

<報 文>

長崎県における微小粒子状物質 (PM_{2.5}) の成分濃度の特徴について*

前田 卓磨**・土肥 正敬***・田中 雄規***

キーワード ①微小粒子状物質 (PM_{2.5}) ②発生源解析 ③PMF解析

要 旨

本県では2017年から2019年まで県北地域 (大塔・吉井), 島原半島地域 (島原, 小浜) において微小粒子状物質 (以下「PM_{2.5}」という) の成分測定を実施した。これらの地点は互いに近傍 (約16km) に位置しているが, 濃度差が比較的大きく国内発生源による地域汚染の影響が推察されたことから, PM_{2.5}成分データを用いた発生源寄与率の推定を行った。この結果, 大塔の道路交通・植物燃焼因子と硝酸二次生成因子の寄与が大きく, 島原の硝酸二次生成因子の寄与が大きかった。越境由来の汚染物質の影響を示す硫酸二次生成因子や石炭燃焼因子の寄与は比較地点と概ね同等であったため, 自動車排ガスや植物燃焼及び硝酸二次生成粒子の影響をうけて, 濃度差が生じていたことが示唆された。

1. はじめに

PM_{2.5}は粒径が2.5μmより小さく, 器官や肺胞に到達することで人体へ悪影響を及ぼすことが知られており, 欧米での疫学調査では呼吸器疾患や循環器疾患とPM_{2.5}濃度の間に有意な相関が認められている。日本でも健康リスクの観点から2009年に環境基準が制定され^{1), 2)}, 全国的にPM_{2.5}質量濃度の常時監視局の設置が進められている。本県では2012年度から整備を始め, 2014年度からは17地点の一般環境大気測定局 (以下「一般局」という) と1地点の自動車排出ガス測定局 (以下「自排局」という) で観測されている。

また, 2011年度に策定された成分分析ガイドラインに則り, 本県においてもこれまでの調査研究 (2015年度~2017年度)³⁾で, 五島・諫早・大村で成分分析を実施し, 主に春季の高濃度日においては越境由来の硫酸塩による影響を強く受けていることを明らかにした。一方で, 県内発生源の影響については未解明の部分が多く, 本県では通年における採取試料の成分濃度の知見がなかった。そこで, PM_{2.5}質量濃度が高濃度の地点と低濃度の地点が近在している県北地域 (大塔・吉井) や島原半島地域 (島原・小浜) において, 国内発生源の影響の解明を目的として, 2017年から2019年まで通年におけるPM_{2.5}成分分析を実施した。

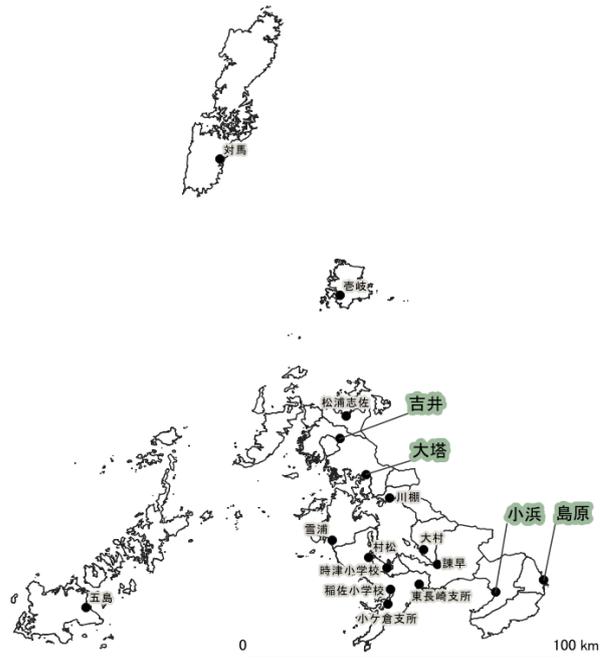


図1 長崎県のPM_{2.5}質量濃度測定地点 (太字は本研究における成分分析地点)

