

微小粒子状物質の成分分析結果に関する統計的解析  
～環境省データを用いた主要成分の比率の分布及び統計的手法による比較～

酒井 護

Statistical considerations of data from the chemical speciation results of fine particulate matter  
-- Distribution of major component ratios and comparison by permutation test  
on data from the Ministry of the Environment --

SAKAI Mamoru

Abstract

Environmental standards for fine particulate matter (PM<sub>2.5</sub>) were established in September 2009. Measurements of mass concentration and analyses of chemical components -including ion components, inorganic elements, and carbon components- have been conducted by the Ministry of the Environment (MOE) and local governments. In this paper, general trends in the distribution ranges (the 25th to 75th percentiles, representing the central half of the data), as well as differences due to season or site location, were investigated using 49,784 data entries obtained from the MOE website from 2017 to 2022. This study considered: (1) the distribution of mass concentrations, (2) the proportional ratios of major components, and (3) the relationships between the ratios of major components and mass concentration with large scale datasets. Permutation test methods were used in these analyses.

**Key words:** fine particulate matter (PM<sub>2.5</sub>), chemical components analysis, permutation test

I 緒言

大気中の粒子状物質には降下ばいじんと浮遊粒子状物質 (SPM) がある。大気中に浮遊する粒子状物質のうち粒径が 10 μm 以下のものについては 1972 年 1 月に SPM として環境基準 (連続する 24 時間における 1 時間値の平均値が 0.10 mg/m<sup>3</sup> 以下であり、かつ、1 時間値が 0.20 mg/m<sup>3</sup> 以下であること) が設定された[1]。SPM の中でも微小な粒子状物質のばく露により健康影響を及ぼしていることを示す国内外の疫学分野、その他の科学的知見が蓄積されてきたことから、2009 年 9 月に大気中に浮遊する粒子状物質であって、その粒径が 2.5 μm の粒子を 50%の割合で分離できる分粒装置を用いて、より粒径の大きい粒子を除去した後に採取される粒子 (微小粒子状物質 (PM<sub>2.5</sub>)) について環境基準 (1 年平均値が 15 μg/m<sup>3</sup> 以下であり、かつ、1 日平均値が 35 μg/m<sup>3</sup> 以下であること) が設定された[2]。2010 年 3 月には、大気汚染防止法 (昭和 43 年

法律第 97 号) 第 22 条の規定に基づく大気の汚染の状況の常時監視に関する事務の処理基準が改正され、『III 微小粒子状物質に係る常時監視』が追加された[3]。2011 年 7 月には『微小粒子状物質の成分分析ガイドライン』[4]が示された。ガイドラインでは、「地域毎の特色に応じた効果的な微小粒子状物質対策の検討のため、質量濃度の測定に加え、微小粒子状物質の成分分析を行うこと」が地方自治体に求められている (斜字部分は引用)。さらにガイドラインでは、「成分分析を実施することで、微小粒子状物質の健康影響調査に資する知見の充実並びにシミュレーションモデルの構築及び検証への寄与にも期待できる。さらに、成分分析を継続的に実施することで、発生源の経年的な推移や対策の効果の検証に関する知見を得ることも可能となる」ことも示されている[5]。

著者の所属機関を含め、地方環境研究所には PM<sub>2.5</sub> の質量濃度及び成分分析を行っている機関がある。その測定結果について、2022 年以降の全国環

境研会誌には以下のような報文[6]-[8]が掲載されている。前田ら[6]は、長崎県北部及び長崎県南部のそれぞれ近接した2か所の測定局で年間約200試料のデータでPM<sub>2.5</sub>の成分分析結果から正方行列因子分解法(PMF)による解析を行った。その結果、全地点で最も大きい寄与濃度を示したのは一般的に越境汚染を示す因子とされる硫酸二次生成因子であり、県北地域では秋季に道路交通や植物燃焼、冬季に硝酸二次生成の影響を受けて濃度差が生じていることを報告している。中込ら[7]は、長野市での2020年度の夏季調査において、小笠原諸島西之島の噴煙や花火の影響により高濃度のPM<sub>2.5</sub>が観察された際の成分の特徴について解析した。その結果、西之島の噴煙の影響が強く見られた日には、陽イオンに対する陰イオンの合計当量濃度の比が1.1以上となっていたことや花火大会の実施時には花火特有成分であるK<sup>+</sup>、K、Mg<sup>2+</sup>、Ba、Sr、Cu濃度が顕著に上昇することを報告している。仙本ら[8]は、複数年にわたり捕集したPM<sub>2.5</sub>について無機成分32種を分析した結果により後方流跡線解析とPMFによる発生源解析を実施した。その結果、広島市におけるPM<sub>2.5</sub>の発生源としては越境由来のほか国内由来の寄与もあることを報告している。またWEB上で確認できる2022年以降に発行された地方環境研究所の紀要には、成分分析の結果を用いた発生源解析や高濃度事例の要因調査などの事例[9]-[21]や経年的に成分分析の結果を報告している事例[22]-[28]などがある。各地域別のPM<sub>2.5</sub>の成分の特徴は上記の地方環境研究所紀要のほか、各自治体のWEBサイトなどでも参照が可能である。

最近全国で実施されたPM<sub>2.5</sub>の成分分析結果を基に、規模の大きいデータを用いることで、各成分の全国的な分布傾向を把握し、さらに発生源が地域にもたらす影響の有無を検証することを目的として、以下の考察を行った。考察には、環境省及び都道府県・大気汚染防止法施行令(昭和43年政令第329号)第13条に定める政令市が実施した質量濃度及び成分分析の結果がまとめられている環境省WEBサイト[29]のデータを使用した。考察の対象は、①質量濃度の分布、②イオン成分・無機元素・炭素成分のそれぞれについて一部項目の合計が全体に占める比率の分布、③イオン成分・無機元素・炭素成分の各成分と質量濃度との比率の分布、の3項目である。これらについて、大まかな分布範囲の傾向として、全体の中央部分に含まれる測定結果・計算結果の範囲(25%～75%順位値の範囲)を示すとともに、この範囲の測定結果・計算結果につ

いて季節や地点分類の別による平均値の差を統計的に解析しその大きさの順序を示した。また、④地域的な影響として、測定局(一般環境局)の経度及び緯度によりレコード数がほぼ等しくなるように全体を4つの地域に区分し、各成分の項目別の傾向を比較することで影響の有無を確認した。

