ノート

鹿児島県におけるPM₂₅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	Ш	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(PM₂₃)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: PM25, PMFモデル, 発生源寄与率

1 はじめに

微小粒子状物質(以下「PM25」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,PM25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PM25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,PM25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¹¹では,PM₂₅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²¹。 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PM25の捕集を行った。

鹿児島県環境保健センター

〒892-0835 鹿児島市城南町18番地



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³¹ (以下「マニュアル」という。)に基づき,2台のPM₂₅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。

PM2s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PM2s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、PM₂₅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。

年度季節14集地点月香季2016.4.14~2016.4.27南さつま局2016.7.1~2016.5.20霧島局2016.7.1~2016.7.14南さつま局夏季2016.7.21~2016.8.3霧島局2016.9.30~2016.10.16南さつま局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2017.3.3~2017.3.16志布志局2017.5.11~2017.5.24霧島局2017.6.6センター2017.5.11~2017.5.24霧島局2017.8.18~2017.7.10鹿屋局2017.8.18~2017.8.27センター2017.10.20~2017.10.12北シター2017.8.18~2017.8.27センター2017.8.18~2017.8.27センター2017.8.18~2017.8.27センター2017.10.20~2017.10.12北シター2017.10.20~2017.10.12北シター2018.1.16~2018.2.14センター2018.1.16~2018.2.14センター2018.1.16~2018.2.14センター2018.1.16~2018.2.14センター2018.1.16~2018.2.14東島局2018.1.16~2018.2.14三ンター2018.1.16~2018.2.14三ンター2018.1.16~2018.2.14三ンター2018.1.16~2018.2.14三ンター2018.1.16~2018.2.14三シター2018.1.16~2018.2.14三シター2018.1.16~2018.2.14三シター2018.1.16~2018.2.14三シター2018.1.16~2018.2.14三シター2018.1.16~2018.2.14三シター2018.1.16~2018.3.12三酸島局2018.1.16~2018.3.12三酸島局2018.1.16~2018.4.12三酸島局2018.1.12~2018.5.22霧島局2018.1.19~2018.8.7<						
APA2016. 4.14~2016. 4.27南さつま局 深島局2016. 5. 7~2016. 5.20霧島局2016. 7. 1~2016. 7.14南さつま局2016. 7.21~2016. 8.3霧島局2016. 9.8~2016. 9.15志布志局2016. 10.20~2016.10.16南さつま局2016. 10.20~2016.11.2霧島局2017. 1.19~2017.2.5霧島局2017. 2.8~2017.2.6南さつま局2017.3.3~2017.3.16志布志局2017.5.11~2017.5.24霧島局2017.6.6センター2017.7.0~2017.7.10鹿屋局2017.8.18~2017.8.27センター2017.8.18~2017.8.27センター2017.10.22~2017.7.10鹿屋局2017.10.22~2017.11.9霧島局2017.10.22~2017.11.9霧島局2017.11.22~2017.12.6鹿屋局2017.11.22~2017.12.7徳屋局2017.11.22~2017.13七ンター秋季2017.10.22~2018.1.42017.12.22~2018.1.4センター2018.3.13~2018.2.4霧島局2018.3.13~2018.3.22センター2018.4.12~2018.4.29薩摩川内局2018.5.9~2018.5.22霧島局2018.6.8~2018.6.21鹿屋局2018.6.8~2018.6.21鹿屋局2018.6.8~2018.6.21鹿屋局2018.6.8~2018.6.21鹿屋局2018.7.19~2018.8.7霧島局2018.8.17~2018.8.30鹿屋局2018.8.17~2018.8.30鹿屋局2018.8.17~2018.8.202018.8.17~2018.8.312018.8.17~2018.8.312018.8.17~2018.8.322018.8.17~2018.8.332018.8.17~2018.8.332018.8.17~2018.8.332018.9.20~2018.9.27<	年度	季節	期間	捕集地点		
