

熊本市における微小粒子状物質（PM2.5）の成分分析結果について（平成 28 年度）

佐々木一夫 緒方美治 大平(吉田)芙美香*1 濱野晃 藤井幸三

*1 医療政策課

1 はじめに

微小粒子状物質（PM2.5）については、平成 21 年 9 月に環境基準が設定され、熊本市においてもその実態を把握するため監視体制を強化している。質量濃度の自動測定装置は、平成 24 年に神水本町に設置したのを皮切りに順次増設し、平成 26 年度は 6 箇所に、その後測定装置の移設・増設により、平成 27 年 3 月末には 8 箇所で常時監視を行っている。

また、PM2.5 の発生源等を解明し対策に役立てるため、その成分についても、平成 25 年から神水本町でフィルタ捕集を行い質量濃度の測定とイオン成分・無機元素成分の分析を開始した。平成 26 年度からは、試料捕集地点（以下「地点」という。）を 3 箇所に増やすとともに、新たに粒子中の炭素成分についても分析を開始した。本報では平成 28 年度に実施した PM2.5 成分測定結果（2 箇所）について、その概要を報告する。

2 調査の概要

(1) 地点及び試料捕集期間

平成 28 年度は、大気汚染常時監視測定局のうち「水道町」および「城南町」に専用の捕集装置を設置し、PM2.5 のフィルタ捕集と成分分析を実施した。地点概要を表 1、測定局位置を図 1 に示す。

表 1 地点概要

地点名	所在地	概要	区分
水道町	中央区水道町 13-2	中心市街地（商業地域）の主要幹線道路（国道 3 号及び県道熊本高森線）交差点近く	自動車排出ガス測定局
城南町	南区城南町高 482	市南部に位置する平坦な田園地帯	一般環境大気測定局

「水道町」局は自動車排出ガス測定局で、中心市街地に位置し、中高層建築物に囲まれていることから排出ガスの滞留が多くなることが予想される。

一方「城南町」局は周囲に圃場が多い郊外の田園地帯で、バックグラウンドとしての意味合いを持つ。

試料の捕集期間については、環境省が定める「微小粒子状物質（PM2.5）の成分分析ガイドライン」¹⁾（以下「分析ガイドライン」という。）に基づいた、年度ごとの望ましい期間に従い、季節ごとに 14 日間連続で捕集・分析を実施することを基本とした。各地点にはそれぞれ 2 台ずつ捕集装置を設置し、四フッ化エチレン樹脂（PTFE）製フィルタと石英繊維製フィルタを用いて試料の捕集を行った。なお、捕集時間は各日午前 10 時から翌日同時までの 24 時間とした。実際の捕集状況は表 2 のとおりである



図1 調査地点の位置（平成28年度、熊本市域）

表2 捕集状況

区分	計画期間（捕集開始日基準）	備考
春季	平成28年5月6日～19日	熊本地震対応のため、中止。
夏季	平成28年7月21日～8月3日	城南町は石英フィルタの捕集時間が各日午前0時からの24時間。
秋季	平成28年10月20日～11月2日	
冬季	平成29年1月19日～2月1日	水道町は、1月19日にPTFE・石英の両フィルタ、1月21～25日に石英フィルタが未捕集（不足分を2月2～7日に追加捕集）。 城南町は1月21・22・24日にPTFEフィルタが未捕集（不足分を2月2～4日に追加捕集）。

春季は熊本地震発生直後のため通常業務を実施できる状況ではなく、試料捕集は中止しており、測定データは存在しない。また、夏季は城南町に設置した捕集機器の設定ミスにより石英フィルタの捕集時間が各日 0 時からの 24 時間となっていた。さらに、冬季は機器の不具合が頻発して試料が未捕集となる日が多かった。

このため、この報告において夏季の炭素成分測定結果を地点間比較等に用いることは見合わせた。また、濃度平均値の算定など数値データの取り扱いは、分析項目ごとに 2 箇所ともにフィルタ捕集できた日を対象とすることとした。(夏季・秋季は計画期間に同じ、冬季は平成 29 年 1 月 20 日～2 月 4 日のうち分析項目ごとに 2 箇所ともにフィルタ捕集できた日)

(2) 試料捕集及び分析の方法、測定項目

試料の捕集及び分析方法は、分析ガイドライン及び環境省が定める「大気中微小粒子状物質 (PM2.5) 成分測定マニュアル」²⁾(以下「成分測定マニュアル」という。)に基づき実施した。具体的な方法は表 3 に、測定項目は表 4 に示す。

表 3 捕集及び分析方法

項目	方法
粒子捕集	PM2.5 ロウポリウムエアサンプラ (Thermo Fisher Scientific FRM2025i) を用い、PTFE 製フィルタ (Pall Teflo) 及び石英繊維製フィルタ (PALLFLEX PRODUCTS 2500QAT-UP) に捕集
質量濃度測定	捕集後の PTFE 製フィルタを、環境制御チャンバ (electro-tech systems Model 5532) を用い 21.5 ± 1.5 、相対湿度 35 ± 5 % でコンディショニングした後、精密天秤 (METTLER TOLEDO XP2UV) で秤量
イオン成分測定	捕集後の PTFE 製フィルタを超純水に浸漬し、超音波照射で成分を抽出した溶液をディスクフィルタ (東洋濾紙 13HP020CN) でろ過し、イオンクロマトグラフ装置 (DIONEX ICS-1600・ICS-2100) で陰イオン AS17 カラム・陽イオン CS16 カラムにより測定
無機元素成分測定	捕集後の PTFE 製フィルタを硝酸 (関東化学 EL)・フッ化水素酸・過酸化水素 (関東化学 Ultrapur) の混合液に浸漬し、マイクロ波加熱装置 (Anton Paar Multiwave PRO) を用いて加熱分解・濃縮した溶液を誘導結合プラズマ-質量分析装置 (Agilent Technologies 7800) で測定
炭素成分測定	捕集後の石英繊維製フィルタをサーマルオプテカル・リフレクタンス法分析装置 (Sunset Laboratory OC/EC Lab Instrument Model 5) で IMPROVE プロトコルにより測定

表 4 測定項目

項目	内容
イオン成分	硫酸イオン SO_4^{2-} 、硝酸イオン NO_3^- 、塩化物イオン Cl^- 、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 Ca^{2+} 、マグネシウムイオン Mg^{2+} 及びアンモニウムイオン NH_4^+
無機元素成分	ナトリウム Na、アルミニウム Al、カリウム K、カルシウム Ca、スカンジウム Sc、バナジウム V、クロム Cr、鉄 Fe、ニッケル Ni、亜鉛 Zn、砒素 As、アンチモン Sb、鉛 Pb、マンガン Mn、コバルト Co、銅 Cu、セレン Se、モリブデン Mo、カドミウム Cd、バリウム Ba、トリウム Th、ベリリウム Be、マグネシウム Mg、銀 Ag、タリウム Tl 及びウラン U
炭素成分	有機炭素 (OC1、OC2、OC3、OC4) 元素状炭素 (EC1、EC2、EC3) 及び炭化補正值 (OCpyro)

ナトリウム Na、カリウム K、カルシウム Ca、マグネシウム Mg は、イオン成分及び無機元素成分で重複測定している。

3 調査結果及び考察

(1) 質量濃度

各期間・地点ごとの質量濃度について、測定結果概要を表 5 に示す。

表 5 質量濃度測定結果概要

区分	地点	平均値(最小～最大)	高濃度日	特徴的な気象内容
夏季	水道町	16.8 (10.4～25.7)	なし	煙霧：8月2日
	城南町	16.9 (9.7～24.1)	なし	
秋季	水道町	13.4 (4.8～28.4)	なし	特になし
	城南町	12.9 (6.7～29.8)	なし	
冬季	水道町	22.1 (12.4～41.9)	2日(1月27日、28日)	煙霧：1月28日
	城南町	17.9 (9.8～30.9)	なし	
年間	水道町	17.4 (4.8～41.9)	2日	
	城南町	15.9 (6.7～30.9)	なし	

