＜報　文＞

気象的要因に着目した大都市圏における冬季のPM$_{2.5}$高濃度事例の解析*

長谷川　就一**・石井　克巳***・石原　健****・杉本　恭利*****

キーワード　①PM$_{2.5}$（微小粒子状物質）　②高時間分解能　③接地逆転層　④硝酸塩　⑤高湿度

要　　旨

2017年12月及び2018年12月に，東京・名古屋・大阪の大都市圏において発生したPM$_{2.5}$の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用いて，気象的要因に着目して解析した。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が共通しており，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と考えられた。また，PM$_{2.5}$の濃度上昇にはNO_3^-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（NOx）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。

1. はじめに

PM$_{2.5}$の高濃度事例を解析する際，大気汚染常時監視測定局における自動測定機による質量濃度のデータがベースとなるが，合わせてPM$_{2.5}$を構成する成分濃度のデータも必要となる。しかし，成分データは主として，各季節に2週間，日単位のフィルター捕集に基づく手分析（常時監視の成分分析）のデータを活用することになるが，データがある期間が限られるために解析できる事例も限定されてしまうという課題があった。これを補うため，PM$_{2.5}$に関する全国の地方環境研究所と国立環境研究所によるⅡ型共同研究では，これまで，常時監視の成分分析の期間以外に高濃度が予想されたときに，常時監視の成分分析と同様の方法でフィルター捕集及び分析を行い，解析する取り組みも行ってきたが，労力や測定地点の分布などの問題もあった。一方，環境省が2017年度から，全国の10地点（五島，福岡，隠岐，兵庫（赤穂），大阪，名古屋，新潟（巻），東京，宮城（箟岳），札幌）においてPM$_{2.5}$の成分自動測定機による測定を行い，データを公開している。このデータは，成分数は限られるものの主要な成分が通年で得られることから，上述の課題が解決できるとともに，1時間単位で測定されていることから，高濃度の事象をより詳細に考察することができるようになる。大気汚染物質の高濃度事象は気象状況と密接な関連があることから，高時間分解能の成分データを活用することでその考察を深めることができる。

そこで，2019～2021年度に実施されたPM$_{2.5}$に関するⅡ型共同研究では，2017～2019年度に起きたPM$_{2.5}$の高濃度事例の中からいくつか選び，高時間分解能の成分データを中心とし，気象との関連を重点として高濃度事例を解析することで，地域汚染や越境汚染によるPM$_{2.5}$高濃度要因の解明に取り組んだ[1)]。その中から本報では，東京・名古屋・大阪の三大都市圏において，2017年及び2018年のいずれも12月下旬に起きた高濃度事例について述べる。

2. 方法

解析対象とした事例は，2017年12月21～25日及び2018年12月20～24日の期間である。解析に利用したデータは，環境省のPM$_{2.5}$成分自動測定機（ACSA-14）の測定値[2)]，大気汚染常時監視測定局における測定データ[3)]，気象庁の気象観測データ[4)]である。PM$_{2.5}$成分自動測定機ACSA-14（紀本電子工業製）は，大気汚染常時監視測定局における自動測定機と同じ方法によるPM$_{2.5}$質量濃度とともに，主要成分である硫酸イオン（SO_4^{2-}），硝酸イオン（NO_3^-），水溶性有機炭素（WSOC），黒色炭素（BC）の濃度が1時間単

*Analysis of PM$_{2.5}$ pollution episodes in metropolitan areas in winter focusing on meteorological factors

**Shuichi HASEGAWA（埼玉県環境科学国際センター）Center for Environmental Science in Saitama
***Katsumi ISHII（千葉県環境研究センター）Chiba Prefectural Environmental Research Center
****Ken ISHIHARA（千葉県環境研究センター，現所属 千葉県長生地域振興事務所）Chiba Prefectural Environmental Research Center
*****Kiyotoshi SUGIMOTO（奈良県景観・環境総合センター）Nara Prefecture Landscape and Environment Center

位で測定されている（SO_4^{2-}，NO_3^-及びWSOCについては，毎日23時にメンテナンスにより欠測）。10地点のうち，東京（国設東京大気測定所），名古屋（国設名古屋大気測定所），大阪（国設大阪大気測定所）のデータを利用した。ただし，名古屋については，2018年の解析期間は欠測で利用できなかった。

