

# 終了課題成果報告書

研究テーマ名	汚染物質の排出構造変化によるPM <sub>2.5</sub> 及びO <sub>3</sub> への影響						
研究担当者(共同研究者含む)	長谷川就一、米持真一、佐坂公規、市川有二郎、村田浩太郎、米倉哲志						
実施期間	令和元年度～令和4年度(4か年)						
研究区分	自主研究事業(共同研究機関名: )						
研究費(千円)	元年度	2年度	3年度	4年度	年度	研究費合計	備考
自主研究費	538	728	597	419		2282	
関連外部資金							
環境基本計画上の位置付	(目標)安心・安全な環境保全型社会づくり (施策)大気環境の保全						
背景と目的(目標設定)	<p>PM<sub>2.5</sub>は経年的に低下しつつあるが、越境汚染の減少が示唆される中、元々越境汚染の寄与が西日本よりも小さい関東地方において、経年的な低下の要因はまだ解明されていない。また、短期的な高濃度は、県東部を中心に引き続き発生している。これらを解明することは、今後の社会や気象の変化によるPM<sub>2.5</sub>の動向の予測に必要である。一方、光化学オキシダント(その大部分はO<sub>3</sub>)については、日中のピーク濃度の年平均は横ばいか漸減傾向にとどまっている。前駆物質であるNO<sub>x</sub>とVOCの排出量や大気中濃度は低下傾向であるが、自動車排ガスのNO<sub>2</sub>/NO<sub>x</sub>比の変化などが影響を与えている可能性が指摘されている。こうした状況の中、2020年は、東京湾から関東地方へ影響する発生源である船舶に対する燃料中の硫黄分の規制が強化された。また、延期された夏季東京五輪が2021年に開催されたが、光化学スモッグの抑制が大きな課題となっていた。こうした対策の実施などによる変化を把握することは、今後の改善に向けて非常に重要である。そこで本研究では、汚染物質の排出構造の変化によるPM<sub>2.5</sub>及びO<sub>3</sub>への影響を解明する。</p>						
研究内容(緊急性・必要性、新規性・独創性)	<p>PM<sub>2.5</sub>中のSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>と、その前駆物質であるSO<sub>2</sub>に着目し、船舶燃料の規制前後となる2019～2022年に、関東地方において海風の風下となる夏季に、県北部の騎西(当センター)と県南部の戸田においてSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の高時間分解測定を行い、大気常時監視データと合わせて解析した。</p> <p>また、PM<sub>2.5</sub>の短期的な高濃度は寒候期に多いことから、低温で生成しやすくなるPM<sub>2.5</sub>中のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>に着目し、2021年11月～2022年2月に騎西において、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>の高時間分解測定を行い、前駆物質であるNO<sub>2</sub>や気象データと合わせて解析した。</p> <p>一方、2013～2022年の光化学スモッグ注意報の発令日数を集計し、休日に発令が多かった2015年7月と平日に発令が多かった2020年8月に着目し、平日と休日に分けて戸田などの一般局と自動車排出ガス測定局(自排局)における常時監視データを解析した。合わせて、2013～2022年のNO<sub>x</sub>濃度や自動車NO<sub>x</sub>排出量などの経年変化の把握、県内の自排局におけるNO<sub>2</sub>/NO<sub>x</sub>比の経年変化の解析を行った。また、春日部増戸自排局においてNO<sub>x</sub>とO<sub>3</sub>の1分間値の測定により自動車排ガスのNO<sub>2</sub>/NO<sub>x</sub>比の推定を行った。</p>						
成果の概要(目標達成度)	<p>2019～2022年で晴天・南寄りの風でPM<sub>2.5</sub>が上昇した2～3日間を分析・解析した結果、戸田でSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>がピークとなる数時間前に東京湾臨海部でSO<sub>2</sub>が上昇していたが、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>のピークは2020年以降低下した。騎西のSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>のピークは戸田よりも遅れることが多かった。臨海部におけるSO<sub>2</sub>は2019年から2020年に低下しており、東京港などの入港船舶数の減少以上に低下していた。SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度は2019年の広域汚染や2020年の火山噴煙の影響で高かった時期もあったが、それ以外の時期のデータや、定期測定を行っている鴻巣におけるデータなども踏まえると、県内の夏季PM<sub>2.5</sub>中のSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>は船舶燃料の規制強化により低減したことが示唆された。</p>						

寒候期のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>と前駆物質であるNO<sub>2</sub>の関係性は、NO<sub>2</sub>が低くてもNO<sub>3</sub><sup>-</sup>が高い場合は、相対湿度(RH)が高い(75%以上)傾向であった。これは、前駆物質が多くなっても水分が多いことにより不均一反応などが促進されて二次生成量が多くなっていることが考えられた。一方、NO<sub>2</sub>が高くてもNO<sub>3</sub><sup>-</sup>が高い場合と低い場合があり、これらは全体的にRHが低かった。このNO<sub>3</sub><sup>-</sup>の高低を分けている要因の1つは風速であった。また、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>は夕方から夜、未明にかけての夜間に上昇する傾向であり、RHや風速の典型的な日内変動やNO<sub>2</sub>から生じる前駆物質(N<sub>2</sub>O<sub>5</sub>、HNO<sub>3</sub>)の夜間生成に対応している。

