

南関東から見た山梨県内のSPMの汚染状況

清水 源治 吉澤 一家 石井 洋亨 高橋 照美*1 日高 照泰*2 山本 敬男*3 小鳥居 哲*3 堀内 達*4

Alteration of the SPM pollution in Pref.Yamanashi compared with the south Kanto area

Genji SHIMIZU, Kazuya YOSHIZAWA, hiromichi ISHII, Terumi TAKAHASHI,
Teruyasu HIDAKA, Takao YAMAMOTO, Satoshi KOTORII and Tohru HORIUCHI

キーワード：SPM, 南関東, 山梨県

粒径 $10\mu\text{m}$ (0.01mm)以下の粒子は、その種類を問わず大気中から落下しにくいいため、SPM(浮遊粒子状物質)と呼ばれる。このSPMは呼吸によって呼吸器に沈着するだけでなく、発ガン性の強いBaP(ベンゾ(a)ピレン)などを吸着しているため、環境基準が設けられている。

ここで本県は、平成14年度からSPM計が未整備であった大気汚染測定局にこれを配備し、16年度には全測定局でSPMの測定が可能になった。ここでは、これまでに得られた県内のSPMによる汚染状況を関東平野の調査結果と比較した。また高濃度事例についても報告する。

調査方法

1. 南関東の調査結果

南関東4都県と横浜市、川崎市は、昭和58年から一都三県公害防止協議会のもとでSPMの共同調査を開始した。この調査は、SPM濃度が高くなりやすい梅雨明け後と初冬の時期に、道路や事業所の影響を直接受けない一般環境でエアサンプラーを用いて粒子を捕集し、その成分を分析して汚染の特徴や発生源寄与を推定している。

この調査にはその後本県などが参画し、現在では関東甲信静の1都9県5市が関東地方環境対策推進本部大気環境部会のもとで行う広域調査になった。ここでは南関東の粒子濃度などをこれらの報告書¹⁻³⁾から引用した。

2. 本県のSPMの測定結果

県内のSPM濃度には大気汚染測定局の値を用いた。なおここでは、エアサンプラーによる捕集から求めた濃度

を粒子濃度と定義し、測定局で得た濃度をSPM濃度とした。両者の濃度は原則的に一致する。

結果および考察

1. 本県のSPM濃度の推移

本県のSPMの測定は、平成元年度に県庁局(その後廃止)、2年度に衛公研局と大月局で始まった。現在も測定を継続している両局の年平均値と年間2%除外値(年間の日平均値のうち高い側の2%を除外した後の最高値)を表1に示した。

両局の年平均値は、測定開始年度から下がり続ける傾向にあり、中でも11年度と14年度は著しく濃度が下がった。この両年は、自動車に対する長期規制(9, 10, 11年規

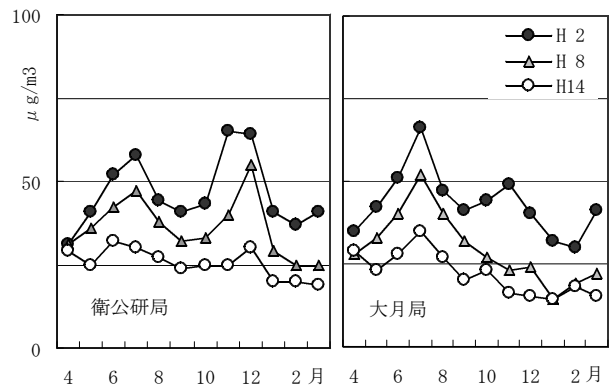


図1 衛公研局と大月局の月平均値の推移

表1 SPMの年間2%除外値と年平均値の推移(平成2~17年度)

年度		2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17
衛公研	2%除外値	126	135	116	126	112	98	82	99	86	73	75	64	56	61	61	64
	平均値	47	48	42	41	39	38	36	37	39	31	33	30	26	27	26	26
大月	2%除外値	89	85	119	75	81	77	87		82	63	77	59	64	49	50	58
	平均値	43	41	39	36	36	31	31	33	35	29	27	26	22	21	20	21

