

福井県における越境大気汚染の解明に関する研究 —PM_{2.5}の環境中挙動と発生源寄与の解明—

岡 恭子・藤田大介・竹内靖子・清水隆浩・高岡 大・西澤憲彰

Study about transboundary air pollution in Fukui prefecture
-Behavior during the environment and source contribution of PM_{2.5}-

Kyoko OKA, Daisuke FUJITA, Yasuko TAKEUCHI, Takahiro SHIMIZU, Dai TAKAOKA,
Noriaki NISHIZAWA

福井県の PM_{2.5} の特徴および越境大気汚染の影響について調査研究を実施した。立地の異なる 3 地点で成分分析を行った結果、福井県の PM_{2.5} の特徴は、主に県内全域に広がる広域的な汚染があり、さらに市街地では地域的な汚染が追加されることと考えられた。PMF 解析の結果、硫酸系二次粒子の寄与割合が高いことや、海塩粒子や硝酸系二次粒子の季節特性が明らかになった。また、モデル解析により東アジアからの越境大気汚染の寄与割合を求めたところ、日によって異なり、その割合は 0~75%程度であった。

1. はじめに

微小粒子状物質 (PM_{2.5}) は、呼吸器系や循環器系への健康影響が懸念され、平成 21 年 9 月に国の環境基準 (年平均値 15 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下、日平均値 35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下) が定められている。平成 29 年度の全国における環境基準達成状況は一般局 89.9%、自排局で 86.2%であり、平成 25 年度以降緩やかな改善傾向が続いている。(平成 25 年度の環境基準達成状況は 一般局 : 16.1%、自排局 : 13.3%) 福井県においては、平成 29 年度は全局で環境基準を達成した。しかし、一時間値が 35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超過することはあり、今後も注視が必要である。

PM_{2.5} 高濃度事象の原因として、経済発展が著しい東アジア地域からの越境大気汚染が考えられる。当県は地理的に越境汚染の影響を受けやすい日本海側に位置していることから、越境汚染寄与の解明が不可欠である。また、国内の中京や関西方面からの流入も考えられる。

本報では、PM_{2.5} 成分および前駆物質等の調査により、県内における PM_{2.5} の地域特性や環境中挙動および発生源を解明し、また、地域 (国内) 由来および越境汚染の寄与を推定する調査研究を行ったので報告する。

2. 成分分析からみる地域特性

2. 1 背景と目的

地理的条件の異なる 3 地点 (沿岸部、市街地、山間部) において成分分析を行うことで、福井県内の PM_{2.5} 成分組成の地域による特性を調査した。

2. 2 方法

調査地点やサンプリング方法、分析方法については、既報⁴⁾⁵⁾のとおりである。調査期間は、平成 26 年度夏季から平成 29 年度夏季までの環境省が設定した統一試料捕集期間に併せて実施した。解析に当たって、近隣で開催された花火大会が原因と考えられる高濃度日や、サンブラー不調によると考えられる異常値の場合は除外した。また、濃度が検出下限値以下の場合には、検出下限値の 2 分の 1 の値を用いて解析した。

2. 3 結果と考察

2. 3. 1 地域特性について

調査期間 (平成 26 年度夏季~平成 29 年度夏季) の各成分の地点別・季節別平均値を求めた。結果を、図 2-1 から図 2-3 に示す。ただし、平成 27 年度夏季は、調査期間中に全国的な高濃度事象があり、夏季の代表値とはいいがたいことから、この解析から除き、各季 3 か年分とした。無機元素成分については、測定した 29 元素の合計濃度を 100%として組成を求めた。

今回の調査では、地理的条件によって主成分の組成に大きな差はなかったが、いくつかの成分において地域特性や季節による特徴がみられた。また、3 地点とも、質量濃度の 70%以上が硫酸イオン (SO₄²⁻)、アンモニウムイオン (NH₄⁺)、有機炭素 (OC)、元素炭素 (EC)、硝酸イオン (NO₃) の 5 成分であり、主成分は、硫酸アンモニウムと硝酸アンモニウムと炭素成分であると推測された。

市街地である福井は、どの季節でも質量濃度が最も高く、地域汚染が示唆された。福井では、炭素成分濃度が他の 2 地点よりも高い傾向にあり、また、冬季に硝酸イオンの濃度・割合が他の 2 地点よりも高く、これらは市街地における地域汚染と考えられた。

海沿いである越廼では、海からの季節風が強くなる秋・冬季に海塩の影響が強くなり、ナトリウム (Na) の割合が高かった。

六呂師では、他の 2 地点よりも、質量濃度は低い傾向にあり、特に、無機成分濃度が低かった。海岸から離れ、固定発生源となる工場等がほとんどないことが影響していると考えられた。炭素成分については、春・夏季には六呂師の方が越廼よりも高い傾向にあった。六呂師では、周囲が山林に囲まれていることから、植物起源揮発性有機ガス由来と考えられた。

3 地点とも、質量濃度は、秋・冬季が、春・夏季よりも低い傾向にあった。秋・冬季は、季節風により大陸からの影響が強くなる季節であるが、福井県では、降雨が増える季節でもある。降雨による除去作用のため、質量濃度は高くなりにくいと考えられる。

無機元素成分は、3 地点とも、ナトリウム、アルミニウム (Al)、カリウム (K)、鉄 (Fe) の成分割合が高かった。

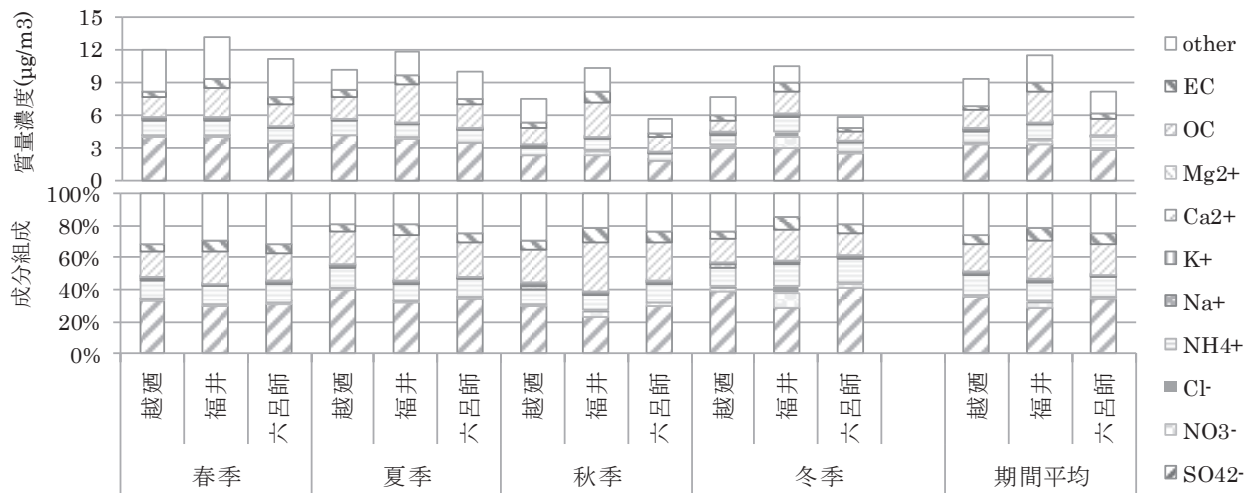


図 2-1 各地点における PM_{2.5} 主成分濃度とその組成
(平成 26 年度夏季～平成 29 年度夏季 季節別平均および期間平均 平成 27 年度夏季は除く)

