

栃木県における微小粒子状物質 (PM2.5) の 成分及び高濃度化要因の解析 (第2報)

大気環境部

飯島 史周 大塚 香穂里¹ 金田 治彦² 齋藤 由実子 石原島 栄二
(¹ 現下水道管理事務所 ² 現工業振興課)

要旨

栃木県では、微小粒子状物質(以下、「PM2.5」という。)のモニタリング調査を県内14地点で行っており、真岡市では詳細な解析のためのサンプリングを行っている。平成29年度は、真岡市で3日の高濃度日が観測され、そのうち2日の詳細解析を実施した。解析の結果、燃焼系発生源と越境汚染の影響が示唆され、複合的な要因での高濃度化事象と考えられた。また、これまでの知見をもとに各要因をパラメータとしてPM2.5濃度のシミュレーションを行ったところ、実測値と再現値に強い相関が得られた。このシミュレーションをもとに過去の高濃度事象を抽出すると、シミュレーション結果に合致しない高濃度事例があり、二次生成以外の発生源の寄与が大きいものと考えられた。今後、シミュレーションの汎用化には改良の余地がある。

キーワード：微小粒子状物質、PM2.5、成分分析、発生源寄与解析、高濃度化、シミュレーション

1 はじめに

微小粒子状物質(PM2.5)は、大気中に浮遊する粒径2.5 μm以下の微細な粒子であり、中国都市域における汚染や日本国内への越境流入について、平成25年1月に報道で大きく取り上げられ、国民の関心が高まった。PM2.5の発生源は、工場、発電所、野焼き、船舶、飛行機、自動車などの人為的な発生源や、自然界からの放出、大気中などでの化学反応による生成など、多岐にわたることが知られている。PM2.5の環境基準(環境基本法第16条)は、人の健康を保護するために維持されることが望ましい基準として、年平均値が15 μg/m³以下、かつ、日平均値の年間98%値が35 μg/m³以下と規定されている。

栃木県では、県内のPM2.5濃度を把握するために、「平成29年度PM2.5大気環境調査結果」(本年報収録、p.96)に示すとおり、県内の常時監視測定、四季調査の成分分析及び発生源寄与解析を継続して実施している。

近年では、全測定地点で環境基準を達成するとともに、各測定局の年平均値もゆるやかに減少し、改善の傾向が見られ、全国的にも同様に改善の傾向が報告されている¹⁾。しかしながら、日平均値35 μg/m³以上となった日(以下、「高濃度日」という。)がまだ発生し、短時間ながら高濃度化する事例も散見される。

本県では、1時間ごと1スポットで捕集したPM2.5の水溶性イオン成分を分析し、高濃度化に特異的な成分の変化を調査している。それに合わせて、PM2.5濃度及びその成分の変化と、気温や湿度、日射量などの気象因子、オキシダント(Ox)濃度やSO₂濃度などの原因物質濃度の1時間ごとの経時変化を対比することで、時間分解能を高めた解析を試みた。

結果として、本調査研究(第1報)²⁾では、夏季には硫酸アンモニウムによる高濃度化が顕著であり、その関連因子として「日射量」、「SO₂濃度」及び「Ox濃度」に着目し、硫酸の反応スキームからPM2.5との関連を述べた。冬季

では、硝酸アンモニウムによる高濃度化が顕著であり、「NO_x濃度」、「湿度」及び「大気安定度」との関連が示唆された。また、花火や渡良瀬遊水地におけるヨシ焼き、野焼きなどによって高濃度化する事例を報告しており³⁾、PM2.5の濃度変化を考察するにはいろいろな角度からの視点が求められる。

本報告では、第1報で関連が示唆された関連因子の濃度やパラメータ等を用いたPM2.5濃度の変化の再現について、検討した内容を報告する。

2 調査方法及び内容

2.1 県内のPM2.5高濃度事例の把握

県内14箇所の常時監視地点(p.96参照)において、PM2.5濃度、Ox濃度、SO₂濃度、NO_x濃度、NMHC濃度、風向及び風速の1時間値を対象とし、調査を実施した。また、相対湿度、日射量、降水量については、近隣のアメダス測定局のデータを用いた。環境基準に照らしあわせ、高濃度日及び注意喚起基準の指針値(日平均値70 μg/m³)から時間値で70 μg/m³以上となった日を高濃度事例として、次の分析を実施した。

本県では、真岡市役所で通年的に石英ろ紙によるPM2.5の捕集を行っており、真岡市役所において高濃度日となった場合は、水溶性イオン成分の分析を実施した。また、PM2.5常時監視局のうち、採取方法の異なる雀宮中学校と平出を除く12箇所の地点では、PTFE製のテープろ紙を用いて、PM2.5を1時間ごとに1スポットとして捕集している。時間値70 μg/m³を超過した日は、このテープろ紙を用いて、超過した時間と前後数時間を対象に、水溶性イオン成分の分析を実施した。

