

【調査報告】

福岡市におけるPM_{2.5}高濃度事例に対する原因推定の検討Estimation of cause to high PM_{2.5} concentration in Fukuoka City

日下部正和* 平岡誠* 宇都宮彬* 岩本眞二* 小田嶋博**

Masakazu Kusakabe*, Makoto Hiraoka*, Akira Utsunomiya*, Shinji Iwamoto*, Hiroshi Odajima**

【要約】

九州においては、黄砂、煙霧、光化学オキシダントの発生など中国大陸からの影響を受けた現象が多く観察されており、これらの発生に伴った微小粒子状物質（ここでは空気力学粒径が $2.5\mu\text{m}$ 以上の粒子を50%カットした粒子。以下PM_{2.5}と略。）濃度の変動が予想される。本報告では、2002年度から2005年度の12月までに測定したPM_{2.5}日平均濃度の高濃度事例を抽出し、浮遊粒子状物質（粒径 $10\mu\text{m}$ 以下の粒子。以下SPMと略。）、オキシダント、SO₂などの大気汚染物質との関係、離島である隠岐のデータ、気象データや後方流跡線などから、PM_{2.5}が高濃度を示す原因について検証した結果、その原因が黄砂による越境汚染、煙霧による越境汚染、地域汚染のいずれであるかについて、おおまかに推定できることが分かった。

キーワード：PM_{2.5}、越境汚染、黄砂、煙霧

1. はじめに

大気中の粒子状物質とその健康影響については、1990年代初め頃から、米国を中心にPM₁₀（空気力学粒径が $10\mu\text{m}$ 以上の粒子を50%カットした粒子）濃度と日死亡との関連性に関する疫学研究が相次ぎ報告され、続いて日死亡との関連性がPM_{2.5}においてより顕著であることを示す疫学研究報告が出された¹⁾。これらの疫学報告に基づき、米国ではPM₁₀に加え、1997年にPM_{2.5}の環境基準が追加された。

一方、我が国では、一般大気環境におけるPM_{2.5}の曝露と健康影響との関連性を明らかにする目的で、平成11年度（1999年度）より環境省を中心に「微小粒子状物質曝露影響調査」が開始され、2007年7月にその結果が公表された²⁾。この結果に基づき、2009年9月にはSPMに加えて、新たにPM_{2.5}の環境基準が定められ、これを契機に日本全国でPM_{2.5}の測定が開始され始めた。

近年の九州においては、黄砂、煙霧、光化学オキシダント等の発生に代表されるように、中国大陸で発生した物質の移流による影響が多く観察されている³⁾⁴⁾⁵⁾⁶⁾。黄砂は、中国大陸内陸部の砂漠地帯で発生した土壌由来のエアロゾルであり、おもに春季において西日本を中心にSPM濃度の上昇をもたらすことが知られている。また、煙霧は、SPM濃度の上昇

に大陸から移流した硫酸塩エアロゾルが寄与し、高濃度のSPMと煙霧との関連が高いことが報告されている⁷⁾。このように九州北部地域においては、中国大陸からの汚染物質等の影響を強く受けるため、特に黄砂、煙霧等が発生している時にはPM_{2.5}濃度も高くなることが予想される。

日置らは、Pb、Zn、V、Mn、La、Sm、SO₄²⁻などの成分濃度を、PM_{2.5}、SPM、SO₂などの観測データや後方流跡線と比較検討することにより地域汚染や長距離輸送の影響の解析を行っている⁸⁾。また、板野らは、PM_{2.5}を成分濃度と後方流跡線、CFORS (Chemical Weather Forecasting System) などから検証を行い、東アジアが国内のPM_{2.5}濃度に及ぼす影響を言及している⁹⁾。このように、長距離輸送を検証する場合には、成分濃度を用いる手法で解析されることが多いが、一方で成分濃度は十分なデータの蓄積がないことから、SPM、SO₂の常時観測データや気象データなどを用い、総合的に移流の影響の判断を行うことも重要であると考えられる。

そこで、過去に測定したPM_{2.5}濃度において高濃度を示した日を抽出し、一般環境大気測定局の常時観測で得られる大気汚染物質の濃度データや、後方流跡線、気圧配置などの気象データを用いて、高濃度のPM_{2.5}が観測された要因について考察を行った。

* 日本環境衛生センター西日本支局

** 独立行政法人 国立病院機構 福岡病院

2. 観測地点および調査方法

PM_{2.5}の観測は、福岡市南西部の住宅地に位置する国立病院機構福岡病院 (Fig. 1) において、TEOM法を原理とした自動測定器 (Thermo Fisher Scientific社TEOM-1400) を用いて行った。このとき自動測定機の検出器温度は、湿度の影響を考慮し50℃で安定させ、測定した。本報告で解析対象としたデータは、福岡病院におけるPM_{2.5}の観測結果のうち、2002年4月から2005年12月までの3年9ヶ月間 (1371日) とした。なお、本観測に使われた測定器はPM_{2.5}の標準測定法との等価性評価を受けていないため、厳密には環境基準の評価はできないが、ここでは環境基準値を高濃度日の目安として考察を行っている。

