

# 大分県におけるPM2.5成分の解析と発生源由来等の調査

甲斐 太郎、河野 友彰<sup>\*1</sup>、河村 勇祐<sup>\*2</sup>、安藤 大生

## Investigation of Components and Sources of PM2.5 in Oita Prefecture

Taro Kai, Tomoaki Kono, Yusuke Kawamura, Daiki Ando

Key Words : 微小粒子状物質 PM2.5, 成分組成 Chemical Composition,  
 正値行列因子分解 Positive Matrix Factorization (PMF),  
 大気汚染常時監視 Air Pollution Monitoring

### 要 旨

PM2.5（微小粒子状物質）の発生源由来等の推定を目的として2015年度から大分県内のPM2.5の質量濃度、イオン成分、無機元素及び炭素成分を調査し、発生源由来等に関する情報を収集している。成分分析結果を使用してPMF法を用いた解析を実施した結果、大分県内全体では硫酸塩、バイオマス燃焼由来の寄与が大きいことが分かった。また、地域ごとの特徴として日田市ではバイオマス燃焼の寄与、中津市で重油燃焼の寄与、佐伯市では海塩粒子の寄与が高いことが分かった。

### はじめに

PM2.5とは、大気中に浮遊している2.5 $\mu\text{m}$ （1 $\mu\text{m}$ は1mmの千分の1）以下の小さな粒子のことである。PM2.5は非常に小さいため（髪の毛の太さの1/30程度）、肺の奥深くまで入りやすく、呼吸器系への影響に加え、循環器系への影響が心配されている。<sup>1)</sup>

2009年9月にPM2.5の環境基準が設定（平成21年9月9日環境省告示）され、さらに2011年7月に微小粒子状物質（PM2.5）の「成分分析ガイドライン（平成23年7月環境省水・大気環境局）」が作成された。

ガイドラインではPM2.5の成分分析における地方自治体の役割として特定の発生源への対策等、地域独自の対策の検討を実施することとされている。また、大分県長期総合計画において、PM2.5発生源寄与率の把握のための成分分析と発生源対策を行い、環境基準達成率の向上を図ることとしている。

当県では、大気汚染防止法第22条に基づきPM2.5の常時監視を日田市において2013年2月末から、中津市及び佐伯市において2013年4月末から、別府市、臼杵市、津久見市、豊後大野市、由布市、国東市、日出町において2014年12月中旬から現在まで実施している。図1に大分県が管理している10カ所の大気

常時監視測定局の配置図を示す。

さらに、平成27年10月から現在まで毎年2地点で4期間（春季、夏季、秋期、冬季）PM2.5のサンプリングを行い、成分分析を実施している。当センターでは過去の年報で2015年度から2017年度に成分分析結果の調査結果を報告した。<sup>2,3,4)</sup> その結果、県内の2地点でPM2.5に対する越境汚染の影響がともに大きく、1地点でバイオマス燃焼の影響が大きいことが推察された。当該結果を受け、当県におけるPM2.5の環境基準超過の要因等を考察するためには、バイオマス燃焼等の発生源からの影響を詳細に検討することが不可欠であると考えた。そこで黄砂等の越境汚染時に影響が大きくなると考えられる「土壌」を発生源とするケイ素と「バイオマス燃焼」を発生源とするレボグルコサンを新たな指標成分として測定するために測定方法を検討し、測定できる体制を整えた。<sup>5)</sup>

また当県の「大気環境調査報告書」において、PM2.5の環境基準達成状況を報告している。PM2.5の環境基準は、長期基準（年平均値が15 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下であること）と短期基準（日平均値の98%値が35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下であること）の両方を満たした場合、達成と評価することとされておりさらに、2013年3月9日より日平均値が70 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えると予想される場合に注意喚起を行うこととしている。

2020年度は10局すべてで環境基準を達成し、年平均値及び日平均値の過去5年間の全局平均は減少傾

※1 大分県福祉保健部西部保健所

※2 大分県生活環境部循環社会推進課

向にあることから、PM2.5による汚染は改善されているように思われる。しかしながらWHO (World Health Organization) は、2021年9月に大気環境に関するガイドラインとして、「WHO global air quality guidelines(AQG)」<sup>6)</sup>を公表し、PM2.5の指針値を年平均10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ から5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ に、日平均を25 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ から15 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ に引き下げたことから、環境基準未満であっても健康に悪影響をおよぼす危険性があり、今後環境基準の再評価が検討される可能性もあることから、今後も常時監視や成分分析の調査を継続して実施し、発生源に関する情報を蓄積する必要があると考える。

本研究では、2015年度から2021年度に実施した大気常時監視測定局のデータ、2015年度秋期から2022年度にかけて実施したPM2.5成分分析結果、Positive Matrix Factorization(PMF)法を用いた発生源寄与率の推定結果から当県のPM2.5の特性についての考察を行ったので報告する。

## 方 法

### 1 大気常時監視局データの解析

#### 1.1 経年変化、高濃度日数調査

##### 1.1.1 経年変化

経年変化は大気常時監視測定局(10局)の2015年度から2021年度までのPM2.5日平均値を用いた。また、季節については3月から5月を春季、6月から8月を夏季、9月から11月を秋季、12月から2月を冬季として解析を実施した。

##### 1.1.2 高濃度日数調査

大気常時監視測定局(10局)の2015年度から2021年度までのPM2.5日平均値について、35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (PM2.5の短期環境基準を参照)以上の日を高濃度日として調査を実施した。

#### 1.2 階層クラスター解析

階層クラスター解析(HCA: Hierarchical Cluster Analysis)とは多変量解析手法の一つで、異なる性質のものが混ざり合っている集団のなかから互いに似たものを集めてクラスターをつくり、対象を分類する方法である。分析はRソフトを用いウォード法で行った。分析結果はデンドログラム(樹形図)で示した。

#### 1.3 主成分分析

主成分分析(PCA: Principal Component Analysis)とは、多変量解析手法の一つで、多くの変数が存在するときその変数を合成して「主成分」と

呼ばれる新たな変数を作り出し、その新たな変数によって元のデータを近似することでより少ない変数によるシンプルな表現を可能にする(多次元データを2次元、3次元データに縮約する)分析手法である。例えば2次元(2変量)のデータを解析する場合、分散が最も大きい方向の軸が第1主成分で、第1主成分の軸と直行し、次に分散が大きくなる方向(第1主成分との相関がない)の軸が第2主成分となる。主成分の図における原点にはそれぞれの変数の平均値がくるようになっている。主成分分析結果の横軸はPC1(第1主成分)、縦軸はPC2(第2主成分)で表している。PC1、PC2の%は「寄与率」といい、各主成分の情報が入力したデータのすべての情報のなかでどのくらいの割合を占めているのかを表している。%の一番大きい成分が第1主成分となる。分析はRソフトを用いて行った。

## 2 PM2.5成分分析データの解析

### 2.1 採取、分析方法

大気試料のサンプリング及び分析は、環境省が定める「微小粒子状物質(PM2.5)の成分分析ガイドライン」<sup>7)</sup>及び「大気中微小粒子状物質(PM2.5)成分測定マニュアル」<sup>8)</sup>に従って実施した。サンプリングは毎年2地点で行い、経年的な変化を調査するための固定局として由布市、県内全域の状況を数年ごとに移動して調査するための移動局として日田市、中津市、佐伯市で行った。サンプリング地点と期間を表1に示す。

表1. PM2.5採取地点と期間(2015年度~2022年度)

採取地点	期 間
由布市	2015年度秋季~2022年度
日田市	2015年度秋季~2017年度
中津市	2018年度~2019年度
佐伯市	2020年度~2022年度

採取期間は全国統一日程とし、各季節(春季、夏季、秋季、冬季)に環境省が示したコア期間を中心とした14日間にわたって、1試料につき23時間30分かけて大気をろ紙上に吸引捕集した。吸引流量は30 L/minとした。測定成分は、質量濃度、イオン成分、無機元素及び炭素成分とした。測定方法と測定に使用したろ紙の種類は表2のとおりとした。

表2. 測定項目ごとの測定法とろ紙の種類 (2015年度~2022年度)

測定項目	測定法	ろ紙
質量濃度	秤量法	PTFE
イオン成分	イオンクロマトグラフ法	石英
無機元素	酸分解/ICP-MS法	PTFE
炭素成分	サーマルオプテカル・リフレクタンス法	石英

## 2.2 PMF解析

### 2.2.1 PMF解析の概要

PMF (Positive Matrix Factorization) 法とは多数組の観測データセットをいくつかの因子に分解する手法で、因子寄与および因子プロファイルと呼ばれる統計情報を同時に算出することができる。<sup>9)</sup>

PMFモデルは以下のような質量保存式により表現され、観測点の成分濃度は因子寄与と因子プロファイルに分解される。<sup>10)</sup>

$$x_{ij} = \sum_{k=1}^p g_{ik} f_{kj} + e_{ij}$$

ここで $x_{ij}$ は観測点における試料 $i$  ( $i=1, \dots, n$ ) 中の成分 $j$  ( $j=1, \dots, m$ ) の観測濃度 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )、 $g_{ik}$ は試料 $i$ に対する因子 $k$  ( $k=1, \dots, p$ ) の相対寄与 (単位なし)、 $f_{kj}$ は因子 $k$ のプロファイルにおける成分 $j$ の濃度 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )、 $e_{ij}$ は試料 $i$ 中の成分 $j$ の観測値とモデル化された計算値の残差である。因子 $k$ は発生源とみなして発生源寄与を推定するものである。

PMF解析では以下の式で示されるQ値を最小にする解を繰り返し計算によって求めた。

$$Q = \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^m \left( \frac{e_{ij}}{u_{ij}} \right)^2$$

$$= \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^m \left( \frac{x_{ij} - \sum_{k=1}^p g_{ik} f_{kj}}{u_{ij}} \right)^2$$

上式において $u_{ij}$ は観測点における試料 $i$ 中の成分 $j$ の測定に伴う不確かさである。

PMF解析では探索的に $p$ 値を増減させて以下で近似される理論値 $Q_{\text{theory}}$ に近い $Q$ が得られるまで解析を繰り返した。

$$Q_{\text{theory}} = nm - p(n+m)$$

ここで $n$ は試料数、 $m$ は成分数である。PMF解析では理論値に近いかつ分散が小さくなる $p$ を模索した。

計算にはEPA PMF 5.0を使用した。<sup>11)</sup>

### 2.2.2 データセットの作成

データには2015年度から2020年度の由布市、日田市、中津市、佐伯市で採取したPM2.5の成分分析データを用いた。全てのデータの中でイオンバランス (アニオンとカチオンの当量濃度の比) が0.8~1.2の範囲に収まるかつケミカルマスキングモデル (質量濃度の実測値と推定値の比) が0.7~0.85に収まるデータを採用した。(採用データ数 $n=434$ ) 下限値未満のデータは下限値の1/2に置き換え、欠測値は-999とし、PMFのソフトウェア上で各成分の中央値に置換した。不確実性について、下限値未満は「下限値 $\times 5/6$ 」、下限値以上は「SQRT ( (誤差フラクション $\times$ 測定値)<sup>2</sup> + (1/2 $\times$ 検出下限値)<sup>2</sup> )」とした。

