

(課題番号5-1604 平成28~30年度)

# 「都市型PM2.5の高濃度化現象の原因解明と 常時監視データ補正法」

研究代表者:長田 和雄(名古屋大学)

累積予算額:108,097千円

## 研究体制

(サブテーマ1) 「ガス状・粒子状のアンモニアと硝酸に関する研究」

名古屋大学: 長田 和雄

(サブテーマ2) 「濃尾平野の都市型PM2.5発生要因に関する研究」

名古屋市環境科学調査センター: 山神 真紀子、池盛 文数、久恒 邦裕

(サブテーマ3) 「関東平野の都市型PM2.5発生要因に関する研究」

東京都環境科学研究所: 齊藤 伸治、星 純也

(サブテーマ4) 「PM2.5質量濃度に与える吸湿性粒子の影響評価」

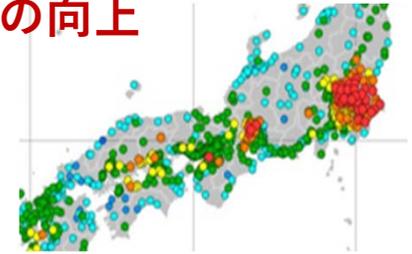
東京理科大学: 三浦 和彦

# 研究開発目的

【行政ニーズ】 PM2.5 発生源寄与の推計精度向上のための解析手法に関する研究

【行政ニーズ】 PM2.5 の1 時間値の評価方法の確立および測定精度の向上

PM2.5が局所的に高濃度となる東京と名古屋において



- ① 冬季の高濃度イベントを調べるために、ガス状のアンモニアと硝酸等を観測 (サブ: 1・3)
- ② PM2.5の高濃度化に寄与する発生源を調べるために、時別・風向別のPM2.5サンプルを採取し、有機マーカ成分や指標元素を分析 (サブ: 2・3)
- ③ 常時監視局で測定されるPM2.5濃度の1時間値の解釈を補助する手法を提案するために、光散乱式計測装置(OPC)でエアロゾル湿度特性を測定し、主要化学成分との関係を調べる (サブ: 4・3・2・1)

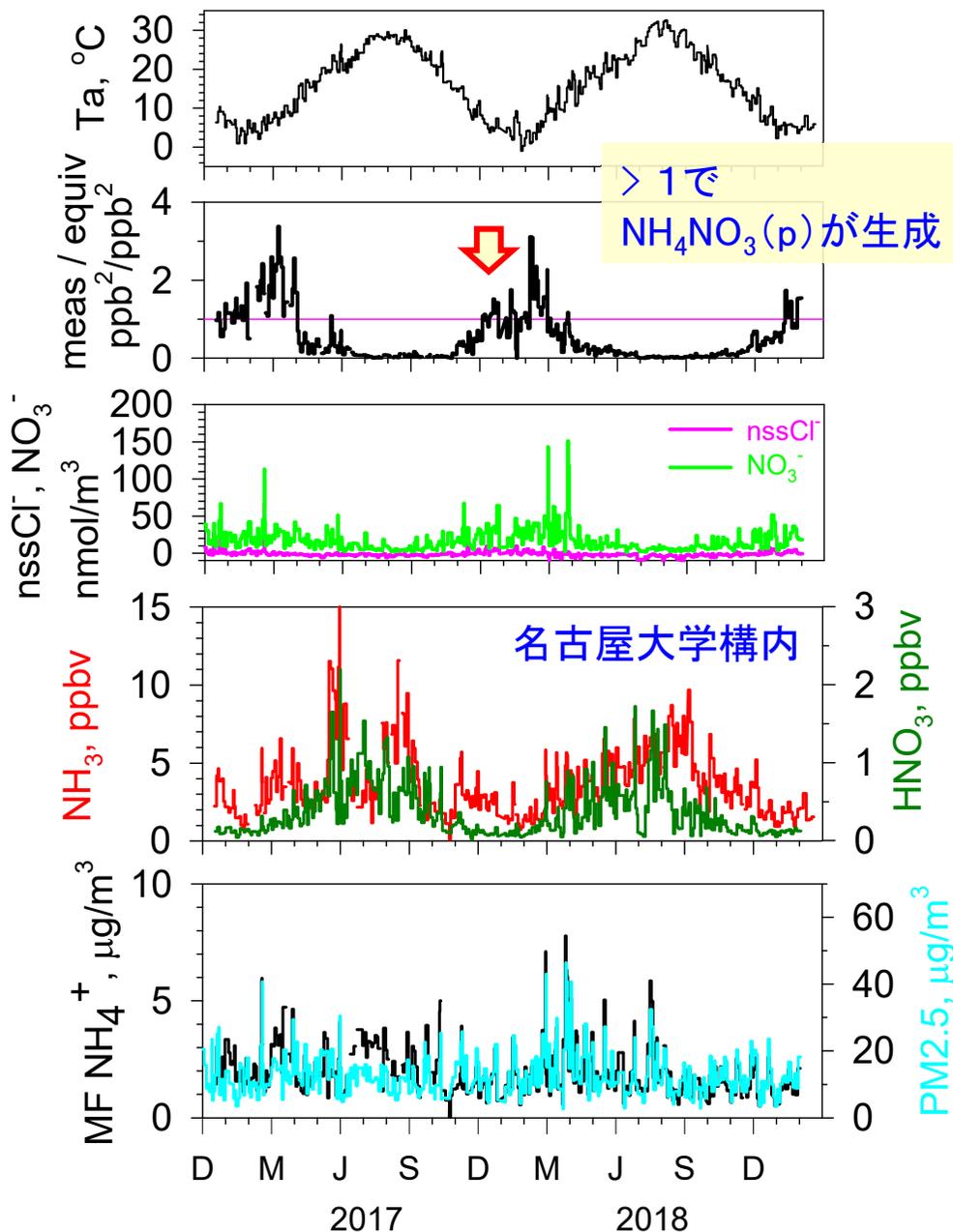
# サブ(1) ガス状・粒子状のアンモニアと硝酸に関する研究 (名古屋大学)

デニューダー差量法を用いた  
 $\text{NH}_x$ 計 (ガス状 $\text{NH}_3$ と粒子状 $\text{NH}_4^+$   
 を同時に測定)

名大: 16年12月～  
 都環研: 17年11月～  
 1時間毎



名大: 16年10月～  
 1～3日毎



# 17年12月

名大

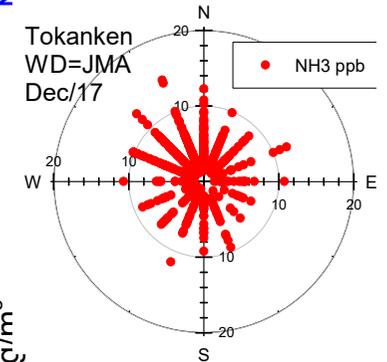
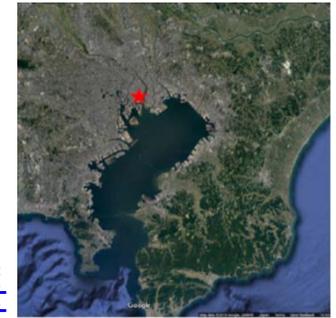
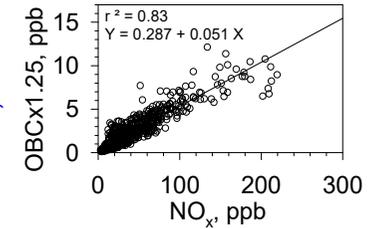
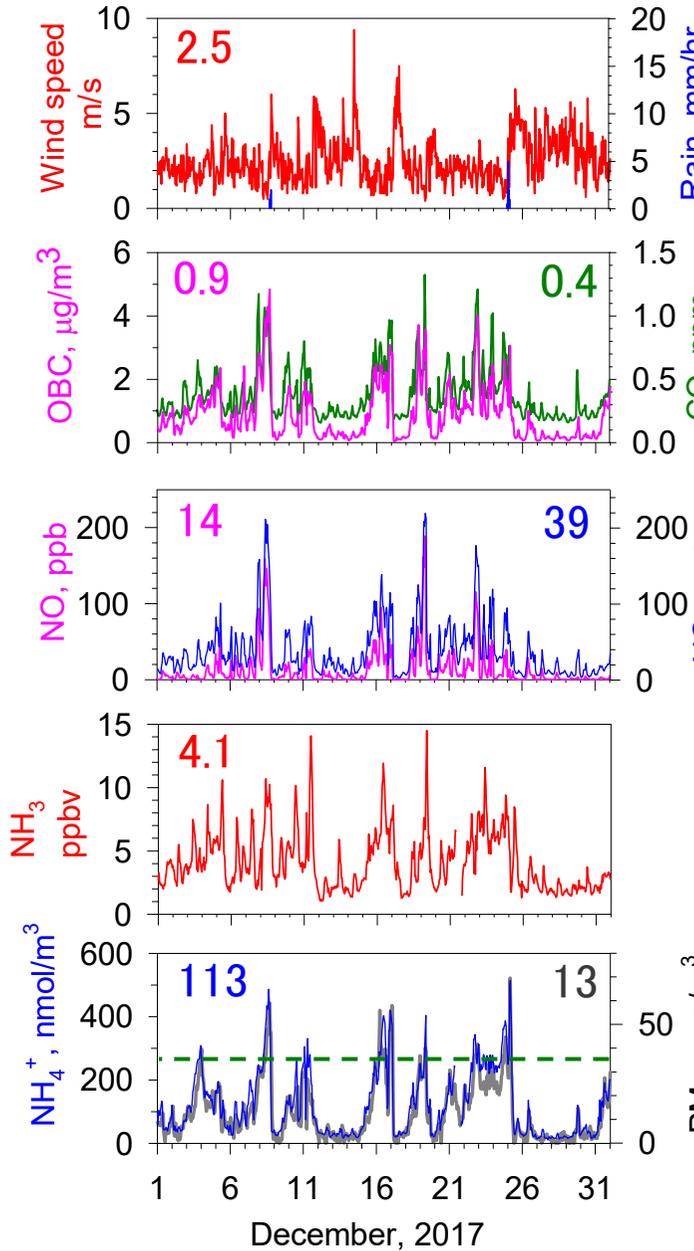
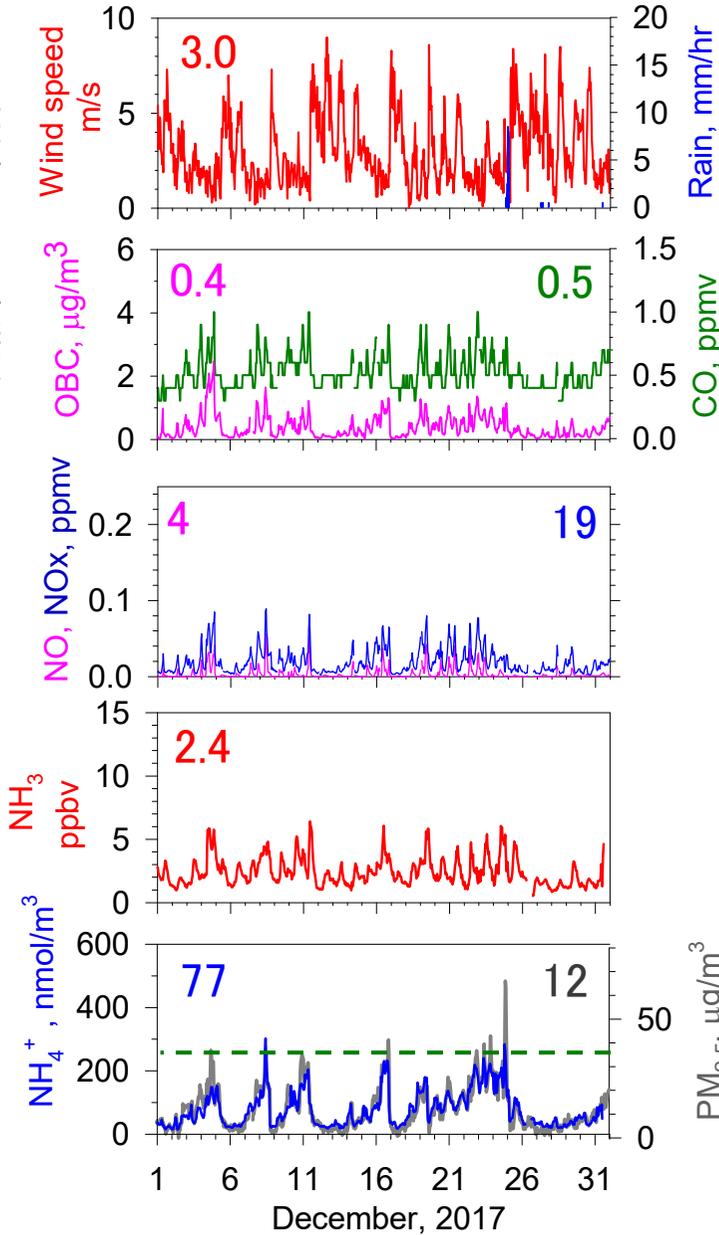
時別風速で3 m/sの時間数  
17年12月 名古屋:452 東京:543

