

令和元年度 PM2.5 大気環境調査結果

大気環境部

佐藤 翔大 佐藤 安里紗 石原島 栄二¹
(¹ 現県南健康福祉センター)

1 はじめに

PM2.5は、大気中に浮遊する粒径2.5μm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、「年平均値が15μg/m³以下（長期基準）」であり、かつ、「日平均値(年間98%値)が35μg/m³以下（短期基準）」と規定されている。

本県においては、県内のPM2.5濃度の動向を把握するために、令和2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、試料の採取及び成分分析を実施している。

本報告は、令和元年度に実施したPM2.5大気環境調査の結果についてまとめたものである。

2 調査方法

2.1 大気環境常時監視測定

2.1.1 調査地点

栃木県におけるPM2.5自動測定機の設置地点計14局を図1に示す。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31年4月1日から令和2年3月31日まで

2.1.3 調査方法

常時監視測定局のPM2.5の質量濃度（以下「PM2.5濃度（常監）」という。）の1時間値から、日平均値の年間98%値及び年平均値を算出し、県内のPM2.5濃度の動向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、「大気環境情報システム」¹⁾のホームページ上に公表されている大気環境常時監視測定結果を用いた。



図1 栃木県内のPM2.5常時監視測定局

2.2 四季調査

2.2.1 調査地点

真岡市役所屋上の1地点において調査を実施した。

2.2.2 調査期間

大気環境常時監視測定の調査期間のうち、春季（令和元年5月8日から5月22日）、夏季（令和元年7月18日から8月1日）、秋季（令和元年10月17日から10月31日）及び冬季（令和2年1月16日から1月30日）の各2週間について調査を行った。なお、本稿では、今年度の調査結果と併せて、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。前年度分の調査期間は既報²⁾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。なお、サンプリング時間は、午前10時から翌日午前10時までの24時間とした。

成分分析は、大気中微小粒子状物質(PM2.5)成分測定マニュアル³⁾に準拠して行った。調査項目は、標準測定法⁴⁾により測定したPM2.5の質量濃度（以下「PM2.5濃度（四季）」という。）、イオン成分濃度、炭素成分濃度及び金属成分濃度とした。また、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。各分析方法は、以下に示すとおりである。

- ① PM2.5濃度(四季)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 $21.5 \pm 1.5^{\circ}\text{C}$ 、相対湿度 $35 \pm 5\%$ の条件で秤量した。
- ② 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(NH_4^+)、カリウムイオン(K^+)、マグネシウムイオン(Mg^{2+})、カルシウムイオン(Ca^{2+})、塩化物イオン(Cl^-)、硝酸イオン(NO_3^-)及び硫酸イオン(SO_4^{2-})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。
- ③ 炭素成分については、石英ろ紙で採取した試料を用い、有機炭素成分(以下「OC」という。)及び元素状炭素成分(以下「EC」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。
- ④ 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、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 解析地点及び期間

解析は、「2.2.1 調査地点」及び「2.2.2 調査期間」と同様に、真岡市における平成30年度及び令和元年度の2カ年分の調査結果を使用した。

2.3.2 解析方法

解析は過去の調査⁹⁾に準じて行った。解析には「2.2 四季調査」の解析結果を使用し、平成30年度及び令和元年度の2カ年分の調査結果を使用した。

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、ケミカルマスパランス法(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』⁶⁾を使用した。

また、測定により得たPM2.5中の各成分濃度とPM2.5濃度(四季)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)⁸⁾を用いてスクリーニングを行った。PM2.5濃度(四季)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(四季)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、他の報告¹⁰⁾から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が分かっているため、解析から除外した。

$$M = 1.586[\text{SO}_4^{2-}] + 1.372[\text{NO}_3^-] + 1.605[\text{nss-Cl}^-] \\ + 2.5[\text{Na}^+] + 1.634[\text{OC}] + [\text{EC}] + [\text{SOIL}]$$

$$[\text{nss-Cl}^-] = [\text{Cl}^-] - 18.98[\text{Na}]/10.56$$

なお、[nss-Cl⁻]が負となった場合は、0とした。

$$[\text{SOIL}] = 9.19[\text{Al}] + 1.40[\text{Ca}] + 1.38[\text{Fe}] + 1.67[\text{Ti}]$$

