

ノート

鹿児島県におけるPM_{2.5}の地域特性と発生源解析に 関する調査研究（第Ⅱ報）

Surveillance about Regional Peculiarity and Analysis of Source of PM_{2.5} in Kagoshima Prefecture (Ⅱ)

田知行 紘 太 和 田 加奈子 及 川 恵 子
大小田 修 司

要 旨

2016年度～2018年度の当県内7地点における微小粒子状物質（PM_{2.5}）成分分析の蓄積データから、PMFモデルを用いた発生源解析を行った。その結果、県内7地点における発生源について、硫酸系二次粒子、バイオマス燃焼＋道路交通、塩化物＋硝酸系二次粒子、土壌、石炭燃焼＋工業、石油燃焼、海塩の7因子に分けられた。3か年継続して調査を行った霧島局における発生源寄与率について、この7因子を用いて年度別に解析したところ、各年度とも硫酸系二次粒子の寄与が40～50%程度と最も大きかった。また、季節別の解析も行ったところ、土壌は春季に、硫酸系二次粒子は夏季に、塩化物＋硝酸系二次粒子及び石炭燃焼＋工業は冬季に寄与率が大きくなった。さらに、越境汚染、桜島の火山活動及び道路交通の影響についても発生源寄与率の解析を行った。

キーワード：PM_{2.5}、PMFモデル、発生源寄与率

1 はじめに

微小粒子状物質（以下「PM_{2.5}」という。）の発生源は多種多様で、生成機構も複雑であることから、PM_{2.5}質量濃度の測定だけでは高濃度要因の解明はできない。そのため、当センターではPM_{2.5}中のイオン成分、無機元素及び炭素成分の分析を実施することにより、PM_{2.5}の発生源や高濃度要因を解明するための調査研究を2016年度～2018年度の3か年で実施した。

既報¹⁾では、PM_{2.5}中のイオン成分及び無機元素の分析結果から、桜島の火山活動の影響や大陸起源による影響について報告した。また、本調査研究を行う中で、土壌の主成分であるケイ素（Si）の挙動と組成変化によって発生源が異なることが示唆された事例と、桜島の火山活動による影響が示唆された事例について報告した²⁾。

本報では、3か年の捕集・成分分析結果の蓄積データから、モデルソフトを用いた発生源解析を実施したので、報告する。

2 調査方法

2.1 調査地点及び捕集期間

図1に調査地点を示す。また、表1に試料の捕集期間を示す。

2016年度は霧島局、南さつま局、志布志局及び環境保健センター（以下「センター」という。）、2017年度は霧島局、鹿屋局及びセンター、2018年度は霧島局、薩摩川内局及び鹿屋局においてPM_{2.5}の捕集を行った。

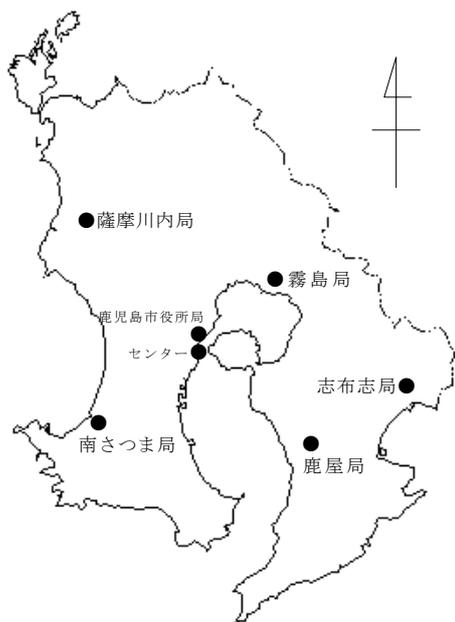


図1 調査地点

2. 2 捕集方法

大気中微小粒子状物質 (PM2.5) 成分測定マニュアル³⁾ (以下「マニュアル」という。)に基づき、2台のPM_{2.5} サンプラを用いて24時間を1試料とし、各季節で原則14日間連続捕集を行った。捕集用フィルタは、イオン成分及び炭素成分の分析用に石英製フィルタ (Pall社 2500QAT-UP), 無機元素及びSiの分析用にPTFE製フィルタ (Pall社 Teflo) を使用した。

PM_{2.5}質量濃度については、それぞれの測定局に設置してある自動測定機のデータを使用した。ただし、志布志局及びセンターにおいてはPM_{2.5}質量濃度を測定していないため、それぞれ鹿屋局及び鹿児島市役所局 (鹿児島市より提供) のデータを使用した。

2. 3 成分分析方法

マニュアルに基づき、イオン成分はイオンクロマトグラフ法、Si以外の無機元素は酸分解/ICP-MS法、炭素成分はサーマルオプティカル・リフレクタンス法により分析を行った。

また、Siは波長分散型蛍光X線分析法により分析を行った。

なお、PM_{2.5} サンプラはThermo社 2025i, イオンクロマトグラフはDionex社 ICS-1600, マイクロウェーブ分解装置はMilestone社 ETHOS 900及びETHOS EASY, ICP-MSはAgilent社 7900, 炭素成分分析装置はSUNSET社 Model 5, 蛍光X線分析装置は県工業技術センター保有の理学電気工業(株) RIX-3000を使用した。

表1 捕集期間

年度	季節	期間	捕集地点	
2016	春季	2016. 4. 14~2016. 4. 27	南さつま局	
		2016. 5. 7~2016. 5. 20	霧島局	
	夏季	2016. 7. 1~2016. 7. 14	南さつま局	
		2016. 7. 21~2016. 8. 3	霧島局	
	秋季	2016. 9. 8~2016. 9. 15	志布志局	
		2016. 9. 30~2016. 10. 16	南さつま局	
	冬季	2016. 10. 20~2016. 11. 2	霧島局	
		2016. 12. 26~2017. 1. 4	センター	
		2017. 1. 19~2017. 2. 5	霧島局	
		2017. 2. 8~2017. 2. 26	南さつま局	
	2017	春季	2017. 3. 3~2017. 3. 16	志布志局
			2017. 4. 13~2017. 4. 26	鹿屋局
2017. 5. 11~2017. 5. 24			霧島局	
夏季		2017. 6. 6	センター	
		2017. 6. 27~2017. 7. 10	鹿屋局	
		2017. 7. 20~2017. 7. 30	霧島局	
秋季		2017. 8. 18~2017. 8. 27	センター	
		2017. 10. 3~2017. 10. 12	センター	
		2017. 10. 19~2017. 11. 9	霧島局	
冬季		2017. 11. 22~2017. 12. 6	鹿屋局	
		2017. 12. 22~2018. 1. 4	センター	
		2018. 1. 16~2018. 2. 4	霧島局	
2018	春季	2018. 2. 10~2018. 2. 23	鹿屋局	
		2018. 3. 13~2018. 3. 22	センター	
		2018. 4. 12~2018. 4. 29	薩摩川内局	
	夏季	2018. 5. 9~2018. 5. 22	霧島局	
		2018. 6. 8~2018. 6. 21	鹿屋局	
		2018. 6. 27~2018. 7. 10	薩摩川内局	
	秋季	2018. 7. 19~2018. 8. 7	霧島局	
		2018. 8. 17~2018. 8. 30	鹿屋局	
		2018. 9. 20~2018. 9. 27	薩摩川内局	
	冬季	2018. 10. 18~2018. 10. 31	霧島局	
		2018. 11. 7~2018. 11. 20	鹿屋局	
		2018. 12. 11~2018. 12. 24	鹿屋局	
2019	2019. 1. 17~2019. 1. 30	霧島局		
	2019. 2. 13~2019. 2. 26	薩摩川内局		