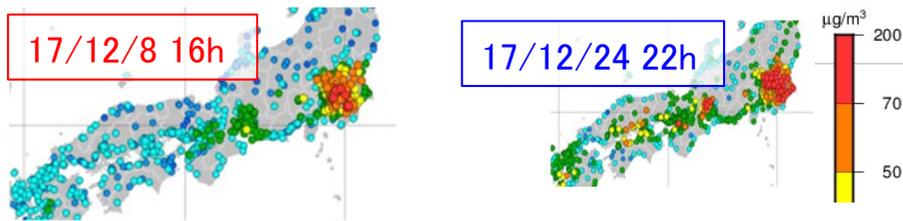
都環研(サブ3)

OBC:PM2.5成分自動測定結果データ(環境省)

国設名古屋

名大

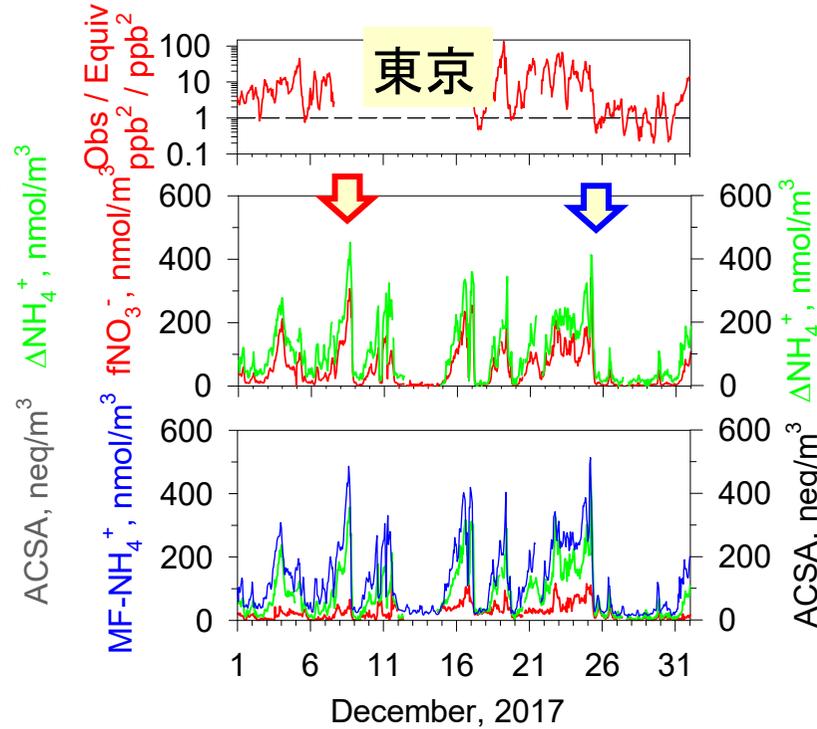
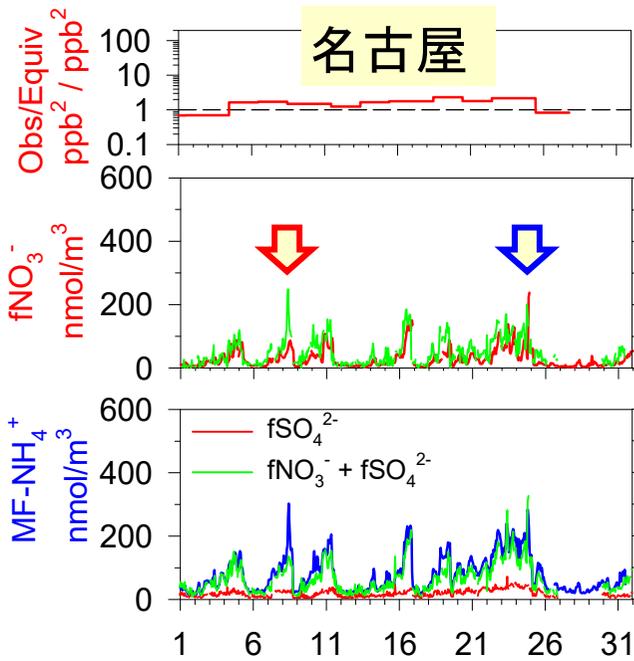




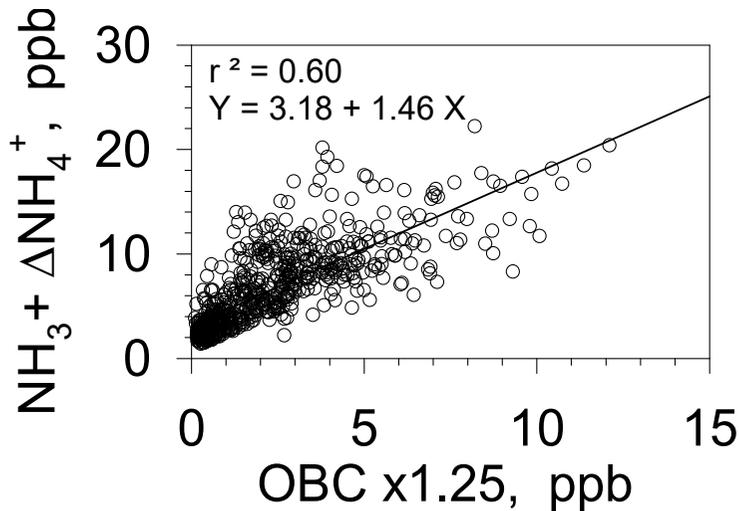
$$\Delta\text{NH}_4^+ = \text{NH}_4^+ - 2 \times \text{SO}_4^{2-}$$

( $\text{NH}_4\text{NO}_3$ 量に相当)

fNO<sub>3</sub><sup>-</sup>, fSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>: PM2.5成分自動測定結果データ(環境省)



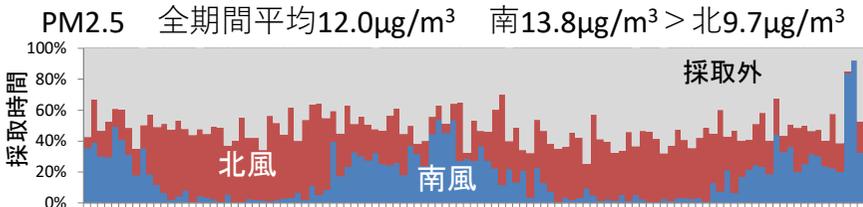
サブ(3)から



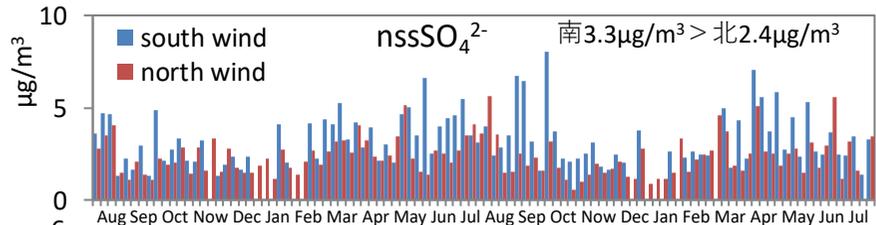
$\text{NH}_3 + \Delta\text{NH}_4^+$  平均値(17年12月): 6.7 ppb  
 Y切片: 3.2 ppb  
 ⇒ 自動車排出ガス由来(以外)が約半分

