

新潟巻および周辺局のPM2.5高濃度イベントの空間分布解析

Spatial distribution of the high concentration event of PM2.5 in Niigata-Maki and the surrounding monitoring sites

弓場彬江*, 高橋克行, 吉村有史, 柴崎みはる, Phan Kim Oanh, 佐藤啓市

Akie Yuba*, Katsuyuki Takahashi, Yuji Yoshimura, Miharu Shibasaki, Phan Kim Oanh, Keiichi Sato

【和文要約】

PM2.5濃度は減少傾向にあるが、高濃度となる事例は依然として発生している。PM2.5高濃度事例における広域的な影響と局所的な影響を明らかにするため、カーブフィッティング法を用いて、新潟巻および周辺局のPM2.5高濃度イベントを抽出し、汚染の空間分布を解析した。PM2.5高濃度イベントが2日以上継続する場合、周辺の測定局においても最大80%の確率で高濃度となっていた。一方、PM2.5高濃度イベントが1日のみの場合、周辺局が高濃度となっている事例は30%程度で、周辺局とのつながりが薄く、測定局周辺での生成・排出による影響が強い可能性が示唆された。PM2.5高濃度イベント時の風向とPM2.5およびPM2.5中のSO₄²⁻、NO₃⁻濃度の解析から、PM2.5、SO₄²⁻は風向による差が少ないが、NO₃⁻高濃度イベントが1日のみの場合、特に西南西からの輸送時に濃度が高くなる傾向が見られた。

キーワード：PM2.5、高濃度事例解析、長距離輸送、空間分布

1.はじめに

PM2.5はSO₄²⁻、NO₃⁻、NH₄⁺などの無機イオン、元素状炭素や有機炭素、金属などの成分から構成され、高濃度下では、呼吸器及び循環器疾患のリスクが増加するなどの健康影響が懸念されている¹⁻³⁾。日本ではPM2.5の環境基準として1年平均値が15 μg/m³以下、かつ1日の平均値が35 μg/m³以下であることが定められている。環境基準に加えて、健康影響が出現する可能性が高くなると予測される濃度水準を法令に基づかない注意喚起のための暫定指針値として定められている⁴⁾。当日5:00-7:00または5:00-12:00のPM2.5 1時間値を基にPM2.5が高濃度となる可能性を知らせる注意喚起が実施されている。

PM2.5の長期測定は、2021年度時点で常時監視局の一般環境大気測定局(一般局)858局、自動車排出ガス測定局(自排局)240局において行われており、PM2.5質量濃度の1時間値が得られている⁵⁾。

2021年度は常時監視局全測定局の年平均値は一般局で8.3 μg/m³、自排局で8.8 μg/m³と報告されており、2013年度以降減少傾向にある⁵⁾。国内におけるPM2.5対策だけでなく、中国などの東アジアにおける排出規制による濃度減少、それに伴う日本への越境輸送による影響が減少したと考

えられる⁶⁾。しかし、PM2.5濃度の日平均値が35 μg/m³を超える日もあり、PM2.5高濃度事例の解析は引き続き必要と考える。

本研究では、国設新潟巻測定局(37°48'32.436"N, 138°51'10.367"E)におけるPM2.5高濃度時における、広域的な影響を周辺局との比較から、局所的な影響について測定局の気象条件から把握するため解析を行なった。

2.研究方法

2.1 カーブフィッティング法によるPM2.5高濃度抽出

2.1.1 解析対象

東アジア酸性雨モニタリングネットワーク (Acid Deposition Monitoring Network in East Asia: EANET) の一つである、新潟巻測定局 (37°48'33"N, 138°51'09"E) においてPM2.5自動測定機 (紀本電子製、PM-712) を用いて測定されているPM2.5質量濃度を解析対象とした。新潟巻測定局と周辺局との相関を見るため、周辺局として新潟県内常時監視局の一般局16局 (東山の下、巻、大山、太郎代、山木戸、松浜、市役所、坂井輪、亀田、白根、新発田、新津、糸魚川、深谷、佐渡、六日町) および自排局1局 (城岡) のPM2.5質量濃度も解析の対象とした (図1)。



図1 The location of EANET monitoring site named Niigata-Maki (red), Ambien air pollution monitoring station (blue), and Roadside air pollution monitoring station (navy) in Niigata Prefecture.

