

2021 年度

微小粒子状物質成分分析結果報告書

2023 年 3 月

目 次

1. はじめに	1
2. 調査内容	2
(1) 測定地点	2
(2) 試料捕集	3
(3) 成分の分析	4
3. 調査結果	5
(1) 年間の状況	5
(2) 季節別の状況	7
①季節平均	7
②各季節の日ごとの状況	11
4. 2012-2021 年度の状況	19
(1) PM2.5 濃度の変化要因に関する考察	19
①はじめに	19
②方法	19
③解析結果	19
(2) 2001 年度-2010 年度との比較	25
5. まとめ	27

巻末資料

- 資料 1 分析方法の概要
- 資料 2 成分分析結果

1. はじめに

大気中に浮遊する $2.5\mu\text{m}$ 以下の微小粒子状物質（以下、「PM_{2.5}」と記す。）は、呼吸器系への影響に加え、循環器系への影響が懸念されている。PM_{2.5}は発生源から直接排出された粒子（一次粒子）と、大気中に排出されたガスが反応して生成した粒子（二次粒子）による多くの成分で構成され、発生源も多岐にわたる。効果的なPM_{2.5}対策の検討のため、大気中の挙動等の科学的知見の集積、並びに発生源寄与率の推計に資することを目的として、PM_{2.5}の質量濃度の測定に加え、成分分析が実施されている。

2021年度は大阪府域の一般環境大気測定局（以下、「一般局」と記す。）40局と自動車排出ガス測定局（以下、「自排局」と記す。）17局を合わせた57局でPM_{2.5}の環境基準を達成し（達成率100.0%）、2020年度の96.4%から増加し、2016年度以降は80%以上で推移している。

本報告書では、2011年度から実施しているPM_{2.5}の成分分析結果等を用いて、大阪府内における2021年度のPM_{2.5}の構成成分の実態についてとりまとめた。

2. 調査内容

PM_{2.5}成分分析は、「微小粒子状物質（PM_{2.5}）の成分分析ガイドライン¹（平成23年7月29日、環境省通知）」および「大気中微小粒子状物質（PM_{2.5}）成分測定マニュアル²（令和元年5月改訂、環境省）（以下、「マニュアル」と記す。）」に準拠して実施した。

試料捕集は研究所が準備した試料捕集用のフィルタを用いて大阪府の委託業者が行い、試料中の成分の分析は研究所が実施した。

（1）測定地点

一般局の泉大津市役所（以下、「泉大津」と記す。）では毎年度測定している。2021年度は、泉大津及び河内長野市内の一般局の三日市公民館（以下、「三日市」と記す。）の2地点で試料を捕集した。なお、本報告書では大都市に位置する大阪市が測定した一般局の聖賢小学校（以下、「聖賢」と記す。）および自排局の出来島小学校（以下、「出来島」と記す。）の分析結果もあわせて、PM_{2.5}に含まれる成分濃度の特徴についてとりまとめた。図1に測定地点の位置を示した。

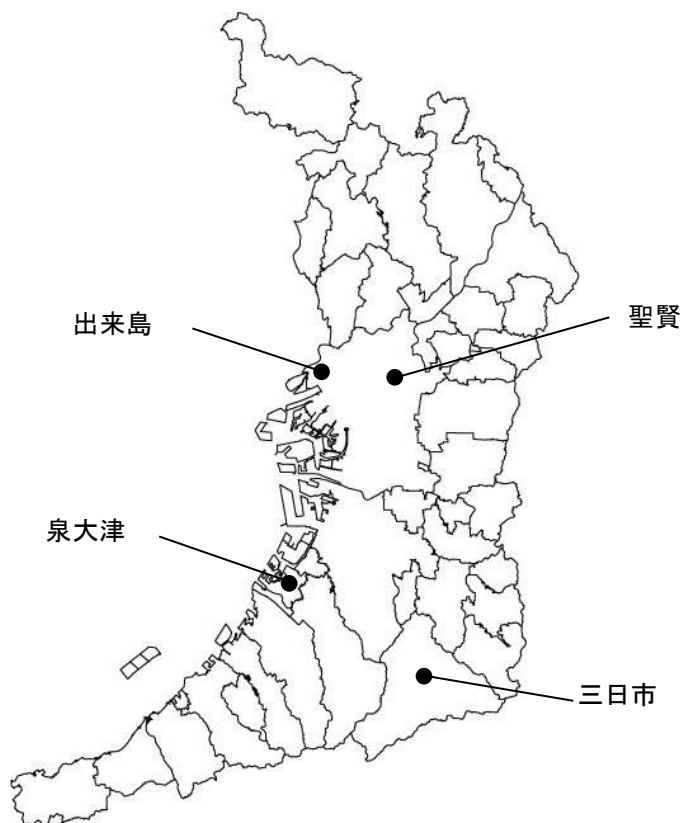


図1 測定地点の位置

¹ 環境省； http://www.env.go.jp/air/osen/pm/ca/110729/no_110729001b.pdf

² 環境省； <https://www.env.go.jp/air/osen/pm/ca/manual.html>

(2) 試料捕集

2021年度の試料捕集は、各地点、季節ごとに14日間実施した(表1)。2011年度から毎年度測定している泉大津の過年度の測定期間を表2に示した。1日の捕集時間は10時から翌日9時の23時間である。本報告書では、例えば2021年5月13日から5月14日にかけて試料を捕集した場合、5/13と表記する。

PM_{2.5}試料はテフロンフィルタおよび石英フィルタ上にそれぞれ捕集した。捕集に用いた装置は、泉大津および聖賢ではサーモフィッシャーサイエンティフィック社製PM_{2.5}シーケンシャルエアースンプラで、三日市および出来島ではムラタ計測器サービス社製スリットジェットエアサンプラであり、両者は分粒方式が異なる。粗大粒子側の存在量が多い成分(元素)では、分粒装置の分粒特性の違いにより、成分(元素)濃度に大きな差が生じる可能性があることに留意する必要がある²。

表1 測定期間(2021年度)

所管	分類	地点	試料捕集				時間
			期間				
			春	夏	秋	冬	
大阪府	一般	泉大津	2021年5月 13日~27日	2021年7月 26日~8月9日	2021年10月 21日~11月4日	2022年1月 20日~2月3日	10時~ 翌日9時
		三日市					
大阪市	一般	聖賢	2021年5月 13日~27日	2021年7月 22日~8月5日	2021年10月 21日~11月4日	2022年1月 20日~2月3日	
	自排	出来島					

表2 泉大津における測定期間(2011~2020年度)

年度	春	夏	秋	冬
2011	2012年3月9日 ~3月23日	2011年7月29日 ~8月12日	2011年11月4日 ~11月18日	2012年1月27日 ~2月10日
2012	2012年4月18日 ~5月2日	2012年7月26日 ~8月9日	2012年11月1日 ~11月15日	2013年1月24日 ~2月7日
2013	2013年5月8日 ~5月22日	2013年7月24日 ~8月7日	2013年10月23日 ~11月6日	2014年1月22日 ~2月5日
2014	2014年5月8日 ~5月22日	2014年7月23日 ~8月6日	2014年10月22日 ~11月5日	2015年1月21日 ~2月4日
2015	2015年5月8日 ~5月22日	2015年7月22日 ~8月5日	2015年10月21日 ~11月4日	2016年1月20日 ~2月3日
2016	2016年5月7日 ~5月21日	2016年7月21日 ~8月4日	2016年10月20日 ~11月3日	2017年1月19日 ~2月2日
2017	2017年5月10日 ~5月24日	2017年7月20日 ~8月3日	2017年10月19日 ~11月2日	2018年1月18日 ~2月1日
2018	2018年5月9日 ~5月23日	2018年7月19日 ~8月2日	2018年10月18日 ~11月1日	2019年1月17日 ~1月31日
2019	2019年5月8日 ~5月22日	2019年7月18日 ~8月1日	2019年10月17日 ~10月31日	2020年1月16日 ~1月30日
2020	2020年5月 14日~28日	2020年7月27日 ~8月10日	2020年10月22日 ~11月5日	2021年1月21日 ~2月4日

(3) 成分の分析

テフロンフィルタをPM_{2.5}の捕集前後に恒量・秤量し、PM_{2.5}質量濃度を算出した。その後、テフロンフィルタを無機元素の分析に用いた。石英フィルタは無機元素以外の成分の分析に用いた。解析には分析した項目のうち、ガイドラインに示された項目を用いた(表3)。それらの分析方法の概要と分析結果は巻末資料に示した。

数値の取り扱い環境省からの通知に従い、2018年度より1日ごとの値の有効数字を2桁から3桁に変更した(ただし、定量下限値の有効数字2桁目の位までの桁数とする)。定量下限値は有効数字2桁とし、検出下限値は定量下限値の有効数字2桁目の位までの桁数とした。検出下限値未満の値は検出下限値の1/2の値として図示および平均値の算出に用いた。なお、平均値の桁数については環境省の定めがなく、大阪府の指示に従い2021年度より有効数字を2桁から3桁(ただし、季節平均値は定量下限値の有効数字2桁目の位までの桁数とする(合算値となるOC、EC、無機元素を除く))に変更した。

なお、本報告書では、フィルタを秤量して求めたPM_{2.5}質量濃度と自動測定機の値を区別するために、自動測定機の値はPM_{2.5}濃度と表記した。

表3 解析に用いた項目

成分	項目数	項目
イオン成分	8項目	塩化物イオン(Cl ⁻)、硝酸イオン(NO ₃ ⁻)、硫酸イオン(SO ₄ ²⁻)、ナトリウムイオン(Na ⁺)、アンモニウムイオン(NH ₄ ⁺)、カリウムイオン(K ⁺)、マグネシウムイオン(Mg ²⁺)、カルシウムイオン(Ca ²⁺)
無機元素	29項目	ナトリウム(Na)、アルミニウム(Al)、カリウム(K)、カルシウム(Ca)、スカンジウム(Sc)、チタン(Ti)、バナジウム(V)、クロム(Cr)、マンガン(Mn)、鉄(Fe)、コバルト(Co)、ニッケル(Ni)、銅(Cu)、亜鉛(Zn)、ヒ素(As)、セレン(Se)、ルビジウム(Rb)、モリブデン(Mo)、アンチモン(Sb)、セシウム(Cs)、バリウム(Ba)、ランタン(La)、セリウム(Ce)、サマリウム(Sm)、ハフニウム(Hf)、タンタル(Ta)、タングステン(W)、鉛(Pb)及びトリウム(Th) ※泉大津および三日市では、ガイドラインの実施推奨項目のうちケイ素(Si)は分析していない。
炭素成分	2項目	有機炭素(Organic Carbon : OC)、元素炭素(Elemental Carbon : EC)

3. 調査結果

(1) 年間の状況

大阪府2地点（泉大津、三日市）および大阪市2地点（聖賢、出来島）における年間56日間（14日間×4季）のPM_{2.5}質量濃度の2021年度の平均値は、9.0～9.9 μg/m³であった（表4）。成分では、いずれの地点もOC（2.21～3.60 μg/m³）濃度が最も高く、続いてSO₄²⁻（1.97～2.25 μg/m³）濃度が他の成分と比較して高かった。4地点における年間56日間のPM_{2.5}質量濃度の平均値は、自動測定機による年間概ね365日のPM_{2.5}濃度の年平均値に対して0.8から1.1とほぼ同レベルであった。4地点の自動測定機によるPM_{2.5}濃度の年平均値は2012年度からは6.0～6.6 μg/m³減少した（図2）。

各地点における年度平均値から算出した成分構成割合³は、OCが24～36%、SO₄²⁻が21～23%で、全地点でOCが最も高かった（表5）。それら2成分とEC・NO₃⁻・NH₄⁺の5成分で、PM_{2.5}の概ね70～80%を占めている計算となった。無機元素（29項目の合計値）の割合は3.6～4.6%であった。自排局の出来島ではECの割合が他の地点よりやや高かった。なお、泉大津における年度平均値の成分構成割合は、過年度と比べ、OCの割合が増え、SO₄²⁻の割合が減少する傾向にある（図3）。

表4 各地点におけるPM_{2.5}質量濃度および成分濃度の年平均値

地点	PM _{2.5} 質量濃度	成分濃度							
		OC	EC	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻	NH ₄ ⁺	Cl ⁻	Mg ²⁺	無機元素
泉大津	9.9	3.60	0.525	0.784	2.25	0.991	0.0709	0.0122	0.453
三日市	9.0	3.11	0.518	0.402	2.06	0.807	0.0357	0.0088	0.326
聖賢	9.4	2.21	0.658	0.805	1.97	1.01	0.106	0.0147	0.407
出来島	9.0	2.43	0.788	0.792	2.01	1.02	0.0851	0.0167	0.333

