

— 技術調査報告 —

京都府宇治市における硝酸塩、硫酸塩粒子の濃度変動について

曹 仁秋^{1,2}, 牧野 国義³, 東野 達¹, 山本 浩平¹

Variation in particle concentrations of nitrate and sulfate in Uji, Kyoto Prefecture

Renqiu Cao^{1,2}, Kuniyoshi Makino³, Susumu Tohno¹, Kouhei Yamamoto¹

¹ Graduate School of Energy Science, Kyoto University, Yoshida-Honmachi, Sakyo-ku, Kyoto 606-8501, Japan

² Tokyo-dylec Corp, Naito-machi Bldg., 1 Naito-machi, Shinjuku-ku, Tokyo 160-0014, Japan

³ Environmental Effect Laboratory, 5-15-11 Asagayakita, Suginami-ku, Tokyo 166-0001, Japan

Corresponding author. (E-mail) caorq@tokyo-dylec.co.jp

A few studies have reported the concentrations of nitrate and sulfate because the continuous measurements of both substances are not typically easy. Since we could use continuous analyzers, we surveyed the concentrations of nitrate and sulfate for almost a year in Uji, Kyoto Prefecture, and then analyzed the seasonal variation and diurnal variation of the concentrations. The concentrations of PM particles (PM_{10} , $PM_{2.5}$, PM_{10}) were low in the winter. The concentrations of nitrate in the PM_{10} and $PM_{2.5}$ decreased in the summer. In contrast, the concentrations of sulfate increased in the spring. It is considered that these concentration variations are influenced by the gasification of nitrate in the summer and blowing of yellow sand in the spring. The peak time of the nitrate concentrations was typically observed between 8 a.m. and 9 a.m. in the diurnal variation in relation to the increased concentration by increased traffic volume and decreased concentration by a warmer temperature. In addition, the peak time of the sulfate concentrations was observed about 2 p.m. when the amount of UV increased. By comparing the concentrations among the main wind directions, both the concentrations of nitrate and sulfate were appreciated to be found by the wind from the direction of Osaka City.

Keywords: PM, Particulate matter, Sulfate, Nitrate

1. はじめに

粒子状物質 (PM) の主要な成分である硫酸塩や硝酸塩は、その健康影響について PM 濃度とともに大きな関心が寄せられている (Hazi, *et al.*; 2003, Ostro, *et al.*; 2010)。これらの報告は、硫酸塩や硝酸塩が人の健康に有害な影響を及ぼすことを指摘している。したがって、PM 濃度だけでなく、これら PM 成分の濃度変動を把握することも重要になり、近年わが国でも報告されるようになった (速水, 2006; Hagino, *et al.*; 2007, 米持ら, 2008)。それらによると、硫酸塩は国外発生源由来であり、硝酸塩は国内国外発生源由来、アンモニウム塩は両者の中間である (速水, 2006) とされており、また、関東では、硫酸塩濃度は夏季に高いことなどが報告されている (米持ら, 2008; 三好ら, 2009)。しかしながら、季節変動要因や日変化などについて、その重要性は認識されながらも、まだ長期に亘る報告数が少なく、機構の解明には至っていない。これは硫酸塩や硝酸塩の連続的な計測が容易でなかったことが一因である。我々は以前に黄砂の影響が考慮される春季について硝酸塩や硫酸塩の濃度変動要因について報告した (渡部ら, 2007) が、さらに、この硫酸塩や硝酸塩の濃度について四季

別、粒径別 (PM_{10} と $PM_{2.5}$) に 1 時間値を用いて解析し、濃度変動要因や日変化について検討したところ、興味ある結果を得たので報告する。

2. 研究方法

2.1 観測地点と観測期間

PM の観測は京都府宇治市にある京都大学宇治キャンパス研究所本館の屋上 (地上高度約 20 m) および同館の 5 階で行った (Fig.1)。観測地点は住宅地域に位置し北約 5 km、西約 8 km、南約 5 km に清掃工場があるが、周囲には他の大規模な固定発生源はない。観測期間は四季に分け、①夏季: 2004 年 6 月 26 日～7 月 24 日、②秋季: 2004 年 10 月 14 日～11 月 24 日、③冬季: 2005 年 1 月 14 日～2 月 15 日、④春季: 2005 年 4 月 1 日～5 月 12 日である。

