

【調査研究】

岡山県内4地点の大気環境中微小粒子状物質の発生源解析について
Source Characterizations of PM2.5 in Atmospheric Environment at Four Sites in Okayama Prefecture

山田克明, 間野遼太, 西村佳恵, 赤木正章, 野村 茂, 小川 登 (大気科)
YAMADA Katsuaki, MANO Ryouta, NISHIMURA Yoshie, AKAKI Masaaki,
NOMURA Shigeru, OGAWA Noboru (Atmosphere Section)

要 旨

岡山県内4地点で観測された平成28～30年度の環境大気中の微小粒子状物質の構成成分の分析結果を用いて、Positive Matrix Factorization (PMF) 解析を行い、発生源を推定した。推定発生源として9つの因子を抽出したところ、主にバイオマス等燃焼因子、道路交通等因子及び硫酸系二次粒子因子が岡山県におけるPM2.5の主要な因子であると推測された。測定地点ごとの違いとしては、新見測定局及び総社測定局では硫酸系二次粒子因子が全体濃度の40%近くを占め、長津測定局では道路交通等因子が最も寄与した結果になった。塩生測定局では石炭燃焼及び重油燃焼因子による寄与が他の3地点に比べ多大であった。また、季節による寄与濃度の変化としては、秋季において、バイオマス等燃焼因子が他の季節に比べ増加する傾向を示した。

[キーワード：環境大気, 微小粒子状物質, 発生源解析, PMF解析]

[Key words: Atmospheric Environment, PM2.5, Source Characterization, Positive Matrix Factorization Analysis]

1 はじめに

微小粒子状物質（以下「PM2.5」という。）については、本県でも以前から実態把握に取り組んでおり、観測結果を報告してきた^{1)～14)}。本報では、平成28～30年度のPM2.5構成成分の分析結果を用いて、Positive Matrix Factorization（以下「PMF」という。）解析を行い、発生源の影響を推定したので報告する。

2 調査方法

2.1 調査地点

図1に調査地点を示す。調査地点は、県北西部の新見測定局（新見市）、県南部の総社測定局（総社市）、長津測定局（早島町）及び塩生測定局（倉敷市）とした。新見測定局及び総社測定局は大規模な事業場等の少ない市街地に設置された一般環境大気測定局（以下「一般局」という。）であり、長津測定局は幹線道路沿いに設置された自動車排出ガス測定局（以下「自排局」という。）である。塩生測定局は石油精製や石油化学、鉄鋼、自動車等の業種が集積している瀬戸内海沿岸の水島工業地帯の東側に位置する一般局である。

2.2 試料採取及び成分測定

試料採取及び成分測定の詳細は既報¹¹⁾と同様に、「大気中微小粒子状物質成分測定マニュアル」（環境省水・大



図1 調査地点

気環境局, 平成24年4月) に準じているが、試料採取数には季節間で偏りがある（基本的に春季・秋季14日間, 夏季・冬季7日間）。構成成分の分析結果は有効数字2桁で取り扱い、検出下限値未満の場合は同値の1/2を用いて解析した。

2.3 発生源寄与解析

発生源寄与の推定は、既報¹³⁾と同様に、レセプターモデルであるPMF解析により行った。解析ソフトウェアは米国環境保護庁が公開しているEPA-PMF5.0を利用した

15)。PMF解析は、多変量解析の一種で、成分濃度の時系列データセット(x)をいくつかの因子に分解し、それぞれの因子寄与(g)と因子プロファイル(f)を求める手法である。

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

ここで、 x_{ij} は試料*i*中の成分*j*の観測値、 g_{ik} は試料*i*に対する因子*k*の相対寄与、 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。モデルでは、任意の因子数*p*について計算し、次式で定義されるQ値を最小にする g_{ik} 及び f_{kj} を求める。 u_{ij} は観測における試料*i*中の成分*j*の測定に伴う不確かさである。

$$Q = \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^m \left(\frac{x_{ij} - \sum_{k=1}^p g_{ik} f_{kj}}{u_{ij}} \right)^2$$