# サブ(2) 濃尾平野の都市型PM2.5発生要因に関する研究(名古屋市環科セ)

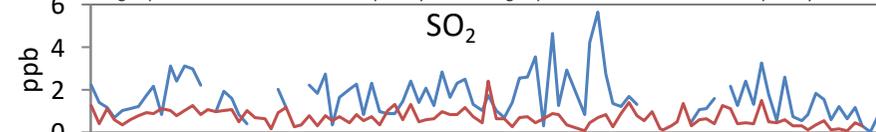
## 風向別PM2.5(2016.8~2018.7)



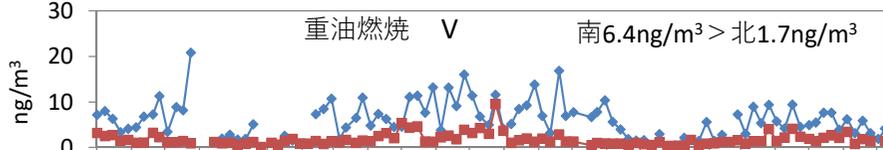
Aug Sep Oct Now Dec Jan Feb Mar Apr May Jun Jul Aug Sep Oct Now Dec Jan Feb Mar Apr May Jun Jul



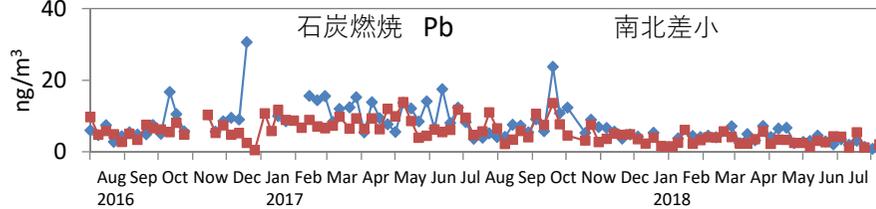
Aug Sep Oct Now Dec Jan Feb Mar Apr May Jun Jul Aug Sep Oct Now Dec Jan Feb Mar Apr May Jun Jul



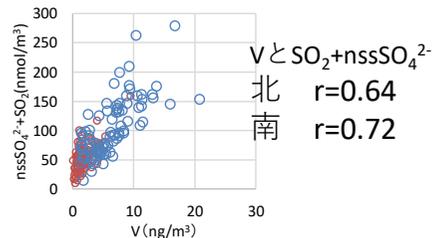
Aug Sep Oct Now Dec Jan Feb Mar Apr May Jun Jul Aug Sep Oct Now Dec Jan Feb Mar Apr May Jun Jul



Aug Sep Oct Now Dec Jan Feb Mar Apr May Jun Jul Aug Sep Oct Now Dec Jan Feb Mar Apr May Jun Jul

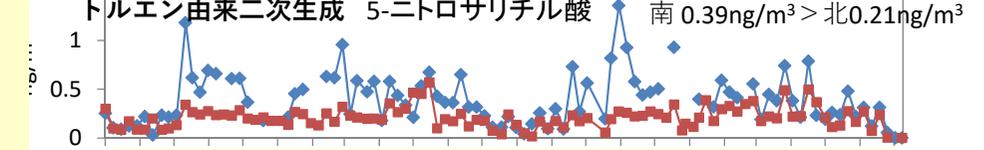
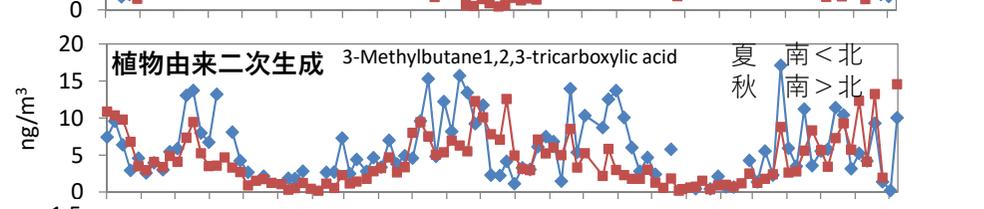
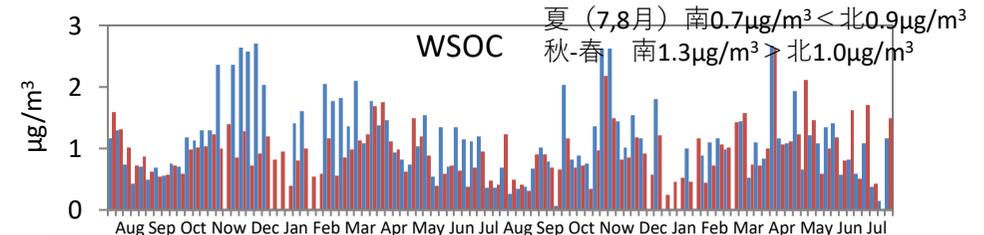
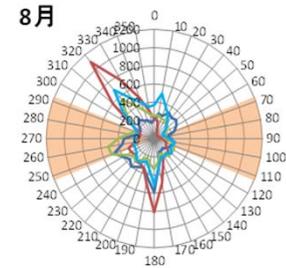


Aug Sep Oct Now Dec Jan Feb Mar Apr May Jun Jul Aug Sep Oct Now Dec Jan Feb Mar Apr May Jun Jul



SO<sub>2</sub>, SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, V濃度:  
南 > 北  
南(港湾部)での重油  
燃焼が寄与

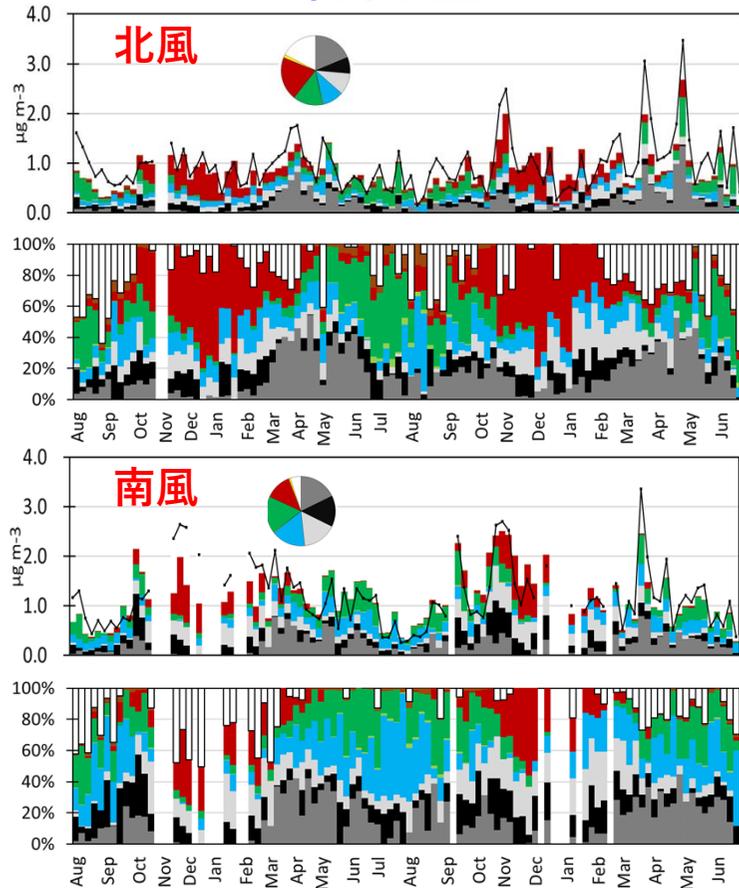
1m/s以上について  
1週間サンプリング



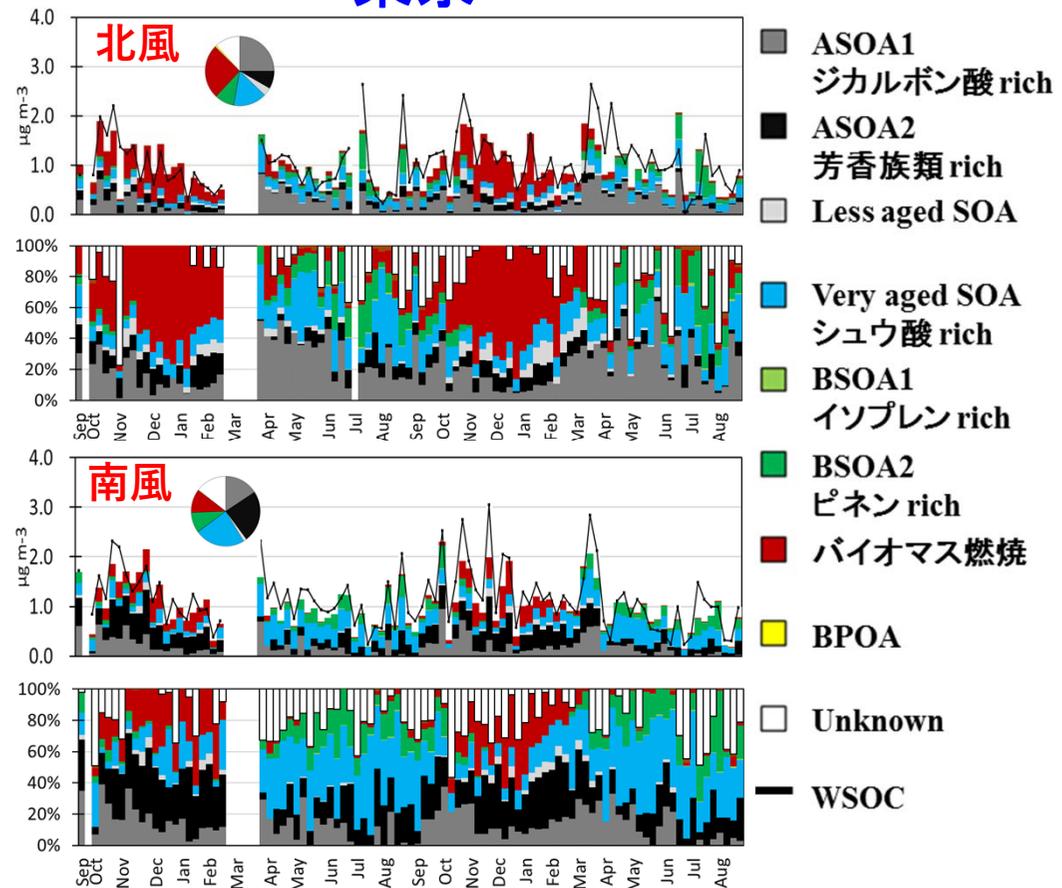
南からプラ燃焼の寄与

# PMF法によるWSOCの発生源寄与解析(サブ2+3)

## 名古屋



## 東京



- ASOA1  
ジカルボン酸 rich
- ASOA2  
芳香族類 rich
- Less aged SOA
- Very aged SOA  
シュウ酸 rich
- BSOA1  
イソプレン rich
- BSOA2  
ピネン rich
- バイオマス燃焼
- BPOA
- Unknown
- WSOC