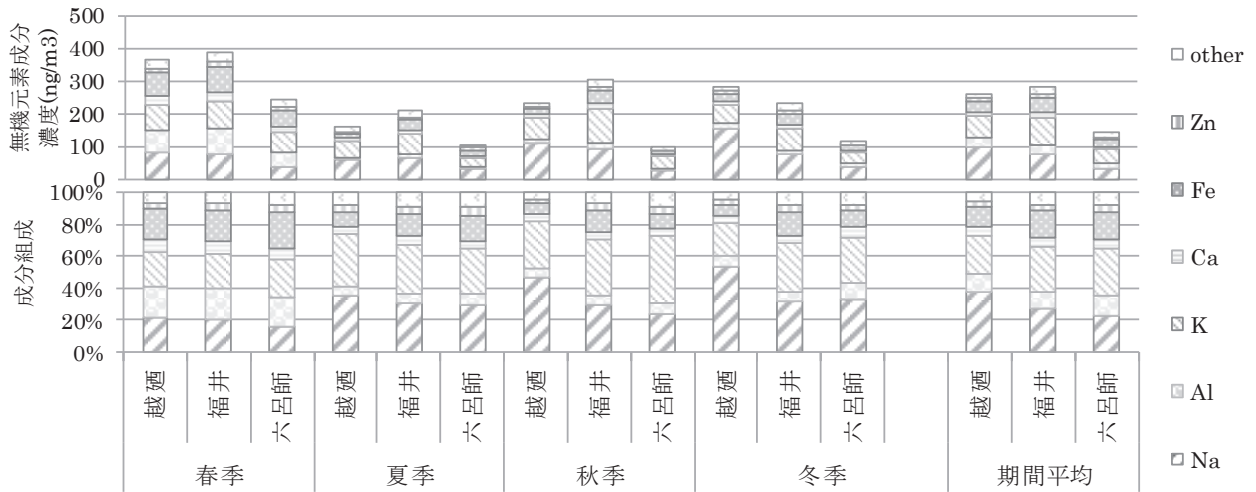


図 2-2 各地点における PM_{2.5} 無機元素成分濃度とその組成
(平成 26 年度夏季～平成 29 年度夏季 季節別平均および期間平均 平成 27 年度夏季は除く)

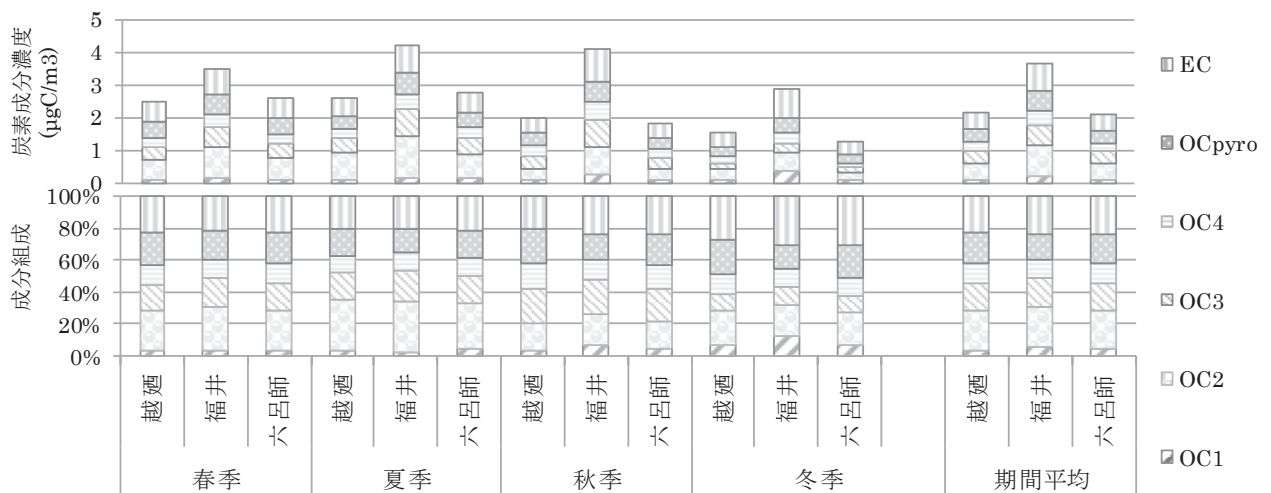


図 2-3 各地点における PM_{2.5} 炭素成分濃度とその組成
(平成 26 年度夏季～平成 29 年度夏季 季節別平均および期間平均 平成 27 年度夏季は除く)
(OC 成分は、炭素分析時の分離温度で区別)

春季は、3地点ともアルミニウム濃度が他の季節よりも高かった。アルミニウムは土壌の指標成分であり、春季には黄砂や農耕由来の土壌成分が増えたと考えられた。また、春季には、定量していない成分の濃度が高くなる日がみられ、土壌成分中のケイ素と推測した。

次に、調査期間中の3地点の各成分濃度の相関係数を求めた。その主成分についての結果を表2-1に示す。相関が高ければ、3地点に共通する広域汚染の影響が考えられる。

質量濃度や硫酸イオン濃度などでは、相関係数は0.9前後となり、高い相関があった。一方、地域汚染の影響が高いと思われる硝酸イオンや、炭素成分についても、質量濃度等に比べれば弱いものの、相関があった。無機元素成分でも、多くの成分で相関があった。

海塩の影響を受けていると考えられるナトリウムイオンでは、山間部である六呂師は、越廼・福井ともに相関がなく、沿岸部から離れて影響がなくなったためと考えた。また、プレーキ粉じんや廃棄物焼却の指標として用いられるアンチモン(Sb)は、福井が両地点との相関がなく、地域汚染の影響と考えた。

表2-1 地点間における主要成分の濃度の相関係数

	越廼-福井	六呂師-福井	六呂師-越廼
質量濃度	0.92	0.89	0.92
NO ₃ ⁻	0.43	0.49	0.55
SO ₄ ²⁻	0.94	0.92	0.91
NH ₄ ⁺	0.88	0.87	0.92
OC	0.81	0.79	0.83
EC	0.64	0.54	0.79
Na ⁺	0.59	0.30	0.24
Sb	0.31	0.22	0.71

2. 3. 2 越境大気汚染の影響について

平成27年度夏季調査期間の後半は、大陸から西日本を経由した越境大気汚染の影響とみられる高濃度期であり、後半は前半と比較して、次のような特徴があった。

- ・質量濃度が高い。
- ・全体に対する硫酸イオンの組成が高い。
- ・炭素成分に対するECとOC3の組成が異なる。
- ・鉛濃度と亜鉛濃度の比(Pb/Zn)が高い。

また、平成27年度夏季の各成分の濃度や組成を他の年の夏季と比較したところ、硫酸イオン濃度が、他の年よりも高濃度であった。炭素成分では、OC3やECの組成は他の年と大差なかったが、OCpyroの濃度・組成は他の年よりも高かった。

