

大分県におけるPM_{2.5}発生源由来等の推定について

甲斐 太郎^{*1}、河村 勇祐^{*2}、河野 友彰^{*3}、安藤 大生^{*4}、河野 公亮、
村上 泰隆、森永 由加里、安井 玉樹^{*5}、山下 佳史^{*2}

Investigation of Sources of PM_{2.5} in Oita Prefecture

Taro Kai, Yusuke Kawamura, Tomoaki Kono, Daiki Ando, Kosuke Kawano,
Yasutaka Murakami, Yukari Morinaga, Tamaki Yasui, Yoshifumi Yamashita

Key Words：微小粒子状物質 PM_{2.5}、レセプターモデル Receptor model、
後方流跡線解析 Backward trajectory analysis

要 旨

PM_{2.5}（微小粒子状物質）対策等の基礎資料作成を目的に、大分県内で観測されたPM_{2.5}に関するデータ（大気常時監視データや成分濃度等）について各種手法を用いて解析し、大分県におけるPM_{2.5}の発生源由来等の推定を試みた。解析の結果、大分県は越境汚染由来の寄与割合が最も高く、春季及び冬季において東アジアに近い地点ほど影響を受けやすいことが考察された。また、沿岸部の地点は夏季の海風時に濃度が上がりやすい傾向にあり、原因の一つとして沿岸部の固定発生源や本州及び四国（瀬戸内工業地域）等からの移流の影響が考察された。

はじめに

PM_{2.5}とは、大気中に浮遊している2.5μm（1μmは1mmの千分の1）以下の小さな粒子のことである。PM_{2.5}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。そこで、当センターではPM_{2.5}発生源解明及び発生源対策に向けた行政施策等を定める際の基礎資料作成を目的として調査研究を行ってきた¹⁻⁶⁾。

本稿では、引き続き大気常時監視測定局の測定データやPM_{2.5}成分分析結果を集約し、各種統計解析手法を活用して当県のPM_{2.5}の発生源由来等の推定を行い、その結果について考察を行ったので報告する。

方 法

1 大気常時監視データの解析

1.1 使用したデータについて

大気常時監視データの解析には、図1に示す地点において自動測定機によって測定されているPM_{2.5}濃度及び風向・風速の1時間値データを使用した。

2015年度～2023年度までのデータまたは公表データ⁷⁾を解析に用いた。また、日田市については2015年度～2022年度のデータを解析に用い、風向・風速については気象庁公表データ⁸⁾を解析に使用した。

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。

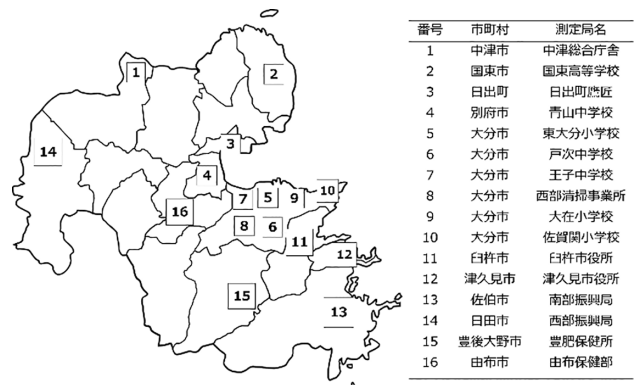


図1 大気常時監視局（PM_{2.5}測定局）の配置図

1.2 PM_{2.5}濃度の経年変化（国外との比較）

PM_{2.5}について東アジア等からの移流の影響を考察するため、大分県の大気中PM_{2.5}及び二酸化硫黄（SO₂）濃度の年平均値の推移を中国及び韓国における測定値と比較した。大分県のデータは図1の観測地点全ての測定値の平均値を採用した。中国及び韓国のデータは中国環境保護部⁹⁾及び韓国環境省公

※1 大分県防災局消防保安室

※2 大分県循環社会推進課

※3 大分県北部保健所豊後高田保健部

※4 大分県産業科学技術センター

※5 大分県北部保健所

表データ¹⁰⁾に基づき調査した。なお、中国のPM_{2.5}について2013年は74都市、2014年は161都市、2015～2018年は338都市、2019～2020年は337都市、2021年～2023年は339都市の年平均値となっている。また、中国における排ガス中のSO₂排出量の推移と、石炭及び石油の消費量の推移を調べた。これらは中国国家統計局が公表している「中国統計年鑑」¹¹⁾を基に調査した。

1.3 PM_{2.5}濃度と風向、風速の関係性について

1.3.1 解析方法について

図1に示す中津市、大分市（東大分）、佐伯市、日田市、由布市の5地点について、PM_{2.5}濃度と風向風速との関係性について考察するため、大気常時監視局の1時間値データを使用してCBPF解析を実施し、地点ごとの特徴や発生源方向に関する考察を行った。日田市についてのみ気象庁の風向風速データを使用した。図は全てオープンソースソフトウェア「R」（以下「Rソフト」という。）のパッケージ”openair”^{12),13)}を使用して作図した。閾値について、昨年度⁶⁾は地点ごとの上位75%の値としたが、本稿では35μg/m³（日平均の環境基準値）とした。

1.3.2 CBPF解析について

CBPF (Conditional Bivariate Probability Function) 解析とは「条件付き二変量確率関数」のことであり、発生源因子の寄与濃度が一定の閾値を超えた場合の風向、風速によって発生源の位置を推定する解析手法である。CBPF解析は以下の式を使用して行った¹⁴⁾。

$$CBPF = m_{\Delta \theta, \Delta u} / n_{\Delta \theta, \Delta u}$$

ここで、 $m_{\Delta \theta, \Delta u}$ はPM_{2.5}の1時間値が閾値を超えた場合の風向 θ 及び風速 u の数、 $n_{\Delta \theta, \Delta u}$ は風向 θ 及び風速 u の総数とした。解析及び作図にはRソフトを用い、二変量の極座標プロットで作図した¹²⁻¹⁴⁾。

2 レセプターモデルによる解析

2.1 PM_{2.5}の採取、分析方法

レセプターモデルに使用した大気試料（PM_{2.5}）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（PM_{2.5}）の成分分析ガイドライン」¹⁵⁾及び「大気中微小粒子状物質（PM_{2.5}）成分測定マニュアル」¹⁶⁾に従って実施した。本稿では由布市と大分市の結果を報告する。成分分析実施地点とサンプリング期間は既報⁶⁾に示しているとおりである。

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PM_{2.5}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である。測定方法と測定に使用したろ紙の種類は昨年度⁶⁾と同じである。

2.2 レセプターモデルについて

レセプターモデルとは、ある地点で観測された成分濃度をもとにその濃度に影響を及ぼしたであろう各種発生源の寄与濃度を統計的に推定するモデルのことである。大気観測研究においては「PMF法」や「CMB法」が多く用いられている。本稿では同一のデータセットをPMF法及びCMB法を用いて解析した。

