

## 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<sup>リ</sup>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と考えられた。また、計算の妥当性を示す複数の評価指数やマニュアル<sup>リ</sup>も整備されていることから、平成 27 年度報告書<sup>リ</sup>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 30 年度報告書<sup>リ</sup>と同様とし、東京都微小粒子状物質検討会報告書<sup>リ</sup>の発生源データを引用して計算した山神らの報告<sup>リ</sup>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、 $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{Cl}^-$ 、 $\text{NH}_4^+$ については、硫酸アンモニウム $[(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4]$  ( $\text{SO}_4^{2-}$ : 72.7%、 $\text{NH}_4^+$ : 27.3%)、硝酸アンモニウム $[\text{NH}_4\text{NO}_3]$  ( $\text{NO}_3^-$ : 77.5%、 $\text{NH}_4^+$ : 22.5%) と塩化アンモニウム $[\text{NH}_4\text{Cl}]$  ( $\text{Cl}^-$ : 66.3%、 $\text{NH}_4^+$ : 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 8 割以上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、 $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$  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  $\text{NH}_4\text{NO}_3$  は「二次 (硝酸塩)」、 $\text{NH}_4\text{Cl}$  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。ただし、“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 なし

夏季 前橋 欠測のため、7/19 を除外  
勝浦 欠測のため、7/25 を除外

秋季 市原 欠測のため、10/24 を除外  
富士 全期間で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 市原 欠測のため、1/18 及び 1/19 を除外  
富士 欠測のため、1/28 を除外  
湖西 全期間でイオン成分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。

表 5-1-1 発生源データ（単位：g/g）

		SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>		NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>		Cl <sup>-</sup>		Na <sup>+</sup>		K <sup>+</sup>	
8 発 生 源	土壌・道路粉じん	5.68x10 <sup>-4</sup>	4.49x10 <sup>-4</sup>	1.93x10 <sup>-4</sup>	1.18x10 <sup>-4</sup>	3.35x10 <sup>-4</sup>	1.53x10 <sup>-4</sup>	1.25x10 <sup>-2</sup>	2.66x10 <sup>-3</sup>	1.27x10 <sup>-2</sup>	3.39x10 <sup>-3</sup>
	海塩粒子	7.80x10 <sup>-2</sup>	1.60x10 <sup>-2</sup>	0	0	5.51x10 <sup>-1</sup>	2.75x10 <sup>-2</sup>	3.04x10 <sup>-1</sup>	1.52x10 <sup>-2</sup>	1.10x10 <sup>-2</sup>	1.10x10 <sup>-3</sup>
	鉄鋼工業	0	0	0	0	3.41x10 <sup>-2</sup>	6.82x10 <sup>-3</sup>	1.36x10 <sup>-2</sup>	2.72x10 <sup>-3</sup>	1.32x10 <sup>-2</sup>	2.64x10 <sup>-3</sup>
	石油燃焼	3.18x10 <sup>-1</sup>	1.60x10 <sup>-1</sup>	0	0	9.20x10 <sup>-4</sup>	9.20x10 <sup>-4</sup>	1.00x10 <sup>-3</sup>	5.00x10 <sup>-3</sup>	8.50x10 <sup>-4</sup>	8.50x10 <sup>-4</sup>
	廃棄物焼却	0	0	0	0	2.70x10 <sup>-1</sup>	2.70x10 <sup>-2</sup>	1.20x10 <sup>-1</sup>	1.20x10 <sup>-2</sup>	2.00x10 <sup>-1</sup>	2.00x10 <sup>-2</sup>
	自動車排ガス	2.16x10 <sup>-2</sup>	2.16x10 <sup>-3</sup>	0	0	2.00x10 <sup>-4</sup>	2.00x10 <sup>-5</sup>	7.64x10 <sup>-5</sup>	7.64x10 <sup>-6</sup>	1.97x10 <sup>-4</sup>	1.97x10 <sup>-5</sup>
	ブレーキ粉じん	4.90x10 <sup>-3</sup>	1.52x10 <sup>-3</sup>	0	0	1.25x10 <sup>-2</sup>	2.50x10 <sup>-3</sup>	7.60x10 <sup>-3</sup>	2.50x10 <sup>-3</sup>	3.50x10 <sup>-3</sup>	7.00x10 <sup>-4</sup>
	植物燃焼	1.61x10 <sup>-2</sup>	3.22x10 <sup>-3</sup>	2.03x10 <sup>-3</sup>	4.06x10 <sup>-4</sup>	2.59x10 <sup>-2</sup>	5.18x10 <sup>-3</sup>	6.55x10 <sup>-3</sup>	1.31x10 <sup>-3</sup>	6.32x10 <sup>-2</sup>	1.26x10 <sup>-2</sup>
+ α	二次(硫酸塩)	7.27x10 <sup>-1</sup>	7.27x10 <sup>-2</sup>	0	0	0	0	0	0	0	0
	二次(硝酸塩)	0	0	7.75x10 <sup>-1</sup>	7.75x10 <sup>-2</sup>	0	0	0	0	0	0
	二次(塩化物)	0	0	0	0	6.63x10 <sup>-1</sup>	6.63x10 <sup>-2</sup>	0	0	0	0

		Ca <sup>2+</sup>		NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>		OC		EC		Al	
8 発 生 源	土壌・道路粉じん	5.52x10 <sup>-2</sup>	2.64x10 <sup>-2</sup>	6.05x10 <sup>-3</sup>	9.68x10 <sup>-4</sup>	6.90x10 <sup>-2</sup>	2.83x10 <sup>-2</sup>	1.28x10 <sup>-2</sup>	4.10x10 <sup>-3</sup>	6.11x10 <sup>-2</sup>	7.66x10 <sup>-3</sup>
	海塩粒子	1.17x10 <sup>-2</sup>	5.85x10 <sup>-4</sup>	0	0	0	0	2.80x10 <sup>-8</sup>	2.80x10 <sup>-8</sup>	2.90x10 <sup>-7</sup>	2.90x10 <sup>-8</sup>
	鉄鋼工業	4.51x10 <sup>-2</sup>	9.02x10 <sup>-3</sup>	0	0	0	0	5.00x10 <sup>-3</sup>	5.00x10 <sup>-3</sup>	9.99x10 <sup>-3</sup>	2.00x10 <sup>-3</sup>
	石油燃焼	8.50x10 <sup>-4</sup>	4.30x10 <sup>-4</sup>	0	0	0	0	3.00x10 <sup>-1</sup>	1.25x10 <sup>-1</sup>	2.10x10 <sup>-3</sup>	1.10x10 <sup>-3</sup>
	廃棄物焼却	1.10x10 <sup>-2</sup>	2.20x10 <sup>-3</sup>	0	0	0	0	5.00x10 <sup>-2</sup>	5.00x10 <sup>-2</sup>	4.20x10 <sup>-3</sup>	8.40x10 <sup>-4</sup>
	自動車排ガス	1.46x10 <sup>-3</sup>	1.46x10 <sup>-4</sup>	0	0	2.47x10 <sup>-1</sup>	2.47x10 <sup>-2</sup>	4.94x10 <sup>-1</sup>	4.94x10 <sup>-2</sup>	1.57x10 <sup>-3</sup>	1.57x10 <sup>-4</sup>
	ブレーキ粉じん	3.18x10 <sup>-2</sup>	6.36x10 <sup>-3</sup>	0	0	7.98x10 <sup>-2</sup>	3.07x10 <sup>-2</sup>	1.53x10 <sup>-1</sup>	7.60x10 <sup>-2</sup>	1.94x10 <sup>-2</sup>	3.88x10 <sup>-3</sup>
	植物燃焼	4.15x10 <sup>-4</sup>	8.30x10 <sup>-5</sup>	1.27x10 <sup>-2</sup>	2.54x10 <sup>-3</sup>	4.15x10 <sup>-1</sup>	8.29x10 <sup>-2</sup>	9.71x10 <sup>-2</sup>	1.94x10 <sup>-2</sup>	3.70x10 <sup>-4</sup>	7.40x10 <sup>-5</sup>
+ α	二次(硫酸塩)	0	0	2.73x10 <sup>-1</sup>	2.73x10 <sup>-2</sup>	0	0	0	0	0	0
	二次(硝酸塩)	0	0	2.25x10 <sup>-1</sup>	2.25x10 <sup>-2</sup>	0	0	0	0	0	0
	二次(塩化物)	0	0	3.37x10 <sup>-1</sup>	3.37x10 <sup>-2</sup>	0	0	0	0	0	0

