

長崎県における微小粒子状物質 (PM_{2.5}) の経年変化(2018～2021年度)

横田 哲朗, 前田 卓磨

Secular variation of PM_{2.5} in Nagasaki Prefecture (2018～2021)

Tetsurou YOKOTA, Takuma MAEDA

キーワード: PM_{2.5}, 成分, PMF解析

Key words: particulate matter 2.5, component, Positive Matrix Factorization

はじめに

微小粒子状物質 (以下、「PM_{2.5}」という。) の成分分析については、PM_{2.5}の発生源寄与割合の推計に資することを主目的の一つとして、平成22年3月に改正された「大気汚染防止法第22条の規定に基づく事務の処理基準について」¹⁾ (以下、「事務処理基準」という。) に盛り込まれたところであり、本県においても2018年より「微小粒子状物質 (PM_{2.5}) の成分分析ガイドライン」²⁾ (以下、「ガイドライン」という。) に基づき、PM_{2.5}の成分分析を開始している。発生源寄与割合の推計には、PMF (Positive Matrix Factorization) やCMB (Chemical Mass Balance) などの数値解析が挙げられ、特にPMFに関しては、発生源の情報がない場合でも測定データさえあれば計算が実行可能という利点があるため、近年、研究報告例も増えている。今回、県内のPM_{2.5}測定データについてPMF解析を実施し、発生源寄与割合の推計を試みたので報告する。

材料及び方法

1 解析対象データ

解析対象データは、事務処理基準及びガイドラインに基づき当センターが県大気常時監視測定局 (川棚局) で試料採取及び測定したデータのうち、2018年度から2021年度のものを使用した。PM_{2.5}質量濃度は、同測定局の自動測定器のデータを使用した。また、環境省が取りまとめ公表している全国の自治体の測定データ³⁾から主に九州北部のデータを使用した。各測定地点を図1に示す。環境省による公表データについては、公表までのタイムラグの関係上2017年度から2019年度までのデータを使用した。詳細は以下のとおりである。

(1) 測定地点 (本県測定地点)
川棚局 (2018年度～2021年度)

(2) 測定地点 (環境省公表データより引用した地点)
環境省の公表データから表1の測定地点のデータを使用した。

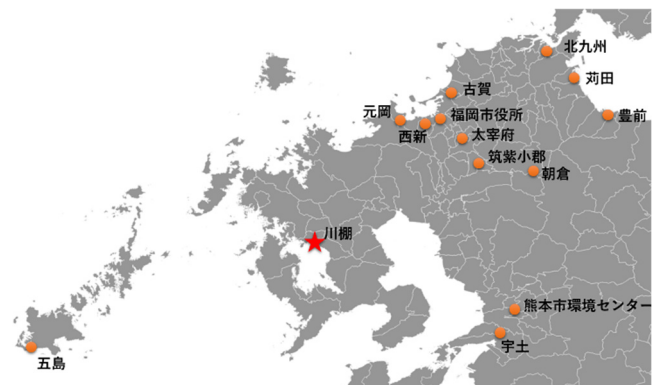


図1 測定地点

表1 解析にデータ使用した測定地点

報告団体名	地点名	年度			データ数	
		2017	2018	2019		
環境省	五島				168	
	太宰府局				168	
	筑紫小郡局				56	
	福岡県	朝倉局				56
		豊前局				56
		苅田局				56
福岡市	古賀局				56	
	市役所局				168	
	元岡局				168	
北九州市	西新局				112	
	北九州観測局				168	
熊本県	宇土				168	
熊本市	環境総合センター				168	
合計:					1568	

(3) 測定期間

測定期間は環境省が設定した統一試料捕集期間に合わせて年4回、各季節2週間連続で実施した。他県においても多少の測定日の前後はあるが、同様の条件でサンプリングされているデータを使用した。サンプリング時間は12:00から翌12:00までの24時間とした。

