

ソース・レセプター解析による西日本・日本海沿岸 へのPM_{2.5} 越境輸送

桑原, 昇平
九州大学大学院総合理工学府 | 現: マツダ株式会社

鵜野, 伊津志
九州大学応用力学研究所 : 教授

王, 哲
九州大学応用力学研究所

板橋, 秀一
一般財団法人電力中央研究所

他

<https://doi.org/10.15017/1917875>

出版情報 : 九州大学応用力学研究所所報. 152, pp.1-11, 2017-03. 九州大学応用力学研究所
バージョン :
権利関係 :

ソース・レセプター解析による西日本・日本海沿岸への PM_{2.5}越境輸送

桑原 昇平*¹ 鶴野 伊津志*² 王 哲*² 板橋 秀一*³ 弓本 桂也*² 長田 和雄*⁴ 山本 重一*⁵

(2017 年 1 月 30 日受理)

Trans-boundary transport of PM_{2.5} to the western Japan and Japan Sea side regions based on the Source-Receptor Analysis

Shohei KUWAHARA, Itsushi UNO, Zhe WANG, Syuichi ITAHASHI, Keiya YUMIMOTO,

Kazuo OSADA, Shigekazu YAMAMOTO

E-mail of corresponding author: uno@riam.kyushu-u.ac.jp

Abstract

Long-term synergetic fine and coarse mode aerosol observations were analyzed at 1-h intervals at the Chikushi-campus of Kyushu University, Fukuoka, Japan, from December 2013 to March 2015. The GEOS-Chem chemical transport model, including dust and sea-salt acid uptake processes, was used for detailed analysis of observation data. Long-range anthropogenic aerosol trans-boundary transport events were observed during our analysis period, and the numerical model generally captured the observed time variation of PM_{2.5} aerosols. In order to have a better understanding of trans-boundary PM_{2.5} contribution, the model domain was divided into 15 major source regions, and emission intensity sensitivity analysis was conducted to show the detailed source-receptor relationship. We found the Japanese domestic contribution to annual averaged PM_{2.5} concentration at Fukuoka was 20 %, and another 80% were coming from outside Japan (19.6 % and 16.3% were coming from central north China region and Korea, respectively). From late fall to early spring when the PM_{2.5} concentration became higher, the trans-boundary fraction reached up to 90%, and this fraction was higher when the daily PM_{2.5} concentration exceeded the environmental standards of 35µg/m³.

Key words : PM_{2.5}, Source-Receptor Analysis, Trans-boundary air pollution, Chemical transport model

1. 緒言

微小粒子状物質 (PM_{2.5}) とは大気中に浮遊する粒子のうち、粒径が 2.5µm 以下の粒子の総称である。その成分には硫酸塩 (SO₄²⁻)、硝酸塩 (NO₃⁻)、アンモニウム塩 (NH₄⁺)、炭素成分 (Black carbon, Organic carbon)、無機元素などが含まれる。PM_{2.5} が及ぼす影響としては、視程の悪化や交通障害、日射の遮蔽などの物理的な影響のほかに、粒径が非常に小さく、肺胞の奥まで入り

やすいため、呼吸器系疾患や循環器系疾患のリスクを上昇させることがあげられる。

近年、中国では PM_{2.5} による深刻な大気汚染が頻発している。特に、2013 年 1 月には北京-天津域-河北省 (京津冀域) をはじめとする華北平原から上海にかけての広範囲において PM_{2.5} の高濃度スモッグが発生し、健康被害のほか、高速道路の封鎖や飛行機の欠航など交通にも大きな影響をもたらした。中国の風下に位置する日本国内においても越境大気汚染に関する過剰とも思える報道や健康影響への危惧から、大気汚染に対する関心が高まっている。

わが国では 2009 年に PM_{2.5} に対する大気環境基準 (年平均値 15µg/m³ 以下かつ日平均値 35µg/m³ 以下) が新たに設定され、現在は 700 カ所以上で PM_{2.5} の常

*1 九州大学大学院総合理工学府 (現:マツダ株式会社)

*2 九州大学応用力学研究所

*3 一般財団法人電力中央研究所

*4 名古屋大学大学院環境学研究所

*5 福岡県環境部

時監視が実施されるなど、汚染状況の把握が進められている^{1,2)}。しかしながら、2014年度のPM_{2.5}の環境基準達成率は、一般環境大気測定局では37.8%、自動車排出ガス測定局では25.8%にとどまっている³⁾。

PM_{2.5}による広域の大気汚染対策を検討する上では、その発生源毎の寄与を明らかにすることが重要な課題である。茶谷ら⁴⁾は2000年度を対象として化学輸送モデルCMAQを用いた感度解析を実施し、首都圏における粒子成分に関する発生源寄与(自動車、自動車以外の人為発生源、自然発生源、越境輸送の計4種)を推定している。その中で、PM_{2.5}の主成分でもあるSO₄²⁻は冬季で80%、年平均で58%が国外寄与であると報告している。また、茶谷ら⁵⁾はCMAQを用いた感度解析により、日本三大都市圏における2005年度のPM_{2.5}の発生源寄与を評価している。その結果、PM_{2.5}の国外寄与が年平均で大阪・兵庫圏では48%、愛知・三重圏では41%、首都圏では31%、東京23区では26%であると報告している。季節毎の特徴についても、夏季には国内寄与が増加し、春季と秋季には国外寄与が多いこと、冬季には大阪・兵庫圏、愛知・三重圏では国外寄与が高いが、東京23区や首都圏では国内寄与が高いことが示されている。これらの先行研究から判るようにPM_{2.5}については越境輸送の寄与が大きく、特に、大陸に近い九州から西日本域でその影響が顕著と考えられる。PM_{2.5}の発生源寄与に関する研究の多くは国内の発生源の種類に関するものであり、国外寄与に関する詳細な研究は少ない。Ikeda *et al.*^{6,7)}はCMAQによる2010年を対象とした感度解析から、日本国内への越境寄与を示している。例えば、長崎県福江島のPM_{2.5}濃度に対する発生源地域別(日本、朝鮮半島、中国東北部、中国中北部、中国中南部、中国南部;計6領域)の寄与は、年平均として7.8%が国内寄与、89.2%が国外寄与で、中国中北部が48.9%、中国中南部が22.3%、朝鮮半島が10.6%の寄与を示すと報告している。

JSPS 科学研究費基盤研究S「多波長ライダーと化学輸送モデルを統合したエアロゾル5次元同化に関する先導的研究(代表 鶴野伊津志)」の一環として、九州大学筑紫キャンパス周辺での1時間の高時間分解の連続したPM_{2.5}組成分析の測定が継続されているが、本研究では、その観測データに対して2013年12月から2015年3月を対象として、化学輸送モデルを用いたソース・レセプター解析(ソース・レセプター関係の推定)を実施した。ここで、ソース・レセプター関係とは、大気汚染物質の受容領域(レセプター)に対する汚染物質の発生源領域(ソース)の寄与であり、この関係が明らかになると、汚染物質の輸送過程や濃度分布の季節変動の解明が可能になり、観測データの解析や理解、環境改善の施策立案などに活用することができる。

