

令和 4 年 6 月 21 日現在

機関番号：17102

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2018～2021

課題番号：18H03359

研究課題名(和文) 東アジア域のPM2.5汚染レジームの経年変化の総合解析

研究課題名(英文) Integrated analysis of regime shift of Asian PM2.5 pollution

研究代表者

鵜野 伊津志 (UNO, Itsushi)

九州大学・応用力学研究所・特任教授

研究者番号：70142099

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,300,000円

研究成果の概要(和文)：2012年から2021年にかけての、中国の排出量変化に伴って生じたエアロゾル化学成分の組成の変化についてまとめた。(1)中国の環境改善による影響を定量的に評価し化学輸送モデルを用いた発生源・受容体解析により、風下地域のPM2.5濃度を改善することを明らかにした。しかし、SO₂とNO_xの削減率の差は、アンモニア-硝酸-硫酸-水系の化学的不均衡により、硝酸塩の発生が多くなることになった。西日本の清浄な離島での観測と数値モデリングにより、PM2.5の中の主要成分が硫酸塩から硝酸塩に変化しつつある(パラダイムシフト)が確認された。COVID-19の蔓延にともなうロックダウンの効果も検討に加えた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

2012年から2021年にかけての、中国の排出量変化に伴って生じたエアロゾル化学成分の組成の変化についてまとめた。さらにCOVID-19の蔓延にともなう大規模なロックダウンの効果を観測データ解析と化学輸送モデルによる解析から明らかにした。排出量の変化によるアンモニア-硝酸-硫酸-水系の化学的不均衡により、硝酸塩の発生が多くなることになった。西日本の清浄な離島での観測と数値モデリングにより、PM2.5の中の主要成分が硫酸塩から硝酸塩に変化しつつある(パラダイムシフト)が確認され、これらの結果をUno et al. (2020, Scientific Reports)に発表した。

研究成果の概要(英文)：Changes in the composition of aerosol chemical components resulting from changes in emissions in China from 2012 to 2021 are summarized. (1) The impact of environmental improvements in China was quantitatively evaluated and source-receptor analysis using a chemical transport model revealed that PM2.5 concentrations in downwind areas were improved. However, the difference in SO₂ and NO_x reduction rates was due to a chemical imbalance in the ammonia-nitrate-sulfate-water system, which resulted in more nitrate generation. Observations and numerical modeling on a clean remote island in western Japan confirmed that the major component in PM2.5 is changing from sulfate to nitrate (paradigm shift); the effect of lockdown associated with the spread of COVID-19 was also added to the study.

研究分野：大気環境モデリング

キーワード：東アジア PM2.5レジーム 経年変化 排出量変化 モデル解析 COVID-19

様式 C-19、F-19-1、Z-19（共通）

1. 研究開始当初の背景

(1) 2010年代になってPM_{2.5}の高濃度が日本では大きな社会・環境問題となったが、最近は大気浄化の傾向が見られる。これには、中国での汚染物質排出量の減少と環境濃度低減の効果が大きい。PM_{2.5}は、化学的には(NH₄)₂SO₄、NH₄NO₃等の2次生成粒子の寄与が大きく、中国では、硫黄分の多い石炭の燃焼に伴うSO₂の大量発生が重篤な環境汚染を起こしていたが、大規模な火力発電所への脱硫装置の導入により排出量は2005-2006年頃をピークに減少に転じた。一方、自動車の急速な普及などにより2000年以降にNO_xの排出量が増加したが、2011-2012年頃をピークにNO_x濃度は低減した。これに対して、NH₃の排出は食料増産のための施肥・家畜の増大、温暖化の進展にともなう土壌温度の上昇などで排出量が増加している。

(2) SO₂が減少すると、大気中のNH₃が過剰となり、HNO₃が存在する場合には、硝酸塩粒子を生成させる。従って、PM_{2.5}濃度の減少率はSO₂の削減・減少から期待されるよりもはるかに小さい。この反応系でキーとなるNH₃は、大気汚染物質として分類されておらず、環境濃度の時間分解能の高いモニタリングもほとんどされていない。前述のように、NH₃が増大するとNH₄NO₃の生成量が増加・HNO₃の寿命の変化、越境輸送量の増加、日本への硝酸態窒素とアンモニア態窒素の沈着量の増加などが生じ、従来のS/Nの沈着量のバランスが変化する。このような環境変化は中国のSO₂排出量が減少傾向に転じた2005-2006年から急激的に起こっていると考えられ、このような観点からの解析を行う必要がある。

