

オキシダント濃度の予測に関する研究

村 田 元 秀

オキシダント濃度の予測に関する研究

Studies on the prediction of oxidant
concentrations.

村田元秀

目

次

I. 序 論

II. 研究材料および研究方法

1. 研究材料

1-1 汚染物質

1-2 気象条件

2. 研究方法

2-1 説明変数の平均と標準偏差

2-2 説明変数間の相関係数

2-3 因子分析

2-4 重回帰分析

2-5 予測

2-6 計算

III. 研究成績

1. 説明変数の平均と標準偏差

2. 説明変数間の相関係数

3. 説明変数の因子分析

3-1 主成分分析

3-2 因子負荷量

3-3 因子軸の回転

3-4 因子負荷量の図示

IV. 重回帰分析

5. 予測式の検証

5-1 予測式の妥当性

5-2 予測式の精度

V. 考察

1. オキシダントの制御

— 硫酸酸化物と対比して —

2. 予測手法

V. 結論

工 序 論

大気汚染とは、事業活動その他の人の活動によって、大気の正常成分¹¹⁻⁶⁾の異常な増加や、正常大気中には存在しない成分が存在し、これら¹¹⁻⁷⁾の健康や生活環境に好しくない影響¹¹⁻⁸⁾を与え、あるいは与える恐れがある状態を言う¹¹⁻⁸⁾ものとされている。

現象としての大気汚染は、人類の歴史とともにある^{11-7), 9), 10)}。といっても過言ではないが、エネルギー源としての燃料が、薪や炭のようなものから、固形の化石燃料である石炭に変わり、次で、化石燃料ではあるが、液体燃料である石油へと移るのに伴って、問題が複雑になり、その規模が拡大してきている。

水が国において、大気汚染が社会問題となつたのは、明治以降の工業の近代化以来¹¹⁾のことである。特に、第二次大戦以後の問題は、いわゆる経済の高度成長に必要な莫大なエネルギーを石油系燃料に求めたところから起因している。

石油は、一部に異論はあるが、古代水産生物の分解生成物¹²⁾とされている。したがって、その成分中には、当然生体を構成していた元素として、炭素、水素、酸素、窒素、硫黄、燐などが含まれている。そこで、これを燃焼してエネルギー源として使用すると、二酸化硫黄や三酸化硫黄などの硫黄酸化物や一酸化窒素や二酸化窒素などの窒素酸化物などが二酸化炭素や水とともに大気中に排出されてくる。問題の重要性が十分認識されていなかった昭和30年代においては、硫黄分の含量の多い重油を主たるエネルギー源として、生産設備の新設や規模の拡大を行ったので、その影響が全国的な規模で問題となったことは、ばい煙規制法の制定から大気汚染防止法への移行、さらにばい煙規制の実施へと進みざるを得なかった経緯をみても明らかである。

しかしながら、これら一連の法規制の強化と、排煙脱硫技術などの防除技術の実用化によって、硫黄酸化物による大気汚染には、著

しい改善がみられるに至っている¹³⁾。

そして、硫酸化合物に代って、新たに登場してまたのが、光化学反応による大気汚染である。

光化学反応による大気汚染は、1940年代に、ロサンゼルス地区に住む人々が、晴天下で視程の悪化を伴う煙霧状のスモッグ発生時に

、眼刺激、植物被害、臭気、ゴムのひび割れなど、従来のロンドン型^{7), 10)}とは異なる新しい現象に悩まされだしたのが始まりであるとい

われている。この、いわゆるロサンゼルススモッグの原因物質は、その後の多くの研究¹⁴⁾

によつて、単一の汚染物質によるものでは無いことが確認された。即ち、図-1¹⁴⁾に示

したように、大気中の炭化水素と窒素化合物の混合物に太陽光の紫外線が作用する=とに

よつて、二次的に生成する複数の汚染物質が特殊な気象条件下でスモッグを発生させ、種

々の悪影響をもたらし=とが判明した。そして、これらの生成物質としては、オゾン、=

酸化窒素、パーオキシアセチルナイトレート
およびその同族化合物などの酸化性物質や、ホル
ムアルデヒド、アクリレインなどの還元性物
質など数多くの物質があり、大気中には二酸化
硫黄が共存すると主は、硫酸ミストも生成す
る。

光化学反応によって生成する酸化性物質の
うち、二酸化窒素を除いたものが「光化学オ
キシダント」(以下「オキシダント」という
。)と称されており、光化学反応による大気
汚染の状態を示す指標として用いられている
。そして、分析上は、中性ヨウ化カリウム溶
液を標準物質とし、この溶液中のヨウ素イオ
ンを酸化してヨウ素を遊離させるような物質
をオキシダントとすることとされている。し
たがって、主にも述べたように、オキシダ
ントは、特定の物質を示す名称ではなく、オ
ゾンを主成分とした酸化性物質の総称であるが
、通常オキシダント中のオゾンの割合は、
80ないし90%⁽⁴⁾とされている。例-2⁽⁸⁾に示

田田市地域におけるオゾンとオキシダントの
同時測定結果の一例を示した。

ところで、わが国における光化学反応によ
る大気汚染は、昭和45年7月18日東京都杉並
区にある立正高校生徒の集団被害事件が始ま
りである⁸⁸⁾といわれている。この年、東京、
千葉、埼玉および神奈川県⁸⁹⁾の各都県で12,887名の
被害者が発生した。翌46年以降、東海、近
畿、北関東など、その被害区域は拡大し、全
国的な問題となつて現在に至っている。

このように、オキシダントに代表される光
化学反応による大気汚染は、現在早急に解決
を要する大きな課題であるため、その年のオ
キシダントの最高濃度の予測を定量的に行う
ことができれば、事前制御なしは、予測体
制の確立によつて、年々20,000名を越える被害
者の発生を最少限にすることが可能であらう
と考えられる。

このように観測から、著者は、多変量解析
の手法によつて、オキシダント濃度に関する

る因子の解析、ならびにオキシダント最高濃度の定量的な予測の可能性について検討し、若干の知見を得たので報告する。

Ⅱ 研究材料および研究方法

1. 研究材料

四日市地域においては、大気汚染の常時監視として、各種自動測定機による大気汚染物質の測定が14地点で実施されている。こゝでは、汚染物質については、四日市商業高校の測定結果を、また、気象条件については、四日市測候所ならびに御在所山頂の定時観測結果と三重県環境科学センターのデータを用いた。

用いた変数としては、説明変数として、次に述べる大気汚染物質5物質と気象条件14要素を用いた。また、目的変数としては、その日のオキシダント最高濃度を用いた。

研究の対象とした期間は、光化学反応の発生しやすい5月から9月までとし、昭和49年について、以上述べた20要素の揃っている90組のデータを研究材料とした。

1-1 汚染物質

一次汚染物質としては、一酸化窒素(NO)

、二酸化窒素(NO_2)、二酸化硫黄(SO_2)、浮遊粒子状物質(DST)を用いた。時刻については、9時の測定値を用いた。この理由としては、気象データとの整合性の他に、実用段階での予測作業時間や、予測の公表時間等も考慮したためと、図-3に、その一例を示したように、海風の侵入に伴うオキシダント濃度の増加のみられる時刻であることも考慮したためである。このような観点から、9時のオキシダント測定値も、オキシダント初期値(OX)として変数に加えた。

光化学反応に関与する一次汚染物質として炭化水素を用いたのは、理由としては、四日市商業高校で測定されていることと、著者が公害センターにおいて^(測定している)汚染物質を対象に、2ヶ年に行なった研究^(90,91)において、測定法が異っていたにしても、炭化水素の濃度差が大きいことや、オキシダント最高濃度との間の相関関係が、2年目にはみとめられるようになったためである。

