

調査研究 終了報告書

令和元年8月6日作成

研究者(所属・氏名): 環境部 岡 恭子

研究課題名 (終了)	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—	コード No. III-1
共同研究者 (担当分野)	藤田大介(分析、雨水調査)、竹内靖子(分析、VOCs 調査)、 西澤憲彰(調整全般)、高岡大(モデル解析)、清水隆浩(モデル解析) 福島綾子(~H26 主担当)、川下博之(H27 分析)、 山崎隆博(H27VOCs 調査)、吉川昌範(~H29 調整全般)	
研究期間	平成 26 年度から 30 年度まで(5 年間)	
研究費用	(全体) 39,470 千円	
研究成果 の概要	<p>1. 目的</p> <p>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15μg/m³以下、日平均値35μg/m³以下)が定められている。また、平成25年3月より日平均値が70μg/m³を超えると予想される場合に県民への注意喚起が実施されることとなった。県内では、平成26年2月26日に注意喚起を行っており、この日の日平均値は80μg/m³を超過する測定局があった。このように、環境基準を超過する高濃度となることがあり、環境中挙動や発生源の解明が求められている。</p> <p>また、近年わが国では、経済発展が著しい東アジア地域からの越境大気汚染と考えられるPM_{2.5}高濃度事象が問題となっており、日本海側に位置している当県は地理的に越境汚染の影響を受けやすい地域と考えられることから、越境汚染寄与の解明が不可欠である。</p> <p>これらのことから、PM_{2.5}成分および前駆物質等の調査を実施し、PM_{2.5}の環境中挙動および発生源を解明し、地域(国内)由来および越境汚染の寄与を推定することで、地域に応じたPM_{2.5}対策および高濃度要因解明のための基礎資料とする。</p> <p>2. 方法</p> <p>1) 地域特性の調査のため、立地の異なる3地点(越廼(沿岸部)、福井(市街地)、六呂師(山間部))でのPM_{2.5}成分分析を実施した。(H26夏季~H29夏季)</p> <p>2) 環境中挙動の調査のため、次の調査を行った。</p> <ul style="list-style-type: none"> ・福井(市街地)で1日を昼間と夜間に区切り、12時間毎のPM_{2.5}成分分析を実施した。(H26~H29各年1回。H28年は、春季にも1回) ・各季5日間、福井(市街地)においてVOC(前駆物質)の調査を実施し、前駆物質とPM_{2.5}の関係を調査した。(H27秋季~H30夏季) ・PM_{2.5}成分調査時に、福井(市街地)で雨水成分調査を実施し、雨水とPM_{2.5}の関係を調査した。(H27秋季~H30夏季) <p>3) 発生源解明のため、成分分析の結果をもとにモデル解析(PMF解析)により発生源解析を行った。</p> <p>4) 越境汚染の寄与を推定するために、モデル解析(WRF/CMAQ解析)でゼロ</p>	

アウト法により発生地寄与割合を求めた。

3. 結果

1) 3地点での成分分析からの地域特性

調査期間（H26年夏季～H29年夏季）の各成分の地点別・季節別平均値を求めた。ただし、H27年夏季は、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、解析から除き、各季3ヵ年分とした。

質量濃度は、どの季節でも市街地である福井が一番高かった。

地理的条件によって主成分の組成に大きな変化はなかったが、いくつかの成分において地域特性が見られた。また、各地点とも、季節による特徴がみられた。

- ・福井では、冬季に硝酸イオンの濃度・割合が他の2地点よりも高くなった。
- ・越廼では、秋季・冬季にナトリウムの割合が高くなった。（海塩由来）
- ・六呂師では、他の2地点よりも、無機成分濃度が低かった。
- ・炭素成分濃度は、福井は他の2地点よりも高かった。
- ・3地点とも、質量濃度は、春季・夏季が秋季・冬季よりも高い傾向にあった。
- ・3地点とも、春季・秋季が、夏季・冬季よりも硫酸イオンの割合が低かった。