		Sc		V		Cr		Mn		Fe	
8 発 生 源	土壌・道路粉じん	1.33x10 <sup>-5</sup>	3.52x10 <sup>-6</sup>	1.08x10 <sup>-4</sup>	3.45x10 <sup>-5</sup>	2.79x10 <sup>-4</sup>	1.55x10 <sup>-4</sup>	1.06x10 <sup>-3</sup>	3.86x10 <sup>-4</sup>	5.31x10 <sup>-2</sup>	6.42x10 <sup>-3</sup>
	海塩粒子	1.20x10 <sup>-9</sup>	6.00x10 <sup>-10</sup>	5.80x10 <sup>-8</sup>	1.74x10 <sup>-8</sup>	1.50x10 <sup>-9</sup>	4.50x10 <sup>-10</sup>	5.80x10 <sup>-8</sup>	1.74x10 <sup>-8</sup>	2.90x10 <sup>-7</sup>	8.70x10 <sup>-8</sup>
	鉄鋼工業	1.32x10 <sup>-6</sup>	2.64x10 <sup>-7</sup>	1.25x10 <sup>-4</sup>	2.50x10 <sup>-5</sup>	3.16x10 <sup>-3</sup>	6.32x10 <sup>-4</sup>	2.20x10 <sup>-2</sup>	2.20x10 <sup>-3</sup>	1.57x10 <sup>-1</sup>	1.57x10 <sup>-2</sup>
	石油燃焼	9.00x10 <sup>-8</sup>	4.50x10 <sup>-8</sup>	6.38x10 <sup>-3</sup>	3.19x10 <sup>-3</sup>	2.10x10 <sup>-4</sup>	1.05x10 <sup>-4</sup>	1.20x10 <sup>-4</sup>	4.00x10 <sup>-5</sup>	4.60x10 <sup>-3</sup>	2.30x10 <sup>-3</sup>
	廃棄物焼却	4.60x10 <sup>-7</sup>	9.20x10 <sup>-8</sup>	2.70x10 <sup>-5</sup>	1.35x10 <sup>-5</sup>	8.50x10 <sup>-4</sup>	8.50x10 <sup>-4</sup>	3.30x10 <sup>-4</sup>	3.30x10 <sup>-4</sup>	6.10x10 <sup>-3</sup>	6.10x10 <sup>-3</sup>
	自動車排ガス	1.19x10 <sup>-7</sup>	1.19x10 <sup>-8</sup>	7.25x10 <sup>-6</sup>	7.25x10 <sup>-7</sup>	1.16x10 <sup>-5</sup>	1.16x10 <sup>-6</sup>	1.93x10 <sup>-5</sup>	1.93x10 <sup>-6</sup>	9.89x10 <sup>-4</sup>	9.89x10 <sup>-5</sup>
	ブレーキ粉じん	4.00x10 <sup>-6</sup>	8.00x10 <sup>-7</sup>	5.90x10 <sup>-5</sup>	1.18x10 <sup>-5</sup>	4.21x10 <sup>-4</sup>	8.42x10 <sup>-5</sup>	7.20x10 <sup>-4</sup>	1.44x10 <sup>-4</sup>	9.12x10 <sup>-2</sup>	1.82x10 <sup>-2</sup>
	植物燃焼	0	0	0	0	0	0	1.00x10 <sup>-5</sup>	2.00x10 <sup>-6</sup>	1.00x10 <sup>-4</sup>	2.00x10 <sup>-5</sup>
+ α	二次(硫酸塩)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	二次(硝酸塩)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	二次(塩化物)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0

		Zn		As		Se		Sb		La	
8 発 生 源	土壌・道路粉じん	1.31x10 <sup>-3</sup>	7.96x10 <sup>-4</sup>	1.13x10 <sup>-5</sup>	4.19x10 <sup>-6</sup>	1.43x10 <sup>-6</sup>	5.50x10 <sup>-7</sup>	1.30x10 <sup>-5</sup>	7.42x10 <sup>-6</sup>	3.13x10 <sup>-5</sup>	1.05x10 <sup>-5</sup>
	海塩粒子	2.90x10 <sup>-8</sup>	8.70x10 <sup>-9</sup>	2.90x10 <sup>-8</sup>	8.70x10 <sup>-9</sup>	1.20x10 <sup>-7</sup>	3.60x10 <sup>-8</sup>	1.40x10 <sup>-8</sup>	4.20x10 <sup>-9</sup>	9.00x10 <sup>-9</sup>	2.70x10 <sup>-9</sup>
	鉄鋼工業	5.15x10 <sup>-2</sup>	1.03x10 <sup>-2</sup>	1.03x10 <sup>-4</sup>	1.03x10 <sup>-4</sup>	5.11x10 <sup>-5</sup>	5.11x10 <sup>-5</sup>	9.00x10 <sup>-5</sup>	9.00x10 <sup>-5</sup>	9.75x10 <sup>-6</sup>	9.75x10 <sup>-6</sup>
	石油燃焼	4.00x10 <sup>-4</sup>	2.00x10 <sup>-4</sup>	2.30x10 <sup>-5</sup>	1.20x10 <sup>-5</sup>	4.80x10 <sup>-5</sup>	4.80x10 <sup>-5</sup>	6.90x10 <sup>-6</sup>	3.50x10 <sup>-6</sup>	4.00x10 <sup>-5</sup>	4.00x10 <sup>-5</sup>
	廃棄物焼却	2.60x10 <sup>-2</sup>	1.30x10 <sup>-2</sup>	1.50x10 <sup>-4</sup>	1.50x10 <sup>-4</sup>	0	0	9.52x10 <sup>-4</sup>	4.80x10 <sup>-4</sup>	7.70x10 <sup>-6</sup>	7.70x10 <sup>-6</sup>
	自動車排ガス	6.24x10 <sup>-4</sup>	6.24x10 <sup>-5</sup>	3.69x10 <sup>-6</sup>	3.69x10 <sup>-7</sup>	1.67x10 <sup>-6</sup>	1.67x10 <sup>-7</sup>	1.96x10 <sup>-5</sup>	1.96x10 <sup>-6</sup>	3.41x10 <sup>-7</sup>	3.41x10 <sup>-8</sup>
	ブレーキ粉じん	3.26x10 <sup>-3</sup>	6.52x10 <sup>-4</sup>	2.20x10 <sup>-5</sup>	4.40x10 <sup>-6</sup>	3.50x10 <sup>-6</sup>	1.75x10 <sup>-6</sup>	2.13x10 <sup>-3</sup>	4.26x10 <sup>-4</sup>	7.00x10 <sup>-6</sup>	1.40x10 <sup>-6</sup>
	植物燃焼	1.00x10 <sup>-4</sup>	2.00x10 <sup>-5</sup>	0	0	0	0	0	0	0	0
+ α	二次(硫酸塩)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	二次(硝酸塩)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	二次(塩化物)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0

右側の数字は誤差

太字：フィッティングに使用した項目

SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>～NH<sub>4</sub><sup>+</sup>は水溶性イオンのデータ

## 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  $10.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$  で夏季の次に高かったが、全 25 地点中、期間平均値が  $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$  を超えたのは 12 地点であり、その範囲は  $7.8 \sim 12.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$  であった。なお、期間平均値の最大値は湖西（ $12.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ）であった。

