

〔報告〕

## PMF法によるPM<sub>2.5</sub>発生源寄与割合の推定

三好 猛雄 秋山 薫 上野 広行 横田 久司

石井 康一郎 伊藤 雄一\* 樋口 幸弘\*

(\*東京都環境局環境改善部)

### 1 はじめに

大気中の微小粒子状物質 (PM<sub>2.5</sub>) が人の健康に及ぼす影響が懸念されている。このため、環境省より2009年9月にPM<sub>2.5</sub>の環境基準 (1年平均値が15 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下であり、かつ1日平均値が35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下であること) が告示された。東京都では2001年度から都内4地点 (一般局が足立区綾瀬と町田市中町の2局、自排局が日光街道梅島と甲州街道国立の2局) において、PM<sub>2.5</sub>の大気中濃度の測定を行っている<sup>1)</sup>。これによると、年平均濃度は徐々に減少しているものの、2008年度において、3地点で環境基準を超過している状況にある。そこで、大気中のPM<sub>2.5</sub>の実態を把握するため、2008年度に都内17地点において大気環境調査を実施した<sup>2)</sup>。さらに、PM<sub>2.5</sub>の削減対策を行うため、得られたデータを用いて、レセプターモデルの一種であるPMF (Positive Matrix Factorization) 法により発生源寄与割合を推定したので、その結果について報告する。

### 2 PMF法について

PMF法は因子分析の一つであり、多成分の変動要素か

らいくつかのパターン (因子) を抽出する統計モデルである<sup>3),4)</sup>。抽出された因子のプロファイルに着目することで、その因子の由来を推定することができる。また、測定値に対する各因子の寄与も求められる。CMB (Chemical Mass Balance) 法との違いは、発生源に関する情報を必要としない点である。

### 3 PMF法による計算

東京都が2008年度に行った大気環境調査<sup>2)</sup>の結果を用いて計算を行った。この調査は都内17地点において、各季節2週間ずつ行われた。炭素成分、イオン成分、放射化分析の短寿命金属成分については1日ごとのデータが得られているが、中長寿命の金属成分は1週間の平均値しか得られていない。PMF法による計算を、すべての成分を対象として行うため、炭素成分、イオン成分、短寿命金属成分のデータは1週間分を平均して用いた。ただし、検出下限値未満となったデータが2割以上であった成分は計算に使用しなかった。ナトリウム、カリウム等、イオン成分及び金属成分として測定されている成