(単位： $\mu\text{g}/\text{m}^3$)

冬季は、全採取期間のうち1月20日・23日及び1月25日～2月4日の結果($n=13$)より平均値を算出した。

高濃度日：1日平均値が $35\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えた日

平均質量濃度は、年間値で水道町局 $17.4\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、城南町局 $15.9\mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。季節ごとでは冬季に濃度が高く、秋季に濃度が低い傾向であった。平成 26 年度⁶⁾及び平成 27 年度⁸⁾は、夏季の濃度が最も低く、秋季と冬季に質量濃度が $35\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超える観測日があったが、平成 28 年度は冬季の水道町のみで出現しており、その日数も 2 日間と少なかった。期間・地点ごとの平均濃度についても、すべて $25\mu\text{g}/\text{m}^3$ 未満であった。しかし、これらは気象要因などの一時的な現象の可能性も考えられるため、今後も継続的な監視が必要である。また、捕集期間中に黄砂の観測日はなく、煙霧の観測日が夏季、冬季それぞれ 1 日ずつあった。

各期間の濃度変化を折れ線グラフで比較したものを図 2 に示す。

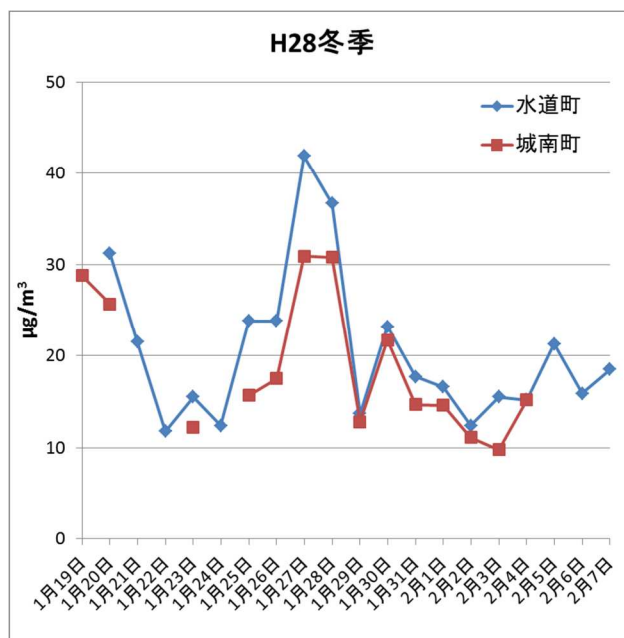
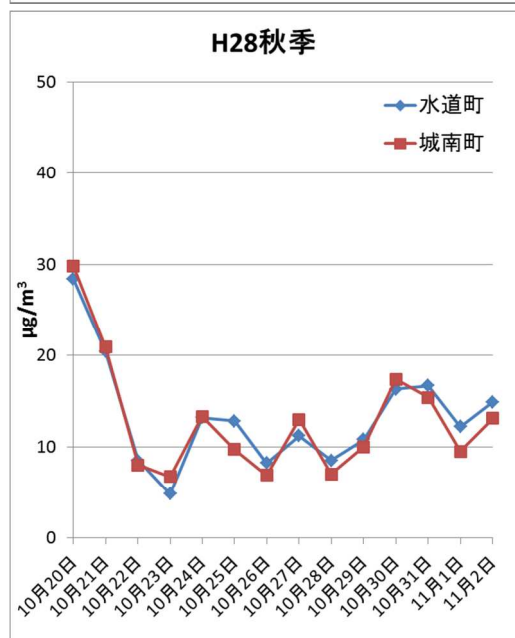
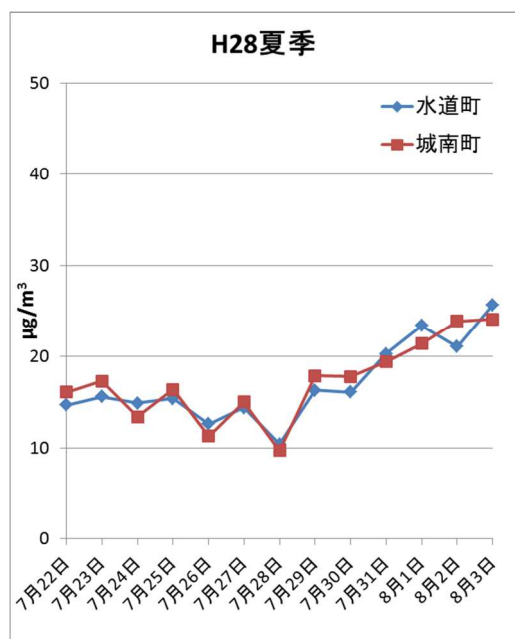


図2 各期間の質量濃度変化

両地点ともに質量濃度及び濃度変化の挙動はほぼ同じ傾向を示していたが、冬季は自動車排出ガス測定局である水道町が一般環境大気測定局である城南町に比較してやや高い値で推移していた。

このことから、PM2.5の濃度は、主として市域全体にわたる広域的な要因の影響を受けている一方、局地的な要因も一定の影響を与えていることが推察された。

各期間の平均質量濃度と成分構成の概要を図3に示す。

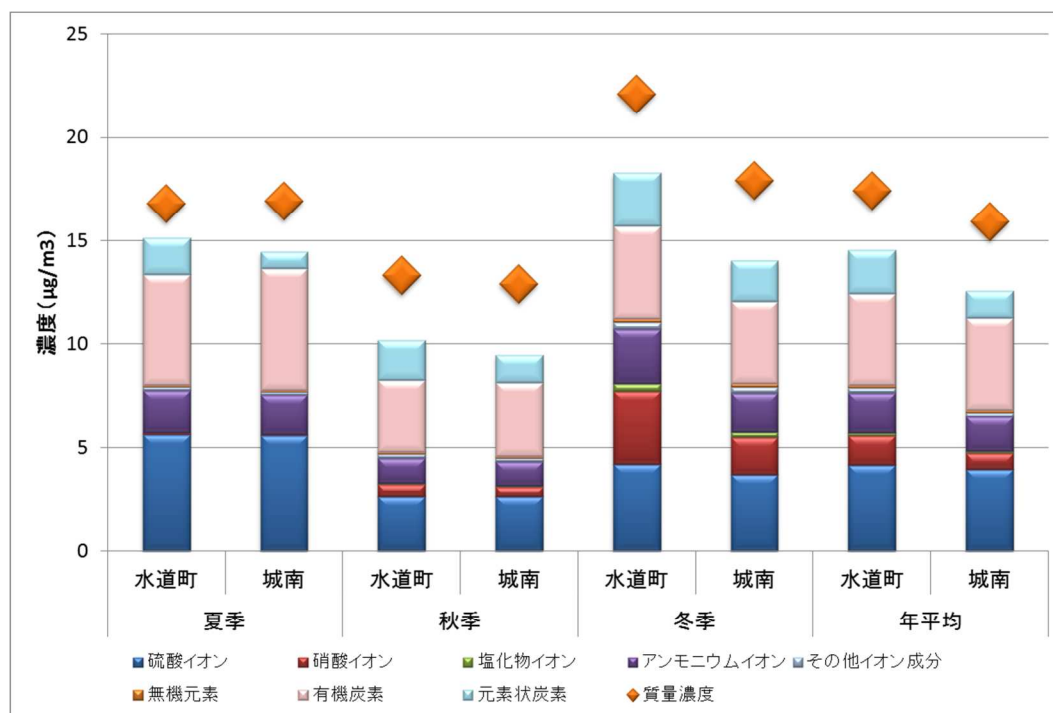


図3 各期間の平均質量濃度と成分構成

夏季の城南町の成分構成は、2種類あるフィルタの各日ごとの試料捕集時間が異なることから、参考扱い。

冬季は、全採取期間のうち、質量濃度・イオン成分・無機元素成分を1月20日・23日及び1月25日～2月4日の結果(n=13)、炭素成分を1月20日及び1月26日～2月4日の結果(n=11)で集計した。

