | 0.488*            | 1.00    |         |         |         |          |          |         |         |         |         |                 |                              |                               |                 |                              |                |                  |                  |         |      |  |  |
| Sc                            | 0.355*            | 0.417*  | 1.00    |         |         |          |          |         |         |         |         |                 |                              |                               |                 |                              |                |                  |                  |         |      |  |  |
| V                             | 0.626**           | 0.299** | 0.222** | 1.00    |         |          |          |         |         |         |         |                 |                              |                               |                 |                              |                |                  |                  |         |      |  |  |
| Cr                            | 0.430*            | 0.393** | 0.198** | 0.187** | 1.00    |          |          |         |         |         |         |                 |                              |                               |                 |                              |                |                  |                  |         |      |  |  |
| Fe                            | 0.570**           | 0.942** | 0.402** | 0.339** | 0.495** | 1.00     |          |         |         |         |         |                 |                              |                               |                 |                              |                |                  |                  |         |      |  |  |
| Ni                            | 0.594**           | 0.383** | 0.162** | 0.834** | 0.535** | 0.437**  | 1.00     |         |         |         |         |                 |                              |                               |                 |                              |                |                  |                  |         |      |  |  |
| Zn                            | 0.841**           | 0.461** | 0.374** | 0.456** | 0.574** | 0.613**  | 0.525**  | 1.00    |         |         |         |                 |                              |                               |                 |                              |                |                  |                  |         |      |  |  |
| As                            | 0.829**           | 0.473** | 0.244** | 0.409** | 0.509** | 0.568**  | 0.482**  | 0.828** | 1.00    |         |         |                 |                              |                               |                 |                              |                |                  |                  |         |      |  |  |
| Sb                            | 0.280**           | 0.108   | 0.049   | 0.201** | 0.119*  | 0.0561   | 0.194**  | 0.221** | 0.225** | 1.00    |         |                 |                              |                               |                 |                              |                |                  |                  |         |      |  |  |
| Pb                            | 0.810**           | 0.539** | 0.409** | 0.331** | 0.508** | 0.630**  | 0.360**  | 0.845** | 0.876** | 0.194** | 1.00    |                 |                              |                               |                 |                              |                |                  |                  |         |      |  |  |
| Cl <sup>-</sup>               | -0.0227           | 0.0261  | 0.0149  | -0.115  | 0.0941  | -0.00260 | -0.00360 | -0.0255 | 0.0452  | -0.0107 | 0.0288  | 1.00            |                              |                               |                 |                              |                |                  |                  |         |      |  |  |
| NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>  | 0.0783            | 0.147   | -0.0872 | -0.106  | 0.259** | 0.175**  | 0.0384   | 0.101   | 0.269** | 0.0295  | 0.220** | 0.375**         | 1.00                         |                               |                 |                              |                |                  |                  |         |      |  |  |
| SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> | 0.954**           | 0.387** | 0.326** | 0.672** | 0.363** | 0.454**  | 0.606**  | 0.768** | 0.768** | 0.271** | 0.734** | -0.0362         | 0.000621                     | 1.00                          |                 |                              |                |                  |                  |         |      |  |  |
| Na <sup>+</sup>               | 0.208**           | 0.148   | 0.123   | 0.175** | 0.042   | 0.124    | 0.134    | 0.162** | 0.0923  | -0.0142 | 0.128   | 0.285**         | -0.0472                      | 0.221**                       | 1.00            |                              |                |                  |                  |         |      |  |  |
| NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>  | 0.958**           | 0.397** | 0.325** | 0.636** | 0.405** | 0.477**  | 0.598**  | 0.793** | 0.797** | 0.252** | 0.763** | -0.0106         | 0.0901                       | 0.989**                       | 0.178**         | 1.00                         |                |                  |                  |         |      |  |  |
| K <sup>+</sup>                | 0.708**           | 0.332** | 0.266** | 0.304** | 0.350** | 0.323**  | 0.311**  | 0.608** | 0.682** | 0.665** | 0.737** | 0.0859          | 0.111                        | 0.661**                       | 0.165**         | 0.653**                      | 1.00           |                  |                  |         |      |  |  |
| Mg <sup>2+</sup>              | 0.453**           | 0.530** | 0.300** | 0.239** | 0.217** | 0.463**  | 0.227**  | 0.388** | 0.399** | 0.172** | 0.500** | 0.236**         | 0.0424                       | 0.414**                       | 0.753**         | 0.383**                      | 0.526**        | 1.00             |                  |         |      |  |  |
| Ca <sup>2+</sup>              | 0.492**           | 0.724** | 0.425** | 0.219** | 0.363** | 0.715**  | 0.292**  | 0.463** | 0.468** | 0.0653  | 0.509** | 0.316**         | 0.251**                      | 0.409**                       | 0.233**         | 0.429**                      | 0.355**        | 0.528**          | 1.00             |         |      |  |  |
| OC                            | 0.824**           | 0.294** | 0.231** | 0.411** | 0.346** | 0.397**  | 0.420**  | 0.703** | 0.663** | 0.251** | 0.637** | -0.00380        | 0.141*                       | 0.659**                       | 0.112           | 0.676**                      | 0.610**        | 0.310**          | 0.384**          | 1.00    |      |  |  |
| EC                            | 0.851**           | 0.286** | 0.250** | 0.400** | 0.422** | 0.395**  | 0.426**  | 0.765** | 0.793** | 0.220** | 0.781** | 0.0465          | 0.286**                      | 0.747**                       | 0.0384          | 0.778**                      | 0.674**        | 0.288**          | 0.394**          | 0.849** | 1.00 |  |  |

凡例 青字はr≧0.8、赤字は0.8>r≧0.6を示している。また、\*は5%水準、\*\*は1%水準で有意であることを示している。  
SbとK濃度の相関係数は0.665であったが、外れ値の影響が大きかったことから、色分けは行っていない。

### 3. 2 PM<sub>2.5</sub>及び各成分濃度の相関関係

PM<sub>2.5</sub>及び各成分濃度の相関関係を表3に示した (n=279).

#### 3. 2. 1 PM<sub>2.5</sub>濃度及び各成分濃度の相関関係

PM<sub>2.5</sub>濃度と強い相関関係を示した成分濃度は、四季を通して濃度の高かったSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>及びNH<sub>4</sub><sup>+</sup>、OC、ECの他、微量成分であるZn及びAs、Pbであった。Pb及びAsは石炭燃焼の指標成分と考えられており、アジア大陸からの移流の影響を強く受けると言われている。また、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>及びNH<sub>4</sub><sup>+</sup>は(NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>として長距離輸送される場合がある<sup>2)</sup>。

PM<sub>2.5</sub>濃度とやや強い相関関係を示した成分は、V及びK<sup>+</sup>であった。

#### 3. 2. 2 各成分濃度間の相関関係

SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>及びNH<sub>4</sub><sup>+</sup>は、相互に非常に強い相関関係を示し、イオン成分ではK<sup>+</sup>、無機成分ではV及びZn、As、Pb、炭素成分ではOC及びECとやや強い相関関係を示した。SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>は、Niとやや強い相関関係も示した。

K<sup>+</sup>はSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>及びNH<sub>4</sub><sup>+</sup>に加えてZn、As、Pb、OC、ECとやや強い相関関係を示した。

Na<sup>+</sup>はMg<sup>2+</sup>と、Ca<sup>2+</sup>はAl及びFeとやや強い相関関係を示した。

Zn及びAs、Pbは、相互に強い相関関係を示すとともに、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、K<sup>+</sup>、OC、ECとやや強い相関関係を示した。

Ni及びVは、相互に強い相関関係を示すとともに、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>とやや強い相関関係を示した。VはNH<sub>4</sub><sup>+</sup>ともやや強い相関関係を示した。

Al及びFeは、相互に強い相関関係を示すとともに、Ca<sup>2+</sup>とやや強い相関関係を示した。

OC及びECは、相互に強い相関関係を示し、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>及びNH<sub>4</sub><sup>+</sup>、K<sup>+</sup>、Zn、As、Pbとやや強い相関関係を示した。

### 3. 3 指標成分濃度の特徴

#### 3. 3. 1 SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>及びNO<sub>3</sub><sup>-</sup>

SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>及びNO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度について、5年間の四季の平均値及び最大値を表4に示した。SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度の平均値は夏季に最も高く、秋季及び冬季に低かった。

2016年度の伊野合同庁舎測定局及び四国内の

バックグラウンド測定局でのNO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度を図6に示した<sup>5)</sup>。伊野合同庁舎測定局のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度は四季を通して極めて低濃度で、バックグラウンド相当の濃度レベルであった。PM<sub>2.5</sub>中のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>は主にNH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>として存在しているが、ガス-粒子平衡によりガス状のNH<sub>3</sub>及びHNO<sub>3</sub>が生じる。この平衡反応は可逆反応であり、気温の上昇によりガス化が促進され、低下により粒子化が促進される。暖候期においては、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>の多くがガス状として存在すること、ろ紙に捕集されたNH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>の揮散が起こること(負のアーティファクト)等により、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度は低くなることが知られているが、伊野合同庁舎測定局では、濃度が高くなると考えられる寒候期においても低濃度であった。この理由として、観測地点のNO<sub>x</sub>濃度が低く、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>の生成が少ないためとも考えられる。

各測定日のSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>及びNO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>/SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>比を図7に示した。SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度は、季節によらず10 µg/m<sup>3</sup>を超えるほどの大幅な濃度の上昇がみられた。一部の期間については、3.4で高濃度となった要因について述べる。

PM<sub>2.5</sub>中のSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>とNO<sub>3</sub><sup>-</sup>の比率は、越境汚染と地域汚染の相対的な影響度の指標になりうると言われている<sup>7)</sup>。また、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>/SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>比が0.5から1を超えると地域汚染の影響が強く、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>/SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>比が0.2程度になると越境汚染の影響が強いと言われている<sup>7)</sup>。全測定期間中でNO<sub>3</sub><sup>-</sup>/SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>比が0.5を超えた日はみられなかったことから、本観測地点では地域汚染の影響はかなり少ないと考えられる。

#### 3. 3. 2 Pb及びZn

Pb及びZn濃度の5年間の四季の平均及び最大値を表4に示した。Pb濃度の平均値は季節によって差があり、冬季に最も高く夏季は最も低かった。一方、Zn濃度の平均値は季節によって差がみられなかった。

各測定日のPb及びZn濃度、Pb/Zn比を図8に示した。Pb/Zn比は、石炭燃焼の指標として用いられている<sup>8)</sup>。エアロゾル中のPb/Zn比について、国内起源の場合0.2から0.3程度、大陸起源の場合0.5から0.6程度と推定されている<sup>9)</sup>。全測定日のPb/Zn比は、平均値0.36、標準偏差0.16、最大値1.31であった。夏季ではPb/Zn比が0.5を超えた日はな

く、冬季はPb/Zn比の日変動が大きかった。Pb濃度を $20\text{ng/m}^3$ 以上 ( $n=11$ )、 $10\text{ng/m}^3$ 以上 $20\text{ng/m}^3$ 未満 ( $n=52$ )、 $10\text{ng/m}^3$ 未満 ( $n=216$ ) に区分して、各測定日のPb/Zn比の平均値を求めると、それぞれ0.67, 0.48, 0.33であり、Pb濃度の上昇に伴ってPb/Zn比は大きく上昇していた。

### 3. 3. 3 As及びV

As及びV濃度における5年間の四季の平均及び

最大値を表4に示した。As濃度の平均値は冬季に最も高く、夏季及び秋季に最も低かった。また、V濃度は夏季に最も高く、秋季及び冬季に最も低かった。

各測定日のAs及びV濃度、As/V比を図9に示した。As/V比は、石油燃焼に対する石炭燃焼の寄与を表すとされている<sup>10)</sup>。全測定日でのAs/V比は、平均値0.77、標準偏差0.67、最大値5.32であった。

