

大阪市における大気中微小粒子状物質(PM_{2.5})濃度及び組成の10年間の変遷

浅川 大地

Changes in the concentration and the composition of fine particulate matter (PM_{2.5}) in the atmosphere at Osaka City for the past 10-year period

ASAKAWA Daichi

Abstract

Local governments have monitored the chemical composition of airborne fine particulate matter (PM_{2.5}) for about 10 years under the Japanese Air Pollution Control Act. The accumulated chemical data is expected to analyze in detail to understand the regional characteristics of PM_{2.5}, the temporal trend of its sources, and the effectiveness of policies for PM_{2.5} reduction. Prior to the detailed analysis, this report gives an overview of trend of the mass concentration and the chemical composition of PM_{2.5} for the past 10 years. The PM_{2.5} concentrations in Osaka city and other regions in Japan have been decreasing. The PM_{2.5} concentrations in Osaka city have been higher than the average concentration in the Kinki region by about 2–3 µg/m³ during 2010–2019 (fiscal year). In addition, interannual changes in the chemical composition of PM_{2.5} suggested the decline of the impact of transboundary air pollution from mainland China over the past 10 years and the effects of the tightening of marine fuel oil regulations in 2020. Detailed analysis, including source analysis, will be conducted in the future for a quantitative evaluation of the PM_{2.5} features.

Key words: Fine Particulate Matter; PM_{2.5}; Chemical Composition; Transboundary Air Pollution, Marine Fuel Oil Regulation

I はじめに

2010年に大気中微小粒子物質(PM_{2.5})の環境基準値が設定され、大気汚染防止法 22 条(常時監視)に基づき、全国の自治体で PM_{2.5} 質量濃度のモニタリングが始まった。また、効果的な削減対策の検討や PM_{2.5} の挙動や発生源の解析に資するために、成分分析の実施も常時監視に盛り込まれた。成分分析によって、地域ごとの PM_{2.5} の特徴を把握することや、発生源の経年的な推移、削減対策の効果検証を行うことが期待されている。

大阪市においては、2011 年の秋季から PM_{2.5} 成分分析を開始しており、昨年度(2021 年度)までに約 10 年間の成分分析データが蓄積されている。そこで、本報告では過去 10 年間の PM_{2.5} 質量濃度と成分分析データについて、今後の詳細な解析に向けて、全国の観測結果と比較して長期的な変遷を俯瞰する。

から取得した。データ取得期間は、データが公開されている 2010 年度から 2019 年度までとした。得られた月間値を 6 つの地域区分(東北・北海道、関東、中部、近畿、中国・四国、九州・沖縄)ごとに平均化した。大阪市の測定値は別途抽出して平均化した。本研究で使用した全国の測定局数は 10 年間で 73 地点から 1103 地点に増加しており、大阪市内の測定局数は 2010 年に 3 地点で、2019 年に 13 地点であった。

大阪市の日別の PM_{2.5} 濃度を算出するために、上記と同じデータベースから 1 時間値を取得した。欠測値はすべて無視して、大阪市の全測定局の 1 時間値を日別に平均化して、日別値を算出した。次に、春季(4～6 月)、夏季(7～9 月)、秋季(10～12 月)、冬季(1～3 月)の季節ごとの日別濃度の分布を示すために、最小値と最大値、四分位濃度を抽出した。同様に、各季節の成分分析期間(14 日間)の日別濃度の分布を調べた。

II 方法

1) PM_{2.5} 質量濃度

自動測定機で測定された全国の PM_{2.5} 質量濃度月間値を国立環境研究所の大気常時監視データベース[1]

2) PM_{2.5} 成分分析データ

成分分析データの解析期間は、大阪市内で四季の測定を開始した 2012 年度から 2021 年度の 10 年間とした。全国の成分分析データは環境省の HP[2]から取得した

