

長崎県における微小粒子状物質 (PM_{2.5}) 成分濃度の特徴について (2017～2018年)

前田卓磨、土肥正敬¹、田中雄規¹

1 現所属:長崎県県北保健所

長崎県では2017～2018年まで佐世保地域(大塔局・吉井局)において、微小粒子状物質(以下「PM_{2.5}」という)の成分測定を実施した。これら2地点は近傍に位置しているが、濃度差が比較的大きく地域特有の発生源の影響が推察されたことから、成分分析の結果を用いてPositive matrix factorization(以下「PMF解析」という)を用いた発生源寄与率の推定を行った。この結果、春季の越境由来の汚染物質の影響は両地点で同等であり、大塔局では秋季の自動車排ガスやバイオマス燃焼及び冬季の硝酸系二次生成の因子による影響をうけて、濃度が上昇していることが示唆された。一方で地点間の濃度差は年々減少し、地域発生源による影響が減少していることが推察された。

キーワード: PM_{2.5}成分分析、地域発生源、PMF解析

はじめに

PM_{2.5}は粒径が2.5 μm より小さく、器官や肺胞に到達することで人体へ悪影響を及ぼすことが知られており、欧米での疫学調査では呼吸器疾患や循環器疾患とPM_{2.5}濃度の間に有意な相関が認められている。日本でも健康リスクの観点から2009年に環境基準が制定された¹⁾²⁾ことで、全国的にPM_{2.5}質量濃度の常時監視局の設置が進められている。本県では2012年度から整備され、2014年度からは18地点の一般環境大気測定局(以下「一般局」という)と1地点の自動車排出ガス測定局(以下「自排局」という)で観測されている。

また、2011年度に策定された成分分析ガイドラインに則り、各自治体において、成分分析を実施する体制が整備され、2016年度時点でほぼ全ての都道府県で実施されている。本県においてもこれまでの調査研究で、五島・諫早・大村で成分分析を実施し、主に春季の高濃度日においては越境由来の硫酸二次生成物質による影響を強く受けていることを明らかにした。一方で、国内発生源の影響については未解明の部分が多く、本県では通年における採取試料の成分濃度の知見がなかった。また、佐世保地域(大塔局・吉井局)や島原半島地域(島原局

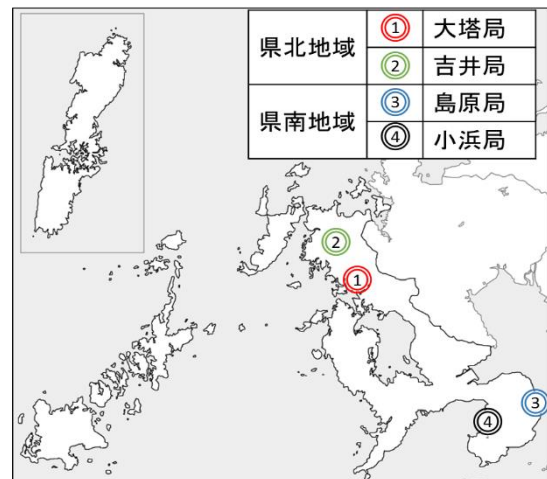


図1 試料採取地点(すべて一般局)

・小浜局)においてPM_{2.5}質量濃度が高濃度の地点と低濃度の地点が近在していることがわかり、これらの地域の国内発生源の影響の解明を目的として、2017年から通年のPM_{2.5}成分分析を実施している。本稿では、サンプリングが終了した佐世保地域の成分分析と発生源推定の結果を報告する。

調査地点及び方法

1 調査地点

調査地点を図1に示す。大塔局は南西約60mに針尾バイパス、北西約130mに西九州自動車道等の幹線道路があり、日中での交通量が多く、自排局の福石とは距離5kmと近い位置にある。一方、吉井局は標高75mに位置し、周辺に幹線道路又は工場等の固定発生源がない。両地点は距離約16km離れており、烏帽子岳（568m）等の山々に隔てられている。

