

2014 から 2016 年度における神奈川県内の PM_{2.5} 高濃度事象の解析

榎原正敬、福崎有希子（横浜市環境科学研究所）、
白砂裕一郎（横浜市環境創造局）、
武田麻由子（神奈川県）、
高垣勇介、田中佑典（川崎市）

Analysis of high concentration of PM_{2.5} in Kanagawa from 2014 to 2016

Masataka Umehara, Yukiko Fukusaki (Yokohama Environmental Science Research Institute),
Yuichiro Shirasuna (Yokohama Environmental Planning Bureau),
Mayuko Takeda (Kanagawa Prefectural Government),
Yusuke Takagaki, Yusuke Tanaka (City of Kawasaki)

キーワード：PM_{2.5}、光化学反応、成分分析、発生源寄与解析、後方流跡線解析

要 旨

PM_{2.5} の環境基準のうち達成率が低い短期基準の達成率向上のため、実態把握の一環として神奈川県、川崎市及び横浜市で広域的な PM_{2.5} 成分分析調査・解析を行った。3 か年の調査により、春季では黄砂等による広域的な汚染気塊の移流や有機炭素（OC）及び硫酸塩による地域的な汚染、夏季では光化学反応によって二次粒子が生成することや、硫酸塩による汚染気塊の循環、秋季では OC 及び硝酸塩による地域的な汚染、冬季では硝酸塩による地域的な汚染が主な原因であると推察された。

1. はじめに

微小粒子状物質（PM_{2.5}）に関しては、環境基準が2009年に告示され、大気汚染常時監視に関する事務処理基準が2010年に改正された。これに基づき本市では2011年からPM_{2.5}の常時監視を開始している。微小粒子状物質に係る環境基準の設定についての答申では、従来の浮遊粒子状物質（SPM）のように質量濃度測定のみではなく、体系的に成分分析も行う必要があるとされている。これは、PM_{2.5}やその原因物質の排出状況の把握及び排出インベントリの作成、大気中の挙動や二次生成機構の解明を進め、より効果的な削減対策を検討するためには、成分分析が必要との考えに基づいている¹⁾。

一方で、本市ではより広域での調査のため、1968年に神奈川県及び川崎市と共同で、神奈川県公害防止推進協議会（以下、推進協と呼ぶ。）を組織し、2001年からPM_{2.5}について共同で調査解析を実施している。

また、本調査を開始した2014年の全国の一般局におけるPM_{2.5}の環境基準達成状況は37.8%であり、内訳としては長期基準（年平均値15 μg/m³）が60.3%、短期基準（日平均値35 μg/m³）が40.6%と短期基準の達成率が低い結果となっている²⁾。これは、年間の平均値で評価する長期基準に対して、短期基準は1日の平均値で評価することから、気象条件などにより短い間でも高濃度化してしまうと、基準を容易に超過してしまうためである。

そこで、推進協では環境基準のうち短期基準の達成率向上を目標とし、対策に必要な実態把握の一環として、2014年度から2016年度の3年間で季節ごとに成分分析調査を行った。今回、広域的に詳細な解析を同時に行った

ところ、神奈川県内での高濃度の要因について知見が得られたので報告する。

2. 方法

2-1 調査日及び調査地点

九州大学応用力学研究所のSPRINTARS³⁾等により、神奈川県内でPM_{2.5}濃度が高濃度となると予測された日に、神奈川県及び川崎市と共同採取を行った。調査地点は高濃度と予測された時点で使用可能な地点とし、本調査期間内に一度でも測定した地点を図1に示す。

2-2 調査方法

原則として午前10時から翌日午前10時までを1日とし、1日ごとにフィルタ捕集によりPM_{2.5}を採取した。サンプリング条件を表1に示す。

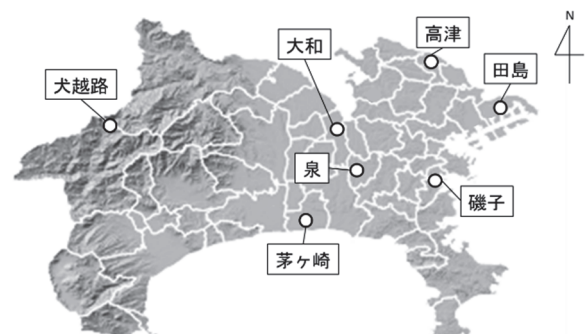


図1 調査地点

表1 調査地点ごとのサンプリング条件

		神奈川県	川崎市	横浜市
調査地点		大越路、茅ヶ崎、大和	高津、田島	泉 磯子
PTFE	サンプラー	メーカー Thermo Scientific	ムラタ計測器サービス	MCAS-SJA※2
	型式	FRM 2025※1	FRM 2025i※1	FRM 2025
石英	サンプラー	メーカー Thermo Scientific	ムラタ計測器サービス	MCAS-SJA
	型式	FRM 2025	FRM 2025i	MCAS-SJ※2
石英	フィルタ	メーカー Pall	品名 Teflo 47mmΦ 2.0μm	
	メーカー Pall	品名 2500QAT-UP 47mmΦ		

※1 吸引ガス量 16.7 L/分
※2 吸引ガス量 30 L/分

表2 分析項目及び分析装置

項目	分析装置
イオン成分	Cl ⁻ , NO ₃ ⁻ , SO ₄ ²⁻
	Na ⁺ , NH ₄ ⁺ , K ⁺ , Mg ²⁺ , Ca ²⁺
金属成分	Na, Al, Si, K, Ca, Sc, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, As, Se, Rb, Mo, Sb, Cs, Ba, La, Ce, Sm, Hf, W, Ta, Th, Pb
炭素成分	有機炭素 (OC)、元素炭素 (EC)
水溶性有機炭素 (WSOC)	

DIONEX ICS-2100
DIONEX ICS-1600
Agilent 7700 x
Sunset Carbon Analyzer
Analytikjene multi N/C 3100

2-2-1 成分分析

成分測定マニュアル⁴⁾に基づき、成分分析を行った。分析した項目、及び分析装置を表2に示す。

2-2-2 発生源寄与解析

発生源を推定するため、レセプターモデルの一種である Positive Matrix Factorization (PMF) 法と Chemical Mass Balance (CMB) 法の2種類を用いて解析を行った⁵⁾。CMB 法については東京都微小粒子状物質検討会の発生源プロファイルを用いて解析し、硫酸塩、硝酸塩、有機炭素、自動車排出ガス、重油燃焼、鉄鋼業、土壌、海塩、ブレーキ粉じん、廃棄物焼却、植物質燃焼の11因子に分離して寄与率を推定した。

2-2-3 その他

気象概況として気象庁公開データから横浜地方気象台(中区山手町)の1時間値データを、広域的な大気汚染の状況として大気汚染物質広域監視システム(そらまめ君)から神奈川県内の一般環境大気測定局常時監視データを用いた。

また、コンター図の作成は地図作成ソフト Surfer を用いた。

3. 結果と考察

3-1 春季(3~5月)

共同採取した期間は2014年4月16日から20日、2015年4月27日から30日、2016年5月25日から31日である。3か年の結果は概ね同一であるため、代表して2014年度の結果について詳しくまとめる。

3-1-1 気象概況及び常時監視

2014年春季の観測では、4月16日及び17日に神奈川県内においてPM_{2.5}高濃度事象が発生した。今回は特に、4月16日について記す。

4月16日の気象概況を図2に示す。横浜地方気象台によると、4月16日は晴れ、最高気温22.5℃、最低気温12.7℃であった。湿度は朝晩で高く、特に夜は80%程度まで上昇した。最大風速は約7.5 m/sと強かったが朝晩は比較的穏やかであった。風向は未明に北東風が入ったが、その後は南風が卓越した。

