

大気環境の濃度と基準に関する  
基礎的研究

1980年 1月

塚 谷 恒 雄

大気環境の濃度と基準に関する  
基 礎 的 研 究

1980年 1月

塚 谷 恒 雄

# 目 次

第1章 緒論	1
第2章 大気汚染濃度の確率分布理論	3
第1節 概説	3
第2節 対数正規分布	6
第3節 ワイブル分布およびそのパーセント点	11
第4節 ピアソン系分布	17
第5節 大気拡散モデルと分布理論	26
第6節 要約	31
第3章 大気汚染濃度の確率分布解析	33
第1節 概説	33
第2節 地域別の分布形解析	38
第3節 汚染物質相互の濃度分布	48
第4節 ピアソン系分布と対数正規分布	51
第5節 対数正規分布のパラメータ推定	57
第6節 要約	64
第4章 大気汚染濃度の時系列解析	67
第1節 概説	67
第2節 スペクトルと自己相関係数の計算条件	71
第3節 大気汚染濃度のスペクトルと自己相関係数	74
第4節 汚染物質毎のスペクトルと自己相関係数	79
第5節 スペクトルと自己相関係数の定式化	82
第6節 要約	87
第5章 大気汚染濃度の平均化解析	89
第1節 概説	89
第2節 平均化理論	93
第3節 平均化理論の大気汚染への応用	98
第4節 アローヘッドチャート理論	107

第5節	要約	120
<b>第6章</b>	<b>大気汚染制御目標の衛生工学的設計</b>	<b>123</b>
第1節	概説	123
第2節	大気汚染濃度のDoseと超過回数	126
第3節	大気汚染濃度の等価表示と超過確率	134
第4節	環境基準に関するいくつかの応用例	139
第5節	要約	141
<b>第7章</b>	<b>二酸化窒素に係る環境基準の統計的検討</b>	<b>143</b>
第1節	概説	143
第2節	量・反応関係と安全係数	144
第3節	二酸化窒素に係る指針値の根拠と評価	146
第4節	二酸化窒素に係る量・反応関係	151
第5節	要約	155
<b>第8章</b>	<b>結論</b>	<b>157</b>
参考文献		160

# 第1章 緒 論

大気汚染は、庄司(1966)が定義するように「人工的に大気中に導入された汚染物の量、濃度あるいは持続時間が過剰で、ある地域の多数の人に不快感を与え、あるいは公衆衛生上、または人、動物、植物の生命、財産に有害であり、あるいは国または一地域にわたって、生活および財産の正当な享受が妨げられる状態」といえる。このような大気汚染に関し、本研究は次のような動機と目的の下になされたものである。

## 問題の所在

大気汚染制御にあたって課題となる項目を、技術的・工学的なものに限って挙げれば次のとおりである。

- 1) 発生源における汚染物質排出量の低減。
- 2) 発生源における汚染物質排出量と環境濃度との関連性の把握。
- 3) 環境濃度と影響との関連性の把握。

わが国の大気汚染制御の歴史をふり返れば、上記項目のうち1)については、燃料規制、防除装置の開発、原料転換、立地規制などにより、恒久的かつ充分ではないにせよ、幾多の成果が蓄積されつつあると評価できよう。2)の項目については、わが国の近年の大気汚染状況の推移が物語るように、1)の項目に関する進展の当然の結果として、大気環境の改善はなし得るものである。発生源と大気環境の汚染状況との関連性は、依然として学問的にも検討課題として解明されねばならないが、基本的には何よりも発生源規制という社会的経験の結果として把握されてしかるべきものである。

3)の項目については未解明の部分が多い。大気汚染は一定の疾病や身体的障害を生ずるのみならず、生活上の不便や精神的な不快、社会的財産、自然的資源に影響を与えるものであるが、特に影響を被る対象が集団としての人の健康である場合、大気汚染と影響との関連性についての知見が少ないことはWHO(1977)においても強調されているところである。

このような関連性解明の困難さを更に述べれば、

- ① 人体実験等によって大気汚染と健康影響を受ける人々をコントロールすることが、倫理的に忌避されていること、
- ② 微量・長期かつ複合的な大気汚染によって生ずる影響は非特異的影響であり、これらを検出することが困難であること、
- ③ 人口集団もしくは個人に対する大気汚染ばく露条件の定量的表現手法が充分には整備されていないこと、

等が挙げられよう。

大気汚染制御という社会的行動をおこす際、主要な検討課題の1つとして、大気環境状態のあるべき目標を定めることが挙げられる。行動の目的が人の健康を保護することにあるならば、そのような目標は、大気汚染を説明変数とし健康影響を目的関数とする定量的な関数関係の知見をもとにして定められるべきである。冒頭に定義された大気汚染の現象発生の機序は1)→2)→3)の順で説明されるが、人間の社会行動の全面停止を意図するものでない限り、制御行動の動機は逆に3)→2)→1)の順で吟味し、

合理的かつ正当な発生源規制を企図するためのものでなければならない。

## 本研究の目的と範囲

さらに続いて前記③の内容を敷衍すれば、大気汚染ばく露条件の整理とは、大気中における種々の汚染物質の物理的・化学的挙動を時間の経過とともに把握し、かつ汚染大気にはく露される人間の状態を個人もしくは集団を単位として把握し、これらに影響との関連性解明の意図に整合する形式で定量化することであるといえる。

かくて本研究は、環境大気中における大気汚染濃度の挙動を統計的手法によって把握し、もって大気汚染制御の指針提示の手法および大気汚染影響解明の指標提示の手法を開発すること、を目的とする。

ここで扱われる大気汚染濃度は、地表面付近に固定された特定点における特定物質に係るものであり、その理論的取扱いの煩雑さを避けるために時間的な定常性を前提としている。

## 本論文の構成

本論文は、緒論と結論を別として6つの章から構成されている。第2章、第3章、第4章は、ランダムに変動する大気汚染濃度の挙動について統計的情報を得るためのデータ解析の章である。統計的な情報は、確率密度関数およびパワースペクトルによって得られる。初めの2つの章は確率密度関数の近似式を得るための解析、後の章はスペクトル解析をその内容とする。

第5章は、第4章までに得られた結果をもとにして、ばく露時間の効果、濃度が一定値を越える回数と頻度などに関する理論展開の章である。

第6章は、それまでに得られた結果の応用の章である。影響に寄与する大気汚染ばく露の定式化を行い、その適用の可能性を吟味する。

第7章は、わが国の二酸化窒素に係る環境基準に関して検討した章である。大気汚染の人体影響に関する従来の知見を、量・反応関係の視点から検討する。

以上が本論文の構成である。

各章の冒頭では各節毎の内容の簡単な紹介を行い、終節では、当該章で得られた結論を要約して述べる。

また、議論の展開のため、必要に応じて各種の数式が使用されている。これらは、本文中の他の個所で引用されるものに限って番号がつけられている。

## 第2章 大気汚染濃度の確率分布理論

本章および次章においては、本研究が対象とする大気汚染濃度の統計的性質のうち、最も基本的なものである分布形について述べる。特に本章では、大気汚染濃度の分布形をよく近似する代表的なモデルの数学的性質について考察することを目的とする。分布形に関する情報を得ることは、推定や検定という統計操作を行うために必要であるのみならず、前章において述べた本研究の目的遂行のための理論的基盤をつくるうえでも必要なことである。

まず第1節においては、第2節以降に考察するいくつかの分布形モデルの特質を概説し、その採用の理由を述べる。第2節および第3節においては、分布形発生の理論的根拠が確立されており、かつ大気汚染濃度の頻度分布をよく近似すると考えられる対数正規分布およびワイブル分布の数学的性質について述べる。

次いで第4節において、各種の分布形モデルを近似的あるいは1対1に対応させながら包含するものとして、ピアソン系分布を採用し、分布型の判定方法として3次までのモーメントによる新しい簡便法を提示する。

第5節では、大気汚染の“現象解明派”の立場から、大気汚染濃度の頻度分布形が非対象になることの物理的理由について、従来の大気拡散理論を発展させながらいくつかの可能性を追求する。

第6節は以上の要約である。

### 第1節 概 説

本章は、大気汚染濃度の分布形をよく近似する数学的モデルのうち、代表的なものの性質を提示することを目的としている。特に本節は、第5章以降の展開の主要なモデルとなる対数正規分布の、確率分布理論全体に占める位置について概説する。

まず最初に、大気汚染濃度の定義について考察すれば次のとおりである。すなわちここでいう「大気汚染濃度」とは、特に人間の社会的諸活動を行うにあたり支障となるような特定物質の環境大気中における体積比もしくは重量比などを指すものである。これらの大気汚染濃度は、通常、地表面から数10 m以下において固定して設置された濃度測定機によって、時間別に測定される。

大気汚染濃度の測定は、JIS（日本工業規格）あるいは米国のCFR（Code of Federal Regulations, 40 CFR Parts 50, 51 and 53）に典型的に示されるように、一定量の大气を測定機内に吸引し、直接もしくは間接的に特定物質の存在比を求めることによって行われる。

したがって大気汚染濃度は、環境大気中の特定物質の組成を、固定測定点において一定の時間および空間によって平均化したものであり、時刻と位置および平均化時間もしくは平均化空間の関数として表現される。

本論文全体において使われている“大気汚染濃度の分布（形）”とは、有限な期間における大気汚染濃度 $x$ を確率変数とみたときの、 $x$ の確率分布を意味するものである。

以上のような測定によって得られた大気汚染濃度の頻度分布を、それに適した確率分布モデルによって近似する方法は、KENDALL and STUART (1969) がその著書Advanced Theory of Statistics,

Vol.1 “Distribution Theory” において大別したように、次の3つの系統がある。すなわち、1.ピアソン系分布、2.シャリエ系分布、および3.基本分布形（正規分布およびそれから導かれる複合分布）への変数変換、がそれぞれである。以下にそれぞれを概説する。

ピアソン系分布についてはELDERTON(1927)がその著書“Frequency Curves and Correlation”に詳述している。この分布はTable 2-1に示すような12個の型に分けられる。この中には正規分布、ガンマ分布、ベータ分布、 $\chi^2$ 分布、t分布、指数分布などの基本分布が含まれている。

分布に4次までのモーメントが存在するならば、歪度(skewness)  $\beta_1$  や尖度(kurtosis)  $\beta_2$  が求められる。ピアソン系分布の特色は、これらの無次元統計量の組み合わせによって分布形モデルが得られる点にある。

本章第4節において述べられるピアソン系分布は、上に述べたように重要な基本分布を含むものの、分布形発生の理論的根拠には言及しないという立場で導入されたものである。このような経緯、およびTable 2-1に明らかなように分布形が統一された一つの形式ではないために、ピアソン系分布は一時あまり使われなくなった。

シャリエ系分布は、Table 2-2に示すようなA, B, Cの3つの型に分けられるが、A型以外はあまり使われない。A型分布は、グラム・シャリエA型(Gram-Charlier series of Type A)とよばれ、エルミート(Hermite)多項式の展開によるものである。多項式の係数はモーメントから簡単に求めること

ができ、正規分布の数表があればその分布が計算できる。またピアソン系分布に比べて、分布関数の定式化が簡単であるといった特色がある。しかしながらCRAMÉR(1946)が指摘するごとく、無限級数であるA型が収束するか発散するかは数学的には重要であっても、実用上の問題としては、現実の頻度分布を近似するのに級数の第何項までを取ればよいかより重要である。この点に関してA型分布には、

1. 有限の項数を採用すれば、場合によっては特に変数域の両端において確率密度が負になる、
2. 項数を多くとれば、場合によっては少ない場合より近似度が悪くなる、

といった欠点がある。もし観測によって得られた現実の頻度分布を、確率分布モデルによって近似する場合、変数域の両端に焦点があてられ、特に高濃度大気汚染の制御が現実的な課題であるならば、この分布型は致命的な欠陥をもつといえる。

基本分布形への変数変換による確率分布モデルには、ピアソン系分布がもつ以上の豊富さがあること

Table 2-1 Pearson distributions

$y = y_0(1+x/a_1)^{m_1}(1-x/a_2)^{m_2}, m_1/a_1 = m_2/a_2$
$y = y_0(1-x^2/a^2)^m$
$y = y_0(1+x/a)^p \exp(-px/a)$
$y = y_0(1+x^2/a^2)^{-m} \exp(-v \tan^{-1} x/a)$
$y = y_0 x^{-p} \exp(-\tau/x)$
$y = y_0 x^{-q_1}(x-a)^{q_2}, q_1 > q_2 - 1$
$y = y_0(1+x^2/a^2)^{-m}$
$y = y_0(1+x/a)^m$
$y = y_0 \exp(-x/a), a > 0, 0 \leq x < \infty$
$y = y_0 x^{-m}, m > 1$
$y = y_0(1+x/a_1)^m(1-x/a_2)^{-m},  m  < 1$
$y = y_0 \exp\{-(x-a)^2/2\sigma^2\}$

Table 2-2 Gram-Charlier distributions

<p>Type A <math>f(x) = \varphi(x) \{a_0 H_0(x) + a_2 H_2(x) + a_4 H_4(x) + \dots\}</math>          where <math>\varphi(x) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \exp(-\frac{x^2}{2})</math>  <math>H_1(x)</math> is Hermite polynomial</p>
<p>Type B <math>f(x) = b_0 \psi(x) + b_1 \Delta \psi(x) + b_2 \Delta^2 \psi(x) + \dots</math>          where <math>\psi(x) = \frac{\lambda^x}{x!} \exp(-\lambda)</math>  <math>\Delta \psi(x) = \psi(x) - \psi(x-1)</math>  <math>\Delta^2 \psi(x) = \Delta \psi(x) - \Delta \psi(x-1), \dots</math></p>
<p>Type C <math>f(x) = \exp\{\tau_0 H_0(x) + \tau_1 H_1(x) + \tau_2 H_2(x) + \dots\}</math>          where <math>H_1(x)</math> is Hermite polynomial</p>
<p><math>f(x)</math> is all in standard measure with zero mean and unit variance.</p>



は明らかである。一般にジョンソン系 (Johnson family) とよばれている分布は、基本分布を正規分布にとり、変数を Table 2-3 に示す 4 個の式によって変換するものである。これらの 4 つの型の  $\beta_1, \beta_2$  の値への対応の良さはピアソン系に比肩しうるものである。

基本分布を正規分布にとり、変数変換を対数関数によって行えば対数正規分布が得られる。対数正規分布には、岩井 (1947, 1948, 1949a, 1949b, 1953) による一連の研究によ

て明らかにされたように、Fig. 2-1 に示す 4 個のいわゆる Slade 型分布がある。このうちでもモーメントや数学的性質が簡潔でかつ実用的価値が高いものは、岩井・石黒 (1970) がその著書“応用水文統計学”において述べるごとく、I 型および II 型である。I 型は 2 パラメータの対数正規分布、II 型は 3 パラメータの対数正規分布とよばれ、AITCHISON and BROWN (1963) がこれらの数学的性質と実際の応用面について詳述している。ピアソン系分布との比較をすれば、2 パラメータ対数正規分布は第 2 ベータ分布 (ピアソン系 VI 型) に属し、3 パラメータ対数正規分布は第 2 ベータ分布および下限値が大きくなるにつれてベータ分布 (ピアソン系 I 型) になる。

対数正規分布は、岩井らによる水文学分野における先駆的応用に止まらず、かつて V.T. CHOW (1955) が数十の文献を挙げて review したごとく化学工学における粒度分布、経済学における個人所得などの分布、医学・生物学における組成分布などに応用されている。

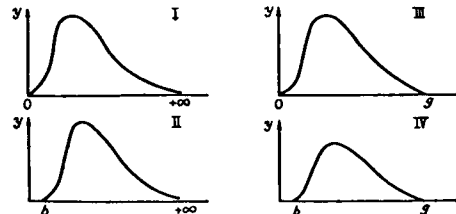
対数正規分布は、ピアソン系分布における理論的発生根拠の不明確さとは対照的に、第 2 節に述べるような比例効果則にその発生根拠をみることができる。このような理論的背景と数学的簡潔さ、および応用分野の広さが Aitchison and Brown をして「人間が加法より、乗法の計算に功みであったならば、はじめに対数正規分布があり、次いで正規分布がその変形として生まれたであろう」と言わしめているのである。

以上が Kendall and Stuart によって大別された 3 つの手法である。これらの他に、近年の計算機によるシミュレーション手法の発展とともに開発された新しい分布形理論がある。最後にこのことについて略述する。

ピアソン系分布もしくはジョンソン系分布、スレード型分布は、何れもその関数形が型 (Type) によって異なり、かつ確率分布関数を積分して求めなければならないため、時として実用的でない場合があ

Table 2-3 Johnson distributions

$f(y) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{y^2}{2}\right),$
where $y = x$ , (normal) $y = \ln x$ (log-normal) $y = \tanh^{-1}(2x-1)$ (type $S_B$ ) $y = \sinh^{-1}x$ (type $S_J$ )
$f(y)$ is in standard measure



$$F(x) = \frac{1}{\sqrt{\pi}} \int_{-\infty}^{\xi} e^{-\xi^2} d\xi$$

$\xi = \alpha \log \frac{x}{x_0}$	$(0 < x < \infty)$	I
$\xi = \alpha \log \frac{x-b}{x_0-b}$	$(b < x < g)$	II
$\xi = \alpha \log \frac{x}{x_0} \frac{g-x_0}{g-x}$	$(0 < x < g)$	III
$\xi = \alpha \log \frac{x-b}{x_0-b} \frac{g-x_0}{g-x}$	$(b < x < g)$	IV

Fig. 2-1 Slade distributions

る。このような難点をもたず、しかもピアソン系に匹敵する広い範囲の分布を近似できるものとして、Burr 分布および Tukey の lambda 分布がある。

Burr 分布は、

$$dF = F(1-F)g(x)dx,$$

ここで F: 分布関数、

を解いて得られるもので、次のような汎用式がある。

$$F(x) = 1 - \frac{1}{(1+x^\alpha)^\beta}, \quad x \geq 0; \alpha, \beta > 0$$

$$= 0, \quad x < 0$$

しかしながら、Burr 分布は J 型および U 型のベータ分布に対応しない欠点がある。

Tukey の lambda 分布は、パーセントイル関数を R として、

$$R(p) = \{ p^\lambda - (1-p)^\lambda \} / \lambda, \quad 0 \leq p \leq 1, \lambda \neq 0,$$

なる基本形で示される分布である。RAMBERG (1975) は上式を更に一般化して次式を与えている。

$$R(p) = \lambda_1 + \{ ap^{\lambda_3} - (1-p)^{\lambda_2} \} / \lambda_2$$

変数の変域は  $\lambda_2, \lambda_3$  の付号によって次のように定まる。

$$\lambda_1 - \frac{1}{\lambda_2} \leq x \leq \lambda_1 + \frac{a}{\lambda_2}, \quad \lambda_2, \lambda_3 > 0$$

$$-\infty \leq x \leq \infty, \quad \lambda_2, \lambda_3 < 0$$

Ramberg による lambda 分布とピアソン系分布とを比較すれば、lambda 分布はベータ分布 (ピアソン系 I 型) に対応しない欠点がある。

## 第 2 節 対数正規分布

$X = \ln x$  ( $0 < x < \infty$ ) が平均  $\mu$ 、分散  $\sigma_g^2$  の正規分布  $N(\mu, \sigma_g^2)$  であるとき  $x$  は対数正規分布をなし、このときの対数正規分布を  $A(\mu, \sigma_g^2)$  と略記する。 $A(\mu, \sigma_g^2)$  の確率密度関数 (probability density function) は次式で表わされる。

$$f(x) = \frac{1}{\sqrt{2\pi} \sigma_g x} \exp \left\{ -\frac{(\ln x - \mu)^2}{2 \sigma_g^2} \right\} \quad (2-1)$$

ここで、 $\mu = E[X]$  であり  $\exp(\mu)$  は  $A(\mu, \sigma_g^2)$  の幾何平均  $\bar{x}_g$  である。また  $\sigma_g^2 = E[(X - \mu)^2]$  であり、 $\sigma_g$  は  $A(\mu, \sigma_g^2)$  の対数標準偏差 (logarithmic S.D.) である。

$f(x)$  は  $x$  が 0 および  $\infty$  において  $x$  軸に高次接触をおこなう。すなわち正の実数  $k$  に対して次の式

が成立する。

$$\lim_{\chi \rightarrow 0} \chi^k f(\chi) = \lim_{\chi \rightarrow 0} \frac{1}{\sqrt{2\pi} \sigma_g} \exp\left(-\frac{\mu^2}{2\sigma_g^2}\right) \frac{\chi^{k-1+\mu/\sigma_g^2}}{\chi^{\ln \chi / 2\sigma_g^2}} = 0$$

$$\lim_{\chi \rightarrow \infty} \chi^k f(\chi) = \lim_{\chi \rightarrow \infty} \frac{1}{\sqrt{2\pi} \sigma_g} \exp\left(-\frac{\mu^2}{2\sigma_g^2}\right) \frac{\chi^{k-1+\mu/\sigma_g^2}}{\exp\left\{\frac{1}{2}\left(\frac{\ln \chi}{\sigma_g}\right)^2\right\}} = 0$$

対数正規分布は単一モードの分布である。すなわち、

$$\frac{\partial}{\partial \chi} f(\chi) = f(\chi) \left( -\frac{1}{\chi} - \frac{1}{\chi} \frac{\ln \chi - \mu}{\sigma_g^2} \right),$$

であるから、 $0 < \chi < \infty$ では  $\chi = \exp(\mu - \sigma_g^2)$  においてのみ  $\partial f / \partial \chi = 0$ となる。

$A(\mu, \sigma_g^2)$ にはすべての次数のモーメントが存在する。原点まわりの  $k$ 次モーメント  $\mu'_k$ は次のとおりである。

$$\begin{aligned} \mu'_k &= \int_0^\infty \chi^k f(\chi) d\chi \\ &= \exp\left(k\mu + \frac{k^2}{2}\sigma_g^2\right) \end{aligned} \quad (2-2)$$

上式から平均値  $\bar{\chi}$ 、分散  $\sigma^2$ は次のようになる。

$$\bar{\chi} = \bar{\chi}_g \exp\left(\frac{\sigma_g^2}{2}\right) \quad (2-3)$$

$$\sigma^2 = \bar{\chi}_g^2 \left\{ \exp(2\sigma_g^2) - \exp(\sigma_g^2) \right\} \quad (2-4)$$

$$= \bar{\chi}^2 \left\{ \exp(\sigma_g^2) - 1 \right\} \quad (2-5)$$

いま  $\omega = \exp\left(\frac{\sigma_g^2}{2}\right)$ と表わすと、平均値まわりの3次および4次モーメントは次のようになる。ここで  $\omega > 1$ 。

$$\mu_3 = \bar{\chi}_g^3 \omega^3 (\omega^2 - 1)^2 (\omega^2 + 2)$$

$$\mu_4 = \bar{\chi}_g^4 \omega^4 (\omega^2 - 1)^2 (\omega^8 + 2\omega^6 + 3\omega^4 - 3)$$

変動係数 (coefficient of variation) を  $C_v$  とすると (2-5) により

$$C_v^2 = \omega^2 - 1,$$

であるから、 $\mu_3, \mu_4$  は次のようにも表わされる。

$$\mu_3 = \bar{x}^3 C_v^4 (C_v^2 + 3)$$

$$\mu_4 = \bar{x}^4 C_v^4 (C_v^8 + 6C_v^6 + 15C_v^4 + 16C_v^2 + 3)$$

歪度係数 (coefficient of skewness)  $\tau_1$  および尖度係数 (coefficient of kurtosis)  $\tau_2$  は次のようになる。

$$\left. \begin{aligned} \tau_1 &= \frac{\mu_3}{\sigma^3} = (\omega^2 + 2)\sqrt{\omega^2 - 1} \\ &= C_v^3 + 3C_v \end{aligned} \right\} (2-7)$$

$$\left. \begin{aligned} \tau_2 &= \frac{\mu_4}{\sigma^4} - 3 = (\omega^2 - 1)(\omega^6 + 3\omega^4 + 6\omega^2 + 6) \\ &= C_v^8 + 6C_v^6 + 15C_v^4 + 16C_v^2 \end{aligned} \right\} (2-8)$$

$A(\mu, \sigma_g^2)$  の最頻値 (mode)  $x_{\text{mode}}$  , 中央値 (median)  $x_{\text{median}}$  , 平均値 (mean)  $\bar{x}$  は次のようである。

$$x_{\text{mode}} = \bar{x}_g / \omega^2$$

$$x_{\text{median}} = \bar{x}_g$$

$$\bar{x} = \bar{x}_g \omega$$

$\omega > 1$  だから最頻値、中央値、平均値の間の大小関係は、

$$x_{\text{mode}} < \bar{x}_g < \bar{x}$$

となる。Fig.2-2, Table 2-4 に種々の  $\sigma_g$  に対する変動係数、歪度係数、尖度係数、平均値、最頻値を示してある。

正規分布は、1次結合の再生性 (reproductive properties) をもつ。これに対応して対数正規分布には次のような再生性の定理が成立する。

$x_j$  が互いに独立で、その分布は対数正規分布  $A(\lambda_j, \sigma_{g_j}^2)$  であるとする。  $b_j, c$  (但し  $c = \exp(a) > 0$ ) がそれぞれ

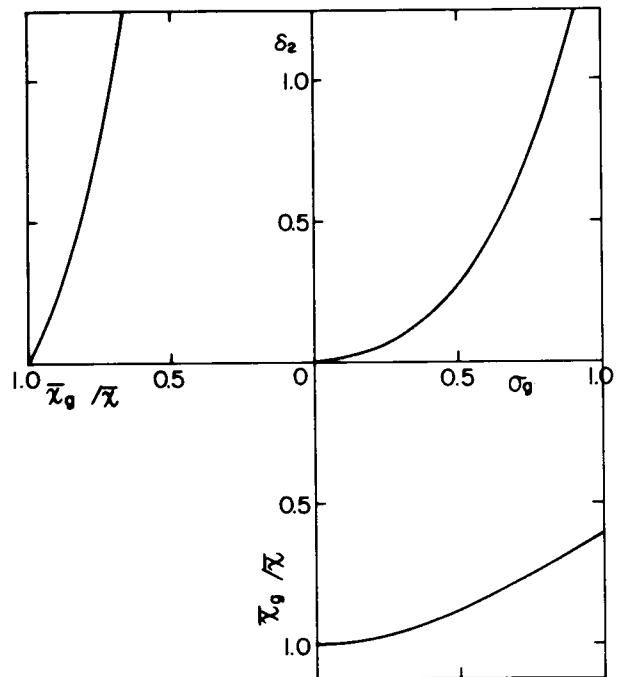


Fig. 2-2 Relation of log-normal distribution between  $\bar{x}$ ,  $\bar{x}_g$ ,  $\sigma_g$  and  $\delta_2$

定数でかつ  $\sum b_j \lambda_j$  および  $\sum b_j^2 \sigma_{g_j}^2$  が収束するとき、  
変数のべき乗積である変量  $c \prod \lambda_j^{b_j}$  は

幾何平均：

$$\mu_o = a + \sum b_j \lambda_j,$$

対数分散：

$$\sigma_{g_o}^2 = \sum b_j^2 \sigma_{g_j}^2,$$

の対数正規分布  $A(\mu_o, \sigma_{g_o}^2)$

にしたがう。但し  $a = \ln C$ 。

この定理からは次のような性質が導かれる。

1.  $\lambda_j$  ( $j = 1, 2, \dots, n$ ) が互いに独立で  $A(\lambda, \sigma_g^2)$  にしたがうとき、その幾何平均値は  $A(\lambda, \sigma_g^2/n)$  にしたがうとき。
2.  $\lambda_1$  と  $\lambda_2$  が独立でそれぞれ  $A(\lambda_1, \sigma_{g_1}^2)$ ,  $A(\lambda_2, \sigma_{g_2}^2)$  にしたがうとき、 $\lambda_1 \cdot \lambda_2$  は  $A(\lambda_1 + \lambda_2, \sigma_{g_1}^2 + \sigma_{g_2}^2)$  にしたがう。
3.  $\lambda$  が  $A(\lambda, \sigma_g^2)$  にしたがう、 $b, c$  (但し、

$c = \exp(a) > 0$ ) が定数であるとき、 $c \lambda^b$  は  $A(a + b \lambda, b^2 \sigma_g^2)$  の分布にしたがう。

4.  $\lambda$  が  $A(\lambda, \sigma_g^2)$  の分布であるとき、 $1/\lambda$  は  $A(-\lambda, \sigma_g^2)$  の分布にしたがう。

対数正規分布の統計学的な発生根拠は中心極限定理によって説明される。ここでは生体組織数に関する Cramer'による説明と粉碎粒子の粒径に関する Kolmogoroff の説明について述べる。なお大気汚染濃度についての応用は第5節において述べる。

CRAMER (1946) は生体組織に対し時系列的に作用する  $n$  個の刺激量  $\xi_1, \xi_2, \dots, \xi_n$  を考えた。これらは互いに独立な不規則変動とみなすことができる。 $\xi_1, \xi_2, \dots, \xi_\nu$  によって生成された生体組織の数を  $x_\nu$  で表わす。このとき新たな刺激  $\xi_{\nu+1}$  による組織数の増加分は、 $\xi_{\nu+1}$  および現在の組織数の関数  $g(x_\nu)$  に比例すると仮定する。すなわち、

$$x_{\nu+1} = x_\nu + \xi_{\nu+1} g(x_\nu), \quad (2-9)$$

であるから、

Table 2-4 Characteristics of log normal distribution

$\sigma$	$\bar{x}_g/\bar{x}$	$x_{mode}/\bar{x}_g$	$C_v$	$r_1$	$r_2$
0.00	0.1000 E-01	0.1000 E-01	0.0000 E-01	0.0000	0.0000
0.05	0.9938	0.9963	0.5003	0.1502	0.4014 E-01
0.10	0.9950	0.9851	0.1008	0.3018	0.1623
0.15	0.9888	0.9668	0.1508	0.4560	0.3719
0.20	0.9802	0.9413	0.2020	0.6148	0.6784
0.25	0.9692	0.9105	0.2540	0.7788	0.1096 E-01
0.30	0.9560	0.8737	0.3069	0.9495	0.1645 E-01
0.35	0.9406	0.8321	0.3610	0.1130 E-01	0.2353 E-01
0.40	0.9231	0.7866	0.4165	0.1322 E-01	0.3260 E-01
0.45	0.9037	0.7380	0.4738	0.1528 E-01	0.4417 E-01
0.50	0.8825	0.6873	0.5329	0.1750 E-01	0.5898 E-01
0.55	0.8596	0.6352	0.5943	0.1993 E-01	0.7803 E-01
0.60	0.8353	0.5827	0.6588	0.2260 E-01	0.1027 E-02
0.65	0.8096	0.5306	0.7251	0.2557 E-01	0.1351 E-02
0.70	0.7827	0.4795	0.7952	0.2888 E-01	0.1779 E-02
0.75	0.7548	0.4301	0.8689	0.3263 E-01	0.2354 E-02
0.80	0.7261	0.3829	0.9468	0.3689 E-01	0.3137 E-02
0.85	0.6968	0.3383	0.1029 E-01	0.4179 E-01	0.4219 E-02
0.90	0.6670	0.2967	0.1117 E-01	0.4745 E-01	0.5741 E-02
0.95	0.6368	0.2583	0.1211 E-01	0.5407 E-01	0.7919 E-02
1.00	0.6065	0.2231	0.1311 E-01	0.6185 E-01	0.1109 E-03
1.05	0.5762	0.1913	0.1418 E-01	0.7108 E-01	0.1581 E-03
1.10	0.5461	0.1628	0.1534 E-01	0.8213 E-01	0.2296 E-03
1.15	0.5162	0.1376	0.1659 E-01	0.9545 E-01	0.3403 E-03
1.20	0.4868	0.1153	0.1795 E-01	0.1116 E-02	0.5152 E-03
1.25	0.4578	0.9597 E-01	0.1942 E-01	0.1315 E-02	0.7975 E-03
1.30	0.4296	0.7926 E-01	0.2102 E-01	0.1560 E-02	0.1263 E-04
1.35	0.4020	0.6498 E-01	0.2278 E-01	0.1865 E-02	0.2043 E-04
1.40	0.3753	0.5287 E-01	0.2470 E-01	0.2247 E-02	0.3401 E-04
1.45	0.3495	0.4269 E-01	0.2681 E-01	0.2731 E-02	0.5784 E-04
1.50	0.3247	0.3422 E-01	0.2913 E-01	0.3347 E-02	0.1003 E-05
1.55	0.3008	0.2722 E-01	0.3170 E-01	0.4137 E-02	0.1797 E-05
1.60	0.2780	0.2149 E-01	0.3455 E-01	0.5160 E-02	0.3283 E-05
1.65	0.2563	0.1684 E-01	0.3771 E-01	0.6493 E-02	0.6138 E-05
1.70	0.2357	0.1310 E-01	0.4122 E-01	0.8242 E-02	0.1174 E-06
1.75	0.2163	0.1011 E-01	0.4515 E-01	0.1056 E-03	0.2299 E-06
1.80	0.1979	0.7750 E-02	0.4958 E-01	0.1364 E-03	0.4603 E-06
1.85	0.1806	0.5894 E-02	0.5445 E-01	0.1778 E-03	0.9424 E-06
1.90	0.1645	0.4449 E-02	0.5997 E-01	0.2337 E-03	0.1972 E-07
1.95	0.1494	0.3333 E-02	0.6619 E-01	0.3099 E-03	0.4219 E-07
2.00	0.1353	0.2479 E-02	0.7321 E-01	0.4144 E-03	0.9221 E-07

$$\xi_1 + \xi_2 + \dots + \xi_n = \sum_{\nu=0}^{n-1} \frac{x_{\nu+1} - x_{\nu}}{g(x_{\nu})} .$$

