

PM2.5 に対するヒト曝露評価モデルの開発

研究者氏名	新添 多聞
日本所属機関	京都大学大学院医学研究科・特定研究員
中国研究者氏名	王 自發
中国所属機関	中国科学院大気物理学研究所・教授

要 旨

本研究では中国から飛来する PM2.5 の指標として PM2.5 中の鉛の同位体比に着目した。京都、瀋陽、長沙において PM2.5 のサンプリングを行い、鉛同位体比の測定を行った。また、大気輸送モデルを用いた鉛の拡散シミュレーションを行い、測定値との比較検討を行った。瀋陽、長沙での PM2.5 濃度は京都のおよそ 8 倍であった。瀋陽、長沙の鉛の同位体比の測定値は既往研究で指摘されてきた特徴にほぼ従い、中国北部と南部を代表する結果となった。一方、京都のサンプルについては日本の鉛よりも瀋陽の鉛に近い特徴を持っていた。後方流跡線解析の結果から、これは中国東北部から流入する気塊の影響を反映した結果であることを強く示唆することが示された。大気拡散シミュレーションの計算値は京都ではほぼ測定値と一致したが、瀋陽では若干の過大評価、長沙では過小評価となった。また、京都における中国からの影響を過小評価している可能性が高い。これは大気輸送モデルに与えた鉛放出量が現在の鉛放出量の強度と分布を捉えきれていないことが原因であると考えられる。本研究により PM2.5 中の鉛の同位体比が中国起源の PM2.5 の指標として利用できることが示されたが、今後、指標として定量的に利用するためにはさらに調査を継続し、鉛同位体比の測定データを蓄積する必要がある。

Key words PM2.5 , 鉛, 同位体比, 越境大気汚染

緒 言：

PM2.5 は空気力学直径 2.5 μm 以下の大気中浮遊粒子を指し、呼吸によりヒトの肺の奥深くに侵入して沈着し、呼吸器だけでなく、循環器にも影響すると考えられている。近年、中国の急速な経済発展に伴って大気汚染が深刻化し、PM2.5 が極端な高濃度となる事象が頻繁に報告され、ヒトの健康被害が懸念されている。中国で発生した PM2.5 は大気の流れによって全球規模で広範囲に輸送されるため、越境大気汚染による日本への影響も懸念されている。その一方で、PM2.5 の発生源は日本国内にも存在し、その影響は必ずしも小さくないと考えられているが、その実態はいまだ不明である。そのため、中国で発生した PM2.5 の日本への影響の定量的評価も難しくしているのが現状である。

PM2.5 の発生源についての検討を難しくしているのが、PM2.5 が多種多様な成分の集合体であることによる。その主な成分は硫酸塩、硝酸塩、有機炭素、黒鉛であるが、それぞれに複雑な発生源を持つ。硫酸塩、硝酸塩、黒鉛については化石燃料の燃焼といった人為的な発生源が主であり、発生源の特定と定量的な評価がある程度は可能である。一方、有機炭素には様々な化学種が含まれるだけでなく、主要な発生源として石油関連産業などの人為的なものだけでなく、樹木から発生する揮発性有機化合物などの自然由来の寄与が大きいことで知られており、発生源の定量的評価が極めて困難である。

中国における主要なエネルギー源は石炭である。石炭は PM2.5 の主要な発生源の一つで、消費量の増加とともに石炭の低質化が懸念されている。燃焼時に硫酸塩の前駆種である二酸化硫黄と黒鉛が発生すると同時に、重金属の一種である鉛が発生する。鉛には安定同位体の Pb204 と、放射性同位体の Pb206、207、

208 が存在し、物質に含まれる鉛の同位体比がその物質の起源や年代の同定に利用されているが、特に中国起源の鉛の同位体比には特徴があることで知られている (e.g. Inoue and Tanimizu, 2008)。筆者らはこれまで中国起源の鉛の大気を通じた越境輸送とヒト曝露について共同で数値的研究を行ってきたが (Niisoe et al., 2010, 2011)、今回は中国起源の PM2.5 の指標として鉛に着目した。

