

沖縄県うるま市における 4 段およびインパクト付 5 段フィルタパック法の比較

前田美奈子・城間朝彰・野波秀行・岩崎綾・田崎盛也・友寄喜貴

Comparative Measurements of 4-Stage and 5-Stage Filter Pack with PM_{2.5} Impactor at Uruma, Okinawa

Minako MAEDA, Tomoaki SHIROMA, Hideyuki NOHA, Aya IWASAKI,
Moriya TASAKI and Nobutaka TOMOYOSE

要旨：従来の 4 段フィルタパック法の前段にインパクトを追加し、粒子状物質を粗大粒子と微小粒子に分取する 5 段フィルタパック法が全国環境研協議会第 6 次酸性雨全国調査の乾性沈着調査で推奨されている。今回沖縄県うるま市において既存の 4 段フィルタパック法(4FP)とインパクト付 5 段フィルタパック法(5FP)で並行測定を実施した結果、粒子状物質とガス状物質のイオン成分濃度の和は 4FP と 5FP で概ね同等であり、インパクトの追加によるイオン成分濃度への影響はみられなかった。またインパクト追加により PM_{2.5} のイオン成分の通年観測が可能となり、高濃度イベントにおける大気汚染物質発生源解析に有効だと考えられた。

Key words：乾性沈着，フィルタパック法，微小粒子状物質 (PM_{2.5})，沖縄県，越境大気汚染

I はじめに

全国環境研協議会（以下「全環研」という）第 6 次酸性雨全国調査の乾性沈着調査では従来の 4 段フィルタパック法（以下「4FP」という）の前段にインパクトを追加し、粒子状物質を粗大粒子 (>2.5 μm) と微小粒子 (≤ 2.5 μm, 以下「PM_{2.5}」という)に分取する方法(以下「5FP」という)を推奨している¹⁾。この手法を用いることにより、粗大粒子と PM_{2.5} のイオン成分の通年観測が可能となる。そこで既存調査地点である当研究所屋上において 2019～2020 年度に 4FP と 5FP の並行測定を実施したので報告する。また、FP 法のアーティファクト（ろ紙上での化学反応に起因する測定値の誤差）の 1 つである NH₃ ガスの影響は、小川式パッシブサンプラーを用いたパッシブ法（以下「PS」という）による NH₃ ガスの並行測定にて検証したので、併せて報告する。

II 方法

1. 調査地点

酸性雨調査の既存調査地点である沖縄県衛生環境研究所（沖縄県うるま市兼箇段，以下「うるま」という）の屋上にて実施した（図 1）。うるまは沖縄本島中部に位置し、周辺は畑地で養豚・養鶏場・生コン製造工場がある。大規模な SO₂ および NO_x 発生源はなく、最も近い海岸から約 3 km の距離がある。

2. 調査期間

2019 年 4 月 1 日から 2021 年 3 月 28 日までのデータを使用した。月区切りについては全環研に合わせて集計した。

3. 調査対象物質および測定方法

乾性沈着試料の採取は全環研の実施要領²⁾に基づき、4FP および 5FP 法は原則 2 回/月（2 週間毎）、PS 法は 1 回/月で行った。両 FP 法の各ろ紙と捕集成分について表 1 に示す。4FP では F0 ろ紙に粗大粒子と PM_{2.5} が合わせて捕集される。一方、5FP は 4FP の前段に PM_{2.5} インパクトを追加することにより粗大粒子を I0 に、PM_{2.5} を F0 に分けて捕集することが可能となる。FP 法のろ紙 (I0, F0, F1 および F3) および PS 法のろ紙は純水を用いて抽出し、FP 法のろ紙 (F2 および F2') は 0.05 % (v/v) H₂O₂ 溶液で抽出した。抽出後、イオンクロマトグラフ分析装置 (metrohm 850 Professional IC) を用いてイオン成分 (Na⁺, NH₄⁺, K⁺, Mg²⁺, Ca²⁺, Cl⁻, NO₂⁻, NO₃⁻ および SO₄²⁻) の濃度を測定した。



図 1. 調査地点。

表 1.ろ紙の種類と捕集成分.

