

5) 成分調査結果を用いた PM_{2.5} に対する越境移流/地域発生の影響の解析

豊永悟史 出納由美子 北岡宏道

要旨

平成 25 年度に熊本県内 3 地点と長崎県の離島 2 地点で実施された微小粒子状物質 (PM_{2.5}) 成分調査結果を比較したところ、県内の汚染状況について次の 3 点が明らかになった。(1) 越境移流の影響を受けた成分 (SO₄²⁻, As, Se), 地域発生の影響を受けた成分 (NO₃⁻, OC, Soot-EC) が存在し、越境移流と地域発生が複合的に影響していた。(2) 一部の無機元素成分は宇土運動公園局で高い傾向が見られ、NO₃⁻は益城町役場局と神水自排局で高い傾向が見られる等地域的な違いが見られた。(3) 高濃度事例解析の結果、越境移流が主要因の事例と越境移流/地域発生が複合的に影響した事例の 2 パターンが存在することが示された。

キーワード：微小粒子状物質 (PM_{2.5})、地域特性、越境移流、高濃度事例解析

はじめに

微小粒子状物質 (以下、「PM_{2.5}」という。) は疫学調査で死亡率等の有意な上昇を引き起こす可能性が指摘されており¹⁾、日本でも全国的に環境基準を超過していることから²⁾、大気環境行政上の重要な課題の一つとなっている。その高濃度汚染原因の一つとして、経済発展が著しいアジア大陸からの越境移流が考えられている。特に九州においては、その影響が大きいことが指摘されており^{3, 4)}、PM_{2.5}削減対策の検討のためには、越境移流と地域発生の影響の定量的把握が必要不可欠である。

離島と都市部の PM_{2.5} 質量濃度、あるいは成分濃度を比較することで、越境移流と地域発生の影響を把握する試みがなされているが^{5, 6)}、熊本県内において、定量的な解析が行われた例はほとんどなく、その実態は明らかになっていない。そこで本研究は、環境省のガイドライン⁷⁾に基づき、全国の自治体で実施されている成分調査のデータを活用し、熊本県内と地域的な発生源の影響をほとんど受けないと考えられる長崎県の離島の成分調査結果を比較することで、①PM_{2.5}成分

に対する越境移流、地域発生の影響の定量的な把握、②各地域の PM_{2.5} 成分の特徴の解析、③高濃度事例の発生要因の推定を試みた。

調査・解析方法

1 解析対象地点及びデータの概略

図 1 に調査地点の位置関係を示した。解析対象としたのは、熊本県内の 3 地点 (宇土運動公園局、益城町役場局、神水自排局; 以下、それぞれ「宇土」、「益城」、「神水」という。) と長崎県の離島 2 地点 (国設五島酸性雨測定局、国設対馬酸性雨測定局; 以下それぞれ「五島」、「対馬」という。) において平成 25 年度の夏～冬の 3 季節に各 2 週間実施された PM_{2.5} 成分調査結果である。夏季のみ地点間で調査期間が異なっており、宇土と益城は 7/30～8/12、残りの 3 地点では 7/25～8/7 に実施された。秋季と冬季には 10/23～11/5、1/22～2/4 に全地点で調査が実施された。なお、採取は全地点で 10 時に開始され、地点により異なるが、翌日の 9 時～10 時の間に試料回収・設置が行われた。本文及び図中で示す試料採取期間や PM_{2.5} 質量濃度の日平均値、成

分濃度等の日付は特に説明がない限り試料採取開始日としている。宇土と益城は熊本県，神水は熊本市，五島と対馬は環境省が調査を実施している。神水，五島，対馬は環境省 HP で公表されているデータ⁸⁾を解析に使用した。

成分はイオン，炭素，無機元素に分けられる。イオンは Na^+ ， Mg^{2+} ， NH_4^+ ， Ca^{2+} ， K^+ ， SO_4^{2-} ， NO_3^- ， Cl^- の 8 成分を全地点で分析しており，解析対象とした。炭素は，元素状炭素 (EC) をフラクション別に 2 種類に分類した Char-EC・Soot-EC⁹⁾ 及び有機炭素 (OC) を解析対象とした。Char-EC はバイオマス燃焼の指標，Soot-EC は自動車排ガスの指標になると考えられている^{9, 10)}。なお，神水は炭素の測定を行っていない。無機元素は，地点により分析対象成分が異なっており，検出下限値未満が多い成分も含まれる。全地点で共通して分析しており，全期間の 1/4 以上で測定値が得られている 9 成分 (Al, V, Mn, Fe, Zn, As, Se, Ba, Pb) を解析対象とした。なお，Na, Ca, K はイオンと重複しているため，イオンの値を用いて評価することとした。

2 PM_{2.5} 質量濃度の日平均値の取扱い

神水，五島，対馬は，成分調査で 23～24 時間採取したフィルターを標準測定法¹¹⁾で秤量して得られた質量濃度を「日平均値」とした。宇土，益城は自動測定機の PM_{2.5} 質量濃度の 1 時間値を，試料採取時間に合わせて 23 時間 (11 時～翌 9 時) 平均した値を「日平均値」とした。標準測定法の値と自動測定機の値は，日単位で比較した場合には，等価性を持つことが示されており，同等に評価して問題ないと判断した¹²⁾。

3 常時監視データおよび気象解析

常時監視データの解析には熊本県内および五島と対



図 1 解析対象地点の位置関係

馬の PM_{2.5} 質量濃度の 1 時間値を使用した。気塊の由来と移流経路を求める解析手法として，後方流跡線解析 (NOAA Hysplit model) を用いた。本報の後方流跡線図はすべて NOAA の HP¹³⁾から入手した気象データ (GDAS) を用いて，Trajstat (気象解析ソフト¹⁴⁾) で作成したものである。宇土を起点とし，起点高度は 1000m，遡及時間は 72 時間とした。なお，気象データ (GDAS) は「4 高濃度事例解析」の混合層高度の解析にも使用した。また，天気図は，気象庁ホームページより入手したものを使用した。

