

【調査研究】

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
Source Characterizations of PM2.5 at Two Sites in Okayama Prefecture

中野温朗, 間野遼太, 喜多真帆, 野村 茂, 信森達也, 鷹野 洋 (大気科)

Atsurou Nakano, Ryouta Mano, Maho Kita, Shigeru Nomura,

Tatsuya Nobumori, Hiroshi Takano (Atmosphere Section)

要 旨

岡山県内2地点で観測された平成24～27年度までの環境大気中の微小粒子状物質の成分分析結果を用いて、Positive Matrix Factorization (PMF) 解析を行い、発生源の影響を推定した。推定発生源として8つの因子を抽出したところ、総社測定局では硫酸系二次粒子因子が全体濃度の過半近くを占め、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。どちらの地点でもバイオマス等燃焼因子が主要な因子の一つになった。

[キーワード：微小粒子状物質, 発生源解析, PMF]

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

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実態把握に取り組んでおり、観測結果を報告してきた^{1)～12)}。本報では、平成24～27年度までの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

調査地点は、県中南部の総社測定局（総社市）、県南部の長津測定局（早島町）とした。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。図1に調査地点を示す。

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に示したとおり¹¹⁾、「大気中微小粒子状物質成分測定マニュアル（環境省平成24年4月）」に準じている。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）。構成成分の測定結果は有効数字2桁で取り扱い、検出下限値未満の場合は同値の1/2を、定量下限値未満の場合は有効数字2桁の測定値を用いて解析した。

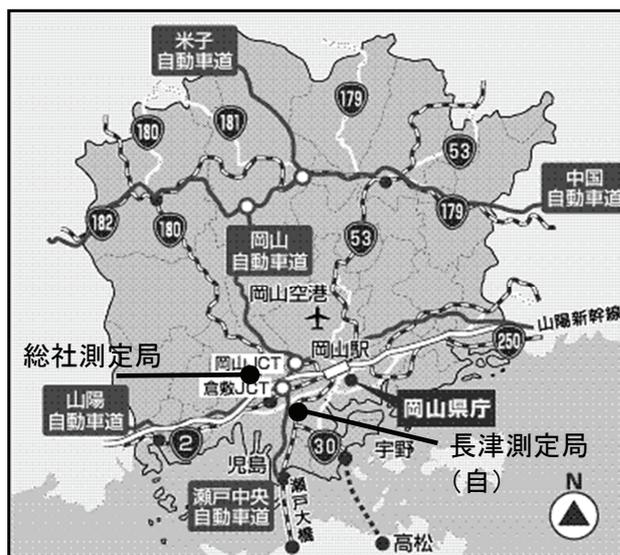


図1 調査地点

2.3 発生源寄与解析

発生源寄与の推定は、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¹³⁾。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。

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

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。

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

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¹³⁾。

2.4 解析条件

表1に解析条件をまとめて示した。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なかで、イオン成分のイオンバランス（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¹³⁾。

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（20%）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、ソフトウェアで算出されたSignal/Noise（S/N）比が解析対象項目すべてで1以上になったため、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（Ni、Mg²⁺、Ca²⁺、Cl⁻）はWeakに、それら以外の項目はStrongに設定した。なお、PM2.5（質量濃度）はWeak、Total Variableに設定した。上記の条件で解析後、予測値と実測値の決定係数が低かったAlをStrong からWeakに変更し、再解析した。

3 結果

3.1 因子数の決定

図2に因子数と Q 値の関係を示した。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8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8としたときには、Bootstrap run（計算回数100回、Minimum Correlation R-Value 0.6）によるマッピングの当てはまりはいずれの因子も計算回数に近く良好な結果を示し（表2-1）、発生源の指標とした成分は概ね25%値から75%値の四分位範囲に入っていた（表2-2）。 Q 値、Bootstrap runのマッピング及び指標成分の四分位範

