

関東 SPM 合同調査及び PM_{2.5} 高濃度時の解析

—平成 24 年度調査結果のまとめ—

内藤季和 石井克巳

1 はじめに

関東 SPM 合同調査は、昭和 56 年に当時深刻な大気汚染問題であった浮遊粒子状物質 (SPM) について 1 都 3 県 2 市での合同調査を始めたことに端を発し、その後、参加自治体を増やししながら、粗大粒子と微小粒子に注目して夏季と冬季の調査を継続して汚染実態や発生源等を推定し、今後の対策に資することを目的に進めてきた。平成 20 年からは夏季の微小粒子 (PM_{2.5}) に注目して調査を行うようになり、広域的な PM_{2.5} 濃度等の実態把握を中心に、二次生成粒子の成分濃度とその前駆物質成分濃度(ガス状成分濃度)も測定し、夏季における広域的な二次生成粒子汚染のメカニズムについて検討してきた。参加自治体は現在、1 都 9 県 7 市にまで拡大してきた。

一方、平成 22 年度の環境省の事務処理基準改正により、PM_{2.5} 成分分析は PM_{2.5} 自動測定機による質量濃度測定と同様に常時監視項目に位置づけられたため、各自治体の責任において採取・分析を行い、本調査会議に分析結果を持ち寄って解析を行うスタイルへと変更した。ただし、平成 24 年度は移行期間であり、全ての自治体が成分分析を行える状況ではないため、本調査会議内で調整して、自治体間で分析の協力を行って合同調査を実施した。

本報告では、平成 24 年度の夏季に実施した合同調査結果から明らかになった関東甲信静地域の PM_{2.5} の汚染状況及び地域的な特徴について報告する。

2 調査手法

2. 1 調査地点と期間

調査は図 1 に示す関東甲信静の 20 地点で実施した。調査時期は環境省の提案による夏季の日程で、梅雨明け後の平成 24 年 7 月 25 日 (水) から 8 月 8 日 (水) の間に 24 時間採取を連続して実施した。特に、7 月 30 日 (月) から 8 月 6 日 (月) までの 1 週間をコア期間とした。試料採取の開始・終了時刻は原則として 10 時とした。

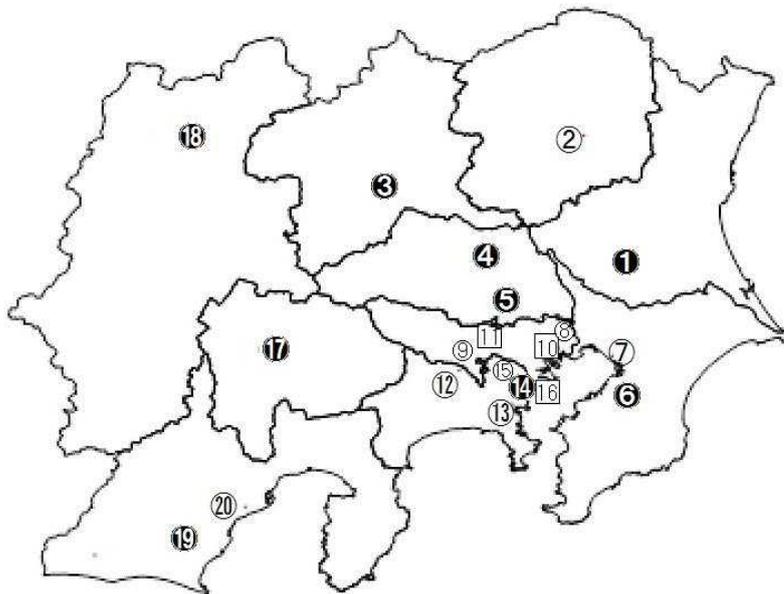


図 1 調査地点 (○：一般環境局 □：自動車排ガス局)

【白抜き数字はフィルターパック法実施地点】

- 1：茨城県土浦市 2：栃木県矢板市 3：群馬県前橋市 4：埼玉県鴻巣市 5：埼玉県さいたま市 6：千葉県市原市 7：千葉県千葉市 8：東京都足立区綾瀬 9：東京都多摩市 10：東京都江東区亀戸 11：東京都国立市 12：神奈川県大和市 13：横浜市磯子区 14：川崎市川崎区田島 15：川崎市高津区 16：川崎市川崎区池上 17：山梨県甲府市 18：長野県長野市 19：静岡県島田市 20：静岡県静岡市

