

令和3(2021)年度PM2.5大気環境調査結果

大気環境部

佐藤 安里紗 齋藤 康司¹

(¹ 現県西環境森林事務所)

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」と定義されており、PM2.5については、「年平均値が15μg/m³以下(長期基準)」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4年3月現在、一般環境大気測定局(以下「一般局」という。)11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13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3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13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。なお、益子町役場での測定は、令和2年度末で廃止された。

2.1.2 調査期間

令和3年4月1日から令和4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。

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

季節ごとに連続する2週間の調査を行った(春季:令和3年5月13日から5月27日、夏季:令和3年7月22日から8月5日、秋季:令和3年10月21日から11月4日、冬季:令和4年1月20日から2月3日)。なお、本稿では、令和3年度の調査結果と併せて、令和2年度分も含めた2か年分のデータについて、解析を行った。令和2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

四季調査は、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。

試料の捕集は、2台のサンプラー(Thermo Scientific社製、2025i)を用いて、PTFEろ紙及び石英ろ紙で同時に行い、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、2週間毎日繰り返した。

調査項目は、標準測定法⁴⁾で測定した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、炭素成分濃度及び無機元素成分濃度とした。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。解析に使用したPM2.5濃度(常監)の日平均値は、サンプリング時間に



図1 栃木県内のPM2.5常時監視測定局

合わせ、午前11時から翌日午前10時までの1時間値の平均値を用いた。なお、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ろ紙で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(春季:Thermo Fisher SCIENTIFIC社製、ICS-2100 夏~冬季:東ソー社製、IC-2010)で分析した。
- ③ 炭素成分については、石英ろ紙で採取した試料を用いた。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。)は、サーマルオプティカル・リフレクタンス法で測定した。なお、分析プロトコルは、IMPROVEプロトコル(Desert Research Institute社製、Model 2001a)で測定した。水溶性有機炭素成分(以下「WSOC」という。)は、燃焼酸化-赤外線式TOC法(Aanalytik Jena社製、multi N/C3100)で分析した。
- ④ 無機元素成分については、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。

2.3 発生源寄与推定解析

2.3.1 解析地点及び期間

解析地点は「2.2.1 調査地点」に示す地点、解析期間は「2.2.2 調査期間」に示す期間とし、真岡市役所における令和3年度及び令和2年度の2か年分の調査結果を対象とした。

2.3.2 解析方法

解析は過去の調査⁵⁾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、令和3年度及び令和2年度の2か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、ケミカルマスバランス法(CMB法)を用いて有効分散最小二乗法で寄与率を推定した。ソフトウェアは、花石竜治氏が公開している『CMB8J』⁶⁾⁷⁾を使用した。

また、測定で得た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⁾⁹⁾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。

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

$$[\text{nss-Cl}^-] = [\text{Cl}^-] - 18.98[\text{Na}]/10.56 \quad \text{なお、} [\text{nss-Cl}^-] \text{が負となった場合は、} 0 \text{とした。}$$

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

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。この発生源プロファイルは、東京都微小粒子状物質検討会報告書¹⁰⁾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、一次粒子と二次生成粒子の寄与を分けて解析した。

また、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式量比に基づき、表2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、二次生成粒子の寄与を考慮した発生源寄与推定解析を行った。

表1 発生源プロフィール

	土壌		海塩		鉄鋼業		重油燃焼		廃棄物燃焼		自動車排出ガス		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	13.3 ± 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 二次生成粒子の発生源プロフィール

	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
NH4	273000 ± 27300	27300	225000 ± 22500	22500	337000 ± 33700	33700
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	663000 ± 66300	66300
NO3	0 ± 0	0	775000 ± 77500	77500	0 ± 0	0
SO4	727000 ± 72700	72700	0 ± 0	0	0 ± 0	0

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5年間の環境基準達成状況を表3に、令和3年度の常時監視測定局13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4に示す。

