

関東 SPM 共同調査の結果について

○中込和徳（長野県環境保全研究所）

関東地方環境対策推進本部大気環境部会浮遊粒子状物質調査会議

1. はじめに

本共同調査は、昭和 56 年に南関東の 1 都 3 県 2 市による共同調査として開始された。その後、平成 12 年度に支持母体を一都三県公害防止協議会から関東地方環境対策推進本部に移し、現在では 1 都 9 県 6 市の体制で関東地域を中心とした浮遊粒子状物質（以下 SPM）の広域調査を継続している。

調査は、SPM 濃度が高濃度化しやすいと考えられる夏期と冬期について、概ね粒径 $2\mu\text{m}$ 以上の粗大粒子とそれ以下の微小粒子とに分級捕集して成分分析を行うというもので、平成元年度以降ほぼ同じ手法で実施してきた。平成 14 年度からは、それまでの一般環境を中心とした調査に加え、道路沿道においても同様の手法で調査を行い、八都県市によるディーゼル車運行規制の効果把握に努めてきた。

本報では、現在の調査手法が確立された平成元年度から 19 年度までの調査結果を総まとめし、SPM の濃度や組成の動向及び発生源寄与の推移などについて季節および粒径別に解析した結果について報告する。

2. 調査方法

調査期間は、夏期（7 月下旬～8 月初旬）、冬期（11 月下旬～12 月初旬）ともに、一般環境調査については連続した 4 日間、道路沿道調査については期間全体を 2～3 日ずつ 5 期間に分け、各期間で連続捕集した。調査地点については、平成元年度には 1 都 3 県の一般環境調査地点 12 地点であったが、その後の変遷を経て、平成 19 年度には、1 都 9 県の一般環境調査 17 地点、道路沿道調査 13 地点となった。試料の採取方法としては、一般環境調査はアンダーセンサーボリウムエアサンプラー 2 台を平行稼働し、それぞれに石英ろ紙とポリフロンろ紙を装着して、SPM を粒径 $2.1\mu\text{m}$ 未満の微小粒子と $2.1\sim 11\mu\text{m}$ の粗大粒子とに分別捕集した。道路沿道調査については、PCI（一部 MCI）サンプラーに石英ろ紙を装着し、粒径 $2.5\mu\text{m}$ 未満の微小粒子と $2.5\sim 10\mu\text{m}$ の粗大粒子とに分別捕集した。測定項目（方法）は、一般環境調査および道路沿道調査ともに、粒子濃度（重量法）、水溶性イオン成分（イオンクロマトグラフ法）、炭素成分（熱分離法）および多環芳香族炭素成分（高速液体クロマトグラフ法）であった。更に一般環境調査については発生源寄与推定のため、金属成分（放射化分析法）の分析も行った。このうち、一般環境調査の水溶性イオン成分と金属成分の分析についてはポリフロンろ紙試料を使用し、その他の項目については石英ろ紙試料を使用した。以下では本調査会議による解析結果のうち、一般環境調査結果の概要を報告する。

3. 結果および考察

3.1 粒子状物質濃度の推移

図 1 に、平成元年度から 19 年度まで継続調査した地点における粒子状物質濃度（粗大粒子濃度+微小粒子濃度）と、SPM 常時監視局の年平均値（1 都 9 県の平均値）とを合わせて示した。この図から常時監視局の年平均値には明瞭な減少傾向が見られた。一方、本調査の結果については、冬期調査では、常時監視局同様の減少傾向が明瞭に見られたが、夏期調査では、全体としては減少傾向にあるものの、年度による変動が大きく、減少の割合は明瞭ではなかった。

