

28. PMF(Positive Matrix Factorization)による分類と 後退流跡線を用いた日本の降水化学データの解析

A PMF-based trajectory methodology applied to daily precipitation and wet deposition data in Japan

○村尾直人*、原 弘之*、山形 定*、太田幸雄*、原 宏**

Naoto MURAO, Hiroyuki HARA, Sadamu YAMAGATA, Sachio OHTA and Hiroshi HARA

ABSTRACT; Positive matrix factorization (PMF) was applied to daily wet deposition data from three stations in Japan to find the source profiles from which the precipitation samples are constituted. For most ions more than 90 % of the weighted variation was explained with 4 factors. The factors are characterized by the following compounds: strong acids (H_2SO_4 and HNO_3), $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$, NaCl , and CaSO_4 . The anion-cation balance was fairly good in the factors. Based on the chemical compositions of the factors, a time series of the factor contributions, and the results from trajectory analysis, the factors are considered to represent sea salt, soil, $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ and acidity. Although the total nss- SO_4 wet deposition amount decreased in the last 7 years at Wajima station, the contributions of the $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ factor to nss- SO_4 wet deposition were fairly constant (ca.50%). The acidity seemed to be controlled by the neutralization by soil particles.

KEY WORDS: Acid deposition, Wet deposition, Wajima. PMF, Daily Precipitation, Trajectory

1. はじめに

酸性沈着問題に関して、硫黄や窒素の発生から沈着に至る過程の理解が近年大きく進んだものの、その影響・評価側から求められる酸沈着量や降水の pH については、将来予測に不可欠なデータを十分提出できているとはいいがたい。本研究では、大気エアロゾルの観測データからその発生源情報を得るために多用されている PMF(Positive Matrix Factorization)法を、pH を含む降水データ、および H^+ を含む沈着量データに適用し、

(1) PMF 法適用の妥当性を評価すること

(2) PMF 法で分類したデータに流跡線を作成しそれぞれの輸送過程を明らかにし、また分類の妥当性を評価すること

によって、酸性沈着問題に対して新たな視点を得ることを目的とする。

2. 方法

(1) 使用した降水データ

環境省が第4次酸性雨対策内の酸性雨モニタリング調査によって捕集・分析したサンプルのうち、石川県輪島、北海道利尻、青森県竜飛岬の3地点をデータとして用いた。捕集期間は輪島が1995.4.1-2001.3.31の6年間、利尻・竜飛が1998.4.1-2001.3.31の3年間である。いずれもオートサンプラーを使用し毎日朝9時から12時間捕集している。

分析されたイオン成分は H^+ , SO_4^{2-} , NO_3^- , Cl^- , NH_4^+ , Ca^{2+} , Mg^{2+} , K^+ , Na^+ の9種で、PMF解析にはこれらの濃度と湿性沈着量を使用した。

* 北海道大学大学院工学研究科

** 東京農工大学農学部

(2) PMF 解析

PMF 法は、因子負荷量と因子得点に非負制約をかけた因子分析法で、観測点での実測値から物理的に意味がある共通変動因子を抽出できること、測定データの誤差を考慮できること、などの利点を有している。因子の抽出は最小二乗法を使い、

$$Q = \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^m ((X_{ij} - \sum_{k=1}^p G_{ik} F_{kj}) / s_{ij})^2$$

を最小にすることによって行われる。ここで、 i はサンプル、 j は成分、 k は各因子に対応する。

PMF モデルに実測した成分濃度や沈着量 (X_{ij}) とその測定誤差 (s_{ij})、予測される因子数 (p) を入力し、因子得点 (G_{ik}) と因子負荷量 (F_{kj}) を求めた。本研究では $\sum F_j = 1$ の条件を設定した。すなわち、 F はイオン構成比(一)、 G は総イオン濃度($\mu\text{eq/L}$)もしくは総イオン沈着量($\mu\text{eq/m}^2$)になる。また、因子数 p は様々な検討の結果 4 とした。

3. 後退流跡線解析

気象庁全球客観解析データをもとに、等温位面後退流跡線を作成した。各測定地点を到達地点とし、到達時刻は日本時間の 15 時、到達高度 850hPa、計算日数は 4 日間とした。到達日は、各因子の湿性沈着量 (G 値) が高かった 10 日間とした。

4. 結果

以下では、輪島の湿性沈着量に関する解析結果について述べる。

(1) PMF 解析

解析結果の妥当性は、①測定データが再現できていること、②降水組成のイオンバランスがとれていること、③予測された降水組成が物理的な意味を持っていること、から評価した。