2.2 観測項目

上記の地点の同期間に、 PM_{10} 、 $PM_{2.5}$ の総重量とこれらに含まれる硝酸塩と硫酸塩の濃度、さらに、 $PM_{2.5}$ の重量、ガス成



Fig.1 Location of the observation site in Uji

分濃度 (NO_x , SO_2)、温湿度、全天日射量を観測した。観測機器は以下の通りである(温湿度計を除く)。

- PM_{10} 、 $\text{PM}_{2.5}$ 、 PM_{10} : Thermo 社製 TEOM1400、
- 硝酸塩 : Thermo 社製ナイトレイトモニター-8400N
- 硫酸塩 : Thermo 社製サルフェイトモニター-8400S
- NO_x : 東亜 DKK 社製 NO_x 計 GLN-32
- SO_2 : 東亜 DKK 社製 SO_2 計 GFS-252
- 全天日射量 : 英弘精機社製日射量計 MR301LR

ナイトレイトモニター-8400N およびサルフェイトモニター-8400S を本館に設置し、捕集ポートを窓外に置いて粒子状硝酸塩と硫酸塩濃度を半連続的に計測した。本研究ではガス粒子変換による二次生成粒子を対象として粒径別質量濃度を測定するため、各モニタの捕集ポートに PM_{10} 、 PM_{10} 用の 2 台のサイクロンを取り付け、電磁バルブで入口を時間的に切り替えることで粒径別計測を行った。測定時間はサンプリング 10 分、分析 2 分、待機時間 3 分の合計 15 分間で、タイマーを用いて 15 分ごとに PM_{10} 、 PM_{10} を交互に測定した。 PM_{10} 、 $\text{PM}_{2.5}$ および PM_{10} 濃度測定装置は 3 台の TEOM1400 を用いて、30 分ごとに濃度計測を行った。

TEOM1400 は世界的によく使用されている装置であり、質量測定の分解能は $0.01 \mu\text{g}$ 程度と非常に高感度であると共に測定原理上フィルタ部にろ過捕集された粒子状物質の粒径、形、密度などに影響されない連続測定が行えるという特徴を持つ。TEOM1400 は湿度影響を低減するため、フィルタ設定温度を 50°C としている。フィルタ上の捕集試料を加温することにより、 PM に含まれている水分以外の半揮発性物質(硝酸塩、揮発性有機化合物)なども同時に揮散することから、TEOM1400 による測定値は大気温度で試料を捕集する標準測定法に比べてやや低めの測定値を示す傾向が環境省の報告 (2010) などで指摘されている。サルフェイトモニター-8400S およびナイトレイトモニター-8400N の性能実験について、Olga ら (2004) は 2001 年から 2002 年の間にサルフェイトモニター-8400S、ナイトレイトモニター-8400N、AMS および PILS-IC 装置を用いて、ニューヨーク市で $\text{PM}_{2.5}$ 中の硝酸塩および硫酸塩粒子の計測を行った。すべての装置の SO_4^{2-} または

NO_3^- 濃度の経時変化が一致し、高い相関を得た。

2.3 解析方法

まず各季節における PM_{10} 、 $\text{PM}_{2.5}$ 、 PM_{10} の濃度と PM_{10} 、 PM_{10} に含まれる硝酸塩と硫酸塩の濃度を観測し、それぞれの割合を検討した。また、 PM_{10} 、 PM_{10} 中の硫酸塩と硝酸塩のそれぞれの割合についても検討した。次に、 PM_{10} 、 $\text{PM}_{2.5}$ 、 PM_{10} の日内変動を季節別に観察した。都市の PM 粒子の日内変動については、平日の朝夕に増加することが報告されているが (秋山ら, 2006)、その確認をするためである。硝酸塩と硫酸塩については微小粒子 (PM_{10}) と粗大粒子 (PM_{10+1}) で性質が異なる可能性もあるので、2 つを区別し、光化学反応に関与する日射量とともに季節別に観察した。さらに、都市であっても地域により異なる可能性があるため、風向と $\text{PM}_{2.5}$ およびガス成分の濃度との関連性について検討した。

