

閉鎖性海域周辺地域における微小粒子状物質 (PM_{2.5}) に関する研究牧原 秀明 川上 七恵 岩田 杉夫*¹ 森下 一行*² 梶田 奈穂子*³

国内では、2009年にPM_{2.5}に係る環境基準が設定されて以降、PM_{2.5}の大気常時監視網の整備が進められてきた。この常時監視データから、瀬戸内海、大阪湾、伊勢湾及び東京湾などの閉鎖性海域周辺地域においてPM_{2.5}濃度が特に高くなる傾向がみられた。その原因究明のため、2016年度から国立研究開発法人国立環境研究所（以下 国立環境研究所）と地方環境研究所等との共同研究（Ⅱ型共同研究）の一環として、閉鎖性海域における汚染機構の解明に関する研究が行われた。

伊勢湾・三河湾周辺の豊橋で季節毎の調査を実施したところ、春季にPM_{2.5}イオン成分濃度が最も高く、秋季に最も低くなった。また、瀬戸内海及び伊勢湾・三河湾周辺の11地点の調査結果を比較すると、春季及び夏季に瀬戸内海周辺地域、特に新居浜においてPM_{2.5}イオン成分濃度が高くなる傾向が確認された。新居浜ではPM_{2.5}イオン成分のうち、NO₃⁻、SO₄²⁻、NH₄⁺が他地点と比べて高く、これらのイオンが高濃度となることがPM_{2.5}高濃度化の要因であることが示唆された。

キーワード 閉鎖性海域、伊勢湾・三河湾、微小粒子状物質(PM_{2.5})、イオン成分、二次生成

1 はじめに

微小粒子状物質 (PM_{2.5}) とは、大気中に浮遊する粒子状物質のうち空気動力学径が 2.5 μm 以下の物質である。肺の奥深くまで入りやすく、呼吸器系疾患、循環器系疾患及び脳神経系疾患等の多くの疾患への悪影響が懸念されている¹⁾。

PM_{2.5}の発生源は多岐にわたり、工場や自動車等の人為起源由来のもの、火山や土壌等の自然起源由来のものがある。これらの発生源から直接粒子状として大気中に排出される一次生成粒子と、大気中にガス状として排出され、光化学反応等により粒子化して生成する二次生成粒子が存在する。二次生成の前駆体として、SO_x、NO_x、揮発性有機化合物 (VOC) 等があり、大気中の反応により硫酸塩、硝酸塩及び二次有機粒子等の二次生成粒子となる。一般に一次生成粒子より二次生成粒子の方が PM_{2.5} 濃度と与える影響が大きいと言われており、二次生成粒子の生成を抑えることが PM_{2.5} 対策にとって大変重要であると言える。

国内では2009年にPM_{2.5}に係る環境基準が設定されて以降、国や地方自治体によるPM_{2.5}の大気常時監視網の整備が進められてきた。これまでに蓄積された常時監視データを見ると、全国のPM_{2.5}の環境基準達成率は年々増加傾向にある一方、九州や瀬戸内海、大阪湾、東京湾等の閉鎖性海域周辺地域では依然として環境基準非達成の測定局が多く見られる²⁾。これらの地域におけるPM_{2.5}高濃度化の要因として、九州では越境汚染の影響を受けやすいことが考えられる。また、大阪湾、東京湾周辺地域は大都市圏であり、人為起源の排出量が多いことが挙げられる。その一方で瀬戸内海周辺地域において高濃度となる要因は不明である。

これらのことから、2016年度からのⅡ型共同研究における研究テーマの一つとして、閉鎖性海域周辺地域における汚染機構の解明に関する研究が行われた³⁾。

本研究では、Ⅱ型共同研究の一環として、フィルターパック (FP) 法を用いた季節毎の調査を閉鎖性海域である伊勢湾・三河湾周辺の豊橋で実施し、閉鎖性海域周辺地域における汚染機構の解明に資することを目的とした。

