

[ノート]

兵庫県における PM_{2.5} の発生源解析に関する研究 -その 1-

中坪 良平¹ 竹本 智美² 平木 隆年¹

¹ 兵庫県環境研究センター大気環境科 (〒654-0037 神戸市須磨区行平町 3-1-18)

² 兵庫県農政環境部環境管理局水大気課環境影響評価室 (〒650-0011 兵庫県神戸市中央区下山手通 5-10-1)

Study on source apportionment of PM_{2.5} in Hyogo Prefecture -part 1-

Ryouhei NAKATSUBO¹ Satomi TAKEMOTO² and Takatoshi HIRAKI¹

¹ Atmospheric Environmental Division, Hyogo Prefectural Institute of Environmental Sciences,
3-1-18, Yukihiro-cho, Suma-ku, Kobe, Hyogo 654-0037, Japan

² Environmental Assessment Office, Water & Air Quality Control Division, Environmental Management
Bureau, Agricultural & Environmental Affairs Department, Hyogo Prefectural Government,
5-10-1, Shimoyamate-Dori, Chuo-ku, Kobe, Hyogo 650-0011, Japan

平成 25 年度及び平成 26 年度に、県内の自治体（神戸市、姫路市、尼崎市、明石市、西宮市、加古川市及び兵庫県）が実施した PM_{2.5} の成分分析結果を用いて、レセプターモデルの一種である Positive Matrix Factorization (PMF) 解析を行い、PM_{2.5} の生成に寄与する発生源とその寄与濃度を推定した。本解析では、重油燃焼、工業系粉じん、石炭燃焼、硝酸塩・塩化物塩、道路交通・バイオマス燃焼・海塩・土壌と推測される 5 つの因子が抽出された。平成 25 年度の地点別の因子寄与濃度は、砂田こども広場を除く全地点で石炭燃焼の寄与濃度が最も高く (4.3~11.1 μg/m³, 32.8~70.1%)、特に豊岡市役所では 11.1 μg/m³ (70.1%) となった。また重油燃焼の寄与濃度は、灘浜 (4.3 μg/m³, 20.1%)、須磨 (4.7 μg/m³, 22.0%)、林崎 (4.6 μg/m³, 20.9%) などが高かった。平成 26 年度は、平成 25 年度と概ね同様の傾向だったが、垂水は他地点よりも重油燃焼の寄与濃度が高かった。また、石炭燃焼は各地点で概ね同様の日変化を示すことから広域的な汚染を表し、重油燃焼は地点の違いによる地域差が大きいことから、瀬戸内海沿岸部、特に明石海峡周辺における船舶などの地域的な汚染を表している可能性があった。

I はじめに

環境省が公表した平成26年度の微小粒子状物質 (PM_{2.5}) の環境基準達成率は、一般局で37.8%、自排局で25.8%であり、未だ低い状況である¹⁾。効果的なPM_{2.5}の低減対策策定のためには、大気汚染防止法に基づいて地方自治体を実施しているPM_{2.5}の成分分析結果を活用した解析が有効であり、特に、成分分析データから発生源を推定する手法であるレセプターモデルを利用することで、観測地点に影響する発生源とその寄与率を明らかにすること

ができる。我々は、以前からPM_{2.5}の成分分析結果を用いた発生源解析に取り組んでおり^{2),3)}、県内のPM_{2.5}に及ぼす発生源とその寄与率を推定してきた。しかしながら、観測地点が限られていたため、県内の広範囲の状況を把握することは出来ていなかった。本研究では、県内の自治体が大気汚染防止法に基づく常時監視として実施しているPM_{2.5}の成分分析結果を用いて、レセプターモデルのひとつであるPositive Matrix Factorization (PMF) 解析を行い、県内の多地点におけるPM_{2.5}の発生源とその寄与率を推定した。

II 方法

1. 県内のPM_{2.5}成分分析地点

Table 1及びFig. 1に、平成25年度（FY2013）及び平成26年度（FY2014）に、県内で実施されたPM_{2.5}成分分析地点一覧と位置図を示した。PM_{2.5}成分分析は、平成25年度は8地点、平成26年度は11地点の、延べ12地点（灘浜、須磨、垂水、船場、国設尼崎、砂田こども広場、林崎、津門川、加古川市役所、平岡、豊岡市役所、洲本市役所）で実施された。県南部の沿岸域が多く、県北部は豊岡市役所、淡路島は洲本市役所の各1地点であった。種別では、一般局が6地点、自排局が6地点であった。

Table 1 Sites for PM_{2.5} components analysis.