以下では、東アジア地域の発源地域を国・地域、中国の省ごとに15領域に分割し、各領域の人為起源排出量の削減感度計算を行い、各領域の人為起源汚染物質の相対寄与率を示す。また、福岡市でPM_{2.5}の環境基準が超過した23日のケースについての発生源寄与率の特徴もまとめた。

2. 解析手法

2.1 化学輸送モデル

本研究では化学輸送モデルとしてGEOS-Chem ver. 9.2⁸⁾を使用した。モデル計算は、NASA GEOS-FP同化気象解析データを用いて、NO_x - O_x - VOC - HO_x - COの詳細な化学反応過程を含む全球2°×2.5°度格子の計算結果を境界条件にし、アジア域を0.5°×0.667°度格子で一方向ネストで計算した。モデルの計算領域の設定と基本計算条件は、Uno *et al.*⁹⁾と鶴野ら¹⁰⁾に報告したものと同一である。エアロゾルの粒径範囲は、1つの微小モードのみを扱っている。一方、鉱物性ダスト(以下、黄砂という)は、GEOS Chemでは4ピン(有効半径はそれぞれ0.73、1.4、2.4、4.5 μm)の計算が可能である¹¹⁾。モデルでは海塩(2ピン)の発生と輸送も扱われている。

モデル計算は、REAS 2.1 (Regional Emission inventory in Asia)¹²⁾の排出量推計を用いた。REASインベントリは2008年までしかないため、2009年以降はMEIC排出量推計(<http://www.meicmodel.org>)と2010年までのエネルギー統計を利用して外挿した結果を用いた。一方、NH₃の排出量は冬季に少なく、夏季に多い季節変化を示す。ここでは、このような季節変化を含むHuang *et al.*¹³⁾に一致するようにREASの結果を補正した(REASのNH₃には月変化はない)。

火山については国内の十勝岳(北海道)、樽前山(北海道)、雌阿寒岳(北海道)、有珠山(北海道)、浅間山(長野県、群馬県)、伊豆大島(東京都)、三宅島(東京都)、阿蘇山(熊本県)、九重山(大分県)、霧島山(宮崎県、鹿児島県)、桜島(鹿児島県)、薩摩硫黄島(鹿児島県)、諏訪之瀬島(鹿児島県)、国外のブルサン山(フィリピン、ルソン島)、マヨン山(フィリピン、ルソン島)がモデル内で考慮されている。これらの火山の排出量や高度に関する情報は、気象庁の火山活動解説資料¹⁴⁾が利用できる場合はそれに基づき設定した。

PM_{2.5}濃度のモデル計算値を求める際には、硫酸塩(SO₄²⁻)、硝酸塩(NO₃⁻)、アンモニウム塩(NH₄⁺)、黒色炭素(BC)、有機炭素(OC)、微小海塩、微小黄砂のそれぞれの質量濃度の総和から算出した。なお、OCについては、一次排出の有機物質(OM)の影響を加味する



Fig.1 Asian nest region, source regions for source-receptor analysis and observation sites.



Fig.2 Continuous Dichotomous Aerosol Chemical Speciation Analyzer (ACSA-12) at the roof of RIAM.

ために、OC の計算値の 1.7 倍¹⁵⁾ を $PM_{2.5}$ 濃度計算に用いた。Fig. 1 にモデルの計算領域(アジア域)、発生源感度解析用の領域設定、解析に用いた観測地点を示す (Table 1 参照)。

2.2 観測データ

モデル再現性の検証のために、以下の2つの観測データを使用した。エアロゾル化学成分連続自動分析装置 (Continuous Dichotomous Aerosol Chemical Speciation Analyzer, ACSA-12; 紀本電子工業製) を用い、1 時間毎の $PM_{2.5}$ 、 PM_{10} 質量濃度、および、硫酸塩 (SO_4^{2-}) 濃度、硝酸塩 (NO_3^-) 濃度、光学的元素状炭素濃度 (OBC、Optically measured Black Carbon)、水溶性有機化合物 (WSOC、Water Soluble Organic Compounds) 濃度の測定値を用いた。

ACSA-12 では、環境大気を PM_{10} インレットから導入し、1 時間毎に PM_f ($<2.5 \mu m$)、 PM_c ($2.5 \sim 10 \mu m$) をパーティクルインパクトで分粒した後、 $1m^3$ の大気中のエアロゾルをそれぞれフッ素樹脂フィルターに捕集している。硫

酸塩は硫酸バリウムを生成させ散乱光を比濁法で、硝酸塩と WSOC は紫外吸光光度法で、OBC は近赤外散乱法で計測している。ACSA による WSOC はシュウ酸 ($C_2O_4^{2-}$) 相当とされているが、通常測定される WSOC とは性質が異なることに留意する必要がある。ACSA-12 の測定方法の詳細は紀本ら¹⁶⁾ を参照されたい。測定は九州大学筑紫キャンパス(2014年9月-12月)と太宰府市の福岡県保健環境研究所(2013年12月-2014年8月、2015年1月-3月)で行った。Fig. 2には応用力学研究所屋上に設置された ACSA-12 を示す。

福岡以外の観測点については環境省大気汚染物質広域監視システム(通称そらまめ君、<http://soramame.taiki.go.jp/>)の $PM_{2.5}$ 質量濃度のデータを使用した。ただし、本研究の対象期間である2014年度については速報値である。モデル再現性の検証には、人為起源汚染の影響の少ない離島の佐渡(新潟県)、隠岐(島根県)、福江(長崎県)、宮古島(沖縄県)の $PM_{2.5}$ 測定データの1時間値を使用した。

観測データの日平均値は、1日の測定時間が20時間以上の測定日のみを対象に1時間値から算出した。月平均値は、日平均値の総和を測定日数で除した値とした。

2.3 ソース・リセプター解析の方法

$PM_{2.5}$ のソース・リセプター関係を推定するため、本研

Table 1 Source regions for sensitivity analysis

No.	Source Region	Country detail
1	Japan	Japan
2	Korea	Korea
3	Northeast China	Jilin, Heilongjiang
4	Liaoning China	Liaoning
5	Central N. China	Beijing, Tianjin, Hebei, Shandong
6	Central E. China	Shanghai, Jiangsu, Zhejiang
7	Taiwan	Taiwan
8	Central S. China	Fujian, Jiangxi
9	Central China	Henan, Anhui, Hubei
10	Shanxi China	Shanxi
11	Southwest China	Guangdong, Hunan, Hongkong, Macao, Hainan, Yunnan, Guizhou
12	Inland China	Qinghai, Gansu, Shaanxi, Inner Mongolia, Ningxia
13	Chuan-Yu China	Sichuan, Chongqing
14	Ocean - Ship	Ship exhaust gas
15	Others	Others than region 1 - 14

