

長崎県における微小粒子状物質(PM_{2.5})に関するPMF解析

堤 清香, 横田 哲朗, 前田 卓磨

PMF analysis of PM_{2.5} in Nagasaki Prefecture

Kiyoka TSUTSUMI, 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は発生源情報が不要で測定データのみで解析可能であるという利点がある。以前、2018年度から2021年度において、県内のPM_{2.5}測定データについてPMF解析²⁾を実施したが、今回は対象期間を2018年度から2023年度に拡大してPMF解析を実施し、発生源寄与割合の推計を試みた。

調査方法

1 解析対象データ

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³⁾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2023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⁴⁾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2018年度から2021年度までのデータを使用した。

(1) 測定地点（本県測定地点）

川棚局（2018年度～2023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図1の測定地点のデータ（2018年度～2021年度）を使用した。



図1 測定地点

(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 PMFによる発生源解析

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 PMF5.0⁵⁾を用いてPMF解析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0.7以上1.3以下の範囲から外れているものは除外した。加えて、川棚局のデータについては機械の故障により欠測した期間 (2019年夏季、2022年度) のデータも除外した。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 (国立環境研究所と複数の地方環境研究所の共同研究) 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。

【最終解・選定条件】

- ・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

川棚局の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)⁶⁾ は、「1年平均値が15 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下であり、かつ、1日平均値が35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 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、2022年度、2023年度は各1回、2020年度は2回、日別平均値が環境基準 (35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) を超過する高濃度発生事例はあったが、2021年度は環境基準を超過したものはなかった。

表1 PMF解析における条件

サンプル数			
	川棚	他県(九州地域10地点)	
✓	238	1455	
合計 1693			
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, Pb	OC, EC
Weak (不確かさ3倍)	Cl ⁻ , Ca ²⁺	Al, Cr, Mn, Fe, Ni, Cu, As, Zn, Sb	なし
Factor			6
Uncertainty			20%
Base runs			100
Bootstrap runs			100
Mapping of bootstrap factors			99-100

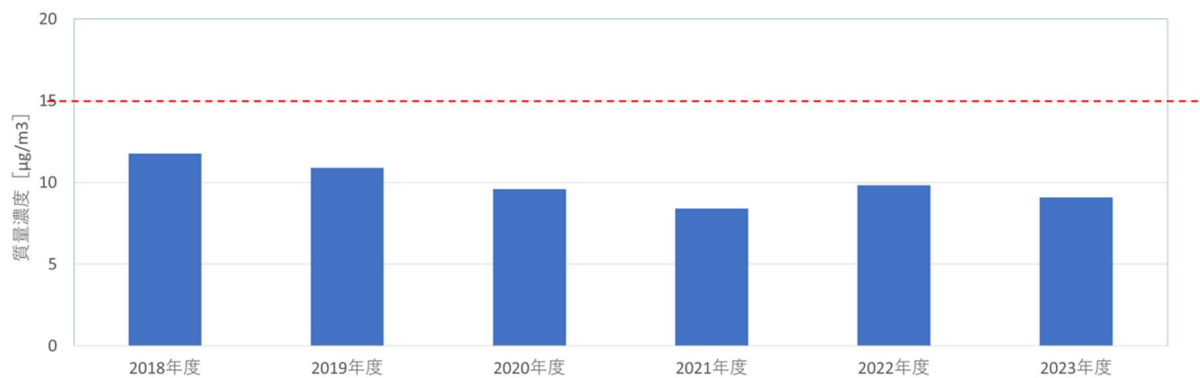
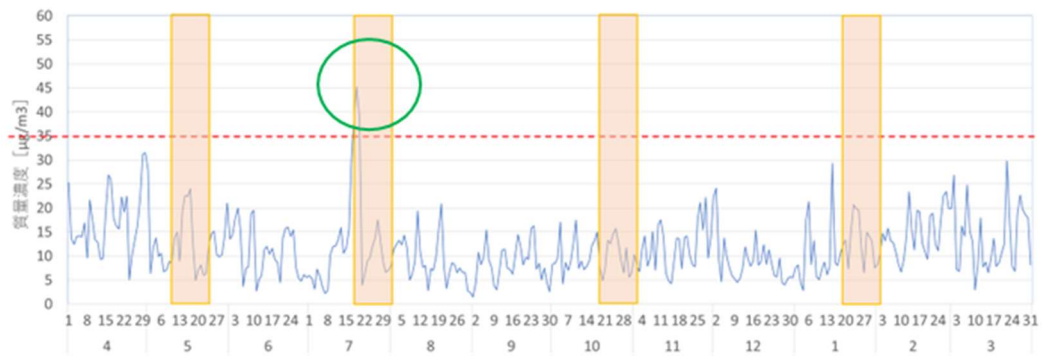


