

# 山口県における微小粒子状物質(PM<sub>2.5</sub>)中のケイ素(Si) (第 2 報)

環境科学部 三戸一正, 今富幸也, 川本長雄, 長田健太郎, 佐野武彦

The Si concentration of PM<sub>2.5</sub> collected in Yamaguchi Prefecture (II)

Kazumasa MITO, Yukiya IMATOMI, Nagao KAWAMOTO, Kentaro OSADA, Takehiko SANŌ

Yamaguchi Prefectural Institute of Public Health and Environment

## 1 はじめに

PM<sub>2.5</sub> 中の Si 濃度については、「微小粒子状物質 (PM<sub>2.5</sub>)の成分分析ガイドライン」について (環水大大発第 110729001 号, 平成 23 年 7 月 29 日) において, 測定が望まれる実施推奨項目とされている。また, Si は土壌成分の一つであり<sup>1)</sup>, 発生源に関する有益な情報を提供してくれる項目であると想定される。ただし, Si を測定するためには蛍光 X 線分析装置等が必要なため, 実際には測定を行っている自治体は少ない。当所も Si を測定するための装置を所有していないが, 地方独立行政法人山口県産業技術センター所有の蛍光 X 線分析装置を使用できる状況であったので, Si の測定について検討した<sup>2, 3)</sup>。今回は, 平成 24 年度から 26 年度までの 3 年間の結果についてまとめたので報告する。

## 2 方法

PM<sub>2.5</sub> の成分測定用の試料採取は, 山口県の瀬戸内海側に位置する周南市役所(周南, 一般環境の地点)と日本海側に位置する山口県萩健康福祉センター(萩, 対照地点)で, PTFE ろ紙(PTFE 46.2 mm Filter, PP RING SUPPORTED, Whatman)を用いて行った(図 1)。

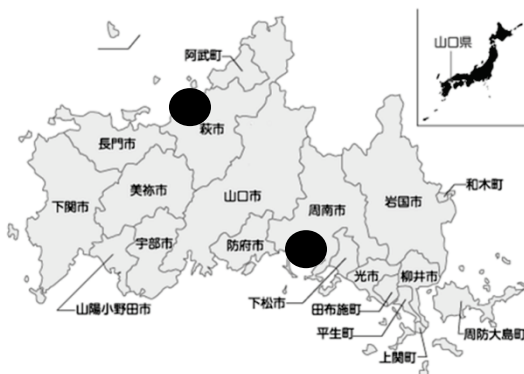


図 1 採取地点(●の位置が試料採取地点)

試料採取期間は, 平成 24 年度から平成 26 年度の 3 年間であり, 周南市役所及び山口県萩健康福祉センターの協力を得て 24 時間ごとの連続サンプリングを実施した(表 1)。

PM<sub>2.5</sub> 中の成分測定については, 環境省の大気中微小粒子状物質(PM<sub>2.5</sub>)成分測定マニュアルに基づき, ICP-MS (7500 cx, Agilent), エネルギー分散型蛍光 X 線分析装置(M4 TORNADO, BRUKER AXS)を利用した。Si の検量線用の標準試料としては, 大橋ら<sup>4)</sup>と同じく NIST SRM 2783 を用いた。PM<sub>2.5</sub> 質量濃度については, 環境大気常時監視マニュアル(第 6 版)(平成 22 年 3 月環境省)に基づき, 精密天秤 (XP26, METTLER TOLEDO) を使用した。風速, 及び浮遊粒子状物質(SPM)の値については, 山口県大気汚染常時監視システムのものを使用した。なお, 平均値の算出の際に, 検出下限値未満の値については, 検出下限値の 1/2 の値を使用した。

