

栃木県における微小粒子状物質 (PM_{2.5}) の 成分及び高濃度化要因の解析 (第3報)

大気環境部

飯島 史周¹⁾ 佐藤 翔大 黒田 彩香²⁾ 齋藤 由実子³⁾ 石原島 栄二
(1 現都市整備課 2 現保健環境センター企画情報部 3 現保健環境センター水環境部)

1 はじめに

微小粒子状物質(PM_{2.5})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。PM_{2.5}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起源や、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。PM_{2.5}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PM_{2.5}濃度を把握するために、「平成30年度PM_{2.5}大気環境調査結果」¹⁾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²⁾。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。)がまだまだ発生しており、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PM_{2.5}を捕集し、水溶性イオン成分を分析し、高濃度化時に特異的又は特徴的な成分を調査している。併せて、PM_{2.5}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経時変化を比較検討することで、時間分解能を高めた解析を試みている。

その結果、本調査研究(第1報)³⁾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の「日射量」、「SO₂濃度」及び「Ox濃度」に着目した硫酸の生成反応スキームからPM_{2.5}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、「NOx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検討しており⁴⁾、PM_{2.5}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、これまでの知見に基づき、重回帰分析によるPM_{2.5}濃度の再現について検討したので報告する。

2 調査方法及び内容

2.1 県内のPM_{2.5}高濃度事例の把握

県内14箇所の常時監視地点¹⁾において、PM_{2.5}濃度、Ox濃度、SO₂濃度、NOx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。高濃度日及び注意喚起基準の指針値(日平均値70 μg/m³)を考慮し、時間値が70 μg/m³以上となった日を高濃度事例として抽出し、次の分析を実施した。

真岡市役所において高濃度日となった場合は、通年的に石英ろ紙を用いて、日単位で採取しているPM_{2.5}中の水溶性イオン成分の分析を実施した。また、PM_{2.5}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製のテープロ紙を用いて、PM_{2.5}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、このテープロ紙を用いて、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 重回帰分析によるPM_{2.5}濃度のシミュレーション

PM_{2.5}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、②PM_{2.5}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PM_{2.5}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が少ないことから、第2報では二次生成に着目したシミュレーションを実施した⁵⁾。その結果、二次生成を中心にした高濃度事象が良好に再現されたが、野焼きなどの燃焼系発生源や移流の影響による高濃度化は再現されていない。また、このシミュレーションは、PM_{2.5}濃度の変化を反映しているが、PM_{2.5}濃度自体は再現されていない。そこで、PM_{2.5}濃度を再現すべく、重回帰分析を用いて解析を行った。

解析は、真岡市役所を対象とし、平成28年度の調査結果を用いて、一時間値を対象とした。使用した因子は、気温、相対湿度、SO₂濃度、NOx濃度、NMHC濃度、3時間前のPM_{2.5}濃度、2時間前の日射量、風向(南北)、風向(東西)、風速、降水量、曜日、時刻の計13項目である。これらの因子及びPM_{2.5}一時間値の中に欠測又は異常値がある場合は、解析の対象から除外した。このうち風向(南北)(v_{NS})と風向(東西)(v_{EW})は、次式で計算した値を用いた。

$$v_{NS} = v_n \cos \theta_n$$

$$v_{EW} = v_n \sin \theta_n$$

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

また、相対湿度は60~80%なら1、それ以外を0とし、曜日は月曜日から順に1から7とし、休日ほど高い値となるようにした。時刻については、人間活動が盛んな時間に着目し、6時を1として、20時まで1時間ごとに1ずつ増加するように設定した。

解析には、Windows Excel 2013の分析ツールを使用した。

2.3 重回帰分析による数時間後のPM2.5濃度の再現

PM2.5濃度を予測することは、注意喚起をするうえで重要な因子である。ある時刻における因子の一時間値を用いて、数時間後のPM2.5濃度を再現することができれば、予測に向けた知見が得られると考え、重回帰分析による解析を実施した。使用した因子は平成28年度のデータとし、気温、相対湿度、SO2濃度、NOx濃度、NMHC濃度、PM2.5濃度、日射量、風向(南北)、風向(東西)、風速、降水量の計11項目である。また、相対湿度、風向(南北)、風向(東西)は、2.2節と同様に計算した値を用いた。