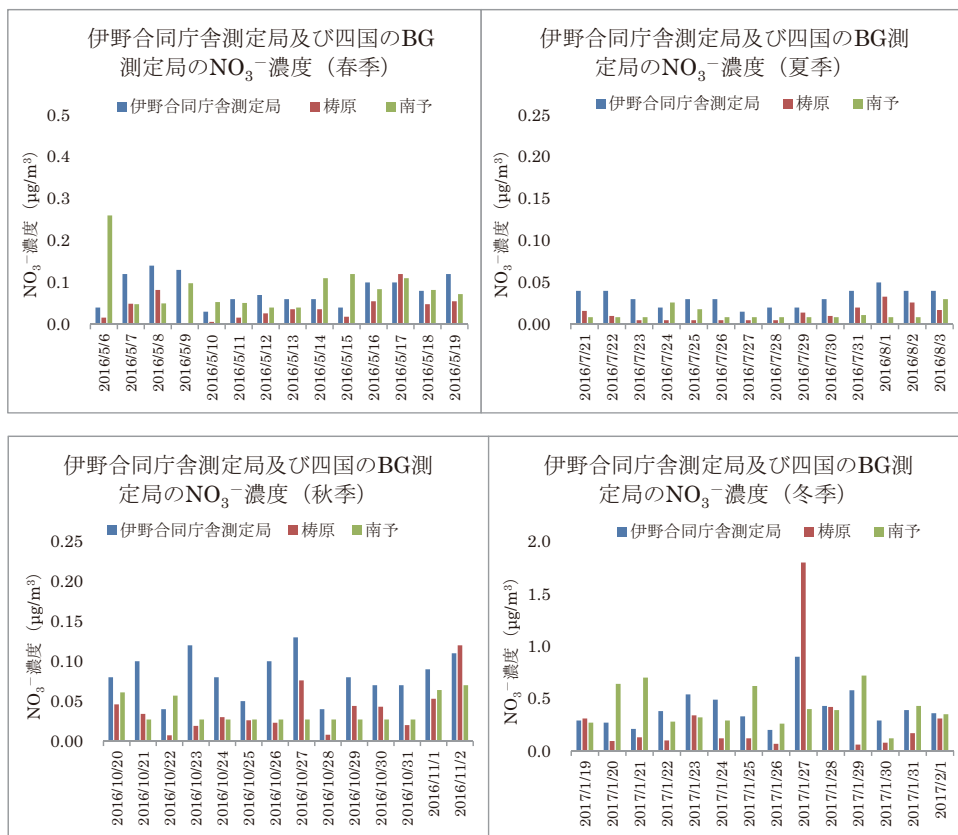


図6 2016年度の伊野合同庁舎測定局及び四国のバックグラウンド測定局の $\text{NO}_3^-$ 濃度

①2013年度

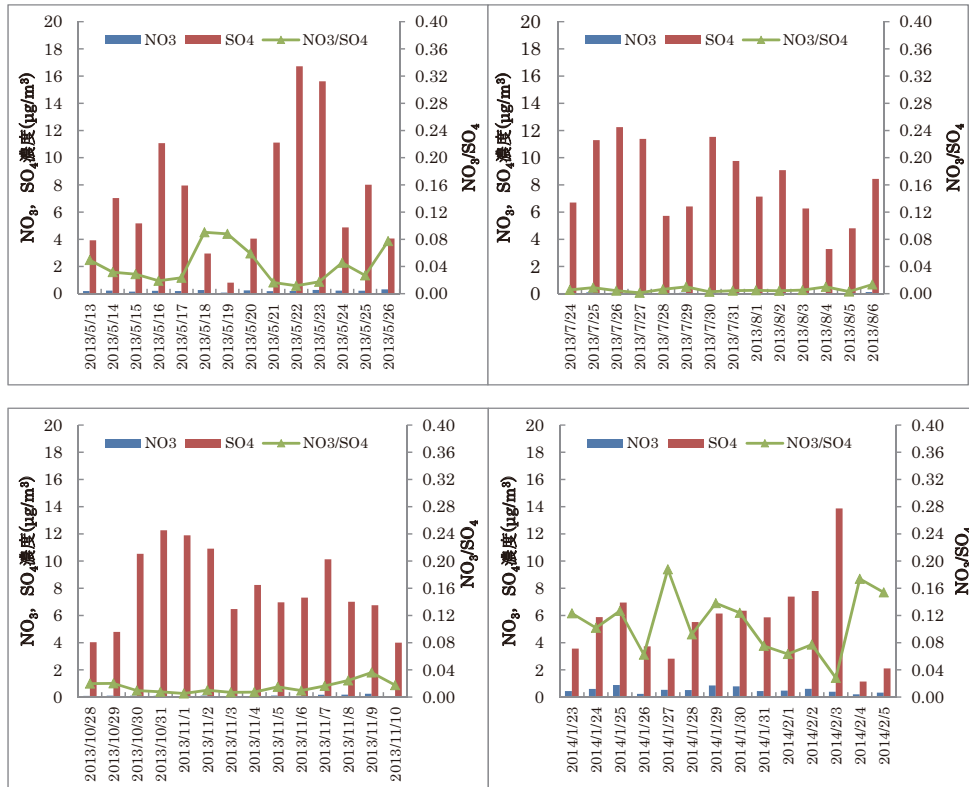


図7 各測定日のSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>及びNO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>/SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>比

②2014年度

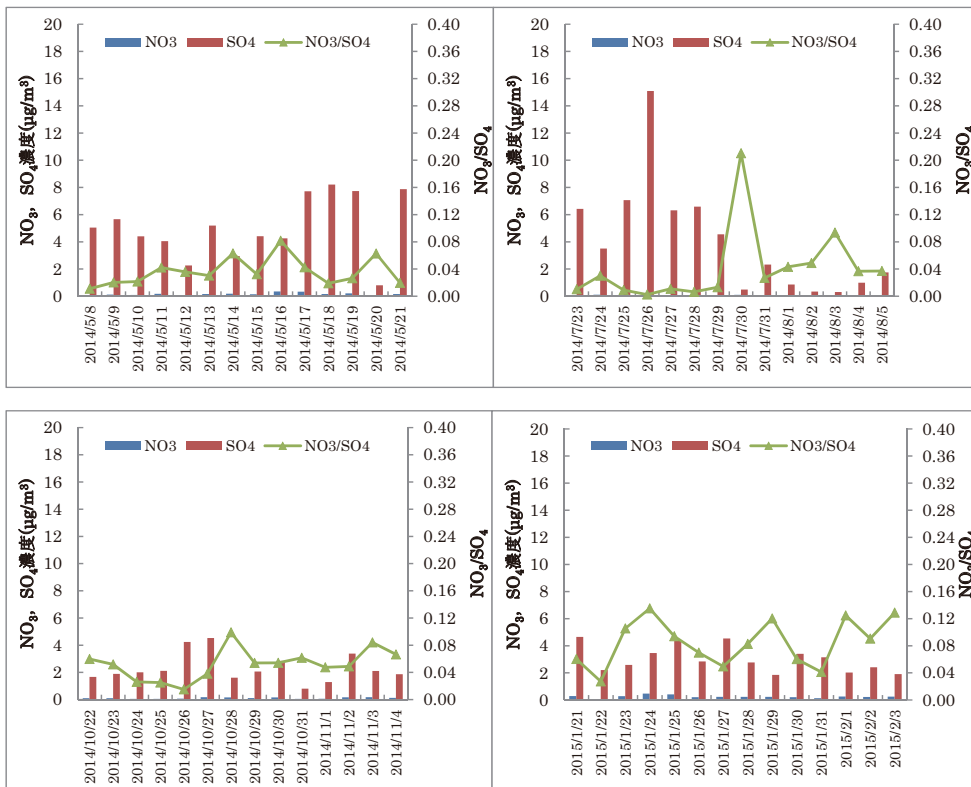


図7 各測定日のSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>及びNO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>/SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>比



③2015年度

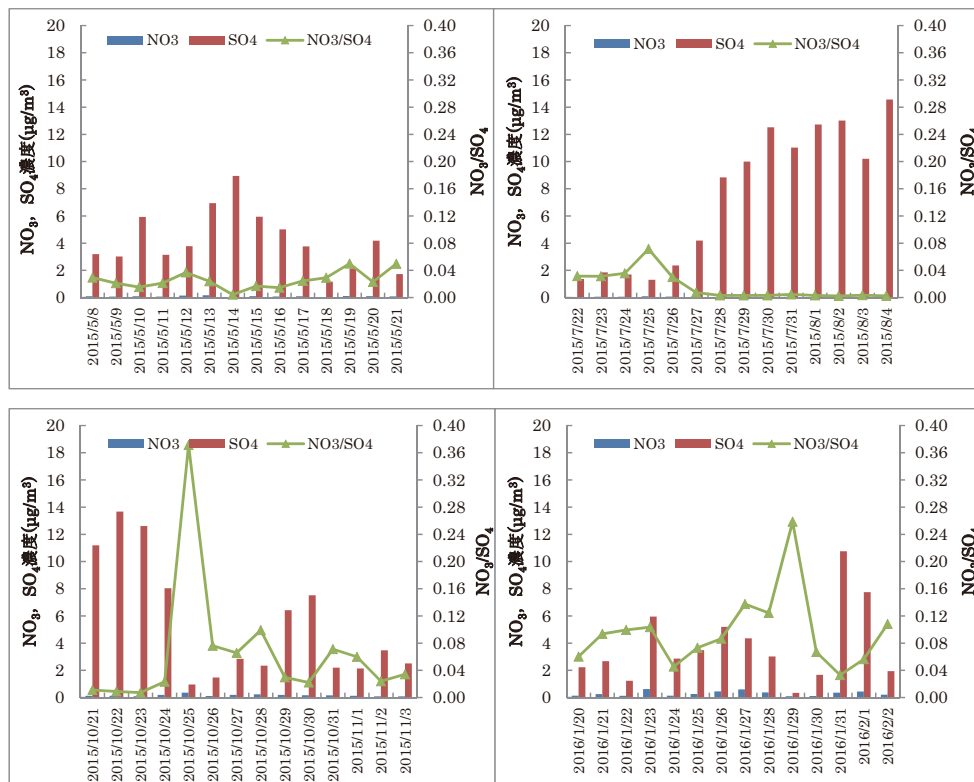


図7 各測定日のSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>及びNO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>/SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>比

④2016年度

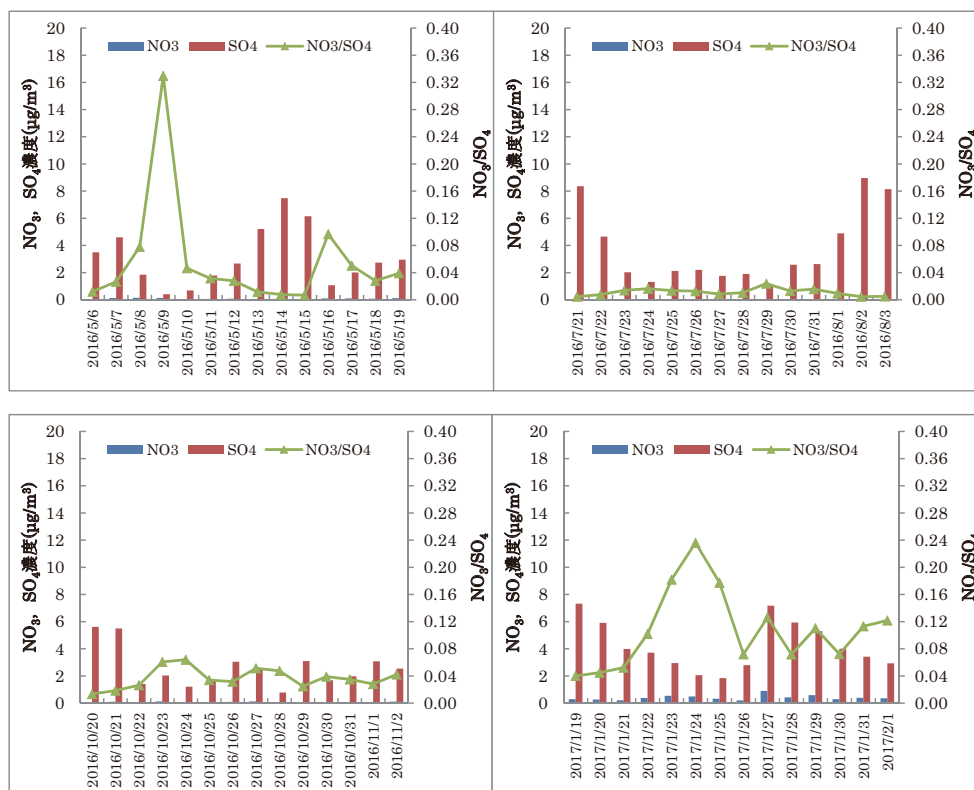


図7 各測定日のSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>及びNO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>/SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>比

⑤2017年度



図7 各測定日のSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>及びNO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>/SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>比