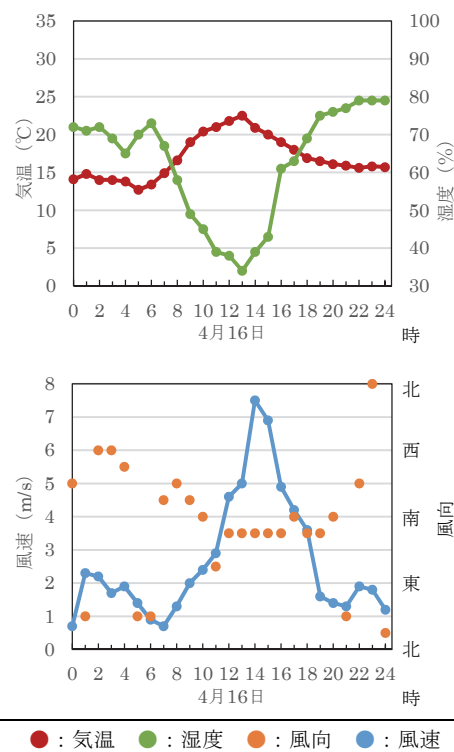


図2 横浜地方気象台における2014年4月16日の気温・湿度及び風向・風速の推移

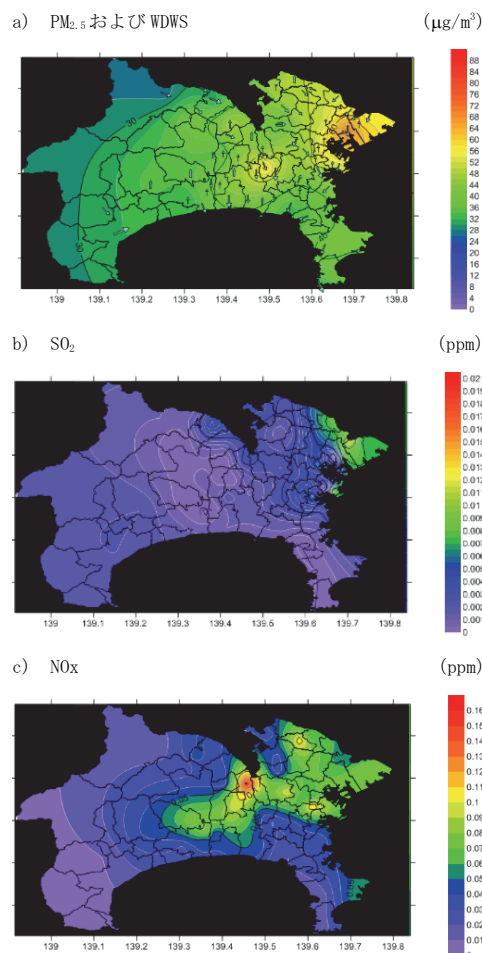


図3 2014年4月16日24時における分布

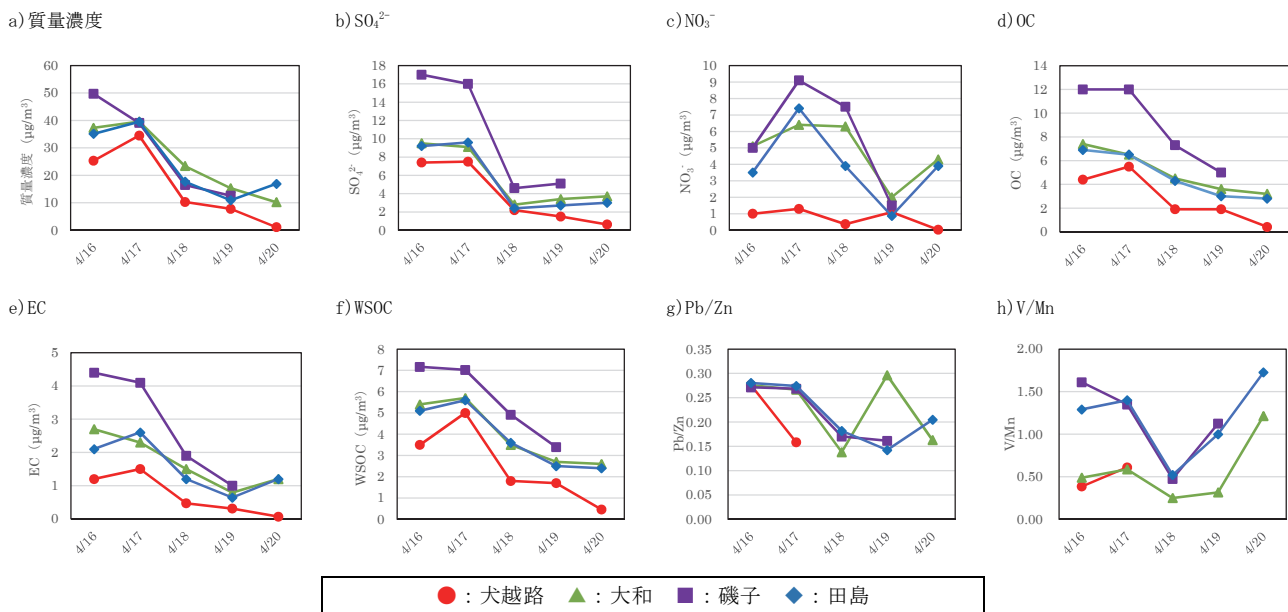


図4 2014年度春季における各成分の濃度推移

神奈川県内の常時監視データから作成した、大気汚染物質の濃度分布及び風向風速(WDWS)分布を図3に示す。横浜市及び川崎市の東京湾沿岸部を中心に前駆物質であるSO₂及びNO_x濃度が高かった。

3-1-2 成分分析

期間中の各成分濃度及び金属比の推移を図4に示す。特に磯子において、SO₄²⁻、OC、EC、WSOC濃度が高かった。また、質量濃度及びSO₄²⁻、WSOC濃度が山間地である犬越路においても都市部と同等レベルの濃度があったことから、広域的な汚染の影響があったことが示唆された。

Pb/Zn比は、大陸からの長距離輸送の指標として利用されている⁶⁾。PM_{2.5}が高濃度となった4月16日のPb/Zn比は他の日と比べて大きいことから、大陸からの越境汚染の可能性が示唆された。

また、V/Mn比は発生源によって濃度比の差が大きく、発生源の推定に有効な指標とされ、特に人為起源としては石油燃焼の指標とされている⁷⁾。PM_{2.5}が高濃度となった4月16日は、磯子及び田島でV/Mn比が1.4前後と他の日と比べて高くなっていることから、石油燃焼の影響もあったと考えられる。

PM_{2.5}が高濃度となった4月16日の犬越路、大和、磯子、田島の成分組成を図5に示す。すべての地点でSO₄²⁻が35%前後、OCが20%前後と高い結果となった。また、大和と田島についてはNO₃⁻の影響も一定程度見られる。

3-1-3 発生源寄与解析

2014年度四季成分分析期間及び高濃度採取期間のデータを用い、PMF解析を実施したところ、重油燃焼を含む硫酸塩、塩化物、硝酸塩、有機炭素+ディーゼル排気+植物質燃焼+廃棄物焼却、土壌、鉄鋼業、海塩の7因子に分離された。算出した4月16日の犬越路、大和、磯子及び田島の発生源寄与率を図6に示す。

PMF法では磯子で重油燃焼を含む硫酸塩の寄与が42.9%と大きく、海岸に近い田島、磯子で海塩の影響が9%前後と大きい。また、犬越路も含め土壌の寄与が3~8%と大きいのは、土壌指標成分のAlが犬越路で130 ng/m³、

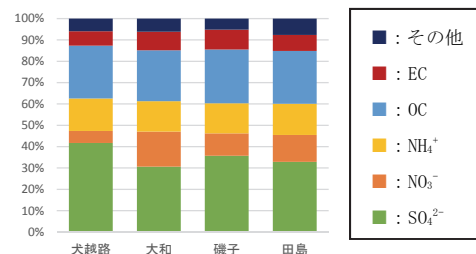


図5 2014年4月16日におけるPM_{2.5}の成分組成

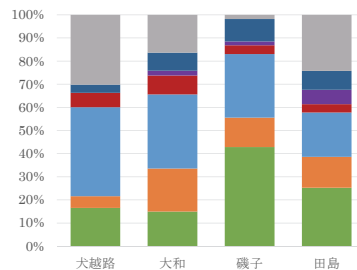


図6 PMF法による発生源寄与率

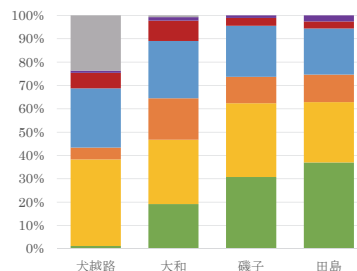


図7 CMB法による発生源寄与率

大和で 230 ng/m³、磯子で 150 ng/m³、田島で 120 ng/m³と高かったことと一致する。

CMB 法で算出した 4 月 16 日の犬越路、大和、磯子及び田島の発生源寄与率を図 7 に示す。PMF 法との比較のため、有機炭素、自動車排出ガス、ブレーキ粉じん、植物質燃焼、廃棄物焼却を合計して示す。PMF 法と比較すると、CMB 法では重油燃焼と硫酸塩の和の寄与は最大 63 %と大きく、逆に海塩の寄与は見られなかった。硝酸塩や有機炭素+自動車排出ガス+ブレーキ粉じん+植物質燃焼+廃棄物焼却は、PMF 法と大きな違いはなかった。

3-1-4 後方流跡線解析

Pb/Zn 比が他の日と比べて高く国外からの越境汚染の影響が示唆されたため、後方流跡線解析を行った。解析には、米国海洋大気庁 (NOAA) の HYSPLIT MODEL を利用した⁸⁾。起点は、この期間中神奈川県内で最も高濃度となった横浜市の潮田局とし、起点高度は 1,500 m、遡及時間は 72 時間とした。最も高濃度となったのは 16 日 24 時 (72 µg/m³)、17 日 23 時 (90 µg/m³)であったが、この時刻では計算上の不具合により、後方流跡線を得ることができなかったため、16 日及び 17 日の 15 時の後方流跡線とした。結果を図 8 に示す。16 日 15 時の後方流跡線

はモンゴルから中国の華北地域及び東北地域を経由してきており、成分分析と後方流跡線の双方から黄砂の影響が疑われる。17 日 15 時の後方流跡線は中国の山東省～韓国を経由してきており、国外からの越境汚染の影響も考えられる。

3-1-5 2014 年度春季まとめ

2014 年 4 月 16 日及び 17 日に PM_{2.5} 高濃度が発生した。成分分析の結果、磯子を中心に SO₄²⁻、WSOC 濃度が高く、質量濃度及び SO₄²⁻、WSOC 濃度が山間地である犬越路においても都市部と同等レベルであったことに加えて、成分比の推移からも、広域汚染が示唆された。さらに同日は、金属成分分析、発生源寄与解析、後方流跡線解析の結果からこのときの大気は大陸からの移流成分を含み、国外からの汚染気塊の移流の影響が示唆された。また、気象概況や常時監視データ解析において、夜間に湿度が高いこと、風速が小さいこと、東京湾岸地域を中心に SO₂ や NO_x が高濃度であったことから、地域汚染由来の PM_{2.5} が滞留したことによって高濃度化したと考えられる。これらのことから汚染気塊の移流に地域汚染が重なったものと推測される。

