

川崎市における大気中の粒径別浮遊粉じんの性状に関する調査研究

Investigations on Particle Size and Major Components of Ambient Aerosol in Kawasaki City

早 坂 孝 夫	Takao	HAYASAKA
小 池 順 一	Jun-ichi	KOIKE
井 上 康 明	Yasuaki	INOUE
黒 沢 芳 則	Yoshinori	KUROSAWA
佐 藤 静 雄	Shizuo	SATOH

1 はじめに

都市域での大気汚染は活発な都市・産業活動に伴い莫大なエネルギーが、密な地域内で充分制御されることなく消費されていることから生じていると言っても過言でなかろう。これらエネルギー消費の主なものに物質・人の流通手段である自動車、ゴミ焼却、発電所、及び大小オイラーを使用している各種事業所や一般家庭等が挙げられる。

大気汚染の中でも微小粒子を主体とした浮遊粉じんの低減化対策が遅れている。これは微小粒子状物質が人為的（固定・移動発生源）、自然（土壤・海塩）発生源からの一次粒子だけでなくガス状物質の変換によって二次生成粒子も発生するという発生・生成機構の多様性と、滞留時間が長く輸送・拡散の過程での重力沈降や凝集、四季毎に変化する気象の影響によってその挙動が複雑だからである。

浮遊粉じんの化学組成、粒径分布の特性はその発生・生成機構及び気象条件に関係していると考えられている。都市大気浮遊粉じんの粒径分布は、粒径 $2 \mu\text{m}$ 前後が谷となる2山型となっていると報告されている^{1,2)}。粒径 $2 \mu\text{m}$ 以下の微小粒子は物の燃焼によって発生するものやガス状物質が粒子状物質に変換して生成する二次粒子が主なものであるとされている。この人為的発生源が起因

として生じる微小粒子の挙動を把握することが浮遊粒子状物質削減対策に緊要である。

そこで市内環境大気・道路沿道大気中の粒径別浮遊粉じんの実態について通年調査を実施し、主に微小粒子を中心にその濃度、主成分及び発生源寄与について検討したのでその結果を報告する。

2 調査方法

2.1 調査地点及び期間

(1) 調査期間

昭和62年4月から昭和63年3月までの1年間である。

(2) 調査地点

調査地点は一般環境大気測定所として臨海工業地帯に隣接した川崎市公害研究所（田島）、市の中央部に位置する中原区役所（中原）、海から内陸に20数km入った丘陵地で住居地域の麻生測定所（麻生）及び首都高速・産業道路に面した池上自動車排ガス測定所（池上）の合わせて4箇所である。

2.2 試料の採取方法

環境大気中の浮遊粉じんについてアンダーセン・ローボリウムサンプラーを用いて3段分級捕集した。浮遊粉じんの粒径範囲別捕集は空気動力学

径 $11 \mu\text{m}$ 以上, $2.1 \mu\text{m} < dp < 11 \mu\text{m}$, $2.1 \mu\text{m}$ 以下とした。3段とも捕集ろ材に石英纖維ろ紙 (Pallflex 2500 QAST) を用いた。空気吸引量は 28.3 l/min である。試料採取は毎月1回、第3週から第4週にかけて6日間行った。

粒子の粒径分布の表示法として、 $2.1 \mu\text{m} < dp < 11 \mu\text{m}$ を粗大粒子、 $2.1 \mu\text{m}$ 以下を微小粒子、それらの合計を浮遊粉じんとした。

2.3 試料の分析法

水溶性成分：分級捕集されたろ紙の $1/2$ 試料とイオン交換水 20 mL を三角フラスコに入れ、20分間超音波抽出した。

Cl^- , NO_3^- , SO_4^{2-} の分析はイオンクロマトグラフィー (IC: 溶離液 $2.4 \text{ mM Na}_2\text{CO}_3$, 3 mM NaHCO_3) で行った。これらの分析では抽出液を 5 mL ディスポーバルシリングに取り、 $0.22 \mu\text{m}$ のフィルター (マイレクス-GC, Millipore 社製) で粒子状物質を除去し、イオンクロマトグラフィー装置の計量管 ($500 \mu\text{l}$) に、 $1 \sim 2 \text{ mL}$ 注入し分析を行った。 NH_4^+ についてはオートアナライザー (インドフェノール法) を用いて行った。また、 Na^+ , K^+ については干渉抑制剤として塩化セシウムを添加した後、原子吸光法を用いて分析した。

炭素成分：白金製ホルダー上に試料をとり、He 気流中、燃焼炉 550°C で揮発、分解した加熱生成物を酸化炉で酸化し生成した CO_2 から求めた炭素量を有機炭素 (C_{org}) とし、引き続き 900°C He-O₂ 気流中で燃焼し生成した CO_2 から求めた炭素量を元素状炭素 (C_{el}) とし、それらを合計したものを総炭素量 (C_{T}) とした。分析装置は CHN 計 (MT-3型 柳本製) を用いた³⁾。

金属成分：微小粒子中の Ti, V, Cr, Mn, Fe, Ni, Cu, Zn, Br, Pb についてはエネルギー分散型蛍光 X 線装置を用いて分析した⁴⁾。

