

〈特集〉

日本と中国のPM_{2.5}の性状と関東地域の越境大気汚染の影響

米 持 真 一

埼玉県環境科学国際センター

(〒347-0115 埼玉県加須市上種足914 E-mail: yonemochi.shinichi@pref.saitama.jp.jp)

概 要

2013年1月、中国広域で発生したPM_{2.5}の高濃度汚染を機に、日本国内でもPM_{2.5}への関心が急速に高まった。我々は埼玉県加須市で2000年からPM_{2.5}の化学成分を含めた通年観測を行ってきたが、従来の大気汚染対策の効果として、PM_{2.5}濃度は微減傾向が見られる。

高濃度汚染発生時に、中国国内で採取したPM_{2.5}の化学成分分析の結果、石炭に由来する成分が特徴的であった。一方、同時期に埼玉県加須市で採取したPM_{2.5}には大きな変化は見られず、メディア等の報道とリンクはしていなかった。PM_{2.5}汚染の正確な把握と濃度の一層の低減には、化学組成情報が不可欠である。

キーワード：PM_{2.5}、化学組成、金属元素成分、中国、越境大気汚染

原稿受付 2014.11.26

EICA: 19(4) 58-62

1. は じ め に

2013年1月、中国広域でPM_{2.5}高濃度汚染が発生した。北京市内の米国大使館による測定値は850 μg/m³を超え、これがメディアを通じて世界中に発信されたことから、日本国内でも大きく報じられた。

その後、北西風によって中国のPM_{2.5}が日本に運ばれてくるとの懸念が高まり、いわゆる越境大気汚染に対する関心が高まった。当時は、いささか過熱気味の報道により、多くの日本国民が、“PM_{2.5}は中国から飛来する得体の知れない有害物質”という誤ったイメージを持ったと考えられる。

PM_{2.5}は1997年に米国で初めて大気環境基準が設定され、日本でも2009年に環境省により環境基準値が設定されたが、当時は国民に広く知られることは無かった。埼玉県環境科学国際センターでは、2000年の設立当初から、PM_{2.5}の週単位の捕集を開始し、年間を通して、その主要化学成分の分析も継続してきた¹⁾。また、2009年からは、これに1日単位の捕集を加えた2台の体制で通年観測を継続している²⁾。

更に同年から中国の研究機関と共同研究を開始し、2013年1月に発生したPM_{2.5}高濃度汚染時にも上海市内、北京市内で日本国内との同時観測を実施していた。本稿では、これらの観測データを基に、日本と中国のPM_{2.5}について成分を含めて解説したい。

2. 長期観測から見た化学組成の変化

2.1 観測地点と分析方法

環境科学国際センターは都心郊外の埼玉県加須市に位置する (Fig. 1)。周囲を田園に囲まれ、近傍に大規模な発生源は無い。PM_{2.5}採取装置は、Partisol Plus 2025 (Thermo Scientific) を用い、1週間単位の捕集では石英フィルター上に、1日単位の捕集ではPTFEフィルター上にPM_{2.5}を捕集した。

捕集前と捕集後にフィルターを恒温恒湿室で24時間以上静置したのち、秤量精度1 μgの精密電子天秤を用いて重量を測り、その差からPM_{2.5}質量濃度を求めた。

水溶性無機イオンは、フィルターの1/4を用いて超



Fig. 1 Location of observation site (Center for Environmental Science in Saitama, CESS)

純水中で超音波抽出を行い、イオンクロマトグラフ法で測定した。有機炭素(OC)と元素状炭素(EC)は同じく1/4を用いCHNコーダーにより熱分離法で測定した。PM_{2.5}の成分測定マニュアル³⁾では、加熱中に一部が炭化してECとして分析されるOCを、光学的に補正する熱光学式炭素分析装置を用いることとなっているが、本観測では15年前からCHNコーダーを用いてきたことから、同じ手法で分析を行っている。