ここで、*n*は試料数、*m*は成分数を表す。なお、このQ値の理論値は次式で算出される。

$$Q_{(\text{theory})} = n \times m - p \times (n + m)$$

2.4に記述した不確かさの算出や各成分の重み付け、その他の実行手順はソフトウェアのユーザーガイドに準じた¹⁵⁾。

2.4 解析条件

表1に解析条件を示す。本報では、ソフトウェアで計算する前に、イオンバランス及びマスクロージャーモデルを利用してデータスクリーニングを行った。PM2.5構成成分の分析結果の中で、イオンバランス（陽イオン/陰イオン式量比）が0.7～1.3の範囲から外れるデータを除外し、さらにマスクロージャーモデル（推定質量濃度 = 1.375[SO₄²⁻] + 1.29[NO₃⁻] + 2.5[Na⁺] + 1.4[OC] + [EC] + 9.19[Al] + 1.4[Ca²⁺] + 1.38[Fe] + 1.67[Ti]、なおTi濃度は測定していないため、[Ti] = 0.1[Fe]として算出した。）を用いた推定値が0.7～1.3の範囲から外れるデータを除外した。各成分で25%値から75%値の四分位範囲から3倍を超えるデータについても除外した。その他に、解析結果の統計的な安定性についてソフトウェアの評価ツール（3.1に記述したBootstrap runなど）により確認し、安定した解が得られるまでデータスクリーニングを行った¹⁵⁾。

不確かさのデータマトリクスは各成分の検出下限値と誤差割合（15%）により算出して作成した。モデル全体に係る不確かさ（Extra Modeling Uncertainty）は0%に設定した。

各成分の重み付けについては、検出下限値未満のデータ数の割合を基に行った。検出下限値未満の割合が3%を超過する項目（Cr, Ni, Al, Cu, Mg²⁺, Ca²⁺, NO₃⁻）はWeak（不確か性を3倍）に、50%を超過する項目（Cl⁻）はBad（解析から除外）に、それら以外の項目はStrong（変更無し）に設定した。なお、PM2.5（質量濃度）はWeak, Total Variableに設定した。

表1 解析条件

対象期間	平成28年度	平成29年度	平成30年度
春季/	H28/5/9～5/22	H29/5/10～5/23	H30/5/9～5/22
夏季/	H28/7/25～7/31	H29/7/24～7/30	H30/7/23～7/29
秋季/	H28/10/19～11/1	H29/10/19～11/1	H30/10/18～10/31
冬季/	H29/1/23～1/29	H30/1/22～1/28	H31/1/21～1/27
検出下限値未満の濃度データ	検出下限値の1/2で置換		
解析データ数	288		
解析対象項目	OC, EC, Mn, Cr, Ni, As, Al, Fe, Zn, Cu, V, Pb, Na ⁺ , NH ₄ ⁺ , K ⁺ , Mg ²⁺ , Ca ²⁺ , Cl ⁻ , NO ₃ ⁻ , SO ₄ ²⁻ , PM2.5		
不確か性データ	検出下限値 誤差割合 15%, EMU 0%		
重み付け	Strong	OC, EC, Mn, As, Fe, Zn, V, Pb, Na ⁺ , NH ₄ ⁺ , K ⁺ , SO ₄ ²⁻	
	Weak	Cr, Ni, Al, Cu, Mg ²⁺ , Ca ²⁺ , NO ₃ ⁻ , PM2.5	
	Bad	Cl ⁻	

3 結果

3.1 因子数の決定

図2に因子数とQ値の関係を示す。図中の両者の関係は、因子数を5から10の間で変化させて、繰り返し計算数20回で得られたQ (True)（外れ値を除外せずに算出したQ値）とQ (Robust)（外れ値を除外して算出したQ値）の平均値及び相対標準偏差の変化を表している。表1の条件で解析したところ、因子数9において計算値Q (True)とQ (Robust)が理論値Q (Theory)に近づき、相対標準偏差RSD (True)とRSD (Robust)も最小になった。さらに因子数9としたときには、Bootstrap run（計算回数100回、Minimum Correlation R-Value 0.6）によるマッ

