

平成30年度PM2.5大気環境調査結果

大気環境部

佐藤 翔大 飯島 史周¹ 石原島 栄二

(¹ 現都市整備課)

1 はじめに

PM2.5は、大気中に浮遊する粒径2.5 μm以下の微細な粒子である。そのため、肺の奥まで粒子が入りやすく、呼吸器系や循環器系への悪影響が懸念されている。環境基準は、環境基本法第16条において、「人の健康を保護し、及び生活環境を保全する上で維持されることが望ましい基準」と定義されているが、PM2.5については、「長期基準が年平均値が15 μg/m³以下」であり、かつ、「短期基準が日平均値(年間98%値)が35 μg/m³以下」と平成21年9月に規定された。

本県においては、県内のPM2.5濃度を把握するために、平成31年3月現在、一般環境大気測定局(以下、「一般局」という。)12局、及び自動車排出ガス測定局(以下、「自排局」という。)2局の計14局(うち2局は宇都宮市設置)にPM2.5自動測定機を設置し、大気中のPM2.5濃度を1時間ごとに測定している。また、PM2.5中の成分等については、PM2.5が高濃度化する頻度が比較的高い真岡市役所測定局に、平成25年度からサンプラーを併設して、試料の採取と成分分析を実施している。

本報告は、平成30年度に実施したPM2.5大気環境調査の結果、そして平成25年度からの経年変化についてまとめたものである。

2 調査方法及び内容

2.1 県内のPM2.5濃度の把握

2.1.1 調査地点



図1 栃木県内のPM2.5常時監視測定局

栃木県では、図1に示すとおり、常時監視測定局14局にPM2.5自動測定機を設置し、調査を行っている。このうち、自排局は宇都宮市平出と足利市久保田公園の2局である。

2.1.2 調査期間

平成30年4月1日から平成31年3月31日まで

2.1.3 調査内容

まず、常時監視局のPM2.5濃度(以下、「PM2.5濃度(常監)」という。)から、日平均値の年間98%値及び年平均値を算出し、県内のPM2.5濃度の状況を把握するとともに、長期基準及び短期基準と比較し、環境基準との適合状況を確認した。なお、これらの解析に使用したデータは、ホームページ「大気環境情報システム」の大気汚染常時監視測定結果を用いた。

2.2 四季調査

2.2.1 調査地点

真岡市役所屋上において調査を実施した。

2.2.2 調査期間

春季は平成30年5月9日から23日まで、夏季は7月19日から8月2日まで、秋季は10月18日から11月1日まで、冬季は平成31年1月17日から1月31日までとした。なお、本稿では、本年度の調査結果に併せて、前年度分も含めた2カ年分のデータについて、解析を行った。なお、平成29年度の調査期間は既報¹⁾のとおりである。

2.2.3 調査方法

2台のサンプラー(Thermo Scientific社製、Model 2025D又は2025i)を用いて、PTFEろ紙及び石英ろ紙で同時にPM2.5を捕集し、成分等を調査した。

調査項目は、PM2.5の質量濃度(以下、「PM2.5濃度(質量)」という。)、各イオン成分濃度、金属成分濃度及び炭素成分濃度とした。また、直近に隣接する真岡市役所常時監視測定局におけるPM2.5濃度(常監)と、各成分等との関連についても検討した。

PM2.5濃度(質量)の測定にあたっては、PTFEろ紙により捕集した試料を恒温恒湿チャンバー(東京ダイレック社製、PWS-PM2.5)内で、温度21.5±1.5°C、相対湿度35±5%の条件で秤量した。

成分分析は、大気中微小粒子状物質(PM2.5)成分分析マニュアル(以下、「成分分析マニュアル」²⁾という。)に準拠して行った。水溶性イオン成分については、石英ろ紙で採取したPM2.5試料を用い、ナトリウムイオン(Na⁺)、アンモニウムイオン(NH₄⁺)、カリウムイオン(K⁺)、マグネシウムイオン(Mg²⁺)、カルシウムイオン(Ca²⁺)、塩化物イオン(Cl⁻)、硝酸イオン(NO₃⁻)及び硫酸イオン(SO₄²⁻)の8成分をイオンクロマトグラフ法(Thermo Fisher SCIENTIFIC社製、ICS-2100)により測定した。炭素成分についても、石英ろ紙で採取した試料を用い、元素状炭素成分(以下、「EC」という。)及び有機炭素成分(以下、「OC」

