

資料

奄美地域におけるPM_{2.5}の発生源解析に関する調査研究（第I報）Surveillance about Analysis of Source of PM_{2.5} in the Amami Region (I)

井 料 良 輔 山 元 広 大 縄 手 雅 宗
長 野 旬 一

1 はじめに

当センターでは、これまでに県本土のPM_{2.5}は、大陸からの越境移流の影響や桜島の火山活動の影響を受け、質量濃度が上昇することを報告している^{1),2)}。

また、山村らは、2020年に九州北西部から山陰・北陸地方で50 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えるPM_{2.5}が測定された事象について、桜島の火山ガスから二次的に生成した硫酸塩粒子（二次生成粒子）が影響を及ぼした可能性を明らかにしている³⁾。このことから、火山ガスが二次生成粒子となるのに要する時間と共に、風向きなどの気象条件によっては、桜島から370km南に位置する奄美地域のPM_{2.5}の上昇に桜島の火山ガスが影響を及ぼす可能性が考えられる。実際に2020年8月に奄美地域で、原因は断定できていないものの、奄美大島の東約1100kmに位置する西之島（東京都）の噴煙の影響と考えられる煙霧が発生している。

2022年度から、奄美地域のPM_{2.5}の実態を把握するため、奄美局でPM_{2.5}のフィルタ捕集を行い、成分分析や常時監視データの解析を実施している。今回の報告では、2022年度と2023年度に当センターで実施した成分分析結果と、自動測定機によるPM_{2.5}質量濃度およびSO₂濃度の挙動について考察した。

2 調査方法

2. 1 調査地点

調査地点は奄美局及び県本土における比較地点として霧島局を選定した（図1）。奄美局は、県本土（桜島）から南に370km、南西側が海、北東側が山に面した地点に位置しており、北側には、諏訪之瀬島や桜島など活発な活動を続ける複数の火山が存在している。霧島局は、県中央部に位置し、国のモニタリング調査における基準局としている。

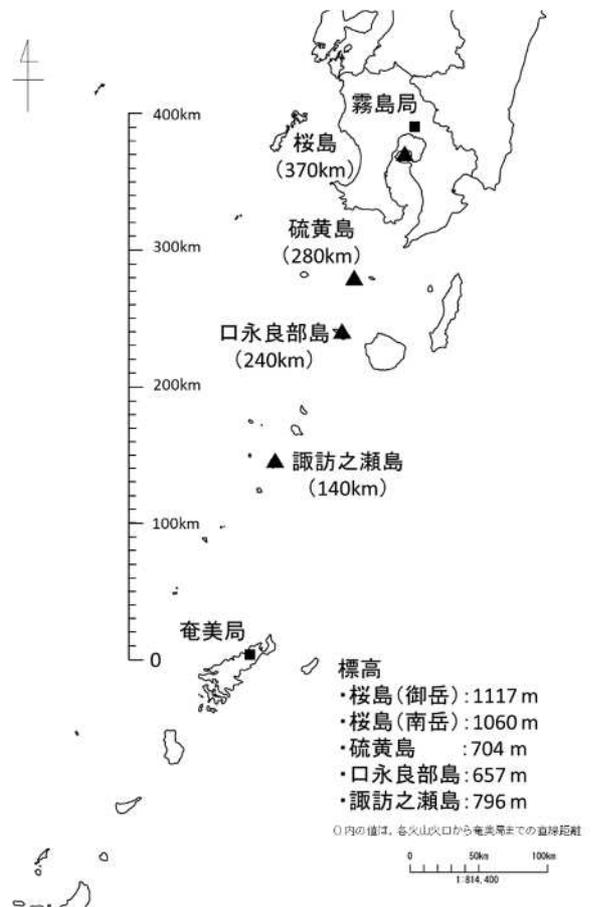


図1 調査地点と周辺の火山

2. 2 調査期間

2022年度の夏季と冬季に2季節、2023年度に4季節調査を行った。調査期間を表1に示す。調査期間はおおむね14日間とした。

表1 調査期間

年度	季節	期間	捕集地点
2022	夏季	2022. 7. 22~2022. 7. 28*	奄美局
		2022. 7. 30~2022. 8. 12	霧島局
	冬季	2023. 2. 8~2023. 2. 21	奄美局
		2023. 1. 19~2023. 2. 1	霧島局
2023	春季	2023. 5. 14~2023. 5. 27	奄美局
		2023. 5. 12~2023. 5. 25	霧島局
	夏季	2023. 8. 24~2023. 9. 6	奄美局
		2023. 7. 20~2023. 8. 2	霧島局
	秋季	2023. 10. 18~2023. 10. 31	奄美局
		2023. 10. 20~2023. 11. 2	霧島局
	冬季	2024. 1. 18~2024. 1. 31	奄美局
		2024. 1. 19~2024. 2. 1	霧島局

