

福岡市における PM_{2.5} 成分組成の経年変化 (平成 26~30 年度)

宇野映介・佐野七穂・松本弘子

福岡市保健環境研究所環境科学課

Annual Variation of PM_{2.5} Chemical Composition in Fukuoka City

Eisuke UNO, Nanaho SANO and Hiroko MATSUMOTO

Environmental Science Section, Fukuoka City Institute of Health and Environment

要約

福岡市では、「大気汚染防止法第 22 条の規定に基づく大気汚染の常時監視に関する事務の処理基準について」に基づき、平成 23 年秋季より PM_{2.5} の成分測定を継続して実施している。そこで、長期的な汚染状況の傾向を把握するため、平成 26~30 年度の市役所測定局、元岡測定局及び西新測定局における PM_{2.5} 成分測定結果（質量濃度、イオン成分及び炭素成分）を季節別にまとめ、それらの経年変化を調査した。その結果、春季及び秋季の質量濃度、硫酸イオン、アンモニウムイオンは減少傾向であった。有機炭素及び元素状炭素の年間平均濃度は市役所局が高く、自動車排気や石油燃焼等によるものと考えられた。また季節別の経年変化をみると、いずれの地点も、冬季に硫酸イオンは減少、硝酸イオンは増加の傾向であった。

Key Words: 微小粒子状物質 PM_{2.5}, 成分組成 Chemical Composition, 経年変化 Annual Variation, 季節変動 Seasonal Variation

1 はじめに

福岡市では、平成 22 年 3 月 31 日に改正された「大気汚染防止法第 22 条の規定に基づく大気汚染の常時監視に関する事務の処理基準について」¹⁾に基づき、平成 23 年秋季より PM_{2.5} の成分測定を市役所測定局（以下、「市役所局」とする。）で開始した。平成 25 年度からは元岡測定局（以下、「元岡局」とする。）、平成 26 年度からは西新測定局（以下、「西新局」とする。）をそれぞれ追加し、以降平成 30 年度まで 3 地点で成分測定を実施した。

そこで、過去 5 年間（平成 26~30 年度）の市役所局、元岡局及び西新局における PM_{2.5} 成分測定結果^{2~6)}を季節別にまとめ、それらの経年変化について調査した結果を報告する。

33 度 35 分、東経 130 度 24 分)、元岡局（北緯 33 度 35 分、東経 130 度 15 分)及び西新局(北緯 33 度 35 分、東経 130 度 21 分)を図 1 に示す。市役所局は、福岡市の中心地である天神に位置する一般環境大気測定局である。用途区分は商業地域であり、周辺には多くの商業施設が立ち並ぶとともに、交通の要所となっているため、交通量が非常に多い。元岡局は、市役所局から西に約 14 km の場所に位置する一般環境大気測定局である。用途区分は市街化調整区域であり、周辺には住宅と田畑があり、付近の道路の交通量はさほど多くない。西新局は、市役所局と元岡局の中間に位置する自動車排出ガス測定局である。用途区分は商業地域で、周辺には商業施設が多く、主要道路に近いので、交通量が非常に多い。

調査は、平成 26~30 年度にかけて、春季（5 月）、夏季（7~8 月）、秋季（10~11 月）及び冬季（1~2 月）の各季節の 2 週間、全測定局同時に試料採取を実施した。

2 方法

2.1 調査地点及び調査期間

調査地点である大気常時監視測定局の市役所局（北緯



図1 調査地点

2.2 試料採取及び測定方法

試料採取及び測定方法は、「大気中微小粒子状物質 (PM_{2.5}) 成分測定マニュアル」⁷⁾ に従った。

試料採取は、すべての地点でローボリウムエアサンプラー (柴田科学製: LV-250R) を用いて行った。フィルターは、サポートリング付き PTFE フィルター (Whatman 製) 及び石英フィルター (Pall 製) を使用した。

PM_{2.5} 質量濃度は、捕集前後に PTFE フィルターを温度 21.5±1.5℃、相対湿度 35±5% の室内で 24 時間以上静置したものを秤量し、捕集前後の差によって求めた。

