

関東 SPM 合同調査

—2014 年度夏季調査結果の概要—

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_{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、2010 年度の大気汚染防止法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。

この調査結果は、関東 SPM のホームページ¹⁾でも公開されており、関東甲信静地域の 2014 年の夏季の調査結果の解析と PM_{2.5} 自動測定機のデータでの高濃度時の解析が含まれている。ここではその概要について報告する。

1) 関東地方大気環境推進連絡協議会浮遊粒子状物質調査会議。 <http://kanto-spm.org/> (2016年10月1日時点)。

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 26 地点で実施した。昨年度より 6 地点増加した。一般環境測定局に

限定し、図に示したように沿岸部と内陸部に分類して解析した。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 2014 年 7 月 23 日 (水) から 8 月 6 日 (水) の間に 24 時間採取を連続して実施した。特に、7 月 28 日 (月) から 8 月 4 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。

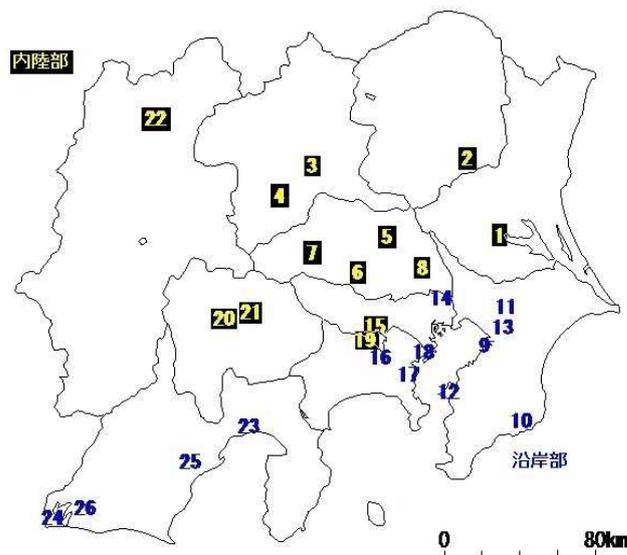


図 1 調査地点

- 1: 茨城県土浦市 2: 栃木県真岡市 3: 群馬県前橋市 4: 群馬県富岡市 5: 埼玉県鴻巣市 6: 埼玉県日高市 7: 埼玉県秩父市 8: さいたま市城南 9: 千葉県市原市 10: 千葉県勝浦市 11: 千葉県佐倉市 12: 千葉県富津市 13: 千葉県千葉市 14: 東京都足立区綾瀬 15: 東京都多摩市 16: 神奈川県大和市 17: 横浜市磯子区 18: 川崎市川崎区 19: 神奈川県相模原市 20: 山梨県甲府市 21: 山梨県東山梨市 22: 長野県長野市 23: 静岡県富士市 24: 静岡県湖西市 25: 静岡県静岡市 26: 静岡県浜松市

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

2014年度の関東甲信地方の梅雨入りは、平年より3日早い6月5日ごろであったが、東海地方は平年より4日早い6月4日ごろであった。梅雨明けは関東甲信地方、東海地方ともに平年並みの7月21日ごろであった。

調査期間中は晴れの日が多く、平均気温は平年より高く、日照時間は平年より長い地点が多かった。また、甲府で8月1日に1時間雨量20mm以上の強い雨が降り、熊谷(7月24日)と長野(7月31日)で1時間雨量10mm以上のやや強い雨が降った。期間中の甲府の降水量は37.5mm、熊谷が19.5mm、長野が14mmであった。その他の地点では期間合計が0.0～7.0mmであった。期間中に調査地点において光化学スモッグ注意報が、7月23日に埼玉県、千葉県、東京都、神奈川県、7月24日に千葉県、東京都、神奈川県、7月25日に東京都、神奈川県、7月26日に群馬県、埼玉県、千葉県、7月31日に埼玉県、8月2日に埼玉県、千葉県、東京都で発令された。

3・2 質量濃度

本調査結果から調査期間中に高濃度であったのは調査初日の7月23日であり、低濃度であったのは8月4日であった。7月26日に真岡で花火大会の影響が見られ、60 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ の高濃度であったことから、解析から除外した。

自動測定機と標準測定法のPM_{2.5}濃度の関係を見ると回帰直線の傾きが1.02で切片が2.11と全体的としては概ね一致していたが、地点別に見ると、常に自動測定機の値が大きい地点やばらつきの大きい地点があった。なお、SPM濃度、PM_{2.5}濃度(常監)、

PM_{2.5}濃度(標準)ともに日変化パターンは良く一致しており、自動測定機のPM_{2.5}濃度は標準測定法に対して全期間を通じて数 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 高い状況であった。

PM_{2.5}中のイオンバランスは傾きが0.98、切片が-0.05、R²値が0.96と良好であった。マスクロージャーモデルは、全てのデータから得られた回帰直線の傾きが0.84、切片が1.68、R²値が0.92であり、79%のデータは推定質量濃度/PM_{2.5}濃度(標準)が0.8～1.2の範囲内に含まれており、概ね整合していた。SPM濃度、PM_{2.5}濃度(常監)、PM_{2.5}濃度(標準)ともに日変化パターンは良く一致していた。