2.2 PM2.5濃度のシミュレーション

PM2.5濃度予測は、現在も広く研究されている分野であるが、現在用いられるモデルでは、①大陸からの影響、②PM2.5濃度の増減傾向を確認することにとどまっ

ており、具体的に③どこまで上昇するか、④いつ高くなるのかを再現することは難しい。

近年の栃木県におけるPM2.5の高濃度化事例は、燃焼系発生源と二次生成を原因とするものが多く、大陸からの影響を原因とするものは少ない。また、発生源寄与と解析から、二次生成粒子の寄与が大きいことが明らかになった。これらのことから、気象条件及び原因物質濃度をもとに二次生成反応を仮定し、再現することができれば、県内のPM2.5の予測に有益な情報が得られると考えた。そこで、県内の高濃度事例が、二次生成に着目したシミュレーションで再現できるかの確認を目的とし、日平均値を用いて解析を行った。

解析には、四季調査によって成分等の詳細なデータが得られている真岡市役所を対象とし、平成26年度から平成28年度のデータを用いた。シミュレーションは、日平均値を対象とし、高濃度日の再現に主眼をおいて行った。解析はスコアリング法を採用し、平均気温、合計日射量、平均湿度、平均SO₂濃度、平均NO_x濃度、平均NMHC濃度、前日夜間のPM2.5濃度、風向、平均風速、合計降水量の計10項目について、表1に示すとおりポイントを付与した。

表1 各項目のスコアリング

項目	条件 (ポイント)
① 平均気温 (°C)	25以上(1.5), 20以上(0.5)
② 日射量計 (MJ/m ²)	20以上(0.5), 10以上(0.25)
③ 平均湿度 (%)	70以上(0.75), 60以下(-0.25)
④ 平均風速 (m/sec)	1.5以下(0.5), 2.5以上(-0.75), 3以上(-1)
⑤ 風向 (v _{NS} , v _{EW})	いずれの絶対値がともに0.25以下(1), 2以上(-0.25)
⑥ 降水量計 (mm)	20以上(-1), 0以上(-0.25)
⑦ 平均SO ₂ (ppb)	1.5以上(2.5), 1以上(2), 0.5以上(0.75)
⑧ 平均NO _x (ppb)	20度未満で20以上(0.5), 10以上(0.25)
⑨ 平均NMHC (ppmC)	0.05以上(0.5), 0.01以上(0.25)
⑩ 前夜の23-24時の平均PM2.5濃度 (µg/m ³)	25以上(2.5), 20以上(1.5), 10以上(0.5), 5以下(-0.5)

加えて、二次生成が進行しやすいと考えられる条件に合致する場合は、プラスの補正を、ウォッシュアウトや成分のガス化などPM2.5濃度が減少する条件に合致する場合は、マイナスの補正を補正項として表2のとおり加えた。それらの総和をスコアとし、1日ごとのスコアの変化が、実測のPM2.5濃度の変化と対応するようにシミュレーションを行った。

風向については、次式によって得られた値を1日の風向の判定に用いた。

$$v_{NS} = \sum_{n=1}^{24} v_n \times \cos\theta_n$$

$$v_{EW} = \sum_{n=1}^{24} v_n \times \sin\theta_n$$

v_{NS} : 南北方向の一日の風向
 v_{EW} : 東西方向の一日の風向
 v_n : n時の風速
 θ_n : n時の風向が北を0度として、時計回りに角度換算した時になす角度

2.3 シミュレーション結果を応用した高濃度事例の抽出

スコアリングによるシミュレーションは、二次生成に着目して行ったため、実測のPM2.5の変動傾向>スコアの変動傾向となった場合、他の発生源の寄与が大きかったことが推察される。このことを確認するために、平成26年度から平成28年度までの間で、スコアの変動傾向に比べてPM2.5濃度の変動傾向が大きかった日を抽出し、その高濃度化の原因について検討を行った。

表2 スコアリングの補正項

項目	条件(ポイント) ※ ○は表1の項目に対応	補正理由
(1)硫酸生成の補正	①≠0,②≠0,⑦≠0かつNO _x 15ppb以下(1)	反応しやすい条件
(2)有機物のガス化補正	日最高気温が30°C以上(-1)	粒子にならずガス化
(3)南からの移流	①≠0かつ風向が南(1) 南に卓越(0.5)	南で原因物質が高濃度化しやすい
(4)連続して雨の日	前日も雨だったとき(-1)	粒子が雨に吸着
(5)夏季湿度による補正	①=1で湿度80以上の時(-0.75)	硫酸アンモニウムが吸湿により粒径増大
(6)夏季NO ₂ による反応阻害	平均気温25以上、最高気温30以上でNO _x 15ppb以上(-1.25)	Oxが硝酸の生成に使われ、SO ₂ の反応が阻害
(7)冬季日射によるNO ₂ の分解	気温6度以下で②≠0の時(-②のポイント)	二次生成が進行しにくい
(8)冬季SO ₂ の過大評価	気温5°C以下で⑦=1の時(-1)	〃
(9)原因物質の存在	⑦=⑧=0の時(-0.5)	二次生成が少ない
(10)下半期の週末	10月から3月までで土日の場合(0.5)	人間活動・野焼きの活発化により一次粒子・NO _x が増加
(11)日中に雨の降っている時間	7時間以上(-0.5), 3以上(-0.25)	粒子が湿性沈着
(12)日中の平均湿度	80%以上(-0.25)	粒径増大により沈降・凝集
(13)強風による拡散	最高風速 2以下(0.25), 4以上(-0.25)	成分が拡散し、反応阻害