* 台風による、欠測のため調査期間は7日間。

2. 3 PM_{2.5}質量濃度, SO₂濃度及びOx濃度

成分分析期間中のPM_{2.5}質量濃度1日平均値は、常時監視マニュアルに基づき、フィルター捕集-質量法により測定を行った。成分分析期間以外のPM_{2.5}質量濃度, SO₂濃度及びOx濃度は自動測定機によるデータを使用した。

各測定局における自動測定機の機種を表2に示す。

表2 自動測定機の機種

測定局	SO ₂	PM _{2.5}	Ox
霧島局		紀本電子工業(株) PM-712	
奄美局	紀本電子工業(株) SA-731	紀本電子工業(株) PM-712	紀本電子工業(株) OA-781

(注) 上段は製造会社名, 下段には機種名を記載している。

2. 4 捕集

PM_{2.5}は、環境大気常時監視マニュアル第6版⁴⁾(以下「常時監視マニュアル」という。)及び大気中微小粒子状物質(PM_{2.5})成分測定マニュアル⁵⁾(以下「成分測定マニュアル」という。)に基づき、PM_{2.5}サンプラ(Thermo社製, 2025i)を使用して24時間ごとにPTFEフィルタに捕集を行った。

2. 5 成分分析

イオン成分(硫酸イオン(SO₄²⁻), 硝酸イオン(NO₃⁻), 塩化物イオン(Cl⁻), アンモニウムイオン(NH₄⁺), 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⁺)と、無機元素成分(鉛(Pb), 亜鉛(Zn), ヒ素(As), バナジウム(V))

を分析項目とした。

2. 5. 1 イオン成分

成分測定マニュアルに基づき、成分分析を行った。フィルタの半分(PMP素材のサポートリングを切除したもの)を超純水10mLで20分間超音波抽出を行い、イオンクロマトグラフ(Thermo Fisher SCIENTIFIC社製, Integrion RFIC)により測定した。

2. 5. 2 無機元素(酸分解/ICP-MS法)

成分測定マニュアルに基づき、成分分析を行った。フィルタの半分(PMP素材のサポートリングを切除したもの)をPTFE製容器に入れ、硝酸7mL, 過酸化水素1mL, フッ化水素酸2mLを加えてマイクロウェーブ分解装置(Milestone社製, ETHOS EASY)によりマイクロ波加熱分解を行い、フィルタを除去した後、液量が0.1mL程度になるまで加熱蒸発させ、5%硝酸水溶液15mLで回収後、50mLに定容したものをICP-MS(Agilent社製, Agilent 7900)により測定した。

2. 6 気象解析

後方流跡線については米国海洋大気庁(National Oceanic and Atmospheric Administration: NOAA)のHYSPLIT Modelを使用し作成した。起点は高度1000mで24時間さかのぼって計算した。

3 調査結果及び考察

3. 1 PM_{2.5}質量濃度, イオン成分濃度

PM_{2.5}質量濃度及びイオン成分濃度の季節別平均を図2に示す。

2023年度におけるPM_{2.5}質量濃度及び全イオン成分の濃度は、両測定局で春季および秋季に高く、夏季に低い傾向が見られた。また、年間を通して奄美局の濃度は霧島局に比べて低かった。2022年度の夏季については調査期間が異なるため比較が難しかったが、冬季は2023年度と同様に奄美局の値が霧島局に比べて低かった。

各イオン成分については、両測定局においていずれの季節でもSO₄²⁻とNH₄⁺が大部分を占めていた。特に奄美局の2022年度夏季についてはSO₄²⁻濃度が高かったことから、二次生成による影響が示唆された。なお、海塩性SO₄²⁻は、無視できる濃度であった。

NH₄⁺は、大気中のNH₃がH₂SO₄及びHNO₃と中和しそれぞれ(NH₄)₂SO₄及びNH₄NO₃の粒子を形成することが知られている。このことから、SO₄²⁻及びNO₃⁻濃度とともにNH₄⁺濃度が高くなったと考えられる。