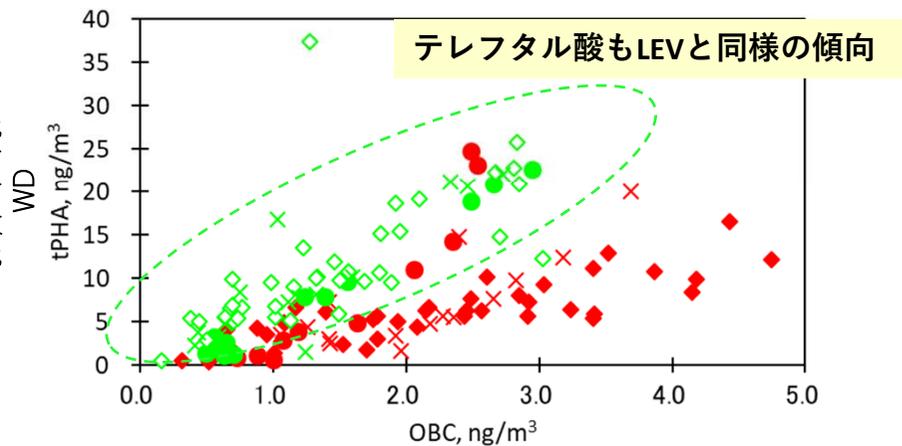
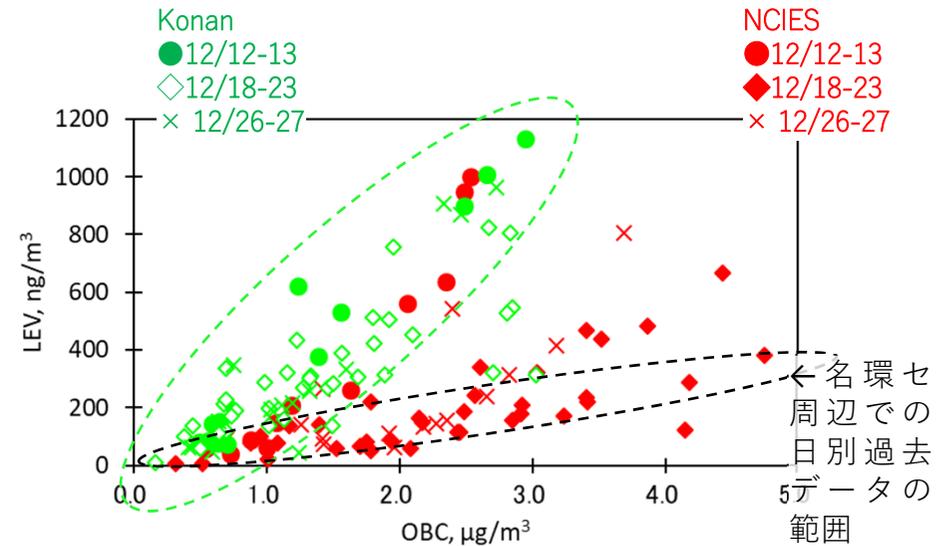
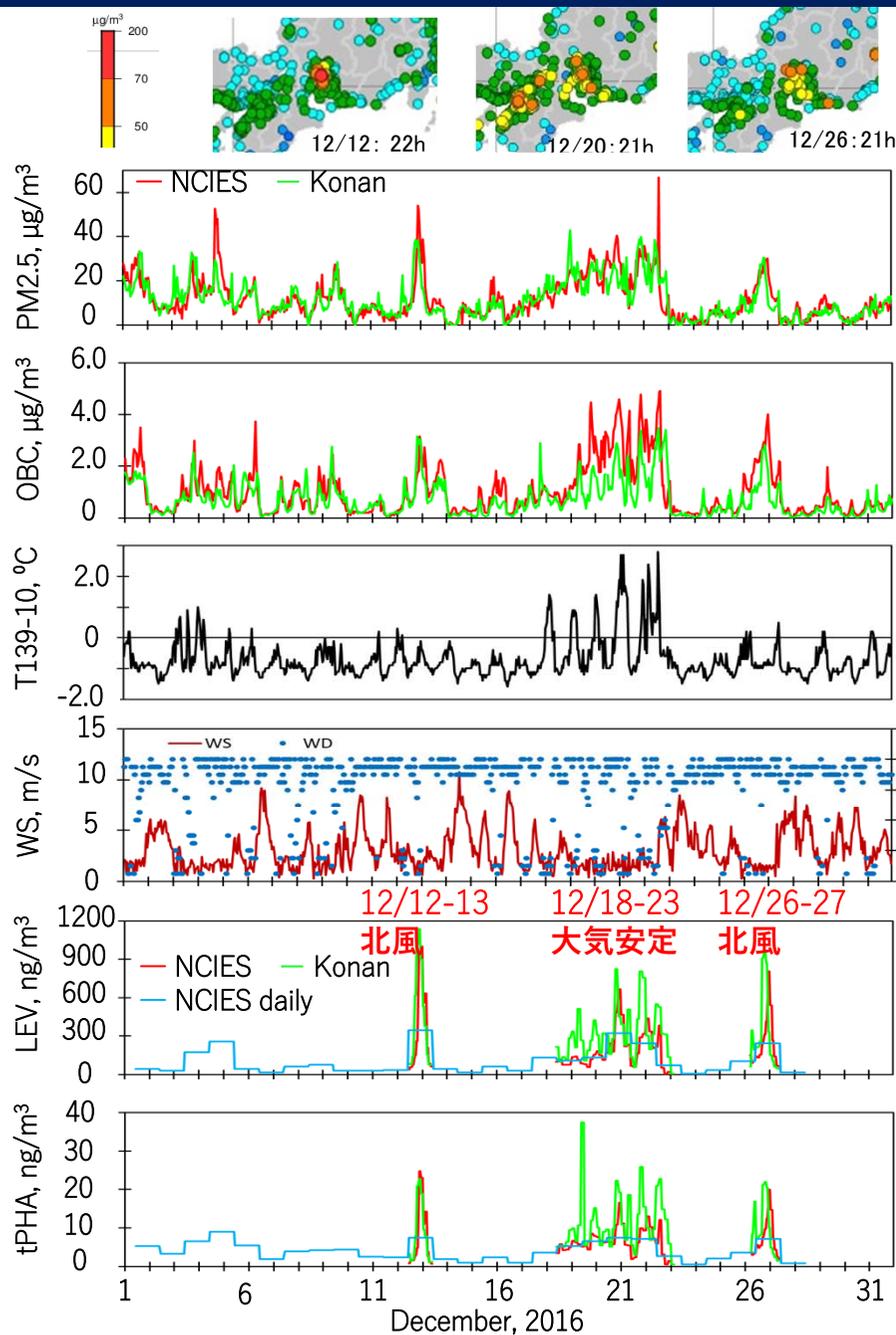
### WSOCに影響が大きい発生源の季節傾向(東京・名古屋ともに)

秋冬: 北でバイオマス燃焼、南で芳香族類の影響が大きい

春: 南でジカルボン酸系の因子の影響が強い

夏: BSOAピネン、南でVery aged SOA、東京の南で芳香族類の影響が強い

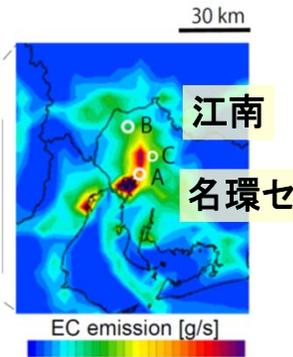
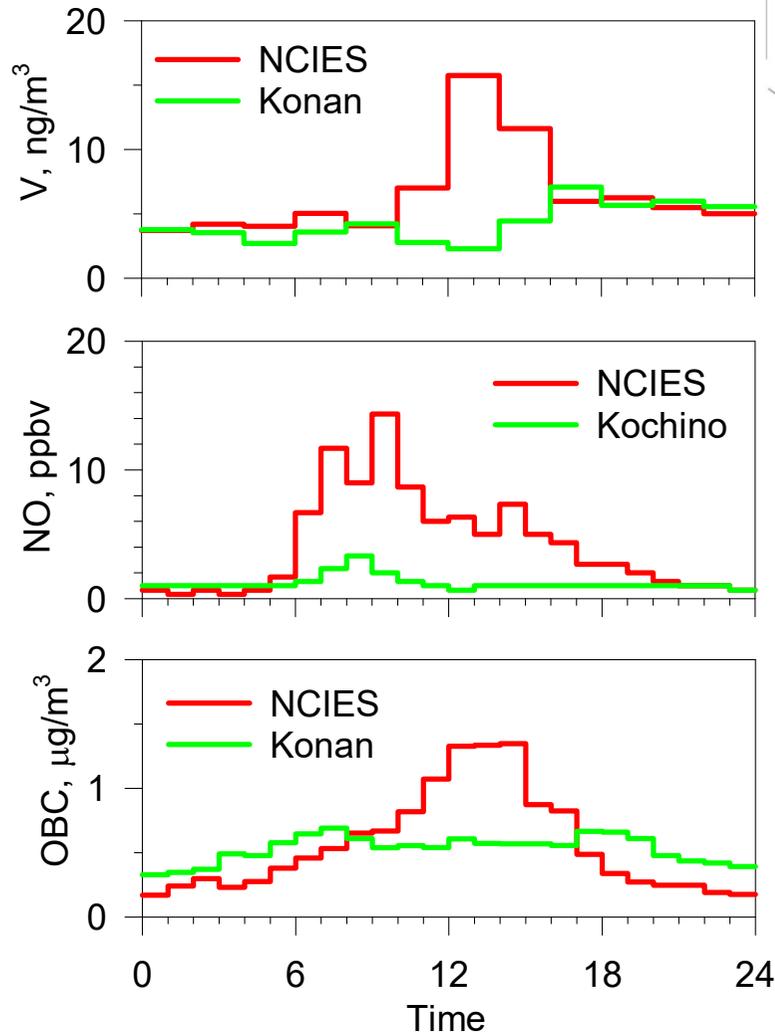
# 有機トレーサー成分とOBCとの関係(サブ2)



