４.５　発生源寄与の推定

４．５．１　計算方法

従来から6発生源×7項目の線形計画法により発生源寄与の推定を行ってきたが、ここ数年、いくつかの問題があり、発生源データの選定や二次粒子の計算方法については、年毎に変動する状況が続いている。（１）線形計画法は、負の寄与が計算されないという長所があるが、分析項目ごとに寄与の合計が環境濃度以下に制限するため、項目数を増やすと寄与量の合計が小さくなりやすい欠点があり、最近の多成分分析の結果を応用しにくい面がある。これに対して、米国EPAが提唱している有効分散最小二乗法（EPA-CMB8.2）では、測定誤差で重みを付けて計算値と実測値の差を最小化するもので、計算値が実測値を上回る場合もあるが、分析項目数を増やしても一方向的な影響は出にくい特長がある。また、負の寄与となる発生源についても自動的に除外して計算するようにプログラム化されていて便利になっている。(2)このEPA-CMB8.2は1998年にCMB8.0が米国EPAのホームページに公開され、早狩らがエクセルマクロに移植したことにより（3）、国内でもよく利用されるようになっている。その後、2005年にCMB8.2(4)としてWindowsベースで実行可能な形式として公開され、このバージョンも国内でも数多くの研究者が利用しており、(5-11)発生源寄与率推定のデファクトスタンダードとなりつつある。

そこで、今回は、このCMB8.2を用いて発生源寄与率計算を行い、従来からの線形計画法の計算結果との比較を行うこととした。東京都微小粒子状物質検討会報告書(5)の発生源データを引用して計算した山神らの報告(6)を参考にして、表4-5-1の8発生源×20項目の発生源データを用いて計算を行った。ただし、山神らは東京都微小粒子状物質検討会報告書からBrを除いた8発生源×20項目で計算を行っているが、フィッティング（最小二乗の適合計算）に用いたのはSO42-、NO3-、Cl-、NH4+、OCを除いた15項目である。当初、山神らと同じ15項目をフィッティングに用いて、今回のデータについて計算したところ、多重共線性の問題から計算不能となる事例がいくつか発生したため、全地点で計算結果が得られるように項目を選択した結果、Scを除いた14項目のときに全地点で計算結果が得られた。これはScが検出限界以下となることが多いことが一因と考えられる。ただし、埼玉県の鴻巣、日高、秩父の3地点については、Alの分析値に問題があるとの報告があり、この3地点だけはAlの代わりにScで計算を行った。

環境データは、夏季調査期間の全期間にあたる原則14個のデータを平均し、検出限界以下のデータについては、検出限界の値の半分とした。測定誤差については、14個のデータの標準偏差を用いた。二次粒子の計算については、SO42-、NO3-、Cl-、NH4+の合計にOCの1.4倍を加えた後、寄与率計算で得られた一次粒子分を差し引いて計算した。差し引くOCについても1.4倍とした。CMB8.2の計算では、いくつかのオプションが付けられるが、今回はSource Eliminationのみを選択した。これは「負となる発生源について除外して再計算する」ものである。

線形計画法による推定では、同一条件で比較するため、従来に無い2発生源及び6項目を増やした8発生源×14項目で計算を行った。ただし、線形計画法の原理に照らして、検出限界以下の値は、そのまま検出限界の値を用いた。二次粒子の計算方法も、前述のCMB8.2と同様とした。なお、埼玉県の鴻巣、日高、秩父の3地点については、Alの代わりにScで計算を行った。