3. 結果と考察

3.1 季節別 PM および PM 中の硝酸塩、硫酸塩濃度

まず宇治市の PM_{10} 、 $\text{PM}_{2.5}$ 、 PM_{10} の年間平均濃度はそれぞれ 18.0 、 22.8 、 $27.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。その $\text{PM}_{10}/\text{PM}_{2.5}$ 、 $\text{PM}_{10}/\text{PM}_{10}$ 、 $\text{PM}_{2.5}/\text{PM}_{10}$ はそれぞれ 80%、66%、83% であった。また、各季節の PM_{10} 、 $\text{PM}_{2.5}$ 、 PM_{10} 濃度を整理した結果を Table 1 に示した。粒子により標本数にばらつきがあるのは欠測が生じたことによる。ただし、標本数はすべて 1200 以上であり、信頼性は確保されていると考えられる。どの粒径でも冬季の濃度が低く、他の季節では大差がない。季節内濃度変動を変動係数で見ると、大体 40% から 60% 程度であるが、冬季については PM_{10} が 88%、 $\text{PM}_{2.5}$ が 63% と他の季節に比べて大きく、微小粒子の冬季の変動が大きくなった。冬季は他の季節よりも濃度が低いために、変動幅が同一であれば変動係数は大きくなる。一般に冬季は低湿度で、粒子中の水分が少ないために濃度が低くなりやすいが、気温や風速などの気象条件によっても変化するため、結果として変動が大きくなったと考えられる。なお、 PM_{10} 中の

Table 1 Summary of concentrations ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) of PM_{10} , $\text{PM}_{2.5}$ and PM_{10}

Season	PM_{10}			$\text{PM}_{2.5}$			PM_{10}		
	Mean	SD	n	Mean	SD	n	Mean	SD	n
Summer	20.2	9.1	1373	24.9	11.9	1373	28.9	13.0	1373
Fall	21.4	13.0	1511	26.4	13.6	1350	32.2	12.2	1365
Winter	12.0	10.5	1618	13.6	8.6	1618	18.2	9.0	1618
Spring	18.3	9.5	1371	26.5	12.5	1373	29.7	13.7	1368

Table 2 Summary of concentrations ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) of nitrate and sulfate in PM_{10} and PM_{10}

Season	Nitrate						Sulfate					
	PM_{10}			PM_{10}			PM_{10}			PM_{10}		
	Mean	SD	n	Mean	SD	n	Mean	SD	n	Mean	SD	n
Summer	0.77	0.42	1371	1.42	0.74	1372	4.43	1.69	1236	5.45	2.27	1236
Fall	3.06	1.94	1543	4.17	2.70	1534	3.10	1.63	1280	5.08	2.80	1280
Winter	2.43	1.30	1443	3.14	3.07	1442	2.00	1.30	1367	2.70	2.02	1367
Spring	1.93	1.88	1957	3.54	2.61	1955	4.67	2.66	1771	6.13	3.98	1771

硝酸塩、硫酸塩の測定報告例は多くないが、変動傾向は概ね PM_{10} 中の硝酸塩、硫酸塩と同様であった。一方、比について、原因は明確でないが、春季のみ $\text{PM}_{10}/\text{PM}_{2.5}$ の割合が 0.69 で、他の季節 (0.81~0.89) に比べて低かった。なお、 $\text{PM}_{10}/\text{PM}_{10}$ 、 $\text{PM}_{2.5}/\text{PM}_{10}$ はそれぞれ 0.6~0.7、0.75~0.9 で季節差が小さかった。硝酸塩、硫酸塩についても、硝酸塩の $\text{PM}_{10}/\text{PM}_{10}$ 比は 0.5~0.8、硫酸塩の $\text{PM}_{10}/\text{PM}_{10}$ 比は 0.6~0.8 であった。

次に、 PM_{10} 、 PM_{10} 中の硝酸塩、硫酸塩の季節別濃度をまとめたものを Table 2 に示した。夏季の硝酸塩濃度は PM_{10} 、 PM_{10} ともに他の季節の半分以下と低く、硝酸アンモニウム等揮発成分が気温の上昇によりガス化しやすくなったこと、また梅雨の時期に当たり、日射不足で生成量が少なかったことが考えられる。季節別には秋季の濃度が高かった。10、11 月は大気が安定しているので、拡散や化学反応による硝酸塩の濃度減少が少ないと考えられる。一方、硫酸塩の季節別濃度は PM_{10} 、 PM_{10} とも春季が最も高かった。春季の濃度増加は国外からの移流の可能性が高いことは良く知られており (速水、2006)、この結果もそれと類似の傾向であった。また、硫酸塩は温暖な季節が寒冷の季節よりも高くなると報告されているが (Rattigan *et al.*, 2006)、ここでも春季に続いて夏季、秋季が高くなり、同様の傾向を示した。なお、季節内の変動係数は硝酸塩の夏季、秋季が 52~65% であるのと比較して、冬季、春季は 54~98% と大きく、硫酸塩についても、夏季、秋季が 38~55% に対し、冬季、春季は 57~75% と大きかった。

