II-278　大気汚染濃度の地域特性解析

京都大学原子炉実験所
正員　塚谷恒雄

1. はじめに　大気汚染濃度の分布形モデルは、発生源の状態，地形・気象条件，測定方法，統計操作の方法などによって影響を受ける。発生源の状態とは、高煙突排出，低煙源からの排出，連続・不連続排出などの要素を指す。分布形は、地域固有の地形・気象条件によって変化するだけでなく、そのモデルは汚染物の測定方法によっても影響を受け，例えば低濃度域の測定精度が悪かったり，高濃度域でのスケールアウトなどがある。従来の大気拡散論では、このように時々刻々変化する多種多様な要素を考慮することは不可能であった。大気拡散モデルで与えられる濃度値が年間の平均値であるのか、月平均値であるのか、最大値か極大値かの疑問は残されたままである。大気汚染対策として長期的な平均値を低減させる場合、短期的な高濃度汚染の出現頻度も減少するが、その減少の程度は、単に平均値の減少に比例するのではなく、その分布形にも依存する。

2. 分布モデル　このような特徴をもつ大気汚染濃度の確率分布を表わすために、いくつかの分布モデルが提唱されている。LARSEN (1969)，庄司・塚谷 (1970) はそれぞれ、米国のCAMPとわが国の主要都市のデータをもとに、いおう酸化物，浮遊粉じん，窒素酸化物などの濃度分布が対数正規型で近似できることを得た。濃度変動 $\chi(t)$ の確率密度関数 $f(\chi)$ は次のようになる。ここで $\chi(t)$ の幾何平均値を $\bar{\chi}_{g.m.}$ とすると $\mu = \log \bar{\chi}_{g.m.}$ である。

$$f(\chi) = \frac{1}{\chi}\frac{1}{\sqrt{2\pi}\,\sigma}\exp\left\{-\frac{(\log \chi-\mu)^2}{2\sigma^2}\right\} \qquad (1)$$

σ は変動 $\log \chi(t)$ の標準偏差である。χ の原点回りのモーメントは次のように求められる。

$$E[\chi^k] = E[\exp(k\chi)] = E[\exp\{k(y\sigma+\mu)\}] = \exp(k\mu + k^2\sigma^2/2)$$

上式から $\chi(t)$ の算術平均値 $\bar{\chi}_{a.m.}$ および分散はそれぞれ次のようになる。

$$\bar{\chi}_{a.m.} = \bar{\chi}_{g.m.}\exp(\sigma^2/2)\,,\qquad var[\chi] = \bar{\chi}^2_{g.m.}\exp\sigma^2(\exp\sigma^2-1) = \bar{\chi}^2_{a.m.}(\exp\sigma^2-1)$$

ASH その他 (1972) は米国ニュージャージ州の2地点においての一酸化炭素およびいおう酸化物の濃度分布を解析・検定して，4乗根正規分布 (fourth-root Gaussian distribution) が特に低濃度域では対数正規分布よりよくあてはまることを得た。ASH その他は、更に $\chi(t)=0$ の場合を考慮して $(\chi+1)^{1/4}$ なる変換を行なうことをも提唱している。

その他の分布モデルには、ガンマ分布，ワイブル分布がある。ガンマ分布はピアソン系のIII型に属し、形の母数 α，尺度の母数 β によって確率密度関数が次のように表わされるものである。Γ はガンマ関数である。

$$f(\chi) = \frac{1}{\Gamma(\alpha)\beta^\alpha}\chi^{\alpha-1}\exp\left(-\frac{\chi}{\beta}\right) \qquad (2)$$

この分布の平均，分散はそれぞれ次のようになる。

$$E[\chi] = \alpha\beta\,,\qquad var[\chi] = \alpha\beta^2$$

ワイブル分布は材料，構造物，装置などの寿命分布を表わすものとして知られ、2つの母数 α，m によって次のように表わされるものである。

$$f(\chi) = \frac{m}{\alpha}\chi^{m-1}\exp\left(-\frac{\chi^m}{\alpha}\right) \qquad (3)$$

この分布の平均，分散は次のようであり，したがって変動係数 ($\sqrt{var[\chi]}/E[\chi]$) は m のみで表わされる。

$$E[x] = \alpha^{1/m}\,\Gamma\left(\frac{m+1}{m}\right), \quad var[x] = \alpha^{2/m}\left\{\Gamma\left(\frac{m+2}{m}\right) - \Gamma^2\left(\frac{m+1}{m}\right)\right\}$$

これら各分布の5および95パーセンタイル値 x_5, x_{95} の比が $x_{95}/x_5 = 13.90$（$\sigma = 0.8$ に相当）の場合、ワイブル分布，4乗根正規分布の対数正規分布に対する比は、x_{50} についてそれぞれ 1.45, 1.22 であり，x_{99} については 0.77，0.84 である。