2 調査期間及び捕集方法

表1に採取期間と高濃度日、及び大塔局と吉井局のPM_{2.5}質量濃度差について表1に示す。採取は2017年秋季から2018年夏季まで約1年間行った。捕集時間は午後0時を開始時刻とし、24時間周期で行った。採取日数は2地点の合計で390日間、大塔局が210日間、吉井局が180日間であった。

捕集装置はFRM2025又はFRM2025iの4台を1地点に2台併用し、流速16.7 L/min で積算流量24 m³の大気試料をフィルタに採取した。用いたフィルタはΦ47 mmの石英繊維フィルタ及びPTFEフィルタで、石英繊維フィルタを炭素成分とイオン成分、PTFEフィルタを無機成分にそれぞれ成分分析に供した。

表1 調査日数及び局舎間の濃度差

年 月	採取日数		濃度差Δ(μg/m ³) 日数	
	大塔局	吉井局	Δ>5	Δ>10
2017	10	15		
	11	17	7	1
	12	24	1	
2018	1	18	2	1
	2	23(1)	2	
	3	18(3)	5*	
	4	21(1)		
	5	3		
	6	30	1	
	7	1		
	8	16		
	9	24	22	
小計	210(5)	180(4)	18	2
	合計	390(9)	※3月の5日間の内 4日間は吉井が高い ()は高濃度日数	

3 成分分析

成分分析に使用した測定機器及び測定項目を表2に示す。成分分析は、原則、環境省の「微小粒子状物質 (PM_{2.5}) の成分分析ガイドライン」³⁾に準拠した。質量濃度は調査地点に隣接する自動測定機 (大塔局：東亜DKK製のFPM-377、吉井局：紀本電子工業製PM-712) の日平均値 (μg/m³) を参照した。また、

有機酸成分は地点間の濃度差が比較的大きい期間のみ測定した。

表2 測定機器及び成分測定項目

成分項目	測定機器
炭素成分	炭素分析装置 (熱分離・光学補正式) Sunset Laboratories製
無機成分	ICP-MS Agilent製7700x
イオン成分	イオンクロマトグラフ DIONEX製ICS1600
有機酸成分	GC-MS 島津製作所製5050A
成分項目	
炭素成分 2項目	有機性炭素 (OC) 無機状炭素 (EC)
無機成分 23項目	Al, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, As, Se, Rb, Mo, Cd, Sb, Ba, La, Ce, Sm, Hf, W, Pb
イオン成分 9成分	Cl ⁻ , NO ₃ ⁻ , SO ₄ ²⁻ , Na ⁺ , NH ₄ ⁺ , K ⁺ , Mg ²⁺ , Ca ²⁺ , しゅう酸
有機酸成分 3成分*	レボグルコサン、コハク酸、 ピノン酸

※地点間の濃度差が高い日のみ測定

4 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 PMF5.0 を用いて PMF解析⁴⁾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マスクロージャーモデル⁵⁾とイオンバランス等で確認し、通常の濃度範囲から逸脱した試料を一部除外したが、比較的濃度が高い試料は統計的な妥当性が保たれる場合は濃度範囲を逸脱している場合でも解析対象とした。選定した結果、解析対象を合計329個とした。本報告では、イ

表3 PMF解析における条件

重み付け	イオン成分	無機成分	炭素成分
Strong	NO ₃ ⁻ , SO ₄ ²⁻ , Na ⁺ , NH ₄ ⁺ , Mg ²⁺ ,	V, Mn, Fe, Cu, As, Se, Cd, Pb	有機性炭素(OC) 元素状炭素(EC)
Weak 不確かさ3倍	PM _{2.5} Cl ⁻ , K ⁺ , Ca ²⁺	Al, Ti, Ni, Zn, Sb	
Bad 解析から除外	しゅう酸	Cr, Co, Rb, Mo, Ba, La, Ce, Sm, Hf, W,	
Factor	7		
Uncertainty	15%		
Base runs	100		
Bootstrap	100		
Boot Factor	99-100		

オン成分と無機成分で重複する成分はイオン成分を解析の対象とした。各条件について表3に示す。また、成分濃度が検出下限値未満の割合が50%を超える成分は解析から除外し、30%を超える成分は重み付けをweakとした。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_{theory}値が近似しているか (2倍以下)
- ・PM_{2.5}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