硝酸塩や硫酸塩の PM_{10} 、 PM_{10} に占める重量の割合を求めたものを、Table 3 に示した。 PM_{10} 、 PM_{10} とも同じ傾向で、硝酸塩は冬季がそれぞれ 20.3%、17.3% と高く、夏季がそれぞれ 3.8%、4.9% と低かった。硫酸塩は春季がそれぞれ 25.5%、20.6% と高く、秋季がそれぞれ 14.5%、15.8% と低い結果であった。また、夏季と春季は硝酸塩よりも硫酸塩の割合が高く、冬季は逆に硝酸塩の割合が高かった。また、春季の硫酸塩濃度増加に、黄砂などの越境汚染の影響が考えられるので、越境汚染の影響が大きくなれば、PM 濃度に占める硫酸塩濃度の割合はさらに高くなる可能性がある

Table 3 Weight percent of nitrate and sulfate in PM_{10} and PM_{10}

Season	Nitrate		Sulfate	
	PM_{10}	PM_{10}	PM_{10}	PM_{10}
Summer	3.8	4.9	21.9	18.9
Fall	14.3	13.0	14.5	15.8
Winter	20.3	17.3	16.7	14.8
Spring	10.5	11.9	25.5	20.6

(Qu *et al.*, 2010, 太田良ら, 2005)。春季に大陸からの越境汚染の影響を受ける台北市でも 2002~2008 年春季で $\text{PM}_{2.5}$ 中の硫酸塩の割合が 21.1% まで高くなると報告されており (Chang *et al.*, 2010)、期間などに違いがあるが、汚染傾向は本研究結果と類似している。

3.2 PM 粒子の日変化

PM 粒子濃度の日変化を PM_{10} 、 $\text{PM}_{2.5}$ 、 PM_{10} について季節別に見たものを、Fig.2 に示した。四季の 3 種の粒子の 24 時間濃度パターンはほぼ一致し、午前と午後のラッシュ時間にピークを持つ二峰性で、交通量の影響が強いことが示唆される結果である。ただし、 PM_{10} については秋季以外それほど明確な二峰性が見られなかった。冬季に微小粒子 (PM_{10} 、 $\text{PM}_{2.5}$) においては多少ピーク出現時刻が変化した、変化理由は明らかでない。

3.3 硝酸塩、硫酸塩の日変化

Fig.3 は PM_{10} 、 PM_{10-1} 中の硝酸塩、硫酸塩濃度と全日射量 (Amount of global solar radiation, ASGR) の季節別日変化を示したものである。なお、ASGR 以外は 3 点移動平均で平滑化している。

また、 PM_{10} 、 PM_{10} 中の硝酸塩と硫酸塩の濃度の日変化はほぼ同様であったので、ここでは微小粒子 (PM_{10}) と粗大粒子 (PM_{10-1}) に分けた。硝酸塩、硫酸塩とも人間活動により排出される窒素酸化物、硫黄酸化物が主発生原因であるので (高見、2006)、微小粒子の方が粗大粒子よりも高濃度になると予想されるが、Fig.3 には各季節の特徴が非常によく現れている。微小粒子中の硝酸塩濃度は秋季のピーク

