

氏 名 (本籍)	村 田 元 秀 (三重)
学 位 の 種 類	獣 医 学 博 士
学 位 記 番 号	乙 第 106 号
学位授与の日付	昭和52年 5 月23日
学位授与の要件	学位規則第 5 条第 2 項該当
学位論文題名	オキシダント濃度の予測に関する研究
論文審査委員	(主査) 教授 山 田 俊 雄 (副査) 教授 田 中 享 一 教授 越 智 勇 一

論 文 内 容 の 要 旨

わが国における戦後の大気汚染問題の主役は、昭和40年代の前半までは、硫黄酸化物であった。しかし、この問題は、相次ぐ規制の強化と、対策技術の確立によって、殆ど解決したといっても過言ではない。

硫黄酸化物に代って、大きな社会問題として登場してきたのが、光化学反応による大気汚染である。この問題は、アメリカでは、1940年代からロサンゼルス地域に発生していたが、日本では、昭和45年7月の東京都立正高生生徒の集団被害事件が最初であり、以後、北海道と九州を除いた太平洋側の各都府県において、全国で年々 20,000 名をこえる、眼刺激を主徴とした被害者が発生している現状である。したがって、この問題の解決は、緊急を要する、重大な課題である。

この問題の解決を困難にしている原因の一つとして、その原因物質があげられる。光化学反応による大気汚染は、他の大気汚染と異って、単一物質の排出によるものではなく、大気中に共存する炭化水素と窒素酸化物に、太陽光中の紫外線が作用することによって生成する二次汚染物質が原因物質である。しかもこの物質は、オゾン、二酸化窒素、パーオキシアセチルナイトレートおよびその同族体などの酸化性物質や、ホルムアルデヒド、アクロレインなどの還元性物質など数多くの物質があげられるが、光化学反応による大気汚染の状態を示す指標としては、生成した酸化物質のうち、二酸化窒素を除いたものを「光化学オキシダント」(以下「オキシダント」という。)として用いている。

次に、原因物質の発生源の多様性があげられよう。窒素酸化物は、固定発生源だけでなく、移動発生源や家庭などからの排出まで考慮する必要がある、防止技術の未確立とも相まって、発生源からの排出規制を困難にしている。また、炭化水素の種類は非常に多く、光化学反応性はその種類によって異なるとともに、窒素酸化物濃度と関連した濃度によっても異なることや、その発生が排出だけでなく、漏洩による部分の寄与が大きいことも問題である。

さらに、問題を複雑にしているのは、オキシダントが高くなるにつれて、眼刺激などの急性の人体影響が顕著に発現することを前提に、三重県は勿論、全国的に、その濃度が継続するような気象条件を条件として、オキシダント濃度が 0.1ppm に達すると、光化学オキシダント予報を発令して、主要固定発生源に対して、燃料使用量の削減準備を指示し、濃度が 0.15ppm を越えると、燃料使用量の 20% 削減を指示しているのが通常である。しかしながら、これらの緊急時の措置発令と被害者の発生とは、必ずしも一致していないのが現状である。

このように、多しの要因が複雑に絡みあっているのが、光化学反応による大気汚染であるが、濃度が高くなってから規制措置を発令したり、住民に周知させるのではなくて、事前に、周知もしくは規制が実施できれば、被害の発生を最少限に阻止できる筈である。

このような観点から、オキシダント濃度の定量的な予測が必要となってくるが、現状で考えられる予測手法としては、物理モデルによる方法と、統計モデルによる法の二つが考えられる。この場合に、物理モデルを用いるには、まづ、光化学反応機構の完全な解明の上に立って、反応をモデル化し、これと拡散モデル(物理モデル)の組合せで、電算機シミュレーションを行う必要があり、定量化には、まだ相当の時間を要するうえ、実用化に際しての問題を考慮すれば、早急には実用化に至らないものと考えられる。

一方の統計モデルについては、現状では、経験則を中心とした半定量的な手法が気象官署を中心に用いられている。

著者は、最近の電算機の普及に伴って、多用されつつある、多変量解析の手法を用いて、オキシダント濃度に関係す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を行った。

まづ、解析ならびに予測を行う場所としては、四日市市にある四日市商業高校を選び、ここでの汚染物質測定結果を用いた。用いた物質は、一酸化窒素、二酸化窒素、二酸化硫黄、浮遊粒子状物質ならびにオキシダントであり、これらの9時の測定値を説明変数として選ぶとともに、その日のオキシダントの最高濃度を目的変数として用いた。