*1 西三河県民事務所廃棄物対策課 *2 西三河県民事務所環境保全課 *3 尾張県民事務所環境保全課

2 方法

2.1 調査地点及び観測期間

調査は環境調査センター東三河支所(地点名:豊橋)の屋上にて行い、PM_{2.5}質量濃度は調査地点近傍の一般環境大気測定局である大崎測定局(調査地点から直線距離 4.7km, 豊橋市大崎町字柿ノ木)の測定値を用いた。また、II型共同研究では瀬戸内海及び伊勢湾・三河湾周辺の計 11 地点(北九州, 広島, 新居浜, 早島, 徳島, 神戸, 海南, 大阪, 桜井, 名古屋, 豊橋)を調査地点とした(図 1, 表 1)。なお、新居浜の PM_{2.5}質量濃度は金子測定局の測定値を用いた。

観測期間は PM_{2.5}成分濃度の常時監視期間と合わせて実施し、2017 年秋季～2018 年夏季の各季節に原則、日単位の観測を 2 週間とした(表 2)。なお、週末などに 48～72 時間の採取を行った地点や、週末に観測を実施していない地点もある。豊橋では 2018 年春季及び夏季の調査では週末 72 時間の連続採取を行った他、2018 年夏季には台風のため 7 月 27 日～7 月 29 日を欠測とした。

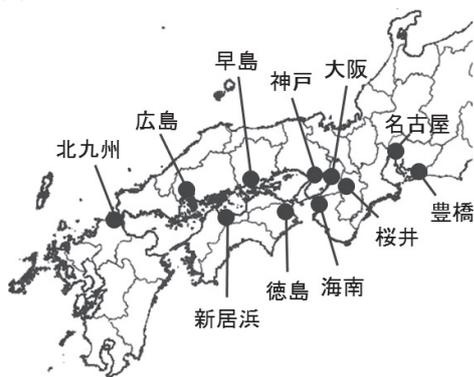


図 1 II 型共同研究調査地点

表 1 II 型共同研究調査地点一覧

地点名	観測地点
北九州	北九州市立大学
広島	広島県立総合技術研究所保健環境センター
新居浜	金子測定局(愛媛県新居浜市)
早島	早島測定局(岡山県都窪郡早島町)
徳島	徳島県立保健製薬環境センター
神戸	兵庫県環境研究センター
海南	日方小学校(和歌山県海南市)
大阪	大阪市立環境科学研究センター
桜井	奈良県景観・環境総合センター
名古屋	名古屋市環境科学調査センター
豊橋	愛知県環境調査センター東三河支所

表 2 観測期間

季節	観測期間
2017 年秋季	2017 年 10 月 19 日～2017 年 11 月 2 日
2018 年冬季	2018 年 1 月 18 日～2018 年 2 月 1 日
2018 年春季	2018 年 5 月 9 日～2018 年 5 月 23 日
2018 年夏季	2018 年 7 月 19 日～2018 年 8 月 2 日

2.2 調査方法

調査は全国環境研協議会・酸性雨広域大気汚染調査研究部会第 6 次酸性雨全国調査実施要領⁴⁾に基づいて実施した。試料採取は粒子状とガス状の無機イオン成分を同時に測定できるフィルターパック(FP)法(NILU 製ホルダー)を用いて、毎分 5L の吸引速度でろ紙に採取し、毎日午前 10 時を起点に 24 時間の連続採取を実施した(図 2)。マスフローメーターはアズビル製 MQV0020BSRN000000, ポンプは(株)テクノ高槻製 SPP-15EBS を使用した。FP は 5 段ろ紙法とし、表 3 に示す 5 種類のろ紙を使用して各成分を採取した。

