

# PS-6 港湾周辺都市部における大気汚染物質発生源寄与の推定に関する研究

環境・動力系 \* 浅見 光史, 城田 英之

## 1. はじめに

健康影響に係る観点から、環境省は2009年9月にPM2.5の質量濃度について環境基準値を制定した。2011年7月には、PM2.5成分分析のガイドライン<sup>1)</sup>を定め、各自治体と連携して対策を進めており、その質量濃度の常時監視体制が全国に構築された。

この成分分析ガイドラインの目的の一つとして、PM2.5の発生源寄与割合を推計することが標榜されている。発生源寄与割合の推計には、ある測定点で得られた物質の成分濃度について化学成分の特徴に基づき、発生源からの寄与や影響を推定するレセプタモデルが一般に用いられる。レセプタモデルは、下流に位置する観測点(レセプタ)から上流に位置する発生源(ソース)に向かい解析するモデルである。具体的には、ある地点で観測された成分濃度に基づき、その濃度に影響を及ぼしたと考えられる発生源の寄与濃度を統計的に評価するものである。代表的なレセプタモデルの一つに正値行列因子分解モデル(PMF:Positive Matrix Factorization)があり、大気エアロゾル、ダイオキシン類、VOCといった発生源寄与解析に用いられる。本報告では、レセプタモデルのうちPMFモデルを用いて、海洋に面した都市に設定されている陸上大気物質測定局における船舶起源の排ガス寄与を評価した。

## 2. モデルの概要

本報告で用いるレセプタモデルであるPMFモデルは、Paatero *et al.*<sup>2)</sup>により開発された。PMFモデルは、多数組の観測データを影響因子に分解する手法で、ある地点、ある期間における濃度は、式(2.1)に示される影響因子毎寄与率とその組成に分解される：

$$x_{ij} = \sum_{k=1}^p g_{ik} f_{kj} + e_{ij} \quad (2.1)$$

ここで、 $x_{ij}$ は観測点における試料*i*に含まれる成分*j*の観測濃度[ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ]、 $g_{ik}$ は試料*i*に対する影響因子*k*の相対寄与[-]、 $f_{kj}$ は影響因子*k*のプロファイルにおける*j*の濃度[ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ]、 $e_{ij}$ は試料*i*に含まれる成分*j*の観測値とモデル化された計算値の残差、 $p$ は影響因子数である。PMFモデルでは、 $x_{ij}$ を再現できる $g_{ik}$ 、 $f_{kj}$ および $p$ を抽出することを目的とする。モデルに任意の影響因子数 $p$ を与え、式(2.2)で定義される $Q$ 値を最小にする解を繰り返し計算によって求める：

$$Q = \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^m \left( \frac{e_{ij}}{u_{ij}} \right)^2 \quad (2.2)$$

$$= \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^m \left( \frac{x_{ij} - \sum_{k=1}^p g_{ik} f_{kj}}{u_{ij}} \right)^2$$

$u_{ij}$ は観測点における試料試料*i*に含まれる成分*j*の測定に伴う不確かさ、 $g_{ik}$ および $f_{kj}$ はともに負とならないように制約される。

## 3. 解析条件

2014年度における沖縄県沖縄市のPM2.5に含まれる成分濃度測定結果<sup>3)</sup>を対象とした。PMFモデルでは、式(2.2)で示されるように、成分の測定結果およびその不確かさが必要である。検出下限値以下の場合は検出下限値の1/2値で置き換えた。一般環境ではイオンバランス(陰イオン当量濃度合計)/陽イオン当量濃度合計)が成立することから、イオンバランス値を確認して測定結果の妥当性を判定した。PM2.5に含まれるイオンバランスを評価した。図-1にその結果を示す。文献<sup>1)</sup>における許容範囲内0.8-1.2(黒破線)にあり、測定結果は妥当であると判断できる。