新潟巻にて測定されているPM2.5成分分析濃度 (SO_4^{2-} , NO_3^-) についてもPM2.5高濃度時の特徴を解析するため解析の対象とした。

分析の対象期間は、新潟巻及び常時監視局のデータが公開されている2017年4月から2022年3月までとした。

2.1.2 PM2.5高濃度事例の抽出

新潟巻で得られたPM2.5の1時間平均値を用いて日平均値を求め、カーブフィッティング法を用いてベストフィット曲線を作成した⁷⁾。今回の解析では長期変動のカットオフ周期を24、36、48、60ヵ月、季節変動周期を2、3、4、6ヵ月と変動させた中で、外れ値として抽出される事例が最も少なくなる組み合わせとして長期変動周期を36ヵ月、季節変動周期を2ヵ月を得た。得られたベストフィット曲線とPM2.5日平均値との残差のうち、解析期間全体の残差の標準偏差に対して3倍以上の残差を持つPM2.5日平均値を外れ値とし、高濃度事例とした。

2.2 PM2.5高濃度事例の解析

2.2.2 高濃度イベント時の周辺分布の解析

PM2.5が高濃度になる場合、排気ガスなど一次排出量の増加、 $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ など二次生成粒子の増加、新潟巻において観測されたPM2.5の高濃度イベントが汚染気塊の輸送により発生したものである場合、新潟巻だけではなく周辺にも影響が及んでいると考えられる。そこで、新潟巻の周辺局として2.1.1に示した17局に対してもカーブフィッティング法による高濃度イベントの抽出を行ない。新潟巻局において

高濃度イベントとして切り出された日と同じ日に、周辺局においても高濃度イベントが観測されたか評価することで、1回の高濃度イベントにおける汚染の広がりを評価した。

2.3 高濃度イベント時の近傍からの影響解析

PM2.5高濃度イベントが周辺の排出源からの影響を強く受けている場合、特定の風向からの輸送があった際にPM2.5が高濃度となると考えられる。そのため、高濃度イベント時とそれ以外の通常時のPM2.5質量濃度及びPM2.5中の成分濃度について、風向別の濃度分布を確認し、局地的な影響の有無を確認した。

3. 研究成果

3.1 高濃度イベントの抽出結果

新潟巻局における2017年4月から2023年2月の日平均値を用いて高濃度イベントを抽出した結果、図2の赤×で示すように、合計67日が高濃度イベントとして抽出された。

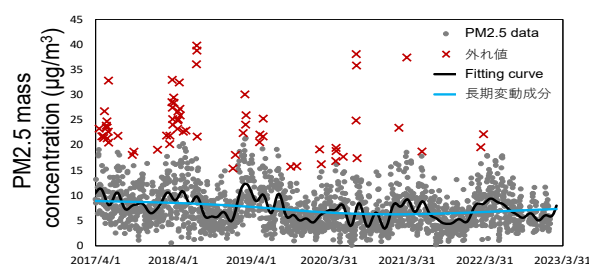


図2 Daily averaged concentration of PM2.5 at Niigata-Maki (gray dot), best-fit curve (black line), long-term trend (blue line), and outlier (red cross) based on the curve fitting method.

高濃度イベントは主に3月から5月の春季に多い傾向があり、10月から2月は少ない傾向がみられた(図3)。2017年から2021年にかけて、高濃度イベントが減少傾向にある。高濃度イベントの継続日数に着目すると、高濃度イベントが1日のみの事例は、2017年から2021年の年ごとの合計日数として6日、5日、8日、4日、3日となり、2021年まで複数回観測されている。一方、高濃度イベントが2日継続した事例の回数および延べ日数は、2017年に2日(1回)、2018年に6日(3回)、2019年に4日(2回)、2020年以降は無しとなった。高濃度イベントが3日以上継続した事例の延べ日数および連続した高濃度日を1回とした場合の回数は、年ごとの差が大きく、2017年は計8日(2回)、2018年は計13日(3回)、2020年は計6日(2回)観測されたが、2019年