気象条件については、天気・視程・風向・風速・気温・湿度については、四日市測候所の9時の観測結果を用いた。また、日最高気温と6時の気温との差を気温の日較差として、さらには、日最高気温と日最高気温の平年値との差なら、びに日最低湿度も用いた。また、気象の垂直方向の影響を把握するため、御在所山頂の9時の風向・風速を用い、日射量については、三重県環境科学センターにおける測定結果から、7時から9時までの3時間平均値を用いた。以上で、説明変数としての気象条件は14となった。

19の説明変数を基準化した後、相関行列をつくり、これの主成分分析を行って、因子負荷量を求めると、各変数は

- 1) 天 気 群
- 2) 日 射 量 群
- 3) 気 温 群
- 4) 風 向 群
- 5) 風 速 群
- 6) 汚染物質群

の6群と、独立変数として、オキシダント初期値と視程の2変数に分類された。

また、第1主成分から第3主成分までで全体の61.5%を説明でき、第1主成分は、オキシダント初期値に関連した天気の変数であり、第2主成分は、気温に関連した変数、第3主成分は、一次汚染物質の変数とすることができる。これを近似的に式で示せば、

$$Z_1 \doteq 0.8 \times (\text{湿度}) + 0.9 \times (\text{天気}) - 0.9 \times (\text{気温の日較差}) - 0.8 \times (\text{日最高気温の平年値との差}) - 0.9 \times (\text{日射量}) + 0.9 \times (\text{日最低湿度}) - 0.5 \times (\text{オキシダント初期値})$$

$$Z_2 \doteq 0.8 \times (6 \text{ 時の気温}) + 0.9 \times (9 \text{ 時の気温}) + 0.8 \times (\text{日最高気温}) + 0.7 \times (\text{浮遊粒子状物質})$$

$$Z_3 = 0.7 \times (\text{二酸化窒素}) + 0.6 \times (\text{二酸化硫黄}) - 0.7 \times (\text{視程})$$

となる。

次に、19の説明変数と目的変数であるオキシダント日最高濃度を用いて、変数増減法による重回帰分析（F値の取入れまたは棄却限界値は2.0とした。）を実施した結果、次の予測式が得られた。

$$\begin{aligned} \text{オキシダント日最高濃度} = & 7.78 \times (\text{気温の日較差}) - 3.74 \times (\text{御在所山頂の風速}) \\ & + 1.18 \times (\text{オキシダント初期値}) + 0.99 \times (\text{最低湿度}) + 3.29 \\ & \times (\text{御在所山頂の風向}) - 0.99 \times (\text{視程}) + 3.21 \times (\text{一酸化窒素}) - 77.59 \end{aligned}$$

得られた予測式の重相関係数は +0.822 で、ダービン、ワトソン比は 2.07 であった。また分散分析の結果、F値は 24.35 であったから、F(7, 82, P=0.5%) は 3.18 であるので、危険率 0.5% 以下で有意な式が得られたわけである。

さらに、さきの因子負荷量による説明変数の分類結果と比較してみると、得られた式は、独立変数 2 変数と、6 群中 5 群から各々 1 変数を選んでおり、さきの分類結果とも一致していることが判った。なお、式は、気温の日較差が大きく、御在所山頂の風速が弱く、オキシダント初期値が高く、御在所山頂の風向が西寄り、視程が悪く、一酸化窒素濃度が高いときに、オキシダント最高濃度が高いことを示しており、過去の知見に照しても妥当であるといえる。最低湿度の符号が正であるが、係数は小さいので、この場合、抑制変数として機能したのではないかと考えられる。