季節ごとには、次のような特徴があった。

- ・越廼と六呂師の硫酸イオンの組成は夏・冬季に高い。
- ・OC3の組成は冬季に低い。
- ・OCpyroの組成は夏季に低い。
- ・ECの組成は冬季に高い。
- ・Pb/Znは秋・冬季に高い。

これらの特徴が見られる理由は、越廼の海塩由来成分、福井の市街地由来成分等(硝酸イオン等)の各地点における発生成分に季節差があることや、偏西風が強くなる冬季に越境大気汚染の傾向が強くなるためと考えた。

そこで、越境大気汚染の特徴を、平成27年度夏季後半の高濃度期の平均値と比較して、次の5つとし、このうちどれかが当てはまった場合に越境大気汚染型の日である

と仮定し、越境大気汚染型の日数を求めた。結果を表2-2に示す。

- ・硫酸イオンの組成が高いこと(対質量濃度)
- ・OC3の組成が低いこと(対炭素量)
- ・ECの組成が高いこと(対炭素量)
- ・OCpyroの組成が高いこと(対炭素量)
- ・Pb/Znが高いこと

表2-2 各地点・各季における越境大気汚染型の日の割合

	越廼	福井	六呂師
春季	0.71	0.76	0.86
夏季	0.45	0.50	0.66
秋季	0.60	0.71	0.89
冬季	0.90	1.00	0.95

越境大気汚染型の日は、どの地点でも冬季に多く、夏季に少なかった。冬季に、偏西風の影響が強くなるためと考えた。また、どの季節でも、山間部の六呂師で最も高い割合であった。山間部では、周囲に汚染発生源がほとんどなく、広範囲の汚染の影響が主であると考えられ、越境大気汚染の影響が強かったと考えられた。

ここで、後方流跡線解析からも越境大気汚染型の日数を求めた。最も西に位置する越廼で、調査期間中の後方流跡線を調べ、(海拔1300m地点、120時間)大陸(朝鮮半島含む)を経由した場合に大陸由来とし、その日を越境大気汚染型とした。その結果、秋季以外では成分分析の結果から求めた越境大気汚染型の日数と同程度の結果が得られた。ただし、両方法での判定の結果の合致率は、66%であった。成分分析結果を用いた解析時の基準値の見直しで少し改善がみられたが、その他にも、大気中の滞留や、雨天等の気象の影響を考慮していないこと、質量濃度が低く、誤差が大きいことなど、様々な条件が複雑に絡んでくるため、ずれが生じていると考えられる。

(岡 恭子)

3. 福井局における雨水成分の分析

3. 1 背景と目的

PM_{2.5}は、大気中で降水によって除去されると考えられる。そこで、雨水の成分と大気中のPM_{2.5}の成分を分析し比較することで、大気中のPM_{2.5}と降水の関係性について調査を行った。

3. 2 方法

3. 2. 1 雨水採取方法

降水試料自動採取装置(株式会社小笠原計器製作所製US-420)により降水時開放捕集を行った。

3. 2. 2 雨水採取場所および時期

福井局(大気汚染常時監視測定局福井局:福井市豊島2-5-26)の屋上においてでサンプリングを行った。

調査は、PM_{2.5}成分分析(環境省の設定した統一試料捕集期間)と同じ日程で、年間4季ごとに連続した2週間のサンプリングを行った。なお、このサンプリングは、平成27年度秋季から平成30年度夏季まで行った。

3. 2. 3 分析方法

サンプリングした雨水について、PM_{2.5}成分分析と同種のイオン成分(8種)の分析を行った。

3.3 結果と考察

3.3.1 イオン成分の組成変動

まず、PM_{2.5}のイオン組成と降雨量の関係を調べた。各年の傾向は同じであったため、代表として、降雨日の多かった平成28年度の夏季と冬季について、PM_{2.5}および雨水のイオン組成の変動と降雨量との関係を図3-1から図3-4

に示す。(調査対象イオンの総量(全イオン)を100%として表現した。全イオンは、アニオン3種、カチオン5種を指す。)

