

PM2.5 等の大気汚染物質にかかる移流影響の把握

三田村徳子・服部達明・江下 舞・高取惇哉・園 正¹⁾・水嶋清嗣²⁾・居川俊弘・宮野愛子³⁾

要約

滋賀県において PM2.5 が高濃度になった日の気圧配置を分類した。春は、移動性高気圧が日本の南岸を通過する場合に、高気圧北西域の周回流により越境移流して、濃度上昇する事例が多かった。高気圧が北西から進んでくる場合は、PM2.5 は濃度上昇しないことが多かった。しかし、北西からの高気圧であっても、勢力が強く移動が極めて遅い場合、高気圧中心に PM2.5 が保持され、上空に拡散せずに広域的な高濃度をもたらした事例があった。夏は、本州から離れた南海上に梅雨前線が停滞する場合や、太平洋高気圧の張り出しが数日間継続して強い場合に、PM2.5 濃度が上昇しやすかった。いずれも、気圧勾配がゆるやかな状態が長期間持続すると、越境汚染に加えて国内汚染の蓄積も増加すると考えられた。

PM2.5 等の大気汚染物質は地上に沈着して、琵琶湖流水域の栄養塩濃度に影響する。本研究では、PM2.5 が増減する気象要因の解明と同時に、大気由来の窒素降下量の増減要因についてもテーマとしている。滋賀県における窒素降下量は、乾性沈着量（粒子やガスによる沈着量）よりも湿性沈着量（雨や雪による沈着）の方が多く見積もられている。乾性沈着については、夏に光化学オキシダントが生成されるときに窒素沈着量が増加することが、以前の調査結果からわかっており、今回実施したシミュレーションモデルによる解析においても、同様の結果となった。湿性沈着量が増加するのは、県北部では西高東低の冬型気圧配置時、県全域では南岸低気圧や梅雨前線による降水量が多い時であった。県北部では、河川の全窒素は低濃度であるため、大気からの影響をうけやすいと考えられた。PM2.5 の成分には窒素が含まれており、降雨前に PM2.5 が高濃度であれば、降雨時に雨に溶け込んで地上への沈着量が増加することが判明した。

1. はじめに

微小粒子状物質（以下「PM2.5」とする。）は、粒子が極めて小さいことから、人肺の奥深くまで入り込みやすく、健康影響が懸念されている。また、経済発展が著しい東アジアからの越境汚染について、頻繁に報道された時期があり、県民の関心が高まった。日本における PM2.5 の環境基準は、2009 年度に設定され、全国的に監視体制が強化されてきた。滋賀県の PM2.5 常時監視は、環境省の試行事業として自排草津局（自動車排出ガス測定局）で 2009 年度から測定を開始し、その後、県として 2012 年 1 月から機器整備を進め、現在では 9 局で自動測定を行っている。

本研究は、国内外から滋賀県へ移流する PM2.5 が、どのような気象要因で高濃度になるのか、特定することを目的としている。PM2.5 高濃度事例について、濃度とその成分やシミュレーションモデルによる解析を実施し、気象要因と移流の関係を検討した。

同時に、琵琶湖流水域への大気由来窒素負荷量の増減要因について、実際の測定結果とシミュレーションモデル解析により、得られた知見について報告する。

2. 方法

県管轄局における PM2.5 日平均濃度と天気図の関係から、高濃度をもたらす気圧配置の特徴を検討した。そして、年により異なる気圧配置の傾向が、環境基準値超過日数に及ぼす影響を考察した。また、高濃度事例の成分測定による解析から、越境移流と国内発生の寄与の大きさを定性的に判断した。シミュレーションモデルによる解析では、気象モデル（WRF）の計算結果である気圧と風、大気モデル（CMAQ）の計算結果である PM2.5 をそれぞれ可視化し、それらを照らし合わせて、気圧配置と移流の関係を解析した。また、PM2.5 シミュレーションモデルによる 3 次元解析も追加した。以上を総合的に判断して、PM2.5 が高濃度となった気圧配置を分類した。

大気由来の窒素負荷量が増減する気象要因について、実測値による解析とシミュレーションモデルによる解析を実施した。

1)既退職、2)現・滋賀県企業庁、3)現・滋賀県琵琶湖環境部環境政策課

2.1. 実測値の測定方法

PM_{2.5} 濃度の測定は、図 1 の県管轄の自動測定局において、常時監視している。機種は、守山局は FRM-377（東亜 DKK）、自排草津局は SHARP5030（Thermo）、他 7 局は PM-712（紀本）である。各局の測定開始は、自排草津局は 2009 年 4 月から、東近江局、長浜局、高島局は 2012 年 1 月から、八幡局、彦根局は 2012 年 3 月から、守山局は 2013 年 12 月から、草津局、甲賀局は 2014 年 3 月からである。

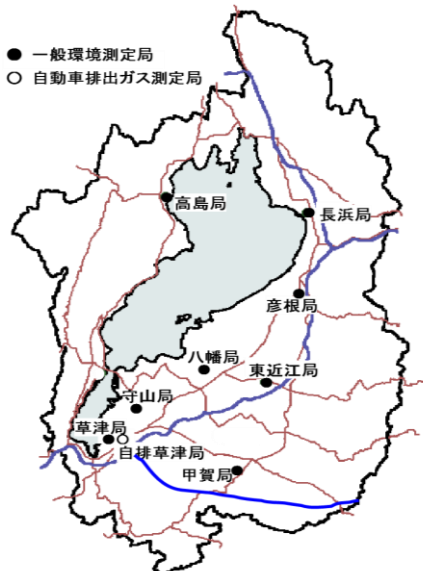


図 1 大気測定局配置図

PM_{2.5} の成分測定は、環境省の成分測定マニュアルに準じた。イオン成分と炭素成分は石英ろ紙、無機元素成分は PTFE ろ紙で採取した試料を使用した。一部、自動測定機 PM-712 のテープろ紙を使用したイオン成分と無機元素の成分測定を実施した。

湿性降下物調査の降水量および窒素濃度は、常時開放式の簡易法により、今津（高島合同庁舎屋上）と大津（琵琶湖環境科学研究センター屋上）において通年実施している約 1 週間ごとのデータを使用した。

2.2. 化学輸送モデルの構造

シミュレーションモデルの構造を、以下に示す。

気象シミュレーションモデル：WRF v3.1.1

客観解析データ：JMA GPM MSM, FNL

大気シミュレーションモデル：CMAQ v4.7.1

排出量データ（滋賀県が以下を使用して自作）

植物起源：MEGAN v2.10

人為起源：REAS2（2009 年以降を推定）

塩素類（火山）：GEIA

バイオマスバーニング：GFED3

ガスモジュール：CB05c1

粒子モジュール：aero 4

人為起源データである REAS2 には、2008 年までのデータしか提供されていなかったため、2009 年以降のデータを推定して使用した。その方法を説明する。REAS2 は、物質項目ごとに、道路由来等の要因別に、2000 年から 2008 年まで、月ごとのメッシュデータがある。東アジアの地域区分は、REAS2 に記載されていないが、各データの差をみることで、地域区分が推定できた。その地域区分別の各々のデータについて、2008 年までの年間増加量の平均を求め、2006 年の年間データは 2005 年データ + 平均増加量とし、2007 年からは前年データ + 平均増加量が年ごとに 90% ずつに減少するとして算出した。図 2 に、計算方法の例を示した。これは、中国の江西省において道路輸送（自動車）により生じる粒子中の元素状炭素（P EC）のデータ作成方法である。

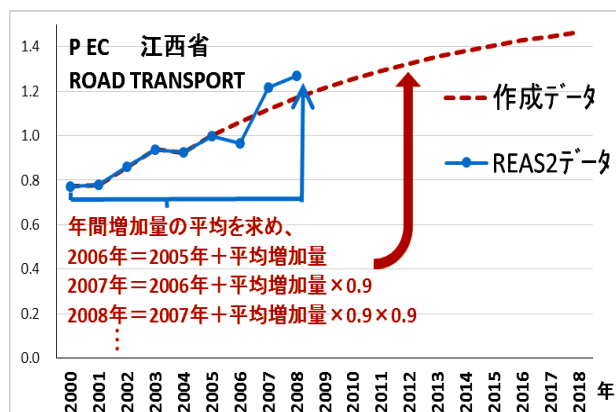


図 2 人為起源排出量データ作成方法の例

各年の月別データは、2008 年までの平均月別推移から算出した。時間別データは、EPA（米国環境保護庁）データの項目別推移を利用して算出した。

計算領域は、東アジア域は 50Km メッシュとし、0.25 度メッシュ（約 28Km メッシュ）の排出量データから面積配分した。日本域は 10Km メッシュとし、0.25 度メッシュデータを分割する必要があるため、NASA（米国航空宇宙局）の 1Km メッシュ光データと国土交通省の道路 3 次メッシュを使用し、重み付けをして再配分した。

3. 結果と考察

3.1. 滋賀県の PM_{2.5} 濃度状況

人の健康の適切な保護を図るために維持されることが望ましい水準として定められた PM_{2.5} の環境基準は、「年平均値が 15 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下、かつ、日平均値が 35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下」である。2016 年度までの県管轄局における環境基準達成状況を、表 1 に記載した。

表1 環境基準達成状況

(○：達成、×：非達成、－：未測定)

年度 測定局	2009 (H21)	2010 (H22)	2011 (H23)	2012 (H24)	2013 (H25)	2014 (H26)	2015 (H27)	2016 (H28)
草津	－	－	－	－	－	○	○	○
守山	－	－	－	－	－	○	○	○
甲賀	－	－	－	－	－	○	○	○
八幡	－	－	－	×	×	○	○	○
東近江	－	－	－	×	×	×	○	○
彦根	－	－	－	○	×	○	○	○
長浜	－	－	－	○	×	×	○	○
高島	－	－	－	○	○	○	○	○
自排草津	×	×	×	×	×	○	○	○

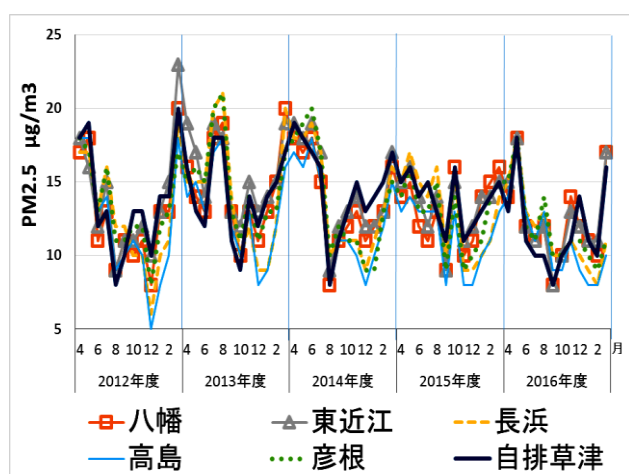


図3 PM2.5 月平均値の推移

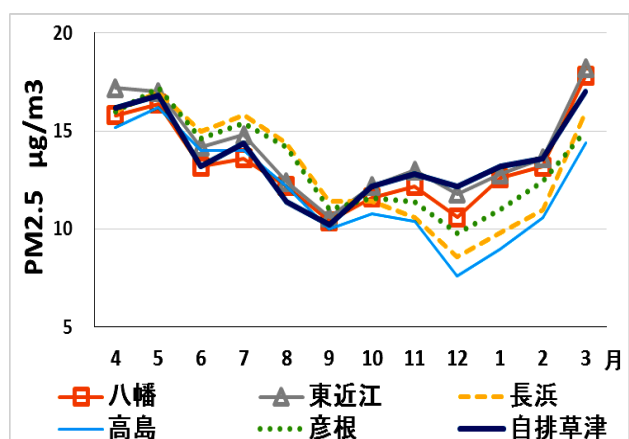


図4 5年間のPM2.5 月別平均 (2012年度～2016年度)

2012年度4月の時点でPM2.5測定を開始していた6局について、2016年度までの月平均値の推移を図3に、この5年間にわたる月ごとの平均を図4に示した。5年間を通して、3月から5月は最も濃度上昇しやすかった。年度

により濃度が高くなる月は若干異なり、夏に高濃度となる年があった。県内の濃度を比較すると、3月や4月の春先は、東近江、八幡、自排草津の県南東部で濃度が高く、夏は、長浜、彦根の県北東部で濃度が高かった。冬は、高島、長浜、彦根の県北部で濃度が低かった。環境基準達成状況(表1)をみると、春に他地点よりも濃度が高いことが多い東近江は非達成が多い。夏に高濃度となることが多い長浜では、2013年度は7月と8月に濃度が高く、2014年度は6月に濃度が高かったため、2013年度と2014年度は非達成となった。

県でPM2.5の測定を開始して5年が経過した。その結果、県内各地点で環境基準達成状況に差があり、季節により濃度上昇しやすい地域が異なることが判明した。この要因については、今後の検討課題である。