重複して分析している成分はイオン成分として取り上げた。

微小粒子状物質(PM_{2.5})の主要成分はイオン成分(粒子中では結合して塩類として存在しており、主な成分は硫酸アンモニウムや硝酸アンモニウム)と炭素成分である。イオン成分は秋季に割合が低くなり、冬季が高かった。一方炭素成分は冬季に割合が低くなり、夏季・秋季は高かった。

このあと、各成分についての考察を述べる。

(2) イオン成分

各期間・地点のイオン成分濃度平均値及び質量濃度に対する割合を表6、構成比を表7、各期間中の質量濃度とイオン成分間の相関係数を表8、各期間の成分濃度変動に対する地点間相関係数を表9、イオン成分の濃度を図4、イオン成分の構成比を図5、各期間中のイオン成分濃度変化を図6に示す。なお、検出下限値未満となった項目は、ゼロ値として扱い、冬季の測定結果は全採取期間のうち1月20日・23日及び1月25日～2月4日の結果(n=13)で集計した。

表6 質量濃度・イオン成分濃度平均値及び質量濃度に対する割合

区分	夏季(n=14)		秋季(n=14)		冬季(n=13)		年間(n=41)	
地点	水道町	城南町	水道町	城南町	水道町	城南町	水道町	城南町
質量濃度	16.8	16.9	13.4	12.9	22.1	17.9	17.4	15.9
SO ₄ ²⁻	5.6	5.6	2.7	2.7	4.2	3.7	4.2	4.0
NO ₃ ⁻	0.074	0.043	0.58	0.46	3.5	1.8	1.4	0.76
Cl ⁻	<0.019	<0.019	0.051	0.036	0.37	0.25	0.14	0.10
NH ₄ ⁺	2.1	1.9	1.2	1.2	2.6	1.9	2.0	1.7
Na ⁺	0.060	0.048	0.067	0.054	0.087	0.078	0.071	0.060
K ⁺	0.072	0.067	0.088	0.086	0.24	0.22	0.13	0.12
Ca ²⁺	0.025	0.023	0.023	<0.015	<0.015	<0.015	0.021	0.016
Mg ²⁺	0.0091	0.0096	0.0086	0.0066	0.015	0.014	0.011	0.010
合計	7.9	7.7	4.7	4.5	11.0	7.9	7.9	6.7
割合	47.2%	45.6%	35.1%	34.7%	50.0%	44.3%	45.3%	42.2%

(単位: µg/m³)

表7 イオン成分構成比

区分	夏季		秋季		冬季		年間	
地点	水道町	城南町	水道町	城南町	水道町	城南町	水道町	城南町
SO ₄ ²⁻	71	72	57	60	38	47	53	59
NO ₃ ⁻	0.94	0.56	12	10	32	22	18	11
Cl ⁻	-	-	1.1	0.80	3.3	3.1	1.8	1.4
NH ₄ ⁺	26	25	26	26	24	24	25	25
Na ⁺	0.76	0.63	1.4	1.2	0.79	0.98	0.90	0.90
K ⁺	0.90	0.87	1.9	1.9	2.1	2.7	1.7	1.8
Ca ²⁺	0.32	0.30	0.49	-	-	-	0.26	0.24
Mg ²⁺	0.11	0.12	0.18	0.15	0.13	0.17	0.14	0.15

(単位: %)

表8 質量濃度とイオン成分濃度変動の相関係数

区分	夏季		秋季		冬季	
地点	水道町	城南町	水道町	城南町	水道町	城南町
SO ₄ ²⁻	0.91	0.96	0.86	0.90	0.85	0.83
NO ₃ ⁻	0.52	-0.33	0.67	0.76	0.87	0.86
Cl ⁻	-	-	-	0.77	0.94	0.86
NH ₄ ⁺	0.91	0.95	0.90	0.90	0.97	0.94
Na ⁺	-0.36	-0.41	-0.11	-0.073	0.31	0.44
K ⁺	0.74	0.38	0.85	0.94	0.47	0.45
Ca ²⁺	-0.14	0.26	0.38	-	-	-
Mg ²⁺	-0.25	-0.21	0.14	0.24	0.19	0.18

期間中に検出下限値未満が5日以上あった季節は“-”表示とした。

表9 各成分濃度変動に対する地点間相関係数

区分	夏季	秋季	冬季
質量濃度	0.93	0.97	0.96
SO ₄ ²⁻	0.95	0.97	0.96
NO ₃ ⁻	0.31	0.71	0.95
Cl ⁻	-	-	0.81
NH ₄ ⁺	0.95	0.94	0.96
Na ⁺	0.91	0.96	0.98
K ⁺	0.66	0.91	0.97
Ca ²⁺	0.50	-	-
Mg ²⁺	0.90	0.71	0.97