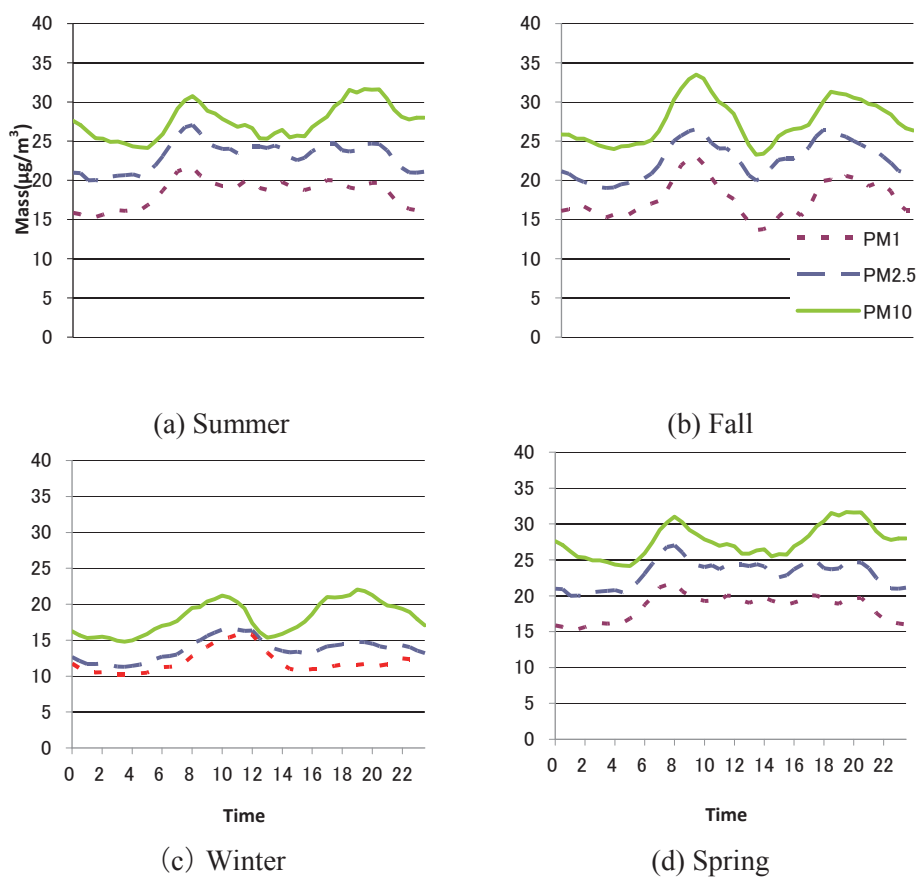
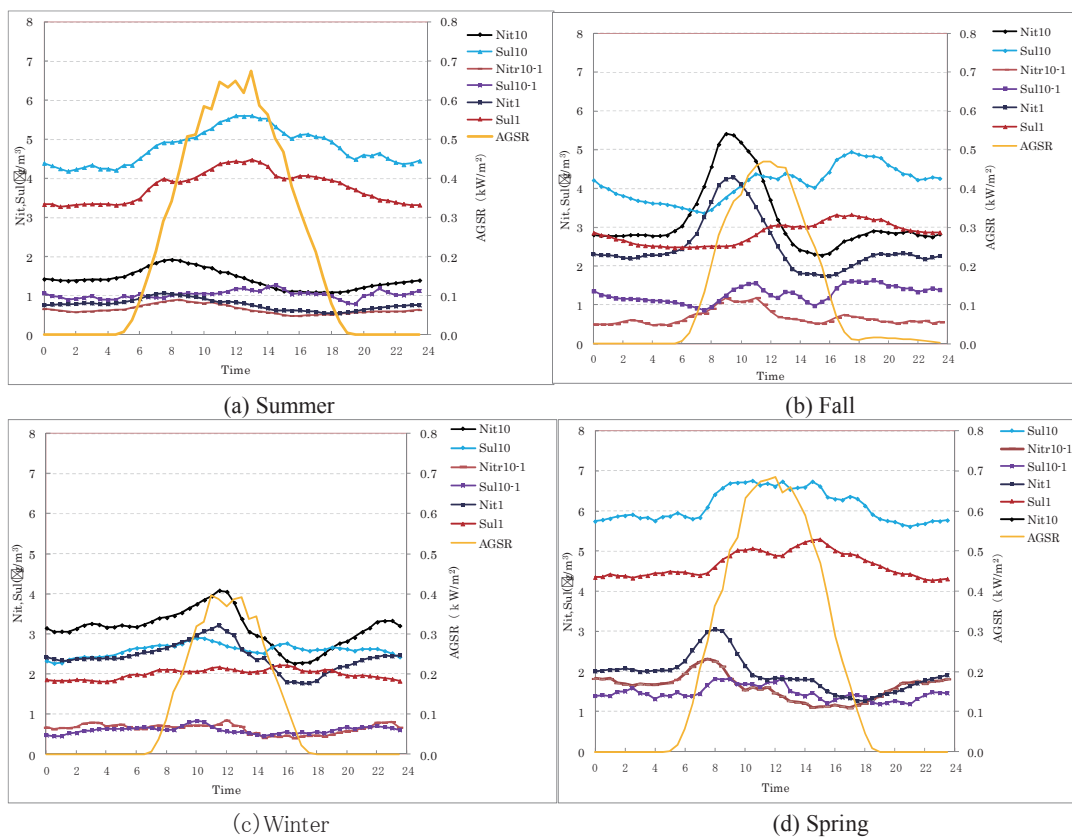


Fig.2 Diurnal variation of PM concentrations in four seasons

Fig.3 Diurnal variation of nitrate and sulfate concentrations in PM_1 , PM_{10} and amount of global solar radiation (AGSR) in four seasons

