

平成17年度浮遊粒子状物質 合同調査報告書

関東における大気エアロゾルのキャラクタリゼーション（第23報）

平成19年3月

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

まえがき

環境省の「平成 17 年度大気汚染状況について」によれば、全国の浮遊粒子状物質の長期的評価による環境基準達成率は、一般局で 96.4%、自排局 93.7%となり、15 年度が一般局 92.8%、自排局 77.2%、16 年度が一般局 98.5%、自排局 96.1%であり、昨年度に比べやや減少した。これは「環境基準を超える日が 2 日以上連続することにより非達成」になった測定局がやや増加したことによるものと考えられる。また年平均値においては、近年ゆるやかな改善傾向がみられています。なお、山梨県を含む関東地域では、8 都県のうち 6 都県が非達成局を有し、この地域では依然として浮遊粒子状物質による汚染が広範囲に及んでいることが示されています。

浮遊粒子状物質は、事業所や自動車などの人為起源や黄砂に代表される自然起源など多様な発生源から大気中へ放出されます。また大気中においては、硫黄酸化物や窒素酸化物などのガス状物質からも二次的に生成されるなど、光化学反応を含めその挙動は複雑です。さらに関東地域では、都市部や非都市地域を問わず内陸部の広い地域で高濃度現象がしばしば観測されるなどの特徴を有しています。

このような中、関東地域を中心とした浮遊粒子状物質に対する広域的な取り組みは、これまでに変遷を伴っていますが、1 都 7 県 3 市（東京都、神奈川県、千葉県、埼玉県、茨城県、栃木県、群馬県、山梨県、横浜市、川崎市、千葉市）で構成された「関東 SPM 検討会」において実施されてきました。その後、平成 12 年度に「関東地方環境対策推進本部大気環境部会」の中に「浮遊粒子状物質調査会議」が組織されたことに伴い、長野県と静岡県が加わり、さらに平成 15 年度はさいたま市、平成 18 年度には静岡市を加え、現在 1 都 9 県 5 市の体制で浮遊粒子状物質の汚染実態や発生源把握及び情報交換を目的とした広域共同調査に取り組んでいます。

本報告書では平成 17 年度に実施した共同調査の結果について、経年的な動向を含めて取りまとめております。また、平成 15 年 10 月からは南関東の 1 都 3 県においてディーゼル車の運行規制が実施されたことにより、関東地域における浮遊粒子状物質の発生量が少なくなったともいわれていますが、その影響を確認するとともに汚染の原因を究明することが今後、重要と思われます。この報告書が浮遊粒子状物質問題についての一資料として広く活用され、また忌憚のないご指導やご助言をいただければ幸いです。

共同調査の実施及び報告書の取りまとめにあたり、ご協力をいただいた関係各位に心から感謝申し上げます。

平成 18 年度 浮遊粒子状物質調査会議幹事

茨城県生活環境部環境対策課

茨城県霞ヶ浦環境科学センター大気環境研究室

平成17年度 調査会議担当者

茨城県生活環境部環境対策課	山田 功
茨城県霞ヶ浦環境科学センター	岡田 和則
栃木県生活環境部環境局環境管理課	金田 治彦
栃木県保健環境センター	齋藤由実子
群馬県環境生活部環境保全課	細野 隆司
群馬県衛生環境研究所	熊谷貴美代 飯島 明宏
埼玉県環境部青空再生課	相沢 和哉
埼玉県環境科学国際センター	米持 真一 梅沢夏実
千葉県環境生活部大気保全課	針谷 謙一
千葉県環境研究センター	内藤 季和 水上 雅義
東京都環境局環境改善部計画課	竹永 裕二 井筒 春生
東京都環境科学研究所	飯村 文成 三矢 律子
神奈川県環境農政部大気水質課	保坂 由文
神奈川県環境科学センター	小山 恒人
静岡県環境森林部生活環境室	増田 敦子
静岡県環境衛生科学研究所	篠原英二郎
山梨県森林環境部大気水質保全課	堀内 達
山梨県衛生公害研究所	清水 源治 山本 敬男
長野県生活環境部地球環境課	二村 大輔
長野県環境保全研究所	中込 和徳
横浜市環境創造局環境保全部規制指導課	数野 賢治
横浜市環境科学研究所	白砂裕一郎
川崎市環境局公害部環境対策課	安倍 悠史
川崎市公害研究所	山田 大介
千葉市環境保全部環境規制課	平松 茂樹
千葉市環境保健研究所	坂元 宏成 加藤 啓史
さいたま市環境経済局環境部環境対策課	石井 弘和 須田 幸子

目 次

I 本 編	
1 目 的	1
2 調査方法	1
2. 1 調査期間	1
2. 2 参加自治体および調査地点	1
2. 3 試料の捕集方法および測定方法	3
3 調査期間中の気象概況	4
3. 1 夏期調査	4
3. 2 冬期調査	4
4 調査結果	8
4. 1 粒子状物質濃度	8
4. 2 水溶性成分濃度	13
4. 3 炭素成分濃度	24
4. 4 多環芳香族炭化水素成分濃度	30
4. 5 金属等の元素成分濃度	34
4. 6 発生源寄与の推定	38
4. 7 道路沿道調査について	45
5 まとめ	64
6 今後の課題	66
II 資料編	
1. 浮遊粒子状物質採取要領	67
2. 測定方法	69
3. 調査期間の常時監視データ	71
4. 各成分濃度測定結果	77
5. 常時監視データおよび粒子状物質成分濃度間の関係	84
6. 調査地点の概況	89

I 本編

1 目的

広域的な課題である浮遊粒子状物質に対する取り組みの一環として、関東地方の自治体が共同して調査を行う。

調査は、光化学反応によって浮遊粒子状物質が高濃度になりやすい夏期と大気が安定して高濃度になりやすい冬期に実施する。これにより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。また、道路沿道で調査を行いディーゼル自動車規制の強化伴う汚染状況の変化を把握する。

さらにこれまでの共同調査の結果を踏まえて、浮遊粒子状物質の濃度や組成の動向および発生源寄与の推移などについて検討する。

2 調査方法

2.1 調査期間

夏期、冬期ともに、一般環境の調査は延べ5日間(月～金曜日)、道路沿道における調査は延べ12日間(一般環境調査の期間を含む月～翌週金曜日)とした。道路沿道の調査は、浮遊粒子状物質のサンプリング周期によって①～⑤に区分した。これらの期間を表2-1-1に示した。

表2-1-1 調査期間

区分	調査名	調査期間
夏期調査	一般環境調査	平成17年 7月 25日(月)～7月 29日(金)
		平成17年 7月 25日(月)～8月 5日(金)
	道路沿道調査	期間 ① 7月 25日(月)～7月 27日(水)
		② 7月 27日(水)～7月 29日(金)
		③ 7月 29日(金)～8月 1日(月)
		④ 8月 1日(月)～8月 3日(水)
		⑤ 8月 3日(水)～8月 5日(金)
区分	調査名	調査期間
冬期調査	一般環境調査	平成17年12月 5日(月)～12月 9日(金)
		平成17年11月 28日(月)～12月 9日(金)
	道路沿道調査	期間 ① 11月 28日(月)～11月 30日(水)
		② 11月 30日(水)～12月 2日(金)
		③ 12月 2日(金)～12月 5日(月)
		④ 12月 5日(月)～12月 7日(水)
		⑤ 12月 7日(水)～12月 9日(金)

備考 冬期一般環境調査の水戸の調査期間は、平成17年11月28日(月)～12月2日(金)

2.2 参加自治体および調査地点

(1) 参加自治体

調査には、関東地方の次の1都9県4市が参加した。

神奈川県、東京都、千葉県、埼玉県、茨城県、栃木県、群馬県、長野県、山梨県、静岡県の各都県及び横浜市、川崎市、千葉市、さいたま市の各市

(2) 調査地点

一般環境の調査地点を表2-2-1と図2-2-1に、道路沿道の調査地点を表2-2-2と図2-2-2

に示した。各調査地点周辺の状況は「II 資料編」に示した。

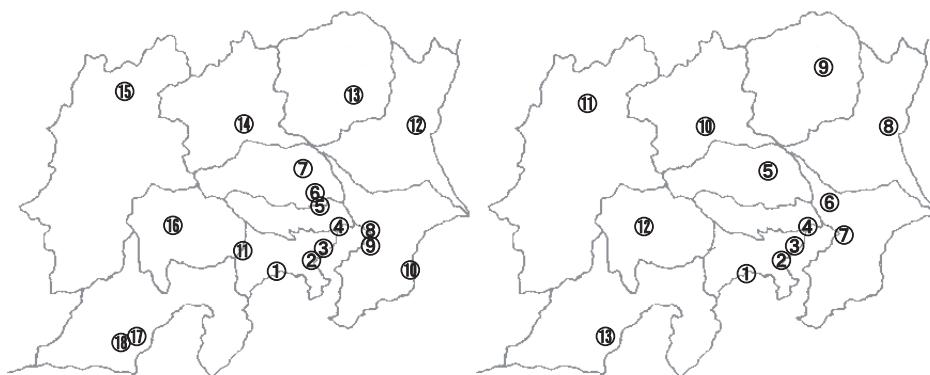


図2-2-1 一般環境の調査地点

図2-2-2 道路沿道の調査地点

表2-2-1 一般環境の調査地点

番号	地 点 名	担当自治体	場 所
1	平塚	神奈川県	神奈川県環境科学センター
2	横浜	横浜市	横浜市環境科学研究所
3	川崎	川崎市	川崎市公害研究所
4	江東	東京都	東京都環境科学研究所
5	戸田	埼玉県	埼玉県戸田蕨保健所
6	さいたま	さいたま市	さいたま市役所
7	騎西	埼玉県	埼玉県環境科学国際センター
8	千葉	千葉市	千葉真砂測定局
9	市原	千葉県	市原岩崎西測定局
10	一宮	千葉県	一宮東浪見測定局
11	犬越路	神奈川県	国設丹沢酸性雨測定所
12	水戸	茨城県	茨城県環境監視センター
13	河内	栃木県	栃木県保健環境センター
14	前橋	群馬県	群馬県衛生環境研究所
15	長野	長野県	長野県環境保全研究所
16	甲府	山梨県	山梨県衛生公害研究所
17	藤枝	静岡県	藤枝自排測定局
18	島田	静岡県	島田市役所測定局

表2-2-2 道路沿道の調査地点

番号	地 点 名	担当自治体	場 所
1	平塚松原	神奈川県	松原歩道橋自排局
2	横浜滝頭	横浜市	磯子区滝頭自排局
3	川崎池上	川崎市	池上新田公園前自排局
4	江東亀戸	東京都	江東区亀戸自排局
5	鴻巣	埼玉県	鴻巣市天神自排局
6	柏大津ヶ丘	千葉県	柏市大津ヶ丘自排局
7	千葉市役所	千葉市	千葉市役所自排局
8	自排水戸	茨城県	水戸大工町自排局
9	矢板市片岡	栃木県	矢板市片岡公民館自排局
10	国設前橋	群馬県	国設前橋自排局
11	更埴 I C	長野県	更埴 I C自排局
12	山梨県庁	山梨県	山梨県庁自排局
13	藤枝	静岡県	藤枝自排測定局

表2-3-1 捕集ろ紙の種類と測定項目

区分	捕集ろ紙	項目	担当自治体
一般環境調査 微小粒子 粗大粒子	石英繊維ろ紙 (PALLFLEX 2500QAT-UP)	粒子濃度	横浜市
		炭素成分	川崎市
		多環芳香族炭化水素	千葉県
	ポリフロン繊維ろ紙 (ADVANTEC ポリフロン)	粒子濃度	横浜市
		金属等の元素成分	千葉県 埼玉県
		水溶性成分	埼玉県
道路沿道調査 PM2.5 PM(2.5-10)	石英繊維ろ紙 (PALLFLEX 2500QAT-UP)	粒子濃度	横浜市
		炭素成分	神奈川県
		水溶性成分	神奈川県
		多環芳香族炭化水素	千葉県

表2-3-2 各成分の測定方法の概要

成 分	炭素成分	金属等の元素成分	水溶性成分	多環芳香族炭化水素
分析法	熱分離法	放射化分析法	イオンクロマトグラフ法	高速液体クロマトグラフ法
分析項目	元素状炭素 有機炭素	V, Al, Mn, Cl, Na Ca, Br, Ti, Mg, Cu (短寿命核種)	Na ⁺ , NH ₄ ⁺ , K ⁺ , Mg ²⁺ , Ca ²⁺ , Cl ⁻ , NO ₃ ⁻ , SO ₄ ²⁻	B[k]F, B[a]P B[ghi]P
条件等	He雰囲気下600°C で元素状炭素と 有機炭素を分離	日本原子力研究所 東海研究所原子炉 で放射化分析	純水/エタノール にて超音波抽出	ジクロロメタンにて 超音波抽出

2.3 試料の捕集方法および測定方法

(1) 試料の捕集方法

一般環境調査では、アンダーセン・ロウボリウム・エアサンプラーにより2.1～11 μm(粗大粒子)と2.1 μm未満(微小粒子)に分別し捕集した。この調査では2台のサンプラーを同時に稼働し、それぞれに石英繊維ろ紙とポリフロン繊維ろ紙を装着した(表2-3-1)。

道路沿道調査では、石英繊維ろ紙を装着した東京ダイレック社のPCIサンプラーにより2.5 μm以下(PM2.5)と2.5～10 μm(PM(2.5-10))の粒子を分別捕集した。

試料の捕集方法の詳細は、「II 資料編」に示した。

(2) 測定項目と測定方法

一般環境調査では、石英繊維ろ紙について炭素成分と多環芳香族炭化水素を測定し、ポリフロン繊維ろ紙について金属成分と水溶性成分を測定した。道路沿道調査では、石英繊維ろ紙について炭素成分と水溶性成分と多環芳香族炭化水素を測定した。表2-3-1にこれらの区分と測定の担当自治体を示した。

各成分の測定方法の概要を表2-3-2に示した。その詳細は、「II 資料編」に示した。

3 調査期間中の気象概況

調査期間は道路沿道調査にあわせて5つに区分(一般環境調査は夏期を期間①、②に、冬期を期間④、⑤に分割)し、午前10時を起点に各期間の風速等の観測値を集計した(表3)。観測値¹⁾は、各気象観測所(横浜、東京、千葉、熊谷、水戸、宇都宮、前橋、長野、甲府、静岡)の時別値(時間値)を気象庁のホームページで閲覧した。また、地上天気図²⁾(午前9時、図3-1、図3-2)も同様にホームページから転載した。

3.1 夏期調査

関東は平年より遅い7月18日頃に梅雨が明け、太平洋高気圧におおわれた。調査期間前半は台風7号が房総半島に上陸し、大雨になったが、台風通過後は気温が上昇し、期間②、③、⑤に光化学スモッグ注意報が発令された調査地点もあった(表3)。

1) 期間①：7月25日(月)～7月27日(水) [一般環境調査]

25日は晴れ、その後は台風7号の影響を受け大荒れの天気。

2) 期間②：7月27日(水)～7月29日(金) [一般環境調査]

台風一過、西寄りの風に覆われ関東地方を中心に気温が上昇。

3) 期間③：7月29日(金)～8月1日(月)

引き続き気温が上昇、30,31日は雷雨に見舞われた。

4) 期間④：8月1日(月)～8月3日(水)

高気圧の影響下にあり、概ね晴れ。

5) 期間⑤：8月3日(水)～8月5日(金)

概ね晴れの状態が継続、4,5日に気温が上昇。

3.2 冬期調査

調査期間の始めは冬型気圧配置が緩み小春日和、期間半ばには冬型気圧配置に戻りよく晴れたが、後半には強い冬型気圧配置に覆われ、関東で降雪が見られた。

1) 期間①：11月28日(月)～11月30日(水)

冬型の気圧配置が緩み、暖かい日が続き、概ね晴れ。

2) 期間②：11月30日(水)～12月2日(金)

冬型の気圧配置が戻り 高気圧に覆われ、晴れ。

3) 期間③：12月2日(金)～12月5日(月)

冬型の気圧配置が強まり関東は概ね晴れ。

4) 期間④：12月5日(月)～12月7日(水) [一般環境調査]

引き続き強い冬型の気圧配置に覆われ、晴れ。

5) 期間⑤：12月7日(水)～12月9日(金) [一般環境調査]

二つの低気圧が発生、概ね晴れたが一部地域では降雪が見られた。

1) 観測値：電子閲覧室 <http://www.data.kishou.go.jp/etrn>

2) 天気図：こんにちは！気象庁です！ <http://www.kishou.go.jp/jma-magazine/>

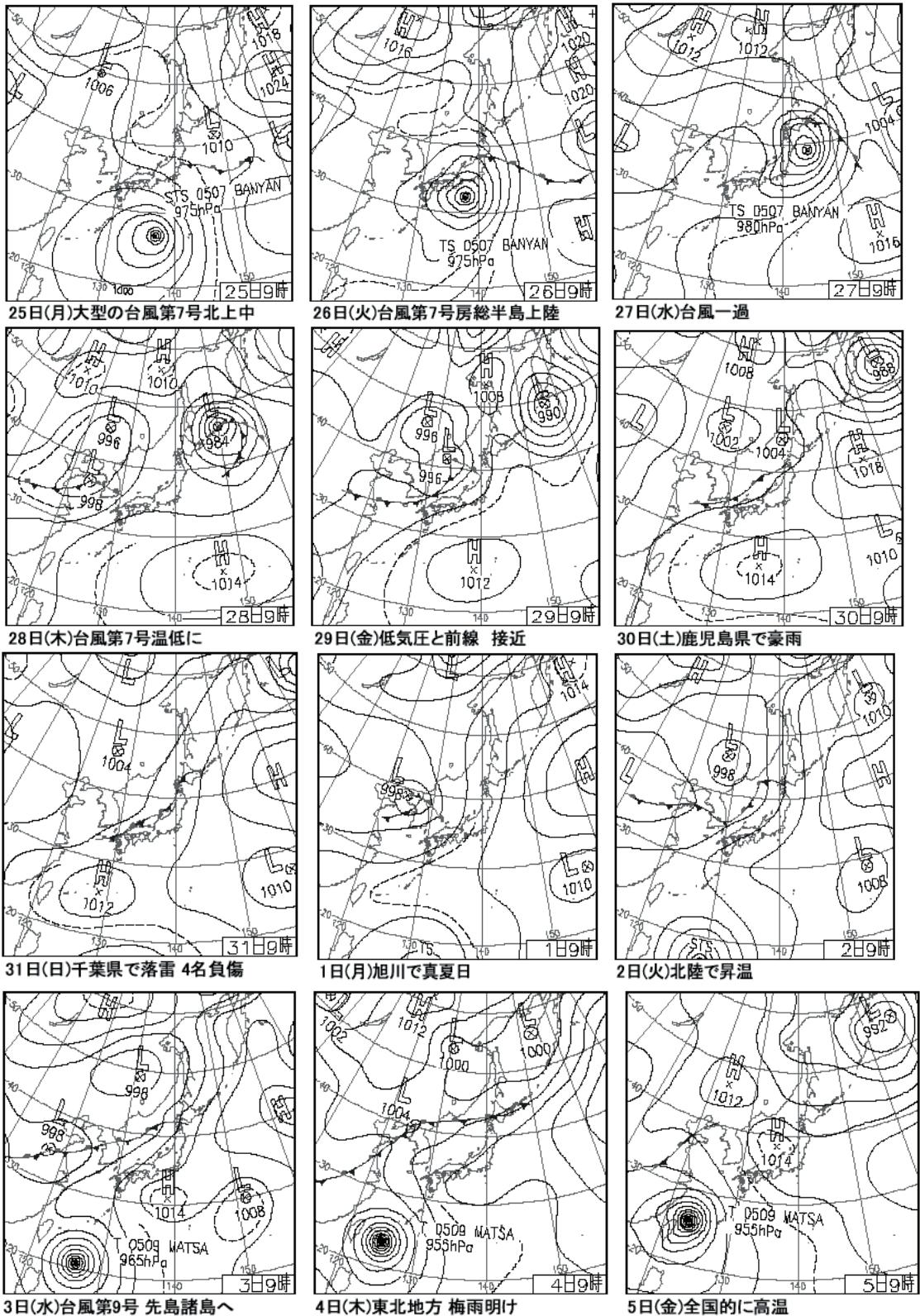


図3-1 夏期調査時の天気図 (平成17年7月25日～8月5日)

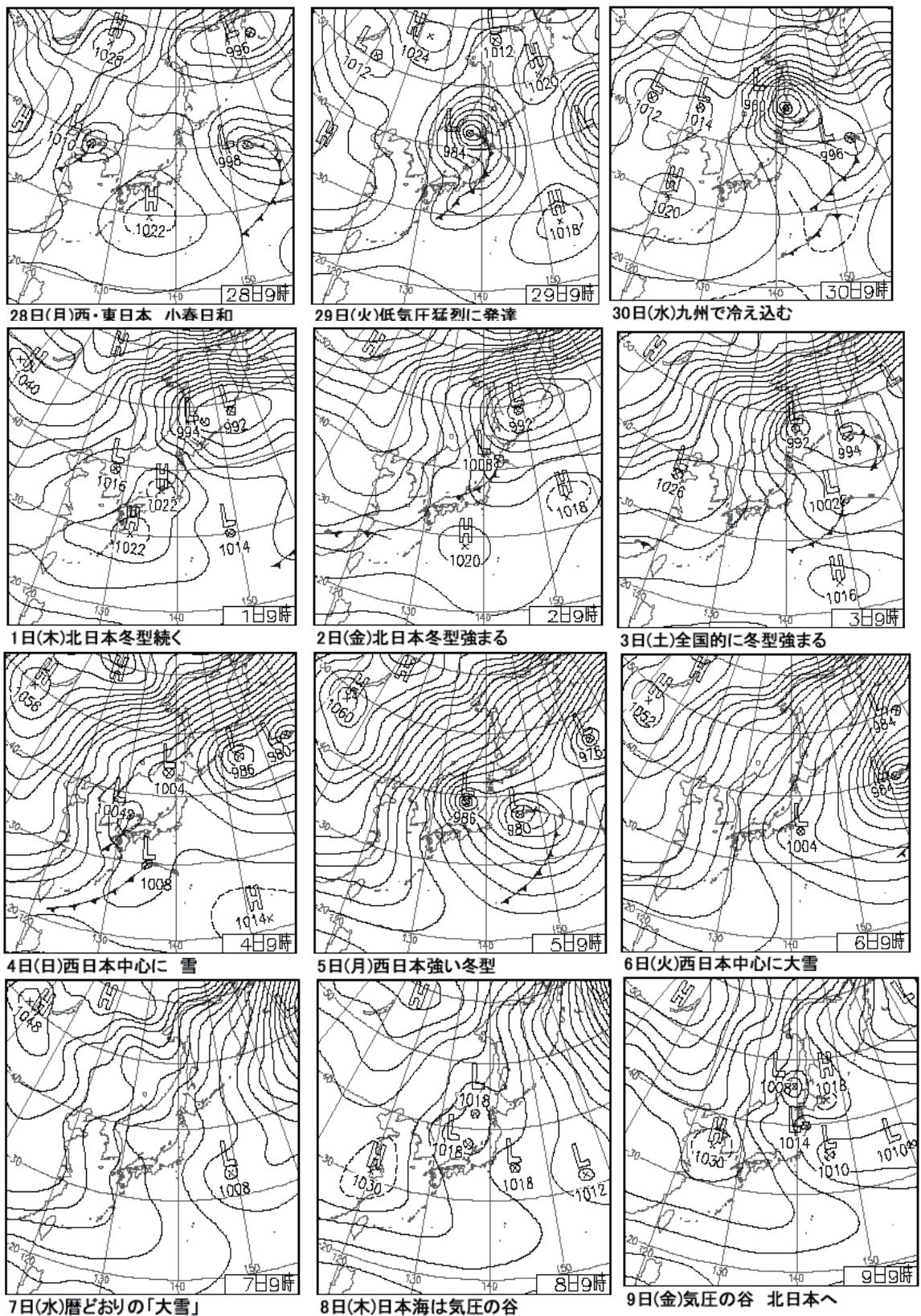


図3-2 冬期調査時の天気図 (平成17年11月28日～12月9日)

4 調査結果

ここでは、「4.1 粒子状物質濃度」から「4.6 発生源寄与の推定」で一般環境調査の結果を、「4.7 道路沿道調査について」で道路沿道調査結果をまとめた。

4. 1 粒子状物質濃度

本調査の粒子状物質の捕集では、イオン成分及び金属成分分析用としてポリフロンろ紙を、炭素成分及び多環芳香族炭化水素成分分析用として石英ろ紙を使用した。ポリフロンろ紙及び石英ろ紙により捕集された粒子状物質濃度（[粒子状物質濃度] = [粗大粒子濃度] + [微小粒子濃度]、以下 TSP 濃度と略す）の散布図及び回帰直線を図 4-1-1 に示す。

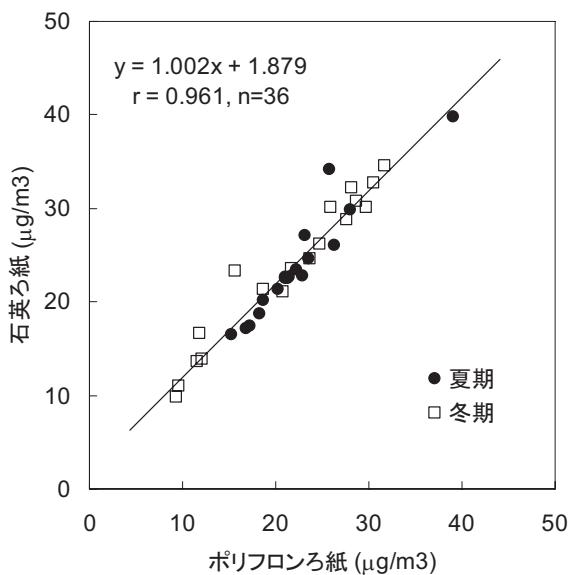


図 4-1-1 2種類のろ紙の TSP 濃度の関係

2種類のろ紙の TSP 濃度の回帰直線は、 $[石英] = 1.002 \times [ポリフロン] + 1.879$ ($r=0.961, n=36$) となり、両ろ紙の粒子状物質濃度はほぼ一致していた。このことから、いずれのろ紙の TSP 濃度を解析に使用しても支障はないものと思われるが、発生源寄与の推定に石英ろ紙の粒子状物質濃度を用いていることから、TSP 濃度として石英ろ紙の値を使用した。夏期及び冬期の TSP 濃度を図 4-1-2 に、粒径別濃度および TSP 濃度に対する微小粒子濃度の割合を図 4-1-3 に示す。

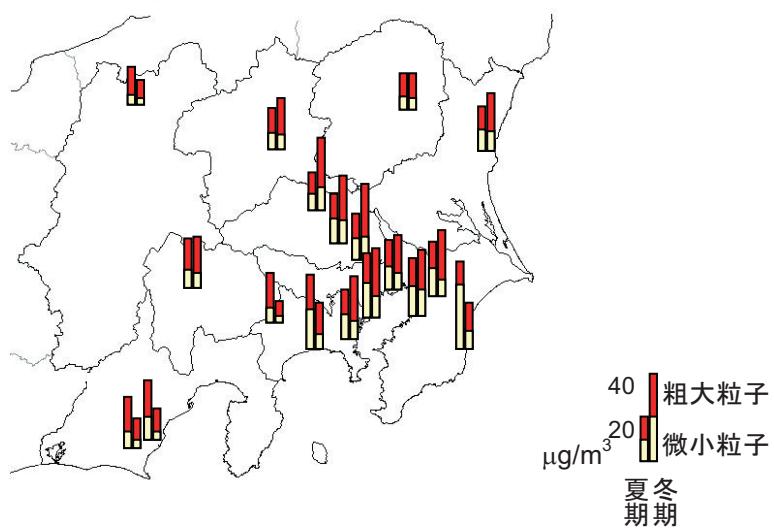


図 4-1-2 夏期および冬期の TSP 濃度

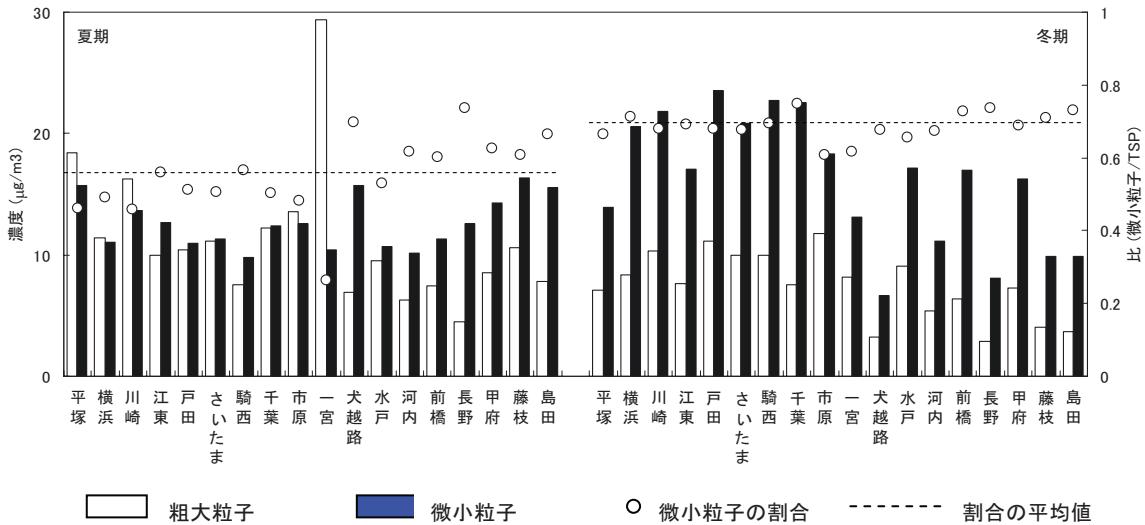


図 4-1-3 粗大粒子濃度、微小粒子濃度および TSP 濃度に対する微小粒子濃度の比

(1) 夏期調査

夏期の TSP 濃度は $16.5\sim39.8$ (平均 23.8) $\mu\text{g}/\text{m}^3$ の範囲にあり、昨年度、一昨年度とほぼ同じ水準であった。今回の調査で最も高濃度であった地点は一宮、次いで平塚、川崎が高く、最も低濃度であった地点は河内であった。

粗大粒子の濃度は $4.5\sim29.4$ (平均 11.2) $\mu\text{g}/\text{m}^3$ の範囲にあり、昨年度と同様に一宮で特に高かった。平塚、川崎、市原などの臨海地域で高く、長野、河内、犬越路などの内陸地域で低い傾向が見られた。

微小粒子の濃度は $9.8\sim16.4$ (平均 12.6) $\mu\text{g}/\text{m}^3$ の範囲であった。藤枝、平塚、犬越路、島田、甲府などの関東南西地域の調査地点において、相対的にやや高い濃度であったが、全体的に地点間の濃度差は小さかった。

TSP 濃度に対する微小粒子濃度の比は $0.26\sim0.74$ (平均 0.55) であった。長野、犬越路などの内陸部で相対的に高い値を示し、一宮、川崎、平塚などの臨海地域で低い値を示した。

(2) 冬期調査

冬期の TSP 濃度は $9.9\sim34.6$ (平均 23.6) $\mu\text{g}/\text{m}^3$ の範囲にあり、昨年度、一昨年度とほぼ同じ水準であった。今回の調査で最も高濃度であった地点は戸田、次いで駒西、川崎が高く、最も低濃度であった地点は犬越路であった。

粗大粒子の濃度は $2.9\sim11.8$ (平均 7.4) $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。市原、戸田、川崎などの臨海地域で高く、長野、犬越路などの内陸地域で低い傾向が見られた。

微小粒子の濃度は $6.7\sim23.5$ (平均 16.1) $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。戸田、駒西、千葉、川崎などの南関東地域で高く、犬越路、長野などの内陸地域で低い傾向が見られ、地点間の濃度差が大きかった。

TSP 濃度に対する微小粒子濃度の比は $0.61\sim0.75$ (平均 0.69) であり、地点間の差は小さかった。

(3) 調査期間の代表性および粒子状物質濃度の推移

本調査は、夏季および初冬季に、それぞれ延べ4日間実施している。このような短期調査で得られた結果の経年変化について考察を行う場合、調査期間の代表性を予め把握する必要がある。まず、平成10年度から17年度の8年間に一般環境調査を行った地点で観測されたSPM（常時監視）年平均濃度の推移を図4-1-4に示す。なお、ここでは、1都3県において平成15年10月から施行されたディーゼル車運行規制の効果を考察するために、調査地点を表4-1-1に示したディーゼル車運行規制地域内と地域外の2群に分類し、データを集計した。

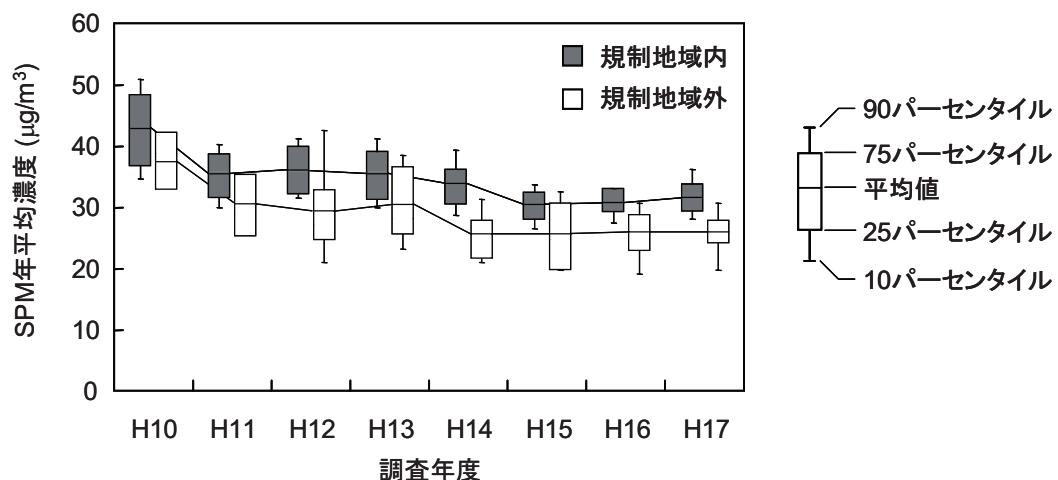


図4-1-4 SPM（常時監視）年平均濃度の推移

表4-1-1 調査地点の区分

地 域 区 分	地 点 名
ディーゼル車運行規制地域内	平塚、横浜、川崎、江東、千葉、市原、戸田、さいたま（H16～）、騎西（H12～）、千葉、市原、横須賀（～H13）、多摩（～H14）、浦和（～H11）、寄居（～H14）
ディーゼル車運行規制地域外	水戸、河内、前橋、長野（H12～）、甲府、島田（H12～）
除 外	犬越路、小河内（～H11）：SPM常時監視を行っていないため 一宮：海塩粒子の影響を強く受けるため 鴻巣（H14）、藤枝（H14～）：自動車排ガス測定局で調査されたため

全般的に、SPM年平均濃度は低下傾向であった。規制地域内では、ディーゼル車運行規制が施行された平成15年度に顕著なSPM濃度の低下が見られ、その後ほぼ横ばい（約31 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）で推移している。一方、規制地域外では平成14年度に顕著なSPM濃度の低下が見られた後、横ばい（約26 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）で推移しており、SPM濃度の低下と規制の施行との直接的な関連は認められなかった。

次に、一般環境調査実施期間の代表性を検証するため、SPM年平均濃度に対する調査期間中のSPM濃度比を図4-1-5に示す。

平成13年度から15年度の夏期調査期間におけるSPM濃度は、年平均濃度に比べて大幅に高かった。また、平成12年度、15年度および17年度の冬期調査期間におけるSPM濃度は、年平均濃度に比べて低かった。このように、調査期間の代表性は各年度で異なるため、本調査結果から経年変化を考察する際には、上記の傾向に注意すべきである。