(4) PMF解析に用いた成分

イオン成分 (Cl⁻,SO₄²⁻,NO₃⁻,Na⁺,NH₄⁺,K⁺,Mg²⁺,Ca²⁺)
 無機元素成分 (Al,V,Cr,Mn,Fe,Ni,Cu,Zn,As,Sb,Pb)
 炭素成分 (OC,EC)

2 発生源解析

米国環境保護庁のホームページで公開されているソフトウェア EPA PMF5.0 を用いて PMF解析⁴⁾による発生源寄与率の推定を試みた。データの選定については、測定日ごとの分析データについてイオンバランス (Anion/Cation比率) が0.8以上1.2以下の範囲から外れているものは除外した。また、マスクロージャーモデル⁵⁾を用いて通常の濃度範囲 (0.8以上1.2以下) から逸脱した試料を除外した。なお、川棚のデータについては、エアサンプラーの異常等によりイオン成分及び炭素成分が欠測した期間 (2018年7月19日、20日及び2019年夏季) と火山活動の影響による高濃度イベント (2020年8月)⁶⁾のデータ以外は、除外処理をせずにデータセットの一部とした。最終的に解析に用いたのは合計1142個のデータセットとした。表1にPMF解析の条件を示す。検出下限値未満の測定値は、検出下限値の1/2に置換した。また、PM_{2.5}構成成分の実測値と推定値の相関係数が0.5未満の場合は成分の重みづけをweak (不確かさが3倍) とした。PMF解析結果についてII型共同研究グループの解析方法を参考に以下の内容を確認し、妥当性が高い最終解を選択した。

- ・各発生源の因子を説明できるか
- ・Q値とQtheory値が近似しているか (2倍以下)
- ・Bootstrap結果のIQR値及びmapping値

調査結果

1 PM_{2.5}質量濃度の経年変化について

川棚のPM_{2.5}質量濃度について、県大気常時監視測定局 (川棚局) のデータを整理し、各年度の平均質量濃度にしたものを図2に示す。PM_{2.5}の環境基準 (平成21年9月9日、環告33)⁷⁾は、「1年平均値が15 µg/m³以下であり、かつ、1日平均値が35 µg/m³以下であること。」とされている。今回は年度ごとに集計しているが、図2からPM_{2.5}の質量濃度は減少傾向にあることが示唆され、1年

表1 PMF解析における条件

サンプル数			
川棚	他県 (九州地域13地点)		
207	935		
合計1142			
重み付け	イオン成分	無機元素成分	炭素成分
Strong	NO ₃ ⁻ ,SO ₄ ²⁻ ,Na ⁺ ,NH ₄ ⁺ ,K ⁺ ,Mg ²⁺	V,Mn,Fe,As	元素状炭素 (EC)
Weak (不確かさ3倍)	Cl ⁻ ,Ca ²⁺	Al,Cr,Ni,Cu,Zn,Sb,Pb	有機性炭素 (OC)
Factor			6
Uncertainty			20%
Base runs			100
Bootstrap runs			100
Mapping of bootstrap factors			96-100

間の平均値も環境基準を下回っていた。

また、各年度の日別平均値について図3に示す。2018年度、2019年度は各1回、2020年度は2回、日別平均値が環境基準 (35 µg/m³) を超過する高濃度イベントが発生しているが、2021年度は環境基準を超過したものはなかった。