3.2. PM2.5の移流状況と変動要因

3.2.1. PM2.5高濃度時の気圧配置

九州地方における高濃度のPM2.5は、寒冷前線後面や移動性高気圧によりもたらされる越境移流の影響が大きいことが文献等(参考文献参照)で報告されている。本研究では、滋賀県におけるPM2.5日平均濃度と気圧配置を照らし合わせ、関連を調べた。

PM2.5日平均値が高かった日について、天気図のパターンを図5に例示した。滋賀県が移動性高気圧の北西域にあるとき(図5の①)や高気圧が遠ざかっていくとき(図5の②)、高気圧に広く覆われているとき(図5の③)に濃度上昇しており、移動性高気圧が関係している事例が多かった。

黄砂が日本に飛来してくる場合にも、PM2.5濃度が上昇することが多い。中国黄土地帯で低気圧によって高く巻き上げられた砂塵が、偏西風によって東進し、日本付近での前線により地上付近に降下してくると考えられている。このため、日本で黄砂が観測されるときは、日本の東岸や南岸に前線がある場合が多い。図5の④は、北海道から沖縄にかけて大規模な黄砂が観測された日の天気図である。黄砂については、人為起源が少なく自然起源のみの黄砂と人為起源の汚染物質を多く含む場合がある。④の黄砂日は、自排草津局のPM2.5日平均濃度が87.7µg/m³、SPM(粒子状物質)が163µg/m³であり、微小粒子の他に粗大粒子(SPMからPM2.5を差し引いた値)の濃度も高いので、この黄砂は自然起源の粒子を多く含んでいると考えられる。

夏季では、梅雨前線が本州から少し離れた南岸にあるとき(図5の⑤)や太平洋高気圧の張り出しが強いとき(図5の⑥)にPM2.5濃度が上昇した事例が多かった。

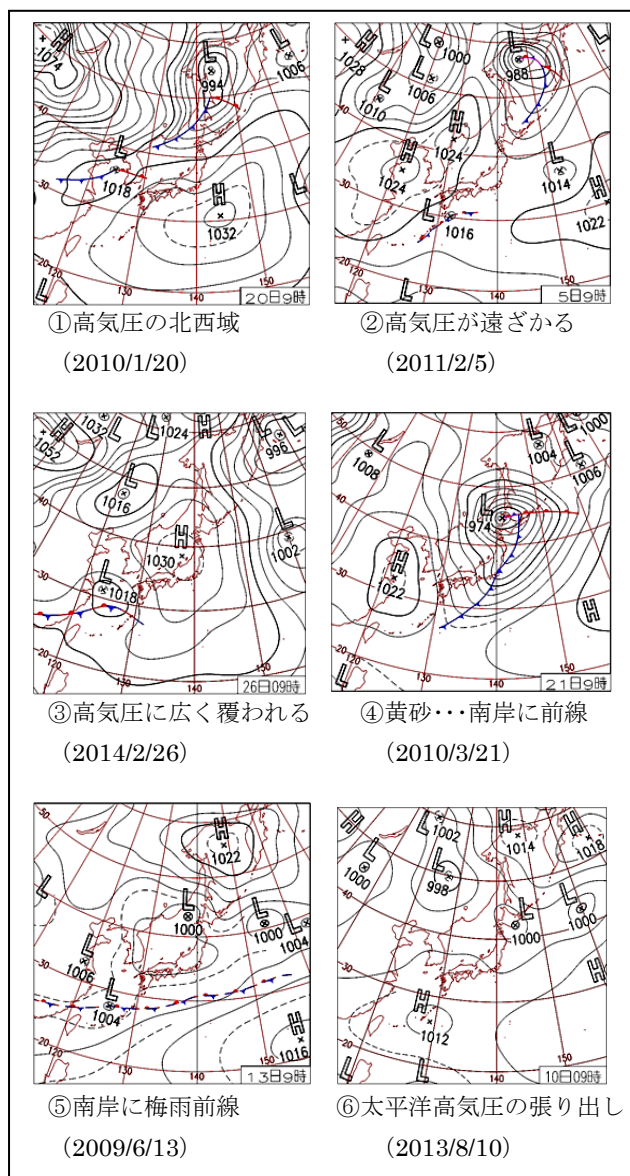


図5 PM2.5 高濃度日の天気図（気象庁 HP より）

移動性高気圧が通過する経路によって、PM2.5 の濃度上昇の程度が異なることが予想されたので、その関係を調べた。2009 年 4 月から 2014 年 8 月の期間について、高気圧中心部の経路を図 6 のように 5 つに分類した。人為起源の汚染物質を運ぶ気圧配置に焦点を絞るために、自然起源の影響をうける黄砂日は除いて検討した。

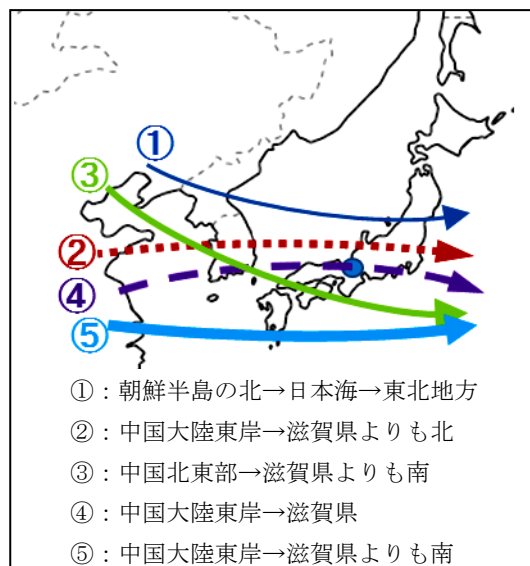


図6 移動性高気圧の経路分類

図 6 の経路別に、高気圧中心の位置で時期をⅠ～Ⅳの 4 つに分けて、滋賀県の PM2.5 日平均濃度を集計した(図 7)。

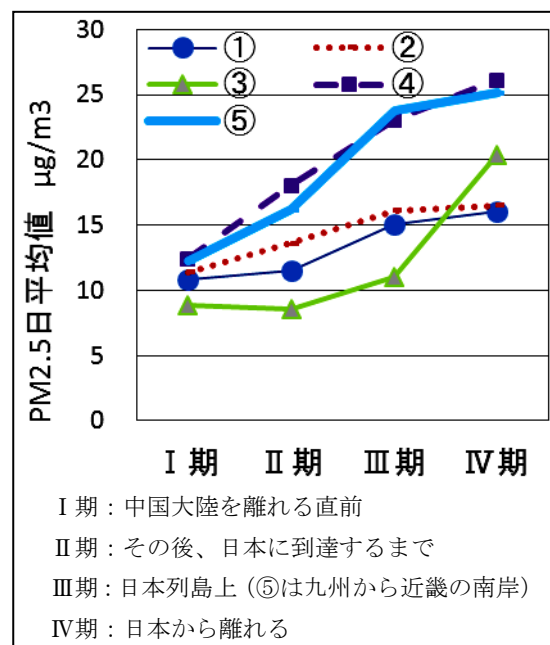


図7 移動性高気圧の経路と PM2.5 日平均濃度

集計した数は、経路①は 53、経路②は 33、経路③は 8、経路④は 38、経路⑤は 46 であった。高気圧の中心がどの経路であっても、Ⅱ期からⅢ期、Ⅳ期へと進むにつれ濃度が高くなったが、特に高気圧の中心が滋賀県の真上から南を通過する場合に濃度上昇が大きかった。個々の事例では、滋賀県の北を高気圧中心が通過する経路であっても、2014 年 2 月 26 日（図 5 の③）のように、PM2.5 が濃度上昇することがあった。この事例については、強い勢力の高気圧が中国の北東部にかなり長期間あったことが原因と考えられ、3.2.3 の項で、詳しく解析する。

経路⑤で濃度上昇した例を図8に示す。図の右は、速報値（そらまめ君）から全国一般局の日平均値を計算し、各都道府県の最高値が $35 \mu\text{g}/\text{m}^3$ （環境基準値）以上であった場合に、濃度範囲ごとに色分けして表示した。Ⅲ期とした16日、Ⅳ期とした17日と高気圧が移動するに従い、高濃度の分布が北へ移動し、濃度が高くなっている。

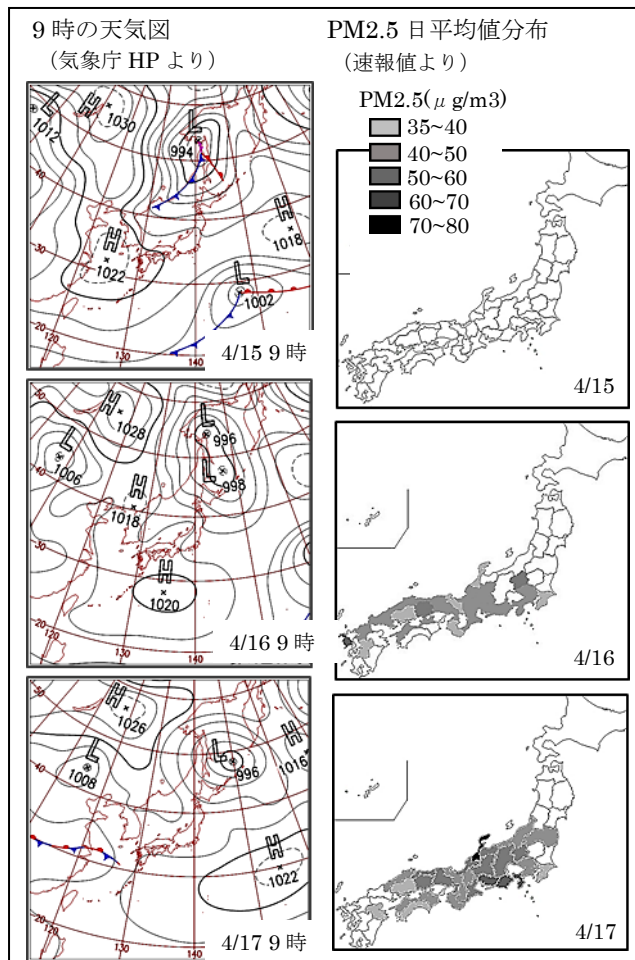


図8 経路⑤の天気図とPM2.5日平均値の例
(2014/4/15~4/17)

滋賀県管轄一般局のPM2.5日平均値の集計においても、4月15日は $18.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、16日は $35.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、17日は $43.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ であり、日ごとに濃度上昇していた。

偏西風の蛇行や海水温等の気候変動により、同じ季節であっても、気圧配置の傾向が年によって異なる。4月を例に、PM2.5濃度の測定を自排草津局で開始した2009年から2016年について、各年の気圧配置傾向と環境基準値超過日数を表2に示す。表中右欄の環境基準値超過日数は、滋賀県管轄局において $35 \mu\text{g}/\text{m}^3$ （環境基準値）以上の局があった日数である。

表2 各年4月の気象とPM2.5環境基準値超過日数

年	気象(移動性高気圧)	PM2.5日平均値が環境基準値を超過した日数
2009	高気圧に覆われ多照、低気圧の発達少なく、 経路④と⑤の帯状高気圧が続く	6日
2010	大気の流れが不安定 経路②、④も長く続かず、帯状高気圧も少ない	0日
2011	冷涼な高気圧、上空の寒気が南下、低温、 移動性高気圧は多いが、低気圧の影響を受ける	0日
2012	オホーツク海高気圧や低気圧が発達し、 移動性高気圧が阻まれる	3日 (すべて黄砂)
2013	低気圧の影響を受け、 移動性高気圧が影響する日が続かなかった	1日
2014	高気圧に覆われ晴れの日が多く、 経路⑤でPM2.5濃度上昇した	4日
2015	低気圧や前線の影響を受ける日が多かった (移動性高気圧通過で軽度PM2.5濃度上昇した)	1日
2016	低気圧や前線が通過する日が多かった	1日 (黄砂)

超過日数が最も多かった年は、2009年であった。この年は、経路④や⑤の移動性高気圧に長く覆われ、次々に現れる高気圧により帯状高気圧も多く出現した。2014年も図8で示したように、経路⑤で濃度上昇した。反対に超過日数が少ない年は、移動性高気圧が通過しても、図9のように低気圧の発達などで高気圧に覆われる期間が短い年であった。

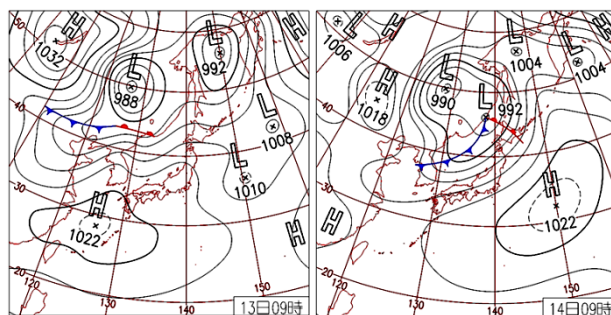


図9 低気圧の影響で環境基準値を超過しなかった例
(2013年4月)