雨水とPM_{2.5}のイオン組成の変化については、関連性が見られなかった。

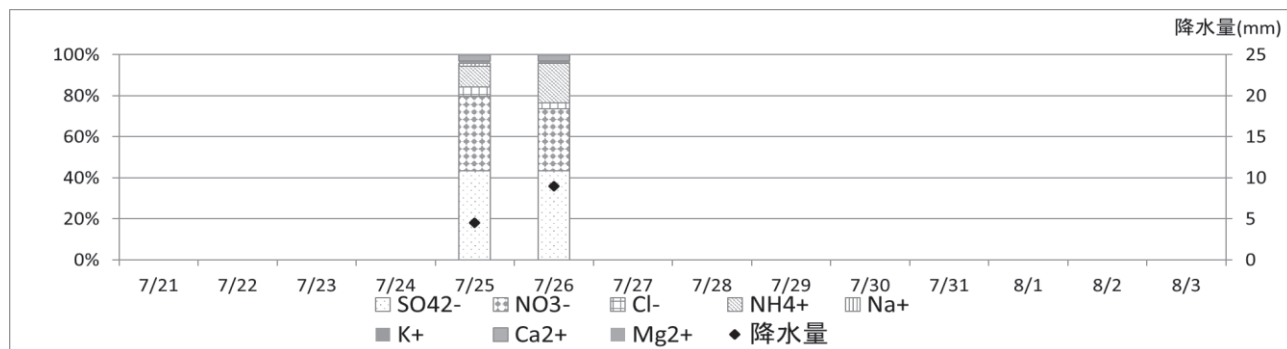


図3-1 平成28年度夏季 雨水の組成と降水量

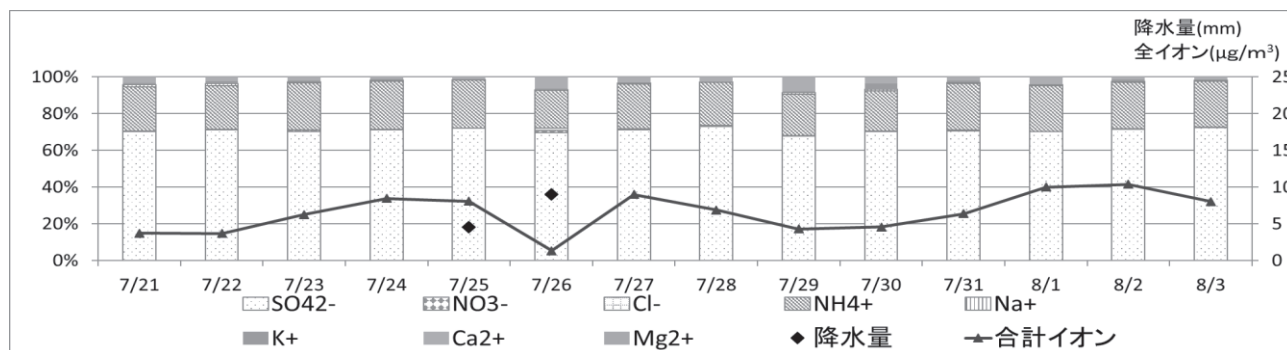


図3-2 平成28年度夏季 PM_{2.5}の組成と降水量

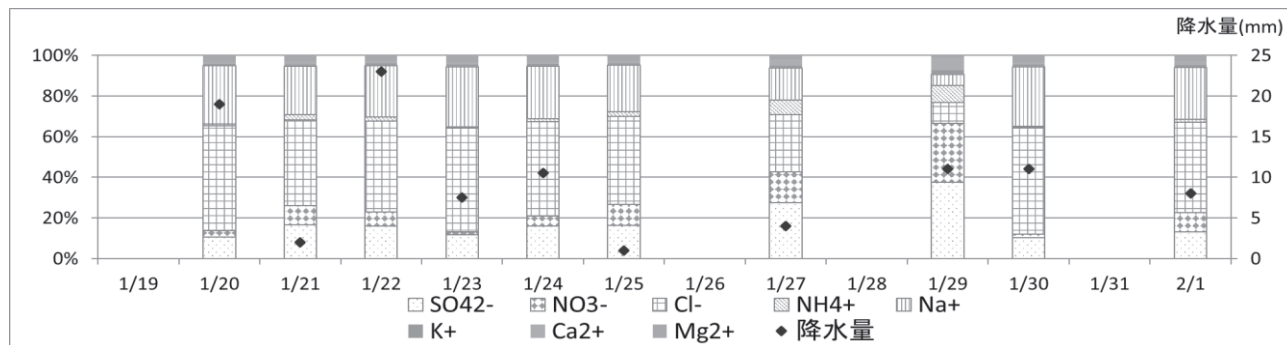


図3-3 平成28年度冬季 雨水の組成と降水量

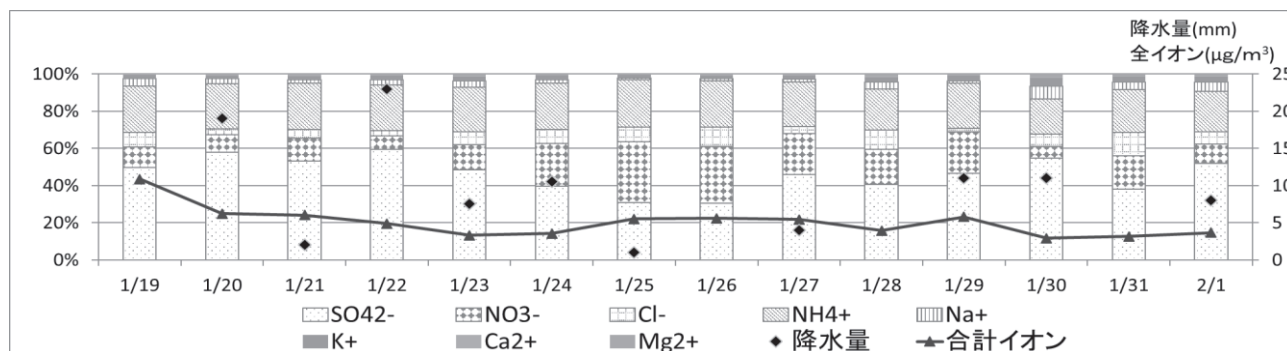


図3-4 平成28年度冬季 PM_{2.5}の組成と降水量

3. 3. 2 PM_{2.5}と雨水中のイオン成分の比較

降雨日は、春・夏季に少なく、秋・冬季に多い傾向にあった。

PM_{2.5}と雨水との組成の関係を見るため、測定したイオン8種の総量を100%として、それぞれの各季の平均組成を求めたところ、夏季と冬季で大きく傾向が異なった(図3-5)。PM_{2.5}のイオン組成は、夏季には硝酸イオンがほとんど含まれておらず、冬季に多くなった。これは、硝酸が、気温の低い冬季に粒子化しやすいためと考えられる。雨水では、夏季に硝酸イオンが多く含まれ、冬季に少なくなるというPM_{2.5}とは逆の傾向がみられた。冬季は、海塩粒子の影響が強くなり、ナトリウムイオンや塩化物イオンの割合が高くなったためと考えられる。PM_{2.5}と雨水では、成分組成が全く異なり、関係性はわからなかった。

(藤田大介)

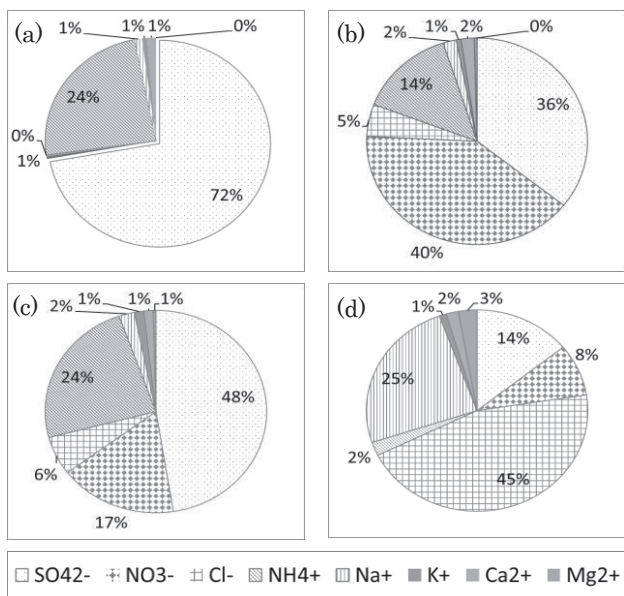


図 3-5 PM_{2.5}と雨水中のイオン成分の平均濃度割合

(a)PM_{2.5} 夏季 (b)雨水 夏季
(c)PM_{2.5} 冬季 (d)雨水 冬季

4. 前駆物質調査

4. 1 背景と目的

PM_{2.5}の発生については、発生源から直接排出される一次粒子と、ガス状で排出された物質が大気中での反応により粒子化する二次生成粒子が存在する。二次生成粒子の前駆物質としては、有機成分由来の揮発性有機化合物(以下「VOC」という。)等と、無機成分由来の硝酸塩や硫酸塩がある(図4-1)。

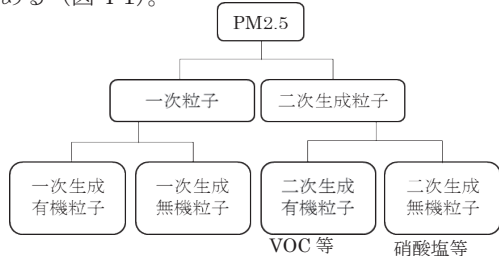


図 4-1 PM_{2.5}の分類

VOCは、工場や自動車等からの人為的に発生するものと植物等から発生するものがあり、大気中で化学反応を起こしさらに反応生成物が凝縮すること等により二次生成粒子を生成することがわかっている。そこで、PM_{2.5}の前駆物質の一つであるVOCを測定し、PM_{2.5}発生との関連性について調査した。

4. 2 方法

VOCの調査は、環境省の「有害大気汚染物質測定方法マニュアル」⁶⁾に準拠し、パッシブサンプラーを用いた容器(キャニスター)採取-GC/MS法で実施した。分析対象物質は、住友精化株式会社のHAPs-J52(有害大気汚染物質測定用標準ガス)、PAMS-J58(光化学スモッグモニタリングステーション用)の97種とした。

調査期間は、平成27年度秋季から平成29年度夏季までの環境省の設定した統一試料捕集期間に併せて、季節変動と日内変動を調査した(表4-1)。なお、日内変動調査は、光化学反応が活性化と思われる昼間を6:00~18:00、夜間を18:00~6:00として、12時間サンプリングを3日間行った。

