

CMB法によるPM_{2.5}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 内田 悠太 樋口 幸弘 伊藤 雄一**

(*現・国立環境研究所 **東京都環境局)

要 旨

2008年度に行った都内17地点におけるPM_{2.5}大気環境調査の結果を用いて、CMB法により発生源寄与割合を推定した。東京都におけるPM_{2.5}発生源の特性を反映したプロファイルを作成するため、各発生源について検討を行った。その結果、環境省の調査などで使用されている発生源プロファイル(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、ブレーキ粉じんの7発生源が含まれる)に植物質燃焼類(野焼き)を追加し、8発生源からなるプロファイルを得た。発生源寄与について、一般環境と道路沿道に分類し計算をしたところ、自動車排出ガスは一般環境で11.6%、道路沿道で18.8%、ブレーキ粉じんは一般環境で1.7%、道路沿道で2.4%と、いずれも道路沿道でPM_{2.5}質量濃度に対する寄与割合が大きかった。次に、一般環境のデータを区部と多摩部に分類し計算をしたところ、重油燃焼は区部において寄与割合が大きく(区部6.0%、多摩部2.9%)、植物質燃焼類は多摩部で大きかった(区部0.7%、多摩部2.5%)。

キーワード：微小粒子状物質 (PM_{2.5})、CMB法、発生源寄与割合、発生源プロファイル

Estimation of the source contribution of PM_{2.5} by CMB

MIYOSHI Takao*, AKIYAMA Kaoru, UENO Hiroyuki, YOKOTA Hisashi

ISHII Koichiro, UCHIDA Yuta, HIGUCHI Yukihiko, ITO Yuichi**

(*National Institute for Environmental Studies **Bureau of Environment, Tokyo Metropolitan Government)

Summary

The source contribution was estimated by CMB, using the results of research on ambient PM_{2.5} at 17 sites in Tokyo in fiscal 2008. Each source was investigated in order to compose the source profile which reflected characteristics of PM_{2.5} sources in Tokyo. As a result, biomass burning was added to the source profile in the research of the Ministry of the Environment (7 sources of road dust, sea salt, iron and steel industries, fuel oil combustion, refuse incineration, motor vehicle exhaust, and brake abrasion dust were included) and 8 sources were used for calculation of the source contribution of PM_{2.5}. The data were classified into those at general air pollution monitoring stations and roadside air pollution monitoring stations. The calculation by CMB showed that the contributions of motor vehicle exhaust and brake abrasion dust were larger at roadside air pollution monitoring stations. Then the data at general air pollution monitoring stations were classified into those in 23 Wards Area and Tama District. The calculation showed that the contribution of fuel oil combustion was larger in 23 Wards Area and that of biomass burning was larger in Tama District.

Key Words : PM_{2.5}, CMB, source contribution, source profile

1 はじめに

大気中の微小粒子状物質 (PM_{2.5}) は人の健康に及ぼす影響が懸念されている。このため、環境省は2009年9月にPM_{2.5}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) を告示した。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の中町の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_{2.5}の大気中濃度の測定を行っている¹⁾。これによると、全体の傾向としては、年平均濃度は徐々に減少しているものの、2009年度において、自排局では15 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超過している。

また、東京都は大気中のPM_{2.5}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²⁾。ここで得られたデータを用いて、PM_{2.5}の削減対策を検討するため、レセプターモデル (PMF (Positive Matrix Factorization) 法及びCMB (Chemical Mass Balance) 法) による発生源寄与割合の推定を行った³⁾。今回はCMB法による推定結果について報告する。

2 CMB法について

CMB法とは、いくつかの発生源を仮定し、それぞれの発生源の成分組成 (発生源プロファイル) を用いて、発生源寄与割合の推定を行う方法である。東京都において、これまでもCMB法による解析が行われている⁴⁻⁶⁾。解析を行う際、仮定した発生源及び発生源プロファイルが適切であるか、という点が非常に重要である。なお、CMB法による解析の対象となるのは一次粒子のみである。

3 CMB法による計算

(1) 大気環境データ

東京都が2008年度に行った大気環境調査²⁾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、四季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。そこで、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。イオン成分及び金属成分として測定されている成分について、どちらを解析に使用するか、検出下限