2.2 経年変化と特徴

Fig. 2は2000年9月から実施してきた1週間単位のPM_{2.5}質量濃度の推移を示したものである。通年で試料が得られた2001年度は23.2 μg/m³であったが、2012年度は16 μg/m³と11年間で7 μg/m³低下したことになる。

2009年から実施してきた1日単位のPM_{2.5}の捕集から得た質量濃度のうち、短期基準値である35 μg/m³を超過した日数と注意喚起のための暫定的な指針値⁴⁾である70 μg/m³を超過した日数を**Fig. 3**に示した。

35 μg/m³超過日数は年々減少しており、総体として改善傾向にあると考えられる。また、35 μg/m³超過日は、10月～3月に集中しており、環境基準達成には、この期間の濃度を低下させる必要がある。2011年2月、11月には全国的な高濃度現象が見られ、こ

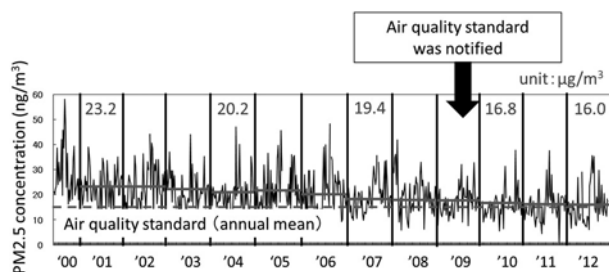


Fig. 2 Trend of PM_{2.5} mass concentration at CESS

の要因について解析を行った事例から、越境大気汚染と地域汚染が混在し、高濃度が発生したと推察されている^{5,6)}。なお、2013年は過去5年間では見られなかった夏季に高濃度が連続する事例が見られた。

Fig. 4に1週間単位で通年観測を継続してきたPM_{2.5}の主要成分濃度の経年推移を示した。PM_{2.5}は塩化物イオン(Cl⁻)、硝酸イオン(NO₃⁻)、硫酸イオン(SO₄²⁻)、有機炭素(OC)及び元素状炭素(EC)の5成分で約7~8割程度を占めるが、Cl⁻、NO₃⁻、ECには明瞭な濃度低下傾向が見られる。Cl⁻は主に焼却炉から発生するHClに由来する成分と考えられるが、1990年代後半に発生したダイオキシン問題をきっかけとする焼却炉規制の効果と考えられる。NO₃⁻は窒素酸化物(NO_x)が前駆物質であるが、これは従来から進められてきた移動発生源、固定発生源対策の効果と考えられる。ECについても同様に移動発生源対策、

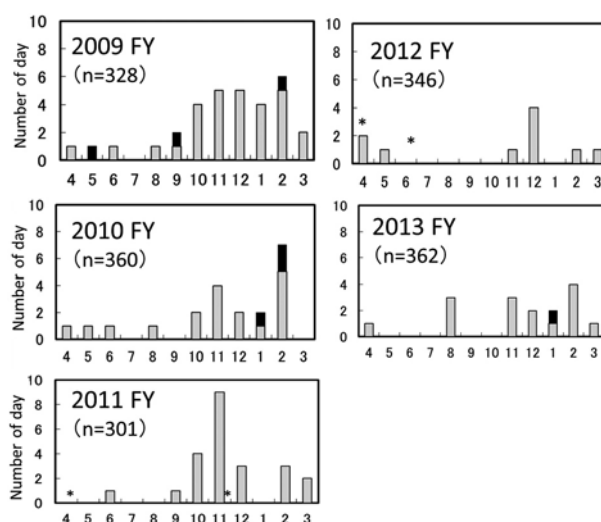


Fig. 3 Number of days that daily mean concentration exceeded the 24 hour standard of 35 μg/m³. Black bar in figures describes number of days that those exceeded 70 μg/m³ of advisory level. Asterisk describes the month that less than 20 days