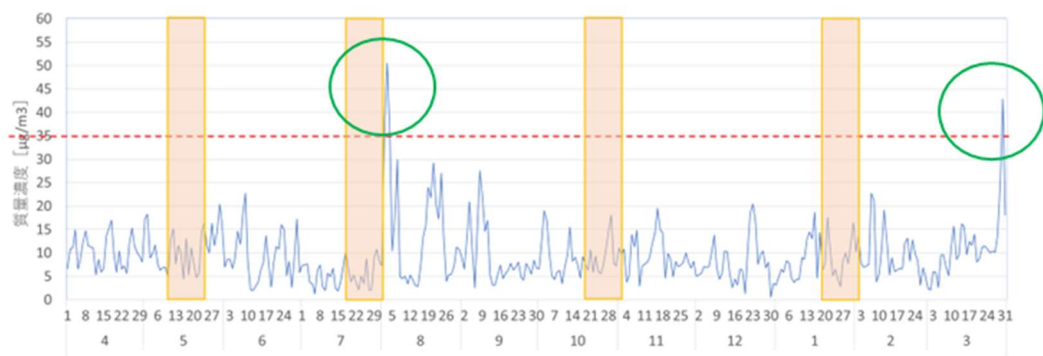
図2 川棚におけるPM_{2.5}質量濃度の経年変化
 (図中の破線は、環境基準 (年平均) 15 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ の指標を表す。)



2018年度



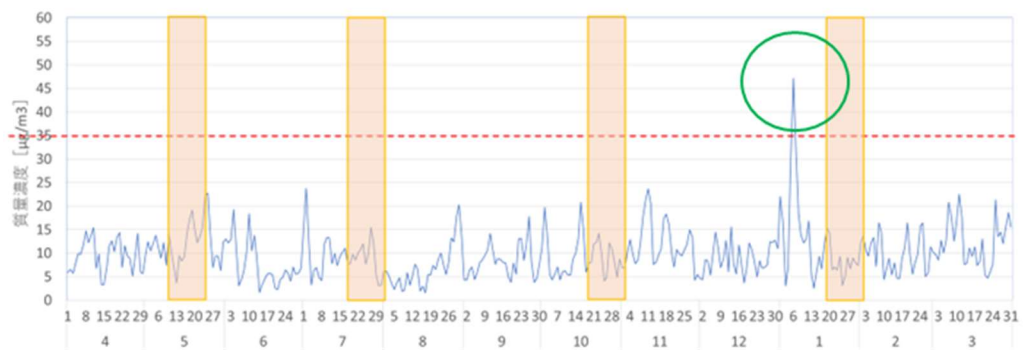
2019年度



2020年度



2021年度



2022年度



2023年度

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 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 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よそその期間を示している。

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⁷⁾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、解析者の判断に基づく解釈も含まれている。

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	二次生成(硫酸塩)	SO ₄ ²⁻ , NH ₄ ⁺
3	二次生成(硝酸塩)	NO ₃ ⁻
4	石油燃焼	V, Ni, EC
5	海塩	Na ⁺ , Mg ²⁺
6	土壌・工業	Al, Cr, Mn, Fe, Zn, Pb

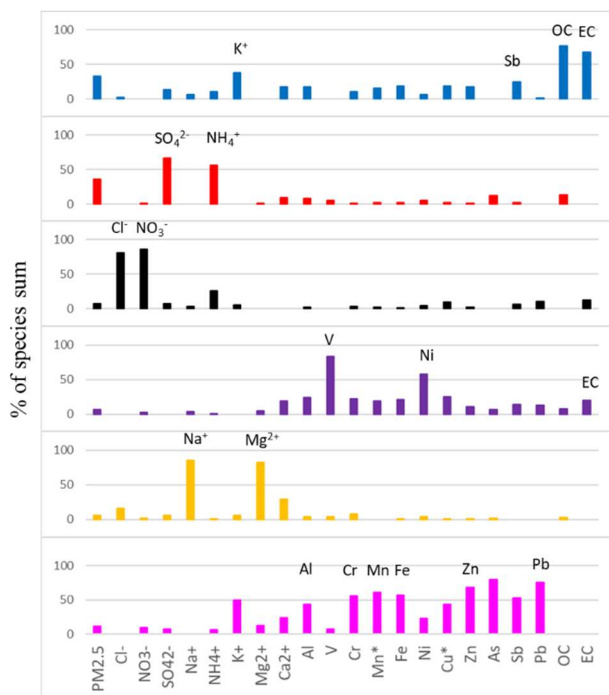


図4 発生源のプロファイル (% of species sum)

上から順に(a)道路交通・バイオマス燃焼、(b)二次生成(硫酸塩)、(c)二次生成(硝酸塩)、(d)石油燃焼、(e)海塩、(f)土壌・工業と解釈した。

(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。

(b) 二次生成(硫酸塩)