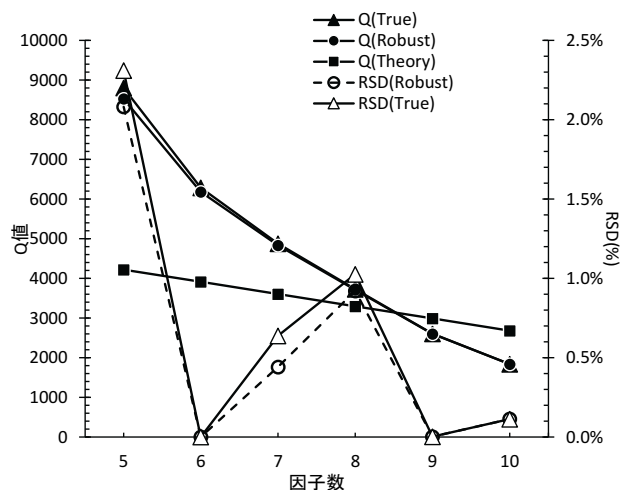


図2 因子数とQ値の関係

表2 Bootstrapの結果 (因子)

Base Bootstrap	因子1	因子2	因子3	因子4	因子5	因子6	因子7	因子8	因子9	Unmapped
因子1	100	0	0	0	0	0	0	0	0	0
因子2	0	100	0	0	0	0	0	0	0	0
因子3	0	0	100	0	0	0	0	0	0	0
因子4	0	0	0	94	1	0	5	0	0	0
因子5	0	1	0	0	99	0	0	0	0	0
因子6	0	0	0	0	0	100	0	0	0	0
因子7	0	0	0	0	0	0	100	0	0	0
因子8	0	0	0	0	0	0	0	100	0	0
因子9	0	0	0	0	0	0	0	0	100	0

ピングの当てはまりは、表2に示すとおり、いずれの因子も計算回数とほぼ同じで良好な結果を示した。Q値及びBootstrap runのマッピングから、因子数9で解析した結果が統計的に安定な解であると判断した。

3.2 因子の推定

図3に表1の解析条件の下、繰り返し計算100回で抽出された9つの因子に占める各成分の相対比を示す。各成分は因子1～9の合計で100%になる。因子間の成分相対比の

中で、負荷の大きい指標成分に着目し、調査地点周辺の状況を勘案した上で次のとおり発生源を推定した^{16)～22)}。

因子1は、石炭燃焼の指標成分とされるAsやPbの負荷が大きいために石炭燃焼の寄与を表すと解釈された。

因子2は、NO₃の負荷が大きく、廃棄物燃焼の指標成分であるZn、Pb、Cr、Cu成分の負荷も大きいことから、二次生成された硝酸系エアロゾル+廃棄物燃焼の複合因子と解釈された。