※無機元素はSiを除く29項目の合計値である。

※無機元素にNa、K、および、Caが含まれるため、Na⁺、K⁺、および、Ca²⁺は表記していない。

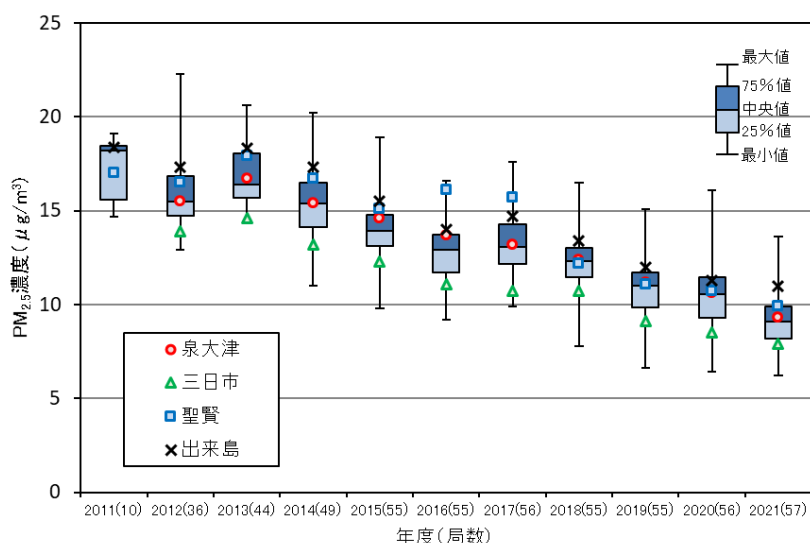
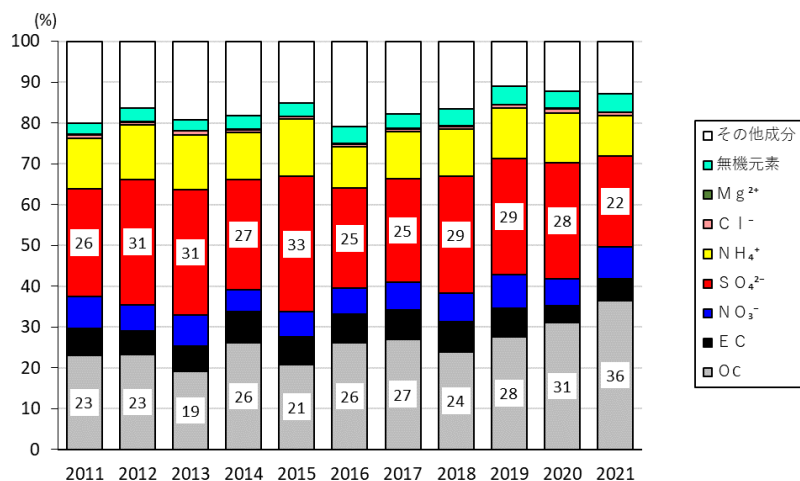


図2 大阪府内におけるPM_{2.5}濃度（自動測定機）の年平均値の分布

³ 各成分濃度のPM_{2.5}質量濃度に対するパーセンテージ。

表 5 各地点における各成分濃度の年平均値のPM_{2.5}質量濃度年平均値に対する割合（%）

地点	OC	EC	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻	NH ₄ ⁺	Cl ⁻	Mg ²⁺	無機元素
泉大津	36	5.3	7.9	23	10	0.72	0.12	4.6
三日市	35	5.8	4.5	23	9.0	0.40	0.10	3.6
聖賢	24	7.0	8.6	21	11	1.1	0.16	4.3
出来島	27	8.8	8.8	22	11	0.95	0.19	3.7



※その他成分は、PM_{2.5}質量濃度から成分濃度の和を差し引いたもので、OCに結合している水素・酸素等を含む（OCは炭素のみの濃度）。

図 3 泉大津におけるPM_{2.5}の成分構成割合の経年変化

(2) 季節別の状況

①季節平均

2021年度の泉大津におけるPM_{2.5}質量濃度の季節平均値は7.6~11.1 μg/m³、三日市においては6.9~10.7 μg/m³、聖賢においては8.0~10.7 μg/m³、出来島においては7.0~9.9 μg/m³であった(表6)。出来島は春、三日市は夏、泉大津と聖賢は冬の平均値が四季の中では最も高かった。自動測定機によるPM_{2.5}濃度の月平均値は、いずれの地点も3月(9.8~15.4 μg/m³)に年間で最大となった(図4)。

成分では、4地点のSO₄²⁻(夏2.41~2.89 μg/m³、夏以外1.32~2.49 μg/m³)およびOC(夏2.55~4.43 μg/m³、夏以外1.91~3.43 μg/m³)、泉大津のMg²⁺の平均値が四季の中では夏に最も高かった。NO₃⁻濃度は、いずれの地点においても冬が最大(1.27~2.06 μg/m³)、夏が最小(0.0500~0.0907 μg/m³)であった。この傾向は、硝酸アンモニウム(NH₄NO₃)が、低温下では粒子として存在するが、高温時にはガスとして存在することに矛盾しない。出来島以外の3地点のEC、泉大津以外の3地点のMg²⁺およびすべての地点のNH₄⁺、Cl⁻の平均値は冬が最大であった。いずれの地点も無機元素は春に最も高かった。

無機元素について、実施推奨項目を除く13項目の季節平均値を表7に示した。各項目の平均値は0.004(Sc)~185(Na) ng/m³と濃度範囲が広く、PM_{2.5}質量濃度に占める割合は0.000053~1.7%であった。無機元素は大気中で反応して二次生成することがないため、各種発生源の指標となることが知られている²。土壌粒子の指標であるAl, Ca, Scは、4地点で(泉大津のSc、三日市のCa除く)春に最大となった。また、各発生源から排出されるが土壌にも含まれるV, Fe, Ni, Znも春に最大となっていた。これらの無機元素の濃度が高かった5/25~5/26には、大阪では観測記録はなかったが、西日本で黄砂が観測されていることから黄砂の影響があったと考えられる。

PM_{2.5}の成分構成割合は季節によって異なっていた(図5)。NO₃⁻、Cl⁻およびNH₄⁺の割合は冬に高く(それぞれ、13~19%、1.1~2.8%、13~15%)、夏に低かった。OCおよびSO₄²⁻は季節による変動はあまり見られなかった。春と秋におけるNO₃⁻、Cl⁻およびNH₄⁺の成分構成割合は夏と冬の間程度で類似していた。

2021年度の泉大津におけるPM_{2.5}質量濃度および成分濃度の季節平均値を同地点の過去の値と比較した(図6)。PM_{2.5}質量濃度の季節平均値は、2013年以降4季節とも減少傾向にある。SO₄²⁻およびNH₄⁺濃度はPM_{2.5}質量濃度と同様の傾向を示した(それぞれ、相関係数r=0.90、0.83)。OC濃度はほぼ横ばいである。EC濃度はいずれの季節も2013年度以降減少傾向にある。NO₃⁻濃度はいずれの季節も2016年度以降と同レベルであった。Cl⁻濃度は他の季節より高い冬季において、2014年度以降は2020年度を除き0.2~0.3 μg/m³で推移している。また、無機元素では、Sc及びPb濃度は2012年度から2014年度にかけて減少し、その後は横ばいの傾向にある。V濃度は2019年度冬に前年度の冬から大きく減少し、その後、低いレベルで推移している。

表6 各地点におけるPM_{2.5}質量濃度および成分濃度の季節平均値

季節	地点	PM _{2.5} 質量濃度	成分濃度							
			O C	E C	N O ₃ ⁻	S O ₄ ²⁻	N H ₄ ⁺	C l ⁻	M g ²⁺	無機元素
春	泉大津	10.2	3.34	0.511	0.623	2.14	0.908	0.0225	0.011	<u>0.585</u>
	三日市	8.4	2.86	0.418	0.199	1.94	0.741	0.012	0.0088	<u>0.379</u>
	聖賢	9.5	2.15	0.698	0.538	1.85	0.836	0.022	0.0126	<u>0.552</u>
	出来島	<u>9.9</u>	2.39	<u>0.873</u>	0.884	2.00	0.95	0.035	0.017	<u>0.581</u>
夏	泉大津	10.8	<u>4.43</u>	0.514	0.0907	<u>2.89</u>	0.896	0.0096	<u>0.0137</u>	0.507
	三日市	<u>10.7</u>	<u>3.95</u>	0.586	0.0500	<u>2.62</u>	0.808	0.0125	0.0090	0.317
	聖賢	9.5	<u>2.55</u>	0.517	0.090	<u>2.41</u>	0.832	0.010	0.0126	0.317
	出来島	9.3	<u>2.93</u>	0.726	0.09	<u>2.47</u>	0.912	0.014	0.011	0.206
秋	泉大津	7.6	3.43	0.506	0.362	1.47	0.560	0.0320	0.0103	0.292
	三日市	6.9	2.94	0.466	0.0924	1.32	0.435	0.0123	0.0073	0.270
	聖賢	8.0	2.23	0.679	0.602	1.45	0.763	0.088	0.0161	0.347
	出来島	7.0	2.31	0.741	0.52	1.45	0.726	0.084	0.019	0.237
冬	泉大津	<u>11.1</u>	3.22	<u>0.572</u>	<u>2.06</u>	2.49	<u>1.60</u>	<u>0.219</u>	0.0135	0.426
	三日市	10.0	2.71	<u>0.603</u>	<u>1.27</u>	2.34	<u>1.25</u>	<u>0.106</u>	<u>0.0100</u>	0.339
	聖賢	<u>10.7</u>	1.91	<u>0.738</u>	<u>1.99</u>	2.18	<u>1.60</u>	<u>0.304</u>	<u>0.018</u>	0.413
	出来島	9.7	2.10	0.815	<u>1.68</u>	2.10	<u>1.49</u>	<u>0.208</u>	<u>0.020</u>	0.310

※下線は各地点での項目ごとの最大値を示した。

※無機元素はSiを除く29項目の合計値である。

※無機元素にNa、K、および、Caが含まれるため、Na⁺、K⁺、および、Ca²⁺は表記していない。

表7 各地点における無機元素成分濃度の季節平均値

季節	地点	無機元素(実施推奨項目除く)												
		Na	Al	K	Ca	Sc	V	Cr	Fe	Ni	Zn	As	Sb	Pb
春	泉大津	139	<u>75.7</u>	96	<u>45</u>	0.015	<u>1.81</u>	<u>1.37</u>	<u>137</u>	<u>2.49</u>	<u>57.5</u>	1.19	0.713	4.86
	三日市	51.9	<u>85.6</u>	60.4	39.0	<u>0.016</u>	<u>0.695</u>	1.27	<u>96.1</u>	<u>0.94</u>	<u>21.2</u>	0.822	0.498	2.77
	聖賢	93	<u>87.5</u>	61.3	<u>67</u>	<u>0.015</u>	<u>1.23</u>	<u>1.49</u>	<u>163</u>	<u>1.97</u>	<u>37.2</u>	1.17	1.46	6.6
	出来島	86	<u>46</u>	55	<u>53</u>	<u>0.012</u>	<u>1.67</u>	<u>2.2</u>	<u>163</u>	<u>3.26</u>	<u>98.6</u>	1.3	1.15	16.5
夏	泉大津	<u>185</u>	22.7	99.5	40	0.006	1.06	1.21	96.6	1.53	35.7	0.560	0.622	4.37
	三日市	71.7	22.4	53.8	<u>45</u>	0.0051	0.600	0.93	82.6	0.813	21.0	0.757	0.546	3.32
	聖賢	<u>94</u>	24.0	31.5	40	0.008	0.80	0.726	85	1.18	15.8	0.40	0.79	6.7
	出来島	<u>61</u>	7	11	16	0.010	0.90	1.4	56	1.21	17.3	0.34	0.66	<u>17.0</u>
秋	泉大津	78.6	14	66.8	24	0.004	0.438	0.8	64.2	1.52	22.8	0.562	0.756	3.89
	三日市	56.6	16	60.4	24	0.004	0.241	<u>1.7</u>	77	0.87	16.0	0.561	0.499	3.31
	聖賢	42	31.6	49.3	52	0.005	0.236	0.983	108	0.33	32.7	0.61	<u>1.46</u>	6.8
	出来島	58	10	10	22	0.006	0.38	1.4	77	0.15	30.5	0.59	<u>1.26</u>	6.9
冬	泉大津	124	27	<u>109</u>	26.8	<u>0.0176</u>	0.567	1.1	79.7	2.52	28.1	<u>1.74</u>	<u>0.991</u>	<u>6.64</u>
	三日市	<u>72.5</u>	23	<u>98.3</u>	26.4	0.0060	0.417	1.42	74.8	0.93	19.6	<u>1.79</u>	<u>0.922</u>	<u>5.37</u>
	聖賢	86	35.2	<u>75</u>	39	0.007	0.369	1.21	117	0.61	25.6	<u>1.47</u>	1.41	<u>6.96</u>
	出来島	64	19	<u>65</u>	26	<u>0.012</u>	0.346	1.5	83	0.42	18.3	<u>1.31</u>	<u>1.28</u>	6.6

