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

甲斐　太郎、河村　勇祐[※1]、河野　友彰[※2]、河野　公亮、安井　玉樹[※3]、山下　佳史

Investigation of Characteristics and Sources of $PM_{2.5}$ in Oita Prefecture

Taro Kai, Yusuke Kawamura, Tomoaki Kono, Kosuke Kawano, Tamaki Yasui, Yoshifumi Yamashita

Key Words：　微小粒子状物質$PM_{2.5}$，成分組成Chemical Composition，
正値行列因子分解Positive Matrix Factorization（PMF）

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、大分県内の$PM_{2.5}$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、大分県内における$PM_{2.5}$の特徴の考察及び発生源由来等の推定を試みた。解析の結果、大分県は春季及び夏季に濃度が増加する特徴があり、日田市のみ春季及び冬季に増加する特徴が確認された。春季は越境汚染（黄砂等）の影響、夏季は二次生成の活性化、日田市の冬季は硝酸塩及びバイオマス燃焼由来等の影響により濃度が増加する可能性が考えられた。

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[1)]。

大分県では、大気汚染防止法第22条に基づき$PM_{2.5}$の常時監視を県内各地点において実施している。図1に大分県及び大分市が管理している大気常時監視測定局（$PM_{2.5}$を測定している一般局）の配置図を示す。

当センターでは2015年10月から現在まで毎年2地点で4期間（春季、夏季、秋季、冬季）$PM_{2.5}$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[2,3,4)]で2015年度から2017年度に県内2地点における$PM_{2.5}$成分分析の解析結果を報告した。その結果、県内の2地点で$PM_{2.5}$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$PM_{2.5}$の環境基準超過の要因等を考察するためには、越境汚染や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」の指標成分のケイ素と「バイオマス燃焼」の指標成分のレボグルコサンを新たに測定するための測定方法を検討し、測定できる体制を整えた[5)]。また、昨年度の年報[6)]にて、大分県内4地点の成分分析結果を集約し発生源解析を実施した結果、地点毎に各発生源由来等の寄与率が異なり、大分県内全体では硫酸塩（越境汚染由来）及びバイオマス燃焼由来の寄与が大きいことを報告した。

$PM_{2.5}$の年平均値は減少傾向にあることから、$PM_{2.5}$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2024年4月19日に中津市・宇佐市にて約10年ぶりに注意喚起が発令される[7)]など、一時的に環境基準値を超過するレベルの高濃度日は発生している。また、近年新型コロナウイルスによる産業活動の制限が解除されつつあるため今後$PM_{2.5}$濃度が上昇することが懸念される。さらに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）」[8)]を公表し、$PM_{2.5}$の指針値を年平均10μg/m³から5μg/m³に、日平均を25μg/m³から15μg/m³に引き下げた。また、2024年2月7日にアメリカ環境保護庁（EPA）が$PM_{2.5}$の年間一次国家大気質基準（NAAQS）を現行の12μg/m³から9μg/m³に引き下げる規則変更案を発表した[9)]。従って現在の日本での環境基準値（年平均値15μg/m³、日平均値35μg/m³）未満であっても人の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

※１大分県生活環境部循環社会推進課
※２大分県福祉保健部西部保健所
※３大分県福祉保健部北部保健所

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性があると考える。そこで本稿では、$PM_{2.5}$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に、大気常時監視測定局のデータや$PM_{2.5}$成分分析結果を使用し、各種統計解析手法を活用して当県の$PM_{2.5}$の特徴及び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　大気常時監視局データの解析

1.1　使用したデータについて

大気常時監視データに関して、大分県管理10局分は2015年度～2022年度までのデータを、大分市管理分は2015年度～2021年度までの公表データ[10]を解析に用いた。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。解析には$PM_{2.5}$のデータだけではなく風向、風速等のデータも使用した。日田市の風向風速については解析に応じて2015年度～2021年度までの気象庁公表データ[11]を使用した。風向は16方位データを使用した。また、風向の『CALM』は『静穏』を意味し、大気常時監視局データでは風速0.4m/s以下、気象庁データでは風速0.2m/s以下の風を表している。

1.2　経年変化（年平均値、季節別平均値）

年平均値について、大分県管理分は大気常時監視測定局の2015年度から2022年度までの$PM_{2.5}$年平均値をプロットし、図2に示した。大分市管理分は2021年度までの年平均値を用い、6局（一般局）分の平均値をプロットした。また、季節別平均値は2015年度～2021年度の中津市、大分市(東大分)、佐伯市、日田市、由布市、大分県（県内全局の平均値）における$PM_{2.5}$の1時間値について季節別に平均値を算出し、図3に示した。

1.3　$PM_{2.5}$濃度と風向、風速の関係性について

中津市、大分市（東大分）、佐伯市、日田市の4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「風向風速別平均濃度」、「CBPFプロット」、「$PM_{2.5}$高濃度時の風向頻度」の3つの図を作成し、地点ごとの特徴や発生源に関する考察を行った。日田市についてのみ「風向風速別平均濃度」、「CBPFプロット」の作図には気象庁の風向風速データを使用した。これら3つの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、図4～7に示した。「風向風速別平均濃度」、「CBPFプロット」及び「$PM_{2.5}$高濃度時の風向頻度」は季節ごとに作図した。また、「$PM_{2.5}$高濃度時の風向頻度」についてここでは、$PM_{2.5}$の1時間値が日平均値の環境基準値（35μg/m³）を超えたときの風向頻度とした。

1.4　CBPF解析について

「CBPFプロット」を作成するため、CBPF解析を用いた。CBPF（Conditional Bivariate Probability Function）解析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時間値が上位25%の場合の風向$\theta$及び風速uの数、$n_{\Delta\theta,\Delta u}$は風向$\theta$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),13),14)]。

2　$PM_{2.5}$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（$PM_{2.5}$）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。今回の解析には主に中津市、大分市、佐伯市、日田市、由布市の結果を用いた。また、大分市のデータは公表データ[17)]又は提供データを用いた。表1に成分分析実施地点とサンプリング期間を示す。

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30L/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年報[6)]と同じである。

2.2　$PM_{2.5}$成分の経年変化及び成分割合

当センターで継続的に採取・分析を実施している由布市の2015年度秋季～2023年度冬季までの成分分析データを使用して年度季節毎の平均値を算出し、図8に示した。中津市、佐伯市、日田市の経年変化については昨年度の年報[6]に結果を示している。

2.3　PMF解析（発生源解析）

2.3.1　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[18]。

計算にはEPA　PMF5.0[19]を使用した。解析結果は図9～12に示した。

2.3.2　データセットの作成

データには中津市、大分市、佐伯市、日田市で採取した$PM_{2.5}$の成分分析データを用いた。中津市、佐伯市、日田市は当センターで分析した結果を、大分市は公表データ[17]又は提供データを使用した。昨年度の年報[6]での作成方法とは異なり、本稿では地点毎にデータセットを作成した。

2.4　CPF解析について

CPF（Conditional Probability Function）法[20),21)]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。風向は大分県の大気常時監視測定局のデータ（16方位データ）等を使用した。地点（中津市、大分市、佐伯市、日田市）ごと、発生源ごとに解析を行い、結果は図13～16に示した。今回の解析では発生原因子の寄与率が上位25％の場合の各方角の風向の数と総数を使用した。

結　果・考　察

1　大分県内の$PM_{2.5}$の特徴について

1.1　大分県全体の傾向について

大分県全体の$PM_{2.5}$の傾向として図3より春季と夏季に濃度が上昇するという特徴がある。春季に濃度が上昇する理由としては移動性高気圧等による大陸からの越境汚染の影響が考えられる。図2より$PM_{2.5}$の年平均値は年々減少傾向にあるが、これについては中国等の大陸側の$PM_{2.5}$濃度が年々減少している[22)]ことが理由の一つとして考えられる。夏季は越境汚染の影響が小さくなるが、大分県では図3より春季に次いで高濃度となっている。夏季に濃度が高くなる理由としては光化学反応の活性化による二次生成反応の促進[23)]の影響が考えられる。図4～7より夏季に高濃度の$PM_{2.5}$が観測されるときは海風が多い。大分県は沿岸部に固定発生源が多いため、海風が卓越する夏季に固定発生源から直接発生する$PM_{2.5}$もしくは二酸化硫黄、揮発性有機化合物等の前駆物質が光化学反応を起こして生成した$PM_{2.5}$の影響を受ける可能性や、活火山から放出される二酸化硫黄等の火山性ガスが光化学反応により二次生成した$PM_{2.5}$の影響を受けている可能性が考えられる。

次に$PM_{2.5}$成分の特徴について、図8より全季節通して硫酸イオン（SO_4^{2-}）と有機炭素（OC）の割合が多いことが分かる。硫酸イオンは主に二酸化硫黄の二次生成により硫酸塩が生成することで濃度が増加し、越境汚染により飛来する傾向にある。また、有機炭素は発生源からの一次発生と揮発性有機化合物からの二次生成の両方で生成し、越境汚染やバイオマス燃焼等の地域内汚染等、発生源は多岐にわたる。図8より硫酸イオン濃度が徐々に減少傾向にあるが、これは越境汚染による影響が小さくなっているためであると考える。しかしながら、有機炭素に関しては濃度が測定開始当初から減少があまりみられない。これは、有機炭素は一次発生、二次生成両方により発生するため、越境汚染の減少により濃度が減少したとしても地域内における二次生成等で濃度が増加している可能性が考えられる。硫酸イオン、有機炭素は夏季に濃度が増加する傾向にある。この理由については、夏季は光化学反応が活性化し二酸化硫黄や揮発性有機化合物の二次生成が促進されるためであると考える。次に硝酸イオン（NO_3^-）は冬季に濃度が増加する傾向にあることが分かる。この理由として冬季はボイラー等の使用量の増加によって二酸化窒素の排出量が増えるのと、硝酸塩は半揮発性のため冬に粒子化しやすい[24)]ためであると考える。アンモニウムイオン（NH_4^+）も図8より成分の割合が比較的多く、夏季と冬季に増加傾向にあることが分かる。この理由について夏季は硫酸アンモニウム粒子の生成、冬は硝酸アンモニウム粒子の生成が起こりやすいためであると考えられる。