最後に、得られた予測式の予測精度を検証するため、昭和49年と同様な方法で昭和50年のデータを蒐集し、得られた58組のデータについて予測を行った。その結果、オキシダント最高濃度の実測値と予測値の間には、+0.758 の相関係数が得られた。t検定の結果、危険率 1% = 0.337 であるから、この結果は、危険率 1% 以下であるといえるが、念のため、光化学オキシダント予報発令基準値である 0.1ppm 以上の濃度について、実測値と予測値の関係をみてみると、実測値の最高値が 0.1ppm 以上となった日は、58例中14例であった。この14例の平均値は 0.119ppm であって、これに対応する予測値の平均値は 0.121ppm であった。また、予測値が 0.1ppm に達しなかったのは 14 例中 1 例であって、実測値 0.10ppm に対し、予測値 0.088ppm となった 1 例のみであった。したがって、その的中率は 92.8% であった。三重県では、昭和 49 年の光化学オキシダント注意報 (0.15ppm 以上) の発令は 7 回であったのに対して、50 年の発令は 0 であった。同予報 (0.10ppm 以上) の発令も、同様に、49 年 20 回、50 年 11 回と減少の傾向を示しており、全国的傾向と一致している。この原因としては、いわゆる冷夏現象によるためではないかといわれているが、このような状況下で、前年の式そのまま、高濃度の予測的中率 92.8% の高的中率を得たことは、式の構造の妥当性と適正さを示すものと考えられる。

結論としては、光化学反応論上からも妥当で充分な予測精度をもった式を得ることができたものと考えられる。また、各変数は 9 時までのデータ（最大値、最小値は 9 時の予測値を用いる。）で予測を行えるよう配慮したので、データ蒐集に 30 分、予測計算に 30 分を見込んでも、10 時には、その日の最高濃度の予報を発表することが可能であるため、最高濃度の出現までには、3～4 時間の余裕を見込むことができるので、事前制御等の対策面にも極めて有効であると確信する。

論文審査の結果の要旨

光化学反応による大気汚染は、硫黄酸化物による大気汚染のように、単一物質の排出によるものではなく、大気中に共存する炭化水素と窒素酸化物に、太陽光中の紫外線が作用することによって、生成される二次汚染物質が原因物質である。この複雑さに加えて、一次汚染物質の発生源の多様性も、また、オキシダント公害の解決を困難にしている原因の1つである。窒素酸化物は、固定発生源（工場・事業場）のみでなく、移動発生源や家庭などからの排出まで考慮する必要がある、その防止技術の未確立とも相まって、発生源からの排出規制は困難である。また、炭化水素の種類も非常に多く、光化学反応性は、その種類によって異なるとともに、窒素酸化物濃度によっても左右されるものといわれる。さらに、重要な問題点は、オキシダントが高くなるにつれて、眼刺激などの急性の人体影響が顕著に発現することが予想されるので、その濃度が継続するような気象条件を前提として、オキシダント濃度が0.1ppmに達すると、光化学オキシダント予報を発して、主要固定発生源に対して、燃料使用量の削減準備を指示し、濃度が0.15ppmを越えると、燃料使用量の20%削減を指示しているのが通常であるが、これらの緊急時措置と被害者発生とは、必ずしも一致しないなどの難点があり、光化学スモッグ問題の解決を困難にしている。

オキシダントの定量的予測手法としては、物理モデル・統計モデルなどが考えられているが、必ずしも実用的・効率的とはいえない。著者は、近時、各方面で応用をみている多変量解析の手法を用いて、オキシダント濃度に関係する因子の解析ならびに、オキシダント最高濃度の定量的予測の可能性について検討を加え、以下にのべるような広汎な成果をあげている。

まず、対象システムにおいて、目的変数としては、オキシダント日最高濃度(OXMAX)をとり、説明変数としては、つぎのとおり、汚染物質の測定値5要素、気象条件の測定値14要素を採用し、合計20要素の揃った90組のデータを、研究資料としている。

大気汚染物質^{*)}：一酸化窒素(NO)(ppb)・二酸化窒素(NO₂)(ppb)・二酸化硫黄(SO₂)(ppb)・浮遊粒子状物質(DST)($\mu\text{g}/\text{m}^3 \times 10$)・オキシダント初期値(OX)：* いずれも、午前9時値。

気象条件：天気¹⁾(WEA)・湿度²⁾(HUM)(%)・日最低湿度(HMN)(%)・気温の日較差^{*)}(D6)(°C)・日射量^{**)}(SRD)($\text{Cal}/\text{cm}^2/\text{hr}$)・日最高気温と日最高気温の平均値との差(DTMX)(°C)・日最高気温(TMX)(°C)・6時気温(T6)(°C)・9時気温(T9)(°C)・視程³⁾(VIS)(km)・風向⁴⁾(WD)・風速⁵⁾(WV)(m/s)・御在所山頂風向^{***)}(GWD)・御在所山頂風速^{****)}(GWV)：¹⁾⁻⁵⁾、9時値・* 日最高気温と6時の気温との差・** 7～9時までの3時間平均値、*** 9時値、気象の垂直方向の影響把握のため、御在所岳は標高1,200米。

