

兵庫県における PM_{2.5} 汚染の実態把握調査 (3)

中坪 良平¹, 常友 大資¹, 平木 隆年¹

¹ 兵庫県環境研究センター 大気環境科 (〒654-0037 神戸市須磨区行平町 3-1-27)

Investigation of the Actual Condition concerning PM_{2.5} Air Pollution in Hyogo Prefecture (3)

Ryouhei NAKATSUBO¹, Daisuke TSUNETOMO¹ and Takatoshi HIRAKI¹

¹ Atmospheric Environmental Division, Hyogo Prefectural Institute of Environmental Sciences,
3-1-27, Yukihiro-cho, Suma-ku, Kobe, Hyogo 654-0037, Japan

2007年11月から2009年10月までの2年間、兵庫県下3地点(芦屋、姫路、須磨)において微小粒子状物質(PM_{2.5})濃度及びPM_{2.5}に含まれる主要成分濃度の測定を実施した。得られた成分濃度の測定結果を用いて多変量解析(重回帰分析及び主成分分析)を行いPM_{2.5}濃度の変動要因を推定した。重回帰分析の結果、PM_{2.5}濃度の増加要因として、全地点でOC, Na⁺, NH₄⁺, K⁺が採択され、芦屋と須磨ではECも採択された。主成分分析の結果、総合的な汚染度の指標、半揮発性成分の指標、人為起源による汚染の指標と考えられる3つの主成分が得られたが、他の要因の影響も受けている可能性が考えられた。

はじめに

空気動力学径が2.5 μm以下の大気中微小粒子状物質(PM_{2.5})については、2009年9月9日に環境基準が告示され、現在、地方自治体による常時監視体制の整備が進められている。これまでに環境省等が実施したPM_{2.5}濃度の測定結果から、わが国の都市部におけるPM_{2.5}濃度は全国的に環境基準を上回ると予想されている¹⁾。金谷ら²⁾は、局所的な汚染の影響が少ない離島の九州福江島でPM_{2.5}濃度を測定し、告示日以降の測定データを解析した結果、日平均値の年間98%タイル値が56.5 μg/m³となり、測定の不確かさ考慮しても有意に環境基準(35 μg/m³)を超過していると報告した。このことは、PM_{2.5}の環境基準超過に及ぼす越境大気汚染の関与を強く示唆している。一方、熊谷ら³⁾は、関東平野内陸部では光化学反応に起因すると推察される二次生成粒子の濃度増加によって微小粒子濃度が増加することを報告している。このことは、地域的な汚染源に起因するPM_{2.5}の濃度増加を示唆

している。これらの報告は、PM_{2.5}の低減対策を的確に実施していくためには、周辺環境の異なる様々な地域でPM_{2.5}の高濃度要因や発生源を把握し、PM_{2.5}の高濃度事象に及ぼすそれらの影響を定量的に把握することの必要性を示している。

当センターでは、PM_{2.5}濃度を2週間程度の平均濃度で把握することを目的としたサンプラーを製作し、2001年からモニタリング調査を実施してきた。既報⁴⁾では、2003年から2007年における四年間のPM_{2.5}質量濃度の測定結果をとりまとめて報告した。また、2007年からは質量濃度の並行測定を継続するとともに主要な成分濃度の測定を開始し、2007年から2008年における1年間の成分濃度測定結果をとりまとめて前報⁵⁾で報告した。本報告では、2007年から2009年まで実施した県内3地点におけるPM_{2.5}の質量濃度と主要成分濃度の測定結果に、統計解析の一種である多変量解析手法を適用し、PM_{2.5}の濃度変動に及ぼす主要成分とその寄与度合いを把握すると共に、PM_{2.5}の濃度変動要因を推察した。

方法

1. サンプル地点及び期間

サンプリングは前報⁵⁾に従い、芦屋市精道町(芦屋市役所分庁舎屋上：以下「芦屋」)、姫路市北条(兵庫県姫路総合庁舎屋上：以下「姫路」)および神戸市須磨区行平町(当センター3階ベランダ：以下「須磨」)の3地点で実施した。

本報告では2007年11月から2009年10月までの2年間の結果をとりまとめた。

2. サンプルおよび質量濃度の測定方法

PM_{2.5}のサンプリング方法は前報⁵⁾に従い、当センターで制作したPM_{2.5}サンプラーを用いて、約2週間周期のサンプリングを連続して実施した。質量濃度も前報⁵⁾に従って秤量法により測定した。