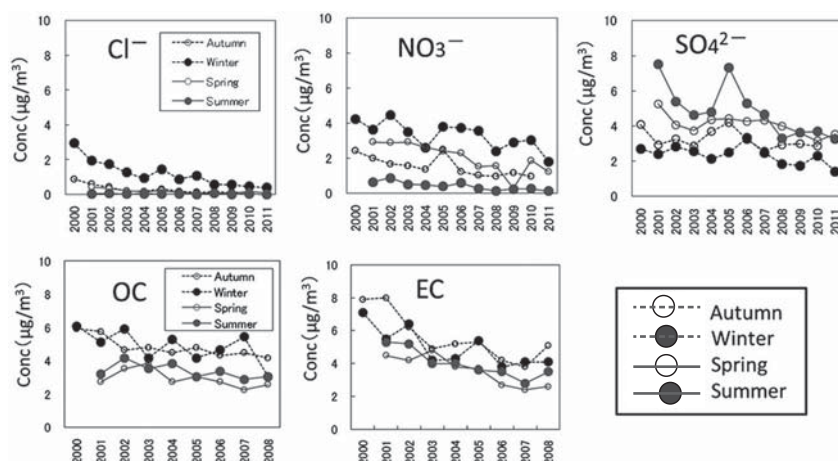


Fig. 4 Trends of major chemical components of PM_{2.5}

特に自動車NO_x・PM法や2003年10月から開始された七都県市（その後、八都県市）によるディーゼル車運行規制等の効果によるものと考えられる。

3. 2013年1月の中国における高濃度汚染⁷⁾

3.1 PM_{2.5} 質量濃度

我々は2009年より中国の大学等の研究機関と大気エアロゾルの共同研究を行ってきたが、2013年1月には北京市内で現地研究者の協力の下にPM_{2.5}、PM₁の同時採取を実施していた。試料採取はマルチノズル・カスケードインパクト（MCI）サンプラーを用いた。北京市内の米国大使館では、以前より独自にPM_{2.5}の測定を行っており、PM_{2.5}の1時間値をtwitter上で公開していたが、1月12日夜間に測定値が900 μg/m³近い値まで上昇したため、メディアを通じて世界中に報道された。Fig. 5は2013年1月のPM_{2.5}の1時間測定値の推移である。1月10日夕方から300 μg/m³を超える高い濃度で推移していたが、12日夕方から急激に上昇し、20時に886 μg/m³に達した。夜間も800 μg/m³前後の状態が続いた。Fig. 5に、我々の観測期間も示した。1月9日～23日を6回に分け、フィルター上にPM_{2.5}及びPM₁を採取した。前述の高濃度は期間②に見られた。

Fig. 6は採取した試料から得たPM_{2.5}及びPM₁質量濃度と、米国大使館の測定値を試料採取期間に合わせて整理したものである。期間②を除き、概ね整合していた。1月12日を含む期間②のPM_{2.5}の濃度差

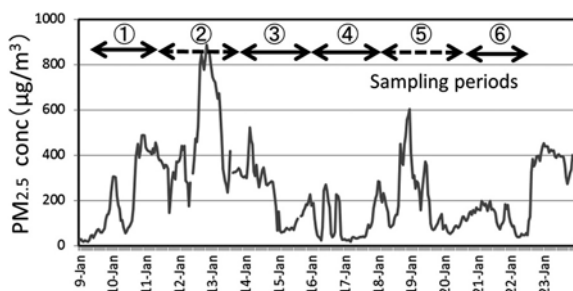


Fig. 5 Variation of PM_{2.5} measured by U. S. Embassy in Beijing in January, 2013. Dotted lines described weekend

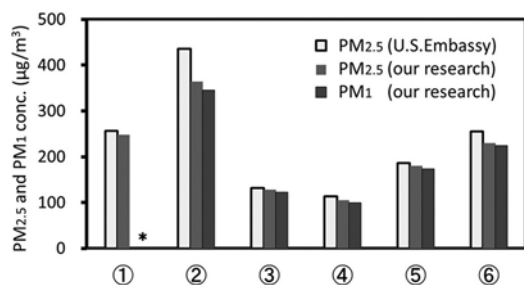


Fig. 6 Comparison of PM_{2.5} measured by U. S. Embassy with those by our research in Beijing * No data