また、霧島局において冬季にNO₃⁻濃度が高くなっていった。NH₄NO₃は気温が高い場合に気化しNH₃及びHNO₃となりやすく、気温が低い場合に粒子化する傾向があることから、気温の低い冬季にNO₃⁻濃度が高くなったと考えられる。奄美局の冬季については、測定期間中における平均気温が2022年度は16.9°C、2023年度は16.0°Cと高かったことから、粒子化の割合が低く、NO₃⁻濃度が季節間で大きく変わらなかったと考えられる（霧島局は2022年度6.1°C、

2023年度9.5°C）。

続いて、イオン成分濃度の大部分を占めるSO₄²⁻当量とNO₃⁻当量の合計（SO₄²⁻+NO₃⁻）とNH₄⁺当量の相関を図3に示す。

両測定局においていずれの季節でも（SO₄²⁻+NO₃⁻）/NH₄⁺比が概ね1に近いことから、主に（NH₄）₂SO₄及びNH₄NO₃として存在していたと考えられる。

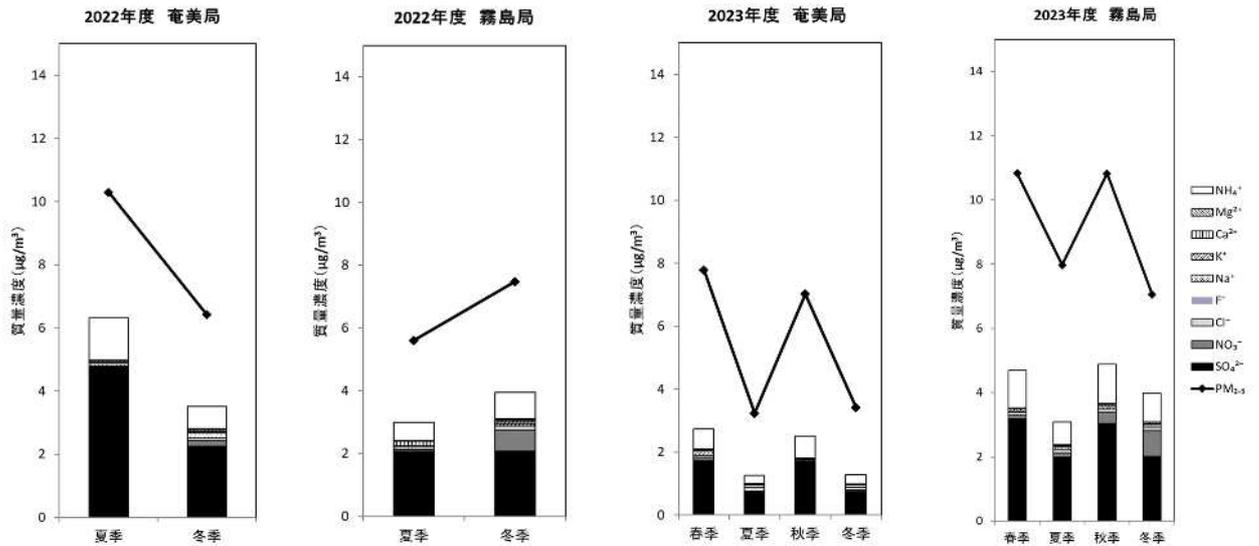


図2 PM_{2.5}質量濃度及びイオン成分濃度季節別平均

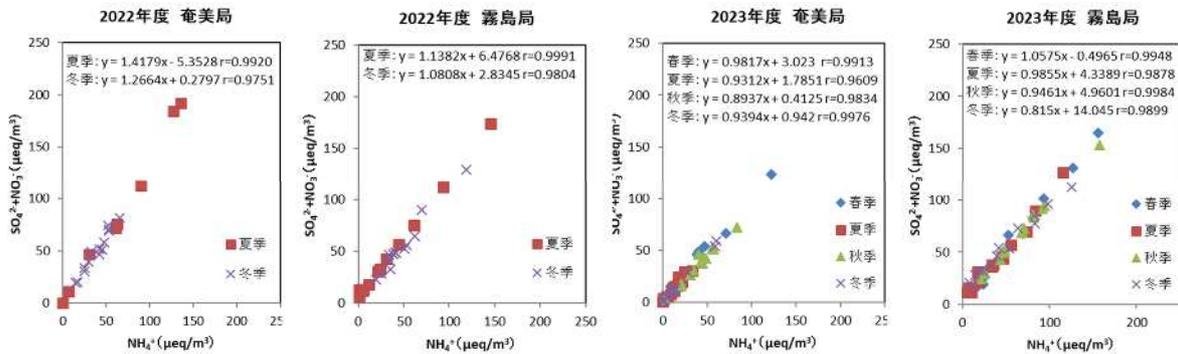


図3 季節別のSO₄²⁻及びNO₃⁻とNH₄⁺当量の相関

3. 2 無機元素成分濃度比

無機元素成分は、他の成分より大気輸送中の変質が少ないため、発生源を特定する際の指標として用いられ⁵⁾、化石燃料の燃焼等に由来する粒子と、土壌に由来する粒子の元素濃度比がわずかに異なることを利用してPM_{2.5}の起源を推定することができる。本報では、一般的に用いられるPb/Zn比及びAs/V比を使い解析を行った。

