

# PM<sub>2.5</sub>発生源推定に係る統計的流跡線解析を用いたPMF解析結果の検証

田崎盛也・城間朝彰・野波秀行・前田美奈子

## Verification of PMF Results for Source Apportionment of PM<sub>2.5</sub> using Statistical Analysis of Trajectories

Moriya TASAKI, Tomoaki SHIROMA, Hideyuki NOHA and Minako MAEDA

**要旨：** 2017年度から2020年度において実施した沖縄県における微小粒子状物質(PM<sub>2.5</sub>)成分分析のPMF (Positive Matrix Factorization) 解析結果の各因子に対して、統計的流跡線解析の手法であるCWT (Concentration Weighted Trajectory, 濃度重みづけ流跡線) 解析や、PSCF (Potential Source Contribution Function, 潜在的発生源寄与関数) 解析を行った。統計的流跡線解析による発生源推定の結果は各因子の推定発生源とおおむね一致したため、統計的流跡線解析からもPMF解析結果は妥当であると判断した。

**Key words:** 沖縄県, 微小粒子状物質(PM<sub>2.5</sub>), 統計的流跡線解析, CWT (濃度重みづけ流跡線) 解析, PSCF (潜在的発生源寄与関数) 解析, PMF (Positive Matrix Factorization) 法

### I はじめに

微小粒子状物質(PM<sub>2.5</sub>)は大気中に浮遊する粒径が2.5 μmの小さな粒子である。この大きさのために肺の奥深くまで入り込むことから健康への影響が懸念されている。沖縄県では2017年からPM<sub>2.5</sub>の成分分析を本格的に開始し、2017-2020年度の4年間のデータを用いた発生源解析について既報<sup>1)</sup>により報告を行っている。ただし、発生源解析はPMF (Positive Matrix Factorization, 正値行列因子分解) 法のみで行っており、その結果の妥当性が十分に検証されているわけではない。発生源解析で用いられる手法として、PMF法のようなレセプターモデルの他には流跡線を用いる手法がある。その中でもCWT

(Concentration Weighted Trajectory, 濃度重みづけ流跡線) 解析<sup>2,3)</sup>やPSCF (Potential Source Contribution Function, 潜在的発生源寄与関数) 解析<sup>4,5)</sup>といった統計的な流跡線解析の手法が存在し、PMF解析の結果を補足するように用いられている<sup>3,5)</sup>。

流跡線解析については既報<sup>6)</sup>で多数の流跡線を効率的に作成する方法を確立させており、本報告と共に掲載の「Pythonを用いた統計的流跡線解析 (以下、別報)」にてCWT解析およびPSCF解析する手法を確立させている。本報告では既報<sup>1)</sup>のPMF解析結果について統計的流跡線解析による検証を行ったので、その結果を報告する。

### II 方法

#### 1. 解析対象データの調査地点および調査期間

図1にPM<sub>2.5</sub>成分分析調査地点である沖縄県衛生環境研究所を示した。試料採取は当研究所の屋上で行っている。表1には調査期間を示した。連続14日測定となっていない期間は台風等によりやむを得ず測定を中断したことによる。

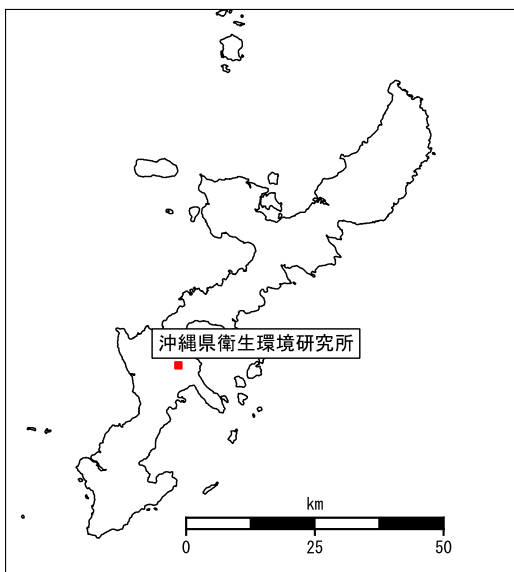


図1. PM<sub>2.5</sub>成分分析調査地点.