2. 調査地点及び方法

2.1 調査地点

長崎県のPM_{2.5}質量濃度測定地点を図1に示す。本県は離

*Characteristics of PM_{2.5} components in Nagasaki prefecture

**Takuma MAEDA (長崎県環境保健研究センター) Nagasaki Prefectural Institute of Environment and Public Health Center

***Masataka DOI, Yuki TANAKA (長崎県県北保健所) Nagasaki Prefectural Kenhoku Healthcare Office

島地域を含めると、九州全土と同程度の県域をもち、PM_{2.5} 質量濃度の変動についても、地域差が大きいと考えられるため、2013年以降におけるPM_{2.5}質量濃度の各測定局間の相関係数を調査した。成分分析を行った4地点について、大塔は標高約3mにあり、南西約60mに針尾バイパス、北西約130mに西九州自動車道等の幹線道路があり、日中での交通量が多い。一方、吉井は標高約75mに位置し、周辺に幹線道路又は工場等の固定発生源がない。両地点は距離約16km離れており、烏帽子岳 (標高568m) 等の山々に隔てられている。島原は標高約4mにあり、有明湾に面した島原半島の東部に位置し、南西約330mに幹線道路と私鉄がある。一方、小浜は標高約29mにあり、橘湾に面した島原半島の西部に位置し、西部約300mに幹線道路があり、温泉資源が豊かな場所である。両地点は距離約16km離れており、普賢岳 (標高1359m)、平成新山 (1483m) 等が連なる雲仙岳 (火山) に隔てられている。

2.2 調査期間及び方法

表1に各調査地点の採取日数を示す。採取期間は各地域で約1年間実施した。捕集時間は午後0時を開始時刻とし、24時間周期で行った。捕集装置はFRM2025又はFRM2025iの4台を1地点に2台併用し、流速16.7L/minで積算流量24m³の大気試料をフィルタに採取した。フィルタはφ47mmの石英繊維フィルタ (Pallflex 2500QAT-UP) 及びPTFEフィルタ (Whatman 7592-104) で、石英繊維フィルタは炭素成分とイオン成分、PTFEフィルタは無機成分の成分分析に供した。

成分分析に使用した測定機器及び測定項目を表2に示す。成分分析は、原則、環境省の「大気中微小粒子状物質 (PM_{2.5}) 成分測定マニュアル」⁴⁾ に準拠した。質量濃度は調査地点に隣接する自動測定機 (大塔・島原・小浜: 東亜DKK製FPM-377, 吉井: 紀本電子工業製PM-712) の日平均値 (µg/m³) を参照した。

2.3 発生源解析

米国環境保護庁のホームページで公開されているソフトウェア EPAPMF5.0を用いてPMF解析⁵⁾による発生源寄与率の推定を試みた。データの選定はマスクロージャーモデル⁶⁾を用いて通常の濃度範囲から逸脱した試料を一部除外したが、比較的濃度が高い試料は統計的な妥当性が保たれる場合は濃度範囲を逸脱している場合でも解析対象とした。表3にPMF解析条件を示す。調査地点の成分分析結果に離島2地点 (国設五島局・国設対馬局) と九州地域15地点の環境省HP公表データ⁷⁾を加えて、合計1625個のデータセットとし、検出下限値未満の測定値は、検出下限値の1/2に置換した。また、PM_{2.5}構成成分の実測値と推定値の相関係数が0.5未満の場合は成分の重みづけを

weak (不確かさが3倍) とした。PMF解析結果についてII型共同研究グループの解析方法を参考に以下の内容を確認し、妥当性が高い最終解を選択した。

- ・各発生源の因子を説明できるか
- ・Q値とQtheory値が近似しているか (2倍以下)
- ・Bootstrap結果のIQR値及びmapping値
- ・各因子の指標成分の四分位範囲の当てはまり

表1 採取日数及び地点間濃度差

年 月	採取日数				濃度差Δ(µg/m ³) 日数		
	県北地域 大塔局	吉井局	県南地域 島原局	小浜局	Δ>5	Δ>10	
2017	10	15	14				
	11	17	17		7	1	
	12	24	11		1		
	1	18	11		2	1	
	2	23(1)	15(1)		2		
2018	3	18(3)	19(2)		5 ^{*1}		
	4	21(1)	21(1)				
	5	3	3				
	6	30	30		1		
	7	1	1				
	8	16	16				
	9	24	22				
	10						
	11			24	24	10	1
	12			27	31	8	
2019	1		6(1)	6	3	1	
	2		19	21	7	1	
	3		31(2)	31	5	2	
	4		24	24	5		
	5		3	3	1		
	6		28	28	2 ^{*2}		
	7		8	8	3		
	8		12	12	2		
	9		24	21	3		
小計	210(5)	180(4)	206(3)	209			

