



国環研と地環研等との第II型共同研究

「光化学オキシダントおよびPM_{2.5}汚染の地域的・気象的要因の解明」

(2019-2021年度)

Elucidation on regional and meteorological factors of photochemical oxidants and PM_{2.5} pollution

研究概要



目次

S1. 今回の共同研究の成果概要	1
S2. 全国における光化学オキシダント汚染状況とその要因に関する研究	2
S2.1 全国の光化学オキシダント濃度の経年変化傾向.....	2
S2.2 光化学オキシダント高濃度事例.....	4
S2.3 VOC組成の地域間比較.....	4
S3. 高時間分解成分測定データを利用したPM_{2.5}高濃度の気象要因の解明に関する研究	6
S3.1 大都市圏における高濃度事例の解析.....	7
S3.2 広域における高濃度事例の解析.....	8
S3.3 越境汚染・地域汚染複合型高濃度事例の解析.....	9
S4. PM_{2.5}成分測定データを用いた国内発生源の影響評価	10
S4.1 PMF法によるPM _{2.5} の発生源寄与解析.....	10
S4.2 国内発生源の影響評価.....	10
S5. PM_{2.5}中有機成分分析に関する分析手法の検討と観測	12
S5.1 精度管理の実施.....	12
S5.2 テープろ紙分析による高時間分解の二次有機粒子指標成分分析.....	12
S5.3 バイオマス燃焼粒子の越境汚染によるPM _{2.5} 高濃度現象.....	13
S6. 瀬戸内地域におけるPM_{2.5}の高濃度化要因と傾向	14
S6.1 瀬戸内地域のPM _{2.5} 常時監視データ解析.....	14
S6.2 PM _{2.5} 前駆体ガス成分の実態把握.....	14
S6.3 高濃度・局地輸送現象の解析.....	15

目次

S6.4 新居浜(燧灘)におけるPM _{2.5} 高濃度化要因.....	15
S6.5 船舶燃料油規制強化による大気質への影響に関する解析.....	15
S7. 化学輸送モデルを用いた解析.....	17
S7.1 北海道のPM高濃度事例の解析	17
S7.2 2020年8月の高濃度PM _{2.5} に対する西之島・諏訪之瀬島・桜島の寄与.....	18
S7.3 NO _x 、VOC削減による福岡県内オゾン濃度の変化	18

研究概要

S1. 今回の共同研究の成果概要

2019年度から2021年度まで実施された国立環境研究所と地方環境研究所等とのⅡ型共同研究「光化学オキシダントおよびPM_{2.5}汚染の地域的・気象的要因の解明」は、47の地方環境研究所の参加により、7つの研究グループを作ることにより実施された。

以下に各グループによる主な研究成果の概要を示す。

- 【光化学オキシダント・PMグループ】2011～2019年度における光化学オキシダントの経年変化を解析した。経年変化は、季節や地域によって増減傾向が異なり、夏季には東日本で減少、西日本で増加と傾向が分かれた。（参照=S2.1）光化学オキシダント高濃度事例について2018、19年度の事例を解析した。2019年5月下旬の全国規模の事例では、高気圧に覆われた気象条件下での地域汚染が原因と推定された。（参照=S2.2）揮発性有機化合物（VOC）成分の測定耐性を整備し、全国26地点で2020、21年の春および夏に昼夜別観測を実施した。ほとんどの地点でアルデヒド類の濃度は昼の方が夜より高かった。（参照S2.3）
- 【高濃度気象解析グループ】2017～2019年度に国内で発生したPM_{2.5}の高濃度事例に対し、大都市圏において発生した事例、広域的に発生した事例、越境汚染と地域汚染が複合した発生した事例のそれぞれについて、高濃度の原因となった気象要因を解析し一覧表を作成した。（参照=S3）
- 【PM成分データ解析グループ】PM_{2.5}成分測定結果を用いて、解析目的に応じた地点と季節を選定したデータによるPMF解析を行った。火山やバイオマスを含む各種国内発生源の影響について知見を収集した。（参照=S4）
- 【分析法グループ】環境省が公開しているPM_{2.5}中の多環芳香族炭化水素類（PAHs）の測定法マニュアルに示される2種類の測定法HPLC-FLD法とGC-MS法のクロスチェックを行い精度管理を行った（参照=S5.1）2019年春季と夏季に名古屋のPM_{2.5}テープろ紙により3時間ごとの二次有機粒子（SOA）指標成分の分析を行い植物起源と人為起源それぞれのSOAに関する重要な知見を得た。（参照=S5.2）2018年4月下旬や2019年2-3月に北海道等で観測されたPM_{2.5}高濃度イベントについて有機指標成分による要因解析を行い、バイオマス燃焼粒子の越境輸送の影響を示した。（参照=S5.3）
- 【瀬戸内高濃度グループ】2012～2019年度のPM_{2.5}常時監視データの地域別解析を行った。全国的に減少傾向にあり、2016年度以降は瀬戸内地域の年平均値も15 μ g/m³を下回ったが、他の地域よりは高い傾向が継続している。（参照=S6.1）フィルターパック法およびパッシブサンプラー法で共同観測を実施し、PM_{2.5}の前駆体であるガス成分濃度の実態を把握した。（参照=S6.2）PM_{2.5}高濃度事例に対し、高濃度要因の解析を行った（参照=S6.3, 6.4）船舶燃料油規制強化の影響を解析した。（参照=6.5）
- 【モデル解析グループ】2019年2-3月に北海道等で発生したPM_{2.5}高濃度事例についてモデル解析を実施し、中国東北部のバイオマス燃焼の影響を示唆した。（参照=S7.1）2020年8月の西日本を中心としたPM_{2.5}高濃度事例についてモデル解析により火山の影響を示した。（参照=S7.2）福岡県を対象としたモデル解析により、光化学オキシダント濃度の対策効果を評価した。（参照=S7.3）

研究概要

S2. 全国における光化学オキシダント汚染状況とその要因に関する研究

得られた主な成果：

<O_x経年変化傾向>

○ 2011～2019年度における光化学オキシダント（O_x）の経年変化について、全日平均値も日中平均値も年度平均は全国的に増加傾向であった。ポテンシャルオゾン（P0）の変化率はO_xほど大きくなかった。NO_xは全国的に減少傾向であった。O_xもP0も増加傾向となっている地点があり、実質的にO_xが増加している地域が存在した。

○ O_x経年変化を月別にみると、5月は全国的に増加傾向であるのに対し、7、8月では東日本は減少傾向、西日本は増加傾向となっていた。季節や地域によって増減傾向が異なることが分かった。

<O_x高濃度事例解析>

○ O_x高濃度事例について2018、19年に発生した事例を解析した。そのうち2019年5月下旬に発生した事例は全国規模であり、九州から関東まで数日間かけて西から順にO_x濃度が増加した。越境汚染の影響も少なからずあったと推定されたが、主に高気圧に覆われ気温が高い気象条件下での地域汚染によるO_x生成によって高濃度になったと考えられた。

<VOC調査>

○ O_x生成に重要な揮発性有機化合物（VOC）成分の測定体制を整備した。これにより全国規模でのVOC地域間比較を行うことができた。

○ 全国26地点で2020、21年の春および夏にVOCの昼夜別観測を実施した。VOC組成は地点によって様々であるが、O_x生成能の大きさで重要なのはアルデヒド類と芳香族炭化水素である点は概ね共通であった。夏季には植物起源VOCも一定の寄与があった。ほとんどの地点でアルデヒド類の濃度は昼>夜となる変動を示した。

S2.1 全国の光化学オキシダント濃度の経年変化傾向

O_x濃度の長期トレンド解析については、これまでのII型共同研究（第1～4期、2001～2012年度）において1970年代～2010年頃の期間は解析済みであるため、本研究ではそれ以降の近年のO_x汚染状況を詳細に把握することを目的とし、全国のO_x濃度等のトレンド解析を行った。解析にあたっては、2010年にO_x校正方法が変更になったことも考慮し、対象期間は2011～2019年度（2019年度は速報値を使用）とした。

O_x、P0、NO_x、NMHCについて、全日平均・日中平均（6～20時）・夜間平均（1～5、21～24時）の年度平均または月別平均、日最高値およびその出現時刻、濃度ランク別時間数（20 ppb毎）、時刻別平均値、O_x日中生成量（DPO_x）等を求め、それぞれの経年変化を解析した。