期間中に検出下限値未滿が5日以上あった季節は“ - ”表示とした。

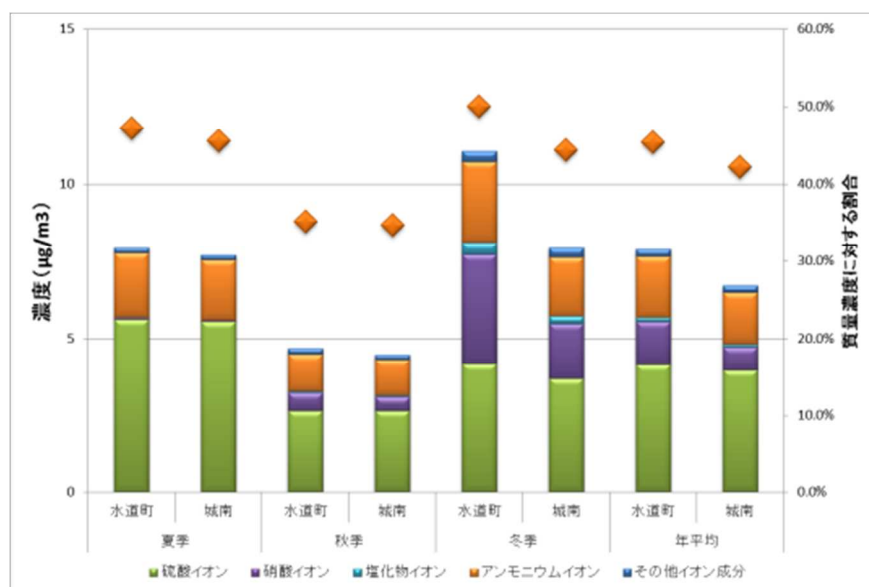


図4 イオン成分構成と濃度

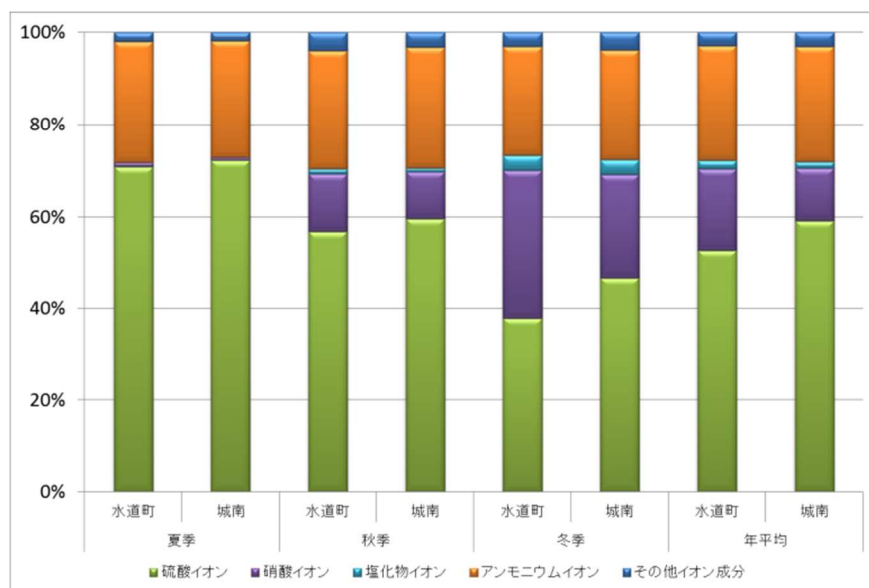


図5 イオン成分の組成割合

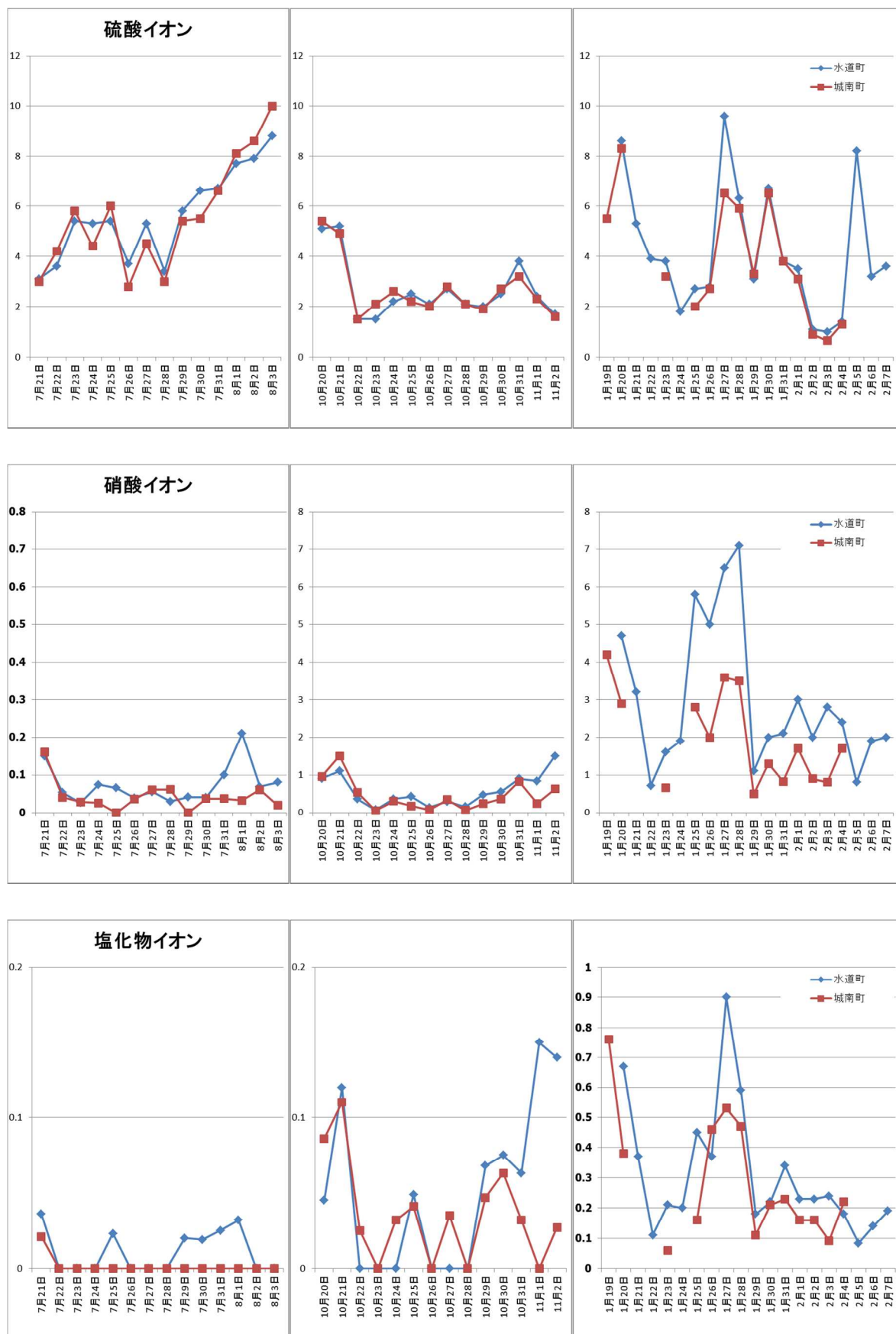


図 6 - 1 各期間中のイオン成分濃度変化(単位： $\mu\text{g}/\text{m}^3$)

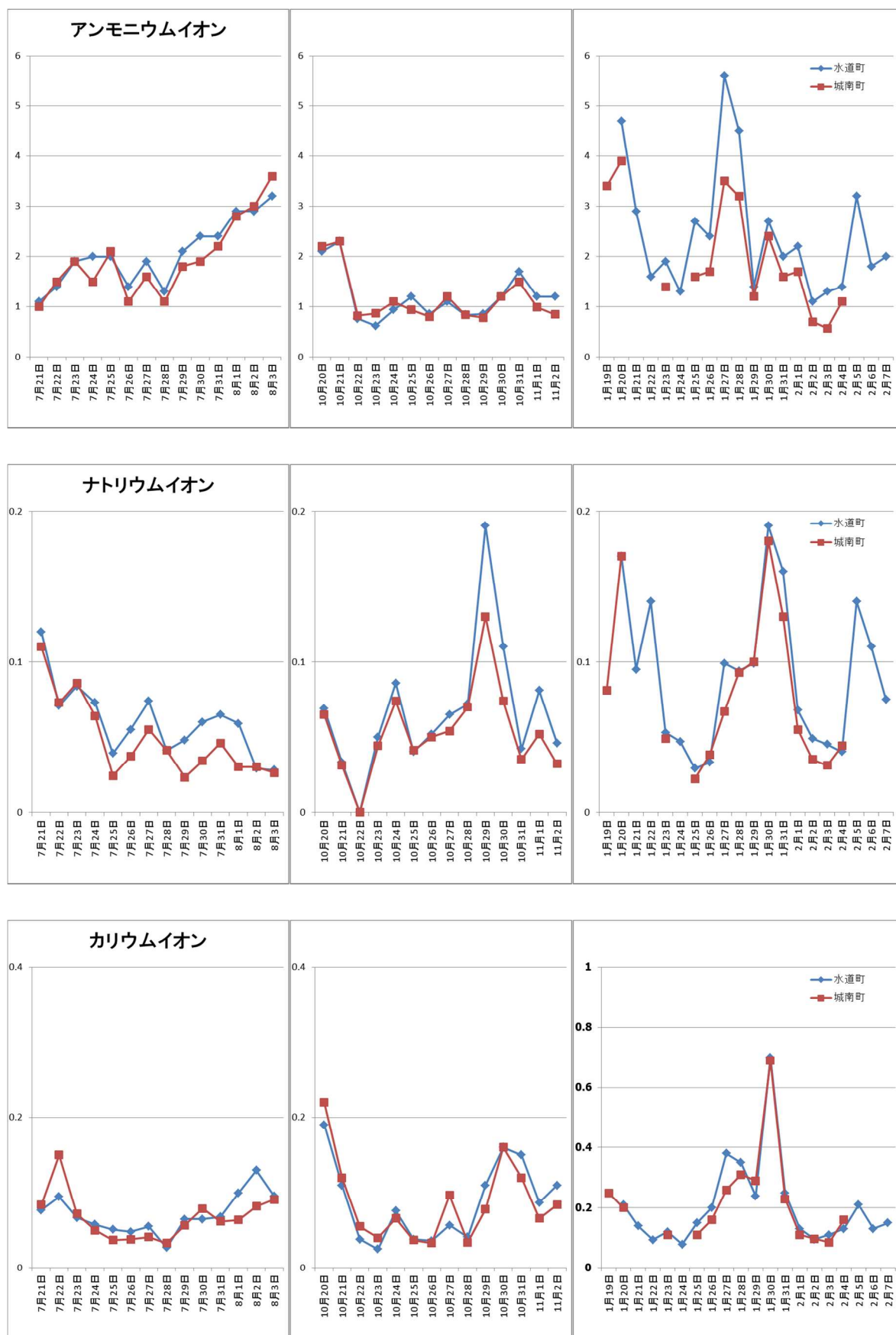


図6-2 各期間中のイオン成分濃度変化(続き、単位： $\mu\text{g}/\text{m}^3$)