光化学スモッグ注意報の発令が休日に多かった2015年7月と平日に多かった2020年8月を比較した結果、2020年8月の平日のNOやNO<sub>2</sub>の経時変化は、日中を中心に2015年7月の休日に近い状況になっており、特に自排局のNOは平日日中で大きく低下し、休日と同じ低いレベルであった。NOタイトレーションにより減少したO<sub>3</sub>を推定したところ、昼間では、2020年8月の平日は、2015年7月の休日並みにNOタイトレーションが低下していた。NO<sub>x</sub>濃度は経年的に低下傾向だが、一般局のNO<sub>2</sub>よりも自排局のNOの方が低下が大きく、自排局におけるNO<sub>2</sub>/NO<sub>x</sub>比は年々上昇傾向であった。春日部増戸自排局において測定により推定した自動車排ガスのNO<sub>2</sub>/NO<sub>x</sub>比は、大型車の影響を強く受ける平日夜間から早朝に小さく、日中から夕方は大きくなる傾向であったが、全体として従来考えられていたよりもやや大きい可能性が示された。

#### 成果の公表(発表・投稿、講演会の開催、報道機関の活用、特許取得等)

##### 【口頭発表】

長谷川就一：埼玉県における高時間分解測定データに基づくPM<sub>2.5</sub>炭素成分の時間・季節・地域分布、第36回エアロゾル科学・技術研究討論会、東広島、2019年9月

長谷川就一：埼玉県における夏季PM<sub>2.5</sub>硫酸塩の高時間分解測定による船舶燃料規制の影響検討、第38回エアロゾル科学・技術研究討論会、オンライン、2021年8月

長谷川就一：埼玉県における船舶燃料規制前後の夏季PM<sub>2.5</sub>硫酸塩の比較、第62回大気環境学会年会、オンライン、2021年9月

長谷川就一、米持真一：四季成分測定の長期データによる埼玉県におけるPM<sub>2.5</sub>の変化、第39回エアロゾル科学・技術研究討論会、横浜/オンライン、2022年8月

長谷川就一、米持真一：東京五輪の交通規制による埼玉県におけるNO<sub>x</sub>・NMHCの変化、第63回大気環境学会年会、堺、2022年9月

長谷川就一：埼玉県におけるの夏季硫酸塩および冬季硝酸塩と前駆物質との関係性、第40回エアロゾル科学・技術研究討論会、桐生、2023年8月

長谷川就一：NO<sub>x</sub>低下に伴う埼玉県の光化学オキシダント高濃度の出現動向の考察、第64回大気環境学会年会、つくば、2023年9月

#### 成果の発展性(埼玉県(行政・地域)への貢献、技術発展・実用化、課題等)

夏季のPM<sub>2.5</sub>のSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の低下が、船舶燃料の規制強化によるものであることが示唆されたことによって、PM<sub>2.5</sub>の一次排出成分だけでなく、二次生成成分の前駆物質の排出を削減することでPM<sub>2.5</sub>を抑制できることが改めて実証されたと言える。これが内陸の埼玉県で言えるということは、前駆物質の排出削減は広域的な視点で取り組む必要性を示している。一方、同じように二次生成成分であるNO<sub>3</sub><sup>-</sup>には気象条件が複雑に関与しているため、前駆物質の排出削減効果が直接的に見えない面があるが、前駆物質からNO<sub>3</sub><sup>-</sup>の二次生成が促進される気象条件でも高濃度にならなかったときは、NO<sub>2</sub>はやはり低い濃度レベルであることが多かった。NO<sub>2</sub>は経年的に低下しているが、冬季は年間の中で高く、また平均ではなく日内変動などの短時間では高濃度の出現がまだ多い。SO<sub>2</sub>もNO<sub>2</sub>も既に環境基準を十分達成している中で、船舶燃料の規制強化がSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の低下につながったことを考えると、NO<sub>2</sub>についてもさらなる削減対策(特に寒候期)を広域的に進めれば、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>の低下につながる余地があると考えられる。

光化学オキシダントについては、自動車由来のNO<sub>x</sub>排出量や特性の変化の影響で光化学スモッグ注意報の平日・休日の傾向が変化してきている可能性があり、それを踏まえると、最近の休日の状況が、自動車のEVシフトが進みNO<sub>x</sub>の排出削減がさらに進んだ数年先の状況を表しているかもしれない。光化学スモッグ注意報の発令日数は、年ごとの夏季の気象状況に大きく影響されるものの減少傾向とは言えないため、NO<sub>x</sub>に比べて低下傾向が緩やかなVOCの寄与の解明と削減対策も一層重要になると考えられる。