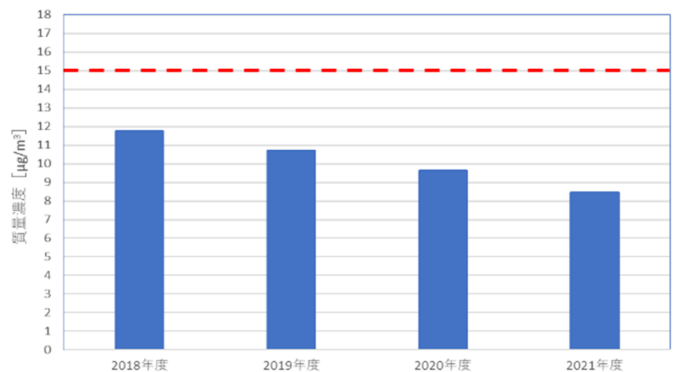


図2 川棚におけるPM_{2.5}質量濃度の経年変化

図中の破線は、環境基準 (年平均) 15 µg/m³の指標を表す。

2 発生源解析

(1) 発生源の種類とその指標成分

得られたPM_{2.5}成分濃度データに対し、PMF解析を用いて、発生源種類の推定を行った。この結果、6種類の発生源が推定された。各発生源の指標成分を表3及び図4に示す。

指標成分に対する各発生源の割り当ては文献^{8,9)}や成分測定マニュアルで確認したが、全く同じ指標成分の組み合わせでない場合、解析者による恣意的な解釈も含まれている。



図3 川棚測定局におけるPM_{2.5}質量濃度の日別平均値

図中の破線は、環境基準（日平均）35 µg/m³の指標を表す。
また、枠で囲んだ部分は成分分析のサンプリングを行ったおおよその期間を示している。

表3 PMF解析により推定された発生源

	発生源因子	指標成分
1	道路交通・バイオマス燃焼	K ⁺ , Sb, OC, EC
2	石油燃焼	V, Ni, EC
3	工業	Mn, Fe, Zn, Pb
4	二次生成(硫酸塩)	SO ₄ ²⁻ , NH ₄ ⁺
5	二次生成(硝酸塩)	NO ₃ ⁻
6	海塩	Na ⁺ , Mg ²⁺

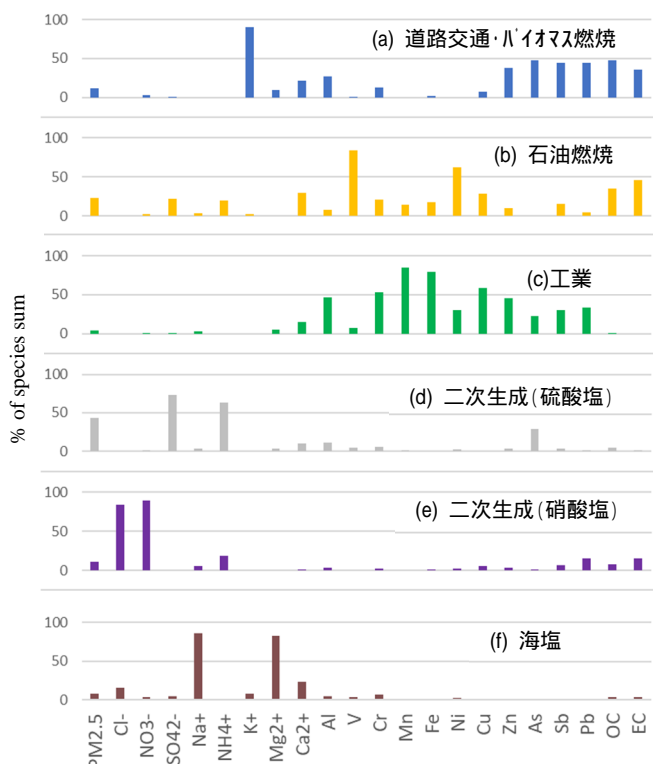


図4 発生源のプロファイル (% of species sum)

(a) 道路交通・バイオマス燃焼

OC, ECが比較的高く、ブレーキパッド由来とされるSbの寄与が高いことから、自動車排ガスの特徴がみられたため道路交通由来とした。また、K⁺の寄与率が高く、バイオマス燃焼の寄与も表す因子と解釈した。その他、AsとPbの寄与が高く、バイオマス燃焼に加え廃棄物燃焼の影響も含まれることが示唆された。これらの因子は本解析では分離できなかった。

