

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、前報²⁾と同様に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±1.5℃、相対湿度35±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(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(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4年度及び令和3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

解析は前報²⁾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4年度及び令和3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『CMB8.J』⁵⁾を使用した。

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、石油燃焼、廃棄物燃焼、土壌・道路粉じん、海塩粒子、鉄鋼、ブレーキ粉じん、自動車排ガス、植物燃焼の計8種類に分類されている。

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(硫酸塩)、硝酸アンモニウム(硝酸塩)及び塩化アンモニウム(塩化物)を、各塩に含まれるNH₄⁺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た。これらのプロファイルは、令和3年度微小粒子状物質・光化学オキシダント合同調査報告書⁷⁾において使用されている。

以上のように、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

	石油燃焼		廃棄物燃焼		土壌・道路粉じん		海塩粒子		鉄鋼		ブレーキ粉じん		自動車排ガス		植物燃焼	
	2500 ± 1300	58000 ± 29000	13000 ± 2700	300000 ± 15000	14000 ± 2700	7600 ± 3900	76 ± 8	6600 ± 1300								
Na+	46000 ± 23000	1700 ± 850	6100 ± 970	0 ± 0	0 ± 0	0 ± 0	0 ± 0	13000 ± 2500								
NH ₄ ⁺	420 ± 210	49000 ± 25000	13000 ± 3400	11000 ± 1100	13000 ± 2600	3500 ± 6400	200 ± 20	63000 ± 13000								
K+	0 ± 0	210000 ± 110000	340 ± 150	550000 ± 28000	34000 ± 6800	13000 ± 700	200 ± 20	26000 ± 5200								
Cl ⁻	630 ± 320	430 ± 220	190 ± 120	0 ± 0	0 ± 0	0 ± 1500	0 ± 0	2000 ± 410								
NO ₃ ⁻	530000 ± 270000	110000 ± 55000	570 ± 450	78000 ± 16000	0 ± 0	4900 ± 2500	22000 ± 2200	16000 ± 3200								
SO ₄ ²⁻	55000 ± 21000	22000 ± 6200	69000 ± 28000	0 ± 0	0 ± 0	80000 ± 31000	250000 ± 25000	410000 ± 83000								
OC	100 ± 29000	23000 ± 16000	13000 ± 4100	0 ± 0	5000 ± 5000	150000 ± 76000	490000 ± 49000	97000 ± 19000								
EC	2400 ± 1200	1600 ± 800	5100 ± 540	0 ± 0	1000 ± 200	9000 ± 12	150 ± 15	10 ± 2								
Ti	95 ± 48	10 ± 5	110 ± 35	0 ± 0	130 ± 25	59 ± 84	7.3 ± 1	0 ± 0								
V	240 ± 120	580 ± 290	1100 ± 390	0 ± 0	22000 ± 2200	720 ± 18000	19 ± 2	10 ± 2								
Mn	13000 ± 6500	8000 ± 4000	53000 ± 6400	0 ± 0	160000 ± 16000	91000 ± 3	990 ± 99	100 ± 20								
Fe	16 ± 8	11 ± 6	22 ± 10	0 ± 0	44 ± 44	16 ± 48	1.5 ± 0	0 ± 0								
Co	970 ± 490	390 ± 200	80 ± 70	0 ± 0	2900 ± 2900	96 ± 3	9.9 ± 1	0 ± 0								
Ni	79 ± 40	1800 ± 900	270 ± 170	0 ± 0	3700 ± 3700	13000 ± 650	110 ± 11	0 ± 0								
Cu	670 ± 340	17000 ± 8500	1300 ± 800	0 ± 0	52000 ± 10000	3300 ± 4	620 ± 62	100 ± 20								
Zn	8 ± 4	48 ± 24	11 ± 4	0 ± 0	100 ± 100	22 ± 2	3.7 ± 0	0 ± 0								
As	7 ± 3	6 ± 3	1 ± 1	0 ± 0	51 ± 51	4 ± 10	2 ± 0	0 ± 0								
Se	2 ± 1	190 ± 95	56 ± 18	4 ± 1	77 ± 77	21 ± 59	0.49 ± 0	100 ± 20								
Rb	2 ± 1	140 ± 70	13 ± 7	0 ± 0	90 ± 90	2100 ± 5	20 ± 0	0 ± 0								
Sb	89 ± 45	460 ± 230	500 ± 85	1 ± 0	500 ± 500	12000 ± 1	99 ± 10	250 ± 50								
Ba	1 ± 0	2 ± 1	31 ± 11	0 ± 0	10 ± 10	7 ± 5	0.34 ± 0	0 ± 0								
La																