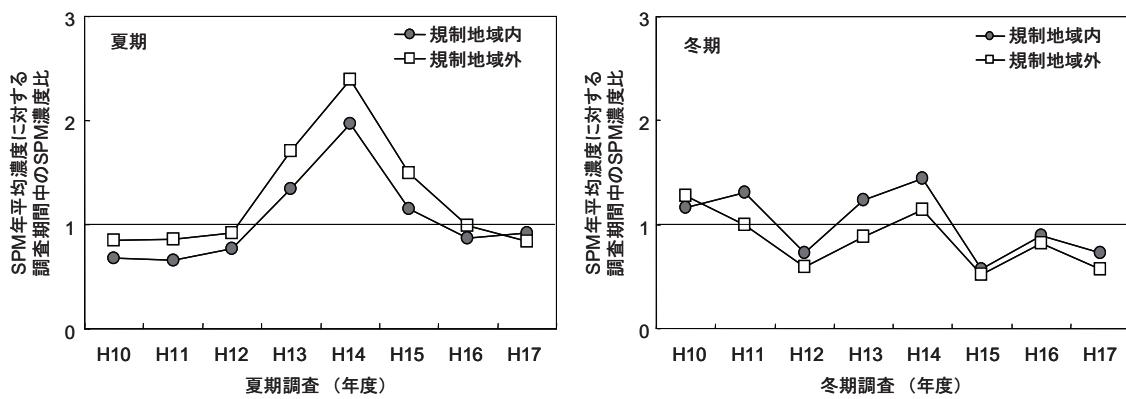


図 4-1-5 SPM 年平均濃度に対する調査期間中の SPM 濃度比

図 4-1-6 に平成 10 年度から 17 年度の 8 年間に行った一般環境調査における微小粒子濃度および粗大粒子濃度の推移を示す。平成 13 年度から 15 年度の夏期調査で見られた微小粒子濃度の上昇（図 4-1-6 左上）は、SPM 年平均濃度に対する夏期調査期間の濃度比の上昇（図 4-1-5 左）とよく一致していた。冬期調査における微小粒子濃度の推移（図 4-1-6 右上）も、SPM 年平均濃度に対する冬期調査期間の濃度比の推移（図 4-1-5 右）とよく一致していた。これらのことから、微小粒子濃度の変動が SPM 濃度の変動により強く寄与していることが確認された。また、夏期調査においては規制地域外の微小粒子濃度が規制地域内と同程度、またはそれを上回る濃度に達する傾向が見られたが、冬期調査においては規制地域外の微小粒子濃度が規制地域内の濃度を下回る傾向が顕著であった。このことから、規制地域内外では、汚染のメカニズムが大きく異なることが示唆された。

前述のように、調査期間の代表性は各年度で異なるため、本調査で得られた粒子状物質濃度の推移から、経年変化を考察するには注意が必要である。そこで、夏期調査および冬

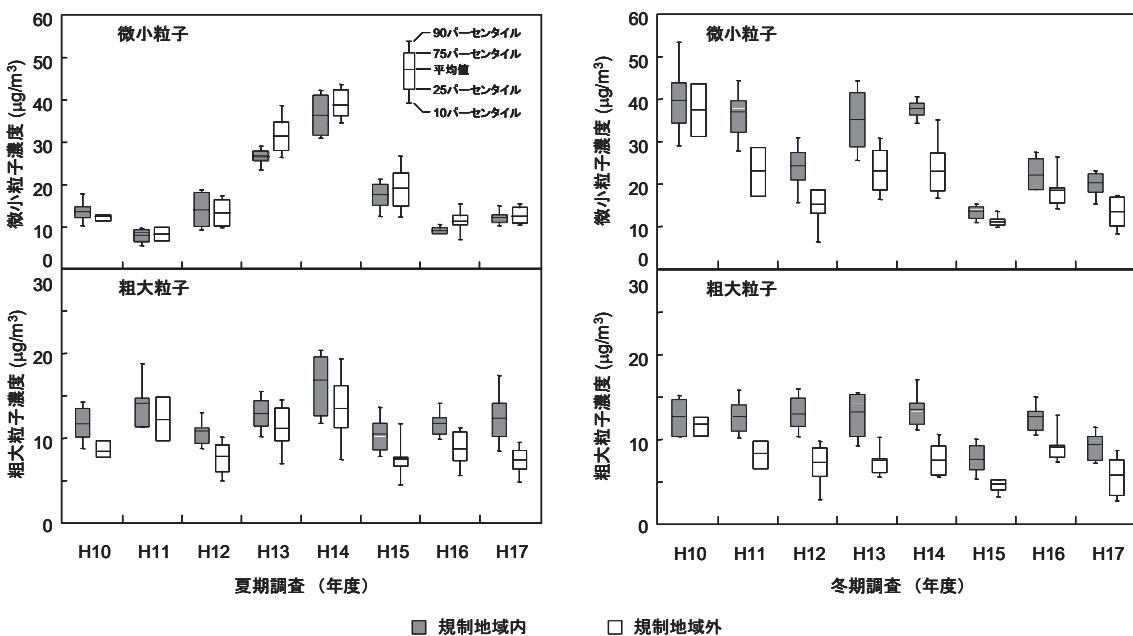


図 4-1-6 調査期間中の微小粒子・粗大粒子濃度の推移

期調査とともにデータの代表性が同程度であった平成12年度（ディーゼル車運行規制施行前）と17年度（施行後）の調査結果について、微小粒子濃度を比較した（図4-1-7）。

夏期調査、冬期調査ともに、平成17年度は12年度に比べ微小粒子濃度は低下していた。しかしながら、夏期調査における濃度低下は僅かであり、ディーゼル車運行規制施行前後での変化は小さいと推察された。一方、冬期調査における濃度低下は夏期調査よりも大きく、特に規制地域内においては顕著な濃度低下が見られた。これはディーゼル車運行規制の効果を示唆するものであろう。

全般的には、ディーゼル車運行規制の施行によって微小粒子濃度が低下する傾向であったことから、規制の効果が表れていると評価できるが、一方で夏期の微小粒子濃度に大きな変化が生じていない点（光化学反応による二次生成粒子の増大などによって、規制の効果が相殺された可能性）にも注目すべきであろう。詳細については、各成分分析結果を基に、次節以降で考察する。

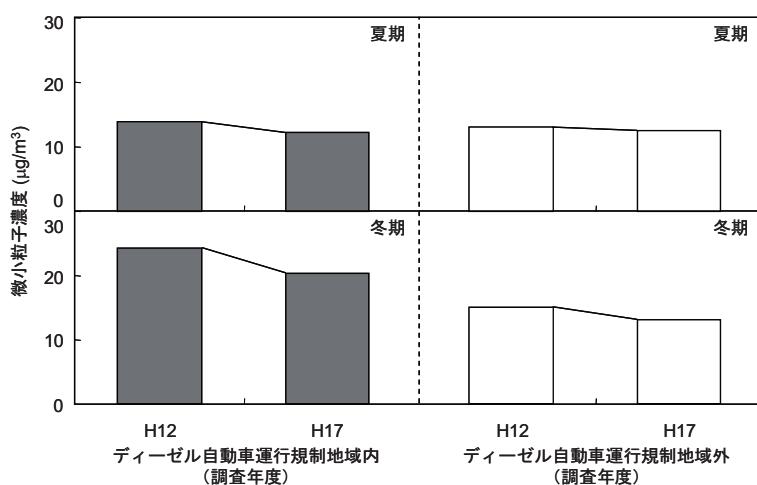


図4-1-7 ディーゼル車運行規制前後の濃度比較

4. 2 水溶性成分濃度

(1) 夏期調査

各地点の粒子状物質中の水溶性イオン濃度を図 4-2-1-1 から図 4-2-1-8 の左側に示した。

粗大粒子中の陽イオンは Na^+ が $0.22\sim6.19$ (平均 $1.07 \mu \text{g}/\text{m}^3$) であり、昨年よりやや減少した。最も濃度が高い地点は昨年同様に一宮で、他の地点と比べて突出していた。そのほかでは、平塚、横浜、川崎、千葉、市原、水戸などの沿岸部で濃度が高かった。濃度が低い地点は犬越路、長野、甲府であった。 NH_4^+ は $0.01\sim0.07$ (平均 $0.03 \mu \text{g}/\text{m}^3$)、 K^+ は $0.03\sim0.20$ (平均 $0.05 \mu \text{g}/\text{m}^3$) と例年どおり低濃度であった。 Mg^{2+} は $0.01\sim0.52$ (平均 $0.07 \mu \text{g}/\text{m}^3$) であった。一宮が突出して高く、 Na^+ 濃度が高い地点で濃度が高いのは例年と同じ傾向である。 Ca^{2+} は $0.01\sim0.19$ (平均 $0.06 \mu \text{g}/\text{m}^3$) で、川崎と一宮で濃度が高かった。

陰イオンでは Cl^- は $0.02\sim11.19$ (平均 $1.32 \mu \text{g}/\text{m}^3$) であり、 Na^+ 、 Mg^{2+} と同じく一宮の濃度が突出していた。他の地点では、沿岸部で濃度が高い傾向が見られた。また、最も低い地点は犬越路と甲府であった。 NO_3^- は $0.41\sim1.91$ (平均 $1.18 \mu \text{g}/\text{m}^3$) であり、昨年よりやや濃度が高かった。 SO_4^{2-} は $0.32\sim1.53$ (平均 $0.57 \mu \text{g}/\text{m}^3$) であった。

粗大粒子では例年どおり、沿岸部で海洋起源と考えられる Na^+ 、 Cl^- の濃度が高い傾向が見られた。また各地点毎の Na^+ 、 Mg^{2+} 、 Cl^- の濃度の比率はほぼ一致していた。一宮ではこれら 3 成分が他の地点より特に高濃度であり、海塩粒子が多く含まれていると考えられた。

微小粒子中の陽イオンは Na^+ が $0.07\sim1.03$ (平均 $0.24 \mu \text{g}/\text{m}^3$) であった。 NH_4^+ は $0.95\sim2.78$ (平均 $1.29 \mu \text{g}/\text{m}^3$) であり、昨年より高かった。 K^+ は $0.04\sim0.13$ (平均 $0.07 \mu \text{g}/\text{m}^3$)、 Mg^{2+} が $0.01\sim0.05$ (平均 $0.01 \mu \text{g}/\text{m}^3$)、 Ca^{2+} は $0.01\sim0.05$ (平均 $0.02 \mu \text{g}/\text{m}^3$) であった。

陰イオンでは Cl^- は $0.00\sim0.50$ (平均 $0.04 \mu \text{g}/\text{m}^3$) であった。微小粒子中の Na^+ 、 Mg^{2+} 、 Cl^- も他の地点と比べ一宮で特に高濃度であり、海塩粒子が微小粒子側にも捕集されたものと考えられた。 NO_3^- では $0.03\sim0.42$ (平均 $0.21 \mu \text{g}/\text{m}^3$) であり、昨年よりやや高かった。 SO_4^{2-} は $2.39\sim7.36$ (平均 $3.56 \mu \text{g}/\text{m}^3$) であり、昨年より高かった。また、犬越路で濃度が高かった。

全体的な傾向では Na^+ 、 Mg^{2+} 、 Ca^{2+} 、 Cl^- 、 NO_3^- は粗大粒子に多く存在し、 NH_4^+ 、 SO_4^{2-} は微小粒子に多く存在していた。

次に各イオン成分の当量濃度比を図 4-2-2-1 から図 4-2-2-4 の左側に示した。陽イオンは粗大粒子では全ての地点で Na^+ が最も多かった。また、微小粒子では全ての地点で NH_4^+ の割合が高かった。

陰イオンは粗大粒子では沿岸部に位置する地点で Cl^- の割合が最も高かったが、それ以外の地点では NO_3^- の割合が高く、犬越路では SO_4^{2-} の割合が高かった。微小粒子では、全地点で SO_4^{2-} の割合が最も高かった。

(2) 冬期調査

各地点における粒子状物質中の水溶性イオン濃度を図 4-2-1-1 から図 4-2-1-8 の右側に示した。粗大粒子中の陽イオンは Na^+ が $0.05\sim0.73$ (平均 $0.20 \mu \text{g}/\text{m}^3$) であった。一宮で最も濃度が高かった。 NH_4^+ は $0.00\sim0.03$ (平均 $0.00 \mu \text{g}/\text{m}^3$)、 K^+ は $0.00\sim0.02$ (平均 $0.01 \mu \text{g}/\text{m}^3$) であった。

$\mu\text{ g}/\text{m}^3$ 、 Mg^{2+} は $0.00\sim0.03$ (平均 $0.01\mu\text{ g}/\text{m}^3$)であった。 Ca^{2+} は $0.01\sim0.10$ (平均 $0.05\mu\text{ g}/\text{m}^3$)で、南関東を中心に濃度が高い傾向が見られた。陰イオンでは Cl^- は $0.06\sim1.26$ (平均 $0.30\mu\text{ g}/\text{m}^3$)で、 Na^+ 、 Mg^{2+} と同様に千葉、市原、一宮で濃度が高い傾向が見られた。 NO_3^- は $0.10\sim1.12$ (平均 $0.85\mu\text{ g}/\text{m}^3$)、 SO_4^{2-} は $0.03\sim0.32$ (平均 $0.18\mu\text{ g}/\text{m}^3$)の範囲であった。

微小粒子中の陽イオンでは Na^+ は $0.03\sim0.14$ (平均 $0.09\mu\text{ g}/\text{m}^3$)と低濃度であった。 NH_4^+ は $0.57\sim2.13$ (平均 $1.20\mu\text{ g}/\text{m}^3$)で昨年よりやや減少していた。 K^+ は $0.02\sim0.16$ (平均 $0.09\mu\text{ g}/\text{m}^3$)、 Mg^{2+} は $0.00\sim0.01$ (平均 $0.00\mu\text{ g}/\text{m}^3$)、 Ca^{2+} は $0.00\sim0.06$ (平均 $0.03\mu\text{ g}/\text{m}^3$)であった。陰イオンでは Cl^- は $0.00\sim1.81$ (平均 $0.38\mu\text{ g}/\text{m}^3$)であり、昨年とほぼ同じであった。戸田、さいたま、騎西、千葉が他の地点より高濃度であった。 NO_3^- は $0.15\sim3.68$ (平均 $1.82\mu\text{ g}/\text{m}^3$)で、昨年と比べてやや増加した。犬越路を除く南関東と前橋、甲府で濃度が高かった。 SO_4^{2-} は $1.08\sim2.87$ (平均 $1.56\mu\text{ g}/\text{m}^3$)であり、昨年より減少した。地点間の濃度差は少なかったが水戸で濃度が高かった。

冬期調査における全体的な傾向としては Na^+ 、 Mg^{2+} 、 Ca^{2+} は粗大粒子に多く含まれるのに対し NH_4^+ 、 K^+ 、 NO_3^- 、 SO_4^{2-} は微小粒子に多く存在していた。

各イオン成分の当量比を図4-2-2-1から図4-2-2-4の右側に示した。陽イオンは、粗大粒子では、甲府を除く全地点で Na^+ の割合が高く、次に多いのは Ca^{2+} であった。微小粒子では全ての地点で NH_4^+ の割合が最も高かった。

陰イオンは粗大粒子では地点間のばらつきはあるものの沿岸部で Cl^- の割合が高い傾向が見られるが、 NO_3^- 、 SO_4^{2-} も比較的多く存在していた。微小粒子では、犬越路、水戸、長野、藤枝、島田では SO_4^{2-} の割合が高かったが、他の地域では NO_3^- と SO_4^{2-} が同程度含まれていた。また、戸田、千葉では Cl^- の割合が最も高くなっていた。

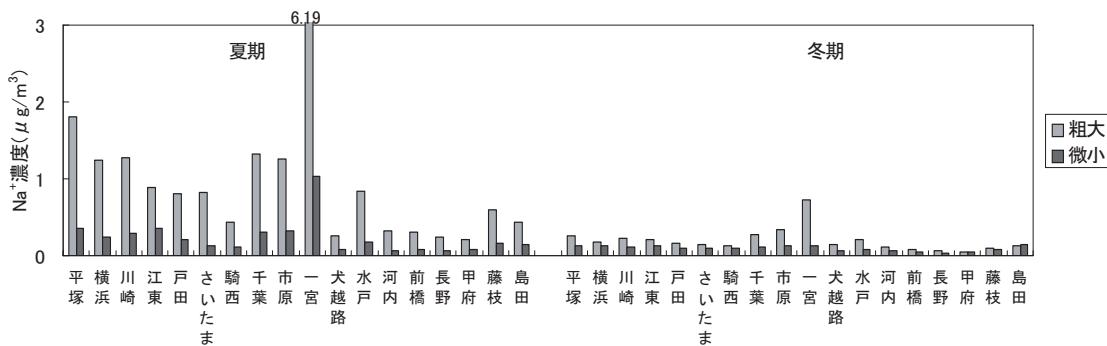


図 4-2-1-1 粒子状物質中のナトリウムイオン濃度

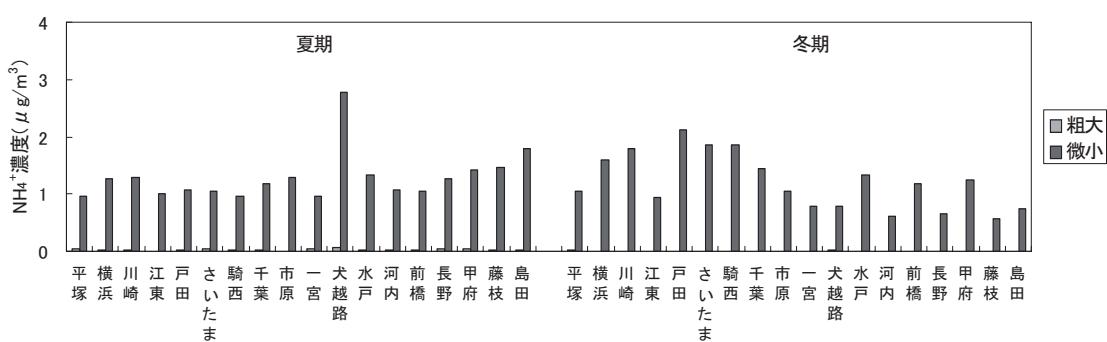


図 4-2-1-2 粒子状物質中のアンモニウムイオン濃度

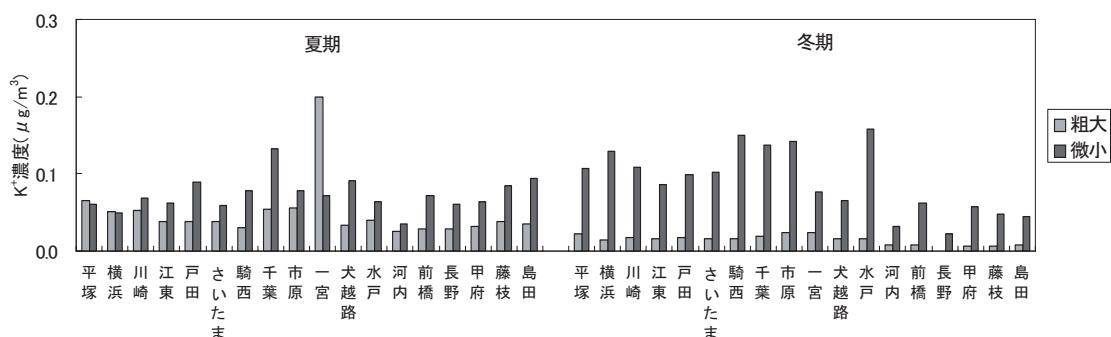


図 4-2-1-3 粒子状物質中のカリウムイオン濃度

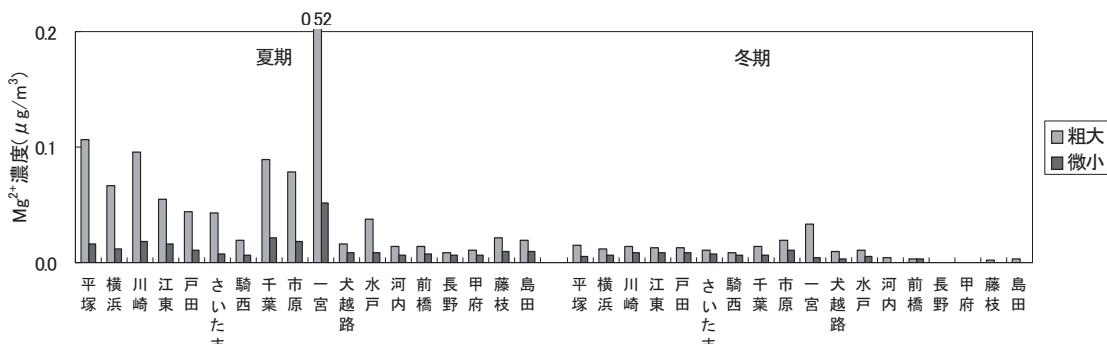


図 4-2-1-4 粒子状物質中のマグネシウムイオン濃度

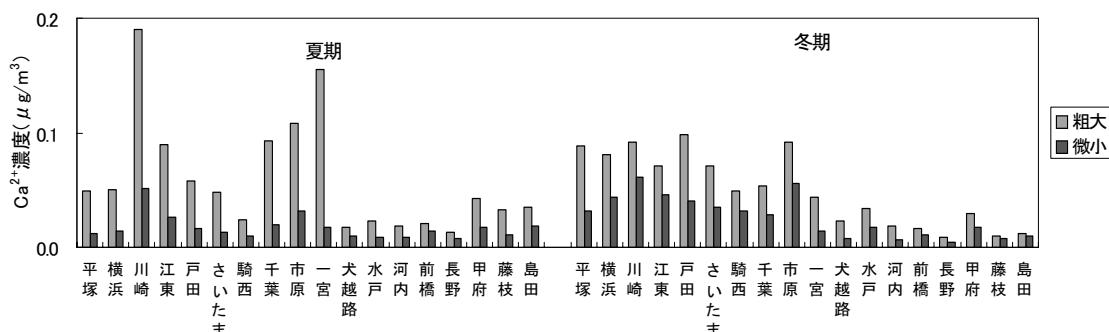


図 4-2-1-5 粒子状物質中のカルシウムイオン濃度

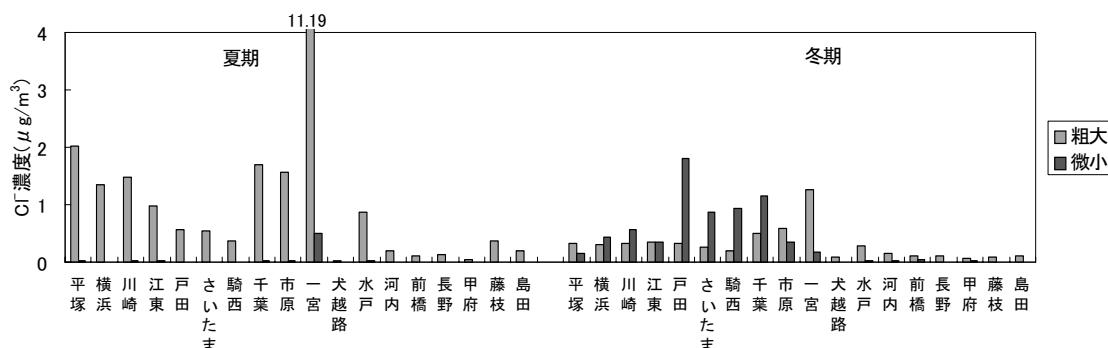


図 4-2-1-6 粒子状物質中の塩化物イオン濃度

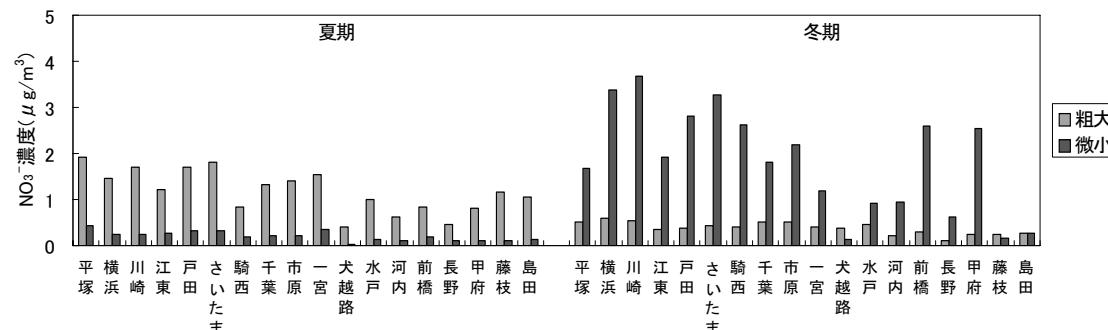


図 4-2-1-7 粒子状物質中の硝酸イオン濃度

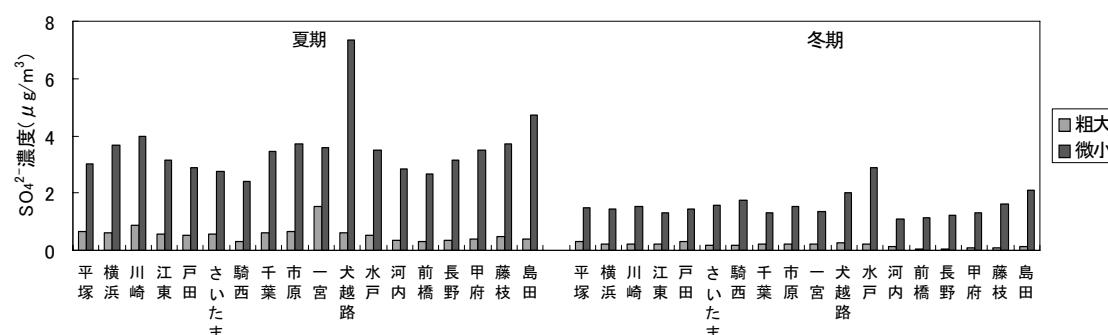


図 4-2-1-8 粒子状物質中の硫酸イオン濃度

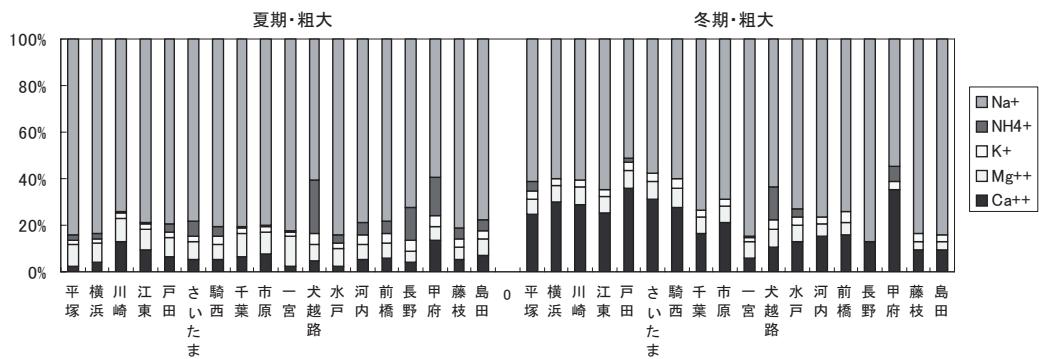


図 4-2-2-1 粗大粒子中の陽イオン当量濃度比

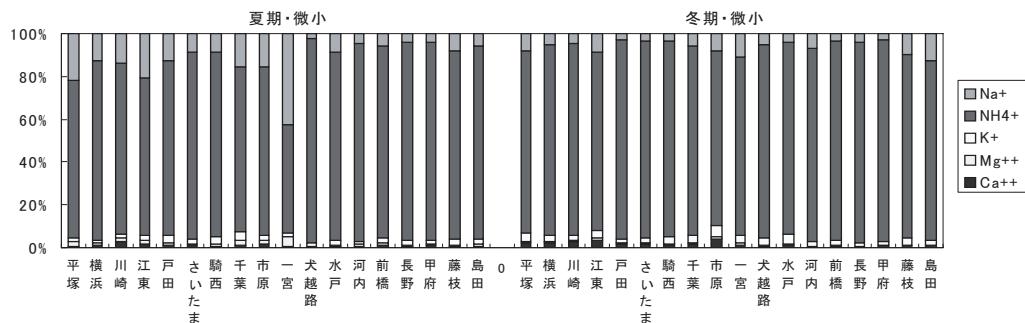


図 4-2-2-2 微小粒子中の陽イオン当量濃度比

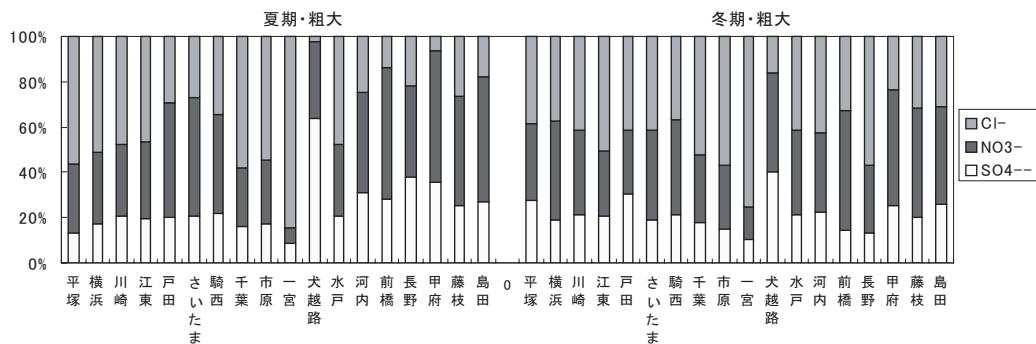


図 4-2-2-3 粗大粒子中の陰イオン当量濃度比

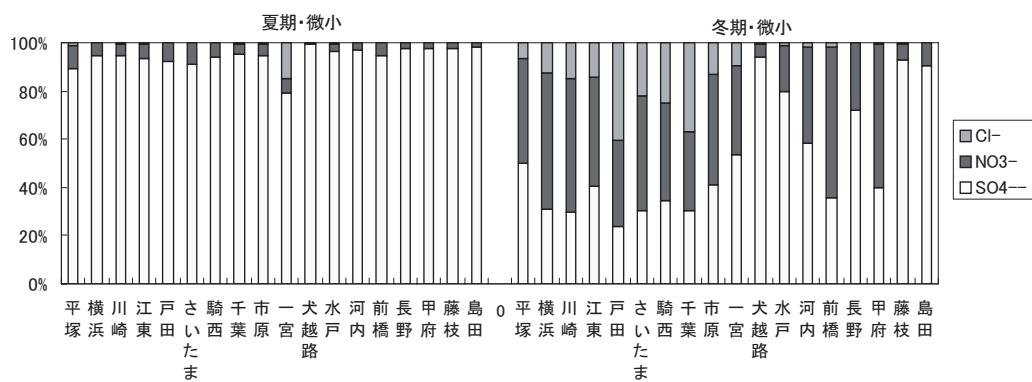


図 4-2-2-4 微小粒子中の陰イオン当量濃度比

(3) イオン当量関係

夏期・冬期、粗大・微小粒子ごとの全陽イオン、全陰イオンの当量関係を図4-2-3に示した。各期間の粗大、微小粒子について陽イオン：陰イオンはほぼ1:1で対応していた。

粗大粒子中の Na^+ と Cl^- の当量濃度の関係を図4-2-4に示した。冬期は Na^+ 、 Cl^- がほぼ1:1で対応しているのに対し、夏期の両値は1:1からやや外れ、 Cl^- 不足側に寄っており、 Cl^-/Na^+ は0.8となっていた。夏期調査期間の後半に広域で光化学スモッグ注意報が発令されたことから考えると、光化学反応で生成した HNO_3 と NaCl との反応により、 Cl^- の損失が生じたことが考えられる。

図には示さなかったが、微小粒子中の NH_4^+ では、例年どおり夏期は NH_4^+ と SO_4^{2-} がほぼ1:1となるのに対し、冬期では NH_4^+ と全陰イオンが1:1となり、夏期は $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 、冬期は NH_4Cl 、 NH_4NO_3 、 $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ の形での存在が示唆された。

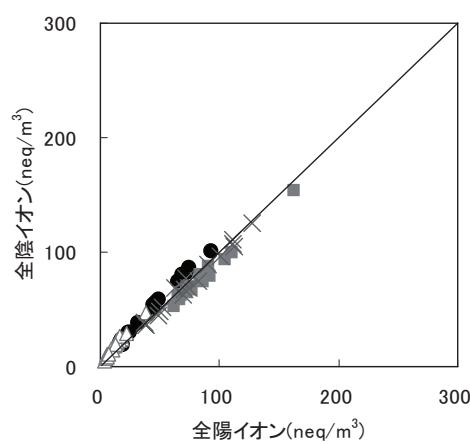


図4-2-3 粒子状物質中の全陽イオン、全陰イオンの当量関係

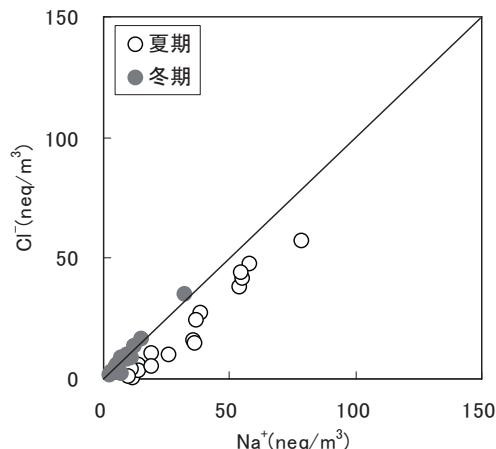


図4-2-4 粗大粒子中の Na^+ と Cl^- の当量関係

(4) 経年推移

今年度調査を行った地点について、図4-2-5-1から図4-2-5-8に水溶性成分濃度の経年変化を示した。昨年までは、各成分とも、夏期、冬期の粗大、微小粒子全ての推移を示したが、グラフの煩雑化を避けるため、低濃度かつ推移に変化が見られない部分は省略した。各成分では、 Na^+ 、 Mg^{2+} 、 Ca^{2+} は粗大粒子について、 NH_4^+ 、 K^+ 、 SO_4^{2-} については微小粒子についてのみ示した。また、 Cl^- 、 NO_3^- は夏期粗大粒子と冬期微小粒子について示した。

図4-2-6に各成分の全地点平均濃度の推移を、図4-2-7に粉じん中の割合の推移を示した。また、図4-2-8に全地点の常時監視データの平均値の推移を示した。常時監視局のSPM濃度については、平成16年度と比べ、夏期は同程度、冬期はやや減少していたが、観測期間の代表性について考慮する必要がある。

過去8年間について、夏期、冬期に特徴的な成分の推移を以下に述べる。夏期粗大粒子中の Na^+ 、 Cl^- は主に海塩粒子が起源と考えられ、気象の影響を大きく受けるため年度間の

濃度変動が大きい。平成 17 年度は平成 16 年度と比べると濃度は低いが、濃度、割合ともに過去 8 年間では比較的高いレベルであったと言える。また、 Na^+ 濃度は平成 16 年とほぼ同じであるにも関わらず、 Cl^- は大幅に減少しており、同時に粗大粒子中の NO_3^- 濃度が高くなる傾向が見られることから、光化学反応により生成する硝酸(HNO_3)と NaCl 中の Cl^- との置換反応が示唆される。夏期微小粒子に特徴的な SO_4^{2-} の増減は、夏期粗大粒子中の NO_3^- 濃度の増減と概ね同期していることから、光化学反応による生成促進が示唆される。また、濃度は年度ごとに増減が見られるものの、微小粒子中の割合では平成 13 年以降高いレベルで推移しており、微小粒子に占める硫酸アンモニウム $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ の割合は約 4 割前後となっていた。

冬期の微小粒子では、 Cl^- 濃度に顕著な減少傾向が見られた。また、 NO_3^- 濃度についても年度間の変動はあるものの、概ね減少傾向が見られた。いずれも平成 15 年度の濃度が最低となり、その後若干増加が見られるが、平成 14 年以前と比べると低い濃度で推移していた。これに対して、 SO_4^{2-} 濃度は平成 16 年度と比べると若干減少したが、大きな変化は見られなかった。割合でも平成 16 年度と比べると減少したが、8 年間の推移でみると、微増傾向となっていた。陰イオンを中和して粒子化していると考えられる NH_4^+ はこれらの陰イオン 3 成分の合計で決まると考えられるが、経年的にはほぼ横ばいで推移していた。