このように、本州の南を通過する高気圧によりPM2.5が日本に持ち込まれると考えられ、この高気圧が日本から離れていった後も、図5の②のように気圧勾配がゆるやかな静穏状態が継続すると濃度上昇が維持され、低気圧等の影響を強く受けると濃度低下した。

次に、夏季のPM2.5濃度上昇と気圧配置の関係を解析した。6月から8月頃にかけては、移動性高気圧が関与しないPM2.5濃度上昇が見られた。梅雨時期については、図5の⑤や図10のように、本州から少し離れた南岸に梅雨前線が長期間停滞し、本州付近の気圧勾配がゆるやかであり、弱い西風をもたらすような気圧配置のときに、PM2.5は環境基準値を超過しやすかった。図10のPM2.5日平均値分布は、速報値（そらまめ君）から全国の一般局の日平均値を計算し、各都道府県の最高値が $35\mu\text{g}/\text{m}^3$ （環境基準値）以上であった場合に濃度範囲ごとに色分けして表示した。2014年6月14日は、九州地方から中国地方にかけて環境基準値を超過しており、翌日の15日は、環境基準値超過地域が東に広がっている。17日は、梅雨前線が近づいた九州地方は雨で濃度が低下したが、引き続き前線から離れている中国地方から関東地方にかけては環境基準値を超過している地域が多かった。

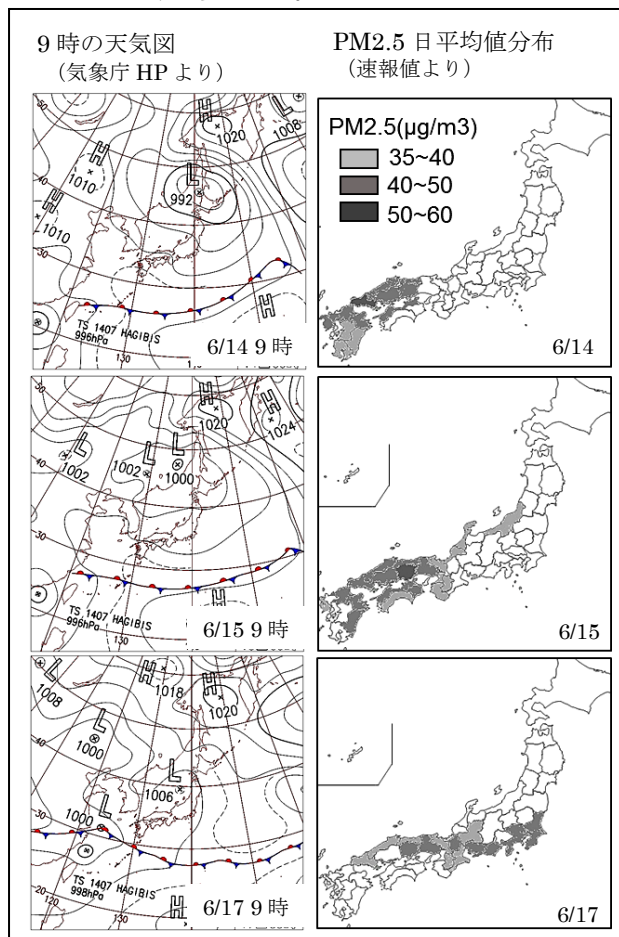


図10 梅雨時期のPM2.5濃度上昇事例(2014年6月中旬)

各年の梅雨時期について、前線の位置とPM2.5濃度を表3に示す。近畿地方で梅雨入りしている期間について、集計した。春に比べて、濃度上昇が穏やかであったため、PM2.5日平均値が $30\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上の日数も表示した。2009年と2014年は、 $30\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上、 $35\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上が多く、他

の年と異なり、図10のように、6月に梅雨前線が本州から離れた南海上に停滞して雨が少なかった。前線の北に低気圧、南に高気圧が位置しており、弱い西風が吹きやすかったことが、PM2.5の濃度上昇と関係していると考えられる。

表3 各年梅雨時期の気象とPM2.5濃度

年	気象(梅雨前線)	PM2.5日平均値 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	
		30以上	35以上
2009	6月の梅雨前線は本州から離れた南海上に停滞し、小雨	10日	6日
2010	梅雨前線が活発化し、曇や雨の日が多かった	1日	0日
2011	梅雨前線の影響を受けた	1日	0日
2012	活発な梅雨前線や台風の影響を受けた	0日	0日
2013	6月後半に梅雨前線が日本付近で活発	0日	0日
2014	6月は梅雨前線が南海上に離れて停滞することが多かった	5日	1日
2015	梅雨前線が本州南岸に停滞することが多く、活動が活発	1日 (黄砂)	0日
2016	西日本付近では、梅雨前線の活動が活発	0日	0日

梅雨明け後は、太平洋高気圧に覆われて安定した期間にPM2.5濃度が上昇しやすかった。2013年の夏は、全国的に広い範囲で高濃度になった。滋賀県においても、数日間環境基準値を超過した。この2013年の気圧配置の特徴は、高気圧の中心が日本の南海上、例年よりもかなり西にあったことである(図11、表4)。この年は猛暑で局地的に雨量が多い地域があり、気象庁の報道発表資料では、「西に強く張り出した太平洋高気圧の周りを流れる風が平年と比べて非常に暖かかった中国東部から東シナ海の空気を日本に運び、特に日本海側で大雨をもたらした」と説明している。これは、局地的な大雨についての報道資料であるが、暖かい水蒸気とともに、大陸起源の汚染物質も日本に運んできたと考えられる。2010年や2012年も、高気圧が勢力を持続していた期間があったが、日本の東海上に位置しており、2013年よりもPM2.5濃度上昇は大きくなかった(図11、表4)。

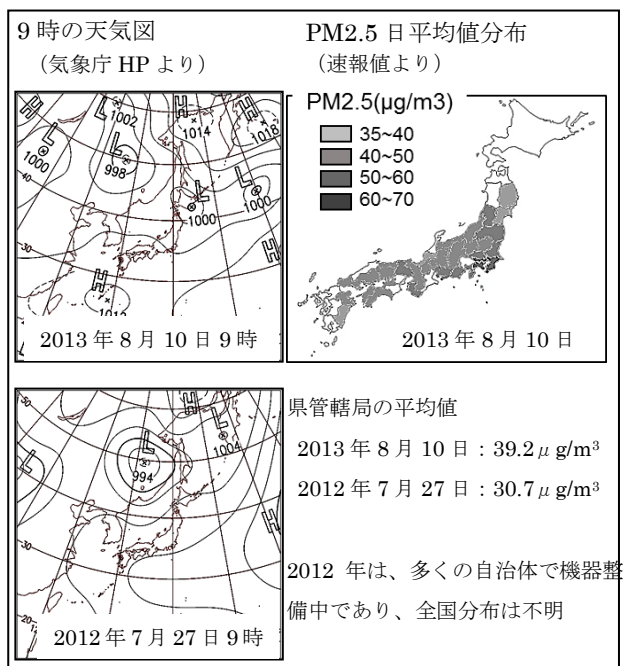


図 11 夏の太平洋高気圧の位置

表 4 各年夏の気象と PM2.5 濃度

年	気象(太平洋高気圧)	PM2.5 日平均値 µg/m³	
		30 以上	35 以上
2009	本州付近への張り出し弱い (エルニーニョ 現象)	0日	0日
2010	日本の東海上で張り出し強く、 極端な高温(ラニーニャ 現象)	5日	0日
2011	変動が大きかったが、全体的には、 張り出しは弱い(台風、前線)	0日	0日
2012	日本の東海上で勢力強い	4日	0日
2013	日本の南海上から西日本にかけて強い	18日	7日
2014	日本の東海上で強かったが、西日本への 張り出しは弱い(台風、偏西風の蛇行で多雨)	1日	1日
2015	北日本中心に張り出しが強まった期間に濃度 上昇、その後は前線や台風の影響	3日	3日
2016	台風の上陸が多かった	0日	0日

滋賀県における PM2.5 高濃度時の気圧配置を、季節ごとにまとめる。秋から春は、広域な帯状高気圧や次々に発生する移動性高気圧が滋賀県の南を通過し、低気圧の影響が少なく、弱風で穏やかな日が続く場合に、濃度上昇した。移動性高気圧の周回流により、高濃度気塊が移流したと考

えられる。梅雨時期は、前線が本州から離れた日本の南海上に停滞した期間に濃度が上昇した。夏は、太平洋高気圧の勢力が持続して強い期間に濃度上昇しやすく、特に日本の南海上に位置するときに高濃度となった。梅雨前線の北側で静穏な気象条件のときや太平洋高気圧の勢力下では、気圧勾配がゆるやかなため、急激で大きな濃度上昇は少ないが、数日間にわたり濃度上昇が継続しやすい。PM2.5 濃度の変動が、気象要因によるものか、発生量の変化によるものか、両者を見極めるために、気象要因を把握することが重要である。

3.2.2. 高濃度事例の成分測定による解析

PM2.5 の高濃度期間に、6 時間ごとの成分測定を実施した事例について報告する。図 12 は、成分測定の調査地点である。表 5 と図 13～図 15 は、各測定期間中で最も PM2.5 が高濃度であった 1 試料 (6 時間) を選んで示した。表 5 には、選択した成分測定結果 A～K の 11 例について、測定日時と気象要因を記載した。図 13 は 11 例の PM2.5 濃度、図 14 と図 15 は成分測定結果の一部を示した。2014 年 4 月以降の事例である D、G、I、については、八幡局で実施した。それ以外の 8 例については、環境総合推進費 5B-1101 「全国環境研究機関の有機連携による PM2.5 汚染の実態解明と発生源寄与評価」により当センターの屋上に自動測定機 (紀本 PM712) と成分分析用サンプラーを設置して測定した結果を使用した。分析方法は、環境省の成分測定マニュアルに準じている。

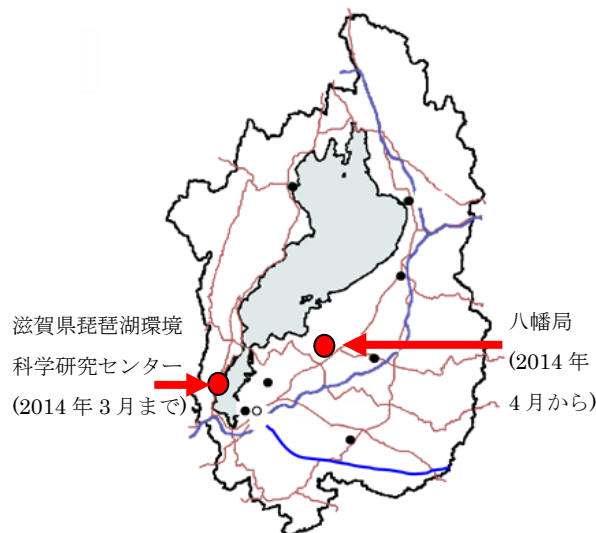


図 12 成分測定のサンプリング地点

表 5 PM2.5 高濃度時の成分測定日時と気象要因

事例	測定日時	気象(高濃度要因)
A	2012/5/8 18~24 時	高気圧北西域の周回流
B	2014/3/17 6~12 時	高気圧の周回流
C	2014/3/24 12~18 時	高気圧北西域の周回流
D	2014/4/17 12~18 時	高気圧北西域の周回流
E	2014/2/25 18~24 時	大きな勢力の高気圧に覆われる
F	2012/5/17 12~18 時	黄砂(南海上に前線)
G	2014/5/30 12~18 時	黄砂(東海上~南海上に前線)
H	2013/5/22 6~12 時	梅雨前線が離れた南海上に停滞
I	2014/6/15 12~18 時	梅雨前線が離れた南海上に停滞
J	2012/7/29 12~18 時	太平洋高気圧が東海上に張り出す
K	2013/7/28 0~6 時	太平洋高気圧が南海上に張り出す

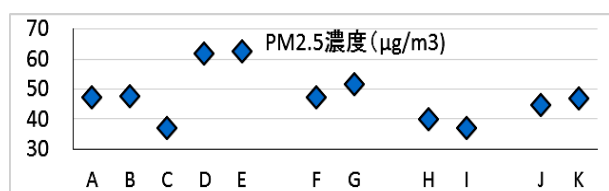


図 13 事例 A~K の PM2.5 濃度 (6 時間の平均)