図 1 に PMF による予測値と観測データとの比較を示した。 R^2 値は Ca^{2+} イオンで若干低い値となった ($R^2=0.73$) が、それ以外は 0.9 以上の高い値が得られた。

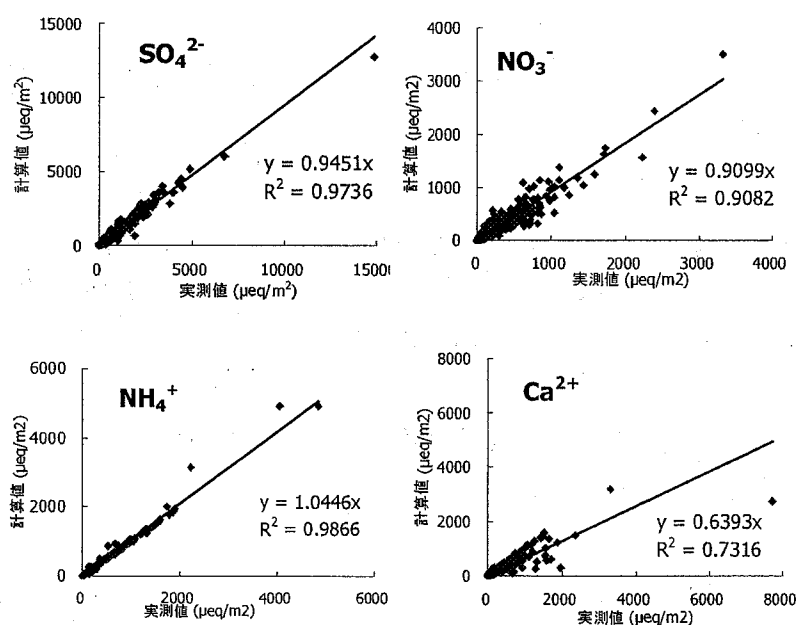


図 1 PMF による観測データの再現性

解析で得た各因子のイオン構成比を図2に示す。各因子ともカチオンとアニオンが50±5%以内に収まっており、イオンバランスが非常に良好な因子が抽出されたといえる。

各因子の解釈は以下の通りである。

因子1： SO_4^{2-} と NH_4^+ から構成されていることから、国内外で生成した硫酸アンモニウムが降水に取り込まれたものと考えられる。

因子2： Ca^{2+} 、 Mg^{2+} を多く含み、また SO_4^{2-} や NO_3^- を含むことから、黄砂その他の土壌粒子と SO_2 、硝酸ガスの反応生成物を表していると考えられる。

因子3：組成は海水のイオン構成に近い。 $\text{SO}_4^{2-}/\text{Na}^+$ 比、 $\text{Ca}^{2+}/\text{Na}^+$ 比はそれぞれ13.5%、4.8%となり、海水の標準値（それぞれ12%、4%）に非常に近い値になった。この点も因子抽出が妥当であることを表していると考えられる。

因子4：主に H^+ 、 SO_4^{2-} 、 NO_3^- で構成されていることから、大気中に排出

された SO_2 や NO_x から生成した硫酸ミストや硝酸ガスがそのまま降水に取り込まれたものを表していると思われる。この因子において硫酸イオンと硝酸イオンの組成割合が等しい点は大変興味深い。