また、図2より、$PM_{2.5}$の測定を開始した2015年度と2021年度を比べると中津市、大分市、佐伯市、日

田市の4地点は濃度の減少率が他地点と比べて小さいことが分かる。従ってこれら4地点は越境汚染以外の$PM_{2.5}$の高濃度要因があると思われる。

1.2　発生源解析結果について

PMF解析の解析結果を図9～図12に示した。解の安定性及び因子解釈を考慮し、発生源因子の数を決定した結果、地点ごとに因子数が異なった。図9～図12には地点ごとの発生源因子のプロファイル（組成情報）及び因子寄与の割合を示している。図9～図12の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、四角のマーカーはその因子に振り分けられた各成分の割合を示す。各因子について、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。因子分解できなかったものは『その他』とした。以下に地点ごとに結果を説明する。

中津市は図9より6つの因子に分けることができ、Factor1はNa^{+}、Mg^{2+}の割合が大きいため『海塩粒子』、Factor2はCl^{-}、NO_3^{-}の割合が大きいため『硝酸塩』、Factor3はCu、Cr、Mn、Fe、Ni、Zn等の割合が大きいため『鉄鋼工業』、Factor 4 はAl、Feの割合が大きいため『土壌』、Factor 6 はSO_4^{2-}、NH_4^{+}、V、Niの割合が高いため『硫酸塩（重油燃焼）』と解釈した。Factor5についてはまず、SO_4^{2-}、NH_4^{+}、As、Pb等の『石炭燃焼』系の指標成分の割合が高く、K^{+}、OC、EC等の『バイオマス燃焼』系の指標成分の割合も高かった。また、Fe、Cu、Sbといった『ブレーキ粉じん』系やZn等の『タイヤ粉じん』系、そしてECといった『自動車排気』系の指標成分も高かったことから、複数の因子が混在しているとみて、『硫酸塩（石炭燃焼）・バイオマス燃焼・自動車』と解釈した。

大分市は図10より7つの因子に分けることができ、Factor1はAl、Siの割合が大きいため『土壌』、Factor3はCl^{-}、NO_3^{-}の割合が大きいため『硝酸塩』、Factor4はSO_4^{2-}、NH_4^{+}の割合が大きく、V、Ni、As、Pbの割合が小さい（重油燃焼、石炭燃焼以外の発生源）ため『硫酸塩（その他）』、Factor5はNa^{+}、Mg^{2+}の割合が高いため『海塩粒子』、Factor6はSO_4^{2-}、NH_4^{+}、V、Ni、As、Pbの割合が高いため『硫酸塩（石油・石炭）』と解釈した。Factor2とFactor7はどちらも無機元素の割合が高かった。Factor2はFeやMnの割合が特に高く、Fe、Mn以外にもCa^{2+}、Cr、Zn等の割合が高いため、Factor2は『鉄鋼工業』と解釈した。Factor7はFactor2と比べてK^{+}、Cu、As、Sb、Pbの割合が特に高く、K^{+}、OC、EC等の『バイオマス燃焼』系の指標成分や、K^{+}、Cu、Cr、Zn、As、Sb等の『廃棄物焼却』系の指標成分の割合も高く、また、Zn等の『タイヤ粉じん』、Fe、Cu、Sb等の『ブレーキ粉じん』といった自動車系の指標元素の割合も高いため複数の発生源が混在していると思われる。また、SO_4^{2-}やNH_4^{+}の割合がほとんどゼロであることから一次発生系（排出源から直接排出される）$PM_{2.5}$であると推察される。従ってFactor 7は『一次発生（バイオマス燃焼・廃棄物焼却・自動車等）』と解釈した。

佐伯市は図11より5つの因子に分けることができ、Factor1はNa^{+}、Mg^{2+}の割合が大きいため『海塩粒子』、Factor2はCl^{-}、NO_3^{-}の割合が大きいため『硝酸塩』、Factor3はSO_4^{2-}、NH_4^{+}、V、Ni、As、Pbの割合が大きいため『硫酸塩（石油・石炭）』、Factor5はMn、Fe、Zn、Niの割合が高いため『鉄鋼工業』と解釈した。全季節通して『硫酸塩（重油・石炭)』の寄与が高い傾向にあることが分かる。また、Factor 4 はAl、Fe等の『土壌』の指標成分、K^{+}、Cr、Cu、As、Sb等の『廃棄物焼却』系の指標成分、Cu、Fe、Sb等の『ブレーキ粉じん』系の指標成分が高く、複数の発生源が混在していると思われる。従ってFactor4は『土壌・廃棄物焼却・自動車』と解釈した。

日田市は図12より5つの因子に分けることができ、Factor1はK^{+}、OC、ECの割合が大きいため『バイオマス燃焼』、Factor2はSO_4^{2-}、NH_4^{+}、OCの割合が大きく、V、Ni、As、Pbの割合が小さいため『硫酸塩（その他）』、Factor3はAl、Feの割合が大きいため『土壌』、Factor4はCl^{-}、NO_3^{-}の割合が大きいため『硝酸塩』、Factor 5 は無機元素系の割合が高く、例えば、Cr、Mn、Ni、Fe、Zn等の『鉄鋼工業』系、Cr、Cu、Zn、As、Sb等の『廃棄物燃焼』系、V、Ni等の『石油燃焼系』、Fe、Cu、Sb等の『ブレーキ粉じん』系が考えられ、複数の因子が混在していると思われる。また、SO_4^{2-}、NH_4^{+}の割合がほとんどゼロであることから、一次発生による$PM_{2.5}$と思われる。従ってまとめて『一次発生（産業活動・自動車等）』と解釈した。

1.3　地点毎の特徴について

1.3.1　中津市について

中津市では大分県の全体的な傾向と同じく、春季及び夏季に濃度が増加する傾向にある。また、図2、図3を見ても分かるように中津市は県内においても濃度が高い地点でもある。春季に濃度が高い理由としては越境汚染の影響が考えられ、図1より特に中津市、日田市は県の西部にあり、県のなかで大陸に近い場所に位置することから越境汚染の影響を特に受けやすいと考えられる。また、2024年4月19日に中津市・宇佐市にて約10年ぶりに注意喚起が発令されたが、これも越境汚染（黄砂）の影響であると考えられ、中津市で一番高い値が観測されたことからも他地点と比べて比較的越境汚染による影響を受けやすいと思われる。

春季について図4の風向・風速別濃度、CBPF解析より春季は広範囲の方角において高濃度となりやすい傾向にある。次に高濃度の$PM_{2.5}$が観測されたときの風向頻度については主に北～西北西、または南西及び東北東の方角から風が吹くことが多い。次にPMF解析の結果から春季は『硫酸塩（重油）』、『硫酸塩（石炭）・バイオマス燃焼・自動車等』の寄与が高い傾向にあり、これらのCPF解析結果をみると、図13より『硫酸塩（重油）』は北東、東北東、南南東の方角及び静穏時、『硫酸塩（石炭）・バイオマス燃焼・自動車等』は西南西、南西、南、東南東、東の方角の寄与が高いことが分かる。これらの結果から考察すると、春季は主に北東、東北東の方角及び静穏時の『硫酸塩（重油）』及び西南西、南西及び東の方角からの『硫酸塩（石炭）・バイオマス燃焼・自動車等』の影響で濃度が増加している可能性が考えられる。これらの寄与が高い理由の1つとして越境汚染の影響が考えられ、北東、東北東、東、及び南西の方角から越境汚染由来の$PM_{2.5}$が飛来しやすいと思われる。

次に夏季について、図4の風向・風速別濃度、CBPF解析結果を見ると、特に北東や東北東方向、静穏時の寄与が高いことが分かる。高濃度の$PM_{2.5}$が観測されたときの風向頻度をみると、東北東及び南西方向の頻度が多いことが分かる。次にPMF解析結果より、夏季は『硫酸塩（重油）』の割合が高く、図13のCPF解析結果より『硫酸塩（重油）』は北東、東北東方向及び静穏時の寄与が高い。これらの結果から考察すると、夏季は主に北東、東北東の方角及び静穏時の『硫酸塩（重油）』由来の$PM_{2.5}$の影響で濃度が増加している可能性が考えられる。『硫酸塩（重油）』が海側の方角で濃度が上昇するため、船舶燃料燃焼の影響が考えられる。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と考察されている[25)]ことから、中津市も影響を受けている可能性がある。また、沿岸部には固定発生源も複数存在するため海風の影響で固定発生源から発生した$PM_{2.5}$及びその前駆物質の二次生成反応の影響により濃度が増加した可能性も考えられる。

