

2) WRF/CMAQ を用いた PM_{2.5} の発生源寄与解析

—PMF モデルによる発生源寄与との比較—

古澤尚英*¹ 板橋秀一*² 豊永悟史*³ 出納由美子

要 旨

熊本県の PM_{2.5} 主要発生源および越境・地域汚染の影響を把握するために、化学輸送モデル CMAQ を用いて 2014 年冬季の熊本県を対象とした発生源寄与を求めた。PMF モデルによる発生源寄与と比較したところ、越境汚染の寄与について有意な相関が得られ、両モデルの結果の妥当性が支持された。PMF の「2 次生成硝酸塩+塩化物」因子は CMAQ の「九州」寄与と有意な相関が得られたが、宇土と益城で相関が違い、このことは NH₃ の地域汚染と類似性がみられた。

キーワード：微小粒子状物質，WRF/CMAQ，PMF，発生源寄与

はじめに

2013 年に、疫学調査で健康影響が指摘されている微小粒子状物質 (PM_{2.5}) について、中国における現状と日本への越境汚染が報道されてから、日本でも PM_{2.5} に対する関心が高まってきている。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¹⁾、これまで多くの研究が行われている^{2)~4)}。以前までは自動測定機による PM_{2.5} 質量濃度の常時監視を目的として観測が行われてきたが、2013 年度より全国の自治体で成分調査が行われるようになり、地域ごとの汚染の特徴が明らかになりつつある⁵⁾。

このような背景から、全国の自治体と同様に、熊本県でも PM_{2.5} の発生源寄与の把握に取り組み、PM_{2.5} の削減に向けた研究を行っている^{4), 6)}。統計的手法を用いたレセプターモデルによる評価もその一つであり、これによると熊本では、越境汚染だけでなく地域汚染による影響もみられ、特に自動車による排出が地域間の濃度差を生み出している要因であると報告されている⁶⁾。

本研究では、熊本県の汚染状況を把握することを目的とし、メソ気象モデル Weather Research and Forecasting modeling system⁷⁾ version 3.4.1 (以下、「WRF」という。)と化学輸送モデル Community Multi-scale Air

Quality Modeling System⁸⁾ version 4.7.1 (以下、「CMAQ」という。)を用いて、試験的に発生源寄与の感度計算を行った⁹⁾。これにより、観測だけでは把握することができない PM_{2.5} などの大気中 3 次元空間濃度分布を推定することができる^{10), 11)}。この結果⁹⁾と先に報告されている Positive Matrix Factorization¹²⁾ (以下、「PMF」という。)などのレセプターモデルによる発生源寄与解析の結果⁶⁾を比較したので、その結果を報告する。なお、本研究で使用したモデル計算結果は、PMF は豊永ら⁶⁾のデータを利用しており、WRF/CMAQ は古澤ら⁹⁾のデータを利用している。

方法

1 モデルの初期値および再現性比較に使用したデータ・解析期間

PMF は、実測値をもとにした統計解析により発生源寄与を計算するモデルであるため、初期値として $N=100$ 以上の PM_{2.5} 質量濃度および成分濃度の実測値が必要となる。一方で、WRF/CMAQ には初期値として実測値は必要ないが、計算結果の妥当性を判断するために、計算値と実測値と比較する必要がある。

PMF の計算には、以下に示す成分濃度および質量濃度について 2013 年度～2014 年度のデータを使用した。

*¹ 環境生活部環境保全課 *² (一財) 電力中央研究所 *³ 環境生活部環境保全課

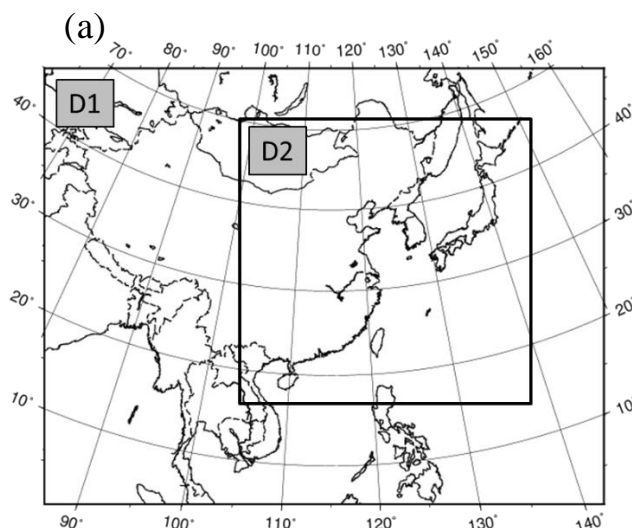
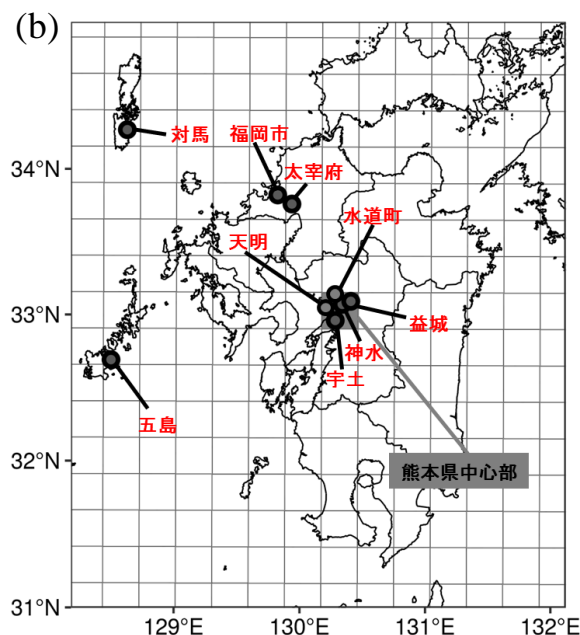


