

[資 料]

兵庫県における PM_{2.5} 汚染の実態把握調査 (1)

中坪 良平* 吉村 陽 池澤 正 平木 隆年

Investigation of the Actual Condition concerning PM_{2.5} Air Pollution
in Hyogo Prefecture (1)Ryouhei NAKATSUBO*, Akira YOSHIMURA, Tadashi IKESAWA
and Takatoshi HIRAKI*Atmospheric Environment Division, Hyogo Prefectural Institute of Public Health and
Environmental Sciences, 3-1-27 Yukihiro-cho, Suma-ku, Kobe, Hyogo 654-0037, Japan*

In order to make clear the actual condition of the air pollution caused by fine particles (PM_{2.5}) in Hyogo prefecture, monitoring of PM_{2.5} concentration have been carried out for four years at two sites in Ashiya and Suma. In Ashiya, the annual means of the PM_{2.5} and the coarse particles (PM_{10-2.5}) mass concentrations changed in the range of 17.5~19.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ and 9.6~10.8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, respectively. In Suma, the annual means of the PM_{2.5} and the PM_{10-2.5} mass concentrations changed in the range of 17.2~18.4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ and 10.1~11.6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, respectively. And those concentrations in both sites are almost identical. The PM_{10-2.5} concentration showed the characteristic seasonal variation with the amount of the yellow sand blown into Japan. On the other hand, the PM_{2.5} concentration was high also in summer due to the secondary particles. The significant difference between the mass concentrations in Ashiya and Suma of both PM_{2.5} and PM_{10-2.5} was not seen and the correlation was very high. Therefore, a possibility that those concentrations were predominated by the large-scale factor was suggested.

I はじめに

空気動力学径が2.5 μm 以下の微小粒子状物質 (PM_{2.5}) の健康影響については、死亡率等との関連が米国の疫学研究¹⁾等で報告されている。米国は2006年9月にPM_{2.5}に関する環境の基準を強化し²⁾、WHOは同年10月にPM_{2.5}の大気質ガイドラインを新たに設定した³⁾。さらにEUも、2008年6月にPM_{2.5}の年平均値に関する基準と達成時期を告示した⁴⁾。日本では1999年に、「微小粒子状物質暴露影響調査検討会」が環境庁に設置され、PM_{2.5}の暴露と健康影響との関

連を明らかにすることを目的に各種調査研究が継続的に実施されてきた。2007年7月に調査報告書が出され⁵⁾、また同年5月には、諸外国の科学的知見を集積しPM_{2.5}の健康影響を評価するため、「微小粒子状物質健康影響評価検討会」が設置され、2008年4月にその検討結果が報告された⁶⁾。その中では、疫学知見ならびに毒性学知見から、PM_{2.5}が人々の健康に影響を与えていることが支持されるとして、さらに定量的な評価に関する考察を進める必要があるとしている。

一方、上記の考察を進める上で必要となるPM_{2.5}の測定に関する日本国内での報告例は、名古屋市での測定⁷⁾や埼玉県での測定⁸⁾、環境省の調査報告⁵⁾等があるが、未だ少ないのが現状である。兵庫県では、PM_{2.5}による大気汚染の実態を2週間程度の平均濃度で把握することを目的としたサンプラーを製作し⁹⁾、

大気環境部

*別刷請求先: 〒654-0037 神戸市須磨区行平町3-1-27
兵庫県立健康環境科学研究所センター
大気環境部 中坪 良平

PM_{2.5}の長期平均濃度のモニタリングを実施してきた。本報告では、それらの結果から、兵庫県内の2地点におけるPM_{2.5}濃度の長期トレンドを中心に報告する。

II 方法

2.1 PM_{2.5}モニタリング地点および期間

PM_{2.5}のモニタリングは、芦屋市精道町（芦屋市役所分庁舎屋上、地上高約10m：以下「芦屋」）、神戸市須磨区行平町（当センター3階ベランダ、地上高約10m：以下「須磨」）の2地点で実施した（Fig. 1）。

モニタリング地点周辺の詳細図をFig. 2(a), (b)に示した。2地点とも兵庫県南東部の阪神圏内に位置し、自動車NOx・PM法の対策地域に指定されている。芦屋のモニタリング地点の約25m南には、国道43号とその上を高架構造で阪神高速3号神戸線が走っている。須磨のモニタリング地点の約60m西には阪神高速3号神戸線が高架構造で走り、約260m南西には国道2号が走っている。