3. 結果及び考察

3.1 浮遊粉じんの粒径別年平均濃度

粗大、微小粒子の年平均濃度は表 1 のとおりである。この年平均結果からは微小、粗大粒子濃度とも道路沿道の池上が最も高く、ついで一般環境地点の中原、田島、麻生の順であった。一般環境

地点で最も高かった中原における粗大、微小粒子濃度に対する池上のその比は約 1.4 であった。

各調査地点とも浮遊粉じん中に占める微小粒子の年平均割合は 60 ~ 65 % であった。年間を通した全調査地点での浮遊粉じん濃度 (x) と微小粒子濃度 (y) との関係を回帰直線で表わし、図 1 に示した。

相関係数 $r = 0.97$ 傾きは 0.73 となり、都市域での浮遊粉じん濃度は微小粒子の挙動に影響を受けていることが明らかになった。

3.2 浮遊粉じんの粒径別経月推移

各調査地点での粒径別浮遊粉じん濃度の経月推移を図 2 に示した。

表 1 粗大、微小、浮遊粉じんの年平均濃度

	粗 大	微 小	浮遊粉じん
田 島	25	40	65
中 原	26	44	70
麻 生	18	34	52
池 上	36	62	98

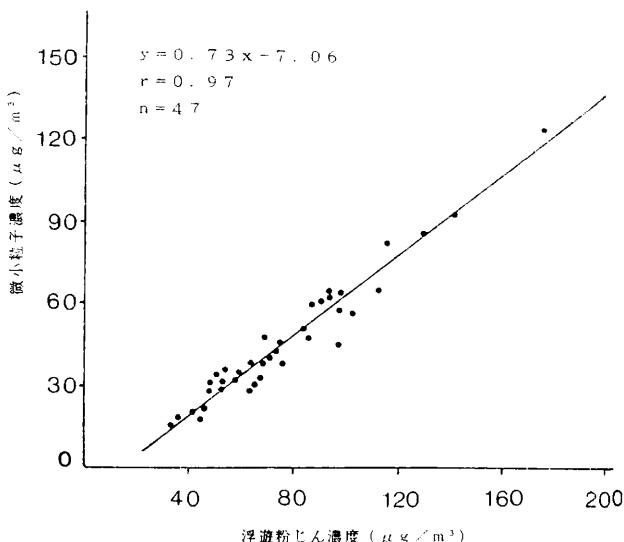


図 1 浮遊粉じんと微小粒子との関係

粗大、微小粒子濃度の経月推移は各調査地点とも類似性を示していた。62年度の浮遊粉じん濃度

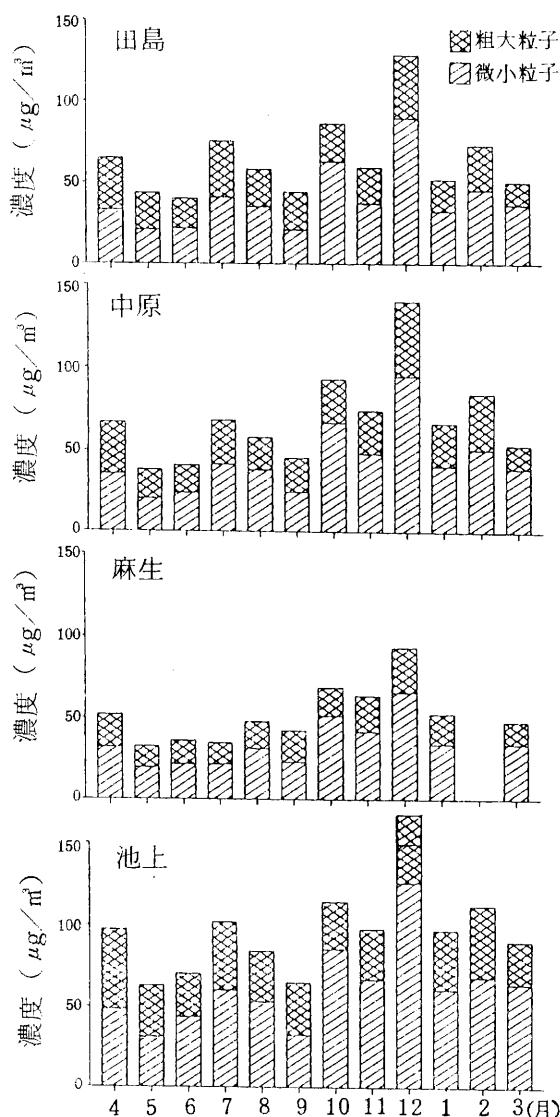


図2 粒径別浮遊粉じん濃度の経月推移

は例年通りに秋口の10月から12月にかけて高くなり、12月に最高濃度を示した。中でも微小粒子にその傾向が顕著に表われた。粗大、微小粒子の12月の濃度は道路沿道の池上48 μg/m³, 126 μg/m³, 一般環境の中原45 μg/m³, 95 μg/m³, 田島39 μg/m³, 89 μg/m³, 麻生27 μg/m³, 66 μg/m³の順であった。12月の微小粒子濃度は各地点とも年平均濃度の約2倍に達した。月平均風速の弱まりや温度逆転層の出現率の上昇等の気象的要因が重なったことが高濃度を生じる要因としてあげられている⁵⁾。粗大粒子濃度は微小粒子ほど高くなっている。粗大粒子は微小粒子と比べて滞留時間が短く、局所汚染の要素が大きいが固定発生源から排出される粗大粒子は燃料の良質化や電気集塵機等の公害防止設備の充実で改善されてきていると思われる。もう一つの発生源である土壤、中でも自動車走行に伴う舞き上げ粉じんで発生する粗大粒子による寄与は道路の清掃、植樹帯の設置等によって軽減化が期待される。

