

## 9. 8 大気環境科

大気環境科では、大気環境監視テレメータシステムにより得られる観測データの常時監視、微小粒子状物質(PM<sub>2.5</sub>)の成分測定(イオン成分、炭素成分、無機元素)、ベンゼン等の有害大気汚染物質調査、酸性雨環境影響調査、航空機騒音調査等を行っている。

### 1. 試験検査・監視等調査業務

#### (1) 大気汚染監視調査(環境政策課事業)

島根県は一般環境大気測定局7局(安来市、雲南市、出雲市、大田市、江津市、浜田市、益田市)を設置し、大気環境の状況把握を行っている。当研究所には大気環境監視テレメータシステムの監視センターが設置されており、大気環境の常時監視、測定機器の稼働状況の把握、測定データの確定作業を行った。なお、西津田自動車排出ガス測定局については、松江市の中核市移行に伴い、平成30年度から松江市が管理運営している。

信頼性の高い測定データを確保するために、光化学オキシダント計の目盛校正を各測定局で行った。

令和元年度は100ppbを超える光化学オキシダント高濃度事象が4月に1日、5月に4日観測された。5月23日は、安来市、松江市、雲南市、出雲市、大田市、江津市、浜田市、益田市で120ppbを超え(最高値:大田市144ppb)、島根県で初めて光化学オキシダントに関する注意報を発令した。

微小粒子状物質(PM<sub>2.5</sub>)については、平成25年4月から安来市、出雲市、大田市、江津市、益田市、平成25年7月から雲南市で開始した質量濃度の常時監視、平成25年10月(秋季)から浜田市及び隠岐の島町で開始した成分測定(イオン成分、炭素成分、無機元素)を継続して実施した。

#### (2) 有害大気汚染物質調査(環境政策課事業、松江市受託事業)

優先取組有害大気汚染物質について、県は、安来市中央交流センターで、松江市は、中核市移行に伴い平成30年度からこれまで県が調査を行っていた国設松江大気環境測定所、馬漕工業団地周辺、西津田自動車排出ガス測定局の計3地点で、環境省は、隠岐酸性雨測定所で環境モニタリング調査を実施した。なお、松江市が調査を実施した3地点については、松江市から委託を受け、当所が分析を行った。

#### (3) 酸性雨環境影響調査(環境政策課事業)

酸性雨状況を把握して被害を未然に防止することを目的に、松江市と江津市の2地点でWet-Only採取装置による降水のモニタリング調査を行った。

#### (4) 国設松江大気環境測定所管理運営(松江市受託事業)

環境省が全国9か所に設置する国設大気環境測定所

のひとつである松江大気環境測定所は、昭和55年から松江市西浜佐陀町の現在地で稼働しており、測定機器の保守管理を行っている。

#### (5) 国設酸性雨測定所管理運営(環境省受託事業)

東アジア酸性雨モニタリングネットワーク(EANET)は2001(平成13)年1月に本格運用を開始し、現在13ヶ国が参加している。

日本には湿性沈着モニタリングサイトとして9地点あり、島根県には国設隠岐酸性雨測定所(平成元年度開設)が設置されている。降水自動捕集装置、気象観測装置、乾式SO<sub>2</sub>-NO<sub>x</sub>-O<sub>3</sub>計、PM<sub>10</sub>・PM<sub>2.5</sub>測定装置、フィルターパック法採取装置が整備されており、測定局舎と、測定機器の保守管理および湿性・乾性沈着モニタリングの調査を行った。

なお、EANETの湿性沈着モニタリングサイトであった国設蟠竜湖酸性雨測定所は、平成31年3月をもって、湿性・乾性沈着モニタリング、SO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub>、O<sub>3</sub>の測定、PM<sub>10</sub>、PM<sub>2.5</sub>の測定を終了した。

また、平成12年度から環境放射性物質モニタリングが、隠岐・蟠竜湖の両測定所において行われている。

#### (6) 黄砂実態解明調査(環境省受託事業)

環境省が全国5か所に設置するライダーモニタリングシステム(松江市、平成17年4月設置)の保守管理を行った。ライダーモニタリングシステムについては、平成21年10月にN<sub>2</sub>ラマン散乱チャンネルが増設され、数値化データを求めるために仮定されていた係数の一部が測定できるようになった。

令和元年度は、気象庁によると4月に3日、11月に1日、松江で黄砂が観測された(気象庁による松江における黄砂観測は、令和2年2月3日をもって終了したため、2月3日までの観測日数)。

#### (7) 三隅発電所周辺環境調査(環境政策課事業)

三隅火力発電所周辺の大気環境モニタリングについて、浜田保健所及び益田保健所が試料採取を、当所が重金属類10物質の分析をそれぞれ担当した(2回/年)。

#### (8) 化学物質環境汚染実態調査(環境省受託事業)

POPs条約対象物質及び化学物質審査規制法第1、2種特定化学物質等の環境汚染実態を経年的に把握することを目的として、隠岐酸性雨測定所において、10月に大気モニタリング調査が実施され、当科はサンプリング機材の調整、準備を行った。

(9) 航空機騒音調査（環境政策課事業）

松江、出雲の各保健所が実施する航空機騒音調査について、当科は騒音計の校正、データ確認及び技術支援を行った。調査回数は、美保飛行場：連続14日間調査を2回、出雲空港：連続7日間調査を4回であった。

(10) 花粉観測システム管理運営（環境省受託事業）

環境省が当所に設置した花粉観測システム（はなこさん）によって、花粉の飛散状況をリアルタイムで情報提供した（平成31年2月～令和元年5月）。

## 2. 研究的業務

(1) 光化学オキシダント及びPM<sub>2.5</sub>の生成に関連する炭

化水素類等の挙動把握に関する研究（平成30～令和3年度）

島根県において光化学オキシダント（O<sub>x</sub>）及び微小粒子状物質（PM<sub>2.5</sub>）生成への関与が明らかになっていない炭化水素類及びアルデヒド類について、炭化水素類は容器（キャニスター）採取－ガスクロマトグラフ質量分析（GC/MS）法、アルデヒド類は固相捕集－高速液体クロマトグラフ（HPLC）法により、高濃度時を中心に松江で濃度測定を行い、松江における生成関連物質濃度と光化学O<sub>x</sub>及びPM<sub>2.5</sub>の濃度変動との関連性を把握する。令和元年度は、炭化水素類及びアルデヒド類の濃度測定を行った

## 島根県における PM2.5 濃度の経年変動 (2014～2019 年度)

園山 隼人・金津 雅紀・小原 幸敏・藤原 誠

### 1. はじめに

日本における微小粒子状物質 (以下、PM2.5) の高濃度事象の要因としては、越境大気汚染によるものに加えて、自動車排出ガスの影響や広域気象 (海陸風、風の収束等)・局地気象 (接地逆転層、多湿等) の影響によるもの、特定の固定発生源によるもの、野焼き等に代表されるバイオマス燃焼によるものなどがあると考えられている。<sup>1)</sup>

近年では、島根県も含め全国的に PM2.5 濃度の年平均値および高濃度事象の件数は減少しており、一般環境大気測定局での PM2.5 環境基準 (長期基準: 1 年平均値が 15 $\mu\text{g}/\text{m}^3$  以下であること。短期基準: 1 日平均値が 35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$  以下であること。長期基準、短期基準をともに満たした場合に環境基準達成。) の達成状況は、2014 年度 37.8%であったものが 2019 年度は 93.5%となっている。<sup>2)</sup>

島根県は大気汚染物質の大規模な発生源が少ないため、大気が清浄な地域であるが、偏西風帯に位置し中国等がある大陸からの距離が近いことから、越境大気汚染の影響を受けやすい地域である。特に、島根半島の北方 40km から 80km の日本海にある隠岐島は、自動車や工場からの排ガス等の地域的な汚染の影響がほとんどないため、越境大気汚染の影響を調査する上で重要な地点であると考えられる。

本報では、島根県の隠岐の島町および松江市における PM2.5 の 2014 年度から 2019 年度までの通年観測データを用いて、PM2.5 質量濃度および成分濃度の経年変動を調査したので報告する。

### 2. 調査方法

#### 2.1 調査項目、調査地点、捕集条件

調査項目について、自動測定機により PM2.5 質量濃度の測定を行い、フィルタ捕集法によりイオン成分 (Cl<sup>-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、Na<sup>+</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、K<sup>+</sup>、Ca<sup>2+</sup>、Mg<sup>2+</sup>)、炭素成分 (OC、EC)、無機成分 (Be、Na、Mg、Al、K、Ca、Sc、V、Cr、Mn、Fe、Co、Ni、Cu、Zn、As、Se、Rb、Cd、Sb、Cs、Ba、Pb) 濃度の測定を行った。

フィルタ捕集法によるサンプリングは、バックグラウンド地域として国設隠岐酸性雨測定所 (島根県隠岐郡隠岐の島町: 以下、隠岐)、都市地域として島根県健康環境科学研究所 (島根県松江市西浜佐陀町: 以下、松江) の 2 地点で実施した。

フィルタ捕集については、両地点とも大気汚染防止法に基づく PM2.5 成分測定の一試料捕集期間は 10 時を起点とし 24 時間ごと、それ以外の期間においては 2016 年 8 月までは 12 時、2016 年 9 月からは 10 時を起点とし、吸引流量 16.7L/min で 24 時間ごとおよび 168 時間 (1 週間) ごとにサンプリングを実施した。表 1 に捕集期間ごとのサンプリング時間の詳細を示す。

表 1. 2014～2019 年度におけるサンプリング状況

|    | 期間                | サンプリング時間 |
|----|-------------------|----------|
| 隠岐 | 2014年4月～2014年5月   | 24時間     |
|    | 2014年6月～2015年7月   | 168時間    |
|    | 2015年8月～2018年7月   | 24時間     |
|    | 2018年8月～2019年3月   | 168時間    |
|    | 2019年4月～2019年5月   | 24時間     |
|    | 2019年6月～2020年3月   | 168時間    |
| 松江 | 2014年4月～2016年2月   | 168時間    |
|    | 2016年3月～2018年6月上旬 | 24時間     |
|    | 2018年6月中旬～2019年3月 | 168時間    |
|    | 2019年4月～2019年5月   | 24時間     |
|    | 2019年6月～2020年3月   | 168時間    |

#### 2.2 PM2.5 質量濃度の測定

PM2.5 の質量濃度は、隠岐では国設隠岐酸性雨測定所の紀本電子工業 (株) PM712、松江では国設松江大気環境測定所の Thermo 社 TEOM-1405-DF (~2015. 3. 25) および Model 5030 SHARP Monitor (2015. 3. 26~) を用いて 1 時間ごとに測定した。

#### 2.3 PM2.5 成分濃度の測定

フィルタ捕集については、隠岐では FRM-2025i (Thermo)、松江では Partisol 2000-FRM (Thermo) (~2018. 9. 6) および FRM-2025i (Thermo) (2018. 9. 7~) を各地点 2 台使用し、イオン成分及び炭素成分は石英繊維

維フィルタ (2500QAT-UP) に、無機元素成分は PTFE フィルタ (WP-500-50) に捕集した。

PM2.5 の成分濃度の測定は、環境省が示す大気中微小粒子状物質 (PM2.5) 成分測定マニュアル<sup>3)</sup>に従って行い、イオン成分はイオンクロマトグラフ法、炭素成分はサーマルオプテカル・リフレクタンス法、無機元素成分は ICP-MS 法により測定した。

## 2. 4 通年観測期間における観測状況

通年観測期間における観測日数を表 2、3 に示す。1日に23時間以上観測した日を有効な観測日とした。な

お、定期的実施する捕集装置の清掃、統一試料捕集期間前後の準備、停電、捕集装置等のトラブル、測定値の異常等は、欠測とした。

## 2. 5 月平均値の算出方法と測定値の取扱い

月平均値は、サンプリング単位ごとに得られた測定値を月単位 (月を跨ぐサンプリングの場合は、開始日時を基準とする) で加重平均にして算出した。解析を行うにあたっては、定量下限値未満検出下限値以上の測定値はそのまま使用し、検出下限値未満の測定値は検出下限値の1/2の値を使用した。