モニタリングは、須磨では2001年8月から、芦屋では2003年10月から開始した。本報告では、並行してモニタリングを実施した2003年10月から2007年9月までの結果をとりまとめた。

2.2 PM_{2.5}の捕集と濃度測定

当センターで制作したPM_{2.5}サンプラー⁹⁾を用いて、インパクター分級方式により石英繊維フィルター（PALLFLEX 2500QAT-UP, φ110mm）上にPM_{2.5}粒子を捕集した。またインパクタープレート上にも石英繊維フィルター（同上, φ90mm）を載せ、粒径が10～2.5 μmの粗大粒子（PM_{10-2.5}）も捕集した。捕集フィルターは、原則として毎月1日と16日に交換し、約2週間周期のサンプリングを連続して実施した。フィルターの秤量は、セミマイクロ天秤（Mettler社製, AE240, 秤量下限10 μg）を使用し、秤量前にフィルターを241Am（アメリカシウム）線源にかざし静電気を除去した。フィルターは、捕集前後に相対湿度50%に調整されたデシケーターに24時間以上放置し、室内を室温約20℃、相対湿度が約50%となるように調節して秤量した¹⁰⁾。捕集前後の差をPM_{2.5}、PM_{10-2.5}の質量とし、それら採気量（m³）で除して質量濃度（μg/m³）とした。PM_{2.5}濃度とPM_{10-2.5}濃度を足したものを粒径10 μm以下の粒子（PM₁₀）の濃度とした。

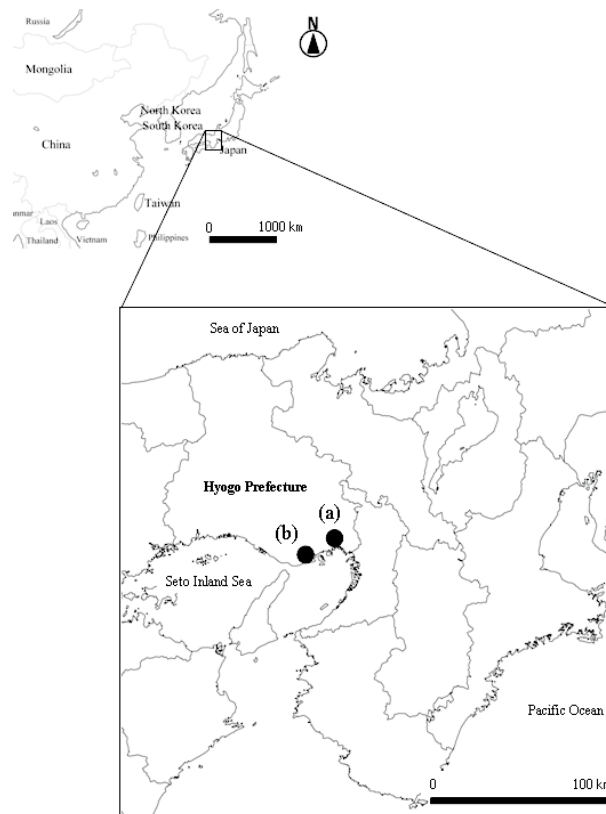


Fig.1 Location of the sites. (a)Ashiya and (b)Suma, Hyogo Prefecture.

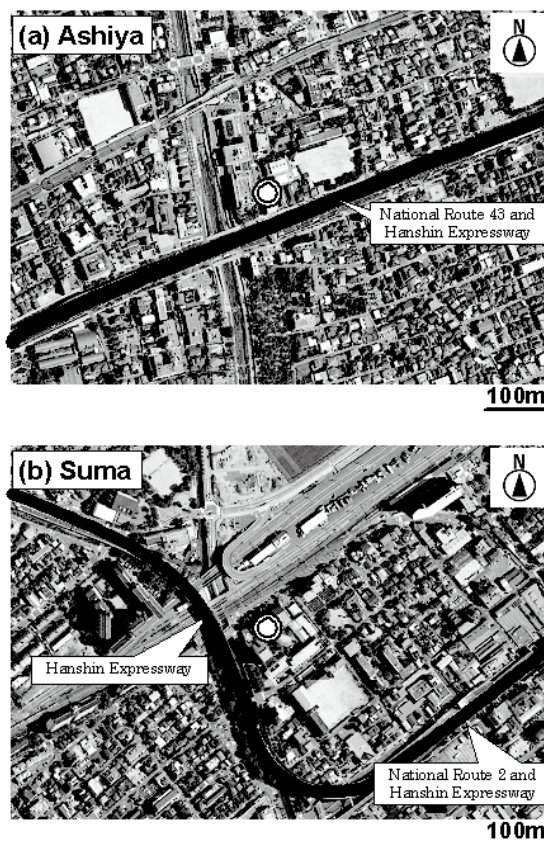


Fig.2 Detailed location of the sites. (a)Ashiya and (b)Suma. The double circle is measurement point. A line shows the proximity road.