日本海に位置する隠岐 (Fig. 1) では、酸性雨監視局がPM_{2.5}の観測を長年行っており、地域汚染の影響が少ない観測地点として、福岡病院で観測したPM_{2.5}濃度との比較データに使用した。

この他に福岡病院におけるPM_{2.5}との比較にはSPM、SO₂、O₃などの常時監視項目を取り上げ、対象とした常時監視局は、福岡病院近傍にある福岡市の南局、九州北岸に位置し大陸からの移流による影響が強く反映されると考えられる糸島局の2つとした。

また、日本を中心とした大気の流れを考察するために、気象観測データ (福岡管区气象台、気象月報) および後方流跡線 (米国海洋大気庁 (NOAA) のHYSP LITモデル) を用いた。後方流跡線の作成条件は、福岡市南区および隠岐の上空500m高度において、高濃度のPM_{2.5}が示された時間から72時間とした。



Fig.1 Location of observation sites.

3. 結果と考察

3.1 PM_{2.5}の濃度

3.1.1 経年変化

Fig. 2に2002年度4月から2005年度12月までにおける年ごとのPM_{2.5}年平均値、98パーセンタイル値、福岡管区气象台で黄砂および煙霧を観測した日数を示す。PM_{2.5}年平均値は、2002年度から2005年度にかけて大きな変動は見られないものの、毎年度20 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超す値で推移しており、年平均値15 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ の環境基準を満たしていない。また、98パーセンタイル値は、45~60 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ の値で、環境基準の日平均値35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を大きく超えている。98パーセンタイル値は、黄砂および煙霧の観測日数と比較すると、ともに減少傾向で類似したトレンドを示している。

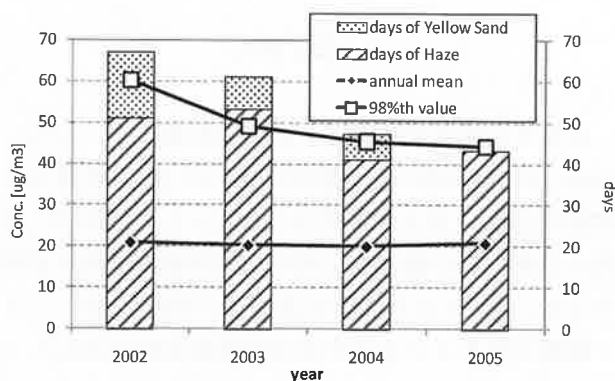


Fig.2 Trends in days of yellow sand and haze, annual mean concentrations and 98 percentile value at Fukuoka.

3.1.2 月変化

PM_{2.5}の月平均濃度と福岡管区气象台で観測された黄砂および煙霧の月別日数をFig. 3に示す。また、同グラフには隠岐のPM_{2.5}月平均濃度を参考として示した。福岡におけるPM_{2.5}の月平均濃度は、春季の4、5、6月に高く、夏季の8月に低くなる傾向が見られる。また、隠岐におけるPM_{2.5}の月平均濃度は、福岡と比較すると低いものの福岡で観測されたPM_{2.5}と類似した濃度変化を示している。春季は、黄砂や煙霧など移流の影響と思われる現象が、多く出現する時期でもあり、春季におけるPM_{2.5}の上昇は、中国大陸からの移流による越境汚染を示唆している。

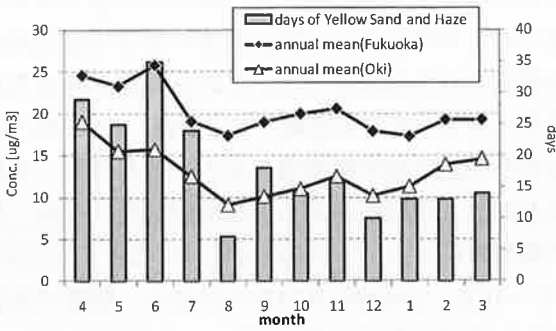


Fig.3 Trends in days of yellow sand and haze, monthly mean concentrations of PM_{2.5} at Fukuoka and Oki.

