

長崎県における春季の微小粒子状物質の成分特徴について (2014～2016年)

土肥 正敬、田村 圭¹、富永 勇太²

1 現所属:長崎県環境部環境政策課 2 現所属:長崎県県南保健所

長崎県では、2014年から2016年にかけて春季のPM2.5採取及び成分分析を県内2地域で実施した。収集したPM2.5成分データについて発生源種別をPositive matrix factorization (PMF解析)により、発生源位置をConcentration Weighted Trajectory (CWT解析)により推定した。この結果、最も高濃度化に寄与していたのはSO₄²⁻、NH₄⁺を指標とする硫酸系二次生成粒子と推定された。併せて、硫酸系二次生成粒子の発生源位置をCWT解析により推定したところ大陸側からの移流が示唆されたが、その発生源寄与は年々減少していると推定された。

キーワード：PM2.5成分分析、発生源推定、越境移流

はじめに

微小粒子状物質（以下、「PM2.5」という）は粒径2.5 μmの非常に小さな粒子であるため人体へ取り込まれやすく、呼吸器系や循環器系などへ健康被害を及ぼす可能性が指摘されていることから近年注目されるようになった。

環境省は2009年にPM2.5質量濃度の環境基準を設定するとともに、いわゆる大気汚染防止法に係る事務処理基準¹⁾を改正し、全国的なPM2.5監視測定体制の整備を進めてきた。この一環として、2011年にはPM2.5成分分析ガイドラインが策定され、「地方自治体は、環境基準の達成状況を把握するために質量濃度の測定を行うとともに、特定の発生源への対策等、地域独自の対策の検討を行うために成分分析を行うことが求められる。」とする方針が示された。これにより、PM2.5構成成分について各自自治体の主導による常時監視体制の整備が進められ、2016年度時点ではほぼ全ての都道府県で実施されるに至っている。加えて、全国の地方環境研究所が独自に取り組む研究課題にもPM2.5が取り上げられるようになり、今日までその実態解明が進められてきた。環境保健研究センター（以下、「環保研」という）においても、特に高濃度が観測されやすい春季におけるPM2.5成分分析を実施したので、発生源推定結果と併せて報告する。

材料および方法

1 調査地点



図1 試料採取地点

調査地点を図1に示す。県内2地点で同時にPM2.5試料を採取した。1地点目は離島地区の五島局とした。2地点目は、本土地区の諫早局としたが、都合により環保研と大村局に地点変更した期間がある。

2 調査日数

調査日数を表1に示す。2014年から2016年の3年にわたって、春季（概ね3月から5月）にPM2.5試料を採取した。採取日数はのべ408日間であった。内訳は、五島局186日間、諫早局168日間、環保研27日間、大村局27日間である。なお、前述のとおり、調査期間3年を通じて地点変更がなかったのは、離島地区（五島局）だけである。

表 1 地点毎の試料採取日数

		(単位:日)			
年	月	離島地区		本土地区	
		●五島局	●諫早局	●環保研	●大村局
2014	2		10		
	3		29		
	4				
	5	21		22	
	6			5	
2015	3	29		30	
	4	30		25	
	5	27		25	
	6			1	
2016	3	30		31	
	4	25		17	3
	5	24			24
小計		186	168	27	27

合計408日

3 試料採取

試料採取方法及び使用機器を表 2 に示す。試料採取は、原則、成分分析ガイドライン²⁾及び成分測定マニュアル³⁾に準拠した。連日、正午から積算流量 24m³ の大気試料をフィルター採取、成分分析に供した。使用したフィルターの大きさは Φ47 mm で、石英製もしくは PTFE 製のものを用いた。石英製フィルターは炭素成分とイオン成分の分析に、PTFE 製フィルターは無機成分分析に使用した。

表 2 試料採取方法及び使用機器

採取方法	使用機器
正午開始, 16.7 L/min, 24hr	FRM2025 series (H26年2~3月はLV-250)

4 成分分析

成分分析方法と測定項目を表 3 に示す。成分分析は、原則、成分分析ガイドライン及び成分測定マニュアルに準拠した。なお、質量濃度は秤量法ではなく、調査地点近傍にある自動測定機の日平均値(μg/m³)を参照した。