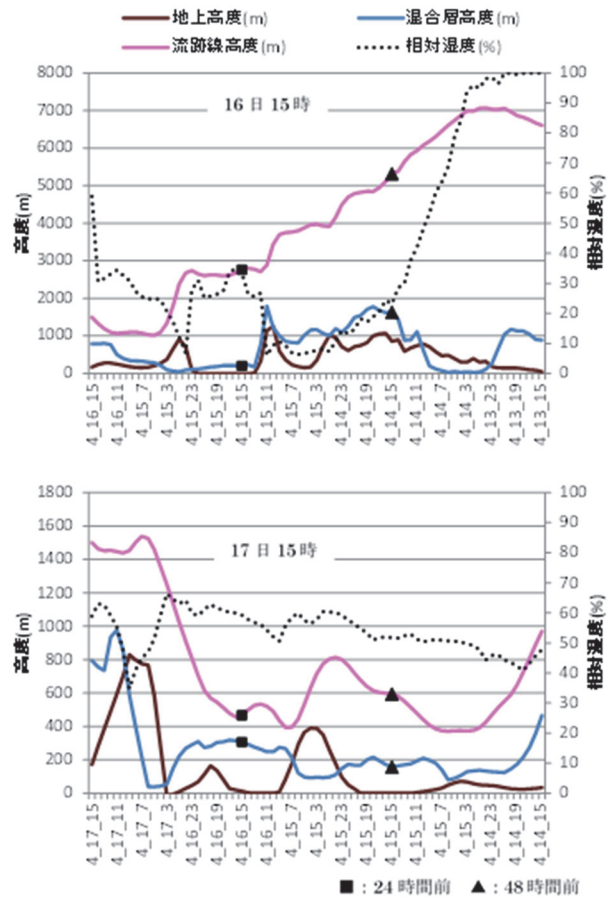
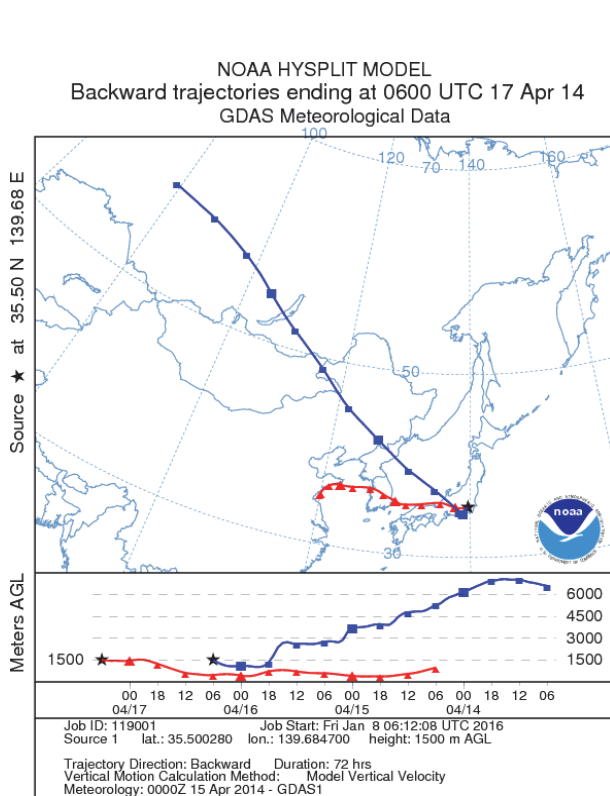


図 8 4 月 16 日及び 17 日の 15 時の後方流跡線解析

3-2 夏季

共同採取した期間は2014年7月23日から27日、2015年6月11日から16日及び7月25日から8月4日、2016年7月7日から20日である。この中で夏季に特徴的な事例であった2015年7～8月期の結果について詳しくまとめる。

3-2-1 気象概況及び常時監視

7～8月期では7月26日及び31日、8月1日に神奈川県内においてPM_{2.5}高濃度事象が発生した。7月26日及び8月1日について記す。

7月26日及び8月1日の気象概況を図9に示す。26日から27日は関東地方で猛暑日となり、28日から30日にかけても雲が出るが暑い日が続き、31日から3日にかけては再び猛暑日となった。26日は夜間は北風で風が弱まり、昼間は南風で風が強まる傾向にあった。1日は一日中南風であった。

大気汚染物質の濃度分布及び風向風速分布を図10及び図11に示す。

7月26日は日中、東京湾と相模湾からの海風の流入により、O_x濃度が最大0.196 ppm (13時、川崎市高津局)まで上昇するとともにPM_{2.5}質量濃度が同時に上昇した。夕方以降は、南風によって高濃度域が北へと移動していった。東京湾からの海風が吹いた日中は、SO₂だけでなく非メタン炭化水素(NMHC)も東京湾岸地域で高くなる(最大0.90 ppmC、7時、川崎市大師局)傾向だった。

8月1日は相模湾からの海風が弱まり、湿度が90%を超過した7月31日から8月1日にかけての夜間に、神奈川県東部を中心にPM_{2.5}質量濃度が上昇した。午前中には、東京湾と相模湾からの海風が流入し、沿岸部からPM_{2.5}質量濃度が上昇した。午後になって相模湾からの海風が強まると、高濃度域が北部へと移動していった。その後、夜間は高湿度かつ弱風になったため、PM_{2.5}質量濃度は高いまま継続した。

