

# 横浜におけるPM2.5の無機成分測定と発生源寄与推定

Measurement of inorganic composition and source contributions for PM2.5 in Yokohama

環境マネジメント専攻 リスクマネジメントコース 責任指導教官：益永茂樹  
副専攻：環境生命学  
窪田慎 (Shin KUBOTA)

## ABSTRACT

Measurements were performed from June 2003 to January 2005 in Yokohama city, Kanagawa prefecture, Japan. The species in this study were PM2.5, OC, EC, Na<sup>+</sup>, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>, K<sup>+</sup>, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, Cl<sup>-</sup>, SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, Ca, V, Cr, Mn, Ni, Cu, Zn, Cd, Pb. The source contributions for PM2.5 in this site were estimated by using Positive Matrix Factorization (PMF) based factor analysis. The results showed that eight sources were identified: gasoline-powered vehicles (32%), NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-rich secondary aerosol (10%), oil combustion (8.4%), sea salt (4.0%), incineration (4.9%), soil (2.4%), metal (10%), SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>-rich secondary aerosol & diesel-powered vehicles (28%). In conclusion, it would be necessary to be enforced emission standards for not only diesel-powered vehicles, but also multiple sources. In addition, this study was first applied for PMF method in Japan.

## 1. はじめに

浮遊粒子状物質は呼吸器疾患等の健康影響が懸念されている物質である。その発生源は一般的にディーゼル車排ガス由来とされ、現在東京都を中心に2003年のディーゼル車排ガス規制などの対策が進められている。しかし、粒径が小さいPM2.5はSPMよりもさらに種々の発生源から、複雑な反応を経て形成される。そのため一つの発生源対策で削減することは難しく、効果的に削減するためには発生源を正確に把握することが必要である。

これまで日本では発生源を把握する手法として主にCMB(Chemical Mass Balance)法が使われてきた<sup>[1]</sup>。しかし、CMB法は発生源組成が必要で、環境中での組成が変化しないなど、PM2.5の特性とは矛盾した仮定の下で解析が行われてきた。また、発生源組成は規制などにより流動的に変化するためにその把握は困難を極める。そこで、近年、これらの問題を改善した推定手法として、P. Paatero (Helsinki Univ.) によってPMF(Positive Matrix Factorization)法が開発され<sup>[2]</sup>、世界各地で適用され始めている。この手法では観測点の測定結果から発生源数・組成を割り出し、寄与率を推定できる。このためにPMの特性に適した手法であると考えられる。そこで、本研究ではPMF法を用いてPM2.5の発生源寄与を推定することを目的とした。また、本研究は日本で初めてPMF法を適用した例となる。

## 2. 測定・分析方法

PM2.5中の構成成分の分析を行った。捕集場所は横浜国大環境情報4号棟屋上で、2003年5月から2005年1月まで捕集した。捕集後、各成分OC、EC、Na<sup>+</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、K<sup>+</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、Cl<sup>-</sup>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、Ca、V、Cr、Mn、Ni、Cu、Zn、Cd、Pbを分析した。

## 3. 測定・分析結果

PM2.5の主要成分はOC、EC、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>となり、全サンプル平均では79%を占めた。重金属成分中の主成分はCa、Znで重金属成分中平均70%を占めた。

季節変動は、OCは夏は冬に比べて38%減少し、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>は夏は冬に比べて63%増加した。重金属成分ではV、Niが夏は冬に比べてそれぞれ240、66%増加した。これらの傾向は横浜周辺での測定結果と一致した<sup>[1]</sup>。

## 4. 発生源寄与推定方法

PMF法<sup>[2]</sup>を用いてPM2.5の発生源を特定および寄与率を推定した。PMFモデルは、①観測点での実測濃度から発生源組成を特定できる、②ばらつきの大きいデータに対して頑健性を有している、③寄与率が非負制約をかけるために負に算出されない、以上3つを大きな特徴として

いる。PMF法の基礎式を(1)式に示した。

$$Q = \sum_{i=1}^m \sum_{j=1}^p \left( X_{ij} - \sum_{k=1}^p G_{ik} F_{kj} \right) / \sigma_{ij}^2 \quad (1)$$

PMFモデルに実測成分濃度(X<sub>ij</sub>)とその標準偏差(σ<sub>ij</sub>)を入力し、(1)式より最適なQ値となる発生源数(p)を求めた。この際の発生源寄与濃度(G<sub>ik</sub>)と発生源組成(F<sub>kj</sub>)を推定した。実測PM2.5重量濃度から回帰分析を用いて各発生源の寄与率を求めた。実測PM2.5重量濃度を従属変数(Y)、各発生源の寄与濃度(G<sub>ik</sub>)を説明変数(X<sub>ik</sub>)とする重回帰式 Y<sub>i</sub> = a<sub>k</sub> · X<sub>ik</sub> で表し、各係数(寄与率: a<sub>k</sub>)を求めた。

## 5. 発生源寄与推定結果・考察

横浜国大におけるPM2.5に寄与する発生源は8個(Factor I～VIII)を推定し、各発生源組成(F<sub>ik</sub>)も推定した。最も大きい寄与を示したのはFactor I (32%)だった。Factor Iの組成はOC、EC、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、Vを多く含むことからガソリン車と特定した。Factor VIII(28%)はNH<sub>4</sub><sup>+</sup>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>を多く含むため、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の二次生成粒子の特徴を示した。またOC、EC、Mn、Cuも多くディーゼル車の特徴もあるため、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の二次生成粒子およびディーゼル車の発生源が混合したFactorと特定した。Tab.1に各Factorの解釈とその寄与率を示した。

以上より、PMF法では観測点の測定結果のみで明確な発生源寄与の把握が可能であるために、未知の発生源が存在する場合でも応用が可能である。さらにサンプル数を増やすことで季節変動など、より明確に発生源の寄与の変動を把握することが可能となると考えられる。本手法はPMの発生源の寄与推定には有効であると考えられ、さらなる適用が望まれる。

Tab.1 Identification and contribution of 8 sources

Factor	Identified Sources	Contribution
I	Gasoline-Powered Vehicles	32%
II	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> -rich Secondary Aerosol	10%
III	Oil Combustion	8.4%
IV	Sea Salt	4.0%
V	Incineration	4.9%
VI	Soil	2.4%
VII	Metal	10%
VIII	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> -rich Secondary Aerosol & Diesel-Powered Vehicles	28%

## 参考文献

- [1] 浮遊粒子状物質調査会議, 平成14年度浮遊粒子状物質合同報告書, 2004
- [2] Paatero P., Chemo. Intell. Lab. Syst., 37, 23-35, 1997