結果及び考察

1 PM_{2.5}質量濃度の経年変化等について

2014年度以降の大塔局と吉井局におけるPM_{2.5}質量濃度経年変化と試料採取期間を図2に示す。既報⁶⁷⁾のとおり長崎県の環境基準達成率は年々上昇傾向にあり、大塔局では2016年度まで環境基準非達成であったが、2017年度以降は達成されている。一方、吉井局では2014年度の観測開始以降、達成されている。両地点は類似した傾向で変動しており、相関係数は0.80と強い相関がみられた。概ね冬季から春季にかけて濃度が上昇し、35 µg/m³を超過した高濃度日が見られており、長崎県の特徴である偏西風に伴う大陸からの越境汚染の影響を受けていると考えられる。2017年末頃までは地点間の濃度差が明瞭であり通年で大

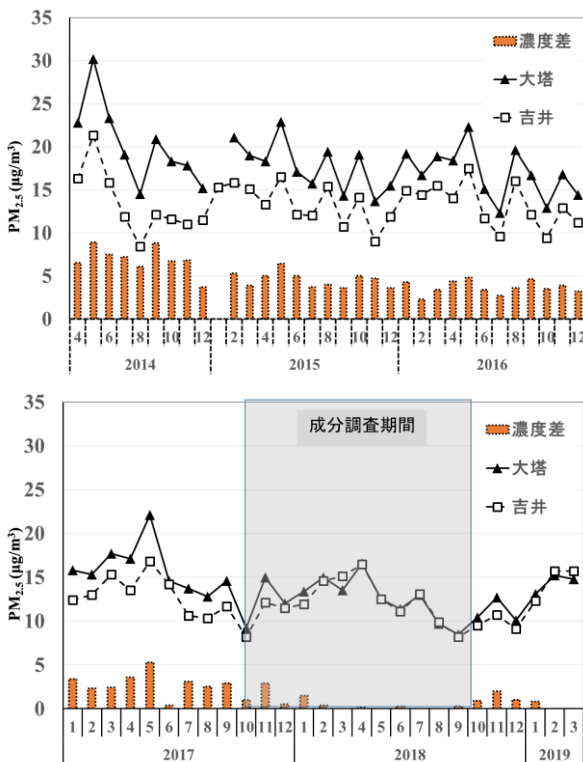


図2 大塔局と吉井局のPM_{2.5}月平均値の推移 (網掛け部分は成分調査実施期間)

塔局の濃度が高い傾向があったが、2018年以降はほぼ見られなくなっている。また、表1に成分調査実施期間において、地点間の濃度差が比較的大きかった日数を示しており、秋季及び冬季に大塔局が比較的高い日があった。

2 PM_{2.5}成分濃度

2017年秋から2018年冬の各季節における大塔局と吉井局のPM_{2.5}成分濃度を図3に示す。各季節ともSO₄²⁻の割合が最も高く、特に春季と冬季が高かった。SO₄²⁻は微小粒子状では主に(NH₄)₂SO₄として存在し、大気中のSO₂が酸化されてできるH₂SO₄が、NH₃と反応して生成される。このため、SO₂の排出量が比較的多い大陸由来の影響を受けていることが示唆される。NO₃⁻は特に冬季に高くなっており、夏季にはほぼ見られなかった。主にNH₄NO₃として存在し、揮発性が高い特性があるため、気温が高い夏季はガス化しやすく、冬季には粒子化しやすいことで濃度が高くなる傾向があると考えられる。また、大塔局が比較的高くなっており、周辺の発生源による地域的な汚染の影響が示唆された。NH₄⁺については、先述のとおりSO₄²⁻、NO₃⁻とのカウンターイオンとして存在することから、これらのイオン濃度と相関がみられ、(SO₄²⁻+NO₃⁻)/NH₄⁺等量濃度比は大塔局が1.02、吉井局が0.99であり、これらの塩を多く含んでいたことが示唆された。OCは年間を通して高く、揮発性有機化合物等の影響を受けて濃度が上昇していると考えられる。ECはNO₃⁻と同様に大塔局が比較的高く、地域的な汚染の影響をうけていることが示唆された。

