

## 4 レセプターモデルを用いた PM<sub>2.5</sub> の発生源寄与割合の推計

本章では、2015 年度の PM<sub>2.5</sub> 成分測定データに対して、レセプターモデルである CMB 法及び PMF 法の 2 通りの手法を適用し、PM<sub>2.5</sub> の発生源寄与割合を推計する。

### 4.1 成分測定データに対する前処理

環境省及び東京都環境科学研究所の 2015 年度の PM<sub>2.5</sub> 成分測定データに対して、以下の前処理を実施した。その結果、解析に用いるのが適当な成分として、表 4-1 の 24 成分が抽出された。また、解析に用いるのが適当なレコードとして、環境省のデータからは日本全国の 158 測定局で得られた 5,320 レコードが、東京都環境科学研究所のデータからは 102 レコードが、それぞれ抽出された。

#### 4.1.1 データの取得と基本的な確認

環境省の Web サイト「微小粒子状物質(PM2.5)測定データ | 平成 27 年度」<sup>26</sup>より、2015 年度の成分測定データを取得した。データを精査し、発見された入力ミス（不適切な記号・全角文字などの混入、測定値と検出限界との対応付けの誤り等）については、可能な範囲で修正を行った。また、東京都環境科学研究所において 2015 年度に捕集された PM<sub>2.5</sub> の成分測定データについても、入力ミスを修正した上で、解析に用いた。

#### 4.1.2 各地点における各成分の有効な測定値数の確認

解析に使用する成分を選定する際の判断材料とするため、環境省の成分測定データのうち、関東地域の各地点における各成分の有効な測定値数（未測定及び欠測以外の測定値数）を確認した（図 4-1）。

---

<sup>26</sup> 環境省：微小粒子状物質(PM2.5)測定データ | 平成 27 年度,  
[http://www.env.go.jp/air/osen/pm/monitoring/data/pm25\\_27.html](http://www.env.go.jp/air/osen/pm/monitoring/data/pm25_27.html)（平成 31 年 4 月 22 日アクセス）

### 有効な測定値数

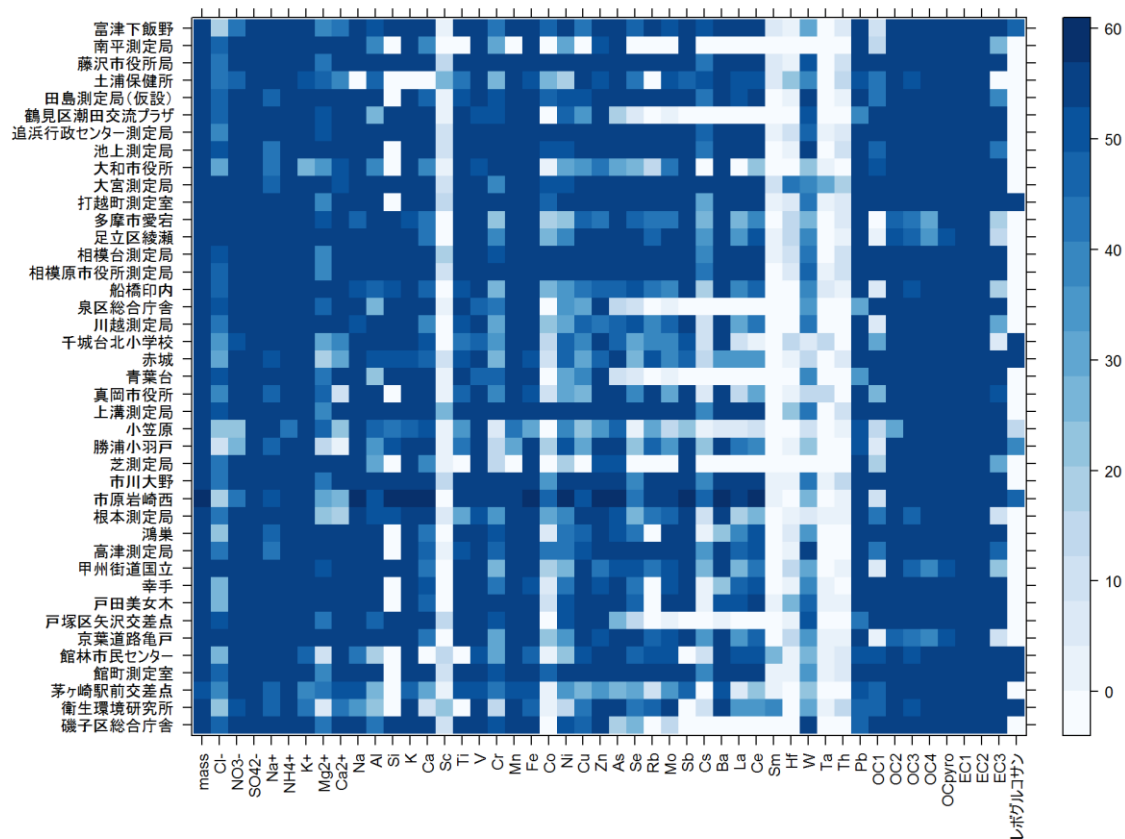


図 4-1 関東地域の測定地点における各成分の有効な測定値数（環境省の成分測定データ）

※ カラーバーの数値は、各地点における各成分の有効な測定値数を表す。

### 4.1.3 解析に使用する成分の選定

発生源の指標成分としての重要性及び有効な測定値の多さの2つの観点から、解析に使用する成分を選定した（図 4-2、表 4-1、表 4-2）。

解析に際しては、炭素成分を次のように再整理して用いた。なお、EC、char-EC、soot-EC が負値となった場合は、0 に修正した。

- OC : OC1 + OC2 + OC3 + OC4 + OCpyro
- EC (CMB 解析のみ) : EC1 + EC2 + EC3 - OCpyro
- char-EC (PMF 解析のみ、以下「cEC」という。) : EC1 - OCpyro
- soot-EC (PMF 解析のみ、以下「sEC」という。) : EC2 + EC3 (EC1 < OCpyro の場合は OCpyro - EC1 を減算)

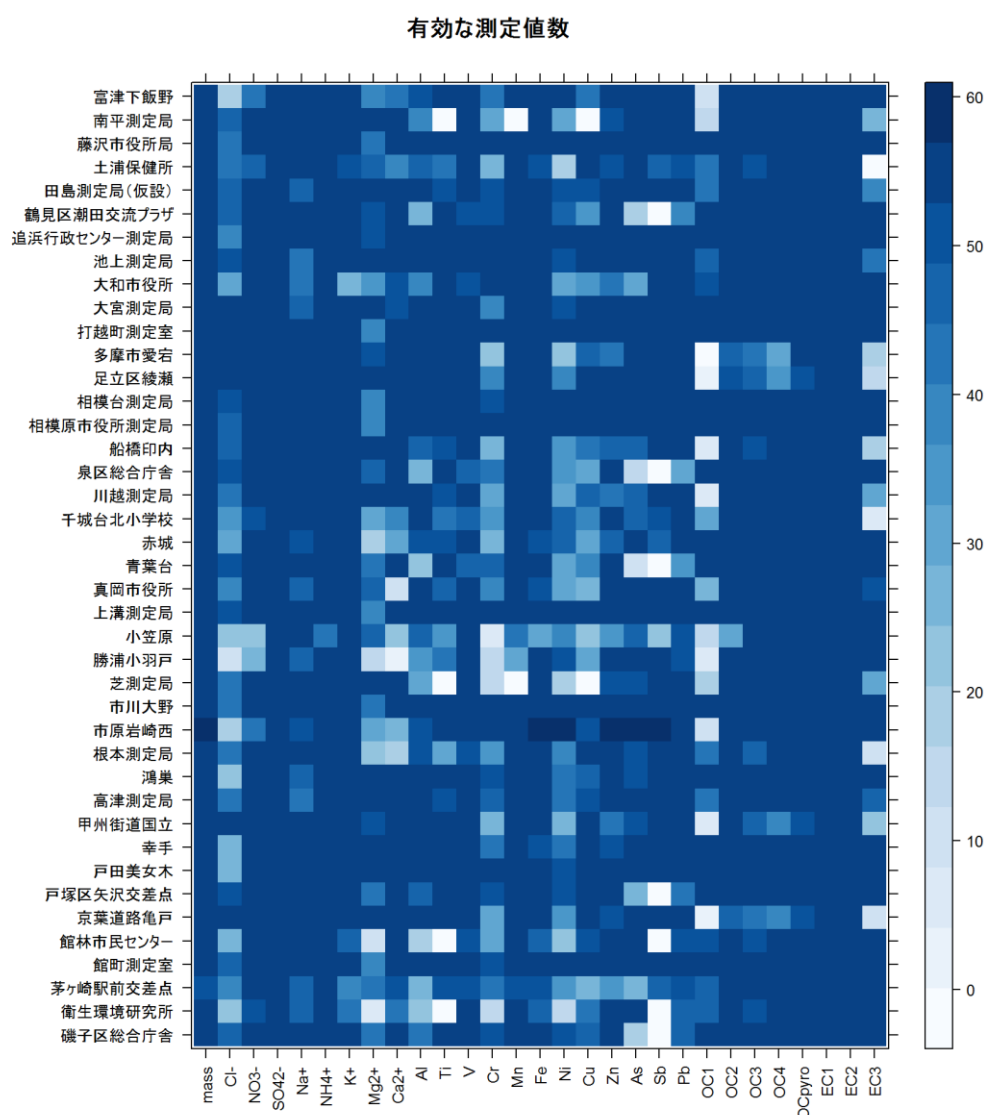


図 4-2 本解析に使用した成分（環境省の成分測定データ、関東地域の測定地点を例）

※ カラーバーの数値は、各地点における各成分の有効な測定値数を表す。

表 4-1 本解析に使用した成分

成分名	海塩	地殻	道路	自動車排気ガス	ブレーキ	タイヤ	鉄鋼	石油燃焼	廃棄物焼却	バイオマス燃焼	石炭燃焼	東京都プロフィール
Cl <sup>-</sup>												✓
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>												✓
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>												✓
Na <sup>+</sup>	●								○			✓
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>												✓
K <sup>+</sup>									●	○		✓
Mg <sup>2+</sup>												
Ca <sup>2+</sup>		●	○				○					✓
Al		●	○									✓
Si												
Sc		○	○									✓
Ti		○	○		○		○					
V								●				✓
Cr							○		○			✓
Mn							●					✓
Fe			○		○		●					✓
Co												
Ni							○	●				
Cu					●		○		○			
Zn						●	○		●			
As									○		●	✓
Se												✓
Rb												
Mo												
Sb					●				○			✓
Cs												
Ba					●							
La												✓
Ce												
Sm												
Hf												
W												
Ta												
Th												
Pb											○	
OC												✓
EC				●				○				✓
soot-EC				●				○				
char-EC										●		
レボグルコサン										●		

- ※ PM<sub>2.5</sub>成分測定データのうち、解析に使用した成分の背景を白で、使用しない成分の背景を黒で、それぞれ示した（解析対象 24 成分）。
- ※ 各成分がどの発生源の指標成分となっているかを、○（「環境省 PM<sub>2.5</sub>成分測定マニュアル無機元素測定法」 iii ページの表）及び●（飯島（2011）<sup>27</sup>の記載）で示した。
- ※ 東京都プロフィールに含まれている成分についても示した。

<sup>27</sup> 飯島明宏：大気モデルー第 5 講 レセプターモデルー，大気環境学会誌，46(4)，A53-A60（2011）

表 4-2 CMB 解析及び PMF 解析に用いた成分

CMB				PMF			
No	成分	No	成分	No	成分	No	成分
1	PM <sub>2.5</sub> (MASS)	13	Fe	1	PM <sub>2.5</sub> (MASS)	13	Cr
2	Cl <sup>-</sup>	14	Zn	2	Cl <sup>-</sup>	14	Mn
3	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	15	As	3	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	15	Fe
4	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	16	Sb	4	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	16	Ni
5	Na <sup>+</sup>	17	OC	5	Na <sup>+</sup>	17	Cu
6	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	18	EC	6	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	18	Zn
7	K <sup>+</sup>			7	K <sup>+</sup>	19	As
8	Ca <sup>2+</sup>			8	Mg <sup>2+</sup>	20	Sb
9	Al			9	Ca <sup>2+</sup>	21	Pb
10	V			10	Al	22	OC
11	Cr			11	Ti	23	cEC
12	Mn			12	V	24	sEC

※ CMB 解析では、表 4-1 に示す成分のうち、東京都プロファイルに含まれる成分を使用した。  
 ※ PMF 解析では、表 4-1 に示す成分のうち、背景を白で示した成分（EC を除く）を使用した。  
 ※ cEC は char-EC、sEC は soot-EC を示す。

#### 4.1.4 解析に使用するレコードの選定

解析では、4.1 で選定した表 4-1 の全成分の測定値が揃っているレコードのみを使用する。該当レコードは、環境省の成分測定データでは、日本全国で 7,778 レコードであった。この中から、次の 2 つの点から異常と思われるレコードをさらに除外した。

- ・ 質量濃度よりも成分濃度の和の方が大きいレコード
  - 成分濃度の和を計算する際、OC に係数 1.7 を乗じた。
  - 該当レコードは、2,040 レコードであった。
- ・ イオンバランスが崩れているレコード
  - 陰イオン当量が陽イオン当量から 20 % 以上乖離しているレコードを除外した（図 4-3）。
  - 該当レコードは、418 レコードであった。

最終的に、日本全国の 158 測定局で得られた 5,320 レコードが抽出された。

また、東京都環境科学研究所の成分測定データにも同様の処理を適用し、102 レコードが抽出された。

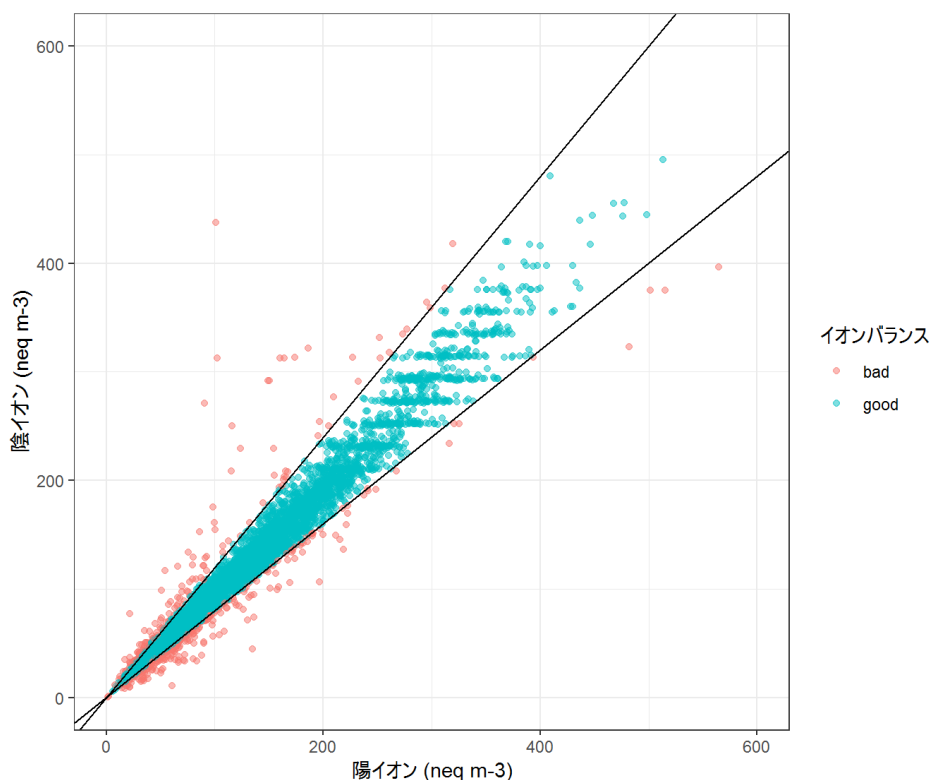


図 4-3 イオンバランスの確認結果（環境省の成分測定データ）

#### 4.1.5 検出限界未満の測定値の取り扱い

検出限界未満の測定値は、飯島（2011）<sup>28</sup>に従い、検出限界の半分の値で置換した。その際、後述の通り不確かさを大きく設定した。

## 4.2 CMB 解析の実施

4.1 に記載したスクリーニング済みのデータに対して、CMB 法を適用した。ソフトウェアは、EPA CMB 8.2 を使用した。発生源プロファイルは、「東京都微小粒子状物質検討会報告書（東京都微小粒子状物質検討会、平成 23 年 7 月）」で報告された、次の発生源を用いた。

- ・ 土壌・道路粉じん（ROAD）
- ・ 海塩（SEA）
- ・ 鉄鋼（IRON）
- ・ 重油燃焼（FUEL）
- ・ 廃棄物焼却（REFUSE）
- ・ 自動車排出ガス（CAR）
- ・ ブレーキ粉じん（BRAKE）
- ・ 植物質燃焼類（BIOMASS）