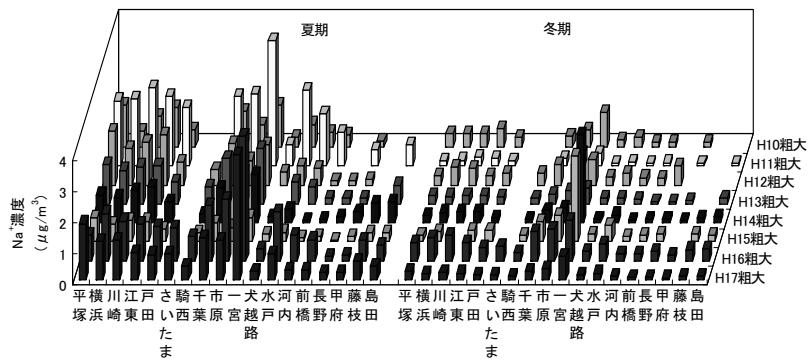


図 4-2-5-1 粒子状物質（粗大粒子）中のナトリウムイオン濃度

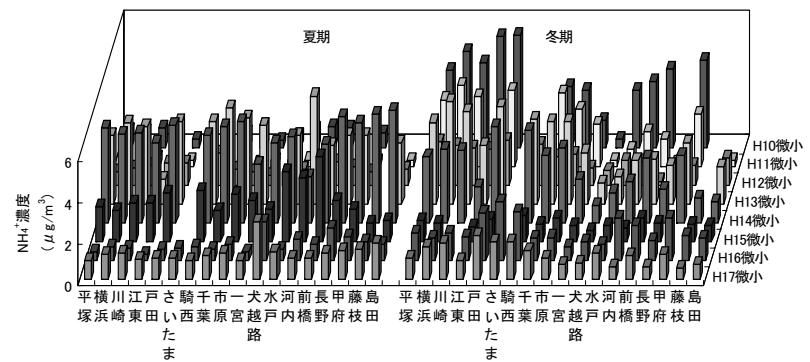


図 4-2-5-2 粒子状物質（微小粒子）中のアンモニウムイオン濃度

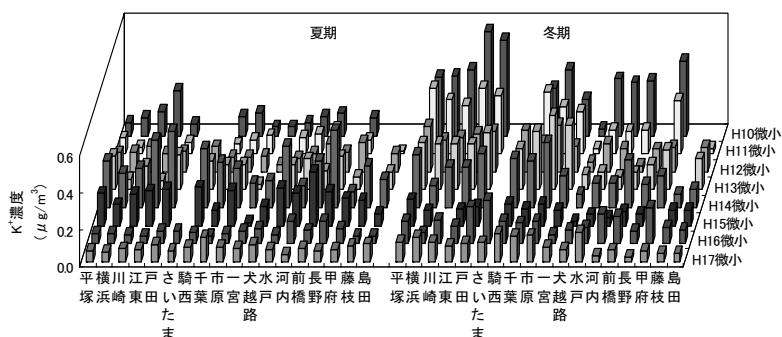


図 4-2-5-3 粒子状物質（微小粒子）中のカリウムイオン濃度

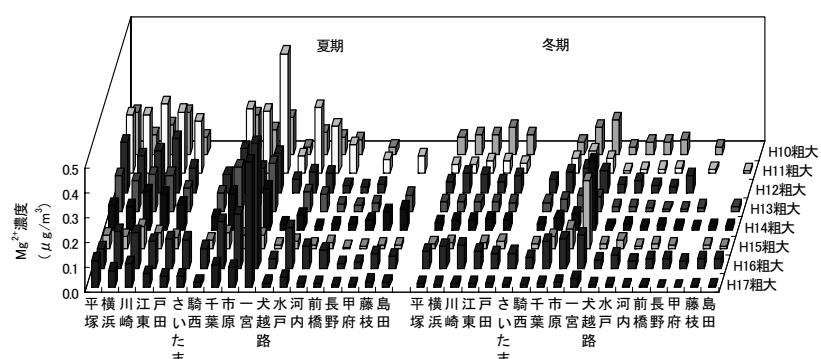


図 4-2-5-4 粒子状物質（粗大粒子）中のマグネシウムイオン濃度

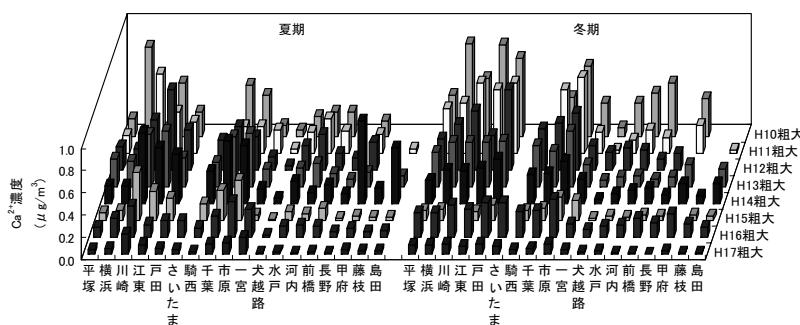
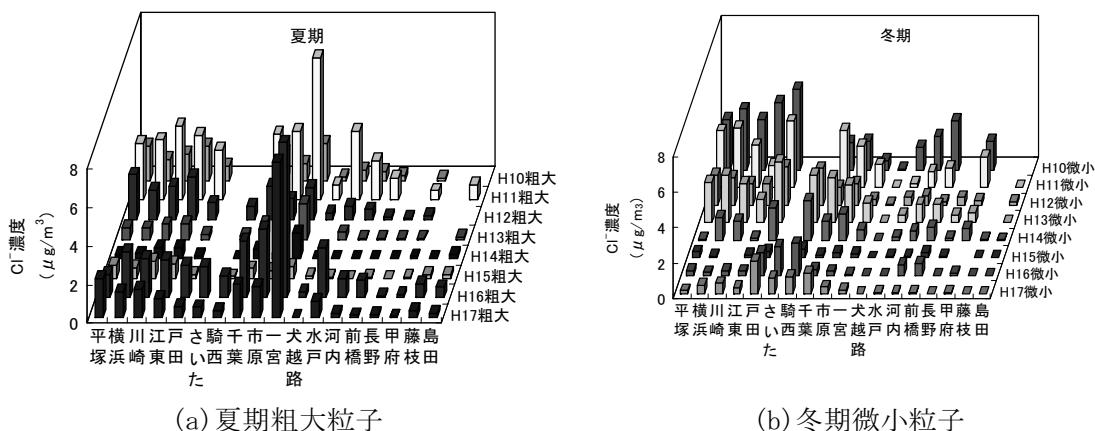


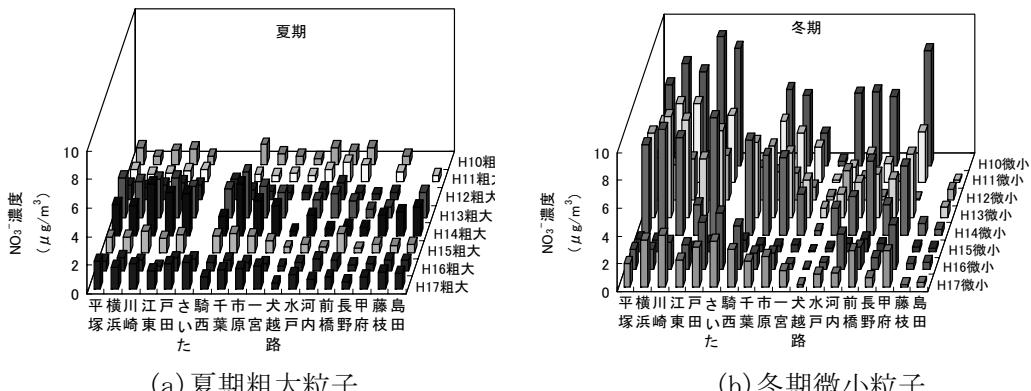
図4-2-5-5 粒子状物質（粗大粒子）中のカルシウムイオン濃度



(a) 夏期粗大粒子

(b) 冬期微小粒子

図4-2-5-6 粒子状物質中の塩化物イオン濃度



(a) 夏期粗大粒子

(b) 冬期微小粒子

図4-2-5-7 粒子状物質中の硝酸イオン濃度

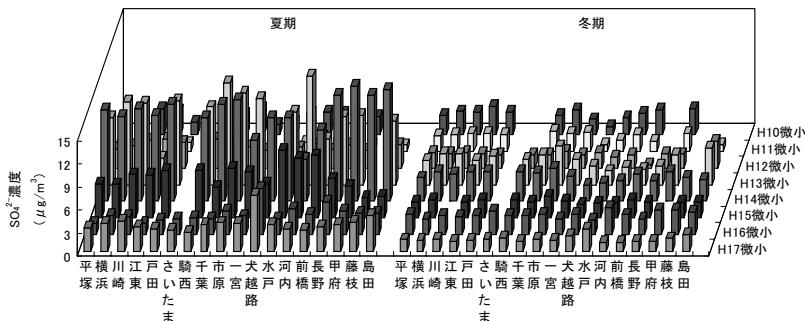


図4-2-5-8 粒子状物質（微小粒子）中の硫酸イオン濃度

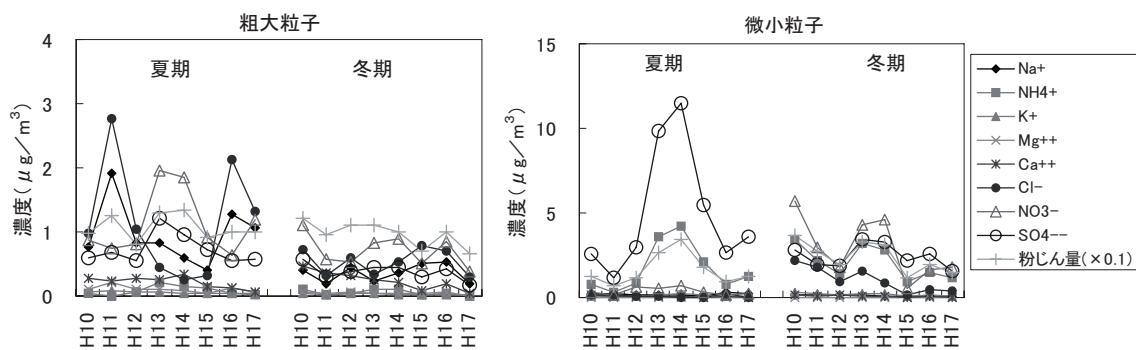


図4-2-6 各イオンの全地点平均濃度の推移

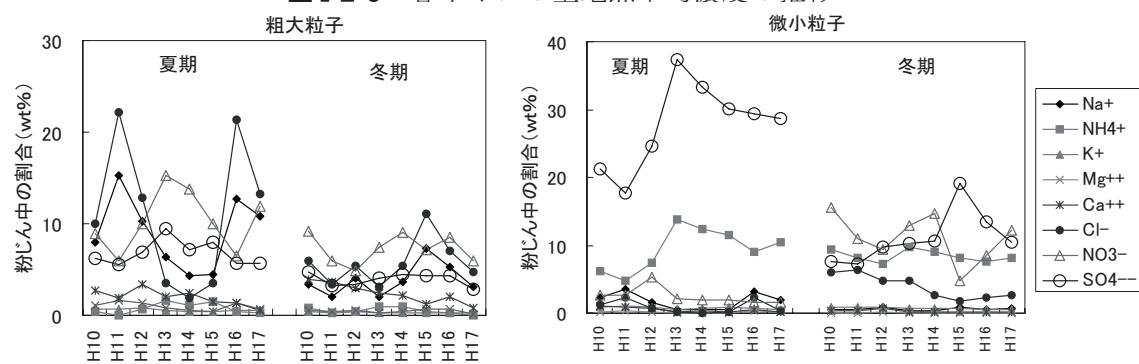


図4-2-7 粉じん中の各イオンの割合の推移

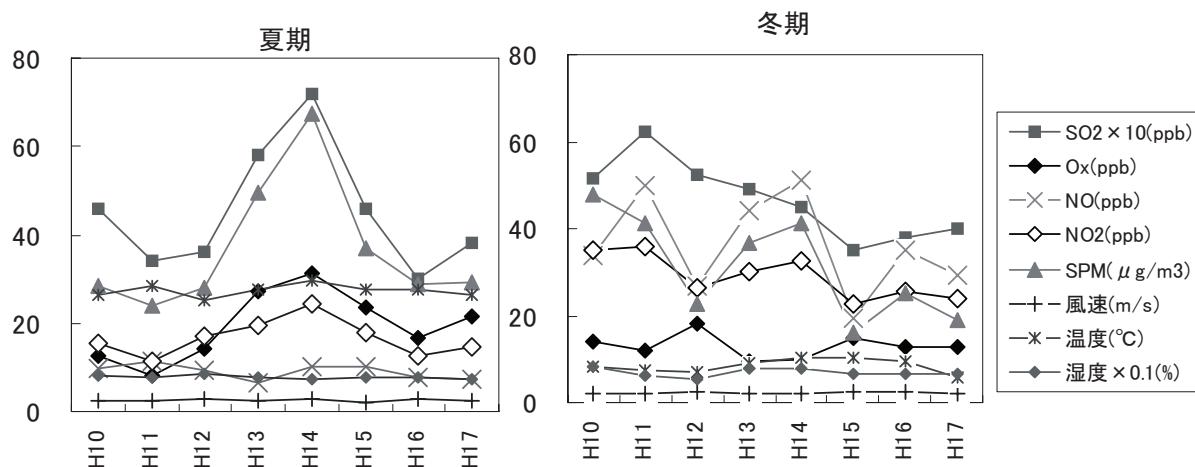


図4-2-8 各調査期間中の常時監視データ全地点平均値の推移

(5) 放射化分析結果との比較

図4-2-9に放射化分析法とイオンクロマトグラフ法による分析値の比較を示した。NaとNaイオン、ClとClイオンはともに良い相関が見られた。Na⁺はほぼ1:1で対応していたのに對し、Cl⁻はイオンクロマトグラフ法がやや低い値であった。これに対してCaとCaイオン、MgとMgイオンでは放射化分析の方が高い値を示したことから、これらはイオンとしてではなく、不溶性の形態での存在が示唆される。

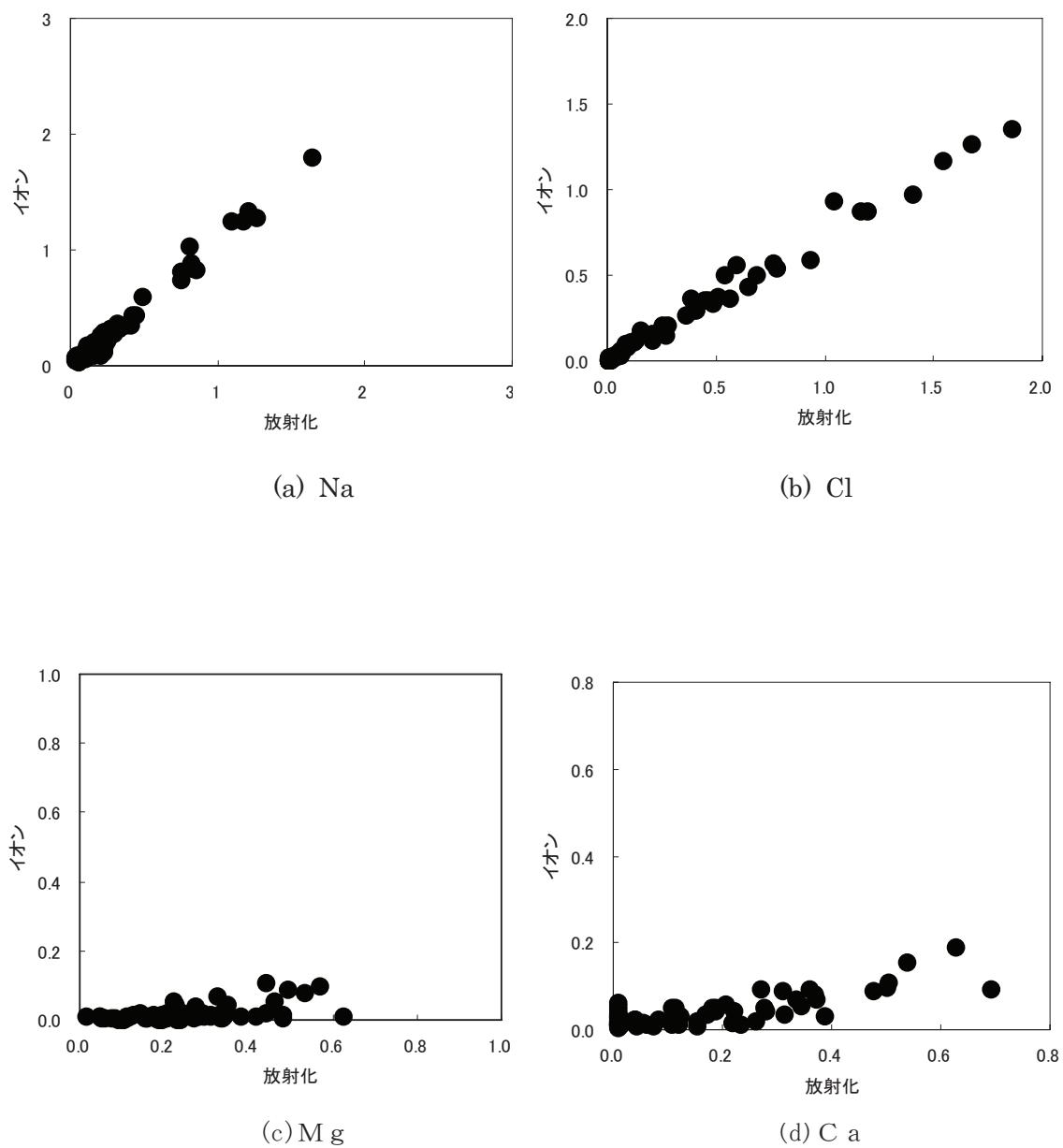


図4-2-9 イオンクロマトグラフ法と放射化分析法による分析値の比較（単位 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）
(イオンはイオンクロマトグラフ法による値、放射化は放射化分析による値を示す)

4. 3 炭素成分濃度

平成 17 年度の夏期及び冬期調査における各測定地点の粗大粒子中の炭素成分濃度を図 4-3-1 に、微小粒子中の炭素成分濃度を図 4-3-2 に示した。

(1) 粗大粒子中の炭素成分濃度

粗大粒子中の炭素成分濃度は、夏期調査では有機炭素 (OC) が 0.7 (江東) ~2.0 (藤枝) $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、平均で $1.0\mu\text{g}/\text{m}^3$ となり、元素状炭素 (EC) が 0.3 (長野) ~1.2 (市原) $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、平均で $0.7\mu\text{g}/\text{m}^3$ となった。

冬期調査では有機炭素が 0.3 (犬越路) ~1.6 (騎西) $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、平均で $0.8\mu\text{g}/\text{m}^3$ となり、元素状炭素が 0.1 (犬越路) ~1.1 (さいたま) $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、平均で $0.7\mu\text{g}/\text{m}^3$ となった。(有機炭素/元素状炭素) 濃度比は全地点平均で夏期が 1.6 (平成 16 年度 5.6)、冬期が 1.3 (平成 16 年度 2.6) であり、元素状炭素の割合が大きく增加了。

(2) 微小粒子中の炭素成分濃度

微小粒子中の有機炭素は、夏期調査では 0.7 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) ~ 3.0 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)、平均で $1.3\mu\text{g}/\text{m}^3$ となり、冬期調査では 0.7 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) ~ 3.1 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)、平均で $2.0\mu\text{g}/\text{m}^3$ となった。

平成 16 年度は夏期に $2\mu\text{g}/\text{m}^3$ を越えた測定地点は長野 1 地点であり、冬期では 4 地点で $3\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えた。平成 17 年度は夏期で $3\mu\text{g}/\text{m}^3$ を越えた地点は藤枝のみであり、他に $2\mu\text{g}/\text{m}^3$ を越えた地点はなかった。冬期でも、 $3\mu\text{g}/\text{m}^3$ を越えた地点は騎西のみであった。また、 $2\mu\text{g}/\text{m}^3$ を越えたのは騎西の他に 9 地点あった。

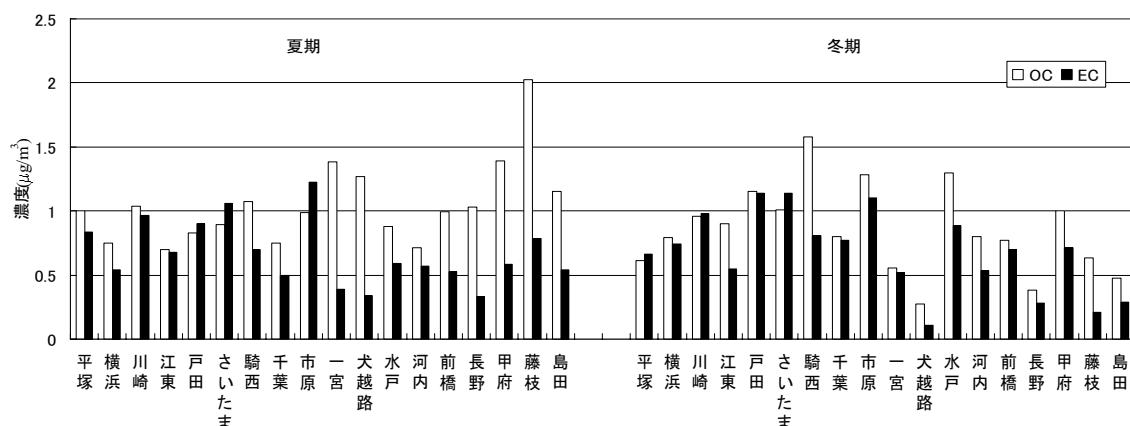


図 4-3-1 粗大粒子中の炭素成分濃度

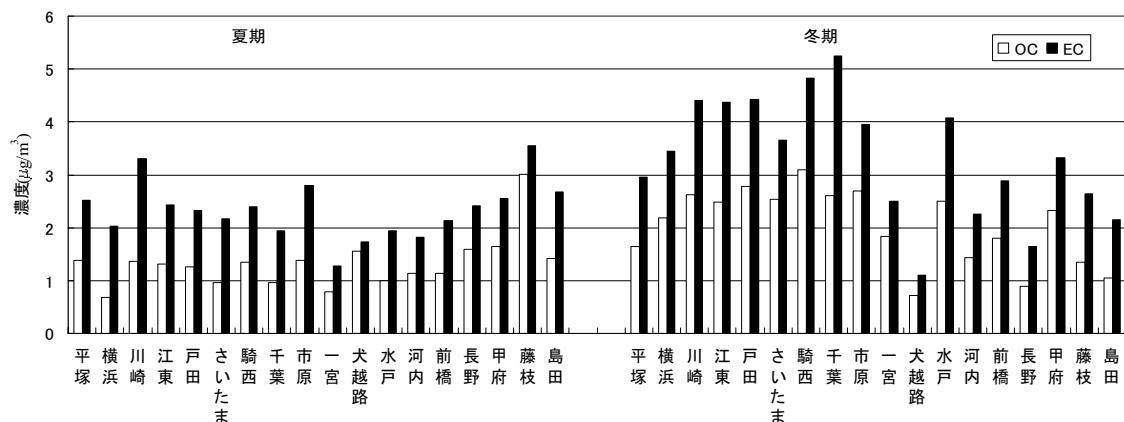


図 4-3-2 微小粒子中の炭素成分濃度

元素状炭素は、夏期調査で 1.3 (一宮) ~3.6 (藤枝) $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 平均で $2.3\mu\text{g}/\text{m}^3$ であり、冬期調査では 1.1 (犬越路) ~5.2 (千葉) $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 平均で $3.3\mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。平成 17 年度の調査では、微小粒子中の元素状炭素濃度は冬期に高くなる地点が多かった。また、(有機炭素/元素状炭素) 濃度比を比較すると、夏期は 0.57, 冬期は 0.61 となった。平成 15 年度の濃度比は夏期に 0.55, 冬期は 0.70 であり、平成 16 年度は夏期に 0.83 で、冬期は 0.87 であったので、元素状炭素の占める割合が平成 16 年度より増加し、平成 15 年度並となった。

(3) 粒子状物質中の炭素成分含有率

各測定地点の夏期及び冬期調査における粗大粒子中の炭素成分含有率を図 4-3-3 に、微小粒子中の炭素成分含有率を図 4-3-4 に示した。

粗大粒子中の有機炭素の含有率は、夏期では 4.7 (一宮) ~23.0% (長野) で平均 11.1% となり、冬期では 6.6 (一宮) ~15.7% (騎西) で平均 11.3% となった。平均含有率は、平成 16 年度の夏期 7.9%, 冬期で 6.9% と比べて増加していた。有機炭素が高い含有率を示したのは、ほとんどが都心部を大きく離れた測定地点であった。

元素状炭素の含有率は、夏期では 1.3 (一宮) ~9.5% (さいたま) で平均 6.7% となり、冬期では 3.2 (犬越路) ~11.4% (埼玉) で平均 8.5% となった。平均含有率は、有機炭素と同様に平成 16 年度の夏期 1.2%, 冬期 2.4% と比べて増加した。また、粗大粒子では、有機炭素含有率が元素状炭素含有率よりも大きくなる傾向にあった。

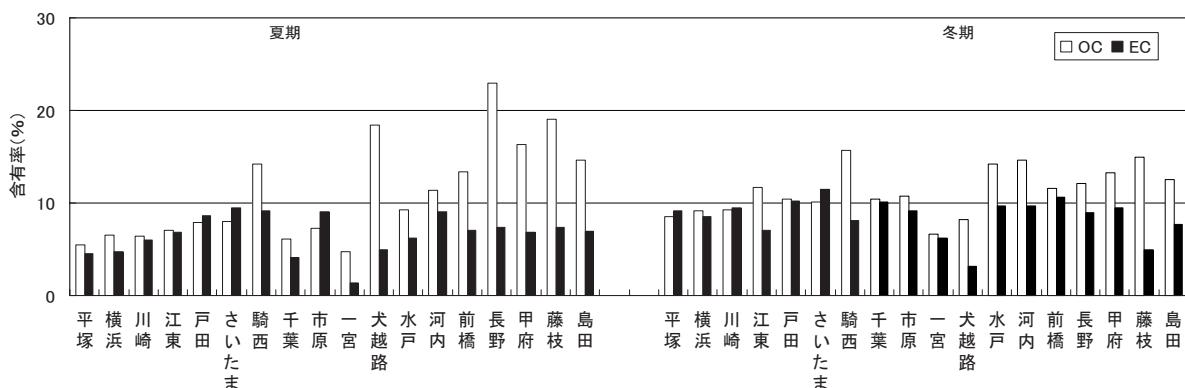


図 4-3-3 粗大粒子中の炭素成分含有率

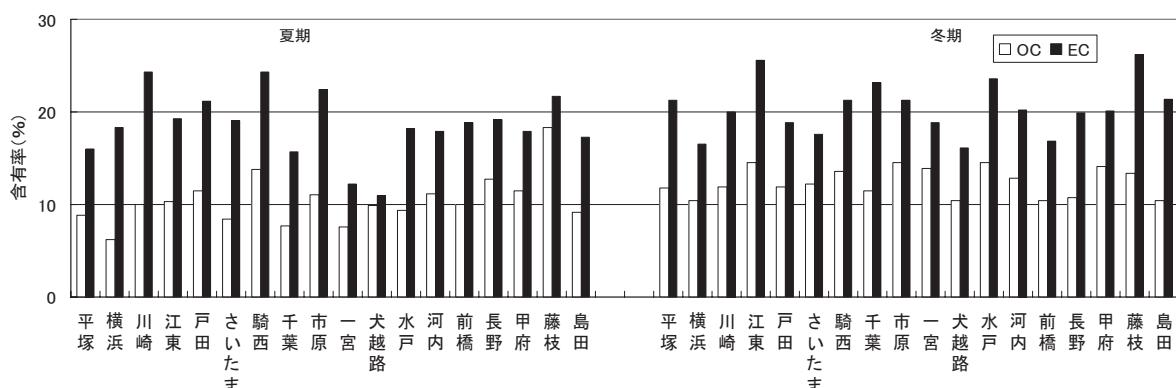


図 4-3-4 微小粒子中の炭素成分含有率

微小粒子中の有機炭素の平均含有率は、夏期では 6.2（横浜）～18.4%（藤枝）で平均 10.4%となり、冬期では 10.4（島田）～14.6（市原）%で平均 12.4%となった。平成 16 年度の平均は、夏期 10.1%，冬期で 12.7%であり、ほぼ同じであった。

一方、元素状炭素の含有率は夏期で 11.0（犬越路）～24.3（川崎）%で平均 18.6%となり、冬期で 16.1（犬越路）～26.2（藤枝）%（平均 20.5%）となった。平成 16 年度の元素状炭素の含有率は、夏期で 1.0～19.0%（平均 12.1%），冬期で 10.8～21.0%（平均 14.7%）であり、平成 17 年度の元素状炭素の平均値が大きく増加していた。夏期で 20% を越えた地点は川崎、戸田、騎西、市原、藤枝の 5 地点であり、冬期で 20% を越えたのは 11 地点となった。

(4) 粒子状物質中の炭素成分組成

夏期及び冬期の全データ（夏期 n=18，冬期 n=18）により、粗大粒子及び微小粒子中の全炭素（TC）濃度と元素状炭素濃度（EC）及び有機炭素濃度（OC）の関係を図 4-3-5 及び図 4-3-6 に示した。

図 4-3-5 に示したとおり、粗大粒子では炭素成分組成（有機炭素と元素状炭素の割合）に季節差のあることが認められ、元素状炭素が夏期で 38.9% ($r=0.57$)，冬期では 44.8% ($r=0.94$) となり、平成 16 年度（夏期 12.2%，冬期 32.5%）と同様に冬期で高い割合を示した。

図 4-3-6 は微小粒子中の炭素成分組成を示した図であるが、夏期及び冬期とも高い相

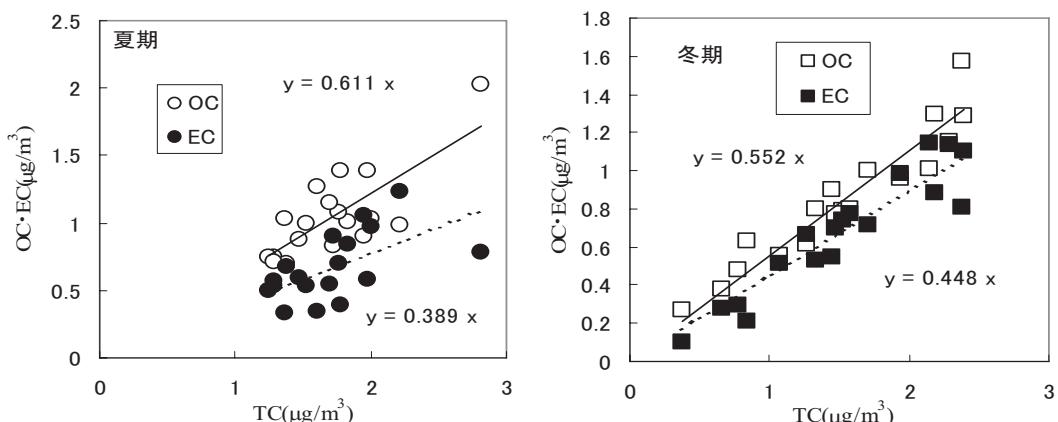


図 4-3-5 夏期及び冬期の粗大粒子中の TC と OC 及び EC の関係

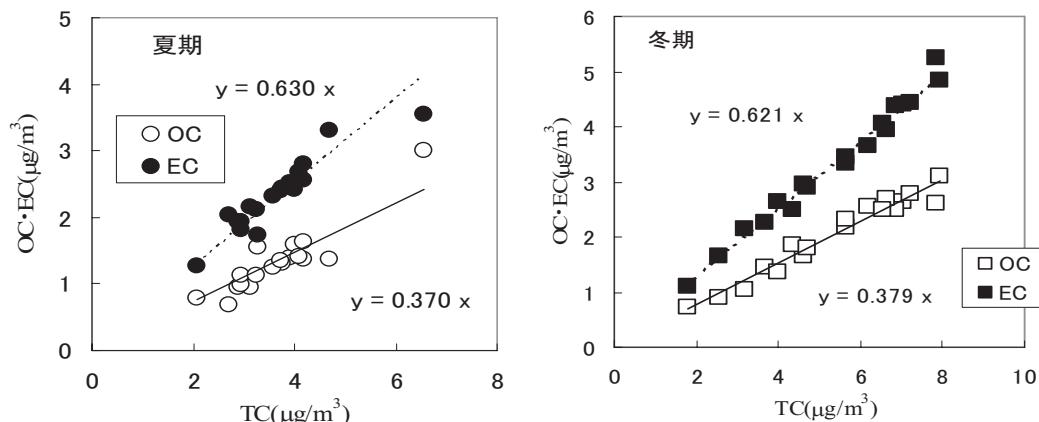


図 4-3-6 夏期及び冬期の微小粒子中の TC と OC 及び EC の関係

関が見られた。夏期の元素状炭素が 63.0% ($r=0.92$)、有機炭素が 37.0% ($r=0.90$) であり、冬期の元素状炭素が 62.1% ($r=0.99$)、有機炭素が 37.9% ($r=0.98$) となった。平成 16 年度の元素状炭素は夏期で 54.2%，冬期で 53.2% であり、平成 16 年度と比較して大きく増加した。

微小粒子中の各炭素成分の夏期調査と冬期調査の経年変化を図 4-3-7 に示した。左図の夏期調査を見ると、平成 10 年度から平成 14 年度まで元素状炭素濃度は増加の一途をたどっており、右図の冬期調査時の元素状炭素濃度を見ても、平成 12 年度に大きく減少した後は増加傾向を示していた。しかし、ディーゼル車運行規制が施行された平成 15 年度以降、夏期冬期共に元素状炭素濃度が大きく低下した。平成 17 年度は、平成 16 年度よりも元素状炭素濃度が増加していたが、ディーゼル規制以前の濃度よりも低いままであった。

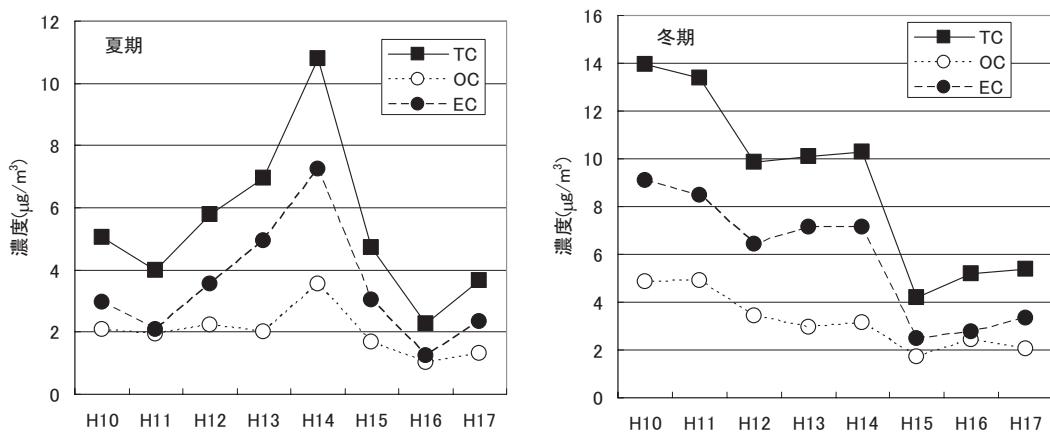


図 4-3-7 夏期（左）と冬期（右）の微小粒子中の TC, OC 及び EC の経年推移

(5) ディーゼル規制地域と規制地域外での比較

平成 15 年 10 月に東京都、埼玉県、神奈川県、千葉県の 1 都 3 県でディーゼル車排出ガス規制が施行されてから、ディーゼル車排出粒子は減少したと言われている。微小粒子中の元素状炭素はディーゼル車排出粒子の指標とされているので、その経年推移をディーゼル車規制地域内外で比較した。その際、清浄地域の犬越路と清浄地域に準じた太平洋岸地域の一宮、道路沿道の藤枝、同じく平成 14 年度に調査した道路遠藤の鴻巣は除いた。