図1 (a) WRF/CMAQ の計算領域, (b) D2 の計算メッシュと調査地点



環境省作成のガイドラインおよびマニュアルに従って実施された^{13), 14)} 熊本県の5地点(宇土運動公園局, 益城町役場局, 神水本町自排局, 水道町自排局, 天明局; 以下, それぞれ「宇土」, 「益城」, 「神水」, 「水道町」, 「天明」という。)と, 福岡県の2地点(福岡市役所局, 太宰府局; 以下, それぞれ「福岡市」, 「太宰府」という。), 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。)の9地点について(図1), $PM_{2.5}$ 成分調査結果のイオン成分, 無機成分のデータを使用した。 $PM_{2.5}$ 質量濃度は, 神水, 水道町, 天明, 五島および対馬で, 環境省のマニュアル¹⁵⁾に従った標準測定法により測定されたデータを使用した。宇土, 益城, 福岡市および太宰府については, 試料採取時間に合わせた23時間の $PM_{2.5}$ 自動測定機による常時監視データの1時間値を使用した。

WRF 気象場の再現性検証には, 熊本地方気象台による観測データ¹⁶⁾を使用した。また, CMAQ の再現性検証には, 神水, 福岡市, 対馬および五島の成分調査結果および $PM_{2.5}$ 自動測定機による常時監視データを用いた。

解析期間は2014年冬季の $PM_{2.5}$ 成分調査期間である2014年1月22日～2月4日とした。

2 WRF/CMAQ の計算条件

WRFおよびCMAQはLinux OS上で動作するソフトウェアで, 無償で使うことができる。本研究では, CPU: Core-i7 (8 core), RAM: 16GBの性能のコンピュータにLinux ディストリビューションのUbuntu 16.04 LTSをインストールして計算環境を構築した。

計算条件は古澤ら⁹⁾により, ゼロアウト法を用いた感度解析から, 発生源寄与割合を計算した。ゼロアウト法とは, 通常計算(Base)と, 目的の排出量データを全てゼロにした計算をそれぞれ行い, それらの差分をとることで目的の発生源からの影響を求める方法である¹¹⁾。

発生源には, 古澤ら⁹⁾に指定されている5つ(熊本県内人為起源(Kumamoto), 熊本県以外の九州人為起源(Kyushu), 有明・八代・天草海域船舶起源(Ship)および日本の火山(Vol.)に分類し, それ以外をここでは簡易的に国外(Abroad)とする)に設定した。更に, Kumamoto は発生源種別について, 燃焼起源(Comb.[Ku]; 産業廃棄物処理を含むすべての産業, 発電所などの燃料消費に該当する業種からの排出), 自動車起源(Aut.[Ku]; すべての自動車, 車両からの排出)および農畜産起源 Agri.[Ku]; 肥料施肥, 家畜排泄による排出)に細分類し, それ以外をその他(other[Ku])とした。

排出量データは, 電力中央研究所の板橋氏に作成を依頼した。計算領域は図1に示すとおりであり, その他の計算条件については表1に示す。なお, 次節以降のWRF/CMAQの結果において, 宇土, 益城, 神水, 水道町および天明に該当する計算領域は「熊本県中心部」と表記する⁹⁾。

3 PMF モデル

豊永ら⁶⁾の解析条件は次のとおりである。PMFモデルには, EPA-PMF5.0を使用して解析を行い, 因子数を6に設定して計算を行ったところ, 抽出された因子は, ①2次生成硫酸塩; SO_4^{2-} と NH_4^+ の濃度が高く,

表 1 WRF および CMAQ の計算条件

モデル	WRF-ARW v3.4.1	CMAQ v4.7.1
計算領域	D1: 東アジア域 (81km × 81km), D2: 中国東部～日本域 (27km × 27km) 計算中心: 30°N, 115°E, 地図投映法: Lambert conformal conic	
計算期間	2014/1/15 9:00～2014/2/14 9:00 (解析期間は2014/1/22 10:00～2014/2/5 9:00)	
鉛直格子数	37層 (地表～50hPa)	
入力データ	<ul style="list-style-type: none"> ・土地利用 : USGS ・気象解析値: NCEP FNL最終解析データ (1° × 1°) ・海水面温度: NCEP RTG-SST-HI (0.083° × 0.083°) ・気象観測値: NCEP ADP 地表面気象観測データ 	<ul style="list-style-type: none"> ・気象データ: WRF 計算値 ・排出量データ 人為起源: REASv2.1 バイオマス燃焼: GFEDv3.1 植物起源: MEGAN 火山起源: ACESS, 気象庁火山データ
計算条件	PBL scheme: Mellor Yamada Janjic (eta) tke scheme Analysis nudging: Wind (G_{uv} = D1; $3.0 \cdot 10^{-5} \text{ s}^{-1}$, D2; $1.0 \cdot 10^{-5} \text{ s}^{-1}$) Surface: Noah LSM Surface nudging: Wind (G_{uv} = D1; $3.0 \cdot 10^{-5} \text{ s}^{-1}$, D2; $1.0 \cdot 10^{-5} \text{ s}^{-1}$)	MCIP: version 4.1 Gas phase chemistry: saprc99 (ebi) Aerosol: AERO5 その他初期値及び境界条件はCMAQデフォルト設定
感度解析 ※CMAQ ゼロアウト法	<ul style="list-style-type: none"> ・熊本県内人為起源: Kumamoto 熊本県内燃焼起源: Comb.[Ku] 熊本県内自動車起源: Aut.[Ku] 熊本県内農畜産起源: Agri.[Ku] 熊本県内その他人為起源: other[Ku] ・熊本県以外の九州人為起源: Kyushu ・有明・八代・天草海域船舶起源: Ship ・日本の火山起源: Vol. ・国外起源: Abroad ※九州以外の日本国内人為起源と火山以外の自然起源も含まれるが、ここでは簡易的に国外とする。	

中国など東アジアにおける石炭燃焼の影響, ②炭素性エアロゾル; EC と OC の濃度が高く, 道路交通由来の EC や 2 次生成 OC の影響, ③土壌; Al, Fe, Ca, Mn 等の無機成分濃度が高く, 黄砂などの土壌粒子の影響, ④石油燃焼; V, Ni の相対比が高く, 船舶や工場における石油燃焼の影響, ⑤海塩 (クロリンロス); Na, Mg などの海水に多く含まれる成分の相対比が大きく, 海塩の影響, ⑥2 次生成硝酸塩+塩化物; NO_3^- と Cl^- の相対比が大きく, 半揮発性を持つ粒子の影響, という結果であった。