また、二次生成の寄与割合を推計するために、次の手順でフィッティングを行った。まず、前述の発生源プロファイルを用いて、一次粒子にのみ含まれる成分を対象としたフィッティングを行う。次に、二次粒子にも含まれる成分（アンモニウムイオン、硫酸イオン、硝酸イオン、OC）については、前述のフィッティング結果に基づき各発生源に分配し、残りを想定される各二次生成物質（ $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 、 $\text{NH}_4\text{NO}_3$ 、 $\text{NH}_4\text{HSO}_4$ 、二次有機粒子）に配分した。解析に使用した発生源プロファイルを表 4-3 に示す。なお、二次有機粒子については、観測値の OC 濃度に各発生源の寄与として割り当てられた OC 濃度を差し引いて 1.7 を乗じることで算出した。本手法により算出した二次有機粒子には、二次生成由来の有機粒子のほか、未把握の一次有機粒子が含まれると考えられることから、ここでは「二次有機粒子等」と表記した<sup>29</sup>。

発生源寄与割合の推計結果は、PMF 解析と合わせて、4.4 に示す。

<sup>28</sup> 飯島明宏：大気モデル—第 5 講 レセプターモデル—，大気環境学会誌，46(4)，A53-A60（2011）

<sup>29</sup> CMB 解析では、シミュレーションモデルのように二次有機粒子（Secondary Organic Aerosol：SOA）を直接算出することができず、ここでは便宜上、OC 濃度から二次有機粒子の寄与割合を算出している。また、CMB 解析に使用した発生源プロファイルは、主に煙道中の粒子を対象とした既往の調査結果から整理されたものであり、凝縮性粒子が一次粒子として考慮されていないと考えられる。CMB 解析で算出した二次有機粒子は、二次生成由来の有機粒子のほか、未把握の一次有機粒子も含まれることから、二次有機粒子の寄与を過大評価している可能性があり、ここでは、「二次有機粒子等」と表記した。

表 4-3 本解析に使用した CMB 発生源プロファイル

成分	発生源											
	土壌・道路粉じん		海塩粒子		鉄鋼		重油燃焼		廃棄物焼却		自動車排出ガス	
	濃度	誤差	濃度	誤差	濃度	誤差	濃度	誤差	濃度	誤差	濃度	誤差
Cl <sup>-</sup>	3.4E-04	1.5E-04	5.5E-01	2.8E-02	3.4E-02	6.8E-03	9.2E-04	9.2E-04	2.7E-01	2.7E-02	2.0E-04	2.0E-05
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	1.9E-04	1.2E-04	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	5.7E-04	4.5E-04	7.8E-02	1.6E-02	0.0E+00	0.0E+00	3.2E-01	1.6E-01	0.0E+00	0.0E+00	2.2E-02	2.2E-03
Na <sup>+</sup>	1.3E-02	2.7E-03	3.0E-01	1.5E-02	1.4E-02	2.7E-03	1.0E-02	5.0E-03	1.2E-01	1.2E-02	7.6E-05	7.6E-06
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	6.1E-03	9.7E-04	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00
K <sup>+</sup>	1.3E-02	3.4E-03	1.1E-02	1.1E-03	1.3E-02	2.6E-03	8.5E-04	8.5E-04	2.0E-01	2.0E-02	2.0E-04	2.0E-05
Ca <sup>2+</sup>	5.5E-02	2.6E-02	1.2E-02	5.9E-04	4.5E-02	9.0E-03	8.5E-04	4.3E-04	1.1E-02	2.2E-03	1.5E-03	1.5E-04
OC	6.9E-02	2.8E-02	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	2.5E-01	2.5E-02
EC	1.3E-02	4.1E-03	0.0E+00	0.0E+00	5.0E-03	5.0E-03	3.0E-01	1.3E-01	5.0E-02	5.0E-02	4.9E-01	4.9E-02
Al	6.1E-02	7.7E-03	3.0E-07	0.0E+00	1.0E-02	2.0E-03	2.1E-03	1.1E-03	4.2E-03	8.4E-04	1.6E-03	1.6E-04
V	1.1E-04	3.5E-05	1.0E-07	0.0E+00	1.3E-04	2.5E-05	6.4E-03	3.2E-03	2.7E-05	1.4E-05	7.2E-06	7.0E-07
Cr	2.8E-04	1.6E-04	0.0E+00	0.0E+00	3.2E-03	6.3E-04	2.1E-04	1.1E-04	8.5E-04	8.5E-04	1.2E-05	1.2E-06
Mn	1.1E-03	3.9E-04	1.0E-07	0.0E+00	2.2E-02	2.2E-03	1.2E-04	4.0E-05	3.3E-04	3.3E-04	1.9E-05	1.9E-06
Fe	5.3E-02	6.4E-03	3.0E-07	1.0E-07	1.6E-01	1.6E-02	4.6E-03	2.3E-03	6.1E-03	6.1E-03	9.9E-04	9.9E-05
Zn	1.3E-03	8.0E-04	0.0E+00	0.0E+00	5.2E-02	1.0E-02	4.0E-04	2.0E-04	2.6E-02	1.3E-02	6.2E-04	6.2E-05
As	1.1E-05	4.2E-06	0.0E+00	0.0E+00	1.0E-04	1.0E-04	2.3E-05	1.2E-05	1.5E-04	1.5E-04	3.7E-06	4.0E-07
Sb	1.3E-05	7.4E-06	0.0E+00	0.0E+00	9.0E-05	9.0E-05	6.9E-06	3.5E-06	9.5E-04	4.8E-04	2.0E-05	2.0E-06

※ 発生源プロファイルの濃度 (g/g) と誤差を示す。

※ 二次粒子の (NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>、NH<sub>4</sub>HSO<sub>4</sub>、NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>については、それぞれの分子量から組成を算出した。



表 4-3(2) 本解析に使用した CMB 発生源プロフィール

成分	発生源				二次粒子					
	ブレーキ粉じん		植物質燃焼類		(NH <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>		NH <sub>4</sub> HSO <sub>4</sub>		NH <sub>4</sub> NO <sub>3</sub>	
	濃度	誤差	濃度	誤差	濃度	誤差	濃度	誤差	濃度	誤差
Cl <sup>-</sup>	1.3E-02	2.5E-03	2.0E-02	4.0E-03	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	0.0E+00	0.0E+00	1.4E-03	2.8E-04	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	7.8E+01	7.8E+00
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	4.9E-03	1.5E-03	9.0E-03	1.8E-03	7.3E+01	7.3E+00	8.4E+01	8.3E+00	0.0E+00	0.0E+00
Na <sup>+</sup>	7.6E-03	2.5E-03	5.8E-03	1.2E-03	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	0.0E+00	0.0E+00	1.9E-03	3.8E-04	2.7E+01	2.7E+00	1.6E+01	1.6E+00	2.3E+01	2.3E+00
K <sup>+</sup>	3.5E-03	7.0E-04	1.3E-02	2.6E-03	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00
Ca <sup>2+</sup>	3.2E-02	6.4E-03	2.3E-03	4.7E-04	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00
OC	8.0E-02	3.1E-02	5.2E-01	1.0E-01	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00
EC	1.5E-01	7.6E-02	1.3E-01	2.7E-02	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00
Al	1.9E-02	3.9E-03	2.1E-03	4.1E-04	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00
V	5.9E-05	1.2E-05	4.0E-07	1.0E-07	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00
Cr	4.2E-04	8.4E-05	3.9E-04	7.8E-05	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00
Mn	7.2E-04	1.4E-04	9.8E-05	2.0E-05	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00
Fe	9.1E-02	1.8E-02	3.6E-03	7.2E-04	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00
Zn	3.3E-03	6.5E-04	9.7E-04	1.9E-04	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00
As	2.2E-05	4.4E-06	2.0E-03	4.0E-04	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00
Sb	2.1E-03	4.3E-04	7.7E-06	1.6E-06	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00

※ 発生源プロフィールの濃度 (g/g) と誤差を示す。

※ 二次粒子の (NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>、NH<sub>4</sub>HSO<sub>4</sub>、NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>については、それぞれの分子量から組成を算出した。

### 4.3 PMF 解析の実施

4.1 で整理したスクリーニング済みのデータに対して、因子数を 8 から 13 まで変えながら、PMF 解析を実施した。ソフトウェアとしては、EPA PMF 5.0 を使用した。追加誤差は、5% に設定した。寄与割合の推計結果は、CMB 解析と合わせて、4.4 に示す。

#### 4.3.1 不確かさの算出

PMF 解析においては、成分測定結果の不確かさデータが必要となる。試料  $i$  中における成分  $j$  の濃度を  $c_{ij}$ 、対応する検出限界を  $DL_{ij}$  とする。本解析では、EPA PMF 5.0 の説明書<sup>30</sup>に従い、不確かさ  $u_{ij}$  を次の通りに与えた。

$$u_{ij} = \begin{cases} \sqrt{(EF_j c_{ij})^2 + \left(\frac{1}{2} DL_{ij}\right)^2} & (c_{ij} \geq DL_{ij}) \\ \frac{5}{6} DL_{ij} & (c_{ij} < DL_{ij}) \end{cases}$$

ここで、誤差フラクション  $EF_{ij}$  は 0.2 に設定した。

#### 4.3.2 統計的に最適な因子数の選択

各因子数について、Base Model Run を 20 回ずつ繰り返し、統計的に最適な因子数を決定した。

全ての因子数において、20 回の Base Model Run は全て収束した。モデルの観測値へのあてはまりのよさを表す  $Q_{\text{true}}$  を理論値  $Q_{\text{exp}}$  で規格化した値は、因子数の増加とともに、1.28 から 0.877 まで減少した (図 4-4)。

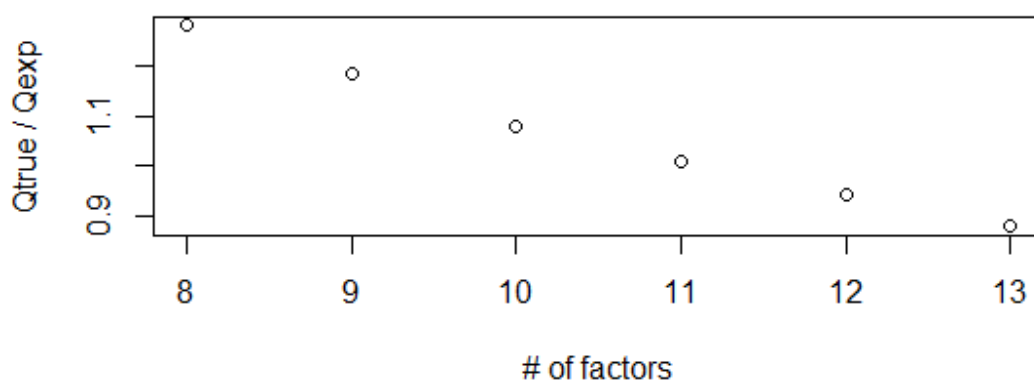


図 4-4 因子数と  $Q_{\text{true}}/Q_{\text{exp}}$  との関係

<sup>30</sup> EPA: Positive Matrix Factorization (PMF) 5.0 Fundamentals and User Guide, [https://www.epa.gov/sites/production/files/2015-02/documents/pmf\\_5.0\\_user\\_guide.pdf](https://www.epa.gov/sites/production/files/2015-02/documents/pmf_5.0_user_guide.pdf)

また、モデルの頑健性を表す  $Q_{\text{true}}$  の相対標準偏差は、10 因子及び 11 因子のときに急増したが、12 因子以上では再び減少した（図 4-5）。

以上を踏まえて、統計的に最適な因子数として、9 因子を採用した。

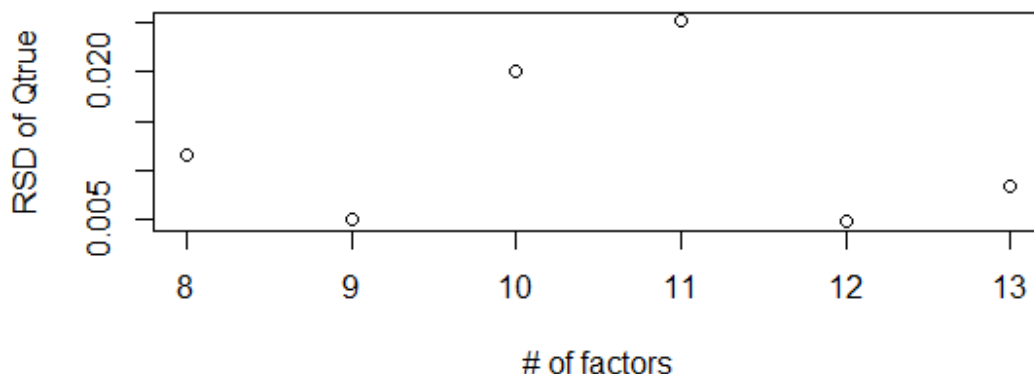


図 4-5 因子数と  $Q_{\text{true}}$  のばらつき（相対標準偏差）との関係

#### 4.3.3 因子プロファイルの可視化

統計的に最適と考えられる 9 因子モデルの各因子のプロファイルを、図 4-6～図 4-8 に示す。

各因子は、指標元素の % of species sum に基づき、大気環境学的に無理のない範囲で、各発生源と次のように対応付けられた（表 4-4）。

なお、各因子に分解した OC 濃度については、係数 1.7 を乗じた上で発生源寄与割合を算出した。

表 4-4 PMF の各因子を対応付けた発生源と指標とした成分

因子	対応付けた発生源	指標とした成分
第 1 因子	石炭燃焼	As、Pb
第 2 因子	硫酸アンモニウム	$\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NH}_4^+$
第 3 因子	二次有機粒子・バイオマス燃焼	$\text{K}^+$ 、OC、cEC
第 4 因子	道路・地殻	$\text{Ca}^{2+}$ 、Al、Ti、Fe
第 5 因子	硝酸アンモニウム・塩素	$\text{Cl}^-$ 、 $\text{NO}_3^-$
第 6 因子	鉄鋼・ブレーキ・タイヤ	Cr、Mn、Cu、Zn、Sb
第 7 因子	自動車排出ガス	OC、sEC
第 8 因子	重油燃焼	V、Ni
第 9 因子	海塩	$\text{Na}^+$ 、 $\text{Mg}^{2+}$

※ cEC は char-EC、sEC は soot-EC を示す。

※ 第 3 因子について、因子プロファイルでは OC であるが、OC を各因子に分解した後、係数補正 (1.7) を行った上で発生源寄与割合を算出しているため、「二次有機粒子・バイオマス燃焼」とした。

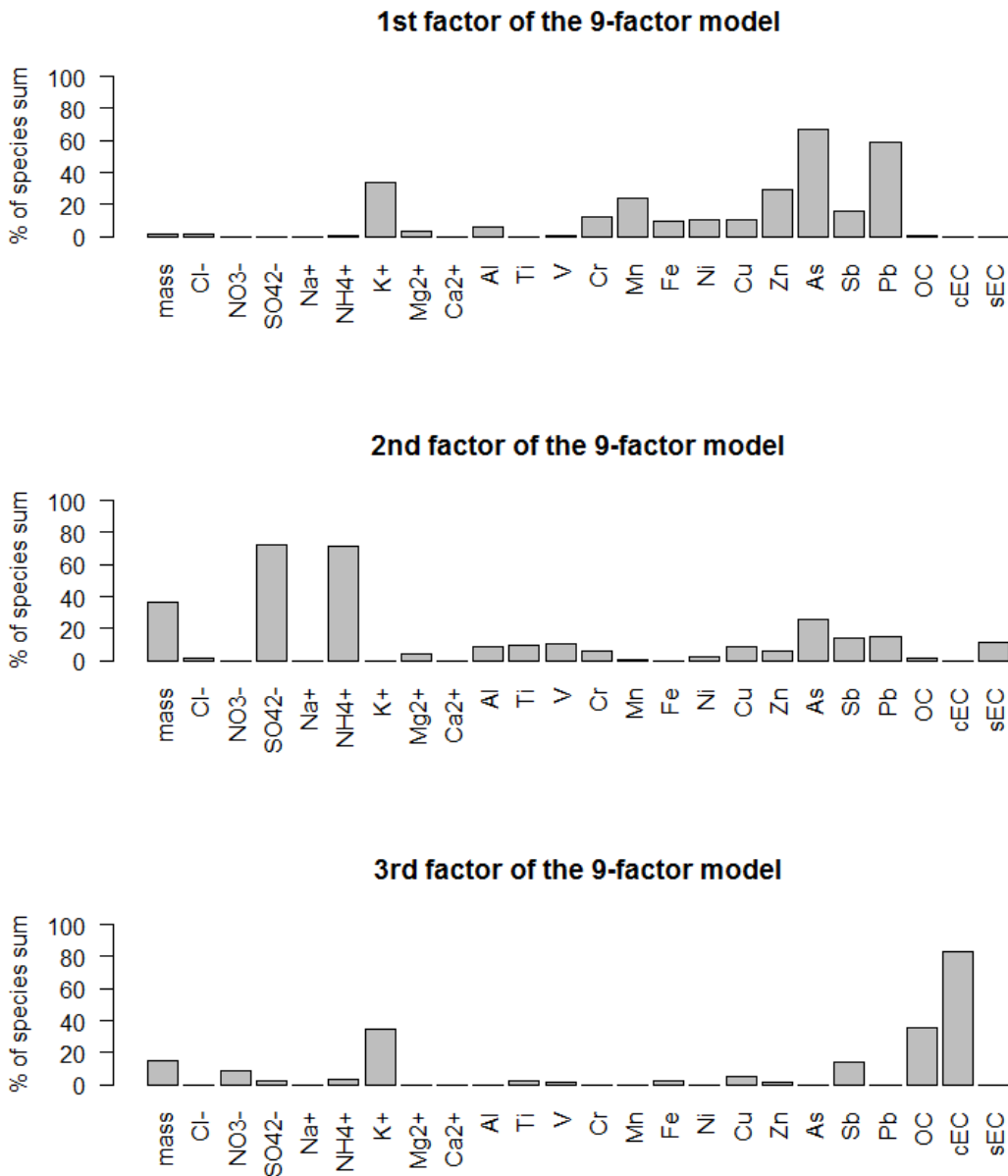


図 4-6 9 因子モデルの第 1 因子（石炭燃焼）、第 2 因子（硫酸アンモニウム）、第 3 因子（二次有機粒子・バイオマス燃焼）のプロファイル

※ cEC は char-EC、sEC は soot-EC を示す。

※ 第 3 因子について、因子プロファイルでは OC であるが、OC を各因子に分解した後、係数補正 (1.7) を行った上で発生源寄与割合を算出しているため、「二次有機粒子・バイオマス燃焼」とした。