各々の刺激自体は生体の成長に対し微量の影響しか与えないとすると、上式の右辺は次のように近似できる。

$$\xi_1 + \xi_2 + \dots + \xi_n = \int_{x_0}^x \frac{dx}{g(x)} \quad (2-10)$$

ここで、 $x = x_n$  は最終段階の組織数である。 $\xi_{\nu}$  が独立変数であり  $n$  が大であれば、中心極限定理によって上式は漸近的に正規分布をすることが導かれる。次に刺激による組織数の増加が組織数に直接比例するときは  $g(x) = x$  であり  $\ln x$  は正規分布、すなわち  $x$  は対数正規分布をすることが示される。

$g(x) = x$  の場合の (2-9) によって表わされる関係を比例効果則 (law of proportionate effect) といい、AITCHISON and BROWN (1963) によれば 1930 年に R. Gibrat が提唱したものである。比例効果則の適用限界については AITCHISON and BROWN (1963) が詳述している。

KOLMOGOROFF (1941) は鉱石中の特定成分が人為的もしくは自然的作用によって破壊分裂し成分の大きさ  $x$  が分布をなす場合について、次のような理論を展開した。

いま  $N(r, t)$  を時刻  $t$  において大きさ  $\rho$  が  $\rho \leq r$  なる部分の数量とし、また  $Q(k)$  を時刻  $t$  に大きさ  $r$  の成分が  $t \sim t+1$  の間に破壊分裂して大きさが  $\rho \leq kr$  となるものの期待値とする。破壊分裂が  $r$  と  $\rho$  の比、すなわち  $k$  のみの関数であるとする、時刻  $t+1$  における全体の数量の分布  $\bar{N}(r, t+1)$  は次のようになる。

$$\bar{N}(r, t+1) = \int_0^1 \bar{N}\left(\frac{r}{k}, t\right) dQ(k) \quad (2-11)$$

$N(r, t)$  が時刻  $t=0$  において任意の分布をもつならば、時刻  $t$  における部分総和  $N(t)$  の期待値は、

$$\bar{N}(t) = N(0) Q^t(1) ,$$

となる。ここで次のような関数  $T(x, t)$  と  $S(x)$  を導入する。

$$T(x, t) = \frac{\bar{N}(\exp x, t)}{\bar{N}(t)} = \frac{\bar{N}(\exp x, t)}{N(0) Q^t(1)} \quad (2-12)$$

$$Q(k) = Q(1) S(\ln k) \quad (2-13)$$

よって (2-11), (2-12), (2-13) から次式が成立する。

$$\begin{aligned} T(x, t+1) &= \frac{1}{N(0) Q^{t+1}(1)} \int_0^1 \bar{N}\left(\frac{\exp x}{k}, t+1\right) dQ(k) \\ &= \int_{-\infty}^0 T(x-\xi, t) dS(\xi) \end{aligned}$$

$T(x, 0)$  は定義によって分布関数であり、 $S(x)$  も分布関数とみなすことができる。よって中心極限定理より  $t \rightarrow \infty$  のとき  $T(x, t)$  は正規分布をなし、したがって  $x$  は対数正規分布となる。以上が Kolmogoroff が導いた結論である。

このような Kolmogoroff 流の数学的取扱いは、その後 FILIPPOV (1961), LAMPERTI and NEY (1968), FELLOR (1971) らによって受けつがれている。

### 第3節 ワイブル分布およびそのパーセント点

ワイブル分布は機器やシステムの寿命分布を近似する有効な関数として近年注目をあつめており、その確率密度関数は次式によって表わされる。

$$f(x) = \frac{m}{\alpha} x^{m-1} \exp\left(-\frac{x^m}{\alpha}\right), \quad \alpha, m > 0 \quad (2-14)$$

上式を変形すると、

$$f(x) dx = \exp(-X^m) d(X^m), \quad X = \frac{x}{\alpha^{\frac{1}{m}}} > 0,$$

となり  $X$  は  $x$  の値を  $\alpha^{\frac{1}{m}}$  を単位尺度としたものである。よって  $\alpha$  は尺度の母数 (scale parameter) と呼ばれる。また、

$$\frac{\partial}{\partial x} f(x) = f(x) \left( \frac{m-1}{x} - \frac{m}{\alpha} x^{m-1} \right),$$

であり  $m \leq 1$  のとき分布には最頻値 (mode) が存在せず単調減少をつづける。  $m > 1$  であれば最頻値が存在する。また後述のように、変動係数や歪度、尖度などは  $m$  のみの関数になる。よって  $m$  は形の母数 (shape parameter) という。

$m=1$  のとき、ワイブル分布は指数分布 (exponential distribution) に一致し、  $m=2$  のときはレーレー分布 (Rayleigh distribution) に一致する。

原点まわりの  $k$  次モーメント  $\mu'_k$  は次のとおりである。

$$\begin{aligned} \mu'_k &= \int_0^{\infty} \frac{m}{\alpha} x^{m-1} \exp\left(-\frac{x^m}{\alpha}\right) x^k dx \\ &= \alpha^{\frac{k}{m}} \int_0^{\infty} t^{\frac{k}{m}} \exp(-t) dt \quad \left(t = \frac{x^m}{\alpha}\right) \\ &= \alpha^{\frac{k}{m}} \Gamma\left(\frac{k}{m} + 1\right) \end{aligned}$$

ここで、 $\Gamma(x)$  は次式で定義されるガンマ関数である。

$$\Gamma(x) = \int_0^{\infty} t^{x-1} \exp(-t) dt$$

ワイブル分布の平均値 $\bar{x}$ と分散 $\sigma^2$ は次のようになる。

$$\bar{x} = \alpha^{\frac{1}{m}} \Gamma\left(\frac{1}{m} + 1\right)$$

$$\sigma^2 = \alpha^{\frac{2}{m}} \left\{ \Gamma\left(\frac{2}{m} + 1\right) - \Gamma^2\left(\frac{1}{m} + 1\right) \right\}$$

平均値まわりの3次および4次モーメントは次のようになる。

$$\mu_3 = \alpha^{\frac{3}{m}} \left\{ \Gamma\left(\frac{3}{m} + 1\right) - 3 \Gamma\left(\frac{2}{m} + 1\right) \Gamma\left(\frac{1}{m} + 1\right) + 2 \Gamma^3\left(\frac{1}{m} + 1\right) \right\}$$

$$\mu_4 = \alpha^{\frac{4}{m}} \left\{ \Gamma\left(\frac{4}{m} + 1\right) - 4 \Gamma\left(\frac{3}{m} + 1\right) \Gamma\left(\frac{1}{m} + 1\right) + 6 \Gamma\left(\frac{2}{m} + 1\right) \Gamma^2\left(\frac{1}{m} + 1\right) - 3 \Gamma^4\left(\frac{1}{m} + 1\right) \right\}$$

変動係数 $C_v$ は形の母数 $m$ のみによって表わされる。

$$C_v^2 = \frac{\Gamma\left(\frac{2}{m} + 1\right) - \Gamma^2\left(\frac{1}{m} + 1\right)}{\Gamma^2\left(\frac{1}{m} + 1\right)} \quad (2-15)$$

歪度(skewness)  $\beta_1$ および歪度係数 $r_1$ , 尖度(kurtosis)  $\beta_2$ および尖度係数 $r_2$ もおなじく $m$ のみによって表わされる。分布の特性値およびそれらの間の大小関係は次のとおりである。

$$x_{\text{median}} = \alpha^{\frac{1}{m}} (\ln 2)^{\frac{1}{m}}$$

$$x_{\text{mode}} = \alpha^{\frac{1}{m}} \left(1 - \frac{1}{m}\right)^{\frac{1}{m}}, \quad m \geq 1$$

$$\bar{x} \leq x_{\text{median}} < x_{\text{mode}}, \quad m \geq 3.401$$

$$x_{\text{median}} \leq x_{\text{mode}} < \bar{x}, \quad 3.401 > m \geq \frac{1}{1 - \ln 2} = 3.259$$

$$x_{\text{mode}} < x_{\text{median}} < \bar{x}, \quad 3.259 > m \geq 1$$

$$x_{\text{median}} < \bar{x} \quad 1 > m > 0$$

Table 2-5に $m=0.7(0.01)4$ に対応する変動係数 $C_v$ , 歪度係数 $r_1$ , 尖度係数 $r_2$ ,

$\Gamma\left(\frac{1}{m}\right)$ ,  $\Gamma\left(\frac{1}{m} + 1\right)$ の値を示してある。



Table 2-5 Characteristics of Weibull distribution

m	$x_{med}/\bar{x}$	$x_{mode}/\bar{x}$	$C_v$	$\tau_1$	$\tau_2$	$\Gamma(\frac{1}{m}+1)$
0.70	0.4680		0.1462 E-01	0.3498 E-01	0.2054 E-02	0.1266 E-01
0.75	0.5152		0.1353 E-01	0.3121 E-01	0.1599 E-02	0.1191 E-01
0.80	0.5582		0.1261 E-01	0.2815 E-01	0.1274 E-02	0.1133 E-01
0.85	0.5972		0.1181 E-01	0.2560 E-01	0.1035 E-02	0.1088 E-01
0.90	0.6325		0.1113 E-01	0.2345 E-01	0.8530 E-03	0.1052 E-01
0.95	0.6644		0.1053 E-01	0.2160 E-01	0.7119 E-03	0.1023 E-01
1.00	0.6931	0.0000	0.1000 E-01	0.2000 E-01	0.6000 E-03	0.1000 E-01
1.05	0.7192	0.5613 E-01	0.9527	0.1859 E-01	0.5098 E-03	0.9808
1.10	0.7427	0.1172	0.9102	0.1734 E-01	0.4360 E-03	0.9649
1.15	0.7640	0.1788	0.8718	0.1622 E-01	0.3748 E-03	0.9517
1.20	0.7833	0.2388	0.8369	0.1521 E-01	0.3236 E-03	0.9407
1.25	0.8003	0.2963	0.8050	0.1430 E-01	0.2802 E-03	0.9314
1.30	0.8167	0.3505	0.7757	0.1346 E-01	0.2432 E-03	0.9236
1.35	0.8312	0.4012	0.7487	0.1269 E-01	0.2114 E-03	0.9170
1.40	0.8445	0.4484	0.7238	0.1198 E-01	0.1839 E-03	0.9114
1.45	0.8565	0.4921	0.7006	0.1133 E-01	0.1600 E-03	0.9067
1.50	0.8676	0.5325	0.6790	0.1072 E-01	0.1390 E-03	0.9027
1.55	0.8777	0.5698	0.6588	0.1015 E-01	0.1206 E-03	0.8994
1.60	0.8870	0.6042	0.6399	0.9620	0.1044 E-03	0.8966
1.65	0.8956	0.6359	0.6222	0.9120	0.9001	0.8942
1.70	0.9034	0.6650	0.6065	0.8650	0.7724	0.8922
1.75	0.9107	0.6919	0.5897	0.8207	0.6585	0.8906
1.80	0.9173	0.7166	0.5749	0.7787	0.5569	0.8893
1.85	0.9235	0.7395	0.5608	0.7390	0.4659	0.8882
1.90	0.9292	0.7605	0.5475	0.7012	0.3843	0.8874
1.95	0.9345	0.7799	0.5348	0.6653	0.3110	0.8867
2.00	0.9394	0.7979	0.5227	0.6311	0.2451	0.8862
2.05	0.9440	0.8145	0.5112	0.5984	0.1858	0.8859
2.10	0.9482	0.8298	0.5003	0.5672	0.1323	0.8857
2.15	0.9522	0.8440	0.4898	0.5373	0.8412 E-01	0.8856
2.20	0.9559	0.8572	0.4798	0.5087	0.4067 E-01	0.8856
2.25	0.9593	0.8694	0.4703	0.4812	0.1488 E-02	0.8857
2.30	0.9625	0.8808	0.4611	0.4548	-0.3333 E-01	0.8859
2.35	0.9655	0.8913	0.4523	0.4294	-0.6566 E-01	0.8862
2.40	0.9683	0.9011	0.4438	0.4049	-0.9431 E-01	0.8865
2.45	0.9709	0.9103	0.4357	0.3814	-0.1201	0.8868
2.50	0.9734	0.9188	0.4279	0.3586	-0.1432	0.8873
2.55	0.9757	0.9267	0.4204	0.3367	-0.1639	0.8877
2.60	0.9778	0.9341	0.4131	0.3155	-0.1825	0.8882
2.65	0.9799	0.9410	0.4062	0.2950	-0.1990	0.8887
2.70	0.9818	0.9474	0.3994	0.2751	-0.2137	0.8893
2.75	0.9836	0.9535	0.3929	0.2559	-0.2267	0.8899
2.80	0.9852	0.9591	0.3866	0.2373	-0.2381	0.8905
2.85	0.9868	0.9644	0.3805	0.2192	-0.2481	0.8911
2.90	0.9883	0.9693	0.3747	0.2017	-0.2568	0.8917
2.95	0.9897	0.9739	0.3690	0.1846	-0.2642	0.8923
3.00	0.9911	0.9783	0.3634	0.1681	-0.2705	0.8930
3.05	0.9923	0.9823	0.3581	0.1520	-0.2758	0.8936
3.10	0.9935	0.9862	0.3529	0.1364	-0.2801	0.8943
3.15	0.9946	0.9898	0.3479	0.1212	-0.2835	0.8950
3.20	0.9957	0.9931	0.3430	0.1064	-0.2861	0.8957
3.25	0.9967	0.9963	0.3383	0.9196 E-01	-0.2879	0.8963
3.30	0.9976	0.9993	0.3337	0.7791 E-01	-0.2890	0.8970
3.35	0.9985	0.1002 E-01	0.3292	0.6421 E-01	-0.2895	0.8977
3.40	0.9994	0.1005 E-01	0.3248	0.5086 E-01	-0.2893	0.8984
3.45	0.1000 E-01	0.1007 E-01	0.3206	0.3783 E-01	-0.2835	0.8991
3.50	0.1001 E-01	0.1010 E-01	0.3165	0.2511 E-01	-0.2873	0.8997

N. B. : 0.1462 E 01 means 0.1462 × 10

ワイブル分布の p パーセント点  $x_p$  は次のようにして求められる。式(2-14)より  $X = \ln x$  の累積分布関数 (cumulative distribution function)  $F_1(X)$  は次のようになる。

$$F_1(X) = 1 - \exp \left\{ - \exp(mX - \ln \alpha) \right\} \quad (2-16)$$

Xの平均と分散はつぎのようになる (GUMBEL (1957), 岩井・石黒(1970))。

$$E[X] = \frac{1}{m} (\ln \alpha - \gamma)$$

$$\text{Var}[X] = \frac{\pi^2}{6 m^2}$$

ここで $\gamma$ はオイラー定数 ( $\gamma = 0.57721566 \dots$ )である。次に、 $X$ を変換して次のような変数 $y$ を導入する。

$$y = \frac{X - E[X]}{\sqrt{\text{Var}[X]}} \quad (2-17)$$

$y$ の分布関数 $F_2(y)$ は(2-16)より次のようになる。

$$F_2(y) = 1 - \exp \left\{ - \exp \left( \frac{\pi}{\sqrt{6}} y - \gamma \right) \right\}$$

$F_2(y)$ の $p$ パーセント点 $y_p$ は上式から

$$y_p = \frac{\sqrt{6}}{\pi} \left[ \gamma + \ln \left\{ - \ln \left( 1 - \frac{p}{100} \right) \right\} \right],$$

となる。よってワイブル分布の $p$ パーセント点 $x_p$ は次のように表わされる。

$$x_p = \exp \left\{ E[\ln X] + y_p \sqrt{\text{Var}[\ln X]} \right\}$$

幾何平均値 $\bar{x}_g$ 、対数標準偏差 $\sigma_g$ を用いて表現すれば、

$$x_p = \bar{x}_g \exp(y_p \sigma_g), \quad (2-18)$$

となる。 $F_2(y)$ の $p$ パーセント点をTable 2-6に示す。

以上が一般的なワイブル分布のパーセント点に関する理論である。次にワイブル分布のパーセント点に関する簡単な式形を求めたので、以下に述べる。

ワイブル分布の分布関数は(2-14)から、

$$F(x) = 1 - \exp \left( - \frac{x^m}{\alpha} \right),$$

Table 2-6 Percent point of  $F_2(y)$  for Weibull distribution

$y$	.00	.01	.02	.03	.04	.05	.06	.07	.08	.09
.0	$-\infty$	-3.13667	-2.59228	-2.27215	-2.04383	-1.86580	-1.71956	-1.59524	-1.48697	-1.39094
.1	-1.30455	-1.22596	-1.15380	-1.08704	-1.02486	-0.96663	-0.91182	-0.86002	-0.81088	-0.76411
.2	-0.71945	-0.67669	-0.63565	-0.59617	-0.55812	-0.52137	-0.48581	-0.45136	-0.41791	-0.38540
.3	-0.35376	-0.32292	-0.29284	-0.26345	-0.23470	-0.20657	-0.17900	-0.15196	-0.12542	-0.09934
.4	-0.07369	-0.04845	-0.02359	0.00092	0.02509	0.04895	0.07252	0.09582	0.11887	0.14168
.5	0.16428	0.18668	0.20890	0.23095	0.25285	0.27461	0.29625	0.31779	0.33923	0.36059
.6	0.38189	0.40314	0.42436	0.44556	0.46675	0.48796	0.50920	0.53048	0.55183	0.57326
.7	0.59479	0.61644	0.63823	0.66020	0.68235	0.70473	0.72736	0.75027	0.77350	0.79710
.8	0.82110	0.84556	0.87054	0.89611	0.92234	0.94932	0.97717	1.00602	1.03603	1.06738
.9	1.10035	1.13523	1.17247	1.21263	1.25657	1.30553	1.36154	1.42829	1.51360	1.64079

となる。これよりパーセント点  $x_p$  はパラメータ  $\alpha$ ,  $m$  を使って

$$x_p = \left[ \alpha \ln \frac{1}{1 - \frac{p}{100}} \right]^{\frac{1}{m}}. \quad (2-19)$$

パラメータ  $\alpha$  のみを使って次式のようになる。

$$x_p = \bar{x} \frac{\ln \left[ \frac{1}{1 - \frac{p}{100}} \right]^{\frac{1}{m}}}{\Gamma \left( \frac{1}{m} + 1 \right)}$$

2つのパーセント点  $x_{p_1}$ ,  $x_{p_2}$  が既知であれば任意のパーセント点  $x_p$  は

$$x_p = x_{p_1} \left\{ \frac{\ln \left( \frac{1}{1 - p/100} \right)}{\ln \left( \frac{1}{1 - p_1/100} \right)} \right\}^{\frac{1}{m}},$$

ここで

$$m = \frac{1}{\ln(x_{p_1}/x_{p_2})} \left\{ \ln \ln \left( \frac{1}{1 - p_1/100} \right) - \ln \ln \left( \frac{1}{1 - p_2/100} \right) \right\},$$

となる。

ワイブル分布と対数正規分布を、任意のパーセント点によって比較すると以下のような結果を得る。ここで添字 W, L はそれぞれワイブル分布と対数正規分布を示す。

1) 両者の5パーセント値と95パーセント値が一致する場合の比は、Shoji and Tsukatani (1975) によって次式のように求められた。

$$\frac{x_{p,W}}{x_{p,L}} = \left( k_1 \ln \frac{1}{1-p} \right)^{\frac{\ln C}{k_2}} C^{-\frac{u_p}{k_3}}, \quad \begin{aligned} k_1 &= 2.551 \\ k_2 &= 4.067 \\ k_3 &= 3.290 \end{aligned}$$

ここで、 $C = x_{95}/x_5$ ,  $u_p$  は後述する(5-9)~(5-11)に示される正規分布のパーセント点である。

2) 両者の平均値と分散が等しい場合の比は、(5-6), (2-19)より

$$\frac{x_{p,W}}{x_{p,L}} = \frac{\left( \ln \frac{1-p}{100} \right)^{\frac{1}{m}} \sqrt{1 + C_v^2}}{\Gamma \left( \frac{1}{m} + 1 \right) \exp \left\{ \sqrt{\ln(1 + C_v^2)} u_p \right\}},$$

となる。ここで  $m$  は(2-15)によって  $C_v$  に1対1に対応する (Table 2-5 参照)。 $C_v^2 (= \delta_2)$  をパラメータとした両者の比を Fig. 2-3 に例示した。

3) 両者の幾何平均値と対数標準偏差が等しい場合は、(1-15)および(5-5)によってその比は次のようになる。

$$\frac{x_{p,W}}{x_{p,L}} = \exp \left\{ (y_p - u_p) \sigma_g \right\}$$

ここで  $y_p$  は Table 2-6 に示される  $F_2(y)$  のパーセント点、 $u_p$  は (5-9)~(5-11) に示される正規分布のパーセント点である。上式で表わされる両者の比を Fig. 2-4 に示した。

以上がパーセント点について得られた新しい知見である。次に分布の発生根拠について考察する。

ワイブル分布の統計学的な発生根拠は最小値の漸近分布理論によって説明される。ここでは CRAMÉR (1946) の方法を応用して略述する。

分布関数  $F_x(x)$  をもつ確率変数  $X$  に対し  $n$  個の観測値の最小値を  $X_{\min}$  で表わすと、順序統計量  $X_{\min}$  の分布関数  $F_{\min}(x)$  は次式によって示される。

$$F_{X_{\min}}(x) = 1 - \left\{ 1 - F_x(x) \right\}^n$$

$\xi_n$  と  $\Gamma_n(u)$  を次のように定義する。

$$\xi_n = n F_x(X_{\min}) \quad (2-20)$$

$$\Gamma_n(u) = \text{prob} \left\{ \xi_n \leq u \right\}, \quad 0 \leq u \leq n$$

上式から、

$$\begin{aligned} \Gamma_n(u) &= \text{prob} \left\{ X_{\min} \leq F_x^{-1} \left( \frac{u}{n} \right) \right\} \\ &= F_{X_{\min}} \left( F_x^{-1} \left( \frac{u}{n} \right) \right) \\ &= 1 - \left( 1 - \frac{u}{n} \right)^n. \end{aligned}$$

$\Gamma_n(u)$  の極限分布  $\Gamma(u)$  は次のようになる。

$$\begin{aligned} \Gamma(u) &= \lim_{n \rightarrow \infty} \left\{ 1 - \left( 1 - \frac{u}{n} \right)^n \right\} \\ &= 1 - \exp(-u) \quad (2-21) \end{aligned}$$

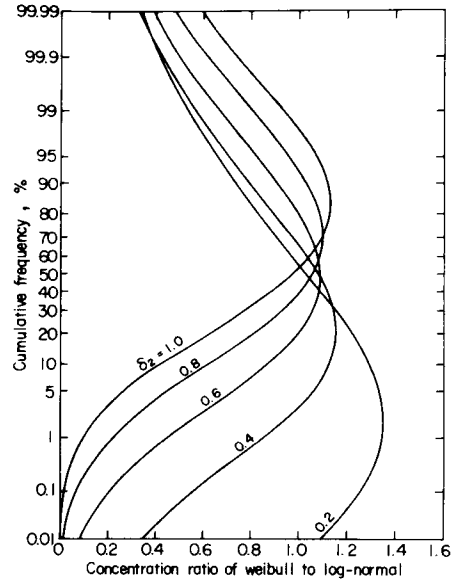


Fig. 2-3 Ratio of Weibull to log-normal distributions for various variance coefficients

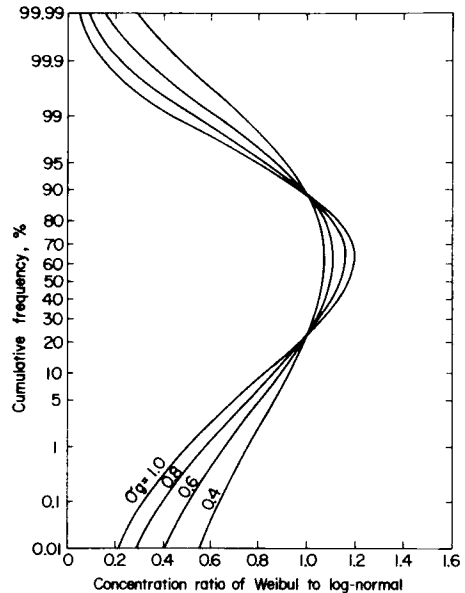


Fig. 2-4 Ratio of Weibull to log-normal distributions for various logarithmic S. D.

同時に  $\xi_n$  もある一定値  $\xi$  に収束する。よって  $\xi$  の確率密度関数は  $\Gamma(u)$  を微分して次のように求められる。

$$f_{\xi}(u) = \exp(-u) \quad (2-22)$$

ここで最初の分布関数  $F_x(x)$  に次のような関数をあてはめる。

$$F_x(x) = \frac{x^m}{\alpha}$$

変数変換  $\xi_n = n F_x(X_{\min})$  によって  $X_{\min}$  は、

$$X_{\min} = \left( \frac{\alpha}{n} \xi_n \right)^{\frac{1}{m}}, \quad (2-23)$$

となる。 $\xi_n$  の漸近分布は (2-22) であるので (2-23) から  $X_{\min}$  の漸近分布は次式のようにワイブル分布に一致する。

$$f_{X_{\min}}(x) = \frac{n}{\alpha} m x^{m-1} \exp\left(-\frac{n}{\alpha} x^m\right), \quad x \geq 0$$

上式は最小値に関する第 3 漸近分布に他ならない (GUMBEL (1957))。

ワイブル分布を機器やシステムの寿命分布として導くには、故障率を時間のべき乗によって表わして寿命分布を求めればよい (真壁 (1966))。

## 第 4 節 ピアソン系分布

ピアソン系分布は

$$\frac{df}{dx} = \frac{(x-c)f}{b_0 + b_1 x + b_2 x^2},$$

なる変数分離型微分方程式の解  $f = p(x)$  によって定義される。この方程式は  $f = 0$  および  $x = c$  において  $df/dx = 0$  となるようにすなわち立ち上りが滑らかでかつモードを持つようになっている。ピアソン系分布はパラメータの値の如何によって 12 の型にわけら

Table 2-7 Classification of main types of Pearson distribution and their probability density functions

type	Criterion	Probability density function
I	$B_1^2 - 4B_0B_2 > 0, B_0B_2 < 0$	$f = \frac{1}{a^{\alpha+\beta-1} B(\alpha, \beta)} X^{\alpha-1} (a-X)^{\beta-1}, 0 \leq X \leq a$
III	$B_1^2 - 4B_0B_2 > 0, B_2 = 0$	$f = \frac{\beta^\nu}{\Gamma(\nu)} \exp(-\beta X) X^{\nu-1}, 0 \leq X$
IV	$B_1^2 - 4B_0B_2 < 0$	$f = \frac{1}{aF(r, \nu)} \left(1 + \frac{X^2}{a^2}\right)^{-\frac{r+2}{2}} \exp\left(-\nu \tan^{-1} \frac{X}{a}\right)$
V	$B_1^2 - 4B_0B_2 = 0$	$f = \frac{\beta^\nu}{\Gamma(\nu)} \exp\left(-\frac{\beta}{X}\right) \left(\frac{1}{X}\right)^{\nu+1}, 0 \leq X$
VI	$B_1^2 - 4B_0B_2 > 0, B_0B_2 > 0$	$f = \frac{1}{a^{\alpha+\beta-1} \beta(\alpha, 1-\alpha-\beta) (a+X)^{1-\beta}}, 0 \leq X$

$F(r, \nu)$ , hyper geometric function.  $B(\alpha, \beta)$ , Beta function.