解析に使用した発生源プロフィールを表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、自動車排気ガス、ブレーキ粉じん及び植物(バイオマス)燃焼由来の計8種類に分類されている。この発生源プロフィールは、東京都微小粒子状物質検討会報告書¹¹⁾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 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 NH_4^+ 、 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 発生源プロフィール

(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	ブレーキ粉塵	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	

表2 平成25年度から令和元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
R1	12/12	2/2	12/12	2/2

(達成局数/全測定局数)

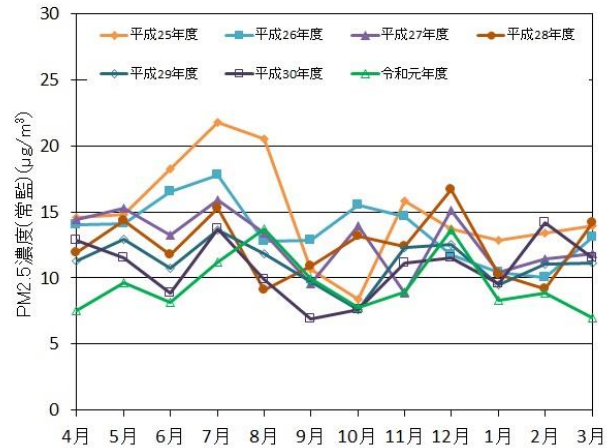


図2 真岡市役所におけるPM2.5濃度(常監)の経月変化

表3 令和元年度の常時監視局の有効日数、PM2.5濃度(常監)日平均値の年間98%値及び年平均値

	一般局											自排局		
	東南那須庁舎 (那須烏山市)	鹿沼市役所 (鹿沼市)	雀宮中学校 (宇都宮市)	県安藤庁舎 (佐野市)	栃木市役所 旧庁舎 (栃木市)	小山市役所 (小山市)	真岡市役所 (真岡市)	益子町役場 (益子町)	今市小学校 (日光市)	那須塩原市環境保 健センター (那須塩原市)	矢板市役所 (矢板市)	大田原市總 合文化会館 (大田原市)	足利市久保 田公園 (足利市)	平出 (宇都宮市)
有効日数 (日)	361	363	355	344	358	365	363	362	364	268	362	327	364	362
年平均値	7.5	7.3	9.3	10.1	8.4	12.0	9.6	9.3	7.3	6.7	7.0	8.0	9.2	10.6
日平均値の 年間98%値	21.4	20.0	22.2	27.3	21.7	26.0	26.2	22.6	19.8	18.8	22.3	21.2	23.7	23.8

3 結果及び考察

3.1 県内のPM2.5濃度の動向

栃木県における過去7年間の環境基準達成状況を表2に、令和元年度の常時監視測定局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。

令和元年度は、長期基準及び短期基準とも、過去4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12.0 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ で、黒磯保健センターが最も低く6.7 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。その他の一般局では、県南部の県安蘇庁舎、県南東部の真岡市役所及び益子町役場、並びに県央部の雀宮中学校でそれぞれ10.1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、9.6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、9.3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 及び9.3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ と比較的高めの値であった。一方で、県西部の鹿沼市役所、県北西部の今市小学校及び県北部の矢板市役所では、それぞれ7.3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、7.3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 及び7.0 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ と低めの値であった。このように、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、この傾向は既報¹⁾と同様であった。

令和元年度における日平均値の年間98%値は、県安蘇庁舎が27.3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ と最も高く、次いで真岡市役所、小山市役所の順であった。最小値は、黒磯保健センターの18.8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。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。