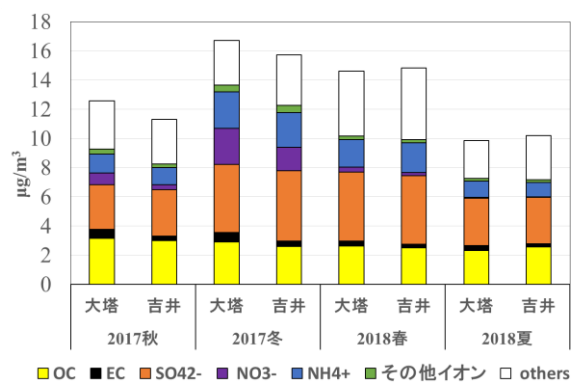


図3 各季節のPM_{2.5}成分濃度

3 発生源種類の推定

(1) 発生源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、7種類の発生源が推定された。各発生源の指標成分を表4及び図4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⁸⁻¹³⁾ 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) 工業系

Mn, Feが高く、Ti等の複数の無機成分が含まれていたため、工業系由来としたが、特定の事業所を示すものではない。工業因子は周囲の環境により指標となる成分が大きく異なるとされ、地域の工業施設の種類と関連付けて解釈されている。

(b) 道路交通・バイオマス燃焼

OC, ECが高く、自動車排ガスの影響がみられたことや、ブレーキパッド由来とされるCu, Sbの寄与が比較的多いことから道路交通由来とした。また、Kが比較的多いことから、バイオマス燃焼の寄与も表す因子と解釈したが、道路交通との分離はできなかった。

(c) 海塩

Na⁺, Mg²⁺, Cl⁻が高いため、海塩由来とした。Cl⁻/Na⁺は0.14で、海中中の組成比1.17より低くなった。原因のひとつとしてクロリノロス (NaCl + HNO₃ → NaNO₃ + HCl↓)¹⁵⁾ の影響などが考えられる。

(d) 硝酸系二次生成

NO₃⁻が高いため硝酸系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。また、既報⁹⁾において長崎県全域でPM_{2.5}とNO_x (ガス状物質) の相関が高くなかったことや、後述する季節毎の寄与割合で、冬季に高い傾向があったことから、二次生成とした。

(e) 石油燃焼系

V, Niが高いため石油燃焼由来とした。石油や重油中に多く含まれるため、船舶や発電所等における燃焼の影響が考えられる。また、Seが比較的高いため、石炭燃焼の負荷が混合していると考えられるが本解析では分離できなかった。

(g) 硫酸系二次生成

SO₄²⁻, NH₄⁺が高いため硫酸系二次生成由来とした。本解析ではSO₄²⁻, NH₄⁺の当量比は0.91であり、硫酸アンモニウム塩(NH₄)₂SO₄が主体的に存在していると考えられる。主に広域汚染の指標として解釈される。

(h) 土壌系

Al, Ti, Feが高いため土壌由来とした。土壌粒子は風等による巻き上げで発生する他、九州地方では春季の黄砂の影響を受けて寄与が大きくなることが知られている。

(2) 発生源寄与

(a) 地点別の発生源寄与割合

両調査地点における発生源寄与の割合について、全調査期間と季節別の解析結果をそれぞれ図5に示す。グラフ中のothersは自動測定機のPM_{2.5}質量濃度観測値から因子寄与濃度の合計値を差し引いた値で、未測定成分由来と考えられる。

調査期間中のPM_{2.5}質量濃度は大塔局と吉井局で同レベルであった (13.7, 13.3 μg/m³)。発生源寄与割合は、両地点において、全調査期間で硫酸系二次生成の寄与が最も大きかった (30%, 39%)。次いで、大塔局は道路交通・バイオマス燃焼が18%, 硝酸系二次生成が14%, 石油燃焼が7%の順で寄与が大きかった。吉井は石油燃焼が10%, 道路交通・バイオマス燃焼と硝酸系二次生成が8%の順で寄与が大きかった。地点間で比較すると、大塔局は吉井局に比べて道路交通・バイオマス燃焼と硝酸系二次生成の寄与率が高く、吉井局は石油燃焼が大塔局に比べて寄与率が高かった。その他の因子で、工業系、海塩、土壌の寄与率は両地点で同レベルであり、寄与率が低かった。

