

京都府における微小粒子状物質 (PM_{2.5}) の常時監視と観測研究 —退職に当たっての一技術職員の覚え書き—

日置 正

2009年9月に微小粒子状物質 (PM_{2.5}) の環境基準が設定されて10年が経過した。この間、2013年1月には、中国の北京市等でPM_{2.5}による広域大気汚染が発生し、我が国への越境大気汚染の影響が大きく報道されたことは記憶に新しい。近年、中国における大気汚染対策の進展とともにかつてのような大規模な越境汚染は激減し、我が国のPM_{2.5}環境基準達成率は向上の一途をたどっている。有機エアロゾルの動態解明等、未解明な課題もあるが、PM_{2.5}問題も一段落の様相を呈している。京都府では、環境省がPM_{2.5}環境基準の設定に向けて微小粒子状物質曝露影響調査を開始した1999年の翌年に国道171号局でPM_{2.5}観測研究を開始し、環境基準設定以降はPM_{2.5}常時監視体制の整備を行ってきた。

筆者は、昭和54年に京都府に奉職以来、通算で約30年にわたり環境大気常時監視および観測研究に携わってきたが、最も思い入れが強いのはキャリア後半の約20年にわたって取り組んだPM_{2.5}に関する仕事である。本稿では、京都府のPM_{2.5}常時監視および観測研究の歩みを概観する。「大気環境研究、次の一手」を考える契機としていただければ幸いである。

はじめに

PM_{2.5}による大気汚染はいつから始まったのであろうか？当初、「PM_{2.5}」という聞き慣れない言葉が一人歩きし、あたかも何か新しい汚染物質が突然出現したかのような印象を与えたが、実は、PM_{2.5}は日本で環境基準が定められている浮遊粒子状物質 (SPM) のうち、粒径が2.5 μm以下の微小粒子状物質であり、これら粒子状物質による大気汚染は1952年のロンドンスモッグの時代から大きな環境問題として存在していた。

本稿では、粒子状物質による大気汚染問題の歴史、京都府のPM_{2.5}常時監視体制の特徴、越境大気汚染を主とした起源解明のための観測研究について紹介する。

京都府におけるPM_{2.5}常時監視

1. 粒子状物質による大気汚染問題の歴史

1952年12月に発生したロンドンスモッグは、石炭燃焼により発生した二酸化硫黄 (SO₂) や、すす、硫酸ミストを含む粒子状物質の高濃度が継続した約1週間の間に、高齢者や心肺系疾患患者を中心に普段の冬より約4,000人もの過剰死亡が発生したとされている。日本でも、第2次世界大戦後の高度経済成長によって、「4大公害訴訟」に代表される激甚公害問題が発生し、四日市市、川崎市などでは深刻な大気汚染が見られた。

日本の代表的な都市における1968年度の浮遊粉じん、いわゆる酸化物の年平均値と2011年度のSPMと二酸化硫黄のデータを比較すると、濃度レベルは十倍から数十倍となっており、いかに深刻な大気汚染状況であったかが分かる。この時代にはわが国でも現在の中国と同様、石炭が主なエネルギー源であり、石炭燃焼を発生原因とする大気汚染—いわゆる「黒いスモッグ」—であった。

表1に粒子状物質による大気汚染問題の経過をまとめた。

日本では、1968年に大気汚染防止法を制定し、1970年の第64回臨時国会（いわゆる、公害国会）で大気汚染防止法の一部改正を行い、官民一体となって大気汚染防止対策に取り組んだ結果、「黒いスモッグ」は改善されていった。一方、燃料の石炭から石油への転換とモータリゼーションの進展は、1970年頃から光化学スモッグ—「白いスモッグ」—を引き起こした。1972年にはSPMの環境基準が告示され、工場や自動車の排ガス規制も強化されたことにより、当初SPMの濃度は低下したが、その後、顕著な濃度低下が見られなくなったことから、1981年に環境庁に浮遊粒子状物質検討会が設置され、大都市域を中心に調査研究が進められた。

こうした中、1993年にはSPMより粒径の小さいPM_{2.5}による呼吸器系や循環器系への健康影響がDockeryらの「6都市研究」という疫学調査で明らかになり、1997年にアメリカ合衆国環境保護庁 (US-EPA) がPM_{2.5}環境基準を設定した。日本では2000年前後の健康被害に関する大気汚染訴訟を契機に、首都圏や阪神地域等の大都市域におけるNO_x対策と粒子状物質対策が大きな行政課題となり、環境省は自動車排ガス規制の強化を進めるとともに、1999年に微小粒子状物質曝露影響調査研究を開始し、国内外の科学的知見を結集して2009年に環境基準「1年平均値が15 μg/m³以下（長期基準）であり、かつ、1日平均値が35 μg/m³以下（短期基準）であること」を設定した。その後、2011年にPM_{2.5}成分分析ガイドラインの策定、2012年以降は成分測定マニュアルの整備を進め、現在まで大気常時監視を担う地方自治体を中心にPM_{2.5}常時監視体制の整備が進められている。

なお、筆者は2010年から2015年まで、環境省水・大気環境局大気環境課が設置する、成分分析ガイドライン検討会および成分測定マニュアル検討会の委員としてこれらの策定に参画した。

2. 京都府におけるPM_{2.5}常時監視体制

京都府においては、2009年度から環境省PM_{2.5}モニタリング試行事業として国道171号自動車排出ガス測定局でPM_{2.5}

表 1. 粒子状物質による大気汚染問題の経過

年次	外国	日本	京都府
1952年	ロンドンスモッグ		
1968年		大気汚染防止法制定	
1970年		この頃から地方公害試験研究機関の創設	
		第64回臨時国会(公害国会) 光化学スモッグ発生(東京都杉並区)	
1972年		SPM 環境基準告示 光化学スモッグ発生(東京都練馬区)	
1981年		環境庁「浮遊粒子状物質検討会」	
1992年		自動車NOx・PM 法制定	
1993年	Dockery「6都市研究」		
1997年	米国PM _{2.5} 環境基準設定	環境省「浮遊粒子状物質総合対策検討会」	
1999年		環境省「微小粒子状物質曝露影響調査研究」(~2007年)	観測研究開始
2006年	米国基準改訂 WHO 大気質指針設定		
2007年		環境省「微小粒子状物質健康影響評価検討会」 NOx・PM 法附帯決議	
2008年	EU PM _{2.5} 環境基準公示	中央環境審議会に「微小粒子状物質に係る環境基準の設定について」諮問	
2009年		PM _{2.5} 環境基準告示	モニタリング試行事業
2010年		大気常時監視に係る事務処理基準改定	
2011年		PM _{2.5} 成分分析ガイドライン策定	
2012年	中国PM _{2.5} 環境基準設定	PM _{2.5} 成分測定マニュアル策定	常時監視体制整備