2.2.1 PMF解析

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¹⁷⁾。計算にはEPA PMF5.0¹⁸⁾を使用した。

2.2.2 CMB解析

CMB (Chemical Mass Balance Method) 法とは、1組の観測データセットと想定される発生源のプロファイルをモデルに投入し、両者の質量収支から発生源寄与を推定する方法であり、統計数理研究所が開発した「CMBKv2.1」¹⁹⁾というツールを使用した。発生源プロファイルは東京都の微小粒子状物質検討会²⁰⁾による検討結果を参考にして、『道路粉じん』、『海塩』、『鉄鋼業』、『重油燃焼』、『廃棄物焼却』、『自動車排ガス』、『ブレーキダスト』の7発生源に、『植物質燃焼』と『硫酸塩』、『硝酸塩』、『有機エアロゾル』とEPA Speciateデータベース#4373の『石炭燃焼 (Coal combustion)』を加えた12発生源とした。また、各因子について『自動車排ガス』と『ブレーキ粉じん』を「自動車」、『鉄鋼』、『廃棄物焼却』、『重油燃焼』、『石炭燃焼』を「産業」、『土壌・道路粉じん』、『海塩粒子』を「自然」と区別して各因子の寄与割合の季節変化について考察した。また、上記の内容で区別した因子について質量濃度の値を用いて寄与濃度を算出し、由布市と大分市で比較を行った。

2.2.3 データセットについて

データセットにはPM_{2.5}の成分分析データを用いた。解析データにはPM_{2.5}中のCl⁻、NO₃⁻、SO₄²⁻、Na⁺、NH₄⁺、K⁺、Ca²⁺、Al、V、Cr、Mn、Fe、Zn、As、Sb、OC、EC、Seの成分濃度及び質量濃度を採用した。由布市は当センターで採取・分析した結果を、大分市は公表データ²¹⁾又は提供していただいたデータを使用した。解析対象年度についてだが、2020年1月（2019年度）の船舶燃料規制（Global Sulphur Cap 2020）により船舶燃料燃焼系の因子プロファイルが変化している可能性があることを考慮して2020年度～2023年度のデータを用いた。

3 後方流跡線解析

3.1 解析方法について

後方流跡線解析とは任意の地点を起点として、そこへ空気塊が到達する経路を風速や気温などの気象データをもとに遡って計算する解析のことである。一般的に大気がどの地域から輸送されてきたのかを知る手法としてよく使われており、地点ごとの状況を調査するために、県内各地点に到達する気塊の輸送経路について後方流跡線解析を用いて検証した。解析はアメリカ海洋大気局（NOAA：National Oceanic and Atmospheric Administration）が提供するHYSPLITモデル（Hybrid Single Particle Lagrangian Integrated Trajectory）²²⁾を用い、コードについては既報²³⁾に記載されているもの及び国立環境研究所との共同研究（Ⅱ型共同研究）において福岡市より提供していただいたものを参考にした。流跡線の作成および解析には、プログラミング言語Python（3.12.3）及びPySPLIT（0.3.6）を用いた。解析条件として、追跡時間を120時間（5日間）、開始高度を海拔1,000 mに設定し、2015年度～2023年度においてPM_{2.5}の1時間値が35μg/m³（日平均値の環境基準値）を超過した日のうち、各日で最初に35μg/m³を超過した時間を開始時刻とした。さらに、各地点に到達した気塊が通過した地域に基づき、東アジア（日本を除く）由来、東南アジア由来、太平洋由来、本州由来、四国由来、九州由来の6区分に分類した。流跡線データから得られた各地域の通過カウント値を基に、経由地による地域特性を解析した。解析地点は図1に示す中津市、日田市、佐伯市、由布市、大分市（東大分）とした。

3.2 瀬戸内方面からの移流の影響について

瀬戸内海は閉鎖的な地形と沿岸部に工業地帯が多く存在することから、大気汚染について議論が進められている^{24),25)}。従って海風等による瀬戸内地域からの移流の影響について調査を行った。流れとしては3.1の本州由来、四国由来の領域について、瀬戸内地域由来、本州（瀬戸内地域以外）由来の領域に分けて同様の解析を行った。

結 果

1 大気常時監視データの解析結果について

1.1 大分県と国外との比較について

大分県、中国、韓国におけるPM_{2.5}及び二酸化硫黄（SO₂）濃度の年平均値の推移を図2、図3に示す。また、中国におけるSO₂排出量の推移を図4に、石炭、石油の消費量の推移を図5に示す。