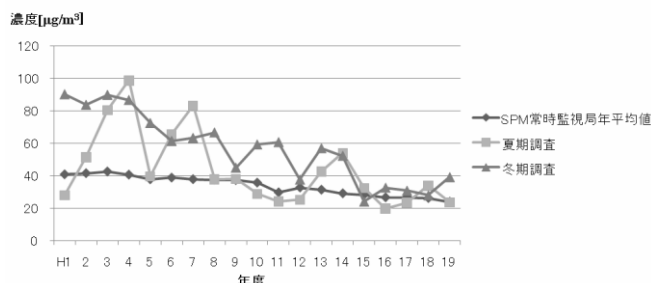


図 1 継続調査地点における粒子状物質濃度および常時監視局年平均値の推移

この夏期と冬期の減少傾向の違いは、常時監視データの季節変動パターンの推移（図 2）にも見られ、冬期に著しい SPM 濃度減少が見られたのに対して、夏期の濃度減少は小さく、季節変動パターンは、かつての冬期に最大となる経月変化から、夏期に最大となるパターンに変化した。

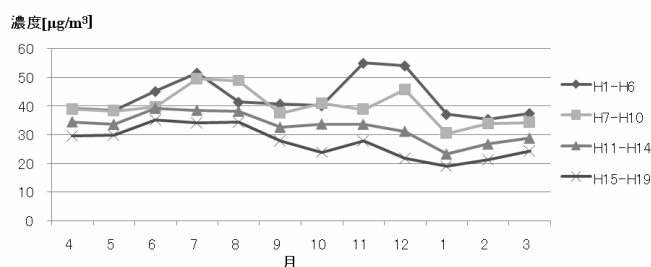


図 2 SPM 常時監視データにおける季節変動パターンの推移(1 都 9 県の平均)

また、粗大粒子濃度と微小粒子濃度の関係については、冬期は濃度レベルによらず微小粒子と粗大粒子の割合は概ね一定であったが、夏期は濃度が高くなるにつれて、微小粒子の割合が大きくなる傾向がみられた。

3.2 成分濃度および発生源寄与率の推移

表 1 に水溶性イオン成分の季節、粒径別の濃度推移の特徴を示した。Ca²⁺は一般的には道路粉じん又は土壌由来の成分であると考えられるが、いずれの季節および粒径においても

減少傾向が見られた。特に冬期の粗大粒子の減少が明瞭であった。K⁺は廃棄物焼却やバイオマス燃焼の指標と考えられるが、Ca²⁺同様いずれの季節および粒径においても減少傾向が見られた。特に冬期の微小粒子については、ダイオキシン類の排出抑制を目的とした焼却炉規制が開始された平成9年前後を境に顕著な濃度低下が見られた。同様に廃棄物焼却の指標である、冬期微小粒子中 Cl⁻も K⁺と類似した明瞭な減少傾向を示したことから、焼却炉の規制強化が両成分の減少に寄与したものと推察された。冬期の微小粒子中の NO₃⁻については、平成15年度に八都県市で実施されたディーゼル車運行規制（以下ディーゼル規制）を境に濃度減少が見られ、NO_x対策の効果と考えられた。

これらに対して二次粒子の主成分である SO₄²⁻については、何れの季節、粒径においても減少傾向は見られず、中国大陸等からの越境汚染の影響も含めて、今後の動態解明が必要であると考えられた。

表1 水溶性イオン成分の経年変化の特徴（下線は特に明瞭に減少した項目）

季節	粒径	減少傾向を示した項目
夏期	粗大	Ca ²⁺ , K ⁺ , NO ₃ ⁻
	微小	Ca ²⁺ , K ⁺ , NO ₃ ⁻ , Mg ²⁺
冬期	粗大	<u>Ca²⁺</u> , K ⁺ , Mg ²⁺
	微小	Ca ²⁺ , <u>K⁺</u> , <u>Cl⁻</u> , NO ₃ ⁻ , Mg ²⁺ , Na ⁺ , NH ₄ ⁺

炭素成分は自動車等の指標と考えられ、微小粒子側に偏在した。図3に微小粒子中の元素状炭素（EC）の濃度推移をディーゼル規制地域内/外に分けて示した。いずれの季節、地域においても、明瞭な減少傾向が見られ、特にディーゼル規制（H15）以降は季節、地域による濃度差が大幅に減少した。同様の減少傾向は有機炭素（OC）についても見られ、微小粒子中の OC/EC 比は0.6程度で概ね一定であった。

