

CPF 法を用いた PM_{2.5} の発生源位置の推定

山神 真紀子, 久恒 邦裕, 池盛 文数

Estimation of local sources of PM_{2.5} using the conditional probability function

Makiko Yamagami, Kunihiro Hisatsune, Fumikazu Ikemori

平成 23 年度, 24 年度に行った微小粒子状物質 (PM_{2.5}) の成分分析調査結果をもとに, 風向を組み合わせる各発生源の位置を推定する Conditional Probability Function (CPF 法) を用いて発生源位置の推定を行った. その結果, 自動車排気粒子, 重油燃焼, 鉄鋼業, 局所的発生源は排出量分布と概ね一致した. 石炭燃焼は特異的な方向を示さず, 地域の発生源よりも越境汚染の影響が高いことを示唆した.

はじめに

名古屋市では, 環境省の「微小粒子状物質 (PM_{2.5}) の成分分析ガイドライン¹⁾」に基づき, 微小粒子状物質 (以下, PM_{2.5}) の常時監視として平成 23 年度に 2 地点, 平成 24 年度に 6 地点で PM_{2.5} の成分分析調査を行った. この成分分析結果を基に Positive Matrix Factorization (以下, PMF 法) を用いて発生源の推定を行い, この結果に, 風向を組み合わせる各発生源の位置を推定する Conditional Probability Function²⁾ (以下, CPF 法) を用いて検討を行った.

方法

1. 調査期間

本調査は, 平成 23 年度および平成 24 年度の春季, 夏季, 秋季, 冬季の四季ごとに 14 日間の測定を基本とした.

平成 23 年度: 春季 5 月 31 日～6 月 14 日
夏季 8 月 23 日～9 月 7 日
秋季 11 月 15 日～29 日
冬季 2 月 14 日～28 日

平成 24 年度: 春季 5 月 9～23 日
夏季 7 月 26 日～8 月 9 日
秋季 10 月 23 日～11 月 6 日
冬季 1 月 24 日～2 月 7 日

2. 調査地点

平成 23 年度は 2 地点, 平成 24 年度は 6 地点で調査を行った. 調査地点を図 1 に示す.

平成 23 年度: 八幡中学校 (一般局), 元塩公園 (自排局)

平成 24 年度: 八幡中学校, 白水小学校, 滝川小学校 (一般局) 元塩公園, 港陽, 上下水道局北営業所 (自排局)

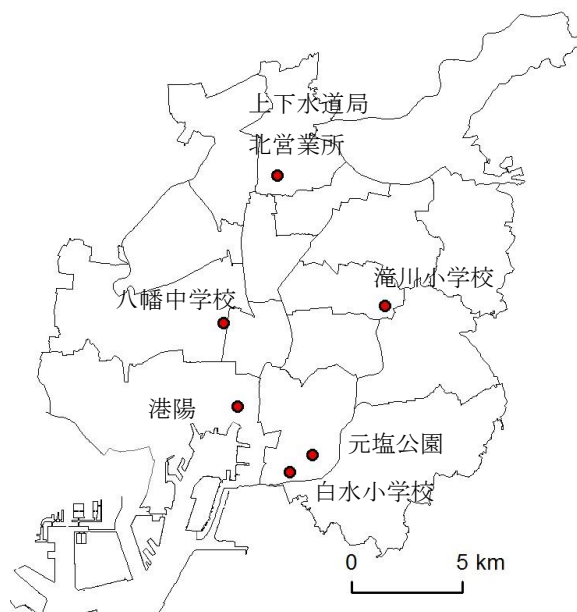


図 1 調査地点

3. 測定項目および分析条件

測定項目および分析条件は, 環境省が作成したガイドラインに基づいて行った. PM_{2.5} 採取装置は, 八幡中学校, 港陽, 上下水道局北営業所がサーモ・エレクトロン製 FRM-2000, 白水小学校, 滝川小学校, 元塩公園が FRM-2025 を使用した. 1 地点に採取装置を 2 台設置し, 1 台は PTFE (ポリテトラフルオロエチレン)