れる。大気汚染濃度に対応して  $x \geq 0$  で定義され、正の歪度をもつ分布は I 型（ベータ分布）、II 型（ガンマ分布）、IV 型、および VI 型（第 2 ベータ分布）である。これらの確率密度関数を Table 2-7 に示す。

上式はモードを原点とした変数  $X = x - c$  を使うと

$$\frac{d}{dX} \ln f = \frac{X}{B_0 + B_1 X + B_2 X^2},$$

となる。分布形の型は上式の右辺分母を 0 とした式  $B_0 + B_1 X + B_2 X^2 = 0$  の根の形態によって変化する。  $B_0, B_1, B_2$  による型の分類は Table 2-7 に併せて示してある。

観測された現実の分布がどの型に属するかはモーメントを求めて判定する。ELDERTON (1927) は歪度 (skewness)  $\beta_1$ , 尖度 (kurtosis)  $\beta_2$  を直角座標の両軸にとり、点  $(\beta_1, \beta_2)$  の位置によって分布型を判定する方法を示した。  $\beta_1, \beta_2$  の定義は次のとおりである。

$$\beta_1 = \frac{\mu_3^2}{\mu_2^3}, \quad \beta_2 = \frac{\mu_4}{\mu_2^2}$$

$\beta_1 - \beta_2$  判定図を Fig. 2-5 に示す。この方法の他に Elderton は、Table 7-2 に関して、

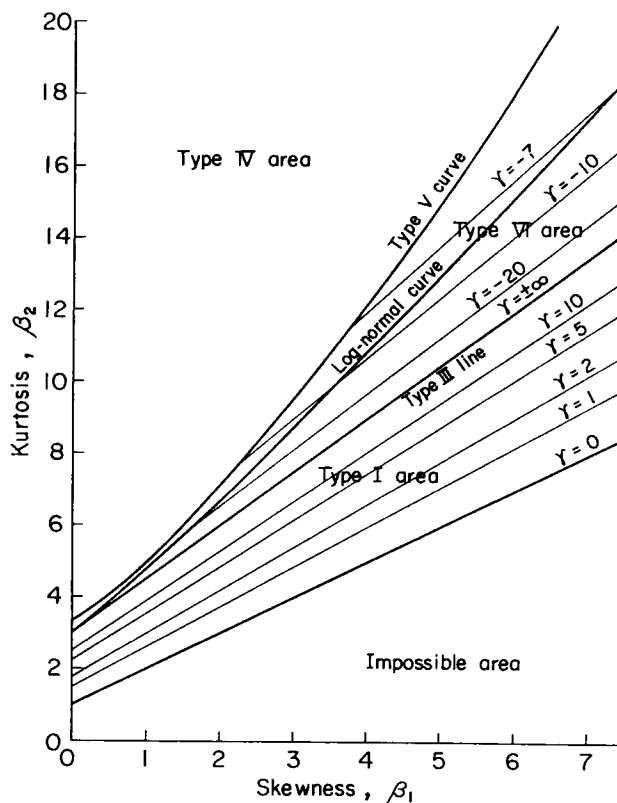


Fig. 2-5  $\beta_1 - \beta_2$  diagram for the class of Pearson distributions

$$\kappa = \frac{B_1^2}{4 B_0 B_2} = \frac{\beta_1 (\beta_2 + 3)^2}{4 (2\beta_2 - 3\beta_1 - 6) (4\beta_2 - 3\beta_1)}$$

による判定法を Fig. 2-6 のようにも示している。Elderton の方法によって大気汚染濃度をピアソン系分布で近似すると、多くの場合、適合度の良い分布形パラメータを得ることができない。これはパラメータ推定に 4 次モーメント  $\mu_4$  を計算するため、誤差が拡大されることによるものと考えられる。

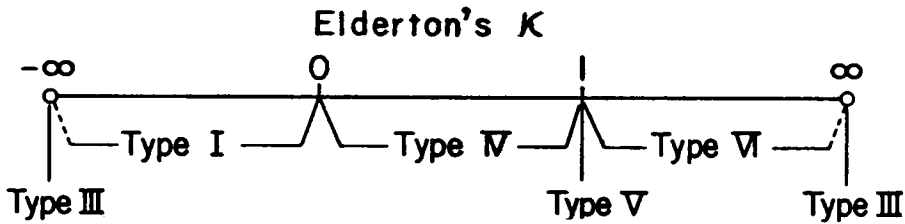


Fig. 2-6 Classification of main types of Pearson system by  $\kappa$

このような従来の判定理論の問題を解決するために、本節では次のような新しい判定理論を考察することとする。この理論は、次に定義する分散係数 (variance coefficient)  $\delta_2$ 、歪み係数 (skewness coefficient)  $\delta_3$  によって分布形の型を判定するものであって、推定が不安定な 4 次モーメントを使用しないという特徴をもつ簡便法である。(TSUKATANI and SHIGEMITSU (1979))。

$$\delta_2 = \frac{\mu_2}{\mu_1^2}, \quad \delta_3 = \frac{\mu_3}{\mu_1^3 \mu_2}$$

大気汚染濃度を対象にすることから変数の下限値を 0 に固定すれば、次に述べるように  $\delta_2, \delta_3$  および平均値  $\mu_1$  によってモーメント法によるパラメータの推定ができる。なお IV 型分布は、HOADLEY (1968) が指摘するように 1 ~ 3 次モーメントによっては表現できない。しかし Elderton の方法による大気汚染濃度分布の予備的解析では、IV 型に分類される例はほとんど無く、実用上の問題とはならない。

### 1 I 型分布 (ベータ分布) の判定とパラメータの推定

I 型の原点まわりの  $k$  次モーメント  $\mu'_k$  は次のように求められる。

$$\begin{aligned} \mu'_k &= \int_0^a \frac{1}{a^{\alpha+\beta+1} B(\alpha, \beta)} x^{\alpha-1} (a-x)^{\beta-1} x^k dx \\ &= \frac{1}{a^{\alpha+\beta+2} B(\alpha, \beta)} \int_0^1 a^{\alpha+k-1} t^{\alpha+k-1} a^{\beta+1} dt \quad \left( t = \frac{x}{a} \right) \\ &= a^k \frac{B(\alpha+k, \beta)}{B(\alpha, \beta)} \\ &= a^k \frac{(\alpha+k-1) \cdots (\alpha+1) \alpha}{(\alpha+\beta+k-1) \cdots (\alpha+\beta+1) (\alpha+\beta)} \end{aligned}$$

ここで  $B(x, y)$  はベータ関数であり、ガンマ関数  $\Gamma(x)$  を用いて次式で定義される。

$$B(x, y) = B(y, x) = \frac{\Gamma(x)\Gamma(y)}{\Gamma(x+y)}$$

ベータ関数  $B(x, y)$  の値を Fig. 2-7 に示した。これはガンマ関数  $\Gamma(x)$  を雨宮・田中(1969)の方法の方法による数値計算によって求めて等高線図を描いたものである。

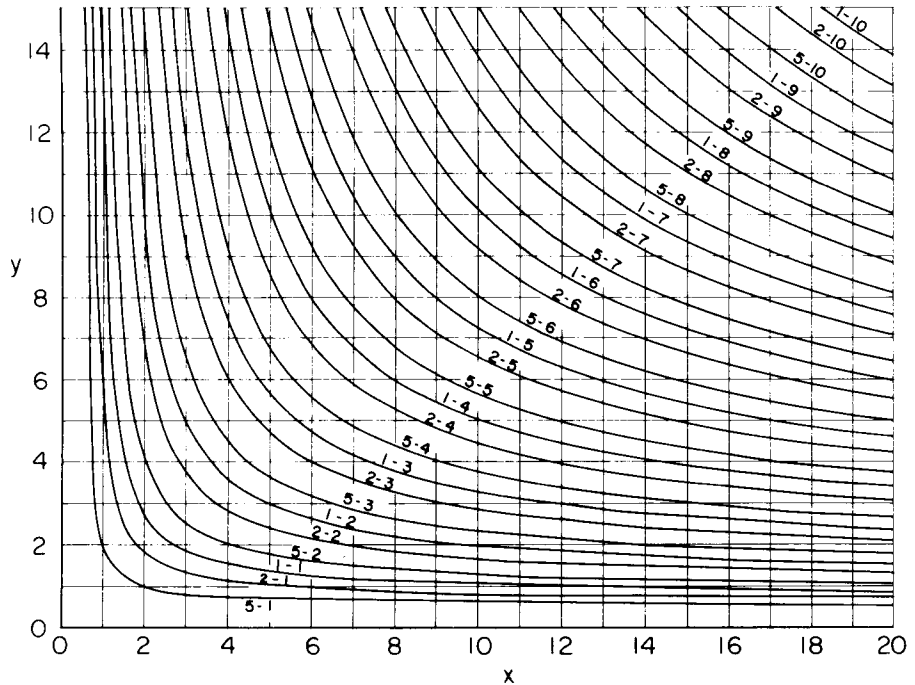


Fig. 2-7 Beta function,  $B(x, y)$  5-1 means  $5 \times 10^{-1}$

平均値まわりの3次までのモーメントはそれぞれ次のようになる。

$$\begin{aligned} \mu'_1 &= a \frac{\alpha}{\gamma}, & \mu_1 &= 0 \\ \mu_2 &= a^2 \frac{\alpha \beta}{\gamma^2 (\gamma + 1)} \\ \mu_3 &= a^3 \frac{2 \alpha \beta (\beta - \alpha)}{\gamma^3 (\gamma + 1) (\gamma + 2)}, \end{aligned}$$

ここで

$$\gamma = \alpha + \beta$$



分散係数  $\delta_2$ , 歪み係数  $\delta_3$  は次のようになる。

$$\delta_2 = \frac{\beta}{\alpha(\alpha + \beta + 1)}$$

$$\delta_3 = \frac{2(\beta - \alpha)}{\alpha(\alpha + \beta + 2)}$$

したがって I 型分布のパラメータ  $\alpha, \beta, a$  は次のようにして求められる。

$$\alpha = \frac{\gamma}{\delta_2 \gamma + \delta_2 + 1}$$

$$\beta = \frac{\delta_2 \gamma (\gamma + 1)}{\delta_2 \gamma + \delta_2 + 1}$$

$$a = \frac{\gamma}{\alpha} \mu_1, \quad \text{ここで } \gamma = \alpha + \beta = \frac{2(\delta_2 - \delta_3 - 1)}{\delta_3 - 2\delta_2}$$

$\delta_2 - \delta_3$  判定図上での I 型分布の存在領域は、 $\gamma$  を用いて次のように表わされる。

$$\delta_3 = 2 \frac{\gamma + 1}{\gamma + 2} \delta_2 - \frac{2}{\gamma + 2}, \quad \gamma > 0$$

## 2 VI 型分布 (第 2 ベータ分布) の判定とパラメータの推定

VI 型分布の原点まわりの  $k$  次モーメント  $\mu'_k$  は次のようにして求められる。

$$\begin{aligned} \mu'_k &= \int_0^{\infty} \frac{1}{a^{\alpha+\beta-1} B(\alpha, 1-\alpha-\beta)} \frac{x^{\alpha-1}}{(a+x)^{-\beta}} x^k dx \\ &= \frac{1}{a^{\alpha+\beta-1} B(\alpha, 1-\alpha-\beta)} \int_0^1 a^{\alpha+\beta+k-1} t^{\alpha+k-1} (1-t)^{-(\alpha+\beta+k)} dt \quad \left(t = \frac{x}{a+x}\right) \\ &= a^k \frac{B(\alpha+k, 1-\alpha-\beta-k)}{B(\alpha, 1-\alpha-\beta)} \\ &= a^k \frac{(\alpha+k-1) \cdots (\alpha+1) \alpha}{(-\alpha-\beta) \cdots (-\alpha-\beta-k+2) (-\alpha-\beta-k+1)} \end{aligned}$$

したがって平均値まわりの 1~3 次モーメントは

$$\mu'_1 = -a \frac{\alpha}{\gamma}, \quad \mu_1 = 0,$$

$$\mu'_2 = a^2 \frac{\alpha \beta}{\gamma^2 (\gamma + 1)},$$

$$\mu'_3 = -a^3 \frac{2\alpha\beta(\beta-\alpha)}{\gamma^3 (\gamma+1)(\gamma+2)}, \quad \text{ここで } \gamma = \alpha + \beta.$$

分散係数と歪み係数は

$$\delta_2 = \frac{\beta}{\alpha(\alpha + \beta + 1)},$$

$$\delta_3 = \frac{2(\beta - \alpha)}{\alpha(\alpha + \beta + 2)}.$$

パラメータは、

$$\alpha = \frac{r}{\delta_2 r + \delta_2 + 1},$$

$$\beta = \frac{\delta_2 r(r + 1)}{\delta_2 r + \delta_2 + 1},$$

$$a = -\frac{r}{\alpha} \mu_1, \quad \text{ここで } r = \alpha + \beta = \frac{2(\delta_2 - \delta_3 - 1)}{\delta_3 - 2\delta_2}.$$

上式における  $r$  はモード  $x_0$  を用いて表わすこともできる。この場合、他のパラメータは2次までのモーメントによって推定できる。

$$r = \frac{2\delta_1 - \delta_2 - 1}{\delta_1 + \delta_2 - 1}, \quad \text{ここで } \delta_1 = \frac{x_0}{\mu_1}$$

VI型の存在領域は次のように表わされる。

$$\delta_3 = 2\frac{r+1}{r+2}\delta_2 - \frac{2}{r+2}, \quad \text{ここで } r < -2$$

### 3 III型分布(ガンマ分布)の判定とパラメータの推定

ガンマ分布の原点まわりの  $k$  次モーメント  $\mu'_k$  は、ガンマ関数  $\Gamma(x)$  を用いて次のように表現される。

$$\begin{aligned} \mu'_k &= \int_0^\infty \frac{\beta^\nu}{\Gamma(\nu)} \exp(-\beta x) x^{\nu-1} x^k dx \\ &= \frac{1}{\beta^k \Gamma(\nu)} \int_0^\infty \exp(-t) t^{\nu+k-1} dt \quad (t = \beta x) \\ &= \frac{1}{\beta^k} \frac{\Gamma(\nu+k)}{\Gamma(\nu)} = \frac{1}{\beta^k} (\nu+k-1)(\nu+k-2) \cdots \nu \end{aligned}$$

上式より平均値まわりの3次までのモーメントを求めると、 $\delta_2$ 、 $\delta_3$  は次のようになる。

$$\delta_2 = \frac{1}{\nu}, \quad \delta_3 = \frac{2}{\nu}$$

それゆえパラメータ  $\nu$ 、 $\beta$  は次のようになる。

$$\nu = \frac{1}{\delta_2}, \quad \beta = \frac{\nu}{\mu_1}$$

ガンマ分布の  $\delta_2 - \delta_3$  図上での存在領域は、次式で定義される直線上にある。

$$\delta_3 = 2 \delta_2 \quad (2-24)$$

#### 4 V型分布の判定とパラメータの推定

V型分布の原点まわりのk次モーメント  $\mu'_k$  は次のようにして求められる。

$$\begin{aligned} \mu'_k &= \int_0^\infty \frac{\beta^\nu}{\Gamma(\nu)} \exp\left(-\frac{\beta}{x}\right) \frac{1}{x^{\nu+1}} x^k dx \\ &= \frac{\beta^\nu}{\Gamma(\nu)} \int_0^\infty \exp(-t) \left(\frac{t}{\beta}\right)^{\nu+1-k} \beta t^{-2} dt \quad \left(t = \frac{\beta}{x}\right) \\ &= \frac{\beta^k}{\Gamma(\nu)} \int_0^\infty \exp(-t) t^{\nu-k-1} dt \\ &= \beta^k \frac{\Gamma(\nu-k)}{\Gamma(\nu)} = \beta^k \frac{1}{(\nu-1)(\nu-2)\cdots(\nu-k)} \end{aligned}$$

平均値まわりの1~3次モーメント  $\mu_1 \sim \mu_3$  は

$$\begin{aligned} \mu'_1 &= \frac{\beta}{\nu-1}, \quad \mu_1 = 0, \\ \mu_2 &= \frac{\beta^2}{(\nu-1)^2(\nu-2)}, \\ \mu_3 &= \frac{4\beta^3}{(\nu-1)^3(\nu-2)(\nu-3)}, \end{aligned}$$

となる。変動係数  $\delta_2$ 、歪み係数  $\delta_3$  は次のようになる。

$$\begin{aligned} \delta_2 &= \frac{1}{\nu-2} \\ \delta_3 &= \frac{4}{\nu-3} \end{aligned}$$

したがってV型分布のパラメータ  $\nu, \beta$  は次のようにして求められる。

$$\begin{aligned} \nu &= \frac{1}{\delta_2} + 2 \\ \beta &= (\nu-1) \mu'_1 \end{aligned}$$

$\delta_2 - \delta_3$  判定図上では、V型分布は次の曲線上で存在する。

$$\delta_3 = \frac{4\delta_2}{1-\delta_2}, \quad 0 \leq \delta_2 < 2 \quad (2-25)$$

これまでに述べた I、III、V、VI の各分布型の判定領域を Fig. 2-8 に示す。2 パラメータ分布である III 型は式 (2-24) なる直線で表わされ、同じく 2 パラメータ分布である V 型は式 (2-25) なる双曲線の一部として表わされる。I 型は、III 型の直線、 $\delta_3 = \delta_2 - 1$  なる直線、および  $\delta_2$  軸によって囲まれる領域として表わされる。VI 型は、III 型と V 型を表わす 2 本の線で挟まれた領域として表わされる。分布形の形状は確率密度関数の 1 次および 2 次の微係数によって判定できる。Fig. 2-8 にはそれらの形状を単一モード型、J-型、U-型として分類してある。

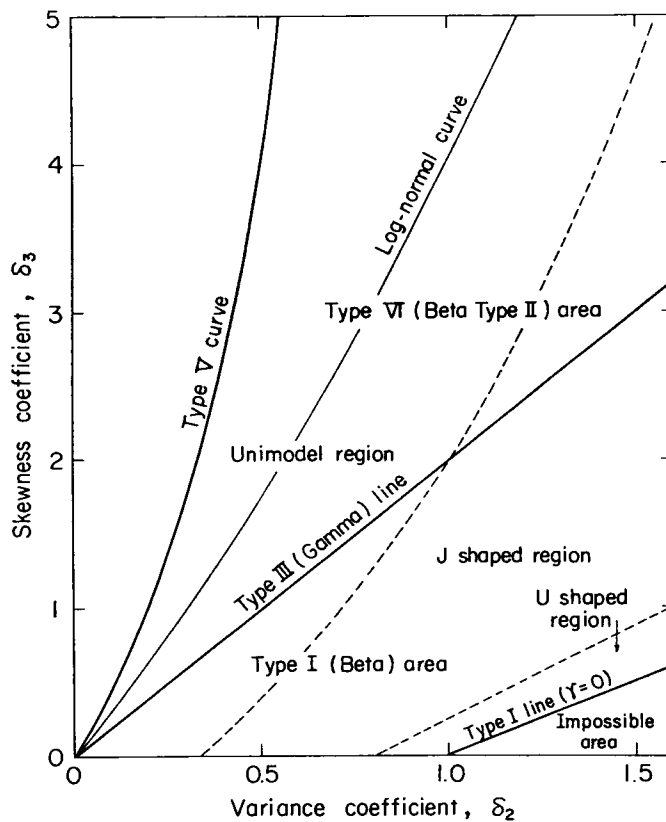


Fig. 2-8  $\delta_2$ - $\delta_3$  diagram for the class and shape of Pearson distributions

対数正規分布のピアソン系分布による分類は次のとおりである。対数正規分布の分散係数  $\delta_2$  と歪み係数  $\delta_3$  は、式 (2-2) よりそれぞれ次のように表わされる。

$$\delta_2 = \exp(\sigma_g^2) - 1$$

$$\delta_3 = \{ \exp(\sigma_g^2) - 1 \} \{ \exp(\sigma_g^2) + 2 \}$$

よって対数正規分布は  $\delta_2 - \delta_3$  判定図上では次式のような放物線となる。

$$\delta_3 = \delta_2 (\delta_2 + 3)$$

Fig. 2-8に上の放物線を示した。明らかに、対数正規分布はピアソン系分布のⅥ型に分類される。対数正規分布をピアソン系Ⅵ型によって表示したときのパラメータは次に示す式のとおりである。

$$\gamma = - \frac{2 \exp(\sigma_g^2)}{\exp(\sigma_g^2) - 1}$$

$$\alpha = \frac{2}{\exp(\sigma_g^2) - 1}$$

$$a = \bar{x}_g \exp\left(\frac{3}{2} \sigma_g^2\right)$$

また Fig. 2-9 は対数正規分布のうち、Fig. 2-1に述べた3パラメータ分布（スレードⅡ型）を  $\delta_2 - \delta_3$  判定図に描いたものである。ここで  $\delta_0 = c/\bar{x}$  は無次元化した下限値である。 $\delta_0$  があまり大きくない時の3パラメータ対数正規分布は、ピアソン系Ⅵ型分布と同様に豊富な分布となることが示される。しかしながら  $\delta_0 < 0$  の場合、大気汚染濃度を対象とする限りでは、いわゆるバックグラウンド濃度との関連において物理的矛盾が生じることは否めない。

ワイブル分布のピアソン系分布による分類は Fig. 2-10 に示すとおりである。これは第3節において述べたワイブル分布の特性値の大小関係からも類推できることでもあるが、 $0 < m < 1$  のときはJ型（J-shaped）のピアソンⅥ型、 $m = 1$  のときはガンマ分布、 $3.25889 \dots \geq m > 1$  のときは  $\delta_3 > 0$  の単一モードのピアソンⅠ型分布によってそれぞれ表示ができる。

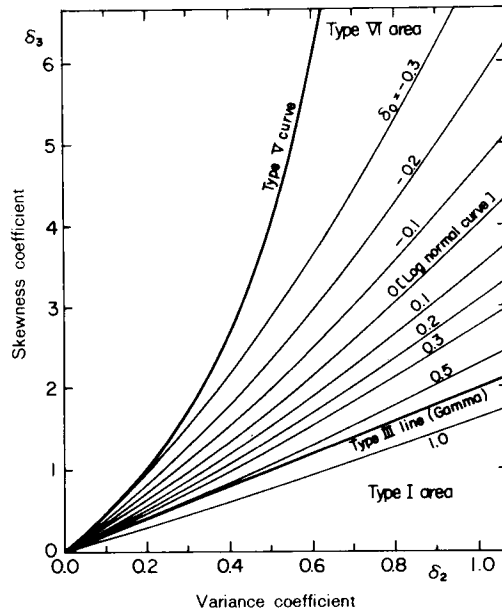


Fig. 2-9 3-parameter log-normal distribution curve for various values of non-dimensional lower limit  $\delta_0$  on  $\delta_2 - \delta_3$  plane, where  $\delta_0 = c/\bar{x}$

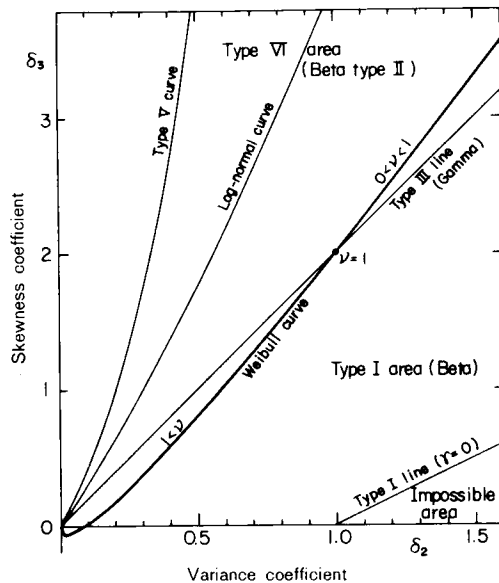


Fig. 2-10 Weibull distribution on  $\delta_2 - \delta_3$  plane

## 第5節 大気拡散モデルと分布理論

環境において観測される大気汚染濃度時系列の頻度分布は、多くの場合正規型で近似することはできない。このような非正規型頻度分布の物理的な発生機構を探ることは、大気拡散理論の重要な課題の1つに数えられる。これまでのところ、発生機構解明の理論的接近方法には大別して2つの流れがある。1つの流れは、大気拡散式もしくは拡散方程式を前提に、式中のいくつかの物理量に関する近似操作を経て、中心極限定理あるいは第2節に述べた比例効果則を用いる統計的手法によって、濃度の確率密度関数が対数正規型で近似できることを示すものである。他の1つは、単一汚染源の場合の大気拡散式を前提に、濃度および風向の水平および垂直方向の分布がそれぞれ正規分布で近似できることに注目し、風下の固定点における濃度の頻度分布を物理的に誘導する手法である。

連続汚染源の瞬間的濃度を表わす正規型大気拡散式は次のとおりである。なおこの式の成立する気象条件は、有風時で主風向が一定、かつ一様な大気である。

$$\frac{\chi(x, y, z)}{Q} = \frac{1}{2\pi u \sigma_y \sigma_z} \exp\left\{-\frac{(y-D_y)^2}{2\sigma_y^2}\right\} \times \left[ \exp\left\{-\frac{(z-D_z)^2}{2\sigma_z^2}\right\} + \exp\left\{-\frac{(z+D_z)^2}{2\sigma_z^2}\right\} \right], \quad (2-26)$$

ここで、 $\chi(x, y, z)$  : 空間 $(x, y, z)$ における瞬間濃度、但し $z=0$ は地表面である、

$Q$  : 汚染源強度、

$u$  : 平均風速、

$\sigma_y, \sigma_z$  : 風下距離 $x$ における水平および垂直方向の煙流拡散幅、

$D_y, D_z$  : 風下距離 $x$ における煙流中心軸の位置

$D_y$ は煙流の水平蛇行運動の効果、および $D_z$ は煙流の垂直蛇行運動と煙流の有効上昇高度の効果を表すものである。いま拡散場が一様であることを考慮すると、 $D_y, D_z$ の確率密度関数 $f$ は煙流の有効上昇高度 $H$ 、各々の標準偏差 $s_y, s_z$ を用いて次のように定式化できる。

$$f_y(D_y) = \frac{1}{\sqrt{2\pi} s_y} \exp\left[-\frac{D_y^2}{2s_y^2}\right] \quad (2-27)$$

$$f_z(D_z) = \frac{1}{2\sqrt{2\pi} s_z} \left[ \exp\left\{-\frac{(D_z-H)^2}{2s_z^2}\right\} + \exp\left\{-\frac{(D_z+H)^2}{2s_z^2}\right\} \right] \quad (2-28)$$

一般に使用されている正規型拡散式は(2-26)の時間平均濃度である。その式形は拡散場のエルゴード性を用いて次式のような操作によって求められる。但しその結果の式形は省略する。

$$\bar{\chi}(x, y, z) = \int_0^\infty \int_{-\infty}^\infty \chi(x, y, z) f_y(D_y) f_z(D_z) dD_y dD_z$$

さて地表面  $z=0$  における最大瞬間濃度 $\chi_0$ は(2-26)より

$$\chi_0 = Q / (\pi u \sigma_y \sigma_z),$$

となり、(2-26)は次のように整理できる。

$$X = Y + Z = \ln \frac{\chi_0}{\chi} \quad (2-29)$$

$$\text{ここで、} \quad Y = \frac{(y - D_y)^2}{2 \sigma_y^2}, \quad Z = \frac{D_z^2}{2 \sigma_z^2} \quad (2-30)$$

$y = 0$ 、すなわち  $X$  軸上における地表濃度に関し、 $Y$  および  $Z$  が  $\chi^2$  分布であるために、 $\ln(\chi_0/\chi)$  は自由度 2 の  $\chi^2$  分布にしたがうことが導かれる。これは GIFFORD (1959) が求めた結果である。

GIFFORD (1974) は更に、固定点に複数の汚染源が作用する場合について、(2-29)を次のように変形した。

$$\frac{1}{n} \sum_{i=1}^n (Y_i + Z_i) = - \ln \left[ \prod_{i=1}^n \frac{\chi_i}{\chi_{oi}} \right]^{\frac{1}{n}}$$

$n$  が大きいとき上式は漸近的に正規分布となる。すなわち  $(1/\chi_{i0})$  で重みづけをされた幾何平均濃度は、漸近的に対数正規分布をなすことが導かれる。

POLLACK (1975) はこれに対し、風速  $u$  を加味して (2-29) を書きなおした。ここで、 $K_1 = \pi \sigma_y \sigma_z / Q$  である。

$$Y + Z = - (\ln K_1 + \ln u + \ln \chi)$$

$Y$  および  $Z$  は拡散に関する項であり、 $u$  は移流に関する物理量である。Pollak は風速が強い場合は  $Y$ 、 $Z$  が無視できるとみなし、また  $\ln u$  が正規分布であるとして濃度の対数正規性を根拠づけた。この考えは BENARIE (1969, 1971) によっても提唱されている。

BENARIE (1974) は単一汚染源である天然ガス精製工場の周辺で  $\text{NO}_2$  と  $\text{SO}_2$  の 24 時間平均値を 2 年分に分けて解析した。汚染源はなだらかな丘陵に挟まれた低地に位置し、合計 37 測定点が最高 20 km 近くにまで配置された。分布形は対数正規確率紙をもとにして、約 73% が対数正規型であると判定された。また風向別の風速分布も求められ、これらも対数正規分布で近似できた。発生源からみて同一方向にある風と大気汚染濃度の観測点の、それぞれの分布の対数標準偏差は同一の値 ( $\sigma_g = 0.6 \sim 0.66$ ) を示した。このことは (2-29) における  $Y, Z$  の変動が小さければ対数正規分布の再生性 4 からみても妥当な結果であるといえよう。

POLLACK (1975) は更に、拡散方程式の box model から対数正規分布の発生根拠とその前提になる条件を導いた。M 個の box にかこまれた 1 つの box  $m$  に関する拡散方程式は次式のように示される。

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \chi(m, t) = & - \sum_{j=0}^n \{ T_A(m, j) + T_D(m, j) \} \chi(m, t) \\ & + \sum_{j=0}^n \{ T_A(j, m) + T_D(j, m) \} \chi(j, t) \\ & + S(m, t) + P(m, t) \end{aligned}$$

ここで、 $\chi(m, t)$  は時刻  $t$  の box  $m$  における平均濃度、 $T_A(m, j)$ 、 $T_D(m, j)$  は box  $m$  から box  $j$  への移流輸送係数と拡散輸送係数である。また  $S(m, t)$ 、 $P(m, t)$  は box  $m$  における汚染物発生強度、および光化学反応等による濃度変化量である。ここで次のような仮定をおく。

1. 右辺の  $S(m, t)$ 、 $P(m, t)$  の寄与は無視できるほど小さい。すなわち  $S(m, t) \sim 0$ 、 $P(m, t) \sim 0$ 。
2. 周囲の box の濃度は時間平均でみれば box  $m$  の濃度に近い。すなわち  $\chi(j, t) = \chi(m, t) + E(j, t)$ 。ここで  $E(j, t)$  はランダム変動量である。

以上の2つの仮定をもとに上式を差分表示し、 $\chi(m, t) = \chi_i$ 、 $\chi(m, t - \Delta t) = \chi_{i-1}$  において  $i = 1$  から  $n$  までの時間総和をとって整理すると次式が得られる。

$$\sum_{i=1}^n \frac{\chi_i - \chi_{i-1}}{\chi_{i-1}} = \sum_{i=1}^n \sum_{j=0}^M \{ T_A(m, j) - T_A(j, m) + T_D(m, j) - T_D(j, m) \} \\ + \sum_{i=1}^n \sum_{j=0}^M \{ T_A(j, m) + T_D(j, m) \} \frac{E(j, i-1)}{\chi_{i-1}}$$

気象条件の時間変化を考慮すると、右辺第1項は時間総和によって0に近くなり、結局第2項がランダム量の時間総和となって残り、第2章第2節に述べた比例効果則によって  $\chi_n$  は対数正規分布をなすことが導かれる。

このような対数正規分布の成立条件は、発生源の項や光化学反応の項が影響する場合もしくは濃度の空間的变化の大きいところでは満足されないことはいうまでもない。Pollack自身、都市化されておらず混合作用の少ない地域で対数正規分布が成立するか否かについては結論を留保している。

再び単一汚染源による地表濃度を表わす正規型拡散式にもどり、SCRIVEN(1965)の手法にしたがって濃度分布の確率密度関数を求めてみよう。

(2-30)で示された  $Y$ 、 $Z$  はそれぞれ  $D_y$ 、 $D_z$  の関数である。 $D_y$ 、 $D_z$  の確率密度関数は(2-27)および(2-28)で示されるため、 $Y$  および  $Z$  の確率密度関数  $f_Y$ 、 $f_Z$  は変数変換によって次のように整理される。

$$f_Y(Y) = \frac{\alpha_y}{\sqrt{\pi Y}} \exp(-\alpha_y^2 Y - m_y^2) \cosh(2\alpha_y m_y \sqrt{Y}), \\ f_Z(Z) = \frac{\alpha_z}{\sqrt{\pi Z}} \exp(-\alpha_z^2 Z - m_z^2) \cosh(2\alpha_z m_z \sqrt{Z}),$$