3 結果及び考察

3.1 県内のPM2.5高濃度事例の把握

3.1.1 高濃度日数の変化と事例

真岡市役所における高濃度日の出現日数の経年変化を図1に示す。平成29年度の高濃度日数は3日間であり、平成24年度から減少傾向であるが、平成28年度以降は、測定日数の1%以下と極めて少なかった。平成27年度以前に比べ、夏季での高濃度日が少ないためと考えられ、その原因としては、気温・日射量が低く二次生成が進行しにくい条件下であったことが考えられた。これは、全国的にも同様の傾向であったことが報告されている¹⁾。また、平成29年度に県内の複数地点で高濃度日となったのは、11月8日の2地点と、12月24日の7地点の2日間であった。

3.1.2 平成29年11月8日の事例

平成29年11月8日は、県南地域の一部でPM2.5濃度が上昇し、高濃度となった。PM2.5濃度の経時変化を図2

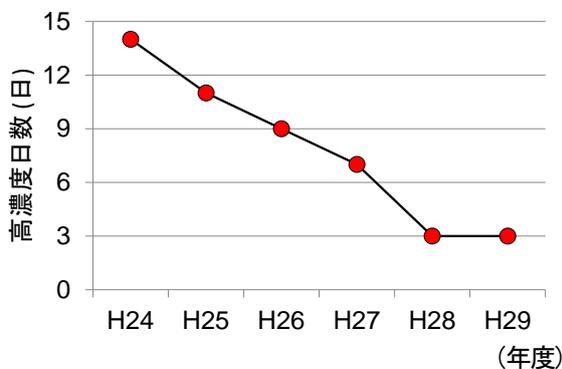


図1 真岡市における高濃度日数の推移

に、時間値が70 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えた足利市久保田公園の成分濃度の経時変化を図3に示す。成分分析からは、硝酸イオン濃度が増加した後、17時から減少に転じており、この変化は、PM2.5濃度及びカリウムイオン濃度の変化におおむね対応していた。また、硫酸イオン濃度は、一日を通して同程度の濃度であった。以上から、11月8日の高濃度事例は、バイオマス燃焼や、自動車排ガス、廃棄物焼却など燃焼系発生源の影響が大きいと考えられた。

また、当日のつくば市館野における高度別気温分布を図4に示す。当日は接地逆転層が形成されており、PM2.5やその原因物質を含む気塊が滞留しやすい条件であったと考えられた。

以上から、本事例は、地域的な発生源によって生じたPM2.5及びその原因物質が、安定した大気の中で滞留しつつ、二次生成反応が進行したことで、高濃度化したものと考えられた。

