



国環研と地環研等との第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」

(平成 28-30 年度)

Investigation of PM_{2.5} regional and wide-ranged pollution mechanisms causing exceedance of the air quality standard

研究概要



目次

S1. 本研究概要について	1
S2. 全国の常時監視及び成分分析データの解析による汚染要因の解明	2
S2.1 全国常時監視データの解析	2
S2.2 全国成分分析データを用いた解析.....	4
S2.3 全国成分分析データを用いた PMF 解析	7
S3. PM_{2.5} 高濃度事例の解析	9
S3.1 高濃度日の出現日数の変動.....	9
S3.2 高濃度事例の観測	9
S4. 汚染要因解析	11
S4.1 PM _{2.5} 中の有機指標物質の濃度分布及び発生源解	11
S4.1.1 レボグルコサン濃度を用いた濃度分布解析.....	11
S4.1.2 レボグルコサン濃度を用いた発生源解析	12
S4.2 PM _{2.5} の輸送過程の観測研究.....	13
S4.2.1 輸送汚染研究グループのオリジナル観測手法とその分析精度の確認.....	13
S4.2.2 地域間輸送の観測.....	14
S4.2.3 越境輸送の観測.....	14
S4.3 閉鎖性海域周辺における PM _{2.5} の高濃度現象	15
S4.3.1 常時監視データによる解析	15
S4.3.2 フィルターパック法による粒子組成と前駆ガスの同時観測	16
S4.3.3 船舶による瀬戸内海上の大気観測	17
S5. 化学輸送モデルを用いた PM_{2.5} の解析	18
S5.1 近年の濃度減少要因の解析(通年計算の解析)	18
S5.2 冬季の発生源解析(2014 年 神奈川県).....	19
S5.3 秋季バイオマス燃焼の影響(2014 年 10 月).....	19
S5.4 春季高濃度事例の解析(2018 年 3 月)	20

研究概要

S1. 本研究概要について

この研究概要は、国立環境研と地方環境研等との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」（2016～2018年度）で得られた成果の概要を公開するためにまとめたものである。以下に研究成果の骨子をまとめる。各内容の説明はS2以降をご確認頂きたい。また、個々の詳細に関しては、共同研究参加者の内部資料として報告書が存するので、お近くのⅡ型共同研究参加者もしくは国立環境研担当者（菅田：sugatas@nies.go.jp）まで相談頂きたい。

- 日本におけるPM_{2.5}濃度は2015年度以降平均濃度で見ても減少傾向にあるだけでなく、高濃度事例の出現頻度も年々低下している（参照=S3.1、S3.2）。越境輸送の寄与が年々減少する一方で、国内のローカルな汚染の寄与に大きな変化が無い事が、その主要因と考えられる（参照=S2）。
- 数値シミュレーションによる解析結果から、PM_{2.5}濃度の減少は、気象条件の変化による影響よりも、中国等を中心とした国外人為起源排出量の減少が主要因であると考えられる。この要因の影響は西日本で大きく見られる。（参照=S5）。
- 成分観測データの解析により、SO₄²⁻やNH₄⁺が2013年度から2016年度まで大きく減少する一方で、NO₃⁻、OC、ECの減少は小さいことがわかった。（参照=S2.2）
- レボグルコサンの分析により、有機エアロゾルの起源に占めるバイオマス燃焼の割合は郊外の方が都市よりも大きいことがわかった。都市においても相当程度を占めることがわかった。（参照=S4.1）
- PM_{2.5}自動測定機のテープろ紙から1時間毎に微量元素成分を精密分析することにより、関西における地域間輸送や大陸からの越境輸送について新たな知見を得ることができた。（参照=S4.2）
- 瀬戸内海周辺地域は、全国的に見ても相対的に高いPM_{2.5}濃度を示す傾向が続いている。瀬戸内海上のPM_{2.5}測定では、沿岸の測定局と同程度かやや高い濃度レベルを示した。他地域と比べて特徴的な高濃度成分が存在し、地域特有の汚染源が示唆された。（参照=S4.3）

研究概要

S2. 全国の常時監視及び成分分析データの解析による汚染要因の解明

ポイント:

- 2013～2016 年度の全国の一般大気環境測定局(一般局)における年平均値は“西高東低”の傾向を保ちながら年々低下し、4年間で $3.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 程度(2割強)低下していた。これは主に越境汚染の影響の減少を表していると考えられる。季節ごとにみると、冬季(1～3月)は4年間で全国的に3割程度低下したが、春季(4～6月)と秋季(10～12月)は主に西日本で2割程度低下した。
- 2013～2016 年度の全国の一般局における日平均値は、高濃度帯の頻度が年々減少した一方、低濃度帯の頻度の増加は2015年度から目立って起きていた。
- 全国の一般局同士の日平均値の相関係数の空間分布は、地域によって特徴が分かれており、地理的・地形的影響によって越境汚染や地域汚染の空間的広がりが決まっていることが示唆された。また、その分布の経年変化から、2016年度は越境汚染による広範囲に及ぶ濃度上昇が顕著に減少したことが推察された。
- 2011～2014 年度の全国成分データから分類したPM2.5高濃度日($35 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上)の組成パターンは、地域・季節によって特徴がみられた。九州・沖縄ではいずれの季節もSO₄²⁻が主体のパターンであったが、関東甲信静では夏季にSO₄²⁻、秋季にNO₃⁻&OC、冬季にNO₃⁻が主体のパターンであった。
- 2013～2016 年度の主要成分の経年変化は、高濃度事象の多寡によりSO₄²⁻やNH₄⁺は増加することもあるが全体的には減少し、NO₃⁻、OC、ECは漸減傾向であった。SO₄²⁻は東海以西、NO₃⁻は関東、近畿、瀬戸内で減少幅が大きく、PM2.5の低下要因は地域によって異なっていた。
- 2013～2015 年度の成分データを用いたPMFモデルによる発生源寄与は、地域・季節によって異なるが、いずれの地域でも石炭由来の硫酸塩の減少がPM2.5の低下に寄与しており、特に春季の中国・四国、九州で顕著だった。また、冬季の全国的なPM2.5の低下は、半揮発性粒子、道路交通+バイオマス燃焼などの地域汚染の減少も寄与していた。一方、夏季のPM2.5の上昇は重油由来の硫酸塩が寄与していた。
- 年々変動や季節的・地域的な違いはあるものの、総合的にみて2013～2016年度の4年間は越境汚染の影響が低下しており、特に西日本を中心に、また冬季には全国に及んだ。一方、地域汚染の影響も大都市圏や瀬戸内を中心に低下していた。

S2.1 全国常時監視データの解析

【年平均・季節平均の考察】

2013～2016年度それぞれの全国の一般大気環境測定局(一般局)における年平均値を経度順に並べて地域分布を調べた結果、一貫して“西高東低”の傾向を保ちつつも、全体的な濃度レベルは年々低下していく傾向がみられ、2013年度に比べて2016年度は $3.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 程度(2割強)低下していた(図S2-1)。この“西高東低”の傾向は、主に大陸からの距離に伴う越境汚染の影響の大きさ、そしてそのレベルの低下は、主に越境汚染の影響の減少を表していると推測される。ただし、 $3.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 程度の低下の中には地域汚染の分も若干含まれている可能性が考えられた。季節ごとにみると、西高東低の傾向は夏季(7～9月)に弱まる傾向があった。また、2013年度の平均濃度の中

研究概要

中央値を基準として経年変化を調べると、冬季（1～3月）は全国的に3割程度低下し、春季（4～6月）は山陰以西、秋季（10～12月）は東海・北陸以西で2割程度低下した。一方、夏季は、2013年度に大規模な高濃度イベントがあり、特異的だった可能性があるため、2014年度からの経年変化をみたところ、西日本での低下は小さく、東に行くほど低下する対照的な傾向がみられた。

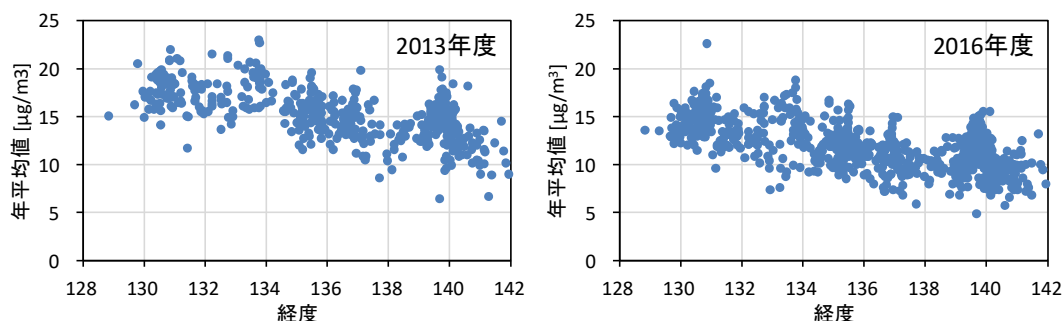


図 S2-1 全国の一般局における年平均値と経度の関係

【日平均を基にした考察】

2013～2016年度それぞれの全国の一般局における日平均値の階級別頻度分布を、都道府県別に調べた結果、全般的には年平均値の“西高東低”と同様の傾向がみられた。2014年度は2013年度に比べて高濃度帯（ $35 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 超）の減少が目立った一方、2015年度は2014年度に比べて低濃度帯（ $15 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下）の増加が目立ち、さらに2016年度は2015年度に比べて、高濃度帯だけでなく中濃度帯（ $25 \sim 35 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ）の減少が顕著であった。なお、この都道府県別の頻度分布を類型化すると、一般的な地域区分とは異なる点がいくつかみられた。これは、地理的・地形的影響によるものと考えられ、地域別に考察する際に留意する必要があることが示唆された。