## II 解析の方法

### 1) 解析に使用したデータの入手方法

環境省WEBサイト[29]には、平成12年度から令和4年度までの微小粒子状物質の質量濃度及び成分測定結果(MS-EXCEL形式のファイルがZIP形式で圧縮されたファイル)がリンクされている。このうち、平成29年度から令和4年度のデータは形式が同じフォーマットとなっていることから、この6年間のデータを使用した。なお、これらのファイルは『測定値及び特記事項に付与するフラグ』シートを含む6種類のワークシートにより構成されている。本解析では、大まかな傾向を示すことを目的としていることから、『1. 総括表(地点情報等)』及び『2. 測定結果』の各シートのデータは使用したが、『3. 精度管理』、『4. 検出下限値』及び『5. 定量下限値』の各シートのデータは使用しなかった。

### 2) 解析の対象とした項目

解析の対象としたものは、質量濃度、イオン成分(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>の8種類)、無機元素(測定推奨項目を除くNa, Al, K, Ca, Sc, V, Cr, Fe, Ni, Zn, As, Sb, Pbの13種類)、炭素成分(OC1~4, EC1~3, OC<sub>Pyro</sub>)とした。ここで、測定推奨項目の無機元素のうち、Si・Tiはケミカルマスキロージャーモデル(MC)の計算にのみ用いた。イオン成分のうち、アニオンとはCl<sup>-</sup>, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の3種類、カチオンとはNa<sup>+</sup>, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>, K<sup>+</sup>, Mg<sup>2+</sup>, Ca<sup>2+</sup>の5種類の濃度の合計である。無機元素のうち、主要3種とはNa, K, Feの3種類、主要5種とはNa, Al, Fe, K, Caの5種類の濃度の合計である。炭素成分のうち、有機炭素とはOC1 + OC2 + OC3 + OC4 + OC<sub>Pyro</sub>、元素状炭素とはEC1 + EC2 + EC3 - OC<sub>Pyro</sub>によりそれぞれ計算した。イオンバランス(IB)・MCについては、文献[30]の方法により計算した。

### 3) 解析から除外した条件

1)で入手したデータのうち『2. 測定結果』シートのセルには、①正の数値、②負の数値、③<〇〇など定量下限未満であることを示す記号、④zzzや

表1 レコードを対象外とした条件

質量濃度	・ 質量濃度のセルにゼロまたは数値以外の記号が入力されている。
イオン成分	・ アニオン3種類, カチオン5種類のセルに1個以上の記号がある。 ・ イオン8種類, アニオン3種類, カチオン5種類の濃度の合計がゼロ。
無機元素	・ 対象とした13種類のセルに1個以上の記号がある。 ・ 対象とした13種類の濃度の合計がゼロ。
炭素成分	・ OC1~4, EC1~3, OCPyroのセルに1個以上の記号がある。 ・ 上記8種類の濃度の合計がゼロ。

--など測定対象としていないことを示す記号、⑤空白、⑥その他のMS-EXCELでの演算不能であることを表す記号、の6種類のデータが入力されていた。本解析では、各測定局での測定日別の成分分析結果の一式を含む測定結果の全体を1件のレコードとして計上し、一部の項目でも表1に示したような条件を含むレコードは対象外とした。年度別には表2に示した全55,905件のレコードのうち、解析の対象としたものは49,784件のレコードであり、対象にしなかったものは6,121件のレコードである。対象としたレコードの内訳は表3に示した。

#### 4) 統計的考察の方法

統計的考察は以下の方法によった。

##### (1) 地点分類の割り当て

1)により入手したデータでは、『2. 測定結果』シートの各データに付番している「試料コード」は14

ケタの数値で表現されている。この14ケタのうち左側の9桁が「地点コード」であり、続く2ケタが年度、右側の3ケタが通し番号となっている。このうち、『1. 総括表 (地点情報等)』シートに記載された「地点コード」から「地点分類」を検索し、各測定局について、バックグラウンド (BG)、一般環境 (一般)、道路沿道 (道路) の3種類を割り当てた。

##### (2) 一般環境の地域区分の方法

一般環境には36,420件のレコードがある。各地域のレコード数がほぼ同じとなるように、測定局を経緯で東西に2つの地域に区分した。岐阜中央局 (岐阜県岐阜市; 東経136度45分32秒) よりも西側にある測定局を地域1・地域2とし、一宮市松降通局 (愛知県一宮市; 東経136度48分30秒) よりも東側にある測定局を地域3・地域4とした。それぞれの地域について緯度で南北に2つの地域に分類した。西側では、井口小学校局 (広島県広島市西区; 北緯34度22分22秒) よりも南側にある測定局を地域1とし、三日市公民館局 (大阪府河内長野市; 北緯34度27分44秒) よりも北側にある測定局を地域2とした。東側では、市川大野局 (千葉県市川市; 北緯35度44分59秒) よりも南側にある測定局を地域3とし、郡上局 (岐阜県郡上市; 北緯35度45分47秒) よりも北側にある測定局を地域4とした。各地域の境界線は図1に示した線で区分される。地域別のレコード数は図1内に示した。

表2 年度別 計算の対象・対象外のレコード数

年度	年度別のレコード数		
	対象	対象外	合計
2017	8,474	1,290	9,764
2018	8,567	946	9,513
2019	8,156	1,360	9,516
2020	8,401	805	9,206
2021	8,233	797	9,030
2022	7,953	923	8,876
合計	49,784	6,121	55,905

表3 季節別・地点分類別の解析対象のレコード数

季節	地点分類			合計
	BG	一般	道路	
春	953	9,143	2,393	12,489
夏	917	9,107	2,395	12,419
秋	937	9,039	2,365	12,341
冬	1,024	9,131	2,380	12,535
合計	3,831	36,420	9,533	49,784

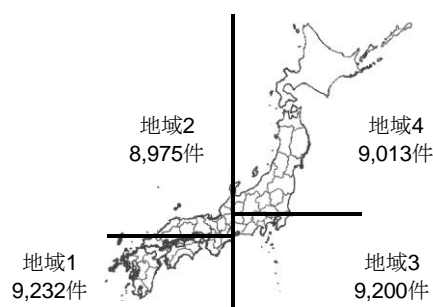


図1 各地域の境界線とレコード数 (国土地理院ウェブサイト[31]より作成)

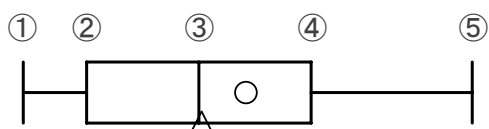


図2 結果の分布範囲のプロット方法

①→5%順位値, ②→25%順位値, ③→50%順位値,  
④→75%順位値, ⑤→95%順位値の位置を表す  
(全体の中央の90%の範囲のみの分布となる)  
平均値の計算 : ○→全体, △→②~④の範囲のレコード  
並べ替え検定は②~④の範囲のレコードを対象とした

