

## 4) PMF モデルを用いた熊本県における PM<sub>2.5</sub> の発生源寄与解析

小原 大翼 山本 裕典 豊永 悟史\*1 出納 由美子\*2 松崎 達哉\*3

### 要 旨

県内の PM<sub>2.5</sub> の大気汚染状況と汚染要因の把握を目的として、2013～2016 年度の県内 7 地点（水道町、神水、城南、宇土、荒尾、益城、天明）及び遠隔地である長崎県の五島、対馬（以下、「離島」という。）2 地点における PM<sub>2.5</sub> 成分調査結果を用いた解析を行った。

PMF 法を用いて PM<sub>2.5</sub> の発生源の推定を行った結果、県内では「2 次生成硫酸塩」や自動車と 2 次生成有機炭素の影響を主に示す「炭素性エアロゾル」の 2 つの因子の影響が大きく、いずれの地点においても両因子の合計で 60～80% の寄与率を示していた。また、離島との比較から、「2 次生成硫酸塩」は主に越境汚染に由来し、「炭素性エアロゾル」は主に地域汚染に由来していることが示唆された。この傾向は経年的にも変わらず、県内は越境汚染に加えて、自動車等による地域汚染の影響を受けていることが明らかとなった。

**キーワード：微小粒子状物質（PM<sub>2.5</sub>），PMF 法，越境移流，地域汚染**

#### はじめに

2009 年 9 月に微小粒子状物質（以下、「PM<sub>2.5</sub>」という。）の大気環境基準が設定されたことを契機に、熊本県では、2012 年度より PM<sub>2.5</sub> 濃度の自動測定を開始した。また、PM<sub>2.5</sub> の汚染要因を明らかにし、削減対策に生かすことを目的とした PM<sub>2.5</sub> 成分濃度調査が全国的に実施されており、熊本県でも 2013 年度より調査を開始した。

山本ら（2018）<sup>1)</sup> は、2014～2016 年度における県内の大気汚染常時監視測定局で観測された PM<sub>2.5</sub> 質量濃度を解析し、県内の PM<sub>2.5</sub> 質量濃度は経年的に減少傾向にあることを報告している。この減少は全国的な傾向であり、中国において大気汚染対策が進んでいることを反映していると考えられている<sup>12)</sup>。

豊永ら（2014）<sup>13)</sup> は 2014 年度までの熊本県内 5 地点と長崎県の離島 2 地点の PM<sub>2.5</sub> 成分濃度を比較し、越境汚染と地域汚染が複合的に影響していたことを報告している。また、豊永ら（2017）<sup>4)</sup> は Positive Matrix

Factorization (PMF) 法を用いた発生源解析により、熊本県内の主要な地域内発生源として道路交通の影響を指摘している。さらに、PM<sub>2.5</sub> 濃度の経年的な変動が主に越境汚染の影響で生じている可能性にも言及しており、今後の経年変化を注視する必要性についても指摘している。<sup>4)</sup>

