

2017年2月に山梨県で観測された 微小粒子状物質 (PM_{2.5}) 高濃度事例の要因解析

大橋泰浩 土橋正徳*

Analysis of the High Concentration of PM_{2.5} Episode that Occurred in Yamanashi Prefecture on February, 2017

Yasuhiro OHASHI and Masanori TSUCHIHASHI

キーワード:PM_{2.5}、成分分析、イオン成分、水溶性有機炭素、芝焼き、野焼き

微小粒子状物質 (以下、「PM_{2.5}」という。)は、粒径が2.5 μm以下と小さく、呼吸器系の奥へ入り込みやすいことから、その健康影響が懸念されており、多くの国で環境基準が設定される等、国際的に注目されている。

2013年1月に中国北京市で大規模な高濃度事例が発生し、日本でも一時的にPM_{2.5}濃度が上昇したことにより、社会的に大きな関心をもたれるようになった。これを契機として、環境省が主催した専門家会合における検討が行われ、2013年2月に健康影響が出現する可能性が高くなると予想される濃度水準として、「注意喚起のための暫定的な指針 (日平均値70 μg/m³)」が定められた。当初、注意喚起の判断方法として、「午前5~7時の1時間値の平均値 (同一区内の中央値) が85 μg/m³を超えた場合」とされたが、日中の濃度上昇に対応するため、同年11月に「午後からの注意喚起の判断基準 (午前5~12時の1時間値の平均値が80 μg/m³を超えた場合)」が追加され、2014年11月には、注意喚起解除の判断基準等も追加された¹⁾。

これを受けてPM_{2.5}に係る注意喚起事例は、2013年3月5日の熊本県を初めとして、主に九州地方や西日本を中心として実施されたが、その件数は減少傾向にある。また、関東地方では、2013年11月4日に千葉県で東日本として初めて注意喚起を実施したが、関東地方周辺で注意喚起を実施する事例はあまりない。そのような状況の中、2017年2月6日に山梨県で初となる注意喚起を行った。

2017年2月5日、10時頃から山梨県の中・西部地域 (甲府盆地内) でPM_{2.5}濃度が上昇し、東山梨では一時201 μg/m³という高濃度を記録した。その後も6日の朝まで甲府富士見局では60~100 μg/m³程度の状態が続いた。朝の5時~7時における中・西部地域の平均値 (中央値) は、85 μg/m³を超える状況ではなかったが、5時~12時の平均値は、甲府富士見局で82 μg/m³と80 μg/m³を超え

たため、12時に中・西部地域で注意喚起を行った。しかし、1時間後 (13時) には10 μg/m³以下となったため、注意喚起を解除した。

この事例について、PM_{2.5}の高濃度化要因を明らかにすることを目的として、大気汚染常時監視測定局6局 (一般局4局、自排局2局) の常時監視測定データを解析するとともに、甲府富士見局および大月局に設置してあるPM_{2.5}自動測定機から回収したテープろ紙の成分分析を実施した。PM_{2.5}の主要成分は、水溶性イオン成分 (主に硫酸イオン (SO₄²⁻)、硝酸イオン (NO₃⁻)、アンモニウムイオン (NH₄⁺))、炭素成分 (元素状炭素 (EC)、有機炭素 (OC)) であるが、今回は水溶性イオン成分の分析を行った他、二次有機粒子全体の指標として、水溶性有機炭素 (WSOC) の分析を行った。

調査方法

1 大気汚染常時監視測定データの解析

(1) 調査地点

山梨県内の大気汚染常時監視測定局のうち、PM_{2.5}自動測定機が設置されている6局 (一般局4局、自排局2局) の常時監視測定データを解析した。調査対象とした地点の位置関係を図1に示した。なお、山梨県の注意喚起区域は大きく中・西部地域と富士・東部地域に分けられる。

(2) 解析対象データ

常時監視測定データとして、この6局で測定されたPM_{2.5}、浮遊粒子状物質 (SPM)、窒素酸化物 (NOx)、光化学オキシダント (Ox)、二酸化硫黄 (SO₂) の1時間値を解析に使用した。また、PM_{2.5}濃度の周辺地域との比較のため、そらまめ君の公開データ (速報値)²⁾ を使用し、千葉大学環境リモートセンシング研究センターweb「大気汚染常時監視局データ (速報値) の広域分布図」³⁾ で公開