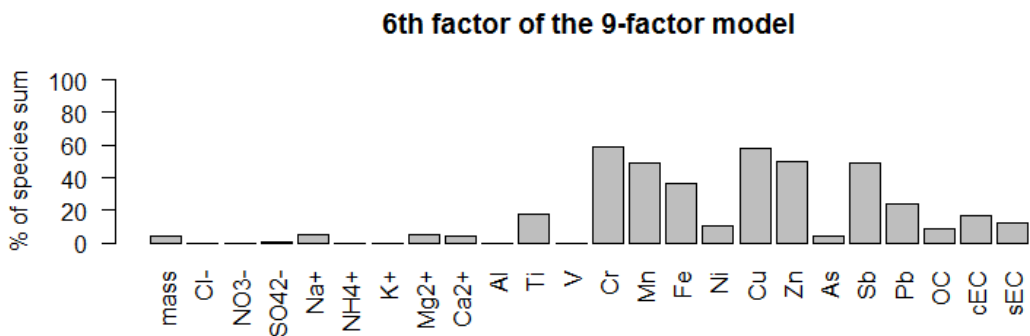
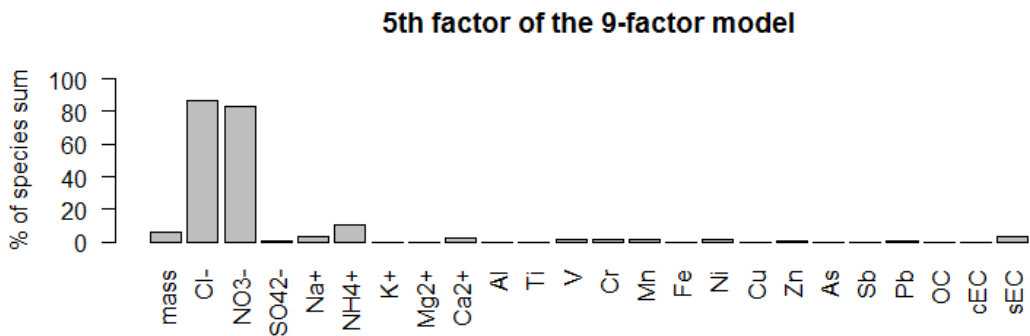
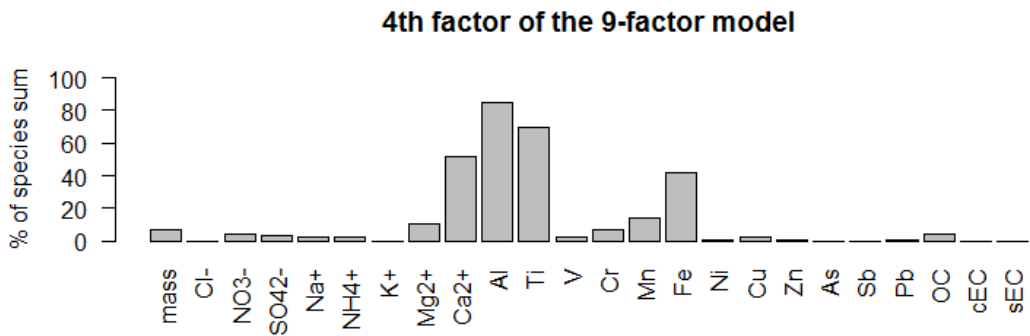


図 4-7 9 因子モデルの第 4 因子（道路・地殻）、第 5 因子（硝酸アンモニウム・塩素）、第 6 因子（鉄鋼・ブレーキ・タイヤ）のプロファイル

※ cEC は char-EC、sEC は soot-EC を示す。

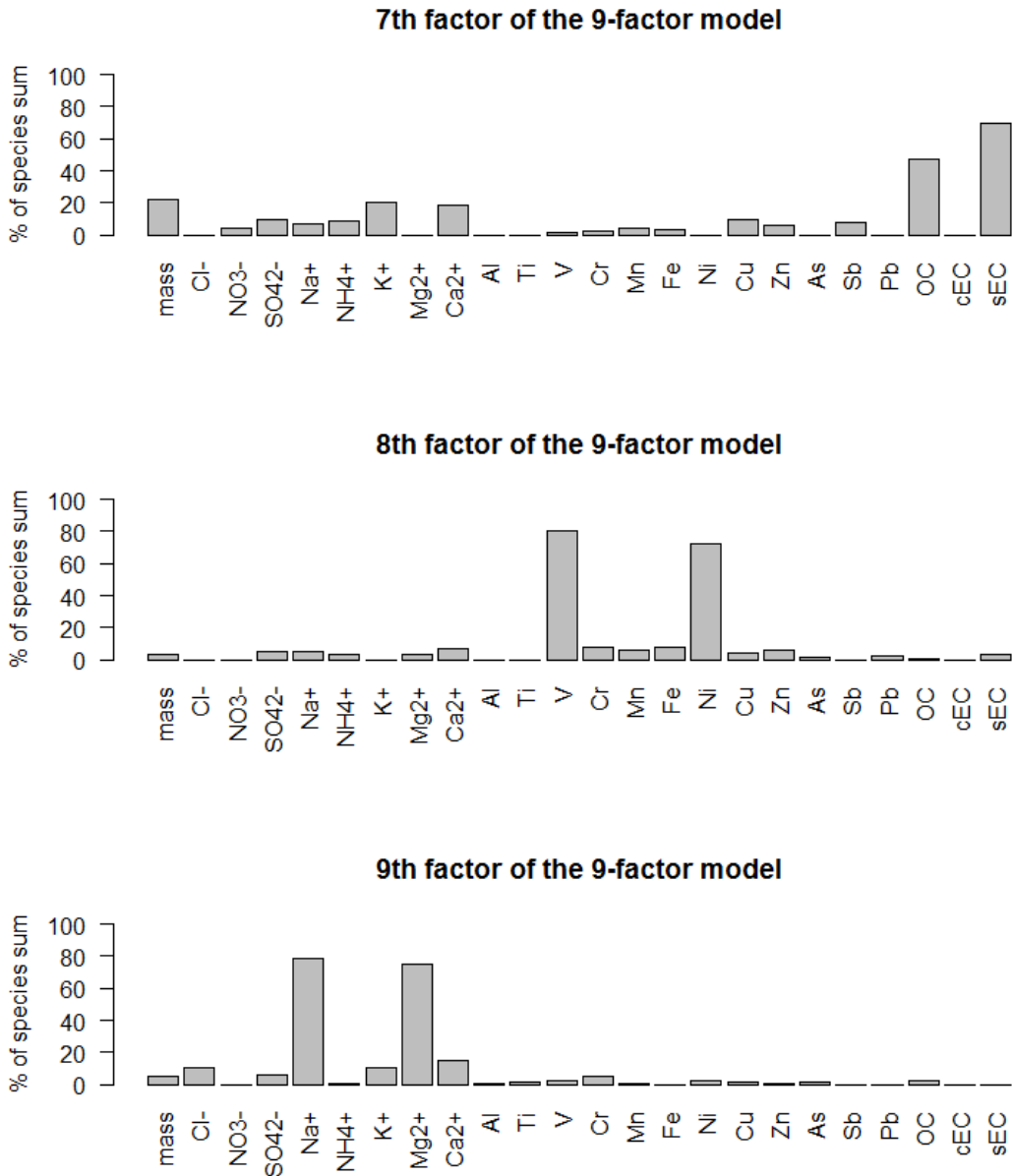


図 4-8 9 因子モデルの第 7 因子（自動車排出ガス）、第 8 因子（重油燃焼）、第 9 因子（海塩）因子のプロファイル

※ cEC は char-EC、sEC は soot-EC を示す。

#### 4.4 CMB 解析及び PMF 解析の結果

CMB 解析及び PMF 解析から得られた、各発生源の寄与割合の推計結果を図 4-10 から図 4-18 に示す。CMB 解析及び PMF 解析の結果に共通してみられる傾向として、次のものが挙げられる。

- ・ 季節に関する傾向
  - 道路・地殻の寄与割合が、春季に大きくなり、黄砂等の影響が考えられる (図 4-10、図 4-15)。
  - 硫酸アンモニウムの寄与割合が、夏季に大きくなり、SO<sub>x</sub> からの二次生成による影響が考えられる。大気環境中における SO<sub>x</sub> (SO<sub>2</sub> 等) は、光化学反応により酸化され H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> となり、NH<sub>3</sub> と反応することで (NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> が生成されたと考えられる (図 4-11、図 4-16)。
  - 硝酸アンモニウムの寄与割合が、冬季に大きくなり、NO<sub>x</sub> からの二次生成の影響が考えられる。大気環境中における NO<sub>x</sub> は、大気中で酸化され HNO<sub>3</sub> となり、NH<sub>3</sub> と反応することで NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub> が生成されたと考えられる (図 4-13、図 4-18)。
- ・ 地点に関する傾向
  - 海に近い地点ほど、重油燃焼の寄与割合が大きく、夏季において重油燃焼が大きくなる傾向があった。重油燃焼は、大規模固定煙源や船舶等の起源が考えられ、それらが集中する臨海地域で重油燃焼の寄与割合が大きくなったと考えられる。

一方、CMB 解析及び PMF 解析の結果の相違点として、次の事項が挙げられる。

- ・ 自動車排出ガスの寄与割合
  - PMF 解析による自動車排出ガスの寄与割合は、CMB 解析と比べて寄与割合が大きく、特に関東内陸の栃木県及び埼玉県で PMF 解析と CMB 解析の乖離が顕著であった。PMF 解析の自動車排出ガスに対応する因子では、OC や SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> の成分も確認されたことから、二次生成由来の OC や SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> の起源が PMF 解析の自動車排出ガスの因子に一部配分されているためと考えられる。
- ・ 硫酸アンモニウム及び二次有機粒子の寄与割合
  - PMF 解析による硫酸アンモニウムや二次有機粒子・バイオマス燃焼の寄与割合は、CMB 解析と比較してより小さい結果となった。上記と同様に、PMF 解析の自動車排出ガスに対応する因子では、二次生成由来の OC や SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> の起源が PMF 解析の自動車排出ガスの因子に一部配分されているためと考えられる。

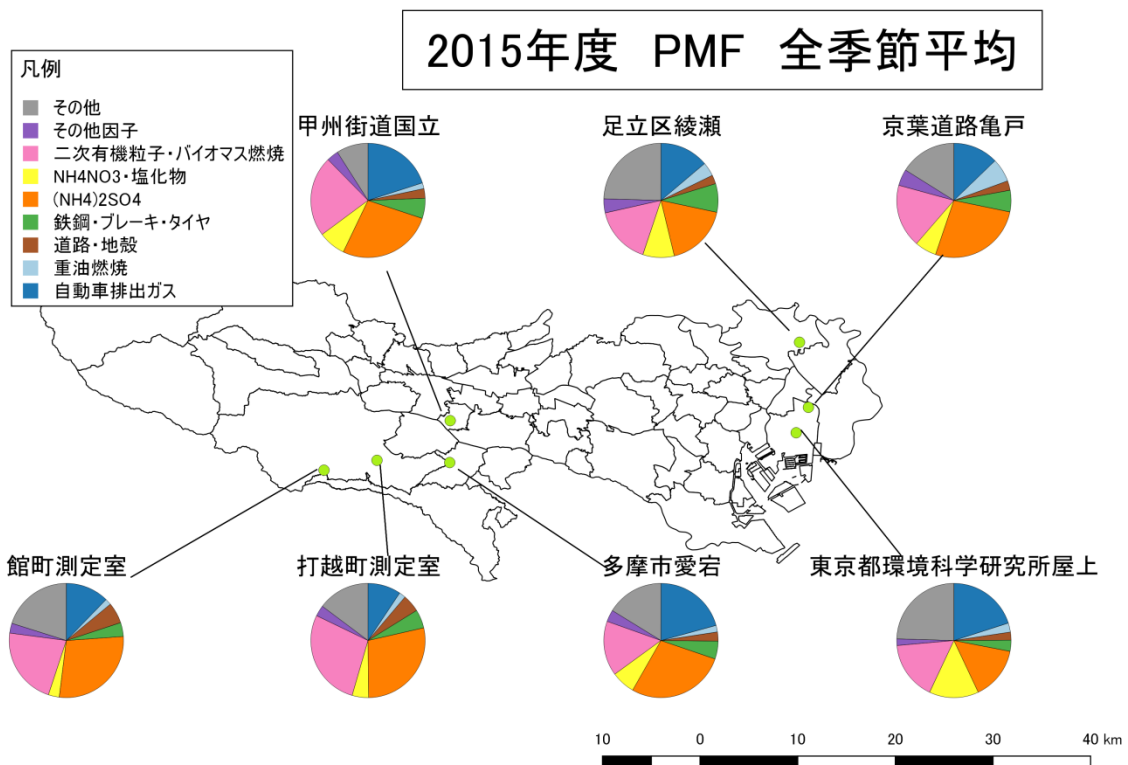
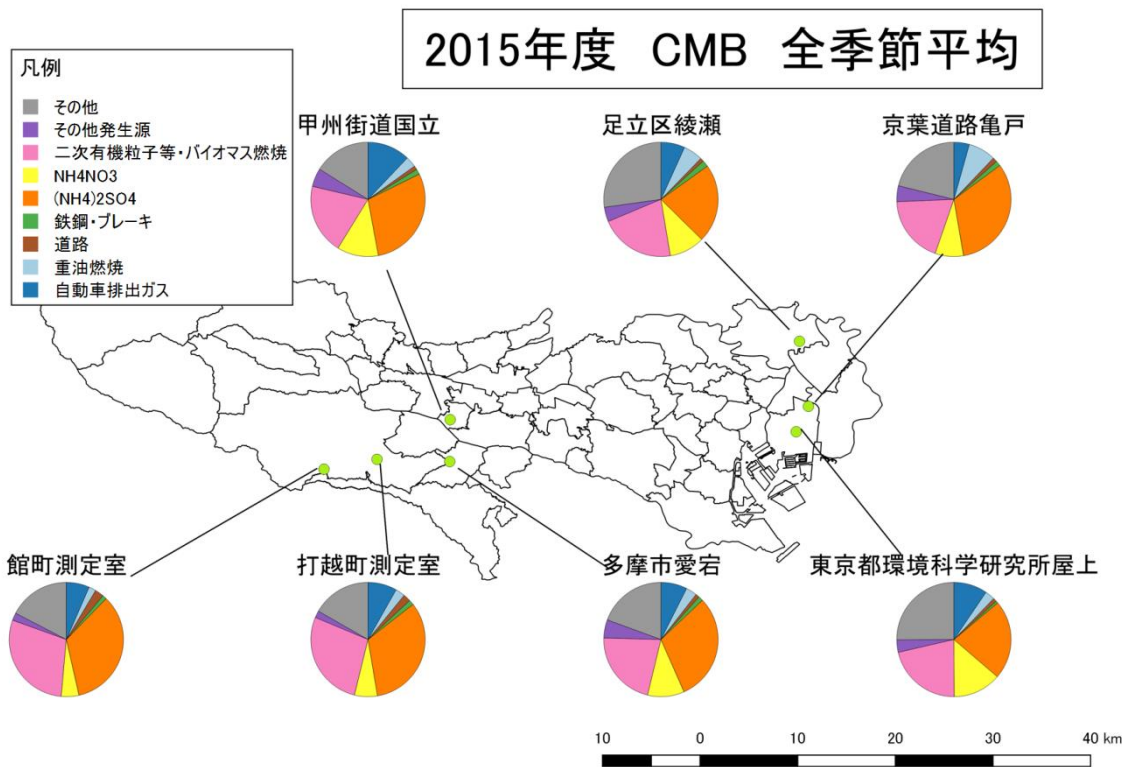


