

微小粒子状物質 (PM2.5) における発生源寄与の推定

武田麻由子、小松宏昭 (神奈川県環境科学センター)

神奈川県内の大気汚染常時監視測定局 (大和市役所、茅ヶ崎駅前交差点、西丹沢犬越路) で実施した四季の構成成分の分析データを基にCMB (Chemical Mass Balance) 法及びPMF (Positive Matrix Factorization) 法を用いて発生源別の寄与の推定を行った。双方の方法で共通して得られた推定結果を見ると、年間を通してPM2.5濃度に対する寄与が大きかったのは二次生成粒子の硫酸アンモニウムであり、冬季の大和市役所、茅ヶ崎駅前交差点では硝酸アンモニウムであった。西丹沢犬越路では年間を通して硝酸アンモニウムの寄与は小さかった。

1 はじめに

PM2.5は粒径が小さく肺の奥深くまで入りやすいことから、人への健康影響が懸念され、平成21年9月に環境基準が設定された。

神奈川県の環境基準の達成状況をみると、平成23年度は一般環境大気測定局 (一般局) で20%、自動車排出ガス測定局 (自排局) で0%、平成24年度は一般局で67%、自排局で63%となっていた。平成25年度には、関東全域で夏季に高濃度日が連続して発生し、神奈川県で環境基準を達成したのは1局のみとなった。

以上のことから、PM2.5の削減に向けた検討が急務である。神奈川県では平成23年度から自動濃度測定機によるPM2.5の質量濃度の測定と構成成分の分析を開始し、PM2.5の汚染実態についての現状把握及び解析を行っているところである。PM2.5の効果的な削減対策を推進するためには、併せて発生源に関する検討が重要である。今回は、発生源別の寄与の推定方法及び平成25年度の推定結果について報告する。

2 研究の目的と位置付け

環境科学センターではPM2.5の効果的な削減対策の検討に資するため、PM2.5の発生状況や季節別の構成成分の特徴といった基礎的な情報の整理を行うとともに、発生源別の寄与の推定などを行っている。また、人為発生源の影響を確認するため山間地の西丹沢犬越路を調査地点として加え、市街地と山間地とを比較しながら検討を行っている。

3 解析方法

発生源別の寄与の推定には、今回はPM2.5に含まれる構成成分に着目した、レセプターモデルを用いた統計的手法を使用した。レセプターモデルを用いた統計的手法にはいくつかの方法があり、現在よく使わ

れているのはChemical Mass Balance (CMB) 法及びPositive Matrix Factorization (PMF) 法である。

3.1 CMB法

主要な発生源から排出される粒子について、粒子中に含まれる構成成分の種類と濃度のパターンがわかっている（既知の発生源プロファイル）場合に、そのパターンと実際に採取した試料中の構成成分の種類と濃度とを比較し、各々の発生源の寄与を推定する方法である。解析ソフトはアメリカ合衆国環境保護庁(EPA)のCMB8.2を用い、既知の発生源プロファイルは東京都微小粒子状物質検討会報告書で使用されたものを基本とした。検討した発生源は、PM2.5として排出される一次粒子の発生源である自動車排出ガス、重油燃焼、廃棄物焼却、海塩粒子、鉄鋼工業、道路粉じん、ブレーキ粉じん及び植物質燃焼の8発生源である。また、大気中で光化学反応によりPM2.5になる二次生成粒子は有機炭素、硫酸アンモニウム及び硝酸アンモニウムの3種類とした。

3.2 PMF法

実際に採取した試料中の構成成分データから、データ変動の大部分が説明できる最小の因子数を抽出し、各因子に含まれる構成成分の特徴から発生源を推測し、その寄与を推定する方法である。解析ソフトはEPAのPMF5.0を用いた。

3.3 解析に用いた観測データセット

環境科学センターでは一般局の大和市役所(大和)、自排局の茅ヶ崎駅前交差点(茅ヶ崎)及び山間地の西丹沢犬越路測定局* (犬越路)の計3地点でPM2.5の構成成分の分析を実施している。