()は高濃度日数、空欄は未実施

*1 3月の5日間の内4日間は吉井が高い

*2 6月の2日間の内1日間は小浜が高い

表2 測定機器及び成分測定項目

成分項目	測定機器
炭素成分 2項目	有機性炭素 (OC) 元素状炭素 (EC) 炭素分析装置 (熱分離・光学補正式)
無機成分 12項目	Al, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Ni, Cu, Zn, As, Sb, Pb ICP-MS
イオン成分 8成分	Cl ⁻ , NO ₃ ⁻ , SO ₄ ²⁻ , Na ⁺ , NH ₄ ⁺ , K ⁺ , Mg ²⁺ , Ca ²⁺ イオンクロマトグラフ

表3 PMF解析における条件

サンプル数			
本土4地点	離島2地点	九州地域15地点	
712	110	803	合計1625
重みづけ	イオン成分	無機成分	炭素成分
Strong	NO ₃ ⁻ , SO ₄ ²⁻ , Na ⁺ , NH ₄ ⁺ , K ⁺ , Mg ²⁺ , Ca ²⁺	Al, Ti, V, Mn, Fe, As	有機性炭素 (OC) 元素状炭素 (EC)
Weak 不確かさ3倍	PM _{2.5} Cl ⁻	Cr, Ni, Cu, Zn, Sb, Pb	
Factor	7		
Uncertainty	20%		
Base runs	100		
Bootstrap runs	100		
Mapping of bootstrap factors	92-100		

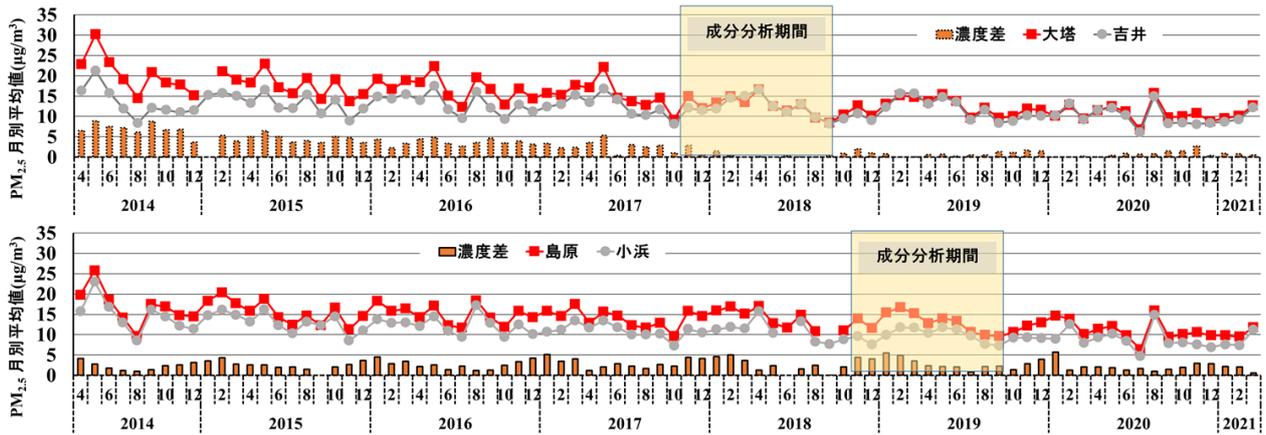


図2 調査地点におけるPM_{2.5}質量濃度月平均値の推移（上：県北地域、下：島原半島地域）

3. 結果及び考察

3.1 PM_{2.5}質量濃度

県北地域（大塔・吉井）と島原半島地域（島原・小浜）におけるPM_{2.5}質量濃度の月平均値の推移を図2に示す。一般的にPM_{2.5}質量濃度は低くなっており、2017年度以降は全地点の環境基準が達成されている。大塔と吉井をみると、2018年以降から局舎間の濃度差が減少し、秋季以外ではほぼ見られなくなっているため、地域汚染の影響が減少したと考えられる。一方、島原と小浜については濃度差が依然としてみられるため、島原における地域汚染の影響が考えられる。

