５　発生源寄与の推定

5.1　計算方法

発生源寄与の推定にはレセプターモデルの１つであるCMB(Chemical Mass Balance)法を用いた。CMB法にはいくつかの手法があり、平成26年度報告書1)で、従来使用してきた線形計画法と米国EPAが提唱し計算ソフトを頒布している有効分散最小二乗法（EPA-CMB8.2）の比較を行った。その結果、全体的にEPA-CMB8.2の方が妥当な結果が得られる傾向があった。また、計算の妥当性を示す複数の評価指数やマニュアル2)も整備されていることから、平成27年度報告書3)からEPA-CMB8.2により発生源寄与の推定を行っている。

計算方法については、平成28年度報告書4)と同様とし、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、基本的には表5-1-1の20項目×8発生源の発生源データを用いることとした。フィッティング（CMB法の適合計算）の項目としてはOCを除き、SO42-、NO3-、Cl-、NH4+については、硫酸アンモニウム[(NH4)2SO4]（SO42-：72.7%、NH4+：27.3%）、硝酸アンモニウム[NH4NO3]（NO3-：77.5%、NH4+：22.5%）と塩化アンモニウム[NH4Cl]（Cl-：66.3%、NH4+：33.7%）を発生源として加えた19項目×11発生源でCMB計算を行うところ、今回はスカンジウム（Sc）が全地点・全季節を通じて7割近く検出下限値未満であったことから、フィッティングから除き、18項目×11発生源で計算を行った。ただし、有機エアロゾルの二次粒子についてはOCの分析値から別に計算を行う方法とし、OCの分析値から寄与率計算で得られた一次粒子分を差し引いた値に1.6倍を乗じて算出した。

表記については、(NH4)2SO4は硫酸塩の二次粒子であるため、「二次（硫酸塩）」とする。同様にNH4NO3は「二次（硝酸塩）」、NH4Clは「二次（塩化物）」とする。有機エアロゾルの二次粒子については「二次（OC）」とする。「その他」と表記する分については、水分や不明分が含まれるが、二次粒子の過剰分も含まれている点に注意が必要である。

　その他、本報告書におけるCMB計算の設定条件は以下の通りとした。

1. 計算に用いる環境データは、指定した各調査期間にあたる14日間を対象とした。“CMB計算に使用する成分” が全て揃っている日を“有効な日”とし、CMB計算に使用する成分が1つでも欠ける場合は、平均値を算出した際に全体の成分バランスを崩さないことを優先して、その日の全てのデータを除いた測定期間の平均値を用いた。
2. 検出下限値未満のデータの取り扱いについては、検出下限値の1/2の値を代入した。ただし、OC、ECの各フラクションが検出下限値未満である場合は、0としてOC、ECを算出した。
3. 測定誤差（uncertainty）については、有効な日のデータの標準偏差を用いた。ただし、調査期間14日間全てで検出下限値未満であった場合は、標準偏差がゼロとなって計算できないため、標準偏差を検出下限値の1/2として計算した。
4. CMB計算のオプションは、昨年度と同様に「負の寄与となる発生源について除外して再計算する」Source Eliminationのみを選択した。

上記の①を受け、期間平均値を算出する際に、除外した日付（有効な日とならなかった日）及びCMB計算の対象外としたケースは以下の通りである。

春季　吾妻　　炭素成分が欠測のため、5/17の全ての成分を除外して算出

勝浦　　欠測のため、5/9を除外して算出

　　　吉田　　無機元素が欠測のため、5/18の全ての成分を除外して算出

夏季　勝浦　　欠測のため、7/19を除外して算出

相模原　欠測のため、7/21を除外して算出

秋季　浜松　　全期間でAlが欠測のため欠測地点として扱い、CMB計算の対象外とし

た。

冬季　真岡　　有効な日が調査期間の半分に満たないため欠測地点として扱い、CMB計

算の対象外とした。

表5-1-1　発生源データ（単位：g/g）



5.2　春季の計算結果

PM2.5濃度の期間平均値（14日間平均）の全地点の平均値は12.2 μg/m3で四季の中で最も高く、全24地点のうち期間平均値が15 μg/m3を超えたのが2地点で、最大値は前橋の18.0 μg/m3であった。