究ではエミッション感度法を用いた。エミッション感度法とは、あるソース領域における原因物質のエミッション(排出量)を変化させた差分からソース領域の寄与を求める手法である。

本研究では東アジア地域を Fig.1に示した15個の領域に分割した(Table 1 に領域名と具体的な国名・省名を示す)。モデル計算では、人為起源の排出量を図に示した各領域について、20%削減した感度解析を実施することで、各領域からの相対寄与を求めた。その際、従来のエミッション感度法のように各領域を1つずつ削減するのではなく、偏西風の主風向を考慮して、風下から風上にかけて順に領域を拡大していく手法を取った。これは、1つの領域のみの排出量を20%削減すると、その風上からの汚染物質がそこで希釈され、ガス・エアロゾル平衡が変化するのを防ぐためである。モデル計算では、火山の寄与を推定するため、火山からの排出量を100%除いた感度解析も行った。本研究では、

- [1] 全ての排出量を与える場合(標準計算、CNTL)
- [2] 計算領域全体の人為起源排出量を20%削減した場合(CNTL-20%)
- [3] 発生源地域(14領域)の人為起源排出量を20%削減した場合(Reg_i-20%)
- [4] 火山からの排出量を100%削減した場合

の合計17ケースのモデル計算(2013年12月1日から2015年3月31日まで)を実施した。

発生源地域別の人為起源の相対寄与は、以下のよう

$$\Delta C_{\text{reg},i-20\%} / (C_{\text{CNTL}} - C_{\text{CNTL}-20\%}) \times 100\% \quad (1)$$

ここで、 C_{CNTL} は標準計算の濃度($\mu\text{g}/\text{m}^3$)、 $C_{\text{CNTL}-20\%}$ は計算領域全体を20%削減した場合の濃度($\mu\text{g}/\text{m}^3$)を示し、 $\Delta C_{\text{reg},i-20\%}$ は以下のように算出する。

$$\Delta C_{\text{reg},i-20\%} = C_{\text{reg},1,2,\dots,i-1-20\%} - C_{\text{reg},1,2,\dots,i-20\%} \quad (2)$$

ここで、 $C_{\text{reg},1,2,\dots,i-20\%}$ は領域1から*i*を20%削減した場合の濃度を意味する。

一方、PM_{2.5}濃度に対する火山の寄与は以下のように算出する。

$$(C_{\text{CNTL}} - C_{\text{VOLC-OFF}}) / C_{\text{CNTL}} \times 100\% \quad (3)$$

ここで、 $C_{\text{VOLC-OFF}}$ は火山からの排出量を100%削減した場合の濃度である。

3. 化学輸送モデルの再現性

福岡、佐渡、隠岐、福江、宮古島におけるモデルと観測のPM_{2.5}日平均濃度、月平均濃度の変化をそれぞれ Figs. 3, 4 に示す。モデル計算の対象期間は2013年12月から2015年3月であるが、隠岐、佐渡、宮古島についてはデータ利用可能期間について比較した。図には、中国のアメリカ大使館・領事館で測定されたPM_{2.5}

の月平均値を上海と北京についての比較も示した。

Fig. 3 には、観測とモデルの線形回帰、相関係数R、一致性の尺度dを示す。ここで一致性の尺度dは以下で定義され、モデルと観測の一致性を示す(d=0は一致性がなく、d=1は高い一致性を示す)。

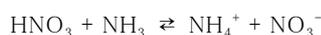
$$d = 1 - \frac{\sum_{i=1}^n (C_{\text{mod},i} - C_{\text{obs},i})^2}{\sum_{i=1}^n (|C_{\text{mod},i} - \bar{C}_{\text{obs}}| - |C_{\text{obs},i} - \bar{C}_{\text{obs}}|)^2}$$

Fig. 4 では、観測値を箱ヒゲ線図(1日平均値の10%, 25%, 50%, 75%, 90%タイル値)、モデル月平均値を実線で示している(平均値と50%タイル値は異なることがある)。図の右軸はモデル濃度、左軸は観測値を示している(軸の範囲は、Fig.3に示した回帰式でモデル値を変換した範囲である)。

PM_{2.5}の日平均濃度、月平均濃度ともにモデル計算値は観測値の変化傾向をよく捉えている。特に月平均濃度は、PM_{2.5}濃度が冬から春にかけて高く、夏に低い季節変化を概ね再現している。相関係数については、最も低い宮古島においても0.77以上で、モデル計算値は観測値と強い相関を示している。モデルの過小傾向が北京と上海にも見えるが、両地点とも季節変化の再現性はよい。線形回帰の結果は、国内について、y切片は4.83 - 8.64 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、回帰係数は0.74 - 0.98 となって、国内の最小は隠岐(0.78)で、福岡では0.98となって、相関は高い。一方、中国の2地点は回帰係数が1.5 - 1.7程度とモデルが60%程度過小、北京のy切片は16 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ と大きなバイアスがあり、モデルで表現できないローカル汚染が大きいと考えられる。モデルの一致性の尺度dについては、都市部である福岡では0.76と遠隔地の値に比べると低いが、有意な一致性を示している。

化学組成観測データの使える福岡について、PM_{2.5}の月平均の成分別の比較を行った。ACSA-12はPM_{2.5}中の硫酸塩(SO₄²⁻)、硝酸塩(NO₃⁻)、元素状炭素(OBC)、水溶性有機化合物(WSOC)の濃度が測定できる。しかしOCについては非水溶性有機化合物の寄与も多く、モデル計算値のOCと直接比較はできないが参考として比較した。

Fig. 5 にACSA-12による各成分の観測値(Fig. 4と同様に日平均値を箱ヒゲ線図で示した)とモデル計算値の月平均濃度を示す。SO₄²⁻、NO₃⁻、BCともに季節変動を概ね再現しているが、BCについては期間を通じて過小評価であった。NO₃⁻は2014年1, 2月に過大傾向が見られるが2015年の冬季の一致性は非常に高い。冬季には、気象条件によりNO₃⁻の越境輸送も起こることがItahashi *et al.*¹⁷⁾に明瞭に示されている。NO₃⁻の生成に関わる反応式は、