表 1 PM<sub>2.5</sub> の成分測定用の試料採取期間

	24 年度	25 年度	26 年度
春	5/8 ~ 5/22	5/9 ~ 5/23	5/8 ~ 5/22
夏	7/26 ~ 8/9	7/24 ~ 8/7	7/23 ~ 8/6
秋	10/23 ~ 11/6	10/23 ~ 11/6	10/22 ~ 11/5
冬	1/16 ~ 1/30	1/22 ~ 2/5	1/21 ~ 2/4

### 3 結果と考察

#### (1) Si の測定結果の比較

PM<sub>2.5</sub> 中の Si の年度平均値については、周南では 340 ng/m<sup>3</sup> 程度、萩では 160ng/m<sup>3</sup> 程度であった(図 2)。周南と萩を比較すると、周南の平均値が高くなる傾向が示された。また、この 3 年間の季節別の平均値については、周南、萩ともに春季に濃度が比較的高濃度になる傾向が示された(図 3)。春季の平均値が比較的高濃度になる現象は、平成 24 年度に横浜、加古川、福岡においてもみられており<sup>5)</sup>、気象条件の影響を受けているものと推察された。夏季は比較的低濃度になる傾向がみられたが、平成 25 年度の周南の平均値のみは傾向が異なっており、比較的高濃度になっていた(図 4~6)。この原因を特定することはできていないが、平成 25 年夏の周南では西方向からの風が比較的强大という特徴がみられており(図 7)、今後も注目していきたいと考えている。

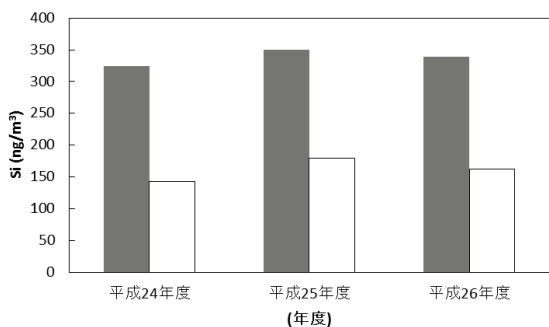


図 2 年度平均値(■周南, □萩)

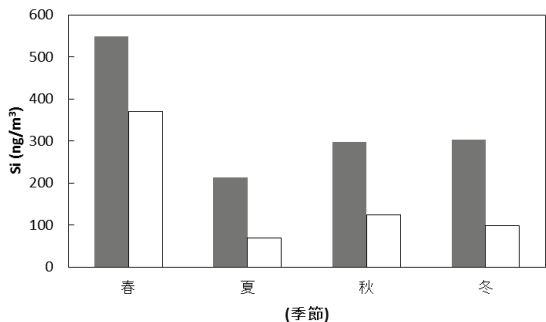


図 3 対象期間中の季節別平均値(■:周南, □:萩)

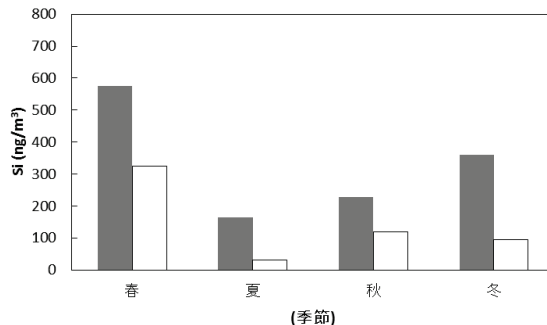


図 4 平成 24 年度の季節別平均値(■:周南, □:萩)

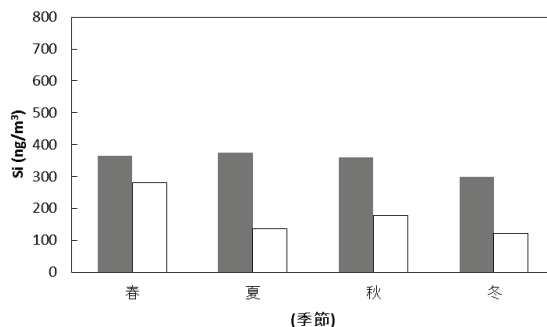


図 5 平成 25 年度の季節別平均値(■:周南, □:萩)