全国のO_xおよびP0の日中平均値の経年変化率（図 S2-1）を求めたところ、O_x変化率は全国的に正值であり、O_xは増加傾向となっていた。P0の変化率はO_xよりも小さかった。図示しないがNO_xは全国的に減少傾向であったことから、NOタイトレーション効果の減少がO_xの増加に一部影響していると考えられた。四国や九州地方を中心にO_xもP0も正值となる地域が多く、これらの地域では実質的にO_xが増加している可能性が考えられた。

O_xは年度平均では全国的に増加傾向であるが、月毎に経年変化率をみると、5月は全国的に増加傾向であるのに対し、8月では東日本は減少傾向、西日本は増加傾向と地域によって増減傾向が異なることが分かった（図 S2-2）。

研究概要

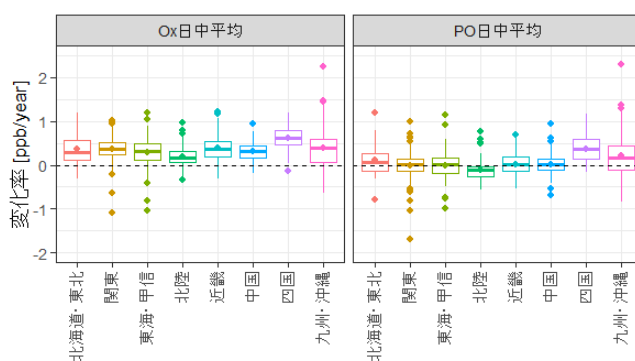


図 S2-1 Ox及びP0の日中平均値の経年変化率の地域別箱ひげ図

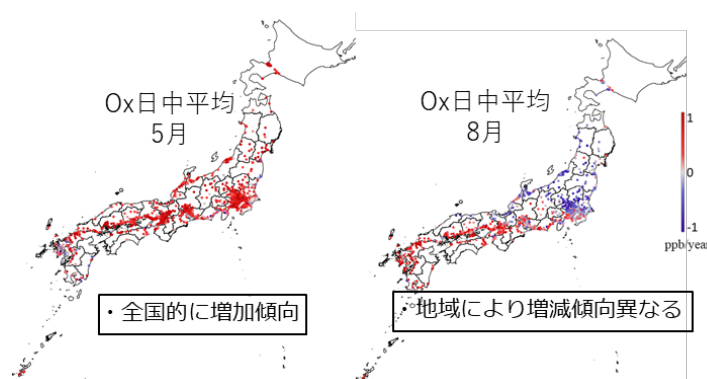


図 S2-2 2011～2019年度におけるOx日中平均値の月別変化率（左5月、右8月）

上述のほか、地方毎に見られるOx経年変化の特徴は以下のとおりである。

- ・東北地方（山形県、秋田県、宮城県および新潟県）では、60 ppb以上となる時間数は5月が最も多く、次いで4月であり、7、8月はそれほど多くなかった。山形県内では日本海沿岸の方が内陸地点よりも高濃度時間数が多かった。各月の高濃度時間数の経年変化は横ばいまたは減少傾向であった。
- ・関東地方では、80 ppb以上となる高濃度時間数は5～8月にかけて多い。時間数が多い地点は、東京湾沿岸よりも埼玉県北部や群馬県南部など関東平野の内陸地域に集中しており、これらの地点では120 ppb以上となる時間数も多かった。高濃度時間数の経年変化は、5月は増加傾向で7、8月は減少傾向であった。
- ・東海、近畿地方では、OxもP0も増加傾向となっている地点が多く、地域内の多くの地点ではOxは実質的な増加傾向にあると考えられた。大気の輸送ルートを考慮し、大阪府～滋賀県の4地点について、月別・時刻別のP0濃度の経年変化率を比較した。沿岸部ではOxピーク時間帯（11～18時）の濃度は増加傾向であるのに対し、内陸の地点では夏の同時時間帯において減少傾向であった。
- ・中国、四国、九州地方では、OxもP0も全体的に増加傾向を示し、P0濃度の日最高値が経年的に高濃度側にシフトしていた。九州北部や瀬戸内沿岸の一部の地点では、P0の変化率は負値を示し、それらの地点では10～1月の減少傾向が影響している可能性が考えられた。

以上、Oxの経年変化は各地域さまざまであるが、総じて春のOx濃度は増加傾向であると言える。Ox増減傾向の地域差や季節差をもたらす要因解明は今後の課題である。

研究概要

S2.2 光化学オキシダント高濃度事例

本研究では、3つの事例（事例1：2019年5月全国規模、事例2：2018年7月近畿地方、事例3：2018年7-8月関東地方及び山梨県）を解析した。紙面の都合により、ここでは事例1の解析結果のみ記述する。

事例1は、2019年5月23日～27日にかけて全国的にOxが高濃度となり、各地で光化学オキシダント注意報が複数回発令された事例であった。23日に九州、中国地方で高濃度が観測され、その後、24～27日にかけてOx高濃度域は近畿、東海、関東地方へと移動していった（図 S2-3）。この期間、日本列島は広く高気圧に覆われ、各地で真夏日となるなど気温が高く、Oxが高濃度になりやすい気象条件であった。近畿地方では、24、25日に注意報レベルの高濃度となった（最高値152 ppb、兵庫県）。夜間でもOx濃度の低下が見られず、後方流跡線解析から越境汚染の影響が示唆された。関東地方では26、27日の濃度が特に高く（最高値201 ppb、東京都）、26日は群馬県南部、27日は群馬県北部や長野県までと高濃度域は広範囲に及んだ（図 S2-4）。山間のリモート地点では夜間も含めOx濃度が高水準で推移していたことから、越境汚染の影響は少なからずあったと考えられるが、両日とも東京湾岸地域でNOx、NMHC濃度がOxにやや先行して顕著に高くなっていたことから、東京湾岸地域での生成によってOxは高濃度になり、光化学反応が進行しながら強い海風によって関東内陸に輸送されたと推察された。光化学オキシダントの低減には地域汚染対策が重要であると考えられた。

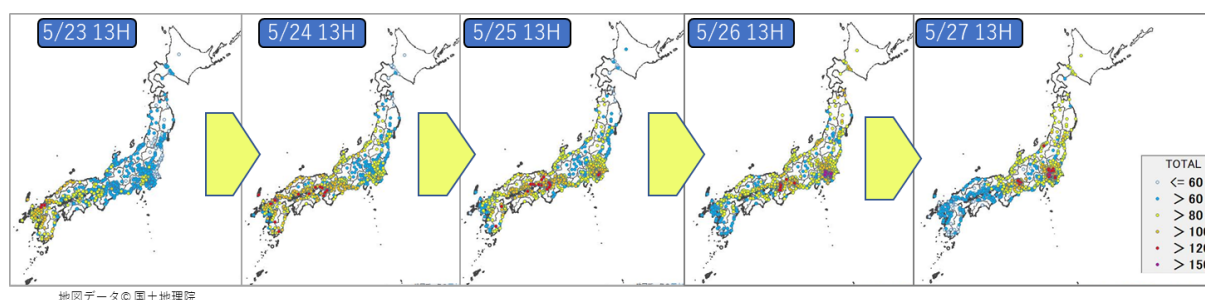


図 S2-3 2019年5月23～27日（各日13時）の全国Ox濃度分布

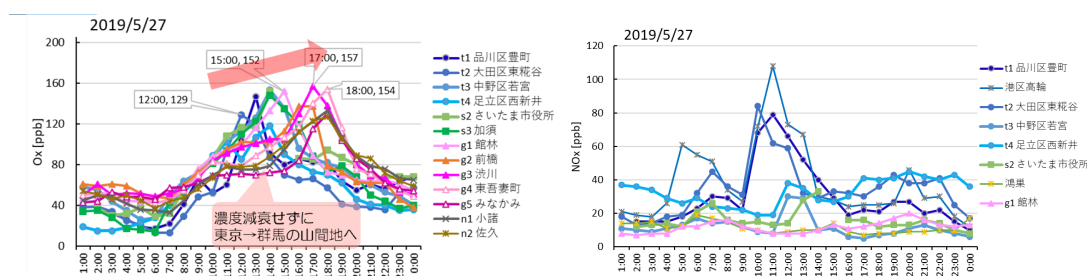


図 S2-4 関東地方における2019年5月27日のOx濃度（左）とNOx濃度（右）の変動

S2.3 VOC組成の地域間比較

Ox生成の前駆物質として関与するVOCの全国的な濃度レベル及び組成の昼夜変動の把握を目的として、VOCs及びアルデヒド類（ALDs）の共同調査を実施した。

研究概要

本調査に参加した機関は、23機関で、調査地点数は26地点であった（図 S2-5）。調査対象物質のVOCsはHAPs: Hazardous Air Pollutantsの成分およびPAMS: Photochemical Assessment Monitoring Stationsの成分も追加して測定した（測定項目は測定機関により若干異なる）。前述のOxトレンド解析においてOxは春も高濃度時間数が多いことから、VOC共同調査は春季及び夏季に実施し、サンプリングは昼夜別（9:00～17:00、17:00～翌9:00）を基本とした。