がやや大きいのは、フィルターの目詰まりによるポンプ停止により採取時間が若干異なったためである。期間②～⑥ではPM₁/PM_{2.5}が0.95を超えており、PM_{2.5}のほとんどがPM₁（粒径1 μm以下）として存在したことが分かった。

3.2 化学成分の特徴

PM_{2.5}はPTFEフィルターのみで採取したため、炭素成分の分析はしていないが、水溶性無機イオン8成分、金属元素成分57成分の分析を行った。水溶性無機イオンは、期間②のSO₄²⁻とNO₃⁻濃度が特に高かった。NO₃⁻は燃焼に伴い発生するNO_xから生成し、SO₄²⁻は硫黄分を含む燃料の燃焼に伴い発生するSO₂が主な前駆物質と考えられる。SO₄²⁻/NO₃⁻は燃焼に占める硫黄分を含む燃料の燃焼の比率を示しているが、期間②はこの比率が特に高かった（Fig. 7）。

金属元素成分は、試料に硝酸、フッ化水素酸、過酸化水素水を加えた後に、マイクロウェーブ試料前処理装置を用いて高温高压で分解し、誘導結合プラズマ質量分析（ICP/MS）法によって測定した。Table 1に、日本で有害大気汚染物質優先取組物質として挙げられている9元素の北京市における2週間平均濃度と最高濃度を、比較として同期間の埼玉県加須市の平均濃度と、北京市/加須市を示した。北京市の最高濃度は期間②のものである。北京市のPM_{2.5}濃度は加須市の14倍であったが、ベリリウム（Be）、クロム（Cr）、

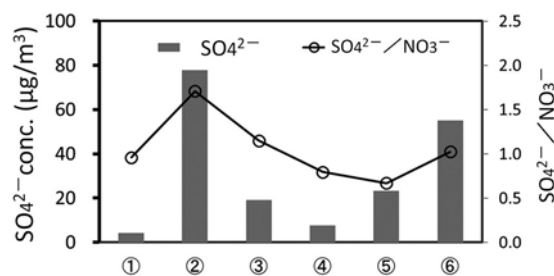


Fig. 7 Variation of sulfate ion and ratio of SO₄²⁻ to NO₃⁻

Table 1 Comparison of elements between Beijing and Kazo in January, 2013

	Beijing		Kazo	Beijing
	Average	Max.	Ave.	Kazo
PM _{2.5}	201	364	14.7	14
Be	0.19	0.24	0.015	13
V	4.7	8	1.6	3
Cr	10	17	1	10
Mn	97	170	6.8	14
Ni	11	19	1.1	10
Zn	570	1300	41	14
As	33	78	0.66	50
Cd	6.5	15	0.24	27
Pb	390	970	8.6	45

Unit: PM_{2.5} (μg/m³), metals (ng/m³)

マンガン (Mn), ニッケル (Ni), 亜鉛 (Zn) も 10 倍～14 倍とほぼ同レベルであった。

これに対して, ヒ素 (As), カドミウム (Cd), 鉛 (Pb) は 27 倍～50 倍に達していた。これらの重金属元素は, 石炭中に豊富に含まれる成分であり, SO_4^{2-} とともに石炭燃焼の影響が強く示唆される。

1 月 12 日～13 日は週末であり。北京市内の気温は氷点下で推移していた。このため暖房等に用いられた石炭燃焼の影響がその要因の一つと考えられる。

4. 関東地域への影響

越境大気汚染を評価するにあたり, 1 日単位で採取した 2013 年 1 月～3 月の $\text{PM}_{2.5}$ を対象に主要成分を調べた。Fig. 8 に 2011 年～2013 年のそれぞれ 1 月～3 月に 1 日単位で採取したフィルターから得た $\text{PM}_{2.5}$ 濃度と $\text{PM}_{2.5}$ 中の SO_4^{2-} 濃度の変化を示した。図中の矢印はメディア等で $\text{PM}_{2.5}$ の越境大気汚染が話