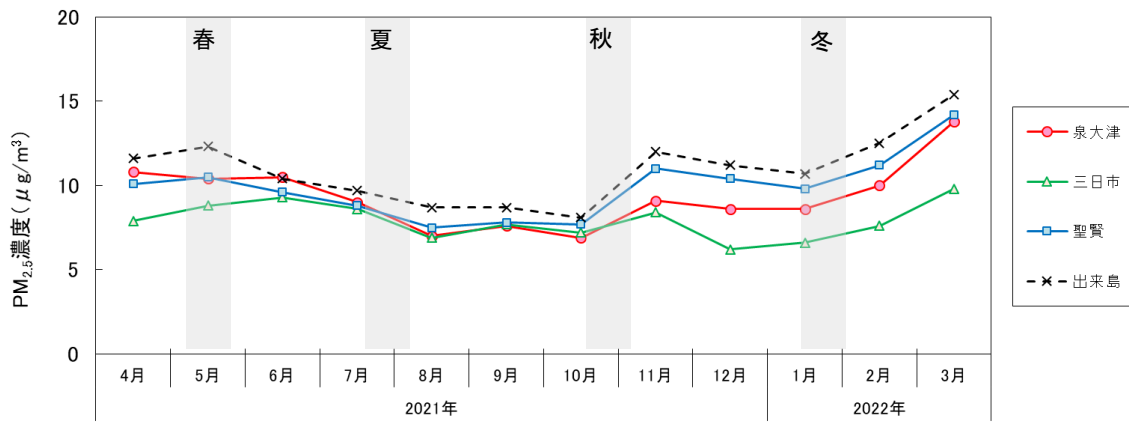
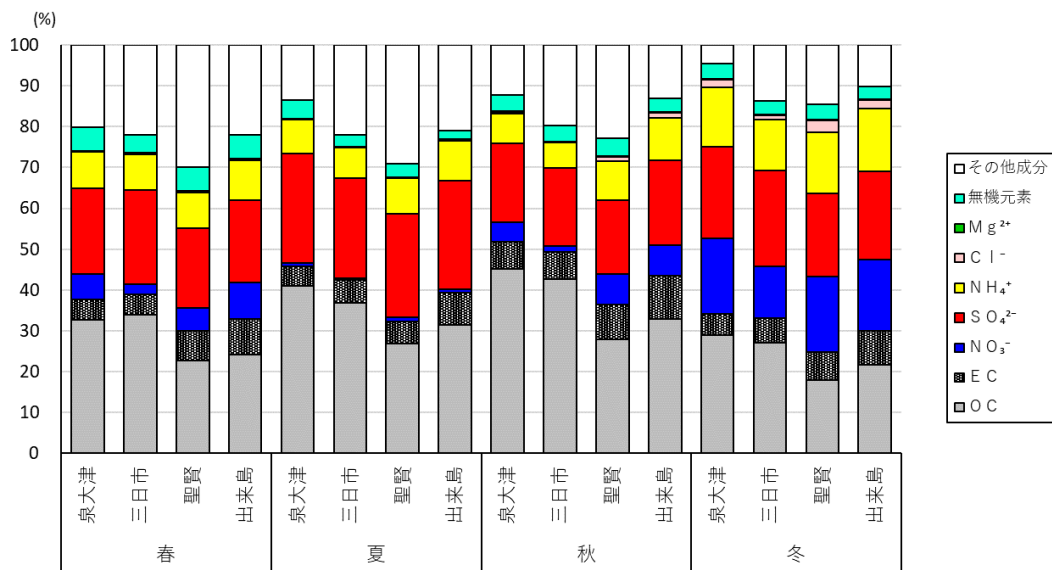
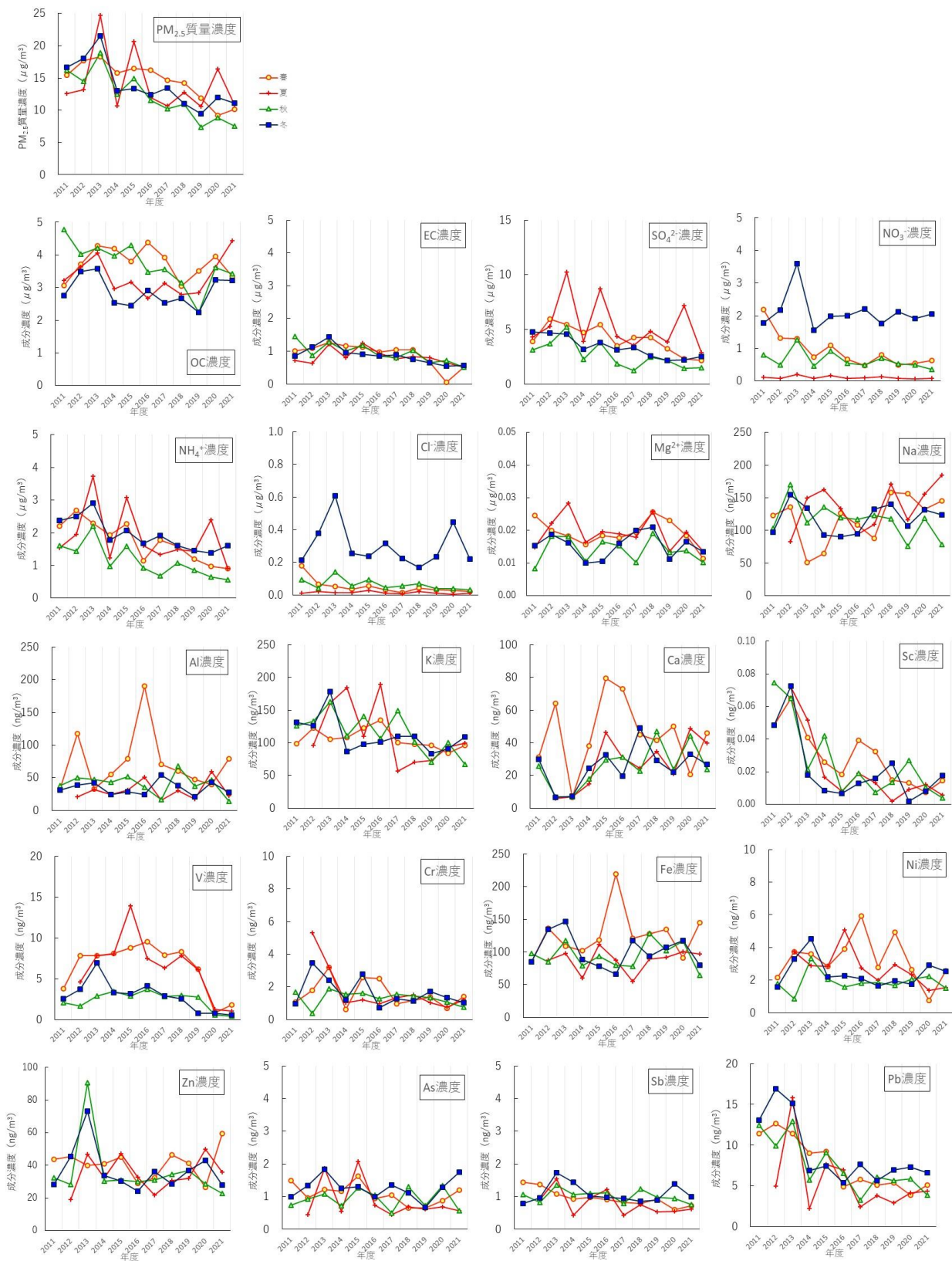


図4 PM_{2.5}濃度 (自動測定機) の月平均値の推移



※その他成分は、PM_{2.5}質量濃度から成分濃度の和を差し引いたもので、OCに結合している水素・酸素等を含む (OCは炭素のみの濃度)。

図5 各地点におけるPM_{2.5}の成分構成割合の季節平均値



※2011年度の無機元素の分析はPM_{2.5}質量濃度が高い試料のみ実施し、夏は8月3~8日のデータがないため無機元素成分の値を表示していない。

図6 泉大津におけるPM_{2.5}質量濃度および成分濃度の季節平均値の推移

②各季節の日ごとの状況

前述のように、2021年度の調査期間中のPM_{2.5}質量濃度の年平均値や季節平均値はこれまでより低い傾向を示し、日単位でも低い濃度で推移した。四季を通して調査期間中に1日平均値の環境基準である35 μg/m³を超過した日はなかった。ここでは、各季節の期間中の濃度推移を記載する。

a 春

PM_{2.5}質量濃度は、10 μg/m³前後で推移し、5/16あるいは5/20に各地点においてPM_{2.5}質量濃度が春の調査期間中最小となった。PM_{2.5}質量濃度が15 μg/m³を超過した日(地点)は、5/18(出来島)、5/19(出来島、泉大津)、5/25(泉大津、三日市、聖賢)、5/26(聖賢)であった(図7)。

成分構成は三日市のNO₃⁻濃度が低いことを除き4地点で大きな違いはなかった。三日市を除きPM_{2.5}質量濃度が15 μg/m³近くとなった5/18、5/19は、三日市を除きNO₃⁻濃度が他の日より高かった(図8、図9)。5/25、5/26は他の日と比べて無機元素の濃度が多く、特に土壌指標成分(Al、Ca、Sc、Tiの合計)が多くなっていた(図11)。

調査期間中の日平均の気温は18.9~23.1℃(5月平年値20.1℃)、風速は1.4~3.2 m/s(年間平年値2.4 m/s)、相対湿度は50~96%(年間平年値63%)で日ごとの明確な違いはなかった(図10)。期間中の日最大雨量は5/20の190.5 mmであった。5/16、5/20にPM_{2.5}質量濃度が低下したのは降雨の影響が考えられた。

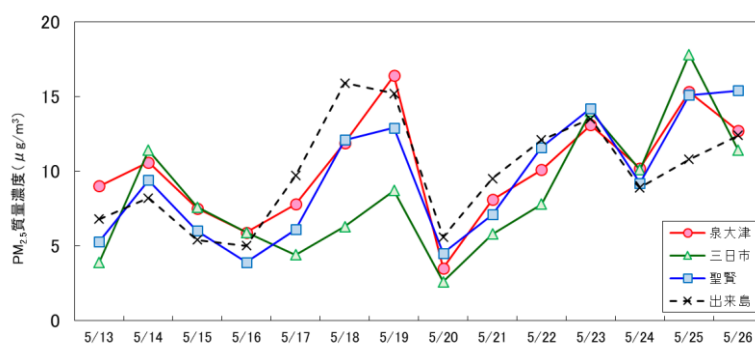


図7 各地点におけるPM_{2.5}質量濃度の経日変化(春)