という。)をIMPROVEプロトコル法(Sunset Laboratory社製、CAA-202M-D又はDRI 2001)で測定した。水溶性有機炭素成分(以下、「WSOC」という。)については、燃焼酸化-赤外線式TOC法(Aanalytik Jena社製、multi N/C3100)で測定した。金属成分については、PTFEろ紙で採取した試料を用い、ナトリウム(Na)、アルミニウム(Al)、カリウム(K)、カルシウム(Ca)、スカンジウム(Sc)、チタン(Ti)、バナジウム(V)、クロム(Cr)、マンガン(Mn)、鉄(Fe)、コバルト(Co)、ニッケル(Ni)、銅(Cu)、亜鉛(Zn)、ヒ素(As)、セレン(Se)、ルビジウム(Rb)、モリブデン(Mo)、アンチモン(Sb)、セシウム(Cs)、バリウム(Ba)、ランタン(La)、セリウム(Ce)、サマリウム(Sm)、ハフニウム(Hf)、タングステン(W)、タンタル(Ta)、トリウム(Th)及び鉛(Pb)の29元素をICP-MS法(Agilent社製7500ce及び7800)で分析した。

なお、四季調査の解析ではPM2.5濃度(常監)の日平均値は、サンプリング時間に合わせ、午前11時から翌日午前10時までの各1時間値の平均値を用いた。

2.3 発生源寄与推定解析

2.3.1 調査地点及び期間

解析には、「2.2.2 調査期間」と同様、平成29年度及び平成30年度の2カ年分の真岡市における調査結果を使用した。

2.3.2 調査方法

解析は既報³⁾に準じて行った。

発生源寄与推定解析については、四季調査における各成分濃度等の期間平均値を季節ごとに算出し、ケミカルマスバランス法(CMB法)を用いて有効分散最小二乗法により寄与率を推定した。ソフトウェアは、花石竜治氏が公開している『CMB8J』⁴⁾⁵⁾を使用した。

測定により得たPM2.5中の各成分濃度とPM2.5濃度(質量)の値が、整合しているか検討することを目的として、マスクロージャーモデル(EPAモデル)⁶⁾⁷⁾を用いてスクリーニングを行った。PM2.5濃度(質量)と、以下に示す質量濃度の推定値(M)とが大きく異なる(>30%)場合は、PM2.5濃度(質量)が適切ではない可能性があるため、PM2.5濃度(常監)を使用して発生源寄与推定解析を行った。また、花火大会があった日のデータは、特定のイオンが著しく上昇することから、解析から除外した。

$$M = 1.586[SO_4^{2-}] + 1.372[NO_3^-] + 1.605[nss-Cl^-] + 2.5[Na^+] + 1.634[OC] + [EC] + [SOIL]$$

$$[nss-Cl^-] = [Cl^-] - 18.98[Na]/10.56$$

なお、[nss-Cl⁻]が負となった場合は、0とした。

$$[SOIL] = 9.19[Al] + 1.40[Ca] + 1.38[Fe] + 1.67[Ti]$$

解析に使用した発生源プロファイルを表1に示す。発生源は、土壌、海塩粒子、鉄鋼業由来、重油燃焼、廃棄物焼却、自動車排出ガス、プレーキ粉じん及び植物燃焼由来の合わせて8種類に分類した。この発生源プロファイルは、東京都微小粒子状物質検討会報告書⁸⁾のデータから引用したものである。ただし、東京都のプロファイルから臭素(Br)を除き、濃度の単位をmg/kgに変換する等、一部改変を施した上で使用した。

なお、今回の発生源寄与推定解析では、Na、K及びCaは水溶性イオン成分の分析結果を用いた。また、主に二次生成粒子を構成するSO₄²⁻、NO₃⁻、NH₄⁺、Cl⁻及びOCについては、一次粒子の寄与と二次生成粒子の寄与とに分けて解析した。

表1 発生源プロファイル

(単位: mg/kg)