解析には、Windows Excel 2013の分析ツールを使用した。

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30年度の高濃度日数は0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%以下と極めて少ない日数であった。平成27年度以前に比べ、夏季における高濃度日が減少していることが考えられ、原因としては、例年に比べ、気温及び日射量が低く、大気中における二次生成が進行しにくい条件下であったこと³⁵⁾が考えられた。なお、このことは、全国的にも同様であったことが報告されている²⁶⁾。また、平成30年度に県内の複数地点(2地点)で高濃度日となったのは、4月4日であった。

一方、真岡市役所において、PM2.5の1時間値が70 µg/m³以上となった時間数は、年間を通じて3時間であり、最

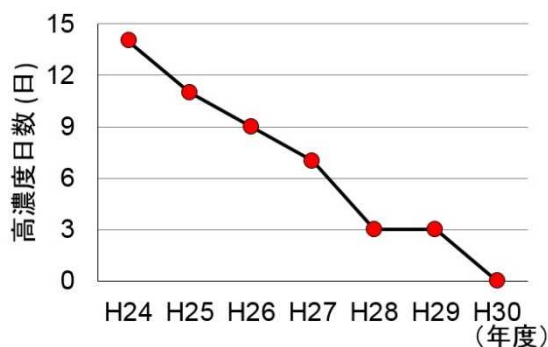


図1 真岡市における高濃度日数の推移

も高かったのは、平成30年12月22日20時の76 µg/m³であった。

3.1.2 平成30年4月4日の事例

平成30年4月1日から首都圏を中心にPM2.5濃度の上昇がみられ、2日には関東、中部及び近畿地方の広範囲で、3日から4日にかけては関東地方のほぼ全域でPM2.5濃度が上昇した⁷⁾。

県内でも、ほぼ全域でPM2.5濃度が約30 µg/m³となり、県南部を中心に濃度が上昇した。PM2.5濃度の経時変化を図2に、真岡市役所の成分濃度の経時変化を図3に示す。

硫酸イオン及びアンモニウムイオン濃度は、4月3日の10時頃から上昇し、4月4日の21時頃まで高い状態が続いた。この間、硫酸イオンは一般的な春季の約3倍、アンモニウムイオンは約2倍高かった。しかし、硝酸イオン濃度は、概ね同程度であり、変動は少なかった。加えて、2日から4日は、全国的に気温が高く、25℃以上の夏日を記録する地点もあったことが報告されている⁸⁾。これらのことから、原因物質である硫酸化合物の二次生成反応が進行しやすかったことが考えられた。

また、後方流跡線解析の結果を図4に示す。関東地方上空に4月4日の12時に到達した気塊の内、高度500~1,000 m付近の気塊は、中国地方北部及び近畿地方東部を通過し、到達した可能性が示唆された。以上から、本事例は、硫酸系二次生成粒子の反応が進行しやすい条件下で発生した、国内における広域汚染である可能性が示唆された。

3.1.3 平成30年12月22日の事例

平成30年12月22日は、県南地域でPM2.5濃度が上昇した。PM2.5濃度の経時変化を図5に、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濃度の上昇に合わせて、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上昇していた。一方、硫酸イオンは、一日を通して同程度の濃度であった。また、PM2.5濃度の上昇時に、塩化物イオン濃度が、一般的な冬季に比べて、高いことも特徴的であった。これらのことから、12月22日の高濃度事例においては、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考えられた。

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。

後方流跡線解析の結果を図8に示す。真岡市に18時に到達した気塊の内、高度2,000 m付近の気塊は、関東地方南部を経由して、北上し到達した可能性が示唆された。また、つくば市におけるエアロゾルの鉛直方向の分布図⁹⁾から、22日の18時頃から23日の未明にかけて、エアロゾル存在量の増加が確認されたことと併せて、本事象は燃焼系発生源を由来とする、関東地方を中心とした地域汚染の可能性が示唆された。

