

# 大阪府域でのパッシブ簡易測定法による酸性ガスの測定

西川嘉範・畑中 弘

## Measurement of Acidic Gases within Osaka Prefecture Using a Simple Passive Sampling Method

Yoshinori NISHIKAWA and Hiroshi HATANAKA

### Summary

Nitric acid ( $\text{HNO}_3$ ), hydrochloric acid ( $\text{HCl}$ ), sulfur dioxide ( $\text{SO}_2$ ), ozone ( $\text{O}_3$ ) and nitrogen dioxide ( $\text{NO}_2$ ) were sampled by the use of proposed simple passive samplers that were composed of collection media wrapping with poly-tetra-fluoro-ethylene (PTFE) sheet. Polyamide filter, ( $\text{NaNO}_2+\text{K}_2\text{CO}_3$ ) impregnated filter and triethanolamine (TEA) impregnated filter were used as collection media. Sampling rate of the passive sampler was obtained from collected amount in the passive sampler, corresponding air concentration measured by the four-stage filter pack method or the automatic measurement method and exposure period. Field monitoring was carried out at two urban sites, Osaka and Higashiosaka City, and at two suburban sites, Ikeda and Sakai City, by the passive sampling method in the monthly base. The concentration ( $\text{nmol}/\text{m}^3$ ) of  $\text{HNO}_3$ ,  $\text{HCl}$ ,  $\text{SO}_2$ ,  $\text{O}_3$  and  $\text{NO}_2$  ranged 6 ~ 99, 15 ~ 104, 13 ~ 169, 459 ~ 2148 and 155 ~ 1963, respectively, during three fiscal years of 2003 and 2005. The concentrations of  $\text{HNO}_3$  and  $\text{HCl}$  showed an apparent seasonal trend with high concentration in summer and low in winter. The other gases did not show specific seasonal trends, although  $\text{NO}_2$  was somewhat high in winter.  $\text{HNO}_3$ ,  $\text{HCl}$ ,  $\text{SO}_2$  and  $\text{NO}_2$  concentrations were high in the urban site, while  $\text{O}_3$  concentration was high in the suburban site.

### はじめに

パッシブ簡易測定法は電源が不要で安価であることから、数多い地点で同時にその濃度分布を知りたい場合や自動測定機などのアクティブ法のデータを補完する目的で、また、発展途上国などでは経済的に有利な方法として関心を集めてきた。そこで、大気中のガス状汚染物質を簡便に測定する方法として、ガス捕集媒体をテフロンシートで包む極めて単純なパッシブ法(N式)<sup>1,2,3)</sup>が提案された。大阪府域の市町村環境部局参加による大阪府酸性雨調査連絡会(APS-N-Osaka)では本法を用いた乾性沈着調査が実施されている。さらに、都道府県及び政令都市の環境研究機関で組織する全国環境研協議会の第4次酸性雨全国調査<sup>4,5,6)</sup>でもフィルターパック法(4段ろ紙法)に加えて、N式パッシブ法による乾性沈着調査が取り入れられている。

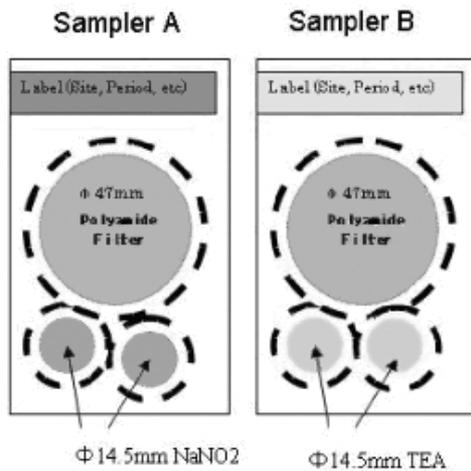
本報告では、硝酸( $\text{HNO}_3$ )、塩酸( $\text{HCl}$ )、二酸化硫黄( $\text{SO}_2$ )、オゾン( $\text{O}_3$ )、二酸化窒素( $\text{NO}_2$ )及びアンモニア( $\text{NH}_3$ )について、大阪府域で実施している季節

調査(11地点, 6月と10月)および通年調査(4地点, 毎月)の平成15年度から17年度の3年間の調査結果について報告する。

### 材料および方法

#### 1. パッシブサンプラーの作製

テフロンシート(400×1000mm, 厚さ1mm, ADVANTECポリフロンフィルターPF100)を100×110mmの大きさに切り、長い方の辺を二つに折り、ガス捕集媒体をシートに挟み込みホッチキスで固定する。捕集媒体としてはポリアミドろ紙、( $\text{NaNO}_2+\text{K}_2\text{CO}_3$ )含浸ろ紙、トリエタノールアミン(TEA)含浸ろ紙、燐酸( $\text{H}_3\text{PO}_4$ )含浸ろ紙を用いた。本調査で使用したサンプラー例を第1図に示すが、2タイプ(Sampler AとSampler B)のサンプラーを作製した。Sampler AとSampler Bを各1個使用すると、3種類(ポリアミド、( $\text{NaNO}_2+\text{K}_2\text{CO}_3$ )含浸、TEA含浸)のサンプラーが2セット分サンプリングすることになる。 $\text{NH}_3$ については