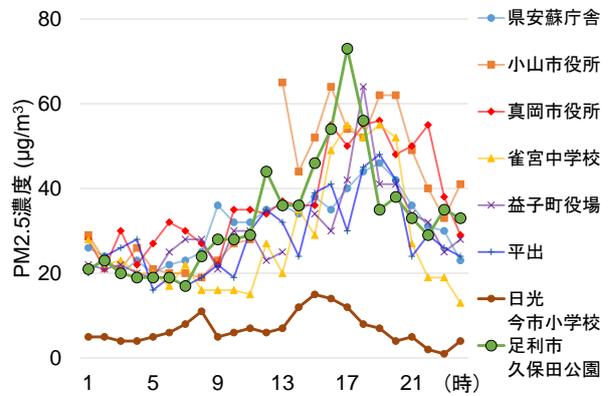


図2 平成29年11月8日のPM2.5濃度の経時変化

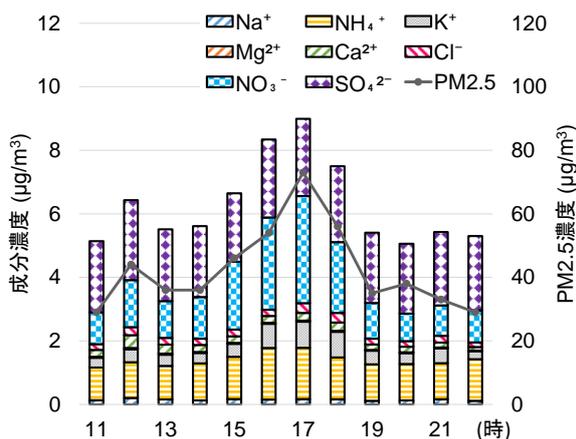


図3 平成29年11月8日の成分濃度の経時変化

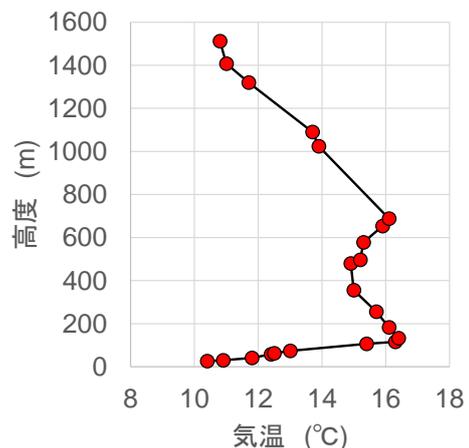


図4 平成29年11月8日21時のつくば市館野における高度別気温分布

3.1.3 平成29年12月24日の事例

平成29年12月24日は、県南部から大田原市までの平野部の広い範囲でPM2.5濃度が上昇し、高濃度となった。PM2.5濃度の経時変化を図5に、最も高濃度となった真岡市役所の成分濃度の経時変化を図6に示す。成分分析からは、PM2.5濃度の変化に連動して、硝酸イオン、アンモニウムイオン及び塩化物イオンの濃度が変化していた。また、硫酸イオンは、一日を通して同程度の濃度であった。以上から、12月24日の高濃度事例においても、バイオマス燃焼や、自動車排ガス、廃棄物焼却など燃焼系発生源の影響が考えられたが、3.1.2節の事例に比べ塩化物イオン濃度が高かった。

当日のつくば市館野における高度別気温分布を図7に示す。当日は接地逆転層が形成されており、PM2.5やその

原因物質を含む気塊が滞留しやすい条件であったと考えられた。加えて、後方流跡線解析の結果を図8に示す。真岡市に22時に到達した気塊は、中国から韓国方面を経由して、日本の南側へ抜けた後南風によって北上したことで、到達した可能性が示唆された。これは、成分分析において、真岡市の一般的な冬季に比べ、硫酸イオン濃度と塩化物イオン濃度が高いことから支持された。また、図8での経路近辺の都市である北京とソウル、真岡市のPM2.5濃度の経時変化を図9に示す。経時変化における各都市の最大ピークは、後方流跡線解析から見積もられる到達時間とおおむね一致し、東進するにつれて減少する傾向が見られた。以上から、本事例は地域的な燃焼系発生源や二次生成だけでなく、大陸由来の汚染気塊が到達し、県内全域で高濃度化したものと考えられた。