3. 2. 1 Pb/Zn比

有鉛ガソリンを使用する地域では、普遍的に存在するZn濃度に対して相対的にPb濃度が高くなることから、Pb/Zn比は有鉛ガソリンの指標とされている。

有鉛ガソリンについては日本では1970年代から使用が禁止されていることから、Pb/Zn比は減少傾向にあり、日本国内起源の場合は0.2～0.3程度、大陸起源の場合は0.5～0.6程度と報告されている⁶⁾。Pb及びZn濃度並びにPb/Zn比の季節別平均を図4に示す。

両年度において、奄美局及び霧島局ともにPb/Zn比が夏季に0.3以下を示したことから、大陸起源による影響は夏季に弱かったことが示唆される。また、奄美局(2023年度)は夏季以外について、Pb/Zn比が一定だったことから、季節変動が少なかったことが考えられた。

一方、霧島局(2022年度)においては、他の地点に比べ冬季にZn濃度が高かったことから、Pb/Zn比が小さく、他の測定局と異なる傾向を示した。原因等も含め、今後詳細な解析等が必要である。

3. 2. 2 As/V比

Asは石炭燃焼、Vは石油燃焼の指標として用いられており、As/V比は石炭使用量の多い中国で日本より大きい値を示すとされている^{7),8)}。As及びV濃度並びにAs/V比の季節別平均を図5に示す。

2023年度において、両測定局で夏季にAs/V比が小さく、奄美局では春に、霧島局では秋にAs/V比が高い傾向を示したことから、相対的に両測定局において夏季は石油燃焼の影響が強く、奄美局では春に、霧島局では秋に石炭燃焼の影響が強かったことが示唆される。