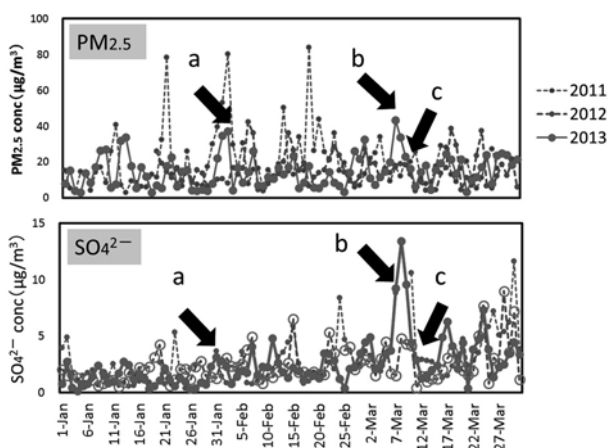


Fig. 8 Variation of $\text{PM}_{2.5}$ mass concentration and sulfate ion (SO_4^{2-}) during January to March in 2011-2013 at Kazo

題となった期間 (2013 年 1 月 31 日～2 月 2 日前後, 期間 a), 西日本に黄砂が飛来した期間 (3 月 5 日～8 日前後, 期間 b), 関東の広域で大規模な煙霧が観測された 3 月 10 日 (期間 c) を示している。期間 a の $\text{PM}_{2.5}$ 濃度は, 最高で $37 \mu\text{g}/\text{m}^3$ であり, 短期基準値 $35 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を僅かに超えたレベルであった。この濃度レベルは過去 2 年と比べても特筆すべき高濃度では無かった。

一方, 西日本に比較的規模の大きな黄砂が飛来した期間 b は, 加須でも 3 月 7 日に $43 \mu\text{g}/\text{m}^3$ まで上昇し, 最も高い濃度となった。 SO_4^{2-} の上昇は更に顕著であり期間 a は $3.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ であったのに対して, 期間 b は $13.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ となった。この期間は関東地方への黄砂飛来の発表は無かったものの, $\text{PM}_{2.5}$ 中のカルシウムイオン (Ca^{2+}), マグネシウムイオン (Mg^{2+}) にも顕著な濃度上昇が見られたことから, 黄砂が飛来したことが推察される。煙霧の見られた期間 c は $\text{PM}_{2.5}$ 濃度の上昇はほとんど見られず, いわゆる粗大粒子の舞い上がりであったと考えられる。

ある地点の気塊の起源を推定する手法に流跡線解析がある。Fig. 9 に, 加須市の上空 3000 m を起点とした期間 a および期間 b の後方流跡線を示した。流跡線は 72 時間前まで計算したものである。期間 a, b ともに中国東北部を経由した流跡線が描かれており, いわゆる越境大気汚染現象が起きていたことが分かる。特に期間 b は, 数千 km 離れた中国の奥地からの気塊の飛来が描かれていることから, 黄砂飛来が強く示唆された。しかしながら, 前述のとおり, 期間 a, b の濃度レベルは特別に高いものでは無かった。