ろ紙をセットし、質量濃度測定・イオン・金属分析用に、もう1台は石英繊維ろ紙をセットし、炭素分析用とした。流速はすべて16.7L/minで採取した。

3.1. 質量濃度

質量濃度測定にはPTFEフィルターを用いた。コンディショニングおよび秤量操作は、温度 $21.5\pm 1.5^{\circ}\text{C}$ 、相対湿度 $35\pm 5\%$ で行った。秤量は、感度 $1\mu\text{g}$ の天秤（Sartorius ME5-F）を用いた。

3.2. イオン成分

イオン分析にはPTFEフィルターを用いた。イオンクロマトグラフィー（DIONEX ICS-1000）により以下の成分を分析した。

陰イオン： SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 Cl^- 、 NO_2^- 、 $\text{C}_2\text{O}_4^{2-}$

陽イオン： Na^+ 、 K^+ 、 NH_4^+ 、 Mg^{2+} 、 Ca^{2+}

3.3. 炭素成分

炭素分析には石英フィルターを用いた。ろ紙の加熱前処理は 350°C で1時間行った。熱分離光学補正法による炭素分析計（Sunset Lab model4L）により以下の成分を分析した。炭素成分は分析の測定条件によりいくつかの温度フラクションに分けられる。有機炭素（OC）はヘリウム雰囲気中 120°C （OC1）、 250°C （OC2）、 450°C （OC3）、 550°C （OC4）、および光学補正值（pyOC）を加えたものである。元素炭素（EC）は98%ヘリウム+2%酸素雰囲気中 550°C （EC1）、 700°C （EC2）、 800°C （EC3）およびpyOCを引いたものである。

有機炭素（ $\text{OC}=\text{OC1}+\text{OC2}+\text{OC3}+\text{OC4}+\text{pyOC}$ ）

元素炭素（ $\text{EC}=\text{EC1}+\text{EC2}+\text{EC3}-\text{pyOC}$ ）

3.4. 無機元素成分

無機元素分析にはPTFEフィルターを用いた。圧力容器分解装置により酸分解し、ICP-MS（Agilent7700）により、以下の29元素を分析した。なお、*印は実施推奨項目を表す。

Na, Al, K, Ca, Sc, Ti*, V, Cr, Mn*, Fe, Co*, Ni, Cu*, Zn, As, Se*, Rb*, Mo*, Sb, Cs*, Ba*, La*, Ce*, Sm*, Hf*, W*, Ta*, Th*, Pb

4. 解析方法

PMF法による発生源寄与率の推定には、EPA-PMF 3.0を使用した。

CPF法は発生源因子の寄与率が、一定の閾値を超えた場合の風向の頻度分布によって、発生源の位置を推定するものである。CPF値は次の式によって求められる。閾値は各発生源因子の寄与率が上位25%の場合とした。風向データは常時監視測定局または名古屋地方

気象台のデータを用いた。

$$\text{CPF} = \frac{m_{\Delta\theta}}{n_{\Delta\theta}} \quad m_{\Delta\theta}: \text{上位25\%の風向}\theta\text{の数}, \\ n_{\Delta\theta}: \text{風向}\theta\text{の総数}$$

結果及び考察

1. PM_{2.5} および各成分の濃度変動

PM_{2.5}および各成分の濃度変動を図2に示す。名古屋市内6地点におけるPM_{2.5}の平均濃度は16.4~19.3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ で、市の南部で濃度が高い傾向が見られた。PM_{2.5}濃度は春季に高く、夏季に低いという傾向は平成23年度、24年度とも変わらなかった。

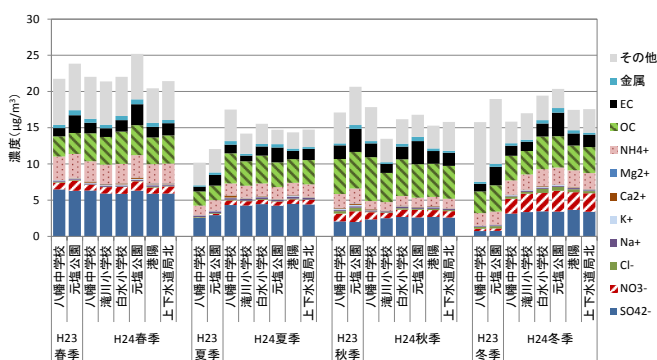


図2 PM_{2.5}の季節変動

2. PMF法による発生源推定

発生源の推定には、イオン分析と無機元素分析で両方に測定値があるものはイオン分析の値を採用した。PMF法に採用した成分は、 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 Cl^- 、 Na^+ 、 K^+ 、 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 NH_4^+ 、OC、EC、Al、Ti、V、Cr、Mn、Fe、Ni、Zn、As、Sb、Pbの21成分とした。