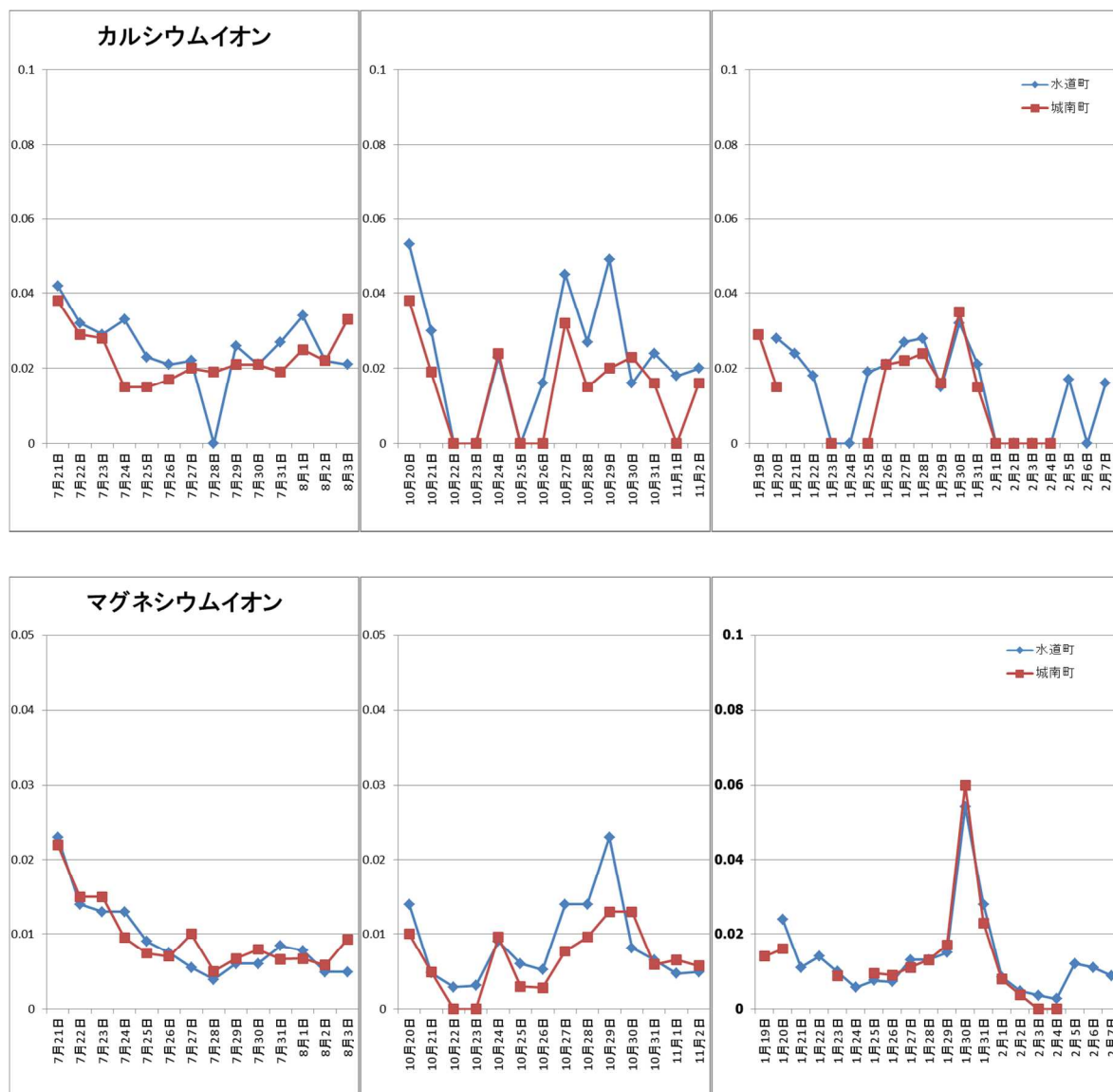


図 6-3 各期間中のイオン成分濃度変化(続き、単位： $\mu\text{g}/\text{m}^3$)

イオン成分が質量濃度に占める割合は、年平均で約 42～45%、季節ごとで約 35～50%を占めており、冬季に高く、秋季に低くなる傾向が見られた。地点間では、水道町局で占める割合がやや高い傾向にあったが、その差は冬季以外は小さかった。主要成分は、いずれの地点ともに夏季は硫酸イオン及びアンモニウムイオンであり、秋・冬季は硫酸イオン、硝酸イオン及びアンモニウムイオンであって、3 成分の合計はイオン成分全体の 93～98%を占め、その主成分は硝酸アンモニウムと硫酸アンモニウムであることが推察された。また、水道町局で質量濃度が $35\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超える観測日（1 月 27・28 日）のいずれかで、両地点の硝酸イオン、塩化物イオン及び水道町のアンモニウムイオンが全捕集期間中の最高値を記録した。

硫酸イオンは、主に硫黄分を含む化石燃料の燃焼に由来し、大陸からの移流が影響していると推察されている。今回の分析結果でも、各地点でほぼ同ような挙動を示しており、主に市域全体にわたる広域的な要因の影響を受けていることが考えられる。特に夏季に濃度が最も高く、イオン成分の約 7 割を占め、質量濃度との相関も高い一方、冬季は小さいながら地点差が見られ、局地的な要因も一定の影響を与えていることが推察された。

硝酸イオンは同じくさまざまな化石燃料の燃焼に由来し、大陸からの移流が影響していると推察される成分である。今回の分析結果では、夏季に濃度が低く、移流時の気温や湿度などで粒子状物質からガス化していることが推察される。一方、冬季は気温が低いため大気環境中

で比較的粒子状の硝酸アンモニウムなどの硝酸化合物として安定的に捕集され検出されたものと推察される。また、冬季は約 2 倍程度の地点差が見られ、局地的な要因も一定の影響を与えていることが推察された。

アンモニウムイオンについては、主に硫酸イオンや硝酸イオンとともに粒子形成されることから、これらのイオン濃度とほぼ同じような挙動を示し、年間を通じて質量濃度との相関も高かった。

カリウムイオンは、植物バイオマスや肥料などを起源とし、各季節でほかのイオン成分に比べ含有量が低い中、質量濃度の傾向と同じく冬季に最も含有量が高かった。なお、日ごとの質量濃度との相関は秋季で高く、冬季でやや低く、夏季には水道町で相関が高かった。

ナトリウムイオンは、海塩などを起源とし、各季節でほかのイオン成分に比べ含有量が低く、冬季に最も高かった。日ごとの質量濃度との相関は、冬季に高かったが、ほかの季節は検出下限値未満が多く相関は不明だった。

カルシウムイオンとマグネシウムイオンについては、各季節ともに含有量は低く、差は見られていないが、秋季の初日と中盤(10 月 20・29 日)や冬季の中盤(1 月 30 日)に高濃度を検出し、その高濃度検出時の挙動が類似しており興味深い。

(3) 無機元素成分

各期間・地点の無機元素成分濃度平均値及び質量濃度に対する割合を表 1 0、構成比を表 1 1、各期間の成分濃度変動に対する地点間相関係数を表 1 2 に示す。なお、検出下限値未満となった項目は、ゼロ値として扱い、冬季の測定結果は全採取期間のうち 1 月 20 日・23 日及び 1 月 25 日～2 月 4 日の結果(n=13)で集計した。また、ナトリウム・カリウム・カルシウム・マグネシウムはイオン成分としても測定を実施している。