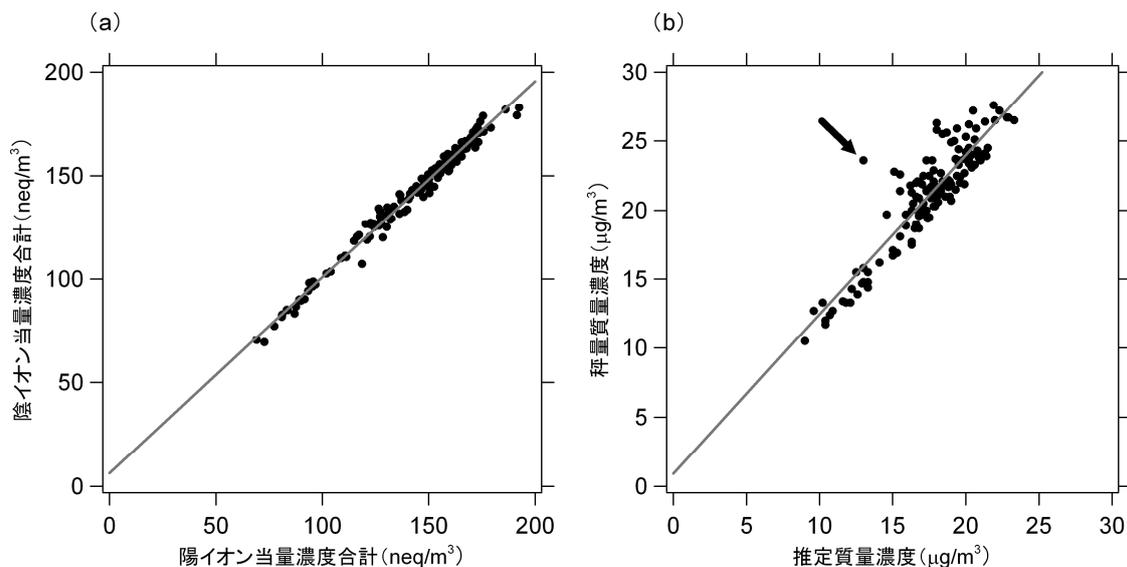


図1 大気環境データのチェック(a: イオンバランス、b: マスクロージャーモデルによるチェック)

分については、すべてイオン成分を使用した。

次に、データのチェックを行った。イオンバランスによるチェックでは陽イオンと陰イオンのバランスを調べたが、特に問題となるようなデータはなかった(図1a)。さらに、マスクロージャーモデルによるチェックを行った。マスクロージャーモデルとは、次式によりいくつかの成分の濃度を用いて、質量濃度(Cm)の推定を行い、フィルタ法による秤量質量濃度の妥当性を評価するというものである<sup>5)</sup>。

$$Cm = 1.375[SO_4^{2-}] + 1.29[NO_3^-] + 2.5[Na^+] + 1.4[OC] + [EC] + 9.19[Al] + 1.40[Ca] + 1.38[Fe] + 1.67[Ti]$$

Cmと秤量質量濃度の相関を調べたところ、甲州街道国立の秋季後半のデータが回帰直線から大きく外れていたため、計算の対象から除いた(図1b、矢印で示したデータ。測定局の近くで集合住宅の工事があった)。

PMF法による計算を行うにあたり、因子数を決定する必要があるが、繰り返し計算を行った際の結果の安定性等を考慮して5とした。また、入力するデータとして、測定値以外に誤差が必要である。測定値をCi、各成分の測定値の幾何平均をM、幾何標準偏差をσとし、Cr=Ci/Mを求め、

$$Cr \geq \sigma^2 \text{ のとき、誤差 } 5\%、$$

$$\begin{aligned} \sigma^2 > Cr \geq \sigma & \text{ のとき、誤差 } 10\%、 \\ \sigma > Cr \geq \sigma^{-1} & \text{ のとき、誤差 } 15\%、 \\ \sigma^{-1} > Cr \geq \sigma^{-2} & \text{ のとき、誤差 } 20\%、 \\ Cr < \sigma^{-2} & \text{ のとき、誤差 } 25\% \end{aligned}$$

とした。

計算にはEPA PMF 3.0を使用した<sup>6)</sup>。

#### 4 計算結果

図2にPMF法による計算結果を示す。aが各因子における成分を質量濃度で表示したもので、bが成分を相対比で表示したものである。また、表1に各因子の測定値への寄与について、一般環境と道路沿道の比較、季節変動、及び各因子におけるイオンバランスを示した。

図2と表1の結果に基づき、因子の由来の推定を行った。

##### ・因子 I

塩素(76.2%)の比が高い。また、カリウム(22.6%)の比も比較的高くなっている。野焼きが多く行われる秋季に寄与が大きいため、バイオマス燃焼に由来すると推定される。