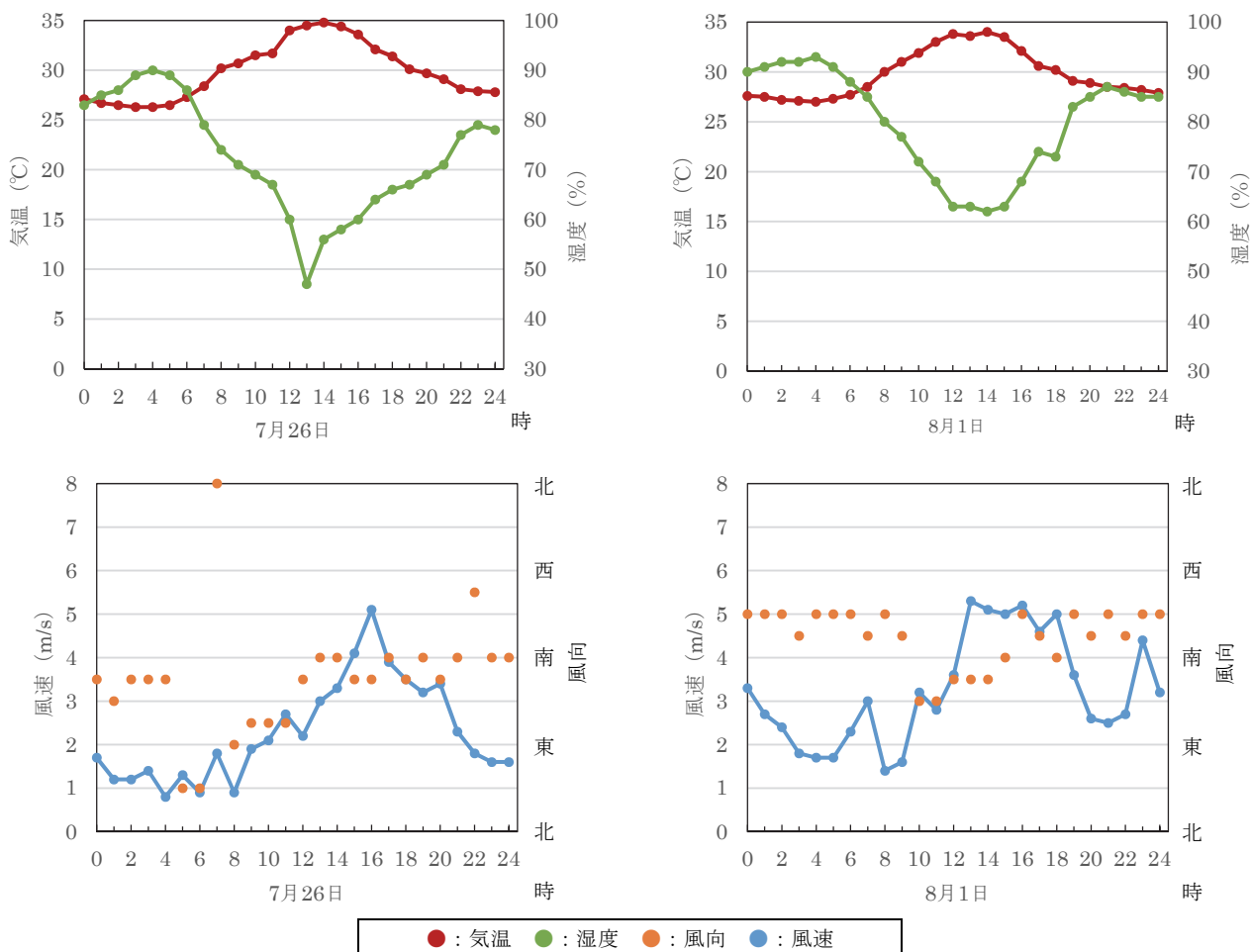


図9 横浜地方気象台における2015年7月26日及び8月1日の気温・湿度及び風向・風速の推移

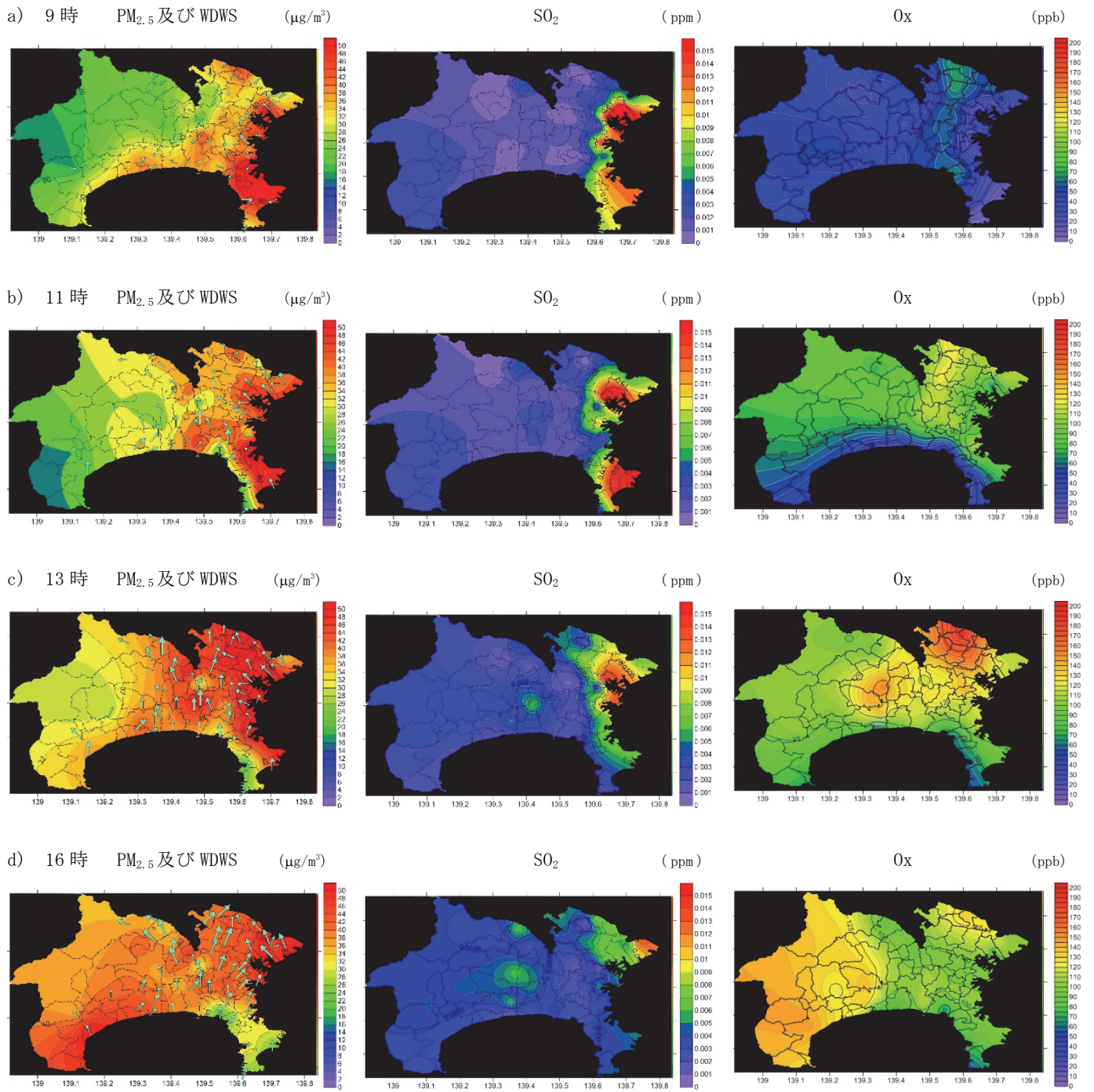


図10 2015年7月26日のPM_{2.5}及びWDWS、SO₂、O₃分布

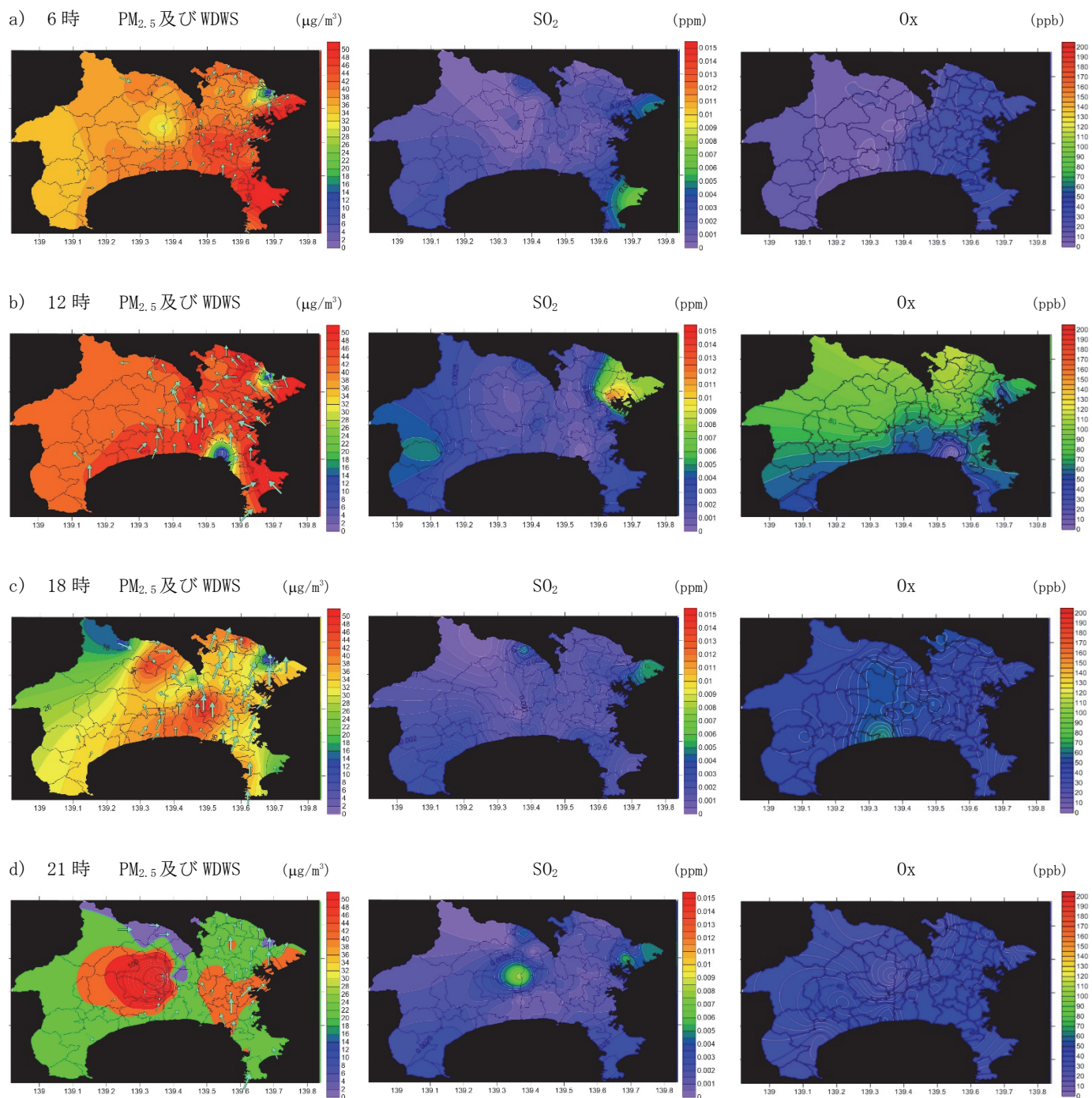
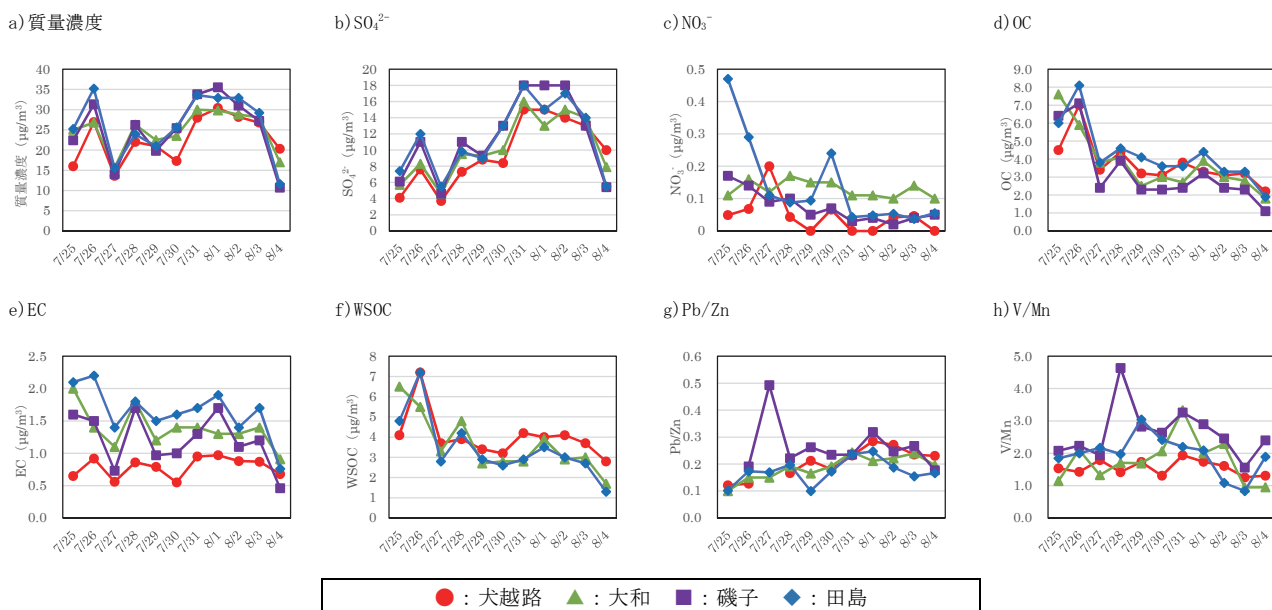