結果及び考察

1 PM_{2.5} 質量濃度の日平均値の経時変化

図 2 に PM_{2.5} 質量濃度 (日平均値) の経時変化を示

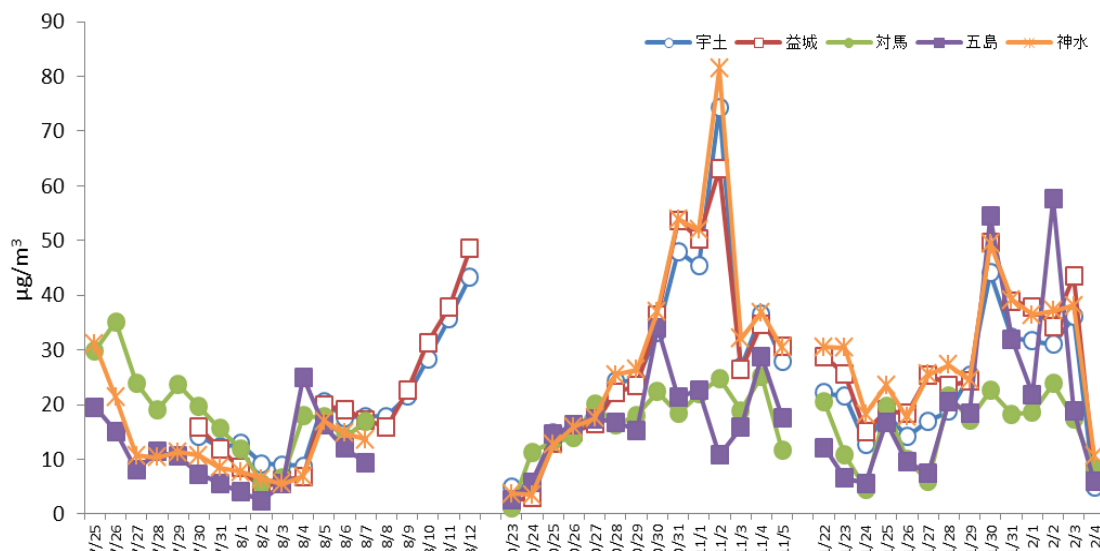


図 2 PM_{2.5} 質量濃度 (日平均値) の経時変化

した。変動傾向は全体的には地点間で類似していたが、秋と冬は離島に比べて県内の濃度レベルが高い傾向が見られた。また、冬季は県内3地点でも濃度レベルの差が見られ、神水と益城が全体的に宇土よりも高い傾向が見られた。

2 PM_{2.5}の主要な成分組成

図3に各成分の平均濃度を示した。平均した期間は、全ての調査地点でデータが存在する7/30~8/7, 10/23~11/5, 1/22~2/4（これらの期間をまとめて、以下、「同一期間」という。）である。PM_{2.5}質量濃度と解析対象成分の濃度の合計値との差は不明分として示している。いずれの地点でもPM_{2.5}質量濃度へ占める割合

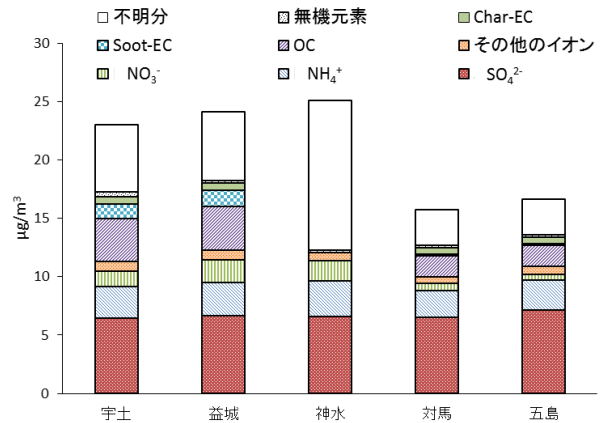
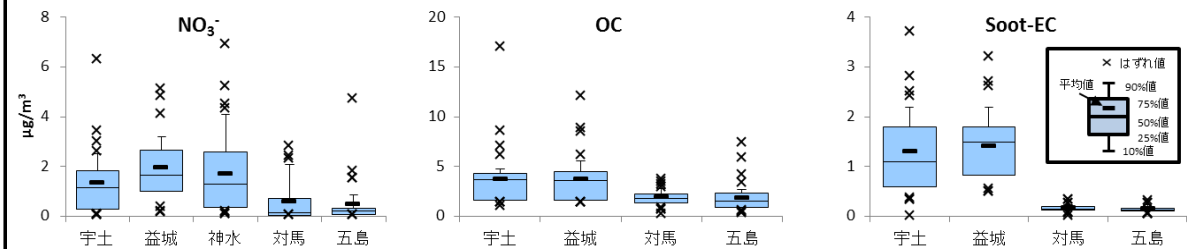
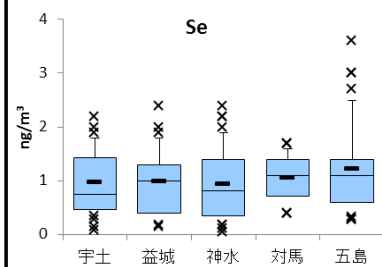
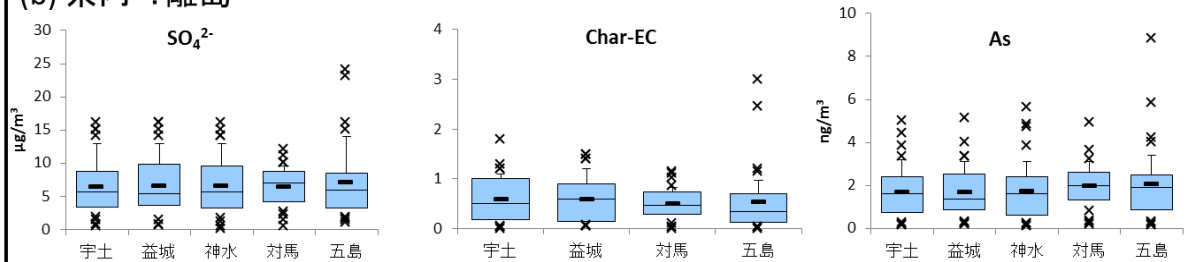