また、令和元年度の一般局と自排局との濃度差について検討するため、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。)及び県央地域の平出(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、県南地点間は、自排局に比べ一般局の方が、やや高めの値であり、県央地点間では、反対に一般局に比べ自排局の方がやや高かった。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、県安蘇庁舎では、別の要因が関与していることが示唆された。

3.2 真岡市のPM2.5濃度(常監)の動向

四季調査実施地点である真岡市について、PM2.5濃度(常監)の経月変化を図2に示す。なお、令和元年度の調査結果に加え、平成25年度から平成30年度までの結果も併せて表示している。

令和元年度は、8月と12月にやや濃度の上昇がみられたが、最も濃度が高かった8月においても13.7 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。また、濃度の推移は、平成30年度と類似しており、濃度の上昇がみられた8月と12月、加えて9月を除き、下回るか同程度の濃度であった。

経年的には、7月を中心とした夏季及び11月から12月にかけての時期に、PM2.5濃度が上昇する傾向がみられたものの、全体的に濃度水準が低下傾向にある。

3.3 四季調査における調査地点の気象概況

平成30年度及び令和元年度の真岡市における、調査期間中のPM2.5濃度(常監)の平均値及び各気象状況を表4に示す。

令和元年度の四季調査実施期間は、おおむね5月、7月、10月及び1月に相当する。なお、夏季において、花火大会の影響によるPM2.5濃度の上昇が確認された。花火の影響によるPM2.5濃度及び特定の成分濃度の上昇は、既報¹²⁾でも述べられており、各平均濃度に与える影響が大きいことから、本項、「3.4 四季調査結果」及び「3.5 発生源寄与推定解析」の解析では除外した。調査期間中の各季節のPM2.5濃度(常監)の平均値は、前年度に比べ、夏季は同程度であり、他季については低下していた。

調査期間中の全季節において、降水量は増加し、平均日射量は減少していたことから、前年度に比べ、PM2.5濃度が沈静化しやすく、光化学反応が緩やかになるような条件であったことが推察された。

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30年度				令和元年度			
	春季	夏季	秋季	冬季	春季	夏季	秋季	冬季
PM2.5濃度 (常監) ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	10.9 ± 7.9	14.0 ± 7.7	7.8 ± 5.6	13.9 ± 12.6	8.6 ± 5.4	15.0* ± 9.0	5.9 ± 4.9	10.8 ± 13.5
平均気温 ($^{\circ}\text{C}$)	18.2 ± 5.6	27.7 ± 3.7	14.0 ± 4.5	3.4 ± 5.1	17.9 ± 1.6	26.4 ± 2.3	16.0 ± 1.8	4.3 ± 2.0
平均相対湿度 (%)	66.1 ± 21.0	76.4 ± 13.4	72.7 ± 16.3	56.3 ± 19.3	66.1 ± 12.1	87.8 ± 6.2	84.3 ± 7.5	66.6 ± 12.7
合計降水量 (mm)	29.5	55.5	18.0	5.0	69.0	71.0	162.0	67.5
平均日射量 (MJ/m^2)	22.0 ± 6.3	20.2 ± 2.9	12.6 ± 3.5	11.4 ± 2.8	18.5 ± 5.6	14.5 ± 5.8	7.8 ± 3.4	8.0 ± 3.7

*花火大会の日(7月27日)を除く

3.4 四季調査結果

3.4.1 成分組成の概要

平成30年度及び令和元年度の各季節のPM_{2.5}濃度(四季)と各成分濃度を図3に、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PM_{2.5}濃度(四季)はおおむね整合していたため、PM_{2.5}濃度(四季)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30年度が40~49%、令和元年度は41~59%で推移していた。