本研究では京都と中国北部の瀋陽および南部の長沙において PM2.5 のサンプリングを実施して鉛同位体比の測定を行った。また、大気輸送モデルを用いた鉛の拡散シミュレーションを行い、測定値との比較検討を行った。

研究方法：

京都（2014 年 11 月 5～12 日）、瀋陽（同年 10 月 21～23 日）、長沙（同年 10 月 24～26 日）において、PM2.5 インパクタを装着したハイボリュームエアサンプラー（SHIBATA HV-500R）を用いて PM2.5 のサンプリングを行った。サンプリング高度はそれぞれ 3m、12m、40m である。

次に、京都でのサンプリング期間中の大気の流れを調べるために、後方流跡線解析を行った。気象庁 MSM の 925hPa（高度約 800 m）の 3 時間ごとの解析値を用いて、2014 年 11 月 5～12 日に京都上空にあった気塊の 1 時間ごとの位置を 7 日間遡った。

さらに、大気輸送モデルを用いた大気拡散シミュレーションにより、サンプリング期間中の大気中鉛の再現を行った。大気輸送モデルとして、気象モデルとの online 結合モデルである WRF-Chem V3.6.1 を用いた。各 time step ごとに予報された時々刻々の気象変動が拡散に反映される。気象場の初期値と境界値として気象庁の MSM 解析値を用いた。計算領域は東アジア全域、ランベルト正角円錐図法を採用し、空間解像度は 90 km である（図 1）。大気への鉛の排出量としては Niisoe et al. (2010)での推定値を用いた。また、モデルにおいて鉛の粒径は $1\mu\text{m}$ に固定した。計算期間は 2014 年 10 月 1 日から同年 11 月 12 日までで、大気中鉛の初期値はゼロとした。

結 果：

京都、瀋陽、長沙における測定結果を表 1 に示す。京都における PM2.5 の重量濃度は $14.6 \mu\text{g m}^{-3}$ であった。瀋陽、長沙では京都のおよそ 8 倍で $100 \mu\text{g m}^{-3}$ を超えていた。大気中鉛の重量濃度では京都と瀋陽、長沙の差はさらに大きく、京都が 5.3 ng m^{-3} であるのに対して瀋陽はおよそ 22 倍の 116.0 ng m^{-3} 、長沙はおよそ 56 倍の 294.8 ng m^{-3} であった。大気拡散シミュレーションの計算値は京都ではほぼ測定値と一致したが、瀋陽では若干の過大評価、長沙では過小評価となった。

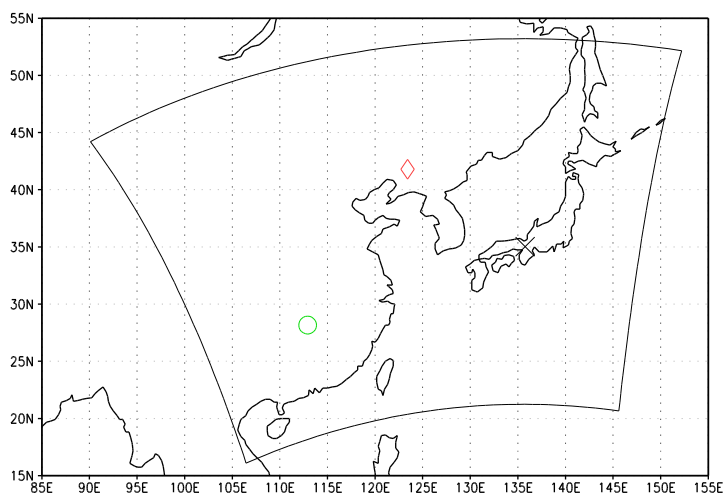


図 1．大気拡散シミュレーションの計算領域。×、◇、○はそれぞれ京都、瀋陽、長沙の位置を表す。

表 1. 測定結果。

	重量濃度		同位体比		
	PM2.5 ($\mu\text{g m}^{-3}$)	Pb* (ng m^{-3})	Pb204/Pb206	Pb207/Pb206	Pb208/Pb206
京都	14.6	5.3 (5.7)	0.0558	0.871	2.14
瀋陽	124.7	116.0 (209.7)	0.0537	0.849	2.11
長沙	113.3	294.8 (122.0)	0.0548	0.859	2.11