2. 2 試料の採取及び分析方法

PM_{2.5}については、石英繊維ろ紙及びテフロン製ろ紙を装着したPM_{2.5}サンプラーまたはこれと同等なサンプラーを用いて採取した。また、PM_{2.5}調査に加え、9自治体においてはフィルターパック法により捕集される、二次生成粒子の主な前駆物質と考えられているガス状成分(SO₂, HNO₃, HCl, NH₃)、及びエアロゾル成分中の水溶性イオンについての調査も実施した。

3 調査結果

3. 1 調査期間中の気象概要

平成24年度の梅雨入りは、平年並みの6月上旬であったが、関東甲信地方の梅雨明けは7月25日ごろ(平年より4日ほど遅い)、東海地方は7月23日ごろ(平年並)であった。

コア期間を通して、各気象観測所における気温は平年より高く、日照時間は平年より長かった。また、期間中はほとんど晴れていたが、8月4日は沖縄に接近した台風第11号の影響で雨や曇りとなり、8月6日は本州付近に南から湿った空気が入り、大気の状態が非常に不安定になった。

コア期間中に光化学オキシダント注意報の発令はなかったが、7月25日から7月28日にかけては、各地で注意報が発令された。

3. 2 質量濃度

図2に標準測定法によるコア期間のPM_{2.5}の平均濃度を示す。南関東の平均濃度は6.9µg/m³、北関東甲信静が9.4µg/m³で、その差は2.5µg/m³であった。全調査期間では、南関東よりも北関東甲信静が1.2µg/m³高く、その差は小さくなった。

自動測定機によるPM_{2.5}日平均濃度と比較したところ、地点による差が大きい。標準測定法によるPM_{2.5}濃度の概ね1.1から1.2倍であることが分かった。一方、SPM濃度、常時監視PM_{2.5}濃度、標準測定法によるPM_{2.5}濃度ともに日変化パターンは良く一致していた。

PM_{2.5}中のイオンバランスはおおむね良好であったが、マスクロージャーモデルでは、ばらつきが大きい結果となった。

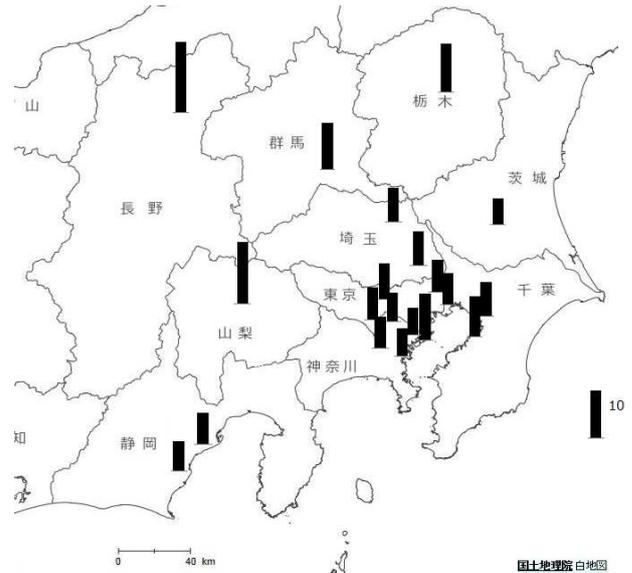


図2 コア期間のPM_{2.5}平均濃度
(標準測定法)

3. 3 イオン成分の測定結果

水溶性イオン濃度の期間平均値は平成20年度から4年間の調査において、今回が最も低い値となった。調査地点の中で最も水溶性イオン濃度の期間平均値が高かったのは長野であり、これまでの調査結果とは異なる傾向を示した。その他、矢板、池上(自排局)、前橋、亀戸(自排局)、さいたま、鴻巣で濃度が高くなっており、自排局を除くとこれら内陸部の調査地点の方が人為発生源の多い東京湾沿岸部よりも水溶性イオン濃度が高い傾向を示した。夏季PM_{2.5}の主要なイオン成分である硫酸イオンは長野、矢板、前橋など関東北部で高い傾向を示したが、東京湾沿岸部は必ずしも高くなかった。これは、コア期間中の光化学反応が盛んでなく、発生源近傍の東京湾沿岸部では原因物質である二酸化硫黄濃度が高いものの粒子化が進まなかったことなどが影響していると推察された。