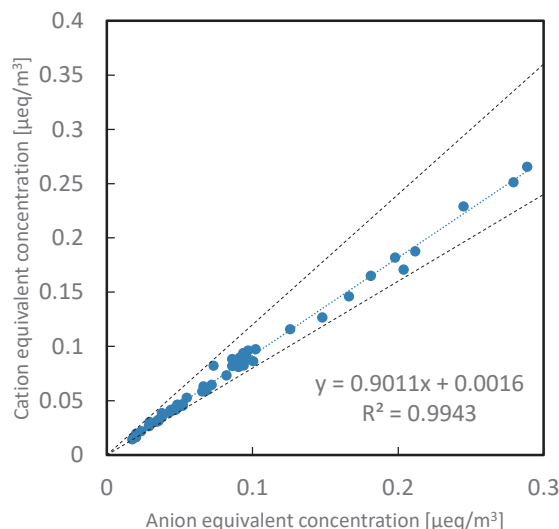


図-1 イオンバランスによる陽/陰イオン当量濃度比較

また、質量濃度測定値の地域代表性を、マスクロージャモデル(PM2.5の質量濃度と主要成分の関係を予め統計的に求め、成分測定データから質量濃度を推定する測定質量濃度妥当性評価モデル)で検証した。式(2.3)のモデルによる推定質量濃度と実測質量濃度を図-2に示す。文献<sup>1)</sup>における許容範

図 0.8-1.2(黒破線)外の観測点は分析から除外した。また、成分の不確かさ補正を、検出下限値未満が 2%の場合補正なし、2-20%の場合 3 倍、20%以上の場合成分を除外した。

$$\begin{aligned} & \text{推定質量濃度} \\ & = 1.375[\text{SO}_4^{2-}] + 1.29[\text{NO}_3^-] + 2.5[\text{Na}^+] \\ & + 1.4[\text{OC}] + [\text{EC}] + [\text{SOIL}] \end{aligned} \quad (2.3)$$

$$[\text{SOIL}] = 1.89[\text{Al}] + 1.4[\text{Ca}] + 1.38[\text{Fe}] + 2.14[\text{Si}] + 1.67[\text{Ti}]$$

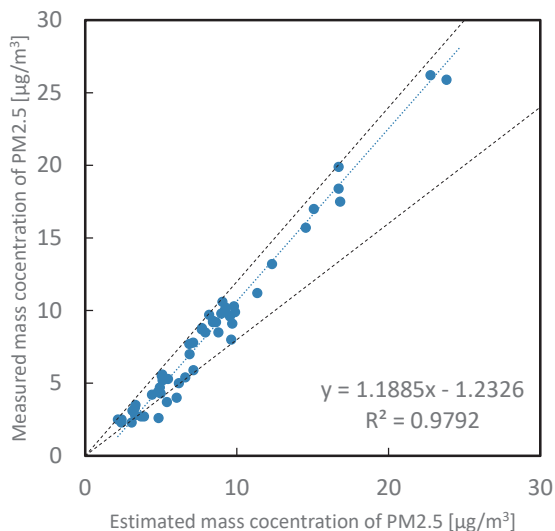


図-2 マスクロージャモデルによる PM2.5 質量濃度比較

PMF モデルでは、影響因子の数を評価者が決定する必要がある。ここでは、観測点近傍の施設や気象条件を考え、実現象を説明し得ることが確認されている影響因子数 6<sup>3)</sup>を仮定した。影響因子の解釈は PMF 解析結果から評価者が行うため、現段階では発生源が何であるかは不明である。

#### 4. 解析結果と影響因子の解釈

3. の解析条件に基づき、30 回の繰り返し計算を行い、影響因子の成分濃度および成分組成を求めた。PMF モデル解析の結果を図-3 に示す。分解された影響因子(図では Factor)についてユニークな成分組成が分配されている。図-3 に示される主な指標成分(影響因子において高値の成分組成)に基づき、影響因子の解釈を行った。この解釈には、PMF 解析手法およびその解釈に関するレビュー文献<sup>4)</sup>を参考にした。