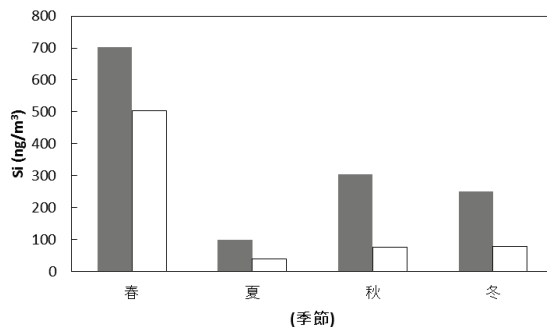


図 6 平成 26 年度の季節別平均値(■:周南, □:萩)

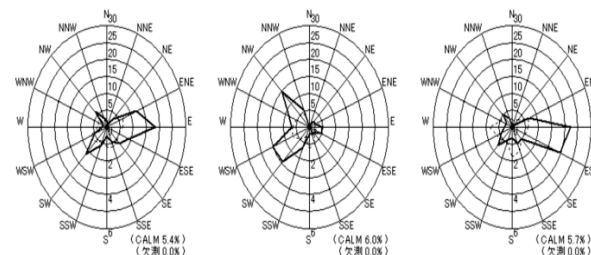


図 7 夏季の周南の風配図

(左から、平成 24 年度、25 年度、26 年度の対象期間のもの。)

(2) Si の高濃度事例

ア 平成 24 年 5 月の事例

平成 24 年 5 月 16 日から 18 日にかけて、Si 濃度が高濃度になっていた(表 2)。Si は土壌の主要成分の一つなので、風速が強いと風による土壌の巻き上げにより濃度が上昇することが想定される。そこで、平成 24 年 5 月 16 日から 18 日の風速について確認したが、それぞれの地点において比較的強い時ではなかったため、風による土の巻き上げ以外に主要因があるものと推察された(表 3, 図 8, 図 9)。また、Si は黄砂飛来時に高濃度になることが知られているので<sup>6)</sup>、気象庁の黄砂観測結果を調べてみたが、この期間に近隣の黄砂観測地点(下関地方気象台)において黄砂の報告はなされていなかった<sup>7)</sup>。ただ、煙霧については、萩特別地域気象観測所で観測されていた<sup>7)</sup>。平成 24 年 5 月 16 日から 18 日にかけての PM<sub>2.5</sub> は、年度平均値より高濃度になっており(表 4)、Si についても同様に、煙霧により高濃度になった可能性があると推察された。

イ 平成 25 年 5 月の事例<sup>5)</sup>

平成 25 年 5 月 12 日から 13 日にかけて、Si 濃度が高濃度になっていた(表 2)。この事例でも上記アと同様に、煙霧により高濃度になった可能性があると推察された(表 3, 表 4, 図 10, 図 11)。

ウ 平成 26 年 5 月の事例<sup>8)</sup>

平成 26 年 5 月 17 日から 20 日にかけて、Si 濃度が高濃度になっていた(表 2)。この事例でも、風速と黄砂については上記アと同様であったが(表 3, 図 12, 図 13)、この期間は、下関地方気象台及び萩特別地域気象観測所で煙霧の報告はなかった<sup>7)</sup>。Si が高濃度になった要因を特定することはできていないが、同時期に山口県内の測定局で浮遊粒子状物質(SPM)濃度の上昇がみられており、何らかの広域的な汚染があったものと考えている(図 14)。なお、図 14 では 5 月下旬にも SPM 濃度が上昇しているが、この時期は近隣の黄砂観測地点(下関地方気象台)において黄砂の報告がなされており<sup>7)</sup>、黄砂の影響により濃度が上昇したものと考えている。

表 2 高濃度事例時の Si 濃度(ng/m<sup>3</sup>)