2.3 浮遊粒子状物質 (SPM) 濃度の測定値

SPM濃度の測定値は、芦屋市内および神戸市内に設置されている大気汚染常時監視測定局のうち、一般大気測定局で得られた一時間測定値を用いた。SPM濃度の測定方法はβ線吸収法である。

III 結果と考察

3.1 2週間測定値および年平均値の推移

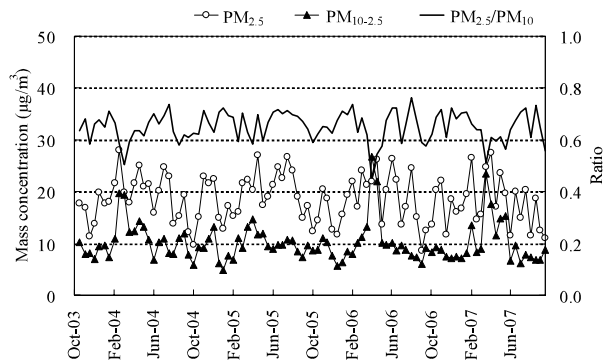
Fig. 3(a), (b)にPM_{2.5}およびPM_{10-2.5}の2週間測定値と、PM_{2.5}/PM₁₀比の推移を示した。PM_{2.5}濃度の2週間測定値は、芦屋では8.7~28.0 μg/m³の濃度範囲で推移し、平均は18.5 μg/m³、須磨では9.4~27.2 μg/m³の濃度範囲で推移し、平均は17.8 μg/m³であった。一方、PM_{10-2.5}濃度の2週間測定値は、芦屋では5.0~26.6 μg/m³の濃度範囲で推移し、平均は10.0 μg/m³、須磨では5.4~25.3 μg/m³の濃度範囲で推移し、平均は10.7 μg/m³であった。PM_{2.5}/PM₁₀比は、芦屋では0.45~0.76の範囲で推移し、平均は0.65、須磨では0.47~0.73の範囲で推移し、平均は0.63であった。

Table 1にPM_{2.5}およびPM_{10-2.5}濃度の年平均値を示した。年平均値は、モニタリング開始(2003年10月)から1年毎の平均値とした。芦屋におけるPM_{2.5}およびPM_{10-2.5}濃度の年平均値は、それぞれ17.5~19.5 μg/m³、9.6~10.8 μg/m³の範囲、須磨におけるPM_{2.5}およびPM_{10-2.5}濃度の年平均値は、それぞれ17.2~18.4 μg/m³、10.1~11.6 μg/m³の範囲で推移していた。

Table 2に、環境省が示した「微小粒子状物質暴露影響調査報告書」⁵⁾(以下、「環境省報告」と称す)から自動測定機(TEOM)によるPM_{2.5}濃度の全国の年平均値を示した。モニタリング期間の区切りや採取方法が異なるため一概には比較できないが、本研究で得られたPM_{2.5}濃度の年平均値は、都市部に近い濃度で推移していた。

また、環境省報告におけるPM_{2.5}濃度の年平均値は、道路沿道で低下傾向がみられているが都市部や非都市部は明瞭な経年変化がみられていない。本研究で得られたPM_{2.5}濃度の年平均値も同様に、明瞭な経年変化はみられなかった。米持ら⁸⁾は、2000年から埼玉県北部の一般環境において、フィルター法によるPM_{2.5}の観測を実施しており、1週間毎の質量濃度と主要成分の経年変化を報告している。その中でPM_{2.5}質量濃度については明瞭な変化がみられず、その原因については硫酸塩等の二次粒子の、近年の増加傾

(a)Ashiya



(b)Suma

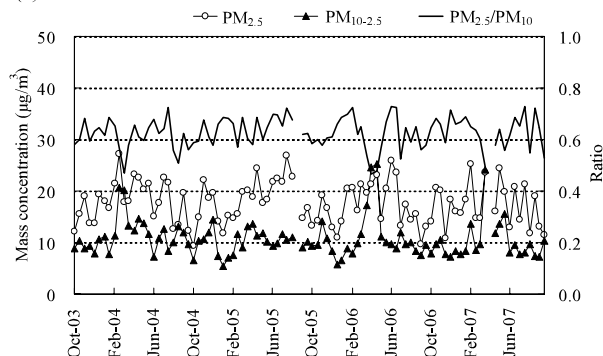


Fig.3 Trends of measured values of PM_{2.5} and PM_{10-2.5}, PM_{2.5}/PM₁₀ ratio.