PM_{2.5} と SPM との関係を見るために、福岡病院から約 4km 離れた常時監視測定局の南局で観測された SPM 濃度との日平均値の相関を Fig. 4 に示した。両者は、相関係数が約 0.9 と非常に強い相関関係を示し、またその傾きは 0.6 となり、平均的に PM_{2.5} は SPM の 60%程度であるとみられる。

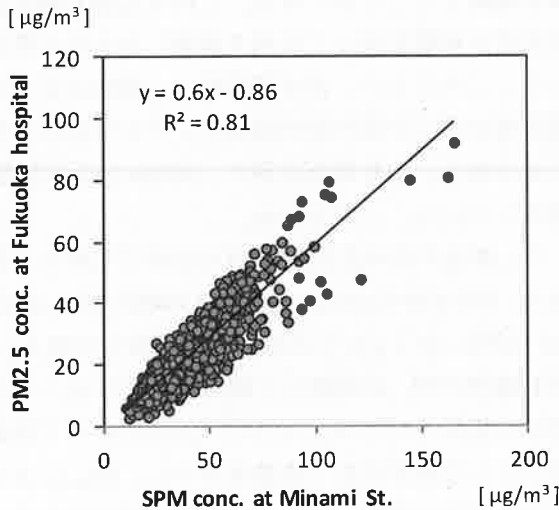


Fig.4 Correlation between PM_{2.5} concentrations at Fukuoka and SPM concentrations at Minami St.

3.2 PM_{2.5}濃度と後方流跡線方位との関係

中国大陸からの影響など長距離輸送を検討するうえで、後方流跡線による解析は有効な手段である。そこで解析対象期間 1371 日の全てにおいて後方流跡線を作成し、起点である福岡へ到達する際の後方流跡線の方位（以下、方位）を Fig. 5 のように 8 つに分類した。後方流跡線が、各方位を示した日数と

各方位における PM_{2.5} 日平均値の平均濃度をまとめた結果を Fig. 6 に示す。

年間を通しての気流の流れは、偏西風の影響により NNW と WNW が最も多く、それぞれの頻度は全体の 2 割近くとなっている。各方位における PM_{2.5} の平均濃度では、東日本方向の ENE、また韓国、中国北部（北京など）、砂漠地帯方向の WNW、中国南部（上海など）方向の WSW が、約 20 µg/m³ と比較的高濃度を示している。特に WNW 方向では、PM_{2.5} の平均濃度が 23.5 µg/m³ と全方位中で最も高い値を示していた。



Fig.5 Direction of backward trajectory.

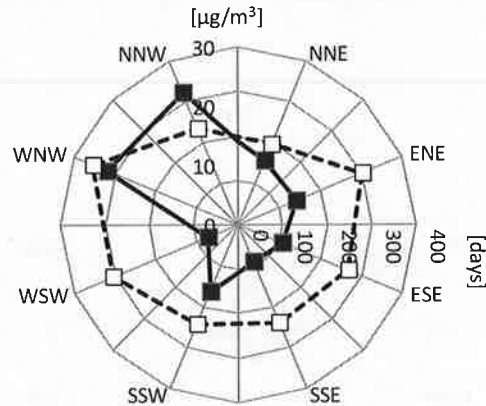


Fig.6 Days in which direction of backward trajectory arrived at Fukuoka (black) and mean of PM_{2.5} concentrations in each direction (white) .

3.3 高濃度事例の抽出とその特徴

解析対象期間 1371 日のうち、PM_{2.5} 濃度の日平均値が環境基準値である 35 µg/m³ を超えた日を PM_{2.5} 高濃度日として、全体の 9.6%にあたる 132 日を抽出した。また、このうち数日にわたって PM_{2.5} の高濃度が

観測された場合はその期間を1事例とし、合計69事例を抽出した。

Fig. 7にPM_{2.5}高濃度日を年度毎に示している。PM_{2.5}高濃度日は、年々減少傾向にあるが、年度ごとでは毎年度20日を超え、日平均値での環境基準達成は難しい状況にある。

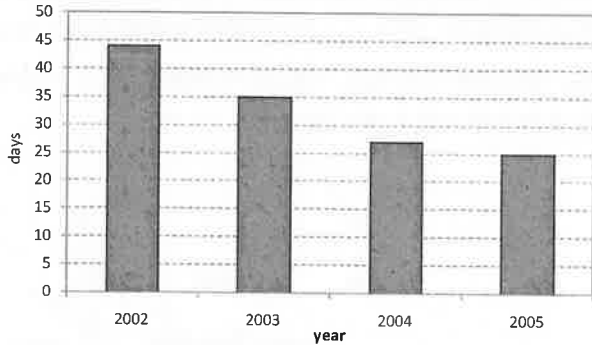


Fig.7 Trends in days above 35µg/m³ at Fukuoka

次に、PM_{2.5}高濃度日についてFig. 6と同様の方法で後方流跡線の方位頻度をまとめたものをFig. 8に示す。PM_{2.5}高濃度日の約4割がWNWを示し、また方位を中国大陸全土を含むWSW、WNW、NNWでみるとPM_{2.5}高濃度日の約7割を示し、Fig. 6と比較するとPM_{2.5}に対する中国大陸方向からの影響の大きさが分かる。