が、本報告執筆時点では 2020 年度分までしか公開されていないため、2012 年度から 2020 年度の 9 年間のデータを利用した。大阪市の 2021 年度のデータは大阪市環境局環境管理課より提供を受けた。取得したデータを 1) と同様の地域区分ごとに季節平均値を算出した。ただし、国内の人為的汚染影響の対照として環境省が離島や山間部、岬で実施したバックグラウンド地域のデータは別途抽出して平均値を算出した。平均値の算出にあたり、欠測値は無視し、検出下限値未満の測定値は検出下限値に置換した。

II 結果と考察

1) 大阪市と他地域の PM_{2.5} 質量濃度

大阪市と地域区分ごとの PM_{2.5} 質量濃度の月間値を図 1 に示す。いずれの地域においても、2010 年度から 2019 年度にかけて PM_{2.5} 質量濃度の減少傾向が見られた。東北・北海道地域と中部地域は PM_{2.5} 質量濃度が比較的低い傾向があり、九州・沖縄地域と中国・四国地域は高い傾向があった。九州・沖縄地域と東北・北海道地域との PM_{2.5} 質量濃度年間値の差は、2010～2012 年度は 4.4～6.7 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であったが、2017～2019 年度は 4.0～4.8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ に縮小していた。中国大陸からの越境移流の影響を受けやすい九州・沖縄地域で PM_{2.5} 質量濃度の減少幅が大きかったことから、越境移流の影響が低減したことが示唆された。

大阪市は近畿地域の平均値よりも PM_{2.5} 質量濃度が高い傾向が見られ、都市汚染の影響があると考えられた。近畿地域の平均値と大阪市の年間値の差は、解析期間中を通じて約 2～3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。PM_{2.5} の環境基準値は、1 年平均値が 15 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下であり、かつ、1 日平均値が 35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下であることとされている。2019 年度の大阪市の PM_{2.5} の環境基準達成率は 100% であったが、2020 年度は 86% であった[3]。近年の濃度低下傾向が継続すれば、大阪市では PM_{2.5} の環境基準が達成されると見込まれる。ただし、世界保健機関は健康影響に関する最新の知見を基に global air quality guidelines を 2021 年に改訂して、PM_{2.5} の勧告値を 1 日平均値 15 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、年平均値 5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ に引き下げた[4]。また、持続可能な開発目標(SDGs)の Goal 11(住み続けられるまちを)のターゲット 11.6.2 として、PM_{2.5} 年平均値(人口加重平均値)が挙げられている。こうした状況から、特に都市部の PM_{2.5} については今後も注視が必要であると考えられる。

2) 成分分析期間の季節代表性

自治体による PM_{2.5} 成分分析は、四季ごとに 14 日間ずつの測定を行うこととされている。すなわち、14 日間の測定値で各季節の成分濃度を評価しているが、大気汚染状況は日々変化するため、14 日間で十分に季節代

表性を担保できるかは不明である。季節代表性について検証するために、各季節と成分分析期間における PM_{2.5} 質量濃度分布を比較した(図 2)。両期間の四分位範囲と中央値が近ければ、14 日間の測定期間が季節代表性を有すると考えることができる。しかし、図 2 に示したように両期間の PM_{2.5} 質量濃度分布に差が見られることも多かった。特に、比較的高濃度事象が多かった期間前半は、成分分析期間に高濃度日を含むかどうかで、季節代表性に影響があったと推測された。この点に留意して、長期的な傾向を把握する場合には、1 地点のデータのみでなく、複数地点のデータを加味した解析が有効であると考えられた。

3) 大阪市と他地域の PM_{2.5} 成分濃度

図 3～図 8 に PM_{2.5} 主要成分濃度の経時変化を示す。大阪市では、一般環境大気測定局(一般局)と自動車排出ガス測定局(自排局)の各 1 地点で PM_{2.5} 成分分析を実施している。これら 2 地点の成分濃度を比較すると、元素状炭素(図 7)とバナジウム(図 8)以外の成分濃度はほぼ同等であった。元素状炭素濃度とバナジウム濃度は自排局の方が高濃度の傾向が見られたが、近年はその差は縮小していた。地域区分ごとの成分濃度を見ると、硫酸イオン濃度とアンモニウムイオン濃度はバックグラウンド地域と他地域との差が小さく、その他の成分濃度に関してはバックグラウンド地域で低濃度の傾向が見られた。