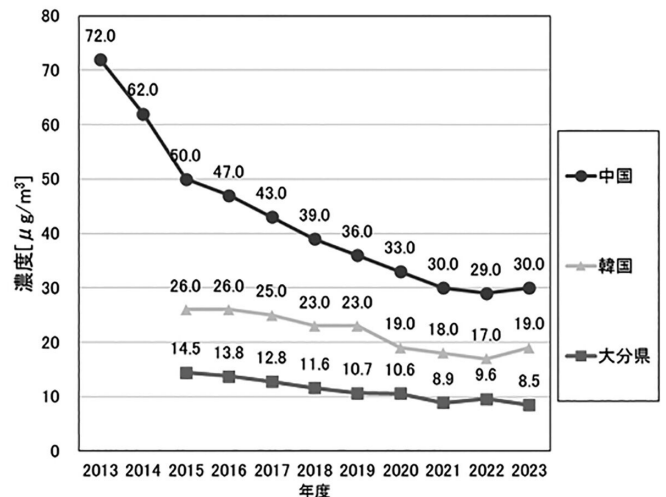


図2. 大分県、中国、韓国におけるPM_{2.5}濃度の年平均値の推移

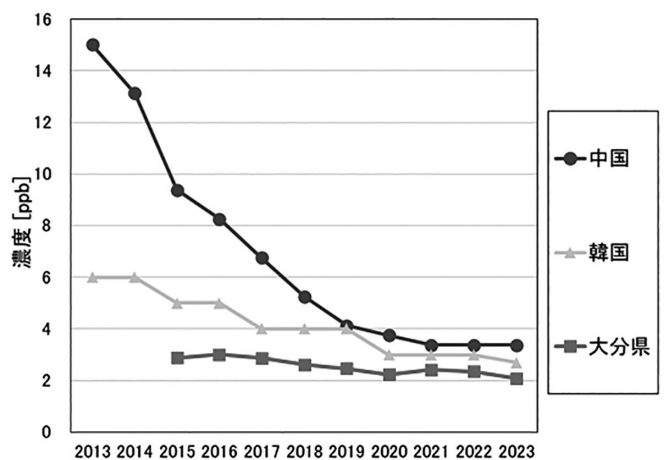


図3. 大分県、中国、韓国におけるSO₂濃度の年平均値の推移

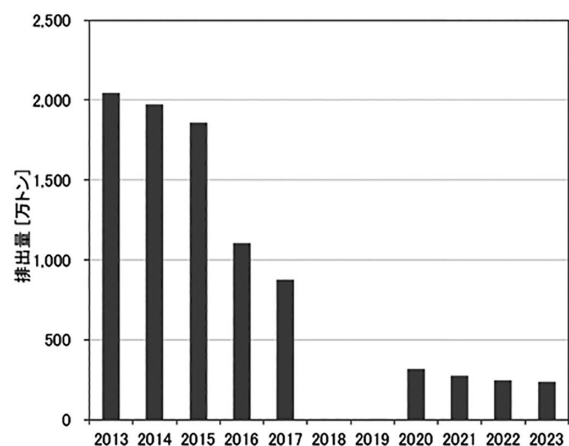


図4. 中国におけるSO₂排出量の推移

※2018年、2019年はデータがないため空欄

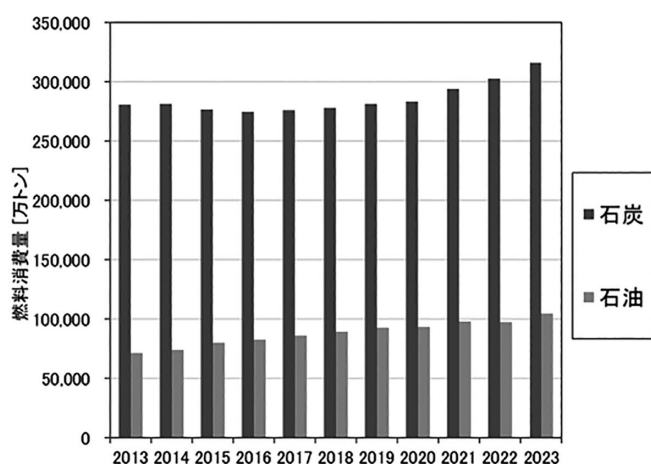


図5. 中国における石炭及び石油消費量の推移

図2及び図3より、PM_{2.5}、SO₂両方において濃度が年々減少傾向にあることが分かる。特に中国は2013年～2020年頃にかけて急激に減少していることが分かる。しかしながら2021年以降は停滞傾向にある。図4より、中国におけるSO₂の排出量は減少傾向にあり、2016年度～2020年度にかけて急激に減少していることが分かる。図5より中国における石炭及び石油消費量は年々増加傾向にあることが分かる。

1.2 CBPF解析結果について

以下、図6～図9に各地点における季節ごとのCBPF解析(閾値35μg/m³)の解析結果を示す。CBPFプロットの縦軸横軸は方角を表しており、中心から外側に向かう程風速が大きくなっている。色が濃い場所ほどCBPF値が高いことを示しており、色が濃い場所(風向・風速)において閾値(35μg/m³)以上のPM_{2.5}を観測する確率が高いことを表している。