番号	ろ紙種類	4FP 捕集成分	5FP 捕集成分
I0	石英	—	粗大粒子
F0	テフロン	粗大粒子+	PM _{2.5}
F1	ナイロン	SO ₂ , HONO, HNO ₃ , NH ₃	
F2	K ₂ CO ₃ 含浸	SO ₂ , HONO, HCl,	
F2'	K ₂ CO ₃ 含浸	SO ₂ , HCl, NO ₂	
F3	H ₃ PO ₄ 含浸	NH ₃	

Ⅲ 結果と考察

1. 粒子状成分濃度による 4FP と 5FP の比較

各粒子状成分の経月変化を図 2 に示す. 成分名に付してある(p)は粒子状成分を, (g)はガス状成分を表す.

SO₄²⁻(p)濃度について, 両法の全粒子状物質濃度はよく一致しており, 夏季に低くなる傾向を示した. 2020 年 8 月は最も高濃度となったが, その要因については後述する. 5FP における粒子状物質の多くは PM_{2.5} が占めており, 全粒子状物質濃度の季節変動は PM_{2.5} に依存し, 粗大粒子では季節変動がみられなかった.

NO₃⁻(p)濃度は, 両法の全粒子状物質濃度で概ね一致しており, 夏季に低く, 秋季から春季にかけて高くなる傾向を示したが, 冬季における濃度はやや 4FP > 5FP であった. 5FP における粒子状物質の多くは粗大粒子が占めており, 全粒子状物質濃度の季節変動は粗大粒子に依存していた.

Cl⁻(p)濃度は, 両法の全粒子状物質濃度で類似した挙動を示したが, 季節的な変動はみられず, やや 4FP > 5FP であった. 佐藤らによると, 強風下においてまきあげられた土壌由来および海塩の粒子が 4FP の F0 ろ紙で捕集されているとの報告²⁾があり, うるまでも強風による粗大粒子の過大評価が起こっている可能性が示唆された.

5FP における粒子状物質の多くは粗大粒子が占めていた.

NH₄⁺(p)濃度は, 両法の全粒子状物質濃度で類似した挙動を示し, 夏季に低くなる傾向を示したが, 4FP < 5FP であった. この要因として, うるまは北東 350 m に生コン製造工場があり, 工場由来の CaCO₃がアーティファクトに影響していると考えられる. 特に 4FP の F0 ろ紙上で次式(1)のように粒子同士が反応するアーティファクトが起こり³⁾, NH₄⁺(p)が過小評価されている可能性がある. 5FP では粗大粒子の CaCO₃(p)は I0 ろ紙に, PM_{2.5} の (NH₄)₂SO₄(p)は F0 ろ紙に捕集されるのでこれら粒子同士の反応は起こりにくい. 5FP における粒子状物質の多

くは PM_{2.5} が占めており, 全粒子状物質濃度の季節変動は PM_{2.5} に依存していた.

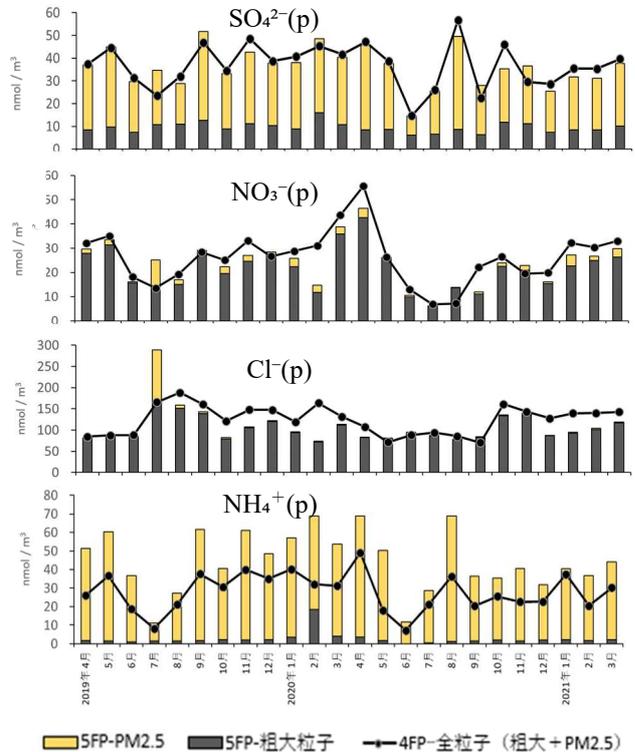
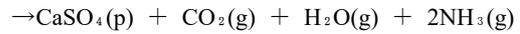
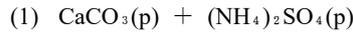