江南(郊外で風上)と名環セ(都市で風下)で傾きの傾向が異なる

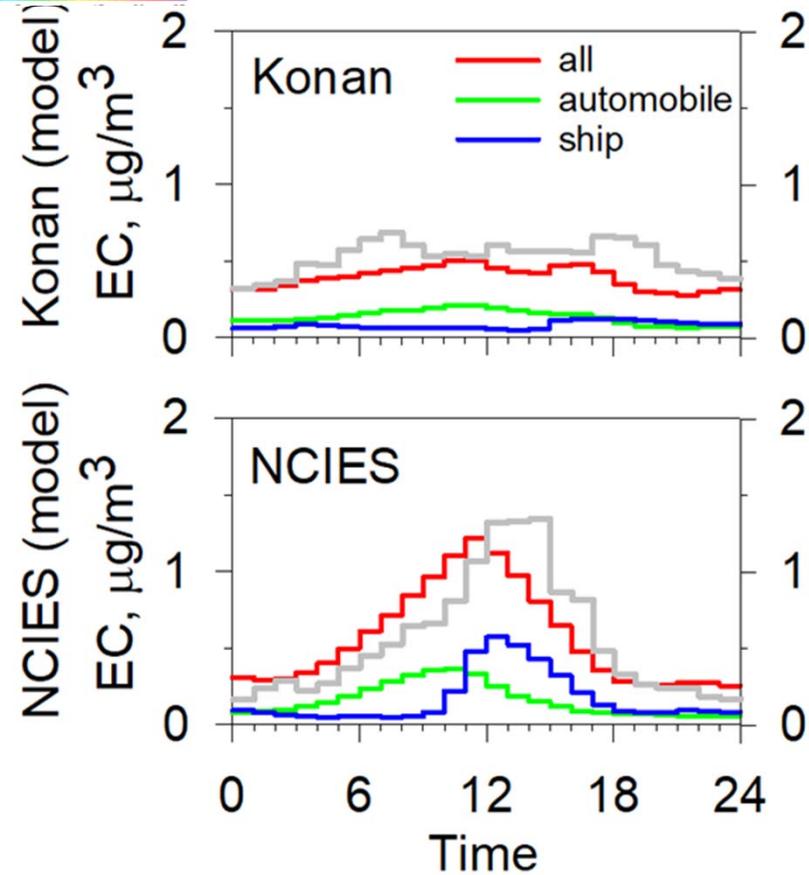
# 海風時のテープろ紙詳細分析とシミュレーションによる発生源解析 サブ(2+1)

16年8月4～6日のサンプルを  
2時間毎にまとめて分析



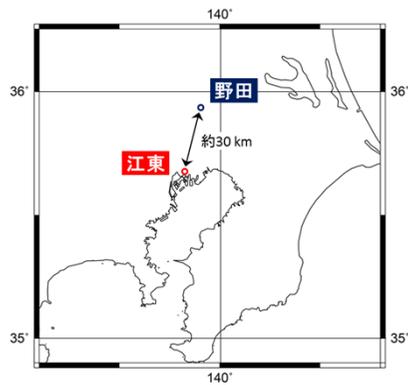
大気環境学会誌に掲載

研究協力者: 国環研・茶谷

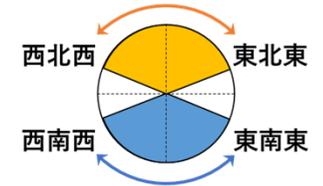


海風時のEC濃度上昇には湾岸部での重油燃焼が寄与

# サブ(3) 関東平野の都市型PM2.5発生要因に関する研究(都環研)

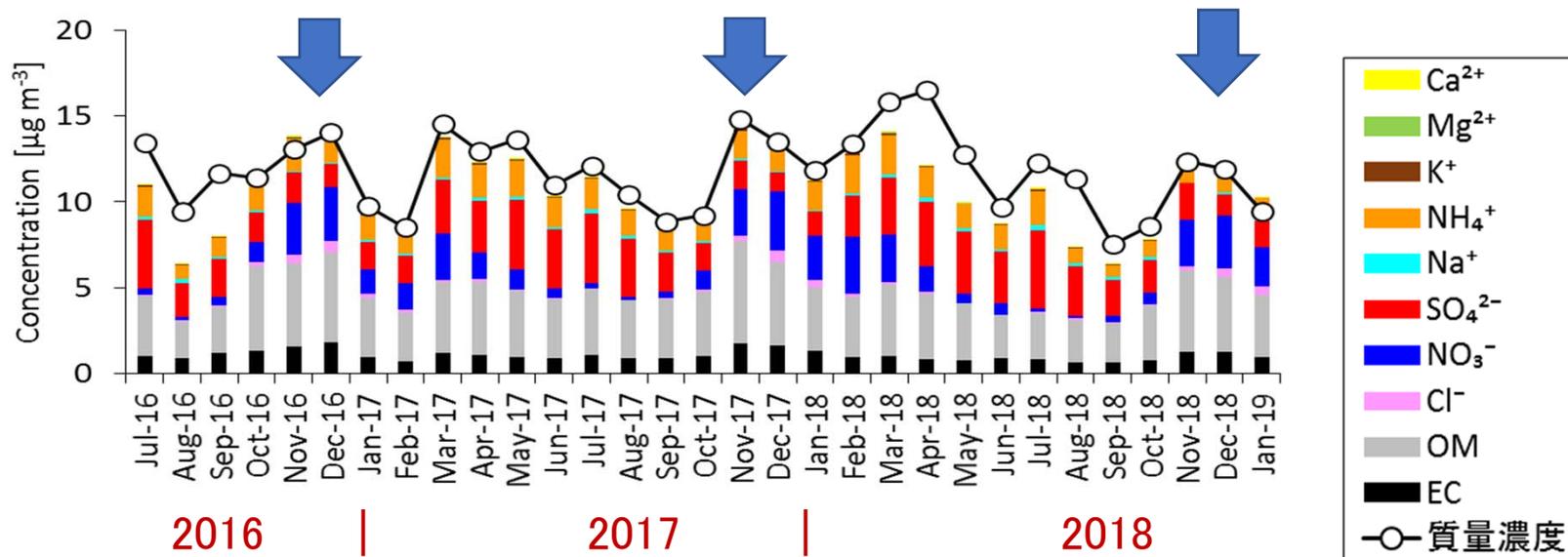


- ・硝酸アンモニウム生成関わる窒素酸化物測定  
( $\text{NO}_y \cdot \text{HNO}_3$ 計とACSA-14による $\text{fNO}_3^-$ データ、 $\text{NO}_2^-$ )
- ・n-アルカンとカルボン酸の分析