No.	Station	Local government	Site type	FY2013	FY2014
①	Nadahama	Kobe City	general	○	○
②	Suma	Kobe City	general	○	
③	Tarumi	Kobe City	road side		○
④	Senba	Himeji City	road side	○	○
⑤	Kokusetsu-Amagasaki	Amagasaki City	general	○	○
⑥	Sunada-kodomohiroba	Amagasaki City	road side	○	○
⑦	Hayashizaki	Akashi City	road side	○	○
⑧	Tsutogawa	Nishinomiya City	road side		○
⑨	Kakogawa city office	Kakogawa City	general	○	○
⑩	Hiraoka	Kakogawa City	road side		○
⑪	Toyooka city office	Hyogo Prefecture	general	○	○
⑫	Sumoto city office	Hyogo Prefecture	general		○

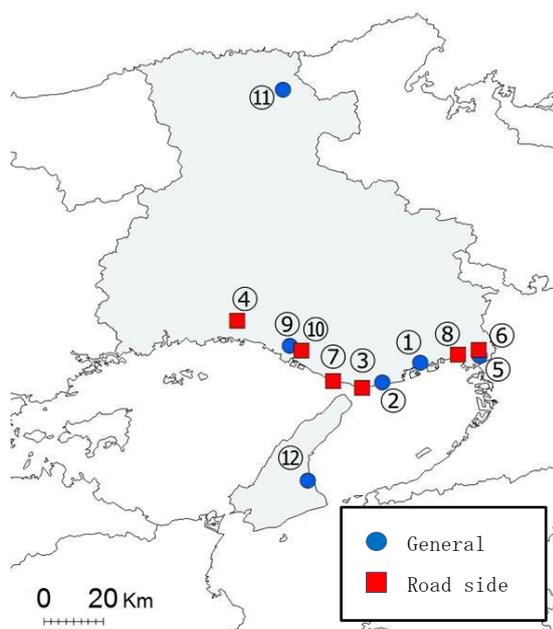


Fig.1 Sites map for PM_{2.5} components analysis.

2. 成分分析期間及び捕集時間

Fig. 2に、成分分析期間の一覧を示した。概ね全地点で、環境省が指定する試料捕集期間（指定期間）を含む期間に実施していたが、開始日時が前後している地点や期間内で欠測のみられる地点があった。また、平成25年度、平成26年度ともに指定期間と異なる期間に実施している地点や、平成26年度の春季に試料捕集をしていない地点があった。捕集時間は、捕集装置等の不具合で捕集を中断した場合を除き、概ね23～24時間程度であった。また、捕集開始時間は8～11時の範囲で、捕集終了時間も8～11時の範囲で実施されていた。

3. 成分分析項目

PM_{2.5}の成分分析ガイドライン⁴⁾で示された分析項目（質量濃度、イオン成分8種、無機元素成分30種、炭素成分8種）のうち、イオン成分及び炭素成分は全地点で分析されていたが、質量濃度を分析していない地点（加古川市役所、平岡）や、無機元素成分の一部を分析していない地点（津門川：Sc, Ti, V, Co, Rb, Mo, Sb, Cs, La, Ce, Sm, Hf, W, Ta, Th, 豊岡市役所及び洲本市役所：Si）があった。