硫酸イオン濃度(図 3)とアンモニウムイオン濃度(図 5)は全国的に漸減傾向であった。国内外で硫黄酸化物の排出量が減少して、硫酸アンモニウム粒子が削減されていることが示唆された。特に、九州・沖縄地方やバックグラウンド地域において硫酸イオン濃度の低下が比較的確著であったことから、中国大陸からの越境輸送の寄与が低下していることが支持された。また、硫酸イオンが減少したために、カウンターパートのアンモニアのガス態濃度が増大している可能性がある。

硝酸イオン濃度(図 4)は、硝酸アンモニウムの揮発性のために、夏季に低濃度で冬季に高濃度になる明瞭な季節変動が見られた。東北・北海道や中部地域では、冬季の硝酸イオン濃度が減少傾向にあるように見えた。一方で、大阪市を含む他の地域では、長期的な減少傾向は見られなかった。

有機炭素と元素状炭素は PM_{2.5} 質量濃度に占める割合も高く、主要な構成成分である。バックグラウンド地域を除く地域では、有機炭素濃度(図 6)は漸減から横ばいであり、大阪市の有機炭素濃度は他地域と同程度の水準であった。それに対して、元素状炭素濃度(図 7)は減少傾向がより明瞭であった。大阪市の一般局と自排局の元素状炭素濃度を比較すると、自排局の方が高濃度の傾向があり、近年は両局間の差が縮小していた。従

って、自動車排出ガス由来の元素状炭素が減少しており、全国的な元素状炭素濃度の低下傾向に寄与していると考えられた。

図8にはバナジウム濃度の経年変化を示している。大阪市では、春季と夏季にバナジウム濃度が上昇する明瞭な季節変動が見られ、自排局の方が高濃度になる傾向があった。バナジウムは主に重油燃焼由来であると考えられており、大阪湾岸に近い自排局で濃度が高く、海風が卓越する暖候期に濃度が上昇することから、船舶排ガスや湾岸部の重油燃焼由来であると推察された。他の地域でも暖候期にバナジウム濃度が上昇し、バックグラウンド地域においても東北・北海道や中部地域と同程度の濃度が見られた。ただし、2020年春季以降は、すべての地域においてバナジウム濃度が顕著に減少した。2020年1月に、MARPOL条約（船舶による汚染の防止のための国際条約）によって船舶燃料油の硫黄分濃度規制が強化されている。船舶燃料を低硫黄燃料油に変更することで、船舶の燃焼機関から排出される粉じん中のバナジウム濃度が顕著に減少することが知られている[5]。実際に、2009年に船舶燃料油の規制を行った米国の港湾部では、大気中PM_{2.5}に含まれるバナジウム濃度が6割程度減少した[6]。そのため、2020年春季以降のバナジウム濃度の減少は、MARPOL条約による規制強化の効果であると推察され、それ以前は、バックグラウンド地域においても船舶排ガスの影響を受けていた可能性が示唆された。ただし、2020年にはCOVID-19の影響で経済活動の停滞があったため、船舶を含む重油燃焼由来のPM_{2.5}排出量が減少した可能性も考えられる。

船舶燃料油の硫黄分濃度規制の強化によって、硫酸イオン濃度も低下すると期待された。しかし、図3を見ると、大阪市を含めて西日本地域では、2020年の夏季も硫酸イオン濃度が前年と同程度に上昇していた。この原因として、2020年夏季の成分分析期間に、九州南部や太平洋の火山ガス由来の硫酸酸化物が西日本に飛来したことが考えられた。火山ガスの影響が軽微であったと予想される東北・北海道と関東地域では、2020年夏季