表 1 0 無機元素成分濃度平均値及び質量濃度に対する割合

区分	夏季(n=14)		秋季(n=14)		冬季(n=13)		年間(n=41)	
地点	水道町	城南町	水道町	城南町	水道町	城南町	水道町	城南町
質量濃度	16.8	16.9	13.4	12.9	22.1	17.9	17.4	15.9
ナトリウム	55	51	68	51	84	83	69	62
アルミニウム	23	22	30	22	37	68	30	37
カリウム	71	66	82	79	230	211	127	119
カルシウム	<38	<38	<38	<38	<38	45	<38	<38
スカンジウム	<0.0080	<0.0080	<0.0080	<0.0080	<0.0080	<0.0080	<0.0080	<0.0080
バナジウム	1.8	1.9	1.6	1.5	1.8	1.7	1.7	1.7
クロム	0.84	0.31	0.61	0.56	0.76	0.60	0.74	0.49
鉄	30	22	42	39	51	46	41	36
ニッケル	1.9	1.6	1.2	0.67	1.5	0.74	1.5	1.0
亜鉛	13	10	18	17	36	30	22	19
ヒ素	0.48	0.47	0.99	0.99	1.0	0.99	0.83	0.82
アンチモン	0.53	0.49	0.63	0.79	1.2	2.0	0.77	1.1
鉛	2.1	2.1	3.8	4.6	7.7	9.0	4.5	5.2
マンガン	2.6	2.2	2.8	4.0	4.7	5.0	3.4	3.7
コバルト	0.039	0.016	0.040	0.038	0.045	0.041	0.041	0.032
銅	1.6	1.8	1.6	1.8	3.1	2.6	2.1	2.1
セレン	0.50	0.42	0.69	0.63	0.88	0.80	0.69	0.62
モリブデン	0.50	0.13	0.59	0.26	0.58	0.34	0.56	0.24
カドミウム	0.089	0.11	0.15	0.20	0.25	0.33	0.16	0.21
バリウム	2.2	1.0	1.5	0.79	6.1	5.0	3.3	2.3
トリウム	<0.0050	<0.0050	<0.0050	<0.0050	<0.0050	<0.0050	<0.0050	<0.0050
ベリリウム	<0.0078	<0.0078	<0.0078	<0.0078	<0.0078	<0.0078	<0.0078	<0.0078
マグネシウム	9.4	8.5	12	8.6	21	21	14	13
銀	0.018	0.022	0.035	0.033	0.031	0.12	0.028	0.058
タリウム	0.017	0.018	0.055	0.053	0.060	0.052	0.044	0.041
ウラン	<0.0046	<0.0046	<0.0046	<0.0046	<0.0046	<0.0046	<0.0046	<0.0046
合計	216	193	268	233	489	533	324	305
割合	1.3%	1.1%	2.0%	1.8%	2.2%	3.0%	1.9%	1.9%

(単位 : ng/m³、質量濃度のみ µg/m³)

表 1 1 無機元素成分構成比

区分	夏季		秋季		冬季		年間	
地点	水道町	城南町	水道町	城南町	水道町	城南町	水道町	城南町
ナトリウム	26	26	25	22	17	16	21	20
アルミニウム	10	11	11	9.5	7.6	13	9.3	12
カリウム	33	34	31	34	47	40	39	39
カルシウム	-	-	-	-	-	8.4	-	-
スカンジウム	-	-	-	-	-	-	-	-
バナジウム	0.81	0.98	0.58	0.64	0.38	0.32	0.53	0.56
クロム	0.39	0.16	0.23	0.24	0.16	0.11	0.23	0.16
鉄	14	12	16	17	10	8.7	13	12
ニッケル	0.87	0.85	0.46	0.29	0.30	0.14	0.47	0.33
亜鉛	5.9	5.3	6.8	7.4	7.3	5.6	6.9	6.3
ヒ素	0.22	0.24	0.37	0.43	0.21	0.19	0.26	0.27
アンチモン	0.25	0.25	0.23	0.34	0.24	0.37	0.24	0.35
鉛	0.98	1.1	1.4	2.0	1.6	1.7	1.4	1.7
マンガン	1.2	1.1	1.1	1.7	0.95	0.93	1.04	1.2
コバルト	0.018	0.0083	0.015	0.016	0.0091	0.0077	0.013	0.0104
銅	0.75	0.92	0.58	0.78	0.63	0.50	0.65	0.68
セレン	0.23	0.22	0.26	0.27	0.18	0.15	0.21	0.20
モリブデン	0.23	0.069	0.22	0.11	0.12	0.063	0.17	0.080
カドミウム	0.041	0.056	0.055	0.086	0.051	0.063	0.050	0.070
バリウム	1.0	0.54	0.57	0.34	1.2	0.94	1.0	0.75
トリウム	-	-	-	-	-	-	-	-
ベリリウム	-	-	-	-	-	-	-	-
マグネシウム	4.4	4.4	4.4	3.7	4.3	3.9	4.3	4.1
銀	0.0082	0.011	0.013	0.014	0.0064	0.022	0.0086	0.019
タリウム	0.0079	0.0094	0.021	0.023	0.012	0.010	0.014	0.013
ウラン	-	-	-	-	-	-	-	-

(単位：%)

表 1 2 各成分濃度変動に対する地点間相関係数

	ナトリウム Na	アルミニウム Al	カリウム K	カルシウム Ca	スカンジウム Sc	バナジウム V	クロム Cr	鉄 Fe
夏 (n=14)	0.85	-	0.59	-	-	0.96	-0.15	0.63
秋 (n=14)	0.84	-	0.96	-	-	0.99	0.82	0.90
冬 (n=13)	0.97	0.94	0.95	-	-	0.96	0.55	0.69

	ニッケル Ni	亜鉛 Zn	ヒ素 As	アンチモン Sb	鉛 Pb
夏 (n=14)	-0.09	0.89	0.99	0.40	0.96
秋 (n=14)	0.56	0.83	0.97	0.86	0.90
冬 (n=13)	0.44	0.55	0.98	0.36	0.73

	マンガン Mn	コバルト Co	銅 Cu	セレン Se	モリブデン Mo	カドミウム Cd	バリウム Ba	トリウム Th
夏 (n=14)	0.88	-	0.04	0.97	0.18	0.91	0.15	-
秋 (n=14)	0.93	-	0.24	0.97	0.60	0.87	0.63	-
冬 (n=13)	0.56	-0.17	0.75	0.96	0.05	0.50	0.99	-

	ベリリウム Be	マグネシウム Mg	銀 Ag	タリウム Tl	ウラン U
夏 (n=14)	-	0.53	0.91	0.89	-
秋 (n=14)	-	0.76	0.98	0.94	-
冬 (n=13)	-	0.98	0.00	0.98	-

期間中に検出下限値未満が 5 日以上あった季節は “ - ” 表示とした。

無機元素成分が質量濃度に占める割合は、年平均で約 1.9%、季節ごとで約 1.1～3.0%を占めており、冬季に高く、夏季に低くなる傾向が見られた。季節間や地点間で変動があるものの、主要成分は、ナトリウム(海塩起源)・アルミニウム・カルシウム・鉄(以上、土壌起源)・カリウム(植物バイオマスや肥料起源)などであり、これら主要 5 成分の合計は無機元素成分全体の 82～85%を占めていた。

一方、割合が小さいその他の成分ではさまざまな起源を持ち、それぞれで濃度変化の挙動が異なる。

両地点でよく似た挙動を示した元素としては、バナジウム、ヒ素、鉛、セレン、タリウムは季節に関係なく通年で共通した発生源の影響を受けたと考えられ、特にバナジウムは夏季に濃度が最も高く化石燃料(重油)由来、タリウムは秋季に濃度が最も高く化石燃料(石炭)由来の発生源の影響が大きかったと考えられる。

銀や銅も季節に関係なく通年で共通した発生源の影響を受けたと考えられたが、城南町で銀は冬季(2月1日、1.2ng/m³)、銅は夏季(7月22日、14ng/m³)と秋季(10月31日、9.0ng/m³)に高濃度が検出されたため相関が低くなっており、局地的な要因が影響していることが考えられる。