表 4-1 調査期間

		季節変動調査	日内変動調査
H27年度	秋	10/26~10/30	
	冬	1/25~1/29	
H28年度	春	5/9~5/13	
	夏	7/25~7/29	
	秋	10/24~10/28	
	冬	1/23~1/27	
H29年度	春	5/15~5/19	
	夏	7/24~7/28	8/19 6時~8/22 6時
	秋	10/23~10/27	
H30年度	冬	1/22~1/26	
	春	5/14~5/18	
H30年度	夏	7/23~7/27	

4. 3 結果と考察

4. 3. 1 季節変動調査

各季節において、全97種の合計濃度(TVOC)とPM_{2.5}質量濃度やOC濃度との関係は明確ではなかった(図4-2)。また、各VOCについて、質量濃度やOC濃度と相関が比較的高かった(0.8以上)化合物数と各季節との関係についても明確ではなかった(図4-3)。

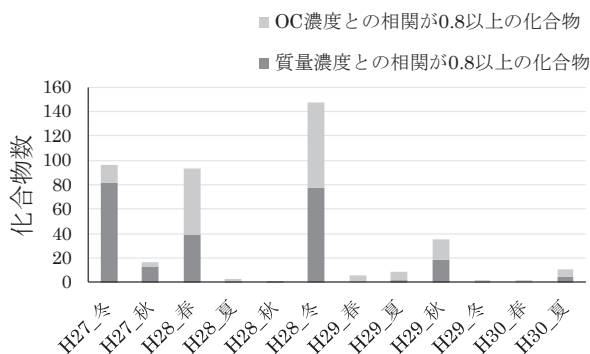
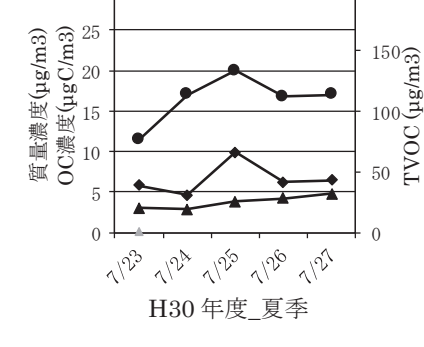
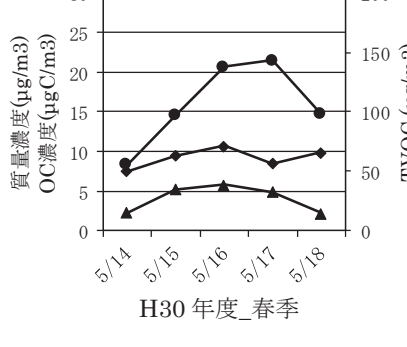
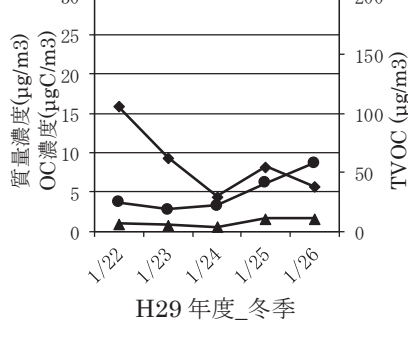
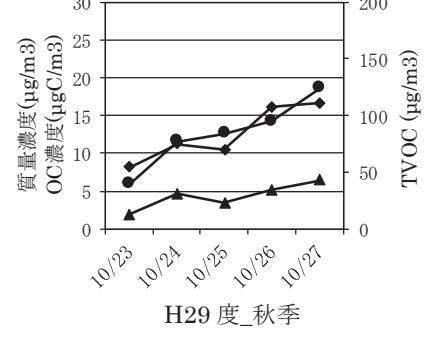
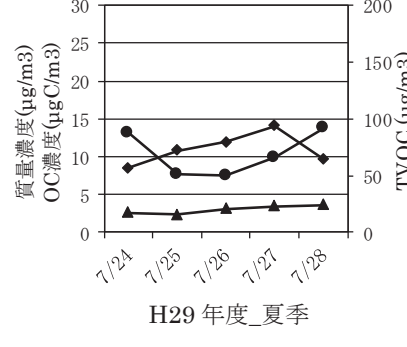
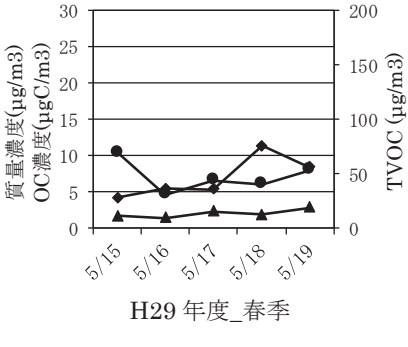
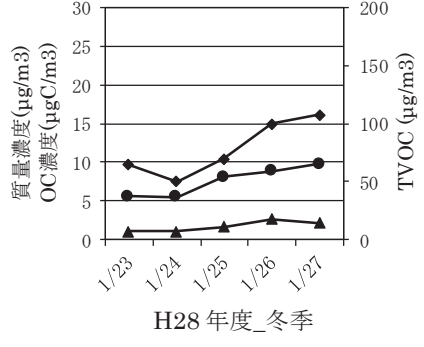
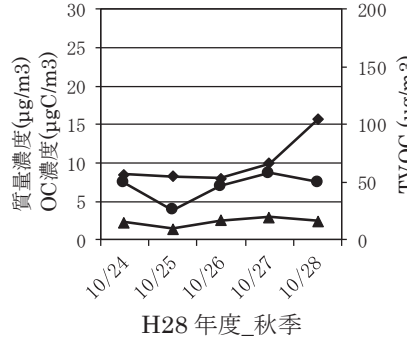
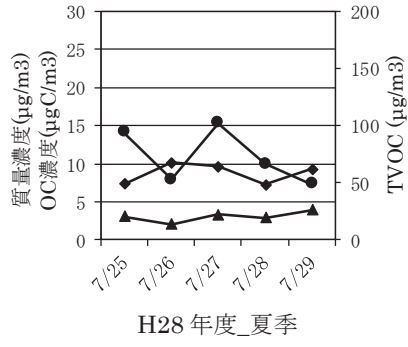
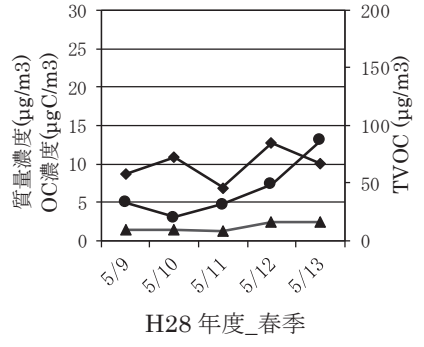
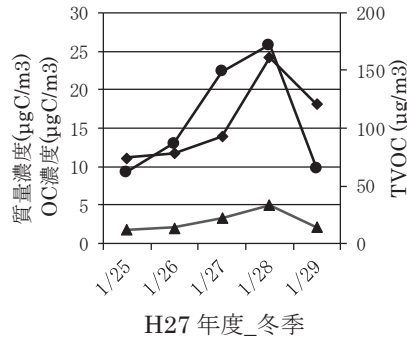
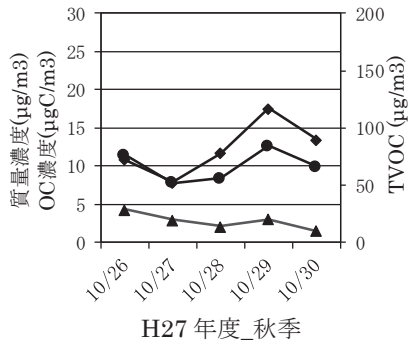