(3) 測定結果・計算結果の分布範囲のプロット方法

測定結果・計算結果の分布範囲のプロットは図2に示した様式によった。最大値を含むと  $x$  軸の範囲が大きくなることから、上下5%ずつの範囲はプロットに含めていない（全体の分布の中央部分の90%のみの範囲となる）。また、算術平均値として、個別に表3の合計欄の数のレコードにより計算した結果を中央に○印、②~④の範囲（箱の部分）のみで計算した結果を下側の線の部分にあわせて△印でプロットした。図2の様式では、全体の中央部の90%の範囲がプロットされている。この範囲であっても箱の部分（全体の中央の50%の分布範囲）の外側の上下20%の分布は、上側もしくは下側のいずれかに伸びている場合がある。季節別・地点分類別の大きさの順位に関する統計的考察は箱の部分に分布したもののみを使用した。

(4) 統計的考察に使用するレコードの数

季節別・地点分類別のレコード数は表4の左列の通りである。各レコードのうち表4の中央列の上位25%及び下位25%のそれぞれに相当する数のレコードを除外し、表4に示した数のレコード（中央の50%の部分）を用いて季節別（春 vs 夏, 春 vs 秋, 春 vs 冬, 夏 vs 秋, 夏 vs 冬, 秋 vs 冬の6通り）、地点分類別（BG vs 一般, BG vs 道路, 一般 vs 道路の3通り）にそれぞれの組み合わせについて検討した。図1内に示した各地域のレコード数より表4と同様の手法で表5に示した数のレコードにより検討した。

(5) 正規確率プロット (Q-Qプロット) の作成方法

Q-Qプロットの作成にあたり、あらかじめすべての測定結果・計算結果を昇順に並べ替えたのちに  $Z$  スコアに換算した。（昇順順位）÷（標本のレコード数 + 1）を確率とした標準正規分布の逆関数により計算された期待値を  $y$  軸方向、もとの測定結果・

計算結果の  $Z$  スコアへの換算値を  $x$  軸方向にプロットした。対角線は、直線  $y=x$  である。

(6) 並べ替え検定の方法

一般に、標本内の測定結果の分布が正規分布に従っていない場合や、分布が正規分布に従っている場合でもその一部分のみ抽出する場合には、 $t$  検定や分散分析などのパラメトリックな方法による検定は適用できない。そのため、本解析では、ノンパラメトリックな方法である並べ替え検定[32]により平均値の差を検定した。

この方法では、比較する2つの標本の全測定結果・計算結果を無作為に2つのグループに分類し、

表4 並べ替え検定のレコード数

区分	レコード数		
	全体	上下25%	中央部分
春	12,489	3,122	6,245
夏	12,419	3,104	6,211
秋	12,341	3,085	6,171
冬	12,535	3,133	6,269
BG	3,831	957	1,917
一般	36,420	9,105	18,210
道路	9,533	2,383	4,767

上下25%に相当する件数の測定結果・計算結果を除外した並べ替え検定は中央部分の測定結果・計算結果を用いて行った

表5 並べ替え検定のレコード数  
(一般環境の地域別)

地域	季節	レコード数		
		全体	上下25%	中央部分
地域1	春	2,324	581	1,162
	夏	2,267	566	1,135
	秋	2,333	583	1,167
	冬	2,219	554	1,111
地域2	春	2,293	573	1,147
	夏	2,242	560	1,122
	秋	2,298	574	1,150
	冬	2,274	568	1,138
地域3	春	2,289	572	1,145
	夏	2,220	555	1,110
	秋	2,297	574	1,149
	冬	2,233	558	1,117
地域4	春	2,326	581	1,164
	夏	2,246	561	1,124
	秋	2,272	568	1,136
	冬	2,287	571	1,145

それぞれのグループの平均値の差を計算する。この試行を複数回繰り返し、もとの標本での平均値の差よりも、無作為に分けた2つのグループの平均値の差が大きくなった頻度（確率）を記録する。この頻度から、無作為にグループ分けした場合に、もとの標本でのグループ分けが発生している確率が推定される。平均値の大きさの順番について並べ替え検定により有意な差が確認されなければ( )でまとめて表記した。

具体的な手法は以下のとおりである。季節での比較を例として例えば、春及び夏の全結果を表計算ソフトウェアの1列に並べる（春及び夏の結果数を  $n_{春}$  及び  $n_{夏}$  とすると全体で  $(n_{春} + n_{夏})$  個の結果となる。また、春及び夏の結果の平均値は、それぞれ  $x_{春}$  及び  $x_{夏}$  とする）。それぞれの結果の右側の列に一樣乱数を  $(n_{春} + n_{夏})$  個発生させる。この一樣乱数をその左側の列の結果とともに昇順に並べ替える。並び替え後の結果について、上側の  $n_{春}$  個の結果をグループ1とし、下側の  $n_{夏}$  個の結果をグループ2とする。グループ1及びグループ2の平均値が  $x_1$  及び  $x_2$  であるとき、平均値の差の絶対値は、 $\Delta x_k = |x_1 - x_2|$  となる。ここで、下付き文字は  $k$  回目の試行であることを示す。この  $\Delta x_k$  と、もとの標本での平均値の差の絶対値  $\Delta x_E (=|x_{春} - x_{夏}|)$  を比較する。この操作を表計算ソフトウェアにより 30,000 回繰り返し、 $\Delta x_k > \Delta x_E$  であった頻度が設定した指標値未満である場合には、もとの平均値に有意な差があると判断した。本解析では、指標値として、季節別では  $30,000 \times 0.05 \div 6 = 250$  個、地点分類別では  $30,000 \times 0.05 \div 3 = 500$  個をそれぞれ設定した。ここで、指標値の設定にあたり、組み合わせの数で除することで多重比較の補正を行った。

#### (7) 数値の丸め方

数値の丸め方は、日本産業規格 JIS Z 8401:2019『数値の丸め方』に従った。質量濃度・比率（百分率）の丸めの幅は 0.1、IB・MC の丸めの幅は 0.01 として表記した。