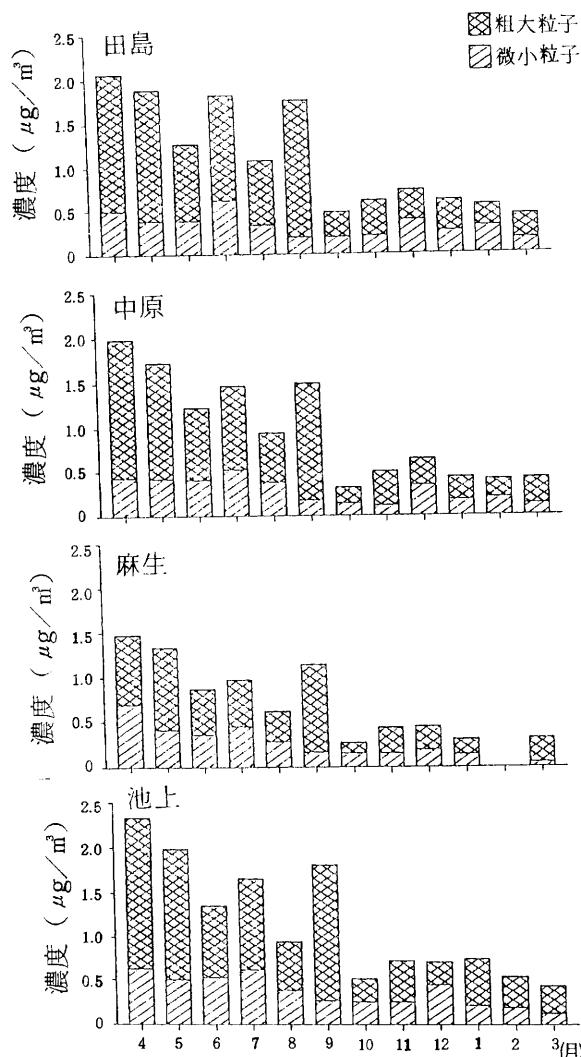
3.3 粒径別浮遊粉じん中の水溶性成分

大気中にガス状物質で存在する二酸化硫黄や窒素酸化物等が種々の条件で反応し、粒子状物質として二次生成されることが主因である成分に、SO₄²⁻, NO₃⁻, Cl⁻, NH₄⁺がある。これら二次生成粒子成分の粗大・微小粒子の年平均濃度を表2に示した。二次生成粒子成分はCl⁻を除いて微小粒子側に偏っていた。

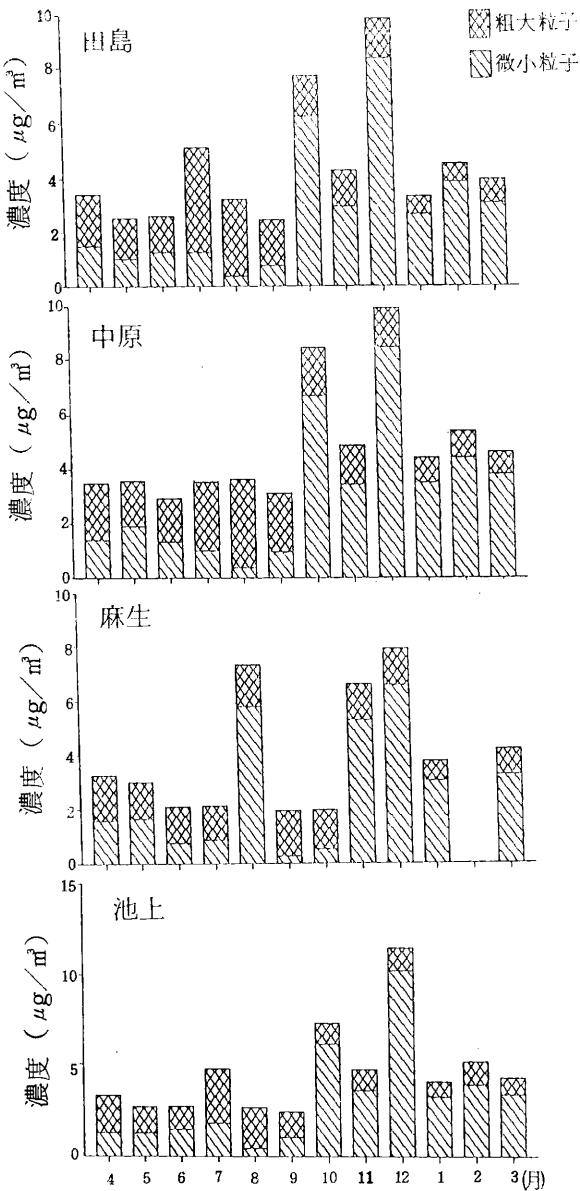
東京湾に面した川崎市では海塩粒子の影響を受け年平均濃度では微小粒子と比べて粗大粒子中のCl⁻濃度が高かった。同様な理由でNa⁺も粗大粒子側の濃度が高くなっている(図3)。