12016.5.7~2016.5.20霧島局2016.7.1~2016.7.14南さつま局2016.9.8~2016.9.15志布志局2016.9.8~2016.9.15志布志局2016.0.20~2016.11.12第8島局2016.10.20~2016.11.2第8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2017.2.8~2017.3.16志布志局2017.3.3~2017.3.16志布志局2017.5.11~2017.5.24霧島局2017.6.6センター2017.6.6センター2017.6.27~2017.7.10夏季2017.7.20~2017.2017.8.18~2017.8.272017.1.9~2017.1.9霧島局2017.1.19~2017.2017.1.928島局2017.1.0.3~2017.1.192017.1.928島局2017.1.0.3~2017.1.192017.1.19~2017.1.192017.1.19~2017.1.192017.1.19~2017.1.192017.1.19~2017.1.192017.1.19~2017.1.192018.1.16~2018.2.1430.52017.1.192018.1.16~2018.2.1430.51.10.22~2018.1.42018.1.10~2018.3.222018.1.16~2018.3.22 <td< td=""><td rowspan="3"></td><td>素季</td><td>2016. 4.14~2016. 4.27</td><td>南さつま局</td></td<>		素季	2016. 4.14~2016. 4.27	南さつま局		
 		тч	2016. 5. $7 \sim 2016$. 5. 20	霧島局		
夏季 2016. 7.21~2016. 8.3霧島局 2016. 9.30~2016. 9.15志布志局 2016. 10.20~2016. 11.2和季 2016. 10.20~2016. 11.2霧島局 2016. 10.20~2017. 1.4センター センター 2017. 1.19~2017. 2.5종季 2017. 1.19~2017. 2.5霧島局 2017. 3.3~2017. 3.16志布志局 2017. 3.3~2017. 3.162017. 3.3~2017. 3.16志布志局 2017. 5.11~2017. 5.24霧島局 2017. 6.62017. 6.66センター 2017. 7.20~2017. 7.10鹿屋局 2017. 8.18~2017. 8.272017. 8.18~2017. 8.27センター 2017. 10.3~2017. 10.12センター 2017. 10.19~2017. 11.92017. 10.19~2017. 11.9霧島局 2017. 10.2~2017. 11.9霧島局 2017. 11.22~2017. 11.92017. 10.19~2017. 11.9霧島局 2017. 11.22~2017. 11.9東屋局 2017. 11.22~2017. 11.92018. 1.16~2018. 2.4霧島局 2018. 1.16~2018. 2.4東屋局 2018. 1.16~2018. 2.4春季 2018. 3.13~2018. 3.22センター 2018. 1.16~2018. 2.4東屋局 2018. 1.16~2018. 2.4春季 2018. 3.13~2018. 3.22センター2018. 5.9~2018. 5.22霧島局 2018. 6.8~2018. 5.22藤屋局 2018. 6.8~2018. 5.222018. 6.8~2018. 5.22霧島局 2018. 6.8~2018. 5.22藤屋局 2018. 6.27~2018. 7.102018. 6.8~2018. 5.22霧島局 2018. 6.27~2018. 7.10鹿屋局 2018. 6.27~2018. 8.72018. 6.8~2018. 8.7霧島局 2018. 7.19~2018. 8.7藤屋局 2018. 6.27~2018. 8.72018. 6.8~2018. 8.27藤屋局 2018. 8.17~2018. 8.30鹿屋局 2018. 5.9~2018. 5.222018. 6.27~2018. 7.10藤屋尾局 2018. 6.27~2018. 7.10藤屋尾局 2018. 5.9~2018. 8.72018. 6.27~2018. 7.10藤屋尾局 2018. 6.27~2018. 8.7霧島局 2018. 6.27~2018. 8.72018. 6.		夏季	2016. 7. 1~2016. 7.14	南さつま局		