2013～2016年度それぞれの全国の一般局同士の日平均値の相関係数について、各都道府県で数局選んで相関係数の空間分布（図 S2-2）を調べた結果、相関係数が高いエリア（0.75以上）は、関東・山梨と九州（大分を除く）では相対的に狭かったが、それ以外の地域（北海道と沖縄を除く）では広域に広がっていた。また、そのエリアは、太平洋側の測定局では太平洋側を中心に、日本海側の測定局では日本海側を中心に、また瀬戸内の測定局では大分から近畿や三重付近を中心に、東西方向に広がる傾向にあった。このため、地理的・地形的影響により、越境汚染や地域汚染の空間的広がりが決まっていることが示唆された。また、越境汚染による広範囲での高濃度イベントの出現と関係しているものと考えられる、相関係数がやや高いエリア（0.6～0.75）は、2013年度や2015年度に比べて2016年度には顕著に縮小した。

研究概要

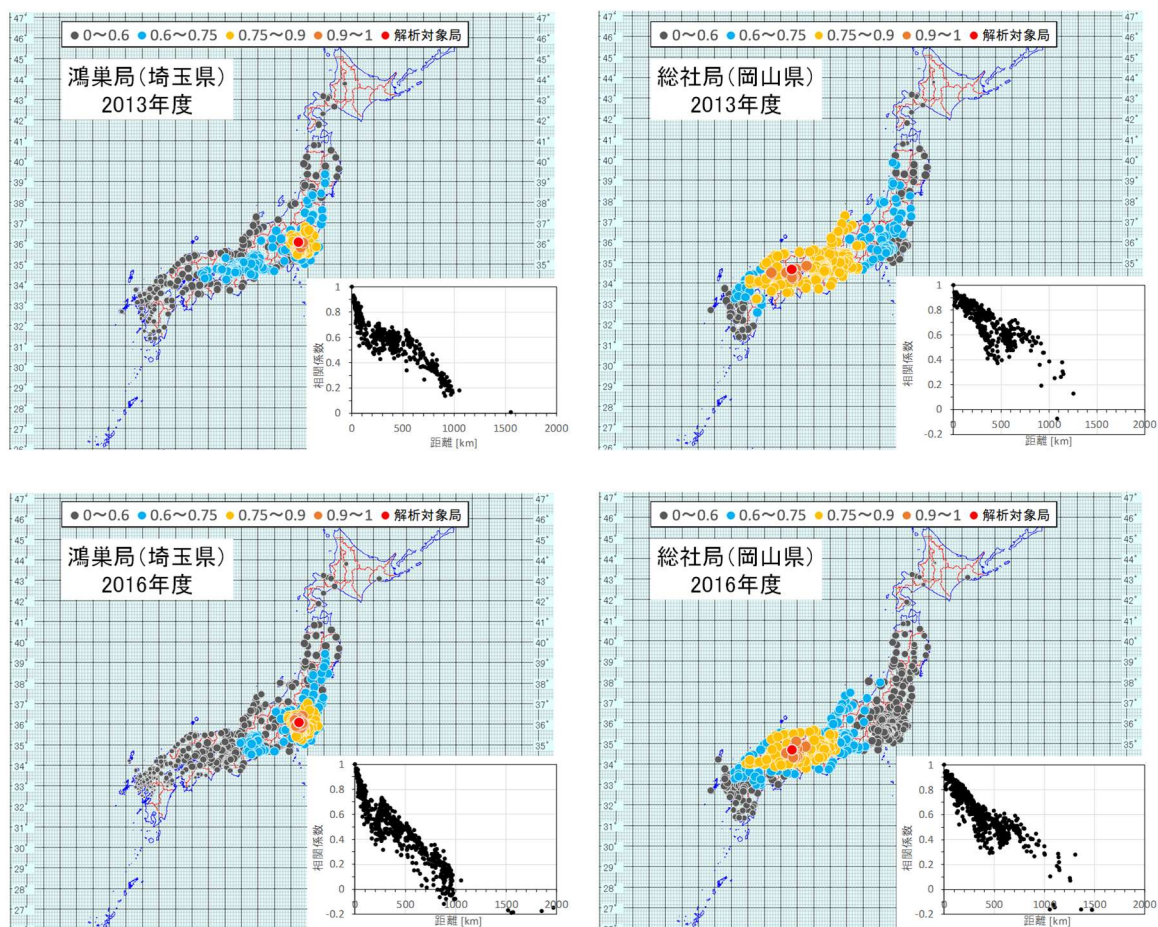


図 S2-2 解析対象局と全国の一般局との間の日平均値の相関係数の空間分布の例
(右下は局間直線距離(横軸)と相関係数(縦軸)の関係図)

S2.2 全国成分分析データを用いた解析

【高濃度日における化学組成の特徴】

2011～2014年度の全国のPM_{2.5}成分分析データから、高濃度日(質量濃度 35 μg/m³以上)に該当するデータを抽出し、平均組成を地域別に調べた。その結果、関東甲信静では平均組成の季節差がもっとも顕著であり、春季はSO₄²⁻(9.7μg/m³)に次いでNO₃⁻、夏季はSO₄²⁻(13.2μg/m³)、秋季および冬季はOC(9.3、8.4μg/m³)とNO₃⁻(9.1、12.8μg/m³)が高かった。東海・近畿、中国・四国も同様の季節傾向であるが、秋季、冬季のNO₃⁻は関東ほど高くなく(東海近畿の冬 8.5μg/m³)、SO₄²⁻が高めだった(中国・四国の春 14.9μg/m³)。九州・沖縄ではいずれの季節もSO₄²⁻が優勢となった(秋 12.0～春 17.0μg/m³)。

各高濃度日データ(n=852)のPM_{2.5}濃度に対する主要5成分(NO₃⁻、SO₄²⁻、NH₄⁺、OC、EC)の含有率に対してクラスター分析を行った結果、6つの高濃度組成パターンに分類された(SO₄rich型、SO₄型、NO₃型、NO₃&OC型、OC型、混合型(SO₄²⁻、NO₃⁻、OCが同程度))。各高濃度パターンの発生頻度から、以下の地域特性が見られた(図 S2-3)。

- ・北海道・東北・北陸：他地域に比べて全体的に発生頻度は低い。SO₄型は春季に主に発生。夏季のOC型は2014年のシベリア森林火災の影響である。

研究概要

- ・関東甲信静： 春季は混合型、夏季は SO₄ 型、秋季は NO₃&OC 型、冬季は NO₃ 型と季節によって発生頻度の高い高濃度パターンは大きく異なっていた。他地域に比べて NO₃ 型と NO₃&OC 型が多く、合わせて高濃度日全体の 5 割を占める一方で、SO₄rich 型はわずかで SO₄ 型の頻度は全体の 2 割と少ない。
- ・東海・近畿： 春夏季に SO₄rich 型、SO₄ 型が多く高濃度日全体の 5 割を占めていた。秋季は OC 型、冬季は混合型と NO₃ 型の頻度が多かった。季節差があるのは関東と共通していたが、NO₃ 型の頻度は関東ほど多くない。
- ・中国・四国： 春季に SO₄rich 型、SO₄ 型が多く、高濃度日全体の 5 割を占めていた。一方で冬季には混合型が多く、混合型の発生地域は瀬戸内海沿岸に限定された。
- ・九州・沖縄： SO₄rich 型、SO₄ 型が高濃度日全体の 9 割を占め、春季と冬季に集中していた。バックグラウンド地点ではすべて SO₄rich 型または SO₄ 型であった。