表 3 成分測定項目及び使用機器

測定項目	使用機器
質量濃度(μg/m³)	
五島局・諫早局	自動測定機(機種:PM-712)
大村局	自動測定機(機種:FPM-377)
環保研	(大村局測定値を参照)
炭素成分(μg/m³)	熱分離・光学補正式炭素計
水溶性有機炭素	全有機体炭素計
無機成分(ng/m³)	誘導結合プラズマ質量分析計
イオン成分(μg/m³)	イオンクロマトグラフ
測定項目(詳細)	
炭素成分	有機性炭素(OC)、無機炭素(EC)
3項目	水溶性有機炭素(WSOC)
無機成分	Al, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, As, Se, Rb, Mo, 22項目
	Cd, Ba, La, Ce, Sm, Hf, W, Pb
イオン成分	Cl, NO ₃ ⁻ , SO ₄ ²⁻ , Na ⁺ , NH ₄ ⁺ , K ⁺ , Mg ²⁺ , Ca ²⁺ , シュウ酸
9項目	

5 発生源解析

(1) 発生源種類の推定

米国環境保護庁が提供するソフトウェア EPA PMF5.0 を使用して、レセプターモデル解析のひとつである positive matrix factorization (以下、「PMF 解析」という)⁴⁾ による発生源種類の推定を試みた。変数に PM2.5 質量濃度を追加し、測定項目の重み付けを表 4 のとおりとした。モデル全体の不確かさを一律 15%とし、100 回計算を実行した。

なお、PMF 解析結果について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 Q_{exp} 値が近似しているか (2 倍以下)
- ・PM2.5 構成成分の実測値と推定値の相関係数
- ・Bootstrap 結果の IQR 値及び mapping 値
- ・PM2.5 (Total variable) の寄与が 0 でないこと

表 4 PMF 解析における各成分の重み付け

	Total variable	イオン成分	無機成分	炭素成分
Strong		NO ₃ ⁻ , SO ₄ ²⁻ , Na ⁺ , NH ₄ ⁺ , Mg ²⁺ , Ca ²⁺	Al, Ti, V, Mn, Fe, Co, Cu, As, Se, Rb, Cd, Ba, La, Ce, W, Pb	
Weak (予測から除外)	PM _{2.5}	K ⁺	Ni, Mo	OC, EC
Bad (解析から除外)		Cl, シュウ酸	Cr, Zn, Sm, Hf,	WSOC

(2) 発生源位置の推定

Yaqiang Wang 氏が提供する MeteoInfo Trajectory Statistics plugin (version 1.4.4R5) を用いて Concentration weighted trajectory (以下、「CWT 解析」という)⁵⁾ による発生源位置の推定を試みた。なお、CWT 解析に投入する変数には、前述の PMF 解析により推定された発生源の寄与濃度(μg/m³)を使用した。解析条件は以下のようにした。

- 後方流跡線:NOAA-HYSPLIT
- 遡及時間:72 時間
- 描画頻度:1 時間毎
- グリッド:0.5 度 x 0.5 度
- 遡及起点:本土地区(諫早局、環保研、大村局)
- 起点高度:500, 1000, 1500 m

結果および考察

1 PM2.5 質量濃度の経年変化等について

長崎県では全 18 地点において PM2.5 質量濃度常時監視を実施しており、環境基準達成地点は既報⁶⁾のとおり経年的に増える傾向にあった。ここでは、本研究で PM2.5 成分分析を実施した 3 地点(五島局、諫早局及び大村局)における PM2.5 質量濃度について、過去 4 年間(2013 から 2016 年度)のデータを図 2 に示す。なお、図中の赤枠は本研究において成分分析を実施した期間を示している。