図 11 2015年8月1日のPM_{2.5}及びWDWS、SO₂、O₃分布



● : 犬越路 ▲ : 大和 ■ : 磯子 ◆ : 田島

図 12 2015 年度夏季における各成分の濃度推移

3-2-2 成分分析

期間中の各成分濃度及び金属比の推移を図 12 に、また 7 月 26 日と 8 月 1 日の犬越路、大和、磯子及び田島の成分組成を図 13 に示す。PM_{2.5} 質量濃度は、4 地点で同じような濃度推移を示した。成分分析から 7 月 26 日は SO₄²⁻ と OC が、8 月 1 日は SO₄²⁻ が主成分だった。

7 月 26 日は O_x 濃度が高く (図 10)、OC 及び WSOC が高いことから、光化学反応によって PM_{2.5} 質量濃度が上昇したと考えられる。対して、8 月 1 日は OC の上昇が見られないことから、光化学反応の影響は小さいと考えられる。また、SO₄²⁻ が 40~50 % と PM_{2.5} の主成分であったが、SO₂ 濃度は上昇していないことから、東京湾近郊やその他の地域で排出された SO₂ が酸化されて粒子化した気塊が、東京湾周辺で循環して神奈川県内に流入したと考えられる⁹⁾。

3-2-3 発生源寄与解析

2015 年度四季成分分析期間及び高濃度採取期間のデータを用い、PMF 解析を実施したところ、重油燃焼を含む硫酸塩、石炭燃焼を含む硫酸塩+廃棄物焼却、硝酸塩+塩化物、有機炭素+ディーゼル排気、土壌、鉄鋼業、海塩の 7 因子に分離された。PM_{2.5} が高濃度となった 7 月 26 日、8 月 1 日の犬越路、茅ヶ崎、磯子、田島の PMF 法及び CMB 法による発生源寄与率を図 14 及び図 15 に示す。CMB 法では、PMF 法との比較のため硫酸塩と廃棄物焼却を、有機炭素と自動車排出ガスとブレーキ粉じんと植物質燃焼をそれぞれ合計して示した。

7 月 26 日は、PMF 法では重油燃焼を含む硫酸塩が最大 38 %、石炭燃焼を含む硫酸塩+廃棄物焼却が最大 14 %、CMB 法では重油燃焼が最大 39 %、硫酸塩+廃棄物焼却が最大 36 %、有機炭素+自動車排出ガス+ブレーキ粉じん+植物質燃焼が最大 30 % と寄与率が高かった。

PM_{2.5} の主成分である SO₄²⁻ が前日と比べて上昇していることから、光化学反応だけでなく SO₂ の粒子化の影響もあったと考えられる。

8 月 1 日は、PMF 法では重油燃焼を含む硫酸塩が最大

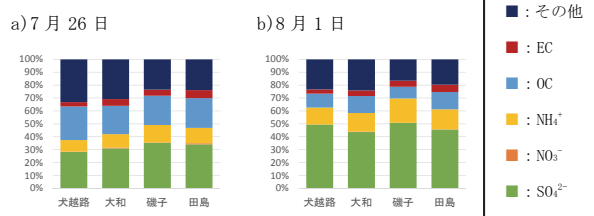


図 13 PM_{2.5} の成分組成

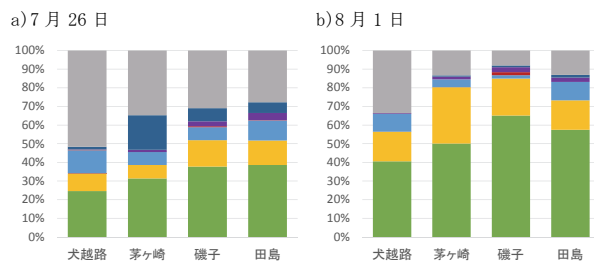


図 14 PMF 法による発生源寄与率

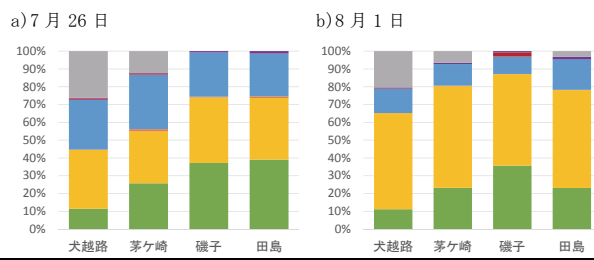


図 15 CMB 法による発生源寄与率

65 %、CMB 法では硫酸塩+廃棄物焼却が最大 57 %と寄与率が高かった。硫酸塩に汚染された気塊の循環による PM_{2.5} の高濃度化が示唆された成分分析結果と合致する。

3-2-4 2015 年度 (7~8 月期) まとめ

2015 年 7 月 26 日及び 8 月 1 日に PM_{2.5} 高濃度が発生した。いずれの地点においても似たような PM_{2.5} 質量濃度推移を示した。

7 月 26 日については、O_x 濃度と PM_{2.5} 質量濃度の上昇がほぼ同時であったことから、光化学反応による影響が大きいことが示唆された。日中、東京湾岸地域において高濃度の SO₂、NMHC の排出があったことから、光化学反応により SO₄²⁻と OC が生成することで、PM_{2.5} 質量濃度が高濃度化したと考えられる。

8 月 1 日については、常時監視データ解析や成分分析、発生源寄与と解析から、SO₂ 濃度が上昇していないにも関わらず SO₄²⁻が PM_{2.5} の高濃度化に寄与していることが示唆された。これは、海風循環により SO₂ が SO₄²⁻に変化しながら、神奈川県内に流入したためと推察される。

3-3 秋季

共同採取した期間は 2014 年 10 月 29 日から 11 月 2 日、2016 年 11 月 19 日から 22 日である。実際に PM_{2.5} が高濃度となった 2014 年度の結果について詳しくまとめる。

3-3-1 気象概況及び常時監視

2014 年秋季の観測では、10 月 31 日に神奈川県内において PM_{2.5} 高濃度事象が発生した。10 月 31 日の気象概況を図 16 に示す。

前日の 10 月 30 日は高気圧に覆われて晴天であったが、31 日は早朝と夕方以降に弱い雨が降った。また、11 月 1 日早朝にも弱い雨が降った。風は夜から午前中にかけては北風であり、日中は東風、南風、西風と風向が変化した。風速も最大 3 m/s 程度であり、全体を通して穏やかな風であった。

大気汚染物質の濃度分布及び風向風速分布を図 17 に示す。前日の 10 月 30 日は夜間になって風が弱まると、

神奈川県東部を中心に NO_x と NMHC の濃度が上昇した。風が弱いため、10 月 31 日 10~12 時に神奈川県東部で PM_{2.5} 質量濃度が上昇し始め、13 時~17 時は前日同様、東京湾からの海風により、東京湾岸地域で NO_x 及び SO₂ とともに、PM_{2.5} 質量濃度も上昇した。15 時に相模湾からの海風が吹き始めると、PM_{2.5}、NO_x、SO₂ いずれも北へ押し流され、濃度が減少していった。22 時に海風から陸風へ変化すると、北から徐々に PM_{2.5} 高濃度域が南下してきて、10 月 31 日 23 時から 11 月 1 日の明け方まで神奈川県東部で PM_{2.5} の高濃度状態が続いた。