また、ここにも述べたように、その日のオキシダント濃度の最高値 ($OxMAX$) を、目的変数として用いた。

なお、これらの測定値は、いずれも1時間平均値であり、測定法は、大気汚染防止法に準拠して行われているが、その詳細を述べることは、本研究の趣旨ではないので省略する。

1-2. 気象条件

四日市測候所で行われている9時の定時観測データを用いることを原則とした。天気 (WEA), 視程 (VIS), 風向 (WD), 風速 (WV), 気温 (T_9), 湿度^(HUM)がそれである。また、日最高気温と日最低気温の差を気温の日較差と称し、日最低気温は5時の気温を用いるのが通例であるが、データ利用の面から、5時の気温を用いず、日最高気温 (TMX) と、6時の気温 (T_6) との差を、気温の日較差 (D_6) として用いた。さらに、日最高気温と日最高気温の平年値との差 ($DTMX$) ならびに日最低

湿度 (H_{MN}) も用いた。

一方、気象条件は、水平的な動きの他に、垂直方向での変化が大きく、この影響も無視できないので、所田市市の西方約 20 km にある標高 1,210 m の御在所山頂の 9 時の風向 (GWD) と風速 (GWV) を用いた。

日射量 (SRD) については、三重県環境科学センターで毎時測定されている日射量の 7 時から 9 時までの 3 時間平均値を用いた。

以上、説明変数として用いた気象条件は、14 変数となった。

2. 研究方法

汚染物質濃度の変数と、気象条件14変数の計19変数を説明変数とし、オキシダント最高濃度を目的変数として、次の順序で研究を行った。

2-1、説明変数の平均と標準偏差

19変数90組のデータも、オキシダント最高濃度もインデックスとして、グループ化して、それぞれの平均値とその標準偏差を求めた。

2-2 説明変数間の相関行列

各変数間のすべての組合せによる相関係数を計算し、相関行列とした。

2-3 因子分析^{92), -100)}

因子分析については、最尤法、正準因子分析、セントロイド法、主成分分析法など多くの方法が知られているが、ここでは、主成分分析法を用いて行った。また、因子軸の回転は、基準バリマックス法による直交回転を行った。

2-4. 重回帰分析.

重回帰分析の手法¹⁰⁾としては、変数選択の方法によって、変数減少法、変数増加法、これらの二者を組合せた変数増減法などがあるが、本研究では、変数増減法を用いて行った。

2-5 予測

得られた重回帰式を因子分析の結果と照合し、妥当性ならびにその精度を確認したのち昭和50年のデータについて、予測を実施した。

2-6 計算

三重県環境科学センター設置のFACOM 230-25を用いて計算を行った。プログラムについては、FACOMの既製プログラム(MULVA)を用いた。

Ⅲ 研 究 成 績

1. 説明変数の平均と標準偏差

用いたデータについて、汚染物質の濃度を時刻別に合計して、その平均値の時刻別変化として示したのが、図-4である。

表-1には、各変数の平均値とその標準偏差を、オキシダント日最高濃度によって3群に分割したものと、全体とを示した。その結果、オキシダント日最高濃度の増加に伴って、変数の平均値が増加するものと、反対に減少するものがあった。また、増加あるいは減少の中河過程で逆の挙動を示すものもあった。増加するのは、二酸化窒素、二酸化硫酸、浮遊粒子状物質、気温の日較差、日最高気温の平年値との差、日射量ならびに日最高気温の7変数であった。

減少の傾向を示したのは、風速、天気、視程ならびに御在所山頂の風速の4変数であった。

残りの8変数のうち、オキシダント、^{初期値}一酸化

化窒素、9時の気温、御在所風向の4変数は、オ1群とオ3群の比較からは増加の傾向を示しており、残った、気温、湿度、風向、日最低湿度の4変数は、オ1群とオ3群を比較すると減少の傾向を示した。

2. 説明変数間の相関行列

主な相関係数について述べてみると、

表-2に示したとおりであるが、まず、一次汚染物質のうち、一酸化窒素、二酸化窒素、二酸化硫黄の間には各々正の相関がみられる。しかしながら、これらの物質は、それぞれ水、風の弱いと主に濃度が高くなるという逆相関を示しているものの、一酸化窒素は、地上(測候所)と御在所^{山頂}による係数上の差はみとめられないのに、二酸化窒素は、御在所山頂の風速に一段強く影響を及ぼす。また、二酸化窒素は、視程が悪く、濃度が高くなる傾向をみせている。二酸化硫黄に於けると、これらの条件の他に、日射量や天気、土壌には湿度の影響が加わってきている。一次汚染物質ではあるが、浮遊粒子状物質の挙動は、これらに

述べたガス状汚染物質とは異っている。風が弱いときには、濃度が高く存る傾向はガス状汚染物質と同じであるが、気温に強い影響を受けるようであり、また、湿度と逆相関を示している点が異っている。オキシダント初期値は、地上風が弱く、天気が良く、日射量が多い時といった条件の他に、朝涼しく、日中の気温が高い、また、湿度が低く、乾燥しているといったときには、濃度が高く存る傾向を示している。

次に気象要素相互間の関係をみてみると、まず、気温では、6時、9時、日最高気温の相互間には、極めて密接な関係がみられることは、奇然といえる。6時の気温は、湿度、最低湿度と正の相関がみとめられるが、日射量とは、逆相関がみとめられ、気温の日較差とも負の相関がある。9時には、湿度相関との相関は弱くなり、視程や日最高気温の平年値との差との間に密接な関係が生じてくる。日最高気温では、湿度との相関はみとめら

れなくなり、気温の日較差や日最高気温の平
年値との差との間に密接な正の相関がみられ
、視程との間にも正の関係がある。また、天
気とは逆相関であるから、天気の良いときと
いうことになり、風速も弱いときに日最高気
温が上昇することを示している。

視程は、上表に述べたように日最高気温と
正、天気、風速とは負、湿度とも負の関係に
あるから、晴れて、乾燥し、風が無く、湿度
の高い時は、視程が良好であることを示して
いる。

最後に、日射量は、6時の気温、湿度、天
気などと負、気温の日較差、日最高気温の平
年値と差などと正であるから、早朝の気温は
低いが、比較的乾燥して晴れた日で、日中の
気温の高い日に強いといえよう。

3. 説明変数の因子分析

3-1 主成分分析

主成分分析結果と因子分析結果を表-3-1
に示した。主成分分析の結果、オ^(Z₁)₁、オ^(Z₂)₂
主成分^(Z₂)全体の46.4%、オ^(Z₃)₃主成分^(Z₃)までで61.5

% , オ₄主成分⁽⁸⁴⁾まで含めると68.4%を説明できることが判る。係数を見てもみると、オ₁主成分では、湿度、最低湿度、天気⁽⁸⁴⁾の係数が正で、その値が大きい。気温の日較差、日射量、日最高気温の平年値との差の各係数は負で値が大きい。オキシダント初期値の係数は負で、値は比較的大きい値を示している。その他の変数は、値が小さく、殆ど負である。したがって、オ₁主成分⁽⁸⁴⁾は、オキシダント初期値に相関する天気⁽⁸⁴⁾の因子であるということができる。即ち、オキシダント初期値は、早朝の気温が低く、⁽⁸⁴⁾最高気温が平年値より高くなるような日で、日射が強く、天気の良、比較的湿度の小さい日に高い値を示すものと解釈できる。オ₂主成分⁽⁸³⁾は、6時と9時および日最高気温が正、風速は、地上も御在所山頂も負、一酸化窒素と浮遊粒子状物質が正であるが、気温関係の係数が大きいので、気温とそれに関連する因子ということができる。オ₃主成分⁽⁸³⁾は、一次汚染物質の係数が正で大きい

く、視程と滞在所い風の風速が負であるから、一次汚染物質とその関連因子と、いうことが出来る。オ₁主成分^(Z₁)で係数の大きいのは、ガス状汚染物質と風速であるが、説明力がい小さいためか、解釈は困難である。

3-2 因子負荷量
主成分分析により得られた各主成分と、もとの変数との相関係数を因子負荷量と呼ぶ⁽⁹²⁾が、寄与率は、因子負荷量の2乗の和として計算される⁹³⁾ので、因子負荷量の絶対値が0.5を越えるもののみをも、表-3-1の中央に示した。その結果、各主成分の特徴は、かなり明らかとなったといえる。即ち、

オ₁主成分₁：天気—湿度，天気，日最低湿度がプラスで、気温日較差，日最高気温の平年値との差，日射量ならびにオキシゲント初期値がマイナス。（天気が良く、湿度が低いときはプラスの値は小さくなる。）