図 2. 粒子状物質の大気濃度の経月変化.

2. 粒子状成分とガス状成分濃度の和による 4FP と 5FP の比較

FP 法は粒子状物質を捕集するフィルタ上でアーティファクトが生じる方法であるが, 粒子状成分とガス状成分の総量については精度よく測定することができる.

両法の粒子状成分とガス状成分の和について, 各イオン成分毎に比較した結果を図 3 に示す. SO₄²⁻(p) + SO₂(g), NO₃⁻(p) + HNO₃(g) および NH₄⁺(p) + NH₃(g) では相関が高く, イオン成分の和はよく一致した. Cl⁻(p) + HCl(g) では相関係数が r = 0.36 と低く, 前述したように Cl⁻(p)が強風の影響を受け, 4FP で過大に評価されていることが要因と考えられる. また HCl(g)のみでも近似曲線(線形)は y = 0.7673x (2020 年 1 月を除く), 相関係数は r = 0.55, 総量は 4FP > 5FP であり, 相関が低いことから, 次式(2)および(3)のように 4FP の F0 ろ紙上の Cl⁻(p)がガス化し F2 ろ紙で捕集されるアーティファクトが起こっていると考えられる³⁾. なお, 2019 年度のみであれば Cl⁻(p) + HCl(g) の近似曲線(線形)は y = 0.8346x, 相関係数は r = 0.91 (2019 年 7 月の値を除く)と相関が高く, 2020 年度にお

いて相関が低かった。特に風が強い冬季で差があることから、気象条件の影響を受けやすいことが示唆された。

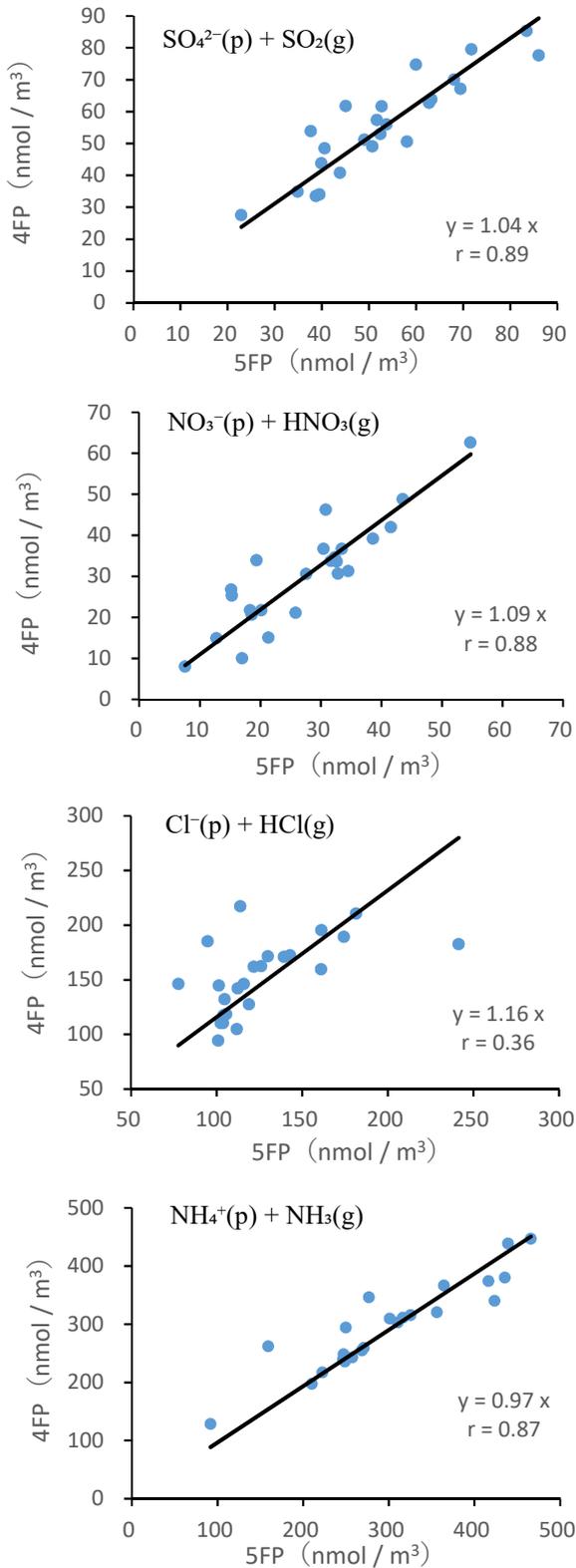
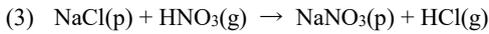
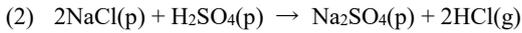


