

愛媛県内におけるPM_{2.5}の経年変化及び船舶燃料油環境規制の影響

清水友樹 徳永友貴 那須勇汰 堀内裕章 兵頭孝次 泉喜子 望月美菜子

Keywords : Atmospheric Environment, PM_{2.5}, Source Characterization, Ship Emissions, vanadium

大気中の微小粒子状物質(PM_{2.5})は、呼吸器系や循環器系等への影響が懸念されることから、本県ではPM_{2.5}質量濃度の自動測定機による常時監視に加え、季節ごとにPM_{2.5}の成分分析を行っている。また、大内らの調査¹⁰⁾において、PM_{2.5}の発生源寄与を推定し、各発生源の指標成分について知見を得ている。

今般、PM_{2.5}質量濃度の常時監視結果、及びPM_{2.5}の成分分析結果を用いて10年間の経年変化を追跡調査するとともに、令和2年1月から開始されたSO_x規制^{1,2)}による影響について検証した。

その結果、PM_{2.5}は越境汚染の減少により、本県の環境も改善傾向にあり、SO_x規制の前後で、重油燃焼・硫酸系エアロゾルの特異な指標成分であるバナジウム(V)の濃度が減少しており、船舶の重油使用の減少、又は燃料油中のV含有量の低下が示唆された。

はじめに

大気中のPM_{2.5}は、粒径が2.5 μm以下の極めて微小な粒子であり、呼吸器系や循環器系等への影響が懸念されることから、平成21年9月にPM_{2.5}に係る大気環境基準が制定された。また、平成22年3月に「大気汚染防止法第22条の規定に基づく大気汚染の常時監視に関する事務処理の基準」が改正されたことを受け、各地方自治体におけるPM_{2.5}の測定が行われるようになった。

本県においても、平成23年9月に最初のPM_{2.5}自動測定機が設置されて以降、現在では17か所の測定局(松山市設置5局を含む。)においてPM_{2.5}の質量濃度常時監視を行い、環境基準の達成状況を把握している。また、これに加え、季節ごとにPM_{2.5}の成分分析を行っており、大気中の挙動や発生源に係る知見の集積に努めており、この10年間の経年変化をとりまとめた。

加えて、硫黄酸化物(SO_x)や粒子状物質による人の健康や環境への悪影響を低減するため、世界一律で、令和2年1月から船舶の燃料油の硫黄含有量を既存の3.5%から0.5%以下にする規制が強化(以下、SO_x規制^{1,2)})されたことを受け、SO_x規制による県内のPM_{2.5}質量

濃度及び構成成分への影響について検証を行ったので報告する。

方法

1 PM_{2.5}質量濃度自動測定機による常時監視体制及びPM_{2.5}質量濃度の経年変化について

PM_{2.5}質量濃度自動測定を実施している各測定局の配置は図1のとおりである。県内の地域性を考慮して、東予地域(今治旭、東予、西条、金子、中村、川之江、伊予三島)の7局、中予地域(松前、久万高原)の2局、南予地域(大屋、八幡浜、宇和島)の3局、計12局を本県で整備している。また、松山市が市内(和気、味生、朝生田、垣生小学校、富久町)の5局(中予地域を含む。)を整備している。

これらの自動測定機で収集した平成25年度から令和3年度のデータを用い、PM_{2.5}質量濃度について、東予地域、中予地域、南予地域に分け、それぞれの年平均値の経年変化を調査した。また、本県におけるPM_{2.5}の環境基準(1年平均値が15 μg/m³以下であり、かつ、1日平均値が35 μg/m³以下であること)の達成率(環境基準達成した測定局数/全17局)についても併せて調査した。

表 1 各発生源と指標成分

| 発生源 | | 指標成分(%) |
|-----|----------------------|---|
| 1 | 塩化物・硝酸系エアロゾル | Cl ⁻ (57.5), NO ₃ ⁻ (82.8), NH ₄ ⁺ (6.4) |
| 2 | 土壌・工場粉じん | Al (71.3), Fe (62.9), Rb (71.0), Ca ²⁺ (23.7), Mn (58.9), Pb (56.1), Zn (48.8) |
| 3 | 重油燃焼・硫酸系エアロゾル | V (68.9), Ni (52.3), SO ₄ ²⁻ (13.9), NH ₄ ⁺ (12.4), EC (10.5) |
| 4 | 海塩 | Na ⁺ (87.5), Ca ²⁺ (33.6), Cl ⁻ (33.0) |
| 5 | 石炭燃焼・硫酸系エアロゾル (近隣) | SO ₄ ²⁻ (8.0), NH ₄ ⁺ (8.6), As (74.6), Pb (19.5) |
| 6 | バイオマス燃焼・道路交通 | K ⁺ (25.1), OC (44.8), EC (46.4), As (10.1), Rb (4.0), Sb (16.1) |
| 7 | 石炭燃焼・硫酸系エアロゾル (越境汚染) | SO ₄ ²⁻ (63.7), NH ₄ ⁺ (59.5), As (7.3), Pb (15.1) |