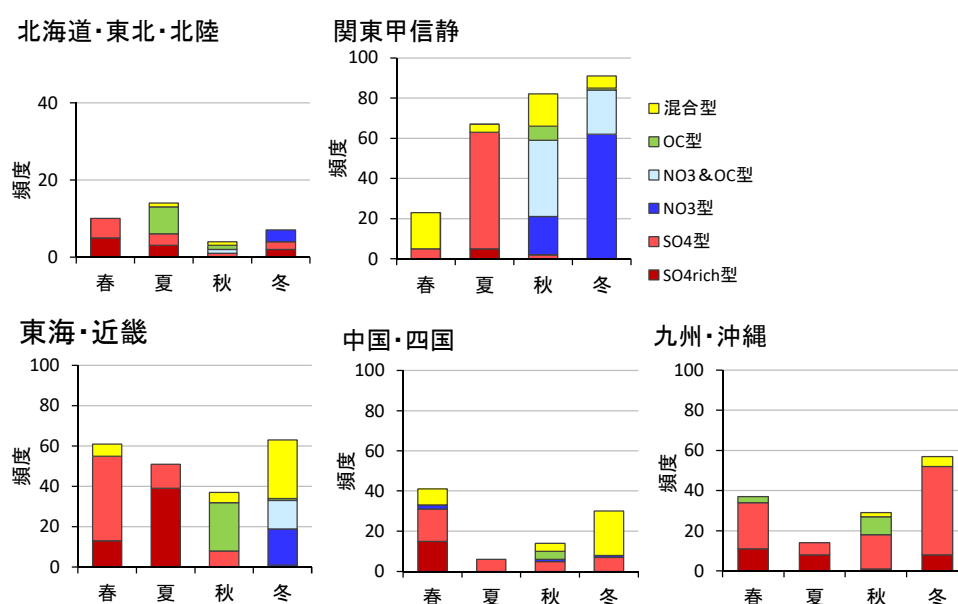


図 S2-3 2011～2014 年度における高濃度組成パターンの季節別発生頻度

さらに、高濃度日における無機元素成分 (Pb、As (石炭燃焼指標)、V (石油燃焼指標)) に着目し、夏季と冬季の違いについて解析した結果、夏季は石油燃焼、冬季は石炭燃焼の影響が相対的に大きいことがうかがえた。また西日本ほど Pb、As 濃度が高くなる傾向があり、越境汚染の影響をより強く受けていると考えられた。

以上のことから、PM_{2.5} の高濃度組成パターンは地域・季節によって大きく異なることが明らかとなった。特に SO₄ を主体とする型と NO₃ や OC を主体とする型の発生頻度の違いは、その地域あるいは季節において、越境汚染と地域汚染の程度の違いを示唆している。

【主要成分の経年変化】

2013～2016 年度の成分分析継続地点 (104 地点) を対象に、PM_{2.5} 成分の経年変化を解析した。経年変化を見る上で、成分調査は期間が限定的であるため、データの代表性に留意する必要がある。S2.1 において PM_{2.5} 質量濃度の通年データを用いて、成分分析統一調査期間と季節の平均値と比較検証した結果、地域によって異なる部分もみられたが、全般的には冬季と春季は 4 年間で

研究概要

も比較的季節平均値に近く、秋季は2013および2015年度に高めの傾向、夏季は2015年度にかなり高かったことが分かった。

各成分の全地点の平均値の推移（図S2-4）は、 SO_4^{2-} や NH_4^+ は増加することもあるが、2013年度と比較すると2016年度は大きく減少した。この SO_4^{2-} に関しては、九州、中国四国で春や冬に明確な減少傾向が見られた。

NO_3^- 、OC、ECは漸減傾向となっていた。このほか Cl^- と K^+ も漸減傾向となっており、廃棄物燃焼など一次排出源の影響も低下傾向にあることが示唆された。一方、自然起源由来の成分（ Na^+ 、 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} ）は横ばいであった。

$\text{PM}_{2.5}$ 濃度階級別に主要5成分の平均組成の経年変化（図S2-5）を見ると、低濃度域では SO_4^{2-} の割合は減少傾向であり、越境汚染のベースラインが低下している可能性が考えられる。高濃度域では、高濃度事象の多寡により一貫した傾向は見られず年度毎の違いが大きかったが、2016年度は多くの成分で割合は減少していた。

各地点における2013年度と2016年度の成分平均値の差を地図上にプロットすると（図S2-6）、 SO_4^{2-} の減少幅が大きかったのは東海以西に集中しており、逆に NO_3^- において減少幅が大きい地点は関東、近畿、瀬戸内地域に集中していた。前者は越境汚染、後者は地域汚染の低下を示唆しており、 $\text{PM}_{2.5}$ 濃度の低下要因は地域によって異なることを示している。

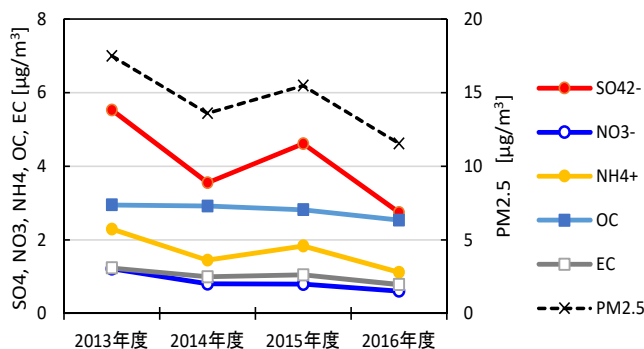


図 S2-4 成分継続調査地点における $\text{PM}_{2.5}$ 濃度、イオン成分、炭素成分の経年変化

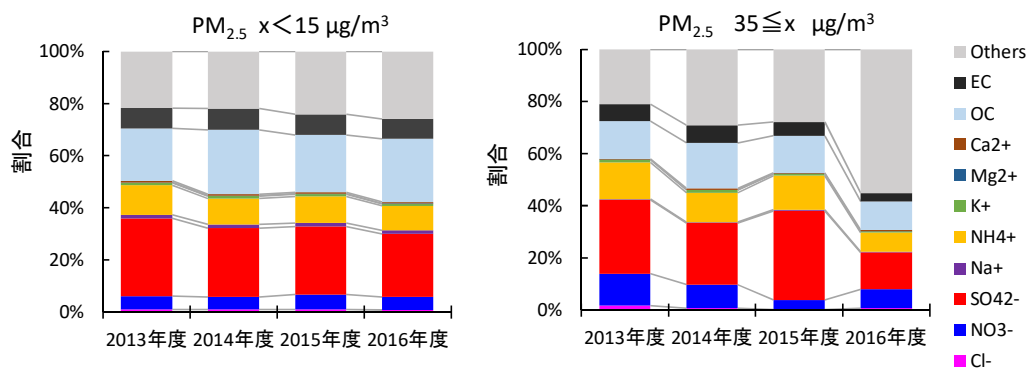


図 S2-5 $\text{PM}_{2.5}$ 濃度階級別の主要組成の経年変化

研究概要

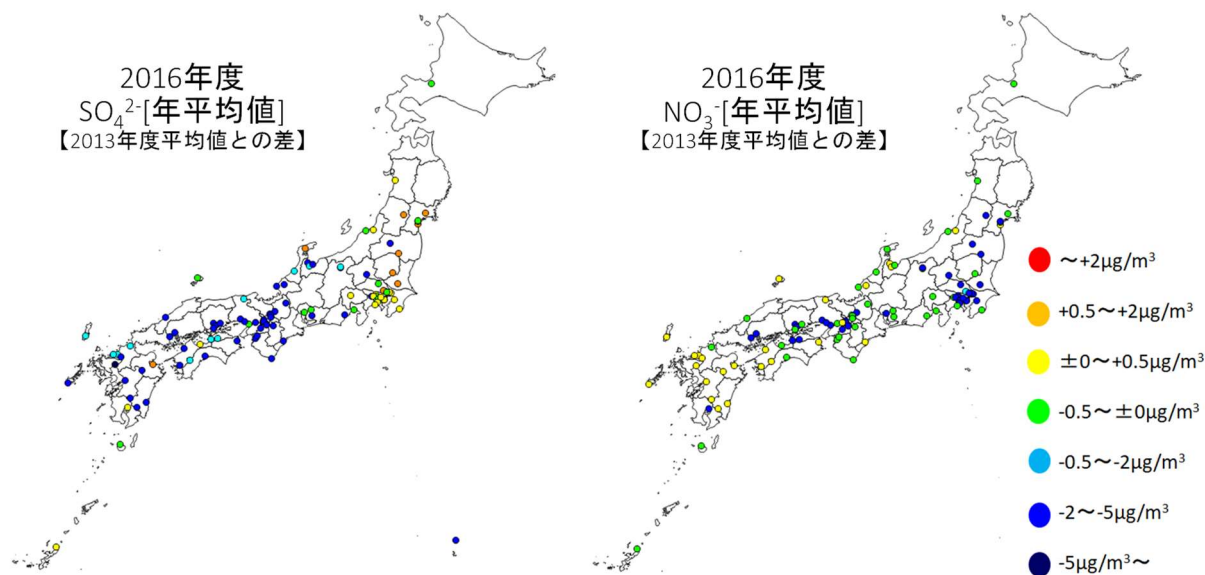


図 S2-6 2016年度と2013年度の平均値差の分布(左 SO₄²⁻、右 NO₃⁻)

S2.3 全国成分分析データを用いた PMF 解析

2013~2015 年度の成分分析継続地点を対象に、下記の地域ごとに PMF モデルによる発生源寄与解析を行った。これによって得られた5~7 (地域により異なる) の発生源因子の寄与濃度について、2013年度と2015年度の変化について考察した (図 S2-7、S2-8)。