令和3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、大谷中学校(小山市)が最も高く9.5µg/m³で、黒磯保健センター(那須塩原市)が最も低く5.0µg/m³であった。その他の一般局では、雀宮中学校(宇都宮市)、県安蘇庁舎(佐野市)及び真岡市役所で比較的高めの値を示す一方、鹿沼市役所、今市小学校(日光市)、矢板市役所及び県南那須庁舎(那須烏山市)で比較的低めの値であった。このように、県北部に比べ県南部で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。

日平均値の年間98%値は、大谷中学校(小山市)が最も高く20.6µg/m³で、黒磯保健センター(那須塩原市)が最も低く14.5µg/m³であった。その他の一般局においても、年平均値と同様におおむね県南部で高くなる傾向がみられた。

平出(宇都宮市)及び足利市久保田公園の自排局については、それぞれ地理的位置が比較的近い雀宮中学校(宇都宮市)及び足利市役所におけるPM2.5濃度(常監)と比較した。年平均値は両地点間とも同じ値であり、年間98%値は、県央の2地点では同じ値であり、県南地点間では一般局に比べ自排局の方がやや高めであった。また、地点間の濃度差について検討するためt検定を行った結果、県央地点間では有意差があり、県南地点間では有意差は得られなかった。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、県央地点間においては、その傾向と一致していた。

表3 環境基準達成状況
(平成29年度から令和3年度まで)

	長期基準		短期基準	
	一般局	自排局	一般局	自排局
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
R2	12/12	2/2	12/12	2/2
R3	11/11	2/2	11/11	2/2

(達成局数/全測定局数)

表4 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	
	雀宮中学校 (宇都宮市)	足利市役所 (足利市)	栃木市役所 (栃木市)	県安藤庁舎 (佐野市)	鹿沼市役所 (鹿沼市)	今市小学校 (日光市)	大谷中学校 (小山市)	真岡市役所 (真岡市)	矢板市役所 (矢板市)	黒磯保健センター (那須塩原市)	県南那須庁舎 (那須烏山市)	平出 (宇都宮市)	足利市久保田公園 (足利市)
有効日数 [日]	364	350	363	363	355	363	365	363	363	363	363	337	361
年平均値 [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]	8.4	7.6	7.6	9.0	6.6	6.7	9.5	8.2	5.7	5.0	6.7	9.0	7.9
日平均値の 年間98%値 [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]	18.4	16.7	16.8	19.0	16.0	16.6	20.6	20.5	16.5	14.5	16.7	18.4	17.8

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、平成29年度から令和3年度までのPM2.5濃度（常監）（月平均値）の経月変化を図2に、平成25年度から令和3年度におけるPM2.5濃度（常監）（年平均値）の経年変化を図3に示す。

令和3年度は、4月から11月までほぼ変化なく、低濃度で推移し、12月及び3月にやや上昇したものの、1年を通して7.0~9.8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ と、濃度変動は小さかった。例年と比較しても、年間を通して低濃度であった。