値未満となったデータの数により検討し、カリウムとカルシウムはイオン成分を、ナトリウムは金属成分を使用することにした。有機炭素、アンモニウムイオン、硝酸イオン、硫酸イオン、塩化物イオンは二次生成に由来するため (一次粒子にも含まれる)、計算の際、フィッティングの対象としなかった。また、ヨウ素は使用した発生源プロファイルに含まれていなかった。以上の検討の結果、元素炭素、カリウム (イオン)、カルシウム (イオン)、ナトリウム (金属)、アルミニウム、バナジウム、マンガン、スカンジウム、クロム、鉄、亜鉛、ヒ素、セレン、臭素、アンチモン、ランタンの16成分により計算を行った。

次に、データのチェックを行った³⁾。イオンバランス及びマスクロージャーモデルによるチェックを行った結果、周辺工事の影響を受けていると考えられた甲州街道国立の秋季後半のデータを計算の対象から除いた。

(2) 発生源プロファイル

東京都におけるPM_{2.5}発生源の特性を反映したプロファイルを作成するため、各発生源について検討を行った。環境省の調査⁷⁾などで使用されている発生源プロファイル (これを既存プロファイルと呼ぶことにする) に含まれる7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、ブレーキ粉じん) を基本的には使用した。ただし、東京都が行った2008~2009年度の発生源調査⁸⁾の結果で既存プロファイルを更新可能かについても検討した。土壌・道路粉じんは、調査地点によるばらつきが小さく、東京都を代表する結果が、また、廃棄物焼却は、最近の廃棄物焼却炉からの排出を反映した結果がそれぞれ得られていると考えられたため、これら二つを更新の候補とした。新たな発生源として調査を行った植物質燃焼類 (野焼き) については、レボグルコサンや炭素同位体調査の結果から発生源としての寄与が存在することが示唆されたので、追加を検討した。都の調査結果のうち、稲わらと雑草・剪定枝の二つを用いてプロファイルを作成したが、これらだけでは検出された元素数が少なく、プロファイルとして不十分であった。そこで、EPAのデータベースであるSPECIATE 4.2⁹⁾から得られた小麦、稲わらの9プロファイルを追加して、合計11データとし、各成分について中央値を植物質燃焼類のプロファイルとした。

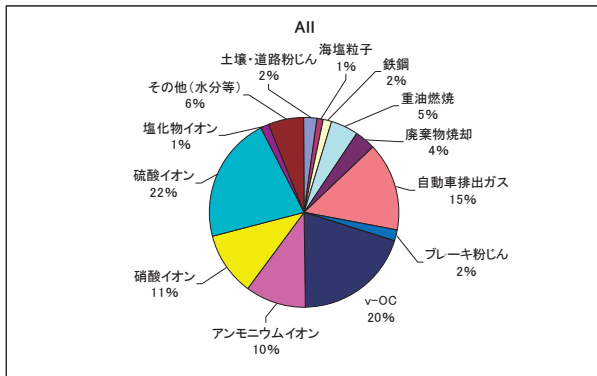
計算に使用したプロファイルは以下の5パターンで

ある。

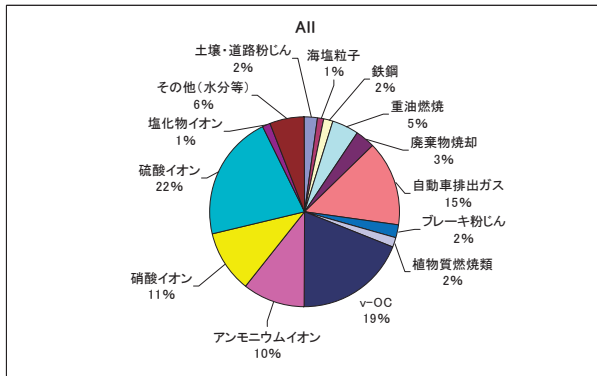
- 0 既存プロファイルそのまま使用
- 1 既存プロファイルに植物質燃焼類を追加
- 2 既存プロファイルに植物質燃焼類を追加し、土壌・道路粉じんを更新
- 3 既存プロファイルに植物質燃焼類を追加し、廃棄物焼却を更新
- 4 既存プロファイルに植物質燃焼類を追加し、土壌・道路粉じんと廃棄物焼却を更新