* 現 中北保健福祉事務所

されている画像を使用した。



図1 PM_{2.5}の調査地点および気象観測所
(●:大気汚染常時監視測定局、☆:気象観測所)

2 気象データ解析

気象データ解析のため、気象庁のホームページで公開されている「過去の気象観測データ」⁴⁾を解析に使用した。中・西部地域(甲府盆地内)の代表地点として甲府地方気象台、富士・東部地域の代表地点として大月気象観測所の気温および風速等の気象データを解析に使用した。これらの2地点については、図1にその位置(☆)を示した。

3 成分分析

大気汚染常時監視測定局6局に設置されているPM_{2.5}自動測定機のうち、甲府富士見局についてはAPDA-375A(堀場製作所)、大月局および吉田局についてはFPM-377(東亜DKK)であり、PTFEテープろ紙(APDA-375A:TFH-01、FPM-377:AP-50)を使用しているため、水溶性イオン分析とWSOC分析が可能であった。今回、甲府富士見局および大月局の2局で回収したテープろ紙のうち、2017年2月5日~6日までの計48時間分を成分分析に供した。なお、試料の分割方法については、豊永ら⁵⁾が行なった方法を参考にして、PTFEテープろ紙をスポット毎にカットし、6時間分を1試料とした。

水溶性イオン成分分析は、大気中微小粒子状物質(PM_{2.5})成分測定マニュアル⁶⁾を参考にし、超純水15mLで20分間振とう抽出した。これを孔径0.45μmのディスクフィルター(Pall Corporation製)でろ過後に、イオンクロマトグラフ(HIC-20Asp 島津製作所)で分析を行った。分析対象イオンは、SO₄²⁻、NO₃⁻、NH₄⁺の他、ナトリ

ウムイオン(Na⁺)、カリウムイオン(K⁺)、カルシウムイオン(Ca²⁺)、マグネシウムイオン(Mg²⁺)、塩化物イオン(Cl⁻)の8種類である。また、WSOCの分析は、抽出液のうち5mLを分取して、超純水12mLを加え、TOC計(Sievers社製900)で分析した。

各分析において、同じ種類のテープろ紙から試料と同面積を採取し、ブランク試料(n=4)とした。ブランク試料は試料と同様に分析を行い、その平均値を補正に用いた。

結果および考察

1 大気汚染常時監視測定データの解析結果

(1) 山梨県内における常時監視測定データの比較

2月4日~7日の中・西部地域および富士・東部地域のPM_{2.5}、SPM、NO_x、O_x、SO₂濃度の経時変化を図2に示した。

2月5日~6日の高濃度期間について、PM_{2.5}濃度は5日10時頃から中・西部地域(甲府富士見局、東山梨局、県庁自排局、国母自排局)で高くなり始め、特に東山梨局では13時にこの期間最高値である201μg/m³を記録した。その後、60~100μg/m³程度の濃度となるが、夜になっても濃度が下がらず、6日の午前中までその状態が継続した。一方で、富士・東部地域(大月局、吉田局)では、PM_{2.5}濃度はほとんど上昇しておらず、期間中の最高でも18μg/m³であった。SPM濃度もPM_{2.5}濃度と同様に推移しており、今回の高濃度化が機械的なエラーではないことが確認できた。ただし、国母自排局では6日の正午ごろにSPM濃度が急上昇したが、この原因は不明である。

NO_x濃度については、5日の正午ごろに東山梨で濃度が急上昇しており、それ以降の期間も、比較的高い濃度で、PM_{2.5}濃度と同じような挙動であったことから、PM_{2.5}の高濃度化に燃焼系の要因が関わった可能性が考えられる。

なお、O_x濃度については、中・西部地域と富士・東部地域で大きな違いはなく、SO₂濃度については、期間を通して、大きな変化は認められなかったが、若干、甲府富士見局の方が大月局よりも高い傾向であった。

2) 周辺地域とのPM_{2.5}濃度の比較

PM_{2.5}濃度が上昇し始めた2月5日12時と濃度が減少する前の2月6日11時におけるPM_{2.5}の大気汚染常時監視局データ(速報値)と風向・風速の広域分布図(関東周辺のみを抜粋)を図3に示した。