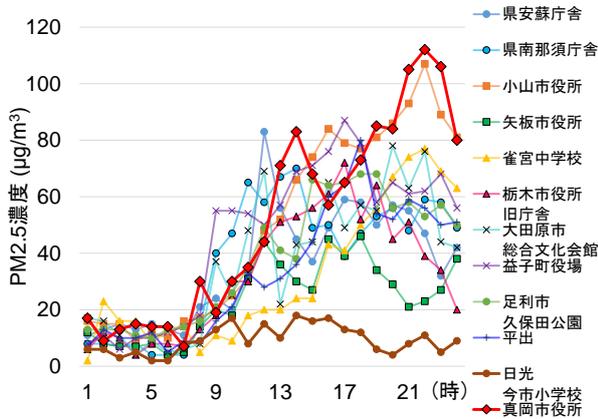


図5 平成29年12月24日のPM2.5濃度の経時変化

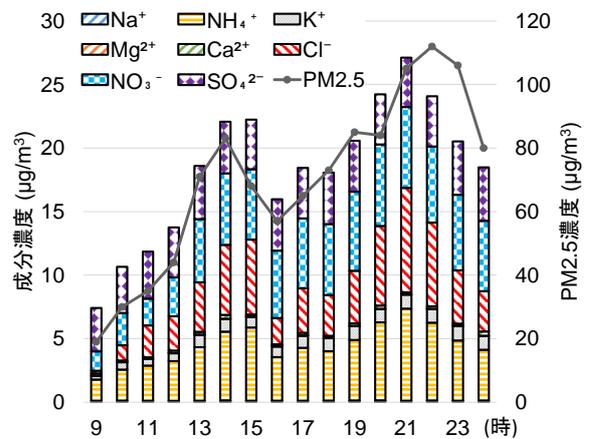


図6 平成29年12月24日の成分濃度の経時変化

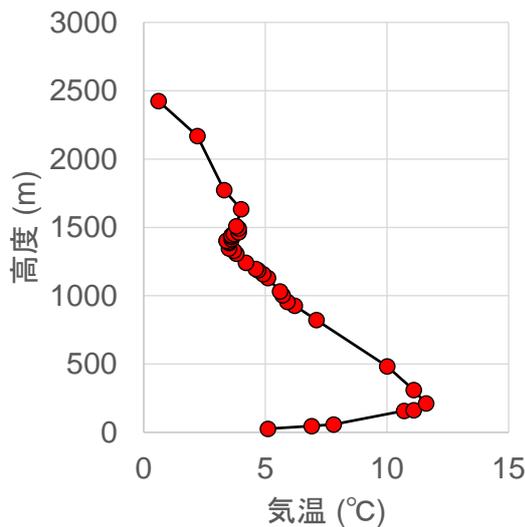


図7 平成29年12月24日21時のつくば市館野における高度別気温分布

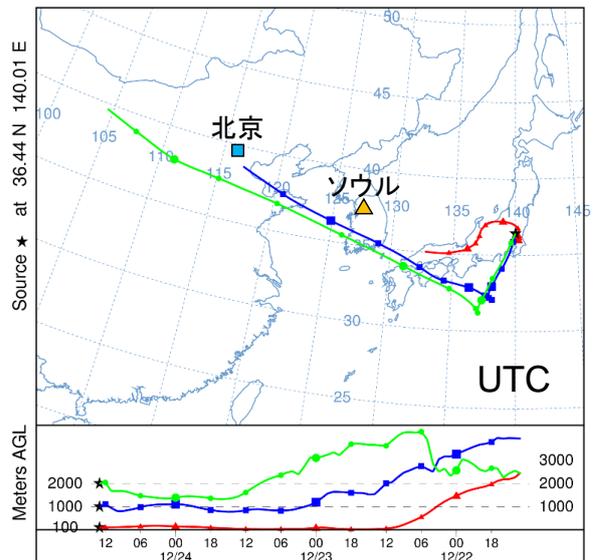


図8 平成29年12月24日22時の後方流跡線解析

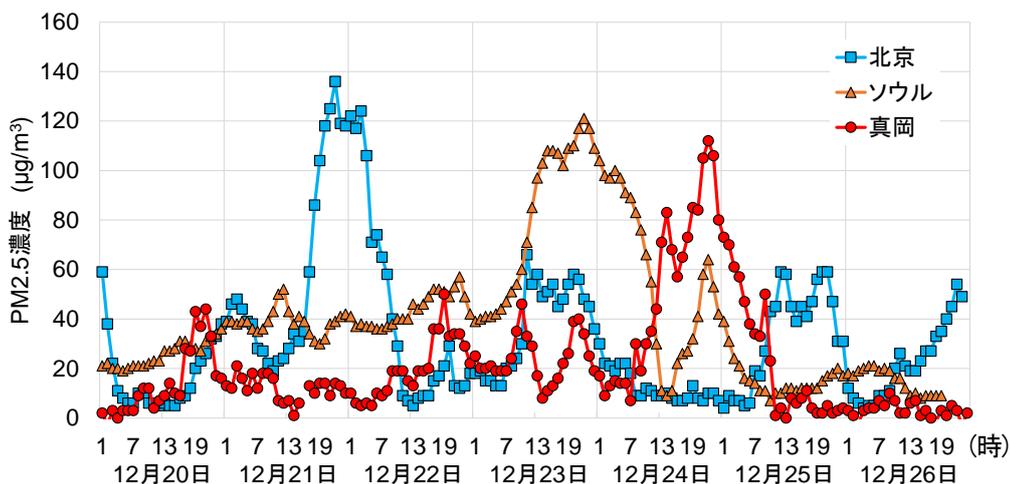


図9 北京、ソウル、真岡市のPM2.5濃度の経時変化⁶⁾

3.2 PM2.5濃度のシミュレーション

一例として、平成28年度夏季を対象に、PM2.5濃度とスコアの経時変化を図10に示す。7月初頭に観測された硫酸系二次生成粒子による高濃度事例²⁾が再現されていたが、PM2.5濃度の実測値が低い部分では、スコアが過大評価となることが多かった。これは、高濃度化する因子についてのみ重みづけしており、低減させる因子を考慮しきれていないためと考えられた。しかしながら、濃度変化そのものの傾向は大まかに再現されており、PM2.5濃度とスコアの相関係数は0.80と強い相関を示した。

解析に供した平成26年度から平成28年度までの、四季ごとのPM2.5濃度とスコアの相関係数を表3に示す。夏季、春季、冬季、秋季の順に高い相関が得られ、秋季を除き強い相関が見られた。これまでに、二次生成寄与率は夏季、冬季、春季、秋季の順に高い傾向であることを報告しているが²⁾、相関係数は冬季と春季で逆転が見られた。これは、冬季では野焼きなどがよく行われて、燃焼系発生源の影響が大きくなり、シミュレーションでその寄与が再現されていないためと考えられた。以上から、実施したシミュレーションは、二次生成のみに着目すると一定の再現性が得られているが、スコア自体は、

PM2.5濃度の値そのものの再現には至っておらず、さらなる改良の余地がある。

表3 平成26年度から平成28年度までの、四季ごとのPM2.5濃度とスコアの相関

	年度	相関係数	
春	H26	0.77	0.76 (62.5)
	H27	0.80	
	H28	0.76	
夏	H26	0.76	0.80 (68.3)
	H27	0.83	
	H28	0.80	
秋	H26	0.69	0.64 (62.0)
	H27	0.60	
	H28	0.67	
冬	H26	0.79	0.75 (66.8)
	H27	0.74	
	H28	0.76	