※各成分について、発生源 1～7 の合計が指標成分以外を含み 100%である。

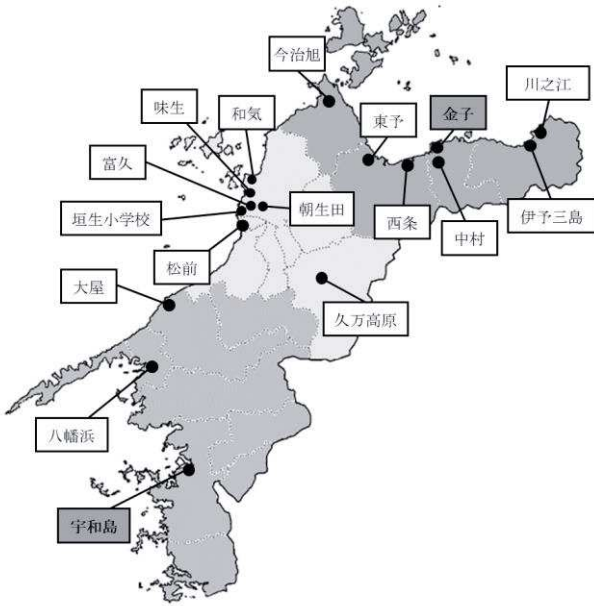


図 1 測定地点

2 PM_{2.5} 構成成分分析及び測定結果の経年変化について

成分分析の試料採取は重化学工業等が立地する金子及びバックグラウンドとして宇和島の 2 地点で行い(図 1), 季節ごとに年 4 回, 各 2 週間連続捕集を実施した。試料採取には, 環境省の環境大気常時監視マニュアルに基づき, PM_{2.5} 質量濃度の測定にはフィルター捕集-質量法(標準測定法)を用いた。分析には, 環境省の PM_{2.5} 成分測定マニュアルに基づき, 質量濃度を測定するとともに構成成分として, イオン成分の測定にはイオンクロマトグラフ法, 炭素成分の測定には炭素分析装置サーマルオプティカル・リフレクタンス法, 無機成分の測定には誘導結合プラズマ質量分析法を用いた。

PM_{2.5} の成分分析については, 平成 24 年度春季から令和 3 年度冬季までの 10 年間におけるデータ(突発的な外れ値を除く。)を用い, 各季節 2 週間分の値の平均値を解析に供した。

(1) 発生源(推定)毎の経年変化

以前の調査において, 本県における PM_{2.5} の発生源寄与を推定した結果, 各発生源とその指標成分は表 1 のように示された¹⁰⁾。これら発生源毎に, 平成 24 年度を 100%とし, 経年変化を調査した。ただし, 石炭燃焼・硫

酸系エアロゾル(近隣)及び石炭燃焼・硫酸系エアロゾル(越境汚染)は発生源間成分比率が全く異なるものの指標成分が同じであるため, 1 つにまとめた。また, PM_{2.5} 質量濃度と各発生源の指標成分の経年変化の相関性を確認するため, PM_{2.5} 質量濃度の経年変化率と各発生源の指標成分の経年変化率をそれぞれ平成 24 年度比として, 回帰分析を行い, 相関係数を求めた。

(2) 重油燃焼・硫酸系エアロゾルの指標成分の経年変化

SO_x 規制の対象である船舶の燃料油は重油燃焼・硫酸系エアロゾルに分類でき, 指標成分は V, ニッケル(Ni), 硫酸イオン(SO₄²⁻), アンモニウムイオン(NH₄⁺)及び元素状炭素(EC)であり, これらの成分について, PM_{2.5} 質量濃度に対する構成割合の経年変化を調査した。