図3. 4FPと5FPによる粒子状成分とガス状成分のイオン成分濃度の和の分布。

3. FP法とPS法の並行測定

FP法のアーティファクトの影響を検討するために、PS法によるNH₃(g)の並行測定を実施した。PS法はアーティファクトがない状態のNH₃(g)として精度良く測定できることから4FPおよび5FPにおける濃度と比較し(図4)、さらに濃度比と気温の関係について比較した(図5)。

両法ともPS法と挙動は概ね一致したが、PS法よりもやや高い値を示し、年平均で4FPでは1.28倍、5FPでは1.21倍、NH₃(g)を過大評価している可能性が示唆された。特に気温が高くなる夏季にNH₄⁺(p)がI0およびF0ろ紙上で揮散し、NH₃(g)の過大評価につながると考えられる。NH₃濃度比は夏季にやや4FP < 5FPとなることもあるが、概ね4FP > 5FPであり、5FPでアーティファクトが低減されていることが示唆された。

4. 5FPにおけるPM_{2.5}成分濃度による高濃度解析

沖縄県では2020年8月5~6日にかけて煙霧が観測された。また、当研究所に最も近い一般大気環境(常時監視)測定局である沖縄局(沖縄県中部保健所屋上)のPM_{2.5}の観測でも5日から6日にかけて濃度の上昇が確認された。うるま市を起点とした後方流跡線図(図6)では西之島付近からの気塊の流入が確認できた。図7に8月3日から17日までの5FPのPM_{2.5}成分の当量比(%)を示した。当量比よりこの期間に採取したPM_{2.5}成分は、(NH₄)₂SO₄として存在しており火山ガスの二酸化硫黄(SO₂)が酸化したことによる二次生成硫酸塩だと考えられる。これらのことから2020年8月の高濃度は、西之島の噴火による影響であることが示唆された。

IV まとめ

うるまにおいて4FPおよび5FPの並行測定を実施したところ、Cl⁻(p)濃度では4FPにおいて強風の影響による粒子状成分の過大評価が示唆されたが、SO₄²⁻(p)およびNO₃⁻(p)では両法による差はみられなかった。NH₄⁺(p)濃度では、4FP < 5FPとなり、インパクトを付けることで粒子状成分が揮散するアーティファクトが低減された可能性がある。粒子状成分とガス状成分の和はCl⁻(p)+HCl(g)以外は高い相関がみられた。また、5FPでは粗大粒子とPM_{2.5}を分取することができ、PM_{2.5}成分による高濃度イベント(西之島の噴火)の発生源解析をすることができた。PM_{2.5}成分分析は環境省のガイドラインに基づき⁶⁾、14日間、年4季(=56日間/年)の捕集であり、年間の15%しかカバーできない。イオン成分のみの測定ではあるが、5FPを導入し通年でPM_{2.5}を捕集できることは想定外のイベント