春季の計算結果を図 5-2-1 と図 5-2-2 に示す。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、28～43%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、24～37%を占め、全地点の平均値が 30%であった。石油燃焼は、春季が最も高かった昨年度と異なり、今年度は夏季の次に高かった。特に市原、富津、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 4 地点では、自動車の寄与率がゼロもしくは低く、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。また、広域で、土壌・道路粉じんの寄与が認められた。なお、真岡、さいたま、千葉、横浜、川崎等 11 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  $11.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$  であり、四季の中で最も高かったが、期間平均値が  $15 \mu\text{g}/\text{m}^3$  を超えていた地点はなく、 $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$  を超えたのは 23 地点であり、勝浦及び長野では  $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$  未満であった。期間平均値の範囲は、勝浦（ $6.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ）を除いて  $9.3 \sim 13.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$  であり、最大値はさいたまであった。

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（硫酸塩）が高く、31～50%を占め、全地点の平均値は 41%であった。次に二次（OC）が高く、24～46%を占め、全地点の平均値が 33%であり、両項目を合わせると 6～8 割を占めていた。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、四季全てを解析対象とした平成 27 年度以降、夏季が最も高いことが多く、今年度も夏季が最も高かった。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り、これらの地点では、自動車の寄与率がゼロもしくは低かったことから、春季と同様に、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、千葉、横浜、川崎、浜松等 10 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  $6.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$  で四季の中で最も低く、全 24 地点（欠測扱いの富士を除く）で期間平均値が  $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$  未満であり、最大値は綾瀬の  $9.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$  であった。東京湾周辺、埼玉県東部、土浦、真岡、太田といった関東地方の一部で期間平均値が比較的高い傾向であった。

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、21～48%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、13～32%を占め、全地点の平均値が 22%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 13%、10%を占め、特に二次（硝酸塩）の寄与率が高い地点は、PM2.5 濃度が高い地域とほぼ一致していた。一方で石油燃焼の寄与率は春季夏季より低下し、4%程度であった。鉄鋼の寄与率は、沿岸で高い傾向であったが、内陸の中では太田や相模原が 3%以上と比較的高い傾向が見られた。植物燃焼は地点差が大きく、大月では寄与率が 1 割を超え、その他、真岡、寄居といった内陸で寄与が計算され、沿岸で計算された地点は、静岡のみであった。二次（塩化物）は湖西で 11%と高い寄与率が計算されたが、この期間の湖西の塩化物イオンは全て検出下限値未満であり、検出下限値が高いことが影響したと考えられる。その他の地点では、春季、夏季と同様の傾向で寄与率が低い又はゼロであった。なお、全地点の半分を超える 14 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  $9.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$  で秋季の次に低かったが、冬季の真岡が唯一、全ての測定地点・期間の中で期間平均値が  $15 \mu\text{g}/\text{m}^3$  を超えていた。秋季と同様に、東京湾周辺、埼玉県東部、土浦、真岡、太田といった関東地方の一部で期間平均値が比較的高い傾向であった。なお、全 24 地点（欠測扱いの湖西を除く）中、12 地点で期間平均値が  $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$  を超えていた。

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、20～46%を占め、全地点の平均値が 33%であった。二次（硫酸塩）は、12～34%を占め、全地点の平均値が 17%であった。また、二次（硝酸塩）及び自動車の寄与率が四季の中で最大となった。二次（硝酸塩）の寄与率は、4～31%と地点間のバラツキが大きく、静岡及び浜松では 4%及び 7%であったが、関東地方を中心に 15 地点では 20%を超えており、全地点の平均値も 20%であった。自動車は 15 地点で 15%を上回り、全地点の平均値が 16%であり、沿岸と内陸の差はあまりなかった。土壌・道路粉じんは、寄与が大きかった昨年度の冬季と傾向が異なり、南関東を中心とした寄与がほとんどなく、内陸の太田で寄与濃度が  $1.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ （寄与率 9%）と比較的高かった以外は特徴的な汚染がなく、全地点の平均値は 2%と低かった。植物燃焼は、寄居、多摩、甲府、大月、長野といった内陸で比較的高い傾向であった。鉄鋼は、市原、富津、横浜、川崎といった東京湾周辺で比較的高い傾向であったが、内陸の太田でも寄与率が 4%と比較的高かった。

なお、全地点の半分以上の 17 地点でその他がマイナスとなり、年々、マイナスとなる地点数が増加傾向にある。マイナスの地点が増える要因は不明であるが、特に冬季はその傾向が強く、今後、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、検討する必要がある。

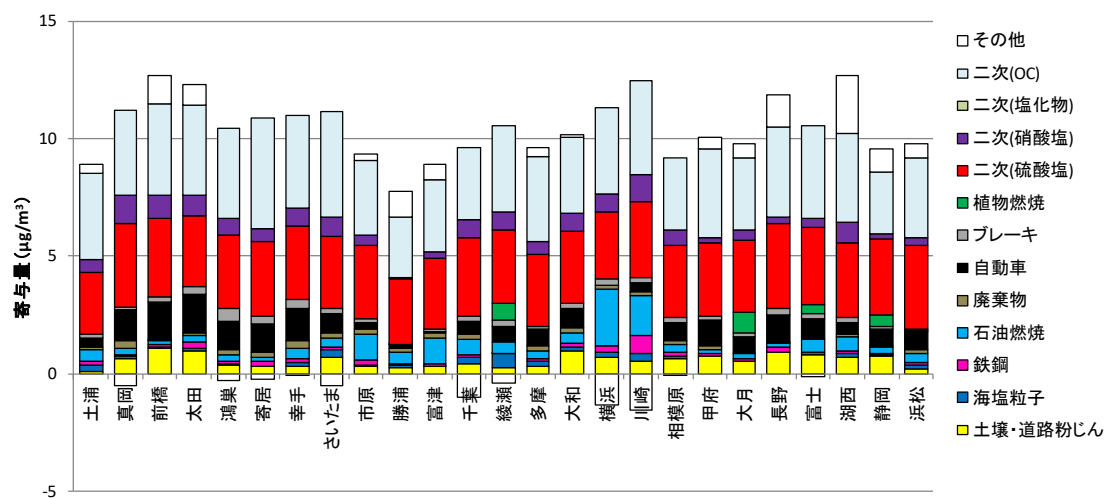


図 5-2-1 令和元年度春季の発生源寄与量の推定結果（単位： $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）