炭素成分は平成30年度、令和元年度ともに、秋季以外では44~54%、秋季では61~78%であった。金属成分は、いずれの年度も1~3%であった。

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

3.4.2 水溶性イオン成分

平成30年度及び令和元年度の季節ごとのPM_{2.5}中の各水溶性イオン成分濃度及びPM_{2.5}濃度(四季)を図4に示す。

各水溶性イオン成分濃度についてみると、令和元年度夏季のSO₄²⁻が、前年度同時期に比べ1割程度増加していた。このことは、前に述べたように、令和元年度夏季の気象条件は、前年度に比べ、光化学反応が緩やかになるような条件であったものの、光化学反応を促進させるための日射量としては充分であったことが示唆された。

3.4.3 炭素成分

平成30年度及び令和元年度のPM_{2.5}中の炭素成分濃度及びPM_{2.5}濃度(四季)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量が最も少ないこと(図4)からも支持された。

令和元年度は、春季と秋季でOCの減少、加えて秋季ではECの減少もみられ、同時期のPM_{2.5}濃度(四季)の減少に起因するものと考えられた。

3.4.4 金属成分

平成30年度及び令和元年度の金属成分濃度から、各種指標を算出した。そのうち、石油燃焼の指標であるV/Mn¹³⁾、大陸からの越境輸送の指標であるPb/Zn¹³⁾、石油燃焼及び越境輸送両方の指標であるAs/V¹⁴⁾について、表6に示す。

地殻中のV/Mnは0.16¹⁵⁾であり、大気中の微小粒子のV/Mnでは0.21~0.28¹³⁾とされている。それらと比較して、令和元年度のV/Mnは、秋季及び冬季では大気中の微小粒子の一般的な値に近かったが、春季及び夏季には高い値を示していた。このような季節変動は、季節によって精製度の異なる石油製品の燃焼の影響によるものとも考えられた。

令和元年度のPb/Znは0.08~0.18で推移しており、北京で観測されたPb/Zn=0.56¹³⁾に比べ、かなり小さい値で推移している。

令和元年度のAs/Vは秋季と冬季で高かった。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⁾、令和元年度はガソリン燃焼由来に近い値で推移していた。しかし、As/Vが高かった冬季は、石炭由来の値である4.8を超える日も2日程度観測されており、寒候期における燃料の変化等が示唆された。

なお、北京で観測されたAs/Vは8.5¹⁶⁾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。

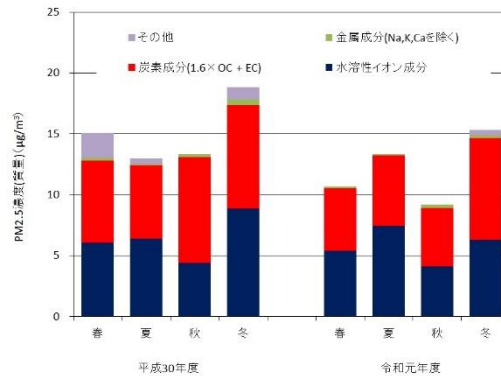


図3 平成30年度及び令和元年度の各季節における各種成分濃度

表5 平成30年度及び令和元年度の各季節におけるPM2.5中の成分組成比

	平成30年度				令和元年度			
	春	夏	秋	冬	春	夏	秋	冬
水溶性イオン成分	40.3	49.3	39.7	47.1	50.7	59.5	52.2	41.2
炭素成分(1.6×OC + EC)	44.4	46.1	77.7	45.1	48.3	45.9	61.4	54.3
金属成分(Na, K, Caを除く)	1.8	0.7	1.9	2.4	1.3	1.0	3.4	1.8
その他	13.5	3.8	0.0	5.4	0.0	0.0	0.0	2.7
合計	100.0	100.0	119.3	100.0	100.3	106.4	117.0	100.0