と2021年には3日以上続く高濃度イベントはなかった。高濃度イベントが2日または3日以上となる事例は、2018年以降減少傾向にある。

新潟巻の平均的なPM2.5濃度変動の範囲からPM2.5濃度が大きく逸脱する場合、春季に多い大陸からの長距離汚染の影響を受けている可能性が考えられる。東アジアでのPM2.5対策が広く行われるようになり、越境輸送の影響が減少し、高濃度イベントが発生しにくくなっていると考えられる⁶⁾。

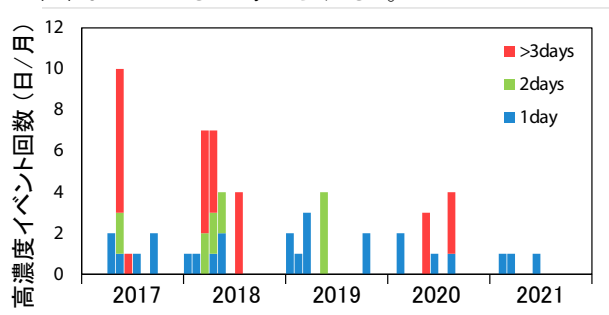


図3 Number of high PM2.5 concentration event observed at Niigata-Maki, which high PM2.5 continue on 1 day (blue), two days (green), and more than three days (red).

3.2 新潟巻PM2.5高濃度時の周辺局との比較

新潟巻において観測された高濃度イベントが、局所的か広域的な汚染の広がりなのかを評価するため、新潟巻および、新潟県内の常時監視局のうちPM2.5質量濃度を測定している17測定局の2017年4月1日から2020年3月31日までの4年分のPM2.5質量濃度データを用い、新潟巻と同様に高濃度イベントの抽出を行なった。

新潟巻でPM2.5高濃度イベントが広域的な影響によるものである場合、近傍の測定局も同じく高濃度となると考えられる。新潟巻のPM2.5高濃度イベントとして切り出された同日に、他の測定局においても同じく高濃度イベントが観測されたかを解析した。新潟巻の高濃度イベントが2日以上になる場合と1日のみの場合に分けて解析を行なった。新潟巻の高濃度イベントの継続が1日のみの場合、周辺の測定局のうち約30%で同日に高濃度イベントが観測された。新潟巻の高濃度イベントが2日以上継続した場合、1日ごとに新潟巻と周辺局で同時に高濃度となっているかを確認した。新潟巻の高濃度イベントが3日以上継続している事例では、新潟市内の測定局の80%程度で同じ期間に高濃度イベントが観測された(図4)。