第1図 調査で用いたパッシブサンプラー例

平成17年度から実施しているが、別に 14.5mmH<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> 含浸る紙2枚をPTFEろ紙に挟んで固定した。作製したサンプラーは個々にシール付きポリ袋に入れ、さらにアルミ蒸着袋に入れた上、サンプリングに使用する前およびサンプリング後は冷蔵庫に保管することとした。

2. パッシブサンプラーのサンプリング速度

対象ガス種の捕集量 (M) は捕集媒体の有効断面積 (A)、暴露期間 (t) および大気濃度 (C<sub>A</sub>) に比例するので、Mは次式で示される。

$$M = k \cdot A \cdot t \cdot C_A \text{ ----- (1)}$$

ここで比例定数 (k) はパッシブサンプラーの形状に依存するので当該パッシブ法のサンプリング速度に対応する。kの次元は、M、A、tおよびC<sub>A</sub>がそれぞれ[nmol]、[m<sup>2</sup>]、[day]および[nmol/m<sup>3</sup>]とすると、[m/day]で示される。kの値はパッシブ法と同期間、同地点で測定したフィルターパック法又は自動測定機で得られた大気濃度に基づいて次の式から計算する。

$$k[\text{m/day}] = M / (A \cdot t) / C_A \text{ ----- (2)}$$

さて、パッシブ法の大気濃度 (C<sub>P</sub>) は次式から計算出来る。

$$C_P[\text{nmol/m}^3] = M / (A \cdot t) / k \text{ ----- (3)}$$

つまり、C<sub>P</sub>は単位有効断面積および単位暴露期間当たりの捕集量 (nmol/m<sup>2</sup>/day) をサンプリング速度 (m/day) で割ることにより容易に計算出来る。全環研の東海・近畿・北陸支部の共同調査<sup>2)</sup>ではフィールドデータから

第2表 調査地点情報

地点	緯度	経度	属性	市町村名	暴露期間
A	34.972	135.414	田園	能瀬町	6月と10月
B	34.825	135.448	郊外	池田市	毎月
C	34.884	135.522	田園	茨木市	6月と10月
D	34.748	135.512	都市	吹田市	6月と10月
E	34.804	135.727	郊外	枚方市	6月と10月
F	34.667	135.640	都市	東大阪市	毎月
G	34.680	135.535	都市	大阪市	毎月
H	34.487	135.513	郊外	堺市	毎月
I	34.417	135.648	田園	千早赤坂村	6月と10月
J	34.372	135.448	田園	岸和田市	6月と10月
K	34.317	135.142	郊外	岬町	6月と10月

第3表 調査期間の月区切り

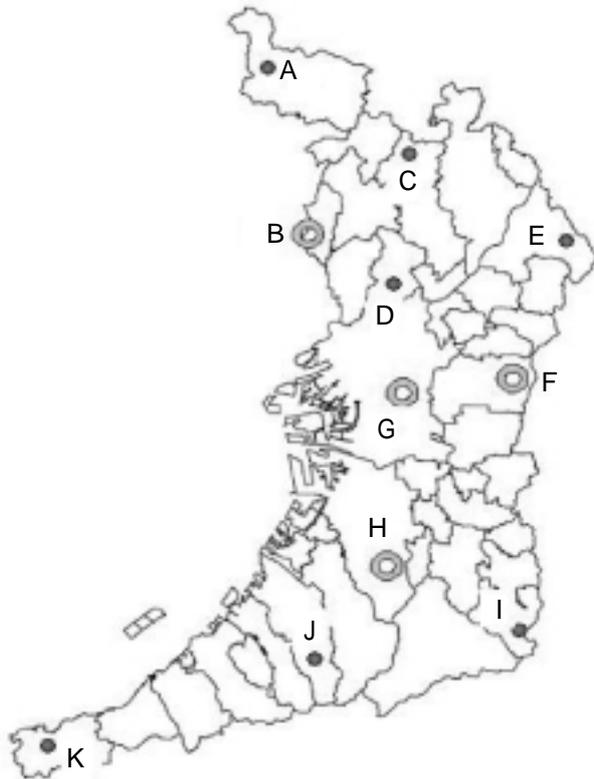
月	平成15年度(2003)		平成16年度(2004)		平成17年度(2005)	
	捕集期間	週	捕集期間	週	捕集期間	週
4月	3/31~4/28	4	3/29~4/26	4	3/28~5/2	5
5月	4/28~6/2	5	4/26~5/31	5	5/2~5/30	4
6月	6/2~6/30	4	5/31~6/28	4	5/30~6/27	4
7月	6/30~8/4	5	6/28~8/2	5	6/27~8/1	5
8月	8/4~9/1	4	8/2~8/30	4	8/1~8/29	4
9月	9/1~9/29	4	8/30~9/27	4	8/29~10/3	5
10月	9/29~11/4	5	9/27~11/1	5	10/3~10/31	4
11月	11/4~12/1	4	11/1~11/29	4	10/31~11/28	4
12月	12/1~1/5	5	11/29~12/27	4	11/28~12/26	4
1月	1/5~2/2	4	12/27~1/31	5	12/26~1/30	5
2月	2/2~3/1	4	1/31~2/28	4	1/30~2/27	4
3月	3/1~3/29	4	2/28~3/28	4	2/27~3/27	4

