

〔資料〕

石川県におけるPM_{2.5}成分組成について (研究報告書第57号(令和元年度)資料の訂正)

石川県保健環境センター 環境科学部 初瀬 裕・河本 公威・太田 聡
牧野 雅英・柿本 均

〔和文要旨〕

研究報告書第57号(令和元年度)に投稿した資料において、多環芳香族炭化水素類(PAHs)濃度の単位換算に誤りがあったため、該当部分を訂正した。

平成30年度6-7月、9月、12月、2-3月の4期に、石川県内の2地点(輪島局、松任局)においてPM_{2.5}試料を採取し、11種類の多環芳香族炭化水素類(PAHs)及び炭素成分、イオン成分を定量した。

PM_{2.5}質量濃度の季節変動は、輪島局及び松任局ともに、2-3月が最も高く、次いで6-7月が高く、9月と12月が低くなった。炭素成分濃度及びイオン成分濃度は、輪島局より松任局で高い傾向であった。

PM_{2.5}の成分組成割合では、輪島局及び松任局とも主成分は有機炭素(OC)とSO₄²⁻であり、OCの割合は、全国測定結果と比べてやや高かった。

PM_{2.5}質量濃度とPAHs濃度及び気象データの間は有意な相関はなかった。PAHs濃度と気温が有意な負の相関を示した。常時監視項目とPAHs濃度では、輪島局で自動車排ガス及び固定発生源双方の指標であるNO₂と、松任局で自動車排ガス汚染の指標であるCOと有意な正の相関を示した。

キーワード：微小粒子状物質、多環芳香族炭化水素類、炭素成分、イオン成分

1 はじめに

微小粒子状物質(以下、「PM_{2.5}」という)は、大気中に浮遊している粒子状物質のうち、粒径2.5μmで50%分粒された小粒径側の粒子状物質で、微小粒子のため肺の奥まで到達しやすく、呼吸器系や循環器系への健康が懸念されている有害大気汚染物質である¹⁾²⁾。また、「大気汚染防止法第22条の規定に基づく大気汚染の状況の常時監視に関する事務の処理基準について」において、地方自治体は質量濃度に加えてPM_{2.5}の成分分析調査(以下、「成分分析調査」という)を年4回行い、その結果を国(環境省)へ報告することとされている³⁾⁴⁾。

一方、多環芳香族炭化水素類(以下、「PAHs」という)は化石燃料やバイオマス燃料等の燃焼により発生し、人

体への毒性(発がん性、変異原性)を有する物質が多く存在することから、これまでにさまざまな地域で大気中の動態調査が実施されてきた⁵⁾⁻⁸⁾。

これまでの研究において国内のPAHsの最大の発生源は自動車(特にディーゼル車)排ガスであること⁹⁾⁻¹¹⁾、また、中国大陸における石炭燃料の燃焼により発生したPAHsが越境輸送により国内で観測されていること等¹²⁾¹³⁾が明らかとなってきた。

本県では、PM_{2.5}中のPAHs濃度や炭素成分、イオン成分等を調査し、その結果からPM_{2.5}の発生源を明らかにすることを目的に調査研究を実施している。本報告では、H30年度の調査結果から、PM_{2.5}質量濃度及び成分組成、PAHs濃度について調査を行ったので報告する。

Investigation about the Component of PM_{2.5} in Ishikawa Prefecture. by HATSUSE Yuh, KAWAMOTO Tomotake, OHTA Satoshi, MAKINO Masahide, KAKIMOTO Hitoshi (Environmental Science Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : PM_{2.5}, Polycyclic Aromatic Hydrocarbons(PAHs), Carbonic components, Ionic components

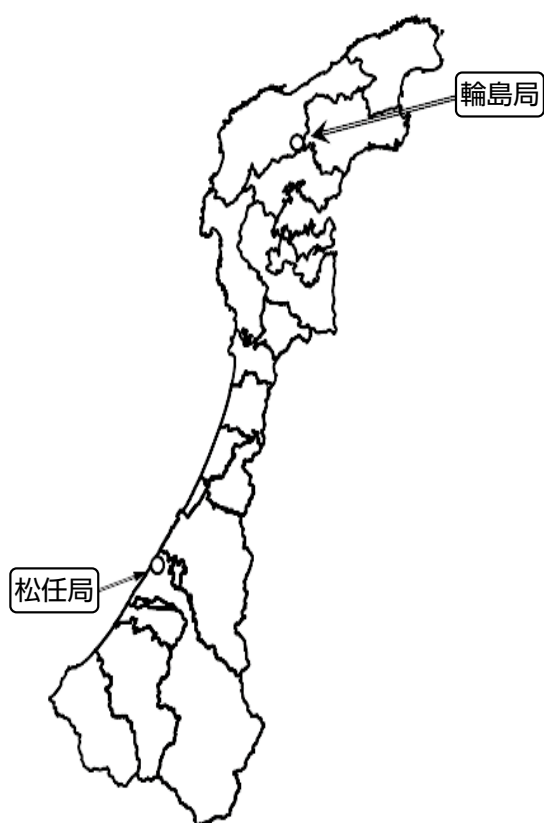


図1 地点図

2 調査方法

2・1 調査地点及び調査期間

調査地点は、輪島局及び松任局の2地点とした(図1)。輪島局は、一般環境大気測定局であり、のと里山空港敷地内に設置されており、周辺には空港以外の事業所や民家が少ない地点であるため、人為的汚染の少ないバックグラウンド地点として選定した。一方、松任局は、一般環境大気測定局であり、白山市の市街地に近く、周辺は住宅街であり南南東約1kmの所に交通量の多い国道8号線が存在する地点で一般環境地点として選定した。

試料の採取は、平成30年6月28日～7月12日(輪島局)、6月29日～7月13日(松任局)、9月11日～9月25日、12月3日～12月17日、平成31年2月28日～3月14日の4期間(14日/期間)で実施した。