東アジアの酸性沈着に最も重要であると考えられる硫酸イオンについて、因子1、2、4の月別沈着量を図3に示す。

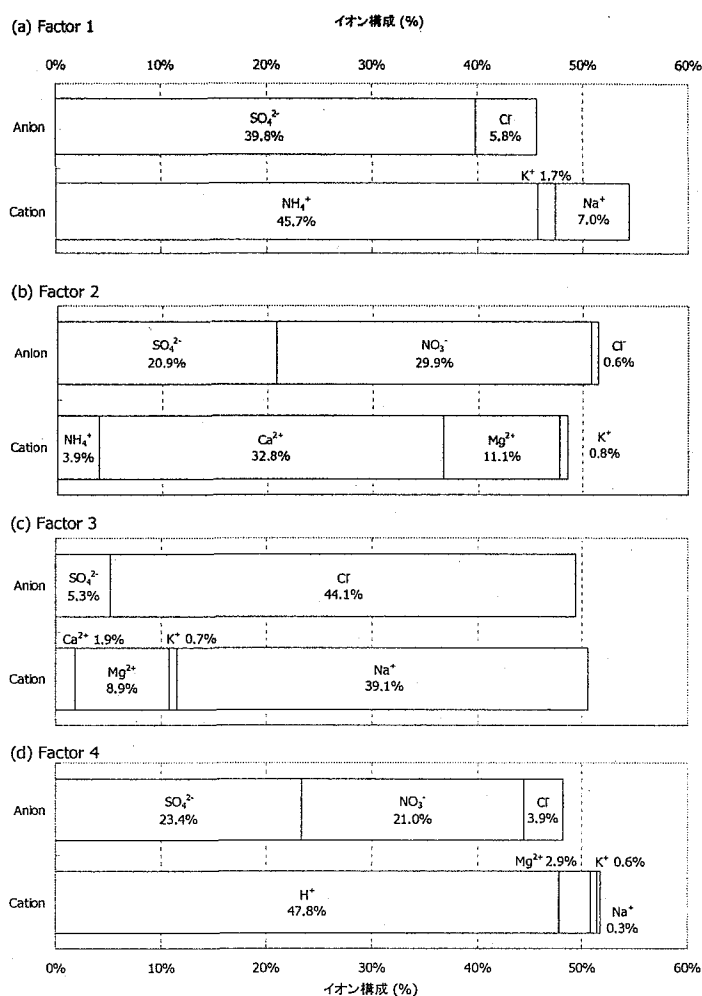


図2 各因子の構成

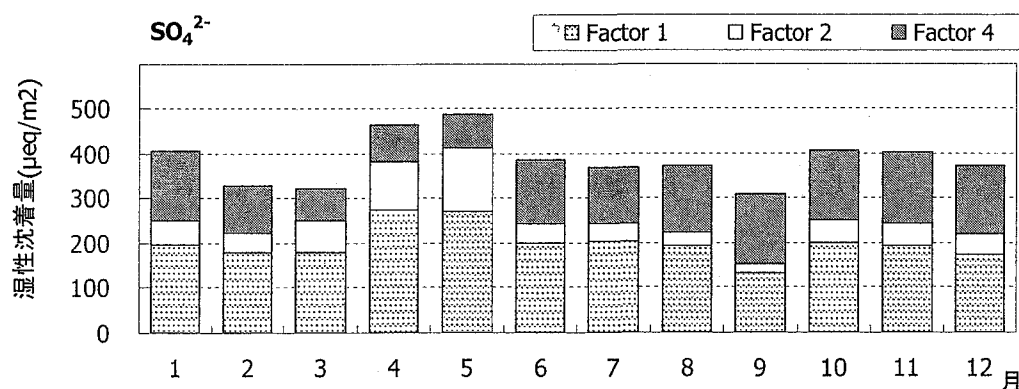


図3 非海塩硫酸イオンの月別沈着量

因子1（硫酸アンモニウム）、2（土壌）の寄与は春に卓越し、総沈着量も春に最大になっている。因子2の春の極大は黄砂の影響を示唆するが、因子4（酸）の寄与は春季に低い季節変動を示し、他の季節ではいずれも100~150 $\mu\text{eq}/\text{m}^2$ 程度の寄与があることがわかる。また日本海側において、硫酸の H^+ 沈着量への寄与は硝酸と同程度であることが推定された。

図4に非海塩硫酸イオン沈着量の年変動を、また、図5には非海塩硫酸イオン沈着量の年変動への各因子の寄与割合を示した。図4からわかるように、輪島では非海塩硫酸イオン沈着量は減少傾向にある。これが、中国等の硫黄排出量の減少によるものかどうかについてはさらなる検討が必要と思われる。図5に示す各因子の寄与からは、そのようなトレンドのなか、因子1（硫酸アンモニウム）の寄与はほぼ50%と一定で、酸としての沈着は、土壌粒子による中和の度合いで決定されることが示唆される。