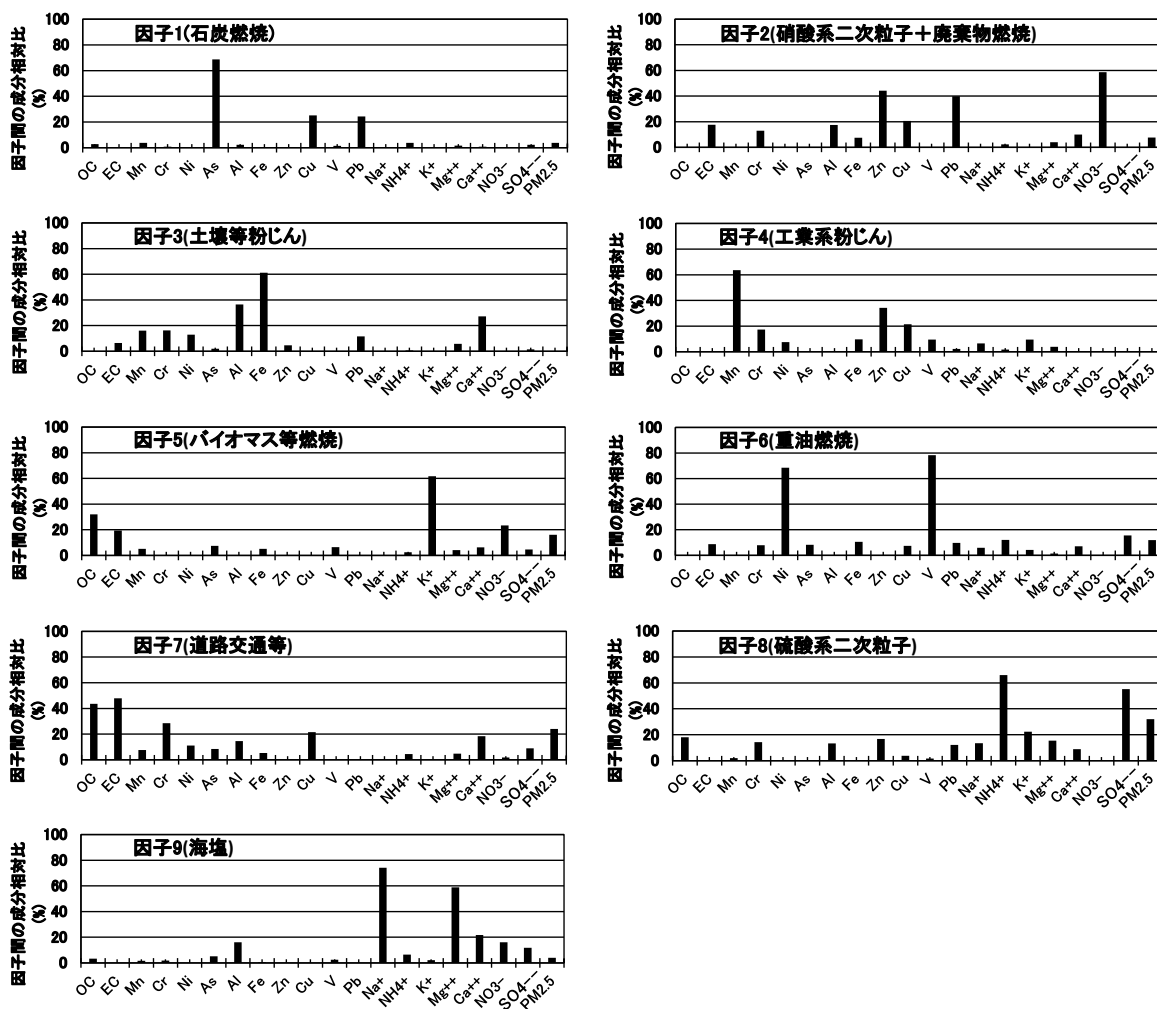


図3 抽出された因子間の成分相対比 (成分相対比から推定される発生源を因子に括弧で記載)

因子3は、土壌粒子の指標成分とされるAl、Fe及びCa²⁺の負荷が大きい上に様々な無機元素の負荷があるため、土壌粒子などを含んだ粉じんの寄与を表す因子と解釈された。

因子4は、無機元素であるMnやZnの負荷が大きいため、工業系の粉じんと解釈された。

因子5は、バイオマス燃焼の指標成分とされるOCやEC、K⁺の負荷が大きいことから、バイオマス等燃焼の寄与を表す因子と解釈された。

因子6は、重油燃焼の指標成分とされるNiやVの負荷が大きいため重油を燃料とする内燃機関の寄与を表す因子と解釈された。

因子7は、自動車排気の指標成分とされるECの負荷が大きく、タイヤ粉じんやブレーキ粉じんの指標成分とされるCuの負荷もあったことから、道路交通等因子と解釈された。

因子8は、NH₄⁺やSO₄²⁻の負荷が大きいため、二次生成された硫酸系エアロゾルと解釈された。

因子9は、海塩の指標成分とされるNa⁺の負荷が大きいため、海塩の寄与を表す因子と解釈された。

3.3 地点別の因子の寄与濃度

PMF解析の結果に基づいて地点別に各因子寄与濃度を推定した結果を図4に示す。

いずれの地点においても因子8（硫酸系二次粒子）の寄与が大きく、新見測定局及び総社測定局ではPM2.5質量濃度の40%近くを占めて他の2地点よりも高くなった（総社5.2 μg/m³ > 長津3.9 μg/m³ > 新見3.7 μg/m³ = 塩生3.7 μg/m³）。幹線道路沿いに位置する長津測定局では、他の3地点と比べて因子7（道路交通等）が高くなった（長津4.9