各パターン、全データの平均に対して、CMB法による発生源寄与割合の計算を行った結果が図1である。v-OCとは、主として二次有機粒子であると考えられる。大気環境調査における有機炭素濃度から一次粒子として割り当てられた濃度を差し引いて1.4倍(有機炭素から有機物への変換係数¹⁰⁾したものである。アンモニウムイオン、硝酸イオン、硫酸イオン、塩化物イオンは大気環境調査の結果をそのまま用いている。なお、使用したソフトはEPA CMB 8.2である¹¹⁾。この結果、以下の

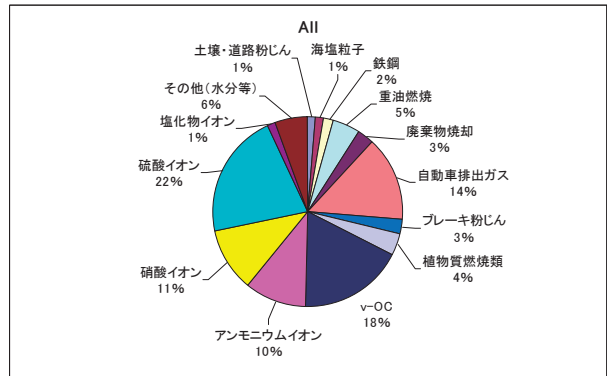
パターン0 (既存プロファイル)



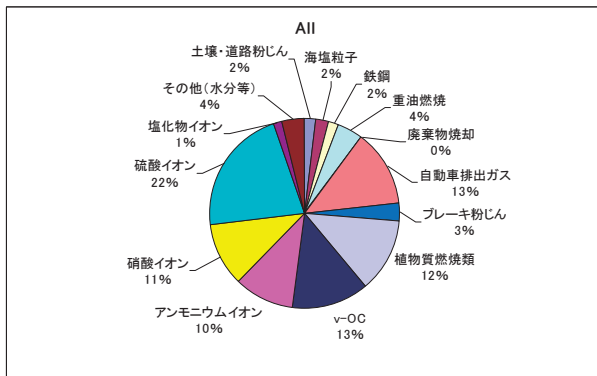
パターン1 (植物質追加)



パターン2 (植物質追加、土壌更新)



パターン3 (植物質追加、廃棄物更新)



パターン4 (植物質追加、土壌と廃棄物更新)