表1. PM<sub>2.5</sub>成分分析調査期間.

年度	春季	夏季	秋季	冬季
2017	5.10-5.24	7.24-8.7	10.23-10.27 10.30-11.9	1.18-2.1
2018	5.9-5.23	7.19-7.20 7.23-8.5	10.22-11.5	1.17-1.31
2019	5.10-5.24	7.19-7.23 7.26-8.5	10.17-10.31	1.16-1.30
2020	5.11-5.25	7.23-8.6	10.22-11.5	1.21-2.4

2. 解析に用いたデータ

既報<sup>1)</sup>におけるPMF解析結果を用いた。抽出された6つの因子は表2のとおりである。試料採取方法や分析方法、PMF法の設定などについては既報<sup>1)</sup>を参照。

表2. PMF解析で抽出した因子.

	指標成分	推定発生源
因子1	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> , NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	二次生成硫酸塩
因子2	Al, Si, Ti	土壌粒子
因子3	Cr, Cu, Zn, Sb, Pb	道路交通
因子4	Cl <sup>-</sup> , Mg <sup>2+</sup> , Na	海塩粒子
因子5	Cl <sup>-</sup> , NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	二次生成硝酸塩 + 塩化物
因子6	V, Ni	重油燃焼

3. 流跡線解析および統計的流跡線解析について

(1) 流跡線解析

流跡線解析の開始時間は測定期間内の毎時とし、流跡線遡行時間は5日間(120時間)とし、気象データはGDASを用い、出発高度は500 m, 1000 m, 1500 mの3つとした。

(2) 統計的流跡線解析

手法の概要については別報を参照のこと。CWT解析、PSCF解析いずれについてもグリッドセルの範囲は0-50N°, 90-160E°とし、1°×1°のサイズで分割した。グリッドセル総数は3500となる。PSCF解析では閾値を設定する必要があるが、データの75%タイル値を閾値として使用し、PSCF解析を行った。重みづけは工藤ら<sup>2)</sup>やPolissirら<sup>4)</sup>の用いた係数により補正を行った。

III 結果および考察

1. エンドポイントの頻度と重みづけについて

図2にグリッドセル上のエンドポイントの頻度を10のN乗毎に階級表示した分布を示す。観測点のある沖縄島付近にエンドポイントが集中し、観測点から離れるにしたがって頻度が減少しているのが分かる。これを反映し、沖縄近海や中国東部の沿岸部、九州などが重みづけ係数1をとる領域となっている(図3)。

2. 因子毎の解析結果について

(1) 因子1: 二次生成硫酸塩

既報<sup>1)</sup>で二次生成硫酸塩として解釈した因子1について

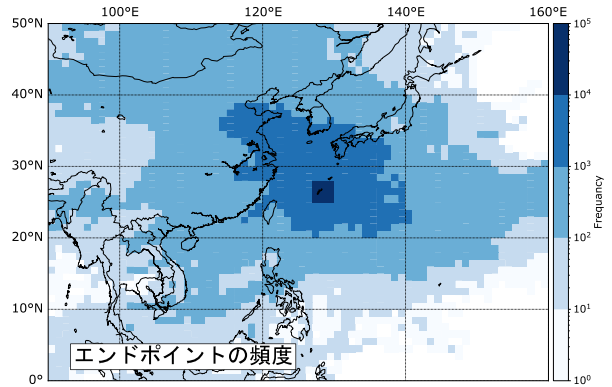


図2. エンドポイントの頻度分布.