表4-5-1　発生源データ



４．５．２　EPA-CMB8.2による計算結果

EPA-CMB8.2による計算結果を表4-5-2及び図4-5-1に示す。二次粒子の赤字は、市原、千葉、横浜、川崎の4地点で不明分が負になったため、不明分がゼロになるように二次粒子の量を減らしたことを示している。8発生源全ての寄与が計算されたのは、佐倉、多摩、大和、川崎、相模原の5地点だけであった。また、全地点で寄与が計算された発生源は石油燃焼のみで、鉄鋼工業と廃棄物焼却は1地点を除く25地点で計算された。寄与が計算された発生源からの一次粒子分のイオン種を差し引いたが、二次粒子の寄与が非常に大きく、どの地点でもPM2.5の半分以上を占め、最大の寄与率となった。全平均で二番目に寄与率が大きい発生源は自動車排ガスで、三番目に石油燃焼と続くが、量的には二次粒子の5分の1以下となっている。勝浦、横浜、富士、湖西で自動車排ガスがゼロとなっているが、石油燃焼が増えているため無機元素の構成比により配分されたものと考えられる。

表4-5-2　 EPA-CMB8.2による計算結果（単位：g/m3）



（注）二次粒子の赤字は不明分が負になったため、不明分がゼロになるように調整した。



図4-5-1　 EPA-CMB8.2による計算結果（単位：g/m3）

　真岡については、極端に植物燃焼が多いが、これは7/26-27の試料の影響が大きく、これを除いた時と比較すると図4-5-2のようにPM2.5濃度も3g/m3程度低くなり、植物燃焼の寄与が他の地点と変わらない程度にまで低くなる。その一方で、自動車の寄与が高くなっている。極端に植物燃焼が多くなる原因としては、K濃度が全期間平均で10倍程度、他の地点よりも高く、7/26-27の日データでは100倍程度高くなっているためと考えられる。



図4-5-2　 真岡におけるEPA-CMB8.2による計算結果（単位：g/m3）

表4-5-3に今回のCMB8.2での計算結果の妥当性スコアを示す。R2はフィッティングに用いた項目の誤差で重み付けした実測値と計算値の相関係数の二乗である。マニュアル（2）には、0.8未満ではよく説明できていないと書かれている。χ2は実測値と計算値の差の二乗和を誤差で重みづけした後、自由度（＝項目数－発生源数）で除したものである。マニュアルでは、１未満が良い適合で、1～2なら受け入れ可、4以上なら一つ以上の項目がよく説明されていないと書かれている。

％MASSは計算された寄与量が実測値のPM2.5濃度に占める割合であり、今回は二次粒子の計算を後で行ったため、二次粒子分を加えた値を示した。マニュアルにはPM2.5濃度が10g/m3未満でなければ、80～120％の範囲で受け入れ可とある。

以上の3つの判断基準を元に妥当性を評価すると3基準とも合格となるのは、26例中15例で、複数の不適合は富津、横浜、東山梨の3地点であった。中でも横浜は3つの基準とも満たさず、χ2を大きくしている原因を調べるとEC、V、Seの実測値が高く、現在の発生源データのセットでは説明できないためと考えられた。こうした地点については、ローカルな未知の発生源の影響を受けたか、あるいはいずれかの項目が何らかのコンタミネーションを受けた可能性がある。

　　　　　　　　

**表4-5-3　EPA-CMB8.2の計算結果の妥当性スコア**

（注）赤いセルは不適合を示す

４．５．３　線形計画法による計算結果

線形計画法による計算結果を表4-5-4及び図4-5-3に示す。二次粒子の赤字は不明分が負になったため、ゼロになるように二次粒子の量を調整したことを意味するが、CMB8.2の4地点に真岡を加えた5地点で調整した。自動車排ガスと植物燃焼は全地点で計算された。全地点で廃棄物焼却の寄与が計算されていない点は疑問であるが、比較的似た組成の植物燃焼に振り分けられた可能性がある。CMB8.2と同様に二次粒子の寄与が最大であるが、二番目が植物燃焼で、三番目に自動車排ガスと続いていて、植物燃焼が多く計算されている点が特徴である。不明分の割合は、CMB8.2と同程度あり、実質的に二番目の量を占めている。