Table 1 Annual mean of mass concentration with 95% confidence interval of PM_{2.5} and PM_{10-2.5}.

Term ^{a)}	2003	2004	2005	2006
PM _{2.5} (µg/m ³)	19.0 ± 1.7	19.5 ± 1.8	18.0 ± 2.0	17.5 ± 1.8
Ashiya PM _{10-2.5} (µg/m ³)	10.8 ± 1.4	9.6 ± 1.0	10.2 ± 1.9	9.6 ± 1.6
Data number	23	24	24	23
PM _{2.5} (µg/m ³)	18.2 ± 1.6	18.4 ± 1.7	17.2 ± 1.7	17.3 ± 1.7
Suma PM _{10-2.5} (µg/m ³)	11.6 ± 1.4	10.2 ± 0.9	11.1 ± 1.9	10.1 ± 1.6
Data number	23	23	24	23

a) from October to following September

Table 2 Annual mean of mass concentration of PM_{2.5} which the Ministry of the Environment investigated using the TEOM.

Term ^{a)}	2003	2004	2005	2006
Rural area	14.7	13.8	14.4	13.8
Urban area	20.1	19.2	19.9	19.5
Roadside	25.5	23.7	22.2	21.6

a) from April to following March

向を指摘している。米国のPM_{2.5}環境基準（年平均値15 μg/m³）と比較すると、本研究で得られたPM_{2.5}濃度の年平均値は高く、今後PM_{2.5}濃度の低減対策を考える上では、二次粒子の低減対策が重要であると考えられる。

3.2 月平均値の変動パターン

Fig. 4(a), (b)に PM_{2.5}およびPM_{10-2.5}濃度の芦屋と須磨における月変動を示した。各月の濃度は四年間の平均値とした。PM_{2.5}およびPM_{10-2.5}濃度の変動パターンは芦屋と須磨で類似していた。PM_{2.5}、PM_{10-2.5}ともに春季に高濃度を示し、この理由は、PM_{2.5}に比べPM_{10-2.5}でその傾向が顕著なことから黄砂の影響によるものと推測できる。日本に飛来する黄砂の空気動力学径は4 μm前後にピークがあることが知られており、また、本研究でPM_{10-2.5}の高濃度事例が確認された期間は、全国的に黄砂が観測される時期と一致していた¹¹⁾。

一方、PM_{2.5}濃度は、春季の他、夏季に高濃度となる傾向を示した。夏季に高濃度となる要因としては、紫外線等の光エネルギーが強く光化学反応が活発になり、大気中のガスが粒子化してできる二次粒子の生成が促進されるためと推測できる。二次粒子は粒径が小さく、PM_{10-2.5}よりもPM_{2.5}に多く含まれている¹²⁾。Fig.3のPM_{2.5}/PM₁₀比についてみると、夏季に高くなる傾向がみられ、最も高い値を示したのは、芦屋では2006年8月、須磨では2006年6月であった。

3.3 モニタリング地点間の相関

Fig.5(a), (b)にPM_{2.5}、PM_{10-2.5}について、芦屋と須磨で得られた2週間測定値の相関を示した。PM_{2.5}濃度について、測定値の回帰直線の傾きは1.03、切片は0.08、決定係数は0.89となり地点間で高い相関を示した。また、傾きの95%信頼区間は0.96~1.11、切片の95%信頼区間は-1.31~1.48であり、両地点の測定値に有意差は認められなかった。PM_{10-2.5}濃度について、測定値の回帰直線の傾きは0.97、切片は-0.36、決定係数は0.94となり地点間で高い相関を示した。傾きの95%信頼区間は0.92~1.02、切片の95%信頼区間は-0.94~0.21であり、両地点の測定値に有意差は認められなかった。