表1 解析条件

対象期間	平成24年度	平成25年度	平成26年度	平成27年度
春季/	H24/5/9～5/22	H25/5/9～5/22	H26/5/8～5/21	H27/5/8～5/21
夏季/	H24/7/26～8/1	H25/7/29～8/4	H26/7/28～8/3	H27/7/27～8/2
秋季/	H24/10/23～11/5	H25/10/23～11/5	H26/10/22～11/4	H27/10/20～11/2
冬季/	H25/2/13～2/19	H26/1/27～2/2	H27/1/26～2/1	H28/1/25～1/31
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	229			
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⁻ ,PM _{2.5}			
不確かデータ	検出下限値 誤差割合 20%, EMU 0%			
重み付け	Strong	OC,EC,Mn,Cr,As,Fe,Zn,Cu,V,Pb,Na ⁺ ,NH ₄ ⁺ ,K ⁺ ,NO ₃ ⁻ ,SO ₄ ²⁻		
	Weak	Ni,Al,Mg ²⁺ ,Ca ²⁺ ,Cl ⁻ ,PM _{2.5}		
	Bad	なし		

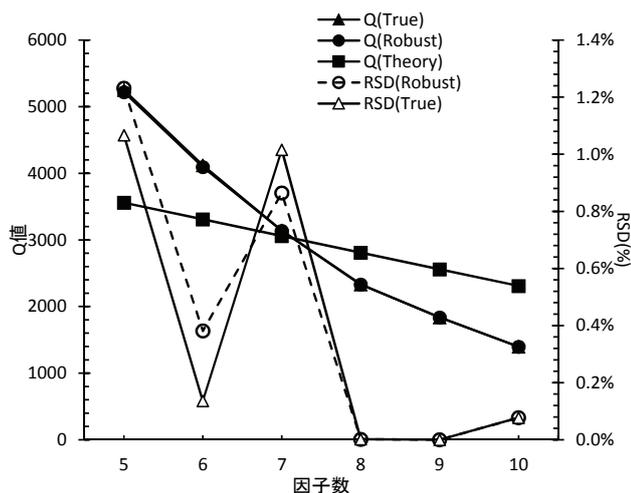


図2 因子数とQ値の関係

囲への適合状況から、因子数8とした解析結果が統計的に安定且つ堅牢な解であると判断した。

3.2 因子の推定

図3に表1の解析条件のもと繰り返し計算100回で抽出された8つの因子に占める各成分の相対比を示した。各成分は因子1～8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^{14)～18)}。

因子1は、 NH_4^+ や SO_4^{2-} 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2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3は、Clや NO_3^- の負荷が大きいため二次生成された塩化物系エアロゾルや硝酸系エアロゾルを表す因子と解釈された。因子4は、自動車排気の指標成分とされるECの負荷が大きく、タイヤ粉じんやプ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5は、土壌粒子の指標成分とされるAlや Ca^{2+} の負荷が大きいうえ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6は、バイオマス燃焼の指標成分とされるOCやEC、 K^+ の負荷が大きいため、バイオマス等燃焼の寄与を表す因子と解釈された。因子7は海塩の指標成分とされる Na^+ やCl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。因子8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石炭燃焼の寄与を表すと解釈された。

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に示した。総社測定局では、因子1（硫酸系二次粒子）の寄与濃度がPM2.5質量濃度の1/3近くを占めて長津測定局よりも高くなった（総社 $7.6\mu\text{g}/\text{m}^3$ > 長津 $6.6\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）。幹線道路沿いに位置する長津測定局では、市街地にある総社測定局と比べて多くの因子で寄与濃度が高く推定されたなか、特に因子4（道路交通等）が高くなった（長津 $6.8\mu\text{g}/\text{m}^3$ > 総社 $1.7\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）。

総社測定局、長津測定局の両地点とも因子1に加えて因子6（バイオマス等燃焼）が主要な因子（総社 $5.8\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、長津 $5.0\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）の一つになった。両地点ともに周辺には耕作地が存在しており、バイオマス燃焼の発生する可能性があった。