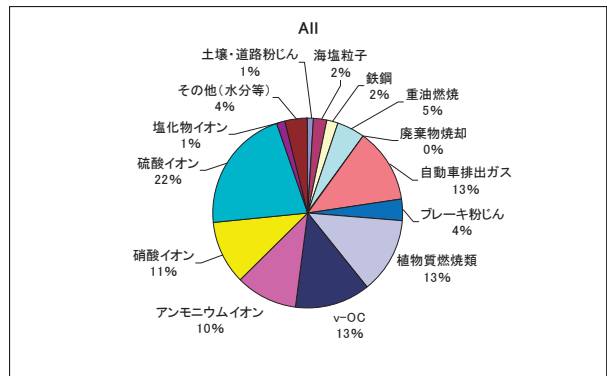


図1 発生源プロファイルの各パターンに対する計算結果

ような特徴がみられた。

- 廃棄物焼却を更新すると、しない場合に比べて、植物質燃焼類が非常に大きくなる。
- 土壌・道路粉じんを更新しても、各発生源の寄与割合に大きく影響しない。

パターン1から4のうち、どれを採用するか検討した結果、パターン1が適当であると判断された。その理由は以下のとおりである。

- 決定係数（モデルの当てはまり、計算結果がどれだ

け実測値を説明できているかを示す。0から1の値をとり、1に近いほどよい）がパターン1を使用したとき、最もよくなった。

パターン1 : 0.77887

パターン2 : 0.76685

パターン3 : 0.75637

パターン4 : 0.74722

参考 パターン0 : 0.77803

- パターン1における植物質燃焼類の寄与割合が、

表1 パターン1に含まれる8発生源のプロファイル

成分	土壌・道路粉じん		海塩粒子		鉄鋼		重油燃焼	
	wt%	SD	wt%	SD	wt%	SD	wt%	SD
EC	1.28	0.41	0.0000028	0.0000028	0.5	0.5	30	12.5
OC	6.9	2.83	0	0	0	0	0	0
NH ₄ ⁺	0.605	0.0968	0	0	0	0	0	0
K ⁺	1.27	0.339	1.1	0.11	1.32	0.264	0.085	0.085
Ca ²⁺	5.52	2.64	1.17	0.0585	4.51	0.902	0.085	0.043
NO ₃ ⁻	0.0193	0.0118	0	0	0	0	0	0
SO ₄ ²⁻	0.0568	0.0449	7.8	1.6	0	0	31.8	16
Cl ⁻	0.0335	0.0153	55.1	2.75	3.41	0.682	0.092	0.092
Na	1.25	0.266	30.4	1.52	1.36	0.272	1	0.5
Al	6.11	0.766	0.000029	0.0000029	0.999	0.2	0.21	0.11
V	0.0108	0.00345	0.0000058	0.00000174	0.0125	0.0025	0.638	0.319
Mn	0.106	0.0386	0.0000058	0.00000174	2.2	0.22	0.012	0.004
Sc	0.00133	0.000352	0.00000012	0.00000006	0.000132	0.0000264	0.000009	0.0000045
Cr	0.0279	0.0155	0.00000015	0.000000045	0.316	0.0632	0.021	0.0105
Fe	5.31	0.642	0.000029	0.0000087	15.7	1.57	0.46	0.23
Zn	0.131	0.0796	0.0000029	0.0000087	5.15	1.03	0.04	0.02
As	0.00113	0.000419	0.0000029	0.0000087	0.0103	0.0103	0.0023	0.0012
Se	0.000143	0.000055	0.000012	0.0000036	0.00511	0.00511	0.0048	0.0048
Br	0.000464	0.000207	0.19	0.0095	0.0144	0.0144	0.00085	0.00085
Sb	0.0013	0.000742	0.0000014	0.0000042	0.009	0.009	0.00069	0.00035
La	0.00313	0.00105	0.0000009	0.0000027	0.000975	0.000975	0.004	0.004

成分	廃棄物焼却		自動車排出ガス		プレーキ粉じん		植物質燃焼類(野焼き)	
	wt%	SD	wt%	SD	wt%	SD	wt%	SD
EC	5	5	49.4	4.94	15.3	7.6	9.71	1.94
OC	0	0	24.7	2.47	7.98	3.07	41.5	8.29
NH ₄ ⁺	0	0	0	0	0	0	1.27	0.254
K ⁺	20	2	0.0197	0.00197	0.35	0.07	6.32	1.26
Ca ²⁺	1.1	0.22	0.146	0.0146	3.18	0.636	0.0415	0.0083
NO ₃ ⁻	0	0	0	0	0	0	0.203	0.0406
SO ₄ ²⁻	0	0	2.16	0.216	0.49	0.152	1.61	0.322
Cl ⁻	27	2.7	0.02	0.002	1.25	0.25	2.59	0.518
Na	12	1.2	0.00764	0.000764	0.76	0.25	0.655	0.131
Al	0.42	0.084	0.157	0.0157	1.94	0.388	0.037	0.0074
V	0.0027	0.00135	0.000725	0.0000725	0.0059	0.00118	0	0
Mn	0.033	0.033	0.00193	0.000193	0.072	0.0144	0.001	0.0002
Sc	0.000046	0.0000092	0.0000119	0.00000119	0.0004	0.00008	0	0
Cr	0.085	0.085	0.00116	0.000116	0.0421	0.00842	0	0
Fe	0.61	0.61	0.0989	0.00989	9.12	1.82	0.01	0.002
Zn	2.6	1.3	0.0624	0.00624	0.326	0.0652	0.01	0.002
As	0.015	0.015	0.000369	0.0000369	0.0022	0.00044	0	0
Se	0	0	0.000167	0.0000167	0.00035	0.000175	0	0
Br	0.083	0.0166	0.00245	0.000245	0.0049	0.00098	0.028	0.0056
Sb	0.0952	0.048	0.00196	0.000196	0.213	0.0426	0	0
La	0.00077	0.00077	0.0000341	0.00000341	0.0007	0.00014	0	0