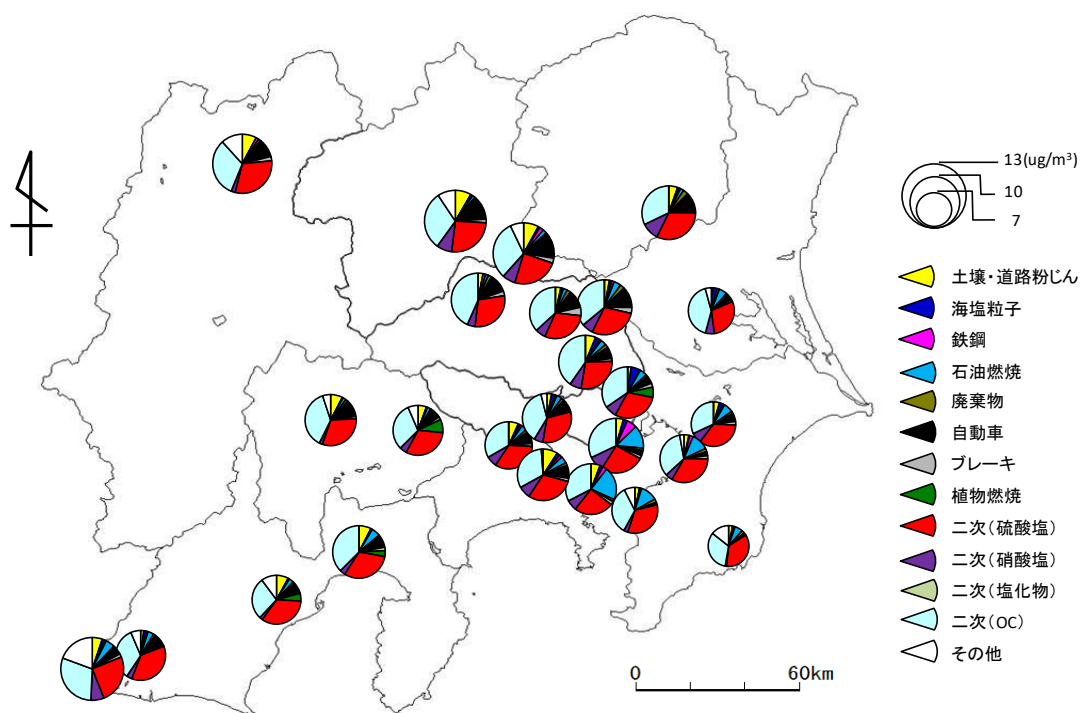


図 5-2-2 令和元年度春季の発生源寄与率の推定結果（マップ）

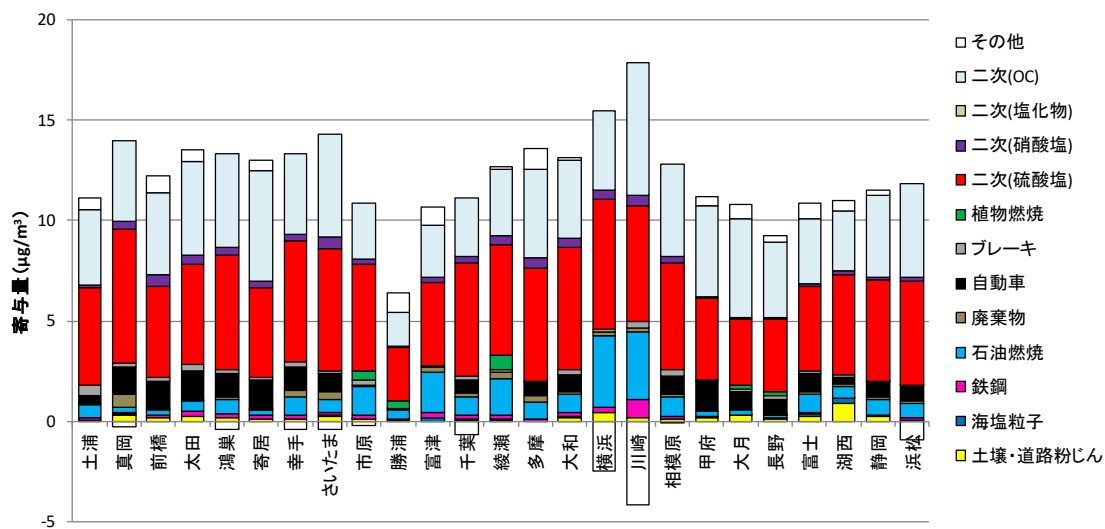


図 5-3-1 令和元年度夏季の発生源寄与量の推定結果（単位： $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）

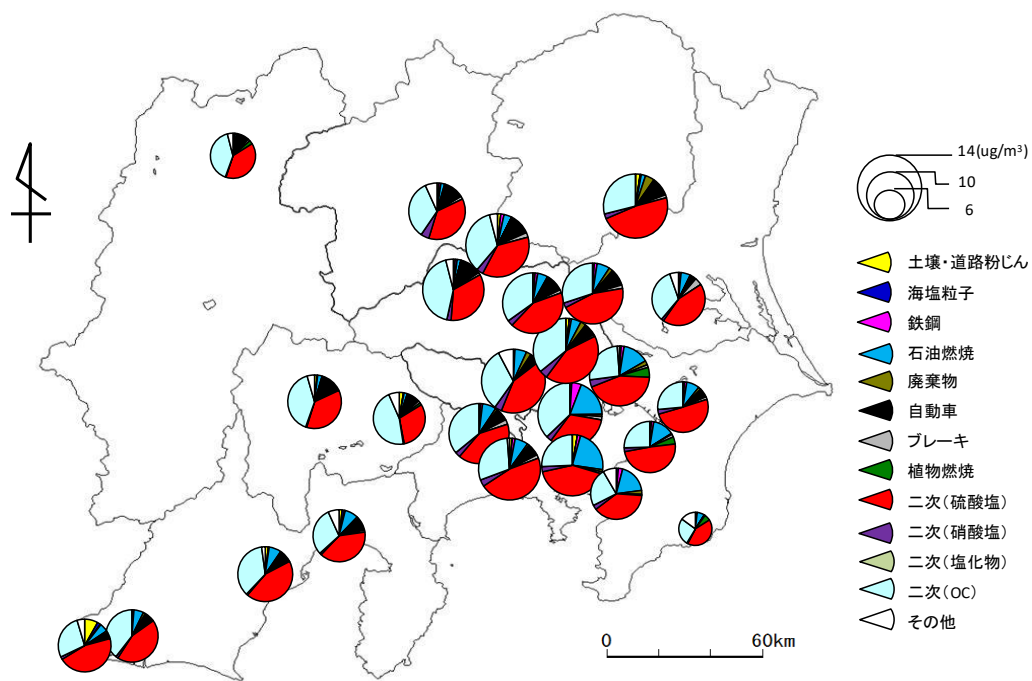


図 5-3-2 令和元年度夏季の発生源寄与率の推定結果（マップ）

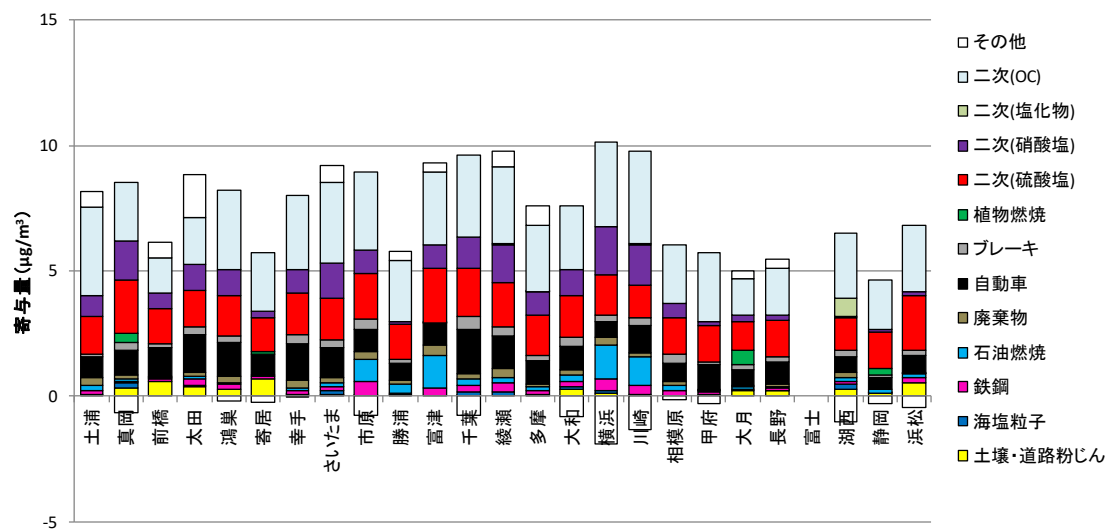


図 5-4-1 令和元年度秋季の発生源寄与量の推定結果（単位： $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）