図 4-9 東京都におけるレセプターモデルを用いた発生源寄与解析結果（2015 年度全季節平均）上図：CMB、下図：PMF

※ 発生源寄与割合は各調査地点の期間平均で算出した。

※ CMB 解析や PMF 解析で分類されなかった濃度はその他とした。CMB 解析では、二次有機粒子等とバイオマス燃焼の発生源は個々に区別されたが、PMF 解析では両者の寄与が一つの因子に混在する結果となった。そこで、CMB 解析と PMF 解析の結果の相互比較を目的とした本図では、CMB 解析の結果についても二次有機粒子等とバイオマス燃焼の寄与を合算し、PMF 解析の結果との比較が容易になるように示した。また、寄与割合の小さい発生源（CMB：海塩、廃棄物焼却、NH<sub>4</sub>HSO<sub>4</sub>、PMF：石炭燃焼、海塩）は、その他発生源として示した。



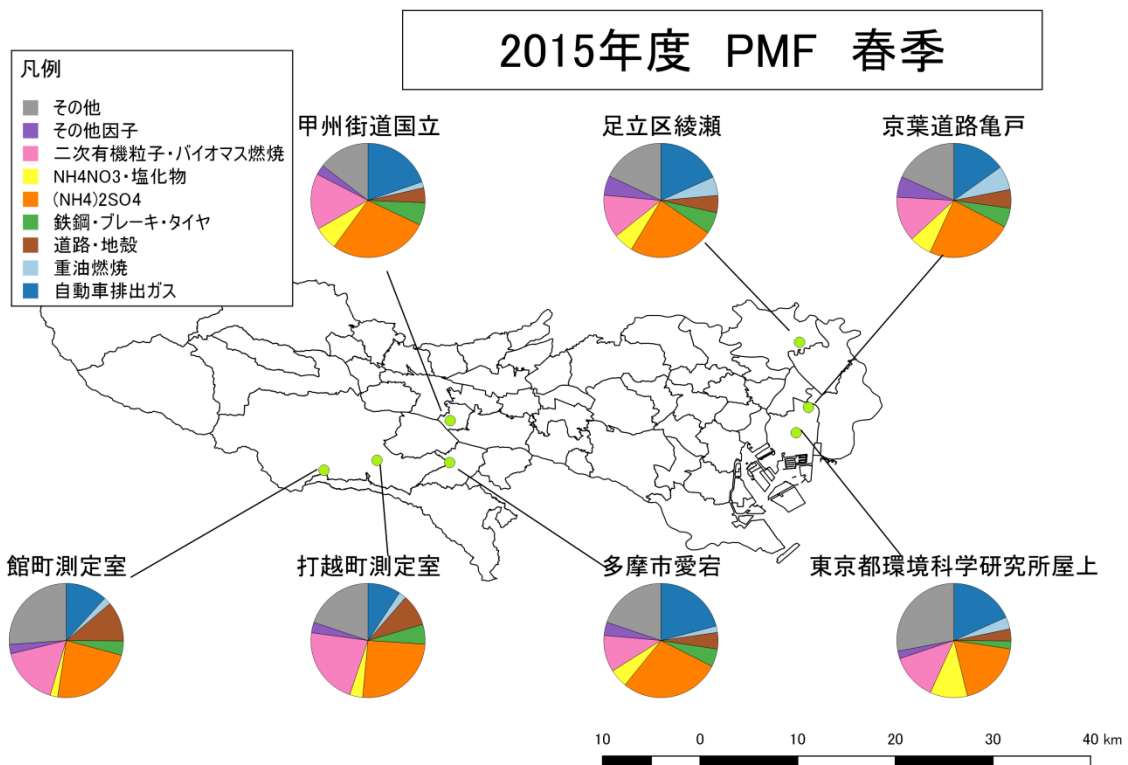
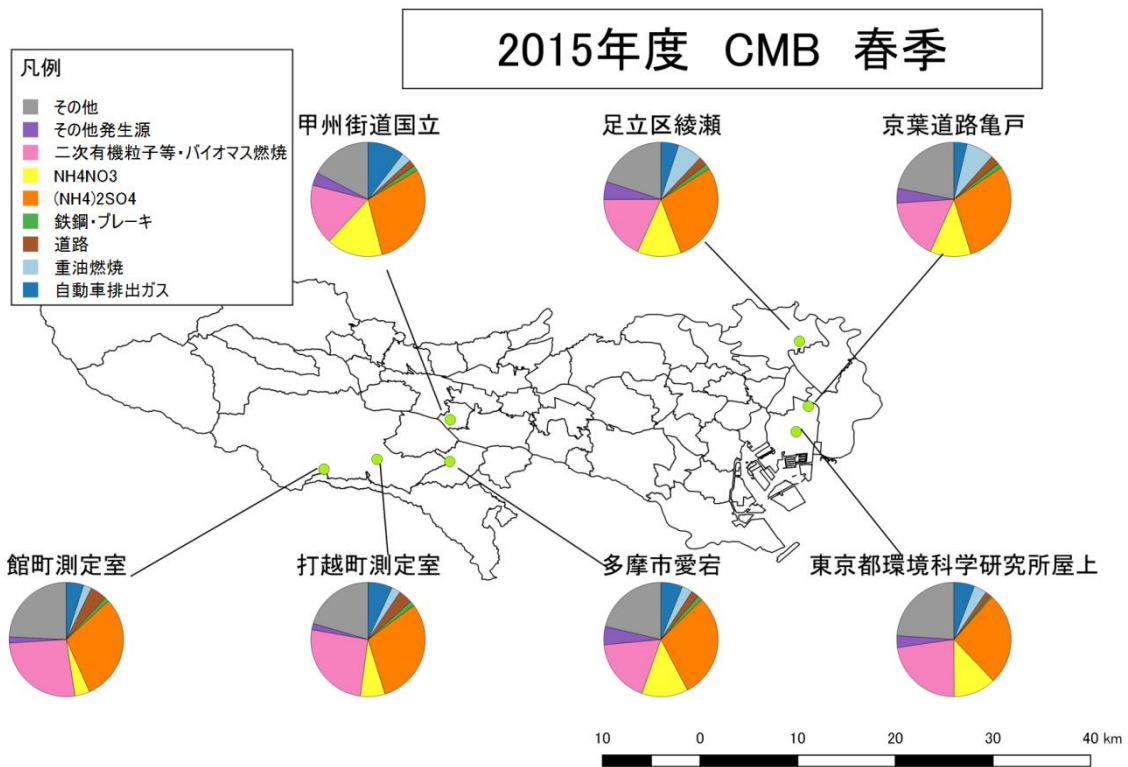


図 4-10 東京都におけるレセプターモデルを用いた発生源寄与解析結果(2015 年度春季)

上図 : CMB、下図 : PMF

※ 発生源寄与割合は各調査地点の期間平均で算出した。

※ CMB 解析や PMF 解析で分類されなかった濃度はその他とした。CMB 解析では、二次有機粒子等とバイオマス燃焼の発生源は個々に区別されたが、PMF 解析では両者の寄与が一つの因子に混在する結果となった。そこで、CMB 解析と PMF 解析の結果の相互比較を目的とした本図では、CMB 解析の結果についても二次有機粒子等とバイオマス燃焼の寄与を合算し、PMF 解析の結果との比較が容易になるように示した。また、寄与割合の小さい発生源 (CMB : 海塩、廃棄物焼却、NH<sub>4</sub>HSO<sub>4</sub>、PMF : 石炭燃焼、海塩) は、その他発生源として示した。

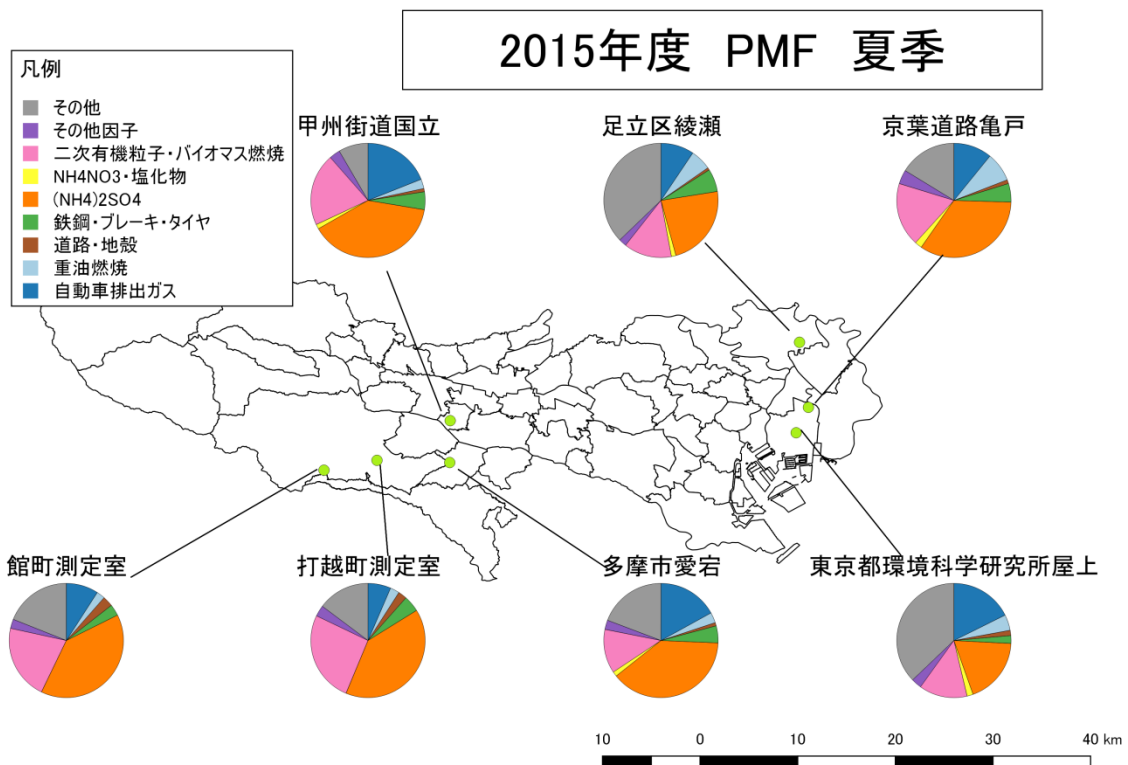
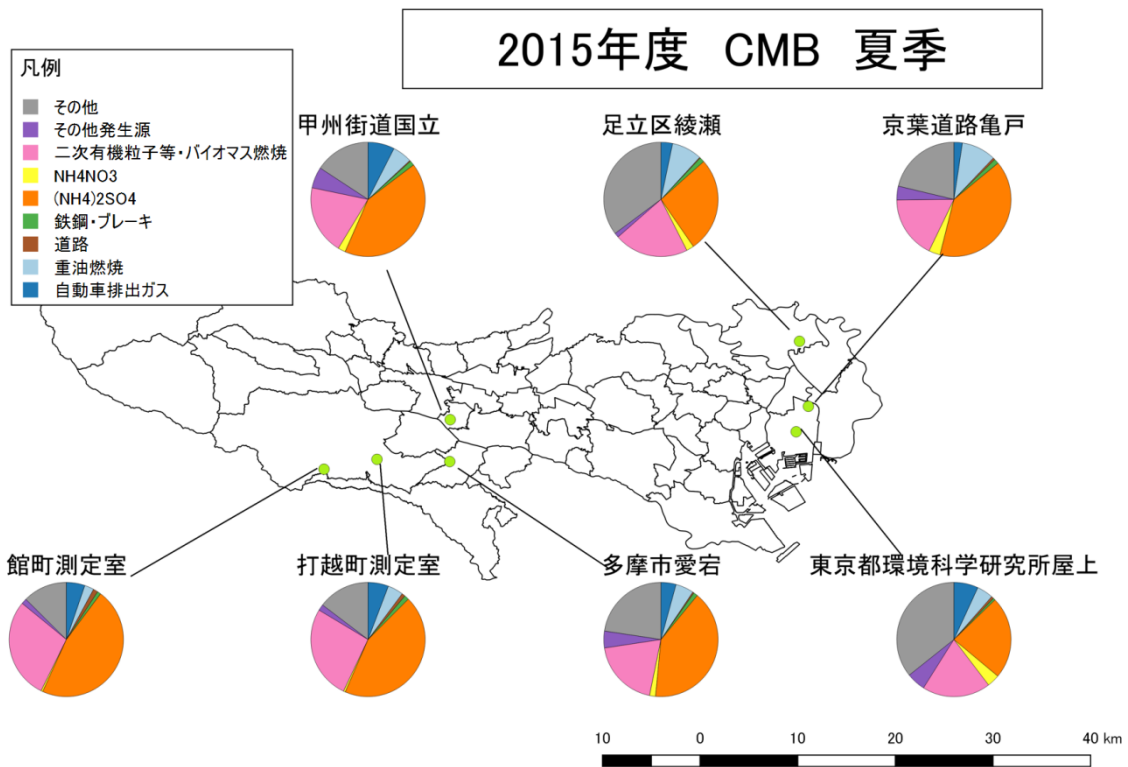


図 4-11 東京都におけるレセプターモデルを用いた発生源寄与解析結果(2015 年度夏季)

上図：CMB、下図：PMF

※ 発生源寄与割合は各調査地点の期間平均で算出した。

※ CMB 解析や PMF 解析で分類されなかった濃度はその他とした。CMB 解析では、二次有機粒子等とバイオマス燃焼の発生源は個々に区別されたが、PMF 解析では両者の寄与が一つの因子に混在する結果となった。そこで、CMB 解析と PMF 解析の結果の相互比較を目的とした本図では、CMB 解析の結果についても二次有機粒子等とバイオマス燃焼の寄与を合算し、PMF 解析の結果との比較が容易になるように示した。また、寄与割合の小さい発生源 (CMB : 海塩、廃棄物焼却、NH<sub>4</sub>HSO<sub>4</sub>、PMF : 石炭燃焼、海塩) は、その他発生源として示した。

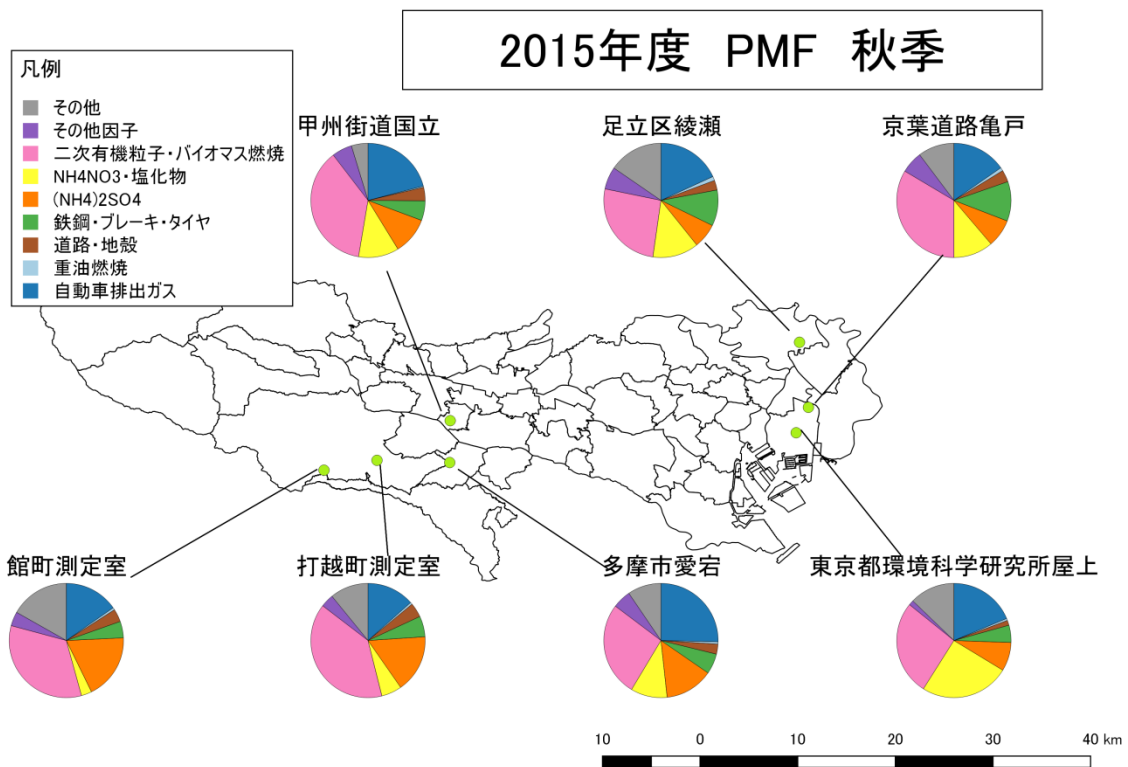
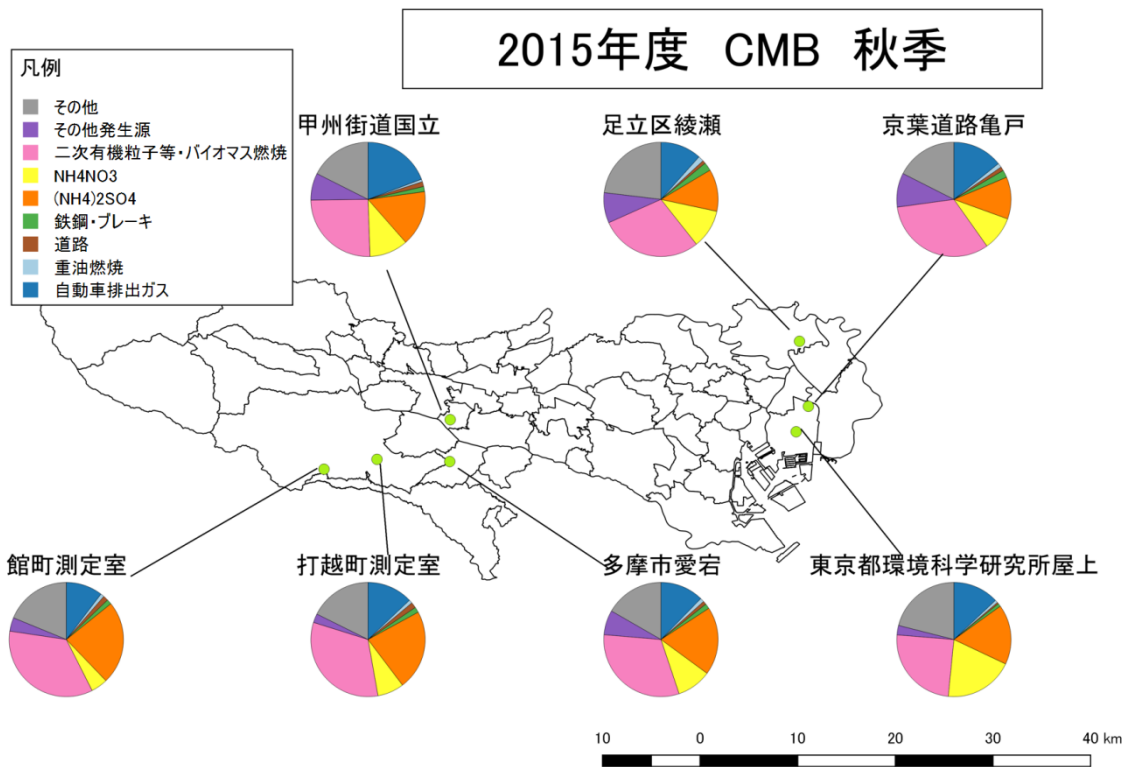