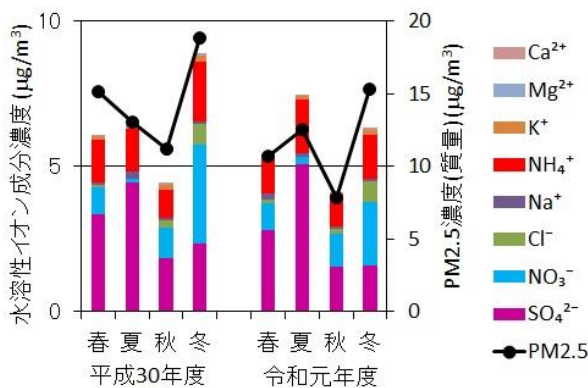


図4 平成30年度及び令和元年度の各季節における水溶性イオン成分濃度及びPM2.5濃度

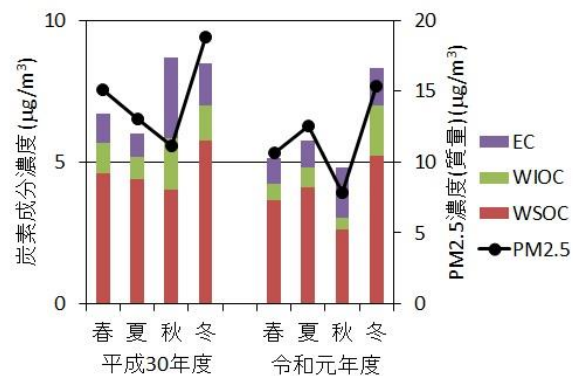


図5 平成30年度及び令和元年度の各季節における炭素成分濃度及びPM2.5濃度

表6 平成30年度及び令和元年度の各季節における金属成分指標値

	平成30年度				令和元年度			
	春	夏	秋	冬	春	夏	秋	冬
V/Mn(石油燃焼)	0.55	1.18	0.19	0.14	0.56	1.10	0.23	0.08
Pb/Zn(大陸越境)	0.14	0.14	0.22	0.13	0.18	0.09	0.08	0.09
As/V (石油燃焼及び大陸越境)	0.23	0.22	0.82	0.66	0.34	0.20	0.93	1.71

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 硫酸アンモニウム ($(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$)、硝酸アンモニウム (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^+ 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し行った。

OCの二次生成成分については、OCの分析値に有機粒子への換算係数1.6⁹⁾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。PM2.5平均濃度からすべての寄与量を差し引いた残余をその他とし、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30年度及び令和元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。

令和元年度は、いずれの季節も二次生成粒子の寄与 ($(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 、 NH_4NO_3 、 NH_4Cl 及びOCの寄与率の合計) が最も大きく、その値は50~72%であった。次いで、自動車排出ガスの寄与が大きく、11~41%であった。「3.4.4 金属成分」のV/Mnで述べたように、精製度の異なる石油製品の燃焼が示唆されていたが、発生源寄与推定解析においても、自動車排気ガスの寄与に加えて、春季と夏季における重油燃焼の寄与率の増加がみられ、このことが支持された。なお、夏季には $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 、冬季には NH_4NO_3 の寄与が増加しており、これらは既報¹⁾で得られたように、各季で代表される成分であった。また、平成30年度と同様に、秋季に二次生成成分の寄与が低いことが特徴であり、秋季の挙動については、前に述べた水溶性イオン成分及び炭素成分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	0 ± 0	0
NH_4	273019 ± 27302		225358 ± 22536		336925 ± 33693	
K	0 ± 0	0	0 ± 0	0	0 ± 0	0
Ca	0 ± 0	0	0 ± 0	0	0 ± 0	0
Cl	0 ± 0	0	0 ± 0	0	663074 ± 66307	
NO_3	0 ± 0	0	774641 ± 77464		0 ± 0	0
SO_4	726980 ± 72698		0 ± 0		0 ± 0	0