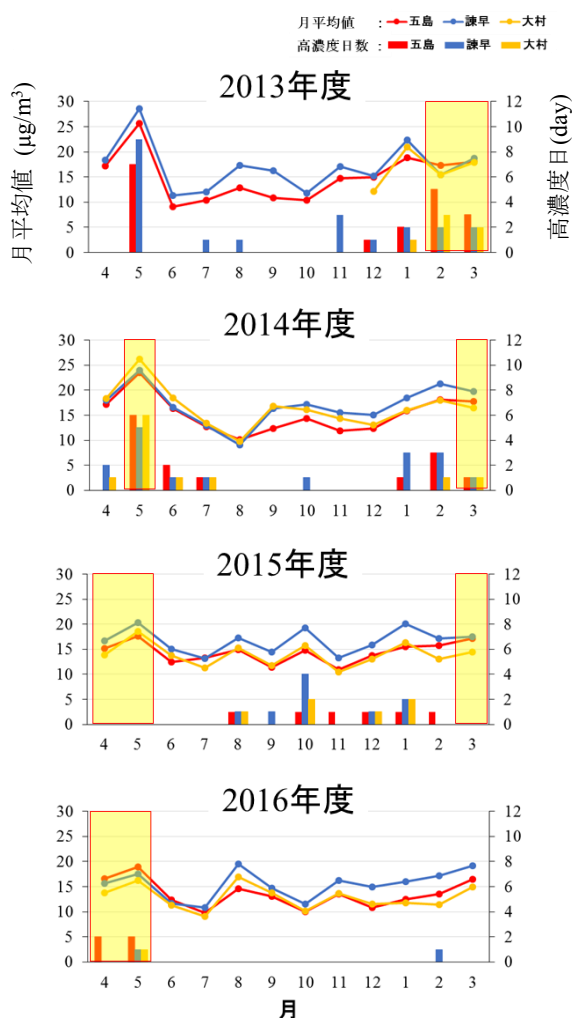


図2 PM2.5 月平均値の推移 (2014-2016 年度)
※赤枠は成分分析を実施した期間を示す

(1) PM2.5 月平均値

月平均値について、2014 年度までは春季の濃度上昇が特徴的であるが、2015 年度以降は観測されなかった。

また、諫早局の月平均値は五島局や大村局と挙動が似ているものの、概ね諫早局がわずかに高濃度であった。このことは、他地点と比べて地域発生源(道路交通や産業活動等)が多いと推察される諫早局での濃度の上乗せが考えられる。

(2) PM2.5 日平均値の高濃度日

日平均値が 35 µg/m³ を超過した日を高濃度日として集計した。

2014 年度までは冬から春にかけて高濃度日が多く観測されており、偏西風の影響により大陸からの越境汚染を受けやすいとされる長崎県の特徴と考えられた。しかし、2015 年度以降は冬春の高濃度日がほとんど観測されておらず、経年傾向に変化がみられた。

2 発生源種類の推定

(1) 発生源種類とその指標成分

PMF 解析を用いて、春季の PM2.5 成分データから発生源種類の推定を行った。この結果、7 種類の発生源が推定された。各発生源の指標成分を表 5 及び図 3 に示す。なお、指標成分に対する各発生源の割り当ては文献⁷⁻¹⁴⁾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。

(a) 海塩

海塩粒子は Na⁺, Mg²⁺, Cl⁻ が指標となるが、本解析から Cl⁻ を除外しているため Na⁺ と Mg²⁺ のみで検討した。この発生源の寄与は大きくないが、漫然と一定量が存在する点で海塩粒子の特徴があった(図なし)。なお、Cl⁻を解析から除外した理由は検出下限値未満のデータが多かったためであるが、原因のひとつとしてクロリンロス (NaCl + HNO₃ → NaNO₃ + HCl)¹⁵⁾ の影響などが考えられる。

(b) 工業系

複数の無機成分が含まれる発生源を工業系としたが、特定の事業所を示すものではない。As, Se が含まれるため石炭燃焼を含む事業所の可能性もあるが、本解析では分離できなかった。

(c) 土壌系

Ti, Al, Fe など特徴的な無機成分を含む発生源を土壌系とした。黄砂観測日にその寄与度が大きくなることが多い。

(d) 石油燃焼系

V, Ni など特徴的な無機成分を含む発生源を石油燃焼とした。石油燃焼灰に V, Ni 等が含まれることは広く知られており¹⁵⁾、また、石油精製グレードや燃焼機関によってその組成が異なる。例えば、船舶とその他の産業では石油燃焼灰の組成が異なることもありうるが、本解析では分離できていない。

(e) 硝酸系二次生成

NO_xを指標とする発生源を硝酸系二次生成とした。本来、単一の指標成分で一次排出粒子か二次生成粒子かを判断することは難しいが、既報⁶⁾において長崎県全域で PM2.5 と NO_x (ガス状物質) の相関が高くなかったことから、ここでは外部からの流入を想定した二次生成とした。

(f) タングステン

W を指標とする発生源をタングステンとした。後述するが、タングステンの寄与は諫早局で大きかった点で特徴的であった。

(g) 硫酸系二次生成

SO₄²⁻, NH₄⁺等を指標とする発生源を硫酸系二次生成粒子とした。本解析では SO₄²⁻, NH₄⁺が当量比約

1:2 で存在していることから、硫酸アンモニウム塩 (NH₄)₂SO₄ で存在していると考えられた。(NH₄)₂SO₄ は大気中で安定に存在することから長距離輸送され、越境汚染の指標に使われる¹⁵⁾。