オ₂主成分₂：気温—6時と9時、それに日最高気温がプラス、浮遊粒子状物質も

プラス。

オの主成分は：一次汚染物質——=酸化窒素

、=酸化硫黄がプラス、視程と御在所山

頂の風速がマイナス。

のように示えることができる。表-3-1の
左側の欄に、各変数のオの主成分までの累積
寄与率を示した。6時と9時、そして日最高
温、湿度、日最低温度などが90%以上、天気
、気温日較差、日最高気温の平年値との差、
日射量が70%以上の寄与率となっていること
が判る。

3-3 因子軸の回転

主成分に含まれている比較的大きな因子
負荷量をより大きくし、これ以外の比較的小
さい因子負荷量をより小さくするため、因子
軸の回転を行った。その結果を、表-3-2
に示した。左の表-3-1とあまり大きな
変化はないが、各因子の意味づけはより容易
となった。すなわち、次のように解釈するこ
とができる。

オ₁ 因子 — 天気:

$$F_1 \div 0.9 \times (HUM) + 0.9 \times (WEA) - 0.8 \times (D6) \\ - 0.6 \times (DTMX) - 0.9 \times (SRD) + 0.9 \times (HMN)$$

オ₂ 因子 — 気温:

$$F_2 \div 0.9 \times (T6) + 1.0 \times (T9) + 0.9 \times (TMX)$$

オ₃ 因子 — 一次汚染物質:

$$F_3 \div 0.8 \times (NO_2) + 0.8 \times (SO_2) + 0.7 \times (DST) \\ - 0.6 \times (VIS)$$

3-4、因子負荷量の図示

主成分表-3-1の因子負荷量を、オ₁主成分₂軸とオ₂主成分₂軸上に図示したのが、図-5である。その結果、₂₁のプラス側には、湿度、最低湿度、天気が一つのグループとして位置している。また、その反対のマイナス側には、気温日較差、日射量、最高気温の平均値との差が一つのグループをつくり、オキシダント初期値が少し離れて位置し、同じマイナス側には、風向と御在所山頂の風向がある。₂₂軸では、プラス側の寄与率の高い位

置には、気温ゲル-70°が位置しており、汚染物質群もプラス側ではあるが、寄与率は低い。このような関係も、オノ主成分 Z_1 とオノ主成分 Z_3 でみたのが、図-6である。そうすると、 Z_1 軸での天気群は、図-5より明瞭な形をとって表現されている。また、オキシゲン初期値の位置は、図-5と大きな差はないが、風向群が Z_3 軸のマイナス側に移ったことが判る。 Z_3 軸のプラス側では、 Z_2 軸上での寄与率の低かった一次汚染物質が明瞭に表現されており、 Z_2 軸では寄与率の低かった視程が、 Z_3 軸のマイナス側に位置を占めてきている。即ち、図-5と図-6から、 Z_1 軸のプラス側は湿度と天気を示し、マイナス側は、日射量、気温の日較差、最高気温の平年値との差を示しており、日射量、視程は、天気も示しているものと解釈される。 Z_2 軸のプラス側は気温群を示し、 Z_3 軸のプラス側は一次汚染物質群を示しているものと解釈される。このような関係を、図3 負荷量のグラフと

1で示したのが図-7であり、三次元の立体図として示したのが、図-8である。特に図-8においては、主成分のべた、各グループの位置関係を明らかにすることができたものと考えられる。

4. 重回帰分析

19変数を説明変数とし、オキシダント日最高濃度を目的変数として、変数増減法によって重回帰分析を行った。このときの説明変数を取り入れたのは棄却するための限界値(戸値)は2.0とした。

その結果は、表-4后らびに表-5に示れたとおりであって、当初の19変数が、汚染物質では、オキシダントと一酸化窒素の2変数、気象要素では、気温の日較差、御在所山頂の風向と風速、日最低湿度后らびに視程の5変数の計7変数に要約することができた。

得られた式は、

$$\begin{aligned} \text{オキシダント日最高濃度} = & 2.78 \times (\text{気温の日較差}) - 2.74 \times (\text{御在所山頂の9時の風速}) \\ & + 1.18 \times (\text{9時のオキシダント濃度}) + 0.99 \times (\text{日最低湿度}) + \end{aligned}$$

$3.29 \times (\text{御在所山頂の9時の風向}) - 0.99 \times (\text{9時の視程}) +$

$3.21 \times (\text{9時の一酸化窒素濃度}) - 77.59 \dots\dots\dots (1)$

となった。

分散分析の結果は、F値は危険率 0.5% 以下で有意(危険率 $0.5\% = 3.18$)であり、重回帰係数 $+0.822$ の予測式が得られた。また、ダービン・ワトソン比(Durbin-Watson Ratio)^{101), 102)}は 2.09 であった。

参考として、19変数とオキシダントの最高濃度との相関表を、表-6に示した。

また、抽出された変数の因子分析結果を表-7に示し、この変数のオ1主成分とオ2主成分に対応するオキシダントの最高濃度の散布図を、図-7に示した。変数による主成分分析の結果、オ1主成分の寄与率は 31% 、オ2主成分の寄与率は 21.3% であったから、オ2主成分までの累積寄与率は 52.0% となるため、図-7の説明力は約 50% であるが、オキシダントの最高濃度は、表-7から判るようには、気温日較差、オキシダント初期値の値の

大きいZ軸のマイナス側に集中している。逆に、40 ppb以下の低濃度は、日最低湿度の高いZ軸のプラス側と、御在所風速、視程の大きいZ軸のプラス側に散布している。説明力のためか、Z軸のプラス側とZ軸のマイナス側には囲まれている象限では、濃度が混在している。

5. 予測式の検証

5-1 予測式の妥当性

5.1に示した、図-5a、b、c、dから、19変数は、次の6群に分類される。

1) 天気群 天気、湿度、日最低湿度

2) 日射量群 日射量、気温日較差、最高気温と平均値の差

3) 気温群 6時の気温、9時の気温、日最高気温

4) 風向群 地上風向、御在所風向

5) 風速群 地上風速、御在所風速

6) 汚染物質群 一酸化窒素、一酸化窒素、一酸化硫黄、浮遊粒子状物質

そして、独立変数としてのオキシダント初期値と視程である。

いも、得られた重回帰式の説明変数をみてみると、気温群を除いた各群から各々1個づつの変数が抽出され、独立変数2変数が加わって、予測式が成立していることが判る。気温群のうち、日最高気温は、得られた7変数の次の8番目にあたる変数であったが、F検定の結果 $F = 1.33$ であったため、棄却限界2.0以下として棄却されたものである。したがって、気温の問題を除けば、予測式は、説明変数として選んだ19変数を代表しているといえる。また、7変数のうち、負の符号を有するのは、都在所の風速と日最低湿度ならびに視程であって、その他の変数は正であった。このことは、現在までに調査された日本各地の調査結果とも一致しており^{103), -131)}、妥当なものと考えられる。

5-2 予測式の精度

得られた予測式を用いて、昭和50年6月か

らゝ月までの68例について、検証してみたのが、誤-10である。

オキシダント注意報発令基準で考えた場合、昭和50年の注意報発令回数^{回数}は、全国で265回で、前年の288回と比較して10%近く減少している。四日市地域においても、49年には67回の発令があつたのに、50年には発令エれていない。このような状況であつたため、予測式の係数修正が必要なのではなかと考へられたが、修正なしで+0.758の相関係数が得られた。回をみると、比較的濃度の低い部分での誤差が大きい^{ため}、相関係数を悪くしているように思われるが、濃度の低い部分は、^{濃度}実際には予測を行う必要がないので、実用には十分堪えうる予測式であると考えられる。

IV 春 祭

ハ オキシダントの制御

一、硫酸酸化物と対比して

オキシダントに代表される光化学大気汚染は早急に解決を要する大きな課題であるが、かつての代表汚染物質であり、制御に成功したと考えられる硫酸酸化物と、制御の観点から比較を行ってみたい。