2・2 試料採取方法

試料の採取は、PM_{2.5}成分測定マニュアル¹⁴⁾に準じて行った。採取装置には、Thermo scientific製シーケンシャルエアサンプラー Model 2025i(輪島局)、2025i-D(松任局)を用いた。サンプリングフィルタには、Pallflex社製2500 QAT-UP φ47mmの石英繊維フィルタ及びWhatman社製のPTFE製フィルタを使用した。

試料の捕集時間は24時間とした。採取後のフィルタは、分析に供するまで遮光・冷凍保存(-20℃)した。

2・3 PM_{2.5}質量濃度の分析方法

PM_{2.5}成分測定マニュアル¹⁴⁾に準じて行った。試料採取前及び採取後のPTFE製フィルタ(6-7月のみ石英繊維フィルタ)を恒温恒湿(温度21.5±1.5℃、相対湿度35±5%)の条件下に24時間以上放置し、精密天秤で秤量した。

2・4 PAHsの対象物質及び分析方法

PAHsは、4環のフルオランテン(Flu)、ピレン(Pyr)、クリセン(Chr)、5環のベンツ[a]アントラセン(BaA)、ベンゾ[e]ピレン(BeP)、ベンゾ[a]ピレン(BaP)、ベンゾ[b]フルオランテン(BbF)、ベンゾ[k]フルオランテン(BkF)、ジベンツ[a,h]アントラセン(DBahA)、6環のベンゾ[ghi]ペリレン(BgPe)、インデノ[1,2,3-cd]ピレン(IDP)の11物質を対象とした。

分析は、有害大気汚染物質測定方法マニュアル¹⁵⁾に準じた既報¹⁶⁾の方法で行った。また、感度の低い化合物を定量可能とするため、2日分のフィルタをコンポジットして分析に供した。

2・5 炭素成分及びイオン成分の対象物質及び分析方法

炭素成分は、有機炭素(Organic Carbon:OC)、元素炭素(Elemental Carbon:EC)を、イオン成分は、Cl⁻、NO₃⁻、SO₄²⁻、Na⁺、NH₄⁺、K⁺、Mg²⁺、Ca²⁺を対象とした。

炭素成分及びイオン成分の分析は、環境省のPM_{2.5}成分測定マニュアル¹⁴⁾に準じた。

2・6 常時監視項目及び気象データ

大気の常時監視項目(二酸化硫黄SO₂、一酸化窒素NO、二酸化窒素NO₂、メタンCH₄、非メタン炭化水素NMHC、浮遊粒子状物質SPM、オキシダントO_x)は調査地点の自動測定機データを使用した(COは松任局のみ)。

気温、風速、相対湿度、日射量、日照時間、降水量の気象データは、松任局については、自動測定機のデータを使用した(日照時間は金沢地方気象台のデータを使用した)。輪島局については、輪島特別地域気象観測所及び三井のアメダスのデータを使用した(日射量は松任局のみ)。

なお、これら常時監視項目及び気象データはPM_{2.5}の採取時間帯に合わせて1時間値を抽出し、PAHsの分析に合わせ2日間の算術平均値を算出して解析に使用した。

3 結果及び考察

3・1 PM_{2.5}の質量濃度、成分濃度及び成分組成

(1) 質量濃度及び成分濃度

質量濃度及び成分濃度を表1、図2に示す。質量濃度は、輪島局及び松任局ともに、2-3月が最も高く、次いで6-7月が高く、9月と12月が低くなった。既報¹⁷⁾の結果と同様であった。

平成30年度大気汚染物質に係る常時監視測定結果(環

表 1 PM_{2.5}成分濃度及び割合

単位 上段 (μg/m³)
(ng/m³) (PAHsのみ)
中段 (%)
下段 (%)