(b) 石油燃焼

VとNiの負荷が高いため重油燃焼由来と解釈した。

(c) 工業

Mn, Fe, Zn, Pbの負荷が高く、工業因子の特徴が見られた。また、CrとCuの負荷も見られた。さらに、この因子の割合は北九州及び苅田で多く見られた。両地点は製

鉄産業が盛んな地域であるが、この因子で負荷が見られた成分の組み合わせは製鉄産業と解釈する報告⁸⁾があるため、工業(特に製鉄関連)の因子と解釈した。

(d) 硫酸塩

SO₄²⁻とNH₄⁺が高いため硫酸二次生成由来とした。NH₄⁺はSO₄²⁻とNO₃⁻のカウンターイオンとして知られており、(SO₄²⁻とNO₃⁻)/NH₄⁺の等量比は1に近くなる。本因子におけるSO₄²⁻, NO₃⁻, NH₄⁺の当量比は1.05であった。このことから、硫酸アンモニウム塩 (NH₄)₂SO₄が主体的に存在していると考えられる。主に広域汚染の指標として解釈される。

(e) 硝酸塩

NO₃⁻が高いため硝酸二次生成由来とした。また、Clも比較的高いため、半揮発性の塩化アンモニウムの負荷もみられた。硝酸塩は冬季に高濃度となるとされており、本解析においても同様の傾向が見られた。

(f) 海塩

Na⁺とMg²⁺が高いため、海塩由来とした。

(2) 川棚における発生源寄与の経年変化

川棚における発生源寄与の割合を図5に示す。各因子の寄与割合は、二次生成(硫酸塩)が最も大きく54%であった。次いで道路交通・バイオマス燃焼の12%、二次生成(硝酸塩)、海塩の8%、石油燃焼の5%、工業の4%の順であった。図中の「その他」はPM_{2.5}の質量濃度から各因子の成分の質量濃度を差し引いた残りを表す。

また、図6に各因子の経年変化を示す。年度間で各因子の濃度に大きな変化は見られない中、石油燃焼の因子のみ2020年度、2021年度はほとんど発生していなかった点が特徴として挙げられる。本解析結果において、Vはその83.5%を石油燃焼因子に寄与しており、Vと石油燃焼因子の経年変化はほぼ一致すると考えられるため、本解析が妥当であれば、Vの濃度と石油燃焼因子の変化傾向は同様となるはずである。川棚のV濃度の経年変化を図7に示す。Vの濃度は2019年の冬季のデータから大幅に減少しており、この傾向は2021年冬季まで続く結果となり、本因子の解は妥当であると言える。

まとめ

今回の調査により、2018年度から2021年度の川棚の測定地点におけるPM_{2.5}の質量濃度及び各成分データを使用してPMF解析を行い、発生源因子の推定及び経年変化の傾向を明らかにした。発生源因子としては二次生成(硫酸塩)が全体の半分以上を占めており広域汚

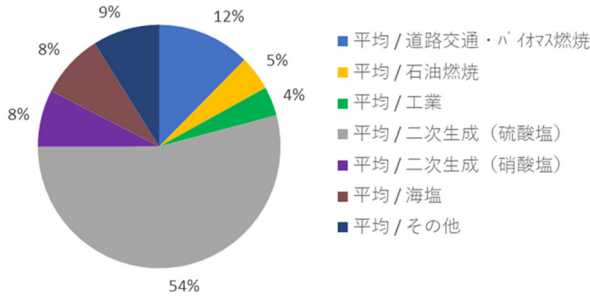


図5 川棚における発生源因子の割合 (2018-2021)

