

PMF 法による香川県における PM_{2.5} 発生源解析Source Characterization of PM_{2.5} at Kagawa Prefecture by the PMF Method

池田 光広

Mitsuhiro IKEDA

要 旨

香川県及び高松市は現在、観音寺市役所、香川県農業試験場満濃試験地、高松競輪場の3地点でPM_{2.5}成分分析を実施している。今回、平成26年度、27年度の成分分析データを用いてPMF(Positive Matrix Factorization)法による発生源解析を行い、発生源とその寄与濃度を推定した。

解析の結果、土壌・工業系粉じん、硫酸系2次粒子、硝酸系2次粒子、道路交通・バイオマス燃焼、石炭燃焼、重油燃焼、海塩粒子の7つの発生源に分解することができた。ブランク地点である満濃試験地と比較して観音寺市役所については硝酸系2次粒子の寄与が大きく、高松競輪場については、重油燃焼の寄与が大きいことがわかった。

Abstract

Currently, in Kagawa prefecture and Takamatsu city, we have been conducting component analysis of PM_{2.5} in three different spots: Kanonji City Hall, Kagawa Prefecture Agricultural Experiment Station Manno, and the Takamatsu Bicycle Racetrack. This time, we carried out source characterization by the PMF(Positive Matrix Factorization) Method and estimated the source and contribution concentration using a component analysis of 2014 and 2015 data.

As a result of analysis, it was factorized into 7 sources: soil and industrial dust, secondary sulfate, secondary nitrate, road traffic and biomass combustion, coal combustion, heavy oil combustion, and sea salt. Compared with Manno, which is a blank spot, it was found that the contribution of secondary nitrate in Kanonji and heavy oil combustion in Takamatsu is large.

キーワード：PM_{2.5} PMF 法 発生源解析

I はじめに

微小粒子状物質(以下、PM_{2.5})は粒径が2.5μm以下と小さいため、肺の奥深くまで入りやすく、健康に及ぼす影響が懸念されている¹⁾。

香川県及び高松市は平成24年度からPM_{2.5}質量濃度の常時監視測定局を整備し、現在では13地点で測定を実施している。またPM_{2.5}成分分析については、香川県は平成24年度から、高松市は平成26年度から測定を開始し、現在は観音寺市役所(以下、観音寺)、香川県農業試験場満濃試験地(以下、満濃)、高松競輪場(以下、高松)の3地点で実施している。

香川県におけるPM_{2.5}質量濃度は緩やかな低下傾向にあるものの、平成28年度は13測定局中5局で環境基準を達成しておらず、高濃度原因の究明が求められている。

3地点におけるPM_{2.5}成分分析データを解析した結果、地点ごとの成分濃度に特徴がみられ、影響を及ぼしている発生源に違いがあることが示唆された。そこで各地点に影響している主な発生源とその寄与濃度を解明するため、平成26年度、27年度の成分分析データを用いてレセプターモデルの一種であるPMF法による発生源解析を行ったので、その結果について報告する。

II 方法

1 調査地点及び調査期間

図1に示すとおり観音寺、満濃、高松の3地点でPM_{2.5}成分調査を実施した。採取期間は表1に示すとおり各季節連続2週間実施した。なお、満濃は平成27年度春のデータが欠測、高松は、平成26年度は春秋、平成27年度は夏冬のみ調査となっている。



図1 調査地点

表1 調査期間

季節		期間
平成26年度	春	5月8日～5月21日
	夏	7月23日～8月5日
	秋	10月22日～11月4日
	冬	1月21日～2月3日
平成27年度	春	5月7日～5月20日
	夏	7月22日～8月4日
	秋	10月21日～11月3日
	冬	1月20日～2月2日

2 採取方法及び分析方法

質量濃度、無機元素成分測定用に PTFE 製フィルタ (47mmφ) を用い、イオン・炭素成分測定用に石英製フィルタ (47mmφ) を用いた。吸引流速は 16.7L/min で、観音寺、満濃については、サンプラー (Thermo Scientific 2025 型) で 0 時から 24 時間、高松については、サンプラー (SIBATA LV-250 型) で 12 時から 24 時間採取した。