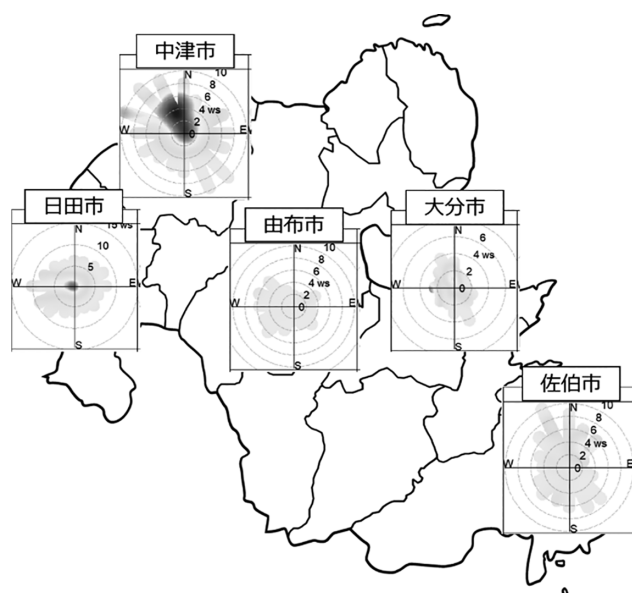


図6. 春季におけるCBPF解析結果

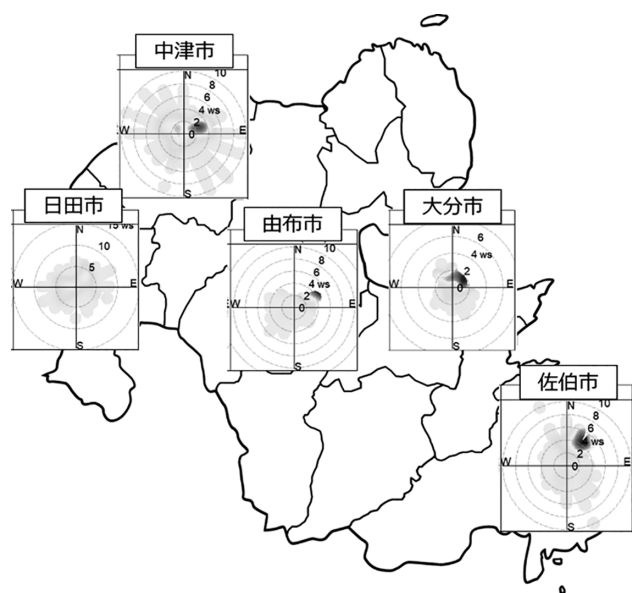


図7. 夏季におけるCBPF解析結果

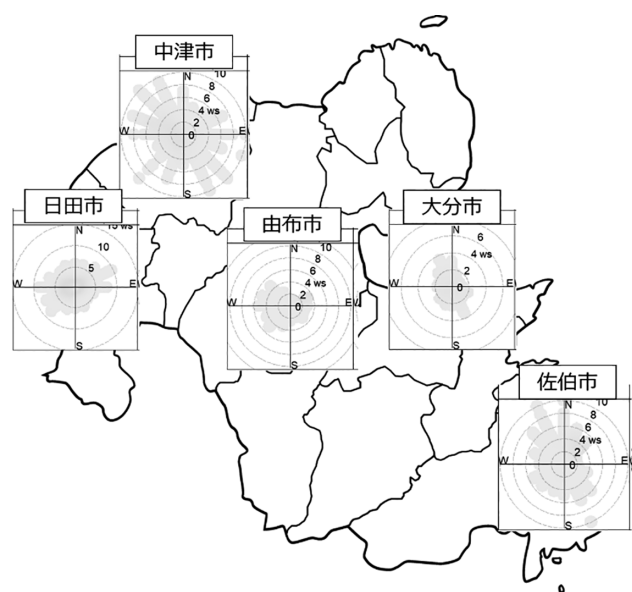


図8. 秋季におけるCBPF解析結果

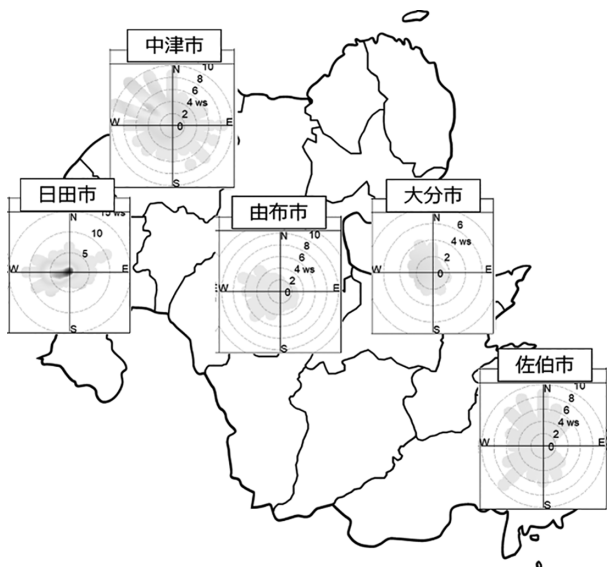


図9. 冬季におけるCBPF解析結果

春季は、中津市や日田市で高濃度となりやすく、中津市は北西、日田市は西側のCBPF値が高いことが分かる。次に夏季は中津市、大分市、佐伯市といった沿岸部に位置する地点において海側にてCBPF値が高いことが分かる。また、由布市は内陸部に位置するが、海側（大分市側）においてCBPF値が高い傾向にあった。秋季は全体的にCBPF値が小さい傾向にあった。最後に冬季は春季と同様に中津市及び日田市において高濃度となりやすい傾向にあり、中津市は北西風、日田市は西風時にCBPF値が高い傾向にあった。また、日田市については全季節を通して弱風時のCBPF値が高い傾向にあった。

2 レセプターモデルの解析結果について

2.1 PMF解析結果

由布市及び大分市におけるPMF解析結果（因子プロファイル、因子寄与割合）を図10から図13に示す。因子プロファイル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割り振られた各成分の割合を示している。各因子について含まれる各成分の値をもと元に各因子が何の発生源を意味するのか解釈した。また、因子分解できなかったものは『その他』とした。

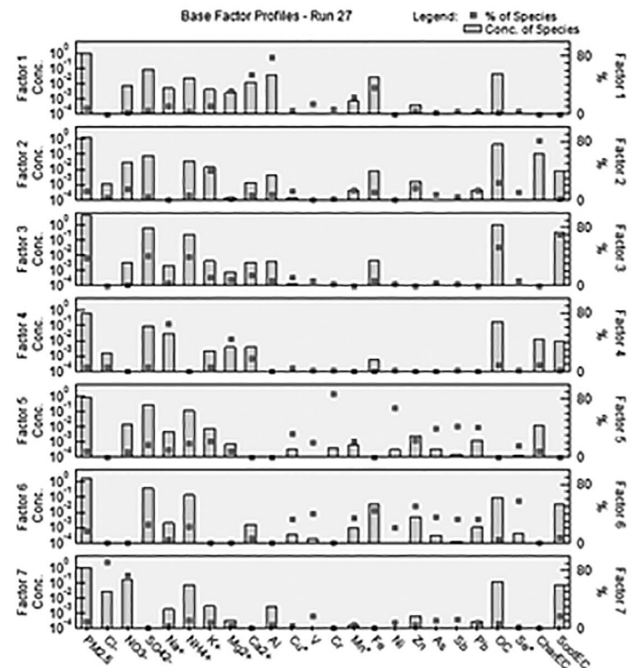


図10. 由布市における因子プロファイル

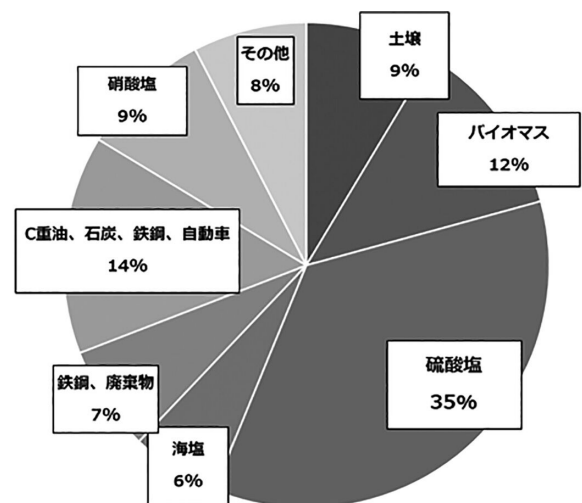


図11. 由布市における因子寄与割合

由布市は7つの因子に分解することができた。因子解釈についてだが、Factor1は Ca^{2+} 、Al、Feの割合が大きいため『土壌』、Factor2は K^+ 、CharECの割合が大きいため『バイオマス燃焼』、Factor3は SO_4^{2-} 、 NH_4^+ の割合が高いため『硫酸塩』、Factor4は Na^+ 、 Mg^{2+} の割合が高いため『海塩粒子』、Factor5はCu、Cr、Ni、Zn、Sb、Pbの割合が高いため、複数因子が混在しているとみて『鉄鋼、廃棄物等』、Factor6は SO_4^{2-} 、 NH_4^+ 、Cu、V、Mn、Fe、Ni、Zn、As、Sb、Pb、Seの割合が高いため複数因子が混在しているとみて『C重油、石炭、鉄鋼、自動車等』、Factor7はCl、 NO_3^- の割合が高いため『硝酸塩』と推定した。