3. 成分濃度の測定方法

主要成分濃度の測定は前報⁵⁾に従い、炭素成分(有機炭素(OC)および元素状炭素(EC))と水溶性イオン成分(Cl⁻, NO₃⁻, SO₄²⁻, Na⁺, NH₄⁺, K⁺, Mg²⁺, Ca²⁺)を測定した。

4. 多変量解析

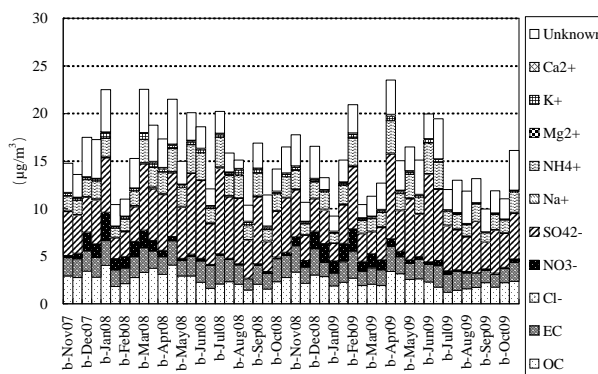
多変量解析は、重回帰分析及び主成分分析を行った。重回帰分析は、PM_{2.5}の質量濃度を目的変数、主要成分濃度を説明変数として変数増減法により行った。主成分分析は、各主成分の固有値及び寄与率から指標となる主成分を求めた。また、各データの主成分得点を求め、季節別に平均主成分得点を計算した。

結果および考察

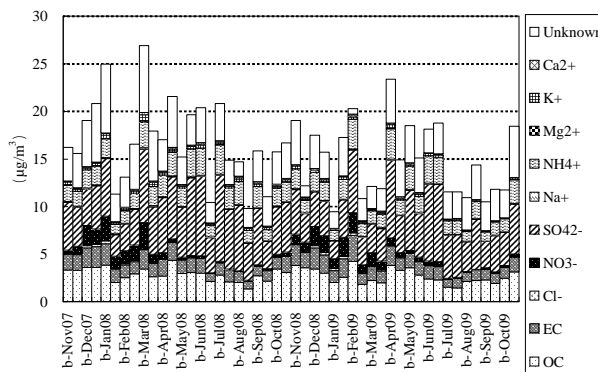
1. 主要成分濃度の季節変動

Fig. 1にPM_{2.5}主要成分濃度の推移を積み上げグラフとして示した。全地点で概ね同様の傾向を示し、PM_{2.5}質量濃度は春季～夏季および初冬季に高くなる傾向を示した。主要な成分は、前報で報告したとおりOC, EC, NO₃⁻, SO₄²⁻, NH₄⁺であった。OCは春季と初冬季に高くなる傾向、NO₃⁻は冬季に高くなる傾向、SO₄²⁻およびNH₄⁺は春季～夏季に高くなる傾向を示した。一方、ECについては晩秋～初冬季に若干の濃度増加がみられたが、目立った季節変化はみられなかった。

(a) Ashiya



(b) Himeji



(c) Suma

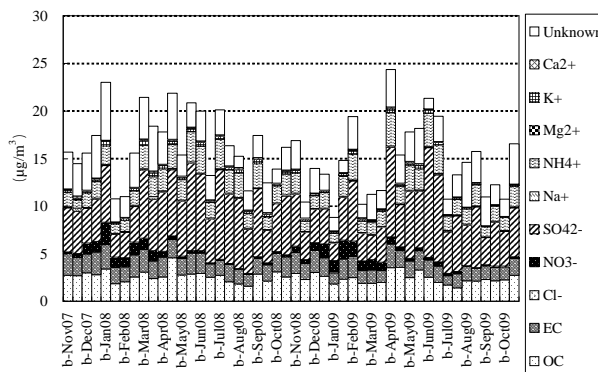


Fig.1 Trends of measured values of the main components of PM_{2.5}, (a)Ashiya, (b)Himeji and (c)Suma, Hyogo Prefecture. The "b" on the horizontal axis is "begin".

2. 重回帰分析結果

各地点においてPM_{2.5}質量濃度がどの成分の影響で変動するかを定量的に知るため、地点別に、PM_{2.5}質量濃度を目的変数とし、主要成分濃度を説明変数として重回帰分析を行った。重回帰分析は、ある目的変数と多数の説明変数との関係を線形一次式として推定あるいは予測する手法である。

地点別に重回帰分析を行った結果、得られた偏

Table 1 Result of multiple linear regression analysis.