・春季は、3地点の組成が類似していた。3地点とも、春季にはアルミニウム濃度が他の季節よりも高かった。（土壌由来）

以上のことから、次のように考察した。

- ・秋季・冬季は、降雨が増えるため、3地点とも、濃度が低くなる傾向にある。
- ・春季は、3地点とも、黄砂や農耕由来の土壌成分が増え、相対的に硫酸イオンの割合が低くなる。
- ・秋季・冬季の越廼では海塩の影響が強くなる。
- ・硫酸イオンは、大陸からの越境大気汚染の指標とされている。春季・夏季は同程度の濃度ながら、他成分量の差から割合が異なる。また、偏西風の影響が強くなる冬季に割合が高くなる。

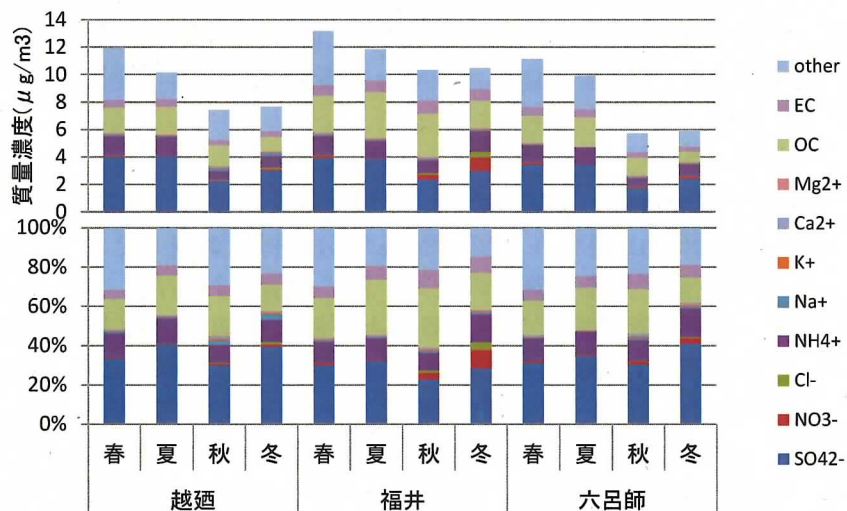


図1 PM_{2.5}主成分濃度とその組成
(H26年度夏季～H29年度夏季平均 H27夏季は除く)

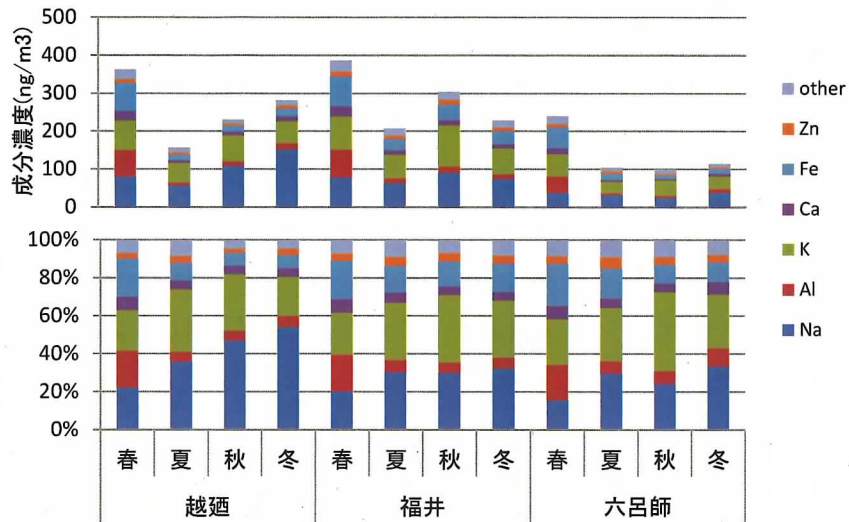


図2 PM_{2.5}無機成分濃度とその組成
(H26年度夏季～H29年度夏季平均 H27夏季は除く)

