

# 徳島県におけるPMF法による微小粒子状物質 (PM<sub>2.5</sub>) の発生源寄与率の推定

徳島県立保健製薬環境センター

森兼 祥太・高瀬 由里\*・林 貴大・高島 京子

Source apportionment of fine particulate matter (PM<sub>2.5</sub>) by Positive Matrix Factorization method in Tokushima Prefecture

Shota MORIKANE, Yuri TAKASE, Takahiro HAYASHI, and Kyoko TAKASHIMA

Tokushima Prefectural Institute of Public Health, Pharmaceutical and Environmental Sciences Center

## 要 旨

平成29年度から令和元年度にかけて、徳島県が採取したPM<sub>2.5</sub>の成分分析結果を用いて、レセプターモデルのひとつであるPositive Matrix Factorization (PMF)解析を行い、徳島県内の測定地点(徳島、脇町)におけるPM<sub>2.5</sub>の主要な発生源の寄与率を推定した。その結果、バイオマス燃焼、海塩、道路交通、半揮発性粒子、土壌、重油燃焼、硫酸塩(石炭)と推測される7つの因子が抽出された。徳島と脇町の地点別因子寄与濃度を季節ごとに比較したところ、脇町はバイオマス燃焼、冬季における硫酸塩(石炭)の寄与濃度が大きく、徳島は夏季における重油燃焼の寄与濃度が特に大きいという結果を得た。

Key words : PMF法 Positive Matrix Factorization , 発生源解析 Source apportionment

## I はじめに

PM<sub>2.5</sub>は、粒径が2.5 μm以下の非常に小さな粒子の総称であり、呼吸器系や循環器系への影響が懸念されている。平成21年9月に大気環境基準が示され、年平均値15 μg/m<sup>3</sup>以下の長期基準と日平均値35 μg/m<sup>3</sup>以下の短期基準、両方の基準を満たすこととされている。徳島県におけるPM<sub>2.5</sub>の環境基準達成状況は、表1に示すとおり平成28年度以降は100%を維持しているが、さらなるPM<sub>2.5</sub>の削減を進めるためには、成分分析によりその主成分を明らかにするとともに、質量濃度に寄与する発生源を把握することが重要であると考えられる。ソースモデルのChemical Mass Balance (以下CMB法)やレセプターモデルのPositive Matrix Factorization (以下PMF法)を用いた解析が、他自治体等で多数実施されている。PMF法は、発生源に関する予見を必要とせず、成分測定濃度データがあれば発生源の寄与割合を解析することができる<sup>1)</sup>。ただし、因子数の決定に任意性があり、導出される因子の解釈に主観が介入する点に注意が必要である<sup>1)</sup>。

本報では、平成29年4月に環境省からPM<sub>2.5</sub>の精度管理に係る目標検出下限値が示されて以降の県内の測定データを用いてPMF法による解析を実施し、PM<sub>2.5</sub>の発生源寄与割合の推計を行った。その解析結果について報告する。

表1 徳島県におけるPM<sub>2.5</sub>環境基準達成状況  
(全国の達成率は一般局における数字)

区分	年度	徳島県		全国		
		測定局数	有効測定局数	環境基準達成測定局数	環境基準達成率(%)	環境基準達成率(%)
一般局	平成21	1	1	0	0	-
	平成22	1	1	0	0	32.4
	平成23	1	1	0	0	27.6
	平成24	3	3	0	0	43.3
	平成25	5	5	0	0	16.1
	平成26	10	10	6	60	37.8
	平成27	10	10	8	80	74.5
	平成28	10	10	10	100	88.7
	平成29	10	10	10	100	89.9
	平成30	10	10	10	100	93.5
令和元	10	10	10	100	-	