第1表 大気濃度換算に用いたサンプリング速度

対象ガス	サンプリング速度 (m/day)			捕集媒体
	夏季調査*	冬季調査*	採用速度 (平均)	
HNO <sub>3</sub>	241 ± 59(11)	185 ± 55(13)	213	Polyamideろ紙 Pall ULTIPORE N66( 47mm)
HCl	314 ± 115(11)	228 ± 200(13)	301	1%NaNO <sub>2</sub> , 1%K <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> & 5% Glycerin 混合溶液を調製して セルロースろ紙に含浸 ADVANTEC 514A( 14.5mm)
SO <sub>2</sub>	333 ± 78(11)	362 ± 200(13)	348	
O <sub>3</sub>	195 ± 34(11)	167 ± 30(13)	181	
NH <sub>3</sub>	672 ± 78(4)	861 ± 173(5)	767	5%H <sub>3</sub> PO <sub>4</sub> & 2%Glycerin含浸ろ紙 ADVANTEC 514A( 14.5mm)
NO <sub>2</sub>	.....	.....	131**	15%TEA含浸ろ紙 ADVANTEC 514A( 14.5mm)

\*文献2) による全環研東海・近畿・北陸支部共同調査結果、( )内は調査参加機関数

\*\*文献4) による調査結果の平均値



第2図 調査地点の位置

(2)式を用いてサンプリング速度を計算した。第1表にその時の平均サンプリング速度を示すが、本報告ではこの値を用いて大気濃度換算することとした。

### 3. 調査地点および調査期間

サンプリングは大阪府域11地点で2003年4月から2006年3月に実施した。地点情報を第2表にその位置関係を第2図に示す。で示した4地点(池田市, 大阪市, 東大阪市, 堺市)は通年調査を, で示した7地点は季節調査を実施した。サンプリング期間は第3表に示した月区切りに従い4又は5週間単位の暴露捕集を行った。

### 4. アクティブサンプリング

パッシブ法と比較するために, G地点で4段ろ紙法によるサンプリングを行いHNO<sub>3</sub>, HCl, SO<sub>2</sub>およびNH<sub>3</sub>の大気濃度を測定した。O<sub>3</sub>とNO<sub>2</sub>については自動の常時監視データと比較することとした。

## 結果および考察

### 1. パッシブ法とアクティブ法の比較

4段ろ紙法で使われているポリアミドろ紙はHNO<sub>3</sub>以外に一部HCl, SO<sub>2</sub>およびNH<sub>3</sub>を捕獲する<sup>7)</sup>ことから, パッシブ法でもHNO<sub>3</sub>以外にHCl, SO<sub>2</sub>およびNH<sub>3</sub>を捕集する。前報でパッシブ法におけるこれらのガスの累積捕集性は確認された<sup>1,2,3)</sup>, しかしながらHNO<sub>3</sub>以外のガス

### 第4表 パッシブ法とアクティブ法の相関関係

測定ガス	回帰式	相関係数	個数
HNO <sub>3</sub>	Y=1.15X-0.5	0.963	36
HCl	Y=1.36X-3.0	0.924	36
SO <sub>2</sub>	Y=1.28X+2.3	0.974	36
O <sub>3</sub>	Y=0.98X+50	0.909	36
NO <sub>2</sub>	Y=1.19X-410	0.610	36
NH <sub>3</sub>	Y=0.63X+46	0.835	12

Y: パッシブ法による大気濃度 (nmol/m<sup>3</sup>)

X: アクティブ法による大気濃度 (nmol/m<sup>3</sup>)

はパッシブ法と良好な相関が得られなかった<sup>4,5,6)</sup>ことからポリアミドパッシブ法ではHNO<sub>3</sub>のみの測定に用いることとした。一方で, 亜硝酸イオンから硝酸イオンへのO<sub>3</sub>による酸化を利用した(NaNO<sub>2</sub>+K<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>)含浸ろ紙パッシブサンプラーはK<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>が含まれているのでO<sub>3</sub>の他にHClおよびSO<sub>2</sub>を捕集する。