の硫酸イオン濃度はその前年夏季よりも顕著に低下していた。また、大阪市の2021年夏季の硫酸イオン濃度もそれ以前の夏季の濃度よりも顕著に低下し、春季や秋季、冬季と同程度の濃度であった。大阪市の2021年夏季の硫酸イオン濃度は2016～2019年夏季の硫酸イオン濃度よりも0.91～2.8 µg/m³低く、割合では27～66%低下したことが分かった。今後、他地域の2021年度成分分析データを追加して詳細な解析を進めることで、船舶燃料油規制の効果を定量的に評価可能になると期待できる。

謝辞 本報告は、大気汚染防止法第22条（常時監視）により大阪市環境局が実施した調査結果を使用しました。

参考資料

- 1) 国立研究開発法人国立環境研究所．環境展望台 大気汚染常時監視データ．<https://tenbou.nies.go.jp/download/>．WEB サイトの内容は2022年7月29日に確認した
- 2) 環境省．微小粒子状物質（PM_{2.5}）の質量濃度及び成分測定（手分析）結果．<https://www.env.go.jp/air/osen/pm/monitoring.html>．WEB サイトの内容は2022年7月29日に確認した
- 3) 大阪市環境局総務部企画課．大阪市環境白書（令和3年度版）．2021
- 4) World Health Organization．WHO global air quality guidelines．2021
- 5) 中坪 良平, 高石 豊, 松村 千里, 平木 隆年, 大下 佳恵, 羽賀 雄紀, et al.. C 重油及びA 重油使用時の船舶から排出されるPMの実船観測．第61回大気環境学会年会 要旨集 分科会6 2020.
- 6) L. Tao, D. Fairley, M.J. Kleeman, R.A. Harley. Effects of switching to lower sulfur marine fuel oil on air quality in the San Francisco Bay area. Environmental Science & Technology 2013; 47: 10171–10178.