4 フィルターパック法

大気中の粒子状成分およびガス状成分を把握するために, フィルターパック法を用いて調査を行った。粒子状物質およびガス状物質を捕集するろ紙は, 全国環境研協議会の第 5 次酸性雨全国調査報告書 (平成 25 年度)¹⁷⁾ に従って 4 段ろ紙を作成した。サンプリング

の吸引速度は約 6L/min で行った。回収したろ紙は超純水で抽出し, イオンクロマトグラフ (Dionex DX-500) を用いてイオン成分の分析を行った。サンプリング期間は 2016 年 1 月 23 日～2 月 3 日とした。フィルターの交換は, 宇土については 1 日ごと, 益城については 3～4 日ごとに行った。

結果と考察

ここではまず, 古澤ら⁹⁾による WRF/CMAQ の計算結果についての再現性の検証を示し, その後, PMF と CMAQ のモデルの結果について比較を行う。

1 WRF/CMAQ について

1.1 気象場の再現性

気温, 相対湿度および水平風速について, 熊本地方気象台の実測値と WRF による熊本県中心部の計算値を比較した結果を示す (図 2)。気温と湿度については

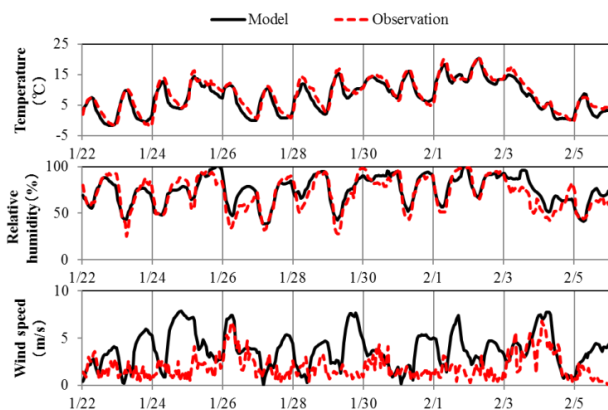


図 2 WRF 気象場 (Model) と熊本地方気象台 (Observation) の比較

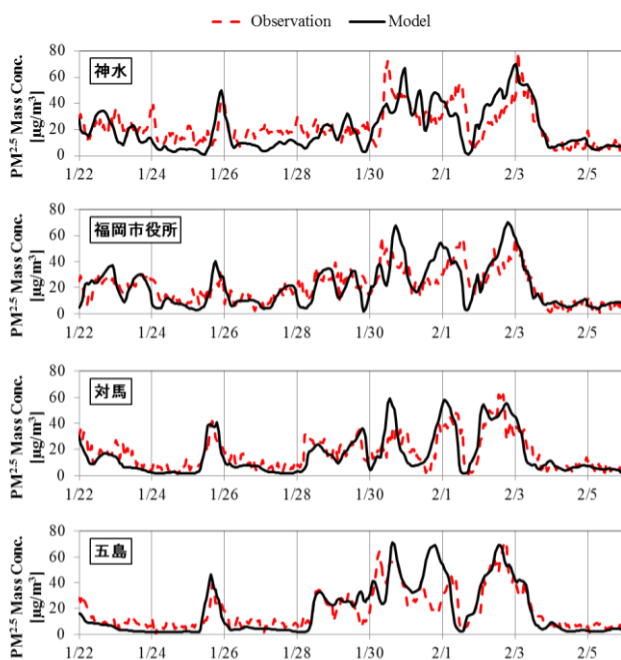


図 3 PM_{2.5} 質量濃度の CMAQ (Model) と常時監視測定局 (Observation) の比較

日内変動を再現できており、良好な再現性を有していた。一方で、水平風速は一部期間を除いてモデルが過大になっていたが、これは、熊本県中心部の領域は海域を含んでいることが要因と推測された。

1.2 PM_{2.5} 濃度の再現性

神水、福岡市、対馬および五島における PM_{2.5} 質量濃度の 1 時間値と主要成分濃度の日平均値について再現性の検証を行った (図 3, 図 4)。検証には板橋と速水¹⁰⁾で示されている相関係数(R), Mean Fractional Bias (MFB) および Mean Fractional Error (MFE) を用いた。MFB と MFE は以下の計算式にて求めた。

$$MFB = \frac{2}{N} \sum_{i=1}^N \frac{(M_i - O_i)}{(M_i + O_i)} \times 100$$

$$MFE = \frac{2}{N} \sum_{i=1}^N \frac{|M_i - O_i|}{(M_i + O_i)} \times 100$$

ここで i は指定の時間, M_i は i 時におけるモデルの計算値, O_i は i 時における実測値, N はデータ数を示す。この定義により MFB ; -200% ~ +200%, MFE ; 0% ~ +200% の範囲の値をとる。MFB と MFE は、モデルを科学的知見の拡充や規制対策などに十分適用可能な performance goal (MFB $\leq \pm 30\%$, MFE $\leq +50\%$) と、それらへの適用が妥当だとみなせる performance criteria (MFB $\leq \pm 60\%$, MFE $\leq +75\%$) が提唱されており、この指標に沿って再現性を検討した¹⁸⁾。

PM_{2.5} 質量濃度については MFB ; -29.2% ~ -6.3%, MFE ; 43.5% ~ 54.7% であり、すべての地点で performance criteria を満たしており、発生源寄与解析に適用可能な再現性を有していた。

PM_{2.5} の主要成分濃度は、硝酸塩 (NO₃⁻), 硫酸塩 (SO₄²⁻), アンモニウム塩 (NH₄⁺), 元素炭素 (EC), 有機炭素 (OC) について、実測値とモデル計算値の日平均値について再現性の検証を行った。検証には、データを熊本県 (宇土、益城、神水)、福岡県 (福岡市、太宰府) および離島 (対馬、五島) の 3 つの地域に分類して行った。この結果、SO₄²⁻ (MFB ; -47.2% ~ -43.1%, MFE ; 46.6% ~ 58.7%) は全ての地点で performance criteria を満たしていた。また、NH₄⁺ (MFB ; -52.8% ~ -18.4%, MFE ; 29.3% ~ 56.2%) についても全ての地域で performance criteria を満たしていた。NO₃⁻ は熊本県 (MFB ; 17.1%, MFE ; 61.1%) および福岡県 (MFB ; 7.0%, MFE ; 65.3%) は performance criteria を満たしていた。離島の EC (MFB ; -36.4%, MFE ; 45.1%) および OC (MFB ; -55.6%, MFE ; 65.1%) については performance criteria を満たしていたが、熊本県および福岡県は有意な再現性が得られなかった。炭素成分については、既報^{9), 10), 19)} のとおり、モデルによる過小評価が指摘され、検討が行われている。従って、次節以降の感度解析について炭素成分は発生源からの感度が過小に評価されていることに留意する必要がある。