結果及び考察

1 PM_{2.5} 質量濃度の経年変化

自動測定による PM_{2.5} 質量濃度については, すべての地域において減少傾向が認められた(図 2)。また, 平成 25 年度はすべての測定局で環境基準を達成していなかったが, 令和元年度には初めて県内すべての測定

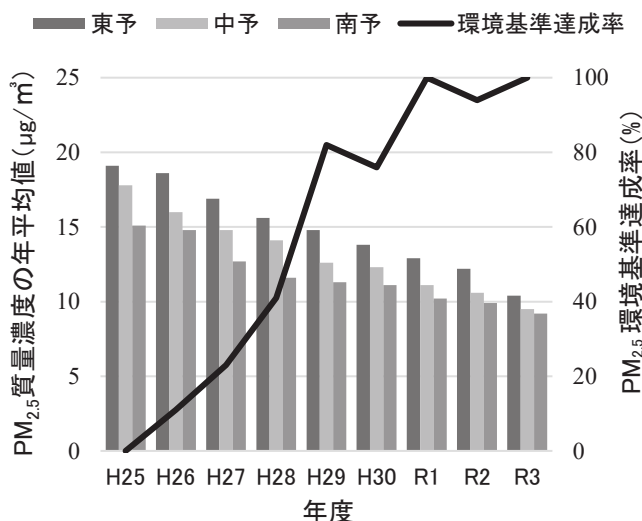


図 2 自動測定機常時監視における PM_{2.5} 質量濃度の経年変化及び環境基準の達成率

局で環境基準を達成し、令和 2 年度においても県内 17 局中 16 局、令和 3 年度は再びすべての測定局で環境基準を達成など環境改善が進んでいる。

2 PM_{2.5} の構成成分の経年変化

PM_{2.5} 構成成分と同時に測定した質量濃度の経年変化について、図 3 に示した。各発生源の指標成分の経年変化(平成 24 年度比)は、石炭燃焼・硫酸系エアロゾルの指標成分は PM_{2.5} 質量濃度に合わせて増減しており、海塩の指標成分は PM_{2.5} 質量濃度の増減に関係なく横ばいであるなど発生源毎に異なる変化となった。

PM_{2.5} 質量濃度と各発生源間の指標成分の経年変化(いずれも平成 24 年度比)を回帰分析した結果を図 4、表 3 に示した。PM_{2.5} 質量濃度の経年変化と各発生源の指標成分の経年変化の相関係数は、石炭燃焼・硫酸系エアロゾルが最も高い結果となった。

また、石炭燃焼・硫酸系エアロゾルにおいて、砒素(As)は近隣(74.6%)、越境汚染(7.3%)の発生源間成分比率の差が大きく、近隣に特異な成分であるため、石炭燃焼・硫酸系エアロゾルの指標成分から As を省いて石炭燃焼・硫酸系エアロゾル(越境汚染)として再度、回帰分析した結果、相関係数が上昇したため、PM_{2.5} 質量濃度の減少には石炭燃焼・硫酸系エアロゾル(越境汚染)がより大きく影響していることが推察された。これにより、本県の PM_{2.5} に係る環境改善は、越境汚染の減少によるものと考えられた。

表 2 V/Ni 比の経年変化

| | H24 | H25 | H26 | H27 | H28 |
|-----|-----|-----|-----|-----|-----|
| 金子 | 1.9 | 2.3 | 2.2 | 2.3 | 2.2 |
| 宇和島 | 2.6 | 3.8 | 3.1 | 2.7 | 3.1 |
| | H29 | H30 | R1 | R2 | R3 |
| 金子 | 2.2 | 2.3 | 1.8 | 0.6 | 0.5 |
| 宇和島 | 2.2 | 2.6 | 2.5 | 0.7 | 1.0 |

3 燃料油指標成分の経年変化

重油燃焼・硫酸系エアロゾル指標成分の PM_{2.5} 質量濃度に対する構成割合の経年変化を図 5 に示した。

SO₄²⁻、NH₄⁺、EC 及び Ni については、10 年間概ね横ばいであり、SO_x 規制前後で顕著な変化が確認できなかった。SO_x 規制により、SO₄²⁻が減少していると予想したが、SO₄²⁻の発生源が様々あり、石炭燃焼・硫酸系エアロゾル(越境汚染)の寄与のほうが大きいと考えられ、本調査では SO_x 規制の影響は明確に認められなかったものと考えられた。