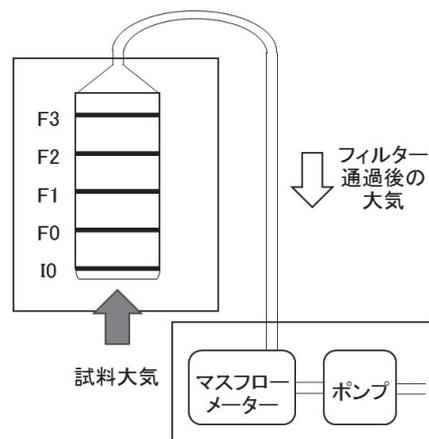


図 2 FP 法概略図

表 3 ろ紙の種類と採取成分

ろ紙	種類	採取成分
I0	石英繊維(ドーナツ型)	粗大粒子のエアロゾル成分
F0	PTFE	PM _{2.5} のエアロゾル成分
F1	ポリアミド	HNO ₃ 並びに HONO, HCl, SO ₂ 及び NH ₃ ガスの一部
F2	6%K ₂ CO ₃ +2%グリセリン含有セルロース	F1 で採取されなかった HONO, HCl, SO ₂ ガスと NO ₂ の一部
F3	5%リン酸+2%グリセリン含有セルロース	F1 で採取されなかった NH ₃ ガス

回収したろ紙を 50mL ポリ容器に入れ、超純水 20mL を加えて 20 分間振とう抽出し、孔径 0.45 μm のメンブレンフィルターでろ過したろ液を検液とした。

分析はイオンクロマトグラフ（株式会社島津製作所デュアル流路分析システム）を用いて行い、検液中のイオン成分 (Cl^- , NO_3^- , SO_4^{2-} , Na^+ , NH_4^+ , K^+ , Mg^{2+} , Ca^{2+}) を表 4 に示す条件で分析した。なお、本稿では $\text{PM}_{2.5}$ のエアロゾル成分 (F0) の結果について取りまとめた。

表 4 イオンクロマトグラフ分析条件

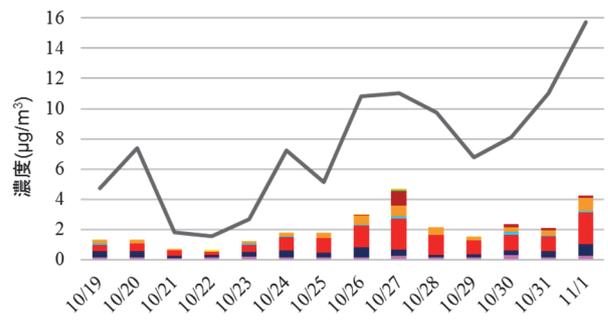
	アニオン	カチオン
カラム	(株)島津製作所 Shim-Pack IC-SA2	(株)島津製作所 Shim-Pack IC-C4
移動相	0.6 mmol/L Na_2CO_3 12 mmol/L NaHCO_3	2.5 mmol/L $(\text{COOH})_2$ 1.0 mmol/L 18-クラウン-6
流量	1.0 mL/min	1.0 mL/min
試料注入量	50 μL	100 μL
カラム温度	40 $^\circ\text{C}$	40 $^\circ\text{C}$
検出器	電気伝導度検出器	電気伝導度検出器

3 結果及び考察

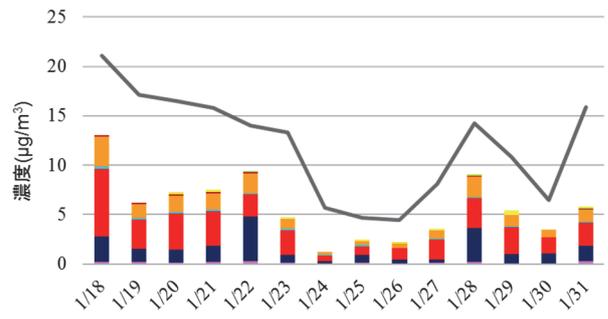
3.1 豊橋における調査結果

2017 年秋季から 2018 年夏季にかけて各季節 2 週間実施した調査結果を図 3 に示す。図の棒グラフが各日における各 $\text{PM}_{2.5}$ イオン成分の日平均値を積算したものであり、折れ線グラフが $\text{PM}_{2.5}$ 質量濃度（大崎測定局の常時監視データ）を表している。