表4 PMF解析により推定された発生源

発生源	指標成分
1 工業系	Ti, Mn, Fe
2 道路交通・バイオマス燃焼	K ⁺ , Cu, Zn, OC, EC
3 海塩	Cl ⁻ , Na ⁺ , Mg ²⁺
4 硝酸系二次生成	NO ₃ ⁻
5 石油燃焼	V, Ni
6 硫酸系二次生成	SO ₄ ²⁻ , NH ₄ ⁺ , OC
7 土壌系	Al, Ti, Fe

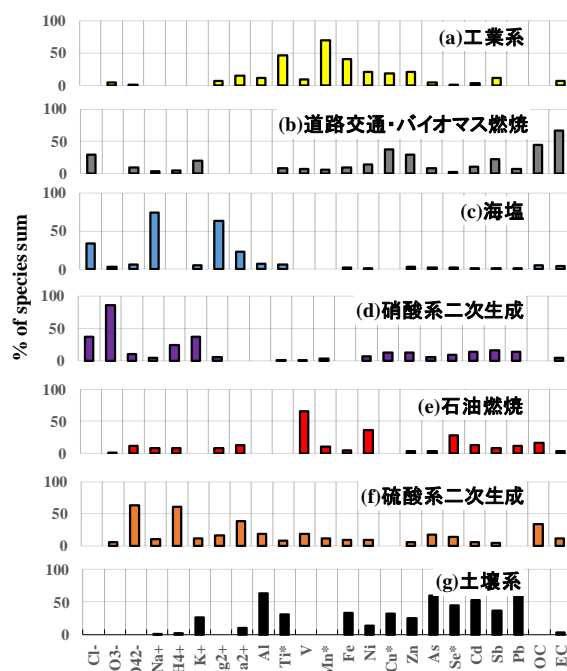


図4 発生源のプロファイル(% of species sum)