表2 粗大、微小粒子中の各種二次生成粒子成分の年平均濃度

	粗 SO ₄ ²⁻	大 NO ₃ ⁻	大 Cl ⁻	NH ₄ ⁺	微 SO ₄ ²⁻	微 NO ₃ ⁻	小 Cl ⁻	NH ₄ ⁺
田 島	2.7	1.6	1.3	0.014	6.2	2.8	0.88	1.2
中 原	1.8	1.7	1.18	0.014	6.1	3.1	0.98	1.3
麻 生	1.7	1.3	0.81	0.010	5.2	2.7	0.63	0.91
池 上	2.9	1.5	1.3	0.049	7.4	3.2	1.1	1.5

図3 粒径別浮遊粉じん中の Na^+ 濃度の経月推移

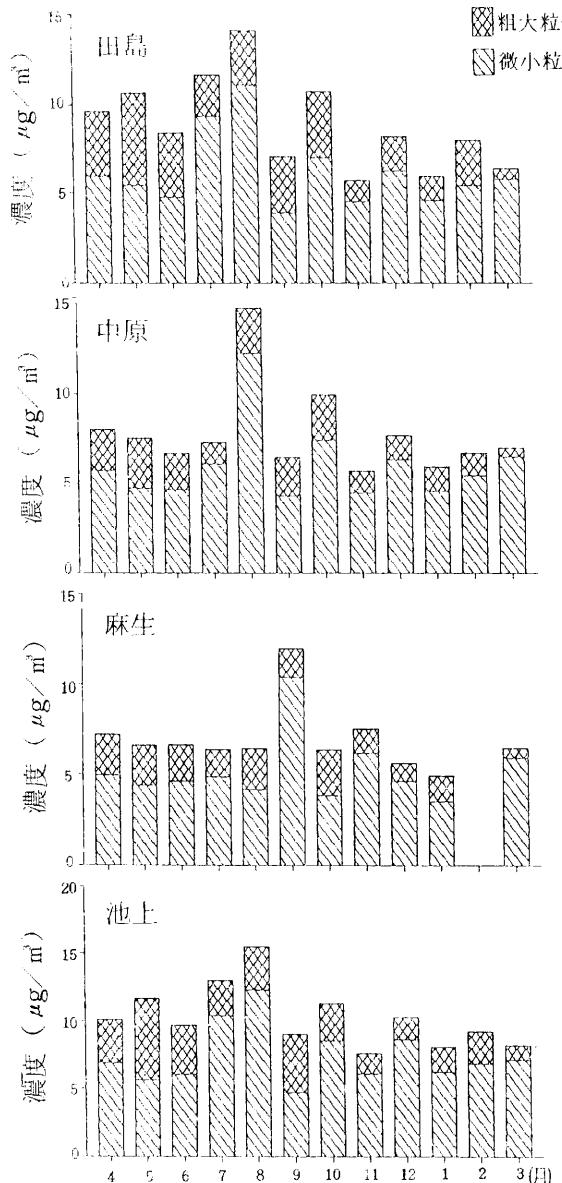
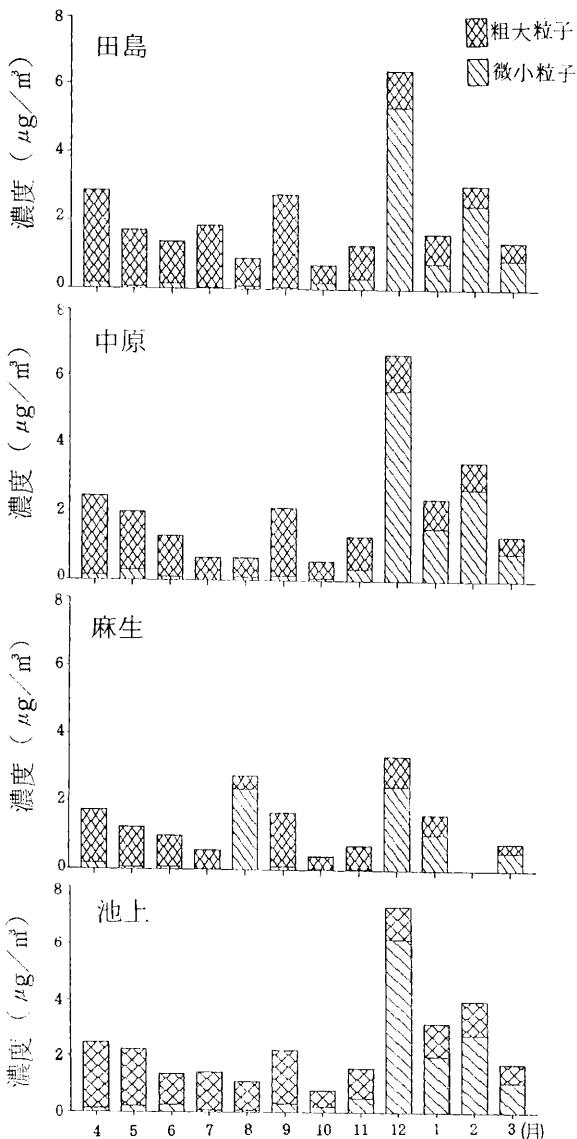
これら粗大粒子側の成分濃度は一次粒子要因と考えられる。冬期での微小粒子中の Cl^- は別の生成機構による二次生成粒子と考えられる。海塩粒子濃度は風向の影響から冬期よりも夏期に濃度が高くなっている。この粗大粒子中の Na^+ と硝酸ガスとが反応し硝酸ナトリウムが生成することが報告されている⁶⁾。実際粗大粒子中の NO_3^- 濃度が