イオン成分は、石英フィルターの 1/4 片を超純水 10 mL で 20 分間超音波抽出し、孔径 0.45 μm の PTFE ディスクフィルターでろ過後、イオンクロマトグラフ (Dionex 製: ICS-1100, 2100) で測定した。測定項目は SO₄²⁻、NO₃⁻、Cl⁻、NH₄⁺、Na⁺、K⁺、Ca²⁺、Mg²⁺ の 8 項目とした。

炭素成分は、石英フィルターの 1 cm² を使用し、カーボンアナライザー (Sunset Laboratory 製: ラボモデル)

で IMPROVE プロトコルに従い測定した。測定項目は OC1, OC2, OC3, OC4, EC1, EC2, EC3, OCPyro とした。有機炭素 (OC) は OC = OC1 + OC2 + OC3 + OC4 + OCPyro, 元素炭素 (EC) は EC = EC1 + EC2 + EC3 + OCPyro で算出した。

3 結果及び考察

3.1 PM_{2.5} 質量濃度及び各成分の経年変化

3 地点における PM_{2.5} の質量濃度及び各成分 (イオン成分、炭素成分) の測定結果について、4 季節全て (以下、「年間」とする。) の平均濃度及び各季節の平均濃度の経年変化をみた。

3.1.1 質量濃度

質量濃度の年間及び各季節の平均濃度を図 2 に示す。質量濃度の年間平均濃度は、増加や減少が見られるものの、全体的に緩やかに減少しており、この傾向は、全国及び福岡市における大気常時監視測定局の PM_{2.5} 濃度 (年平均値)^{8, 9)} の経年変化傾向と概ね一致した。

季節別では、春季及び秋季において減少傾向であった。PM_{2.5} の国内での汚染は大陸からの越境輸送が一因となっているが、平成 25 年以降、中国では PM_{2.5} の排出量が減少している¹⁰⁾。そのため、一般的に大陸規模の輸送が起こりやすいとされる春季と秋季¹¹⁾ において減少したのではないかと考えられた。

3.1.2 硫酸イオン (SO₄²⁻)

SO₄²⁻ の年間及び各季節の平均濃度を図 3 に示す。SO₄²⁻ の年間平均濃度は平成 27 年度に上昇したのち、緩やかに減少した。

季節別では、いずれも減少傾向であったが、特に平成 27~28 年度にかけて、春季と秋季の平均濃度の減少幅が大きかった。これは質量濃度と同様に、中国において、平成 24 年以降、SO₄²⁻ の前駆体である二酸化硫黄 (SO₂) の排出量が顕著に減少している¹⁰⁾ ためと考えられた。

3.1.3 硝酸イオン (NO₃⁻)

NO₃⁻ の年間及び各季節の平均濃度を図 4 に示す。NO₃⁻ の年間平均濃度は、質量濃度や SO₄²⁻ に比べて、はっきりとした減少傾向はみられなかった。

季節別では、NO₃⁻ 平均濃度は夏季が低く、冬季が高かった。夏季は冬季に比べ気温が高く、NO₃⁻ (粒子) が HNO₃ (気体) へ気化しやすいためと考えられた。

3.1.4 アンモニウムイオン (NH₄⁺)

NH₄⁺ の年間及び各季節の平均濃度を図 5 に示す。NH₄⁺ の年間平均濃度は、質量濃度及び SO₄²⁻ と同様の傾向を示した。季節別では春季、夏季、秋季は、SO₄²⁻

と、冬季では質量濃度と同様の傾向であり、 NH_4^+ は主に SO_4^{2-} の対イオンとして存在していることが示唆された。

3.1.5 有機炭素 (OC)

OCの年間及び各季節の平均濃度を図6に示す。OCの年間平均濃度は、質量濃度や他の成分と異なり、やや増加傾向にあった。OCの発生源は、自動車排気や石油燃焼等であるため、大陸からの越境汚染だけではなく地域規模の汚染の影響を受けていると考えられた。いずれの年度においても元岡局や西新局に比べ市役所局が高く、交通量の多い商業地域である市役所局でOCが比較的高かったと考えられた。