ここで、

$$\alpha_y = \sigma_y / s_y, \quad m_y = y / (\sqrt{2} s_y) \\ \alpha_z = \sigma_z / s_z, \quad m_z = H / (\sqrt{2} s_z)$$

$Y$  と  $Z$  が互いに独立であるとみなせば、その和  $X = Y + Z$  すなわち  $\ln(\chi_0/\chi)$  の確率密度関数  $f_X$  は  $f_Y$  と  $f_Z$  の合成積によって求められる。すなわち、

$$f_X(X) = \int_0^X f_Y(X-Z) f_Z(Z) dZ \\ = \alpha_y \alpha_z \exp(-\alpha^2 X - 2m^2) H(X), \quad (2-31)$$



ここで、  $\alpha^2 = (\alpha_y^2 + \alpha_z^2)/2$ ,  $m^2 = (m_y^2 + m_z^2)/2$  ,

$$H(X) = \frac{1}{\pi} \int_0^\pi \exp \left[ \frac{\alpha_y^2 - \alpha_z^2}{2} X \cos \theta \right] \cos h \left\{ r \cos (\theta + t) \right\} d\theta ,$$

$$r^2 = 4 (\alpha_y^2 m_y^2 + \alpha_z^2 m_z^2) X ,$$

$$t = \tan^{-1} \frac{\alpha_y m_y}{\alpha_z m_z} .$$

$H(X)$  は  $n$  次の変形第 1 種のベッセル関数  $I_n(x)$  を用いて次のような級数表示ができる。

$$H(X) = I_0 \left[ \frac{\alpha_y^2 - \alpha_z^2}{2} X \right] I_0(r) + 2 \sum_{n=1}^{\infty} I_n \left[ \frac{\alpha_y^2 - \alpha_z^2}{2} X \right] I_{2n}(r) \cos(2nt)$$

GIFFORD (1959) は等方性の場合における拡散を考えて Scriven と同様の結果を得ているが、その形式には若干の誤りがある。その誤りを修正しつつ、拡散理論による大気汚染分布形の諸性質を説明すれば、以下のごとくになる。すなわち、等方性拡散の場合の地表濃度  $\chi(x, y, 0)$  の確率密度関数  $f$  は次式によって示される。

$$f \left( \frac{\chi}{\chi_0} \right) = \frac{\sigma^2}{s^2} \left[ \frac{\chi}{\chi_0} \right]^{\frac{\sigma^2}{s^2} - 1} \exp \left[ -\frac{y^2 + H^2}{2 s^2} \right] I_0 \left[ \frac{\sigma}{s^2} \sqrt{y^2 + H^2} \sqrt{2 \ln \frac{\chi_0}{\chi}} \right] \quad (2-32)$$

この分布の原点回りの  $k$  次モーメントは  $t = \sigma \sqrt{2 \ln(\chi_0/\chi)}$  なる変数変換によって次のように求められる。

$$\begin{aligned} \mu'_k &= \frac{\chi_0^k}{s^2} \exp \left[ -\frac{y^2 + H^2}{2 s^2} \right] \int_0^\infty t \exp \left\{ -\left[ \frac{\sigma^2 + k s^2}{\sigma^2 s^2} \right] \frac{t}{2} \right\} I_0 \left[ \frac{\sqrt{y^2 + H^2}}{s^2} t \right] dt \\ &= \frac{\chi_0^k}{s^2} \exp \left[ -\frac{y^2 + H^2}{2 s^2} \right] \frac{\sigma^2 s^2}{\sigma^2 + k s^2} \exp \left[ \frac{y^2 + H^2}{2 s^2} \frac{\sigma^2}{\sigma^2 + k s^2} \right] \\ &= \chi_0^k \frac{\sigma^2}{\sigma^2 + k s^2} \exp \left\{ -\frac{k (y^2 + H^2)}{2 (\sigma^2 + k s^2)} \right\} \\ &= \chi_0^k \frac{\alpha^2}{k + \alpha^2} \exp \left\{ -\frac{km^2}{2 (k + \alpha^2)} \right\} , \end{aligned} \quad (2-33)$$

ここで、  $\alpha^2 = \sigma^2/s^2$ ,  $m^2 = (y^2 + H^2)/s^2$

最大値と平均値の比は次のように  $\alpha$  と  $m$  のみによって決定される。

$$\frac{\chi_0}{\bar{\chi}} = \left[ 1 + \frac{1}{\alpha^2} \right] \exp \left\{ \frac{m^2}{2 (1 + \alpha^2)} \right\}$$

すなわち測定点がx軸から離れるにしたがい、また濃度の拡散幅が小さかったり風の蛇行が大きくなるにしたがって、平均濃度は低下する。このことを示したのがFig. 2-11である。 $\chi_0/\bar{\chi}$ が大きい場合には、当然のことながらその出現頻度は小さくなる。そのような場合の確率密度は、(2-32)を $\chi = \chi_0$ 付近でテイラー展開し1次までの項をとって近似すると次のようになる。

$$f\left(\frac{\chi}{\chi_0}\right) = \alpha^2 \left[ 1 + \frac{\alpha^2 m^2}{2} \ln \frac{\chi_0}{\chi} \right] \times \exp \left[ -\frac{m^2}{2} - \alpha^2 \ln \frac{\chi_0}{\chi} \right]$$

最大濃度付近の濃度 $\chi_c = (1-c)\chi_0$ 、( $c \sim 0$ )について、 $\chi_c$ を超過する確率 $P_c$ は上式から、

$$P_c = c \alpha^2 \exp \left[ -\frac{m^2}{2} \right] = c \frac{\sigma^2}{s^2} \exp \left[ -\frac{y^2 + H^2}{2s^2} \right],$$

となる。超過確率は位置、有効上昇高度、気象条件によって支配されることが明らかである。

等方性拡散の場合の確率密度関数の例をFig. 2-12に示した。最頻値(mode)に関する存在条件の第1次近似は $\alpha = \sigma/s$ の値である。 $\alpha \geq 1$ のときはモードが存在し、 $\alpha \leq 1$ のときは $\chi \rightarrow 0$ において $f \rightarrow \infty$ となる。このような分布形の性質をピアソン系分布によって近似した例がFig. 2-13である。式(2-33)で示される原点回りのモーメントから、第4節に述べた分散係数 $\delta_2$ 、歪み係数 $\delta_3$ を求め、 $\delta_2 - \delta_3$ 図上におけるそれらの領域を求めると、等方性拡散における単一汚染源の地表濃度の確率密度分布はベータ分布(ピアソンI型分布)に分類

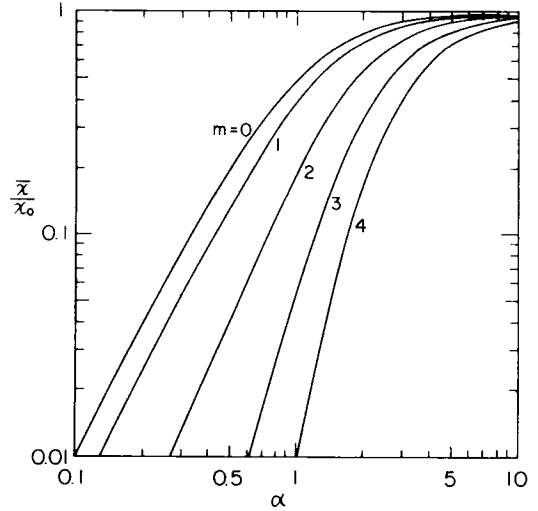


Fig. 2-11 Ratio of mean to peak concentrations as a function of  $m$  and  $\alpha$

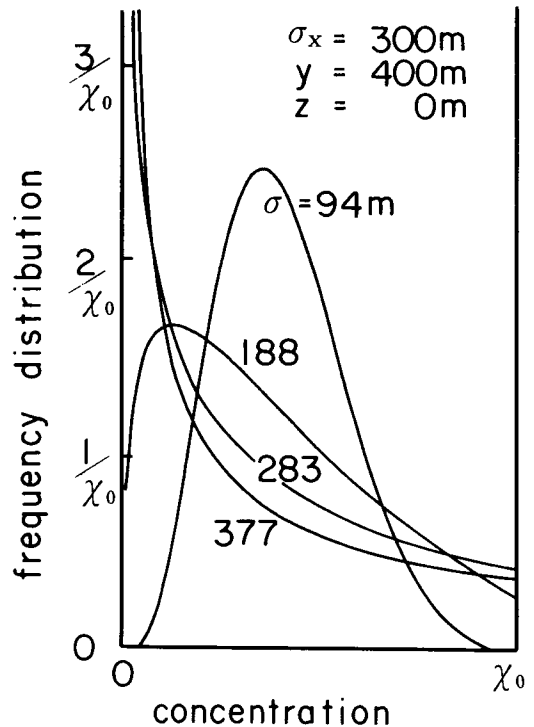


Fig. 2-12 Distribution model derived from diffusion equation in an isotropic field

される。第4節に述べたピアソン系分布のうち、ベータ分布のみが変数の変域に上限があることからみて、Fig. 2-13の結果は妥当なものである。

このような分布形をもつ濃度変動の相対強度 (relative fluctuation intensity) すなわち変動係数  $C_v$  は (2-33) から次式のように求められる。

$$C_v^2 = \frac{(1+\alpha^2)^2}{\alpha^2(2+\alpha^2)} \exp \left\{ \frac{m^2}{(1+\alpha^2)(2+\alpha^2)} \right\} - 1$$

Fig. 2-14 は上式によって  $\alpha$  と  $m$  の関数として変動係数を表わしたものである。

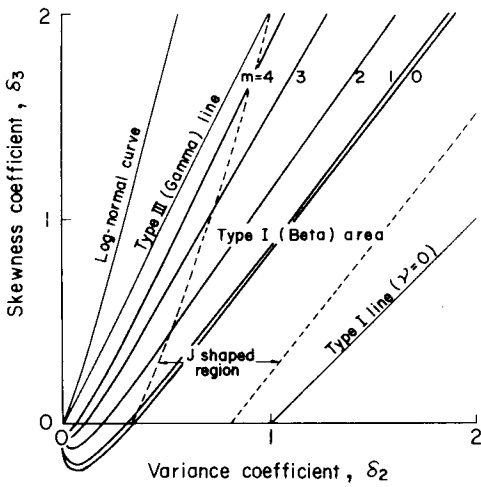


Fig. 2-13 Distribution model represented on  $\delta_2$ - $\delta_3$  plane

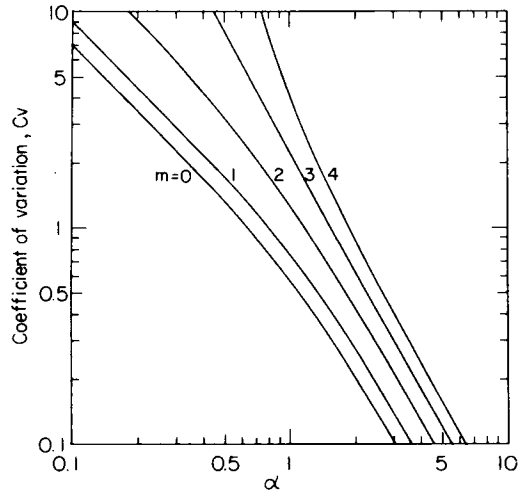


Fig. 2-14 Relative fluctuation intensity of the distribution model in an isotropic field

## 第6節 要 約

非対称の頻度分布を示す大気汚染濃度の性質を整理し定量化するためには、その分布形の近似式を得ることが求められる。従来から用いられている近似式には対数正規分布が第一に挙げられるが、本章の主要な目的は、いくつかの非対称確率密度分布関数の中に占める対数正規分布の位置を明らかにすることにあった。

すなわち、第1節においては、非対称確率密度分布の理論式を大別し、1)ピアソン系分布、2)ジャリエ系分布、3)基本分布形への変数変換、の3つを挙げてそれぞれの特徴を概説した。次いで第2節では対数正規分布の数学的性質を述べ、その統計学的発生根拠に触れた。特に比例効果則 (law of proportionate effect) について2つの異なる導入方法を紹介した。CRAMÉR (1946) と KOLMOGOROFF (1941) による方法がそれである。

第3節では、ワイブル分布の数学的性質を整理して述べた。本節の特徴はワイブル分布と対数正規分

布を比較した点にある。すなわちワイブル分布と対数正規分布のパーセント点の比を、1)5パーセント点と95パーセント点が等しい場合、2)平均値と分散が等しい場合、3)幾何平均値と対数標準偏差が等しい場合、の3つに分けて求めた。これらはそれぞれ定式化し、あるいは図形表示した。

ピアソン系分布は、型 (Type) によって式形が異なること、およびその物理的発生根拠に言及しないことを除けば、多くの非対称分布を一括して近似できるものとして、シャリエ系分布とならんで古典的に有用なものである。しかしながら、特に大気汚染濃度の場合のように実際にこれを適用する場合には、4次までのモーメントを求めなければならず、その結果パラメータの安定性は悪くなる危険がある。そこで第4節では、分散係数 (variance coefficient)  $\delta_2$  と歪み係数 (skewness coefficient)  $\delta_3$  を定義して、3次までのモーメントによる新しい解法を提示した。対象としたピアソン系分布は、I, II, V, VIの各型である。その結果、実測値から  $\delta_2, \delta_3$  を求めれば型 (Type) の判定ができるように  $\delta_2 - \delta_3$  判定図が作製され、また該当する型のパラメータが  $\delta_2 - \delta_3$  から求められるようになった。 $\delta_2 - \delta_3$  判定図における対数正規分布、ワイブル分布などの位置も明らかとなった。

第5節では、一様な (homogeneous) 場における大気拡散式を用い、単一汚染源を対象として固定点における濃度分布の理論式を求めた。ここで用いられた数学的手法は、それぞれ異なる2つの独立な正規分布を示す確率変数を、大気拡散式に代入して変数変換を行い、地表濃度の確率密度分布関数を求める、というものである。その結果、一様でかつ等方的な (isotropic) 拡散場における地表濃度をピアソン系分布によって判定すれば、それはピアソン I 型分布 (ベータ分布) に属することが明らかとなった。

以上が第2章の要約である。

### 第3章 大気汚染濃度の確率分布解析

本章は、大気汚染濃度の実測結果に前章の確率分布理論を適用し、確率分布モデルのうちで対数正規分布が占める位置を明らかにすることを目的とする。

第1節においては、大気汚染濃度分布に関する従来の研究について概括する。第2節では、わが国の代表的な大気汚染地域の濃度分布の地域特性について述べる。第3節は、大気汚染物質毎に分布特性が異なるか否かについて検討したものである。以上の2節では、ピアソン系分布を解析指標に使用している。

第4節においては、実測された濃度分布を近似する数学モデルとして、ピアソン系分布に対する対数正規分布の有用性について考察する。この節で使われる分布形の適合度検定は、Lynnによって提唱された相対的な検定方法である。

第5節は、対数正規分布のパラメータ推定と順序統計量について述べる。すなわち前半部では、点推定と区間推定の諸公式を略述し、後半部では正規分布、したがってまた変数変換の対数正規分布の順序統計量の期待値の近似式について考察し、第5章以後の準備をする。

第6節は以上の要約である。

#### 第1節 概 説

自然現象や社会現象にあらわれる各種の物理量や経済量などが対数正規分布によって近似されることを認識したのは、AITCHISON and BROWN (1957)によれば、MCALISTER (1879)および GALTON (1879)の論文を最初とする。その後、対数正規分布の理論は、前章第1節に述べたごとく、多くの分野で応用されてきた。しかしながらこの理論が、大気汚染濃度分布に応用された例は、それほど遠いものではない。濃度の分布形が大気汚染研究の対象として挙げられるのは、1960年代初頭から始まる連続自動測定機の開発、大気拡散理論の発展および電子計算機の普及と時期を一にしている。

大気汚染研究における濃度分布理論はGIFFORD (1959)によって口火が切られた。これは前章第5節に述べたごとく大気拡散式から導かれる理論であって、Gifford自身の関心は分布形そのものよりむしろ最大値と平均値との比 (peak to mean ratio) にあったといえる。また非等方性拡散場における理論解 (2-31式)、もしくはそれよりはるかに簡略化された等方性拡散場における解 (2-32) をみても、濃度分布の数学的表現は一般に難解であり、大気汚染制御に直接応用される例は僅かである。

一方、大気汚染濃度の実測値をもとにした分布形に関する研究は、主としてLarsenが先駆的に開始した。Larsen以前には、高橋 (1972) が述べるごとく化学工学分野におけるエアロゾル粒径分布が大気汚染と関連して研究された他、WANTA (1956)、OLDHAM (1953) が萌芽的報告をしている。

LARSEN (1961) は、米国Louisvilleにおいて1956年および1957年の23カ月間にわたって観測されたSO<sub>2</sub>濃度について、一定濃度を超過する濃度の持続時間が対数正規分布をなすと報告している。Larsenはその後、個人的にはこの論文は推奨しなくなっている。固定点において観測された濃度が対数正規分布をなすことを明らかにしたのは、ZIMMER and LARSEN (1965) である。すなわち

CAMP (Continuous Air Monitoring Program) の整備に伴って収集された Chicago, Cincinnati, Los Angeles, New Orleans, Philadelphia, San Francisco, Washington D.C. の測定値にもとづき、7種類の汚染物質濃度 (CO, HC, NO, NO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub>, O<sub>x</sub>, SO<sub>2</sub>) が全ての平均化時間 (5分~1年) にわたって対数正規分布をなすことが発表された。その後 LARSEN (1971) は、同じ汚染物質、同じ都市における 1961年から1968年までの7年間の観測値を総括し、次のような特性をもつ数学モデルを提唱している。

1. 大気汚染濃度は全ての平均化時間にわたって対数正規分布をなす。
2. 濃度分布の中央値の対数は、平均化時間の対数に対して線型である。
3. 算術平均濃度は平均化時間によって変化しない。
4. 最大の平均化時間においては、平均値、幾何平均値、最大値および最小値は全て同一となる。
5. 1カ月以内の平均化時間における最大値の対数は平均化時間の対数に比例して減少する。

Larsenの数学モデルは、第5章第4節に述べるように、理論的にはいくつかの問題点を胎んではいるものの、大気汚染濃度が対数正規分布をなすことに着眼して、大気汚染制御に体系的に応用された最初のものである。

一方ヨーロッパにおいては、LIEDMEIER and GAMMELGARD (1968) が、大気汚染濃度の累積頻度が対数正規確率紙上で直線になり、特に中間濃度域での直線性が良い事を報告している。その際、対数標準偏差  $\sigma_g$  について、群小汚染源のある都市域では小さい値をとり、小数の大汚染源がある工業地域においては大きい値をとることが指摘されている。また最大値の挙動について、平均化時間30分の最大値は日平均最大値の2~2.5倍になろうと述べられている。

CSANADY (1968) は、なだらかな地形の Fort Wayne 市郊外で 90 m の高度で飛行する航空機から蛍光粒子を放出し、風下 1.6 km の地表上の線測定を行い、地表濃度の変動が対数正規分布をなすことを確率紙によって確かめた。また濃度変動の分散係数より (2-5) を使って、対数標準偏差  $\sigma_g$  が求められた。それによれば  $\sigma_g$  の平均的な値は 0.3 (安定状態)、0.55 (やや安定状態) であった。これらの実験結果から、大気安定度が安定か

ら不安定になるにつれ、短期的な  $\sigma_g$  の値は増大することが伺える。その後 CSANADY (1969) は、少なくとも煙流内部における  $\sigma_g$  の値は x, y 方向に一定であると述べ、更に大気安定度、地形、粗度によって  $\sigma_g$  は変化し、その代表的な値として

Table 3-1 Typical values of logarithmic S. D. proposed by Csanady (1969)

	Stable, smooth terrain	Neutral, smooth terrain	Rough terrain, neutral or unstable
$\sigma_g$ (non dim.)	0.2	0.35	0.70

Table 3-1 を提唱している。

一方わが国においては、庄司・塚谷 (1970) が対数正規確率紙によって、大阪市、尼崎市、東京都における SO<sub>2</sub>、浮遊粉じん濃度の1時間値が対数正規分布をなすことを報告した。庄司・塚谷はまた、濃度の時間的変動を定常確率過程とみなして、平均化時間による分布形の変化を求め、大気環境基準について考察を加えている。その詳細については、第5章において述べることとする。

藤井 (1971) は浮遊粉じん濃度が対数正規分布をなすことを次のように確かめた。すなわち大阪市内の工業地域、商業地域、住宅地域を代表する6地点において、High-Volume Air Samplerによ

る浮遊粉じん濃度の24時間測定を各地点各月毎に2~3回実施し、各地点について20個以上のデータをもとに対数正規分布を仮定し $\chi^2$ 検定を行った。その結果1%の有意水準で対数正規分布が認められた。藤井は更に、粉じんの成分分析を行い、硫酸イオン濃度およびベンゼン可溶性有機物質濃度についても対数正規分布が認められたと述べている。

北海道大学の井上・渡辺(1973)は、大気汚染濃度の時間的変動が対数正規分布をなすことに注目し、1969年度のをわが国177地点のSO<sub>2</sub>濃度統計値から次のような興味ある議論を展開した。すなわち99%値の実測値と年平均値の実測値から幾何平均値と対数標準偏差を求め、実測した年平均 $\bar{x}$ と計算によって求めた幾何平均値 $\bar{x}_g$ とが

$$\bar{x}_g = 0.856 \bar{x} - 0.0042 \quad (r = 0.981, n = 177)$$

で示されることを得た。濃度単位はppmである。 $\bar{x}_g$ 、 $\sigma_g$ を求めるのに使用した式は第5章(5-7)である。

井上・渡辺は更に、1時間値の年間最高値と $\bar{x}$ から次のような回帰式を求めている。

$$\bar{x}_g = 0.888 \bar{x} - 0.0032 \quad (r = 0.992, n = 177)$$

日平均濃度については次式を得ている。

$$\bar{x}_{gd} = 0.926 \bar{x} - 0.0015 \quad (r = 0.993, n = 177)$$

井上・渡辺の方法は、対数標準偏差 $\sigma_g$ が年平均値の増加によって減少するということを示すものもある。すなわち上の回帰式と(2-3)から、

$$\sigma_g = \sqrt{\ln \left[ \frac{\bar{x}}{a\bar{x} + b} \right]^2}$$

但し上式は、井上・渡辺が述べているように、 $\bar{x}$ が小さい地域では $\sigma_g$ が大きいという程度に止めておくべきであって、同一地点で平均濃度が減少すれば $\sigma_g$ が増大することを示しているのではない。

以上に挙げた代表的文献から明らかなように、対数正規分布は大気汚染研究にとって魅力あるモデルとなったが、同時に実測された分布形をもとに対数正規分布を吟味し、更に異なった確率分布モデルを提唱する試みも盛んとなっている。以下にこのことを述べる。

BARRY(1969, 1971)はカナダのオタワ河沿岸のチョークリバー原子力研究所(Chalk River Nuclear Laboratories, CRNL)の2基の実験用原子炉(NRX-炉およびNRU-炉)から排出されるAr-41に注目し、周辺環境におけるAr-41の1時間平均濃度を1969年から1968年にかけて測定した。2基の原子炉から排出されたAr-41を含む換気用空気は、原子炉から約1km離れた山頂に設けられた高さ50mの排気塔から放出されている。周辺地形の標高差は約50mである。Barryは、このような単一汚染源による地表濃度の時間変動の性質について、濃度 $x$ を超過する割合 $F(x)$ が次式によって表わされると述べている。

$$F(x) = F(0) \exp \left\{ -F(0) \frac{x}{\bar{x}} \right\}$$

ここで $F(0)$ は濃度が0ではない割合であり、 $\bar{x}$ は平均濃度である。Barryは、汚染源近くの地表測定点における $F(0)$ は平均化時間の0.3～1/3乗に比例して増大し、平均化時間が約4日に達すると $F(0)$ は最大値1に達するとしている。このようなBarryの分布は、このままでは他の分布形との比較ができないという弱点がある。Barryの分布を修正して他の分布形と比較するための、新しい知見を得たので次に述べる。すなわち確率密度関数は $f(x)$ は、

$$f(x) = \frac{d}{dx} \{ F(0) - F(x) \} = \frac{F^2(0)}{\bar{x}} \exp \left\{ -F(0) \frac{x}{\bar{x}} \right\},$$

であるから原点回りの $k$ 次モーメント $\mu'_k$ は次のようになる。

$$\begin{aligned} \mu'_k &= \frac{F^2(0)}{\bar{x}} \int_0^\infty x^k \exp \left\{ -F(0) \frac{x}{\bar{x}} \right\} dx \\ &= \frac{\bar{x}^k}{F(0)^{k-1}} \int_0^\infty y^k \exp(-y) dy = \frac{k! \bar{x}^k}{F(0)^{k-1}} \end{aligned}$$

これより分散係数 $\delta_2$ と歪み係数 $\delta_3$ との間には次式が成立する。

$$\delta_3 = \frac{3}{2} \delta_2 + \frac{1}{2 \delta_2}, \quad \delta_2 \geq 1$$

$\delta_2 - \delta_3$  判定図上のBarryの分布をFig.3-1に示す。 $F(0) = 1$ の時の $(\delta_2, \delta_3)$ は $(1, 2)$ に位置を占め、Barryの分布は $\nu = 1$ ,  $\beta = 1/\bar{x}$ なるパラメータをもつガンマ分布、および $m = 1$ ,  $\alpha = \bar{x}$ なるパラメータをもつワイブル分布に一致する。Figs.3-1および2-13から明らかのように、バックグラウンド濃度が無い場合の単一汚染源による地表濃度分布は、ピアソン系I型分布(ベータ分布)、特にJ型(J-shaped)によって近似されることがわかる。

ASH, BLOOMFIELD and MCNEIL (1972)は、米国New Jersey州の4地点において1970～1971年に測定された $SO_2$ および $CO$ の一時間値をもとに、濃度分布の対数正規分布およびガンマ分布への適合性を $\chi^2$ -検定およびKolmogorov-Smirnov検定によって求めた。4地点2成分の実測値はそれぞれ8,000以上の個数をもっているため、何れの検定結果も対数正規分布およびガンマ分布を棄却したが、Kolmogorov-Smirnov検定によっては、ガンマ分布のほうが適合度が良いとの結果が得られている。更にAsh et al.

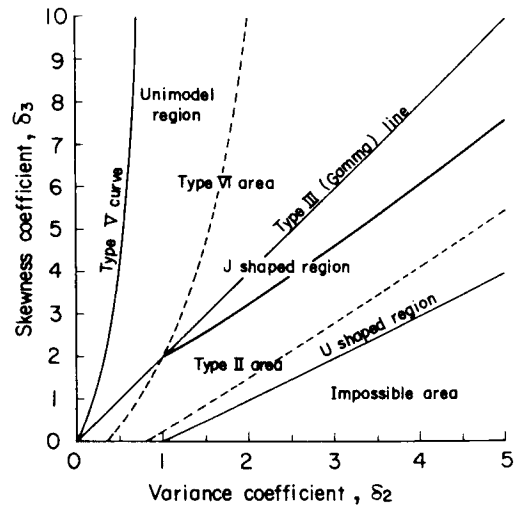


Fig. 3-1 Representation of Barry's distribution on  $\delta_2 - \delta_3$  plane



は、新しい分布形モデルとして4乗根正規分布を提唱している。

SHOJI and TSUKATANI (1975)は、東京および大阪の都市型汚染地域のSO<sub>2</sub>と浮遊粉じん濃度の1時間値をもとに、対数正規分布、4乗根正規分布、ワイブル分布についてそれぞれの確率紙による検定を1カ月毎に行っている。その結果をFig.3-2およびTable 3-2に示す。

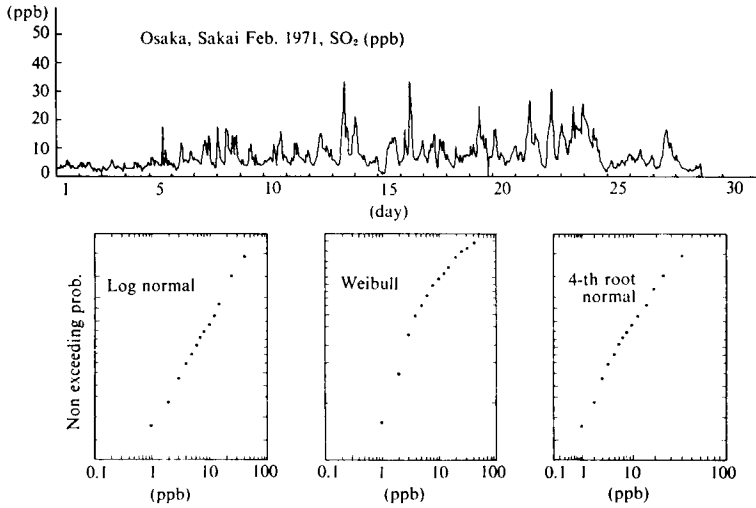


Fig. 3-2 Inspection of conformity of each distribution model

Table 3-2 Observed parameters and inspection of conformity of each model

STATION, POLLUTANT	HRS. OF NULL DATA	LN.	4th- ROOT	WEI- BULL	xgm	xgm	σ(i)	ℓ	a	
										ppb
TOKYO TOCHO, SOx	69.1	76	ooo	oo	o	68.4	99.4	0.87	23.0	0.12
	69.2	83	o	ooo	oo	58.0	79.9	0.82	35.1	0.21
	69.3	68	o	oo	ooo	78.9	100.4	0.74	26.9	0.13
	69.4	5	oo	oo	o	42.3	51.8	0.63	10.6	0.16
	69.5	68	oo	oo	o	25.9	33.4	0.69	19.4	0.08
	69.6	62	oo	ooo	o	24.3	30.7	0.67	17.9	0.22
	69.7	0	o	oo	oo	22.6	32.0	0.80	45.3	0.11
	69.8	144	o	oo	oo	36.7	43.6	0.91	55.9	0.09
	69.9	14	o	oo	oo	27.1	38.2	0.82	39.7	0.10
TOKYO TOWER, SOx 25m	69.7	0	o	o	o	55.9	82.6	0.85	58.2	0.10
	69.8	51	ooo	oo	o	100.9	118.4	0.56	10.7	0.13
	69.9	83	ooo	oo	o	61.7	73.7	0.60	14.1	0.15
TOKYO TOWER, SOx 125m	69.7	0	o	oo	o	83.7	124.9	0.93	39.4	0.13
	69.8	51	o	ooo	o	106.7	129.0	0.63	10.1	0.13
	69.9	3	ooo	o	o	82.5	102.3	0.63	20.1	0.12
TOKYO TOWER, SOx 225m	69.7	215	o	oo	o	53.0	82.1	0.94	34.3	0.16
	69.8	64	ooo	oo	o	81.0	109.6	0.78	15.3	0.18
	69.9	8	ooo	oo	o	50.7	69.4	0.80	20.7	0.14
OSAKA EIKEN, SOx	67.8	0	oo	ooo	oo	26.8	35.1	0.79	19.9	0.04
OSAKA EIKEN, S.S.	67.8	0	o	oo	o	360*	481*	0.79	20.3	0.07

ooo, oo, o indicate the best, better, and less conformity respectively.