V については、金子では平成 27 年度、宇和島では平成 28 年度をピークに減少傾向を示し、共に SO_x 規制開始前後の令和元年度から令和 2 年度で対前年度比(金子:-77.7%(他年度:-9.4~25.4%)、宇和島:-62.0%(他年度:-28.7~27.6%))の差が最大となった。V は重油燃焼・硫酸系エアロゾルにおいて特異な成分のため、発生源の変化に伴う差が明確に確認でき、SO_x 規制の影響が認められたものと考えられた。これは、平成 28 年に 10 月に開催された国際海事機関の海洋環境保護委員会で正式に令和 2 年 1 月の開始が決定したため、前もって低硫黄燃料油の使用が開始されたこと、平成 27 年から欧米の指定海域で、令和元年から独自に中国で SO_x の規制が強化されており、海に隣接する金子及び宇和島はその影響を受けたことが考えられた。また、船舶由来の V/Ni 比は工業由来よりも高い傾向を示すことが指摘されており¹¹⁾、SO_x 規制前後で V/Ni 比(表 2)が平均 2.5(1.8~3.8)から平均 0.7(0.5~1.0)に低下していることから、船舶の重油の使用が減少した、又は燃料油中の V 含有量が低下したのと考えられた。

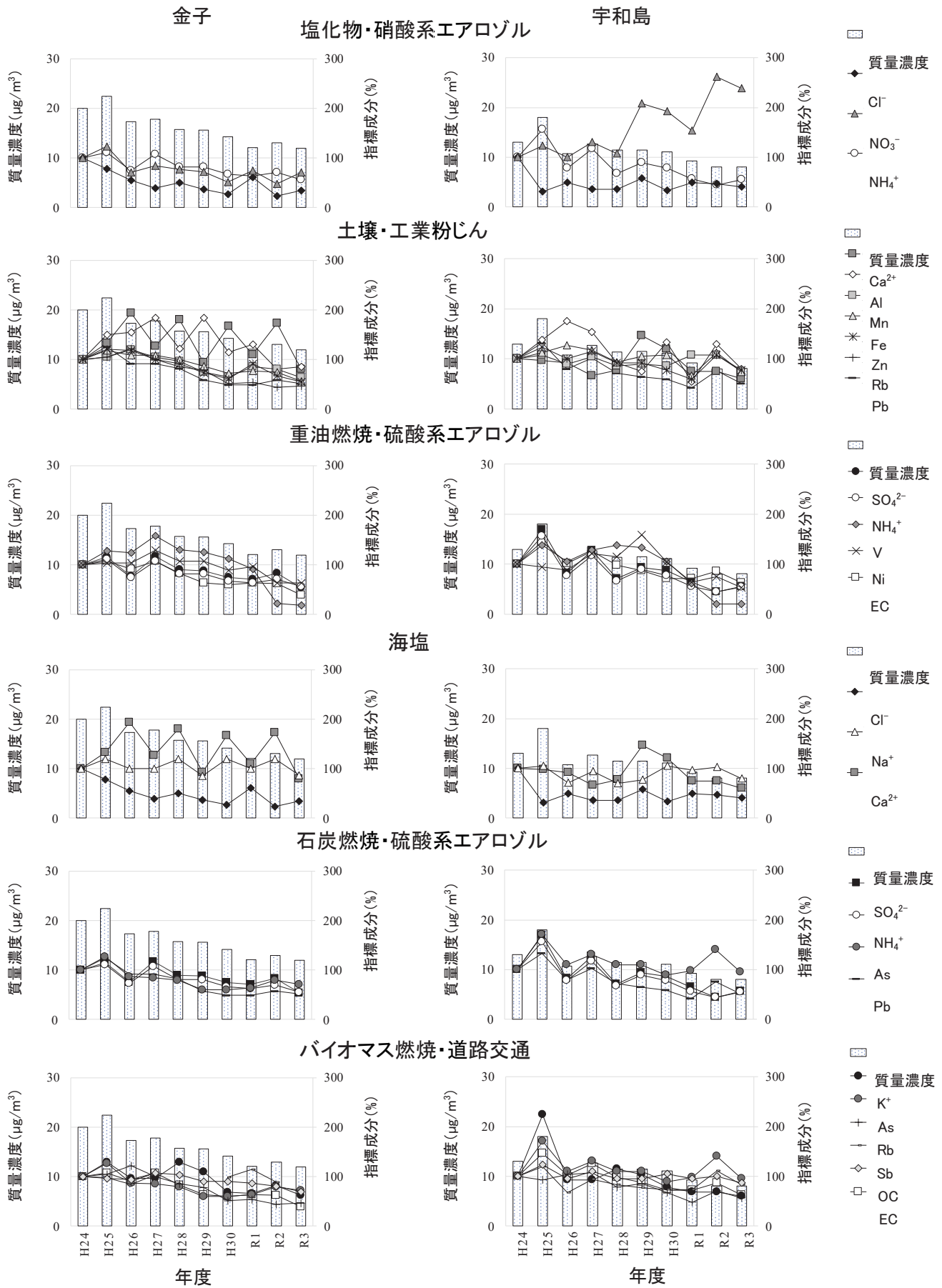


図3 PM_{2.5} 質量濃度及び指標成分の経年変化

(PM_{2.5} 質量濃度(棒グラフ(左軸)), 指標成分(H24=100%) (折れ線グラフ(右軸)))

表 3 発生源ごとの相関係数

| 発生源 | 相関係数 (R) |
|-------------------------|----------|
| 塩化物・硝酸系エアロゾル | 0.16 |
| 土壌・工場粉じん | 0.39 |
| 重油燃焼・硫酸系エアロゾル | 0.72 |
| 海塩 | 0.04 |
| 石炭燃焼・硫酸系エアロゾル | 0.80 |
| バイオマス燃焼・道路交通 | 0.65 |
| 石炭燃焼・硫酸系エアロゾル (越境汚染) | 0.88 |