PMF法には2年間の6地点のデータ（ $n=428$ ）を用いた。検出下限値以下の値は、検出下限値の2分の1の値を用いた。不確実性（U）は並行試験結果およびIto et al.³⁾を参考に次式より求めた。

$$U=0.2\times C_{ij}+DL$$

ここで、 C_{ij} は各サンプルの各成分の濃度、DLは検出下限値を示す。

S/N比が2より小さい成分は“weak”とした。因子数の決定方法は前報³⁾と同様の方法で求めた。その結果、因子数を8とした。各因子における成分の質量濃度および各成分における因子の相対比を図3に示す。

各因子の由来について以下のように推定した。

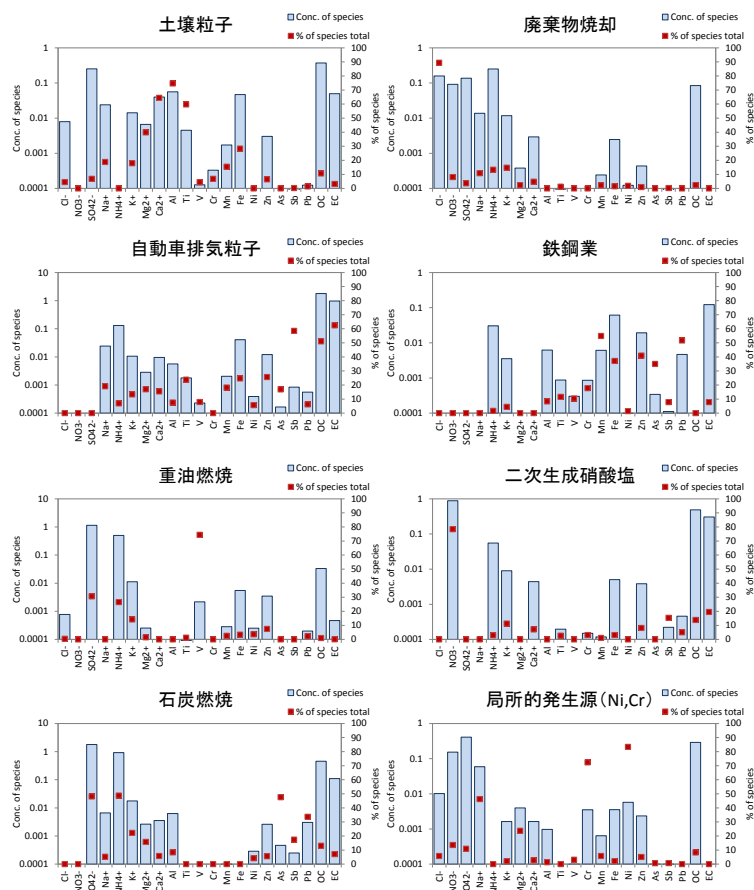


図3 PMF法による発生源プロファイル。

- 因子1：アルミニウム，チタン，カルシウムイオン，マグネシウムイオンが高いことから土壌に由来するとした。
- 因子2：元素炭素，有機炭素，アンチモン，亜鉛が高いことから自動車排出粒子に由来するとした。
- 因子3：硫酸イオン，アンモニウムイオン，バナジウム高いことから重油燃焼由来の二次生成硫酸塩とした。
- 因子4：硫酸イオン，アンモニウムイオン，ヒ素，鉛が高いことから石炭燃焼由来の二次生成硫酸塩とした。
- 因子5：塩化物イオンが高いことから廃棄物焼却に由来するとした。
- 因子6：マンガン，鉄，亜鉛，鉛が高いことから鉄鋼業に由来するとした。
- 因子7：硝酸イオンが高いことから二次生成硝酸塩に由来するとした。
- 因子8：ニッケル，クロムが高いことから局所的発生源（Ni,Cr）に由来するとした。