PM_{2.5}、PM_{10-2.5}濃度とも、両地点の測定値に有意差が認められず、また、地点間の相関が非常に高かった。これは、PM_{2.5}、PM_{10-2.5}濃度の2週間ごとの変動パターンが類似していることを示している。Fig.6に、兵庫県が設置している大気汚染常時監視測定局のう

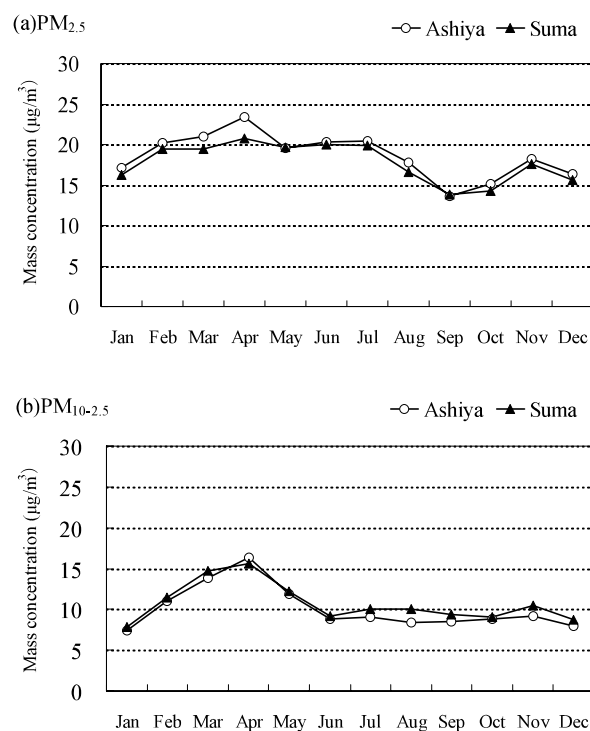


Fig.4 Monthly variation of mass average concentration. (a)PM_{2.5} and (b)PM_{10-2.5}. Each monthly mean is the average of four years.

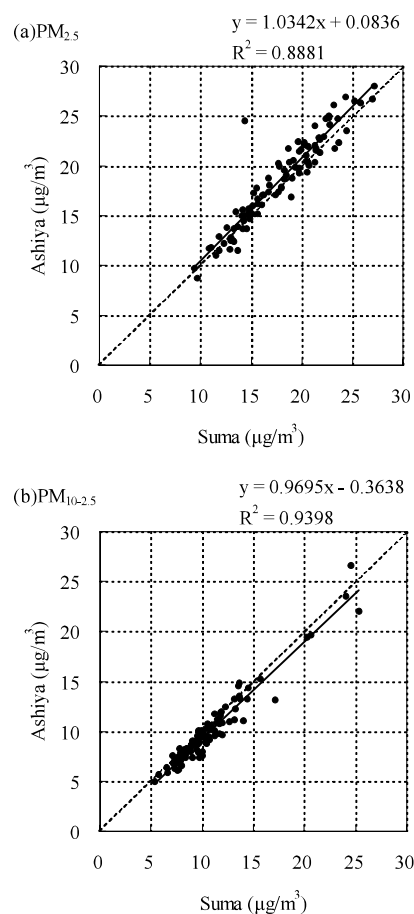


Fig.5 Correlation of all measured values of the mass concentration between Ashiya and Suma. (a)PM_{2.5} and (b)PM_{10-2.5}.

ち、芦屋市内の一般局(3局)と神戸市内の一般局(13局)で2007年度に測定されたSPM濃度の相関を示した。各値は、市内全一般局の1時間値の平均である。回帰直線の傾きは1.03、切片は-0.33、決定係数は0.90となり、1時間値にもかかわらず高い相関を示した。傾きの95%信頼区間は1.03~1.04、切片の95%信頼区間は-0.55~-0.12となり、わずかに芦屋で高濃度を示す傾向がみられたが、ほぼ1:1に分布していた。

米持ら⁸⁾は、PM_{2.5}の主要成分のうち硫酸塩の割合が最も高く、夏季にはPM_{2.5}質量濃度の半分以上を占めると報告している。また藍川ら¹³⁾は、硫酸イオンによる汚染が、半球規模での影響により濃度が支配されていることを指摘している。これらの報告と本研究結果を考慮すると、SPM、PM_{2.5}、PM_{10-2.5}等の粒子状物質濃度が、局所的ではなく、より広域的な要因により支配されている可能性が示唆された。