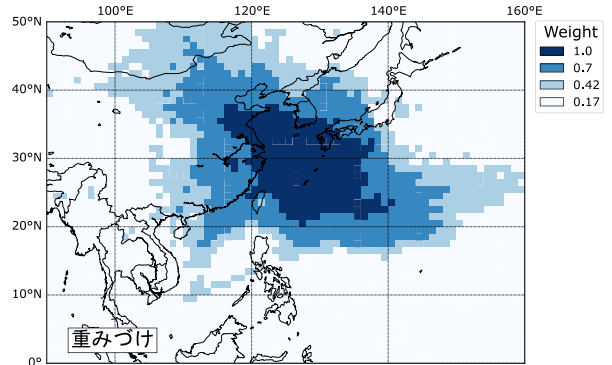


図3. 重みづけの分布.

て、WCWTプロットとWPSCFプロットを図4上段に示す。大陸にある程度寄与が大きい領域があるほか、WCWTプロットでは九州周辺の地域や太平洋上の一部分で濃度寄与が高い。これは九州にある火山や西之島の火山活動からのSO<sub>2</sub>由来であると考えられる。このことから因子1は大陸からの越境および火山活動からのSO<sub>2</sub>由来の二次生成硫酸塩であり、人為起源と自然起源両方を含むと解釈した。

(2) 因子2: 土壌粒子

既報<sup>1)</sup>で土壌粒子由来として解釈した因子2について、WCWTプロットとWPSCFプロットを図4中段に示す。大陸付近からの影響に加えて、沖縄島の南方海上に濃度寄与が大きい領域があるが、この地域から合理的な発生源を考えることは難しい。WCWTプロットの特に濃度寄与の大きい部分のグリッドセル(23-24N°, 126-127E)とこのセルを通過する流跡線を調べると、2018年5月17日15時出発高度1500mの流跡線について、空気塊の速度が遅いためこの流跡線によるエンドポイント数が28と多く、遡行がこの付近で終了しており、他の時間の流跡線も同様な傾向にあることが分かった(図5)。またこの日の因子2の寄与濃度は9.3 μg/m<sup>3</sup>と大きくPM<sub>2.5</sub>の濃度も17.3 μg/m<sup>3</sup>と比較的高かった。このことよ