\* :  $\mu\sigma/\sigma^2$

GOROSHKO and ZAITSEV (1973) は、ソ連邦における CO 濃度の日平均値を 1 カ年にわたって求め、4 地点の分布形を確率紙によって検定した。その結果、対数正規分布および  $\nu = 1$ ,  $\beta = 1/\bar{x}$  のガンマ分布が実測値をよく近似することが明らかとなった。更に、何れの分布がより良い近似を与えるかについて Kolmogorov 検定がなされたが、水準 5% では両方の分布形が適合するとの結果が得られている。

LYNN (1974) は、Philadelphia の 3 地点における 1960 - 1968 年の 9 カ年にわたる浮遊粉じん日平均濃度について、年度毎に分布形の適合性を比較した。分布形モデルには、対数正規分布 (2 パラメータおよび 3 パラメータ)、ガンマ分布、ピアソン系分布 (I 型および VI 型) および正規分布を採用した。各分布形モデルの適合度の比較は、実測値から各分布形モデルのパラメータを推定し、任意の濃度区間毎の理論頻度を求め、次に実測頻度と理論頻度との差の絶対値の総和を求める。各モデル間の適合度比較は、これらの絶対差の総和によって行われた。

このような解析結果によって、各モデル間の適合性の順位は濃度区間の変化には関係せず一定であり、全体的には 2 パラメータの対数正規分布が最適である場合が多いことが明らかとなった。

以上が対数正規分布以外の分布形モデルによって、実測値を考察した例の主なものである。1970 年代に至り、計算機シミュレーション手法の発展とともに、シミュレーションによる固定点の濃度分布を求める試みが現われている。最後にこのことについて述べる。

FORTAK (1970) は、西独 Bremen 市における 1967 年 9 月から 1968 年 5 月までの SO<sub>2</sub> 濃度の 30 分平均値を、市内 4 地点においてシミュレートし、実測した分布形と比較した。その結果、2 地点では分布形全体で計算値が実測値より大きく、他の 2 地点では逆の結果が得られている。

KOCH and THAYER (1972) は、Chicago 市の 8 地点 1 カ月、St. Louis 市の 10 地点 3 カ月についてそれぞれ 1 時間値平均濃度および 2 時間平均濃度の分布形を求め、実測値との比較を行った。その結果、90% 値における計算値と実測値との比は、Chicago においては 1 地点のみが 2 をこえて 2.8、St. Louis においては 1 地点のみが 2 をこえて 2.6 になった他は、2 倍以内の誤差であった。

## 第 2 節 地域別の分布形解析

本節では、わが国における代表的な地域の大気汚染濃度分布形について、ピアソン系分布にしたがって解析をすすめる。解析の条件と方法は次のとおりである。

### (1) 対象地域

対象地域には、都市汚染地域として東京都、京都市、臨海工業地帯における汚染地域として三重県四日市市および大阪府堺市、単一汚染源地域として火力発電所が立地している大阪府岬町および佐賀県唐津市を選定した。これらの地域の大気汚染濃度は、もとより測定地点の局所的な影響および都府県にまたがる広域的な大気汚染濃度変動の影響を受けていると考えられる。しかし同時に、これらはそれぞれの地域特性を反映していることもまちがいない。

### (2) 対象汚染物質

対象とする大気汚染物質は、従来からわが国の大気汚染の代表的指標であった SO<sub>2</sub> (二酸化硫黄) を主として選定した。SO<sub>2</sub> は溶液導電率法による 1 時間平均濃度として測定され、その詳細は JIS K -

0131, B-7952 および B-7952 解説によって規格化されている。本測定法に関する問題点は寺部 (1969) が指摘するごとくいくつか残されているが、近年の低濃度大気汚染測定に関して吸収液の蒸発損失が挙げられる。矢田部 (1970) や青木 (1976) は、真の濃度が 0 ppb であっても、現行測定法では 10 ppb 前後を指示する場合もあると述べている。井上 (1975) による大阪府下における調査結果も示すように、現行測定法は  $\text{SO}_2$  による大気汚染の長期的傾向の把握に必ずしも充分なものではない。

### (3) 大気汚染濃度の記録と整理

わが国における大気汚染濃度は、各都道府県およびその他の機関が測定している。本解析においては、上記対象地域ごとの各都道府県が記録・公表する大気汚染濃度の 1 時間平均濃度を入手し、これを計算機入力用カードに穿孔した。ppb を濃度単位とし、小数点以下を省略した。

## 2-1 臨海工業地帯における大気汚染濃度分布

臨海工業地帯における大気汚染濃度分布形について、ピアソン系分布による解析を行った。対象とした地域のうち大阪府堺市の大気汚染については、堺市の公害白書 (1972 ~ 1977) および塚谷 (1977) がその概況を述べている。また三重県四日市市の大気汚染については、三重県の公害白書および吉田 (1967) がその概況を述べている。

堺市の大気汚染濃度は、1 時間平均濃度から 1 カ月毎の分散係数  $\delta_2$  と歪み係数  $\delta_3$  を求め、その結果を Fig. 3-3 に示した。Fig. 3-3 から明らかなように、これらの分布形はピアソン系分布の VI 型 (第

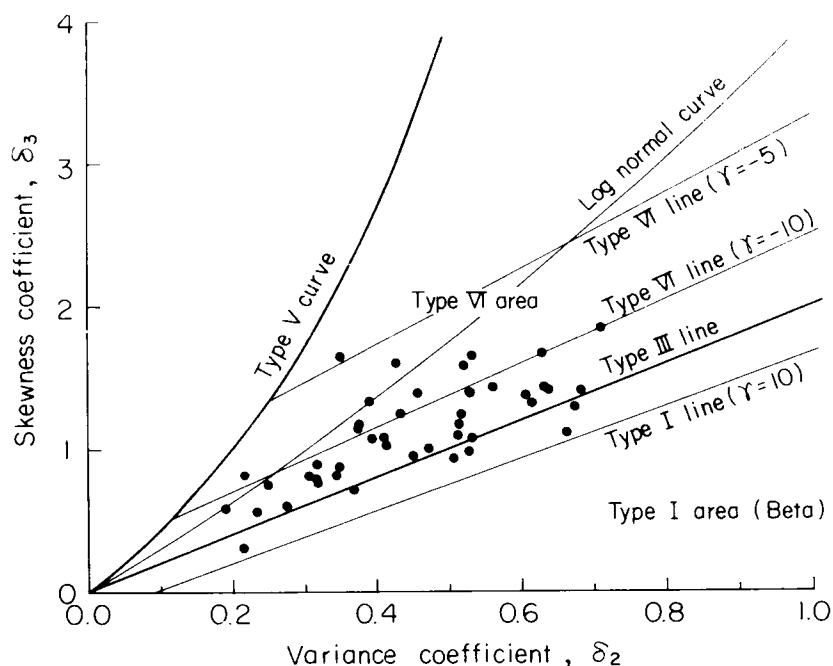


Fig. 3-3 Classification of hourly  $\text{SO}_2$  concentration whose sampling period is one month in littoral industry area

Sampling stations and periods are tentatively chosen from the data at Sakai, Osaka from July, 1970 to June, 1974.

2ベータ分布)によって近似できると判定される。又、いくつかはⅠ型(ベータ分布)もしくはⅢ型(ガンマ分布)に対応している。更に詳しくみれば、堺市のデータの多くは、 $\delta_2 - \delta_3$  図上において $\gamma = -5$ に対応するⅥ型分布とガンマ分布に挟まれた領域内にある。 $\delta_2 - \delta_3$  の変域は、次に述べる四日市や2-3において述べる都市域のものに比べて小さい。また、単一汚染源による分布形モデルであるBarry分布(Fig. 3-1参照)に比べても、 $\delta_2, \delta_3$  の変域には明らかな違いがある。

Fig. 3-4は四日市市における $\delta_2$ と $\delta_3$ の関係を示したものである。これはTable 3-3に示すとおり、3カ月ごとに分散係数と歪み係数を求めたものである。四日市市の大気汚染が激しかった1967年時点の濃度分布はFig. 3-4およびTable 3-3から明らかなように、ピアソン系分布ではⅥ型もしくはⅠ型に分類され、しかもその頻度分布はJ型(J-shaped)である。これに対し大気汚染対策がすすんだ1972年時点には単一モード型に変化している。特に磯津の春期(4~6月)について1967年と1972年を比較すると、平均濃度分布が28%減であるのに対し、幾何平均濃度が30%増となっている。これは磯津に隣接している化学工場からの硫酸ミストの飛散が防止されたことによって高濃度発生が減少し、また1969年以降の大気汚染広域化に伴ないいわゆるバックグラウンド濃度が増加した

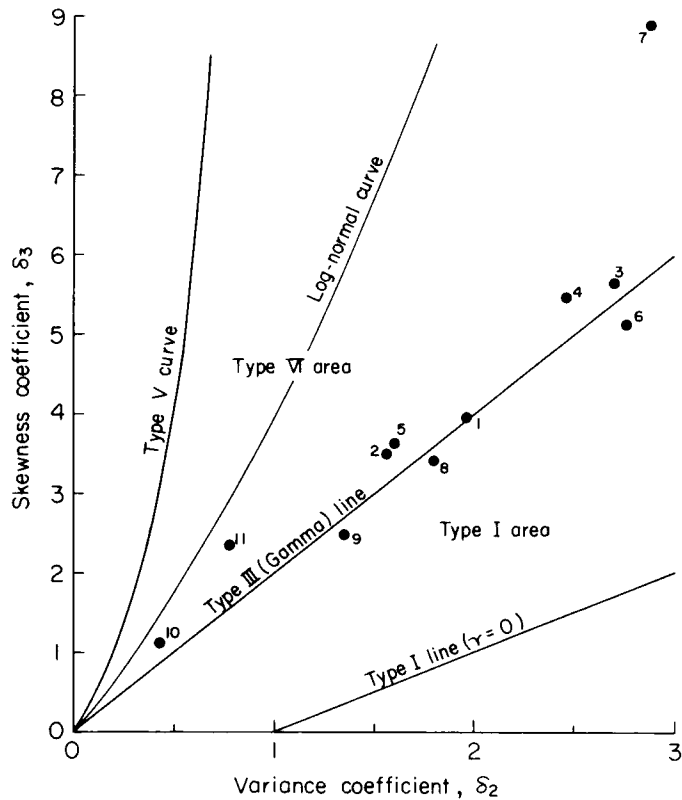


Fig. 3-4 Classification of hourly SO<sub>2</sub> concentration in littoral industry area of Yokkaichi, Mie  
Numbers 1 to 11 correspond to those in Table 3-3.

Table 3-3 Observed parameters of hourly SO<sub>2</sub> concentrations in littoral industry area (Yokkaichi, Mie).

No	Station	Period	n <sup>2)</sup>	$\bar{x}$	$\sigma$	$\sigma^2$	$\sigma g$	$\delta_2$	$\delta_3$	$a^1)$	$\alpha$	$\gamma$
1	Yohgyo shikenjo	1967. 4-6	2086	32.6	15.4	2095	1.232	1.972	3.970	—	—	—
2		1967. 7-9	1819	31.6	18.4	1556	1.021	1.562	3.510	671.8	0.72	-15.27
3		1967.10-12	954	23.8	11.4	1470	1.100	2.698	5.659	1816.5	0.39	-30.21
4	Yokkaichi hokensho	1967. 4-6	1835	28.8	12.8	2036	1.272	2.463	5.484	919.8	0.45	-14.40
5		1967. 7-9	1856	38.8	21.4	2350	1.088	1.605	3.654	744.3	0.71	-13.74
6		1967.10-12	1340	31.4	13.8	2737	1.216	2.769	5.124	—	—	—
7		1968. 1-3	1551	22.6	12.0	1473	1.069	2.882	8.890	204.3	0.50	-4.48
8	Isozu	1967. 4-6	1974	52.8	24.2	5020	1.322	1.802	3.439	—	—	—
9		1967. 7-9	1637	53.5	29.9	3871	1.081	1.354	2.501	—	—	—
10		1972. 4-6	2184	37.8	31.4	613	0.616	0.429	1.126	151.9	3.16	-12.69
11		1972. 7-9	2151	23.4	17.4	427	0.758	0.777	2.359	75.2	2.00	-6.42

1) unit: [ppb]. 2) n: hours of available data.

a,  $\alpha$  and  $\gamma$  are estimated parameters for Pearson Type VII distribution.

この結果である推察される。Fig. 3-5 a, bに両者の頻度分布とピアソン系VII型分布および対数正規分布による近似曲線を示した。頻度分布には1 ppbの幅で激しい凹凸があるが、これは記録紙からの読み取り時における個人誤差によると考えられる。階級幅を1 ppbにとった場合の2～4次のモーメントと、階級幅を5 ppbにとって Sheppardの補正を行ったモーメントとの誤差は、原点回り、平均値回り共に0.8%以内であった。この場合の頻度分布と近似曲線との比をFig. 3-6 a, bに示す。

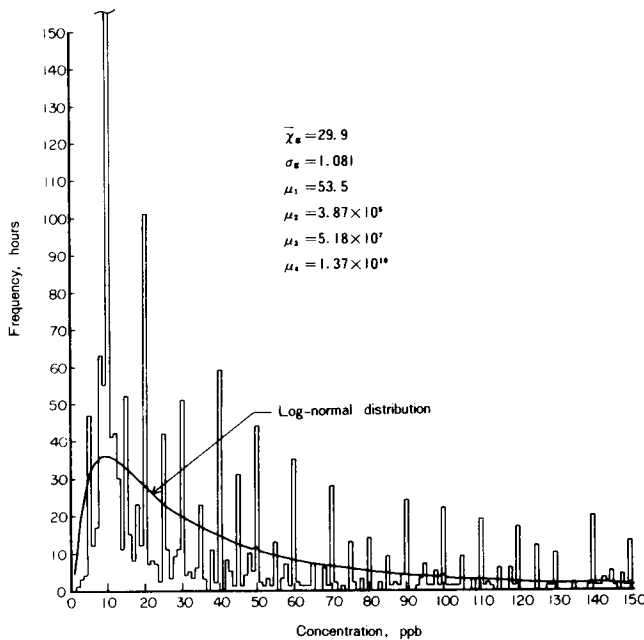


Fig. 3-5-a Histogram of 1 ppb interval width for SO<sub>2</sub> concentration (Isozu, Yokkaichi, July - Sept., 1967)

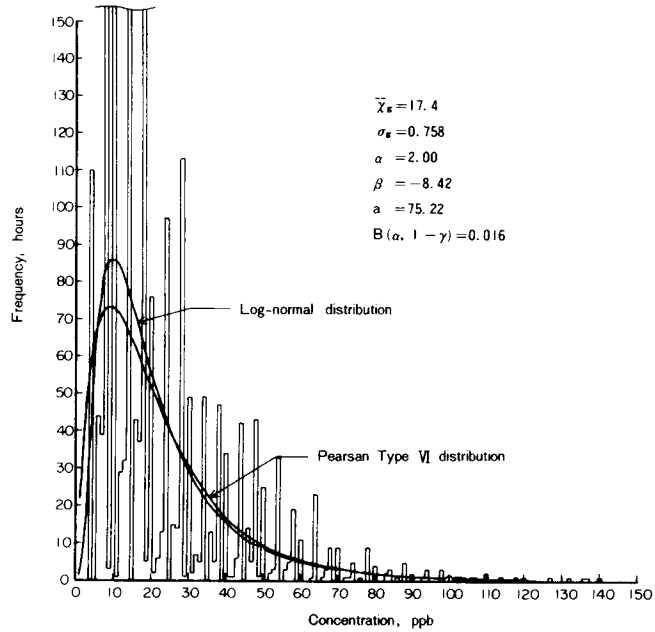


Fig. 3-5-b Histogram of 1 ppb interval for SO<sub>2</sub> concentration (Isozu, Yokkaichi, July - Sept., 1972)

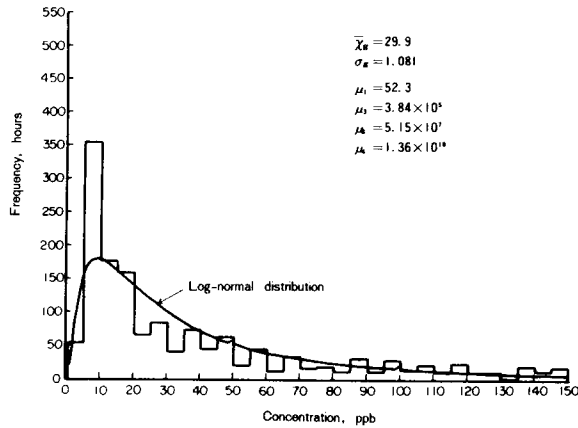


Fig. 3-6-a Histogram of 5 ppb interval width for SO<sub>2</sub> concentration (Isozu, Yokkaichi, July - Sept., 1967)

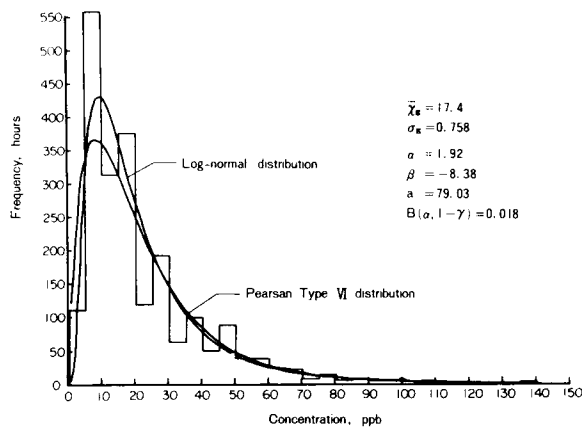


Fig. 3-6-b Histogram of 5 ppb interval width for SO<sub>2</sub> concentration (Isozu, Yokkaichi, July - Sept., 1972)

## 2-2 単一汚染源地域における大気汚染濃度分布

単一汚染源地域に対する大気汚染の見地からの明確な定義はない。汚染源が放射性物質などのいわゆる特異的な汚染物質を放出するような場合は除くとして、SO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub>などいわゆる非特異的な一般汚染物質を対象とする限り、単一汚染源地域といえども他地域からの汚染物質の流入、および小汚染源による汚染寄与がある。そのためここでは、単一汚染源地域の大気汚染とは、対象とする単一汚染源による大気汚染と他の汚染源による大気汚染とが重畳したもので、かつ対象地域と汚染源との位置関係、および汚染物質排出量との関連で、単一汚染源の影響が著しいと考えられる大気汚染である、と定義する。

単一汚染源地域として、大阪府岬町と佐賀県唐津市を選定した。

大阪府岬町は、和歌山県との接触点にあたる大阪府の南端に位置し、県境の山岳地帯を背に西は紀淡海峡を隔てて淡路島に連なる地域である。町のほぼ中央部の海岸に出力462 MWの火力発電所が立地しており、この発電所の大気汚染物質排出量に匹敵する他の汚染源は周辺にはなく、この地域は典型的な単一汚染源地域といえる。岬町の大気汚染の概要については、大志野ら(1975)が述べている。SO<sub>2</sub>の年次別

排出量はTable 3-4のとおりである。大気汚染濃度測定点のうち、発電所から南西および南東にそれぞれ位置する東畑(Higashihata)および孝子(Kyoshi)における風向別濃度の最大値、95%値、90%値、50%値を求めるとFig.3-7のようになる。何れも汚染源方向に高濃度の出現がみられる。この地域の近年の大気汚染は、Table 3-4に示すごとく汚染物質排出量の大幅な低下がみられ、単一

Table 3-4 Annual emission of SO<sub>x</sub> and NO<sub>x</sub> (Misaki, Osaka)

fiscal year	SO <sub>x</sub> (10 <sup>2</sup> t/y)	NO <sub>x</sub> (10 <sup>2</sup> t/y)
1956	88.5	22.4
1957	111.3	24.7
1958	99.3	27.0
1959	99.1	29.2
1960	105.7	21.9
1961	107.6	20.6
1962	163.3	33.4
1963	271.8	72.8
1964	284.1	80.1
1965	276.9	87.6
1966	289.9	90.0
1967	283.6	88.1
1968	284.6	90.0
1969	246.3	73.9
1970	194.6	55.5
1971	143.5	47.9
1972	76.2	40.6
1973	46.4	27.0
1974	21.6	15.9

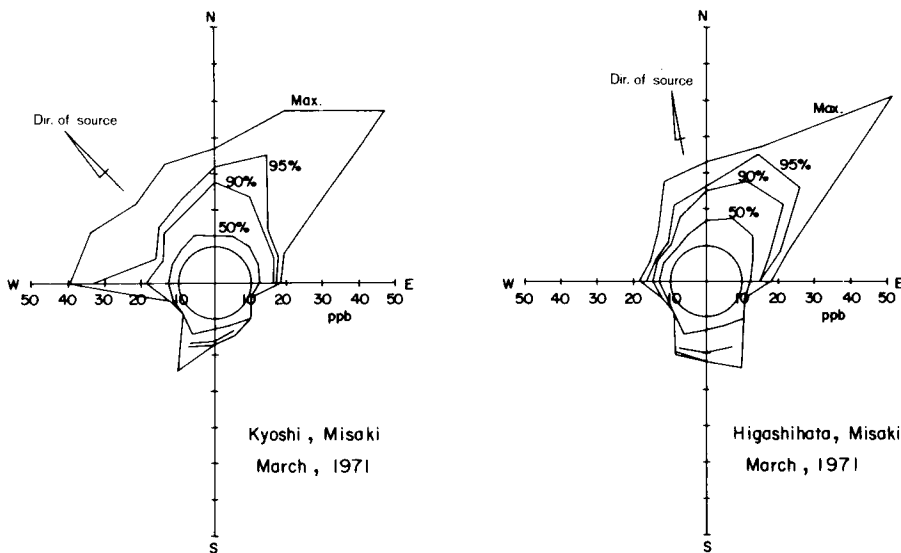


Fig. 3-7 Concentration rosette for each percentile (Misaki, Osaka)

汚染源特有の現象の出現は少なくなっている。そのため、濃度分布の解析は1971～1972年のデータにもとづいて行った。3カ月毎の各種統計量をTable 3-5に示す。Fig. 3-8は分散係数 $\delta_2$ と歪み係数 $\delta_3$ の値を示したものである。その特徴は、分散係数 $\delta_2$ に比べて歪み係数 $\delta_3$ の値が大きい点であり、ピアソン系による分布の型はⅥ型である。またとくにTable 3-5に示したNos. 1, 2, 7および

Table 3-5 Observed parameters of hourly SO<sub>2</sub> concentrations around an isolated source (Misaki, Osaka)

No	Station	Period	n <sup>2)</sup>	$\bar{x}_m$ <sup>1)</sup>	$\bar{x}_g$ <sup>1)</sup>	$\sigma^2$	$\sigma_g$	$\delta_2$	$\delta_3$	a <sup>1)</sup>	$\alpha$	$\gamma$
1	Kyoshi	1971. 1- 8	2099	20.0	15.4	412	0.658	1.080	5.202	27.2	2.42	- 3.29
2		1971. 4- 6	1903	34.3	27.3	986	0.628	0.798	4.380	28.3	3.98	- 3.29
3	Higashihata	1972. 1- 3	2021	19.9	17.4	167	0.485	0.419	2.088	7.4	11.48	- 4.27
4		1972. 4- 6	2168	22.3	19.0	227	0.551	0.455	1.889	18.0	6.18	- 4.97
5		1972. 7- 9	2027	15.7	12.7	118	0.669	0.480	1.211	80.9	2.68	-13.81
6		1972.10-12	1862	21.8	18.5	231	0.543	0.486	1.998	19.6	5.45	- 4.91
7		1971. 1- 3	2189	23.2	17.7	428	0.703	0.792	2.945	43.6	2.47	- 4.63
8		1971. 4- 6	2168	27.3	22.1	507	0.617	0.681	3.904	15.8	5.73	- 3.32
9	Tannowa	1972. 1- 3	2180	14.3	11.9	97	0.583	0.477	1.567	25.3	3.85	- 6.81
10		1972. 4- 6	2171	16.5	14.5	82	0.512	0.301	0.964	24.3	6.26	- 9.20
11		1972. 7- 9	2109	17.6	16.1	59	0.412	0.190	0.523	41.4	7.93	-18.62
12		1972.10-12	2204	11.8	9.9	69	0.574	0.494	1.723	17.7	4.04	- 6.06
13	Tannowa	1971. 1- 3	2151	17.2	14.2	175	0.592	0.588	2.071	28.9	3.31	- 5.55
14		1971. 4- 6	1718	23.5	19.7	244	0.580	0.443	1.382	47.4	3.87	- 7.82

1) unit : [ppb], 2) n : hours of available data.  
a,  $\alpha$  and  $\gamma$  are estimated parameters for Pearson Type Ⅵ distribution.

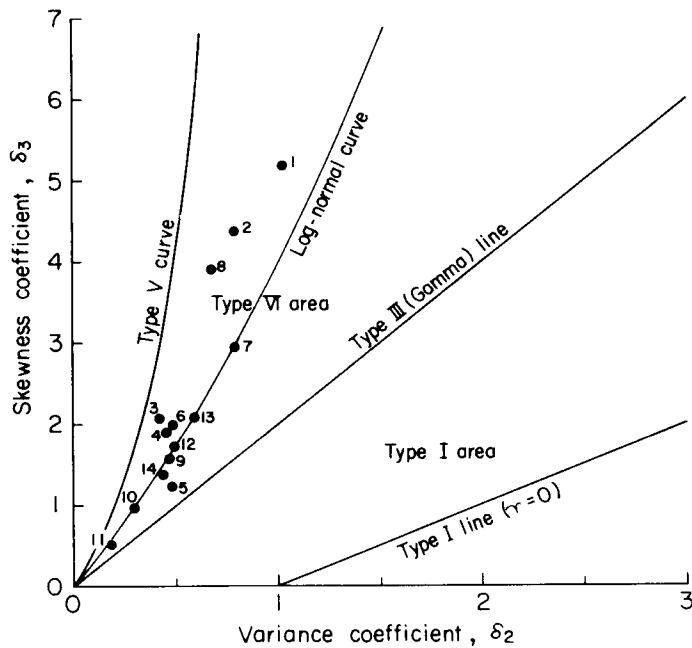


Fig. 3-8 Classification of hourly SO<sub>2</sub> concentrations around an isolated source (Misaki, Osaka)

Numbers 1 to 14 correspond to those in Table 3-5.



8は、 $\delta_3$ の値が大きいことが認められる。これらのデータは1971年1～6月に孝子および東畑において観測されたものである。特に同年4～6月の3カ月間の1時間最高濃度は、孝子および東畑の値が大阪府下では最高であった。

Fig. 3-4のうちピアソン系V型分布と対数正規分布に対応する曲線に挟まれた $\delta_2, \delta_3$ のデータから幾何平均濃度と対数標準差の不偏推定量を求め、第5章第1節に後述する方法によって99%値を推定した。この値と実測値の99%濃度を比較したのがTable 3-6である。対数正規分布によって分布形を近似した場合、単一汚染源地域にあっては僅かな例外を除いて、高濃度の出現頻度は少なめに見積られることがわかる。以上が大阪府岬町における、大気汚染濃度分布の解析結果である。次に佐賀県唐津市における分布形について述べる。

唐津市は、佐賀県北部に位置して玄界灘に面し、南の後背地は山岳となっている地域である。市のほぼ中央部の海岸に出力1031 MWの火力発電所が立地しており、周辺には他の大汚染源はない。唐津市の大気汚染の概要については、碓(1977)が述べている。大気汚染濃度測定点のうち、発電所の南西2及び6 kmにそれぞれ位置する神田(Kohda)および竹木場(Takekoba)における風向別濃度の最大値、95%値、90%値および50%値を求めるとFig. 3-9のようになり、何れも汚染源からの風向時に高濃度の出現がみられる。

Table 3-6 Comparison of 99 percentile values of hourly SO<sub>2</sub> concentration between observed and estimated (Misaki, Osaka)

	Kyoshi			Higashihata		Tannowa		Kyoshi			Higashihata			Tannowa		
	1971	1972	1974	1971	1972	1971	1972	1971	1972	1974	1971	1972	1974	1971	1972	1974
$\bar{x}_{gm}$	18.5	18.8	27.8	15.7	18.5	14.1	10.7	80.2	17.1	14.2	23.4	13.8	25.9	21.3	13.9	24.8
$\sigma$	0.63	0.55	0.37	0.67	0.65	0.60	0.56	0.64	0.47	0.56	0.68	0.58	0.41	0.61	0.61	0.49
$\frac{x_{99}}{\bar{x}_{am}}$ obs.	6.03	3.87	2.46	3.96	3.49	4.94	3.77	4.73	3.15	3.76	5.18	2.87	2.61	3.71	2.98	3.11
$\bar{x}_{am}$ calc.	3.55	3.09	2.21	3.80	3.67	3.37	3.15	3.61	2.67	3.15	3.86	3.26	2.89	3.43	3.43	2.77
$\bar{x}_{gm}$	15.4	16.3	13.7	19.5	11.1	16.4	9.7	23.1	17.8	11.1	22.0	15.0	17.3	16.1	14.8	15.9
$\sigma$	0.65	0.41	0.87	0.70	0.48	0.57	0.47	0.56	0.40	0.64	0.59	0.47	0.80	0.57	0.50	0.82
$\frac{x_{99}}{\bar{x}_{am}}$ obs.	4.57	0.85	4.56	4.00	2.97	3.51	3.19	3.62	3.60	3.56	3.91	3.13	3.09	3.67	3.15	4.50
$\bar{x}_{am}$ calc.	3.67	2.39	5.18	3.99	2.72	3.20	2.67	3.15	2.34	3.61	3.32	2.67	4.67	3.20	2.82	4.81
$\bar{x}_{gm}$	17.9	17.2	11.5	18.4	11.3	12.5	10.6	27.9	22.5	10.3	21.1	15.2	7.5	20.0	14.6	8.9
$\sigma$	0.66	0.48	0.48	0.72	0.58	0.57	0.53	0.63	0.70	0.69	0.57	0.46	0.72	0.53	0.51	0.89
$\frac{x_{99}}{\bar{x}_{am}}$ obs.	5.58	3.49	3.15	4.89	3.82	3.49	3.47	4.53	3.55	3.66	3.97	2.75	4.65	2.70	3.39	4.38
$\bar{x}_{am}$ calc.	3.73	2.72	2.72	4.12	3.26	3.20	2.89	3.55	4.00	3.92	3.20	2.62	4.12	2.98	2.88	5.34

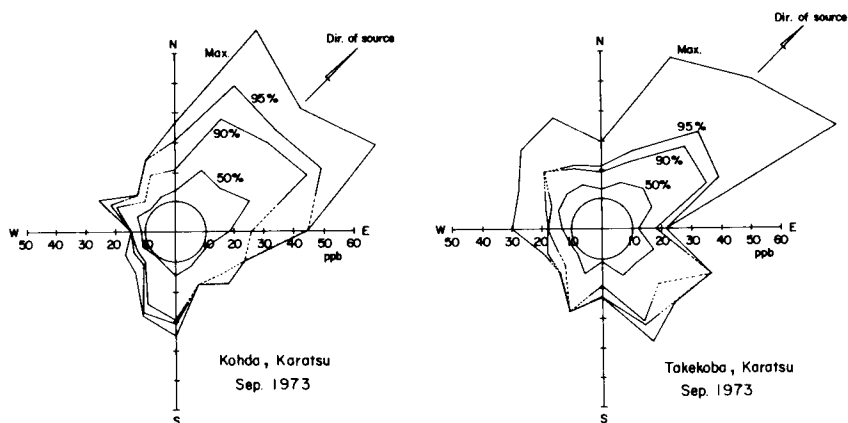


Fig. 3-9 Concentration rosette for each percentile (Karatsu, Saga)

唐津市におけるSO<sub>2</sub>濃度のうち1973年9～10月の2カ月間の測定値から $\delta_2, \delta_3$ を求めるとTable 3-7のようになる。これらの値は、岬町において求められたものと同じく、 $0.4 < \delta_2 < 0.5$ に対し $1.9 < \delta_3 < 2.0$ と $\delta_3$ が比較的大きくなっている。

Table 3-7 Observed parameters of hourly SO<sub>2</sub> concentrations around an isolated source (Karatsu, Saga)

No	Station	Period	n	$\bar{x}_{am}^{1)}$	$\bar{x}_g$	$\sigma^2$	$\sigma_g$	$\delta_2$	$\delta_3$	a	$\alpha$	$\tau$
1	Kohda	1973.9-10	1321	16.0	13.8	145	0.539	0.541	2.058	20.4	4.13	-5.16
2	Mirukashi	1973.9-10	1213	14.5	12.9	89	0.476	0.406	1.917	6.5	10.29	-4.55
3	Takekoba	1973.9-10	1310	15.4	13.4	116	0.533	0.471	1.900	14.4	5.52	-5.07

a,  $\alpha$  and  $\tau$  are estimated parameters for Pearson Type III distribution.