採取月	採取地点	PM _{2.5} 質量濃度	TC				付成分											other
			OC	PAHs	EC	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻	NH ₄ ⁺	Na ⁺ , K ⁺ , Mg ²⁺ , Ca ²⁺								
										Na ⁺	K ⁺	Mg ²⁺	Ca ²⁺					
6-7月	輪島	平均値	8.56	2.75	2.50	0.05	0.25	1.86	0.04	0.18	1.22	0.19	0.23	0.13	0.01	0.02	0.07	3.94
		割合	100.0	32.2	29.2	0.0005	3.0	21.7	0.5	2.1	14.2	2.3	2.7	1.6	0.1	0.2	0.8	46.1
		各成分中の割合	---	100.0	90.8	0.0017	9.2	100.0	2.1	9.6	65.6	10.4	12.3	7.2	0.4	0.9	3.8	---
	松任	平均値	10.44	3.19	2.77	0.14	0.42	3.32	0.06	0.34	2.08	0.30	0.55	0.37	0.05	0.03	0.09	3.93
		割合	100.0	30.6	26.5	0.0013	4.0	31.8	0.6	3.3	19.9	2.8	5.2	3.5	0.5	0.3	0.9	37.6
		各成分中の割合	---	100.0	86.8	0.0044	13.2	100.0	1.8	10.2	62.6	8.9	16.5	11.1	1.6	0.9	2.8	---
9月	輪島	平均値	4.36	1.55	1.40	0.14	0.15	1.50	0.00	0.02	1.07	0.33	0.07	0.04	0.02	0.00	0.01	1.31
		割合	100.0	35.6	32.1	0.0033	3.5	34.4	0.1	0.5	24.6	7.7	1.6	0.9	0.5	0.0	0.1	30.0
		各成分中の割合	---	100.0	90.1	0.0093	9.9	100.0	0.3	1.4	71.4	22.3	4.6	2.6	1.5	0.1	0.4	---
	松任	平均値	5.85	2.53	2.17	0.28	0.36	2.14	0.01	0.10	1.43	0.42	0.18	0.08	0.07	0.01	0.02	1.17
		割合	100.0	43.2	37.1	0.0048	6.1	36.7	0.2	1.7	24.5	7.2	3.1	1.4	1.3	0.2	0.3	20.1
		各成分中の割合	---	100.0	85.8	0.0111	14.2	100.0	0.5	4.5	66.9	19.6	8.5	3.8	3.4	0.5	0.7	---
12月	輪島	平均値	4.06	1.19	0.99	0.57	0.20	1.60	0.04	0.06	1.07	0.31	0.11	0.07	0.04	0.01	0.00	1.27
		割合	100.0	29.2	24.3	0.0140	4.9	39.5	1.1	1.6	26.4	7.6	2.8	1.7	0.9	0.2	0.0	31.3
		各成分中の割合	---	100.0	83.2	0.0480	16.8	135.2	3.8	5.5	90.3	26.0	9.7	6.0	3.0	0.6	0.1	---
	松任	平均値	4.44	1.63	1.25	0.82	0.37	1.90	0.12	0.15	1.11	0.30	0.23	0.14	0.07	0.01	0.01	0.91
		割合	100.0	36.6	28.3	0.0184	8.4	42.8	2.7	3.3	25.0	6.7	5.1	3.2	1.5	0.3	0.1	20.6
		各成分中の割合	---	100.0	77.2	0.0503	22.8	100.0	6.2	7.7	58.5	15.7	11.9	7.4	3.4	0.8	0.3	---
2-3月	輪島	平均値	12.54	3.99	3.47	0.68	0.52	4.48	0.01	0.49	2.72	0.98	0.28	0.09	0.16	0.01	0.02	4.06
		割合	100.0	31.8	27.7	0.0055	4.2	35.7	0.1	3.9	21.7	7.8	2.2	0.7	1.3	0.1	0.1	32.4
		各成分中の割合	---	100.0	86.9	0.0171	13.1	100.0	0.2	11.0	60.7	21.9	6.2	2.0	3.5	0.3	0.4	---
	松任	平均値	13.46	3.96	3.35	1.02	0.60	5.80	0.05	1.11	3.04	1.23	0.37	0.18	0.14	0.02	0.03	3.70
		割合	100.0	29.4	24.9	0.0076	4.5	43.1	0.4	8.3	22.6	9.1	2.7	1.3	1.0	0.2	0.2	27.5
		各成分中の割合	---	100.0	84.7	0.0258	15.3	100.0	0.9	19.2	52.3	21.2	6.4	3.0	2.4	0.4	0.5	---
全データ	輪島	平均値	7.38	2.37	2.09	0.36	0.28	2.36	0.02	0.19	1.52	0.45	0.17	0.08	0.06	0.01	0.02	2.65
		割合	100.0	32.1	28.3	0.0049	3.8	32.0	0.3	2.6	20.6	6.1	2.3	1.1	0.8	0.1	0.3	35.9
		各成分中の割合	---	100.0	88.1	0.0152	11.9	100.0	1.0	8.0	64.4	19.2	7.3	3.5	2.4	0.4	1.0	---
	松任	平均値	8.48	2.81	2.37	0.58	0.44	3.25	0.06	0.41	1.90	0.54	0.33	0.20	0.08	0.02	0.04	2.42
		割合	100.0	33.1	28.0	0.0068	5.1	38.3	0.7	4.8	22.4	6.4	3.9	2.3	1.0	0.2	0.4	28.6
		各成分中の割合	---	100.0	84.5	0.0207	15.5	100.0	1.9	12.7	58.4	16.8	10.3	6.0	2.5	0.6	1.1	---

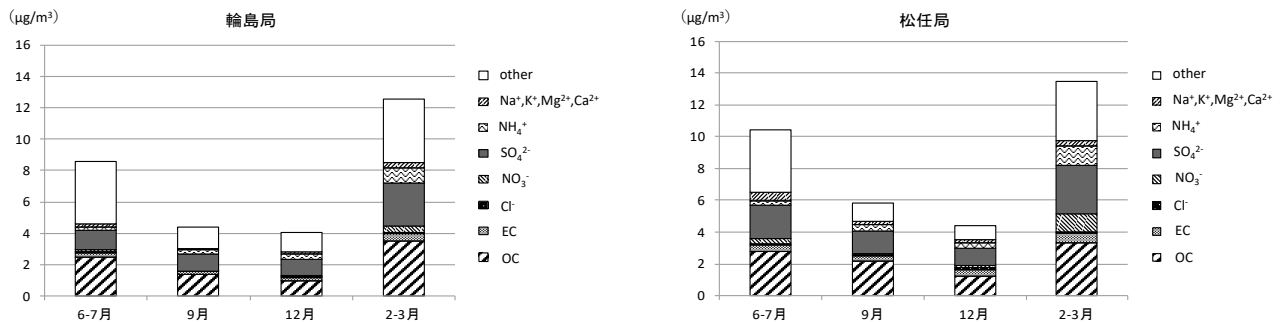


図 2 採取月別成分濃度

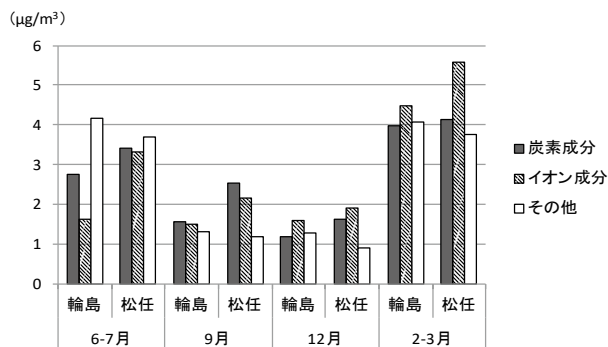


図 3 PM_{2.5}の炭素成分及びイオン成分の濃度

境省)¹⁸⁾(以下、「常時監視測定結果」という)によると、PM_{2.5}質量濃度の季節別の傾向は「平成30年度は晩夏から秋季の濃度が低く、9月の月平均値が最も低かった。一方、平成30年4～5月の全国、平成30年7月の西日本、平成31年2～3月の北日本において、日平均値が35 μg/m³を超過した延べ日数が多かった。」とされており、今回の結果はこの報告と一致していた。

また、地点別の炭素成分とイオン成分の濃度を図3に示す。輪島局、松任局ともに、6-7月、9月は炭素成分濃度 ≥ イオン成分濃度、12月、2-3月は炭素成分濃度 ≤ イオン成分濃度となった。炭素成分濃度及びイオン成