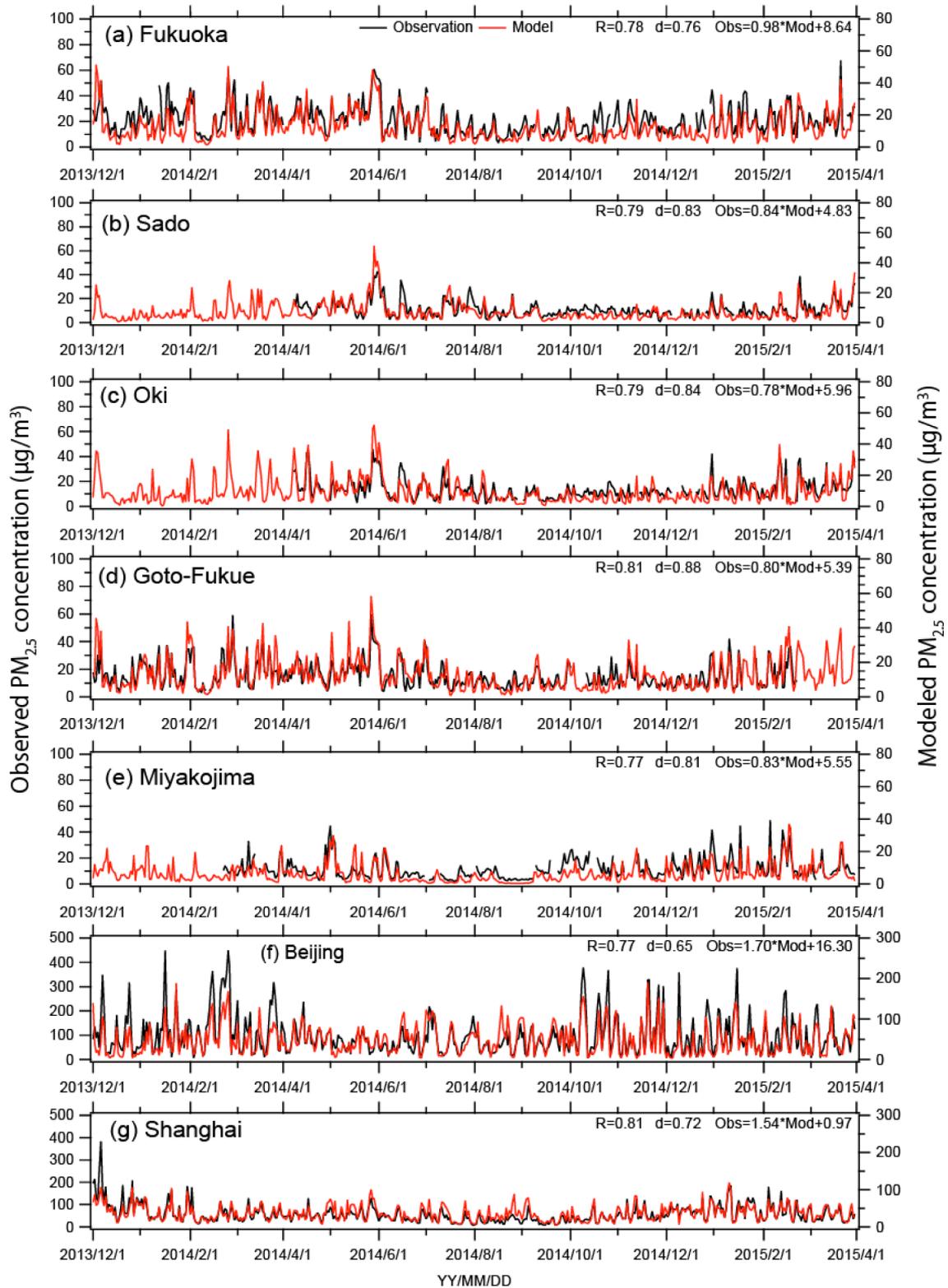


Fig. 3 Observed and modeled $PM_{2.5}$ concentration for (a) Fukuoka, (b) Sado, (c) Oki, (d) Goto-Fukue, (e) Miyakojima, (f) Beijing and (g) Shanghai. Left axis is for observation and right axis is for modeled concentration.

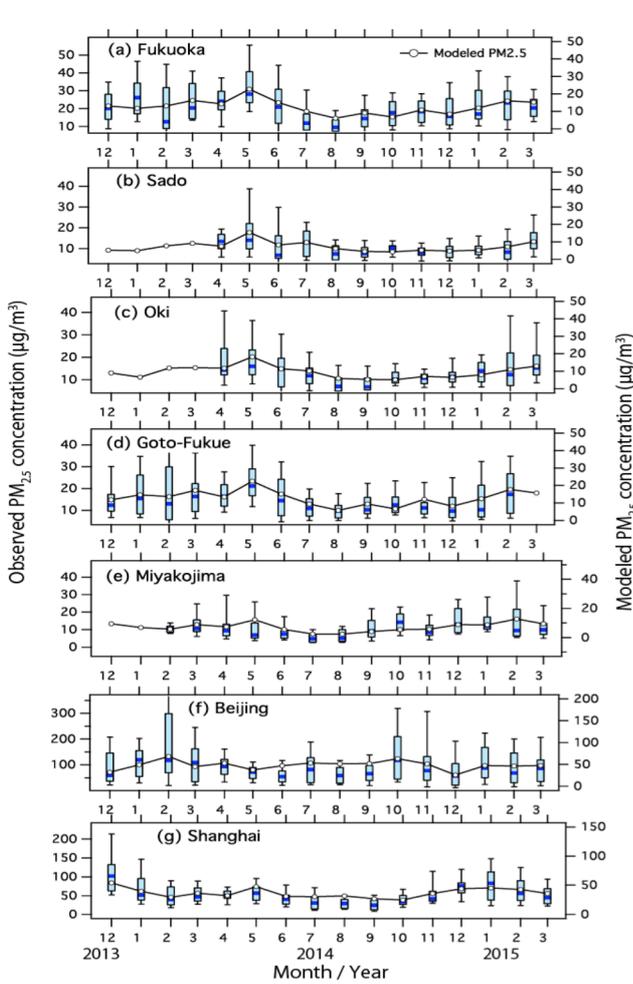


Fig. 4 Monthly average of observed and modeled PM_{2.5} concentration for (a) Fukuoka, (b) Sado, (c) Oki, (d) Goto-Fukue, (e) Miyakojima, (f) Beijing and (g) Shanghai. Observation is shown by box-plot (10, 25, 50, 75 and 90 percentiles of daily averaged value) and model results by line. Left axis is for observation and right axis is for modeled concentration.