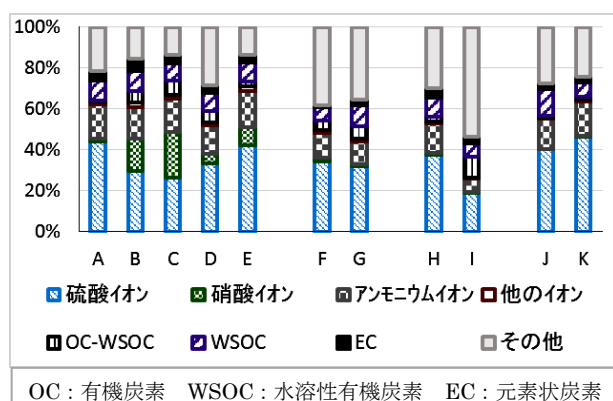


図 14 事例 A~K の成分割合

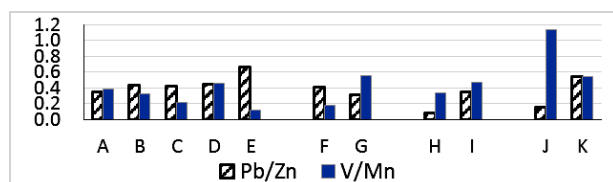


図 15 事例 A~K の無機元素比

表 5 に示したように、A~D は、高気圧の周回流により移流したと考えられる。E は、高気圧の中心付近に保持されて(天気図は図 5 の③に記載)、日本に移流したと推測されるが、詳細は次項のモデル解析で説明する。D は、前項の図 8 で説明した事例である。B~E は、2 月から 4 月の

事例であり、他の 5 月から 7 月の事例と違って気温が低い。図 14 のように硝酸イオンが粒子化している。図 15 の Pb/Zn は、石炭燃焼起源の指標とされており、値が 0.4~0.5 以上になると、石炭燃焼起源 PM2.5 の越境移流が強く疑われる。A~E は、移動性高気圧により高濃度がもたらされた事例であるが、これらは Pb/Zn が高く、東アジア大陸からの影響が大きいと考えられる。V/Mn は、重油燃焼を起源とする国内汚染の指標とされている。特に E については、PM2.5 濃度と Pb/Zn が高く、V/Mn は低いので、他の事例よりも越境汚染による寄与率が高い可能性が高い。

F と G は、黄砂の事例である。気象庁の黄砂情報によると、F よりも G の方が黄砂の規模が大きく、西日本から東日本にかけて 4 日間にわたって飛来した。A~E と同様 Pb/Zn が高く(図 15)、汚染物質を含んだ黄砂であると考えられる。前項で、図 5 の④は、SPM (10 μm 以下の粒子) と PM2.5 (2.5 μm 以下の粒子) の濃度差が大きかったため、自然起源の粗大粒子 (SPM-PM2.5) を多く含んだ大規模な黄砂と判断した。八幡局を例にすると、F の SPM は 51 μg/m³、PM2.5 は 48.7 μg/m³、G の SPM は 55 μg/m³、PM2.5 は 51.7 μg/m³ であった。このように、F と G は、SPM と PM2.5 の濃度差が少なかったため、粗大粒子がほとんどなく、無機元素比からも汚染物質を多く含んでいたことがわかる。

H と I は、梅雨前線が本州から離れた南海上に停滞した期間の事例である。H は、近畿地方が梅雨入りしていなかったため、前項で記載した表 3 「各年梅雨時期の気象と PM2.5 濃度」には含まれていない。I は、前項の図 10 で説明したように近隣の自治体で同時に濃度が高く、Pb/Zn も高い(図 15)ことから、越境の影響が大きいと考えられる。それに加えて、サンプリング地点周辺において、麦収穫後の野焼きが盛んに行われていたため、地域の影響も含まれていると思われる。図 14 の成分をみると、非水溶性の有機炭素 (OC-WSOC) とその他成分が多く、通常の成分測定では分析できない植物起源の有機成分等が多く含まれている可能性がある。事例 I の植物燃焼起源の PM2.5 については、この項の最後に詳しく記述した。

J と K は、梅雨明け後に太平洋高気圧の張り出しが強かった期間の事例である。これらの事例とは若干期間がずれるが、前項の図 11 に 2013 年と 2012 年の夏の太平洋高気圧の位置を天気図で示した。図 15 の J は Pb/Zn が低く V/Mn が高いので、国内の重油起源の影響が大きく、K は Pb/Zn が 0.54 とかなり高いので越境移流の寄与が大きいと推測される。2013 年夏は、前述のように日本の広い範囲で PM2.5 の高濃度が観測された。西に強く張り出した太平洋高気圧の縁をまわって大陸起源の汚染物質が日本に移流し、気圧勾配が弱い状態が継続したため、国内都市部の

PM2.5も蓄積し、国内外のPM2.5が重複したと考えられる。硫酸イオンとアンモニウムイオンの濃度が、Kで高いのは、大陸からの影響が大きいためと考えられるが、国内寄与が多いと考えられるJにおいても、夏以外の他事例に比べて両イオンは高濃度であり、国内の光化学二次生成が活発であったことが窺える。

Iの期間を含む6月15日～19日について、植物燃焼の影響を解析した。図16に、この期間の八幡局PM2.5濃度1時間値を示した。18日以外は、午後にピークがみられる。特に17日に大きなピークがあるが、成分測定用のサンプラーが測定期間の途中で1台故障したため、前ページの図表(表5と図13～15)のIは、17日ではなく15日について記載している。図16と同じ期間に八幡局で実施した成分測定のうち、植物燃焼と関連が深いレボグルコサン、カリウムイオン、WSOC(水溶性有機炭素)の濃度を図17に表示している。図中のレボグルコサンは、セルロースの燃焼によって発生する無水多糖類で、野焼きや森林火災等のバイオマス燃焼の指標とされている物質である。カリウムイオンとWSOCは、レボグルコサンほど指標性はないが、やはりバイオマス燃焼により濃度上昇することが知られている。レボグルコサンの分析は、国立環境研究所と地方環境研究所のⅡ型共同研究「PM2.5の短期的/長期的環境基準超過をもたらす汚染機構の解明」において、大阪市立環境科学研究センターが分析した結果である。カリウムイオンとWSOCは、滋賀県琵琶湖環境科学研究センターで分析した。WSOCは、石英ろ紙で採取するとガスの吸着影響を受けて過大評価される可能性が指摘されている。前述のようにサンプラーが1台故障したため、17日12時以降のWSOC分析の試料は、石英ろ紙からPTFEろ紙に変更している。このため、17日12時からのWSOCは、それまでに比べて濃度が低く算出されている可能性がある。これを考慮しても、PM2.5濃度が上昇した時間にカリウムイオンとWSOCとレボグルコサンが上昇しており、広域的なPM2.5汚染に加えて、地域的な植物燃焼もPM2.5濃度に寄与していたと推察される。この期間の八幡局PM2.5日平均値は、15日が $33.6\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、16日が $27.3\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、17日が $35.9\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、18日が $20.1\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、19日が $22.4\mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。17日は、広域的な越境汚染に地域の植物燃焼が加わって環境基準値 $35\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超過したと考えられる。この期間は、梅雨期にもかかわらず少雨で、梅雨の晴れ間に実施されることが多い小麦収穫後の野焼きが、県内の田園地帯で多発していたのを確認している。守山局や東近江局等でも同じ頃にPM2.5濃度のピークがみられた。

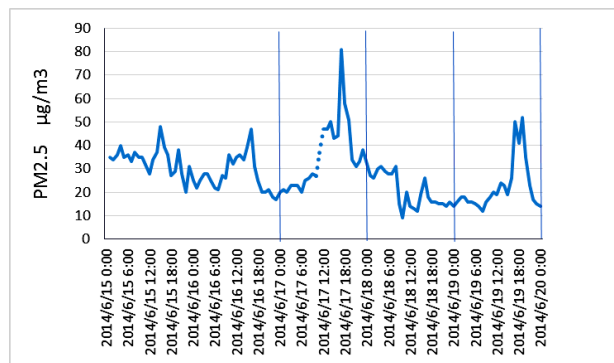


図16 八幡局PM2.5濃度の1時間値(2014/6/15～19)
(点線は、1時間欠測)

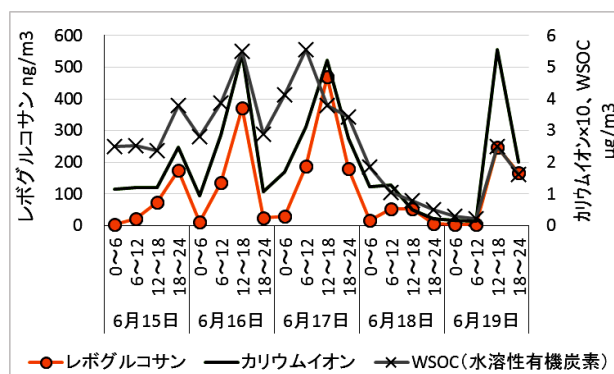


図17 八幡局PM2.5成分濃度(2014/6/15～19)
(植物燃焼由来成分)

3.2.3. 高濃度事例のモデル解析

3.2.1の項で、滋賀県におけるPM2.5高濃度時の気圧配置を以下のように把握した。秋から春は、本州の南を通過する移動性高気圧の周回流により高濃度気塊が移流しやすかった。梅雨時期は、前線が本州から離れた日本の南海上に停滞した期間に濃度が上昇した。夏は、太平洋高気圧の勢力が継続して強く、特に本州の南海上に位置する期間に高濃度となった。この項では、化学輸送モデルWRF/CMAQにより得られた気圧と風およびPM2.5を画像で表現して、PM2.5が高濃度となる気象要因を解析した。モデル解析の事例は、前項の成分測定を実施した事例(表5、図13～15)から表6のように選定した。事例のアルファベットは、表5と統一した。2014年を中心に選んだが、夏は2012年の国内発生と2013年の越境汚染の影響を比較した。夏の事例JとKのPM2.5シミュレーション画像は、国内都市部での発生状況がわかりやすいように日本域10Kmメッシュを使用しており、他の事例では大陸からの移流状況がわかりやすいように東アジア域50Kmメッシュを使用した。

表 6 シミュレーションモデルにより解析した事例

事例	期間	気象(高濃度要因)
B	2014 年 3 月中旬	高気圧の周回流
D	2014 年 4 月中旬	高気圧の周回流(図 8)
E	2014 年 2 月下旬	大きな勢力の高気圧
I	2014 年 6 月中旬	梅雨前線が離れた南海上に停滞(図 10)
J	2012 年 下旬	太平洋高気圧が東海上に張り出す
K	2013 年 夏	太平洋高気圧が南海上に張り出す(図 11)

表 6 の事例について、シミュレーション画像等を次ページ以降に記載した。気象モデルの画像は、気圧を色分けし、風向と風速を矢印で表現した。これに、同じ日時の PM2.5 シミュレーションモデル結果を照らし合わせて検討した。事例ごとに特徴を説明する。

事例 B シミュレーション画像(図 20)は、3 月 15 日に九州の南西海上にあった高気圧(図 19、20)の移動に伴い、中国中南部の PM2.5 が韓国を経由して西日本に移流している様子を示している。南岸を通過した高気圧に加えて、日本海からきたもう 1 つの高気圧の影響もあり、高濃度が維持されていた。

事例 D 4 月 15 日に東シナ海にあった移動性高気圧(図 22)の周回流により、PM2.5 が北京から朝鮮半島を経て西日本経由で移流(図 23)している。本州南岸を移動する高気圧の北域の風による越境移流の基本的なパターンであり、図 8 で説明したとおりである。

事例 E この事例は、多くの自治体で注意喚起が発表され、実際に日平均値で $70 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上が観測された(図 25、環境省 HP より作成)期間であり、滋賀県でも $70 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 近くまで濃度上昇(図 24)した。勢力の強い高気圧が中国の北東部に長期間あり(図 26、図 27)、高気圧の周回流により中国中部の工業地帯の PM2.5 と北部(北京)の PM2.5 が集められて、日本海に流された後、26 日には高気圧の中心に高濃度で保持され、広範囲に日本に上陸(図 27)した。

事例 I 図 10 や図 16、17 で前述した事例であり、野焼きの影響もあると推定された。図 29 の天気図のように、梅雨前線が日本から少し離れた太平洋上にあり、前線の南には太平洋高気圧が北には低気圧がある気圧配置が数日間継続していた。図 30 のシミュレーション画像から、前線付近から南側では PM2.5 濃度が極めて低い状態であるが、前線の北側では高濃度となっていることがわかる。前線の北側では、穏やかな西風により、大陸からの移流があったと推測できる。また、静穏な状態が持続したことから、国内の PM2.5 や地域の野焼きも影響して、県内で環境基準値を超過した測定局が存在した。図 28 の県内濃度をみる

と、17 日は測定地点による濃度のバラツキがみられ、野焼き影響の大小がこの日の環境基準値超過に関係していると思われる。

事例 J 2012 年夏の事例は、図 32 の天気図のような気圧配置が数日間継続していた。図 33 の気象モデルは、本州をとりまく高気圧と低気圧が長期間、同じような位置に停滞し、本州付近は気圧勾配がないことにより、弱風で風向も定まらない状態が持続していることを示している。国外からの流入がなく、国内の都市部から発生した PM2.5 が蓄積している状況であり、前項の成分測定による解析と一致した結果である。