経年変化は図3から、令和2年度は濃度がやや上昇したが、令和3年度には減少し、長期的にも減少傾向にある。

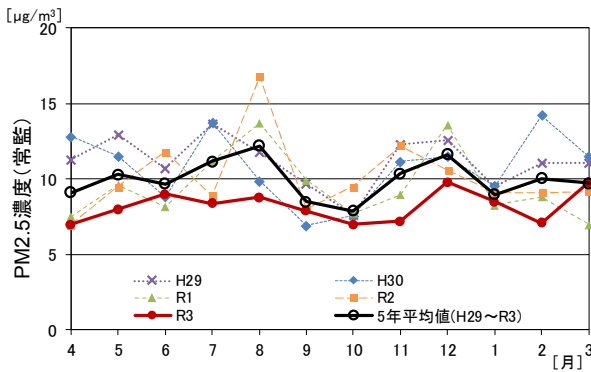


図2 真岡市役所におけるPM2.5濃度（常監）（月平均値）の経月変化（平成29年度から令和3年度まで）

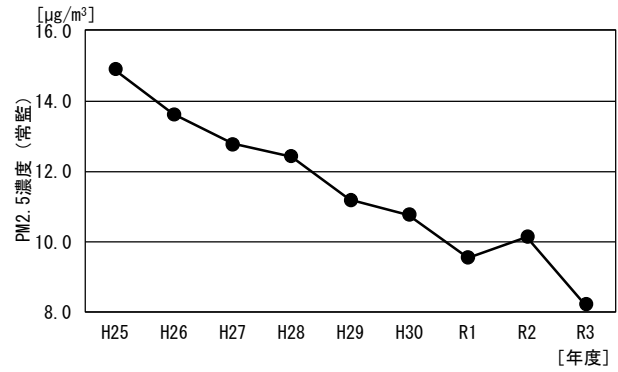


図3 真岡市役所におけるPM2.5濃度（常監）（年平均値）の経年変化

3.3 四季調査における調査地点の気象概況

令和3年度及び令和2年度の真岡市における、四季調査期間中のPM2.5濃度（常監）の平均値及び各気象状況を表5に示す。

令和3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。調査期間中の各季節のPM2.5濃度（常監）の平均値は、令和2年度に比べ、夏季及び秋季で減少していた。

令和3年度の調査期間中の気象状況を令和2年度と比較すると、春季は合計降水量が74.0mmと減少した。夏季は平均気温及び平均日射量が上昇し、合計降水量は119.5mmと令和2年度の2倍以上であった。冬季は平均気温が1.7 $^{\circ}\text{C}$ と下降した。このことから、令和3年度の調査期間は、夏季は天気良かった反面、雨量が多く、冬季は寒かったと言える。

表5 四季調査期間におけるPM2.5濃度（常監）と気象概況

	令和3年度				令和2年度			
	春季	夏季	秋季	冬季	春季	夏季	秋季	冬季
PM2.5濃度 （常監） [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]	7.0 ± 2.8	8.6 ± 2.6	5.8 ± 5.4	9.5 ± 7.9	7.4 ± 4.6	10.8 ± 4.4	9.5 ± 6.4	9.4 ± 7.0
平均気温 [$^{\circ}\text{C}$]	19.0 ± 1.8	27.2 ± 1.2	12.4 ± 1.8	1.7 ± 1.5	18.0 ± 3.4	24.5 ± 2.0	12.8 ± 2.7	3.7 ± 2.2
平均相対湿度 [%]	83 ± 13	78 ± 6	73 ± 12	57 ± 8	77 ± 15	87 ± 7	73 ± 12	58 ± 11
合計降水量 [mm]	74.0	119.5	24.0	0.0	96.5	47.0	22.5	1.5
平均日射量 [MJ/m ²]	12.2 ± 6.7	19.1 ± 3.6	11.4 ± 3.2	11.9 ± 2.2	14.9 ± 6.4	12.9 ± 5.9	11.6 ± 4.1	11.7 ± 3.9

3.4 四季調査結果

3.4.1 成分組成の概要

令和3年度及び令和2年度の各季節のPM2.5濃度(四季)と各成分濃度を図4に、同期間の成分組成比を表6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、各成分濃度による理論質量濃度とPM2.5濃度(四季)の差は30%未満であり、整合していたため、PM2.5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。

PM2.5濃度(四季)は、図4から、令和2年度が春夏秋冬と季節が進むにつれ、濃度が上昇する傾向が見られたのに対し、令和3年度は、春夏は同程度で、秋冬に濃度が上昇した。また、各成分濃度は、夏季に水溶性イオン成分、冬季に無機元素成分がやや減少したほかは同程度であった。

成分の組成比については表6から、水溶性イオン成分は、四季を通して令和2年度33~51%、令和3年度は32~46%で推移していた。炭素成分の組成比は、令和2年度は50~64%、令和3年度は42~61%であり、いずれの年度も夏季における寄与が最も大きかった。令和2年度の同時季と比較すると、春季に炭素成分の組成比が減少したほかは同程度であった。無機元素成分の組成比は、いずれの年度も春季が最大で2~3%程度、その他の季節は1%程度であった。