10162016. 9. 8~2016. 9.15志布志局 南さつま局2016. 10. 20~2016. 10. 16南さつま局 マンクー2016. 12. 26~2017. 1.4センター2017. 1. 19~2017. 2.5霧島局 2017. 1. 19~2017. 2.5病まの 家島局 2017. 3. 3~2017. 3.16志布志局 2017. 3. 3~2017. 3.162017. 3. 3~2017. 3.162017. 5.11~2017. 5.24霧島局 2017. 6.6センター2017. 6.27~2017. 7.10鹿屋局 2017. 8.18~2017. 8.27センター2017. 10.3~2017. 10.122017. 6.27~2017. 7.30霧島局 2017. 8.18~2017. 8.27センター2017. 10.19~2017. 11.9霧島局 2017. 10. 3~2017. 10.12センター2017. 10.19~2017. 11.9霧島局 2017. 11.22~2017. 12.6鹿屋局 2017. 11.22~2017. 12.72018. 1.16~2018. 2.4霧島局 2018. 1.16~2018. 2.4露島局 2018. 1.16~2018. 2.4春季2018. 3.13~2018. 3.22センター2018. 5.9~2018. 5.22霧島局 2018. 6.27~2018. 5.22露島局 2018. 6.27~2018. 5.222018. 6.27~2018. 5.22霧島局 2018. 6.27~2018. 7.10鹿屋局 2018. 5.9~2018. 5.222018. 6.27~2018. 7.10鹿屋局 2018. 6.27~2018. 7.10鹿屋局 2018. 6.27~2018. 8.72018. 6.27~2018. 8.7霧島局 2018. 6.27~2018. 8.7霧島局 2018. 6.27~2018. 8.72018. 6.27~2018. 8.7霧島局 2018. 7.19~2018. 8.7裏島局2018. 7.19~2018. 8.7霧島局 2018. 7.19~2018. 8.7三人 2018. 5.92018. 6.27~2018. 7.10鹿屋局 2018. 7.19~2018. 8.7三人 2018. 6.27~2018. 7.102018. 6.27~2018. 7.10鹿屋局 2018. 7.19~2018. 8.7三人 2018. 6.27~2018. 7.102018. 6.27~2018. 8.7霧島局 2018. 7.19~2018. 8.7三人 2018. 6.27~2018. 7.10<			2016. 7.21~2016. 8. 3	霧島局		
2016秋季2016. 9.30~2016.10.16南さつま局 2016.10.20~2016.11.2零島局 2016.12.26~2017.1.4センター2016.12.26~2017.1.4センター2017.1.19~2017.2.5霧島局 2017.2.8~2017.3.162017.2.8~2017.2.26南さつま局 2017.3.3~2017.3.162017.3.3~2017.3.16志布志局 2017.6.62017.5.11~2017.5.24霧島局 2017.6.62017.6.6センター2017.6.27~2017.7.10廃屋局 2017.8.18~2017.8.272017.20~2017.7.30霧島局 2017.10.3~2017.10.122017.10.3~2017.10.12センター2017.10.22~2018.1.4センター2017.11.22~2017.12.6廃屋局 2017.11.22~2017.12.62018.1.16~2018.2.4霧島局 36局2018.1.16~2018.2.4霧島局 36局2018.1.16~2018.2.4霧島局 36局2018.1.16~2018.2.23廃屋局 2018.3.13~2018.3.222018.6.8~2018.6.21廃屋局 2018.6.27~2018.7.102018.6.8~2018.6.21廃屋局 2018.6.27~2018.7.102018.6.8~2018.6.21廃屋局 2018.8.17~2018.8.302018.7.19~2018.8.7霧島局 302018.8.17~2018.8.30廃屋局 302018.8.17~2018.8.20藤摩川内局 302018.8.17~2018.8.30廃屋局 302018.8.17~2018.8.30廃屋局 302018.0.18~207.8.9.27藤摩川内局 302018.0.18~207.8.9.27藤摩川内局 302018.0.18~207.8.9.27藤摩川内局			2016. 9. 8~2016. 9.15	志布志局		
(ハギ) 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. 3. 3~2017. 3.16 志布志局 2017. 5. 11~2017. 5.24 廃屋局 2017. 6. 6 センター 2017. 7. 20~2017. 7.10 廃屋局 2017. 6. 6 センター 2017. 8. 18~2017. 8.27 センター 2017. 8. 18~2017. 8.27 センター 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 2017. 10. 19~2017. 10.12 センター 2017. 10. 19~2017. 11. 9 霧島局 2017. 10. 19~2017. 11. 9 霧島局 2017. 11. 22~2018. 1. 4 センター 2018. 1. 16~2018. 2. 4 霧島局 2018. 1. 16~2018. 2. 4 霧島局 2018. 1. 16~2018. 2. 4 霧島局 2018. 3. 13~2018. 3. 22 センター 2018. 5. 9~2018. 5. 22 霧島局 2018. 5. 9~2018. 5. 22 霧島局 2018. 6. 27~2018. 7. 10 薩摩川内局	2016	파주	2016. 9.30~2016.10.16	南さつま局		