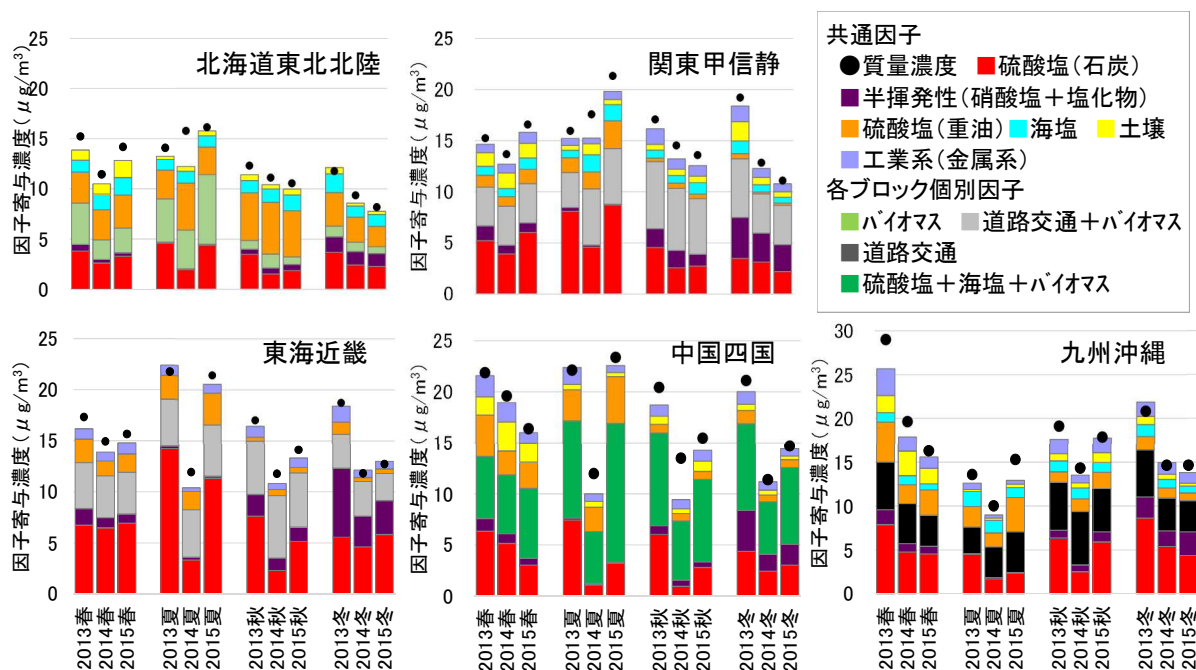


図 S2-7 各地域における季節ごとの発生源寄与濃度の経年変化

研究概要

- ・北海道・東北・北陸： 硫酸塩（石炭由来）がすべての季節で減少し、バイオマス燃焼が春季を除くすべての季節で減少したことにより、夏季を除き PM_{2.5} 濃度が減少していた。夏季に PM_{2.5} 濃度が上昇したのは、硫酸塩（重油由来）の増加によるものであった。
- ・関東甲信静： 春季・夏季は半揮発性粒子以外のすべての因子が増加したことにより PM_{2.5} 濃度が増加した。特に春季は硫酸塩（石炭由来）、夏季は道路交通+バイオマス燃焼と硫酸塩（重油由来）が増加した。秋季・冬季は概ねすべての因子が減少したことにより PM_{2.5} が減少し、特に秋季は硫酸塩（石炭由来）、冬季は半揮発性粒子、道路交通+バイオマス燃焼が減少した。
- ・東海・近畿： 夏季・秋季の硫酸塩（石炭由来）、冬季の半揮発性粒子（硝酸塩と塩化物の合計）の減少のため、すべての季節で PM_{2.5} 濃度が減少していた。
- ・中国・四国： すべての季節で硫酸塩（石炭由来）が顕著に低下しており、夏季を除き PM_{2.5} 濃度が低下した。夏季は、硫酸塩（重油由来）が増加したことにより若干増加傾向にあった。
- ・九州・沖縄： 全体的な傾向は中国・四国と類似していた。
- ・全国： 春季は硫酸塩（石炭由来）が関東甲信静を除くすべての地域で減少していた。夏季の硫酸塩（重油由来）は全国的に増加し、冬季の道路交通+バイオマス燃焼は全国的に減少した。

ただし、PMF モデルによる発生源寄与解析を、地域ごと及び全国で行った場合、抽出される因子は完全に同一ではないため、同じ地点の同じ発生源因子の寄与濃度は必ずしも同じではなく、今回の場合特に硫酸塩（重油）が両者で異なっていた。このため、目的に応じてデータセットを選択する必要があることがわかった。



図 S2-8 全国解析における発生源寄与濃度変化率の地域的特徴

変化率(%) : 2015年と2013年の寄与濃度差 / 2013年の寄与濃度

注) 全国解析のため、地域ごとの解析結果と若干異なる場合がある

研究概要

S3. PM_{2.5} 高濃度事例の解析

ポイント:

- PM_{2.5} の高濃度予測情報を共有することにより、参加機関共同で高濃度に即応した PM_{2.5} の採取および成分分析を実施した。
- 1局あたりの高濃度出現日数は、2013 年度に 16 日であったが年々減少し、2016 年度以降は 3 日以下で推移した。
- 全国で 100 局以上が高濃度となる広域的な高濃度日は激減した。
- 高濃度となった主な要因は、4～5 月は黄砂、11～12 月は OC が寄与した地域汚染または地域汚染と越境汚染の複合、3 月は越境汚染と地域汚染の複合であった。
- 森林火災等のバイオマス燃焼による越境汚染が、主に北日本で観測された。

S3.1 高濃度日の出現日数の変動

・2013 年 4 月～2018 年 12 月における、月毎の一般環境大気測定局 1 局あたりの PM_{2.5} 高濃度出現日数（PM_{2.5} の日平均濃度が 35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超過した日数を有効測定局数で割った値）を図 S3-1 に示す。

年度ごとの 1 局あたりの高濃度出現日数は 2013 年度が 16 日であったが年々減少し、2014 年度は 10 日、2015 年度は 5 日、2016 年度は 2 日、2017 年度は 3 日、2018 年度（12 月まで）は 2 日となった。特に、2016 年度以降は日数が低下したまま横ばいで推移している。高濃度日の季節的な傾向は年度によって異なるが、超過日数が減少した 2016 年度以降では、4～5 月、11～12 月、3 月に高濃度となる傾向が見られた。

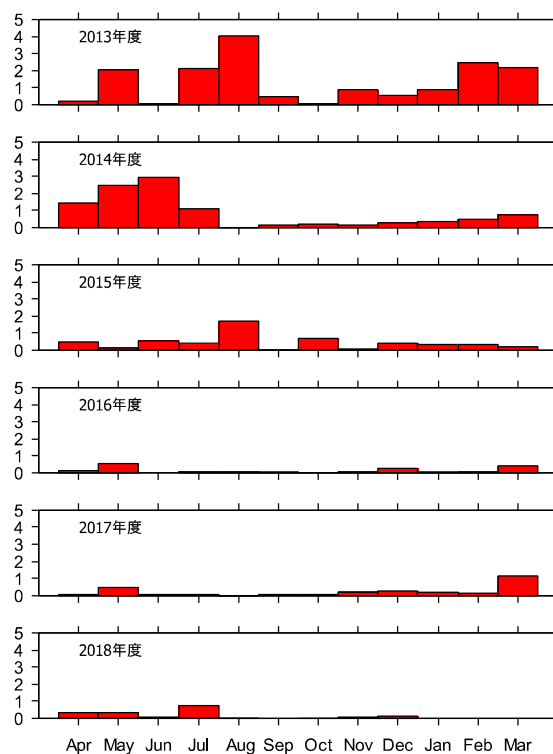


図 S3-1 測定局1局あたりの月別高濃度日数

S3.2 高濃度事例の観測

・2015 年度から 2017 年度における高濃度事例を表 S3-1 に示す。35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 超局数は、高濃度事例の期間中に最も超過した局数が多かった日の局数を示す。また、成分分析により判明した特徴的に高濃度であった成分と、汚染タイプとして成分分析や他の解析手法を合わせて総合的に判断した高濃度要因を示す。

高濃度となった要因は、4～5 月は黄砂が関連していた事例が多かった。11～12 月は OC が高濃度に寄与し、地域汚染または地域汚染と越境汚染の複合により高濃度となる事例が見られた。3 月は越境汚染と地域汚染の複合により広域的に高濃度となっていた。近年の傾向として、同期間に

研究概要

高濃度となっていて、地域によってPM_{2.5}の成分濃度の変動が異なる場合が多く、高濃度要因が地域によって違う事例が観測された。森林火災等のバイオマス燃焼による越境汚染が、主に北日本で観測された。