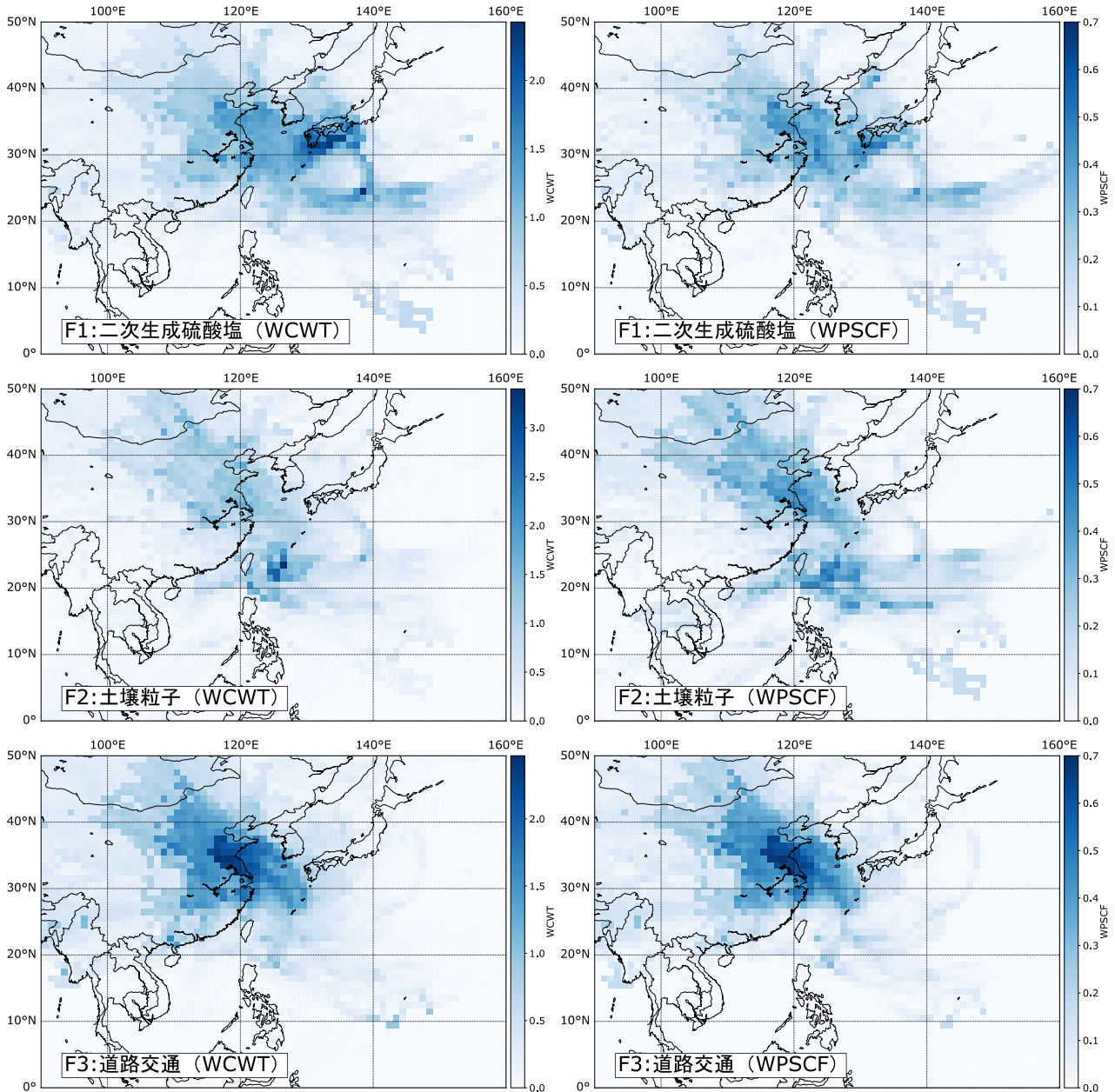


図4. 因子1～因子3のWCWT解析結果およびWPSCF解析結果.

り、沖縄島の南方海上にある濃度寄与の大きい領域は特定の時期の影響が大きく、その影響を与える発生源は別の場所にある可能性も考えられるが、村尾<sup>7)</sup>によると流跡線の作成時間は3日～5日が限界であり、さらに遡行時間を増やしても意味のある結果を得ることは難しい。また、調査地点近傍の土壌の巻き上げによる汚染の可能性も考えられる。このため因子2は大陸からの越境に加えて未知発生源または調査地点近傍の影響を含む土壌粒子と解釈した。

(3) 因子3：道路交通

既報<sup>7)</sup>で道路交通由来として解釈した因子3について、WCWTプロットとWPSCFプロットを図4下段に示す。

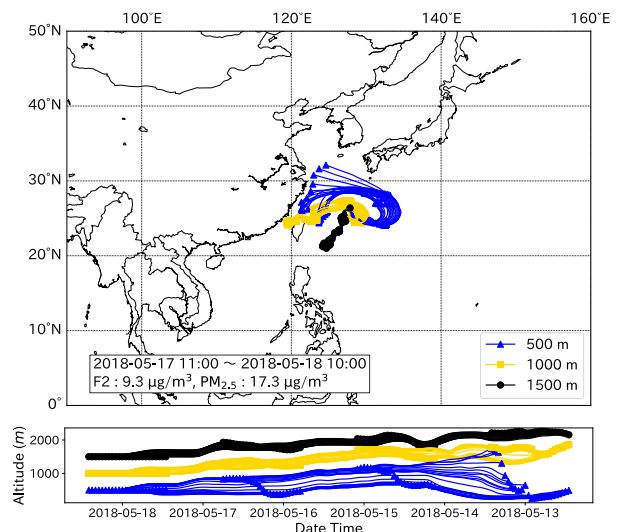


図5. 2018年5月17日11時～18日10時の流跡線.