2016.12.26~2017.1.4 センター 2017.1.19~2017.2.5 霧島局 2017.2.8~2017.2.6 南さつま局 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 2017.6.6 センター 2017.6.72017.7.10 鹿屋局 2017.720~2017.7.10 鹿屋局 2017.8.18~2017.8.27 センター 2017.8.18~2017.8.27 センター 2017.10.3~2017.10.12 センター 2017.20~2017.10.12 センター 2017.10.22~2017.12.6 鹿屋局 2017.10.22~2017.12.7 運動局 2017.10.22~2017.10.12 センター 2017.10.3~2017.10.12 センター 2017.10.22~2017.11.9 霧島局 2017.11.22~2017.12.6 鹿屋局 2018.1.16~2018.2.4 霧島局 2018.1.16~2018.2.5 連歩 2018.1.16~2018.2.4 霧島局 2018.5.9~2018.5.22 霧島局 2018.6.27~2018.4.29 薩摩川内局 2018.6.27~2018.7.10 鹿屋局 2018.6.27~2018.7.10 鹿屋局 2018.6.27~2018.8.7 <td></td> <td>似子</td> <td>2016.10.20~2016.11.2</td> <td>霧島局</td>		似子	2016.10.20~2016.11.2	霧島局		
令季 2017. 1.19~2017. 2.5 霧島局 2017. 2.8~2017. 2.26 南さつま局 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 2017. 6.6 センター 2017. 8.18~2017. 7.10 鹿屋局 2017. 8.18~2017. 8.27 センター 2017. 8.18~2017. 8.27 センター 2017. 10.3~2017.10.12 センター 2017. 10.3~2017.10.12 センター 2017. 10.19~2017.11.9 霧島局 2017. 11.22~2017.12.6 鹿屋局 2017. 11.22~2017.12.6 鹿屋局 2017. 12.22~2018.1.4 センター 2018. 2.10~2018.2.4 霧島局 2018. 3.13~2018.3.22 センター 2018. 3.13~2018.3.22 センター 2018. 3.13~2018.3.22 センター 2018. 3.13~2018.3.22 センター 2018. 5.9~2018.5.22 霧島局 2018. 6.27~2018. 1.2 慶 2018. 6.27~2018. 6.21 鹿屋局 2018. 6.27~2018. 8.7 霧島局 2018. 6.27~2018. 8.7 霧島局 2018. 7.19~2018. 8.7 霧島局<			2016.12.26~2017.1.4	センター		
(ペチ) 2017. 2. 8~2017. 2.26 南さつま局 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 2017. 6.6 センター 2017. 7.20~2017. 7.10 鹿屋局 2017. 8.18~2017. 8.27 センター 2017. 10.3~2017.10.12 センター 2017. 10.3~2017.10.12 センター 2017. 10.3~2017.10.12 センター 2017. 10.19~2017.11.9 霧島局 2017.11.22~2018.1.4 センター 2018.1.16~2018.2.4 霧島局 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 2018.5.9~2018.5.22 霧島局 2018.6.27~2018.5.22 霧島局 2018.5.9~2018.5.22 霧島局 2018.6.27~2018.8.7 鹿屋局 2018.6.27~2018.8.7 藤摩川内局 2018.7.19~2018.8.7 藤摩川内局 2018.8.17~2018.8.8.7 露島局 2018.8.17~2018.8.8.7 露島局 2018.8.17~2018.8.9.27 薩摩川内局 2018.8.17~2018.8.9.27 薩摩川内局 <td></td> <td>反禾</td> <td>$2017. 1.19 \sim 2017. 2.5$</td> <td>霧島局</td>		反禾	$2017. 1.19 \sim 2017. 2.5$	霧島局		