1.3 発生源寄与

古澤ら⁹⁾ による、熊本県中心部における解析期間中発生源寄与割合を表 2 に示す。表中の数字 (%) は Base の濃度における割合を示し、Kumamoto は Comb.[Ku], Aut.[Ku], Agri.[Ku] および other[Ku] の合計値として示

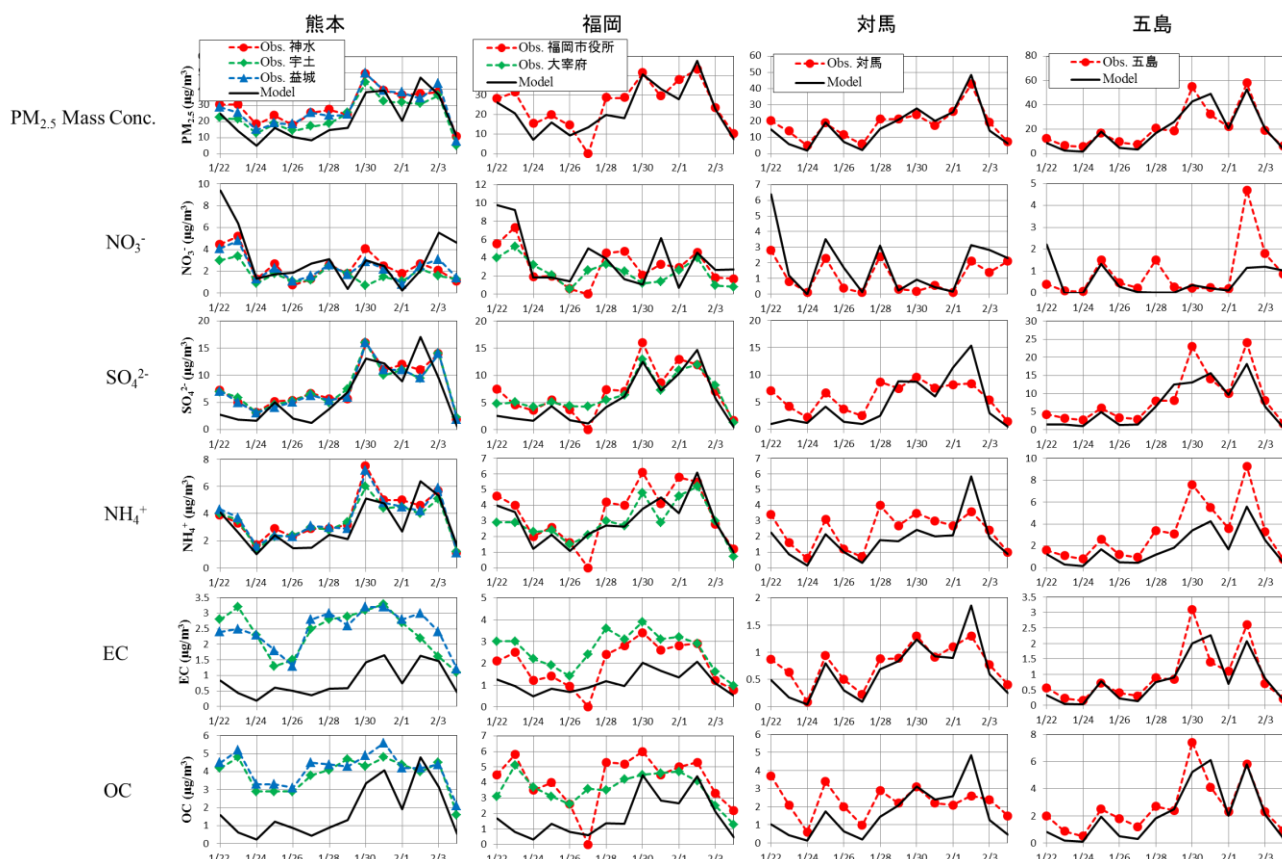


図4 PM_{2.5}主要成分濃度のCMAQ (Model) と実測値 (Observation) の比較

している。

質量濃度で最も感度が大きかったのは Abroad の約 74%であり、Kumamoto は約 22%であった。Kumamoto の内訳では Agri.[Ku]と Aut.[Ku]が大きな割合を占めており、特に Agri.[Ku]は Kumamoto の約 70%と大きな割合を占めていた。シミュレーションモデルを用いた研究による発生源寄与の結果では、モデルの種類に関係なく、地域汚染では自動車の走行による影響が大きな割合を占めていると報告されている^{6), 10), 11)}が、本研究の解析期間は冬季の限定していることから、これらの報告とは異なった結果になったと古澤ら⁹⁾は報告している。主要成分濃度は質量濃度の約 70%を占めており、SO₄²⁻が最も高く、寄与割合では約 96%が Abroad であった。SO₄²⁻は主に化石燃料の燃焼で排出され、日本に比べ中国からの排出量が多く、冬季においては、SO₄²⁻が中国からの越境汚染の指標の一つとされている。これらのことから、豊永ら⁴⁾が報告しているように、解析期間中は大規模な越境汚染があったことが示唆された。NO₃⁻と NH₄⁺は Kumamoto からの寄与が大きく、特に Agri.[Ku]が大きな割合を占めていた。EC と OC は Abroad の割合が大きいが、熊本県内でも Aut.[Ku]に EC が約 18%、OC が約 3%の寄与がみられ