事例 K 2013 年の夏の高濃度事例についても、同じ気圧配置が長期間持続(図 35)し、本州付近は弱風であったため、国内汚染の蓄積が事例 J と同様に見られた。それに加えて、太平洋高気圧の位置が例年と比べて西にあったため、中国東岸の気流が日本に流れ込みやすい状態であり、国外の寄与もみられる。このことは、図 36 のシミュレーション画像から判断したが、前項の気圧配置や成分測定から解析した結果とも整合性がとれている。国内汚染が優位であった事例 J よりも、国外からの越境が加わった事例 K の方が高濃度であった。

これまで解析した PM2.5 高濃度事例を比較すると、移動性高気圧が関与した越境移流は、大気の流れが比較的速いと考えられる。反対に大気の流れが弱く、静穏な状況が長期間継続した場合には、国内汚染の蓄積が加わる。

さらに、立体的な PM2.5 濃度分布を検討に加えた。気象要因の異なる 3 つの事例について、シミュレーションモデルによる鉛直分布を図 37 に示す。上段平面図の線上で作成した鉛直分布が下段の図である。事例 B の高気圧の周回流による移流では、比較的高くまで高濃度の気塊が及んでいるが、事例 E は B とは異なり、日本付近で気塊が上空に広がっていない。事例 E は、勢力の強い高気圧の中心の緩やかな下降流に PM2.5 が保持されて、上空に拡散せずに地上で水平方向に広範囲の高濃度塊になったため、日本に注意喚起レベルの高濃度をもたらしたと判断できる。事例 J は、西からの越境移流ではなく、本州周辺の大気が閉じ込められ停滞した状態であったため、国内の各大都市で単独発生したものが混ざりあうことなく描かれている。

事例B 高気圧の周回流による越境移流 (2014年3月中旬)

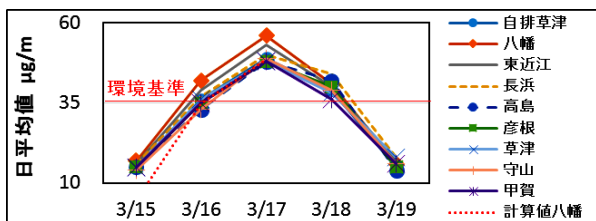


図18 事例Bの県内PM2.5濃度

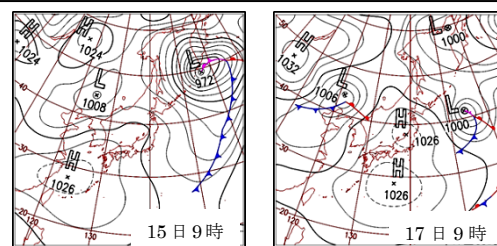


図19 事例Bの天気図 (気象庁HPより)

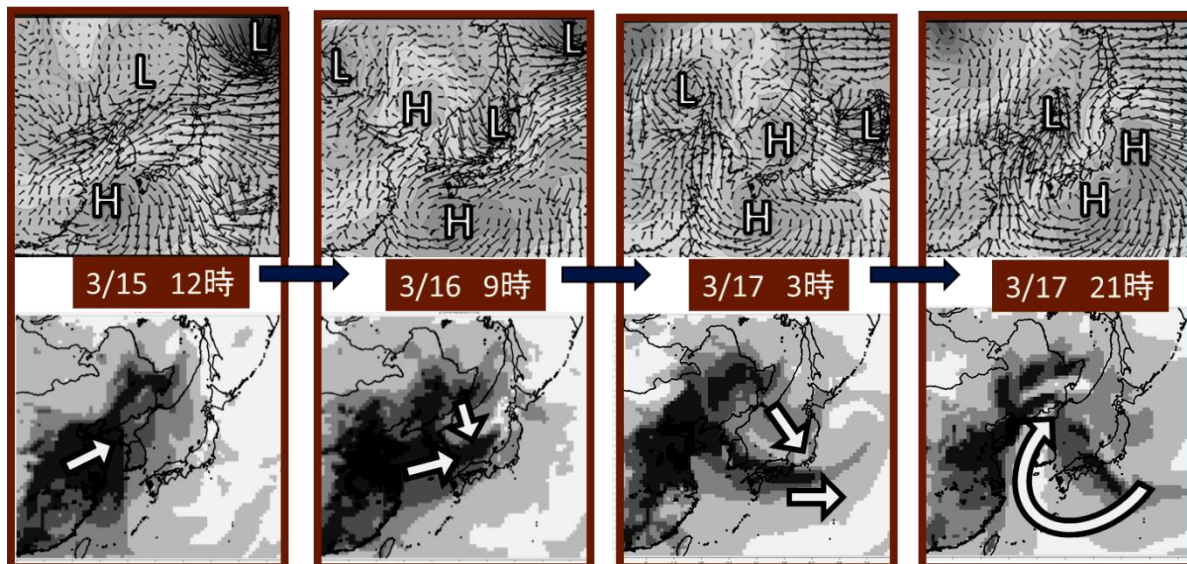


図20 事例Bの気象モデル (上段) とPM2.5シミュレーションモデル (下段)

事例D 高気圧の周回流による越境移流 (2014年4月中旬)

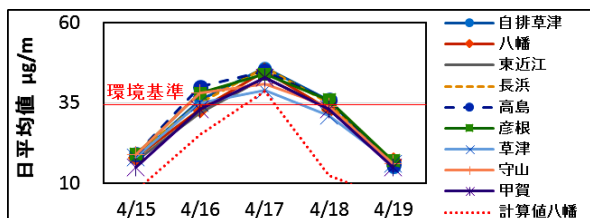


図21 事例Dの県内PM2.5濃度

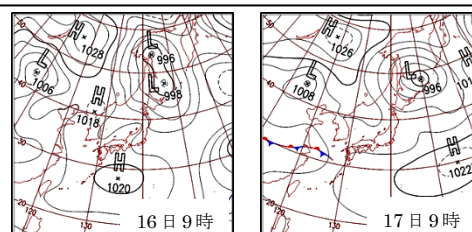


図22 事例Dの天気図 (気象庁HPより)

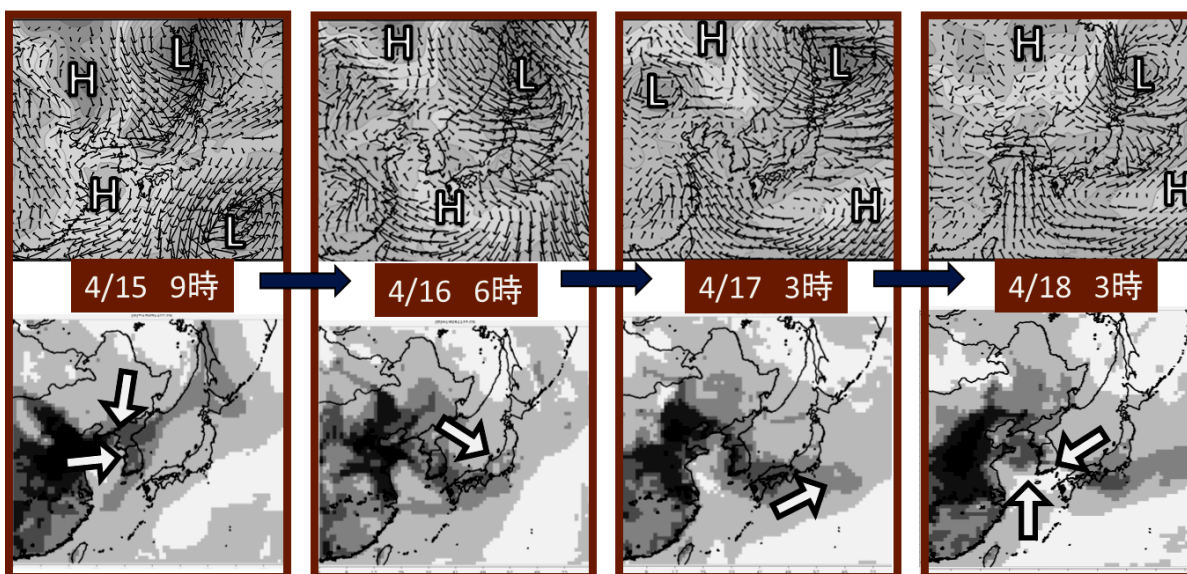


図23 事例Dの気象モデル (上段) とPM2.5シミュレーションモデル (下段)

事例E 大きな勢力の高気圧に保持された移流（2014年2月下旬）

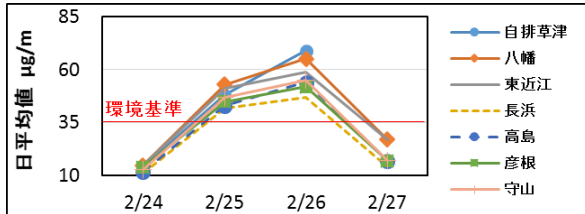


図24 事例Eの県内PM2.5濃度



図25 日平均値 $70 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上の府県 (2/26)

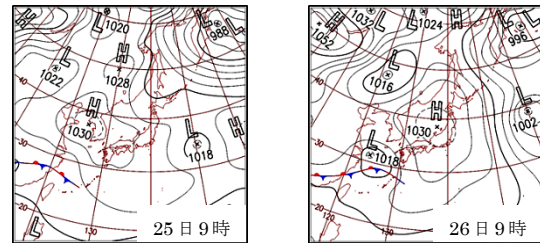
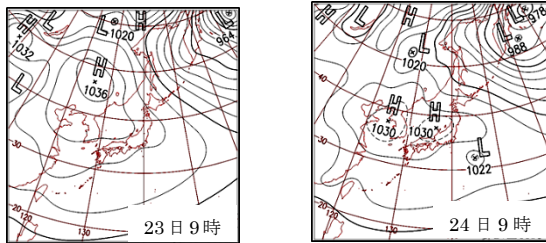