表 2. 隠岐での通年観測期間における観測日数

|        |        |    |    |    |    |    |    |     |     |     |    |    |    | 単位：日 |
|--------|--------|----|----|----|----|----|----|-----|-----|-----|----|----|----|------|
| 隠岐     |        | 4月 | 5月 | 6月 | 7月 | 8月 | 9月 | 10月 | 11月 | 12月 | 1月 | 2月 | 3月 | 合計   |
| 2014年度 | 質量濃度   | 30 | 30 | 30 | 30 | 31 | 30 | 31  | 28  | 31  | 31 | 28 | 31 | 361  |
|        | イオン成分  | 30 | 25 | 30 | 30 | 20 | 20 | 30  | 23  | 31  | 30 | 21 | 31 | 321  |
|        | 炭素成分   | 30 | 15 | 30 | 30 | 20 | 20 | 30  | 23  | 31  | 30 | 21 | 31 | 311  |
|        | 無機元素成分 | 30 | 18 | 30 | 30 | 20 | 20 | 30  | 23  | 31  | 30 | 21 | 29 | 312  |
| 2015年度 | 質量濃度   | 30 | 31 | 30 | 31 | 31 | 29 | 30  | 30  | 31  | 31 | 27 | 31 | 362  |
|        | イオン成分  | 23 | 21 | 27 | 22 | 27 | 29 | 30  | 29  | 31  | 24 | 25 | 30 | 318  |
|        | 炭素成分   | 23 | 21 | 27 | 22 | 27 | 29 | 30  | 29  | 31  | 24 | 25 | 30 | 318  |
|        | 無機元素成分 | 7  | 15 | 27 | 22 | 27 | 30 | 30  | 29  | 31  | 24 | 27 | 26 | 295  |
| 2016年度 | 質量濃度   | 30 | 31 | 30 | 31 | 31 | 30 | 31  | 23  | 30  | 31 | 28 | 31 | 357  |
|        | イオン成分  | 29 | 28 | 29 | 30 | 25 | 27 | 30  | 16  | 28  | 30 | 25 | 31 | 328  |
|        | 炭素成分   | 29 | 28 | 29 | 30 | 25 | 27 | 30  | 16  | 28  | 30 | 25 | 31 | 328  |
|        | 無機元素成分 | 19 | 23 | 29 | 27 | 10 | 21 | 30  | 16  | 30  | 30 | 25 | 31 | 291  |
| 2017年度 | 質量濃度   | 30 | 31 | 30 | 31 | 31 | 30 | 31  | 28  | 31  | 28 | 26 | 31 | 358  |
|        | イオン成分  | 29 | 26 | 27 | 30 | 27 | 26 | 30  | 24  | 27  | 23 | 14 | 26 | 309  |
|        | 炭素成分   | 29 | 26 | 27 | 30 | 27 | 26 | 30  | 24  | 27  | 23 | 14 | 26 | 309  |
|        | 無機元素成分 | 29 | 27 | 27 | 28 | 27 | 26 | 30  | 24  | 28  | 24 | 14 | 28 | 312  |
| 2018年度 | 質量濃度   | 30 | 31 | 30 | 31 | 31 | 30 | 31  | 28  | 31  | 31 | 28 | 31 | 363  |
|        | イオン成分  | 30 | 28 | 29 | 30 | 23 | 26 | 30  | 22  | 31  | 29 | 21 | 31 | 330  |
|        | 炭素成分   | 30 | 28 | 29 | 30 | 23 | 26 | 30  | 22  | 31  | 29 | 21 | 31 | 330  |
|        | 無機元素成分 | 30 | 19 | 27 | 13 | 23 | 26 | 23  | 22  | 31  | 30 | 15 | 28 | 287  |
| 2019年度 | 質量濃度   | 30 | 31 | 30 | 31 | 31 | 30 | 31  | 28  | 31  | 31 | 29 | 31 | 364  |
|        | イオン成分  | 23 | 26 | 30 | 31 | 21 | 30 | 30  | 21  | 22  | 16 | 29 | 31 | 310  |
|        | 炭素成分   | 23 | 26 | 30 | 31 | 21 | 30 | 30  | 21  | 22  | 16 | 29 | 31 | 310  |
|        | 無機元素成分 | 27 | 26 | 30 | 31 | 21 | 30 | 31  | 20  | 31  | 26 | 0  | 0  | 273  |

<個別成分の欠測状況>

2016年度：10/30 (Ni)、1/9~3/31 (Al, Cr, Cu)

2017年度：4/1~4/20 (Al, Cr, Cu)、6/4~6/18 (Al, Cr, Cu)、10/19~11/3 (Al, Cr, Mn, Cu)

表 3. 松江での通年観測期間における観測日数

|        |        |    |    |    |    |    |    |     |     |     |    |    |    | 単位：日 |
|--------|--------|----|----|----|----|----|----|-----|-----|-----|----|----|----|------|
| 松江     |        | 4月 | 5月 | 6月 | 7月 | 8月 | 9月 | 10月 | 11月 | 12月 | 1月 | 2月 | 3月 | 合計   |
| 2014年度 | 質量濃度   | 30 | 24 | 30 | 31 | 31 | 30 | 31  | 30  | 31  | 31 | 28 | 30 | 357  |
|        | イオン成分  | 30 | 30 | 28 | 31 | 31 | 30 | 31  | 30  | 31  | 31 | 25 | 30 | 358  |
|        | 炭素成分   | 30 | 30 | 28 | 31 | 31 | 30 | 31  | 30  | 31  | 31 | 25 | 30 | 358  |
|        | 無機元素成分 | 30 | 31 | 28 | 31 | 31 | 30 | 31  | 26  | 27  | 31 | 26 | 30 | 352  |
| 2015年度 | 質量濃度   | 30 | 31 | 30 | 31 | 31 | 30 | 31  | 30  | 31  | 31 | 29 | 30 | 365  |
|        | イオン成分  | 30 | 31 | 30 | 25 | 31 | 29 | 28  | 29  | 31  | 27 | 28 | 31 | 350  |
|        | 炭素成分   | 30 | 31 | 30 | 25 | 31 | 29 | 28  | 29  | 31  | 27 | 28 | 31 | 350  |
|        | 無機元素成分 | 30 | 31 | 30 | 30 | 31 | 29 | 28  | 29  | 31  | 27 | 28 | 31 | 355  |
| 2016年度 | 質量濃度   | 30 | 31 | 30 | 28 | 30 | 30 | 31  | 30  | 30  | 31 | 28 | 31 | 360  |
|        | イオン成分  | 30 | 30 | 30 | 30 | 30 | 29 | 30  | 29  | 31  | 30 | 26 | 30 | 355  |
|        | 炭素成分   | 30 | 30 | 30 | 30 | 30 | 29 | 30  | 29  | 31  | 30 | 26 | 30 | 355  |
|        | 無機元素成分 | 29 | 30 | 20 | 30 | 30 | 25 | 30  | 29  | 31  | 30 | 24 | 31 | 339  |
| 2017年度 | 質量濃度   | 30 | 31 | 30 | 31 | 8  | 0  | 22  | 30  | 31  | 31 | 27 | 31 | 302  |
|        | イオン成分  | 30 | 30 | 30 | 31 | 30 | 30 | 31  | 29  | 31  | 31 | 25 | 31 | 359  |
|        | 炭素成分   | 30 | 30 | 30 | 31 | 30 | 30 | 31  | 29  | 31  | 31 | 25 | 30 | 358  |
|        | 無機元素成分 | 30 | 30 | 30 | 31 | 27 | 30 | 31  | 29  | 30  | 31 | 12 | 10 | 321  |
| 2018年度 | 質量濃度   | 30 | 31 | 30 | 31 | 31 | 30 | 31  | 30  | 31  | 31 | 27 | 31 | 364  |
|        | イオン成分  | 30 | 30 | 23 | 31 | 30 | 29 | 30  | 27  | 31  | 29 | 26 | 31 | 347  |
|        | 炭素成分   | 30 | 30 | 23 | 31 | 30 | 29 | 30  | 27  | 31  | 29 | 26 | 31 | 347  |
|        | 無機元素成分 | 29 | 31 | 30 | 31 | 30 | 29 | 30  | 27  | 31  | 30 | 24 | 31 | 353  |
| 2019年度 | 質量濃度   | 30 | 31 | 30 | 31 | 31 | 30 | 31  | 28  | 31  | 31 | 29 | 31 | 364  |
|        | イオン成分  | 30 | 30 | 30 | 29 | 26 | 30 | 29  | 27  | 31  | 29 | 27 | 31 | 349  |
|        | 炭素成分   | 30 | 30 | 30 | 29 | 26 | 30 | 29  | 27  | 31  | 29 | 27 | 31 | 349  |
|        | 無機元素成分 | 30 | 30 | 30 | 30 | 26 | 30 | 30  | 19  | 31  | 29 | 27 | 31 | 343  |

### 3. 結果と考察

#### 3. 1 島根県における環境基準の達成状況

2013年度から2019年度における島根県内9地点(益田、浜田、江津、大田、出雲、雲南、松江、安来、隠岐)の環境基準達成状況は、2013年度1地点(11%)、2014年度2地点(22%)、2015・2016年度は8地点(89%)、2017・2018・2019年度は9地点(100%)で達成しており、2013年度から2015年度にかけて急速に改善した。

#### 3. 2 島根県におけるPM2.5高濃度日出現状況

図1に島根県における2013年度から2019年度の高濃度日(PM2.5質量濃度の日平均値が $35\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上)の1局あたりの出現日数を示す。2013年度11.2日、2014年度10.3日、2015年度4.6日、2016年度2.2日、2017年度2.4日、2018年度3.6日、2019年度0.1日であり、2013年度から2015年度にかけて減少傾向を示し、2015年度以降は低い水準で推移した。

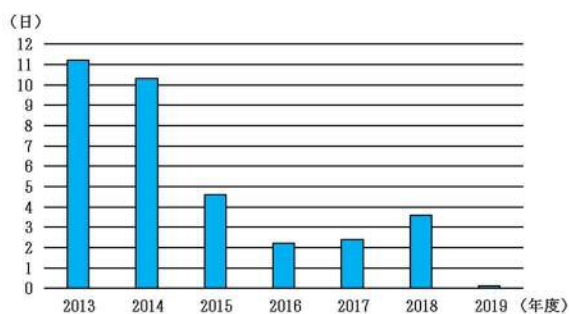


図1. 島根県における1局あたりのPM2.5高濃度日の出現日数(2013~2019年度)

#### 3. 3 PM2.5質量濃度および主要成分濃度の推移

図2に2014年度から2019年度にかけて隠岐、松江で実施した通年観測のPM2.5質量濃度および成分濃度の年平均値を示す。表4にはPM2.5質量濃度に対する主要成分が占める割合を示す。この期間においては、いずれの年度も $\text{SO}_4^{2-}$ 濃度が最も高く、続いてOC濃度、 $\text{NH}_4^+$ 濃度となっていた。PM2.5質量濃度に対する $\text{SO}_4^{2-}$ 濃度、OC濃度、 $\text{NH}_4^+$ 濃度が占める割合をみると、この3成分でPM2.5質量濃度の40~50%程度を占めていた。したがって、この3成分が島根県で観測されるPM2.5を構成する主要成分であるといえる。

図3、4、5に隠岐、松江のPM2.5質量濃度および主要成分濃度の月平均値、1年間移動平均値を示す。PM2.5質量濃度は、隠岐、松江ともに2014年度から2016年度