2. 4 解析方法

EPA-PMF5.0⁴⁾を使用して解析を行った。

PMF (Positive Matrix Factorization) モデルは、レセプターモデルの一つであり、多数組の測定データセットを複数の因子に分解する手法で、(A)式により因子プロファイル及び因子寄与に分解される。

$$x_{ij} = \sum_{k=1}^p g_{ik} f_{kj} + e_{ij} \quad \dots (A)$$

x_{ij} : 試料*i* ($i = 1, 2, \dots, n$) 中の成分*j* ($j = 1, 2, \dots, m$) の測定濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)
 g_{ik} : 試料*i*に対する因子*k* ($k = 1, 2, \dots, p$) の相対寄与 (単位なし)
 f_{kj} : 因子*k*のプロファイルにおける成分*j*の濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)
 e_{ij} : 試料*i*中の成分*j*の測定値とモデル化された計算値の残差 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)

PMFモデルでは、測定値 (x_{ij}) を再現できる g_{ik} , f_{kj} 及び因子数 p を見いだすことを目的とし、(B)式で定義される Q を最小にする解 (g_{ik} マトリックス及び f_{kj} マトリックス) を繰り返し計算により求める。

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

u_{ij} : 試料*i*中の成分*j*の測定に伴う不確実性
 なお、 g_{ik} 及び f_{kj} はともに負の値にならないように制約される。

2. 5 データセットの作成

2. 5. 1 測定データ

PMFモデルでは、長期間又は他地点において様々な成分濃度を観測したデータセット (x_{ij} マトリックス) が必要とされる。

表2に解析対象項目を示す。

欠測値については、その試料を除外することとし、検出下限値未満の測定値については、検出下限値の1/2で置換した。

なお、検出下限値については、期間中の最大値を使用した。

2. 5. 2 不確実性データ

PMFモデルでは、モデルに投入する個々の測定データについて、不確実性のデータセット (u_{ij} マトリックス) が必要である。それぞれの測定値の不確実性は、(C)式又は(D)式⁵⁾により算出した。

$x_{ij} \leq MDL_j$ の場合

$$u_{ij} = \frac{5}{6} \times MDL_j \quad \dots (C)$$

$x_{ij} > MDL_j$ の場合

$$u_{ij} = \sqrt{(EF_j \times x_{ij})^2 + (0.5 \times MDL_j)^2} \quad \dots (D)$$

MDL_j : 成分*j*の検出下限値 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)
 EF_j : 成分*j*の測定値の誤差割合

今回は、誤差割合 EF_j に 5%, 10%, 15%, 20% をそれぞれ代入した4種類の不確実性データセットを作成した。なお、モデル全体の不確実性として Extra Modeling Uncertainty を設定することができるが、今回の解析では 0% とした。

表2 解析対象項目

イオン成分	塩化物イオン (Cl ⁻)
	硝酸イオン (NO ₃ ⁻)
	硫酸イオン (SO ₄ ²⁻)
	ナトリウムイオン (Na ⁺)
	アンモニウムイオン (NH ₄ ⁺)
	カリウムイオン (K ⁺)
	マグネシウムイオン (Mg ²⁺)
無機元素	カルシウムイオン (Ca ²⁺)
	アルミニウム (Al)
	ケイ素 (Si)
	バナジウム (V)
	マンガン (Mn)
	鉄 (Fe)
	銅 (Cu)
	亜鉛 (Zn)
	ヒ素 (As)
	セレン (Se)
	ルビジウム (Rb)
	モリブデン (Mo)
	カドミウム (Cd)
	アンチモン (Sb)
	セシウム (Cs)
	バリウム (Ba)
ランタン (La)	
セリウム (Ce)	
タングステン (W)	
鉛 (Pb)	
炭素成分*	有機炭素 (OC)
	元素状炭素 (EC)

* 炭素成分は2018年度のみ分析を行ったため、2016年度～2018年度の解析には使用していない。

2. 5. 3 各成分の重み付け

原則として、(E)式に示すSignal/Noise (S/N) 比が0.5未満又は検出率30%未満の成分は重み付けをBad (モデルから除外), S/N比が0.5以上1未満又は検出率が30%以上50%未満の成分及びPM_{2.5}質量濃度は重み付けをWeak (不確実性を3倍に調整), S/N比が1以上かつ検出率が50%以上の成分は重み付けをStrong (不確実性を調整しない)とした。

$$\left(\frac{S}{N}\right)_j = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n d_{ij} \quad \dots (E)$$

ただし、 $x_{ij} \geq u_{ij}$ の場合

$$d_{ij} = \frac{x_{ij} - u_{ij}}{u_{ij}} \quad \dots (F)$$

$x_{ij} < u_{ij}$ の場合

$$d_{ij} = 0 \quad \dots (G)$$

(d_{ij} : 信号強度)

2. 5. 4 解析の実行

(1) 予備計算

誤差割合EF_jを5%, 10%, 15%, 20%と変化させ、かつ、因子数を4~12まで変化させ、計算回数は20回、Seed (繰り返し計算の初期位置) は1に設定して計算を実行した (Base Model Runs)。

(B)式により得られたQの計算値 (Q_{True} (全ての測定値から計算) 及び Q_{Robust} (外れ値を除外して計算)) が (H)式に示す理論値 Q_{Theory} に近くなる誤差割合及び因子数を求め、さらに Q_{True} 及び Q_{Robust} の20回計算した結果から得られる相対標準偏差 (RSD) を求め、ばらつきを確認した。

$$Q_{Theory} = nm - p (n + m) \quad \dots (H)$$

(2) 再計算

(1)で得られた誤差割合及び因子数における各成分の計算値及び測定値の決定係数 (r^2) が0.5未満の場合、その成分の重み付けをWeakに変更して(1)と同様の処理を行い、本解析を行う誤差割合及び因子数を選定した。

(3) 本解析

(2)で得られた誤差割合及び因子数について、計算回数は100回、SeedはRandom Startに設定して計算を実行し、Base Model Bootstrap Method (以下「Bootstrap」という。)によりモデルの適合度の確認を行った。

Bootstrapは、Base Model Runsの解の安定性を評価するものであり、解析に用いた測定値データセットから

重複しないデータブロックをランダムに選び、新しい測定値データセットを構築してPMFモデルを実行し、分離された因子 (Bootstrap因子) とBase Model Runsで分離した因子 (Base因子) の一致の程度 (Mapping) を考察するものである。

今回はBootstrapの繰り返し計算を100回に設定し、各因子のMappingが80以上であるか確認を行った。

また、Base Model Runsで得られたそれぞれの因子におけるプロファイルの指標成分から発生源を推定した。

3 調査結果及び考察

3. 1 2016年度~2018年度

イオン成分、無機元素のデータが全てそろっている試料 (366試料) を使用して解析を行った。

表3に各項目の重み付けを示す。

Alは検出率が23.2%であったが、指標性を重視し、Weakに設定した。また、予備計算で Q_{True} 、 Q_{Robust} 及び Q_{Theory} が近い条件において、Ca²⁺、Sb及びBaの r^2 が0.5未満となったため、これらの重み付けをStrongからWeakに変更して再計算を行った。