①2013年度

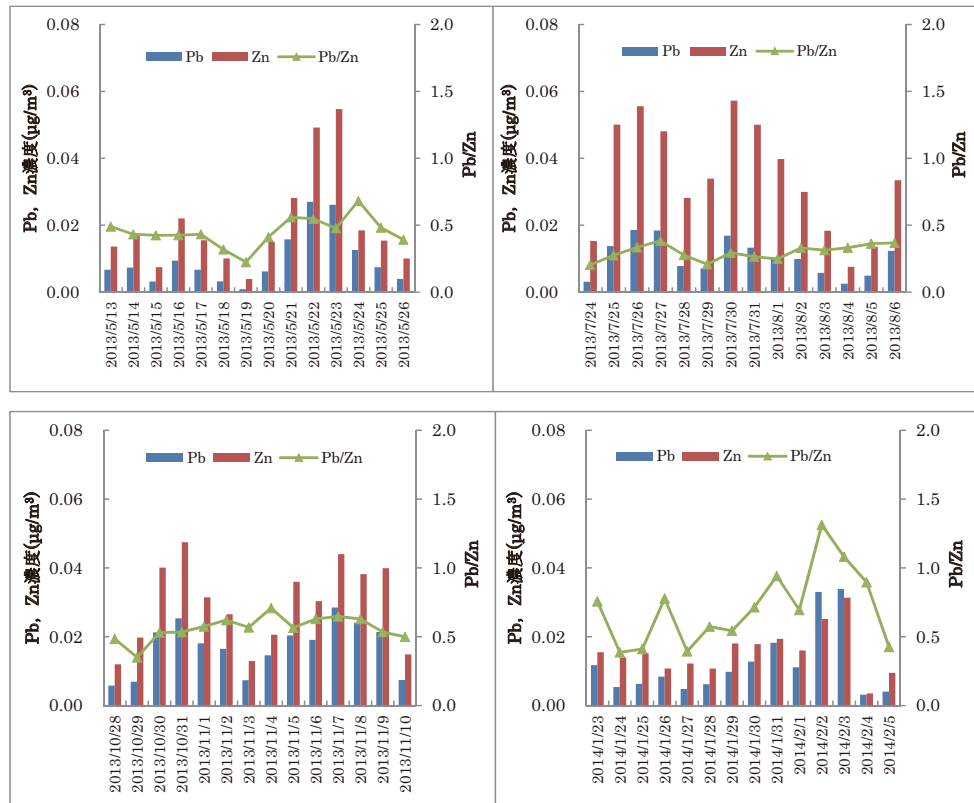


図8 各測定日のPb, Zn濃度及びPb/Zn

②2014年度

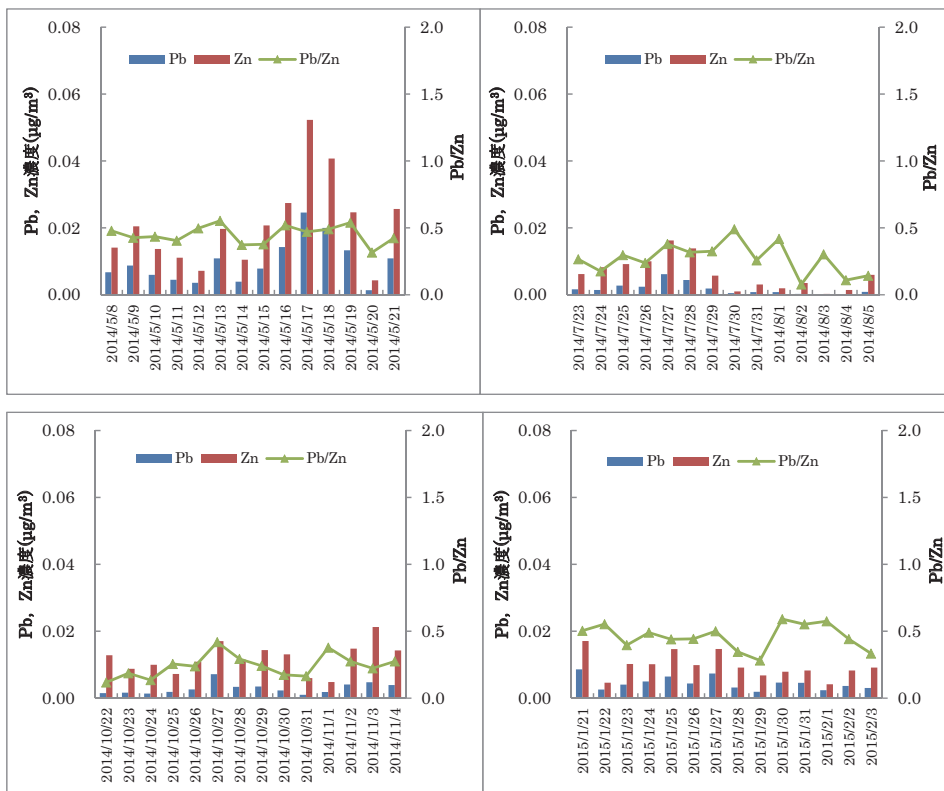


図 8 各測定日のPb, Zn濃度及びPb/Zn

③2015年度

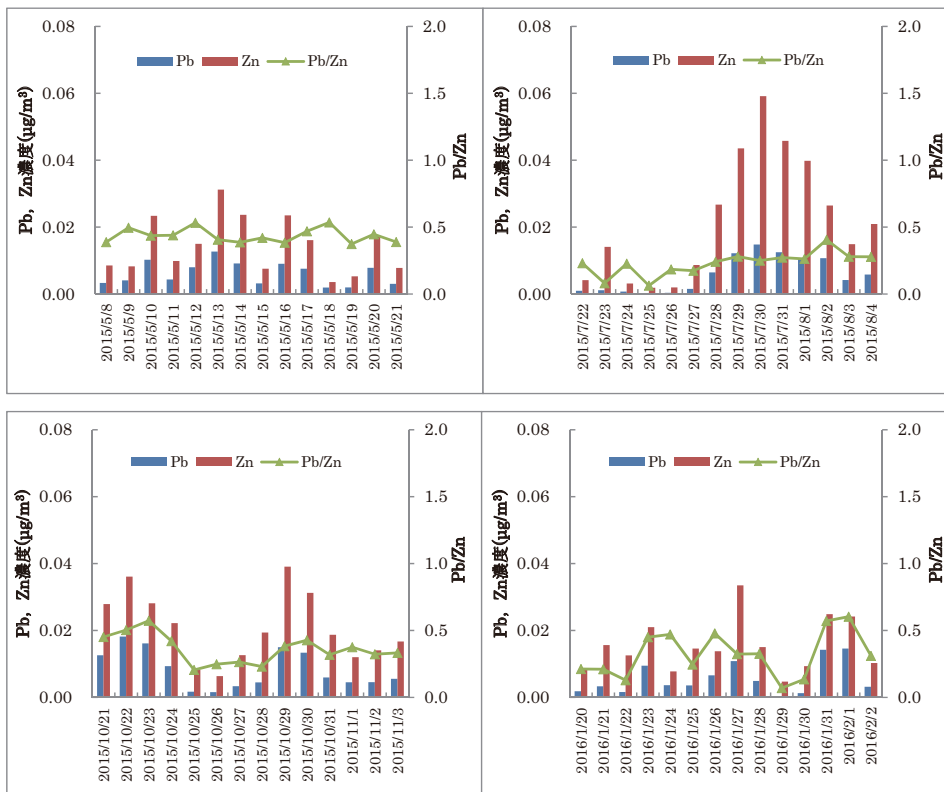


図 8 各測定日のPb, Zn濃度及びPb/Zn

④2016年度

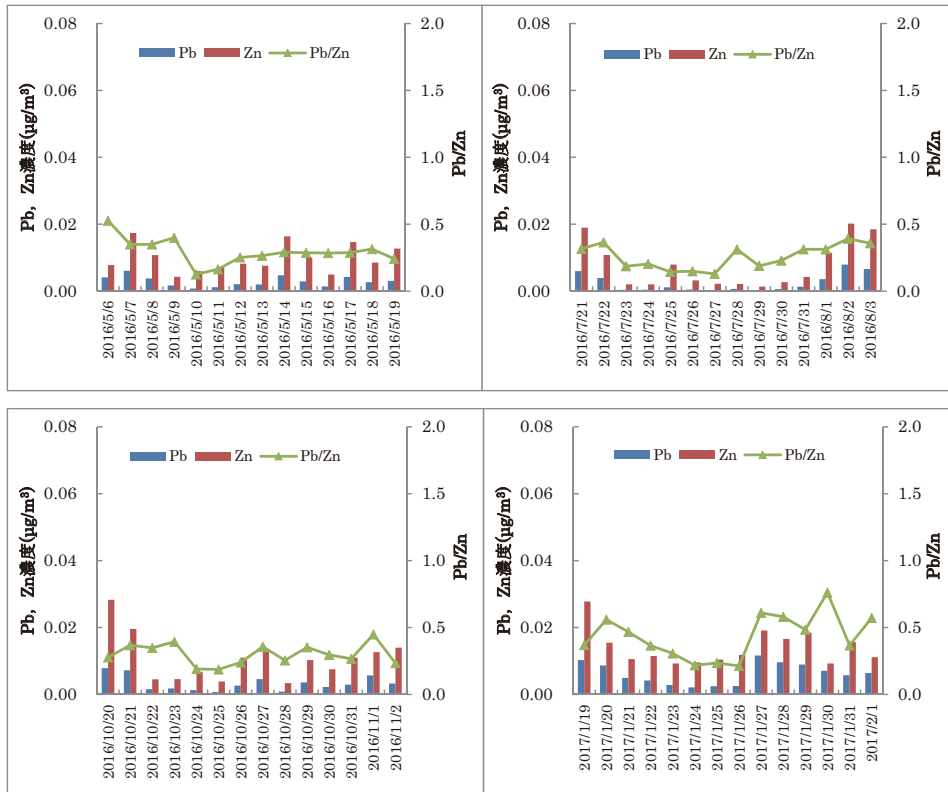


図8 各測定日のPb, Zn濃度及びPb/Zn

⑤2017年度

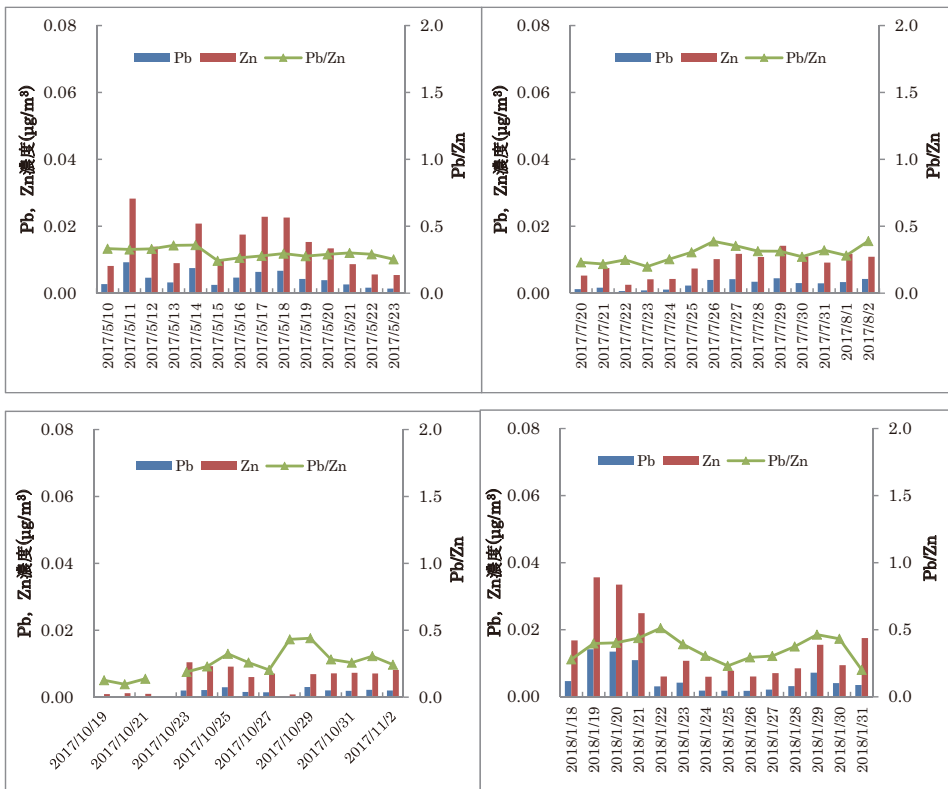


図8 各測定日のPb, Zn濃度及びPb/Zn



①2013年度

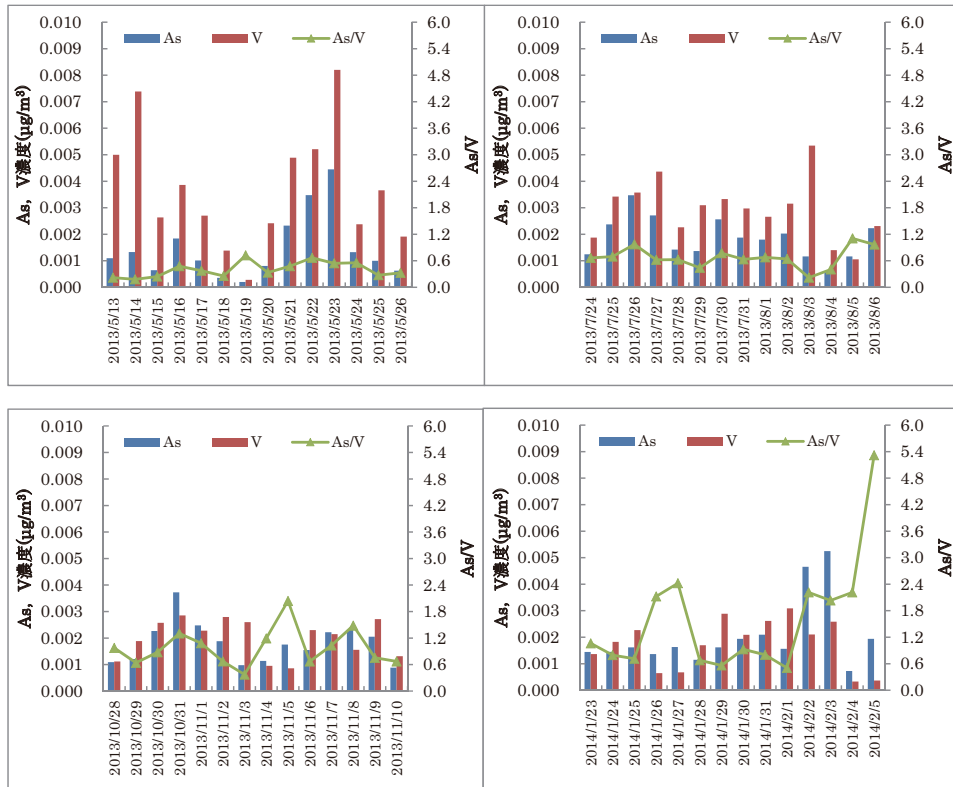


図9 各測定日のAs及びV濃度, As/V比

②2014年度

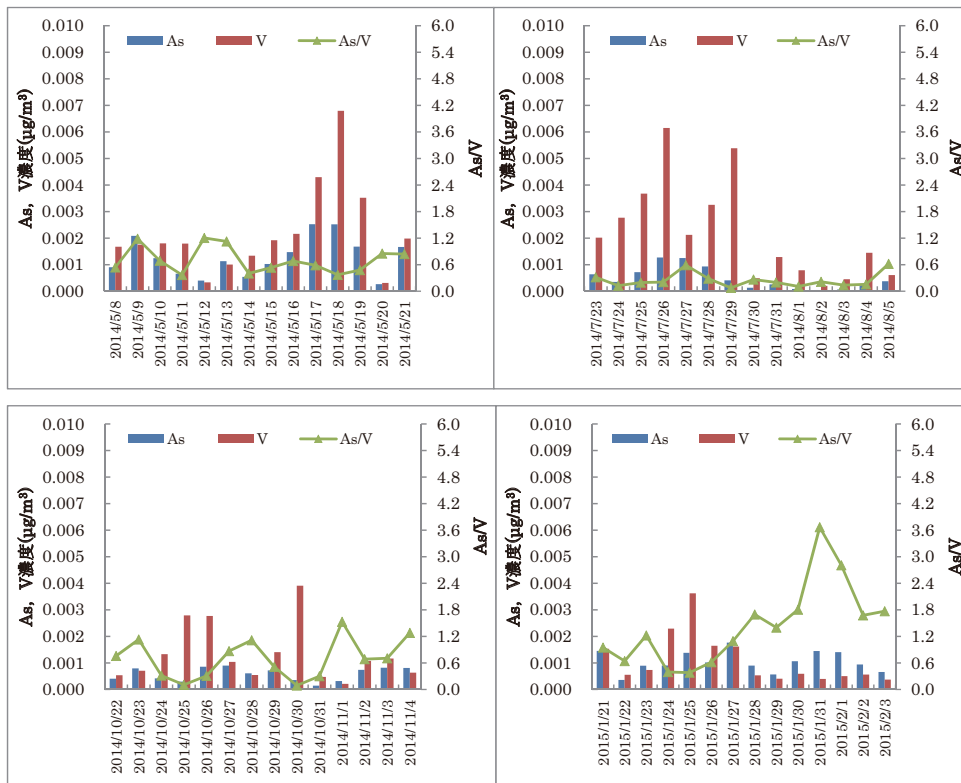


図9 各測定日のAs及びV濃度, As/V比

③2015年度

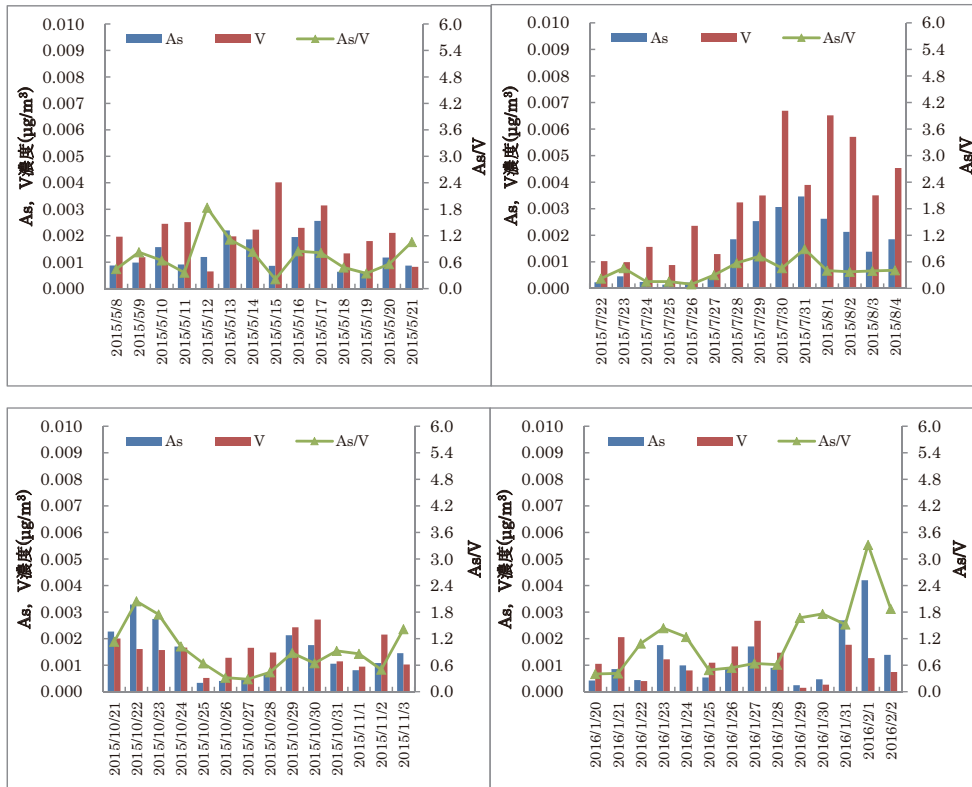


図9 各測定日のAs及びV濃度, As/V比

④2016年度

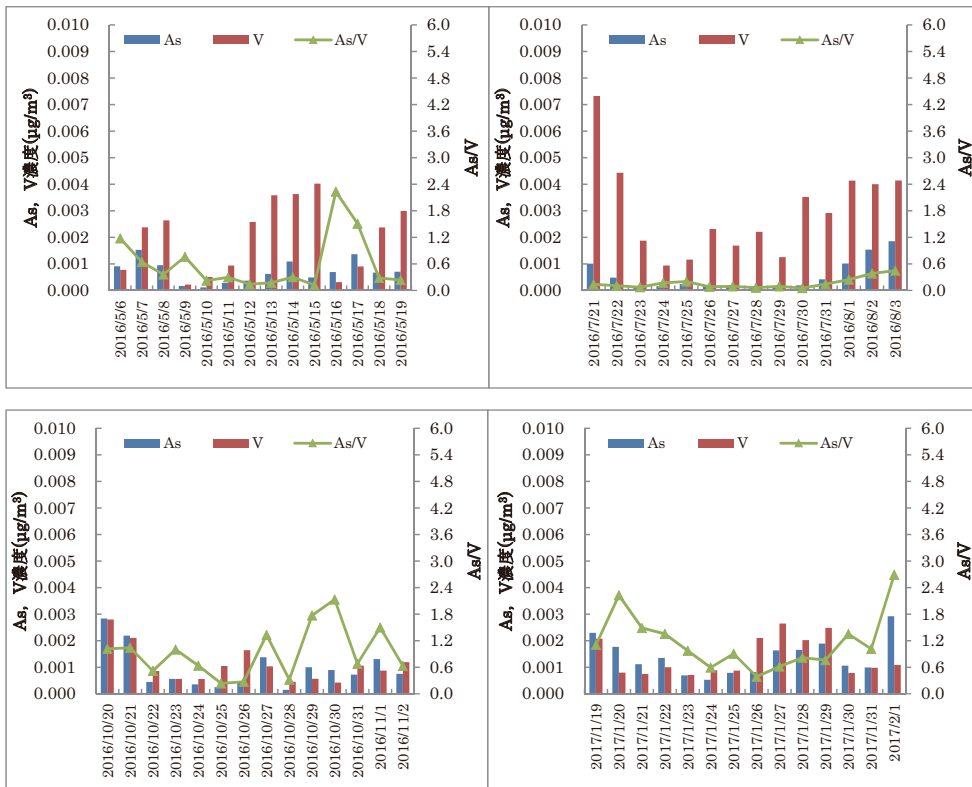


図9 各測定日のAs及びV濃度, As/V比

⑤2017年度

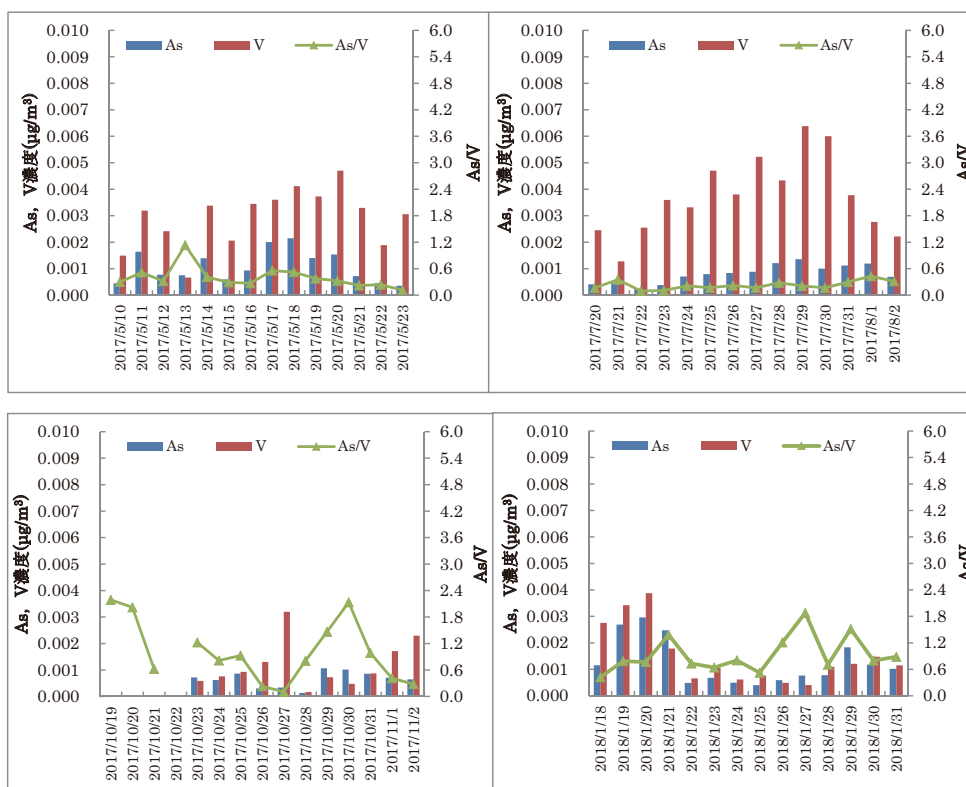


図9 各測定日のAs及びV濃度, As/V比

3. 4 高濃度日の特徴

2013年度から2017年度までの各測定日において、PM<sub>2.5</sub>濃度が30 µg/m<sup>3</sup>を超え、かつ指標成分濃度が高濃度であった4事例について、四季それぞれで高濃度になった要因を検討した。

3. 4. 1 2013年5月22日, 23日

2013年5月22日から23日のPM<sub>2.5</sub>濃度及び特徴的な成分濃度、濃度の春季平均値を表5に示した。

両日のPM<sub>2.5</sub>濃度は、2013年度及び5年間の春季平均値18.6, 14.4 µg/m<sup>3</sup>に対して38.8, 36.9 µg/m<sup>3</sup>と大幅に高く、環境基準の1日平均値35 µg/m<sup>3</sup>を超過していた。

各成分濃度について見ると、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度は、2013年度及び5年間の春季平均値7.38, 4.80 µg/m<sup>3</sup>に対して16.7, 15.6 µg/m<sup>3</sup>であり、春季の最高濃度であるとともに、全測定日で最高濃度であった。

表5 2013年5月22日から23日までのPM<sub>2.5</sub>濃度及び特徴的な成分濃度と春季平均値

| 測定日            | µg/m <sup>3</sup> | ng/m <sup>3</sup> |      |      |      |      |      | µg/m <sup>3</sup>             |                              |                | µg/m <sup>3</sup> |       |
|----------------|-------------------|-------------------|------|------|------|------|------|-------------------------------|------------------------------|----------------|-------------------|-------|
|                | PM <sub>2.5</sub> | 無機元素              |      |      |      |      |      | イオン成分                         |                              |                | 炭素成分              |       |
|                |                   | Al                | V    | Ni   | Zn   | As   | Pb   | SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> | NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> | K <sup>+</sup> | OC                | EC    |
| 2013/5/22      | 38.8              | 437               | 5.21 | 2.37 | 49.2 | 3.47 | 27.0 | 16.7                          | 6.23                         | 0.402          | 3.76              | 1.40  |