図26 事例Eの天気図（気象庁HPより）

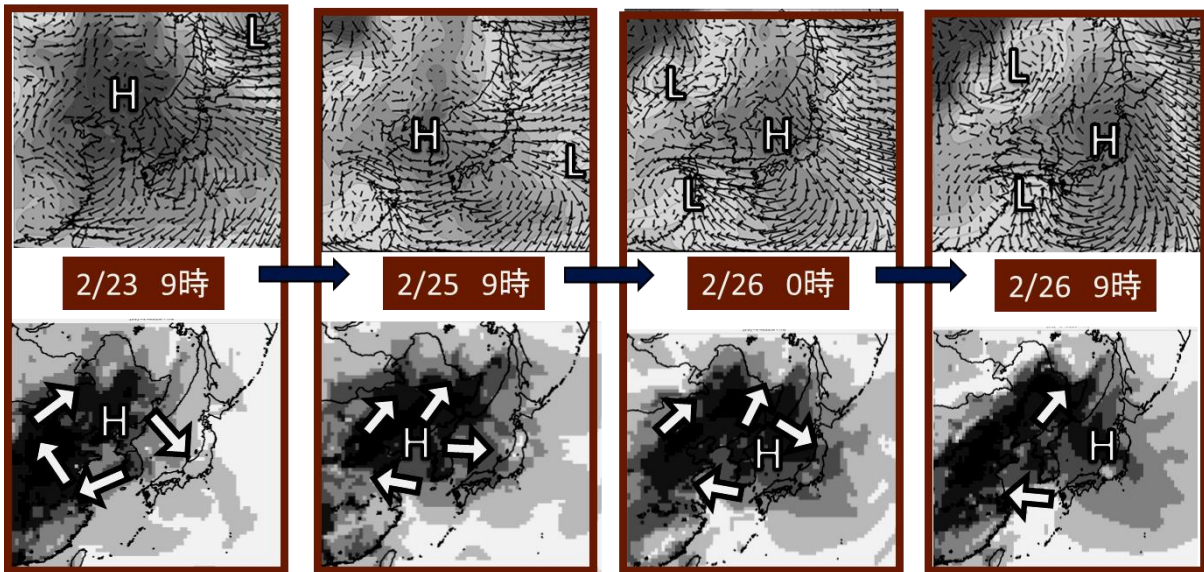


図27 事例Eの気象モデル（上段）とPM2.5シミュレーションモデル（下段）

事例I 梅雨前線が本州から離れた南海上に停滞（2014年6月中旬）

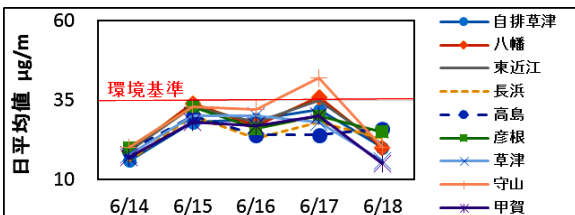


図28 事例Iの県内PM2.5濃度

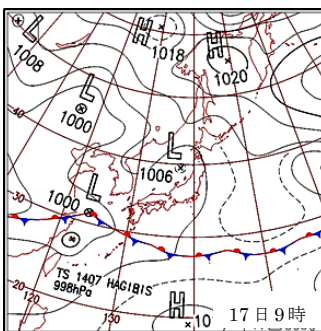


図29 事例Iの天気図

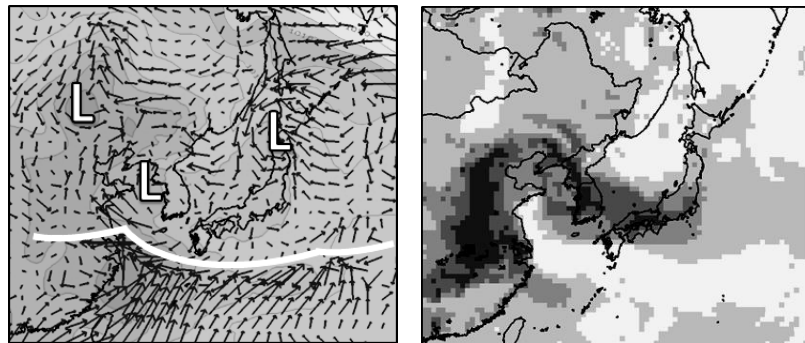


図30 事例Iの気象モデルとPM2.5シミュレーションモデル（2014/6/17）

事例 J 太平洋高気圧が東海上に張り出す（2012 年夏）

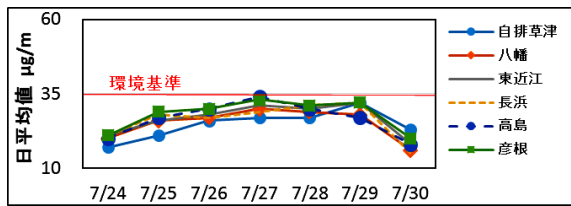


図 31 事例 J の県内 PM2.5 濃度

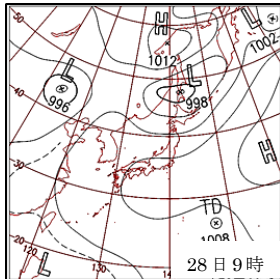


図 32 事例 J の天気図

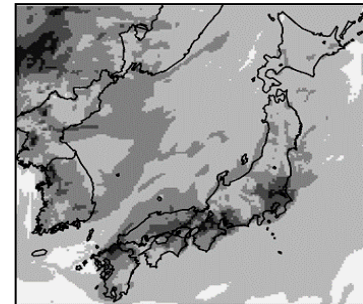
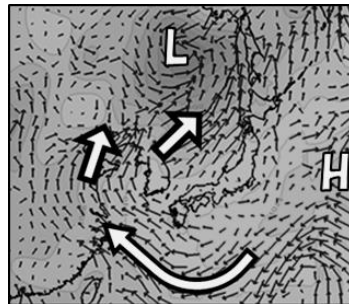


図 33 事例 J の気象モデルと PM2.5 シミュレーションモデル（2012/7/28）

事例 K 太平洋高気圧が南海上に張り出す（2013 年夏）

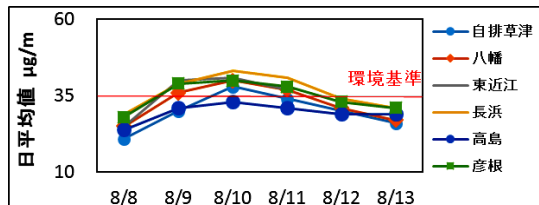


図 34 事例 K の県内 PM2.5 濃度

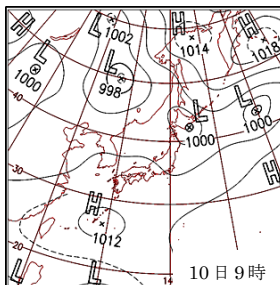


図 35 事例 K の天気図

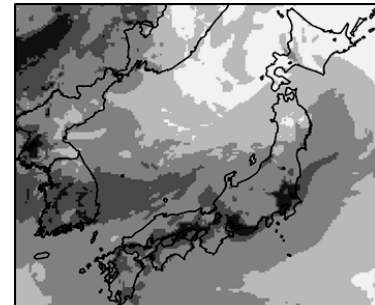
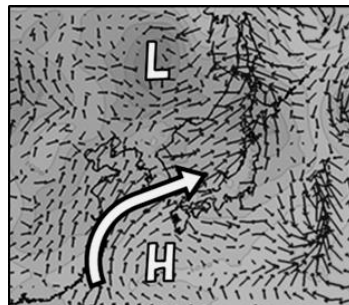
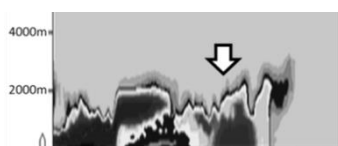
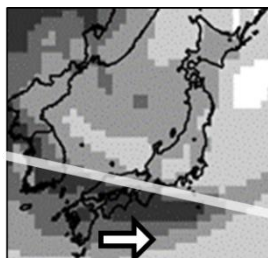


図 36 事例 K の気象モデルと PM2.5 シミュレーションモデル（2013/8/10）

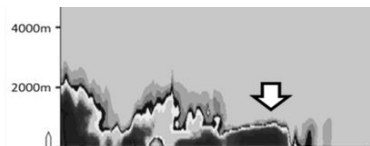
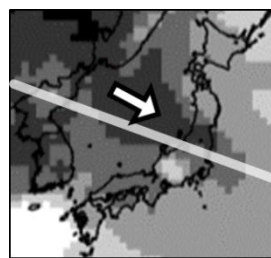
<事例 B>

高気圧の周回流による越境



<事例 E>

高気圧の中心に保持



<事例 J>

国内汚染の蓄積

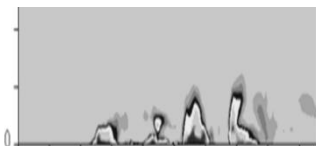
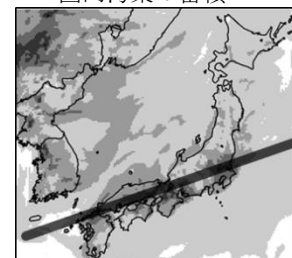


図 37 事例 B、事例 E、事例 J の PM2.5 シミュレーション鉛直分布（上段図の線で作成）

3.2.4. 高濃度時の気圧配置分類

以上の解析結果から、滋賀県における PM2.5 高濃度現象と気圧配置の関係を以下の3つに分類した。

- ①移動性高気圧が日本の南岸を通過するとき、高気圧北西域の周回流による移流が発生
- ②大きな勢力で移動が遅い高気圧中心に PM2.5 が保持
- ③気圧勾配がゆるやかな状態が長期間継続

梅雨前線が本州から離れた南岸に位置する場合や太平洋高気圧の勢力下の高濃度事例は、③に包括した。分類した3つのパターンについて、日平均の環境基準値を超過した日数を月別に示したのが、図 38 である。2012 年度から 2016 年度の 5 年間を集計した。4 月や 3 月は、環境基準値超過日数が多く、①の移動性高気圧の周回流による移流が多い。5 月から 8 月の暖候期は、③の気圧勾配がゆるやかな状態が多くを占めている。②は頻度的には少ないが、2014 年 2 月の注意喚起レベルの高濃度事例が含まれている。

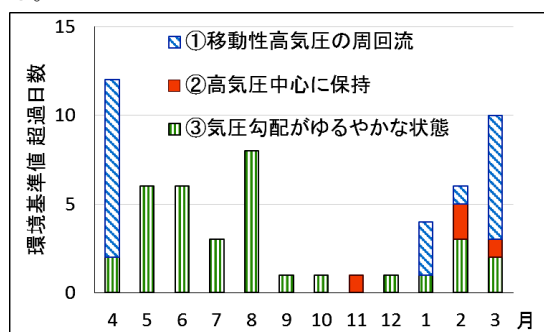


図 38 気圧配置分類別の PM2.5 環境基準値超過日数 (2012 年度～2016 年度を集計)

3.3. 大気降下物による負荷量と変動要因

本研究のもう 1 つの目的は、大気から流域への窒素負荷量と変動要因を把握することである。大気から地上への栄養塩の負荷（沈着）は、雨等による湿性沈着と粒子やガスによる乾性沈着がある（図 39）。この大気降下物による負荷量は、PM2.5 と同様にシミュレーションモデルで計算され、汚染物質の大気濃度と関連がある。

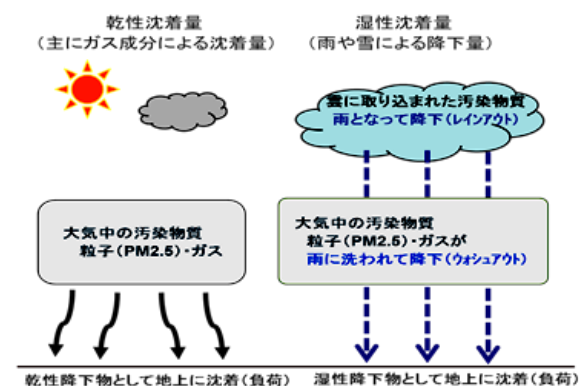


図 39 湿性沈着と乾性沈着の概念

窒素成分の乾性沈着量と湿性沈着量について、以前に実施した降下物調査（当センター研究報告書 (H23～25 年度) 「大気降下物に関する解析評価」）の結果を図 40 に示す。乾性沈着量よりも湿性沈着量が 1.3～5.8 倍多く、夏は乾性沈着と湿性沈着の両方が増加していた。

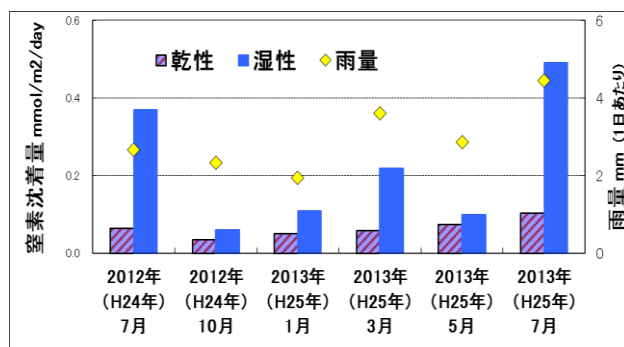


図 40 窒素成分の乾性沈着量と湿性沈着量 (地点: 当センター、各期間 2 週間のサンプリング)

今回は、シミュレーションによる解析を加えて、解析を実施した。

3.3.1. 窒素成分の乾性沈着量

以前の調査は、詳細な把握がなされていなかった乾性沈着を中心に実施した。その結果、窒素の乾性沈着量は、硝酸ガス (HNO_3) の濃度上昇により、夏の昼に顕著に増加することがわかった（図 41）。また、 HNO_3 濃度は、オキシダント (Ox) の日変化量 (日最高 1 時間値－日最低 1 時間値) と良い相関があり（図 42）、 Ox の生成により発生する OH ラジカルが、 HNO_3 の生成量を決定すると考えられた（図 43）。図 42 の回帰式は、 Ox 変化量が 30ppb 以上を対象とした。詳しくは、前述の当センター研究報告書に記載している。

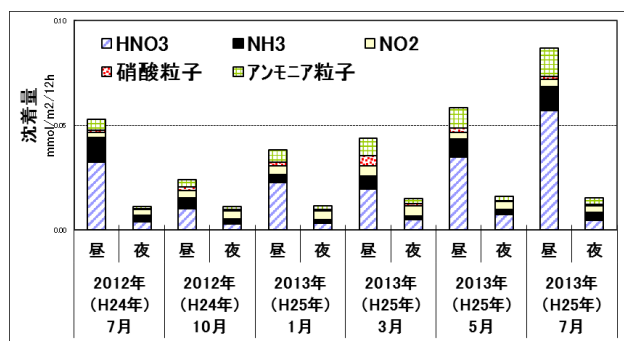


図 41 昼夜別の窒素乾性沈着量 (12 時間平均・地点は当センター)