網かけは各発生源の指標元素を示す。

EC（元素状炭素）とOC（有機炭素）はサーマルオプティカル・リフレクタンス法による炭素分析の結果、得られる成分で、分析条件（設定温度、分析雰囲気）によって分けられる。

シミュレーションモデル（解析型モデル）の計算結果と近かった。

表1はパターン1に含まれる8発生源のプロファイルである。

4 計算結果

(1) 一般環境と道路沿道

データを一般環境と道路沿道に分類し（自排局である

下連雀局は道路沿道に位置しているが、大気環境調査において、元素状炭素の濃度が低かったため、一般環境に分類した）、各発生源の寄与について、それぞれ季節変動を調べた（図2）。自動車排出ガスは一般環境に比べて道路沿道が大きく（寄与割合は一般環境で11.6%、道路沿道で18.8%であった）、季節変動では秋季が大きい。ブレーキ粉じんも自動車排出ガスと同様の結果を示した（一般環境1.7%、道路沿道2.4%）。

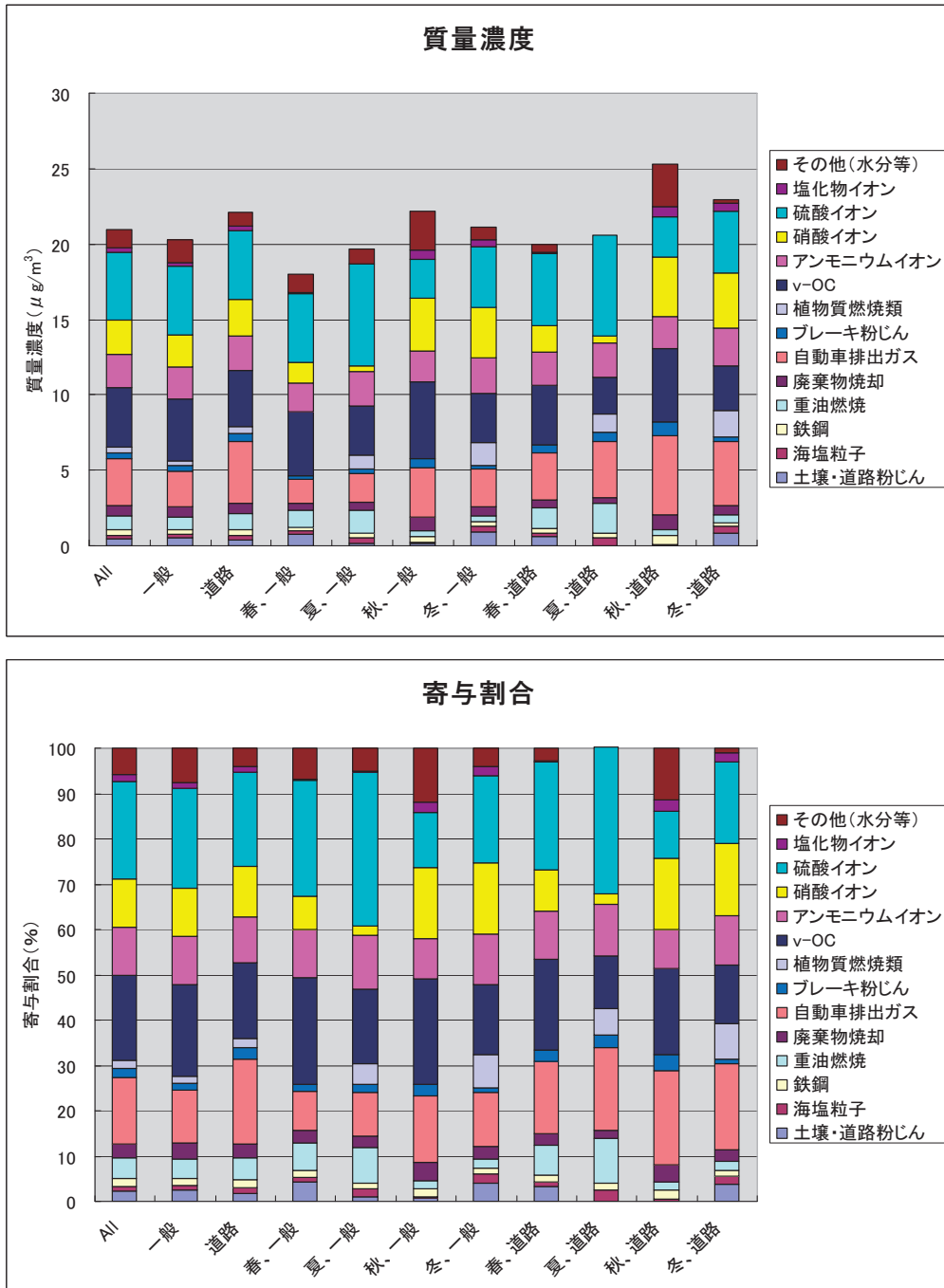


図2 CMB法による計算結果1（一般環境と道路沿道进行分类）

(2) 区部と多摩部

一般環境のデータを区部と多摩部に分類し、各発生源の寄与について、それぞれ季節変動を調べた(図3)。重油燃焼が区部において大きいという特徴がみられた(区部6.0%、多摩部2.9%)。指標元素であるバナジウムが船舶から放出されている可能性があり、東京湾に近い区部が大きくなったと考えられる。また、南寄りの風が吹く夏季にも重油燃焼が大きくなった(海塩粒子も南寄りの

風が吹く夏季が大きい)。土壌・道路粉じんは区部と多摩部でほとんど差がないが(区部2.4%、多摩部2.5%)、大陸からの気塊が流れてくる春季と冬季が大きい。植物質燃焼類は多摩部が大きく(区部0.7%、多摩部2.5%)、野焼きが区部よりも多摩部で多く行われているためと考えられる。ただし、植物質燃焼類の季節変動については、春季と秋季における寄与がまったくないという結果になっており、これは実際を反映していないと思われる。