表 2. 京都府におけるPM_{2.5}自動測定機一覧

測定局名	区分	型式	測定項目	測定局名	区分	型式	測定項目
向陽	一般	PM-712	PM _{2.5}	亀岡	一般	PM-712(D)	PM _{2.5} , PM _{10-2.5} , OBC
久御山	一般	PM-712(D)	PM _{2.5} , PM _{10-2.5} , OBC	南丹	一般	PM-712	PM _{2.5}
宇治	一般	PM-712	PM _{2.5}	綾部	一般	PM-712	PM _{2.5}
城陽	一般	PM-712	PM _{2.5}	福知山	一般	PM-712	PM _{2.5}
田辺	一般	PM-712	PM _{2.5}	東舞鶴	一般	PM-712(D)	PM _{2.5} , PM _{10-2.5} , OBC
井手	一般	PM-712	PM _{2.5}	宮津	一般	PM-712	PM _{2.5}
精華	一般	PM-712	PM _{2.5}	京丹後	一般	PM-712(D)	PM _{2.5} , PM _{10-2.5} , OBC
木津	一般	PM-712(D)	PM _{2.5} , PM _{10-2.5} , OBC	国道1号	自排	PM-712	PM _{2.5}
南山城	一般	PM-712	PM _{2.5}	国道171号	自排	PM-712	PM _{2.5}

常時監視を開始（2010年度、福知山大気常時監視測定局を追加）した。2012年1月には、一般環境大気測定局13局と自動車排ガス測定局1局の計14局にPM_{2.5}自動測定機等を整備し、現在、表2に示す18局体制でPM_{2.5}常時監視を実施している。

京都府におけるPM_{2.5}モニタリング体制で、特筆すべき点が三つある。

一つは、事務処理基準に基づいて算定される必要な測定局数は、京都府域の人口をベースにすると16局となり、100%以上の整備率である。これらの測定局は、地域的な偏りがないうように配置し、併設するSO₂、NOx、Ox等と相まって、越境大気汚染や光化学2次生成も含めた総合的な大気常時監視

を可能ならしめている。

二つ目は、PM_{2.5}のみのモニタリングにとどまらず、京都府が整備した18局のうち、表2に示す5局において、PM_{2.5}と同時に粒径2.5～10μmの粗大粒子（以下、「PM_{10-2.5}」という）の質量濃度及びPM_{2.5}中の元素状炭素（以下、「EC」という）を反射型光散乱-近赤外吸収法により自動分析（以下、「OBC」という）する装置を整備していることである。

既往研究によると、わが国に輸送されてくる黄砂の中心粒径は約4μm程度であり、粒径区分としてはPM_{10-2.5}に属するが、近年、黄砂粒子のPM_{2.5}質量濃度に対する寄与が明らかになってきた。また、ECに関しては、越境大気汚染よりもむしろ地域汚染の影響を受けやすいという知見が得られて

いる。したがって、単にPM_{2.5}質量濃度のみのモニタリングではPM_{2.5}の高濃度をもたらしたものが、人為起源汚染物質か、黄砂等の土壌粒子の微小粒径分なのか、あるいは、越境大気汚染なのか、地域汚染なのかを判別することは困難であるが、2粒径の質量濃度とOBCを同時に自動観測することによって、成分分析を待たずに、速報的に越境汚染、黄砂、地域汚染の判別がある程度可能になるという利点がある。

三つ目は、わが国の大気常時監視測定局の配置図を見ると明らかのように、太平洋側に比べて格段に測定局数が少ない日本海側にも測定局を3局整備していることである。

これは、中央環境審議会答申「微小粒子状物質に係る環境基準の設定について」で課題として示された海外からの移流の影響を把握するための仕掛けであり、ローカルな発生源や国内大都市域からの移流の影響が少ないと考えられる日本海側の測定局をプラットフォームとして、大陸からの長距離輸送の正味の影響が捉えられると期待して設置したものである。

次に、自動測定機の機種選定に当たって考慮したことは、次の4点である。

- (1) バーチャルインパクターを用い、PM_{2.5}とPM_{10-2.5}の同時捕集と質量濃度測定が可能であること。
- (2) 検出器のβ線源強度が大きく、かつ半減期が長いこと。
- (3) ろ紙送りが1時間毎であること。
- (4) 水分影響対策として、加熱方式で無いこと。

自動測定機の整備に着手した時点で、環境省水・大気環境局は標準測定法と等価な日平均値が得られる自動測定機として8機種を認定していた。当所では、約10年にわたる自動測定機の運用経験から、特に、ろ紙送りの時間間隔と水分影響対策に留意が必要であることを把握していたため、上記の4点を自動測定機が有すべき特性としたものである。

常時監視体制の整備に当たって最も懸念されたのは財源であったが、幸いにも地域活性化交付金（住民生活に光をそそぐ交付金「知の地域づくり」）の適用が可能となり、下記の測定・分析装置等を一時に整備することができた。

- (1) 大気エアロゾル自動分析装置（紀本電子工業製、PM-712フルスベック）5台
- (2) PM_{2.5}自動測定機（紀本電子工業製、PM-712）9台
- (3) 大気エアロゾル成分分析用サンプラー（Thermo Scientific社製、Model2025-D）4台
- (4) 炭素分析装置（DRI社製、Model2001A）1台
- (5) マイクロ波試料調製装置（アントンパール社製、Multiwave3000）1台