図 4-12 東京都におけるレセプターモデルを用いた発生源寄与解析結果(2015 年度秋季)

上図：CMB、下図：PMF

※ 発生源寄与割合は各調査地点の期間平均で算出した。

※ CMB 解析や PMF 解析で分類されなかった濃度はその他とした。CMB 解析では、二次有機粒子等とバイオマス燃焼の発生源は個々に区別されたが、PMF 解析では両者の寄与が一つの因子に混在する結果となった。そこで、CMB 解析と PMF 解析の結果の相互比較を目的とした本図では、CMB 解析の結果についても二次有機粒子等とバイオマス燃焼の寄与を合算し、PMF 解析の結果との比較が容易になるように示した。また、寄与割合の小さい発生源 (CMB : 海塩、廃棄物焼却、NH<sub>4</sub>HSO<sub>4</sub>、PMF : 石炭燃焼、海塩) は、その他発生源として示した。

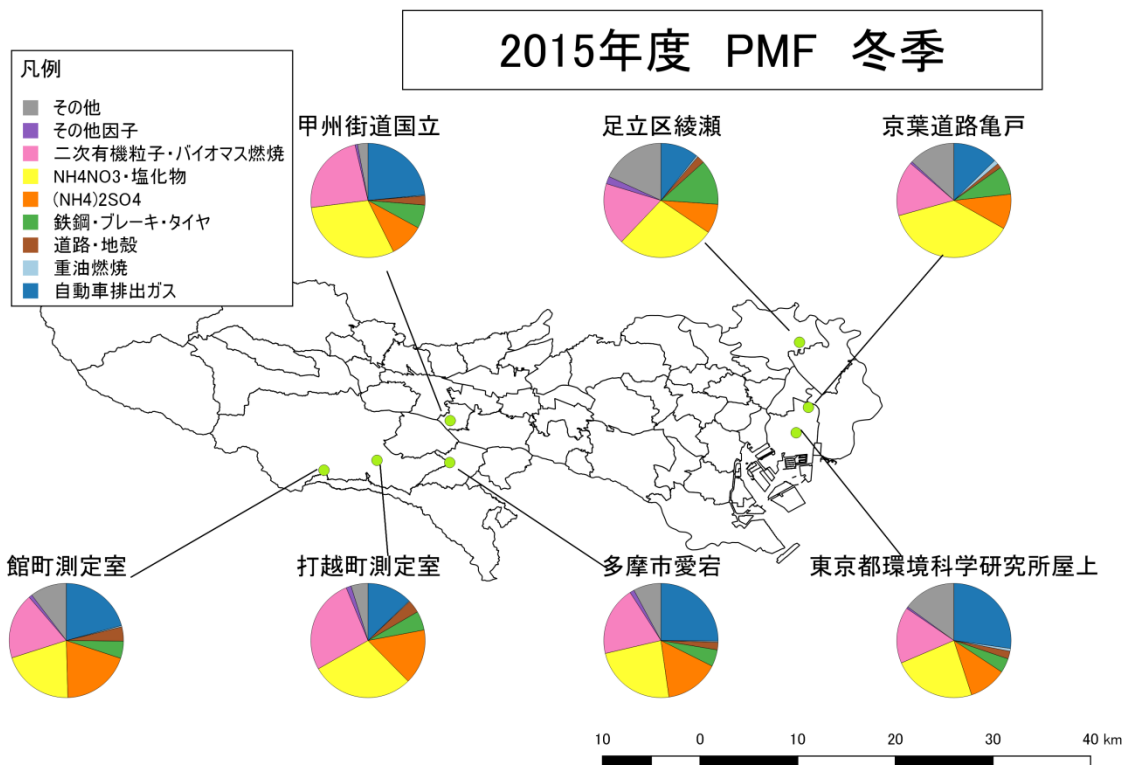
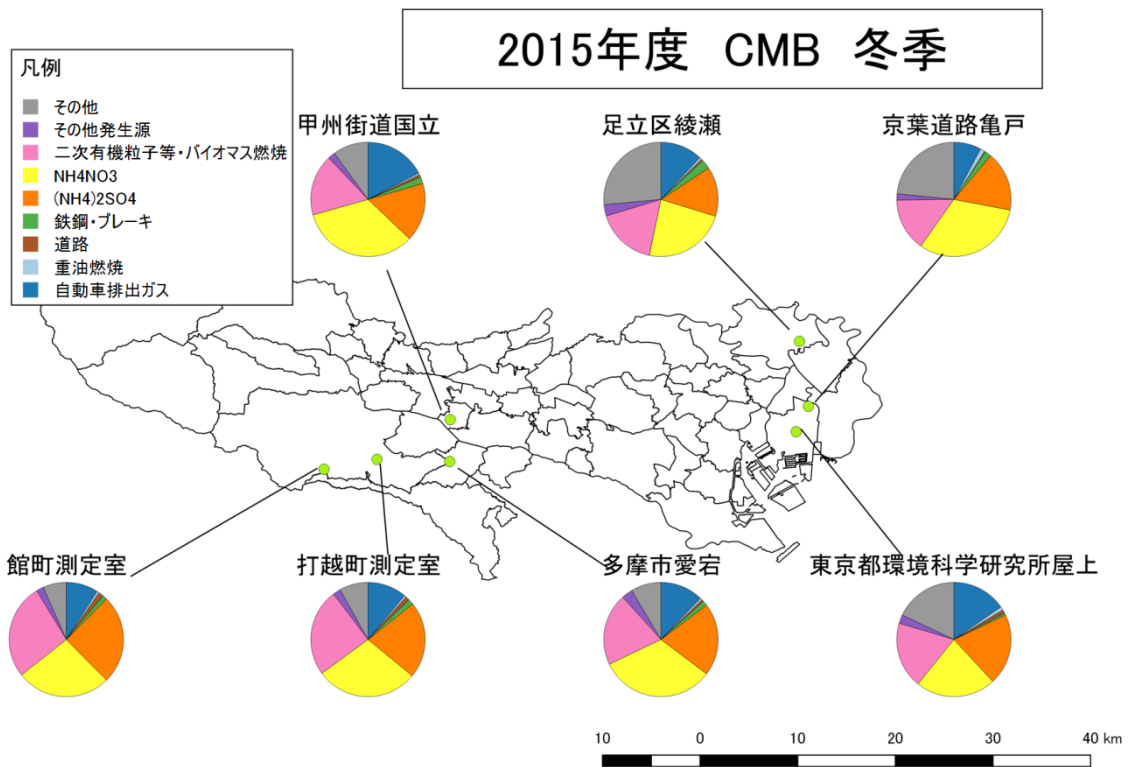


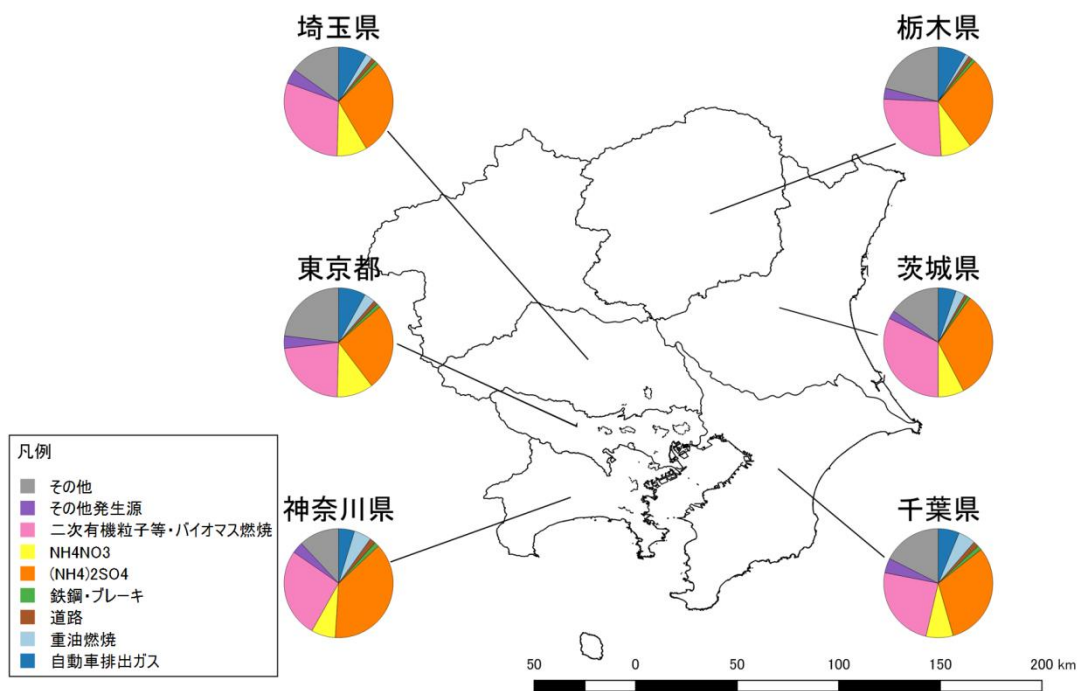
図 4-13 東京都におけるレセプターモデルを用いた発生源寄与解析結果(2015 年度冬季)

上図：CMB、下図：PMF

※ 発生源寄与割合は各調査地点の期間平均で算出した。

※ CMB 解析や PMF 解析で分類されなかった濃度はその他とした。CMB 解析では、二次有機粒子等とバイオマス燃烧の発生源は個々に区別されたが、PMF 解析では両者の寄与が一つの因子に混在する結果となった。そこで、CMB 解析と PMF 解析の結果の相互比較を目的とした本図では、CMB 解析の結果についても二次有機粒子等とバイオマス燃烧の寄与を合算し、PMF 解析の結果との比較が容易になるように示した。また、寄与割合の小さい発生源 (CMB：海塩、廃棄物焼却、NH<sub>4</sub>HSO<sub>4</sub>、PMF：石炭燃烧、海塩) は、その他発生源として示した。

## 2015年度 一般環境 CMB 全季節平均



## 2015年度 一般環境 PMF 全季節平均

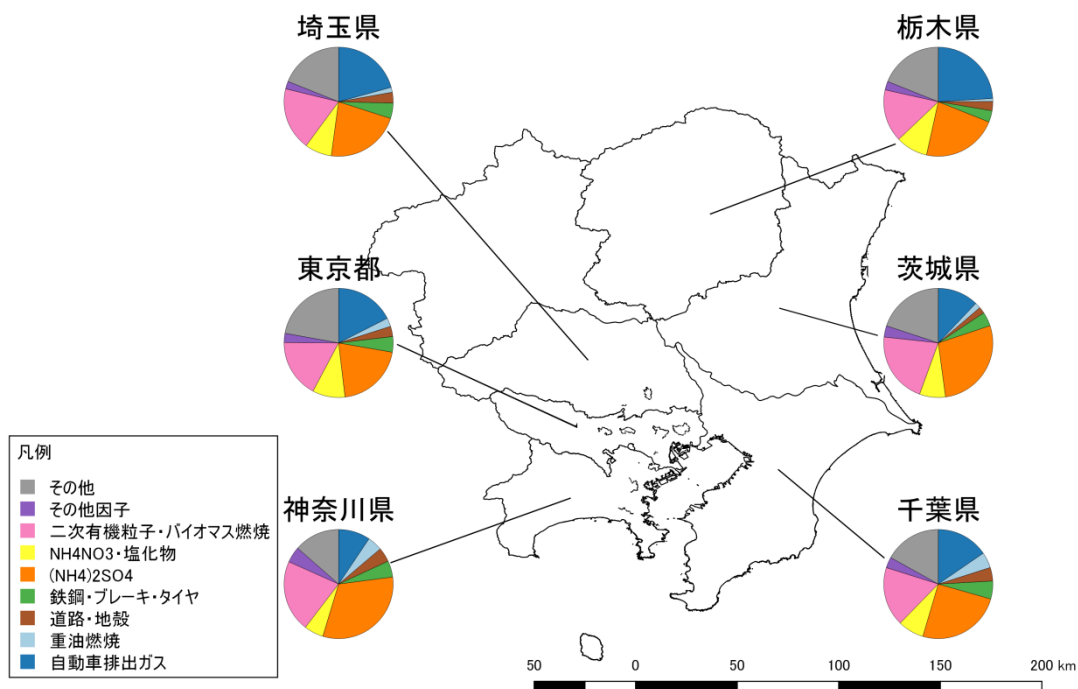
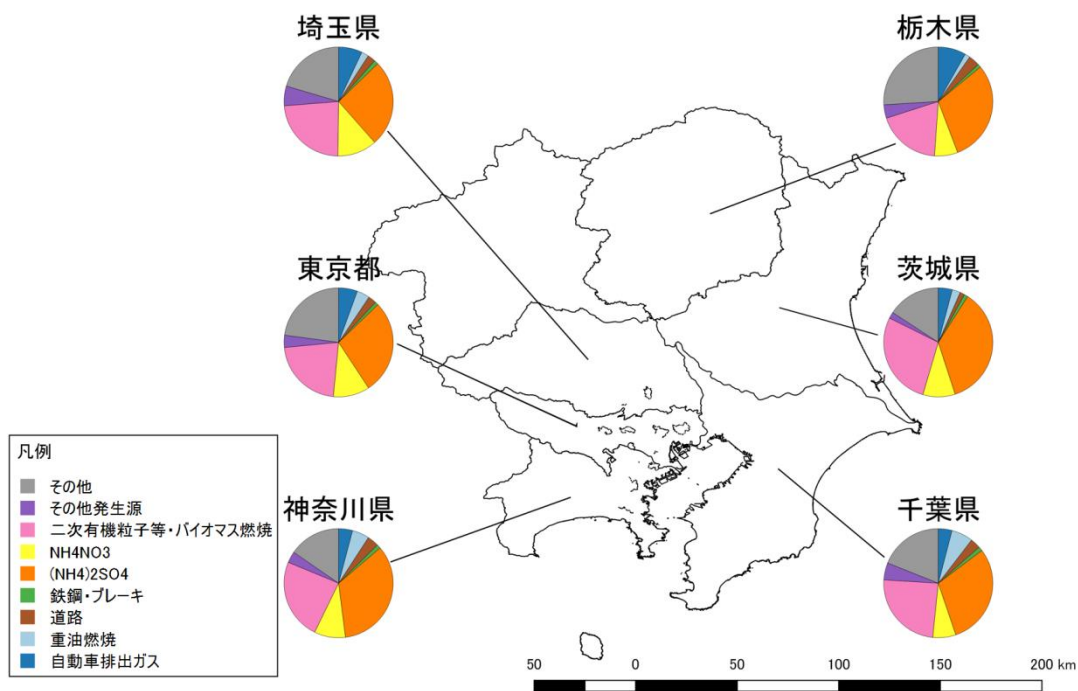