バリウムは、冬季に地点間の相関が高かったが、夏季と秋季に水道町が城南町と比較して

高い濃度で推移し、相関も比較的低く、局地的な要因が影響していることが考えられた。

クロムは、夏季の水道町が比較的濃度が高く、期間中に 2 日の高濃度検出(7 月 24 日に 2.6 ng/m³、7 月 27 日に 2.1 ng/m³) があり、局地的な要因が影響していることが考えられた。

(4) 炭素成分

各期間・地点の炭素成分濃度平均値及び質量濃度に対する割合を表 1 3、構成比を表 1 4、各期間の成分濃度変動に対する地点間相関係数を表 1 5、各期間中の炭素成分濃度変化を図 7 に示す。なお、夏季は城南町の石英フィルタの捕集時間が各日午前 0 時からの 24 時間となっていることから、質量濃度に対する割合は算出していない。冬季の測定結果は全採取期間のうち 1 月 20 日及び 1 月 26 日～2 月 4 日の結果(n=11)で集計した。

表 1 3 炭素成分濃度平均値及び質量濃度に対する割合

区分	夏季(n=14)		秋季(n=14)		冬季(n=11)		年間(n=39)	
地点	水道町	城南町	水道町	城南町	水道町	城南町	水道町	城南町
質量濃度	16.8	16.9	13.4	12.9	22.5	18.6	17.6	16.1
OC1	0.033	0.023	0.056	0.044	0.21	0.12	0.10	0.062
OC2	2.6	2.7	1.2	1.1	1.5	1.2	1.8	1.7
OC3	1.2	1.3	0.87	0.87	1.1	0.93	1.1	1.0
OC4	0.41	0.43	0.44	0.43	0.43	0.42	0.43	0.43
OCpyro	1.1	1.4	0.9	1.1	1.3	1.3	1.1	1.3
OC 小計	5.4	5.9	3.5	3.6	4.5	4.0	4.4	4.4
EC1	1.3	1.2	1.4	1.3	2.6	2.2	1.8	1.6
EC2	1.4	0.90	1.3	0.95	1.2	0.93	1.3	0.93
EC3	0.11	0.080	0.13	0.11	0.10	0.090	0.11	0.093
EC 小計	1.8	0.80	1.9	1.3	2.6	1.9	2.1	1.3
炭素合計	7.1	6.7	5.4	4.9	7.1	5.9	6.5	5.8
割合	42.4%	-	40.5%	37.9%	31.4%	31.8%	37.2%	35.9%

(単位 : µg/m³)

OC(有機炭素) 小計 = OC1+OC2+OC3+OC4+OCpyro

EC(元素状炭素) 小計 = EC1+EC2+EC3-OCpyro

表 1 4 炭素成分構成比

区分	夏季		秋季		冬季		年間	
地点	水道町	城南町	水道町	城南町	水道町	城南町	水道町	城南町
OC1	0.46	0.34	1.0	0.90	3.0	2.0	1.5	1.1
OC2	37	40	22	23	21	20	27	29
OC3	17	20	16	18	16	16	16	18
OC4	5.8	6.4	8.2	8.7	6.0	7.1	6.5	7.3
OCpyro	15	21	17	22	18	23	17	22
OC 小計	75	88	65	73	64	67	68	77
EC1	19	18	26	27	36	38	27	28
EC2	19	13	24	19	17	16	20	16
EC3	1.5	1.2	2.5	2.2	1.5	1.5	1.8	1.6
EC 小計	25	12	35	27	36	33	32	23

(単位：%)

表 1 5 各成分濃度変動に対する地点間相関係数

	全炭素 TC	有機炭素 OC	元素状炭素 EC
夏 (n=14)	0.46	0.69	0.27
秋 (n=14)	0.94	0.97	0.80
冬 (n=11)	0.90	0.89	0.92

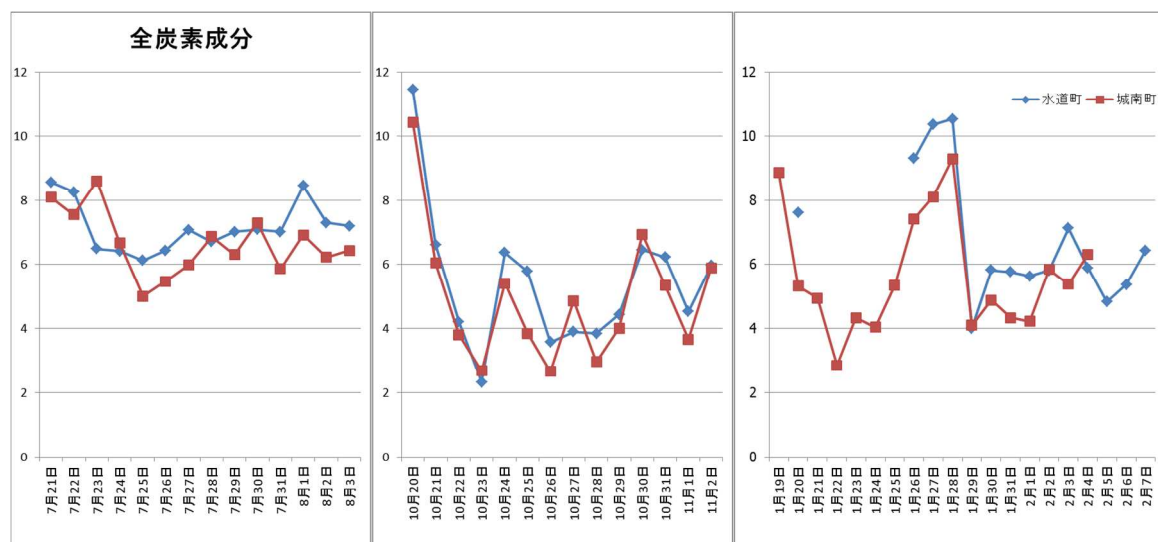


図 7 - 1 各期間中の炭素成分濃度変化(単位：µg/m³)