### 2-3 都市域における大気汚染濃度分布

都市域における大気汚染は、特定地点の汚染に対して寄与する汚染源を同定することが一般に困難であり、多数の汚染源から排出された汚染物質が複合して大気汚染を形成していると考えられる。都市において大気汚染に関与する微気象は、Geiger (1965) や太田・長尾 (1969), YOSHINO (1975) が指摘するごとく①道路や建物によって起状が形成され、大気の流れが著しく大きい、②都市全体の影響で気流に抵抗が生じ、気流の一部は都市の上空を乗り越えたり、都市を迂回する、③都市内での使用エネルギーが多く、熱エネルギーの放出がある、といった特徴をもつ。都市活動によって比較的低層から放出された汚染物質は、このような気象場で拡散・混合される。また特に、谷間や盆地に立地した都市においては、風速が弱く乱れが大きい結果、都市内部の汚染物質は比較的均一に混合して都市内部にとじこめられやすい。このような都市における大気汚染の濃度分布を求めるために、対象地域として東京都および京都市を選定した。

東京都におけるSO<sub>2</sub>濃度の時間的変動の分布形を求めるために、まず1961年1月から同6月までの6カ月間にわたって求められた1時間測定値のデータをもとにして、Table 3-8に示す各種統計量を

Table 3-8 Observed parameters of hourly SO<sub>2</sub> concentration in urban areas (Tokyo and Kyoto)

No	Station	Period	n <sup>2)</sup>	$\bar{x}_{am}^{1)}$	$\bar{x}_g^{1)}$	$\sigma^2$	$\sigma_g$	$\delta_2$	$\delta_3$	a <sup>1)</sup>	$\alpha$	$\tau$
1	Tokyo Tocho	1969. 1-3	1932	93.7	68.2	6300	0.827	0.717	1.765	672.7	1.73	-12.4
2		1969. 4-6	2069	38.9	30.0	976	0.711	0.645	1.615	239.2	1.97	-12.1
3	Johto Hokensho	1969. 1-3	2051	88.3	70.0	3325	0.738	0.426	0.861	—	—	—
4		1969. 4-6	2135	62.6	52.3	1479	0.619	0.377	1.006	219.2	3.69	-12.9
5	Toritsu Eiken	1969. 1-3	1730	43.3	29.5	1861	0.867	0.993	2.368	447.1	1.20	-12.4
6		1969. 4-6	1875	35.7	28.0	656	0.713	0.515	1.171	588.8	1.97	-32.5
7	Kohjiya Hokensho	1969. 1-3	2093	88.7	68.5	4522	0.738	0.575	1.357	736.3	2.07	-17.2
8		1969. 4-6	2177	85.5	60.9	4882	0.874	0.669	1.332	—	—	—
9	Tokyo Tower (25m)	1969. 4-6	2147	43.0	33.3	1156	0.720	0.624	1.723	167.6	2.27	-8.8
10	(127m)	1969. 4-6	2146	114.9	89.6	9298	0.683	0.704	2.322	267.7	2.46	-5.7
11	(223m)	1969. 4-6	2087	96.6	63.1	10100	0.932	1.083	2.703	821.2	1.15	-9.8
12	Kyoto Shiyakusho	1971. 4-6	2158	30.0	22.3	660	0.724	0.732	2.006	132.5	1.90	-8.4
13		1971. 7-9	2080	21.2	17.2	218	0.656	0.486	1.359	68.2	3.01	-9.7
14		1971.10-12	2111	33.2	28.0	452	0.579	0.409	1.229	73.5	4.00	-8.9
15		1972. 1-3	2123	25.1	22.0	227	0.499	0.359	1.496	15.5	8.91	-5.5

1) unit : [ppb], 2) n : hours of available data.

a,  $\alpha$  and  $\tau$  are estimated parameters for Pearson Type III distribution.

求めた。また同じく、京都市におけるSO<sub>2</sub>濃度の統計量についても、1971年度の京都市役所におけるデータをもとに求めた。その結果もTable 3-8に併記してある。両都市の濃度分布の分散係数 $\delta_2$ および歪み係数 $\delta_3$ の値をFig. 3-10に示した。臨海工業地帯周辺地域あるいは単一汚染源地域の $\delta_2$ ,  $\delta_3$ の値に比べて著しい特徴は、 $\delta_2$ ,  $\delta_3$ が小さい値を示すことである。Fig. 3-10のうち $\delta_2$ ,  $\delta_3$ ともに最大値を示すデータは東京タワーの地上223mにおいて測定されたものであり、特異的なものである。

都市における濃度分布は、Fig. 3-10から明らかなようにピアソン系分布による分類ではⅥ型であると判定される。またⅥ型のうちでも、多くのデータの $\delta_2$ - $\delta_3$ の値はガンマ分布と対数正規分布を示す2つの曲線に挟まれている。

Fig. 3-11は京都市の頻度分布の1例である。

以上に述べた3種類の汚染地域の、 $\delta_2$ - $\delta_3$ 判定図上における定性的な特性をまとめるとTable 3-

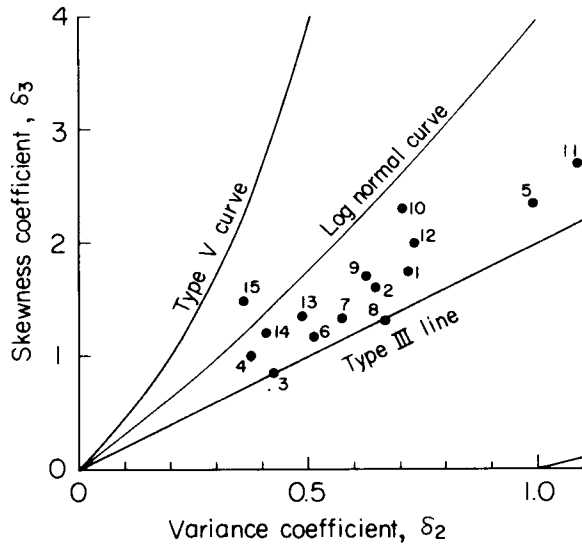


Fig. 3-10 Classification of hourly SO<sub>2</sub> concentration in urban areas (Tokyo and Kyoto)  
Numbers 1 to 15 correspond to those in Table 3-8.

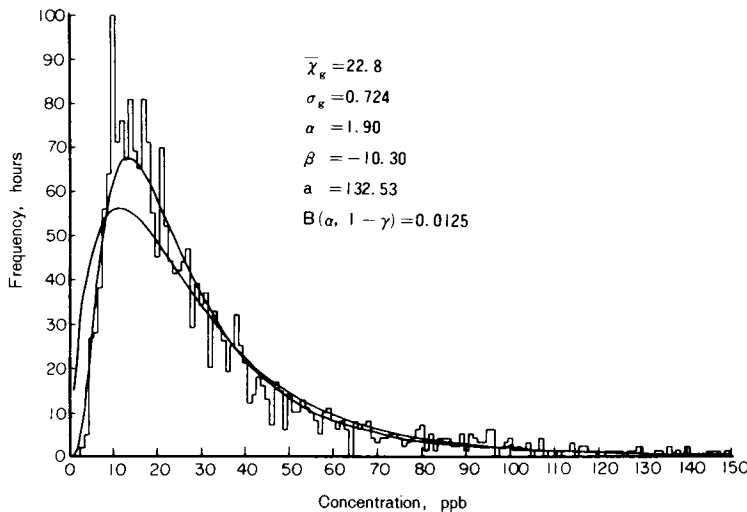


Fig. 3-11 Histogram for hourly SO<sub>2</sub> concentration in Kyoto  
(Municipal office, April to June in 1971)

9のようになる。これらは対象汚染物質をSO<sub>2</sub>に限って得られた結果であり、他の汚染物質を対象にすれば、環境中への排出形態および大気中での物理化学的挙動のちがいで、おのずとその結論は異なるものと予想される。

Table 3-9 Qualitative characteristics of the distribution for each area type

Area type	$\delta_2$	$\delta_3$	Shape of the cumulative distribution on log normal prob. paper	Shape of the distribution	Pearson type
Littoral industrial area	0~3	0~9	concave	J-shaped*	I, W
Isolated source area	0~1	0~6	convex	unimodal**	W
Urban area	0~1	0~3	concave	unimodal	W

\* It will tend to be unimodal shaped when there is background pollution.

\*\* It will tend to be J-shaped when there is no background pollution.

### 第3節 汚染物質相互の濃度分布

本節では、同一地点、同一期間に測定された複数汚染物質の相互の濃度分布について述べる。分布形の解析は大阪府岬町における1974年9~11月の3ヶ月間のデータを主にして行った。この地域は前節に述べたごとく、当初は単一汚染地域であったが、火力発電所の大気汚染防止対策が進展し、上記測定期間においては相当程度の環境改善の効が現われ、単一汚染源による顕著な影響はみられなくなった。このことはTable 3-4に示す汚染物質排出量の低下状況からも類推できよう。したがって、上記測定期間におけるこの地域の大気汚染は、大阪湾沿岸工業地帯や和歌山工業地帯からの広域的な流入汚染物によってもひきおこされていると考えられる。以下に行う解析は、この条件下の大気汚染濃度に関するものである。

Table 3-10 Observed parameters of each pollutant at Misaki, Osaka (Sept. - Nov., 1974)

No	Station	Pollutant	n	$\bar{x}_{am}$	$\bar{x}_g$	$\sigma^2$	$\sigma_g$	$\delta_2$	$\delta_3$	a	$\alpha$	$\gamma$
1	Kyoshi	SO <sub>2</sub>	2099	7.01	5.82	89.4	0.719	0.801	2.688	17.8	2.16	-5.84
2		NO	2087	6.79	4.41	64.1	0.906	1.392	4.919	23.8	1.21	-4.24
8		NO <sub>2</sub>	2101	15.88	12.52	117.8	0.787	0.466	1.080	187.2	2.51	-21.70
4		Oxidant	1827	31.54	25.85	485.8	0.655	0.488	1.399	58.2	4.06	-7.44
5		Suspended particulates	2148	55.45	49.09	987.8	0.475	0.321	1.288	41.8	8.63	-6.44
6		Wind speed	2150	15.00	11.68	104.2	0.768	0.463	0.831	-	-	-
7	Yokuba	SO <sub>2</sub>	2117	18.18	11.81	60.2	0.567	0.846	1.095	22.0	5.22	-8.69
8		NO	1954	9.87	6.16	94.8	1.028	0.968	2.082	259.2	1.11	-29.16
9		NO <sub>2</sub>	2186	15.48	12.84	101.4	0.724	0.423	0.876	-	-	-
10		Oxidant	2094	30.34	25.46	357.6	0.616	0.388	1.239	52.8	4.65	
11		Suspended particulates		69.68			0.807	0.873	2.004			
12		Wind speed	2144	28.85	16.26	389.1	0.994	0.596	0.754	-	-	-

The units of suspended particulates and wind speed are  $\mu g/m^3$  and  $0.1m/sec$ , while those of others are all in ppb. a,  $\alpha$  and  $\gamma$  are estimated parameters for Pearson Type W distribution.

岬町においては、8測定局のうち2局においてSO<sub>2</sub>、NO、NO<sub>2</sub>、Oxidant、浮遊粉じんの5汚染物質と風向風速が測定されている。この2局(孝子局、役場局)に関して求めた統計量をTable 3-10に示す。また変動係数と歪み係数の値をFig. 3-12に示す。これらの図表から明らかのように、すべての汚染物質濃度の分布形がPearson VII型によって近似され、とくにSO<sub>2</sub>とOxidantは対数正規分布に対応する曲線に近接している。Fig. 3-12で注目すべき点はNOであって、 $\delta_2$ 、 $\delta_3$ はともに大きい値をとり、分布の形状はJ型に近いものとなっている。

次に各汚染物質の非超過確率を求めて、対数正規確率紙にプロットした。Figs. 3-13~3-20がその例である。Plotting positionは

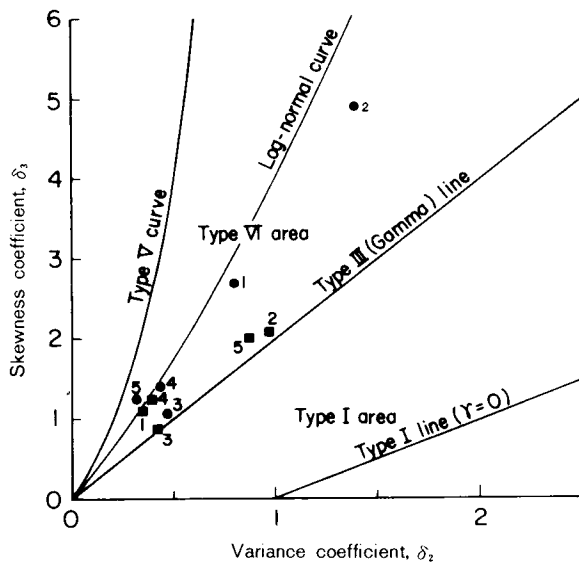


Fig. 3-12 Classification of each pollutant distribution in Misaki (Sept. to Nov., 1974) Numbers 1, 2, 3, 4 and 5 indicate SO<sub>2</sub>, NO, NO<sub>2</sub>, Oxidant and Suspended particulates. Stations Kyoshi and Yakuba are indicated by ● and ■

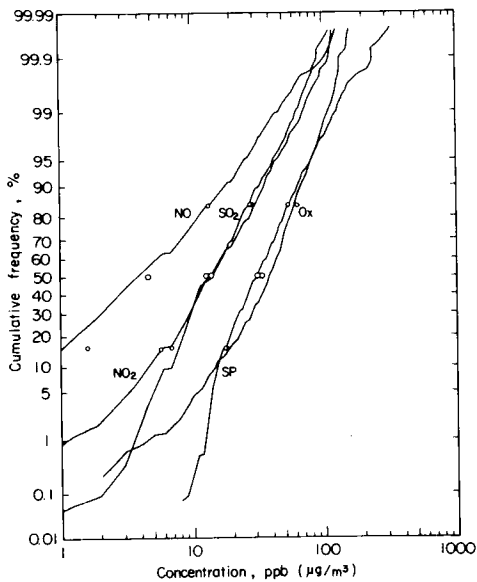


Fig. 3-13 Each pollutant on log-normal probability paper (Yakuba, Misaki, Jan. to June, 1974)

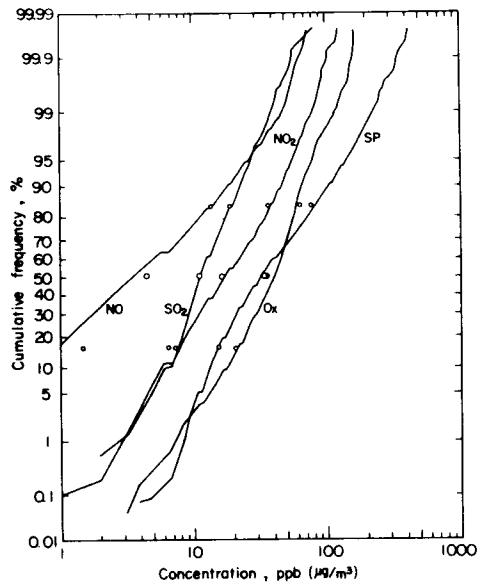


Fig. 3-14 Each pollutant on log-normal probability paper (Yakuba, Misaki, Jan. to June, 1974)

第5節(3-7)の Thomas plot によった。Figs. 3-13, 3-14 は6カ月間の各汚染物質を1枚の図にまとめたものである。各曲線の傾き自体の比較は意味がないが、これらの図によって対数正規分布への定性的な適合度が明らかとなる。図中の○印は幾何平均濃度および $\pm 1.00 \sigma_g$ の値を示している。これらの図では  $\text{SO}_2$ ,  $\text{NO}$ ,  $\text{NO}_2$  が低濃度以外では比較的に対数正規分布に近いことが示されている。

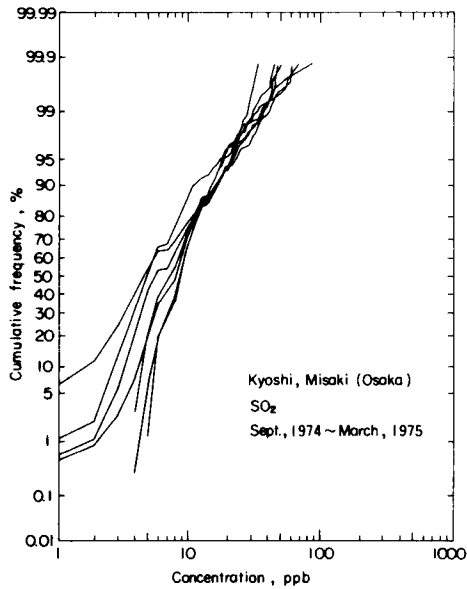


Fig. 3-15  $\text{SO}_2$  concentration for each month

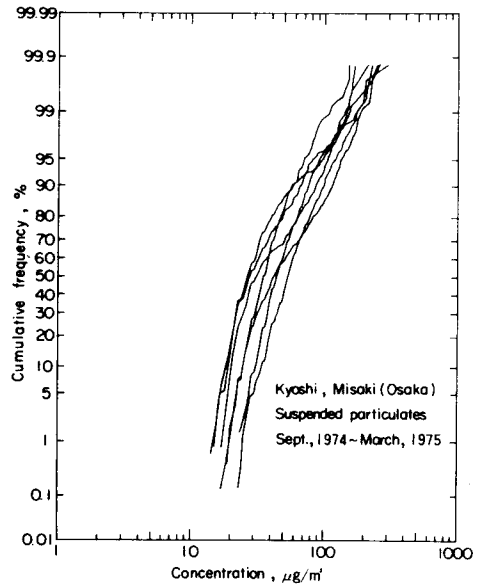


Fig. 3-16 Suspended particulates concentration for each month

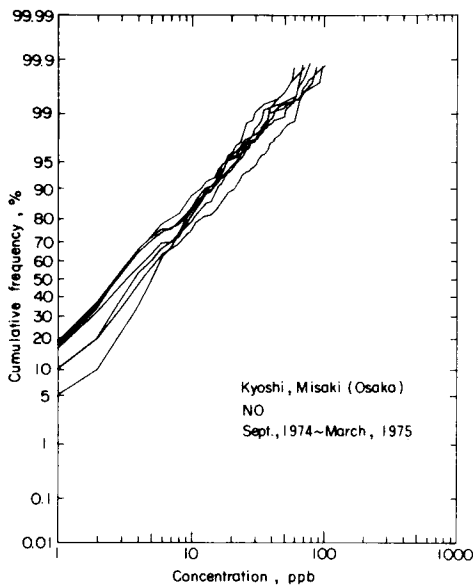


Fig. 3-17  $\text{NO}$  concentration for each month

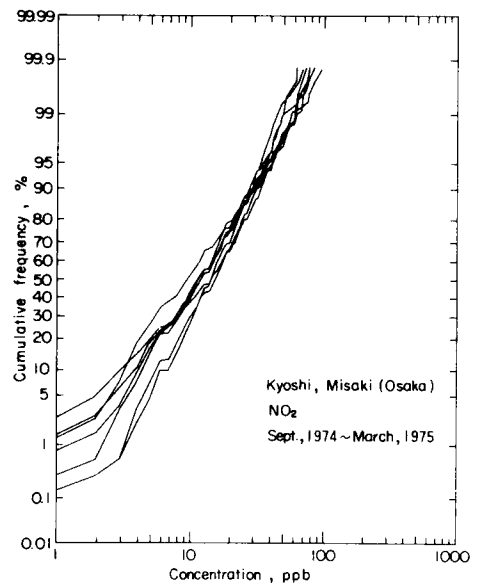


Fig. 3-18  $\text{NO}_2$  concentration for each month

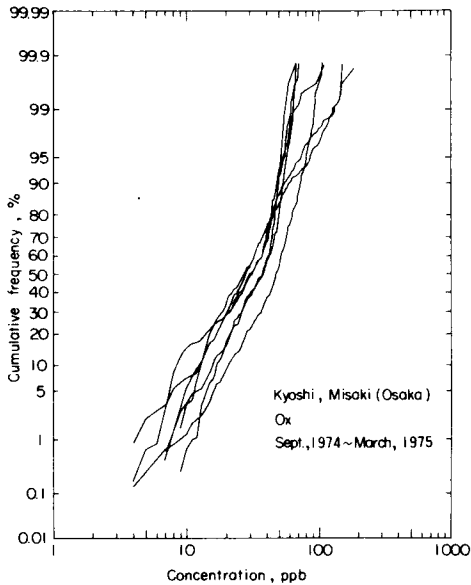


Fig. 3-19 Oxidant concentration for each month

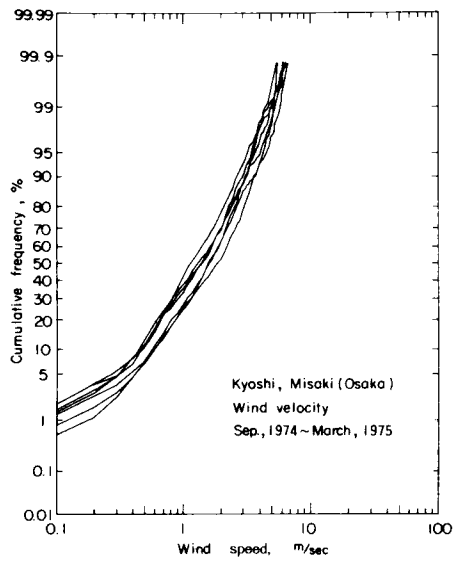


Fig. 3-20 Wind speed for each month

Figs. 3-15~3-20は5種類の汚染物質と風速の月毎の非超過確率を示したものである。これらの図で特に注目すべきはOxidantである。Fig. 3-19の7カ月分のデータのうち、その形状が下に凸である5カ月分は、11~3月の冬季のものであり、Oxidantの高濃度発生が抑制されていることを示している。

以上の解析においては、汚染物質相互に系統的な分布特徴は、NOを除いて見出せなかった。NOについても $\delta_2 - \delta_3$ 判定図上でJ型の形状を示す領域に属したが、これも低濃度域における測定技術が向上すれば、格別の特徴はなくなるものと考えられる。

#### 第4節 ピアソン系分布と対数正規分布

前節までの $\delta_2 - \delta_3$ 判定図による大気汚染濃度の分布形解析によれば、実際の分布形はピアソン系VI型によって近似される場合が多く、またそのうちの幾らかはピアソン系VI型の1種である対数正規分布によっても近似されることが明らかとなった。本章第1節において述べたように、大気汚染濃度分布形のモデル化には、取扱いの簡便さと数学的性質の豊富さによって、対数正規分布を用いることが一般に行われている。以上のような理由から、本節ではピアソン系VI型分布を対数正規分布によって近似した場合の誤差評価を行う。

ピアソン系VI型と対数正規分布の確率密度関数の比較は、既にFigs. 3-6-b, 3-11において例示したとおりである。このような比較を更に直感的に行うため、ピアソン系分布の分布関数を対数正規確率紙上に描いた。その方法と結果は以下のとおりである。

すなわち $\delta_2 - \delta_3$ 判定図上の任意の点に対応するピアソン系分布を求め、その分布関数を対数正規確

率紙上に求めた。Fig. 3-21 は  $\delta_3 = 1.5$  に対し  $\delta_2 = 0.4, 0.6, 0.8, 1.0$  とって求めた分布関数である。  
 $(\delta_2, \delta_3) = (0.4, 1.5)$ ,  $(0.6, 1.5)$  は VI 型、 $(\delta_2, \delta_3) = (0.8, 1.5)$ ,  $(1.0, 1.5)$  は I 型である。  
 対数正規分布は  $(\delta_2, \delta_3) = (0.4365, 1.5)$  のときに VI 型によって近似される。

Fig. 3-22 は  $\delta_2 = 0.6$  に対し  $\delta_3$  を 1, 2, 3, 4, 5 と変化させて求めた分布形である。 $(\delta_2, \delta_3) = (0.6, 1)$  は I 型、その他は VI 型に分類される。対数正規分布は  $(\delta_2, \delta_3) = (0.6, 2.16)$  のときにピアソン系分布によって近似される。

Fig. 3-23 は VI 型分布において  $\gamma$  の値を  $-10$  に固定し、 $\delta_2 = 0.2, 0.4, 0.6, 0.8, 1.0$  に対応させた分布形である。対数正規分布は  $(\delta_2, \delta_3) = (0.25, 0.8155)$  のとき VI 型分布で近似される。

以上の結果から類推できるように、 $\delta_2 - \delta_3$  判定図において  $\delta_3 = \delta_2 (\delta_2 + 3)$  で示される曲線より上方に位置するデータの分布関数は、対数正規確率紙上では上に凸の曲線となり、逆に下方に位置するデータは対数正規確率紙上では下に凸の曲線を描く。

臨海工業地帯、単一汚染源地域および都市域という 3 種類の地域の大气汚染濃度分布のうち、 $\delta_2 - \delta_3$  判定図において対数正規分布に対応する曲線より上方に位置する（すなわち  $\delta_3 > \delta_2 (\delta_2 + 3)$ ）

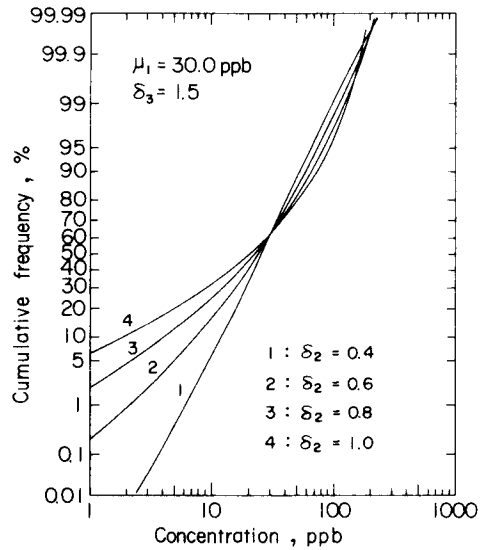


Fig. 3-21 Effect of  $\delta_2$  on the shape of Pearson distribution plotted on log-normal probability paper

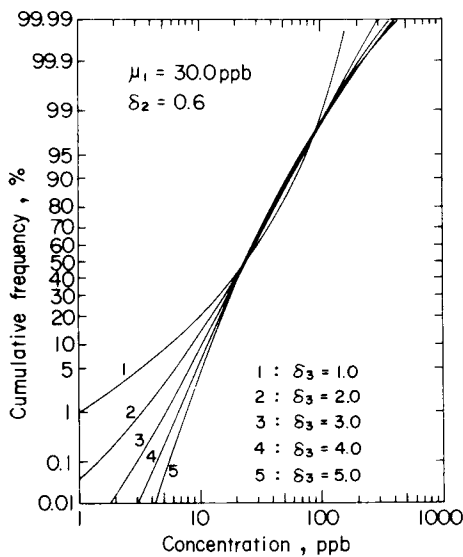


Fig. 3-22 Effect of  $\delta_3$  on the shape of Pearson distribution plotted on log-normal probability paper

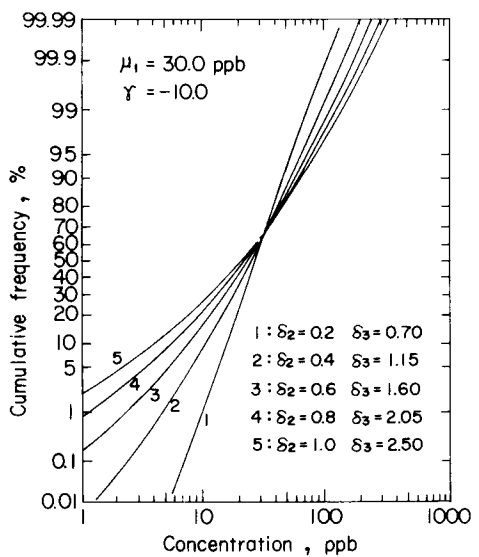


Fig. 3-23 Effect of  $\delta_3$  on the shape of Pearson distribution plotted on log-normal probability paper



データが得られたのは、大阪府岬町と佐賀県唐津市の単一汚染源地域である。このことは、単一汚染源地域においては他の地域と比較して低い平均濃度であるにもかかわらず、高濃度の発生があることを示しているといえよう。しかしながら、本節で解析された濃度分布は、第2章第5節に述べた大気拡散モデルによる濃度分布と様相が異なることは、Fig. 2-13およびFig. 3-8を比較しても類推ができる。このような不一致の理由としては次のようなことが考えられる。すなわち、単一汚染源地域における地表測定点の濃度は、汚染源から測定点を直撃する風が存在するときのみ上昇するわけではなく、大志野ら(1975)が述べる如く、その地域の気象と地形の条件によっては汚染物質は大気の循環流にのっても測定点に到達し、また他の広域的な汚染源からの移流汚染物質によるバックグラウンド濃度によっても測定点濃度が上昇すると考えられる。

一方、第2章第5節で述べた理論分布に対応する実測分布は、MARTINE and BARBER (1966, 1967)による次のような観測結果から求められるので、ピアソン系による判定を行うと次のようになる。

Martin and Barberは、英国Nottinghamshireの平坦な地域に立地する単一汚染源(High Marnham 火力発電所、出力 1000 MW)を中心とする半径 4.8 ~ 4.6 kmの円弧上にほぼ等間隔に 16 基の導電率法による SO<sub>2</sub> 濃度測定機を設置し、単一汚染源による SO<sub>2</sub> 濃度とバックグラウンド濃度とを測定した。使用した測定機の応答時間は約 3 分である。単一汚染源による汚染濃度の検出には、測定点方向への風向時の濃度記録紙上に現われる特異的なピーク濃度からバックグラウンド濃度を差し引く方法と、主風向を中心に 90° の角度内にある 5 地点の濃度のうち、内側の 3 地点の濃度から、バックグラウンドと考えられる外側の 2 地点の濃度を差し引く方法とが併用された。測定期間は 1963 年 10 月から 1964 年 9 月までの 1 年間であり、その間の不安定、中立、安定の気象状態の出現頻度はそれぞれ 41%、28%、31%であった。また安定状態が続いた直後においては、fumigation 効果とみられる高濃度が出現している。

以上のような観測によって得られた単一汚染源による濃度の出現頻度を整理すると Fig. 3-24 および Table 3-11 となる。地表測定点における 3 分間最大値の変動は、第 2 章第 5 節に述べた気象変動による煙流中心軸の変動、および汚染源の放出量の変動によるものと考えられることができる。Table 3-11 から明らかなように、ピアソン系分布による 3 分間最大値の分布形は I 型と判定される。これに対し、1 時間平均濃度および日平均濃度の分布形は II 型に分類される。平均化時間による  $\delta_2$  および  $\delta_8$  の値の変化については第 5 章第 1 節において述べる。

次に、実測値をもとにしてピアソン系 II 型分布と対数正規分布との適合性の比を、LYNN (1974) の手法にしたがっておこなう。

比較の対象とした実測値は、臨海工業地帯の実測値として Fig. 3-3 に示す大阪府堺市

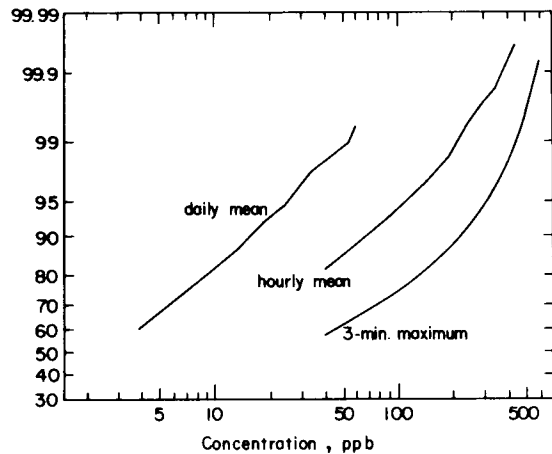


Fig. 3-24 Cumulative frequency distributions of SO<sub>2</sub> concentration from power station only  
Data are taken at 16 stations around the source from Oct., 1963 to Sept., 1964 in Nottinghamshire by Martin and Barber (1966).