\*現 徳島県立中央病院

## II 方法

### 1 解析対象データ

解析対象データは、大気汚染防止法第 22 条に基づき実施した常時監視測定結果を用いた。その詳細は次のとおり。

#### (1) 採取地点

徳島（徳島市新蔵町 3 丁目 80 番地）

脇町（美馬市脇町大字猪尻字建神社下南 73 番地）

#### (2) 採取期間

平成 29 年度

春季（5 月 10 日～5 月 24 日）

夏季（7 月 20 日～8 月 3 日）

秋季（10 月 19 日～11 月 2 日）

冬季（1 月 18 日～2 月 1 日）

平成 30 年度

春季（5 月 9 日～5 月 23 日）

夏季（7 月 19 日～8 月 2 日）

秋季（10 月 18 日～11 月 1 日）

冬季（1 月 17 日～1 月 31 日）

令和元年度

春季（5 月 8 日～5 月 22 日）

夏季（7 月 18 日～8 月 1 日）

秋季（10 月 17 日～10 月 31 日）

冬季（1 月 16 日～1 月 30 日）

また、採取時間は午前 10 時～翌朝 9 時の 23 時間としたが、平成 29 年度の徳島で採取した試料のみ、午前 10 時～翌朝 9 時 30 分の 23 時間 30 分採取とした。

#### (3) データセットのクリーニング

上記採取期間のうち、採取装置不具合等の理由により欠測となった成分が含まれる 8 試料については、解析対象データから除外した。

また、測定日ごとの成分分析データについて、イオンバランスを確認したところ、7 試料について 0.8 以上 1.2 以下の範囲から外れていたため、これらの試料も解析対象データから除外した。

さらに、極端な高値を示す等の特異的な試料は、モデルの再現性や因子分解に悪影響を及ぼす懸念があることから、4 試料について解析対象データから除外した。

以上より、2 地点における 3 年間、合計 317 試料の成分データを解析に供した。

### 2 解析手順

解析の実施にあたっては、アメリカ合衆国環境保護庁（US-EPA）が公開している「EPA PMF5.0」<sup>2)</sup>を用い、「EPA PMF5.0 User Guide」に準拠して進めた。

#### (1) 解析使用成分

以下に示す 24 成分と PM<sub>2.5</sub> 質量濃度データセットを作成した。

イオン成分 Na<sup>+</sup>, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>, K<sup>+</sup>, Mg<sup>2+</sup>, Ca<sup>2+</sup>, Cl<sup>-</sup>, SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>

金属成分 Al, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Ni, Cu, Zn, As, Se, Sb, Ba, Pb

炭素成分 OC, EC

さらに、解析結果の妥当性を判断するために PM<sub>2.5</sub>（質量濃度）も解析に加えた。

#### (2) 濃度データセットの作成

検出下限値未満の成分については、検出下限値の 2 分の 1 の値で置換した。また、ある測定日のデータのうち、特定の成分だけが欠測だった場合には「-999」と入力することで、解析ソフト上で中央値に置換されるよう処理した。

#### (3) 不確かさデータセットの作成

PMF 法では、成分データそれぞれの信頼性を評価するために、濃度データセットと合わせて、不確かさのデータセットが必要になる。各成分の不確かさは、検出下限値と誤差割合から算出することとし、濃度データセットと 1 対 1 で対応させた不確かさデータセットを作成した。不確かさの変動率は、5%、10%、15%、20%と変化させ、最適な誤差割合を検討した。ソフトウェア上で任意に付加することのできる総合的な不確かさ（Extra Modeling Uncertainty）は、本報では 0%として計算を実施した。

#### (4) 各成分の重み付け

PMF5.0 では各成分の重み（モデルに与える影響の大きさ）を Strong（不確かさを調整しない）、Weak（不確かさを 3 倍に調整）、Bad（解析から除外）の 3 種類に調整することができる。

重みづけは、一般的にシグナル/ノイズ比により行われるが、すべて 1 以上であったため、検出下限値未満のデータ数の割合が大きい Cr、Ni を Weak に設定した。

また、予備的な解析を行った際、Sb は再現性が悪く（R<sup>2</sup> < 0.5）、これも Weak に設定した。

最終的には、上記 3 成分に加え、Mg も Weak とし、PM<sub>2.5</sub> 質量濃度は Total Variable (Defaults to Weak) に設定し、その他の成分はすべて Strong として解析に供した。