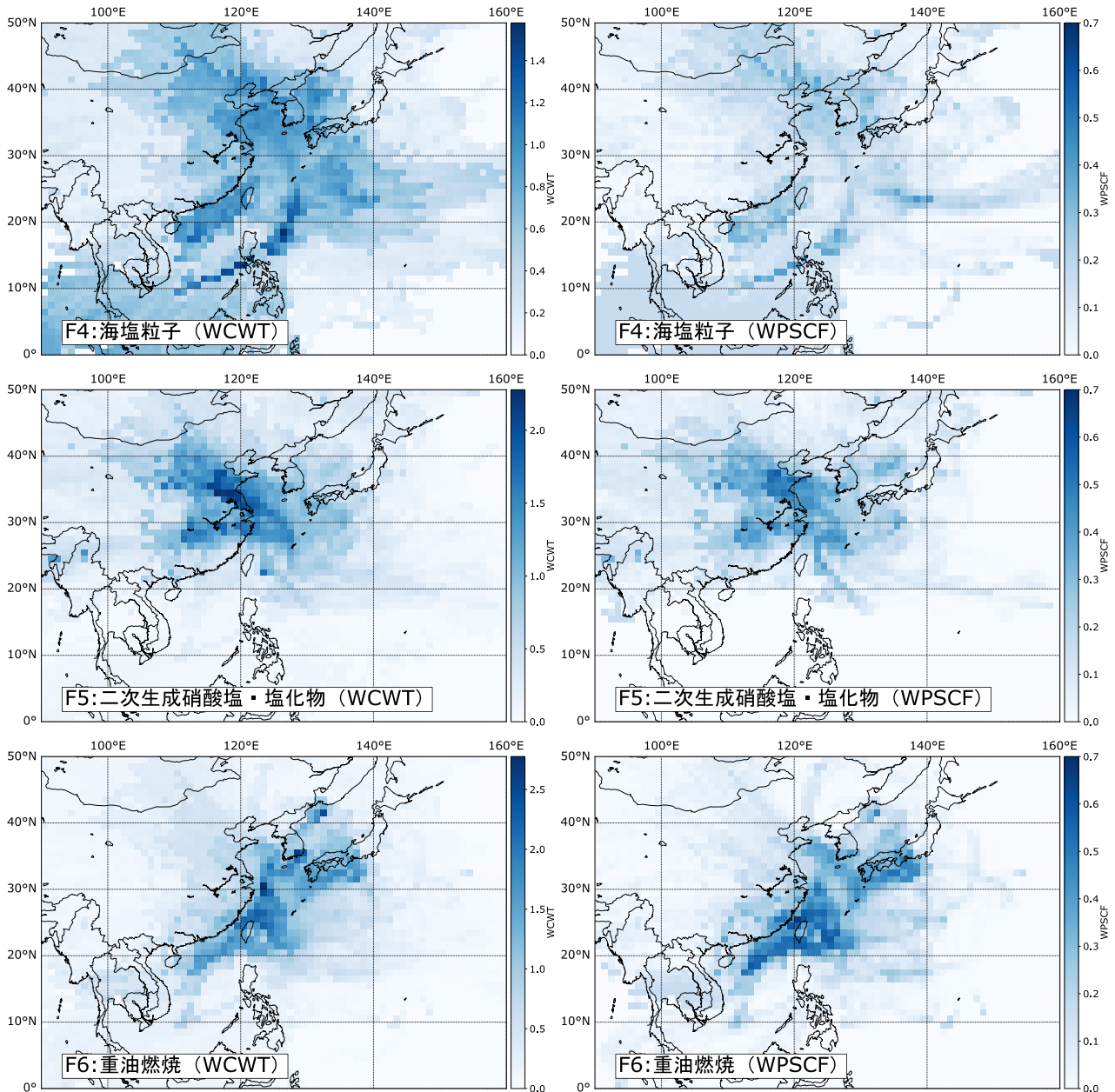


図6. 因子4～因子6のWCWT解析結果およびWPSCF解析結果.