### III. 結果と考察

#### 1) 質量濃度の分布

##### (1) 分布の傾向

質量濃度の分布を、全測定結果・季節別測定結果・地点分類別測定結果の別に図3に示す。全測定結果

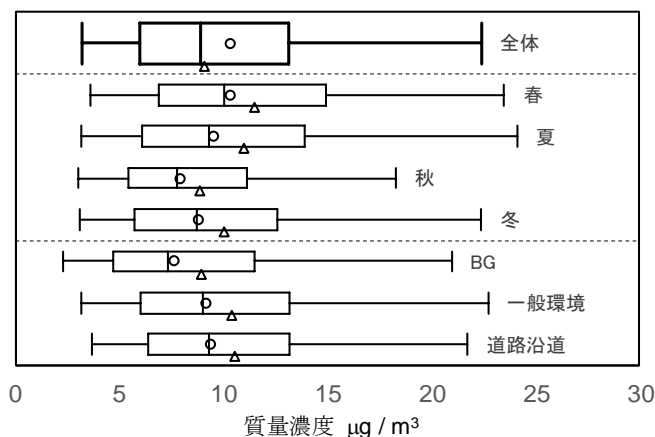


図3 質量濃度の分布

は上側・季節別測定結果は中央・地点分類別測定結果は下側に配置した。中央部分の測定結果は、(6.0～13.1)  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  の範囲に分布していた。いずれの分布においても、全測定結果による算術平均値は中央値よりも大きくなっている。中央値と比較して高濃度側の範囲に分布している測定結果が多く存在するため、算術平均値は中央値よりも大きな値となっている。また、箱の部分のみの測定結果で計算した算術平均値は全体の中央値とほぼ一致していた。

#### (2) Q-Qプロットによる正規分布との関連性

全レコードを使用して作成した Q-Q プロットを図4に示す。ただし、 $x$  軸、 $y$  軸とも -4 から 4 の範囲のみとしている。Z スコアの絶対値が 1 以下の部分では直線  $y = x$  の周りにプロットが集まっているが Z スコアの絶対値が 2 を超えた部分では直線  $y = x$  よりも大きく外れていることから、正規分布に従っていないとされた。季節別、地点分類別のプロットも同様に正規分布に従った分布ではなかった。これらは参考として、各 Q-Q プロット

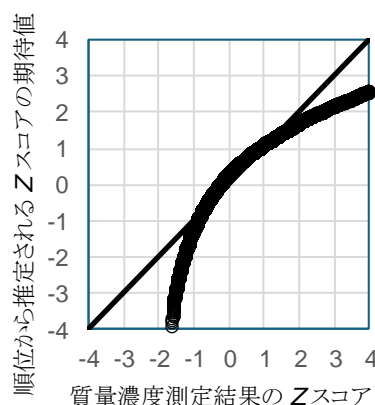


図4 質量濃度の Q-Q プロット

の相関係数と近似直線の傾きを表 6 に丸めの幅を 0.001 としてまとめて示す。

(3) 並べ替え検定による平均値の大きさの比較

表 4 に示した数のレコードにより並べ替え検定を行った結果、表 7 及び表 8 の通りとなった ( $\Delta x_E \cdot \Delta x_k$  の計算では、丸めの幅の 0.1 倍まで計算して表記した)。質量濃度では、 $\Delta x_k$  が  $\Delta x_E$  よりも大きくなった頻度はすべての比較においてもゼロ回であり、すべての場合で有意な差があった。つまり、中央部分の平均値は、季節別には春 > 夏 > 冬 > 秋の順、地点分類別には 道路 > 一般 > BG の順になっているとされた。

## 2) 一部項目の合計が全体に占める比率の分布

一般にパレートの法則などで知られている通り、一部の項目のみで全体の大部分を占めていることがある。PM<sub>2.5</sub> の成分における同様の傾向の有無について以下の通り考察した。なお、2)・3)でのそれぞれの測定結果・計算結果について図 3 と同様の分布図は、末尾に図 A1 としてまとめて示した。

(1) イオン成分での比率

アニオンがイオン成分全体に占める比率の中央部分の計算結果 (図 A1 左上のグラフの一番上のプロットの箱の部分; 以下同様) は、(70.1~72.9) % の範囲に分布していた。季節別・地点分類別に、表 4 に示した数のレコードにより並べ替え検定を行い、季節別には、冬 > 夏 > 春 > 秋の順、地点分類別には BG > 一般 > 道路の順であった (以下、同様の手順で検定を行った)。

表 5 に示したレコードにより、地域別での季節ごとの平均値の大きさは、地域 1・地域 2 は(夏, 冬) > 春 > 秋、地域 3・地域 4 は冬 > 夏 > 春 > 秋の順となった。また季節別での地域ごとの平均値の大きさは、春・秋は地域 3 > (地域 2, 地域 4) > 地域 1、夏は(地域 1, 地域 2) > 地域 3 > 地域 4、冬は地域 3 > 地域 2 > 地域 1 > 地域 4 の順となった。地域 1・地域 2 では夏と冬の平均値に差がみられないものの、冬が大きく秋が小さくなるという傾向はいずれの地域でも同じであった。

これらについて、各地域におけるアニオン成分の SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>及び Cl<sup>-</sup> の濃度がイオン成分全体の合計濃度に占める比率を季節別に図 5 に示す。すべての季節において地域 1・地域 2 では地域 3・地域 4 と比較して、アニオンのうち SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>がイオン成分全体に占める比率が大きくなることから相対的に、

表 6 Q-Q プロットの相関係数と近似曲線傾き

	相関係数	近似曲線傾き
全体	0.943	0.943
季節：春	0.960	0.960
季節：夏	0.936	0.935
季節：秋	0.948	0.948
季節：冬	0.940	0.940
地点分類：BG	0.923	0.921
地点分類：一般	0.941	0.941
地点分類：道路	0.954	0.953

NO<sub>3</sub><sup>-</sup>・Cl<sup>-</sup>がイオン成分全体に占める比率は小さくなっていった。このことより、季節に関係なく地域 1・地域 2 は、地域 3・地域 4 と比較して発生源からの SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の影響をより強く受けていると考えられた。

(2) 無機元素での比率

主要 3 種のみが無機元素 13 種に占める比率の中央部分の計算結果は、(65.0~80.2) % の範囲に分布していた。季節別には、夏 > 秋 > 冬 > 春 の順、地点分類別には BG > 道路 > 一般 の順であった。主要 5 種のみが無機元素 13 種に占める比率の中央部分の計算結果は、(88.6~95.5) % の範囲に分布していた。季節別には、(春, 冬) > 秋 > 夏 の順、地点分類別には BG > (一般, 道路) の順であった。

表 5 に示したレコードにより、主要 3 種が無機元素全体に占める比率について地域別での季節ごとの平均値の大きさは、地域 1 は夏 > 秋 > 冬 > 春、地域 2 は(夏, 冬) > 秋 > 春、地域 3 は夏 > 秋 > 春 > 冬、地域 4 は夏 > (秋, 冬) > 春の順となった。また季節別での地域ごとの平均値の大きさは、春は

表 7 季節別質量濃度の並べ替え検定結果

季節	$\Delta x_E$	$\Delta x_k > \Delta x_E$ の頻度			(参考)
		0 回	1~249 回	250 回以上	$\Delta x_k$ の最大値
春 夏	0.74	○			0.17
春 秋	2.36	○			0.16
春 冬	1.51	○			0.15
夏 秋	1.62	○			0.16
夏 冬	0.78	○			0.16
秋 冬	0.85	○			0.13