図4 粒径別浮遊粉じん中の NO_3^- 濃度の経月推移

田島 $3.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$, 中原 $3.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$, 池上 $3.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$ と夏期に高濃度を示した(図4)。

冬期と比べて夏期に濃度が高くなる成分に SO_4^{2-} がある(図5)。

都市大気中での $\text{SO}_2 \rightarrow \text{SO}_4^{2-}$ の変換が光化学反応によって促進されることが知られている。各調査地点での微小粒子中の SO_4^{2-} の最高値は夏期

図5 粒径別浮遊粉じん中の SO_4^{2-} 濃度の経月推移図6 粒径別浮遊粉じん中の Cl^- 濃度の経月推移

に集中し $10.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ~ $12.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ の範囲にあり、この時微小粒子中に占められる SO_4^{2-} の組成割合は 23 % ~ 49 % であった。粗大粒子中のそれは春、冬に別れ $2.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ~ $6.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ の範囲にあり、この時粗大粒子中に占められる SO_4^{2-} の組成割合は 15 % ~ 22 % であった。

反対に夏期と比べて冬期に濃度が高くなる微小

粒子中成分に NO_3^- , Cl^- , NH_4^+ がある(図6~図7)。

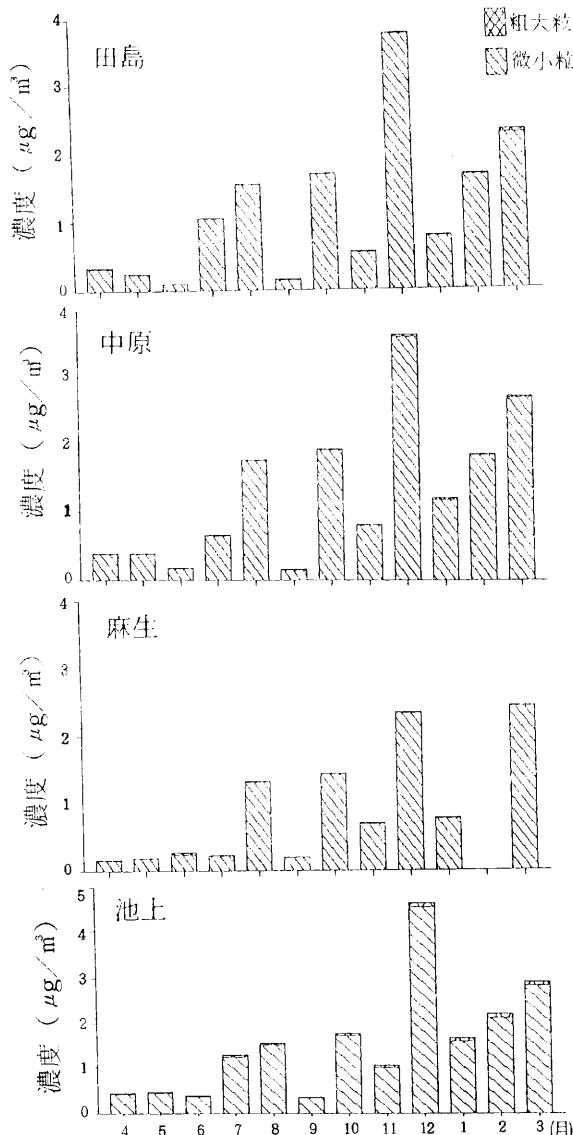
二次生成粒子の前駆体である HNO_3 , HCl , NH_3 のガス状態では飽和蒸気圧が高く、粒子として存在するためにはより蒸気圧の低い化合物を生成している。夏期と比べて温度の低い冬期に濃度が高いのも NH_4NO_3 , NH_4Cl , $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$,