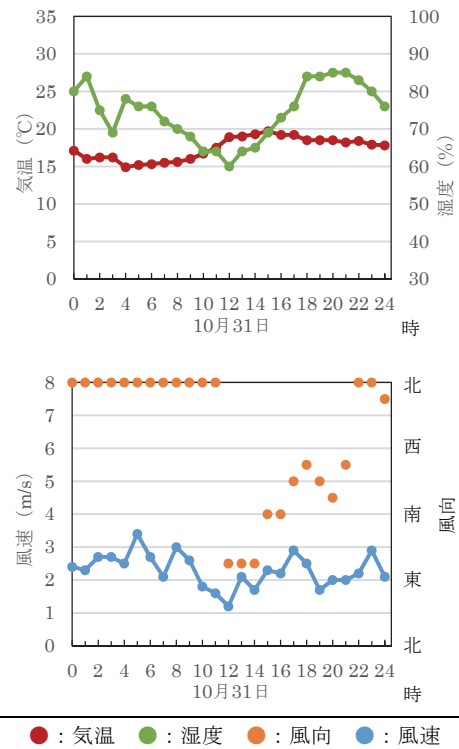


図 16 横浜地方気象台における 2014 年 10 月 31 日の気温・湿度及び風向・風速の推移

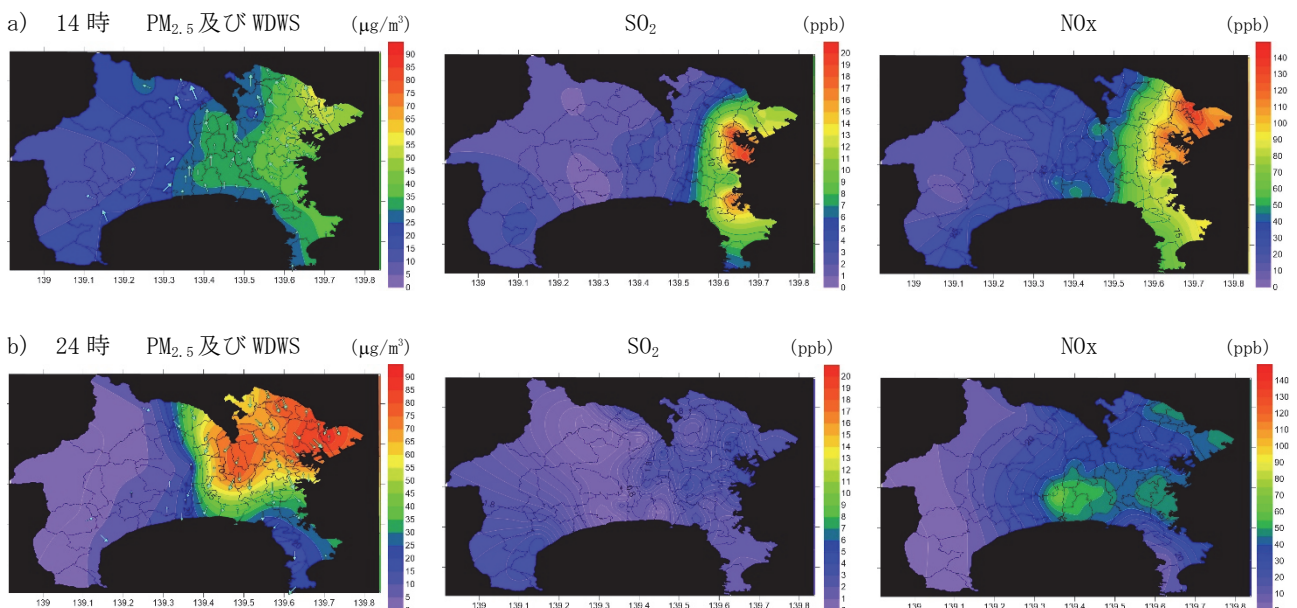


図 17 2014 年 10 月 31 日の PM_{2.5} 及び WDWS、SO₂、NO_x 分布

3-3-2 成分分析

期間中の各成分濃度及び金属比の推移を図18に示す。また、PM_{2.5}が高濃度となった10月31日の犬越路、大和、磯子及び田島の成分組成を図19に示す。

沿岸部の田島、磯子でPM_{2.5}質量濃度が約50 µg/m³と高く、OCが30%前後、NO₃⁻が29%と主成分だった。犬越路では他地点と比較して質量濃度が低かったことから、地域汚染の影響が大きかったことが示唆された。

また、夜間に湿度が高かったことから、昼間に排出されたNO_xより生成したNO₃⁻の粒子化反応が進行したと考えられる。このような地域内で排出された汚染物質を含む気塊が、海陸風によって移動している間にPM_{2.5}が高濃度化したと考えられる。

3-3-3 発生源寄与解析

2014年度四季成分分析期間及び高濃度採取期間のデータを用い、PMF解析を実施したところ、重油燃焼を含む硫酸塩、塩化物、硝酸塩、有機炭素+ディーゼル排気+植物質燃焼+廃棄物焼却、土壌、鉄鋼業、海塩の7因子に分離された。犬越路、大和、磯子、田島のPMF法及びCMB

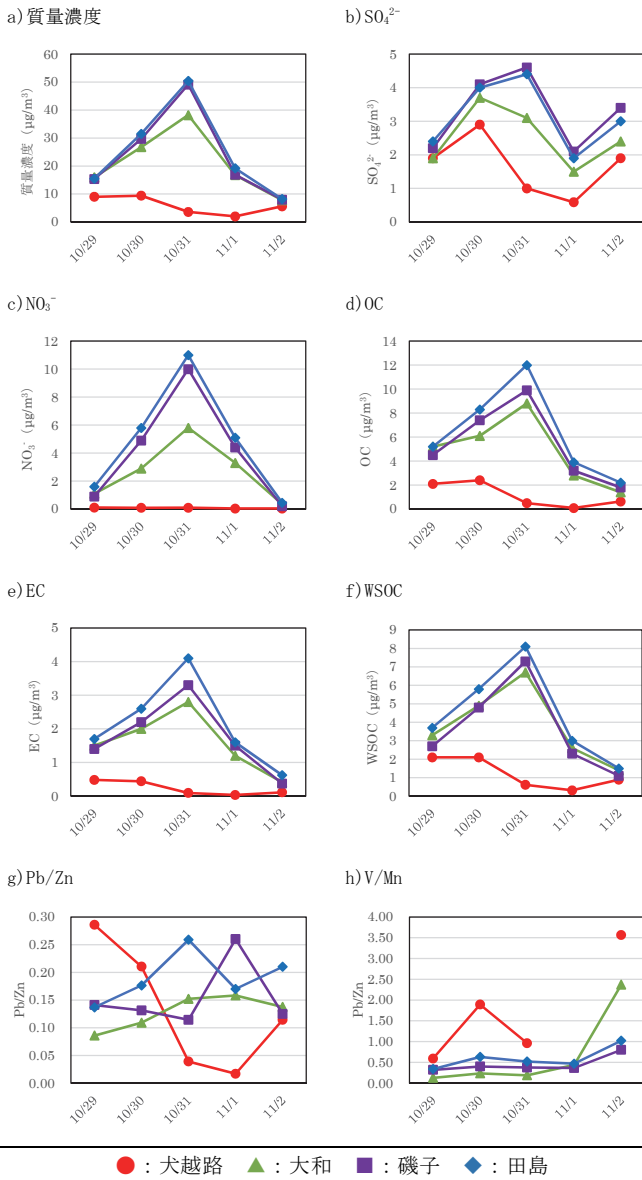


図18 2014年度秋季における各成分の濃度推移

法による発生源寄与率を図20及び図21に示す。

PMF法、CMB法のいずれにおいても、犬越路を除いて、硝酸塩が20~30%、有機炭素系成分が20~40%と寄与割合が高かった。これは、成分分析で示唆されたNO_xやOCの粒子化によるPM_{2.5}の高濃度化と合致する。

3-3-4 2014年度秋季まとめ

2014年10月31日にPM_{2.5}高濃度事象が発生した。山間地の犬越路では、他地点と比べて濃度が低かったことから、地域汚染の影響が大きかったことが示唆された。

成分分析から3地点の主成分はNO₃⁻とOCであり、気象概況や常時監視データ解析から、東京湾岸地域で排出されたSO₂、NO_x、NMHCを含む汚染気塊が、海陸風により関東平野内を移動する間、湿度が高かったためPM_{2.5}が高濃度化したと考えられる。また発生源寄与解析からも、硝

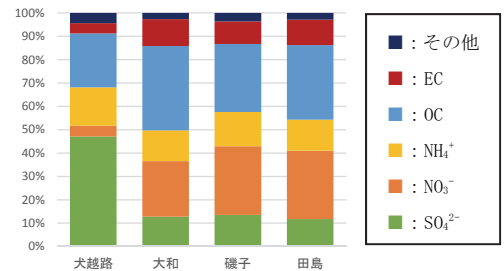


図19 2014年10月31日におけるPM_{2.5}の成分組成

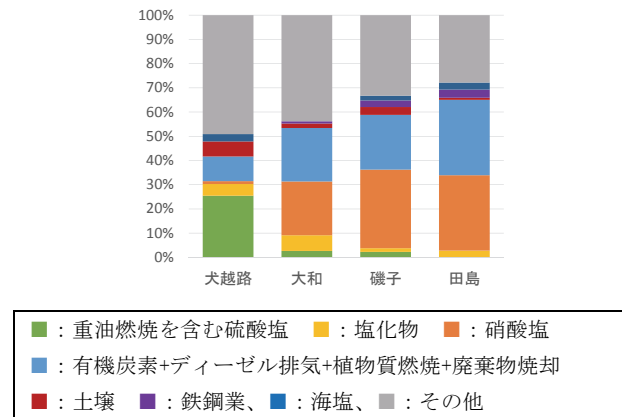


図20 PMF法による発生源寄与率

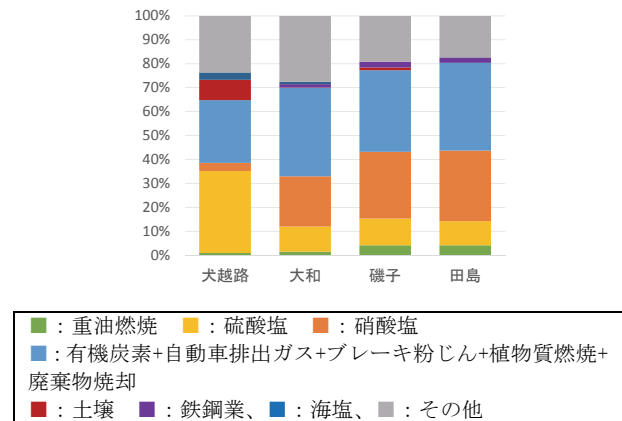


図21 CMB法による発生源寄与率

酸塩や有機炭素系成分の寄与が大きく、二次生成による高濃度化を支持していた。

3-4 冬季

共同採取した期間は2015年3月15日から19日、2016年2月26日から3月9日、2016年12月20日から22日である。実際にPM_{2.5}が高濃度となった2014年度の結果について詳しくまとめる。

3-4-1 気象概況及び常時監視

2014年度冬季の観測では、2015年3月15日から19日まで観測を行い、3月16日に神奈川県内においてPM_{2.5}高濃度事象が発生した。3月16日について記す。

3月16日の気象概況を図22に示す。3月16日は低気圧が南岸を通過したため、夕方以降に雨が降った。午前

中は北風であり、日中は東風、南風、西風と風向が変化した。また、風速も最大3m/s程度であり、一日を通して穏やかな風であった。

大気汚染物質の濃度分布及び風向風速分布を図23に示す。16日はPM_{2.5}濃度が昼頃に一度ピークを迎え、夜間に一時濃度が低下したものの、17日未明まで県北西部を除いた全域でPM_{2.5}の高い状態が継続した。この間、PM_{2.5}が高かった地域ではNO_xも高い傾向にあった。

当該期間は天気が曇り又は雨であったことから、日射が遮られて高湿度な環境となったことによりNO_xからNO₃⁻が生成したことで高濃度となったと考えられる。また、風もそれほど強くなかったことから、生成したNO₃⁻を中心とするPM_{2.5}が滞留したため、PM_{2.5}の高濃度状態が継続したと考えられる。