| 2013/5/23      | 36.9              | 287               | 8.20 | 3.65 | 54.7 | 4.45 | 26.1 | 15.6                          | 5.64                         | 0.401          | 4.43              | 1.66  |
| 春季平均<br>(2013) | 18.6              | 168               | 3.71 | 1.51 | 20.0 | 1.46 | 9.74 | 7.38                          | 2.70                         | 0.170          | 2.70              | 0.838 |
| 春季平均<br>(5年)   | 14.4              | 150               | 2.57 | 1.14 | 15.9 | 1.17 | 6.58 | 4.80                          | 1.72                         | 0.101          | 2.52              | 0.671 |

また、Pb濃度は、2013年度及び5年間の春季平均値9.74, 6.58ng/m<sup>3</sup>に対して27.0, 26.1ng/m<sup>3</sup>と

2013年度の平均値と比較して2.7倍以上高く、22日は5年間の春季で最高濃度であった。一方、Zn

濃度は、2013年度及び5年間の平均値20.0, 15.9 ng/m<sup>3</sup>に対して49.2, 54.7 ng/m<sup>3</sup>であり、2013年度の春季平均値に対して2.5倍以上高かった。Pb/Zn比は、22日は0.55, 23日は0.48であり、Pb濃度が20ng/m<sup>3</sup>を超えたときのPb/Zn比の平均値0.67と比較すると、やや低い値であった。As濃度は、2013年度及び5年間の春季平均値1.46, 1.17ng/m<sup>3</sup>に対して3.47, 4.45ng/m<sup>3</sup>であり、23日は5年間の春季で最も高い値であった。Pb及びAs濃度が高濃度であったこと、Pb/Zn比が0.5程度であったことから、大陸起源の石炭燃焼粒子の影響がみられたと考えられる。

2013年5月22日及び23日の天気図を図10に示した<sup>11)</sup>。本県は、22日は東シナ海、23日は日本海を東進してきた2つの高気圧に覆われていた。移動性高気圧がアジア大陸東岸から東シナ海を東進する際は、その北～北東縁の周回流によってアジア大陸東岸に蓄積されていた汚染物質が九州など西日本に輸送される「移動性高気圧周回流パターン」が知られており<sup>12, 13)</sup>、特に22日の気象状況は「移動性高気圧周回流パターン」と同様であった。

2013年5月22日12時を基点とした後方流跡線解析の結果を図11に示した<sup>14)</sup>。流跡線の計算方法は、村尾の方法<sup>15)</sup>を参考としたが、特に測定地点における到達高度及び得られた流跡線の評価について以下のとおりとした。到達高度については、基本とする高度を1,500mとしたが、本県の北には石鎚山及び剣山、瓶ヶ森といった標高1,500m以上の山地があることから、到達高度2,000mについても流跡線の計算を行った。また、得られた流跡線については、その通過高度と通過

経路にある山地の標高を比較した。標高から50mの範囲を地表面の摩擦力の影響が強いものとして、標高から50mを超える位置を流跡線が通過していない場合は、流跡線の結果を不採用とした。なお、流跡線の通過経路にある山の高度は、国土交通省国土地理院の地理院地図（電子国土Web）の断面図作成機能で得られた結果を使用した<sup>16)</sup>。測定地点に到達した気塊は、中国大陸の太原及び済南、青島といった地域を通過後、日本海、瀬戸内工業地域を通過して四国に到達し、その後大川峰及び中津山を越えて流入したものであった。このことから、大陸由来の影響と併せて瀬戸内工業地域の影響を受けていることも考えられる。なお、この期間は西日本でPM<sub>2.5</sub>濃度が高濃度であり、東アジアモデルスケールによって5月21日に大陸から流入した南西方向に伸びた帯状の汚染気塊が西日本で停滞している計算結果が得られたことが報告されている<sup>17)</sup>。ただし、気象庁によると、この期間は本県への黄砂は観測されていない<sup>18)</sup>。

また、5月21日から23日の各日9時での東アジアでの硫酸塩濃度分布を図12に示した<sup>19)</sup>。なお、この分布図は気象庁全球スペクトルモデル予測値や、地表面情報として平年値を利用して予測した結果であり、気象場として再解析データを使ったリ、実際の地上積雪データ等を利用した再解析は行っていない<sup>19)</sup>。5月21日の流跡線の経路上にある黄海及び日本海は高濃度の硫酸塩が分布しており、硫酸塩が輸送されることによりPM<sub>2.5</sub>中のSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度が影響を受けたことも考えられる。また、5月22日及び23日に本県は硫酸塩濃度が比較的高いエリアとなっていた。



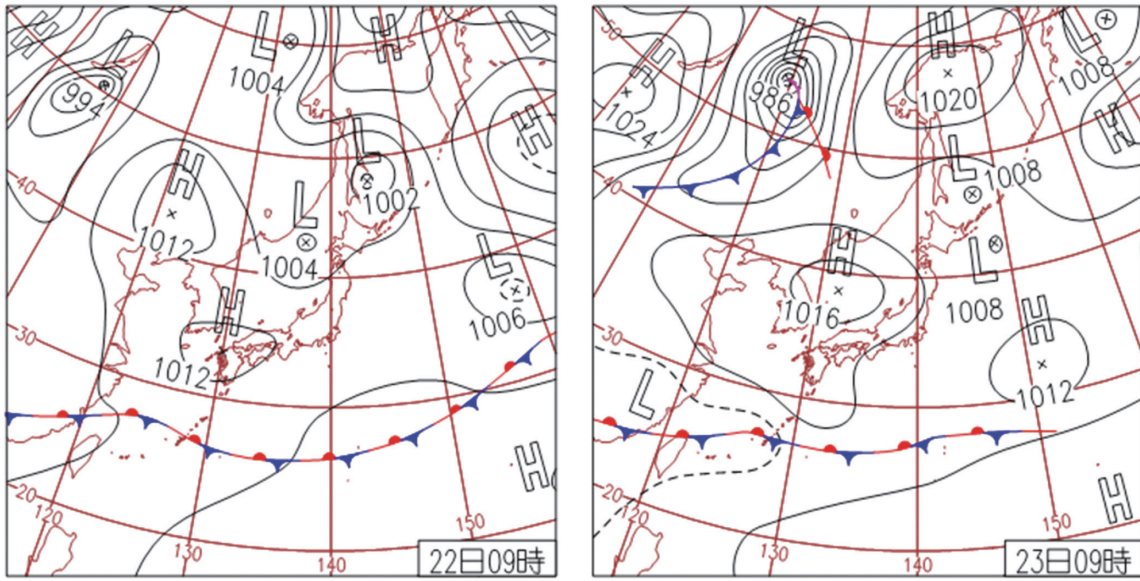


図10 2013年5月22日及び23日9時の天気図

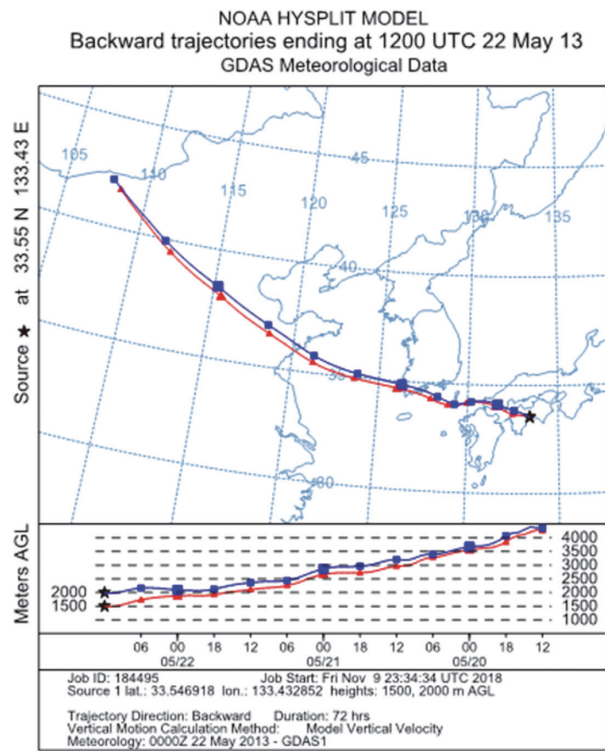
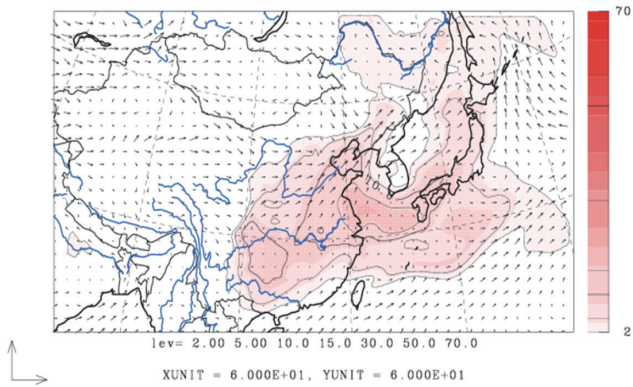


