

# 関東 SPM 合同調査

## —2013 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、1981 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。2008 年からは夏季の微小粒子 (PM<sub>2.5</sub>) に注目して調査を行うようになり、広域的な PM<sub>2.5</sub> 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、2010 年度の大気汚染防止法の事務処理基準改正により、PM<sub>2.5</sub> 成分分析は PM<sub>2.5</sub> 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。

本報告では、2013 年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<sub>2.5</sub> の汚染状況及び地域的な特徴の概要について報告する。

### 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。今年度は一般環境測定局に限定したため、自動車排ガス測定局であるさいたま市の調査地点は解析対象外とした。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 2013 年 7 月 24 日 (水) から 8 月 7 日 (水) の間に 24 時間採取を連続して実施した。特に、7 月 29 日 (月) から 8 月 5 日 (月) までの 1 週間を

コア期間として詳細な解析を行った。試料採取の開始・終了時刻は原則として 10 時とした。

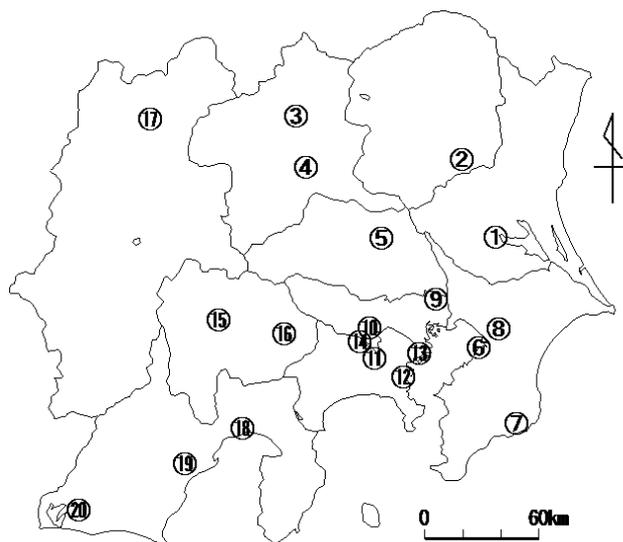


図 1 調査地点

- ①：茨城県土浦市 ②：栃木県真岡市 ③：群馬県前橋市  
④：群馬県沼田市 ⑤：埼玉県鴻巣市 ⑥：千葉県市原市  
⑦：千葉県勝浦市 ⑧：千葉県千葉市 ⑨：東京都足立区綾瀬  
⑩：東京都多摩市 ⑪：神奈川県大和市 ⑫：横浜市磯子区  
⑬：川崎市川崎区 ⑭：神奈川県相模原市 ⑮：山梨県甲府市  
⑯：山梨県大月市 ⑰：長野県長野市 ⑱：静岡県富士市  
⑳：静岡県静岡市 ㉑：静岡県浜松市  
(丸数字はフィルターパック法実施地点)

#### 2・2 試料の採取及び分析方法

PM<sub>2.5</sub> 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<sub>2.5</sub> 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<sub>2.5</sub> 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 (SO<sub>2</sub>, HNO<sub>3</sub>, HCl, NH<sub>3</sub>)、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

2013年度の関東甲信地方の梅雨入りは、6月10日ごろ（平年より2日遅い）であったが、東海地方は5月28日ごろ（平年より11日早い）であった。関東甲信地方の梅雨明けは7月6日ごろ（平年より15日早い）、東海地方は7月7日ごろ（平年より14日早い）であった。

コア期間を通して、調査地点の平均気温は平年より低い地点が多く、日照時間はすべての地点で平年より短かった。また、真岡（8月1日）、長野（8月4日）、静岡（7月29日及び8月3日）で1時間雨量10mm以上のやや強い雨が降り、前橋（8月4日）では1時間雨量30mm以上の激しい雨が降ったが、その他の地点ではコア期間合計が2.0～3.5mmであった。試料捕集期間中に光化学オキシダント注意報の発令はなかった。