表2 二次生成粒子の発生源プロフィール

	[mg/kg]					
	二次(硫酸塩)		二次(硝酸塩)		二次(塩化物)	
Na	0 ± 0	0	0 ± 0	0	0 ± 0	0
NH ₄	270000 ± 27000		230000 ± 23000		340000 ± 34000	
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	660000 ± 66000	
NO ₃	0 ± 0	0	770000 ± 77000		0 ± 0	0
SO ₄	730000 ± 73000		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4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4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(表3)。

表4から、一般局の年平均値は、大谷中学校(小山市)が最も高く10.0µg/m³で、黒磯保健センター(那須塩原市)が最も低く5.5µg/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り、県南部が高めの傾向は既報⁸⁾と同様であった。

表3 環境基準達成状況
(平成30年度から令和4年度まで)

	長期基準		短期基準	
	一般局	自排局	一般局	自排局
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
R4	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)年平均値及び日平均値の年間98%値(令和4年度)

	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)	県安蘇庁舎 (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]	365	348	302	359	341	361	362	360	362	361	360	365	361
年平均値 [µg/m ³]	9.0	8.0	8.0	9.3	6.8	7.0	10.0	9.4	7.5	5.5	7.7	8.7	8.8
日平均値の 年間98%値 [µg/m ³]	20.5	18.9	18.2	21.8	18.1	18.8	21.3	23.3	19.1	16.2	22.3	19.6	20.7

日平均値の年間98%値は、真岡市役所が最も高く23.3µg/m³で、黒磯保健センター(那須塩原市)が最も低く16.2µg/m³であった。その他の一般局においては、年平均値と同様に、おおむね県南部で高くなる傾向が見られた。

平出(宇都宮市)及び足利市久保田公園の自排局について、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。年平均値及び年間98%値は、両地点間ともほぼ同じ値であった。

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、平成30年度から令和4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4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。

図2から、令和4年度の月平均値は、6.7~11.4µg/m³となり、令和3年度の7.0~9.8µg/m³と比較して濃度変動が大きかった。また、月平均値の5年平均値と比較すると、12月で少ない以外は、ほぼ同程度の値で推移した。

図3から、長期的には減少傾向であったが、令和4年度のPM2.5濃度は前年度よりやや上昇した。

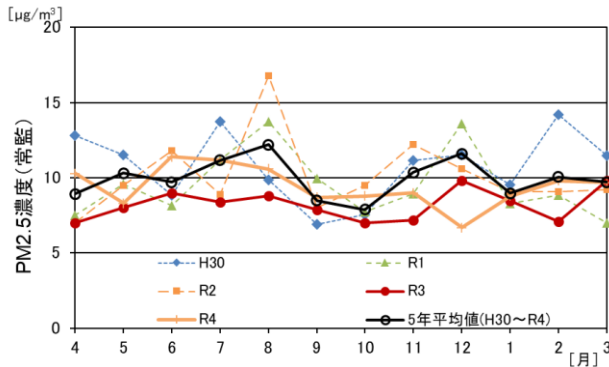


図2 真岡市役所におけるPM2.5濃度(常監)の経月変化(平成30年度から令和4年度まで)

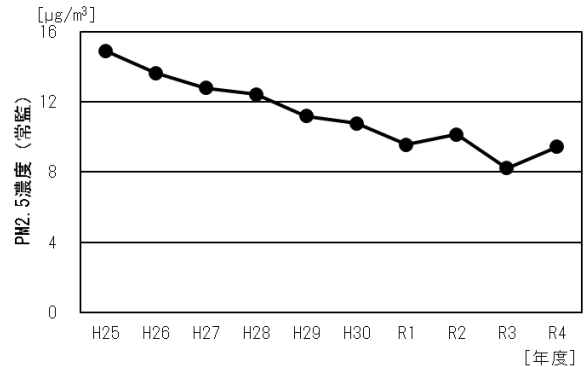


図3 真岡市役所におけるPM2.5濃度(常監)(年平均値)の経年変化

3.3 四季調査における調査地点のPM2.5濃度(常監)と気象概況

令和4年度及び令和3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4年度の四季調査実施期間は、おおむね5月、7月、10月及び2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3年度と比較し、冬季は減少し、それ以外の季節は上昇した。