1.3.2　大分市（東大分）について

大分市（東大分）も図3より大分県の全体的な傾向と同じく、春季及び夏季に濃度が増加する傾向にある。図5の風向・風速別濃度とCBPF解析結果より、春季、夏季は主に東北東、北東、北北東の方角から風が吹いたときに高濃度となる確率が高い傾向にあることが分かる。次に高濃度の$PM_{2.5}$が観測されたときの風向頻度を見ると、こちらも春季、夏季どちらも北西、北北西、北、南南西の方角で頻度が多いことが分かる。PMF解析結果から、春季は『土壌』、『鉄鋼工業』、『硫酸塩（その他）』、『硫酸塩（重油・石炭）』及び『一次発生（バイオマス燃焼・廃棄物焼却・自動車等）』が、夏季は『硫酸塩（その他）』及び『鉄鋼工業』の寄与が高いことが分かる。図14のCPF解析結果より、『土壌』は北北西、北西、西北西、西、西南西の方角、『鉄鋼工業』は北北西、北、北東の方角、『硫酸塩（その他）』は北、北北東、東北東、南南東の方角、『硫酸塩（重油・石炭）』は北北東、東、東南東、南東の方角、『一次発生（バイオマス燃焼・廃棄物焼却・自動車等）』は南南西、南東、北東の方角の寄与が高い事が分かる。これらの結果から考察すると、春季及び夏季は北西、北北西の方角から『土壌』（黄砂等）、北北西、北、北東の方角から『鉄鋼工業』、北、北北東、東北東の方角から『硫酸塩（その他）』、北北東の方角から『硫酸塩（重油・石炭）』、南南西、北東の方角から『一次発生（バイオマス燃焼・廃棄物燃焼・自動車等）』の影響を受けて高濃度となっていると推察される。そして『硫酸塩（その他）』と『硫酸塩（重油・石炭）』はCALMのCPF値が高いため、付近に発生源が存在している可能性が考えられる。また、頻度は少ないが北東付近の方向から風が吹いたときに『硫酸塩（その他）』と『鉄鋼工業』、『一次発生（バイオマス燃焼・廃棄

物燃焼・自動車等）』の影響でPM$_{2.5}$濃度が大きく増加する確率が高い傾向にあり、方角的に固定発生源の影響を受けている可能性が考えられる。『廃棄物焼却』について、Cr、Cu、Asの割合が高いため、「CCA処理木材」の焼却の影響を受けている可能性がある。「CCA処理木材」とは木材の防腐、防蟻を目的として、CCA（クロム・銅・ヒ素化合物系木材防腐剤）を木材内部に加工注入処理したもので1960年代半ばから1990年代にわたって家屋の土台部分やエクステリアなどに多用されてきた[26]が、現在はその毒性等から国内ではほとんど生産・使用されていない。しかしながら、今後建築物の解体によって今まで使用されてきたCCA処理木材が廃棄物として大量に排出されることが予想される。CCAにはクロム化合物、銅化合物、ひ素化合物が含まれており、CCAを含む木材の焼却等によってCr、Cu、As等の有害物質が放出される可能性が考えられる[27]。

1.3.3　佐伯市について

佐伯市も大分県の全体的な傾向と同じく、春季及び夏季に濃度が増加する傾向にある。図6の風向・風速別濃度とCBPF解析結果より、春季は北東、北北東、南西、西の方角から、夏季は北東、北北東の方角から風が吹いたときに高濃度となる傾向がある事が分かる。高濃度のPM$_{2.5}$が観測されたときの風向頻度をみると、春季は北、北北東、北東、南、南南西、夏季は北北東、北東の方角時に高濃度となる頻度が多いことが分かる。また、PMF解析結果より春季及び夏季は『工業系』及び『硫酸塩（重油・石炭）』の寄与が高く、図15のCPF解析結果より『鉄鋼工業』は北西、北、北北東、北東、東北東、東の方角、『硫酸塩（重油・石炭）』は北北東、北東、東北東、南南東、南、南南西の方角で寄与が高いことが分かる。これらの結果から考察すると、佐伯は春季については北、北北東、北東の方角から『鉄鋼工業』、北北東、北東、南、南南西の方角から『硫酸塩（重油・石炭）』の影響を受け、夏季は北、北北東及び北東の方角から『鉄鋼工業』、北北東、北東の方角から『硫酸塩（重油・石炭）』の影響を受けて高濃度となっている可能性が考えられる。また佐伯市の夏季について、今回の解析では因子分解できなかった『その他』の寄与が大きく、『その他』の因子についてCPF解析を行った結果、北北東及び東の方角の寄与が高かったため、夏季は全体的に北北東及び東の方角から影響を受けやすいと思われる。佐伯市の測定地点の北東付近（沿岸部）には固定発生源が複数存在するためそれらの影響を受けている可能性も考えられる。

1.3.4　日田市について

日田市は県内の他地点とは傾向が異なり、春季及び冬季に濃度が増加する傾向にある。図7の風向・風速別濃度とCBPF解析結果より、春季は、南から北北東にかけて幅広い範囲で高濃度となり、静穏時にも濃度が高くなる傾向にある。冬季は南、南南西、南西、西、西北西の方角からの風及び静穏時に濃度が高くなる傾向にある。次に高濃度のPM$_{2.5}$が観測されたときの風向頻度をみると春季は西南西、西、西北西、東の方角、冬季は西、西北西、北西、北北西の方角の頻度が多いことが分かる。また、春季と冬季はどちらも静穏の時に高濃度となる頻度が多いことも分かる。（春季40.8%、冬季54.1%）PMF解析結果より、春季は『バイオマス燃焼』、『硫酸塩（その他）』、『土壌・硫酸塩（石炭）』、冬季は『バイオマス燃焼』及び『硝酸塩』の寄与が高いことが分かった。そして図16のCPF解析結果より、『硫酸塩（その他）』は北、南東、北北東、東北東、東の方角。『土壌・硫酸塩（石炭）』は北北東、南、南西、西南西、西の方角、『バイオマス燃焼』は南南東、南、西、西北西、北西、北北西及び静穏時、『硝酸塩』は西南西、西、西北西、南南東及び静穏時に高い寄与を示しており、『バイオマス燃焼』及び『硝酸塩』CALMのCPF値が大きいことが分かる。これらの結果から考察すると、春季は南、西、西北西、北西、北北西の方角及び静穏時の『バイオマス燃焼』、北、北北東及び東の方角からの『硫酸塩（その他）』、北北東、南、南西、西南西、西の方角からの『土壌・硫酸塩（石炭）』の影響を受けており、冬季は南、西、西北西、北西、北北西の方角及び静穏時の『バイオマス燃焼』及び西、西北西、静穏時の『硝酸塩』の影響により濃度が増加している可能性が考えられる。『バイオマス燃焼』の寄与率が高い要因として、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県内の他地域と比べて多く設置されている等の理由が考えられる。また、今回解析した4地点では共通して秋季に『バイオマス燃焼』、冬季は『硝酸塩』の寄与が増加する傾向にあることが分かった。秋季の『バイオマス燃焼』の増加は野焼き等による影響、冬季

の『硝酸塩』の増加は越境汚染またはボイラー等の使用量増加による地域内生成に加え、気温の低下により、硝酸アンモニウムの生成しやすい状態となったことが原因として考えられる。

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ことはもちろん、大気環境常時監視測定局の再配置の基礎資料としても活用される可能性もあることから今後もデータを蓄積し継続して解析を実施していく。

謝 辞

本調査の遂行にあたり大分市環境部環境対策課に$PM_{2.5}$成分分析データを提供いただきました。ここに感謝申し上げます。また、$PM_{2.5}$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）環境省．“微小粒子状物質（$PM_{2.5}$）に関する情 報”https：//www.env.go.jp/air/osen/pm/info.html#ABOUT（参照2024-09-03）

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：$PM_{2.5}$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）

６）甲斐太郎　他：大分県におけるＰM2. 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）

７）NHK大分NEWS　WEB「$PM_{2.5}$濃度が高い状況に一時注意喚起の情報出される」https：//www3. nhk. or. jp / lnews / oita / 20240419 / 5070018313. html （参照2024－09－03）

８）World Health Organization. 2021. WHO global air quality guidelines： particulate matter（PM2.5 and PM10), ozone, nitrogen dioxide, sulfur dioxide and carbon monoxide

９）U.S. EPA.（2024 February 7). ：EPA finalizes stronger standards for harmful soot pollution, significantly increasing health and clean air protections for families, workers, and communities. https：//www. epa. gov / newsreleases / epa - finalizes - stronger - standards - harmful - soot - pollution - significantly-increasing（参照2024－09－03）

10）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）

11）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（参照2024－09－03）

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

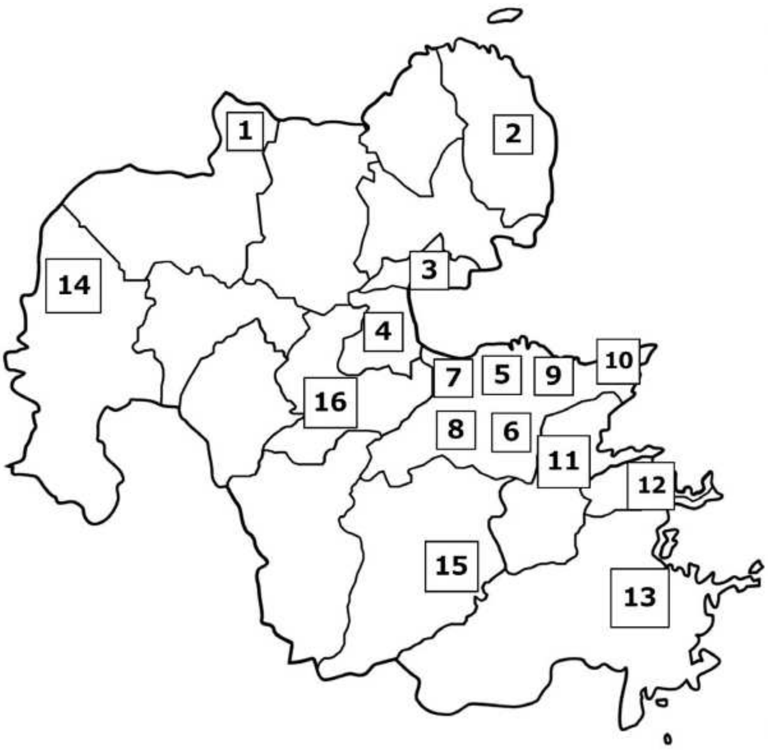
16）環境省：大気中微小粒子状物質（$PM_{2.5}$）成分測定マニュアル

17）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.（参照2024－09－03）

18）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）

19）United States Environmental Protection Agency : EPA Positive Matrix Factorization（PMF）5. 0 Fundamentals and User Guide,17