各発生源の季節別寄与濃度の平均値を図4に示す。石炭燃焼は春に寄与濃度が高く，越境汚染の可能性が示唆される。重油燃焼は春と夏に高い。自動車排気粒子は秋に高い。廃棄物焼却は秋から冬に高い。土壌粒子は春に高く，黄砂の影響が示唆される。二次生成硝酸塩は冬に高くなった。

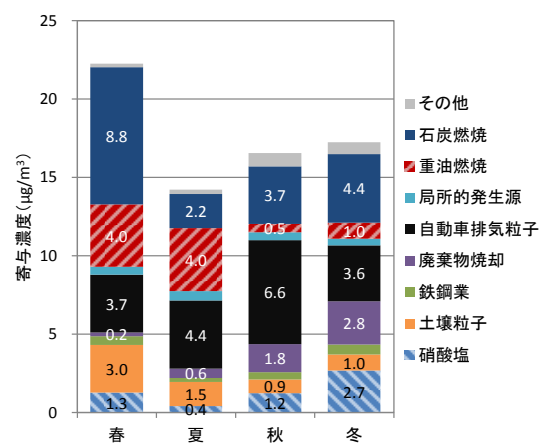


図4 季節別発生源寄与濃度

3. CPF プロットと発生源分布の比較

CPF プロットと，国内の排出源インベントリであるEAGrid 2000-JAPAN⁵⁾の1kmメッシュの年間排出量分布，市内及び市周辺部の清掃工場の分布，平成23年度PRTR年間取扱量の分布を図5-1~8に示す。

自動車排気粒子の各地点のCPFプロットは，市内の自動車由来の発生源の位置とほぼ一致していた。重油燃焼のCPFプロットはどの地点も南の方角を示していたが，名古屋市南側に大規模燃焼施設があること，また，港が南側にあり，船舶の影響もあることから妥当な結果と言える。廃棄物焼却のCPFプロットは北の3地点が北西の方角を示していたが，南の清掃工場に近い地点では清掃工場の方角を示しておらず，必ずしも清掃工場の位置とは一致していない。鉄鋼業のCPFプロットは，Mnの取り扱い施設の方角を示していた。局所的発生源（Ni,Cr）のCPFプロットは，取扱量の多い市の南部を示していた。なお，Ni,Crは両方を取り扱っている施設が多かった。石炭燃焼のCPFプロットは，方角が偏っていない地点が多く，石炭燃焼が地域の発生源よりも越境汚染の影響が高いことを示唆している。二次生成硝酸塩のCPFプロットは道路の方角とは一致していない。土壌粒子は測定局の校庭の位置を示す地点もあったが，北西に偏っている地点も多い。