図 4-14 関東地域におけるレセプターモデルを用いた発生源寄与解析結果（2015 年度全季節平均）上図：CMB、下図：PMF

※ 発生源寄与割合は各都県で PM<sub>2.5</sub> 成分分析を実施した一般環境大気測定局における期間平均で算出した。群馬県で発生源寄与割合が確認されないのは、解析の前処理におけるスクリーニングでデータが除外されたためである。

※ CMB 解析や PMF 解析で分類されなかった濃度はその他とした。CMB 解析では、二次有機粒子等とバイオマス燃焼の発生源は個々に区別されたが、PMF 解析では両者の寄与が一つの因子に混在する結果となった。そこで、CMB 解析と PMF 解析の結果の相互比較を目的とした本図では、CMB 解析の結果についても二次有機粒子等とバイオマス燃焼の寄与を合算し、PMF 解析の結果との比較が容易になるように示した。また、寄与割合の小さい発生源（CMB：海塩、廃棄物焼却、NH<sub>4</sub>HSO<sub>4</sub>、PMF：石炭燃焼、海塩）は、その他発生源として示した。

## 2015年度 一般環境 CMB 春季



## 2015年度 一般環境 PMF 春季

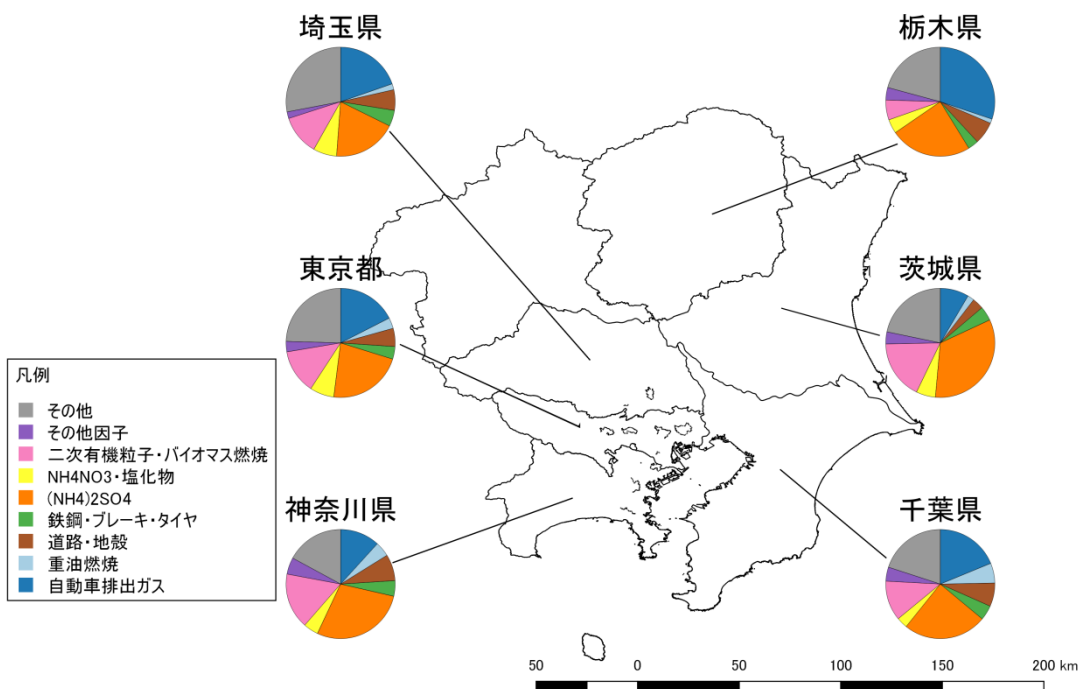
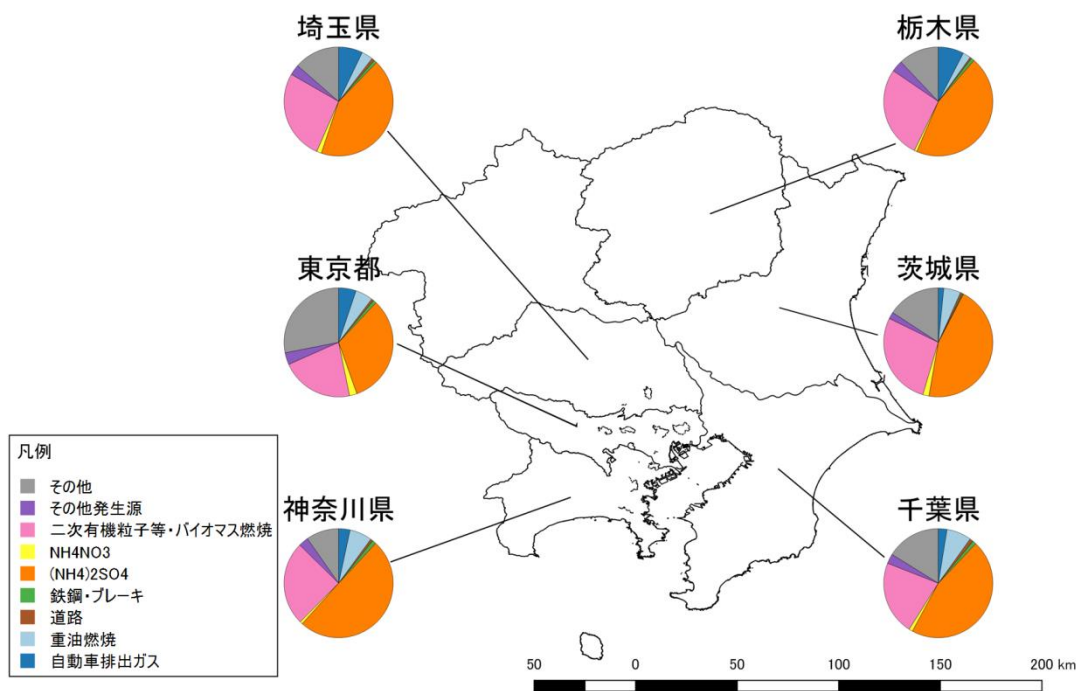


図 4-15 関東地域におけるレセプターモデルを用いた発生源寄与解析結果（2015 年度春季）上図：CMB、下図：PMF

- ※ 発生源寄与割合は各都県で PM<sub>2.5</sub> 成分分析を実施した一般環境大気測定局における期間平均で算出した。群馬県で発生源寄与割合が確認されないのは、解析の前処理におけるスクリーニングでデータが除外されたためである。
- ※ CMB 解析や PMF 解析で分類されなかった濃度はその他とした。CMB 解析では、二次有機粒子等とバイオマス燃焼の発生源は個々に区別されたが、PMF 解析では両者の寄与が一つの因子に混在する結果となった。そこで、CMB 解析と PMF 解析の結果の相互比較を目的とした本図では、CMB 解析の結果についても二次有機粒子等とバイオマス燃焼の寄与を合算し、PMF 解析の結果との比較が容易になるように示した。また、寄与割合の小さい発生源（CMB：海塩、廃棄物焼却、NH<sub>4</sub>HSO<sub>4</sub>、PMF：石炭燃焼、海塩）は、その他発生源として示した。

## 2015年度 一般環境 CMB 夏季



## 2015年度 一般環境 PMF 夏季

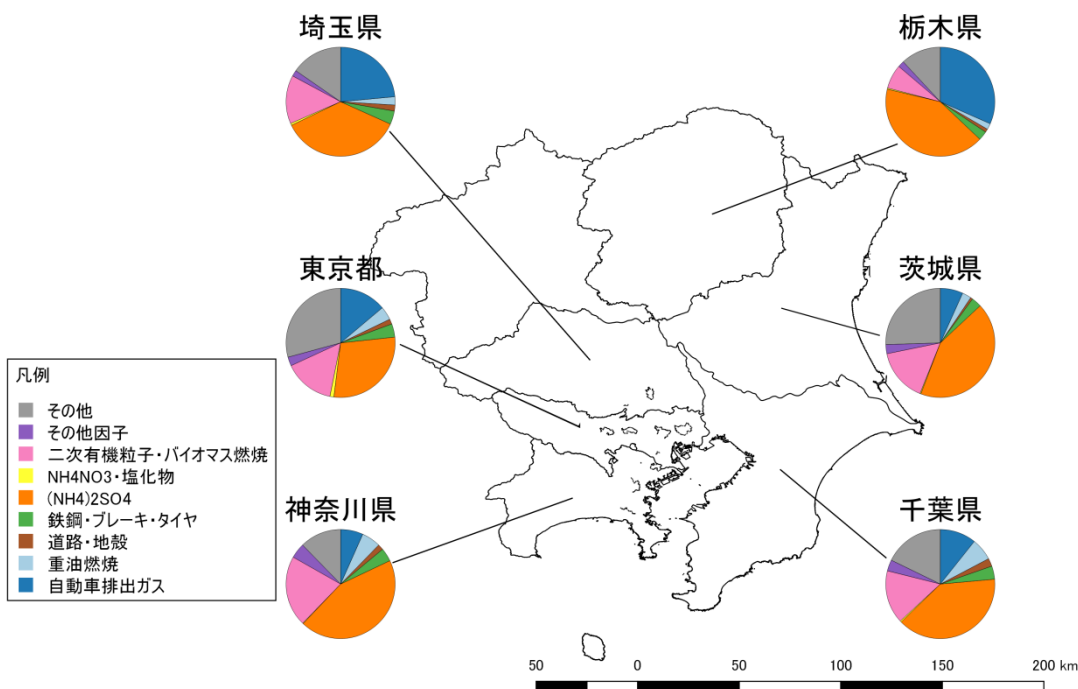
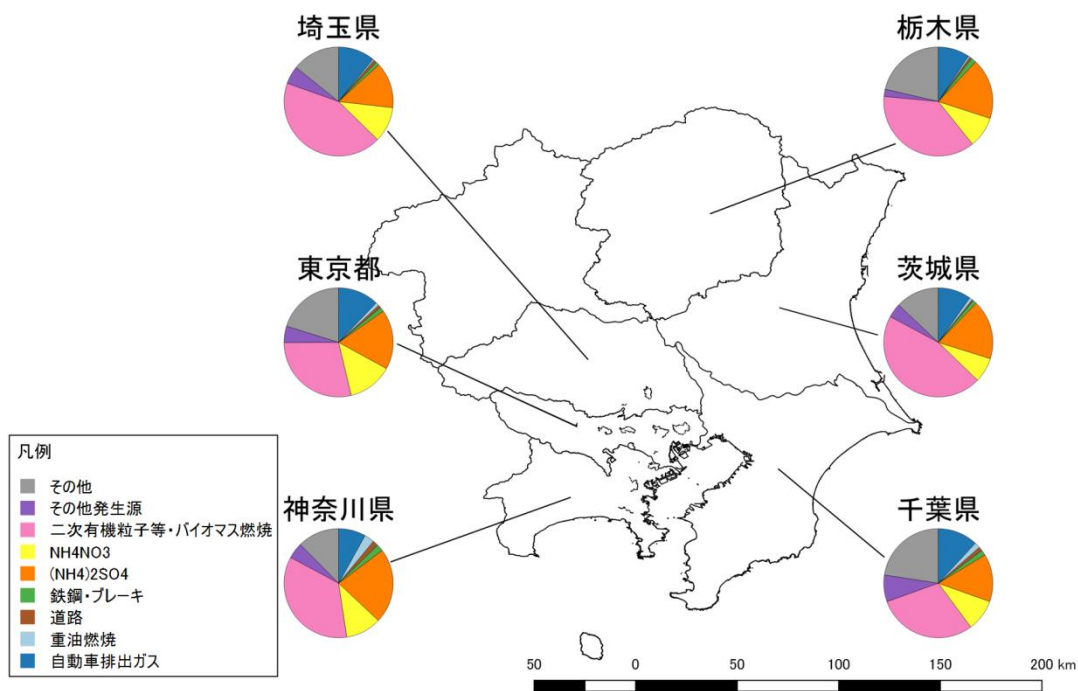


図 4-16 関東地域におけるレセプターモデルを用いた発生源寄与解析結果（2015 年度夏季）上図：CMB、下図：PMF

- ※ 発生源寄与割合は各都県で PM<sub>2.5</sub> 成分分析を実施した一般環境大気測定局における期間平均で算出した。群馬県で発生源寄与割合が確認されないのは、解析の前処理におけるスクリーニングでデータが除外されたためである。
- ※ CMB 解析や PMF 解析で分類されなかった濃度はその他とした。CMB 解析では、二次有機粒子等とバイオマス燃焼の発生源は個々に区別されたが、PMF 解析では両者の寄与が一つの因子に混在する結果となった。そこで、CMB 解析と PMF 解析の結果の相互比較を目的とした本図では、CMB 解析の結果についても二次有機粒子等とバイオマス燃焼の寄与を合算し、PMF 解析の結果との比較が容易になるように示した。また、寄与割合の小さい発生源（CMB：海塩、廃棄物焼却、NH<sub>4</sub>HSO<sub>4</sub>、PMF：石炭燃焼、海塩）は、その他発生源として示した。

## 2015年度 一般環境 CMB 秋季



## 2015年度 一般環境 PMF 秋季

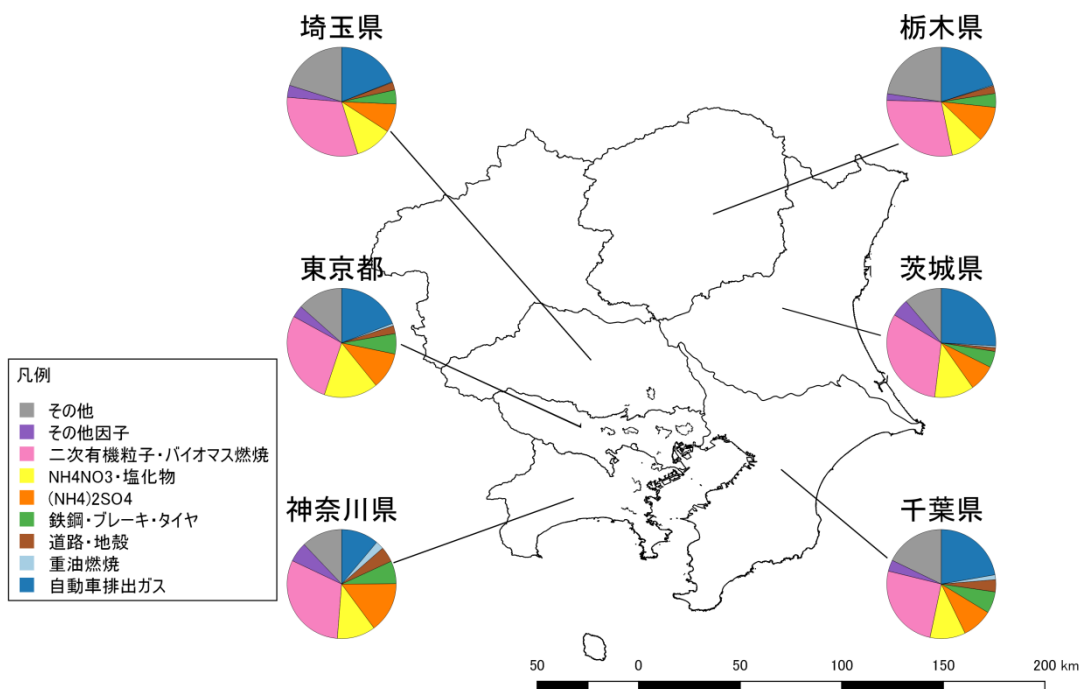


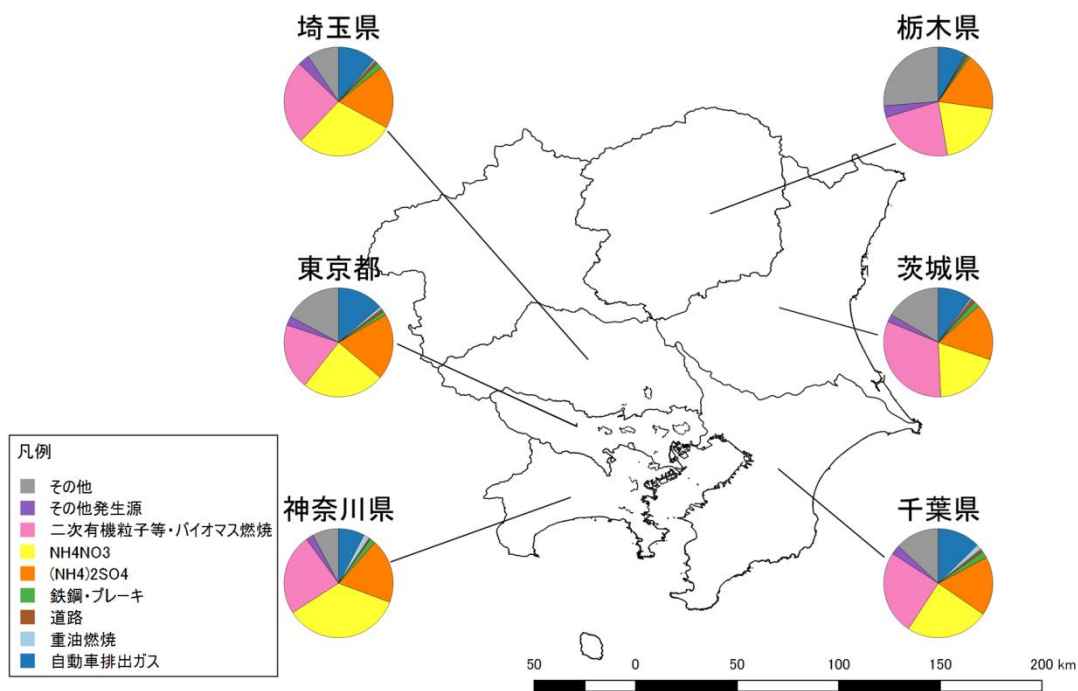
図 4-17 関東地域におけるレセプターモデルを用いた発生源寄与解析結果（2015 年度秋季）上図：CMB、下図：PMF