この19説明変数を基準化した上、相関行列を作り、これについて主成分分析をおこない、因子負荷量(得られた主成分ともとの変数との相関係数)を求めると、第1軸(Z₁)には、天気関係(湿度(+))・天気(+))・日最低湿度(+))・気温日較差(-))・日最高気温の平年値との差(-))・日射量(-))・オキシダント初期値(-))、(天気が良く、湿度が低いと、+の値は小さくなる)、第2軸(Z₂)には、気温関係(6時気温(+))・9時気温(+))・日最高気温(+))・浮遊粒子状物質(+))が、また、第3軸(Z₃)には、一次汚染物質(NO₂(+))・SO₂(+))・視程(-))・御在所山頂風速(-))が、それぞれ、集まっているのがみとめられた。そして、第1主成分から第3主成分までで、全体の61.5%を説明することができ、これを各変数の第3主成分までの累積寄与率でみると、6時気温・9時気温・日最高気温・湿度・日最低湿度などが80%以上、天気・気温日

較差・日最高気温の平均値との差・日射量が70%以上の寄与率を示している。

ついで、各主成分に含まれている比較的大きい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、因子軸の直交回転（バリマックス法）を試みると、回転後の各軸（ F_1 ・ F_2 ・ F_3 ）は、つぎのように示すことができる。すなわち、

$$F_1(\text{天気})=0.9\text{HUM}+0.9\text{WEA}-0.8\text{D6}-0.6\text{DTMY}-0.9\text{SRD}+0.9\text{HMN}$$

$$F_2(\text{気温})=0.9\text{T6}+1.0\text{T9}+0.9\text{TMX}$$

$$F_3(\text{一次汚染物質})=0.8\text{NO}_2+0.8\text{SO}_2+0.7\text{DST}-0.6\text{VIS}$$

と得られ、これを図示（Fig 8）すると、これらの関係が直観的・立体的に観察される。

つぎに、19個の説明変数と、目的変数として日最高濃度を用いて、変数増減法による重回帰分析を実施した結果、つぎの予測式を得ている。すなわち、

$$\begin{aligned}\text{OXMAX} = & -77.59 + 7.78\text{D6} - 3.74\text{GWV} + 1.18\text{OX} + 0.99\text{HMN} \\ & + 3.29\text{GWD} - 0.99\text{VIS} + 3.21\text{NO}\end{aligned}\quad (1)$$

この重相関係数は、+0.822 と求められており、

さきに示したように（Fig 8）、この系の19変数は、つぎの6群と2つの独立変数に分類される。

すなわち、

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・最高気温と平年値の差，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・二酸化窒素・二酸化硫黄・浮遊粒子状物質，7) 視程，8) オキシダント初期値。

いま得られた重回帰式の説明変数をみると、気温群を除いた各群から、おのおの1個づつの変数が抽出され、これに独立変数2変数が加わって、予測式が成立していることがわかる。（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、予測式は説明の変数として選んだ19変数を、うまく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、御在所の風速と視程ならびに、定数項であって、その他の変数は正である。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、妥当なものと考えてよいようである。

なお、念のため、上で除かれた気温群から、日最高気温を加え、8変数による重回帰式を求めてみると、

$$\begin{aligned}\text{OXMAX} = & -84.7 + 6.89\text{D6} - 3.54\text{GWV} + 1.17\text{OX} + 0.85\text{HMN} + 3.06\text{GWD} \\ & - 1.15\text{VIS} + 3.03\text{NO} + 0.96\text{TMX}\end{aligned}\quad (2)$$

と得られ、重相関係数は +0.825。

(1)と(2)両式の間には、有意の差は認められないことが示され、爾後の研究には、(1)式を採用している。

ついで、著者はこの重回帰予測式を用いて、その予測精度を検証するため、別に得られた58組のデータについて予測実験を行った結果、オキシダント最高濃度の実測値と予測値の間には、+0.758の相関係数が得られた。（ $P < 0.01$ ）。光化学オキシダント予報発令基準値である0.1ppm以上の濃度について、実測値と予測値の関係をみると、実測値の最高値が0.1ppm以上となった日は、58例中14例、この14例の平均値は0.119ppmであって、これに対応する予測値の平均値は0.121ppmと得られた。予測値が0.1ppmに達しな