#### 3・2 質量濃度

調査期間中に高濃度であったのは7月30、31日であり、低濃度であったのは7月24日と8月2日であった。自動測定器と標準測定法のPM<sub>2.5</sub>濃度の関係を見ると回帰直線の傾きが0.96と良好であったが、切片は3.74と常時監視のデータがやや高くなっていることが分かった。SPM濃度、PM<sub>2.5</sub>濃度（常監）、PM<sub>2.5</sub>濃度（標準）ともに日変化パターンは良く一致していた。

PM<sub>2.5</sub>中のイオンバランスは全体の傾きが1.01、切片が-0.45、R<sup>2</sup>値が0.98と良好であったが、マスクロージャーモデルでは、地点間のばらつきが大きく、推定質量濃度/PM<sub>2.5</sub>濃度（標準）について、0.8を下回るケースが多かった。そこで、PM<sub>2.5</sub>濃度（標準）を測定していない4地点のデータを除外した結果、傾きが0.86、切片が1.16、R<sup>2</sup>値が0.89となった。

図2に標準測定法によるコア期間のPM<sub>2.5</sub>の平均濃度を示す。南関東の平均濃度は17.3μg/m<sup>3</sup>、北関東甲信静が17.9μg/m<sup>3</sup>で、その差は小さかった。

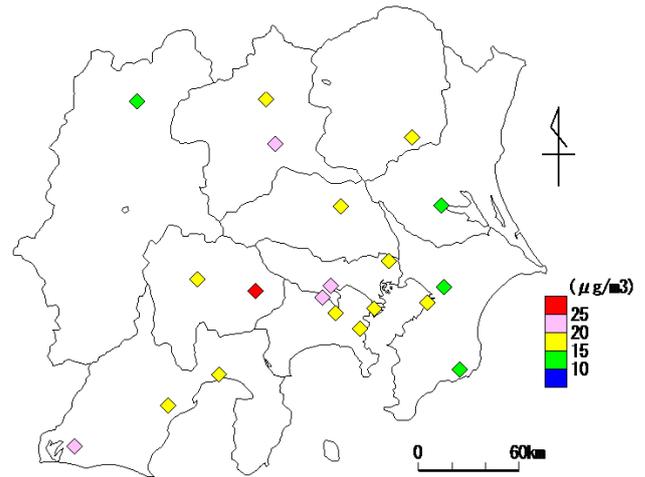


図2 コア期間のPM<sub>2.5</sub>平均濃度  
（標準測定法）

#### 3・3 イオン成分の測定結果

水溶性イオン成分の全地点の期間平均濃度は9.9μg/m<sup>3</sup>であり、過去5年間の結果と比較すると2008年度と並んで高い値であった。地点ごとでは東京都、神奈川県、静岡県にある測定地点がそれ以外の地域の測定地点と比べて高めであった。水溶性イオン成分では全ての地点でSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>とNH<sub>4</sub><sup>+</sup>が合計して7割以上を占めており、次いでNO<sub>3</sub><sup>-</sup>が多く存在していた。ただし、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>は地点間での差が大きかった。前駆物質の濃度とSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>及びNO<sub>3</sub><sup>-</sup>の関係では、概ね前駆物質の濃度が高い地点でそれらのイオン成分濃度が高かったが、例外もあり、必ずしも二次生成がその場で起こっていなかったことが示唆された。今回の調査期間では、複数の調査地点でPM<sub>2.5</sub>濃度が35μg/m<sup>3</sup>以上を観測する事例が7月30～31日と7月31日～8月1日の2日間確認された。PM<sub>2.5</sub>濃度が上昇した地点では水溶性イオン成分の占める割合が高かったため、PM<sub>2.5</sub>濃度の上昇は主に水溶性イオン成分の増加によるものと推察された。また、7月30～31日では流跡線が通過したと思われる福井県でも同様にPM<sub>2.5</sub>濃度が高濃度化しており、南関東・静岡県での高濃度化事象との関連が示唆された。しかし、大月では水溶性イオン成分以外の成分の割合が大きく、水溶性イオン成分以外の影響もあると考えられた。