表3 項目の重み付け (2016年度~2018年度)

重み付け	項目	備考
Strong	Cl, NO ₃ , SO ₄ ²⁻ , Na ⁺ , NH ₄ ⁺ , K ⁺ , Mg ²⁺ , V, Mn, As, Se, Rb, Pb, Si	
	PM _{2.5} 質量濃度	
Weak	Fe, Cu, W	S/N比が0.5以上1未満 検出率が30%以上50%未満
	Ca ²⁺ , Sb, Ba	r^2 が0.5未満
	Al	検出率30%未満, 指標性重視
Bad	Zn, Mo, Cd, Cs, La, Ce	S/N比が0.5未満 検出率が30%未満

図2に再計算によって得られた各誤差割合、因子数におけるQ値及びRSDを示す。

誤差割合10%/因子数8, 誤差割合10%/因子数9, 誤差割合15%/因子数6, 誤差割合15%/因子数7, 誤差割合20%/因子数4, 誤差割合20%/因子数5において Q_{True} 、 Q_{Robust} 及び Q_{Theory} が近くなった。

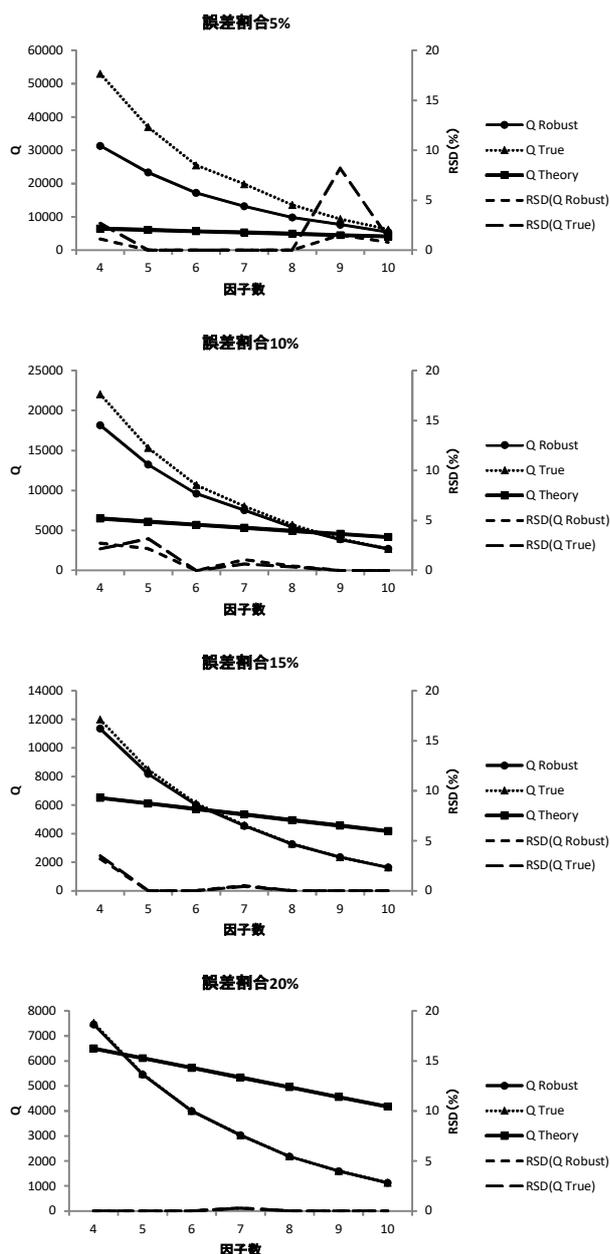


図2 各誤差割合，因子数における R^2 値及びRSD (2016年度～2018年度)

誤差割合15%/因子数6ではClの r^2 が，誤差割合20%/因子数4ではCl, Al及びVの r^2 が，誤差割合20%/因子数5ではCl及びVの r^2 が0.5未満となったことから，誤差割合10%/因子数8，誤差割合10%/因子数9及び誤差割合15%/因子数7で本解析を実施した。

誤差割合10%/因子数8の条件では，Bootstrapを実行したところ，全ての因子でMappingが80以上となり，割り当てのない因子（Unmapped）はなかったことから良好な結果であった。しかし，Cl及びAsの相対比が大きくなり，解釈が困難な因子が存在した。

誤差割合10%/因子数9の条件では，Bootstrapを実行

したところ，Unmappedはなかったが，Mappingが80を下回った因子があった。また，Clのみ相対比が大きい因子及びAsのみ相対比が大きい因子があり，いずれも解釈が困難であった。

誤差割合15%/因子数7の条件では，Bootstrapを実行したところ，Unmappedはなかったが，Mappingが80を下回った因子があった。しかし，いずれの因子も合理的に説明することができた。

以上の検討結果から，誤差割合15%/因子数7の条件の計算結果を採用した。

図3に各因子のプロファイルを示す。

因子1は， SO_4^{2-} 及び NH_4^+ の相対比が大きいことから，「硫酸系二次粒子」とした。

因子2は，廃棄物焼却や野焼きの指標である K^+ 及びブレキ粉じんの指標であるBaの相対比が大きいことから，「バイオマス燃焼+道路交通」とした。これらの発生源は同じ因子になる事例が報告されている^{6), 7)}。

因子3は，Cl及び NO_3^- の相対比が大きく，これらが同じ因子になる事例が報告されている。この因子は半揮発性を持つ $PM_{2.5}$ 粒子の影響を示し，単一の発生源と対応するものではないと考えられており^{5), 6)}，「塩化物+硝酸系二次粒子」とした。

因子4は，土壌成分である Ca^{2+} , Al, Fe及びSiの寄与が大きいことから，「土壌」とした。

因子5は，石炭燃焼の指標であるAs, Se, Sb及びPb並びに鉄鋼工業の指標であるMn, Fe及びCuの相対比が大きいことから，「石炭燃焼+工業」とした。

因子6は，石油燃焼の指標であるVの相対比が大きいことから，「石油燃焼」とした。

因子7は，海塩の成分であるCl, Na^+ , Mg^{2+} 及び Ca^{2+} の相対比が大きいことから，「海塩」とした。

なお， SO_4^{2-}/Na^+ 比（モル濃度比）が海水中の組成比（0.060）より大きい場合， Na^+ に対してClの比率が小さくなるクロリンロスが生じる傾向があることが報告されている^{5), 6), 8)}。この因子において， SO_4^{2-}/Na^+ 比は0.67であり，0.060より大きく，Cl/ Na^+ 比は0.18であり，海水中の組成比（1.17）より小さいことから，クロリンロスが生じたと考えられる。