2. 研究の目的

(1) 本研究の目的は、東アジア域でのPM_{2.5}汚染レジームの経年的な変化を念頭においた観測データ・数値モデル解析を行い、汚染レジームの動態解明、将来予測、NH₃の重要性の確認・提示をすることである。

(2) 解析には、東アジア酸性雨ネットワークEANET、全国環境研協議会観測、九州大学での地上測定結果、環境省のEANET局でのエアロゾル成分自動測定結果など解析と同時に、パッシブサンプラーによるNH₃観測を九州大学と長崎県福江島で1週間平均値として測定する。福江島は中国から越境輸送されたエアロゾルが日本最西端に到達する地点で、そこでのNH₃の季節変化が流入境界条件として重要であるが、そのような観測はされていない。

(3) 本研究では、従来、十分に解析されなかった観測データをNH₃の重要性の側面から再解析する。観測解析と並行して、GEOS CHEMとCMAQ化学輸送モデルを用いたNH₃とNH₄の重要性の解析を行う。モデル解析では、10年スケールのモデル計算を通じて、PM_{2.5}レジームの経年変化を明らかにする。

3. 研究の方法

(1) PM_{2.5}濃度の10年スケールの経年変化をPM_{2.5}汚染レジーム変化の観点から観測データとモデル研究の手法を統合して解析する。中国大陸ではNH₄NO₃粒子の形態をとっているが、中国から東シナ海上を日本へ越境する輸送する過程で、NH₄から分解されNH₃となって輸送されると考えられるが、その詳細は未知である。これは、NH₃が汚染ガスとして分類されておらず、モニタリングの項目となっていないことが理由の一つであり、解析も十分にされていない。本研究では既往のNH₃の観測結果を掘り起こして、地域分布、季節変化を含めた解析を行う。

(2) 2017年4月から環境省が主導して福江島と福岡市（福岡大学）に導入されたエアロゾル化学成分連続自動分析装置の1時間観測値と福岡大学サイトに導入されたURG大気イオンメータ9000Dからの1時間毎のガス(NH₃、HNO₃など)とエアロゾル成分でNH₃/NH₄輸送・変換の視点で解析する。福岡でのNH₃の観測はURG9000Dである程度可能であるが、福江島ではNH₃の測定が行われていないので、パッシブ方式のNH₃の測定を行う。福江島でのNH₃の濃度レベルと季節変化は不明であり、NH₃/NH₄の越境輸送の観点から新しい知見をもたらすと考えられる。

(3) これらの観測と同時に、GEOS CHEM と CMAQ 化学輸送モデルを用いた数値解析を行う。モデル解析では、10 年スケールのモデル計算を通じて、PM_{2.5} レジームの経年変化を明らかにする。

4. 研究成果

(1) 中国の排出量の経年変化：2000 年以降の中国と日本の排出量の経年的な変化についてまとめた。図 1 にはアジア域大気汚染物質排出量インベントリ REAS による中国と日本の SO₂ および NO_x 排出量の 2000 年から 2015 年までの変化を示す。さらに、より近年の傾向を把握するために、Aura 衛星に搭載された Ozone Monitoring Instrument (OMI) による華北平原領域 (Central East China (CEC); 110-123 °E, 30-40 °N) で平均した SO₂ および NO₂ の対流圏大気カラム濃度 (vertical column density; VCD) を 2005 年から 2020 年まで解析したのも示す。SO₂ 排出量は 2005 年をピークに減少傾向に転じ、2013 年には 2000 年レベルにまで低下し、SO₂ 排出量はさらに経年的に減少を続け、2015 年以降も年率約 8% で低下している。一方で NO_x 排出量は 2000 年代には増加し続けたが、2011 年をピークに減少傾向に転じた。しかしながら、2015 年の排出量は 2008 年レベルに相当し、また NO₂ 大気カラム濃度の傾向を勘案すると、近年の NO_x 排出量の減少傾向は 2015 年以降では年率約 3% で、SO₂ に見られるほど顕著ではなく鈍化していると考えられる。