Table 3-11 Properties of the frequency distribution of SO<sub>2</sub> concentration from power station only (Martin and Barber (1966, 67))

		8-min. maximum	Hourly mean	Daily mean
% of recordings of specified averaging time	W	3177	3177	530
	S	4127	4127	788
Mean concentration (ppb)	W	67.3	80.8	6.1
	S	90.7	38.7	7.3
	W + S	80.5	35.7	6.9
Variance coefficient, $\delta_2$	W	1.815	0.927	1.619
	S	1.288	1.225	2.287
	W + S	1.496	1.153	2.094
Skewness coefficient, $\delta_3$	W	3.437	5.737	4.299
	S	2.160	4.647	6.430
	W + S	2.618	5.131	6.170

Mean concentrations are slightly different from the original ones. It is due to the calculation of the moments from grouped data, in which sheppards correction was applied.

all recorders. W=Oct., 1963 to March, 1964.

S=April, 1964 to Sept., 1964.

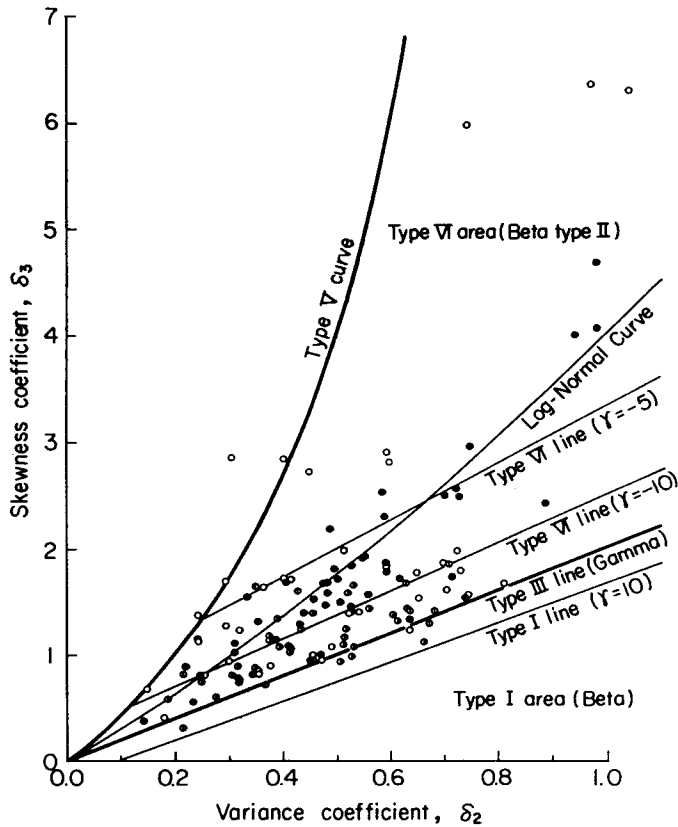


Fig. 3-25 Classification of the distributions on  $\delta_2$ - $\delta_3$  diagram by Lynn's test at 10 ppb width of interval

● and ⊙ indicate log-normal distribution is better to approximate, while ○ and ⊕ indicate Pearson distribution is better, at Misaki and Sakai respectively.

のSO<sub>2</sub> 1時間値、および単一汚染源地域として大阪府岬町のSO<sub>2</sub> 1時間値である。先ず、これらの実測値から1ヶ月毎に分散係数 $\delta_2$ と歪み係数 $\delta_3$ を求め、その結果をFig.3-25のように示した。Fig.3-25において○, ●で示されているデータは岬町における総計85カ月分であり、①, ②で示されている44個のデータは堺におけるものである。僅かの例外を除いて、殆んどの実測値が対数正規分布もしくはピアソン系Ⅵ型によって近似されていることがわかる。

次に1カ月毎の実測値をもとに(3-1)および(3-2)から対数正規分布のパラメータを求め、第2章第4節に述べたモーメント法により $\delta_2, \delta_3$ からピアソン系Ⅵ型もしくはⅠ型のパラメータを求めた。こうして求めた2つの理論頻度分布と実測分布との差の絶対値を、10, 20, あるいは40 ppbの幅にとった各濃度区間毎に求めて総和した。対数正規分布とピアソン系分布との適合性の比較は、このような差の絶対値総和の大小によって判断した。Lynnが求めた結果と同じく、適合性の良否は濃度区間幅を変えても2つの分布形モデルの間で逆転することはほとんどみられなかった。

以上の結果をFig.3-25に示した。対数正規分布のほうが適合性がよいデータは●, ②で示し、ピアソン系分布のほうが適合性が良いデータは○, ①で示した。但し $\delta_2 - \delta_3$ 図上でピアソン系Ⅴ型の曲線より上方に位置する5個のデータについては比較は行っていない。

Fig.3-25に対応するデータのうち任意に選んだ27カ月分のデータについて、パラメータ推定値をTable 3-12に示した。また適合性比較の結果をTable 3-13に示した。適合性の比較はLynnの手法による他、 $\chi^2$ -検定によっても行ったが、対数正規分布もしくはピアソン系分布の仮説は、有意水準5%においては殆んどが棄却された。これは、データ数が多いためにおける当然の結果である。

本章第1、2節および本節で述べたように、実際の大气汚染濃度分布は対数正規分布で近似できる場合もあるが、そうでない場合もある。又、Fig.3-25にみられるようにピアソン系と判定された分布の

Table 3-12 Observed parameters and inspection of conformity:  
data of SO<sub>2</sub> at Sakai and Misaki

Station	Period	n	$\bar{x}_{am}^*$	$\bar{x}_{gm}^*$	$\sigma^2$	$\sigma_g$	$\delta_2$	$\delta_3$	$a^*$	$\alpha$	$\tau$	
1	Kyoshi	71.1	742	17.3	13.5	293.1	0.630	0.983	4.073	31.6	2.12	-3.88
2		2	671	19.9	15.4	412.7	0.653	1.042	-6.279	21.0	2.82	-2.97
3		3	686	23.1	17.8	524.4	0.662	0.981	4.677	32.6	2.45	-3.46
4	Higashihata	71.1	742	20.2	15.7	285.9	0.669	0.700	1.862	97.8	1.98	-9.35
5		2	658	25.2	19.5	414.6	0.704	0.650	1.764	107.8	2.13	-9.11
6		3	739	24.5	18.3	568.9	0.718	0.944	4.004	41.2	2.28	-3.84
7	Tannowa	71.1	744	17.4	14.1	219.4	0.596	0.723	2.559	34.2	2.60	-5.10
8		2	669	19.6	16.4	185.5	0.573	0.480	1.467	45.0	3.43	-7.85
9		3	738	14.9	12.5	110.5	0.574	0.496	1.815	19.4	4.33	-5.64
10	Ozaki	71.1	683	28.6	21.4	728.8	0.714	0.890	2.419	147.0	1.54	-7.90
11		2	611	43.4	33.0	1199.7	0.735	0.635	1.338	1306.2	1.66	-49.98
12		3	732	29.5	21.9	649.8	0.746	0.747	1.577	922.7	1.41	-44.24
13	Hakotsukuri	71.1	743	14.7	11.6	157.5	0.642	0.730	2.490	32.0	2.46	-5.35
14		2	671	17.4	14.3	138.4	0.609	0.457	1.001	252.2	2.41	-34.94
15		3	672	17.7	14.3	186.6	0.627	0.593	1.785	48.7	2.67	-7.32
16	Shorinji	71.1	743	82.7	65.5	8458.9	0.682	0.506	0.927	1533.0	1.82	33.71
17		2	671	77.6	65.0	2479.8	0.590	0.411	1.087	395.0	3.33	-12.67
18		74.1	714	20.8	18.6	92.9	0.479	0.215	0.309	106.8	3.56	18.27
19		2	584	25.8	21.9	261.1	0.565	0.392	1.082	78.8	3.71	-11.34
20		3	733	28.0	24.0	270.5	0.562	0.344	0.812	191.5	3.48	-23.77
21	Hamadera	71.1	735	56.3	47.0	1169.7	0.615	0.369	0.724	4518.7	2.67	214.08
22	Kanaoka	71.1	744	54.2	47.2	900.3	0.531	0.306	0.805	187.3	4.50	-15.56
23		2	672	57.1	50.2	1144.3	0.492	0.350	1.643	20.2	13.73	-4.87
24		3	734	48.5	41.2	887.0	0.571	0.377	1.186	86.5	4.70	-8.39
25	Kyoshi	71.1	673	22.2	18.8	240.8	0.547	0.486	1.685	33.6	4.08	-6.17
26		2	696	17.9	16.3	78.2	0.408	0.244	1.127	3.4	30.85	-5.89
27		3	652	19.7	17.2	175.7	0.481	0.450	2.724	3.3	21.71	-3.59

\* unit : [ppb]      n : hours of available data

○, △, × at P and L indicate the best, better, and less conformity to the distributions of Pearson and the log-normal respectively.

Table 3-13 Results of the test of goodness of fit

Station	Period	Section	Chi-square test				Lynn's test			
			Pearson K	$\chi^2$	Ju	Log-normal K	$\chi^2$	Ju	Pea.	L.N.
1	Kyoshi	71.1	20	2	44.51		3	38.41	243.9	233.9
2		2	10	4	20.44		5	24.82	103.0	121.0
3		3	20	2	10.82		3	8.26	169.9	168.1
4	Higashihata	71.1	10	5	36.01		6	48.76	185.7	168.4
5		2	10	6	6.86	○	7	14.95	58.8	82.5
6		3	20	2	13.87		3	11.34	105.6	95.3
7	Tannowa	71.1	10	5	48.14		6	41.03	151.7	185.8
8		2	10	4	13.10		5	12.63	78.5	67.4
9		3	10	2	16.96		3	13.83	102.1	92.0
10	Ozaki	71.1	20	4	29.67		5	25.43	268.9	174.1
11		2	20	5	10.67		6	30.01	181.9	135.2
12		3	20	3	27.21		4	48.72	227.3	183.2
13	Hakotsukuri	71.1	10	3	20.69		4	16.17	112.4	103.0
14		2	10	2	25.68		3	45.50	125.5	171.7
15		3	10	4	34.62		5	23.25	124.0	92.9
16	Shorinji	71.1	40	3	36.71		4	81.02	287.9	248.7
17		2	40	3	12.02		4	11.17	174.9	131.8
18		74.1	10	1	2.28	○	2	19.23	38.0	102.6
19		2	10	5	22.77		6	14.38	94.6	67.7
20		3	10	5	22.30		6	11.90	94.7	40.0
21	Hamadera	71.1	20	5	7.11	○	6	28.34	123.0	134.1
22	Kanaoka	71.1	20	5	30.16		6	16.13	144.2	107.1
23		2	20	6	6.55		7	23.95	120.1	158.7
24		3	20	4	5.57	○	5	2.77	69.1	60.1
25	Kyoshi	72.1	10	5	54.83		6	44.30	186.7	168.6
26		2	10	2	12.24		3	23.98	74.4	124.7
27		3	10	3	18.23		4	56.16	111.3	189.5

note : ○ in Ju column indicates the hypothetical distribution is accepted at 0.05 significance level.

unit : ppb

実測値がLynnの方法によってはむしろ対数正規分布のほうが適合性が良い場合もある。このようなことを考慮して、ピアソン系Ⅶ型およびⅠ型分布を対数正規分布によって近似表現した場合の誤差評価を次のように行った。

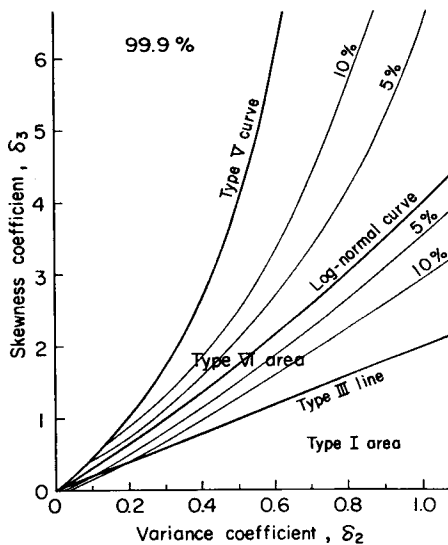


Fig. 3-26 Evaluation of the relative error of Pearson to log-normal distributions at 99.9 percentile point

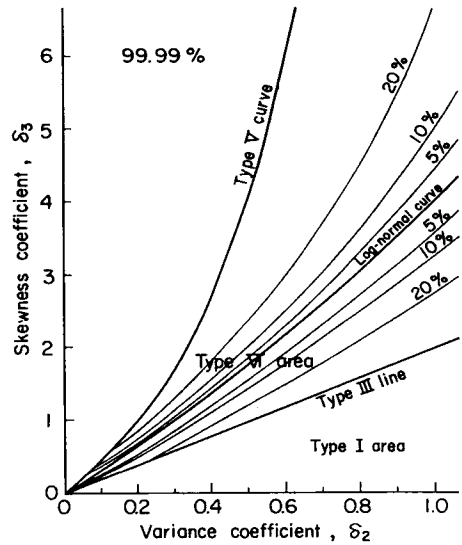


Fig. 3-27 Evaluation of the relative error of Pearson to log-normal distribution at 99.99 percentile point

すなわち  $\delta_2 - \delta_3$  判定図上において、 $\delta_2$  を固定して対数正規分布のパーセンタイル濃度を求め、次に  $\delta_3$  を変化させて対応するピアソン系分布のパーセンタイル濃度を求め、両者のパーセンタイル濃度の相対誤差を求めた。パーセンタイル濃度と相対誤差を与えると、 $\delta_2 - \delta_3$  図上では Figs.3-26, 3-27 のような等誤差曲線が得られる。Fig.3-26 は 99.9% 値における相対誤差を 5% および 10% にとり、Fig.3-27 は 99.99% 値における相対誤差を 5%、10%、20% ととったものである。

## 第5節 対数正規分布のパラメータ推定

前節において、大気汚染濃度分布の第1次近似として対数正規モデルを採用することの妥当性をピアソン系分布と関連させながら検討した。第4章以降では、理論的取扱いの簡便さのゆえに対数正規分布を前提とした議論をすすめるが、時間の関数として求められる大気汚染濃度の測定値をもとにして分布形を求める場合には、統計量に関する推定と検定を行う必要がある。そのため本節では、対数正規分布のパラメータ推定について略述することとする。

### 5-1 対数正規分布のパラメータ推定

観測された大気汚染濃度  $x_i (i = 1, 2, \dots, n)$  が対数正規分布  $A(\mu, \sigma_g^2)$  をなすとき、その母数である  $\mu$ 、および  $\sigma_g$  の点推定は次のように整理できる。

最尤推定量 (maximum likelihood estimator) を  $\hat{\mu}$  および  $\hat{\sigma}_g$  で表わすと、これらはそれぞれ次のようにして求められる。

$$\hat{\mu} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n \ln x_i$$

$$\hat{\sigma}_g^2 = \frac{1}{n} \left\{ \sum_{i=1}^n (\ln x_i)^2 - \frac{1}{n} \left[ \sum_{i=1}^n \ln x_i \right]^2 \right\}$$

また、 $E[\hat{\mu}] = \mu$ 、 $E[\hat{\sigma}_g^2] = \frac{n-1}{n} \sigma_g^2$  であるから、最良不偏推定量 (best unbiased estimator)  $\check{\mu}$ 、 $\check{\sigma}_g$  はそれぞれ次のようになる。

$$\check{\mu} = \hat{\mu} \quad (3-1)$$

$$\check{\sigma}_g^2 = \frac{1}{n-1} \left\{ \sum_{i=1}^n (\ln x_i)^2 - \frac{1}{n} \left[ \sum_{i=1}^n \ln x_i \right]^2 \right\} \quad (3-2)$$

対数正規分布の  $\mu$  は位置母数 (location parameter)、 $\sigma_g$  は尺度母数 (scale parameter) であるから、MANN (1969) あるいは竹内 (1975) の方法にしたがい、最良不変推定量 (best-invariant estimator)  $\tilde{\mu}$ 、 $\tilde{\sigma}_g$  は次のようになる。

$$\tilde{\mu} = \hat{\mu}$$

$$\tilde{\sigma}_g^2 = \frac{1}{n+1} \left\{ \sum_{i=1}^n (\ln x_i)^2 - \frac{1}{n} \left[ \sum_{i=1}^n \ln x_i \right]^2 \right\}$$

以上に述べた 3 種類の推定量は、 $n$  が十分に大きいときは漸近的に同一となる。本論文では全体を通じて最良不偏推定量が求められているが、後述する区間推定では何れの推定量によっても同じ結果が得られる。一方、パラメータ  $\theta$  の最尤推定量  $\hat{\theta}$  に関して、 $\theta$  の関数  $g(\theta)$  の最尤推定量は  $g(\hat{\theta})$  であるため、 $A(\mu, \sigma_g^2)$  の平均値  $\bar{x}$  と分散  $\sigma^2$  の最尤推定量  $\hat{x}$ 、 $\hat{\sigma}^2$  は (1-3)、(1-5) より次のようになる。

$$\hat{x} = \exp\left(\hat{\mu} + \frac{1}{2} \hat{\sigma}_g^2\right)$$

$$\hat{\sigma}^2 = \exp\left(2\hat{\mu} + \hat{\sigma}_g^2\right) \left\{ \exp\left(\hat{\sigma}_g^2\right) - 1 \right\}$$

FINNEY (1941) は、対数正規分布の平均値は  $X = \ln x$  なる変換値から求めるべきことを示した。Finney は最尤推定量  $\hat{x}$  の性質を次のように表わした。

$$E[\hat{x}] = \bar{x} \exp\left[-\frac{n-1}{n} \frac{\sigma_g^2}{2}\right] \left[1 - \frac{\sigma_g^2}{n}\right]^{\frac{n-1}{2}}$$

$$\xrightarrow{n \rightarrow \infty} \bar{x}$$

$$\text{Var}[\hat{x}] = \exp\left[2\mu + \frac{\sigma_g^2}{n}\right] \left\{ \exp\left[\frac{\sigma_g^2}{n}\right] \left[1 - \frac{2\sigma_g^2}{n}\right]^{-\frac{n-1}{2}} - \left[1 - \frac{\sigma_g^2}{n}\right]^{1-n} \right\}$$

$$\xrightarrow{n \rightarrow \infty} \exp\left(2\mu + \sigma_g^2\right) \cdot \frac{1}{n} \left(\sigma_g^2 + \frac{1}{2} \sigma_g^4\right)$$

明らかに  $\hat{x}$  は偏りのある推定量である。このとき級数、

$$g(t) = 1 + \frac{n-1}{n}t + \frac{(n-1)^3}{n^2} \frac{t^2}{2!} + \frac{(n-1)^5}{n^2} \frac{t^3}{3!} + \dots,$$

を導入すると、有効不偏推定量  $\hat{x}'$  は次式によって示される。

$$\hat{x}' = \exp(\hat{\mu}) \cdot g\left(\frac{1}{2} \hat{\sigma}_g^2\right) \quad (3-3)$$

Finney はまた分散  $\sigma^2$  の不偏推定量  $\hat{\sigma}'^2$  を上記級数  $g(t)$  を用いて次のように求めた。

$$\hat{\sigma}'^2 = \exp\left(2\hat{\mu}\right) \left\{ g\left(2\hat{\sigma}_g^2\right) - g\left(\frac{n-2}{n-1} \hat{\sigma}_g^2\right) \right\} \quad (3-4)$$

(3-3)(3-4) を求めるための近似式も Finney によって与えられており、対数正規分布の平均値と分散について、上述の方法と無変換で直接求める方法との効率に関する近似式も与えられている。

対数正規分布  $A(\mu, \sigma_g^2)$  の母数  $\mu$  および  $\sigma_g$  の区間推定は次のように整理できる。

すなわち無限個からなる母集団  $A(\mu, \sigma_g^2)$  から  $n$  個がサンプリングされたとき、標本対数平均値  $\bar{x}$  は  $A(\mu, \sigma_g^2/n)$  にしたがって、統計量

$$t = \frac{\check{\mu} - \mu}{\sqrt{\frac{\check{\sigma}_g^2}{n}}},$$

は自由度  $\nu = n - 1$  の  $t$  分布にしたがう。ここで  $\check{\sigma}_g^2$  は (3-2) にて定義される  $\sigma_g^2$  の不偏推定量である。したがって信頼度  $(1 - \alpha)$  の  $\mu$  の推定区間は次のようになる。

$$\check{\mu} - t_\alpha \check{\sigma}_g / \sqrt{n} \leq \mu \leq \check{\mu} + t_\alpha \check{\sigma}_g / \sqrt{n}$$

ここで  $t_\alpha$  は自由度  $\nu$ 、確率  $\alpha$  に対する  $t$  分布の両側  $\alpha$  点であって次のように定義される。

$$1 - \alpha = \int_{-t_\alpha}^{t_\alpha} \frac{\Gamma(\frac{\nu+1}{2}) (1 + \frac{y^2}{\nu})^{-(\nu+1)/2}}{\sqrt{\pi \nu} \Gamma(\frac{\nu}{2})} dy, \quad \nu = n - 1$$

$t_\alpha$  を直接求める近似式は、 $\nu \geq 10$  の場合、竹内(1975)によって

$$t_\alpha \doteq \sqrt{\frac{\nu}{\nu-2} \left( 1 + \frac{u_{\alpha/2}^2 - 3}{2\nu} \right)} u_{\alpha/2},$$

と与えられている。ここで  $u_{\alpha/2}$  は

$$1 - \frac{\alpha}{2} = \int_{-\infty}^{u_{\alpha/2}} \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{t^2}{2}\right) dt,$$

であって、その近似値は (5-9)~(5-10) によって求められる。

いま次式で定義される統計量  $m$  を用いると、

$$m = \exp\left(t_\alpha \check{\sigma}_g / \sqrt{n}\right),$$

幾何平均濃度  $\bar{\chi}_g$ 、平均濃度  $\bar{\chi}$  の推定区間は次のようになる。

$$\exp(\check{\mu})/m \leq \bar{\chi}_g \leq \exp(\check{\mu}) \cdot m$$

$$\exp\left(\check{\mu} + \frac{\check{\sigma}_g^2}{2}\right) / m \leq \bar{\chi} \leq \exp\left(\check{\mu} + \frac{\check{\sigma}_g^2}{2}\right) \cdot m$$

対数標準偏差  $\sigma_g$  については、統計量

$$\chi^2 = \frac{(n-1) \check{\sigma}_g^2}{\sigma_g^2},$$

が自由度  $\nu = n - 1$  の  $\chi^2$  分布にしたがうことを利用して、信頼度  $(1 - \alpha)$  の信頼区間が次のように

求められる。

$$\frac{(n-1) \check{\sigma}_g^2}{\chi^2(\nu: \alpha/2)} \leq \sigma_g^2 \leq \frac{(n-1) \check{\sigma}_g^2}{\chi^2(\nu: 1-\alpha/2)}$$

ここで、 $\chi^2(\nu: \alpha/2)$  の値を直接求める近似式には、 $\nu \geq 30$  の場合、山内(1972)によって次式が紹介されている。

Wilson-Hilferty の近似式

$$\chi^2(\nu: \alpha/2) \doteq \nu \left\{ 1 - \frac{2}{9\nu} + u_{\alpha/2} \sqrt{\frac{2}{9\nu}} \right\}^3,$$

ここで  $u_{\alpha/2}$  は、正規分布の上側  $\alpha/2$  点である。以上が対数正規分布の母数に関する区間推定である。大気汚染濃度を測定する場合、費用、労力などの制約条件によって連続的測定ができないことがある。このような場合、従来の間欠的測定には平均値に関する推定誤差の考察がなされていないことが多い。間欠測定に伴うサンプリング誤差を定量化する新しい知見を得たので以下に述べる。

すなわち、期間  $0 \leq t \leq T$  において連続測定が行われれば総計  $N$  個の濃度が得られるのに対し、実際の測定は  $n$  回 ( $n < N$ ) 行われたとする。このとき期間  $0 \leq t \leq T$  における幾何平均濃度  $\bar{x}_g = \exp(\mu)$  に関し、 $\mu$  の信頼区間は次のようになる。

$$\check{\mu} - t_\alpha \frac{\check{\sigma}_g}{\sqrt{n}} \sqrt{1 - \frac{n}{N}} \leq \mu \leq \check{\mu} + t_\alpha \frac{\check{\sigma}_g}{\sqrt{n}} \sqrt{1 - \frac{n}{N}}$$

上式から、幾何平均濃度の信頼区間は次のように示される。

$$m_1 \exp(\check{\mu}) \leq \bar{x}_g \leq m_2 \exp(\check{\mu})$$

ここで、 $m_1, m_2$  は抽出比 (sampling ratio)  $r = n/N$ 、標本対数標準偏差  $\check{\sigma}_g$ 、信頼度  $(1-\alpha)$  によって次のように求められる。

$$m_1 = \exp \left\{ -t_\alpha \frac{\check{\sigma}_g}{\sqrt{n}} \sqrt{\frac{1-r}{rN}} \right\}$$

$$m_2 = \exp \left\{ t_\alpha \frac{\check{\sigma}_g}{\sqrt{n}} \sqrt{\frac{1-r}{rN}} \right\}$$

よって、連続測定が実施できないときには、平均濃度の信頼度を与えることによって抽出比が逆に求められるので、必要測定数  $n$  を期間  $0 \leq t \leq T$  にランダムに配置すればよい。

## 5-2 順序統計量の期待値

大気汚染濃度の実際的な測定は単位時間ごとに行われており、有限時間には有限個のデータが得られる。連続的な確率密度関数  $f(x)$ 、およびその分布関数  $F(x)$  をもつ母集団から  $n$  個のデータを求め、それらを大きさの順にならべた値、すなわち



$$X_{(1/n)} \geq X_{(2/n)} \geq \dots \geq X_{(n/n)} \quad , \quad (3-5)$$

は順序統計量 (order statistics) である。KENDALL and STUART (1969) が詳細に、また岩井・石黒 (1970) が簡潔に説明しているように、 $X_{(i/n)}$  の標本分布  $P_i$  は次のような形をとる。

$$dP_i = \frac{\{F(X_{(i/n)})\}^{n-i} \{1-F(X_{(i/n)})\}^{i-1}}{B(i, n-i+1)} dF(X_{(i/n)}) \quad (3-6)$$

上式は第2章第4節で述べたピアソン系分布のうち、 $(i, n-i+1)$  を母数とするベータ分布である。 $B(x, y)$  はベータ関数である。 $i$  番目の順序統計量  $X_{(i/n)}$  に対応する分布関数  $F(X_{(i/n)})$  の、平均と分散は次のようになる。ここで  $F(X_{(i/n)})$  を単に  $F_i$  と記す。

$$\begin{aligned} E[F_i] &= \int_0^1 F_i dF_i = \frac{1}{B(i, n-i+1)} \int_0^1 F_i^{n-i+1} (1-F_i)^{i-1} dF_i \\ &= \frac{B(i+1, n-i+1)}{B(i, n-i+1)} \\ &= \frac{i}{n+1} \end{aligned} \quad (3-7)$$

$$\text{Var}[F_i] = \frac{i(n+1-i)}{(n+1)^2(n+2)}$$

順序統計量 (3-5) を確率紙上へプロットする場合、超過確率は (3-7) を用いて求めるのが一般的である。なおこの方法はトーマスプロット (Thomas plot) と呼ばれている。また岩井・石黒 (1970) は (3-7) が超過確率の平均値を表わしているのに対し、中央値を表わすものとして次のようなヘイズンプロット (Hazen plot) を示している。

$$F_{i, \text{median}} = \frac{2i-1}{2n}$$

母集団の分布形が対数正規分布である場合、(3-5) に示される順序統計量に  $X_{(i/n)} = (\ln X_{(i/n)} - \ln \bar{x}_g) / \sigma_g$  なる変数変換を行っても、その順序は変化しない。こうしてできた新しい順序統計量

$$X_{(1/n)}, X_{(2/n)}, \dots, X_{(n/n)},$$

は標準正規分布  $N(0, 1)$  からの標本となる。大気汚染を予測する場合、高濃度から数えて  $i$  番目の濃度  $X_{(i/n)}$  に対応する変数  $X_{(i/n)}$  の期待値は式 (3-6) より次式のようなになる。

$$E[X_{(i/n)}] = \frac{n!}{(n-i)!(i-1)!} \int_{-\infty}^{\infty} x \varphi(x)^{n-i} \{1-\varphi(x)\}^{i-1} \varphi(x) dx, \quad (1 \leq i \leq n),$$

$$\text{明らか } E[X_{(i/n)}] = -E[X_{(n-i+1)/n}] \quad (1 \leq i \leq n),$$

ここで、

$$\Phi(x) = \int_{-\infty}^x \varphi(u) du, \quad \varphi(u) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{u^2}{2}\right)$$