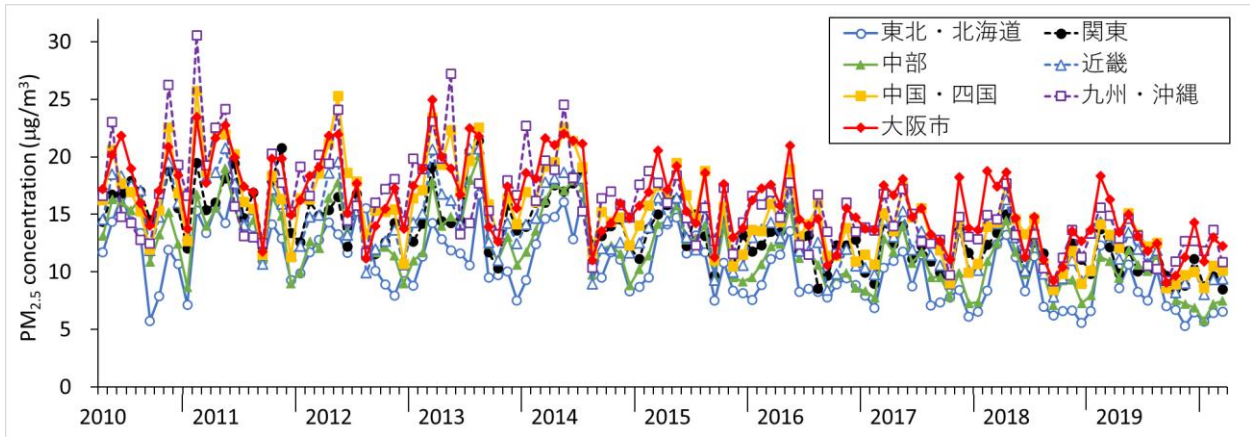


図 1 地域ごとの PM_{2.5} 質量濃度の月間値

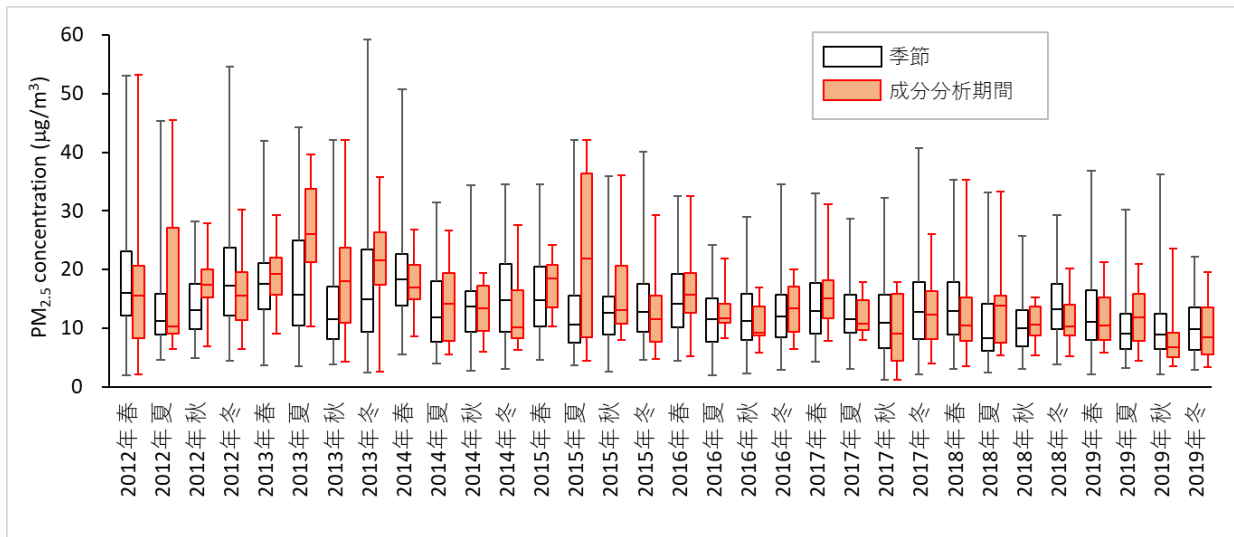


図 2 大阪市における各季節と成分分析期間中の PM_{2.5} 質量濃度の四分位範囲(箱)と最大最小値(ひげ)