このような中国の排出量変化の傾向に対して、わが国の PM_{2.5} の大気環境基準達成率は、2013 年に 16.1% であったものが、2014 年以降急速に改善し、2020 年には 98% に至った。この劇的な改善には中国の排出量削減の影響が大きい。

PM_{2.5} の総量としては、このような近年の減少傾向が中国・日本で見られているが、PM_{2.5} の主要成分である SO₄²⁻ と NO₃⁻ に関わる前駆体の SO₂ と NO_x の排出量の減少率は図 1 に示したように一致していない。さらには、SO₂ と NO_x の排出量の減少傾向に対し、NH₃ はほとんど横ばいで推移している。したがって、PM_{2.5} の組成は大きく変化 (レジームシフト) する可能性を示した。

2) エアロゾル化学成分の組成比の変化：長崎県福江島での観測から PM₁ 中の NO₃⁻/SO₄²⁻ 比が 2012-2019 年にかけて増加 (SO₄²⁻ が減少し、NO₃⁻ が増加) していることを示した (図 2)。

これに対応して、SO₄²⁻ と NO₃⁻ の越境輸送の変化を GEOS-Chem モデルの発生源感度解析の結果から報告した。モデル計算では、2010 年の排出量推計に対して、SO₂ を 70%、40% と NO_x を 90%、80% と変化させた組み合わせで行い、気象条件は 2018 年 2-4 月とし、排出量変化による濃度の変動を評価した (図 2)。発生源の削減に対して、モデルはすべての地点でほぼ同じ傾向で変化することが判る。前述のように NO_x、SO₂ 発生量は減少しているが、その減少率は異なり、加えて、NH₃ 発生量は一定なので、SO₄²⁻ は減少するが、NO₃⁻ が増加することとなる。モデル計算の気象年は一定であるが、その結果は福江島での 2019 年までの観測結果と整合的である。

(3) 新型コロナウイルスの影響の検出：モデルと観測で示された SO₄²⁻ と NO₃⁻ の変化傾向が 2020 年も継続することが予想されたが、2019 年末に中国湖北省武漢市から世界中に蔓延した新型コロナウイルスに対して、中国では 2020 年 1 月 23 日からロックダウン (都市封

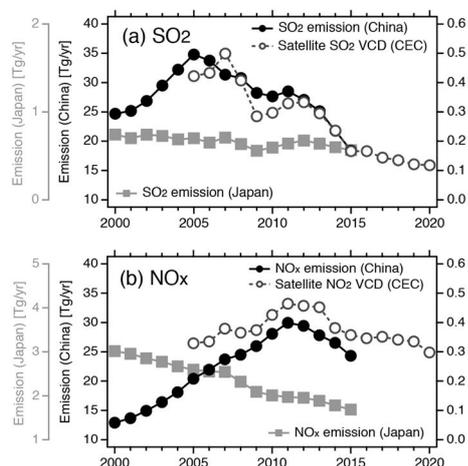


図 1 中国と日本の排出量の長期的と衛星観測結果 (a) SO₂、(b) NO_x

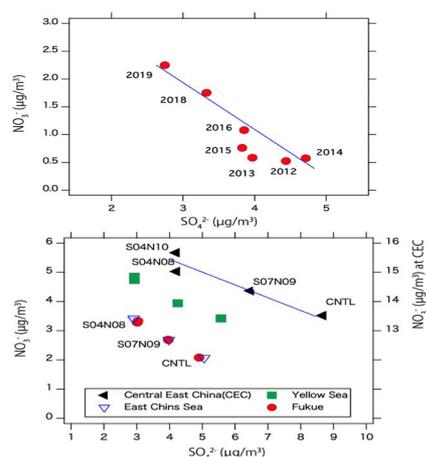


図 2 (上) 福江島での 2-4 月平均濃度 (観測値) (下) 化学輸送モデルの発生源感度解析の結果

鎖)という手段が講じられ、劇的に排出量が変化した。移動交通手段は制限され、製造業等の生産活動も著しく低下した。自動車等の移動発生源は NO_x の主たる発生源でもあり、2020年2月の中国の NO_2 濃度は例年に比較して実に半減したと推定されている⁹⁾。福江島での2020年の観測結果によると、 SO_4^{2-} は経年的な減少を示しているが、 NO_3 は2019年までの増加傾向のラインから大きく逸脱して減少したことを示した(図3)。