にかけて減少傾向を示し、その後は横ばいで推移、そして2018年度から2019年度にかけて減少傾向を示していた。また、2014年度は松江が隠岐よりも若干高い濃度で推移していたが、2015年度以降は2地点間の濃度差は小さくなっていた。この期間において、 $\text{SO}_4^{2-}$ 濃度および $\text{NH}_4^+$ 濃度は緩やかな減少傾向を示しており、2地点間の濃度差も小さかった。周辺に発生源が少ないバックグラウンド地域である隠岐と都市地域である松江の2地点間でPM2.5質量濃度および $\text{SO}_4^{2-}$ 濃度、 $\text{NH}_4^+$ 濃度の濃度差が小さくなっていることから、島根県の大気汚染物質の推移は、広域的な影響を受けている可能性が高いということが示唆された。また、OC濃度に着目すると、この期間において隠岐では緩やかな上昇傾向を示しており、松江ではほぼ横ばいで推移しながらも、観測期間を通して松江が隠岐よりも平均 $0.77\mu\text{g}/\text{m}^3$ ほど高い濃度で推移していた。このことから、隠岐と比較して周辺に発生源の多い松江では、人為的な活動に伴う地域的な汚染の影響を受けていることが示唆された。

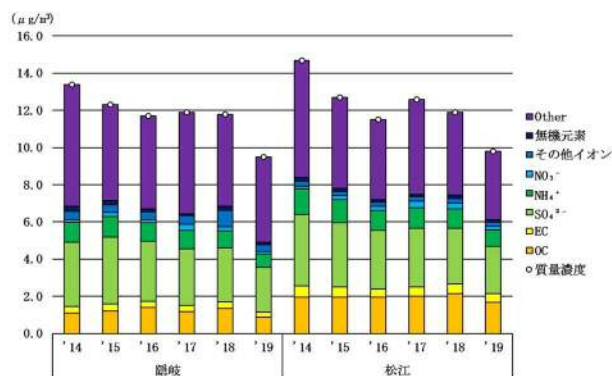


図2. PM2.5質量濃度および成分濃度の年平均値(2014~2019年度)

表4. PM2.5質量濃度に対する主要成分の割合(2014~2019年度)

|    |                    | 単位: % |      |      |      |      |      |
|----|--------------------|-------|------|------|------|------|------|
| 地点 | 成分                 | 2014  | 2015 | 2016 | 2017 | 2018 | 2019 |
| 隠岐 | $\text{SO}_4^{2-}$ | 25.7  | 29.1 | 27.8 | 25.4 | 24.5 | 25.3 |
|    | OC                 | 8.2   | 9.9  | 11.9 | 9.9  | 11.5 | 9.1  |
|    | $\text{NH}_4^+$    | 8.0   | 9.1  | 8.5  | 8.5  | 7.7  | 7.5  |
| 松江 | $\text{SO}_4^{2-}$ | 26.1  | 27.1 | 27.4 | 25.0 | 25.2 | 26.0 |
|    | OC                 | 13.3  | 15.4 | 16.9 | 15.9 | 18.0 | 17.1 |
|    | $\text{NH}_4^+$    | 9.4   | 9.8  | 9.5  | 8.8  | 8.6  | 9.0  |

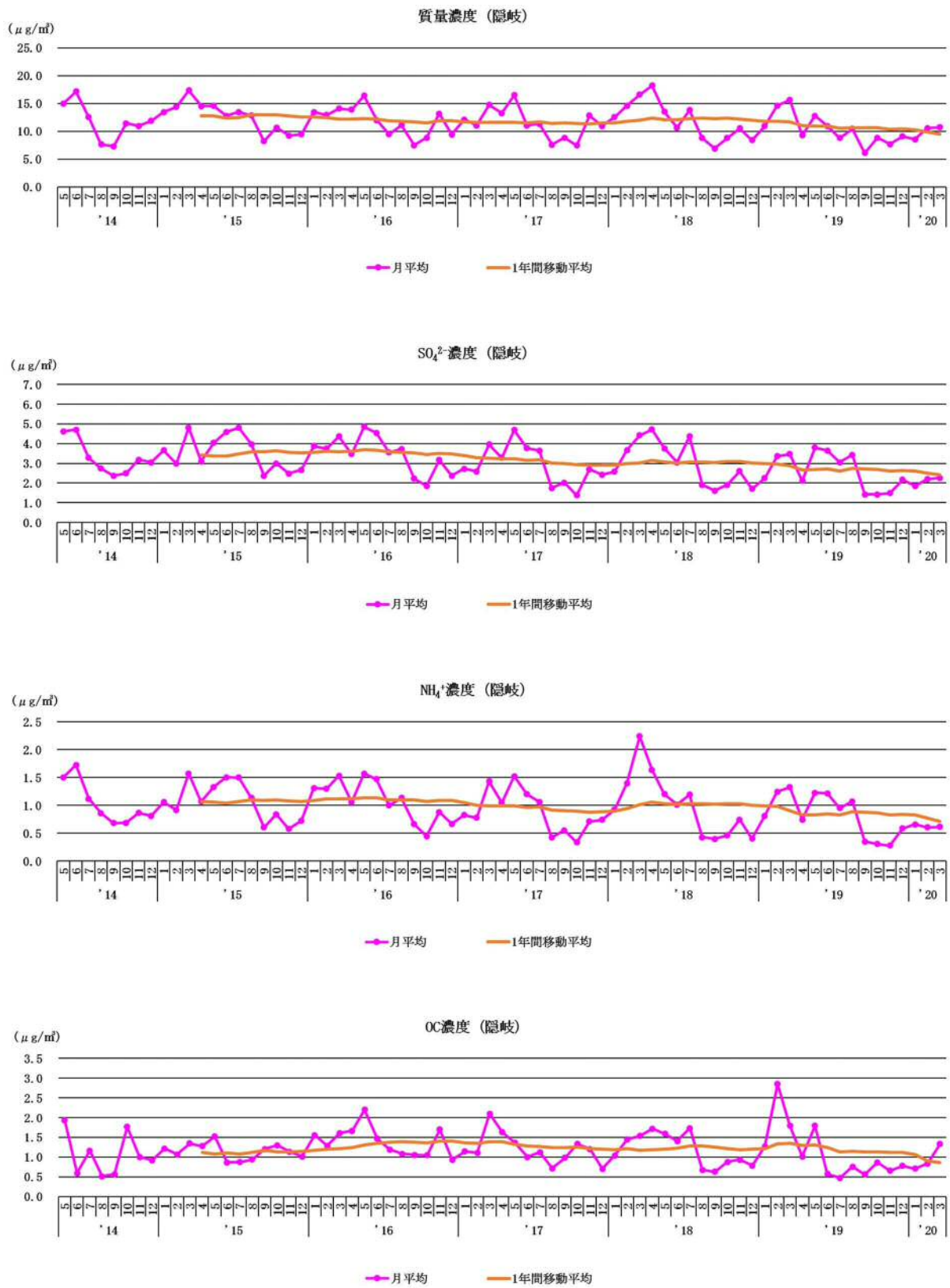


図3. 隠岐におけるPM2.5質量濃度および主要成分濃度の月平均値、1年間移動平均値(2014～2019年度)



図4. 松江におけるPM2.5質量濃度および主要成分濃度の月平均値、1年間移動平均値(2014～2019年度)

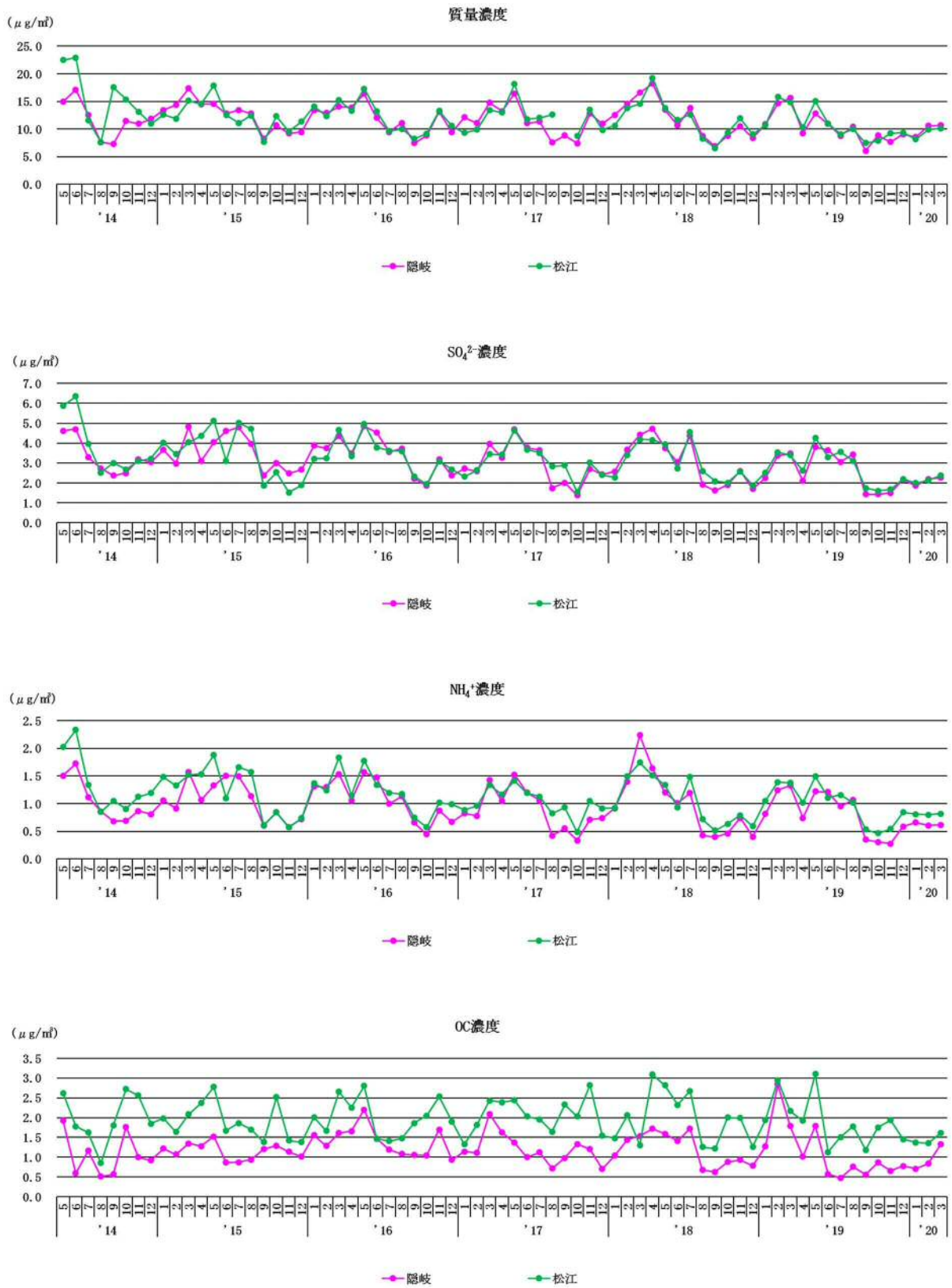


図5. PM<sub>2.5</sub> 質量濃度および主要成分濃度の月平均値の2地点間比較(2014~2019年度)



### 3. 4 PM2.5 質量濃度および主要成分濃度の季節変動

図6に2014年度から2019年度にかけて隠岐、松江で実施した通年観測のPM2.5 質量濃度および成分濃度の季節別平均値を示す。PM2.5 質量濃度について、隠岐では春(3~5月)に高く、夏(6~8月)から秋(9~11月)へと低下していき、冬(12~2月)に再び上昇する変動傾向を示した。一方、松江では春に高く、夏から冬

にかけては同程度の濃度であった。

図7にPM2.5 質量濃度および主要成分濃度の季節変動を示す。SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度およびNH<sub>4</sub><sup>+</sup>濃度は、隠岐、松江ともに春に高く、秋に低くなる傾向を示した。また、OC濃度は、隠岐では春のみ高くなる傾向を示したのに対し、松江では春と秋に高くなる傾向を示しており、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>濃度とは異なる変動傾向を示していた。

