

[自主研究]

# 微小エアロゾル長期観測試料中の金属元素成分の検討

米持真一 松本利恵 佐坂公規 長谷川就一 野尻喜好 藤井佑介

## 1 目的

当センターでは2000年の設立当初から、PM<sub>2.5</sub>の週単位測定を開始し、継続している。2005年からはPM<sub>1</sub>、環境基準値の設定された2009年からは、1日単位のPM<sub>2.5</sub>捕集を追加して、標準測定法に準じた質量濃度測定を開始した。PM<sub>2.5</sub>濃度には微減傾向が見られていたが、2013年1月に中国広域で高濃度PM<sub>2.5</sub>汚染が発生し、これを機に、日本国内でも社会の関心が急速に高まった。東アジアの経済発展は著しく、特に中国で排出された大気汚染物質の一部が風下側の日本に輸送される、越境大気汚染への関心も高まった。一方、関東は自身の排出量も多く、西日本と比べて大陸からの距離も離れているため、地域汚染の影響も少なくはない。

PM<sub>2.5</sub>に含まれる金属元素成分は、長距離輸送中の変化が無く、同時に発生源推定に有効な成分である。本研究では、金属元素成分に着目し、加須におけるPM<sub>2.5</sub>高濃度要因について明らかにすることを目的とする。

## 2 方法

環境科学国際センターにPM<sub>2.5</sub>採取装置(FRM2025)を設置し、24時間単位のPM<sub>2.5</sub>捕集を通年で行った。捕集にはPTFEフィルターを使用した。なお、1週間単位のPM<sub>2.5</sub>及びPM<sub>1</sub>の捕集も行った。解析には24時間捕集のPM<sub>2.5</sub>試料を用い、試料中の金属元素成分を分析した。金属元素成分は、マイクロウェーブ試料前処理装置(ETHOS UP, Milestone)を用い、フッ化水素酸、硝酸、過酸化水素を添加して高温高圧条件下で酸分解を行い、ICP/MSにより66元素を測定した。

## 3 結果

### 3.1 通年観測結果

2017年4月1日～2018年3月31日までの1日単位のPM<sub>2.5</sub>試料 (n=365) から得た年平均濃度は、10.9 μg/m<sup>3</sup>であった。年平均濃度は2014年度 13.7 μg/m<sup>3</sup>、2015年度 12.5 μg/m<sup>3</sup>、2016年度 11.1 μg/m<sup>3</sup>から更に低下し、過去最低となった。

短期基準値である日平均値35 μg/m<sup>3</sup>の超過日数は、2013年度が8日、2015年度から2017年度は5日であった。これらは全て11月から1月に出現していた。

### 3.2 高濃度要因の解析

解析する対象として季節や規模を考慮して以下の3期間を抽出した。また、比較的解析事例の多いPM<sub>2.5</sub>成分調査の実施時期とは重ならない期間を選択した。

- (1) 2015年夏季(7月下旬～8月上旬):3年間で唯一夏季の濃度上昇。加須では35 μg/m<sup>3</sup>は超えなかったが、首都圏では超過地点多数。
- (2) 2015年秋季(10月中旬):10月9日～10日に45 μg/m<sup>3</sup>前後の高濃度が続く。
- (3) 2017年冬季(12月下旬):3年間の最高値60 μg/m<sup>3</sup>。

PM<sub>2.5</sub>中には、土壌等に由来する自然起源の粒子も含まれるため、平均的な土壌粒子の存在比(Rudnick and Gao *et al.*, 2003)を用い、Alで規格化した濃縮係数(EFs)を求めた。図1に分析を行った全ての期間の平均濃度から得た代表的元素のEFsを示すが、EFs ≥ 100となった元素は、Cu、Zn、As、Se、Cd、Tl、Pb、Biなどであった。

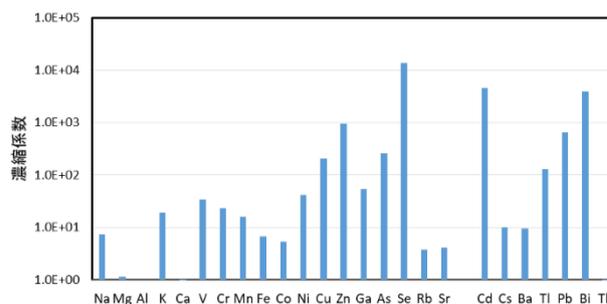


図1 加須のPM<sub>2.5</sub>中元素成分の濃縮係数

過去の文献(例えばOkuda *et al.*, 2008)、科研費研究および大気環境課事業(PM<sub>2.5</sub>成分調査、富士山頂観測、日中韓同時観測など)により得た成分データを活用し、As/V比、Pb/Zn比、La/Sm比などを用いて高濃度の主たる要因を検討した結果、期間(1)は主として光化学大気汚染を伴う高濃度現象であるが、後半には越境大気汚染による気塊の流入も確認された。また、期間(2)は越境大気汚染と地域汚染の複合型の濃度上昇、期間(3)は主として当該地域周辺のバイオマス焼却による濃度上昇によるものと考えられた。

## 文献

- 1) Rudnick, R. L. and Gao, S.: Composition of the continental crust, *Treatise On Geochemistry*, **3**, 1-64 (2003).
- 2) Okuda, T., *et al.*: Trends in hazardous trace metal concentrations in aerosols collected in Beijing, China from 2001 to 2006, *Chemosphere*, **72**, 917-924 (2008).