3. 結果と考察

3.1 濃度の時間的推移

図1に2017年12月の事例，図2に2018年12月の事例について$PM_{2.5}$及び成分濃度の推移をそれぞれ示す。2017年12月の事例においては，大阪では21日の午前中からやや濃度が高かったが，午後はいったん濃度が低下し，夕方から上昇傾向となった。22日の昼頃から23日の夜遅くにかけて，35μg/m³を超過する2～3時間のピークが複数回見られた。名古屋では22日の午前中から濃度の上昇傾向が始まり，22日夜から23日の夜遅くにかけて35μg/m³を超過する1時間の単発的なピークが複数回あった。その後24日21～22時に濃度が急上昇し60μg/m³を超過するピークが見られた。両地点とも25日早朝に濃度が低下した。東京では22日の夕方から顕著な濃度上昇があり，22日22時，24日21時に50μg/m³を超過するピークが見られ，25日4時には70μg/m³のピークが見られたが，25日の午前中に急激に濃度が低下した。こうした高濃度時には，大阪，名古屋，東京の周辺都市部も同様に高濃度となり，特に東京の周辺では範囲が広く，関東南部の全域が高濃度となった。

2018年12月の事例においては，大阪では20日午前中から$PM_{2.5}$濃度が上昇し20日23時及び21日1時に40μg/m³を超過するピークが見られた。その後濃度は低下し22日は10μg/m³程度になる時間もあったが，夜遅くに上昇傾向となり24時に30μg/m³を超過するピークが見られた。その後20μg/m³前後を保ったが，23日夜遅く急激に濃度が低下した。東京では20日午後に濃度が上昇して19時に30μg/m³を超過してからいったん濃度が低下した。21日午後から再び濃度が上昇し，22日午後から夜までほぼ40μg/m³を超え，18時及び19時に50μg/m³を超過するピークが見られた。その後30μg/m³以下に低下したが，23日夜に再び濃度が上昇し，22時に40μg/m³を超過するピークを示した後に急激に濃度が低下した。こうした高濃度時には，大阪，名古屋，東京の周辺都市部も同様な高濃度傾向はあったが，大阪，名古屋周辺は2017年12月の事例に比べると高濃度となった地点は少なかった。東京の周辺では，2017年12月の事例と同様に関東南部の全域が高濃度となっており，特に中央部から西側が顕著に高濃度となっていた。