継続的なPM2.5高濃度が観測された場合、越境汚染などのような広範囲に影響があるイベントであり、

1日以下の高濃度イベントは局所的な発生源からの影響の可能性が考えられる。

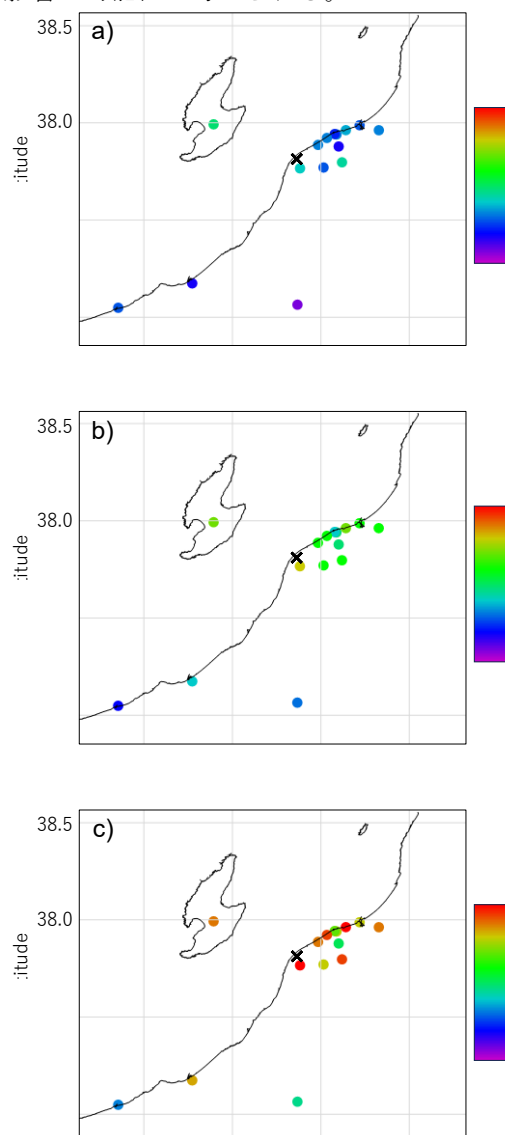


図4 Frequency of cases that high PM2.5 concentration events were simultaneously observed at Ambient air pollution monitoring stations in Niigata, when the high PM2.5 concentration event was occurred at Niigata-Maki (black cross). a) in the case that the high PM2.5 concentration event was observed one day, b) in the case that the high PM2.5 concentration events last 2 days, c) in the case that the high PM2.5 concentration event last more than 3 days.

3.3 新潟巻PM2.5高濃度時の近傍からの影響

3.2.では高濃度イベントが1日のみであった場合、局所的な発生源からの影響が高い可能性が示された。新潟巻の風向とPM2.5および同局で測定されているPM2.5中の SO_4^{2-} 、 NO_3^- 濃度との相関を、高濃度イベント以外の通常時、1日のみの高濃度イベントおよび複数日の高濃度イベントで比較し、高濃度イベントの

特徴を確認した。

高濃度イベントが2日以上継続する場合、通常時と比較して西、西南西方向からの輸送が増える傾向にあった(図5)。

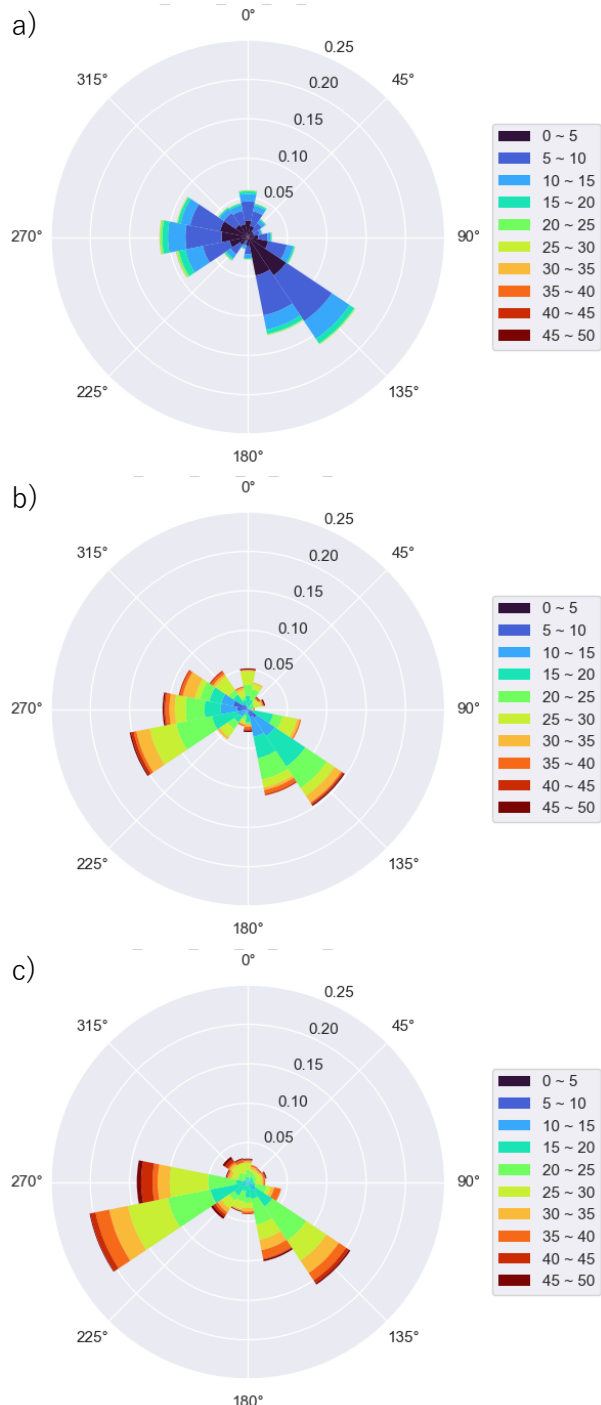


図5 Distribution of PM2.5 mass concentration by wind direction during the period a) non high PM2.5 event, b) high PM2.5 event in 1 day, and c) high PM2.5 event lasts more than 2 days. PM2.5 concentration is shown as the color bar.