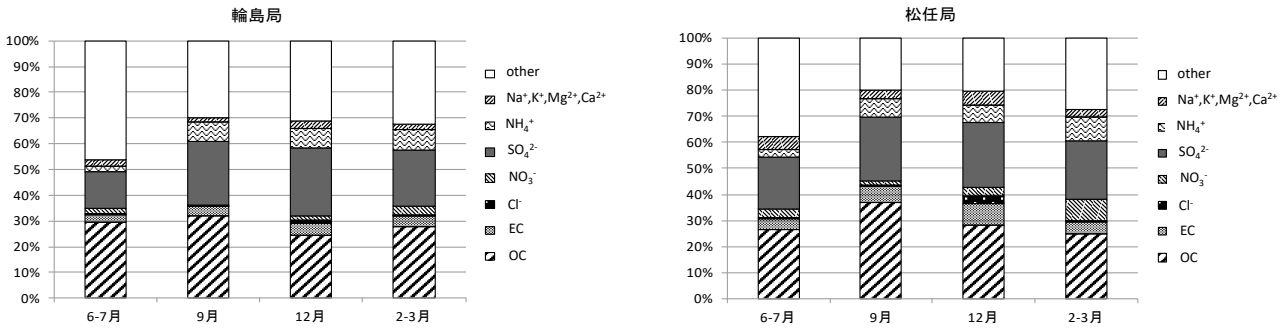


図 4 採取月別成分組成

表 2 H30年度全国の成分組成との比較

区分	採取地点	OC	EC	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻	NH ₄ ⁺	Na ⁺ , K ⁺ , Mg ²⁺ , Ca ²⁺	other
バックグラウンド	輪島	28.3	3.8	0.3	2.6	20.6	6.1	2.3	35.9
	全国値	18.0	4.0	1.0	3.0	31.0	10.0	3.0	30.0
一般環境	松任	28.0	5.1	0.7	4.8	22.4	6.4	3.9	28.6
	全国値	23.0	6.0	1.0	6.0	26.0	10.0	2.0	26.0

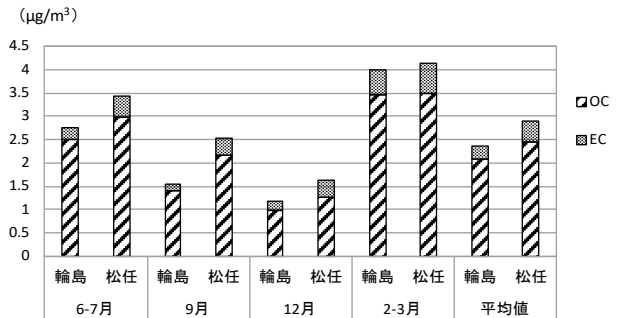


図 5 採取月別炭素成分濃度

分濃度はともに輪島局より松任局で高い傾向であった。

(2) 成分組成

PM_{2.5}の中の成分組成を表1, 図4に示す。

平均値で比較すると, 輪島局では炭素成分が32.1%, イオン成分が32.0%, 松任局では炭素成分が33.1%, イオン成分が38.3%であった。

PM_{2.5}の平均組成とH30年度全国測定結果¹⁸⁾を表2に示す。輪島局及び松任局の平均組成は, 主にOC(輪島28.3%, 松任28.0%)とSO₄²⁻(輪島20.6%, 松任22.4%)が占め, 次いでNH₄⁺が高くなっていた。これは全国測定結果と同様の傾向であり, OCの割合は全国測定結果と比べてやや高かった(松任局:一般環境, 輪島局:バックグラウンド)。

(3) 炭素成分

ア 季節変動

炭素成分の濃度を表1, 図5に示す。輪島局及び松任局ともに, 2-3月が最も高く, 次いで6-7月が高く, 9月と12月が低くなり既報¹⁷⁾と同様の傾向であった。

イ 成分組成

炭素成分に対する有機炭素(以下,「OC」という)及び元素状炭素(以下,「EC」という)の割合を表1, 図6に示す。OCの割合は77.2%~90.8%, ECの割合は9.2%~22.8%であり, 炭素成分の約80%~90%がOCであった。炭素成分に占めるOCの割合は, 12月に低く, 他の時期は同程度で, ECの割合は, 12月に高く, 他の時期は同程度であった。

PAHsはOCの中に含まれ,その割合を図7に示す。た

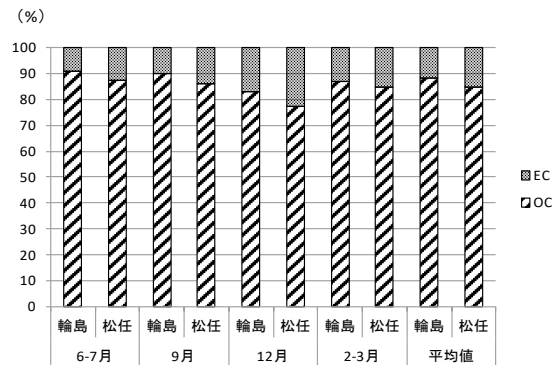


図 6 OCとECの組成比

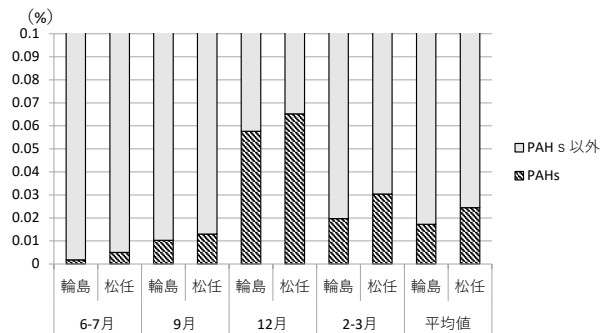


図 7 OC中のPAHsの割合

だし, PAHs濃度はOC濃度の10⁻⁴~10⁻⁸であり, 濃度がかかなり異なるため縦軸の最大値を0.1%とし, 拡大している。PAHsの割合が最も高くなったのは, 輪島局, 松任局共に12月であった。北陸では, 冬季に降雨・降