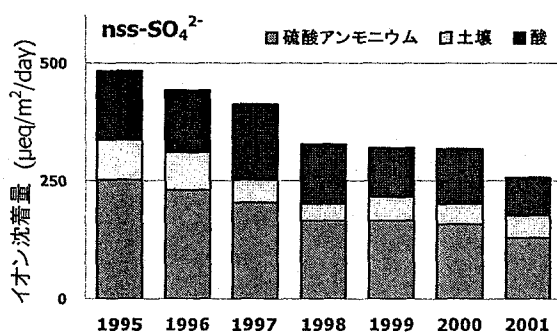


図4 非海塩性硫酸イオン沈着量の年変動

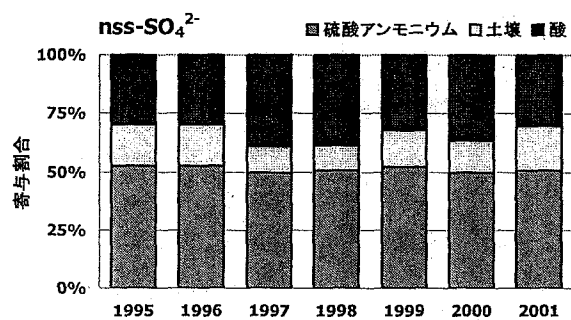


図5 非海塩性硫酸イオン沈着量への各因子の寄与割合

(2) 流跡線解析

海塩因子を除く因子1・2・4が卓越するデータに対して後退流跡線を作成した。結果を以下に示す。

図6： 因子1（硫酸アンモニウム）：900hPa程度の低高度で、南西から輸送されるものが多く、このことは、国内外の発生源地域で生成した硫酸アンモニウムが境界層内を輸送されてきたことを示唆する。

図7： 因子2（土壌）：中国北部、ゴビ砂漠付近から測定地点まで長距離輸送される流跡線がみられる。因子が卓越するデータが春季に多く、また降水中に Ca^{2+} が多く含まれることから、これらの流跡線は黄砂の輸送を表していると考えられる。

図8： 因子4（酸）：因子1と2両方の特徴を有していたが、国内発生源からの寄与も示唆される点が興味深い。いずれにしても、発生源地域で生成した硫酸ミストがそのまま輸送されることは考えにくいため、輸送過程で生成した硫酸が降水に取り込まれたものと考えられる。