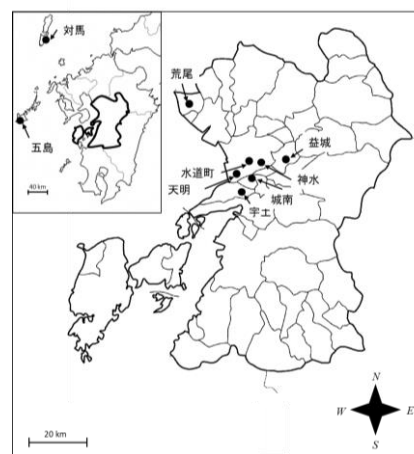


図 1 調査地点

\*1 現阿蘇地域振興局保健福祉環境部

\*2 現（公財）熊本県環境整備事業団

\*3 現環境生活部環境保全課

表1 調査地点, 期間, 分析項目の概要

調査実施主体	地点名	測定局名・地点情報	調査期間 (2013年度) <sup>*1,2</sup>	調査期間 (2014年度) <sup>*1,2</sup>	調査期間 (2015年度) <sup>*1,2</sup>	調査期間 (2016年度) <sup>*1,2</sup>	分析項目	
熊本県	宇土	宇土運動公園局 緯度 32.68472 経度 130.66444	夏季7月30日~8月13日 秋季10月23日~11月6日 冬季1月22日~2月5日	春季5月8日~21日 夏季7月23日~8月5日 秋季10月22日~11月4日 冬季1月21日~2月3日	春季5月7日~20日 夏季7月22日~8月4日 秋季10月21日~11月3日 冬季1月20日~2月2日	春季5月6日~19日 夏季7月21日~8月3日 秋季10月20日~11月2日 冬季1月19日~2月1日	【イオン】 Na <sup>+</sup> , Mg <sup>2+</sup> , K <sup>+</sup> , Ca <sup>2+</sup> , NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> , SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> , NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> , Cl <sup>-</sup> 【無機元素】	
	荒尾	荒尾運動公園局 緯度 32.980655 経度 130.46722		春季5月7日~20日 夏季7月22日~8月4日 秋季10月21日~11月3日 冬季1月20日~2月2日	春季5月6日~19日 夏季7月21日~8月3日 秋季10月20日~11月2日 冬季1月19日~2月1日	【無機元素】 Na, Al, K, Ca, 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, Cd, Be 【炭素成分】 OC, EC		
	益城	益城町役場局 緯度 32.79066 経度 130.81833	夏季7月30日~8月13日 秋季10月23日~11月6日 冬季1月22日~2月5日	春季5月8日~21日 夏季7月23日~8月6日 秋季10月22日~11月6日 冬季1月21日~2月3日				
熊本市	神水	神水本町自排局 緯度 32.79066 経度 130.81833		春季5月8日~21日 夏季7月23日~8月5日 秋季10月22日~11月4日 冬季1月21日~2月3日	春季5月7日~21日 夏季7月22日~24日、27日~8月6日 秋季10月21日~11月3日 冬季1月20日~2月2日			
	水道町	水道町自排局 緯度 32.80417 経度 130.71417		春季5月8日~21日 夏季7月23日~8月5日 秋季10月22日~11月4日 冬季1月21日~2月3日	春季5月7日~20日 夏季7月22日~24日、27日~8月6日 秋季10月21日~11月3日 冬季1月20日~2月2日	夏季7月21日~8月3日 秋季10月20日~11月2日 冬季1月19日~2月1日	【イオン】 Na <sup>+</sup> , Mg <sup>2+</sup> , K <sup>+</sup> , Ca <sup>2+</sup> , NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> , SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> , NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> , Cl <sup>-</sup> 【無機元素】 Na, Al, K, Ca, Sc, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, As, Se, Mo, Sb, Ba, Th, Pb, Cd, Ba, Mg, Ag, Ti, U 【炭素成分】 OC, EC	
	天明	天明局 緯度 32.73306 経度 130.63444		春季5月10日~26日 夏季7月23日~8月5日 秋季10月22日~11月10日 冬季1月26日~2月8日				
	城南	城南局 緯度 32.72611 経度 130.71388			春季5月7日~21日 夏季7月22日~24日、27日~8月6日 秋季10月21日~11月3日 冬季1月20日~2月4日	夏季7月21日~8月3日 秋季10月20日~11月2日 冬季1月19日~2月1日		
環境省	五島	国設五島酸性雨測定局 緯度 32.60640 経度 129.65700	夏季7月25日~8月8日 秋季10月23日~11月6日 冬季1月22日~2月5日	春季5月8日~21日 夏季7月23日~8月5日 秋季10月22日~11月4日 冬季1月21日~2月3日	春季5月7日~20日 夏季7月22日~8月4日 秋季10月21日~11月3日 冬季1月20日~23日、26日~2月4日	春季5月6日~19日 夏季7月21日~8月3日 秋季10月20日~11月2日 冬季1月19日~2月1日	【イオン】 Na <sup>+</sup> , Mg <sup>2+</sup> , K <sup>+</sup> , Ca <sup>2+</sup> , NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> , SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> , NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> , Cl <sup>-</sup> 【無機元素】 Na, Al, Si, K, Ca, 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 【炭素成分】 OC, EC	
	対馬	国設対馬酸性雨測定局 緯度 34.24170 経度 129.29600	夏季7月25日~8月8日 秋季10月23日~11月6日 冬季1月22日~2月5日	春季5月8日~21日 夏季7月23日~8月5日 秋季10月22日~11月4日 冬季1月22日~2月4日	春季5月7日~20日 夏季7月22日~8月4日 秋季10月21日~11月3日 冬季1月20日~2月2日	春季5月6日~19日 夏季7月21日~8月3日 秋季10月20日~11月2日 冬季1月19日~2月1日	【炭素成分】 OC, EC	
	同一期間		夏季7月30日~8月13日 秋季10月23日~11月6日 冬季1月22日~2月5日	春季5月8日~21日 夏季7月23日~8月5日 秋季10月22日~11月4日 冬季1月21日~2月3日	春季5月7日~20日 夏季7月22日~8月4日 秋季10月21日~11月3日 冬季1月20日~2月2日	春季5月6日~19日 夏季7月21日~8月3日 秋季10月20日~11月2日 冬季1月19日~2月1日		