	土壌	海塩	鉄鋼業	重油燃焼	廃棄物燃焼	自動車排気ガス	プレーキ粉塵	バイオマス燃焼
Na	12500 ± 2660	304000 ± 15200	13600 ± 2720	10000 ± 5000	120000 ± 12000	76 ± 8	7600 ± 2500	6550 ± 1310
NH4	6050 ± 968	0 ± 0	0 ± 0	0 ± 0	0 ± 0	0 ± 0	0 ± 0	12700 ± 2540
K	12700 ± 3390	11000 ± 1100	13200 ± 2640	850 ± 850	200000 ± 20000	197 ± 20	3500 ± 700	63200 ± 12600
Ca	55200 ± 26400	11700 ± 585	45100 ± 9020	850 ± 430	11000 ± 2200	1460 ± 146	31800 ± 6360	415 ± 83
Cl	335 ± 153	551000 ± 27500	34100 ± 6820	920 ± 920	270000 ± 27000	200 ± 20	12500 ± 2500	25900 ± 5180
NO3	193 ± 118	0 ± 0	0 ± 0	0 ± 0	0 ± 0	0 ± 0	0 ± 0	2030 ± 406
SO4	568 ± 449	78000 ± 16000	0 ± 0	318000 ± 160000	0 ± 0	21600 ± 2160	4900 ± 1520	16100 ± 3220
OC	69000 ± 28300	0 ± 0	0 ± 0	0 ± 0	0 ± 0	247000 ± 24700	79800 ± 30700	415000 ± 82900
EC	12800 ± 4100	0 ± 0	5000 ± 5000	300000 ± 125000	50000 ± 50000	494000 ± 49400	153000 ± 76000	97100 ± 19400
Al	61100 ± 7660	0 ± 0	9990 ± 2000	2100 ± 1100	4200 ± 840	1570 ± 157	19400 ± 3880	370 ± 74
Sc	13 ± 4	0 ± 0	1 ± 0	0 ± 0	0 ± 0	0 ± 0	4 ± 1	0 ± 0
V	108 ± 35	0 ± 0	125 ± 25	6380 ± 3190	27 ± 14	7 ± 1	59 ± 12	0 ± 0
Cr	279 ± 155	0 ± 0	3160 ± 632	210 ± 105	850 ± 850	12 ± 1	421 ± 84	0 ± 0
Mn	1060 ± 386	0 ± 0	22000 ± 2200	120 ± 40	330 ± 330	19 ± 2	720 ± 144	10 ± 2
Fe	53100 ± 6420	0 ± 0	157000 ± 15700	4600 ± 2300	6100 ± 6100	989 ± 99	91200 ± 18200	100 ± 20
Zn	1310 ± 796	0 ± 0	51500 ± 10300	400 ± 200	26000 ± 13000	624 ± 62	3260 ± 652	100 ± 20
As	11 ± 4	0 ± 0	103 ± 103	23 ± 12	150 ± 150	4 ± 0	22 ± 4	0 ± 0
Se	1 ± 1	0 ± 0	51 ± 51	48 ± 48	0 ± 0	2 ± 0	4 ± 2	0 ± 0
Sb	13 ± 7	0 ± 0	90 ± 90	7 ± 4	952 ± 480	20 ± 2	2130 ± 426	0 ± 0
La	31 ± 11	0 ± 0	10 ± 10	40 ± 40	8 ± 8	0 ± 0	7 ± 1	0 ± 0

3 結果及び考察

3.1 県内のPM2.5濃度

栃木県における過去6年間の環境基準達成状況を表2に、平成30年度の常時監視局14局における欠測日を除いた有効日数、PM2.5濃度(常監)の年平均値及び日平均値の年間98%値を表3に示す。

平成30年度は、長期基準及び短期基準とも、過去3年間と同様に全局で環境基準を達成した。一般局の年平均値は、小山市役所が最も高く13.0 µg/m³で、黒磯保健センターが最も低く6.9 µg/m³であった。その他の一般局では、県南地域に位置している県安蘇庁舎及び真岡市役所、県央南部の雀宮中学校で、それぞれ10.8 µg/m³、10.7 µg/m³及び11.1 µg/m³と高めの値であった。一方で、比較的北部に位置する矢板市役所及び県南那須庁舎では、それぞれ8.5 µg/m³及び8.9 µg/m³とやや低めであった。県北地域に比べ、県南地域の方が年平均値が高くなる傾向がみられ、この傾向は前研究¹⁾と同様であった。

平成30年度における日平均値の年間98%値は、一般局では小山市役所が28.0 µg/m³と最も高く、次いで真岡市役所、県安蘇庁舎、益子町役場の順であった。最小値は黒磯保健センターの19.1 µg/m³であり、他の地点に比べ、3.1~8.9 µg/m³ほど低かった。年平均値と同様に、日平均値の年間98%値も、県南地域で高くなる傾向がみられた。

次に、平成30年度の一般局と自排局との濃度差を検討するため、地理的位置が比較的近い測定局である県南地域の足利市久保田公園(自排局)と県安蘇庁舎(一般局)(以下、「県南地点間」という。)、県央地域の平出