夏期の元素状炭素濃度の経年推移を示した図 4-3-8 を見ると、規制地域内外にかかわらず平成 14 年度に最も高濃度となり、平成 15 年度以降は大きく減少していた。

冬期の元素状炭素濃度の経年推移を示した図 4-3-9 を見ると、規制地域内外にかかわらず平成 14 年度以前のディーゼル車運行規制以前の濃度が格段に高く、以後大きく減少した。また、平成 14 年度以前は江東や戸田といった規制地域内で高濃度を示しており、規制地域外では甲府のみが高濃度を示していたが、ディーゼル車運行規制以後は規制地域内外にかかわらず元素状炭素濃度が大きく減少していた。

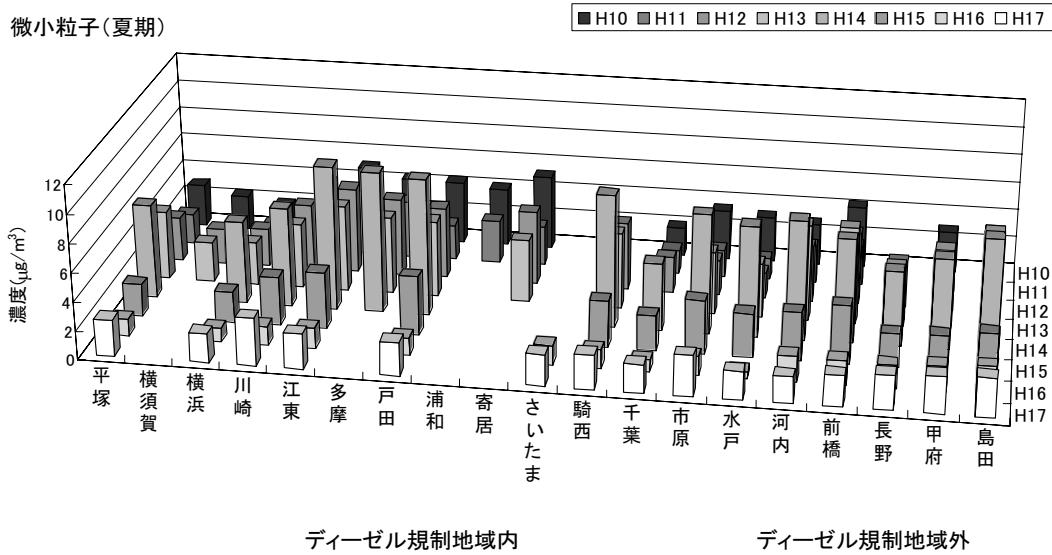


図 4-3-8 夏期調査における微小粒子中の元素状炭素濃度の経年変化

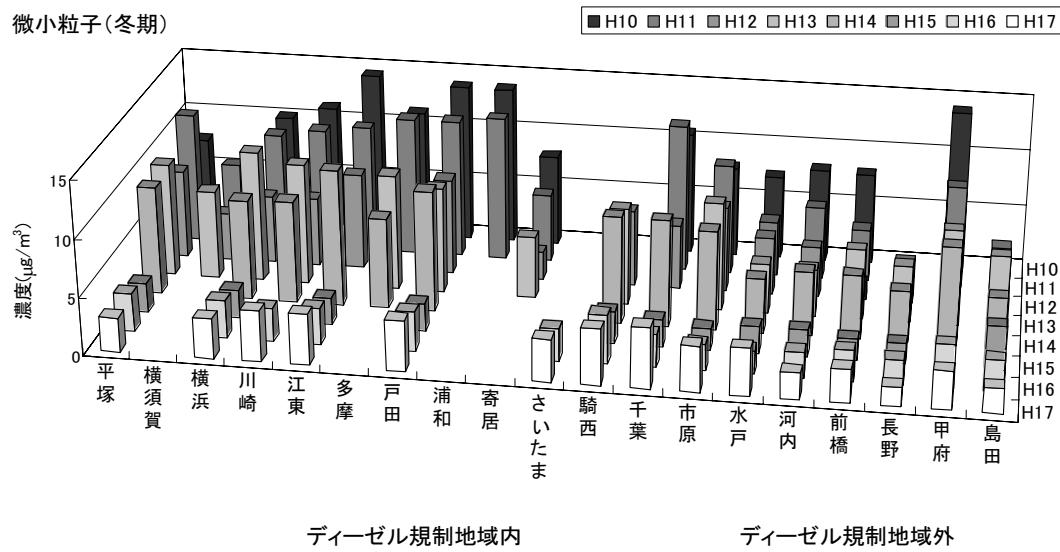


図 4-3-9 冬期調査における微小粒子中の元素状炭素濃度の経年変化

ディーゼル車規制地域内外の平均元素状炭素濃度の経年推移を図 4-3-10 に示した。上図の夏期の経年推移を見ると、ディーゼル車運行規制以前から規制地域内外の濃度差はほとんどなかった。規制地域内外の元素状炭素濃度は、どちらも平成 14 年度にピークを迎え、ディーゼル車運行規制が施行された平成 15 年度以降は大きく減少した。下図の冬期の経年推移を見ると、平成 14 年度以前は元素状炭素濃度が非常に高く、さらに規制地域内であり高濃度を示した。しかし、ディーゼル車運行規制が施行された平成 15 年度以降は規制地域内外にかかわらず大きく減少した。特に規制地域内での減少は大きく、規制地域外とほぼ同程度の濃度にまで減少していた。

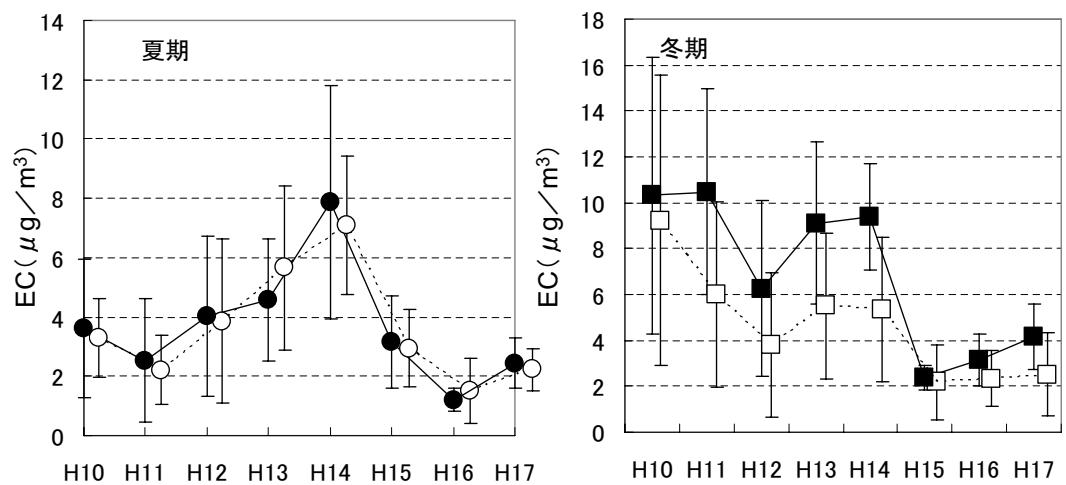


図 4-3-10 夏期(左)と冬期(右)のディーゼル車規制地域内外の微小粒子中の EC の経年変化
 ●■は規制地域内、○□は規制地域外、バーは 95%信頼区間を示す

4. 4 多環芳香族炭化水素成分濃度

粒子状物質に含まれる多環芳香族炭化水素(PAHs)のうち、ろ紙で捕集可能なベンズ(k)フルオランテン(BkF)、ベンズ(a)ピレン(BaP)、ベンズ(ghi)ペリレン(BghiP)について分析した。これら3成分のうち国際がん研究機関(IARC)ではBaPについては、ヒトに対して発ガン性の可能性が高いグループ2Aに、BkFについては、ヒトに対して発ガン性の可能性があるグループ2Bに評価している。BaPは平成8年の大気汚染防止法の改正で定められた有害大気汚染物質の優先取組物質でもあるが、米国環境保護庁(EPA)での発ガン性評価ではB2(ヒトに対して発ガン性を証明するデータが不十分である物質)に分類されている。動物実験では発ガン性が確認されており、ヒトのDNA阻害も報告されている。BkFも米国EPAでの発ガン性評価ではB2であるが、動物実験では発ガン性が確認されている。一方、BghiPはIARCでは発ガン性の評価ができない物質のグループ3に分類されているが、変異原性試験では陽性であり、動物実験ではBaPと混合投与すると、BaPの発ガン性を増強する例が報告されている。

(1) PAHs成分濃度

地点別の粗大粒子と微小粒子とを合計したPAHs各成分濃度を図4-4-1に示した。

夏期のPAHs各成分濃度はBkFが $0.026\text{ng}/\text{m}^3$ (長野)～ $0.247\text{ng}/\text{m}^3$ (市原)、BaPが $0.016\text{ng}/\text{m}^3$ (犬越路)～ $0.222\text{ng}/\text{m}^3$ (市原)、BghiPが $0.038\text{ng}/\text{m}^3$ (犬越路)～ $0.407\text{ng}/\text{m}^3$ (市原)の範囲であった。また、夏期の算術平均濃度はBkFが $0.073\text{ng}/\text{m}^3$ 、BaPが $0.059\text{ng}/\text{m}^3$ 、BghiPが $0.127\text{ng}/\text{m}^3$ であった。

一方、冬期のPAHs各成分濃度はBkFが $0.081\text{ng}/\text{m}^3$ (犬越路)～ $0.489\text{ng}/\text{m}^3$ (水戸)、BaPが $0.062\text{ng}/\text{m}^3$ (長野)～ $0.485\text{ng}/\text{m}^3$ (水戸)、BghiPが $0.141\text{ng}/\text{m}^3$ (犬越路)～ $1.16\text{ng}/\text{m}^3$ (水戸)の範囲であった。また、冬期の算術平均濃度はBkFが $0.278\text{ng}/\text{m}^3$ 、BaPが $0.228\text{ng}/\text{m}^3$ 、BghiPが $0.645\text{ng}/\text{m}^3$ であった。PAHs 3成分が粒子状物質に占める割合については夏期が4～34ppm、冬期は29～81ppmと比較的広い範囲であった。

同一地点におけるPAHsの冬期／夏期濃度比をみるとBkFが1.9(島田)～9.8(騎西)で平均4.7倍、BaPが1.7(犬越路)～11.7(騎西)で平均4.8倍、BghiPが2.1(犬越路)～13.5(水戸)で平均6.0倍と、冬期にかなり高くなった前年ほどではないが、かなり差が見られる結果となった。

(2) PAHsの粒径別存在割合

PAHsは化石燃料等の燃焼過程から不完全燃焼によって生成すること、今回分析対

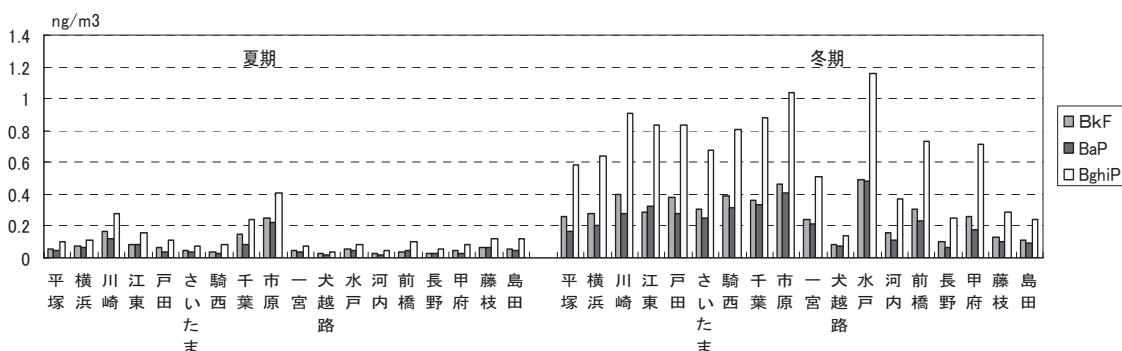


図4-4-1 地点別PAHs濃度

象の3成分が通常粒子状で存在することを考え合わせると、微小粒子側に偏って存在することが予想される。ここ数年の調査では微小粒子中の存在率は冬期でほぼ90%以上、夏期で70~90%であることが確認されている。今回の調査では夏期は47~89%，冬期は60~97%とやや広い範囲であった。低い結果は夏期・冬期ともに犬越路で、犬越路を除くと夏期は62~89%，冬期は80~97%となる。

(3) PAHs成分間の関係

3成分の濃度の合計を100%とした成分割合を図4-4-2に示した。例年は、夏期・冬期とも、ほとんどの地点でBkF<BaP<BgHPであったが、前年の夏期はBaP<BkF<BgHPとなる地点が多くなり、今回も18地点中16地点でこのパターンになった。冬期には18地点中17地点で同じパターンとなり、組成の変化が起こっているものと考えられる。各成分の割合はBkFが20~36%，BaPが15~26%，BgHPが44~62%で例年と同様であった。

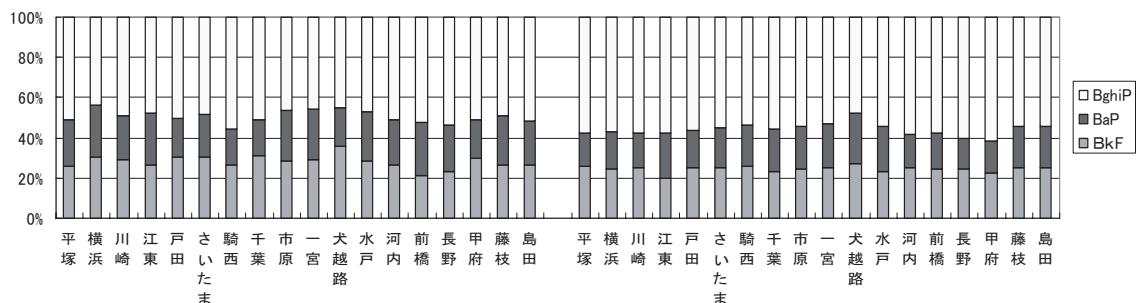


図4-4-2 PAHs 3成分の割合

図4-4-3にBgHPに対するBkF, BaPとの成分濃度の関係を示した。相関係数を r ，標本数を n とすると、夏期は $(BkF)=0.6118x(BgHP)-0.0046$ $r=0.991$ $n=18$ ， $(BaP)=0.5073x(BgHP)-0.0052$ $r=0.970$ $n=18$ であった。また冬期は、 $(BkF)=0.4143x(BgHP)+0.0113$ $r=0.979$ $n=18$ ， $(BaP)=0.3875x(BgHP)-0.021$ $r=0.954$ $n=18$ であった。夏期・冬期ともに比較的高い相関関係が認められた。

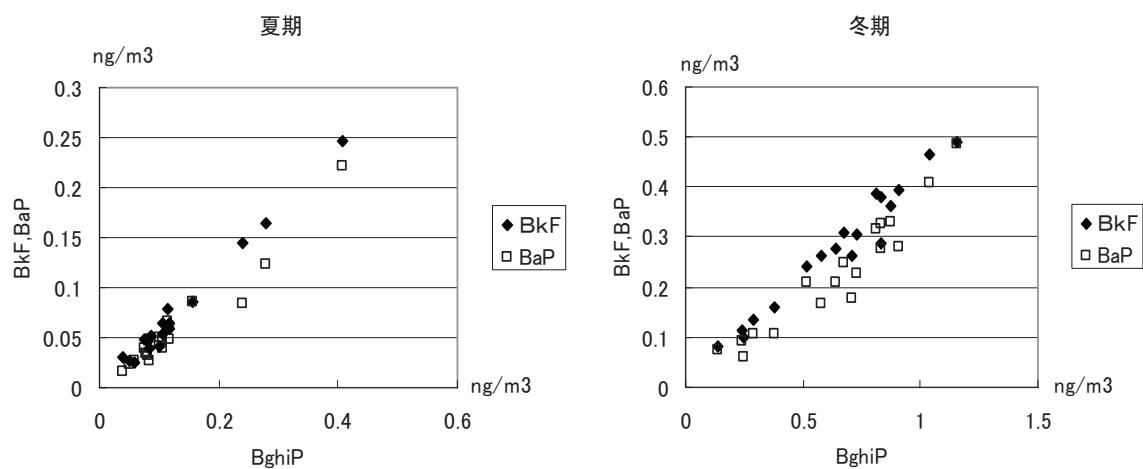


図4-4-3 BgHPとBkF, BaPとの関係

(4) 元素状炭素との関係

ディーゼル排出ガス中の粒子状物質いわゆるDEPの主要な指標元素である元素状炭素（EC）と微小粒子中のPAHs 3成分の関係を図4-4-4に示した。冬期のECとPAHsの間には例年は良い関係が認められていたが、15年度の調査結果では夏期、冬期とも、ECとの間に明確な関係が認められなかったが、16年度は、BkFとBaPについては、冬期にECとの相関係数が0.7以上となり、関係が再び認められるようになった。17年度（今回）の冬期の結果も0.8以上の相関係数となり、強い相関が認められた。

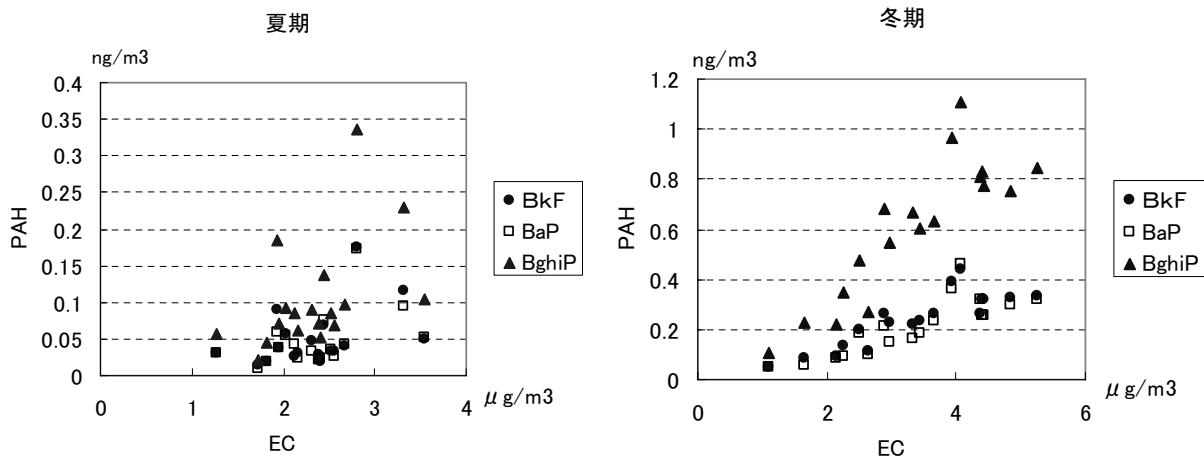


図4-4-4 微小粒子中の元素状炭素とPAHs各成分の関係

次にPAHsとECの濃度比を図4-4-5に示した。14年度以降、夏期よりも、冬期に高くなる傾向が認められる。BaPに注目すると、夏期は全地点で $0.1\text{ (ng}/\mu\text{g)}$ を下回った。15年度の冬期はディーゼル車運行規制地域内のほとんどの地点で $0.1\text{ (ng}/\mu\text{g)}$ を超えていたが、16年度は18地点中7地点で超え、今回は水戸の1地点だけが超えていた。18地点中13地点で $0.05\text{ (ng}/\mu\text{g)}$ を上回っていた。14年度の結果では、ほとんどの地点で $0.05\text{ (ng}/\mu\text{g)}$ を下回っていたことから、15年度以降は規制に伴いディーゼル車の排出ガス組成（特に、PAHsとECの組成比）に大きな変化があり、その後ゆっくりと戻っている可能性が考えられる。

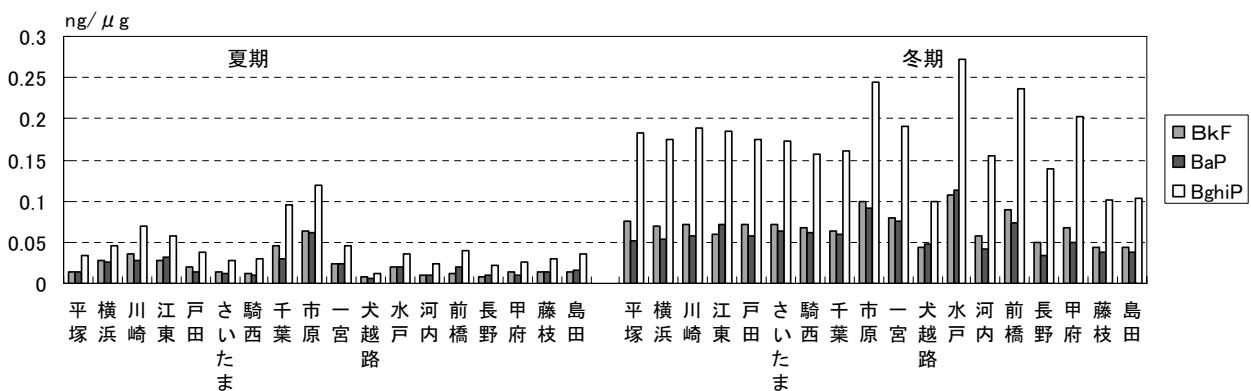


図4-4-5 微小粒子中の元素状炭素とPAHs各成分の濃度比

冬期の微小粒子中のBaPと元素状炭素の比について、最近8年間の傾向を見ると図4-4-6に示すように、ディーゼル車運行規制地域では平成11年度にBaP含有率が大きく落ち込んだが、その後増加傾向になり、平成14年度から15年度にかけて0.1($\text{ng}/\mu\text{g}$)以上の地点が見られるものの、地点間の差が大きい。再び減少傾向になり、今回の17年度のデータは平成11年度のように小さく範囲も狭くなっている。その他の地域でも、平成11年度にBaP含有率が大きく落ち込んだが、その後の増加傾向にある地点が多く、今回の17年度のデータで再び減少している。また、ディーゼル車運行規制地域と異なり、地点間の差が大きい。なお、市原と一宮は0.2($\text{ng}/\mu\text{g}$)以上のデータがいくつか含まれており、極地的な汚染を受けた可能性があると判断して、この図から省いてある。

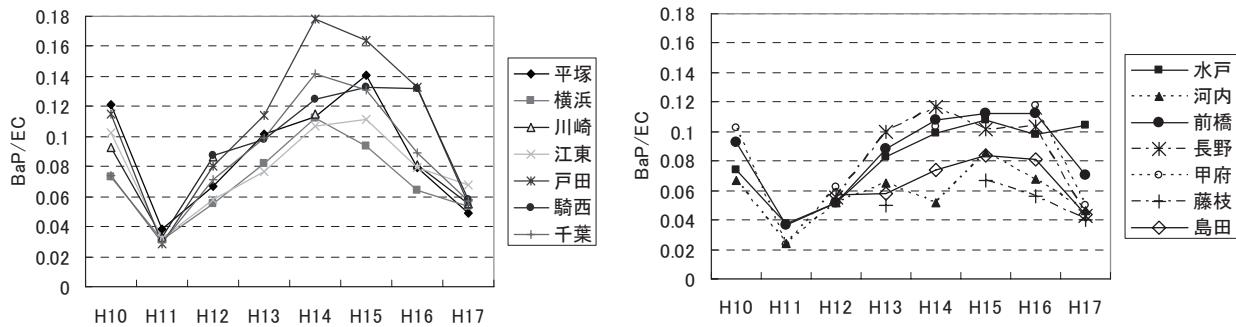


図4-4-6 冬期の微小粒子中のBaP/ECの比の年度推移

(左がディーゼル車運行規制地域で右はその他の地域)

(5) 年度推移について

最近8年間の微小粒子中の各PAHsの平均濃度および微小粒子濃度を図4-4-7に示す。PAHsも微小粒子も冬期に高くなる傾向があるが、13年度、14年度は夏期に微小粒子濃度が高くなったにもかかわらず、PAHsでは同様な動きが見られなかった。夏期の粒子濃度は、この8年間で4番目に低い濃度であり、冬期は15年度に次いで2番目に低い濃度であった。PAHsの濃度も、この8年間で夏期は平成11年度に次いで低い濃度で、冬期は最低レベルであった。こうした低い結果が続くことから、ディーゼル車運行規制による効果が現れた可能性がある。

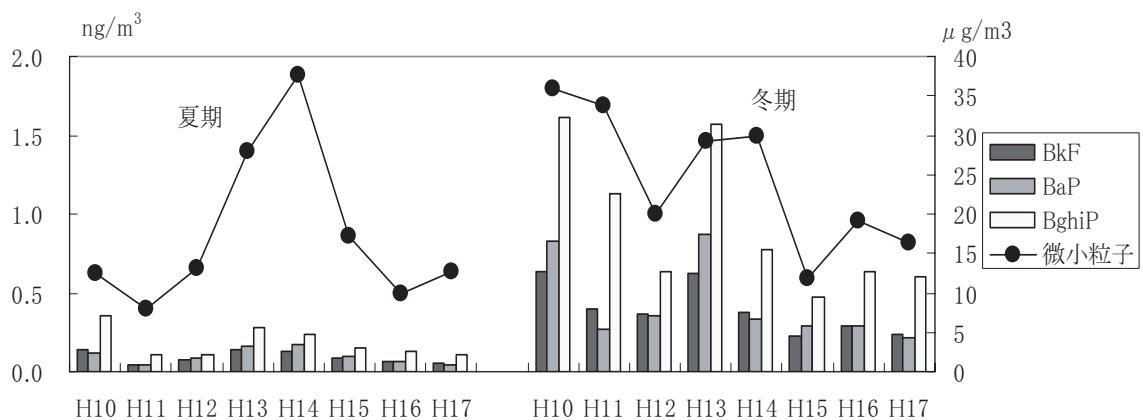


図4-4-7 微小粒子中の各PAHs濃度および微小粒子濃度の年度推移

(PAHs濃度は左軸、微小粒子濃度は右軸)

4. 5 金属等の元素成分濃度

日本原子力研究所の東海研究所 JRR-3 での熱中性子放射化分析（短寿命核種）により、バナジウム、アルミニウム、マンガン、塩素、ナトリウム、カルシウム、臭素、チタン、マグネシウム及び銅の 10 元素を定量し、これらの成分の季節的・地點的な特徴について考察した。

(1) バナジウム

各調査地点におけるバナジウム濃度を、季節別、粒径別に図 4-5-1 に示す。粗大粒子では、夏期が $0.00027\text{--}0.0027 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、冬期が $0.00024\text{--}0.0015 \mu\text{g}/\text{m}^3$ の範囲にあり、微小粒子では、夏期が $0.00091\text{--}0.011 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、冬期が $0.00018\text{--}0.0047 \mu\text{g}/\text{m}^3$ の範囲にあった。平成 16 年度までと同様、夏季に微小側が高濃度となり、地域的には石油燃焼施設が集中している東京湾岸で高い傾向にあった。

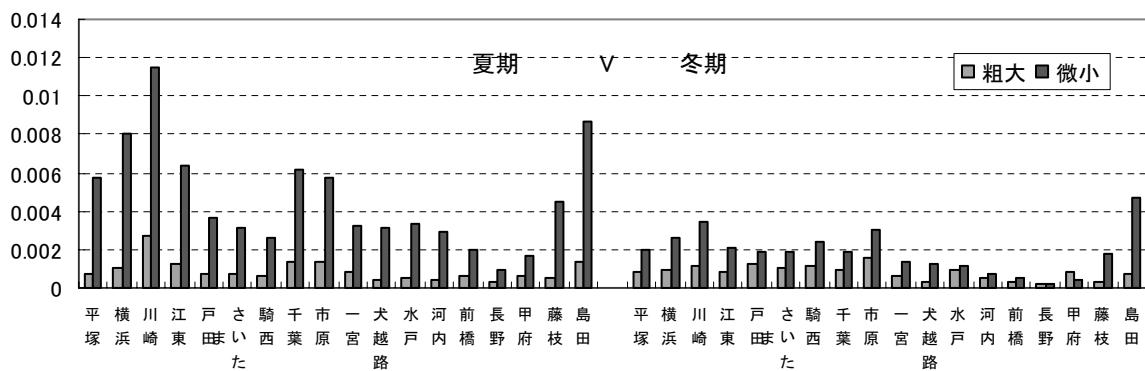


図 4-5-1 バナジウム濃度

(2) アルミニウム

アルミニウムの濃度を図 4-5-2 に示す。粗大粒子では、夏期が $0.082\text{--}0.25 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、冬期が $0.092\text{--}0.36 \mu\text{g}/\text{m}^3$ の範囲にあり、微小粒子では、夏期が $0.018\text{--}0.14 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、冬期が $0.010\text{--}0.24 \mu\text{g}/\text{m}^3$ の範囲にあった。平成 16 年度までと同様、粗大側が高濃度となった。アルミニウムは道路粉じん若しくは土壌に由来すると考えられており、これを反映する結果となった。また、平成 14 年度までのように冬季に高濃度となる傾向が見られた。

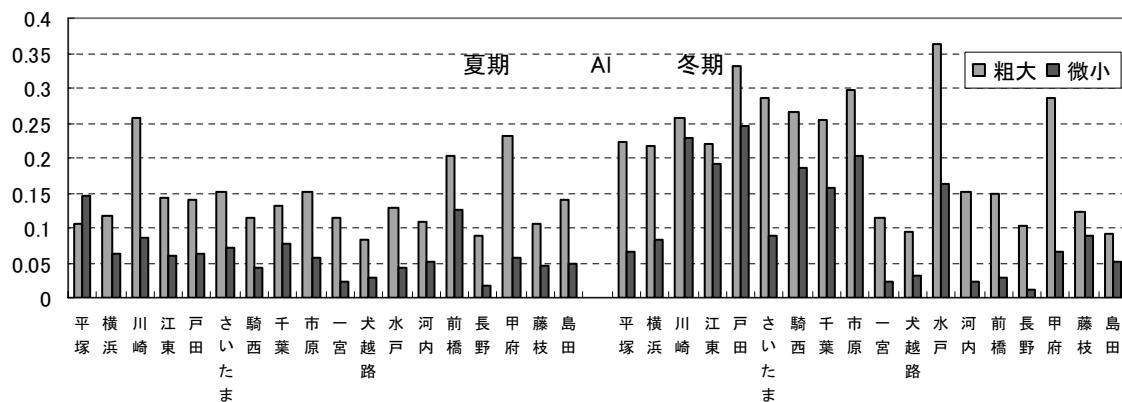


図 4-5-2 アルミニウム濃度

(3) マンガン

マンガンの濃度を図 4-5-3 に示す。粗大粒子では、夏期が $0.0018\text{--}0.018 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、冬

期が $0.0021\sim0.021 \mu\text{g}/\text{m}^3$ の範囲にあり、微小粒子では、夏期が $0.0014\sim0.015 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、冬期が $0.0019\sim0.028 \mu\text{g}/\text{m}^3$ の範囲にあった。夏期は粗大側が高く、冬期は微小側が東京湾岸で高くなる傾向がある。マンガンは鉄鋼工場に由来すると考えられ、冬期の微小粒子はこれを反映している。このような傾向は例年と同様である。

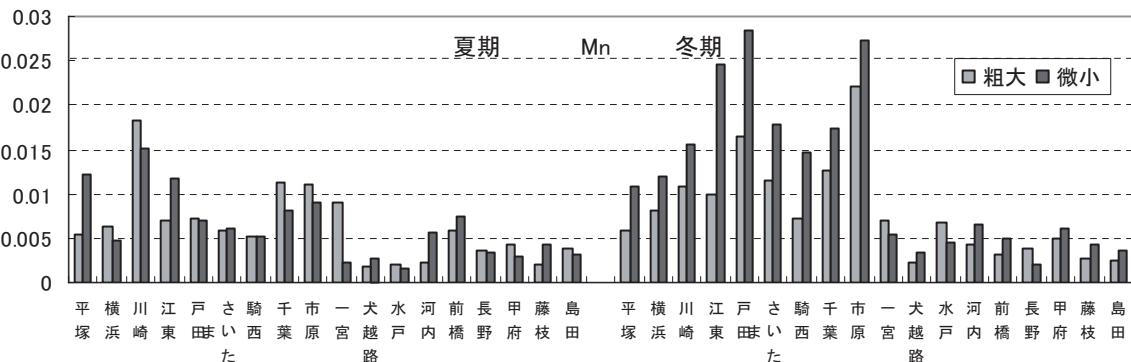


図 4-5-3 マンガン濃度

(4) 塩素

塩素の濃度を図 4-5-4 に示す。粗大粒子では、夏期が $0.0078\sim11 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、冬期が $0.062\sim1.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ と広い範囲にあり、微小粒子では、夏期が $<0.01\sim0.54 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、冬期が $<0.01\sim2.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ の範囲にあった。海に近い地点で粗大側が高く、海塩の影響と考えられる。冬季の微小粒子は例年高い傾向があったが、15 年度からは低濃度の傾向が続き、17 年度も戸田、千葉等の一部を除いてその傾向が見られた。

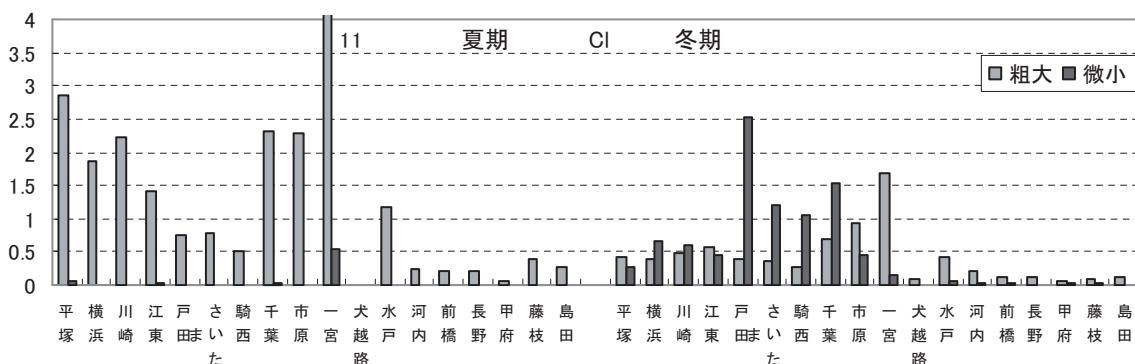


図 4-5-4 塩素の濃度

(5) ナトリウム

ナトリウムの濃度を図 4-5-5 に示す。粗大粒子では、夏期が $0.20\sim4.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、冬期

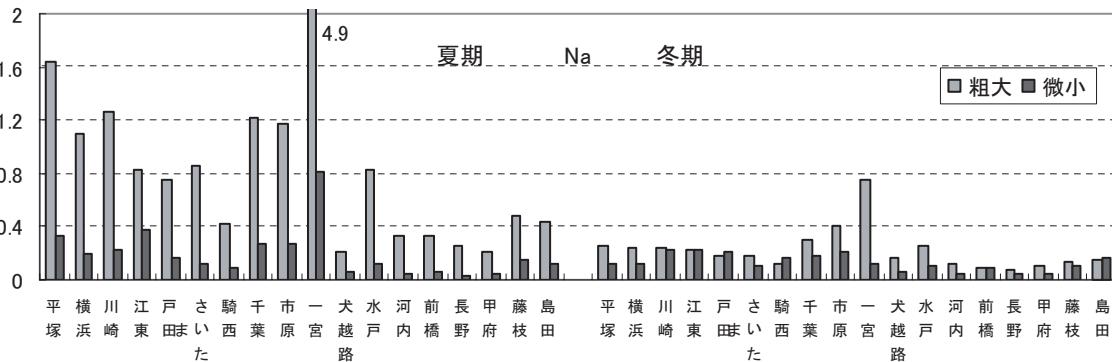


図 4-5-5 ナトリウム濃度

が $0.074\sim0.75 \mu\text{g}/\text{m}^3$ の範囲にあり、微小粒子では、夏期が $0.04\sim0.80 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、冬期が $0.04\sim0.22 \mu\text{g}/\text{m}^3$ の範囲にあった。塩素同様、海に近い地点で粗大側が高く、海塩の影響と考えられる。

