

大気常時監視データの因子分析によるPM_{2.5}高濃度要因の推定

谷口 延子 高倉 尚枝 大竹 秀平* 日置 正

Presumption of PM_{2.5} High Concentration Factor by Factor Analysis of the Air Quality Monitoring Data

Nobuko TANIGUCHI Naoe TAKAKURA Syuhei OTAKE* Tadashi HIOKI

京都府及び京都市における微小粒子状物質 (PM_{2.5}) 質量濃度の高濃度要因を明らかにするため、2013年度の大気常時監視測定結果を用いて因子分析を行ったところ、2つの因子が抽出され、「光化学二次生成」、「近傍の一次生成及び光化学反応が関与しない二次生成」と解釈した。また、因子分析で得られた因子得点を説明変数、PM_{2.5}質量濃度を目的変数として重回帰分析を行い、それぞれの因子のPM_{2.5}質量濃度に対する寄与を推定したところ、夏季の午後には「光化学二次反応」によりPM_{2.5}質量濃度が上昇し、都市域では夏季の午前及び冬季に「近傍の一次生成又は光化学反応が関与しない二次生成」によるPM_{2.5}の高濃度が生じたと推定した。

キーワード：微小粒子状物質、常時監視、因子分析

key words : PM_{2.5}, Air quality monitoring, Factor analysis

はじめに

京都府では2009年度よりPM_{2.5}の測定を開始し、2015年4月1日現在、京都府18局、京都市11局の計29局において24時間365日監視を行っている。投稿日現在で、京都府内においてPM_{2.5}の注意喚起が発令されたことはないが、2013年度の京都府大気汚染常時監視測定結果によれば、有効測定日数（年間250日以上）を満たした測定局28局のうち24局で環境基準非達成であった（京都府文化環境部環境・エネルギー局環境管理課、平成26年8月7日、平成25年度環境常時監視測定結果等について、<http://www.pref.kyoto.jp/kankyo-ka/news/press/2014/8/25jyokan.html>）。環境基準は長期基準（年平均値15 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）及び短期基準（日平均値35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）の両方を満たした場合に達成と規定されているが、非達成局の内訳を見ると、長期基準及び短期基準のいずれも非達成であった測定局が10局、長期基準は達成したが短期基準が非達成であった測定局が14局であった。PM_{2.5}に関しては、越境大気汚染による短期基準の超過が話題になることが多いが、国内汚染の影響も無視できず、現時点では越境大気汚染と国内汚染の影響が輻輳している状況にある。そこで本研究では、大気常時監視の通年測定結果を用い、飯島¹⁾の方法を参考に、京都府内で観測されたPM_{2.5}高濃度事象に寄与する因子を抽出し、各因子のPM_{2.5}寄与濃度を推定した。通年測定結果のような大量のデータを取り扱う解析においては、越境汚染のようにPM_{2.5}濃度が高くても事例数が少ない事象は、個別の因子として抽出される可能性が低くなる傾向があり、本研究も、観測事例の多い国内汚染に起因する光化学二次生成や初冬期の二次生成に着目した解析となる。

（平成27年7月31日受理）

* 京都市衛生環境研究所

* Kyoto City Institute of Health and Environmental Sciences

調査方法

1. 調査項目及び地点

調査地点は、京都府及び京都市所管局のうち、PM_{2.5}、一次生成の指標成分である二酸化硫黄 (SO₂) 及び窒素酸化物 (NO_x)、二次生成の指標成分である光化学オキシダント (Ox) の4項目が揃う府中北部（京丹後、東舞鶴、福知山、亀岡）、京都市（壬生、山科、西京）、府南部（向陽、久御山、木津）の計10局を選定した。これらの配置を図1に示す。「はじめに」で述べた環境基準の達成状況を個別に示すと、短期基準は全局で非達成、長期基準は山科、西京、久御山で非達成であった。