全期間で
0.73

()内は各二次生成寄与率(%)を示す。

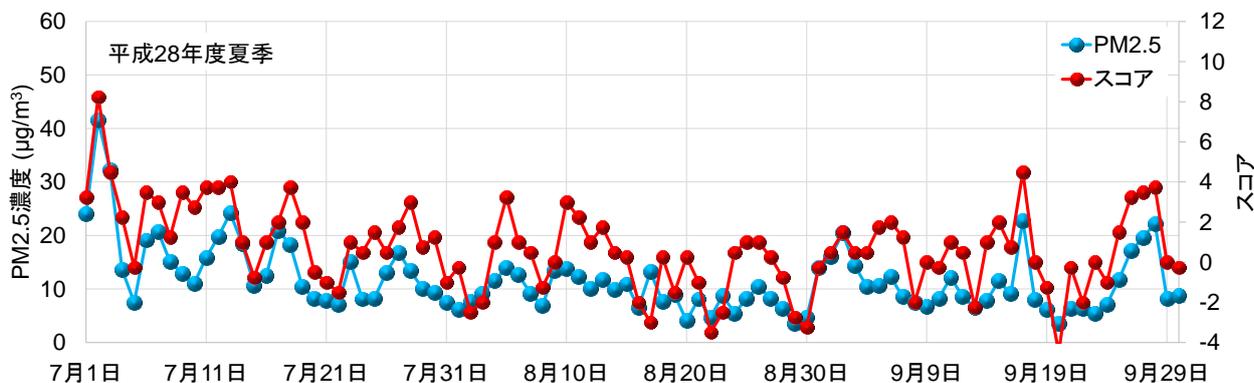


図10 平成28年度夏季のPM2.5濃度(日平均値)とスコアの経時変化

3.3 シミュレーション結果を応用した高濃度事例の抽出

平成26年度から平成28年度までの間で、スコアの傾向に対しPM2.5濃度が過大となり、かつ、日平均値25 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超過した日は、表4のとおり6日間あった。それぞれの日が含まれる季節のPM2.5濃度とスコアの経時変化を図11~14に示す。また、それぞれの日について、高濃度化した原因として推定される要因を表4に示す。高濃度化は、2日間が二次生成と越境汚染による寄与、2日間が主に燃烧系発生源の寄与、1日が局所的な花火大会の影響であった^{2) 4) 5)}。原因不明である平成27年12月23日について

では未解析であったため、高濃度化要因について解析を行った。

表4 高濃度化要因まとめ

日付	高濃度化要因
平成26年6月3日	二次生成+黄砂飛来+煙霧
平成26年7月26日	真岡市花火大会
平成27年10月10日	二次生成+越境汚染
平成27年12月10日	二次生成+燃烧系発生源
平成27年12月23日	原因不明(今回解析)
平成29年2月5日	農道の芝焼き