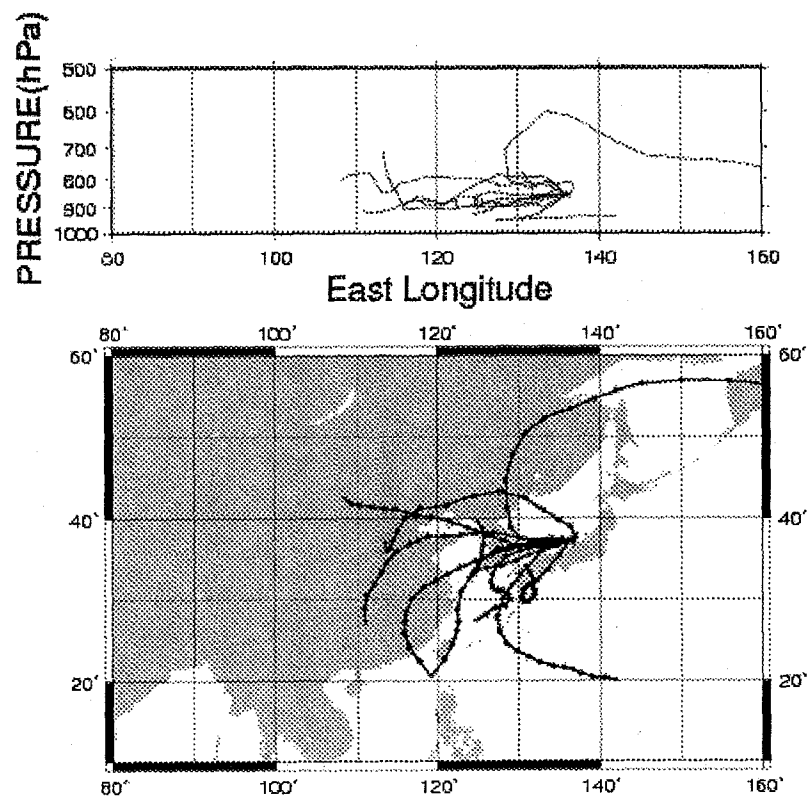


図6 因子1（硫酸アンモニウム）が卓越する日の流跡線

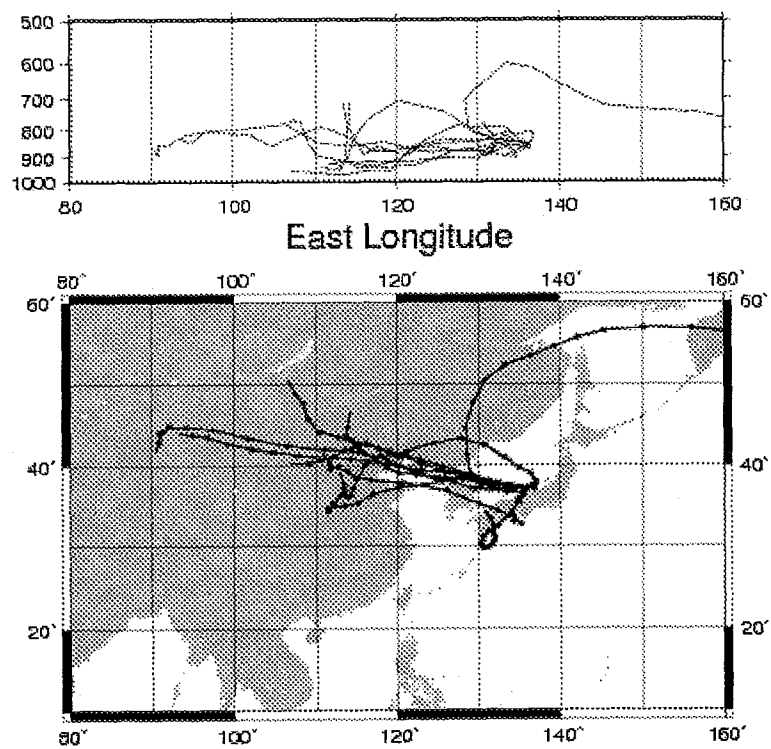


図7 因子2（土壌粒子）が卓越する日の流跡線

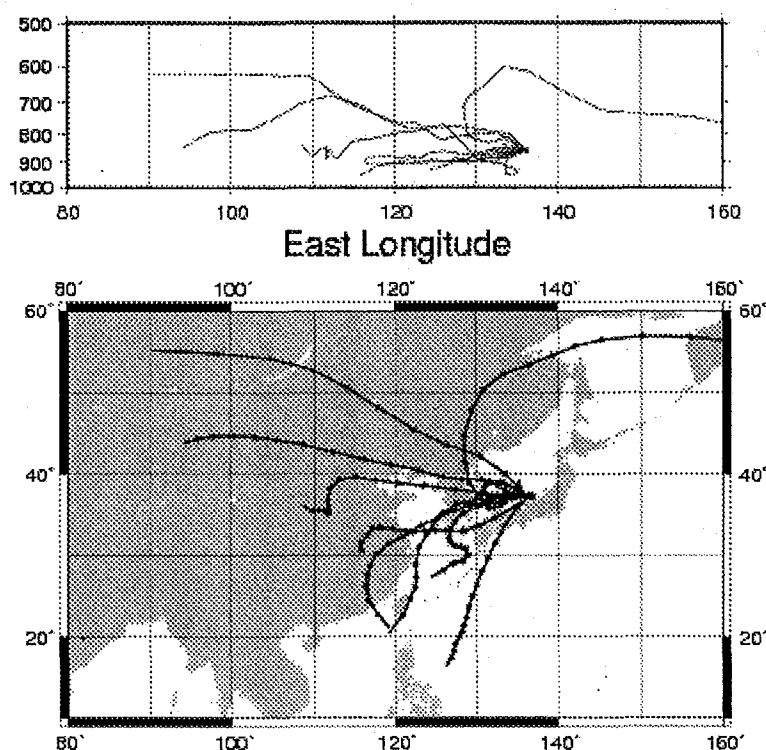


図8 因子3（酸粒子）が卓越する日の流跡線

5. まとめ

PMF法を降水データ解析に適用し、測定データの再現性、降水組成のイオンバランス、降水組成の物理的意味等の検討を行った。その結果、輪島の湿性沈着量に関して、妥当と思われる以下の4因子の抽出ができた；(1) 硫酸アンモニウム、(2) 海塩、(3) 土壌、(4) 酸。また、これらの因子が卓越する事例について、流跡線解析を行うことで各因子の輸送経路を把握できた

この手法を用いることで、従来の解析では得ることができなかった以下のような情報を得ることができた。すなわち、輪島において、酸の沈着に対する硫酸と硝酸の寄与はほぼ同程度であること。また、近年、非海塩硫酸イオンの沈着量に減少傾向がみられるが、それへの硫酸アンモニウムの寄与はほぼ50%で変化は小さく、酸としての硫酸の寄与は土壌粒子による中和で決まっているように見えること、などである。

参考文献

- 1) 環境省、酸性雨対策検討会(2002)：第4次酸性雨対策調査取りまとめ
- 2) 原宏：日本の降水の化学(1997)
- 3) Penti Paatero: User's Guide for Positive Matrix Factorization programs PMF2 and PMF3 (1998)