1012017. 3. 3~2017. 3.16志布志局春季2017. 4.13~2017. 4.26鹿屋局春季2017. 5.11~2017. 5.24霧島局2017. 6. 6センター2017. 6. 27~2017. 7.10鹿屋局夏季2017. 6.27~2017. 7.10鹿屋局2017. 8.18~2017. 8.27センター2017. 10. 3~2017. 10.12センター秋季2017. 10. 3~2017. 10.12センター2017. 10. 19~2017. 11. 9霧島局2017. 11. 22~2018. 1. 4センター冬季2018. 1.16~2018. 2. 4霧島局2018. 2.10~2018. 3.22センター春季2018. 3.13~2018. 3.22センター春季2018. 5. 9~2018. 5.22霧島局2018. 6. 8~2018. 6.21鹿屋局2018. 7.19~2018. 7.10薩摩川内局夏季2018. 7.19~2018. 8.7霧島局2018. 8.17~2018. 8.30鹿屋局2018. 8.17~2018. 8.30鹿屋局2018. 9.20~2018. 9.27薩摩川內局秋季2018. 10.18~2018.10.31霧島局		冬李	2017. 2. 8~2017. 2.26	南さつま局		
本季 2017. 4.13~2017. 4.26 鹿屋局 207. 5.11~2017. 5.24 霧島局 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 2017. 8.18~2017. 8.27 センター 2017. 10.3~2017. 10.12 センター 2017. 10.3~2017. 10.12 センター 2017. 10.19~2017. 11.9 霧島局 2017. 10.22~2017. 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. 2.10~2018. 3.22 センター 2018. 3.13~2018. 3.22 センター 2018. 3.13~2018. 3.22 センター 2018. 4.12~2018. 4.29 藤摩川内局 2018. 5.9~2018. 5.22 霧島局 2018. 6.27~2018. 7.10 薩摩川内局 2018. 7.19~2018. 8.7 霧島局 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 2018. 10.18~2018. 10.31 霧島局			$2017.$ 3. $3\sim 2017.$ 3. 16	志布志局		
春季2017. 5.11~2017. 5.24霧島局 2017. 6.62017. 6.6センター夏季2017. 6.27~2017. 7.10鹿屋局夏季2017. 7.20~2017. 7.30霧島局2017. 8.18~2017. 8.27センター20172017. 10. 3~2017. 10.12センター秋季2017. 10. 3~2017. 10.12センター2017. 10. 19~2017. 11. 9霧島局2017. 12.22~2018. 1. 4センター冬季2018. 1.16~2018. 2. 4霧島局2018. 2.10~2018. 2.23鹿屋局春季2018. 3.13~2018. 3.22センター春季2018. 4.12~2018. 4.29薩摩川内局夏季2018. 6.8~2018. 6.21鹿屋局2018. 7.19~2018. 8.7霧島局2018. 8.17~2018. 8.30鹿屋局2018. 9.20~2018. 9.27薩摩川内局秋季2018. 10.18~2018. 10.31霧島局			2017. 4.13~2017. 4.26	鹿屋局		
2017. 6. 6センター夏季2017. 6. 27~2017. 7.10鹿屋局夏季2017. 7.20~2017. 7.30霧島局2017. 8.18~2017. 8.27センター2017. 8.18~2017. 8.27センター秋季2017. 10. 3~2017. 10.12センター2017. 10. 19~2017. 11. 9霧島局2017. 11. 22~2017. 12. 6鹿屋局2018. 1.16~2018. 1. 4センター2018. 2.10~2018. 2. 4霧島局2018. 3.13~2018. 3.22センター春季2018. 4.12~2018. 4.29春季2018. 5. 9~2018. 5.22霧島局2018. 6. 8~2018. 6.21夏季2018. 6. 27~2018. 7.10夏季2018. 7.19~2018. 8.72018. 8.17~2018. 8.30鹿屋局2018. 9.20~2018. 9.27薩摩川内局秋季2018. 10.18~2018.10.3138島局2018.10.18~2018.10.31		春季	2017. 5.11~2017. 5.24	霧島局		
夏季 2017. 6.27~2017. 7.10 鹿屋局 夏季 2017. 7.20~2017. 7.30 霧島局 2017. 8.18~2017. 8.27 センター 2017. 0.3~2017.10.12 センター 秋季 2017.10.3~2017.10.12 センター 2017.10.19~2017.11.9 霧島局 2017.11.22~2017.12.6 鹿屋局 2017.12.22~2018.1.4 センター 冬季 2017.12.22~2018.1.4 センター 2018.1.16~2018.2.4 霧島局 2018.2.10~2018.2.3 鹿屋局 2018.3.13~2018.3.22 センター 冬季 2018.4.12~2018.4.29 薩摩川内局 春季 2018.6.27~2018.5.22 霧島局 2018.6.27~2018.7.10 薩摩川内局 夏季 2018.7.19~2018.8.7 霧島局 2018.8.17~2018.8.30 鹿屋局 2018.8.17~2018.8.30 鹿屋局 2018.9.20~2018.9.27 薩摩川内局 2018.0.18~2018.10.31 霧島局			2017. 6. 6	センター		