表4-5-4　 線形計画法による計算結果（単位：g/m3）



（注）二次粒子の赤字は表4-5-2と同じ



図4-5-3　 線形計画法による計算結果（単位：g/m3）

図4-5-4に二つの計算方法の結果の比較を散布図にして示した。道路粉じんについては、CMB8.2＞線形計画法の傾向はあるものの、一定の直線関係が認められる。海塩粒子については、逆に線形計画法＞CMB8.2の傾向があるが、ここでも相関関係が認められる。鉄鋼工業については、線形計画法でゼロとなる事例が多いが、計算されている場合は直線的な関係が認められる。石油燃焼については、バラツキが大きいものの、CMB8.2＞線形計画法の傾向があり、おおむね正の相関がある。自動車排ガス及びブレーキ粉じんについても、バラツキがあるものの、一定の関係性が認められる。しかし、植物燃焼については、CMB8.2で寄与が計算されないことが多く、計算された場合でも一致も悪く、両者の関係はほとんど認め難い。特に真岡での計算結果が大きく異なっているが、この原因としては、CMB8.2が環境中のK濃度を半分程度しか説明していないが、線形計画法では100％説明しているため、植物燃焼の寄与の差が大きくなったものと考えられる。線形計画法では指標元素の適合を優先するため、こうした差になったものと考えられる。二次粒子については、計算方法が同様なこともあり、真岡と横浜の2データを除けば、よい直線関係が認められる。



図4-5-4　CMB8.2と線形計画法の比較（単位：g/m3）

　図4-5-5に沿岸部と内陸部に区分した結果を円グラフに示す。最大寄与の二次粒子の量はいずれの図でも50％以上を占めている。しかし、二番目に大きな発生源となると沿岸と内陸、計算方法で異なる結果となった。沿岸（線形）では、植物燃焼と自動車が同程度で二番手グループであり、内陸（線形）では植物燃焼が二番目である。沿岸（CMB8.2）では、石油燃焼が二番目で、内陸（CMB8.2）では自動車と植物燃焼が同程度で二番手グループとなっている。

各発生源について、計算方法による結果の差に注目すると、道路粉じんについては、土壌粒子との混在が考えられるが、線形計画法とCMB8.2では、沿岸では差がなく、内陸でCMB8.2＞線形計画法であった。しかし、海塩粒子については、沿岸で線形計画法＞CMB8.2で、内陸ではいずれの計算法も小さな割合として計算された。鉄鋼工業については、沿岸、内陸ともほとんど計算されなかったが、石油燃焼は沿岸＞内陸で、CMB8.2＞線形計画法となり、特に沿岸での差が顕著であった。廃棄物焼却はCMB8.2のみ計算されたが、自動車については沿岸も内陸も同程度の寄与が両計算法で得られた。ブレーキ粉じんについても、同様であった。植物燃焼については、計算方法による差が大きく、沿岸でも内陸でも線形計画法がかなり大きな寄与を示し、特に内陸での寄与が大きく計算された。不明分については、沿岸の線形計画法でやや大きいものの、10％強でほぼ同程度であった。



図4-5-5　線形計画法とCMB8.2による発生源寄与率の比較

４．５．４　まとめと今後の課題

　14項目×8発生源の発生源データを用いて、レセプターモデルの代表的な推定方法であるEPA-CMB8.2と線形計画法について、発生源寄与率の推定の比較を沿岸と内陸に分けて行った。二次粒子については、計算方法によらず、50％以上の最大寄与となり、沿岸でも内陸でもほぼ同程度の寄与が計算された。また、海塩粒子、自動車鉄鋼工業、ブレーキ粉じんなどの発生源についても計算方法による差が小さかった。しかし、廃棄物焼却については、CMB8.2では一定以上の寄与が計算されたが、線形計画法では全く計算されなかった。石油燃焼の寄与は、計算方法による差が大きく、特に沿岸で差が大きくなった。全体的に二つの計算方法の結果に一定の関係は見られるが、植物燃焼の寄与は、両計算法の関係性が乏しく、特に内陸での差が顕著であった。