\*1 採取時間: 宇土と益城は10:00~翌0:00, 荒尾は12:00~翌3:00, 神水は10:00~翌10:00, 五島と対馬は10:00~翌9:30  
\*2 採取期間の日付は試料採取開始日を表示している

本研究では、2013~2016年度のPM<sub>2.5</sub>成分測定結果にPMF法を適用し、熊本県内におけるPM<sub>2.5</sub>の主要発生源を明らかにすることを試みた。特に、これまでに十分な検討が行われていない発生源寄与の経年変化についても解析を試みた。

## 調査方法

### 1 調査地点及び調査項目

図1に調査地点の位置関係、表1に調査地点、期間、分析項目の概要をそれぞれ示した。解析対象は、熊本県内の7地点(宇土運動公園局, 益城町役場局, 荒尾運動公園局, 神水本町自排局, 水道町自排局, 城南町局, 天明局; 以下それぞれ「宇土」, 「益城」, 「荒尾」, 「神水」, 「水道町」, 「城南」, 「天明」という。)に加えて、越境移流と地域汚染の影響を比較するために、長崎県の離島2地点(国設五島酸性雨測定局, 国設対馬酸性雨測定局; 以下それぞれ「五島」, 「対馬」という)とした。

### 2 解析方法

解析には、成分データをもとに発生源寄与をする手

法として広く用いられているPMF(Positive Matrix Factorization)法を使用した<sup>15)</sup>。PMF解析に使用した宇土, 益城, 荒尾, 水道町, 神水, 天明, 城南, 対馬, 五島の9地点の成分データのうち、宇土, 対馬, 五島については、2013~2016年度、神水は2014~2015年度、益城は2013~2014年度、水道町は2014年度~2016年度、荒尾, 城南は2015年度~2016年度、天明は2014年度のデータを使用し<sup>2)</sup>、これらを一つのデータセット(N=1,253)として解析を行った。なお、PM<sub>2.5</sub>質量濃度が欠測だった日やイオン成分等が欠測だった日は原則として解析対象から除外し、年度ごとに全ての調査地点で調査が行われていた共通の期間を「同一期間」と定義した(表1)。

### 3-1 解析条件

解析には米国環境保護庁のEPA-PMF5.0<sup>3)</sup>を使用した。解析条件は豊永ら<sup>4)</sup>に従い次の手順で検討を行った。宇土, 益城, 荒尾, 水道町, 神水, 天明, 城南, 対馬, 五島の全地点で測定を行っているPM<sub>2.5</sub>成分について、検出下限値未満の値は下限値の1/2を、欠測値については中央値を代入した。検出下限値は地点ご

と、季節ごとに異なっているが、ここでは成分ごとに検出下限値の最大値を使用した。また、誤差は一律15%とした。

各成分の重みづけ (Strong, Weak, Bad) については、マニュアルや既往研究で多く用いられている S/N 比と検出下限値未満の割合に基づき、調整を行った<sup>14)</sup>。S/N 比については、原則として  $1 < S/N$  の成分は Strong、 $0.5 \leq S/N < 1$  の成分は Weak、 $S/N < 0.5$  の成分は Bad とした。

有効データ数 (下限値未満等を除いたデータ数) が 1 地点でも全体調査期間の 30% 以下の場合には Bad に設定したが、 $Ca^{2+}$ 、 $Cl^-$ 、 $Ni$ 、 $Sb$  は指標性を重視して、Weak に設定した。また、イオンと無機元素で重複する成分については、イオンを解析対象とし、無機元素は Bad に設定した。

さらにデータの再現性を予測値と実測値の  $R^2$  値より判断し、再現性の悪い成分 ( $R^2 < 0.5$ ) については重みづけを Weak にした。加えて、 $K^+$  は 2013 年度冬季の高濃度イベント時の高値により、また  $Pb$  は宇土のみでの高値により、Strong に設定するとモデル全体の当てはまりが悪くなると判断されたため、Weak に設定した。