表 5 PMF 解析により推定された発生源

発生源	指標成分
1 海塩	Na ⁺ , Mg ²⁺
2 工業系	Mn, Cu, As, Se, Rb, Pb, Cd
3 土壌系	Ca ²⁺ , Al, Ti, Fe, Ba, La, Ce
4 石油燃焼系	V, Ni
5 硝酸系二次生成	NO ₃ ⁻
6 タングステン	W
7 硫酸系二次生成	SO ₄ ²⁻ , NH ₄ ⁺ , OC, EC

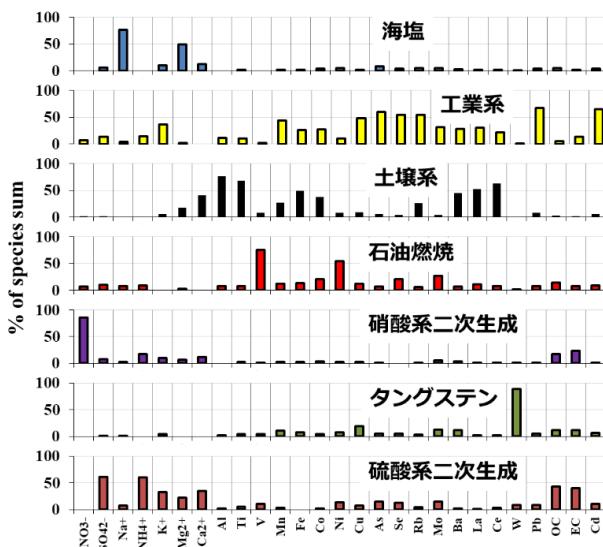


図 3 発生源プロフィール (% of species sum)

(2) 発生源寄与

(a) 地点別の発生源寄与割合

各調査地点における発生源寄与割合について図 4 に示す。

各調査地点とも、硫酸系二次生成の寄与割合が最も大きかった点で共通していた。しかし、地点毎の調査日数に差があるため、以降は特に調査期間が長かった五島局と諫早局について述べる。

調査期間中の PM_{2.5} 質量濃度を比べると五島局と諫早局は同レベルであった (18.3, 18.6 μg/m³)。

その発生源寄与割合をみると、硝酸系二次生成は五島局よりも諫早局が高くなっており (10%, 16%)、諫早局の周辺環境 (道路交通や産業活動等) に由来する一次排出源の影響を反映した結果と考えられた。

また、タングステン発生源は諫早局に特徴的な発生源であった。その寄与割合は 5%と大きくはないが、地域発生源に由来する可能性がある。ただし、タングステンは切削工具への添加材など用途はいくつかあるが、本解析においてタングステンが単独で発生源に分離された理由は不明である (例えば、タングステンが鋼材等の切削研磨に利用されるのであれば、鋼材成分を伴って飛散することも考えられる)。

一方、石油燃焼系の発生源は五島局が諫早局よりも高くなっており (9%, 5%)、周辺環境から推察すると船舶往来に由来する燃焼灰などが考えられる。

さらに、工業系の発生源は、五島局と諫早局ではほぼ同レベル (8%, 9%) であるが、特に五島局周辺で無機成分を排出する工業系発生源は想定しにくいいため、外部からの流入の可能性もある。