*カッコ内は拡散シミュレーションによる計算値。

図 2 は Pb208 と Pb206 の Pb207 に対する同位体比の散布図である。鉛同位体比のプロットはほぼ一直線上に並ぶが、中国産の鉛のプロットはその直線よりも下側に位置し、中国北部の鉛は左下、中国南部の鉛は右上に並ぶという特徴がある (e.g. Inoue and Tanimizu, 2008)。本研究による瀋陽、長沙での測定値は直線の下側で瀋陽が左下、長沙が右上となった。一方、京都での測定値は直線上に位置せず、むしろ瀋陽の測定値の下に位置した。

図 3 は京都での測定期間である 2014 年 11 月 5 日から同月 12 日までの京都上空 925 hPa の気塊の後方流跡線である。7 日間で計 56 本の流跡線があるが、ほぼすべての気塊が中国東北部から来ていることがわかる。図 4 は大気拡散シミュレーションによる、中国起源の大気中鉛の京都での測定期間と同期間で平均した地表付近の濃度 (ng m^{-3}) である。1 ng m^{-3} を超える領域が西日本を覆っているのがわかる。

考 察：

瀋陽、長沙での PM2.5 濃度が京都のおよそ 8 倍であることから中国都市部での大気汚染の深刻さを窺うことができる (表 1)。鉛濃度で見ると差が大きくなることから、中国の PM2.5 は鉛の含有量が高いという特徴がある。さらに、瀋陽と長沙では PM2.5 濃度が同程度であるのに対して鉛濃度では長沙は瀋陽の 2.5 倍であり、長沙での鉛含有量の高さが際立っている。

瀋陽、長沙の鉛の同位体比は既往研究で指摘されてきた特徴にほぼ従い、中国北部と南部を代表する結果となった (図 2)。

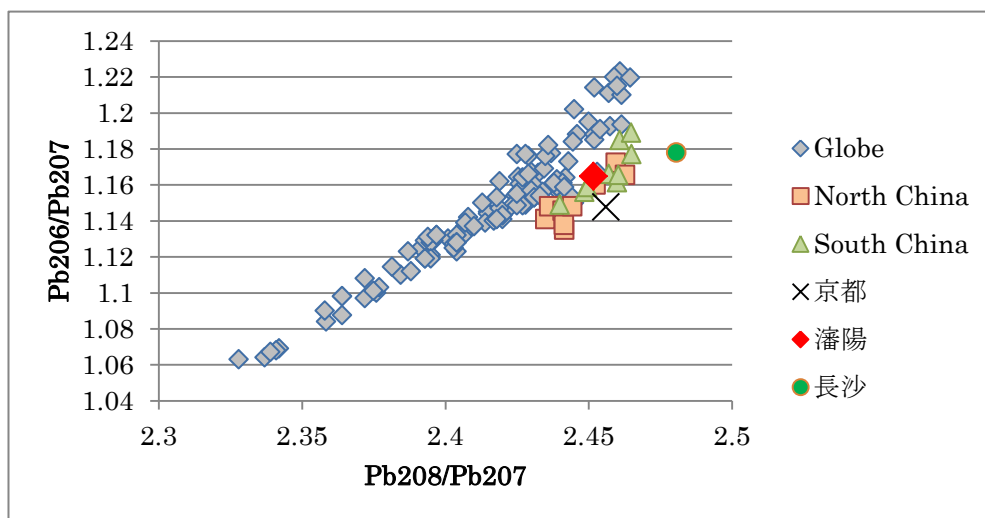


図 2. 大気中鉛の同位体比の散布図。×、◇、○はそれぞれ京都、瀋陽、長沙における測定値を表す。■、△、◇はそれぞれ既往研究による中国北部、中国南部、全球のその他の地域における測定値 (Bollhöfer and Rosman, 2000; 2001; Mukai et al., 2001)。