IV まとめ

兵庫県内のPM_{2.5}による汚染実態を把握するため、芦屋と須磨の2地点で、PM_{2.5}濃度の連続測定を4年間実施した。芦屋におけるPM_{2.5}およびPM_{10-2.5}濃度の年平均値は、それぞれ17.5~19.5 μg/m³、9.6~10.8 μg/m³の範囲、須磨におけるPM_{2.5}およびPM_{10-2.5}濃度の年平均値は、それぞれ17.2~18.4 μg/m³、10.1~11.6 μg/m³の範囲で、2地点ともほぼ横ばいに推移していた。PM_{10-2.5}濃度については、春季に観測される黄砂の影響により特徴的な季節変動を示した。一方、PM_{2.5}濃度については、二次粒子の影響により夏季にも濃度が高くなる傾向がみられた。また、PM_{2.5}濃度、PM_{10-2.5}濃度ともに測定地点間の有意差がみられず、相関が非常に高かったことから、広域的な要因により濃度が支配されている可能性が示唆された。

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) USEPA: National Ambient Air Quality Standards for Particulate Matter; Final Rule, *Federal Register*, Vol.71, No.200(2006)

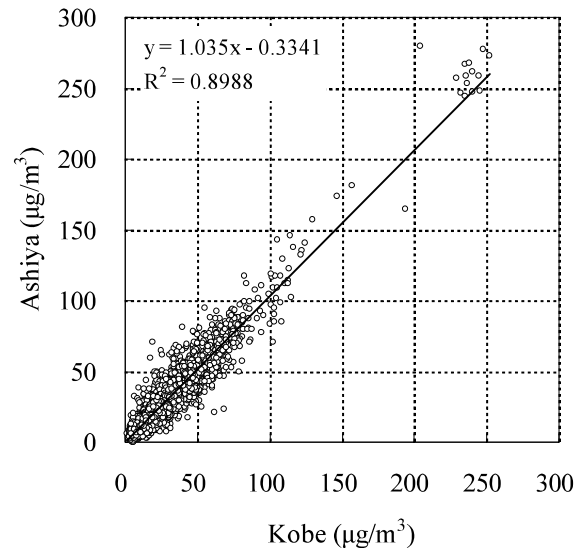


Fig.6 Correlation of all measured values of the SPM mass concentration between all monitoring sites in Ashiya and Kobe city.

- 3) WHO: Air quality guidelines. Global update 2005. Particulate matter, ozone, nitrogen dioxide and sulfur dioxide (2006)
- 4) EU: Directive 2008/50/EC of the European Parliament and of the Council of 21 May 2008 on ambient air quality and cleaner air for Europe (2008)
- 5) 環境省:微小粒子状物質暴露影響調査報告書 (2007)
- 6) 環境省:微小粒子状物質健康影響評価検討会報告書 (2008)
- 7) 中島寛則, 酒井哲男, 北瀬勝, 山神真紀子: 名古屋市におけるPM_{2.5}濃度の成分濃度と発生源寄与率について, *名古屋市環境科学研究所報*, **32**, 13-17 (2002)
- 8) 米持真一, 梅沢夏実, 松本利恵: 埼玉県北部のPM_{2.5}濃度と化学組成の5年間の観測結果, *大気環境学会誌*, **42**, 129-142 (2007)
- 9) 吉村陽, 小坂浩: PM_{2.5}長期モニタリングのためのサンプラーの試作, *兵庫県立健康環境科学研究所 5号*, 2, 56-61(2005)
- 10) 吉村陽, 小坂浩, 小山太八郎, 玉置元則: 浮遊粒子状物質測定用フィルター秤量時の相対湿度変化が精度に及ぼす影響, *環境技術*, **32**, 51-56(2003)
- 11) 気象庁ホームページ: [地球環境のデータバンク]黄砂 (URL http://www.data.kishou.go.jp/obs-env/kosahp/kosa_data_index.html)
- 12) 笠原三紀夫: 粒子状大気汚染の現状と今後の課

題-PM_{2.5}導入の意義を考える-, 大気環境学会誌,
37, 96-107(2002)

- 13) Aikawa,M, Hiraki,T Yamagami,M, Kitase,M,
Nishikawa,Y, Uno,I: Regionality and
particularity of survey site from the viewpoint

of the SO₂ and SO₄²⁻ concentration in ambient
air in a 250 x 250-km region of Japan,
Atmospheric Environment, 42, 1389-1398
(2008)