3.4 粒径別浮遊粉じん中の炭素成分

各調査地点での粗大・微小粒子中の総炭素の年平均濃度を表3に示した。

表3 粗大、微小粒子中の総炭素の年平均濃度

	粗 大	微 小
出 島	3.0	13.6
中 原	3.5	14.7
麻 生	2.0	10.6
池 上	6.0	27.7

図7 粒径別浮遊粉じん中のNH₄⁺濃度の経月推移

NH₄HSO₄, NaNO₃等に変換し安定な状態で存在しているためと言われている⁷⁾。各調査地点での微小粒子中のNO₃⁻, Cl⁻, NH₄⁺の最高値は12月に集中し, NO₃⁻は6.5 μg/m³~10.3 μg/m³, Cl⁻は2.5 μg/m³~6.2 μg/m³, NH₄⁺は2.5 μg/m³~6.2 μg/m³の範囲であった。

浮遊粉じん中の炭素成分の80~85%は、年平均割合で微小粒子中に含まれていた。微小粒子の総炭素中に占める元素状炭素の年平均割合は道路沿道の池上で74%と高く、一般環境では64%~69%の範囲であった。ディーゼル自動車の排出粒子の指標成分とされている元素状炭素と有機炭素の濃度比(Corg/Cel)が小さいほどディーゼル自動車排出粒子の影響を受けていると言われている。微小粒子中のこの年平均濃度比は池上で0.35, 田島で0.44, 中原で0.51, 麻生で0.56であった。各調査地点での微小粒子中の有機炭素と元素状炭素の月別推移を図8に示した。

微小粒子中の炭素の月別推移は浮遊粉じん濃度と同様に秋から冬にかけて高くなり12月に最高値を示した。微小粒子中の有機炭素と元素状炭素の12月の濃度は池上 15.6 μg/m³, 41.3 μg/m³, 中原 12.2 μg/m³, 25.0 μg/m³, 田島 11.0 μg/m³, 24.5 μg/m³, 麻生 8.3 μg/m³, 15.4 μg/m³であった。

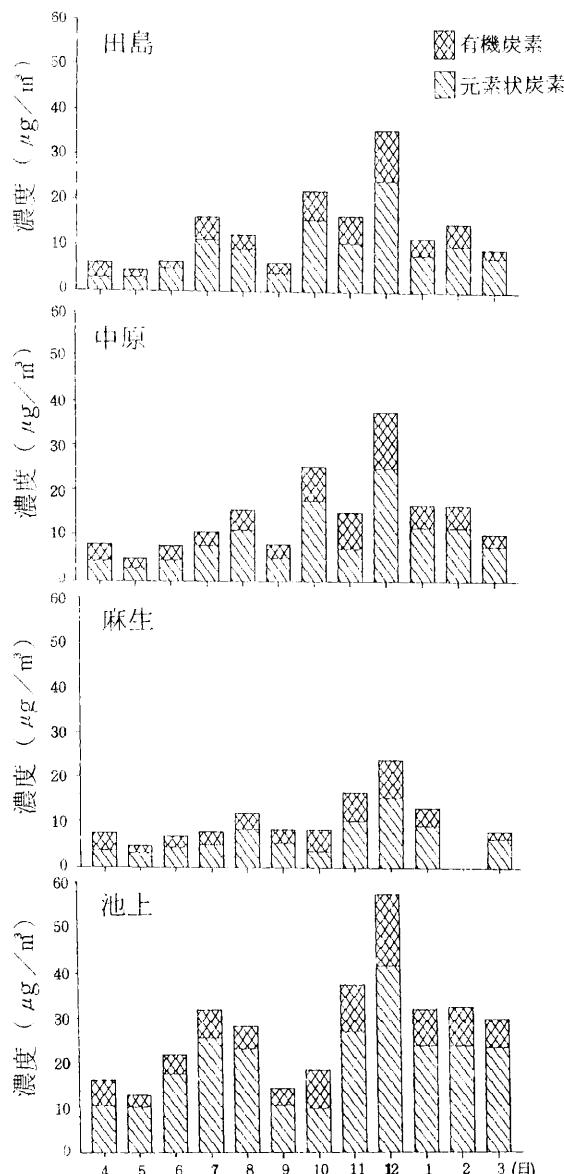


図8 微小粒子中の有機炭素と元素状炭素濃度の経月推移

3.5 微小粒子中の金属成分

大気浮遊粉じんの中でも粒径 2 μm 以下の微小粒子は人間の肺奥部まで侵入し沈着することから人体に対して影響があると指摘されている。この微小粒子中に含まれる重金属元素濃度を把握するため Ti, V, Cr, Mn, Fe, Ni, Cu, Zn, Br, Pb, Na⁺, K⁺の金属成分について分析を

行い、その結果を表4に示す。

市内各調査地点での微小粒子中の重金属の年濃度範囲及び年平均値と61年度の国設大気測定網(NASN)の浮遊粒子状物質の全国平均値⁸⁾との比較を表4で行った。川崎市において固定発生源からの排出が主因であると考えられる各種重金属元素は臨海部と内陸部とでは濃度差が大きかった。また、臨海部での微小粒子中に含まれる V, Cr, Mn, Fe, Ni, Cu, Zn の元素濃度は、NASN の浮遊粒子状物質中のそれらの全国平均値を若干上回っていた。