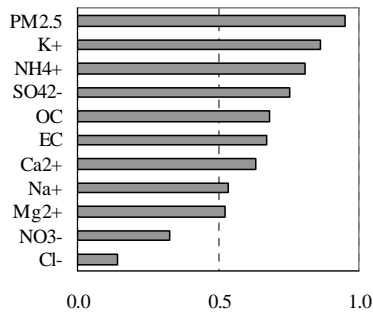
(n=48, $p < 0.01$)

Site	Regression coefficients	OC	EC	Na ⁺	NH ₄ ⁺	K ⁺	Mg ²⁺	Ca ²⁺	R ^{**}
Ashiya	Partial	1.62	1.51	14.43	3.21	7.87	-19.21*	-7.91	0.97
	Standard partial	0.30	0.18	0.11	0.52	0.24	-0.09*	-0.10	
Himeji	Partial	1.86		38.53	3.02	12.05		-16.37	0.94
	Standard partial	0.33		0.20	0.45	0.32		-0.19	
Suma	Partial	1.69	1.70	17.86	3.31	7.96		-12.94	0.95
	Standard partial	0.26	0.17	0.22	0.59	0.22		-0.16	

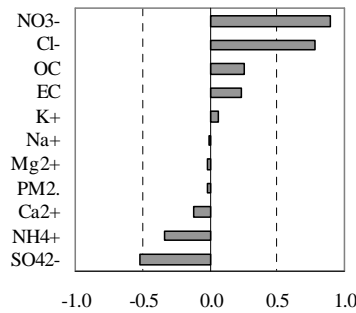
* : $p < 0.05$

** : Squared multiple correlation coefficient adjusted for the degree of freedom

(a) PC 1 (eigenvalue = 4.88)



(b) PC 2 (eigenvalue = 1.95)



(c) PC 3 (eigenvalue = 1.27)

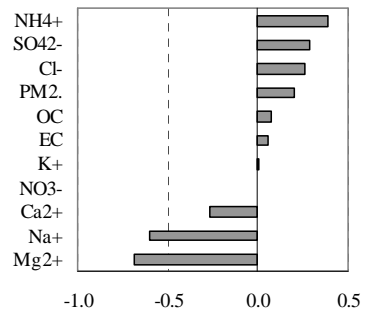


Fig.2 Factor loading pattern of the each variables of the (a) Principal Component 1 (PC 1), (b) Principal Component 2 (PC 2) and (c) Principal Component 3 (PC 3).

回帰係数及び標準偏回帰係数，自由度調整済み決定係数をTable 1に示した．標準偏回帰係数は，PM_{2.5}質量濃度に対する各成分の寄与を推定するために各説明変数を平均=0，分散=1となるように標準化して重回帰分析を行った時の偏回帰係数である．自由度調整済み決定係数は，芦屋が0.97，姫路が0.94，須磨が0.95となり，PM_{2.5}の質量濃度は3地点ともここで用いた説明変数で十分説明できると考えられた．芦屋と須磨では，OC，EC，Na⁺，NH₄⁺，K⁺が危険率1%未満でPM_{2.5}質量濃度の増加要因として採択された．姫路では，OC，Na⁺，NH₄⁺，K⁺が危険率1%未満でPM_{2.5}質量濃度の増加要因として採択された．姫路ではECが採択されず，PM_{2.5}質量濃度の増加への寄与は小さいと考えられた．これは，姫路の調査地点近傍に目立った幹線道路がないことが要因と考えられた．3地点ともNH₄⁺の標準偏回帰係数が最大を示し，NH₄⁺がPM_{2.5}質量濃度の増加へ最大の寄与を示すと考えられた．PM_{2.5}中のNH₄⁺は，SO₄²⁻やNO₃⁻等の陰イオンと塩を形成した状態で存在することが知られている．そのため，NH₄⁺を含む無機塩がPM_{2.5}質量濃度の増加に大きな影響を及ぼしていると考えられた．なお，PM_{2.5}中