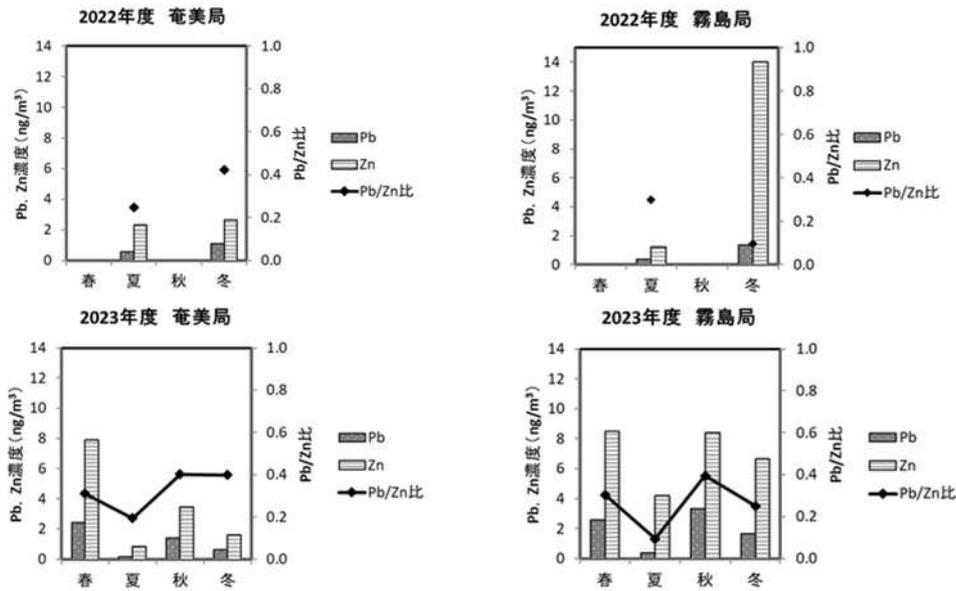


図4 Pb及びZn濃度並びにPb/Zn比季節別平均

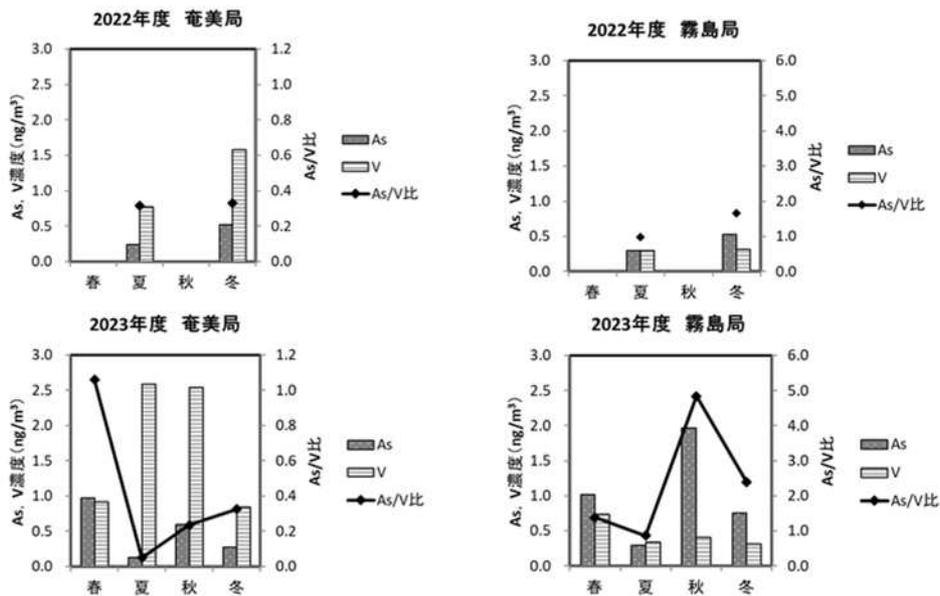


図5 As及びV濃度並びにAs/V比季節別平均

3. 3 SO₂とPM_{2.5}の濃度上昇の要因について

3. 3. 1 SO₂の濃度上昇

奄美局の北側には、図1のとおり諏訪之瀬島、口永良部島、硫黄島及び桜島といった活発に活動を続ける火山が存在している。また、奄美市名瀬では、2002年8月、諏訪之瀬島からの降灰を観測している⁹⁾。このため、火山活動の影響を調査することを主な目的として、奄美局にSO₂自動測定機を設置した。奄美局のSO₂濃度は、2022年4月4日、5月22日、10月18日及び19日に1時間値の最高値が30ppbを超過しており、これらの時期には諏訪之瀬島において気象庁による爆発発表等が行われている^{10)~12)}。

図6及び図7のとおり4月4日16時及び5月22日16時には、SO₂、PM_{2.5}ともに日最高値を記録し、両者ともに同じ変動が見られた。また同時間帯は、北東の風が多く観測された。奄美局を起点とした後方流跡線解析(図9、10)から奄美

局に到達した空気塊は、諏訪之瀬島方向から移流していたことがうかがえたため、4月4日及び5月22日のSO₂とPM_{2.5}の濃度上昇の要因は、諏訪之瀬島の火山活動によるものと考えられた。これは、既に報告されている霧島局における桜島の噴火に伴うSO₂濃度及びPM_{2.5}質量濃度の挙動と類似している²⁾。

一方、2022年10月18日及び19日については、SO₂とPM_{2.5}の変動の一致はわずかしか見られなかった(図8)。SO₂高濃度を記録した時間帯において、4月、5月と同じく北風が多く観測され、奄美局を起点とした後方流跡線解析(図11)から奄美局に到達した空気塊は、諏訪之瀬島方向から移流していたことがうかがえたため、10月18日及び19日のSO₂濃度上昇の要因は、諏訪之瀬島の火山活動によるものと考えられた。