(6) カルシウム

カルシウムの濃度を図 4-5-6 に示す。粗大粒子では、夏期が $<0.04\sim0.62 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、冬期が $0.08\sim0.69 \mu\text{g}/\text{m}^3$ の範囲にあり、微小粒子では、夏期が $<0.01\sim0.11 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、冬期が $<0.01\sim0.22 \mu\text{g}/\text{m}^3$ の範囲にあった。カルシウムは道路粉じんなどに由来すると考えられ、例年同様、粗大側が高い傾向にあった。微小粒子は多くの地点で検出限界以下であった。

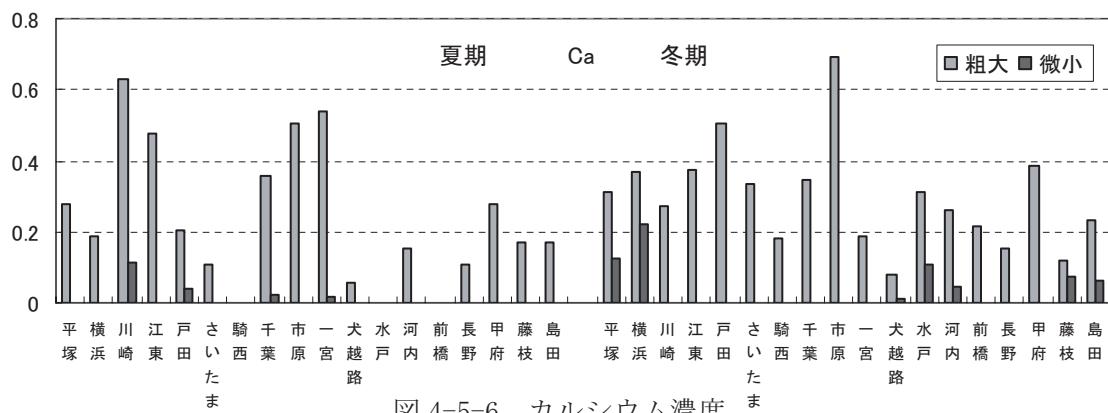


図 4-5-6 カルシウム濃度

(7) 臭素

臭素の濃度を図 4-5-7 に示す。粗大粒子では、夏期が $0.002\sim0.047 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、冬期が $<0.001\sim0.010 \mu\text{g}/\text{m}^3$ の範囲にあり、微小粒子では、夏期が $0.0036\sim0.0093 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、冬期が $0.0015\sim0.020 \mu\text{g}/\text{m}^3$ の範囲にあった。例年同様、冬季の微小側が高い傾向にあった。

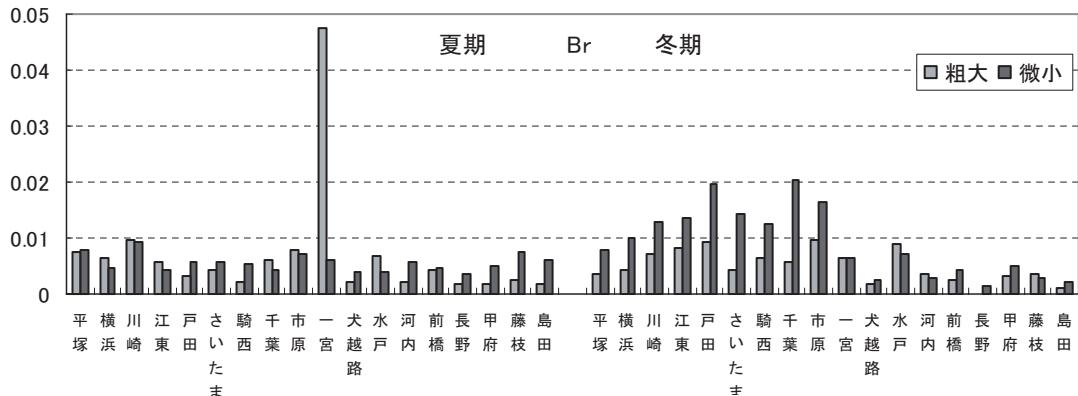


図 4-5-7 臭素濃度

(8) チタン

チタンの濃度を図 4-5-8 に示す。粗大粒子では、夏期が $0.009\sim0.055 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、冬期が $0.007\sim0.039 \mu\text{g}/\text{m}^3$ の範囲にあり、微小粒子では、夏期が $<0.001\sim0.019 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、冬期が $<0.001\sim0.033 \mu\text{g}/\text{m}^3$ の範囲にあった。例年同様、粗大側が高い傾向にあった。

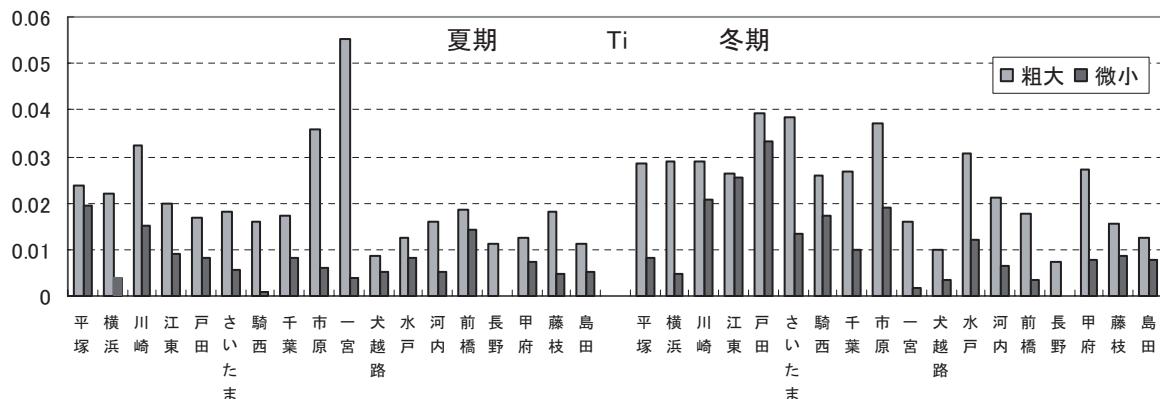


図 4-5-8 チタン濃度

(9) マグネシウム

マグネシウムの濃度を図 4-5-9 に示す。粗大粒子では、夏期が $<0.02\text{~}1.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、冬期が $0.08\text{~}0.62 \mu\text{g}/\text{m}^3$ の範囲にあり、微小粒子では、夏期が $0.05\text{~}0.33 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、冬期が $0.05\text{~}0.41 \mu\text{g}/\text{m}^3$ の範囲にあった。昨年度は粗大側の濃度が高く、微小側との差が顕著であったが、今年度は微小側が高い地点も相当数見られた。

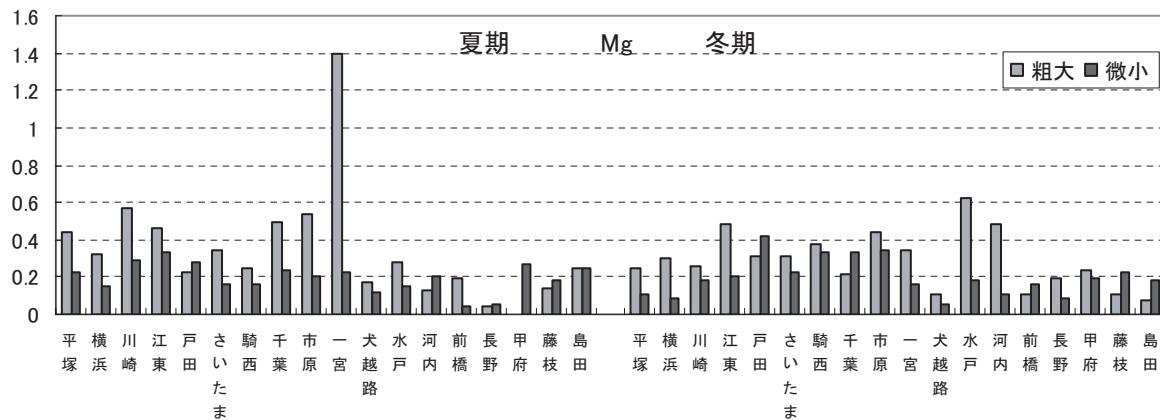


図 4-5-9 マグネシウム濃度

(10) 銅

銅の濃度を図 4-5-10 に示す。粗大粒子では、夏期が $0.0012\text{~}0.031 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、冬期が $0.0039\text{~}0.026 \mu\text{g}/\text{m}^3$ の範囲にあり、微小粒子では、夏期が $<0.002\text{~}0.013 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、冬期が $<0.002\text{~}0.017 \mu\text{g}/\text{m}^3$ の範囲にあった。粒径別では昨年度と同様、粗大側が高い傾向にあった。

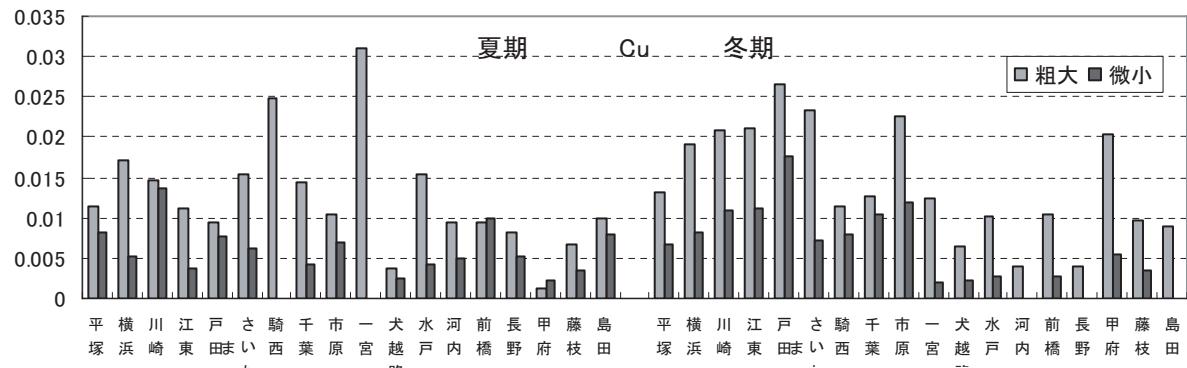


図 4-5-10 銅濃度

4. 6 発生源寄与の推定

(1) 使用した発生源データ

表4-6-1に今年度の寄与率計算で使用した発生源データを示す。6発生源×7項目で、平成2年度以降、同じものを使用してきたが、平成14年度の報告書から、重油燃焼と廃棄物焼却について東京都のデータ¹⁾に差し替えている。

表 4-6-1 寄与の推定計算で使用した発生源データ（単位：%）

	自動車	重油燃焼	廃棄物焼却	海塩粒子	道路粉じん	鉄鋼
C a	0.045	0.212	2.6	1.2	6.0	4.5
N a	0.008	0.664	5.26	30.42	1.1	1.4
A l	0.020	0.529	0.646	0.00003	6.5	1.0
K	0.234	0.434	4.77	1.1	0.97	1.3
M n	0.012	0.019	0.0247	0.000005	0.15	2.2
V	0.005	0.212	0.00286	0.000005	0.021	0.013
CEL	55.7	30.28	0.291	0	4.0	0

(2) 発生源寄与率の推定方法

従来と同様に6発生源×7項目の線形計画法で行い、6発生源の寄与の合計を最大化することを目的とする。しかし、寄与の合計が粉じん濃度を超えないように制限するため、式の数は8本となり、6発生源×8項目とも言える。計算ソフトとして、15年度報告書から、文献2のBASICプログラムをエクセルのVBAに翻訳したものを使用している。

粉じん濃度は石英ろ紙のデータを使用したが、カリウムは水溶性成分のカリウムイオンの結果を使用した。また、ナトリウムとカルシウムについては、放射化分析のナトリウムとカルシウムをイオンクロマトによるナトリウムイオンとカルシウムイオンのデータと比較して濃度の高い方の値を採用した。

二次粒子の計算は平成元年度以来同じで、次式のように4種の水溶性成分の実測値の和として計算した。

$$\text{二次粒子} = [\text{NH}_4^+] + [\text{Cl}^-] + [\text{NO}_3^-] + [\text{SO}_4^{2-}]$$

しかし、この式は一次発生量を考慮していないため、過大評価している可能性もあるが、その一方、二次性成分の有機炭素を考慮していないため、相殺されている部分もあると考えられる。二段分級のため粗大粒子側にも混入する可能性があると考えて、粗大粒子でも二次粒子の計算を行っている。ただし、粗大粒子中の塩化物イオンは海塩粒子起源の塩化ナトリウムなどが考えられるため、粗大粒子の二次粒子の計算には塩化物イオンを使用していない。また、海塩粒子には7.68%の硫酸イオンが含まれていることを考慮して、ナトリウムイオンから相当する硫酸イオンを補正した。また、寄与の合計が100%を超える場合は、二次粒子の量を減らして100%になるように調整した。

(3) 計算結果

表4-6-2～4-6-5および図4-6-1～4-6-4に発生源寄与の推定結果を示す。不明部分は粒子

状物質濃度（石英ろ紙）から各発生源の寄与量を差し引いた結果とした。

粗大粒子では、自動車は夏期については、0%となる地点はなく、10%を超える地点が9地点もあり、昨年度とはかなり異なる結果であった。冬期は10%を超える地点が13地点もあり、こちらも昨年度とはかなり異なる結果であった。重油燃焼は、夏期も冬期も0~7%未満の寄与率が計算され、平均して2~3%程度の寄与が計算された。廃棄物焼却と鉄鋼については、夏期はほとんどの地点で1%未満の寄与となり、冬期は全地点で0%の寄与となった。海塩粒子については、夏期は5地点で20%を超えたが、冬期は一宮と犬越路を除いて0%であった。夏期の一宮は60.9%という極端な寄与率となった。道路粉じんは、地点によるバラツキが例年同様に大きく、夏期が0~32%，冬期が0~39.9%と幅広い寄与率となつた。二次粒子は粗大粒子の場合、分級されなかった粒子の混入によるものが主と考えられ、評価が難しいが、従来と異なり、夏期も冬期も4~20%の範囲で比較的揃った結果であった。不明分は微小粒子よりも粗大粒子が、夏期よりも冬期が多い傾向があり、夏期の粗大粒子では平均で40%程度であり、50%を超えたのは犬越路だけであった。一方、冬期の粗大粒子では平均で60%を超え、50%未満となったのは平塚と犬越路だけであった。

微小粒子では、夏期は平成16年度に統いて最大が二次粒子で、二番目が自動車というパターンが多く見られたが、逆に冬期は最大が自動車で、二番目が二次粒子というパターンが多く見られた。夏期は、二次粒子が最大で、次いで自動車という例が18例中15例あり、冬期は、18例中6例であった。不明分がゼロとなったのは夏期の川崎市だけであり、マイナス分を二次粒子から差し引いた。夏期に不明分が20%を超えた例は18例中8例あり、冬期には18例中11例が超えていた。

表4-6-3 夏期微小粒子の発生源寄与推定結果

	粒子濃度	自動車	重油燃焼	廃棄物	海塩粒子	道路粉じん	鉄鋼	二次粒子	不明
平塚	15.8	4.53	0.00	0.00	0.82	0.00	0.00	4.42	5.99
横浜	11.1	3.42	0.41	0.00	0.80	0.00	0.00	5.20	1.22
川崎	13.6	3.06	5.26	0.40	0.73	0.42	0.59	3.20	0.00
江東	12.7	3.65	1.33	0.00	1.19	0.00	0.00	4.41	2.09
戸田	11.0	3.26	1.66	0.74	0.51	0.00	0.00	4.28	0.51
さいたま	11.4	3.45	0.81	0.00	0.43	0.00	0.00	4.16	2.50
騎西	9.8	4.02	0.50	0.00	0.37	0.00	0.00	3.53	1.41
千葉	12.4	2.97	0.94	0.00	0.97	0.00	0.00	4.83	2.67
市原	12.5	3.82	2.23	0.00	1.00	0.00	0.00	5.23	0.25
一宮	10.5	2.28	0.00	0.00	1.54	0.00	0.00	5.38	1.25
犬越路	15.8	2.72	0.71	0.00	0.27	0.00	0.00	10.17	1.89
水戸	10.7	3.37	0.23	0.00	0.55	0.00	0.00	4.99	1.54
河内	10.2	2.83	0.79	0.00	0.20	0.00	0.00	4.05	2.29
前橋	11.3	3.36	0.84	0.12	0.24	0.00	0.00	3.93	2.79
長野	12.6	4.16	0.33	0.12	0.20	0.00	0.00	4.54	3.25
甲府	14.3	4.20	0.70	0.31	0.19	0.00	0.00	5.05	3.82
藤枝	16.4	6.29	0.16	0.00	0.55	0.00	0.00	5.30	4.09
島田	15.5	4.04	1.41	0.00	0.45	0.00	0.00	6.62	2.99
	粒子濃度	自動車	重油燃焼	廃棄物	海塩粒子	道路粉じん	鉄鋼	二次粒子	不明
平塚	8.8	28.8%	0.0%	0.0%	5.2%	0.0%	0.0%	28.0%	38.0%
横浜	8.5	30.9%	3.7%	0.0%	7.3%	0.0%	0.0%	47.0%	11.1%
川崎	9.0	22.4%	38.5%	2.9%	5.3%	3.1%	4.3%	23.5%	0.0%
江東	10.0	28.8%	10.5%	0.0%	9.4%	0.0%	0.0%	34.8%	16.5%
戸田	9.0	29.7%	15.2%	6.7%	4.7%	0.0%	0.0%	39.1%	4.6%
さいたま	8.6	30.4%	7.1%	0.0%	3.8%	0.0%	0.0%	36.7%	22.0%
騎西	9.1	40.9%	5.0%	0.0%	3.8%	0.0%	0.0%	35.9%	14.3%
千葉	8.2	24.0%	7.6%	0.0%	7.8%	0.0%	0.0%	39.0%	21.6%
市原	10.8	30.5%	17.8%	0.0%	8.0%	0.0%	0.0%	41.7%	2.0%
一宮	7.7	21.9%	0.0%	0.0%	14.8%	0.0%	0.0%	51.5%	11.9%
犬越路	10.6	17.3%	4.5%	0.0%	1.7%	0.0%	0.0%	64.5%	12.0%
水戸	6.5	31.5%	2.1%	0.0%	5.2%	0.0%	0.0%	46.7%	14.4%
河内	11.7	27.9%	7.8%	0.0%	1.9%	0.0%	0.0%	39.9%	22.5%
前橋	11.5	29.8%	7.5%	1.1%	2.1%	0.0%	0.0%	34.8%	24.8%
長野	15.5	33.0%	2.6%	0.9%	1.6%	0.0%	0.0%	36.1%	25.8%
甲府	12.5	29.4%	4.9%	2.2%	1.4%	0.0%	0.0%	35.4%	26.8%
藤枝	11.3	38.4%	1.0%	0.0%	3.3%	0.0%	0.0%	32.3%	25.0%
島田	10.3	26.0%	9.1%	0.0%	2.9%	0.0%	0.0%	42.7%	19.3%

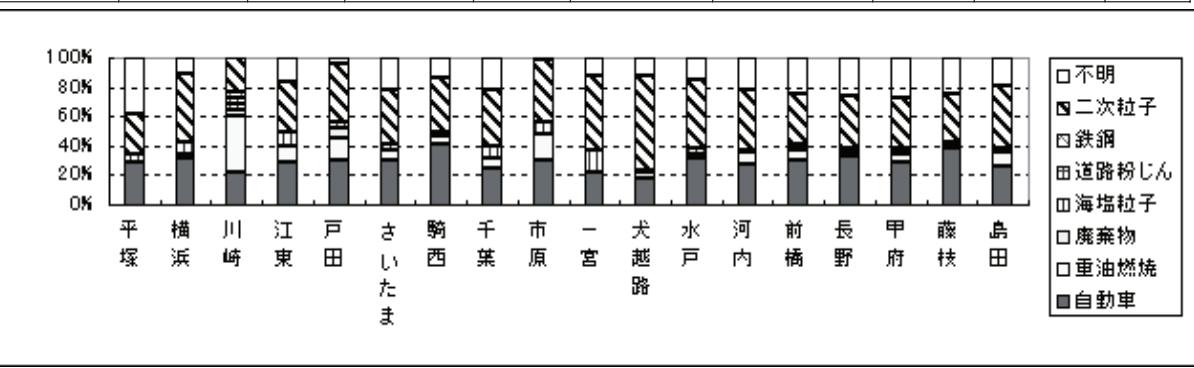


図 4-6-2 夏期微小粒子の発生源寄与の推定結果

過去9年間の微小粒子の発生源寄与率（全調査地点の平均）の推移を図4-6-5に示す。夏期は二次粒子が自動車よりも多く、同様な傾向は平成9年度と13年度以降に見られている。冬期の自動車は平成14年度までは、40%以上のほぼ一定した寄与率を示していたが、15年度に全地点平均で31%となり、16年度は24%まで下がった。しかし、今年度は34%に上がっており、対前年度比で42%の増加となった。発生源の説明量も、低かった前年度よりは若干増え、80%近い結果となった。

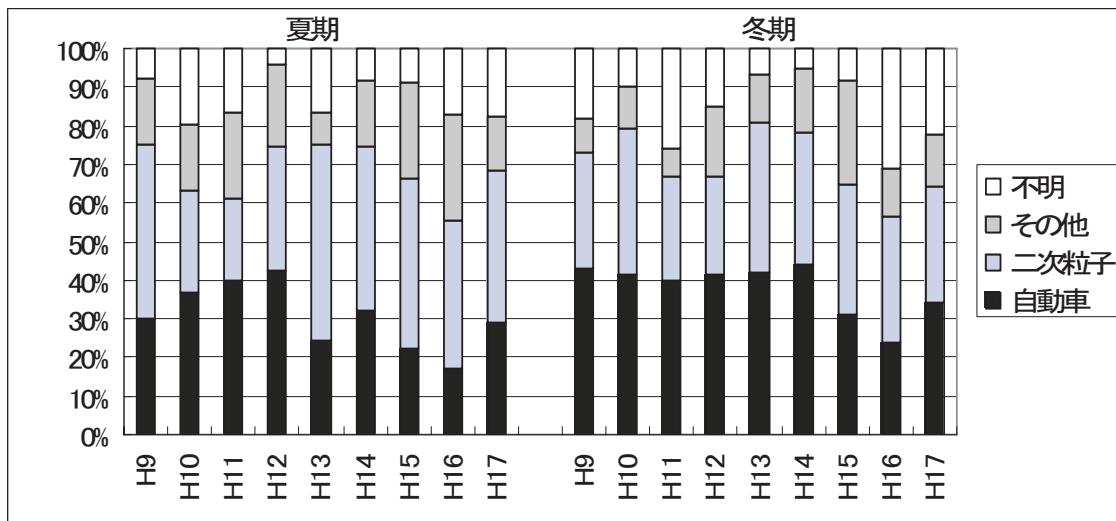


図4-6-5 微小粒子の発生源寄与の推移
(その他は鉄鋼・廃棄物焼却・重油燃焼・海塩粒子・道路粉じんの合計)

参考文献

- 1)ディーゼル車排ガスと花粉症の関連に関する調査委員会報告書. 東京都. 平成15年5月.
- 2)玄光男, 井田憲一: (パーソナルコンピュータソフトウェアシリーズ) 線形計画・目標計画プログラム, 電気書院発行. 1985年

4. 7 道路沿道調査について

浮遊粒子状物質の中でも特にディーゼル排気粒子や二次生成粒子が主体となる微小粒子については、人体への健康影響が懸念されており、道路沿道を含めた大気環境中における汚染実態の把握が重要である。道路沿道を中心とした関東甲信静地域における微小粒子(PM_{2.5})の共同調査は平成14年度より実施しているが、15年10月からは関東1都3県の条例によるディーゼル車運行規制が開始され、排出規制の強化が図られている。16年度に引き続く今年度は、規制後の期間における共同調査となるが、これまでの調査の結果との比較等も加え、首都圏をはじめとした関東一円におけるPM_{2.5}濃度及び組成の変化について検討した。

道路沿道の調査地点は、図2-2-2に示した13地点(自排局)であり、条例規制地域である首都圏内(平塚松原、横浜滝頭、川崎池上、江東亀戸、鴻巣、柏大津ヶ丘、千葉市役所)とその他の首都圏外(自排水戸、矢板市片岡、国設前橋、更埴IC、山梨県庁、藤枝)とに地域区分して、以下では用いている。17年度の夏期及び冬期の各5測定期間(夏期期間①:7月25日～27日、②:7月27日～29日、③:7月29日～8月1日、④:8月1日～3日、⑤:8月3日～5日、冬期期間①:11月28日～30日、②:11月30日～12月2日、③:12月2日～5日、④:12月5日～7日、⑤:12月7日～9日)に共同調査を実施した。

大気中の粒子状物質は、試作した簡易サンプラーにより3段階(上段より粒径10μm以上の粒子状物質(PM_{>10})、粒径2.5～10μm(PM_{2.5-10})、粒径2.5μm以下(PM_{2.5})に分級捕集した。捕集試料(石英繊維ろ紙)のPM_(2.5-10)、PM_{2.5}について水溶性成分、炭素成分及びPM_{2.5}について多環芳香族炭化水素成分の分析を行った。

(1) PM_{2.5}等濃度の地域性と期間変化

各地点の夏期及び冬期期間における粒径別粒子状物質の平均濃度を図4-7-1に示した。

PM(_{>10})濃度は夏期が3.4～21μg/m³(平均8.5μg/m³)、冬期が1.8～16μg/m³(平均7.7μg/m³)、PM_(2.5-10)濃度は夏期が7.6～24μg/m³(平均12μg/m³)、冬期が2.8～14μg/m³(平均8.5μg/m³)の地域分布であり、冬期では各地点ともPM(_{>10})とPM_(2.5-10)の濃度はほぼ同程度であった。

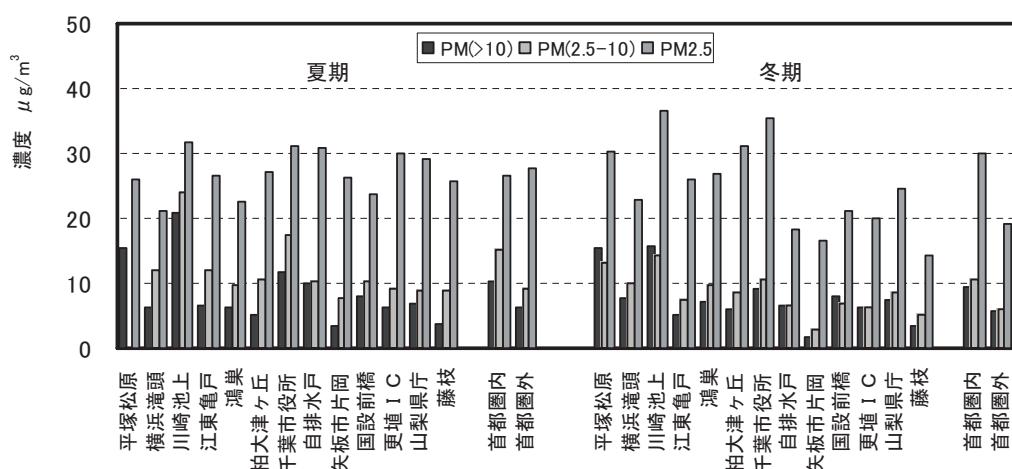


図4-7-1 道路沿道地点における粒径別粒子状物質濃度

粗大な粒子の PM(>10) と PM(2.5-10) を合計した濃度が $25 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を超え高かったのは、夏期及び冬期の川崎池上、平塚松原、夏期の千葉市役所であった。いずれも首都圏内の地点であり、首都圏内では首都圏外と比べ、夏期、冬期とも濃度が $4\text{--}6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 程高めであった。

PM2.5 濃度は夏期が $21\text{--}32 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (平均 $27 \mu\text{g}/\text{m}^3$)、冬期が $14\text{--}37 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (平均 $25 \mu\text{g}/\text{m}^3$) の地域分布であり、夏期と冬期の濃度差は小さいが、地点間の濃度差は冬期で大きい。PM2.5 濃度が $30 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えた地点は、夏期では首都圏内、外の川崎池上、千葉市役所、自排水戸、更埴 IC であったが、冬期ではいずれも首都圏内の川崎池上、千葉市役所、柏大津ヶ丘、平塚松原であった。首都圏内では江東亀戸で夏期と冬期が同程度の濃度であったが、他の地点では $2\text{--}5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 程夏期よりも冬期に高めとなった。一方、首都圏外ではいずれの地点も冬期に夏期と比べ $3\text{--}13 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 程低い濃度であり、地域的な違いがみられた。

各地点の夏期、冬期(各 5 測定期間)における PM(2.5-10) 及び PM2.5 の濃度変動を図 4-7-2 に示した。PM(2.5-10) の全地点の平均による 5 期間の濃度変動は夏期が $10\text{--}15 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、冬期が $6.4\text{--}13 \mu\text{g}/\text{m}^3$ の範囲であった。夏期の平塚松原では期間①～③に $21\text{--}25 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、川崎池上では期間③～⑤に $28\text{--}31 \mu\text{g}/\text{m}^3$ と濃度が高くなっており、他地点との変動パターンからのずれが大きかった。冬期では地点間で $9\text{--}13 \mu\text{g}/\text{m}^3$ のほぼ一定した濃度幅のある緩やかな濃度変動パターンとなった。

PM2.5 の全地点の平均による 5 期間の濃度変動は夏期が $17\text{--}36 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、冬期が $19\text{--}32 \mu\text{g}/\text{m}^3$ の範囲であり、各地点の変動パターンのピークは、夏期では期間③あるいは期間⑤、冬期では多くが期間①であった。夏期では各期間における地点間の濃度幅が $12\text{--}16 \mu\text{g}/\text{m}^3$ の狭い範囲で変動する類似したパターンとなった。冬期では地点間の濃度幅が $21\text{--}30 \mu\text{g}/\text{m}^3$ と大きくなり、夏期に比べ倍ほど濃度差のある変動パターンとなっており、これは前述の冬期における首都圏内、外における地域差によっている。今回の各地点における PM2.5 の期間濃度は夏期、冬期とも $40 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 程が高い濃度レベルとなつたが、この濃度を超えたのは夏期では期間③の自排水戸、山梨県庁、期間⑤の千葉市役所、自排水戸、川崎池上であり、冬期では期間①、⑤の川崎池上であった。

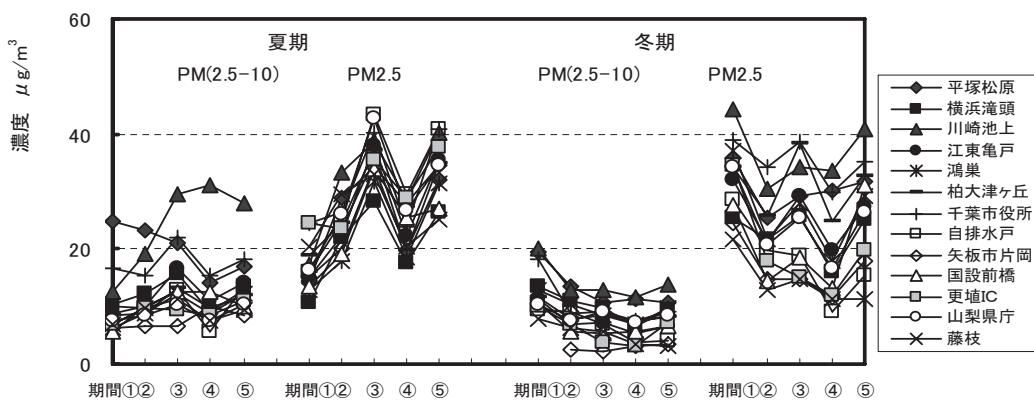


図 4-7-2 道路沿道地点における PM(2.5-10) 及び PM2.5 濃度の期間変動

PM(2.5-10) 及び PM2.5 濃度の期間変動について首都圏内と首都圏外の地域区分により、各地域の平均による期間変動を図 4-7-3 に示した。

PM(2.5-10) 濃度は首都圏内、外で夏期、冬期とも濃度レベルに違いがあるが、ほぼ同様の変動パターンを示した。首都圏内で首都圏外と比べ、夏期が 5~8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、冬期が 4~6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 程高くなる濃度変動であった。

PM2.5 濃度の首都圏内、外における期間変動は、夏期はよく一致しており、首都圏内が 16~36 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (平均 27 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)、首都圏外が 18~37 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (平均 28 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) の範囲であり、ともに期間③でピークとなった。濃度低下のみられた期間④では首都圏外で首都圏内よりも 4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 程高い濃度であるが、その他の期間

では、地域差は小さく 2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下であった。冬期の期間変動は首都圏内が 25~35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (平均 30 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)、首都圏外が 12~29 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (平均 19 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) の範囲であり、地域間で濃度差のある変動パターンとなった。各期間とも首都圏内で首都圏外と比べ濃度が高めであり、期間①の 7 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ から期間③の 14 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ までの地域差であった。PM2.5 濃度の首都圏内、外の期間変動では季節的な違いが明らかであった。

今回の道路沿道の各地点で測定された簡易サンプラーによる PM10(PM(2.5-10) +PM2.5)、PM2.5 濃度と自排局の常監データの SPM 測定値(資料編に記載)の関係を図 4-7-4 に示した。SPM 測定値($X \mu\text{g}/\text{m}^3$)と PM10, PM2.5 濃度($Y \mu\text{g}/\text{m}^3$)の相関図では PM10, PM2.5 濃度は夏期、冬期とも同程度の濃度範囲であるが SPM 測定値は夏期では冬期と比べ倍ほど広い濃度範囲に散布している。得られた回帰直線の傾きは、SPM と PM10 の関係では夏期が 0.86、冬期が 1.26 であり、夏期と冬期を併せると 0.97 となり、ほぼ 1:1 に対応していた。SPM と PM2.5 の関係では傾きは夏期が 0.59、冬期が 0.86 となり、季節的な違いがみられているが、この結果は 14 年度から引き続き、ほぼ同様に得られている。

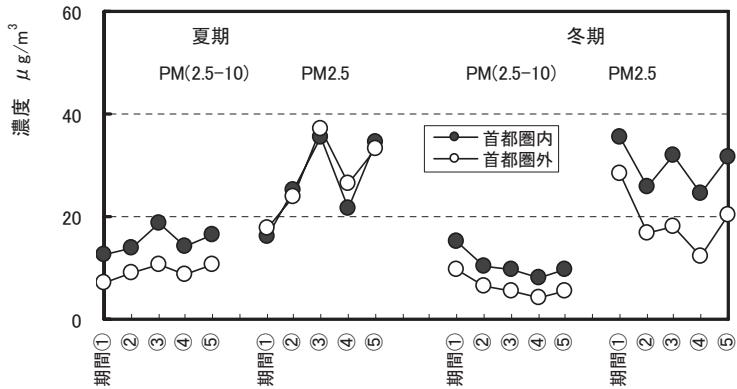


図 4-7-3 首都圏内、外における濃度変動

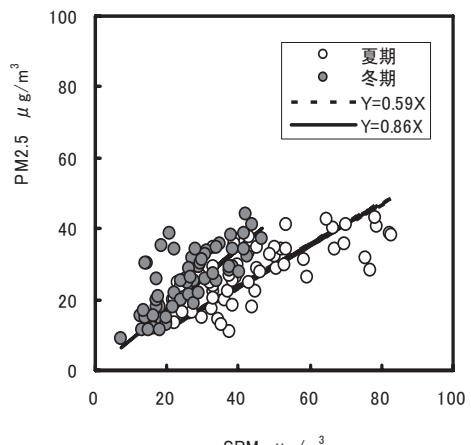
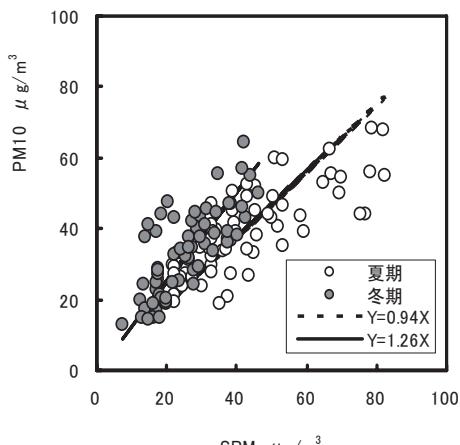