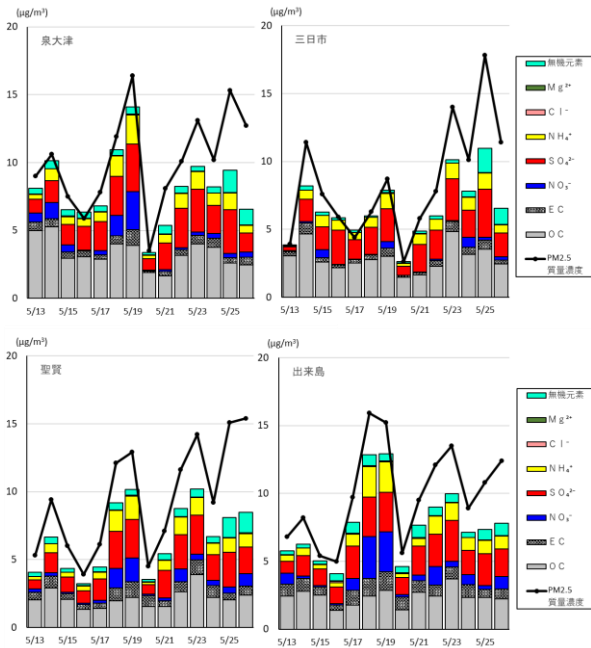


図8 地点ごとのPM_{2.5}質量濃度と成分濃度の積み上げグラフ（春）

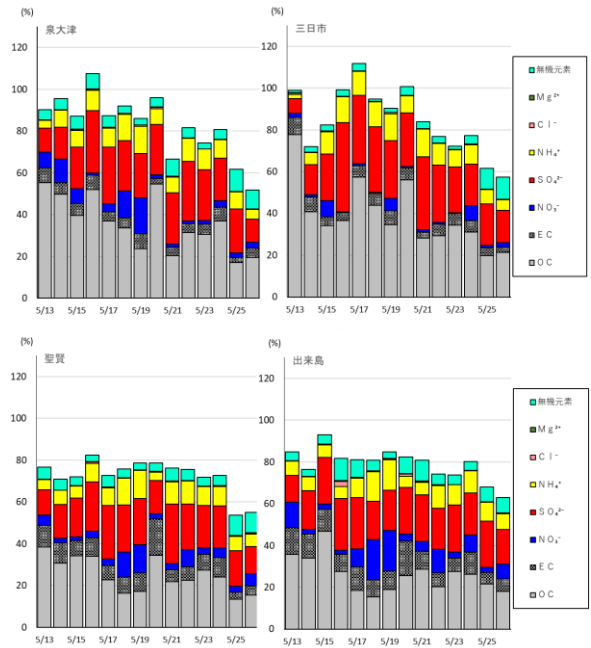


図9 地点ごとの成分構成割合（春）

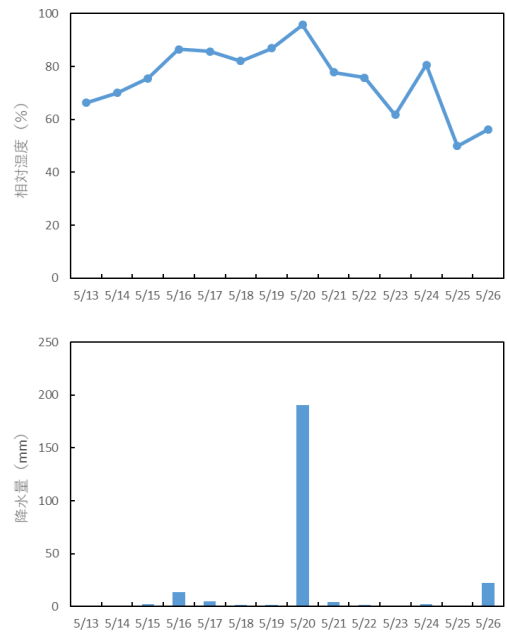
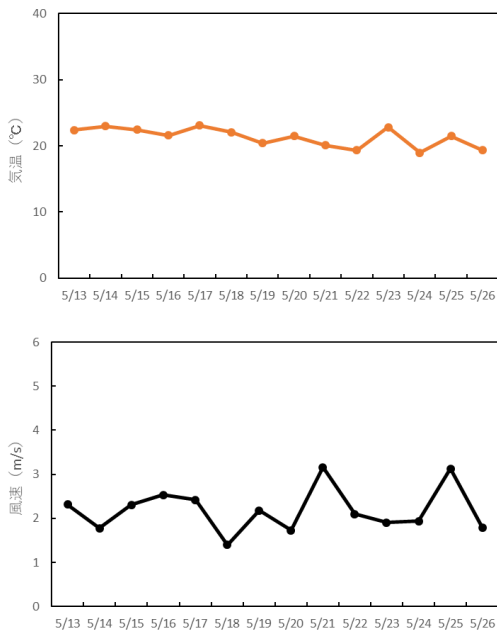


図10 調査期間中に大阪管区気象台で観測された気温・湿度・風速・降水量（春）

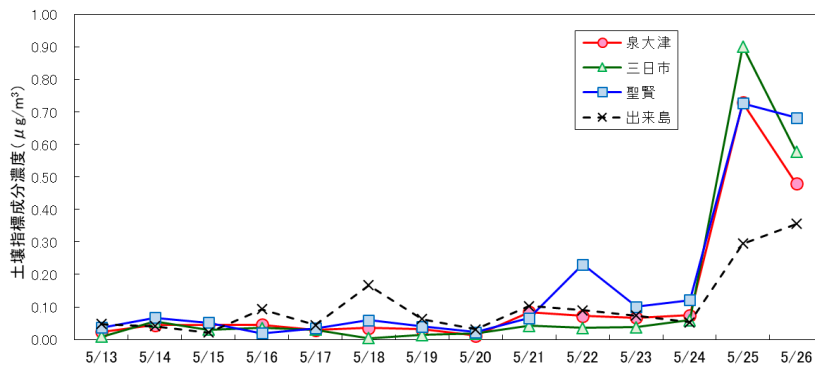


図11 各地点における土壌指標成分濃度の経日変化（春）

b 夏

PM_{2.5}質量濃度は、いずれの地点も7/29から徐々に上昇し、7/30に15 μg/m³前後となった後、8/1まで高い値で推移した。8/2に10 μg/m³前後まで下降し、その後は2.2~11.7 μg/m³の範囲で推移した(図12)。PM_{2.5}質量濃度が15 μg/m³を超過した日は4地点とも7/30、7/31、8/1の3日間であった。

成分構成は4地点で大きな違いはなかった。調査期間の前半の主成分はOCあるいはSO₄²⁻であり、7/30~8/2はSO₄²⁻の割合が7/29までに比べて高くなった。8/3以降はSO₄²⁻濃度が低下し、いずれの地点も主成分はOCであった(図13、図14)。SO₄²⁻濃度はPM_{2.5}質量濃度の日変動と類似していた。

調査期間中の日平均の気温は28.2~31.3℃(8月平年値29.0℃)、風速は1.7~3.6 m/s(年間平年値2.4 m/s)、相対湿度は57~77%(年間平年値63%)であった(図15)。

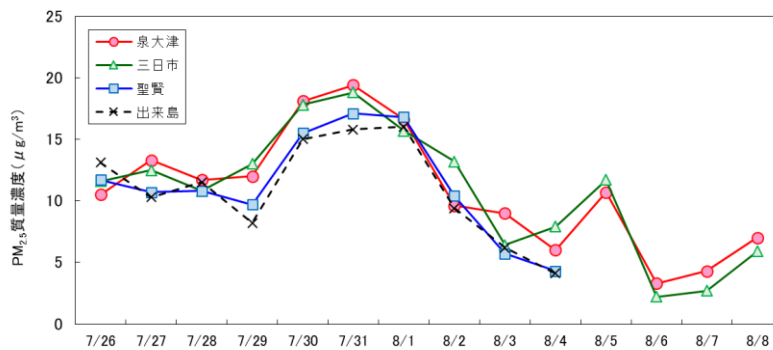


図12 各地点におけるPM_{2.5}質量濃度の経日変化(夏)

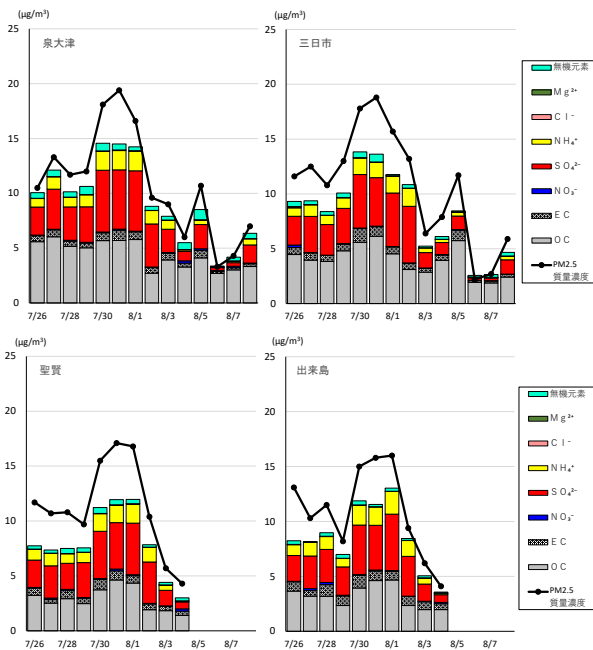


図13 地点ごとのPM_{2.5}質量濃度と成分濃度の積み上げグラフ(夏)

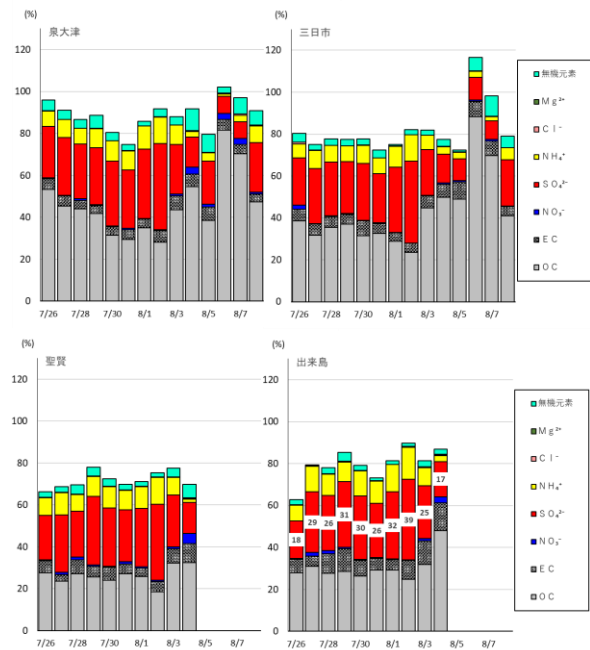


図14 地点ごとの成分構成割合(夏)

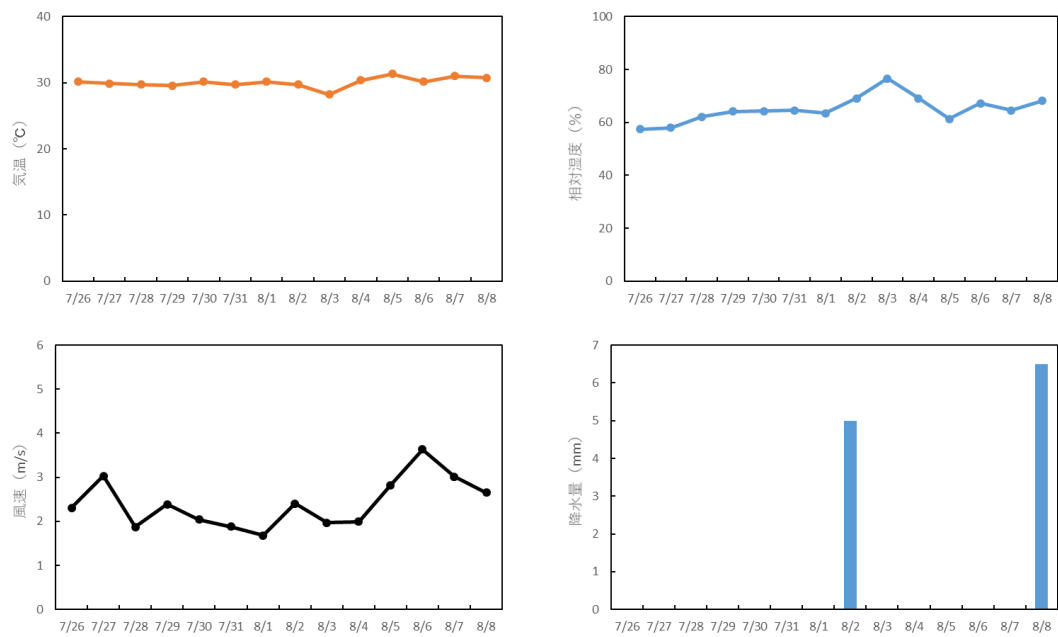


図 15 調査期間中に大阪管区気象台で観測された気温・湿度・風速・降水量（夏）

c 秋

PM_{2.5} 質量濃度は 5~10 μg/m³ 前後で推移し、PM_{2.5} 質量濃度が 15 μg/m³ を超過した日は無かった (図 16)。

成分構成は 4 地点で大きな違いはなかった。11/1 および 11/2 は SO₄²⁻ 濃度が他の日より高かった (図 17)。11/2 を除き主成分はいずれの地点も OC であった (図 18)。

調査期間中の日平均の気温は 13.9~18.8 °C (10 月平年値 19.5 °C)、風速は 1.2~2.8 m/s (年間平年値 2.4 m/s)、相対湿度は 53~89% (年間平年値 63%) で日ごとの明確な違いはなかった (図 19)。期間中の日最大雨量は 10/25 の 26.5 mm であった。