### 2.3 CPF解析

CPF (Conditional Probability Function) 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。<sup>12)</sup> 従って、CPF値が高い方角から発生源の影響を大きく受けていることが推定される。CPF値は次の式によって求められる。

$$\text{CPF} = m \Delta \theta / n \Delta \theta$$

ここで $m \Delta \theta$ はPMF解析によって得た各発生源因子の寄与率が上位25%の場合の風向 $\theta$ の数、 $n \Delta \theta$ は風向 $\theta$ の総数を意味する。風向は大分県の大気常時監視測定局のデータを使用した。

## 結 果

### 1 常時監視局データの解析

#### 1.1 経年変化、高濃度日数調査

##### 1.1.1 経年変化

図2に大気常時監視測定局の地点毎のPM2.5経年変化を示した。図2より2015年度以降PM2.5は減少傾向にあることが分かる。また、中津市、佐伯市、日田市以外の市町はほとんど同じ濃度の推移を示していることが分かる。

図3は図2のグラフについて季節ごとに分けて濃度推移をプロットしたものである。図3においてもPM2.5濃度は徐々に減少傾向にあり、中津市、佐伯市、日田市以外はほとんど同じ推移を示した。日田市は秋と冬に高濃度となる傾向にあり、中津市、佐伯市は春、夏に高濃度となる傾向がみられた。

##### 1.1.2 高濃度日調査

表3に2015年度から2021年度までのPM2.5高濃度日の日数を示した。2015年度は全地点で高濃度とな

る日がみられた。2016年度夏以降高濃度日数は大きく減少した。中津市、日田市で比較的高濃度となった日が多く、中津市は春、夏に、日田市は秋、冬に高濃度が発生する傾向にあった。

## 1.2 階層クラスター解析

階層クラスター解析結果より図4の点線で区切りグループ分けを行った結果、県南部、県東部、県中部～豊肥地区、県北部～西部地区の4つのグループに分類できた。

## 1.3 主成分分析

図5に主成分分析結果を示した。第1主成分の寄与率は34.8%、第2主成分は15.7%であった。図5は横軸に第1主成分得点を、縦軸に第2主成分得点をプロットした図である。図5より第1主成分得点は日田、中津、佐伯、その他の順に高くなっていった。

## 2 PM2.5成分の解析

### 2.1 成分分析結果

由布市の2015年度秋季から2022年度冬季までのPM2.5質量濃度と各成分の経年変化を図6に示した。図6の由布市の経年変化より、まず、質量濃度について、2015から2018年度までは減少傾向にあるが、それ以降は横ばいでほとんど変化が見られないことが分かる。次に成分濃度について、硫酸イオンが夏に増え、硝酸イオンが冬に増加傾向にあることが分かる。図7、図8、図9の日田市、中津市、佐伯市についても同様の傾向が確認された。地点ごとの特徴として日田市はOC(有機炭素)の濃度が高く、特に秋冬に増加する傾向がみられた。

### 2.2 PMF解析結果

PMF解析の解析条件と解析結果を表4に示した。PMF解析の結果、解の安定性及び因子解釈を考慮し、発生源因子の数を7に決定した。図10から図16に各発生源因子のプロファイルを示す。図の棒グラフはその因子に含まれる各成分の濃度を、四角のマーカはその因子に振り分けられた各成分の割合を示す。7つの因子について、含まれる各成分の値を元に各因子が何の発生源を意味するのか解釈した。因子1は $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NH}_4^+$ の割合が多いため『硫酸塩』、因子2は金属元素の割合が多いため『交通・工業』、因子3は $\text{Na}^+$ 、 $\text{Mg}^{2+}$ の割合が大きいため『海塩粒子』、因子4は $\text{K}^+$ 、OC、ECの割合が大きいため『バイオマス燃焼』、因子5は $\text{Ca}^{2+}$ 、Al、Mn、Feの割合が大きいため『土壌』、因子6はCl<sup>-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>の割合が大きいため『硝酸塩』、因子7はV、Niの割合が大き

ため『重油燃焼』と解釈した。

図17から図22は各地点における因子寄与率の割合を円グラフで示したものである。まず、2016年度から2017年度の調査結果より、由布市では硫酸塩、バイオマス燃焼が高い寄与を示しており、全体の50%以上を締めていた。また、日田市においても硫酸塩、バイオマス燃焼が50%以上を占めていたが、由布市と比較してバイオマス燃焼の寄与がより顕著に大きいことが分かった。次に2018年度から2019年度の調査結果より、由布市は2016年度～2017年度と比較して、バイオマス燃焼の寄与が減少し、海塩由来の寄与が増加した。中津市では由布市と比較して重油燃焼の寄与率が高い結果となった。そして2020年度の調査結果では由布市は約50%を硫酸塩が占めていた。佐伯市では硫酸塩、海塩粒子が50%以上を占めていたが、由布市と比較すると特に海塩粒子が高い寄与率となっていた。

次に図23から図28に各地点における寄与濃度について季節毎に平均値を示した。まず、2016年度から2017年度の日田市の寄与濃度について由布市と比較すると、季節関係なく年間を通してバイオマス燃焼の寄与濃度が高いことが分かる。さらに秋、冬に関しては寄与濃度の大多数がバイオマス燃焼であることが分かる。次に、2018年度、2019年度の中津市の寄与濃度について由布市と比較すると、中津市は重油燃焼の寄与濃度が高く、特に春と夏に高いことが分かる。最後に2020年度の日田市の寄与濃度について由布市と比較すると、日田市は春と夏に海塩粒子の寄与濃度が高いことが分かった。

図29に継続的に調査を実施している由布市の寄与濃度の年度別季節別の変化を示した。寄与濃度の合計は2018年秋以降に大きく減少していることが分かる。また、各因子に関しても季節によって傾向が異なり、例えば春は土壌由来が、夏は硫酸塩が、秋はバイオマス燃焼が、冬は硝酸塩が増える傾向にある。また、2019年度の冬以降重油燃焼の寄与濃度が大きく減少していることが分かる。この減少について詳細に解析を行うため、重油燃焼の指標成分であるバナジウム(V)とニッケル(Ni)について焦点をあてて解析を行った。図30に由布市におけるバナジウムとニッケルの経年変化のグラフを示した。グラフより、2019年度冬を境にバナジウムとニッケル濃度が大きく減少していた。

### 2.3 CPF解析結果

各発生源の硫酸塩及び硝酸塩のCPF解析結果を図

31、32に示した。方角ごとにCPF値を示しており、CPF値の大きい方角から強く影響を受けていると考えられる。硫酸塩のCPFプロットでは全地点で北東方向に大きい寄与が見られた。次に、硝酸塩のCPFプロットでは全地点で西方向に大きい寄与が見られた。次に日田のバイオマス燃焼、中津の重油燃焼、佐伯の海塩粒子についてCPFプロットとCPF値と方角ごとの平均風速の関係を図33から図35に示した。まず、日田市のバイオマス燃焼についてCPFプロットでは南と南西方向に大きな寄与を示した。また静穏(風速0.4m/s以下)時も高いCPF値を示した。CPF値と方角ごとの風速のグラフでは、南、南西方向の平均風速は比較的小さいことが分かった。次に中津市の重油燃焼についてCPFプロットでは北東と南東方向に大きな寄与を示した。また、静穏時も高いCPF値を示した。CPF値と方角ごとの平均風速のグラフでは、北東方向は比較的風速は小さめであるのに対し南東方向の風速は高めであった。最後に佐伯市の海塩粒子についてCPFプロットでは南東方向に高い寄与を示した。そしてCPF値と方角ごとの平均風速のグラフでは、南東方向の風速は比較的高めであった。

## 考 察

### 1 常時監視局データの解析

#### 1.1 経年変化、高濃度日数調査

図2、3より全体的にPM2.5濃度が減少傾向にある理由の一つとして中国等の大陸から発生するPM2.5濃度の減少<sup>13)</sup>による越境汚染の減少が考えられる。また、日田市、中津市、佐伯市以外の地点では比較的同じ濃度推移を示したことから、日田市、中津市、佐伯市では地域的な要因によって高濃度となっている可能性が考えられる。そして他の7地点に関しては傾向がほとんど同じであるため越境汚染等の広域的な汚染の寄与が大きいと考えられる。

表3より、中津市と日田市において高濃度日数が多いことから地域的な汚染の影響を受けている可能性が示唆される。また、2020年度に高濃度日数が増加しているが、これは西ノ島の噴火<sup>14)</sup>の影響を受けていると考えられる。

#### 1.2 階層クラスター解析、主成分分析結果

図4の階層クラスター解析結果より、10地点を4つのグループに分類することができた。この結果から日田、中津、佐伯の中でも日田、中津と佐伯で異なる

傾向を示していることが分かる。また、図5の主成分分析結果より、中津市、日田市、佐伯市の第1主成分得点が大きかったことから第1主成分得点はPM2.5濃度の大きさを示しており、横軸の値が大きいほどその地点のPM2.5が高いことを表していると考察できる。また、第2主成分得点については、日田市は大きくマイナス値を示し、対して佐伯市は大きくプラスの値を示した。図3より日田市は冬、佐伯市は夏に高濃度になる傾向を示していることから、冬に高濃度になりやすい地点はマイナス値を示し、夏に高濃度になりやすい地点はプラス値を示している可能性が考えられる。また、第1主成分と第2主成分の累積寄与率が50.5%と全データの半分程度しか説明できていないことからPM2.5の濃度に影響を及ぼす要因(変数)が多いことが考えられる。

## 2 大分県のPM2.5成分について

### 2.1 各地点の成分分析経年変化について

図6～図9において硫酸塩が夏に高い傾向にあった。これについて、夏は大気中での光化学反応が活性化されるため、二酸化硫黄から硫酸アンモニウム(PM2.5)に生成する反応が促進される<sup>15)</sup>ためであると考えられる。また、冬に硝酸イオンが増加する傾向にあった理由としては、冬はボイラー等の使用量増加による二酸化窒素の排出量が増えるのと、硝酸アンモニウムは半揮発性であり冬に粒子化しやすい<sup>16)</sup>ためであると考えられる。そして日田市において秋冬にOCが増加傾向にあった理由としてはOCの発生源は多岐にわたるため断定は難しいが、バイオマス燃焼が要因の一つとして考えられる。

### 2.2 各地点の発生源由来等について

各地点の寄与率の割合として、全地点、全季節において硫酸塩の割合が高い傾向となった。硫酸塩の要因としては越境汚染、火山活動、工場などの影響が考えられる。全地点、全季節において高いことから、大陸からの越境汚染の影響を強く受けていると考えられる。また、図31より、瀬戸内海側の方角で、高い寄与を示していることから、瀬戸内工業地域等からの影響を受けている可能性も考えられる。

次に硝酸塩についても全地点で冬季に高い傾向となり、図32のCPFプロットでは全地点で西側において高い寄与を示した。硝酸塩は冬に増加する傾向があり、冬季の季節風の方角とCPF値の高い方角が一致していることを考えると、硫酸塩同様大陸からの越境汚染の影響を強く受けていると考えられる。ま

た、静穏時に比較的高いCPF値を示していたことから、自動車等の移動発生源の影響も可能性として考えられる。

日田市ではバイオマス燃焼の寄与率が高い傾向にあった。日田市は林業や木材産業が盛んで、木材を燃料とした発電所やボイラー等が他地域と比べて多く設置されているためバイオマス燃焼由来の寄与が大きくなったと推察される。

中津市では重油燃焼由来の寄与率が高い傾向にあった。重油燃焼の要因としては工場、船舶燃料等が考えられる。中津市は瀬戸内海沿岸部に位置し、瀬戸内海沿岸では船舶由来の燃料燃焼による影響を受けやすい<sup>17)</sup>ことから、中津市も影響を受けている可能性がある。