に対応する観点から大きなメリットといえる。これらのことから、うるまにおいても既存4FPによるデータの継

続の評価を維持しながら、PM_{2.5}のイオン成分の通年観測が可能な5FPへの移行が望ましいと考える。

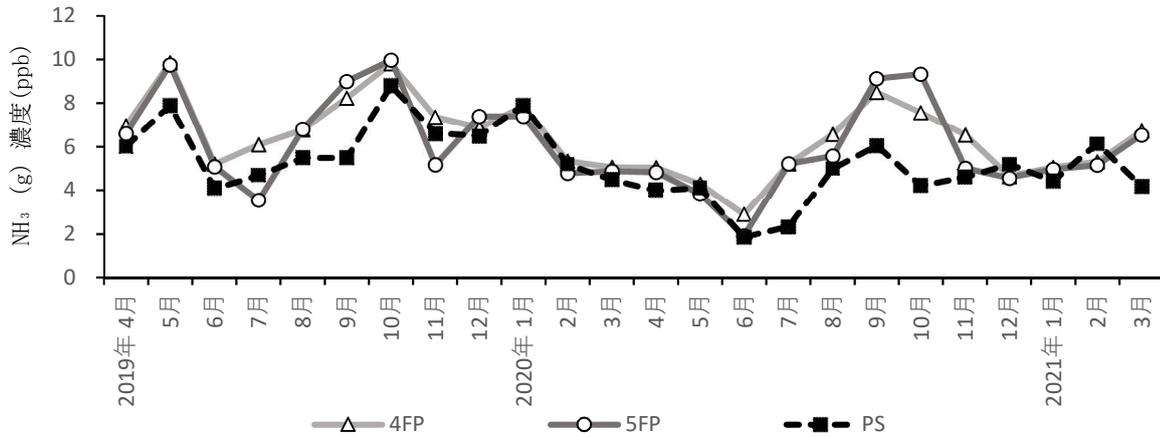


図4. FP法とPS法によるNH₃(g)濃度.

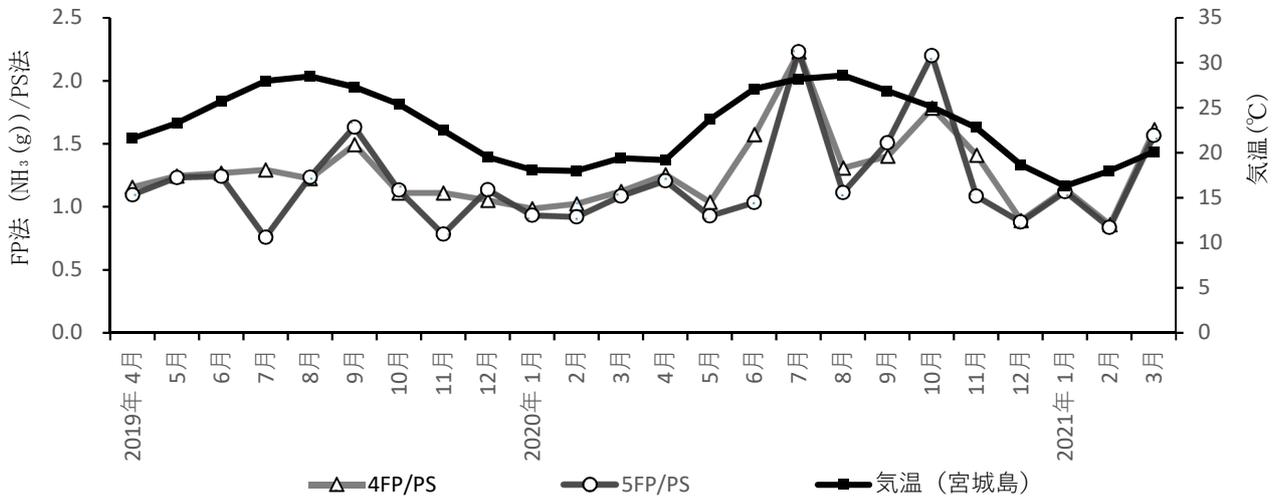


図5. FP法とPS法によるNH₃(g)濃度比 (FP法/PS法) と平均気温⁴⁾の関係.