VOC調査結果の一例として、図 S2-6に2020年8月3日の結果（オゾン生成ポテンシャル（OFP）およびALDs濃度）を示す。VOC組成は地域によって様々であったが、共通に見られたのは全OFPに対してALDsと芳香族炭化水素の占める割合が多いことであった。ALDs濃度はいずれの地点も昼>夜となる共通点が見られ、光化学二次生成の影響が大きいことが推察された。一方で、芳香族炭化水素は郊外地点などで夜>昼となる傾向が見られた。

2021年の調査結果でも、OFPで割合の多い成分はALDsとトルエン、エチルベンゼンなどの芳香族炭化水素であった。2021年はPAMS調査地点が拡充したことで、様々な地点のVOCデータが取得でき、植物起源VOCであるイソプレン（2-Methyl-1,3-butadiene）やα-ピネンも一定の割合を占めていることが分かった。ALDsは、ほとんどの地点で昼>夜となる変動を示した（図 S2-7左）。植物起源VOCのうちイソプレン濃度は昼>夜、α-ピネン濃度は夜>昼となる傾向があり、特に両者の濃度が高い地点（山形県など）で顕著であった（図 S2-7右）。これは物質毎の植物の放出特性や放出された後の大気中での反応速度の違い等の影響が想定されるが詳しい要因説明は今後の課題である。

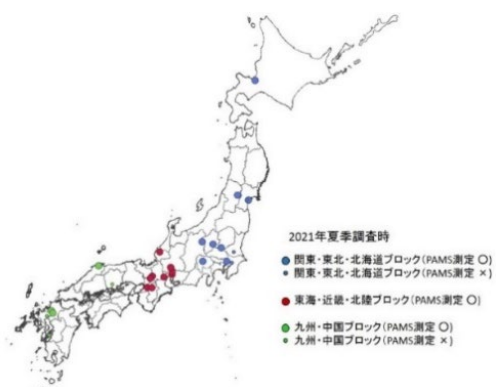
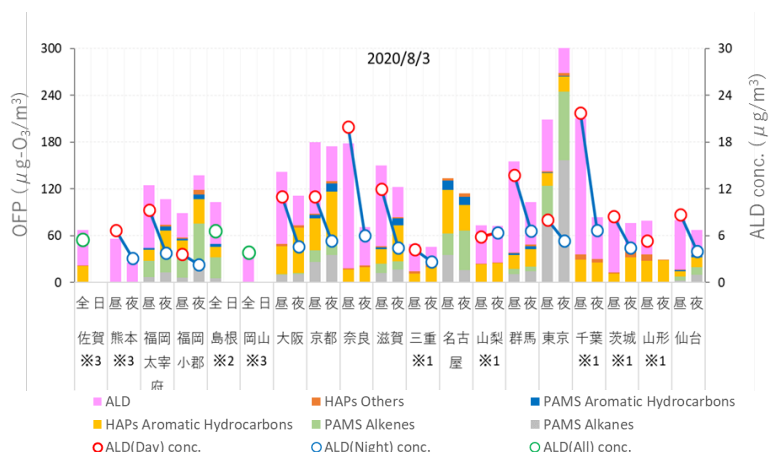


図 S2-5 VOC共同調査地点



※植物起源VOCは測定地点が限定的であったためPAMS Alkenesに含めた

図 S2-6 2020年夏季における各地点のOx生成能（OFP）とアルデヒド（ALD）濃度（2020年8月3日）

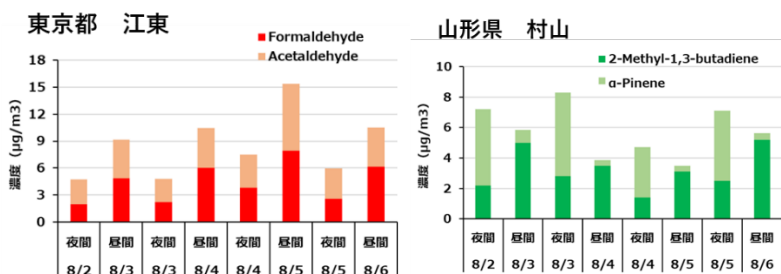


図 S2-7 2021年夏季のアルデヒド類濃度（左）および植物起源VOC濃度（右）の昼夜変動

研究概要

S3. 高時間分解成分測定データを利用したPM_{2.5}高濃度の気象要因の解明に関する研究

得られた主な成果：

- 大都市圏において冬季に発生した高濃度事例では、PM_{2.5}の濃度上昇にNO₃⁻が寄与していた点が共通していた。この濃度上昇は夜間や低気圧の接近による降雨の時間帯に多く起きており、相対湿度が高くなることによって窒素酸化物（NO_x）から硝酸塩への二次生成が顕著になったためと推察された。また、接地逆転層の形成などによる大気安定・滞留が、PM_{2.5}の濃度上昇をもたらした気象要因となったと考えられた。
- 大都市圏において夏季に発生した高濃度事例では、PM_{2.5}が日中に上昇する周期的な傾向がみられた。これは、日中に光化学反応が盛んになりSO₂から硫酸塩への二次生成が顕著になったためと推察された。また、合わせて海陸風による風向変化も周期的な濃度変動をもたらした気象要因となったと考えられた。
- 広域的な高濃度事例の多くは大陸からの越境汚染が示唆されるものであり、春季や秋季に大陸から東進してくる寒冷前線の通過に伴って発生していた。その中には黄砂が飛来しPM_{2.5}濃度を押し上げたケースや、大陸での森林火災の影響を受けたと考えられるケースもあった。濃度上昇は西（九州）から東へと順に移っていくことが多いが、移流経路によってはそうならない場合もあった。
- 広域的に高濃度になった事例の中には、越境汚染に加えて地域汚染が複合したケースもみられた。全国的に西から東にPM_{2.5}及びSO₄²⁻が時間差を持って上昇した様子から、移動性高気圧により吹き出された大陸からの気塊が移流したと推察された。このとき、大都市圏では日中に上昇する変動がみられ、海陸風による地域内での排出・生成が加わったこと、また時季によっては光化学反応による二次生成が顕著となったことが考えられた。

研究概要

S3.1 大都市圏における高濃度事例の解析

2017～2019年度に、東京・名古屋・大阪などの大都市圏において発生した高濃度事例について、1時間単位で測定された成分データを中心に解析した。冬季に発生した高濃度事例（12月及び2月の各2事例、計4事例）では、PM_{2.5}の濃度上昇にNO₃⁻が寄与していた点が共通していた。この濃度上昇は夜間や低気圧の接近による降雨の時間帯に多く起きており、相対湿度が高くなることにより窒素酸化物（NO_x）から硝酸塩への二次生成が顕著になったためと推察された。また、移動性高気圧に覆われて風が穏やかであったこと、夜間や朝に接地逆転層が形成されていたことも共通しており、これらが大気を安定・滞留させ、PM_{2.5}の濃度上昇をもたらした気象要因となったと考えられた。

一方、夏季に発生した高濃度事例（7～8月の1事例）では、PM_{2.5}が日中に上昇し夜間に低下する周期的な傾向がみられた。このとき、PM_{2.5}に占めるSO₄²⁻の割合が高く、濃度変動もPM_{2.5}と同期していた。これは、日中に光化学反応が盛んになりSO₂から硫酸塩への二次生成が顕著になったためと推察された。また、合わせて海陸風による風向変化も周期的な濃度変動をもたらした気象要因となったと考えられた。