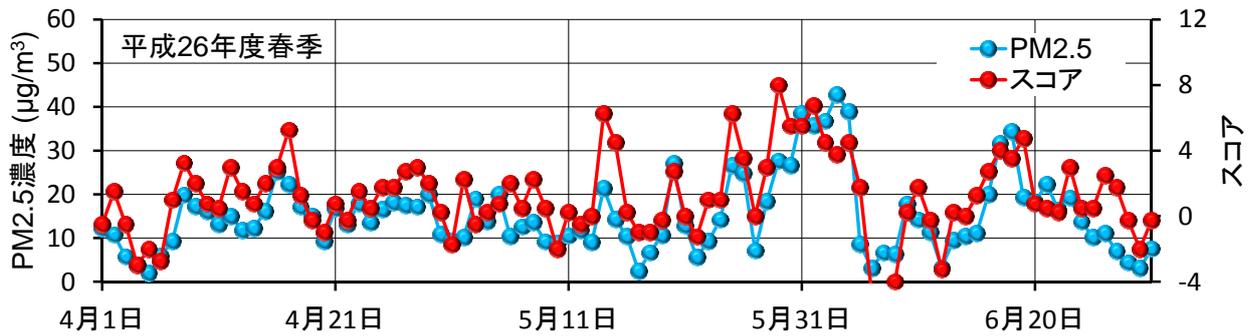


図11 平成26年度春季のPM2.5濃度(日平均値)とスコアの経時変化

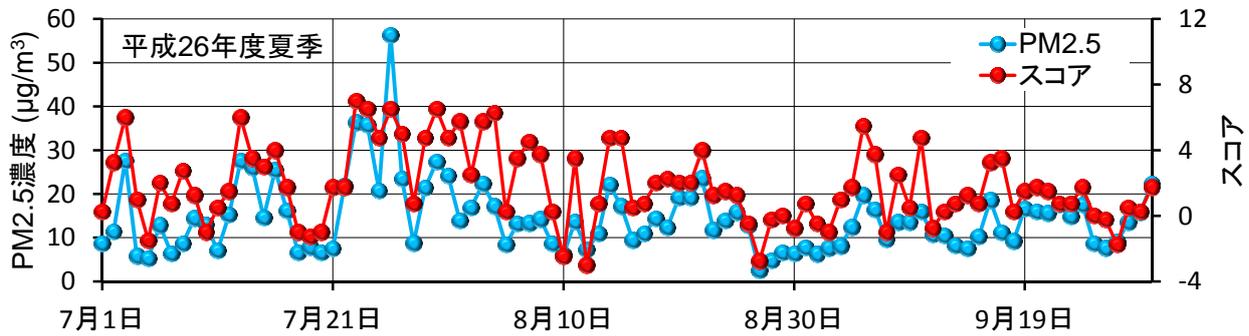


図12 平成26年度夏季のPM2.5濃度(日平均値)とスコアの経時変化

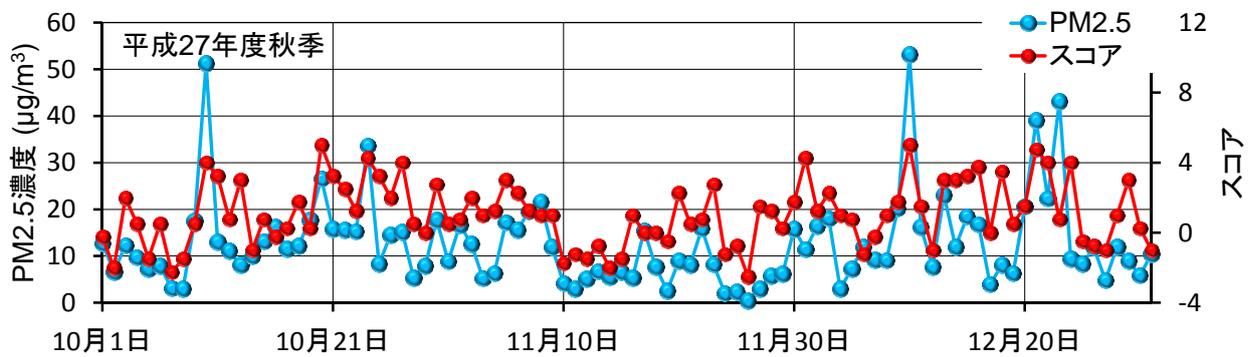


図13 平成27年度秋季のPM2.5濃度(日平均値)とスコアの経時変化

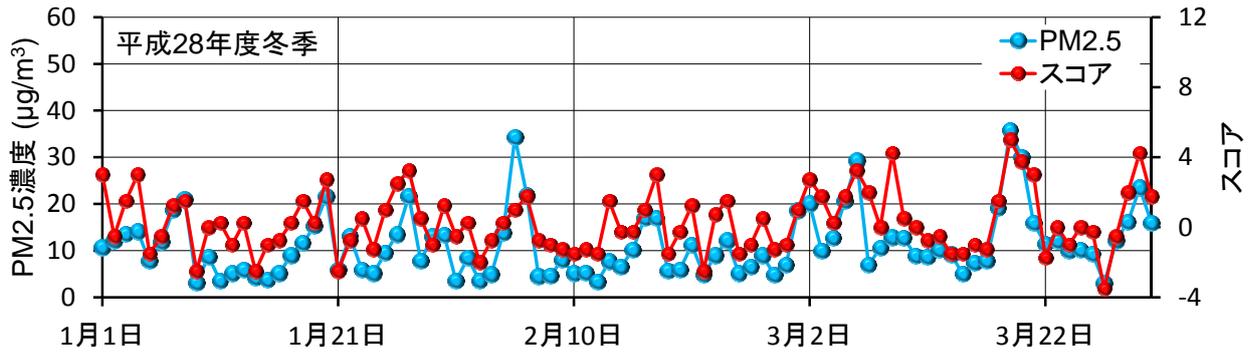


図14 平成28年度冬季のPM2.5濃度(日平均値)とスコアの経時変化

真岡市役所で、石英ろ紙を用いて捕集した当該日1日分の試料を用いて、水溶性イオン成分を測定した結果を図15に示す。その結果、主成分は硝酸アンモニウムであり、二次生成による寄与が大きいと考えられた。一方で、真岡市の一般的な冬季に比べ、硫酸イオンと塩化物イオンが高めであり、3.1.3節の解析結果と類似していたため、平成27年12月23日19時の真岡市を起点とした後方流跡線解析を実施した(図16)。図16から、到達した気塊が大陸を経由したものであると考えられることから、経路近辺の都市と真岡市のPM2.5濃度の経時変化を検討し、その結果を図17に示す。真岡市で観測されたPM2.5

濃度に比べ、上海と瀋陽で観測されたPM2.5濃度は著しく大きかった。そのため、大陸から輸送された気塊の一部が、真岡市に到達し、PM2.5を構成する成分に影響を与えたものと考えられた。以上から、本事例は二次生成に加え、大陸から輸送された気塊による越境汚染の複合事例と考えられた。