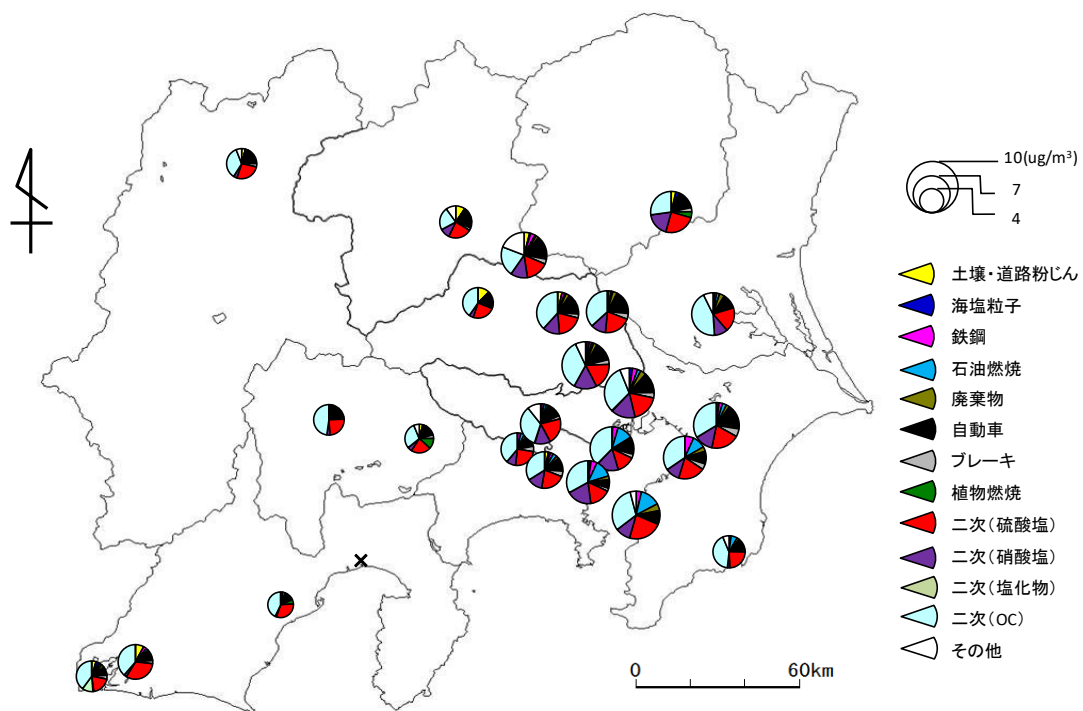


図 5-4-2 令和元年度秋季の発生源寄与率の推定結果（マップ）

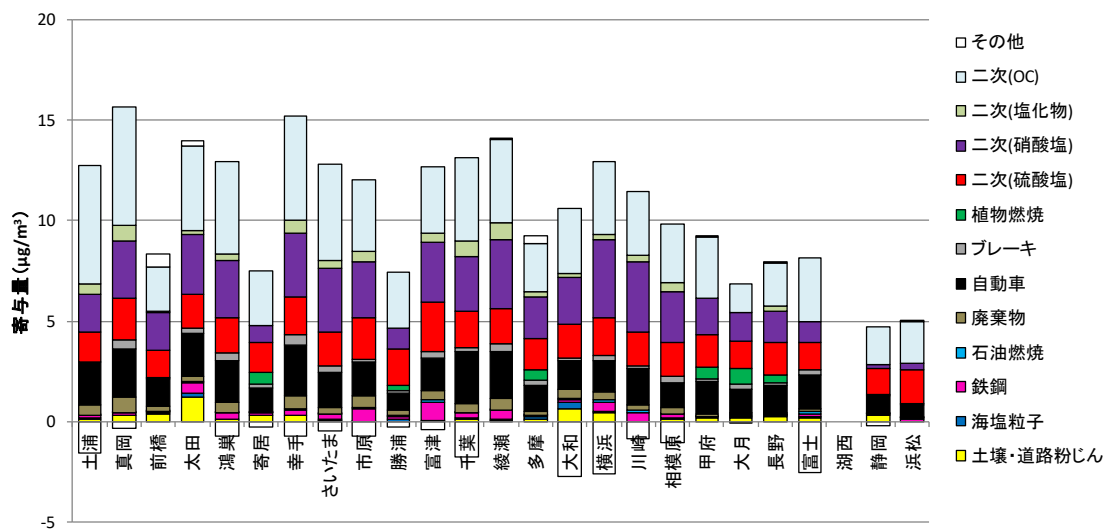


図 5-5-1 令和元年度冬季の発生源寄与量の推定結果 (単位:  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )

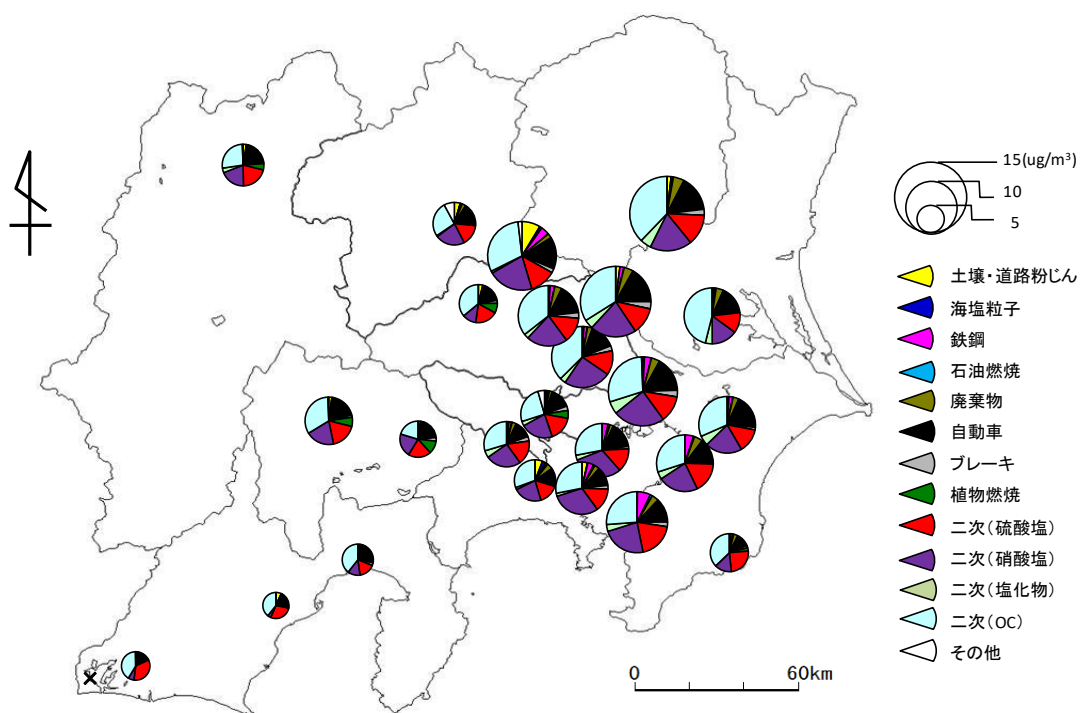


図 5-5-2 令和元年度冬季の発生源寄与率の推定結果 (マップ)



## 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。

$R^2$  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。

$\chi^2$  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  $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$  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