	周南	萩
平成 24 年 5 月 16 日～17 日	930	1500
平成 24 年 5 月 17 日～18 日	1700	480
平成 25 年 5 月 12 日～13 日	680	730
平成 26 年 5 月 17 日～18 日	1900	820
平成 26 年 5 月 18 日～19 日	1300	1400
平成 26 年 5 月 19 日～20 日	1700	1700

表 3 高濃度事例時の風速(m/s)

	周南	萩
平成 24 年 5 月 16 日～17 日	0.6	2.7
平成 24 年 5 月 17 日～18 日	1.3	2.8
平成 25 年 5 月 12 日～13 日	0.4	2.3
平成 26 年 5 月 17 日～18 日	0.5	1.5
平成 26 年 5 月 18 日～19 日	0.8	0.9
平成 26 年 5 月 19 日～20 日	1.2	2.6

表 4 高濃度事例時の PM<sub>2.5</sub>(μg/m<sup>3</sup>)

	周南	萩
平成 24 年 5 月 16 日～17 日	32.0	49.0
平成 24 年 5 月 17 日～18 日	24.9	27.1
平成 24 年度平均値	16.7	14.5
平成 25 年 5 月 12 日～13 日	51.3	43.1
平成 25 年度平均値	21.1	19.6

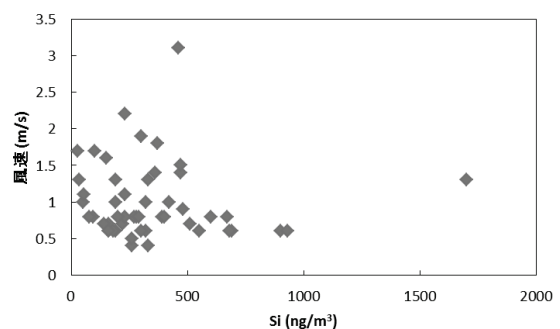


図 8 周南の平成 24 年度の Si と風速(n=50)

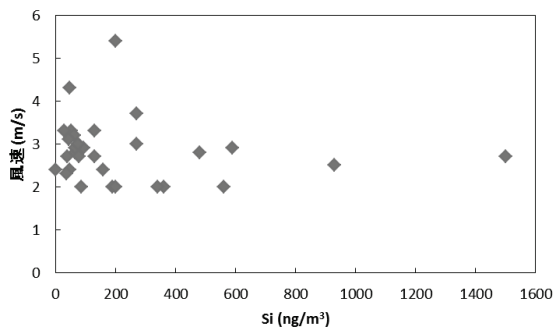


図9 萩の平成24年度のSiと風速(n=31)

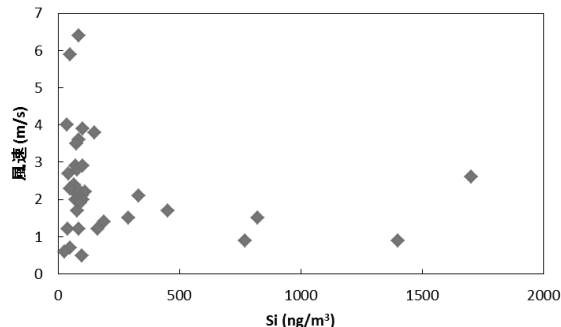


図13 萩の平成26年度のSiと風速(n=37)

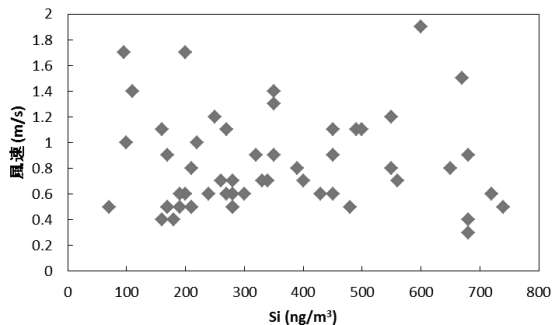


図10 周南の平成25年度のSiと風速(n=54)