表 S3-1 PM_{2.5} 高濃度解析事例

期間	常時監視 総局数	35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 超局数	特に高い地域	高濃度になった成分	汚染タイプ
2015年度					
4/23-5/1	685	79	全国	硫酸塩、土壌、硝酸塩	黄砂、越境汚染、地域汚染
6/11-18	688	165	九州、中国四国、近畿、東海、北陸、東北	硫酸塩、土壌、OC	黄砂、越境汚染、地域汚染
7/26-8/6	690	299	九州、中国四国、近畿、東海、北陸、関東、東北	硫酸塩、Pb、As	越境汚染、地域汚染
10/8-12	660	126	中国四国、近畿、東海、北陸、関東	硫酸塩、硝酸塩、OC、EC	越境汚染、地域汚染
10/20-28	673	142	九州、中国四国、近畿、東海、関東	硫酸塩、硝酸塩、V	越境汚染、地域汚染
1/27-2/1	658	95	九州、中国四国、近畿	硝酸塩、硫酸塩、V、Ni、As、Pb	越境汚染、地域汚染
2/26-3/6	695	107	九州、中国四国、近畿、東海、関東	硫酸塩、土壌、硝酸塩	越境汚染、黄砂、地域汚染
2016年度					
4/22-27	735	40	九州、中国四国、近畿、北陸	硫酸塩、土壌	黄砂、地域汚染
5/6-9	727	34	近畿、北陸、北海道	土壌、OC、EC	黄砂、バイオマス燃焼
5/20-24	727	28	中国四国、近畿、関東	硫酸塩、OC	地域汚染
5/25-29	730	143	九州、中国四国、近畿、北陸、関東、東北	硫酸塩、Pb、As	越境汚染
7/1-3	727	18	関東	硫酸塩、OC、EC	地域汚染
11/3-6	688	16	九州、中国四国、近畿、北海道	硫酸塩、OC、EC、Pb	越境汚染、バイオマス燃焼
12/8-14	707	33	九州、関東	硫酸塩、OC、硝酸塩	越境汚染
12/18-23	708	68	中国四国、近畿、東海、関東、東北、北海道	硝酸塩、OC、レボグルコサン	地域汚染、(越境汚染)
2/13-15	707	34	九州	硫酸塩、OC、硝酸塩	越境汚染
2/15-18	709	12	中国四国、東海	硝酸塩、硫酸塩、OC、EC	越境汚染、地域汚染
3/18-21	688	91	中国四国、近畿、東海、北陸、関東	硫酸塩、硝酸塩、Pb、As、OC、レボグルコサン	越境汚染、地域汚染
2017年度					
5/6-9	745	113	九州、中国四国、近畿、関東	土壌、硫酸塩、硝酸塩	黄砂、越境汚染
5/29-6/1	742	104	九州、中国四国、近畿、北陸、東北	硫酸塩	越境汚染、地域汚染
11/6-9	761	54	九州、中国四国、関東	硝酸塩、OC、EC、Cl	地域汚染
11/28-30	753	44	中国四国、近畿、関東	硫酸塩、硝酸塩、OC、EC	越境汚染、地域汚染
12/21-25	772	72	九州、中国四国、近畿、関東	OC、EC、硝酸塩	地域汚染
3/24-30	767	266	全国	硫酸塩、硝酸塩、As、V	越境汚染、地域汚染

研究概要

S4. 汚染要因解析

S4.1 PM_{2.5} 中の有機指標物質の濃度分布及び発生源解析

ポイント:

- 模擬試料中の有機指標物質測定で機関間の測定値のばらつきが小さかったレボグルコサン (LEV: バイオマス燃焼) について、各参加自治体 (12 自治体) で常時監視 PM_{2.5} 成分測定期間 (2016、2017 年度) において採取された PM_{2.5} 試料の測定を行った。各地点の LEV 濃度は、秋あるいは冬の季節平均値が高く、延べ 33 地点 (2016 年度: 21 地点、2017 年度: 12 地点) 中 28 地点で秋に年間最大値を示した。西日本において、近畿・東海で同一日に LEV 高濃度現象が生じたのは、広範囲で大気汚染物質の滞留しやすい気象条件下であったことが原因と考えられた。一方、東日本では、地点により LEV 高濃度日が異なり、局所的に LEV 高濃度が生じていたと推測された。
- LEV 濃度の高い秋、冬において、OC に対する LEV 濃度の比は都市部に比べて郊外の方が大きく、立地条件によりバイオマス燃焼の影響が異なることが示唆された。
- LEV 濃度を含む成分データを用いて PMF 解析を行った結果、LEV によりバイオマス燃焼 (BB) の因子を切り出すことができた。PM_{2.5} 及び OC に対する BB 因子の割合は、概ね、都市部に比べて郊外に位置する地点の方が大きいですが、都市においても相当程度を占めることがわかった。

S4.1.1 レボグルコサン濃度を用いた濃度分布解析

・各参加自治体 (10 自治体) で実大気粒子の抽出液中の有機指標物質を測定した結果、環境省から測定法が公開されているレボグルコサン (LEV: バイオマス燃焼)、ピノン酸 (PNOA: α -ピネン由来の二次生成) 及びコハク酸 (DCA4: 大気中二次生成) のうち LEV は機関間の測定値のばらつきが小さかった。一方、PNOA 及び DCA4 の精度改善には、検量線の直線性を確保するため GC/MS の特性に注意を払うこと、検量線の濃度範囲を適切に設定すること、目的の物質に応じた適切な内標準物質を使用することが望ましいと考えられた。

・各参加自治体 (12 自治体) で常時監視 PM_{2.5} 成分測定期間 (2016、2017 年度) において採取された PM_{2.5} 試料の LEV 測定を行った。それらの LEV 濃度は、2016 年度 (21 地点) において、秋の全地点平均値 (99 ng/m³) が最も高く、続いて冬 (56 ng/m³)、春 (30 ng/m³)、夏 (14 ng/m³) の順であった。LEV 中炭素濃度の有機炭素に占める割合も秋冬 (1.4, 1.1%) の方が春夏 (0.4, 0.2%) に比べて高い値であった。これらの傾向は 2017 年度 (12 地点) も同様であった。

・各地点の LEV 濃度では、秋あるいは冬の季節平均値が最も高かった。2016 年度秋は、濃度範囲が地点により大きく異なっており、海南・河内長野・天理・桜井・名古屋・前橋・村山・札幌 R (R: 道路沿道) では、データの半数以上が 100ng/m³ を超えていた。一方、大阪 R・大阪・茅ヶ崎 R・大和では 100 ng/m³ を超えた日はなく、他の地点のような高濃度は見られなかった (図 S4-1)。

・LEV 最大濃度は桜井の 600 ng/m³ (2016/10/22) であった。また、同一日において、近畿・東海の他の測定地点 (天理・泉大津・高石 R・河内長野・久御山・伊賀・名古屋・名古屋 R) でも地点最大値を示した。2016 年度秋において西日本 (14 地点) と東日本 (7 地点) でみると、西日本

研究概要

において、近畿・東海で同一日に LEV 高濃度現象が生じたのは、広範囲で大気汚染物質の滞留しやすい気象条件下であったことが原因と考えられた。一方、東日本では、11/2 の札幌 R（最大値 560 ng/m³）、10/30 の前橋（360 ng/m³）、10/22 の村山（290 ng/m³）と局所的に高濃度が生じていた。

S4.1.2 レボグルコサン濃度を用いた発生源解析

・LEV 濃度の高い秋、冬における OC と LEV 濃度の相関関係を調べた結果、海南（2016 年度のみ）と尾鷲を除き、よい相関（相関係数 R>0.7）を示した。これらの 2 地点を除いて人口や人口密度から都市部と郊外に分類したところ、OC と LEV 濃度の相関プロットの傾きは都市部（0.03）< 郊外（0.05）となり、OC に対する LEV 濃度の比は郊外の方が大きく、立地条件によりバイオマス燃焼の影響が異なることが示唆された。

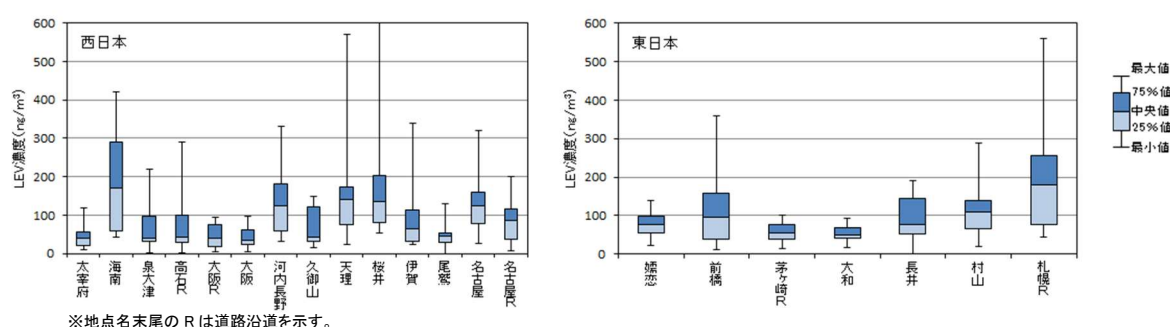


図 S4-1 2016 年度秋の地点別レボグルコサン濃度

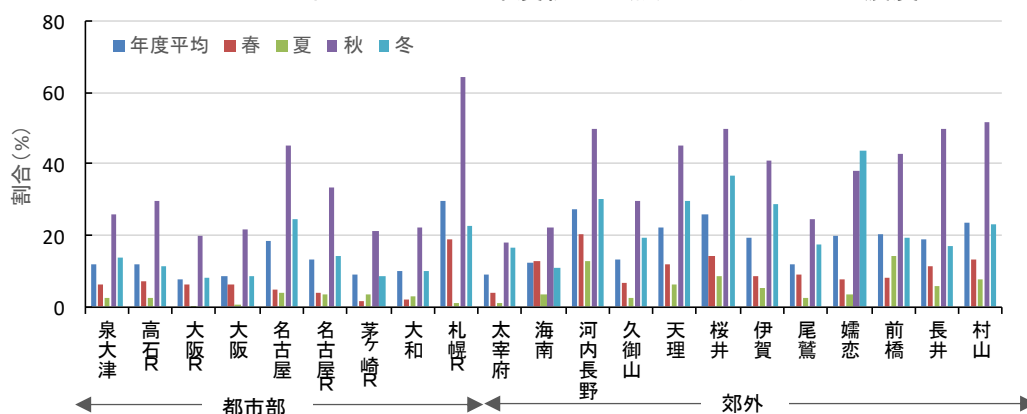


図 S4-2 2016 年度の PM_{2.5} に対するバイオマス燃焼因子の割合

・LEV 濃度を含む成分データを用いて PMF 解析を行った結果、LEV によりバイオマス燃焼(BB)の因子を切り出すことができた。図 S4-2 に示すように、PM_{2.5} に対する BB 因子の割合は春・夏（0-20%）よりも秋・冬（10-64%）に高かった。PM_{2.5} 及び OC に対する BB 因子の割合は、概ね、都市部に比べて郊外に位置する地点の方が大きい。都市においても相当程度を占めることがわかった。今回の研究ではバイオマス燃焼の指標に限られたが、自動車や二次生成など、寄与が大きいと思われる指標物質を加えることで、PMF による発生源寄与評価において、OC の発生源を細分化することが期待される。