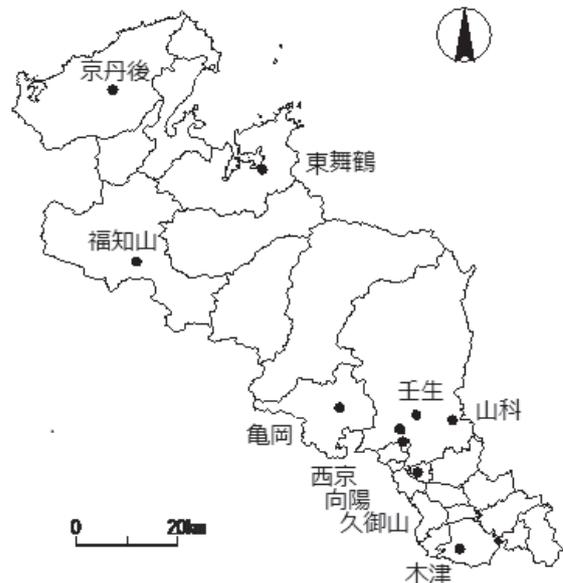


図1. 解析対象測定局の配置図

2. 調査期間

2013年4月1日1時から2014年3月31日24時までの1時間値を解析対象とした。測定機の保守点検や故障等により欠測が生じるため、測定局及び測定項目により有効データ数は異なるが、いずれも環境省が定める有効測定時間 (PM_{2.5}は有効測定日数) を満たしていた。

3. 調査方法

2013年度に京都府及び京都市が実施した大気汚染常時監視測定結果より、上記1で示した10局についてデータセットを構築した。因子分析に供した測定結果の統計値を表1に示す。なお、PM_{2.5}自動測定機の機種は、京都府 (福知山局を除く) は紀本電子工業 (株) 製PM-712、福知山局は (株) 堀場製作所製APDA-3750、京都市はすべて東亜ディーケーケー (株) 製FPM-377である。

まず、測定局近傍に特異なPM_{2.5}発生源の有無を確認するために、PM_{2.5}について測定局間相関分析を行った。次に、PM_{2.5}の環境動態を決定する因子を明らかにするため、PM_{2.5}、SO₂、NO_x、O_xの測定値を用いて因子分析を行った。ただし、O_xの主成分であるO₃はNOとの反応により消失するため、O_xの代わりに、下に示す(1)式で求めたポテンシャルオゾン(PO)を用いた。

$$[PO] = [Ox] + [NO_2] - \alpha \times [NOx] \quad (1)$$

α 値は先行研究²⁾等で汎用されてきた0.1を用いた。因子分析で得られた因子得点を説明変数、PM_{2.5}質量濃度を目的変数として重回帰分析を行い、それぞれの因子のPM_{2.5}寄与濃度を計算した。統計解析ソフトはSPSS Statistics 22を用いた。

結果及び考察

1. 相関分析

PM_{2.5}について測定局間の相関係数を表2に示す。2012年度³⁾と同様にすべての局間で高い相関を示しており、測定局近傍に特異なPM_{2.5}発生源がないことを確認した。

2. 因子分析

主因子法により抽出された2つの因子の因子行列を表3に示す。2つの因子で4項目の全分散の48%が説明された。因子1の指標成分はPO及びSO₂であり、「光化学二次生成」を表す因子と解釈した (以下、F1とする)。京都府が実施したPM_{2.5}成分調査結果では、夏季の光化学二次生成時にはPM_{2.5}中の (NH₄)₂SO₄が大幅に増加する⁴⁾ことからSO₂はその前駆物質としてPM_{2.5}の生成に関与していると考えられた。因子2の指標成分はNO_xと読み取れ、「近傍の一次生成 + 光化学反応が関与しない二次生成」を表す因子 (以下、F2とする) と解釈した。光化学反応が関与しない二次生成としては、夜間の硝酸 (HNO₃) の生成⁵⁾があげられる。

各測定局において、日平均値が35 μ g/m³を超過した日の因子得点の平均を図2に示す。測定局間の差は小さいため、短期基準超過の原因は主に広域汚染によるものと考えられる。F2よりもF1の方がより差が小さいことから、F1の方がより広域的な汚染を表す因子であるとも言える。しかし、詳細に比較すると、図3に示すようにF1及びF2の両方が低い府中北部グループと、両方が高い京都市及び府南部のグループに分類された。京都市及び府南部が高くなる原因は地理的及び社会的条件から都市汚染によるものと考えられた。なお、京都