下線:環境基準(長期的評価)超過

*1 現 富士・東部保健福祉事務所 *2 現 大気水質保全課 *3 現 富士・東部林務環境事務所
*4 大気水質保全課

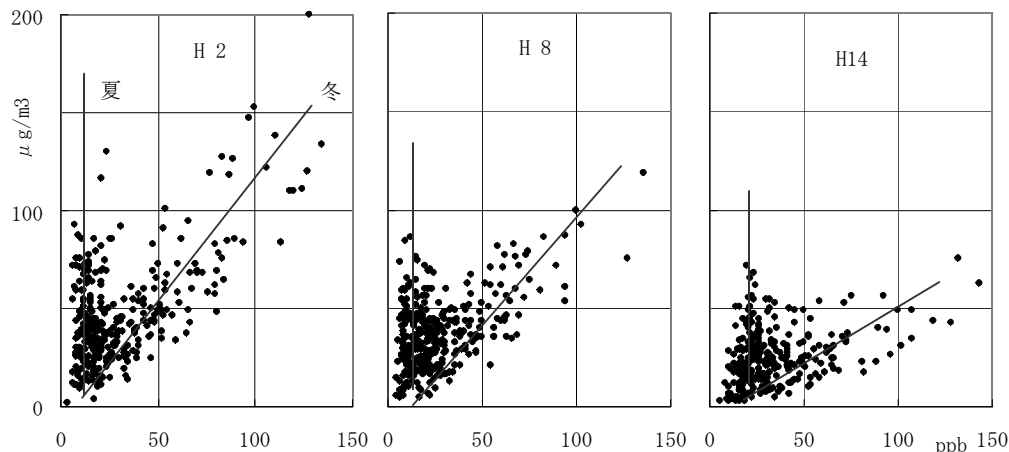


図2 衛公研局のNOx(X軸, 日平均値)とSPM(Y軸, 日平均値)の関係

制)や新短期規制(15, 16年規制)などの単体規制と8都県市の運行規制(15年)の前後の年度にあたり, 本県のみならず関東全域の濃度が下がった。

また, SPMが環境基準を満たすためには,
 ・2%除外値が $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えないこと, かつ,
 ・日平均値が2日以上連続して $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えないことが条件になる。この2%除外値についても経年的には下がり続ける傾向にあり, 短期規制(6年規制)の後には $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えることがなくなった。また長期規制後の13年度からは, 2日以上連続して日平均値が $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えて基準未達成(表1中、 $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下でアンダーラインの値)になることもなくなった。

図1に, これら規制前後の年度の月平均値を示した。2年度の衛公研局では, 梅雨明け後の7月に濃度が高く初冬の11, 12月にさらに濃度が高くなる二山型の汚染パターンが見られたが, 短期規制後の8年度はこの特徴がやや薄れ, 長期規制後の14年度はその特徴は全くなくなった。同様に大月局の初夏は, 近傍道路の交通量が増えかつオキシダント濃度が高くなるためその濃度は高くなるが⁴⁾, 14年度もその特徴は見られたものの全体の濃度は低かった。

このように両局のSPM濃度は, 自動車に対する規制が強化されたことにあわせて濃度が下がってきた。ただしNOxについては, このような規制にもかかわらず濃度が下がる傾向は見られなかった。図2に衛公研局の日平均値を示したが, NOx濃度が低くSPM濃度のみが変化する夏の時期に対して, NOx濃度が高くなるとSPM濃度も高くなる冬の時期の回帰直線の勾配は, 2年度に較べて8, 14年度は緩やかになった。また14年度のSPMは $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えることがなかったが, NOxは従前どおり100ppbを超えていた。これらは, NOxについてはその対策がSPMほどの効果を上げていないことを示していた。

2. 南関東6地点の濃度と本県の濃度

本県も参加している関東のSPM共同調査は, 広域的な課題であるSPMに対して関東地方の一般環境における粒

子組成の季節的な特徴, 地域的な特徴および主要な発生源からの負荷を明らかにすることを目的に, 現在も調査が続いている。

調査は夏期, 冬期の2回, 参加自治体がアンダーセン・エアサンプラーを用いて延べ5日間(月～金曜日、96時間)にわたり粒子を捕集し, 南関東の都県市が炭素成分などを分析し結果を解析する。また粒子を粒径 $2.1 \mu\text{m}$ を境に粗大側の粒子(粗大粒子)と微小側の粒子(微小粒子)に分級捕集することが大きな特色になっており, これらの手法は調査開始以来, 変化していない。粒子濃度は両者の和になる。