わが国の代表的測定点におけるいおう酸化物などの分布を1カ月毎に求め，以上の各分布形モデルへの適合度を，確率紙を使って求めた。その結果の一部を右表に示す。

測定点（年度）		3月	4	5	6	7	8	9	総合
都庁前 (44)	L	・	+	+	+	・	・	・	・
	4	+	+	+	○	+	・	+	○
	W	○	+	+	○	○	+	○	+
城東保健所 (44)	L	+	・	+	+	+	+	+	・
	4	○	○	・	○	○	○	○	○
	W	・	+	・	+	+	+	+	・
都衛生研究所 (44)	L	○		○	+	+	・	○	+
	4	+		・	○	○	+	・	・
	W	・		・	・	+	・	・	・
東京タワー 25m (44)	L	+	・	+	+	・	○	○	+
	4	○	+	・	○	・	・	・	+
	W	・	・	・	+	・	・	・	・
東京タワー 125m (44)	L	+	○	○	・	・	・	+	+
	4	・	+	・	・	+	+	・	・
	W	・	・	・	・	・	・	・	・
東京タワー 225m (44)	L	・	・	○	・	・	○	○	+
	4	・	+	・	○	+	・	・	○
	W	・	・	・	+	・	・	・	+
京都市役所 (46)	L	○	○	○	+	+	+	+	○
	4	+	+	○	+	+	+	+	・
	W	+	+	+	・	+	+	・	・
磯津 (42)	L	・	・	・	・	+	・	+	・
	4	+	・	+	・	・	+	+	+
	W	○	・	・	・	・	・	・	・
四日市保健所 (42)	L	+	+	○	・	+	・	・	+
	4	・	・	・	+	○	+	・	+
	W	・	・	・	・	+	・	・	・
三浜小 (42)	L	・	・	・	+	+	+	+	・
	4	・	・	・	○	・	・	・	・
	W	+	+	・	+	・	・	・	+
窯業試験所 (42)	L	+	+	・	・	+	+	+	+
	4	・	・	+	・	+	・	・	+
	W	・	・	・	・	・	・	・	・

表．確率紙による適合度

L：対数正規分布
4：4乗根正規分布
W：ワイブル分布
○：良く合う
+：合う　・：合わない

3．パーセンタイル濃度　庄司・塚谷（1973）は，平均化時間 s なる ζ パーセンタイル値 $x_{s,\zeta}$ を次式にて近似した。

$$\frac{x_{s,\zeta}}{\bar{x}_{gm}} = \exp\left\{ y_\zeta \cdot \sigma(s) \right\} \qquad (4)$$

ここで

$$\sigma(s) = \sigma(1)\sqrt{G(s)/G(1)}, \qquad (5)$$

$$G(s) = \frac{2}{s}\int_0^s \left(1 - \frac{\tau}{s}\right) R(\tau)\, d\tau, \qquad (6)$$

$$y_\zeta = \Phi^{-1}(\zeta). \qquad (7)$$

$R(\tau)$ は $\log x(t)$ の自己相関係数，$\Phi(y)$ は誤差関数である。

相関関数 $R(\tau)$ が $R(\tau) = \exp(-\tau/\ell)$（$\ell$: integral scale）で近似されるとき $G(s)$ は次のようになる。

$$G(s) = 2\frac{\ell^2}{s^2}\left[\exp\left(-\frac{s}{\ell}\right) - 1 + \frac{s}{\ell}\right] \qquad (8)$$

谷沢ら（1972）は $R(\tau) = \exp(-\tau/\ell)\cdot\cos(2\pi\tau/\tau_0)$ と近似したが，このときの $G(s)$ は次式のようになる。

$$G(s) = 2\frac{\ell^2}{s^2}\left[\left\{1 - \left(\frac{2\pi\ell}{\tau_0}\right)^2\right\}\left\{\exp\left(-\frac{s}{\ell}\right)\cos\left(\frac{2\pi s}{\tau_0}\right) - 1\right\} + \frac{\ell}{s}\left\{1 + \left(\frac{2\pi\ell}{\tau_0}\right)^2\right\} - \frac{4\pi\ell}{\tau_0}\cdot\exp\left(-\frac{s}{\ell}\right)\sin\left(\frac{2\pi s}{\tau_0}\right)\right] \Big/ \left\{1 + \left(\frac{2\pi\ell}{\tau_0}\right)^2\right\}^2 \qquad (9)$$

右表の地点などについて，1カ月間および6カ月間の自己相関係数を求めた。その結果 $R(\tau)$ は次式で近似できることを得た。

$$R(\tau) = a\cdot\exp\left(-\frac{\tau}{\ell}\right) + (1-a)\cos\left(\frac{2\pi\tau}{\tau_0}\right)$$

このときの $G(s)$ は次のようになる。

$$G(s) = (1-a)\frac{2\ell^2}{s^2}\left\{\frac{s}{\ell} - 1 + \exp\left(-\frac{s}{\ell}\right)\right\} + \left(\frac{\tau_0}{\pi}\right)^2\frac{a}{2s^2}\left\{1 - \cos\left(\frac{2\pi s}{\tau_0}\right)\right\} \qquad (10)$$

これらの $G(s)$ を使ってパーセンタイル濃度を求めた。

ASH et al (1972): Princeton Univ. Tech rep. 19
LARSEN (1969): J. APCA, 19　庄司・塚谷 (1970): 衛生工学討論会，ibid (1973): Atm. Env. 7-5