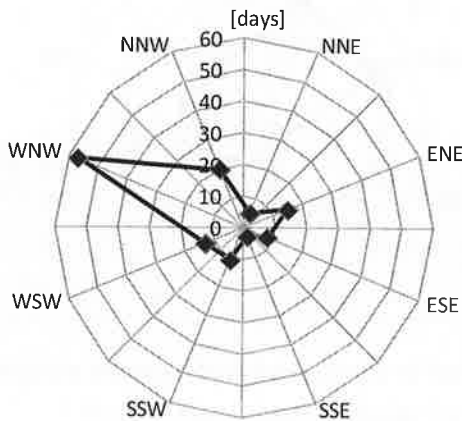


Fig.8 Days in which direction of backward trajectory arriving at Fukuoka when PM_{2.5} exceeded 35µg/m³.

次に、黄砂及び煙霧の典型的な現象の解析を行うため、69事例の中からさらに3つずつ事例抽出を行った。典型事例の抽出方法は、福岡管区気象台により

黄砂及び煙霧と判断され、かつ数日間に渡り現象が確認された事例のうち、PM_{2.5}濃度の日平均値で高濃度が観測された事例とした。これら典型と考えられる事例に対し、後方流跡線、気圧配置、SPMの県内濃度分布やPM_{2.5}と常時監視項目との比較を行い、それぞれどのような特徴があるかを検討した。なお、黄砂の典型事例として、2002年4月1日～2日、2002年4月8日～10日、2002年4月12日～14日を、煙霧の典型事例として2002年6月3日～6日、2003年5月21日～24日、2003年12月23日～25日を取り上げた。

3.3.1 黄砂の典型事例

黄砂の典型事例として抽出した3つの事例のうち、2002年4月7日～14日の事例を以下に紹介する。この事例では、PM_{2.5}の高濃度が2002年4月8日から10日の3日間で観測された。Fig. 9に、天気図、後方流跡線、福岡県内におけるSPMの濃度分布、PM_{2.5}濃度や南局でのSPM濃度などの経時変化を示している。

天気図を見ると、日本の南岸に低気圧を伴った前線を確認することができる。これは大陸で発生した低気圧が前線を伴って九州を通過したものと考えられる。このときの、後方流跡線は、隠岐とともに砂漠地帯のある中国大陸内陸部モンゴル付近の上空から来ており、上昇気流に乗り、3000m付近の高度を經由していることが分かる。

PM_{2.5}濃度の経時変化は、8日の13時ごろから上昇し始め、8日17時に182 µg/m³、9日15時に138 µg/m³、10日15時に137 µg/m³と非常に高い濃度が出現し、3日間高濃度のPM_{2.5}が継続して観測されている。また、隠岐で観測されたPM_{2.5}も8日から9日にかけて福岡と同じような濃度変化で高濃度を示し、PM_{2.5}による広域的な汚染が確認できる。このとき、福岡県全域で、特に北部沿岸地域を中心に300 µg/m³を超える高濃度のSPMが観測されている。また福岡におけるPM_{2.5}と南局におけるSPMとの比率は平均で0.54であり、Fig. 4で示した平均値と比べ、粗大粒子が多い構成となっていた。

他の典型事例においても共通していた特徴は、天気図で日本南岸に前線が確認されることと、後方流跡線の起点高度が高くモンゴル付近砂漠地帯上空を經由していることであった。一方、SPM分布の高濃度広範囲は共通事項ではなかった。また、3事例におけるPM_{2.5}/SPMの平均値は0.61であり、SO₂濃度の最高値

は10ppbで最高値の平均は7.9 ppbであった。

以上から、PM_{2.5}の上昇が黄砂による越境汚染に起因するときの特徴を以下の通りとした。○天気図においては、大陸で発生した低気圧が東進するに伴い、日本南岸に前線が位置する気圧配置である、○後方流跡線においては、方位が砂漠地帯のあるSSW~Nを示し、起点高度が数千メートルと高く、流跡線の長さが長い、○PM_{2.5}とSPMとの比率は、0.5程度の値を示す、○汚染範囲が広く、隠岐のPM_{2.5}も同時に高くなる。