た。また、炭素成分は過小評価であることを考慮すると、熊本県内の発生源の中では、炭素成分は自動車排ガスに最も影響を受けていることが示唆された。

2 PMF モデルとの比較

PMF モデルについては、豊永ら⁶⁾が行った研究から、解析期間における各因子の日平均値を検証に用いた。

2.1 PMF モデルによる発生源寄与の推定結果

本節では、豊永ら⁶⁾が行った PMF の発生源寄与解析結果の根拠を説明する。図 5 に宇土、益城および五島における PMF の発生源寄与の時系列変化を示す。この結果では、2 次生成硫酸塩、石油燃焼および海塩(クロリンロス)は、宇土および益城に比べて五島の割合が高い結果であった。これらの因子は、中国などアジア諸国からの越境汚染、海上船舶および海上からの排出が大きい因子であることから、中国に近い位置にあり、周囲を海に囲まれた五島ではこれらの排出の影響が、宇土および益城よりも大きく表れたのだと推測された。一方で、炭素性エアロゾルおよび 2 次生成硝酸塩+塩化物は、五島よりも宇土および益城の濃度が高い結果であった。また、五島では九州本土に比べて人

表 2 CMAQ による解析期間中の発生源寄与割合

		PM _{2.5}	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻	NH ₄ ⁺	EC	OC
Mass Concentration (μg/m ³)		21.53	3.23	6.17	3.11	0.82	1.78
Contribution ratio (%)	Abroad	73.7	14.6	96.2	48.4	74.3	95.7
	Kyushu	3.3	6.3	1.7	7.1	4.2	0.9
	Vol.	0.5	0.0	1.4	0.6	0.0	0.0
	Ship	0.2	0.9	0.0	0.3	0.0	0.0
	Kumamoto (sum total)	22.4	78.1	0.7	43.6	21.5	3.4
Comb.[Ku]		0.6	1.8	0.3	0.9	0.2	0.1
Aut.[Ku]		3.5	11.2	0.0	3.9	18.2	2.7
Agri.[Ku]		16.2	66.7	0.0	35.9	0.0	0.0
other[Ku]		2.0	-1.6	0.4	3.0	3.1	0.6

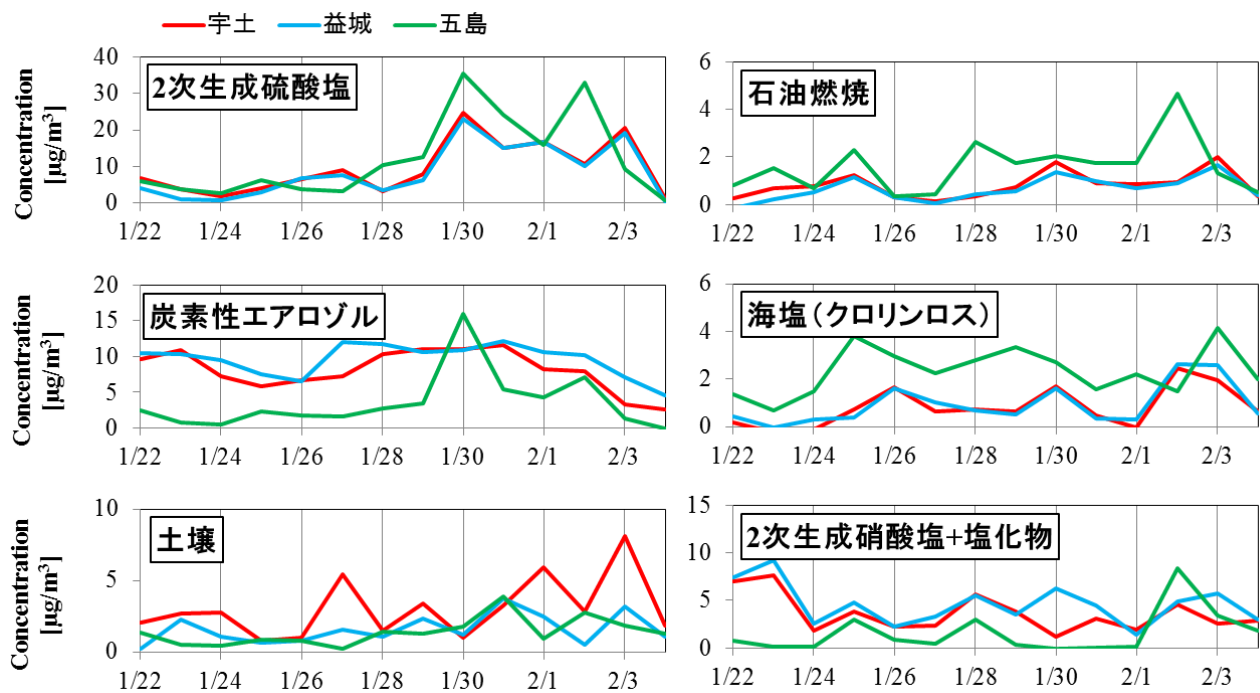


図 5 PMF による解析期間中の発生源寄与の時系列変化

為排出が少なく、地域汚染は少ないとされていることから、炭素性エアロゾルおよび 2 次生成硝酸塩+塩化物は主に地域汚染が強い因子であることが示唆された。土壌は、益城および五島に比べて宇土の濃度が高い結果であった。土壌は黄砂などの土壌由来の無機元素の指標とされているが、本研究の解析期間に黄砂は確認されておらず²⁰⁾、越境/地域汚染の影響を断定することはできなかった。これらのことから、本研究では越

境汚染の因子；2 次生成硫酸塩、石油燃焼および海塩（クロリンロス）、地域汚染の因子；炭素性エアロゾルおよび 2 次生成硝酸塩+塩化物、それ以外の因子に土壌を分類した。