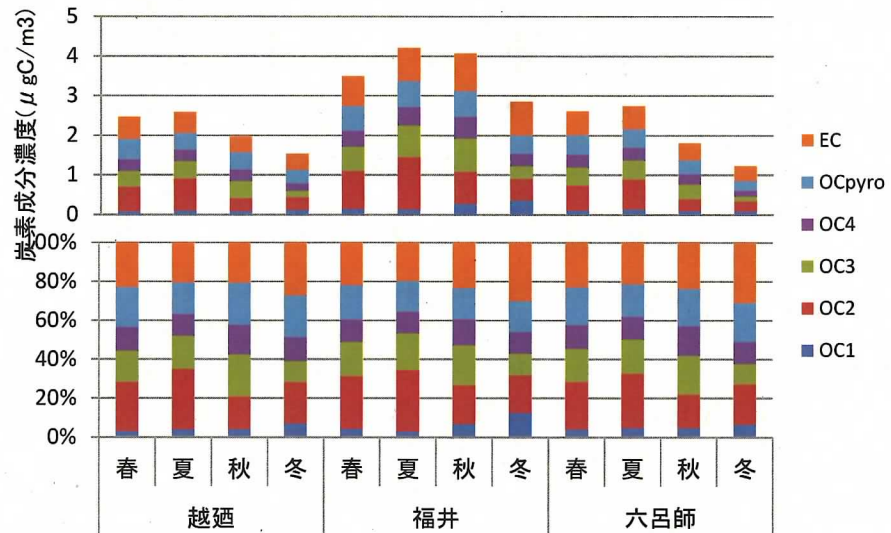


図3 PM_{2.5}炭素成分濃度とその組成
(H26年度夏季～H29年度夏季平均 H27夏季は除く)

全調査期間の3地点の平均値を図4に示す。質量濃度の70%以上が硫酸イオン、アンモニウムイオン、有機炭素、元素状炭素、硝酸イオンの5成分であり、つまり、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。

硫酸イオンは、主に大陸からの移流の指標とされていること、硝酸イオンは主に秋・冬季の福井で高濃度であることから、地域汚染は、主に炭素成分と硝酸成分であることがわかった。

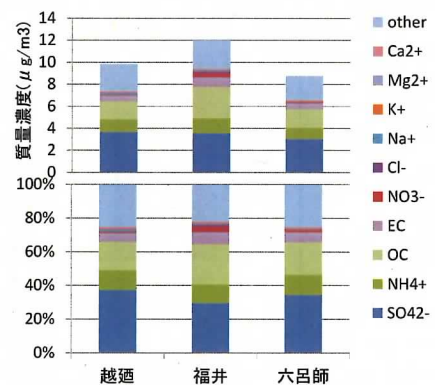


図4 主成分平均濃度・組成

調査期間中の3地点の各成分濃度の相関係数を求めた。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。これらのことから、広域的な汚染があると推測された。