複数日連続の高濃度イベント時のPM2.5が1日のみの高濃度イベント時のPM2.5濃度より高い傾向が見られたが、風向別に高濃度の出現割合に差は見られ

なかった。

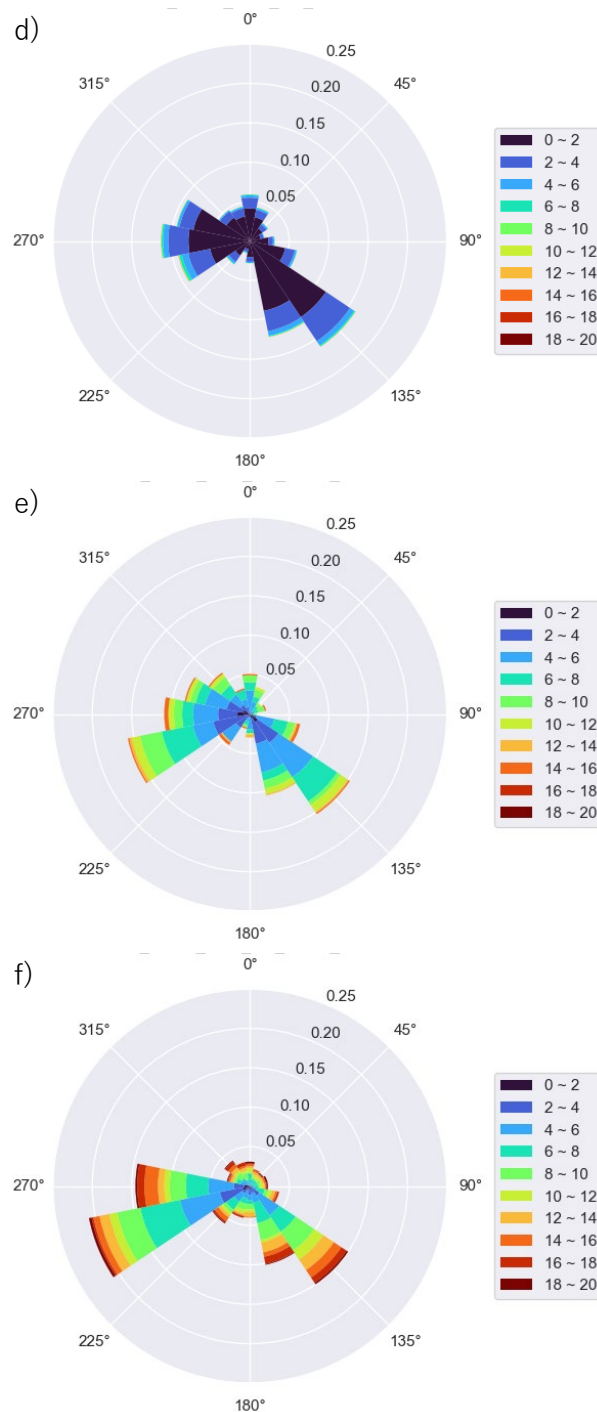


図6 Distribution of SO_4^{2-} in PM2.5 mass concentration by wind direction during the period d) non high PM2.5 event, e) high PM2.5 event in 1 day, and f) high PM2.5 event lasts more than 2 days. PM2.5 concentration is shown as the color bar.