4. 発生源寄与解析

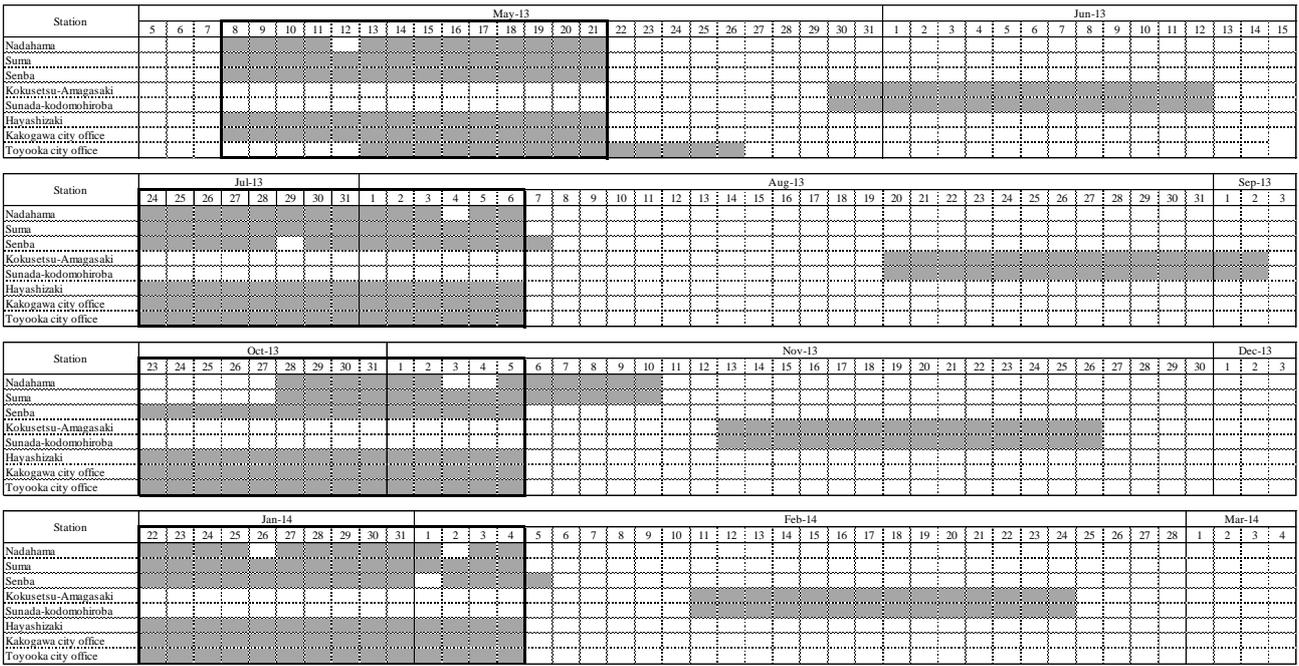
4.1 解析モデル

発生源寄与解析は、レセプターモデルのひとつであるPositive Matrix Factorization (PMF) 解析を行った。PMFは多変量解析の一種で、成分濃度の時系列データセットをいくつかの因子に分解し、因子のプロファイル及び寄与を求める手法である。解析には、米国環境保護庁 (US. EPA) が公開するEPA-PMF5.0⁵⁾を用いた。PMFモデルの詳細は既報を参照されたい⁶⁾。

4.2 成分データ

全地点のうち、無機元素成分の一部を分析していない津門川を除く11地点のデータ（全960サンプル）の、PM_{2.5}、Cl⁻、NO₃⁻、SO₄²⁻、Na⁺、NH₄⁺、K⁺、Mg²⁺、Ca²⁺、Al、V、Cr、Mn、Fe、Ni、Cu、Zn、As、Sb、Ba、Pb、OC、ECを解析に用いた。各成分について、成分毎に重み付け（不確かさの調整）を行った。一般的にシグナル/ノイズ比 (S/N比) による重み付けが行われるが⁷⁾、すべて1以上のため、