2-1) 日内変動調査

H26年度から29年度までに夏季に4回、春季に1回の調査を実施したが、昼間と夜間の平均質量濃度・成分組成とも類似しており、明確な差は得られなかった。

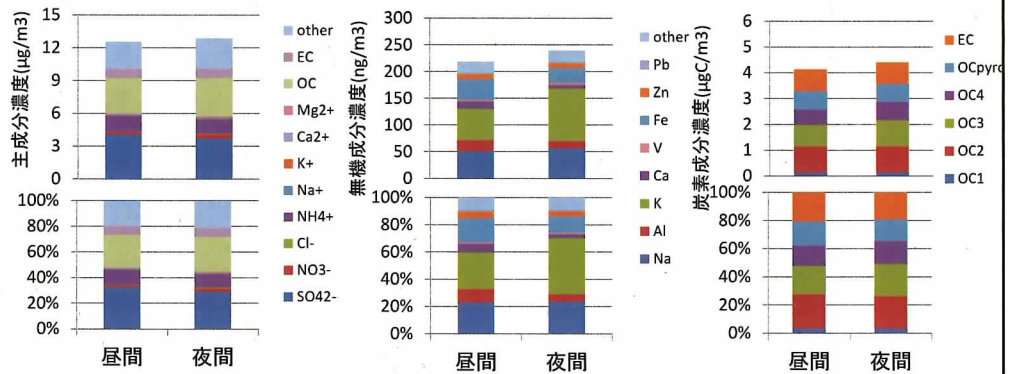


図5 日内変動調査結果の平均成分濃度とその組成

2-2) 前駆物質調査

○季節変動調査 (H27年度秋季～H30年度夏季)

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。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6)。

○日内変動調査 (H29年度夏季)

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。実際に、調査期間中の風速の平均値は、昼:2.1 m/s、夜:1.2 m/sであり、夜間は拡散による希釈が起こ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7)。

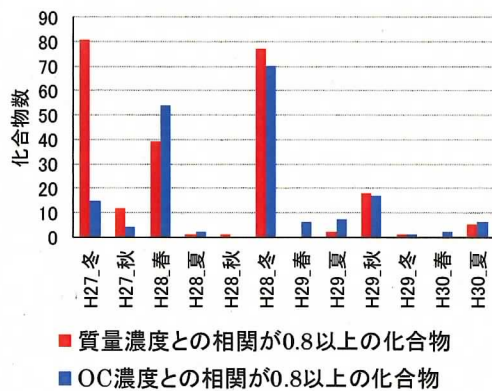


図6 質量濃度とOC濃度との相関が高かった化合物数

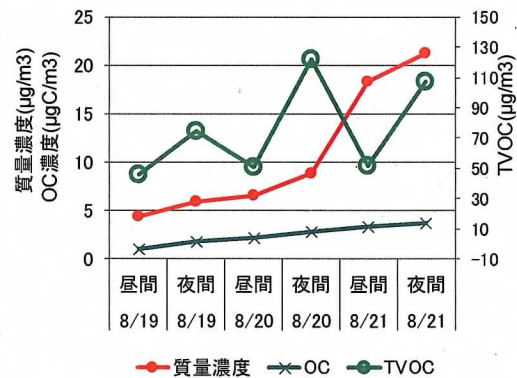


図7 TVOCとPM_{2.5}の関係

2-3) 雨水調査

まず、PM_{2.5} のイオン組成比と降水量を比較した。各年の傾向は同じであったため、代表として、複数の雨水サンプルのあった平成 28 年度の夏季と冬季について、PM_{2.5} のイオン組成比の変動と降水量との関係を示す。(調査対象イオンの総量を 100%として表現した。)

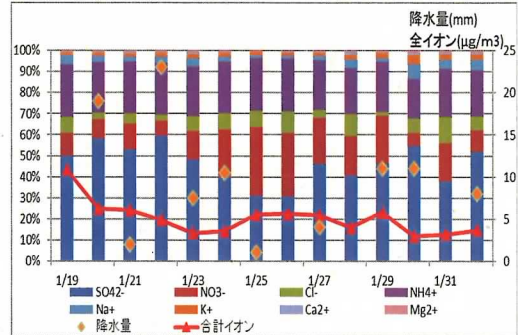
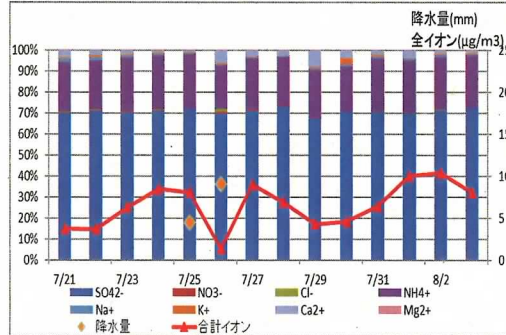