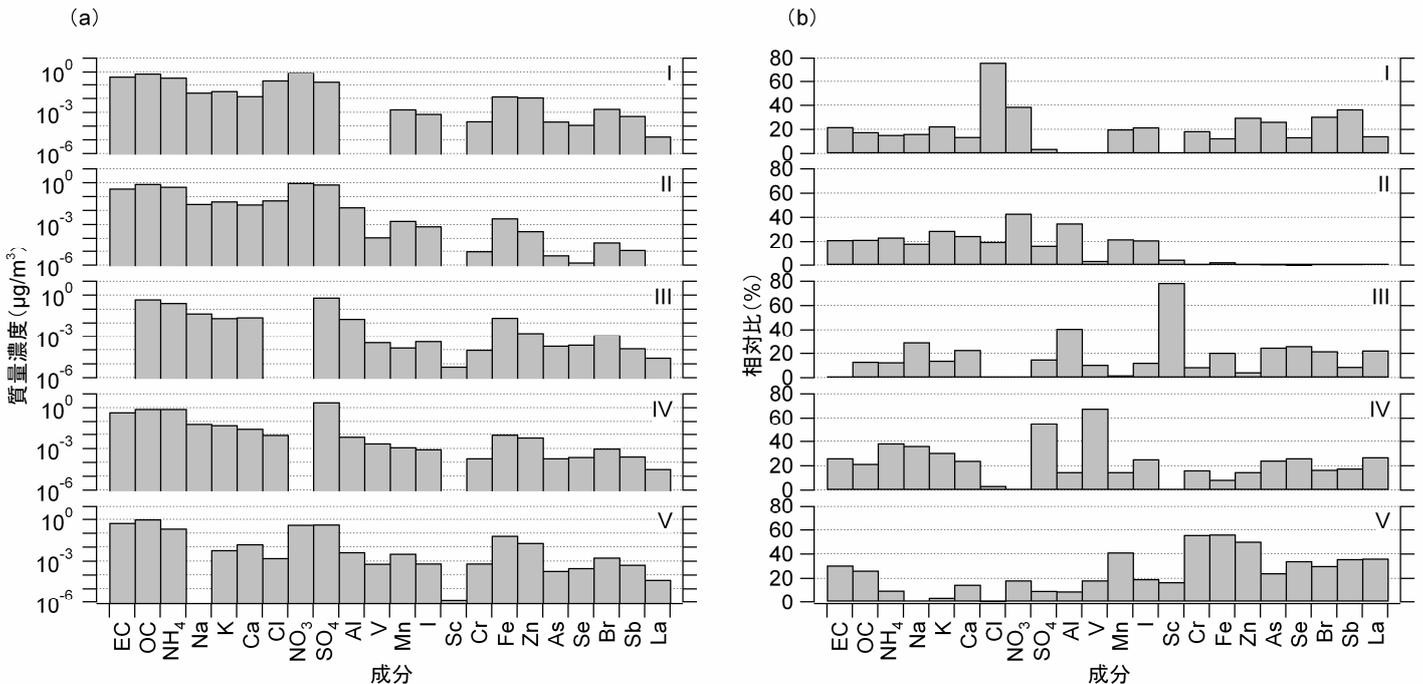


図2 PMF法による計算結果(各因子における成分を a:質量濃度、b:相対比(各成分について、因子IからVまでの合計が100%になる)で表示)

表1 PMF 法による計算結果

● 各因子の寄与

・ 一般環境と道路沿道の比較

	I	II	III	IV	V
一般環境(23区)	1.21	0.76	1.19	1.09	1.02
一般環境(多摩)	0.58	1.06	0.97	0.86	0.70
一般環境	0.93	0.89	1.09	0.98	0.88
道路沿道(23区)	1.22	0.97	0.92	1.09	1.27
道路沿道(多摩)	0.84	1.38	0.84	0.89	0.89
道路沿道	1.08	1.12	0.89	1.02	1.13
道路沿道/一般環境	1.16	1.25	0.81	1.03	1.29

・ 季節変動

	I	II	III	IV	V
春季	0.10	0.71	1.51	0.94	1.33
夏季	-0.05	0.08	0.39	2.43	0.91
秋季	2.60	0.97	0.49	0.21	1.37
冬季	1.39	2.24	1.60	0.39	0.41