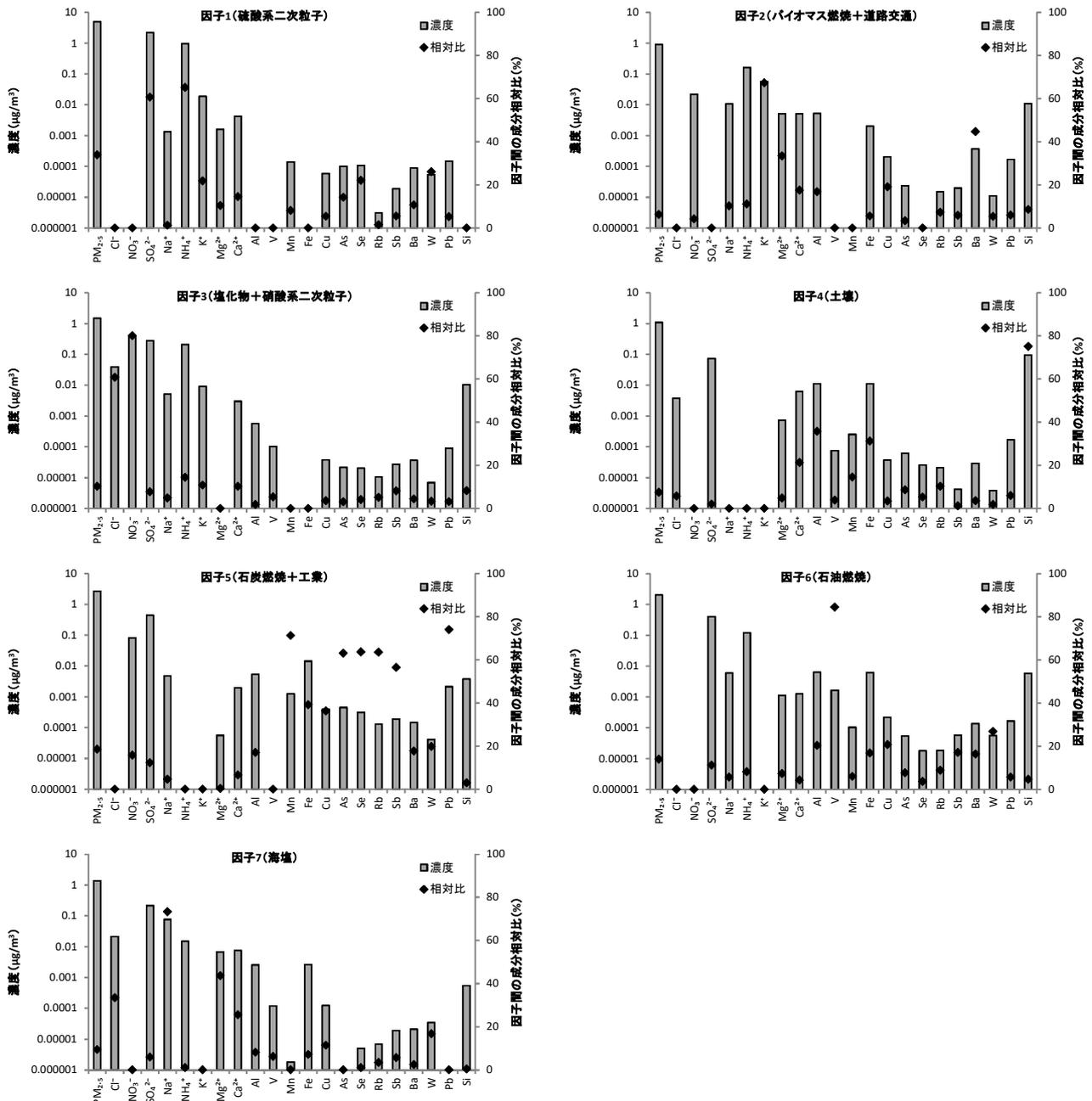


図3 誤差割合15%／因子数7における各因子のプロファイル (2016年度～2018年度)

3. 1. 1 季節別の解析

図4に3か年継続して調査を行った霧島局における3か年間の各季節のPM_{2.5}質量濃度への各因子の寄与率を示す。

土壌の寄与が春季に大きくなっているが、これは、土壌の巻き上げや黄砂の影響によるものと考えられる。

硫酸系二次粒子の寄与が夏季に大きくなっているが、光化学反応の影響を受けたためと考えられる⁹⁾。

塩化物＋硝酸系二次粒子の寄与は、夏季に小さく、冬季に大きくなっている。半揮発性の物質が気温の高い夏季にガス化し、気温の低い冬季に粒子化しているものと

考えられ、硝酸系二次粒子に関しては、既報の知見とも一致する¹⁾。

バイオマス燃焼＋道路交通の寄与は、秋季から冬季にかけて大きくなっている。これは、野焼きの影響によるものと考えられる⁹⁾。

また、石炭燃焼＋工業の寄与が夏季に小さく、秋季及び冬季に大きい一方で、石油燃焼の寄与が夏季に大きく、冬季に小さくなっている。これは、大陸起源による越境汚染の影響が夏季に弱く、冬季に強いことを示唆しており、既報の知見とも一致する¹⁾。

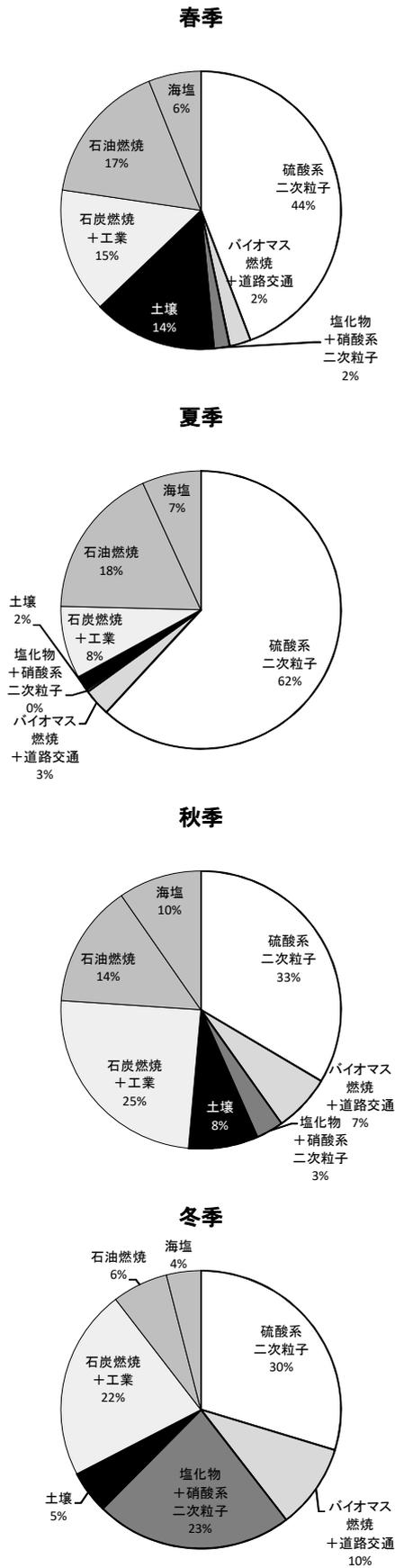


図4 各季節のPM_{2.5}質量濃度への各因子の寄与率 (霧島局, 2016年度~2018年度)

3. 1. 2 年度別の解析

図5に霧島局における各年度のPM_{2.5}質量濃度への各因子の寄与率を示す。

いずれの年度も硫酸系二次粒子が40~50%程度、石炭燃焼+工業が20%程度、石油燃焼が10~20%程度、バイオマス燃焼+道路交通、塩化物+硝酸系二次粒子、土壌及び海塩が数%ずつであり、大きな違いは見られなかった。