表1. 2013年4月1日から2014年3月31日までの京都府内各測定局における測定結果(1時間値)の統計量

測定項目名	微小粒子物質 (PM _{2.5}) μ g/m ³					二氧化硫 (SO ₂) ppm					窒素酸化物 (NO _x) ppm					ポテンシャルオゾン (PO) ppm					
	測定局名	測定時間数	平均値	25 th -パーセンタイル	中央値	75 th -パーセンタイル	35 μ g/m ³ 超過時間数	測定時間数	平均値	25 th -パーセンタイル	中央値	75 th -パーセンタイル	測定時間数	平均値	25 th -パーセンタイル	中央値	75 th -パーセンタイル	測定時間数	平均値	25 th -パーセンタイル	中央値
京丹後	8601	11.9	5	10	16	253	8632	0.001	0.001	0.001	0.001	8627	0.004	0.003	0.004	0.005	8580	0.036	0.024	0.037	0.046
東舞鶴	8566	13.0	6	11	17	308	8676	0.001	0.001	0.001	0.002	8748	0.009	0.004	0.006	0.011	8644	0.035	0.022	0.034	0.045
福知山	8698	14.9	7	13	20	465	8754	0.003	0.002	0.003	0.003	8677	0.008	0.004	0.006	0.009	5986	0.036	0.021	0.035	0.049
亀岡	8684	14.9	7	13	20	409	8675	0.002	0.001	0.001	0.002	8687	0.011	0.004	0.008	0.014	8626	0.036	0.023	0.035	0.045
壬生	8648	14.6	7	13	20	385	8640	0.004	0.003	0.004	0.005	8273	0.015	0.007	0.011	0.018	8081	0.042	0.032	0.040	0.049
山科	8646	16.1	9	14	21	531	8686	0.004	0.003	0.004	0.005	8128	0.017	0.008	0.013	0.021	8099	0.041	0.031	0.039	0.048
西京	8651	16.3	9	14	22	537	8689	0.004	0.003	0.004	0.005	8661	0.014	0.006	0.009	0.017	8611	0.041	0.031	0.039	0.049
向陽	8732	13.7	6	11	19	347	8756	0.004	0.003	0.004	0.004	8752	0.015	0.005	0.010	0.019	8696	0.041	0.031	0.039	0.048
久御山	8661	16.1	8	14	22	515	8706	0.004	0.003	0.004	0.005	8665	0.022	0.007	0.014	0.029	7777	0.042	0.031	0.040	0.050
木津	8693	14.3	7	12	19	347	8744	0.003	0.002	0.002	0.003	8715	0.011	0.005	0.008	0.014	8654	0.038	0.025	0.037	0.048

*[ポテンシャルオゾン (PO)] = [光化学オキシダント (O_x)] + [二氧化硫 (NO₂)] - α × [窒素酸化物 (NO_x)], α 値は先行研究²⁾で汎用されてきた0.1を用いた。

表2. 2013年4月1日から2014年3月31日までの京都府内各測定局におけるPM_{2.5}(1時間値)の測定局間相関係数

	京丹後	東舞鶴	福知山	亀岡	壬生	山科	西京	向陽	久御山	木津
京丹後		0.863	0.825	0.773	0.731	0.725	0.740	0.763	0.720	0.731
東舞鶴			0.875	0.812	0.791	0.788	0.800	0.814	0.771	0.763
福知山				0.859	0.821	0.815	0.831	0.854	0.814	0.800
亀岡					0.878	0.854	0.877	0.913	0.887	0.861
壬生						0.897	0.923	0.918	0.885	0.844
山科							0.908	0.899	0.882	0.848
西京								0.927	0.889	0.840
向陽									0.935	0.879
久御山										0.879
木津										0.889

表3. バリマックス回転後の因子行列

測定項目	1	2
微小粒子状物質 (PM _{2.5})	0.562	0.284
二酸化硫黄 (SO ₂)	0.670	0.281
窒素酸化物 (NOx)	0.065	0.634
ポテンシャルオゾン [*] (PO)	0.707	-0.262

^{*}[ポテンシャルオゾン(PO)]=[光化学オキシダント(Ox)]+[二酸化窒素(NO₂)]-α×[窒素酸化物(NOx)], α値は先行研究等²⁾で汎用されてきた0.1を用いた。