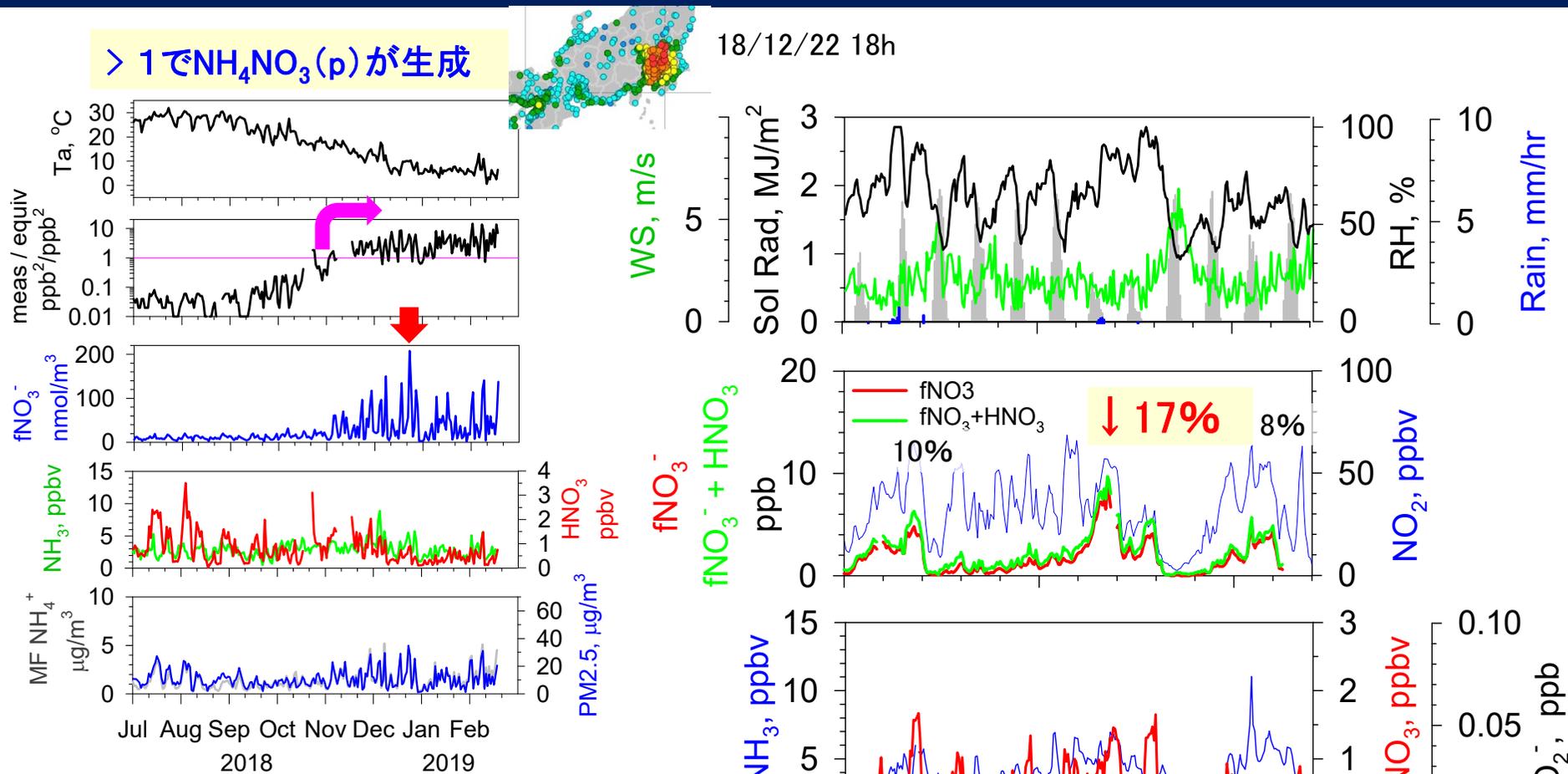
ウインドセクター

【他サブとの連携】(サブ1)アンモニアガス・粒子の観測  
(サブ2)ウインドセクターサンプル+テープろ紙  
(サブ4)PM<sub>2.5</sub>イオン成分データ



秋～冬の高濃度は硝酸アンモニウムと有機物

# 硝酸アンモニウムの生成条件の解析(サブ3)



> 1でNH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>(p)が生成

18/12/22 18h

NO<sub>2</sub>からのNO<sub>3</sub><sup>-</sup>化率が  
高いのは高湿度時？

2NO<sub>2</sub> + H<sub>2</sub>O = NO<sub>3</sub><sup>-</sup> + H<sup>+</sup> + HONO  
NH<sub>3</sub>の存在により促進され、量的に寄与  
する可能性も(Li et al., PNAS, 2018)

↓ 17%

December, 2018

# n-アルカンとカルボン酸を用いた有機物酸化過程の解析(サブ3)

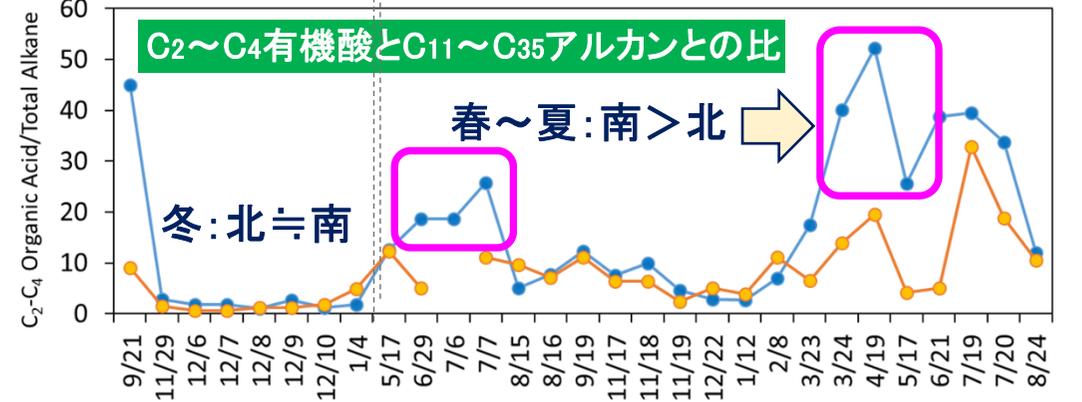
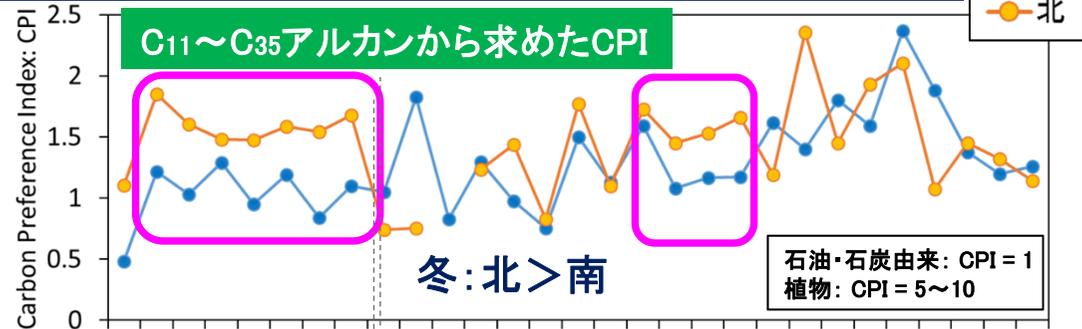
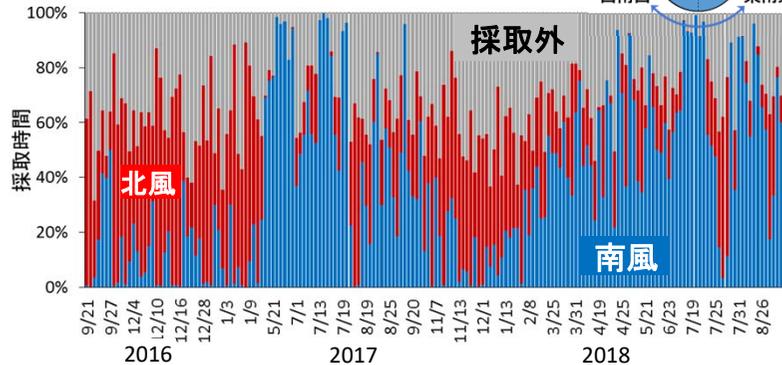
●南  
●北

## 南北風向別にPM<sub>2.5</sub>を採取

- 直鎖アルカンから求めたCPI:  
冬において、北 > 南  
⇒ 植物の影響
- 低分子有機酸(SOA)とアルカン(POA)との濃度比:  
冬:ほとんど差が見られない  
春~夏:南 > 北  
⇒ 南のほうが酸化の進んだ粒子
- 有機酸の構成:  
夏:低分子ジカルボン酸  
冬:C<sub>5</sub>~モノカルボン酸の割合が増加  
⇒ 夏は南からVery aged SOA  
⇒ 冬は北からPOA

南風で顕著

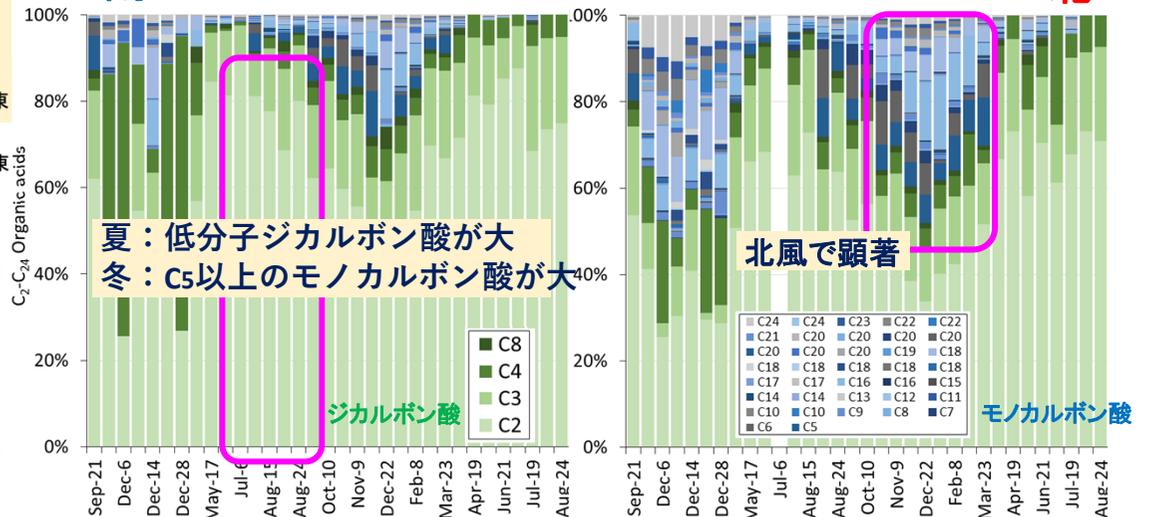
北風で顕著



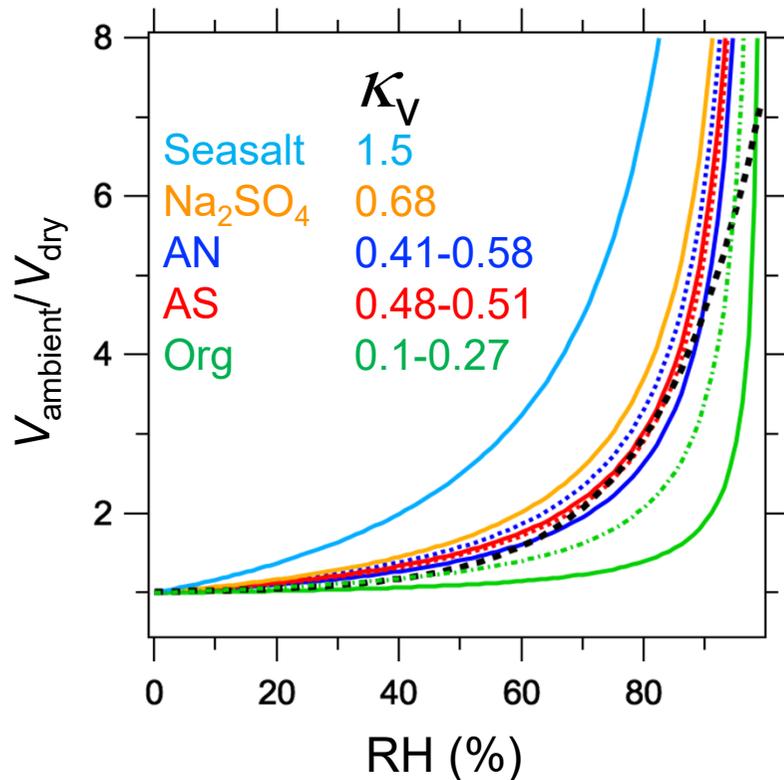
南

## C<sub>2</sub>~C<sub>24</sub> 有機酸の構成割合

北



# サブ(4) PM2.5質量濃度に与える吸湿性粒子の影響評価(東京理科大学)



破線はスマートカルク  
(紀本電子工業, 2007)