2019年の時点では、これらの機器は概ね良好に稼働しているが、今後、更新時期を迎えることになるため、財源の確保や自動測定機の配置の見直し等の検討が必要になると考えられる。

京都府におけるPM_{2.5}観測研究

PM_{2.5}観測研究の目的は、PM_{2.5}の起源を明らかにし、効果的な削減対策に科学的な根拠を与えることである。

図1は、粒子状物質の生成過程、粒径、起源を図式化したものである。起源の多様性、同じ起源でも多種の成分を含み、成分によって粒径分布が異なること、大気中での反応によって、同じ成分の粒径区分が微小から粗大に移ること等により、粒子状物質の起源解明を困難にしている。

例えば、石炭燃焼粒子中のPbは主に微小粒子に偏在し、Feは主に粗大粒子に存在している。また、硝酸アンモニウムは生成時は微小粒子に存在するが、過剰な硫酸が存在すると硝酸ガスとして遊離し、粗大粒子に存在するCaCO₃等と反応して粗大粒子側に移行することが知られている。したがって、PM_{2.5}の起源解明のためには、PM_{2.5}の成分分析にとどまらず、粗大粒子の分析も必須であることは論を待たない。

また、大陸からの人為起源汚染物質や黄砂の長距離輸送も、気象条件で分類した輸送形態、すなわち、寒冷前線後面型と移動性高気圧周回流型とでは継続時間が大きく異なり、後者の継続時間は2～3日であることが多いが、前者ではほとんどが24時間以内であることが多い。したがって、時間

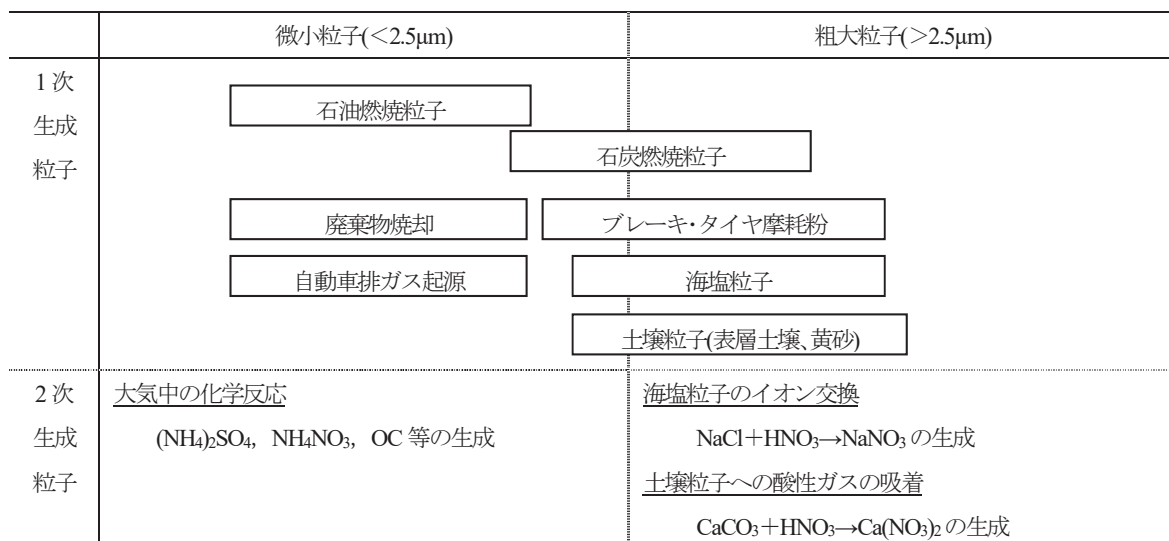


図1. 大気エアロゾルの粒径、生成過程と起源（極めて複雑で図式化は困難であり、主なものを例示）

分解能の高い観測が要請されることになる。

表3は、起源解析における無機元素の有用性をまとめたものである。イオン成分、炭素成分は、PM_{2.5} 質量濃度への寄与が大きい、発生源を切り分けるための情報が乏しい。一方、無機元素は、PM_{2.5} 質量濃度への寄与は小さいが、発生源情報が豊富である。このような成分ごとの特徴を踏まえた上で、起源解析に資するよう相補的に分析や解析を行うことが重要である。

イオン成分や炭素成分を起源解析に用いるとすれば、化石燃料の評価にはSO₄²⁻のδ³⁴Sや炭素成分のδ¹³Cが必要であり、バイオマス燃焼の評価にはpMC(¹⁴C/¹²C)等の同位体比分析が必要となる。しかしながら、これらの同位体比分析には、ある程度のサンプル量と特殊な装置や技術を必要とし、PM_{2.5} モニタリングとして実施するには極めてハードルが高い。一方、無機元素成分は、成分測定マニュアルの無機元素一斉分析法に準拠すれば30元素を超える濃度データが取得可能であり、起源解析への利用が大いに期待される。つまり、無機元素は、主要成分であるイオン成分や炭素成分に比べ指標性が高く、輸送過程での濃度減衰はあっても化学反応による生成・消滅がないので、発生源の情報が観測地点まで保存されやすいという特徴を持っている。

これらのことから、筆者は、大気エアロゾルの起源研究において、「無機元素の粒径別高時間分解能連続観測」の有用性を提唱し、既存のサンプリング技術と分析技術を組み合わせることで実現し、観測研究への応用を図ってきた。

この成果として、当所が2002年から2019年までに発表した論文および講演・口頭発表は、学会誌等5報、全国環境研究会誌4報、京都府保健環境研究所年報12報、学会講演・口頭発表35件に及ぶ(学会近畿支部、全環研環境保全・公害防止研究発表会、全環研東海・近畿・北陸支部における発表を除く)。限られた紙幅ですべてを紹介することは不可能であるため、次節以降、学会誌論文を中心に主な観測研究の概要を紹介し、本稿に関連するその他の成果はまとめて「業績目録」に掲載することとした。