フィールドでのアクティブ法による大気濃度とN式パッシブ法により得られた大気濃度を比較した。第4表にG地点で調査したパッシブ法(Y)とアクティブ法(X)による大気濃度の相関分析の結果を示す。HNO<sub>3</sub>は傾きが1に近く相関係数も極めて良好であった。HClおよびSO<sub>2</sub>については, (NaNO<sub>2</sub>+K<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>)サンプラーと比較したのであるがこれも良好な相関が得られた。O<sub>3</sub>でも傾きが1に近く良好な相関関係が得られた。H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>サンプラーによるNH<sub>3</sub>では平成17年度からの測定であるため12個のデータセットしかありませんが, 傾きが0.6とパッシブ法が低めに見積もられている。このことはフィルターパック法が特に夏季にアーティファクトの影響<sup>6)</sup>を受け易いことが一つの原因では無いかと考えている。TEAサンプラーによるNO<sub>2</sub>では常時監視局データとの比較であるが相関係数が0.61と他のガスよりも劣っていた。いずれにしても, HNO<sub>3</sub>の測定にはポリアミド, O<sub>3</sub>, HClおよびSO<sub>2</sub>の測定には(NaNO<sub>2</sub>+K<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>), NO<sub>2</sub>の測定にはTEA, NH<sub>3</sub>の測定にはH<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>サンプラーを使うこととしているが, なかでも, HNO<sub>3</sub>とHClのパッシブサンプラーはこれまで無かったものであり貴重なデータを提供するものと考える。

### 2. 季節調査による大気濃度

第5表に大阪府域11地点で6月と10月に実施したN式パッシブ法による調査結果を示す。HNO<sub>3</sub>, SO<sub>2</sub>, HCl, O<sub>3</sub>およびNO<sub>2</sub>の3年間の平均濃度はそれぞれ, 6月で47nmol/m<sup>3</sup>, 67nmol/m<sup>3</sup>, 46nmol/m<sup>3</sup>, 1662nmol/m<sup>3</sup>および524nmol/m<sup>3</sup>, そして10月で12nmol/m<sup>3</sup>, 23nmol/m<sup>3</sup>, 28nmol/m<sup>3</sup>, 1318nmol/m<sup>3</sup>および529nmol/m<sup>3</sup>であった。NH<sub>3</sub>は1年間の平均が6月と10月でそれぞれ84nmol/m<sup>3</sup>および94nmol/m<sup>3</sup>であった。これらのガス成分の濃度レベルはO<sub>3</sub> > NO<sub>2</sub> > NH<sub>3</sub> > SO<sub>2</sub> > HCl > HNO<sub>3</sub>の順であっ

第5表 大阪府域11地点における酸性ガス成分の6月と10月の測定結果

地点	6月(梅雨期)															
	HNO <sub>3</sub>			SO <sub>3</sub>			HCl			O <sub>3</sub>			NO <sub>2</sub>			NH <sub>3</sub>
	'03	'04	'05	'03	'04	'05	'03	'04	'05	'03	'04	'05	'03	'04	'05	'05
A	14	19	22	28	24	36	20	28	30	1505	1488	1734	436	322	206	65
B	46	57	69	72	68	78	53	76	65	1649	1729	2148	891	550	358	59
C	27	34	51	35	40	49	23	29	38	1892	1399	2277	429	377	162	31
D	41	62	67	102	107	102	35	44	48	1317	1342	1939	1554	828	494	123
E	39	54	63	43	43	59	31	36	46	1406	1151	1744	391	258	151	92
F	53	61	77	85	82	88	65	78	81	1658	1451	1855	1123	714	421	128
G	67	73	96	137	132	143	59	67	69	1244	1176	1959	1463	1076	578	156
H	41	50	68	63	—	—	69	—	—	1442	—	—	815	502	364	106
I	23	30	44	22	21	29	31	30	36	1904	1518	2333	176	172	152	52
J	17	21	36	18	21	27	25	19	26	1659	1355	2258	196	203	151	29
K	35	44	—	118	141	—	40	70	—	1573	1295	—	802	661	—	—
最低	14	19	22	18	21	27	20	19	26	1244	1151	1734	176	172	151	29
最高	67	73	96	137	140	143	69	78	81	1904	1729	2333	1554	1076	578	156
平均	37	46	59	66	68	68	41	48	49	1568	1390	2027	752	515	304	84
地点	10月(秋期)															
	HNO <sub>3</sub>			SO <sub>3</sub>			HCl			O <sub>3</sub>			NO <sub>2</sub>			NH <sub>3</sub>
	'03	'04	'05	'03	'04	'05	'03	'04	'05	'03	'04	'05	'03	'04	'05	'05
A	4	5	4	9	13	6	11	15	14	1130	1592	1573	346	302	226	80
B	18	13	11	24	23	13	37	33	26	1317	1706	1571	608	440	352	64
C	10	8	9	25	27	16	23	26	20	1669	1773	1990	227	169	156	31
D	12	9	10	41	24	24	21	16	19	734	833	1005	1079	1153	875	137
E	15	13	15	25	14	10	33	25	27	809	1216	1139	192	156	282	87
F	19	17	15	32	31	20	55	35	32	1048	1299	1124	934	863	629	165
G	24	23	19	68	52	45	44	41	39	689	1019	963	1366	1506	968	245
H	17	17	16	24	21	19	31	39	31	980	1371	1116	597	728	519	87
I	9	7	7	14	11	8	34	25	25	1671	1872	1724	221	196	167	31
J	6	5	4	11	6	7	14	8	7	1380	1635	1495	235	250	221	17
K	14	11	—	51	42	—	53	41	—	1213	1476	—	632	429	—	—
最低	4	5	4	9	6	6	11	8	7	689	833	963	192	156	156	17
最高	24	23	19	68	52	45	55	41	39	1671	1872	1990	1366	1506	968	245
平均	13	11	11	29	24	17	32	28	24	1149	1436	1370	585	563	439	94