分析は、環境省で定める方法²⁾³⁾に従い実施し、質量濃度はフィルタ捕集-質量法 (標準測定法)、イオン成分はイオンクロマトグラフ法 (観音寺、満濃: DIONEX ICS-1000、高松: 島津製作所 LC-20)、炭素成分はサーマルオプティカル・リフレクタンス法 (DRI 製 2001A)、無機元素成分は酸分解/ICP-MS 法 (観音寺、満濃: Agilent 7500cx、高松: Thermo Scientific iCAP QC) により実施した。

イオン成分は Na⁺、NH₄⁺、K⁺、Mg²⁺、Ca²⁺、Cl⁻、SO₄²⁻、NO₃⁻ の 8 項目、炭素成分は有機炭素 (OC)、元素状炭素 (EC) の 2 項目、無機元素成分は Na、Al、K、Ca、V、Cr、Mn、Fe、Ni、Cu、Zn、As、Pb の 13 項目を測定した。

3 PMF 法による発生源解析

PMF 法による発生源解析は米国環境保護庁がホームページで公開しているソフトウェア EPA PMF5.0 を用いて

行った。PMF 法は因子分析の一つであり、多成分の変動要素からいくつかのパターン (因子) を抽出する統計モデルで、抽出された因子の成分組成の特徴からその因子の由来を推定することができる。PMF モデルは、式 (1) で表される。ここで、 x_{ij} は試料 i 中の成分 j の濃度、 g_{ik} は試料 i に対する因子 k の寄与濃度、 f_{kj} は因子 k における成分 j の濃度、 e_{ij} は試料 i 中の成分 j の観測値と計算値の残差である。

PMF 法では、任意の因子数 p を与えることによって式 (2) で表される Q 値 (因子分析における誤差の平方和) を最小にする解 (g_{ik} 、 f_{kj}) を繰り返し計算によって求める。なお、 u_{ij} は試料 i 中の成分 j の不確かさである。

$$x_{ij} = \sum_{k=1}^p g_{ik} f_{kj} + e_{ij} \quad \dots (1)$$

$$Q = \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^m \left(\frac{e_{ij}}{u_{ij}} \right)^2 \quad \dots (2)$$

本解析では、イオン成分と無機元素成分で重複する成分 (Na、K、Ca) については、Na は無機元素成分のデータを、K、Ca はイオン成分のデータを採用した。

成分濃度が検出下限値未満の場合は検出下限値の 1/2 で置き換えた。また、検出下限値未満の割合が 50% 以上の成分 (Cl⁻、Ca²⁺、Cr) については解析から除外し、20% 以上 50% 未満の成分 (K⁺、Mg²⁺、Al、Ni、Zn) については不確かさを 3 倍にして解析に用いた。

III 結果

1 成分分析結果の妥当性評価

PMF 法による解析に用いる成分分析データについて、結果の妥当性評価を実施した。評価方法は環境省が示すイオンバランス法及びマスクロージャーモデル⁴⁾を用いた。まず、陽イオンと陰イオンのイオン当量比が 0.8~1.2 の範囲にあるデータを適合とし、範囲外のデータは解析から除外した。次に PM_{2.5} 秤量質量濃度と式 (3) に示したマスクロージャーモデルによる推定質量濃度の比が 0.7~1.3 の範囲にあるデータを適合とし、範囲外のデータは解析から除外した。以上の結果、3 地点合計 221 データを用いて PMF 法による発生源解析を行うこととした。

$$C_m = 1.375[SO_4^{2-}] + 1.29[NO_3^-] + 2.5[Na^+] + 1.4[OC] + [EC] + 9.19[Al] + 1.4[Ca] + 1.38[Fe] + 1.67[Ti] \quad \dots (3)$$