表 8 地点分類別質量濃度の並べ替え検定結果

地点分類	$\Delta x_E$	$\Delta x_k > \Delta x_E$ の頻度			(参考)
		0 回	1~499 回	500 回以上	$\Delta x_k$ の最大値
BG 一般	1.56	○			0.19
BG 道路	1.84	○			0.22
一般 道路	0.28	○			0.13

(地域1, 地域2, 地域3) > 地域4, 夏は(地域1, 地域3) > 地域2 > 地域4, 秋は(地域1, 地域2) > 地域4 > 地域3, 冬は地域2 > (地域1, 地域4) > 地域3の順となった。地域3を除き夏が大きくなり春が小さくなるという傾向を示していたが、季節ごとの傾向は地域ごとに異なっていた。表5に示したレコードにより、主要5種が無機元素全体に占める比率について地域別での季節ごとの平均値の大きさは、地域1は(春, 夏) > (秋, 冬)、地域2は(秋, 冬) > 春 > 夏、地域3は夏 > 春 > 冬 > 秋、地域4は(春, 冬) > (夏, 秋)の順となった。また季節別での地域ごとの平均値の大きさは、春は地域1 > (地域3, 地域4) > 地域2, 夏は地域1 > 地域3 > 地域2 > 地域4, 秋は地域1 > 地域2 > (地域3, 地域4), 冬は地域1 > (地域2, 地域4) > 地域3の順となった。主要5種の場合、いずれの場合も全体の場合と季節別の比率が異なっており、それぞれ別の発生源の影響を受けている可能性が考えられた。

### (3) 炭素成分での比率

有機炭素が炭素成分全体に占める比率の中央部分の計算結果は、(75.4~84.8)%の範囲に分布し

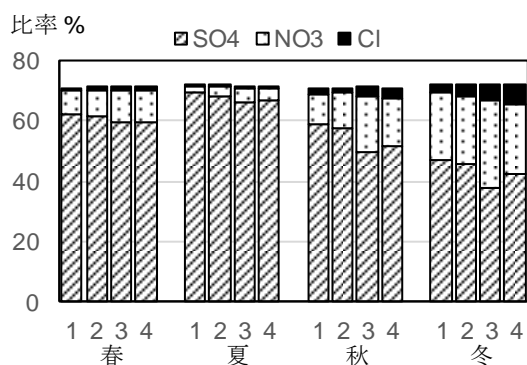


図5 地域別・季節別のアニオン種別の比率  
(横軸の数字は地域の記号を表す)

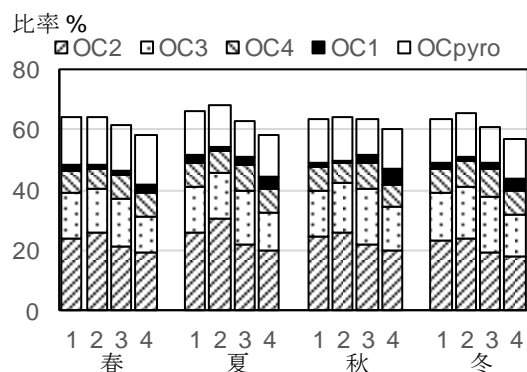


図6 地域別・季節別の炭素種別の比率  
(横軸の数字は地域の記号を表す)

ていた。季節別には 夏 > 春 > 秋 > 冬 の順、地点分類別には BG > 一般 > 道路 の順であった。

表5に示したレコードにより、すべての地域で季節ごとの平均値の大きさは、夏 > 春 > 秋 > 冬 の順となり全体と同じ傾向であった。また季節別での地域ごとの平均値の大きさは、春は(地域2, 地域4) > 地域3 > 地域1, 夏は地域2 > 地域4 > (地域1, 地域3), 秋は地域2 > 地域4 > 地域3 > 地域1, 冬は地域2 > (地域3, 地域4) > 地域1の順であり、いずれの季節でも地域2が大きく、地域1が小さいという結果となった。同じ計算結果で各地域における炭素成分のうちOC1~4及びOCpyroの濃度が炭素成分の合計濃度に占める比率の平均を図6に示す。炭素成分全体の合計の季節別の大きさの順番は、地域によらず 夏 > 春 > 秋 > 冬 であった。またOCpyroを除く種別の大きさは、いずれの地域・季節でもOC2 > OC3 > OC4 > OC1の順番であり、本解析で用いた手法では、特徴的な発生源による影響は見られなかった。

### 3) 質量濃度との比率の分布

質量濃度に占めるイオン成分、無機元素及び炭素成分の比率及びIB・MCについて季節別に傾向を考察した。

#### (1) イオン成分が質量濃度に占める比率

イオン成分が質量濃度に占める比率の中央部分の計算結果は、(33.6~52.5)%の範囲に分布していた。季節別には 冬 > 夏 > 春 > 秋 の順、地点分類別には BG > 一般 > 道路 の順であった。

表5に示したレコードにより、地域別での季節ごとの平均値の大きさは、地域1・地域2は冬 > 夏 > 春 > 秋、地域3は冬 > (春, 夏) > 秋、地域4は冬 > 春 > 夏 > 秋の順となった。また季節別での地域ごとの平均値の大きさは、春は(地域1, 地域3) > 地域4 > 地域2, 夏は地域1 > 地域3 > 地域2 > 地域4, 秋は地域1 > 地域4 > (地域2, 地域3), 冬は地域1 > (地域2, 地域4) > 地域3の順となった。地域別での比率の平均値は冬に大きく、秋に小さくなっていることに地域差は見られなかった。また、 $\text{SO}_4^{2-} \cdot \text{NH}_4^+$ が質量濃度に占める比率とイオン成分全体が質量濃度に占める比率の相関係数を地域別・季節別に計算した結果を丸めの幅を0.01として表9に示す。 $\text{SO}_4^{2-}$ は夏にはいずれの地域でも0.7を超えているが、冬には地域1を除いて0.2程度よりも小さくなる場合があった。また、 $\text{NH}_4^+$ は夏には地域1・地域3では0.5未満となっていたが、それ以外の地域では0.5を超えており、質量濃度及びイオン

表9 SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>・NH<sub>4</sub><sup>+</sup>のそれぞれが質量濃度に占める比率とイオン成分全体が質量濃度に占める比率の相関係数

地域	季節	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	地域	季節	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>
地域1	春	0.70	0.54	地域3	春	0.47	0.51
	夏	0.70	0.46		夏	0.70	0.45
	秋	0.72	0.57		秋	0.42	0.61
	冬	0.34	0.52		冬	0.06	0.74
地域2	春	0.66	0.52	地域4	春	0.47	0.52
	夏	0.87	0.61		夏	0.78	0.54
	秋	0.59	0.53		秋	0.43	0.56
	冬	0.20	0.57		冬	0.21	0.57