(4) NH_3 の季節変化と越境輸送の検出： 福岡都市圏(3地点)と福江島で、 NH_3 の小川式パッシブサンプラー(PS)計測を行い、濃度レベルと季節変化を調べた。福岡3地点では濃度レベルは1.5 - 3.5 ppb程度で、季節変化のパターンは非常に類似していた(図4)。一方、福江島の NH_3 レベルは福岡に対して低く、概ね0.5 - 2 ppb程度であり、明瞭な季節変化が見えなかった。PSの結果をフィルターパック計測などと比較し、暖候期の濃度レベルがほぼ一致することを確認した。一方、外気温が15より低下すると、 NH_3 PSの濃度が大きくなる傾向にあった。これはPSのポリエチレン多孔栓やフィルター表面に捕捉された NH_4NO_3 が再揮散して、 NH_4^+ NH_3 によるアーティファクトとして作用するためと考えられた。福江では、冬季のエアロゾルの越境輸送があるときに、 NH_3 に上昇の傾向が見えた。これは越境輸送された NH_4NO_3 による可能性があることを示した。これらの成果は論文「福岡都市圏と福江島での NH_3 の季節変化」として投稿中である。

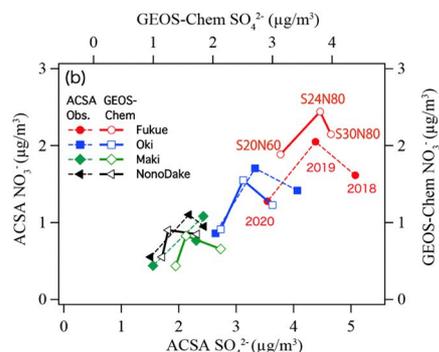


図3 福江島、隠岐、巻、のの岳での2-4月平均濃度(観測値)と化学輸送モデルの発生源感度解析の結果

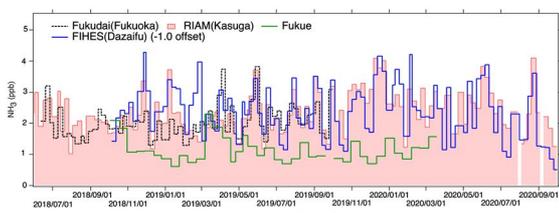


図4 NH_3 パッシブサンプラーによる NH_3 濃度の測定結果。福岡大学(福岡市)、九州大学 RIAM(春日市)、太宰府 FIHES、福江島での結果

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計8件（うち査読付論文 8件/うち国際共著 7件/うちオープンアクセス 8件）

| | |
|---|-------------------------|
| 1. 著者名 Uno, I., Z. Wang, S. Itahashi, K. Sumimoto et al. | 4. 巻 10 |
| 2. 論文標題 Paradigm shift in aerosol chemical composition over regions downwind of China | 5. 発行年 2020年 |
| 3. 雑誌名 Scientific Reports | 6. 最初と最後の頁 - |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41598-020-63592-6 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である） | 国際共著 該当する |
| 1. 著者名 Itahashi, S., Yumimoto, K., Uno, I., Hayami, H., Fujita, S.-I., Pan, Y., and Wang, Y | 4. 巻 18 |
| 2. 論文標題 A 15-year record 2001-2015 of the ratio of nitrate to non-sea-salt sulfate in precipitation over East Asia | 5. 発行年 2018年 |
| 3. 雑誌名 Atmos. Chem. Phys. | 6. 最初と最後の頁 2835-2852 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である） | 国際共著 該当する |
| 1. 著者名 Wang, Z.; Uno, I.; Osada, K.; Itahashi, S.; Yumimoto, K.; Chen, X.; Yang, W.; Wang, Z. | 4. 巻 11 |
| 2. 論文標題 Spatio-Temporal Variations of Atmospheric NH ₃ over East Asia by Comparison of Chemical Transport Model Results, Satellite Retrievals and Surface Observations. | 5. 発行年 2020年 |
| 3. 雑誌名 Atmosphere | 6. 最初と最後の頁 900 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である） | 国際共著 該当する |
| 1. 著者名 Wang, Z., Uno, I., Yumimoto, K., Itahashi, S., Chen, X., Yang, W. and Zifa Wang | 4. 巻 244 |
| 2. 論文標題 Impacts of COVID-19 lockdown, Spring Festival and meteorology on the NO ₂ variations in early 2020 over China based on in-situ observations, satellite retrievals and model simulations | 5. 発行年 2021年 |
| 3. 雑誌名 Atmos. Environ | 6. 最初と最後の頁 - |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.atmosenv.2020.117972 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である） | 国際共著 該当する |