20）Kim, E., Hopke, P.K.： Source apportionment of fine particles in Washington, D.C., utilizing temperature-resolved carbon fractions. Journal of the Air & Waste Management Association, 54, 773－785（2004）
21）山神真紀子　他：ＣＰＦ法を用いた$PM_{2.5}$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）
22）環境省：令和4年度大気汚染状況について（別添1令和4年度大気汚染物質（有害大気汚染物質等を除く）に係る常時監視測定結果）https：//www.env.go.jp/content/000230544.pdf（参照－2024－09－03）
23）Heo, J et al.： Source apportionment of PM2.5 in Seoul, Korea. Atmos. Chem. Phys.,9,　4957－4971（2009）．
24）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).
25）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$PM_{2.5}$化学成分の解析，Earozoru Kenkyu, 33（3），175－182（2018）
26）岩崎克己　：我が国におけるCCA木材保存剤の開発とその処理木材市場の減衰の技術的背景，木材保存, 29, 192－216（2003）
27）千葉啓子　他：CCA防腐処理材のCr、Cu、Asの含有量，NMCC共同利用研究成果報文集, 13, 169－172（2005）



番号	市町村	測定局名
1	中津市	西部振興局
2	国東市	国東高等学校
3	日出町	日出町鷹匠
4	別府市	青山中学校
5	大分市	東大分小学校
6	大分市	戸次中学校
7	大分市	王子中学校
8	大分市	西部清掃事業所
9	大分市	大在小学校
10	大分市	佐賀関小学校
11	臼杵市	臼杵市役所
12	津久見市	津久見市役所
13	佐伯市	南部振興局
14	日田市	西部振興局
15	豊後大野市	豊肥保健所
16	由布市	由布保健部

図1　大気常時監視測定局（$PM_{2.5}$を測定している一般局）の配置図

表1　$PM_{2.5}$成分分析実施地点（2015年度～2023年度）

採取地点	調査年度	備考
由布市	2015年度秋～2023年度	大分県衛生環境研究センターで採取・分析
日田市	2015年度秋～2017年度	大分県衛生環境研究センターで採取・分析
中津市	2018年度～2019年度	大分県衛生環境研究センターで採取・分析
佐伯市	2020年度～2022年度	大分県衛生環境研究センターで採取・分析
臼杵市	2023年度	大分県衛生環境研究センターで採取・分析
大分市	2015年度～2023年度	大分市実施