	春季			夏季			秋季			冬季		
	$R^2$	$\chi^2$	%MASS	$R^2$	$\chi^2$	%MASS	$R^2$	$\chi^2$	%MASS	$R^2$	$\chi^2$	%MASS
土浦	0.852	0.68	95.7%	0.790	0.60	94.7%	0.797	0.65	92.7%	0.798	0.96	114.2%
真岡	0.938	0.23	105.1%	0.923	0.25	102.2%	0.879	0.71	108.2%	0.870	0.44	102.2%
前橋	0.846	0.92	90.7%	0.863	0.72	93.2%	0.883	0.33	90.0%	0.907	0.47	92.2%
太田	0.885	0.60	92.9%	0.784	0.97	96.0%	0.875	0.56	80.8%	0.922	0.51	98.2%
鴻巣	0.888	0.77	102.8%	0.805	0.91	103.5%	0.873	0.49	102.6%	0.902	0.48	106.1%
寄居	0.882	0.57	102.1%	0.704	1.29	96.0%	0.703	0.76	104.5%	0.836	0.52	104.4%
幸手	0.898	0.57	100.4%	0.884	0.60	103.2%	0.838	0.66	100.3%	0.878	0.46	105.2%
さいたま	0.917	0.63	105.0%	0.886	0.60	102.9%	0.868	0.53	92.9%	0.845	0.80	104.1%
市原	0.873	0.78	97.2%	0.779	1.06	101.9%	0.822	1.14	109.1%	0.761	1.25	106.6%
勝浦	0.821	0.76	85.6%	0.794	0.52	85.0%	0.786	0.81	93.7%	0.831	0.49	104.0%
富津	0.904	0.52	92.5%	0.858	0.24	91.6%	0.782	1.16	96.0%	0.778	1.29	103.2%
千葉	0.856	0.92	111.9%	0.854	0.82	106.2%	0.820	0.76	108.6%	0.884	0.60	116.0%
綾瀬	0.825	0.70	104.2%	0.885	0.52	98.8%	0.874	0.57	93.9%	0.897	0.61	99.4%
多摩	0.889	0.58	96.1%	0.844	0.59	92.3%	0.825	0.77	89.3%	0.835	1.01	95.5%
大和	0.893	0.56	98.8%	0.856	0.79	98.9%	0.950	0.29	111.6%	0.926	0.43	135.2%
横浜	0.879	0.53	113.3%	0.915	0.37	119.1%	0.878	0.38	123.0%	0.859	0.81	125.3%
川崎	0.861	0.60	114.4%	0.812	0.88	130.6%	0.786	0.81	115.7%	0.768	1.05	108.5%
相模原	0.871	0.78	100.1%	0.806	1.03	100.6%	0.891	0.50	102.0%	0.863	0.87	112.3%
甲府	0.881	0.62	94.9%	0.720	0.87	95.5%	0.744	1.02	105.3%	0.812	0.97	99.4%
大月	0.901	0.62	93.5%	0.829	0.65	93.4%	0.862	0.63	93.8%	0.937	0.40	101.9%
長野	0.863	0.92	88.3%	0.908	0.72	96.0%	0.872	0.37	94.1%	0.832	0.74	99.4%
富士	0.836	1.08	101.3%	0.829	0.66	93.2%	-	-	-	0.932	0.57	146.2%
湖西	0.869	0.69	80.6%	0.754	0.84	95.4%	0.920	0.22	118.8%	-	-	-
静岡	0.850	0.69	89.8%	0.767	0.60	97.9%	0.707	0.74	106.8%	0.726	0.95	105.4%
浜松	0.824	0.92	93.6%	0.848	0.53	108.7%	0.865	0.37	107.1%	0.589	1.34	99.8%

$R^2$  が 0.8 未満だったのは、春季が 0 例、夏季が 8 例、秋季が 7 例、冬季が 6 例であった。 $\chi^2$  が 2 を超えたケースはなかった。%MASS が 80% 未満であるケースはなかったが、120% を超えたケースは、夏季と秋季に 1 例ずつ、冬季に 3 例あった。なお、冬季の大和 (135%) や富士 (146%) では、120% を大きく超過した。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 11 地点であり、不適合が 1 項目だけあったのが 5 地点 (欠測の季節がある富士や湖西を含む)、2 項目あったのが 6 地点であった。また、土浦、川崎、静岡は、不適合が 3 項目であった。平成 27 年度以降からの結果と比較すると、不適

合率が低かった昨年度よりは、不適合率が若干高かったが、春季を中心に不適合率は低いことから、今年度の計算結果についても妥当性は高く、適切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 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) が最大となった地点と季節を示している。また、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、土壌・道路粉じん及び海塩粒子であった。夏季に多かった発生源は、石油燃焼、二次（硫酸塩）、二次（OC）であった。秋季に多かった発生源は、ブレーキ粉じんであった。冬季に多かった発生源は、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

	最大データ	春	夏	秋	冬	区分別
土壌・道路粉じん	太田/冬	0.54	0.17	0.17	0.21	春は沿岸<内陸
海塩粒子	綾瀬/春	0.15	0.03	0.06	0.05	沿岸>内陸
鉄鋼	富津/冬	0.15	0.16	0.19	0.24	沿岸>>内陸
石油燃焼	横浜/夏	0.55	0.97	0.31	0.04	沿岸>>内陸
廃棄物焼却	真岡/冬	0.15	0.16	0.16	0.31	沿岸・内陸の差はない
自動車	千葉/冬	0.79	0.74	0.94	1.58	沿岸≤内陸の傾向
ブレーキ粉じん	鴻巣/春	0.21	0.18	0.23	0.22	春夏冬は沿岸<内陸
植物燃焼	大月/春	0.10	0.08	0.05	0.12	冬は沿岸<内陸
二次(硫酸塩)	真岡/夏	3.16	5.06	1.53	1.63	夏は沿岸>内陸
二次(硝酸塩)	横浜/冬	0.61	0.31	0.79	2.14	春冬は沿岸≤内陸
二次(塩化物)	綾瀬/冬	0.00	0.00	0.03	0.29	—
二次(OC)	川崎/夏	3.58	4.04	2.54	3.31	春夏冬は沿岸≤内陸 秋は沿岸≥内陸

注) 数値は全地点の平均濃度 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )      色の判別: 最も多い・2番目に多い・最も少ない

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、二次（硫酸塩）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。ただし、二次（硫酸塩）の最大データは夏季の真岡（内陸）であった。一方、概ね沿岸<内陸の傾向が見られるものとしては、土壌・道路粉じん、自動車、

ブレーキ粉じん、植物燃焼が挙げられる。ただし、自動車の最大データは冬季の千葉（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・内陸ともに二次（OC）であり、寄与率はそれぞれ 33%、36%であった。2 番目は沿岸・内陸ともに二次（硫酸塩）で、寄与率はそれぞれ 31%、30%と同程度であり、両項目の合計は沿岸と内陸でそれぞれ 64%、65%で同程度であった。3 番目は、沿岸が石油燃焼（8%）で、内陸は自動車（10%）であり、石油燃焼と自動車の寄与率の合計は沿岸・内陸ともに 13%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 30 年度報告書<sup>4)</sup>と同様に、石油燃焼寄与率の高い市原、富津、横浜、川崎では、自動車の寄与率がゼロもしくは低い結果が得られている。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。なお、土壌・道路粉じんは黄砂の影響等により春季に高くなるケースが見られるが、今年度も春季に広域で寄与が認められ、沿岸・内陸それぞれ約 5%の寄与率であった。

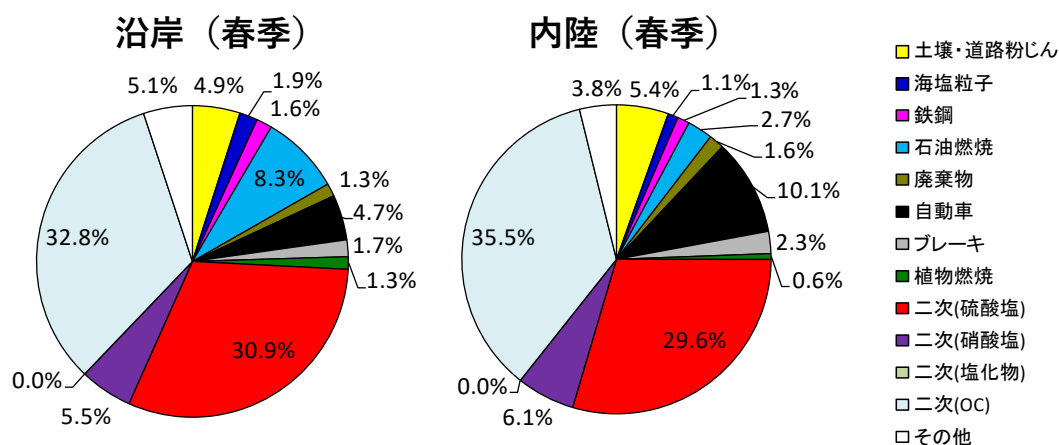


図 5-7-1 春季の沿岸・内陸の区分別の寄与率

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。最大寄与は沿岸・内陸ともに二次（硫酸塩）であり、寄与率はそれぞれ 43%、40%であった。2 番目は沿岸・内陸ともに二次（OC）で、寄与率はそれぞれ 30%、36%であり、両項目の合計は沿岸・内陸それぞれ 72%、76%と 7 割以上を占めていた。3 番目に高い寄与率であったのは、沿岸では石油燃焼、内陸では自動車であった。なお、市原、富津、綾瀬、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。