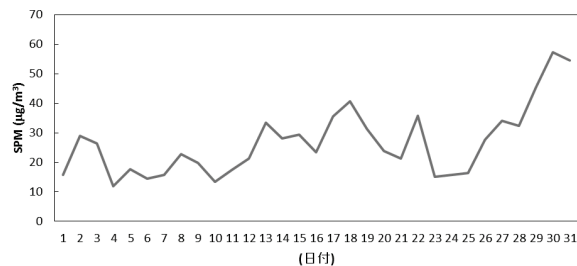


図14 平成26年5月のSPM(山口県平均)  
山口県平均を算出する際に使用した測定局は29局である。

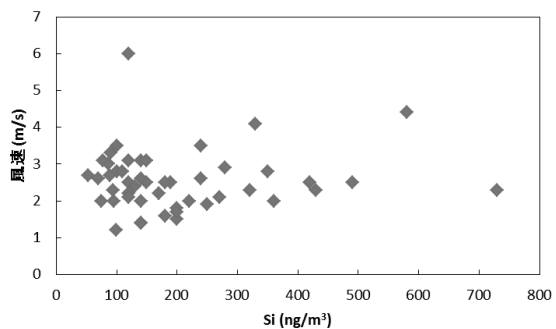


図11 萩の平成25年度のSiと風速(n=48)

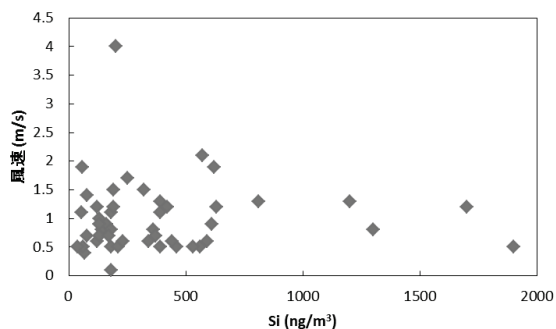


図12 周南の平成26年度のSiと風速(n=50)

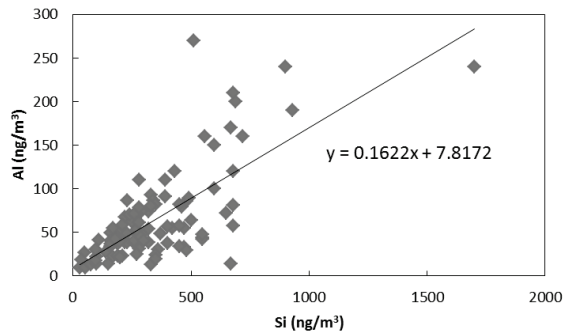


図15 周南のSiとAlの散布図(n=100)

### (3) Al との関係

土壌の指標成分の例として、Al が挙げられている<sup>9)</sup>。そこで、Al と Si の直線的な関係の程度を確認するために、平成24年度と平成25年度の結果を利用して、散布図を作成した(図15, 図16)。散布図を作成したところ、比例関係になる傾向がみられ、ピアソンの積率相関係数(r)は周南では0.72(n=100)であり、萩では0.90(n=72)であった。ただし、回帰直線から大きく外れている試料があることや、地点によっても回帰直線の傾きが異なることから、一律にAlの値に係数を乗じてSiの値を推定することは、妥当ではないと考えられた。

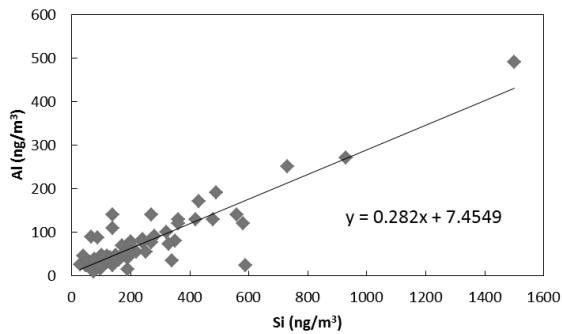


図 16 萩の Si と Al の散布図(n=72)