図 4-3 質量濃度とOC濃度との相関が高かった化合物数



● 質量濃度 ▲ OC ◆ TVOC

図 4-2 TVOC と PM_{2.5} の関係

4. 3. 2 日内変動調査

VOC は、夜間に高く昼間に低い傾向にある物質が多かった。夜間は、混合層高度が低くなる、風速が弱くなるなど、気象の要因で VOC が高濃度になることが報告されている⁷⁾。実際に調査期間中の風速の平均値は、昼:2.1m/s、夜:1.2m/s であり、夜間は拡散による希釈が起りにくかったと考えられる。このような中で、PM_{2.5} 中の OC 濃度や質量濃度との相関がみられそうな化合物はなかった(図 4-4)。

(竹内靖子)

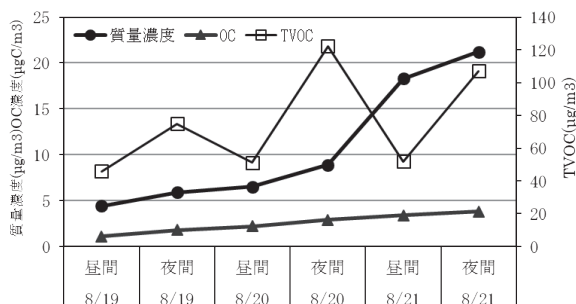


図 4-4 TVOC と PM_{2.5} の昼間夜間の関係

5. PMF 解析

5. 1 背景と目的

PMF は、質量保存式をベースとして、測定データ中に内在する変動要素を統計的にグループ化し、それらを発生源として振り分けるシミュレーション法である。また、PMF は発生源情報が無くても、測定データがあれば計算実行可能であるという利点を持つため、様々な研究機関で利用されている。

そこで、本研究でも当該手法を用いて発生源寄与の解析を試みた。

5. 2 方法

計算の実施に当たっては、アメリカ合衆国環境保護庁 (US-EPA) がウェブ上で公開している「EPA PMF 5.0」を用いた。

なお、計算の条件等については、本報とは別の研究取り組みで使用した設定内容をそのまま適用しており、その詳細は過去の報告⁸⁾⁹⁾に明記のため、ここでは記載を省略する。

また、解析対象データは、本編で扱っているものに加え、自排福井局等で測定したデータも含めている。

5. 3 結果と考察

数値計算で得られた発生源因子の種類を表 5-1 に示す。

表 5-1 算出された発生源の種類と指標成分

発生源の種類	指標成分
バイオマス燃焼	K ⁺ , OC, EC
自動車排ガス	Pb, Zn
硫酸系二次粒子	SO ₄ ²⁻ , NH ₄ ⁺
海塩粒子	Cl ⁻ , Na ⁺
土壌	Al, Ca, Fe
石油燃焼	V, Ni
塩化物・硝酸系二次粒子	Cl ⁻ , NO ₃ ⁻

なお、種類の特定は、各因子の特徴的な指標成分から解析者が判断している。

次に、計算で得られた発生源ごとの寄与割合を測定地点および季節別に図 5-1 に示す。

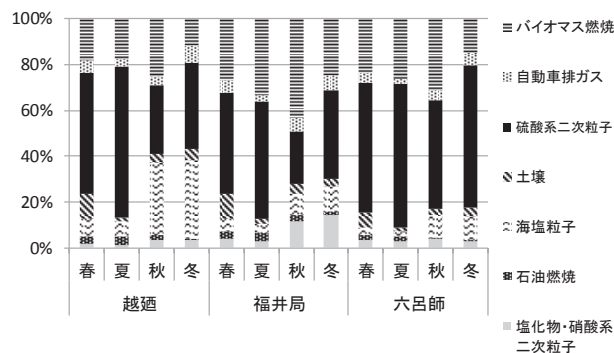


図 5-1 発生源ごとの寄与割合 (PMF)

(1) バイオマス燃焼

年間平均では 2 番目に寄与割合の高い発生源で、どの地点においても特に秋に上昇する傾向が見られた。これは、この時期に福井平野部で多く行われる稲わら焼却が主な原因と考えられ、福井局は郊外に広がる田園地帯の影響を強く受けたと思われる。

(2) 自動車排ガス

寄与割合は総じて低く、明確な地域差および季節差は見られなかった。

(3) 硫酸系二次粒子

年間平均で最も寄与割合の高い発生源で、どの地点においても季節変動が大きく、春夏に上昇し秋冬に低下する特性が見られた。また、近隣に大規模な発生源がない越廼でも割合が高いことから、越境汚染などの広域的な影響が示唆される。

(4) 土壌

寄与割合は低いものの、いずれの地点においても春に最も高くなるという季節特性が見られた。地点差がないことから広域的な影響であり、大陸から飛来する黄砂が主要因と考えられる。

(5) 海塩粒子

割合自体は大きくないものの、季節差と地点差の両方が明確に表れた要素といえる。春夏は低く、秋冬に上昇するという硫酸系二次粒子とは正反対の季節特性が見られ、地域特性では特に越廼において顕著な上昇が見られた。

この解析結果は、北西から吹く冬の季節風の影響が、海辺に面する越廼で最も強くなるという実態に沿ったものといえる。

(6) 石油燃焼

自動車排ガスと同じく寄与割合は総じて低く、明確な地点差および季節差は見られなかった。

(7) 塩化物・硝酸系二次粒子

海塩粒子と同じく、季節差と地点差の両方が明確に表れた因子で、福井局が最も特徴的だった。季節性については、気温の低下によってガス状から粒子状に変化する割合が増加したためと考えられる。また、福井局 3 地点のうちの間である福井局で高いことから、主に地域汚染の影響を受けていると考えられる。

総合的なまとめとして、海塩粒子や硝酸系二次粒子の季節特性が実態と合っていることや、硫酸系二次粒子の寄与

割合がある程度妥当であることなどから一定の信頼性はあるものの、秋の福井局のようにバイオマス燃焼の寄与が40%以上もあるかという疑念は残る。

バイオマス燃焼の寄与については、全体の寄与割合はもとより越境汚染と地域汚染の割合がどの程度の配分となっているかも汚染機構を解明する上で重要である。国立環境研究所を始めとして、各都道府県の地域環境研究所でもこの課題に対してレボグルコサンを新たに測定項目に追加し、より詳細な解析を行っており、本県でも今後取り組むべき項目と考える。

(高岡 大)

6. WRF/CMAQ 解析

6. 1 背景と目的

PMF 解析は、発生源を解析する手法であり、発生場所は特定できない。

一方、化学輸送モデル解析は、観測データが無い地点の汚染物質濃度を予測することができる手法である。解析に使用する排出量データには、大気を仮想的に区切った3次元格子内で排出される汚染物質量データが入っている。この排出量データと気象データを使用して、あらゆる物理・化学過程を経て格子内に存在する汚染物質濃度を計算することができる。