今回の解析にはこれら3地点の平成25年度の四季の分析結果を使用した。各測定局の位置を図1に、成分分析実施期間を表1に示す。

* 犬越路測定局：西丹沢の標高920m地点にある研究局。自動濃度測定機による質量濃度の測定は実施していない。

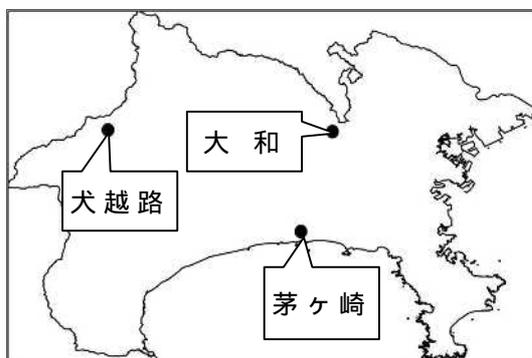


図1 調査地点

表1 成分分析の実施期間

	実施月日
春	平成25年5月8日～22日
夏	平成25年7月24日～8月7日
秋	平成25年10月23日～11月6日
冬	平成26年1月22日～2月5日

4 結果及び考察

各日の発生源別の寄与を算出し、各季節14日間の平均値を算出した。大和と茅ヶ崎は概ね同様の結果であり、平均して市街地とした。

4.1 CMB法を用いた発生源別の寄与の推定結果

CMB法を用いた発生源別の寄与の推定結果を図2に示す。

PM2.5濃度に最も寄与していた成分は二次生成粒子の硫酸アンモニウムであり、夏季の市街地で特に多く、50%を超過していた。山間地の犬越路でも年間を通して40%前後の寄与が見られた。一方、硝酸アンモニウムは、市街地で冬季に寄与が大きく28%を占め、次いで春秋に10%超の寄与があったが、犬越路では年間を通して寄与は小さかった。

一次粒子の発生源では、市街地では春夏に重油燃焼の、秋冬に自動車排出ガスの寄与が大きかった。春冬には犬越路も含め、道路粉じんの影響が見られた。犬越路では夏～冬に植物質燃焼の影響が見られた。

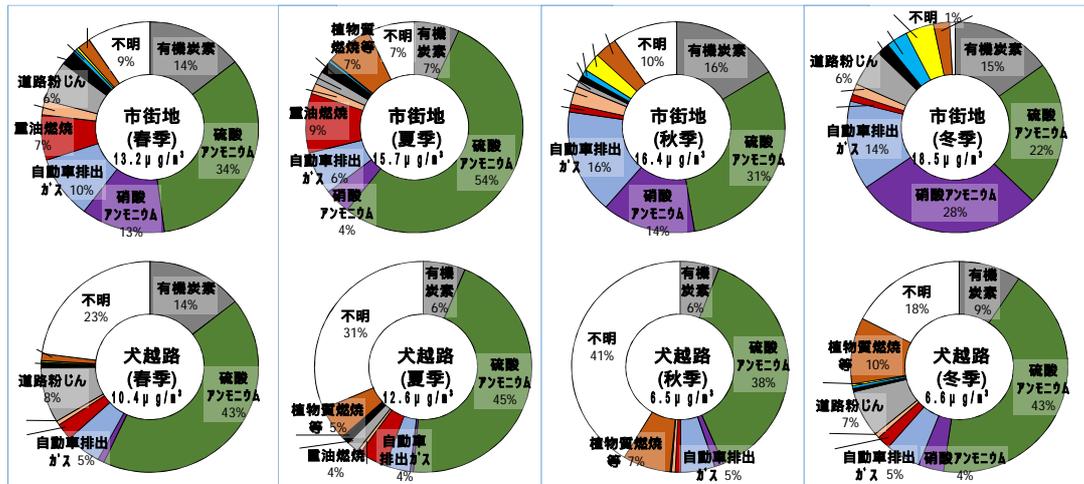


図2 CMB法を用いた各季節の発生源種類別寄与

発生源及び数値は寄与が4%を超える場合のみ記載

- 有機炭素
- 硫酸アンモニウム
- 硝酸アンモニウム
- 自動車排出ガス
- 重油燃焼
- 鉄鋼工業
- 道路粉じん
- プレーキ粉じん
- 海塩粒子
- 廃棄物焼却
- 植物質燃焼等
- 不明

4.2 PMF法を用いた発生源別寄与の推定結果

PMF法により解析したところ、最適な因子数として7が選定され、各因子に含まれる構成成分の特徴から硫酸アンモニウム+石炭燃焼、硝酸アンモニウム、ディーゼル排気粒子、重油燃焼、鉄鋼工業、土壌粒子、植物質燃焼+海塩粒子と推定した。PMF法による推定結果を図3に示す。

PM2.5濃度に最も寄与していた成分は二次生成粒子の硫酸エアロゾル+石炭燃焼であり、夏季の市街地で特に多かった。山間地の犬越路でも年間を通して40%前後の寄与が見られた。一方、硝酸エアロゾルは、市街地で冬季に寄与が大きく41%を占め、次いで春秋に10%超の寄与があったが、犬越路では年間を通して寄与は小さかった。