2.2 モデルによる発生源寄与の比較

本節では、PMF と CMAQ による発生源寄与の結果について日平均値で比較を行い、モデル間での越境・

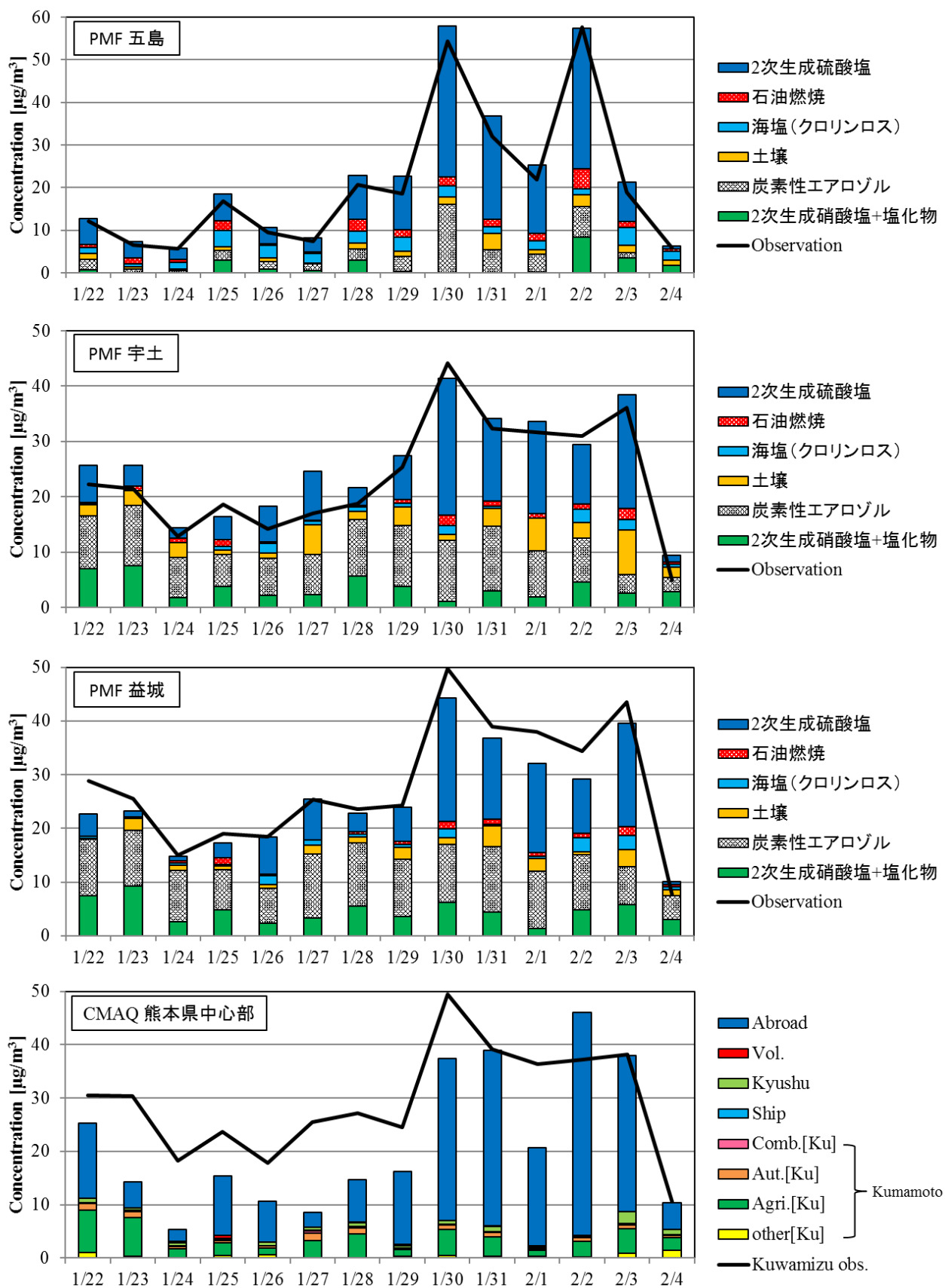


図6 PMF および CMAQ の発生源寄与の日平均値による比較

表3 CMAQの発生源寄与とPMFの因子との相関関係

		2次生成 硫酸塩	炭素性 エアロゾル	土壌	石油燃焼	海塩 (クロリンロス)	2次生成 硝酸塩+塩化物
宇土	国外	<u>0.73</u>	0.18	0.20	<u>0.62</u>	<u>0.63</u>	-0.14
	九州	0.13	0.13	0.06	0.10	-0.04	<u>0.58</u>
益城	国外	<u>0.74</u>	0.21	0.25	<u>0.67</u>	<u>0.61</u>	0.15
	九州	0.05	0.12	0.03	-0.10	0.05	<u>0.85</u>

下線部は $R > 0.5$, $p < 0.05$ の値

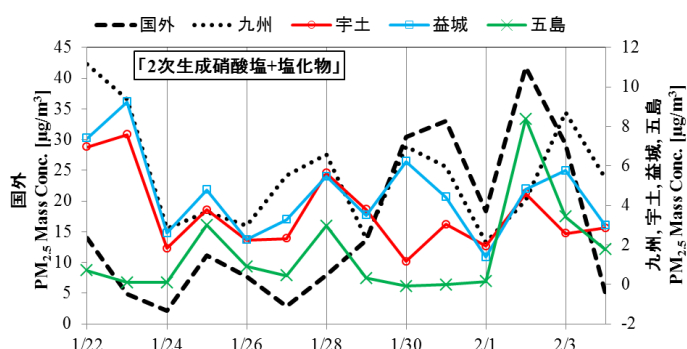


図7 PMFの2次生成硝酸塩+塩化物因子とCMAQ発生源寄与の日平均値

地域汚染の評価の違いについて述べていく。まず、発生源寄与の日平均値について、PMFの宇土、益城及び五島と、CMAQの熊本県中心部の結果を図6に示す。前節で示したとおり、五島は宇土および益城に比べて2次生成硫酸塩、石油燃焼及び海塩（クロリンロス）の割合が大きく、国外からの影響を強く受けている。宇土および益城の炭素性エアロゾルおよび2次生成硝酸塩・塩化物濃度は、日によってばらつきはあるものの、 $10 \sim 20 \mu\text{g}/\text{m}^3$ の濃度を推移しており、越境汚染があった1/30～2/3の期間においても、同様の濃度レベルを推移していた。このように、宇土および益城では一定濃度の地域汚染があり、この濃度に越境汚染の影響が加算されている結果であった。一方で、CMAQの感度解析では、解析期間中のAbroadの感度が60～80%であり、地域汚染であるKyushu, KumamotoおよびShipの濃度を合わせても $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下で、寄与割合は日によって大きく変化していた。これらの結果から、PMFとCMAQで得られる発生源寄与には大きな違いが見られた。