$\kappa$ -Köhler式 (Petters and Kreidenweis, 2007; Snider et al., 2016)

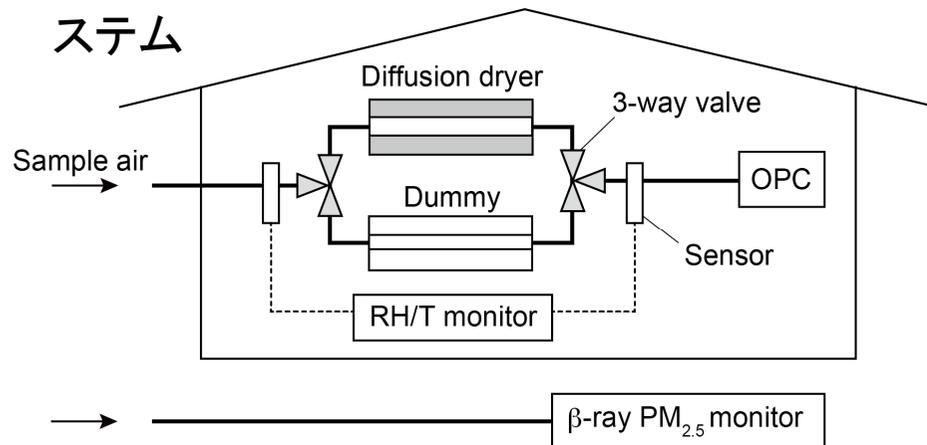
$$\frac{V_{\text{ambient}}}{V_{\text{dry}}} = 1 + \frac{RH}{100 - RH} \kappa_V$$

化学組成・濃度の積み上げに基づく  
吸湿成長パラメータ  $\kappa_{V\_chem}$

体積成長率の観測から求める  
吸湿成長パラメータ  $\kappa_V$

二つの  $\kappa$  の妥当性、季節性と地域性の有無を調べる

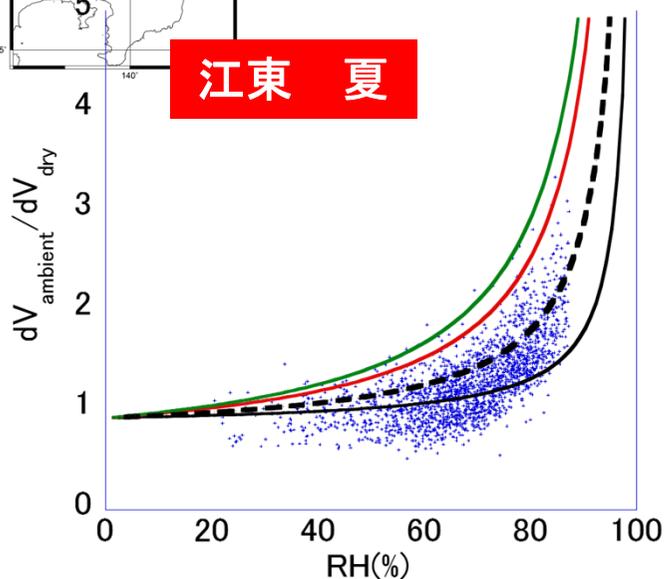
吸湿特性観測システム



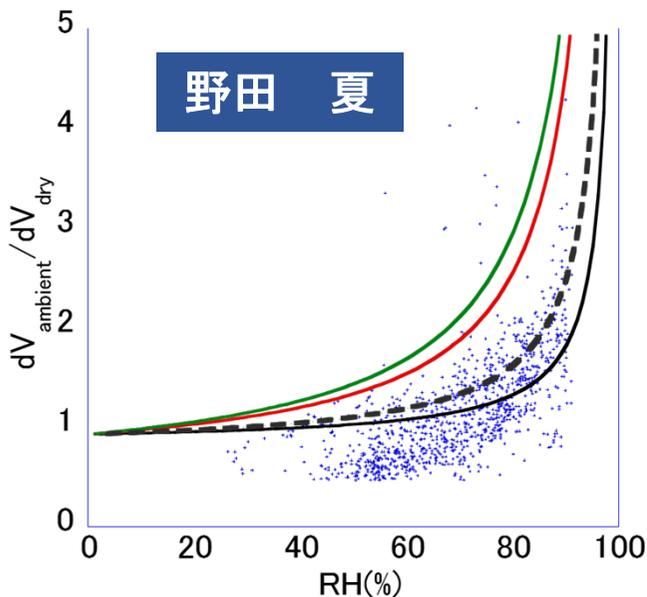
# 吸湿特性観測システムでの観測から得られる $\kappa_v$ 値 (サブ4)