ある格子内の濃度のうち、特定地域からの寄与割合を求めたい場合は、特定地域(格子)の排出量をゼロにした排出量データを使用して、ある格子の濃度を計算する。そして、通常計算時の濃度からの減少分を特定地域の寄与とする。(ゼロアウト法)

この手法を用いて福井局付近のPM_{2.5}濃度のうち、特定地域からの寄与割合を求めた。

6. 2 方法

6. 2. 1 使用モデル・データ

気象モデルとして、米国国立大気研究センターを中心に開発されたWRF (Weather Research and Forecasting) version3.7.1を、化学輸送モデルとして米国環境保護庁が作成したCMAQ (Community Multiscale Air Quality) version5.0.2を使用した。

WRF 計算用の気象データは、米国環境予測センター(NCEP)のFNLを、土地利用には、WRFに付随するUSGSのデータを利用した。

CMAQ 計算用の排出量データは、下記の排出インベントリ等から国立大学法人大阪大学が開発した排出量データ作成プログラムを使用して作成した。

- ①JATOP Emission Inventory Database (JEI-DB)
2010 (自動車)、2005 (自動車以外)
- ②平成23年度 排出規制海域(ECA)設定による大気環境改善効果の算定事業における、船舶排出データベース(OPRF 2010)
- ③EAGrid2010-JAPAN
- ④Hemispheric Transport of Air Pollution(HTAP v2)
- ⑤Fire INventory from NCAR (FINN),
- ⑥AEROCOM

ゼロアウト法に使用するプログラムは、共同研究先から提供を受けたCMAQ version5.0.1用のプログラムをベースに、当センターで作成した。

CMAQにおける化学反応メカニズムは、saprc07tc、エアロゾル計算には、aero6を選択した。

6. 2. 2 解析領域・期間

解析対象期間は、成分分析の調査期間であり、結果からも越境大気汚染の影響が示唆されている平成27年7月22日10時~8月5日10時とした。

WRF/CMAQによるモデル解析では、解析開始時の濃度(初期濃度)を求めるために助走計算が必要なため、7月1日から計算を行った。

解析領域は、図6-1に示す3領域設定した。領域1は東アジアを含めた地域(1格子当たり45km×45km)、領域2は日本周辺地域(同15km×15km)、領域3は福井県周辺地域(同5km×5km)である。福井局は領域3の印の位置にある。領域3には東アジアが含まれていないが、領域3の境界濃度に領域1,2の計算結果が反映されているため、領域3の福井局付近における東アジア地域からの寄与割合を求めることが可能である。

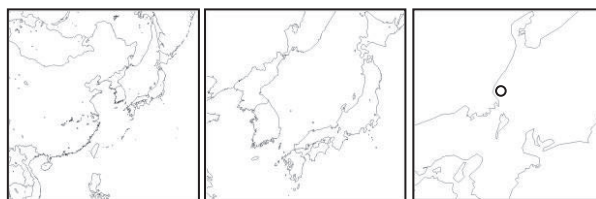


図6-1 計算領域

(左:領域1、中:領域2、右:領域3)

6. 2. 3 寄与割合を求める対象地域

寄与割合を求める地域は、東アジア、西日本(近畿以西~九州)、福井県内の3つの地域とし、この3つの地域についてゼロアウト法を実施した。また、通常計算時とこの3つの領域の和との差分を、この3つ以外の地域由来と考え「その他」とした。

6. 3 結果と考察

6. 3. 1 気象モデルの再現性

気象モデルの再現性を確認するため、WRFで計算した気象データのうち、気温、湿度と福井局の観測値を比較した。図6-2に福井局付近におけるWRFの計算結果および観測値を示す。

気温および湿度とも観測値と計算値の相関係数は0.9以上で、再現性は高かった。

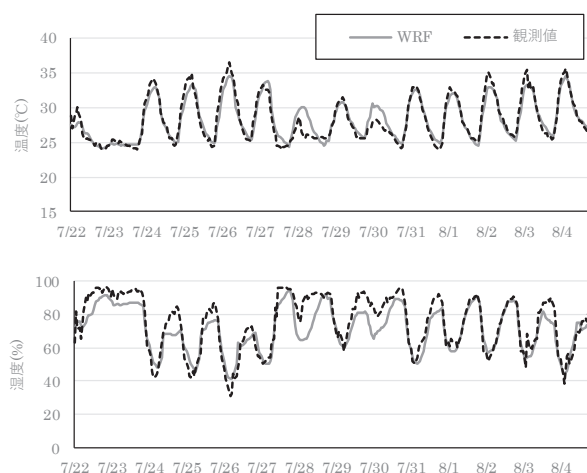


図6-2 WRF 計算結果(福井局)

(上:温度 下:湿度)

6. 3. 2 化学輸送モデルの再現性

CMAQ の再現性を確認するため、CMAQ で計算した PM_{2.5} 成分の和を福井局の観測値および成分分析値と比較した。結果を図 6-3 および 6-4 に示す。福井局の観測値との比較において、図 6-3 は質量濃度の一時間値を比較したものであり、図 6-4 は、成分分析の結果と一日平均値で比較したものである。一時間値の相関係数は 0.7 であり、期間後半に高濃度となる傾向を再現できていた。成分分析の結果との比較では、質量濃度の相関係数は 0.8 であった。成分別にみると、硫酸イオンとアンモニウムイオンの相関係数が 0.9 とよい相関であったが、硝酸イオンの相関係数は 0.2、炭素成分の相関係数は 0.3 と再現性はあまりよくなかった。

また、硫酸イオンについては、越境大気汚染の影響が強いと考えられる日に計算値の方が実測値よりも高い場合があった。今回、計算に使用したインベントリが 2010 年等、実際の計算期間よりも古い時期のデータであるため、誤差が大きくなったと考えられ、今後、新しいインベントリを入手して再計算を行いたい。

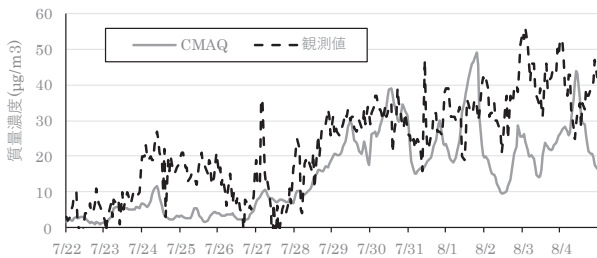


図 6-3 CMAQ 計算結果（福井局 PM_{2.5} 質量濃度）

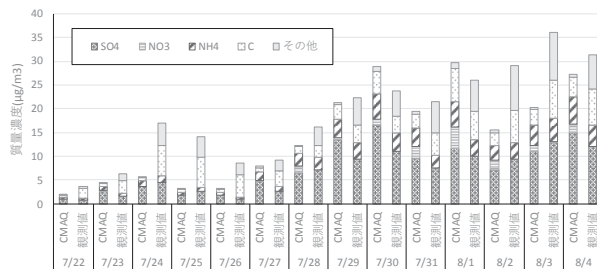


図 6-4 CMAQ 計算結果
（福井局 PM_{2.5} 成分別質量濃度）

6. 3. 3 PM_{2.5}の地域別発生源寄与割合について

ゼロアウト法により求めた各地域別の発生源寄与割合を図 6-5 に示す。期間後半は、東アジアからの寄与割合が高かった。これは、越境大気汚染の影響が示唆された成分分析の結果とも一致する。このことから、対象期間における PM_{2.5} の濃度上昇は東アジアからの影響といえる。ただし、8/2 ごろから西日本の影響が大きくなっている。これは、西日本で滞留して高濃度化した大気が流入してきたためと考えられる。