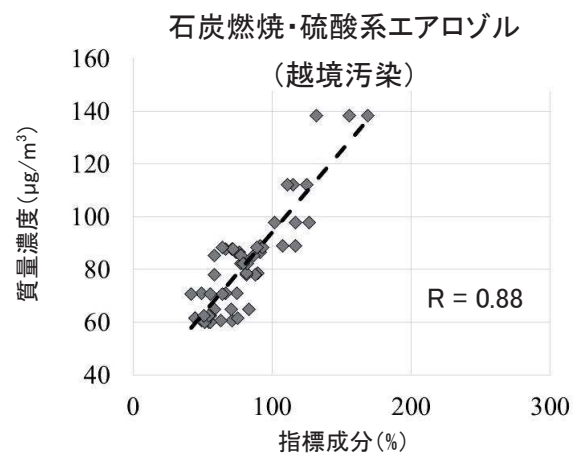
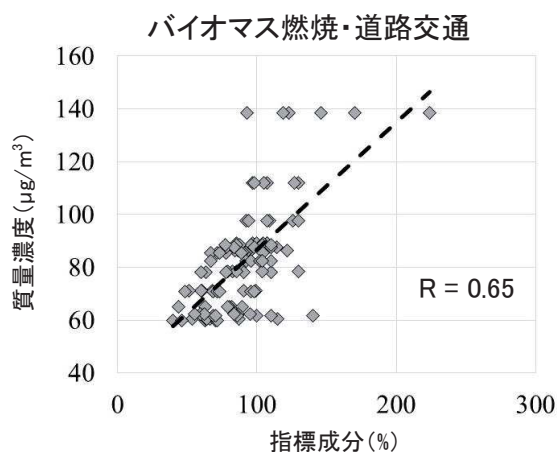
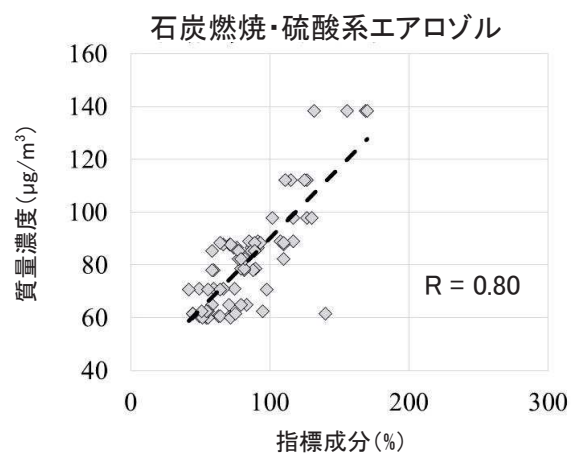
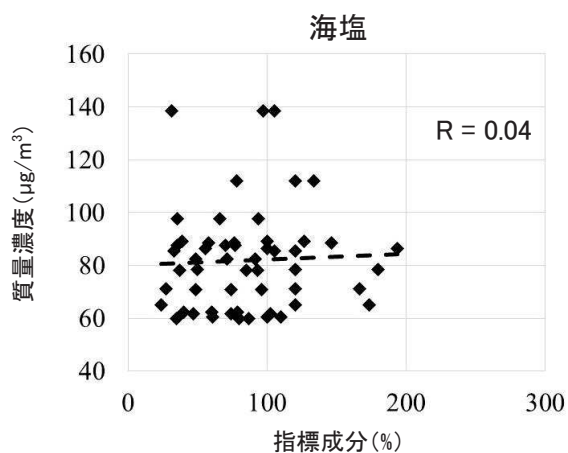