1. 大気常時監視データに基づく研究

大気常時監視データを活用した大気汚染研究については、かつては大気環境に関する主要な研究分野の一つであったが、近年、研究事例が激減している。河村ら(2009)はSPM高濃度事例におけるSO₂、Ox、NOx等のガス成分の挙動から、高濃度をもたらしたものが越境大気汚染、二次粒子生成、地域汚染に帰着することを明らかにした。また、高倉ら(2016)は2013年度以降のPM_{2.5}の年平均濃度減少傾向が、NO₂等の地域的な人為起源汚染物質濃度の影響の低減に関係することを明らかにした。谷口ら(2015)は、2013年度の常時監視結果を用いて因子分析、重回帰分析を行い、PM_{2.5}の高濃度要因が光化学二次生成と、近傍の一次生成または光化学反応が関与しない二次生成であることを明らかにした。

こういう分野の研究が少なくなった理由として、近年、地方自治体の常時監視業務が地方環境研究所から行政部局に移ったことにあるとも考えられるが、当所がこういう地道な研究を継続して実施していることは全国的に見ても意義深いことである。

2. 粒子状物質中無機元素成分の観測研究の嚆矢

日置、江坂(1992)は、1990～1991年に府内10地点でローボリウムエアサンプラーで約1か月採取した試料中のAl、Ca、Mn、Fe、Zn、PbをICP-AES法で分析し、無機元素の動態を解析した。久御山局において、9月のサンプルから高濃度のMn、Feが検出されたが、久御山局周辺は地下水のMn、Fe濃度が高いことが知られており、台風により巻き上げられた水田の水の影響によって高濃度となったことが推定された。

このことを契機に、筆者は、エアロゾルの起源解明研究には少なくとも2粒径に分別した高時間分解能の無機元素データの必要性をおぼろげながら感じたのであるが、残念ながらその当時はこれを実現ならしめるサンプラーは存在しておらず、断念せざるを得なかった。

それから約10年が経過し、米国のPM_{2.5}環境基準設定

表3. エアロゾルの起源解析における無機元素の有用性

成分	質量濃度への寄与	主な発生源	左欄の発生源解明のための指標
イオン	大きい	燃焼(石油、石炭) 2次生成	δ ³⁴ S(SO ₄ ²⁻)
炭素 (EC, OC)	中程度～大きい	燃焼(石油、石炭) 燃焼(バイオマス) 2次生成	δ ¹³ C pMC(¹⁴ C/ ¹² C)、レボグルコサン
無機元素	かなり小さい	燃焼(石炭) 燃焼(石油) ブレーキ、廃棄物 石油精製 土壌(黄砂)	Pb/Zn V/Mn Ba/Sb La/Sm

を受けて、環境省が1997年に「浮遊粒子状物質総合対策検討会」、1999年に「微小粒子状物質曝露影響調査研究」(～2007年)を開始し、国内の自動測定機メーカーもPM_{2.5}自動測定機の開発に着手した。

筆者は、2000年10月から国道171号局において複数メーカーのPM_{2.5}自動測定機による質量濃度の並行測定試験を実施するとともに、24時間連続採取したディコトマス・シーケンシャル・エアサンプラーと1時間毎にPM_{2.5}自動測定機デュープ紙に採取したエアロゾル中の無機元素、イオン成分、多環芳香族環状水素類を分析し、日平均レベルでよく一致することを確認した。ここに、エアロゾル主要成分の粒径別長時間分解能連続観測手法を確立し、観測研究への応用が可能になった。

次節以降は、無機元素を中心としたエアロゾル主要成分の粒径別長時間分解能連続観測手法を観測研究へ応用して得られた成果について述べる。

3. 弥栄における長距離輸送エアロゾル研究

長距離輸送エアロゾルの我が国の大気環境に対する影響を明らかにすることを目的に、国内汚染の影響が少ないと考えられる国設弥栄酸性雨測定所における長距離輸送エアロゾルの観測研究を実施した。この研究は、国立環境研究所の村野総合研究官、向井主任研究官から研究資機材の支援を受けて2001年11月30日に開始した。2001年12月には石炭燃焼粒子を主体とする小規模な越境汚染、2002年4月9～10日には人為起源汚染物質を伴う大規模な黄砂があり、2つのイベントの12時間毎の粒径別イオン成分および無機元素成分を観測して、化学成分の挙動や、元素濃度比の人為起源物質と黄砂の長距離輸送現象の指標としての有効性を報告した(日置ら、2006)。

本研究の公表以前には、大気環境学会等でも「黄砂時に人為起源汚染物質の濃度が高くなる」というような発表が散見されたが、本研究の成果として、人為起源汚染物質は大陸から単独で輸送される場合、黄砂とともに輸送される場合、黄砂に前後して輸送される場合があることが明らかとなった。

この観測手法は、1時間毎のエアロゾル採取も可能であり、ベータ線吸収法により得られた粒径別の質量濃度を参考にして、遡って任意の時刻を選択したうえで、粒径別のイオン成分および無機元素成分を効率良く分析できることを特徴としている。

成果は、エアロゾル研究誌に発表(日本エアロゾル学会2007年度論文賞を受賞)するとともに、大気環境学会年會等で口頭発表した。

4. 松山、大阪、つくばにおける同時観測研究

エアロゾルに関する越境大気汚染と地域汚染の影響を区別して評価することを目的として、2007年3月の14日間、松山、大阪およびつくばでTSPを採取し、Pb/Zn比、V/Mn比、La/Sm比およびLa/V比などの複数の金属元素濃度比を用いて解析した(日置ら、2009)。

松山で観測した高いPb/Zn比は北京市のTSPのPb/Zn比

と整合的であり、長距離輸送の影響と考えられた。松山で観測した高いV/Mn比はローカルな石油燃焼系発生源の影響と考えられたが、長距離輸送の影響を受けるケースでは低いV/Mn比が観測された。大阪ではV/Mn比が他の観測地点に比べて顕著に低く、廃棄物焼却や鉄鋼工業の影響が推定されたが、ローカルな土壌や多様な人為発生源の影響が輻射していると考えられた。つくばは土壌や地殻の元素濃度比に近く、変動も小さかったことから観測地点に影響を与える人為発生源が近傍に少ないか、または相当遠方において影響が平均化されていることにより、人為発生源の影響が観測されにくくなっていると推定された。