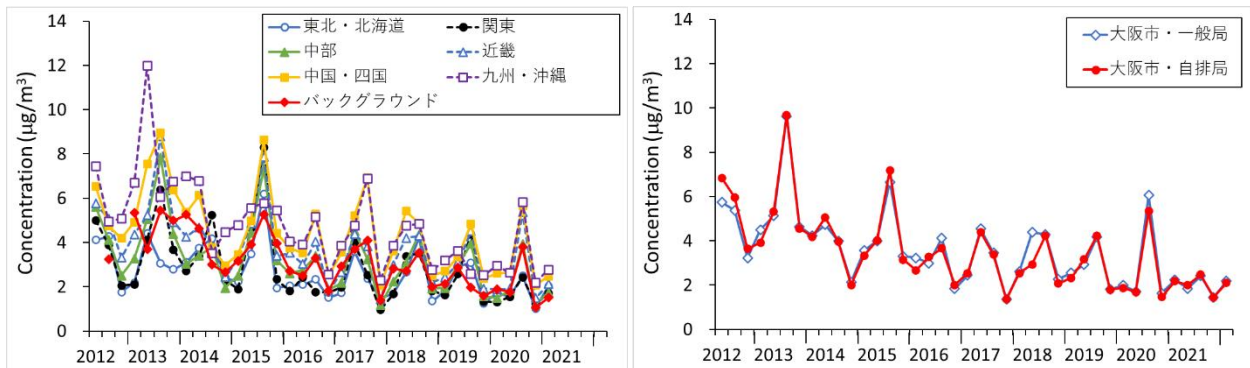


図 3 地域区分ごと(左)と大阪市(右)の硫酸イオン濃度

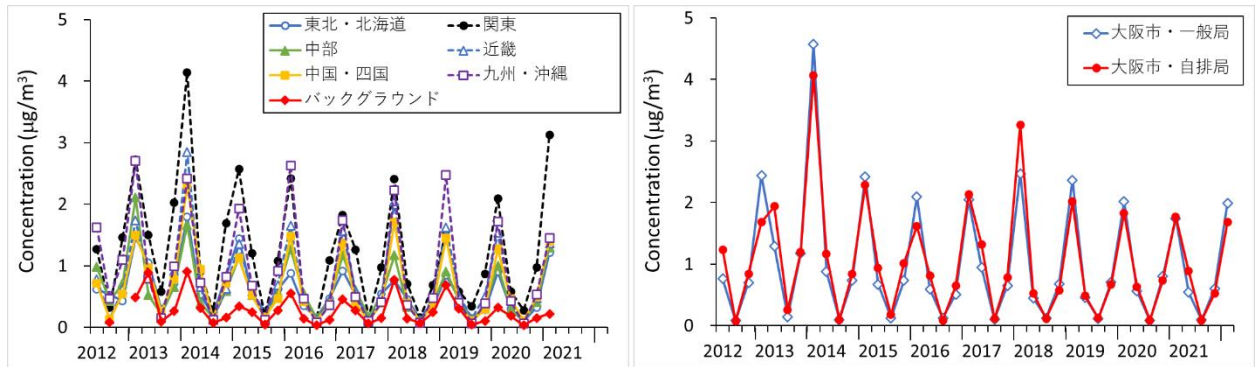


図4 地域区分ごと(左)と大阪市(右)の硝酸イオン濃度

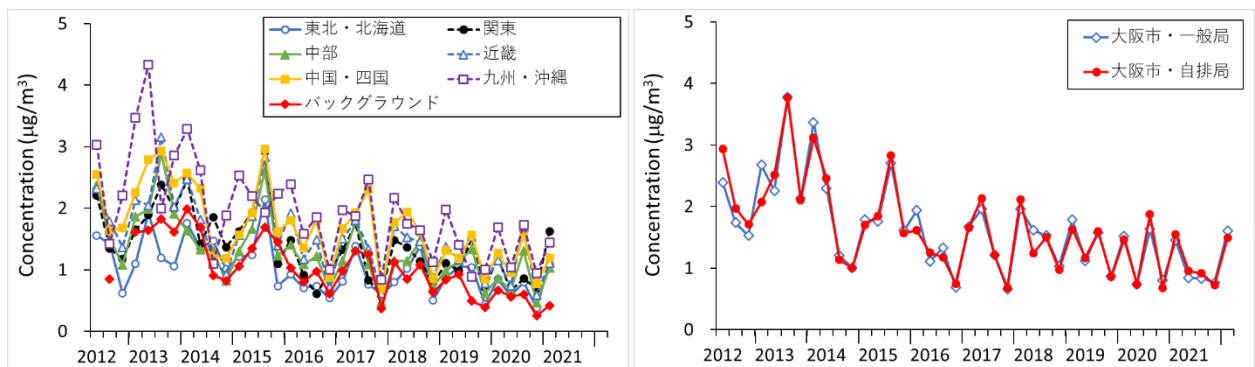


図5 地域区分ごと(左)と大阪市(右)のアンモニウムイオン濃度