図3に各年度のSPM濃度を折れ線グラフで示した。南関東の値には, 調査を継続している6地点(平塚, 横浜, 川崎, 江東, 戸田, 市原)の算術平均値をあてた。また本県は, 4～7年度が大月(大月局), 8～17年度が甲府(衛公研局)を調査地点にしている。図には甲府の年平均値と2%除外値の推移を示したが, これらの減少傾向は南関東⁶⁾によく一致していた。

なお図中には, 調査時の粒子濃度(粗大粒子と微小粒子の和)を棒グラフで示した。粒子濃度は夏期, 冬期ともにSPMの年平均値を上回ることが多かったが, 近年はこれを下回ることが多く, これまで濃度が高くなりやすかった時期も近年は高くなりにくい状況を反映していた。

また大月は夏期の粒子濃度が南関東なみに高かったが, 冬期は明らかに低かった。甲府は夏期, 冬期ともに南関東と同程度の濃度で推移していた。これらの平均値は, 大月の夏期が $66 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (南関東 $63 \mu\text{g}/\text{m}^3$)、冬期 $46 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (同 $68 \mu\text{g}/\text{m}^3$)、甲府の夏期が $31 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (同 $33 \mu\text{g}/\text{m}^3$)、冬期 $46 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (同 $47 \mu\text{g}/\text{m}^3$)であり, 甲府の濃度は南関東の一般環境の平均値に似かよっていた。

3. 粗大粒子と微小粒子

共同調査では粒子を粗大粒子と微小粒子に分級捕集した。ここで, 粗大粒子は道路の摩耗や海水の飛散など物理的な要因で生じ, 微小粒子は化石燃料の燃焼や光化学反応など化学的な要因で生ずる。

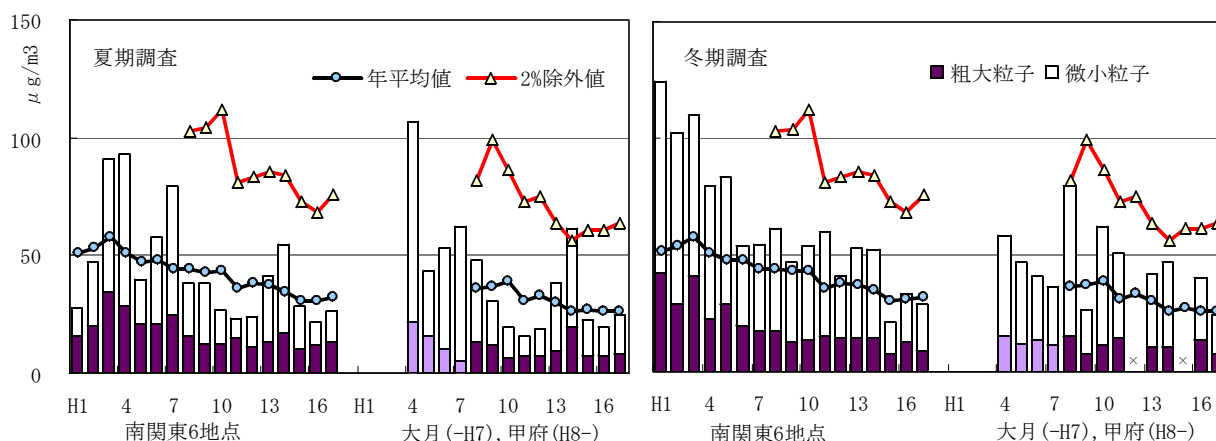


図3 南関東6地点と甲府のSPMの年平均値、2%除外値⁵⁾および共同調査時の粒子濃度
 南関東6地点:平塚、横浜、川崎、江東、戸田、市原の平均値 粒子濃度:H4~7 大月、H8~甲府