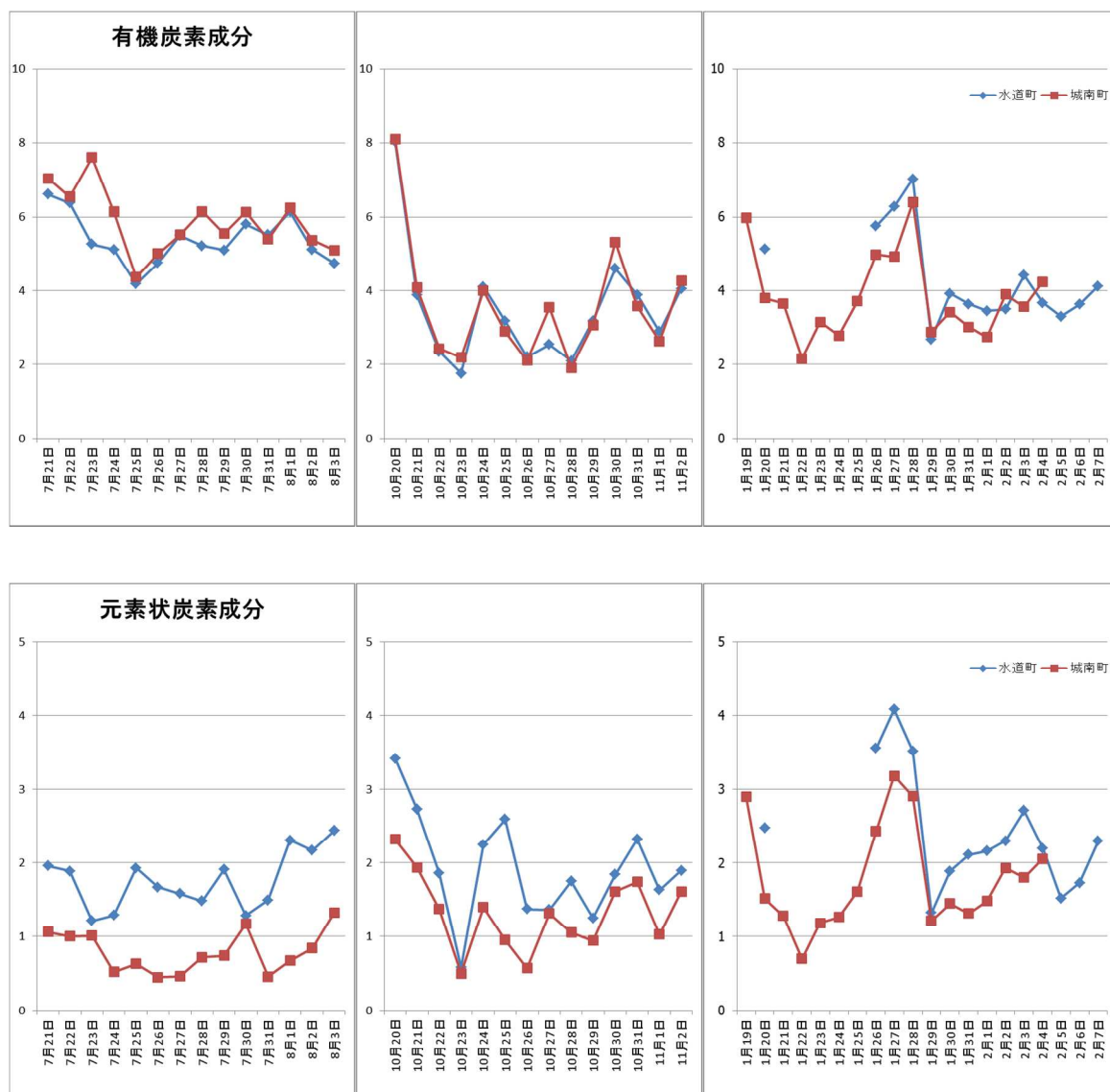


図 7-2 各期間中の炭素成分濃度変化(続き、単位：μg/m³)

炭素成分が質量濃度に占める割合は、年平均で約 36～38%、季節ごとに約 32～42%を占めており、夏季・秋季に高く、冬季に低くなる傾向が見られたが、これは主に冬季にイオン成分濃度が高くなるため、相対的に割合が低くなったものと推察される。

成分別では、有機炭素成分は、各季節ともに両地点でほぼ同じような挙動を示しており、日ごとの質量濃度との相関は高い。また、秋季は城南町が期間平均で約 2～10%多く検出される傾向にあったが、冬季は水道町が期間を通じて平均約 12%多く検出された。これについては、局地的な要因の影響が推察された。

一方、元素炭素成分は各季節ともに水道町がより多く検出される傾向にあり、これは元素炭素成分が主にディーゼル排気など高温における不完全燃焼時に生成する成分(いわゆる「すす」の状態となった炭素)であることから、交通量が多く自動車排出ガスが多い沿道環境の影響を受けているためと考えられる。

(5) まとめ

1. 平均質量濃度は、冬季に濃度が高く、秋季に濃度が低い傾向であり、35μg/m³を超える

観測日は冬季の水道町のみで2日間と平成26・27年度と比較しても少なかった。

2. 測定した両地点ともに質量濃度変化の挙動はほぼ同じ傾向であったが、自動車排出ガス測定局(水道町)で一般環境大気測定局(城南町)に比較して冬季にやや高い値で推移しており、PM2.5濃度が広域的な要因の影響を受けている一方、局地的な要因も一定の影響を与えていることが推察された。
3. イオン成分が質量濃度に占める割合は、年平均で約42～45%、季節ごとで約35～50%を占めており、冬季に高く、秋季に低くなる傾向が見られた。主要成分は、いずれの地点ともに夏季は硫酸イオン及びアンモニウムイオンであり、秋・冬季は硫酸イオン、硝酸イオン及びアンモニウムイオンで、その主成分は硝酸アンモニウムと硫酸アンモニウムであった。なお、質量濃度の全捕集期間最大値を記録した1月27日には硫酸イオン及びアンモニウムイオンとともに濃度が高く、硫酸アンモニウムも最高値を記録したと推察された。
4. 無機元素成分が質量濃度に占める割合は、年平均で約1.9%、季節ごとで約1.1～3.0%を占めており、冬季に高く、夏季に低くなる傾向が見られた。主要成分は、ナトリウム(海塩起源)・アルミニウム・カルシウム・鉄(以上、土壌起源)・カリウム(植物バイオマスや肥料起源)などであった。
5. 無機元素成分のうち、バナジウム、ヒ素、鉛、セレン、タリウムは季節に関係なく通年で共通した発生源の影響を受けたと考えられ、特にバナジウムは夏季に濃度が最も高く化石燃料(重油)由来、タリウムは秋季に濃度が最も高く化石燃料(石炭)由来の発生源の影響が大きかったと推察される。
6. 無機元素成分のうち、城南町で銀が冬季、銅は夏季と秋季に高濃度検出したため相関が低くなっており、水道町ではバリウムが夏季と秋季、クロムは夏季に城南町と比較して高い濃度で推移し、相関も比較的低く、局地的な要因が影響していることが考えられた。
7. 炭素成分が質量濃度に占める割合は、年平均で約36～38%、季節ごとで約32～42%を占めており、夏季・秋季に高く、冬季に低くなる傾向が見られたが、これは主に冬季にイオン成分濃度が高くなるため、相対的に割合が低くなったものと推察された。
8. 炭素成分別では、有機炭素成分で冬季に水道町の方が期間を通じて平均約12%多く検出され、局地的な要因の影響が推察された。一方、元素状炭素成分は各季節ともに水道町がより多く検出される傾向にあり、交通量が多く自動車排出ガスが多い沿道環境の影響を受けていることが推察された。

文献

- 1) 環境省：水・大気環境局，微小粒子状物質（PM2.5）の成分分析ガイドライン，2011．
- 2) 環境省：水・大気環境局 大気環境課長・自動車環境対策課長，大気中微小粒子状物質（PM2.5）成分測定マニュアル，2014．
- 3) 緒方美治、武原弘和、近藤芳樹、藤井幸三：熊本市における微小粒子状物質（PM2.5）の実態調査（平成25年2月～3月），熊本市環境総合センター年報，No.20，49-58，2012．
- 4) 緒方美治、飯銅和浩、坂口美鈴、吉田芙美香、福田照美、近藤芳樹、藤井幸三：熊本市における微小粒子状物質（PM2.5）の成分分析（平成25年度），熊本市環境総合センター年報，No.21，51-65，2013．
- 5) 緒方美治、飯銅和浩、渡邊隆、坂口美鈴、清藤順子、吉田芙美香、福田照美、近藤芳樹、藤井幸三：熊本市におけるPM2.5の高濃度予測時の6時間分解能観測による無機元素成

分を中心とした発生源解析—平成 26 年 3 月～6 月の 4 期間の事例—,熊本市環境総合センター年報, No.22, 47-61, 2014.

- 6) 飯銅和浩、坂口美鈴、緒方美治、渡邊隆、清藤順子、吉田芙美香、福田照美、近藤芳樹、藤井幸三：熊本市における微小粒子状物質 (PM2.5) の成分分析 (平成 26 年度)—地点間比較を中心に—, 熊本市環境総合センター年報, No.22, 62-82, 2014.
- 7) 緒方美治、飯銅和浩、吉田芙美香、福田照美、坂口美鈴、渡邊隆、清藤順子、津留靖尚、濱野晃、近藤芳樹、藤井幸三：熊本市における PM2.5 の高濃度予測時の 6 時間分解能観測による無機元素成分を中心とした発生源解析(その 2)—平成 26 年 12 月、27 年 1 月、27 年 2 月の 3 つの事例—, 熊本市環境総合センター年報, No.23, 2015.
- 8) 緒方美治、飯銅和浩、吉田芙美香、福田照美、坂口美鈴、渡邊隆、清藤順子、津留靖尚、濱野晃、藤井幸三：熊本市における微小粒子状物質 (PM2.5) の成分分析 (平成 27 年度), 熊本市環境総合センター年報, No.24, 44-55, 2016.