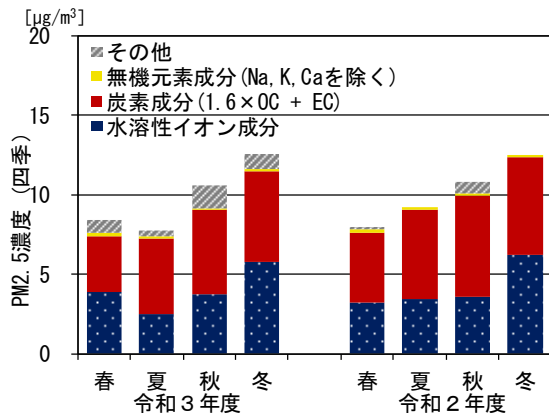


図4 季節別成分濃度 (令和3年度及び令和2年度)

表6 季節別PM2.5中の成分組成比 (令和3年度及び令和2年度)

	令和3年度				令和2年度			
	春	夏	秋	冬	春	夏	秋	冬
水溶性イオン成分	46.1	32.4	35.1	46.1	40.8	39.4	33.3	51.0
炭素成分 (1.6×OC+EC)	41.8	61.4	50.2	45.3	54.3	63.5	59.0	50.3
無機元素成分 (Na, K, Caを除く)	2.3	1.2	0.9	0.9	2.6	1.1	1.0	1.3
その他	9.8	5.0	13.7	7.7	2.2	0.0	6.7	0.0
合計	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	104.1	100.0	102.5

3.4.2 水溶性イオン成分

令和3年度及び令和2年度における季節別PM2.5中の水溶性イオン成分濃度及びPM2.5濃度(四季)を図5に示す。

主成分であるSO₄²⁻、NO₃⁻及びNH₄⁺について見ると、令和3年度のSO₄²⁻は季節変動があまりなく、NO₃⁻及びNH₄⁺は夏季に減少し、冬季に増加する傾向が見られた。主成分の濃度を令和2年度と比較すると、春季はNO₃⁻及びNH₄⁺が増加し、夏季はSO₄²⁻、NO₃⁻及びNH₄⁺が減少した。秋季及び冬季はおおむね同程度であった。

3.4.3 炭素成分

令和3年度及び令和2年度における季節別PM2.5中の炭素成分濃度及びPM2.5濃度(四季)を図6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。

令和3年度のOCは、春季の濃度が低めで、夏季に上昇し、秋・冬季はそのまま同程度で推移した。

令和2年度と比較すると、炭素成分濃度は全ての季節で同程度であり、OCも同様であった。ECは夏季で減少した。

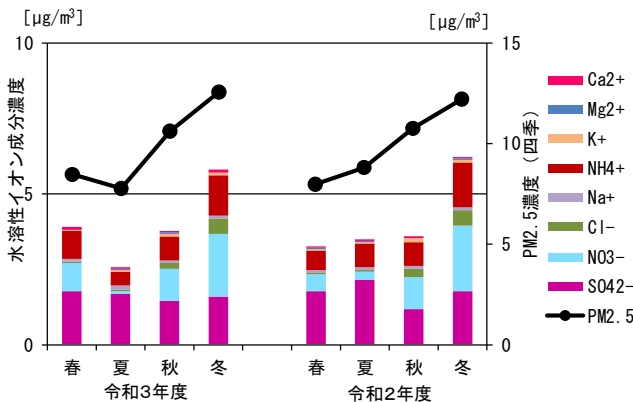


図5 季節別水溶性イオン成分濃度及びPM2.5濃度 (令和3年度及び令和2年度)

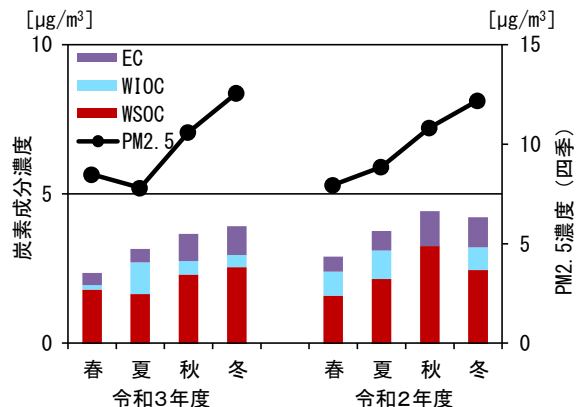


図6 季節別炭素成分濃度及びPM2.5濃度 (令和3年度及び令和2年度)