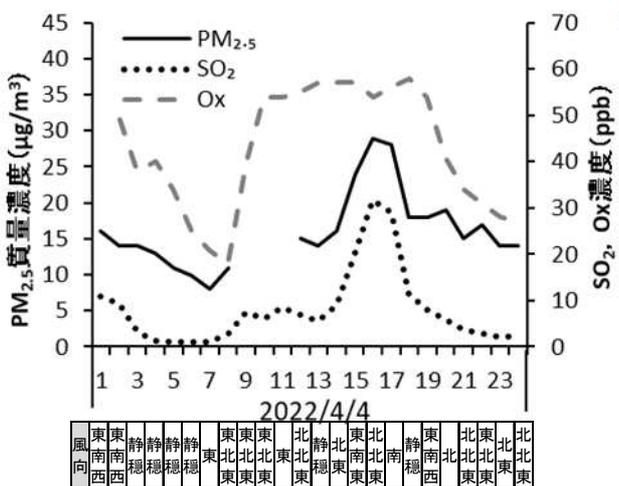


図6 PM_{2.5}質量濃度、SO₂濃度、Ox濃度及び風向(奄美局)
(2022年4月4日0時~24時)

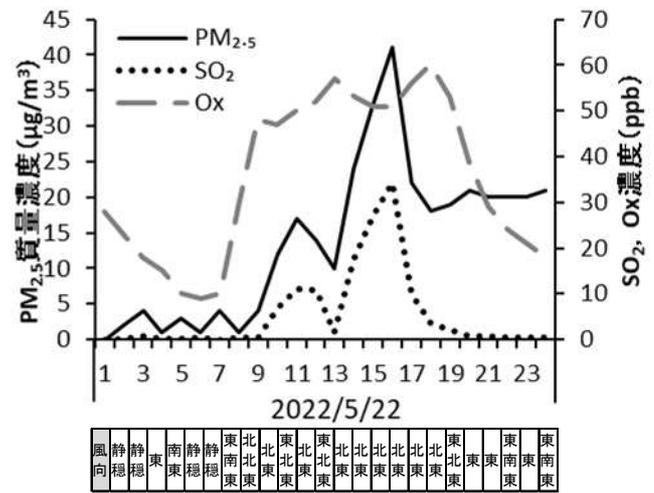


図7 PM_{2.5}質量濃度、SO₂濃度、Ox濃度及び風向(奄美局)
(2022年5月22日0時~24時)

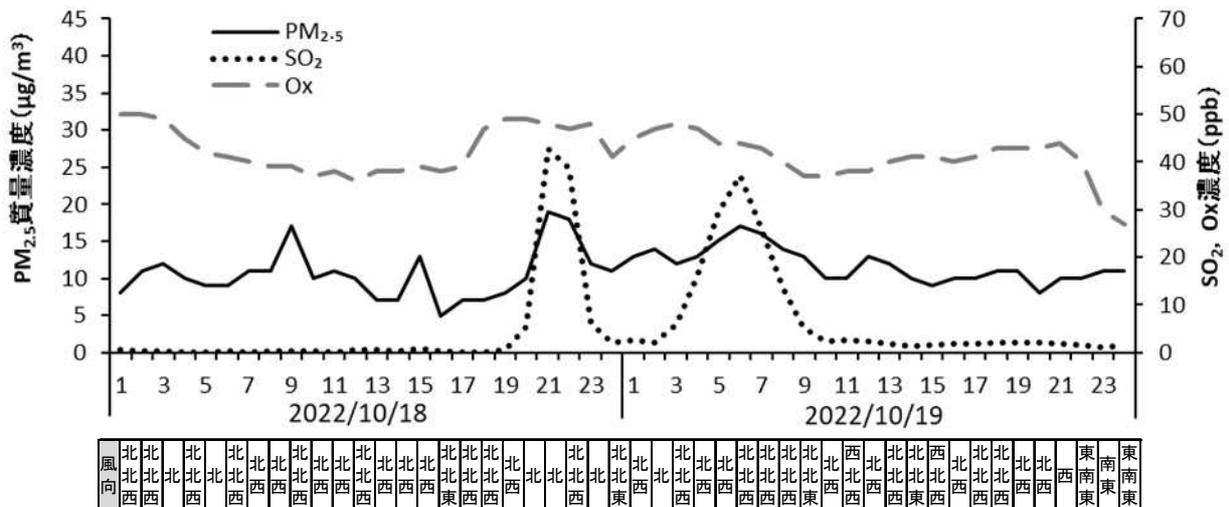


図8 PM_{2.5}質量濃度、SO₂濃度、Ox濃度及び風向(奄美局)
(2022年10月18日0時~19日24時)

2022年4月4日16時
(24時間)