これらの高濃度事例に関して推察された、期間別・地域別の気象要因を表S3-1に示す。

表S3-1 大都市圏における高濃度事例の気象要因

高濃度期間	高濃度エリア	濃度上昇に寄与した成分	総観気象					地域気象					
			低気圧の接近 前線通過	高気圧 (移動性/ 太平洋)	黄砂	台風通過	海陸風	逆転層 混合層高 度の低下	弱風 滞留 大気安定	風の収束	強い日射 光化学反 応	高湿度 不均一反 応	
冬季(12月)	2017/12/22-24 近畿	NO ₃ (SO ₄)	◎	○					○	○	○		○
	2017/12/22-24 東海	NO ₃ (SO ₄ , WSOC)	◎	○						○	○		○
	2017/12/22-23 関東南部	NO ₃		○					◎	◎	○		◎
	2017/12/24-25 関東南部	NO ₃ (WSOC)	◎	△					◎	○	○		◎
	2018/12/20-21 近畿	NO ₃	△	○					○	◎	○		
	2018/12/22-23 関東南部	NO ₃	○	△					◎	◎	△		◎
冬季(2月)	2018/2/9-11 近畿・東海	NO ₃	◎	○					○	○			○
	2018/2/9-11 関東	NO ₃	◎	○					◎	○			○
	2019/2/6-7 近畿	NO ₃	◎	○					○	○			○
	2019/2/6-7 関東	NO ₃	◎	○					◎	○			○
夏季	2019/8/1-2 近畿	SO ₄						○		◎		◎	
	2019/8/1-2 東海	SO ₄						○		○		◎	
	2019/8/1-2 関東	SO ₄						○		○		◎	

研究概要

S3.2 広域における高濃度事例の解析

2017～2019年度に、国内で広域的に発生した高濃度事例について、1時間単位で測定された成分データを中心に解析した。広域的な高濃度事例の多くは大陸からの越境汚染が示唆されるものであり、春季や秋季に大陸から東進してくる寒冷前線の通過に伴って発生していた。その中には黄砂が飛来したケース（春季2事例、秋季1事例）があり、PM_{2.5}でも土壌成分（Al、Feなど）が高くなり、黄砂がPM_{2.5}濃度を押し上げたと考えられた。また、2～4月にはWSOCが高くなったケースもあり、大陸での森林火災の影響を受けたものと考えられた。濃度上昇は西（九州）から東へと順に移っていくことが多いが、移流経路によってはそうならない場合もあった。

これらの高濃度事例に関して推察された、期間別・地域別の気象要因を表S3-2に示す。

表S3-2 広域における高濃度事例の気象要因

	高濃度期間	高濃度エリア	濃度上昇に寄与した成分	総観気象				地域気象					
				低気圧の接近 前線通過	高気圧 (移動性/ 太平洋)	黄砂	台風通過	海陸風	逆転層 混合層高 度の低下	弱風 滞留 大気安定	風の収束	強い日射 光化学反 応	高湿度 不均一反 応
春季・秋季 (前線通過・黄砂飛来)	2017/5/6	九州北部、山陰、北陸	土壌(Si,Al)	◎		◎							
	2017/5/6-9	全国	土壌(Si,Al)		◎	◎							
	2018/4/15-18	九州～東海	土壌(Si,Al)	○	◎	◎							
	2018/4/19-23	全国	SO ₄		◎								
	2019/10/29-31	九州～近畿	土壌(Si,Al)	◎		◎				○			
	2019/11/1-4	九州～近畿	SO ₄ , NO ₃ , 土壌(Si,Al)	◎		◎				◎			
春季(前線通過)・秋季(台風通過)	2018/4/27-28	北海道～北日本、日本海側	WSOC, NO ₃	◎									
	2018/4/29-5/2	全国	SO ₄		◎								
	2019/3/22	九州～近畿	WSOC	◎						○			
	2019/3/22	中国・四国～東北(関東除く)	WSOC	◎									
	2019/4/5-8	九州北部～近畿	SO ₄	◎						◎			
	2017/9/19	九州北部～山陰	SO ₄	◎			◎						
2017/9/20	九州北部～北信越・関東	SO ₄	◎			◎							
冬季	2019/2/21-23	北海道	NO ₃ , WSOC, SO ₄		◎								

研究概要

S3.3 越境汚染・地域汚染複合型高濃度事例の解析

2017～2019年度に、広域的に高濃度になった事例の中には、越境汚染に加えて地域汚染が複合したケースもみられたことから、1時間単位で測定された成分データを中心に解析した。春季の3月及び5月の各1事例、計2事例とも、全国的に西から東にPM_{2.5}及びSO₄²⁻が時間差を持って上昇した様子から、移動性高気圧により吹き出された大陸からの気塊が移流したと推察された。このとき、名古屋や東京などでは日中に上昇する変動がみられ、海陸風によって地域内での排出・生成の影響が加わったこと、また5月は光化学反応による二次生成が顕著となったことが考えられた。

3月の事例では、移動性高気圧が東に抜けた後に大陸から進んできた低気圧の寒冷前線通過時に、水溶性有機炭素（WSOC）の急上昇がみられた地点もあった。これは大陸で起きていた野焼きや森林火災による気塊が移流してきたものと推測された。また、5月の事例では、移動性高気圧に覆われていた間に、上空数百mで気温が逆転していたときもあり、地表付近の大気が滞留しやすい状況であったと推測された。

これらの高濃度事例に関して推察された、期間別・地域別の気象要因を表S3-3に示す。

表S3-3 越境汚染・地域汚染複合型高濃度事例の気象要因

高濃度期間	高濃度エリア	濃度上昇に寄与した成分	総観気象					地域気象					
			低気圧の接近 前線通過	高気圧 (移動性/ 太平洋)	黄砂	台風通過	海陸風	逆転層 混合層高 度の低下	弱風 滞留 大気安定	風の収束	強い日射 光化学反 応	高湿度 不均一反 応	
春季(3月)	2018/3/24-28	九州・山陰	SO ₄ , NO ₃ (都市部), (WSOC)		◎			△		○			
	2018/3/25-28	近畿	SO ₄ , NO ₃ (都市部), (WSOC)		◎			○		○			
	2018/3/25-29	東海	SO ₄ , NO ₃ (都市部), (WSOC)		◎			○		○			
	2018/3/25-29	関東	SO ₄ , NO ₃ (都市部), (WSOC)		◎			○		○			
春季(5月)	2019/5/24-26	九州, 中国・四国	SO ₄		○					○		○	
	2019/5/24-27	近畿, 東海, 北陸, 関東	SO ₄		○				○	○		○	
	2019/5/26-28	東北	SO ₄		○							○	
	2019/5/26-27	北海道	SO ₄		○					○		○	

研究概要

S4 PM_{2.5}成分測定データを用いた国内発生源の影響評価

得られた主な成果：

- PMF解析のパラメータを変更して予備計算を何度も行い、解の堅牢性や因子解釈の妥当性も考慮して、最終解の候補をいくつか選択した上で本計算を行い、最適解を求めることで、解析者による結果の差異を抑えることができた。
- PMF解析で得られた因子の寄与濃度分布をもとに国内発生源がPM_{2.5}濃度に及ぼす影響を評価した。製鉄所近傍での製鉄所関連由来一次粒子のPM_{2.5}濃度に対する寄与率は寄与が大きい時で約10-40 %と推定された。大分県内の地点ではバイオマス燃焼因子の寄与率（通期15-42%）の地点差が大きく、春・夏の寄与率が他地域に比べて高く、内陸部に存在する固定発生を含む何らかの燃焼行為を伴う発生源が寄与しているものと考えられた。九州地方での硝酸塩と塩化物との混合因子の寄与は冬平均で0-2.4 μg/m³と推定され、工業地域や交通量の多い地域に近いほど大きい傾向が示唆された。

S4.1 PMF法によるPM_{2.5}の発生源寄与解析

・参加自治体（8-9自治体）で、同じデータセットを用いてPMF解析（テストラン）を実施した。EPA PMF 5.0 User GuideとⅡ型共同研究作成の手順書のみを参考にした1回目では、解析者によって解釈が異なり、解が6通りとなった。具体的な手順を会合で共有化後の2回目では9人中6人が同一解となり、客観的にパラメータを変化させて繰り返し計算を行うことが重要であることが確認できた。具体的には、因子数や不確実性の値を変化させて予備計算を何度も行い、解の堅牢性や因子解釈の妥当性も考慮して、最終解の候補をいくつか選択した上で本計算を行い、最適解を求めることで、解析者による結果の差異を抑えることができた。