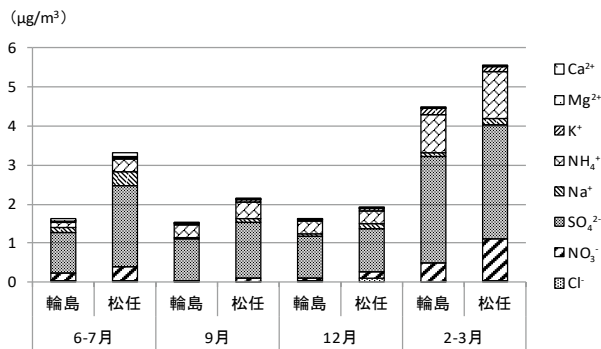


図8 採取月別イオン成分濃度

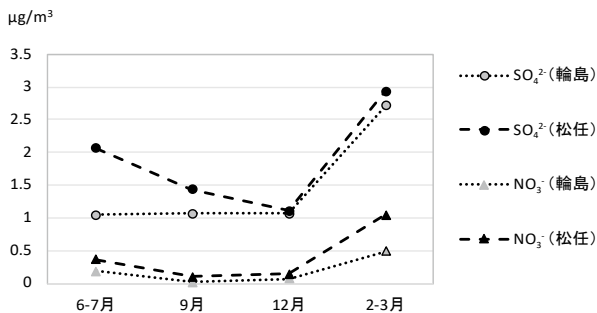


図9 採取月別のSO₄²⁻, NO₃⁻

雪が多くなる気象条件からPM_{2.5}の発生が抑制され、一方で国内外において暖房等のため各種燃料の使用が増大することからPAHs濃度が高くなること¹⁹⁾により相対的に割合が高くなると考えられる。

(4) イオン成分

ア 季節変動

採取月別イオン成分濃度を図8に示す。輪島局では2-3月が最も高く、他は同程度であった。松任局では2-3月が最も高く、次いで6-7月が高く、9月、12月は同程度であった。この傾向は既報の季節変動¹⁷⁾と同様

であった。6-7月で輪島局と松任局で異なる傾向となったが、理由はわからなかった。

PM_{2.5}には、事業活動や自動車から排出されたSO_x, NO_x, NH₄等から二次生成された硫酸アンモニウム、硝酸アンモニウムが含まれているとされている¹⁾²⁰⁾。SO₄²⁻とNO₃⁻の季節変動を図9に示す。SO₄²⁻と比較しNO₃⁻濃度は非常に低く、気温が低い2-3月に濃度が高くなっている。田中ら²¹⁾は大気中のアンモニア、塩化水素、硝酸ガスは、低温では粒子状の塩として存在し、高温ではガスとして存在しやすいためとしている。

全ての期間でSO₄²⁻及びNO₃⁻の濃度は、松任局が輪島局より高かった。

イ 濃度及び割合

イオン成分の濃度及び割合を表1に示す。イオン濃度の平均値では、SO₄²⁻が輪島局で1.52 µg/m³、松任局で1.90 µg/m³、NO₃⁻が輪島局で0.19 µg/m³、松任局で0.41 µg/m³、NH₄⁺が輪島局で0.45 µg/m³、松任局で0.54 µg/m³であり、これら3種のイオンで全イオンの約90% (輪島局91.7%, 松任局90.1%)であった。

輪島局及び松任局について、SO₄²⁻ + NO₃⁻のイオン当量とNH₄⁺のイオン当量の相関を図10に示す。SO₄²⁻ + NO₃⁻のイオン当量とNH₄⁺のイオン当量は強い相関があり、イオンのバランスがとれていた。この結果は、既報²²⁾と同様で、主として硫酸アンモニウム、硝酸アンモニウムとして存在していると考えられた。

ウ 海塩の影響

海塩の影響を見るために、Mg²⁺とNa⁺の相関とMg²⁺/Na⁺の比を表3に示す。Mg²⁺とNa⁺の間には、強い相関があり、6-7月と9月の輪島局を除き、危険率1%で有意であった。また、Mg²⁺/Na⁺の比は、輪島局で6-7月は0.116、9月は0.052、12月は0.097、2-3月

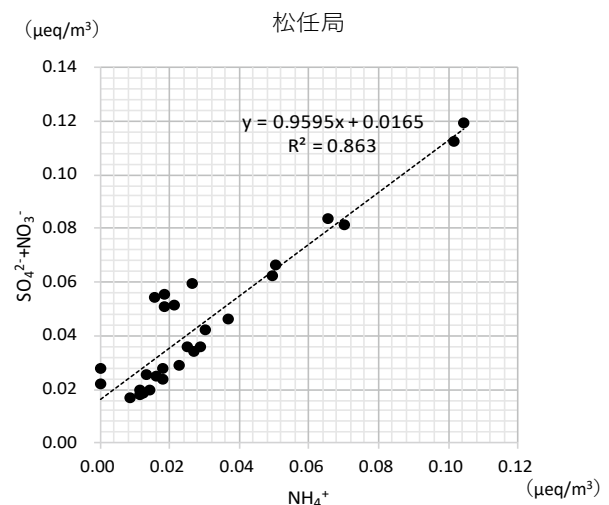
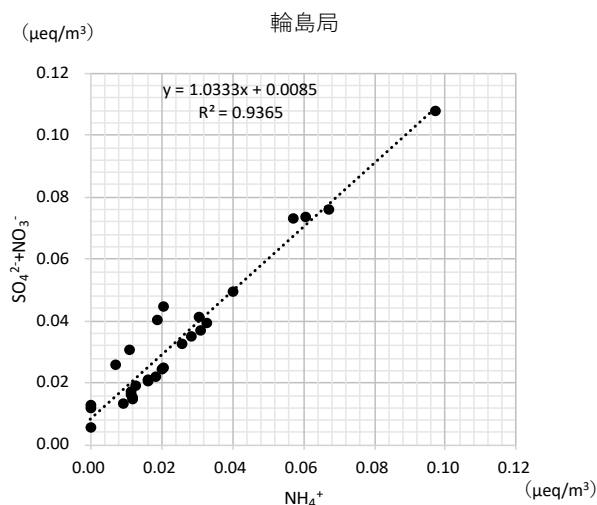