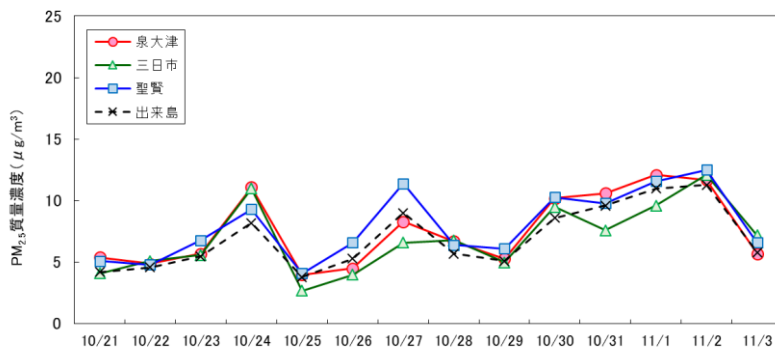


図 16 各地点における PM_{2.5} 質量濃度の経日変化 (秋)

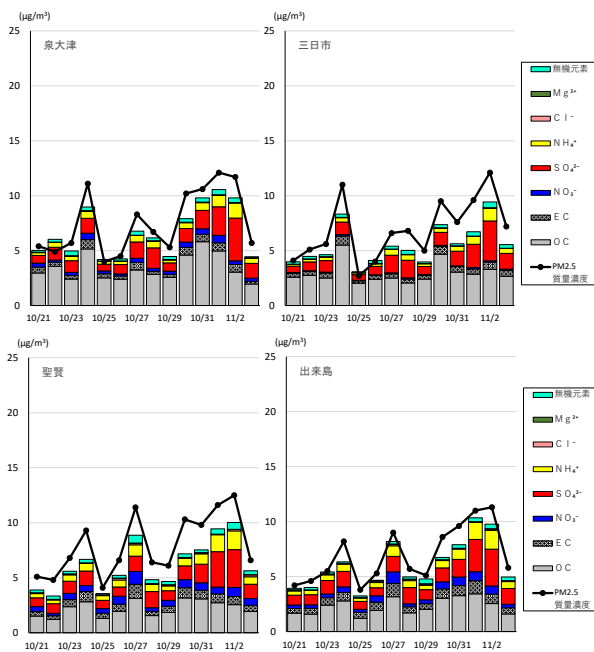


図 17 地点ごとの PM_{2.5} 質量濃度と成分濃度の積み上げグラフ (秋)

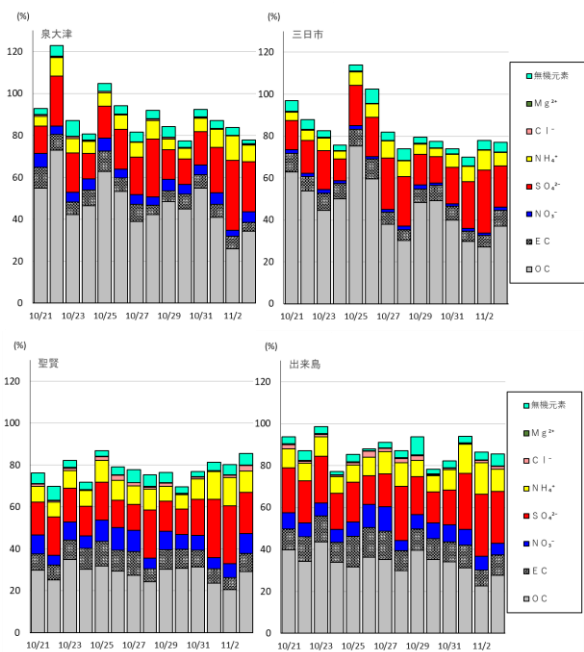


図 18 地点ごとの成分構成割合 (秋)

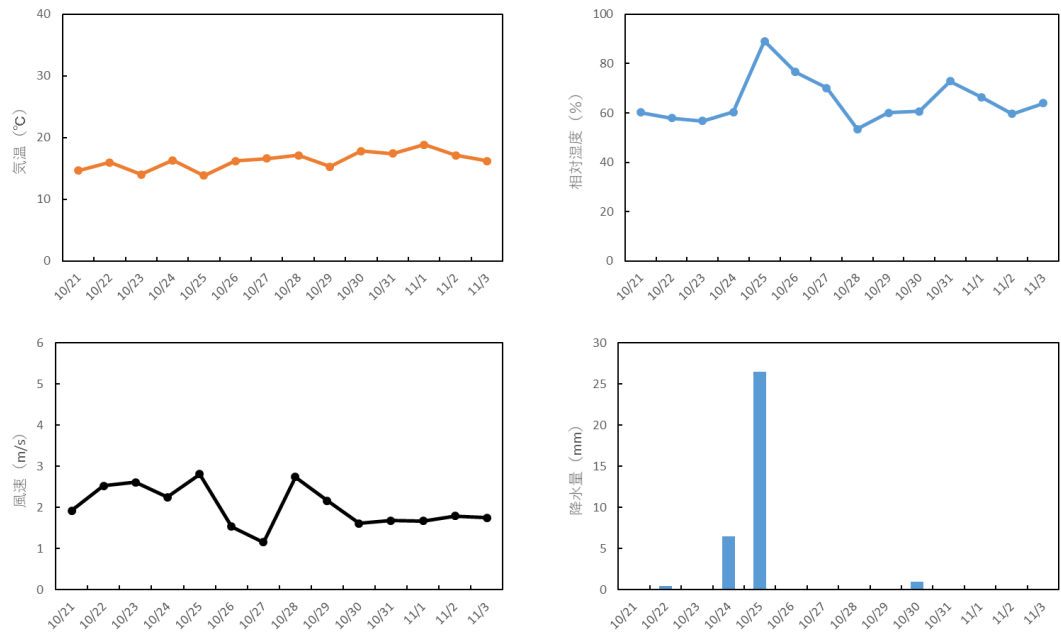


図 19 調査期間中に大阪管区气象台で観測された気温・湿度・風速・降水量 (秋)

d 冬

PM_{2.5} 質量濃度は 1/23 にかけて上昇し、1/24 に急激に濃度が低下した後、再び 15 μg/m³ 程度まで上昇し、1/31 にかけて減少した後、2/2 にかけて上昇した。PM_{2.5} 質量濃度が 15 μg/m³ を超過した日(地点)は 1/23 (泉大津、三日市)、1/26 (泉大津、聖賢、出来島)、1/27 (聖賢)、2/1 (三日市) および 2/2 (泉大津、三日市、聖賢、出来島) であった (図 20)。

成分構成は 4 地点で大きな違いはなかったが、1/23 の泉大津および 1/24 の聖賢では Cl⁻濃度が他の日より高かった (図 21)。主成分はいずれの地点も OC あるいは SO₄²⁻ であった (図 22)。上述の PM_{2.5} 質量濃度が 15 μg/m³ を超過した日(地点)は NO₃⁻濃度が冬季平均値 (1.3~2.1 μg/m³) より高く、PM_{2.5} に占める割合が 25% 前後 (冬季平均: 13~19%) であった。冬は NO₃⁻濃度の上昇が PM_{2.5} 質量濃度上昇の原因であったと考えられた。

調査期間中の日平均の気温は 3.6~8.6 °C (1 月平年値 6.2 °C)、風速は 1.1~3.4 m/s (年間平年値 2.4 m/s)、相対湿度は 53~87% (年間平年値 63%) であった (図 23)。

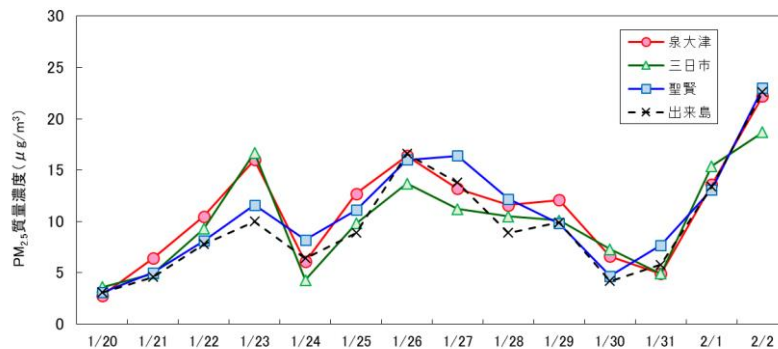


図 20 各地点における PM_{2.5} 質量濃度の経日変化 (冬)

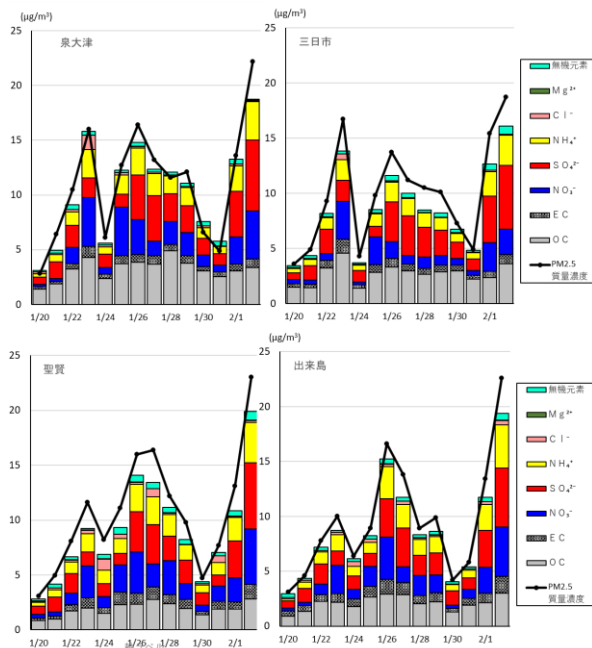


図 21 地点ごとの PM_{2.5} 質量濃度と成分濃度の積み上げグラフ (冬)

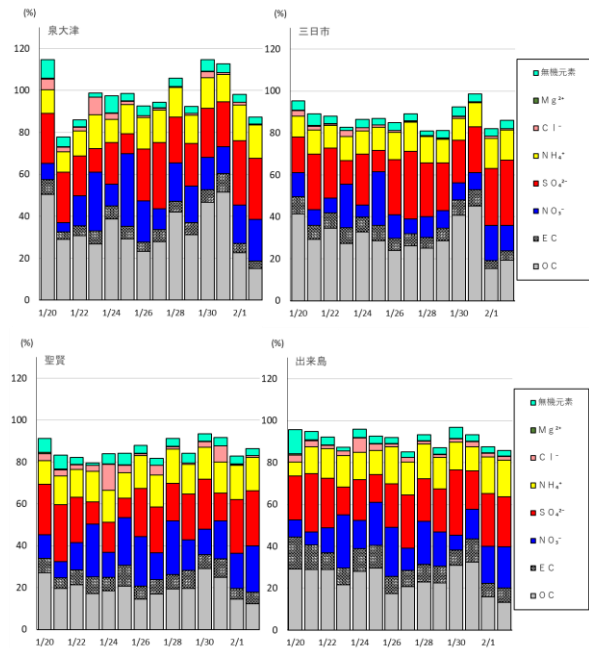


図 22 地点ごとの成分構成割合 (冬)

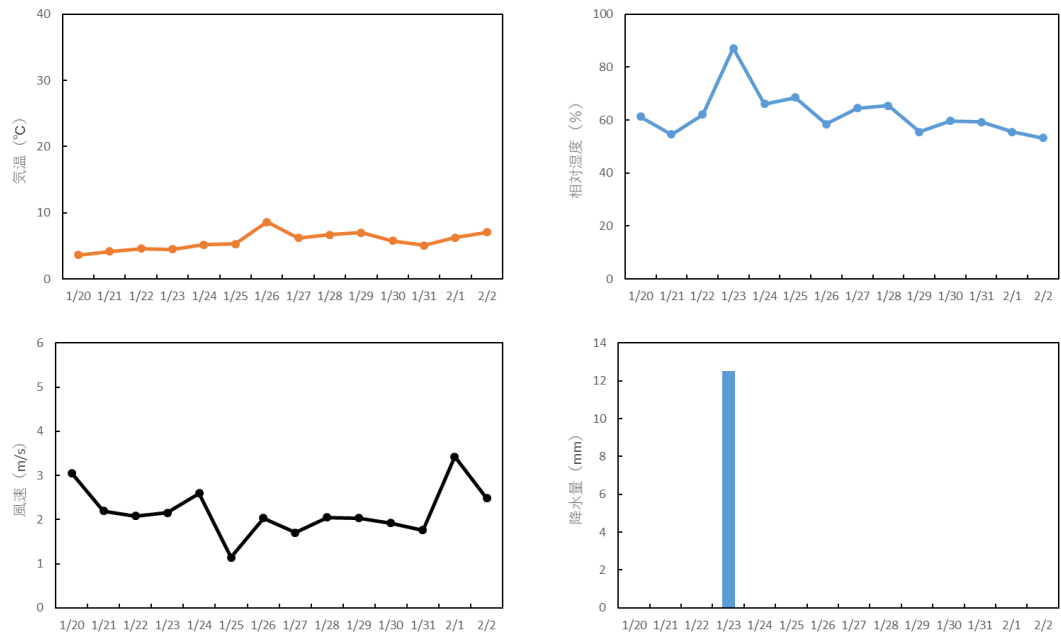


図 23 調査期間中に大阪管区气象台で観測された気温・湿度・風速・降水量 (冬)