佐伯市では海塩粒子由来の寄与率が高い傾向にあった。佐伯市は沿岸部に位置しているのが高くなったと考えられる。また同様に中津市においても海塩粒子の寄与が高い傾向にあった。図35のCPFプロットより南東方向の寄与が高いことから夏季の季節風によって海塩粒子が海から陸へ運ばれたと考えられる。

図29より由布の『重油燃焼』の寄与が2019年度冬季以降著しく減少していた。この理由としては、国際海事機関(IMO)が2020年1月1日から燃料油中の硫黄分の上限を、3.5%から0.5%へと大幅に引き下げた<sup>18)</sup>ことが原因であると考えられる。規制が始まった時期と『重油燃焼』の寄与が著しく減少し始めた時期(2019年度冬)が一致していることから大分県内のPM2.5成分が船舶用燃料油の規制の影響を受けていると考えられる。しかしながら、規制後バナジウム濃度は大きく減少したが硫酸イオン濃度はほとんど変化していないことから、硫酸塩に関しては船舶より越境汚染や工場由来の寄与が大きいと推察される。船舶燃料規制については今後も継続的にサンプリングと解析を実施することで大分県がどのくらいの影響を受けたのか考察を行っていききたい。

## おわりに

大分県のPM2.5濃度の解析を実施した結果、日田市、中津市、佐伯市は他7地点よりも濃度が少し高い傾向にあることが分かった。成分分析、PMF解析を実施した結果、地域別の特徴として、日田市はバイオマス燃焼、中津市は重油燃焼、佐伯市は海塩由来のPM2.5の寄与が高い傾向にあったことから地点毎に高濃度の要因が異なると考えられる。ま

た、PMF解析結果より重油燃焼の寄与が2020年1月より大きく減少した。これは船舶燃料の規制が影響していると考えられるが、新型コロナウイルスによる産業活動の停滞等の影響も考えられるため原因を解明するためにはさらに長期的な解析が必要となる。

大分県内のPM2.5濃度は越境汚染の減少に伴い減少傾向にあるが、現時点でも高濃度となる日があったり、基準値の引き下げが検討される可能性があったりすること等から、今後も継続して調査を実施していくことが重要であると考えられる。また、PM2.5濃度や各成分濃度については社会情勢や規制等によって時代とともに変化していることから今後も引き続き監視を行っていききたい。

また、昨今のヘリウムガスの需給ひっ迫により、当センターにおいてもヘリウムガスの確保に支障が生じている。今後も継続してPM2.5の成分分析を行うために、炭素分析やレボグルコサンについてキャリアガスに依存しない分析方法の検討、検証もあわせて実施していききたい。

## 謝 辞

本調査の推進にあたりPM2.5サンプラーの設置、サンプリング等で多大なるご協力を賜りました環境保全課、保健所等関係職員の皆様に深謝いたします。

## 参 考 文 献

- 1) 環境省. “微小粒子状物質(PM2.5)に関する情報” <https://www.env.go.jp/air/osen/pm/info.html#ABOUT> (参照2023-10-01)
- 2) 松田貴志 他: 大分県における微小粒子状物質成分の調査(2015), 大分県衛生環境研究センター年報, 43, 55-64 (2015)
- 3) 松田貴志 他: 大分県における微小粒子状物質成分の調査(2016), 大分県衛生環境研究センター年報, 44, 45-55 (2016)
- 4) 松田貴志 他: 大分県における微小粒子状物質成分の調査(2017), 大分県衛生環境研究センター年報, 45, 52-68 (2017)
- 5) 末松久枝 他: PM2.5発生源推定のための指標成分に係る測定方法の検討, 大分県衛生環境研究センター年報, 48, 36-42 (2020)
- 6) World Health Organization. 2021. WHO global air quality guidelines: particulate matter (PM2.5

- and PM10) , ozone, nitrogen dioxide, sulfur dioxide and carbon monoxide
- 7) 平成23年7月環境省水・大気環境局：微小粒子状物質 (PM2.5) の成分分析ガイドライン
  - 8) 環境省：大気中微小粒子状物質 (PM2.5) 成分測定マニュアル
  - 9) Paatero, P. and Tapper, U. : Positive matrix factorization : a non-negative factor model with optimal utilization of error estimates of data values, *Environmetrics*, 5, 111 – 126 (1994)
  - 10) 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, 第46巻, 第4号(2011)
  - 11) United States Environmental Protection Agency : EPA Positive Matrix Factorization(PMF)5.0 Fundamentals and User Guide,17
  - 12) 山神真紀子 他：CPF法を用いたPM2.5の発生源位置の推定, 名古屋市環境科学調査センター年報, 第2号, 2013
  - 13) 環境省“微小粒子状物質等専門委員会(第13回) 議事次第・配布資料”  
<https://www.env.go.jp/council/07air-noise/y078-13b.html> (参照2023-10-01)
  - 14) 環境省：令和2年度黄砂飛来状況調査報告書
  - 15) Heo, J et al. : Source apportionment of PM2.5 in Seoul, Korea. *Atmos. Chem. Phys.*,9, 4957 – 4971 (2009) .
  - 16) Nakatsubo, R et al. : Estimate of regional and broadbased sources for PM2.5 collected in an industrial area of Japan, *Asian J. Atmos. Environ.*, 8, 126 – 139 (2014) .
  - 17) 中坪良平 他：瀬戸内海沿岸部において1時間ごとに観測したPM2.5化学成分の解析, *Euro-zoru Kenkyu*,33 (3) , 175 – 182 (2018)
  - 18) 環境省資料：船舶の排出ガス対策について (2022年6月22日)