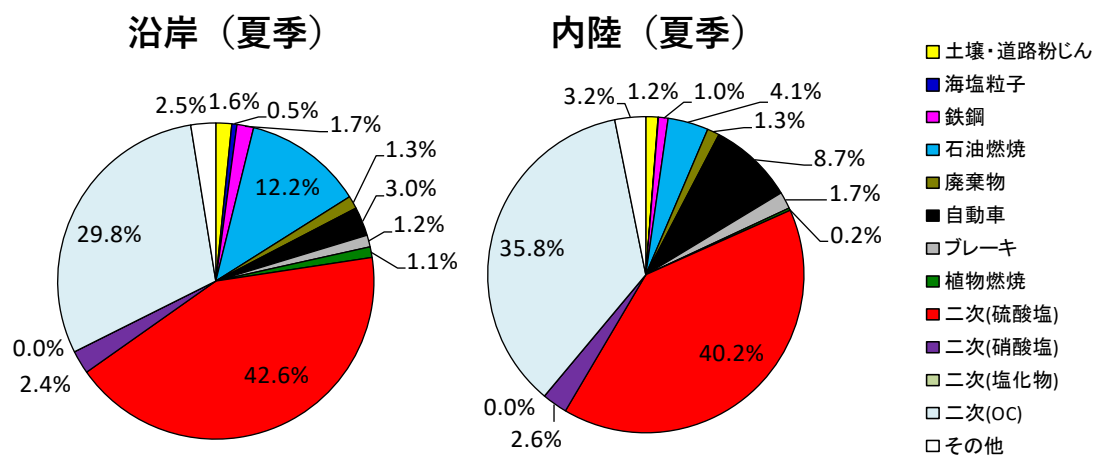


図 5-7-2 夏季の沿岸・内陸の区分別の寄与率

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・内陸ともに二次（OC）で、寄与率はそれぞれ 36%、34%と同程度であった。2 番目は沿岸・内陸ともに二次（硫酸塩）で、寄与率はどちらも 21%であり、両項目の合計は沿岸・内陸ともに約 56%と同程度であったが、春季夏季と比較するとやや低かった。3 番目は沿岸・内陸ともに自動車で、寄与率はそれぞれ 11%、15%であり、内陸部の方が高い傾向であった。一方、石油燃焼の寄与率はそれぞれ 7%、2%であり、自動車と石油燃焼の合計は、沿岸・内陸それぞれ 18%、16%と同程度であった。また、春季、夏季と比較して、二次（硝酸塩）の寄与率が増加し、沿岸・内陸ともに 11%であり、二次粒子 3 項目の合計は沿岸・内陸どちらも約 67%であった。なお、鉄鋼は沿岸＞内陸であり、土壌・道路粉じん及び植物燃焼は沿岸＜内陸であった。

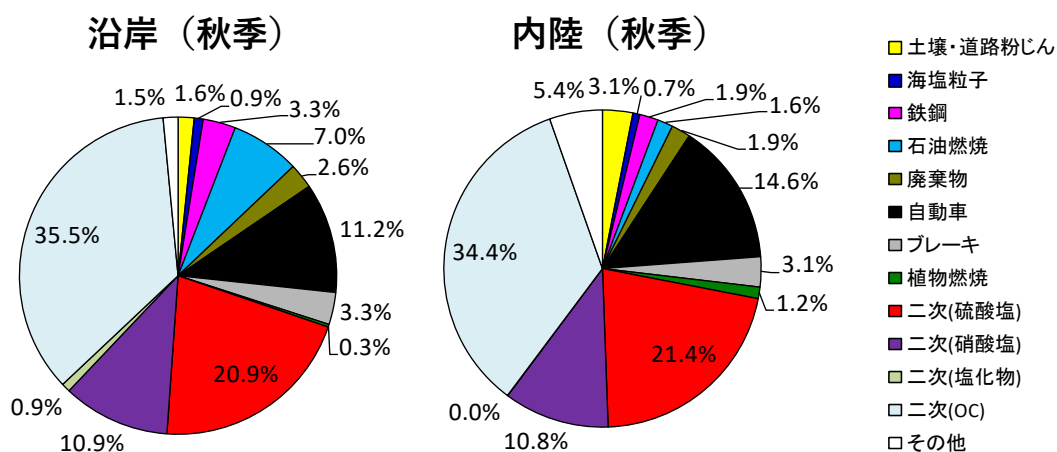
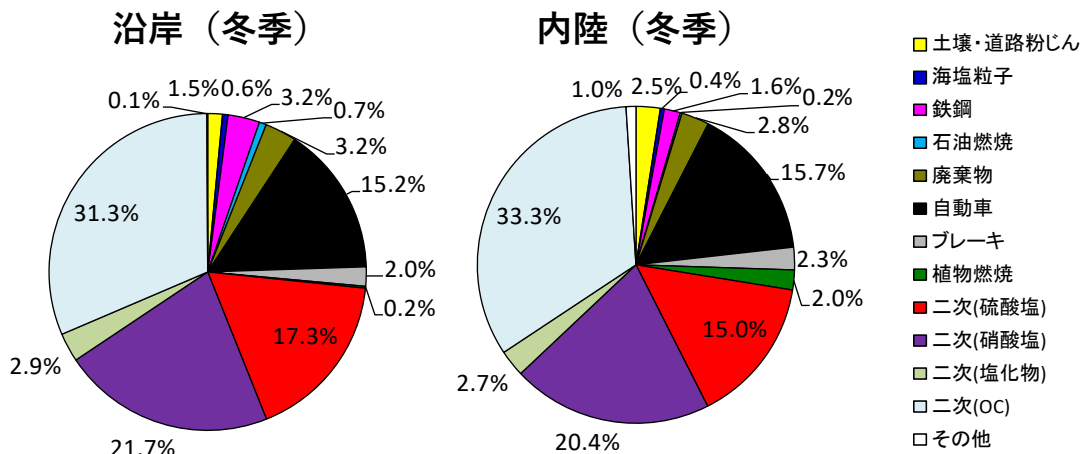


図 5-7-3 秋季の沿岸・内陸の区分別の寄与率

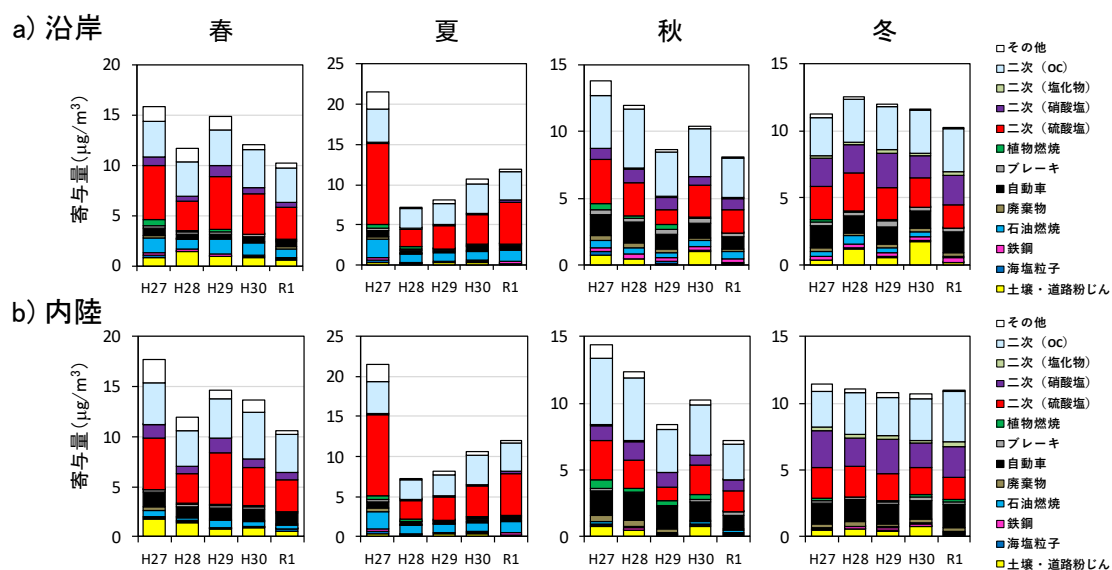
図 5-7-4 に冬季の沿岸・内陸の区分別の平均寄与率を示す。最大寄与は沿岸・内陸ともに二次（OC）で、寄与率はそれぞれ 31%と 33%であった。2 番目は沿岸・内陸ともに二次（硝酸塩）であり、それぞれ 22%、20%であった。二次（硫酸塩）の寄与率は、沿岸・内