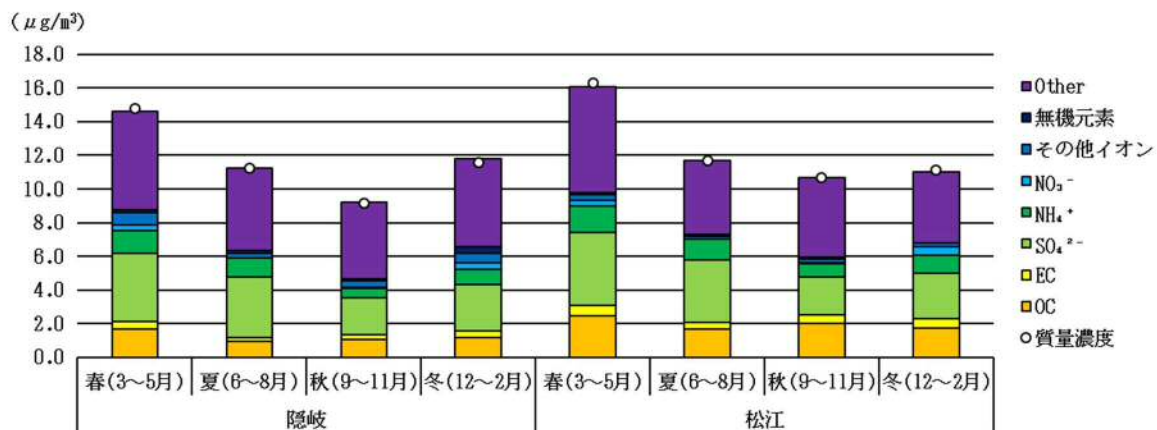


図6. PM2.5 質量濃度および成分濃度の季節別平均値(2014~2019年度)

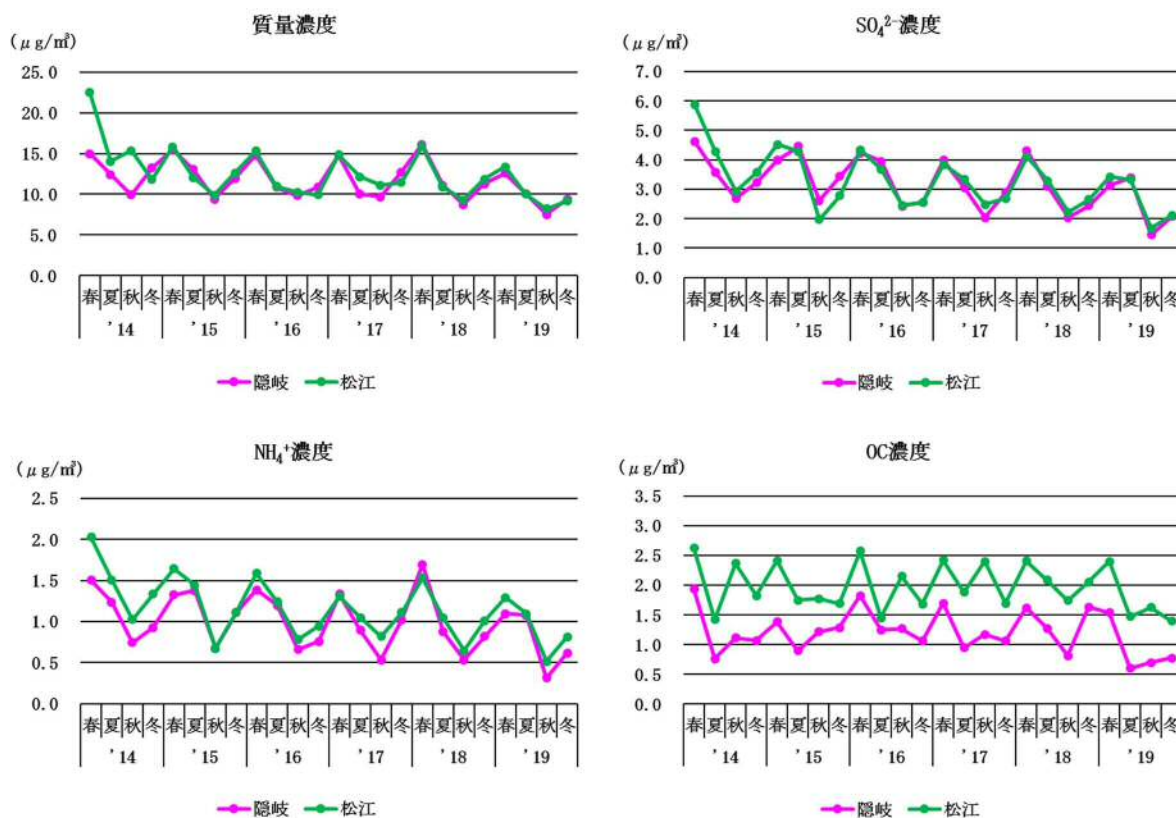


図7. PM2.5 質量濃度および主要成分濃度の季節変動(2014~2019年度)

### 3. 5 島根県での石炭燃焼由来の越境大気汚染の影響

PM2.5 中の無機元素成分は PM2.5 質量濃度への寄与は小さいが、発生源に関する情報を豊富に含んでおり、金属元素の濃度比は気象条件等に左右されることの少ない指標とされている。例えば、Pb と As は石炭燃焼由来の成分であるとされている。<sup>4)</sup>

図 8、9、10 に隠岐、松江の 2014 年度から 2019 年度における Pb 濃度、As 濃度および Pb/Zn 比の月平均値、1 年間移動平均値および季節変動を示す。Pb 濃度、As 濃度は隠岐、松江ともに 2014 年度から緩やかな減少傾向を示していた。この期間を通して各濃度の年平均値が最も低かったのは、隠岐では Pb 濃度が 2019 年度 (2.63ng/m<sup>3</sup>)、As 濃度が 2019 年度 (0.95ng/m<sup>3</sup>)、松江では Pb 濃度が 2019 年度 (2.83ng/m<sup>3</sup>)、As 濃度が 2019

年度 (0.99ng/m<sup>3</sup>) であり、両地点とも 2019 年度が最も濃度が低かった。Pb/Zn 比は大陸からの長距離輸送の指標とされており、国内起源の場合は Pb/Zn=0.2~0.3 程度、大陸起源の場合には Pb/Zn=0.5~0.6 程度と推定されている。<sup>5)</sup>2014 年度から 2019 年度における隠岐、松江の Pb/Zn 比は 2014 年度から緩やかな減少傾向を示していたが、2018 年度後半から 2019 年度の頭にかけてわずかに上昇傾向を示していた。また、この期間を通して Pb/Zn 比の年平均値が最も低かったのは、両地点ともに 2017 年度で、隠岐が Pb/Zn=0.33、松江が Pb/Zn=0.25 であった。一方で、Pb/Zn 比の年平均値が最も高かったのは、両地点ともに 2014 年度で、隠岐が Pb/Zn=0.45、松江が Pb/Zn=0.42 であった。

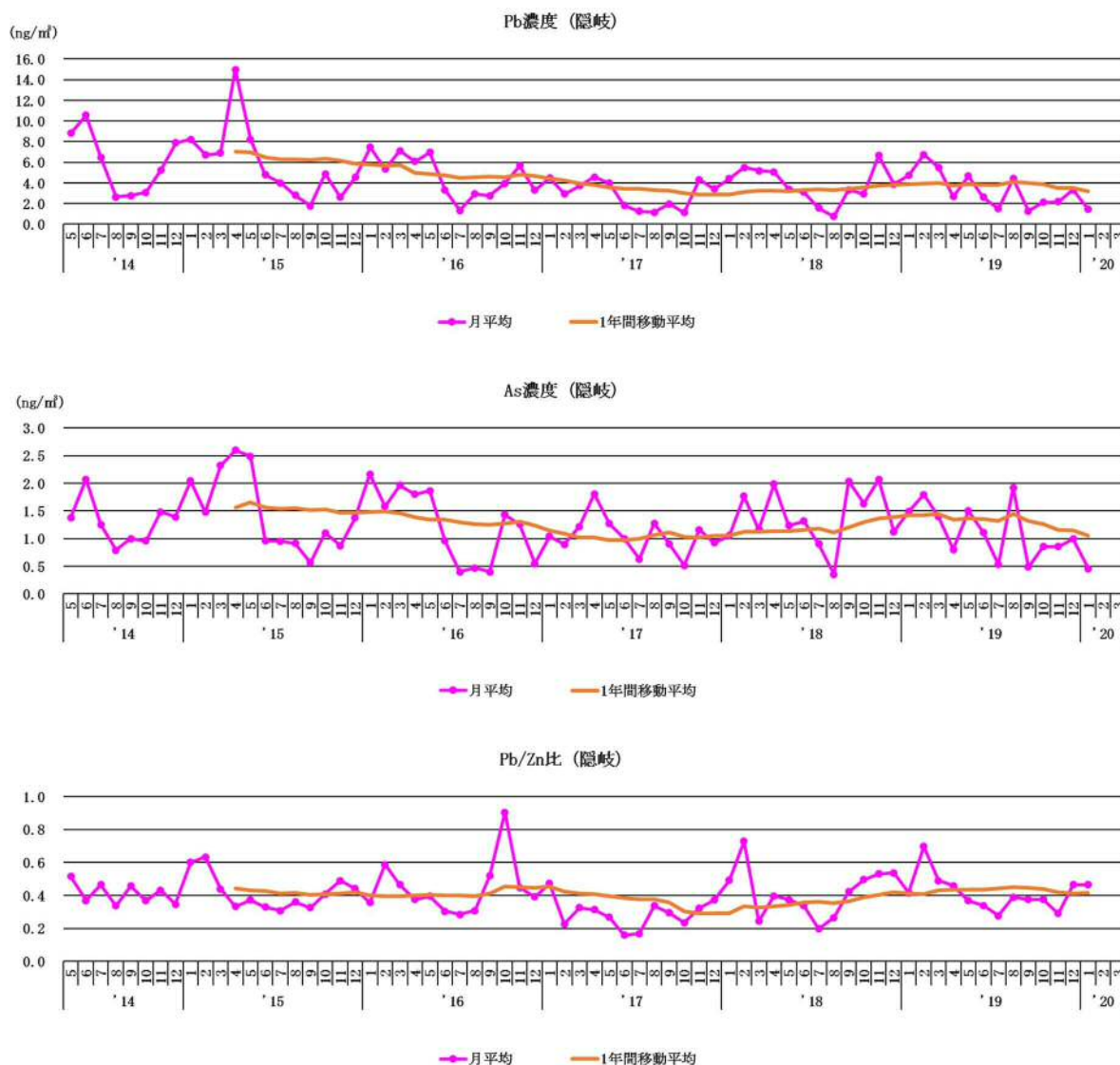


図 8. 隠岐における Pb 濃度、As 濃度、Pb/Zn 比の月平均値、1 年間移動平均値(2014~2019 年度)