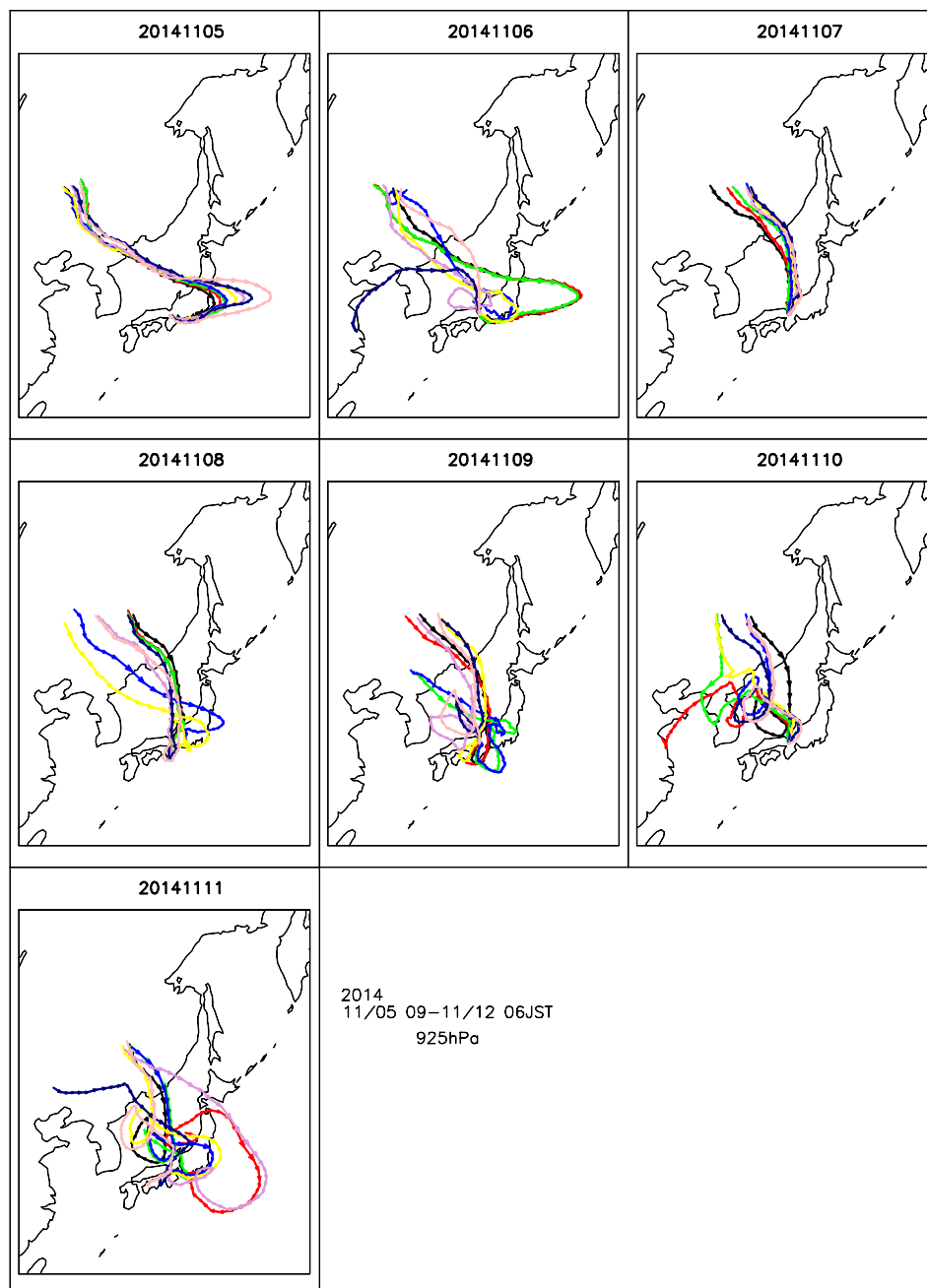


図3．2014年11月5日9時から同月12日6時までの京都上空925 hPa（高度約800 m）の3時間ごとの気塊の7日間の後方流跡線。

一方、京都のサンプルについては中国産以外の鉛の従う直線より離れ、瀋陽の鉛に近い結果となった。後方流跡線解析の結果（図3）によれば、京都でのサンプリング期間中は中国東北部からの気塊が盛んに流入しており、中国から日本海へ大気の流れ出すという冬季の季節風に特徴的な気象場であったことがわかる。従って、京都で採取したサンプルが中国東北部の鉛の影響を強く受けていると考えてよい。