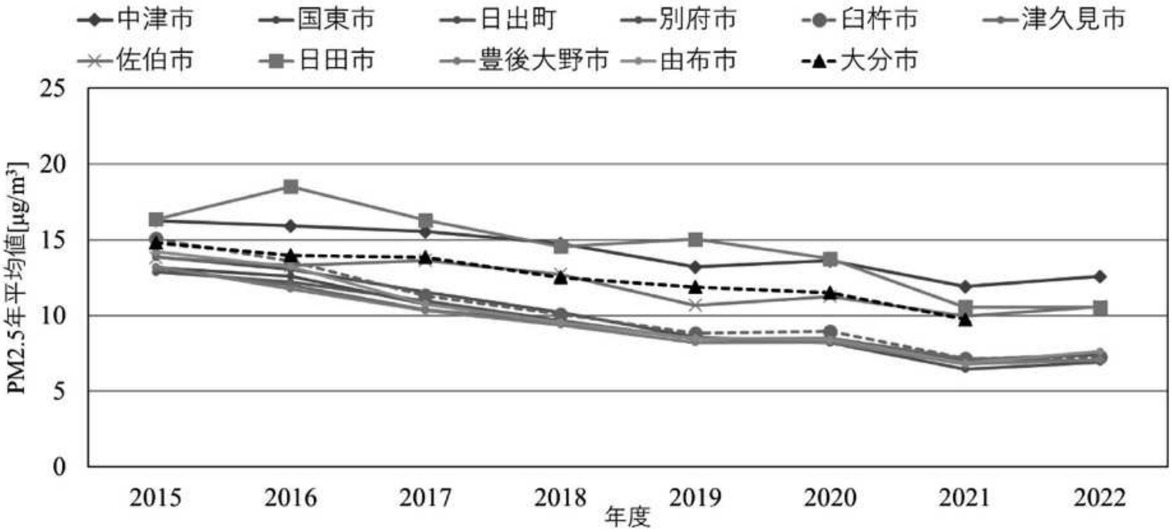


図2　大分県内における$PM_{2.5}$年平均値の推移

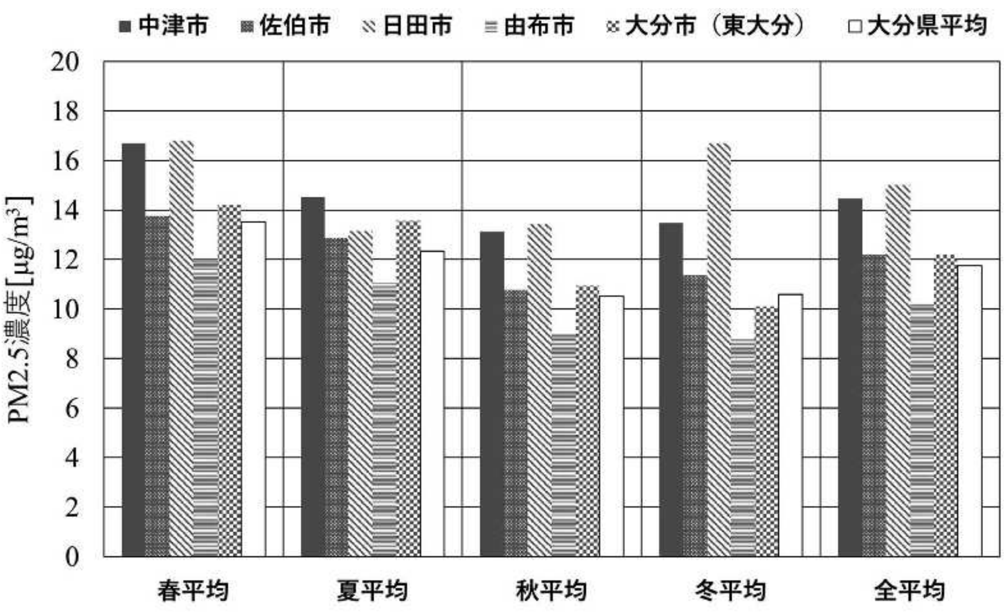


図3　大分県内における$PM_{2.5}$の季節別平均値（2015年度～2021年度）

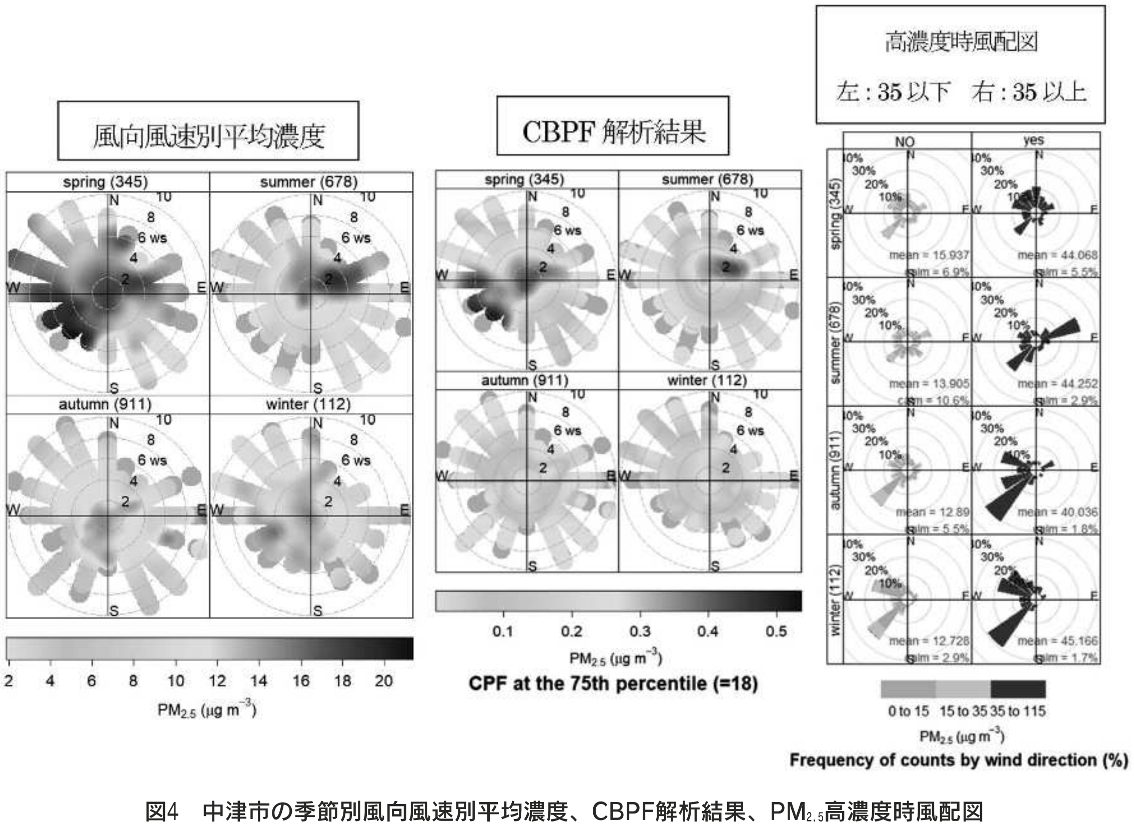


図4　中津市の季節別風向風速別平均濃度、CBPF解析結果、$PM_{2.5}$高濃度時風配図

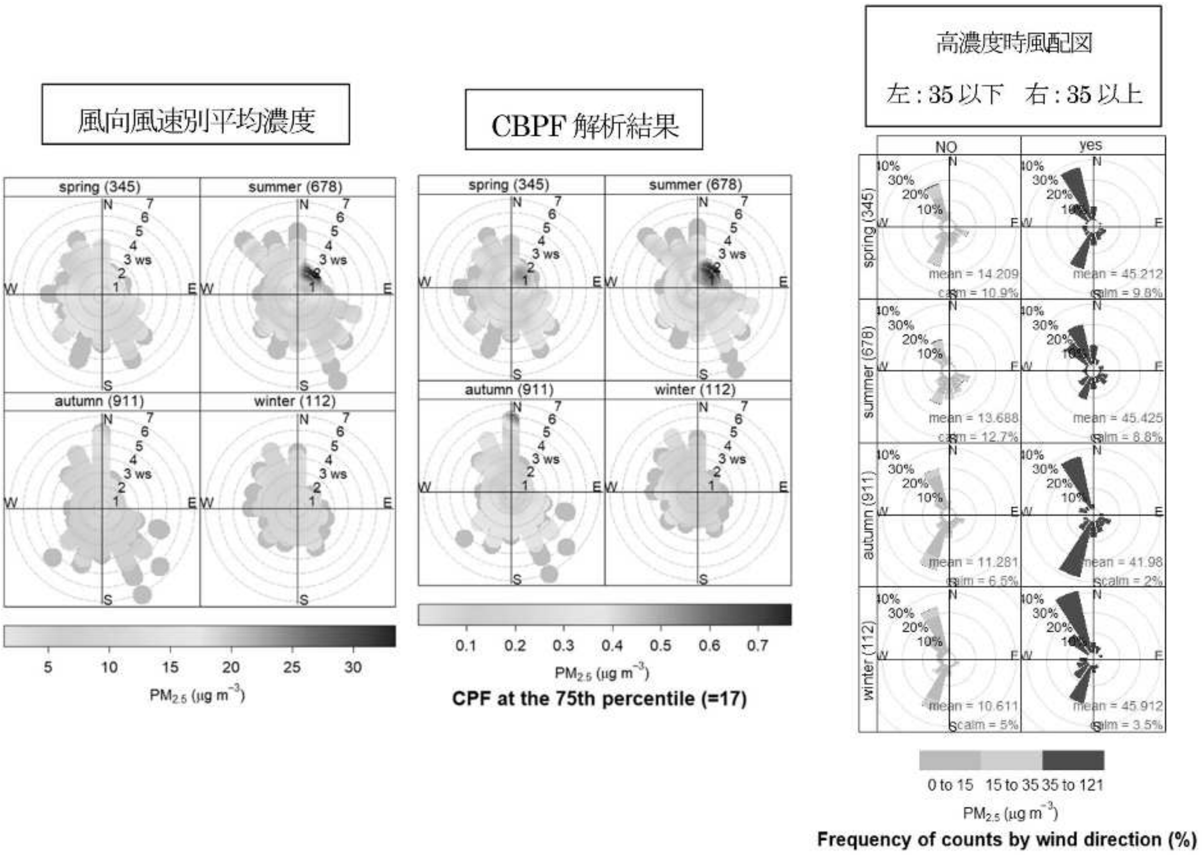


図5　大分市（東大分）の季節別風向風速別平均濃度、CBPF解析結果、$PM_{2.5}$高濃度時風配図

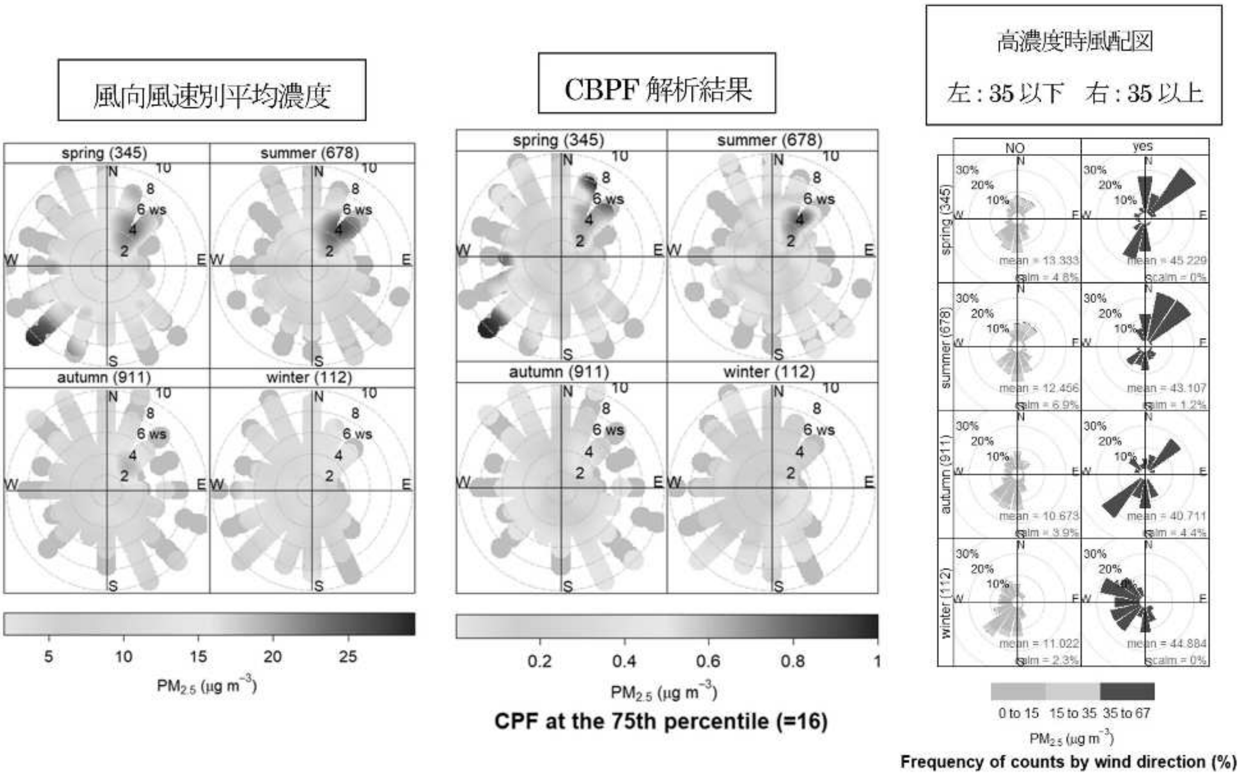


図6　佐伯市の季節別風向風速別平均濃度、CBPF解析結果、$PM_{2.5}$高濃度時風配図

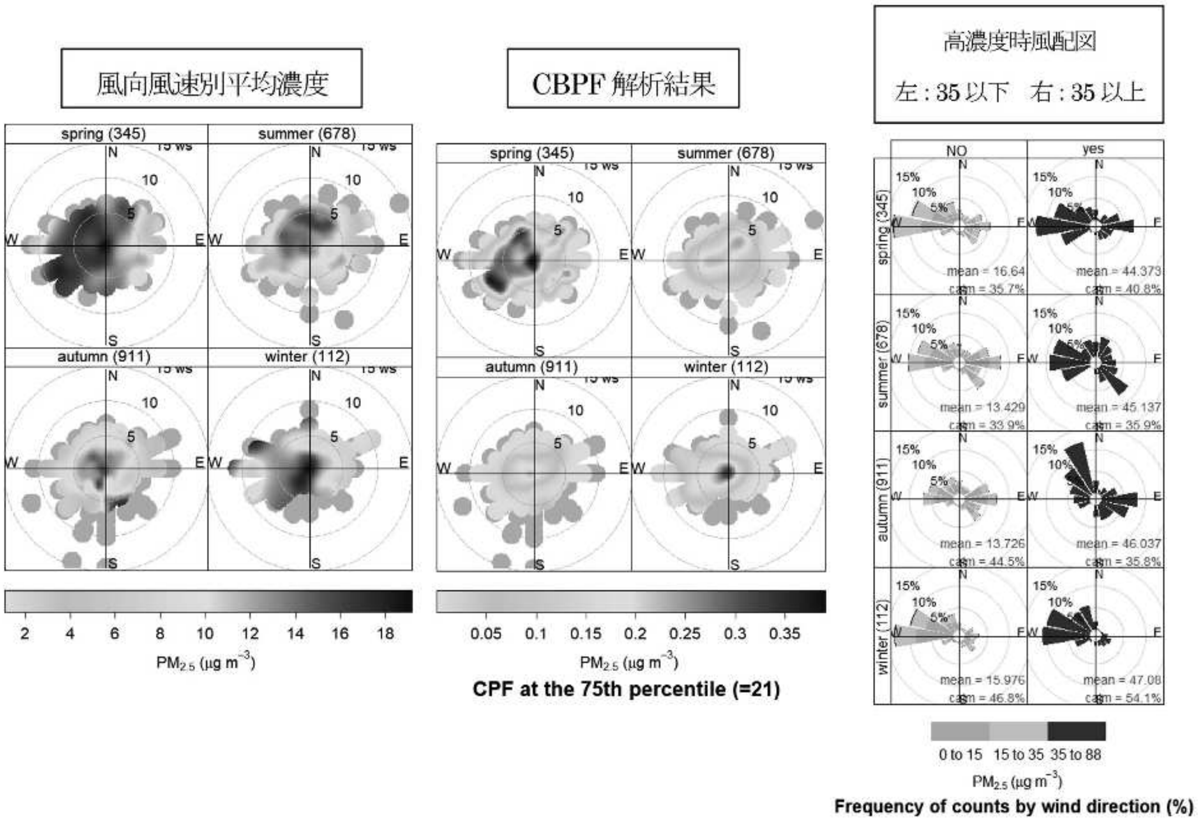


図7　日田市の季節別風向風速別平均濃度、CBPF解析結果、$PM_{2.5}$高濃度時風配図
※風向風速別平均濃度及びCBPF解析結果の風向風速は気象庁データを使用