季節別では、夏季と冬季の平均濃度で増加傾向であり、特に夏季は増加幅が大きかった。一般的に夏季は光化学反応によって生成された光化学オキシダントが大気中の

揮発性有機化合物 (VOC) を酸化し、新たに粒子を生成する二次生成が起こりやすいとされている^{11, 12)}。OCの年間平均濃度の増加傾向には、主に夏季の地域規模での二次生成増加が寄与していると考えられた。

3.1.6 元素状炭素 (EC)

ECの年間及び各季節の平均濃度を図7に示す。ECの年間平均濃度は、市役所局が高く、元岡局が低かった。ECの発生源もOCと同様に自動車排気や石油燃焼等であるため、都市地域にある市役所局でECが高く、郊外にある元岡局で低いと考えられた。

季節別では、 SO_4^{2-} と同様に春季と秋季の平均濃度の減少幅が大きかった。平成26年以降、中国では SO_2 と同様にECの排出量も減少している¹⁰⁾ことが顕著に減少した要因ではないかと推察された。

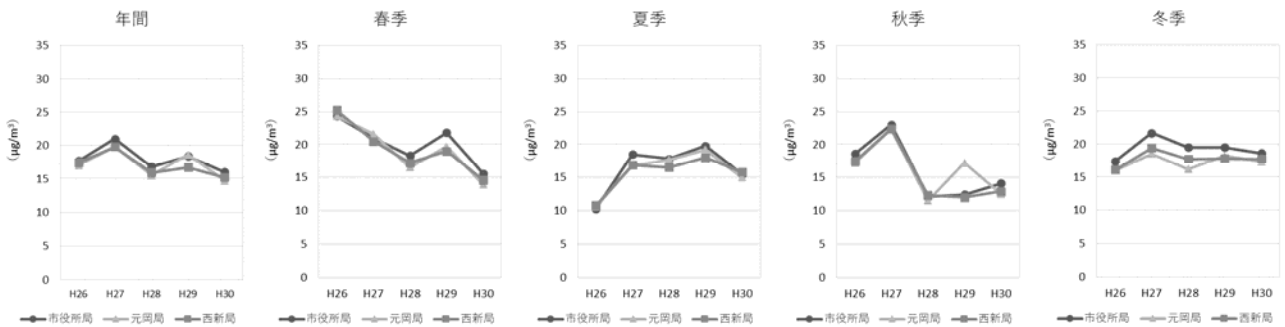


図2 質量濃度の経年変化