#### (5) 因子数の決定

PMF 法は因子分析の一種であり、因子分析の計算は発生源因子の個数を分析者が分析前に仮定してから行う必要がある。

PMF 法では、Q と呼ばれる値が得られる。Q 値は各成分データの残差（実測値と計算値との差）と不確実性データから導かれる誤差の総和を表す。PMF 法では、Q の計算値である Q<sub>True</sub>（外れ値を除外せず求めた Q 値）と Q<sub>Rubust</sub>（外れ値を除外して求めた Q 値）のばらつきが小さく、Q<sub>Theory</sub>（解析に供

したデータ数、解析使用成分数及び発生源因子数で決定される Q 値) と近い値を示すことが統計的に最適な発生源因子数の条件とされている<sup>3)</sup>。

図 1 は、計算回数 20 回、発生源因子数は 5 から 10 の範囲で予備解析を行った際に得られた Q 値及び Q 値の相対標準偏差を、不確かさの変動率ごとに表したグラフである。

不確かさの変動率 10%以下のグラフにおいては、 $Q_{\text{Theory}}$  と  $Q_{\text{True}}$  は交わらず、変動率をさらに上げて試行する必要があると判断した。15%としたとき、15%では発生源因子数を 9 または 10 としたときに  $Q_{\text{Theory}}$  と  $Q_{\text{True}}$  は近い値を示したが、Q 値の相対標準偏差はやや高く、また抽出された因子には、合理的に解釈することが困難な因子が含まれていた。

20%まで上げると、発生源因子数を 7 としたときの  $Q_{\text{Theory}}$  と  $Q_{\text{True}}$  がほぼ一致し、相対標準偏差も低い値を示したため、統計的に安定した解とみなし、この条件にて計算回数を 100 回に増やして得られた解について考察した。

### III 結果

図 2 に、PMF により抽出された 7 つの発生源因子プロフィール (各因子の成分組成と因子間寄与率) を示した。

因子 1 は、 $K^+$ 、OC 及び EC が多く分配されており、バイオマス燃焼を表す因子と推定された。

因子 2 は、 $Na^+$ 、 $Mg^{2+}$  が多く分配されており、また Cl も因子 4 に次いで分配されていたことから、海塩を表す因子と推定された。

因子 3 は、Mn、Fe、Ni、Cu、Zn、Se、Sb、Ba、Pb と多様な金属元素が分配されており、さらに、OC、EC が分配されていたことから道路交通を表す因子と推定した。Mn、Fe、Ni、Cu、Zn、Sb の分配から、金属元素自動車排ガス以外にブレーキ摩耗、タイヤ摩耗、道路粉じんやエンジンオイルの影響が示唆された。

因子 4 は、大半の Cl、 $NO_3^-$  が分配されており、また、 $NH_4^+$  も分配されていたことから、硝酸アンモニウムや塩化アンモニウムといった半揮発性粒子を表す因子と推定した。

因子 5 は、 $Ca^{2+}$ 、Al、Ti、Fe 等の土壌由来と考えられる成分が多く分配されており、土壌を表す因子と推定された。

因子 6 は、V、Ni、 $SO_4^{2-}$ 、 $NH_4^+$  が多く分配されており、重油由来であることが示唆された。また、EC の分配もみられることから、重油燃焼を表す因子と推定された。

因子 7 は、As、Se、Sb、Pb、 $SO_4^{2-}$ 、 $NH_4^+$  が分配されており、石炭由来であることが示唆された。しかし、EC の分配がみられず、石炭燃焼由来と表すには合理性に欠けると判断し、発生源因子名は硫酸塩 (石炭) と定義した。