最終的に解析を行った重みづけ条件を以下に示す (Bad は省略)。

Strong :  $NO_3^-$ 、 $SO_4^{2-}$ 、 $Na^+$ 、 $NH_4^+$ 、 $Mg^{2+}$ 、 $Al$ 、 $V$ 、 $Mn$ 、 $Fe$ 、 $As$ 、 $Ba$ 、 $OC$  (有機炭素)、 $EC$  (元素状炭素)

Weak :  $PM_{2.5}$  (Total Variable)、 $Cl^-$ 、 $K^+$ 、 $Ca^{2+}$ 、 $Ni$ 、 $Zn$ 、 $Se$ 、 $Sb$ 、 $Pb$

### 3-2 因子数

因子数の検討は主に Q 値を用いて行った。Q 値の変化から、最適な因子数は 4~8 の範囲に存在すると推測されたが、因子数 4 では  $Q_{robust}$ 、 $Q_{true}$  の相対標準偏差 (RSD%) が大きく適さないと考えられ、因子数 5~6 では、2 次生成硫酸塩因子と石油燃焼因子が分離できず、因子数 8 では合理的な解釈が難しい因子が分離されたため、最終的には因子数 7 を選択した。

## 結果及び考察

### 1 $PM_{2.5}$ 成分濃度

図 2 に、調査地点ごとの同一期間における各成分の平均濃度を示した。なお、表 1 に示すとおり、各年度で調査を実施している地点が異なっていることには注意が必要である。 $PM_{2.5}$  質量濃度と測定した  $PM_{2.5}$  成分濃度の合計値の差は不明分として示している。なお、

無機元素については、イオンと重複している成分 ( $Na$ 、 $Ca$ 、 $K$ ) を除外し、全地点で測定している  $Al$ 、 $Sc$ 、 $V$ 、 $Cr$ 、 $Mn$ 、 $Fe$ 、 $Co$ 、 $Ni$ 、 $Cu$ 、 $Zn$ 、 $As$ 、 $Se$ 、 $Mo$ 、 $Sb$ 、 $Ba$ 、 $Pb$  の値を用いた。いずれの地点でも  $PM_{2.5}$  質量濃度へ占める割合が大きい成分は  $NO_3^-$ 、 $SO_4^{2-}$ 、 $NH_4^+$ 、 $OC$ 、 $EC$  であった。濃度については、 $SO_4^{2-}$  が全調査地点でほぼ同程度であることに対して、 $NO_3^-$ 、 $OC$ 、 $EC$  は県内 7 地点の方が離島より高い傾向が見られた。

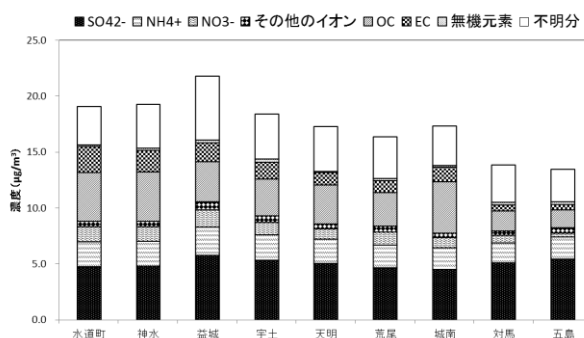


図 2 同一期間における各成分の平均濃度

### 2 因子の解釈

PMF 法により得られた因子プロファイルを図 3 に示した。各因子 (F1~F7) の指標成分と解釈は次の通りである。なお、図 3 中の「濃度」とは、各因子における個々の成分を質量濃度で表示したもので、「配分」とは、個々の成分が各因子で説明される割合であり、すべての因子の合計は 100% となる。

#### F1: 海塩 (クロリンロス) ( $Na^+$ 、 $Mg^{2+}$ )

$Na^+$ 、 $Mg^{2+}$  などの海水に多く含まれる成分の相対比が大きいが、 $Cl^-$  の相対比が小さく  $Cl^-/Na^+ = 0.08$  (当量比) と低いことから、クロリンロスした海塩由来の影響を示す因子と解釈した。<sup>8,9)</sup>