2月5日12時に、山梨県以外にも栃木県でPM_{2.5}濃度が高濃度(121μg/m³)となっていたが、その後、山梨県以外ではPM_{2.5}濃度が下がり、山梨県と同じようにPM_{2.5}が高濃度で継続している地域はなかった。このことから、中国や関東都市圏からの移流による影響は少なく、主に山梨県内(特に甲府盆地内)における地域的な汚染が主な要因であると推察された。

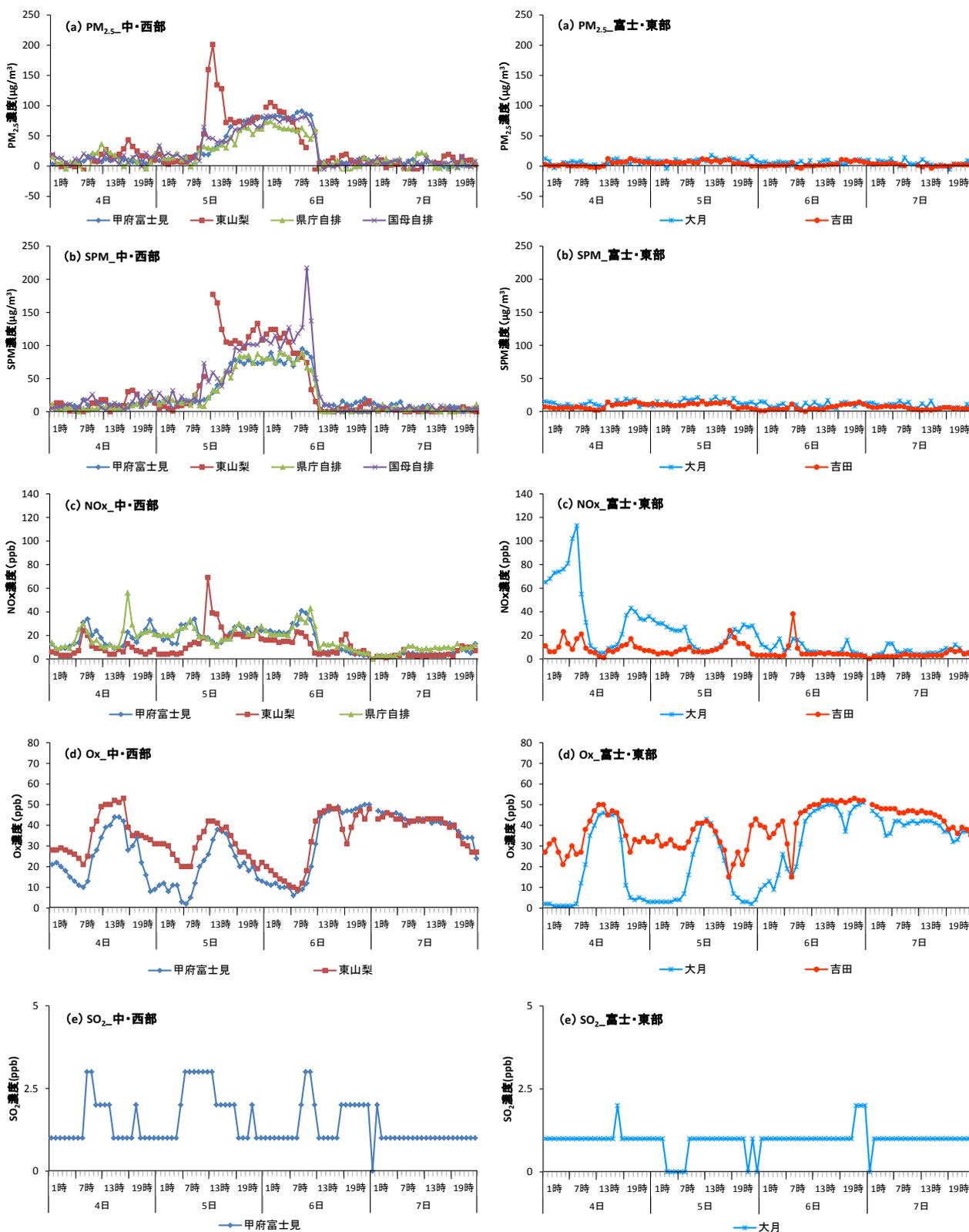
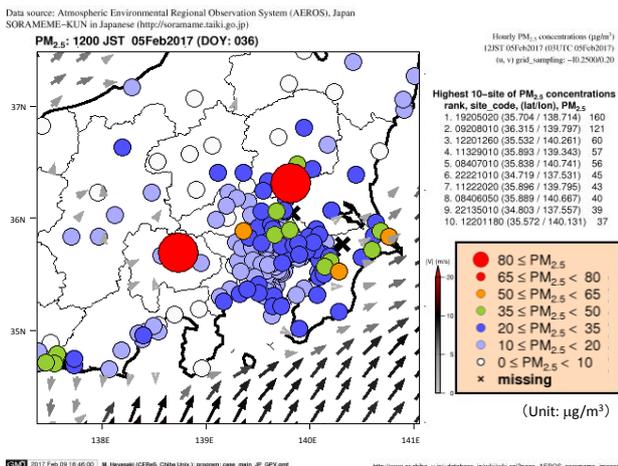