各測定局のPM_{2.5}質量濃度における日平均値の相関係数を表4に示す。相関係数の範囲は0.65~0.97とばらつきがみられ、局舎間の距離が近いほど相関が高い傾向があった。離島地域と本土地域の相関は比較的低く、対馬との相関が平均0.75と県内地点で最少となっており、離島地域の地域汚染の影響が少ないことと、越境汚染の影響に時間差が生じていること等が要因であると考えられた。本土地域に限定すると、相関係数が0.81~0.97と高く、広域的な汚染の影響が大きいと考えられた。成分分析地点については、大塔と吉井の相関係数は0.94と高く、両

地点とも島原と諫早との相関が比較的低かった。島原と小浜の相関係数は0.91と高く、松浦志佐等の県北地域との相関が比較的低かった。

3.2 発生源解析

3.2.1 発生源因子の推定

得られたPM_{2.5}成分濃度データに対し、PMF解析を用いて、発生源種類の推定を行った。この結果、7種類の発生源が推定された。各発生源の指標成分を表5及び図3に示す。指標成分に対する各発生源の割り当ては文献⁸⁻¹³⁾や成分測定マニュアルで確認したが、全く同じ指標成分の組み合わせでない場合、解析者による恣意的な解釈も含まれている。各因子について下記の通り推定した。

(a) 道路交通・バイオマス燃焼

OC, ECが高く、自動車排ガスの影響がみられたことや、ブレーキパッド由来のSbの寄与が比較的多いことから道路交通由来とした。また、Kが比較的多いことから、バイオマス燃焼の寄与も表す因子と解釈したが、道路交通との分離はできなかった。

表4 測定局間のPM_{2.5}質量濃度日平均値の相関係数（2013年4月~2021年3月）

	稲佐小学校	小ヶ倉支所	東長崎支所	大塔	島原	諫早	大村	松浦志佐	対馬	杵岐	五島	小浜	時津小学校	村松	雪浦	川棚	吉井	
稲佐小学校	-	0.97	0.96	0.94	0.91	0.91	0.96	0.89	0.73	0.84	0.87	0.93	0.97	0.97	0.94	0.95	0.91	
小ヶ倉支所	0.97	-	0.96	0.93	0.90	0.89	0.95	0.89	0.72	0.83	0.87	0.94	0.96	0.96	0.95	0.94	0.91	0.95>
東長崎支所	0.96	0.96	-	0.93	0.93	0.92	0.96	0.87	0.69	0.81	0.83	0.94	0.96	0.96	0.93	0.94	0.89	0.90~0.95
大塔	0.94	0.93	0.93	-	0.89	0.89	0.94	0.94	0.77	0.88	0.86	0.89	0.95	0.95	0.94	0.97	0.94	0.80~0.90
島原	0.91	0.90	0.93	0.89	-	0.90	0.93	0.82	0.65	0.77	0.76	0.91	0.91	0.91	0.86	0.90	0.84	0.70~0.80
諫早	0.91	0.89	0.92	0.89	0.90	-	0.92	0.81	0.66	0.77	0.79	0.88	0.90	0.91	0.87	0.90	0.85	0.60~0.70
大村	0.96	0.95	0.96	0.94	0.93	0.92	-	0.89	0.71	0.83	0.83	0.94	0.96	0.96	0.93	0.95	0.91	
松浦志佐	0.89	0.89	0.87	0.94	0.82	0.81	0.89	-	0.83	0.93	0.88	0.84	0.91	0.91	0.93	0.93	0.96	
対馬	0.73	0.72	0.69	0.77	0.65	0.66	0.71	0.83	-	0.90	0.80	0.67	0.73	0.73	0.75	0.76	0.81	
杵岐	0.84	0.83	0.81	0.88	0.77	0.77	0.83	0.93	0.90	-	0.88	0.78	0.85	0.85	0.86	0.88	0.92	
五島	0.87	0.87	0.83	0.86	0.76	0.79	0.83	0.88	0.80	0.88	-	0.81	0.86	0.87	0.89	0.86	0.90	
小浜	0.93	0.94	0.94	0.89	0.91	0.88	0.94	0.84	0.67	0.78	0.81	-	0.93	0.93	0.91	0.90	0.87	
時津小学校	0.97	0.96	0.96	0.95	0.91	0.90	0.96	0.91	0.73	0.85	0.86	0.93	-	0.97	0.95	0.96	0.92	
村松	0.97	0.96	0.96	0.95	0.91	0.91	0.96	0.91	0.73	0.85	0.87	0.93	0.97	-	0.96	0.96	0.93	
雪浦	0.94	0.95	0.93	0.94	0.86	0.87	0.93	0.93	0.75	0.86	0.89	0.91	0.95	0.96	-	0.95	0.94	
川棚	0.95	0.94	0.94	0.97	0.90	0.90	0.95	0.93	0.76	0.88	0.86	0.90	0.96	0.96	0.95	-	0.94	
吉井	0.91	0.91	0.89	0.94	0.84	0.85	0.91	0.96	0.81	0.92	0.90	0.87	0.92	0.93	0.94	0.94	-	
平均	0.92	0.91	0.91	0.91	0.86	0.86	0.91	0.89	0.75	0.85	0.85	0.88	0.92	0.92	0.91	0.92	0.90	