（岡恭子、清水隆浩、高岡大）

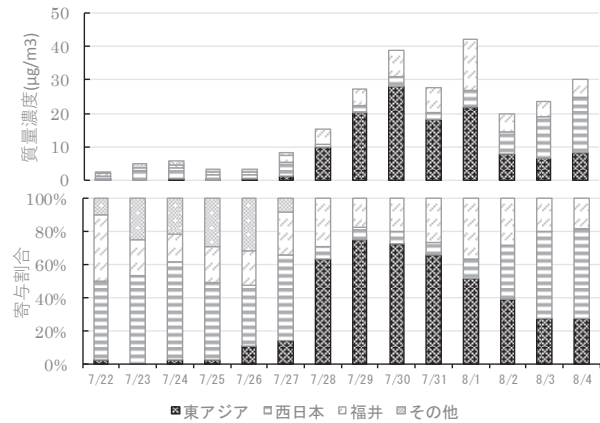


図 6-5 PM_{2.5} の地域別寄与量（質量濃度と寄与割合）

7. 結果と考察

7. 1 福井県の PM_{2.5} の特徴

7. 1. 1 福井県内の影響について

成分分析の結果から、市街地では沿岸部や山間部よりも PM_{2.5} 質量濃度は高く、地域汚染が示唆された。また、地域汚染の主な成分は、炭素成分と硝酸成分であることもわかった。一方、PMF 解析の結果では、市街地では、沿岸部や山間部と比較して硝酸成分の影響が高いことに加え、バイオマス燃焼の影響も高いという結果が得られた。

これらのことから、市街地における炭素成分の多くは、バイオマス燃焼由来の可能性があり、バイオマス燃焼由来の影響をもっと詳細に調査する必要があると考えられた。

また、WRF/CMAQ 解析の結果からは、福井県内由来の PM_{2.5} 質量濃度の割合は、変動が大きく、17~40%程度であった。大陸からの越境大気汚染による高濃度期だけでなく、低濃度の時期でも、福井県内由来の割合が低い場合があった。

7. 1. 2 外部流入の影響について

WRF/CMAQ 解析の結果からは、東アジアや西日本など、福井県外由来の PM_{2.5} 質量濃度の割合は、60~83%程度であり、県内由来よりも県外由来の寄与割合の方が高い結果となった。

成分分析の結果、3 地点の成分濃度は、多くの成分で相関があり、特に、主成分である硫酸イオンやアンモニウムイオンでは高かった。これらのことから、県内全域を覆う広域汚染があると示唆された。

7. 2 PM_{2.5} の環境中挙動について

PM_{2.5} は、自然由来もあれば人為由来もあり、一次粒子もあれば二次粒子もあるなど、発生源は多岐にわたり、気象による移動や降水における除去など、大気中における挙動は複雑である。日内変動調査や前駆物質調査、降水調査などで、少しは挙動を見ることができないかと考えて調査を行ったが、どれも PM_{2.5} 質量濃度や成分濃度との明確な関係性はわからなかった。

光化学反応は、日中に、地表付近よりも高い上空でより起こっていると考えられ、また、風向風速などの気象の影響も受けるため、局舎での調査では明確な差が表れなかったと考えられる。また、県外からの流入量が多く、県内における光化学反応による生成量の割合が多くないために、分析結果では差が生じにくかったと考えた。

雨水については、雨水中の成分には、雨水の生成過程で取り込まれるものと、落下の過程で取り込まれるものの両方があり、また、落下の過程ではPM_{2.5}だけでなく粗大粒子等も取り込まれることから、PM_{2.5}以外の影響も大きく、PM_{2.5}との関係性を見い出だせなかった。

8. まとめ

福井県のPM_{2.5}は、県外からの流入とみられる広域的な汚染があり、さらに市街地では、炭素成分や硝酸成分等の地域的な汚染が追加されていると考えられた。

発生源は、春は土壌由来が、秋はバイオマス燃焼由来が他の季節よりも高いといった季節的な特徴や、海沿いは海塩粒子由来、市街地は人為的発生源由来が高いといった地域的な特徴があった。

PM_{2.5}の光化学反応による大気中での生成や降水による除去作用など、環境中の挙動については、日内変動調査、VOC濃度調査、雨水中のイオン成分調査を行ったが、どれもPM_{2.5}質量濃度や成分濃度と明確な関係を明らかにできず、今回の調査方法では関係性が明らかにならないことがわかった。

謝辞

調査の実施に当たり、福井市越廼住民センターおよび福井県自然保護センターに採取装置を設置させていただきました。

WRF/CMAQの実施に当たり、国立環境研究所と地方環境研究所によるⅡ型共同研究「PM_{2.5}の環境基準超過をもたらす地域的/広域的汚染機構の解明」モデルグループの関係者の方々にご指導いただき、解析の一部は、Ⅱ型共同研究の一部として国立環境研究所が保有するスカラ計算機を用いて実施しました。また、CMAQの実行やCMAQ用排出量データ作成等については、大阪大学大学院工学研究科嶋寺光助教にご協力いただきました。

本研究は文部科学省「特別電源所在県科学技術振興事業費補助金」により実施しました。

ご協力を賜りました関係者の方々に感謝申し上げます。

参考文献

- 1) 環境省：大気汚染防止法第22条の規定に基づく大気汚染の状況の常時監視に関する事務の処理基準（平成22年3月）
- 2) 環境省：微小粒子状物質(PM_{2.5})成分分析ガイドライン（平成23年7月）
- 3) 環境省：大気中微小粒子状物質(PM_{2.5})成分測定マニュアル(平成24年4月)
- 4) 岡恭子他：福井県におけるPM_{2.5}成分組成の地域特性について，福井県衛生環境研究センター年報，**14**，69-76(2015)
- 5) 岡恭子他：PM_{2.5}成分の日内変動調査について，福井県衛生環境研究センター年報，**16**，86-88(2017)
- 6) 環境省水・大気環境局大気環境課：有害大気汚染物質測定方法マニュアル 大気中のベンゼン等揮発性有機化合物(VOCs)の測定方法，平成23年3月
- 7) 内田悠太 他：東京都における夏・冬季の揮発性有機化合物の濃度変動について，東京都環境科学研究所年報，43-50（2012）
- 8) 高岡大：PMF法による福井県内のPM_{2.5}発生源寄与解析，福井県衛生環境研究センター年報，**14**，55-60（2016）
- 9) 高岡大：全国から見た福井県の酸性雨の特徴とその要因，福井県衛生環境研究センター年報，**16**，36-45（2018）
- 10) 島田友梨他：福岡市における初期降雨中のイオン成分と微量金属元素による大気汚染物質の長距離輸送の評価，福岡市保健環境研究所報，**34**，39-46(2009)
- 11) 村尾直人：大気モデルー第6講 流跡線解析ー，大気環境学会誌，Vol.46 No.5, A61-A67(2011)