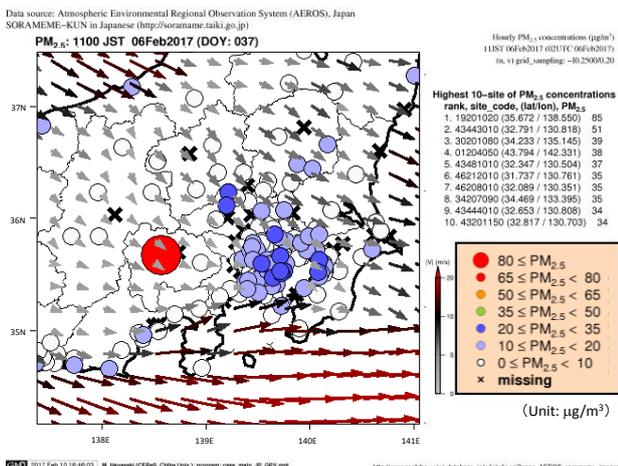
図2 大気汚染常時監視測定データの経時変化 (左：中・西部地域4局、右：富士・東部地域2局)
 (a) PM_{2.5}、 (b) SPM、 (c) NO_x、 (d) O₃、 (e) SO₂

(a) 2月5日 12時



2017 Feb 09 16:46:03 | H: Haysashi (CE/Env, China Univ.) | program: case_rmtk_jp_SPV.gif | http://www.cri.chiba-u.jp/~database-gis/vis/vis.cgi?img=AEROS_soramame_image

(b) 2月6日 11時



2017 Feb 09 16:46:03 | H: Haysashi (CE/Env, China Univ.) | program: case_rmtk_jp_SPV.gif | http://www.cri.chiba-u.jp/~database-gis/vis/vis.cgi?img=AEROS_soramame_image

図3 PM_{2.5} 大気汚染常時監視局データ (速報値) と風向・風速の広域分布図 (※関東周辺の一部改変)
(a: 2月5日 12時, b: 2月6日 11時)

2 気象データの解析結果

中・西部地域 (甲府盆地内) の代表地点として甲府地方気象台の気温、湿度、風速を図4に示し、近傍の甲府富士見局におけるPM_{2.5}濃度も併記した。また、東部地域の代表地点として大月気象観測所の気温、風速の変化を図5に示した。

