

13. PMF(Positive Matrix Factorization)を用いた 日本の降水化学データの解析

Application of PMF (Positive Matrix Factorization) method to daily wet deposition data in Japan

○山下智生*, 村尾直人*, 山形定*, 太田幸雄*, 原 宏**
Tomoo YAMASHITA*, Naoto MURAO*, Sadamu YAMAGATA*,
Satio 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 . 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 three stations show different temporal trends for total nss- SO_4 wet deposition amount, the monthly contributions of the $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ factor to nss- SO_4 wet deposition were fairly constant for the studying years. The acidity seemed to be controlled by the neutralization by soil particles.

KEY WORDS: Acid deposition, Daily wet deposition in Japan, PMF, Trajectory

1. はじめに

酸性沈着の影響を考える場合、硫酸や硝酸の酸としての沈着量評価が不可欠である。本研究では、輪島、竜飛、利尻の降水化学データに因子分析の一種である PMF(Positive Matrix Factorization)法および流跡線解析を適用し、3 地点の酸沈着量の月、年変動や発生源寄与などを調べることを目的とした。

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、青森県竜飛、北海道利尻の3地点をデータとして用いた。捕集期間、サンプル数は輪島が1995.4.1-2001.3.31の905サンプル、竜飛が1998.4.1-2005.12.31の716サンプル、利尻が1998.4.1-2001.3.31、2003.4.1-2005.12.31の526サンプルである。

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(―)、 G は総イオン沈着量($\mu\text{eq}/\text{m}^2$)になる。また、本研究では因子数 p を 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、等音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。因子ごとに流跡線を作成し、到達日は、各因子の湿性沈着量が高かった 50 日の中から 1 因子のみ高い日を採用した。

3. 結果

(1) PMF 解析

PMF 解析によって得られた各因子のイオン構成比(輪島)を図 1 に示す。3 地点とも同様のイオン構成を示しており、各因子の解釈は以下の通りである。

因子 1: SO_4^{2-} と NH_4^+ で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+} や Mg^{2+} を多く含み、また SO_4^{2-} や NO_3^- を含むことから、黄砂や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。

$\text{SO}_4^{2-}/\text{Na}^+$ 、 $\text{Ca}^{2+}/\text{Na}^+$ 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。

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と考えられる。

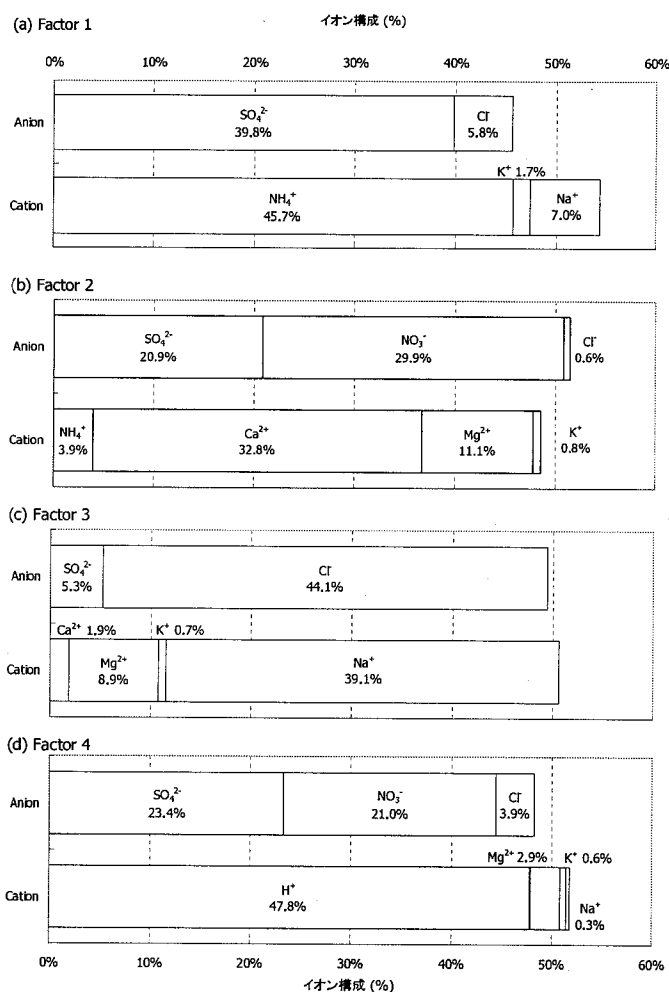


図 1 各因子の構成

次に、酸性沈着において重要な非海塩硫酸塩沈着量の各地点での月変動を表したものを図2に示す。

非海塩硫酸塩は因子3(海塩)を除く因子1、2、4で構成される。この図は各因子の寄与割合を月別に表したものである。

輪島では、因子1(硫酸アンモニウム)の寄与が一年を通して50%でほぼ一定である。よって、輪島での $\text{nss}\cdot\text{SO}_4^{2-}$ 沈着量の半分はアンモニアで中和されていると考えられる。因子2(土壌)の寄与は3~5月(春)に多いことから、黄砂の影響を受けているといえる。因子4(酸)の寄与は、因子2の寄与が大きい春に小さく、夏に最大となっている。