図 4-7-4 PM10、PM2.5 濃度と SPM 測定値の関係

(2) イオン成分及び炭素成分濃度の地域性と期間変動

① イオン成分

粗大な PM(2.5-10)粒子については、道路沿道では一般環境と同様に海塩由来の粒子に加えて、車の走行に伴う道路ダストの影響を受けているものと考えられる。各地点における Na^+ (海塩粒子)及び Ca^{2+} (道路ダスト)の指標成分について、夏期及び冬期の平均濃度による地域分布を図 4-7-5 に示した。

夏期の Na^+ 濃度は沿岸部の平塚松原で $2.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ と特に高く、その他の首都圏内の 4 地点でも $1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えていた。内陸部の地点の多い首都圏外では $0.3 \sim 0.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ の低い濃度範囲であった。冬期の Na^+ 濃度は首都圏内では $0.1 \sim 0.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、首都圏外では $0.1 \sim 0.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ といずれも低い濃度範囲の地域分布であった。こうした結果は 16 年度と同様であり、海洋からの影響の季節的な違いによるものと考えられた。 Ca^{2+} 濃度は、川崎池上では夏期、冬期(1.1 、 $0.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$)とも他地点よりも高く、道路ダストの影響によるものと考えられた。その他の首都圏内の夏期、冬期では $0.2 \sim 0.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ の濃度範囲であり、首都圏外では季節によらず $0.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下の低い濃度範囲であった。

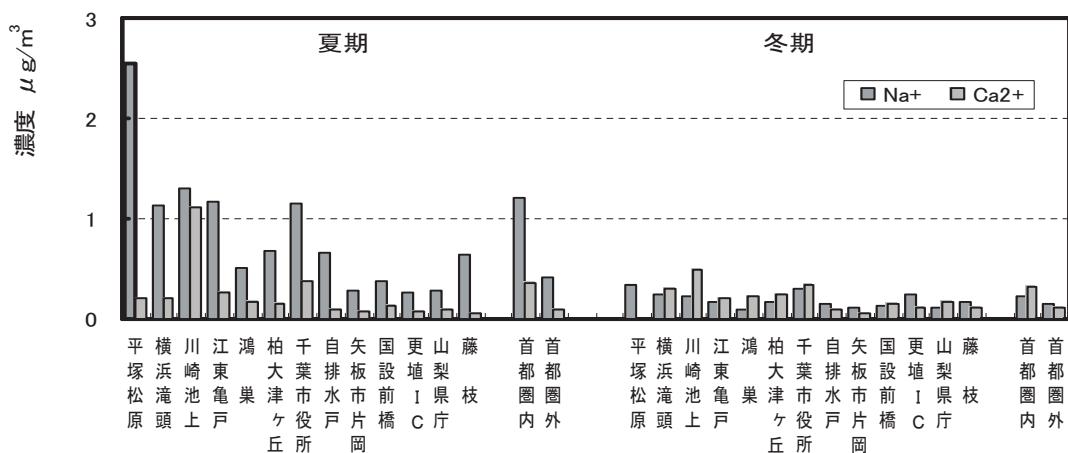


図 4-7-5 各地点における PM(2.5-10) 中の Na^+ 及び Ca^{2+} 濃度

Na^+ 濃度は夏期に冬期と比べ高かったが、沿岸部の平塚松原では 5 期間で $1.6 \sim 4.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ の範囲の濃度変動であった。夏期の期間毎の各地点における海塩組成から PM(2.5-10) 中の Na^+ と Cl^- 、 NO_3^- 濃度の関係を図 4-7-6 に示した。 Na^+ 濃度を指標成分とした関係(左図)から、 Cl^- 濃度は、期間①の各地点では図中に示した海塩組成比とよく一致しているが、その他の期間では、海塩組成比から下方に散布し、 Cl^- ロスの様子がみられる。 Cl^- ロスに伴う NaNO_3 の生成については、 $\text{NO}_3^-/\text{Na}^+$ 濃度比(右図)から、期間①では明らかに低い範囲に散布しているが、他期間では濃度比が大きくなっていた。こうした期間による違いは、大気の活性化が期間①ではあまり進行しなかったのに対して、その他の期間では促進状況が反映されているものと考えられた。

道路沿道地点における PM2.5 中のイオン成分の期間平均濃度を図 4-7-7 に示した。PM2.5 中 8 種のイオン成分の総濃度は、夏期では $9.2 \sim 14 \mu\text{g}/\text{m}^3$ の地域分布であるが、

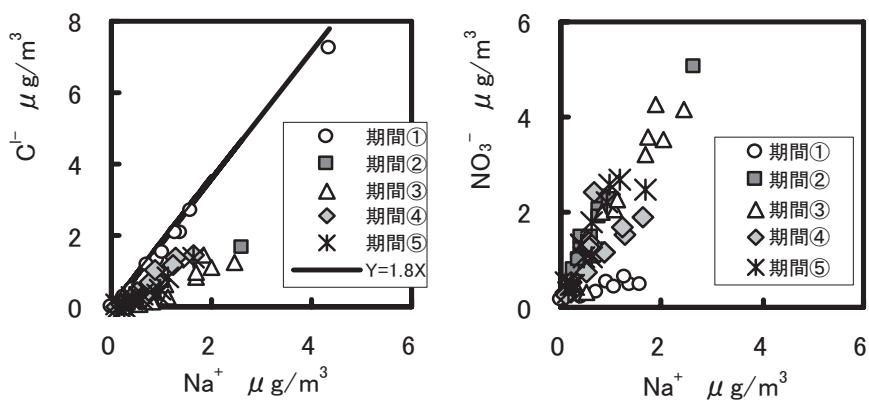


図 4-7-6 PM(2.5-10) 中の Na^+ 濃度と Cl^- 、 NO_3^- 濃度の関係

首都圏内が $9.2\sim 14 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (平均 $12 \mu\text{g}/\text{m}^3$)、首都圏外が $9.6\sim 13 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (平均 $11 \mu\text{g}/\text{m}^3$)と同程度の濃度であり地域的な違いは小さい。冬期では $4.7\sim 10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ の濃度範囲の地域分布であり、夏期よりも低い濃度であった。首都圏内が $8.9\sim 10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (平均 $9.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$)、首都圏外が $4.7\sim 8.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (平均 $6.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$)の濃度範囲であり、首都圏内では地点間の濃度差が小さく、首都圏外よりも高めの濃度であった。夏期は各地点とも SO_4^{2-} と NH_4^+ が主体となっており、それぞれの濃度は首都圏内では 8.1 、 $2.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、首都圏外では 7.4 、 $2.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ であり地域差は小さい。冬期の SO_4^{2-} 濃度は首都圏内、外とも $2.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 程であり、地域的な濃度差は NO_3^- 、 Cl^- 及び NH_4^+ 濃度でみられており、首都圏内ではそれぞれの濃度は 3.1 、 0.9 及び $2.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ であり、首都圏外では同様に 1.7 、 0.2 及び $1.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ となり、この 3 成分で $3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 程の地域差が生じている。

各地点における PM2.5 中の 3 種の陰イオンと NH_4^+ の濃度を合計したアンモニウム塩濃度(二次的な生成によると考えられる)は夏期の首都圏内、外ではそれぞれ 11 、 $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、冬期の首都圏内、外ではそれぞれ 8.8 、 $5.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。PM2.5 中へのアンモニウム塩の含有量(%)は夏期の首都圏内、外ではそれぞれ 42 、 37% 、冬期の首都圏内、外ではそれぞれ 29 、 31% であり、首都圏内、外とも冬期よりも夏期に高くなっていた。

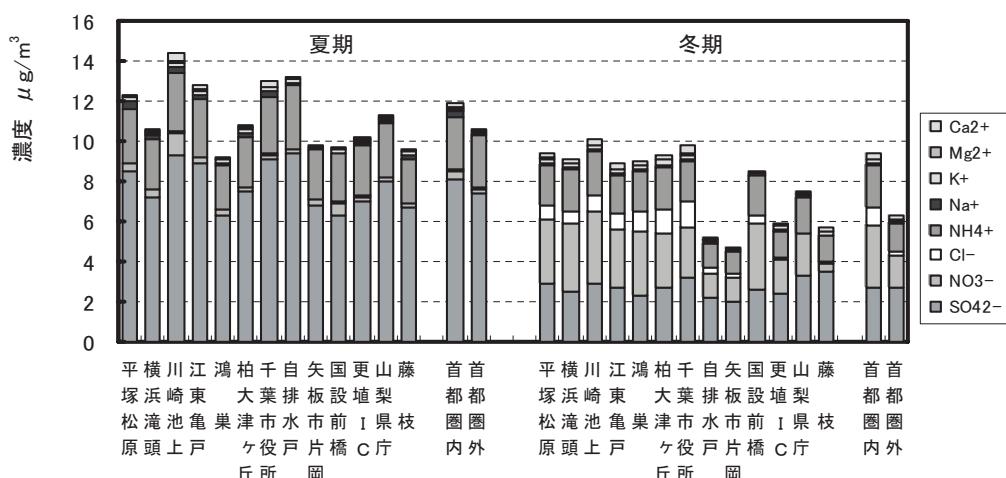


図 4-7-7 道路沿道地点における PM2.5 中のイオン成分濃度

各地点における PM2.5 中のイオン成分については、図 4-7-7 に示されるように、夏期では陰イオンのうち SO_4^{2-} が主体となるアンモニウム塩が形成されており、冬期には SO_4^{2-} がベースとなり、主として NO_3^- がアンモニウム塩として粒子化することによって濃度を高めている。PM2.5 中の SO_4^{2-} 、 NO_3^- 濃度及びアンモニウム塩 (SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 Cl^- 及び NH_4^+) 濃度の期間変動を首都圏内、外の地域別に図 4-7-8 に示した。

PM2.5 中の SO_4^{2-} 濃度の期間変動は夏期、冬期で大きく異なっているが、首都圏内、外とも同様の変動パターンを示した。期間変動は首都圏内、外でそれぞれ夏期が $2.5 \sim 15 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、 $3.2 \sim 13 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、冬期が $1.5 \sim 5.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、 $1.4 \sim 5.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ の濃度範囲であり、同様に夏期は期間③で冬期は期間①でピークとなっており、夏期では冬期よりも 3 倍程ほど高めの濃度であった。 NO_3^- 濃度は粒子化傾向に基づく季節変化が大きく、夏期では低い濃度で推移しており、首都圏内、外とも $0.2 \sim 0.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 程の期間変動であった。冬期には粒子化が促進され、期間変動は首都圏内が $1.9 \sim 4.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、首都圏外が $1.0 \sim 2.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ の濃度範囲であり、地域間では倍程濃度レベルに違いがみられた。首都圏内、外の期間毎の濃度差は 16 年度とほぼ同様の $0.7 \sim 2.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ であり、期間③で大きかった。

ここでのアンモニウム塩はガス状汚染物質が前駆物質となる二次生成粒子と考えられるが、その濃度の期間変動は夏期では SO_4^{2-} 濃度、冬期では主に NO_3^- 濃度の期間変動が反映されており、首都圏内、外のそれでは夏期が $3.4 \sim 20 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、 $4.6 \sim 17 \mu\text{g}/\text{m}^3$ であり、冬期が $5.7 \sim 11 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、 $3.3 \sim 9.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ の濃度範囲であった。夏期では低い濃度で変動した 16 年度と比べ、首都圏内、外の広範な地域で類似して高い濃度の期間が観測されており、期間③の各地点の PM2.5 中に占める割合は 38～61% (平均 51%) となった。

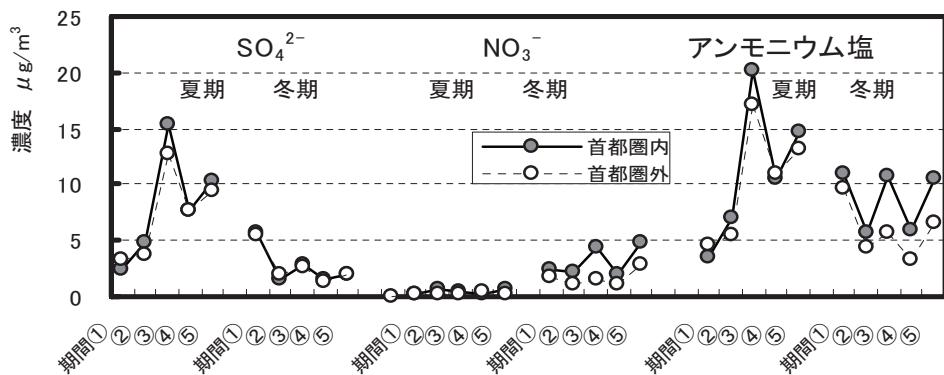


図 4-7-8 PM2.5 中の SO_4^{2-} 、 NO_3^- 濃度及びアンモニウム塩濃度の期間変動

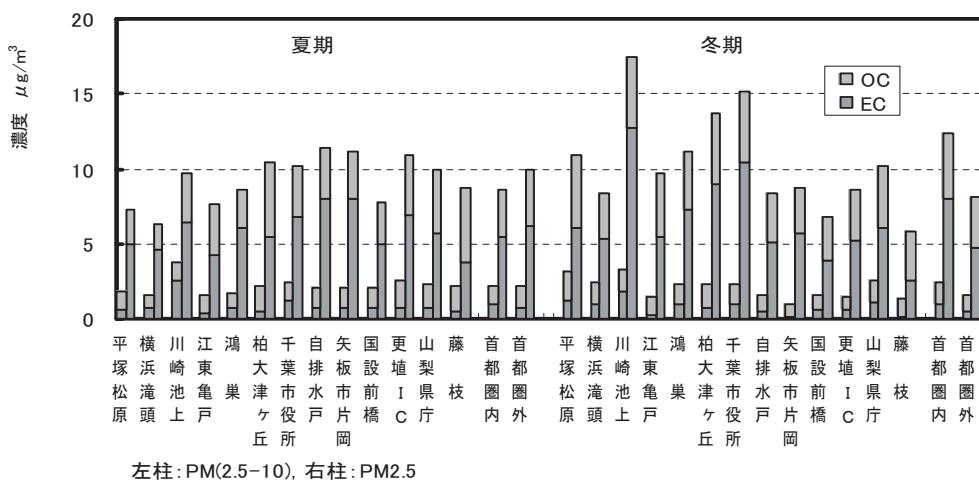
② 炭素成分

道路沿道地点ではディーゼル車から一次的に排出される排気粒子の影響を強く受けているものと考えられる。排気粒子は炭素成分が主体となっており、特に元素状炭素がディーゼル車からの排出強度を示す指標性の高い成分であることが知られている。

各地点における夏期、冬期の PM(2.5–10) 及び PM2.5 中の炭素成分濃度を図 4-7-9 に示した。炭素成分は微小な PM2.5 粒子中に大部分が偏在しているが、今回の PM(2.5–10)

及び PM2.5 中の炭素成分濃度の結果から、PM2.5 中への偏在率は有機炭素(OC)では夏期が 66~75% (平均 71%)、冬期が 68~80% (平均 75%) であり、元素状炭素(EC)では夏期が 71~92% (平均 88%)、冬期が 84~98% (平均 90%) であった。

PM2.5 中の有機炭素濃度は夏期が 1.7~5.0 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、冬期が 2.9~4.8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ の範囲であり、夏期、冬期とも首都圏内、外における濃度差は 1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下であった。元素状炭素濃度は夏期が 3.8~8.0 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、冬期が 2.6~13 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ の濃度範囲であった。夏期では首都圏外で首都圏内と比べ僅かに濃度が高く、自排水戸、矢板市片岡では 8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 程の濃度となった。冬期では首都圏内で首都圏外と比べ 3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 程高めとなっており、川崎池上、千葉市役所では 10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えていた。首都圏外では 2.6~6.1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ の低い濃度範囲であった。



左柱: PM(2.5-10), 右柱: PM2.5

図 4-7-9 道路沿道地点における炭素成分組成の地域分布

PM2.5 中の有機炭素及び元素状炭素の首都圏内、外における期間変動を図 4-7-10 に示した。夏期、冬期の有機炭素濃度は首都圏内、外とも 5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以内の濃度変動であった。両地域を比較すると夏期は 1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 程まで首都圏外で、冬期は 2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 程まで首都圏内で高めとなる期間変動であった。元素状炭素濃度は夏期では首都圏内、外でそれぞれ 3.4~7.1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (平均 5.4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)、4.9~7.6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (平均 6.2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) の範囲の期間変動であり、期間③、④では首都圏外で 2~3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 程高めとなっていた。冬期では首都圏内、外でそれぞれ 7.5~8.7 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (平均 8.0 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)、3.5~6.7 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (平均 4.7 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) の範囲の期間変動であり、いずれの期間も首都圏内で首都圏外と比べ、濃度が高く、5 期間の変動では期間①で 1.9 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、期間④で 4.4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ の

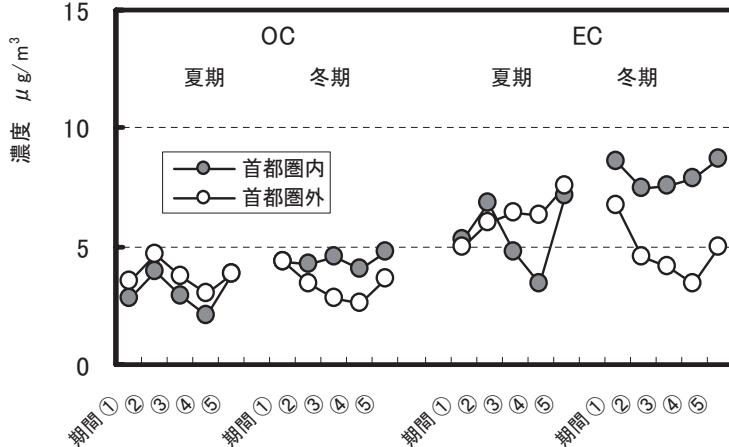


図 4-7-10 首都圏内、外の炭素成分濃度の期間変動

濃度差であった。

道路沿道の夏期、冬期における全測定データにより、PM_{2.5} 中の全炭素濃度と元素状炭素濃度の関係を図 4-7-11 に示した。炭素成分間の関係は、首都圏内、外でよく対応しており、得られた回帰直線(係数を 0 として算出)の傾きは夏期が 0.63、冬期が 0.64 であり、季節によらず一致していた。14~16 年における同様の関係では、14 年は夏期、冬期とも 0.73、15 年では夏期が 0.74、冬期が 0.68、16 年では夏期が 0.73、冬期が 0.70 であった。

3 年間では傾きは 0.68~0.74 の範囲の比較的類似した値となっていたが、今年度では幾分低めとなっており、ディーゼル排気粒子の質的な変化等についての検討も必要となろう。

(3) ディーゼル排気粒子及び二次生成粒子の負荷

微小な粒子として大気中に一次的に放出されるディーゼル排気粒子及びガス状汚染物質の一部が前駆物質となり生成される二次生成粒子について PM_{2.5} 中の炭素成分、イオン成分組成から大気環境への負荷量を見積もった。

- ・ディーゼル排気粒子の濃度は、PM_{2.5} 中の元素状炭素を指標成分として、次式により概算した。

$$\text{ディーゼル排気粒子濃度} = (\text{PM}_2.5 \text{ 中の元素状炭素濃度}) / (\text{ディーゼル排気粒子中の元素状炭素含有率}) \times 100$$

ディーゼル排気粒子中の元素状炭素含有率は、これ迄と同様に、表 4-6-1 の発生源データ(自動車: 55.7%)を採用した。道路沿道では特に元素状炭素の発生源はディーゼル車が特異的であると考えられるが、ここでは、単一発生源からの排出と仮定して算出しているため、過大評価(最大見積もり)となる可能性を含んでいくことになる。

- ・二次生成粒子の見積もりは、PM_{2.5} を対象として、含まれるアンモニウム塩(SO₄²⁻、NO₃⁻、Cl⁻ 及び NH₄⁺ の実測値の和)として想定した。

① 道路沿道における濃度分布

道路沿道の各地点における夏期、冬期の各 5 期間の平均により PM_{2.5} 中へのディーゼル排気粒子と二次生成粒子の負荷濃度を求め、図 4-7-12 に示した。

関東甲信静の広い地域における道路沿道地点では、ディーゼル排気粒子濃度は首都圏内、外では夏期がそれぞれ 7.6~12 μg/m³(平均 9.8 μg/m³)、6.8~14 μg/m³(平均 11 μg/m³)、冬期がそれぞれ 9.5~23 μg/m³(平均 14 μg/m³)、4.7~11 μg/m³(平均 8.5 μg/m³) の範囲の地域分布であった。ディーゼル排気粒子濃度は夏期では冬期と比べ地域的な濃度差は小さく、10 μg/m³ を超えたのは首都圏内が 3 地点、首都圏外が 4 地点であり、1.4 μg/m³ 程首都圏外で高めとなった。冬期では首都圏内では川崎池上

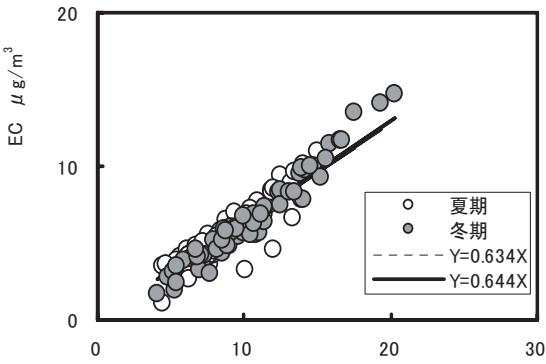


図 4-7-11 PM_{2.5} 中の TC と EC の関係

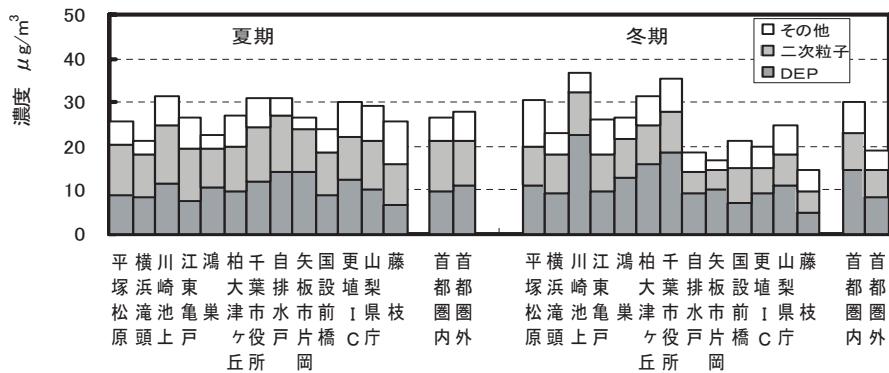


図 4-7-12 道路沿道地点におけるディーゼル排気粒子及び二次生成粒子濃度

で $20 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を超え、その他 4 地点で $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えていた。首都圏外では $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えたのは 2 地点であり、首都圏内よりも $6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 程低くなる地域差がみられた。二次生成粒子濃度は、首都圏内、外では夏期にはそれぞれ $8.8 \sim 13 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (平均 $11 \mu\text{g}/\text{m}^3$)、 $9.1 \sim 13 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (平均 $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$) の濃度範囲であり地域差は小さく、首都圏外で $1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 程高めであった。冬期には首都圏内、外でそれぞれ $8.3 \sim 9.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (平均 $8.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$)、 $4.5 \sim 8.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (平均 $5.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$) の濃度範囲であり、首都圏内では地点間の濃度差も小さく、首都圏外と比べ $3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 程高めとなっていた。

各地点の夏期、冬期における PM2.5 中へのディーゼル排気粒子及び二次生成粒子の負荷率を図 4-7-13 に示した。ディーゼル排気粒子の負荷率は夏期が 26~54% (平均 39%)、冬期が 33~62% (平均 47%) であり、平均すると夏期、冬期とも 50% 以下となり、共に 50% を超えた 16 年と比べ、低めとなつた。負荷率が 50% を超えていたのは、夏期では矢板市片岡、冬期では川崎池上、矢板市片岡、千葉市役所、柏大津ヶ丘であり、30% 以下であったのは夏期の江東亀戸、藤枝であった。地域間の負荷率は夏期では首都圏外で、冬期は首都圏内でそれぞれ 3~4% 程高めとなる季節的な違いがみられた。二次生成粒子の負荷率は夏期が 33~48% (平均 40%)、冬期が 25~39% (平均 30%) であり、平均すると 16 年と比べ夏期で 13%、冬期で 4% 高めであった。

夏期では首都圏内の 4 地点、首都圏外の 1 地点で 40% を超えていた。首都圏内、外における負荷率は夏期では首都圏内で 5% 程、冬期では首都圏外で 2% 程高くなる地域差であった。今回の

道路沿道の地点における PM2.5 への負荷については、夏期ではディーゼル排気粒子と二次生成粒子がそれぞれ 40% 程でほぼ拮抗しており、冬期ではディーゼル排気粒子が二次生成粒子よりも高めであったが、夏期、冬期とも

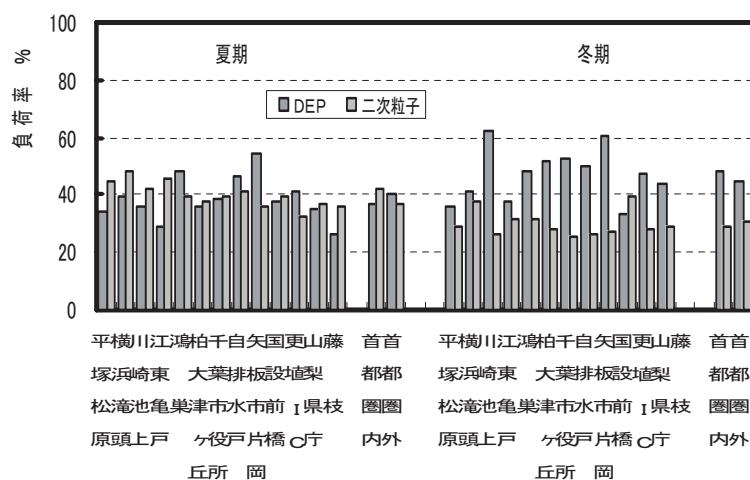


図 4-7-13 ディーゼル排気粒子及び二次生成粒子の負荷率

PM2.5濃度は、ディーゼル排気粒子と二次生成粒子の濃度により75～79%程が見積もられたことになる。

(4) 14～17年の4年間における経年変化

道路沿道における共同調査は前述のとおり14年(2002)度より実施しているが、15年度では10月から関東1都3県の条例によるディーゼル車運行規制が開始されている。さらに、引き続く16、17年度(今回)における共同調査の実施により4年間にわたっている。これまでの規制以前の14年度から規制以降となる16、17年度までの4年間の調査結果を比較して、首都圏をはじめとした関東一円におけるPM2.5濃度及び組成の変化等について検討した。

① PM2.5濃度の経年変化

4年間の首都圏内、外における夏期、冬期各5測定期間のPM2.5濃度の変動を図4-7-14に示した。夏期のPM2.5濃度は各年度とも首都圏内、外で類似した期間変動パターンを示しており、14年度は半数以上の期間で40～60 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ の高い濃度であったが、15年度は20～40 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ の濃度範囲へと減少した。規制後の16年度では20 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 程の低く狭い濃度範囲となり、17年度では15年度と同様に20～40 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ の濃度範囲となった。

各年度の冬期のPM2.5濃度は首都圏内で首都圏外と比べ高めとなる期間変動パターンを示しており、地域による濃度差は年度、期間によって異なっていた。14年度の首都圏内では20～60 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 程の大きな濃度変動となり、2期間で30 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超す地域差が生じていた。期間③では首都圏内、外とも20 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 程の低い濃度となっており、この低濃度レベルについては、測定期間中の降雪や休日をはさみ交通量、大型車の低下を含むものと理解された

が、翌年(規制直後の15年度)の測定期間ではさらに低い濃度が測定された。規制後の16年度では首都圏内が

30～50 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、首都圏外が20～40 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ の濃度範囲であり、17年度では両地域とも16年度よりも10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 程低い範囲の濃度変動であった。

4年間の首都圏内、外におけるPM2.5濃度

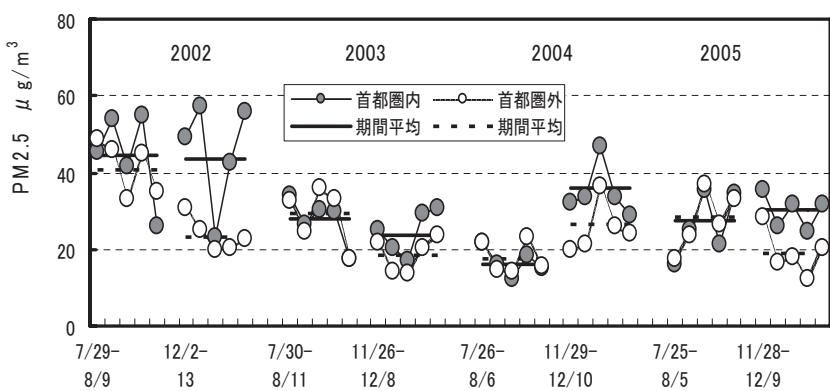


図4-7-14 4年間のPM2.5濃度の期間変動

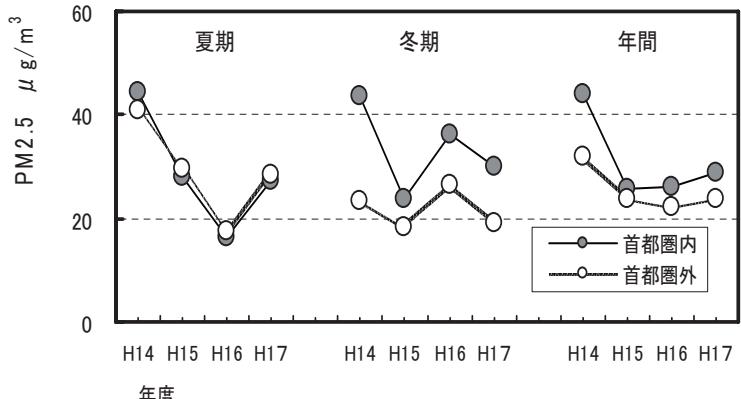


図4-7-15 4年間のPM2.5濃度の経年変化

について夏期、冬期及び夏期と冬期を併せた年間の期間平均濃度により図4-7-15に示した。夏期では期間平均濃度によっても首都圏内、外とも類似した経年変化となつておらず、PM2.5濃度は規制前の14年度から規制後の16年度にかけて首都圏内が $28\mu\text{g}/\text{m}^3$ (63%)、首都圏外が $23\mu\text{g}/\text{m}^3$ (57%)の濃度減少となつた。17年度では15年度とほぼ同様の濃度レベルとなつた。冬期のPM2.5濃度の経年変化は、首都圏外では首都圏内と比べ低く、小さいが、首都圏内、外とも14年度からの濃度減少は規制直後の15年度で最も大きく、首都圏内が $20\mu\text{g}/\text{m}^3$ (45%)、首都圏外が $5.7\mu\text{g}/\text{m}^3$ (22%)であった。

PM2.5の年間平均濃度は規制前の14年度では首都圏内が $44\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、首都圏外が $32\mu\text{g}/\text{m}^3$ であり、以降の15~17年度の3年間では首都圏内、外とも緩やかな経年変化であり、14年度と比べた減少濃度及び減少率は、首都圏内が $15\sim18\mu\text{g}/\text{m}^3$ (35~41%)、首都圏外が $8.3\sim10\mu\text{g}/\text{m}^3$ (26~31%)であった。

② ディーゼル排気粒子及び二次生成粒子濃度の経年変化

図4-7-15と同様に、4年間の首都圏内、外におけるディーゼル排気粒子と二次生成粒子の期間平均濃度をPM2.5濃度と共に図4-7-16に示した。夏期についての経年変化では、首都圏内、外でみられた14年度から16年度にかけたPM2.5の著しい濃度減少に対して、両地域ともディーゼル排気粒子、二次生成粒子のそれぞれの濃度が60%程を超す減少となって対応していた。冬期では、PM2.5濃度の経年変化に対して、ディーゼル排気粒子が二次生成粒子よりも高い濃度レベルで対応しており、地域的な違いを見ることができる。14年度から15年度ではディーゼル排気粒子濃度の減少率は首都圏内、外でそれぞれ44, 26%であった。夏期、冬期の濃度変化を含んだ年間では、ディーゼル排気粒子濃度は規制以降となる15年度からの3年間では、首都圏内、外ともPM2.5の濃度変化に拘わらず、緩やかな濃度減少となっている。17年度では首都圏内、外とも二次生成粒子が $10\mu\text{g}/\text{m}^3$ 程となり、ディーゼル排気粒子との濃度差が小さくなつた。

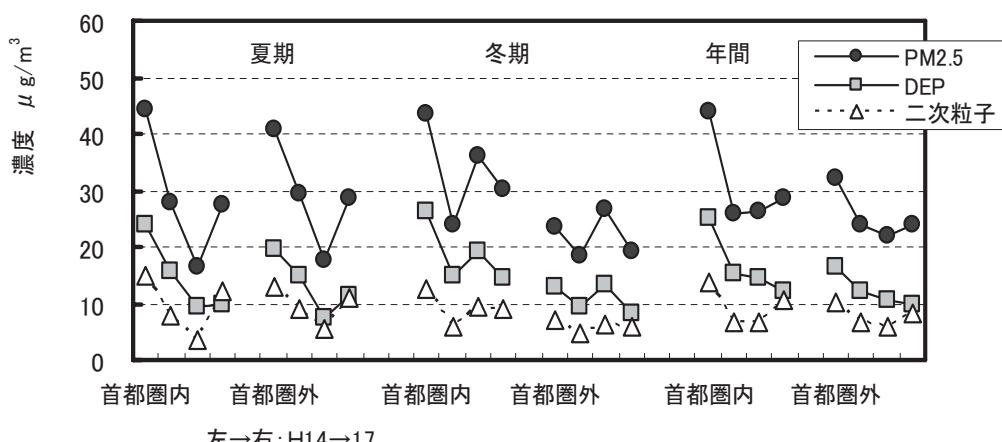


図4-7-16 4年間のディーゼル排気粒子、二次生成粒子濃度の経年変化

首都圏外における14年度から以降の3年間にかけたPM2.5濃度の変化(減少)の内訳について、PM2.5濃度の減少と共に減少したと考えられるディーゼル排気粒子と二次生成粒子の濃度を図4-7-17に示した。ディーゼル排気粒子の3年間の減少濃度

は首都圏内が $9.7 \rightarrow 13 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、首都圏外が $4.1 \rightarrow 6.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ と変化しており、17 年度では PM_{2.5} の減少濃度に占めるディーゼル排気粒子が首都圏内、外でそれぞれ 86、79% であった。こうしたディーゼル排気粒子濃度の変化

については、条例や自動車 NO_x・PM 法等による規制の進展によっているものと推測される。二次生成粒子の PM_{2.5} の減少濃度に占める割合は地域によらず 20~40% であったが、17 年度では 15, 16 年度の半分程の濃度減少にとどまるなど年度による違いがみられた。