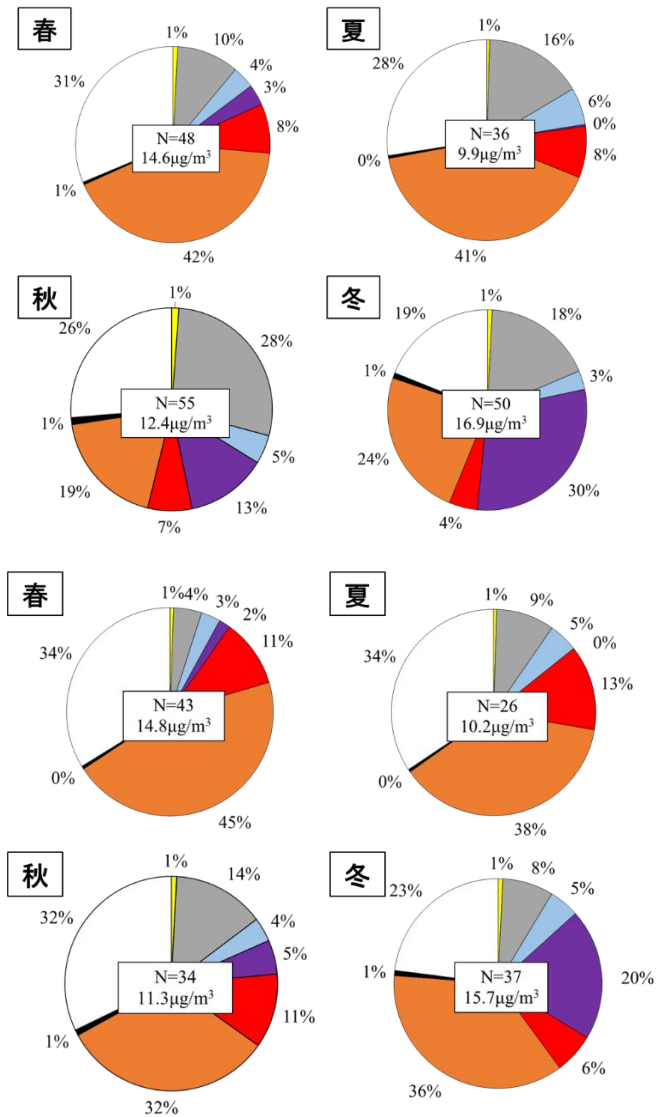
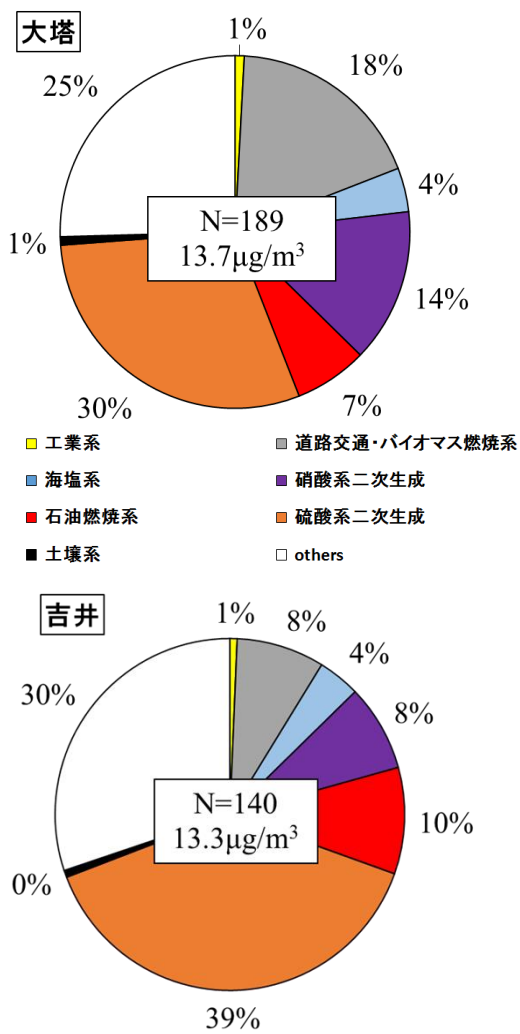


図5 調査地点における発生源寄与割合 (左：全調査期間、右：季節別)

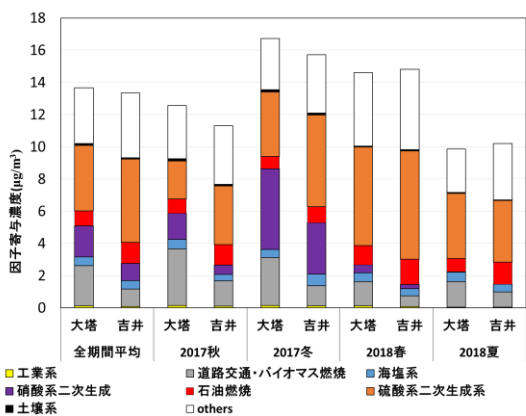


図6 因子寄与濃度の全期間平均及び季節別

図6に地点別の因子寄与濃度の全期間平均と季節別平均を示す。大塔局で因子寄与率が高かった道路交通・バイオマス燃焼の因子寄与濃度は秋季で最大を示す傾向がみられ、夏季、秋季、冬季で高

く、全期間平均値は吉井局の2.3倍であった。また、硝酸系二次生成は両地点で冬季に最大を示す傾向が見られ、秋季、冬季で高く、全期間平均値は吉井局の1.8倍であった。既報⁶⁾¹⁴⁾の五島局と諫早局の観測結果やNOxとPM_{2.5}の相関解析結果から、これらの傾向は周辺環境（道路交通や産業活動等）に由来する一次排出源や二次生成の前駆物質であるNOxの排出源の影響¹⁵⁾を反映した結果と考えられた。