と書ける。これから判るように、大気中のNH₃濃度が低いとHNO₃が十分に存在しているでもNH₄NO₃が生成されず、HNO₃ガスとNO₃⁻粒子の平衡関係がガス側にシフトする。この平衡は温湿度の影響を受けやすい(特に、高湿度の場合)。モデル計算では中国でのNH₃排出量を変化させた感度解析も行ったが、中国のNH₃排出量の大小で、越境されるNO₃⁻濃度が変化した。従って、冬季の年毎のNO₃⁻が過大や過小となる要因として、気象条件とNH₃排出量が影響していると考えられる。

BCは年平均濃度で比較すると、4割程度の過小であった。BCは発生源から直接大気中へと排出される一

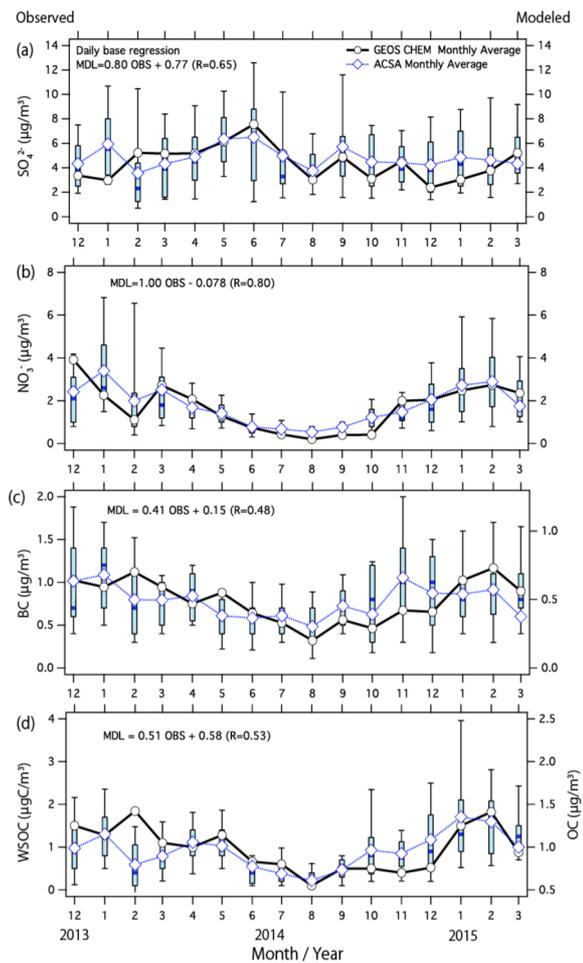


Fig. 5 Monthly averaged of aerosol concentration (a) SO₄²⁻, (b) NO₃⁻, (c) BC and (d) WSOC and OC. Observation (—○—) is shown by box-plot (10, 25, 50, 75 and 90 percentiles of daily averaged value) and model results (—◇—) by line. Left axis is for observation and right axis is for modeled concentration.

次粒子であり、大気中で他の物質と反応しにくいと、モデルにおける過小評価の要因としては排出量が過小であったことが一因として考えられる。

Fig. 5(d)には、ACSA-12のWSOCとモデルのOCを示している。WSOCは、板野ら¹⁸⁾に従ってµgC/m³単位に換算している。仮にACSAで測定されたWSOCがすべてシュウ酸とすると、µg/m³濃度はその3.75倍になり、モデル計算値は過小となる。OCには直接大気中に排出される一次粒子だけでなく、大気中の化学反応によって生成される二次粒子(Secondary Organic Aerosol, SOA)の寄与が大きい。SOAの二次生成過程は未解明の点が多く、OCの過小評価は化学輸送モデルに共通の課題となっている¹⁹⁾が、前述のようにWSOC測定値は水溶性有機物の目安と考えることが妥当であり、こ

では、絶対濃度の議論ではなくて、相対的な季節変化傾向の比較に重点をおきたい。季節変化としては、暖候期に濃度が低く、寒候期に濃度の増加を示し、この傾向は観測もモデルも一致している。その季節変化はBCとも類似している。これは、排出量の季節変化を反映した結果と考えられる。なお、ACSAによるWSOCは、2014年2月と2015年2月で濃度レベルが異なり、2014年2月はモデル結果と変化傾向が異なるが原因は不明である。

福岡市保健環境研究所で測定・分析された2013年度のPM_{2.5}の成分割合²⁰⁾では、SO₄²⁻の割合が最も高く、PM_{2.5}濃度の35%以上を占めているが、組成の同定できない部分が約20%程度存在する。GEOS Chemで計算しているPM_{2.5}成分の構成要素を中島らの測定結果から積み上げると、全体の約77%に相当する。また、モデルに含まれない成分に加えて、過小評価傾向であるBC、OCを考慮すると、図3、4に示したPM_{2.5}濃度としては、観測で測定されるPM_{2.5}質量重量の少なくとも3-4割程度の過小が生じると考えられる。

4. ソース・リセプター解析結果

4.1 発生源地域別の相対寄与

福岡におけるPM_{2.5}の日平均濃度(左軸)とその発源地域別の相対寄与(右軸)をFig. 6に示す。Fig. 7には、月平均濃度についての同様な結果を示す。Table 2には、季節ごとの領域寄与率を示す。領域寄与率は、期間平均濃度を先に計算し、標準計算と感度計算の差から求めた。時間毎の寄与率を先に計算し、それを期間平均とするとPM_{2.5}の低濃度時の国内寄与の影響が大きくなるため、両者は一致しない。図には、観測の月平均値(実線)とFig. 3に示した回帰式で補正されたモデル計算値(赤線)も示している。

Table 2の発生源地域別の相対寄与解析から、2014年度の年平均は、福岡におけるPM_{2.5}の人為起源のうち約20%は国内寄与であり、残りの約80%は越境輸送によるものであった。特に影響が顕著な地域としては、北京・河北省を含む中国中北部(Region 5)が19.6%、朝鮮半島(Region 2)が16.3%である。季節毎の特徴をみると、福岡におけるPM_{2.5}の濃度は冬季から春季に高く、夏季に低い。日本の相対寄与は冬季には9.7%、春季には12.9%、夏季には33.0%と、夏季に国内寄与が上昇するが、PM_{2.5}が高濃度となる冬季から春季については約9割が越境輸送によるものである。冬季から春季についてその内訳を見ると、季節を問わず影響の大きい中国中北部や朝鮮半島に加え、遼寧省(Region 4)や上海域を含む中国中東部(Region 6)、中国中央部(Region 9)の

寄与も高くなることが判る。また、朝鮮半島、中国東北部(Region 3)、遼寧省、中国中北部、中国内陸部(Region 12)の寄与は夏季よりも冬季に高いのに対し、中国中東部、中国中南部、中国南西部(Region 11)の

Table 2 Source relative contributions (%) to PM_{2.5} in Fukuoka. (Spring: March-May, Summer: June-August, Fall: September-November, Winter: December-February)

Source Region	Relative contribution to the total PM _{2.5} concentration (%)				
	Spring	Summer	Fall	Winter	FY. 2014
Region 1 Japan	12.9	33.0	27.2	9.7	20.7
Region 2 Korea	17.9	12.5	17.4	17.2	16.3
Region 3 N.E. China	5.7	2.7	4.8	7.1	5.1
Region 4 Liaoning	7.0	7.4	6.9	8.9	7.6
Region 5 Central N. China	24.0	15.2	18.5	20.7	19.6
Region 6 Central E. China	9.9	10.4	5.0	7.4	8.2
Region 7 Taiwan	0.1	0.5	0.1	0.1	0.2
Region 8 Central S. China	0.6	1.5	0.6	0.5	0.8
Region 9 Central China	7.9	4.2	5.5	10.3	7.0
Region 10 Shanxi	2.8	0.9	2.7	3.3	2.4
Region 11 S.W. China	1.3	2.8	0.9	1.2	1.6
Region 12 Inland China	5.5	1.9	4.8	8.5	5.2
Region 13 Chuan-Yu	0.4	0.1	0.7	0.7	0.4
China Total	65.2	47.6	50.6	68.8	58.0
Ocean ships	2.2	5.4	3.0	1.4	3.0
Others	1.8	1.5	1.8	2.9	2.0
Observed PM _{2.5} (μg/m ³)	27.0	16.2	17.6	21.2	20.1
Modeled PM _{2.5} (μg/m ³)*	26.1	18.8	17.4	22.7	21.3

* Model results were corrected by regression shown in Fig.3.