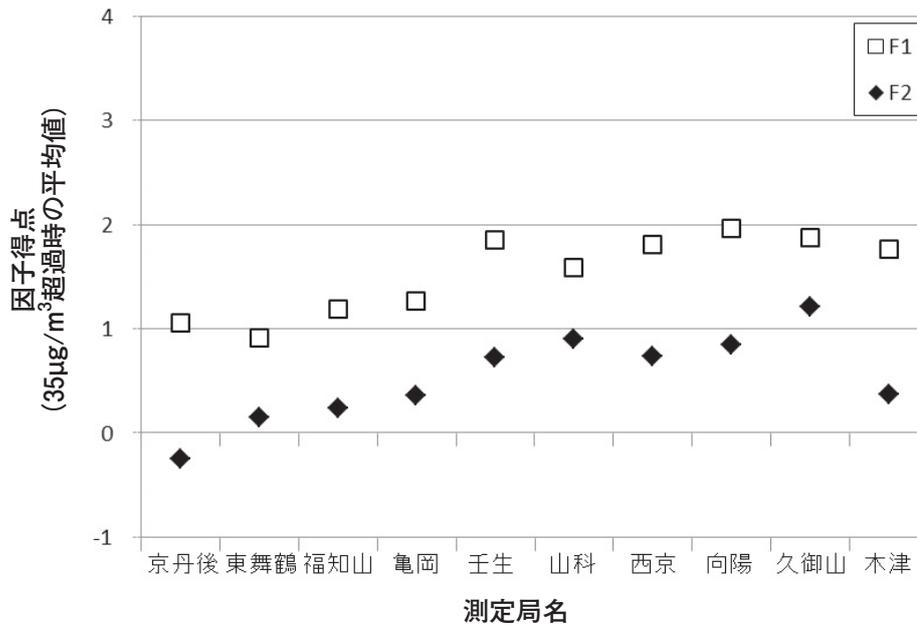


図2. PM_{2.5}日平均値が35µg/m³を超過した日の因子得点の測定局別平均値。

□F1：光化学二次生成を表す因子、◆F2：近傍の一次生成+光化学反応が関与しない二次生成を表す因子。

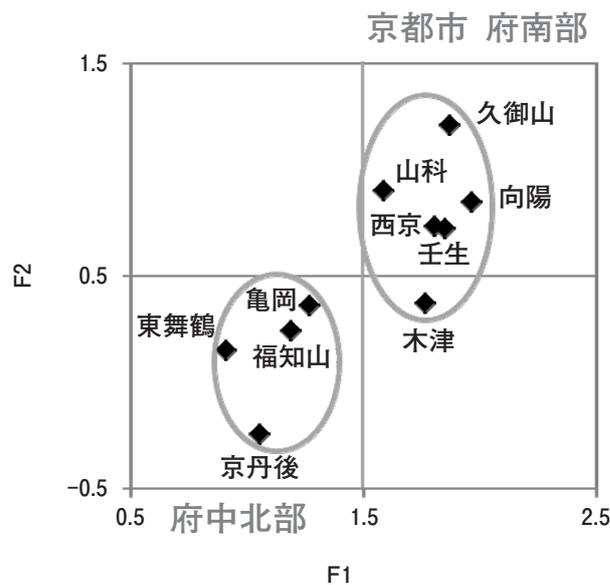


図3. PM_{2.5}日平均値が35µg/m³を超過した日の因子得点の測定局別平均値の散布図。

F1：光化学二次生成を表す因子、F2：近傍の一次生成+光化学反応が関与しない二次生成を表す因子。

市及び府南部グループの中で木津のF2が他局より低かったのは、周辺に発生源が少ないためと考えられた。久御山局のF2が他局より高かったのは、周辺に多くの工場が立地し、かつ測定局を中心とした半径1-2kmの範囲内で四方を幹線道路に囲まれていることから、これらの発生源による影響が示唆された。

3. 重回帰分析

PM_{2.5}実測値を目的変数、F1及びF2の因子得点を説明変数とした重回帰式を用いて各因子のPM_{2.5}寄与濃度を推定した。図4及び図6に、夏季及び初冬季で観測された高濃度事例について、PM_{2.5}実測値、重回帰分析により再計算したPM_{2.5}寄与濃度の総和及び各因子のPM_{2.5}寄与濃度を示す。

3-1. 夏季の高濃度事例

久御山局、木津局、京丹後局における、8月7日から13日までのPM_{2.5}実測値、PM_{2.5}寄与濃度の総和及び各因子のPM_{2.5}寄与濃度を図4に示す。実線がPM_{2.5}実測値で、点線がPM_{2.5}寄与濃度の総和である。各因子のPM_{2.5}寄与濃度を棒グラフで示す。下からF2のPM_{2.5}寄与濃度（以下、F2-PM_{2.5}とする）、F1のPM_{2.5}寄与濃度（以下、F1-PM_{2.5}とする）の順に積み上げた。