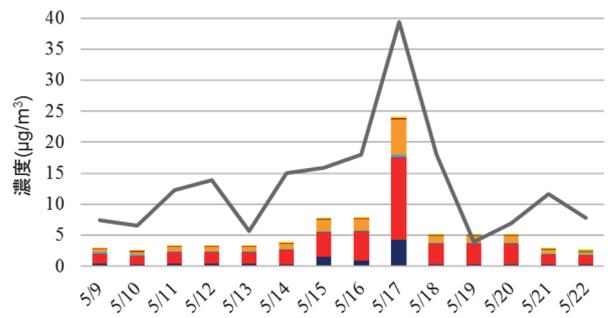
季節による比較をすると、2017 年秋季に $\text{PM}_{2.5}$ 濃度が低い日が最も多く、2018 年春季は突出して高濃度となる日（5 月 17 日）があることが特徴である。また、 $\text{PM}_{2.5}$ イオン成分濃度と $\text{PM}_{2.5}$ 質量濃度を比較すると、濃度の増減傾向が概ね一致していた。



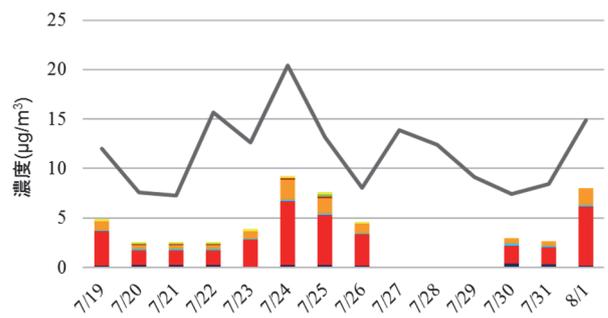
(a) 2017 年秋季



(b) 2018 年冬季



(c) 2018 年春季



(※7/27～7/29 は台風のため欠測)

(d) 2018 年夏季

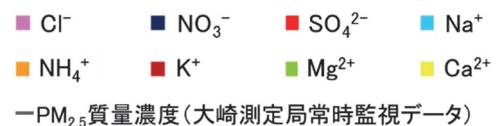


図 3 各季節の $\text{PM}_{2.5}$ イオン成分の調査結果

次に季節毎に PM_{2.5} 濃度を平均した結果を図 4 に示す。季節毎の平均値を比較すると、2017 年秋季が最も PM_{2.5} 濃度が低くなった。その他の季節では 2018 年春季が平均値では最も濃度が高く、次いで 2018 年冬季、2018 年夏季の順となった。

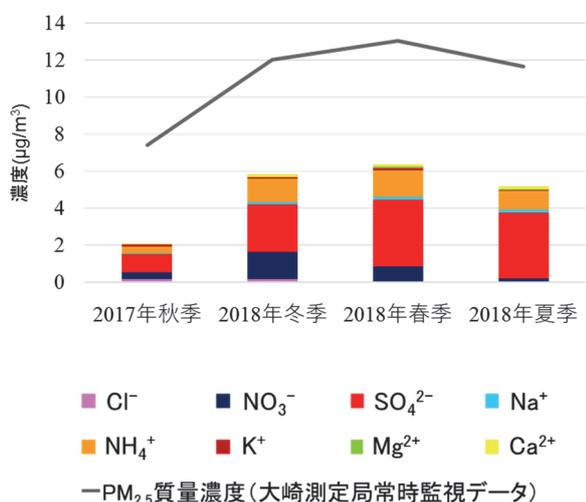


図 4 各季節の PM_{2.5} イオン成分濃度平均

また、各季節のイオン成分の内訳を図 5 に示す。イオン成分の割合を見ると、全ての季節において SO₄²⁻ の割合が最も高くなり、特に 2018 年夏季では全体の約 68% と顕著に高くなった。他のイオンについて比較すると、NO₃⁻ は 2018 年冬季が最も高く、2018 年夏季で最も低くなった。また、NH₄⁺ は全ての季節で概ね 2 割程度となった。今回の調査では、全ての季節において上述した 3 種類のイオン (SO₄²⁻, NO₃⁻, NH₄⁺) で PM_{2.5} イオン成分の 8 割以上を占めるという結果であった。