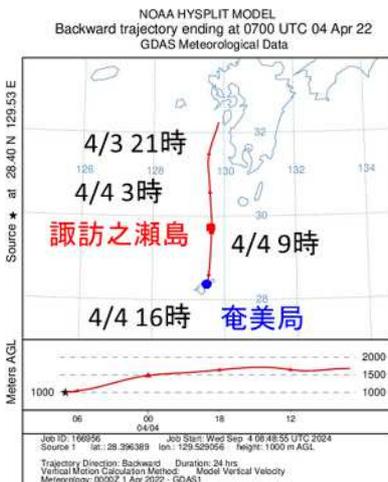


図9 後方流跡線解析 (奄美局)

2022年5月22日16時
(24時間)

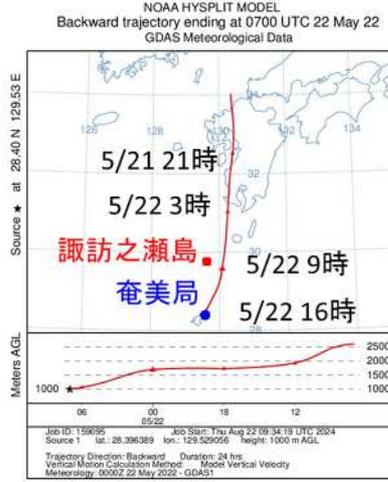


図10 後方流跡線解析 (奄美局)

2022年10月19日6時
(24時間)

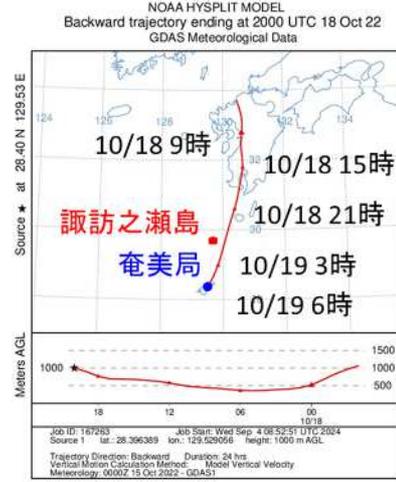


図11 後方流跡線解析 (奄美局)

3. 3. 2 PM_{2.5}の濃度上昇

2022年度および2023年度の測定期間で最も高い1日平均値30 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ が観測された2024年2月11日前後の期間について解析を行った。

2024年2月11日から12日にかけては、図12に示すように

PM_{2.5}濃度が高値で推移していた。また、図13の奄美局を起点とする後方流跡線解析によると、奄美局に到達した空気塊は中国大陸から移流してきたものであり、この期間には越境移流の影響があったと推察された。

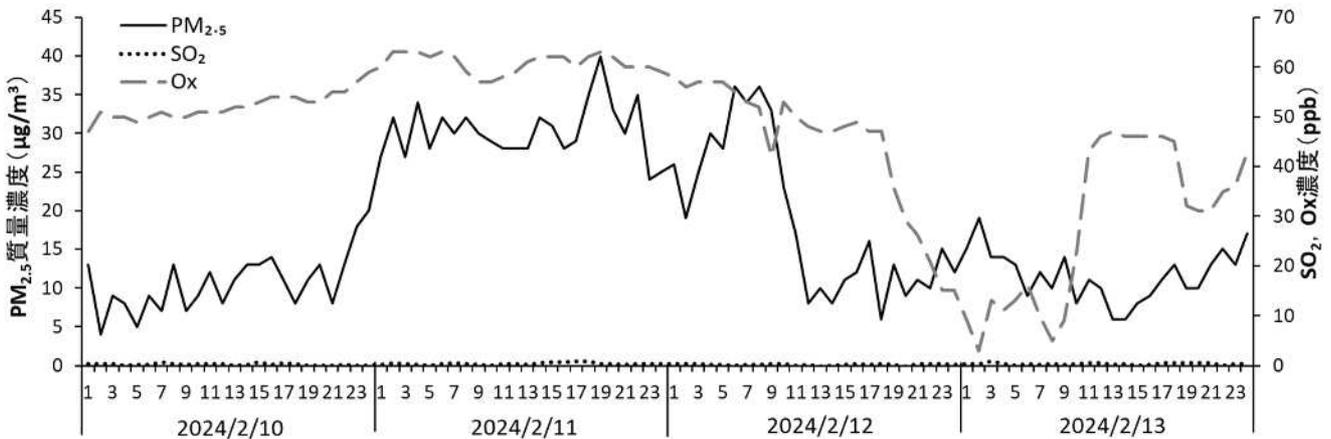


図12 PM_{2.5}質量濃度、SO₂濃度及びOx濃度 (奄美局)
(2024年2月10日0時～13日24時)