図2に標準測定法による調査期間のPM_{2.5}の平均濃度を示す。沿岸部の平均濃度は16.4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、内陸部が18.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ で、やや内陸部が高くなっていた。

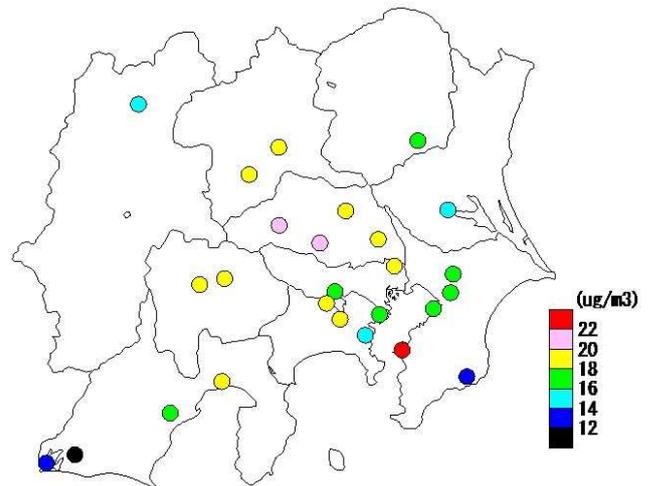


図2 調査期間のPM_{2.5}平均濃度
(標準測定法)

3・3 イオン成分の測定結果

水溶性イオン成分の全地点の期間平均濃度は7.2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であり、過去5年間の結果と比較すると2013年度に次いで高い値であった。地点間で比較すると、東京都、神奈川県及び富士の測定局がそれ以外の地域の測定局と比べて高めであり、花火大会の影響が見られた真岡を除いて内陸部に行くほど低くなる傾向がみられた。水溶性イオン成分中の無機二次粒子の割合は、全ての地点で86～98%と非常に高く、そのうちSO₄²⁻は65～74%、NH₄⁺は20～28%と高い割合を占めていた。

7月23日から7月26日はいずれの地点も濃度が高

く、内陸部では7月26日に濃度の上昇がみられた。内陸部と沿岸部のいずれも7月23日から7月26日の成分組成の変化は小さかったが、水溶性イオン成分濃度とPM_{2.5}濃度の変動はそれぞれで概ね一致していた。また、7月23日及び7月26日の内陸部では、O_xの最高値とSO₄²⁻濃度が沿岸部より高く、日中に南風が卓越していたことから、内陸部では光化学反応が起こりやすく、南関東から移流があった可能性も考えられた。横浜と前橋における後方流跡線を見ると、いずれの地点も類似しているものの7月23日の高さ2,000mと1,000mの後方流跡線が異なっており、高さ2,000mでは日本海を通過して流れ込むルートであった。7月26日の後方流跡線は、前橋の2,000mを除いていずれの地点も類似したルートであったが、内陸部では成分組成及び濃度が大きく変化したことから、内陸部では南関東からの移流が支持された。7月23日及び7月26日は、後方流跡線が南からのルートであった8月3日と大きくルートが異なっており、特に7月26日においては、前橋の2,000mを除き朝鮮半島からの移流の影響も考えられた。

3・4 炭素成分の測定結果

炭素成分の調査地点の平均値をみると、OC濃度は4.3µg/m³ (2.4~7.7µg/m³)、EC濃度は1.1µg/m³ (0.45~2.1µg/m³)、WSOC濃度は3.2µg/m³ (2.5~3.7µg/m³)であった。PM_{2.5}中の炭素成分の割合は、OCは28% (16~37%)、ECは6.7% (3.6~9.4%)であった。

炭素成分の地域特性として、OCは沿岸部と内陸部で異なる挙動がみられ、秩父、日高、富岡で高い傾向であった。ECは真岡、千葉、秩父で高い傾向であり、地点によっては特異的な高濃度がみられた。WSOCは広域で同様の挙動を示し、特に高濃度時に顕著であった。真岡、鴻巣、東山梨で高い傾向であった。7月29日においてはPM_{2.5}のうち炭素成分が4割以上を占めており、特にWSOCの割合が高く、二次生成により粒子化が進んだほか、シベリア森林火災の影響を受けたと考えられる。

PM_{2.5}濃度に影響する原因のひとつであることから、前駆物質や生成過程の検討は今後の課題である。

OC、WSOC、O_x及びNMHCの相関関係をみる

と、相関が認められる地点が多くみられた。昨年の解析では特に内陸部で相関が認められたが、今年は明確な差異は確認できなかった。気象条件等により粒子化に至る挙動が異なるものと考えられ、今後さらなる知見の蓄積が求められる。

3・5 無機元素成分の測定結果

7月23日から26日にかけて高濃度イベントが関東甲信静で広範に見られた。この期間のPM_{2.5}濃度と各無機元素成分濃度の相関を表4-4-3に示す。多くの地点でPM_{2.5}濃度とほとんどの無機元素成分濃度との間に強い相関が見られた。特にCu、Zn、Sb、Pbはそれらを解析対象とした地点のうち半数以上の地点で相関係数0.9以上の非常に強い相関が認められた。一方Na、Al、Si、Ca、Sc、Wの6元素については、半数以上の地点で相関係数が0.5未満と、相関が小さかった。