4. 2012-2021 年度の状況

(1) PM_{2.5}濃度の変化要因に関する考察

①はじめに

日本国内の PM_{2.5}濃度は 2013 年度以降緩やかな減少傾向にある。環境基準の達成率は、2012 年度では国内全測定局の 4 割程度であったが 2016 年度には 9 割近くが達成するまでに改善され、以降、その状況が継続している⁴。この主な要因は中国での発生源対策強化による排出量の大幅な減少と考えられ⁵、また、中国での二酸化硫黄と窒素酸化物の排出量の変化にともない、日本国内のエアロゾルの組成は変化している⁶と報告されている。

そこで、大阪府内における 10 年間の常時監視 PM_{2.5}成分測定結果を用いて、PM_{2.5}による大気汚染状況の改善前である 2012-2015 年度（前半）と改善後の 2016-2021 年度（後半）の PM_{2.5}濃度の変化要因について考察した。なお、本項では PM_{2.5}質量濃度を PM_{2.5}濃度と表記している。

②方法

解析には大阪府内の PM_{2.5}成分測定地点のうち、2012 年度からの継続測定地点である泉大津 (IZ)、聖賢 (OSK) 及び出来島 (OSK_R) のデータを用いた。各成分濃度の平均値は有効数字 2 桁とした。測定地点の位置は図 1 に示した。試料捕集は春夏秋冬各 14 日間で、2013 年度以降は概ね環境省から示された期間である。泉大津の測定期間は表 1 及び表 2 のとおりである。PM_{2.5}の発生源とその寄与濃度の推定には Positive Matrix Factorization (PMF) 法を、発生源位置の推定には Concentration Weighed Trajectory (CWT) 法を用いた。PMF 法のソフトウェアは EPA PMF 5.0 を使用し、大阪府による一般環境の 1 地点を加えた各年度 4 地点の 10 年分の測定データでモデルの最適化を行い、ブートストラップ法により計算結果の堅牢性を確認した。CWT 法のソフトウェアは TrajStat 1.5.4 を使用し、気象データには NCEP-GDAS を用いて、計算範囲は東経 90 度～160 度、北緯 10 度～60 度（グリッド 0.5 度×0.5 度）とした。

③解析結果

図 24 に地点ごとの成分濃度及び PM_{2.5}濃度に対する成分割合の経年変化を示した。3 地点とも 2015 年度までは PM_{2.5}濃度が 15 μg/m³前後で推移していたが、2016 年度以降は濃度減少がみられ、2021 年度は約 10 μg/m³であった。主要成分 (OC、EC、NO₃⁻、SO₄²⁻、NH₄⁺) では、SO₄²⁻濃度が大きく減少した。SO₄²⁻は 2015 年度までは最大濃度成分で PM_{2.5}濃度に対する割合が 30%前後であったが、2016 年度以降は OC 濃度と同程度もしくは OC 濃度より低い濃度で推移しており、2021 年度の割合は 21～23%であった。

図 25 に季節別 PM_{2.5}濃度の経年変化を示した。いずれの地点も、春は緩やかに、秋はやや増減しつつも減少している一方、夏は高濃度イベントの有無で平均値が変化、冬は 2014 年度に急激に減少して以降概ね横ばいであり、季節によって減少の傾向が異なっていた。表 8 に示したとおり、PM_{2.5}濃度の季節平均値は前半の期間平均値に比べ後半は低く、春及び秋に有意差 (p<0.05) がみられた。その差は、IZ では春 4.3 μg/m³、秋 5.8 μg/m³、OSK では春 4.6 μg/m³、秋 6.2 μg/m³で、OSK-R では春 5.8 μg/m³、秋 5.9 μg/m³で、減少率は 3～4 割であった。

⁴ 環境省；令和 2 年度大気汚染状況について (https://www.env.go.jp/air/mat01R2_rep.pdf) .

⁵ 鶴野伊津志, 王哲, 弓本桂也, 板橋秀一, 長田和雄, 入江仁士, 山本重一, 早崎将光, 菅田誠治; 大気環境学会誌, 52, 177-184(2017) .

⁶ 鶴野伊津志, 板橋秀一, 王哲; エアロゾル研究, 36, 110-114(2021).

前半と後半で有意差がみられた春及び秋について、期間別の成分濃度の積み上げグラフを図 26 に示した。前半と後半で有意差 ($p < 0.05$) がみられた成分は、主要成分では SO_4^{2-} (春の OSK-R 除く)、 NH_4^+ 、EC、OC (秋のみ)、無機元素では Pb (秋の OSK-R 除く)、Rb であった。後半の期間平均値は前半に比べて、 SO_4^{2-} で $2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 程度、 NH_4^+ 及び OC (秋のみ) $1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 程度、EC で $0.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 程度の減少がみられた。図 27 に上述の成分の季節平均値の分布を示した。

PMF 法で抽出された 7 つの因子を、各因子の指標物質から、石炭燃焼由来の硫酸塩 (coal)、重油燃焼由来の硫酸塩 (oil)、バイオマス・廃棄物燃焼 (carbon)、硝酸及び塩化物系二次粒子 (secondary NC)、土壌 (soil)、海塩 (sea salt)、道路交通その他金属系 (road/metal) と推定した。図 28 に季節別因子寄与濃度の経年変化を示した。他の季節に比べて、春及び夏は oil 因子、秋は carbon 因子、冬は secondary NC 因子の寄与濃度が高い傾向がみられた。oil 因子の寄与濃度は 2019 年度冬以降に大幅に減少し、2020 年 1 月に強化された船舶燃料規制の効果が考えられた。春及び秋について、期間別の因子寄与濃度を図 29 に示した。後半に濃度減少がみられた主要成分 (SO_4^{2-} 、 NH_4^+ 、EC、OC) の寄与が高い因子は、coal、oil、carbon 及び road/metal 因子で、これらの因子寄与濃度は前半に比べて後半に減少していた。表 9 に示したとおり、coal 因子の寄与濃度の減少が大きく、後半は前半より 5-6 割減少していた。

図 30 に coal 因子の発生源位置推定分布図を示した。分布の中心濃度は後半よりも前半の方が高かった。前半・後半ともにアジア大陸で因子寄与濃度が高く、coal 因子は越境汚染の影響が大きいと考えられた。

以上より、2012-2015 年度 (前半) に対する 2016-2021 年度 (後半) の $\text{PM}_{2.5}$ 濃度の減少は、四季の中で春及び秋に大きく、要因としては越境汚染の石炭由来硫酸塩の減少の影響が大きいと推測された。

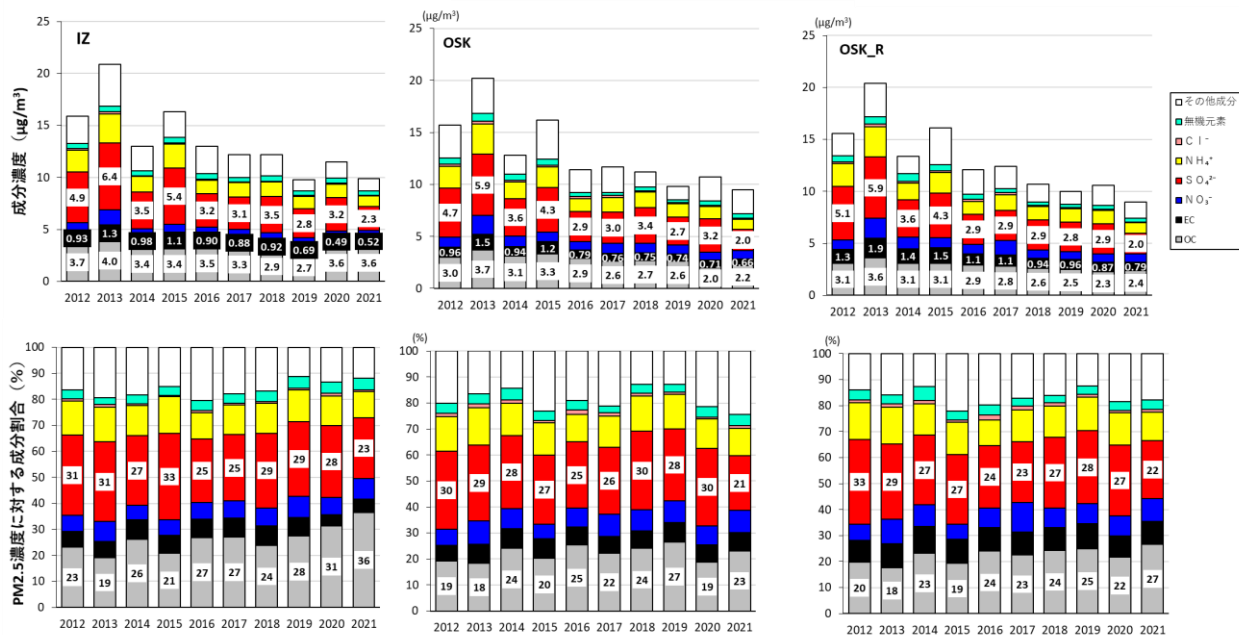


図 24 地点ごとの成分濃度の積み上げグラフ及び成分割合の経年変化

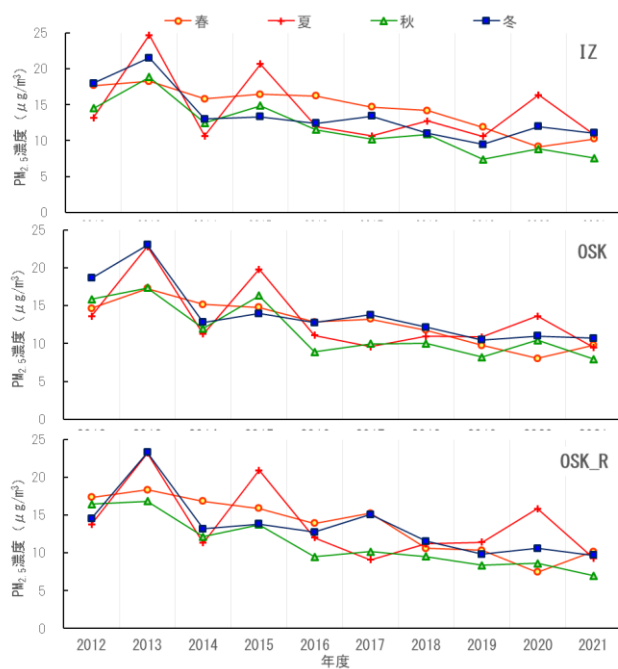


図 25 季節別 PM_{2.5} 濃度の経年変化

表 8 季節別 PM_{2.5} 濃度の期間平均値

季節	期間	PM _{2.5} 濃度 Ave ± σ (µg/m³)		
		IZ	OSK	OSK_R
春	2012-2015	17.1 ± 8.6	15.5 ± 8.2	17.1 ± 8.6
	2016-2021	12.7 ± 6.6	10.9 ± 5.4	11.3 ± 5.4
夏	2012-2015	17.3 ± 11.9	16.9 ± 11.4	17.3 ± 11.4
	2016-2021	12.2 ± 6.6	10.9 ± 5.4	11.5 ± 5.9
秋	2012-2015	15.2 ± 7.7	15.4 ± 7.5	14.8 ± 7.1
	2016-2021	9.4 ± 4.6	9.2 ± 4.7	8.9 ± 4.5
冬	2012-2015	16.5 ± 9.4	17.1 ± 9.8	16.2 ± 8.9
	2016-2021	11.6 ± 6.2	11.8 ± 5.6	11.6 ± 5.9