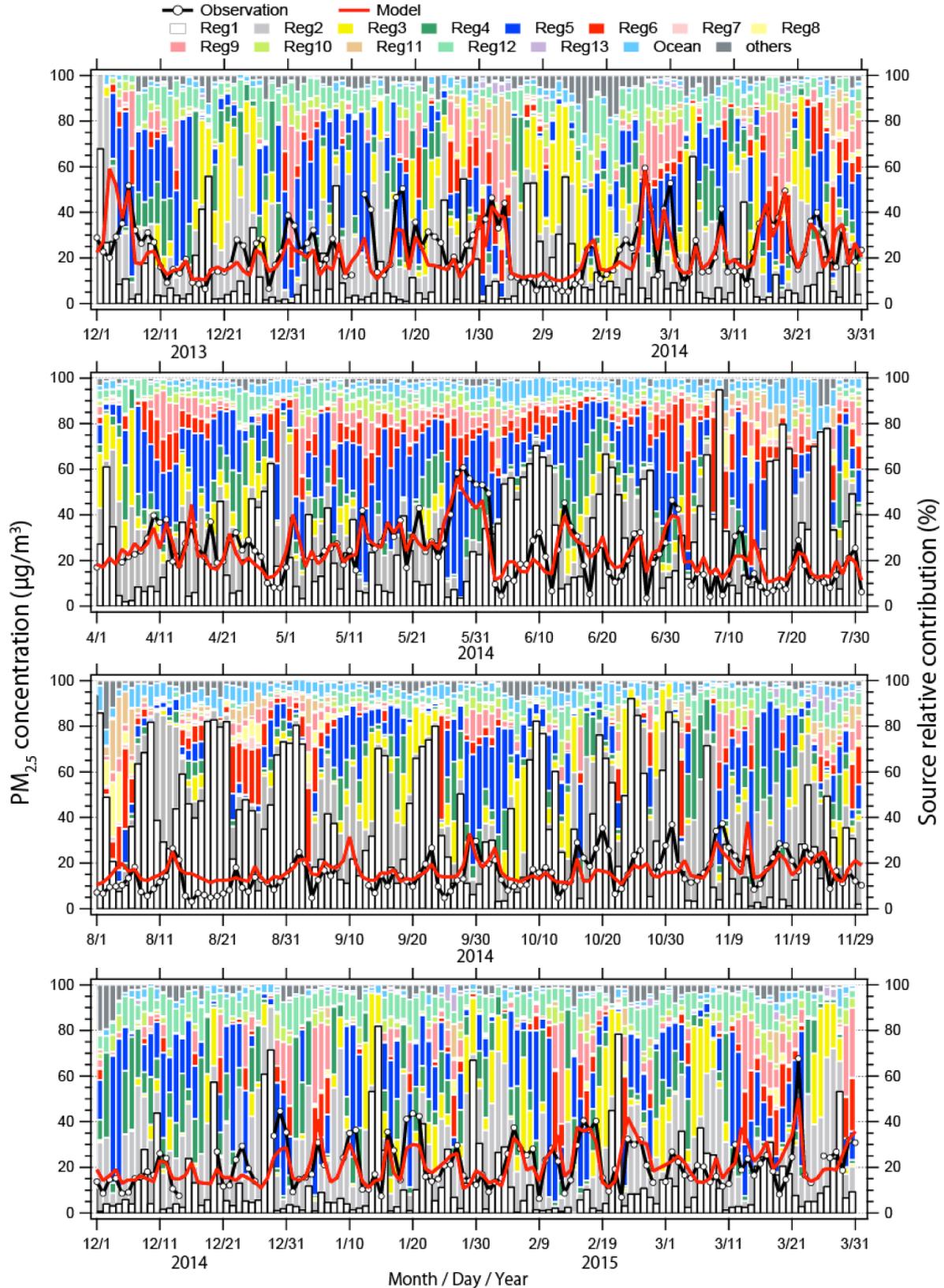


Fig. 6 Source-receptor results of PM_{2.5} at Fukuoka. Color bar indicate the source contribution from the region shown in Fig. 1. Solid line is the observed PM_{2.5}, and red solid line is the model simulated result (corrected by the regression shown in Fig. 3).

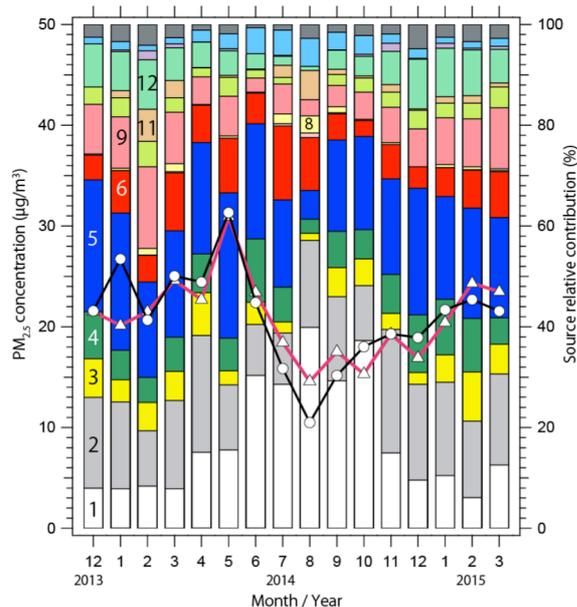


Fig. 7 Same as Fig. 6 but for monthly averaged source region contribution.