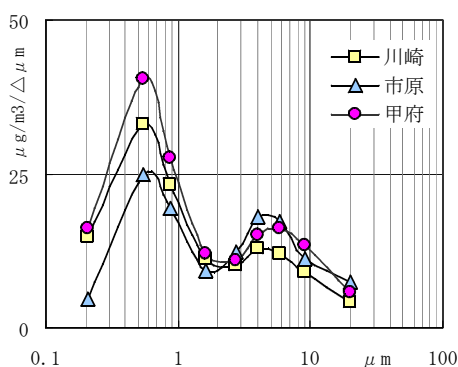


図4 9段捕集による粒子の粒径分布
 (平成9年12月22日~26日)

図3には粗大粒子と微小粒子を区分して示したが、南関東の17年度までの粗大粒子の平均値は、夏期 $18 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、冬期 $20 \mu\text{g}/\text{m}^3$ でその変動は少なかった。これに対して微小粒子は、夏期 $27 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、冬期 $43 \mu\text{g}/\text{m}^3$ で変動が大きく、微小粒子の濃度が高ければ粒子濃度も高くなっていた。微小粒子/粗大粒子の比率は夏期1.5、冬期2.2であったが、濃度が下がった15~17年度は夏期1.1、冬期1.8になり、微小粒子の減少が粒子濃度を下げていた。このような傾向は甲府でも同様であった。

なおSPM濃度の減少傾向が明らかになり始めた9年度に、粒径分布を確認するための調査を行った。結果を図4に示したが、粒径 $2\sim 3 \mu\text{m}$ を谷とする微小側の濃度が高い二山型の分布は従前どおりで、甲府も例にもれなかった。

4. 粒子中の成分と各発生源からの寄与

共同調査では、粒子中の成分を次のように区分し濃度を測定した。

- ・炭素成分:EC(元素炭素)、OC(有機炭素)
- ・水溶性成分: NH_4^+ 、 Na^+ 、 K^+ 、 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 Cl^-
- ・金属等の元素成分:Ti、Br、Mg、Cu、V、Al、Mn、Cl、Na、Ca

・多環芳香族炭化水素:BkF、BaP、BghiP
 その結果、粗大粒子、微小粒子と各成分の間には次のような関係が見られた。

- ・夏期、冬期ともに粗大粒子に多い成分
 Na^+ 、 Mg^{2+} 、 Ca^{2+} 、Al、Ca
- ・夏期、冬期ともに微小粒子に多い成分
 EC、OC、 NH_4^+ 、 K^+ 、 SO_4^{2-} 、V、Br、BkF、BaP、BghiP
- ・夏期に粗大粒子、冬期には微小粒子に多い成分
 NO_3^- 、 Cl^-
- ・粗大粒子、微小粒子に差がない成分
 Mn、Cu

ここで、粗大粒子中の Na^+ は海塩、Alは土壌や道路粉じん由来する。微小粒子に多いECは自動車(ディーゼル車)、Vは重油燃焼、Kは廃棄物焼却などの指標成分になっており、 NH_4^+ や SO_4^{2-} 、 NO_3^- と微小粒子中の Cl^- は二次粒子になる。夏期に粗大粒子中に多い NO_3^- は、 $\text{HNO}_3 + \text{NaCl} \rightarrow \text{NaNO}_3 + \text{HCl}$ の反応で生ずる。また冬期の微小粒子中に多かった Cl^- は、近年その濃度が下がってきた³⁾。

共同調査ではこのような成分を用いて、各発生源からの寄与を計算している。これによれば、重油燃焼や廃棄物焼却の寄与は粗大粒子、微小粒子ともに小さく、粗大粒子では道路粉じんや海塩(沿岸部)、自動車、二次粒子の寄与があった。微小粒子では自動車と二次粒子が大部分を占めており、この両者は粒子全体に占める寄与も大きかった。

図5に微小粒子に対する自動車の寄与率を示した。南関東の夏期はこれまで、二次粒子が多くなれば微小粒子濃度も高くなるため相対的に自動車の寄与が小さくなり、逆に微小粒子濃度が低ければ自動車の寄与が大きくなった。しかし図中円で囲んだ15~17年度はこの例から外れて、微小粒子濃度が低い時も自動車の寄与は大きくならなかった。また冬期は、二次粒子と自動車の寄与はほぼ一定で、自動車は40~50%の範囲にあった。しかし冬期も夏期同様に15~17年度はこの例から外れて、自動車の寄与は30%以下と低い値になった⁶⁾。