また、計算実行回数 100 回、Bootstrap 因子の寄与と Base 因子の寄与との適合性を評価するためのピアソンの相関係数

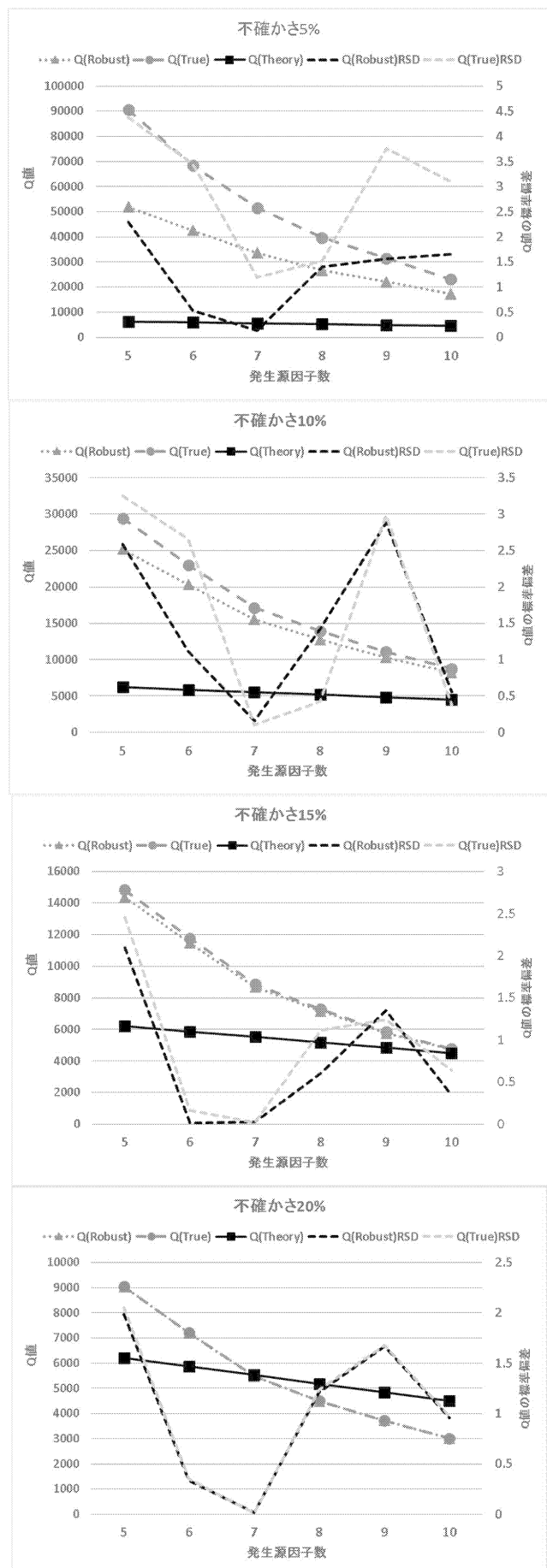


図 1 不確かさ変動率、発生源因子数を変化させたときの Q 値及び Q 値の相対標準偏差の変化

を0.6として Bootstrap run を実行した。

Bootstrap とは、復元抽出法により標本集団からデータブロックをランダムに抽出して構築した新しいデータセットを用いて、基本実行解析 (Base run) の結果との一致性を求めることで、解の堅牢性を確認する手法である。

表 2 に Bootstrap run による計算結果の要約を示した。各 Bootstrap 因子は、100 (計算回数) に近い値が各 Base 因子に割り当てられており、どの発生源にも適合していないことを意味する Unmapped に割り当てられることはなかった。これにより、元のデータセットの解析で得られた解の安定性は十分高いと評価した<sup>1)</sup>。

次に、各 Bootstrap 因子について、各成分の濃度分布を確認した。その結果を表 3 に示す。表 3 中では、「Yes」は各 Base 因子が各 Bootstrap 因子の濃度分布の四分位範囲に含まれていることを表し、「No」は含まれていないことを表す。PM<sub>2.5</sub> はどの因子においても四分位範囲に含まれていることが確認できた。また、各因子を特徴づける指標成分については太字に網掛けで示したが、これらは概ね四分位範囲に含まれていたものの、因子 3 では、いくつかの成分において含まれないという結果になった。