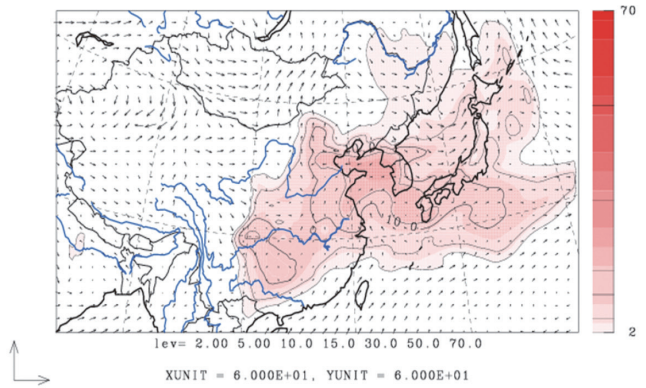
図11 2013年5月22日12時を基点とした後方流跡線解析

U-V&Sulfate m/s&ug/m3 JST  
2013/05/21.09:00:00



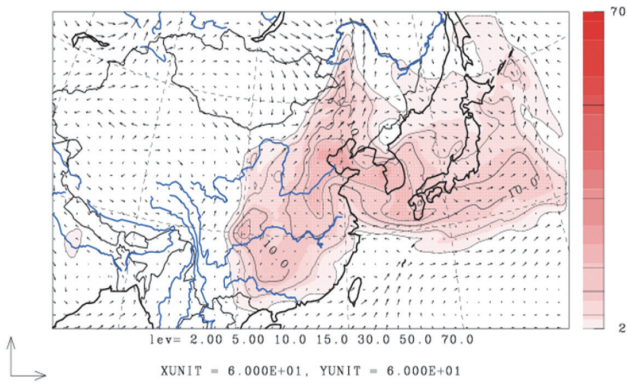
©九州大学応用力学研究所(RIAM)/国立環境研究所(NIES)

U-V&Sulfate m/s&ug/m3 JST  
2013/05/22.09:00:00



©九州大学応用力学研究所(RIAM)/国立環境研究所(NIES)

U-V&Sulfate m/s&ug/m3 JST  
2013/05/23.09:00:00



©九州大学応用力学研究所(RIAM)/国立環境研究所(NIES)

図12 2013年5月21日から23日の各日9時における東アジアでの硫酸塩濃度分布

及び特徴的な成分濃度、濃度の秋季平均値を表6に示した。

### 3. 4. 2 2013年10月30日から11月2日

2013年10月30日から11月2日までのPM<sub>2.5</sub>濃度

表6 2013年10月30日から11月2日までのPM<sub>2.5</sub>濃度及び特徴的な成分濃度と秋季平均値

| 測定日            | μg/m <sup>3</sup><br>PM <sub>2.5</sub> | ng/m <sup>3</sup> |        |      |      |        |      |      |       |      | μg/m <sup>3</sup>             |                              |                |                  | μg/m <sup>3</sup> |       |
|----------------|--|-------------------|--------|------|------|--------|------|------|-------|------|-------------------------------|------------------------------|----------------|------------------|-------------------|-------|
|                |  | 無機元素              |        |      |      |        |      |      |       |      | イオン成分                         |                              |                |                  | 炭素成分              |       |
|                |  | Al                | Sc     | V    | Fe   | Ni     | Zn   | As   | Sb    | Pb   | SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> | NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> | K <sup>+</sup> | Ca <sup>2+</sup> | OC                | EC    |
| 2013/10/30     | 28.3                                   | 196               | 0.21   | 2.57 | 181  | 0.907  | 40.1 | 2.26 | 1.01  | 21.3 | 10.5                          | 3.89                         | 0.408          | 0.154            | 4.69              | 1.52  |
| 2013/10/31     | 30.6                                   | 141               | 0.05   | 2.85 | 153  | 0.772  | 47.4 | 3.72 | 1.62  | 25.3 | 12.3                          | 4.54                         | 0.418          | 0.122            | 4.38              | 1.54  |
| 2013/11/1      | 28.1                                   | 88.8              | 0.05   | 2.28 | 99.4 | 0.0635 | 31.4 | 2.47 | 0.847 | 18.1 | 11.9                          | 4.20                         | 0.352          | 0.0796           | 3.82              | 1.40  |
| 2013/11/2      | 29.6                                   | 53.9              | 0.05   | 2.79 | 73.9 | 0.240  | 26.5 | 1.88 | 0.830 | 16.5 | 10.9                          | 3.99                         | 0.321          | 0.0467           | 4.75              | 1.61  |
| 秋季平均<br>(2013) | 21.9                                   | 92.8              | 0.0614 | 1.99 | 105  | 0.247  | 29.6 | 1.82 | 0.782 | 16.9 | 7.95                          | 2.83                         | 0.245          | 0.0723           | 3.65              | 1.20  |
| 秋季平均<br>(5年)   | 12.9                                   | 135               | 0.0226 | 1.38 | 65.6 | 0.532  | 15.8 | 1.06 | 0.539 | 6.59 | 4.11                          | 1.44                         | 0.136          | 0.0468           | 2.77              | 0.778 |

10月31日にPM<sub>2.5</sub>濃度が30.6 μg/m<sup>3</sup>と5年間の秋季で2番目に高い値であり、その他の日も28 μg/m<sup>3</sup>を超えており、2013年度及び5年間の秋季平均値21.9、12.9 μg/m<sup>3</sup>と比較して、2013年度の秋季で最も濃度の高い期間であるとともに、5年間の秋季平均値と比較して2倍高い値であった。2013年10月29日から11月5日までの測定地点のPM<sub>2.5</sub>濃度の1時間値を図13に示した。10月30日18時にPM<sub>2.5</sub>濃度が30 μg/m<sup>3</sup>を超えて以降11月3日0時に至るまで、ほぼ全ての時間で30 μg/m<sup>3</sup>を超過する状態が継続していた。

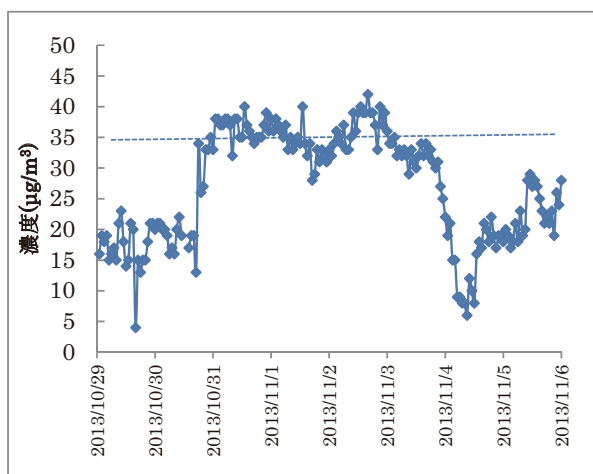


図13 2013年10月29日から11月5日までの伊野合同庁舎測定局でのPM<sub>2.5</sub>濃度の1時間値（破線は、PM<sub>2.5</sub>濃度の環境基準（1日平均値）を表す）

10月30日から順に各成分濃度について見ると、

SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度は、2013年度及び5年間の秋季平均値7.95、4.11 μg/m<sup>3</sup>に対して10.5、12.3、11.9、10.9 μg/m<sup>3</sup>であり、10 μg/m<sup>3</sup>を超える高濃度であった。

Pb濃度は、2013年度及び5年間の秋季平均値16.9、6.59 ng/m<sup>3</sup>に対して21.3、25.3、18.1、16.5 ng/m<sup>3</sup>であり、5年間の平均値と比較すると2.5倍以上の値であった。一方、Zn濃度は、2013年度及び5年間の秋季平均値29.6、15.8 ng/m<sup>3</sup>に対して40.1、47.4、31.4、26.5 ng/m<sup>3</sup>であり、5年間の平均値の1.7から2.9倍の値であった。

Pb/Zn比は0.53、0.53、0.58、0.62と0.5から0.6の範囲内であった。As濃度は、2013年度及び5年間の秋季平均値1.82、1.06 ng/m<sup>3</sup>に対して2.26、3.72、2.47、1.88 ng/m<sup>3</sup>であり、10月31日には5年間の秋季での最大値を示した。これらのことから、大陸起源の石炭燃焼粒子の影響がみられたと考えられる。

その他の成分では、10月30日にはAl及びSc、Fe、Sb、Ca<sup>2+</sup>濃度が、5年間の秋季の最高値又は最高値と同等の値を示した。10月31日にはK<sup>+</sup>、11月2日にはEC濃度が、5年間の秋季の最高値を示した。

2013年10月30日から11月2日までの天気図を図14に示した<sup>16)</sup>。10月26日以降、西日本は東シナ海を連続して東進する高気圧に覆われていた。30日には中国北部に中心を持つ移動性高気圧に覆われており、この高気圧が11月1日にかけて東進することで晴天が続いた。2日には、高気圧の中心は



関東東の太平洋上に移動し、くもりの天気であった。

この気象状況は「移動性高気圧周回流パターン」と考えられる。また、期間中は晴天が続いていたこと、風速の1時間平均値の73%が2m/s未満であったことから、夜間に地表面の放射冷却が起りやすい環境にあり、熱対流が生じにくく大気境界層の高度が低下したことが考えられる。このことから、越境汚染の影響を受けやすい気象条件であったと考えられる。

2013年10月30日から11月2日の各日12時を起点とした後方流跡線解析の結果を図15に示した<sup>13)</sup>。10月30日及び31日に高度2,000mに到達した流跡線は、黄海及び韓国、瀬戸内工業地域を通過していた。11月1日に本県に到達した気塊は、中国大陸の青島を通過後、瀬戸内工業地域を経由したものであった。また、11月2日に本県に到達した気

塊は、武漢及び上海北部、黄海、阿蘇山を経由したものであった。なお、11月には阿蘇山の火山活動に特段の変化はなかった<sup>20)</sup>。これらのことから、3. 4. 1と同様に大陸由来の影響と併せて瀬戸内工業地域の影響を受けていたことも考えられる。

また、10月29日から11月2日の各日9時での東アジアでの硫酸塩濃度分布を図16に示した<sup>19)</sup>。10月29日は黄海上で硫酸塩濃度が高かったが、高気圧から吹き込む北風により、高濃度のエリアが南下することにより、本県は10月30日から硫酸塩濃度が高濃度のエリアに入っていた。なお、10月30日から11月1日に本県に到達した気塊は、いずれも黄海で高濃度の硫酸塩濃度のエリアを通過しており、硫酸塩の輸送によりPM<sub>2.5</sub>中のSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度が影響を受けたことが考えられる。