まず、硫酸酸化物の発生源は、工場、事業場などのいわゆる固定発生源に限定されており、その発生源は硫酸を含む化石燃料の燃焼に伴うものであって、高濃度汚染は、化石燃料中の硫酸分の含量と、排出高、排出温度、排出速度などの排出口（主として煙突）での排出条件、さらには、自由大気中での拡散系数条件などによって発生する。したがって、発生源からの排出量と、拡散系数条件が把握

できれば、風洞実験、拡散計算などの手法に
 よって、地上濃度の推定は比較的容易であり
 、実測値との照合によって、推定濃度が正し
 いことが検証できれば、各煙源からの排出量
 の削減率を合理的に決めることは、現在では
 それほど困難ではないのが実情である^{132), -136)}。
 発生源側としても、低硫黄燃料の多用や、排
 煙脱硫装置の導入など、状況による選択が可
 能であり、現時点においては、比較的制約の
 少ない汚染物質であるといえよう。

一方、オキシダントは、エミも述べたよう
 に、炭化水素と窒素酸化物の光化学反応によ
 る二次生成物であるから、制約するためには
 、一次汚染物質である炭化水素と窒素酸化物
 の実態を把握する必要がある。ところで、こ
 れらの物質は、固定発生源からの排出だけで
 なく、自動車、船舶、航空機などのいわゆる
 移動発生源からの排出比率が極めて高い点に
 大きな特徴がある。また、オキシダントの高
 濃度汚染は、これらの一次汚染物質が、気象系

件は支配されて拡散系状を形成しながら移動して
 ゆく過程で、光化学反応が進行し、二次汚染
 物質であるオキシダントなどが生成するこ
 とが必要である。光化学反応が進行するため
 は、その反応速度を支配する気温が重要な条
 件となるが、紫外線量も勿論大きな比重を占
 めており、その他にも、風速、湿度、天候な
 ど多くの気象条件が関与している。このよう
 に、発生源としての多様性と複雑さに加えて
 、気象条件の多様性も大いに関係して、対策
 は勿論であるが、その前提条件となる実態把
 握をも困難にしている。それではオキシダント
 の起因物質である窒素酸化物や炭化水素を
 対策してはどうかということになるが、窒素
 酸化物は、燃焼に伴って、大気中の主成分で
 ある窒素と酸素が反応して生成するものであ
 るため、燃料中の窒素分の除去だけでは完全
 な対策とはならず、排煙中から窒素酸化物を
 除去するための排煙脱硝装置は、問題点が多
 く、実用化の域には到達していない。さらに

硫黄酸化物では無視できた一般家庭からの排出も考慮する必要が生じてきているのか、実情である。

一方の炭化水素であるが、この名称自体が炭素と水素から成る化合物の総称であるため、炭素の連なり方によって、鎖式と環式とに大別され、各々がさらに分れる等、その種類と数は非常に多いが、光化学反応性についての評価としては、オレフィン系炭化水素やアルキル置換基を多く含む芳香族炭化水素は光化学反応性が高く、炭素数の小さい飽和炭化水素、ベンゼン、アセチレンなどは光化学反応性が低いとされている^{137),-140)}。このように、炭化水素の種類によって、その反応性が異なる上、発生源の多様性は、窒素酸化物以上に、その浮遊形態も排出態様でなく、放出や漏洩などが加わってくる複雑なものである。

このような実態であるため、オキシダントやその起因物質である窒素酸化物、炭化水素の制御は非常に難しく、実効のある排出規制

手では、未だ相当の時間を要するものと考えられる。

しかしながら、汚染範囲の拡大と被害人口の増加（50年度42,839名⁸⁹⁾）は、序論でも述べたように、その日の汚染最高濃度の定量的な予測を要求しており、正確な予測手法の確立とその確立を要求している。

2. 予測手法

一般に、ある時間先の濃度を予測しようとする場合、物理モデルと統計モデルがあると考えられるが、オキシダントの場合には物理モデルを適用するためには、変化率及び特性の解明が先決であって、その上に立って反応モデル化し、紐立てられる反応モデルと汚染物質の拡散モデル（物理モデル）を組合せて電子計算機でシミュレートする方法を確立することが必要である。いくつかの方法が発表^{41) - 47)}されているが、大規模なチャンバー実

験が必要である上、素反応の数が多いため、
 すべての反応が解明されているとはいえない。
 。また、電子計算機でシミュレートするため
 には、計算時間が問題となるが、この面から
 は反応モデルがなるべく簡単であることが望
 む。定量化手では、多くの克服すべき課
 題が残されている。さらに実用化にあたって
 は、一次汚染物質の初期濃度の把握、特に光
 化学反応に関与する炭化水素成分の把握の困
 難性などの問題があるものと考えられる。

いま一つの方法である統計モデルについて
 、現時点で用いられている方法は、各種気象
 条件を単純化して、過去の統計データからオ
 キシダント濃度を予測する方法であって、主
 として気象官署などで、大気汚染気象情報発
 令の資料として用いられている^{(106), (107), (125), (127), (171) - (173)}。

。一般的な手法としては、天気、地上風速、
 上層風速、視程、日照時間などを逐次一定条
 件かどうか判別し、それぞれの条件の組合せ
 によって、オキシダント濃度を判別する、経

原則を中核として半定量的な手法であるといえよう。

著者は、朝の汚染物質濃度と汚染に相関があると考えられる気象条件を選択して、これらの説明変数間の関係を解明するための手法として、因子分析を行ったところ、これらの変数を、6群からなる変数と2個の独立変数に分解することができ、大気汚染構造の解明に寄与することができた。

また予測のための重回帰式は、これらの6群中の5群から各1個の変数と独立変数2個から構成されたものが最良であるとの結論が得られたが、除かれた気温群から、日最高気温を加えて、3変数として重回帰式を求めると、

$$\begin{aligned} \text{オキシダント最高濃度} = & 1.17 \times (\text{9時のオキシダント濃度}) + 3.03 \times (\text{9時の一酸化窒素濃度}) \\ & - 1.15 \times (\text{9時の視程}) + 6.89 \times (\text{気温の日較差}) + 3.06 \\ & \times (\text{潮位前日高}) - 3.54 \times (\text{潮位前日低}) + 0.96 \times \\ & (\text{日最高気温}) + 0.25 \times (\text{日最低湿度}) - 84.7 \dots (2) \end{aligned}$$

なる式が得られ、 $R^2 = 21.56$ となった。また重回帰係数は $+0.225$ が得られた。ダービン・F

トソン比を求めると、2.12となった。と、二つび、この二式についての実用上の優劣を決めるための、同一の予測値に対する予測値の関係調べたところ、一定の傾向は得られなかった。したがって、結論的に、変数は少くてすめばその方がよいということと、多変数の場合の重回帰係数は、少変数のそれよりも若干よくなっているが、片方あるいはダービ、ワトソン比ではよくなるとはいえない結果がでていゝことなどのことから、変数を追加することについて、今後なお検討してゆきたいと考えている。

また、統計的予測手法の新しい動向として、自己回帰モデルあるいは重回帰モデルより、この二つのモデルとカルマン、フィルターの組合せによる汚染物質の時系列予測手法の開発が検討されてきており⁽¹⁷⁴⁾⁻⁽¹⁷⁶⁾、二次汚染物質への適用が可能かどうか、今後検討してゆきたいと考えている。

V 結 論

最近、大まな社会問題となっている光化学大気汚染の指標汚染物質であるオキシダントに関して、初期条件を支配する因子の解明とその日の最高濃度の予測の可能性について、多変量解析の手法によって研究を行ったところ、次の結論を得た。

1、次の一次汚染物質とオキシダントの初期濃度と14の気象要素について主成分分析を試みた。その結果、これらの変数は、天気群、日照量群、気温群、風向群、風速群と一次汚染物質群の6群から成立っているが、その何れにも属しない独立変数として、オキシダント初期濃度と視程の2変数があることが解明できた。また、一次汚染物質についても、相関係数からみた場合、それぞれの特性を気象条件から解明することができた。