(b) 硫酸二次生成

SO₄²⁻, NH₄⁺が高いため硫酸二次生成由来とした。本解析ではSO₄²⁻, NH₄⁺の当量比は1.0であり、硫酸アンモニウム塩(NH₄)₂SO₄が主体的に存在していると考えられる。主に広域汚染の指標として解釈される⁸⁾。

(c) 重油燃焼

V, Niが高いため石油燃焼由来とした。石油や重油中に多く含まれるため、船舶や発電所等における燃焼の影響が考えられる。

(d) 土壌

Al, Ti, Feが高いため土壌由来とした。土壌粒子は風等による巻き上げで発生する他、九州地方では春季の黄砂の影響を受けて寄与が大きくなることが知られている。

(e) 硝酸二次生成

NO₃⁻が高いため硝酸二次生成由来とした。また、Cl⁻も比較的高いため、半揮発性の塩化アンモニウムの負荷もみられた。

(f) 海塩

Na⁺, Mg²⁺が高いため、海塩由来とした。

(g) 石炭燃焼

AsとPbが高いため石炭燃焼とした。SO₄²⁻, NH₄⁺の負荷もみられ、当量比は1.0であった。主に広域汚染の指標として解釈される。

3.2.2 発生源因子寄与濃度

全調査地点における発生源寄与濃度について、全調査期間と季節別の解析結果をそれぞれ図4に示す。グラフ中のothersは自動測定機のPM_{2.5}質量濃度観測値から因子寄与濃度の合計値を差し引いた値で、未測定成分由来と考えられる。

調査期間中のPM_{2.5}平均質量濃度は大塔局と吉井局で同程度(大塔:13.2μg/m³ 吉井:12.6μg/m³)であり、発生源寄与割合は、全調査期間平均で硫酸二次生成の寄与が最も大きかった(大塔:31.5% 吉井:39.3%)。次いで、大塔は道路交通・バイオマス燃焼と硝酸二次生成が10.7%、石炭燃焼が10.4%であった。吉井は石炭燃焼が9.8%、硝酸二次生成が5.8%、道路交通・バイオマス燃焼が5.6%の順で寄与が大きかった。地点間の寄与濃度差が大きかったのは、硝酸二次生成(春季:1.0μg/m³ 冬季:1.0μg/m³)と道路交通・バイオマス燃焼(秋季:0.94μg/m³ 冬季:0.79μg/m³)で、これらの因子により地点間の濃度差が生じたことが示唆された。