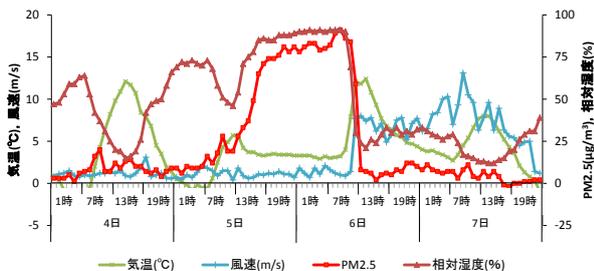


図4 中・西部地域の気温、風速、相対湿度およびPM_{2.5}濃度の変化

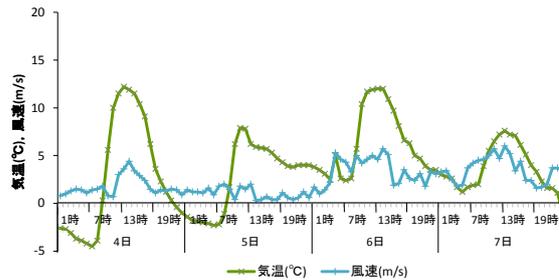


図5 東部地域 (大月気象観測所) の気温、風速の変化

PM_{2.5}濃度が高濃度化した甲府では5日の早朝までは晴れたものの、日中から夜にかけて曇りや雨の天気湿度が上がり、一時雨が降った。また、2月4日21時から6日10時にかけて最高気温が5.7°Cと低く、風速も最大2.1m/sと穏やかであった。荒生ら⁷⁾は、夕方から翌朝までに5°C程度の気温低下があり、夜間の平均風速が1m/s未満の場合、かなりの規模の逆転層が形成されると報告しているが、本事例の場合、4日夕方(19時)に7.9°Cであったが、翌朝(5日4時)に-0.8°Cまで下がり、5日0時~6時の平均風速が1m/s未満であったことから、甲府盆地内に接地逆転層(冷気湖)が形成された可能性が高いと考えられる。さらにその後も気温が低く、風が弱い状況であったことから、逆転層が解消されず、空気が滞りやすい状況が継続したと推察される。また、5日の10時頃から相対湿度が上昇するタイミングでPM_{2.5}濃度が上昇していたことから、硝酸ガスが粒子化した可能性が考えられる。

3 テープろ紙を用いた成分分析結果

(1) 水溶性イオン成分濃度の変化

イオン成分のうち、NO₃⁻、SO₄²⁻、NH₄⁺、K⁺の濃度の経時変化を図6に示した((a) 甲府富士見局、(b) 大月局)。

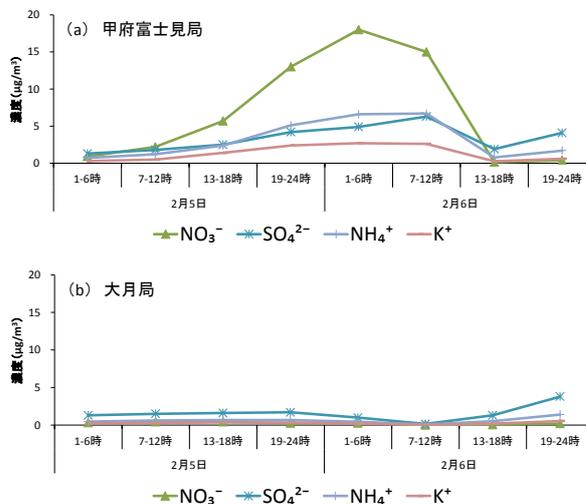


図6 水溶性イオン成分濃度の経時変化

甲府富士見局では、PM_{2.5}濃度の上昇とともにNO₃⁻濃度が上昇しており、NH₄⁺濃度も同様に上昇していたことから、夜中に硝酸アンモニウム (NH₄NO₃) が生成したものと推察された。また、NO₃⁻と比較すると低濃度であったが、SO₄²⁻やK⁺濃度も同様の期間に上昇していたことから、重油燃焼やバイオマス燃焼による寄与も示唆された。

一方、大月局では、2月6日の19~24時にSO₄²⁻やNH₄⁺の濃度が若干上昇したものの、その他の期間は、どの成分も低濃度であり、甲府富士見局でPM_{2.5}が高濃度となった期間には、濃度の変化はほとんど認められなかった。