CMAQのゼロアウト法による結果は、任意の地域の排出量をゼロにして計算する手法であるため、ゼロアウト法を適用した地域の寄与割合を定量的に求めることができる。一方で、PMF解析は $\text{PM}_{2.5}$ 成分濃度の割合から排出源を推定する手法であるため、発源地域を

特定する方法ではない。古澤ら⁹⁾のCMAQの発生源寄与は、九州各県と熊本県を区別して計算しており、また、熊本県は4つの発生源に再分類していることから、CMAQの計算結果をそのままPMFの結果と比較することは難しいと推測された。そのため、モデルの結果について比較するにあたり、CMAQの発生源寄与は国外(Abroad)および九州(Kyushu + Kumamoto + Ship)の2つの寄与として、発源地域に曖昧さを持たせてPMFの結果と比較を行った。

次に、宇土および益城について、PMFの因子とCMAQの感度解析について、日平均値の相関係数(R)を表3に示す。表中の下線は $R > 0.5$, $p < 0.05$ の数値を示している。これより、2次生成硫酸塩(0.73～0.74)、石油燃焼(0.62～0.67)および海塩(クロリンロス)(0.63～0.61)について国外との有意な相関があり、宇土および益城の地域間で相関係数に大きな差は見られなかった。2次生成硝酸塩+塩化物と九州についても相関があり、地域汚染が影響していると推測された。しかし、宇土(0.58)と益城(0.85)で相関係数が大きく異なっており、この因子については後述するように地域差が見られた。炭素性エアロゾルおよび土壌は、国外および九州のどちらとも相関がなかった。このことについて、CMAQの炭素成分は実測値に比べて過小で十分に再現されていないことから、本研究のCMAQおよびPMFの結果を比較することは容易ではない。また、土壌因子については図5および2.1節で示したとおり、地域の特徴が明確ではなく、越境/地域汚染に分類することができなかった。これらのことから、炭素性エアロゾルおよび土壌因子について、これ以上のPMFとCMAQの結果の比較は本研究では行わないこととする。

次に、2次生成硝酸塩+塩化物因子について詳細な検証を行う。図7にCMAQの国外および九州の $\text{PM}_{2.5}$ 質量濃度と、PMFの宇土および益城の2次生成硝酸塩+塩化物因子についての日平均値を示す。九州と益城は似た挙動であり、濃度レベルもほぼ同じであった。宇

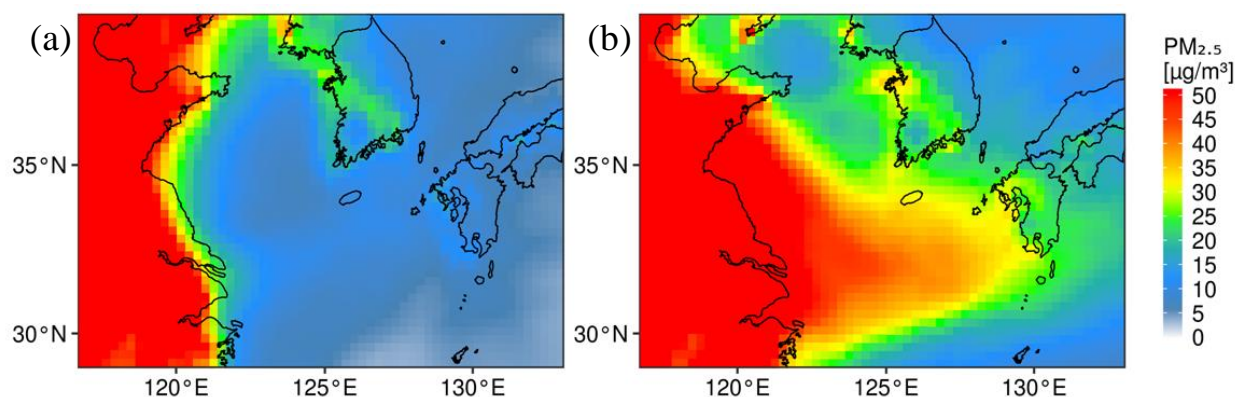


図 8 CMAQ による地上付近の $\text{PM}_{2.5}$ 質量濃度期間平均値
(a) 2014/1/22~1/29, (b) 2014/1/30~2/4

表 4 フィルターパック法による宇土および益城の測定結果 (2015/1/23~2/3)

	NO_3^-	Cl^-	NH_4^+	HNO_3	HCl	NH_3
宇土	3.05	0.95	2.55	0.67	0.50	0.88
益城	4.82	0.90	3.10	0.34	0.34	2.99

Unit; $\mu\text{g}/\text{m}^3$

土は 1/22~1/29 の期間は、益城および九州と同じ濃度レベルであったが、1/30~2/4 の期間は九州に比べて宇土の濃度レベルが低い結果であった。解析期間は 1.3 節で示した通り越境汚染が強い期間であり、また、CMAQ による地上付近の $\text{PM}_{2.5}$ 質量濃度平均値分布を示した図 8 から、熊本県の西側地域では越境汚染が広範囲に広がっていることから、比較的距離が近い場所にある宇土および益城については、越境汚染の影響が同程度であったと推測された。古澤ら⁹⁾によると、熊本県中心部では、地域汚染による NH_3 と、越境汚染による HNO_3 が反応して硝酸アンモニウム (NH_4NO_3) が生成すると報告している。 NH_3 の発生源は主に農業の肥料施肥や畜産業の糞尿であるため、農業・畜産業が盛んな熊本県の県北・県央地域に近い益城が、宇土に比べて NH_3 の汚染を強く受けていたと推測された。本研究の解析期間とは異なるが、筆者らは 2015 年の 1/23~2/3 に宇土および益城でフィルターパック法による調査を行っており、その結果 (表 4) では、益城の NH_3 濃度 ($2.99\mu\text{g}/\text{m}^3$) は宇土 ($0.88\mu\text{g}/\text{m}^3$) の 3 倍以上の濃度であった。全国環境研協議会第 5 次酸性雨調査結果²¹⁾によると、2015 年 1 月~2 月の NH_3 平均濃度は、最大値 ; $3326.1\text{nmol}/\text{m}^3$, 中央値 ; $48.2\text{nmol}/\text{m}^3$, 最小値 ; $2.8\text{nmol}/\text{m}^3$ であり、益城の $2.99\mu\text{g}/\text{m}^3$ ($175.9\text{nmol}/\text{m}^3$) は全国の平均的な濃度よりも高い値であった。また、九州の NH_3 濃度は、 $17.7\text{nmol}/\text{m}^3$ ~