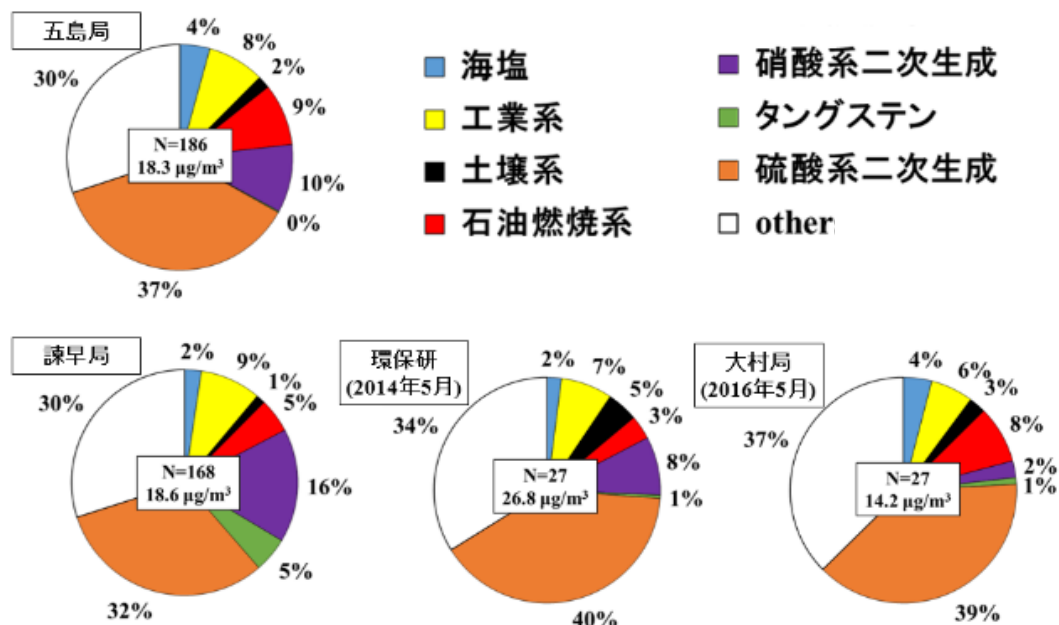


図 4 調査地点毎の発生源寄与割合 (%)

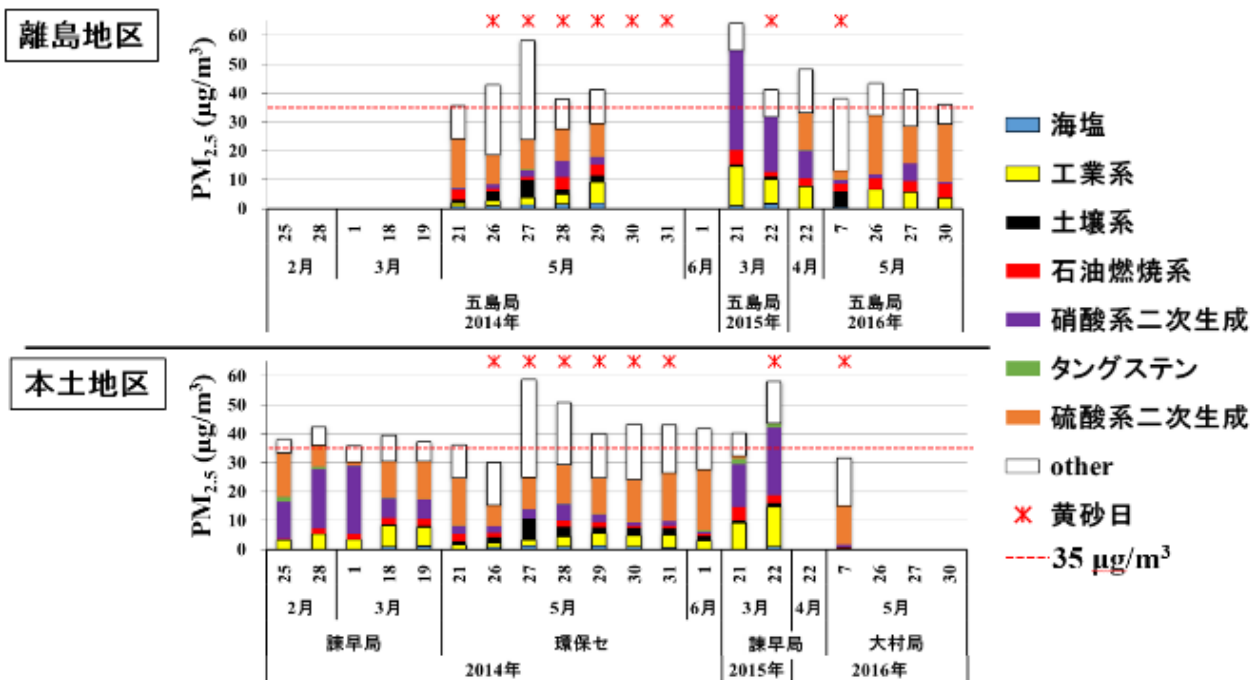


図5 高濃度日(日平均値>35µg/m³)の発生源寄与濃度 (µg/m³)