PM2.5中の SO_4^{2-} 濃度は通常時と比較すると、高濃度イベントが2日以上継続する場合、より高濃度となる傾向が見られた(図6)。これはPM2.5質量濃度が2日以上の高濃度イベント時の方が高くなる傾向と一致した。

一方 NO_3^- は、高濃度イベントの継続が1日の場合、濃度が高くなる傾向が見られた。風向別にみると、高濃度イベント時に西南西からの風が吹く場合に NO_3^- 濃度が高くなる傾向があった。 NO_3^- は主に NH_4NO_3 であるため気温によるガス化と再粒子化の影響を受けるため周辺での生成と消失過程が影響している可能性が考えられる。

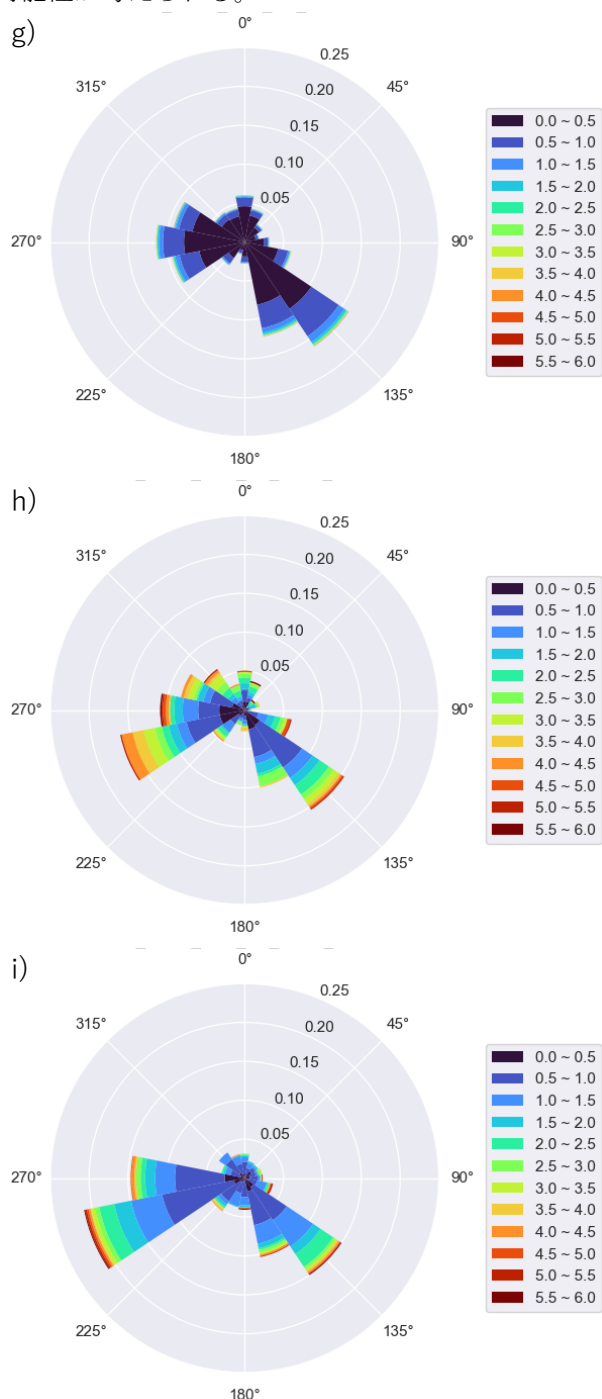


図7 Distribution of NO_3^- in $\text{PM}_{2.5}$ mass concentration by wind direction during the period d) non high $\text{PM}_{2.5}$ event, e) high $\text{PM}_{2.5}$ event in 1 day, and f) high $\text{PM}_{2.5}$ event lasts more than 2 days. $\text{PM}_{2.5}$ concentration is shown as the color bar.

4.まとめ

$\text{PM}_{2.5}$ は高濃度時において呼吸器系、循環器系疾患のリスクを増加させる懸念があり、環境基準が制定されるとともに、常時監視局などによる連続測定が行われている。 $\text{PM}_{2.5}$ 濃度は減少傾向にあるが、 $\text{PM}_{2.5}$ が高濃度となる事例はあるため、国設新潟巻測定局における $\text{PM}_{2.5}$ 及び新潟県内の常時監視局の $\text{PM}_{2.5}$ に対してカーブフィッティング法を用いた高濃度データの切り出しを行ない、新潟巻において $\text{PM}_{2.5}$ が高い事例における汚染の分布を評価した。2017年4月から2022年3月までの期間に、合計67日が $\text{PM}_{2.5}$ 高濃度イベントとして抽出された。