μg/m³ > 総社2.6 μg/m³ > 塩生2.4 μg/m³ > 新見2.2 μg/m³）。水島工業地帯の東側に位置する塩生測定局では、他の3地点に比べて因子1（石炭燃焼）及び因子6（重油燃焼）が他の3局に比べて倍以上高くなった（塩生1.1 μg/m³ + 3.0 μg/m³ > 長津0.37 μg/m³ + 1.2 μg/m³ > 総社0.26 μg/m³ + 1.1 μg/m³ > 新見0.22 μg/m³ + 0.7 μg/m³）。

3.4 季節別の因子の寄与濃度

県内4地点における季節別の因子の寄与濃度を図5に示す。

いずれの地点においても、気温が高く、日射量の多い春季及び夏季において因子8（硫酸系二次粒子）の割合が多く確認された。光化学反応による二次生成が促進されたためと推察された。

秋季において、塩生測定局以外の3地点では、因子5（バイオマス等燃焼）がPM2.5の主要な因子（新見2.2 μg/m³、総社2.0 μg/m³、長津3.0 μg/m³）の一つになった。それぞれの測定地点の付近には耕作地が存在しており、わら焼き等の野焼きによる影響が考えられた。塩生測定局は付近に耕作地が少ないため、大きな変化はなかったものと考えられた。なお、塩生測定局では因子5が通年高濃度傾向を示したが、この原因は現時点では不明である。

また、冬季において、塩生測定局では因子2（硝酸系二次粒子+廃棄物燃焼）の寄与が他の季節より増加した。冬季は風向きが工業地帯から塩生測定局に向かう傾向があることから、工業地帯の影響と推察された。