$95.3\text{nmol}/\text{m}^3$ であり、九州内でも益城の NH_3 濃度は高い値であった。この結果は、前述の NH_3 汚染の程度が地域により異なるという議論を支持する内容であった。これらのことから、益城では宇土と比べて NH_3 が多量に存在しており、越境汚染時には HNO_3 と反応して多くの硝酸アンモニウムを生成することが、宇土と益城における 2 次生成硝酸塩+塩化物濃度に差が見られた要因だと推測された。

このように、CMAQ および PMF の発生源寄与の比較から、越境汚染の影響については 2 つのモデルで有意な相関がみられ、両モデルの妥当性が支持された。地域汚染由来の硝酸塩の影響について 2 つのモデルで概ね一致しており、硝酸塩の挙動は NH_3 濃度の違いを反映していた。一方で、地域汚染由来の炭素成分については CMAQ の計算結果が十分ではないため比較することができなかった。また、土壌成分についても 2 つのモデルで比較することは難しかったため、これらの因子の比較については今後の研究に期待したい。

まとめ

領域気象モデル WRF と化学輸送モデル CMAQ を用いて、熊本における $\text{PM}_{2.5}$ の発生源寄与解析を行った。この結果と PMF による発生源寄与解析の結果を比較したところ、以下のことが分かった。

- ・CMAQ の感度解析結果と PMF の結果を比較したところ、国外と 2 次生成硫酸塩、石油燃焼および海塩 (クロリンロス) について相関がみられた。また、九州と 2 次生成硝酸塩+塩化物に相関がみられたが、宇土と益城では相関係数に大きな違いがあり、地域汚染の影響が示唆された。
- ・2 次生成硝酸塩+塩化物は地域汚染と考えられるが、越境汚染が強い期間であった 1/30~2/4 は益城に比

べて宇土の因子濃度が低く、地点間で違いがみられた。

- ・益城は宇土よりも NH_3 の地域汚染が強く、このことが硝酸アンモニウムの生成を進めており、2 次生成硝酸塩+塩化物因子の濃度挙動が、宇土と益城で違う原因であると推測された。

参考文献

- 1) 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) .
- 2) 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) .
- 3) 鶴野伊津志, Xiaole Pan, 板橋秀一, 弓元桂也, 原由香里, 栗林正俊, 山本重一, 下原孝章, 田村圭, 緒方美治, 長田和雄, 上口友輔, 山田早紀, 小林拓: 大気環境学会誌, **51**, 44-57 (2016) .
- 4) 豊永悟史, 出納由美子, 北岡宏道: 熊本県保健環境科学研究所報, **44**, 57-66 (2015) .
- 5) 大気環境学会要旨集, **57**, 73-90 (2016) .
- 6) 豊永悟史, 出納由美子, 北岡宏道, 村岡俊彦: 大気環境学会誌, **52**, 150-165 (2017) .
- 7) Skamarock, W. C., Klemp, J. B., Dudhia, J., Gill, D. D., Barker, D. M., Duda, M. G., Huang, X-Y., Wang, W., Powers, J. G. : Natl. Cent. for Atmos. Res., Boulder, Colorado, USA, 113 (2008) .
- 8) Byun, D. W., Schere, K. L. : *Appl. Mech. Rev.*, **59**, 51-77 (2006) .
- 9) 古澤尚英, 板橋秀一, 豊永悟史, 村岡俊彦: 大気環境学会誌, 投稿中.
- 10) 板橋秀一, 速水洋: 大気環境学会誌, **51**, 197-217 (2016) .
- 11) 茶谷聡, 森川多津子, 中塚誠次, 松永壮: 大気環境学会誌, **46**, 101-110 (2011) .
- 12) Pant, P., Harrison, R. M. : *Atmos. Environ.*, **49**, 1-12 (2012) .
- 13) 環境省水・大気環境局: 微小粒子状物質 ($\text{PM}_{2.5}$) の成分分析ガイドライン (2011) , http://www.env.go.jp/air/osen/pm/ca/110729/no_110729001b.pdf (2017.8.27 アクセス) .
- 14) 環境省水・大気環境局: 大気中微小粒子状物質 ($\text{PM}_{2.5}$) 測定マニュアル (2012) , <http://www.env.go.jp/air/osen/pm/ca/manual.html> (2017.8.27 アクセス) .
- 15) 環境省: 環境大気常時監視マニュアル第 6 版, https://www.env.go.jp/air/osen/manual_6th/ (2017.8.27 アクセス) .
- 16) 気象庁: 過去のデータ・ダウンロード, <http://www.data.jma.go.jp/gmd/risk/obsdl/index.php> (2017.8.27 アクセス) .
- 17) 第 5 次酸性雨全国調査報告書 (平成 25 年度) , http://tenbou.nies.go.jp/science/institute/region/journal/JELA_4003002_2015.pdf (2017.8.27 アクセス) .
- 18) Boylan, J. W., and Russel A. G. : *Atmos. Environ.*, **40**, 4946-4959 (2006) .
- 19) Itahashi, S., Uno, I., Osada, K., Kamiguchi, Y., Yamamoto, S., Tamura, K., Wang, Z., Kurusaki, Y., Kanaya, Y. : *Atmos. Chem. Phys.*, **17**, 3823-3843 (2017) .
- 20) 気象庁: 日々の天気図, <http://www.data.jma.go.jp/fcd/yoho/hibiten/index.html> (2017.8.27 アクセス) .
- 21) 国立環境研究所全国酸性雨データベース 第 5 次調査データセット, <http://db.cger.nies.go.jp/dataset/acidrain/ja/05/index.html> (2017.9.11 アクセス) .

謝辞

本研究を行うに当たり、九州大学応用力学研究所の鶴野教授には有益な情報を多数いただきました。ここに記して感謝申し上げます。