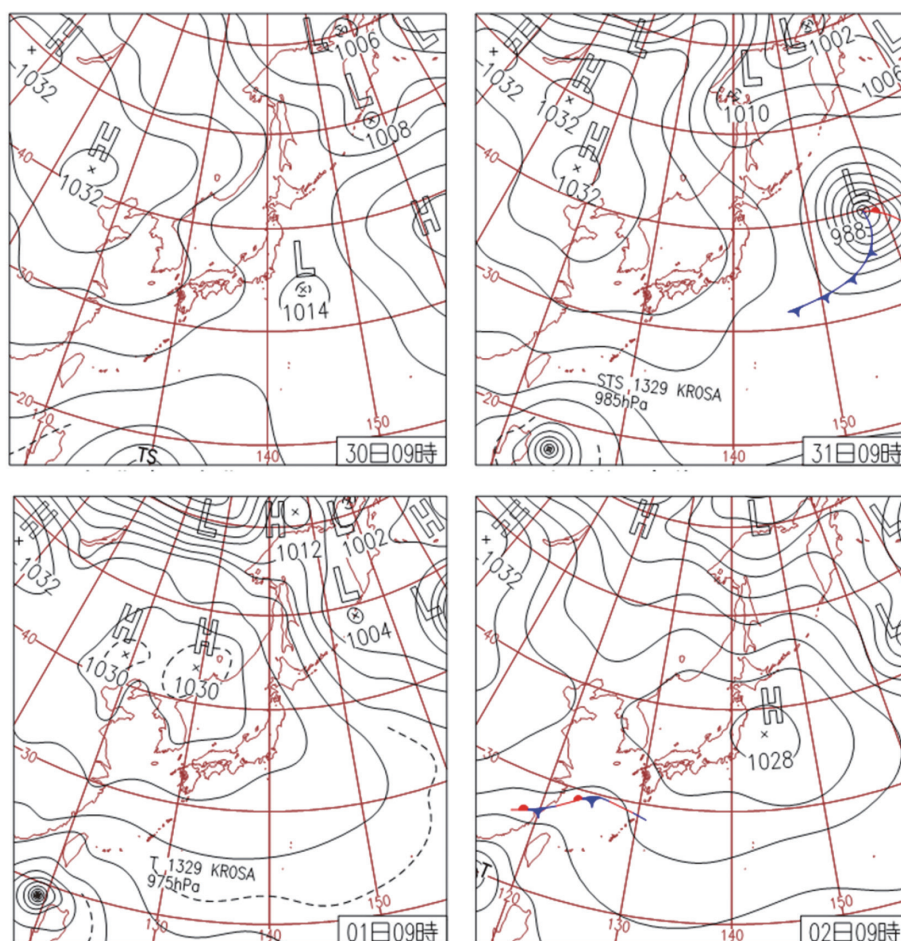


図14 2013年10月30日から11月2日の各日9時の天気図

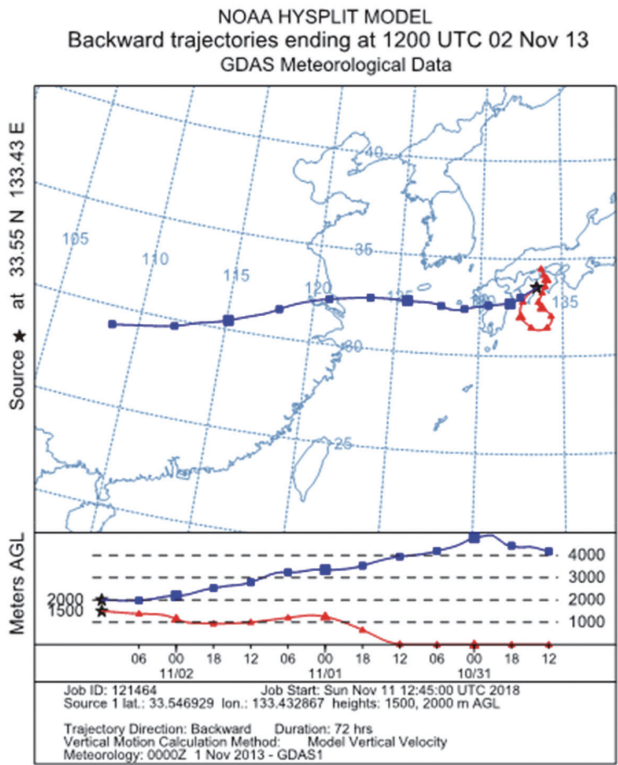
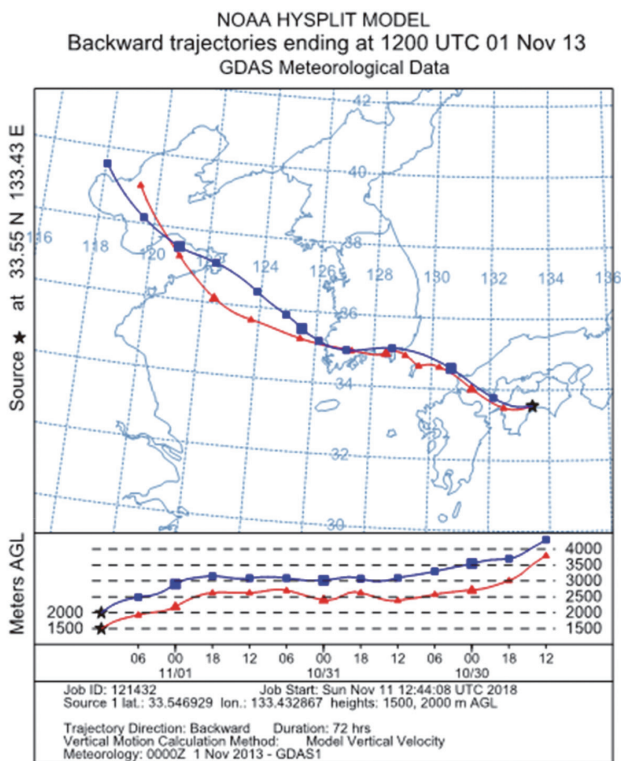
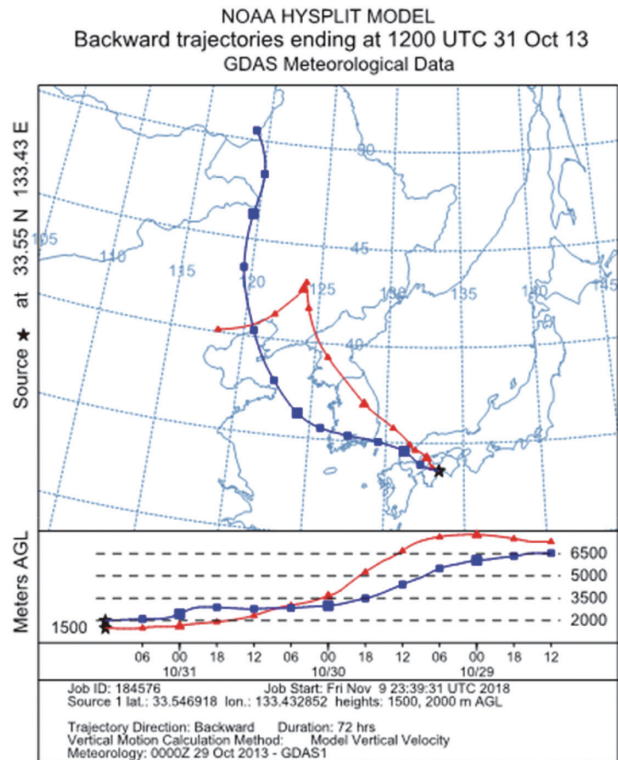
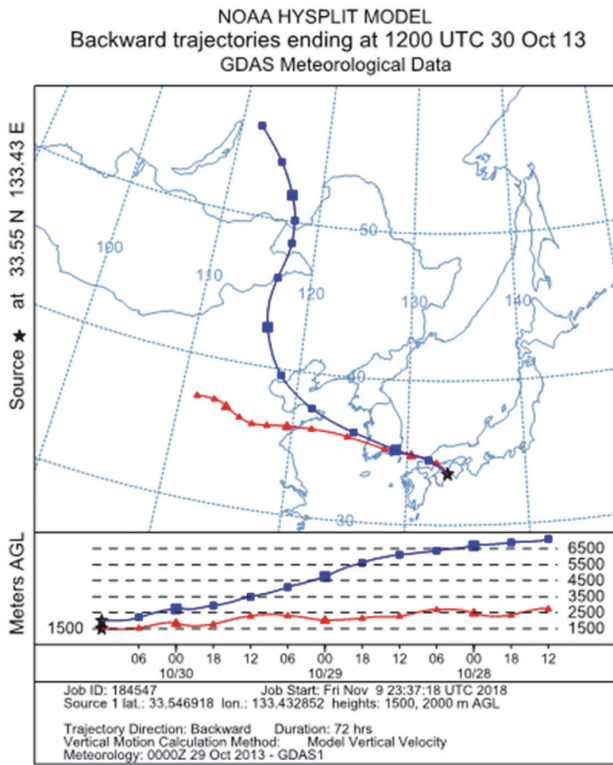
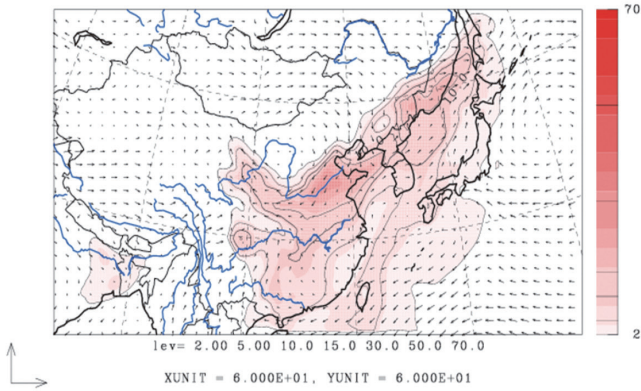


図15 2013年10月30日から11月2日の各日12時を基点とした後方流跡線解析

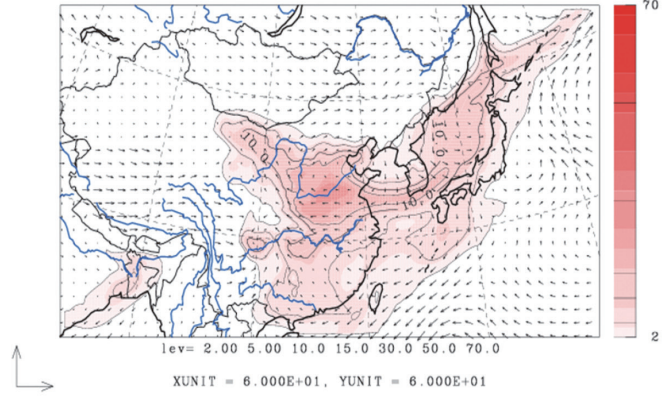


U-V&Sulfate m/s&ug/m3 JST  
2013/10/29.09:00:00



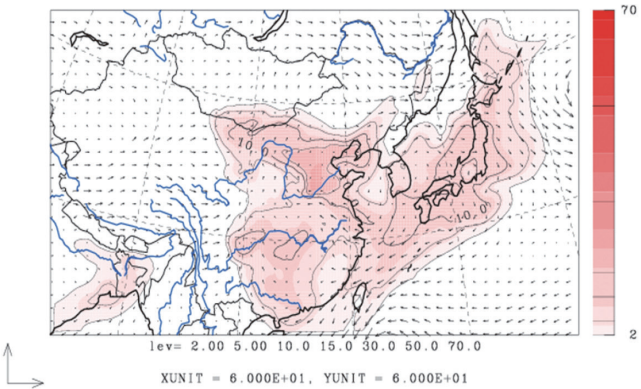
©九州大学応用力学研究所(RIAM)/国立環境研究所(NIES)

U-V&Sulfate m/s&ug/m3 JST  
2013/10/30.09:00:00



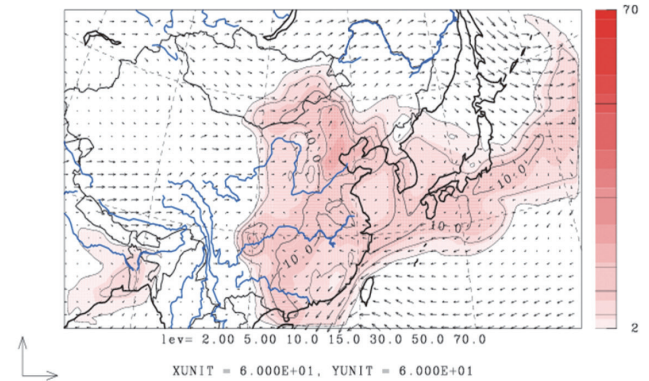
©九州大学応用力学研究所(RIAM)/国立環境研究所(NIES)

U-V&Sulfate m/s&ug/m3 JST  
2013/10/31.09:00:00



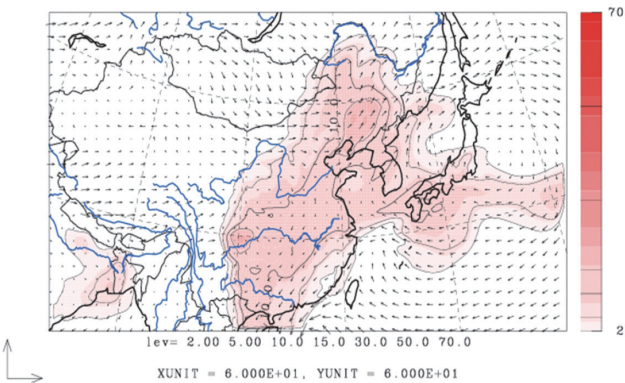
©九州大学応用力学研究所(RIAM)/国立環境研究所(NIES)

U-V&Sulfate m/s&ug/m3 JST  
2013/11/01.09:00:00



©九州大学応用力学研究所(RIAM)/国立環境研究所(NIES)

U-V&Sulfate m/s&ug/m3 JST  
2013/11/02.09:00:00



©九州大学応用力学研究所(RIAM)/国立環境研究所(NIES)

図16 2013年10月29日から11月2日の各日9時における東アジアでの硫酸塩濃度分布

## 3. 4. 3 2014年2月3日

濃度, 濃度の冬季平均値を表7に示した.

2014年2月3日のPM<sub>2.5</sub>濃度及び特徴的な成分表7 2014年2月3日のPM<sub>2.5</sub>濃度及び特徴的な成分濃度と冬季平均値

| 測定日            | $\mu\text{g}/\text{m}^3$<br>PM <sub>2.5</sub> | $\text{ng}/\text{m}^3$<br>無機元素 |      |      |       |      |      |       |      | $\mu\text{g}/\text{m}^3$<br>イオン成分 |                              |                | $\mu\text{g}/\text{m}^3$<br>炭素成分 |       |
|----------------|---|--------------------------------|------|------|-------|------|------|-------|------|-----------------------------------|------------------------------|----------------|----------------------------------|-------|
|                |   | Al                             | V    | Fe   | Ni    | Zn   | As   | Sb    | Pb   | SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>     | NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> | K <sup>+</sup> | OC                               | EC    |
| 2014/2/3       | 33.6  | 240                            | 2.58 | 121  | 1.15  | 31.3 | 5.25 | 1.58  | 33.9 | 13.9                              | 4.74                         | 0.852          | 4.57                             | 2.15  |
| 冬季平均<br>(2013) | 16.0  | 88.3                           | 1.75 | 70.9 | 0.828 | 15.7 | 2.03 | 0.685 | 12.1 | 5.65                              | 2.22                         | 0.243          | 3.12                             | 1.13  |
| 冬季平均<br>(5年)   | 11.7  | 58.1                           | 1.38 | 58.5 | 0.851 | 13.9 | 1.39 | 0.664 | 6.76 | 4.02                              | 1.59                         | 0.123          | 2.34                             | 0.845 |

PM<sub>2.5</sub>濃度は、2013年度及び5年間の冬季平均値16.0, 11.7  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ に対して33.6  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であり、2013年度の冬季平均値と比較して2倍高い値であり、5年間の冬季での最高値を示した。

各成分濃度について見ると、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度は、2013年度及び5年間の冬季平均値5.65, 4.02  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ に対して13.9  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ と2013年度の冬季平均値と比較して2倍高く、5年間の冬季での最高濃度であった。また、Pb濃度は、2013年度及び5年間の冬季平均値12.1, 6.76  $\text{ng}/\text{m}^3$ に対して33.9  $\text{ng}/\text{m}^3$ と非常に高く、全測定日で最も高い値であった。一方、Zn濃度は、2013年度及び5年間の冬季平均値15.7, 13.9  $\text{ng}/\text{m}^3$ に対して31.3  $\text{ng}/\text{m}^3$ であり、2013年度及び5年間の平均値と比較して2倍高い値であった。Pb/Zn比は1.08であり、Pb濃度が20  $\text{ng}/\text{m}^3$ を超えた日のPb/Zn比の平均値0.67と比較しても大きな値であった。As濃度は、2013年度及び5年間の冬季平均値2.03, 1.39  $\text{ng}/\text{m}^3$ に対して5.25  $\text{ng}/\text{m}^3$ と高く、全測定日で最も高い値であった。これらのことから、大陸起源の石炭燃焼粒子の影響がみられたと考えられる。その他の成分では、Al及びNH<sub>4</sub><sup>+</sup>、EC濃度が冬季で最も高かった。