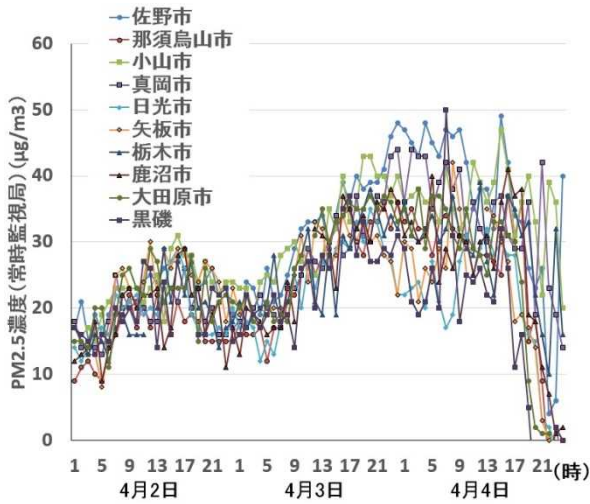


図2 県内におけるPM2.5濃度の経時変化

NOAA HYSPLIT MODEL
Backward trajectories ending at 0300 UTC 04 Apr 18
GFSG Meteorological Data

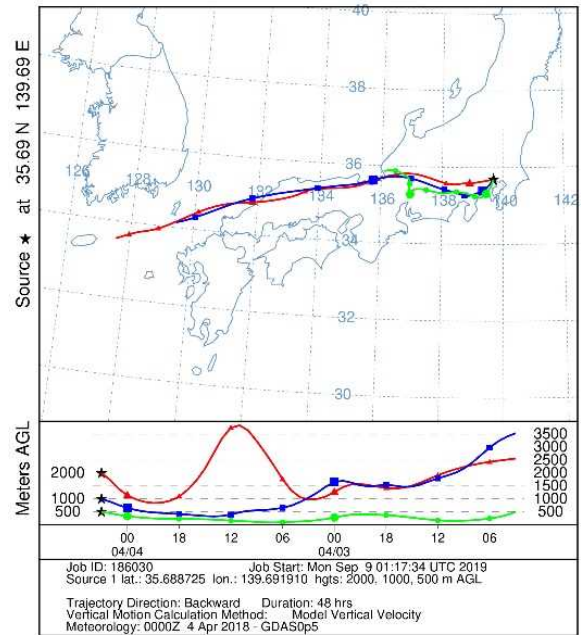


図4 後方流跡線解析結果

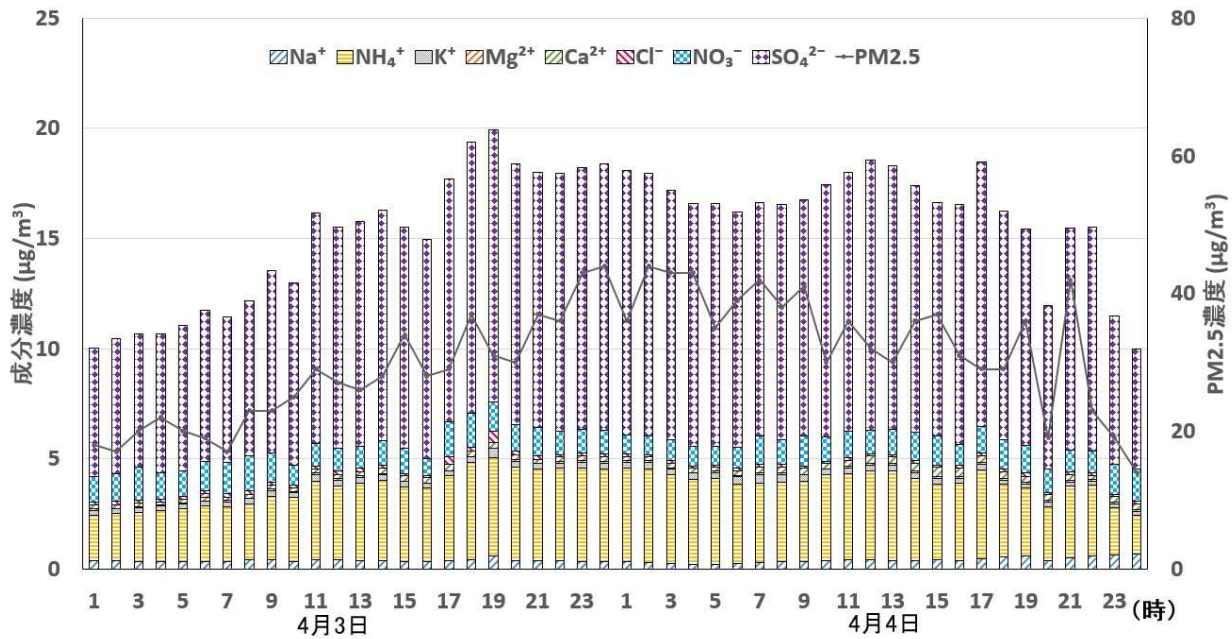


図3 真岡市役所における各成分濃度の経時変化

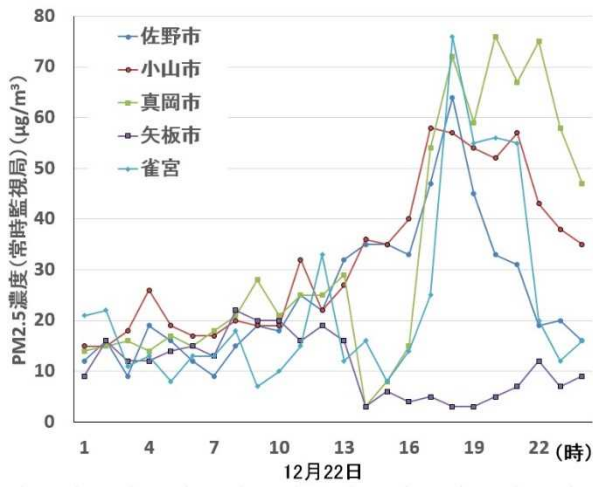


図5 県内におけるPM2.5濃度の経時変化

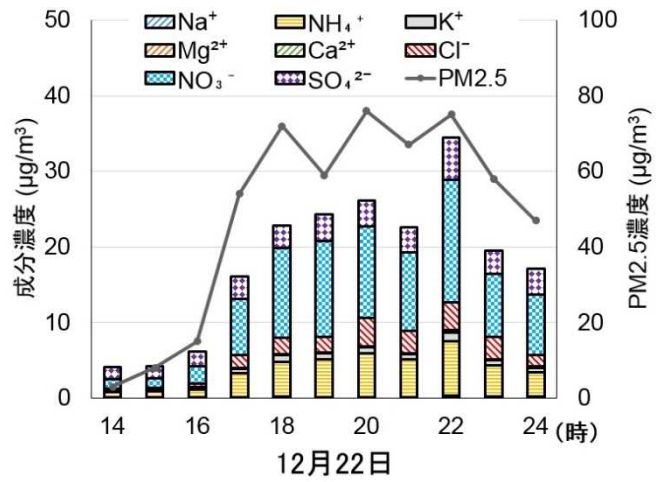


図6 真岡市役所における各成分濃度の経時変化

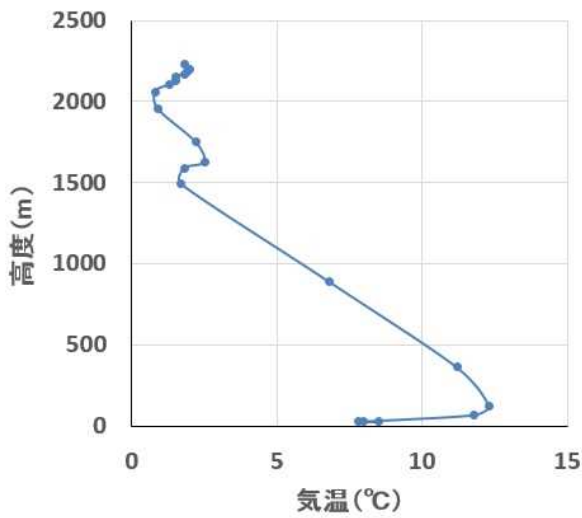


図7 つくば市館野上空の高層気温図

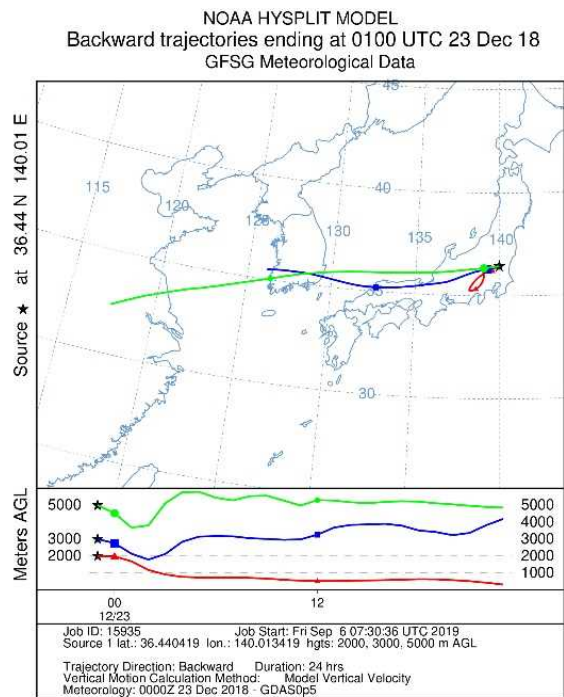