各値は2組の測定値の平均を示している。(n mol/m<sup>3</sup>). -- : 欠測

た、また、HNO<sub>3</sub>、SO<sub>2</sub>およびHClでは6月の方が10月よりも著しく高かった。

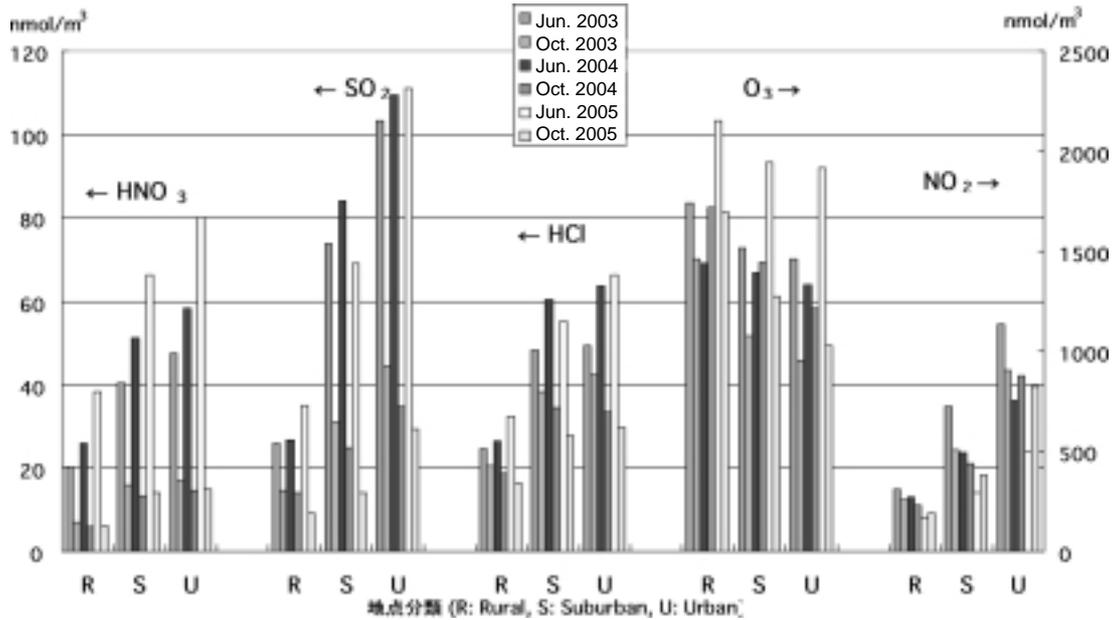
調査地点を第2表で分類したように4ヶ所の田園(R)、4ヶ所の郊外(S)そして3ヶ所の都市(U)の3属性に分けて解析した。第3図にその属性ごとの平均濃度を示したが、HNO<sub>3</sub>、SO<sub>2</sub>、HClおよびNO<sub>2</sub>ではU>S>Rの順、一方O<sub>3</sub>は逆でR>S>Uの順であった。これは都市域で特に多い他の大気汚染物質がO<sub>3</sub>を消費するためではないかと考えられた。各属性において、HNO<sub>3</sub>、SO<sub>2</sub>およびHClは初夏の6月の方が秋の10月よりも濃度が高かった、一方O<sub>3</sub>とNO<sub>2</sub>はそのような傾向を示さなかった。

### 3. 通年調査による大気濃度

年間を通じて調査を実施しているB、F、G、およびHの4地点について、平成15~17年度の3年間に調査結果を

第6表に示す。HNO<sub>3</sub>、HCl、SO<sub>2</sub>、O<sub>3</sub>およびNO<sub>2</sub>の濃度レベルはそれぞれ5.8~99(平均: 31nmol/m<sup>3</sup>)、15~104(同: 45nmol/m<sup>3</sup>)、13~169(同: 68nmol/m<sup>3</sup>)、459~2148(同: 1177nmol/m<sup>3</sup>)および155~1963(同: 715nmol/m<sup>3</sup>)であった。4地点のSO<sub>2</sub>、NO<sub>2</sub>とHNO<sub>3</sub>の濃度はG>F>H、Bの順であり、O<sub>3</sub>はその逆の順、そしてHClではその差は小さかった。