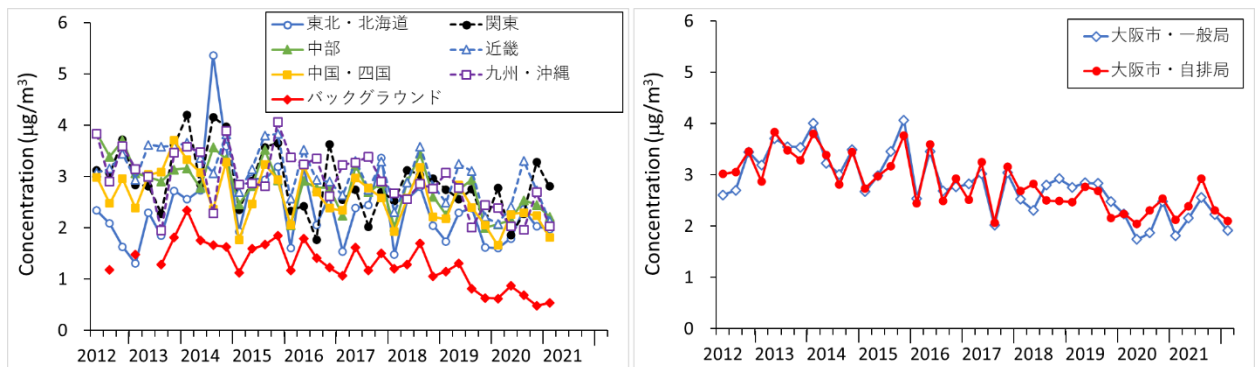


図6 地域区分ごと(左)と大阪市(右)の有機炭素濃度

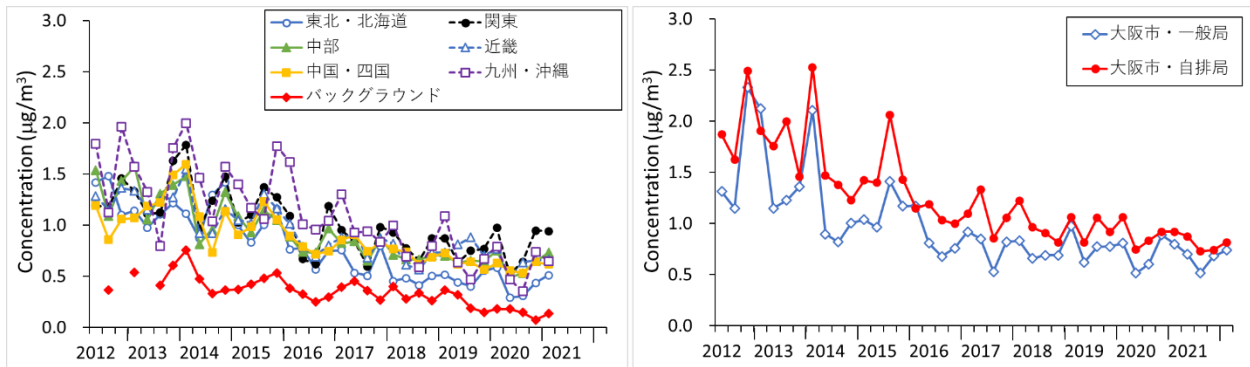


図 7 地域区分ごと(左)と大阪市(右)の元素状炭素濃度

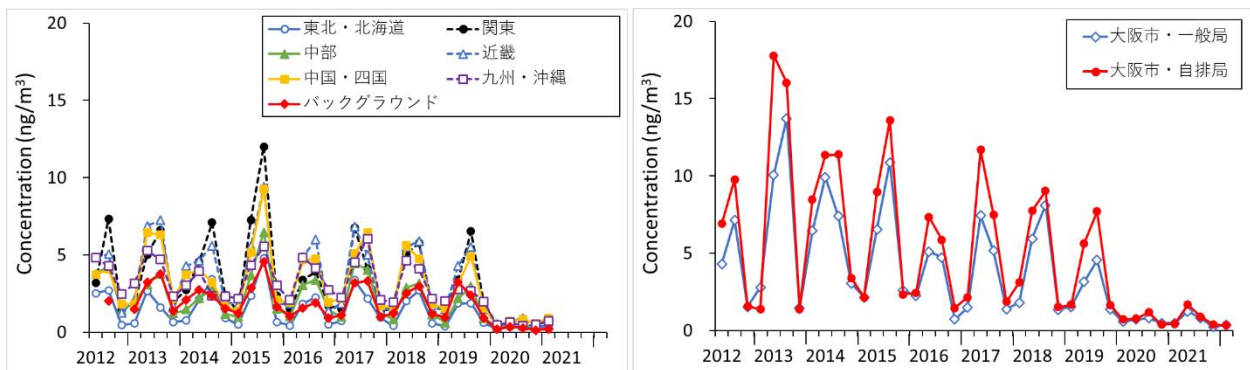


図 8 地域区分ごと(左)と大阪市(右)のバナジウム濃度