※ 発生源寄与割合は各都県で PM<sub>2.5</sub> 成分分析を実施した一般環境大気測定局における期間平均で算出した。群馬県で発生源寄与割合が確認されないのは、解析の前処理におけるスクリーニングでデータが除外されたためである。

※ CMB 解析や PMF 解析で分類されなかった濃度はその他とした。CMB 解析では、二次有機粒子等とバイオマス燃焼の発生源は個々に区別されたが、PMF 解析では両者の寄与が一つの因子に混在する結果となった。そこで、CMB 解析と PMF 解析の結果の相互比較を目的とした本図では、CMB 解析の結果についても二次有機粒子等とバイオマス燃焼の寄与を合算し、PMF 解析の結果との比較が容易になるように示した。また、寄与割合の小さい発生源（CMB：海塩、廃棄物焼却、NH<sub>4</sub>HSO<sub>4</sub>、PMF：石炭燃焼、海塩）は、その他発生源として示した。



## 2015年度 一般環境 CMB 冬季



## 2015年度 一般環境 PMF 冬季

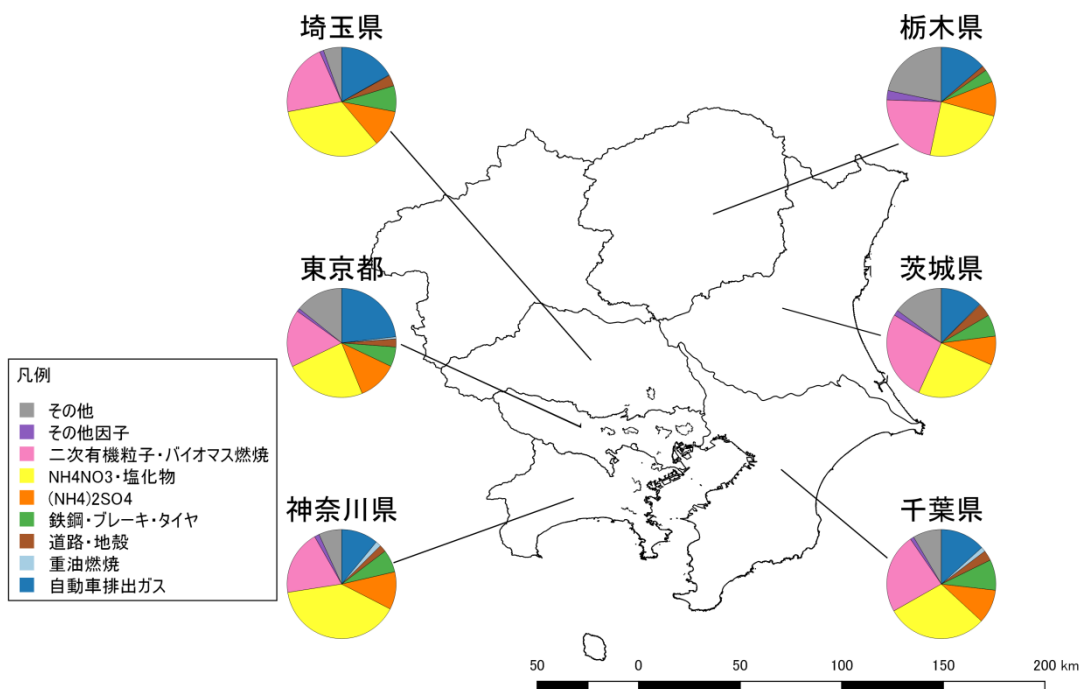


図 4-18 関東地域におけるレセプターモデルを用いた発生源寄与解析結果（2015 年度冬季）上図：CMB、下図：PMF

- ※ 発生源寄与割合は各都県で PM<sub>2.5</sub> 成分分析を実施した一般環境大気測定局における期間平均で算出した。群馬県で発生源寄与割合が確認されないのは、解析の前処理におけるスクリーニングでデータが除外されたためである。
- ※ CMB 解析や PMF 解析で分類されなかった濃度はその他とした。CMB 解析では、二次有機粒子等とバイオマス燃焼の発生源は個々に区別されたが、PMF 解析では両者の寄与が一つの因子に混在する結果となった。そこで、CMB 解析と PMF 解析の結果の相互比較を目的とした本図では、CMB 解析の結果についても二次有機粒子等とバイオマス燃焼の寄与を合算し、PMF 解析の結果との比較が容易になるように示した。また、寄与割合の小さい発生源（CMB：海塩、廃棄物焼却、NH<sub>4</sub>HSO<sub>4</sub>、PMF：石炭燃焼、海塩）は、その他発生源として示した。

## 5 シミュレーションモデルとレセプターモデルの比較について

本章では、シミュレーションモデルとレセプターモデルより得られた結果を比較し、両者の違いを考察する。また、2008年度から2011年度の大気中微小粒子状物質検討会（以下「前回検討会」という。）では、シミュレーションモデルとレセプターモデルを用いたPM<sub>2.5</sub>発生源寄与割合の試算を実施しており、本解析結果についても前回検討会とおおむね同様の考え方でPM<sub>2.5</sub>発生源寄与割合を試算した。

### 5.1 シミュレーションモデルとレセプターモデルの結果の比較

シミュレーションモデルとレセプターモデルの発生源寄与割合推計結果の順位比較について表 5-1 に示す。この比較表では、シミュレーションモデルの発生源寄与割合の順位から関東以外の寄与割合を除いて示している。なお、比較考察に当たって、レセプターモデルは同じ発生源でも関東域内と関東域外の発生源を区別できず、推計された寄与割合の対象発生源は関東域外の影響も含まれていることに留意する必要がある。

表 5-1 シミュレーションモデルとレセプターモデルの発生源寄与割合推計結果

順位	シミュレーションモデル	PMF	CMB
1	アンモニア発生源 (16.4%)	(NH <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> (22.9%)	(NH <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> (26.2%)
2	自動車 (14.8%)	自動車排出ガス (17.2%)	二次有機粒子等 (19.7%)
3	大規模固定煙源 (12.9%)	二次有機粒子・バイオマス燃焼 (15.9%)	NH <sub>4</sub> NO <sub>3</sub> (10.2%)
4	業務・家庭 (2.4%)	NH <sub>4</sub> NO <sub>3</sub> ・塩素 (7.8%)	自動車排出ガス (7.0%)
5	船舶 (2.2%)	鉄鋼・ブレーキ・タイヤ (6.6%)	重油燃焼 (4.3%)

※ ( ) 内の全体の濃度に占める寄与割合 (%) を示す。なお、シミュレーションモデルの結果は関東以外の寄与率 48.3% を除いた順位となっている。

※ 発生源寄与割合は、東京都内 2 地点（足立区綾瀬及び多摩市愛宕）の平均値。

シミュレーションモデルを用いた発生源寄与割合では、上位にアンモニア発生源 (16.4%) や自動車 (14.8%)、大規模固定煙源 (12.9%) が確認された。一方、レセプターモデルでは、上位に(NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> (硫酸アンモニウム) (PMF : 22.9%、CMB : 26.2%)、自動車 (PMF : 17.2%、CMB : 7.0%)、NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub> (硝酸アンモニウム) (PMF : 7.8%、CMB : 10.2%) が確認された。各発生源から排出される NO<sub>x</sub> (大規模固定煙源、自動車)、SO<sub>x</sub> (大規模固定煙源)、NH<sub>3</sub> (アンモニア発生源) は、それらが大気中で化学反応して(NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>、NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub> が生成されると考えられ、PMF や CMB では二次生成粒子として発生源寄与割合が推定されたと推察される。ただし、PMF や CMB のレセプターモデルは関東以外の発生源も全て含んだ寄与割合となっているため、二次生成物質が占める割合はシミュレーションモデルのアンモニア発生源と大規模固定煙源よりも大きくなったと考えられる。

また、自動車は、シミュレーションモデル、レセプターモデルともに上位の発生源として推定された (シミュレーションモデル : 14.8%、PMF : 17.2%、CMB : 7.0%)。シミュレーションモデルの自動車は、関東域における「自動車排出ガス、タイヤ摩耗、ブレーキ粉

じん」を含んだ推計結果である一方、レセプターモデルでは、「自動車排出ガス」と「タイヤ摩耗・ブレーキ粉じん」が区分して推計され<sup>31</sup>、また関東以外の発生源を区分できない。これらを踏まえ、レセプターモデルでは「自動車排出ガス」と「タイヤ摩耗・ブレーキ粉じん」に係る発生源を考慮すると、発生源割合の上位に該当しており(特にPMFでは23.8%)、自動車においてもシミュレーションモデルとレセプターモデルではおおむね同様の傾向を示していると考えられる。なお、CMBでは自動車排出ガスの寄与割合がシミュレーションモデルやPMFと比べて小さい結果となったが、CMBで用いた発生源プロファイルは過去の文献値等から作成されたものであり、必ずしも現状の排出源を反映しているわけではないことに留意する必要がある。

このようにレセプターモデルでは、「対象の発生源と二次生成粒子が区分される」、「対象の発生源に関東以外からの発生源寄与割合も含まれる」等、シミュレーションモデルとの違いがあり、シミュレーションモデルとレセプターモデルの比較考察は難しいものの、両者で推定された主要な発生源はおおむね解釈可能な程度に一致していると考えられる。

---

<sup>31</sup> PMFでは「鉄鋼・ブレーキ・タイヤ」、CMBでは「土壌・道路粉じん」と「ブレーキ粉じん」の合計となり、シミュレーションモデルの自動車に含まれる「タイヤ摩耗・ブレーキ粉じん」と厳密には区分が異なる発生源であることに留意する必要がある。

## 5.2 シミュレーションモデルとレセプターモデルを用いた発生源寄与割合の試算（参考）

前回検討会では、シミュレーションモデルとレセプターモデルを用いた PM<sub>2.5</sub> 発生源寄与割合の試算を行った。そこで、本調査においても、2008 年度と 2015 年度について、前回検討会とおおむね同様の考え方で PM<sub>2.5</sub> 発生源寄与割合を試算した。

### 5.2.1 シミュレーションモデルによる計算結果の補正

前回検討会では、本検討会と同様に、シミュレーションモデルによる PM<sub>2.5</sub> 濃度の基準計算値と観測結果の比率に基づき、成分ごとの補正係数（CF）を用いた補正手法を採用している。本検討会では、日ごと、成分ごと、地点ごとに観測結果に基づき補正を実施したが、前回検討会では、季節ごと、成分ごとに測定地点平均の計算値と観測結果を基に補正を実施した。ここでは、前回検討会と同様の考え方で PM<sub>2.5</sub> 発生源寄与割合を推計するため、季節ごと、成分ごと、測定地点平均で計算結果を補正することとした。

#### （1）観測値及びシミュレーションモデルの計算値における補正の準備

PM<sub>2.5</sub> の観測値とシミュレーションモデルによる計算値による補正係数の概要を表 5-2 に示す。

観測値として、PM<sub>2.5</sub> 総質量濃度を、PM<sub>2.5</sub> 成分分析が実施されている「主要成分（元素状炭素（EC）、有機粒子（Organic Aerosol : OA）、硝酸イオン（NO<sub>3</sub><sup>-</sup>）、硫酸イオン（SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>）、アンモニウムイオン（NH<sub>4</sub><sup>+</sup>）」と、PM<sub>2.5</sub> の主要成分に含まれないその他の粒子「FINE」に分類した。観測値の OA 濃度は、有機炭素（OC）に 1.7 を乗じて算出した<sup>32</sup>。

FINE には、無機元素成分のほか、シミュレーションモデルで計算されない水分及び測定器の分級性能上捕集されてしまう粗大粒子（海塩・土壌等）が含まれると想定した。FINE のうち、シミュレーションに対応すると考えられる成分を「Other」とし、それ以外を「海塩・土壌」と「水分」に分配した。

海塩・土壌は、レセプターモデルである CMB 解析の「海塩」と「土壌・道路粉じん」の合計値を用いた。水分は、PM<sub>2.5</sub> を秤量した湿度 35% 条件下において、無機粒子成分（NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>）と平衡にある水分量とし、E-AIM モデルの Model II による算出結果を用いた（湿度 35% 条件下での無機粒子成分（NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>）と平衡にある水分量）<sup>33</sup>。上述した手法により、FINE について、シミュレーションに対応する成分（Other）とそれ以外（海塩・土壌、水分）に分配した。

シミュレーションモデルによる計算値として、PM<sub>2.5</sub> 総質量濃度を、「主要成分（EC、OA、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>）」と、PM<sub>2.5</sub> 総質量濃度の計算値からこれらの合計を差し引いた濃度「FINE」に分類した。シミュレーションモデルによる計算値の OA 濃度は、モデルから出力された POC と SOA の合計とした。シミュレーションモデルでは計算可能な成分が限られることから、FINE は観測値の Other に対応すると想定した。

<sup>32</sup> ここで示す観測値の「OA」は、OC 濃度に 1.7 を乗じた値（有機物：OM）を用いており、シミュレーションモデルから出力される有機粒子と必ずしも同一ではないことに留意する必要がある。

<sup>33</sup> 2008 年度の PM<sub>2.5</sub> 質量濃度は、相対湿度 50%±5% の条件で秤量した濃度を PM<sub>2.5</sub> の環境基準の公定法である 35%±5% の条件に補正した上で平衡水分量を算出した。湿度補正に当たっては、前回検討会における両湿度の測定値から湿度補正分の水分の PM<sub>2.5</sub> に対する比率を 5% とした。

## (2) 補正係数及び補正濃度の算出

主要成分の5成分（EC、OA、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>）については、シミュレーションによる計算値と観測値との比率に基づき、成分ごとに補正係数（CF）を算出した。FINEのOtherについては、シミュレーションモデルのOtherの計算値と観測値のOther（海塩・土壌と水分を除いた成分）との比率からCFを算出した。

各成分とOtherの計算値にCFを乗じた濃度の合計に海塩・土壌、水分を加算した濃度を「補正後のPM<sub>2.5</sub>濃度」とした（結果的に観測値のPM<sub>2.5</sub>濃度（湿度35%秤量条件）と一致することになる）。

上記手法に基づき季節別、成分別に補正した結果を表5-3に示す。

表5-2 PM<sub>2.5</sub>観測値とシミュレーション計算値を基にした補正係数の概要

	2015年度				2008年度			
	全季節平均				全季節平均			
	μg/m <sup>3</sup> 湿度35%秤量 観測値	μg/m <sup>3</sup> 計算値	補正係数CF 観測値/計算値	μg/m <sup>3</sup> 補正後 計算値	μg/m <sup>3</sup> 湿度50%秤量 観測値	μg/m <sup>3</sup> 計算値	補正係数CF 観測値/計算値	μg/m <sup>3</sup> 補正後 計算値
PM <sub>2.5</sub>	15.94	12.36		15.94	20.08	13.40		20.08
EC	1.17	0.47	2.48	1.17	1.47	0.85	1.74	1.47
OA	4.10	1.67	2.45	4.10	5.11	1.53	3.35	5.11
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	1.30	2.07	0.63	1.30	2.09	3.20	0.65	2.09
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	3.91	4.35	0.90	3.91	4.51	3.96	1.14	4.51
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	1.65	1.97	0.84	1.65	2.13	2.16	0.99	2.13
主要成分（成分計）	12.13	10.53		12.13	15.32	11.70		15.32
FINE	3.81				4.76			
		1.84				1.70		
Other	2.34	1.84	1.41	2.34	1.49	1.70	0.91	1.49
海塩・土壌	0.20			0.20	0.76			0.76
平衡水分	1.27			1.27	1.51			1.51
水分(湿度補正)	0			0	1.00			1.00
FINE+				3.81				4.76
PM <sub>2.5</sub> （35%秤量）	15.94			15.94	19.07			19.07

※ 主要成分（成分計） = EC + OA + NO<sub>3</sub><sup>-</sup> + SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> + NH<sub>4</sub><sup>+</sup>とした。

※ FINEは、PM<sub>2.5</sub>の主要成分以外のその他の粒子を示し、観測値のFINEは無機元素成分やその他の成分のほか、海塩・土壌や水分を含むものとした。シミュレーションモデルによる計算値FINEは、PM<sub>2.5</sub>総質量濃度から主要成分を差し引いた濃度である。