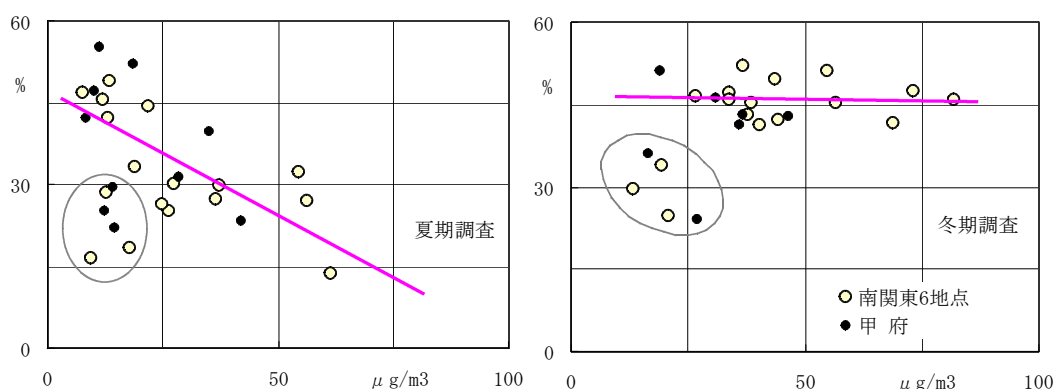


図5 自動車の微小粒子に対する南関東6地点⁶⁾と甲府の寄与率
(南関東6地点:平成元~16年度、甲府:平成9~16年度、円内は15~17年度)

表2 南関東と本県の粒子濃度とEC濃度の調査事例

区分	共同調査						本県の単独調査			
	H4 夏期		H8 夏期		H15 夏期		H15.9.1~9.5			
地点	南関東	大月	南関東	甲府	南関東	甲府	県庁	韮崎	石和	大月
粒子濃度	93	44	38	52	29	21	35	29	28	35
EC濃度	11.0	14.3	7.5	9.7	3.6	2.6	4.1	2.3	2.0	4.5
自動車の寄与%	21	58	35	33	22	22	21	14	13	23
区分	H4 冬期		H8 冬期		H15 冬期		H16.1.16~1.20			
地点	南関東	大月	南関東	甲府	南関東	甲府	県庁	韮崎	石和	大月
粒子濃度	79	57	61	80	21	—	41	29	45	17
EC濃度	16.3	16.6	14.7	20.3	2.6	—	5.2	4.2	4.8	4.0
自動車の寄与%	37	52	43	46	22	—	23	26	19	42

濃度: $\mu\text{g}/\text{m}^3$

図中に甲府の自動車の寄与率も示したが、南関東の夏期、冬期同様に15~17年度の自動車の寄与は小さかった。南関東6地点を含む8都県市では15年10月からディーゼル車の運行規制条例を施行している。このため黒煙(EC)を排出する大型バスやトラックが見られなくなったが、自動車の寄与率低下はその効果と考えられ⁷⁾、その影響は本県にも及んでいた。表2に本県の調査事例を示した。15年9月の調査ではEC濃度が低く、この濃度から求めた自動車の寄与率は南関東同様に13~23%と低かった。また16年1月の調査でも特に粒子濃度が低かった大月を除いて寄与率が8年度のような40~50%の範囲に入ることにはなかった。

なおこの共同調査から、4~7年度の大月では夏期のEC濃度が南関東に比べて特に高いことがわかった。また9年度に行った長寿命核種の元素分析⁸⁾では甲府のAu濃度が $0.030 \mu\text{g}/\text{m}^3$ と調査地点の中で最も高いこともわかった。このAuは粗大粒子に偏在していることから、何らかの物理的な要因で生じていることが考えられた。