a) FY2013



b) FY2014

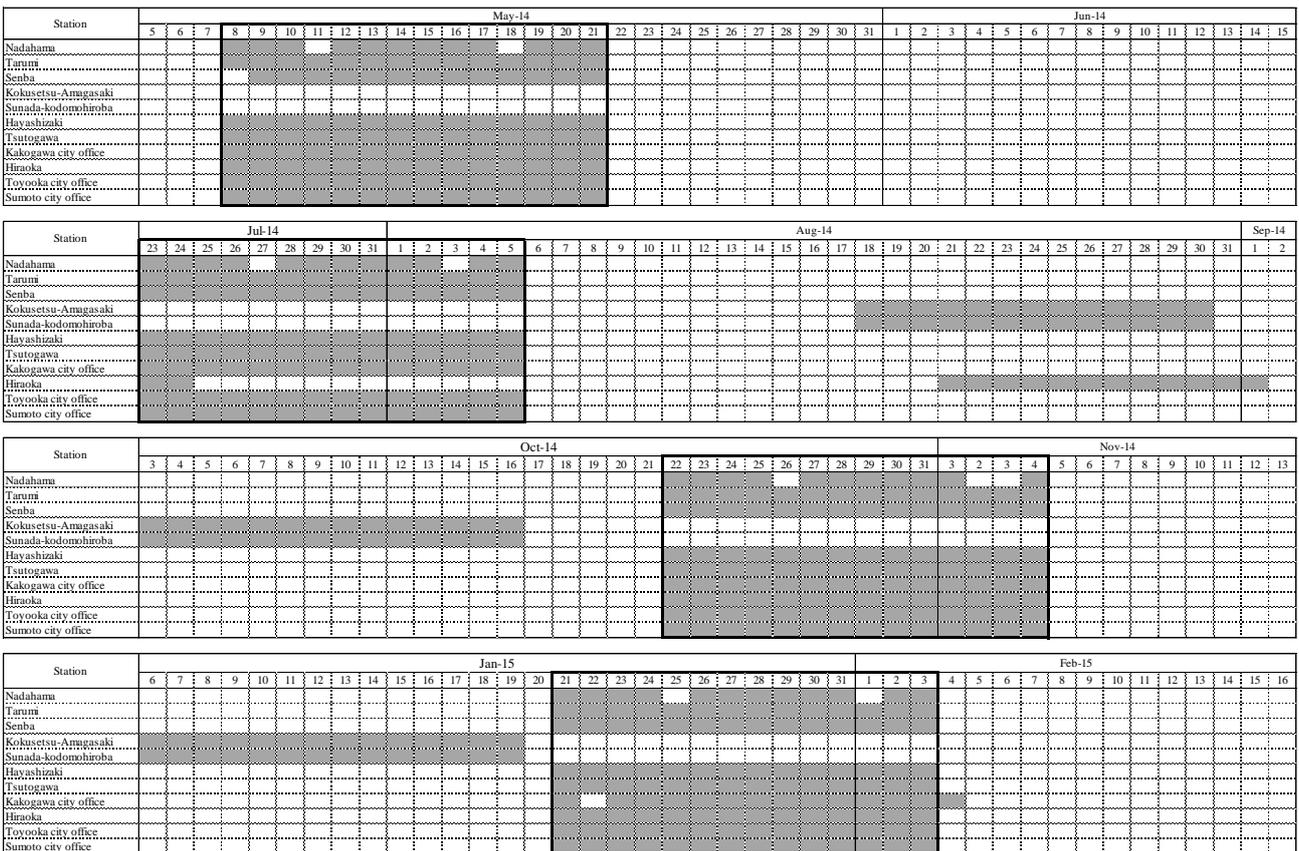


Fig. 2 Sampling period of PM_{2.5}, a) FY2013, b) FY2014. Shaded part shows sampling periods at each station, and bold line part shows designated periods by Ministry of the Environment.

検出下限値未満のデータ数の割合で各成分を重み付けした。具体的には、検出下限値未満のデータ数の割合が10%以上50%未満の成分の不確かさを3

倍に調整した。また、予備的な解析から因子数5~8付近で再現性の悪い (R²=0.5以下) 成分も不確かさを3倍に調整した (調整した成分; PM_{2.5}, Cl⁻,

($4.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$, 20.1%) 須磨 ($4.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$, 22.0%), 林崎 ($4.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$, 20.9%) などが高かった. 重油燃焼は, 瀬戸内海沿岸部の工業地域のうち特に明石海峡に近い地点で寄与濃度が高いことから, 周辺の海上を航行する船舶の影響を受けている可能性がある. 平成26年度は, 平成25年度と概ね同様の傾向がみられたが, 平成26年度のみ実施された垂水は, 他地点よりも重油燃焼の寄与濃度が高かった.