(自排局)と雀宮中学校(一般局)(以下、「県央地点間」という。)におけるPM2.5濃度(常監)を、それぞれ比較した。年平均値及び日平均値の年間98%値は、県南地点間では、自排局の方が一般局よりも、やや高めの値であったが、県央地点間は同程度の値であった。一般的に、自排局の方が自動車排気ガスの直接的な影響により高濃度となると考えられるが、県央地点間では道路沿道に起因する影響に加え、他の要因が関与していることが示唆された。また、平成30年度のPM2.5濃度(常監)の日平均値について、t-検定を行った結果、県央地点間で有意差が認められたことから(p=0.0003)、このことが支持された。

3.2 真岡市におけるPM2.5濃度の動向

真岡市におけるPM2.5濃度(常監)について、月平均値の経月変化を図2に示す。なお、図2は、平成30年度の調査結果に加えて、平成25~29年度までの結果も併せて表示している。

平成30年度は、7月と2月にやや濃度が上昇していたが、最も濃度が上昇した2月においても約14 µg/m³であった。また、平成29年度の経月変化と類似した動向を示しており、4月及び2月を除き、下回るか同程度の濃度であった。

経年的には、平成25年度は夏季に月平均値が20 µg/m³を超えた月もあったが、平成26年度以降は、濃度が大きく低下した水準で推移していた。また、年度により変動があるものの、総じて7月を中心とした夏季及び11~12月にかけての時期に、PM2.5濃度は上昇する傾向がみられた。

表2 平成25年度から平成30年度までの環境基準達成状況

	長期基準		短期基準	
	一般局	自排局	一般局	自排局
H25	7/8	1/2	3/8	0/2
H26	7/7	2/2	6/7	2/2
H27	12/12	2/2	12/12	2/2
H28	12/12	2/2	12/12	2/2
H29	12/12	2/2	12/12	2/2
H30	12/12	2/2	12/12	2/2
	(達成局数/全測定局数)			

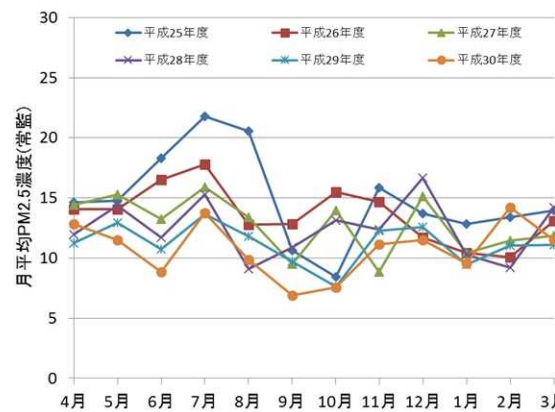


図2 真岡市役所におけるPM2.5濃度(常監)の経月変化

表3 平成30年度の常時監視局の有効日数、PM2.5質量濃度日平均値の年間98%値及び年平均値

	一般局												自排局	
	県安蘇庁舎	県南那須庁舎	小山市役所	真岡市役所	今市小学校	矢板市役所	雀宮中学校	栃木市役所旧庁舎	鹿沼市役所	大田原市総合文化会館	那須塩原市黒磯保健センター	益子町役場	足利市久保田公園	平出
有効日数(日)	358	359	363	352	359	356	361	359	361	364	362	361	362	362
年平均値	10.8	8.9	13.0	10.7	10.0	8.5	11.1	8.8	9.0	9.0	6.9	10.4	11.1	12.5
日平均値の年間98%値	27.4	24.6	28.0	27.8	25.2	24.1	24.5	22.2	23.8	24.0	19.1	25.8	28.2	24.5

3.3 四季調査における調査地点の気象概況

平成29年度及び平成30年度の真岡市における調査期間内PM2.5濃度(常監)の平均値、並びに気象状況を表4に示す。

平成30年度の四季調査を実施した春季、夏季、秋季及び冬季は、それぞれ概ね5月、7月、10月及び1月に相当する。それらの月のPM2.5濃度(常監)平均値は、「3.2 真岡市におけるPM2.5濃度の動向」で述べたように、平成30年度の方が前年度よりも同程度か低い値になっていたが、調査期間内のPM2.5濃度(常監)の平均値は、春季を除き、逆の傾向を示していた。

調査期間内の平均気温は、春季を除き平成30年度の方が高く、PM2.5の濃度に気温が関連していることが示唆された。なお、平均相対湿度は全季節で、降水量は夏季を除き減少し、日射量は冬季を除き増加していた。