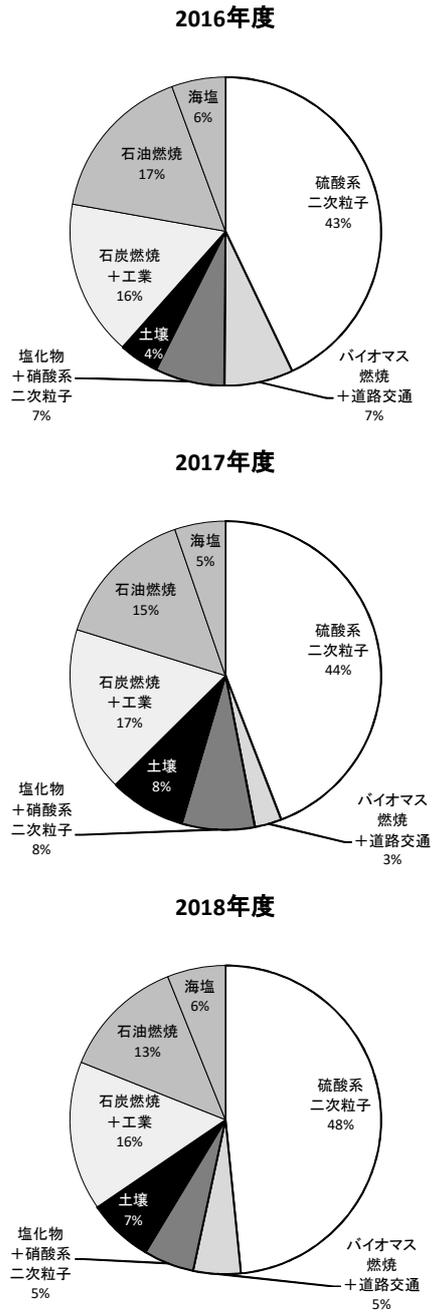


図5 各年度のPM_{2.5}質量濃度への各因子の寄与率 (霧島局)

3. 2 炭素成分を含めた解析

2018年度は炭素成分の分析も行った。燃焼由来や自動車由来の発生源についてより詳細に解析できることが期待されることから、イオン成分、無機元素及び炭素成分のデータが全てそろっている試料（133試料）を使用して解析を行った。

表4に各項目の重み付けを示す。

予備計算において、因子数を変更しても20回の計算のうち数回は収束しない現象が見られたが、ECをWeakに変更したところ結果が改善した。 Q_{True} 、 Q_{Robust} 及び Q_{Theory} が近い条件において、Sb及びBaの r^2 が0.5未満となったため、これらの重み付けをStrongからWeakに変更して再計算を行った。

表4 項目の重み付け（2018年度）

重み付け	項目	備考
Strong	Cl ⁻ , NO ₃ ⁻ , SO ₄ ²⁻ , Na ⁺ , NH ₄ ⁺ , K ⁺ , Mg ²⁺ , Ca ²⁺ , V, Mn, Fe, Zn, As, Se, Rb, Cd, Cs, La, Pb, Si, OC	
	PM _{2.5} 質量濃度	
Weak	Al, Cu, Mo, Ce, W	S/N比が0.5以上1未満 検出率が30%以上50%未満
	Sb, Ba	r^2 が0.5未満
	EC	計算が収束しない

図6に再計算によって得られた各誤差割合、因子数における Q 値及びRSDを示す。

誤差割合15%/因子数7、誤差割合15%/因子数8及び誤差割合20%/因子数5において Q_{True} 、 Q_{Robust} 及び Q_{Theory} が近くなったが、誤差割合20%/因子数5ではCl⁻及びCa²⁺の r^2 が0.5未満となったことから、誤差割合15%/因子数7及び誤差割合15%/因子数8で本解析を実施した。

誤差割合15%/因子数7の条件では、Bootstrapを実行したところ、Mappingは全ての因子で80%以上となり、Unmappedはなく、良好な結果であった。また、いずれの因子も合理的に説明することができた。

誤差割合15%/因子数8の条件では、Bootstrapを実行したところ、Unmappedはなかったが、Mappingで80%を下回った因子があった。また、Asのみ相対比が大きく、解釈が困難な因子が存在した。

以上の検討結果から、誤差割合15%/因子数7の条件の計算結果を採用した。

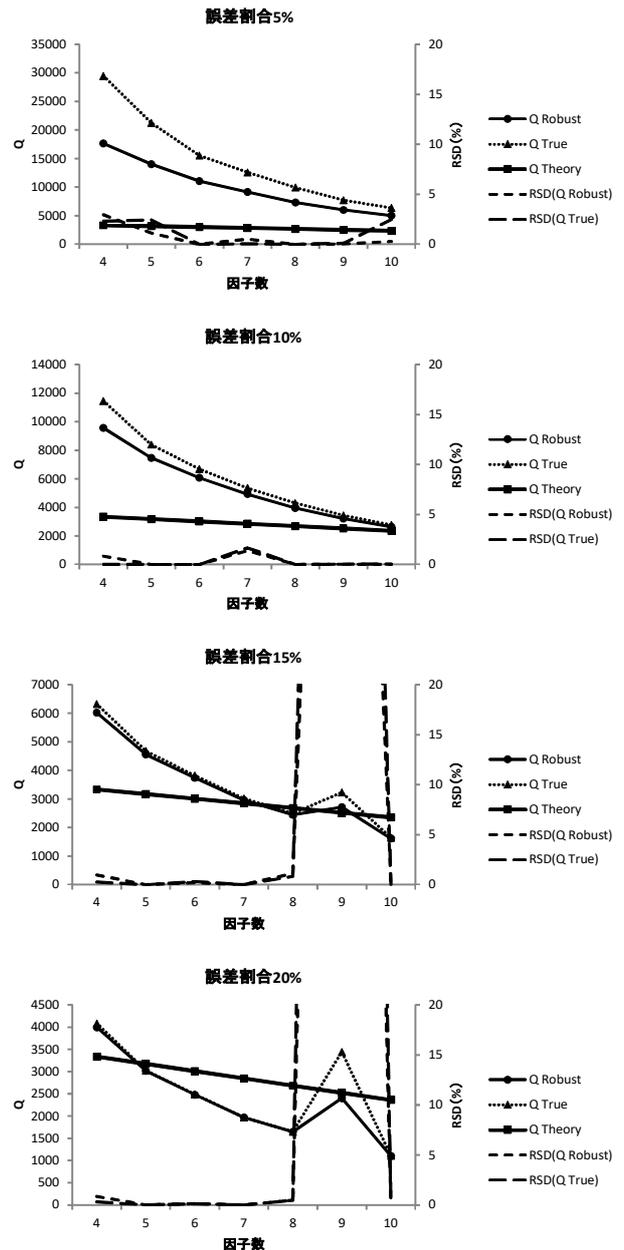


図6 各誤差割合、因子数における Q 値及びRSD（2018年度）

図7に各因子のプロファイルを示す。

因子1は、石油燃焼の指標であるVの相対比が大きいことから、「石油燃焼」とした。

因子2は、SO₄²⁻及びNH₄⁺の相対比が大きいことから、「硫酸系二次粒子」とした。

因子3は、道路粉じんの指標であるCa²⁺、ブレーキ粉じんの指標であるCu、Sb及びBa、自動車排気の指標であるECの相対比が大きい。しかし、この因子におけるOC/EC比は6.4であり、自動車由来のOC/EC比の文献値⁸⁾1.2より大きい。このことから、この因子のOCは他の発生源によるものが大きいと考えられたため、「道路交通