月21日には, 地点によって高濃度に寄与する発生源が異なっていると考えられた. また, 石炭燃焼は各地点で概ね同様の日変化を示すことから広域的な汚染を表し, 一方の重油燃焼は地点の違いによる地域差が大きいことから, 瀬戸内海沿岸部, 特に明石海峡周辺における船舶などの地域的な汚染を表している可能性があった.

IV おわりに

4. 高濃度日における発生源因子の寄与濃度

Fig. 6に, 発生源因子寄与濃度の平成25年度の日変化を示した (観測期間の大きく異なる国設尼崎及び砂田こども広場を除く). 複数地点でPM_{2.5}が $35 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上となった日についてみると, 7月27日は, 全ての地点で石炭燃焼の寄与濃度が高かったが, 5月21日は, 灘浜, 須磨, 林崎では, 石炭燃焼に加えて重油燃焼の寄与濃度が高かった. そのため, 5

平成25年度及び平成26年度に, 県内の自治体が大気汚染防止法に基づき実施したPM_{2.5}の成分分析結果にPMF解析を適用して発生源を推定した. 今回の解析では5つの発生源因子が抽出されたが, 道路交通やバイオマス燃焼など, 観測地点近傍のあらゆる場所に存在すると考えられる発生源が混在した因子が抽出された. これらの発生源を分離するためには, 解析対象地点やデータセットの見直し,