・2017、2018年度のPM_{2.5}成分測定結果（1日値）から各参加自治体（6自治体）が特定の国内発生源がPM_{2.5}濃度に及ぼす影響について評価することを目的に地点と季節を選定し、PMF解析を行った。1,000-3,500（1自治体は2019年度を含む約6,000）前後の試料のPM_{2.5}濃度を含む22-29項目での解析で抽出された因子数は6-7つであった。海塩や土壌の因子は成分測定のガイドラインに示された項目での解析で単独の因子として抽出された。バイオマス燃焼の因子は、ガイドラインの項目のみの解析では道路交通との混在因子として抽出されたが、指標成分であるレボグルコサンを追加して行った解析では、単独で抽出することができた。今後は、二次生成や自動車等人為発生源の指標として提案されている有機物成分を測定して解析を行うことで、さらに発生源の詳細が明らかになっていくことが期待される。

S4.2 国内発生源の影響評価

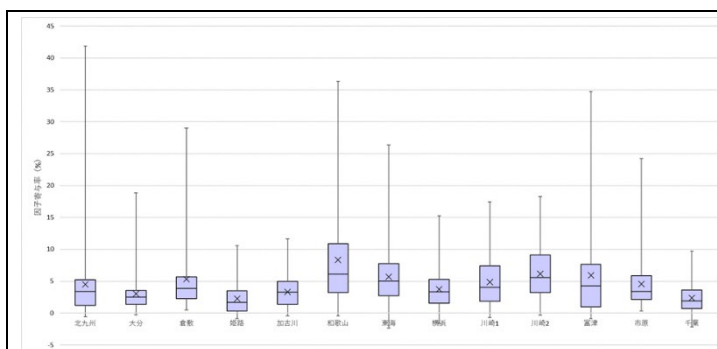
・銑鋼一貫製鉄所（以下「製鉄所」という。）関連の発生源がPM_{2.5}濃度に及ぼす影響を評価するため、全国10箇所の製鉄所近傍に設置された13地点の成分測定結果を用いてPMF解析を行った。抽出された因子寄与濃度によるCPF解析の結果、各地点の工業系粉じん因子の寄与が高い方角は製鉄所の方角と概ね一致した。工業系粉じん因子の寄与濃度から、製鉄所関連由来一次粒子のPM_{2.5}濃度に対する寄与率は平均で約2-8%、大きい時で約10-40 %と推定された（図S4-1）。

研究概要

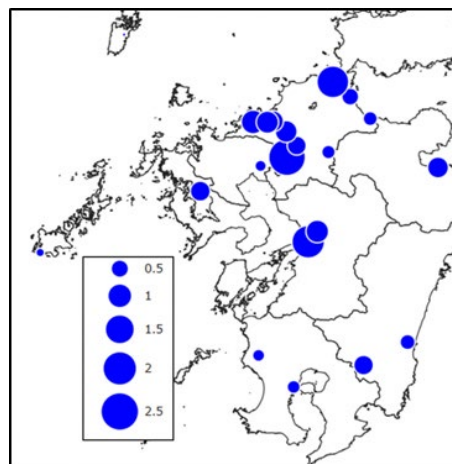
・桜島の火山噴火がPM_{2.5}濃度に及ぼす影響を評価するため、火山活動状況や気流の方向から季節（春、夏）と地点（九州北部、山陰、瀬戸内、北陸地方）を選定してPMF解析を行った。火山活動が活発であった期間は火山噴火がみられなかった期間より、硫酸塩と石炭燃焼の混合因子で約3~7 μg/m³、土壌・巻き上げ粉じん因子は約1 μg/m³濃度が高かった。各地域の因子寄与濃度の変動と気流の推定方向から、桜島から離れた地域においても、火山噴火によりPM_{2.5}濃度が上昇する可能性が示唆された。

・PMF解析において、ガイドラインの項目にバイオマス燃焼の指標成分であるレボグルコサンを追加することで、バイオマス燃焼の因子を単独分離し、PM_{2.5}濃度への寄与を明らかにすることができた。寄与率の全国43地点平均は約20%（通年）で、各地点の寄与濃度は野焼きが頻発する秋および冬に高い傾向があった。他地域に比べて高い寄与濃度を示した大分県では、地点による寄与率（15-42%）の違いが大きく、また、春・夏の寄与率が他地点に比べて高かった。CPF解析及びFire spotの分布より、通期では内陸部に存在する固定発生を含む何らかの燃焼行為を伴う発生源が寄与しており、加えて、秋冬には稲わら等の野焼きが寄与しているものと考えられた。

・九州地方における国内発生源からの硝酸塩の影響を把握するため、冬季（粒子態の存在割合が多い）における九州地方の成分測定結果に関東地方（国内発生源からの硝酸塩の寄与が高いと推定）の測定結果をあわせてPMF解析を行った結果、硝酸塩は、硫酸塩あるいは塩化物との混合因子として抽出された。硫酸塩との混合因子は、越境由来と国内由来の影響が混じっていると考えられた。一方、塩化物との混合因子の寄与濃度は、都市部で大きく、離島地域ではほぼなかったことから、国内発生源からの寄与であると考えられた。同因子についての九州地方での寄与濃度は0-2.4 μg/m³で、濃度分布（図S4-2）からは工業地域や交通量の多い地域に近いほど寄与濃度が大きい傾向が示唆された。



図S4-1 製鉄所近傍の測定地点における工業系粉じん因子の寄与率 [%]



図S4-2 九州地方における半揮発性粒子(硝酸塩・塩化物)因子の寄与濃度分布 [μg/m³]

研究概要

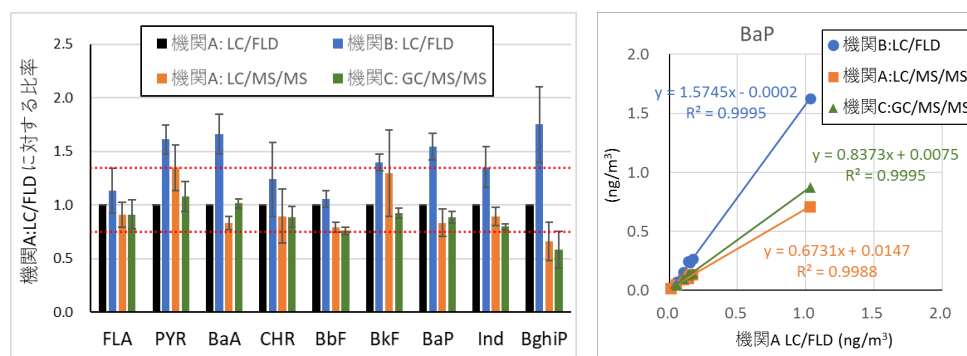
S5 PM_{2.5}中有機成分分析に関する分析手法の検討と観測

得られた主な成果：

- 異なる測定法（LC/FLD、LCとGC/MS/MS）による多環芳香族炭化水素類の測定値を比較したところ、概ね同等（0.75-1.35倍）の測定値が得られた。また、測定値の差は校正曲線に起因する可能性が示唆された。
- 人為起源や植物起源の二次有機粒子（SOA）について、PM_{2.5}テープろ紙を用いて有機成分の高時間分解測定を行った。観測期間の日中において、同一起源の有機物のピークトップが生成順に数時間ずれて検出されるなど、実大気でのSOA変質過程について知見が得られた。
- 2019年2、3月に北海道や隠岐の島で起こったPM_{2.5}と炭素成分の高濃度イベントについて有機成分分析を行い、バイオマス燃焼の越境輸送が原因であること、中国東北部における草本植物燃焼が原因であること、バイオマス燃焼の指標成分とともに人為起源SOAの指標成分も上昇していたことを示した。

S5.1 精度管理の実施

環境省が公開しているPM_{2.5}中の多環芳香族炭化水素類（PAHs）の測定法マニュアルにはLC/FLD法とGC/MS法が示されている。PAHs測定法の室間誤差評価やLC/MS/MS、GC/MS/MS測定法の適用可能性について検討するために、3機関の異なる測定手法で4環以上の9種のPAHsについてクロスチェックを実施した。機関AのLC/FLD法による測定値に対する他機関の測定値の比は0.58-1.75であり、概ね同等（0.75-1.35）の範囲内であった（図S5-1）。化合物ごとに比較すると他機関との測定値には強い相関が見られたが、回帰係数は測定法ごとに異なっていた。すなわち、各測定法の測定精度は良好であるが、校正曲線に差がある可能性が示された。