が顕著で、春季もこれに類似した結果を示した。これらのピークは8時から9時の間に見られたが、冬季にはピーク時間に多少のずれが生じた。理由は明らかでないが、冬季が他の季節と異なるのは第1に気温であり、気温が何らかの関与をした可能性がある。また、Table 3 で示したように夏季には濃度が低下した。硝酸塩の生成にはNO_x とオゾンとの反応による硝酸ガスを経由すると推察され、高温の夏季には逆に硝酸塩がガス化するために濃度減少が生じると考えられる。朝のピークの原因は交通量が増加する時間帯であること、高気温時ほど粒子がガス化しやすいので、気温が高くなる前の時間帯であることなどの可能性が考えられる。粗大粒子の場合も濃度が低いものの、傾向は微小粒子と類似した。この日変化の傾向はニューヨーク市での測定 (Rattigan, *et al.*, 2006) と同じであった。

一方、硫酸塩については、夏季と春季が四季の中で濃度が高く、14 時頃にピークを示した。この時期は日射量が強く、太陽光に関係したASGRはいずれの季節も正午頃をピークとした一峰型の形状で、夏季と春季で強度も類似した。紫外線が強い夏季にはOH ラジカルが生成するが、SO₂が存在するとき、酸化されてSO₃が生成し、水分があれば硫酸が生成する。さらに、アンモニアなどと結合して硫酸塩が生成するので、紫外線の強さが、硫酸塩濃度の増加に関与していることが推察される。一方、冬季は日射量が弱く、硫酸塩濃度が増加しにくいと、ピークが明確でない。これらはボストンでの測定の報告 (Kang *et al.*, 2010) と類似している。粗大粒子については濃度が低く、日変化も小さい。僅かに春季が他の季節よりも高いことは黄砂などの越境汚染の影響も考えられる。また、観測地点周辺に主たる発生源がないので、濃度変動には風向の影響が考えられるが、これについては後述する。

3.4 硝酸塩、硫酸塩濃度への風向の影響

測定点に近い気象庁の測定地点である京田辺測定点の気象資料から季節別に風配図を作成すると、Fig 4 のようになった。主風向は季節に関わらず、SW からSSW であり、これに次ぐのは、NW からNNW である。夏季には南からの割合が高く、冬季には北からの割合が高い。観測地点からみると、SW は大阪市の方面になり、NNW は京都市方面になる。

そこで、SO₂、NO_x、PM_{2.5}について各季節の2 風向別の濃度を比較した (Table 4)。ただし、硝酸塩と硫酸塩については2 風向時に欠測が多く、検討しなかった。NO_x とSO₂はすべての季節で風向SW の濃度が有意に高く、硝酸塩や硫酸塩濃度についても同様の傾向で、大阪市方向からの移流の影響が顕著であった。一方、越境汚染に関して、もし、影響がある場合には、西から北方向の風向時に可能性が強いと推測される。調査された風向の結果から調査期間内では目立った影響が見られなかった。しかしながら、風向の垂直分布は得られていないので、上空の風向に関しては明らかでなく、春季のPM 濃度の増加は越境汚染の可能性も残している。なお、後方流跡線から越境汚染の可能性の示唆は得られなかった。越

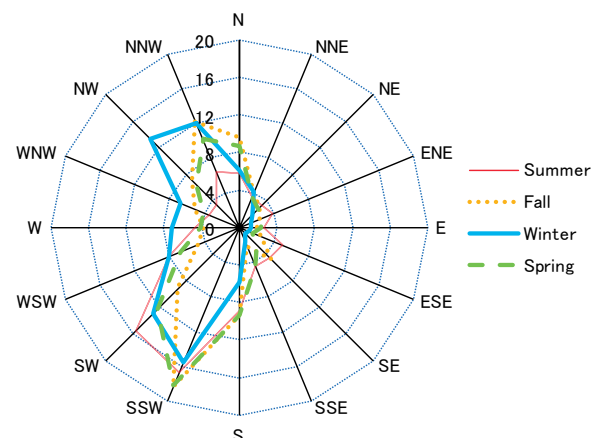


Fig.4 Wind rose in four seasons

境汚染は経年的に増大しており、将来的に硝酸塩、硫酸塩濃度にも影響を強める可能性は小さくないので、継続的に監視することが必要と考えられる。

Table 4 Comparison of concentrations in main wind directions

		Southwest			North-northwest		
		Mean	SD	n	Mean	SD	n
SO ₂ (ppb)	Summer	0.62	0.57	189	0.55	0.47	77 ***
	Fall	0.58	0.56	98	0.34	0.38	130 ***
	Winter	0.63	0.72	150	0.46	0.65	128 *
	Spring	0.55	0.69	119	0.40	0.41	93 *
NO _x (ppb)	Summer	14.2	4.9	189	11.1	5.0	77 ***
	Fall	20.6	13.0	98	13.0	11.7	130 ***
	Winter	16.4	13.0	150	11.2	12.4	128 ***
	Spring	15.0	7.7	119	8.9	11.4	93 ***
PM _{2.5} (μg/m ³)	Summer	22.5	13.5	189	17.5	11.0	77 **
	Fall	23.5	30.2	98	17.0	14.0	130
	Winter	14.7	10.1	150	11.5	10.2	128 **
	Spring	23.8	12.0	119	24.0	6.1	93