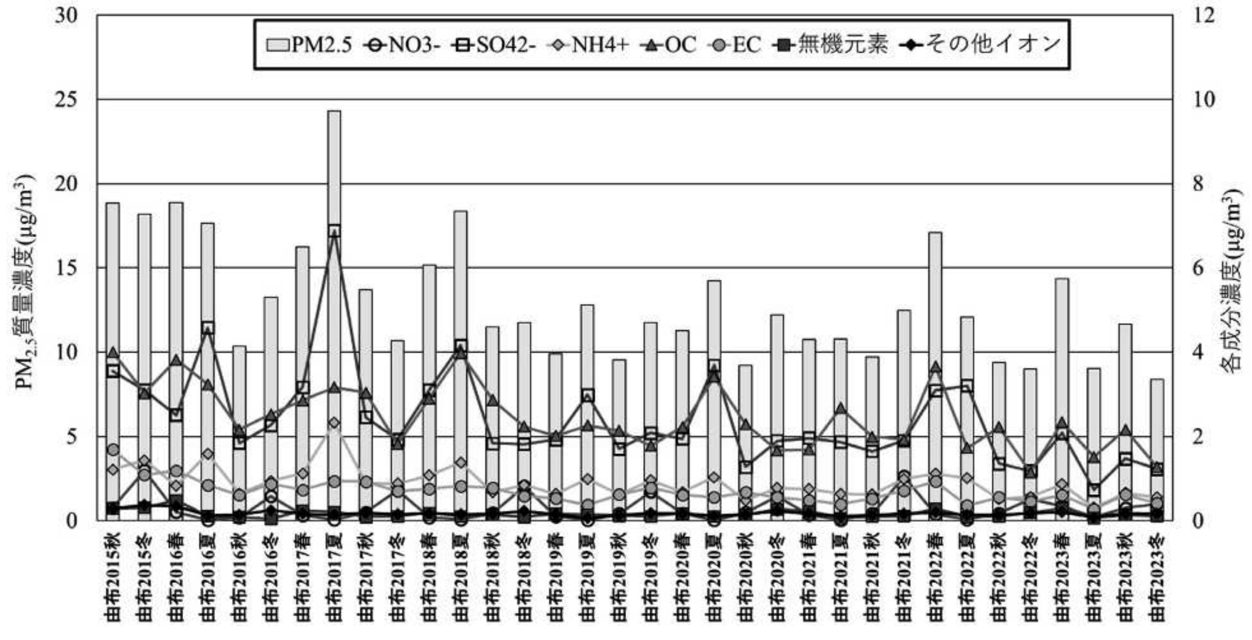


図8　由布市の$PM_{2.5}$質量濃度と各成分濃度の経年変化

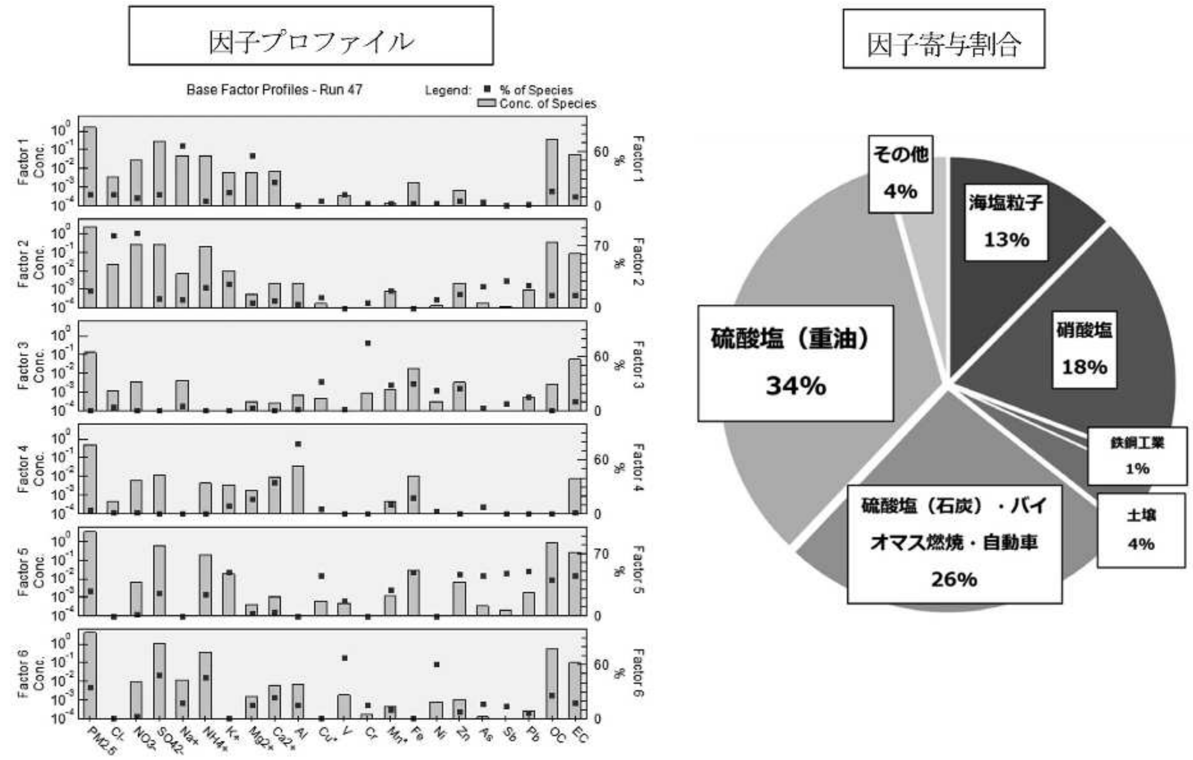


図9　中津市におけるPMF解析結果（2018～2019年度）

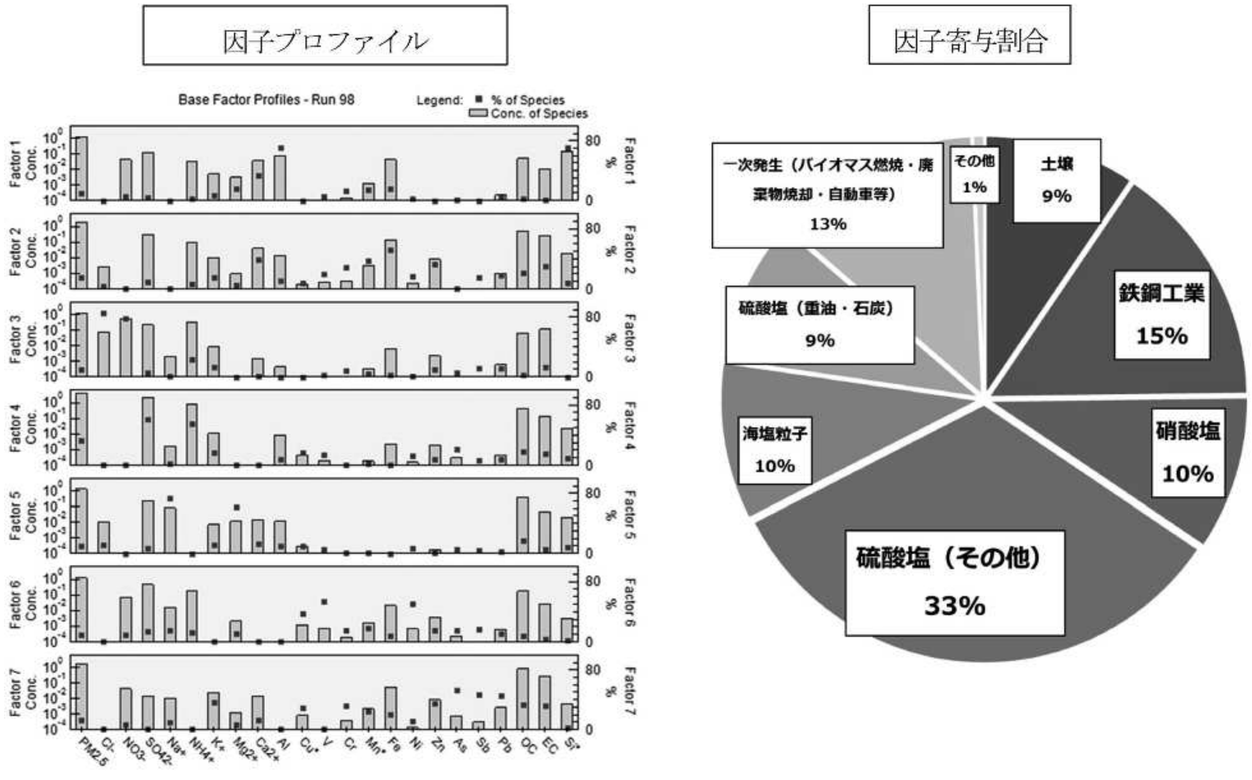


図10　大分市におけるPMF解析結果（2020～2022年度）