3.6 粒径別浮遊粉じん中の主成分の割合

各調査地点での粗大、微小粒子中の炭素成分、二次生成粒子成分、金属成分の組成割合の年平均を表5に示した。

粗大粒子中に占める炭素成分の割合の年平均は各調査地点で11%~17%, 二次生成粒子成分のそれは17%~23%の範囲であった。炭素成分と二次生成粒子成分の合計が粗大粒子中に占める割合の年平均は各調査地点で33%~35%であった。

微小粒子中に占める炭素成分の割合の年平均は道路沿道の池上で45%と最も高く、一般環境の各地点のそれは約32%であった。炭素成分と二次生成粒子成分の合計が微小粒子中に占める割合の年平均は池上で66%, 一般環境の各調査地点のそれは約60%であった。

今回測定した金属成分が微小粒子中に占める割合の年平均は各調査地点で3~5%の範囲であった。

これらの結果から都市大気中の微小粒子を構成する成分は炭素成分と二次生成粒子成分によって占められていることが明らかとなった。

3.7 微小粒子の発生源寄与

以上考察のように環境・道路沿道大気中の微小粒子は主に炭素と二次生成粒子成分によって占められている。ガス状物質からの変換によって生じる二次生成粒子の生成機構は充分解明されていないので発生源寄与を推定することは困難であるが浮遊粒子状物質を削減するには固定・移動発生源からのはいじんだけでなく、二次生成粒子の前駆体である NO_x, SO_x, HCl, NH₃ 等のガス状

表 4 微小粒子中の金属成分の年平均濃度

(μg/m³)

	田 島	中 原	麻 生	池 上	NASN 平均値
T i	0.031 (0.012~0.076)	0.036 (0.013~0.081)	0.023 (0.0093~0.054)	0.032 (0.017~0.063)	—
V	0.0092 (0.0049~0.013)	0.0065 (0.0029~0.010)	0.0047 (0.0031~0.0069)	0.010 (0.061~0.016)	0.0072
C r	0.010 (0.0054~0.022)	0.0065 (N D ~0.0082)	0.0047 (N D ~0.0068)	0.010 (0.0069~0.025)	0.0072
M n	0.046 (0.023~0.088)	0.038 (0.016~0.087)	0.020 (0.0095~0.039)	0.061 (0.029~0.12)	0.031
F e	0.62 (0.31 ~ 0.93)	0.43 (0.22 ~ 0.88)	0.27 (0.17 ~ 0.54)	0.72 (0.45 ~ 1.0)	0.56
N i	0.0093 (0.0052~0.026)	0.0041 (0.0007~0.0084)	0.0027 (0.0005~0.0064)	0.011 (0.0058~0.021)	0.0084
C u	0.028 (0.017~0.053)	0.022 (0.0097~0.043)	0.018 (0.0081~0.028)	0.031 (0.016~0.061)	0.021
Z n	0.21 (0.062~0.56)	0.19 (0.064~0.40)	0.15 (0.064~0.27)	0.27 (0.15 ~ 0.64)	0.18
B r	0.015 (0.0056~0.037)	0.015 (0.0055~0.037)	0.014 (0.0048~0.029)	0.016 (0.0050~0.038)	0.015
P b	0.053 (0.018~0.13)	0.051 (0.021~0.11)	0.043 (0.021~0.090)	0.062 (0.031~0.13)	0.063
N a ⁺	0.33 (0.17 ~ 0.62)	0.28 (0.12 ~ 0.44)	0.28 (0.062~0.70)	0.38 (0.13 ~ 0.63)	0.73
K ⁺	0.29 (0.10 ~ 0.61)	0.30 (0.13 ~ 0.61)	0.26 (0.13 ~ 0.44)	0.29 (0.14 ~ 0.61)	0.37

表 5 粗大, 微小粒子中に含まれる炭素成分, 二次生成粒子成分,
金属成分の割合の年平均

(%)

	粗 炭素成分	大 二次生成粒子成分	炭素成分	微 二次生成粒子成分	小 二次生成粒子成分	金属成分
田 島	12	23	33	28	5	
中 原	13	20	32	27	3	
麻 生	11	22	31	29	4	
池 上	17	17	45	21	4	

物質について今後とも対策を講じていく必要がある。

炭素成分の主要発生源がディーゼル自動車排出粒子であると報告されている⁹⁾。そこでディーゼル自動車排出粒子の指標元素に元素状炭素を用い、この指標元素が他の発生源にないものと仮定して微小粒子に対するディーゼル自動車排出粒子の寄与率を次式¹⁰⁾で推定した。

$$X = A(i) \times 100 / B(i)$$

$$Y = X / A \times 100$$

X : 発生源からの予測濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)

Y : 発生源の寄与率 (%)

A : 微小粒子濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)

A(i) : 微小粒子中の成分 (i) の

濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)

B(i) : 発生源粒子中の成分 (i) の

含有率 (%)

なお、ディーゼル自動車排出粒子中の元素状炭素の含有率は57%とした¹¹⁾。各調査地点での月毎の微小粒子に対するディーゼル自動車排出粒子の発生源寄与率を表6に示した。