夏季2017. 7.20~2017. 7.30霧島局 2017. 8.18~2017. 8.2720172017. 8.18~2017. 8.27センター20172017. 10. 3~2017. 10.12センター秋季2017. 10. 19~2017. 11. 9霧島局2017. 11. 22~2017. 12. 6鹿屋局2018. 2.10~2018. 1. 4センター冬季2018. 1.16~2018. 2. 4霧島局2018. 2.10~2018. 3.22センター春季2018. 3.13~2018. 3.22センター春季2018. 4.12~2018. 4.29薩摩川内局春季2018. 6.8~2018. 6.21鹿屋局2018. 6.8~2018. 6.21鹿屋局2018. 7.19~2018. 8.7霧島局2018. 8.17~2018. 8.30鹿屋局2018. 9.20~2018. 9.27薩摩川内局秋季2018. 10.18~2018.10.31霧島局			2017. 6.27~2017. 7.10	鹿屋局		
2017. 8.18~2017. 8.27 センター 2017 2017. 10. 3~2017. 10.12 センター 秋季 2017. 10. 19~2017. 10.12 センター 2017 2017. 10. 19~2017. 10.12 センター 秋季 2017. 10. 19~2017. 11.9 霧島局 2017. 11. 22~2017. 12.6 鹿屋局 冬季 2017. 12. 22~2018. 1.4 センター 冬季 2018. 1.16~2018. 2.4 霧島局 2018. 2.10~2018. 2.23 鹿屋局 春季 2018. 3.13~2018. 3.22 センター 春季 2018. 4.12~2018. 4.29 薩摩川内局 夏季 2018. 6.27~2018. 5.22 霧島局 2018. 6.27~2018. 7.10 薩摩川内局 夏季 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 2018. 9.20~2018. 9.27 薩摩川内局		夏季	2017. 7.20~2017. 7.30	霧島局		
2017 2017.10.3~2017.10.12 センター 秋季 2017.10.19~2017.11.9 霧島局 2017.11.22~2017.12.6 鹿屋局 2017.11.22~2018.1.4 センター 冬季 2017.12.22~2018.1.4 センター 2018.1.16~2018.2.4 霧島局 2018.2.10~2018.2.23 鹿屋局 2018.2.10~2018.2.23 鹿屋局 2018.3.13~2018.3.22 センター 春季 2018.4.12~2018.4.29 薩摩川内局 春季 2018.6.8~2018.6.21 鹿屋局 2018.6.8~2018.6.21 鹿屋局 2018.6.27~2018.7.10 鹿屋局 2018.7.19~2018.8.7 霧島局 2018.8.17~2018.8.30 鹿屋局 2018.8.17~2018.8.03 鹿屋局 2018.9.20~2018.9.27 薩摩川内局			2017. 8.18~2017. 8.27	センター		
秋季 2017.10.19~2017.11.9 霧島局 2017.11.22~2017.12.6 鹿屋局 2017.12.22~2018.1.4 センター 冬季 2017.12.22~2018.1.4 センター 冬季 2018.1.16~2018.2.4 霧島局 2018.2.10~2018.2.23 鹿屋局 春季 2018.3.13~2018.3.22 センター 春季 2018.4.12~2018.4.29 薩摩川内局 春季 2018.6.8~2018.6.21 鹿屋局 2018.6.8~2018.6.21 鹿屋局 2018.7.19~2018.8.7 霧島局 2018.8.17~2018.8.30 鹿屋局 2018.8.17~2018.8.30 鹿屋局 2018.9.20~2018.9.27 薩摩川内局 2018.0.18~2018.10.31 霧島局	2017	秋季	2017.10. 3~2017.10.12	センター		
回 2017.11.22~2017.12.6 鹿屋局 冬季 2017.12.22~2018.1.4 センター 冬季 2018.1.16~2018.2.4 霧島局 2018.2.10~2018.2.23 鹿屋局 春季 2018.3.13~2018.3.22 センター 春季 2018.4.12~2018.4.29 薩摩川内局 春季 2018.6.8~2018.6.21 鹿屋局 2018.6.8~2018.6.21 鹿屋局 2018.6.27~2018.7.10 薩摩川内局 夏季 2018.7.19~2018.8.7 霧島局 2018.8.17~2018.8.30 鹿屋局 2018.8.17~2018.8.30 鹿屋局 2018.0.18~2078.9.27 薩摩川内局			2017.10.19~2017.11.9	霧島局		
2017.12.22~2018.1.4 センター 冬季 2018.1.16~2018.2.4 霧島局 2018.2.10~2018.2.23 鹿屋局 春季 2018.3.13~2018.3.22 センター 春季 2018.4.12~2018.4.29 薩摩川内局 春季 2018.6.8~2018.6.21 鹿屋局 2018.6.8~2018.6.21 鹿屋局 2018.7.19~2018.8.7 霧島局 2018.8.17~2018.8.7 霧島局 2018.9.20~2018.9.27 薩摩川内局 2018.0.18~2018.10.31 霧島局			2017.11.22~2017.12.6	鹿屋局		