今回抽出した6つの高濃度化事例は、いずれも二次生成に加え、燃烧系発生源又は越境汚染の影響を含んだものである。シミュレーションの汎用化には改良の余地があるものの、二次生成以外の寄与が大きい高濃度化事例を抽出するのに有用である可能性が見いだされた。

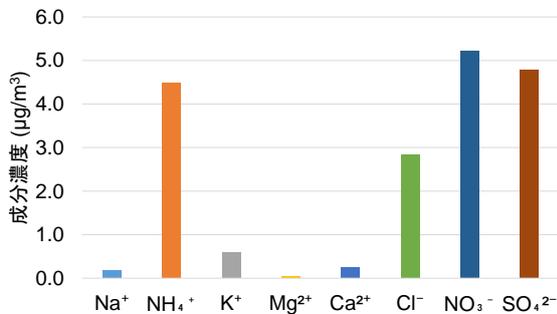


図15 平成27年12月23日の成分濃度

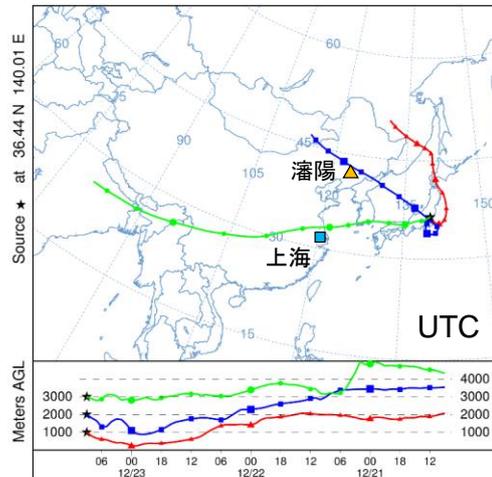


図16 平成27年12月23日19時の後方流跡線解析

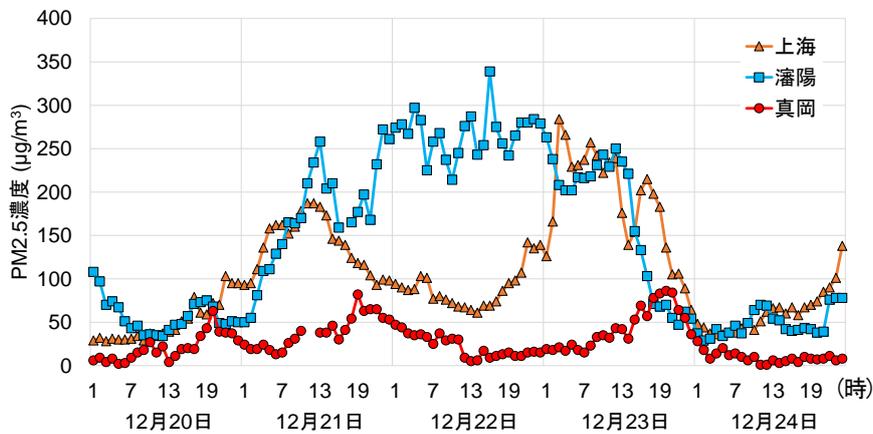


図17 上海、瀋陽、真岡市のPM2.5濃度の経時変化⁶⁾

4 まとめ

平成29年度の真岡市役所における高濃度日は、3日間であり、うち11月8日と12月24日の2日間を対象に解析を行った。いずれの事象についても、成分分析から燃烧系発生源の影響と安定した大気の中で二次生成が進行したことが示唆され、12月24日の事例については、これに加えて若干の越境汚染の影響も示唆された。

これまでの知見をもとにPM2.5濃度シミュレーションを作成した結果、二次生成に着目すると有効と思われる結果が得られ、実測値とシミュレーションでは、秋季を除き強い相関が得られた。また、シミュレーションとの差異をもとに高濃度事例を抽出すると、燃烧系発生源や越境汚染の寄与が大きい高濃度事象が抽出されたことから、シミュレーションは二次生成を反映した結果であると考えられた。今後は、PM2.5濃度予測に向け高時間分解能でのシミュレーションへと拡張することが、必要と考えられる。

5 参考文献

- 1) 平成28年度 大気汚染状況報告書, 環境省, 2018.
- 2) 栃木県保健環境センター年報, 22, 46-55, 2017.
- 3) 花火・ヨシ焼きによる汚染影響について, 大気環境学会誌, 第53巻 第3号 A48-49, 2018.
- 4) 平成27年度微小粒子状物質合同調査報告書 関東におけるPM2.5のキャラクタリゼーション(第8報), 2017.
- 5) 平成26年度微小粒子状物質合同調査報告書 関東におけるPM2.5のキャラクタリゼーション(第7報), 2016.
- 6) PM2.5モニタリングデータ(海外), 環境省
<http://www2.env.go.jp/pm25monitoring/index.html>