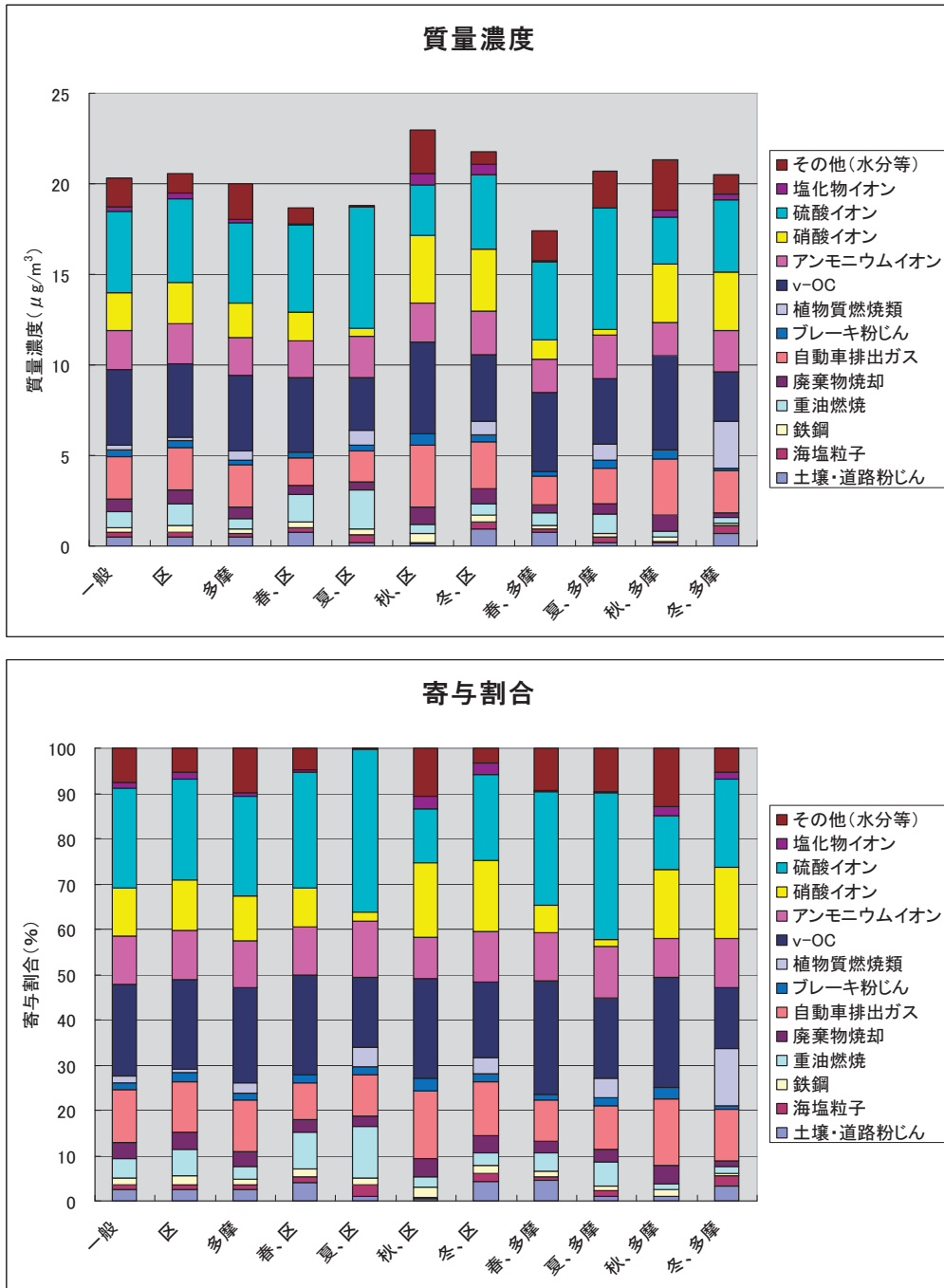


図3 CMB法による計算結果2(区部と多摩部を分類)

この点は今後の課題である。

35, pp.602–610 (2001)

11) http://www.epa.gov/ttn/scram/receptor_cmb.htm

5 まとめ

2008年度に行った都内17地点におけるPM_{2.5}大気環境調査の結果を用いて、CMB法により発生源寄与割合を推定した。発生源プロファイルの整理を行った結果、環境省の調査などで使用されているプロファイルに植物質燃焼類（野焼き）を追加し、8発生源により計算を行うことが適当と判断した。データを一般環境と道路沿道に分類し計算をしたところ、道路沿道では自動車排出ガスやブレーキ粉じんの寄与が大きかった。次に、一般環境のデータを区部と多摩部に分類し計算をしたところ、区部は多摩部に比べて重油燃焼の寄与が大きく、多摩部は区部と比較して植物質燃焼類の寄与が大きかった。

参考文献

- 1) 東京都環境局：平成21年度 大気汚染常時測定結果のまとめ、p.31 (2011)
- 2) 三好猛雄ら：PM_{2.5}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) 三好猛雄ら：PMF法によるPM_{2.5}発生源寄与割合の推定、東京都環境科学研究所年報2010、pp.144–147 (2011)
- 4) 芳住邦雄ら：東京都における浮遊粒子状物質へのリセプターモデルによる発生源寄与の評価、東京都環境科学研究所年報1989、pp.3–10 (1988)
- 5) 秋山薫ら：東京都における浮遊粒子状物質中の炭素成分の粒径分布と発生源寄与の推定、東京都環境科学研究所年報1991、pp.71–77 (1990)
- 6) 鎌滝裕輝ら：浮遊粒子状物質の地域別リセプターモデル（CMB法）による発生源の環境への負荷率推定、東京都環境科学研究所年報1995、pp.18–26 (1995)
- 7) ムラタ計測器サービス株式会社：平成20年度 環境省請負業務結果報告書「平成20年度 微小粒子状物質等実測調査（データ解析（発生源寄与濃度の推計）報告書）」(2009)
- 8) 上野広行ら：PM_{2.5}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)
- 9) <http://www.epa.gov/ttn/chief/software/speciate/index.html>
- 10) Turpin, B. J. and Lin, H. J.: Species contribution to PM_{2.5} mass concentrations: Revisiting common assumptions for estimating organic mass, *Aerosol Science and Technology*,