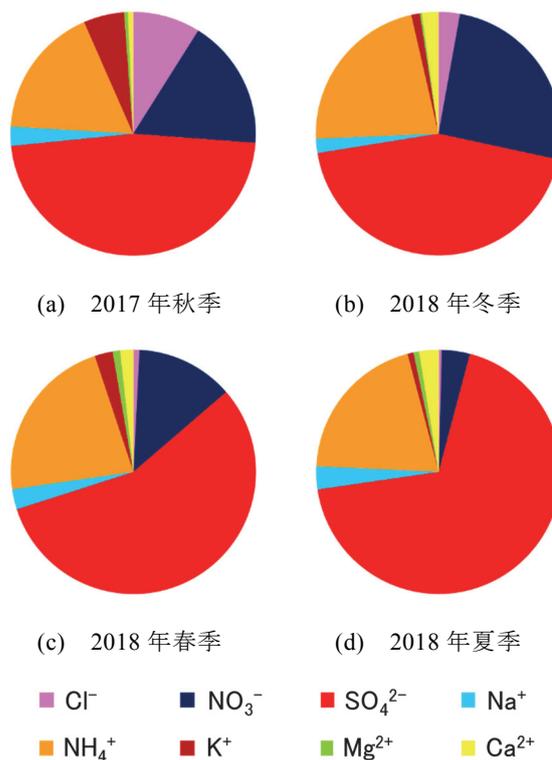


図 5 各季節の PM_{2.5} イオン成分の内訳

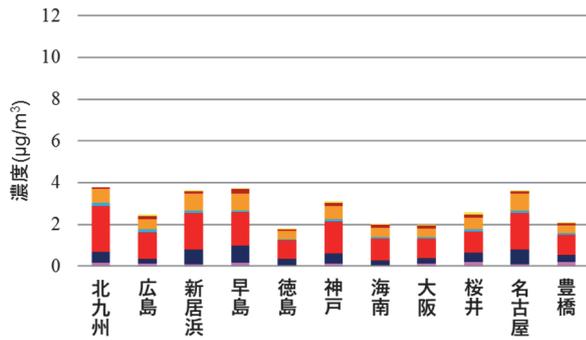
3.2 II 型共同研究における調査結果

瀬戸内海及び伊勢湾・三河湾周辺の 11 地点における各季節の調査結果を図 6 に示す。図 6 は各調査地点における PM_{2.5} イオン成分の日平均値を季節毎に平均した値を用いて比較している。調査結果から 2017 年秋季に全ての調査地点で最も PM_{2.5} イオン成分濃度が低くなった。また、最も高濃度となる季節は調査地点によって異なるが、2018 年春季に最も高濃度となる地点が多くなった。

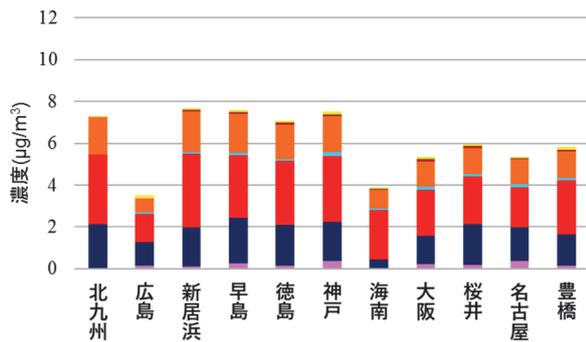
次に調査地点間の比較を行うと、全体的に西に位置する調査地点の方が濃度が高くなる傾向となった。特に 2018 年春季と 2018 年夏季ではその傾向が顕著であり、瀬戸内海に面した新居浜で最も高濃度となった。

一方で、伊勢湾・三河湾周辺に位置する名古屋と豊橋は、瀬戸内海周辺の調査地点と比較すると濃度が低くなる傾向となった。名古屋と豊橋の 2 地点間で比較をすると、2017 年秋季及び 2018 年夏季では名古屋の方が濃度が高く、2018 年冬季及び 2018 年春季では豊橋の方が濃度が高くなった。