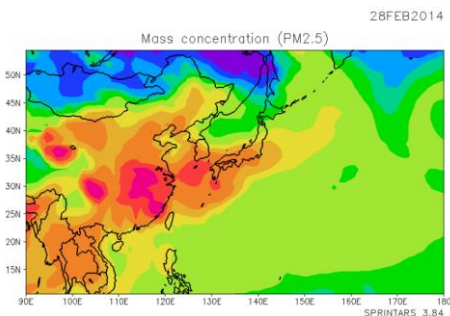


図6 高濃度事例 (2014/2/28~31)

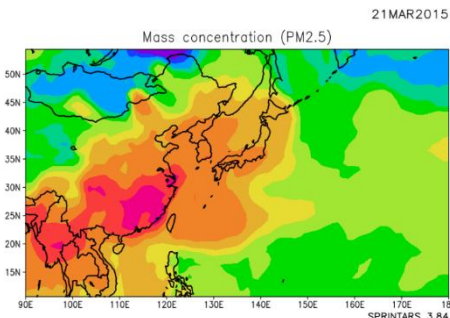


図7 高濃度事例 (2015/3/21~22)

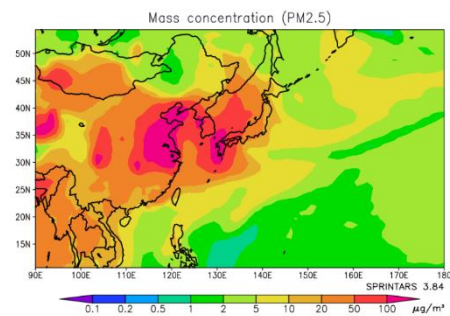


図8 高濃度事例 (2016/5/26~30)

(b) 高濃度日の発生源寄与濃度

成分分析期間において 35 µg/m³ 以上となった日を高濃度日として図5に示す。以下に高濃度事例を挙げる。なお、黄砂観測情報は気象庁 HP¹⁶⁾より入手した。

一事例目は、硝酸系二次生成によるものである。本研究では諫早局 2014/2/28~31 の事例である(図6)¹⁷⁻¹⁹⁾。また、五島局 2015/3/21~3/22 のように、黄砂発表日であっても、硝酸系二次生成を主体とする煙霧が観測された事例もあった。

二事例目は、土壌系発生源によるものである。本研究では五島局 2015/5/26~5/31 の事例などである(図7)。黄砂日は土壌発生源(図中黒)の影響が大きくなるとともに、その他の発生源 (other) の増加を伴うことが多い。これは、測定項目に含まれない炭酸塩やケイ素などの土壌由来成分によると考えられる。

三事例目は、硫酸系二次生成によるものである。本研究では、五島局 2016/5/26~30 の事例などである(図8)。

3 発生源位置の推定結果 (硫酸系二次生成)

前述の PMF 解析で推定された7つの発生源のうち、最も寄与が大きい硫酸系二次生成の発生源位置について、CWT 解析を用いて推定した結果を図9に示す。

解析準備として、本土地区3地点を起点とした後方流跡線を描画したところ、2014年度から2016年度の春季は大陸側からの移流が多いことが確認できた。続いて、硫酸系二次生成の寄与濃度 (µg/m³) を使った CWT 解析を実行した結果、大陸側からの