S4.2 PM_{2.5}の輸送過程の観測研究

ポイント:

- PM_{2.5}自動測定機のテープろ紙を保管・分析する手法により、PM_{2.5}の輸送過程を解明するためのネットワーク観測を4事例で実施した。
- 分析精度は、公定法との並行試験や、共通試料による比較調査から確認した。
- 大阪から京都へのPM_{2.5}の地域間輸送について、夏季に京都府久御山など3地点で6日間の観測を実施した。海風は日没後もあまり衰退せず、汚染の輸送は日中よりも夜間の方が顕著であった。日没頃に大阪湾を出発した重油燃焼汚染物質が、淀川を遡るように40km先の京都盆地まで3~5時間で運ばれる現象が確認された(2015年7月30日~8月5日)。
- 大陸からのPM_{2.5}の越境輸送について、冬季に日本海側の五島、国設隠岐、京丹後、国設佐渡関岬など9地点で観測した。硫酸イオン濃度の距離減衰が著しい事例であったが、温暖前線に向かう上昇性の気流の影響で、汚染は東へ輸送されつつ、上空に持ち去られたものと解釈できた。硫酸イオン濃度の距離減衰にもかかわらず、各地の硫酸イオン/ヒ素の濃度比は、冬季の北京の煙霧時の濃度と中国からの輸送時間に基づく理論計算値とよく整合しており、越境輸送の解析手法として有用であった(2016年12月5~6日)。

S4.2.1 輸送汚染研究グループのオリジナル観測手法とその分析精度の確認

・輸送汚染研究グループでは、PM_{2.5}自動測定機の使用済みテープろ紙を用いた化学成分分析をネットワーク観測として実施した。PM-712(紀本電子工業)を共通基盤とし、この装置が設置されていれば、時間をさかのぼってPM_{2.5}のみならず粗大粒子も精密な成分観測が実施できる利点をふまえ、気象データや常時監視局データ(風向風速、SO₂など)による予備解析で汚染の輸送経路を絞り込みつつ、適切な観測地点を設定した。この方針に沿って、グループ以外の管轄機関からテープろ紙試料の提供を受けて研究を進めたケースもあった。以下の事例を研究した(表S4-1)。

表 S4-1 輸送汚染研究グループが対象とした主な高濃度現象

	期間	輸送パターン	観測地点
1	2015年7月30日~8月5日	地域間輸送	大阪湾から東に40km圏
2	2016年12月5~6日	越境輸送	西日本の遠隔地など
3	2017年5月6~9日	越境輸送(黄砂)	国設隠岐など4地点
4	2017年5月30~31日	地域間輸送	大阪湾から東に80km圏

・一方、本手法は公定法と比べて、テープろ紙を細切する作業が煩雑であり、少ない試料量のため検出下限値が高くなりやすい欠点がある。そこで、公定法との並行試験のほか、分析機関間の分析精度を確認するため、二分割したテープろ紙試料について、京都府を基準として、分析機関間の比較試験を行った。ヒ素や硫酸イオンは、複数機関で精度の高い分析値が得られることがわ

研究概要

かり、データ解析の品質を担保することができた。また、硫酸イオンや粗大粒子中の硝酸イオンはACSA-14(大気エアロゾル化学成分連続自動分析装置)のデータとも一致することがわかった。

S4.2.2 地域間輸送の観測

・京都府と大阪府の府境を跨る $PM_{2.5}$ の地域間輸送の観測研究は我々が知る限り初めてである。2015年7月30日～8月5日までの約6日間について、淀川河口から13kmの鶴橋(大阪市)、23kmの茨木、40kmの久御山(京都府)などを観測地点とし、テープろ紙を分析してイオン成分及び無機元素成分の1時間値を取得した。期間を通じてバナジウムとニッケルの相関関係と、バナジウムと硫黄成分(SO_2 ガス+粒子状硫酸イオン)の相関関係が認められ、重油燃焼の影響が示唆されただけでなく、日中よりも夜間の方が顕著であることがわかった。バナジウムのピーク時刻と風向風速データから、輸送過程を詳細に検討したところ、日没頃に大阪湾を出発した汚染物質は茨木を経由して久御山へ輸送されていた。これは日没により空気の激しい鉛直対流が衰退すると、地表面の汚染物質が鉛直拡散することなく、海風に乗って水平方向へ輸送されたものと考えられる。すなわち、大阪湾からの海風が日没後も減衰しない日は汚染の飛来に十分留意する必要がある。

S4.2.3 越境輸送の観測

・先行研究として環境省推進費研究5B-1101(代表:菅田誠治)は、越境輸送された $PM_{2.5}$ 成分のネットワーク観測を報告しているが、本研究は1時間という極限の高時間分解能で分析した初めての研究である。2016年12月5日から6日にかけて、寒冷前線が通過する前にあらわれた越境輸送現象を観測した。五島、肥前、三瀬、中津、国設蟠竜湖、国設隠岐、京丹後、長浜、国設佐渡関などを観測地点とした。硫酸イオン濃度の距離減衰が著しい事例であったが、これは温暖前線に向かう上昇性の気流(ウオームコンベアベルト)に運ばれた汚染気塊が東へ輸送されつつ、上空に持ち去られたためと考えられた。硫酸イオン濃度の距離減衰にもかかわらず、各地の硫酸イオン/ヒ素の濃度比は、冬季の北京における煙霧期間の平均濃度と中国からの輸送時間(後方流跡線解析による中国沿岸～各観測地点の時間)に基づく理論計算値とよく整合することが明らかとなった。

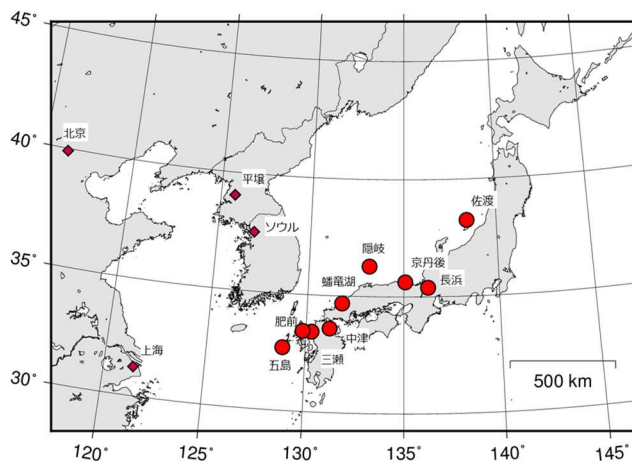


図 S4-3 観測地点図

研究概要

S4.3 閉鎖性海域周辺における PM_{2.5} の高濃度現象

ポイント:

- 全国の測定地点における PM_{2.5} 質量濃度を比較すると、瀬戸内海周辺地域に上位局が多く存在する傾向が続いていることが明らかとなった。
- 同地域においても PM_{2.5} 濃度の減少傾向が確認されたが、日本海および太平洋周辺地域よりも平均で 2-3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 程度高濃度であった。
- PM_{2.5} 成分分析データの解析から、同地域では硝酸イオン、硫酸イオン、バナジウムが関西都市部や越境汚染の影響を受けやすい日本海岸と比較しても高濃度であり、地域特有の汚染源が示唆された。
- 成分の経年変化を見ると、硝酸イオンは横ばいから微減傾向であったが、硫酸イオン濃度には明瞭な減少傾向が認められた。
- フィルターパック法により測定された西日本におけるガス状および粒子状の硝酸濃度は横ばいもしくは微減傾向、硫酸濃度は減少傾向が認められ、イオウ成分の減少傾向が PM_{2.5} 汚染の改善の主な要因の一つと考えられた。
- 同地域には、NO_x 濃度は高くないが硝酸ガス、粒子状硝酸がともに高い地域が複数存在したことから、特徴的な NO_x→硝酸ガス→粒子状硝酸への酸化機構が存在する可能性が示唆された。
- 船舶に搭載した自動測定器による観測から、瀬戸内海上でも沿岸の測定地点と同程度かやや高い濃度レベルの PM_{2.5} が存在することがわかった。