SO₄²⁻とNH₄⁺が高いため硫酸二次生成由来とした。

(c) 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。

(d) 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。

(e) 海塩

Na⁺とMg²⁺が高いため、海塩由来とした。

(f) 土壌・工業

Alが高いため、土壌由来とした。また、Mn, Fe, Zn, Pbの負荷が高く、工業因子の特徴が見られた。

図5に各地域における発生源因子の寄与割合を示す。寄与割合として特徴的なものは道路交通・バイオマス燃焼が市街地に設置されていることから太宰府、市役所(福岡市)、環境総合センター(熊本市)で、石油燃焼が港付近に設置されていることから豊前で、海塩が海岸に近いことから五島で高かった。

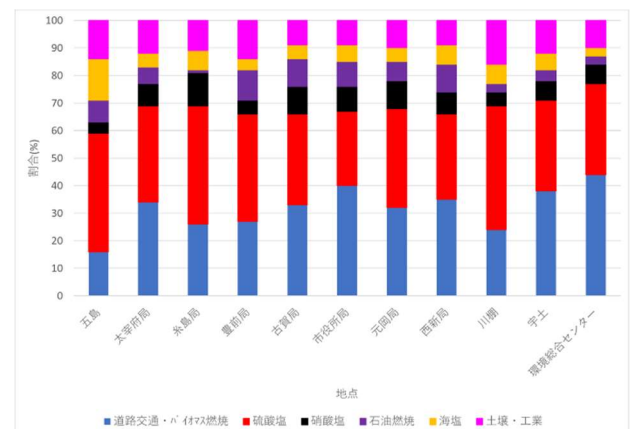


図5 地域の発生源因子の割合

(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6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45%であった。次いで道路交通・バイオマス燃焼の24%、土壌・工業の16%、海塩の7%、二次生成（硝酸塩）の5%、石油燃焼の3%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寄与成分を差し引いた残差を示す。

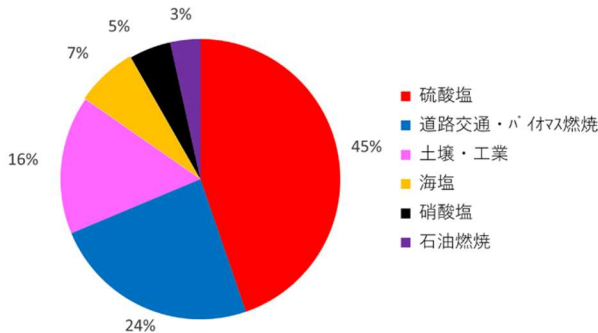


図6 川棚局における発生寄与割合

また、本解析に用いた他県の地点を含め、年度間で各因子の濃度に大きな変化は見られなかったが、石油燃焼因子については、図7のとおり2019年度の冬季（2020年1月）から大きく減少し、図8のとおり本因子の代表成分であるV濃度も同時期に減少していた。同時期は国際海事機関(IMO)が2020年1月1日から燃料油中の硫黄成分の上限を3.5%から0.5%へと大きく引き下げたことが原因の可能性のある報告⁸⁾もあり、今回の結果からも全体的に規制の影響を受けていると考えられる。

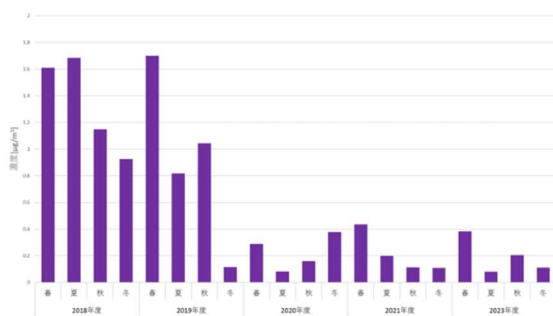


図7 石油燃焼因子の経年変化

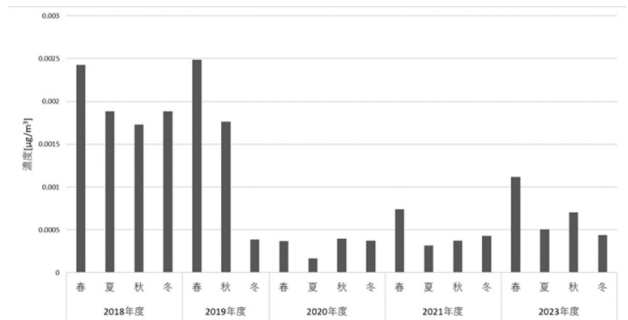


図8 V濃度の経年変化

まとめ

今回の調査により、2018年度から2023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）が全体の約半分を占めており広域汚染の影響を受けやすいことが示唆された。また、各発生源因子について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6年間に於いて減少もしくは横ばいの傾向を示し、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。

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) 横田哲朗・前田卓磨: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),長崎県環境保健研究センター所報,67,76-80(2021)
- 3) 環境省:微小粒子状物質(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(2024.5.21アクセス)
- 4) 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> (2024.5.21アクセス)
- 5) 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)
- 6) 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)
- 7) 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)
- 8) 大分県におけるPM2.5発生源由来等の調査,第49回九州衛生環境技術協議会,23-24