吉井局で寄与が大きかった石油燃焼の因子寄与濃度は春季に最大を示す傾向がみられ、全期間平均値は大塔局の1.4倍であった。

(b) 地点間の濃度差について

地点間において、10 μg/m³以上の濃度差がみられた期間における因子寄与濃度の推移を図7に示す。

2017年秋季の事例では、11/5から大塔局の濃度が上昇しているが、吉井局では大きな変動がなく、地点

間の濃度差が増大した。因子寄与濃度は、11/6から硫酸系二次生成の増加が両地点でみられており、越境汚染の影響が考えられた。一方で、大塔局では道路交通・バイオマス燃焼の影響が増大しているため、地域由来の発生源の影響が複合して質量濃度が上昇し、濃度差が生じたと考えられる。図8にこの期間における有機酸濃度の推移を示す。レボグルコサンは植物を構成するセルロースを熱分解することによって生成されるため、バイオマス燃焼による寄与を評価するための指標物質として用いられている¹⁶⁾¹⁷⁾。また、PM_{2.5}質量濃度と類似の時間変化をみるとみられ¹⁸⁾、11/4～11/7の大塔局で濃度推移とピークが概ね一致しており、

この期間におけるバイオマス燃焼の影響が示唆された。特に11/6～11/8にかけては弱風で接地逆転層を形成し、大気が安定していたため、排出された汚染物質が滞留したことで、濃度上昇が起こったと考えられる。

2018年冬季の事例では道路交通・バイオマス燃焼と硝酸系二次生成によって濃度差が大きくなっていた。硝酸塩は国外・国内いずれからも影響を受けるが、これらの期間では、弱風であることや夜間の湿度が高い特徴があり、地域由来の硝酸塩が生成され滞留しやすかったことで濃度が上昇したと考えられる。

まとめ

本稿は、長崎県におけるPM_{2.5}の地域発生源の影響を把握するために実施している経常研究(H29～R1)の経過報告である。本研究では、県内における近傍した2地点(大塔局・吉井局)での通年比較により、地域由来のPM_{2.5}発生源による種類と寄与を推定した。この結果、発生源は7種類と推定され、両地点で最も大きな寄与は硫酸系二次生成であった。季節別では大塔局で秋季に道路交通・バイオマス燃焼が最も高く、冬季で硝酸系二次生成が最も高かった。地点間の濃度差は秋季及び冬季に大きくなる傾向があり、秋季ではPMF解析と有機酸分析の結果から道路交通・バイオマス燃焼の影響が大きく、冬季では硝酸系二次生成の影響が大きいことが示唆された。両地点の越境汚染の影響は同様であり、濃度差が生じる条件の一つとして秋季及び冬季において弱風や接地逆転層等の大気が安定する気象条件の中で、地域発生源による影響が大きい場合と考えられた。また、地点間の濃度差は経年的に減少傾向にあり、これらの因子による影響が減少していることが示唆された。

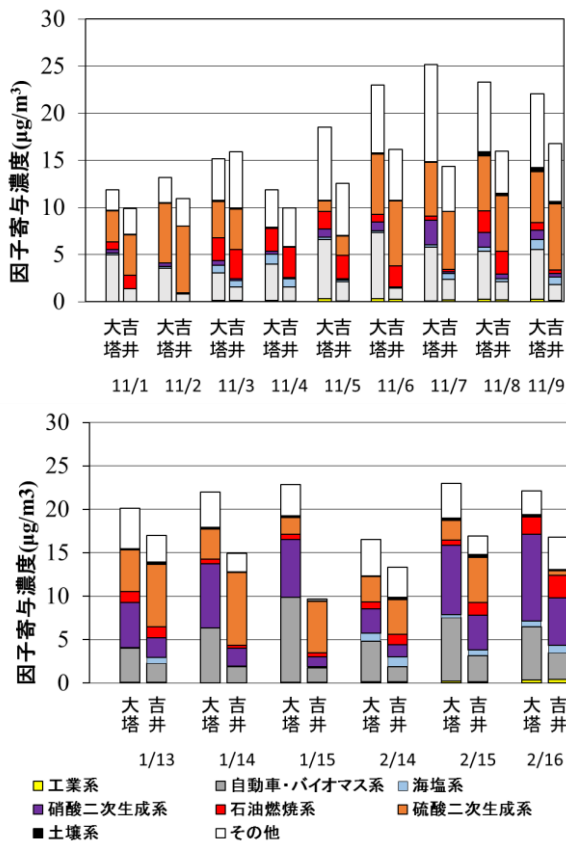


図7 地点間で大きな濃度差がみられた期間の因子寄与濃度の推移
(上:2017年秋季の事例 下:2018年冬季の事例)