寄与は冬季に比べ夏季に高い傾向にある。これは季節風が冬季は大陸側から吹く北西風なのに対し、夏季は太平洋高気圧の縁をまわる南西風の影響を受けるためである。そのため、海洋船舶排出からの寄与も夏季に高く、冬季に低いことが判る。

Fig. 8(a) には、モデルで計算された $PM_{2.5}$ の年平均値(カラー)と国内寄与率(コンター)の地域分布を示す。朝鮮半島から日本付近の $PM_{2.5}$ 年平均濃度は、日本列島にそう形で南西から北東方向の帯状のコンターを示し、九州域では広域にわたって $9-12 \mu\text{g}/\text{m}^3$ である(福岡で線形回帰された換算濃度では $17-20 \mu\text{g}/\text{m}^3$ に相当)。一方、国内寄与は首都圏で最大で 40%以上に達するが、西日本・九州域では圧倒的に越境寄与の大きいことが自明である。東シナ海から九州・四国を東西に横断する北緯 33.6° ライン(福岡市に相当)にそった地上 $PM_{2.5}$ 濃度と国内寄与率を Fig. 8(b) に示すが、 $PM_{2.5}$ 濃度は九州から東シナ海へ西進するにつれてわずかに増加し、逆に、国内寄与は減少している。これは特に九州から東シナ海域では国内寄与の減少の分だけ越境寄与率が増加して、 $PM_{2.5}$ 濃度はほとんど変化しない構造となっているためと考えられる。これらの結果は Ikeda *et al.*⁷⁾の結果と整合的である。

Fig. 9 には福岡市でモデル計算値および観測値ともに環境基準(日平均値 $35\mu\text{g}/\text{m}^3$)を超えた 23 日間のみを抜き出して、日平均値(左軸)と相対寄与(右軸)を示

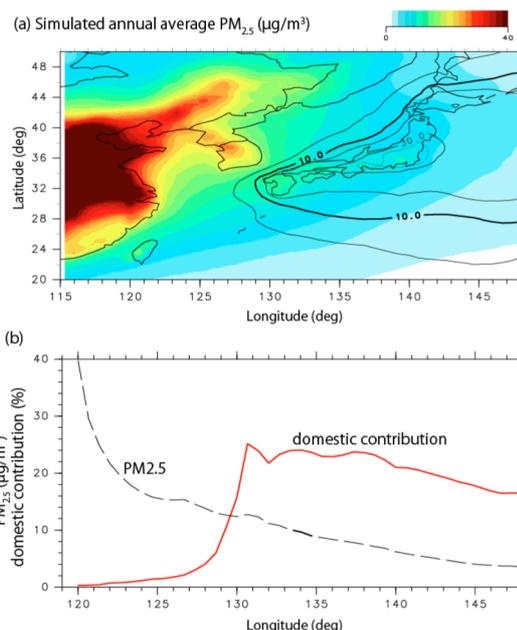


Fig. 8 (a) annual averaged $PM_{2.5}$ concentration (model vertical first layer at $z = 65\text{m}$; color) and domestic contribution % by line. (b) $PM_{2.5}$ and domestic contribution along the latitude of 33.6°N .

す。Table 3 には、その高濃度日のみを対象として平均相対寄与をまとめた。モデル計算値の環境基準達成の判断には、モデル計算値と観測値の回帰直線により修正されたモデル計算値を用いた。

$PM_{2.5}$ 高濃度時には、国内寄与の平均は 11.8%であるが、季節を問わず国外寄与が支配的であり、特に中国中北部の影響が約 30%と顕著であることが判る。冬季から春季の高濃度時には国外寄与が人為起源の寄与の 8 割から 9 割程度を占め、夏季の高濃度時には冬季から春季に比べて国内寄与が大きい傾向を示した。高濃度時の国外寄与の内訳について、冬季から春季の高濃度時には中国の中北部、中東部、中央部、南西部の寄与が特に大きくなっていることが判る。

これらの解析から、冬季から春季における $PM_{2.5}$ の高濃度現象(黄砂によるものを除く)は、この時期に支配的である朝鮮半島、中国東北部、中国中北部からの寄与に加え、中国中東部、中国中央部、中国南西部からの寄与が重合することによって引き起こされると考えることができる。

5. まとめ

本研究では、福岡で観測される $PM_{2.5}$ に対する越境輸送の影響をより詳細に把握し、 $PM_{2.5}$ のソース・リセブ

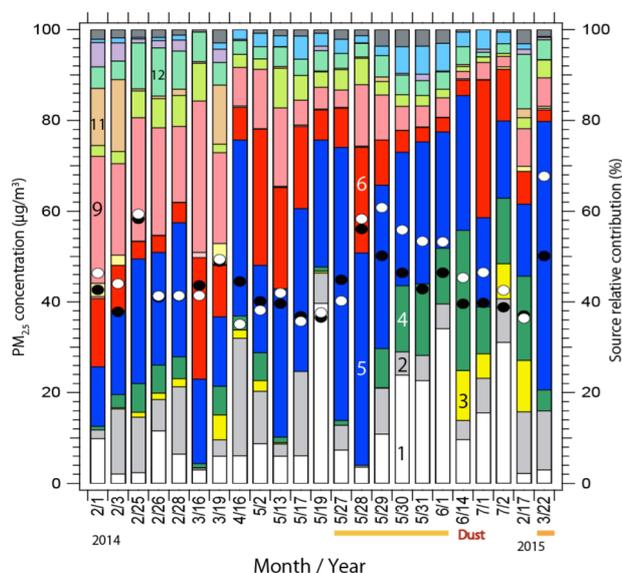


Fig. 9 Source-receptor results when the daily averaged environmental standard of PM_{2.5} level was exceeded 35 µg/m³ at Fukuoka (between January 2014 and March 2015). Color bar indicates the source region shown in Fig. 1. Solid circle is the observed PM_{2.5}, and open circle is the model simulated result (corrected by the regression shown in Fig. 3).

Table 3 Source relative contributions (%) to PM_{2.5} in Fukuoka when the daily averaged environmental standard was exceeded.

Source No.	%	Source No.	%
Region 1 Japan	11.8	Region 9 Central CH.	11.9
Region 2 Korea	8.8	Region 10 Shanxi	3.9
Region 3 NE China	2.2	Region 11 SW China	2.0
Region 4 Liaoning	7.6	Region 12 Inland China	5.4
Region 5 Central N. CH.	29.3	Region 13 Chuan-Yu	0.9
Region 6 Central E. CH.	11.2	China Total	75.1
Region 7 Taiwan	0.1	Ocean Ship	2.5
Region 8	0.5	Others	1.7

ター関係を明らかにすることを目的として、化学輸送モデル GEOS-Chem モデルによる解析を行った。以下では、本研究から得られた知見をまとめた。

モデル計算結果は福岡、佐渡、隠岐、福江、宮古島の合計 5 地点において観測された PM_{2.5} 濃度の時間変化、季節変化を概ね再現していた。しかし、モデルは観測値を過小評価する傾向があった。成分ごとの比較から、モデル計算値の BC、OC が過小であること、これは、モデルでは考慮されない成分が存在することがモデルの PM_{2.5} 濃度が過小となる要因として考えられた。