図10 (SO₄²⁻ + NO₃⁻) とNH₄⁺との相関 (イオン当量濃度)

表 3 Mg²⁺とNa⁺との相関係数とMg²⁺/Na⁺

項目	調査地点	6-7月	9月	12月	2-3月
相関係数	輪島局	0.85 *	0.67	0.95 **	0.91 **
	松任局	0.85 *	0.95 **	0.97 **	0.90 **
Mg ²⁺ /Na ⁺	輪島局	0.116	0.052	0.097	0.142
	松任局	0.082	0.141	0.105	0.133

** p < 0.01 * p < 0.05

は0.142で、松任局で6-7月は0.082、9月は0.141、12月は0.105、2-3月は0.133であった。海塩のMg²⁺/Na⁺ = 0.120²³⁾と比較すると、輪島の9月を除き、ほぼ類似した値であった。このことから、Mg²⁺とNa⁺は、主に海塩の影響であると考えられた。なお、輪島の9月において、Mg²⁺とNa⁺の間に有意な相関がなく、Mg²⁺/Na⁺が0.052と低くなったが、理由はわからなかった。

3・2 PM_{2.5}質量濃度・PAHs濃度と各種データとの相関関係

PM_{2.5}質量濃度及びPAHs濃度と常時監視項目、気象データ、炭素成分及びイオン成分との間の相関を調べた。無相関の検定を行い、データ数が少ないため、危険率1%で有意の場合、「有意な相関がある」と判定した。

(1) PM_{2.5}質量濃度とPAHs濃度との相関

PM_{2.5}質量濃度とPAHs濃度との相関係数を表4に示

表 4 PM_{2.5}質量濃度とPAHs濃度との相関係数

調査地点	全期間	6-7月	9月	12月	2-3月
輪島局	0.45 *	0.51	0.50	0.93 **	0.69
松任局	0.44 *	0.74	0.78 *	0.76 *	0.80 *

** p < 0.01 * p < 0.05

す。相関係数は、輪島局で0.45、松任局で0.44であり、有意な相関を示さなかった。このことは、既報¹⁸⁾の結果と同様であった。また、採取期間ごとの相関を見ると輪島局では12月に有意な正の相関を示し、松任局は輪島局と比較して相関が高い傾向があった。

(2) 気象データとの相関

気象データとの相関係数を表5に示す。

PM_{2.5}質量濃度と気温、風速、相対湿度、日射量、日照時間、降水量の間には、有意な相関を示す項目はなかった。

また、PAHs濃度との相関を見ると、輪島局で気温と相対湿度の間に有意な負の相関があり、松任局では気温と有意な負の相関があった。

PAHs濃度と気温との相関は、PAHsの環数別に見ても有意な負の相関があり(表6)、採取期間ごとに見ると、相関係数は輪島局、松任局ともに6-7月は正となり、他の期間は負となった。これは既報¹⁷⁾の輪島市西二又(金沢大学環日本海域環境研究センター能登大気観測スーパーサイト)と同様の傾向であった。

また、PM_{2.5}質量濃度と気温との相関は、6-7月の輪島局では有意な正の相関となり、他の期間では有意な相関を示さなかった(表7)。データ数が少ないことからデータ数を増やし今後さらなる検討が必要と考える。

(3) 常時監視項目との相関

常時監視項目との相関係数を表8に示す。

PM_{2.5}質量濃度との相関では、輪島局でSO₂、NO、NO₂、SPMが、松任局ではSPMが有意な正の相関があった。

また、PAHs濃度との相関を見ると、輪島局でNO₂、Ox、CH₄が、松任局ではCO、Ox、CH₄との間に有意な正の相関があった。

松任局のPAHs濃度は、自動車排ガス汚染の指標であるCOと有意な相関があり、これは地理的に交通量の多

表 5 気象データとの相関係数

輪島	PM _{2.5} 質量濃度	PAHs	風速	気温	相対湿度	日射量	降水量
PAHs	0.45 *						
風速	-0.19	0.15					
気温	-0.11	-0.72 **	-0.34				
相対湿度	-0.30	-0.65 **	-0.09	0.48 *			
日射量		
降水量	-0.16	-0.18	0.35	0.08	0.51 **	...	
日照時間	0.46 *	-0.02	-0.46 *	0.31	-0.36	...	-0.45 *

松任	PM _{2.5} 質量濃度	PAHs	風速	気温	相対湿度	日射量	降水量
PAHs	0.44 *						
風速	-0.19	0.26					
気温	-0.02	-0.74 **	-0.55 **				
相対湿度	-0.33	-0.25	0.12	-0.03			
日射量	0.08	-0.44 *	-0.65 **	0.75 **	-0.36		
降水量	-0.25	-0.24	0.13	0.11	0.48 **	-0.25	
日照時間	0.36	-0.11	-0.44 *	0.44 *	-0.72 **	0.65 **	-0.33

p: 有意水準

** : p < 0.01 * : p < 0.05

表6 PAHs濃度と気温との相関係数

		4環	5環	6環	PAHs計
全期間	輪島局	-0.73**	-0.71**	-0.71**	-0.72**
	松任局	-0.71**	-0.74**	-0.76**	-0.74**
6-7月	輪島局	0.89**	0.90**	0.79*	0.88**
	松任局	0.31	0.39	0.43	0.40
9月	輪島局	-0.79*	-0.46	-0.22	-0.50
	松任局	-0.79*	-0.85*	-0.79*	-0.83*
12月	輪島局	-0.20	-0.12	-0.07	-0.14
	松任局	-0.35	-0.31	-0.32	-0.34
2-3月	輪島局	-0.40	-0.39	-0.41	-0.40
	松任局	-0.22	-0.08	-0.08	-0.13

** : p < 0.01 * : p < 0.05

表7 PM_{2.5}質量濃度と気温との相関係数

調査地点		全期間	6-7月	9月	12月	2-3月
PM _{2.5} 質量濃度	輪島局	-0.11	0.83*	0.07	0.20	-0.17
	松任局	-0.02	0.54	-0.48	0.23	-0.33