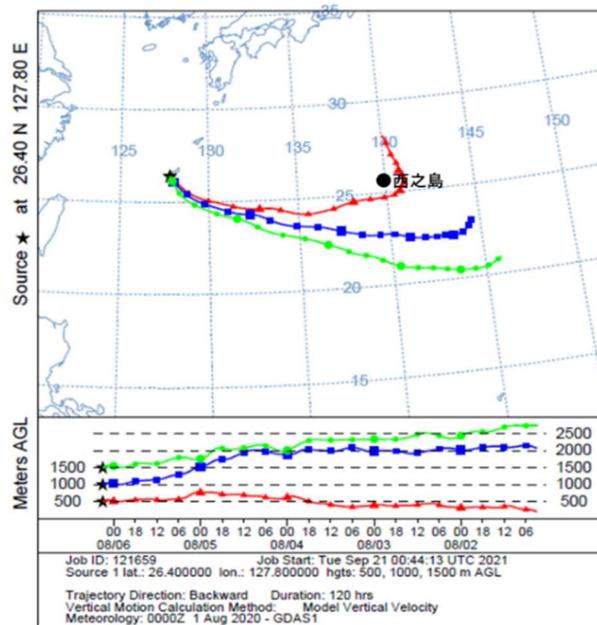


図6. 2020年8月6日の後方流跡線図⁵⁾.

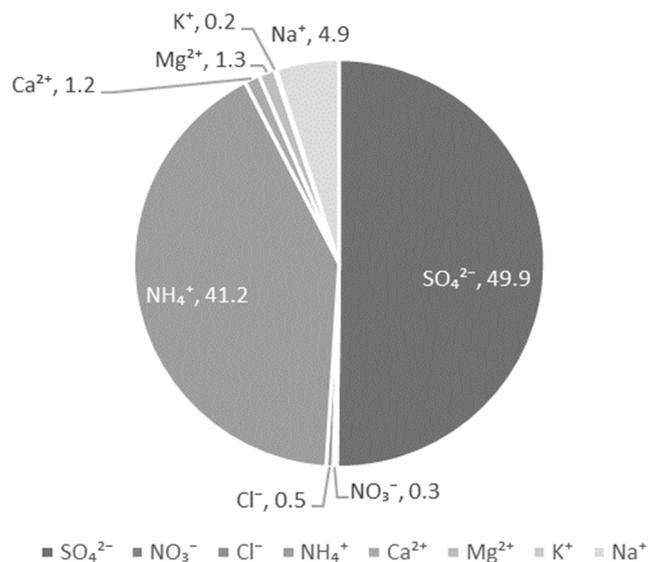


図7. 2020年8月3~17日のPM_{2.5}当量比(%).

V 参考文献

- 1) 全国環境研協議会酸性雨広域大気汚染調査研究部会,
第6次酸性雨全国調査実施要領 (平成28年度).
- 2) 佐藤詩乃・遠藤朋美・武直子・家合浩明・水戸部英子
(2018) PM2.5 インパクトをつけた4段フィルター
パック法による乾性沈着調査について. 第45回 環
境保全・公害防止研究発表会講演要旨集, 44-45.
- 3) 環境省水・大気環境局(2019)微小粒子状物質(PM2.5)
の成分測定マニュアル ガス成分の測定 第2版.
- 4) 気象庁 (2020) 過去のデータ検索.
(<https://www.data.jma.go.jp/obd/stats/etrn/index.php>) .
2020年9月アクセス.
- 5) NOAA (2020) HYSPLIT-WEB.
(<https://www.ready.noaa.gov/HYSPLIT.php>) . 2020年9月
アクセス.
- 6) 環境省水・大気環境局(2011)微小粒子状物質(PM2.5)の
成分分析ガイドライン.