3.4.4 無機元素成分

令和3年度及び令和2年度における無機元素成分濃度から、各種指標を算出した。そのうち、石油燃焼の指標であるV/Mn¹²⁾、大陸からの越境輸送の指標であるPb/Zn¹²⁾、燃料燃焼及び越境輸送両方の指標であるAs/Vを表7に、また、指標の算出に使用した元素の濃度を表8に示す。

V/Mnは地殻中では0.16¹²⁾、また、大気中の微小粒子では0.21~0.28¹²⁾とされている。令和3年度は表7から、春季は地殻中、夏季は微小粒子の値に近いなど、季節変動があることが示唆された。令和2年度(0.07~0.13)と比較すると、春季及び夏季で増加した。

令和3年度のPb/Znは0.12~0.20で推移しており、一番高い冬季でも、北京で観測されたPb/Zn=0.56¹²⁾と比較すると小さい値であり、国内起源とされるPb/Zn=0.2~0.3¹²⁾程度であった。

Vは石油燃焼、Asは石炭燃焼の指標でもあることから、石油燃焼に対する石炭燃焼の比(As/V)が、燃料燃焼の指標として用いられ、石炭燃焼が石油燃焼より優勢な地域では、高めの値となり、越境汚染の指標としても用いられる。令和3年度のAs/Vは、0.71~2.52で推移しており、冬季は夏季の3倍を超える値を示した。しかしながら、北京で観測されたAs/V=8.5¹³⁾と比較すると、大幅に低い値と言える。Pb/Zn及びAs/Vの結果から、越境汚染の影響はかなり小さいと考えられた。

表7 季節別無機元素成分指標値(令和3年度及び令和2年度)

	令和3年度				令和2年度			
	春	夏	秋	冬	春	夏	秋	冬
V/Mn (石油燃焼)	0.14	0.28	0.08	0.08	0.10	0.13	0.07	0.08
Pb/Zn (大陸越境)	0.13	0.12	0.14	0.20	0.13	0.10	0.33	0.11
As/V (燃料燃焼及び大陸越境)	1.59	0.71	0.97	2.52	3.01	2.29	0.78	1.88

表8 季節別指標元素濃度(令和3年度及び令和2年度)

	令和3年度				令和2年度			
	春	夏	秋	冬	春	夏	秋	冬
V	0.44	0.47	0.23	0.30	0.37	0.38	0.18	0.31
Mn	3.3	1.7	2.9	3.7	3.5	2.8	2.6	3.9
Pb	2.8	1.7	2.6	4.5	2.5	2.0	4.8	3.4
Zn	21	14	18	22	18	19	15	32
As	0.70	0.33	0.22	0.76	1.11	0.86	0.14	0.59

3.5 発生源寄与推定解析

令和3年度及び令和2年度の真岡市における、発生源寄与推定解析の結果及びPM2.5濃度(四季)を図7に示す。

令和3年度は、いずれの季節も二次生成粒子の寄与((NH₄)₂SO₄、NH₄NO₃、NH₄Cl及びOCの寄与率の合計)が最も大きく、58~68%を占めていた。中でもOCの寄与は、いずれの季節においても全ての発生源区分の中で最も大きく、特に夏季での寄与率が高かった。二次生成粒子に次いで、自動車排出ガスの寄与が大きく、8~17%を占めていた。

令和2年度と比較すると、主要な寄与を示す二次生成粒子及び自動車排出ガスの寄与は、NH₄NO₃の寄与が春季に増加し、夏季に減少したほかは、おおむね同程度であった。また、全ての季節でバイオマスの寄与が減少し、重油燃焼の寄与が増加した。二次生成粒子の寄与が、その他の季節より秋季に低い傾向は平成30年度から継続している。²⁾