地点ごとに見ると、北関東の4地点(土浦、真岡、前橋、富岡)、及び富士の解析対象項目のうち半数以上で相関係数0.9以上の非常に強い相関が認められたが、日高、城南及び綾瀬の3地点、山梨県の2地点(甲府、東山梨)及び湖西では解析対象項目のうち半数以上で相関係数が0.5未満となった。

7月26-27日の真岡は他の地点とは異なり、PM_{2.5}濃度に対する無機元素成分の占める割合が約23%と特異的に高かったことが確認された。この日の真岡では、測定地点の近傍で花火大会が開催されていた。Al、K、Ca、Ti、Cr、Cu、Rb、Sb、Ba、Pb等の成分が非常に高くなっており、火薬や、炎色反応を用いて花火に着色するための成分として用いられている元素が多く含まれることから、花火大会の影響でPM_{2.5}濃度が高くなったと考えられる。

3・6 発生源寄与の推定

14項目×8発生源の発生源データを用いて、レセプターモデルの代表的な推定方法であるEPA-CMB8.2と線形計画法について、発生源寄与率の推定の比較を沿岸と内陸に分けて行った。二次粒子については、計算方法によらず、50%以上の最大寄与となり、沿岸でも内陸でもほぼ同程度の寄与が計算された。また、海塩粒子、自動車、鉄鋼工業、ブレーキ粉じんなどの発生源についても計算方法による差が小さかった。しか

し、廃棄物焼却については、CMB8.2 では一定以上の寄与が計算されたが、線形計画法では全く計算されなかった。石油燃焼の寄与は、計算方法による差が大きく、特に沿岸で差が大きくなった。全体的に二つの計算方法の結果に一定の関係は見られるが、植物燃焼の寄与は、両計算法の関係性が乏しく、特に内陸での差が顕著であった。

二つの計算法で、それぞれ長所・短所があるものの、全体的な傾向としては、CMB8.2の方が受け入れやすい結果となっている。また、計算が妥当であったかを示す評価指数も複数あり、詳細なマニュアルも整備されていることから、今後はCMB8での計算を行うこととしたい。

3・7 PM_{2.5}自動測定機の高濃度日解析

年間のPM_{2.5}常時監視データより、2014年度におけるPM_{2.5}高濃度日の発生状況について調査した。対象は9都県の116測定局である。その結果、日平均が35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えた日は990データ(延べ日数)で、このうち70 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えたのは島田の2データ(近隣の火災)のみであった。4月、5~6月、6月、7月、11月、3月に広範囲での高濃度事象が6回あり、5~6月の事象が最も規模が大きく期間も長かった。発生日数では7月が最も多かった。高濃度日発生率は、東京都が4.1%と最も高く、次いで静岡県、神奈川県であった。

常時監視の1時間値を用いた詳細解析により、4月の事象は、気温が高くOxやSO₂の濃度も高かったことから硫酸系二次粒子の生成が促進され、関東平野では南風の進入に伴って埼玉、群馬のPM_{2.5}濃度が上昇したと推察された。関東以外でも高濃度の発生が確認されており、越境汚染と地域汚染との複合的な汚染と考えられた。5~6月の事象は、黄砂を含む粒子状物質の関東圏外からの移流と活発な光化学反応による地域的な二次粒子の生成が加わり、高濃度が連続的に発生したと考えられた。7月の事象では、関東平野の中央部と東海の一部で高濃度が発生した。光化学反応による硫酸系二次粒子の影響を受けて高濃度になったと考えられた。

4 今後の課題

本調査会議は、1981年度から浮遊粒子状物質に係る調査研究を開始し、2008年度以降はPM_{2.5}に着目した新たな調査を実施してきたところである。一方で2009年には環境基準が告示され、その後、環境省より2012年には成分測定マニュアルが策定されるなど、国の動きを受け、全国の自治体では常時監視としての成分分析の体制整備が進められた。

こうした状況のもとで、本年度は昨年度と同様に常時監視としての成分分析を行った2014年度の試料について、持ち寄ったデータの解析を行うとともに、2015年度の調査を実施した。PM_{2.5}の成分分析の分析体制はほぼ整備されたことから、基本的には各自治体を実施する調査結果を持ち寄り、解析を中心とした活動に移行している。こうした中で、自治体間での分析手法の統一や精度の確保の他、PM_{2.5}が高濃度となる要因の解析手法の検討などの新たな課題も浮上している。そこで、今後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_{2.5}高濃度事例の解析手法
- ・ 年間を通じた解析(調査結果解析)方法
- ・ 自治体間の分析精度の確保(統一精度管理)

これらの事項に対して、本調査会では、高濃度事例については自動測定器による常時監視データ及び夏季以外の成分分析結果等による解析、統一精度管理試料を用いた自治体間での分析精度の確保に努めており、今後も継続的な検討が必要と思われる。また、昨年度に新たにホームページ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。