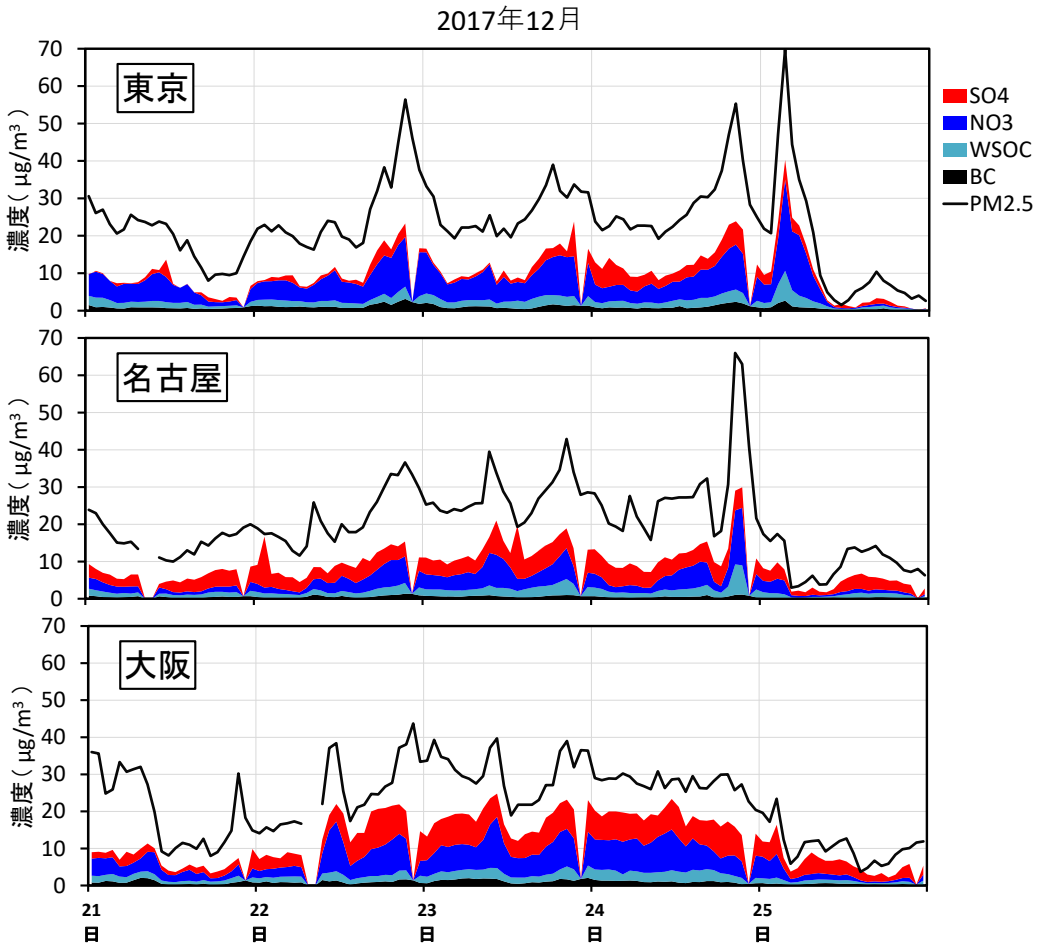

図1　2017年12月21～25日の$PM_{2.5}$及び成分濃度の推移

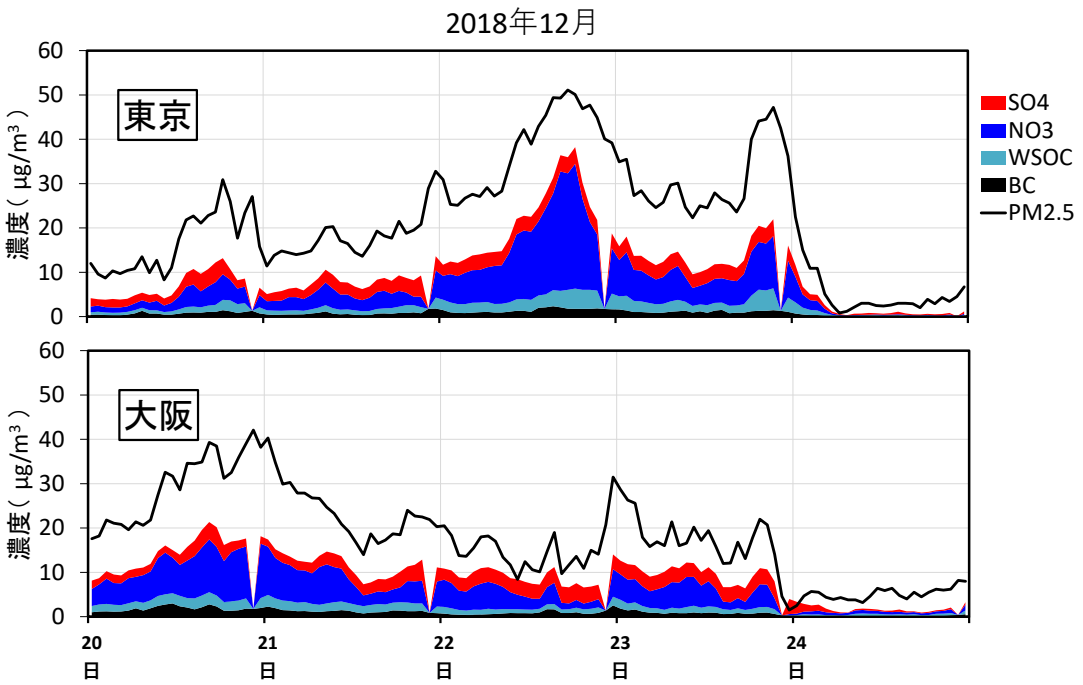

図2　2018年12月20～24日の$PM_{2.5}$及び成分濃度の推移

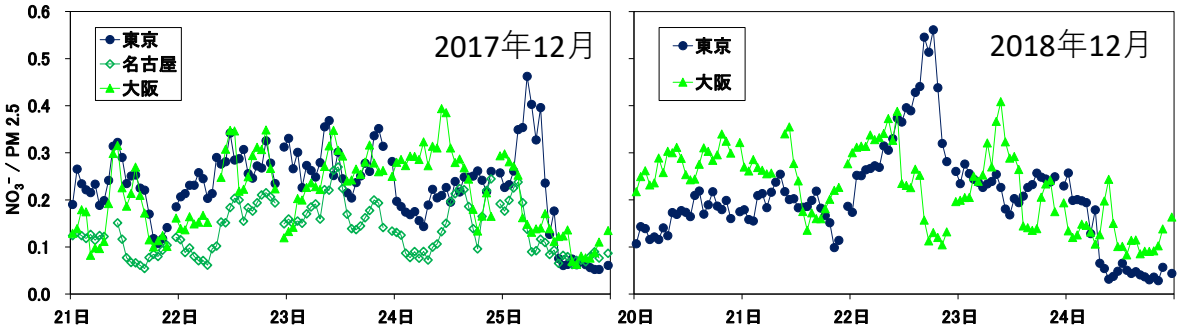

図3　2017年12月21～25日及び2018年12月20～24日の$NO_3^-/PM_{2.5}$比の推移

図3に$PM_{2.5}$濃度に対するNO_3^-濃度の比（$NO_3^-/PM_{2.5}$比）を示す。全体を通して$PM_{2.5}$高濃度時にNO_3^-の比率が高くなる傾向があり，特に2018年12月の事例の東京では最大で56%がNO_3^-だった。それ以外の成分については，$PM_{2.5}$濃度に対する比率の大幅な増加等の特徴は見られなかった。