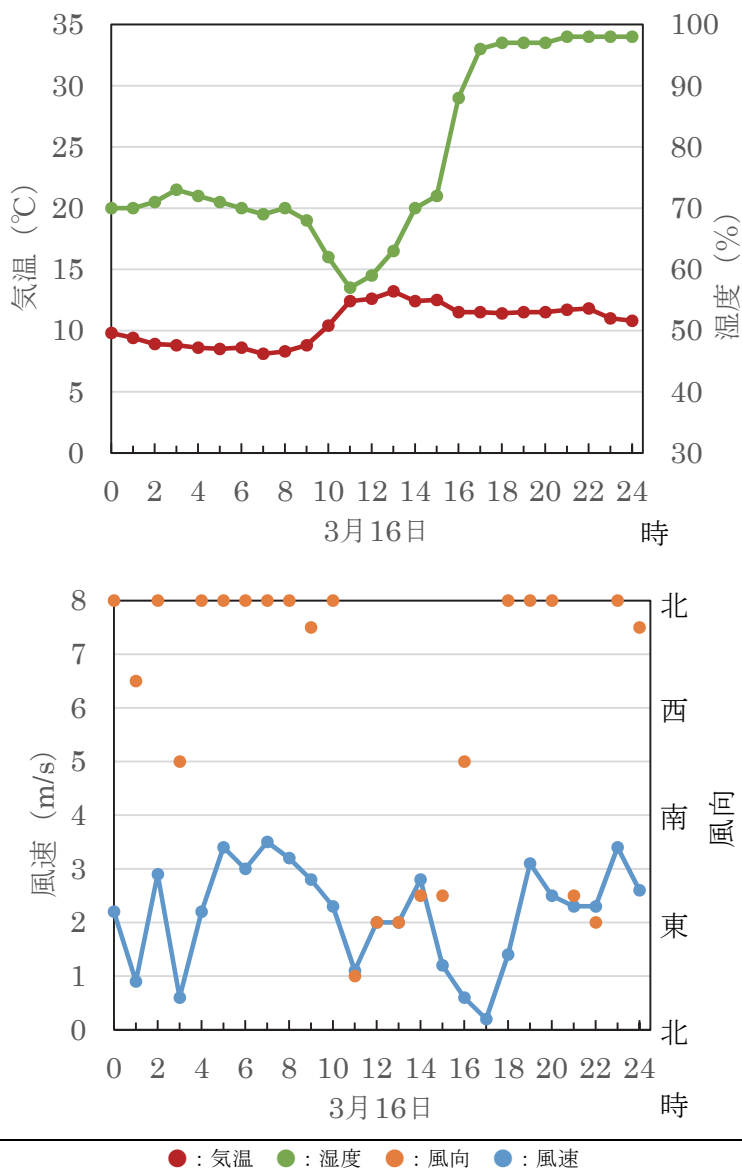


図22 横浜地方気象台における2015年3月16日の気温・湿度及び風向・風速の推移

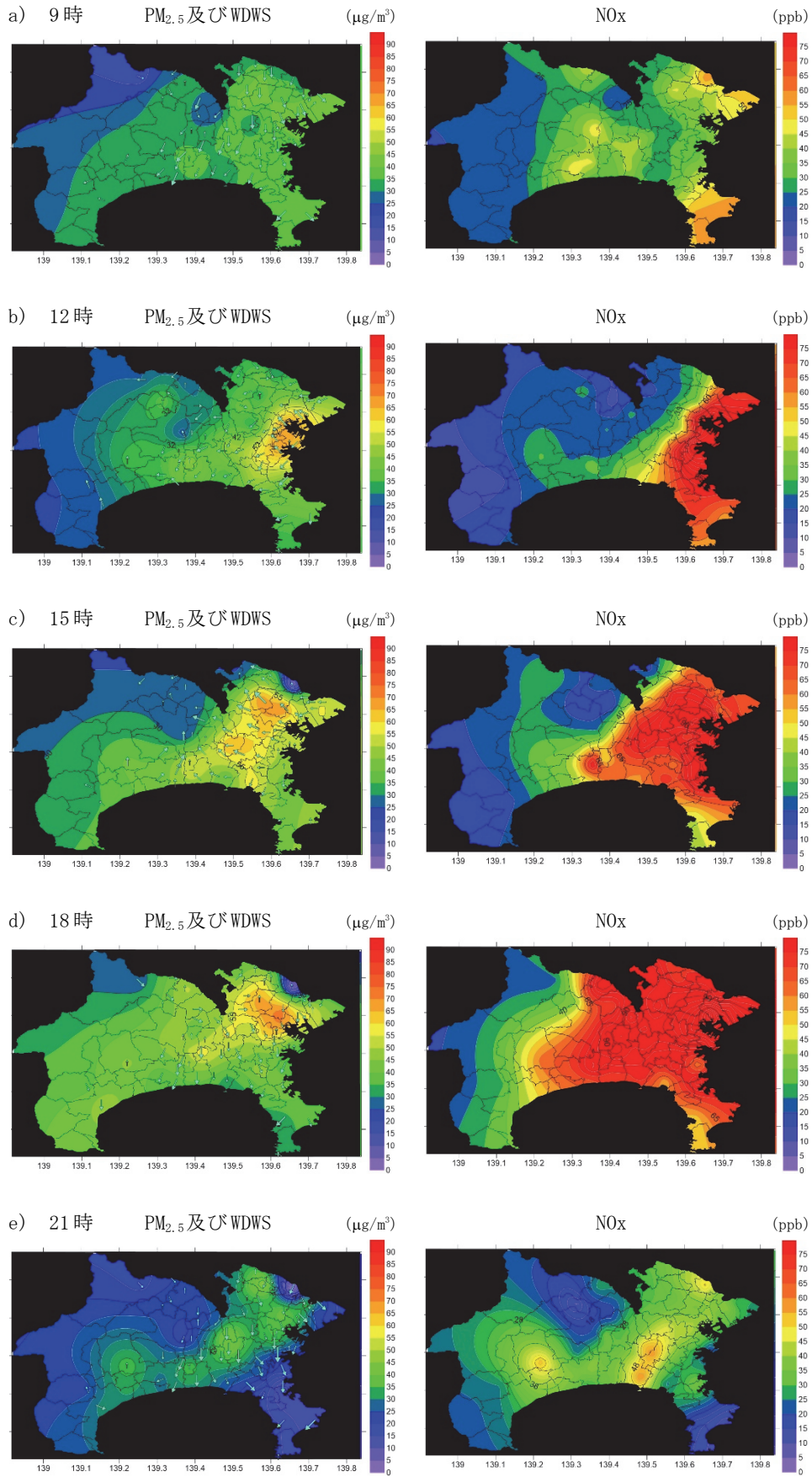


図 23 2015 年 3 月 16 日の PM_{2.5} 及び WDWS、NO_x 分布

3-4-2 成分分析

期間中の各成分濃度及び金属比の推移を図 24 に示す。また、PM_{2.5} が高濃度となった 3 月 16 日の茅ヶ崎、高津及び田島の成分組成を図 25 に示す。

茅ヶ崎、高津、田島の 3 地点では、PM_{2.5} と NO₃⁻ の濃度が同じ挙動を示しており、成分組成でも NO₃⁻ の割合が 40 % 以上と最も大きかった。更に、越境汚染の指標とされる Pb/Zn 比が PM_{2.5} 高濃度時に上昇しなかったことも合わせると、今回の高濃度事例は、主に地域汚染による NO₃⁻ の上昇により引き起こされたと考えられる。また、重油燃焼の指標である V/Mn 比についても、PM_{2.5} 高濃度時に上昇しなかったため、重油燃焼は今回の PM_{2.5} 高濃度化の主要因ではないと考えられる。

3-4-3 発生源寄与解析

2014 年度四季成分分析期間及び高濃度採取期間のデータを用い、PMF 解析を実施したところ、重油燃焼を含む硫酸塩、塩化物、硝酸塩、有機炭素+ディーゼル排気+植物質燃焼+廃棄物焼却、土壌、鉄鋼業、海塩の 7 因子に分離された。茅ヶ崎、田島の PMF 法及び CMB 法による発

生源寄与率を図 26 及び図 27 に示す。

PMF 法、CMB 法ともに PM_{2.5} 濃度が最も高かった 16 日を中心に、その濃度と似た傾向で硝酸塩の寄与が上昇していた。PMF 法では、京浜工業地帯に近接し、海岸に近い田島において、茅ヶ崎ではほとんど見られない鉄鋼業の寄与や、茅ヶ崎と比較して大きな海塩の寄与がみられ、観測点周辺の環境による影響を受けていることが示唆された。

3-4-4 後方流跡線解析

成分分析から地域汚染が示唆されたが、実際に越境汚染がなかったのか調べるため、後方流跡線解析を行った。起点は、期間中神奈川県内で最も高濃度となった横浜市の潮田局とした。最も高濃度となったのは 16 日 11 時(90