島原半島地域ではPM_{2.5}平均質量濃度が小浜局より島原が高く(島原:13.7μg/m³ 小浜:11.0μg/m³)、発生源寄与割合全調査期間平均で硫酸二次生成の寄与が最も大きかった(島原:38.9% 小浜:48.0%)。次いで、島原は硝酸二次生成が21.3%、石炭燃焼が7.0%の順で大きかった。小浜は硝酸二次生成が11%、石炭燃焼が8.0%であった。地点間の寄与濃度差が大きかったのは、硝酸二次生成(春季:2.07μg/m³ 秋季:1.74μg/m³ 冬季:2.98μg/m³)で、これらの因子により地点間の濃度差が生じたことが示唆された。

3.2.3 地点間濃度差と発生源

県北地域で特に濃度差の大きかった秋季(2017年11月1日~9日)について、因子寄与濃度の推移を図5に示す。11/5から大塔の濃度が上昇しているが、吉井では大きな変動がなく、地点間の濃度差が増大した。因子寄与濃度は、11/6から硫酸系二次生成の増加が両地点でみられており、越境汚染の影響が考えられた。11/6の12時における後方流跡線¹⁵⁾(NOAA HYSPLIT, 起点500m, 1000m, 1500m 始点吉井)を行った結果(図6)、後方流跡線は朝鮮半島からの移流を示した。一方で、大塔では道路交通・バイオマス燃焼の影響が増大しているため、地域由来の発生源の影響が複合して質量濃度が上昇し、濃度差が生じたと考えられる。また、11/6~11/9にかけて接地逆転層

表5 PMF解析により推定された発生源

発生源	指標成分
1 道路交通・植物燃焼	K ⁺ , Sb, OC, EC
2 硫酸二次生成	SO ₄ ²⁻ , NH ₄ ⁺ , OC
3 重油燃焼	V, Ni, EC
4 土壌系	Al, Ti, Fe
5 硝酸二次生成	NO ₃ ⁻
6 海塩	Na ⁺ , Mg ²⁺
7 石炭燃焼	As, Pb

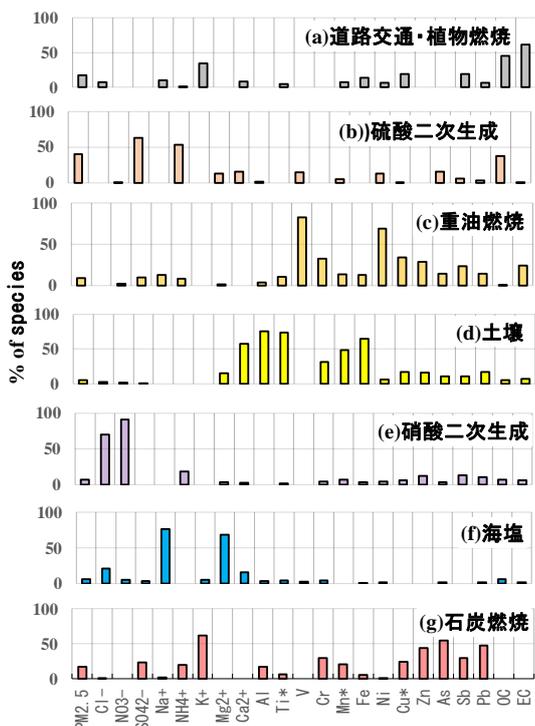


図3 発生源のプロファイル(% of species sum)