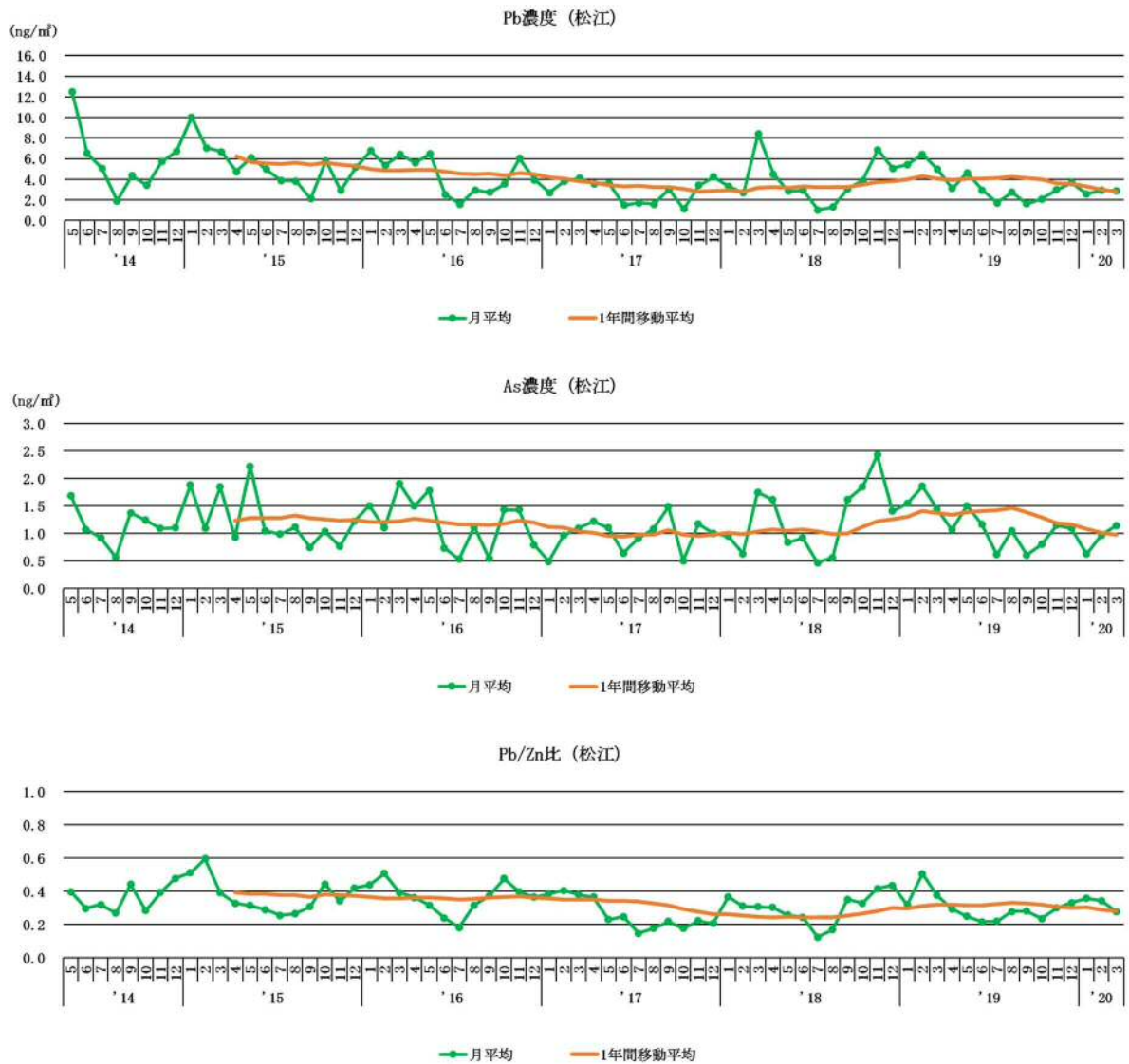


図9. 松江におけるPb濃度、As濃度、Pb/Zn比の月平均値、1年間移動平均値(2014～2019年度)

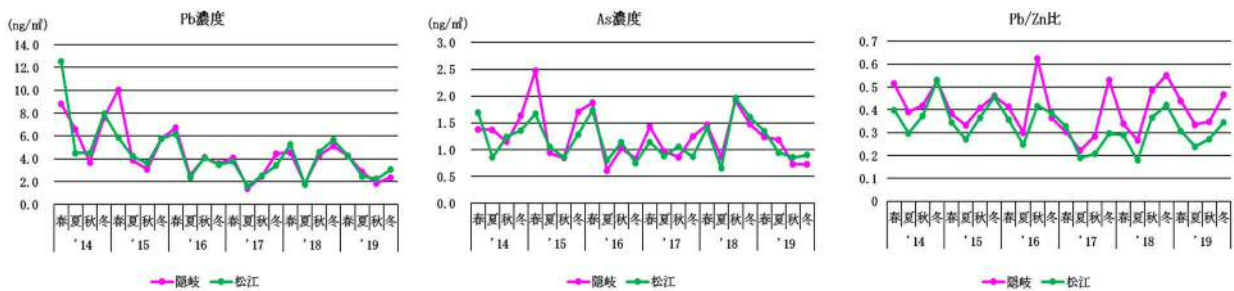


図10. Pb濃度、As濃度、Pb/Zn比の季節変動(2014～2019年度)

図 11 に隠岐、松江における Pb/Zn 比の季節別平均値を示す。Pb/Zn 比は隠岐、松江ともに冬に高く、夏に低くなる傾向を示していた。冬はシベリア気団が発達し、西高東低の気圧配置となることから、北西の季節風が吹くことによって越境大気汚染の影響を受けやすくなる。一方で、夏は小笠原気団が発達し南高北低の気圧配置となることから、南よりの季節風が吹くことによって越境大気汚染の影響を受けにくくなる。<sup>6)</sup>これらのことから、島根県においては冬に石炭燃焼由来の越境大気汚染の影響を比較的大きく受けていると推測される。

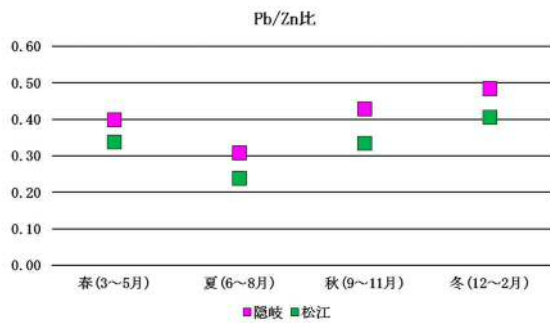


図 11. Pb/Zn 比の季節別平均値(2014～2019 年度)

### 3. 6 島根県における PM2.5 の長期的な汚染特性の変動傾向

島根県においてほとんどの測定局で環境基準が未達成であった 2014 年度と概ね環境基準を達成した 2015～2019 年度の各成分濃度の平均値の比較を図 12、13 に示す。隠岐では  $\text{SO}_4^{2-}$  濃度  $3.44\mu\text{g}/\text{m}^3$  から  $3.03\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、 $\text{NH}_4^+$  濃度  $1.07\mu\text{g}/\text{m}^3$  から  $0.95\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、Pb 濃度  $6.30\text{ng}/\text{m}^3$  から  $3.90\text{ng}/\text{m}^3$ 、As 濃度  $1.47\text{ng}/\text{m}^3$  から  $1.20\text{ng}/\text{m}^3$  となっており、松江では  $\text{SO}_4^{2-}$  濃度  $3.84\mu\text{g}/\text{m}^3$  から  $3.06\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、 $\text{NH}_4^+$  濃度  $1.38\mu\text{g}/\text{m}^3$  から  $1.07\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、Pb 濃度  $6.36\text{ng}/\text{m}^3$  から  $3.75\text{ng}/\text{m}^3$ 、As 濃度  $1.61\text{ng}/\text{m}^3$  から  $1.13\text{ng}/\text{m}^3$  とそれぞれ低下していた。一方、OC 濃度は隠岐では  $1.10\mu\text{g}/\text{m}^3$  から  $1.20\mu\text{g}/\text{m}^3$  とわずかに増加し、松江では  $1.96\mu\text{g}/\text{m}^3$  から  $1.94\mu\text{g}/\text{m}^3$  とほぼ同程度の濃度であった。

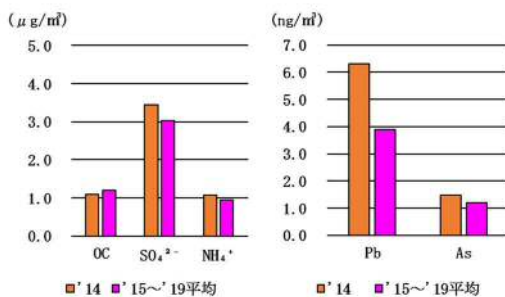


図 12. 隠岐における各成分濃度の 2014 年度と 2015～2019 年度の平均値との比較

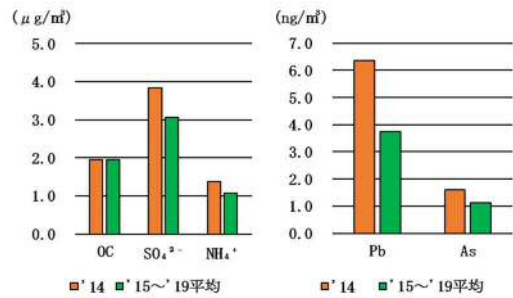


図 13. 松江における各成分濃度の 2014 年度と 2015～2019 年度の平均値との比較

表 5 に 2014 年度から 2019 年度における隠岐、松江での PM2.5 質量濃度および各成分濃度の相関係数(月平均値より算出)を示す。PM2.5 質量濃度と石炭燃焼由来とされる Pb、As 濃度との相関係数はそれぞれ、隠岐で  $r=0.65$ 、 $0.58$ 、松江で  $r=0.59$ 、 $0.47$  であり正の相関を示していた。また、PM2.5 質量濃度と  $\text{SO}_4^{2-}$  濃度の相関係数は隠岐で  $r=0.84$ 、松江で  $r=0.79$  と強い正の相関を示していた。 $\text{SO}_4^{2-}$  は石炭や石油など硫黄分を含む燃料の燃焼に伴って発生する  $\text{SO}_2$  が主な前駆物質と考えられていることから、島根県における PM2.5 質量濃度の推移には、石炭燃焼による寄与が大きいということが示唆される。

表 5. 隠岐、松江における PM2.5 質量濃度および各成分濃度の相関係数(2014～2019 年度)

| 隠岐                 | PM2.5 | $\text{SO}_4^{2-}$ | $\text{NO}_3^-$ | $\text{Cl}^-$ | $\text{NH}_4^+$ | $\text{Na}^+$ | $\text{K}^+$ | $\text{Ca}^{2+}$ | $\text{Mg}^{2+}$ | OC   | BC   | Pb   |
|--------------------|-------|--------------------|-----------------|---------------|-----------------|---------------|--------------|------------------|------------------|------|------|------|
| $\text{SO}_4^{2-}$ | 0.84  |                    |                 |               |                 |               |              |                  |                  |      |      |      |
| $\text{NO}_3^-$    | 0.48  | 0.21               |                 |               |                 |               |              |                  |                  |      |      |      |
| $\text{Cl}^-$      | 0.19  | 0.00               | 0.62            |               |                 |               |              |                  |                  |      |      |      |
| $\text{NH}_4^+$    | 0.86  | 0.95               | 0.42            | 0.12          |                 |               |              |                  |                  |      |      |      |
| $\text{Na}^+$      | 0.14  | -0.07              | 0.35            | 0.65          | -0.08           |               |              |                  |                  |      |      |      |
| $\text{K}^+$       | 0.53  | 0.30               | 0.43            | 0.25          | 0.34            | 0.48          |              |                  |                  |      |      |      |
| $\text{Ca}^{2+}$   | 0.68  | 0.43               | 0.11            | 0.07          | 0.39            | 0.28          | 0.54         |                  |                  |      |      |      |
| $\text{Mg}^{2+}$   | 0.17  | 0.06               | 0.28            | 0.42          | 0.04            | 0.74          | 0.67         | 0.44             |                  |      |      |      |
| OC                 | 0.64  | 0.48               | 0.38            | 0.12          | 0.50            | 0.02          | 0.53         | 0.29             | 0.10             |      |      |      |
| BC                 | 0.71  | 0.46               | 0.65            | 0.35          | 0.54            | 0.38          | 0.74         | 0.42             | 0.44             | 0.70 |      |      |
| Pb                 | 0.65  | 0.45               | 0.28            | 0.06          | 0.48            | 0.25          | 0.54         | 0.68             | 0.41             | 0.35 | 0.63 |      |
| As                 | 0.58  | 0.39               | 0.29            | -0.02         | 0.41            | 0.16          | 0.50         | 0.56             | 0.30             | 0.36 | 0.62 | 0.79 |