期間中は、8月10日の天気図（図5 気象庁ホームページ、日々の天気図、<http://www.data.jma.go.jp/fcd/yoho/data/hibiten/2013/1308.pdf>）にみられるように、太平洋高気圧に覆われ、晴れて高温の日が続いた。久御山局における最高気温は35.9℃（8月7日）から38.5℃（8月11日）を記録した。PM_{2.5}は、8月9日から11日の午後には最高54~59μg/m³まで上昇した。各日の11時頃から17時頃までの風向は主に南西から西南西、風速は1.7~5.1m/sであった。夜間もPM_{2.5}が35μg/m³をやや超過する状態が継続した。夜間の大気は安定していた。各因子のPM_{2.5}寄与濃度は、午前中はF2-PM_{2.5}が卓越し、午後はF1-PM_{2.5}が卓越していた。つまり、午前中は周辺発生源に起因するPM_{2.5}の生成と蓄積があり、午後はPO及びSO₂が関与した光化学二次生成により(NH₄)₂SO₄を主成分とするPM_{2.5}が大量に生成したと考えられた。久御山局と木津局及び京丹後局を比較すると、いずれの局もF2-PM_{2.5}とF1-PM_{2.5}が交互に卓越していたが、F2-PM_{2.5}は前述のように久御山局が若干高くなっていた。F1-PM_{2.5}は久御山局と木津局が同程度であり、京丹後局は低かった。8月10日の昼間にPM_{2.5}が上昇した時間は、久御山局と木津局でPM_{2.5}実測値とPM_{2.5}寄与濃度の総和がよく一致しており、14時及び15時におけるF1-PM_{2.5}は、PM_{2.5}寄与濃度の総和の73%から75%を占めた。西京局及び向陽局においても同様の計算結果を得ており、F1-PM_{2.5}の高濃度は京都市以南で発生した広域汚染事象であったと言える。

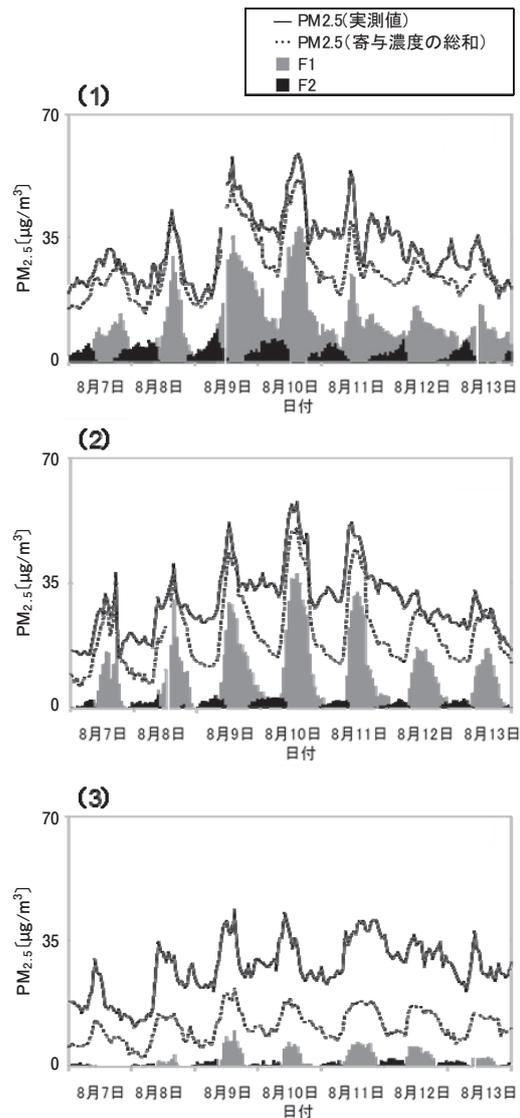


図4. 2013年8月7日から13日までのPM_{2.5}実測値、重回帰分析により計算したPM_{2.5}寄与濃度の総和及び各因子のPM_{2.5}寄与濃度。

■F1：光化学二次生成を表す因子、
■F2：近傍の一次生成+光化学反応が関与しない二次生成を表す因子。

(1) 久御山、(2) 木津、(3) 京丹後

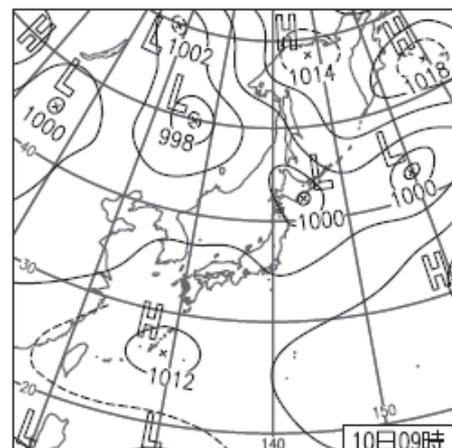


図5. 2013年8月10日の天気図 (気象庁ホームページより)