の割合が最も高いSO₄²⁻は，NH₄⁺との相関が非常に強く，SO₄²⁻の変動がNH₄⁺の変動で十分説明できるため不採択になったと考えられた．一方，全ての地点でPM_{2.5}質量濃度を減少させる要因として，Ca²⁺が危険率1%未満で採択され，芦屋ではMg²⁺ ($p < 0.05$)も採択された．PM_{2.5}中のCa²⁺やMg²⁺は，サンプリング地点周辺の風況が荒れた場合などに巻き上げられた土壌成分に由来すると考えられ⁶⁾，風速の増加に伴い大気が拡散されてPM_{2.5}が低下した可能性が考えられた．

3. 主成分分析結果

主成分分析は，多変量データ（説明変数）の持つ情報を少数個の総合特性値（潜在変数）に要約する手法で，説明変数の潜在変数への貢献度や重要度を明らかにするとともに，個体（この場合は測定値）に及ぼす潜在変数の寄与を評価することが出来る．

3地点の全データ（n=144）を対象として主成分分析を行った結果，主成分の重要度を示す値（固有値）が1以上を示す3種類の主成分が得られた．これら3種類の主成分の累積寄与率は73.4%であっ

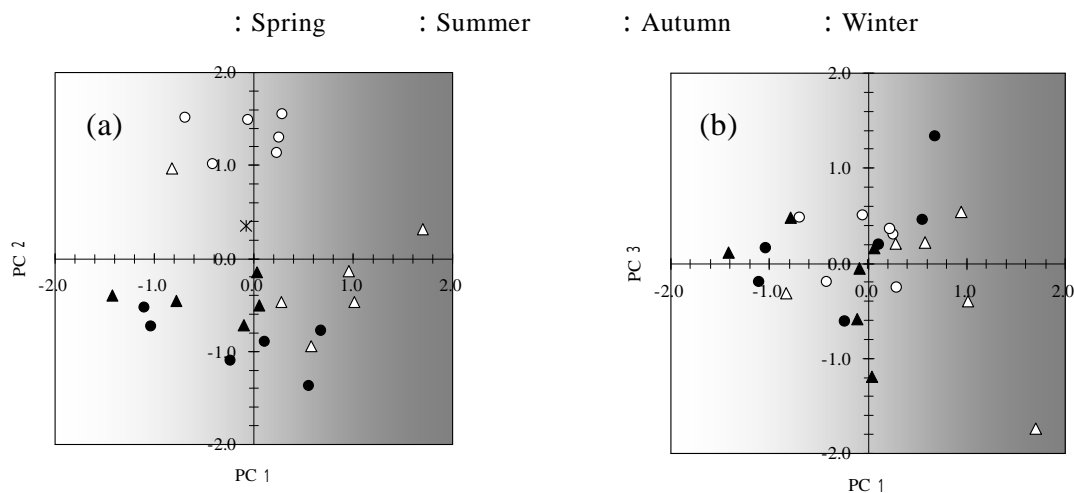


Fig.3 Scatter plots of the principal components score. The horizontal axis shows the Principal Component 1 (PC1), the vertical axis shows the (a) Principal Component (PC 2) and (b) Principal Component (PC 3), respectively.

た．Fig.2に3種類の主成分に寄与する変数の因子負荷量のパターンを示した．各変数の因子負荷量は，プラスの絶対値が大きいほど主成分と正の相関が強く，マイナスの絶対値が大きいほど主成分と負の相関が強いことを示している．主成分1は，全ての変数の因子負荷量が正の符号を持つことから総合的な汚染度の指標と考えられた．主成分2は， NO_3^- や Cl^- が正， SO_4^{2-} や NH_4^+ が負の符号を持つことから半揮発性成分の指標と考えられた．大気中の NH_4^+ は，気温の上昇により NH_3 ガスに変化する可能性が考えられるが， $\text{PM}_{2.5}$ に含まれる NH_4^+ の大部分は，主に $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ として非揮発性の形態で存在すると考えられた．主成分3は， NH_4^+ や SO_4^{2-} が正， Mg^{2+} や Na^+ ， Ca^{2+} が負の符号を持つことから人為起源による汚染の指標と考えられた．これら3種類の主成分により $\text{PM}_{2.5}$ の性質が特徴付けられた．一方で，主成分2ではECの因子負荷量が正を示し，主成分3では NO_3^- の因子負荷量がほぼゼロを示したことから，これらの主成分は他の要素の影響も受けていると考えられた．