| 松江                 | PM2.5 | $\text{SO}_4^{2-}$ | $\text{NO}_3^-$ | $\text{Cl}^-$ | $\text{NH}_4^+$ | $\text{Na}^+$ | $\text{K}^+$ | $\text{Ca}^{2+}$ | $\text{Mg}^{2+}$ | OC   | BC   | Pb   |
|--------------------|-------|--------------------|-----------------|---------------|-----------------|---------------|--------------|------------------|------------------|------|------|------|
| $\text{SO}_4^{2-}$ | 0.79  |                    |                 |               |                 |               |              |                  |                  |      |      |      |
| $\text{NO}_3^-$    | 0.18  | 0.06               |                 |               |                 |               |              |                  |                  |      |      |      |
| $\text{Cl}^-$      | 0.12  | 0.01               | 0.88            |               |                 |               |              |                  |                  |      |      |      |
| $\text{NH}_4^+$    | 0.81  | 0.96               | 0.27            | 0.19          |                 |               |              |                  |                  |      |      |      |
| $\text{Na}^+$      | 0.28  | 0.38               | 0.12            | 0.05          | 0.34            |               |              |                  |                  |      |      |      |
| $\text{K}^+$       | 0.64  | 0.44               | 0.44            | 0.22          | 0.53            | 0.39          |              |                  |                  |      |      |      |
| $\text{Ca}^{2+}$   | 0.72  | 0.62               | 0.11            | 0.06          | 0.59            | 0.41          | 0.52         |                  |                  |      |      |      |
| $\text{Mg}^{2+}$   | 0.29  | 0.38               | 0.28            | 0.16          | 0.40            | 0.38          | 0.39         | 0.43             |                  |      |      |      |
| OC                 | 0.64  | 0.45               | 0.15            | 0.13          | 0.44            | 0.24          | 0.54         | 0.60             | 0.24             |      |      |      |
| BC                 | 0.62  | 0.29               | 0.51            | 0.30          | 0.41            | 0.22          | 0.78         | 0.42             | 0.21             | 0.59 |      |      |
| Pb                 | 0.59  | 0.45               | 0.34            | 0.18          | 0.55            | 0.33          | 0.64         | 0.50             | 0.40             | 0.31 | 0.67 |      |
| As                 | 0.47  | 0.28               | 0.27            | 0.14          | 0.32            | 0.21          | 0.53         | 0.41             | 0.28             | 0.41 | 0.59 | 0.70 |

## 4. まとめ

島根県における PM2.5 質量濃度は、2014 年度から 2015 年度にかけて減少傾向を示し、その後は横ばいで推移、2018 年度から 2019 年度にかけては減少傾向を示していた。PM2.5 の環境基準達成状況については、2013 年度から 2015 年度にかけて急速に改善しており、2017 年度以降は島根県内 9 地点すべての測定局で環境基準

を達成した。

長期的な汚染特性の変動傾向として、ほとんどの測定局で環境基準が未達成であった時期（2014年度）に比べて、概ね環境基準を達成している時期（2015～2019年度）では、PM2.5の主要成分であるSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>濃度および石炭燃焼由来成分とされるPb濃度、As濃度が低下していた。

島根県におけるPM2.5質量濃度はSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度と強い相関関係がみられた。SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>は石炭や石油など硫黄分を含む燃料の燃焼に伴って発生するSO<sub>2</sub>が主な前駆物質であること、石炭燃焼由来成分とされるPb、As濃度が低下していることから、近年PM2.5の環境基準達成状況が急速に改善した要因としては、石炭燃焼による影響の減少が考えられる。また、経済産業省が示す<sup>7)</sup>世界の石炭消費量の推移をみると、近年の日本においては大きな変動は見られないが、島根県の西方に位置する中国の石炭の総消費量は、最大であった2013年度に比べて近年は減少しており、石炭燃焼による越境大気汚染の減少が島根県におけるPM2.5質量濃度の低下に影響していると考えられる。

## 5. 参考文献

- 1) 環境省：微小粒子状物質等専門委員会資料  
<https://www.env.go.jp/council/07air-noise/yoshi07-08.html>
- 2) 環境省：大気汚染状況報告書
- 3) 環境省：大気中微小粒子状物質（PM2.5）成分測定マニュアル（2019改訂版）
- 4) 米持真一(2015), 日本と中国のPM2.5の性状と関東地域の越境大気汚染の影響, 学会誌「EICA」19(4)58-62
- 5) 日置正, 紀本岳志, 長谷川就一, 向井人史, 大原利眞, 若松伸司(2009) 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.
- 6) 財団法人日本気象協会：わかりやすい天気図の話（1995）
- 7) 経済産業省：エネルギー白書2020

## 島根県における光化学オキシダント高濃度事象 (2019 年度)

小原 幸敏・金津 雅紀・園山 隼人・藤原 誠

### 1. はじめに

これまで日本においては、大気汚染対策に係る様々な取組の推進によって、光化学オキシダント (以下、 $O_x$ ) の原因物質である窒素酸化物 ( $NO_x$ ) や揮発性有機化合物 (VOC) 等の大気環境中の濃度は低減してきている。しかし光化学  $O_x$  濃度は近年横ばいの傾向にあり、環境基準達成率は依然として極めて低い状況である (平成 30 年度は一般局で 0.1%、自排局で 0%)。

島根県においては 4 月から 6 月にかけて高濃度の光化学  $O_x$  が観測される傾向にあり、これまで濃度が上昇し短時間に 0.12 ppm を超過した事象はあったが、光化学  $O_x$  注意報を発令するには至らなかった。しかし 2019 年 5 月 23 日に島根県を含む西日本各地で注意報発令レベルの 0.12 ppm を超える高濃度の光化学  $O_x$  が長時間観測され、光化学  $O_x$  注意報を発令した。本報では、2019 年度に観測された高濃度光化学  $O_x$  事象の概況について報告する。

### 2. 解析方法

県内 8 カ所に設置されている一般環境大気測定局の観測データ (1 時間値) を用い、光化学  $O_x$  濃度が 0.10 ppm を超えた事象について、気象状況、光化学  $O_x$  濃度の経時変化及び後方流跡線の解析を行った。後方流跡線解析は、高濃度光化学  $O_x$  観測時の気塊の動きを把握することを目的に、NOAA「HYSPLIT」モデルを用いて、0.10 ppm を超過した測定局の上空 1,500m を初期値として三次元法により計算 (最高濃度観測時刻から 3 日間遡上) した。

また、2019 年 5 月 23 日の島根県を除く中国・四国・九州地方の光化学  $O_x$  濃度は、環境省大気汚染物質広域監視システムに掲載された速報値を使用した。

### 3. 解析結果

2019 年度に島根県で観測された高濃度光化学  $O_x$  事象は 5 月下旬の 1 事象のみであったが、この事象では 5 月 23 日～26 日と長時間にわたって 0.10 ppm を超過した。特に 5 月 23 日には県内全域で 1 時間値が注意報発令基準である 0.12 ppm を超過し、島根県では初の光化学  $O_x$  注意報を発令した。この事象の概況を表 1 に、解析結果を以下に示す。

2019 年 5 月 23 日の日本域地上天気図を図 1 に示す。東シナ海から高気圧が張り出し、ほぼ全国的に晴れて気温が上昇した。島根県内の気象状況は、東シナ海に中心を持つ高気圧に覆われ全域で概ね晴れており、降水を観測した地点はなかった。県内全域で西寄りの風が吹いており、大陸方向からの越境汚染の影響を受けやすい気象状況であった。

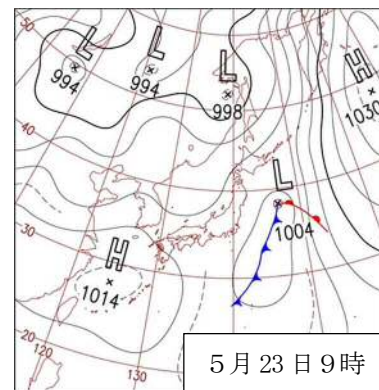


図 1 2019 年 5 月 23 日 9 時における日本域地上天気図 (気象庁 HP より転載)

2019 年 5 月 22 日～27 日の県内 8 局における光化学  $O_x$  濃度の経時変化を図 2 に示す。この期間、各測定局において 23 日に光化学  $O_x$  濃度の最高値が 0.12 ppm を超過し、光化学  $O_x$  注意報を発令した。24 日も県内全域で最高値が 0.10 ppm を超過し、注意報を継続した。25 日にはほとんどの測定局で最高値が 0.10 ppm を下回り、注意報を解除した。26 日には再び各測定局において 0.10 ppm を超過した。27 日以降は濃度が低下した。

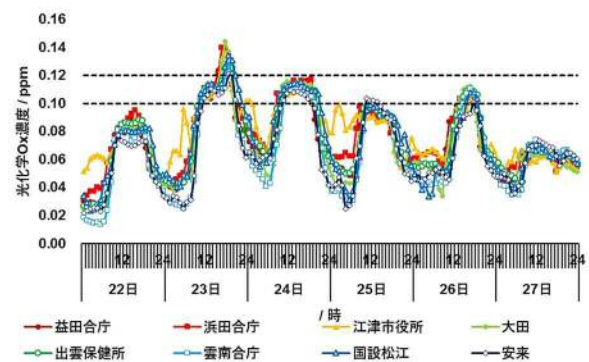


図 2 2019 年 5 月 22 日～27 日における光化学  $O_x$  濃度経時変化

県内全域で光化学0x濃度の最高値が0.12 ppmを超過し注意報を発令した2019年5月23日の県内8局における光化学0x濃度の経時変化を図3に示す。いずれの測定局でも同様な濃度推移を示しており、9時ごろから濃度が上昇し始め、11時ごろには0.10 ppmを超過した。そこから約4時間は横ばいで推移したが、15時ごろから再び濃度が上昇し始め、16時から21時にかけて0.12 ppmを超過した。

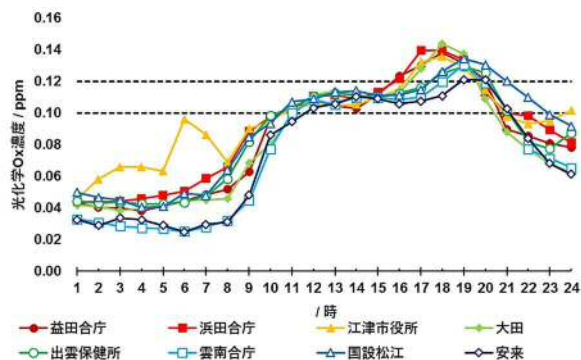


図3 2019年5月23日における光化学0x濃度経時変化

2019年5月23日に中国・四国・九州地方で0.12 ppm以上の光化学0xが観測された地点を図4に示す。主に中国・九州地方の北部で観測されていたが、瀬戸内や九州南部など、広い範囲で高濃度の光化学0xが観測されていた。