図3 同一期間の平均成分濃度

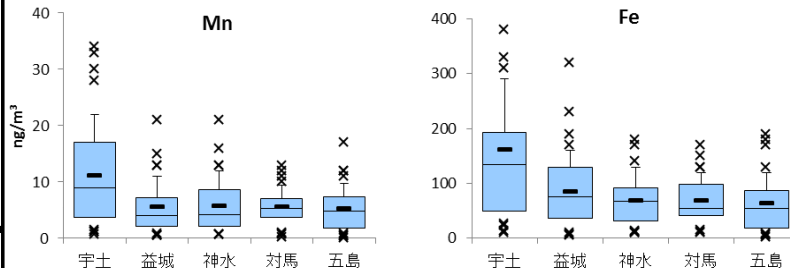
(a) 県内 > 離島



(b) 県内 ≒ 離島



(c) 宇土 > その他地点



(d) 離島 > 県内

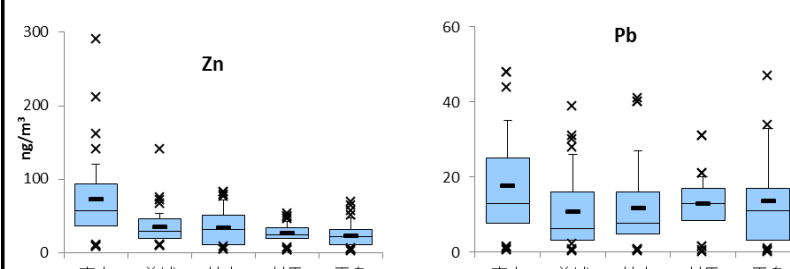
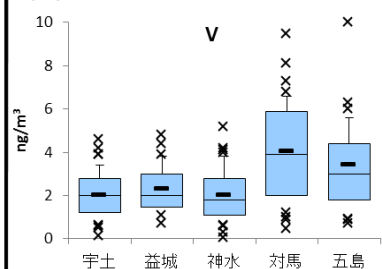


図4 同一期間の成分別濃度レベル比較

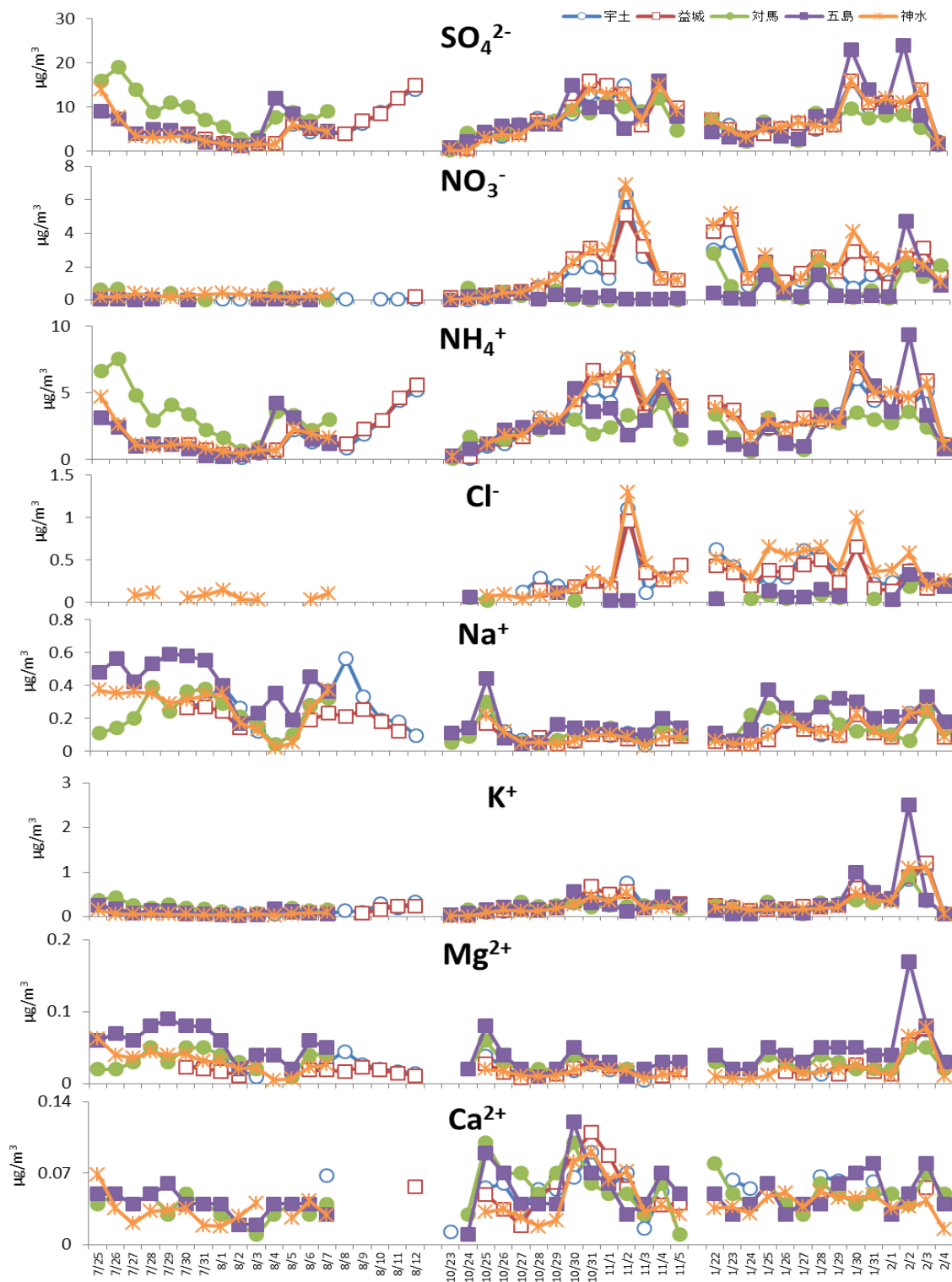


図5 イオン成分濃度の経時変化

が大きい成分は NO_3^- , SO_4^{2-} , NH_4^+ , OC, Soot-EC (神水は OC, Soot-EC 未測定) であった。これらの成分は一般的に $\text{PM}_{2.5}$ の主要成分とされており、過去に行われた国内の観測結果とも同様の傾向を示している¹⁵⁾。

また、 SO_4^{2-} はどの地点でもほぼ同程度の濃度なのに対して、 NO_3^- は県内3地点で高い傾向が見られた。未測定の神水を除くと、OC, Soot-EC についても同様に高い傾向が確認できた。このため、離島では相対的に