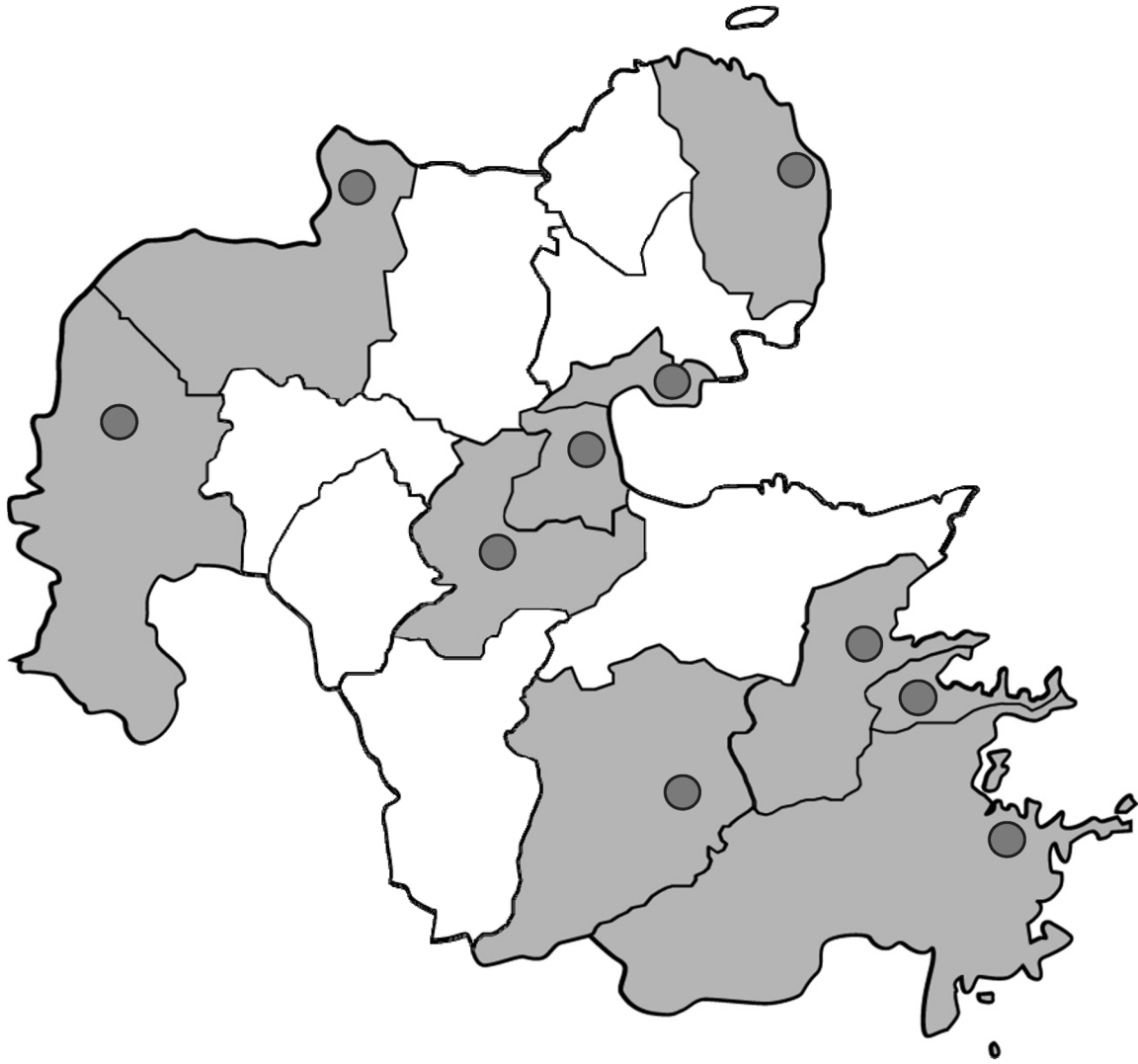


図1. 大気常時監視測定局設置地点（大分県管理）

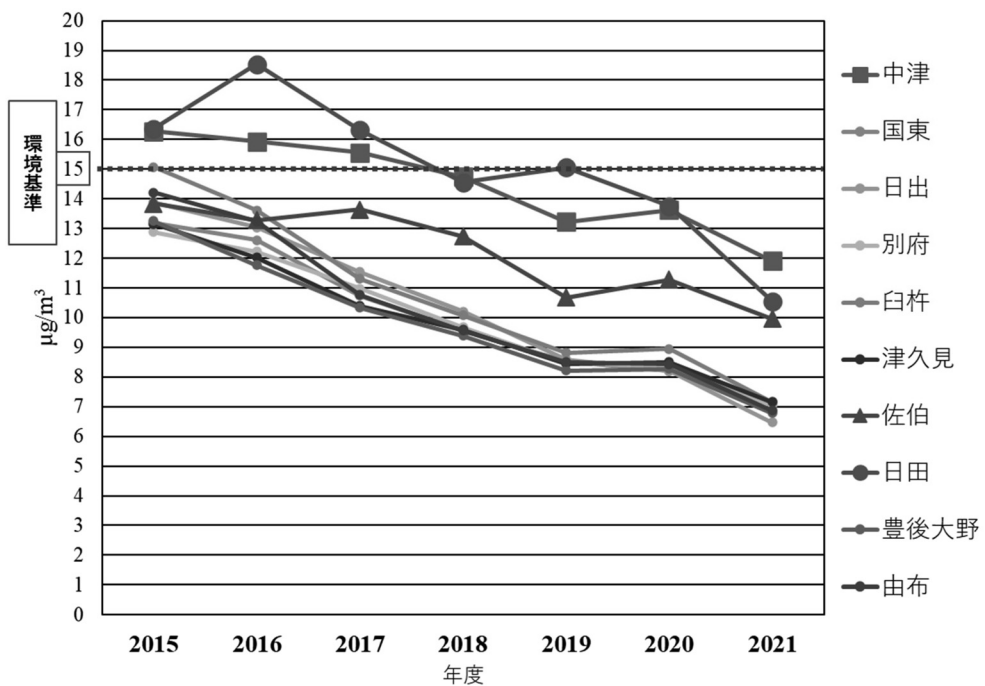


図2. 各測定局（大分県管理分）のPM2.5濃度経年変化



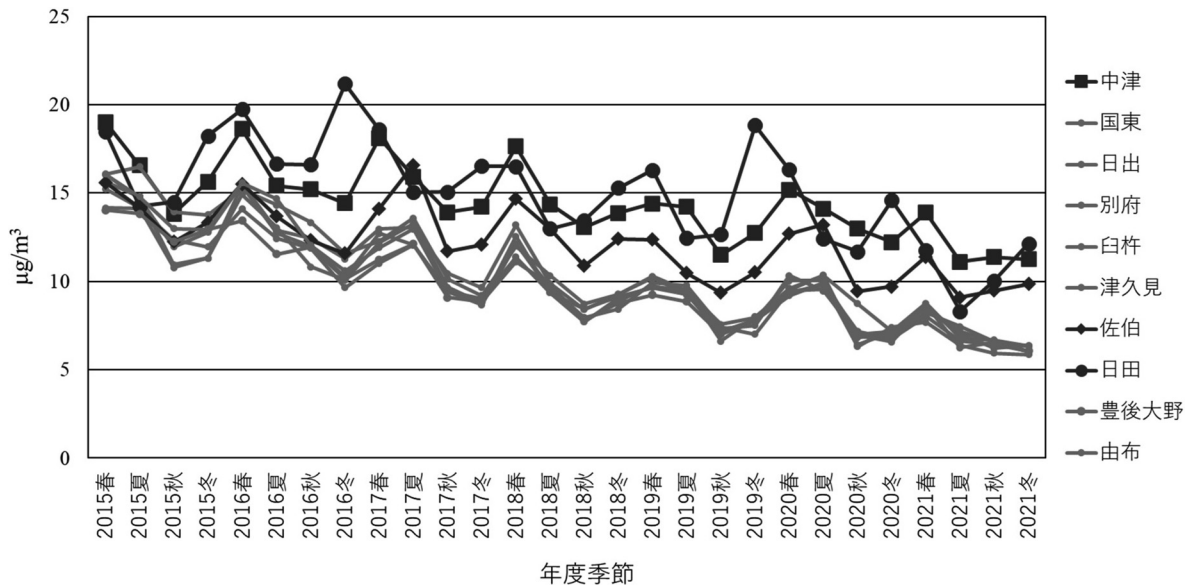


図3. 各測定局（大分県管理分）のPM2.5濃度経年変化（年度、季節ごと）

表3. 2015年度から2021年度までのPM2.5高濃度日数（日平均値が35µg/m³を超えた日数）

	中津	国東	日出	別府	臼杵	津久見	佐伯	日田	豊後大野	由布
2015春	1	0	0	0	0	0	0	1	0	0
2015夏	4	4	4	4	7	6	3	3	6	5
2015秋	1	1	1	1	3	1	0	1	1	1
2015冬	2	0	1	1	1	1	1	4	1	1
2016春	1	1	1	1	2	2	2	2	0	1
2016夏	0	0	0	1	0	0	0	0	0	3
2016秋	0	0	0	0	0	0	0	1	0	0
2016冬	0	0	0	0	0	0	0	5	0	0
2017春	5	0	1	0	0	0	0	3	0	1
2017夏	0	0	0	0	0	0	1	0	0	0
2017秋	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
2017冬	1	0	0	0	0	0	0	3	0	0
2018春	3	0	0	0	0	0	0	1	0	0
2018夏	1	0	0	0	0	0	0	0	0	0
2018秋	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
2018冬	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
2019春	0	0	0	0	0	0	0	3	0	0
2019夏	1	0	0	0	0	0	0	2	0	0
2019秋	0	0	0	0	0	0	0	2	0	0
2019冬	0	0	0	0	0	0	0	5	0	0
2020春	2	1	0	1	1	1	1	1	0	1
2020夏	5	1	2	2	1	0	1	2	0	1
2020秋	0	0	0	0	0	0	1	0	0	0
2020冬	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
2021春	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
2021夏	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
2021秋	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
2021冬	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0

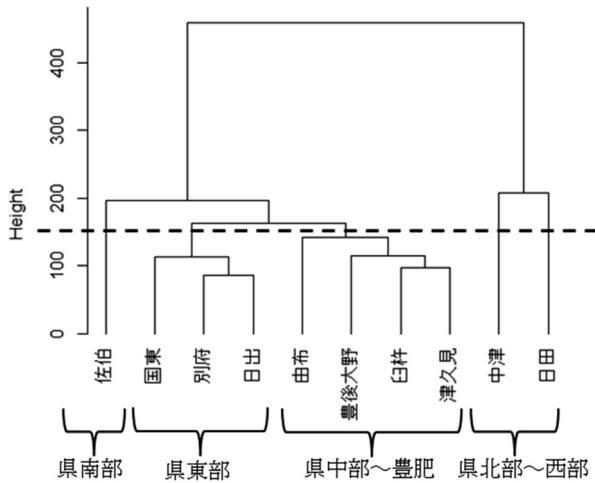


図4. 階層クラスター解析結果

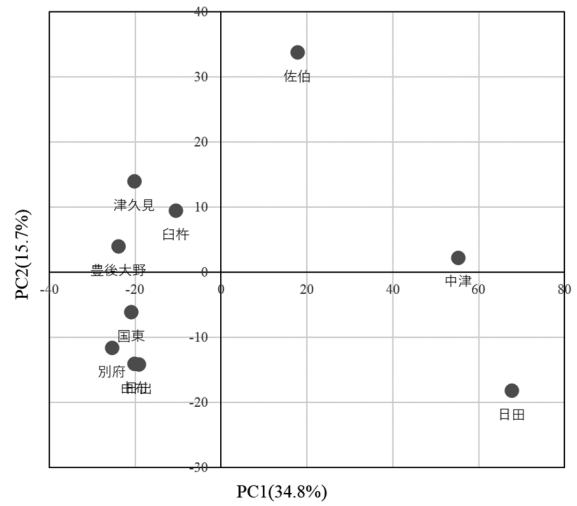


図5. 主成分分析結果 (第1主成分、第2主成分)