#### F2: 石炭燃焼+バイオマス燃焼 ( $As$ 、 $Pb$ 、 $K^+$ )

$As$ 、 $Se$ 、 $Pb$  は石炭燃焼の指標、 $K^+$  はバイオマス燃焼の指標とされている。この因子ではこれらの成分の相対比が高いことから、石炭燃焼とバイオマス燃焼由来の影響を示す因子と解釈した。

#### F3: 2 次生成硝酸塩+塩化物 ( $NO_3^-$ 、 $Cl^-$ )

$NO_3^-$  と  $Cl^-$  の相対比が大きい因子であり、両成分に共通する半揮発性という性質の影響を示す因子と考えられ、必ずしも単一の発生源と対応するものではない因子と考えられる。

#### F4: 石油燃焼 ( $V$ 、 $Ni$ )

$V$ 、 $Ni$  は石油や重油燃焼の指標となる成分であり、船舶や工場における石油燃焼の影響を示す因子と解釈した。また、 $Ni/V$  比 (重量比) が 0.32 と船舶由来の排出の値に近いことから、離島付近を航行する船舶の影響が強い因子と推測される<sup>5,7)</sup>。

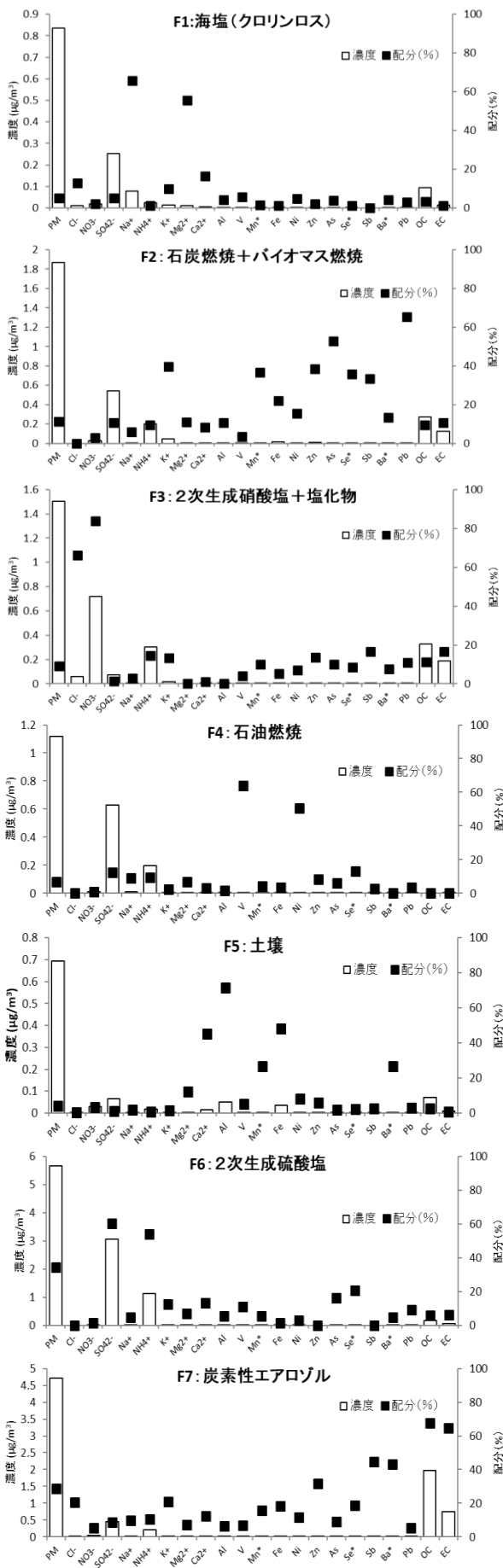


図3 PMF解析により推定したプロファイル

**F5：土壌 (Al, Fe, Ca<sup>2+</sup>, Mn)**

Al, Fe, Ca<sup>2+</sup>, Mn はいずれも土壌の指標成分であり、これらの相対比が高いことから土壌粒子の寄与を示す因子と解釈した。

**F6：2次生成硫酸塩 (SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>)**

越境移流の指標となる SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の相対比が高いことから、主に越境移流によってもたらされた燃焼由来の粒子の影響を示す因子と解釈した。