5. 県内各地のSPM濃度

本県では衛公研局と大月局でSPMの測定を続けてきた。しかしこの2局のみでは県下の汚染状況が十分に把

握できないため、14年度からSPM計の配備を進め16年度には完備した。

図6に測定局の位置と通年値が得られた17年度の年平均値と2%除外値を示した。年平均値は県庁局(自動車排ガス局)が $30 \mu\text{g}/\text{m}^3$ と南関東の一般環境なみに高く、次いで衛公研局など盆地内の測定局となった。また富士川下流域の南部局や県東部の上野原局~吉田局はさらに濃度が低く、年平均値には盆地内とその他の地域との間に明らかな差が見られた。2%除外値は、国道20号線(甲府バイパス)などの影響を受ける石和局が $90 \mu\text{g}/\text{m}^3$ と高く、石和局を除いた盆地内の測定局は $60\sim 80 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、県東部などの測定局は $50\sim 70 \mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。

図7に17年度の各測定局の月平均値を示した。月平均値は7,8月にピークを有する一山型の汚染パターンになり、図1の大月局に似た濃度変化になっていた。図7中、最も濃度が高かったのは7,8月ともに石和局で、2%除外値は $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えなかったが日平均値が2日連続して $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えたため、環境基準超過となった。

6. 県内のSPMの高濃度事例

本県も含めた関東地域のSPM濃度は現在も下がり続けており、環境省の集計⁹⁾では17年度の全国の一般環境に

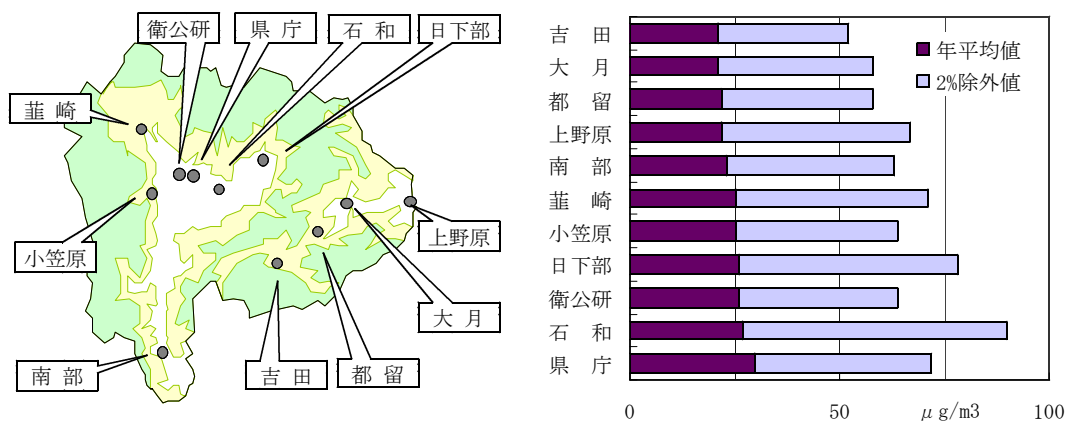


図6 県内の各測定局の位置と平成17年度の2%除外値

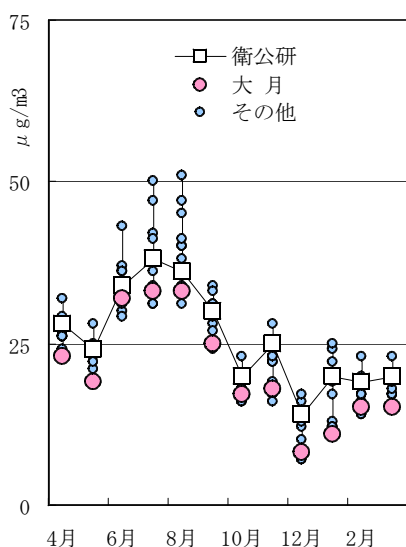


図7 平成17年度の各測定局の月平均値

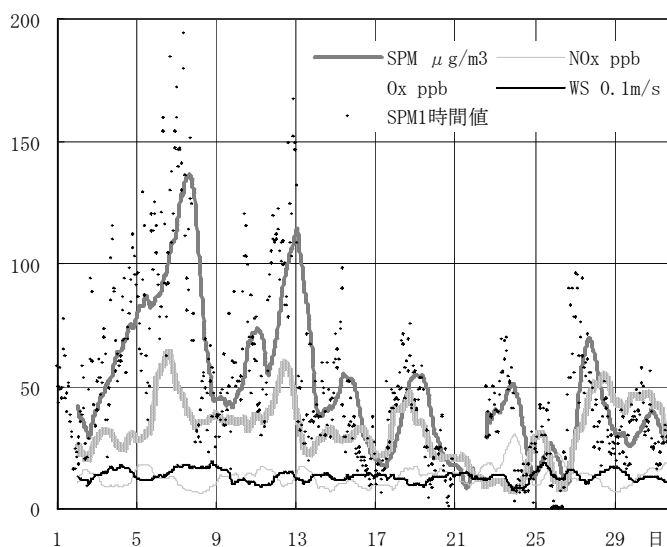