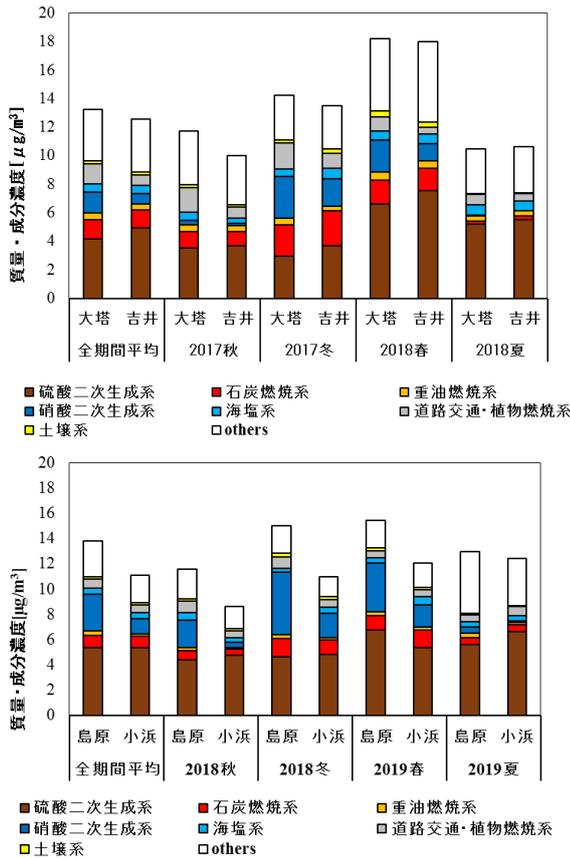


図4 全期間平均及び季節別の因子寄与濃度平均

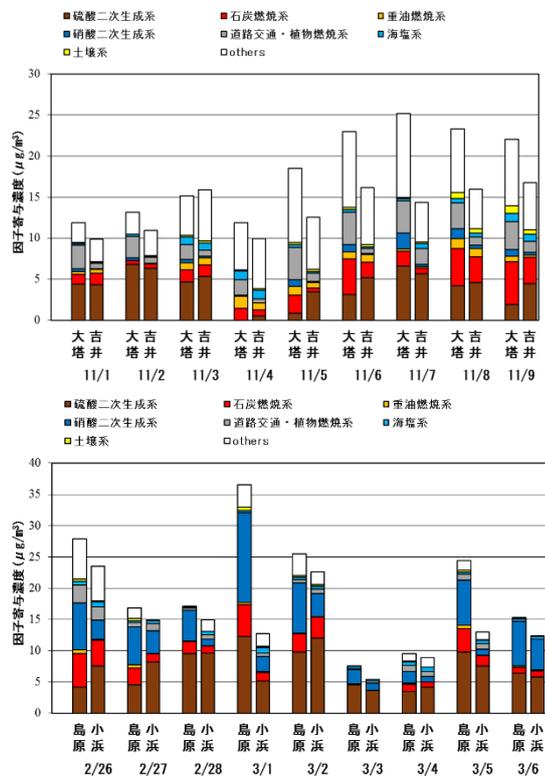


図5 地点間の因子寄与濃度比較

が形成されており、汚染物質が滞留しやすい環境にあったことが地域汚染の影響を長期化させたと考えられる。

島原半島地域で特に濃度差が大きかった冬季(2019年2/26~3/6)について、因子寄与濃度を図5に示す。3/1と3/5に突出して濃度差が生じており、島原で硫酸二次生成、石炭燃焼が高いため越境汚染の影響が考えられたが、後方流跡線では移流が確認できなかった。また、島原の硝酸二次生成濃度が特に大きく、県北地域と同様に期間中は接地逆転層が形成されていたため、地域汚染の影響が表れやすい条件であった。

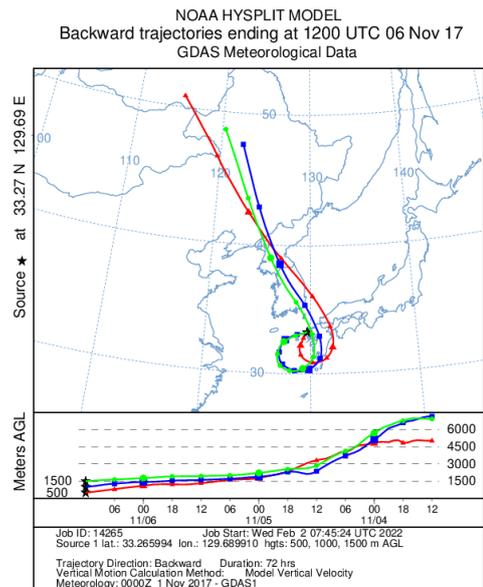


図6 後方流跡線
(起点時間 2017年11月6日12時 始点: 吉井)

3.4 まとめ

本研究は、長崎県におけるPM_{2.5}の地域発生源の影響を把握することで、国内発生源の影響評価や発生源対策の検討に資する基礎データとする目的として実施した経常研究(2017~2019年度)である。これまで、県内の近傍測定地点において継続的に成分調査を行った例はなく、各地点で年間約200試料のデータで解析を行った事例は全国的にも多くない。