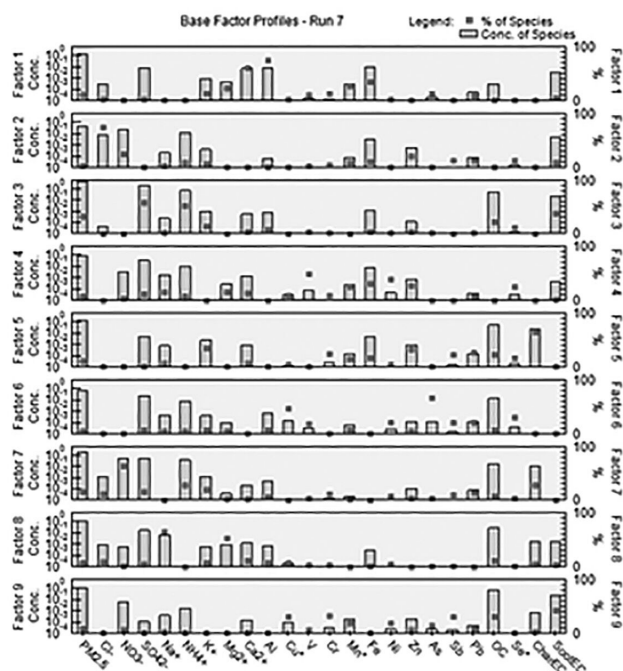


図12.大分市における因子プロファイル

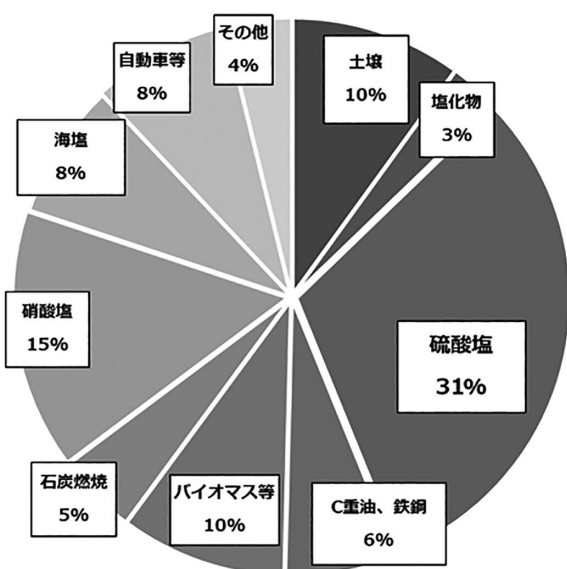


図13.大分市における因子寄与割合

大分市は9つの因子に分解することができた。因子解釈についてだが、Factor1は Ca^{2+} 、Al、Mn、Feの割合が高いため『土壌』、Factor2はClの割合が高いため『塩化物』、Factor3は SO_4^{2-} 、 NH_4^+ の割合が高いため『硫酸塩』、Factor4はV、Mn、Fe、Ni、Znの割合が高いため複数因子が混在しているとみて『C重油、鉄鋼等』、Factor5は K^+ 、CharECの割合が高いため『バイオマス燃焼』、Factor6はCu、As、Pb、Seの割合が高いため複数因子が混在しているとみて『石炭燃焼、廃棄物等』、Factor7は NO_3^- 、 NH_4^+ の割合が高いため『硝酸塩』、Factor8は Na^+ 、 Mg^{2+} の割合が高いため『海塩粒子』、Factor9はCu、

Sb、OC、SootECの割合が高いため複数因子が混在しているとみて『自動車等（排気・ブレーキ）』と推定した。

由布市及び大分市におけるPMF解析結果より、それぞれで異なる数の因子に分解でき、両地点とも『硫酸塩』の寄与割合が最も大きいという結果が得られた。また、大分市は由布市よりも多くの数の因子に分解できたことから由布市よりも多くの発生源が存在している可能性が示唆される。

2.2 CMB解析結果

2.2.1 寄与割合

CMB法による発生源寄与割合の解析結果を以下に示す。

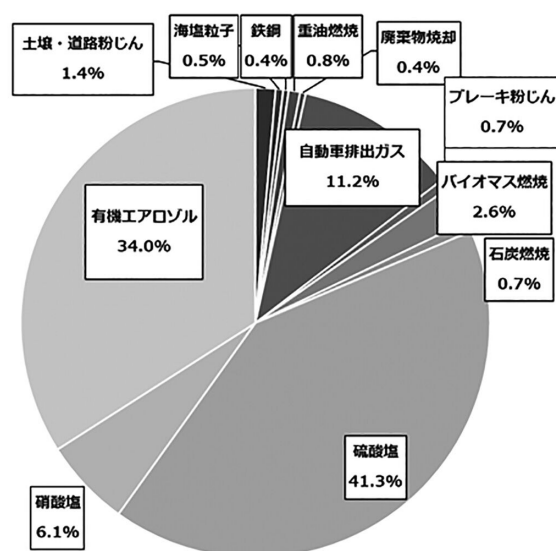


図14. 由布市における寄与割合

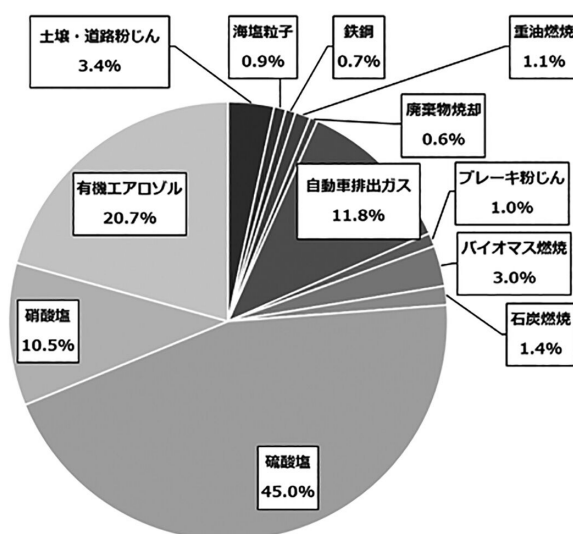


図15. 大分市における寄与割合

由布市及び大分市におけるCMB解析結果より、

PMF解析結果と同様、由布市、大分市両地点において『硫酸塩』の寄与が最も大きいという結果が得られた。次いで『有機エアロゾル』、『自動車排出ガス』、『硝酸塩』の寄与が高いという結果が得られた。由布市と大分市を比較すると大分市の方が地域汚染由来と思われる因子（鉄鋼、重油燃焼等）の割合が若干高いという結果が得られた。

2.2.2 季節変化

由布市及び大分市における季節ごとの各因子の寄与割合の解析結果を示す。

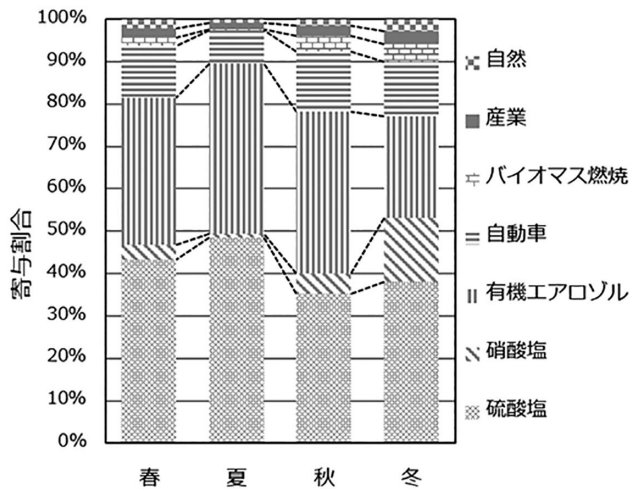


図16. 由布市における季節別の寄与割合

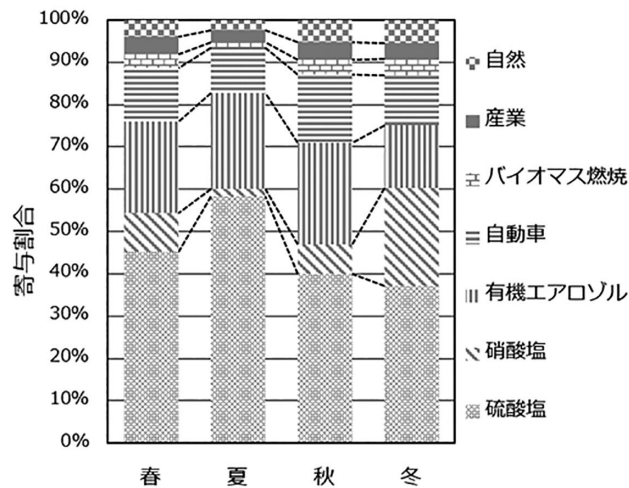


図17. 大分市における季節別寄与割合

季節ごとの特徴として、主に夏季に『硫酸塩』の割合が、冬季に『硝酸塩』の割合が増加する傾向にあることが確認できた。また、少しではあるが『バイオマス燃焼』は秋季及び冬季に増加する傾向にあった。