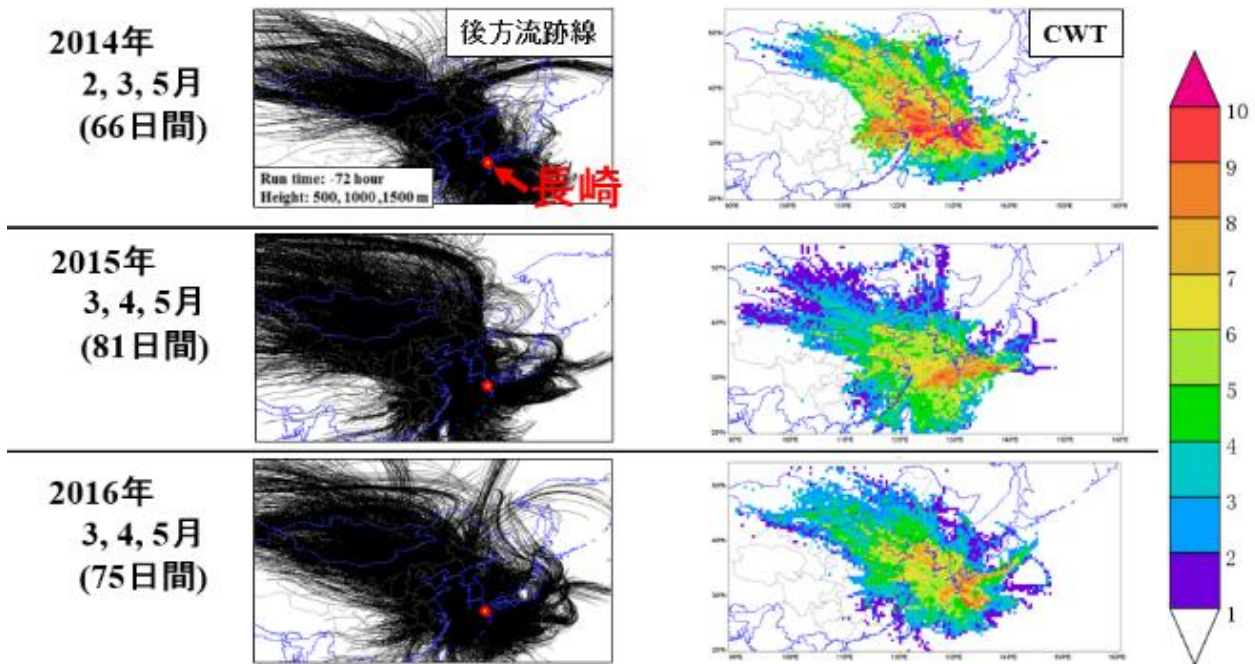


図9 高濃度日(日平均値 $>35\mu\text{g}/\text{m}^3$)の発生源寄与濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)

越境移流が経年的に減少していた。このことは、近年、春季(特に5月)のPM2.5濃度が減少している要因のひとつと考えられた。

まとめ

本研究は、長崎県におけるPM2.5の実態を把握することで、発生源対策やヒトへの影響評価の検討に資する基礎データの蓄積を目的として実施した。2014年時点では、長崎県においてPM2.5構成成分を網羅的に分析した事例は少なく、環境省が常時監視の一環として実施している離島(五島、対馬)での常時監視(年間56日間)などであった。春季に限定されるものの、本研究の成果は長崎県のPM2.5に関する新しい知見が得られるものと期待された。

本研究は離島地区と本土地区において同時にPM2.5を採取し、機器分析により得られた成分データを用いて発生源の種類と位置を推定した。この結果、春季のPM2.5発生源は7種類と推定された。調査期間を通して最も寄与が大きいのは、硫酸系二次生成(指標成分: SO_4^{2-} , NH_4^+)であったが、日平均値 $35\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超える高濃度日は、硫酸系二次生成以外の発生源の影響を強く受けている事例もあった。

また、最も寄与が大きい硫酸系二次生成の発生源位置をCWT解析により推定したところ、大局的には大陸側から流入している傾向がみえたが、その強度は経年的に小さくなっていった。このことは、春季の月平均値が経年減少している一因である可能性を示唆している。

ただし、本研究で実施したPMF解析及びCWT解析は、発生源種類及び発生源位置を推定する手法であり特定には至らないと思われる。また、その他の発生源(other)が占める割合が1/4以上を占めて

いる事実からも、環境場におけるPM2.5の挙動を正確に再現するためには多角的な成分分析やモデル解析手法の導入を検討する必要がある。

なお、当研究所では長崎大学病院及び熱帯医学研究所と共同でPM2.5健康影響調査に取り組んでおり、PM2.5が喘息患者の呼吸器機能に与える影響についても解析中である。解析にあたっては、本研究で蓄積した成分データ使用しており、35症例から憎悪因子の抽出を試みている。この研究結果については、別途報告する予定である。

謝辞

本研究を実施するにあたり、国立環境研究所Ⅱ型共同研究メンバー皆様には多大なるご協力及び御助言を頂きました。また、九州大学応用力学研究所 竹村俊彦教授を開発責任者とする予測数値モデルsprintersの画像データを使用させて頂きました。ここに記してお礼申し上げます。