#### 3・4 炭素成分の測定結果

炭素成分について全調査地点の平均濃度を見ると、

有機炭素が  $2.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$  であり、元素炭素が  $1.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$  となり、水溶性有機炭素は  $1.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$  であった。

PM<sub>2.5</sub> 中の炭素成分の平均含有割合では、有機炭素が 15% (8.2~21%) であり、元素炭素が 6.3% (3.3~9.2%) となり、水溶性有機炭素は 12% (7.1~20%) であった。

また、炭素成分濃度の地域的傾向としては、有機炭素は概ね相模原、甲府、静岡、浜松が高い傾向であり、元素炭素については大月、田島がやや高い傾向と認められ、水溶性有機炭素は大月、富士、静岡で特に高い値が見られた。なお、PM<sub>2.5</sub> 濃度の高かった 2 日間と低かった 2 日間を調査地点ごとに比べると、炭素成分の濃度差は関東地域では小さく、甲信静地域で大きい傾向が今回の調査で見られた。

有機炭素濃度や水溶性有機炭素濃度と昼間のオゾン濃度や非メタン炭化水素濃度との相関関係を見ると、相関関係の認められる事例が内陸部でやや多かった。また、PM<sub>2.5</sub> 濃度が高濃度となる場合には、オゾン濃度や非メタン炭化水素の濃度が高い地点は水溶性有機炭素濃度が高くなる傾向も見られた。

### 3・5 金属成分の測定結果

重金属濃度は、一般的に濃度変動が大きく一部の調査地点で特定の元素が高いという特徴がみられた。

マンガン、鉄、ニッケル、亜鉛、ヒ素及び鉛では、複数の地点でコア期間の後半にかけて低くなる傾向が認められた。

カリウムは、8月3日から4日にかけて複数の地点で高い傾向があった。

### 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。

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、48~60%を占めていた。自動車については、内陸部が沿岸部よりも高く、重油燃焼と海塩粒子については沿岸部が内陸部よりも高く、廃棄物焼却では差が見られないなどの特徴が見られた。

### 3・7 PM<sub>2.5</sub> 自動測定機の高濃度日解析

年間の PM<sub>2.5</sub> 常時監視データより、2013 年度にお

ける PM<sub>2.5</sub> 高濃度日の発生状況について調査した。その結果、7月、8月には広範囲でかつ数日間にわたる高濃度事象があり、11月~3月には1日から3日程度の短い期間での高濃度事象が多くあった。多くの場合、複数の地点で同時に高濃度が発生していた。高濃度日発生率は、7~8月と2月に多かった。成分分析調査期間に発生した秋および冬の3例の高濃度事象について、成分の特徴を調べたところ、3例の事象とも関東地域では PM<sub>2.5</sub> 高濃度時に NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、OC の増加が特徴的であった。一方で、甲信静地域では概して濃度が低く、メインの成分は SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>であり、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度の増加はほとんど見られなかった。以上のことから、関東地域においては、PM<sub>2.5</sub> 日平均値が  $35 \mu\text{g}/\text{m}^3$  を超える高濃度となるのは、地域汚染の影響が大きいと考えられた。

## 4 今後の課題

今後の課題としては次に挙げる事項について検討していく必要があると考えられる。

- ・ PM<sub>2.5</sub> 成分分析が常時監視の一環として実施されることによる本調査会の独自性
- ・ WSOC、ガス状成分等の分析項目の統一
- ・ 年間を通じた解析（四季の調査結果解析）の検討
- ・ PM<sub>2.5</sub> 高濃度事例の解析
- ・ 自治体間の分析精度の確保

これらの事項に対して、本調査会では、精度管理試料の作成・分析による自治体間での分析精度の確保や夏季以外の成分分析結果の集計・解析等を行っており、今後も継続的な検討が必要と思われる。また、本年度は新たにホームページ（注）を作成したことから、国民への情報発信にも注力していくことが求められる。

（注）関東 SPM の HP : <http://kanto-spm.org/>