令和4年度の調査期間中の気象状況を令和3年度と比較すると、春季は、平均日射量が上昇し、合計降水量は減少した。夏季は、平均日射量が減少し、合計降水量は55mmと令和3年度の半分以下と少なかった。冬季の平均日射は、令和3年度とほぼ同値であったが、調査期間が2週間遅くなり2月となった影響もあり平均気温は高かった。

令和4年度の調査期間は、夏季は降水量が少なく、冬季は暖かかったと言える。

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4年度				令和3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/m³]	9.0 ± 4.9	10.7 ± 5.3	10.7 ± 6.4	8.8 ± 4.5	7.0 ± 2.8	8.6 ± 2.6	5.8 ± 5.4	9.5 ± 7.9
平均気温 [°C]	18.1 ± 2.3	27.0 ± 2.5	12.5 ± 2.1	4.0 ± 3.0	19.0 ± 1.8	27.2 ± 1.2	12.4 ± 1.8	1.7 ± 1.5
平均相対湿度 [%]	77 ± 13	80 ± 8	73 ± 7	61 ± 13	83 ± 13	78 ± 6	73 ± 12	57 ± 8
合計降水量 [mm]	68.5	55.0	10.0	26.5	74.0	119.5	24.0	0.0
平均日射量 [MJ/m²]	16.6 ± 7.7	16.0 ± 6.6	12.7 ± 2.7	12.0 ± 3.8	12.2 ± 6.7	19.1 ± 3.6	11.4 ± 3.2	11.9 ± 2.2

3.4 四季調査結果

3.4.1 成分組成の概要

令和4年度及び令和3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。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。

図4から、令和4年度におけるPM2.5濃度は、秋に最も高くなり、炭素成分濃度も同様であった。令和3年度と比較すると、PM2.5濃度及び炭素成分濃度は、冬季を除き令和4年度が高かった。また、水溶性イオン成分濃度についても、冬季を除いて令和4年度が高かった。

表6から、水溶性イオン成分組成は、四季を通して、令和4年が28~51%、令和3年度は32~46%で推移し、同時季で比較すると、秋季で減少し、冬季で増加した。令和4年度の炭素成分の組成比は、令和4年度が約40~58%、令和3年度は約42~61%であり、同時季で比較すると、令和4年度は令和3年度よりも夏季、冬季で減少、春季、秋季で増加した。無機元素成分の組成比は、令和4年度において、ほぼ1%前後で推移し、令和3年度と比較して季節変動は小さかった。

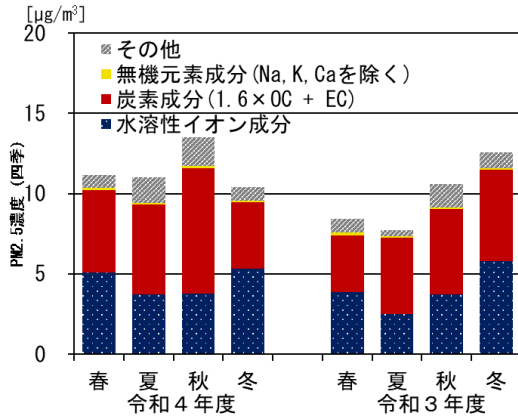


図4 季節別成分濃度
(令和4年度及び令和3年度)

表6 季節別PM2.5中の成分組成比
(令和4年度及び令和3年度)

	令和4年度				令和3年度			
	春	夏	秋	冬	春	夏	秋	冬
水溶性イオン成分	45.7	33.9	28.1	51.4	46.1	32.4	35.1	46.1
炭素成分 (1.6×OC+EC)	45.9	50.8	57.6	39.6	41.9	61.4	50.3	45.3
無機元素成分 (Na, K, Caを除く)	1.1	0.9	1.0	1.0	2.3	1.2	0.9	0.9
その他	7.2	14.4	13.2	8.1	9.8	5.0	13.7	7.7
合計	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0

3.4.2 水溶性イオン成分

令和4年度及び令和3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4年度のSO₄²⁻は、春季及び夏季において高い値を示した。NO₃⁻及びNH₄⁺は、令和3年度同様、夏季に減少し、冬季に増加する傾向が見られた。