5. 弥栄、八幡における湿性降下物研究

人為起源汚染物質の長距離輸送の影響は、エアロゾルのみにとどまらず、降水にも大きな影響を与える。そのため、降水に対する長距離輸送の影響と地域汚染の影響とを個別に評価することを目的として、主に大陸からの大気汚染物質の長距離輸送の影響を受けると考えられる京都府丹後半島の弥栄町と、京都府南部および大阪平野等の地域汚染の影響を受けると考えられる京都府八幡市において2000年4月から1年間、同日降水を採取した。降水中のイオン種濃度、金属元素濃度、金属元素濃度比および鉛同位体比の観測結果に後方流跡線解析を適用し、降水成分に対する人為汚染物質や土壌元素の長距離輸送および地域汚染の影響を評価した(日置ら、2008)。

イオンバランスは弥栄、八幡ともにほぼ良好であったが、イオン種の当量濃度の総量は弥栄が八幡より大きくなっていた。また、内陸に立地する八幡に比べ弥栄では海水の影響が顕著であった。主たる発生源が人為起源と考えられる元素では、八幡および弥栄における濃度レベルおよび濃度変化が大きく異なり、土壌起源と考えられる元素では比較的一致していたことから、人為起源元素については大陸および朝鮮半島等からの長距離輸送に加えて地域的な発生源の影響を受けているものと考えられた。降水中のPb/Zn比、Sr/Mn比、Pb/Cd比およびV/Mn比を用いた解析により、弥栄では長距離輸送される大気汚染物質の影響が想定される場合、これらの濃度比が高くなることが観測された。また、八幡では都市大気エアロゾル中の金属元素濃度比と降水中の金属元素濃度比が整合的であった。気塊が中国中部や朝鮮半島を経由するときに弥栄で高い鉛同位体比が観測され、八幡では地域汚染の影響で鉛同位体比が低くなる傾向を示しており、これら金属元素濃度比や鉛同位体比の長距離輸送や地域汚染の指標としての有効性が明らかとなった。

6. 京都市内における粒径別長時間分解能観測研究

2008年から保健環境研究所屋上で観測機器としてベータ線吸収方式浮遊粉じん計(SPM-613D、紀本電子工業製)を用いた粒径別連続サンプリングを継続実施していたが、2009年12月26日には、24時間内に地域汚染、越境汚染、黄砂イベントが連続して出現するという希有な事象があった。

辻、日置(2013)は、このイベントについて京都市内でエ

アロゾル化学成分の粒径別高時間分解能観測を行い、黄砂と人為起源物質の越境輸送過程を検討した。観測機器としてSPM-613Dを用い、PM_{2.5}およびPM_{10-2.5}の二粒径に分けて1時間毎にPTFEテープろ紙に採取して、イオン成分と無機元素成分を定量分析した。気象データから、12月26日15時までに日本海を東進する低気圧から伸びた寒冷前線が通過したとみられた。12月26日15時までの4時間にSO₂、PM_{2.5}中の(NH₄)₂SO₄およびPb、PM_{10-2.5}中のNO₃を含む汚染気塊が飛来した。Pb/Zn比を利用した解析および後方流跡線解析により、この汚染気塊はSO₂排出地域とされる中国東部を経由したことがわかった。続いて、人為起源物質を多く含む汚染気塊と入れ替わるように、12月26日19時までに黄砂を主体とする気塊が飛来した。この時には、海塩粒子の変質(いわゆる、クロリンロス)がみられず、気塊の特性は大きく変化していた。エアロゾル化学成分の粒径別高時間分解能観測により、大陸から輸送された黄砂と人為起源物質の詳細な輸送過程を明らかにした。

7. 国立環境研究所と地方環境研究所とのⅡ型共同研究

国立環境研究所と全国環境研協議会は、2001年度から6期(各期3年)にわたりエアロゾルとオキシダントに関するⅡ型共同研究に取り組んできた。当所は、第1期から主要メンバーとして参画している。

2001年度に開始された第1期のテーマは、「西日本及び日本海側を中心とした地域における光化学オキシダント濃度の経年変動に関する研究」であり、2007年度(第3期)からは粒子状物質とオキシダントがテーマとなり、2013年度以降の第5期、第6期はPM_{2.5}に特化したテーマとなった。この間、2011～2013年度には、Ⅱ型研究を母体として環境省の環境研究総合推進費(課題番号5B-1101)により「全国環境研究機関の有機的連携によるPM_{2.5}汚染の実態解明と発生源寄与評価」を実施し、当所も日本海側に設置した大気エアロゾル化学成分連続自動分析装置(ACSA-08、紀本電子工業製)を用いた観測研究に参画した。

第6期では、当所が「輸送」サブグループのリーダーとなり、研究指導を行った。この中で、当所が開発した「エアロゾル主要成分の粒径別高時間分解能連続観測手法」を全国展開することを目的として、PM_{2.5}自動測定機のテープろ紙を用いた成分分析1時間値の分析精度を、標準サンプラーを用いた公定法の24時間値との並行試験により比較検討した(辻、日置、2018)。テープろ紙法は公定法と比べると積算流量が4%程度と少ないため、装置検出下限値は大幅に上昇することになるが、試料の面積が小さいために方法検出下限値が低下する成分も認められた。t検定や相関散布図を確認し、平均値の差が30%以内であれば一致性良好と判定したところ、イオン成分及び無機元素成分のうち、SO₄²⁻、NH₄⁺、K、V、Mn、Zn、As、Se、Sb、Ba、Ce、Pbは大気濃度が定量下限値を上回り、公定法との一致性も良好であることが確認できた。