*: p<0.05, **: p<0.01, ***: p<0.001

3.5 硝酸塩と窒素酸化物、硫酸塩と硫黄酸化物の関係

硝酸塩、硫酸塩と窒素酸化物、硫黄酸化物は測定時間が必ずしも一致していないので、厳密には量的な関連性を解析できないが、関係を推測する材料にはなり得る。そこで、PM₁中の硝酸塩と窒素酸化物、PM₁中の硫酸塩と硫黄酸化物について季節別に相関分析を行った結果をTable 5に示した。春季の硫酸塩・硫黄酸化物はp=0.03であったが、他は全てp<0.001である。また、硝酸塩・窒素酸化物の方が高い相関係数であった。高い相関は両者の発生源が緊密で、緊密度は窒素酸化物>硫黄酸化物であることを示唆している。また、春季の硫酸塩・硫黄酸化物の場合は異なった発生源が存在することを示し、垂直方向の混合が盛んだと、越境輸送されてきた気塊が下層大気にも大きく影響する可能性もある。また、硝酸塩、硫酸塩ともPM₁₀中よりもPM₁の方が相関が高く、推測されるように、ガスは粗大粒子よりも微小粒子との関連が密接であった。

Table 5 Correlation analyses between NOx and nitrate or SO₂ and sulfate

	NOx・nitrate			SO ₂ ・sulfate		
	Corr.	n	p	Corr.	n	p
Summer	0.524	685	<0.001	0.391	618	<0.001
Fall	0.653	696	<0.001	0.462	585	<0.001
Winter	0.651	721	<0.001	0.634	684	<0.001
Spring	0.693	917	<0.001	0.103	477	0.03

4. まとめ

京都府宇治市における硝酸塩、硫酸塩濃度の変動の特徴を得るために、四季における PM₁、PM₁₀ 濃度とこれに含まれる硝酸塩、硫酸塩濃度を観測した。この結果に基づき、季節変化と日変化について解析したところ、以下の知見が得られた。

- 1) PM 粒子については PM₁、PM_{2.5}、PM₁₀ のいずれも冬季が低濃度で、他の季節には差が見られなかった。
- 2) PM 粒子に占める硫酸塩の割合は PM₁、PM₁₀ とともに春季が最も高かった。一方、硝酸塩は PM 粒子の濃度が低下する冬季に割合が高くなった。
- 3) 硝酸塩のピークは、交通量と気温が関与していると予想され、8 時から 9 時の間に、日射量の強い夏季、硝酸塩は PM₁、PM₁₀ とともに夏季に濃度が低下し、高温時に硝酸塩粒子がガス化したことが考えられる。
- 4) 硫酸塩は PM₁、PM₁₀ とともに春季に濃度が上昇し、夏季にも高くなることから、黄砂などの越境汚染や紫外線強度の影響が現れたと考えられる。
- 5) 春季の硫酸塩のピークは 14 時頃に見られた。
- 6) 風向による影響は四季に差がなく、主風向時の濃度比較により、硝酸塩、硫酸塩ともに大阪市方向からの移流の影響を受けていることが推察された。

(受稿日 2012.6.13) (掲載決定日 2012.9.21)

参考文献

- 秋山賢一, 小林伸治, 下野彰夫: エアロゾル質量分析計による道路沿道粒子成分の観測: 第 2 報、自動車研究、**28**, 671-674 (2006)
- Chang SC, Chou CC, Chan CC, Lee CT: Temporal characteristics from continuous measurements of PM_{2.5} and speciation at the Taipei Aerosol Supersite from 2002 to 2008, *Atmos Environ*, **44**, 1088-1096 (2010)
- Hazi Y, Heikkinen MSA, Cohen BS: Size distribution of acidic sulfate ions in fine ambient particulate matter and assessment of source region effect, *Atmos Environ*, **37**, 5403-5413 (2003)
- Hagino H, Sakamoto K, Takada T, Kunimi, H: Characterization and source presumption of wintertime submicron organic aerosols at Saitama, Japan, using the Aerodyne aerosol mass spectrometer,

Atmos Environ, **41**, 8834-8845 (2007)

速水洋: 首都圏における大気中二次粒子の発生源寄与評価、電中研報告、No.V05029, 24, (2006)