前半：2012-2015 年度

後半：2016-2021 年度

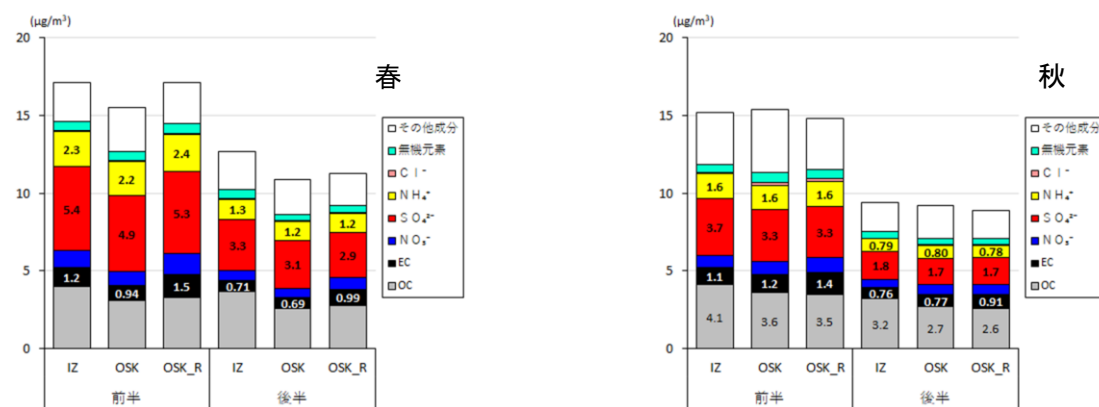


図 26 期間別の成分濃度の積み上げグラフ（春及び秋）

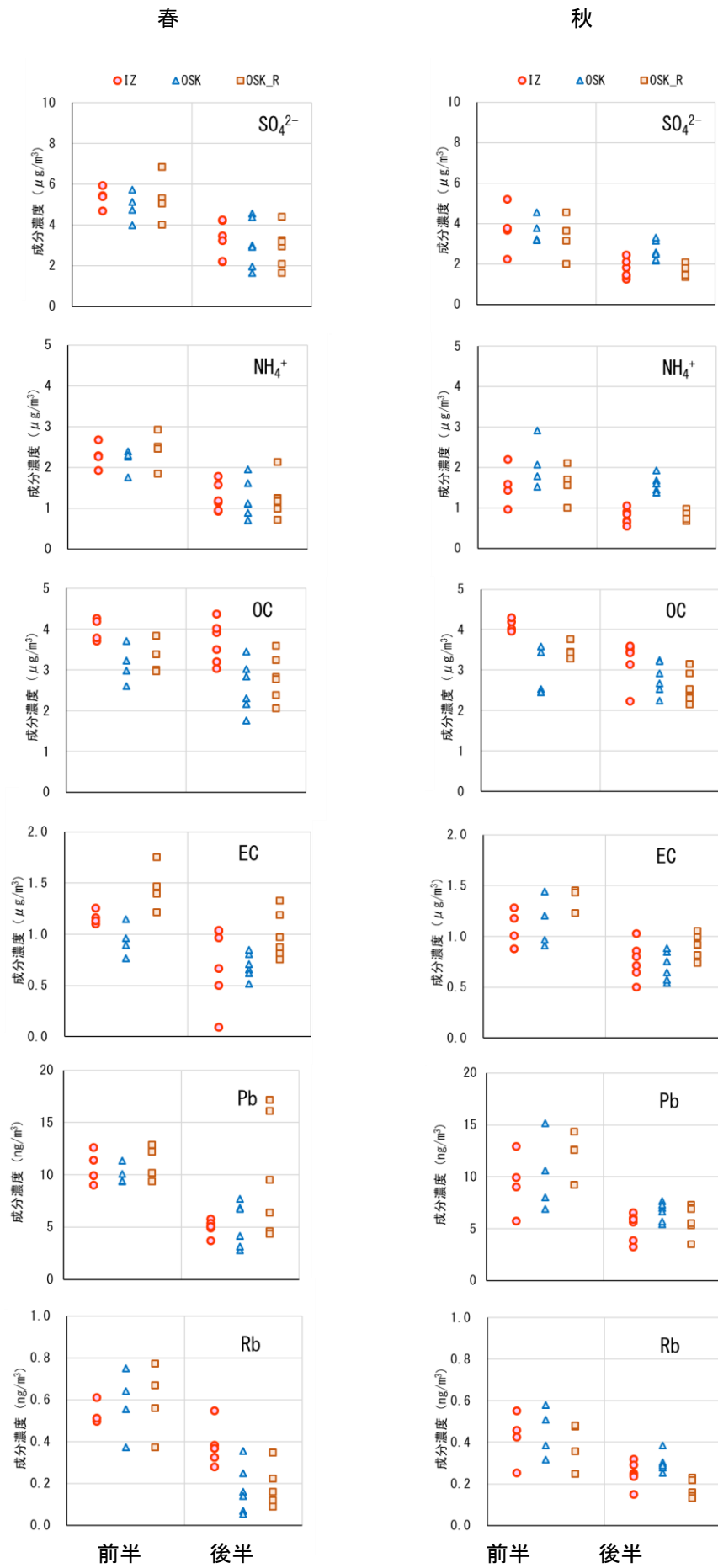


図 27 期間別の季節平均値の分布（春及び秋）

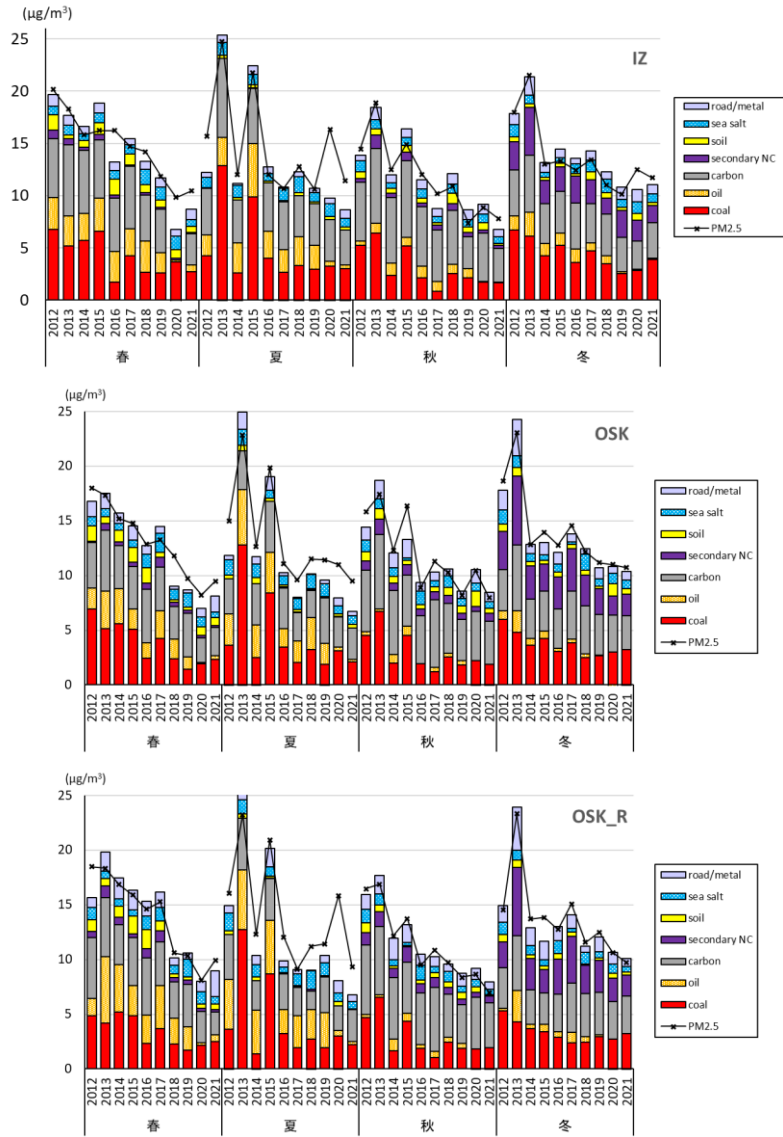


図 28 季節別因子寄与濃度の経年変化

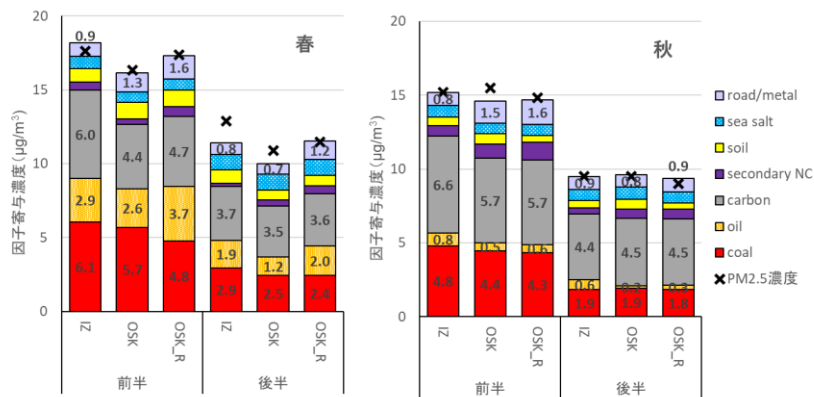


図 29 期間別の因子寄与濃度（春及び秋）

表 9 前半期間と後半期間での因子寄与濃度の差（前半の濃度-後半の濃度 $\mu g/m^3$ ）

	coal		oil		carbon		road/metal	
	春	秋	春	秋	春	秋	春	秋
IZ	3.1	2.9	1.1	0.2	2.3	2.1	0.1	0.0
OSK	3.2	2.5	1.4	0.4	0.9	1.2	0.6	0.7
OSK_R	2.3	2.5	1.7	0.3	1.2	1.2	0.4	0.7

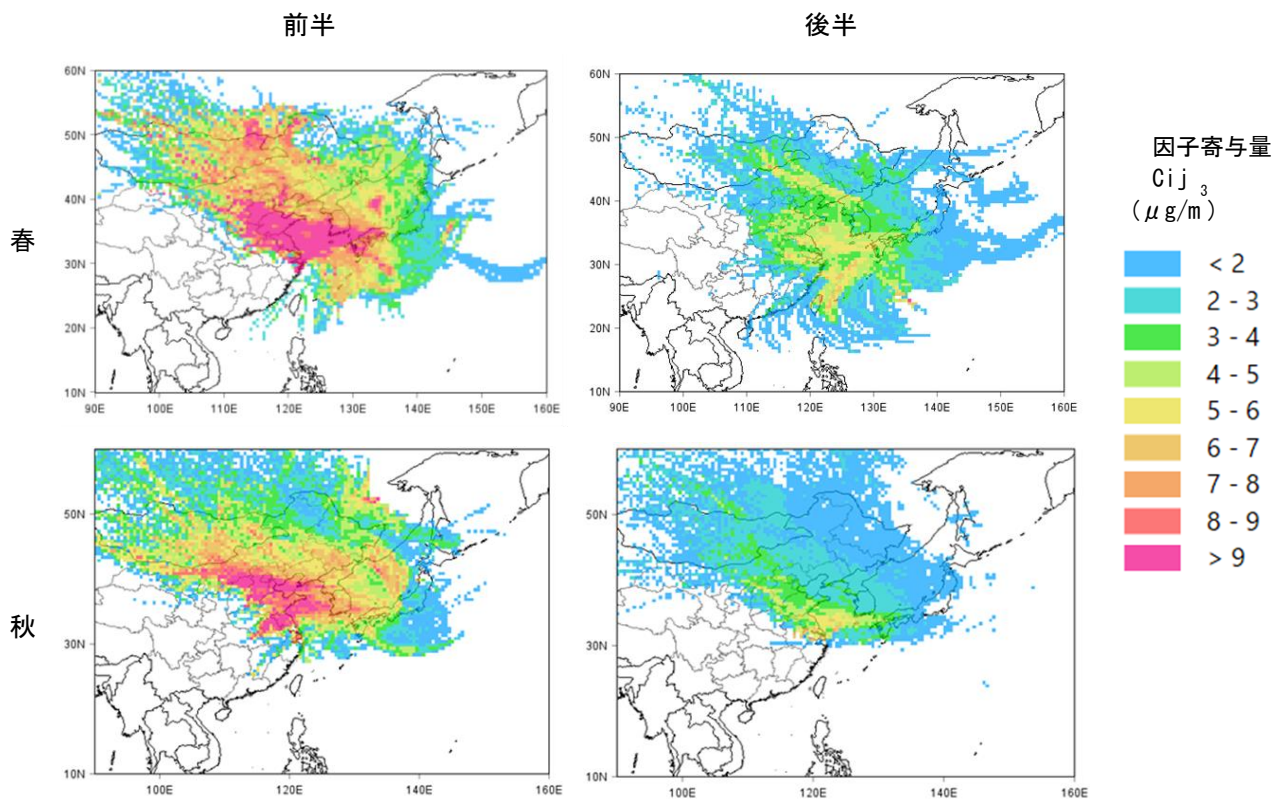


図 30 期間別の coal 因子の位置推定分布図 (春及び秋)