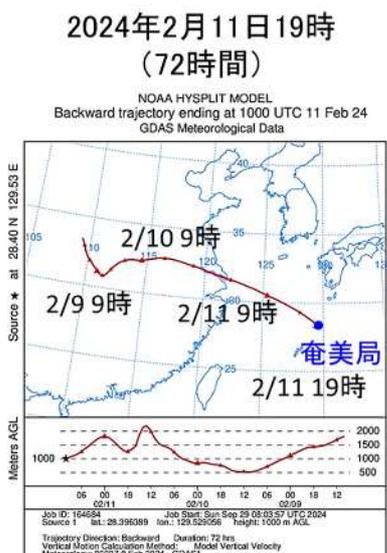


図13 後方流跡線解析 (奄美局)

4 まとめ

- 1) 奄美局のPM_{2.5}質量濃度は霧島局と同様に、春季及び秋季に高く、夏季及び冬季に低く、年間を通して霧島局に比べ低かった。
- 2) 奄美局のイオン成分濃度は、いずれの季節でもSO₄²⁻とNH₄⁺が大部分を占めていた。奄美局のNO₃濃度について、測定期間中における平均気温が高かったため季節間で大きく変わらなかったことが考えられた。
- 3) 奄美局(両年度)及び霧島局(2023年度)においてPb/Zn比が夏季に0.3以下を示したことから、大陸起源による影響は夏季に弱かったことが示唆された。また、奄美局(2023年度)は夏季以外について、Pb/Zn比が一定だったことから、季節変動が少なかったことが考えられた。
- 4) 2023年度において、両測定局で夏季にAs/V比が小さく、奄美局では春に、霧島局では秋にAs/V比が高い傾向を示したことから、両測定局において夏季は石油燃焼の影響が強く、奄美局では春に、霧島局では秋に石炭燃焼の影響が強かったことが示唆された。
- 5) 奄美局のPM_{2.5}質量濃度とSO₂濃度の挙動及び後方流跡線解析から、諏訪之瀬島の火山活動によりPM_{2.5}質量濃度及びSO₂濃度が影響を受けることが示唆された。
- 6) 奄美局におけるPM_{2.5}質量濃度のみが高濃度となった事象について、越境移流の影響が示唆された。

謝 辞

PM_{2.5}成分分析用試料の捕集にあたり、機器の設置及び点検に御協力いただいております、大島支庁保健福祉環境部衛生・環境室環境係の皆様へ深謝いたします。

参考文献

- 1) 西中須暁子, 四元聡美, 他; 鹿児島県における微小粒子状物質に関する報告(第I報), 鹿児島県環境保健センター所報, **16**, 87~95 (2015)
- 2) 西中須暁子, 東小菌卓志, 他; 鹿児島県における粒子状物質などの地域特性に関する調査研究(第II報), 鹿児島県環境保健センター所報, **17**, 43~50 (2016)
- 3) 山村由貴, 新谷俊二, 他; 夏季の太平洋高気圧条件下における高濃度PM_{2.5}に対する火山の寄与解析, 大気環境学会誌, **55**, 169~181 (2020)
- 4) 環境省水・大気環境局; 環境大気常時監視マニュアル第6版 (2010)
- 5) 環境省水・大気環境局; 大気中微小粒子状物質(PM_{2.5})成分測定マニュアル (2019)
- 6) 清水政行; 中国における産業別・地域別SO₂, NO_x, CO₂排出量の推計と考察, 日本国際経済学会第69回全国大会報告論文 (2010)
- 7) 日置正, 紀本岳志, 他; 松山, 大阪, つくばで観測した浮遊粉じん中金属元素濃度比による長距離輸送と地域汚染特性の解析, 大気環境学会誌, **44**, 91~101 (2009)
- 8) 梶田奈穂子, 加藤敦雄, 他; 2014年2月に観測された広域的なPM_{2.5}濃度現象の解析, 愛知県環境調査センター所報, **43**, 1~7 (2015)
- 9) 気象庁; 諏訪之瀬島の火山活動解説資料(平成14年8月)
- 10) 気象庁; 諏訪之瀬島の火山活動解説資料(令和4年4月)
- 11) 気象庁; 諏訪之瀬島の火山活動解説資料(令和4年5月)
- 12) 気象庁; 諏訪之瀬島の火山活動解説資料(令和4年10月)