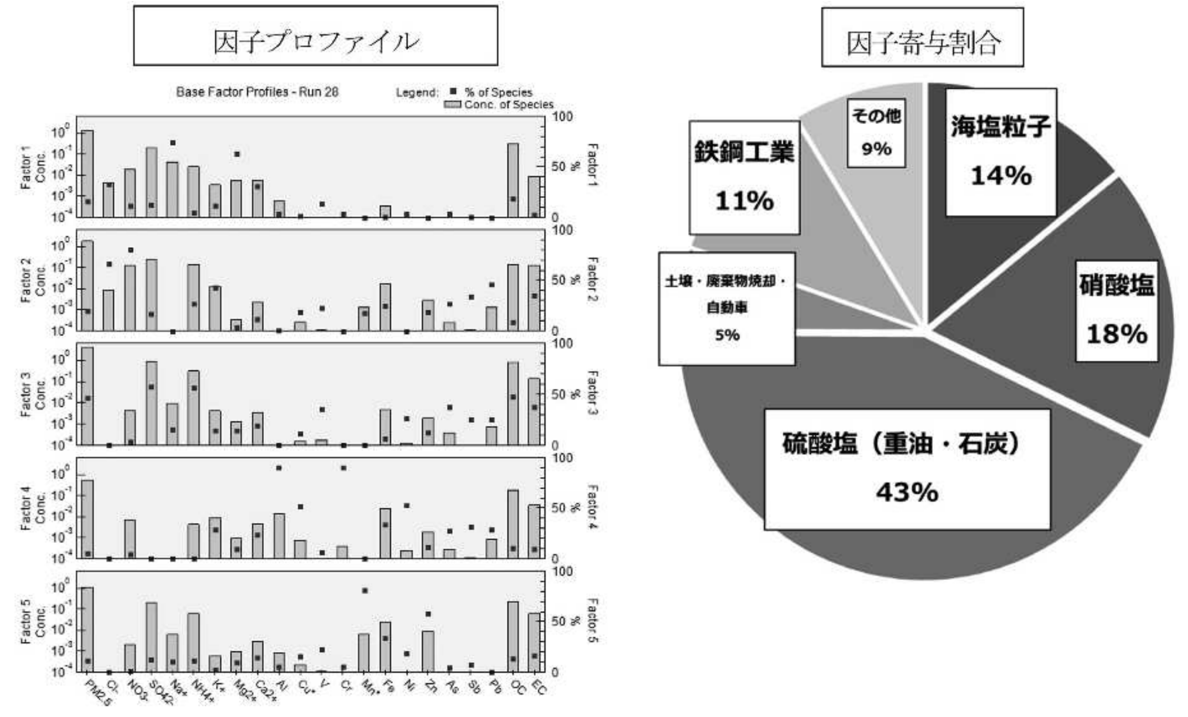


図11　佐伯市におけるPMF解析結果（2020～2022年度）

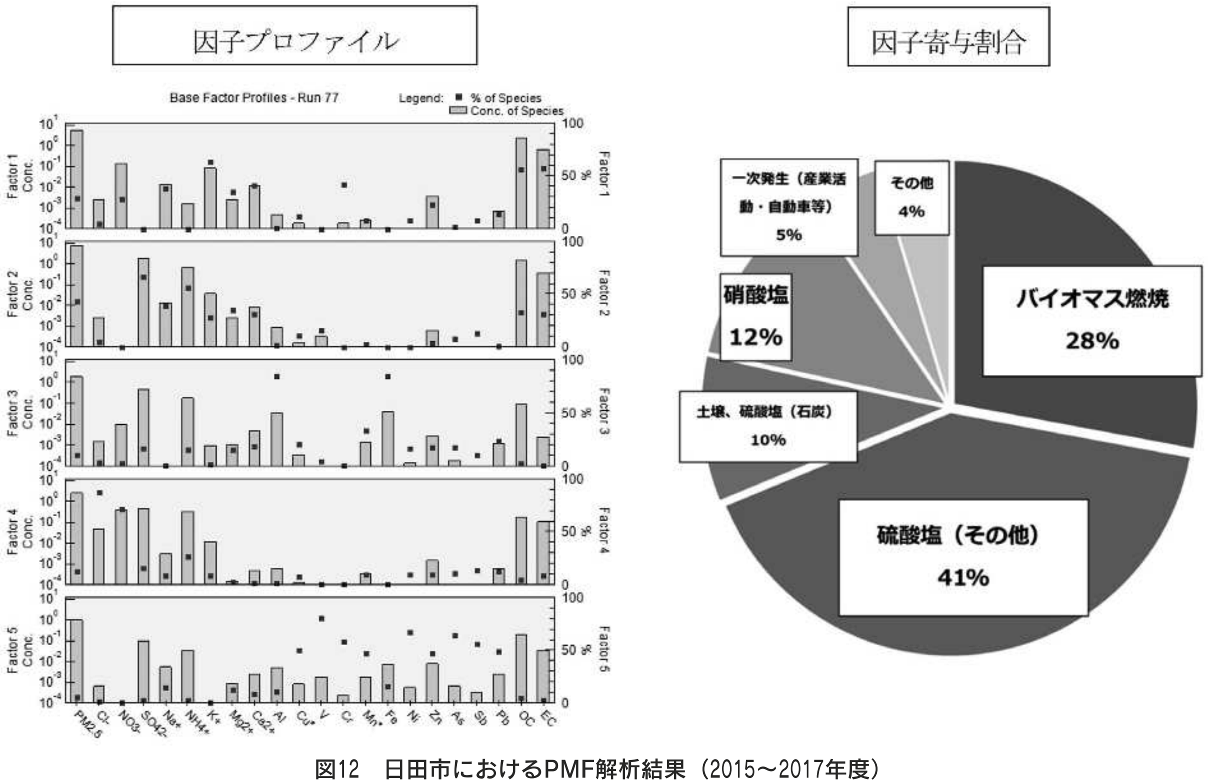


図12　日田市におけるPMF解析結果（2015～2017年度）

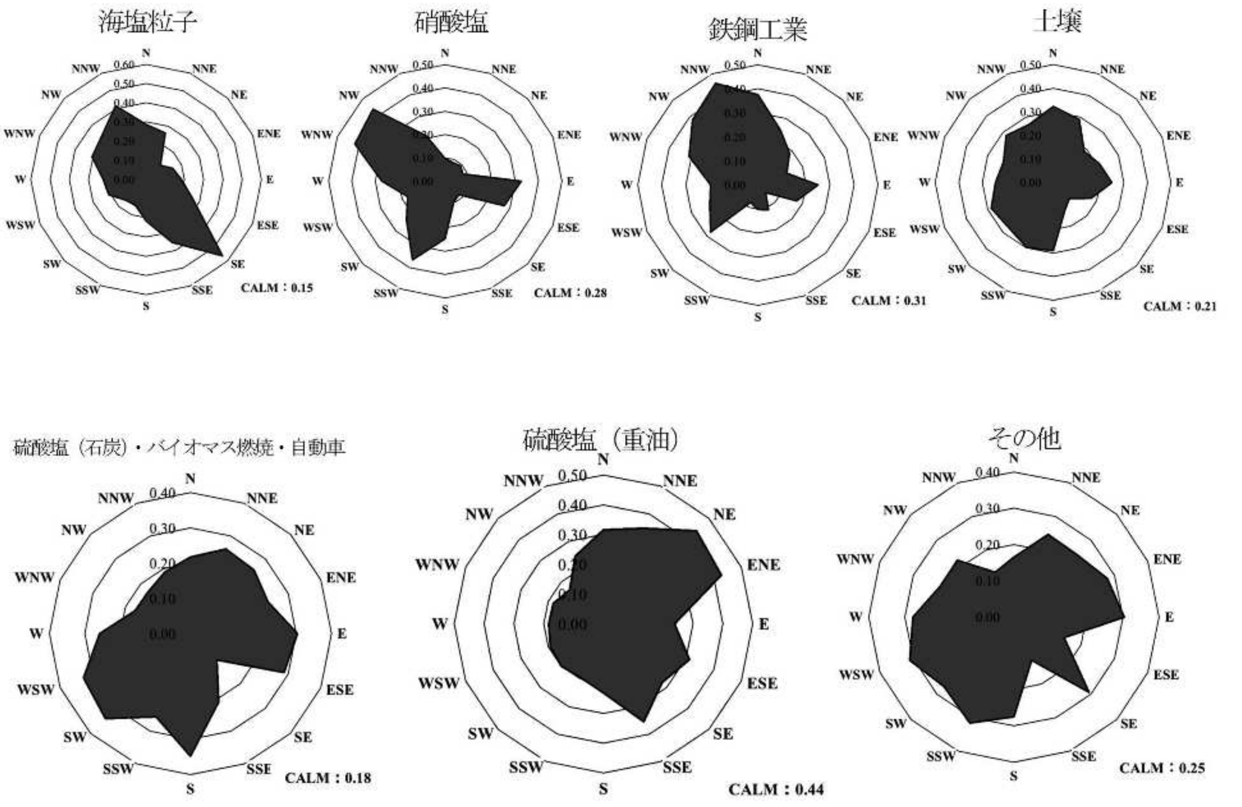


図13　中津市におけるCPF解析結果（2018～2019年度）