3.2 高濃度の気象的要因

図4及び図5に，2017年12月22日9時及び2018年12月21日9時の天気図[5]をそれぞれ示す。2017年12月の事例における近畿，東海，関東南部及び2018年12月の事例における近畿では，移動性高気圧に覆われて，全般的に風が弱い状態であった。

まず，東京における気象的要因を考察するため，図6及び図7に，2017年12月21～25日及び2018年12月20～24日の21時に観測されたつくば（館野）における気温の鉛直分布をそれぞれ示す。東京で夜間に濃度上昇がみられた2017年12月22～24日及び2018年12月20～23日に，いずれも高度100～200m程度以内で強い接地逆転層が発生していた。東京とつくばは50km程度離れているが，安定した気象条件下での関東平野では類似した気象状況になっていると考えられ，東京では大気が滞留し高濃度につながったと考えられた。さらに，図8に2017年12月及び2018年12月における高濃度時の風の収束域の例を示した。図は各常時監視測定局の$PM_{2.5}$濃度と風向・風速を合わせて示している。図8(a)は東京における高濃度のピークの１つである2017年12月24日21時の分布であるが，破線で囲んだエリアでは，風速は弱いながらも北または東寄りの風と南または西寄りの風が向かい合っている様子がうかがえ，風が収束し粒子が拡散しにくい状況になっていたと考えられた。

なお，接地逆転層の形成は，2017年12月22～23日では放射冷却によるものと考えられたが，2017年12月24～25日及び2018年12月22～23日では低気圧の通過に伴い，雲に覆われたため放射冷却の影響は大きくはなく，図9に示したように両者ともに高濃度発生前に地表では北系の風が吹いていた状況のため，下層の冷気塊と上層に入った

暖気との気温逆転が起きたことが考えられた。

続いて，大阪における気象的要因の考察は，大阪平野内での気温の鉛直分布の観測地点がないため，標高626mの生駒山の気温のデータを利用した。図10に，生駒山の気温を3.9℃補正（温度勾配0.65℃/100m×600m）し，大阪(標高23m)の気温と時系列で比較したものを示す。2017年12月と2018年12月のいずれの事例も夜遅くから明け方を中心に大阪の方が低温となっている時間帯があることから，接地逆転層の形成が推察される。また，図8(b)に2017年12月24日1時の近畿の濃度・風の分布を示したが，大阪平野でも高濃度時に風の収束が示唆される場合があった。このため，やはり大阪でも大気が滞留しやすい状態となり，$PM_{2.5}$濃度の上昇に繋がった可能性が考えられた。なお，図8(c)に2017年12月24日1時の東海の濃度・風の分布を示したが，名古屋のある濃尾平野においても高濃度時と風の収束の関連が示唆された。

一方，特に東京で顕著にみられるように，NO_3^-が高濃度に寄与している点について，図11に東京における対象期間の気象データと窒素酸化物（NOx）濃度（千代田区神田司局のデータ，ただし日射量・降水量はアメダス東京のデータ）の経時変化を，図1及び図2に示したNO_3^-濃度と合わせて示す。気温が低い冬季は硝酸が粒子化しやすい性質があるが，日内変動でも気温が低下する夜間にNO_3^-が高くなる傾向がみられた。また，特に2017年12月の事例で明確にみられるように，前駆物質であるNOx濃度の上昇とともにNO_3^-が高くなる傾向がみられた。これらは，夜間に相対湿度が上昇し，高湿度下での不均一反応によるNO_3^-の生成が促進されることが大きな要因になっていると考えられる。降水により相対湿度が上昇する場合も同様で，2017年12月25日未明のNO_3^-の上昇はその顕著な例であり，2018年12月22日及び23日も，日中であるがわずかに降水があり，その後のNO_3^-の上昇に影響したと考えられる。