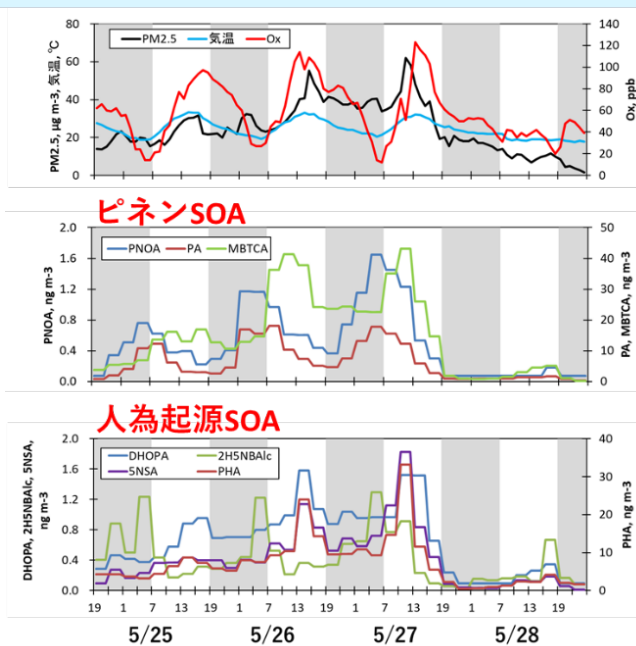
図S5-1 機関AのLC/FLD測定値に対する比率(左)とベンゾ[a]ピレン濃度の散布図(右)

S5.2 テープろ紙分析による高時間分解の二次有機粒子指標成分分析

2019年5月下旬において全国的に光化学オキシダントとPM_{2.5}が高濃度なった事例（春季）と、2019年7月下旬から8月上旬にかけて光化学オキシダントが昼に濃度上昇する日内変動を示した期間

研究概要

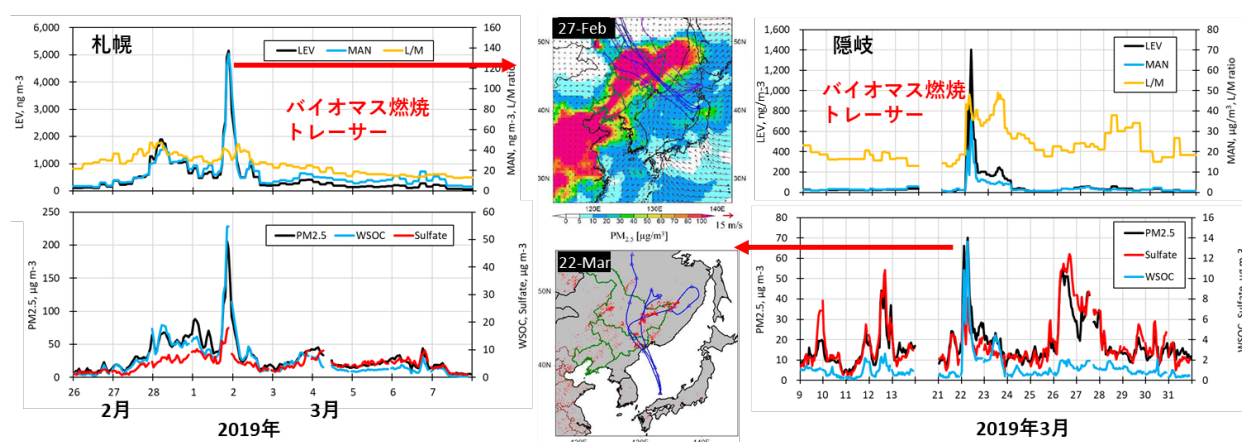
(夏季)について、名古屋のPM_{2.5}テープろ紙により3時間ごとの二次有機粒子(SOA)指標成分の分析を行った(図S5-2)。ピネンSOAの指標成分は、春の観測において提案されている生成順(ピノン酸(PNOA)、ピン酸(PA)、MBTCA)に濃度ピークが見られ、変質が進んだ成分であるMBTCAが日中に濃度ピークを示した。人為起源SOA(ASOA)指標成分については、2,3-ジヒドロキシ-4-オキソペンタン酸(DHOPA)、フタル酸(PHA)、5-ニトロサリチル酸(5NSA)などが両季節とも日中に濃度ピークを示した。一方で、5NSAの前駆体の一つと考えられる2-ヒドロキシ-5-ニトロベンジルアルコール(2H5NBA1c)は夜間に濃度上昇しているため日中のASOAの増加に影響を与えている可能性が考えられるなど、ASOAに関する重要な知見が得られた。



図S5-2 名古屋における2019年春のSOA(ピネンと人為起源由来)の指標成分の時間変動

S5.3 バイオマス燃焼粒子の越境汚染によるPM_{2.5}高濃度現象

2019年2、3月に北海道や隠岐の島で観測されたPM_{2.5}高濃度イベントについて有機指標成分による要因解析を行った。2019年2月から3月に北海道・東北地方や中国地方で生じたPM_{2.5}高濃度事例について、札幌や隠岐のテープろ紙を用いて有機指標成分の高時間分解観測を行い、中国東北部を起源とするバイオマス燃焼粒子の越境輸送がPM_{2.5}高濃度化を引き起こしていることがわかった(図S5-3)。また、有機物の組成比により、森林火災のような木質燃焼ではなく、草本植物燃焼に由来したバイオマス燃焼が原因であることがわかった。バイオマス燃焼の指標成分だけでなく、ASOA指標成分であるDHOPA等も高濃度で検出された



図S5-3 中国東北のバイオマス燃焼粒子の越境輸送によるPM_{2.5}高濃度化(2019年2、3月)

研究概要

S6 瀬戸内地域におけるPM_{2.5}の高濃度化要因と傾向

得られた主な成果：

- 2012年度から2019年度までPM_{2.5}質量濃度は減少傾向にあり、2016年度以降は瀬戸内地域の年平均値も15 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を下回った。ただし、太平洋岸地域や日本海岸地域と比較すると瀬戸内地域のPM_{2.5}濃度は2-3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 程度高い傾向が継続していた
- PM_{2.5}高濃度事例を解析したところ、越境汚染と地域汚染の複合汚染や、九州南部や小笠原諸島の火山排出物の影響に起因すると考えられた。火山由来の二酸化硫黄の一部は瀬戸内地域に達してその場でNH₃と反応して粒子化していた
- 中央構造線に沿った、愛媛県から徳島県へのPM_{2.5}輸送現象を明らかにした
- 船舶燃料油規制後に二酸化硫黄やPM_{2.5}中の硫酸イオン濃度に減少傾向が見られた。また、硝酸濃度も減少しており、COVID-19による活動自粛の影響も考えられた
- 瀬戸内地域の典型的PM_{2.5}高濃度地域である愛媛県（金子局）では、PM_{2.5}前駆体ガス濃度が比較的高く日内変動が顕著であったことから、人為起源の前駆体ガスがPM_{2.5}高濃度化に寄与していると推察された

S6.1 瀬戸内地域のPM_{2.5}常時監視データ解析

2012～2019年度の西日本におけるPM_{2.5}常時監視データを地域別に解析した結果、PM_{2.5}濃度の減少傾向が継続していることが確認された（図S6-1）。2016年度に瀬戸内地域の年平均PM_{2.5}濃度が環境基準値である15 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を下回り、2019年度には約12-13 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ になった。ただし、太平洋岸地域や日本海岸地域と比較すると瀬戸内地域のPM_{2.5}濃度は2-3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ に高い傾向は継続しており、全国のPM_{2.5}年平均値上位20局のうちの約半数は瀬戸内地域の測定局であった。また、PM_{2.5}成分分析結果から、硫酸イオン濃度やアンモニウムイオン濃度などが減少した一方で、硝酸イオン濃度やバナジウム濃度はほぼ横ばいで瀬戸内地域の濃度が高い傾向が確認された。PM_{2.5}の発生源解析（PMF法）から、瀬戸内地域では重油燃焼や硫酸系二次粒子濃度が高いことに加えて、工業系粉じんや石炭燃焼に帰属された発生源の寄与割合が高いことが示された。2020年1月に発効した船舶燃料油規制がPM_{2.5}濃度や重油燃焼由来成分濃度に与える影響を把握するためには、今後の常時監視データ解析が必要である。