HNO<sub>3</sub>、HCl、SO<sub>2</sub>、O<sub>3</sub>およびNO<sub>2</sub>についての月変動を第4図に示す。HNO<sub>3</sub>およびHClの濃度トレンドは明らかに夏に高く冬に低いという季節変動を示した。これは夏季の高温と強い日差しによりNO<sub>x</sub>がHNO<sub>3</sub>に化学変化し易いことや浮遊粉塵中の硝酸塩や塩酸塩がガス化し易いことなどが考えられた。SO<sub>2</sub>については10月に濃度が低い傾向があった。O<sub>3</sub>は春先にやや高い傾向を示し、

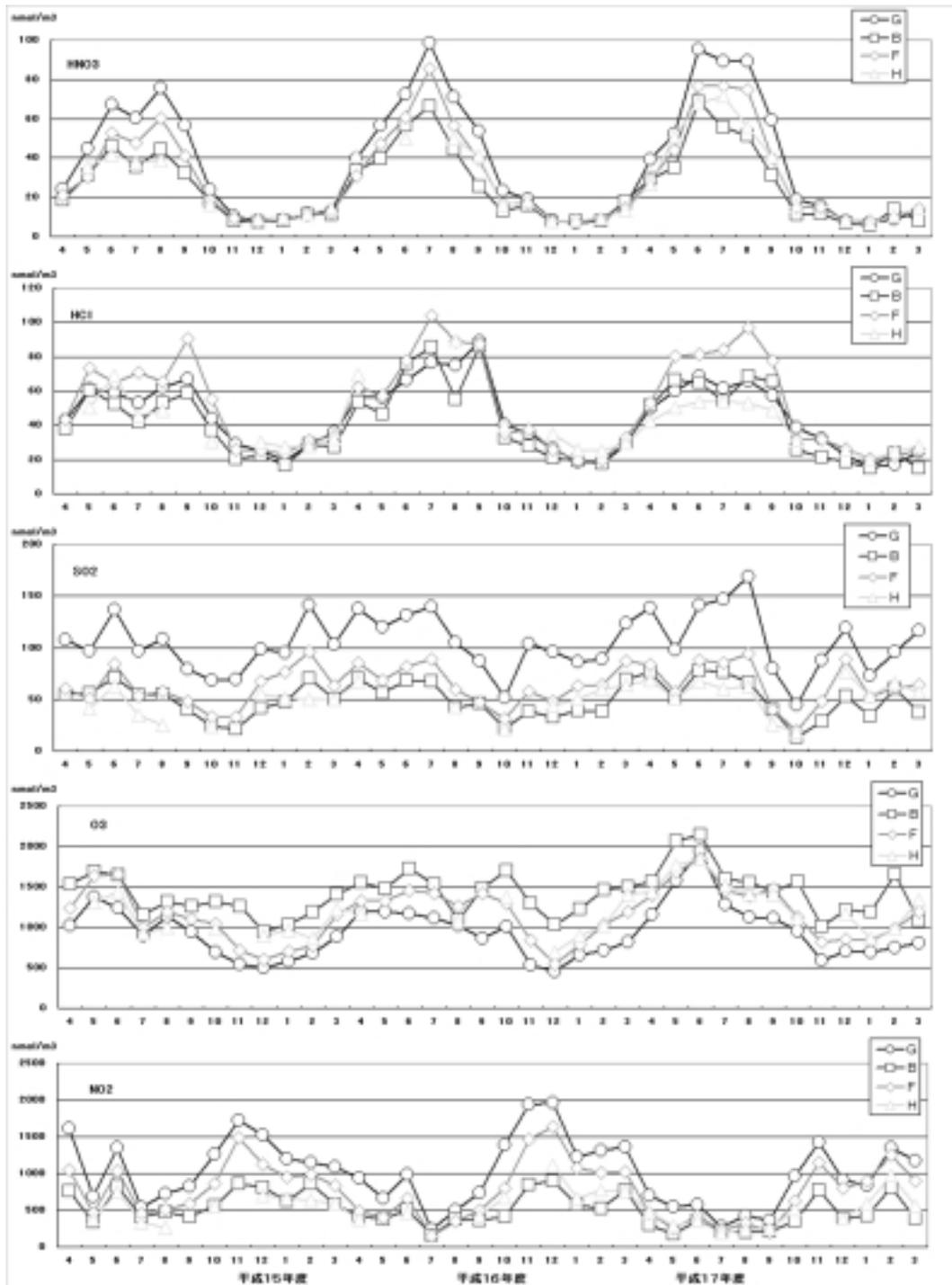


第3図 属性別の平均大気濃度 (R: 田園 S: 郊外 U: 都市)