3.4 四季調査の結果

3.4.1 成分組成の概要

平成29年度及び平成30年度の各季節のPM2.5濃度(質量)と各種成分の濃度を図3に、また同期間の成分組成比を表5に示す。なお、マスクロージャーモデルによるスクリーニングの結果、各成分濃度とPM2.5濃度(質量)は概ね整合していたため、PM2.5濃度(質量)をそのまま解析に用いた。炭素成分濃度は、質量濃度との関係をより正確にするために、OC濃度に有機粒子への換算係数1.6⁹⁾を乗じたものとEC濃度との和とした。

水溶性イオン成分の組成比は、平成29年度が34～51%、平成30年度は40～49%で推移していた。炭素成分は平成29年度、平成30年度ともに、秋季以外では37～49%、秋季では65～78%であった。金属成分は、いずれの年度も1～2%であった。

また、前年度の成分濃度と比較すると、水溶性イオン成分濃度については、春季では減少、それ以外の季節では増加した。炭素成分については、すべての季節で増加した。

3.4.2 水溶性イオン成分

平成29年度及び平成30年度の季節ごとのPM2.5中の水溶性イオン成分の濃度と内訳、及びPM2.5濃度(質量)を図4に示す。

水溶性イオンの各成分濃度についてみると、平成30年度の夏季にSO₄²⁻が、前年度同時期よりも顕著に増加していた。夏季調査期間中の日射量が、平成30年度は前年よりも著しく多くなっていることから、光化学反応が活発であったことによる二次生成粒子の寄与が示唆された。

冬季では、二次生成粒子の主な成分であるNH₄⁺、NO₃⁻、SO₄²⁻及びCl⁻の濃度が、前年度よりも増加していた。これらの増加割合がPM2.5濃度(質量)の増加割合とほぼ同程度(約1.5倍)であったため、粒子化を促進した、何らかの要因が示唆された。

また、季節ごとに比較すると、NO₃⁻の占める割合が冬季>秋季≒春季>夏季となっており、気温上昇による硝酸アンモニウム(NH₄NO₃)のガス解離平衡¹⁰⁾の影響が示唆され、二次生成粒子が、夏季では硫酸アンモニウム((NH₄)₂SO₄)、冬季ではNH₄NO₃の形態で主に存在していると考えられた。また、この平衡によって生じた硝酸(HNO₃)の影響によって、クロリンロス¹¹⁾が生じるため、気温上昇の影響が少ない秋季及び冬季で、Cl⁻の濃度が上昇したと考えられた。なお、この傾向は前研究¹⁾と同様であった。

3.4.3 炭素成分

平成29年度及び平成30年度のPM2.5中の炭素成分濃度、及びPM2.5濃度(質量)を図5に示す。なお、OCはWSOCと非水溶性有機炭素(以下、「WIOC」という。)の和であり、WSOCとWIOCに分けて表示した。また、OC濃度の測定値がWSOCよりも低かった場合は、WSOC濃度はOCの濃度とし、WIOC濃度は0とした。

「3.4.1 成分組成の概要」で、秋季は他季に比べ、炭素成分の占める割合が高いことを述べたが、これは、他季に比べ、二次生成粒子の生成が抑えられ、水溶性イオン成分の寄与が小さかったためと考えられる。このことは、秋季において水溶性イオン成分濃度が最も少ないこと(図4)からも支持された。

平成30年度は、秋季においてECの占める割合が特に高く、サンプリング期間中のガソリン燃焼や重油燃焼の影響が示唆された。

3.4.4 金属成分

平成29年度及び平成30年度の金属成分の濃度から、各種指標を算出した。そのうち石油燃焼の指標値であるV/Mn、大陸からの越境輸送の指標値であるPb/ZnとAs/Vについて、表6に示す。

石油燃焼起源の指標として知られるVと、鉄鋼業や土壌等の発生源に普遍的に含まれるMnとの濃度比(V/Mn)は、発生源の推定に有用と考えられている¹²⁾。地殻中のV/Mnは0.16¹³⁾であり、大気中の微小粒子では、0.21～0.28¹²⁾とされている。平成30年度の秋季及び冬季のV/Mnは、大気中の微小粒子の一般的な値であったが、春季及び夏季には高い値を示していた。「3.4.3 炭素成