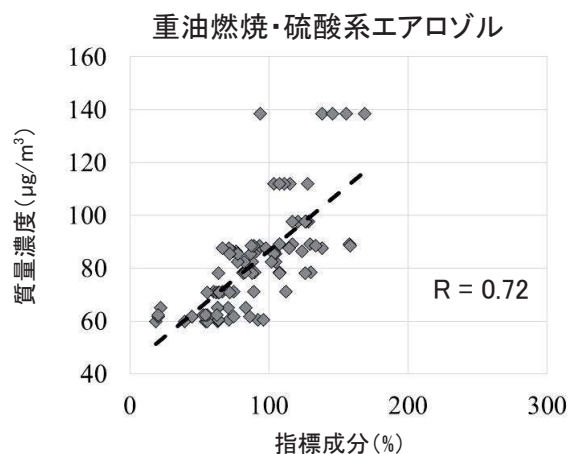
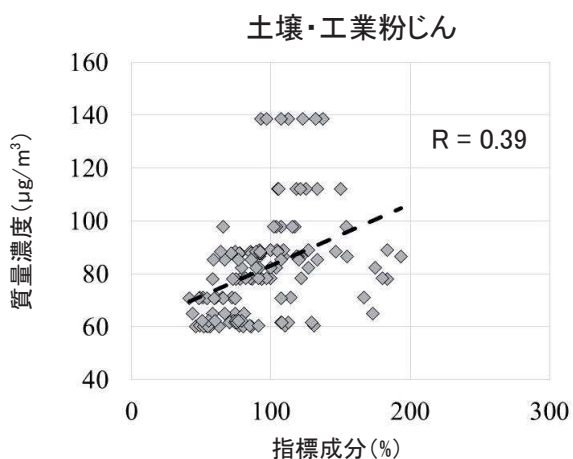
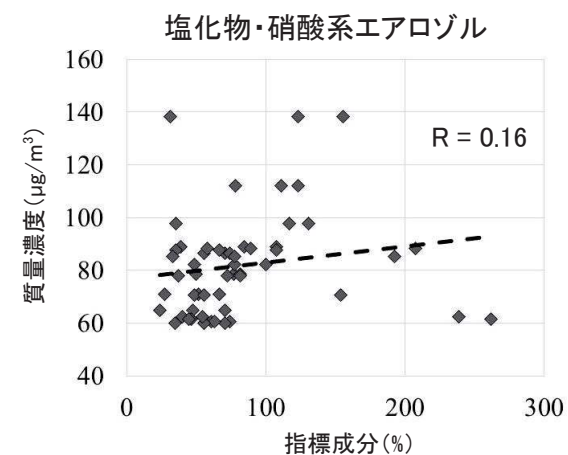