第6表 大阪府域4地点における酸性ガスの通年測定結果

期間	B地点						F地点						G地点						H地点						
	HNO <sub>3</sub>	SO <sub>2</sub>	HCl	O <sub>3</sub>	NO <sub>2</sub>	NH <sub>3</sub>	HNO <sub>3</sub>	SO <sub>2</sub>	HCl	O <sub>3</sub>	NO <sub>2</sub>	NH <sub>3</sub>	HNO <sub>3</sub>	SO <sub>2</sub>	HCl	O <sub>3</sub>	NO <sub>2</sub>	NH <sub>3</sub>	HNO <sub>3</sub>	SO <sub>2</sub>	HCl	O <sub>3</sub>	NO <sub>2</sub>	NH <sub>3</sub>	
4月	19	55	38	1539	762	-	21	60	43	1234	1054	-	24	108	43	1018	1614	-	-	-	-	-	-	-	-
5月	31	56	61	1693	340	-	30	51	73	1639	463	-	45	97	61	1371	691	-	35	41	50	1309	381	-	
6月	46	72	53	1649	823	-	53	85	65	1658	1037	-	67	137	59	1244	1351	-	41	63	69	1442	753	-	
7月	35	54	42	1163	409	-	48	53	71	1002	455	-	60	97	53	896	535	-	38	35	46	918	343	-	
8月	45	55	53	1319	477	-	60	58	65	1192	518	-	76	108	62	1131	722	-	39	25	49	1001	258	-	
9月	32	40	59	1264	408	-	41	48	91	1104	586	-	56	79	67	947	824	-	-	-	-	-	-	-	
10月	18	24	37	1317	561	-	19	32	55	1048	863	-	24	68	44	689	1262	-	17	24	31	980	551	-	
11月	8	22	20	1265	863	-	9	33	25	719	1490	-	10	69	29	550	1722	-	-	-	-	-	-	-	
12月	8	41	22	957	812	-	7	68	25	602	1124	-	8	99	25	505	1520	-	9	55	30	896	695	-	
1月	8	47	16	1029	621	-	9	76	24	703	955	-	8	95	20	575	1198	-	10	52	27	960	667	-	
2月	11	70	26	1197	861	-	11	96	31	774	993	-	12	141	29	681	1153	-	12	49	28	862	638	-	
3月	11	51	27	1406	577	-	12	63	34	1163	834	-	13	103	36	882	1082	-	14	49	32	1232	590	-	
4月	33	70	54	1552	421	-	31	85	62	1335	488	-	40	138	56	1194	939	-	41	68	70	1176	379	-	
5月	40	56	46	1474	381	-	47	68	57	1332	401	-	57	120	56	1192	660	-	-	-	-	-	-	-	
6月	57	68	76	1729	508	-	61	82	78	1451	659	-	72	131	66	1168	987	-	50	-	-	-	464	-	
7月	66	67	86	1532	157	-	86	89	104	1425	155	-	99	139	77	1115	236	-	-	-	-	-	-	-	
8月	44	41	55	1093	369	-	56	59	89	1257	349	-	71	105	75	1024	496	-	50	42	90	1085	-	-	
9月	26	46	86	1488	364	-	39	47	87	1416	502	-	54	87	89	866	740	-	41	-	-	-	431	-	
10月	13	23	33	1706	407	-	17	31	35	1299	797	-	23	52	40	1016	1386	-	17	21	39	1371	672	-	
11月	16	38	28	1290	845	-	17	57	37	840	1458	-	19	104	35	535	1943	-	18	-	-	-	-	-	
12月	7	33	21	1034	901	-	8	48	25	547	1636	-	8	96	26	459	1963	-	8	44	35	690	1108	-	
1月	8	39	19	1229	577	-	7	63	19	780	1079	-	7	86	19	664	1220	-	9	50	26	897	657	-	
2月	8	38	18	1466	519	-	8	64	20	1033	1008	-	8	89	18	714	1315	-	9	60	25	1021	776	-	
3月	18	69	29	1501	781	-	14	87	33	1195	1021	-	15	124	30	819	1368	-	14	64	29	1405	757	-	
4月	29	77	52	1566	296	62	29	83	53	1392	468	158	39	139	50	1155	706	178	27	69	42	1444	470	100	
5月	35	51	66	2064	177	54	44	56	80	1678	246	129	52	97	60	1577	554	154	51	51	50	1772	288	101	
6月	69	78	65	2148	358	59	77	88	81	1856	421	129	95	142	69	1946	574	155	68	68	54	1844	364	107	
7月	56	76	54	1607	209	91	77	86	84	1450	227	217	89	147	62	1285	272	213	71	61	54	1518	184	127	
8月	51	67	69	1555	204	104	75	94	97	1387	320	231	89	169	66	1130	419	230	55	62	53	1410	234	146	
9月	31	40	66	1444	211	79	40	40	78	1481	203	176	60	80	57	1118	359	189	41	26	49	1407	252	116	
10月	11	13	26	1571	352	64	15	20	32	1124	629	165	19	44	38	956	960	243	16	19	31	1116	518	87	
11月	12	28	22	1011	772	82	15	48	32	821	1156	196	16	88	32	593	1425	250	-	-	-	-	-	75	
12月	7	53	19	1213	392	48	8	89	26	853	804	128	8	119	22	703	916	152	8	76	26	1172	389	51	
1月	6	33	15	1197	429	38	8	53	20	846	897	119	7	73	16	688	837	141	6	53	20	858	582	60	
2月	14	60	23	1657	810	58	10	61	22	984	1246	111	9	96	17	748	1355	163	11	65	25	984	978	88	
3月	8	37	15	1085	387	24	15	64	26	1199	905	93	12	116	24	807	1171	131	15	57	28	1336	560	67	
最低	6	13	15	957	157	24	7	20	19	547	155	93	7	44	16	459	236	131	6	19	20	690	184	51	
最高	69	78	86	2148	901	104	86	96	104	1856	1636	231	99	169	89	1946	1963	250	71	76	90	1844	1108	146	
平均	26	50	42	1417	509	64	31	64	52	1162	762	154	38	105	45	943	1013	183	28	50	41	1189	533	94	