この成果により、「エアロゾル主要成分の粒径別高時間分解能連続観測手法」をⅡ型研究の中で展開し、全国の地方環

境研に普及することが期待される。

おわりに

本稿では、京都府のPM_{2.5}常時監視および観測研究の歩みを概観してきたが、この他にも環境省大気環境課が設置する検討会への参画、環境省環境調査研修所の「大気分析研修」、日本環境技術協会主催の「環境大気常時監視技術講習会」への参画等、社会貢献活動にも取り組んできた。研究成果の社会への還元、という意味で特記しておきたい。

本稿の筆を置くに当たって、常時監視と観測研究の実施に関し多くの方々に直接的、間接的なご支援をいただいたことに感謝したい。

業績目録

【学会誌・専門誌】

- 1) 日置正, 中西貞博, 向井人史, 村野健太郎. 2006. 日本海沿岸で粒径別連続採取したエアロゾル中の水可溶性イオン種および微量金属成分による長距離輸送現象の解析 - 2002年春の黄砂イベントを中心に -. エアロゾル研究, 21 (2), 160 - 175.
- 2) 日置正, 中西貞博, 向井人史, 村野健太郎. 2008. 降水中微量金属元素濃度比と鉛同位体比による長距離輸送と地域汚染の解析. 大気環境学会誌, 43 (2), 100 - 111.
- 3) 日置正, 紀本岳志, 長谷川就一, 向井人史, 大原利貞, 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(2), 91 - 101.
- 4) 辻昭博, 日置正. 2013. 大気エアロゾル中のイオン成分および無機元素成分の粒径別高時間分解能観測による黄砂と人為起源物質の越境輸送の詳細解析. 大気環境学会誌 48 (3), 74 - 83.
- 5) 日置正. 2012. 京都府における微小粒子状物質 (PM_{2.5}) のモニタリング. 日中環境産業, 48 (10), 27 - 37.

【全国環境研会誌】

- 6) 河村秀一, 日置正, 藤波直人. 2009. 2007年度における京都府内のSPM高濃度事例の解析結果. 全国環境研会誌, 34 (1), 41 - 47.
- 7) 高倉尚枝, 日置正, 齋藤義弘, 谷口延子. 2016. 京都府における微小粒子状物質 (PM_{2.5}) 質量濃度とガス成分濃度について. 全国環境研会誌, 41 (4), 8 - 13.
- 8) 辻昭博, 日置正. 2018. PM_{2.5}自動測定機テープろ紙を用いた成分分析1時間値の分析精度 - 公定法との並行試験 -. 全国環境研会誌, 43 (1), 25 - 30.
- 9) 辻昭博, 大曲正祥, 野田悠介, 土肥正敬, 佐藤嵩拓, 菅田誠治. 2019. 北部九州及び山陰の離島で観測された2017年5月黄砂の粒径別化学特性. 全国環境研会誌, 44 (3), 56 - 62.