図 8 平成 28 年度夏季 PM_{2.5} と降水量 図 9 平成 28 年度冬季 PM_{2.5} と降水量

この結果、PM_{2.5} と雨水のイオン組成比の変化については、関連性が見られなかった。

次に、PM_{2.5} と雨水の組成比との関係を見るため、それぞれのイオン組成比を比較した。夏季と冬季では、各々の組成比の傾向が異なるため、夏季と冬季の平均組成比を比較した。

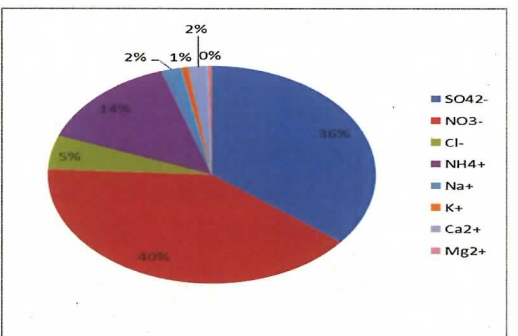
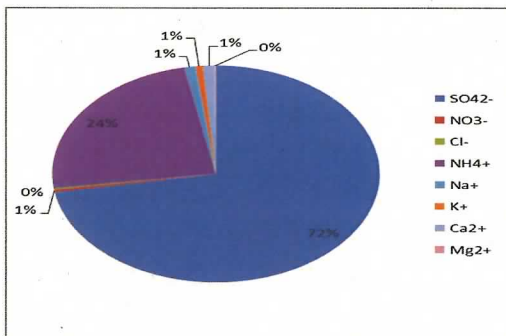


図 10 夏季 PM_{2.5} 濃度割合(n=42)

図 11 夏季雨水濃度割合(n=7)

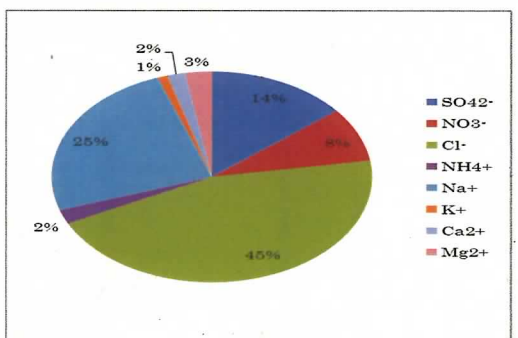
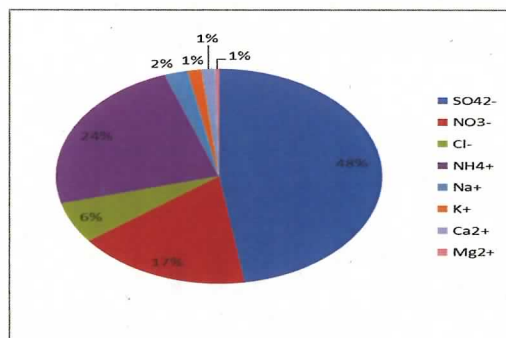


図 12 冬季 PM_{2.5} 濃度割合(n=42)

図 13 冬季雨水濃度割合(n=34)