(2) WSOC 濃度の変化

2月5日~6日の甲府富士見局および大月局におけるWSOC濃度の経時変化を図7に示した。

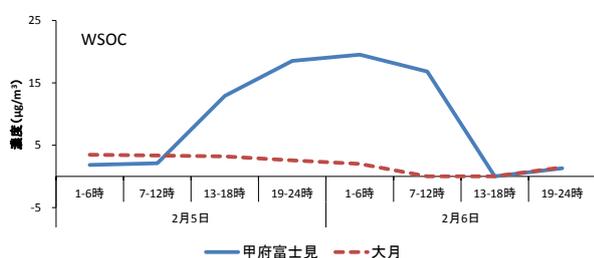


図7 WSOC濃度の経時変化

NO₃⁻、NH₄⁺、K⁺濃度と同様に、甲府富士見局ではPM_{2.5}濃度の上昇とともにWSOC濃度も上昇していたが、大月ではWSOC濃度の上昇も認められなかった。

4 本事例のPM_{2.5}高濃度化の要因

この短期間にPM_{2.5}濃度が高濃度となった大きな要因は、まず第1に、2月5日の早朝に中・西部地域で(盆地型)接地逆転層が形成され、翌日(6日)11時頃まで風が弱く、気温が低い状態が続いたことから、逆転層が解消されず、地域内の発生源から排出された一次粒子や二次生成粒子の前駆物質が滞留したことが考えられる。

第2に、2月5日の午前中または午前中から午後にかけて、中・西部地域の多地点(山梨市、韮崎市、笛吹市等)の河川敷で芝焼きを行ったという情報があり、それ以外にも、個人の田畑において農作物残渣の焼却(野焼き)が行われる時期でもあることから、バイオマス燃焼が主な発生源となった可能性が高いと考えられる。Vianaら⁸⁾により、バイオマス燃焼時には、微粒子中のレボグルコサン、K、WSOC、NO₃⁻等の濃度が高くなると報告されているが、今回の成分分析の結果、PM_{2.5}濃度の上昇に伴い、NO₃⁻、K⁺、WSOC濃度が上昇していたことから、バイオマス燃焼が寄与したことが裏付けられる。

その上で、PM_{2.5}の高濃度化に主に寄与したと考えられるNO₃⁻について、メカニズムを考察する。NO₃⁻は、HNO₃とNH₃の中和反応により生成するNH₄NO₃として存在する。

HNO₃は、日中はNO₂とOHの反応で生成するが、夜間はOxによりNO₂からNO₃への酸化が進み、さらにNO₂とNO₃の反応から生成したN₂O₅が、H₂Oと反応することで生成する⁹⁾。NH₄NO₃は相対湿度に応じて固体または微小滴として存在しているが、NH₄NO₃の潮解湿度(DRH)は、温度(T、単位はケルビン(K))に依存し、次式で求めることができる。そして、相対湿度が潮解湿度以上となると、NH₄NO₃は吸湿によってきわめて高塩濃度の微小滴として存在すると報告されている¹⁰⁾。

$$\ln(DRH) = \frac{723.7}{T} + 1.6954 \quad (式)$$

DRH: NH₄NO₃の潮解湿度(%)

T: 温度(単位:ケルビン(K))

そこで、今回の事例について、甲府地方気象台の気象データを代入することによりNH₄NO₃の潮解湿度を求め、その時の相対湿度との比較を行った(図8)。

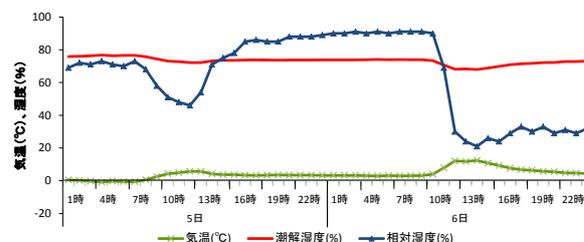


図8 NH₄NO₃の潮解湿度と気象データ

この結果、相対湿度がNH₄NO₃の潮解湿度以上となった期間と、PM_{2.5}が高濃度となった期間がほぼ重なっており、2月5日の正午頃から相対湿度が上昇したことにより、高塩濃度の微小滴(NH₄NO₃)が生成したことも、PM_{2.5}濃度が高濃度化し、継続した大きな要因であると推察された。