** p < 0.01 * p < 0.05

い国道8号線が近いことから、PAHsの発生源として自動車排ガスが寄与しているためと考えられた。

また、輪島局では、PM_{2.5}質量濃度に関して、NO、NO₂と有意な相関があり、PAHs濃度に関して、NO₂との間に有意な相関があった。NO、NO₂は、自動車排ガス及び固定発生源双方の指標であるが、輪島局周辺の交通量は少なく、近隣に固定発生源は存在しない。越境汚染の影響も考えられるが、今後さらなる検討が必要である。

(4) 炭素成分との相関

炭素成分との相関係数を表9に示す。

PM_{2.5}質量濃度との相関では、輪島局及び松任局ともにOC、ECと有意な正の相関があった。また、PAHs濃度との相関を見ると、輪島局及び松任局ともにECと有意な正の相関があった。

OCは主にVOCから二次生成され、ECは化石燃料の燃焼等によって排出される。このことから、輪島局及び松任局ともに化石燃料の燃焼等の影響を受けていることが示唆された。しかし、輪島局周辺の交通量は少なく、近隣に固定発生源は存在しない。越境汚染の影響も考えられるが、今後さらなる検討が必要である。

4 まとめ

(1) PM_{2.5}質量濃度の季節変動は、2-3月が最も高く、次いで6-7月が高く、9月と12月が低くなり、国のH30年度常時監視測定結果の報告と一致していた。

炭素成分濃度及びイオン成分濃度は、輪島局より人為的な影響が大きいと考えられる松任局で高い傾向であった。

輪島局及び松任局の平均組成は、主にOCとSO₄²⁻が占めていた。OCの割合は、全国測定結果と比べてやや高かった。

炭素成分の季節変動は、輪島局及び松任局ともに、PM_{2.5}質量濃度の季節変動と同様であった。炭素成分の約80%~90%がOCであり、ECの割合は12月に高くなった。OC中に占めるPAHsの割合は、12月に高

表8 常時監視項目との相関係数

輪島	PM _{2.5} 質量濃度	PAHs	SO ₂	NO	NO ₂	CO	Ox	NMHC	CH ₄	SPM
PAHs	0.45*									
SO ₂	0.60**	0.47*								
NO	0.62**	0.35	0.36							
NO ₂	0.52**	0.64**	0.53**	0.74**						
CO					
Ox	0.33	0.63**	0.48*	0.37	0.69**	...				
NMHC	0.47*	0.23	0.22	0.64**	0.58**	...	0.31			
CH ₄	0.04	0.70**	0.31	0.29	0.68**	...	0.85**	0.24		
SPM	0.90**	0.44*	0.58**	0.67**	0.61**	...	0.42*	0.51**	0.15	
PM _{2.5} 自動測定機	0.94**	0.51**	0.63**	0.68**	0.64**	...	0.49**	0.51**	0.23	0.96**

松任	PM _{2.5} 質量濃度	PAHs	SO ₂	NO	NO ₂	CO	Ox	NMHC	CH ₄	SPM
PAHs	0.44*									
SO ₂	0.00	-0.28								
NO	0.17	0.15	-0.10							
NO ₂	0.37	0.44*	0.00	0.79**						
CO	0.10	0.68**	-0.18	0.23	0.51**					
Ox	0.33	0.62**	-0.04	-0.10	0.11	0.72**				
NMHC	0.19	-0.47*	0.22	0.43*	0.25	-0.46*	-0.71**			
CH ₄	0.29	0.73**	-0.11	0.00	0.41*	0.85**	0.77**	-0.58**		
SPM	0.95**	0.34	-0.04	0.16	0.29	0.14	0.29	0.27	0.24	
PM _{2.5} 自動測定機	0.82**	0.61**	-0.11	0.20	0.46*	0.51**	0.55**	-0.04	0.54**	0.84**

** p < 0.01 * p < 0.05

表 9 炭素成分との相関係数

輪島	PM _{2.5} 質量濃度	PAHs	OC	EC
PAHs	0.45 *			
OC	0.87 **	0.40 *		
EC	0.92 **	0.62 **	0.83 **	
TC	0.89 **	0.43 *	1.00 **	0.86 **

松任	PM _{2.5} 質量濃度	PAHs	OC	EC
PAHs	0.44 *			
OC	0.92 **	0.42 *		
EC	0.84 **	0.62 **	0.84 **	
TC	0.92 **	0.46 *	1.00 **	0.88 **

** : p < 0.01 * : p < 0.05

くなった。

イオン成分の季節変動は、輪島局では2-3月が最も高く、他の時期は同程度であったが、松任局ではPM_{2.5}質量濃度の季節変動と同様であった。PM_{2.5}中のイオン成分としては、主として硫酸アンモニウム、硝酸アンモニウムとして存在していると考えられ、Mg²⁺とNa⁺は、主に海塩の影響であると考えられた。

(2) PM_{2.5}質量濃度とPAHs濃度との間には、有意な相関は見られず、気象データとの間にも、有意な相関は見られなかった。PAHs濃度と気温の間には、輪島局、松任局ともに有意な負の相関があった。

常時監視項目との相関では、松任局でPAHs濃度と自動車排ガス汚染の指標であるCOと、輪島局でPM_{2.5}質量濃度と自動車排ガスおよび固定発生源双方の指標であるNO、NO₂と、PAHs濃度とはNO₂と有意な正の相関を示した。

炭素成分との相関では、輪島局及び松任局ともに、PM_{2.5}質量濃度とOC、ECの間に有意な正の相関があり、PAHs濃度はECと有意な正の相関があった。ECは化石燃料の燃焼等によって排出されることから、輪島局及び松任局ともに化石燃料の燃焼等の影響を受けていることが示唆された。

しかし、輪島局周辺の交通量は少なく、近隣に固定発生源は存在しない。越境汚染の影響も考えられたが、今後さらなる検討が必要である。

PM_{2.5}質量濃度に加えて、各成分についても季節間の差が見られた。今後はデータの蓄積を図るとともに無機元素のデータを加えて、季節間の差をPM_{2.5}発生源と絡めて検討することを考えている。