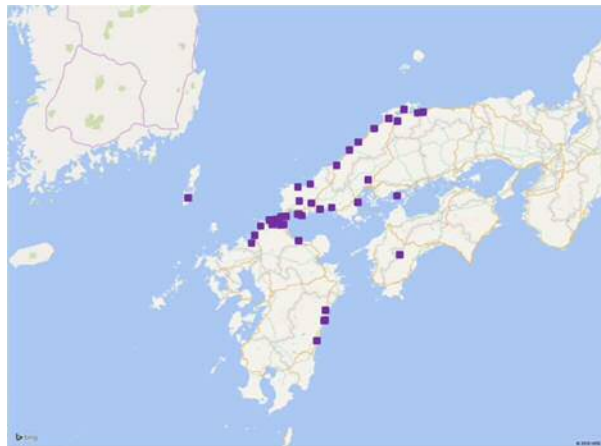


図4 2019年5月23日に中国・四国・九州地方で0.12 ppm以上の光化学0xが観測された地点

期間内最高濃度を記録した2019年5月23日18時の各測定局における後方流跡線解析結果を図5に示す。島根県に到達した気塊はいずれの測定局でも同様

の移流経路を示しており、大陸方向から黄海、朝鮮半島を経由していた。このことから、本事象は大陸及び朝鮮半島からの光化学0xの移流の影響を受けたものと考えられる。

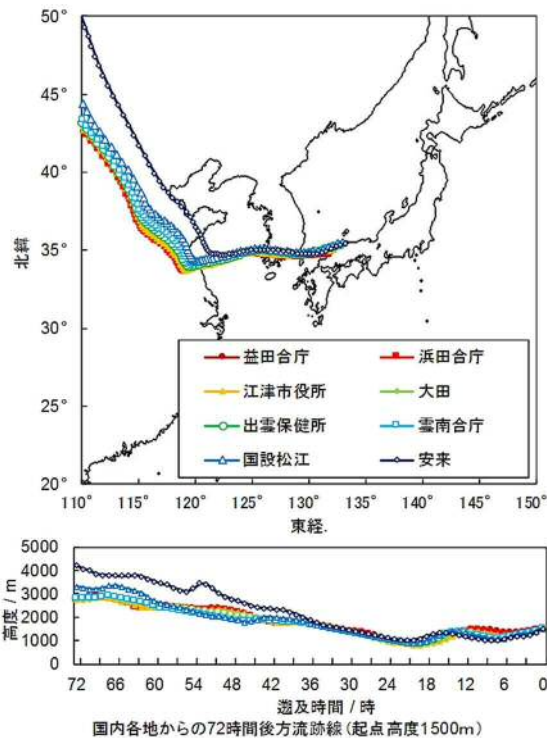


図5 2019年5月23日18時における後方流跡線解析結果

#### 4. まとめ

2019年度に観測された高濃度光化学0x事象は1事象のみであったが、例年と比べ長期間高濃度が観測された。さらに最高濃度もこれまでは0.12 ppm程度であったが、2019年5月の事象では0.144 ppmまで上昇し、島根県初となる光化学0x注意報を発令した。

2019年5月は全国的に例年と比べ高気圧に覆われて晴れの日が多く、気温も高かった。島根県でも松江では5月として観測史上1位の多照、観測史上4位の高温、観測史上3位の少雨となっており、光化学0x生成に関する光化学反応が起こりやすい気象条件であった。

気候変動の影響で、これまで以上に高濃度の光化学0xが観測される可能性があり、光化学0x注意報の発令頻度も多くなっていくと考えられる。そのため今後も引き続き光化学0x濃度を監視し、気象パターンも含めた解析を続けていく必要がある。

表1 2019年度における高濃度光化学Ox事象の概況

| No. | 年月日       | 最高濃度 / ppm  | 0.10 ppm 以上が観測された測定局                                    | 気圧配置    | 後方流跡線                |
|-----|-----------|-------------|---|---------|----------------------|
| 1   | 2020/5/23 | 0.144 (18時) | 益田合庁、浜田合庁、江津市役所、 <b>大田</b> 、出雲保健所、雲南合庁、 <u>国設松江</u> 、安来 |         |                      |
|     | 2020/5/24 | 0.117 (19時) | 益田合庁、 <b>浜田合庁</b> 、江津市役所、大田、出雲保健所、雲南合庁、 <u>国設松江</u> 、安来 | 東シナ海高気圧 | 大陸方向<br>黄海沿岸<br>朝鮮半島 |
|     | 2020/5/25 | 0.104 (11時) | 雲南合庁、 <b>安来</b>   |         |                      |
|     | 2020/5/26 | 0.113 (17時) | 益田合庁、浜田合庁、江津市役所、 <b>大田</b> 、出雲保健所、雲南合庁、 <u>国設松江</u> 、安来 |         |                      |

※太字下線の測定局は当日中最高濃度を示す。



## 島根県における光化学オキシダント生成に関する VOC 濃度の挙動 (2019 年度)

園山 隼人・金津 雅紀・小原 幸敏・藤原 誠

### 1. はじめに

大気汚染に係る環境基準のうち、ほとんどの項目で環境基準を達成しているものの、光化学オキシダントに関しては島根県も含めて全国的に環境基準 (1 時間値が 0.06ppm 以下であること) の達成率が極めて低い状態が続いている。

光化学オキシダントは、大気中の窒素酸化物 (NOx) と揮発性有機化合物 (VOC) が、太陽光を受けて光化学反応を起こすことにより生成される物質の総称で、その主成分はオゾンである。VOC には様々な種類があり、その反応性は物質によって異なることが知られているため、オゾン生成への寄与を評価するためには、各 VOC 濃度とその物質のオゾン生成能を考慮する必要がある。

本報では、2019 年度に行った VOC 濃度の調査結果について報告するとともに、最大オゾン生成能: Maximum Incremental Reactivity (MIR 値)<sup>1)</sup> を用いて各 VOC のオゾン生成への寄与も評価したので、併せて報告する。

### 2. 調査方法

#### 2. 1 調査地点および調査期間

調査は島根県保健環境科学研究所敷地内で実施し、24 時間単位のサンプリングを 3 日間連続で行った。調査期間の詳細は以下のとおりである。

- ①春: 2019 年 4 月 22~25 日
- ②光化学オキシダント高濃度: 2019 年 5 月 23~25 日
- ③夏: 2019 年 7 月 22~25 日
- ④秋: 2019 年 10 月 28~31 日
- ⑤冬: 2019 年 12 月 17~20 日

#### 2. 2 試料採取法と分析方法

分析対象物質はアルカン 27 成分、アルケン 9 成分、芳香族炭化水素 16 成分、植物起源炭化水素 2 成分、アルデヒド類 2 成分の合計 56 成分とした。試料の採取および分析は、有害大気汚染物質測定方法マニュアル<sup>2)</sup> の容器採取-ガスクロマトグラフ質量分析法(アルデヒ

ド類以外)、固相捕集-高速液体クロマトグラフ法 (アルデヒド類) に従い行った。

### 3. 結果と考察

#### 3. 1 VOC の成分別濃度

図 1 に調査期間における VOC の成分別濃度、図 2 に VOC の成分別濃度の割合を示す。

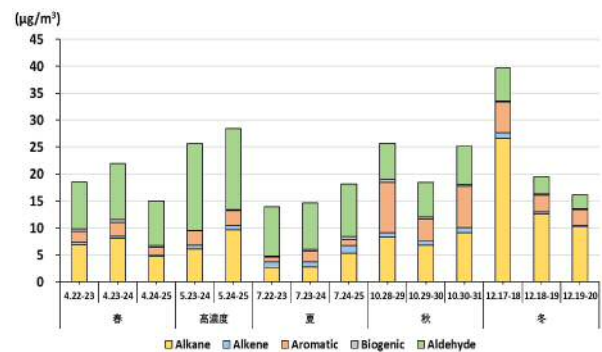


図 1. VOC の成分別濃度

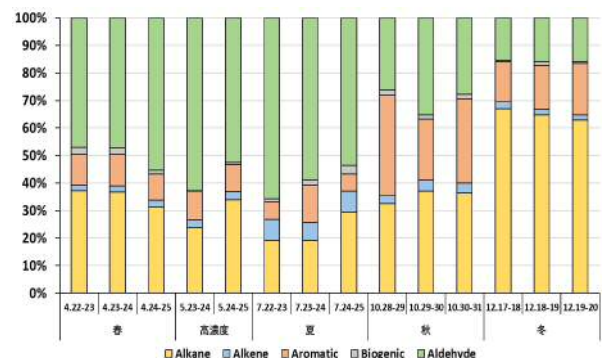


図 2. VOC の成分別濃度の割合

春から夏にかけては、濃度が高いものから順にアルデヒド類、アルカン、芳香族炭化水素となる傾向があり、アルデヒド類の濃度は全体の 50%以上を占めていた。また、光化学オキシダント高濃度時にはアルデヒド類の濃度が高くなっていたが、大きな特徴はあまり見られず、成分別濃度の割合も春や夏と同じような挙動を示していた。一方で秋から冬にかけては、濃度が

高いものから順にアルカン、芳香族炭化水素、アルデヒド類となる傾向がみられ、アルデヒド類の濃度は全体の20~30%となっていた。また、芳香族炭化水素とアルデヒド類の濃度は同程度であった。

表1に調査期間におけるVOCの大気中濃度上位5物質を示す。季節ごとに順位之差はあるものの、ホルムアルデヒドやアセトアルデヒド、プロパンなど共通する物質が大気中濃度で上位となっていることがわかった。

表1. VOCの大気中濃度上位5物質（濃度順）

| 春                   | 高濃度                 | 夏                         | 秋                   | 冬                  |
|---------------------|---------------------|---------------------------|---------------------|--------------------|
| アセトアルデヒド<br>(32.8%) | アセトアルデヒド<br>(40.6%) | ホルムアルデヒド<br>(30.5%)       | トルエン<br>(21.6%)     | プロパン<br>(29.0%)    |
| ホルムアルデヒド<br>(16.5%) | ホルムアルデヒド<br>(16.8%) | アセトアルデヒド<br>(28.4%)       | ホルムアルデヒド<br>(16.6%) | n-ブタン<br>(11.7%)   |
| プロパン<br>(13.5%)     | プロパン<br>(10.2%)     | プロパン<br>(7.0%)            | プロパン<br>(14.6%)     | ホルムアルデヒド<br>(8.9%) |
| n-ブタン<br>(4.6%)     | i-ペンタン<br>(5.7%)    | 2-メチル-1,3-ブタジエン<br>(5.2%) | アセトアルデヒド<br>(12.7%) | アセトアルデヒド<br>(6.7%) |
| i-ペンタン<br>(4.6%)    | トルエン<br>(4.3%)      | i-ペンタン<br>(4.9%)          | n-ブタン<br>(4.3%)     | i-ペンタン<br>(6.7%)   |

### 3. 2 最大オゾン生成推計濃度

光化学オキシダント生成の寄与を評価する指標としては、単位量のVOCが生成しうる最大のオゾン量を示すMIR値が用いられており、VOC濃度にMIR値を乗じることで最大オゾン生成推計濃度(O<sub>3</sub>-μg/m<sup>3</sup>)が算出できる。

図3に調査期間における成分別最大オゾン生成推計濃度および光化学オキシダント濃度(ppb)、図4に成分別最大オゾン生成推計濃度の割合を示す。

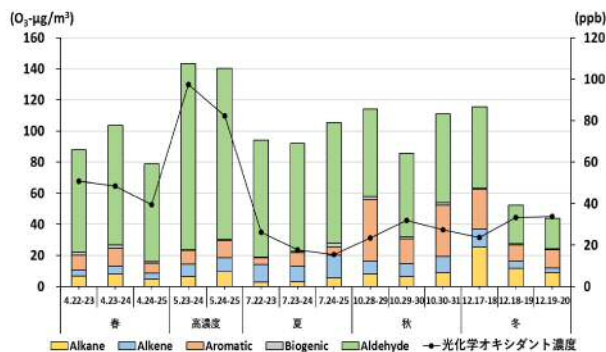


図3. 最大オゾン生成推計濃度

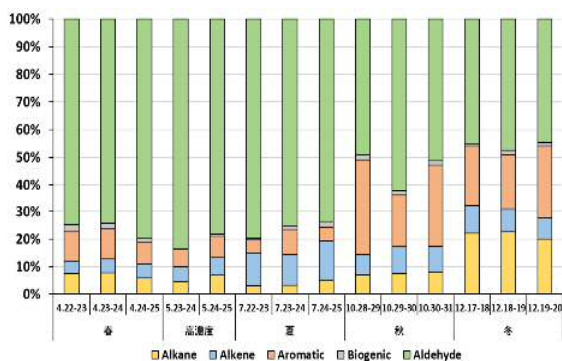


図4. 最大オゾン生成推計濃度の割合

季節ごとの特徴的な挙動は見られなかったが、光化学オキシダント高濃度時には最大オゾン生成推計濃度も高くなっていた。成分別に見るといずれの季節もアルデヒド類の最大オゾン生成推計濃度が高い傾向にあり、その割合は春から夏にかけては70~80%、秋から冬にかけては50~60%程度と大部分を占めていた。また、アルデヒド類以外の最大オゾン生成推計濃度に着目すると、夏はアルケンが高く、夏以外では芳香族炭化水素が高くなっていた。