竜飛では、因子1の寄与は輪島に比べて小さくなっているが、一年を通してほぼ一定であるといえる。因子2の寄与も輪島と同様春に大きく、輪島よりも寄与割合は大きくなっている。因子4も輪島と同じ季節変動を示しているが、因子1の寄与が輪島よりも小さいため、全体的に因子4の寄与割合が大きいという結果になった。

利尻では、各因子の季節変動は輪島、竜飛に似ているが、3地点の中で最も因子1の寄与割合が小さかった。

以上のことから、因子1(硫酸アンモニウム)の寄与は3地点とも一年を通じてほぼ一定であるが、輪島→竜飛→利尻と北に行くにつれて因子1の寄与が小さくなっていることから、アンモニアによる中和を受けにくくなっていると考えられる。因子2(土壌)の寄与は3地点とも春に最大、夏に最小となり、因子4(酸)の寄与は春に最小、夏に最大という結果になった。したがって、 H^+ 沈着量は土壌粒子による硫酸イオンの中和の大小で決まっているように見える。

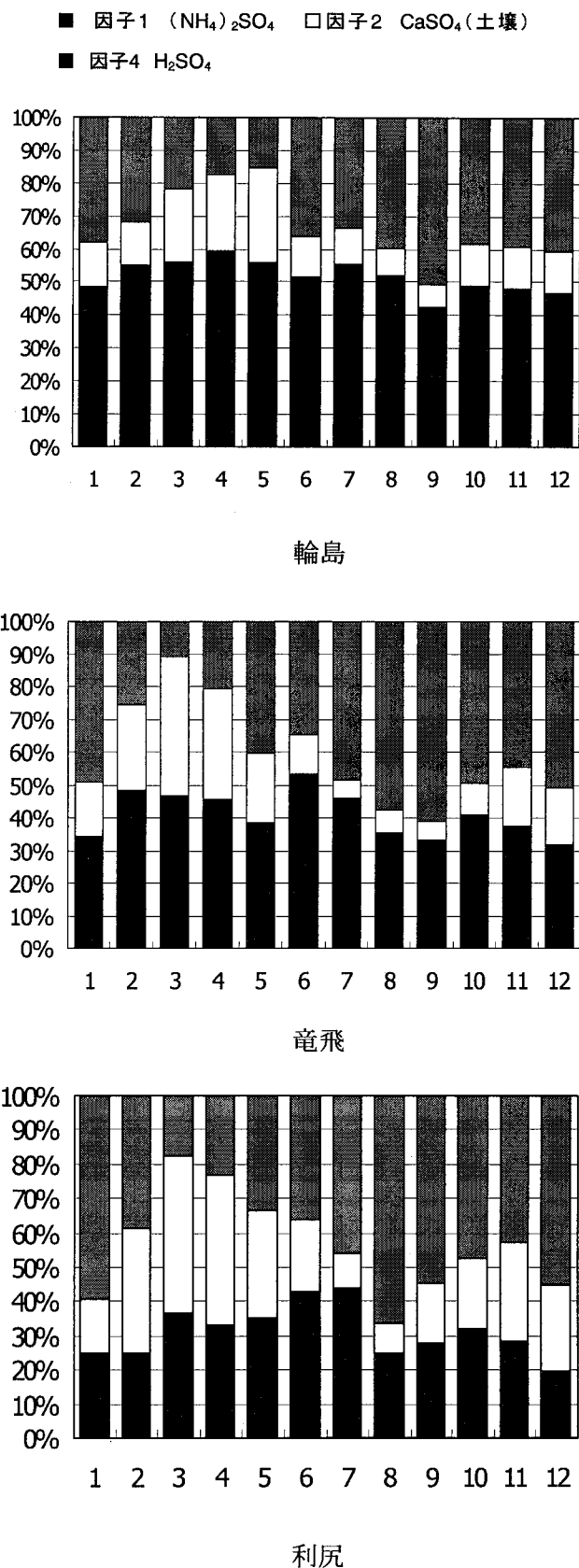


図2 $\text{nss}\cdot\text{SO}_4^{2-}$ 沈着量の月変動

(2) 後退流跡線

因子 3 (海塩) を除く因子 1、2、4 の各因子のみが高かった日に対して後退流跡線を作成した。輪島の流跡線を以下に示す。

図 3：因子 1 (硫酸アンモニウム)