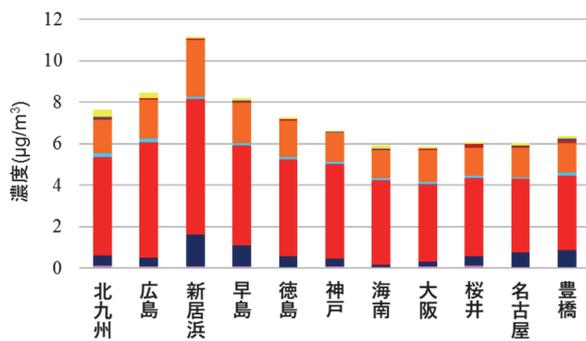
また、豊橋の調査結果を他の 10 地点と比較すると、全ての季節において全調査地点の平均を下回り、特に 2018 年夏季には全調査地点の中で最も濃度が低くなった。



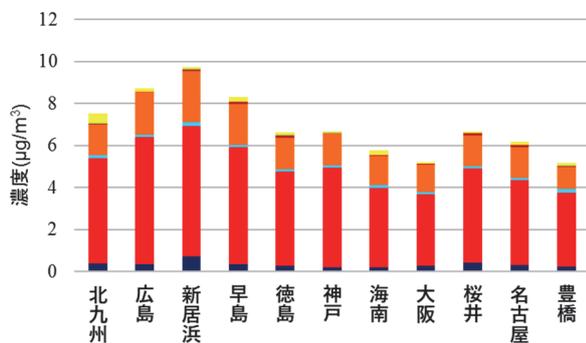
(a) 2017 年秋季



(b) 2018 年冬季



(c) 2018 年春季



(d) 2018 年夏季



図6 II型共同研究における調査結果

新居浜が顕著に高濃度となった 2018 年春季及び 2018 年夏季の調査結果について、各地点のイオン成分濃度を表 5 に示す。地点毎に各イオン成分を比較すると、新居浜では他地点と比較して NO_3^- 、 SO_4^{2-} 、 NH_4^+ が高濃度であった。このうち、 SO_4^{2-} 、 NH_4^+ については新居浜及び新居浜周辺の調査地点で全体的に濃度が高く、 NO_3^- については新居浜で局所的に高濃度となった。

表 5 調査地点間の $\text{PM}_{2.5}$ イオン成分比較

(a) 2018 年春季

	Cl^-	NO_3^-	SO_4^{2-}	Na^+	NH_4^+	K^+	Mg^{2+}	Ca^{2+}
北九州	0.12	0.49	4.76	0.19	1.60	0.08	0.05	0.36
広島	0.07	0.41	5.58	0.17	1.88	0.06	0.00	0.27
新居浜	0.08	1.52	6.54	0.13	2.73	0.06	0.02	0.08
早島	0.08	1.01	4.83	0.09	1.96	0.08	0.02	0.12
徳島	0.05	0.51	4.66	0.13	1.74	0.07	0.02	0.08
神戸	0.06	0.38	4.58	0.10	1.42	0.03	0.01	0.06
海南	0.02	0.13	4.08	0.10	1.33	0.06	0.02	0.14
大阪	0.06	0.25	3.74	0.10	1.53	0.07	0.01	0.06
桜井	0.09	0.49	3.75	0.12	1.36	0.16	0.02	0.08
名古屋	0.03	0.70	3.57	0.09	1.42	0.08	0.02	0.12
豊橋	0.05	0.82	3.58	0.17	1.41	0.15	0.06	0.11

単位： $\mu\text{g}/\text{m}^3$

(b) 2018 年夏季

	Cl^-	NO_3^-	SO_4^{2-}	Na^+	NH_4^+	K^+	Mg^{2+}	Ca^{2+}
北九州	0.03	0.34	5.00	0.17	1.45	0.03	0.05	0.44
広島	0.02	0.30	6.07	0.14	2.03	0.03	0.00	0.14
新居浜	0.03	0.67	6.24	0.15	2.46	0.07	0.02	0.09
早島	0.03	0.30	5.58	0.12	1.93	0.10	0.03	0.20
徳島	0.04	0.21	4.48	0.14	1.48	0.11	0.03	0.11
神戸	0.03	0.16	4.75	0.12	1.52	0.02	0.02	0.04
海南	0.03	0.16	3.78	0.13	1.38	0.04	0.02	0.21
大阪	0.04	0.22	3.41	0.12	1.29	0.04	0.02	0.08
桜井	0.05	0.36	4.50	0.09	1.49	0.09	0.01	0.07
名古屋	0.02	0.29	4.04	0.11	1.47	0.09	0.02	0.13
豊橋	0.02	0.19	3.55	0.16	1.04	0.04	0.04	0.13