S4.3.1 常時監視データによる解析

PM_{2.5} 濃度の年平均値は大都市圏、九州、および瀬戸内海周辺地域において高濃度となる傾向があることが報告されており、その傾向は近年でも確認された。2013 - 2016 年度の西日本における常時監視データを詳細に解析した結果、本州、四国、九州の瀬戸内海沿岸では PM_{2.5} 汚染が改善傾向にあるものの、日本海および太平洋沿岸と比較して年平均値で 2-3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、日平均値の 98 パーセンタイル値で 3-4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 程度高濃度であった(図 S4-4)。成分データの解析によると、瀬戸内海周辺地域では硝酸イオンが顕著に高濃度であり、関西の都市部の平均濃度を上回った。また硫酸イオンについても、越境汚染の影響を強く受ける日本海岸よりも高濃度であった他、バナジウムも他の地域と比較して瀬戸内海周辺地域において高濃度となる傾向が認められ、この地域特有の汚染源の存在が示唆された。

研究概要

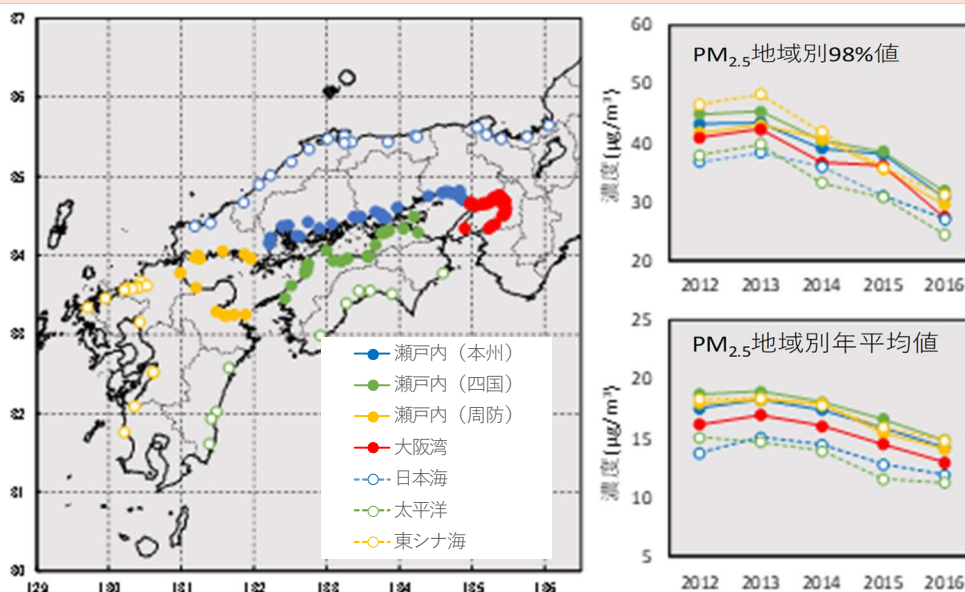


図 S4-4 常時監視データに基づく西日本の地域別 PM_{2.5} 汚染状況

S4.3.2 フィルターパック法による粒子組成と前駆ガスの同時観測

全国環境研協議会によるフィルターパック観測結果を解析したところ、西日本では粒子状およびガス状硝酸については横ばいから微減傾向、硫酸については減少傾向にあることがわかった。また、瀬戸内海周辺を中心とした西日本の 11 地点においてフィルターパック法による詳細観測を実施し、硝酸および硫酸など PM_{2.5} の主要成分およびその前駆ガスの挙動を調べたところ、春季と夏期には前駆ガス (HNO₃、SO₂ 及び NH₃) が高濃度となる傾向が確認された。新居浜ではこの傾向が顕著であり、特に硝酸では、NO_x は名古屋、大阪、神戸等の都市部で高いにも関わらず、HNO₃ と PM_{2.5} 中の NO₃⁻ は新居浜で最も高かったため、新居浜では他地点と比べて、NO_x からの HNO₃ の生成と NO₃⁻ の粒子化が起こりやすかった可能性がある (図 S4-5)。瀬戸内海周辺の地点間では粒子状のイオン成分組成に明瞭な差異が認められず、粒子としては該当地域を覆う広い汚染気塊に支配されている可能性が示唆された。

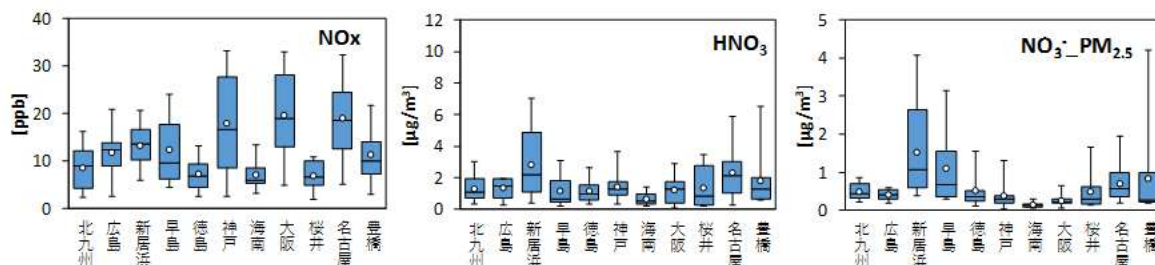


図 S4-5 2018 年春季の NO_x 及び HNO₃、PM_{2.5} 中の NO₃⁻ 濃度 (箱の上端が 75% 値、中線が中央値、下端が 25% 値、バーの上端が最大値、下端が最小値、白丸が平均値)

研究概要

S4.3.3 船舶による瀬戸内海上の大気観測

神戸大学が所有する練習船「深江丸」にPM_{2.5}連続測定器 (PM-712、紀本電子工業) を搭載し、瀬戸内海上の大気中PM_{2.5}濃度を測定した。2016年11月から2018年5月までの期間で神戸と高松を往復した計17の航海でのPM_{2.5}の平均濃度を、同じ測定機種が設置されている沿岸の陸域にある5つの測定地点における同一期間の平均濃度と比較した。海上大気中のPM_{2.5}は陸域の測定地点と類似の変動を示しており、沿岸地域と同程度かもしくはそれ以上の濃度レベルであることが明らかとなった(図S4-6)。瀬戸内海周辺地域における高濃度汚染は、瀬戸内海域を覆う規模の現象であると考えられた。

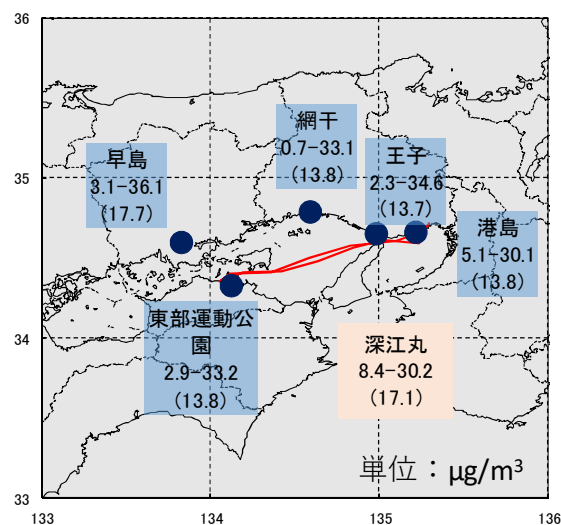


図 S4-6 練習船「深江丸」により観測された瀬戸内海上のPM_{2.5}および沿岸地域との比較.

研究概要

S5. 化学輸送モデルを用いた PM_{2.5} の解析

ポイント:

- 2013 年から 2016 年までを対象として化学輸送モデル(CMAQ)を用いて PM_{2.5} 質量濃度の変化を検討した。排出量を固定して計算したところ、2013 年から 2016 年にかけて計算値は観測値ほど減少しておらず、観測値における質量濃度の減少は発生源からの排出量の変化(減少)を受けたものである可能性が示唆された。
- 2014 年冬季を対象に神奈川県における発生源の寄与割合を推計した。PM_{2.5} 中の SO₄²⁻は海外の寄与割合が約 80%を占めたが NO₃⁻は 90%が国内起源であり、このうち国内自動車の寄与割合が 30%程度であった。
- 2014 年秋季を対象に PMF および CMAQ、両モデルによる発生源寄与解析を比較したところ、中国東北部のバイオマス燃焼による PM_{2.5} 排出量が過小評価されていることが明らかとなった。
- 2018 年 3 月下旬に発生した高濃度事例を対象に、PM_{2.5} 成分濃度分析および化学輸送モデルを用いた感度解析を実施したところ、SO₄²⁻は越境汚染の影響を受けていたが、NO₃⁻は地域によって寄与割合は異なることが明らかとなった。

S5.1 近年の濃度減少要因の解析(通年計算の解析)