3.3.2 煙霧の典型事例

次に煙霧の典型事例として抽出した3つの事例のうち、2003年12月23日~25日の事例を以下に紹介する。

Fig. 10にその時の天気図等を示した。九州の西側には移動性高気圧が位置しており、福岡、隠岐からの後方流跡線は、ともに中国大陸沿岸の上海付近を経由している。PM_{2.5}濃度は、福岡において23日11時に55.3 μg/m³、24日10時に67.3 μg/m³、25日19時に89.9 μg/m³とピーク濃度が出現し、黄砂の事例ほど高くないが、3日間高濃度のPM_{2.5}が継続して観測されている。また、隠岐で観測されたPM_{2.5}においても3日間とも福岡と類似した濃度変化を示している。またこの期間においてPM_{2.5}が上昇する数時間前に対馬でのO₃濃度が上昇する現象もみられ、SO₂濃度はPM_{2.5}濃度と同時に上昇し、3日間とも10ppbを超える高濃度が観測された。汚染の範囲をSPMの県内分布でみると、福岡県全域で75~150 μg/m³のSPMが観測され、黄砂ほど広くないが、比較的広範囲になっている。

他の事例においても共通していた特徴は、天気図で九州西側に移動性高気圧が確認されること、後方流跡線が中国沿岸部上空を経由していることであった。また、黄砂の事例には見られない煙霧の大きな特徴のひとつとして経時変化でみられるようにSO₂濃度がPM_{2.5}濃度と同時に上昇し、高濃度のSO₂が観測されることがあげられる。これは3つの典型事例で共通しており、最高値で15ppb、最高値の平均で9.0ppbとなり、黄砂事例に比べて特徴的であった。もうひとつの大きな特徴として3事例のPM_{2.5}/SPMの平均値が0.73と高いこともあげられる。

以上から、PM_{2.5}の上昇が煙霧による越境汚染に起因するときの特徴を以下の通りとした。○天気図においては、移動性高気圧が九州を通過するなど、大陸沿岸部から空気塊が移流しやすい気圧配置である。○後方流跡線においては、方位が大都市の北京や上海のあるSSW~WSWを示している、○SO₂濃度がPM_{2.5}濃度と同時に上昇し最高濃度が高い濃度を示す、○PM_{2.5}とSPMの比率は0.7程度を示す、○隠岐のPM_{2.5}の同時上昇がある。

煙霧は越境汚染によるものだけでなく、地域汚染による場合もある。これは、大型の高気圧で覆われるなど風速が弱く、地域で発生した大気汚染物質が拡散しにくい気圧配置を形成している場合に、生じやすいと推測される。このような地域汚染の事例として、煙霧の事例の中で越境汚染と判断することができない2004年5月26日~28日の3日間を対象としてFig. 11に示した。

PM_{2.5}濃度は、福岡において26日の12時ごろから上昇し始め、27日1時に79.6 μg/m³、28日20時に71.8 μg/m³とピーク濃度が出現している。隠岐におけるPM_{2.5}濃度は3日間とも環境基準値以下を示し、福岡とは異なった濃度変化となっている。

一方、後方流跡線は、大陸からの流れは示しておらず、粒子が日本近辺の上空に滞留していることを示している。天気図においては、気圧傾度が低く風が弱いことが推測でき、この期間のPM_{2.5}は、地域汚染の影響が強いと考えられる。SPM濃度分布は、おもに都市部での上昇が大きい傾向にある。また、NO_xは大気中における滞留時間が短いため、PM_{2.5}濃度がNO_xと同時に上昇する現象があれば、地域汚染である可能性が高い。これは越境汚染と見られる煙霧や黄砂の事例では見られない現象である。一方で越境汚染が原因と見られる事例では、SO₂が高濃度を示したが、地域汚染と考えられる事例ではこのような現象は見られなかった。このことから地域汚染の特徴として以下を挙げた。○後方流跡線においては、方位が中国大陸側ではない、○気圧傾度が低く風速が低い、○SPMは都市部など限定的な範囲で観測される、○PM_{2.5}濃度がNO_xと同時に上昇する。