3-2. 初冬季の高濃度事例

久御山局、木津局、京丹後局における、12月1日から7日までのPM_{2.5}実測値、PM_{2.5}寄与濃度の総和及び各因子のPM_{2.5}寄与濃度を図6に示す。12月1日から6日午前まで晴れ又は曇りであったが、北部ではアメダス峰山及び舞鶴特別地域気象観測所で12月6日午後から降雨が観測され、南部の京都府地方気象台では12月7日午前からしゅう雨が観測された(気象庁. 過去の気象データ検索. <http://www.data.jma.go.jp/obd/stats/etrn/index.php>)。久御山局における期間中の最高気温は15.8℃(12月6日)、最低気温は1.2℃(12月1日)であった。PM_{2.5}質量濃度は、一時低下した時間もあったが、2日から6日にかけて概ね35µg/m³前後を推移した。この期間も夏季と同様に昼間の風向は南南西から南西、風速が0.4~5.4m/sであり、夜間の大気は安定していた。各因子のPM_{2.5}寄与濃度は、夜間から朝にかけてF2-PM_{2.5}が上昇し、午後からは夏季のようなF1-PM_{2.5}との入れ替わりはなく、F2-PM_{2.5}は低下した。12月2日から5日までの6時から8時の時間帯において、F2-PM_{2.5}は、PM_{2.5}寄与濃度の総和の59%から75%を占めた。風向風速が夏季と同傾向であり、昼間は南西からの流入が考えられるが、冬季は光化学反応が弱いいためF1-PM_{2.5}は夏季よりも少ない。12月2日、5日及び6日の午後にはPM_{2.5}質量濃度の上昇があり、これはF2-PM_{2.5}にF1-PM_{2.5}が上乘せされていた。木津局や京丹後局ではほとんどの時間で35µg/m³を下回っており、特にF2-PM_{2.5}が久御山局より低かった。久御山局が他局より高く35µg/m³前後で推移したのはF2-PM_{2.5}によるものと言える。

また、京丹後局で12月6日午後に観測された短時間のPM_{2.5}質量濃度の上昇は、兵庫県豊岡市役所局(兵庫県大気環境の状況. <http://www.kankyo.pref.hyogo.lg.jp/tai-ki/>)や東舞鶴局でもほぼ同時刻に観測されており、米国海洋大気庁(NOAA)による後方流跡線⁶⁾や12月6日の天気図(図7 気象庁ホームページ. 日々の天気図. <http://www.data.jma.go.jp/fcd/yoho/data/hibiten/2013/1312.pdf>)を参考にとすると、気圧の谷の東進に伴う越境汚染事象であった可能性が高い。各因子のPM_{2.5}寄与濃度をみると、PM_{2.5}質量濃度の上昇は、この前後には発現しなかったF1-PM_{2.5}の急上昇によるものであった。久御山局及び木津局においても同じ時間に濃度上昇がみられるが、この前後も比較的濃度が高いため、越境汚染による影響の度合いについて議論する事は難しい。

これらの解析からは、PM_{2.5}高濃度に寄与するF2及びF1の発生源地域が府内、他府県、あるいは海外かという判定を行うことは困難であるが、F2の指標成分であるNO_xの大気中化学反応が比較的早いことから、F2の発生源地域は府内、遠くても近畿圏内である可能性が高いと考えている。