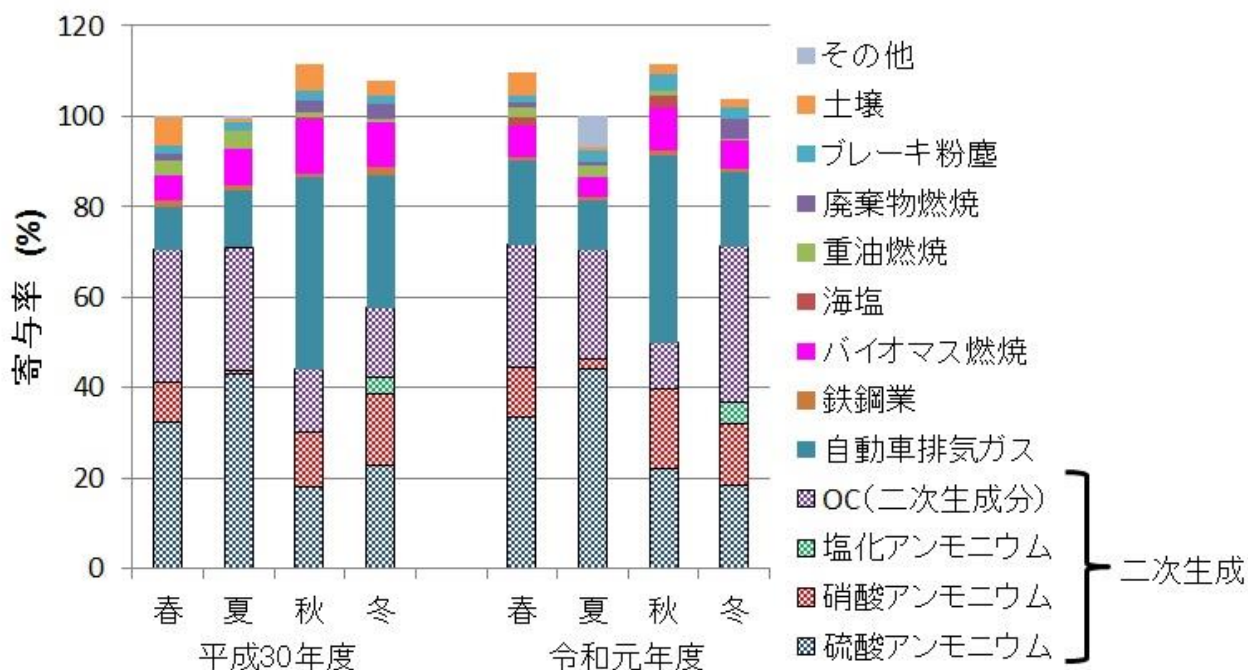


図6 平成30年度及び令和元年度の季節ごとの発生源寄与推定解析

4 まとめ

令和元年度は、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。

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。金属成分の解析からは、寒候期における燃料の変化等が示唆され、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) 大気環境情報システム、<http://atmospheric-monitoring.jp/pref/tochigi/index.html>
- 2) 栃木県保健環境センター年報、24、138-144、2019.
- 3) 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、令和元年5月
- 4) 環境省水・大気環境局大気環境課、環境大気常時監視マニュアル (第6版)、平成22年3月
- 5) 平成30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11報)、2020.
- 6) とある化学者のウェブサイト、<http://rhanaishi.world.coocan.jp/index.html>
- 7) 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)
- 8) 環境省、微小粒子状物質曝露影響調査報告書 (2007)
- 9) 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)
- 10) 飯島ら、花火・ヨシ焼きによる汚染影響について、大気環境学会誌、第53巻、第3号A48-49、2018.
- 11) 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)
- 12) 栃木県保健環境センター年報、21、50-61、2016.
- 13) 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.
- 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) McLennan, S. M. : Relationships between the trace element composition of sedimentary rocks and upper continental crust, Geochemistry, Geophysics, Geosystems (2001)
- 16) 梶田ら、愛知県環境調査センター所報、43、1-7、2015.