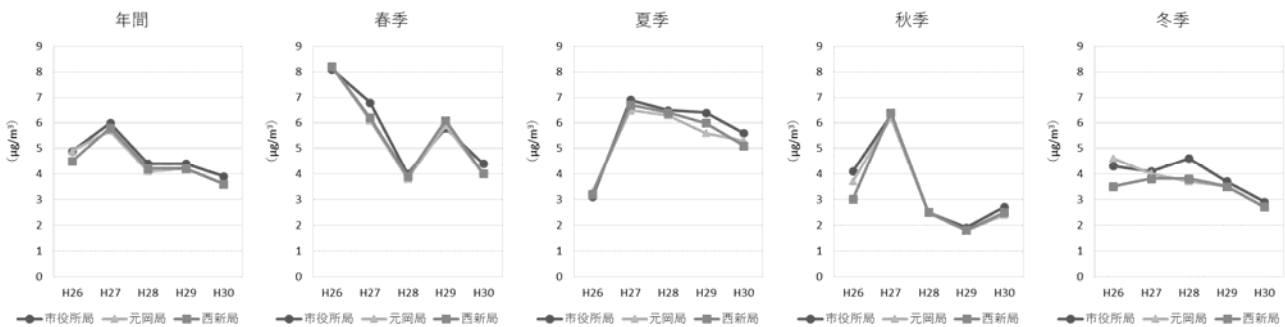


図3 SO_4^{2-} の経年変化

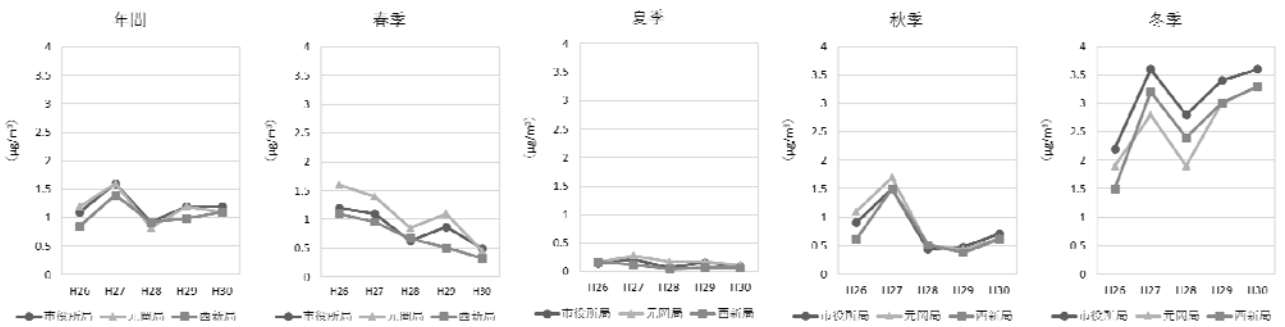


図4 NO_3^- の経年変化

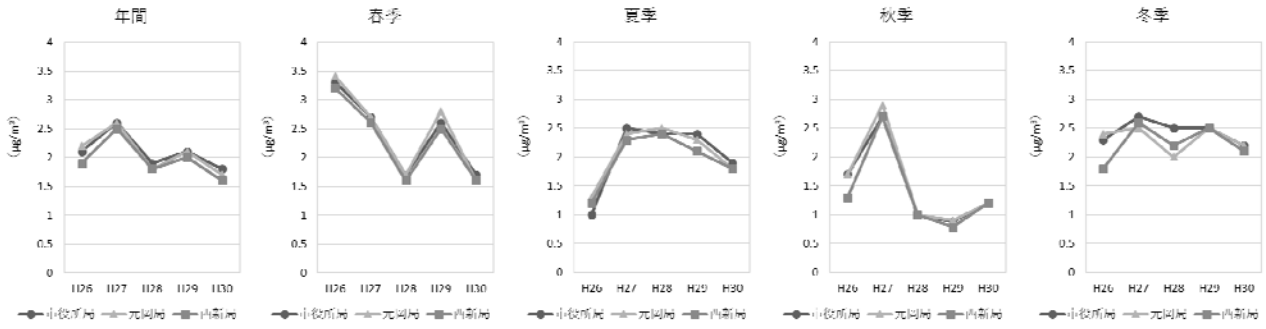


図5 NH₄⁺の経年変化

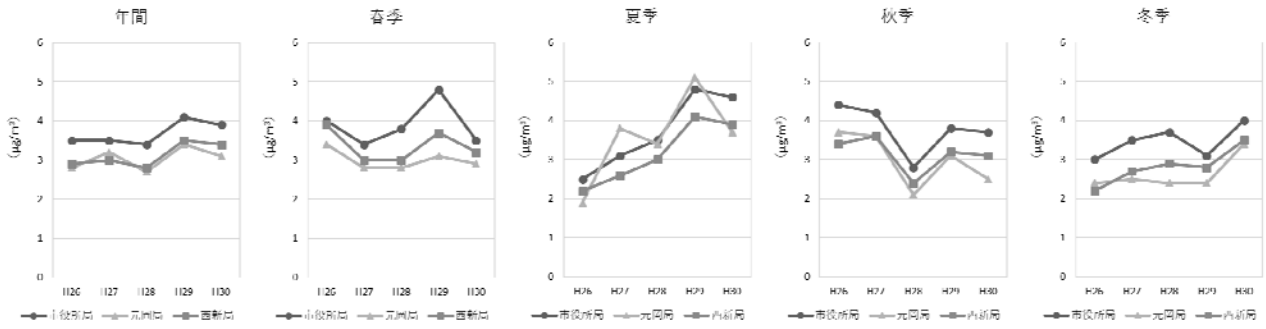


図6 OCの経年変化

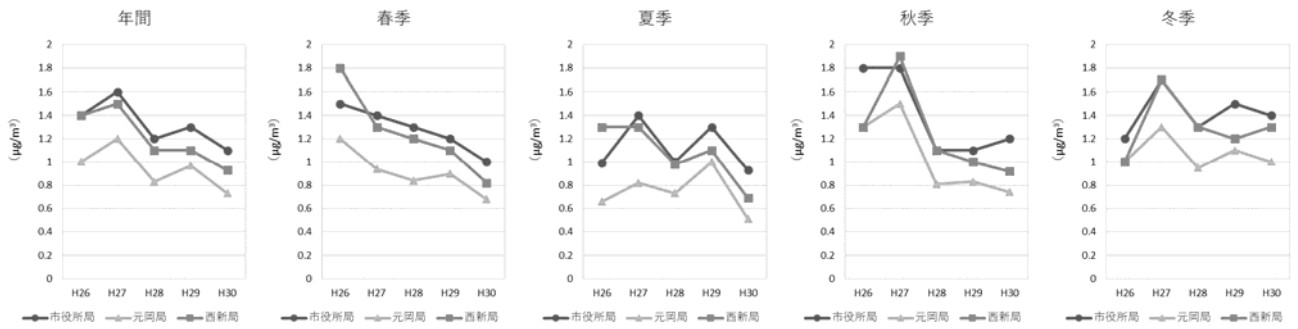


図7 ECの経年変化

3.2 PM_{2.5}質量濃度及び各成分の季節変動

市役所局におけるPM_{2.5}の質量濃度, SO₄²⁻, NO₃⁻及びNH₄⁺の季節変動を図8に示す. SO₄²⁻及びNH₄⁺は冬季を除いて, 質量濃度の季節変動とほぼ同様に推移していることから, 両イオン共に, 質量濃度における割合が高い成分であることが考えられた. 更に, 前述の通り, 冬季を除いてNH₄⁺は主にSO₄²⁻の対イオンとして存在していることが示唆された. NO₃⁻は全ての年度を通して夏季は低く, 冬季は高い傾向であった.