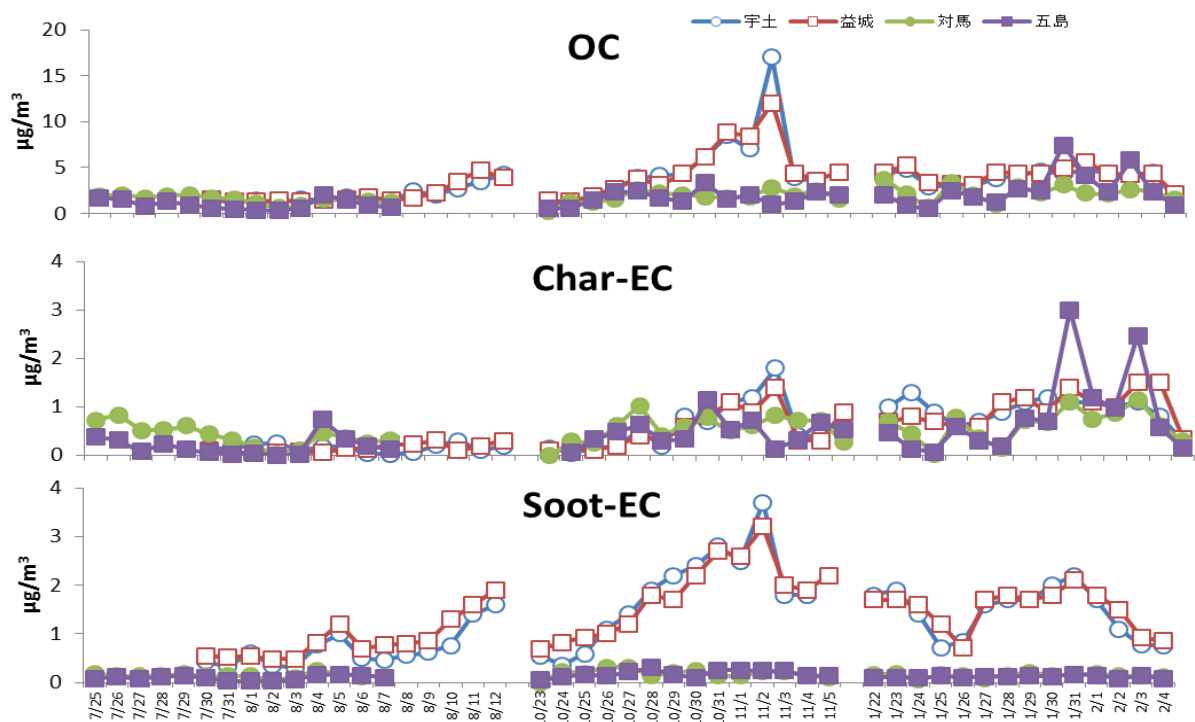


図6 炭素成分濃度の経時変化

SO₄²⁻が占める割合が高く、質量濃度の約40%を占めていたが、県内3地点では26~28%となっており、組成が異なっていた。

3 成分濃度レベルと経時変化の比較

PM_{2.5} 質量濃度及び各成分について地点間の濃度レベルを比較した。濃度レベルは、同一期間についてパーセンタイル値による比較を行い、基本的に10, 25, 50, 75, 90の5つのパーセンタイル値のすべてが高い(あるいは低い)場合を「濃度差がある」と判断した。なお、地点ごとに1/4以上が検出下限値未満である成分は解析対象から除外し、炭素成分については、未測定的神水を解析対象から除外した。

濃度レベルの地点差の代表的なパターンの例を図4に示した。宇土、益城が離島よりも高い濃度レベルを示した成分として、NO₃⁻、OC、Soot-ECが挙げられる一方、SO₄²⁻、As、Se、Char-ECは地点間の明確な差は認められなかった(図4a, b)。これは、前者の成分では地域発生の影響が強いことを、後者では越境移流の影響が強いことを示唆する結果である。この傾向は神水と離島を比較した場合も、未測定の炭素成分(OC、Char-EC、Soot-EC)を除けば同様であった。このことは、経時変化で比較した場合にも、前者の成分は五島と県内3地点では異なる挙動を示し、後者はChar-EC以外では類似した挙動を示したことから支持される

(図5~7)。Char-ECは、特に冬季の経時変化が、五島と宇土、益城で異なっており、地域発生と越境移流の両方の影響を受けている可能性が考えられた(図6)。また、NO₃⁻は益城と神水が宇土よりも若干高い濃度レベルを示した(図4a)。NO₃⁻は地域発生の影響の指標と考えられており³⁾、地域的な発生源の影響を反映しているものと推測される。粒子中NO₃⁻濃度は粒子生成の相手となるアンモニアガス(NH₃)濃度や気温にも影響されることから¹⁶⁾、これらの影響も含めて、今後検討していく必要がある。

無機元素のうち、Mn、Fe、Zn、Pbは、宇土が他の地点に比べて高い濃度を示す傾向が見られた(図4c)。Fe、Mnについては土壌由来の影響も考えられるが、4元素ともに人為的排出の影響を受けるため^{17, 18)}、周辺の工業施設等の影響が想定される。ただし、無機元素は一般的にPM_{2.5}質量濃度に占める割合は小さく¹⁹⁾、PM_{2.5}質量濃度及びその他の成分について、宇土が他の地点に比べて特に高い傾向は見られないことから、これらの無機元素濃度に影響した発生源がPM_{2.5}質量濃度に与える影響は小さいものと予想される。

Vは離島の方が県内3地点よりも高い傾向を示しており、特徴的であった(図4d)。この傾向は、特に夏に顕著であり、いずれの時点でも離島が高い値を示していた(図7)。Vは重油燃焼の指標¹⁸⁾とされており、