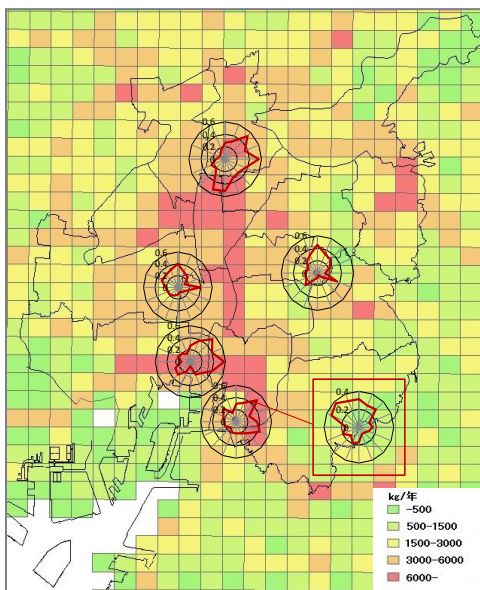


図 5-1 自動車排気粒子の CPF プロットと EAGrid2000 の自動車排気、タイヤ・ブレーキ摩耗 $PM_{2.5}$ 年間排出量分布

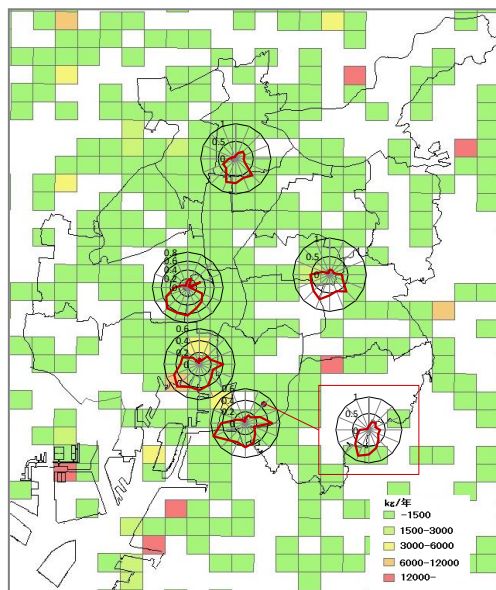


図 5-2 重油燃焼の CPF プロットと EAGrid2000 の大規模燃焼施設 $PM_{2.5}$ 年間排出量分布

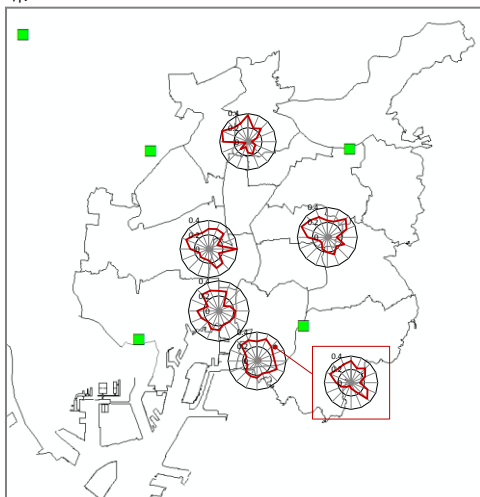


図 5-3 廃棄物焼却の CPF プロットと清掃工場 (■) の分布

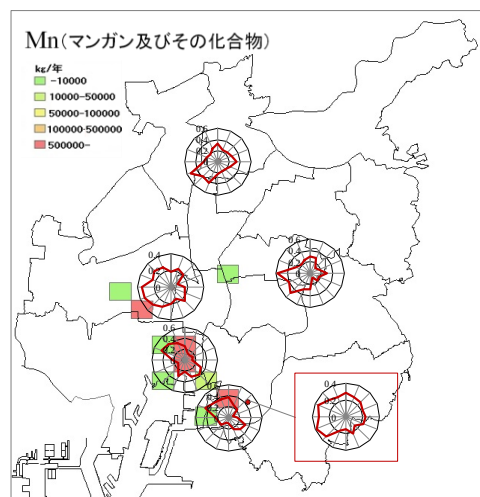


図 5-4 鉄鋼業の CPF プロットと平成 23 年度 PRTR マンガン及びその化合物年間取扱量分布

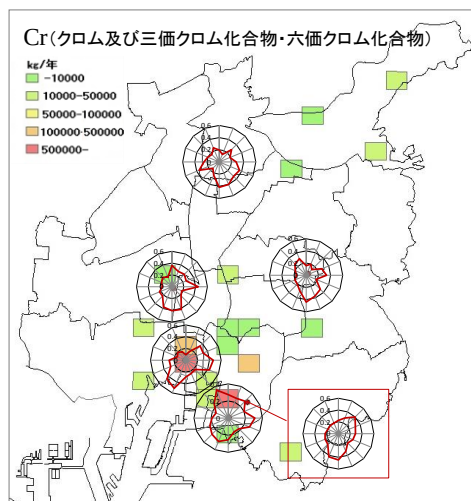
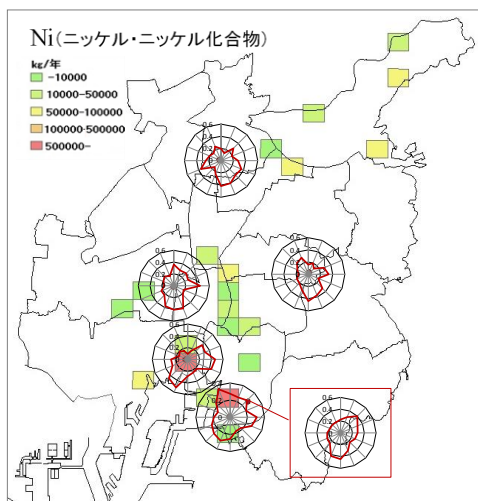