2.2.3 地点比較

寄与濃度及び寄与割合について由布市と大分市で比較した結果を示す。

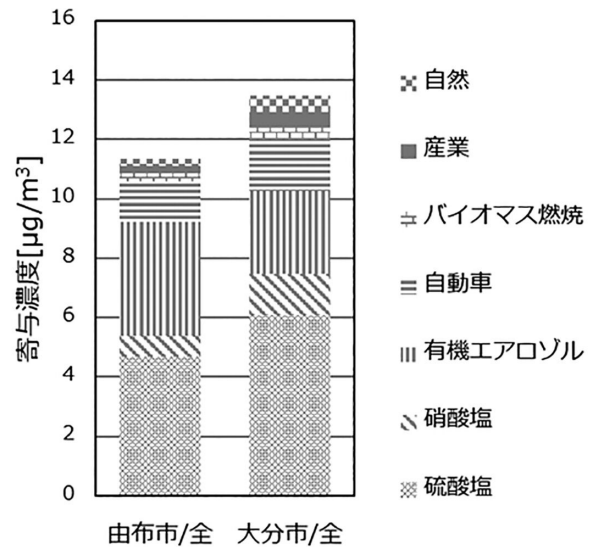


図18. 因子寄与濃度の比較

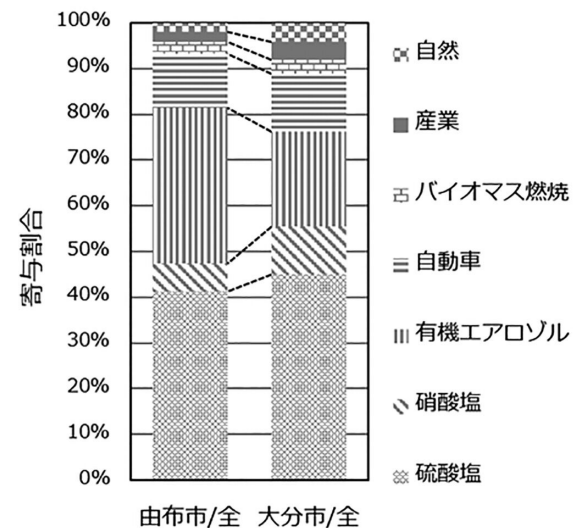


図19. 因子寄与割合の比較

寄与濃度について、『有機エアロゾル』以外は由布市よりも大分市の方が高いという結果が得られた。寄与割合で比較しても寄与濃度と同じく『有機エアロゾル』以外は大分市の方が高いという結果が得られた。

3 後方流跡線解析結果について

3.1 月別の後方流跡線解析結果

大分市における $35\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上のPM2.5が観測されたときの後方流跡線解析結果を以下に示す。

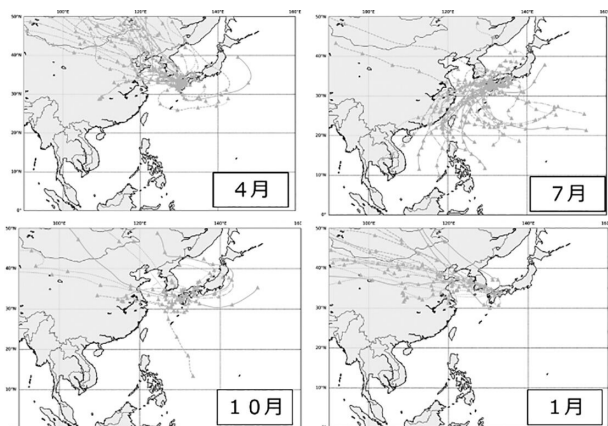


図20. 後方流跡線解析結果（大分市起点）

図20より季節によって高濃度のPM_{2.5}観測時の気塊の輸送経路が異なっていることが分かる。4月（春）及び1月（冬）は東アジア方面、7月（夏）は海側から気塊が多くやってきていることが分かる。

3.2 領域別流跡線通過割合

領域別流跡線通過割合の解析結果を示す。

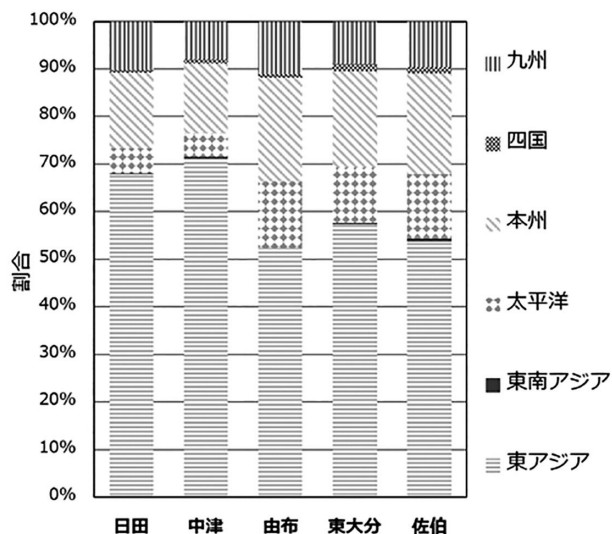


図21 各地点における流跡線通過割合

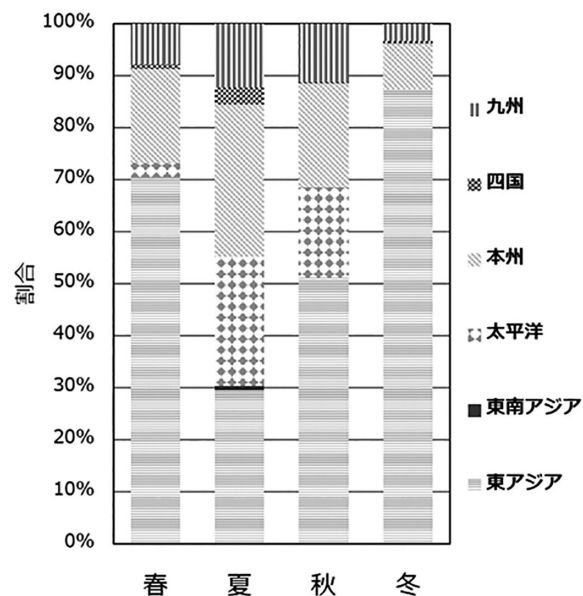


図22 大分市における季節別流跡線通過割合

図21、図22より全体的な特徴としてPM_{2.5}高濃度時は東アジア由来の流跡線が多く、春または冬にその傾向が強くなっていた。また、逆に夏は東アジアを通過する割合が小さくなり、太平洋、本州及び四国由来の流跡線が多くなっていた。他の地点においても大分市と同様の季節的特徴が確認された。地点ごとの特徴として、中津市や日田市といった比較的中國大陸に近い場所に位置する地点は東アジアを通過する流跡線の割合が大きく、佐伯市、大分市といった太平洋に面している地点は太平洋を通過する流跡線の割合が大きく、大分市や佐伯市において四国を通過する流跡線の割合が大きいという結果が得られた。また、由布市は太平洋に面していないが太平洋を通過する流跡線の割合が多かった。