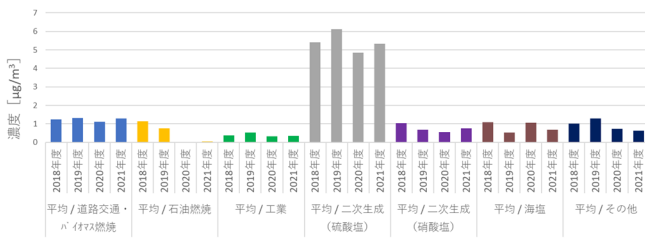


図6 川棚におけるPM_{2.5}発生源寄与の経年変化

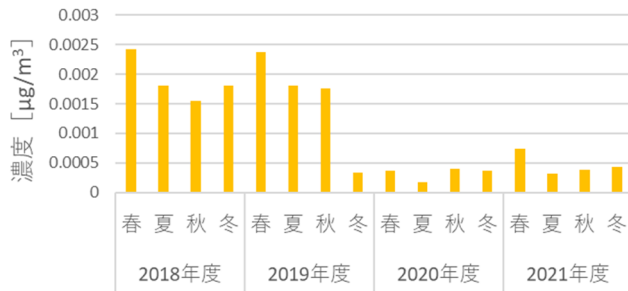


図7 川棚におけるV濃度の経年変化

染の影響を受けやすいことが示唆された。また、各発生源因子は後述する石油燃焼因子以外は年度間で大きな増減はみられなかった。なお、PM_{2.5}の質量濃度は本調査の対象とした4年間において減少傾向を示し、環境基準を超過する事例も年間1件程度であり、ほとんどの場合基準を達成している状況であった。

石油燃焼因子については、2019年度の冬季 (2020年1月) から大きく減少し、本因子の代表成分であるV濃度も同時期に減少していることが分かった。2019年度の冬季 (2020年1月) は、新型コロナウイルス (COVID-19) が世界的に認知された時期である。その後、国内においても感染が拡大したところであり、我が国初の緊急事態宣言が発出され、2020年4月16日には全国を対象が拡

大した。この頃から国内の経済活動が停滞し、2022年6月現在も完全に元に戻ったとは言えない状況が続いている。本調査において、石油燃焼因子及びV濃度の減少が確認されたのは国内の新型コロナウイルス感染症対策が本格化する前からであるため、今回の結果から国内経済の停滞と石油燃焼因子の関連性について議論することは難しい。しかしながら、2020年1月は徐々に海外 (特に中国) との渡航が制限され始めた時期であるなど、新型コロナウイルス感染症と石油燃焼因子の間には何等かの関係がある可能性が考えられるため、資料としてここに報告する。なお、本解析に用いた他県の地点においても、川棚と同様に2019年度冬季から石油燃焼因子及びV濃度が減少する傾向を示したので、併せて報告する。

参考文献・脚注

- 1) 環境省:大気汚染防止法第22条の規定に基づく事務の処理基準について (平成22年3月31日改正関係)
- 2) 環境省:微笑粒子状物質 (PM_{2.5}) の成分分析ガイドライン, https://www.env.go.jp/air/osen/pm/ca/110729/no_110729001b.pdf
- 3) 環境省:微小粒子状物質 (PM_{2.5}) の質量濃度及び成分測定 (手分析) 結果, <https://www.env.go.jp/air/osen/pm/monitoring.html> (2022.3.4アクセス)
- 4) United States Environmental Protection Agency: Positive Matrix Factorization Model for environmental data analyses, <https://www.epa.gov/air-research/positive-matrix-factorization-model-environmental-data-analyses> (2022.8.20アクセス)
- 5) 環境省:大気中微小粒子状物質 (PM_{2.5}) 測定方法暫定マニュアル (2007)
- 6) 竹村 俊彦:夏には珍しいPM_{2.5}高濃度 西ノ島噴火 (2020) <https://news.yahoo.co.jp/byline/takemuratoshihiko/20200807-00192063/> (2021/7/7)
- 7) 環境省:微小粒子状物質による大気の汚染に係る環境基準について, 環告33 (2009)
- 8) Positive Matrix Factorization モデルを用いたPM_{2.5}の発生源解析:文献調査による解析手法と東アジア地域の現状の整理, 大気環境学会誌, 54(4), 139-160 (2019)
- 9) 高岡大他:PMF法による福井県内のPM_{2.5}発生源寄与解析, 福井県衛生環境研究センター年報, 14, 55-60 (2015)