かったのは14例中1例で、(実測値 0.10ppm, 予測値 0.088ppm)。その的中率は92.8%であった。三重県では、昭和49年の光化学オキシダント注意報 (0.15ppm 以上) の発令は7回であったのに対して、50年の発令は0回であり、同予報 (0.10ppm 以上) の発令も同様に、49年20回、50年11回と減少の傾向を示しており、全国的な傾向と一致している。この理由としては、いわゆる冷夏現象によるためではないかといわれているが、このような状況下で、前年の式そのまま、予測的中率92.8%という高的中率を得たことと、予測式の構造の妥当性と適正さを示すものである。

以上、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、多変量解析的接近を試み、つぎのごとき結論が得られた。

(1) 4つの一次汚染物質と、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・日射量群・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、それぞれの特性を、気象条件との相関関係において、これを解明することができた。

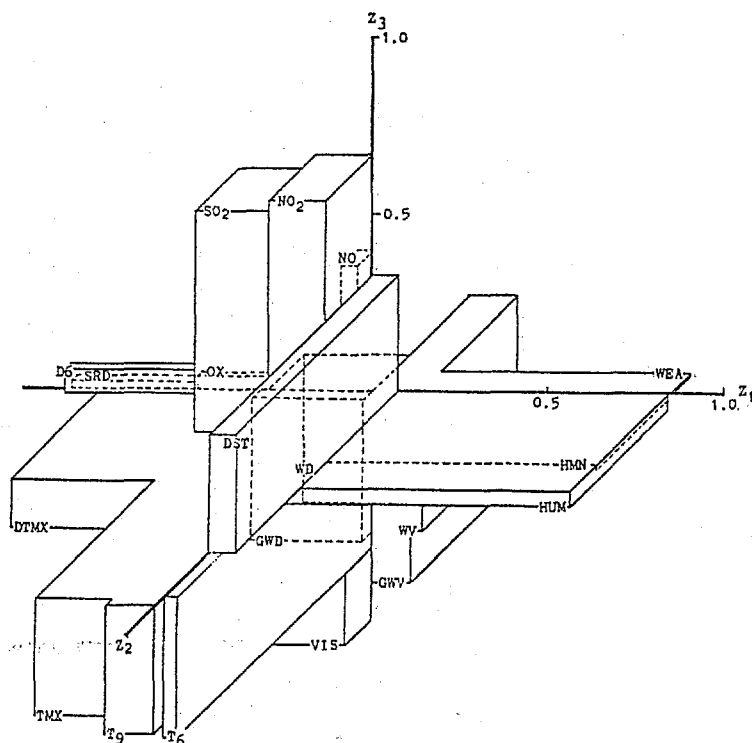


Fig. 8. Factor loadings corresponding to Z_1 , Z_2 , and Z_3 axes.

OX: オキシダント初期値, WEA: 天気, HUM: 湿度, WD: 風向, WV: 風速
DST: 浮遊粒子状物質, HMN: 日最低湿度, GWD: 御在所風向, GWV: 同風速
D6: 気温の日較差, SRD: 日射量, VIS: 視程, DTMX: 日最高気温と日最高気
温平均値との差, TMX: 日最高気温, T9・T6: 9時と6時の気温

(2) これら19変量を、3次元グラフに位置させ、夏期における朝の大気汚染構造で、つぎのように把握することができた。すなわち、第1主成分は、オキシダント初期濃度と、これを支配する日射量群と、天気群から成立ち、第2主成分は気温群、第3主成分は、汚染物質群から成立っている。

(3) 19変量を説明変数とし、オキシダント日最高濃度を目的変数として、重回帰分析を行なった結果、気温群を除いた他の5群から、各1つづつの変量が抽出され、2個の独立変量をこれに加えて、合計7変量による重回帰予備式が構成された。これらの抽出された各変量は、過去の知見からみても妥当なものであり、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) 得られた重回帰予備式を用いて、予測検証を行った結果は、実用にも十分堪え得ることが実証された。

この研究は、複雑な気象条件と光化学反応に関与する各種の一次汚染物質との相互関係を、多変量解析の手法を高度に応用して、多次元的に把握・解析して、光化学スモッグ公害の予測方式を定式化する試みであって、獣医公衆衛生学にとって、甚だ貴重な業績といえることができる。

ここに、本学において、獣医学博士の学位を授与するにふさわしい研究であることを認める。