2、これらの19変数を3次元グラフに位置させ

ると、オノ主成分は、オキシダント初期濃度
と水と支配する照射量群と天気群から成立
ち、ア主成分は気温群、オ主成分は汚染
物質群から成立っていることが解明できた。

したがって、夏季における朝の汚染構造を明
確に把握することができたこと、今後の大
気汚染対策上、大いに有益であった。

3. 19変数を説明変数とし、オキシダント日
最高濃度を目的変数として、変数増減法によ
る重回帰分析を行った結果、気温群を除いた
5群から各1つづつの変数が抽出され、2箇
の独立変数との合計7変数で重回帰式が構成
された。これらの抽出された各変数は、過去
の知見から妥当なものであることが裏書きさ
れた。また、主成分分析の結果とも整合して
おり、満足すべきものであった。

4. 得られた重回帰式を用いて、検証を行っ
た結果、十分実用には堪え得ることが検証され
た。

稿を終るにのぞみ、終始、懇篤なるご
 指導を賜わり、かつ論文のご校閲をいた
 さいた麻布獣医科大学教授山田俊男博士
 に深く感謝の意を表します。また、デー
 タを提供いただいた、津気象台、四日市
 測候所、四日市市の関係者の皆様には厚く
 御礼申し上げるとともに、計算に協力い
 たいただいた三重県環境科学センター、田村穂
 積、木本祥仁の両氏に感謝の意を表しま
 す。

- 1) A.C. STERN, (1968): Air Pollution, 2nd ed., New York, Academic Press.
- 2) S.S. BUTCHER, R.J. CHARLSON, (1972): An Introduction to Air Chemistry, (荒木峻訳). 東京, 東京化学同人.
- 3) W. LEITE, (1968): Die Analyse der Luft und Ihrer Verunreinigungen, (新良宏一郎, 庄野利之, 増田勲 訳) 東京, 化学同人.
- 4) 大茂多敏一, (1974): 大気汚染, P-20, 東京, 総合科学出版.
- 5) 近藤次郎編 (1974): 大気汚染 - 現象の解析とモデル化 -, P-12, 東京, コロナ社.
- 6) 原田朗, (1973): 大気のバックグラウンド汚染, P-6, 東京, 共立出版.
- 7) 河東彊自編, (1961): 応用気象学体系 II, 大気汚染と制御, P-1, 東京, 地人書館.
- 8) 通産省, 厚生省編, (1963): 大気汚染便覧, P-81, 東京, 日公研協会.
- 9) H.C. PERKINS (1974): Air Pollution, P5-6, Tokyo, McGRAW-Hill.
- 10) 外山敏夫 (1965): スモッグの中の生活, P26-32, 東京, 角川書店.
- 11) 岩井弘融, 加藤一郎, 柴田徳仁, 八木義之助編, (1965): 都市問題講座 6, 公害・災害, P40-58, 東京, 有斐閣.
- 12) 浅原照三, (1974): 東京大学公開講座, エネルギー, P65-66, 東京, 東大出版会.
- 13) 環境庁編, (1976): 環境白書 P115, 東京, 大蔵省印刷局.

- 14) U.S. Department of Health, Education, and Welfare, (1970):
Air Quality for Photochemical Oxidants, National Air
Pollution Control Administration Publication No, AP-63.
- 15) P.A. LEIGHTON, (1961): Photochemistry of Air Pollution,
New York, Academic Press.
- 16) L.S. JAFFE, (1967): The Effect of Photochemical Oxidants on
Materials, J.A.P.C.A. 17 375-378.
- 17) J.C. ROMANOVSKY, R.M. INGELS, R.J. GORDON, (1967):
Estimation in the Hydrocarbon-Nitric Oxide System, J.A.
P.C.A. 17 454-459.
- 18) B. DIMITRADES, (1967): Methodology in Air Pollution Studies
Using Irradiation Chambers, J.A.P.C.A. 17 460-466.
- 19) E.R. STEPHENS, F.R. BURLISON, K.M. HOLTZCLAW, (1969):
A Damaging Explosion of Peroxyacetyl Nitrate, J.A.P.C.A.
19 261-264.
- 20) O.C. TAYLOR, (1969): Importance of PAN as a Phototoxic
Air Pollutant, J.A.P.C.A. 19 347-351.
- 21) J.C. MOSHER, W.G. MACBETH, M.T. LEONARD, T.P. MULLINS,
M.F. BRUNELLE, (1970): The Distribution of Contaminants
in the Los Angeles Basin Resulting from Atmospheric

Reactions and Transport. J.A.P.C.A. 20 35-42.

22) D.S. Barth, (1970): Federal Motor Vehicle Emission Goals for CO, HC and NO_x Based on Desired Air Quality Levels, J.A.P.C.A. 20 519 - 527.

23) Wm. E. WILSON, Jr., E. L. MERYMAN, A. LEVY, H. R. TALIAFERRO, (1971): Aerosol Formation in Photochemical Smog, I. Effect of Stirring, J.A.P.C.A. 21 128 - 132

24) B. DIMITRIADES, B. H. ECCLESTON, R. W. HURN, (1970): An Evaluation of the Fuel Factor Through Direct Measurement of Photochemical Reactivity of Emissions, J.A.P.C.A. 20, 150 - 160.

25) Wm. E. WILSON, Jr., A. LEVY, (1970): A Study of Sulfur Dioxide in Photochemical Smog, I Effect of SO₂ and Water Vapor Concentration in the 1-Butene/NO_x/SO₂ System, J.A.P.C.A. 20 385 - 390.

26) R. T. CHENG, J. D. FROHLINGER, M. CORN, (1971): Aerosol Stabilization for Laboratory Studies of Aerosol-Gas Interactions, J.A.P.C.A. 21 138 - 142.

27) P. L. HANST, (1971): Mechanism of Peroxyacetyl Nitrate Formation, J.A.P.C.A. 21 269 - 271.

- 28) E.A. SHUCK, A.P. ALTSHULLER, D.S. BARTH, G.B. MORGAN,
(1970): Relationship of Hydrocarbons to Oxidants in
Ambient Atmospheres, J.A.P.C.A. 20, 297-302.
- 29) J.S. SANDBERG, R.H. THUILLIER, (1970): Oxidant
Levels over San Francisco Bay and Adjacent Land
Stations, J.A.P.C.A. 20 599-602.
- 30) J.S. SANDBERG, R. THUILLIER, M. FELDSTEIN, (1971)
: A Study of Oxidant Concentration Trends in the
San Francisco Bay Area, J.A.P.C.A. 21, 118-121.
- 31) D.S. SETHI, (1971): Photo-Oxidation of Sulfur Dioxide
, J.A.P.C.A. 21 418-420.
- 32) M. FELDSTEIN, (1974): A Critical Review of Regulations
for the Control of Hydrocarbon Emissions from Stationary
Sources, J.A.P.C.A. 24 469-478.
- 33) W.N. STASIUK, Jr., P.E. COFFEY, (1974): Rural and Urban
Ozone Relationships In New York State, J.A.P.C.A. 24 564-568.
- 34) M. CORN, R.W. DUNLAP, L.A. GOLDMUNTZ, L.H. ROGERS, (1975), Photochemical Oxidants: Sources, Sinks and Strategies,
J.A.P.C.A. 25 16-18.
- 35) A.P. ALTSHULLER, (1975): Evaluation of Oxidant Results

at CAMP sites in the United States, J.A.P.C.A., 25 19-24.

36) C.W. SPICER, D.F. MILLER, (1976): Nitrogen Balance in Smog Chamber Studies, J.A.P.C.A., 26 45-50.

37) S.L. KOPCZYNSKI, W.A. LONNEMAN, TWINFIELD, R. SEILA, (1975): Gaseous Pollutants in St. Louis and Other Cities, J.A.P.C.A., 25 251-255.

38) G.C. TIAO, G.E.P. BOX, W.J. HAMMING, (1975): Analysis of Los Angeles Photochemical Smog Data: A Statistical Overview, J.A.P.C.A., 25 260-268.

39) R.K. SEVERS, (1975): Simultaneous Total Oxidant and Chemiluminescent Ozone Measurements in Ambient Air, J.A.P.C.A., 25 394-396.

40) D.F. MILLER, C.W. SPICER, (1975): Measurement of Nitric Acid in Smog, J.A.P.C.A., 25 940-942.

41) D. GROSJEAN, S.K. FRIEDLANDER, (1975): Gas-Particle Distribution Factors for Organic and Other Pollutants in The Los Angeles Atmosphere. J.A.P.C.A., 25 1038-1044.