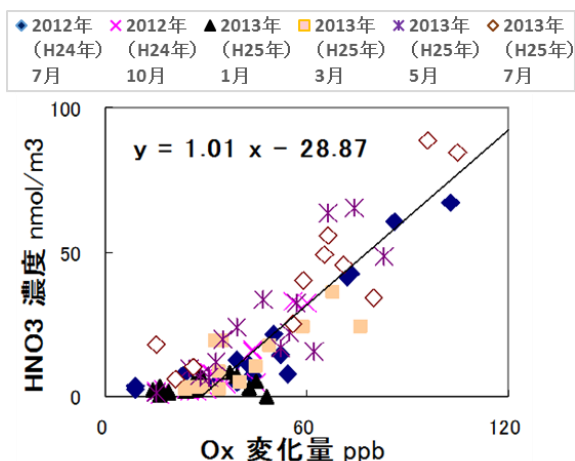


図 42 HNO₃ と O_x 変化量

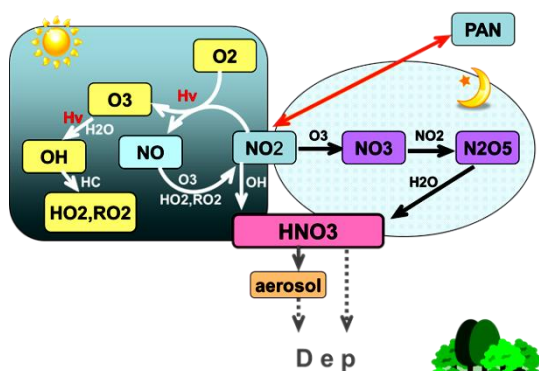


図 43 HNO₃ の生成過程

今回は、シミュレーションにより、窒素沈着量の県内分布を求めた。図 44～46 に、O_x 濃度と PM2.5 濃度から選んだ 3 つの解析日について結果を示す。いずれも 1 日単位の結果を表した。各解析日の左図の測定地点は、紫外線量は当センター（大津市）、日射量と平均風速は彦根气象台、O_x 最高 1 時間値は県管轄の測定局で最も高濃度となった 1 時間値、PM2.5 濃度は県管轄一般局の平均値である。右図は、シミュレーションによる窒素の乾性沈着量である。図 44 の 2014 年 2 月 26 日は、PM2.5 が高濃度で環境基準値を大きく超過しているが、O_x 濃度は 2 月にしては高いものの環境基準値を超過していない。この日のシミュレーションモデルによる窒素の乾性沈着量（図 44 右）は 3 事例の中で最も少ない。図 45 の 2014 年 5 月 30 日は、PM2.5、O_x 濃度ともに高く環境基準値を超過しており、風も弱く、シミュレーションモデルの窒素の乾性沈着量は、他に比べて高濃度である。図 46 の 2014 年 5 月 10 日は、図 45 と比較すると、紫外線量と日射量は同程度ではあるが、風が強く O_x と PM2.5 は大きく濃度上昇しておらず、窒素の乾性沈着量も少ない。

このように、3 事例を比較すると、O_x 濃度が高い時に窒素の乾性沈着量が増加しており、観測による以前の調査結

果と同様であった。紫外線量や日射量が多い弱風下で、PM2.5 等の大気汚染物質とともに O_x 生成の原因物質が移流すると、O_x 濃度が上昇し、O_x の生成量と関連する窒素の乾性沈着量が増加すると考えられる。

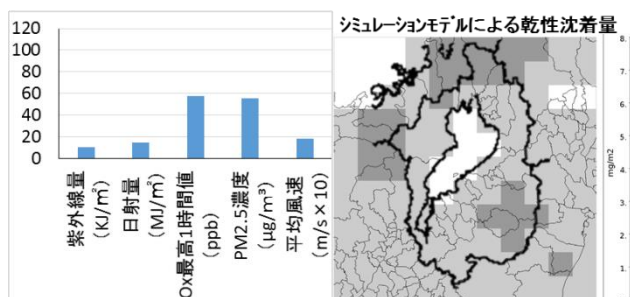


図 44 2014/2/26 の窒素の乾性沈着量

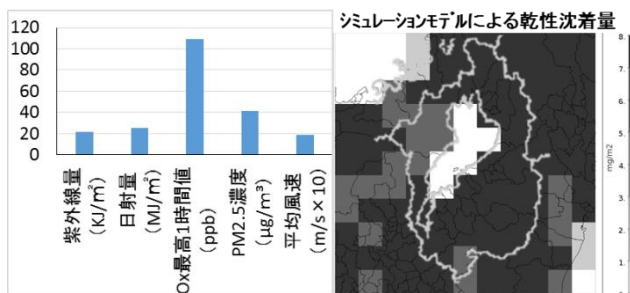


図 45 2014/5/30 の窒素の乾性沈着量

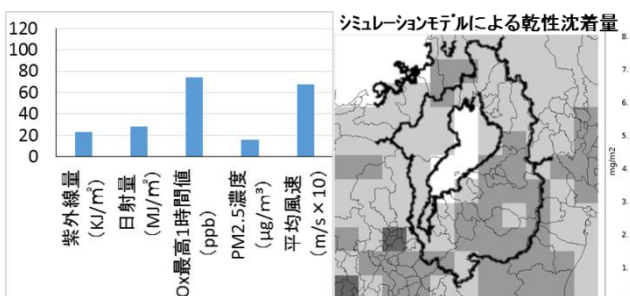


図 46 2014/5/10 の窒素の乾性沈着量

3.3.2. 窒素成分の湿性沈着量

前述したように、湿性沈着量は乾性沈着量の 1.3～5.8 倍であり、大気から流域への負荷量のうち雨や雪による降水量は重要である。ここでは、降水の窒素成分について、実測による沈着量や大気シミュレーションによる沈着量と気圧配置の関係をみた。

湿性降水物の採取は、県北部の今津と南部の大津で実施している（図 47）。図 48 は、両地点のアメダスによる降水量を気圧配置別に集計した結果である。気圧配置は、天気図から判断して、図 48 に示したように 5 つに分類した。両地点の降水量の大きな違いは、冬型気圧配置時には県北部（今津）では降水量が多いが、南部（大津）では少ないことである。3 月は低気圧、6 月と 7 月は梅雨前線、8 月から 10 月は台風により、降水量が増加している。

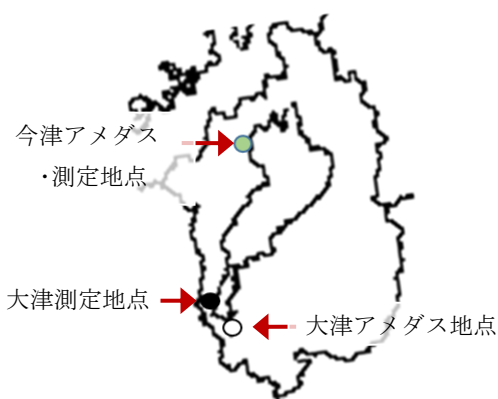


図 47 アメダスと湿性降水物の調査地点

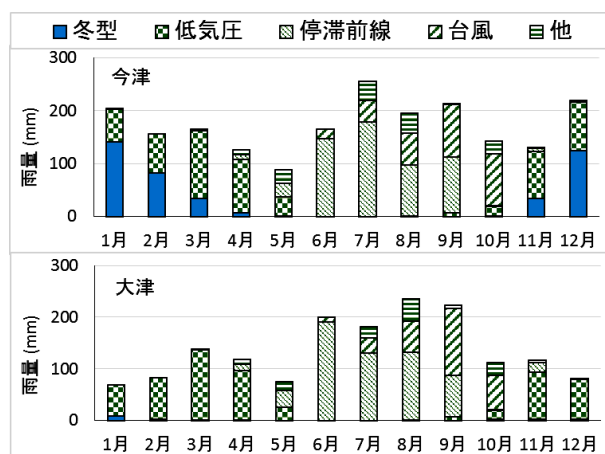


図 48 今津と大津の気圧配置別降水量の経月変化
(2012 年～2015 年の平均)

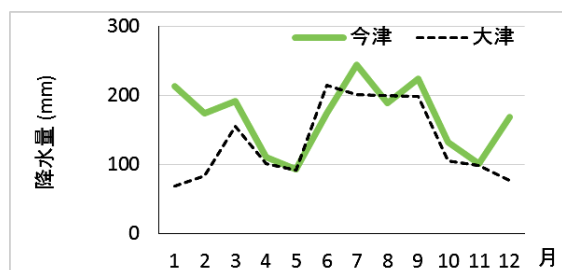


図 49 簡易法による降水量

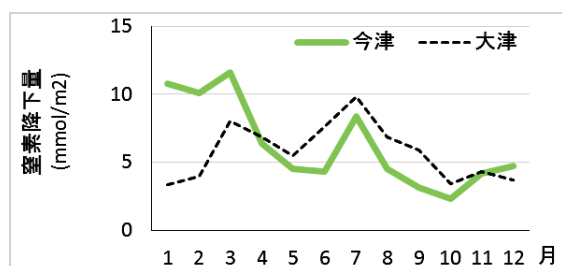


図 50 窒素の湿性（雨・雪）降水量

図 49 は、今津と大津で常時開放式の簡易法により採取した降水量である。図 48 のアメダスの降水量の変動と一致している。図 50 は、採取した雨の窒素降下量である。図 49 の降水量の変動と似ており、降水量が多いと窒素降下量が増加する傾向があることを示している。しかし、台風の多い 8 月と 9 月は、降水量が多い（図 49）にもかかわらず窒素降下量が少ない（図 50）。このことから、台風時には、窒素濃度が低い雨が降っていることがわかる。これと反対に、冬型気圧配置であることが多い冬の今津では、降水量の増加（図 49）以上に窒素降下量の増加（図 50）が著しく、窒素濃度の高い雨や雪が降っている。

このように、季節により湿性の窒素濃度が異なる要因として、気圧配置の影響が考えられたので、気圧配置別に窒素の湿性降下量を解析した。従来からの湿性調査（1 週間程度ごとの採取が多い）で気圧配置分類ができた試料を選定して、降水量と降水中の窒素降下量を図 51 に例示した。この図のサンプリング期間は、冬型が 2012 年 1 月 4 日から 15 日、南岸低気圧は 2014 年 3 月 26 日から 31 日、梅雨前線北上は 2012 年 7 月 11 日から 15 日、台風は 2013 年 10 月 23 日から 27 日である。冬型の気圧配置では、降水量と窒素降下量は、今津と大津で大きな差が生じている。台風では、降水量が多いにもかかわらず、4 例のなかで最も窒素降下量が少ない。