$\text{PM}_{2.5}$ が高濃度となるイベントが1日のみの事例では、周辺局も高濃度となるのは30%程度と低い、3日以上連続する高濃度イベントの場合、80%程度の確率で新潟市内の測定局においても高濃度イベントが観測された。 $\text{PM}_{2.5}$ 高濃度イベントが長く続く事例では、長距離輸送などの大規模な汚染の輸送が原因と考えられ、広い地域で $\text{PM}_{2.5}$ 濃度が増加したと考えられる。一方、1日だけ $\text{PM}_{2.5}$ 高濃度イベントが観測された場合、周辺局とのつながりが薄く、測定局周辺での生成・排出による影響が強い可能性が示唆された。

$\text{PM}_{2.5}$ 高濃度イベントにおける新潟巻局周辺からの影響を評価するため、 $\text{PM}_{2.5}$ 、 $\text{PM}_{2.5}$ 中の SO_4^{2-} 、 NO_3^- 濃度についての風向別の濃度について解析した。 $\text{PM}_{2.5}$ 高濃度イベントが2日以上継続する場合の方が1日のみの場合に比べて、 $\text{PM}_{2.5}$ および SO_4^{2-} 濃度が高くなったが、風向と濃度の間に明確な相関はなかった。一方、 $\text{PM}_{2.5}$ 中の NO_3^- は高濃度イベントが1日のみの場合の方が、2日以上継続する場合と比較して高濃度となる傾向が見られ、西南西から輸送される場合に特に高濃度となる傾向が見られた。 SO_4^{2-} は特に大規模な輸送による可能性が高く、 NO_3^- は近傍での生成消失過程の影響が大きい可能性が示唆された。

* アジア大気汚染研究センター大気圏研究部
Asia Center for Air Pollution Research, Atmospheric Research Department

- 1) Zanobetti A., Schwartz J. (2009): The effect of fine and coarse particulate air pollution on mortality: a national analysis. *Environ Health Perspect.* 117(6) pp.898-903.
- 2) Zhu F., Yu H., Fan X., Ding Z., Wang Q., Zhou J. (2023) Particulate air pollution and cardiovascular disease mortality in Jiangsu Province, China: a time-series analysis between 2015 and 2021. *Front Public Health*, 20;11:1218479.
- 3) Bell M.L., Ebisu K., Peng R.D., Samet J.M., Dominici F. (2009): Hospital admissions and chemical composition of fine particle air pollution. *Am J Respir Crit Care Med.* 15;179(12) pp.1115-20.
- 4) 環境省水・大気環境局 (2013) : 最近の微小粒子状物質 (PM_{2.5}) による大気汚染への対応, p.9
- 5) 環境省水・大気環境局 (2023) : 令和3年度大気汚染状況報告書, :pp.88-96
- 6) Ryu Y.H., Min S.K., Hodzic A. (2021). Recent Decreasing Trends in Surface PM_{2.5} over East Asia in the Winter-spring Season: Different Responses to Emissions and Meteorology between Upwind and Downwind Regions. *Aerosol Air Qual. Res.* 21, 200654.
- 7) Nakazawa, T., Ishizawa, M., Higachi, K., Trivett, N.B. (1997): Two curve fitting methods applied to CO₂ flask data, *Environmetrics*, 8, pp.197-218

Summary

The high PM_{2.5} concentration is still observed, even though PM_{2.5} concentration in the domestic monitoring sites has been decreasing. The high PM_{2.5} events were picked up using the two-curve fitting method to assess the spatial distribution of air pollution during the period of high PM_{2.5} concentration.

When a high PM_{2.5} concentration event lasted for two or more days, the surrounding stations also showed high concentrations with a probability of up to 80%, but when a high PM_{2.5} concentration event lasted for only one day, the surrounding stations showed high concentrations in about 30% of cases. It suggests that the long-range transport of air pollution possibly led the high PM_{2.5} concentration event which lasted more than 2 days, and high PM_{2.5} concentration event only 1 day maybe influenced by the local emission and particle generation.

The relationship between the wind direction and PM_{2.5} or sulfate in PM_{2.5} shows that there was little difference in concentration due to wind direction. The longer the high PM_{2.5} concentration events lasts, the higher PM_{2.5} and sulfate concentration were observed. The concentration of nitrate in PM_{2.5} was higher in the case that the wind direction was west-southwest and the high PM_{2.5} concentration event was only 1 day.