京都でのサンプリング期間中の中国起源の鉛の平均濃度場を拡散シミュレーションで再現すると、期間中の濃度場を反映して 1 ng m^{-3} を超える領域が西日本上空に張り出しており、京都が中国大陆から流入する鉛の影響を受けていたことがわかる（図4）。ただし、 1 ng m^{-3} は京都における鉛濃度の測定値（ 5.3 ng m^{-3} ）の20%程度に過ぎない。図2の鉛同位体比によれば京都におけるサンプルはほとんどすべてが中国東北部の影響を受けていたことになるが、拡散シミュレーションでは中国からの影響を過小評価していること

になる。

図4の中国起源の鉛の平均濃度は大気輸送モデルに与えた中国での鉛の放出量を反映している。この放出量の強度と分布は2001年のエネルギー消費量と人口に基づいており、図4の分布に見られるように中国東北部では瀋陽に集中する。ところが瀋陽での鉛濃度の計算値は測定値の factor 1.8 の過大評価である(表1)。一方、長沙では factor 2.4 の過小評価である。従って、現在の鉛放出量の強度と分布を捉えきれていない可能性がある。図3の後方流跡線によれば、京都に流入する気塊は瀋陽よりも北方から飛来していることが多い。モデルで中国東北部から京都への影響を過小評価しているのは、この地域の鉛放出量を過小評価している可能性が高い。

本研究ではPM_{2.5}中の鉛同位体比が中国起源のPM_{2.5}の指標として利用できるという観点から、京都、瀋陽、長沙においてサンプリングを行い、同位体比の測定を行った。京都のサンプルに見られた鉛同位体比は、中国東北部から流入する気塊の影響を反映した結果であることを強く示唆する結果となった。今後、鉛同位体比を中国から飛来するPM_{2.5}の指標として定量的に利用するためにはさらに調査を継続し、データを蓄積する必要がある。

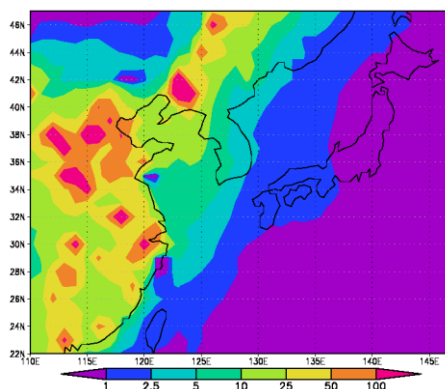


図4. 中国起源の大気中鉛の2014年11月5日9時から同月12日6時までの地表付近の平均濃度(ng m^{-3})。

参考文献：

1. Bollhöfer, A., Rosman K. J. R., 2000. Isotopic source signatures for atmospheric lead: The southern hemisphere. *Geochim. Cosmochim. Acta.* 64(19), 3251-3262.
2. Bollhöfer, A., Rosman K. J. R., 2001. Isotopic source signatures for atmospheric lead: The northern hemisphere. *Geochim. Cosmochim. Acta.* 65(11), 1727-1740.
3. Mukai H., Tanaka A., Fujii T., Zeng Y., Hong Y., Tang J., Guo S., Xue H., Sun Z., Zhou J., Xue D., Zhao J., Zhai G., Gu J., Zhai P., 2001. Regional characteristics of sulfur and lead isotope ratios in the atmosphere at several Chinese urban sites. *Environ. Sci. Technol.*, 35, 1064-1071.
4. Niisoe T., Nakamura E., Harada K., Ishikawa H., Hitomi T., Watanabe T., Wang Z., Koizumi A., 2010. A global transport model of lead in the atmosphere. *Atmos. Environ.* 44, 1806-1814.
5. Niisoe T., Harada K.H., Hitomi T., Watanabe T., Hung N.N., Ishikawa H., Wang Z., Koizumi A., 2011. Environmental ecological modeling of human blood lead levels in East Asia. *Environ. Sci. Technol.* 45, 2856-2862.

作成日： 2015年 3月 11日