　今後の課題としては、CMB8.2は誤差の大きさにより、かなり計算結果に影響することから、適正な誤差を設定する手順を確立することが必要である。測定項目の選定も重要で、項目によっては、全データが検出限界以下であることも珍しくないことから、全地点を横並びで評価できるような項目を選定する必要がある。また、従来から指摘していることであるが、実態に合った発生源データの入手と従来からの発生源データの精査も必要である。計算方法により、発生源の寄与がかなり異なる場合があるため、PMFのような手法を用いて、寄与の計算結果の検証を行うことも検討課題である。

　二つの計算法で、それぞれ長所・短所があるものの、全体的な傾向としては、CMB8.2の方が受け入れやすい結果となっている。また、計算が妥当であったかを示す評価指数も複数あり、詳細なマニュアルも整備されていることから、今後はCMB8での計算を行うこととしたい。また、無機二次粒子の計算については、CMB8.2のマニュアルにも書かれているように硫酸アンモニウムや硝酸アンモニウムを発生源データとして計算することも検討課題である。

参考文献

【1】例えば、関東地方環境対策推進連絡会浮遊粒子状物質調査会議：平成25年度浮遊粒子状物質合同調査報告書　平成27年3月

　http://kanto-spm.org/results/

【2】EPA：EPA-CMB8.2 Users Manual

http://www3.epa.gov/ttn/scram/models/receptor/EPA-CMB82Manual.pdf

【3】早狩　進、花石竜治：環境データ解析用表計算マグロの紹介と解析例(II)　大気環境学会誌　36巻1号39頁（2001）

【4】EPA：Chemical Mass Balance(CMB) Method

http://www3.epa.gov/scram001/receptor\_cmb.htm

【5】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）

http://www.kankyo.metro.tokyo.jp/air/pm25v23.pdf

【6】山神真紀子、久恒邦裕、池盛文数：微小粒子状物質（PM2.5）の発生源寄与率の推定. 名古屋市環境科学調査センター年報第１号（2012）

http://www.city.nagoya.jp/kankyo/cmsfiles/contents/0000045/45031/pm2.5hasseigennkiyoritusuitei.pdf

【7】横田 久司、秋山 薫、三好 猛雄、上野 広行、石井 康一郎、樋口 幸弘、伊藤 雄一：CMB 法によるPM2.5 発生源寄与割合の試算について　東京都環境科学研究所年報2010

http://www.tokyokankyo.jp/kankyoken\_contents/report-news/2010/houkoku218.pdf

【8】飯島明宏：大気モデル　―レセプターモデル―　大気環境学会誌　第46巻4号（2011）

https://www.jstage.jst.go.jp/article/taiki/46/4/46\_4\_A53/\_pdf

【9】武田麻由子、小松宏昭：神奈川県における微小粒子状物質（PM2.5）の特徴について（平成24年度）(2)CMB 法を用いた発生源寄与の推定．神奈川県環境科学センター研究報告 第36 号 (2013)

http://www.k-erc.pref.kanagawa.jp/center/kankoubutu/bulletin-n/h25bull/h25bull03.pdf

【10】相部 美佐緒 木戸 瑞佳 山﨑 敬久 初鹿 宏壮 源 将：微小粒子状物質（PM2.5）の実態把握調査　富山県環境科学センター年報　第42号 ｐ.69（2014）

http://www.eco.pref.toyama.jp/nenpo/pdf/n26/42-4-1-1.pdf

【11】三宅 健司、篠原英二郎、萱沼 広行、前田有美恵： 静岡県内における微小粒子状物質（PM2.5）濃度状況について（第2報）―質量濃度および成分分析結果（2013年度）―　静岡県環境衛生科学研究所報告．No.57 p.57（2014）

http://www6.shizuokanet.ne.jp/eikanctr/nenpo/nenpo57.pdf