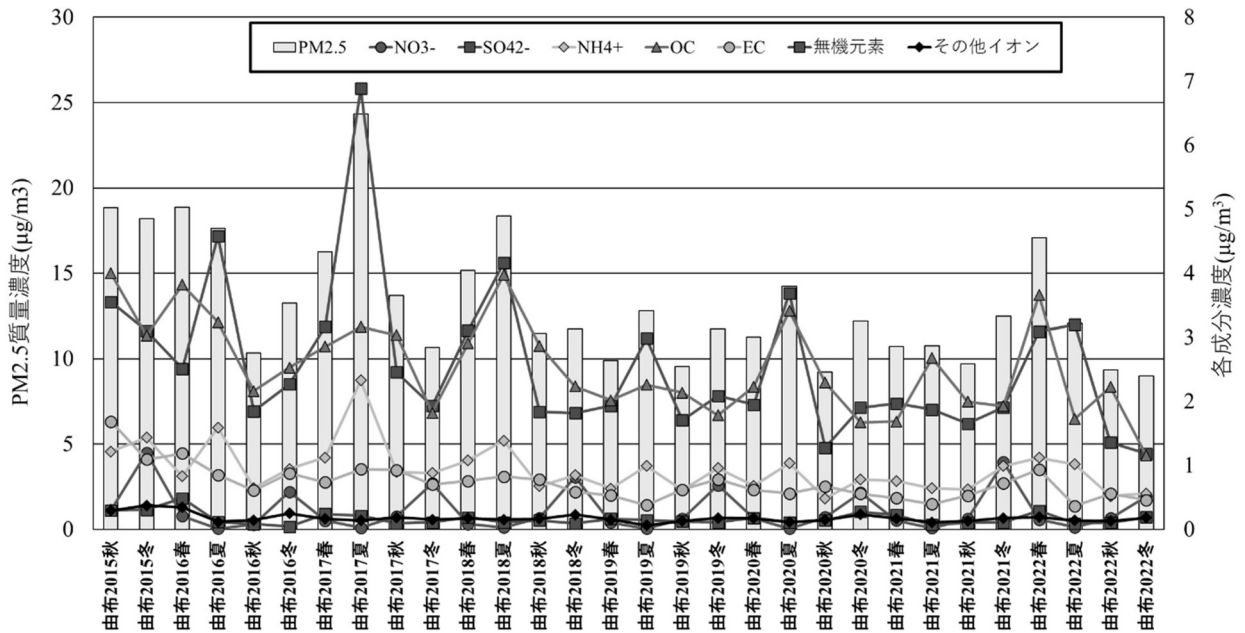


図6. 由布市のPM2.5質量濃度と各成分濃度の経年変化

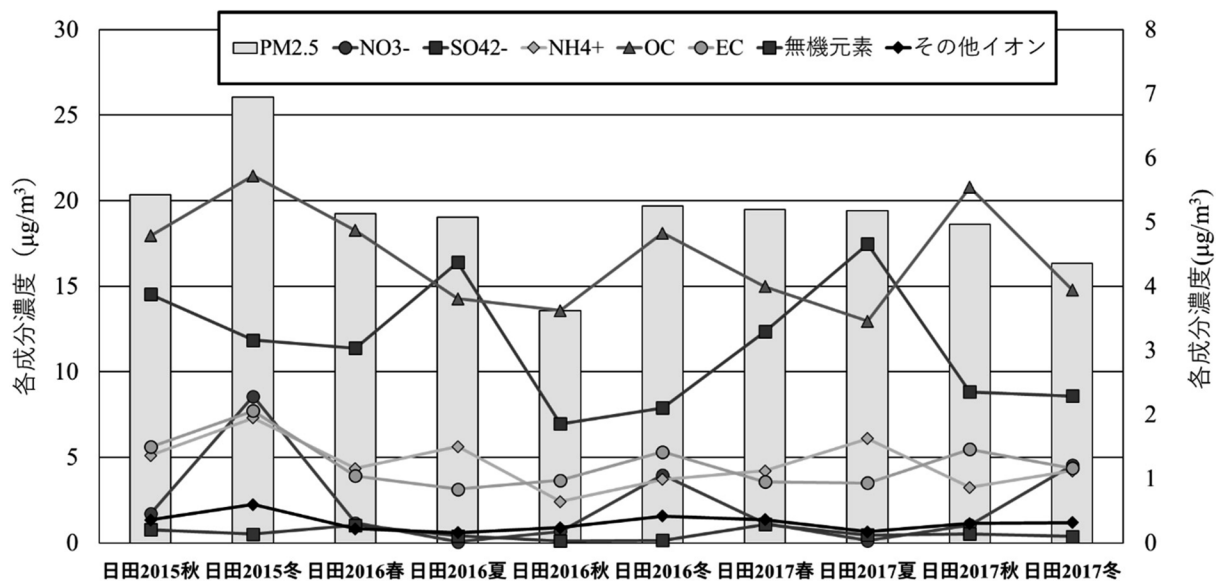


図7. 日田市のPM2.5質量濃度と各成分濃度の経年変化

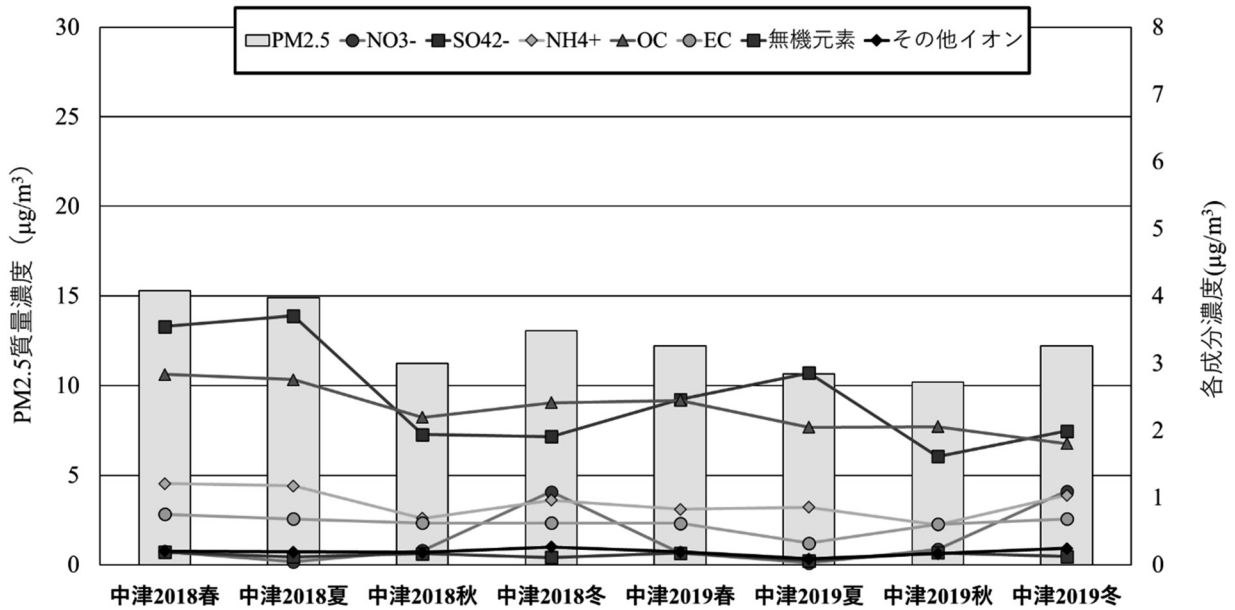


図8. 中津市のPM2.5質量濃度と各成分濃度の経年変化

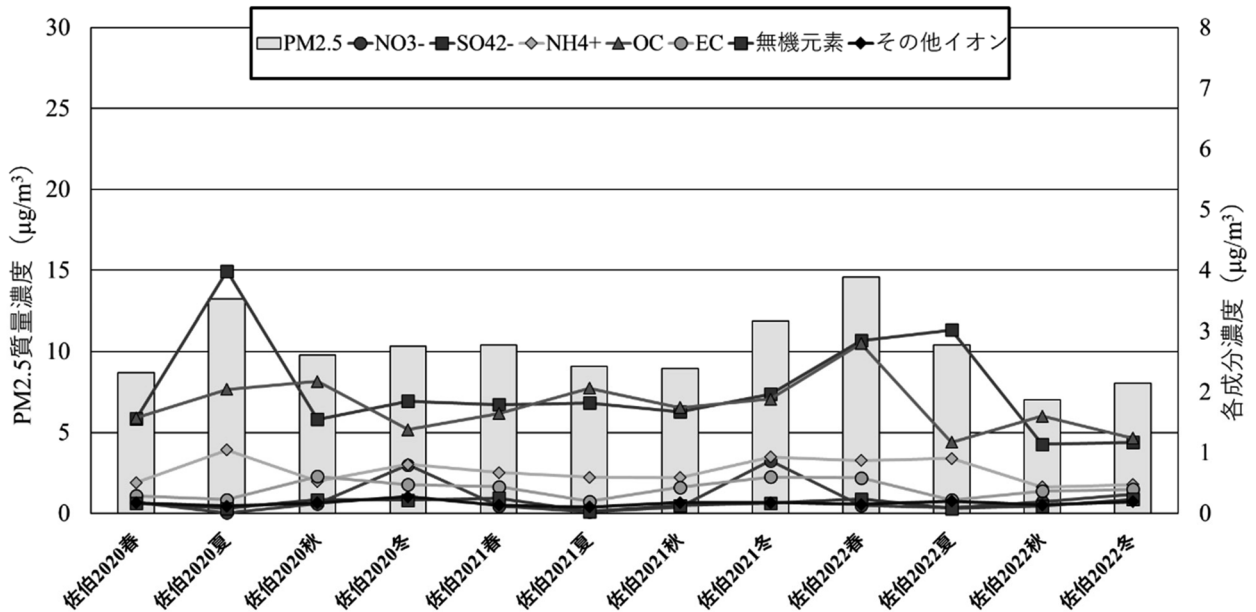


図9. 佐伯市のPM2.5質量濃度と各成分濃度の経年変化

表4. PMF解析条件と解析結果

観測地点数	4地点 (由布、日田、中津、佐伯)
調査期間	2015年度秋季～2020年度 (春：5月頃 夏：7月頃 秋：10月頃 冬：1月頃)
試料数	n=434 (イオンバランス、ケミカルマスキングモデルを用いてデータスクリーニングを実施した。)
データ項目	22項目 (内訳) ・PM2.5質量濃度 ・イオン成分 (8) $\text{Na}^+$ 、 $\text{NH}_4^+$ 、 $\text{K}^+$ 、 $\text{Ca}^{2+}$ 、 $\text{Mg}^{2+}$ 、 $\text{Cl}^-$ 、 $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ ・無機元素 (11) Al、Cu、V、Cr、Mn、Fe、Ni、Zn、As、Sb、Pb ・炭素成分 (2) OC、EC
解析結果	抽出因子：7因子 (硫酸塩、海塩、交通・工業、バイオマス燃焼、土壌、重油燃焼、硝酸塩)
備考	日田は2015年度秋季～2017年度のみ 中津は2018年度～2019年度のみ 佐伯は2020年度のみ

因子 1

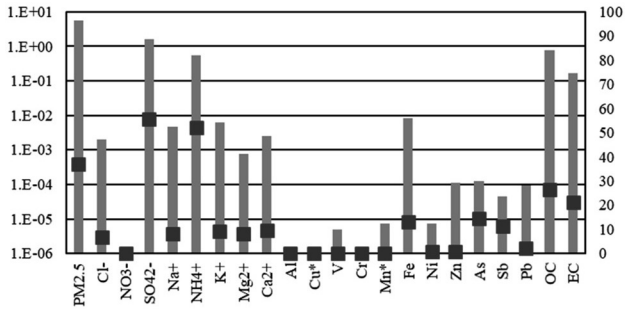


図10. 因子プロファイル (硫酸塩)

因子 2

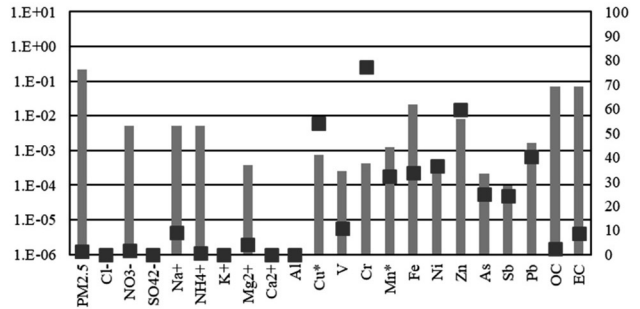


図11. 因子プロファイル (交通・工業)

因子 3

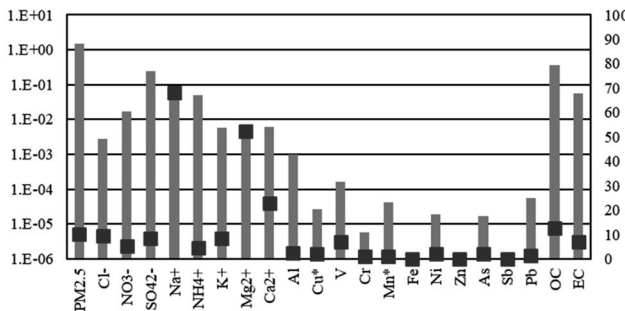


図12. 因子プロファイル (海塩粒子)

因子 4

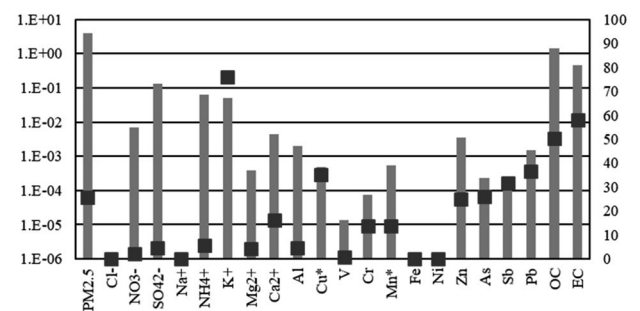


図13. 因子プロファイル (バイオマス燃焼)

因子 5

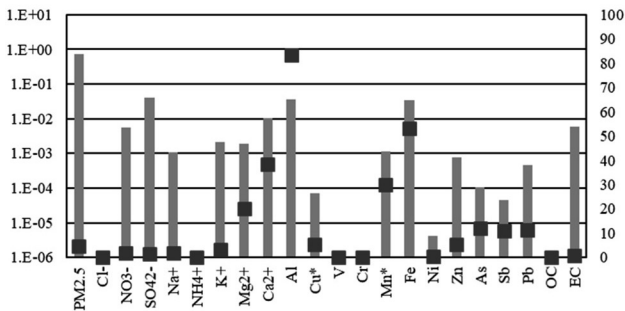


図14. 因子プロファイル (土壌粒子)

因子 6

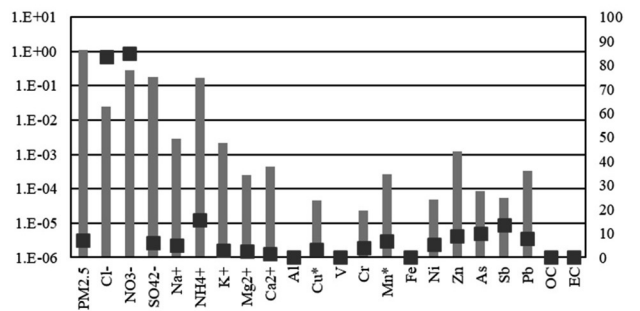


図15. 因子プロファイル (硝酸塩)