冬季 2018. 1.16~2018. 2.4 霧島局 2018. 2.10~2018. 2.23 鹿屋局 春季 2018. 3.13~2018. 3.22 センター 春季 2018. 4.12~2018. 4.29 薩摩川内局 春季 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 夏季 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	2017.12.22~2018.1.4	センター		
2018. 2.10~2018. 2.23 鹿屋局 春季 2018. 3.13~2018. 3.22 センター 春季 2018. 4.12~2018. 3.22 センター 春季 2018. 4.12~2018. 4.29 薩摩川内局 春季 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 夏季 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 秋季 2018.10.18~2018.10.31 霧島局			2018. 1.16~2018. 2. 4	霧島局		
春季 2018. 3.13~2018. 3.22 センター 春季 2018. 4.12~2018. 3.22 薩摩川内局 春季 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 夏季 2018. 7.19~2018. 8.7 霧島局 2018. 8.17~2018. 8.30 鹿屋局 2018. 10.18~2018. 10.31 霧島局			2018. 2.10~2018. 2.23	鹿屋局		
春季 2018. 4.12~2018. 4.29 薩摩川内局 春季 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 夏季 2018. 6.27~2018. 7.10 薩摩川内局 2018. 8.17~2018. 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 秋季 2018.10.18~2018.10.31 霧島局		春季	2018. 3.13~2018. 3.22	センター		
春季 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 夏季 2018. 7.19~2018. 8.7 霧島局 2018. 8.17~2018. 8.30 鹿屋局 2018. 10.18~2018. 10.31 霧島局			2018. 4.12~2018. 4.29	薩摩川内局		
2018. 6. 8~2018. 6.21 鹿屋局 夏季 2018. 6. 27~2018. 7.10 薩摩川内局 2018 2.018. 7. 19~2018. 8.7 霧島局 2018 2.018. 8.17~2018. 8.30 鹿屋局 2018 9.20~2018. 9.27 薩摩川内局 秋季 2018. 10.18~2018. 10.31 霧島局		春季	2018. 5. $9 \sim 2018$. 5. 22	霧島局		
2018. 6.27~2018. 7.10 薩摩川内局 夏季 2018. 6.27~2018. 7.10 薩摩川内局 2018 2018. 7.19~2018. 8.7 霧島局 2018 2018. 8.17~2018. 8.30 鹿屋局 2018. 9.20~2018. 9.27 薩摩川内局 秋季 2018.10.18~2018.10.31 霧島局			2018. 6. 8~2018. 6.21	鹿屋局		
夏季 2018. 7.19~2018. 8.7 霧島局 2018 2018. 8.17~2018. 8.30 鹿屋局 2018 2018. 9.20~2018. 9.27 薩摩川内局 秋季 2018. 10.18~2018. 10.31 霧島局		夏季	2018. 6.27~2018. 7.10	薩摩川内局		
2018 2018. 8.17~2018. 8.30 鹿屋局 2018 2018. 9.20~2018. 9.27 薩摩川内局 秋季 2018. 10.18~2018. 10.31 霧島局	2018		2018. 7.19~2018. 8. 7	霧島局		
2018 2018. 9.20~2018. 9.27 薩摩川内局 秋季 2018. 10.18~2018. 10.31 霧島局			2018. 8.17~2018. 8.30	鹿屋局		
秋季 2018.10.18~2018.10.31 霧島局		秋季	2018. 9.20~2018. 9.27	薩摩川内局		
			2018. 10. 18~2018. 10. 31	霧島局		
2018.11.7~2018.11.20 鹿屋局			2018.11. 7~2018.11.20	鹿屋局		
2018.12.11~2018.12.24 鹿屋局		冬季	2018. 12. 11~2018. 12. 24	鹿屋局		
冬季 2019. 1.17~2019. 1.30 霧鳥局			2019. $1.17 \sim 2019. 1.30$	霧島局		
2019. 2.13~2019. 2.26 薩摩川内局			2019. 2.13~2019. 2.26	薩摩川内局		