3.3 瀬戸内地域等からの移流の影響について

指定した領域と各地点における瀬戸内地域を通過した回数のカウント数と全体に対する割合を示す。

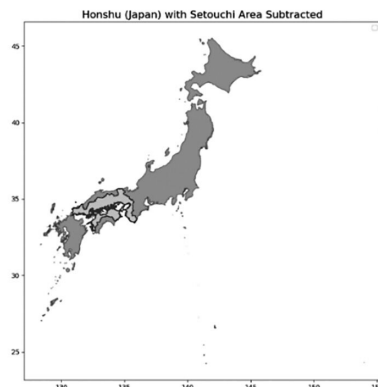


図23. 指定領域について（瀬戸内地域）

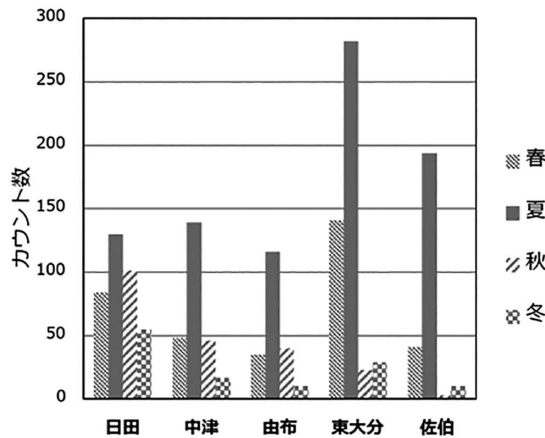


図24. 瀬戸内地域のカウント数

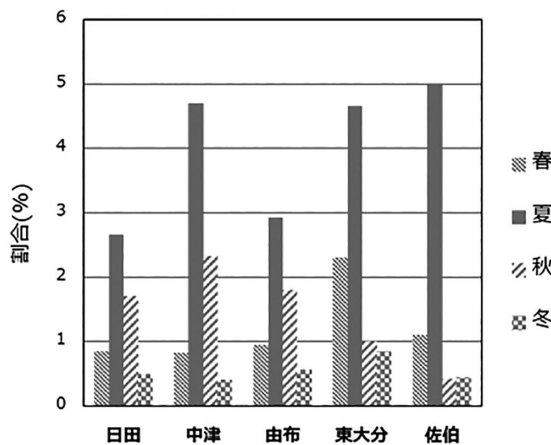


図25. 全体に対する瀬戸内地域を通過した割合

図24、25よりカウント数及び割合は全地点的に夏季に増加する傾向にあった。また、地点別にみると大分市で最も多くなり、全体に対する割合は中津市、大分市、佐伯市で増加する傾向にあった。

4 考 察

4.1 大分県における越境汚染の影響について

レセプターモデル（PMF法、CMB法）による解析結果（図11、図13、図14、図15）より、大分県内において『硫酸塩』の寄与が最も高いことが分かった。『硫酸塩』は主に硫黄分を含む化石燃料の燃焼によって発生した二酸化硫黄（ SO_2 ）が大気中で光化学反応を起こすことで生成（二次生成）し、主に国外等からの越境汚染により濃度が増加する。従って大分県内においては越境汚染の寄与が最も高いと推察される。また、CBPF解析結果（図6～図9）から春季及び冬季は西側の方角の寄与が高く、後方流跡線解析結果（図22）より春季及び冬季は東アジア由来の流跡線の割合が多かったことから、県内において春季及び冬季に $\text{PM}_{2.5}$ が高濃度となるときは

越境汚染由来の可能性が高いと推察できる。中国等の国外における $\text{PM}_{2.5}$ 濃度と SO_2 濃度の推移を調べたところ、2020年頃までにかけて大きく減少傾向にあった。また、石炭及び石油の消費量は増加傾向にあるが、 SO_2 排出量は減少傾向にあることから、環境対策等の効果が表れていると考えられる。従って大分県内の $\text{PM}_{2.5}$ が減少傾向にある主な要因として、 $\text{PM}_{2.5}$ 中の硫酸塩の減少つまり中国等の環境対策による東アジアからの越境汚染の減少が考えられる。

4.2 越境汚染以外の影響について

レセプターモデルによる解析結果より、越境汚染以外の発生源（鉄鋼、C重油等）も推定されたことから、越境汚染ほどではないが地域内（県内及び県外）からの影響も受けていると推察される。中津市、佐伯市、大分市における夏季の $\text{PM}_{2.5}$ のCBPF解析より沿岸部の方角の寄与が高く、後方流跡線解析結果からも夏季に本州や四国（瀬戸内地域）由来の流跡線の割合が増えることから、夏季は偏西風の影響が小さく、海風が吹きやすいため沿岸部の固定発生源や瀬戸内工業地域等からの影響を受けやすくなったと推察される。日田市は特に冬季に $\text{PM}_{2.5}$ 濃度が高くなる傾向にあり、CBPF解析結果より無風時の寄与が高いことから、日田市は盆地で大気が滞留しやすくなり高濃度化したと推察される。最後に由布市はCBPF解析の結果、大分市側の方角の寄与が高く、後方流跡線解析結果から $\text{PM}_{2.5}$ 高濃度時は太平洋由来の流跡線が比較的多かったことから、瀬戸内地域または大分市等から大分川に沿って汚染物質等の移流が起こったのではないかと推察される。

CMB解析において『有機エアロゾル』の割合が『硫酸塩』に次いで高い結果となった。『有機エアロゾル』とは数万種以上の有機化合物のことを示しており、人為起源や植物起源など発生源や生成過程が複雑であるため原因を特定するのは非常に難しい。過去当センターにおいて有機エアロゾルの一種であるバイオマス燃焼の指標であるレボグルコサンを測定しており、由布市において秋季、冬季に濃度が上昇することが確認されている²⁶⁾。従って秋冬の有機エアロゾルの発生要因の一つにバイオマス燃焼が考えられるが、その他の原因について考察するためにはレボグルコサン以外の有機マーカーを分析する必要がある。

4.3 大分県におけるPM_{2.5}高濃度要因の考察

2022年度⁵⁾、2023年度⁶⁾、本稿の調査研究において大分県内において春季、夏季、冬季にPM_{2.5}濃度が増加する傾向にあることが分かった。これらの要因について以下のように考察した。

4.3.1 春季及び冬季の高濃度要因の考察

春季は偏西風、冬季は季節風の影響により大陸（東アジア等）から大気汚染物質の移流が起きやすくなる。中国等では日本よりも高濃度の汚染物質が観測されている。排出された二酸化硫黄（SO₂）は大気中を移送する過程でアンモニアガスと反応（光化学反応）することにより『硫酸塩』（硫酸アンモニウム）を生成し移流する。さらに、排出された揮発性有機化合物（VOC）も大気中を移送する過程で二次生成（光化学反応）等によって『有機エアロゾル』となり移流する。また、黄砂の飛来も起きやすく、中国都市部を通過時に大気汚染物質を取り込む可能性がある。