まとめ

2017年2月5日~6日にかけて観測された山梨県におけるPM_{2.5}の高濃度事例について、大気汚染常時監視測定データより、主に中・西部地域(甲府盆地内)における地域的な要因で濃度が上昇したと推察された。また、中・西部地域において5日の午前中から多地点で芝焼き(野焼き)を行った情報があり、自動測定機のテープろ紙について成分分析を行った結果でも、バイオマス燃焼の指標であるNO₃⁻、K⁺、WSOC濃度が、大月(東部地域)よりも甲府富士見(中・西部地域)で顕著に高かったことから、甲府盆地内で行われた大規模な芝焼き(野焼き)が主な要因であったと考えられる。さらに、甲府富士見ではSO₄²⁻濃度の上昇も認められたことから、重油燃焼等の他の発生源による寄与も加わったと考えられる。

これらの結果から、今回の高濃度化の要因としては、①中・西部地域内（甲府盆地内）で大規模かつ同時期に実施された芝焼きの他、農家等の野焼きや重油燃焼等の影響が加わったことでPM_{2.5}濃度が上昇したこと、②気温が低く、風が弱く、甲府盆地内に安定層（接地逆転層）が形成されたこと、③相対湿度の上昇により、硝酸ガスが粒子化しやすい気象条件が重なったことにより、高濃度化し、その状態が継続したものと推察される。

なお、長谷川ら¹¹⁾や市川ら¹²⁾は、それぞれ2011年11月に関東地方で観測されたPM_{2.5}高濃度事例の解析、2013年11月に千葉県で観測されたPM_{2.5}高濃度事例の解析を行い、どちらもNO₃⁻の高濃度化、バイオマス燃焼、化石燃料燃焼の影響が高濃度化の要因であったと考察している。今回の事例もほぼ同様な因子に起因する高濃度事例であったと考えられる。

今後、PM_{2.5}の高濃度化を防ぐためには、芝焼きや野焼きを行う時期等について市町村間で情報を共有し、大規模かつ同時期に行わないように調整を行うことや、安定層が形成され、硝酸ガスが粒子化しやすい気象条件の日を避ける等、対策を検討する必要がある。

参考文献

- 微小粒子状物質（PM_{2.5}）に関する専門家会合：注意喚起のための暫定的な指針の判断方法の改善について（第2次）（平成26年11月）
[<http://www.env.go.jp/air/osen/pm/info/cic/attach/report20141128.pdf>]（最終検索日：2017年6月22日）
- そらまめ君[<http://soramame.taiki.go.jp/>]
（最終検索日：2017年6月21日）
- 千葉大学環境リモートセンシング研究センターweb「大気汚染常時監視局データ（速報値）の広域分布図」
[http://www.cr.chiba-u.jp/~database-jp/wiki/wiki.cgi?page=AEROS_soramame_images]（最終検索日：2017年6月22日）
- 気象庁HP：過去の気象データ
[<http://www.data.jma.go.jp/obd/stats/etrn/index.php>]（最終検索日：2017年6月22日）
- 豊永悟史，村岡俊彦，北岡宏道：遠隔地と内陸部のPM_{2.5}濃度挙動の違いとその要因-テープろ紙成分分析による事例研究-。全国環境研会誌，**39**(4)，199-208(2014)
- 環境省：大気中微小粒子状物質（PM_{2.5}）成分測定マニュアル（平成25年6月）
[<http://www.env.go.jp/air/osen/pm/ca/manual.html>]
]（最終検索日：2017年6月22日）
- 荒生公雄，西永優，横山秀敏：長崎における接地逆転層の気象学的特性。長崎大学教育学部自然科学研究報告，**31**，33-47(1980)
- M. Viana et al. : Tracers and impact of open burning of rice straw residues on PM in Eastern Spain, *Atmos. Environ.*, **42**(8), 1941-1957(2008)
- Jacob, D. J. : Introduction to atmospheric chemistry, p. 212-215 (1999), (Princeton University Press, New Jersey)
- 藤田慎一ら：“越境大気汚染の物理と化学”，改訂増補版, p. 116-118 (2017)，(成山堂書店)
- 長谷川就一ら：2011年11月に関東で観測されたPM_{2.5}高濃度の解析，大気環境学会誌，**49**(6)，242-251(2014)
- 市川有二郎，井上智博，大橋英明，渡邊剛久，石井克巳，内藤季和：2013年11月4日に東日本として初めて注意喚起が実施された千葉県のPM_{2.5}高濃度エピソードの要因推定。大気環境学会誌，**50**(3)，152-165(2015)