※ 観測値のFINEについて、海塩・土壌は、CMB解析による「海塩」と「土壌・道路粉じん」の合計とした。平衡水分は、E-AIMモデルのModel IIにより算出した。観測値のOtherは、FINEから海塩・土壌と水分を差し引いた濃度である。なお、2008年度におけるPM<sub>2.5</sub>質量濃度は、相対湿度50%±5%の条件で秤量した濃度をPM<sub>2.5</sub>の環境基準の公定法である35%±5%の条件に換算した値。換算に当たっては、前回検討会における実験値5%をPM<sub>2.5</sub>総質量濃度に乗じて算出した。2015年度は相対湿度35%±5%の時条件で秤量したため、水分（湿度補正）は0となる。

※ 主要成分（EC + OA + NO<sub>3</sub><sup>-</sup> + SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> + NH<sub>4</sub><sup>+</sup>）とOtherについて、観測値と計算値の比率を補正係数CFとした。

※ 計算値に補正係数を乗じて補正した後、補正後の濃度とFINE+（海塩・土壌、平衡水分、水分（湿度補正）の合計）を「補正後のPM<sub>2.5</sub>計算値」とした。

表 5-3 季節別・成分別の補正係数の算出結果（2015年度、2008年度）

成分	2015年度				2008年度			
	春季	夏季	秋季	冬季	春季	夏季	秋季	冬季
EC	2.48	2.46	3.26	2.48	1.74	1.89	2.23	1.94
OA	2.45	1.88	1.90	4.95	3.35	3.92	3.30	4.47
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	0.63	0.97	0.15	0.54	0.65	0.55	0.13	0.86
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	0.90	0.96	0.83	0.90	1.14	1.08	0.89	1.23
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	0.84	0.93	0.71	0.80	0.99	0.96	0.75	1.06
Other	1.41	0.78	3.19	1.12	0.91	0.58	0.32	2.30

## 5.2.2 発生源寄与割合推計結果の補正

シミュレーションモデルを用いた PM<sub>2.5</sub> 発生源寄与割合の推計結果に対して、成分ごとに補正係数を乗じ、更に海塩・土壌と水分を加えることで、発生源寄与割合推計結果の補正を行った。

### (1) 有機粒子以外の成分補正

有機粒子以外の成分（EC、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、Other）については、対象の発生源ごとの感度解析（ゼロアウト法）により算出した寄与濃度に対して、表 5-3 に示す成分ごとの補正係数を乗じた。

5.2.1 で述べたように海塩・土壌と平衡水分は、補正を実施せず、PM<sub>2.5</sub> の発生源についても感度解析（ゼロアウト法）を実施した各発生源とは別に区分した。

### (2) 有機粒子の補正

前回検討会では、有機粒子（OA）について、シミュレーションモデルによる計算値は過小評価の結果となり、発生源寄与割合の推計では VOC 発生施設の寄与が十分に確認されなかったことから、(1) の補正手法と別に取り扱うこととした。

OA を一次有機粒子（POA）と二次有機粒子（SOA）に分配し、「SOA」の算出には CMB 解析の「二次有機粒子等」の濃度を用いた<sup>34</sup>。CMB 解析の二次有機粒子等を季節別に算出し、補正後の PM<sub>2.5</sub> の OA 濃度と CMB 解析の二次有機粒子等の差を「POA」として算出した<sup>35</sup>。CMB 解析から求めた二次有機粒子等は、各発生源に寄与を分配できず、また関東以外の寄与も含まれることから、感度解析（ゼロアウト法）を実施した発生源へ配分しないこととした。POA は、一般的に長距離輸送の寄与が小さいと考え、関東以外から都内へ輸送される寄与を考慮せず、すべて関東域内の各発生源に配分するものとした。POA の各発生源の配分に当たっては、関東域における PM<sub>2.5</sub> の発生源別排出量を指標として分配した（表 5-6）。

<sup>34</sup> CMB 解析では、シミュレーションモデルのように二次有機粒子（Secondary Organic Aerosol : SOA）を直接算出することができず、本検討会では便宜上、観測値の OC 濃度に各発生源の寄与として割り当てられた OC 濃度を差し引いて 1.7 を乗じることで二次有機粒子を算出している。CMB 解析で算出した二次有機粒子は、二次生成由来の有機粒子のほか、未把握の一次有機粒子も含まれることから、二次有機粒子の寄与を過大評価している可能性があり、ここでは、「二次有機粒子等」と表記した。

<sup>35</sup> 本方法による POA の算出では、CMB 解析から算出した二次有機粒子等以外の OA を POA としている。CMB 解析に使用した発生源プロファイルは、主に煙道中の粒子を対象とした既往の調査結果から整理されたものであり、凝縮性粒子は一次粒子として考慮されていないと考えられる。よって、CMB 解析から算出した二次有機粒子等を用いた SOA は過大に分配されている可能性があり、本方法によって算出した POA は過小評価されている可能性があることに留意する必要がある。

関東以外の寄与について、本調査では、関東域の各発生源からの排出量を全てゼロとした場合の感度解析を実施していることから、感度解析の計算結果を寄与濃度とした。

### (3) 発生源寄与割合の補正結果

(1) 及び (2) の補正手法を基に推計した発生源別の寄与濃度の推計結果を表 5-4、表 5-5 に示す。ここでは 2015 年度の結果を示した。非線形性による効果は関東以外の寄与に含めて発生源寄与割合を算出した。

表 5-4 感度解析（ゼロアウト法）により算出した発生源寄与濃度（補正後）（2015 年度）

	基準計算値	東京									
		自動車	船舶	大規模固定煙源	業務・家庭	建設機械	その他人為起源	VOC発生施設	アンモニア発生源	自然起源	
PM <sub>2.5</sub>	15.94										
EC	1.17	0.06	0.04	0.00	0.00	0.02	0.03	0.00	0.00	0.02	
OA	4.10	0.08	0.05	0.02	0.02	0.00	0.07	0.02	-0.02	0.01	
POA	0.81										
SOA	3.29										
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	1.30	0.03	0.00	0.01	0.01	0.01	0.02	0.01	0.16	0.01	
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	3.91	-0.01	0.02	0.01	0.01	-0.03	-0.02	0.00	0.00	0.00	
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	1.65	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.11	0.00	
主要成分（成分計）	12.13	0.17	0.11	0.04	0.04	0.00	0.11	0.03	0.25	0.04	
Other	2.34	0.09	0.01	0.04	0.04	-0.04	0.02	0.00	-0.02	0.00	
海塩・土壌	0.20										
平衡水分	1.27										
FINE+	3.81										
		関東6県									関東以外
	基準計算値	自動車	船舶	大規模固定煙源	業務・家庭	建機機械	その他人為起源	VOC発生施設	アンモニア発生源	自然起源	
PM <sub>2.5</sub>	15.94										
EC	1.17	0.21	0.02	0.09	0.05	0.19	0.02	0.00	0.02	0.00	0.37
OA	4.10	0.22	0.03	0.33	0.25	0.26	0.23	0.05	-0.04	0.22	2.22
POA	0.81										
SOA	3.29										
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	1.30	0.46	0.05	0.11	0.01	0.01	0.01	0.02	0.40	-0.03	0.06
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	3.91	0.01	0.04	0.64	0.04	-0.03	0.00	-0.01	0.21	-0.06	2.96
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	1.65	0.19	0.04	0.17	0.02	0.00	0.00	0.01	0.36	-0.03	0.67
主要成分（成分計）	12.13	1.08	0.18	1.34	0.37	0.44	0.26	0.07	0.95	0.10	6.28
Other	2.34	0.38	0.01	0.46	0.10	0.03	0.03	0.00	0.07	-0.04	0.00
海塩・土壌	0.20										
平衡水分	1.27										
FINE+	3.81										

※ 2015 年度の結果を示す。

※ 関東以外については、関東域の排出をゼロとした場合の PM<sub>2.5</sub> 濃度を計算しているため、感度解析結果の値をそのまま用いた。

※ EC、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、Other は、計算した寄与濃度に補正係数を乗じて補正した。海塩・土壌は、CMB 解析による「海塩」と「土壌・道路粉じん」の合計とした。平衡水分は、E-AIM モデルの Model II により算出した。Other は、PM<sub>2.5</sub> 濃度から主要成分（成分計）、海塩・土壌、平衡水分の合計を差し引いた濃度である。

※ SOA は CMB 解析から求めた「二次有機粒子等」の結果を用い、各発生源への分配は実施していない。POA は、OA から SOA を差し引いた濃度とした。

表 5-5 ゼロアウト法計算結果(補正後)に基づく発生源別寄与割合濃度推計(2015年度)

	東京								関東以外	不明分			計
	自動車	船舶	大規模固定煙源	業務・家庭	建設機械	その他人為起源	アンモニア発生源	自然発生源		SOA	海塩・土壌	平衡水分	
PM <sub>2.5</sub>	0.21	0.09	0.08	0.09	-0.02	0.06	0.25	0.03					
EC	0.06	0.04	0.00	0.00	0.02	0.03	0.00	0.02					
POA	0.03	0.01	0.01	0.03	0.01	0.01							
SOA													
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	0.03	0.00	0.01	0.01	0.01	0.02	0.16	0.01					
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	-0.01	0.02	0.01	0.01	-0.03	-0.02	0.00	0.00					
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.11	0.00					
Other	0.09	0.01	0.04	0.04	-0.04	0.02	-0.02	0.00					
海塩・土壌													
平衡水分													

	関東6県								関東以外	不明分			計
	自動車	船舶	大規模固定煙源	業務・家庭	建設機械	その他人為起源	アンモニア発生源	自然発生源		SOA	海塩・土壌	平衡水分	
PM <sub>2.5</sub>	1.36	0.29	1.76	0.29	0.25	0.14	1.06	-0.16	5.39	3.29	0.20	1.27	15.94
EC	0.21	0.02	0.09	0.05	0.19	0.02	0.02	0.00	0.37				1.17
POA	0.12	0.13	0.28	0.07	0.04	0.08							0.81
SOA										3.29			3.29
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	0.46	0.05	0.11	0.01	0.01	0.01	0.40	-0.03	0.03				1.30
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	0.01	0.04	0.64	0.04	-0.03	0.00	0.21	-0.06	3.07				3.91
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	0.19	0.04	0.17	0.02	0.00	0.00	0.36	-0.03	0.77				1.65
Other	0.38	0.01	0.46	0.10	0.03	0.03	0.07	-0.04	1.15				2.34
海塩・土壌											0.20		0.20
平衡水分												1.27	1.27

※ 2015年度の結果を示す。

※ SOAはCMB解析の「二次有機粒子等」の結果を用い、各発生源への分配は実施していない。POAは、OAからSOAを差し引いた濃度とし、各発生源への分配はPM<sub>2.5</sub>排出量を指標とした(表5-6)。

※ 海塩・土壌は、CMB解析による「海塩」と「土壌・道路粉じん」の合計とした。平衡水分は、E-AIMモデルのModel IIにより算出した。

表 5-6 関東域におけるPM<sub>2.5</sub>発生源別排出量(2015年度・2008年度)

	2015年度				2008年度			
	排出量 (t/年)		排出量割合		排出量 (t/年)		排出量割合	
	東京都	関東6県	東京都	関東6県	東京都	関東6県	東京都	関東6県
自動車	602	2,685	3.3%	14.5%	848	3,781	3.1%	14.0%
船舶	283	2,994	1.5%	16.2%	722	2,994	2.7%	11.1%
大規模固定煙源	309	6,387	1.7%	34.6%	189	6,338	0.7%	23.5%
業務・家庭	588	1,485	3.2%	8.0%	628	1,587	2.3%	5.9%
建設機械	188	933	1.0%	5.1%	392	1,475	1.5%	5.5%
その他人為起源	183	1,833	1.0%	9.9%	449	1,837	1.7%	6.8%
計	2,153	16,317	11.7%	88.3%	3,230	23,729	12.0%	88.0%

※ 関東域のシミュレーション対象領域における排出量を集計した。

※ ここで算出した排出量は、8月の平日のインベントリから年間排出量に換算した値であり、必ずしも年間排出量と合致するものではないことに留意する必要がある。

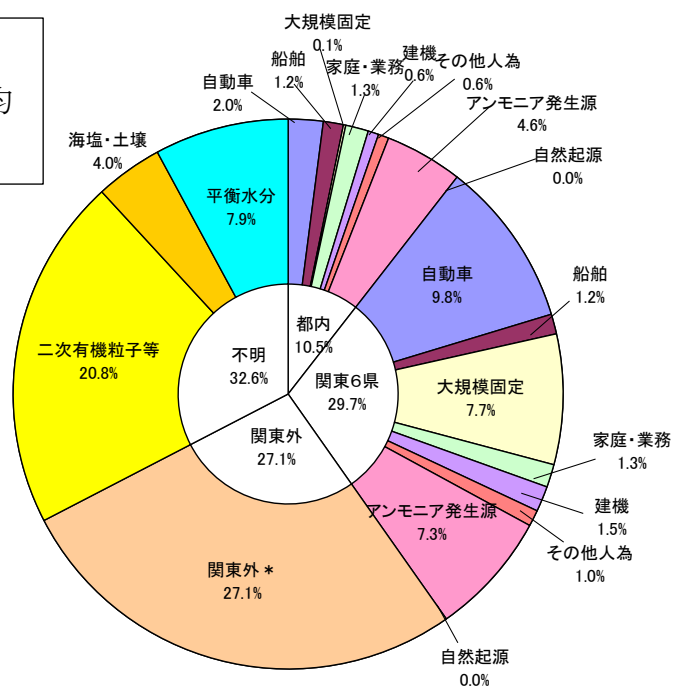


### 5.2.3 PM<sub>2.5</sub>発生源寄与割合の推計結果

5.2.1 及び5.2.2を基に、2008年度と2015年度のPM<sub>2.5</sub>発生源寄与割合を試算した(図 5-1)。2008年度のPM<sub>2.5</sub>質量濃度は、19.1 µg/m<sup>3</sup>であった一方、2015年度のPM<sub>2.5</sub>質量濃度は15.9 µg/m<sup>3</sup>と2008年度に比べて低かった。発生源寄与割合では、都内全体の発生源は、2008年度では10.5%であった一方、2015年度では5.1%であった。関東6県の発生源は2008年度では29.7%であった一方、2015年度では32.0%であった。2015年度における関東全体の人為起源の発生源寄与濃度は、2008年度と比較して低かった(2015年度:5.9 µg/m<sup>3</sup>、2008年度:7.7 µg/m<sup>3</sup>)。関東外の発生源は、2008年度で27.1%であった一方、2015年度では33.5%と2008年度に比べて寄与が大きい結果となった。不明分(二次有機粒子等、海塩・土壌、平衡水分)の割合には大きな変化はなかった。

本試算結果は、2008年度では一般環境大気測定局9局、2015年度では一般環境大気測定局2局におけるPM<sub>2.5</sub>成分分析結果であり、各季節14日間の平均値を年平均の発生源寄与割合として推計している。また、各年度の気象条件も異なることから濃度変化の要因を一概に比較できないことに留意する必要がある。

2008 年度  
一般局 9 局平均  
19.1  $\mu\text{g}/\text{m}^3$



2015 年度  
一般局 2 局平均  
15.9  $\mu\text{g}/\text{m}^3$

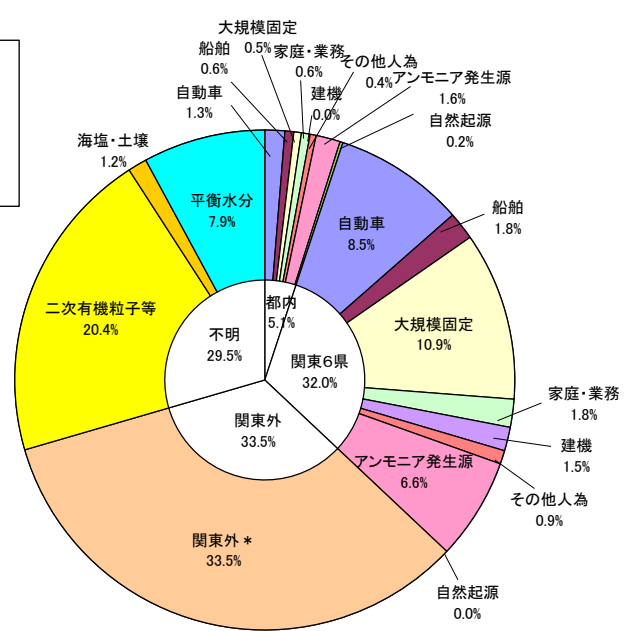


図 5-1 シミュレーションモデルとレセプターモデルから試算した PM<sub>2.5</sub> 発生源寄与割合  
上図：2008 年度、下図：2015 年度

- ※ 2008 年度の発生源寄与割合は、PM<sub>2.5</sub> 成分分析を実施した一般環境大気測定局（一般局）9 局の結果から算出し、2015 年度発生源寄与割合は PM<sub>2.5</sub> 成分分析を実施した一般局 2 局の結果から算出した。
- ※ 関東外には、シミュレーションモデルの誤差が含まれる。
- ※ マイナスの寄与割合の発生源は、0 として集計した。
- ※ PM<sub>2.5</sub> 質量濃度に応じて円グラフの大きさを調整している。