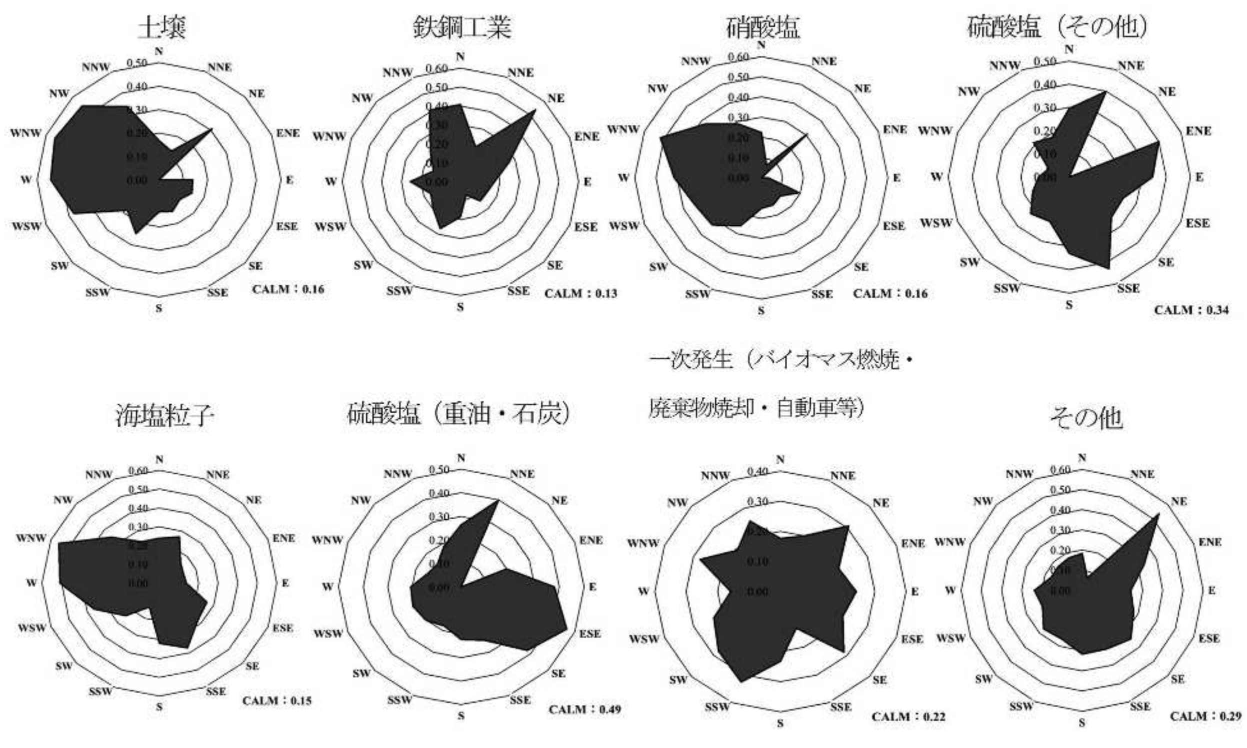


図14　大分市におけるCPF解析結果（2020～2022年度）

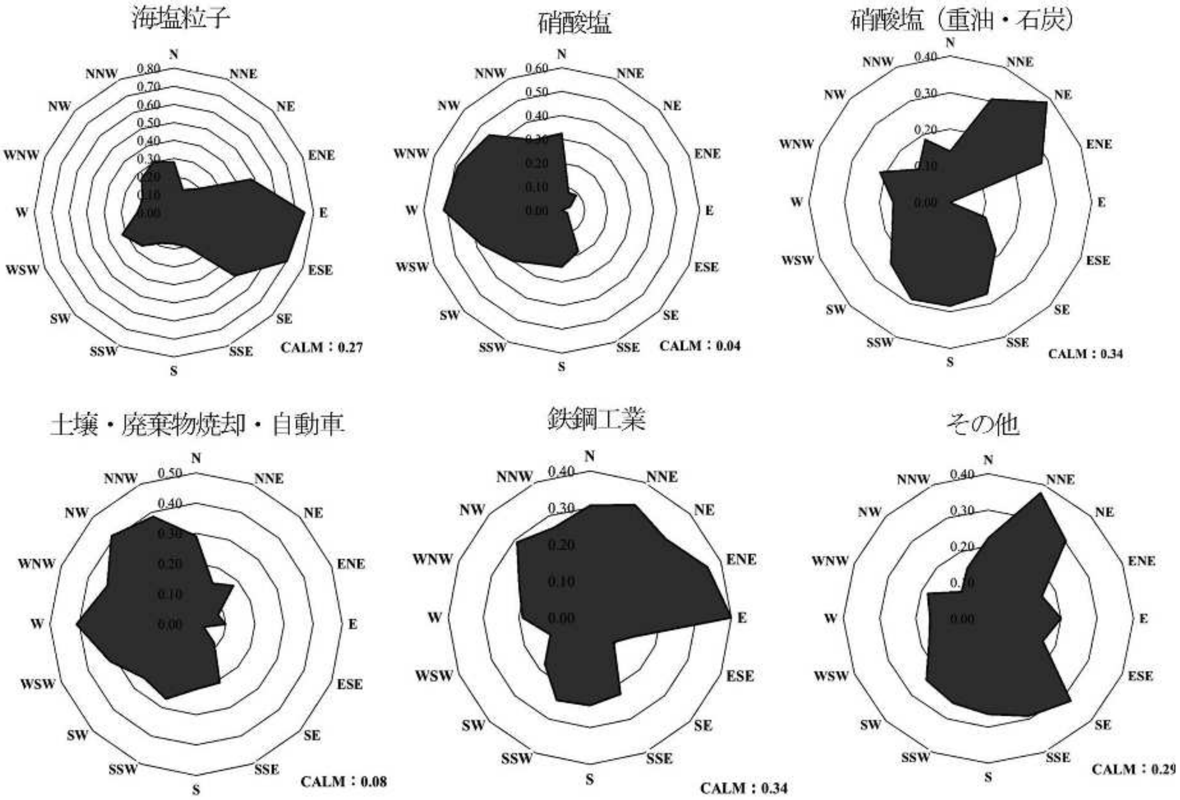


図15　佐伯市におけるCPF解析結果（2020～2022年度）

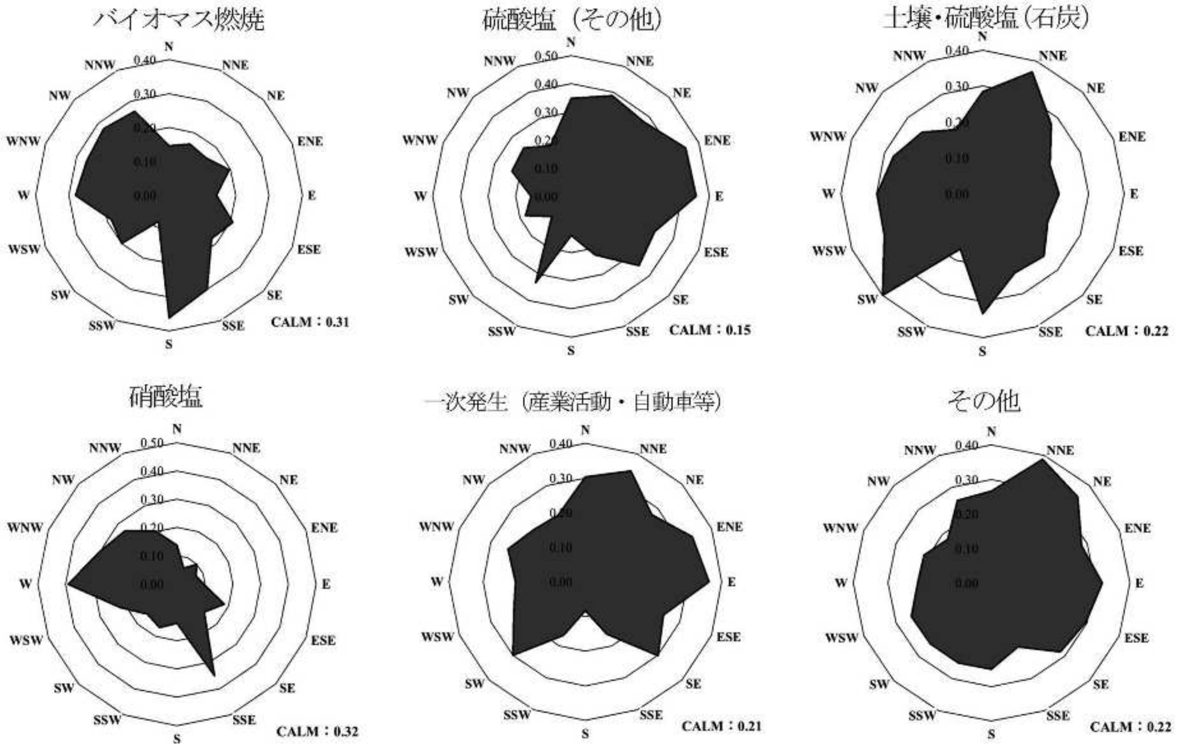


図16　日田市におけるCPF解析結果（2015～2017年度）