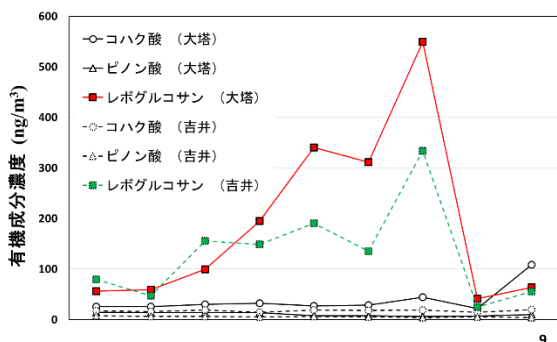


図8 2017年11月事例の有機酸濃度推移

参考文献・脚注

- 1) 環境省水・大気環境局:微小粒子状物質に係る環境基準の設定について(2009).
- 2) 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).
- 3) 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 (2019.7.11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> (2019.7.11 アクセス)
- 5) 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(2007).

- 6) 土肥正敬:長崎県の微小粒子状物質(PM_{2.5})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(2016)
- 7) 前田卓磨:長崎県における微小粒子状物質(PM_{2.5})濃度の特徴(2017年度), *長崎県環境保健研究センター所報*, **63**, 33-38(2017)
- 8) 豊永悟史他: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)
- 9) 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 (2019.7.24アクセス)
- 10) 中坪良平他:兵庫県姫路市における大気中粒子状物質及びガス状物質の並行測定(2)—PM_{2.5}の発生源解析—, *兵庫県環境研究センター紀要*, **3**, 21-25 (2012)
- 11) 豊永悟史他:レセプターモデルを用いた熊本県におけるPM_{2.5}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), 150-165 (2017)
- 12) 高岡大他:PMF法による福井県内のPM_{2.5}発生源寄与解析, *福井県衛生環境研究センター年報*, **14**, 55-60 (2015)
- 13) 山村由貴:福岡県における微小粒子状物質(PM_{2.5})濃度の実態把握, *福岡県保健環境研究所年報*, **43**, 93-98 (2016)
- 14) 土肥正敬:長崎県における粒子状物質の成分特徴について(2014~2016年度), *長崎県環境保健研究センター所報*, **63**, 25-32(2017)
- 15)長谷川就一:2011年11月に関東で観測されたPM_{2.5}高濃度の解析, *大気環境学会誌*, **49**(6), 242-251(2014)
- 16) Simoneit, B. R. T., Schauer, J. J., Nolte, C. G., Oros, D.R.,Elias, V. O., Fraser, M. P., Rogge, W. F., Cass, G. R.:Levoglucosan, a tracer for cellulose in biomass burningand atmospheric particles, *Atmos. Environ.*, **33**, 173-182(1999).
- 17)萩野浩之他:さいたま市における初冬季の微小粒子中のレボグルコサンと炭素成分, *エアロゾル研究*, **21**, 38-44(2006)
- 18)池森文数:PM_{2.5}高濃度イベント時のエアロゾル粒子中有機トレーサー成分—β線自動測定機のテープロ紙を用いた高時間分解能解析—, *大気環境学会誌*, **52**(4), 118-128(2017)

Characteristics of PM_{2.5} components in Nagasaki prefecture (2017-2018)

Takuma MAEDA, Masataka DOI, Yuki TANAKA

We collected PM_{2.5} samples in the Sasebo City (Daito and Yoshi) Nagasaki prefecture from 2017 to 2018 and analyzed their chemical constituents. We carried out the positive matrix factorization (PMF) analysis of the sources. We deduced that local source contribute concentration difference in these close site. As a result of PMF analysis, contribution of spring trans-boundary pollution in two site was almost equivalently and it was presumed that autumn “Vehicle and Biomass Burn” and winter “Secondary Nitrate” factor increased at Daito. But the local source contribution was decrease with year by year.

Key words : PM_{2.5} component analysis, local source, positive matrix factorization analysis