Kang CM, Koutrakis P, Suh HH: Hourly Measurements of Fine Particulate Sulfate and Carbon Aerosols at the Harvard-U.S. Environmental Protection Agency Supersite in Boston, *J Air & Waste Manage Assoc*, **60**, 1327-1334 (2010)

環境省: 自動測定機による微小粒子状物質(PM_{2.5})質量濃度測定方法暫定マニュアル(改定版), 第2章, 5-6 (2010)

三好猛雄, 秋山薫, 上野広行, 横田久司, 石井康一郎, 石井真理奈, 伊藤雄一, 樋口幸弘: PM_{2.5} 大気環境調査について、東京都環境科学研究所年報、**2009**, 110-113 (2009)

太田良和弘, 篠原英二郎, 増田一, 鈴木款: エアロゾルの生成・移流に関する研究(第二報)-エアロゾル及び含有成分の濃度変動について、静岡県環境衛生科学研究所報告、**47**, 85-90 (2005)

Olga Hogrefe, James J., Schwab, Frank Drewnick, G., Garland Lala, Sarah Peters, and Kenneth L. Demerjian.: Semicontinuous PM_{2.5} Sulfate and Nitrate Measurements at an Urban and a Rural Location in New York: PMTACS-NY Summer 2001 and 2002 Campaigns, *Air & Waste Manage. Assoc*, **54**, 1040-1060 (2004)

Ostro B, Lipsett M, Reynolds P, Goldberg D, Hertz A, Henderson KD, Bernstein L: Long-Term Exposure to Constituents of Fine Particulate Air Pollution and Mortality: Results from the California Teachers Study, *Environ Health Perspect*, **118**, 363-369 (2010)

Qu W, Fu G, Wang Y, Wang D: Seasonal variation, source, and regional representativeness of the background aerosol from two remote sites in western China, *Environ Monit Assess*, **167**, 265-288 (2010)

Rattigan OV, Felton H.d., Hogrefe O, Schwab JJ., Roychowdhury UK., Demerjian KL., Husain L, Dutkiewicz VA: Multi-year urban and rural semi-continuous PM_{2.5} sulfate and nitrate measurements in New York state: Evaluation and comparison with filter based measurements, *Atmos Environ*, **40**, 192-205 (2006)

高見昭憲: 沖縄で微粒子を測る,

<http://www.nies.go.jp/kanko/news/24/24-6/24-6-04.html>

Watanabe H, Tohno S, Cao R: Time series analysis of size-segregated nitrate and sulfate particles at Uji during springtime, *J. Jpn. Soc. Atmos. Environ* **42**, 16-27, (2007) [in japanese]

Yonemochi S, Hayami H, Umezawa N, Iijima A, Kumagai K, Takahashi K, Ohara T, Hasegawa S: Fine Aerosol Measurement and Modeling in Kanto Area (FAMIKA) : Concentration variations of sulfate in summer and comparison with those in winter (5 Substance-2 particulate matter, General Presentations), Annal meeting of Japan society for atmospheric environment, **49**, 381 (2008) [in japanese]

京都府宇治市における硝酸塩、硫酸塩粒子の濃度変動について

曹 仁秋^{1,2}, 牧野 国義³, 東野 達¹, 山本 浩平¹

1 京都大学大学院エネルギー科学研究科 〒606-8501 京都市左京区吉田本町

2 東京ダイレック株式会社 〒160-0014 東京都新宿区内藤町1

3 環境影響研究所 〒166-0001 東京都杉並区阿佐谷北5-15-11

硝酸塩、硫酸塩濃度の変動についての報告が従来少なかったことは、連続的な計測が過去には容易でなかったことが一因である。本研究では、自動計測機器を使用して、京都府宇治市におけるPM粒子中の硝酸塩、硫酸塩濃度の変動の特徴を得るためにほぼ1年間の観測を行い、季節別の濃度変動と日変化について解析した。PM粒子(PM₁、PM_{2.5}、PM₁₀)は冬季の濃度が低かった。PM₁、PM₁₀中の硝酸塩濃度は夏季に減少し、硫酸塩濃度は春季に増加した。夏季には硝酸塩粒子のガス化、春季は黄砂の飛来が濃度変動に影響すると考えられる。硝酸塩濃度の日変化におけるピークは主として8時から9時の間に見られた。交通量の増加による濃度増加と気温上昇による濃度減少が関与している。また、硫酸塩濃度の日変化におけるピークは主として紫外線量が増加した14時頃であった。主風向の比較から、硝酸塩、硫酸塩濃度はともに大阪市方向からの移流の影響を受けていることが推察された。