4 まとめ

岡山県内2地点で観測された平成24～27年度までの環境大気中のPM2.5の成分分析結果を用いて、PMF解析を行ったところ、発生源として8つの因子（硫酸系二次粒子、重油燃焼、塩化物・硝酸系二次粒子、道路交通等、土壌等粉じん、バイオマス等燃焼、海塩、石炭燃焼）が推定された。抽出できた因子からは、総社測定局では、因子1の寄与濃度（総社 $7.6\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、長津 $6.6\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）がPM2.5質量濃度（総社 $21.0\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、長津 $25.5\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）の1/3近くを占めて長津測定局よりも高くなった。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（因子4:総社 $1.7\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、長津 $6.8\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）。どちらの地点でもバイオマス等燃焼因子が主要な因子の一つになった（因子6:総社 $5.8\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、長津 $5.0\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）。

表2-1 Bootsrp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	Unmapped
因子1	100	0	0	0	0	0	0	0	0
因子2	0	100	0	0	0	0	0	0	0
因子3	0	0	100	0	0	0	0	0	0
因子4	0	0	0	95	0	5	0	0	0
因子5	0	0	0	0	100	0	0	0	0
因子6	0	0	0	0	0	100	0	0	0
因子7	0	0	0	0	0	1	98	1	0
因子8	0	0	0	0	0	0	0	100	0

表2-2 Bootsrpの結果 (因子内の成分)

成分	因子1	因子2	因子3	因子4	因子5	因子6	因子7	因子8
OC	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes
EC	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes
Mn	Yes							
Cr	Yes	Yes	Yes	Yes	No	Yes	Yes	Yes
Ni	No	Yes	Yes	Yes	No	Yes	Yes	Yes
As	Yes	Yes						
Al	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes
Fe	Yes	Yes	Yes	Yes	No	No	Yes	Yes
Zn	Yes							
Cu	Yes							
V	No	Yes	Yes	Yes	No	Yes	Yes	Yes
Pb	Yes	Yes	No	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes
Na ⁺	No	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes
NH ₄ ⁺	Yes	No	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes
K ⁺	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes
Mg ²⁺	No	Yes						
Ca ²⁺	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes
Cl ⁻	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes
NO ₃ ⁻	Yes	Yes	No	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes
SO ₄ ²⁻	Yes	No	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes
PM2.5	Yes							