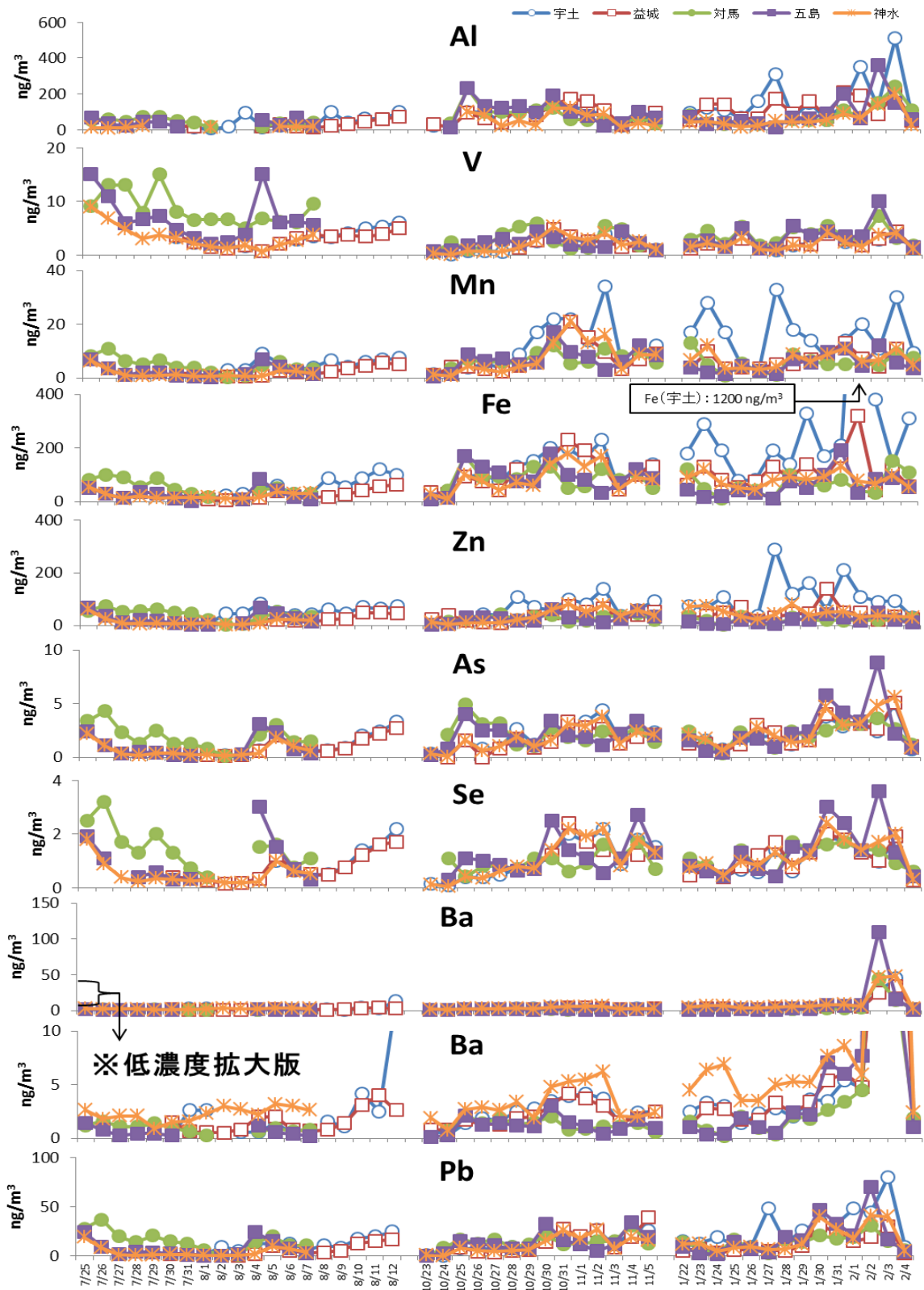


図7 無機元素成分濃度の経時変化

アジア大陸の工業由来の排出や周辺を航行する船舶の影響が想定される。

4 高濃度事例解析

図2に示したPM_{2.5}質量濃度(日平均値)は、既述

のとおり成分調査に合わせた平均値である。このため、厳密に環境基準値との関係を論ずることはできないが、短期の環境基準である1日平均値35 μg/m³(日平均値の年間98%値で評価)を目安として、同一期間について

て県内3地点のうち1地点以上が超過した日を高濃度日と定義した。同一期間のほとんどの高濃度日は多地点同時かつ複数日に渡って観測されていることから、それぞれをまとめて期間 A (10/30~11/4)、期間 B (1/30~2/3) として解析を行った。なお、対馬は期間 A の時点では PM_{2.5} 質量濃度 (1 時間値) の観測が開始されていなかったため、高濃度事例解析では五島と県内3地点の比較を中心に考察した。

(1) 期間 A (10/30~11/4)

PM_{2.5} 質量濃度 (1 時間値) の変化を見ると、10/30 の 12 時頃から五島で PM_{2.5} 質量濃度の上昇が見られ、15 時頃からは県内3地点でも濃度上昇が確認できた (図 8)。その後 11/1 にかけては、五島では濃度が減少したものの、概ね 20 μg/m³ 程度の濃度で推移し、県内3地点は概ね 40 μg/m³ 以上の濃度が持続した。この間の天気図及び後方流跡線は、高気圧の東進に伴う大陸由来の気塊の流入を示しており (図 9a)、越境移流の影響を受けていたと推測された。

11/2 の 12 時頃以降は、五島の PM_{2.5} 質量濃度が減少傾向に転じたが、県内3地点は PM_{2.5} 質量濃度が上昇し、宇土は 11/2 の 17 時~11/3 の 1 時頃にかけて 1 つのピークが確認できた。益城は、11/2 の 18 時頃と 11/3 の 5 時頃に 2 つのピークが確認された。神水は 11/2 の 21 時頃と 11/3 の 2 時頃にピークが見られ、その後は減少した (図 8)。天気図によると、九州は高気圧の背面に位置しており、南西方向からは前線が接近していた (図 9b)。後方流跡線は主に太平洋側からの気塊の流

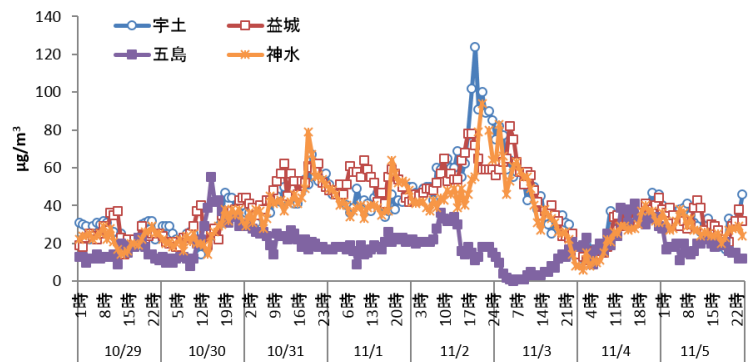


図 8 期間 A の PM_{2.5} 質量濃度 (1 時間値) の経時変化

入を示しており、県内3地点のみで濃度上昇が生じていたことから、地域発生の影響が考えられた。

11/3 の 7 時~24 時にかけては前線の通過に伴って、気圧の低下と少量の降雨が確認され、PM_{2.5} 質量濃度は県内全域で減少した。その後、11/4 の 22 時頃にかけては離島と県内3地点の全域で再び濃度上昇が見られた (図 8)。この期間は前線通過に伴って大陸由来の気塊が流入していたと考えられ (図 9c)、越境移流の影響が強かったものと考えられた。

県内3地点の各成分の挙動に着目すると、一部例外があるものの、2 つのパターンに分けられた。各パターンの代表的な例を図 10 に示した。パターン①は 10/31~11/2 の期間に濃度が高い状態が続くパターンであり、SO₄²⁻、As、Se 等が該当する (図 5, 7, 10a)。変動はあるものの、濃度レベルは概ね横ばい傾向であり、11/3 に一端濃度が減少した後、11/4 にもピークを示す成分が多い。これらの成分の多くは、五島におい