単位： $\mu\text{g}/\text{m}^3$

3.3 高濃度化要因についての考察

新居浜のPM_{2.5}濃度が顕著に高濃度となった2018年春季の結果について、新居浜と豊橋の経日変化を図7に示す。新居浜と豊橋を比較すると、PM_{2.5}イオン成分濃度及びPM_{2.5}質量濃度ともに新居浜の方が高濃度となる日が大半を占めた。また、両地点とも5月17日に最も高濃度となった。5月17日が高濃度となった要因について、データには示さないが他の調査地点でも高濃度となっていたことから、広域的な汚染要因があったと推察される。

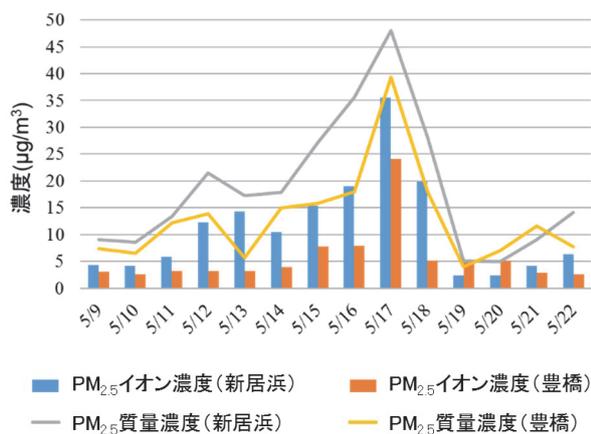


図7 新居浜と豊橋の調査結果比較

また、2018年春季のPM_{2.5}イオン成分濃度及びPM_{2.5}質量濃度について、新居浜と豊橋の調査地点間の濃度差を図8に示す。両地点の濃度差を比較すると、概ねその傾向が一致していることが確認された。このことから、新居浜のPM_{2.5}質量濃度の高濃度化はPM_{2.5}イオン成分濃度の増加、特に上述したようにNO₃⁻、SO₄²⁻、NH₄⁺が増加することが主因であると考えられる。

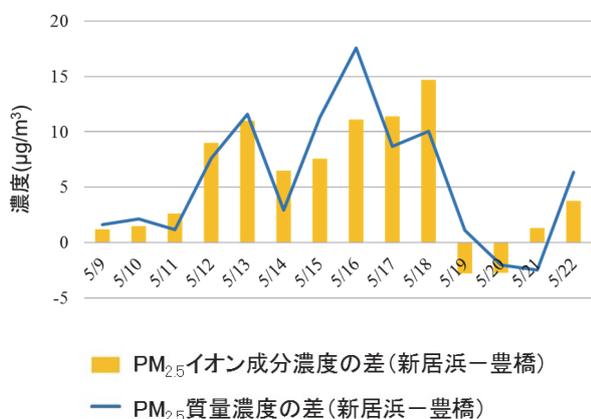


図8 新居浜と豊橋の濃度差の比較

瀬戸内海周辺地域でPM_{2.5}が高濃度化する要因には、大陸からの越境汚染だけでなく、瀬戸内海特有の気象条件に加え、周辺工業地域、船舶などのローカルな汚染要因が関係していると考えられる⁵⁾。また、南北を山地に挟まれた閉鎖的な地形によって起こる大気の滞留等の要因も考えられる。特に今回の調査で最も高濃度となる傾向が見られた新居浜は、燧灘(ひうちなだ)と呼ばれる瀬戸内海でも特に閉鎖的な地形となっている場所であり、こうした特徴的な地形によるPM_{2.5}高濃度化の汚染機構が存在する可能性がある。

また、多くの研究者がPM_{2.5}高濃度化の要因として、船舶燃料由来の排ガスを挙げている⁶⁾。瀬戸内海は全国的に見ても船舶航行が多い地域であり、全国の入港船舶総トン数のうち約4割を瀬戸内海沿岸11府県で占めていることから⁸⁾、船舶の影響は大きいものと考えられる。