③ PM_{2.5}、PM₁₀ 濃度と SPM(常時監視データ)測定値の関係

14~17 年度の 4 年間の全地点における PM_{2.5}、PM₁₀(PM(2.5~10)+PM_{2.5}) 濃度と SPM 測定値(常監データ)との関係について、年度、期間、地域毎の SPM と PM₁₀、PM_{2.5} の相関図を図 4-7-18 及び図 4-7-19 に示した。得られた回帰直線に関する結果を表 4-7-1 に示した。

4 年間の全地点における SPM と PM_{2.5} 及び PM₁₀ の濃度間では、各年度とも対応のよい関係が得られている。4 年間の SPM(X) と PM_{2.5}(Y₁)、PM₁₀(Y₂) の関係では、回帰直線 $Y_1=0.499X+9.3$ 、 $Y_2=0.633X+15.2$ が得られた。また、夏期、冬期の季節で違ひのみられる関係となっており、得られた回帰直線の傾きが夏期よりも冬期で大きな値となっていた。首都圏内、外の地域間ではほぼ同様の関係を示す回帰直線が得られた。

この 4 年間では関東 1 都 3 県の条例あるいは自動車 NO_x・PM 法による規制が行われている。自動車 NO_x・PM 法に基づき、対策地域として指定されている首都圏対策地域における環境基準の達成率は 14, 15 年度と比べ、16 年度では一般局 98.7%、自排局 94.7% と大幅に改善されて来ている。この地域における 16 年度の SPM の年平均値は一般局が $0.030\text{mg}/\text{m}^3$ 、自排局が $0.035\text{mg}/\text{m}^3$ であり、全国平均値(一般局が $0.025\text{mg}/\text{m}^3$ 、自排局が $0.031\text{mg}/\text{m}^3$) よりも高い濃度であった。(平成 16 年度 大気汚染状況報告書 環境省)

米国の PM に関する大気質基準では 1997 年に設定された基準が改定(2006 年 9 月 21 日最終報告)され、PM_{2.5} についての年平均値は $15 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (日平均値を算術平均した値の 3 年平均値) と厳しい基準となっている。

ここで、今回得られた 4 年間の SPM と PM_{2.5} の濃度の関係から、首都圏対策地域における SPM 濃度について米国の PM_{2.5} の大気質基準と照らし合わせてみた。16 年度の首都圏対策地域の SPM 年平均値は一般局($0.030\text{mg}/\text{m}^3$)、自排局($0.035\text{mg}/\text{m}^3$) であり、4 年間の回帰直線から対応する PM_{2.5} 濃度はそれぞれ 24 、 $27 \mu\text{g}/\text{m}^3$ と推計された。これらの値は米国の大気質基準、年平均 $15 \mu\text{g}/\text{m}^3$ よりも $9\sim12 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 程高い値

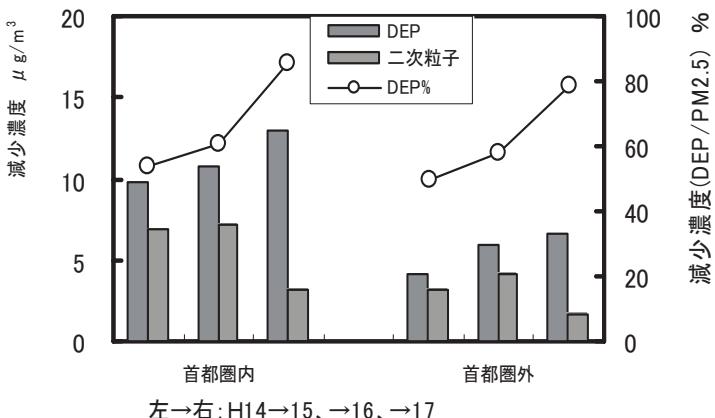


図 4-7-17 4 年間における PM_{2.5} の減少濃度の内訳

となっている。また、逆算すると PM_{2.5} 濃度基準 15 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ に対応する SPM 濃度は 22 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 程と推計された。

PM_{2.5} については健康影響の観点から濃度基準の目標値が設定されており、今後は PM_{2.5} に焦点を当てた対策の進展や規制導入の必要性があるものと考えられる。

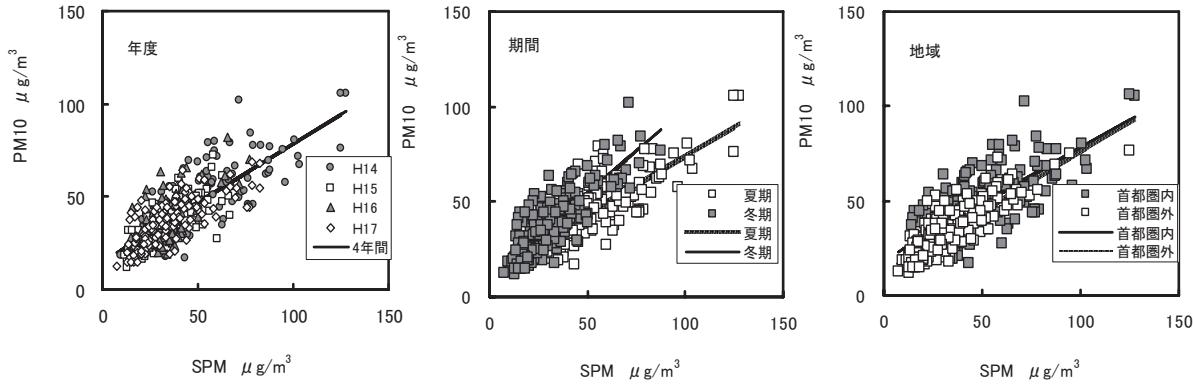


図 4-7-18 4 年間の SPM 測定値と PM10 濃度の関係

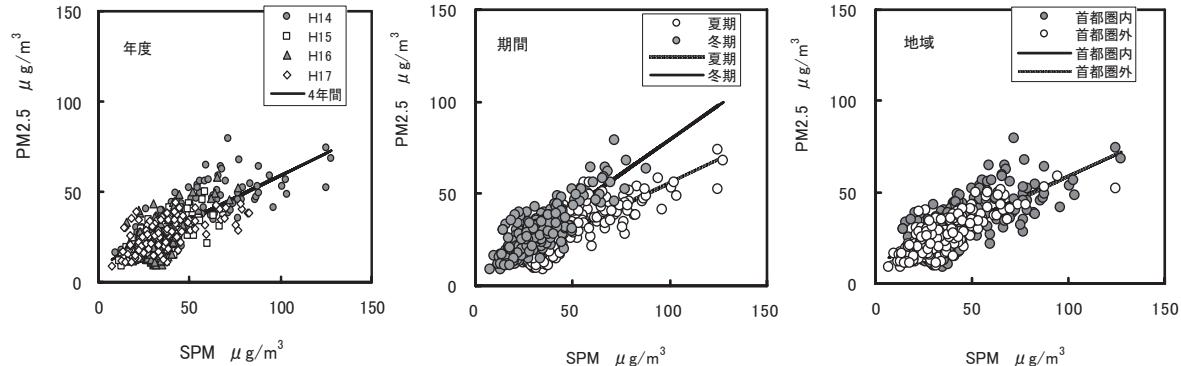


図 4-7-19 4 年間の SPM 測定値と PM_{2.5} 濃度の関係

表 4-7-1 SPM 測定値と PM_{2.5}、PM10 濃度の関係

項目	X:SPM	Y ₁ :PM _{2.5}	Y ₂ :PM10	回帰直線(相関係数, 試料数)
年 度	H14	9.4～128(53)	13～79(39)	$Y_1=0.443X+15.7(r=0.763,n=102)$ $Y_2=0.596X+19.0(r=0.771,n=102)$
	H15	12～69(35)	8.7～50(25)	$Y_1=0.505X+7.7(r=0.770,n=119)$ $Y_2=0.660X+12.8(r=0.764,n=119)$
	H16	14～77(32)	9.2～58(24)	$Y_1=0.625X+4.2(r=0.637,n=121)$ $Y_2=0.726X+12.7(r=0.647,n=121)$
	H17	7.2～83(35)	9.1～44(26)	$Y_1=0.348X+14.0(r=0.659,n=128)$ $Y_2=0.555X+17.3(r=0.737,n=128)$
	H14～17	7.2～128(38)	8.7～79(28)	$Y_1=0.499X+9.3(r=0.767,n=470)$ $Y_2=0.633X+15.2(r=0.781,n=470)$
		Y:SPM	X:PM _{2.5}	$Y=1.18X+4.7(r=0.767,n=470)$
期 間	夏期	16～128(45)	9.2～74(28)	$Y_1=0.506X+5.3(r=0.834,n=231)$ $Y_2=0.610X+13.4(r=0.818,n=231)$
	冬期	7.2～88(31)	8.7～79(28)	$Y_1=0.742X+5.3(r=0.850,n=239)$ $Y_2=0.885X+10.2(r=0.815,n=239)$
地 域	首都圏内	13～128(42)	9.2～79(31)	$Y_1=0.480X+10.7(r=0.720,n=259)$ $Y_2=0.590X+19.1(r=0.737,n=259)$
	首都圏外	7.2～125(33)	8.7～59(25)	$Y_1=0.505X+8.3(r=0.816,n=211)$ $Y_2=0.627X+12.9(r=0.823,n=211)$

④ PM2.5 中の EC と常監データによる NOx 測定値との関係

14 年度からの 3 年間と同様に、今回(17 年度)の PM2.5 中の元素状炭素濃度($Y \mu\text{g}/\text{m}^3$)と常時監視データの NOx 測定値($X \text{ppb}$) (資料編に記載)との関係を調べた。得られた回帰直線は夏期が $Y=0.067X+2.58$ ($r=0.613, n=65$)、冬期が $Y=0.046X$ ($r=0.827, n=65$) であった。14 年度からの 3 年間の相関関係の結果は、前年度の報告書に記述したとおりであり、17 年度を加えた 4 年間の夏期、冬期に得られた回帰直線を図 4-7-20 に示し、図中には NOx 測定値の最大値、平均値、最小値を付した。回帰係数は夏期で冬期よりも大きな値となっており、大気の安定する(滞留しやすい)冬期と比べ、夏期にはガス状の NOx は拡散等の影響を受け低めの濃度となるなど粒子状物質との拡散に対する挙動の違いが反映されていると考えられる。また、回帰係数は 14~16 年度の夏期が 0.11~0.13、冬期が 0.074~0.081 であったが、17 年度では夏期、冬期とも小さな値となっていた。このように 17 年度ではディーゼル車からの排出が多く見込まれる NOx 測定値に対して元素状炭素濃度が低め、さらに、前述の全炭素にしめる元素状炭素の割合が低めとなる傾向がみられ、最近のディーゼル車の排ガス対策等による成分組成の変化、いわゆる発生源データについての検討も必要になろう。

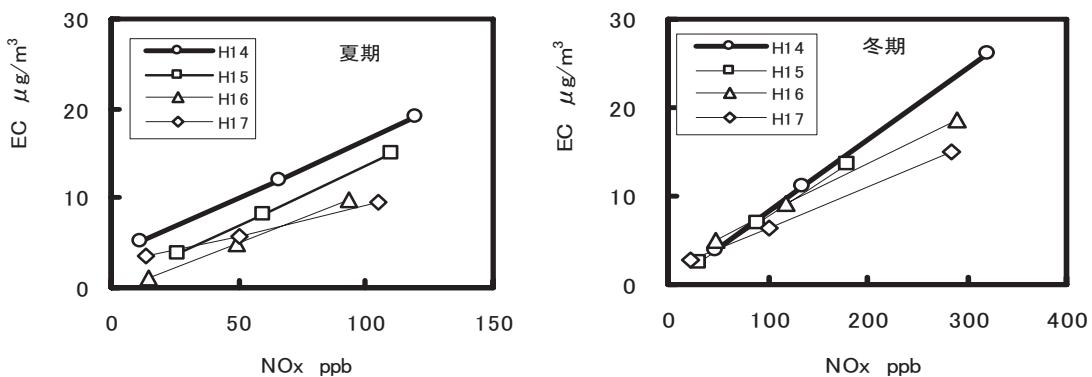


図 4-7-20 4 年間の夏期、冬期における NOx 測定値と PM2.5 中の EC 濃度の関係

⑤ 一般環境と道路沿道における PM2.5 濃度等の経年変化

14 年度から継続して夏期、冬期の一部(平日 4 日間)期間で、簡易サンプラー(PM2.5)による道路沿道調査と一般環境を対象としたアンダーセンサンプラー(PM2.1)による調査を並行して実施している。夏期及び冬期の首都圏内、外における一般環境(PM2.1)と道路沿道(PM2.5)を対比させ、PM2.1 あるいは PM2.5 濃度、DEP 濃度及び二次生成粒子濃度の経年変化を図 4-7-21 及び図 4-7-22 に示した。4 年間の夏期の PM 濃度は、首都圏内、外とも道路沿道で一般環境よりも $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 程高い同様の濃度変化を示しており、14 年度から 15、16 年度にかけて $30 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 程の大規模な濃度低下となり、17 年度では 16 年度と比べ $1\sim4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 程の僅かな濃度増加となった。濃度変化は DEP、二次生成粒子とも PM2.5 と類似しているが、DEP は PM2.5 と同様に道路沿道と一般環境で濃度差のある変動であり、二次生成粒子は濃度差の少ない変動であった。

冬期の PM 濃度は夏期と異なり、濃度変化は地域的な違いが大きく、首都圏内では道路沿道で一般環境と比べ $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 程高めとなる変動であり、14 年度から 15 年度にかけ同様に $30 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 程の濃度低下となった。一方、首都圏外では道路沿道で一般環境と

比べ $5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 程高めであるが、共に 14 年度から 15 年度で $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 程の濃度低下となる変動であった。DEP は PM 同様地域的に違いのある濃度変動であったが、二次生成粒子では 16, 17 年度では首都圏内の道路沿道と一般環境で濃度差が生じている。

夏期と冬期を併せて求めた年間の期間平均濃度から、規制前の 14 年度と比較して以降 3 年間(15~17 年度)の濃度変動(減少)について図 4-7-23 に示した。3 年間において PM2.5 の減少した濃度の変化は首都圏内、外の一般環境及び首都圏内の道路沿道では 2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ の範囲内であり小さかった。首都圏外の道路沿道では $12\sim19 \mu\text{g}/\text{m}^3$ の範囲で経年的に減少している。DEP の減少濃度は首都圏内、外とも道路沿道では経年に減少しているが、一般環境では変化が小さい。二次生成粒子の 3 年間の減少濃度は首都圏内、外の一般環境、道路沿道ともほぼ横ばいであり変化は小さい。

3 年間を平均した平日の一般環境と道路沿道における PM2.5 の減少濃度(低減率)は首都圏内ではそれぞれ $23 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (60%)、 $26 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (51%) であり、首都圏外ではそれぞ

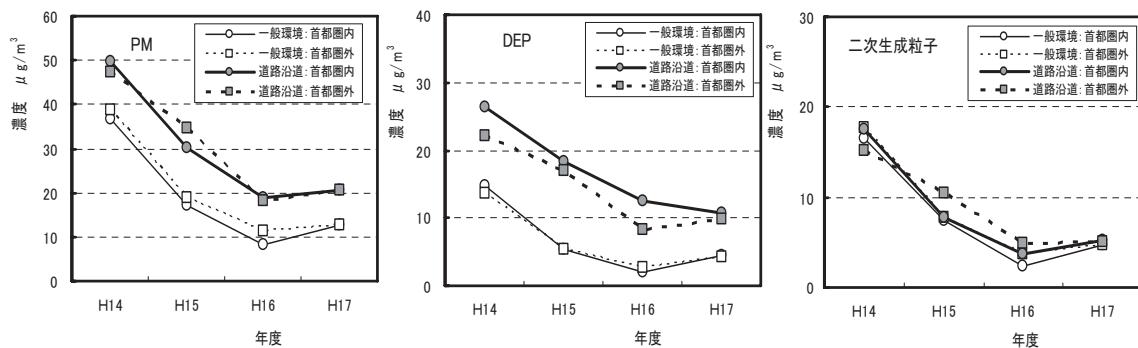


図 4-7-21 夏期における PM2.5、DEP 及び二次生成粒子濃度の経年変化

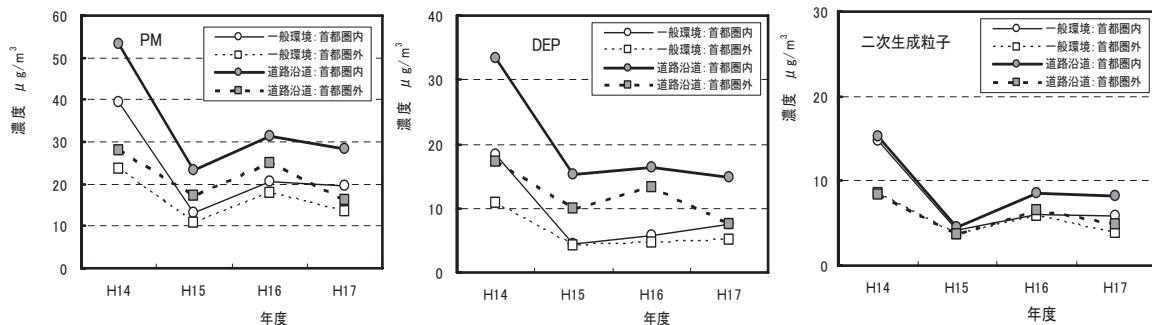


図 4-7-22 冬期における PM2.5、DEP 及び二次生成粒

れ $17 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (55%)、 $16 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (42%) であった。減少した濃度の二次生成粒子/DEP 濃度比は一般環境の首都圏内、外ではそれぞれ 0.91、1.0 であり、ほぼ拮抗した濃度減少となり、道路沿道ではそれぞれ 0.58、0.67 と DEP の濃度減少の大きなことが示された。

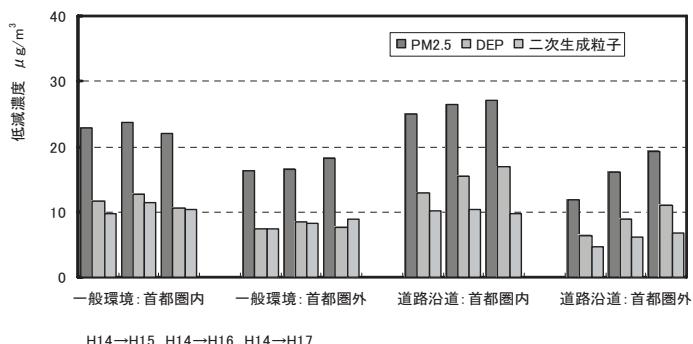


図 4-7-23 3 年間の 14 年度と比べた低減濃度

(5) 多環芳香族炭化水素成分濃度

平成14年度の結果において多環芳香族炭化水素(PAH_s)のほぼ90%以上が微小粒子側に存在していたことから、今年度も微小粒子中の PAH_s の分析だけを行い、この濃度に基づき評価を行った。夏期調査および冬期調査の集計結果を表4-7-2に示す。

PAH_s 濃度は前年度までの傾向と同様に、全体的に夏期調査より冬期調査の方が高くなっていた。夏期の川崎池上と千葉市役所では、これまでの調査結果を引き続いて高い濃度が観測され、近隣における特定の発生源からの影響が示唆された。冬期においては柏が比較的高濃度を示した。

表4-7-2 多環芳香族炭化水素濃度の集計結果 単位： ng/m^3

		最小	(試料名)	最大	(試料名)	平均
夏期沿道調査	BkF	0.014	藤枝④	1.231	川崎④	0.186
	BaP	0.032	横浜④	1.264	川崎④	0.241
	BghiP	0.085	藤枝④	2.680	川崎④	0.406
冬期沿道調査	BkF	0.122	水戸④	0.646	柏③	0.313
	BaP	0.103	藤枝⑤	0.992	柏⑤	0.409
	BghiP	0.284	藤枝⑤	1.427	柏③	0.781

夏期・冬期調査における PAH_s 間の関係を表4-7-3に示す。平成14年度以降、夏期・冬期ともに良好な相関関係にあり、今年度も夏期調査においては同程度の決定係数の値を示したが、冬期調査においては昨年度までと較べると決定係数の値がやや低下し、若干ばらつく傾向が見られた。冬期調査は、この4年間で決定係数と回帰式の回帰係数が徐々に低下する傾向を示しており、 PAH_s 間の関係に継続的な影響を及ぼす要因がこの期間に存在していた可能性がある。なお、若干ばらつく傾向が見られたとはいえ、 PAH_s 間の関係は良好に保たれていると考えられるため、以後は主にBaPについて解析する。

表4-7-3 BghiPに対するBkF, BaPの割合

年度	夏期沿道調査		冬期沿道調査	
	BkF :	$Y=0.63X-0.06 \quad (R^2=0.97)$		$Y=0.46X-0.04 \quad (R^2=0.94)$
1 4	BaP :	$Y=0.74X-0.06 \quad (R^2=0.96)$		$Y=0.79X-0.14 \quad (R^2=0.95)$
	BkF :	$Y=0.611X-0.036 \quad (R^2=0.950)$	$Y=0.420X-0.006 \quad (R^2=0.908)$	
1 5	BaP :	$Y=0.883X-0.067 \quad (R^2=0.933)$	$Y=0.709X-0.046 \quad (R^2=0.879)$	
	BkF :	$Y=0.675X-0.045 \quad (R^2=0.876)$	$Y=0.442X-0.017 \quad (R^2=0.858)$	
1 6	BaP :	$Y=0.888X-0.058 \quad (R^2=0.921)$	$Y=0.674X-0.026 \quad (R^2=0.742)$	
	BkF :	$Y=0.513X-0.023 \quad (R^2=0.945)$	$Y=0.343X+0.045 \quad (R^2=0.826)$	
1 7	BaP :	$Y=0.612X-0.008 \quad (R^2=0.889)$	$Y=0.528X+0.003 \quad (R^2=0.679)$	

図4-7-24に地点別のBaP濃度の期間中の平均濃度を示す。あわせて、各地点の最大、最小値も示した。夏期は昨年と同様に川崎池上と千葉市役所の濃度が高く $0.6\text{ng}/\text{m}^3$ 以上

を示し、その他の地点は濃度が $0.25\text{ng}/\text{m}^3$ 以下と低かった。冬期は、柏大津ヶ丘、千葉市役所がやや高く $0.6\text{ng}/\text{m}^3$ 以上を示し、その他の地点は国設前橋を除いて $0.2\sim0.5\text{ng}/\text{m}^3$ とほとんどの地点で同程度のBaP濃度が観測された。BaP濃度は、ディーゼル運行規制前のような規制地域内外の差異が見られなくなってきたおり、規制の効果が現れていると考えられる。

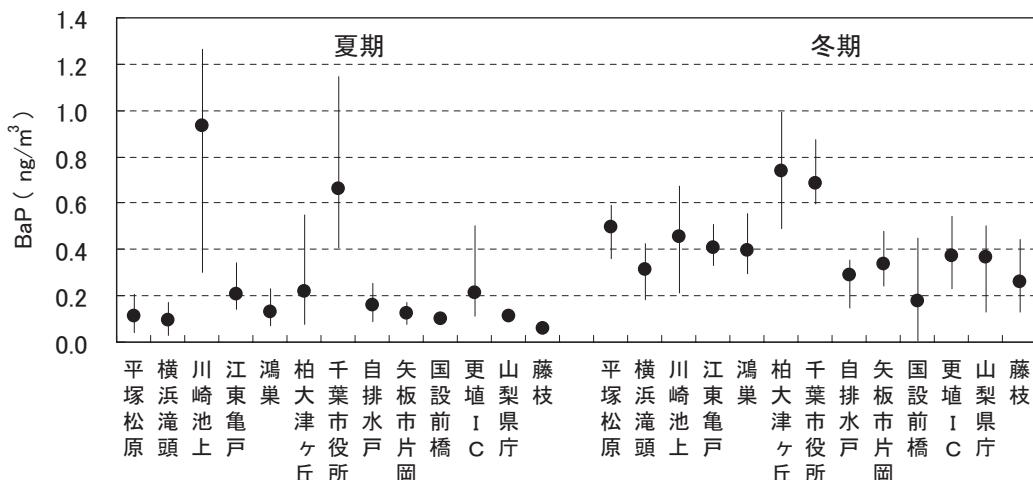


図4-7-24 地点別のBaP平均濃度（最大値、最小値）

夏期および冬期調査の期間別のBaP平均濃度を図4-7-25に示す。昨年と較べると夏期調査における最大値と最小値の差が大きい結果を示したが、明らかなようにBaP濃度は全体的に例年同様、夏期より冬期の方が高い傾向を示した。土日を挟む採取期間（夏期、冬期とも3回目）のBaP濃度が昨年同様、夏期、冬期とも平日とほとんど同程度の値を示していることは、ディーゼル車による影響が小さくなったことの現れと考えられる。

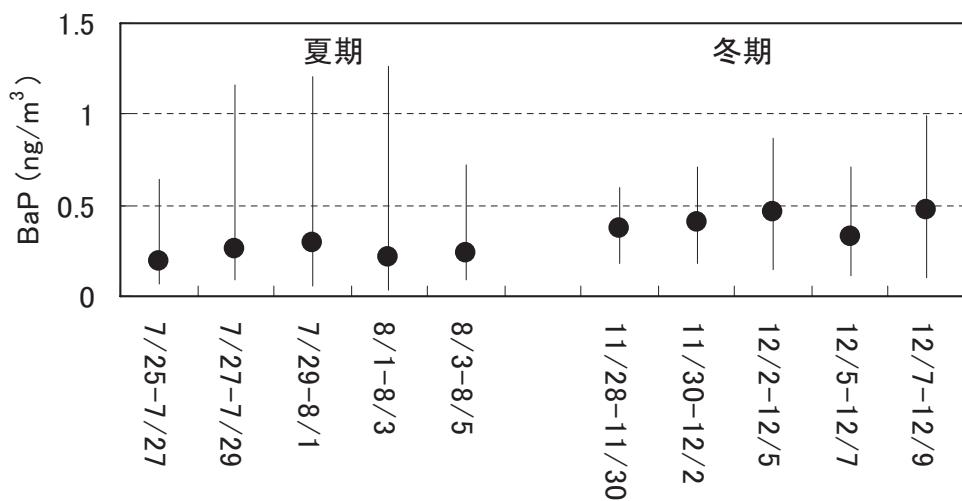


図4-7-25 期間別のBaP平均濃度（最大値、最小値）

ディーゼル車より排出される粒子状物質の主要な指標物質である元素状炭素(EC)とBaPの関係を図4-7-26に示す。昨年同様、夏期調査はECとBaPの間に明白な関係は見られなかったが、冬期調査の結果はECとBaPの間に有意な相関関係がみられた。地点ごとの相関関係を見てみると、良好な相関関係のある地点とあまり相関関係のよくない地点とに分類され、良好な相関関係は規制地域外に多く見られた。

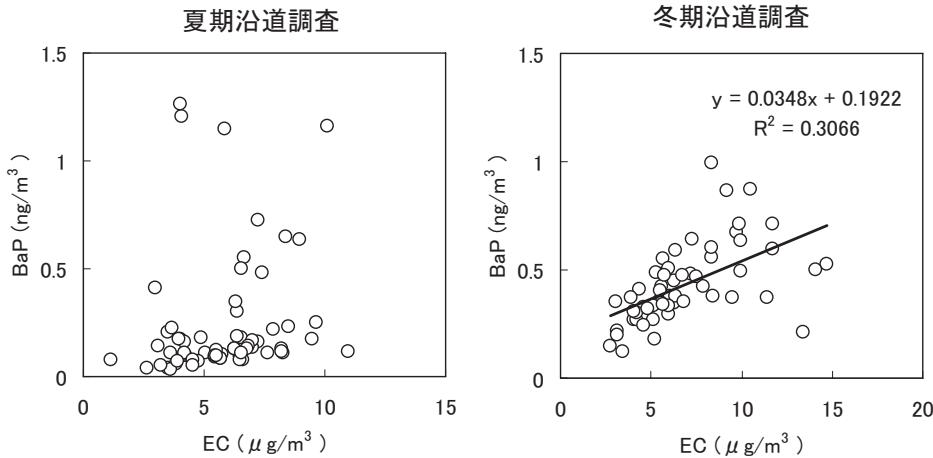


図4-7-26 元素状炭素とBaPの関係

最後に、PAH_sの平成14年度からの全体平均値の推移を図4-7-27、首都圏内外別の平均値の推移を図4-7-28に示す。PAH_s平均濃度の経年的な傾向を見ると、今年度は夏期においては前年度より若干高めであるもののほぼ同じレベルであり、冬期においては平成15年度と平成16年度の中間的な値を示していた。

首都圏内外で分けてみると、平成14年度の冬期調査の結果は、首都圏外に較べて首都圏内の濃度が2倍程度高くなっているのに対し、平成15年度以降はほぼ同程度の濃度を継続している。平成15年10月のディーゼル運行規制の実施により、年度ごとに変動はある程度含まれるが、特に冬期においてPAH_s平均濃度は規制前より濃度が低下した状態で推移していると考えられる。一方、夏期は平均濃度が規制前から比較的低めであったことや特定の発生源からの影響がみられることから、平均値としてはその効果が明確に現れていないものと思われる。

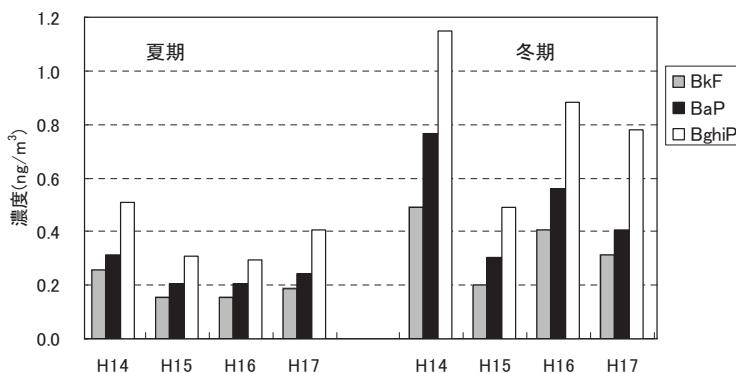


図4-7-27 平成14年度からのPAH_s平均値の推移(全体)

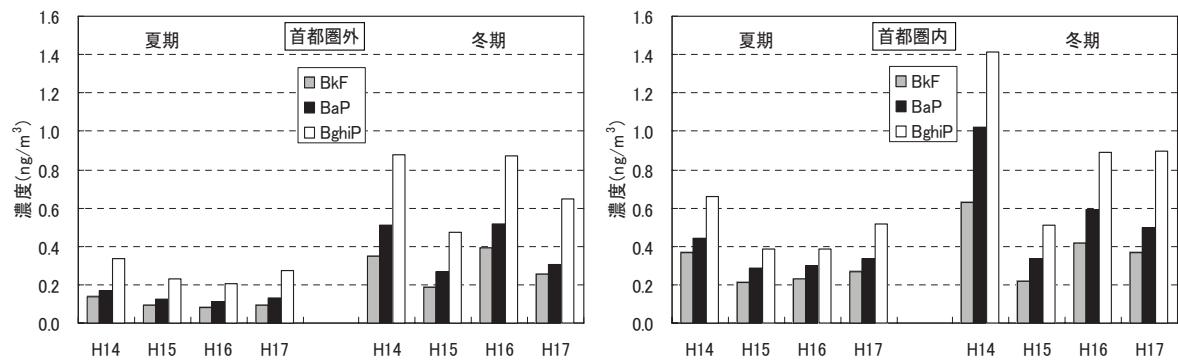


図4-7-28 平成14年度からのPAHs平均値の推移（首都圏内外）

5 まとめ

関東地方の1都9県4市が共同し、夏期と冬期に浮遊粒子状物質を調査した。調査は一般環境18地点と道路沿道13地点で実施し、粒子状物質の濃度やその成分を測定した。一般環境調査では発生源の寄与率を求めた。

夏期調査：一般環境 7月25日～7月29日、道路沿道 7月25日～8月5日

冬期調査：一般環境 12月5日～12月9日、道路沿道 11月28日～12月9日

(1) 一般環境調査

・粒子状物質濃度

夏期調査における粗大粒子濃度は臨海地域で高く、内陸地域で低い傾向であった。

一方、微小粒子濃度は地点差が小さく、TSP（粗大粒子+微小粒子）濃度に対する微小粒子濃度比は相対的に内陸地域で高い値を示した（0.26～0.74）。冬期調査における粗大粒子濃度は、臨海地域で高く、内陸地域で低い傾向であった。微小粒子濃度も臨海地域で高く、内陸地域で低い傾向を示したため、TSP濃度に対する微小粒子濃度比の地点差は小さかった（0.61～0.75）。

夏期調査および冬期調査ともにデータの代表性が同程度であった平成12年度（ディーゼル車運行規制施行前）と17年度（施行後）の調査結果について、規制地域内外における微小粒子濃度の変化を比較したところ、冬期調査では規制地域内において平成17年度は12年度に比べ顕著に濃度が低下していることが確認された。

・水溶性成分濃度

夏期、冬期とともに、 Na^+ 、 Mg^{2+} 、 Ca^{2+} は粗大粒子側に、 NH_4^+ 、 K^+ 、 SO_4^{2-} は微小粒子側に多く存在した。また NO_3^- は夏期は粗大粒子側に、冬期は微小粒子側に多く存在した。また、夏期粗大粒子では、一宮の Na^+ 、 Mg^{2+} 、 Cl^- が突出して高かった。また、 Na^+ に対する Cl^- の当量比はやや Cl^- 不足となっていた。夏期微小粒子中の $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ の割合は近年高いレベルで推移していた。冬期微小粒子では、 Cl^- に顕著な減少傾向が見られ、 NO_3^- についても概ね減少傾向が見られた。

・炭素成分濃度

粗大粒子中の炭素成分は有機炭素濃度が高くなり、微小粒子中の炭素成分は、元素状炭素濃度が高くなる傾向は、例年通りであった。

微小粒子中の元素状炭素濃度は、平成16年度よりも増加していたが、ディーゼル車運行規制以前と比較すると低下しており、規制の効果が窺えた。ディーゼル車運行規制地域内外で比較すると、夏期調査では規制地域内外とも同程度の濃度であった。冬季調査では規制地域内により高濃度を示したが、平成15～16年度ほどではないにしろ、規制以前よりも内外の差は縮小していた。

・多環芳香族炭化水素(PAHs)濃度

全体的に16年度と同様な濃度であったが、この8年間で夏期は平成11年度に次い

で低い濃度で、冬期は最低レベルであった。こうした低い結果が続くことから、ディーゼル車運行規制による効果が現れた可能性がある。ディーゼル車運行規制地域ではBaP/EC比が平成11年度の小さく範囲も狭くなっていたが、その他の地域では地点による差があるものの明らかな減少にはなっていなかった。

・金属等の元素成分濃度

Vは夏期に東京湾岸で濃度が高い傾向にあり、Mnは冬期に東京湾岸で濃度が高くなる傾向があった。Al, Ca, Tiは例年通り粗大粒子中で濃度が高く、Cuも今年度は同様の傾向があった。Clは夏期にはNaと同様に沿岸部の粗大粒子中で濃度が高く海塩の影響が見られ、冬期には微小粒子中の濃度が平成14年度以前より低い傾向が引き続き見られた。Brは冬期の微小粒子で濃度が高かった。

水溶性成分との比較では、濃度は $\text{Na} \approx \text{Na}^+$, $\text{Cl} \approx \text{Cl}^-$, $\text{Ca} > \text{Ca}^{2+}$, $\text{Mg} > \text{Mg}^{2+}$ となった。

・発生源寄与の推定

自動車については16年度よりかなり増加した結果が得られた。夏期は最大の寄与が二次粒子で、二番目が自動車というパターンが多く見られたが、逆に冬期は最大の寄与が自動車で、二番目が二次粒子というパターンが多かった。冬期の自動車は平成14年度までは、40%以上のほぼ一定した寄与率を示していたが、15年度、16年度と連続して下がり24%まで低くなったが、今年度は34%になり、対前年度比で42%の増加となった。発生源の説明量も、低かった16年度よりは若干増え、80%近い結果となつた。