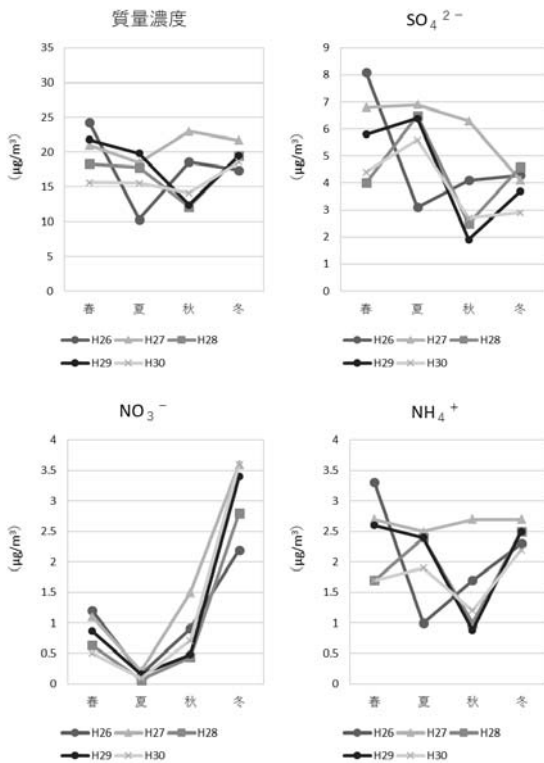


図8 各成分の季節変動 (市役所局)

3.3 PM_{2.5}各成分の季節別の経年変化

市役所局におけるPM_{2.5}各成分の季節別の平均濃度を図9に示す. 冬季のSO₄²⁻は減少の傾向, 冬季のNO₃⁻は質量濃度が高かった平成27年度を除き, 増加の傾向であり, 他局も同様の傾向であった. 長崎県福江島では平成24~31年までの2~4月の野外観測から, 中国より越境輸送されるPM_{2.5}の化学組成が硫酸塩から硝酸塩に変化していることが報告されている¹³⁾. 平成26~30年度の市役所局においても, 冬季のSO₄²⁻の減少及びNO₃⁻の増加が見られたことから, 冬季に関しては, NH₄⁺の主な対イオンはSO₄²⁻からNO₃⁻に移行し, その結果, 冬季のPM_{2.5}の化学組成が硫酸塩から硝酸塩へ変化していることが示唆された.