PM_{2.5}質量濃度の地点間相関係数は離島地域では比較的低く、本土地域とは越境移流による濃度変動に時間差がみられることや、本土地域では地域汚染の影響を受けている地点があること等が要因と考えられた。

PMF解析の結果として、全地点で最も大きい寄与濃度を示したのは硫酸二次生成因子で、一般的に越境汚染を示す因子とされる。県北地域では、秋季に道路交通や植物燃焼、冬季に硝酸二次生成の影響を受けて濃度差が生じていることが推測された。一方で、県北地域の濃度差は直近ではほぼみられず、近傍の自排局でも質量濃度が減

少傾向にあることから、自動車排ガス等の影響が減少していることが濃度差減少の一つの要因と考えられる。

島原半島地域では春季・秋季・冬季硝酸二次生成の影響を受けて濃度差が生じていることが推測された。ただし、島原付近については、交通量が多くなく、大規模な工業地域もないため、前駆物質であるNO_xの大きな発生源はみられない。硝酸塩は半揮発性であるため、高濃度の要因を探るためには粒子態だけではなく、硝酸ガス (HNO₃) やNH₃の動態を把握する必要がある。

4. 謝辞

本研究を実施するにあたり、名古屋市環境科学調査センターの池盛様には分析や統計解析において、多大なるご協力及びご助言を賜りました。また、国立環境研究所Ⅱ型共同研究メンバーの皆様には平素より大気環境調査研究に係るご協力及びご助言を頂きました。ここに記してお礼申し上げます。

5. 引用文献

- 1) 環境省水・大気環境局：微小粒子状物質に係る環境基準の設定について，2009
- 2) 環境省：微小粒子状物質による大気汚染に係る環境基準について，環告33，2009
- 3) 土肥正敬：長崎県における粒子状物質の成分特徴について（2014～2016年度），長崎県環境保健研究センター所報，**63**，25-32，2017
- 4) 環境省HP：微小粒子状物質の成分分析，大気中微小粒子状物質成分測定マニュアル，<http://www.env.go.jp/air/osen/pm/ca/manual.html>（2022.2.3アクセス）
- 5) United States Environmental Protection Agency: Positive Matrix Factorization Model for environmental data analyses, https://cfpub.epa.gov/si/si_public_record_report.cfm?Lab=NERL&count=10000&dirEntryId=308292&searchall=&showcriteria=2&simplesearch=0&timstype=（2022.2.3アクセス）
- 6) 環境省：大気中微小粒子状物質 (PM_{2.5}) 測定方法暫定マニュアル，2007
- 7) 環境省HP：微小粒子状物質測定データ，https://www.env.go.jp/air/osen/pm/monitoring/data/pm25_29.html（2022.2.3アクセス）
- 8) 豊永悟史他：Positive Matrix Factorizationモデルを用いたPM_{2.5}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**（4），139-160，2019
- 9) 東京都微粒子状物質検討会：レセプターワーキング報告書（2011），http://www.kankyo.metro.tokyo.jp/air/air_pollution/torikumi/pm2_5/pm25-report2011.files/9_Receptor_working_report.pdf（2022.2.3アクセス）
- 10) 中坪良平他：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—，兵庫県環境研究センター紀要，**3**，21-25，2012
- 11) 豊永悟史他：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**，(5)，150-165，2017
- 12) 高岡大他：PMF法による福井県内のPM_{2.5}発生源寄与解析，福井県衛生環境研究センター年報，**14**，55-60，2015
- 13) 山村由貴：福岡県における微小粒子状物質 (PM_{2.5}) 濃度の実態把握，福岡県保健環境研究所年報，**43**，93-98，2016
- 14) 環境省HP：粒子状物質の特性について，<http://www.env.go.jp/council/former2013/07air/y078-02/mat02-1.pdf>（2022.2.3アクセス）
- 15) NOAA Hysplit Trajectory Model，<https://www.ready.noaa.gov/hypub-bin/trajresults.pl?jobidno=14265>（2022.2.3アクセス）