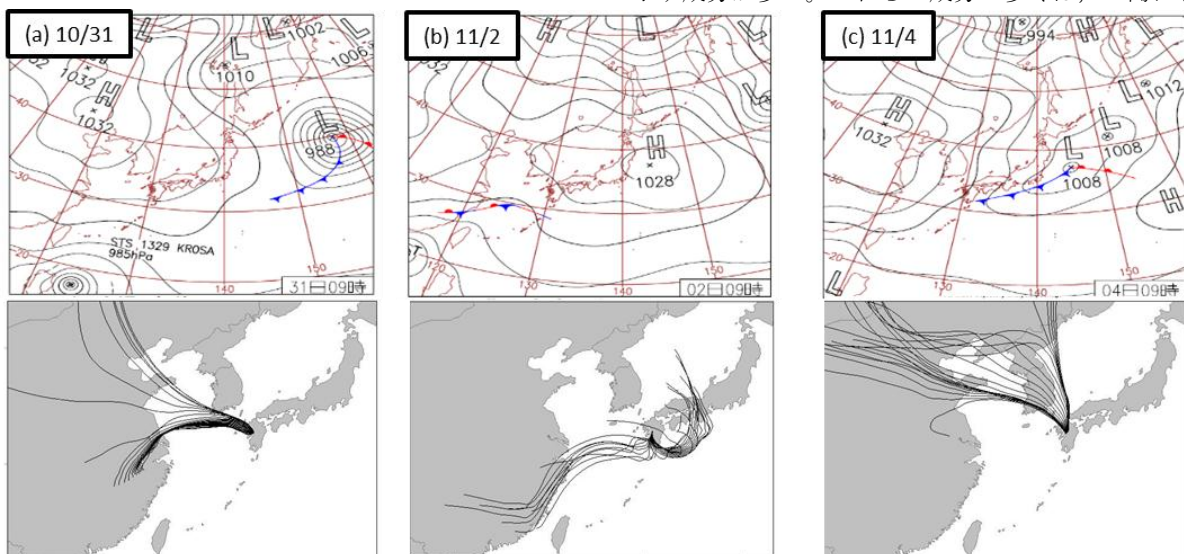


図 9 期間 A の天気図 (午前 9 時) および各日 10 時~翌 9 時まで 1 時間毎の後方流跡線

て 10/30 にピークを示し、その後は減少する傾向が確認できた。パターン②は 10/31 と 11/2 の両方に濃度ピークが認められるものの、後者が明らかに大きい値を示すパターンであり、 NO_3^- 、Soot-EC、OC 等が該当する (図 5, 6, 10b)。五島ではこれらの成分の濃度上昇は確認できず、濃度レベルも明らかに県内 3 地点の方が高い値を示していた。

該当する成分の種類から、パターン①は、主に越境移流の影響と考えられ、10/31 に越境移流してきた汚染気塊がその後 11/2 にかけて滞留したことを示唆している。一方で、パターン②は主に地域発生による影響を示していると推測され、11/2 にかけて影響が強くなったことを示唆していると考えられた。これは、Mn、Fe、Zn が地域発生の影響が強いと考えられる宇土のみでパターン②を示したことからも支持される (図 7c)。

11/2 にかけて地域発生の影響が強くなった気象的要因の一つとして、混合層高度の低下が考えられた。気象データ (GDAS) によると、11/2~3 の宇土の混合層高度は、日中でも 400m 以下と低くなっていた (図 11)。混合層とは、鉛直方向に混合する大気層であり、日中は地表が暖められるため、通常は高度 1000m 付近まで発達し、地表付近の汚染物質を拡散させる役割を果たす。今回の事例では、混合層高度が低い状態となったため、越境移流してきたものに加えて、地域発生した汚染物質も滞留しやすくなり、 $\text{PM}_{2.5}$ の濃度上昇が生じたと考えられた。

以上の結果から、本事例の高濃度要因は次のように推測できた。まず、10/31 頃から県内には越境移流が影響していた。その後、11/2 にかけて混合層高度が低下したことにより、県内においては先の越境移流の影響が持続すると同時に、地域発生の影響が強くなり、複合的に $\text{PM}_{2.5}$ の濃度上昇を引き起こした。その後、11/4 にかけては前線の通過に伴い、新たな越境移流が生じ、濃度上昇が確認された。

(2) 期間 B (1/30~2/3)

$\text{PM}_{2.5}$ 日平均値は 1/29 頃から上昇傾向であり、1/30~2/3 にかけて神水で $35\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超過し、2/2 以外は益城でも同様に超過が確認された。一方で宇土は 1/30 と 2/3 のみで超過が確認された (図