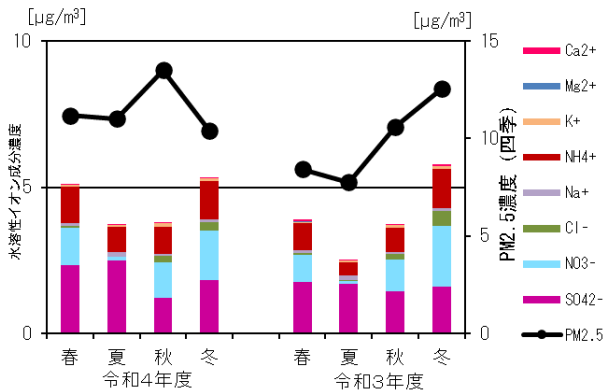


図5 季節別水溶性イオン成分濃度及びPM2.5濃度
(令和4年度及び令和3年度)

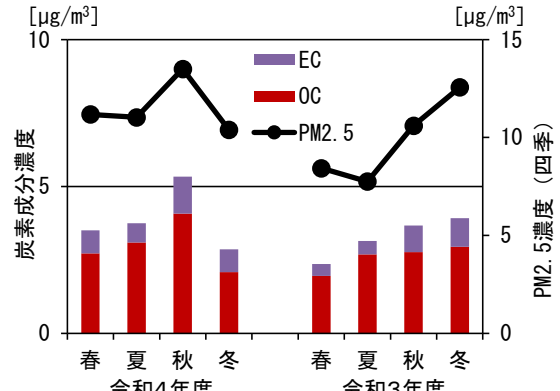


図6 季節別炭素成分濃度及びPM2.5濃度
(令和4年度及び令和3年度)

3.4.3 炭素成分

令和4年度及び令和3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。

令和4年度のOCは、秋に濃度が上昇し、冬に低下した。令和3年度と比較すると、冬季を除いてOC、ECとも令和4年度が高い値であった。

3.4.4 無機元素成分

令和4年度及び令和3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/Mn¹⁰⁾、大陸からの越境輸送の指標であるPb/Zn¹⁰⁾、燃料燃焼及び越境輸送両方の指標であるAs/Vを表7に示した。また、指標の算出に使用した元素の濃度を表8に示した。

V/Mnは、両年度とも各季節で同程度であり、大きな変化はなかった。

Pb/Znは、有鉛ガソリンの廃止が遅れた大陸側で数値が高い傾向があり、越境輸送の指標として用いられる。令和4年度は、令和3年度と比較するとやや高い値だが、0.14~0.21と低い値で推移しており、国内外における継続的な鉛使用の低下が示された。

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る。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、当該地域からの越境汚染の指標としても用いられる。令和4年度のAs/Vは、1.09~3.17で推移し、冬季で最も高い値であった。令和3年度においても同様に冬季で高い値であったことから、冬季に石炭燃焼の影響が大きいことが示された。

表7 季節別無機元素成分指標値（令和4年度及び令和3年度）

	令和4年度				令和3年度			
	春	夏	秋	冬	春	夏	秋	冬
V/Mn (石油燃焼)	0.14	0.22	0.07	0.08	0.14	0.28	0.08	0.08
Pb/Zn (大陸越境)	0.21	0.14	0.20	0.20	0.13	0.12	0.14	0.20
As/V (燃料燃焼及び大陸越境)	1.26	1.09	1.22	3.17	1.59	0.71	0.97	2.52

表8 季節別指標元素濃度（令和4年度及び令和3年度）

	令和4年度				令和3年度			
	春	夏	秋	冬	春	夏	秋	冬
V	0.49	0.62	0.36	0.24	0.44	0.47	0.23	0.30
Mn	3.4	2.8	4.8	3.2	3.3	1.7	2.9	3.7
Pb	3.0	2.7	4.3	3.2	2.8	1.7	2.6	4.5
Zn	15	19	21	16	21	14	18	22
As	0.62	0.67	0.44	0.76	0.70	0.33	0.22	0.76

3.5 発生源寄与推定解析

令和4年度及び令和3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4年度は、いずれの季節も二次生成粒子の寄与（硫酸塩、硝酸塩、塩化物及びOCの寄与率の合計）が大きく45～68%であり、令和3年度の54～68%と同程度であった。次いで、自動車排ガスの寄与が、令和4年度で13～16%、令和3年度で9～18%を占め、両年度とも秋季における寄与が最も高い傾向が見られた。