図8 後方流跡線解析結果

3.2 重回帰分析によるPM2.5濃度のシミュレーション

平成28年度の結果を対象に、重回帰分析により解析した結果、次式でPM2.5濃度が概ね再現された。

$$\begin{aligned}
 \text{PM2.5濃度}(\mu\text{g}/\text{m}^3) = & 161 \times [\text{NOx}(\text{ppm})] \\
 & + 6.3 \times [\text{NMHC}(\text{ppmC})] + 615 \times [\text{SO}_2(\text{ppm})] \\
 & + 0.022 \times [\text{気温}(\text{°C})] - 0.21 \times [\text{降水量}(\text{mm})] \\
 & + 0.89 \times [\text{相対湿度}] - 0.17 \times [\text{風向}(\text{南北})] \\
 & \quad (1 \text{ or } 0) \quad \quad \quad (v_{NS}) \\
 & + 0.20 \times [\text{曜日}] + 0.11 \times [\text{時刻}] \begin{cases} 6\sim 20 \text{時} : \text{時刻}-5 \\ (1\sim 7) \quad \quad \quad \text{それ以外} : 0 \end{cases} \\
 & + 0.69 \times [3\text{時間前のPM2.5濃度}(\mu\text{g}/\text{m}^3)] \\
 & - 0.51 \times [2\text{時間前の日射量}]
 \end{aligned}$$

そこで、PM2.5濃度の再現に対するそれぞれの因子の寄与量を、各因子のZ値で重回帰分析を行い、得られた係数の絶対値の和に占める各係数の割合として算出した(図9)。最も大きな寄与を示したのは3時間前のPM2.5濃度であり、次に原因物質の一つであるNOxであった。同時刻の気象条件や原因物質濃度などの大気雰囲気条件よりも3時間前のPM2.5濃度の寄与量が大きかったことから、一定濃度のPM2.5濃度を有する気塊が一定範囲に分布していると考えられ、ある時刻のPM2.5濃度が、数時間後のPM2.5濃度に比較的大きな影響を与えていることが示唆された。