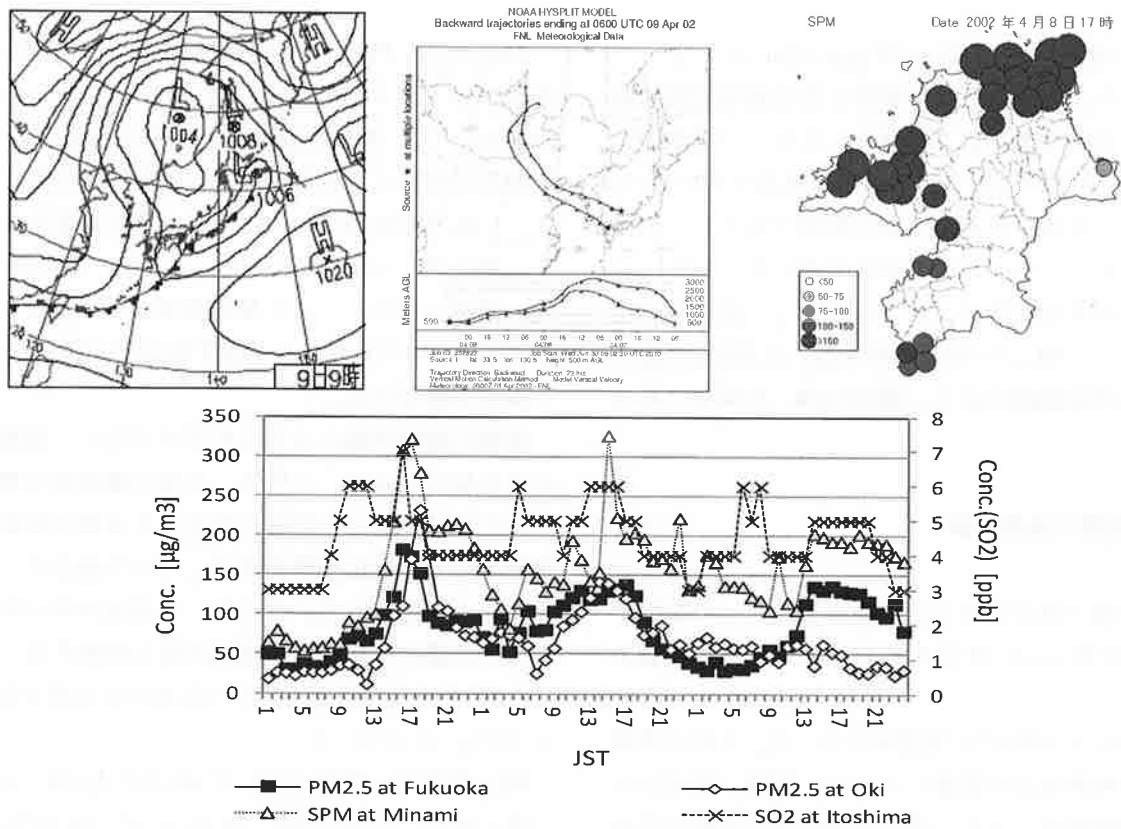


Fig.9 (The example of yellow sand) Trends in relation to other components concentrations, backward trajectory, weather map and distribution of SPM concentration from 8 to 10 April in 2002.