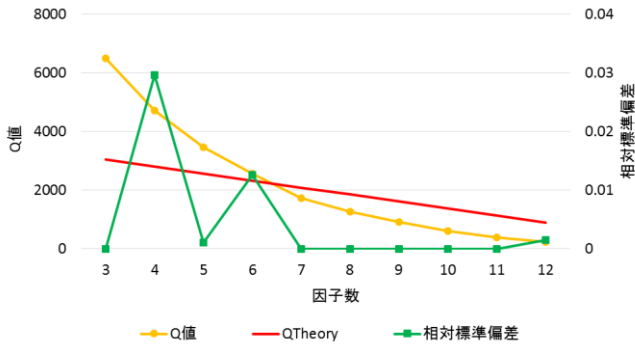


図2 Q値の相対標準偏差、平均値、 Q_{theory} の関係

2 因子数の決定

PMF 法では繰り返し計算で得られた Q 値の相対標準偏差が小さく、かつ Q 値が Q の理論値 (Q_{theory}) に近くなる因子数が統計学的に最適とされている。 Q_{theory} は、 n を試料数、 m を成分数、 p を因子数とした場合、式 (4) で定義される。

$$Q_{theory} = nm - p(n + m) \dots (4)$$

統計学的に最適な因子数を検討するため、因子数を 3～12 に変化させて PMF 法による解析を行い、繰り返し計算を 20 回行った時の Q 値の相対標準偏差、 Q 値の平均値、 Q_{theory} を計算した。その結果を図 2 に示す。相対標準偏差は、全ての因子数で 0.03 未満であり、安定していた。 Q 値と Q_{theory} の関係をみると、因子数 6～7 付近で最も近くなっており、因子プロファイルの妥当性や解析結果の堅牢性を考慮して、因子数を 7 とすることが最適であると判断し、以降の解析を実施した。

3 因子プロファイルの推定

図 3 に各因子における因子プロファイルを因子間の相対比で示す。PMF 法では因子プロファイルの成分組成の特徴から、その因子の種類を解析者自身が決定する必要がある。因子 1 は、Al、Fe の負荷が大きく、土壌粒子由来であると考えられた。また、Fe に加えて Mn、Cu、Zn 等の金属成分の負荷もあり、工業系粉じんも寄与していると推定された (土壌・工業系粉じん)。因子 2 は、 SO_4^{2-} 、 NH_4^+ の負荷が大きいことから SO_2 の酸化により二次的に生成した硫酸アンモニウム、又は長距離輸送された硫酸アンモニウムが寄与していると推定された (硫酸系 2 次粒子)。因子 3 は、 NO_3^- 、 NH_4^+ の負荷が大きいことから、二次生成硝酸エアロゾルに由来すると推定された (硝酸系 2