表4 四季調査期間におけるPM2.5濃度(常監)と気象概況

	平成29年度				平成30年度			
	春季	夏季	秋季	冬季	春季	夏季	秋季	冬季
PM2.5濃度(常監) (µg/m ³)	13.6 ± 8.5	13.2 ± 3.9	6.5 ± 7.7	8.2 ± 7.5	10.9 ± 7.9	14.0 ± 7.7	7.8 ± 5.6	13.9 ± 12.6
平均気温 (°C)	18.9 ± 4.6	25.7 ± 3.0	12.8 ± 4.1	0.2 ± 4.7	18.2 ± 5.6	27.7 ± 3.7	14.0 ± 4.5	3.4 ± 5.1
平均相対湿度 (%)	69.3 ± 19.2	82.2 ± 12.4	83.6 ± 18.4	64.7 ± 19.5	66.1 ± 21.0	76.4 ± 13.4	72.7 ± 16.3	56.3 ± 19.3
合計降水量 (mm)	36.5	39.0	227.0	9.5	29.5	55.5	18.0	5.0
平均日射量 (MJ/m ²)	18.2 ± 8.1	11.8 ± 5.3	8.1 ± 4.8	11.4 ± 3.0	22.0 ± 6.3	20.2 ± 2.9	12.6 ± 3.5	11.4 ± 2.8

H29年度夏季のPM2.5濃度(常監)は7/22,23,28,19,30日で欠測のため、参考値

分」では、特に秋季における石油燃焼の影響が示唆されており、季節によって精製度の異なる石油製品の燃焼の影響があったとも考えられた。

Pb/Znは、長距離輸送の指標として用いられる¹²⁾。平成30年度は0.13~0.22で推移しており、北京で観測されたPb/Zn=0.56¹²⁾に比べ、かなり小さい値で推移している。

As/Vは、石炭燃焼の指標として用いられる¹⁴⁾。石炭、重油、ガソリン燃焼由来のAs/Vの比はそれぞれ4.8、0.02、1.1であることが知られており¹⁴⁾、平成30年度の四季の変化をみると、特に秋季と冬季で高いものの、ガソリン燃焼由来に近いことが示唆された。

なお、北京で観測されたAs/Vは8.5¹⁵⁾であり、Pb/Znの考察と合わせ、越境汚染の影響はかなり小さいと考えられた。

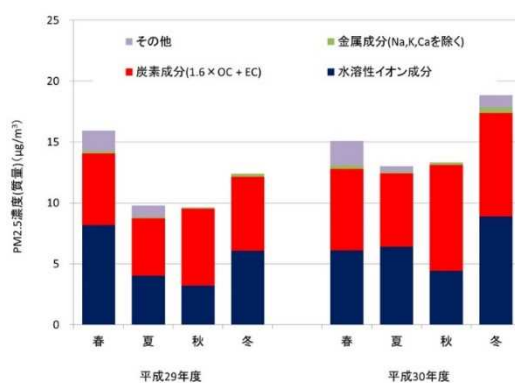


図3 平成29年度及び平成30年度の各季節における各種成分濃度

表5 平成29年度及び平成30年度の各季節におけるPM2.5中の成分組成比

	平成29年度				平成30年度			
	春	夏	秋	冬	春	夏	秋	冬
水溶性イオン成分	51.3	40.6	33.5	49.4	40.3	49.3	39.7	47.1
炭素成分(1.6×OC+EC)	36.9	42.5	65.3	49.3	44.4	46.1	77.7	45.1
金属成分(Na,K,Caを除く)	1.2	1.3	1.0	2.1	1.8	0.7	1.9	2.4
その他	10.6	15.7	0.2	0.0	13.5	3.8	0.0	5.4
合計	100.0	100.0	100	100.8	100.0	100.0	119.3	100.0