図8 石和局の各測定項目の24時間移動平均(平成17年8月)

おける環境基準の達成率は96%であった。しかし関東8都県(本県を含む)ではまだ6都県が非達成局を有しており、本県もこれに該当した。この非達成局の多くは日平均値が2日連続して100 μg/m³を超えたためである。

ここで、非達成となった石和局の日平均値は8月6日が112 μg/m³、7日が119 μg/m³であった。図8に、8月の各測定項目の24時間移動平均とSPMの1時間値を示したが、1時間値は7日10時に194 μg/m³と最も高くなった。各時刻までの24時間移動平均は3~4日ごとに高濃度になる周期的な変化がみられ、6~7日と12~13日のピークは特に高かった。あわせて示した二次粒子生成の指標になるOxのピークもこれに一致し、SPMが高濃度になった時間帯は二次粒子の生成が進みややすい状況にあった。SPMの主要成分は自動車排出粒子と二次粒子であるが、石和局ではこのような二次粒子による広域的な汚染に近傍道路の影響が加わって、濃度が上昇したと考えられた。

なおこれまでの調査^{2,4)}によれば、大月局ではOxが高濃度になった場合SPMも高濃度となり、二次粒子である硝酸塩(NO₃⁻)が高濃度になった。これらは周期的な日変化

を繰り返したが、これとは無関係に硫酸塩(SO₄²⁻)濃度は3~4日周期で変化した。硫酸塩は大陸からの移流の指標成分とされるが、今回の高濃度事例もその周期が似ていることから硫酸塩による濃度上昇が示唆された。

またSPMの濃度上昇時と下降時は風が強かったが、その間の高濃度の時間帯の風は弱く、これが長引けば高濃度の状態も長くなる。ここで24時間移動平均は一日分の平均値の推移を示すが、この値が100 μg/m³を連続して超過する時間数が25時間以上になることが2日連続超過の必要条件になる。石和局のこの時間数は6~7日が36時間、12~13日が17時間であったが、風の弱い時間の長短によりこの差が生じていた。

図9に8月4日~9日の各測定局のSPMの24時間移動平均を示した。この値は石和で最も高く、次いで南部、日下部、韮崎の順序になった。また各測定局の移動平均が最高になった時刻は盆地の北部や北東部ほど遅いことから、6日午後~7日夜までの弱い南寄りの風によって汚染気塊が静岡方面から盆地内部に運ばれたと推測できた。