42) R.I. LARSEN, W.W. HECK, (1976): An Air Quality Data Analysis System for Interrelating Effects, Standards,

and Needed Source Reductions: Part 3. Vegetation Injury, J.A.P.C.A., 26 325-333.

43) M.J. LEONARD, E.L. FISHER, M.F. BRUNELLE, J.E. DICKINSON, (1976): Effects of the Motor Vehicle Control Program On Hydrocarbon Concentrations in the Central Los Angeles Atmosphere, J.A.P.C.A., 26 359-363.

44) W.R. OTT, G.C. THOM, (1976): A Critical Review of Air Pollution Index Systems in the United States and Canada. J.A.P.C.A., 26 460-470.

45) H.E. JEFFRIES, D.L. FOX, R. KAMENS; (1976): Photochemical Conversion of NO to NO₂ by Hydrocarbons in an Outdoor Chamber. J.A.P.C.A. 26 480-484.

46) J. J. BUFALINI, B.W. GAY, Jr., K. L. BRUBAKER, (1972); Hydrogen Peroxide Formation from Formaldehyde Photooxidation and Its Presence in Urban Atmospheres, Environ. Sci. Tech., 6 816-821.

47) P.W. JONES, A.H. ADELMAN, (1972): Photosulfoxidation of Hydrocarbons in the Liquid Phase, Environ. Sci. Tech., 6 933-934.

- 48) W. E. WILSON, JR., A. LEVY, D. B. WIMMER, (1972): A Study of Sulfur Dioxide in Photochemical Smog II Effect of Sulfur Dioxide on Oxidant Formation in Photochemical Smog, J. A. P. C. A., 22 27-32.
- 49) M. D. BENTLEY, I. B. DOUGLASS, J. A. LACADIE, D. R. WHITTIE (1972): The Photolysis of Dimethyl Sulfide in Air, J. A. P. C. A., 22 359-363.
- 50) H. W. SIDEBOTTOM, C. C. BADCOCK, G. E. JACKSON, J. G. CALVE G. W. REINHARDT, E. K. DAMON, (1972): Photooxidation of Sulfur Dioxide, Environ. Sci. Tech., 6 72-79.
- 51) T. A. HECHT, J. H. SEINFELD, (1972): Development and Validation of a Generalized Mechanism for Photochemical Smog, Environ. Sci. Tech., 6 47-57.
- 52) M. LIPELES, N. MALMUTH, (1972): Analytical Studies of Simplified Photochemical Smog Kinetics, Environ. Sci. Tech., 6 360-366.
- 53) T. TROTT, R. W. HENWOOD, C. H. LANGFORD, (1972): Sunlight Photochemistry of Ferric Nitritotriacetate Complexes, Environ. Sci. Tech., 6 367-368.
- 54) C. DONALDSON, G. R. HILST, (1972): Effect of Inhomogeneous

Mixing on Atmospheric Photochemical Reactions, Environ. Sci. Tech., 6 812-821.

55) W.E. WILSON, Jr., A. LEVY, E.H. McDONALD, (1972):

Role of SO_2 and Photochemical Aerosol in Eye Irritation from Photochemical Smog, Environ. Sci. Tech., 6 423-427.

56) P.E. COFFEY, W.N. STASIUK, (1975): Evidence of Atmospheric

Transport of Ozone into Urban Areas, Environ. Sci. Tech., 9 59-62.

57) W.A. GLASSON, (1975): Effect of Carbon Monoxide on

Atmospheric Photooxidation of Nitric Oxide-Hydrocarbon Mixtures, Environ. Sci. Tech., 9 343-359.

58) S.D. REYNOLDS, J.H. SEINFELD, (1975): Interim Evaluation

of Strategies for Meeting Ambient Air Quality Standard for Photochemical Oxidant, Environ. Sci. Tech., 9 433-447.

59) R.J. O'BRIEN, J.R. HOLMES, A.H. BOCKIAN, (1975):

Formation of Photochemical Aerosol from Hydrocarbons, Environ. Sci. Tech., 9 568-576.

60) R.J. O'BRIEN, J.H. CRABTREE, J.R. HOLMES, M.C. HUGGAN,

A.H. BOCKIAN, (1975): Formation of Photochemical Aerosol from Hydrocarbons, Environ. Sci. Tech., 9 577-582.

- 61) S. L. KOPCZYNSKI, R. L. KUNTZ, J. J. BUFALINI, (1975):
Reactivities of Complex Hydrocarbon Mixtures, *Environ. Sci. Tech.*, 9 648-653.
- 62) W. S. CLEVELAND, B. KLEINER, (1975): Transport of
Photochemical Air Pollution from Camden-Philadelphia
Urban Complex, *Environ. Sci. Tech.*, 9 869-871.
- 63) W. A. GLASSON, (1975): Methoxy Radical Reactions
in Atmospheric Chemistry, *Environ. Sci. Tech.*, 9
1048-1058.
- 64) B. W. GAY, Jr., P. L. HANST, J. J. BUFALINI, R. C. NOONAN,
(1976): Atmospheric Oxidation of Chlorinated Ethylenes,
Environ. Sci. Tech., 10 58-67.
- 65) W. L. CHAMEIDES, D. H. STEPMAN, (1976): Ozone Formation
from NO_x in "Clean Air", *Environ. Sci. Tech.*,
10 150-153.
- 66) J. G. CALVERT, (1976): Test of the Theory of
Ozone Generation in Los Angeles Atmosphere, *Environ.*
Sci. Tech., 10 248-262.
- 67) W. L. DILLING, C. J. BREDEWEG, N. B. TEFERTILLER,
(1976): Organic Photochemistry, *Environ. Sci. Tech.*,

10 351-356.

68) R. J. GORDON, (1976): Distribution of Airborne Polycyclic Aromatic Hydrocarbons Throughout Los Angeles, *Environ. Sci. Tech.*, 10 370-373.

69) W. A. LONNEMAN, J. J. BUFALINI, R. L. SEILA, (1976): PAN and Oxidant Measurement in Ambient Atmospheres, *Environ. Sci. Tech.*, 10 374-380.

70) P. T. ROBERTS, S. K. FRIEDLANDER, (1976): Photochemical Aerosol Formation, *Environ. Sci. Tech.*, 10 573-580.

71) J. J. BUFALINI, T. A. WALTER, M. M. BUFALINI, (1976): Ozone Formation Potential of Organic Compounds, *Environ. Sci. Tech.*, 10 910-925.

72) J. KAGAWA, T. TOYAMA, (1975): Photochemical Air Pollution, *Arch. Environ. Health.*, 30 117-122.

73) R. GUICHERIT, (1973): Photochemical Smog Formation in the Netherlands, ^{Proceedings of} The Third International Clean Air Congress, Düsseldorf, (Oct, 8-12, 1973.), C-98.

74) J. V. HAM, H. NIEBOER, (1973): Irradiation of Outdoor Air: The Effect of Changing Emission Quantities

on Photochemical Smog Formation, Proceedings of The Third International Clean Air Congress, Düsseldorf (Oct. 8-12, 1973), C-102.

75) S. SUZUKI, W. ANDO, N. HORIUCHI, (1973):

The Photochemical Reaction of a Sulfur Dioxide - Hydrocarbon - Oxygen System, Proceedings of The Third International Clean Air Congress, Düsseldorf, (Oct. 8-12, 1973), C-110.

76) D. F. MILLER, (1973): Aerosol Formation in

Photochemical Smog : V. The Effect of Humidity and Small Particles, Proceedings of The

Third International Clean Air Congress, Düsseldorf, (Oct. 8-12, 1973), C-121.

77) C. H. SHEN, G. S. SPRINGER, (1976): Photochemical

Particulate Formation in Sulfur Dioxide - Air Mixtures, Atmos. Environ. 10 235-239.

78) A. P. ALTSHULLER, S. L. KOPCZYNSKI, D. WILSON,

W. LONNEMAN, F. D. SUTTERFIELD, (1969): Photochemical

Reactivities of N-Butane and Other Paraffinic

Hydrocarbons, J.A.P.C.A, 19 787-790.