因子 7

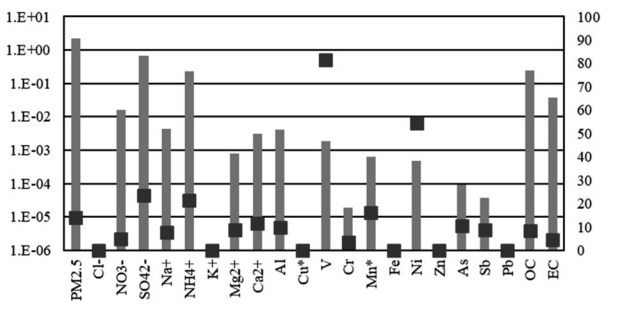
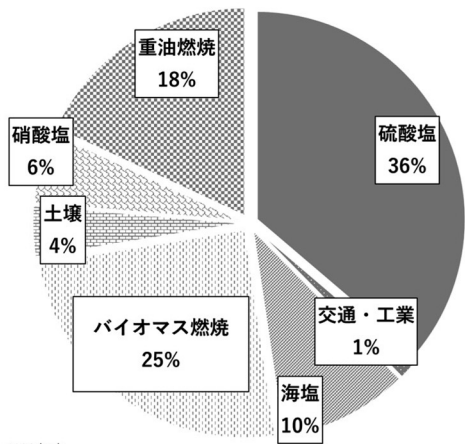
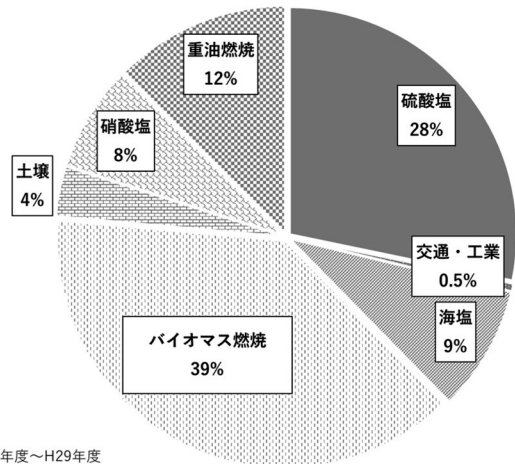


図16. 因子プロファイル (重油燃焼)



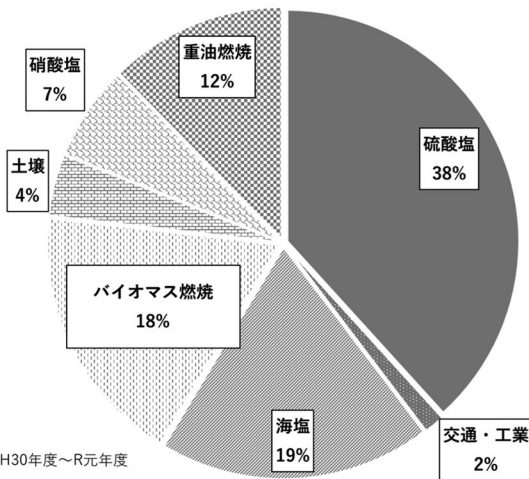
由布H28~H29年度

図17. 由布市の因子寄与率グラフ (2016~2017)



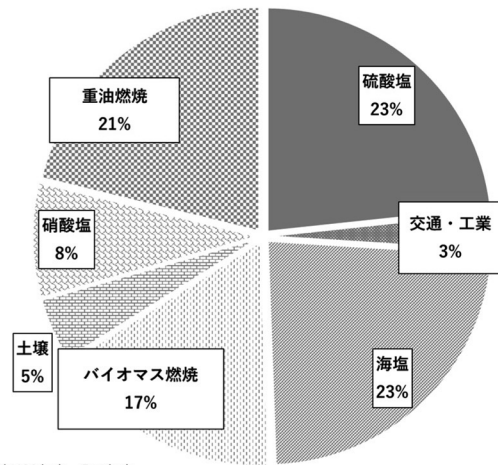
日田H28年度~H29年度

図18. 日田市の因子寄与率グラフ (2016~2017)



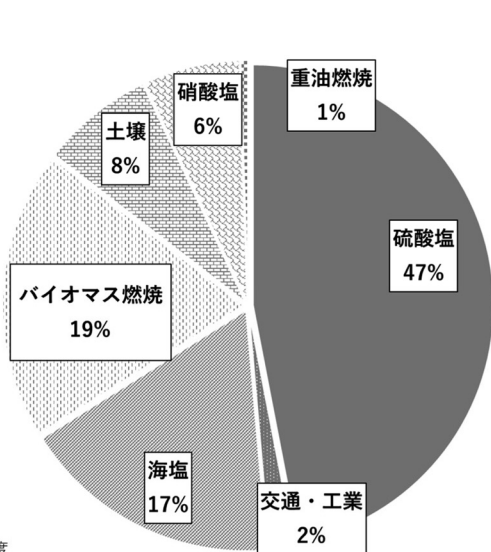
由布H30年度~R元年度

図19. 由布市の因子寄与率グラフ (2018~2019)



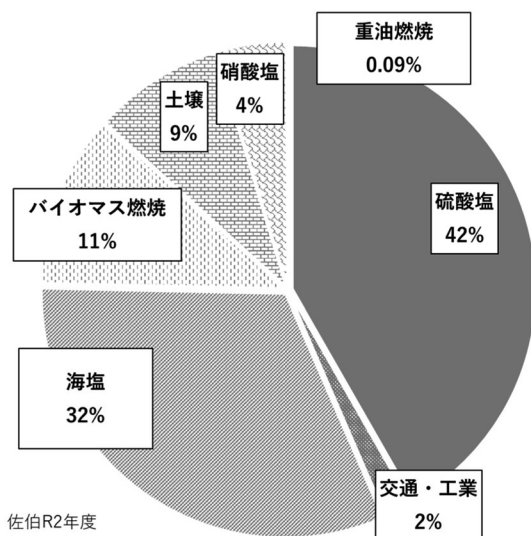
中津H30年度~R元年度

図20. 中津市の因子寄与率グラフ (2018~2019)



由布R2年度

図21. 由布市の因子寄与率グラフ (2020)



佐伯R2年度

図22. 佐伯市の因子寄与率グラフ (2020)

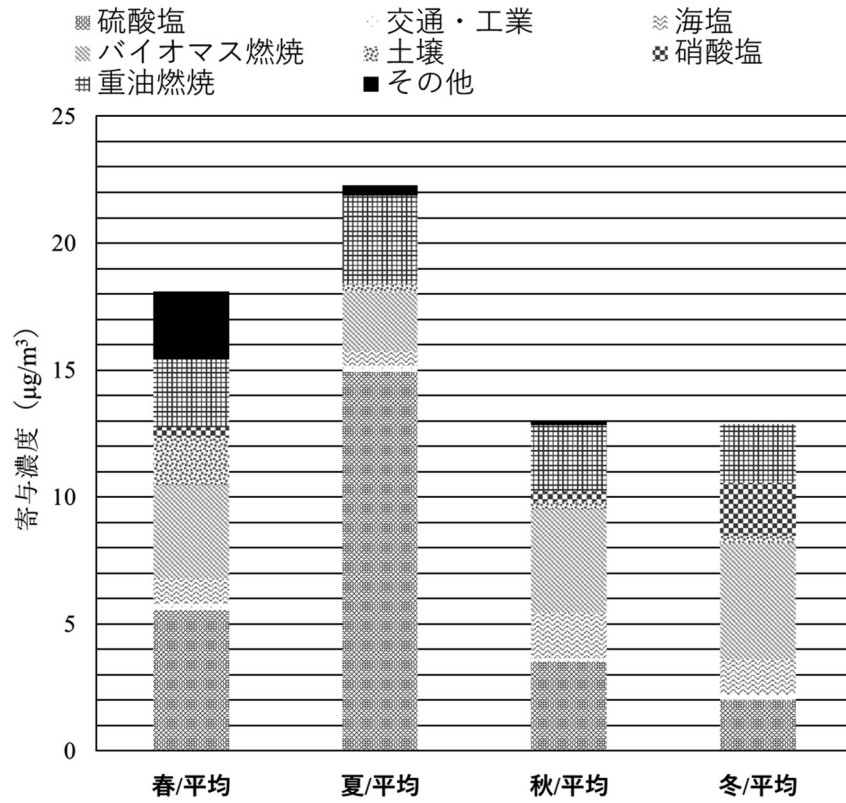


図23. 由布市の因子寄与濃度グラフ (2016~2017)

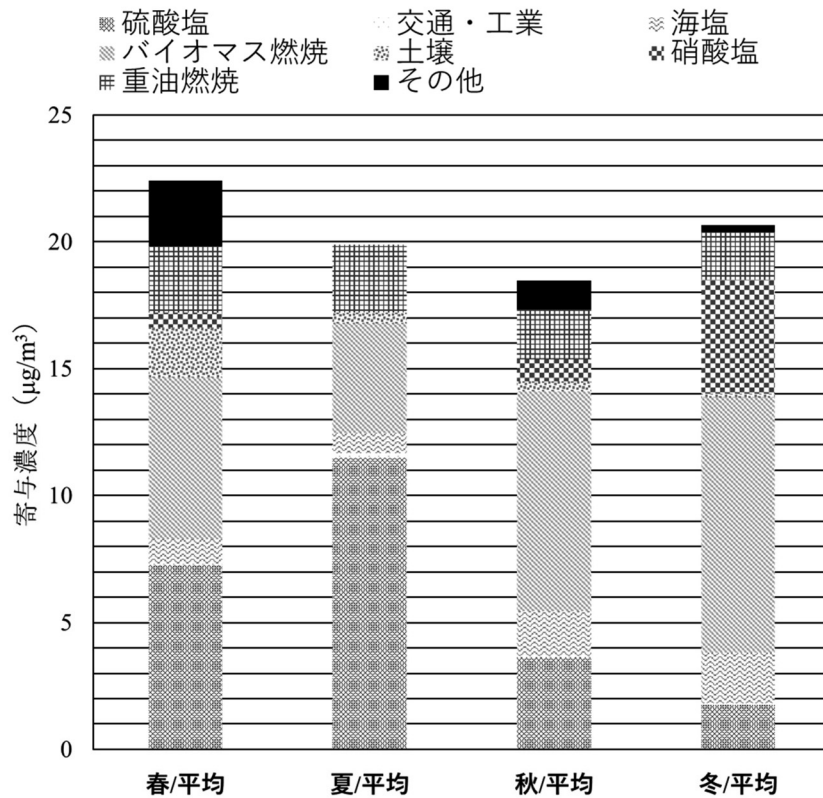


図24. 日田市の因子寄与濃度グラフ (2016~2017)

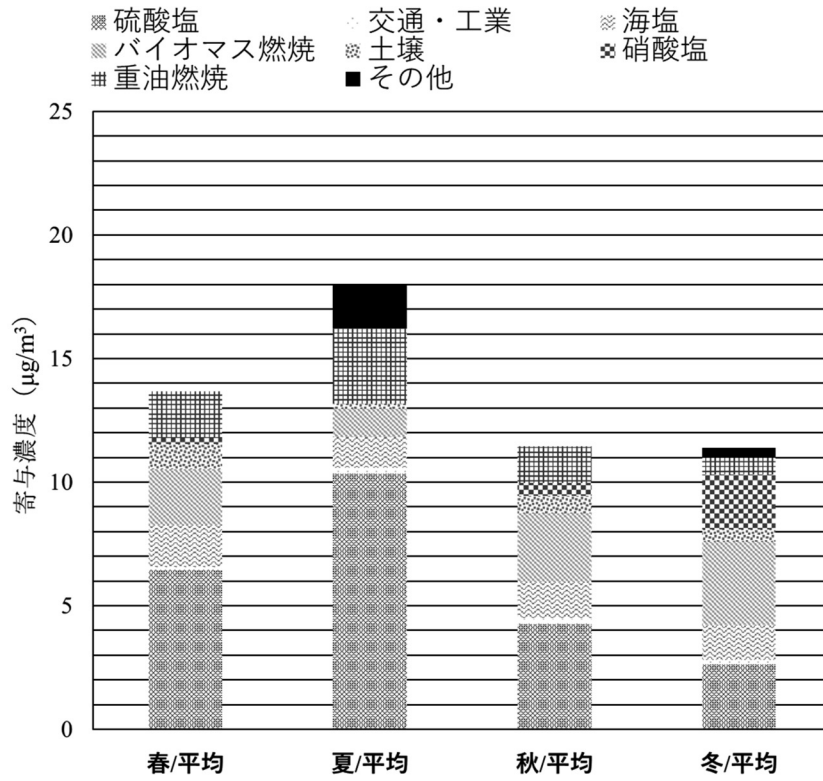


図25. 由布市の因子寄与濃度グラフ (2018~2019)