S6.2 PM_{2.5}前駆体ガス成分の実態把握

PM_{2.5}の前駆体であるガス成分濃度の実態把握を目的として、フィルターパック法およびパッシブサンプラー法で共同観測（24時間採取）を実施した。愛媛県と兵庫県、北九州市においては長時間分解（6時間）観測によってガス成分濃度の日内変動を明らかにした。船舶燃料油規制前（2017-2018）と後（2020-2021）を比較すると、硝酸は29%、硫黄酸化物は38%、アンモニアは9.3%の濃度低下が見られた。また、フィルターパック法とパッシブサンプラー法による併行測定を行ったところ、パッシブサンプラー法で7日間採取した場合はフィルターパック法の測定値と近い値を示したが、1日間採取ではフィルターパック法よりも高い値を示した。

研究概要

S6.3 高濃度・局地輸送現象の解析

2017年度から2020年度に瀬戸内地域でPM_{2.5}濃度が高濃度になった期間について、その要因解析を行った。愛媛県東予地域で日平均値が100 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えたPM_{2.5}高濃度日（2017年4月8日）は、安定かつ高湿度な大気条件下で硝酸アンモニウム塩の生成が促進されたと考えられた。フィルターパック観測によって東予地域では硝酸ガス濃度が高いことも確認された。2017年8月や2018年5月に観測されたPM_{2.5}高濃度事例は、越境輸送による汚染気塊が瀬戸内地域に滞留したことに加え、地域由来のPM_{2.5}が上乘せされた複合汚染であると考えられた。

2018年と2020年の夏季には九州地方や小笠原諸島の火山性ガス由来の硫酸イオン濃度の上昇が見られた。火山由来と考えられる二酸化硫黄濃度の一部は瀬戸内地域に到達して、その場でアンモニアと反応して粒子化していた。今後も火山性ガスを起源とするPM_{2.5}高濃度事例について注視する必要がある。

徳島県においては、都市部よりも瀬戸内海に面していない内陸部の方がPM_{2.5}濃度は高い傾向が継続していた。そこで、吉野川沿いのPM_{2.5}濃度の時間値等を詳細に解析したところ、四国地方の中央構造線に沿って愛媛県側から徳島県側にPM_{2.5}が輸送されていることが示唆された。

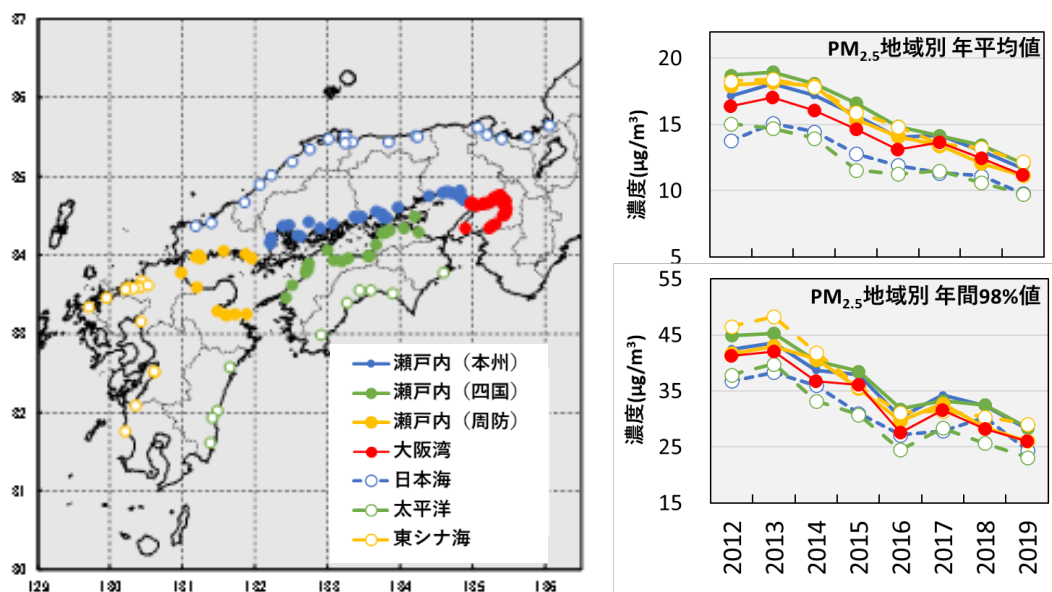
S6.4 新居浜(燧灘)におけるPM_{2.5}高濃度化要因

PM_{2.5}前駆体ガス濃度の日内変動把握のために、愛媛県新居浜市と兵庫県神戸市、北九州市において、高時間分解（6時間）でフィルターパック観測を実施した。瀬戸内地域の典型的PM_{2.5}高濃度地域である新居浜では、前駆体ガス濃度（硝酸、二酸化硫黄及びアンモニア）が他地点よりも比較的高濃度であり、その日内変動も顕著であった（図S6-2）。新居浜においては、人為起源の前駆体ガスが豊富に存在しており、光化学反応等の二次生成反応による粒子化が進みやすい条件にあることがPM_{2.5}高濃度要因の一つであると示唆された。

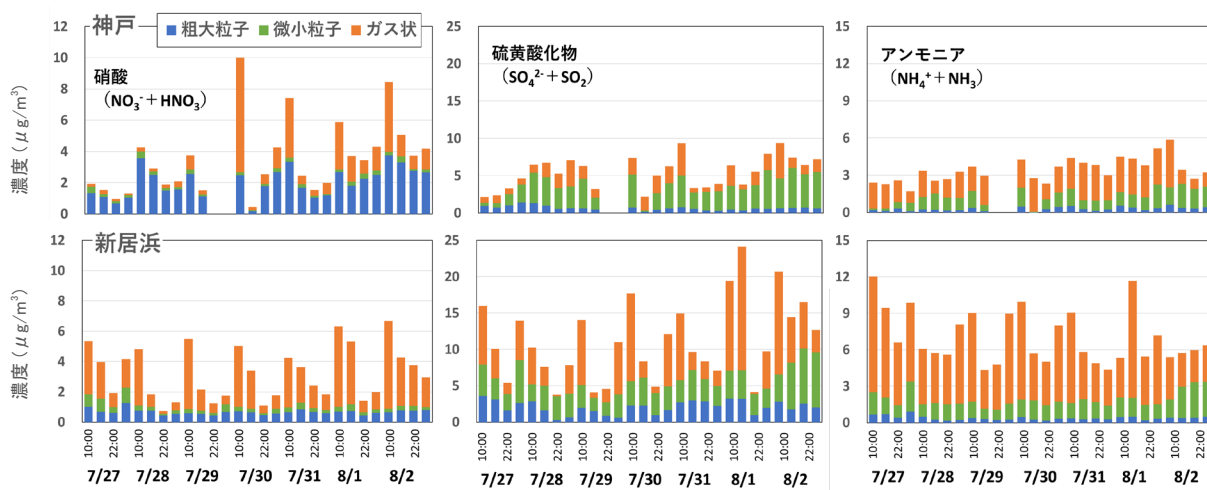
S6.5 船舶燃料油規制強化による大気質への影響に関する解析

船舶燃料油規制（2020年1月）前後のフィルターパック観測結果を比較して、規制強化による大気質への影響把握を試みた。規制前に比較すると規制後には二酸化硫黄濃度が約40-60%も減少し、それに伴ってPM_{2.5}中の硫酸イオン濃度も減少しており規制強化の効果であると考えられた。一方、アンモニア濃度は規制後に上昇しており、中和反応のカウンターである硫酸濃度が減少したためにアンモニアのまま滞留する時間が長くなったためだと推察された。また、規制後に硝酸ガス濃度も減少傾向が見られたが、COVID-19による社会活動の停滞が影響した可能性も考えられた。