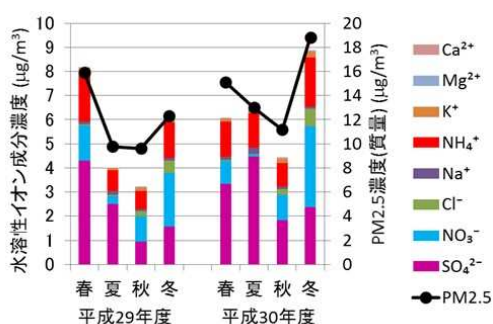


図4 平成29年度及び平成30年度の各季節における水溶性イオン成分濃度

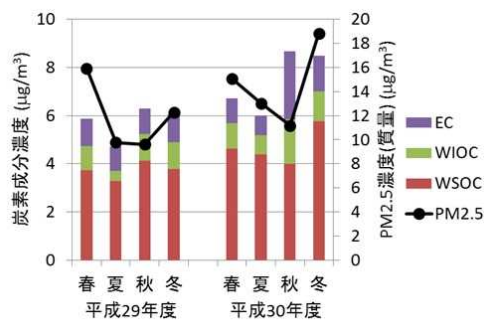


図5 平成29年度及び平成30年度の各季節における炭素成分濃度

表6 平成29年度及び平成30年度の各季節における金属成分指標値

	平成29年度				平成30年度			
	春	夏	秋	冬	春	夏	秋	冬
V/Mn	0.72	1.40	0.22	0.11	0.55	1.18	0.19	0.14
Pb/Zn	0.17	0.21	0.16	0.10	0.14	0.14	0.22	0.13
As/V	0.30	0.35	0.64	0.79	0.23	0.22	0.82	0.66

3.5 発生源寄与推定解析

解析は、表1のプロファイルに加え、二次生成粒子である $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 、 NH_4NO_3 及び塩化アンモニウム (NH_4Cl) を、各塩に含まれる NH_4^+ イオンとカウンターイオンの分子量比に基づき、表7のとおりプロファイルに追加設定を行った。

OCの二次生成については、OCの分析値に有機粒子への換算係数1.6を乗じて、さらに寄与率計算で得られた一次粒子分を差し引いて計算した。なお、差し引くOCについても、換算係数1.6を乗じた。PM_{2.5}平均濃度からすべての寄与量を差し引いた残余分をその他とし、残余が負になる時は、0とした。測定値のうち、Scは、検出下限値未満となる値が多かったことから、解析から除外した。以上のようにして、一次生成に寄与する発生源に加え、二次生成成分の寄与を考慮した発生源寄与推定解析を行った。

平成29年度及び平成30年度の真岡市における、発生源寄与推定解析の結果を図6に示す。

真岡市では、いずれの季節も二次生成粒子の寄与が最も大きく、その値は44~71%であった。次いで、自動車排出ガスの寄与が、10~43%であった。夏季を除き、土壌の寄与が増加しており、風などによる土壌の巻き上げ等の影響が示唆された。また、夏季には $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 、冬季には NH_4NO_3 の寄与が増大しており、これらの物質は前研究¹⁾で得た知見と同様に、各季で代表される成分であった。平成30年度は、平成29年度に比べ、秋季に二次生成成分の寄与が低いことが特徴として挙げられた。秋季の挙動については、先に述べた水溶性イオン成分濃度及び炭素成分濃度(特にEC濃度)の挙動とおおむね一致する結果となった。

表7 二次生成粒子の発生源プロファイル

(単位: mg/kg)			
	硫酸アンモニウム	硝酸アンモニウム	塩化アンモニウム
Na	0 ± 0	0 ± 0	0 ± 0
NH ₄	273019 ± 27302	225358 ± 22536	336925 ± 33693
K	0 ± 0	0 ± 0	0 ± 0
Ca	0 ± 0	0 ± 0	0 ± 0
Cl	0 ± 0	0 ± 0	663074 ± 66307
NO ₃	0 ± 0	774641 ± 77464	0 ± 0
SO ₄	726980 ± 72698	0 ± 0	0 ± 0