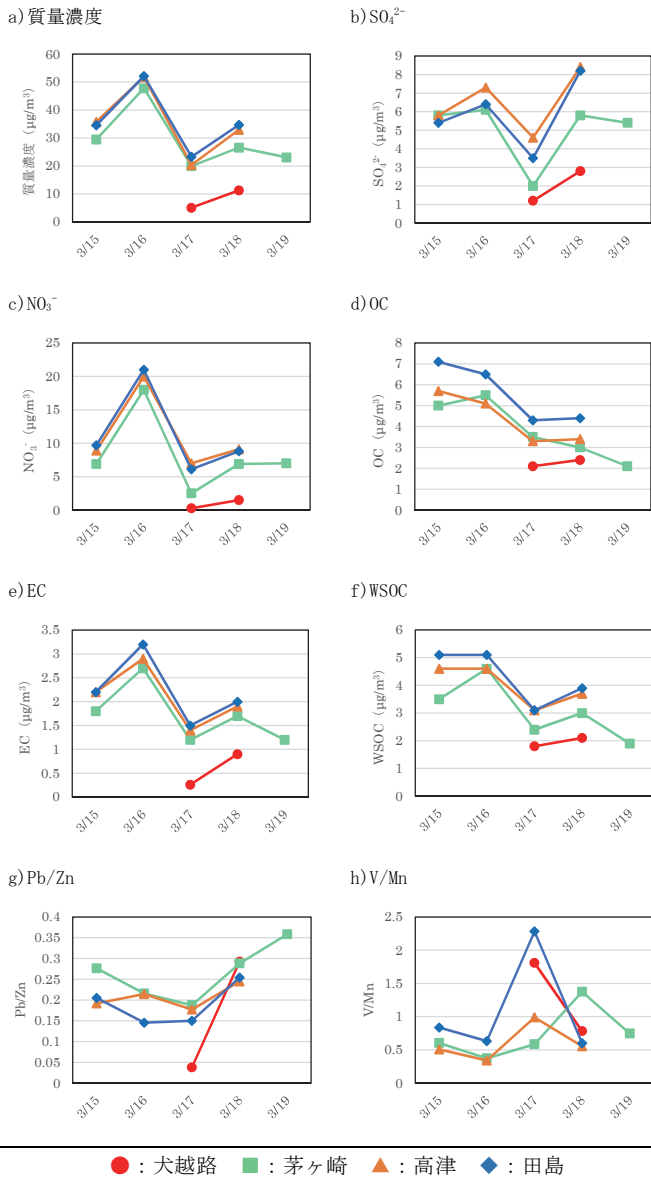


図 24 2014 年度冬季における各成分の濃度推移

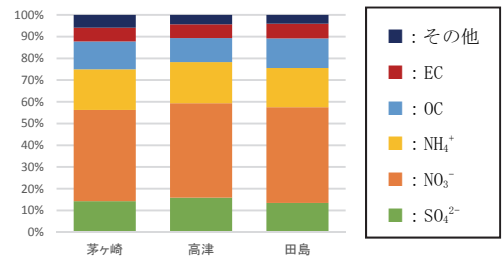


図 25 2015 年 3 月 16 日における PM_{2.5} の成分組成

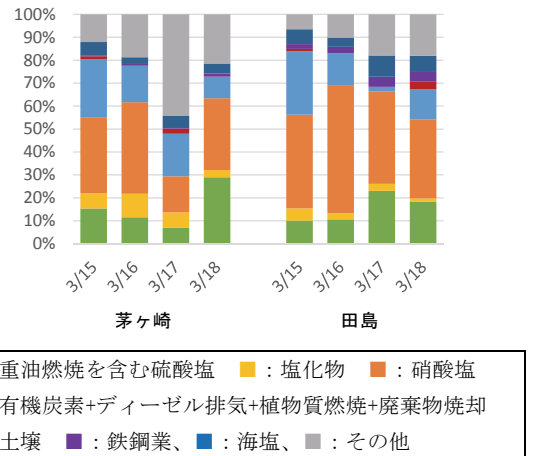


図 26 PMF 法による発生源寄与率

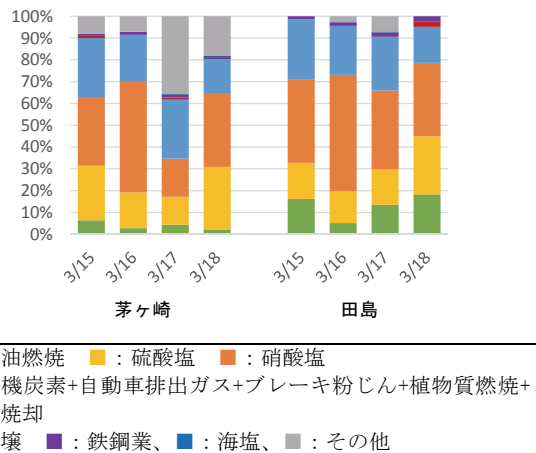


図 27 CMB 法による発生源寄与率

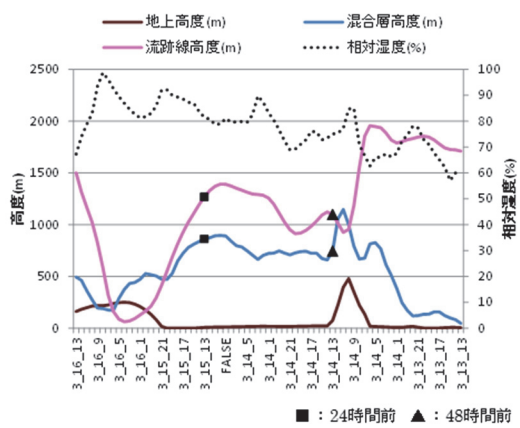
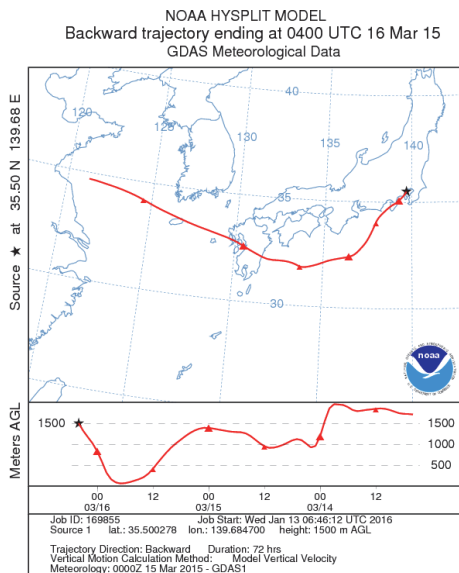


図 28 3月16日13時の後方流跡線解析

$\mu\text{g}/\text{m}^3$)であったが、この時刻では計算上何らかの不具合が生じ、後方流跡線を得ることができなかったため、16日13時の後方流跡線を図28に示す。16日13時の後方流跡線は九州を經由し、西日本の南海上を經由していたこと、一部で流跡線高度が混合層高度よりも低くなっていることから、越境汚染の影響はなかったと考えられる。

3-4-5 2014年度冬季まとめ

2015年3月16日にPM_{2.5}高濃度が発生した。気象概況や常時監視データから、天気が曇りや雨であったため日照時間が少なく高湿度であり、また東京湾岸地域を中心にNO_xが高濃度であった。そのため、NO₃⁻の生成が促進され、風もそれほど強くなかったことから、生成したPM_{2.5}が長時間滞留したことにより高濃度となったと考えられた。成分分析結果から、Pb/Zn比が上昇しなかったこと、後方流跡線解析により越境汚染の影響が見られなかったことにより、主に地域汚染に起因するものであったと推測された。また、発生源寄与解析からも、高濃度化に寄与する成分が異なり、観測点の周辺環境の影響を受けていることが示唆された。

4. おわりに

2014年度から2016年度の3か年にわたり、神奈川県

内のPM_{2.5}高濃度事象について、県、川崎市と共同で調査し、季節ごとの特徴について整理した。

春季では、主に広域的な汚染気塊の移流によってPM_{2.5}が高濃度となる傾向があり、時には地域汚染の影響が加わることが確認された。

夏季では、風が弱く湿度の高い日には、光化学反応による二次生成物により高濃度を示す傾向が見られた。また、気象条件によっては硫酸塩による汚染気塊が循環することでPM_{2.5}が高濃度になると推察された。

秋季では、地域汚染によってPM_{2.5}が高濃度となる傾向が見られた。汚染物質としては、NO₃⁻やOCが主であることが示唆された。

冬季では、主に地域汚染によってPM_{2.5}が高濃度となる傾向が見られた。また、汚染物質の多くは硝酸塩であり、二次生成反応が促進される風が弱く湿度の高い日に高濃度化する傾向にあることが分かった。

今回の調査で、高濃度化に寄与した成分やその発生場所が季節ごとに異なることが分かった。今後は、地域汚染の詳細な原因調査や原因物質の特定等を進めたい。

文献

- 1) 環境省：微小粒子状物質による大気汚染に係る環境基準について（通知）、5pp(2009)
- 2) 環境省：2014年度 大気汚染状況について（一般環境大気測定局、自動車排出ガス測定局の測定結果報告）（お知らせ）、<http://www.env.go.jp/press/102152.html>（2018年8月時点）
- 3) Takemura, T., T. Nozawa, S. Emori, T. Y. Nakajima, and T. Nakajima: *Journal of Geophysical Research*, **110**, D02202(2005)
- 4) 環境省：大気中微小粒子状物質（PM_{2.5}）成分測定マニュアル、<https://www.env.go.jp/air/osen/pm/ca/manual.html>（2018年8月時点）
- 5) 豊永悟史、出納由美子、北岡宏道、村岡俊彦：レセプターモデルを用いた熊本県におけるPM_{2.5}発生源寄与の推定-離島との比較による越境/地域汚染の影響の解析-、大気環境学会誌、**52**、150-165（2017）
- 6) 辻昭博、日置正：大気エアロゾル中のイオン成分および無機元素成分の粒径別高時間分解能観測による黄砂と人為起源物質の越境輸送の詳細解析、大気環境学会誌、**48**、82-91(2013)
- 7) 日置正、紀本岳志、長谷川就一、向井人史、大原利真、若松伸司：松山、大阪、つくばで観測した浮遊粉じん中金属元素濃度比による長距離輸送と地域汚染特性の解析、大気環境学会誌、**44**、91-101(2009)
- 8) 米国海洋大気庁（NOAA）：Air Resources Laboratory - HYSPLIT - Hybrid Single Particle Lagrangian Integrated Trajectory model、<https://ready.arl.noaa.gov/HYSPLIT.php>（2018年8月時点）
- 9) 石井宏明、神田学、森脇亮、奥園孝二：東京湾上空の大気環境計測、水工学論文集、**43**、233-238（1999）