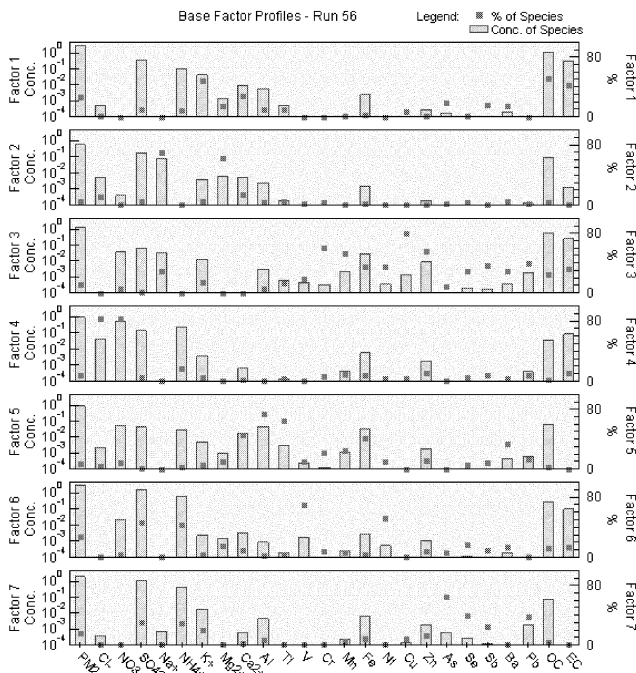


図 2 7つの発生源因子プロフィール (各因子の成分組成と因子間寄与率)

表 2 Bootstrap run による計算結果の要約

	Factor 1	Factor 2	Factor 3	Factor 4	Factor 5	Factor 6	Factor 7	Unmapped
Boot Factor 1	97	0	3	0	0	0	0	0
Boot Factor 2	0	100	0	0	0	0	0	0
Boot Factor 3	0	0	100	0	0	0	0	0
Boot Factor 4	0	0	0	100	0	0	0	0
Boot Factor 5	0	0	0	0	100	0	0	0
Boot Factor 6	0	0	0	0	0	100	0	0
Boot Factor 7	0	0	0	0	0	0	100	0

表 3 各成分における Bootstrap run の結果

	Factor 1	Factor 2	Factor 3	Factor 4	Factor 5	Factor 6	Factor 7
PM <sub>2.5</sub>	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes
Cl <sup>-</sup>	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes
NO <sub>2</sub> <sup>-</sup>	Yes	Yes	Yes	Yes	No	Yes	Yes
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes
Na <sup>+</sup>	Yes	Yes	No	Yes	Yes	Yes	Yes
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes
K <sup>+</sup>	Yes	Yes	Yes	Yes	No	Yes	Yes
Mg <sup>2+</sup>	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes
Ca <sup>2+</sup>	No	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes
Al	No	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes
Ti	No	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes
V	Yes	No	Yes	Yes	No	Yes	Yes
Cr	Yes	Yes	No	Yes	Yes	Yes	Yes
Mn	No	Yes	No	Yes	Yes	Yes	Yes
Fe	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes
Ni	Yes	No	Yes	Yes	No	Yes	Yes
Cu	No	Yes	No	Yes	Yes	Yes	Yes
Zn	No	Yes	No	Yes	Yes	Yes	Yes
As	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes
Se	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes
Sb	Yes	Yes	No	Yes	Yes	Yes	Yes
Ba	Yes	Yes	No	Yes	Yes	Yes	Yes
Pb	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes
OC	Yes	Yes	No	Yes	No	Yes	Yes
EC	Yes	No	No	Yes	Yes	Yes	Yes

#### IV 考察

徳島、脇町それぞれの地点についての、各因子の寄与濃度の推定結果を図 3 に示した。

「バイオマス燃焼」因子については、すべての季節で脇町において徳島より寄与濃度が大きかった。季節変動については明瞭な差がみられなかった。野焼き等由来のバイオマス燃焼だけではなく、調理排気等の寄与の存在についても考慮する必要がある。