+OC」とした。

因子4は、Cl⁻及びNO₃⁻の相対比が大きいことから、「塩化物+硝酸系二次粒子」とした。

因子5は、海塩の成分であるCl⁻、Na⁺、Mg²⁺及びCa²⁺の相対比が大きいことから、「海塩」とした。

因子6は、土壌成分であるCa²⁺、Al、Fe及びSi、希土類元素であるLa及びCeの相対比が大きいことから、「土壌」とした。

因子7は、石炭燃焼の指標であるAs、Se、Sb及びPb並びに鉄鋼工業の指標であるMn、Fe及びCuの相対比が大きいことから、「石炭燃焼+工業」とした。

3.1の結果と比較すると、K⁺の相対比が大きい因子がなく、バイオマス燃焼の割り当てがされなかった。このことについて、「道路交通+OC」因子においてOC/EC比が大きかったことから、バイオマス燃焼はこの因子に含まれることが考えられるが⁸⁾、このことについては今後検討の必要がある。

図8に霧島局におけるPM_{2.5}質量濃度への各因子の寄与率を示す。

図6の2018年度の解析結果と比較すると、各因子それぞれでわずかに差が見られるものの、大きな差異は見られなかった。

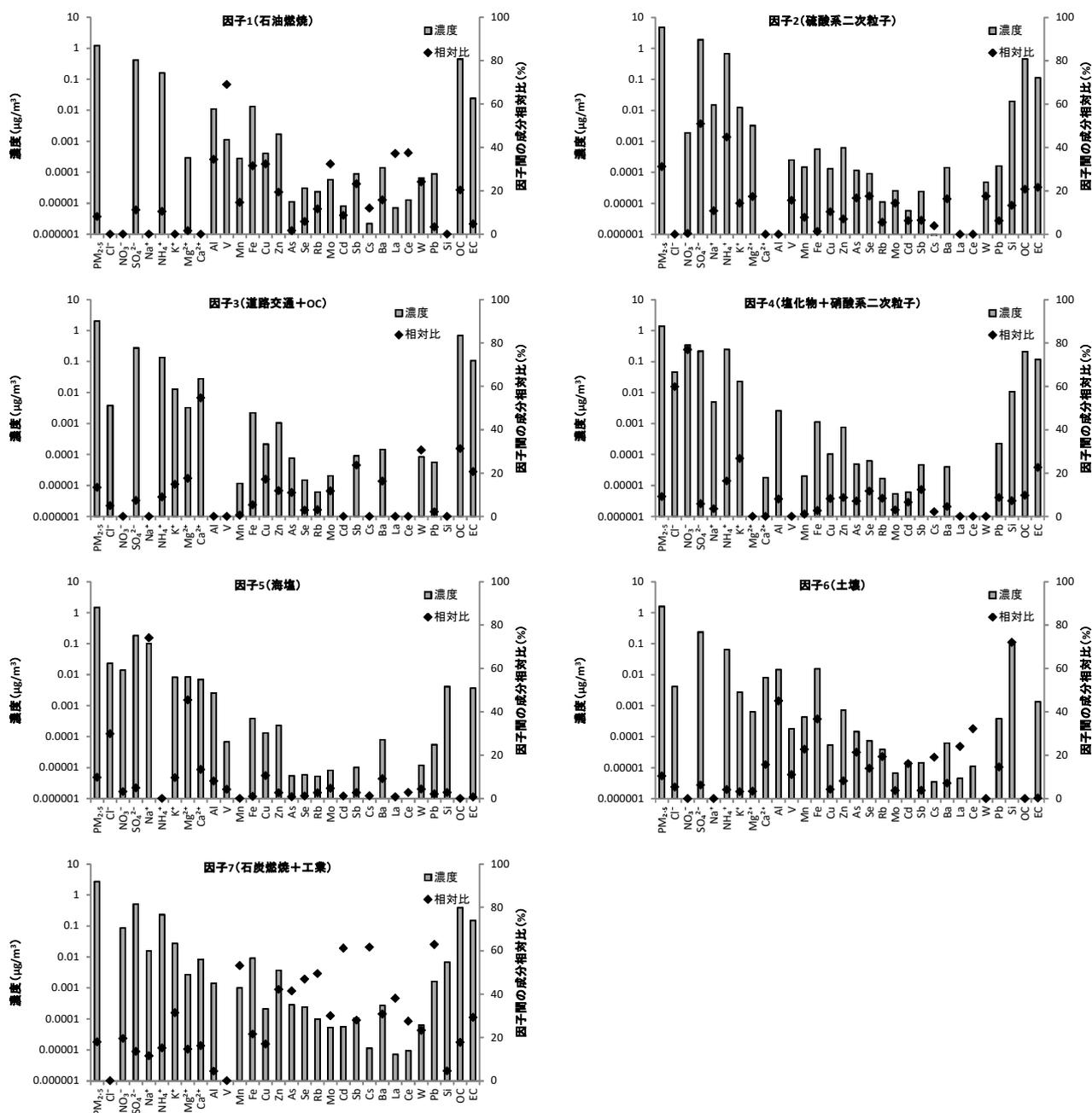


図7 誤差割合15%/因子数7における各因子のプロファイル

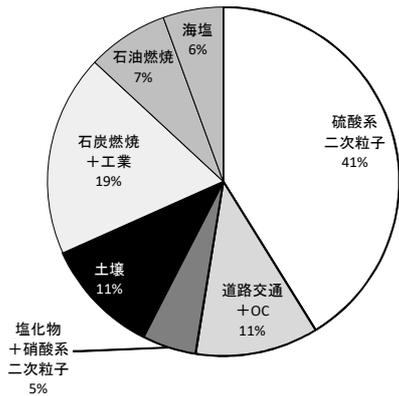


図8 PM_{2.5}質量濃度への各因子の寄与率 (霧島局, 2018年度)

今回は、2018年度のみ炭素成分の分析結果が得られていたことから、詳細な比較ができなかったが、より緻密な解析をしていくためには、今後も炭素成分を含めた分析結果を蓄積していく必要があると考えられる。

3. 3 各発生源についての考察

越境汚染、桜島の火山活動及び道路交通の影響について、今回のPMF解析結果と各種データを用いて考察を行った。

3. 3. 1 越境汚染の影響

図9に各測定局における2017年度冬季のPM_{2.5}質量濃度の経日変化を示す。

いずれの測定局においても、2018年1月18日から19日にかけてPM_{2.5}質量濃度が大きく上昇し、一部の測定局では環境基準の短期基準 (35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) を超過している。なお、この期間の濃度上昇は他自治体においても同様に観測されている¹⁰⁾。