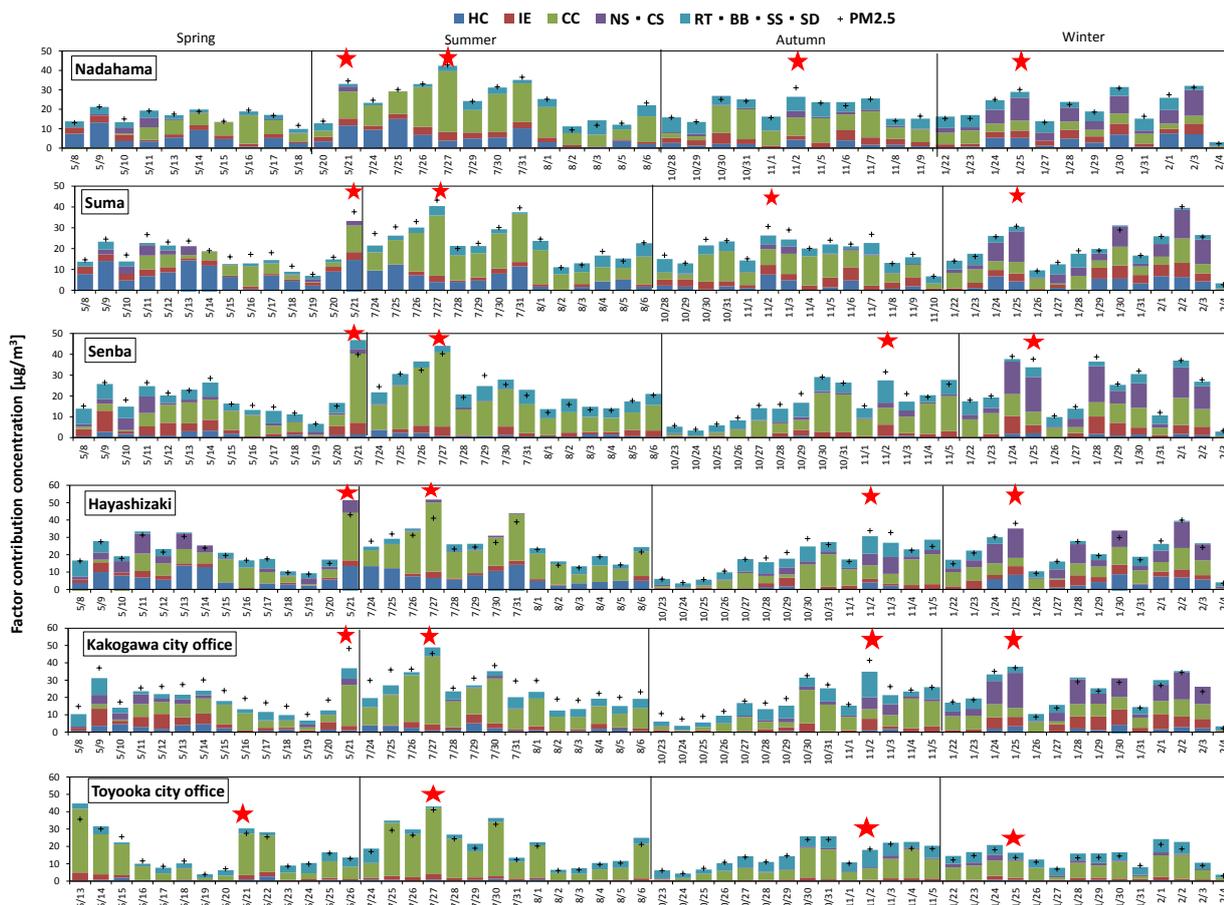


Fig. 6 Daily concentration of factors contribution in F.Y. 2013. (HC: Heavy oil combustion, IE : Industry emission, CC : Coal combustion, NS·CS : Nitrate salt aerosols·Chloride salt aerosols, RT·BB·SS·SD: Road traffic·Biomass burning·Sea salt aerosols·Soil dust). The sign of the star shows the day when PM_{2.5} exceeded $35 \mu\text{g}/\text{m}^3$ in multiple points.

解析に投じる成分の取捨選択等が考えられる。また、有機炭素 (OC) は、個々の物質を測定しておらず有機物の総量として測定しているため、発生源に関する情報が十分把握出来ていない。今後は、有機物の発生源の指標となる成分を測定項目に取り入れ、PMF解析に投じることで、より詳細に発生源を推定できる可能性がある。

文 献

- 1) 環境省：平成26年度大気汚染状況 (2015), http://www.env.go.jp/air/osen/jokyo_h26/index.html (参照2016.8.7)
- 2) 中坪良平, 常友大資, 平木隆年, 齊藤勝美, 余田佳子, 島正之 (2013) 兵庫県の 2 地点における PM_{2.5} の発生源解析, 公益財団法人ひょうご環境創造協会兵庫県環境研究センター紀要, **第4号**, 26-32.
- 3) Nakatsubo, R., Tsunetomo, D., Horie, Y., Hiraki, T., Saitoh, K., Yoda, Y., Shima, M. (2014) Estimate of Regional and Broad-based Sources for PM_{2.5} Collected in an Industrial Area of Japan, *Asian. J. Atmos. Environ.*, **8-3**, 126-139.
- 4) 環境省 (2011) 微小粒子状物質 (PM2.5) の成分分析ガイドライン.
- 5) U.S.EPA : Positive Matrix Factorization Model for environmental data analyses (2014) <https://www.epa.gov/air-research/positive-matrix-factorization-model-environmental-data-analyses>.
- 6) 中坪良平, 常友大資, 平木隆年, 島正之, 余田佳子, 齊藤勝美 (2012) 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-, 財団法人ひょうご環境創造協会兵庫県環境研究センター紀要, **第3号**, 21-25.
- 7) U.S.EPA (2014) EPA Positive Matrix Factorization (PMF) 5.0 Fundamentals and User Guide.
- 8) Bressi, M., Sciare, J., Ghersi, V., Mihalopoulos, N., Petit, J.-E., Nicolas, J. B., Moukhtar, S., Rosso, A., Féron, A., Bonnaire, N. Poulakis, E., Theodosi, C. (2014) Sources and geographical origins of fine aerosols in Paris (France), *Atmos. Chem. Phys.*, **14**, 8813-

8839.

9) Cheng, Yan., Lee, Shuncheng., Gu, Zhaolin., Ho, Kinfaai., Zhang, Yunwei., Huang, Yu., Chow, C., Judith., Watson, G, John., Cao, Junji., Zhang, Renjian. (2014) PM2.5 and PM10-2.5 chemical composition and source apportionment near a Hong Kong roadway, *Particuology* [<http://dx.doi.org/10.1016/j.partic.2013.10.003>].

10) Wang, Yungang., Hopke, Philip, K. (2013) A ten-year source apportionment study of ambient fine particulate matter in San Jose, California, *Atmospheric Pollution Research*, **4**, 398-404.