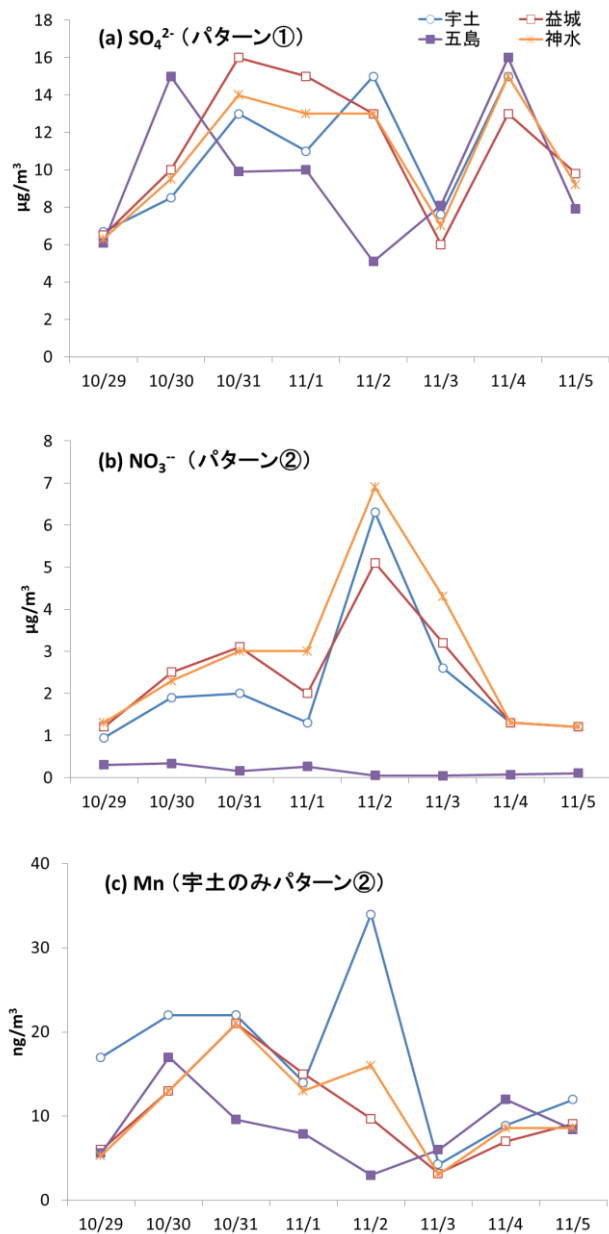


図 10 期間 A の成分濃度経時変化の代表例

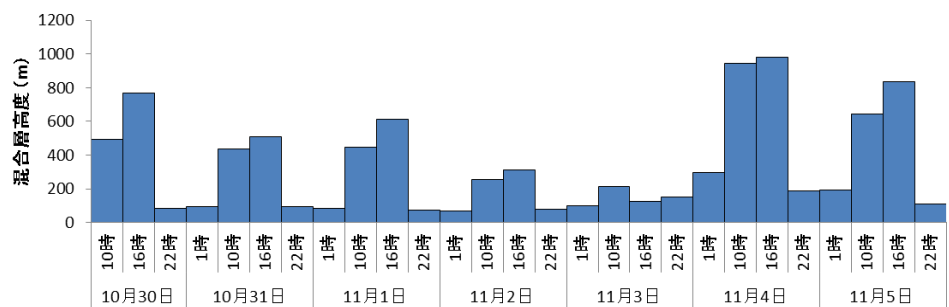


図 11 宇土における混合層高度の経時変化

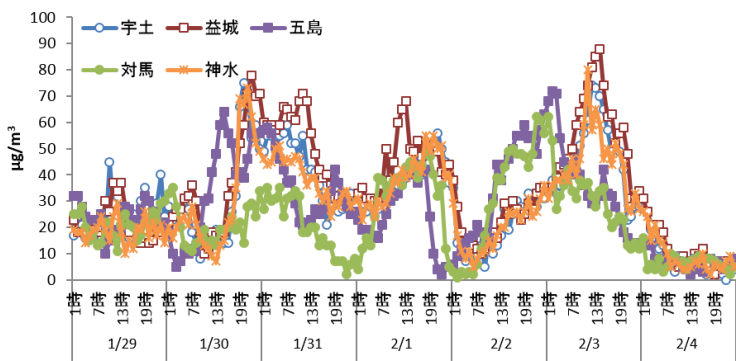


図 12 期間 B の PM_{2.5} 質量濃度 (1 時間値) の経時変化

2). PM_{2.5} 質量濃度の 1 時間値は五島と県内 3 地点で、時間的なずれはあるものの、類似した挙動を示した。濃度レベルは五島に比べると県内 3 地点がやや高い傾向が見られたものの、概ね同程度であった (図 12)。1/30 の午前中と 2/2 の午後~2/3 にかけては、前線を伴う低気圧が通過しており、大陸由来の気塊が流入していることから、1/30~31 と 2/3 の濃度上昇はこれに対応していると考えられた (図 13a, c)。また、1/31 午後~2/1 にかけては高気圧が通過しており、後方流跡線もこれに対応して大陸からの移流を示した (図 13b)。2/1 の濃度上昇はこの移流に対応していると考えられる。以上のことから、本事例は越境移流の影響を強く受けた事例であり、3 回の移流イベントが生じていたと考えられた。

成分濃度の経時変化の代表的な例を図 14 に示した。県内 3 地点の成分濃度について見ると、SO₄²⁻、NH₄⁺、

Se 等の成分濃度について、前線通過による移流イベントに対応する 1/30~31 と 2/3 にピークが見られ、両期間の濃度レベルは同程度であった (図 14a)。一方で、K⁺、Mg²⁺、Ba は後者の期間の濃度レベルが明らかに大きく、挙動が離島と県内 3 地点で類似していることから、越境移流の影響を受けたものだと考えられた (図 14b)。この結果は、前線通過による 2 つの越境移流イベントの化学的性質が明らかに異なっていたことを示している。一般的に、K⁺はバイオマス燃焼、Mg²⁺は海塩や土壌、Ba は土壌やブレーキダスト等の影響を受けると考えられているが、いずれも越境移流時の挙動についての情報は限られている。現時点で化学的性質が異なった要因を明らかにするのは難しいが、今後もイベントごとの特徴を詳細に解析していく必要がある。

まとめ

各地点の越境移流の影響や地域特性の把握及び高濃度要因の推定を目的として、平成 25 年度に熊本県内 3 地点 (宇土、益城、神水) 及び長崎県の離島 2 地点 (五島、対馬) で実施された PM_{2.5} 成分調査の結果を解析した。

離島と県内 3 地点の各成分の濃度レベルの比較から、越境移流の影響が強いと推定される成分 (SO₄²⁻、As、Se 等) と地域発生の影響が強いと推定される成分 (NO₃、OC、Soot-EC 等) が存在することが示され、