冬季はボイラー等の燃焼により窒素酸化物（NO_x）の排出量が増加しやすい。NO_xもSO₂と同様に大気中を移送する過程でアンモニアガスと反応（光化学反応）し『硝酸塩』（硝酸アンモニウム）を生成し移流する。『硝酸塩』は気温が高いと揮発性が高いためガス化（硝酸ガス化）するが、冬季は『硝酸塩』が粒子化しやすい²⁷⁾ため『硝酸塩』の割合及び濃度が増える。また、地域内においてもNO_xの排出量が増えるためNO_xの二次生成（粒子化）による汚染も起きやすい。また、県内において日田市は冬季に濃度が高くなりやすく、原因としては盆地による大気の滞留、バイオマス燃焼、硝酸塩の影響が推察される。また、特にバイオマス燃焼に関しては既報²⁶⁾より日田市で秋季及び冬季に比較的高濃度のレボグルコサンが観測されやすい傾向にあった。

以上のことから春季は主に硫酸塩や黄砂等による越境汚染、冬季は硫酸塩や硝酸塩等による越境汚染や地域内汚染によって高濃度化しやすくなると考察される。また、大分県内において越境汚染は大陸に近い地点（県西部）ほど影響を受けやすくなると推察される。

4.3.2 夏季の高濃度要因の考察

夏季は季節風（海風）の影響で相対的に越境汚染の影響は小さくなる。しかしながら夏季は光化学反

応が活性化するため、SO₂やVOCの二次生成反応（光化学反応）による粒子化が起きやすくなる²⁸⁾。例えば瀬戸内地域及び県内沿岸部の工場や船舶等からSO₂やVOCが排出された場合、二次生成反応によって『硫酸塩』や『有機エアロゾル』への粒子化が起き、海風に乗って県内へ移流する可能性が考えられる。また、火山活動等によって発生したSO₂も粒子化する可能性も考えられる。

以上のことから、夏季にPM_{2.5}が高濃度化するときは越境汚染以外の要因（SO₂やVOCの二次生成）が考えられる。また、大分県内において夏季は沿岸部に位置する地点ほど高濃度化しやすい傾向にあった。さらに由布市は沿岸部に位置していないが、夏季に濃度が高くなる傾向にあった。理由としては夏季の海風が川に沿って流れ、大気汚染物質もその流れに沿って移流していることが考察される。

おわりに

大分県のPM_{2.5}は越境汚染の減少に伴い年々濃度が減少傾向にあるが、2024年4月に10年ぶりに注意喚起が発令されたように、黄砂等の悪条件が揃うと濃度が一時的に増加し、人々の健康に悪影響を及ぼす危険性があるため今後も注意が必要である。

PM_{2.5}に関して、発生源解明及び発生源対策に向けた行政施策等を定める際の基礎資料とするために、今後もデータを蓄積し継続して解析を実施する必要がある。また、今回解析に用いた手法は光化学オキシダント等の他の大気汚染物質にも応用が可能である。

謝辞

本調査の遂行にあたり多くの方々にご指導ご鞭撻を賜りました。

大分市環境部環境対策課の皆様にはPM_{2.5}成分分析データを提供していただきました。ここに深謝の意を表します。

後方流跡線解析に関してⅡ型共同研究を通して福岡市保健環境研究所環境科学課大気担当島田友梨氏にご助言等を賜りました。心より感謝申し上げます。

最後にPM_{2.5}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) 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)
- 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(2016),大分県衛生環境研究センター年報,44,45-55(2016)
- 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(2017),大分県衛生環境研究センター年報,45,52-68(2017)
- 4) 末松久枝 他：PM_{2.5}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)
- 5) 甲斐太郎 他：大分県におけるPM_{2.5}成分の解析と発生源由来等の調査,大分県衛生環境研究センター年報,50,65-83(2022)
- 6) 甲斐太郎 他：大分県におけるPM_{2.5}の特徴と発生源由来等の推定について,大分県衛生環境研究センター年報,51,65-80(2023)
- 7) 環境展望台：大気汚染常時監視データ<https://tenbou.nies.go.jp/download/>(参照2024-09-03 アクセス)
- 8) 気象庁：過去の気象データ・ダウンロード,<https://www.data.jma.go.jp/risk/obsdl/index.php>(2025-03-25 アクセス)
- 9) 中国環境保護部：中国生態環境速報<https://www.mee.gov.cn/hjzl/sthjzk/zghjzkgb/>(2025-03-25アクセス)
- 10) 韓国環境省：大気環境年報(2023),27,2024
- 11) 中国国家统计局：中国統計年鑑,中国統計出版社
- 12) Carslaw, D.C. and K. Ropkins : openair - An R package for air quality data analysis. Environmental Modelling & Software, 27-28, 52-61(2012)
- 13) Carslaw, D.C. : The openair manual - open-source tools for analysing air pollution data. Manual for version 2.6-6, King' s College London(2019)
- 14) Uria-Tellaetxe, I. and Carslaw, D.C. : Conditional bivariate probability function for source identification. Environmental Modelling & Software, 59, 1-9(2014)
- 15) 平成23年7月 環境省 水・大気環境局：微小粒子状物質(PM_{2.5})の成分分析ガイドライン
- 16) 環境省：大気中微小粒子状物質(PM_{2.5})成分測定マニュアル
- 17) 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)
- 18) United States Environmental Protection Agency : EPA Positive Matrix Factorization(PMF)5.0 Fundamentals and User Guide,17
- 19) 統計数理研究所 学術研究リポジトリ : https://ismrepo.ism.ac.jp/?action=pages_view_main&active_action=repository_view_main_item_detail&item_id=32744&item_no=1&page_id=13&block_id=21
- 20) 東京都微小粒子状物質検討会：東京都微小粒子状物質検討会報告書 (2011)
- 21) 環境省：微小粒子状物質 (PM_{2.5}) の質量濃度及び成分測定 (手分析) 結果, <https://www.env.go.jp/air/osen/pm/monitoring.html> (2025-03-25 アクセス)
- 22) NOAA : Air Resources Laboratory, https://www.ready.noaa.gov/HYSPLIT_traj.php (2025-03-25 アクセス)
- 23) 田崎盛也：Pythonによる流跡線解析、沖縄県衛生環境研究所報,56,78-101 (2022)
- 24) 牧原秀明 他：閉鎖性海域周辺地域における微小粒子状物質 (PM_{2.5}) に関する研究,愛知県環境調査センター年報,48,29-35 (2020)
- 25) 板橋秀一 他：ドローンによる瀬戸内地域における海面上PM_{2.5}鉛直濃度分布の測定と高濃度化要因の考察,大気環境学会誌,57 (6) ,129-138 (2022)
- 26) 甲斐太郎 他：大分県におけるレボグルコサン濃度の特徴について, 全国環境研誌,49(3),45-50 (2024)
- 27) Nakatsubo, R et al. : Estimate of regional and broadbased sources for PM_{2.5} collected in an industrial area of Japan, Asian J. Atmos. Environ., 8, 126—139 (2014).
- 28) Heo, J et al. : Source apportionment of PM_{2.5} in Seoul, Korea. Atmos. Chem. Phys., 9, 4957—4971 (2009).