2014年2月3日9時の天気図を図17に示した<sup>16)</sup>。2月1日から中國大陸に中心を持つ低気圧が黄海及び日本海を東進し、3日には別の低気圧とまとまりオホーツク海に中心を持つ低気圧となった。2014年2月1日から3日の各日9時での東アジアの硫酸塩濃度分布を図18に示した<sup>19)</sup>。2月2日には、低気圧の後面に当たる黄海上の硫酸塩濃度は高く、低気圧の東進とともに硫酸塩濃度の高濃度域も東に移動し、本県もそのエリアに入った。

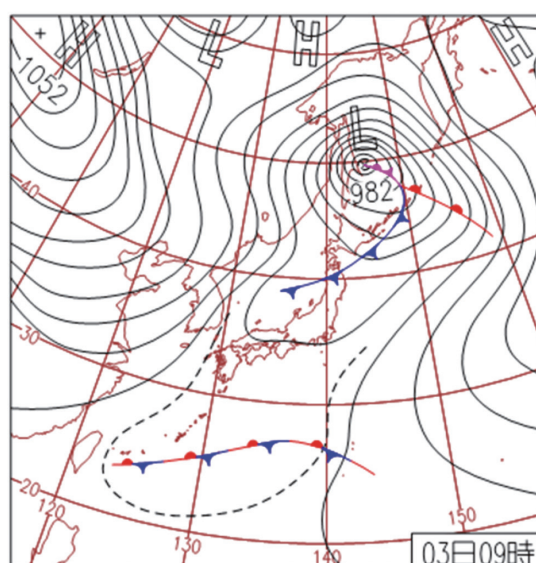


図17 2014年2月3日9時の天気図

2014年2月3日12時を基点とした後方流跡線解析の結果を図19に示した<sup>13)</sup>。高度1,500mに到達した気塊は、中國大陸の太原及び済南、青島の各地域を通過後、瀬戸内工業地域を経て、高度2,000mに到達した気塊は、中國大陸の徐州等の地域を通過後、北九州を経て本県に到達しており、これらの地域の影響を受けていることが考えられる。また、流跡線の経路上の黄海で分布していた高濃度の硫酸塩が輸送されることによりPM<sub>2.5</sub>中のSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度が影響を受けたことも考えられる。

## 3. 4. 4 2015年7月30日から8月2日

2015年7月30日から8月2日のPM<sub>2.5</sub>濃度及び特徴的な成分濃度, 濃度の夏季平均値を表8に示した。

PM<sub>2.5</sub>濃度は、2015年度及び5年間の夏季平均値18.8, 14.4  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ に対して期間中は30  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えており、7月31日には33.9  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ の5年間の



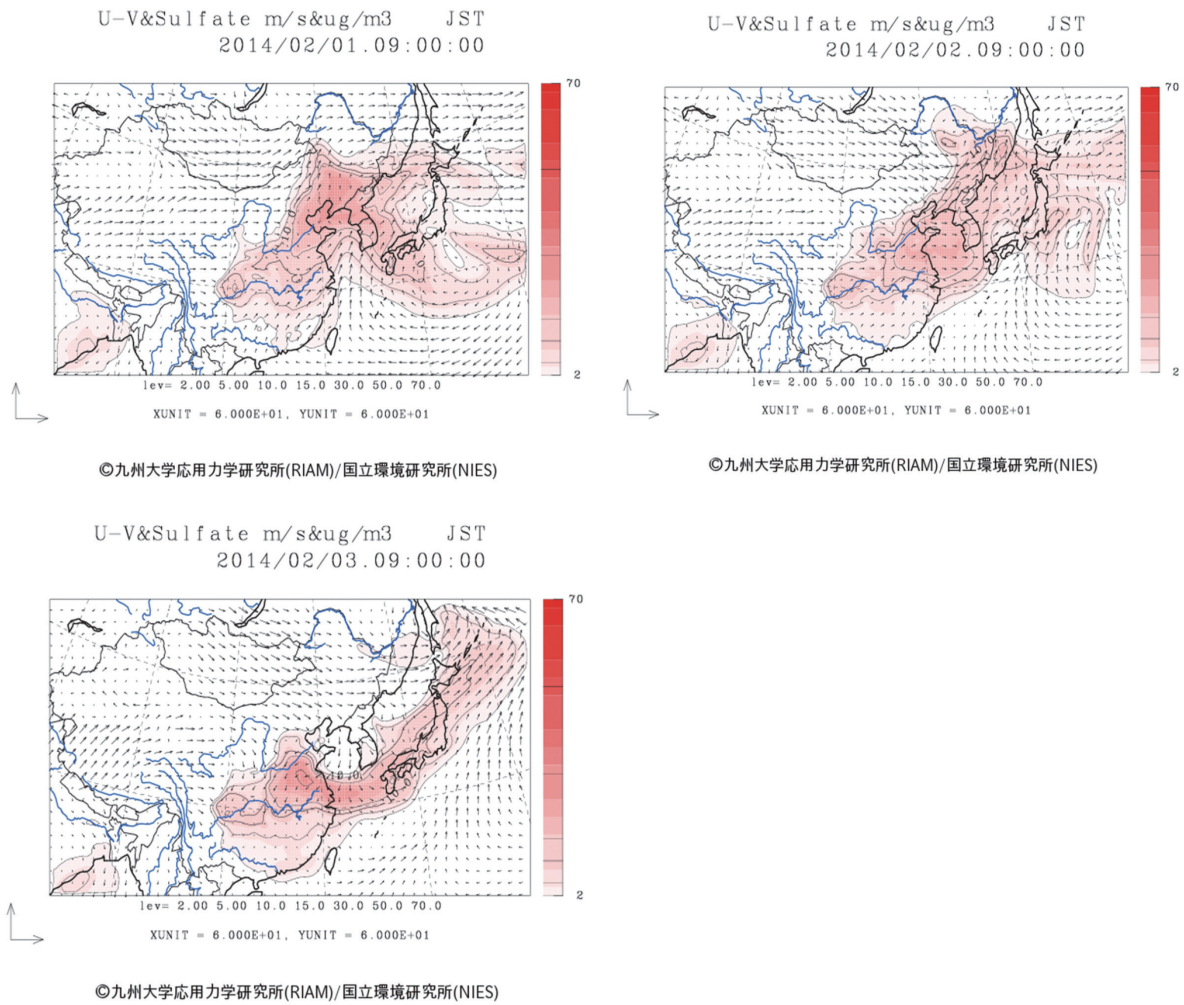


図18 2014年2月1日から3日の各日9時における東アジアでの硫酸塩濃度分布

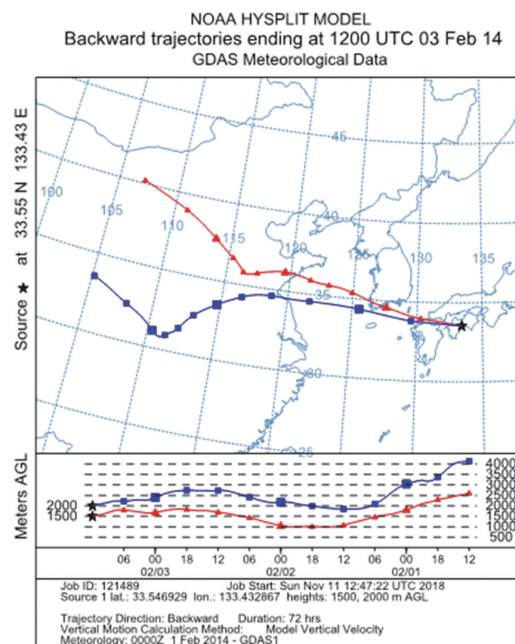


図19 2014年2月3日12時を基点とした後方流跡線解析

表8 2015年7月30日から8月2日までのPM<sub>2.5</sub>濃度及び特徴的な成分濃度と夏季平均値

| 測定日            | $\mu\text{g}/\text{m}^3$<br>PM <sub>2.5</sub> | $\text{ng}/\text{m}^3$<br>無機元素 |      |       |      |      |      |      |       |      | $\mu\text{g}/\text{m}^3$<br>イオン成分 |                              |                | $\mu\text{g}/\text{m}^3$<br>炭素成分 |       |
|----------------|---|--------------------------------|------|-------|------|------|------|------|-------|------|-----------------------------------|------------------------------|----------------|----------------------------------|-------|
|                |   | Al                             | V    | Cr    | Fe   | Ni   | Zn   | As   | Sb    | Pb   | SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>     | NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> | K <sup>+</sup> | OC                               | EC    |
| 2015/7/30      | 31.8  | 60.0                           | 6.69 | 1.09  | 99.7 | 2.38 | 59.1 | 3.06 | 1.70  | 14.8 | 12.5                              | 4.65                         | 0.216          | 5.95                             | 1.78  |
| 2015/7/31      | 33.9  | 53.6                           | 3.89 | 0.872 | 91.9 | 1.62 | 45.8 | 3.46 | 1.32  | 12.5 | 11.0                              | 3.97                         | 0.184          | 6.84                             | 1.81  |
| 2015/8/1       | 33.6  | 39.4                           | 6.51 | 1.03  | 71.7 | 2.67 | 39.8 | 2.62 | 1.61  | 10.5 | 12.7                              | 4.62                         | 0.294          | 6.56                             | 1.64  |
| 2015/8/2       | 30.7  | 127                            | 5.70 | 0.860 | 54.8 | 2.16 | 26.4 | 2.13 | 19.2  | 10.7 | 13.0                              | 4.22                         | 1.34           | 4.70                             | 1.08  |
| 夏季平均<br>(2015) | 18.8  | 33.1                           | 3.26 | 0.427 | 47.9 | 1.19 | 22.2 | 1.47 | 2.01  | 5.85 | 7.54                              | 2.55                         | 0.216          | 3.39                             | 0.921 |
| 夏季平均<br>(5年)   | 14.4  | 32.9                           | 3.02 | 0.501 | 38.2 | 1.12 | 15.8 | 1.03 | 0.948 | 4.58 | 5.87                              | 1.98                         | 0.126          | 2.53                             | 0.714 |

夏季最高濃度を示した。2015年7月22日から8月4日までの伊野合同庁舎測定局のPM<sub>2.5</sub>濃度及び近隣の常時監視局で測定したオキシダント濃度を図20に示した。なお、オキシダント濃度については、伊野合同庁舎測定局に最も近い高知市の常時監視局（南新田町及び介良）の結果を用いた。PM<sub>2.5</sub>濃度は7月28日9時から上昇が始まり、7月30日から8月2日には測定期間中では高い値で推移していた。オキシダント濃度の大幅な上昇も7月28日から始まり、7月31日に最高値となって以降濃度は減少に転じた。このことから、7月30日及び31日にPM<sub>2.5</sub>濃度が高濃度であった要因の一つとして、オキシダント濃度の上昇に伴う二次生成の影響が考えられる。2015年7月30日から8月2日の各日9時の天気図を図21に示した<sup>16)</sup>。期間中本県は高気圧に覆われており、晴天が続いていた。

期間中の各成分濃度について見ると、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度は2015年度及び5年間の夏季平均値7.54、5.87  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ に対して、12.5、11.0、12.7、13.0  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ と高い値であった。また、7月28日から8月2日までの各日9時での東アジアの硫酸塩濃度分布を図22に示した<sup>19)</sup>。3.4.1から3.4.3で述べたときと異なり、本県での硫酸塩濃度の上昇は、本県に到達した気塊が硫酸塩を輸送したことによるものではなく、また硫酸塩濃度の高濃度域の移動の影響も小さいものと考えられる。

Pb濃度は、2015年度及び5年間の夏季平均値5.85、4.58  $\text{ng}/\text{m}^3$ に対して、いずれの日も10  $\text{ng}/\text{m}^3$ を超えたが、最高値は14.8  $\text{ng}/\text{m}^3$ でこれまでに述べたケースと異なり、20  $\text{ng}/\text{m}^3$ 未満であった。Zn濃度は、2015年度及び5年間の夏季平均値22.2、

15.8  $\text{ng}/\text{m}^3$ に対して59.1、45.8、39.8、26.4  $\text{ng}/\text{m}^3$ であり、7月30日は全測定日で最高濃度を示した。Pb/Zn比は、0.28、0.25、0.26、0.40であり、2015年度の夏季平均値0.23と比較すると特に高い値ではなかった。As濃度は2015年度及び5年間の夏季平均値1.47、1.03  $\text{ng}/\text{m}^3$ に対して3.06、3.46、2.62、2.13  $\text{ng}/\text{m}^3$ であり、7月31日には5年間の夏季最高濃度を示した。

#### 4. まとめ

2013年度から2017年度までのPM<sub>2.5</sub>成分分析の結果についてとりまとめた。

2013年度は、PM<sub>2.5</sub>濃度の各季節の平均値は15  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超過したが、2016年度、2017年度では15  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 未満であった。PM<sub>2.5</sub>を構成している成分で濃度の高いものは、四季をとおしてSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、OC、ECであった。

PM<sub>2.5</sub>濃度と強い相関を示した成分濃度は、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>及びNH<sub>4</sub><sup>+</sup>、OC、EC、Zn、As、Pbであった。

SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度は夏季に最も高かったが、季節によらず10  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超える濃度上昇がみられた。Pb及びAs濃度は冬季に最も高かったが、Pb及びAs濃度が高濃度となる要因の一つとして、大陸起源の石炭燃焼粒子の影響が考えられる。

2013年5月22日から23日は、PM<sub>2.5</sub>濃度が35  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超過しており、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度は5年間の全測定日において、Pb及びAs濃度は5年間の春季で最も高い値であった。PM<sub>2.5</sub>濃度が高濃度となった要因として、大陸起源の石炭燃焼粒子の影響等が考えられる。

2013年10月30日から11月2日は、期間中78時間にわたってPM<sub>2.5</sub>濃度が30  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超過する状態が