2020年1月より海洋汚染防止条約(MARPOL条約)による船舶燃料の規制が強化され、一般海域を航行する船舶の燃料中硫黄濃度の上限値が3.5%から0.5%へと引き下げられた。この規制強化の前後のモニタリングにより、船舶燃料由来の排ガスがPM_{2.5}高濃度化にどの程度関わっているのか明らかになってくるものと思われる。

4 まとめ

瀬戸内海及び伊勢湾・三河湾周辺の計11地点で2017年秋季から2018年夏季にかけて季節毎にFP法を用いた乾性沈着のイオン成分を調査した。

調査の結果、2017年秋季に全ての調査地点で最もPM_{2.5}イオン成分濃度が低くなり、2018年春季に最も高濃度となる地点が多くなった。調査地点間の比較を行うと2018年春季と2018年夏季では瀬戸内海周辺地域で高濃度となる傾向が強く見られ、特に新居浜で顕著に高濃度となることがわかった。新居浜では他地点と比較してNO₃⁻、SO₄²⁻、NH₄⁺が高濃度となった。

これらのイオン成分が高濃度となる要因については不明であるが、瀬戸内海の地形がもたらす様々な気象要因や瀬戸内海を航行する船舶由来の排ガスが関係している可能性がある。

今後、高濃度化の要因解明のため、高濃度となる気象要因についての詳細な解析や、船舶燃料規制強化の影響を評価していくことが必要である。

謝 辞

本研究は国立環境研究所と以下の地方環境研究所及び大学によるⅡ型共同研究として実施した。

地点名	調査機関
北九州	公立大学法人北九州市立大学
広島	広島県立総合技術研究所保健環境センター
新居浜	愛媛県立衛生環境研究所
早島	岡山県環境保健センター
徳島	徳島県立保健製薬環境センター
神戸	兵庫県環境研究センター
海南	和歌山県環境衛生研究センター
大阪	大阪市立環境科学研究センター
桜井	奈良県景観・環境総合センター
名古屋	名古屋市環境科学調査センター
豊橋	愛知県環境調査センター

文 献

- 1) 畠山史郎, 野口 恒: もっと知りたいPM_{2.5}の科学, 60-61, 日刊工業新聞社(2016)
- 2) 環境省: 平成30年度 大気汚染物質(有害大気汚染物質等を除く)に係る常時監視結果
<https://www.env.go.jp/air/osen/matH30taikiosenjokyo/full.pdf> (2021.2.10)
- 3) 中坪良平, 岩田杉夫, 高林 愛, 上野智子, 山神真紀子, 浅川大地, 山田克明, 竹本光義, 森兼祥太, 紺田明宏, 藍川昌秀, 板野泰之, 菅田誠治: 閉鎖性海域周辺における日単位のフィルターパック観測, 第59回大気環境学会年会講演要旨集 (3E1115) (2018)
- 4) 全国環境研協議会酸性雨広域大気汚染調査研究部会: 第6次酸性雨全国調査実施要領 (2017~2018)
- 5) 中坪良平, 堀江洋祐, 瀧本充輝, 松村千里, 平木隆年: 瀬戸内海沿岸において1時間ごとに観測したPM_{2.5}化学成分の解析, *Earozoru Kenkyu*, 33(3),175-182(2018)
- 6) 速水 洋, 板橋秀一, 中村篤博, 伊藤武志, 高木 洋, 櫻井達也: 瀬戸内地域のPM_{2.5}組成について, 第60回大気環境学会年会講演要旨集 (1C0900) (2019)
- 7) 嶋寺 光, 荒木 真, 速水 洋, 中村篤博, 伊藤武志, 板橋秀一, 櫻井達也: 大気質モデルを用いた瀬戸内地域における大気汚染の時空間変動特性の解析, 第60回大気環境学会年会講演要旨集 (1C0930) (2019)
- 8) 環境省: せとうちネット, 瀬戸内海の環境情報、社会経済に関する情報, 海運等の現況
https://www.env.go.jp/water/heisa/heisa_net/setouchiNet/seto/g2/g2cat02/kaiun/index.html (2021.2.10)