【京都府保健環境研究所年報】

- 10) 日置正, 江阪忍. 1991. 大気汚染物質の分布に関する研究(Ⅱ) - 浮遊粒子状物質の空間分布と組成の地域特性(1). 京都府保健環境研究所年報, 36, 100 - 106.
- 11) 日置正, 江阪忍. 1992. 大気汚染物質の分布に関する研究(Ⅲ) - 浮遊粒子状物質の空間分布と組成の地域特性(2). 京都府保健環境研究所年報, 37, 65 - 72.
- 12) 高倉尚枝, 谷口延子, 平澤幸代, 辻昭博, 日置正, 藤波直人. 2011. 丹後地域におけるSO₂, SPM高濃度事例の検討. 京都府保健環境研究所年報, 56, 65 - 71.
- 13) 高倉尚枝, 谷口延子, 平澤幸代, 日置正, 藤波直人. 2012. 京都府における微小粒子状物質(PM_{2.5})質量濃度. 京都府保健環境研究所年報, 57, 76 - 85.
- 14) 辻昭博, 日置正. 2012. 2010年12月3日における黄砂現象の1時間毎の化学特性解析. 京都府保健環境研究所年報, 57, 86 - 93.
- 15) 高倉尚枝, 谷口延子, 平澤幸代, 北野隆一, 日置正, 齋藤義弘. 2013. 京都府における微小粒子状物質(PM_{2.5})質量濃度(Ⅱ). 京都府保健環境研究所年報, 58, 51-55.
- 16) 高倉尚枝, 谷口延子, 大竹秀平, 辻昭博, 北野隆一, 日置正, 齋藤義弘. 2014. 京都府における微小粒子状物質(PM_{2.5})成分組成. 京都府保健環境研究所年報, 59, 63 - 70.
- 17) 高倉尚枝, 谷口延子, 平澤幸代, 日置正, 齋藤義弘. 2014. PM_{2.5}とPM_{10-2.5}の2粒径観測によるPM_{2.5}高濃度要因の推定. 京都府保健環境研究所年報, 59, 65 - 74.
- 18) 谷口延子, 高倉尚枝, 大竹秀平, 日置正. 2015. 大気常時監視データの因子分析によるPM_{2.5}高濃度要因の推定. 京都府保健環境研究所年報, 60, 51 - 56.
- 19) 辻昭博, 日置正, 齋藤義弘. 2015. 平成26年(2014年)2月25日~26日に発生したPM_{2.5}汚染におけるイオン成分及び無機元素成分の時空間挙動に基づく特性解析. 京都府保健環境研究所年報, 60, 57 - 64.
- 20) 辻昭博. 2016. 春季PM_{2.5}越境輸送の化学成分の連続観測 - 2014年4月中旬及び5月末の汚染事例 -. 京都府保健環境研究所年報, 61, 53 - 60.
- 21) 平澤幸代, 北野隆一, 齋藤義弘. 2017. 京都府南部地域における大気中のイソプレン及び α -ピネン濃度について. 京都府保健環境研究所年報, 62, 36 - 410.
- 22) 日置正, 中西貞博, 筒井剛毅. 2001. ベータ線吸収方式PM_{2.5}モニターのテープロ紙を利用した粒子状物質中微量金属成分分析. 第42回大気環境学会年会講演要旨集.
- 23) 中西貞博, 日置正, 筒井剛毅. 2001. ベータ線吸収方式PM_{2.5}モニターのテープロ紙を利用した粒子状物質中水可溶性成分分析. 第42回大気環境学会年会講演要旨集.
- 24) 日置正. 2002. ベータ線吸収方式PM_{2.5}モニターのテープロ紙を利用した粒子状物質の粒径別高時間分解能成分分析(全環研特別集会). 第43回大気環境学会年会講演要旨集.
- 25) 日置正, 中西貞博, 筒井剛毅, 向井人史, 村野健太郎. 2002. 日本海沿岸におけるエアロゾルの長期連続モニタリング(1) - 黄砂中の水可溶性成分の挙動 -. 第43回大気環境学会年会講演要旨集.
- 26) 日置正, 中西貞博, 筒井剛毅, 向井人史, 村野健太郎. 2002. 日本海沿岸におけるエアロゾルの長期連続モニタリング(2) - 黄砂中の金属成分の挙動 -. 第43回大気環境学会年会講演要旨集.
- 27) 中西貞博, 日置正. 2002. ベータ線吸収方式PM_{2.5}モニターのテープロ紙を利用した粒子状物質中多環芳香族炭化水素類の分析. 第43回大気環境学会年会講演要旨集.
- 28) 日置正, 中西貞博, 長谷川就一, 若松伸司. 2004. 2003年春季関西地区における大気汚染の立体分布観測(4) - 粒径別エアロゾル中の微量金属成分 -. 第45回大気環境学会年会講演要旨集.
- 29) 中西貞博, 筒井剛毅, 日置正, 向井人史. 2004. 日本海沿岸におけるエアロゾルの長期連続モニタリング(4) - 長距離輸送経路と硫酸及び硝酸の中和機構の違い -. 第45回大気環境学会年会講演要旨集.
- 30) 日置正. 2006. 長距離輸送現象のトレーサーとしてのエアロゾル中金属濃度比 - 2002年の黄砂イベントを中心に -. 第47回大気環境学会年会講演要旨集.
- 31) 日置正. 2007. 大阪における大気エアロゾルの総合観測 - 粒径別金属成分濃度の日内変動と季節変動 -. 第48回大気環境学会年会講演要旨集.
- 32) 日置正, 紀本岳志, 長谷川就一, 大原利真, 向井人史, 若松伸司. 2008. 松山, 大阪, つくばで同時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の解析(招待講演). 第25回エアロゾル科学・技術研究討論会講演要旨集.
- 33) 日置正. 2008. 大阪における大気エアロゾルの総合観測 - 粒径別金属元素濃度比の日内変動と季節変動. 第49回大気環境学会年会講演要旨集.
- 34) 日置正, 紀本岳志, 長谷川就一, 大原利真, 向井人史, 若松伸司. 2009. 大阪で観測したエアロゾルの粒径別元素濃度比による長距離輸送と地域汚染特性の解析. 第26回エアロゾル科学・技術研究討論会講演要旨集.
- 35) 日置正. 2009. 京都府の有害大気汚染物質モニタリングで観測された長距離輸送現象. 第50回大気環境学会年会講演要旨集.
- 36) 辻昭博. 2009. バーチャルインパクターのテープロ紙とニールインパクターの円形ろ紙で採取された粒径別エアロゾルの水溶性成分の比較. 第50回大気環境学会年会講演要旨集.
- 37) 日置正, 村野健太郎, 向井人史. 2010. 粒径別元素濃度

【学会講演・口頭発表】

- 22) 日置正, 中西貞博, 筒井剛毅. 2001. ベータ線吸収方式PM_{2.5}モニターのテープロ紙を利用した粒子状物質中微量金属成分分析. 第42回大気環境学会年会講演要旨集.
- 23) 中西貞博, 日置正, 筒井剛毅. 2001. ベータ線吸収方式PM_{2.5}モニターのテープロ紙を利用した粒子状物質中水可溶性成分分析. 第42回大気環境学会年会講演要旨集.
- 24) 日置正. 2002. ベータ線吸収方式PM_{2.5}モニターのテープロ紙を利用した粒子状物質の粒径別高時間分解能成分分析(全環研特別集会). 第43回大気環境学会年会講演要旨集.
- 25) 日置正, 中西貞博, 筒井剛毅, 向井人史, 村野健太郎. 2002. 日本海沿岸におけるエアロゾルの長期連続モニタリング(1) - 黄砂中の水可溶性成分の挙動 -. 第43回大気環境学会年会講演要旨集.
- 26) 日置正, 中西貞博, 筒井剛毅, 向井人史, 村野健太郎. 2002. 日本海沿岸におけるエアロゾルの長期連続モニタリング(2) - 黄砂中の金属成分の挙動 -. 第43回大気環境学会年会講演要旨集.
- 27) 中西貞博, 日置正. 2002. ベータ線吸収方式PM_{2.5}モニターのテープロ紙を利用した粒子状物質中多環芳香族炭化水素類の分析. 第43回大気環境学会年会講演要旨集.
- 28) 日置正, 中西貞博, 長谷川就一, 若松伸司. 2004. 2003年春季関西地区における大気汚染の立体分布観測(4) - 粒径別エアロゾル中の微量金属成分 -. 第45回大気環境学会年会講演要旨集.
- 29) 中西貞博, 筒井剛毅, 日置正, 向井人史. 2004. 日本海沿岸におけるエアロゾルの長期連続モニタリング(4) - 長距離輸送経路と硫酸及び硝酸の中和機構の違い -. 第45回大気環境学会年会講演要旨集.
- 30) 日置正. 2006. 長距離輸送現象のトレーサーとしてのエアロゾル中金属濃度比 - 2002年の黄砂イベントを中心に -. 第47回大気環境学会年会講演要旨集.
- 31) 日置正. 2007. 大阪における大気エアロゾルの総合観測 - 粒径別金属成分濃度の日内変動と季節変動 -. 第48回大気環境学会年会講演要旨集.
- 32) 日置正, 紀本岳志, 長谷川就一, 大原利真, 向井人史, 若松伸司. 2008. 松山, 大阪, つくばで同時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の解析(招待講演). 第25回エアロゾル科学・技術研究討論会講演要旨集.
- 33) 日置正. 2008. 大阪における大気エアロゾルの総合観測 - 粒径別金属元素濃度比の日内変動と季節変動. 第49回大気環境学会年会講演要旨集.
- 34) 日置正, 紀本岳志, 長谷川就一, 大原利真, 向井人史, 若松伸司. 2009. 大阪で観測したエアロゾルの粒径別元素濃度比による長距離輸送と地域汚染特性の解析. 第26回エアロゾル科学・技術研究討論会講演要旨集.
- 35) 日置正. 2009. 京都府の有害大気汚染物質モニタリングで観測された長距離輸送現象. 第50回大気環境学会年会講演要旨集.
- 36) 辻昭博. 2009. バーチャルインパクターのテープロ紙とニールインパクターの円形ろ紙で採取された粒径別エアロゾルの水溶性成分の比較. 第50回大気環境学会年会講演要旨集.
- 37) 日置正, 村野健太郎, 向井人史. 2010. 粒径別元素濃度