#### 4 まとめ

山口県では、PM<sub>2.5</sub> の成分測定用試料の採取を周南と萩で実施している。山口県における PM<sub>2.5</sub> 中の Si についてまとめたところ、以下のことが示された。

- ・ 萩より周南の値が高い傾向にある。
- ・ 山口県以外の測定地点と同じく、春季に比較的高濃度になる傾向がある。
- ・ 平成 24 年 5 月 16 日から 18 日と、平成 25 年 5 月 12 日から 13 日に、煙霧の影響を受けて、Si 濃度が高くなった可能性が推察された。
- ・ PM<sub>2.5</sub> 中の Al の値に係数を乗じて、PM<sub>2.5</sub> 中の Si の値を推定することは妥当ではないと考えられた。

Si は土壌の主要成分であり、発生源に関する有益な情報を提供してくれる成分であると考えられる。これまで自治体ではあまり測定されてこなかった成分でもあり、今後も継続的に測定を実施したいと考えている。

#### 謝辞

本調査を実施するにあたって、慶應義塾大学の奥田専任講師、地方独立行政法人山口県産業技術センターの小川専門研究員から多大なご助言をいただきました。ここに記して感謝の意を表します。

#### 文献

- 1) McLennan, S. M. : Relationships between the trace element composition of sedimentary rocks and upper continental crust, *Geochemistry, Geophysics, Geosystems* (2001)
- 2) 三戸, 川本, 長田 : 山口県における微小粒子状物質 (PM<sub>2.5</sub>) 中のケイ素の測定について, 第 55 回大気環境学会年会講演要旨集, 465(2014)

- 3) 三戸, 川本, 長田, 今富, 河野 : 山口県における微小粒子状物質 (PM<sub>2.5</sub>) 中のケイ素 (Si), 山口県環境保健センター所報, 56, 55-57(2015)
- 4) 大橋, 内藤, 石井, 市川 : 蛍光 X 線分析法を用いた PM<sub>2.5</sub> の成分測定, 平成 24 年度千葉県環境研究センター年報
- 5) 三戸, 今富, 川本, 長田 : 山口県萩市における微小粒子状物質 (PM<sub>2.5</sub>) 中のケイ素 (Si) について, 大気環境学会中国四国支部発表会講演要旨集, 22-25(2015)
- 6) M. Kasahara, K.-C. Choi and K. Takahashi: Elemental composition of atmospheric aerosols collected during episodic air pollution events in Japan, *International Journal of PIXE*, Vol.2, No.4, 665-678 (1992)
- 7) 気象庁: 各種データ・資料 <http://www.jma.go.jp/jma/menu/menureport.html> (2015.2.17 アクセス)
- 8) 三戸, 今富, 長田 : 平成 26 年における微小粒子状物質 (PM<sub>2.5</sub>) 中のケイ素 (Si) について, 山口県環境衛生職員業務研究発表集録, 55, 33-34(2015)
- 9) 環境省 : 大気中微小粒子状物質 (PM<sub>2.5</sub>) 成分測定マニュアルの策定について (通知) (環水大発第 120419002 号, 環水大自発第 120419001 号, 平成 24 年 4 月 19 日) 【参考資料】
- 10) 奥田, 鳩谷 : ファンダメンタルパラメーター法を用いた EDXRF による PM<sub>2.5</sub> の非破壊多元素同時分析法の開発, *Eaorozoru Kenkyu*, 28(3), 214-221(2013)
- 11) 齊藤, 長谷川, 伏見, 藤谷, 高橋, 小林, 田邊, 若松 : 沿道大気中における微小粒子状物質 (PM<sub>2.5</sub>) の化学成分特徴と経時的挙動, 大気環境学会誌, Vol.46, No.3, 164-171(2011)