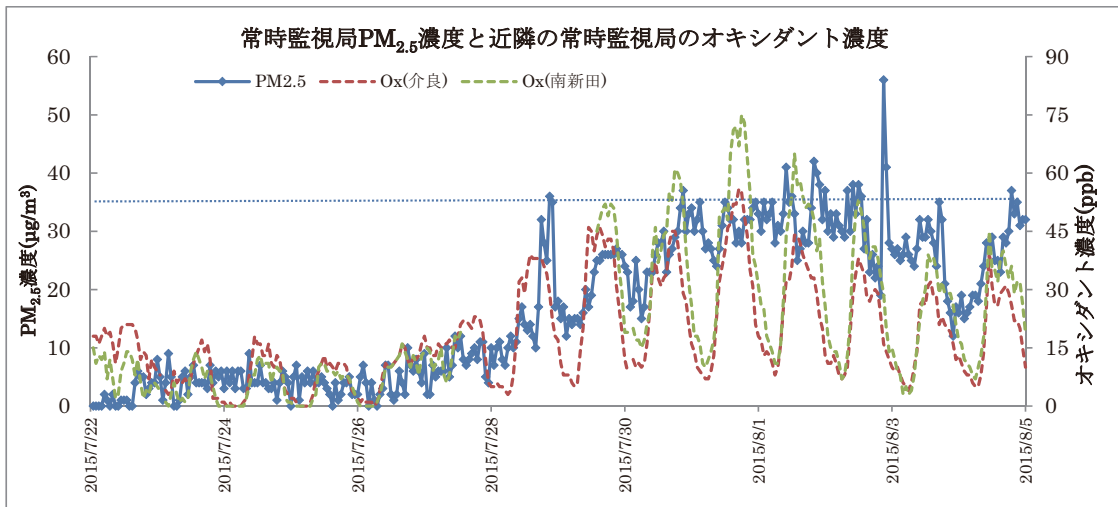


図20 2015年7月22日から8月4日までのPM<sub>2.5</sub>濃度及び近隣の常時監視局で観測された光化学オキシダント濃度の1時間値（破線は、PM<sub>2.5</sub>濃度の環境基準（1日平均値）を表す）

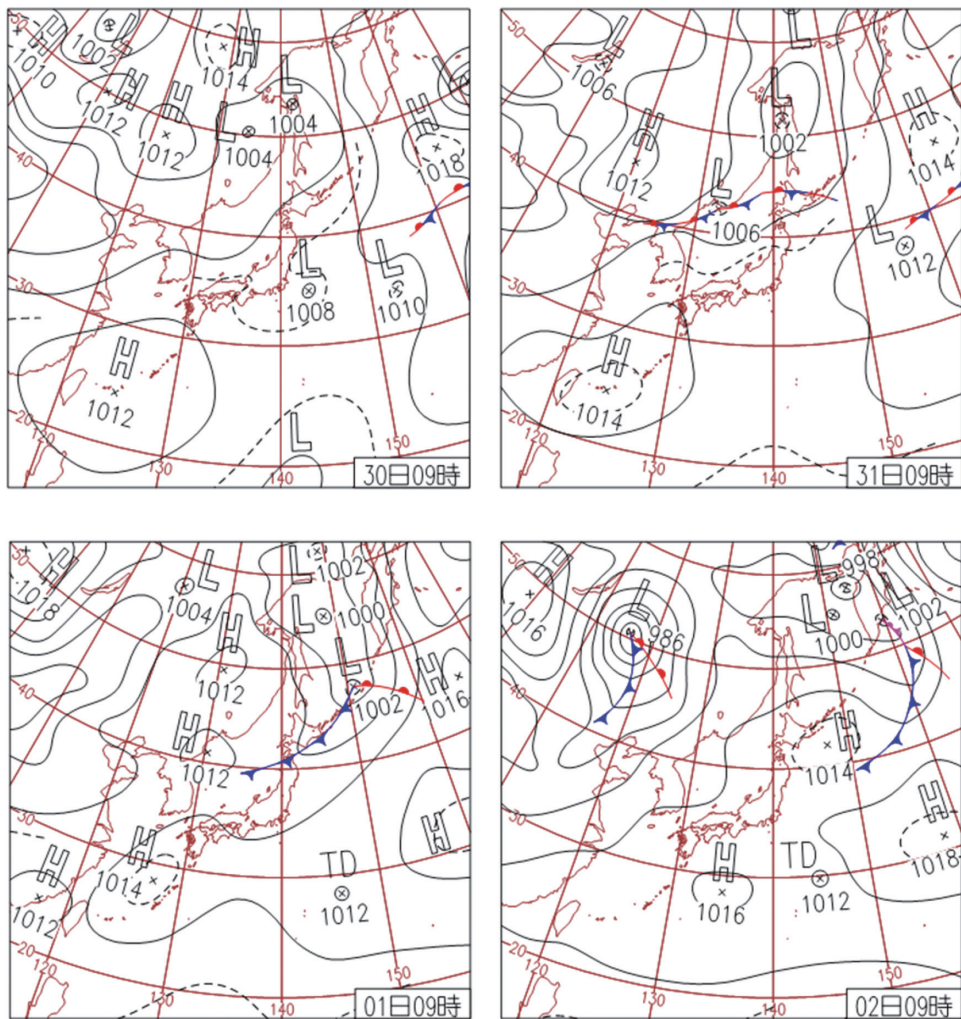


図21 2015年7月30日から8月2日の各日9時の天気図



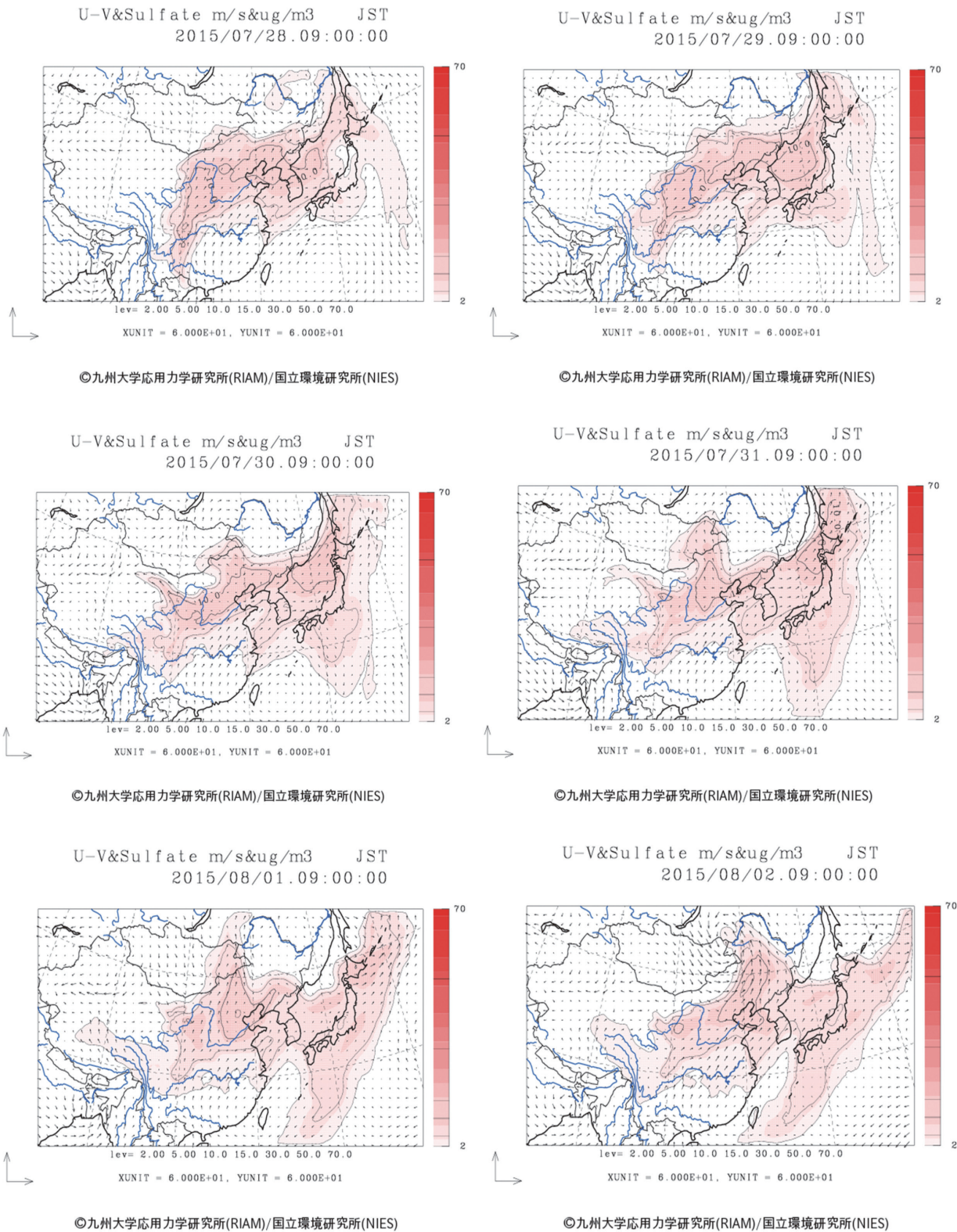


図22 2015年7月28日から8月2日の各日9時における東アジアでの硫酸塩濃度分布

継続した。また、期間中As及びK<sup>+</sup>、EC濃度が5年間の秋季で最高値を示した。PM<sub>2.5</sub>濃度が高濃度となった要因として、大陸起源の石炭燃焼粒子の影響とともに、大陸からPM<sub>2.5</sub>が流入しやすい気象条件の影響等が考えられる。

2014年2月3日は、5年間の冬季で最もPM<sub>2.5</sub>濃度が高かった。また、Pb及びAs濃度が全測定日で最も高く、Pb/Zn比は1を超えていた。PM<sub>2.5</sub>濃度が高濃度となった要因として、大陸起源の石炭燃焼粒子の影響等が考えられる。

2015年7月30日から8月2日は、PM<sub>2.5</sub>濃度は30 μg/m<sup>3</sup>を超過し、5年間の夏季で最も高い値であった。PM<sub>2.5</sub>濃度が高濃度となった要因として、光化学オキシダント濃度の上昇による二次生成の影響が考えられる。

PM<sub>2.5</sub>構成成分の発生源解析を行うにあたって、測定を行っていない指標成分もあり、今後詳細な解析を行うためには、測定対象物質を拡大する必要がある。

## 謝 辞

この度所報を作成するにあたり、京都府保健環境研究所副主査日置正氏には、ご多忙中にもかかわらずPM<sub>2.5</sub>成分分析結果の解析方法について多くのご教示をいただきました。ここに深謝の意を表します。また、解析に用いた光化学オキシダント濃度は、高知市の大気常時監視測定局の測定結果を用いました。データの使用をご承諾いただきました高知市環境保全課に感謝致します。

## 参考文献

- 1) 環境省, 微小粒子状物質健康影響評価検討会報告書, 2008年4月, <http://www.env.go.jp/air/report/h20-01/index.html>, (アクセス日2018年10月19日)
- 2) 環境省, 微小粒子状物質 (PM<sub>2.5</sub>) に関する専門家会合報告書 (最近の微小粒子状物質 (PM<sub>2.5</sub>) による大気汚染への対応), 2013年2月, [http://www.env.go.jp/air/osen/pm/info/attach\\_rep\\_20130227-main.pdf](http://www.env.go.jp/air/osen/pm/info/attach_rep_20130227-main.pdf), (アクセス日2018年10月19日)
- 3) 平成27年度全国道路・街路交通情勢調査一般交通量調査集計表<http://www.mlit.go.jp/road/census/h27/>, (アクセス日2018年10月19日)
- 4) 環境省, 平成28年度大気汚染の状況, <http://www.env.go.jp/air/osen/28taikiosen.pdf> (アクセス日2018年10月11日)
- 5) 環境省, 平成28年度成分測定結果, [https://www.env.go.jp/air/osen/pm/monitoring/data/pm25\\_28.html](https://www.env.go.jp/air/osen/pm/monitoring/data/pm25_28.html) (アクセス日2018年10月14日)
- 6) 鶴野伊津志ら, PM<sub>2.5</sub>越境問題は終焉に向かっているのか?, 大気環境学会誌, 2017, 52, (6), 177-184
- 7) 山神真紀子ら, 2011年2月上旬に観測された広域的なPM<sub>2.5</sub>高濃度エピソードの要因推定, 大気環境学会誌, 2013, 48, (4), 196-205
- 8) 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, 2013, 48, (2), 82-91
- 9) 日置正ら, 松山, 大阪, つくばで観測した浮遊粉じん中金属元素濃度比による長距離輸送と地域汚染特性の解析, 大気環境学会誌, 2009, 44, (2), 91-101
- 10) 米持真一ら, 2013年1月に中国北京市で採取した高濃度PM<sub>2.5</sub>, PM1の特徴, 大気環境学会誌, 2013, 48, (3), 140-144
- 11) 気象庁, 日々の天気図, <http://www.data.jma.go.jp/fcd/yoho/hibiten/index.html> (アクセス日2018年9月14日)
- 12) 鶴野伊津志ら, 春季の移動性高気圧通過時の九州地域での二次汚染物質と火山性SO<sub>2</sub>の挙動, 大気環境学会誌, 1997, 32, (6), 404-424
- 13) 兼保直樹ら, 九州北部における春季の高濃度PM<sub>2.5</sub>と長距離輸送, 大気環境学会誌, 2010, 45, (5), 227-234
- 14) 米海洋大気庁: NOAA (USA), HYSPLIT MODEL, [https://ready.arl.noaa.gov/HYSPLIT\\_traj.php](https://ready.arl.noaa.gov/HYSPLIT_traj.php) (アクセス日2018年10月30日)
- 15) 村尾直人, 大気モデル - 第6講 流跡線解析 -, 大気環境学会誌, 2011, 46, (5), A61-A67
- 16) 国土交通省国土地理院, 地理院地図 (電子国土Web), <https://maps.gsi.go.jp/#10/33.631772/133>.

765411/&base=std&ls=std&disp=1&vs=c1j0h0k0l0u0t0  
z0r0s0f1, (アクセス日 2018年11月7日)

- 17) 環境省, 今年前半のPM<sub>2.5</sub>高濃度日の発生要因, 微小粒子状物質 (PM<sub>2.5</sub>) に関する専門家会合第4回資料, 2013年10月, [http://www.env.go.jp/air/osen/pm/conf/conf01-04/mat01\\_3.pdf](http://www.env.go.jp/air/osen/pm/conf/conf01-04/mat01_3.pdf), (アクセス日2018年10月19日)
- 18) 気象庁, 2013年黄砂観測日及び観測地点の表, [http://www.data.jma.go.jp/gmd/env/kosahp/kosa\\_table\\_2013.html](http://www.data.jma.go.jp/gmd/env/kosahp/kosa_table_2013.html), (アクセス日2018年10月19日)
- 19) 九州大学, 国立環境研究所, 化学天気予報システムCFORS, <http://www-cfors.nies.go.jp/~cfors/index-j.html> (アクセス日2018年11月26日)
- 20) 気象庁, 阿蘇山の火山活動解説資料 (平成25年11月), [https://www.data.jma.go.jp/svd/vois/data/tokyo/STOCK/monthly\\_v-act\\_doc/fukuoka/13m11/503\\_13m11.pdf](https://www.data.jma.go.jp/svd/vois/data/tokyo/STOCK/monthly_v-act_doc/fukuoka/13m11/503_13m11.pdf), (アクセス日2018年11月15日)