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。

3) PMF 解析

発生源比は季節ごと・地点ごとに異なる傾向にあった。

3地点とも、春季は他の季節よりも土壌粒子由来の割合が高かった。また、3地点間の差が他の季節よりも小さかった。

秋季・冬季は福井局のみ硝酸系二次粒子の割合が高くなったことから地域汚染と考えられた。

3地点とも、秋季にバイオマス燃焼割合が高くなった。特に福井局では、3地点で最も高く、福井平野内の野焼きの影響が考えられた。

3地点とも、秋季・冬季に海塩粒子の割合が高くなった。特に越廼では、海塩由来と硫酸系二次粒子由来の割合がほぼ同じであった。

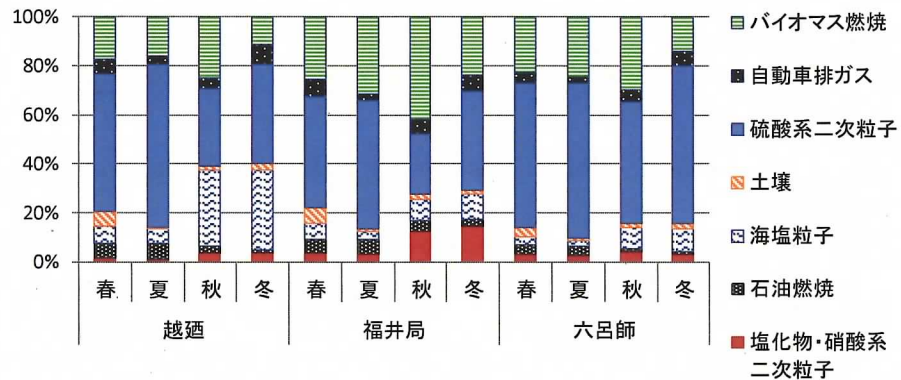


図 1 4 PMF 解析結果

4) WRF/CMAQ 解析

解析対象期間は、平成 27 年 7 月 22 日 10 時～8 月 5 日 10 時（成分分析を実施した期間で、越境大気汚染の影響の高濃度事象があったと考えられる期間）とし、福井県の PM_{2.5} 濃度に対して、①東アジア、②日本国内、③西日本（近畿～九州）、④福井県の 4 つの地域の寄与をゼロアウト法により計算した。その結果、この期間の後半の高濃度期において、福井県の PM_{2.5} は、東アジアからの越境大気汚染に、国内（西日本、福井県を含む。）の影響が加わっていた。また、西日本・福井県以外の日本国内の影響はほとんどなかった。