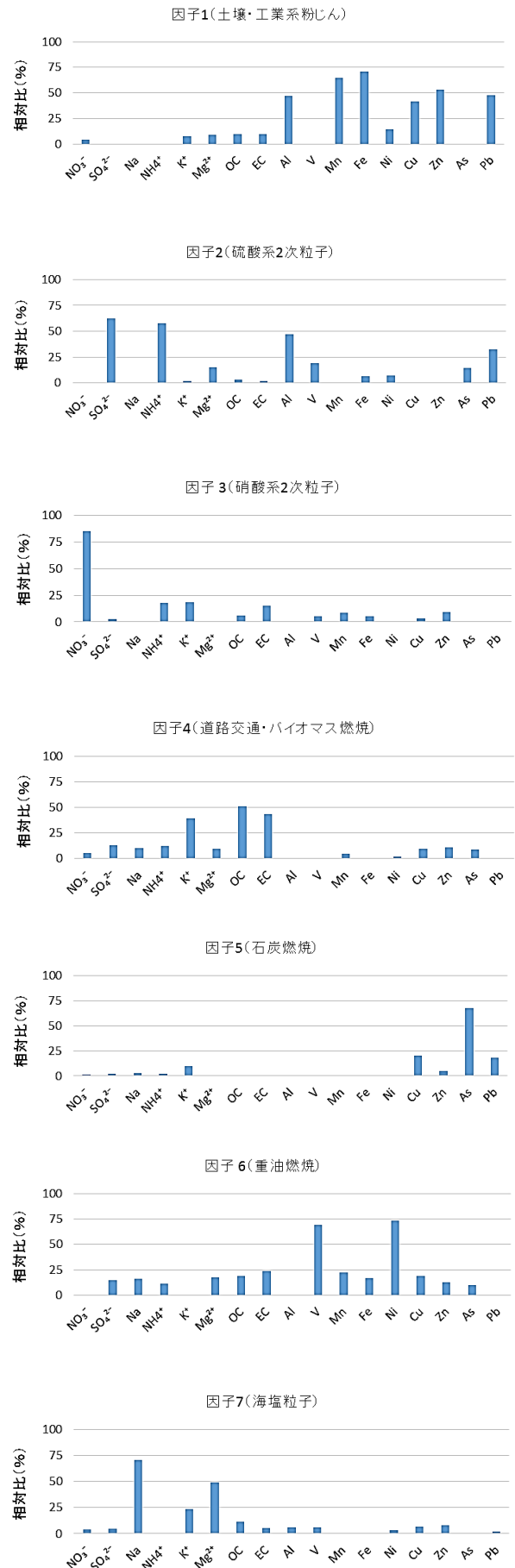


図3 因子プロファイル

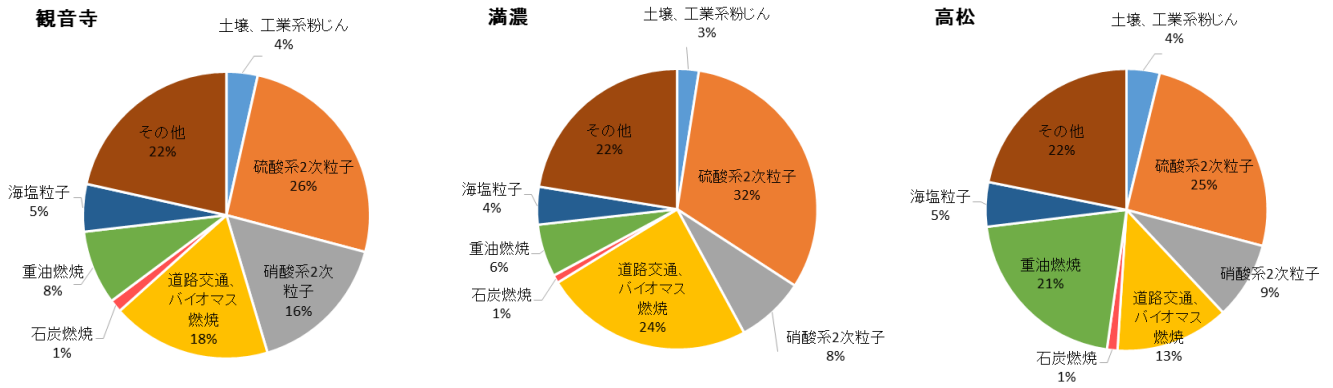


図4 地点別発生源寄与率

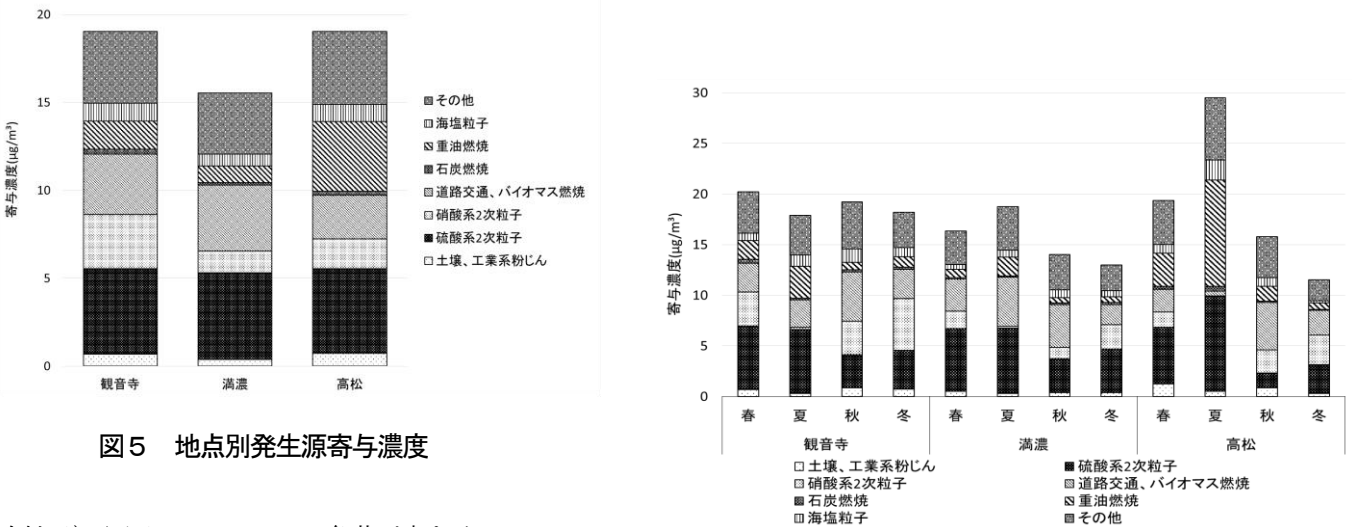


図5 地点別発生源寄与濃度

図6 季節別発生源寄与濃度

次粒子)。因子4は、OC、ECの負荷が大きく、Mn、Ni、Cu、Znに負荷がみられることから道路交通が寄与していると考えられた。また、K⁺の負荷も大きく、バイオマス燃焼も寄与していると推定された(道路交通・バイオマス燃焼)。因子5は、As、Pbの負荷が大きく、石炭燃焼に由来すると推定された(石炭燃焼)。因子6は、SO₄²⁻、NH₄⁺に負荷がみられ、V、Niの負荷が大きいことから重油を燃料とする船舶や火力発電所等が寄与していると推定された(重油燃焼)。因子7は、Na、K⁺、Mg²⁺の負荷が大きく、全地点において寄与が小さいことから海洋由来の粒子と推定された(海塩粒子)。

4 発生源寄与率の推定

図4に全期間における地点別発生源寄与率を示す。3地点とも硫酸系2次粒子の寄与率が25%以上あり、最も大きかった。観音寺、満濃については、道路交通・バイオマス燃焼の寄与率がそれぞれ18%、24%と大きかった。観音寺については硫酸系2次粒子の寄与率が16%あり、満濃の8%、高松の9%と比較すると大きいことがわかった。高松については重油燃焼の寄与率が21%あり、観音寺の8%、

満濃の6%と比較すると大きいことがわかった。

図5に全期間における発生源寄与濃度、図6に季節別の発生源寄与濃度を示す。寄与率が最も大きかった硫酸系2次粒子の寄与濃度は、3地点で同程度であった。観音寺の夏の結果をみると、硫酸系2次粒子の寄与がほとんどなく、その影響でPM_{2.5}質量濃度が低くなっていることがわかった。逆に春、秋、冬に硫酸系2次粒子の寄与が大きくなっており、特に冬はその傾向が顕著であった。高松では、夏に硫酸系2次粒子、重油燃焼の寄与が大きくなっており、その影響でPM_{2.5}質量濃度が高くなっていることがわかった。