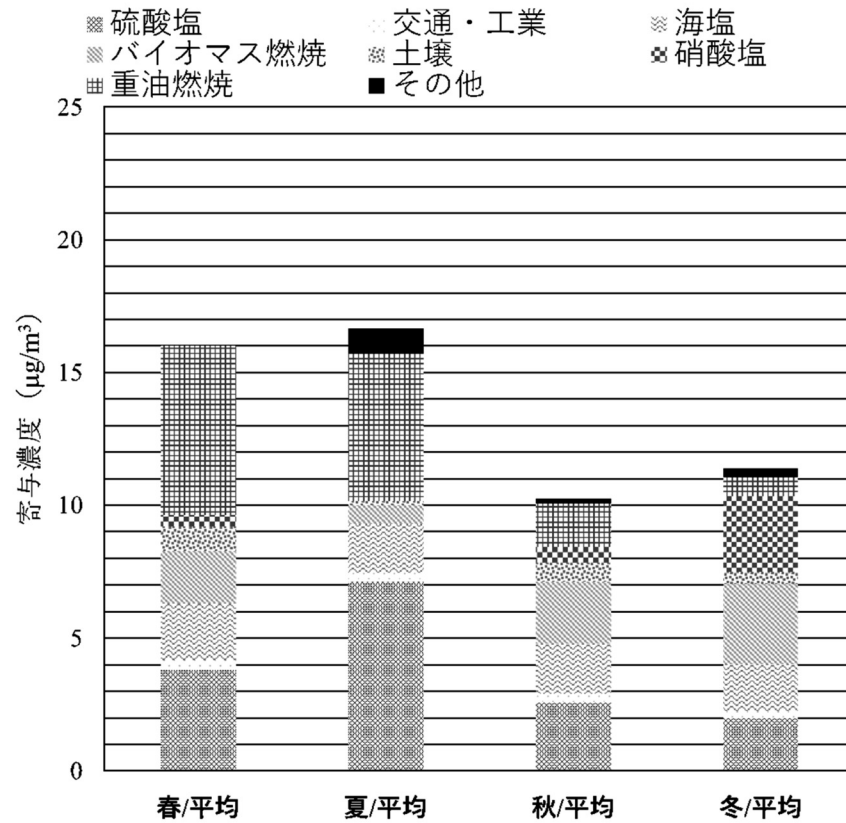


図26. 中津市の因子寄与濃度グラフ (2018~2019)

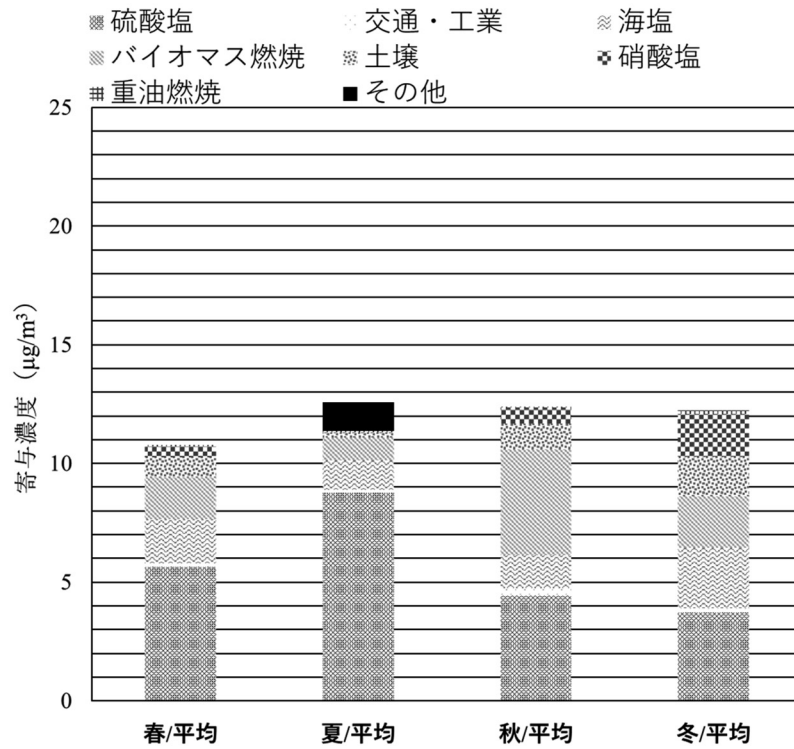


図27. 由布市の因子寄与濃度グラフ (2020)

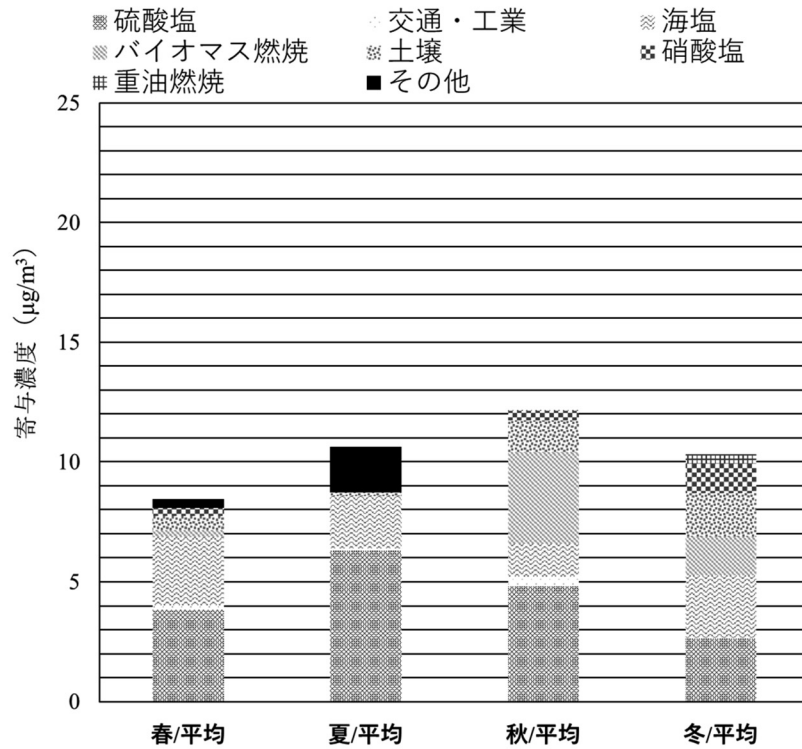


図28. 佐伯市の因子寄与濃度グラフ (2020)



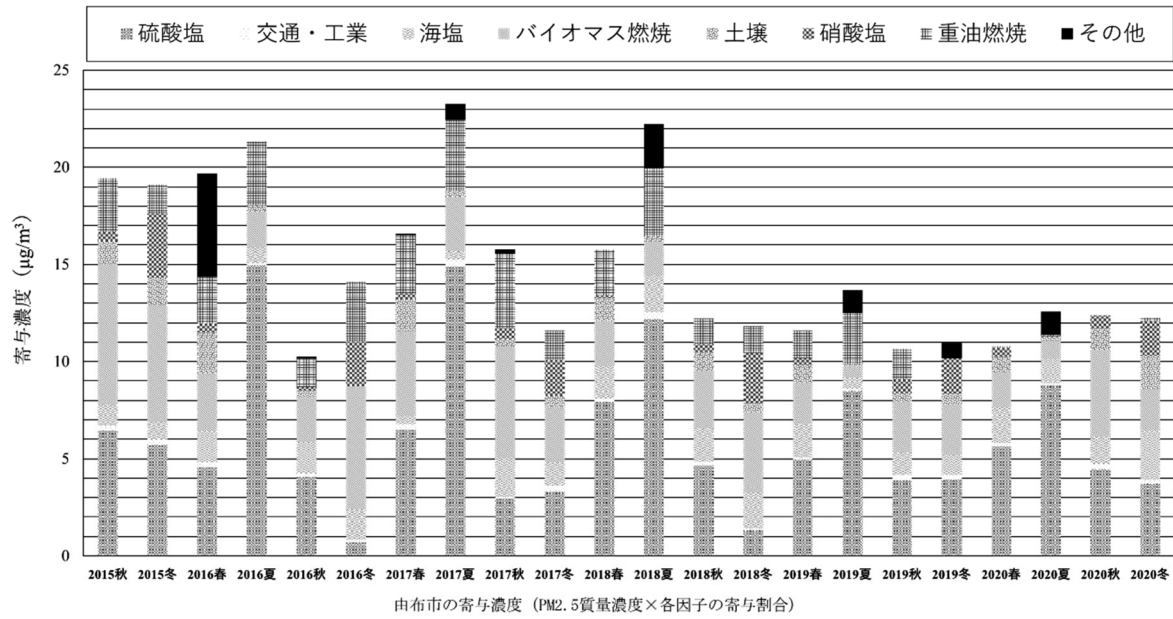


図29. 由布市の因子寄与濃度経年変化 (2015秋~2020冬)

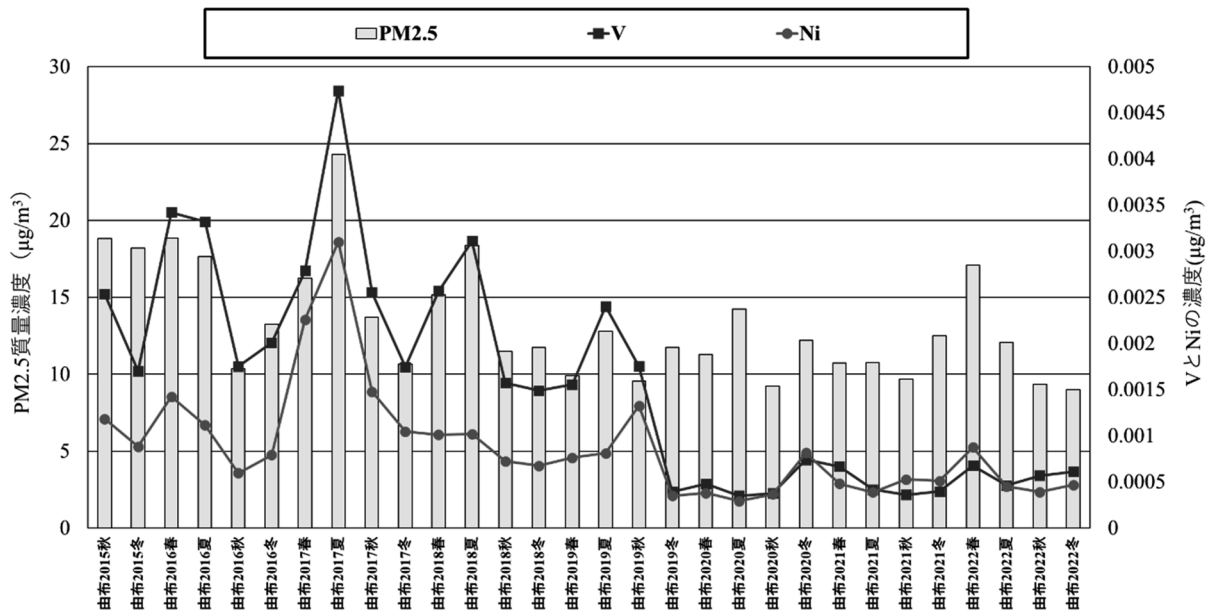


図30. 由布市のPM2.5質量濃度とV、Ni濃度の経年変化 (2015秋~2022冬)