春季の計算結果を図5-2-1と図5-2-2に示す。なお、発生源寄与量の計算値の合計がPM2.5濃度の観測値を超過した場合は、棒グラフでは「その他」において超過分をマイナス値とし、円グラフでは「その他」をゼロとして取り扱った。また、円グラフは大きさがPM2.5濃度の期間平均値に比例するように表し、重なりを減らして見やすくするためにいくつかの地点の位置を調整した。

寄与率は二次（OC）が最も高く、25～47%を占め、全地点の平均値が34%であった。次に二次（硫酸塩）が高く、17～40%を占め、全地点の平均値が31%であった。石油燃焼は、四季全てを解析対象とした平成27年度以降、夏季が最も高かったが、今年度は春季が最も高かった。特に市原、富津、綾瀬、横浜、川崎の東京湾岸沿いの地点で高い傾向があった。ただし、この5地点では、自動車の寄与率がゼロないしは低く、自動車の寄与が石油燃焼に含まれて計算された可能性も考えられる。なお、さいたま等8地点でその他がマイナスとなった。

5.3　夏季の計算結果

PM2.5濃度の期間平均値の全地点の平均値は11.3 μg/m3で春季の次に高かったが、期間平均値が15 μg/m3を超えていたのは、長野の1地点であった。

夏季の計算結果を図5-3-1及び図5-3-2に示す。寄与率は二次（OC）が高く、23～52%を占め、全地点の平均値が38%であった。次に二次（硫酸塩）が高く、22～44%を占め、全地点の平均値が37%と二次（OC）とほぼ同程度あり、両項目を合わせると6～8割程度を占めていた。その一方で、二次（硝酸塩）は四季で最も少なく、二次（塩化物）は全ての地点でゼロであった。石油燃焼は、春季よりも寄与量はやや少なかったが寄与率としてはほぼ同程度であり、春季と同様に市原、富津、横浜、川崎の東京湾岸沿いの地点で寄与率が高く、自動車の寄与率がゼロもしくは低い傾向があった。なお、さいたま等7地点でその他がマイナスとなった。

5.4　秋季の計算結果

PM2.5濃度の期間平均値の全地点の平均値は9.5 μg/m3で四季の中で最も低く、期間平均値が10 μg/m3を超えたのは、全23地点（欠測扱いの浜松を除く）中、10地点であった。

秋季の計算結果を図5-4-1及び図5-4-2に示す。寄与率は二次（OC）が最も高く、26～43%を占め、全地点の平均値が35%であった。次に二次（硫酸塩）が高く、16～32%を占め、全地点の平均値が23%であった。春季夏季に比べて自動車、二次（硝酸塩）の寄与率が高くなり、それぞれ12%、７%を占めた。その一方で石油燃焼は春季夏季の半分以下に寄与率は低下した。植物燃焼は地点差が大きいが、真岡、秩父では寄与率が1割を超え内陸で寄与率が高い傾向が見られた。二次（塩化物）は春季、夏季と同様の傾向で1地点を除いてゼロであった。なお、全地点の半分の12地点でその他がマイナスとなった。

5.5　冬季の計算結果

PM2.5濃度の期間平均値の全地点の平均値は9.7 μg/m3で四季の中で最も低い秋季と同程度であり、期間平均値が10 μg/m3を超えたのは全23地点（欠測扱いの真岡を除く）中、8地点であった。

冬季の計算結果を図5-5-1及び図5-5-2に示す。寄与率は二次（OC）が最も高く、18～40%を占め、全地点の平均値が28%であった。次に二次（硫酸塩）が高く、13～30%を占め、全地点の平均値が20%であった。二次（硝酸塩）、自動車、土壌・道路粉じんの寄与率が四季の中で最大となった。二次（硝酸塩）は3地点で20%を上回り、全地点の平均値が14%であった。自動車は4地点で15%を上回り、全地点の平均値が12%であった。土壌・道路粉じんは南関東を中心に寄与率が高く、富津では31%を占め、全地点の平均値が11%であった。この要因として、調査期間中、南関東では降雨が観測されておらず、平均風速も他年度調査期間よりもやや大きかったことから土壌・道路粉じんが飛散しやすい状況だったことが推察された。また、他の季節ではほぼゼロであった二次（塩化物）が計算されるようになったが、ほとんどの地点で0.3 g/ m3以下と寄与量は小さかった。