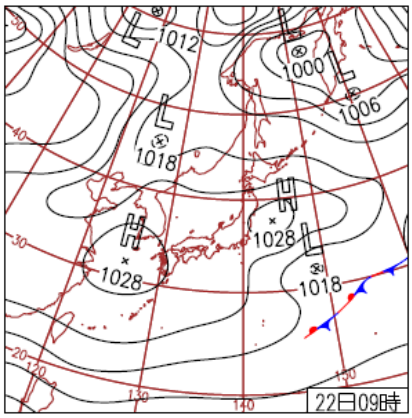

図4　2017年12月22日9時の天気図

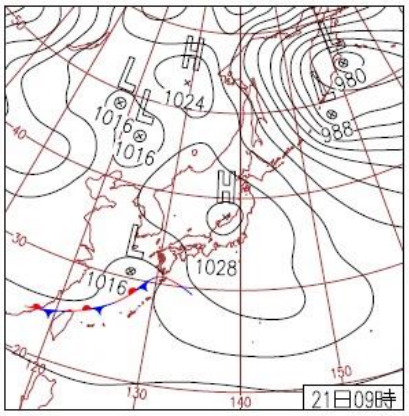

図5　2018年12月21日9時の天気図

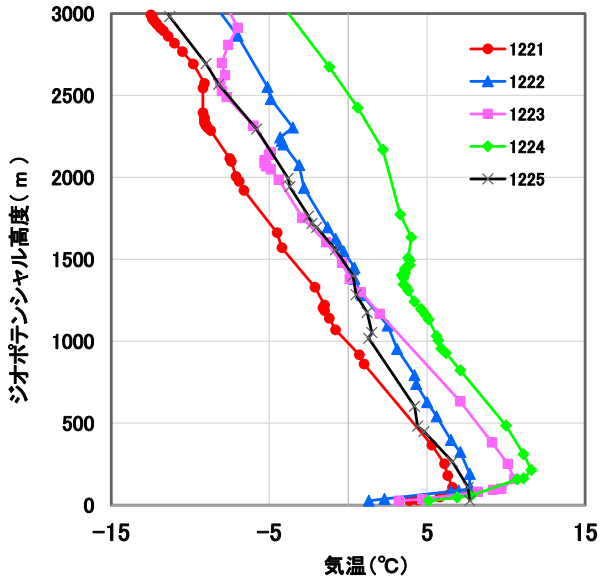

図6　2017年12月21～25日21時のつくば（館野）における気温の鉛直分布

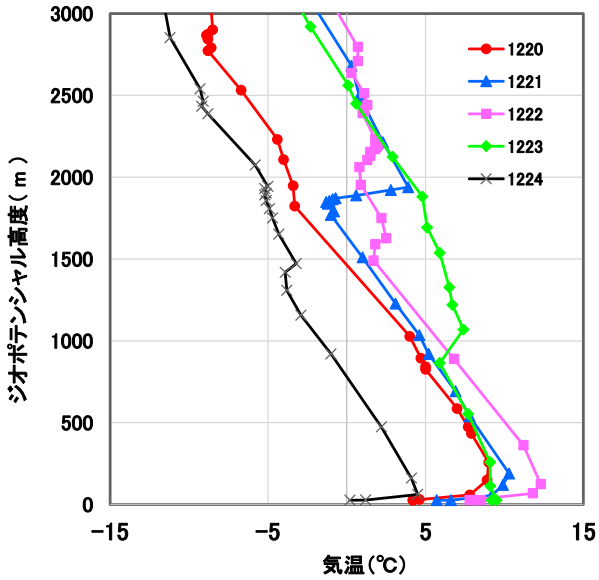

図7　2018年12月20～24日21時のつくば（館野）における気温の鉛直分布

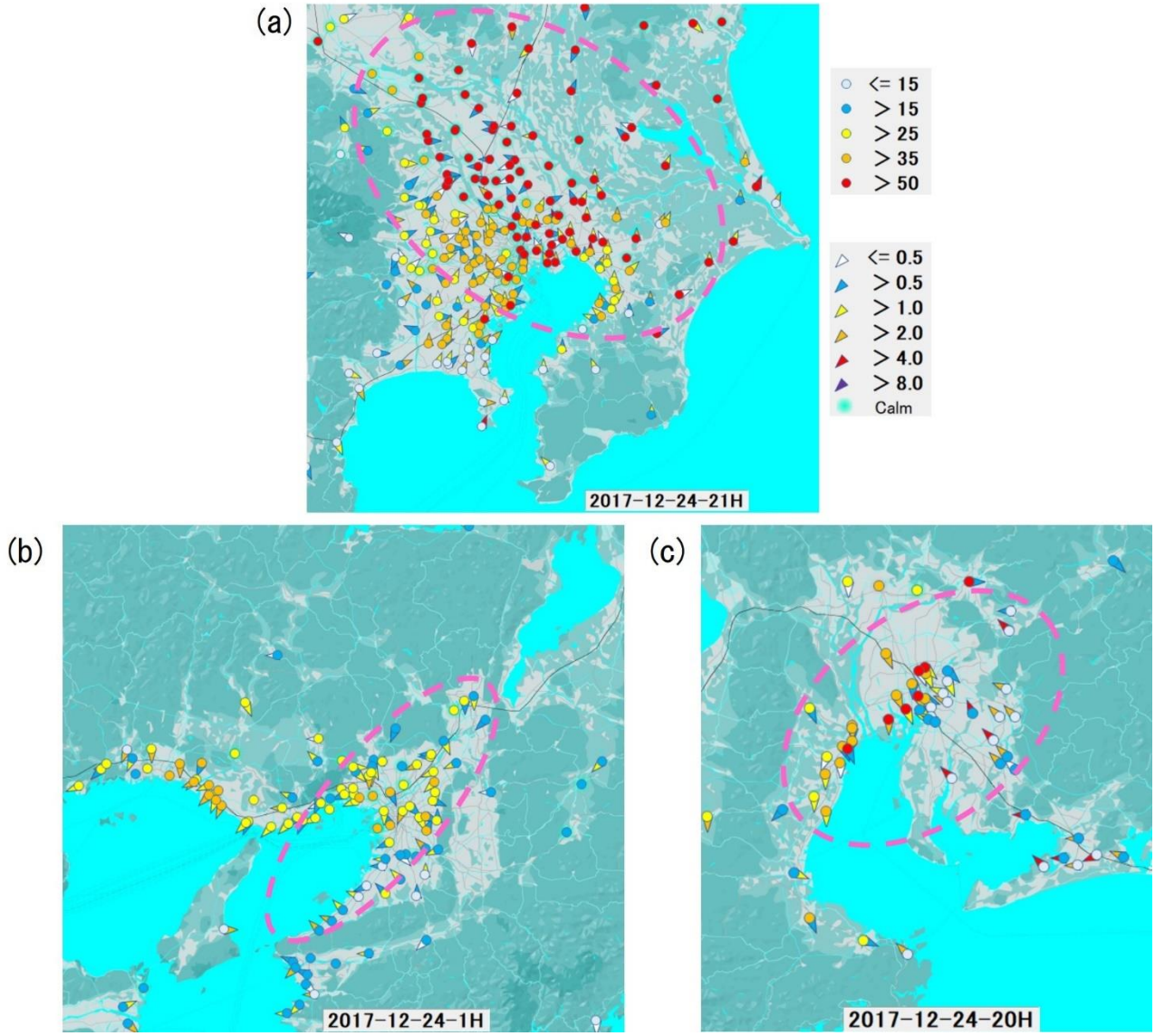

図8　2017年12月及び2018年12月の事例における高濃度時の風の収束域の例

※凡例 ○印：$PM_{2.5}$濃度[μg/m³]　▽印:風向・風速[m/s]　風向は吹き流しスタイル（凡例は北東の風）

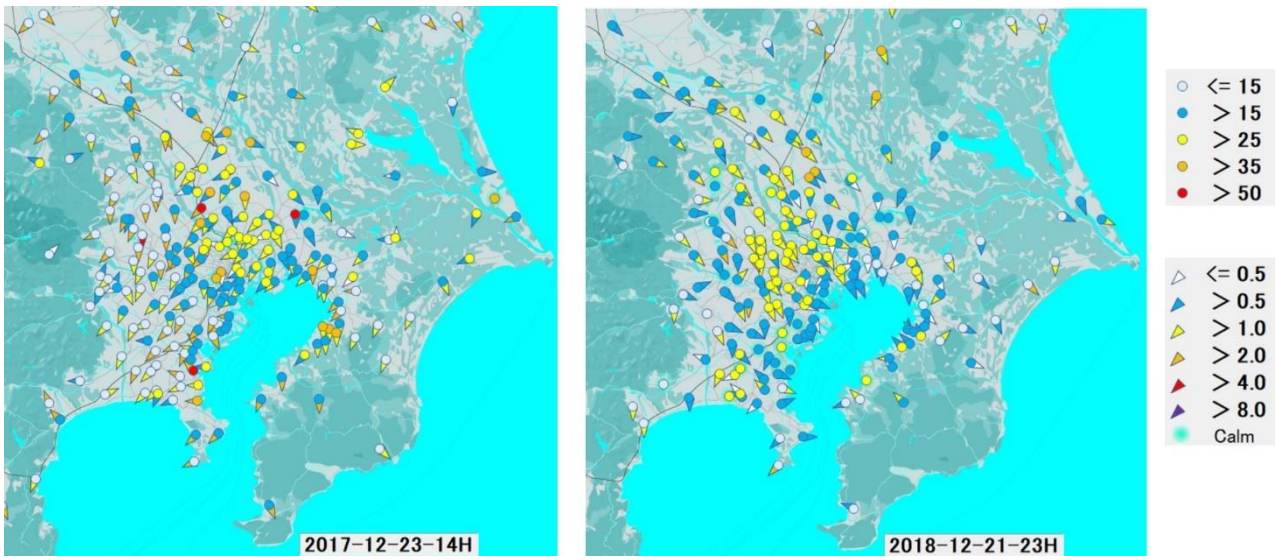

図9　2017年12月及び2018年12月の事例における関東の高濃度時前の北系の風

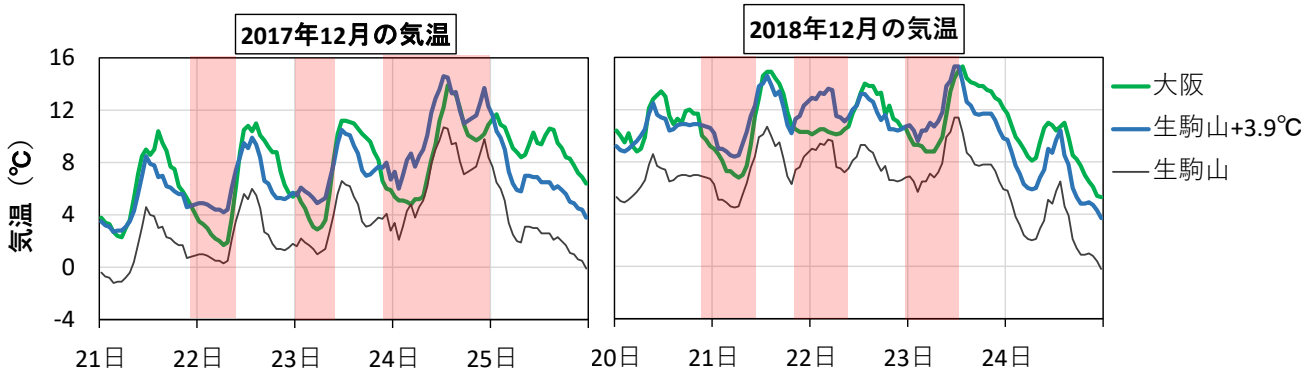

図10　2017年12月及び2018年12月の事例における近畿の高度の異なる地点における気温の推移