4 まとめ

岡山県内4地点で観測された平成28～30年度の環境大気中のPM2.5の成分分析結果を用いてPMF解析を行った

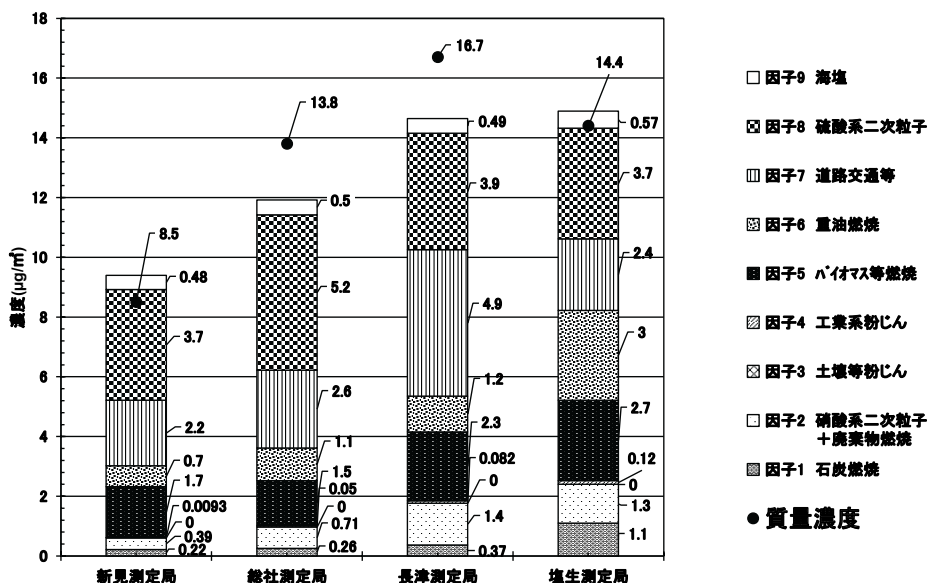


図4 地点別各因子寄与濃度の推定結果

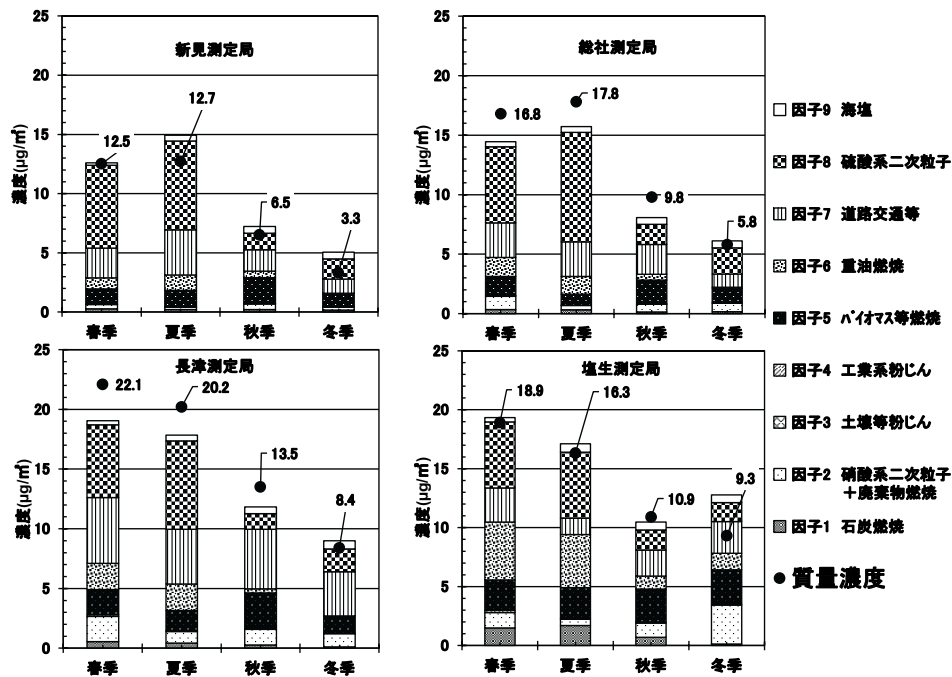


図5 季節による寄与濃度の変化

ところ、発生源として9つの因子（石炭燃焼，硝酸系二次粒子+廃棄物燃焼，土壤等粉じん，工業系粉じん，バイオマス等燃焼，重油燃焼，道路交通等，硫酸系二次粒子，海塩）が推定された。

抽出できた因子からは，岡山県におけるPM2.5の主要な発生源が因子5(バイオマス等燃焼)，因子7(道路交通等)及び因子8(硫酸系二次粒子)であることが推測できた。

測定地点ごとの違いとしては，新見測定局及び総社測定局では因子8(硫酸系二次粒子)が全体濃度の40%近くを占め，長津測定局では因子7(道路交通等)が最も寄与した結果になった。塩生測定局では因子1(石炭燃焼)及び因子6(重油燃焼)による寄与が他の3地点に比べ多であった。

季節による寄与濃度の変化としては，気温が高く，大気中で光化学反応による硫酸系二次粒子の生成が促進される春季及び夏季において，因子8(硫酸系二次粒子)の寄与が大きく，気温が低くなる秋季及び冬季には寄与濃度が大きく低下した。また，耕作地で野焼きが行われる秋季において，因子5(バイオマス等燃焼)による寄与が大きくなる傾向を示した。さらに，工業地帯から塩生測定局の方向に風が吹く傾向がある冬季において，因子2(硝酸系二次粒子+廃棄物燃焼)による寄与が大きかった。

文 献

1) 喜多真帆，中野温朗，野村 茂，信森達也，鷹野 洋：自動測定機を用いたPM2.5 とSPM及びその他の物質

の相関について，岡山県環境保健センター年報，38，1-5，2014

2) 中野温朗，深見武史，喜多真帆，野村 茂，信森達也ら：岡山県におけるPM2.5に係る平成23年度の観測結果について，岡山県環境保健センター年報，37，1-8，2013

3) 杉山広和，信森達也，野村 茂，前田 泉：環境中の大気汚染物質に関する研究（微小粒子PM2.5による大気汚染）-第2報-，岡山県環境保健センター年報，32，7-10，2008