東アジア地域の発生源地域を国・地域、中国の省ごとに 15 領域に分割し、各領域の人為起源排出量の削減感度計算を行い、各領域の人為起源汚染質の相対寄与率を示した。福岡における年平均として PM_{2.5} 濃度に対する人為起源の寄与の内、約 80%は国外寄与であった。影響の大きな地域としては中国中北部の相対寄与が 19.6%、朝鮮半島の相対寄与が 16.3%であった。季節ごとの特徴をみると、PM_{2.5} が高濃度となる冬季から春季にかけては約 90%が国外寄与であり、朝鮮半島、および、中国東北部から中北部からの寄与が大きかった。

福岡における PM_{2.5} 濃度が環境基準を超えた 23 日間については、冬季から春季の高濃度現象は、この時期に支配的である朝鮮半島、中国東北部、中国中北部の寄与に加え、上海周辺地域や河南省などの中国中東～中央部、中国南西部の寄与が重合することによって引き起こされると考えられた。国内寄与は東日本側で高く、国外寄与は大陸に近い西日本側で高かった。発生源地域別の特徴を比べると、中国東北部は日本海側の地域に、中国中南部は東シナ海側の地域に、中国中北部の影響は全域に大きな影響を及ぼすことを示した。季節ごとの変化としては、夏季には国内寄与が高く、冬季から春季には、国外寄与が高いことが判った。

謝辞

本研究は、第 1 著者の修士論文の結果をもとに加筆・解析を加えたものである。研究の一部は、JSPS 科研費基盤研究 S (MEXT/JSPS KAKENHI Grand Number JP25220101) の研究として行った。また、九州大学応用力学研究所の全国共同利用研究のサポートも受けた。

参考文献

- 1) 環境省：微小粒子状物質による大気汚染に係る環境基準について (2009).
- 2) 環境省：微小粒子状物質 (PM_{2.5}) に関する情報 (2015a).
- 3) 環境省：平成 25 年度大気汚染状況について

- (2015b).
- 4) 茶谷聡, 森川多津子, 芦崎翠, 平井洋, 國見均: わが国の汚染物質濃度に対する発生源・越境輸送の感度解析, 大気環境学会誌, **43**, 79-91 (2008).
 - 5) 茶谷聡, 森川多津子, 中塚誠次, 松永壮: 3次元大気シミュレーションによる2005年度日本三大都市圏PM_{2.5}濃度に対する国内発生源・越境輸送の感度解析, 大気環境学会誌, **46**, 101-110 (2011).
 - 6) Ikeda, K., Yamaji, K., Kanaya, Y., Taketani, F., Pan, X., Komazaki, Y., Kurokawa, J., Ohara, T.: Sensitivity analysis of source regions to PM_{2.5} concentration at Fukue Island, Japan, *Journal of the Air & Waste Management Association*, **64**(4), 445-452 (2014).
 - 7) Ikeda, K., Yamaji, K., Kanaya, Y., Taketani, F., Pan, X., Komazaki, Y., Kurokawa, J., Ohara, T.: Source region attribution of PM_{2.5} mass concentrations over Japan, *Geochemical Journal*, **49**, 185-194 (2015).
 - 8) Bey, I., Jacob, D. J., Yantosca, R. M., Logan, J. A., Field, B. D., Fiore, A. M., Li, Q., Liu, H. Y., Mickley, L. J., Schultz, M. G.: Global modeling of tropospheric chemistry with assimilated meteorology: Model description and evaluation, *J. Geophys. Res.*, **106**, 23073-23096 (2001).
 - 9) Uno, I., N. Sugimoto, A. Shimizu, K. Yumimoto, Y. Hara, and Z. Wang: Record heavy PM_{2.5} air pollution over China in January 2013: Vertical and horizontal dimensions. *SOLA*, **10**, 136 - 140, doi:10.2151/sola.2014-028 (2014).
 - 10) 鶴野伊津志, 弓本桂也, 原由香里, 板橋秀一, 金谷有剛, 杉本伸夫, 大原利眞: 何故2013年冬季の中国でPM_{2.5}が高濃度になったか? 大気環境学会誌, **48**, 274-280 (2013).
 - 11) Fairlie, T. D., Jacob, D.J., Park, R.J.: The impact of transpacific transport of mineral dust in the United States, *Atmos. Environ.*, **41**, 1251-1266 (2007).
 - 12) Kurokawa, J., Ohara, T., Morikawa, T., Hanayama, S., Greet, J.-M., Fukui, T., Kawashima, K., Akimoto, H.: Emissions of air pollutants and greenhouse gases over Asian regions during 2000-2008: Regional Emission inventory in ASia (REAS) version 2, *Atmos. Chem. Phys.*, **13**, 11019-11058 (2013).
 - 13) Huang, X., Y. Song, M. Li, J. Li, Q. Huo, X. Cai, T. Zhu, M. Hu, and H. Zhang: A high-resolution ammonia emission inventory in China, *Global Biogeochem Cycles*, **26**, GB1030 (2012).
 - 14) 気象庁: 各火山の活動状況 (2014).
 - 15) Aiken, A. C., DeCarlo, P. F., Kroll, J. H., Worsnop, D. R., Huffman, J. A., Docherty, K. S., Ulbich, I. M., Mohr, C., Kimmel, J. R., Sueper, D., Sun, Y., Zhang, Q., Trimborn, A., Northway, M., Ziemann, P. J., Canagaratna, M. R., Onasch, T. B., Alfarra, M. R., Prevot, A. S. H., Dommen, J., Duplissy, J., Metzger, A., Baltensperger, U., and Jiminez, J. L.: O/C and OM/OC ratios of primary, secondary, and ambient organic aerosols with high-resolution time-of-flight aerosol mass spectrometer, *Environ. Sci. Tech.*, **42**, 4478-4485 (2008).
 - 16) 紀本英志, 植田明子, 辻本賢太, 三谷洋一, 戸矢崎保雄, 紀本岳志: 大気エアロゾル化学成分連続自動分析装置の開発, クリーンテクノロジー, **23**, 49-52 (2013).
 - 17) Itahashi, S., Uno, I., Osada, K., Kamiguchi, Y., Yamamoto, S., Tamura, K., Wang, Z., Kurosaki, Y., and Kanaya, Y.: Nitrate transboundary heavy pollution over East Asia in winter, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, doi:10.5194/acp-2016-879 (2016).
 - 18) 板野泰之, 植田明子, 辻本賢太, 紀本岳志: PM_{2.5}質量および成分の時間値連続測定に基づく大阪市の汚染特性の解析、第53回大気環境学会年会講演演要旨集p. 495, 3F0926 (2012).
 - 19) 森野悠, 茶谷聡, 速水洋, 佐々木寛介, 森康彰, 森川多津子, 大原利眞, 長谷川就一, 小林伸治: 大気質モデルの相互比較実験によるO₃、PM_{2.5}予測性能の評価, 大気環境学会誌, **45**, 212-226 (2010).
 - 20) 中島亜矢子, 木下誠, 大平良一, 宇野映介, 田中衛: 福岡市におけるPM_{2.5}成分組成について, 第56回大気環境学会年会 要旨集, 479 (2015).