3. 4 炭素成分の測定結果

炭素成分の平均濃度を見ると、有機炭素は一般環境が平均2.4µg/m³に対して、道路沿道が2.1µg/m³とやや低く、逆に元素状炭素は一般環境が0.8µg/m³に対して、道路沿道が1.5µg/m³と2倍近く高くなっていた。水溶性有機炭素は一般環境の平均が1.5µg/m³に対し

て、道路沿道が $0.3\mu\text{g}/\text{m}^3$ と明らかに低くなっていた。 $\text{PM}_{2.5}$ 中の炭素成分の平均含有割合では、ほぼ同様な傾向が見られた。

また、炭素成分濃度の一般環境での地域的傾向としては、有機炭素は概ね内陸部で高い傾向であり、元素状炭素についても内陸部でやや高い傾向も認められ、水溶性有機炭素も内陸部で高い傾向であった。

3. 5 金属成分の測定結果

分析対象とした金属成分は 33 元素であったが、実際に調査した地点数は 4~20 地点とかなり差があり、全般的に濃度変動が大きかった。Na, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, As については一部の調査地点で高いという特徴が見られた。K, Ca, Sb, Pb 等では、7 月 31 日~8 月 1 日又は 8 月 4 日に、複数の調査地点で高くなる傾向が認められた。Sc, Mo, Cs, Sm, Au, Si では半数以上が検出限界以下となった。

3. 6 発生源寄与の推定

例年同様に Chemical Mass Balance 法（線形計画法）により地点毎に発生源寄与率を計算した。環境データはコア期間の平均濃度を用いた。自動車と道路粉じんについては自動車排ガス局が高く、重油燃焼と海塩粒子については沿岸部が高く、廃棄物焼却は内陸部が高いなどの特徴が見られた。無機の二次生成粒子については沿岸部、内陸部ともに全体に占める寄与率が最も高くなり、沿岸部、内陸部、一般局、自排局で大きな寄与率の差は見られなかった。

3. 7 $\text{PM}_{2.5}$ 自動測定機の高濃度日解析

平成 24 年度に 1 都 9 県で $\text{PM}_{2.5}$ 濃度の日平均が $35\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超える局数を調べたところ、最も多くの局数が 35 超となったのは 12 月 15 日で 111 局であった。次いで 5 月 9 日の 103 局、7 月 26 日の 79 局、3 月 8 日の 64 局と続き、5 番目は 3 月 7 日の 60 局で、次に 12 月 28 日の 59 局が続いている。このように多くの測定局が一斉に濃度上昇する傾向があり、 $\text{PM}_{2.5}$ の挙動が広域現象であることを示している。また、11 月から 3 月にかけて 35 超過日が出現しやすく、7 月 26 日付近と 3 月 8 日付近では 3 日連続して濃度上昇するような事例も見られている。

それぞれの日について濃度分布の時刻別変化を見ると、ワースト 1 の 12 月 15 日は 1 時~22 時まで首都圏を中心とした高濃度現象であり、首都圏で発生した $\text{PM}_{2.5}$ が長時間滞留したものと考えられた。5 月 9 日及び 3 月 8 日については、広範囲で濃度上昇が起きている、大陸由来の越境汚染の可能性が高い事例と思われ、SPRINTARS のアーカイブでも裏付けされた。今回の調査期間である 7 月 26 日については、日差しが強くなる時間に太平洋岸で濃度上昇が起こっており、光化学反応と西日本からの移流が考えられる事例であった。12 月 28 日についても 12 月 15 日と同様なケースであった。

4 今後の課題

平成 22 年度までは項目ごとに一括分析していたため、測定方法が統一されていたが、平成 23 年度からは各自治体がそれぞれ常時監視として成分分析したデータを持ち寄るデータが主とな多く、分析方法や分析項目、検出下限に差が見られるようになった。平成 24 年度はさらに各自治体による測定データの占める割合が増えたこともあり、質量濃度の妥当性の検証に用いたマスクロージャーモデルでは、バラツキの大きい結果となり、測定値の精度管理が重要と考えられる。

今回から常時監視に係る分析結果を用いて日単位での解析が行えるようになったものの、コア期間中に活発な光化学反応が起こらず、夏季の特徴である硫酸イオンを含めて各成分の濃度は低く、広域汚染メカニズムの解明に向けた十分な解析が行えなかった。今後、広域汚染メカニズムを解明するためには、夏季のコア期間に限らない高濃度日のデータの解析等についても検討することが望まれる。