なお、寄与率は、各成分の実測値と推定値(発生源ごとのプロファイル上の成分濃度及び寄与率の積の総和)の差に測定上の誤差を考慮した値が最小になるよう求めている。各成分の実測値と推定値の差が全て0になることはないため、それらを元に計算された寄与率の合計は、必ずしも100%にはならない。

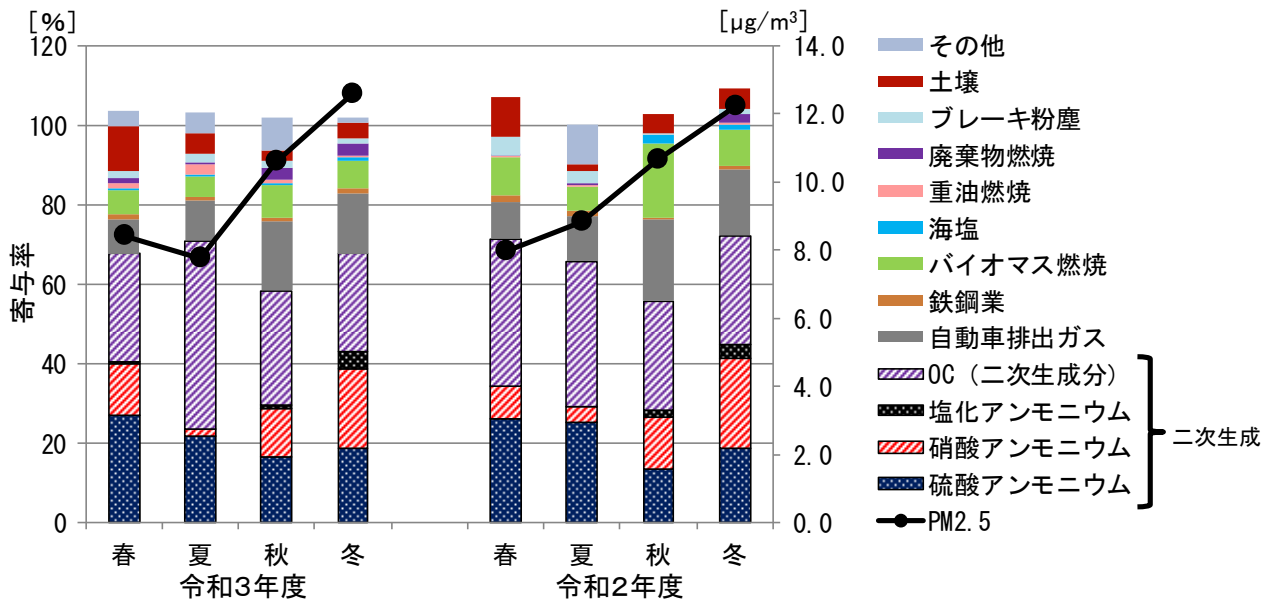


図7 季節別発生源寄与と推定解析結果及びPM_{2.5}濃度(四季)(令和3年度及び令和2年度)

4 まとめ

令和3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、大谷中学校(小山市)で最も高く、黒磯保健センター(那須塩原市)で最も低く、県南地域が高くなる傾向が見られた。

真岡市役所のPM_{2.5}濃度(常監)の動向としては、PM_{2.5}濃度(常監)が低下し、経年的に減少傾向にあった。令和3年度は、令和2年度までと比較して経月的な濃度変動が少なく、1年を通して濃度が低めであった。

四季調査については、冬季はNH₄NO₃が主成分となる傾向が見られた。無機元素成分の解析からは、越境汚染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、これまでと同様に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という特徴が継続して確認できた。

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、26、77-84、2021。
- 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) 令和2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13報)、2022。
- 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) 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。
- 11) 栃木県保健環境センター年報、21、50-61、2016。
- 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) 米持ら、2013年1月に中国北京市で採取した高濃度PM_{2.5}、PM₁の特徴、大気環境学会誌、48、140-144、2013。