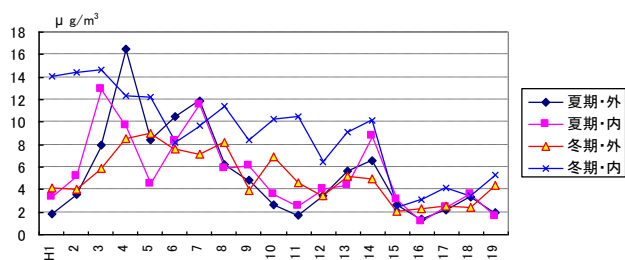


図3 微小粒子中元素状炭素（EC）濃度の推移

微小粒子の発生源寄与率（ケミカルマスバランス法）の推移を、夏期、冬期それぞれについて、図4、5に示した。夏期は二次粒子（NH₄⁺、Cl⁻、NO₃⁻、SO₄²⁻の合計）と自動車の寄与率が拮抗していたが、平成13年からは自動車の寄与率が低減傾向を示し、二次粒子が主たる要因になった。冬期は自動車の寄与率が高かったが、ディーゼル規制（H15）以降は自動車の寄与率がやや低下し、二次粒子と同程度になった。

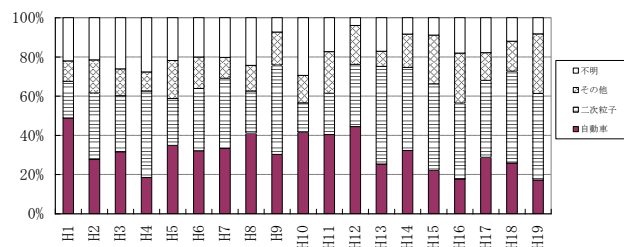


図4 夏期微小粒子の寄与率計算結果の推移（全地点平均）

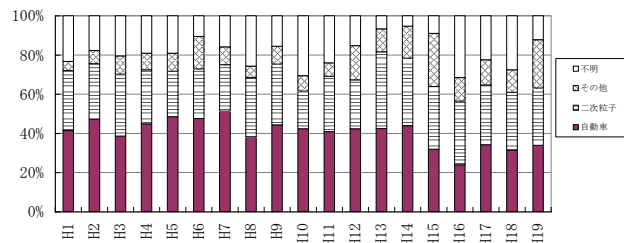


図5 冬期微小粒子の寄与率計算結果の推移（全地点平均）

3.3 因子分析による総合解析

これまで蓄積した膨大なデータを因子分析（Positive Matrix Factorization法）し、抽出された因子の長期トレンドから、粒子状物質濃度の低下要因について検討した。

冬期調査においては、自動車の影響を示す因子が大きく減少し、微小粒子濃度の低下に大きく寄与していた。これは、これまでの自動車排出ガス等に関する様々な規制の効果であると考えられた。また、平成10年頃から塩化物の寄与を示す因子にも明らかな減少傾向が見られ、廃棄物焼却炉に対する規制強化の効果であると推察された。このように、様々な法令整備によって、冬期における粒子状物質の高濃度化の主要因は明らかに抑制されていた。

一方、夏期調査においては、自動車の影響を示す因子については、冬期調査同様に明瞭な減少傾向がみられたが、その寄与は小さく、硫酸塩を要素とする二次粒子の影響を示す因子が微小粒子の動態を支配していた。この因子については、明瞭な減少傾向は見られなかった。

4. おわりに

微小粒子状物質（PM_{2.5}）については、現在、環境省による環境基準制定に向けた取り組みが本格化しており、その濃度低減に効果的な対策を検討してゆくためには、生成機構も含めた動態解明が今後の大きな課題であると考えられる。

そこで本調査会議においても、平成20年度から調査内容をリニューアルし、これまでの調査結果から明瞭な減少傾向が見られない夏期のPM_{2.5}に焦点を当て、その前駆物質であるガス状物質も含めた広域共同調査を実施している。今後も本調査を継続し、PM_{2.5}対策に資するため、その汚染機構解明に取り組んでゆく予定である。