図 5-5 局所的発生源 (Ni,Cr) の CPF プロットと平成 23 年度 PRTR ニッケル・ニッケル化合物取扱量分布 (左) とクロム及び三価クロム化合物・六価クロム化合物年間取扱量分布 (右)

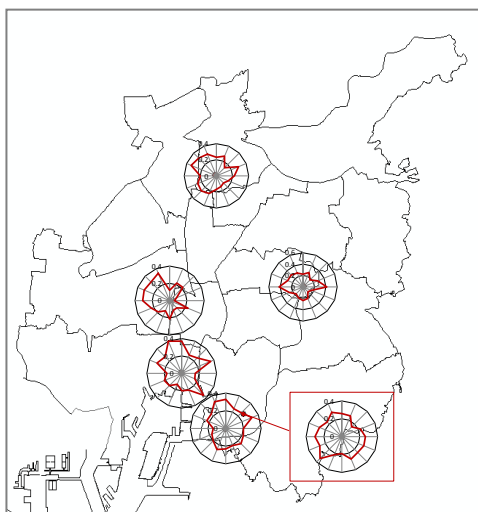


図 5-6 石炭燃焼の CPF プロット

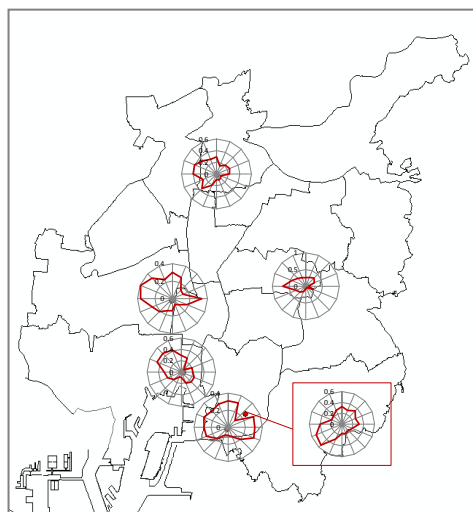


図 5-7 二次生成硝酸塩の CPF プロット

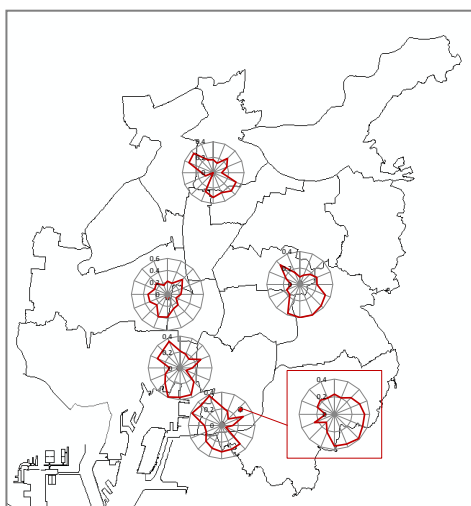


図 5-8 土壌粒子の CPF プロット

文 献

- 1) 環境省: 微小粒子状物質 (PM_{2.5}) の成分分析ガイドライン http://www.env.go.jp/air/osen/pm/ca/110729/no_110729001b.pdf (2011)
- 2) Paatero, P., Tapper, U.: Positive matrix factorization-A nonnegative factor model with optimal utilization of error estimates of data values, *Environmetrics*, **5**, 111-126 (1994)
- 3) Ito K, Xue N, Thurston G.: Spatial variation of PM_{2.5} chemical species and source-apportioned mass concentrations in New York City. *Atmospheric Environment*, **38**, 5269-5282 (2004)
- 4) 山神真紀子, 久恒邦裕, 池盛文数: 微小粒子状物質 (PM_{2.5}) の発生源寄与率の推定, 名古屋市環境科学調査センター年報, **1**, 20-25 (2012)
- 5) Akiyoshi Kannari et al.: *Atmospheric Environment* **41**, 3428-3439 (2007)