文 献

- 1) 微小粒子状物質 (PM_{2.5}) に関する情報 (環境省)
<http://www.env.go.jp/air/osen/pm/info.html#ABOUT>
- 2) 「PM_{2.5}」による大気汚染健康に及ぼす影響と日常生活における注意点 (政府広報オンライン)
<https://www.gov-online.go.jp/useful/article/201303/5.html>
- 3) 「大気汚染防止法第22条の規定に基づく大気汚染の状況の常時監視に関する事務の処理基準について」の一部改正について (平成22年3月31日環水大発第100331001号、環水大自発第100331002号)
- 4) 環境省 水・大気環境局: 微小粒子状物質 (PM_{2.5}) の成分分析ガイドライン, 平成23年7月
- 5) 久保 隆, 小野敏路, 浦野紘平: 多環芳香族炭化水素類による大気汚染特性. 大気環境学会誌, **37**(2), 131-140, 2002.
- 6) 吉岡秀俊, 泉川碩雄, 秋山 薫, 渡邊武春, 鎌滝裕輝, 早福正孝, 清宮隆治, 菅 邦子, 潮来野国彦: 環境大気における多環芳香族炭化水素の濃度推移と挙動 (第2報). 東京都環境科学研究所年報, 1993年度, 53-60, 1994.
- 7) 小川佳美, 兼保直樹, 佐藤 圭, 高見昭憲, 林 政彦, 原圭一郎, 畠山史郎: 長距離輸送された多環芳香族炭化水素とn-アルカン-2009年春季及び秋季の沖縄辺戸岬, 福江島, 福岡での測定から-. 大気環境学会誌, **47**(1), 18-25, 2012.
- 8) HAYAKAWA Kazuichi Editor: Polycyclic Aromatic Hydrocarbons Environmental Behavior and Toxicity in East Asia, 59-63, Springer (2018)
- 9) KAKIMOTO Hitoshi, KITAMURA Moritsugu, MATSUMOTO Yutaka, SAKAI Shigekatsu, KANO H Fumio, MURAHASHI Tsuyoshi, AKUTSU Kazuhiko, KIZU Ryoichi, HAYAKAWA Kazuichi: Comparison of atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons and nitropolycyclic aromatic hydrocarbons in Kanazawa, Sapporo and Tokyo. Journal of Health Science, **46**, 5-15, 2000.
- 10) KAKIMOTO Hitoshi, MATSUMOTO Yutaka, SAKAI Shigekatsu, KANO H Fumio, ARASHIDANI Keiichi, TANG Ning, AKUTSU Kazuhiko, NAKAJIMA Atsuko, AWATA Yukie, TORIBA Akira, KIZU Ryoichi, HAYAKAWA Kazuichi: Comparison of atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons and nitropolycyclic aromatic hydrocarbons in an industrialized city (Kitakyushu) and two commercial cities (Sapporo and Tokyo). Journal of Health Science., **48**, 370-375, 2002.
- 11) HAYAKAWA Kazuichi Editor: Polycyclic Aromatic Hydrocarbons Environmental Behavior and Toxicity in East Asia, 65-74, Springer (2018)

- 12) TANG Ning, HATTORI Tetsuyuki, TAGA Rina, IGARASHI Kazuhiko, YANG Xiaoyang, TAMURA Kenji, KAKIMOTO Hitoshi, MISHUKOV Vasily F., TORIBA Akira, KIZU Ryoichi, HAYAKAWA Kazuichi: Polycyclicaromatic hydrocarbons and nitropolycyclic aromatic hydrocarbons in urban air particulates and their relationship to emission sources in the Pan-Japan Sea countries. *Atmospheric Environment*, **39**, 5817-5826, 2005.
- 13) YANG Xiao-yang, OKADA Yumi, TANG Ning, MATSUNAGA Shiori, TAMURA Kenji, LIN Jin-Ming, KAMEDA Takayuki, TORIBA Akira, HAYAKAWA Kazuichi: Long-range transport of polycyclic aromatic hydrocarbons from China to Japan. *Atmospheric Environment*, **41**, 2710-2718, 2007.
- 14) 環境省水・大気環境局：大気中微小粒子状物 (PM_{2.5}) 成分測定マニュアル，令和元年5月14日改訂。
- 15) 環境省水・大気環境局：有害大気汚染物質測定方法マニュアル，平成26年3月
- 16) 河本公威，牧野雅英，宮田朋子，加藤真美，太田聡，初瀬 裕：石川県における微小粒子状物質 (PM_{2.5}) 中の多環芳香族炭化水素類の濃度について，石川県保健環境センター所報，**55**，1-6 (2018)
- 17) 河本公威，初瀬 裕，太田 聡，牧野雅英，加藤真美，里見良二，柿本 均：第46回環境保全・公害防止研究発表会「石川県における微小粒子状物質 (PM_{2.5}) 中の多環芳香族炭化水素類の特徴について」
- 18) 平成30年度 大気汚染物質（有害大気汚染物質等を除く）に係る常時監視測定結果 環境省HP
- 19) 河本公威，牧野雅英，加藤真美，宮田朋子，太田聡，初瀬 裕，柿本 均：石川県内で採取されたPM_{2.5}中の多環芳香族炭化水素類の濃度変動について，全国環境研会誌，Vol.43 No.4，51-59 (2018)
- 20) 若松伸司，岡崎友紀代，神田 勲：二次生成大気汚染物質（オゾン，PM_{2.5}）に関する近年の研究の状況，日本マリンエンジニアリング学会誌，第49巻 第6号，54-59 (2014)
- 21) 田中茂，駒崎雄一，山縣勝弘，橋本芳一：大気中の塩化アンモニウムおよび硝酸アンモニウムの挙動とその解離平衡，日本化学会誌，**12**，2338-2343，(1987)
- 22) 宮田朋子，野口邦雅，堀 秀朗，柿澤隆一：石川県における微小粒子状物質 (PM_{2.5}) の成分測定結果について (平成24～25年度)，石川県保健環境センター所報，**51**，49-56 (2014)
- 23) 酸性雨調査法，酸性雨調査法研究会 (1993)，268