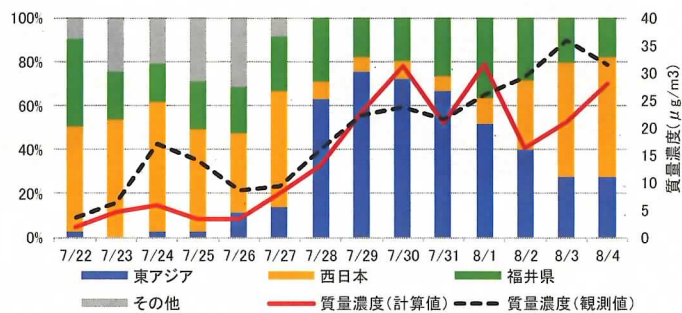


図 1 5 WRF-CMAQ で計算した平成 27 年夏季の福井の PM_{2.5} 質量濃度の発生源寄与割合

	<p>4. まとめ</p> <p>PM_{2.5}成分調査の結果、どの調査期間においても、質量濃度は市街地である福井が沿岸部や山間部よりも最も高く、特に炭素成分濃度が高かった。地理的条件によって主成分の組成に大きな変化はなかったが、地域の特性とみられる現象がいくつか観測された。</p> <p>光化学反応による PM_{2.5} の生成やその挙動の解明のために日内変動調査や前駆物質調査を行ったが、その調査結果と PM_{2.5} の成分調査結果との間には関係性を見いだせなかった。</p> <p>PM_{2.5}濃度と雨水との関係を調査したところ、その両者に関連性は見られなかった。</p> <p>成分調査結果を用いた PMF 解析では、市街地である福井では、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。</p> <p>WRF/CMAQ 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結果、日によって異なり、その割合は0～75%程度であった。</p> <p>以上のことより、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。</p>											
<p>実現した、または期待される成果</p>	<p>1. 県民生活や産業社会への波及効果 県内における発生源寄与を解明することで、PM_{2.5}対策の基礎資料となる。</p> <p>2. 業務遂行のレベルアップへの寄与等</p> <ul style="list-style-type: none"> ・PM_{2.5}の成分（質量濃度、イオン成分、無機元素成分、炭素成分）の分析は、新たな分析技術の習得につながる。 ・VOC、雨水成分の分析技術の向上につながる。 											
<p>今後の対応および計画</p>	<p>引き続き研究事業「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}の発生源に関する調査－」により福井県内の PM_{2.5} の地域特性や発生源についての調査を継続する。</p>											
<p>外部（県民等）への効果的な発信実績 （予定可）</p>	<table border="1"> <thead> <tr> <th data-bbox="347 1323 730 1395">題名</th> <th data-bbox="730 1323 1166 1395">発信媒体、方法等</th> <th data-bbox="1166 1323 1406 1395">発信年月</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td data-bbox="347 1395 730 1890">福井県における PM_{2.5} 成分組成の地域特性について</td> <td data-bbox="730 1395 1166 1890"> 第 56 回大気環境学会 第 42 回公害防止・環境保全研究発表会 第 57 回大気環境学会 第 31 回全国環境研究所協議会 東海・近畿・北陸支部研究会 第 58 回大気環境学会 第 59 回大気環境学会 第 45 回環境保全・公害防止研究発表会 平成 27 年度版福井県衛生環境研究センター年報 </td> <td data-bbox="1166 1395 1406 1890"> H27 年 9 月 H27 年 12 月 H28 年 9 月 H29 年 1 月 H29 年 9 月 H30 年 9 月 H30 年 11 月 H28 年 11 月 </td> </tr> <tr> <td data-bbox="347 1890 730 2013">福井県の PM_{2.5}（微小粒子状物質）成分組成の地域特性についての研究</td> <td data-bbox="730 1890 1166 2013"> 広報誌「衛環研だより」第 23 号 </td> <td data-bbox="1166 1890 1406 2013"> H30 年 9 月 </td> </tr> </tbody> </table>	題名	発信媒体、方法等	発信年月	福井県における PM _{2.5} 成分組成の地域特性について	第 56 回大気環境学会 第 42 回公害防止・環境保全研究発表会 第 57 回大気環境学会 第 31 回全国環境研究所協議会 東海・近畿・北陸支部研究会 第 58 回大気環境学会 第 59 回大気環境学会 第 45 回環境保全・公害防止研究発表会 平成 27 年度版福井県衛生環境研究センター年報	H27 年 9 月 H27 年 12 月 H28 年 9 月 H29 年 1 月 H29 年 9 月 H30 年 9 月 H30 年 11 月 H28 年 11 月	福井県の PM _{2.5} （微小粒子状物質）成分組成の地域特性についての研究	広報誌「衛環研だより」第 23 号	H30 年 9 月		
題名	発信媒体、方法等	発信年月										
福井県における PM _{2.5} 成分組成の地域特性について	第 56 回大気環境学会 第 42 回公害防止・環境保全研究発表会 第 57 回大気環境学会 第 31 回全国環境研究所協議会 東海・近畿・北陸支部研究会 第 58 回大気環境学会 第 59 回大気環境学会 第 45 回環境保全・公害防止研究発表会 平成 27 年度版福井県衛生環境研究センター年報	H27 年 9 月 H27 年 12 月 H28 年 9 月 H29 年 1 月 H29 年 9 月 H30 年 9 月 H30 年 11 月 H28 年 11 月										
福井県の PM _{2.5} （微小粒子状物質）成分組成の地域特性についての研究	広報誌「衛環研だより」第 23 号	H30 年 9 月										

	<p>福井県における PM_{2.5} の地域特性と発生源寄与解析について</p> <p>PM_{2.5} 成分の日内変動調査について</p> <p>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—</p>	<p>平成 28 年度衛生環境研究センター研修会</p> <p>第 44 回環境保全・公害防止研究発表会</p> <p>平成 29 年度版福井県衛生環境研究センター年報</p> <p>平成 30 年度版福井県衛生環境研究センター年報</p>	<p>H29 年 2 月</p> <p>H29 年 11 月</p> <p>H30 年 11 月</p> <p>R01 年 11 月 (予定)</p>
備 考			