(2) 2001年度-2010年度との比較

大阪府内一般環境のPM_{2.5}成分測定地点のうち、2012年度からの継続測定地点である泉大津(IZ)及び聖賢(OSK)の10年間(2012-2021)の成分測定データを、2001年度から2010年度(2001-2010)の10年間の粒子状物質調査⁷のデータと比較した。

2001年度から2010年度については、アンダーセンエアサンプラー(東京ダイレック社)を用いて14日間連続で捕集した粒径2.1μm未満の微小粒子による各年度4月(春)、7月(夏)、10月(秋)、1月(冬)のデータを用いた。調査地点は大阪市東成区である。なお、データを比較するにあたっては、○PM_{2.5}とは捕集粒径が異なること、○14日間連続捕集のため、揮発性が高い粒子は捕集中に揮散し低い濃度となっている可能性があること、○炭素(OC/EC)分析においてOCの炭化補正を行っていないためOCが過小評価、ECが過大評価されていることに留意が必要である。

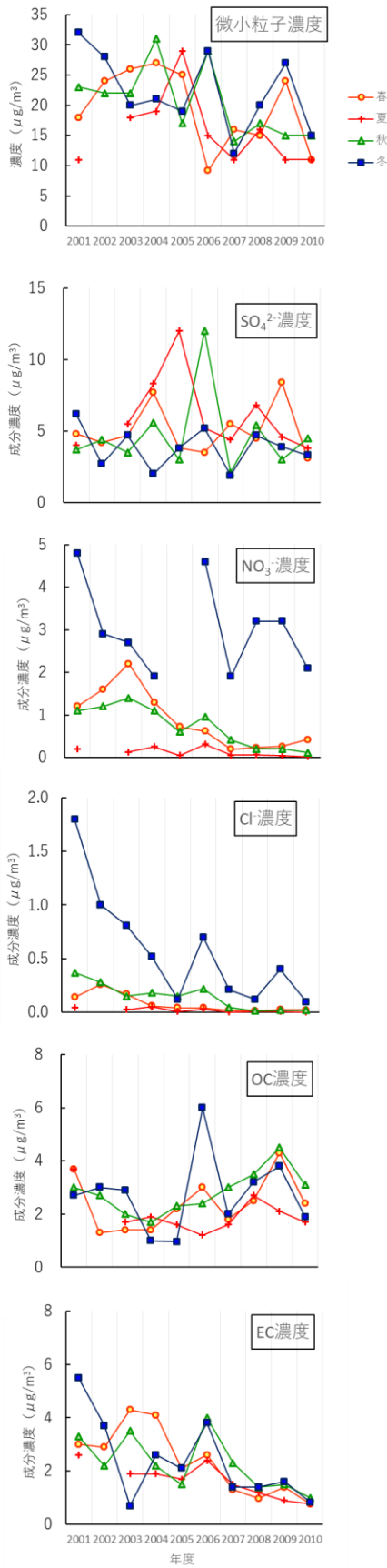
表10に示したとおり、2012-2021の10年間の平均濃度は、2001-2010の10年間に比べて低く、PM_{2.5}成分測定が開始される以前からPM_{2.5}濃度は減少傾向にあったと推測される。図31に微小粒子及びPM_{2.5}濃度、微小粒子及びPM_{2.5}中のSO₄²⁻、NO₃⁻、Cl⁻、OC、EC濃度の経年変化を示した。各季の微小粒子濃度は、高濃度イベントの有無で濃度が増減しているものの、2001から2010年度にかけて減少傾向にあった。また、2001-2010の10年間に比べて、2012-2021の10年間ではNO₃⁻、Cl⁻、ECが低い濃度で推移していた。これらの成分は、自動車排気ガスや廃棄物焼却等が発生源であり、2001-2010の10年間に順次実施された自動車排出ガス規制の強化等の自動車排出ガス対策や2000年に施行されたダイオキシン類対策特別措置法等による工場・事業場対策の効果によるものと推測された。

表10 微小粒子及びPM_{2.5}濃度の10年間平均値

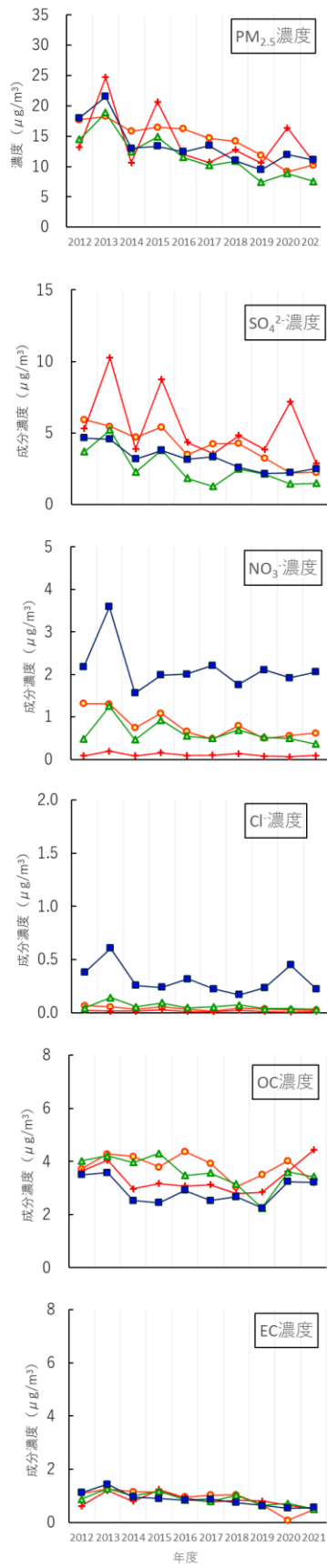
季節	期間	微小粒子及びPM _{2.5} 濃度 Ave±σ(μg/m ³)		
		大阪市内	IZ	OSK
春	2001-2010	19.5 ± 6.5	-	-
	2012-2021	-	14.5 ± 7.7	12.7 ± 7.0
夏	2001-2010	15.7 ± 5.9	-	-
	2012-2021	-	14.2 ± 9.4	13.3 ± 8.8
秋	2001-2010	20.5 ± 6.0	-	-
	2012-2021	-	11.7 ± 6.6	11.7 ± 6.7
冬	2001-2010	22.3 ± 6.5	-	-
	2012-2021	-	13.5 ± 8.0	13.9 ± 8.0

⁷ <https://www.knsk-osaka.jp/kankyo/gijutsu/pm/index.html>

2001-2010 年度（大阪市内）



2012-2021 年度（IZ）



2012-2021 年度（OSK）

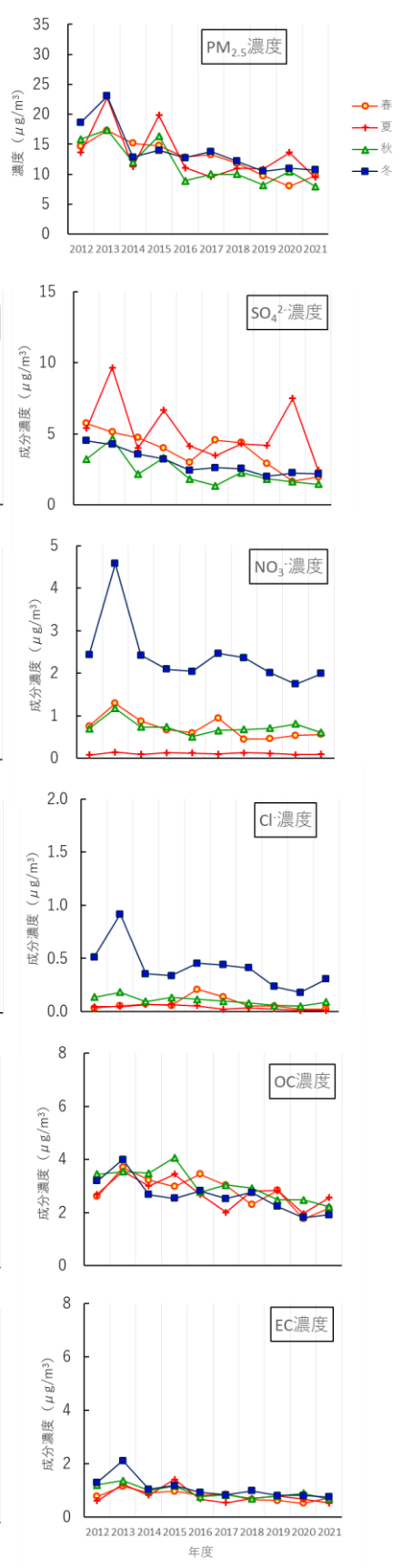


図 31 季節別濃度の経年変化

5. まとめ

2021年度は、泉大津・三日市の一般局2地点においてPM_{2.5}の成分分析を実施した。大阪市の測定地点（一般局の聖賢および自排局の出来島）の成分分析結果とあわせて解析した。

2021年度の調査期間中のPM_{2.5}は、質量濃度・成分濃度ともにこの10年間では低めの値であった。

○年間の状況

- ・ 年間56日間（14日間×4季）の調査期間中のフィルタ法によるPM_{2.5}質量濃度の年平均値は、9.0～9.9 μg/m³であった。
- ・ 成分濃度の中ではいずれの地点もOC濃度（2.21～3.60 μg/m³）とSO₄²⁻濃度（1.97～2.25 μg/m³）が高かった。各地点における年度平均値から算出した成分構成割合は、OCが24～36%、SO₄²⁻が21～23%で、全地点でOCが高かった。
- ・ 2011年度からの継続局である泉大津における年度平均値の成分構成割合は、過年度と比べ、OCの割合が増え、SO₄²⁻の割合が減少する傾向にあった。

○季節別の状況（季節平均）

- ・ PM_{2.5}質量濃度の季節平均値（1日×14回）は、出来島は春（9.9 μg/m³）、三日市は夏（10.7 μg/m³）、泉大津と聖賢は冬（それぞれ11.1 μg/m³、10.7 μg/m³）が最大となった。
- ・ 成分濃度は年平均値同様にいずれの地点・季節もOC濃度とSO₄²⁻濃度が高かった。
- ・ 無機元素は大気中で反応して二次生成することがないため、各種発生源の指標となることが知られている。土壌粒子の指標であるAl, Ca, Scは、4地点で（泉大津のSc、三日市のCaを除く）春に最大となった。また、各発生源から排出されるが土壌にも含まれるV, Fe, Ni, Znも春に最大となっていた。5/25～5/26には大阪では観測記録はなかったが、西日本で黄砂が観測されていることから、黄砂の影響があったと考えられる。
- ・ 2021年度の泉大津におけるPM_{2.5}質量濃度および成分濃度の季節平均値を同地点の過去の値と比較した。PM_{2.5}質量濃度の季節平均値は、2013年以降4季節とも減少傾向にある。SO₄²⁻およびNH₄⁺濃度はPM_{2.5}質量濃度と同様の傾向を示した（それぞれ、相関係数r=0.90、0.83）。OC濃度はほぼ横ばいである。EC濃度は春・冬を除き、過去3年間に比べていずれの季節も低かった。NO₃⁻はいずれの季節も2016年度以降と同レベルの濃度であった。冬のCl⁻濃度は昨年度より低下し、2014年度以降の0.2～0.3 μg/m³で推移していた値に近くなった。また、無機元素のうちSc, Pbは2012、2013年から2014年度にかけて減少し、その後は横ばいの傾向にあった。Vは2019年度冬に前年度の冬から大きく減少し、その後、低い濃度で推移していた。

○2012-2021年度の状況

- ・ 2012-2021年度の10年間の常時監視PM_{2.5}成分測定結果を用いて、PM_{2.5}による大気汚染状況の改善前である2012-2015年度（前半）と改善後の2016-2021年度（後半）のPM_{2.5}濃度の変化要因について考察した。2012-2015年度（前半）に対する2016-2021年度（後半）のPM_{2.5}濃度の減少は、四季の中で春及び秋に大きく、要因としては越境汚染の石炭由来硫酸塩の減少の影響が大きいと推測された。
- ・ 2012-2021年度の10年間のPM_{2.5}成分測定データを2001-2010年度の10年間の粒子状物質調査のデータと比較した。2001-2010年度の10年間に比べて、2012-2021年度の10年間ではNO₃⁻、

Cl⁻、EC が低い濃度で推移していた。これらの成分は、自動車排気ガスや廃棄物焼却等が発生源であり、2001-2010 年度の 10 年間に順次実施された自動車排出ガス規制の強化等の自動車排出ガス対策や 2000 年に施行されたダイオキシン類対策特別措置法等による工場・事業場対策の効果によるものと推測された。