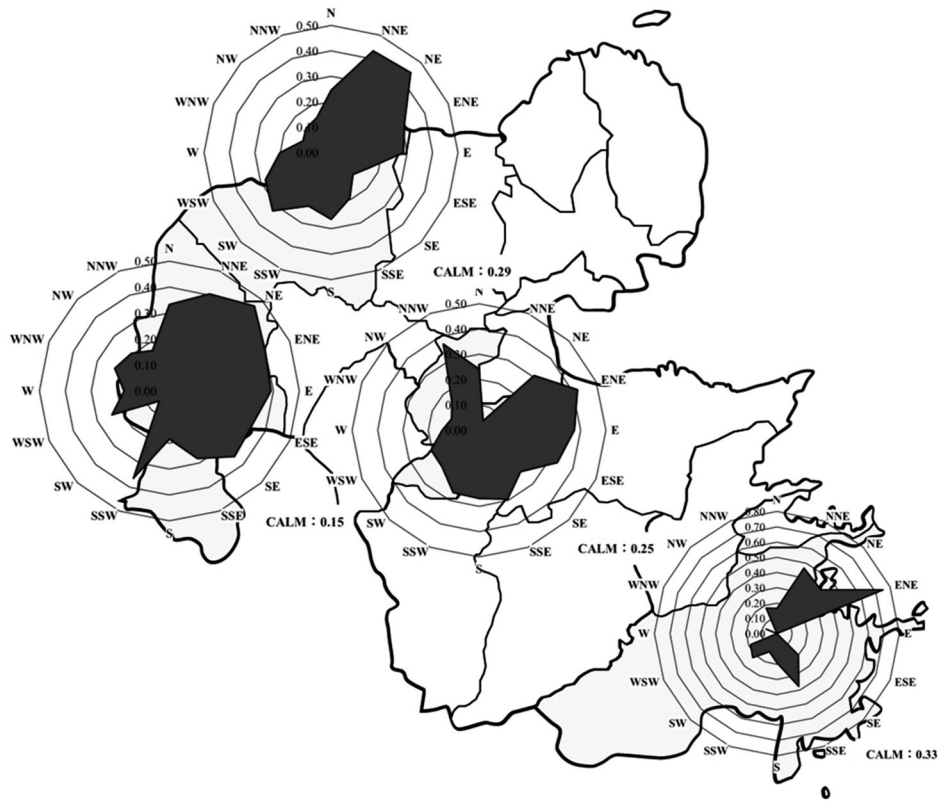


図31. 硫酸塩のCPFプロット

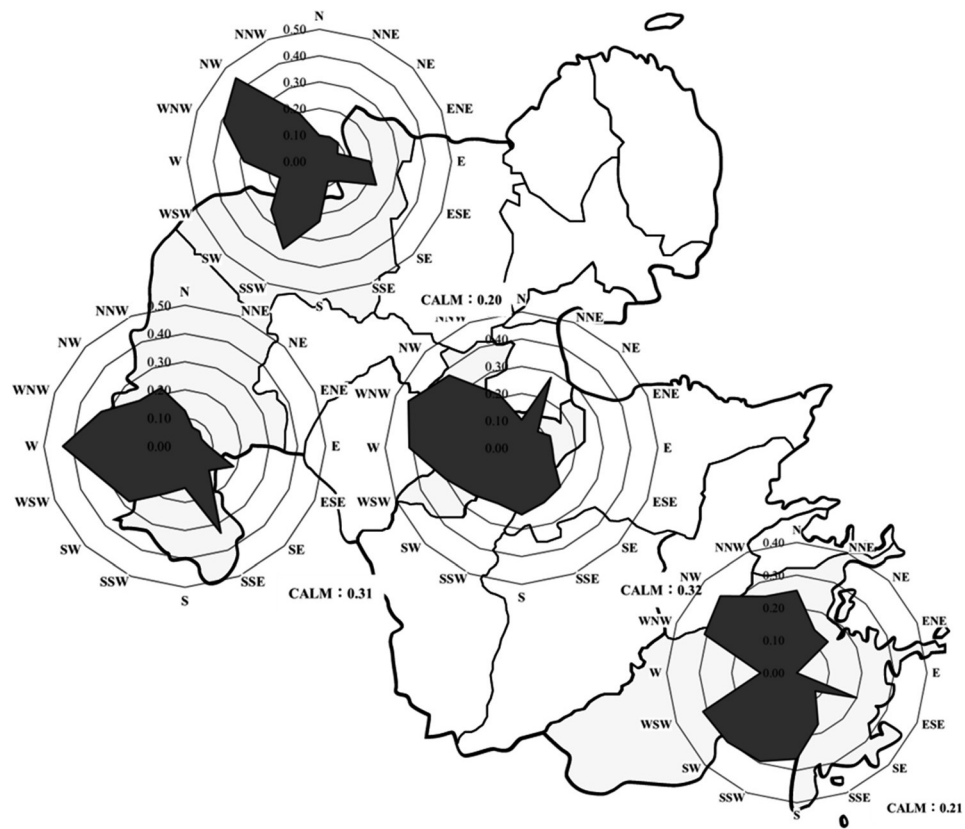


図32. 硝酸塩のCPFプロット

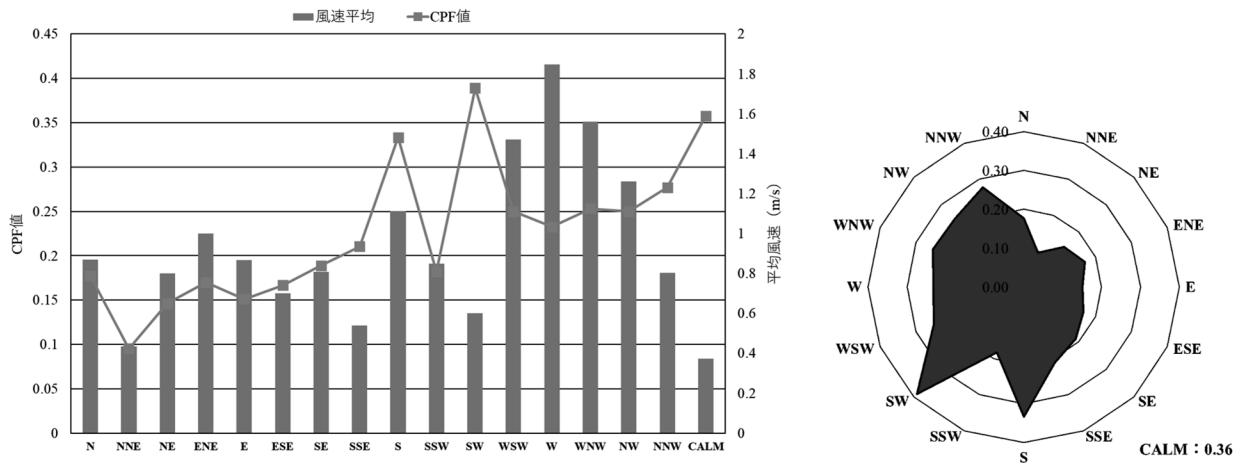


図33. 日田市におけるCPF値（バイオマス燃焼）と方角ごとの風速（左図）とCPFプロット（右図）

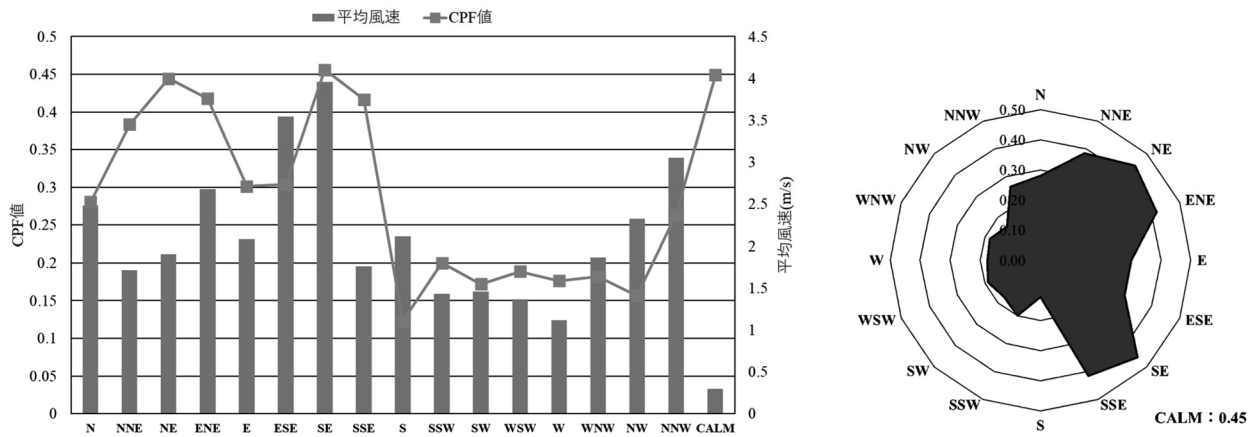


図34. 中津市におけるCPF値（重油燃焼）と方角ごとの風速（左図）とCPFプロット（右図）

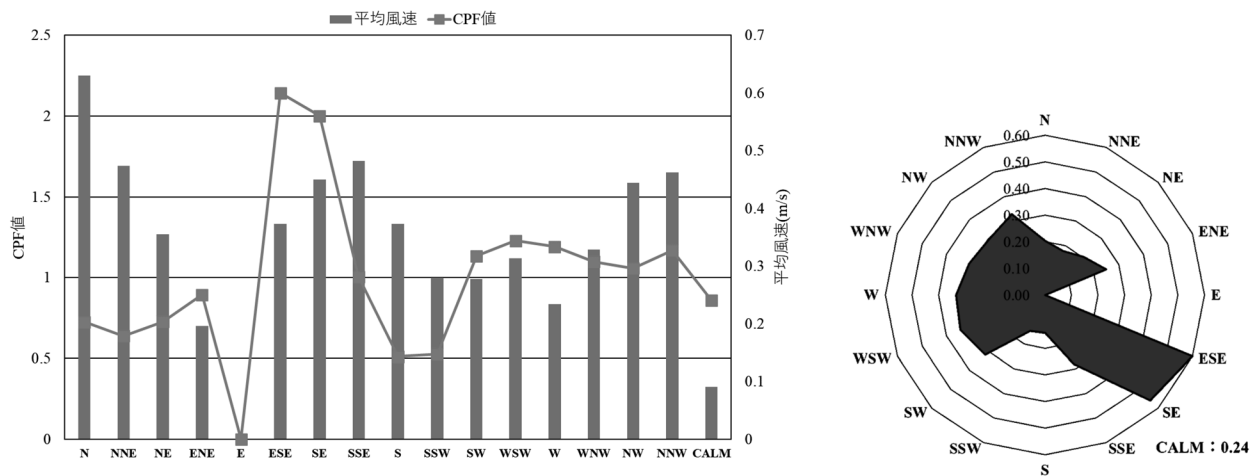


図35. 佐伯市におけるCPF値（海塩粒子）と方角ごとの風速（左図）とCPFプロット（右図）