輪島ではアンモニアの発生量の多い中国中央部からの低高度での輸送が多く見られることから、現地で生成した硫酸アンモニウムがそのまま輸送されたことが考えられる。また、竜飛や利尻への因子 1 の沈着量が高い日の流跡線は、同じく大陸からの輸送を示すが、輪島と比較して流跡線は北よりとなっており、大陸北部ではアンモニアの中和を受けにくいことが示唆される。

図 4：因子 2 (土壌)

因子 2 の沈着量が高い日は 3～5 月 (春) に多く、輪島への流跡線を見ると、中国北部からの高高度で長距離輸送されている線が多く見られることから、黄砂の影響が大きいと考えられる。竜飛や利尻も同様、黄砂の影響と考えられる線が多く見られた。

図 5、図 6：因子 4 (酸) の夏と冬

因子 4 の沈着量が高い日は、3 地点とも夏と冬に多かった。夏の流跡線を見ると、輪島、竜飛では国内からの輸送がほとんどであり、利尻では韓国の寄与が大きいように見える。一方、冬の輪島の流跡線では、大陸からの高高度での輸送が多く見られ、竜飛でも同様な結果だった。すなわち、冬季の硫酸の沈着は、大陸で排出された SO_2 が上空に巻き上げられ、輸送中に酸化されて、もたらされたと考えられる。また、利尻についてはロシアからの寄与が示唆された。

