

学 位 申 請 論 文

オキシダント濃度の予測に関する研究

(要 旨)

村 田 元 秀

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月の東京都立正高校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、生成した酸化性物質のうち、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り、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、オキシダント濃度が高くなるのにつれて、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0.1 ppm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0.15 ppmを越えると、燃料使用量の20%削減を指示しているが通常である。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、多く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、電算機シュミ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、早急には実用化には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、多用されつゝある、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、こゝ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いえることができる。これを近似的に式で示せば、

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

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

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

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。

$$\begin{aligned} \text{オキシダント日最高濃度} = & 7.78 \times (\text{気温の日較差}) - 3.74 \times (\text{御在所山頂の風速}) \\ & + 1.18 \times (\text{オキシダント初期値}) + 0.99 \times (\text{最低湿度}) + 3.29 \times (\text{御在所山頂の風向}) \\ & - 0.99 \times (\text{視程}) + 3.21 \times (\text{一酸化窒素}) - 7.759 \end{aligned}$$

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2.435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%以下で有意であるといえるが、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、その適中率は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、全国的な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、前年の式そのまゝで、高濃度の予測適中率92.8%の高適中率を得たことは、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十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時間の予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。