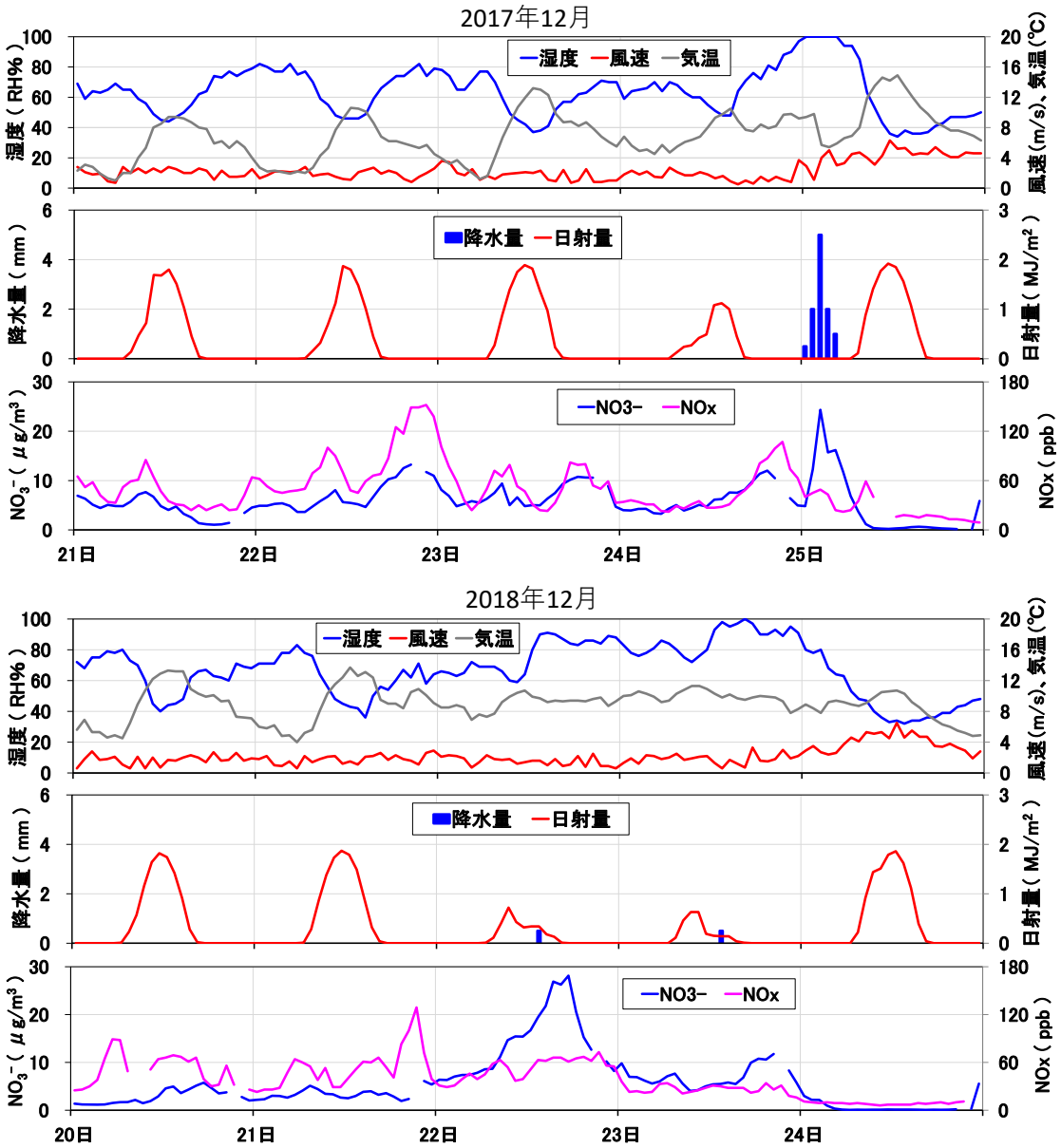

図11　東京における対象期間の気象データ，NOx及びNO_3^-濃度の経時変化

日単位のフィルター捕集に基づく過去の高濃度事例解析では，NO_3^-濃度の24時間平均値と前駆物質・気象要素の経時変化との関係から高湿度の影響が推測されたが[6]，ここではNO_3^-濃度の1時間値からその影響がより強く示唆された。

なお，2017年12月及び2018年12月のいずれの事例も，$PM_{2.5}$濃度が急激に低下したのは，低気圧が日本列島及び沿岸から太平洋上へ通過していく過程で発達し，図11の風速の変化でわかるように強い風が吹いたためであった。

4. まとめ

2017年及び2018年の12月下旬に，東京・名古屋・大阪の大都市圏において発生した$PM_{2.5}$の高濃度事例について，高時間分解能の成分データを中心とし，気象との関連を重点として解析した。2017年と2018年のいずれの事例においても，移動性高気圧に覆われて風が穏やかであったこと，接地逆転層が形成されていたことが共通しており，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と考えられた。