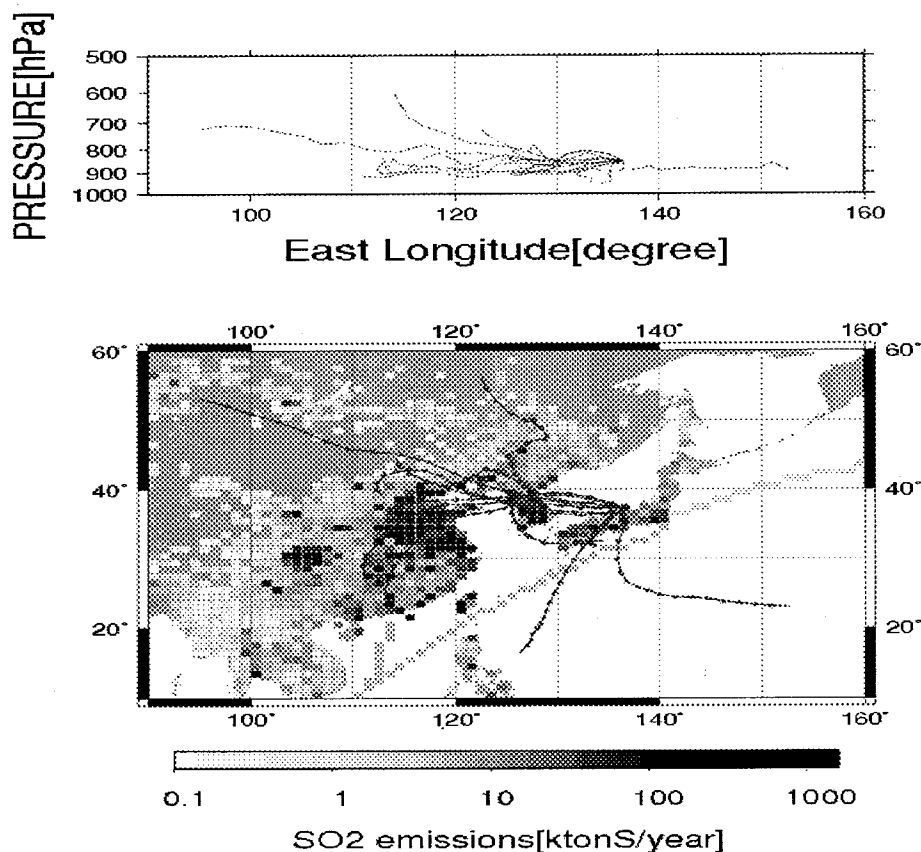


図 3 因子 1 (硫酸アンモニウム) の流跡線

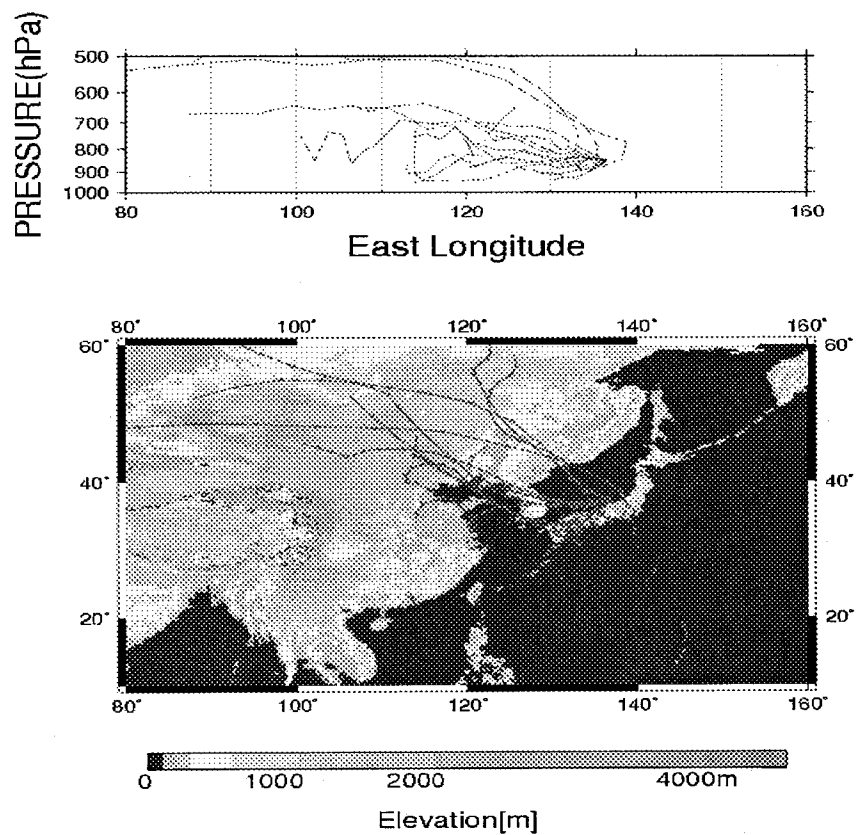


図4 因子2(土壌)の流跡線

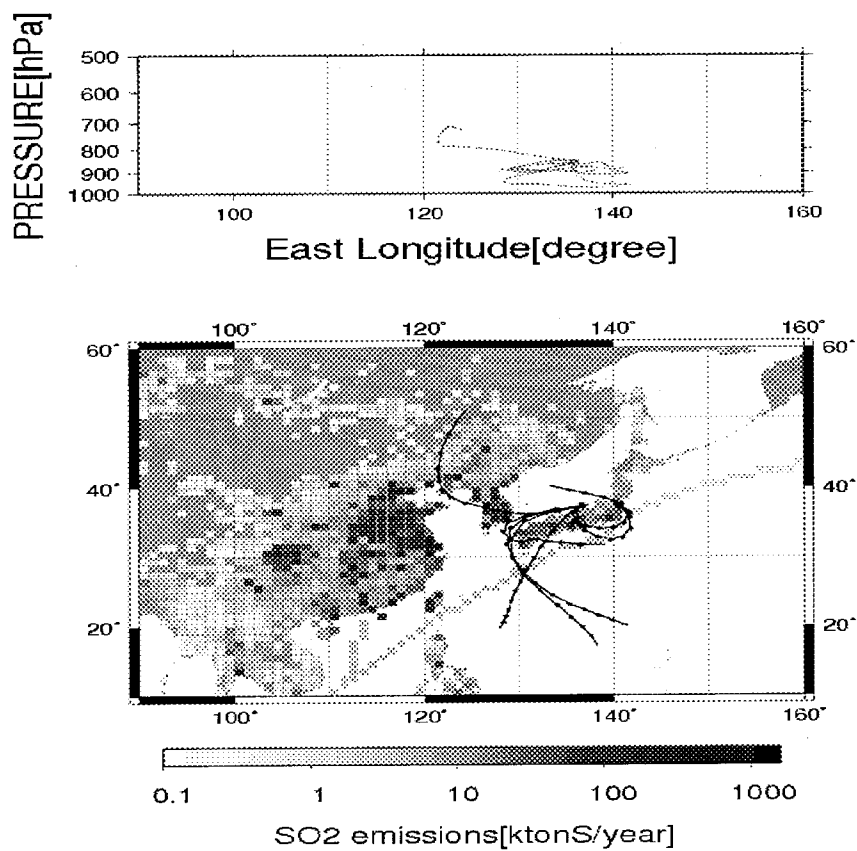


図5 因子4(酸)の夏の流跡線

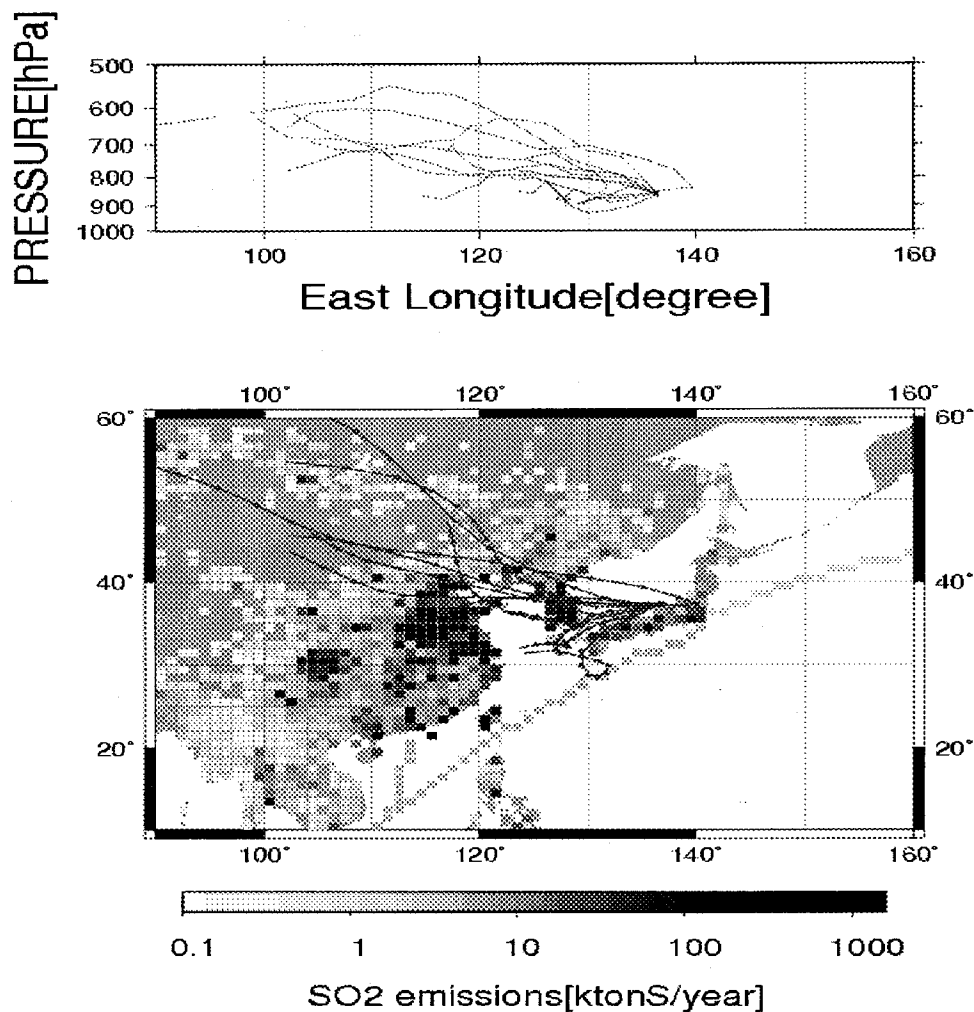


図6 因子4（酸）の冬の流跡線

4. まとめ

PMF法を輪島、竜飛、利尻の降水データ解析に適用することによって、酸性沈着量の月変動を把握できた。また、後退流跡線を作成することによって、各因子の発生源を推定することができた。その結果、酸性沈着において重要な非海塩性硫酸イオンは因子3（海塩）を除く因子1（ $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ ）、因子2（ CaSO_4 ）、因子4（ H_2SO_4 ）の3つの因子から構成されている。酸因子（因子4）の沈着量が高い日は、3地点とも因子2の寄与が小さくなる夏と冬に多く、それらの流跡線を見ると、輪島、竜飛では国内からの輸送がほとんどであり、利尻では韓国の寄与が大きかった。一方冬季の流跡線では、輪島と竜飛では、大陸から高高度での輸送が多く見られた。これは大陸で排出された SO_2 が上空に巻き上げられ、輸送中に硫酸に酸化されて、もたらされたと考えられ、中国からの酸沈着への寄与の多くはそのような形で生じると考えられる。また冬季の利尻ではロシアからの寄与が示唆された。

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 program PMF2 and PMF3(1998)