成分の増減と関係が大きいと考えられた。

また、2) (1) で、秋にはアニオンがイオン成分全体に占める比率も小さくなっていることを示した。ここでの解析結果でも秋にはいずれの地域でもイオン成分が質量濃度に占める比率が小さくなっていた。

(2) 無機元素が質量濃度に占める比率

無機元素が質量濃度に占める比率の中央部分の計算結果は、(2.4~5.0) %の範囲に分布していた。季節別には 秋 > 冬 > 春 > 夏 の順、地点分類別には 道路 > 一般 > BG の順であった。

表5に示した記録により、すべての地域で季節ごとの平均値は、(秋, 冬) > 春 > 夏の順となった。また季節別での地域ごとの平均値の大きさは、春は地域2 > (地域3, 地域4) > 地域1、夏は(地域2, 地域4) > 地域3 > 地域1、秋は地域3 > (地域2, 地域4) > 地域1、冬は地域3 > 地域4 > 地域2 > 地域1の順となった。いずれの場合でも同じような結果であることから、本解析の地域別での比率の平均値を比較する手法では特異的な発生源の影響をみつけることはできないと考えられた。

(3) 炭素成分が質量濃度に占める比率

炭素成分が質量濃度に占める比率の中央部分の計算結果は、(25.2~41.0) %の範囲に分布していた。季節別には 秋 > 夏 > 春 > 冬 の順、地点分類別には 道路 > 一般 > BG の順であった。

表5に示した記録により、地域別での季節ごとの平均値の大きさは、地域1は秋 > (春, 夏) > 冬、地域2は秋 > 夏 > 冬 > 春、地域3・地域4は秋 > 夏 > 春 > 冬 の順となった。また季節別での地域ごとの平均値の大きさは、春は地域2 > (地域3, 地域4) > 地域1、夏は(地域2, 地域4) > 地域3 > 地域1、秋は地域3 > (地域2, 地

域4) > 地域1、冬は地域3 > 地域4 > 地域2 > 地域1の順となった。地域別での比率の平均値は、秋に炭素成分が質量濃度に占める比率が大きくなっていた。また、OC2、OC3及びOC4が質量濃度に占める比率と炭素成分全体が質量濃度に占める比率の相関係数を地域別・季節別に計算した結果を丸めの幅を0.01として表10に示す。濃度でみれば、OC2 > OC3 > OC4であるが、いずれの地域でも相関係数はおおむねOC3 > OC2 > OC4の順になっていた。炭素成分のうち、EC濃度とOC2は負の相関関係にあることから、EC濃度を含めた炭素成分全体の濃度の増減にはOC2よりもOC3濃度の寄与が大きい結果となった。

(4) IB・MC計算結果の分布

IBの中央部分の計算結果は、0.91~1.02の範囲に分布していた。季節別には 夏 > 冬 > 秋 > 春 の順、地点分類別には BG > 一般 > 道路 の順であった。MCの中央部分の計算結果は、0.93~1.11の範囲に分布していた。季節別には 冬 > 夏 > 秋 > 春 の順、地点分類別には 道路 > 一般 > BG の順であった。また、0.80から1.20の範囲に含まれていたレコード数は、IBは46,126個(92.7%)、MCは40,089個(80.5%)であった。

IBが1を超えている場合、分析対象となっているアニオンのイオン当量がカチオンのイオン当量よりも大きくなっている。また、MCが1を超えている場合、PM2.5の主要な成分から推定される質量濃度が実際の質量濃度よりも大きくなっている。IB・MCが1を超えているレコードの比率を季節別・地点分類別に丸めの幅を0.1として表11に示す。

IBについて、季節別には夏にはほぼ50%が1を超えているがその他の季節ではその割合は30%以下でありカチオンのイオン当量大きい状態であることが考えられた。地点分類別にはBGでは35%

表10 OC2・OC3・OC4のそれぞれが質量濃度に占める比率と炭素成分全体が質量濃度に占める比率の相関係数

地域	季節	OC2	OC3	OC4	地域	季節	OC2	OC3	OC4
地域1	春	0.47	0.47	0.38	地域3	春	0.47	0.61	0.54
	夏	0.52	0.55	0.50		夏	0.59	0.52	0.56
	秋	0.45	0.61	0.42		秋	0.39	0.61	0.43
	冬	0.52	0.56	0.34		冬	0.42	0.56	0.42
地域2	春	0.51	0.56	0.43	地域4	春	0.45	0.55	0.45
	夏	0.61	0.66	0.56		夏	0.44	0.59	0.53
	秋	0.39	0.65	0.49		秋	0.32	0.51	0.41
	冬	0.44	0.53	0.43		冬	0.41	0.49	0.38

以上のレコードで1を超えているが、その他の測定局では春・秋・冬では30%以下であった。

表 11 IB・MC が1を超えたレコード数の比率

地域	季節	IB	MC	地域	季節	IB	MC
		%				%	
地域1	春	24.2	36.2	地域3	春	26.3	52.8
	夏	50.4	49.3		夏	50.5	62.2
	秋	21.5	36.2		秋	27.3	61.3
	冬	18.3	52.1		冬	19.8	73.4
地域2	春	30.3	54.1	地域4	春	18.9	46.8
	夏	54.5	70.4		夏	44.3	57.3
	秋	32.6	51.9		秋	28.0	47.4
	冬	28.4	63.8		冬	23.3	60.6
BG	春	40.2	24.9	道路	春	23.7	56.7
	夏	67.8	46.1	夏	40.0	68.6	
	秋	41.5	24.0	秋	26.4	56.2	
	冬	36.3	33.7	冬	25.2	71.4	

MCについて1を超えているレコードは、夏・冬と比較して春・秋は小さくなる傾向にあった。地点分類別には、MCが1を超えるレコードは一般・沿道と比較して、BGは小さくなる傾向にあった。BGは2)(3)で考察した通り、マスキロージャーモデルでの質量濃度推定値の計算式で係数の大きい炭素成分の比率が他の測定局よりも小さいためにMCが1を超えるレコードが少なかったものと考えられた。

#### IV まとめ

全国で最近実施されたPM<sub>2.5</sub>の成分分析結果の統計的な解析を行った。大まかな分布範囲の傾向として、全体の中央部分に含まれる測定結果・計算結果の範囲及び季節や地点分類の別による平均値の大きさの順序について表12のとおりまとめられた。