参考文献・脚注

- 1) 環水大大発第 100331001 号、環水大自発第 100331002 号 (2010)
- 2) 環境省 HP: 微小粒子状物質の成分分析ガイドライン, https://www.env.go.jp/air/osen/pm/ca/110729/no_110729001b.pdf (2016.6.20 アクセス)
- 3) 環境省 HP: 大気中微小粒子状物質成分測定マニュアル, <https://www.env.go.jp/air/osen/pm/ca/manual.html> (2018.6.20 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](#) (2018.6.20 アクセス)
- 5) Yaqiang Wang: MeteInfo, <http://www.meteothinker.com/index.html> (2018.6.20 アクセス)
 - 6) 土肥正敬: 長崎県の微小粒子状物質(PM2.5)環境基準達成状況等について(2014~2016年度), *長崎県環境保健研究センター所報*, **62**, 26-31 (2017)
 - 7) J.-B. Heo: Source apportionment of PM2.5 in Seoul, Korea, *Atmos. Chem. Phys.*, **9**, 4957-4971 (2008)
 - 8) Mi-Seok Oh: Quantitative Source Apportionment of Size-segregated Particulate Matter at Urbanized Local Site in Korea, *Aerosol and Air Quality Research*, **11**, 247-264 (2011)
 - 9) 船坂邦弘他: PMF 法による大阪市内における PM2.5 発生源因子の解析, *大阪市立環境科学研究報告*, **77**, p65-70 (2015)
 - 10) 山神真紀子他: 微小粒子状物質(PM2.5)の発生源寄与率の推定, *名古屋市立環境科学調査センター年報*, **1**, p20-25 (2012)
 - 11) 東京都微粒子状物質検討会: レセプターワーキング報告書 (2011), http://www.kankyo.metro.tokyo.jp/air/air_pollution/torikumi/pm2_5/pm25-report2011.files/9_Receptor_working_report.pdf (2018.6.20 アクセス)
 - 12) 高島輝男他: PM2.5 成分分析結果の PMF 解析, *岐阜県保健環境研究所報*, **24**, p20-24 (2016)
 - 13) 鈴木亮太他: 長崎県福江島・福岡県福岡市におけるエアロゾル金属成分の特徴と発生源推定, *大気環境学会誌*, **49(1)**, 15-25 (2014)
 - 14) 工藤慎治他: クラスタ分析および CWT 解析を用いた東京の PM2.5 質量濃度の増加に影響を及ぼす地域の推定, *大気環境学会誌*, **52(3)**, p89-99 (2017)
 - 15) 環境省 HP: 粒子状物質の特性について, <http://www.env.go.jp/council/former2013/07air/y078-02/mat02-1.pdf> (2018.6.20 アクセス)
 - 16) 気象庁: [地球環境のデータバンク]黄砂, http://www.data.jma.go.jp/gmd/env/kosahp/kosa_data_index.html (2018.6.20 アクセス)
 - 17) Takemura, T., H. Okamoto, Y. Maruyama, A. Numaguti, A. Higurashi, and T. Nakajima: Global three-dimensional simulation of aerosol optical thickness distribution of various origins, *Journal of Geophysical Research*, **105**, 17853-17873 (2000)
 - 18) Takemura, T., T. Nakajima, O. Dubovik, B. N. Holben, and S. Kinne: Single-scattering albedo and radiative forcing of various aerosol species with a global three-dimensional model, *Journal of Climate*, **15**, 333-352 (2002)
 - 19) Takemura, T., T. Nozawa, S. Emori, T. Y. Nakajima, and T. Nakajima: Simulation of climate response to aerosol direct and indirect effects with aerosol transport-radiation model, *J*

Journal of Geophysical Research, **110**, D02202, doi:10.1029/2004JD005029 (2005)

Characteristic of PM2.5 components in spring in Nagasaki prefecture (2014 - 2016)

Masataka DOI, Kei TAMURA¹, Yuta TOMINAGA²

1 Nagasaki Prefectural Government Environmental Policy Division

2 Nagasaki Prefectural Government Kennan Healthcare Office

PM2.5 samples were collected at two monitoring station in Nagasaki prefecture, every spring from 2014 to 2016 and analyzed for their chemical constituents. Sources were deduced using Positive Matrix Factorization (PMF), and pollutant source position were estimated using Concentration weighted trajectory (CWT). A total of 7 sources were deduced and major source of PM2.5 was Secondary sulfate (consist of SO_4^{2-} , NH_4^+). CWT analysis results showed that possible source areas contributing to Secondary sulfate concentration in Nagasaki to be the continent of china, but the source contribution was decrease with year by year.

Key words: PM2.5 component analysis, Source Apportionment, transboundary transport