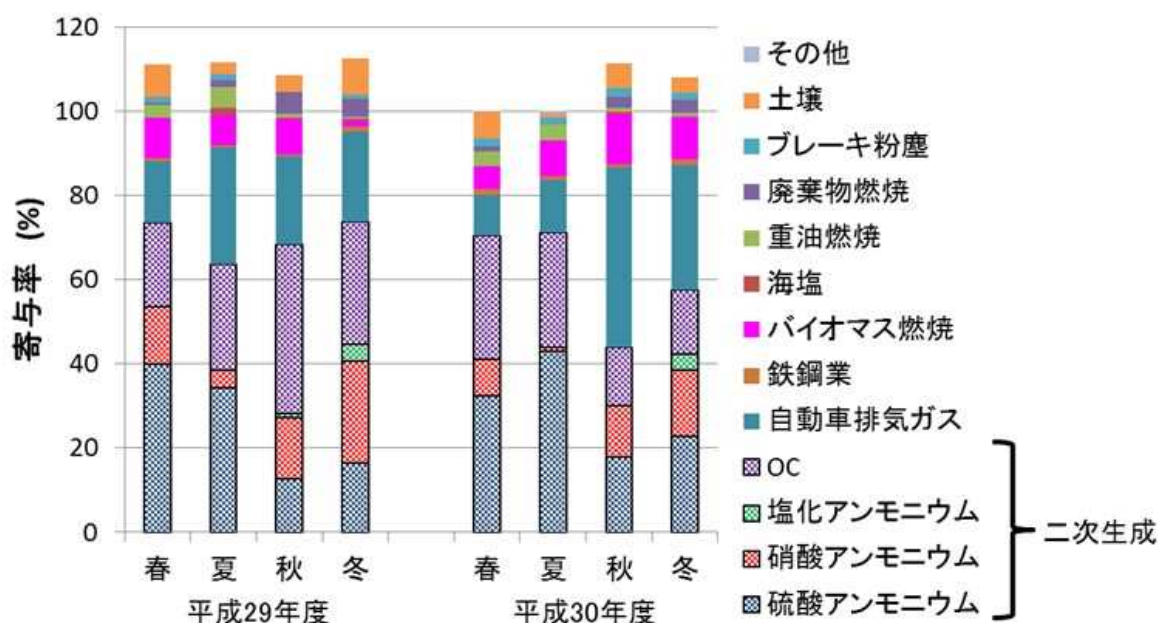


図6 平成29年度及び平成30年度の季節ごとの発生源寄与推定解析(真岡市)

4 まとめ

平成30年度は、すべての測定局で環境基準を達成していた。PM_{2.5}濃度(常監)は、小山市役所で最も高く、黒磯保健センターで最も低く、県南地域ほど高い傾向が見られた。県央地点間のみ一般局と自排局の日平均値に有意差が認められ、道路沿道に起因する影響に加え、他の要因が関与していることが示唆された。

夏季では(NH₄)₂SO₄が、冬季ではNH₄NO₃が主成分となる傾向が見られた。また、夏季では、NH₄NO₃のガス平衡によりクロリンロスが生じ、Cl⁻が検出されにくいことが考えられた。金属成分の解析からは、ガソリン燃焼の影響が示唆され、大陸性気塊の移流の影響は小さいことが示唆された。発生源寄与推定解析からは、二次生成粒子の寄与が最も大きく、次いで自動車排出ガスの寄与が大きいことが分かった。

5 参考文献

- 1) 栃木県保健環境センター年報, 23, 96-102, 2018.
- 2) 環境省水・大気環境局大気環境課, 大気中微小粒子状物質 (PM_{2.5}) 成分測定マニュアル, 平成24年4月
- 3) 平成29年度微小粒子状物質
合同調査報告書 関東におけるPM_{2.5}のキャラクタリゼーション (第10報), 2019.
- 4) とある化学者のウェブサイト
<http://rhanaishi.world.coocan.jp/index.html>
- 5) 平山ら, 川崎市における微小粒子状物質 (PM_{2.5}) の成分組成 (2013年度), 川崎市環境総合研究所年報 (2014)
- 6) 環境省, 微小粒子状物質曝露影響調査報告書 (2007)
- 7) 環境省, 微小粒子状物質 (PM_{2.5}) 成分測定マニュアルに関するQ&A (2018)
- 8) 東京都微小粒子状物質検討会 レセプターワーキング報告書, PM_{2.5}の発生源寄与の推定に関するワーキンググループ (2011)
- 9) Turpin & Ho-Jin Lim: Species Contributions to PM_{2.5} Mass Concentrations: Revisiting Common Assumptions for Estimating Organic Mass, *Aerosol Science and Technology*, 35, 602-610 (2001)
- 10) 田中茂, 駒崎雄一, 山形勝弘, 橋本芳一 (1987) 大気中塩化アンモニウムおよび硝酸アンモニウムの挙動とその解離平衡, *日本化学会誌*, 2338-2343.
- 11) 田中茂, 小田切幸成, 加藤利明, 橋本芳一 (1982) 海洋大気中での汚染物質による海塩粒子からの塩素の脱離, *日本化学会誌*, 1946-1952.
- 12) 日置ら, 松山, 大阪, つくばで観測した浮遊粉じん中金属元素濃度による長距離輸送と地域汚染特性の解析, *大気環境学会誌*, 44, 91-101, 2009
- 13) McLennan, S. M. : Relationships between the trace element composition of sedimentary rocks and upper

continental crust, *Geochemistry, Geophysics, Geosystems* (2001)

- 14) Arditoglou, A., C. Samara, : Levels of total suspended particulate matter and major trace elements in Kosovo: a source identification and apportionment study, *Chemosphere*, 59, 669-678 (2005)
- 15) 梶田ら, 愛知県環境調査センター所報, 43, 1-7, 2015.