図 4 PM_{2.5} 質量濃度と各発生源の指標成分の経年変化率 (H24=100%) の相関関係

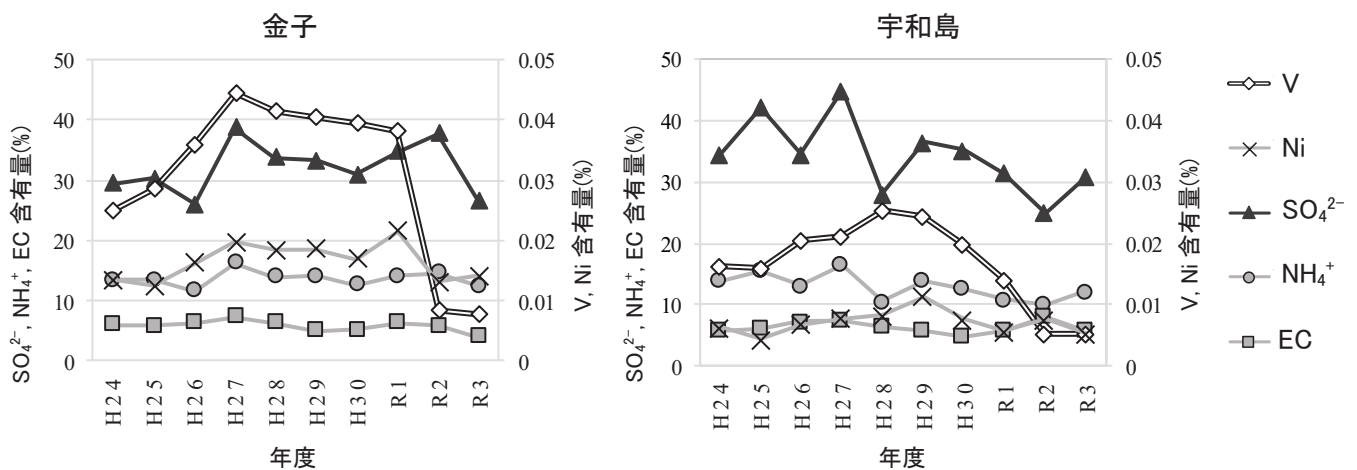


図5 重油燃焼・硫酸系エアロゾル指標成分の $PM_{2.5}$ 質量濃度に対する構成割合の経年変化

まとめ

県内 17 か所の $PM_{2.5}$ の自動測定機常時監視結果及び県内 2 か所で実施した $PM_{2.5}$ 成分分析の濃度データを用いて経年変化及び SO_x 規制の影響について調査し、次の知見を得た。

- 1 本県の $PM_{2.5}$ に係る環境は改善傾向にあり、越境汚染の減少によるものと考えられた。
- 2 SO_x 規制により、 $PM_{2.5}$ の構成成分である V の濃度が減少していることが示唆された。
- 3 SO_x 規制により、船舶の重油使用の減少、又は燃料油中の V 含有量の低下が示唆された。

文献

- 1) 国土交通省:2020 年 SO_x 規制適合船用燃料油使用手引書, (2019)
- 2) 国土交通省: SO_x 規制への対応について, (2020)
- 3) 環境省:微小粒子状物質等専門委員会(第 8 回)資料 1 大気中の $PM_{2.5}$ の状況, (2019)
- 4) 環境省:令和元年度大気汚染状況について, (2021)
- 5) 環境省:令和 2 年度大気汚染状況について, (2022)
- 6) 環境省:令和 2 年度大気汚染状況について, (2022)
- 7) 安達春樹他:第 33 回公衆衛生技術研究会講演要旨集, 27- 29 (2018)
- 8) 紺田明宏他:第 32 回公衆衛生技術研究会講演要旨集, 23- 25 (2017)
- 9) 山内正信他:第 28 回公衆衛生技術研究会講演要旨集, 13- 15 (2014)
- 10) 大内伸保他:平成 27 年度愛媛県立衛生環境研究所年報第 18 号, 10- 17 (2015)
- 11) M. Bressi *et al.*:Sources and geographical origins of fine aerosols in Paris(France) (2014)

Annual trends of PM_{2.5} and influence of environmental regulations on marine fuels for ship in Ehime Prefecture

Yuki SHIMIZU, Tomoki TOKUNAGA, Yuta NASU, Hiroaki HORIUCHI, Koji HYODO
Yoshiko IZUMI, Minako MOCHIZUKI

We are constantly monitoring fine particulate matter (PM_{2.5}) mass concentration with an automatic measuring device, and analyzing components of PM_{2.5} for each season in Ehime Prefecture, due to concerns about the effects of PM_{2.5} in the air on the respiratory and circulatory systems. In addition, Oouchi *et al.*¹⁰⁾ estimated the source apportionment of PM_{2.5} and obtained knowledge about the index components of each source.

Recently, we investigated annual trends of PM_{2.5} for ten years and verified the influence of SO_x regulations that started in January 2020^{1,2)} on components of PM_{2.5}, using the results of monitoring PM_{2.5} mass concentration and the results of component analysis of PM_{2.5}.

As a result, the environment in Ehime Prefecture indicate an improving trend due to the reduction of transboundary PM_{2.5} pollution. The concentration of vanadium which is a specific index component of sulfate aerosol (oil combustion) has decreased before and after the SO_x regulations, and this suggests that a reduction in the usage of heavy fuel oil for ships or a reduction in the vanadium content of marine fuels for ships.