- 79) A. P. ALTSHULLER, S. L. KOPCZYNSKI, D. WILSON, W. LONNEMAN, F. D. SUTTERFIELD, (1969): Photochemical Reactivities of Paraffinic Hydrocarbon-Nitrogen Oxide Mixtures Upon Addition of Propylene or Toluene, J. A. P. C. A., 12 791-794.
- 80) J. G. EDINGER, M. H. McCUTCHAN, P. R. MILLER, B. C. RYAN, M. J. SCHROEDER, J. V. BEHAR, (1972): Penetration and Duration of Oxidant Air Pollution in the South Coast Air Basin of California, J. A. P. C. A., 22 882-886.
- 81) S. L. KOPCZYNSKI, W. A. LONNEMAN, D. SUTTERFIELD, P. DARLEY, (1972): Photochemistry of Atmospheric Samples in Los Angeles, Environ. Sci. Tech., 6 342-347.
- 82) W. A. LONNEMAN, S. L. KOPCZYNSKI, P. E. DARLEY, D. SUTTERFIELD, (1974): Hydrocarbon Composition of Urban Air Pollution, Environ. Sci. Tech., 8 229-236.
- 83) T. A. HECHT, J. H. SEINFELD, M. C. DODGE, (1974): Further Development of Generalized Kinetic Mechanism for Photochemical Smog, Environ. Sci. Tech., 8 327-337.

84) R. A. RUBINO, L. BRUCKMAN, J. MAGYAR, (1976):

Ozone Transport, J. A. P. C. A., 26 972-975.

85) D. F. MILLER, A. LEVY, (1976): Exhaust Hydrocarbon Relationships with Photochemical Aerosol

Formation, J. A. P. C. A., 26 778-782.

86) R. K. FRANKHAUSER, (1976): Ozone Levels

in the Vicinity of 33 Cities, J. A. P. C. A., 26 771-777.

87) 村田元秀, 島津久, 高塚美和, 山田晋延, 宮村典仁, 志村, (1977)

: 発表表

88) 大平俊男, (1972): 光化学スモッグ, P-13, 東京, 講談社.

89) 環境庁, (1976): 昭和50年度光化学大気汚染と健康被害との

関係について, P-11, 光化学大気汚染健康影響調査五分科会報告

90) 村田元秀, (1974): オキシダント濃度の予測に関する研究(第1報),

三重県公害センター年報 第2号 P42-51.

91) 村田元秀, (1975): オキシダント濃度の予測に関する研究(第2報),

三重県公害センター年報 第3号 P29-35.

92) 奥野忠一, 久米均, 芳賀敏郎, 吉沢正, (1971): 多変量解析法,

P324-372, 東京, 日科技連.

93) 奥野忠一, 芳賀敏郎, 矢島敏三, 奥野千恵子, 橋本茂司, 古河陽子, (1976)

: 読多変量解析法, P175-205, 東京, 日科技連.

- 94) 鈴木栄一, (1968): 気象統計学, P103-120, 東京, 地人書館.
- 95) 鈴木栄一, (1975): 環境統計学, P103-124, 東京, 環境情報科学会.
- 96) 芝祐順, (1975): 行動科学における相関分析法 (才2版), P48-63, 東京, 東大出版会.
- 97) B.W. BOLCH, C.J. HUANG, (1974): Multivariate Statistical Methods for Business and Economics, (中村慶一訳), P196-233, 東京, 森北出版.
- 98) W.W. COOLEY, P.R. LOHNES, (1971): Multivariate Data Analysis, (井口清弘, 藤沢武久, 河谷栄一訳), P135-172, 東京, 鹿島出版会.
- 99) H.L. SEAL, (1964): Multivariate Statistical Analysis for Biologists, (塩谷実訳), P130-159, 東京, 共立出版.
- 100) D.N. LAWLEY, A.E. MAXWELL, (1963): Factor Analysis, (土井正監修), P53-63, 東京, 日科技連.
- 101) 小林竜一, (1972): 相関・回帰分析法入門, P101-148, 東京, 日科技連.
- 102) 岩田曉一, (1967): 経済分析のための統計的方法, P419-424, 東京, 東洋経済.
- 103) 環境庁, (1973): 日本における大気汚染及び大気汚染の概要, P181-205.

- 104) 久保明弘, (1972): 光化学スモッグの気象条件, 環境技術 1 408-412.
- 105) 大平俊男, 福岡三郎, (1972): 東京光化学スモッグの現状, 環境技術 1 433-442.
- 106) 河村武, 梅谷志雄, (1972): 光化学大気汚染の気象予報, 大気汚染研究 2 62.
- 107) 中村岳三雄, (1972): 関東南部におけるオキシダント大気汚染の気象条件と予報, 大気汚染研究, 2 63.
- 108) 野口勇, 武田実, 渡辺琢美, 竹下宏子, (1972): 光化学スモッグの発生とオキシダント初期濃度の関係, 大気汚染研究, 2 72.
- 109) 野本秀行, 熊沢安正, 溝口次夫, (1972): 大阪の気象条件とオキシダント濃度についての考察, 大気汚染研究, 2 76.
- 110) 大屋文彦, 落合昭吾, 角谷信昭, 谷中浩志, 相原和男, (1972): 神奈川県における光化学公害について (オ₂報), 大気汚染研究, 2 78.
- 111) 茂木正一, 今岡鏡徳, 五井邦宏, 山田文子, (1973): 埼玉県における光化学スモッグの特徴, 大気汚染研究 2 575.
- 112) 中野道雄, 水谷早, 佐藤誠宏, 中野泰三, 河野仁, (1973): 大阪市における光化学大気汚染解 (I), 大気汚染研究, 2 576.
- 113) 大屋文彦, 岡清宣, 落合昭吾, 何田尊司, 角谷信昭, (1973): 神奈川県における光化学公害について (オ₅報), 大気汚染研究, 2 580.
- 114) 大平俊男, 高橋武夫, 海老沢栄二, 田口勝久, (1974): 茨城県における光化学スモッグについて, 大気汚染研究, 2 577.

- 115) 上田順一, 岡崎勝治, 中村賢, 中島宏治, 高橋政和, 引地武市, (1974): 京都盆地における光化学反応による大気汚染の増強, 大気汚染研究 9 560.
- 116) 河村武, (1974): 関東平野における光化学大気汚染の広域気象解析, 大気汚染研究, 9 563.
- 117) 大屋彦彦, 葛谷昭吾, 北沢慶實, 小野間武司, 原田佳行, (1974): 光化学スモッグオキシダント高濃度の気象条件, 大気汚染研究, 9 566.
- 118) 小池一美, 小島一郎, 竹内純一郎, 佐藤公典, (1974): 愛知県における OX 高濃度と気象状況について, 大気汚染研究, 9 571.
- 119) 左子茂, 野本秀行, 内田利隆, (1974): 大阪府における海風と光化学スモッグの発生, 大気汚染研究, 9 572.
- 120) 佐藤功, (1974): 大阪におけるオキシダント濃度と気象条件の関係, 大気汚染研究, 9 573.
- 121) 谷川敏夫, 水谷昇, 河野仁, 上田玄雄, 片平義彦, 中野道雄, (1974): 大阪市における光化学大気汚染解析(II), 大気汚染研究, 9 577.
- 122) 中村英三雄, (1975): 東京都におけるオキシダント高濃度発生の気象条件, 大気汚染研究 10 468.
- 123) 竹内純一郎, 吉本健二, 小池一美, 小島一郎, (1975): 愛知県における OX 高濃度の気象状況について(2), 大気汚染研究, 10 469.
- 124) 竹内純一郎, 吉本健二, 小池一美, 小島一郎, (1975): 愛知県における OX 高濃度と気象状況について(3), 大気汚染研究, 11 340.