「海塩」因子については、すべての季節で徳島において脇町より寄与濃度が大きかった。徳島のほうが海に近いことから妥当であると考えられる。また、海風が多くなる春季及び夏季のほうが寄与濃度は大きかった。

「道路交通」因子については、2 地点の間に明瞭な差はみられず、季節変動も小さかった。自動車に起因するならば、明瞭な季節変動がみられないことは妥当であると考えられ、徳島は西の国道 11 号線、脇町は、北の徳島自動車道からの影響をそれぞれ受けた結果であるとも考えられる。しかし、この因子については、さまざまな金属元素の寄与がみられたほか、それらの Bootstrap での結果が良好であるとはいえなかったことから、発生源が混在している可能性も考えられる。

「半揮発性粒子」因子については、すべての季節で徳島において脇町より寄与濃度が大きかった。季節変動については、気温の低い冬季に寄与濃度が大きくなり、夏季に小さくなっていた。ただし、これらの半揮発性成分は、気温が高い条件下では大部分が揮散してフィルター捕集ができないという、負のアーティファクトの影響についても考慮する必要がある。

「土壌」因子については、2 地点の間に明瞭な差はみられなかった。季節変動については、春季の寄与濃度が他の季節の寄与濃度に比べ高い値を示した。

「重油燃焼」因子については、すべての季節で徳島におい

て脇町より寄与濃度が大きかった。季節変動については、春季及び夏季の寄与濃度が大きく、特に徳島における夏季の寄与濃度は高い値を示した。脇町に比べ、徳島は工業団地に近いということもこの結果に関連付けられると推測できるが、一方で、瀬戸内海を航行する船舶排気の影響を受けているとも推測できる。環境省の資料によると、平成27年度の一次粒子としてのPM<sub>2.5</sub>総排出量は12万トン、そのうち船舶からの排出は5.6万トンと見積もられており<sup>4)</sup>、海風が多い春季及び夏季にその寄与濃度が大きくなっていることも整合性がある。

船舶汚染防止国際条約1997年議定書(MARPOL条約附属書VI)の2008年改正に基づくSO<sub>x</sub>の排出規制が、2020年1月1日から施行されたことに伴い、今後はより硫黄分の少ない燃料が船舶に使用されることで大気環境中への硫酸イオン等の排出量が低減されることが期待されている<sup>5)</sup>。

このような変化が、徳島県の大気環境へどれぐらいの影響をもたらすか評価するためにも、今後もデータを集め、定期的に解析を行っていく必要がある。

「硫酸塩(石炭)」因子については、すべての季節で脇町において徳島より寄与濃度が大きかった。季節変動については、特に冬季において高い寄与濃度を示した。

冬季は、大陸で暖房用燃料としての石炭需要が高まり、また、西高東低の気圧配置となり、北西の季節風が卓越し、それに伴って大陸からの汚染物質の越境輸送が起りやすくなるためと推測できる。

## V まとめ

平成29年度から令和元年度の間で、県内2地点で採取したPM<sub>2.5</sub>の成分分析データセットを用いてPMF解析を行った。

発生源因子数7として解析したときに最も確からしい解が

得られ、各因子を「バイオマス燃焼」、「海塩」、「道路交通」、「半揮発性粒子」、「重油燃焼」、「硫酸塩(石炭)」と名付けた。

徳島と脇町の地点別因子寄与濃度を比較したところ、徳島は「重油燃焼」、「海塩」、「半揮発性粒子」の寄与割合が比較的大きく、脇町は「バイオマス燃焼」、「硫酸塩(石炭)」の寄与割合が比較的大きいという特徴を見出せた。季節間の寄与濃度を比較すると、夏季の徳島における「重油燃焼」の寄与と、冬季の脇町における「硫酸塩(石炭)」の寄与が特に大きいという結果であった。