表 12 主要成分の比率の分布及び平均値の大きさの順序

対象項目	中央部分の範囲	季節別	地点分類別
質量濃度	(6.0~13.1) µg/m <sup>3</sup>	春 > 夏 > 冬 > 秋	道路 > 一般 > BG
アニオンがイオン成分全体に占める比率	(70.1~72.9) %	冬 > 夏 > 春 > 秋	BG > 一般 > 道路
主要3種のみが無機元素全体に占める比率	(65.0~80.2) %	夏 > 秋 > 冬 > 春	BG > 道路 > 一般
主要5種のみが無機元素全体に占める比率	(88.6~95.5) %	(春, 冬) > 秋 > 夏	BG > (一般, 道路)
有機炭素が炭素成分全体に占める比率	(75.4~84.8) %	夏 > 春 > 秋 > 冬	BG > 一般 > 道路
イオン成分が質量濃度に占める比率	(33.6~52.5) %	冬 > 夏 > 春 > 秋	BG > 一般 > 道路
無機元素が質量濃度に占める比率	(2.4~5.0) %	秋 > 冬 > 春 > 夏	道路 > 一般 > BG
炭素成分が質量濃度に占める比率	(25.2~41.0) %	秋 > 夏 > 春 > 冬	道路 > 一般 > BG
IB	0.91~1.02	夏 > 冬 > 秋 > 春	BG > 一般 > 道路
MC	0.93~1.11	冬 > 夏 > 秋 > 春	道路 > 一般 > BG