IV 考察

1 観音寺の硫酸系2次粒子の寄与について

観音寺に大規模な窒素酸化物(NOx)発生源がないことから、観音寺において硫酸系2次粒子の寄与が大きい原因としては、地形的、気象的要因からNOx又は硝酸塩が流入し

やすい、NO_x から硝酸塩への2次粒子化が起りやすい等が考えられる。過去の当センターの調査研究で観音寺における浮遊粒子状物質(SPM)及びPM_{2.5}の高濃度化と海陸風との関係が指摘されており⁵⁾⁶⁾⁷⁾、硝酸系2次粒子の高濃度化も海陸風が関係している可能性がある。今後、観音寺における風向風速等の気象データを用いてNO_xや硝酸系2次粒子との関係を調査する必要がある。

2 高松における重油燃焼の寄与について

今回のPMF解析結果における重油燃焼は、因子プロファイルのV/Ni比が2.3と高く、船舶の影響が大きいと考えられた⁸⁾⁹⁾。測定地点が沿岸部に位置する観音寺や高松が内陸部に位置する満濃よりも重油燃焼の寄与が大きい点からも妥当であると言える。船舶については、MARPOL条約で燃料油中の硫黄成分濃度の上限値が引き下げられることが決まっており¹⁰⁾、今後、徐々に改善していくと考えられる。ただし、高松の結果については、各季節1年分のデータだけで解析を行っており、今後は複数年度のデータを用いて解析を行い、発生源寄与率の傾向をみる必要がある。

V まとめ

PMF法による解析の結果、土壌・工業系粉じん、硫酸系2次粒子、硝酸系2次粒子、道路交通・バイオマス燃焼、石炭燃焼、重油燃焼、海塩粒子の7つの因子が抽出された。満濃と比較して観音寺では冬の硝酸系2次粒子の寄与が大きく、高松では夏の重油燃焼の寄与が大きいという特徴がみられた。今後は、本研究で得られたデータを基礎として、PM_{2.5}常時監視測定の結果や気象データ等を用いて高い寄与率を示した発生源の原因について解明したい。また、引き続き成分分析を実施し、複数年度のデータを用いて発生源解析を行い、発生源寄与率の経年変化をみていきたい。

なお、本研究の内容は、第58回大気環境学会年会において、口頭発表を行っている¹¹⁾。

謝辞

本研究では高松市環境指導課からPM_{2.5}成分分析データの提供にご協力いただきました。ここに謝意を表します。

文献

- 1) 環境省：微小粒子状物質健康影響評価検討会報告書(平成20年4月)，(2008)
- 2) 環境省水・大気環境局：環境大気常時監視マニュアル第6版(平成22年3月)，(2010)
- 3) 「大気中微小粒子状物質(PM_{2.5})成分測定マニュアルの策定について」(平成24年4月19日環水大発120419002号環水大自発第120419001号環境省水・大気環境局大気環境課長自動車環境対策課長通知)
- 4) 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改訂版，(2007)
- 5) 日野康良ほか：観音寺局における浮遊粒子状物質高濃度現象の解析，香川県環境保健研究センター所報，2，135-146，(2003)
- 6) 細川欣秀ほか：観音寺市役所局における微小粒子状物質(PM_{2.5})の解析，香川県環境保健研究センター所報，13，86-97，(2014)
- 7) 橋本貴世：香川県におけるPM_{2.5}大気環境調査について(V)，香川県環境保健研究センター所報，14，44-56，(2015)
- 8) Bressi et al：Sources and geographical origins of fine aerosols in Paris(France)，Atmos. Chem. Phys. 14，8813-8839，(2014)
- 9) Pra et al：Long-term analysis of elemental content in airborne particulate matter by PIXE and positive matrix factorization：Annual trends and seasonal variability during 2003 and 2008，Atmospheric Environment，94，723-733，(2014)
- 10) 国土交通省：国際海事機関(IMO)第61回海洋環境保護委員会(MEPC61)の開催結果(平成22年10月4日)
- 11) 池田光広：PMF法による香川県におけるPM_{2.5}発生源解析，第58回大気環境学会年会講演要旨集，463，(2017)