なお、全地点の半分以上の16地点でその他がマイナスとなった。マイナスの地点が増える要因は不明であるが、冬季は昨年度も同様の傾向があり、OCの係数や発生源プロファイルの冬季における適合性等を、今後検討する必要がある。



図5-2-1　2018年春季の発生源寄与量の推定結果（単位：μg/m3）



図5-2-2　2018年春季の発生源寄与率の推定結果（マップ）



図5-3-1　2018年夏季の発生源寄与量の推定結果（単位：μg/m3）



図5-3-2　2018年夏季の発生源寄与率の推定結果（マップ）



図5-4-1　2018年秋季の発生源寄与量の推定結果（単位：μg/m3）



図5-4-2　2018年秋季の発生源寄与率の推定結果（マップ）



図5-5-1　2018年冬季の発生源寄与量の推定結果（単位：μg/m3）



図5-5-2　2018年冬季の発生源寄与率の推定結果（マップ）

5.6　四季の結果の妥当性について

四季の計算の妥当性の評価値を表5-6-1に示す。

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。EPA-CMB8.2のマニュアルでは、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1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（OC）の計算を後で行ったため、二次（OC）分を加えた値を示した。マニュアルにはPM2.5濃度が10μg/m3未満でなければ、80～120%の範囲で受け入れ可とある。

表5-6-1　四季の計算結果の妥当性



　R2が0.8未満だったのは、春季が2例、夏季が6例、秋季が2例、冬季が1例であった。χ2が2を超えたケースはなかったが、%MASSが80%未満であるケースは、春季に2例、夏季に1例あり、%MASSが120%を超えたケースは、夏季と秋季に1例ずつ、冬季に2例あった。なお、夏季の川崎は137%と120%を大きく超過した。寄与率計算で使用した18成分の濃度を合計すると観測されたPM2.5濃度の6～8割程度を占めることが多いが、全地点全季節を通じて唯一夏季の川崎だけがPM2.5濃度を超えている状況であった。年間を通じて妥当性の評価で一つも不適合とならなかったのは12地点（冬季欠測の真岡を含む）あり、不適合は2項目あったのが5地点、1項目だけあったのが7地点と特定の地点で不適合が多いケースは見られなかった。また、EPA-CMB8.2による発生源寄与の推定を開始した平成27年度以降からの結果と比較しても不適合率が低かった。このため今年度の計算の妥当性は高く、適切なものであったと考えられる。

5.7　季節別・区分別の発生源寄与について

5.7.1　寄与量について

　表5-7-1に季節別、区分別の傾向をまとめた。この表で「最大データ」というのは、全計算結果の中で、寄与量（μg/m3）が最大となった地点と季節を示している。表中の数値は、その季節の全地点の寄与量の平均値を示している。四季を通じて比較すると、春季に多かった発生源は、石油燃焼であった。夏季に多かった発生源は、二次（硫酸塩）、二次（OC）であったが、この2項目については春季もほぼ同程度の寄与量があった。秋季に多かった発生源は、ブレーキ粉じん、植物燃焼であった。冬季に多かった発生源は、土壌・道路粉じん、海塩粒子、鉄鋼、廃棄物焼却、自動車、二次（硝酸塩）、二次（塩化物）であった。

表5-7-1　季節別・区分別の発生源寄与量



　沿岸、内陸の区分別にみると、概ね沿岸＞内陸の傾向が見られるものとしては、海塩粒子、鉄鋼、石油燃焼、ブレーキ粉じん、二次（硫酸塩）、二次（塩化物）が挙げられる。特に、鉄鋼と石油燃焼は寄与量の差が明確に現れていた。一方、概ね沿岸＜内陸の傾向が見られるものとしては、廃棄物焼却、自動車、植物燃焼が挙げられる。特に、植物燃焼は寄与量の差が明確に現れていた。ただし、自動車の最大データは冬季の富津（沿岸）であった。