また、図10にこの期間PM_{2.5}を捕集していた霧島局における1月19日の後方流跡線¹¹⁾を示す。

この日の気塊は中国大陸から移流してきていることから、19日は越境汚染の影響があったことが推察される。

次に、図11に18日及び19日のPM_{2.5}質量濃度への各因子の寄与率及び寄与濃度を示す。

18日から19日にかけて、石炭燃焼+工業の寄与率及び寄与濃度は大きく上昇していることから、越境汚染の影響を受けたことが裏付けられる。

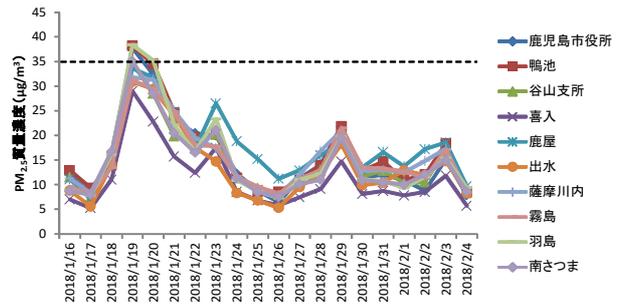


図9 各測定局におけるPM_{2.5}質量濃度の経日変化 (2017年度冬季)

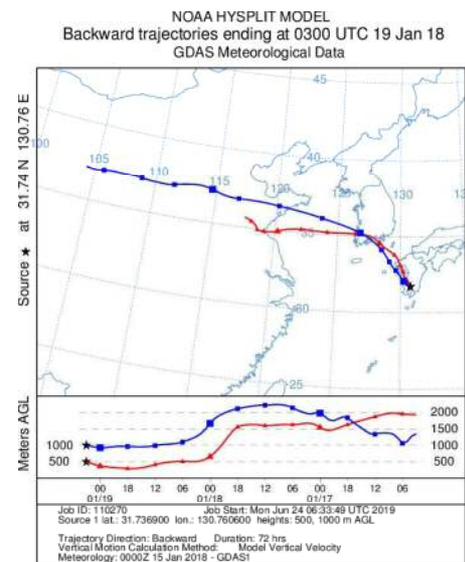


図10 後方流跡線 (霧島局, 2018年1月19日)

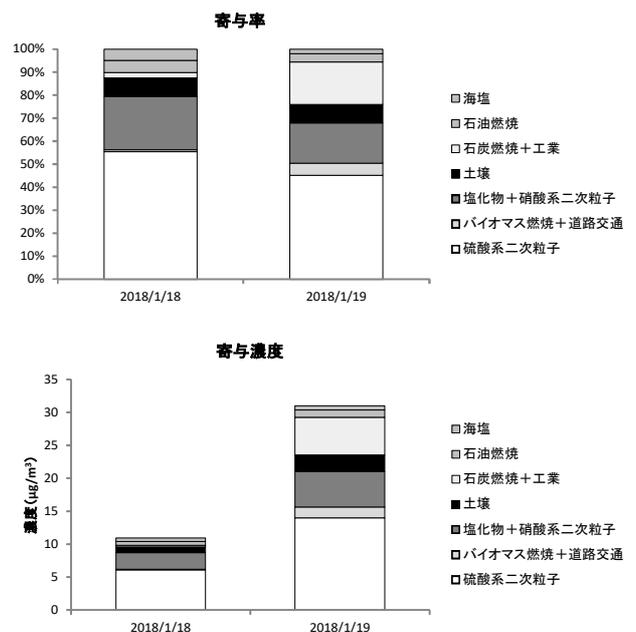


図11 PM_{2.5}質量濃度への各因子の寄与率及び寄与濃度 (霧島局, 2018年1月18日, 19日)

3. 3. 2 桜島の火山活動の影響

図12に各測定局における2018年度冬季のPM_{2.5}質量濃度及びSO₂濃度の経日変化を示す。

鹿屋局において、2018年12月17日及び18日にPM_{2.5}質量濃度及びSO₂濃度が他の測定局より高くなっている。

図13に鹿屋局における17日及び18日のPM_{2.5}質量濃度、SO₂濃度及び風向の経時変化を示す。

PM_{2.5}及びSO₂はおおむね同じ時刻に濃度上昇を示し、西北西から北北西の風が多く観測されている。

また、気象庁の発表¹²⁾では、17日8:35（爆発，流向：南東），11:19（噴火，流向：南東），18日0:49（爆発，流向：南東）に桜島の噴火が観測されたことから、鹿屋局において桜島の火山活動の影響を受けたことが推察される。