● 各因子におけるイオンバランス

	I	II	III	IV	V
陽イオン(neq/m <sup>3</sup> )	21.2	31.9	19.0	51.1	12.9
陰イオン(neq/m <sup>3</sup> )	23.2	32.4	14.0	51.5	15.7
陰イオン/陽イオン	1.10	1.02	0.74	1.01	1.22
Naイオン(neq/m <sup>3</sup> )	1.16	1.31	2.07	2.58	0.00
Clイオン(neq/m <sup>3</sup> )	5.87	1.53	0.00	0.26	0.05
Clイオン/Naイオン	5.04	1.17	0.00	0.10	-

・ 因子II

硝酸の比が43.0%と高く、塩素も19.8%となっている。寄与は夏季が小さく、冬季が大きいことから二次生成(硝酸アンモニウム、塩化アンモニウム)に由来すると推定される。イオンバランスも1に近づいている。また、ナトリウムと塩素のバランスが比較的よいことから、海塩粒子にも由来すると推定される。

・ 因子III

カルシウム(22.8%)やアルミニウム(40.8%)の比が高い。また、質量濃度は小さいが、スカンジウム(78.6%)の比も高くなっている。したがって、土壌・道路粉じんにも由来すると推定される。

・ 因子IV

硫酸(54.9%)の比が高く、寄与は夏季が大きいことから二次生成(硫酸アンモニウム)に由来すると推定される。イオンバランスも1に近い。また、バナジウムの比が67.7%と高いことから重油燃焼にも由来すると推定される。

・ 因子V

一般環境に比べて、道路沿道における寄与が大きく、元素状炭素(30.7%)の比も高いので、自動車排出ガスに由来すると推定される。また、マンガン(41.3%)に代表される金属の比が高いことから鉄鋼にも由来すると推定される。

次に各因子の寄与割合を求めた。全データの平均でPM<sub>2.5</sub>の秤量質量濃度(21.0μg/m<sup>3</sup>)に対して、

因子I : 13.0%

因子II : 17.0%

因子III : 7.5%

因子IV : 22.6%

因子V : 12.9%

であった(大気環境調査におけるその他の成分は含まれていない)。

5 まとめ

2008年度に行った都内17地点におけるPM<sub>2.5</sub>大気環境調査の結果を用いて、PMF法により発生源寄与割合を

推定した。この結果、二次生成に由来すると推定された因子Ⅱや因子Ⅳの寄与割合が大きいことがわかった。PM<sub>2.5</sub>対策を考える上で、二次粒子をいかにして削減するかが課題である。

## 6 おわりに

今後はPMF法による計算結果を、CMB法による結果と比較して、相互に妥当性を評価する。ただし、CMB法による計算を行うには、既存の発生源プロファイルに発生源調査<sup>7)</sup>の結果を反映させて、プロファイルを更新する必要がある。さらに、シミュレーションモデルの結果と合わせて、発生源寄与割合の推定を進める予定である。

## 参考文献

- 1) 東京都環境局：平成20年度 大気汚染常時測定結果のまとめ、p.31 (2010)
- 2) 三好猛雄ら：PM<sub>2.5</sub>大気環境調査について、東京都環境科学研究所年報2009、pp.110-113 (2009)
- 3) Paatero, P. and Tapper, U.: Positive matrix factorization: a non-negative factor model with optimal utilization of error estimates of data values, *Environmetrics*, 5, pp.111-126 (1994)
- 4) Paatero, P.: Least squares formulation of robust non-negative factor analysis, *Chemom. Intell. Lab. Syst.*, 37, pp.23-35 (1997)
- 5) 環境省：大気中微小粒子状物質 (PM<sub>2.5</sub>) 測定方法 暫定マニュアル 改訂版 (2007)
- 6) <http://www.epa.gov/heads/products/pmf/pmf.html>
- 7) 上野広行ら：PM<sub>2.5</sub>発生源調査方法について、東京都環境科学研究所年報2009、pp.114-115 (2009)