さらに，$PM_{2.5}$の濃度上昇にはNO_3^-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降水後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（NOx）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。

冬季の大都市圏では，大気の安定・滞留による地域汚染によって$PM_{2.5}$の高濃度が発生すること，また，高湿度下における硝酸塩の二次生成の促進によって$PM_{2.5}$の高濃度が発生することが明らかとなった。二酸化窒素（NO_2）は環境基準を十分達成しているが，$PM_{2.5}$の高濃度への寄与を考慮し，今後もさらにNOxを削減していく必要があると考えられる。

また，高時間分解能の$PM_{2.5}$成分データを用いて解析することで，気象や前駆物質との関連を詳細に考察することが可能になることから，高時間分解能の$PM_{2.5}$成分測定の継続や拡充，測定データの解析を広げていくことが今後も重要である。

5. 引用文献

1) 国立環境研究所：光化学オキシダント及びPM2.5汚染の地域的・気象的要因の解明 研究概要，https://www.nies.go.jp/kenkyu/chikanken/R1-R3.pdf（2024.1.25アクセス）
2) 環境省：微小粒子状物質（PM2.5）成分自動測定結果，https://www.env.go.jp/air/osen/pm_resultmonitoring/post_25.html（2024.1.25アクセス）
3) 国立環境研究所 環境展望台：大気汚染常時監視データ，https://tenbou.nies.go.jp/download（2024.1.25アクセス）
4) 気象庁：過去の気象データ検索，https://www.data.jma.go.jp/stats/etrn/index.php（2024.1.25アクセス）
5) 気象庁：日々の天気図，https://www.data.jma.go.jp/fcd/yoho/hibiten/index.html（2024.1.25アクセス）
6) 長谷川就一，米持真一，山田大介，鈴木義浩，石井克巳，齊藤伸治，鴨志田元喜，熊谷貴美代，城裕樹：2011年11月に関東で観測された$PM_{2.5}$高濃度の解析，大気環境学会誌，**49**，242-251，2014

付記
本報の内容は，全国の地方環境研究所と国立環境研究所によるⅡ型共同研究「光化学オキシダント及びPM2.5汚染の地域的・気象的要因の解明」（2019～2021年度）において行われました。

謝辞
気象的要因の考察にあたっては，上記Ⅱ型共同研究におけるアドバイザーの早崎将光博士（一般財団法人日本自動車研究所）にご助言をいただきました。ここに感謝申し上げます。