(2) 道路沿道調査

道路沿道におけるPM2.5濃度は、夏期が $21\sim32\mu\text{g}/\text{m}^3$ (平均 $27\mu\text{g}/\text{m}^3$)、冬期が $14\sim37\mu\text{g}/\text{m}^3$ (平均 $25\mu\text{g}/\text{m}^3$)の地域分布であり、夏期と冬期の濃度差は小さい。16年度と比べると夏期では高め、冬期では低めであったが、地点間の濃度差は同様に冬期で大きかった。

イオン成分について、夏期のPM(2.5-10)中の海塩成分、 Cl^- ロス等の変化により、大気の活性化状況の違いが推測された。PM2.5中のアンモニウム塩濃度には、夏期では SO_4^{2-} 濃度が、冬期では主に NO_3^- 濃度が反映されており、地域差は夏期で小さく、冬期で大きい。

炭素成分はPM2.5中への偏在率が高い。PM2.5中の元素状炭素の首都圏内、外における濃度はそれぞれ夏期が 5.4 、 $6.2\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、冬期が 8.0 、 $4.7\mu\text{g}/\text{m}^3$ であり、16年度と比べると夏期では $0.6\sim2\mu\text{g}/\text{m}^3$ の増加となり、冬期では $2.8\mu\text{g}/\text{m}^3$ の減少となった。

PAHs濃度は16年度までと同様に、夏期よりも冬期で高くなる傾向であった。PAHs平均濃度による経年的な傾向は、今年度の夏期では16年度よりも若干高めであるがほぼ同様であり、冬期では15年度と16年度の中間的な濃度レベルであった。首都圏内、外における濃度は、14年度冬期では、首都圏外に比べ首都圏内で倍程高くなっていたが、今年度を含む15年度以降については首都圏内、外ともほぼ同程度の濃度レベルが

継続している。ディーゼル車運行規制の実施により、特に冬期における PAHs 平均濃度は規制前より濃度が低下した状態で推移しているものと考えられた。

ディーゼル排気粒子と二次生成粒子の負荷濃度は、首都圏内では夏期がそれぞれ 9.8、 $11 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、冬期がそれぞれ 14、 $8.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、首都圏外では夏期がそれぞれ 11、 $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、冬期がそれぞれ 8.5、 $5.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$ であり、夏期よりも冬期で地域差が大きかった。PM2.5 へのディーゼル排気粒子と二次生成粒子の負荷率は地域差が小さく、夏期ではそれぞれ 40% 程で拮抗し、冬期ではディーゼル排気粒子が高めとなり、合計すると 75~79% 程となった。

4 年間の経年的な比較によると PM2.5 濃度は 14 年度から以降の 3 年間にかけて首都圏内、外では 26~41% の低減となっていた。また、PM2.5 濃度と SPM 測定値の関係により、現状の SPM 測定値から推計される PM2.5 濃度が米国や WHO において健康影響の観点から設定されている PM2.5 濃度目標値(それぞれ年平均値 15、 $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$)を相当量超えているものと考えられ、今後とも PM2.5 に焦点を当てたディーゼル排気粒子や二次生成粒子等の対策の進展を実証していくことが必要である。

6 今後の課題

浮遊粒子状物質は、以前から光化学オキシダントとともに、環境基準の達成率が全国的に低く、特に関東地方では著しく低い状況であった。また発生源は多種多様であり、浮遊粒子状物質の大気中での挙動も複雑で、また都市部に限らず、非都市部においても高濃度現象が発生する等広域的な汚染であるという特徴を有している。

このような状況の中で浮遊粒子状物質の成分を分析して、発生源からの寄与率を求める等、当調査会議で原因究明を行ってきたところである。

最近の浮遊粒子状物質を環境基準の達成率でみてみると、平成 17 年度においては山梨県を含む関東地域 8 都県のうち 6 都県でいまだに非達成局があり、日平均値 2% 除外値の濃度の高い上位の測定局に関東の測定局が占めている状況にあるものの、平成 7 年度においては 60% 台であった達成率が 90% まで上昇している。

この間に自動車排ガス規制が年々厳しさを増し、平成 15 年 10 月には南関東(東京都、埼玉県、千葉県、神奈川県)で条例によりディーゼル車の運行規制が行われた。このため、環境基準達成率の上昇が排ガス規制の影響によるものかどうか確認していく必要がある。

このような中で本調査会議においても、次のような課題が挙げられている。

- 1) 光化学オキシダント、VOC との関連
- 2) 二次生成粒子の発生機構解明
- 3) 廃棄物焼却炉等発生源データの新たな収集及び見直し
- 4) 短時間における高濃度現象の解明
- 5) 一般環境調査への PM2.5 の適用

このような状況から、排ガス規制の効果を見極めるため本調査は重要であり、上記の課題に関する調査内容や調査方法を検討しながら今後も継続していく予定である。

II 資 料 編

1 浮遊粒子状物質採取要領

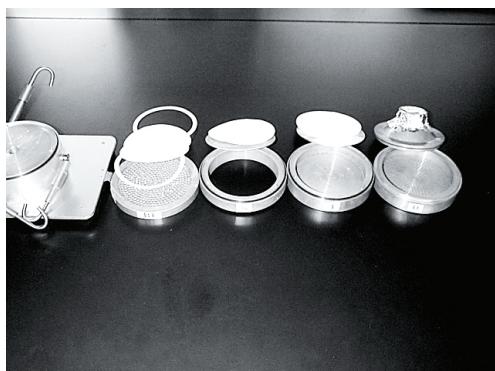


写真 1-1 サンプラーの段の構成



写真 1-2 B F の外側処理

1.1 アンダーセン・ロウボリウム・エアサンプラー

- (1) 段の構成は、**写真 1-1** の右から 0、4、スペーサー+B F の 3 段とし(組立構成は**写真 1-2** を参照)、0 および 4 段の下には皿を置いてろ紙をのせ、B F の上にはバックアップフィルターを装着する。
- (2) 各段に用いる皿等は純水で水洗後、エチルアルコールで置換し乾燥後、使用するまでシール付ビニール袋に保管する。
- (3) ろ紙の装着は清浄な白手袋をし、ピンセットで行う。素手では絶対に触らない。石英ろ紙の場合には、バックアップフィルターの下にスペーサーとしてさらに石英ろ紙を 1 枚を装着し(**写真 1-1**、**写真 1-2** の B F の上)、2 枚のテフロンパッキンでサンドイッチする。ポリフロンろ紙の場合には、バックアップフィルター 1 枚を 2 枚のテフロンパッキンでサンドイッチする。
- (4) 空気漏れを防止するため、**写真 1-2** のように B F の段の上下をビニールテープで 2 周 回シールする。
- (5) シェルターにセットした後、0、4 段の皿がずれていないかを確認する。
- (6) サンプリング開始(野帳に日時を記入)後、5~10 分経ったら吸引量を最終調整する。
- (7) 可能な限り、毎日 10 時に流量のチェックと調整を行い、記録する。吸引量は調整時とチェック時の流量から平均流量を算出し、その吸引時間を乗じて算出する。
- (8) 採取後のろ紙は、捕集面を上にした状態で保管容器に入れ、周囲をビニールテープでシールして、冷凍保存する。分析担当へのろ紙運搬に当たっては、絶対に天地を逆転してはならない。

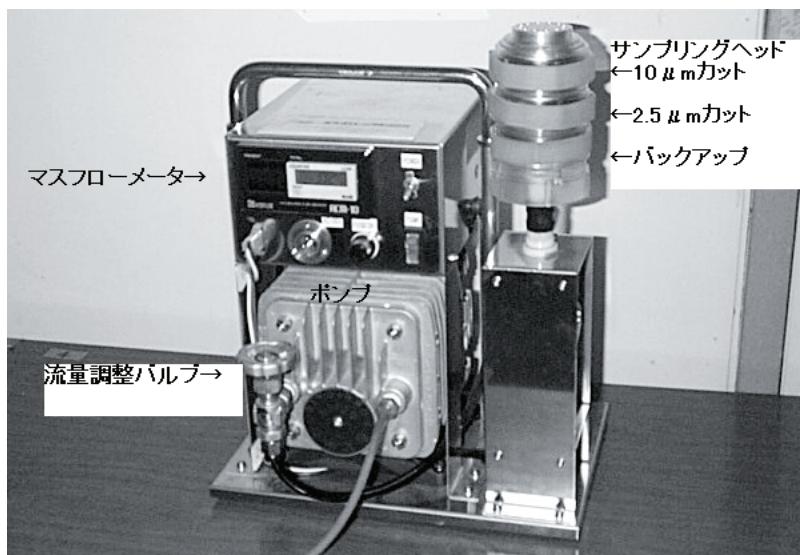


写真1-3 PCIサンプラーの構成

1.2 PCIサンプラー

- (1) PCIサンプラーは東京ダイレック社が開発製造した安価で取り扱いの容易なPM2.5サンプラーであり、米国連邦基準機であるPM2.5サンプラーとのよい相関が報告されている¹⁾。構成は写真1-3に示すようにサンプリングヘッドとマスフローメータとポンプで構成され、サンプリングヘッドは12穴の10μmカットインパクターと12穴の2.5μmカットインパクターとバックアップフィルターの3段組である。ろ紙は、それぞれ2枚のテフロンパッキンでサンドイッチする。
- (2) 操作手順および注意事項は、アンダーセンサンプラーとほぼ同様である。NILU(ノルウェー大気研究所、通称ニール)のフィルターholダーを使用しているため、漏れの心配はないのでビニールテープでのシールは必要ないが、締め過ぎるとろ紙が切れるので注意する。バックアップフィルターを支える目皿はポリカーボネート製であるため、アルコールでの洗浄は行わない。
- (3) 吸引総流量はマスフローメーターで記録しているので、吸引時間による計算は不要である。採取後のろ紙は、捕集面を上にした状態で保管容器(ペトリスライド)に入れ、冷凍保存する。

1) 神奈川県臨海地区大気汚染調査報告書(平成12年度)：神奈川県臨海地区大気汚染調査協議会、2001

2. 測定方法

2.1 粒子状物質濃度

(1) ろ紙の秤量

ろ紙の秤量は温度 20°C、相対湿度 50% の天秤室で 24~48 時間放置し恒量とした後、0.002mg の感度を有する化学天秤で精秤した。秤量に際しては、秤量前後での天秤指示値がゼロであることを確認し、天秤指示値が安定する一定時間放置後の秤量値を記録した。

捕集前後のろ紙の秤量時に合わせてろ紙ブランク 5 枚を秤量して重量を補正した。またポリフロン纖維ろ紙については、静電気による秤量誤差が懸念されるため静電気除去を施したのちに秤量を行った。

(2) 濃度の算出

ろ紙の秤量結果及び吸引空気量から次式により粒子状物質の濃度を $\mu\text{ g}/\text{m}^3$ の単位で求めた。

$$\text{粒子状物質の濃度} = (\text{We} - \text{Ws}) \div V \times 10^3$$

ただし We : 捕集後のろ紙の重量 [mg]
Ws : 捕集前のろ紙の重量 [mg]
V : 吸引空気量 [m^3]

2.2 炭素成分濃度

炭素成分の分析は、CHN コーダーによる熱分離分析法で行った。石英纖維ろ紙を分割し、有機炭素(OC)に 1/8、全炭素(TC)に 1/8 の試料を用いて分析を行い、元素状炭素(EC)は TC から OC を差引いて求めた。OC の測定は、He 雰囲気下、分離温度 600°C による分析条件で行った。また、全炭素の測定は O₂-He 雰囲気下、950°C の完全燃焼による分析条件で行った。炭素成分の定量下限値を表 2-1 に示した。

表 2-1 炭素成分の定量下限値 (単位: $\mu\text{ g}/\text{m}^3$)

	有機炭素(OC)	元素状炭素(EC)
定量下限値	0.16	0.19

2.3 金属等の元素成分濃度

金属等の成分の分析は、放射化(熱中性子線)分析法によった。放射化には日本原子力研究所東海研究所の JRR-3(出力 20MW)付属の気送照射施設(PN-3)を使用した。分析では熱中性子を照射した試料に生成する短寿命放射性核種から放出される γ 線スペクトルを計測した。

照射に供した試料は、採取したポリフロン纖維ろ紙を 1/4 に切り出して、小さく折りたたみ、ポリエチレン製の袋で二重に封入して調製した。試料を気送管により炉内に送り 40 秒間照射した(照射位置の熱中性子束: $2 \times 10^{13}\text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$)。照射後試料を炉内より取り出し、外側の袋を破ってろ紙の入った内側の袋を別のポリ袋に封入して計測試料とした。約 200 秒冷却の後、120~180 秒間 γ 線スペクトルを計測し、外部標準法で V、Al、Mn、Cl、Na、Ca、Br、Ti、Mg、Cu の 10 元素成分について定量を行った。

ろ紙ブランクの標準偏差および標準的な吸引ガス量から計算される検出下限値を表

2-2 に示した。

表 2-2 放射化分析の検出下限値 (単位 : ng/m³)

	V	A1	Mn	C1	Na	Ca	Br	Ti	Mg	Cu
粗大粒子	0.01	1.6	0.6	0.7	5	40	0.2	1	20	0.7
微小粒子	0.03	1.5	0.05	10	24	10	0.6	0.3	10	2

表 2-3 水溶性成分の定量下限値と検出下限値 (単位 : μg/m³)

	Na ⁺	NH ₄ ⁺	K ⁺	Mg ²⁺	Ca ²⁺	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻
定量下限値	0.004	0.005	0.005	0.005	0.021	0.014	0.030	0.030
検出下限値	0.001	0.001	0.001	0.002	0.006	0.004	0.009	0.009

表 2-4 多環芳香族炭化水素の検出下限値 (単位 : ng/m³)

	B[k]F	B[a]P	B[ghi]P
粗大粒子	0.006	0.008	0.02
微小粒子	0.003	0.002	0.008

2.4 水溶性成分濃度

(1) 分析方法

ポリフロン纖維ろ紙の 1/4(面積 12.6cm²)を切り出し、ポリビンの中へ短冊状にカットして入れた。エタノールを微小粒子試料には 1ml、粗大粒子試料には 0.5ml 加えてろ紙を濡らし、さらに新鮮な純水を微小粒子試料には 20ml、粗大粒子試料には 10ml 加えて 15 分間超音波抽出した。あらかじめ新鮮な純水 3ml で洗浄し、さらに数 ml の当該抽出ろ液で共洗いした親水性 PTFE メンブレンろ紙(孔径 0.2 μm、直径 13mm)を装着したろ過器でろ過した抽出ろ液を、分析試料とした。分析試料中の陽イオン 5 成分(Na⁺、NH₄⁺、K⁺、Mg²⁺、Ca²⁺)、陰イオン 3 成分(Cl⁻、NO₃⁻、SO₄²⁻)は、イオンクロマトグラフ法により定量した。

(2) 定量下限値と検出下限値

検量線作成時の各成分最低濃度系列を 5 回測定し、大気吸引量を 163m³(28.3ml/min × 60min × 24h × 4day)として採取試料同様に大気濃度換算した値の標準偏差の 3 倍の値を検出下限値、同様に 10 倍の値を定量下限値とした。これらを表 2-3 に示した。

2.5 多環芳香族炭化水素濃度

粉じん捕集ろ紙 1/4(粗大粒子は 1/2)を共栓付き遠心管に入れ、ジクロロメタン 5ml を加え、15 分間超音波抽出した。抽出液をクロマトイディスク 13P を取り付けた 10ml 注射筒に入れて、ろ過しながら 3ml を他の共栓付き遠心管に分取した後、この液を N₂ 気流下で乾固寸前まで濃縮し、アセトニトリル 1.5ml に再溶解し、これを HPLC 用試料とした。前処理は全て暗所にて行った。HPLC の条件は次のとおりであった。

多環芳香族炭化水素の検出下限値は、表 2-4 に示した。

分離カラム : SUPELCOSIL LC-PAH 25cm × 4.6mmID

移動相 : アセトニトリル : 水(85:15, V/V) 1ml/min

カラム温度 : 40°C

励起波長(Ex) : 365nm、蛍光波長(Em) : 410nm

6 調査地点の概況

6.1 一般環境調査

番号	1	地点名 (場所)	平塚 (神奈川県環境科学センター)	都県市コード	14203
所在地	神奈川県平塚市四之宮 1-3-39	採取場所	4階建屋上		
緯度・経度 (比高m)	35. 20. 51N 139. 21. 05E				
工場及び道路等付近の状況：平塚市の市街からやや北に位置し、付近には畠も点在しております、南西約1kmにゴム製造工場、南約1kmに自動車製造工場等がある。					
地形等の自然条件：県南部の相模川流域の平野部に発達した平塚市の東部に位置している。相模湾から北に4km、相模川からは西に2kmの位置にある。					

番号	2	地点名 (場所)	横浜 (横浜市環境科学研究所)	都県市コード	14107
所在地	横浜市磯子区滝頭 1-2-15	採取場所	庁舎屋上		
緯度・経度 (比高m)	35. 25. 09N 139. 37. 14E				
工場及び道路等付近の状況：庁舎前の幅5m以下の道路は、自動車の交通量が極めて少なく、大型車はほとんど通らない。庁舎から東側およそ0.5kmに国道16号、南東側およそ2kmの埋立地に新日本石油の大規模な製油所がある。					
地形等の自然条件：研究所の周りはこの建物とほぼ同じ高さの丘に囲まれており、北～東側の丘にはマンションが建ち、西側の丘には住宅が密集し、南には脳血管医療センターが建っている。					

番号	3	地点名 (場所)	川崎 (川崎市公害研究所)	都県市コード	14131
所在地	川崎市川崎区田島町 20-2	採取場所	庁舎屋上		
緯度・経度 (比高m)	35. 30. 43N 139. 42. 55E(10m)				
工場及び道路等付近の状況：採取場所から南南東480m先を県道東京大師横浜線、首都高速横浜羽田空港線が走り、その先は臨海工業地帯である。北東約5～6kmに羽田空港、東～南約4kmに川崎港がある。					
地形等の自然条件：付近は平坦地で住宅が密集しており緑の少ない地点である。					

番号	4	地点名 (場所)	江東 (東京都環境科学研究所)	都県市コード	13108
所在地	東京都江東区新砂 1-7-5	採取場所	庁舎屋上		
緯度・経度 (比高m)	35. 39. 54N 139. 49. 39E (23m)				
工場及び道路等付近の状況：東側及び北側約500mにそれぞれ幹線道路があり、1km内に物流配送センター、3～5km先に機械工場、清掃工場などが点在する。					
地形等の自然条件：周辺は10数階建てのマンション及び事務所ビルが多く、南約2km先は東京湾の入り江である。					

番号	5	地点名 (場所)	戸田 (埼玉県戸田・蕨保健所)	都県市コード	11224
所在地	埼玉県戸田市上戸田稻荷木 39	採取場所	局舎屋上		
緯度・経度 (比高m)	35. 48. 52N • 139. 40. 52E (3. 1m)				
工場及び道路等付近の状況：庁舎の前に自動車学校がある。庁舎から200～300m隔てて、県道に囲まれた地域である。周囲は倉庫、運送会社が多い。					
地形等の自然条件：付近は平坦地で、南側1.8kmのところに西から東に荒川が流れている。					

番号	6	地点名 (場所)	さいたま (さいたま市役所)	都県市コード	11107
所在地	さいたま市浦和区常盤 6-4-4	採取場所	局舎(議会棟)屋上		
緯度・経度 (比高m)	35. 51. 43N • 139. 38. 43E (15. 0m)				
工場及び道路等付近の状況：東側に国道17号線が通っている。付近は公共施設が多い官庁街である。					
地形等の自然条件：付近は平坦地で、西側1.4kmのところに北から南へ荒川が流れている。					

番号	7	地点名（場所）	騎西（埼玉県環境科学国際センター）	都県市コード	11421
所在地	埼玉県北埼玉郡騎西町上種足 914	採取場所	生態園エコロッジ屋上		
緯度・経度（比高m）	36. 04. 49N 139. 33. 50E (4 m)				
工場及び道路等付近の状況：周囲は田園地帯である。北西約300mに県道があり、北東約2.2kmに国道122号線がある。					
地形等の自然条件：付近は平坦地であり、大きな建造物は無い。					

番号	8	地点名（場所）	千葉（真砂公園）	都県市コード	12106
所在地	千葉市美浜区真砂 1-11	採取場所	局舎屋上		
緯度・経度（比高m）	35. 37. 51N 140. 04. 15E (5 m)				
工場及び道路等付近の状況：中層建築物の小中学校・大学に囲まれた住宅地にある。北東800mに国道14号がとおり、南西2kmには緑の多い海浜公園がある。					
地形等の自然条件：付近は平坦地である。					

番号	9	地点名（場所）	市原（市原岩崎西測定局）	都県市コード	12219
所在地	千葉県市原市岩崎西 1-8-8	採取場所	局舎屋上		
緯度・経度（比高m）	35. 31. 22N 140. 04. 18E (5 m)				
工場及び道路等付近の状況：京葉臨海工業地帯に隣接し、北西側に国道16号があり、この道路と庁舎の間には緑地公園がベルト状にある。庁舎は特別工業地域内にある。					
地形等の自然条件：付近は平坦地で、北西側に東京湾、内陸は田畠山の低い丘陵になっており緑が多い。北東側には南東から北西へ流れる養老川がある。					

番号	10	地点名（場所）	一宮（一宮東浪見測定局）	都県市コード	12421
所在地	千葉県長生郡一宮町東浪見 1516-2	採取場所	局舎屋上		
緯度・経度（比高m）	35. 20. 58N 140. 22. 54E (5 m)				
工場及び道路等付近の状況：一宮町立東浪見小学校の敷地内にある。付近に大きな工場はなく、西側直近に外房の基幹道路及びJR外房線がある。					
地形等の自然条件：東側は平坦な田地帯であり、その先は太平洋である。西側は標高30m程度の段丘になっている。					

番号	11	地点名（場所）	犬越路（国設丹沢酸性雨測定所）	都県市コード	14364
所在地	神奈川県足柄上郡山北町 927-2	採取場所	屋上(1)階		
緯度・経度（比高m）	35. 29. 16N 139. 05. 06E				
工場及び道路等付近の状況：東側約100m地点に南北に走る7m道路があるが、1999年6月からは麓に道路ゲートが設置され、現在は関係車両のみの通行となっている。					
地形等の自然条件：西丹沢山中の南斜面中腹(920m)にある。東の檜洞丸(1551m)と北西の大室山(1588m)の中間にある犬越路(1169m)の南直下に位置する。					

番号	12	地点名（場所）	水戸（茨城県環境監視センター）	都県市コード	8201
所在地	茨城県水戸市石川1丁目 4043-8	採取場所	局舎屋上		
緯度・経度（比高m）	36. 23. 21N 140. 25. 45E (4 m)				
工場及び道路等付近の状況：水戸市街の西に位置し住宅地の中にある。交通量は少ないものの四方を車道に囲まれており、北側車道にはバス停留所がある。また、南側約0.4kmに国道50号線があり、交通量は多い。なお、工場等の発生源は付近にはない。					
地形等の自然条件：付近は平坦地で北側には田畠が広がっている。山地は北側約30kmではなく、海からは17km離れている。					

番号	13	地点名（場所）	河内（栃木県保健環境センター）	都県市コード	9304
所在地	栃木県河内郡河内町下岡本 2145-13	採取場所	庁舎4階屋外渡り廊下		
緯度・経度（比高m）		36. 36. 1N 139. 56. 25E (12m)			
工場及び道路等付近の状況：工場地域に位置し、付近には小規模な工業団地があるが、大工場はない。南東約1kmに国道4号線が通っている。					
地形等の自然条件：関東平野の北端に位置し、付近は平坦である。北西部標高300～600mの山地と丘陵地が連なっている。東2.3kmに鬼怒川が南北に流れている。					

番号	14	地点名（場所）	前橋（群馬県衛生環境研究所）	都県市コード	10201
所在地	群馬県前橋市上沖町 378	採取場所	庁舎屋上		
緯度・経度（比高m）		36. 24. 06N 139. 05. 57E (20m)			
工場及び道路等付近の状況：付近は田園地帯であるが、約500m南には住宅地および町工場が広がる。約2km北に小規模の工業団地がある。約300m北に県道が東西に走っている。					
地形等の自然条件：赤城山麓の南にあり、付近は平坦地である。約300m南に桃の木川があり、西から東に流れる。					

番号	15	地点名（場所）	長野（長野県環境保全研究所）	都県市コード	20201
所在地	長野県長野市安茂里米村 1978	採取場所	庁舎屋上		
緯度・経度（比高m）		36. 37. 57N 138. 10. 38E (12m)			
工場及び道路等付近の状況：長野市街地の南西部に位置し、東側に裾花川が流れている。周囲は住居地域であるが、1km以内には食品工場が点在する。東約300mと北約600mには、交通量の多い国道等の幹線道路がある。					
地形等の自然条件：南西から北東に流れる千曲川に沿った紡錘形の盆地で盆地の幅は約8kmである。盆地底部の標高は海拔300m～400mで、周囲は海拔1000～2000mの山地に囲まれる。					

番号	16	地点名（場所）	甲府（山梨県衛生公害研究所）	都県市コード	19201
所在地	山梨県甲府市富士見 1-7-31	採取場所	局舎屋上		
緯度・経度（比高m）		35. 40. 08N 138. 33. 11E (4. 5m)			
工場及び道路等付近の状況：甲府市街の北西部に位置しており、付近は住宅地域で工場はない。北約400mに県道(16,000台/日)があるが、NO2の環境基準超過の事例はない。平成12年4月～18年3月は、隣接地で総合病院(9階建て)の改築工事が行われる。					
地形等の自然条件：甲府盆地の北西部、標高280mの地点で、北～東側は山地に近接し、西側約100mを荒川が流れる。年間を通して北西から南西の風が卓越する。					

番号	17	地点名（場所）	藤枝（藤枝自排局）	都県市コード	22214
所在地	藤枝市郡 970	採取場所	局舎屋上		
緯度・経度（比高m）		34. 52. 39N 138. 16. 16E (3 m)			
工場及び道路等付近の状況：国道1号線沿い（12時間交通量22,000台）。南西1.2kmに藤枝市役所があり、周辺に工場等はない。					
地形等の自然条件：志太平野の北部に位置し、付近は平坦地。約2km以西は山間部、約7km以東に駿河湾を望む。					

番号	18	地点名（場所）	島田（島田市役所測定局）	都県市コード	22209
所在地	静岡県島田市中央町 1-1	採取場所	局舎屋上		
緯度・経度（比高m）		34. 49. 59N 138. 10. 45E (4 m)			
工場及び道路等付近の状況：西南西1300m付近に製紙工場、南西1000m付近に紡績工場がある。道路は西30m付近と南40m付近県道がある。また北200mに国道1号線がある。					
地形等の自然条件：付近は平坦地で南1000m付近に大井川がある。					

6.2 道路沿道調査

番号	1	地点名（場所）	平塚松原（松原歩道橋自排局）	都県市コード	14203
所在地	神奈川県平塚市天沼 2-5	採取場所			
緯度・経度（比高m）	35. 19. 49N 139. 21. 34E (2 m)				
主要道路との位置関係	南6mに国道1号線。松原歩道橋側。				
主要道路の交通量	平成17年度神奈川県道路管理課作成データ				
(平日) 12時間交通量	21, 737台	(休日) 12時間交通量	19, 479台		
12時間大型車混入率	10. 6%	12時間大型車混入率	2. 4%		
番号	2	地点名（場所）	横浜滝頭（横浜市磯子区滝頭自排局）	都県市コード	14107
所在地	横浜市磯子区滝頭 3-1-68	採取場所	局舎わき		
緯度・経度（比高m）	35. 25. 03N 139. 37. 38E (3 m)				
主要道路との位置関係	東5mに国道16号、南東1kmに根岸湾工業地帯。				
主要道路の交通量	平成17年度神奈川県道路管理課作成データ				
(平日) 12時間交通量	31, 836台	(休日) 12時間交通量	28, 032台		
12時間大型車混入率	15. 5%	12時間大型車混入率	4. 3%		
番号	3	地点名（場所）	川崎池上（池上新田公園前自排局）	都県市コード	14131
所在地	川崎市川崎区池上町 1-7	採取場所			
緯度・経度（比高m）	35. 31. 18N 139. 43. 50E (2 m)				
主要道路との位置関係	北西17mに首都高速横浜羽田空港線、北東9mに県道東京大師横浜線。				
主要道路の交通量	平成17年度神奈川県道路管理課作成データ				
(平日) 12時間交通量	38, 105台	(休日) 12時間交通量	18, 442台		
12時間大型車混入率	34. 3%	12時間大型車混入率	14. 6%		
番号	4	地点名（場所）	江東亀戸（京葉道路亀戸自排局）	都県市コード	13108
所在地	江東区亀戸 7-42-17	採取場所	局舎わき		
緯度・経度（比高m）	35. 41. 37N 139. 50. 21E (1. 5m)				
主要道路との位置関係	北4. 5mに国道14号線（京葉道路）				
主要道路の交通量	平成11年度新道路交通センサス				
(平日) 12時間交通量	34, 181台	(休日) 12時間交通量	33, 424台		
12時間大型車混入率	15. 8%	12時間大型車混入率	5. 3%		
番号	5	地点名（場所）	鴻巣（鴻巣天神自排局）	都県市コード	11217
所在地	埼玉県鴻巣市天神 1-1-28	採取場所	局舎屋上		
緯度・経度（比高m）	36. 03. 30N 139. 31. 21E (4 m)				
主要道路との位置関係	北東3mに国道17号線。西側に鴻巣女子高校の校庭が隣接する。				
主要道路の交通量	平成17年度新道路交通センサスの近傍2地点の平均による				
(平日) 12時間交通量	34, 167台	(休日) 12時間交通量	34, 166台		
12時間大型車混入率	15. 7%	12時間大型車混入率	4. 1%		
番号	6	地点名（場所）	柏大津ヶ丘（柏市大津ヶ丘自排局）	都県市コード	12305
所在地	千葉県柏市大津ヶ丘 2-1	採取場所	局舎屋上		
緯度・経度（比高m）	35. 50. 29N 140. 0. 7E (2. 5m)				
主要道路との位置関係	北西10. 5mに国道16号線				
主要道路の交通量	平成17年度新道路交通センサスによる（国道16号線柏市弥生町）				
(平日) 12時間交通量	36, 018台	(休日) 12時間交通量	31, 398台		
12時間大型車混入率	32. 1%	12時間大型車混入率	8. 3%		
番号	7	地点名（場所）	千葉市役所（千葉市役所自排局）	都県市コード	12101
所在地	千葉市中央区千葉港 1-1	採取場所	局舎屋上		
緯度・経度（比高m）	35. 36. 27N 140. 06. 28E (2. 5m)				
主要道路との位置関係	北東8mに国道16号、市役所駐車場内にある。				
主要道路の交通量	平成17年度新道路交通センサスによる。				
(平日) 12時間交通量	39, 703台	(休日) 12時間交通量	35, 121台		
12時間大型車混入率	24. 8%	12時間大型車混入率	4. 0%		

番号	8	地点名（場所）	自排水戸（水戸大工町自排局）	都県市コード	8201
所在地	茨城県水戸市大工町 1-6	採取場所	局舎屋上		
緯度・経度（比高m）	36. 22. 51N 140. 27. 31E (3 m)				
主要道路との位置関係	南3mに国道50号線。				
主要道路の交通量	平成17年度新道路交通センサスによる。				
(平日) 12時間交通量	23, 268台	(休日) 12時間交通量	17, 953台		
12時間大型車混入率	11. 1%	12時間大型車混入率	8. 5%		
番号	9	地点名（場所）	矢板市片岡（矢板市片岡公民館自排局）	都県市コード	9211
所在地	栃木県矢板市片岡 2098	採取場所	局舎わき		
緯度・経度（比高m）	36. 48. 24N 139. 56. 58E (3 m)				
主要道路との位置関係	東5mに国道4号線。				
主要道路の交通量	平成17年度新道路交通センサスによる				
(平日) 12時間交通量	19, 066台	(休日) 12時間交通量	18, 562台		
12時間大型車混入率	33. 6%	12時間大型車混入率	8. 5%		
番号	10	地点名（場所）	国設前橋（国設前橋自排局）	都県市コード	10201
所在地	群馬県前橋市元総社町 335	採取場所	局舎わき		
緯度・経度（比高m）	36. 22. 55N 139. 02. 31E (1. 5m)				
主要道路との位置関係	北西7mに国道17号線。				
主要道路の交通量	平成17年度新道路交通センサスによる。				
(平日) 12時間交通量	50, 864台	(休日) 12時間交通量	53, 454台		
12時間大型車混入率	6. 8%	12時間大型車混入率	1. 6%		
番号	11	地点名（場所）	更埴 I C（更埴 I C自排局）	都県市コード	20218
所在地	長野県千曲市栗佐 1064-4	採取場所	局舎屋上		
緯度・経度（比高m）	36. 32. 45N 138. 07. 41E (3 m)				
主要道路との位置関係	東5mに国道18号線。北東500mに長野道更埴 I Cがある。				
主要道路の交通量	平成17年度新道路交通センサスによる。				
(平日) 12時間交通量	28, 481台	(休日) 12時間交通量	27, 912台		
12時間大型車混入率	14. 6%	12時間大型車混入率	4. 4%		
番号	12	地点名（場所）	山梨県庁（山梨県庁自排局）	都県市コード	19201
所在地	山梨県甲府市市丸の内 1-6-1	採取場所	局舎わき		
緯度・経度（比高m）	35. 39. 38N 138. 34. 18E (1. 5m)				
主要道路との位置関係	県道甲府韋崎線から東に100m、国道411号線から北に200m				
主要道路の交通量	平成17年度新道路交通センサスによる（県道甲府敷島韋崎線）。				
(平日) 12時間交通量	12, 018台	(休日) 12時間交通量	12, 235台		
12時間大型車混入率	11. 9%	12時間大型車混入率	8. 0%		
番号	13	地点名（場所）	藤枝（藤枝自排局）	都県市コード	22214
所在地	静岡県藤枝市郡 970	採取場所	局舎屋上		
緯度・経度（比高m）	34. 52. 39N 138. 16. 16E (3 m)				
主要道路との位置関係	西北西5mに国道1号線。				
主要道路の交通量	平成17年度新道路交通センサスによる。				
(平日) 12時間交通量	16, 263台	(休日) 12時間交通量	15, 739台		
12時間大型車混入率	5. 9%	12時間大型車混入率	1. 4%		

執筆担当自治体

I 本 編

1 目 的	茨城県
2 調査方法	茨城県
3 気象状況	静岡県(さいたま市)
4. 1 粒子状物質濃度	群馬県(栃木県)
4. 2 水溶性成分濃度	埼玉県(茨城県)
4. 3 炭素成分濃度	川崎市(横浜市)
4. 4 多環芳香族炭化水素成分濃度	千葉県(長野県)
4. 5 金属等の元素成分濃度	千葉市(静岡県)
4. 6 発生源寄与の推定	千葉県(静岡県)
4. 7 道路沿道調査について	神奈川県、千葉県(横浜市)
5 まとめ	各担当自治体
6 今後の課題	茨城県(群馬県)

II 資料編

1 粒子状物質採取要領	茨城県
2 測定方法	茨城県
3 調査期間中の常時監視データ	各自治体
4 各成分濃度測定結果	各担当自治体(茨城県)
5 常時監視データおよび 粒子状物質成分濃度間の関係	東京都(千葉県)
6 調査地点の概況	各自治体

本報告書は、環境資源の有効利用を図るため
再生紙を使用しております。

平成 19 年 3 月発行

平成 17 年度浮遊粒子状物質
合同調査報告書

編集・発行 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

編集責任 茨城県霞ヶ浦環境科学センター
茨城県土浦市沖宿町 1853 番地

電 話 029-828-0960

印 刷 株式会社 イ マ イ シ
東京都足立区梅島 1 丁目 31 番 15 号
電 話 03-3848-1311