耒1 堵隹期間

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。

$$\begin{aligned} x_{ij} &= \sum_{k=1}^{p} g_{ik} f_{kj} + e_{ij} \quad \cdots \text{(A)} \\ \int x_{ij} : 試料_i \ (i = 1, 2, \cdots, n) 中 \mathcal{O} 成分_i \ (j = 1, 2, \cdots, n) \end{array}$$

- 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 ($\mu g/m^3$)
- g_{ik}: 試料iに対する因子k(k = 1, 2, …, p)の相対寄
 与(単位なし)
- f_ψ:因子kのプロファイルにおける成分jの濃度 (μg/m³)
- *e_y*: 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(μg/m³)

PMFモデルでは、測定値(x_b)を再現できるg_a, f_b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_aマトリックス及びf_bマトリッ クス)を繰り返し計算により求める。

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

 $\left(u_{i}: 試料i中の成分jの測定に伴う不確実性 \right)$ なお、 g_{i} 及び f_{i} 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_{0} 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。 $x_{ij} \leq MDL_i$ の場合

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

x_{ij}>MDL_jの場合

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

$$\int MDL_j : 成分j の検出下限値 (µg/m3)$$

EF, : 成分jの測定値の誤差割合

今回は, 誤差割合*EF*/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			
	塩化物イオン(Cl [*])		
	硝酸イオン(NO ^{3⁻)}		
	硫酸イオン (SO4 ⁻⁾)		
ノナン中八	ナトリウムイオン(Na ⁺)		
イオン成分	アンモニウムイオン(NH4 ⁺)		
	カリウムイオン(K⁺)		
	マグネシウムイオン(Mg²+)		
	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)		
無機元素	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)		
DC TY PA J	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PM25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。

$$\left(\frac{S}{N}\right)_{j} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^{n} d_{ij} \qquad \dots \text{ (E)}$$

ただし, $x_{ij} \ge u_{ij}$ の場合

$$d_{ij} = \frac{x_{ij} - u_{ij}}{u_{ii}} \quad \cdots \text{(F)}$$

 $x_{ij} < u_{ij}$ の場合

 $d_{ij} = 0 \quad \cdots (\mathbf{G})$ $\left(d_{ij} : \ \texttt{f} \in \texttt{f} \oplus \texttt{f} \texttt{g} \right)$

2.5.4 解析の実行

(1) 予備計算

誤差割合*EF*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。

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

(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(r²)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, Ca^{2*}, 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			
	Cl ⁻ , NO ₃ ⁻ , SO ₄ ²⁻ , Na ⁺ ,				
Strong	NH_{4}^{+} , K^{+} , Mg^{2+} , V,				
	Mn, As, Se, Rb, Pb,				
	Si				
Weak	PM2.5質量濃度				
	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,	S/N比が0.5未満			
	Ce	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_{1rue}, Q_{Robust}及びQ_{Theory}が近くなった。





誤差割合15%/因子数6ではClのr²が, 誤差割合20%/ 因子数4ではCl, Al及びVのr²が, 誤差割合20%/因子数 5ではCl及びVのr²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、CI及びAsの相対比が大き く、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、CI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, SO4⁻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2は、廃棄物焼却や野焼きの指標であるK^{*}及びブレー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、CI及びNO₅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PM₂、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Ca²⁺, 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⁺, Mg²⁺及びCa²⁺の 相対比が大きいことから,「海塩」とした。

なお、SO⁴²/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CI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、SO⁴²/Na⁺比は0.67で あり、0.060より大きく、CI/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PM23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⁶⁾。

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⁾。

















3.1.2 年度別の解析

図5に霧島局における各年度のPM25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。

2016年度







2018年度



図5 各年度のPM2.5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。

重み付け	項目	備考		
	Cl ⁻ , NO ₃ ⁻ , SO ₄ ²⁻ , Na ⁺ ,			
	NH4 ⁺ , K ⁺ , Mg ²⁺ , Ca ²⁺ ,			
Strong	V, Mn, Fe, Zn, As,			
	Se, Rb, Cd, Cs, La,			
	Pb, Si, OC			
	PM25質量濃度			
	Al, Cu, Mo, Ce, W	S/N比が0.5以上1未満		
Weak		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		

表4 項目の重み付け(2018年度)

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*_{Robuel}及び*Q*_{Theory}が 近くなったが,誤差割合20%/因子数5ではCI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。



(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、CI及びNO₅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Ca^{2*}, 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⁸⁰、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PM25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



(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PM₂₅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PM₂₅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(35µg/m³)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PM2sを捕集していた霧島局にお ける1月19日の後方流跡線¹¹¹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PM25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,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10 後方流跡線(霧島局, 2018年1月19日)



図11 PM2.5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PM25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PM25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PM25質量濃度, SO2濃度及び風向の経時変化を示す。

PM₂₅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PM25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PM2.6質重濃度及ひSU2濃度の 経日変化(2018年度冬季)





図14 PM2.5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PM₂₅が高濃度を示した期間について、PM₂₅質量濃 度とNOx濃度の相関が低いことから、PM₂₅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PM₂s 質量濃度への各因子の寄与率を示す。

薩摩川内局







図15 PM2.5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

- 1) 2016年度~2018年度データの解析により,当県にお けるPM25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。
- 2)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。
- 3)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PM2s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、 土壤、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。
- 4)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。
- 5) 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PM₂₅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)
- 2)田知行紘太,和田加奈子,他;ケイ素の分析結果からみるPM25の発生源解析,本誌,19,92~98 (2018)
- 3) 環境省;大気中微小粒子状物質(PM2.5) 成分測定

マニュアル, 平成24年4月19日

- 4) Gary Norris, Rachelle 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PM25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(PM25)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PM₂₃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), Atomos. 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 Atomospheric Administration; HYSPLIT Trajectory Model, https://ready.arl.noaa.gov/hypub-bin/trajasrc.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,東小薗卓志,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)