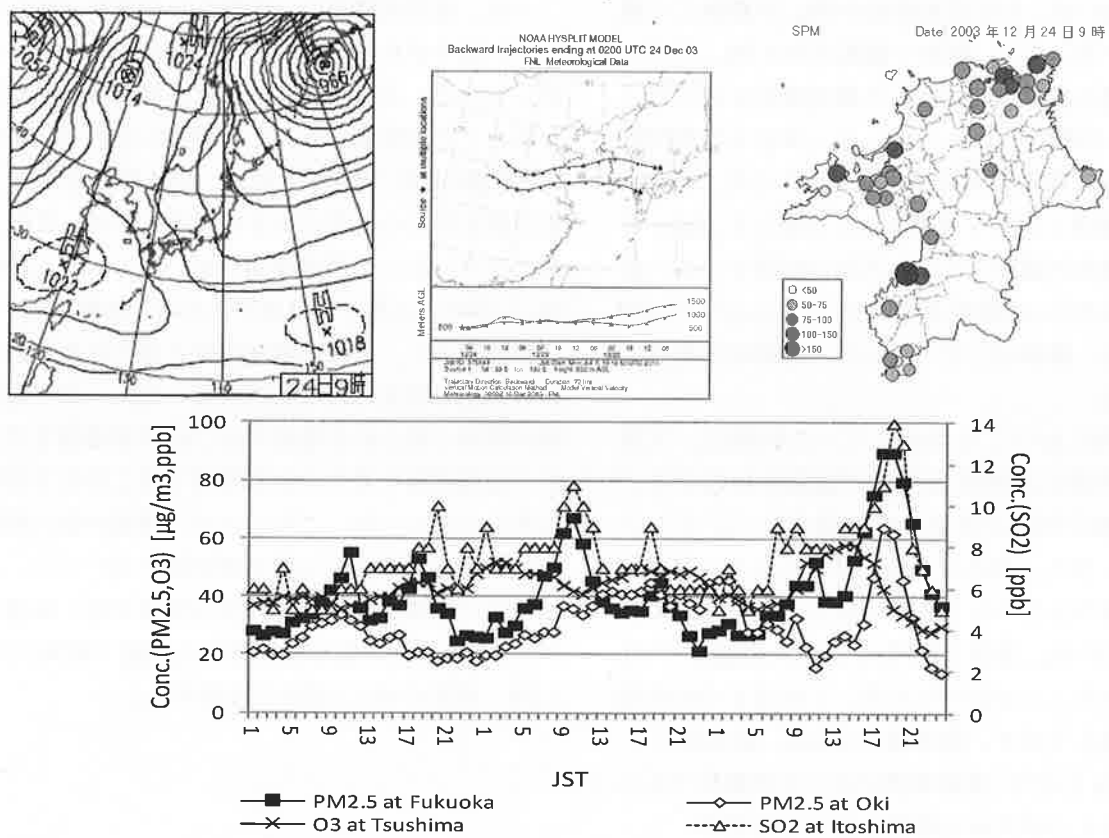


Fig.10 (The example of haze of transborder pollution) Trends in relation to other components concentrations, backward trajectory, weather map and distribution of SPM concentration from 23 to 25 December in 2003.

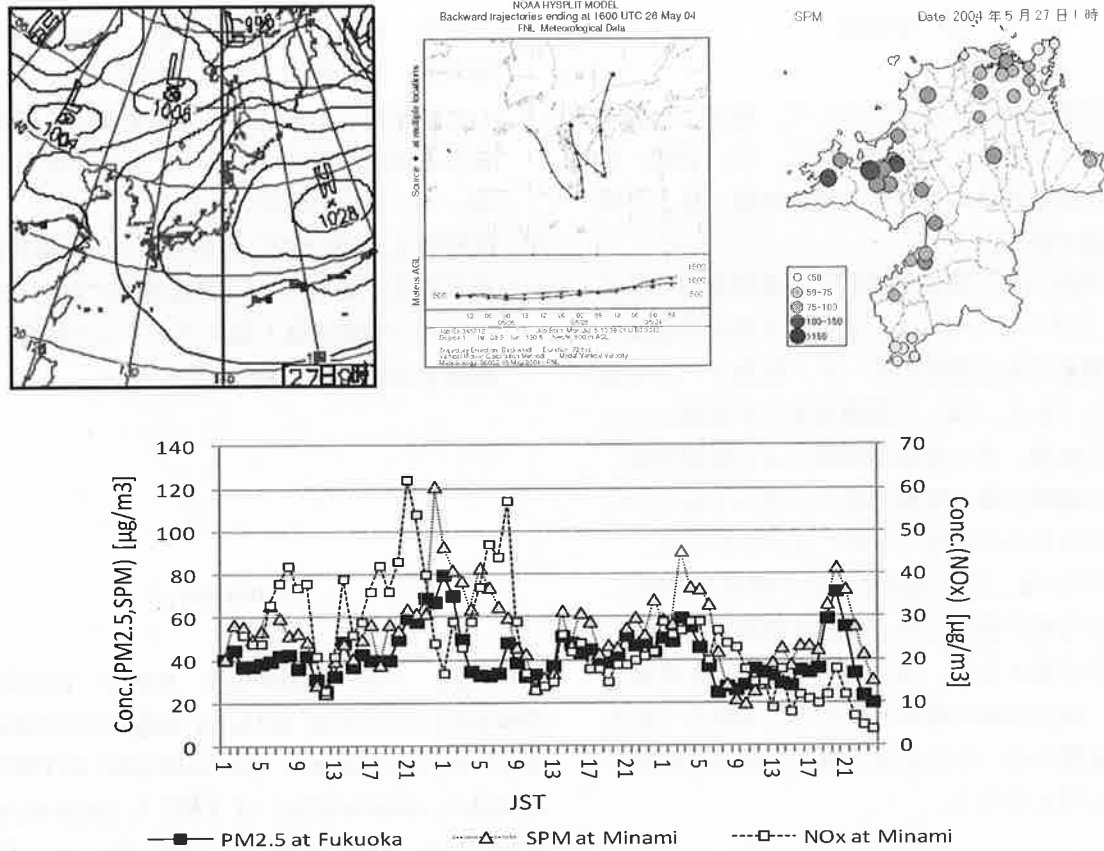


Fig.11 (The example of haze of regional pollution) Trends in relation to other components concentrations, backward trajectory, weather map and distribution of SPM concentration from 26 to 28 May in 2004.