| | |
|--|-----------------------|
| 1. 著者名 板橋 秀一, 王 哲, 弓本 桂也, 鶴野 伊津志 | 4. 巻 55 |
| 2. 論文標題 COVID-19に対する中国のロックダウン期間におけるPM2.5越境輸送の変容 | 5. 発行年 2020年 |
| 3. 雑誌名 大気環境学会誌 | 6. 最初と最後の頁 239-247 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である) | 国際共著 該当する |

| | |
|---|-----------------------|
| 1. 著者名 鶴野伊津志, 板橋 秀一, 王 哲 | 4. 巻 36 |
| 2. 論文標題 中国における人為起源排出規制による東アジアスケールのエアロゾル組成の変化 | 5. 発行年 2021年 |
| 3. 雑誌名 エアロゾル研究 | 6. 最初と最後の頁 110-114 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である) | 国際共著 該当する |

| | |
|---|-----------------------|
| 1. 著者名 Itahashi, S., J. Kurokawa, T. Ohara, I. Uno, S. Fujita | 4. 巻 17 |
| 2. 論文標題 The 36-Year Historical Variation of Precipitation Chemistry during 1976-2011 at Ryori WMO-GAW Station in Japan | 5. 発行年 2021年 |
| 3. 雑誌名 SOLA | 6. 最初と最後の頁 184-190 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である) | 国際共著 - |

| | |
|---|--------------------|
| 1. 著者名 Itahashi, S., Y. Yamamura, Z. Wang and I. Uno | 4. 巻 12 |
| 2. 論文標題 Returning impact of long-range PM2.5 transport over East Asia in 2021 after Chinese economic recovery from the COVID-19 pandemic | 5. 発行年 2022年 |
| 3. 雑誌名 Scientific Reports | 6. 最初と最後の頁 5539 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である) | 国際共著 該当する |

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

| |
|--|
| 1. 発表者名 鶴野伊津志、板橋秀一、弓本桂也、王哲ほか |
| 2. 発表標題 最近のPM2.5越境汚染の濃度減少と組成の変化について |
| 3. 学会等名 第60回大気環境学会 |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|-----------------------------------|
| 1. 発表者名 鶴野伊津志 |
| 2. 発表標題 PM2.5越境汚染の最近の傾向について（2） |
| 3. 学会等名 第19回大気環境学会九州支部研究発表会 |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 板橋 秀一, 山村 由貴, 鶴野 伊津志 |
| 2. 発表標題 東アジアスケールのエアロゾル組成の変化：新型コロナ感染対策による排出量変化の影響 |
| 3. 学会等名 第38回エアロゾル科学・技術研究討論会 |
| 4. 発表年 2021年 |

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

| | 氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号) | 所属研究機関・部局・職 (機関番号) | 備考 |
|-------|---|--|----|
| 研究分担者 | 板橋 秀一 (ITAHASHI SYUICHI) (10714537) | 一般財団法人電力中央研究所・環境科学研究所・主任研究員 (82641) | |

6. 研究組織（つづき）

| | 氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号) | 所属研究機関・部局・職 (機関番号) | 備考 |
|-------|---|---|--------|
| 研究分担者 | 弓本 桂也 (YUMIMOTO KEIYA) (50607786) | 九州大学・応用力学研究所・准教授 (17102) | |
| 研究分担者 | 王 哲 (WANG ZHE) (30791602) | 九州大学・応用力学研究所・助教 (17102) | R28-R2 |

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

| 共同研究相手国 | 相手方研究機関 |
|---------|---------|
| | |