江東 夏



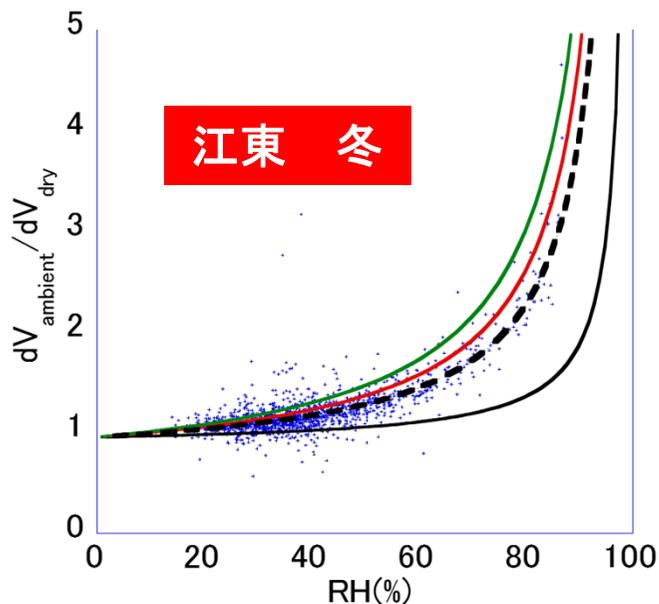
野田 夏



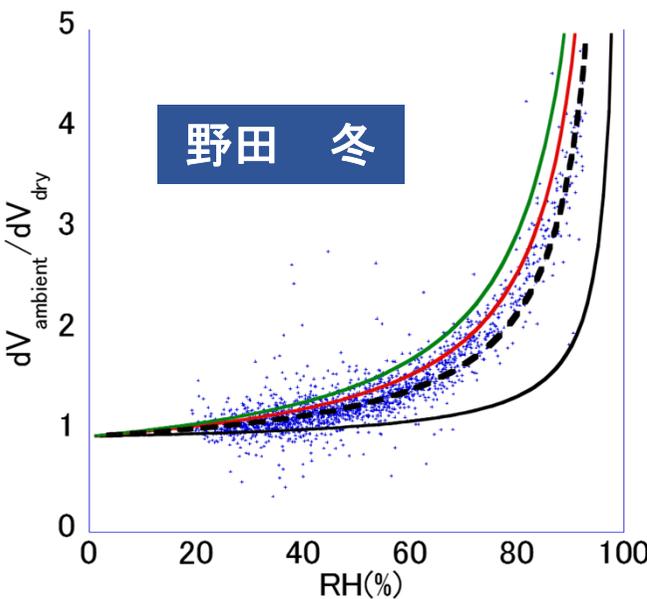
季節変化  
地域による違い  
⇒どちらも小さい

$\kappa_v$ 値の年平均は  
 **$0.40 \pm 0.11$**

江東 冬



野田 冬



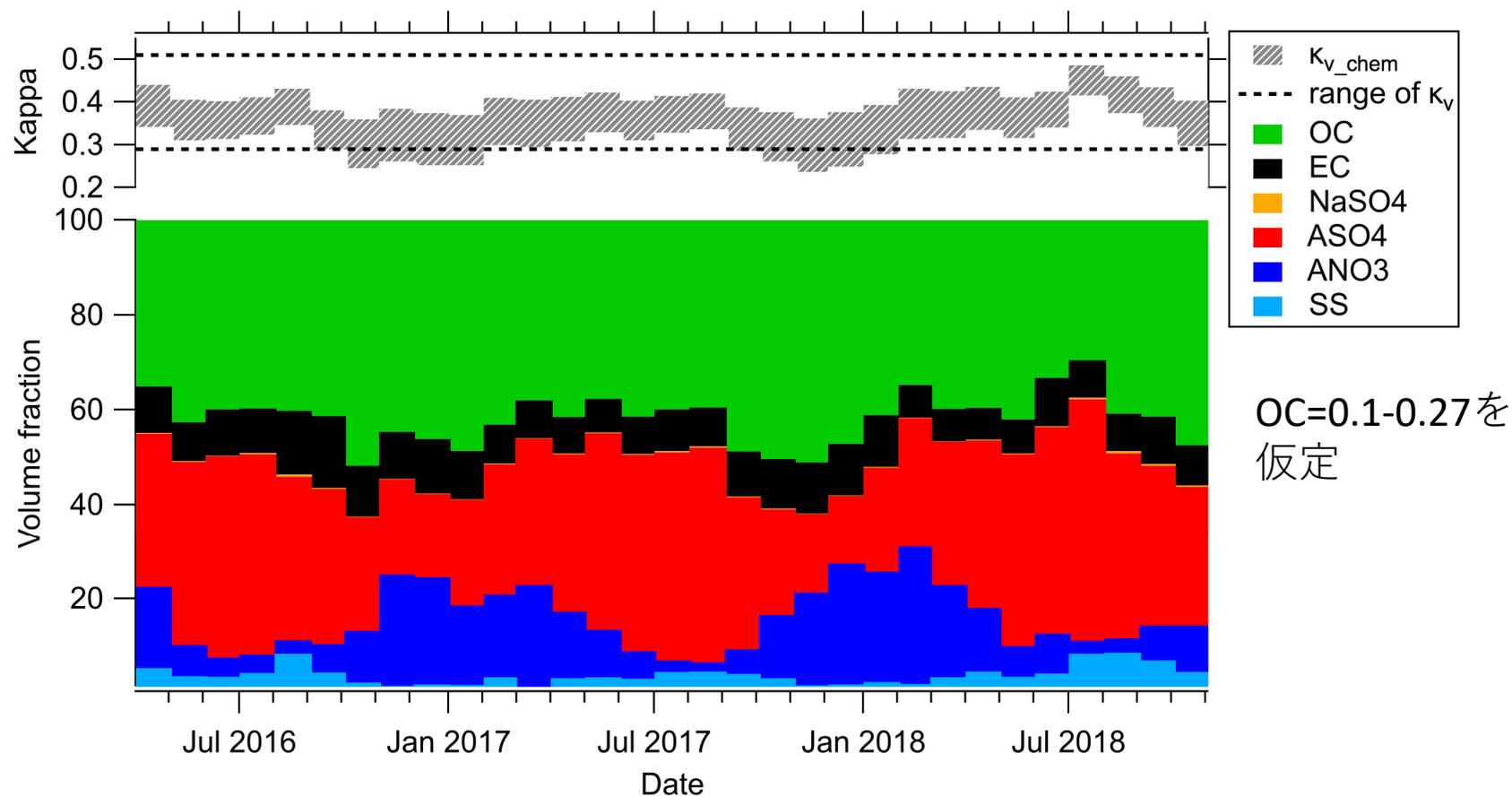
青点：観測値

緑：硫酸アンモニウム 赤：硝酸アンモニウム 灰：有機物 破線：観測平均値

# 化学成分から推定した $\kappa_v$ 値 (サブ4+3)

$$\kappa_{v\_chem} = \frac{1}{V} \sum_i \kappa_{v,i} V_i$$

江東で得られた24h毎の化学成分データから算出



- 化学成分から推定される $\kappa_{v\_chem}$ は0.3-0.5 で、季節変動は小さい
- 観測から得られた平均値 $\kappa_v(0.40 \pm 0.11)$ と整合的
- 湿度影響の補正には、 $\kappa_v(0.40 \pm 0.11)$ を全年で用いて良い

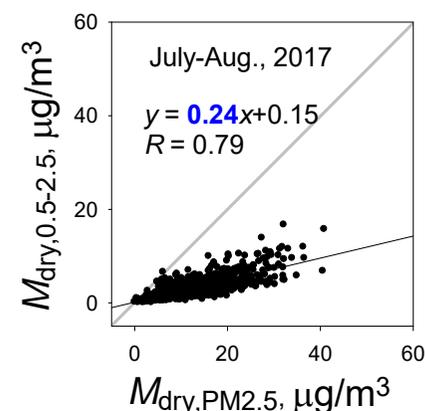
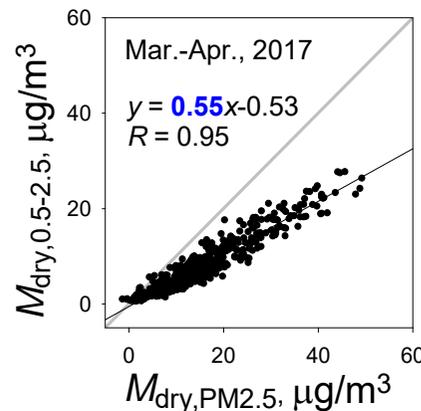
# 簡易OPCを用いた準リアルタイム補正法の検討(サブ1+2)



2ch簡易OPC

$$M_{0.5-2.5} = \rho \frac{\pi}{6} D^3 (N_{>0.5} - N_{>2.5})$$

Dylos DC1700

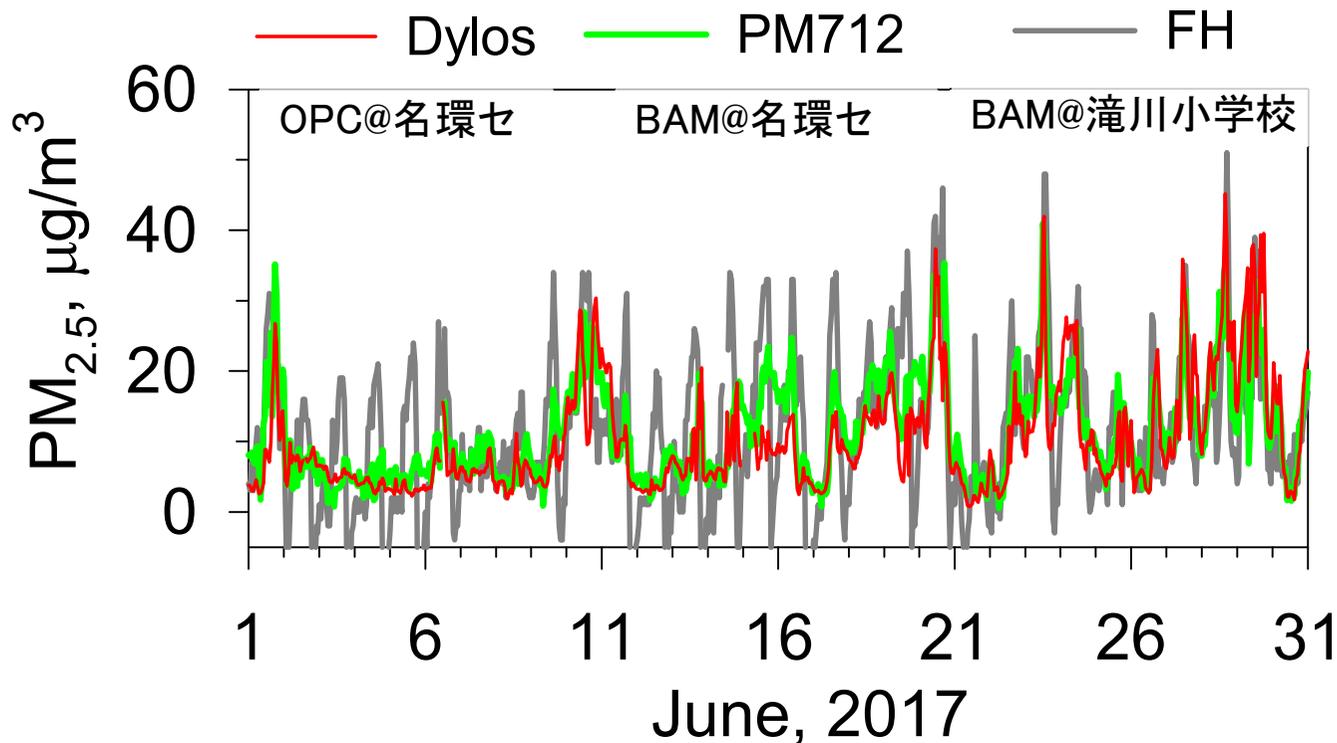


吸湿補正後の  
質量濃度



β線モニター

PM712



結果の一部を投稿中

# 成果の主な活用（まとめ）

【行政ニーズ】 PM2.5 発生源寄与の推計精度向上のための解析手法に関する研究

## ■ 都市域でのPM2.5高濃度化に寄与する発生源

- ・ 時別NH<sub>x</sub>データの解析から自動車排出ガス由来のNH<sub>3</sub>の寄与
- ・ 時別/風向別の試料採取と指標元素・有機マーカの解析から
  - ① 秋・冬の植物/プラ燃焼 (WSOC)
  - ② 夏の港湾部における船舶等による重油燃焼 (SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、EC)

【行政ニーズ】 PM2.5 の1時間値の評価方法の確立および測定精度の向上

## ■ PM2.5 濃度の1時間値の解釈を補助する手法提案

- ・ 若干の季節変化はあるものの、吸湿特性はほぼ一定
- ・ OPC観測データを湿度補正することで有用な参考値が得られる

## 研究成果を用いた、日本国民との科学・科学技術対話の活動

### ②地域の科学講座・市民講座での研究成果の講演

実施日	主催者名	講座名	開催地	参加者数	講演した「研究成果」、「参加者との対話の結果」等
H29. 6. 4	環境学習情報館「えこっくる江東」	江東区環境フェア	東京都	約120名	・東京におけるPM2.5汚染に関する成果につきパネル展示
H30. 1. 26	名古屋大学	サイエンスカフェ	名古屋市	約30名	・名古屋におけるPM2.5の概要と、高濃度化に至る原因について解説
H30. 8. 2	本課題＋日本エアロゾル学会	市民公開講座	名古屋大学	約40名	・名古屋と東京におけるPM2.5高濃度現象とアンモニア等との関係について解説

### ③大学・研究機関の一般公開での研究成果の講演

実施日	主催者名	講座名	開催地	参加者数	講演した「研究成果」、「参加者との対話の結果」等
H29. 2. 10	名古屋市環境科学調査センター	調査研究発表会・推進費合同発表会	名古屋市	約70名	・名古屋市におけるPM2.5濃度の経年変化など、3題を講演し、会場からの質問を基にパネルディスカッションを行った。
H30. 2. 16	名古屋市環境科学調査センター	調査研究発表会・推進費合同発表会	名古屋市	約70名	・名古屋市におけるPM2.5高濃度現象や有機マーカ―について2題の講演をおこなった。