研究概要



図S6-1 常時監視データに基づく西日本の地域別PM_{2.5}汚染状況



図S6-2 2020年夏季の高時間分解フィルターパック観測によるガス状成分、PM_{2.5}含有成分、粗大粒子含有成分濃度

研究概要

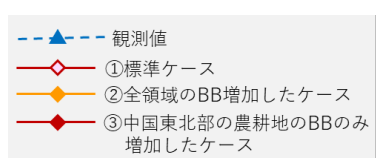
S7. 化学輸送モデルを用いた解析

得られた主な成果：

- 2019年2月末から3月上旬にかけて北海道、東北地方で発生したPM_{2.5}高濃度事例について、化学輸送モデルを用いた発生源解析を実施したところ、中国東北部のバイオマス燃焼の影響を受け、日平均で最大20 μg/m³程度上昇した可能性が示唆された。
- 2020年8月上旬に西日本を中心に観測されたPM_{2.5}高濃度事例について、化学輸送モデルを用いた発生源解析を行ったところ、火山が大きく寄与しており、かつSO₄²⁻生成に寄与した火山は、日ごと、地域ごとに異なっていたことが示された。
- 福岡県を対象として化学輸送モデルによる感度解析を行った。その結果、九州全県のNO_x排出量を削減すると、オゾン濃度は都市部・工業地帯を含む福岡県の北側エリアで増加するが、その風下となる郊外では減少する傾向がみられた。一方、九州全県のVOC排出量を削減すると、福岡県の全域でオゾン濃度は減少するが、その影響はNO_x排出量を削減した場合より小さかった。

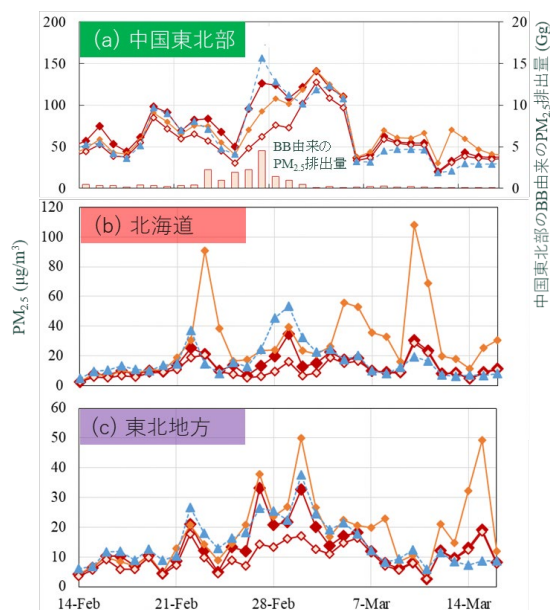
S7.1 北海道のPM高濃度事例の解析

・2019年2月末から3月上旬にかけて、北海道のPM_{2.5}濃度が急激に上昇した。衛星観測データによりバイオマス燃焼(BB)の可能性が考えられたことから、化学輸送モデルを用いた発生源解析を実施した。その結果、北海道、東北地方のPM_{2.5}濃度は、中国東北部の農耕地BBによって日平均最大20 μg/m³程度上昇したと推察された。したがって、今後、冬季に同規模のBBが中国東北部で発生し、北西からの風が吹く等の気象条件が重なった場合、同様のPM_{2.5}高濃度汚染が再発するおそれが見込まれた(図S7-1)。



注：①標準ケースはバイオマス燃焼(国外)GFASv1.2を修正(増加しない)場合

- <①標準ケース>
 - ❖ 3ケースとも過小評価
- <②全領域のBB増加>
 - ❖ 北海道、東北地方で過大評価する期間が発生
- <③中国東北部農耕地のみBB増加>
 - ❖ 3地域共通してPM_{2.5}再現性をもっとも良好

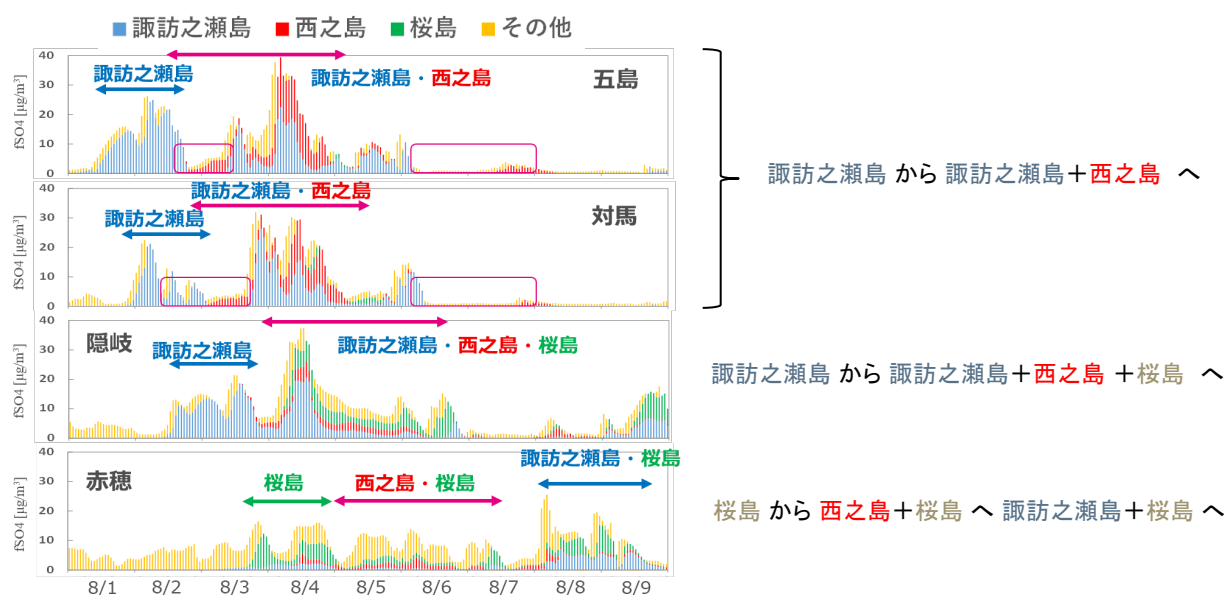


図S7-1 中国東北部および北海道・東北地方のPM_{2.5}濃度

研究概要

S7.2 2020年8月の高濃度PM_{2.5}に対する西之島・諏訪之瀬島・桜島の寄与

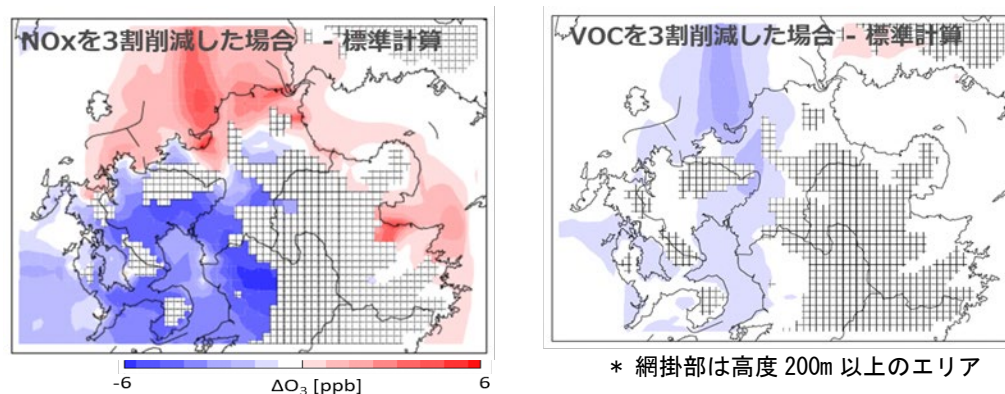
・2020年8月上旬に西日本を中心に観測されたPM_{2.5}高濃度事例について、成分測定および化学輸送モデルによる解析を行った。その結果、モデルによる感度解析結果から、PM_{2.5}濃度上昇には火山が大きく寄与しており、SO₄²⁻生成に寄与した火山は、日ごと、地域ごとに異なっていたことが示された。また、各成分とも船舶の寄与割合は1%であり、この期間の影響は小さいと考えられた（図S7-2）。



図S7-2 SO₄²⁻生成への西之島・諏訪之瀬島・桜島の寄与濃度

S7.3 NO_x、VOC削減による福岡県内オゾン濃度の変化

・2018年6~8月の福岡県を対象に、九州内で生成したオゾンが高濃度となった日を抽出してその平均プロファイルを作成し、解析を行った。その結果、九州全県のNO_x排出量を削減すると、都市部・工業地帯を含む福岡県北側エリアではオゾン濃度が増加し、その風下の郊外で減少する傾向がみられた。一方、九州全県のVOC排出量を削減すると、福岡県全域でオゾン濃度が減少したが、その減少濃度はNO_x排出量を削減した場合に比べて小さかった（図S7-3）。



図S7-3 NO_x、VOC排出量を削減した場合のオゾン濃度変化量