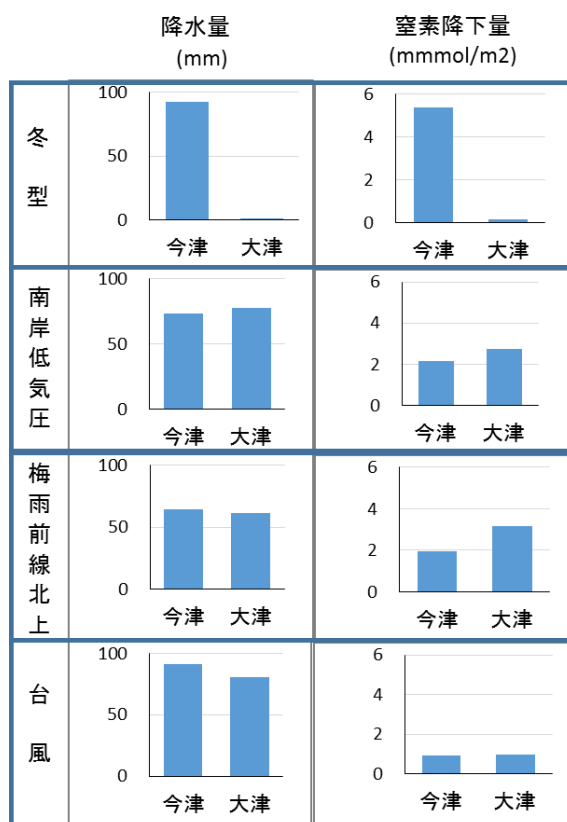


図 51 気圧配置別の降水量と窒素降下量

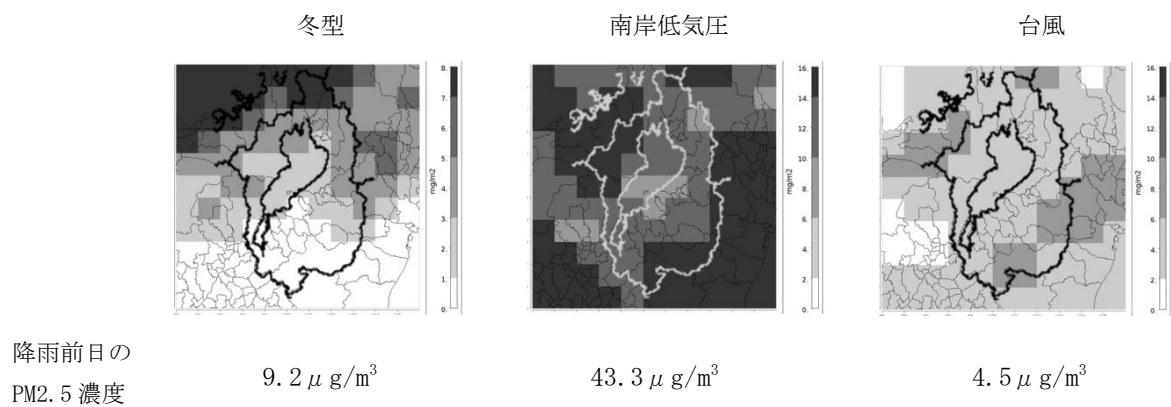


図 52 シミュレーションによる湿性窒素降下量の例

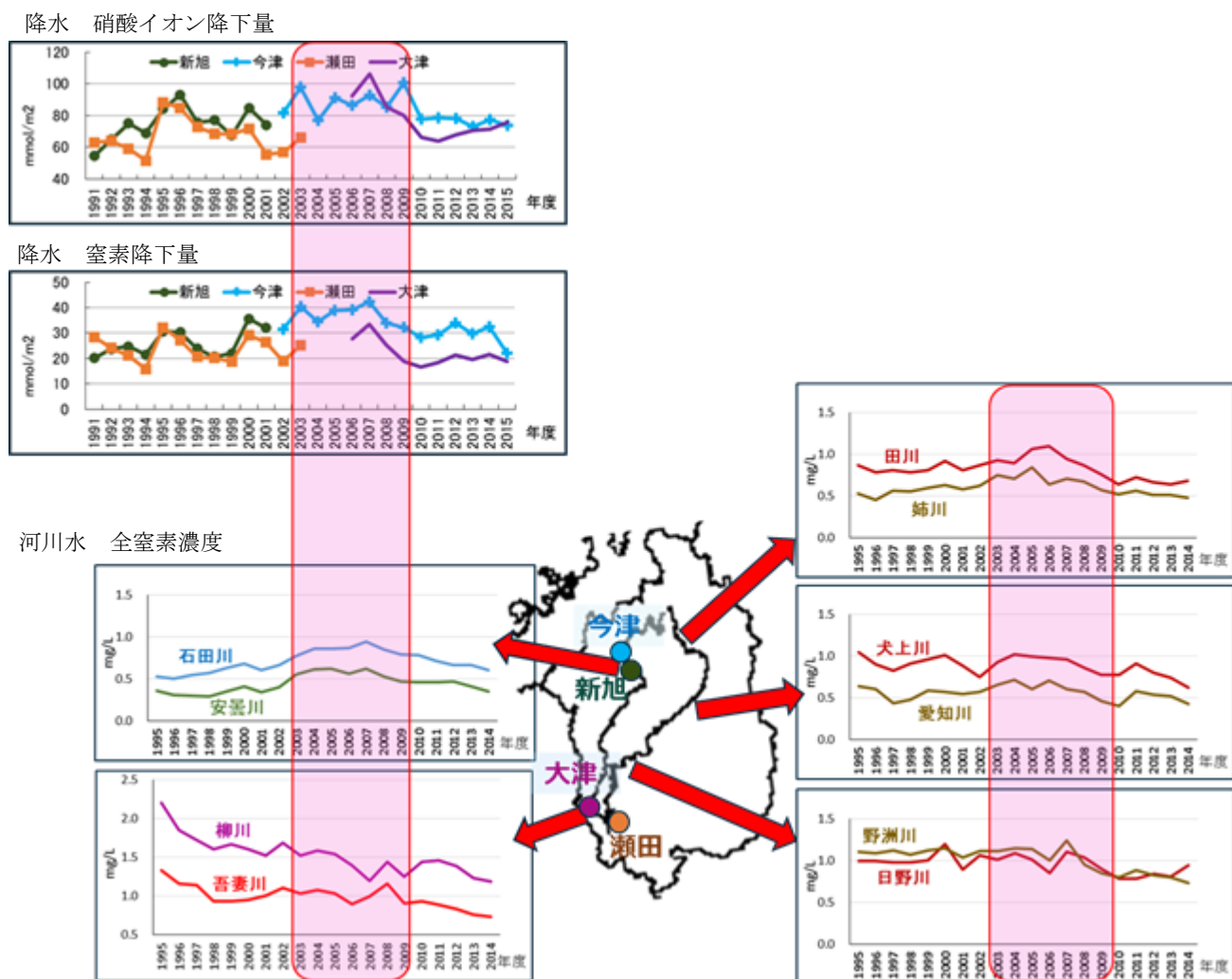


図 53 降水による窒素降下量と河川水中窒素濃度の経年変化

また、図 52 にシミュレーションモデルによる 1 日あたりの湿性窒素降下量の県内分布の例を示した。年間を通したアジア域 (50Km メッシュ) の計算結果がある 2013 年と 2014 年の中から、降水量が多く気圧配置分類可能な日を選んで、日本域 (10Km メッシュ) を計算し、県内の分布を作成した。図 52 の冬型は 2013 年 12 月 29 日、南岸低気圧は 2014 年 4 月 18 日、台風は 2013 年 9 月 16 日の計算結果である。左図の冬型気圧配置で南北の差が大きくなっており、図 51 の実測結果と一致した結果であった。このシミュレーション図は、1 日当たりの沈着量であり、他の 2 つよりもスケールが倍になっているのだが、冬型の気圧配置は数日間継続することが多いので、1 日あたりの降下量が少なくても累積すると南北で大きな差が生じると考えられる。シミュレーションモデル計算結果においても、台風では窒素降下量が少なくなっている。この 3 例の降雨前日における県管轄一般局の PM2.5 濃度平均値は、冬型で $9.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、南岸低気圧で $43.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、台風で $4.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。降雨前に大気中の PM2.5 濃度が高いと雨の窒素降下量が増加する。南岸低気圧は、移動性高気圧が通過した後に出現することが多く、移動性高気圧の周回流による移流で高濃度となった PM2.5 等の大気汚染物質を降水で洗い流して地上に降下させるため、窒素降下量が多くなると推測できる。

3.3.3. 降水による窒素降下量と河川水中窒素濃度の経年変化

降水による窒素降下量といくつかの河川水の窒素濃度について、経年変化を図 53 に示した。降水による窒素降下量は、硝酸イオンのみの降下量とアンモニウムイオンを加算した窒素降下量の両方を作図した。降水による窒素降下量は、2003 年から 2009 年度頃にピークがあるようにみえ、県北西部の河川の窒素濃度もよく似た傾向であるが、県南部の河川では異なる。県北部では、前項に記載したように冬季の降水による窒素降下量が多く、河川の全窒素は低濃度であるため、大気からの影響を受けやすいのに対し、都市部の河川では、下水道整備等大気以外の変動要因が大きいと考えられる。降水による降下量は、中国における排出量の推移とも関係があるといわれている。

大気からの降下物が、河川水濃度に影響する可能性は指摘できたが、定量的な把握には至っておらず、今後の課題である。

4. 結論

PM2.5 が濃度上昇した事例について、天気図との関連や成分測定およびシミュレーションモデルによる解析を実施した。これらの解析手法により得られた結果は、整合性

がとれており、移流状況の把握に高い信憑性が得られた。その結果、PM2.5 が濃度上昇と気圧配置の関係を以下 3 つに分類した。

- ①移動性高気圧が日本の南岸を通過する気圧配置では、高気圧の北西域の周回流による移流がある。
- ②大きな勢力で移動が遅い高気圧中心に PM2.5 が保持され、上空に拡散せずに広範囲に高濃度となる。
- ③安定した太平洋高気圧下や日本の南海上で梅雨前線が停滞する場合等、気圧勾配がゆるやかな状態が長期間継続する気圧配置では、国内汚染の蓄積とゆるやかな越境移流が長期化する可能性がある。

春先は①の移動性高気圧北西域の周回流による移流が多く、夏季は③の気圧勾配がゆるやかな状態で濃度上昇することが多かった。②は頻度的には少ないが、2014 年 2 月の注意喚起レベルのかなり高濃度な事例が含まれている。

県で PM2.5 の自動測定を開始して 5 年が経過し、県内の各地点で環境基準達成状況に差があることがわかったので、今後は県内地域差の要因を解析する必要がある。

窒素成分の乾性沈着量が増加するのは、紫外線や日射量が多い弱風下で、PM2.5 等の大気汚染物質とともに Ox 生成の原因物質が移流して、 Ox 濃度が上昇する時である。

窒素成分の湿性沈着量が増加するのは、県北部では冬型気圧配置の時、県全域では南岸低気圧や梅雨前線による降水量が多い時である。台風時は、降水量は多いが降水中の窒素濃度は低い。降雨前に大気中の PM2.5 濃度が高いと、降水により地上に沈着するため、窒素濃度の高い雨が降る。

県北部では、冬季に雨や雪による沈着量が多く、北部河川の全窒素が低濃度であるため、大気からの影響を受けやすいと考えられる。

各年の気候の特徴は、偏西風の蛇行やエルニーニョ現象等の影響を受け、数ヶ月以上の長期にわたり継続する。このため、大気汚染物質が高濃度となりやすい気象条件が整った年は、その季節中に移流が起こりやすい気圧配置が何度も繰り返され、環境基準超過や大気からの負荷量が増加する頻度が高くなる。大気汚染物質の濃度や負荷量の変動については、発生量の増減だけではなく、その年の気圧配置の傾向による移流や滞留の変化を考慮して判断する必要がある。

5. 参考文献等

鵜野伊津志, 村野健太郎, 若松伸伺 (1998) : 春季の移動性高気圧通過時の二次大気汚染物質の長距離輸送と変質過程の数値解析. 大気環境学会誌, 32, 404-424
兼保直樹, 高見昭憲, 佐藤圭, 畠山史朗, 林政彦, 原圭一郎, Chang Lim-Seok, Ahn Joon-Young (2010) : 九州北

- 部における春季の高濃度 PM2.5 と長距離輸送. 大気環境学会誌, 45, 227-234
- 兼保直樹, 高見昭憲, 佐藤圭, 畠山史朗, 林政彦, 原圭一郎, 河本和明, 山本重一 (2011): 九州北部の離島および大都市部における PM2.5 濃度の通年での挙動. 大気環境学会誌, 46, 111-118
- 鶴野伊津志, 森淳子, 宇都宮彬, 若松伸伺 (1998): 梅雨期の東アジアスケールの長距離輸送の解析. 大気環境学会誌, 33, 109-116
- 兼保直樹, 鈴木基雄, 杉本伸夫, 松井一郎, 清水厚 (2005): 梅雨期の広域的な SPM 高濃度出現をもたらす気象的要因-1997 年 7 月の事例解析-. エアロゾル解析, 20, 3131-322
- 森淳子, 宇都宮彬, 鶴野伊津志, 若松伸伺, 大原利眞 (1997): 九州北部地域におけるエアロゾル濃度の変動と高濃度エピソードの解析. 大気環境学会誌, 32, 73-89
- 日置正, 紀本岳志, 長谷川就一, 向井人史, 大原利眞, 若松伸伺 (2009): 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
- 東京都環境科学研究所 (2011): 微小粒子状物質 (PM2.5) 等の二次生成機構に関する研究 報告書. 東京都微小粒子状物質検討会報告書
- 東京都環境科学研究所 (2011): PM2.5 等のレボグルコサン分析に関する研究. 東京都微小粒子状物質検討会報告書
- 長谷川 就一 (2016): PM2.5 の炭素成分測定における正のアーティファクトの影響. 大気環境学会誌, 51, 58-63
- 長谷川 就一 (2017): 野外焼却の実態と PM2.5 濃度への影響に関する考察. 大気環境学会誌, 52, 40-50
- 板橋秀一, 弓本桂也, 鶴野伊津志, 大原利眞, 黒川純一, 清水厚, 山本重一, 大石興弘, 岩本眞二 (2009): 2007 年春季に発生した東アジア域スケールの広域的越境汚染の化学輸送モデル CMAQ による解析. 大気環境学会誌, 44, 175-185
- 茶谷聡, 森川多津子, 中塚誠次, 松永壮 (2011): 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 PM2.5 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
- 全国環境研協議会 (2016): 第 5 次酸性雨全国調査報告書 (平成 26 年度). 全国環境研会誌, 41(3), 2-37
- 友寄喜貴, 野口泉, 大泉毅, 北村洋子, 中川史代, 溝口俊明, 村野健太郎, 向井人史 (2009): 2003~2006 年度の湿性沈着調査が示す越境大気汚染~全環研酸性雨全国調査結果より~. 大気環境学会誌, 44, 117-127
- 環境研究総合推進費 終了成果報告 (5B-1101): 全国の環境研究機関の有機的連携による PM2.5 汚染の実態解明と発生源寄与評価 (平成 23~25 年度)
- 三田村徳子・園正・服部達明・五十嵐恵子 (2010): 湿性および乾性降下物調査. 琵琶湖環境科学研究センター研究報告書(平成 21 年度)
- 三田村徳子・園 正・宮野愛子・水嶋清嗣・服部達明 (2015): 大気降下物に関する解析評価. 琵琶湖環境科学研究センター研究報告書(平成 23~25 年度)
- 大気汚染物質広域監視システム (そらまめ君) HP : <http://soramame.taiki.go.jp/>
- 気象庁 HP : <http://www.jma.go.jp/>
- 環境省 HP : <http://www.env.go.jp/>