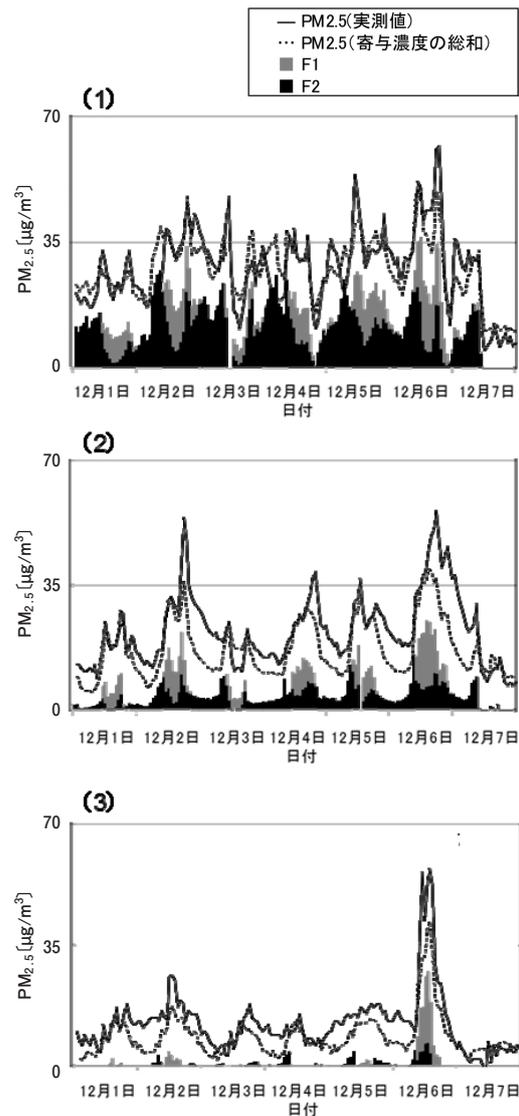


図6. 2013年12月1日から7日までのPM_{2.5}実測値、重回帰分析により計算したPM_{2.5}寄与濃度の総和及び各因子のPM_{2.5}寄与濃度。
 ■F1：光化学二次生成を表す因子、
 ■F2：近傍の一次生成+光化学反応が関与しない二次生成を表す因子。
 (1) 久御山、(2) 木津、(3) 京丹後

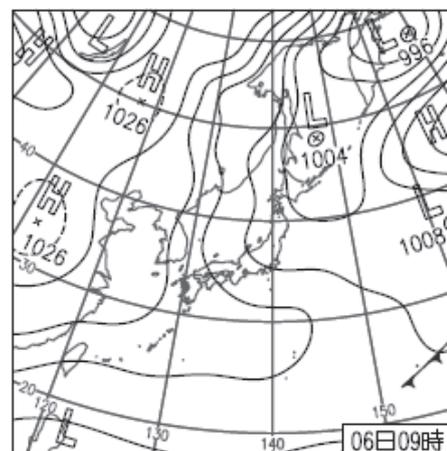


図7. 2013年12月6日の天気図
 (気象庁ホームページより)

謝辞

本研究は、府市連携PM2.5共同研究会において実施した。関係の皆様にご感謝申し上げます。

引用文献

- 1) 飯島明宏. 2013. 発生源プロファイルの刷新および複数のリセプターモデルの連携によるPM2.5発生源寄与推計. 環境省環境研究総合推進費5B-1101「全国環境研究機関の有機的連携によるPM2.5汚染の実態解明と発生源寄与評価」終了成果報告書, 23-51.
- 2) Itano Y, Bandow H, Takenaka N, Saitoh Y, Asayama A, Fukuyama J. 2007. Impact of NO_x reduction on long-term ozone trends in an urban atmosphere. *Science of the Total Environment*, 379, 46-55.
- 3) 高倉尚枝, 谷口延子, 平澤幸代, 日置正, 齋藤義弘. 2013. 京都府における微小粒子状物質 (PM_{2.5}) 質量濃度 (Ⅱ). 京都府保健環境研究所年報, 58, 51-55.
- 4) 高倉尚枝, 谷口延子, 平澤幸代, 日置正, 齋藤義弘. 2014. 京都府における微小粒子状物質 (PM_{2.5}) 成分組成. 京都府保健環境研究所年報, 59, 63-70.
- 5) 長谷川就一, 米持真一, 山田大介, 鈴木義浩, 石井克巳, 齊藤伸治, 鴨志田元喜, 熊谷喜美代, 城裕樹. 2014. 2011年11月に関東で観測されたPM_{2.5}高濃度の解析. *大気環境学会誌*, 49(6), 242-251.
- 6) Draxler, R. R. and Rolph, G. D., 2015. HYSPLIT (HYbrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory) Model access via NOAA ARL READY Website (<http://ready.arl.noaa.gov/HYSPLIT.php>). NOAA Air Resources Laboratory, Silver Spring, MD.