5.7.2　寄与率について

　図5-7-1に春季の沿岸・内陸の区分別の平均寄与率を示す。最大寄与は沿岸が二次（硫酸塩）、内陸が二次（OC）粒子で、寄与率はそれぞれ33%、36%であった。2番目は沿岸が二次（OC）粒子、内陸が二次（硫酸塩）で、寄与率はそれぞれ31%、27%であり、両項目の合計は沿岸と内陸でそれぞれ64%、63%で同程度であった。3番目は、沿岸が石油燃焼（10%）で、内陸は自動車（9%）であり、石油燃焼と自動車の寄与率の合計は沿岸が14%、内陸が12%であった。沿岸において石油燃焼の寄与率が高かったのは、コンビナートや工場や船舶等、石油燃焼の発生源が内陸に比べて多いことから妥当と考えられるが、平成29年度報告書4)と同様に自動車の寄与率がゼロという結果が石油燃焼寄与率の高い市原と横浜において得られている。同報告に記述されているように、石油燃焼の指標であるVの濃度が高いケースでは、“石油燃焼”と“自動車”と両発生源の主要成分であるECの取り合いをしてECが石油燃焼に過重に取られて計算されたことが考えられる。また、近年の自動車のプロファイル自体も変化していると推測されることも影響を与えていると考えられる。



図5-7-1　春季の沿岸・内陸の区分別の寄与率

図5-7-2に夏季の沿岸・内陸の区分別の平均寄与率を示す。沿岸は二次（硫酸塩）と二次（OC）がほぼ同程度で、合わせて7割近くを占めた。内陸は二次（OC）が二次（硫酸塩）よりも若干高く、合わせて7割超となった。3番目に高い寄与率を示したのは、沿岸は石油燃焼で、内陸では自動車であった。なお、市原、富津、横浜、川崎では、春季と同様に、石油燃焼の寄与が高く、自動車の寄与率がゼロもしくは低かったことから、夏季も成分の取り合いにより、自動車の寄与が石油燃焼として計算された可能性も考えられる。



図5-7-2　夏季の沿岸・内陸の区分別の寄与率

図5-7-3に秋季の沿岸・内陸の区分別の平均寄与率を示す。最大寄与は沿岸と内陸ともに二次（OC）で、同程度の寄与率（35%と36%）であった。2番目の寄与である二次（硫酸塩）も沿岸と内陸でほぼ同程度の寄与率（23%と22%）であったが、春季夏季と比較するとやや低かった。3番目、4番目の寄与率は自動車、土壌・道路粉じんであったが、自動車は沿岸＜内陸、土壌・道路粉じんは沿岸＞内陸であった。



図5-7-3　秋季の沿岸・内陸の区分別の寄与率

　図5-7-4に冬季の沿岸・内陸の区分別の平均寄与率を示す。最大寄与は沿岸と内陸ともに二次（OC）で、同程度の寄与率（27%と30%）であった。2番目の寄与である二次（硫酸塩）も沿岸と内陸でほぼ同程度の寄与率（19%と20%）であったが、二次（OC）と二次（硫酸塩）の合計は5割を下回り、四季の中で最も低くなっていた。その分3番目以降の寄与率が高くなり、沿岸では土壌・道路粉じん、二次（硝酸）、自動車、石油燃焼の順でこれらの合計が約45%となり、内陸では二次（硝酸）、自動車、土壌・道路粉じん、植物燃焼の順でこれらの合計が約40%となった。土壌・道路粉じんは黄砂の影響等により春季



図5-7-4　冬季の沿岸・内陸の区分別の寄与率

くなるケースが見られるが、今年度は冬季に東京湾岸を中心に高い寄与率の地点が多かった。自動車については、寄与量としては四季のうち冬季のみ沿岸＞内陸であったが、寄与率としては冬季も内陸が高く四季を通して沿岸＜内陸という結果となった。

参考文献

1）関東地方大気環境対策推進連絡会：浮遊粒子状物質調査会議平成26年度浮遊粒子状物質合同調査報告書　関東におけるPM2.5のキャラクタリゼーション（第7報）（平成26年度調査結果）

2）EPA：EPA-CMB8.2 User’s Manual

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

3）関東地方大気環境対策推進連絡会：浮遊粒子状物質調査会議平成27年度浮遊粒子状物質合同調査報告書　関東におけるPM2.5のキャラクタリゼーション（第8報）（平成27年度調査結果）

4) 関東地方大気環境対策推進連絡会：微小粒子状物質調査会議平成28年度微小粒子状物質合同調査報告書　関東におけるPM2.5のキャラクタリゼーション（第9報）（平成28年度調査結果）

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レセプターワーキング報告書－レセプターモデルによるPM2.5発生源寄与割合の推定－

http://www.kankyo.metro.tokyo.jp/air/air\_pollution/torikumi/pm25-report2011.files/

9\_Receptor\_working\_report.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．1．p.20-25（2012）