各値は2組の測定値の平均を示している。(nmol/m<sup>3</sup>)。 - : 欠測



第4図 HNO<sub>3</sub>、HCl、SO<sub>2</sub>、O<sub>3</sub>、NO<sub>2</sub>の経月濃度変化

NO<sub>2</sub>はやや冬に高かったがHNO<sub>3</sub>やHClのように明瞭な季節変動は示さなかった。なお、HNO<sub>3</sub>、HCl、SO<sub>2</sub>およびNO<sub>2</sub>の濃度は都市部の地点GとRで高かったが、O<sub>3</sub>の濃度は郊外部である地点BとHで高かった。

#### ・ 摘要

提案したパッシブ法はHNO<sub>3</sub>、SO<sub>2</sub>、HCl、O<sub>3</sub>および

NO<sub>2</sub>などのガス成分のフィールドモニタリングを行うのに簡便であった。特にポリアミドろ紙をパッシブ法に適用した例は始めてであり、HNO<sub>3</sub>の測定に極めて有用であり、4段ろ紙法で測定したHNO<sub>3</sub>濃度ともよく一致していた。

平成15～17年度の3年間の調査では、ガス成分の濃度レベルはO<sub>3</sub> > NO<sub>2</sub> > SO<sub>2</sub> > HCl > HNO<sub>3</sub>の順で、その平均濃度はそれぞれ1177nmol/m<sup>3</sup>、715nmol/m<sup>3</sup>、68nmol/m<sup>3</sup>、

45nmol/m<sup>3</sup>および31nmol/m<sup>3</sup>であった。HNO<sub>3</sub>とHCl濃度は明らかに夏に高く冬に低いという季節変動を示した。他のガス成分についてはO<sub>3</sub>で春先にやや高く、NO<sub>2</sub>でやや冬に高いということを除き明確な季節変動を示さなかった。6月と10月に大阪府域11地点で実施した季節調査では、各地点を田園(R)、郊外(S)、都市(U)の3属性に分類して濃度レベルをみたところ、HNO<sub>3</sub>、SO<sub>2</sub>、HClとNO<sub>2</sub>ではU>S>Rの順、O<sub>3</sub>では逆の順であった。

### ．謝 辞

本調査研究を実施するにあたり、パッシブサンプラーのサンプリングおよび運搬等にご協力を頂いた大阪府域市町村の環境部門の担当者に深謝する。

なお、本報告は平成17年11月23日～26日に韓国の済州島で開催された第11回大気中での地域沈着過程に係わる国際共同セミナー(11th International Joint Seminar on Regional Deposition Processes in the Atmosphere, RDPA 2005)および平成18年2月22日～23日に開催された第21回全国環境研究所交流シンポジウム(国立環境研究所、つくば市)でも一部口頭発表した。

### ．引用文献

- 1) 西川嘉範・田口圭介・井上香織・吉村健一郎(2000)．大気中ガス成分のパッシブ簡易測定法の検討．環境化学10(2)：281-289
- 2) 全環研東海・近畿・北陸支部(2004)．パッシブ簡易測定法の実用化検討 - 全環研東海・近畿・北陸支部共同調査研究(酸性雨) - ．全環研会誌．29(1)：25-35
- 3) Yoshinori NISHIKAWA (2004)： Simultaneous Measurement of Nitric Acid, Sulfur Dioxide and Ammonia in Air using a Passive Sampling Polyamide Filter, *J. Environ. Chem.* 14(2)：351-355
- 4) 全環研酸性雨調査研究部会(2005)．第4次酸性雨全国調査報告書(平成15年度)．全環研会誌．30(2)：58-135
- 5) 全環研酸性雨調査研究部会(2006)．第4次酸性雨全国調査報告書(平成16年度)．全環研会誌．31(3)：118-186
- 6) 全環研酸性雨調査研究部会(2007)．第4次酸性雨全国調査報告書(平成17年度)．全環研会誌．32(3)：78-152
- 7) D. Karakas and S.G. Tuncel (1997), Optimization and field application of a filter pack system for the simultaneous sampling of atmospheric HNO<sub>3</sub>, NH<sub>3</sub> and SO<sub>2</sub>, *Atmospheric Environment* 31(11)：1657-1666