**F7：炭素性エアロゾル (EC, OC, Sb, Ba)**

自動車排ガスの指標成分とされる EC, 道路粉塵やブレーキダストの指標とされる Sb, Ba の相対比が高いことから、自動車などの交通活動の影響を示す因子と考えられる。これは3-3で述べるように因子寄与濃度が自排局>一般局>離島となる傾向からも支持される。さらに、この因子の OC/EC 比 (重量比) は 2.7 であり、自動車排ガスの直接的影響を受けた場合の値 (一般的に 1 程度あるいは 1>) よりもかなり高い値と言える<sup>5,10)</sup>。これは、この因子に自動車からの 1 次排出の影響だけではなく 2 次生成由来の有機物の影響が含まれているためである<sup>11)</sup>。以上の検討から、この因子を炭素成分の影響を主に示す因子とし解釈した。

**3 因子寄与の地点間比較**

図4に2013~2016年度における同一期間平均の各地点の因子寄与濃度を示した。なお、繰り返しになるが、表1に示すとおり、各年度で調査を実施している地点が異なっていることには注意が必要である。対馬と五島では2次生成硫酸塩因子の寄与率が最も大きい。県内では2次生成硫酸塩因子に加えて炭素性エアロゾル因子の寄与率も高く、さらに炭素性エアロゾル因子については、自排局が一般局よりも高い傾向が見られた。これらの2因子で県内5地点の因子寄与割合の60~80%程度を占めており、主要な汚染要因であると推定された。また、2次生成硝酸塩+塩化物因子についても県内の寄与割合は8~14%程度とそこまで大きくないものの、県内>離島となる傾向が明確であり、PM<sub>2.5</sub>質量濃度が県内>離島となる要因の一つと考えられた。抽出された7因子のうち、2次生成硫酸塩因子と炭素性エアロゾル因子は、過去の研究結果<sup>11)</sup>なども踏まえると、前者は主に越境汚染、後者は主に地域汚染の影響と推測された。

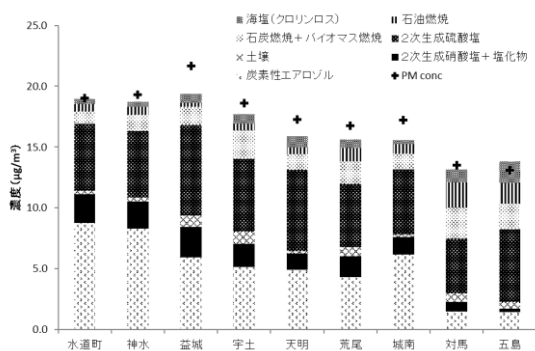


図4 同一期間における地点別平均因子寄与濃度

#### 4 因子寄与濃度の経年変化

年度による汚染状況の違いを把握するため、2013～2016年度のデータが存在する宇土、対馬、五島の3地点について、各PMF因子寄与濃度の比較を行った。なお、2013年度については夏季～冬季の3季節のデータとなっている(表1)。図5に2013～2016年度の同一期間平均の各地点における因子寄与濃度を示した。各年度のPM<sub>2.5</sub>質量濃度を見ると、2013年度は相対的に高濃度の期間のデータと考えられる。各地点の因子寄与割合についてみると、2014～2016年度については、寄与割合の違いは小さかったが、これら3年度と2013年度を比較すると、2013年度の2次生成硫酸塩因子の寄与割合が特に離島で2割程度高い傾向が見られた。2013年度のPM<sub>2.5</sub>質量濃度は他の年度と比べて濃度自体が高く、かつ2次生成硫酸塩因子の割合が高いことから、2013年度の調査期間は越境移流の影響を強く受けていたと考えられる。

2013～2016年度の4年間で見ると、県内1地点(宇土)の主要な因子は炭素性エアロゾル因子と2次生成硫酸塩因子であり、これらで約6割を占めていた。また、離島における主要な因子は2次生成硫酸塩因子であり、この因子が支配的である点も4年間で一致していた。

以上の結果は年度による汚染状況の違いにかかわらず、県内では地域汚染が主と考えられる炭素性エアロゾル因子の影響が無視できないことを示している。

また、PM<sub>2.5</sub>の汚染状況は今後も年度により大きく変化すると考えられるため、今後も経年変化を注視していく必要がある。

#### まとめ

2013～2016年度における県内7地点(水道町, 神水, 城南, 宇土, 荒尾, 益城, 天明)と長崎県の離島2地点(五島, 対馬)において、PMF法による地域発生寄与割合と県内の主要発生源の推定を行った。