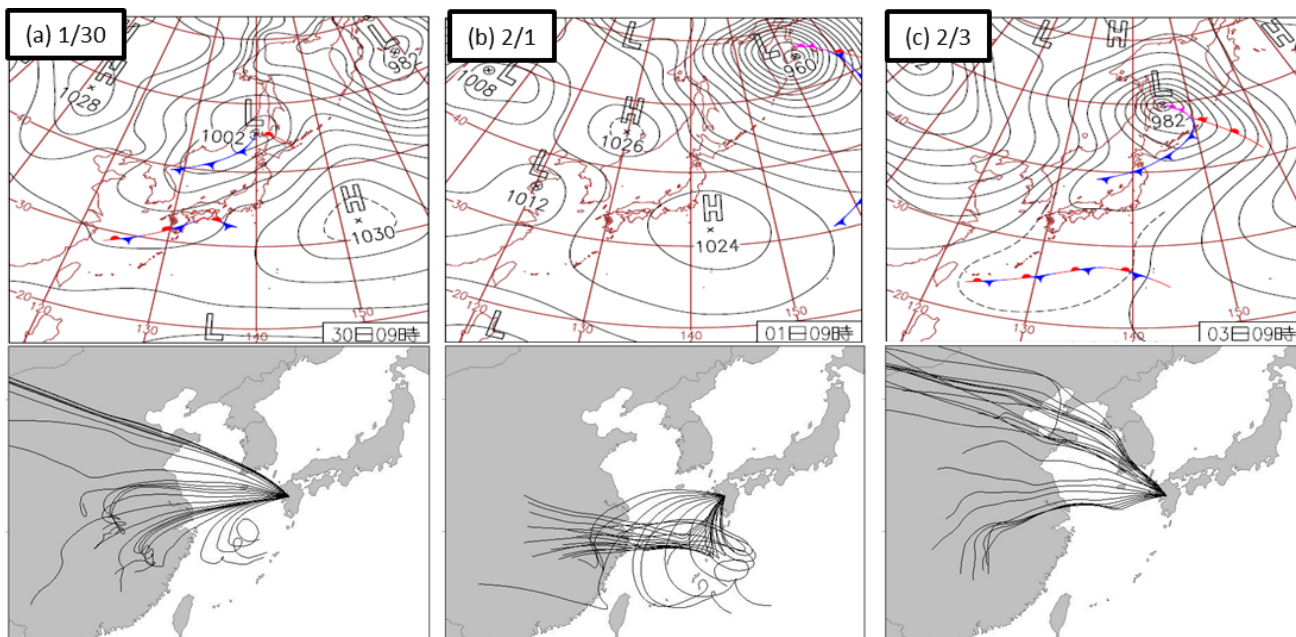


図 13 期間 B の天気図 (午前 9 時) および各日 10 時~翌 9 時まで 1 時間毎の後方流跡線

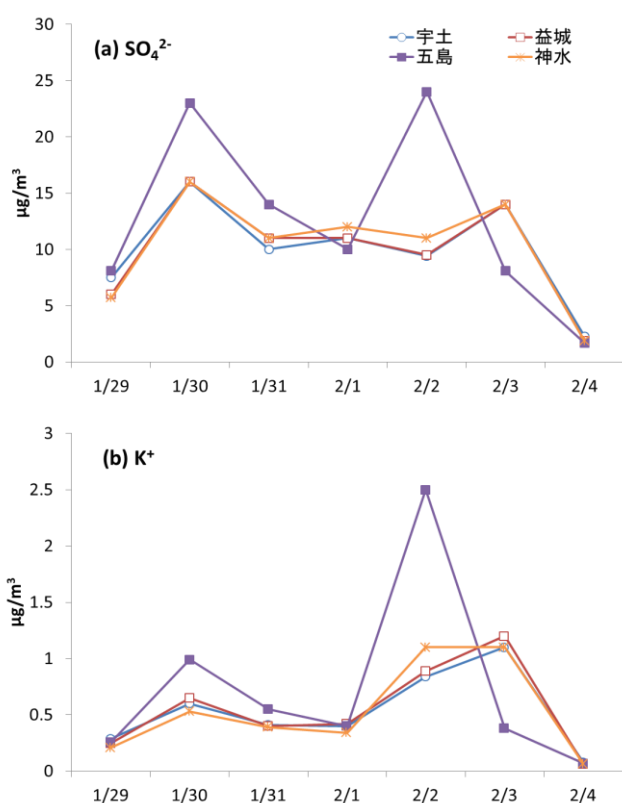


図 14 期間 B の成分濃度経時変化の代表例

県内の $PM_{2.5}$ が越境移流と地域発生両方の影響を複合的に受けている状況が明らかになった。

また、県内でも地点により汚染状況が異なっていたことが示された。宇土では一部の無機元素の濃度が益城と神水に比べて高く、逆に NO_3 は益城と神水の濃度が高い傾向が見られた。これらの特徴は周辺の地域的な発生源の影響を反映していると考えられ、今後も注視すべき点だと言える。

高濃度事例解析を行ったところ、越境移流が主要因の事例と越境移流/地域発生が複合的に影響した事例の 2 パターンが存在することが示された。今後、このような複合的事例の発生頻度を把握していくことが削減対策を検討する上で重要と考えられた。

文献

- 1) 武林亨, 朝倉敬子, 山田睦子: 大気環境学会誌, **46** (2), 70-76 (2011).
- 2) 板野泰之, 大原利眞, 山神真紀子, 大野隆史, 長田

健太郎, 武直子, 菅田誠治: 大気環境学会誌, **48** (3), 154-160 (2013).

- 3) 兼保直樹, 佐藤圭, 高見昭憲, 秀森丈寛, 松見豊, 山本重一: エアロゾル研究, **29** (S1), 82-94 (2014).
- 4) 鈴木亮太, 吉野彩子, 兼保直樹, 高見昭憲, 林政彦, 原圭一郎, 渡辺泉, 畠山史郎: 大気環境学会誌, **49** (1), 15-25 (2014).
- 5) 山本重一, 下原孝章, 濱村研吾, 山本勝彦, 谷口延子, 山崎敬久, 長谷川就一, 三田村徳子, 長田健太郎, 田村圭, 家合浩明, 小林優太, 菅田誠治, 大原利眞: 第 54 回大気環境学会年會要旨集, 226 (2013).
- 6) N. Kaneyasu, S. Yamamoto, K. Sato, A. Takami, M. Hayashi, K. Hara, K. Kawamoto, T. Okuda, S. Hatakeyama: *Atmos. Environ.*, **97**, 416-425 (2014).
- 7) 環境省: 微小粒子状物質 ($PM_{2.5}$) の成分分析ガイドライン (平成 23 年 7 月).
- 8) 環境省: 微小粒子状物質 ($PM_{2.5}$) 測定データ <http://www.env.go.jp/air/osen/pm/monitoring.html>
- 9) Y.M. Han, J.J. Cao, S.C. Lee: *Atmos. Chem. and Phys.*, **10**, 595-607 (2010).
- 10) 関口和彦, 木下勝利史, 桜井健治, 金庚煥, 王青躍, 萩野浩之: エアロゾル研究, **29** (S1), 55-65 (2014).
- 11) 環境省: 環境大気常時監視マニュアル第 6 版, 105-120 (平成 22 年 3 月)
- 12) 環境省: 等価性評価の結果について http://www.env.go.jp/air/osen/pm/parallelexam/results_b.html (2015.5.13 アクセス)
- 13) NOAA Air Resources Laboratory: <http://ready.arl.noaa.gov/HYSPLIT.php>
- 14) Y. Q. Wang, X. Y. Zhang, R. R. Draxler: *Environ. Model. & Soft.*, **24**, 938-963 (2009).
- 15) 坂本和彦: ペトロテック, **34** (3), 193-197 (2011).
- 16) 熊谷貴美代, 田子博, 飯島明宏, 小澤邦壽, 坂本和彦: 大気環境学会誌, **45** (1), 10-20 (2010).
- 17) 真室哲雄, 溝畑朗, 久保田寅英: 大気汚染学会誌, **15** (2), 69-76 (1980).
- 18) 溝畑朗, 真室哲雄: 大気汚染学会誌, **15** (5), 198-206 (1980).
- 19) 関口和彦: 大気環境学会誌, **45** (4), 54-60 (2010).