陸それぞれ 17%、15%であり、3 項目の合計は沿岸・内陸それぞれ 70%と 69%であり、約 7 割を占めていた。また、自動車の寄与率が高くなり、沿岸・内陸それぞれ 15%、16%とほぼ同程度であった。一方、石油燃焼の寄与率が低く、それぞれ 1%、0%であり、自動車と石油燃焼の合計は、沿岸・内陸ともに約 16%と同程度であった。なお、秋季と同様に、鉄鋼は沿岸>内陸であり、土壌・道路粉じん及び植物燃焼は沿岸<内陸であった。



### 5.7.3 固定測定地点における 5 年間の経年変化について

計算方法を EPA-CMB8.2 による有効分散最小二乗法に変更した平成 27 年度から令和元年度の 5 年間ににおける固定測定地点（21 地点）のデータを用いて、経年変化を確認した。固定測定地点である沿岸 12 地点、内陸 9 地点について、それぞれ沿岸及び内陸の区分別に、各年度の季節毎に寄与量 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) 及び寄与率 (%) の平均値を算出し、結果をそれぞれ図 5-7-5 及び図 5-7-6 に示した。



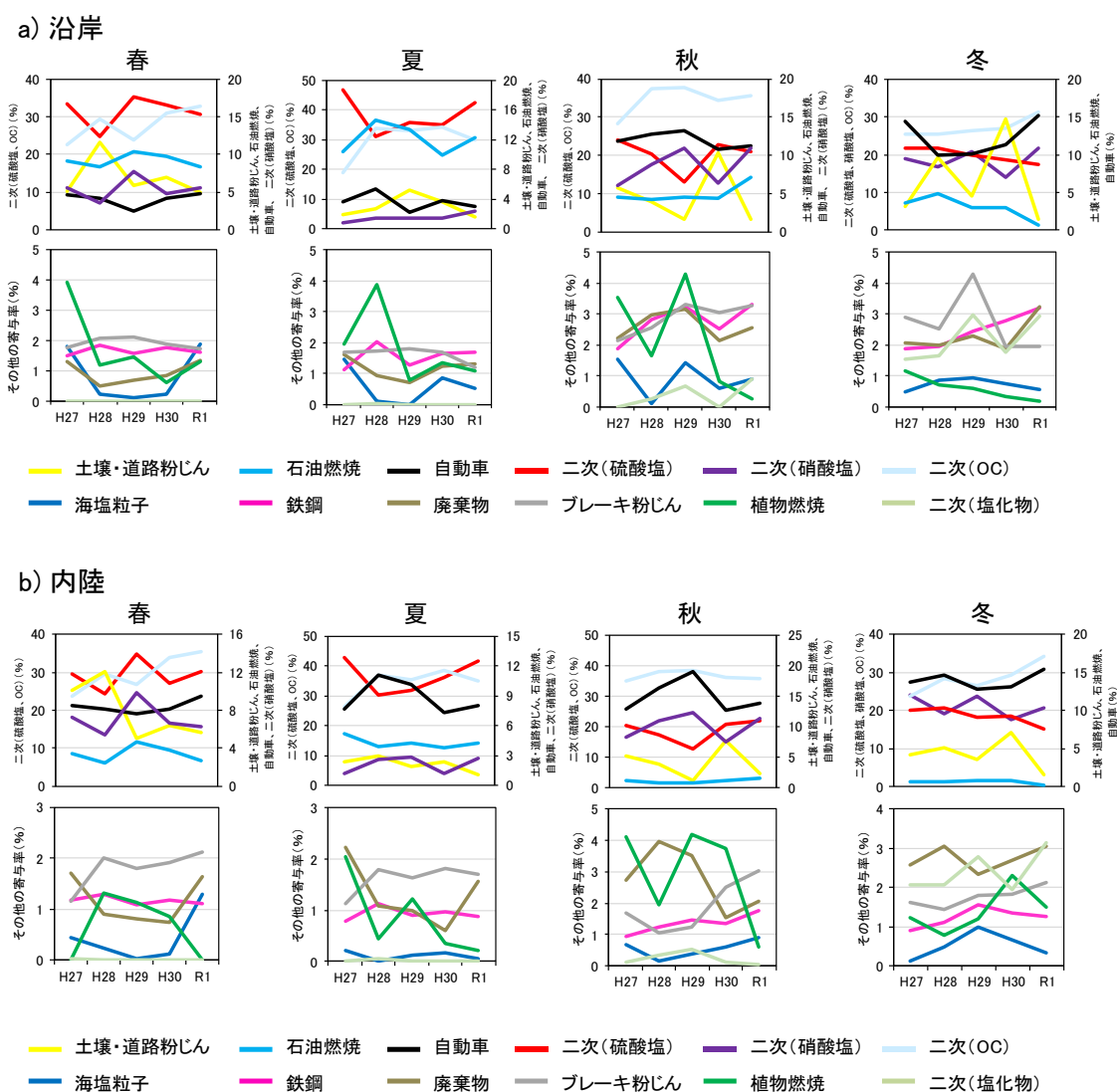


図 5-7-6 沿岸・内陸別の寄与率の経年変化（平成 27～令和元年度、固定地点の平均値）

図 5-7-5 の寄与量の経年変化より、二次（硫酸塩）及び石油燃焼については、年度間のバラツキが大きい、PM2.5 濃度と連動して変化していた。特に二次（硫酸塩）は、他の発生源と比較して寄与量が多いことから、PM2.5 濃度の増減に大きく寄与していると推察された。また、土壌・道路粉じんについては、年度間のバラツキが大きい、PM2.5 濃度とは連動しておらず、一時的な気象状況や黄砂の飛来等の影響を受けたと推察された。一方、二次（OC）、二次（硝酸塩）及び自動車の寄与率については、二次（硫酸塩）と比較して年度間の変動が少ないことから、気象状況等による影響を受けにくく、ほぼ一定の寄与率で推移していると考えられた。

次に、図 5-7-6 の寄与率の経年変化より、ほとんどの発生源については、明確な傾向は認められなかった。二次（OC）の寄与率については、各季節、沿岸・内陸ともに、若干増加または横ばいの傾向であった。これは、PM2.5 濃度の変化に伴う増減とも考えられる。しかし、冬季の二次（OC）については、年度間で PM2.5 濃度があまり変化していないにもかかわらず寄与率が増加していることから、やや増加傾向と推察された。また、ブレーキ粉じんに



についても、特に内陸では二次（OC）と同様の傾向であった。一方、二次（硫酸塩）及び石油燃焼の寄与率については、特に冬季では沿岸・内陸ともに減少傾向と考えられた。ただし、これらは直近 5 年間の経年変化に基づく考察であり、今後も注視しつつ判断する必要がある。

#### 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 PM<sub>2.5</sub> のキャラクターゼーション（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 PM<sub>2.5</sub> のキャラクターゼーション（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 30 年度微小粒子状物質合同調査報告書 関東における PM<sub>2.5</sub> のキャラクターゼーション（第 11 報）（平成 30 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ーレセプターモデルによる PM<sub>2.5</sub> 発生源寄与割合の推定ー  
[http://www.kankyo.metro.tokyo.jp/air/air\\_pollution/torikumi/pm25-report2011.files/9\\_Receptor\\_working\\_report.pdf](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（PM<sub>2.5</sub>）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）