表-1 影響因子の解釈

因子	指標成分	影響因子	発生源
1	Ca <sup>2+</sup> , Al, Si, Ti, Fe	土壌・ダスト	自然, 人為活動
2	OC, EC	道路交通	自動車排気
	Mn, Zn, Sb, As		道路粉塵
3	Na <sup>+</sup> , Mg <sup>2+</sup> , Cl <sup>-</sup>	海塩	海陸風の影響
4	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> , NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	二次生成硫酸塩	-
5	Zn, Mn, Fe, Pb	工業	周辺工業施設
6	V, Ni	石油燃焼	船舶, 火力発電

因子解釈の結果を表-1 に示す。6 の影響因子に対して、典型的な指標成分が確認された。陸域における主な影響因子が Factor 1, 2, 5 に、船舶に関わる影響因子が Factor 6 の石油燃

焼および Factor 3 の海塩として解釈された。

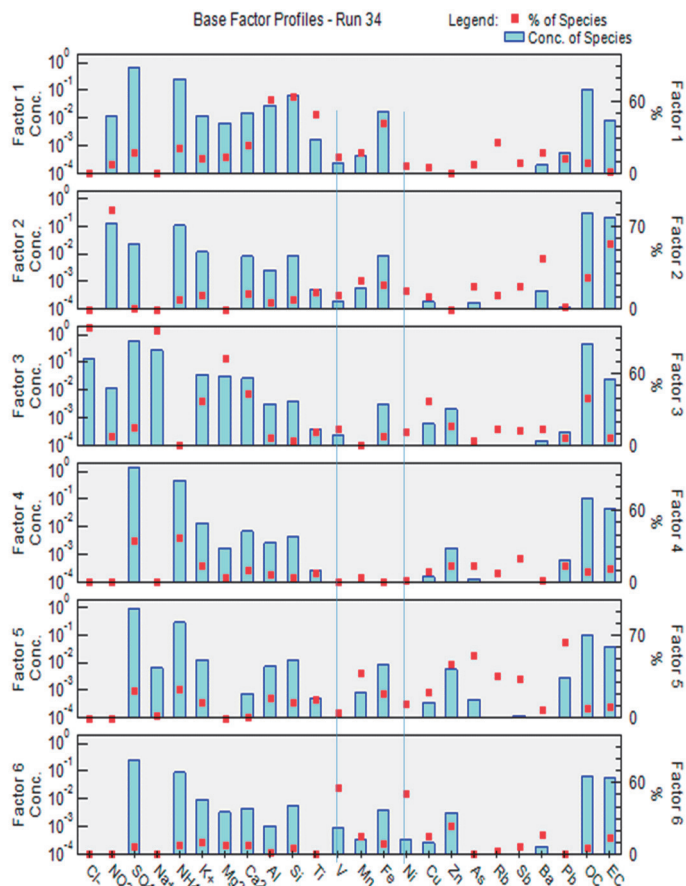


図-3 PMF モデル解析結果。各影響因子(Factor)の成分濃度および成分組成を示す。縦線は、船舶由来指標成分の V および Ni を示す。

#### 5. まとめ

ある測定点で得られた物質の成分濃度について化学成分の特徴に基づき、発生源からの寄与や影響を推定するレセプタモデルを用いて、陸上大気測定局における発生源寄与を推定した。港湾周辺都市に設定されている測定局の結果を用いると、船舶由来を含む石油燃焼因子および海塩因子が明確に分離され、寄与の程度を評価できることが明らかにされた。

#### 参考文献

- 1) 環境省水・大気環境局：大気中微小粒子状物質(PM2.5)測定マニュアル(2012), <http://www.env.go.jp/air/osen/pm/ca/manual.html> (2020.05.22 アクセス)
- 2) P.Paatero *et al.*: Positive Matrix Factorization: A non-negative factor model with optical utilization of error estimates of data values, *Environmetrics*, 5, 111-126, (1994).
- 3) 比嘉ら：沖縄県における微小粒子状物質(PM2.5)の発生源寄与解析(2014年度), 沖縄県衛生環境研究所報 50 号, (2016).
- 4) 豊永ら：Positive Matrix Factorization モデルを用いた PM2.5 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 巻第 4 号, (2019).