大陸に濃度寄与が大きい箇所が集中し、大陸からの移流が示唆される。因子3は移流か地域由来であるかは検討していなかったが、移流の影響が大きいのであれば道路交通だけでなく、工業系由来の可能性も考えられる。そのため、因子3については大陸からの越境の影響が大きい（地域由来も含む）道路交通由来+工業系由来と解釈した。

(4) 因子4：海塩粒子

既報<sup>1)</sup>で海塩粒子由来として解釈した因子4について、WCWTプロットとWPSCFプロットを図6上段に示す。WCWT、WPSCFプロットどちらも海上を中心に濃度寄与が大きい箇所がある。そのため海塩粒子と推測したこ

とは妥当であると判断した。

(5) 因子5：二次生成硝酸塩+塩化物

既報<sup>1)</sup>で二次生成硝酸塩+塩化物として解釈した因子5について、WCWTプロットとWPSCFプロットを図6中段に示す。中国東部を中心とした地域からの影響が大きいことが読み取れ、越境由来であることから、二次生成硝酸塩+塩化物の解釈は妥当であると判断した。

(6) 因子6：重油燃焼

既報<sup>1)</sup>で重油燃焼由来として解釈した因子6について、WCWTプロットとWPSCFプロットを図6下段に示す。大陸での濃度寄与が大きい箇所が見られず、東シナ海を中心とした海洋上に発生源があると示唆している。これ

より因子6は船舶由来の重油燃焼であり，因子6の解釈は妥当であると判断した。

#### IV まとめ

PM<sub>2.5</sub>成分分析結果に対してPMF解析を行い得られた各因子に対して，濃度重みづけを行ったCWTおよびPSCF解析といった統計的流跡線解析の手法を適用し，発生源地域を推定した。得られた結果はおおむねPMF解析の結果を支持しているといえる。ただし，因子2の土壌粒子のように結果の解釈が困難な結果も含まれており，このような課題解決のため，今後もさらなるデータの蓄積や解析が必要だと考える。

#### V 参考文献

- 1) 田崎盛也・城間朝彰・野波秀行・前田美奈子 (2022) 沖縄県におけるPM<sub>2.5</sub>発生源寄与解析について (2017年度-2020年度)。沖縄県衛生環境研究所報, 56 : 40-46.
- 2) 工藤慎治・飯島明宏 (2017) クラスタ分析および

CWT解析を用いた東京のPM<sub>2.5</sub>質量濃度の増加に影響を及ぼす地域の推定。大気環境学会誌, 52 : 89-99.

- 3) 豊永悟史・出納由美子・北岡宏道・村岡俊彦 (2017) レセプターモデルを用いた熊本県におけるPM<sub>2.5</sub>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.
- 4) Polissar, A. V., Hopke, P. K., Harris, J. M (2001) Source regions for atmospheric aerosol measured at Barrow, Alaska, Environ. Sci. Technol., 35, 4214-4226.
- 5) 鈴木亮太・吉野彩子・兼保直樹・高見昭憲・林政彦・原圭一郎・渡邊泉・畠山史郎 (2014) 長崎県福江島・福岡県福岡市におけるエアロゾル金属成分の特徴と発生源推定。大気環境学会誌, 49 : 15-25.
- 6) 田崎盛也 (2022) Pythonによる流跡線解析。沖縄県衛生環境研究所報, 56 : 78-101.
- 7) 村尾直人 (2011) 大気モデル-第6講 流跡線解析-, 大気環境学会誌, 46, A61-A67.