・化学輸送モデルを用いて 2013 年から 2016 年まで PM_{2.5} 質量濃度の推移を検討した。発生源からの排出量を固定し、気象データは毎年更新した条件で計算したところ、年平均値は多くの地点で常時監視による観測値が 2013 年から 2016 年にかけて 15%以上減少したが、計算値は概ね 10%未満の減少であった。2013 年から 2016 年にかけて全国的に質量濃度の減少が観測されたが、その要因として人為発生源からの排出量の減少などの変化が影響を及ぼしている可能性が示唆された。



図 S5-1 PM_{2.5} 質量濃度の増減【2016 年平均値】(2013 年からの増減)

研究概要

S5.2 冬季の発生源解析(2014年 神奈川県)

・2014年冬季(2月)を対象に神奈川県におけるPM_{2.5}の発生源寄与計算を行った。

PM_{2.5}全体では海外の寄与割合が35%であった。また、国内(66%)の内訳をみると自動車の寄与割合が全体の26%を占めた。成分によって寄与割合は異なり、SO₄²⁻は海外の寄与割合が約80%を占めたがNO₃⁻は90%が国内起源であり、このうち国内自動車の寄与割合が30%程度と推定された。また、各成分とも船舶の寄与割合は1%であり、この期間の影響は小さいと考えられた。

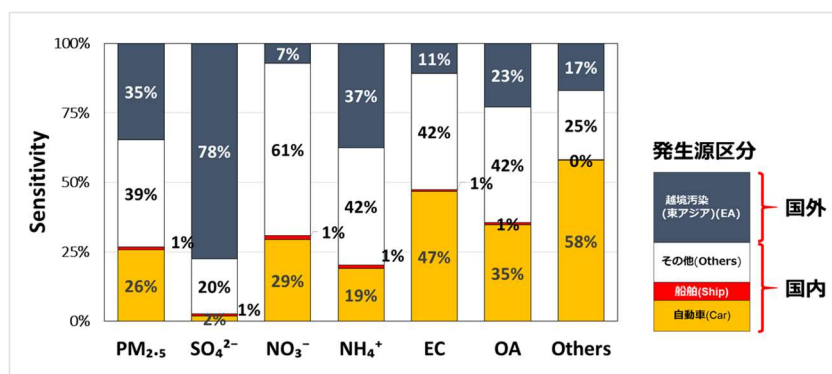


図 S5-2 発生源寄与解析(2014年2月・大和市役所)

小数点以下四捨五入により合計が100にならないことがある

S5.3 秋季バイオマス燃焼の影響(2014年10月)

・PMF解析結果(S4.1)を活用してバイオマス燃焼(BB)起因のPM_{2.5}の越境汚染(中国東北部→能登半島)についてCMAQ再現性を検証したところ、農業由来のBB排出量を増加させたケースのPM_{2.5}濃度(CMAQ)はPMF解析値(観測値ベース)と整合していた。

以上から既存のBB排出インベントリの過少評価および、農業由来のBB排出量を増加させた場合に能登半島に移流するBB由来のPM_{2.5}濃度場の再現性が向上することが判明した。

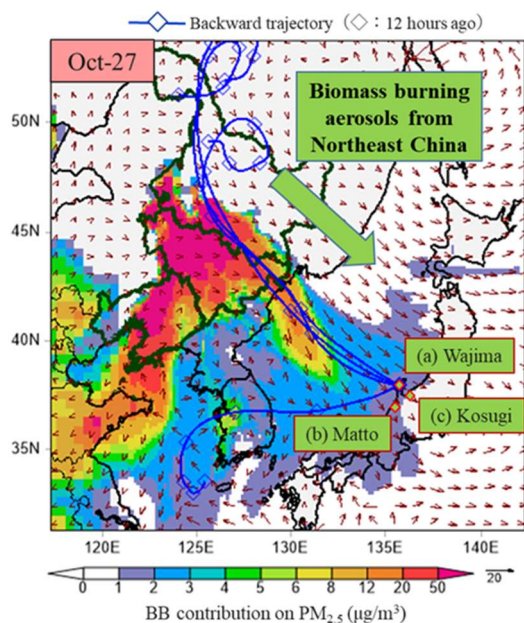


図 S5-3 広域移流したBB起因のPM_{2.5}濃度

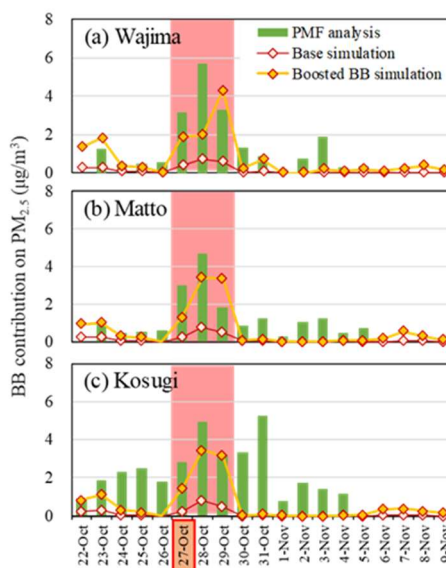


図 S5-4 BBの寄与濃度の比較

研究概要

S5.4 春季高濃度事例の解析(2018年3月)

・2018年3月24日から30日にかけて、国内広域でPM_{2.5}が日平均35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (短期基準)を超えた事例が発生した。この事例について、PM_{2.5}成分濃度分析および化学輸送モデルを用いた検討を行った。全ての排出量を含む設定(CNTL)と国内の人為起源排出量を100%削減した設定(JPEM0)で感度解析を行った結果、越境汚染と国内汚染の寄与割合は地域・成分によって異なることが分かった。SO₄²⁻についてはいずれの地域においても越境汚染の影響が大きい、NO₃⁻は地域の特徴によって寄与割合が異なり、都心部では地域汚染の寄与割合が高く、さらに日本の西側ほど越境汚染の影響が大きくなる傾向が確認された。

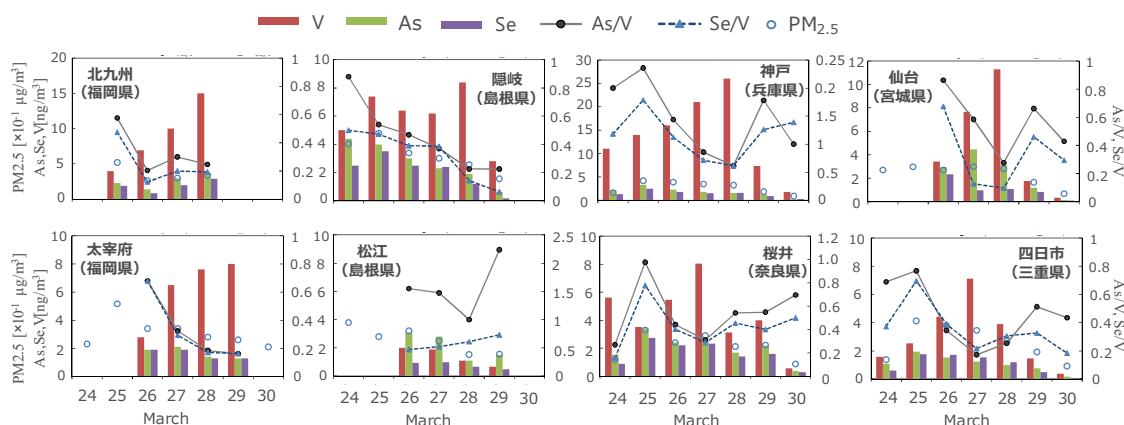


図 S5-5 PM_{2.5}の質量濃度と無機元素濃度の推移

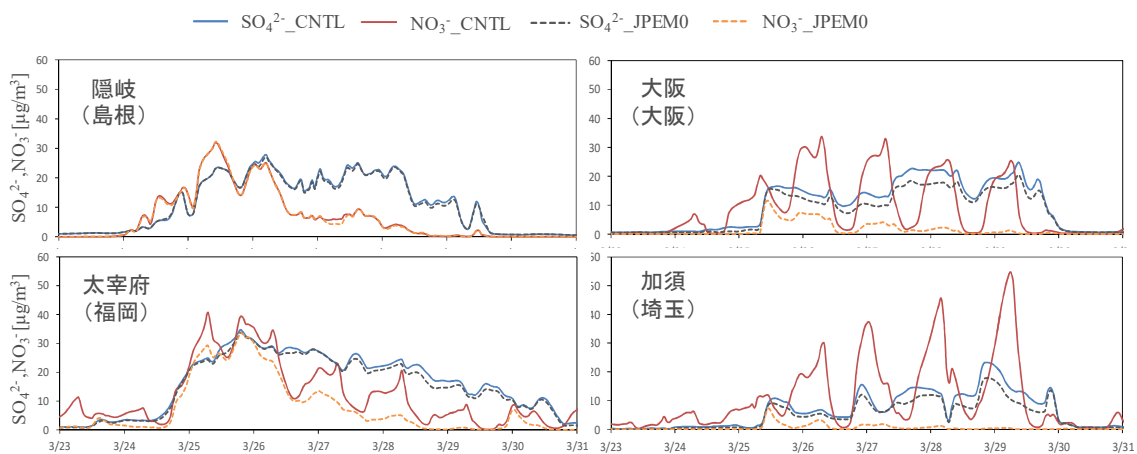


図 S5-6 SO₄²⁻とNO₃⁻の感度解析結果