また、両年度とも二次生成粒子の寄与は秋季で最も低く、この傾向は平成30年度から継続している¹¹⁾。

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。

4 まとめ

- 令和4年度のPM2.5濃度（常監）は、全測定局で環境基準を達成しており、年平均値は、令和3年度と同様に、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）で最も低かった。おおむね県南部で高くなる傾向が見られた。
- 真岡市役所において、平成4年度のPM2.5濃度（常監）月平均値経月変化は、令和3年度より変動が大きかった。また、令和4年度のPM2.5濃度（常監）年平均値は、令和3年度より増加したが、経年的な推移は、減少傾向にある。
- 四季調査において、令和3年度と同様、PM2.5の水溶性イオン成分のうち、SO₄²⁻は、春季及び夏季に増加した。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。また、無機元素成分は、冬季のAs/Vが高くなり、石炭燃焼の影響が大きいことが示された。
- 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、次いで自動車排ガスの寄与が大きいという特徴が継続して確認された。

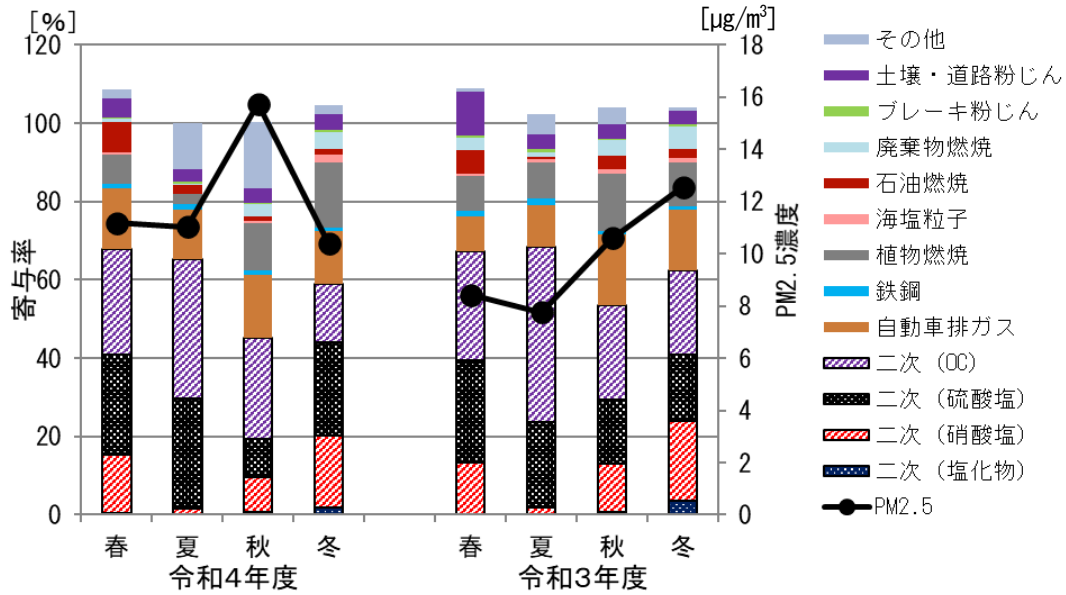


図7 季節別発生源寄与と推定解析結果及びPM2.5濃度(四季)(令和4年度及び令和3年度)

5 参考文献

- 1) 栃木県大気環境情報システム、<https://tochigi-taiki.jp/>
- 2) 栃木県保健環境センター年報、27、61-67、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(PM2.5)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) とある化学者のウェブサイト、<http://rhanaiishi.world.coocan.jp/index.html>
- 6) 平山ら、川崎市における微小粒子状物質(PM2.5)の成分組成(2013年度)、川崎市環境総合研究所年報(2014).
- 7) 令和3年度微小粒子状物質・光化学オキシダント合同調査報告書 関東地方大気環境対策推進連絡会 微小粒子状物質・光化学オキシダント調査会議(2023年3月)
- 8) 栃木県保健環境センター年報、21、50-61、2016.
- 9) 環境省、微小粒子状物質(PM2.5)成分測定マニュアルに関するQ&A、2018.
- 10) 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.
- 11) 栃木県保健環境センター年報、26、77-84、2020.