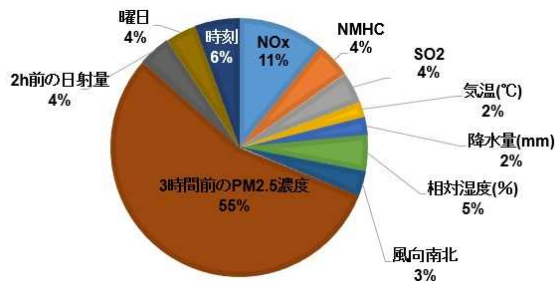


図9 PM2.5再現に占める各因子の寄与量

また、再現されたPM2.5濃度に対する観測値を図10に示す。再現値と観測値の間には $y = x$ に近い関係性が見られ、強い相関がみられた($R = 0.74$)。

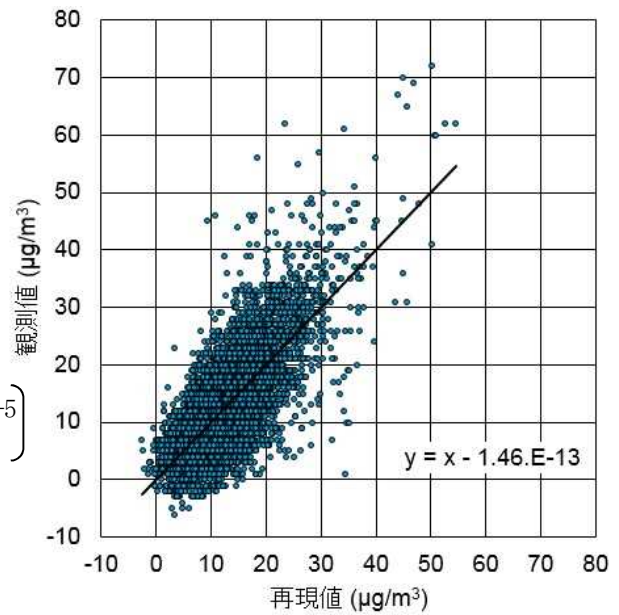


図10 PM2.5の再現値と観測値の比較

更に、解析結果をもとに、日平均値に変換した比較を図11に示す。観測値と再現値の間には良好な直線性が得られ、きわめて強い相関がみられた($R = 0.96$)。一方で近似直線は $y = x$ よりも傾きが大きく、再現値が過少に評価されていることが分かった。これは、野焼きなどの局所的な燃焼系発生源の影響や、汚染気塊の移流に係る因子を計算式に反映できていないためと考えられた。