この表に基づいてディーゼル自動車排出粒子の微小粒子に対する発生源寄与率の平均を算出すると池上59%，田島40%，中原37%，麻生35%となった。

4 まとめ

市内環境、道路沿道大気中の粒径別浮遊粉じん調査を通年に行われて実施し、粒径別浮遊粉じん濃

度及び含有成分を測定した結果次の知見が得られた。

1 昭和62年度の粒径別浮遊粉じん（粗大粒子： $2.1 \mu\text{m} < dp < 11 \mu\text{m}$ ，微小粒子： $2.1 \mu\text{m}$ 以下）濃度は10月から12月にかけて高くなり12月に最高値を示した。中でも12月の微小粒子濃度はその年平均濃度の2倍に達した。粗大、微小粒子の年平均濃度は道路沿道の池上 $35 \mu\text{g}/\text{m}^3$, $62 \mu\text{g}/\text{m}^3$, 中原 $25 \mu\text{g}/\text{m}^3$, $44 \mu\text{g}/\text{m}^3$, 田島 $25 \mu\text{g}/\text{m}^3$, $40 \mu\text{g}/\text{m}^3$, 麻生 $18 \mu\text{g}/\text{m}^3$, $34 \mu\text{g}/\text{m}^3$ の順であった。

2 年間を通した全調査地点での浮遊粉じん濃度（x）と微小粒子濃度（y）との関係を回帰直線で表わした結果、相関係数 $r = 0.97$ ($n = 47$)、傾きは0.73となり、市内の浮遊粉じん濃度は微小粒子の挙動に影響を受けていることが明らかになった。

3 二次生成粒子と仮定した SO_4^{2-} , NO_3^- , Cl^- , NH_4^+ の各種イオン成分の年平均濃度は、 Cl^- を除いて微小粒子側に偏っていた。微小粒子中の SO_4^{2-} は夏期に、 NO_3^- , Cl^- , NH_4^+ は冬期に最高値を示した。

4 浮遊粉じん中の総炭素の微小粒子中に占める割合の年平均は各調査地点で80~85%の範囲であった。

5 微小粒子中の V, Cr, Mn, Fe, Ni, Cu, Zn, Br, Pb の重金属元素の年平均濃度は臨海部と内陸部とでは濃度差が大きかった。また、臨

表6 ディーゼル自動車排出粒子の微小粒子に対する発生源寄与率の経月推移

	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	1月	2月	3月	単位 %
田 島	16	25	38	49	46	34	45	51	48	46	41	36	
中 原	21	25	32	32	52	38	46	26	46	50	40	35	
麻 生	20	29	34	39	46	41	12	44	41	47	—	32	
池 上	39	56	70	75	76	57	20	71	57	69	60	63	

海部での微小粒子中に含まれるV, Cr, Mn, Fe, Ni, Cu, Znの元素濃度は, NASNの浮遊粒子状物質中のそれらの全国平均値を若干上回っていた。

6 各調査地点での粗大粒子中に占める炭素成分と二次生成粒子成分の合計は33%～35%であった。微小粒子中に占める炭素成分の年平均割合は道路沿道の池上で45%と最も高く、一般環境の各調査地点のそれは約32%であった。炭素成分と二次生成粒子成分の合計が微小粒子中に占める年平均割合は池上で66%，一般環境の各調査地点のそれは約60%であった。

7 ディーゼル自動車排出粒子の指標元素に元素状炭素を用い、この指標元素が他の発生源にないものと仮定してディーゼル自動車排出粒子の微小粒子に対する年平均発生源寄与率を算出したところ、池上60%，田島40%，中原37%，麻生35%と推定された。

文 献

- 1) Hidy, G. M. : J. Air Poll. Control Assoc., 25, 1106~1114 (1975)
- 2) 川崎市公害研究所：川崎市における浮遊粉じん粒度分布の調査研究，神奈川県大気汚染調査研究報告，24, 110~112 (1983)
- 3) 林久緒, 井上康明, 早坂孝夫, 黒沢芳則, 佐藤静雄：元素分析法を用いた浮遊粉じん中の炭素等の分析法，大気汚染学会，83～104 (1985)
- 4) 早坂孝夫, 柴田幸雄, 井上康明, 林久緒, 黒沢芳則：蛍光X線分析法による市内浮遊粒子状物質の多元素分析調査結果，川崎市公害研究所年報，11, 13~23 (1985)
- 5) 昭和62年度における大気測定所測定結果について(概要)：川崎市環境保全局公害部(1988)
- 6) Seinfeld, J. H. : American Chemical Society Symp. Ser., 72, 162~192 (1978)
- 7) Gray, H. A., Cass, G. R., Huntzicker, J. J., Heyerdahl, E. K. and Rau, J. A. : Sci. Total Environ., 36, 17~25 (1984)
- 8) 環境庁大気保全局大気規制課：昭和61年度国設大気測定網(NASN)測定結果(1988)
- 9) 福岡三郎, 飯田靖雄, 舟島正直, 伊勢洋昭：ディーゼル車からの粒子状炭素の排出実態について, 大気汚染学会講演要旨集, 578 (1984)
- 10) 一都三県公害防止協議会：昭和61年度南関東浮遊粒子状物質合同調査結果報告書(1988)
- 11) 神奈川県, 横浜市, 川崎市, 横須賀市：神奈川県臨海地区大気汚染調査報告書(1983)