次に、図14に16日及び17日のPM_{2.5}質量濃度への各因子の寄与率を示す。

16日は土壌の寄与はないが、17日は71%と大きく上昇している。このことから、火山灰の影響を強く受けたことが裏付けられる。

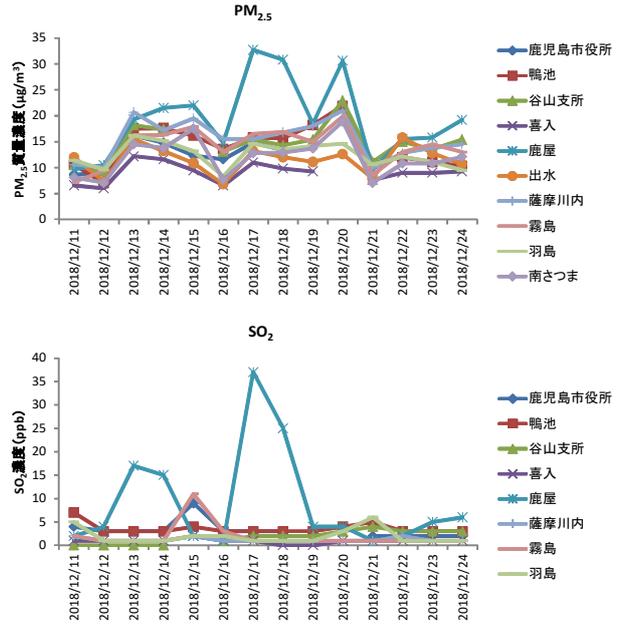


図12 各測定局におけるPM_{2.5}質量濃度及びSO₂濃度の経日変化（2018年度冬季）

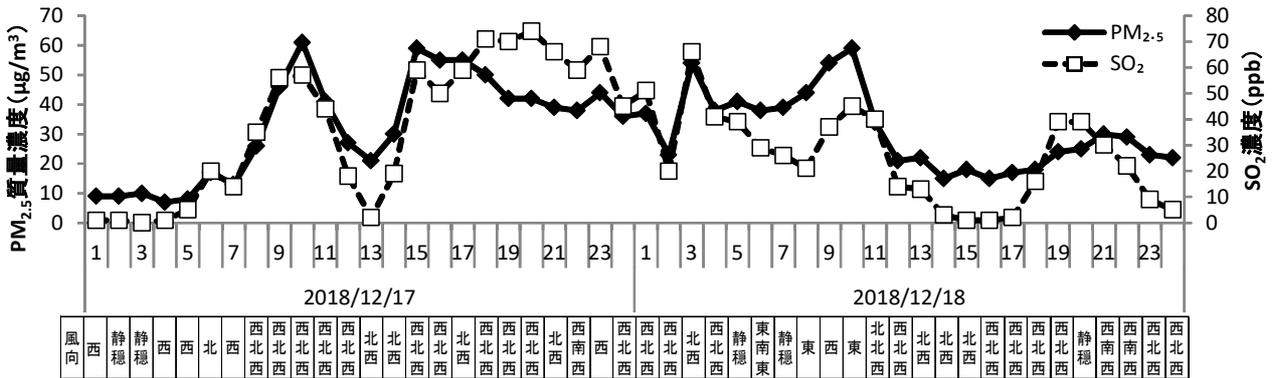


図13 PM_{2.5}質量濃度、SO₂濃度及び風向の経時変化（鹿屋局，2018年12月17日，18日）

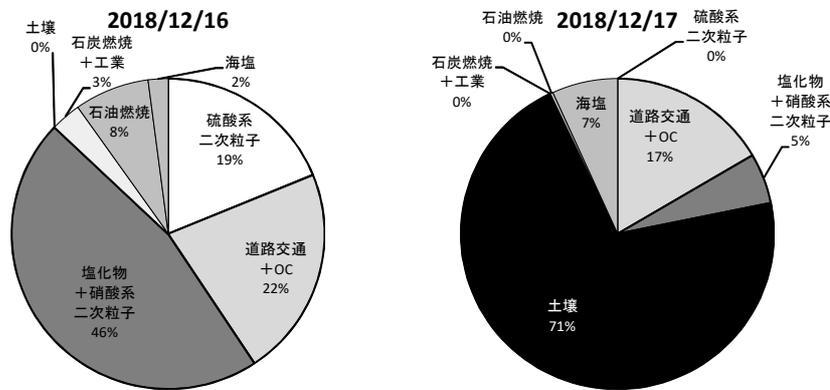


図14 PM_{2.5}質量濃度への各因子の寄与率（鹿屋局，2018年12月16日，17日）

3. 3. 3 道路交通の影響

薩摩川内局は、国道3号沿いに立地しており、自動車排出ガス測定局（以下「自排局」という。）として位置づけられている。これまでの知見¹³⁾では、薩摩川内局においてPM_{2.5}が高濃度を示した期間について、PM_{2.5}質量濃度とNOx濃度の相関が低いことから、PM_{2.5}高濃度時において自動車排出ガスの寄与する可能性は低いとされている。

今回、薩摩川内局と一般環境大気測定局（以下「一般局」という。）である霧島局及び鹿屋局とのPMF解析結果の比較を行い、道路交通の影響の違いについて検討を行った。

なお、薩摩川内局における2018年度の交通量の平均（922.3台/時）と2018年度の捕集期間の交通量の平均（916.2台/時）に大きな差が見られなかったことから、捕集期間中の道路交通の影響は年間を代表していると仮定して解析を行った。

図15に薩摩川内局及び鹿屋局における2018年度のPM_{2.5}質量濃度への各因子の寄与率を示す。

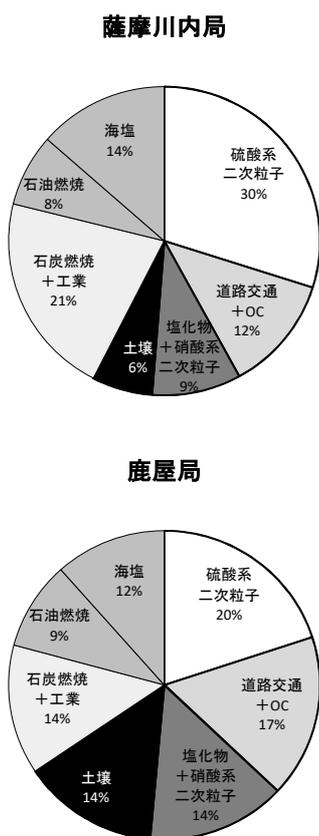


図15 PM_{2.5}質量濃度への各因子の寄与率
(薩摩川内局, 鹿屋局, 2018年度)

薩摩川内局において、霧島局（図8）及び鹿屋局と道路交通+OCの寄与率に大きな差は見られなかった。

この因子には道路交通以外の発生源も含まれるが、3地点とも11%~17%と寄与率は大きくないことから、道路交通のみの寄与率も3地点で大きな差はないと考えられる。交通量の多い薩摩川内局と交通量の少ない霧島局及び鹿屋局で差が見られないことから、道路交通のみの寄与率は小さく、この因子の大部分が道路交通以外の発生源と考えられる。

このことから、当県においては、道路交通の影響は小さいものと示唆される。

4 まとめ

- 2016年度～2018年度データの解析により、当県におけるPM_{2.5}に寄与する因子は硫酸系二次粒子、バイオマス燃焼+道路交通、塩化物+硝酸系二次粒子、土壌、石炭燃焼+工業、石油燃焼、海塩の7つに分けられた。
- 霧島局において土壌は春季に、硫酸系二次粒子は夏季に、塩化物+硝酸系二次粒子及び石炭燃焼+工業は冬季に寄与が大きくなるが、年度別に解析すると各年度で大きな変動は見られなかった。
- 炭素成分の分析結果を加えた2018年度データの解析により、当県におけるPM_{2.5}に寄与する因子は硫酸系二次粒子、道路交通+OC、塩化物+硝酸系二次粒子、土壌、石炭燃焼+工業、石油燃焼、海塩の7つに分けられ、霧島局において2016年度～2018年度の年度別の解析結果と比較したところ、大きな差異は見られなかった。
- 常時監視及び気象データから、越境汚染及び桜島の火山活動の影響が推察された事例について、PMF解析によりそれらの影響が裏付けられた。
- 自排局と一般局の道路交通+OCの寄与率の比較により、当県においては道路交通の寄与が小さいことが示唆された。

参考文献

- 田知行紘太, 福田哲也, 他; 鹿児島県におけるPM_{2.5}の地域特性と発生源解析に関する調査研究 (第I報), 本誌, 18, 62~67 (2017)
- 田知行紘太, 和田加奈子, 他; ケイ素の分析結果からみるPM_{2.5}の発生源解析, 本誌, 19, 92~98 (2018)
- 環境省; 大気中微小粒子状物質 (PM_{2.5}) 成分測定

- マニュアル, 平成24年4月19日
- 4) Gary Norris, Rachele Duvall, *et al.*; EPA Positive Matrix Factorization (PMF) 5.0 Fundamentals and Users Guide (2014)
 - 5) 豊永悟史, 出納由美子, 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**, 150~165 (2017)
 - 6) 大内信保, 山内正信; PMF法を用いた微小粒子状物質 (PM_{2.5}) 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)
 - 7) 池田光広; PMF法による香川県におけるPM_{2.5}発生源解析, 香川県環境保健研究センター所報, **16**, 35~39 (2017)
 - 8) M. Bressi, J. Sciare, *et al.*; Sources and geographical origins of fine aerosols in Paris (France), *Atmos. Chem. Phys.*, **14**, 8813~8839 (2014)
 - 9) 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)
 - 10) 国立研究開発法人国立環境研究所; 環境数値データベース, <https://www.nies.go.jp/igreen/> (2019/9/4アクセス)
 - 11) National Oceanic and Atmospheric Administration; HYSPLIT Trajectory Model, <https://ready.arl.noaa.gov/hypub-bin/trajsrc.pl> (2019/7/16アクセス)
 - 12) 気象庁; 火山に関する情報の発表状況, <http://www.data.jma.go.jp/svd/vois/data/tokyo/STOCK/volinfo/volinfo.php> (2019/7/16アクセス)
 - 13) 西中須暁子, 東小菌卓志, 他; 鹿児島県における粒子状物質などの地域特性に関する調査研究 (第II報), 本誌, **17**, 43~50 (2016)