- 比による長距離輸送エアロゾルの起源の推定 - 2002年春の黄砂イベント - . 第51回大気環境学会年会講演要旨集.
- 38) 辻昭博, 日置正. 2010. β 線式自動粉じん計とニールサンプリャーで採取されたPM_{2.5}及びPM_{10-2.5}のイオン成分の比較. 第51回大気環境学会年会講演要旨集.
- 39) 辻昭博, 日置正. 2010. 黄砂飛来時に1時間毎に採取されたPM_{2.5}及びPM_{10-2.5}のイオン成分分析. 第51回大気環境学会年会講演要旨集.
- 40) 谷口延子, 高倉尚枝, 平澤幸代, 日置正. 2010. 京都府大気常時監視データを用いた越境大気汚染のスクリーニング. 第51回大気環境学会年会講演要旨集.
- 41) 日置正. 2011. 関西地域で観測した長距離輸送エアロゾルの無機元素から見た化学像(全環研特別集会). 第52回大気環境学会年会講演要旨集.
- 42) 日置正, 国立環境研究所II型共同研究グループ. 2011. 大気エアロゾル中の無機元素のICP-MS分析と元素濃度比による起源の推定(都市大気エアロゾル分科会). 第52回大気環境学会年会講演要旨集.
- 43) 辻昭博, 日置正. 2011. 黄砂飛来時の水銀とエアロゾル中イオン成分の高時間分解能観測. 第52回大気環境学会年会講演要旨集.
- 44) 日置正, 環境研究総合推進費B-1101グループ. 2012. 2012年1月中旬に観測されたPM_{2.5}高濃度イベントにおける無機元素の挙動. 第53回大気環境学会年会講演要旨集.
- 45) 谷口延子, 日置正, 佐川竜也, 山本重一, 菅田誠治, 大原利眞. 2012. 隠岐及び京丹後における大気エアロゾル化学成分自動連続分析結果について. 第53回大気環境学会年会講演要旨集.
- 46) 日置正, 谷口延子, 菅田誠治. 2014. 無機元素をトレーサーとした日本海沿岸域におけるPM_{2.5}の越境汚染の解析. 第55回大気環境学会年会講演要旨集.
- 47) 辻昭博, 日置正. 2014. 無機元素の粒径別高時間分解能観測による局地汚染、越境汚染、黄砂の詳細解析. 第55回大気環境学会年会講演要旨集.
- 48) 辻昭博. 2015. Pb/Zn比の粒径別高時間分解能観測によるエアロゾルの越境輸送解析(全環研特別集会). 第56回大気環境学会年会講演要旨集.
- 49) 辻昭博, 向井人史, 橋本茂, 日置正. 2015. 波照間島における越境輸送エアロゾルの粒径別化学特性とPb/Zn比による起源解析. 第56回大気環境学会年会講演要旨集.
- 50) 辻昭博, 日置正. 2015. 平成26年2月25日~26日に発生したPM_{2.5}汚染におけるイオンと無機元素の時空間挙動に基づく特性解析. 第56回大気環境学会年会講演要旨集.
- 51) 辻昭博, 山本重一, 家合浩明, 三田村徳子, 石井克巳, 日置正, 向井人史, 菅田誠治. 2016. Sulfate/V比とAs/V比の二次元プロット法によるSulfateの起源の推定. 第57回大気環境学会年会講演要旨集.
- 52) 辻昭博, 三田村徳子, 野田悠介, 土肥正敬, 河野公亮, 家合浩明, 船木大輔, 日置正, 菅田誠治. 2017. PM_{2.5}自動測定機テープろ紙を用いた無機元素の多地点・高時間分解能観測による冬季の越境輸送過程の詳細解析. 第58回大気環境学会年会講演要旨集.
- 53) 辻昭博, 三田村徳子, 山本勝彦, 日置正, 菅田誠治. 2017. PM_{2.5}自動測定機テープろ紙を用いた夏季の都市-郊外間の人為起源エアロゾルの輸送過程の連続観測. 第58回大気環境学会年会講演要旨集.
- 54) 辻昭博. 2018. テープろ紙を用いたPM_{2.5}無機成分測定の実験精度とネットワーク観測(都市大気エアロゾル分科会). 第59回大気環境学会年会講演要旨集.
- 55) 辻昭博, 大曲正祥, 土肥正敬, 佐藤高拓, 菅田誠治. 2018. 2017年5月に九州北部及び山陰の離島で観測された黄砂粒径別無機成分濃度. 第59回大気環境学会年会講演要旨集.
- 56) 平澤幸代, 浅川大地, 池盛文数, 阿部敦子, 熊谷貴美代, 武田麻由子, 田和佑脩, 阪井裕貴, 吉田天平, 中川修平, 菅田誠治. 2018. PM_{2.5}中の有機指標物質測定法の精度管理調査. 第59回大気環境学36回年会講演要旨集.