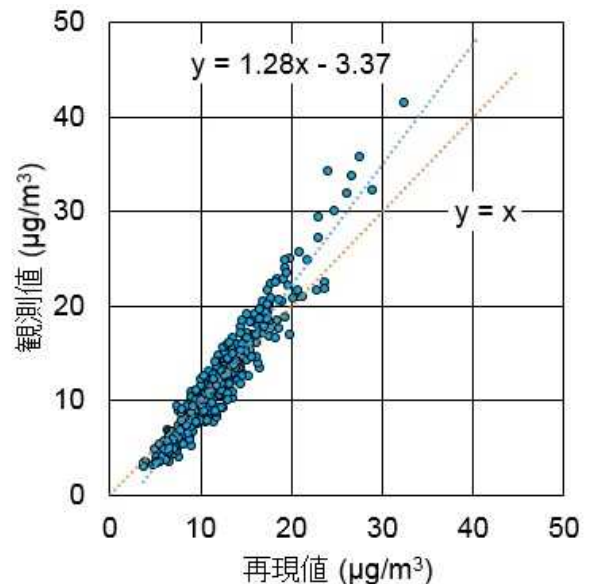


図11 日平均値換算後の再現値と観測値の比較

今後、更なる精緻化には、PM2.5の再現濃度の計算に、WRF/CMAQによる長距離輸送モデルも考慮した複合モデルが有用と思われる。

3.3 重回帰分析による数時間後のPM2.5濃度の再現

平成28年度の結果を用い、1～6時間後のPM2.5濃度を再現した結果、得られた係数を表1に示す。相関係数は、時間が経過するほど低くなる傾向となり、PM2.5濃度の係数も同様であった。一方で、SO₂は、時間が経過するほど係数が大きくなり、逆に1～2時間後の再現には不適切であったことから、反応時間を要する二次生成の特徴を反映していると考えられた。また、相対湿度は、直近の2時間でのみ回帰式に有用となったことから、二次生成に与える影響よりも、生成したPM2.5の成分が吸湿することによる影響が大きかったものと考えられた。風向は、南北、東西ともに負の係数が得られており、計算式において南風するとき風向(南北)は負に、西風するとき風向(東西)は負になるように設定していることから、南又は西方向から流入する風により、PM2.5濃度は正の影響を受けると考えられた。また、O_xとNO_xは、時間が離れるにつれ減少し、直近では正の係数であるが、時間が経過すると負の係数を示した。直近の正の係数については、大気中で硝酸が生成しやすい雰囲気有しているために、蒸気圧が高まり、粒子化が促進されやすい状況となるためと考えられた。

時間が離れるほど各因子との相関係数が小さくなることから、真岡市役所から離れた気塊による影響を考慮できていないと考えられ、ある程度長いスパンでの変動・輸送を考慮したモデル値を重回帰分析の要素の一つとすることで、精度の向上が期待される。

4 まとめ

平成30年度の真岡市役所における高濃度日は、0日間であった。複数の地点で高濃度日となった4月4日と、PM2.5濃度の1時間値が70 µg/m³を超過した12月22日の2日間を対象に解析を行った。成分分析の結果から、4月の事象については、光化学反応による二次生成によって、12月の事象については、燃焼系発生源の影響と安定した大気中で進行した二次生成により、高濃度となったことが示された。

これまでの研究結果から、PM2.5濃度は、前日のPM2.5濃度、湿度及びNO_x濃度が高かった日に高くなりやすいことが分かった。加えて、風速が小さい、降水がない、逆転層が形成されるなど、大気が安定している条件がそろった場合に、より高くなりやすくなっていた。また、週末や、一日のうちでも夕方になる傾向が見られた。

5 参考文献

- 1) 栃木県保健環境センター年報, 24, -, 2019.
- 2) 平成29年度 大気汚染状況報告書, 環境省, 2019.
- 3) 栃木県保健環境センター年報, 22, 46-55, 2017.
- 4) 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.
- 5) 栃木県保健環境センター年報, 23, 58-65, 2018.
- 6) 平成28年度 大気汚染状況報告書, 環境省, 2018.
- 7) そらまめ君ギャラリー, 環境省
<http://tenbou.nies.go.jp/gis/realtime/soramame.html>
- 8) 日々の天気図, 気象庁
<https://www.data.jma.go.jp/fcd/yoho/hibiten/index.html>
- 9) 東アジアライダーネットワーク (AD-Net) データセンター
<http://www-lidar.nies.go.jp/AD-Net/>

表1 一定時間経過後のPM2.5濃度を再現した回帰式の各係数のまとめ

	1h後	2h後	3h後	4h後	5h後	6h後
相関係数(R)	0.84	0.78	0.73	0.68	0.65	0.61
切片	1.5	2.7	4.1	4.7	5.5	6.4
ある時刻でのPM2.5(µg/m ³)	0.82	0.76	0.72	0.67	0.63	0.59
O _x (ppm)	18	19	-	-	-	-12
NO _x (ppm)	40	-	-77	-105	-115	-141
NMHC(ppmC)	-	-	-	-	-4.0	-3.3
SO ₂ (ppm)	-	-	455	601	799	1033
気温(°C)	-	-	0.023	0.029	0.026	0.034
降水量(mm)	-0.12	-0.16	-0.20	-0.24	-0.24	-0.27
日射量(MJ/m ²)	-0.26	-0.33	-0.29	-0.18	-	-
相対湿度	0.46	0.48	-	-	-	-
風向(南北)(m/s)	-0.19	-0.30	-0.34	-0.34	-0.32	-0.33
風向(東西)(m/s)	-0.19	-0.33	-0.34	-0.38	-0.44	-0.37