なお、24時間移動平均の100 μg/m³超過の継続時間は、

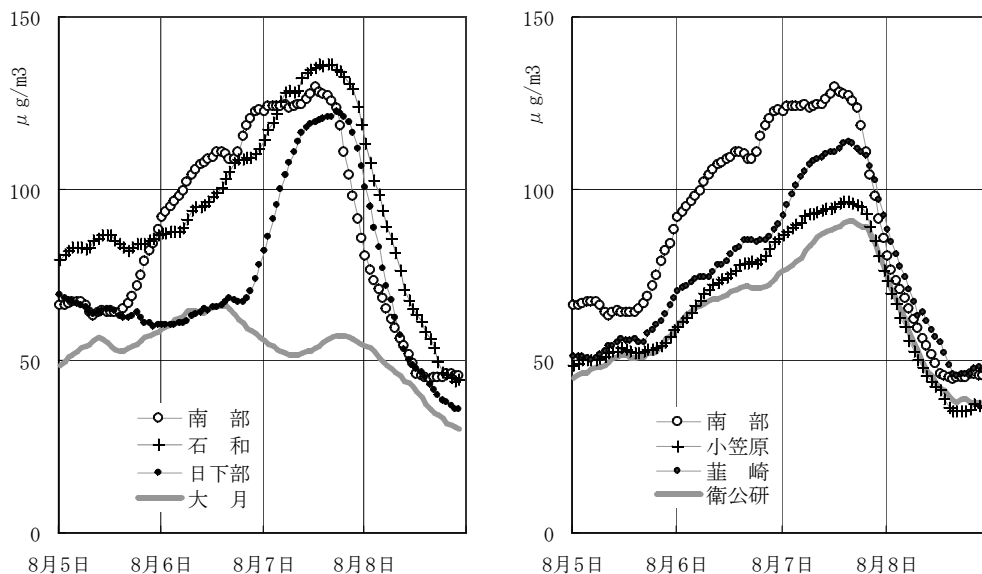


図9 各測定局のSPMの24時間移動平均（平成17年8月）

南部局で39時間、韮崎局、日下部局は19時間であった。南部局は石和局の継続時間を上回ったが、7日の濃度が急速にさがったため、日平均値の $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 超過は6日のみとなって環境基準を満たした。この期間、県東部の大月局などの濃度は低いままで、高濃度になったのは盆地内に限られた。

このように各測定局にSPM計が配置されたことにより、県内各地の汚染状況が把握できるようになった。さらに今回の石和局のように高濃度の状態が続いた場合、これが局地的な汚染なのか否かも、容易に判断できるようになった。

まとめ

県下の全測定局にSPM計が配置され、その汚染状況が把握できるようになった。そこで、本県も参画している関東地域の共同調査の結果を用いながら、その汚染状況の推移や特徴を整理し、本県の状況を南関東の一般環境測定地点（平塚、横浜、川崎、江東、戸田、市原）の平均値と比較した。あわせて高濃度事例を報告した。

- 1) SPM計が配置されていた衛公研局と大月局のSPM濃度は自動車に対する規制の強化とともに濃度が下がったが、 NO_x にはこのような変化はみられなかった。
- 2) 南関東の一般環境でもその濃度は下がっており、甲府の濃度推移は南関東によく一致していた。
- 3) 共同調査では粒子を粗大粒子と微小粒子に分級捕集したが、近年は微小粒子の濃度が下がってきた。この傾向は甲府でも同様であった。
- 4) 粒子濃度の多くを占める微小粒子に対する発生源の寄与は自動車と二次粒子が大きかった。しかし甲府も含めた南関東では自動車の寄与が小さくなった。

5) 17年度の県内のSPM濃度は、県庁局が南関東の一般環境なみに高かったが、盆地内の他の測定局はこれより低く、富士川下流域や県東部ではさらに低かった。

6) また石和局では環境基準非達成となったが、広域的な汚染により日平均値が2日連続して $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えたためであった。

引用文献

- 1) 一都三県公害防止協議会：平成元～6年度南関東浮遊粒子状物質合同調査結果報告書（各年度）
- 2) 一都三県公害防止協議会：平成7～10年度関東浮遊粒子状物質合同調査結果報告書（各年度）
- 3) 関東地方環境対策推進本部大気環境部会：平成11～16年度関東浮遊粒子状物質合同調査結果報告書（各年度）
- 4) 清水源治、高橋照美：山梨県大月における浮遊粒子状物質のキャラクターゼーション、第38回大気環境学会講演要旨集、618(1997)
- 5) 環境省水・大気環境局：大気汚染状況報告書（各年度）
- 6) 内藤季和：浮遊粒子状物質のトレンド解析と発生源寄与の推定について、平成18年度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、講演会資料（2007）
- 7) 小山恒人：関東の道路沿道における $\text{PM}_{2.5}$ の経年的な濃度変動、第47回大気環境学会、特別集会資料（2006）
- 8) 鎌滝裕輝：南関東における大気エアロゾルのキャラクターゼーション（第14報）、第38回大気環境学会講演要旨集、619(1997)