*Base因子の各成分がBootstrap因子プロファイルの成分濃度分布の四分位範囲に入っているものはYes, 入っていないものはNoで示した

*発生源推定の指標となる成分は太字・網掛けで示した

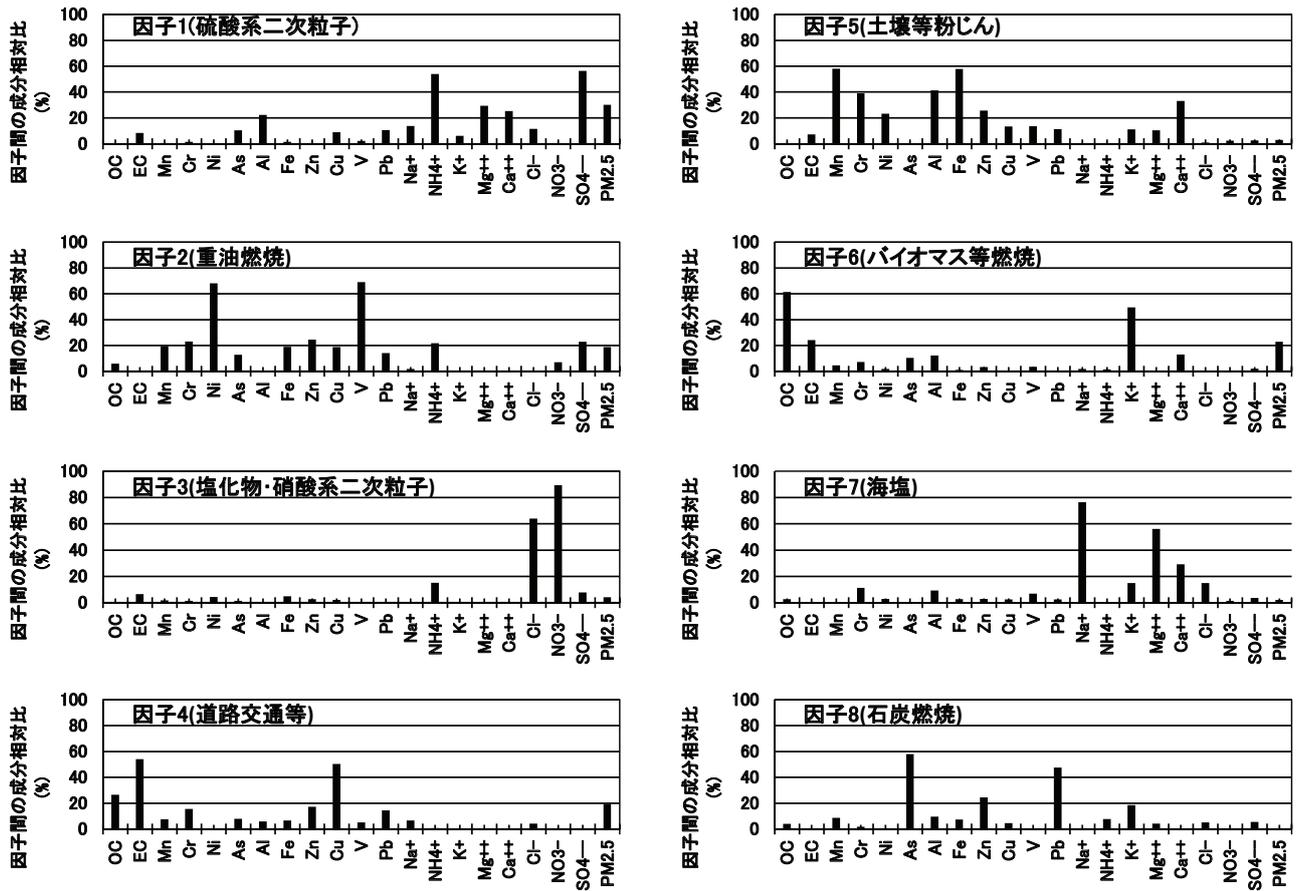


図3 抽出された因子間の成分相対比

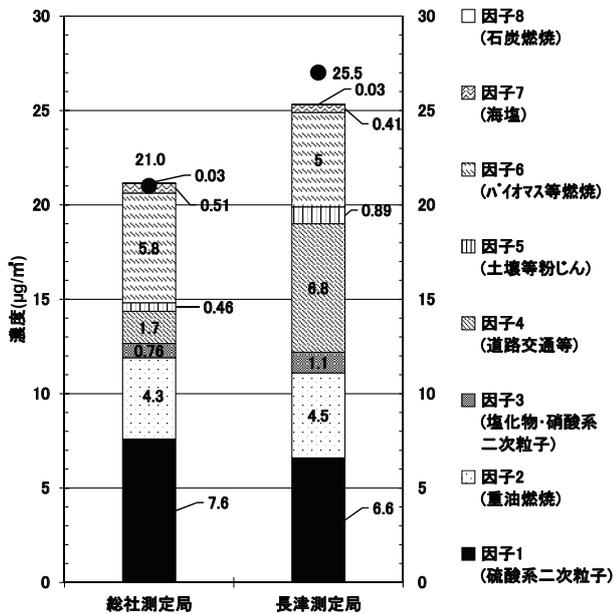


図4 地点別各因子寄与濃度の推定結果

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, 鷹野 洋: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, 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, 中桐基晴: 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, 中桐基晴: 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, 鷹野 洋: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, 鷹野 洋: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) 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>
- 14) 微小粒子状物質 (PM2.5) の成分分析ガイドライン 平成23年7月 環境省
- 15) 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 平成24年4月 環境省
- 16) 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, A53-A60, 2011
- 17) 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
- 18) 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