表2に調査期間における最大オゾン生成推計濃度上位5物質を示す。すべての期間でホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、トルエンが上位となり、大気中濃度では上位でなかったプロピレン、1-ブテン、2-メチル-1,3-ブタジエン、m,p-キシレン、α-ピネンが最大オゾン生成推計濃度では上位物質となっていた。このことから、これらの上位物質の大気中濃度が減少した場合、光化学オキシダント濃度の低減につながっていく可能性があると考えられる。

表2. 最大オゾン生成推計濃度上位5物質（濃度順）

| 春                   | 高濃度                       | 夏                         | 秋                   | 冬                   |
|---------------------|---------------------------|---------------------------|---------------------|---------------------|
| アセトアルデヒド<br>(44.1%) | アセトアルデヒド<br>(50.6%)       | ホルムアルデヒド<br>(46.3%)       | ホルムアルデヒド<br>(35.0%) | ホルムアルデヒド<br>(29.9%) |
| ホルムアルデヒド<br>(32.0%) | ホルムアルデヒド<br>(30.3%)       | アセトアルデヒド<br>(29.8%)       | トルエン<br>(19.4%)     | アセトアルデヒド<br>(15.6%) |
| トルエン<br>(3.5%)      | トルエン<br>(3.2%)            | 2-メチル-1,3-ブタジエン<br>(8.9%) | アセトアルデヒド<br>(18.5%) | トルエン<br>(8.7%)      |
| プロピレン<br>(1.8%)     | 2-メチル-1,3-ブタジエン<br>(1.8%) | トルエン<br>(3.0%)            | プロピレン<br>(3.6%)     | プロパン<br>(5.0%)      |
| α-ピネン<br>(1.7%)     | 1-ブテン<br>(1.7%)           | プロピレン<br>(1.7%)           | m,p-キシレン<br>(2.8%)  | m,p-キシレン<br>(4.9%)  |

## 4. まとめ

2019年度の松江において、VOCの大気中濃度は春から夏にかけてはアルデヒド類とアルカンの割合が高く、秋から冬にかけてはアルカンと芳香族炭化水素の割合が高くなる傾向にあった。また、大気中濃度の上位物質は季節により濃度が変動するものの、ほぼ同じ物質が上位を占めていた。

MIR値より算出した最大オゾン生成推計濃度の観点からみると、大気中濃度が低い物質でもオゾン生成への寄与が大きいと推測されるものがあることから、最大オゾン生成推計濃度で上位となる物質の大気中濃度の減少が光化学オキシダント濃度の効果的な低減につながる可能性があると考えられる。

## 5. 参考文献

- California Air Resources Board :Amendment to the Tables of Maximum Incremental Reactivity(MIR) Values
- 環境省水・大気環境局大気環境課：有害大気汚染物質測定方法マニュアル（2011）

## 島根県における光化学オキシダント濃度 8 時間値の日最高値の 年間 99 パーセントタイル値について

藤原誠・金津雅紀・園山隼人・小原幸敏

第 60 回島根県保健福祉環境研究発表会 (令和元年 7 月 9 日 : 松江市)

第 65 回中国地区公衆衛生学会 (令和元年 8 月 23 日 : 岡山市)

1989～2017 年度の国設松江大気環境測定所における光化学オキシダント濃度の年平均値等の状況及び 8 時間値日最高値の年間 99 パーセントタイル値 (以下、年間 99 パーセントタイル値) の経年変動、出現時期の状況について調査した。この期間の年平均値の最高値は 1996 年度の 40.8ppb、最低値は 2007 年度の 33.2ppb であった。年平均値は 1996 年度にかけて上昇傾向を示した後、2007 年度にかけて低下傾向を示したが、それ以降は再び上昇傾向を示した。松江における年間 99 パーセントタイル値の 3 年平均値は、最高値は 1996～1998 年度の 94.2ppb、最低値は 2006～2008 年度の 76.8ppb であった。この期間、松江では 1996～1998 年度まで上昇傾向を示した後、2006～2008 年度にかけて低下傾向を示したが、それ以降は再び緩やかに上昇傾向を示した。年間 99 パーセントタイル値の出現時期別の頻度は、この期間 4 月後半が最も多く 7 回で、6 月前半までの頻度が多く、この期間 27 回となっているが、6 月後半以降は 2 回とほとんど出現していない。松江では、6 月前半頃に梅雨に入ることが多い。春から梅雨入り前までは、光化学オキシダントを含む大気汚染物質濃度が高い大陸方面からの気団の中に入る影響で、高濃度の光化学オキシダントを観測することが多くあるため、春季を中心に 6 月前半までの出現頻度が多くなっていると考えられる。

## 島根県における光化学オキシダント濃度の経年変動

藤原誠・金津雅紀・園山隼人・小原幸敏・若松伸司<sup>1)</sup>

第 60 回大気環境学会年会 (令和元年 9 月 18 日～9 月 20 日 : 東京都府中市)

1989～2017 年度に島根県松江市の国設松江大気環境測定所で観測された光化学オキシダント濃度の経年変動の状況及び気象状況との関連について報告した。

この期間の平均値は 36.6ppb で、1 時間値の最高値は 2009 年 5 月 9 日 22 時に観測した 124.2ppb であった。年平均値の最高値は 1996 年度の 40.8ppb、最低値は 2007 年度の 33.2ppb であった。光化学オキシダント濃度の 12 ヶ月移動平均値は 1989～1996 年度にかけては、増減しながら上昇傾向を示した後、2007 年度頃まで低下傾向を示した。2000～2005 年度は緩やかに低下したが、1997～2000 年度、2005～2006 年度にかけては比較的大きく低下した。2008 年度以降は再び上昇傾向を示している。風速の 12 ヶ月移動平均値は、光化学オキシダント濃度が低下した 1997～2000、2005～2006 年度にかけて上昇し、光化学オキシダント濃度が上昇した 2007～2009 年度にかけて低下する傾向が見られたが、近年はこの傾向は明瞭でない。気温の 12 ヶ月移動平均値は、光化学オキシダント濃度が低下した 2005～2006 年度頃に同様に低下した。また、2011 年度頃からは、緩やかな上昇傾向が見られる。

1) 愛媛大学

## 通年観測データからみた島根県における PM2.5 濃度の推移

金津雅紀・園山隼人・小原幸敏・藤原誠

第 60 回大気環境学会年会（令和元年 9 月 18 日～9 月 20 日：東京都府中市）

島根県内 2 地点（隠岐、松江）で 2014 年 5 月から 2018 年 3 月にかけて実施したフィルタ捕集法による成分濃度測定を通年観測により得られた成分分析結果を用いて、PM2.5 濃度の推移について報告した。

この期間、隠岐及び松江における PM2.5 の成分濃度は  $\text{SO}_4^{2-}$  の濃度が最も高く、続いて OC、 $\text{NH}_4^+$  濃度が高かった。隠岐、松江ともに PM2.5 質量濃度は 2014～2015 年度にかけて減少傾向、2016 年度以降はほぼ横ばいで推移した。また、 $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NH}_4^+$  濃度は、この期間緩やかな減少傾向を示した。PM2.5 質量濃度及び  $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NH}_4^+$  濃度は、2014 年度は松江が隠岐よりも若干高い濃度で推移しているが、2015 年度以降は地点間の濃度差が小さく、この期間を通して両地点とも春（3～5 月）に高く、秋（9～11 月）に低い類似した濃度推移を示したことから  $\text{SO}_4^{2-}$  及び  $\text{NH}_4^+$  は広域的な汚染気塊の影響を受けている可能性が高い。OC 濃度は、この期間隠岐では緩やかな増加傾向、松江ではほぼ横ばいで推移した。また、この期間を通して松江が隠岐よりも高い濃度で推移していることから、隠岐に比べ周辺に発生源の多い松江では、人為的な活動に伴う地域的な汚染の影響を受けていることが示唆された。

隠岐及び松江の PM2.5 質量濃度は  $\text{SO}_4^{2-}$  濃度と強い相関関係（隠岐： $r=0.8294$ 、松江： $r=0.7699$ ）が見られることから、 $\text{SO}_4^{2-}$  の主な発生源である石油や石炭の燃焼が PM2.5 の質量濃度の推移に大きな影響を与えていると考えられる。

## 島根県における高濃度 PM2.5 出現時の気象状況について

園山隼人・金津雅紀・小原幸敏・藤原誠

第 46 回環境保全・公害防止研究発表会（令和元年 11 月 14 日～11 月 15 日：三重県津市）

2013～2018 年度に島根県内 9 地点（益田、浜田、江津、大田、出雲、雲南、松江、安来、隠岐）で測定した PM2.5 質量濃度及び日平均値が  $35 \mu\text{g}/\text{m}^3$  を超過した日の後方流跡線を用いて、高濃度事象が発生する気象要因について報告した。

この期間、島根県の PM2.5 質量濃度の年平均値は減少傾向を示しており、2015 年度以降は日平均値が  $35 \mu\text{g}/\text{m}^3$  を超過した日数も大幅に減少した。また、PM2.5 の環境基準を達成したのは、2013 年度 1 地点、2014 年度 2 地点だったが、2015 年度には急激に改善されて 2015・2016 年度 8 地点、2017・2018 年度には 9 地点すべてで達成した。

松江、浜田、隠岐において 2013～2018 年度に日平均値が  $35 \mu\text{g}/\text{m}^3$  を超過した日数は、松江 34 日、浜田 69 日、隠岐 44 日であった。この日に各地点に到達した気塊の後方流跡線を経路パターン別に分類したところ、3 地点とも国外から気塊が到達した割合が高く、松江 68%、浜田 72%、隠岐 91%となっていた。さらに、中国（北緯 35 度以北）から朝鮮半島を経由して到達した経路パターンの割合が最も高く、松江 41%、浜田 49%、隠岐 70%であった。この経路パターンの頻度は 2013・2014 年度と比較すると、2015 年度以降は 3 割程度まで減少して推移していることから、この頻度の減少が島根県内の PM2.5 高濃度事象発生日数の減少に大きな影響を与えていると考えられ、島根県において PM2.5 の濃度が上昇する場合には、国外からの汚染の影響が大きいということが示唆された。

## 隠岐及び松江における PM2.5 濃度の推移

金津雅紀・園山隼人・小原幸敏・藤原 誠

第 60 回島根県保健福祉環境研究発表会 (令和元年 7 月 9 日 : 松江市)

2014 年 5 月から 2019 年 3 月にかけて実施した通年観測により得られた成分分析結果を用いて、隠岐及び松江における PM2.5 濃度の推移の状況を整理し、その結果を報告した。

質量濃度は、隠岐は春高く、夏、秋と低下し、冬に再び上昇、松江は春高く、他の季節はほぼ同程度の濃度であった。隠岐、松江ともに、2014 年度が最も高く、2016 年度が低かった。成分濃度は、 $\text{SO}_4^{2-}$  が最も高く、続いて OC、 $\text{NH}_4^+$  の濃度が高く 1 年を通して硫酸アンモニウム等の  $\text{SO}_4^{2-}$  を含む粒子の寄与が大きかった。Pb/Zn 比は大陸からの長距離輸送の指標として取り扱われており、大陸起源では 0.5~0.6 程度まで高くなると推定されている。Pb/Zn 比は通年観測期間において、冬に隠岐で 0.49、松江で 0.42 であったことから、島根県においては、冬に大陸からの越境汚染の影響を比較的大きく受けていると推測される。Pb/Zn 比はこの期間では 2017 年度が最も低くなった。