Fig.3に月平均主成分得点の散布図を示した．主成分得点とは各測定データに及ぼす主成分の影響を得点化したもので，得点が高いほど主成分の影響が大きいと考えられる．この散布図は横軸に主成分1を，縦軸にそれぞれ主成分2と主成分3をとっている．主成分1の得点は春季に高くなったことから，総合的な汚染度は春季に高くなると考えられた．一方，秋季には主成分1の得点が小さかったことから，総合的な汚染度は秋季に低くなると考え

られた．主成分2は，冬季に得点が高く半揮発性成分の影響が高まることを明確に示しているが，総合的な汚染との関連は低いと考えられる．主成分3に明確な季節性はみられないが，夏季には主成分3の得点の増加と主成分1の得点の増加に関連性がみられた．また，Table 2に季節別の平均主成分得点を示したが，主成分3の得点は夏季に最も高かったことから，夏季には人為起源の汚染度が高まる可能性が示唆された．

Table 2 Seasonal average of the principal components score.

		(n=36)		
Season	Month	PC 1	PC 2	PC 3
Spring	Mar, Apr, May	0.617	-0.123	-0.247
Summer	Jun, Jul, Aug	-0.170	-0.900	0.225
Autumn	Sep, Oct, Nov	-0.383	-0.310	-0.179
Winter	Dec, Jan, Feb	-0.064	1.333	0.201

結 論

2007年11月から2009年10月まで実施した $\text{PM}_{2.5}$ 中主要成分の分析結果に多変量解析を適用し，以下の結論を得た．

重回帰分析の結果， $\text{PM}_{2.5}$ 濃度の増加要因として，全地点でOC， Na^+ ， NH_4^+ ， K^+ が採択され，芦屋と須磨ではECも採択された．また，3地点とも NH_4^+ が $\text{PM}_{2.5}$ 質量濃度の増加へ最大の寄与を示すと考えられた．また，全ての地点で $\text{PM}_{2.5}$ 質量濃度を減少させる要因として， Ca^{2+} が採択された．

主成分分析の結果，総合的な汚染度の指標，半揮発性成分の指標，人為起源による汚染の指標と考えられる3つの主成分が得られたが，これらの主成分は他の要因の影響も受けている可能性が考えられた。

月平均主成分得点から，総合的な汚染度は春季に高く秋季に低くなり，冬季には半揮発性成分の影響が高まるが総合的な汚染との関連は低いと考えられた。また，夏季には人為起源の汚染度の高まりに伴って総合的な汚染度が高まる可能性が示唆された。

文 献

- 1) 環境省：微小粒子状物質暴露影響調査報告書（2007）
- 2) 金谷有剛，竹谷文一，入江仁士，駒崎雄一，高島久洋，鶴野伊津志：九州福江島における通年PM_{2.5}質量濃度測定値の大気環境短期基準超過，大気環境学会誌，45，289-292（2010）
- 3) 熊谷貴美代，田子博，飯島明宏，小澤邦壽，坂本和彦：群馬県平野部および山岳部における微小粒子状物質の季節特性，大気環境学会誌，45，10-20（2010）
- 4) 中坪良平，吉村陽，池澤正，平木隆年：兵庫県におけるPM_{2.5}汚染の実態把握調査（1），兵庫県立健康環境科学研究所センター紀要，5，117-122（2008）
- 5) 中坪良平，平木隆年：兵庫県におけるPM_{2.5}汚染の実態把握調査（2），財団法人ひょうご環境創造協会兵庫県環境研究センター紀要，1，37-44（2009）
- 6) 米持真一，梅沢夏実：PM_{2.5}との通年観測による大都市郊外のサブミクロン粒子（PM₁）の特性解明，大気環境学会誌，45，271-278（2010）

Abstract

We carried out the measurement of the PM_{2.5} concentration and the analysis of the main components of the PM_{2.5} at the three sites (Ashiya, Hmeji and Suma) in Hyogo prefecture. We considered a variation factor of the PM_{2.5} mass concentration in each site by applying a multiple regression analysis and a principal component analysis to the results of component composition.

As a result of a multiple regression analysis, OC, Na⁺, NH₄⁺, K⁺ were adopted as an increase factor of

the PM_{2.5} concentration at all sites, and the EC was adopted in Ashiya and Suma. As a result of a principal component analysis, the three bases were obtained that an index of the general pollution, an index of the semi volatility components, an index of the artificial pollution, but these bases probably affected by other factor.