3.4 高濃度事例の分類

前項の通り、PM_{2.5}高濃度事例のうち黄砂による越境汚染、煙霧による越境汚染、地域汚染が原因と考えられる典型的な事例を比較すると、天気図、後方流跡線、汚染物質濃度等において、その特徴に明確な差異が確認された。ここでは、典型事例で示された各特徴をもとに、69 事例（132 日）の高濃度の原因について、黄砂、煙霧、地域汚染によると見られるグループの分類を試みた。また、いずれか判断が難しいものについては、不明とした。

分類した結果、69 事例中で黄砂が 13.2%の 9 事例、煙霧が 69.6%の 48 事例、地域汚染が 10.1%の 7 事例となり、またこれを日数に換算する (Table 1) と黄砂が 10.6%の 14 日、煙霧が 77.3%の 102 日、地域汚染が 7.6%の 10 日と大陸の影響の大きさを推測することができた。また、その原因について不明としたものは全体の 4.5%であり、PM_{2.5}が高濃度を観測した原因については、本手法により黄砂、煙霧、地域汚染に分類できることが考えられた。

Table1 The number and ratio of PM_{2.5} high concentration days which are classified by causes of yellow sand, haze of transborder pollution, haze of regional pollution.

year	yellow sand	haze of transborder pollution	haze of regional pollution	unknown	total
2002	9 (6.8%)	32 (24.2%)	2 (1.5%)	1 (0.8%)	44 (33.3%)
2003	2 (1.5%)	26 (19.7%)	4 (3.0%)	3 (2.3%)	35 (26.5%)
2004	1 (0.8%)	23 (17.4%)	3 (2.3%)	0 (0.0%)	27 (20.5%)
2005	2 (1.5%)	21 (15.9%)	1 (0.8%)	2 (1.5%)	26 (19.7%)
total	14 (10.6%)	102 (77.3%)	10 (7.6%)	6 (4.5%)	132 (100.0%)

4. まとめ

PM_{2.5}の高濃度要因の推定において、地域での個々の寄与を明らかにしていくと同時に、広い地域に影響を及ぼす越境汚染の寄与を的確に把握することが極めて重要である。

本報告では、PM_{2.5}日平均濃度の高濃度事例を抽出し、SPM、オキシダント、SO₂などの大気汚染物質との関係、離島である隠岐のデータ、気象データや後方流跡線などから、PM_{2.5}が高濃度を示す原因について検証した結果、その原因が黄砂による越境汚染、煙霧による越境汚染、地域汚染のいずれであるかについて、おおまかに推定できることが分かった。

また、今後PM_{2.5}の全国的な測定を開始と同時に、PM_{2.5}の成分分析の結果が多く地点事例で公表されていくことが考えられ、PM_{2.5}の発生源推定を考察するうえで、成分分析の結果と併せて、本報告で紹介した方法を用いることにより、推定の精度が向上できるものと考えられる。

参考文献

- 1) 若松伸司：米国の粒子状物質に係る環境基準の改訂，大気環境学会誌，41，A69-A71（2006）
- 2) 環境省：微小粒子状物質曝露影響評価報告書（2007）
- 3) 鵜野伊津志，弓本桂也，杉本信夫，清水厚：随伴モデリングを用いた東アジア域のダストの発生・輸送の逆推定，大気環境学会誌，43，191-197（2008）
- 4) 大原利眞，鵜野伊津志，黒川純一，早崎将光，清水厚：2007年5月8，9日に発生した広域的な光化学オキシダント汚染，大気環境学会誌，43，198-208（2008）
- 5) 岩本眞二，大石興弘，田上四郎，力寿雄，山本重一：福岡県における光化学オキシダント高濃度要因の分類，大気環境学会誌，43，173-179（2008）
- 6) Yukari Hara, Itsushi Uno, Zifa Wang：Long-term variation of Asian dust and related climate factors, Atmospheric Environment, 40, 6730-6740 (2006)
- 7) 山崎誠：アジア大陸から移流した硫酸塩エアロゾルの煙霧による高SPM事例の解析，福岡市保健環境研究所報，29，101-104（2004）

- 8) 日置正，紀本岳志，長谷川就一，向井人史，大原利眞，若松伸司：松山，大阪，つくばで観測した浮遊粉じん中金属元素濃度比による長距離輸送と地域汚染特性の解析，大気環境学会誌，44，91-101（2008）
- 9) 板野泰之，若松伸司，長谷川就一，岡崎友紀代，紀本岳志：夏季のPM_{2.5}質量濃度に対する東アジアからの越境汚染人為エアロゾルの影響，大気環境学会誌，45，66-72（2010）

Summary

PM2.5 can aggravate many respiratory illnesses including asthma and bronchitis. In order to investigate the behavior of PM2.5 in Kyushu, observation of PM2.5 concentrations were done since 2002 in Fukuoka city. In this report, we considered about the cause of high concentration PM2.5 with observation data of PM2.5 from 2002 to 2005. We extracted high concentration events of PM2.5, and we analyzed the cause of high concentration PM2.5 by using air pollution monitoring data such as monitoring stations data, weather map, backward trajectory, etc. in order to evaluate the influence of the transportation from the Chinese territory. As a result, we can presume whether the cause of high concentration PM2.5 is yellow sand, haze of transborder pollution or haze of regional pollution by the relationship of PM2.5 with air pollutants such as SO₂ and O₃, meteorological data, and backward trajectory.