平成29年4月に環境省からPM<sub>2.5</sub>の精度管理に係る目標検出下限値が示されて以降のデータを用いて今回の解析を行ったが、CrやNi等のデータに一部、目標検出下限値を達成できておらず、かつ検出下限値未満のものが含まれていた。これらの成分データの検出率を向上させていくことで、解析に用いるデータセットの質を向上させ、より詳細なPM<sub>2.5</sub>発生源因子の推定に努めていきたい。

## 謝辞

試料採取にあたり、西部総合県民局保健福祉環境部(美馬)環境担当の皆様にも多大な協力を賜りました。記して深く感謝の意を示します。

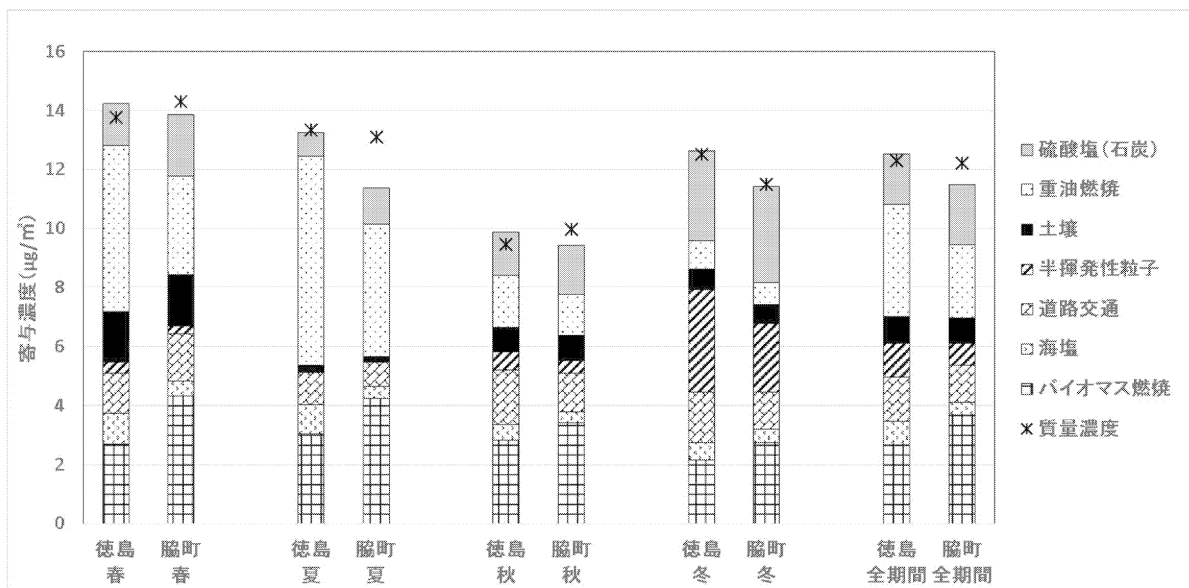


図3 各因子の寄与濃度の推定結果

## 参考文献

- 1) 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**，A53-60（2017）
- 2) 米国環境保護庁：「Positive Matrix Factorization Model for Environmental data analysis」，<https://www.epa.gov/air-research/positive-matrix-factorization-model-environmental-data-analyses>（2020年4月15日現在）
- 3) 中坪良平，竹本智美，平木隆年：兵庫県におけるPM<sub>2.5</sub>の発生源解析に関する研究－その1－，兵庫県環境研究センター紀要，**7**，1-7，公益財団法人ひょうご環境創造協会（2017）
- 4) 環境省：PM<sub>2.5</sub>等の大気汚染物質排出インベントリの整備状況，[https://www.env.go.jp/press/pm2.5\\_9/mat3.pdf](https://www.env.go.jp/press/pm2.5_9/mat3.pdf)（2020年4月15日現在）
- 5) 国土交通省：海事分野におけるSO<sub>x</sub>規制の概要及び国土交通省の対応について，<https://www.mlit.go.jp/common/001292832.pdf>（2020年4月15日現在）