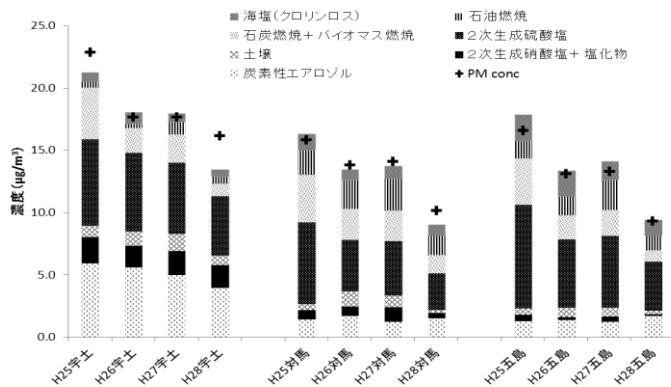


図5 2013～2016年度における測定成分の地点別平均濃

統計的に発生源寄与率を推定するPMF法による解析の結果、「2次生成硝酸塩+塩化物」、「炭素性エアロゾル」、「石炭燃焼+バイオマス燃焼」、「石油燃焼」、「2次生成硫酸塩」、「海塩」、「土壌」の7つの因子に起因する発生源の影響が推定された。

これらのうち、主に越境汚染に由来する2次生成硫酸塩因子及び主に地域汚染に由来する炭素性エアロゾル因子の影響が大きく、県内各地点において60～80%程度の寄与率を示していた。

#### 文献

1. 山本裕典, 豊永悟史, 出納由美子, 松崎達哉: 熊本県保健環境科学研究所報, 47, 56-62 (2017).
2. 飯銅和浩ら: 熊本市環境総合センター研究所報, 62-82, (2014).
3. Norris, G., Duvall, R., Brown, S. & Bai, S.: EPA Positive Matrix Factorization (PMF) 5.0 Fundamentals and User Guide. (2014).
4. Toyonaga, S. et al.: Source Apportionment of PM<sub>2.5</sub> in Kumamoto Estimated by Receptor Models: Assessing Local and Regional Contributions by Comparison with Remote Sites., J. Japan Soc. Atmos. Environ., 52, 150-165 (2017). (in Japanese)
5. Waked, A. et al.: Source apportionment of PM<sub>10</sub> in a north-western Europe regional urban background site (Lens, France) using positive matrix factorization and including primary biogenic emissions., Atmos. Chem. Phys., 14, 3325-3346 (2014).
6. Heo, J., Hopke, P. K. & Yi, S. M.: Source apportionment of PM<sub>2.5</sub> in Seoul, Korea. Atmos. Chem. Phys., 9, 4957-4971 (2009).
7. Bressi, M. et al.: Sources and geographical origins of fine aerosols in Paris (France)., Atmos. Chem. Phys., 14, 8813-8839 (2014).
8. Pio, C. A. & Lopes, D.: A Chlorine loss from marine

- aerosol in a coastal atmosphere., *J. Geophys. Res.*, **103**, 25263 (1998).
9. Hatakeyama, S. : Aerial observation of aerosols transported from East Asia - Chemical composition of aerosols and layered structure of an air mass over the East China Sea., *Aerosol Air Qual. Res.* , **11**, 497–507 (2011).
  10. 飯島明宏, 池盛文数, 長谷川就一, 菅田誠治 : 大気環境学会年会 講演要旨集, **55**, 295 (2014).
  11. Toyonaga, S. et al. : Source Apportionment of PM<sub>2.5</sub> in Kumamoto Estimated by Receptor Models : Assessing Local and Regional Contributions by Comparison with Remote Sites, *J. Japan Soc. Atmos. Environ.*, **52** (5), 150-165 (2017).
  12. Uno, I. et al. : Is PM<sub>2.5</sub> Trans-boundary Environmental Problem in Japan dramatically improving., *J. Japan Soc. Atmos. Environ.*, **52** (6), 177-184, (2017).
  13. 豊永悟史, 出納由美子, 北岡宏道 : 熊本県保健環境科学研究所報, **44**, 57-66 (2014).
  14. Toyonaga, S. et al. : Source apportionment of PM 2.5 in Kumamoto estimated by receptor models., *J. Japan Soc. Atmos. Environ.*, **54** (4), 139-160 (2018).
  15. Iijima, A. : A. Air Quality Model -5. Receptor Models-, *J. Japan Soc. Atmos. Environ.* , **46**, A53–A60 (2011). (in Japanese)