- 125) 粕谷光雄, (1972): 大気汚染気象情報について, 大気汚染気象予報資料
(1), P 14-32.
- 126) 河村武, (1972): 光化学反応による大気汚染と気象条件, 大気汚染気象
予報資料(1), P 50-58.
- 127) 久保朋三, (1972): 大阪府における光化学スモッグと気象条件, 大気汚染気象
予報資料(1), P 59-64.
- 128) 市川清見, (1974): 光化学スモッグ予報の基礎調査, 大気汚染気象予報
資料(2) P 58-59.
- 129) 柳本三治, 大西健一郎, (1974): 京都市およびその周辺に於ける光化学スモッグ
大気汚染気象予報資料(2), P 72-74.
- 130) 赤塚碩, (1974): 四日市の光化学スモッグについて, 大気汚染気象予報
資料(2), P 91.
- 131) 遠藤米吉, (1974): 名古屋のオキシダント高濃度日について, 大気汚染気象
予報資料(2), P 92-95.
- 132) 吉田克己, 横田正一, 村田元秀, 江川照之, 北畠正義, 五十嵐繁, 木本雅仁, 田村
穂積, (1973): 拡散計算法による汚染長期平均値の推定について,
三重県公害センサ-年報 第1号, P 15-23.
- 133) 村田元秀, 田村穂積, 木本雅仁, (1975): 大気汚染予測線における線形計
画法の適用に関する研究, 三重県公害センサ-年報 第2号, P 37-41.
- 134) 田村穂積, 木本雅仁, 村田元秀, (1975): 大気拡散モデルの研究(Ⅱ),

三重県公害センター年報 第3号, P. 42-50.

135) 大気汚染全国協議会 公害委員会, (1965): 大気汚染気象ハンドブック,
東京, コロナ社,

136) 環境庁, (1975): 総量規制マニュアル,

137) 公害対策部会, (1975): 光化学オキシダント生成防止のための大気中炭化水素
濃度の指針に関する報告参考資料

138) U.S. DEPARTMENT OF HEALTH, EDUCATION, AND WELFARE,
(1970): Air Quality Criteria for Hydrocarbons,
National Air Pollution Control Administration Publication
No. AP-64.

139) 八巻西昇, (1972): 光化学スモッグをめぐる諸問題, 石油学会誌, 15
2-11.

140) 日本公害防止協会, (1974): 炭化水素類の光化学反応性調査研究報告書
(環境庁委託調査).

141) 鈴木伸, 堀内宜利, 今井敏康, 佐藤亘, (1972): 亜硫酸ガス-炭化水素-
酸素系の光化学反応, 大気汚染研究, 7 53.

142) 平岡正勝, 池田有光, 北田敏広, (1972): 光化学反応機構の室内実験に関する
考察, 大気汚染研究 7 55.

143) 千阪文武, 山島田勇, 柳原茂, (1972): 光化学反応生成物の電算機シミュレー
ション, 大気汚染研究 7 58.

- 144) 車原幸太郎, 中樂岡 顯, 朝来野国彦, 篠崎善治, 大平俊男, (1972): 光化学スモッグの化学動力学, 大気汚染研究, 7 59.
- 145) 横山長之, 山本晋, (1972): 光化学スモッグの拡散モデル, 大気汚染研究, 7 60.
- 146) 小牧美夫, 鈴木史男, 五十嵐信男, (1972): 移動式スモッグチャンバーによるフィールドサーベ, 大気汚染研究, 7 68.
- 147) 嶋田勇, 柳原茂, 千阪文武, 斎藤敬三, (1973): 炭化水素-窒素酸化物-亜硫酸ガス系の光化学反応, 大気汚染研究, 8 561.
- 148) 鈴木悠男, 五十嵐信男, 今井徹, 小牧美夫, (1973): 移動式スモッグチャンバーによるフィールドサーベ (おこ報), 大気汚染研究, 8 562.
- 149) 五十嵐信男, 鈴木悠男, 今井徹, 小牧美夫, (1973): 移動式スモッグチャンバーによるフィールドサーベ (おこ報) 大気汚染研究, 8 563.
- 150) 平岡正勝, 池田有光, 北田敏広, (1973): 大気汚染光化学反応モデルについて, 大気汚染研究 8 564.
- 151) 市村禎一郎, 秋元肇, 山崎秀郎, (1973): 光化学大気汚染の計算機シミュレーション, 大気汚染研究, 8, 566.
- 152) 平岡正勝, 池田有光, 北田敏広, (1973): 光化学反応式の数値解法について, 大気汚染研究, 8 567.
- 153) 市村禎一郎, 秋元肇, 山崎秀郎, (1973): 光化学大気汚染の拡散反応速度論, 大気汚染研究, 8 568.

- 154) 鈴木伸, 松本和雄, (1974): 酸素原子あるは窒素原子とパラフィン炭化水素との反応に関する研究, 大気汚染研究, 9 148.
- 155) 嶋田勇, 柳原茂, 石井猛, 篠山鋭一, 有藤有文三, 千阪文武, (1974), 各種炭化水素の反応性及び反応性, 大気汚染研究, 9 154.
- 156) 今井徹, 鈴木雄, 末吉靖夫, (1974): 移動式スモッグチェンバーによるフィールドサーベ (中4報), 大気汚染研究, 9 158.
- 157) 北田敏広, 平岡正勝, (1974): 反応性及びモデル構成への一つの試み, 大気汚染研究, 9 159.
- 158) 千阪文武, 柳原茂, 嶋田勇, (1974): 反応性及び生成物の総算表にミレーショ (中4報), 大気汚染研究, 9 160.
- 159) 河本達男, 池田有夫, 平岡正勝, (1975): 反応性及びの一般化モデル, 大気汚染研究, 10 491.
- 160) 北田敏広, 平岡正勝, (1975): 反応性及びモデル構成への一つの試み(その2), 大気汚染研究, 10 492.
- 161) 秋元肇, (1976): 炭化水素混合物に対する HC-NOx系反応性及びの一般化モデル, 大気汚染研究 11 359.
- 162) 山崎秀郎, 秋元肇, (1976): 反応性及び大気汚染のミレーショの方法, 大気汚染研究, 11 362.
- 163) 北田敏広, 平岡正勝, (1976): 反応性及びモデル構成への一つの試み, 大気汚染研究, 11 363.

164) L. WAYNE, R. DANCHICK, M. WEISBURD, A. KOKIN, A. STEIN, (1972): Modeling Photochemical Smog on a Computer for Decision-Making; J.A.P.C.A., 21, 334-340.

165) R.C. SKLAREW, A.J. FABRIK, J. PRAGER, (1972): Mathematical Modeling of Photochemical Smog Using the Pick Method, J.A.P.C.A., 22, 865-869.

166) C.H. WU, H. NIKI, (1975): Methods for Measuring NO_2 Photodissociation Rate, Environ. Sci. Tech., 9, 46-52.

167) N. NEVERS, J.R. MORRIS, (1975): ROLLBACK MODELING: BASIC AND MODIFIED, J.A.P.C.A., 25, 943-947.

168) T.Y. CHANG, B. WEINSTOCK, (1975): Generalized Rollback Modeling for Urban Air Pollution Control, J.A.P.C.A., 25, 1033-1037.

169) C.K.K. YEUNG, C.R. PHILLIPS, (1975): Hydrocarbon Consumption and Synergistic Effects in Photooxidation of Olefins, Environ. Sci. Tech., 9, 732-737.

170) 環境庁 数値計画, (1976): 大気汚染予測モデルの開発調査報告書!

171) 上岡貞一, 高橋政和, 中島暢太郎, 多河英雄, (1974): 京都市における大気汚染の予測と対策について, 大気汚染研究 9, 578.

172) 堀内康正, 新家義行, 江崎貞夫, (1974): オキシダント高濃度出現状況とその

予測手法について, 大気汚染研究, 9, 55p.

173) 高橋政和, 土田順一, 中島暢太郎, 多可英雄, (1975): 京都府における文化遺産

における大気汚染の予測について, 大気汚染研究, 10, 472.

174) 田村穂積, 木本雅仁, 海津芳正, 村田元秀, (1976): 統計的手法による大気

汚染濃度予測, 才3国環境保全・公害防止研究発表会 P-43.

175) 添田喬, (1975): 大気汚染予測モデルと予測, 環境システムの予測とモ

デリング シンポジウムテキスト, 計測自動制御学会関西支部 P-24-37.

176) 榎本義一, 添田喬, (1976): 統計的手法による大気汚染の予測, 環境

技術 5, 1055-1065.