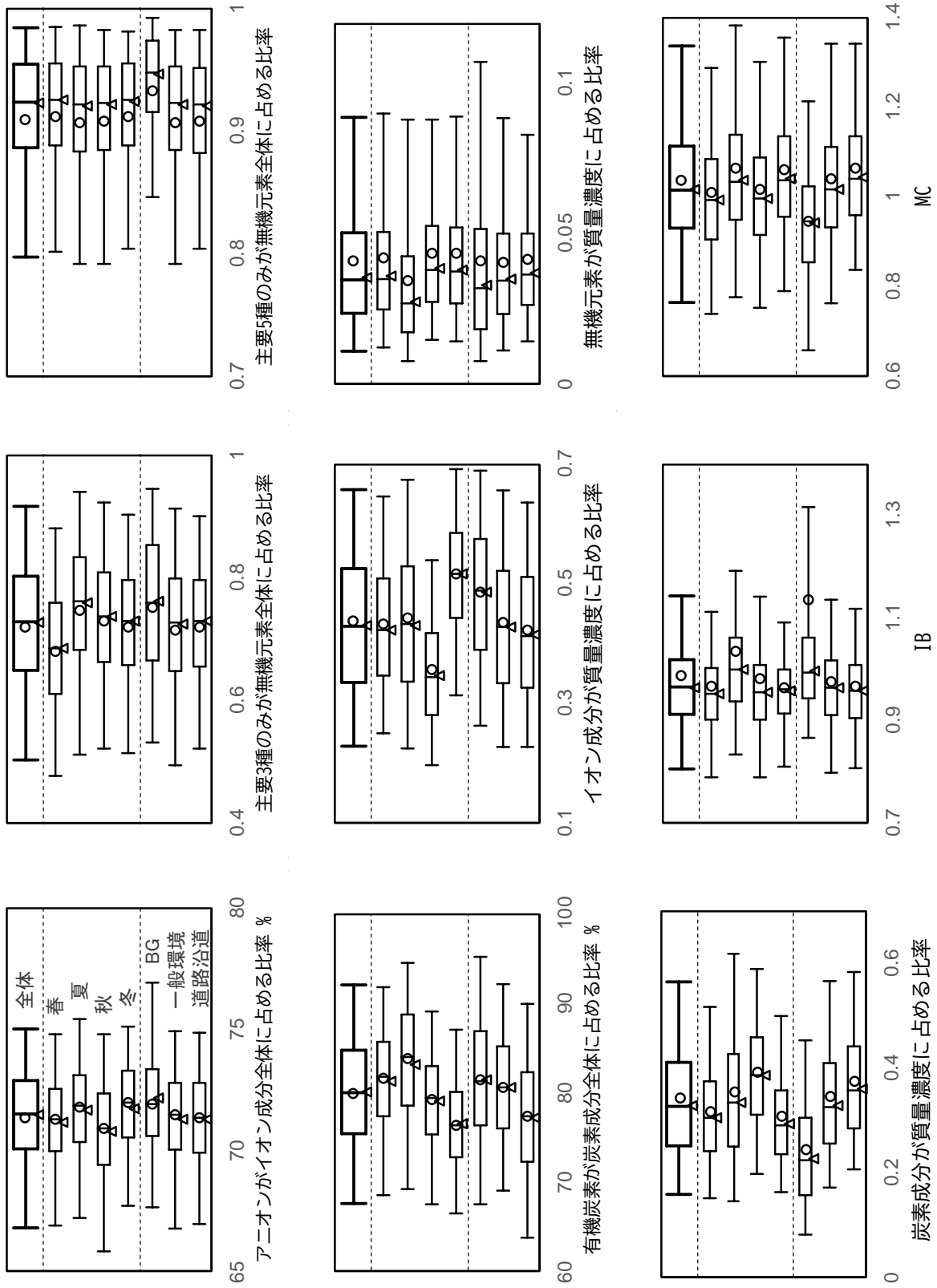


図 A1 各計算結果の分布

## 参考文献

- 1) 環大企 27 号 (昭和 47 年 02 月 14 日) 『浮遊粒子状物質に係る環境基準の設定について』  
<https://www.env.go.jp/hourei/01/000065.html>
- 2) 環水大総発第 090909001 号 (平成 21 年 9 月 9 日) 『微小粒子状物質による大気汚染に係る環境基準について (通知)』  
<https://www.env.go.jp/content/900479267.pdf>
- 3) 微小粒子状物質 (PM<sub>2.5</sub>) の環境基準設定に伴う「大気汚染防止法第 22 条の規定に基づく大気汚染の状況の常時監視に関する事務の処理基準」改正の基本的な考え方  
<https://www.env.go.jp/content/900402449.pdf>
- 4) 『微小粒子状物質 (PM<sub>2.5</sub>) の成分分析ガイドライン』  
<https://www.env.go.jp/content/900403675.pdf>
- 5) 環水大発第 110729001 号 (平成 23 年 7 月 29 日) 「微小粒子状物質 (PM<sub>2.5</sub>) の成分分析ガイドライン」について  
<https://www.env.go.jp/air/osen/pm/ca/110729.html>
- 6) 前田卓磨, 土肥正敬, 田中雄規. 長崎県における微小粒子状物質 (PM<sub>2.5</sub>) の成分濃度の特徴について. 全国環境研会誌 2022; **47**(1): 25-30.
- 7) 中込和徳, 町田哲, 掛川英男. 長野市における 2020 年夏季の PM<sub>2.5</sub> 成分調査結果—西之島噴煙及び花火の影響事例—. 全国環境研会誌 2022; **47**(4): 27-31.
- 8) 仙本清孝, 大前多佳子, 竹内由香理, 佐々木珠生, 花木陽子. 広島市における PM<sub>2.5</sub> 無機成分分析調査結果(2021～2023 年度). 全国環境研会誌 2025; **50**(2): 17-22.
- 9) 吉川弓林, 太田栞, 菱沼早樹子, 佐久間隆, 天野直哉, 大熊一也 他. 宮城県における PM<sub>2.5</sub> 中のレボグルコサンと有機酸の解析. 宮城県保健環境センター年報 2022; **40**: 49-54.
- 10) 熊谷貴美代, 小池有理子, 齊藤由倫. 群馬県における PM<sub>2.5</sub> 成分の経年変化. 群馬県衛生環境研究所年報 2024; **56**: 42-46.
- 11) 太田聡, 河本公威, 宮田朋子, 石田恒巳, 山口麻美, 牧野雅英 他. 石川県における PM<sub>2.5</sub> の発生源について -PAHs を含む成分組成を用いた発生源解析-. 石川県保健環境センター業務年報 2024; **61**: 18-23.
- 12) 岩井直樹, 酒井忠彰. 福井県における PM<sub>2.5</sub> 成分の分布と特徴. 福井県衛生環境研究センター年報 2021; **20**: 43-50.
- 13) 小川知也, 野村茂, 大月史彦, 畝山善光, 森寛史. 岡山県における PM<sub>2.5</sub> 高濃度事象の要因について. 岡山県環境保健センター年報 2023; **47**: 1-4.
- 14) 森寛史, 野村茂, 仲敦史, 畝山善光, 小川知也. 岡山県における PM<sub>2.5</sub> 高濃度事象に関する研究 (第 2 報). 岡山県環境保健センター年報 2024; **48**: 1-6.
- 15) 本田雄一, 勝間孝, 大島千尋, 佐々木一貴. 香川県における PM<sub>2.5</sub> 大気環境調査について (Ⅷ). 香川県環境保健研究センター所報 2024; **23**: 46-51.
- 16) 清水友樹, 徳永友貴, 那須雄太, 堀内裕章, 兵頭孝次, 泉喜子 他. 愛媛県内における PM<sub>2.5</sub> の経年変化及び船舶燃料油環境規制の影響. 愛媛県立衛生環境研究所年報 2021; **24**: 37-43.
- 17) 仙本清孝, 鹿渡正美, 小川秋奈, 竹内由香理, 宮野高光, 佐々木珠生 他. 微小粒子状物質成分調査結果 (第 2 報). 広島市衛生研究所年報 2022; **41**: 32-41.
- 18) 井料良輔, 山元広大, 縄手雅宗, 長野旬一. 奄美地域における PM<sub>2.5</sub> の発生源解析に関する調査研究 (第 I 報). 鹿児島県環境保健センター所報 2024; **25**: 44-50.
- 19) 田崎盛也, 城間朝彰, 野波秀行, 前田美奈子. 沖縄県における PM<sub>2.5</sub> 発生源寄与解析について (2017 年度—2020 年度). 沖縄県衛生環境研究所所報 2022; **56**: 40-46.
- 20) 田崎盛也, 城間朝彰, 野波秀行, 前田美奈子. PM<sub>2.5</sub> 発生源推定に係る統計的流跡線解析を用いた PMF 解析結果の検証. 沖縄県衛生環境研究所所報 2023; **57**: 39-43.
- 21) 原田千恵, 神崎剛志, 藤原基, 坂口美鈴, 近藤芳樹. 熊本市における微小粒子状物質 (PM<sub>2.5</sub>) の成分分析結果について (令和 5 年度(2023 年度)). 熊本市環境総合センター年報 2024; **31**: 31-48.
- 22) 赤間博光, 伊勢里美, 佐藤皓, 相田英輝, 庄司岳志, 山田信之. 仙台市における大気中微小粒

- 子状物質 (PM2.5) 成分調査 一令和 5 年度調査結果報告一. 仙台市衛生研究所報 2024; **53**: 80-88.
- 23) 大谷寿一, 佐々木貞幸, 小池静司, 平野真弘, 齋藤由実子. 令和 5(2023 年度) PM2.5 大気環境調査結果. 栃木県保健環境センター年報 2024; **29**: 48-54.
- 24) 豊田雄一郎, 石井克巳, 堀本泰秀, 高橋洋平, 押尾秀. 微小粒子状物質 (PM2.5) 成分分析調査 (2023 年度). 千葉県環境研究センター年報 2024; **23**: 32-37.
- 25) 鈴木義浩, 沼田和也, 野村あづみ, 小林勉, 喜内博子. 川崎市における微小粒子状物質 (PM2.5) の成分組成 (2023 年度). 川崎市環境総合研究所年報 2024; **12**: 12-22.
- 26) 村上友規, 志村優介, 高林愛, 浦西克維, 杉本恭利. 2022 年度における微小粒子状物質 (PM2.5) 成分分析調査結果について. 奈良県景観・環境総合センター研究報告 2025; **11**: 29-32.
- 27) 堤清香, 横田哲朗, 前田卓磨. 長崎県における微小粒子状物質(PM2.5) 成分分析調査 (2023 年度). 長崎県環境保健研究センター所報 2024; **69**: 50-53.
- 28) 甲斐太郎, 河村勇祐, 河野友彰, 河野公亮, 安井玉樹, 山下佳史. 大分県における PM2.5 の特徴と発生源由来等の推定について. 大分県衛生環境研究センター年報 2024; **51**: 65-80.
- 29) 微小粒子状物質 (PM2.5) の質量濃度及び成分測定 (手分析) 結果  
<https://www.env.go.jp/air/osen/pm/monitoring.html>
- 30) 微小粒子状物質の成分分析 | 大気中微小粒子状物質 (PM2.5) 成分測定マニュアル  
<https://www.env.go.jp/air/osen/pm/ca/manual.html>
- 31) 国土地理院 VECTOR  
<https://maps.gsi.go.jp/vector/#4/38/135/&ls=vblank&disp=1&d=1>
- 32) Onghena, P. (2018). Randomization tests or permutation tests? A historical and terminological clarification. In V. Berger (Ed.), Randomization, masking, and allocation concealment (pp. 209 - 227). Boca Raton/FL: Chapman & Hall/CRC Press.
- (WEB サイトの内容は 2025 年 9 月 1 日に確認した)