4) 杉山広和，信森達也，前田 泉：環境中の大気汚染物質に関する研究（微小粒子PM2.5による大気汚染）-第3報-，岡山県環境保健センター年報，32，11-16，2008

5) 杉山広和，石井尚志，野村 茂，門田 実，前田 泉：環境中の大気汚染物質に関する研究（微小粒子状物質PM2.5による大気汚染）-第4報-，岡山県環境保健センター年報，33，1-5，2009

6) 石井尚志，野村 茂，中桐未知代，山辺真一：環境中の大気汚染物質に関する研究（微小粒子PM2.5による大気汚染）-第5報-，岡山県環境保健センター年報，34，7-10，2010

7) 林 隆義，中桐未知代，野村 茂，小川 登，片岡敏夫ら：環境中の大気汚染物質に関する研究（微小粒子PM2.5による大気汚染）-第6報-，岡山県環境保健センター年報，35，1-7，2011

- 8) 中桐未知代, 吉岡敏行, 林 隆義, 野村 茂, 中桐基晴: 環境中の大気汚染物質に関する研究(微小粒子PM2.5による大気汚染)-第7報-, 岡山県環境保健センター年報, 35, 9-18, 2011
- 9) 林 隆義, 中桐未知代, 野村 茂, 小川 登, 深見武史ら: 環境中の大気汚染物質に関する研究(微小粒子状物質PM2.5による大気汚染)-第8報-, 岡山県環境保健センター年報, 36, 1-8, 2012
- 10) 中桐未知代, 林 隆義, 野村 茂, 小川 登, 深見武史ら: 環境中の大気汚染物質に関する研究(微小粒子状物質PM2.5による大気汚染)-第9報-, 岡山県環境保健センター年報, 36, 9-16, 2012
- 11) 中野温朗, 間野遼太, 喜多真帆, 野村 茂, 信森達也ら: 岡山県下における微小粒子状物質の成分の実態について, 岡山県環境保健センター年報, 39, 1-9, 2015
- 12) 中野温朗, 間野遼太, 喜多真帆, 野村 茂, 信森達也ら: 岡山県下における微小粒子状物質の成分の実態について(第2報), 岡山県環境保健センター年報, 39, 11-19, 2015
- 13) 中野温朗, 間野遼太, 喜多真帆, 野村 茂, 信森達也ら: 岡山県下2地点の大気環境中微小粒子状物質の発生源解析について, 岡山県環境保健センター年報, 41, 5-10, 2017
- 14) 間野遼太, 山田克明, 中野温朗, 野村 茂, 信森達也ら: 岡山県における微小粒子状物質の成分分析結果(平成29年度), 岡山県環境保健センター年報, 42, 1-8, 2018
- 15) U.S.EPA:Positive Matrix Factorization Model for environmental data and analyses(2014), <https://www.epa.gov/air-research/positive-matrix-factorization-model-environmental-data-analyses> (2019年6月20日アクセス)
- 16) 環境省:微小粒子状物質(PM2.5)の成分分析ガイドライン, 2011
- 17) 環境省:大気中微小粒子状物質成分測定マニュアル無機元素測定法, 2012
- 18) 飯島明宏:大気モデル-第5講 レセプターモデル-, 大気環境学会誌, 46 (4), A53-A60, 2011
- 19) 大内伸保, 山内正信:PMF法を用いた微小粒子状物質(PM2.5)の発生源寄与の推定, 愛媛県立衛生環境研究所年報, 18, 10-17, 2015
- 20) 中坪良平, 竹本智美, 平木隆年:兵庫県におけるPM2.5の発生源解析に関する研究-その1-, 兵庫県環境研究センター紀要, 7, 1-7, 2016
- 21) 山村由貴, 山本重一, 力 寿雄, 梶原佑介:福岡県における微小粒子状物質(PM2.5)濃度の実態把握, 福岡県保健環境研究所年報, 43, 93-98, 2016
- 22) 豊永悟史, 出納由美子, 北岡宏道, 村岡俊彦:レセプターモデルを用いた熊本県におけるPM2.5発生源寄与の推定-離島との比較による越境/地域汚染の影響の解析-, 大気環境学会誌, 52 (5), 2017