5. 現在の取組

$\text{PM}_{2.5}$ の発生源は多岐にわたり, 越境大気汚染はそ

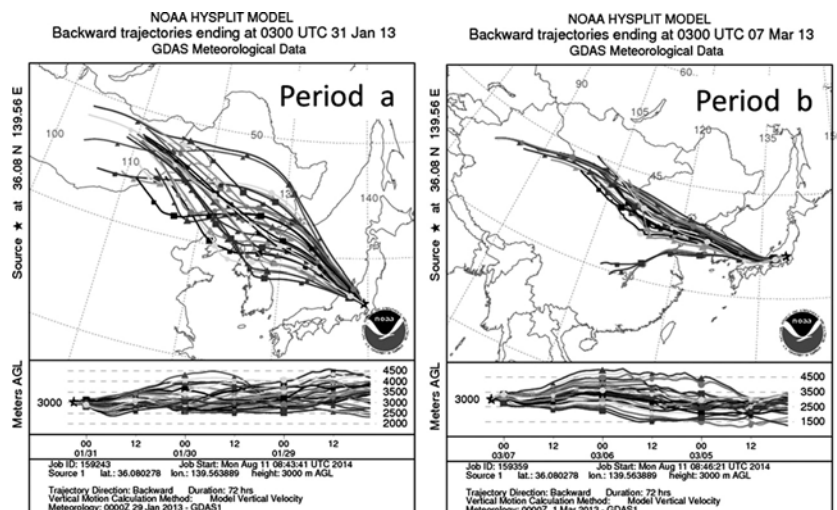


Fig. 9 Backward trajectory analysis on the period a and b calculated by HYSPLIT Model supported by NOAA

の一つとして捉える必要がある。近年の中国の経済・産業の発展は目覚ましく、汚染物質排出量が増加していると思われる反面、発生源対策も強化されている。対策の効果を知るためには、PM_{2.5}の濃度だけでなく、継続的な化学成分の把握が不可欠である。これは日本国内でも同様である。我々は、最新の組成情報を共有するために、2013年から、中国、韓国の研究機関とPM_{2.5}の同時観測を夏季と冬季に行っている⁸⁾。

また、日本国内では従来の発生源対策が奏功している反面、これまであまり関心が持たれて来なかった発生源の影響が相対的に顕在化してきている。その一つに農村地帯で主に収穫期以降に見られる、枯れ草等のバイオマスの屋外焼却が挙げられる。遠方より飛来するPM_{2.5}だけに目を奪われること無く、まだまだ多い身近な発生源にも十分に留意することが、PM_{2.5}濃度の一層の低減には不可欠である。

参考文献

- 1) 米持真一, 梅沢夏実, 松本利恵: 埼玉県北部のPM_{2.5}濃度と化学組成の5年間の観測結果, 大気環境学会誌, Vol. 42, No. 2, 128-142 (2007).
- 2) 米持真一, 梅沢夏実, 松本利恵, 長谷川就一: 異なる測定法によるPM_{2.5}測定結果の比較, 大気環境学会誌, Vol. 46, No. 2, 131-138 (2011).
- 3) 環境省: PM_{2.5}成分測定マニュアル 炭素成分測定方法(第2版)
<http://www.env.go.jp/air/osen/pm/ca/manual/manual-4.pdf>
- 4) 微小粒子状物質(PM_{2.5})に関する専門家会合: 最近の微小粒子状物質(PM_{2.5})による大気汚染への対応(2013年2月)
- 5) 山神真紀子, 佐川竜也, 中戸靖子, 長田健太郎, 米持真一, 山本勝彦, 山田大介, 芝和代, 山田克則, 菅田誠治, 大原利真: 2011年2月上旬に観測された広域的なPM_{2.5}高濃度エピソードの要因推定, 大気環境学会誌, Vol. 48, No. 4, 196-205 (2013).
- 6) 長谷川就一, 米持真一, 山田大介, 鈴木善浩, 石井克巳, 斎藤伸治, 鴨志田元喜, 熊谷貴美代, 城裕樹: 2011年11月に関東で観測されたPM_{2.5}高濃度の解析, 大気環境学会誌, Vol. 49, No. 5, 242-251 (2014).
- 7) 米持真一, 陈炫, 缪萍萍, 吕森林, 梅沢夏実, 王効挙: 2013年1月に中国北京市で採取したPM_{2.5}, PM₁の特徴, 大気環境学会誌, Vol. 48, No. 3, 140-144 (2013).
- 8) 米持真一, Lu Senlin, Chen Xuan, Yang Jiayin, Lee Kiho, 王効挙, 田中仁志, 柳本悠輔, 大石沙紀, 名古屋俊士, 大河内博: 日中韓同時観測における2013年夏季と冬季のPM_{2.5}の特徴, 第55回大気環境学会年会要旨集, p. 393 (2014).