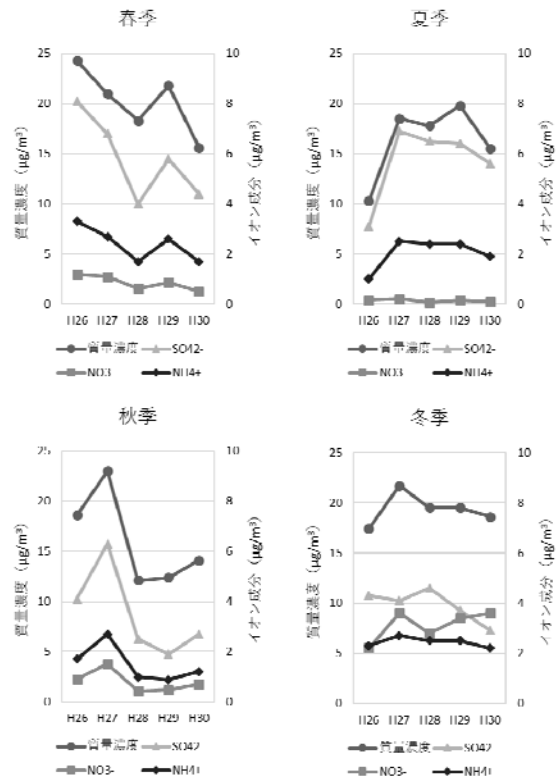


図9 各成分の季節別の経年変化 (市役所局)

4 まとめ

平成26~30年度の市役所局, 元岡局及び西新局におけるPM_{2.5}成分(質量濃度, イオン成分及び炭素成分)の経年変化をみたところ, 質量濃度, SO₄²⁻, NH₄⁺の年間平均濃度は5年間で減少傾向であり, 特に春季及び秋季での減少幅が大きかった. NO₃⁻の年間平均濃度は, 質量濃度やSO₄²⁻に比べて, はっきりとした減少傾向はみられなかったが, 季節別では, 夏季が低く, 冬季が高かった. OC及びECの年間平均濃度を地点別で比較すると, 市役所局が最も高く, 自動車排気や石油燃焼等によるものと考えられた. 季節別では, OCは夏季と冬季で増加傾向であり, ECは春季と秋季の減少幅が大きかった.

市役所局の季節変動の推移をみると, SO₄²⁻及びNH₄⁺は質量濃度とほぼ同様に推移していた. また, 季節別の経年変化をみると, いずれの地点も, 冬季のSO₄²⁻は減少, NO₃⁻は増加の傾向であった.

文献

- 1) 環境省: 大気汚染防止法第 22 条の規定に基づく大気汚染の常時監視に関する事務の処理基準について, 2010
- 2) 環境科学課大気担当: 平成26年度 福岡市における PM_{2.5}の成分組成, 福岡市保健環境研究所報, 40, 190～193, 2015
- 3) 環境科学課大気担当: 福岡市におけるPM_{2.5}の成分組成 (平成27年度), 福岡市保健環境研究所報, 41, 123～125, 2016
- 4) 環境科学課大気担当: 福岡市におけるPM_{2.5}の成分組成 (平成28年度), 福岡市保健環境研究所報, 42, 154～156, 2017
- 5) 環境科学課大気担当: 福岡市におけるPM_{2.5}の成分組成 (平成29年度), 福岡市保健環境研究所報, 43, 125～127, 2018
- 6) 環境科学課大気担当: PM_{2.5}成分組成 (平成30年度), 福岡市保健環境研究所報, 44, 131～133, 2019
- 7) 環境省: 大気中微小粒子状物質 (PM2.5) 成分測定マニュアル, 2019
- 8) 環境省: 大気汚染状況 (平成 25～29 年度)
- 9) 福岡市: 平成30年度版ふくおかの環境
- 10) Bo Zheng, *et al.*: Trends in China's anthropogenic emissions since 2010 as the consequence of clean air actions, *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 14095-14111, 2018
- 11) 大気環境学会: 大気環境の事典, 158～159, 2019
- 12) 環境省: SPM とオキシダントの生成メカニズム, 2020
- 13) Itsushi Uno, *et al.*: Paradigm shift in aerosol chemical composition over regions downwind of China, *Scientific Reports*, 10(1), 2020