一次粒子の発生源では、市街地、山間地とも年間を通してディーゼル排気粒子の寄与が大きく、春夏に重油燃焼の寄与が、春冬に土壌の寄与が見られた。

4.3 CMB法及びPMF法の推定結果の比較及び考察

PMF法を用いた今回の解析結果では、硫酸アンモニウム+石炭燃焼など分離不十分な因子も存在したが、CMB法とPMF法の推定結果を比較す

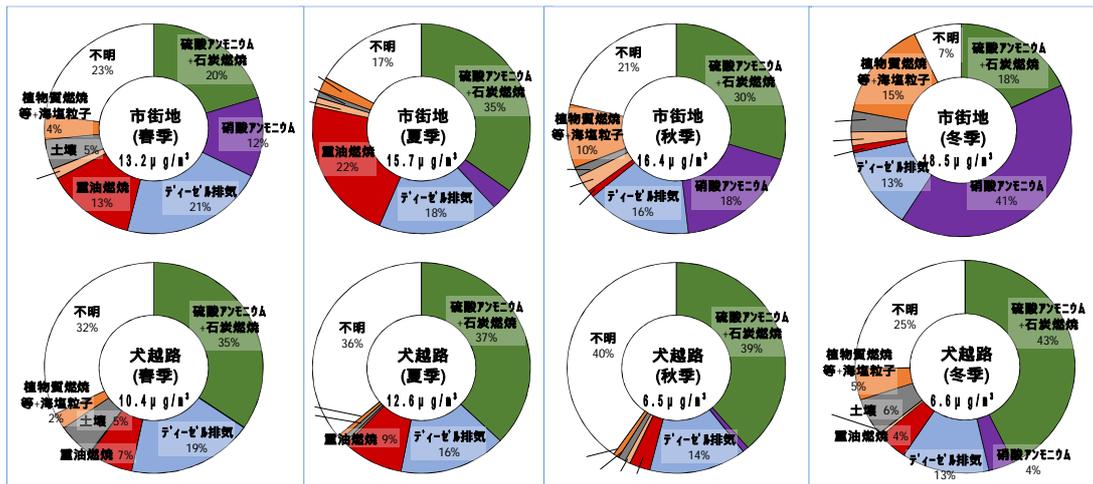


図3 PMF法を用いた各季節の発生源種類別寄与率
 発生源及び数値は寄与が4%を超える場合のみ記載

■ 硫酸アンモニウム+石炭燃焼 ■ 硝酸アンモニウム ■ ディーゼル排気 ■ 重油燃焼
 ■ 鉄鋼工業 ■ 土壌 ■ 植物質燃焼等+海塩粒子 □ 不明

ると、硫酸アンモニウム（PMF法では石炭燃焼が混在）及び硝酸アンモニウムは双方で概ね同様の結果が得られた。硫酸アンモニウムは重油など硫黄分を含む燃料の燃焼や火山ガス等から排出される二酸化硫黄とアンモニアから光化学反応により生成し、大気中で安定であるため長距離輸送されやすい。そのため人為的発生源が近傍にない山間地の犬越路でも年間を通して寄与が見られると考えられた。一方硝酸アンモニウムは、自動車排出ガス等から排出される窒素酸化物とアンモニアから光化学反応により生成するが、硫酸アンモニウムに比べ大気中で不安定であるため、犬越路まで移送されなかったと考えられた。

重油燃焼は、PMF法では別の因子が混在していると考えられ、寄与率はCMB法より大きく推定されているが、季節変動など概ね同様の結果が得られた。CMB法では道路粉じん、PMF法では土壌と推定された因子も、ともに市街地及び山間地で春冬に寄与が大きくなっており、大陸由来の黄砂の影響を含んでいると考えられた。

一方、PMF法によるディーゼル排気は、CMB法による自動車排出ガスと同じく主として自動車由来の因子であると考えられるが、季節変動がCMB法と異なっており、犬越路における寄与もCMB法より大きかった。

5 おわりに

PM2.5の発生源別の寄与について、CMB法とPMF法の異なる二つの手法を用い、市街地と山間地とを比較しながら検討し、地点や季節ごとにその特徴を把握することができた。

CMB法とPMF法で推定結果が異なる部分もあることから、今後は各々の手法を再検討するとともに、新たな統計的手法を追加し、推定精度を向上させる必要がある。また、シミュレーション技術なども活用し、PM2.5の効果的な削減対策の検討に資する研究を進めていく予定である。