上式の値は計算が複雑であるため、 $n$ が大きいところでの精度の良い値が求められた例は多くない。数表のうちでは PEARSON (E, S.) and HARTLEY (1954) による Biometrika Tables for Statisticians が  $n = 2(1)26(2)50$  について 2 D (小数点以下 2 桁) の精度で、また 山内二郎 (1972) による統計数値表が  $n = 2(1)50$  について 10 D の精度で  $E[X_{(i/n)}]$  を示している。ここでは簡便な方法として Harter および竹内による近似的な  $E[X_{(i/n)}]$  の計算法を以下に述べる。

H.L.HARTER (1961) は、 $n = 2(1)100(25)250(50)400$ ,  $i = 1(1)[n/2]$  について数値計算によって 5 D の精度で  $E[X_{(i/n)}]$  を求め、その結果から次のような BLOM (1954) の近似式を修正した。

$$E[X_{(i/n)}] \approx \Phi^{-1}\left(\frac{i - \alpha}{n - 2\alpha + 1}\right)$$

$\alpha$  の値として Blom は簡略値として  $\frac{3}{8}$  (0.375) を提案し、KIMBALL (1960) も同様な値を使っている。これに対して Harter は次式によって  $\alpha$  を求めなおした。

$$\alpha_{i,n} = \frac{i - (n+1) \Phi(E[X_{(i/n)}])}{1 - 2 \Phi(E[X_{(i/n)}])}$$

Table 3-14 に示す  $\alpha_{i,n}$  の値はこのようにして求めたものである。Blom や Kimball による  $\alpha = \frac{3}{8}$  は  $n$  が 50 以上になると小さすぎるため、Harter は  $n \leq 400$  について  $E[X_{(i/n)}]$  に対する最大誤差が最小になる値として  $\alpha = 0.363$  を示している。更に Harter は、 $\alpha$  の簡略値として Table 3-15 を示した。 $i = 1(1)[n/2]$  について同表の  $\alpha_n$  を採用すれば  $E[X_{(i/n)}]$  の誤差は 0.004 以下である。

Table 3-14 Values of  $\alpha_{i,n}$

i	n=25	n=50	n=100	n=200	n=400	i	n=100	n=200	n=400
1	0.377	0.384	0.391	0.396	0.401	30	0.394	0.404	0.414
2	0.394	0.403	0.412	0.419	0.426	35	0.398	0.402	0.412
3	0.395	0.405	0.415	0.423	0.430	40	0.392	0.400	0.410
4	0.394	0.405	0.415	0.424	0.431	45	0.391	0.398	0.408
5	0.392	0.403	0.414	0.423	0.431	50	0.391	0.397	0.407
6	0.391	0.402	0.412	0.422	0.430	55	—	0.396	0.405
7	0.390	0.400	0.411	0.421	0.429	60	—	0.395	0.404
8	0.389	0.399	0.410	0.420	0.429	65	—	0.394	0.403
9	0.388	0.398	0.408	0.418	0.428	70	—	0.394	0.402
10	0.388	0.397	0.407	0.417	0.427	75	—	0.393	0.401
11	0.387	0.396	0.406	0.416	0.426	80	—	0.393	0.400
12	0.387	0.395	0.405	0.415	0.425	85	—	0.392	0.399
13	—	0.394	0.404	0.414	0.424	90	—	0.392	0.399
14	—	0.393	0.403	0.414	0.423	95	—	0.391	0.398
15	—	0.393	0.402	0.413	0.423	100	—	0.391	0.398
16	—	0.392	0.402	0.412	0.422	110	—	—	0.396
17	—	0.392	0.401	0.411	0.421	120	—	—	0.396
18	—	0.391	0.400	0.410	0.420	130	—	—	0.396
19	—	0.391	0.399	0.410	0.420	140	—	—	0.394
20	—	0.391	0.399	0.409	0.419	150	—	—	0.394
21	—	0.390	0.398	0.408	0.419	160	—	—	0.393
22	—	0.390	0.398	0.408	0.418	170	—	—	0.393
23	—	0.390	0.397	0.407	0.417	180	—	—	0.392
24	—	0.390	0.397	0.407	0.417	190	—	—	0.392
25	—	0.390	0.396	0.406	0.416	200	—	—	0.391

Table 3-15 Compromise values of  $\alpha$

n	$\alpha_n$	$\alpha_{1,n}$	$\alpha_{2,n}$
2	0.390	0.390	—
4	0.349	0.347	0.359
6	0.359	0.355	0.368
8	0.364	0.360	0.374
10	0.368	0.364	0.378
15	0.374	0.370	0.385
20	0.378	0.374	0.390
25	0.381	0.377	0.394
50	0.389	0.384	0.408
100	0.396	0.391	0.412
200	0.402	0.396	0.419
400	0.407	0.401	0.426

To estimate  $\alpha$  for intermediate values of  $n$ , use the following equations:

$$\alpha_n = 0.314196 + 0.063386 X - 0.010896 X^2$$

$$\alpha_{1,n} = 0.315065 + 0.057974 X - 0.009776 X^2$$

$$\alpha_{2,n} = 0.327511 + 0.058212 X - 0.007909 X^2$$

where  $X = \log_{10} n$ .

また、 $i=1$  および  $i=2(1) \lfloor n/2 \rfloor$  についてそれぞれ  $\alpha_{1,n}$ ,  $\alpha_{2,n}$  を採用すればその誤差は 0.001 以下となる。Harter による  $\alpha$  の値は  $n$  が 400 以下の場合についてのみ与えられている。 $n$  が大きいときの  $E[X_{(i/n)}]$  の挙動については、竹内が次のように述べている。

竹内啓 (1975) は  $U_{(i/n)} = \theta(X_{(i/n)})$  なる変数変換による順序統計量  $U_{(i/n)}$  を用い、次のように近似式を求めた。すなわち、

$$X_{(i/n)} = \theta^{-1}(U_{(i/n)}),$$

であるから  $\theta^{-1}$  を  $i/(n+1)$  のまわりでテイラー展開し、

$$\begin{aligned} E[X_{(i/n)}] &= \theta^{-1}\left[\frac{i}{n+1}\right] + \left[\theta^{-1}\left[\frac{i}{n+1}\right]\right]' E\left[U_{(i/n)} - \frac{i}{n+1}\right] \\ &\quad + \frac{1}{2} \left[\theta^{-1}\left[\frac{i}{n+1}\right]\right]'' E\left[\left[U_{(i/n)} - \frac{i}{n+1}\right]^2\right] + \dots, \end{aligned}$$

ここで  $y_{(i/n)} = \theta^{-1}\left(\frac{i}{n+1}\right)$  とおき、また  $U_{(i/n)}$  が母数  $(i+1, n-i)$  のベータ分布であるから第 2 章第 3 節から明らかな如く

$$\begin{aligned} E[U_{(i/n)}] &= \frac{i}{n+1}, \\ \text{Var}[U_{(i/n)}] &= \frac{i(n-i+1)}{(n+1)^2(n+2)}, \end{aligned}$$

なる関係を用いれば  $E[X_{(i/n)}]$  は次のように近似される。

$$E[X_{(i/n)}] \doteq y_{(i/n)} \left\{ 1 + \frac{1}{2} \frac{1}{\varphi^2(y_{(i/n)})} \frac{i(n-i+1)}{(n+1)^2(n+2)} \right\}$$

上式は  $i \sim 1$  もしくは  $i \sim n$  のときは役に立たない。そのような場合について竹内は、指数分布にしたがう変数として  $V_{(1)} = -\ln[1 - \theta(X_{(1/n)})]$  を導入し  $E[X_{(i/n)}]$  のまわりでテイラー展開を行い

$$\begin{aligned} V_{(1)} &= -\ln(1-\theta) + \frac{\varphi}{1-\theta}(X_{(1/n)} - E[X_{(1/n)}]) \\ &\quad + \left\{ \frac{\varphi'}{2(1-\theta)} - \frac{\varphi^2}{2(1-\theta)^2} \right\} \{X_{(1/n)} - E[X_{(1/n)}]\} + \dots, \end{aligned}$$

と変形した。ここで  $\varphi = \theta'$  および  $\theta$  の値はそれぞれ  $E[X_{(1/n)}]$  を代入した値である。 $n$  が大きい時、上式の右辺第 3 項の  $\left\{ \right\}$  内が  $1/2$  に収束することを利用すると、上式の期待値は次のようになる。

$$E[V_{(1)}] \doteq -\ln\left\{1 - \theta(E[X_{(1/n)}])\right\} + \frac{1}{2} \text{Var}[X_{(1/n)}]$$

また新しい変数  $V_{(1)}$  は指数分布にしたがう変数の最大値に等しいから、その期待値は

$$E [ V_{(1)} ] = 1 + \frac{1}{2} + \frac{1}{3} + \dots + \frac{1}{n} ,$$

$$\lim_{n \rightarrow \infty} E [ V_{(1)} ] = \log n + \gamma ,$$

である。ここで  $\gamma$  は Euler の定数である ( $\gamma = 0.57721 \dots$ )。  $n$  が大きいとき  $\text{Var} [ X_{(1/n)} ] \rightarrow 0$  であるから  $E [ X_{(1/n)} ]$  は次のようになる。

$$\lim_{n \rightarrow \infty} E [ X_{(1/n)} ] = e^{-1} \left( \frac{0.5615}{n} \right) \quad (3-8)$$

竹内による近似式 (3-8) の収束は相当に遅いため、  $n$  が大きくないところの近似式を次のように修正する。

$$E [ X_{(1/n)} ] = e^{-1} \left( \frac{\beta_n}{n} \right)$$

いくつかの  $n$  に対して  $\beta_n$  を求めると Table 3-16 のようになる。ここで  $\lim_{n \rightarrow \infty} \beta_n = \exp(-\gamma)$  である。  $n \geq 25$  では  $\beta_n$  は次式によって近似でき、その精度は 4 D である。

$$\beta_n = 0.6381 - 0.0065287 \ln n$$

Harter による  $\alpha_{1,n}$  と  $\beta_n$  の関係は、

$$\alpha_{1,n} = \frac{n - \beta_n (n+1)}{n - 2 \beta_n} ,$$

であるので、

$$\lim_{n \rightarrow \infty} \alpha_{1,n} = 1 - \exp(-\gamma) = 0.4385 \dots$$

となる。これによって、  $n$  が大きい場合の最大値の期待値が、正規分布の逆関数を利用して高い精度で求められる。

## 第 6 節 要 約

既往の大気拡散理論の見地からいえば、他の汚染源の影響を受けない孤立した単一汚染源による大気汚染でない限り、地表濃度分布形の物理的発生機構を厳密に秩序だてて明らかにすることは困難である。またたとえ、拡散理論から出発する濃度分布理論が体系化されたとしても、前章に述べた (2-31) あるいは (3-32) から予測されるように、その数学的表現は高度に難解でありかつその表現のために要求さ

れる拡散場の情報の形態は、複雑多量なものであると予想される。これに対し大気汚染制御あるいは大気汚染影響解析の発展のためには、以上のような分布形発生の物理的追求の努力とともに、現実の大気汚染濃度を把握してその統計的性質を整理することも必要である。本章で行った分布形解析はこのような動機をもってなされたものであり、次のような結果が得られた。

第1節においては、大気汚染濃度分布形を対象とする従来の研究を review した。すなわち 1950 年代に始まるこれらの研究は、当初より対数正規分布との関連で遂行され、Larsen によって最初に体系化の試みがなされたことが紹介された。わが国におけるこのような試みは、庄司・塚谷および北海道大学の井上らによって行われている。この種の研究にとって基礎的に必要なのは、バックグラウンド濃度のない、発生源が特定された濃度分布に関する知見である。その例として Barry による放射性物質 (Ar-41) 濃度の分布形が挙げられ、Barry 分布が指数分布でありピアソン I 型分布 (ベータ分布) に対応するものであることが吟味された。

第2節では、臨海工業地帯、都市域、単一汚染源地域の3種類の地域における濃度測定値の分布解析が行われた。判定に用いた universal 分布はピアソン系分布である。その結果、多くの実測分布はピアソン VI 型分布 (第2ベータ分布) によって近似されることが明らかとなった。分布形の地域特性は Table 3-9 にまとめられた。汚染物質毎の分布形解析は第3節で行われた。NOの分布形状がJ型であること、Oxidant の高濃度発生が冬季に抑制されること、を除いて、汚染物質間には顕著な特徴は認められなかった。

第4節では、ピアソン系分布である分布を対数正規分布によって近似するときの誤差評価が行われた。その手法には、両者に対する実測分布の適合度比較、および分布形シミュレーションの2つが併用され、99.9 および 99.99 の各パーセント点における相対誤差の範囲が  $\delta_2 - \delta_8$  判定図に示された。この結果にもとづいて、大気汚染濃度分布形の第1次近似式として対数正規分布が採用されることとなった。

第5節の前半部分は、対数正規分布のパラメータ推定に関する概説である。後半部で述べられた正規分布の順序統計量の近似式は、変数変換によって対数正規分布への応用が可能な簡便式である。

以上が第3章の要約である。



## 第4章 大気汚染濃度の時系列解析

ランダムに変動する大気汚染濃度の統計的情報は、前章までに述べた確率密度関数と本章において述べる自己相関関数もしくはスペクトル密度関数によって得ることができる。本章ではこのような時系列解析を、以下のような構成にしたがって述べることとする。

第1節では、一般的な定常エルゴード時系列について自己相関関数とスペクトル密度関数を定義し、その性質を概説する。なおこの部分の詳細な理論的展開はBENDAT and PIERSOL (1971)およびMONIN and YAGLOM (1971)が行っており、本節はこれらの必要箇所を抽出したものである。

第2節は時系列解析の計算条件を述べたものである。

第3節は、大気汚染濃度の自己相関係数をその形状によって分類し、それに対応するスペクトルを求めた結果を述べたものである。

第4節では、汚染物質毎の時系列解析を行い、特にNOとNO<sub>2</sub>の季節変化の特徴を述べる。

第5節は、第5章以降の展開に必要な自己相関係数とスペクトルの定式化について考察するものである。

第6節は以上の要約である。

### 第1節 概 説

ランダムな時系列の統計的性質を表現するものとしては、第2、第3章で述べた確率密度分布の他に、スペクトルと相関関数がある。スペクトルは、時系列の変動に寄与する周波数とその強さを示す概念である。スペクトルを求めることは、時系列の中にかくされた周期性を発見する手段として有効であり、その物理的現象への適用はTAYLOR (1935)の乱流理論に端を発する。またスペクトル関数のフーリエ変換である相関関数は、任意の一定時間もしくは一定距離をへだてた時系列の相関性を示す概念である。本節では、一般的な定常時系列を $x(t)$ として、先ず上記2つの関数の概説を行う。

時系列 $x(t)$ の自己相関関数(auto-correlation function) $C(\tau)$ は、BATH (1974)によれば次式によって定義される。

$$C(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} x(t) x(t+\tau) dt$$

この積分の収束に関連して、 $C(\tau)$ は実用上次のように定義しなおすのが一般的である。(MONIN and YAGLOM (1971))

$$C(\tau) = \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{T} \int_{-T/2}^{T/2} x(t) x(t+\tau) dt$$

定常時系列においては、 $C(\tau)$ は $\tau$ のみによる偶関数である。 $C(\tau)$ を $C(0)$ で除して正規化したものを自己相関係数(auto-correlation coefficient)といい、 $r(\tau)$ で示す。

$$r(\tau) = \frac{C(\tau)}{C(0)}$$

Schwartz の不等式によって  $r(\tau)$  は次の性質をもつ。

$$|r(\tau)| \leq r(0) = 1$$

時系列  $x(t)$  の平均値を  $\bar{x}$  とすると、平均値が 0 の時系列  $u(t) = \{x(t) - \bar{x}\}$  の自己相関係数  $R(\tau)$  は次式で示される。これは正規化された自己相関係数であるが、一般には単に自己相関係数と呼ばれている。

$$R(\tau) = \frac{C(\tau) - \bar{x}^2}{C(0) - \bar{x}^2}$$

$R(\tau)$  からは次の 2 つの時間スケールが定義される。

$$\text{Integral scale : } \ell = \int_0^{\infty} R(\tau) d\tau$$

$$\text{Micro scale : } \nu = \sqrt{-2 / \left[ \frac{d^2 R(\tau)}{d\tau^2} \right]_{\tau=0}}$$

これらのスケールは、TAYLOR (1921, 1935) によってそれぞれ average size of eddies, smallest size of eddy として乱流理論に導入されたものである。

次にスペクトルについて概説する。時系列  $x(t)$  の平均パワー (power) は、次式が収束するならば次式によって定義される。

$$\bar{x}^2 = \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{T} \int_{-T/2}^{T/2} x^2(t) dt$$

$x(t)$  のフーリエ変換を  $F(\lambda)$  とすると、Parseval の定理から、

$$\bar{x}^2 = \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{2\pi T} \int_{-T/2}^{T/2} |F(\lambda)|^2 d\omega.$$

一般に、 $x(t)$  のスペクトル密度関数 (power spectral density function)  $\phi(\lambda)$  は次のように定義される。以後これを単にスペクトルという。

$$\phi(\lambda) = \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{2\pi |F(\lambda)|^2}{T}$$

すると  $\bar{x}^2$  は次のようになる。

$$\bar{x}^2 = \int_{-\infty}^{\infty} \phi(\lambda) d\lambda$$



したがって  $\psi(\lambda) d\lambda$  は、波数  $\lambda$  と  $\lambda + d\lambda$  との間の  $x$  に寄与する power であることがわかる。波数  $\lambda$  を周波数  $n$  に変換すると、power およびスペクトルは次のようになる。

$$\bar{x}^2 = \int_{-\infty}^{\infty} \psi(n) dn$$

$$\psi(n) = \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{|F(n)|^2}{T}$$

自己相関関数  $C(\tau)$  とスペクトル  $\psi(n)$  との間には次のような関係がある。これは **Wiener Kinchine** の関係といわれ、乱流理論においては **TAYLOR (1938)** が導いたものである。

$$\psi(n) = \int_{-\infty}^{\infty} C(\tau) \exp(-i 2\pi n \tau) d\tau$$

$$C(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} \psi(n) \exp(i 2\pi n \tau) dn$$

$\psi(n)$  は定義によって、実数値をとる非負の偶関数であるから、 $S(n) = 2\psi(n)$  (但し  $n < 0$  のとき  $S(n) = 0$ ) なるスペクトルを導入すると、**Wiener Kinchine** の関係は **BENDAT and PIERSON (1971)** が整理したように、

$$S(n) = 4 \int_0^{\infty} C(\tau) \cos(2\pi n \tau) d\tau,$$

$$C(\tau) = \int_0^{\infty} S(n) \cos(2\pi n \tau) dn,$$

となる。 $S(n)$  は one-sided power spectral density function,  $\psi(n)$  は two-sided power spectral density function という。ここで正規化されたスペクトル  $\psi_0(n) = \psi(n) / \bar{x}^2$  を用いれば次式が成立する。ここで  $\psi_0(n)$  は two-sided のスペクトルである。

$$\psi_0(n) = 2 \int_0^{\infty} R(\tau) \cos(2\pi n \tau) d\tau$$

$$R(\tau) = 2 \int_0^{\infty} \psi_0(n) \cos(2\pi n \tau) dn$$

明らかに、

$$\int_0^{\infty} \psi_0(n) dn = \frac{1}{2} R(0) = \frac{1}{2},$$

$$\lim_{n \rightarrow 0} \psi_0(n) = 2 \int_0^{\infty} R(\tau) d\tau = 2\ell.$$

ゆえに integral scale  $\ell$  は低周波域の変動に依存する。

時系列  $x(t)$  が周期  $T$  の周期関数である場合の自己相関関数  $C(\tau)$  とスペクトル  $\psi(n)$  は、次のよう

に表わされる。すなわち  $x(t)$  のフーリエ級数を

$$x(t) = \frac{a_0}{2} + \sum_{n=1}^{\infty} (a_n \cos n\omega t + b_n \sin n\omega t)$$

とすると、 $C(\tau)$  は次のようになる。

$$C(\tau) = \frac{a_0^2}{4} + \frac{1}{2} \sum_{n=1}^{\infty} (a_n^2 + b_n^2) \cos n\omega \tau$$

またこのスペクトル密度は次のようになる。

$$\psi(n) = \frac{1}{4T} (a_n^2 + b_n^2)$$

以上が相関関数とスペクトルに関する概説である。次に、気象学に関連したスペクトル解析例について述べる。

BLACKMAN and TURKEY (1958) がスペクトル解析の最初の体系的な著書をあらわして以来、スペクトル解析は以前にもまして地球物理学なかんずく気象学の分野の重要な手法となった。BATH (1974) は 1953 年から 20 年間に発表された気象学における応用例を挙げている。それによれば重要な文献のみで 200 以上に達している。

VAN DER HOVEN (1956) は BNL の 125 m 気象観測塔において観測された水平風速のスペクトル解析を周波数域  $10^{-3} \sim 10^3$  1/hr にわたって行い、約 4 日と 1 分程度の周期のところエネルギーピークがあり、2つのピークの間エネルギーギャップがあることを見出している。

これに対し石崎ら (1968) は、潮岬の高さ 10 m の風向風速計から  $10^{-7} \sim 1$  cps の範囲の風速変動のスペクトルを求め、エネルギーギャップの存在を確認しているが、VAN DER HOVEN の結果とは異なり、1 日周期のピークの存在を認めている。森 (1975) は同じ潮岬のデータから、 $10^{-8} \sim 10^{-3}$  cps のスペクトルを求め、4 日周期を頂点とするなだらかなピークと 1 日周期の鋭いピークを認め、更に 4 日より長い周期のエネルギーピークが存在しないと述べている。VINNICHENKO (1970) は自由大気中の風速の水平成分について、スペクトルは 1 年周期のピークがあり、2 カ月と 2~3 日の間ではスペクトルは周波数  $n$  の -1 乗に比例し、1 日~10 分の間では  $n^{-5/3}$  に比例すると述べている。高周波領域では、花房 (1977)、島貫 (1973)、PASQUILL (1974)、BUSCH (1973) らが体系的に述べている。

大気汚染分野のスペクトル解析例は、気象学分野のそれに比べて少ない。SHOJI and TSUKATANI (1970, 1973) は大阪市の浮遊粉じん濃度の 1 時間値をもとに 1 カ月間のスペクトルを求め、マルコフスペクトルで近似している。その後 (1975)、大阪と東京の  $SO_2$  濃度の解析結果から、自己相関係数が減衰成分と 1 日周期もしくは半日周期の周期成分との和で示されることを述べた。大滝ら (1975) は、京浜地方 47 地点の  $SO_2$  濃度 1 時間値について、3 カ月分のデータから lag time 72 時間までの自己相関係数を求め、Table 4-1 に示す 9 種の類型に分類した。その結果は Fig. 4-1 のとおりである。SHOJI and TSUKATANI や大滝らの求めた自己相関係数の中に、lag time の指数関数で近似できるデータがあることは注目すべき点である。同様の結果は POLLACK (1975) によっても得られている。

新村・清水 (1977) は、大阪の都心部、工業地帯および臨海工業地帯の  $SO_2$  と浮遊粉じん濃度について、

Table 4-1 Criteria for the classification of auto-correlation coefficient proposed by Ohtaki et al. (1975)

Criteria	Details of criteria
I	1. Explicitly periodical type 2. Periodical type, however an amplitude gradually damps with time 3. Exponentially damped type
II	A. $r(t) \geq 0.2, t = 1, 2, \dots, 24$ B. $r(t) \geq 0.2$ , not all, $t = 1, 2, \dots, 24$
III	a. $r(1) \geq 0.8$ b. $r(1) < 0.8$

$r(t)$ : autocorrelation coefficient of time lag "t"

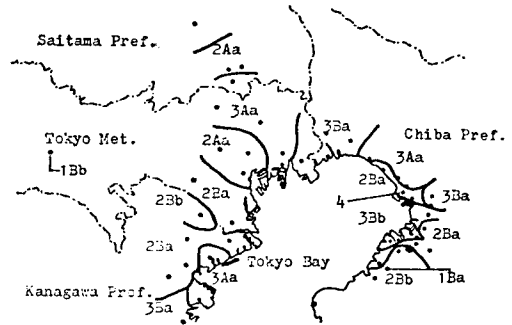


Fig. 4-1 Areal distribution of each type of auto-correlation coefficient

冬期と夏季にわけて自己回帰モデルによるスペクトル解析を行った。その結果によれば低周波成分を除去したスペクトルはwhiteに近く、まだデータの統計的構造が1週間を単位として異なっていることが認められている。以上が大気汚染分野の解析例である。次に計算方法について述べる。

定常的な時系列の離散データから自己相関関数およびスペクトルを求める計算方法には、大別してBlackman - Tukey法(以後BT法を記す)、高速フーリエ変換法(Fast Fourier Transform法、以下FFTと記す)、最大エントロピー法(Maximum Entropy法、以下ME法と記す)がある。これらはそれぞれ異なった計算原理に基いており、標準法といわれるBT法は、先ず自己相関関数を求め、これをWiener Kinchineの関係式に入れてスペクトルを求めるものである。FFT法は、原データをフーリエ変換し直接スペクトルを求め、これを再度フーリエ逆変換して自己相関関数を求める方法である。これに対しME法は、Wiener Kinchineの関係式を制約条件として、データの情報量すなわちエントロピーを最大にするようなスペクトルを推定する方法である。

それぞれの計算方法の詳細についてはBLACKMAN and TUKEY (1958)、赤池(1968)(以上BT法) BENDAT and PIERSOL (1971)、BATH (1974)(以上BT法、FFT法)、LACOSS (1971)、ULRYCH (1972)、日野(1976)(以上ME法)、花房(1977)(BT法、FFT法、ME法)から述べている。

## 第2節 スペクトルと自己相関係数の計算条件

次節以降の解析におけるスペクトルと自己相関係数の計算方法は、Blackman - Tukey法(BT法)と最大エントロピー法(ME法)とを併用した。BT法は自己相関係数の推定が簡単に行え、ME法はスペクトルピークの推定精度が良いという特徴がある。計算条件のうち両者に共通した項目は次のとおりである。

- (1) 対象地域、対象汚染物質、データの記録と整理は、第3章第2節に述べたとおりである。
- (2) 第3章に述べたとく、大気汚染濃度の確率分布は対数正規分布によって近似でき、又第5章以降の展開の都合上、スペクトルと自己相関係数はすべて濃度の対数変換値を用いて求めた。
- (3) スペクトルは正規化されたtwo-sided power spectral density function  $\phi_0(n)$ を正の周波数について求めた。自己相関係数は正規化された自己相関係数 $R(\tau)$ を求めた。

- (4) 計算に用いるデータは1時間平均濃度であり、その長さは1カ月、3カ月もしくは6カ月である。
- (5) 計算結果は全て図形表示した。

BT法を適用する場合の条件は次のとおりである。

- (1) BT法で $\phi_0(n)$ および $R(\tau)$ の関数形を求めた。
- (2) 計算は赤池(1968)の方法によった。特に $R(\tau)$ のlag timeの最大は、原則として1カ月間のデータについて60時間、3カ月間のデータについて240時間、6カ月については430時間である。Spectrum windowにはHanningの方法を用いた。
- (3) 欠測値もしくは濃度が0 ppb(もしくは浮遊粉じんについては $0 \mu\text{g}/\text{m}^3$ )であるデータについては $R(\tau)$ を求める際に削除した。
- (4) 前処理としてトレンドを除去した。トレンドのモデルは、対数変換した時系列に対する1次式を用いた。

ME法を適用する場合の条件は次のとおりである。

- (1) 計算は花房(1977)による方法を基本とするBurgのME法である。予測誤差フィルターの項数は、1カ月間のデータの場合、60個とした。
- (2) ME法はスペクトルの計算に用いた。また結果の図形表示は $n\phi_0(n)$ と $\ln n$ を座標とし、周波数別のエネルギー寄与率を求めた。
- (3) 欠測値は便宜的に、全て0.5 ppbとした。欠測数が対象期間の5%を越えた場合は、ME法は採用しなかった。

以上が計算条件である。次に使用したプログラムの精度について述べる。

- (1) 1カ月間以上のデータの $R(\tau)$ および3カ月間以上の $\phi_0(n)$ の計算はBT法によった。

Fig.4-2-aはFig.

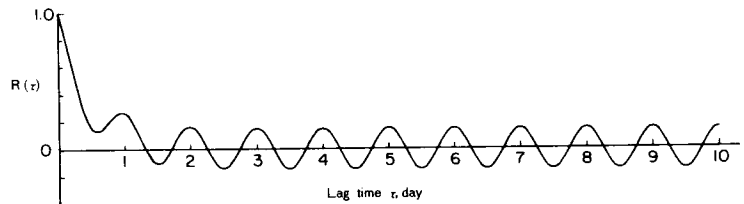


Fig. 4-2-b Generated auto-correlation coefficient

Functional form of  $R(\tau)$  is  

$$R(\tau) = (1-a) \exp\left(-\frac{\tau}{\ell}\right) + a \cos\left(\frac{2\pi\tau}{\tau_0}\right),$$
 where  $a=0.15$ ,  $\ell=12\text{hrs}$  and  $\tau_0=24\text{hrs}$ .

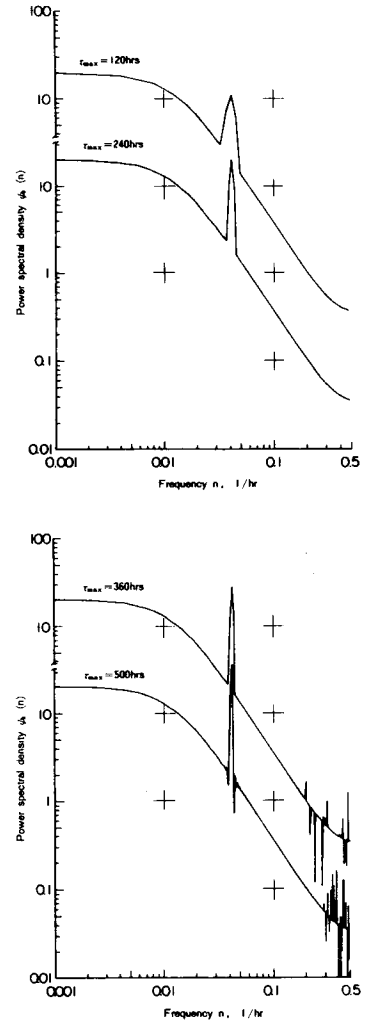


Fig. 4-2-a Power spectral density by Blackman-Tukey method for various maximum lag time  $\tau_{\max}$

4-2-bに示されるモデル化した自己相関係数を1時間おきにサンプリングし、BT法によってスペクトルを求めた例である。モデル化した自己相関係数は

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

で示されるため、Wiener Kinchineの式からそのスペクトルは、次式のようにマルコフのスペクトルに  $n = \frac{1}{\tau_0}$  における線スペクトルを重ね合せたものとなる。

$$\psi_0(n) = \frac{2(1-a)\ell}{1+(2\pi n\ell)^2} + \frac{a}{2} \delta\left(n - \frac{1}{\tau_0}\right)$$

ここで $\delta$ はDiracのdeltaである。Fig.4-2-aに示すとおり、 $R(\tau)$ の最大lag time  $\tau_{\max}$ を大きくするにつれて分解能は良くなるが、 $\tau_{\max} > 360$  hrsでは高周波数側での安定度が悪くなる。そのため、3カ月間のデータについてスペクトルを求めるときは、 $\tau_{\max} = 240$  hrsとした。また1カ月間のデータからスペクトルを求める際は、BT法を採用せずME法によった。

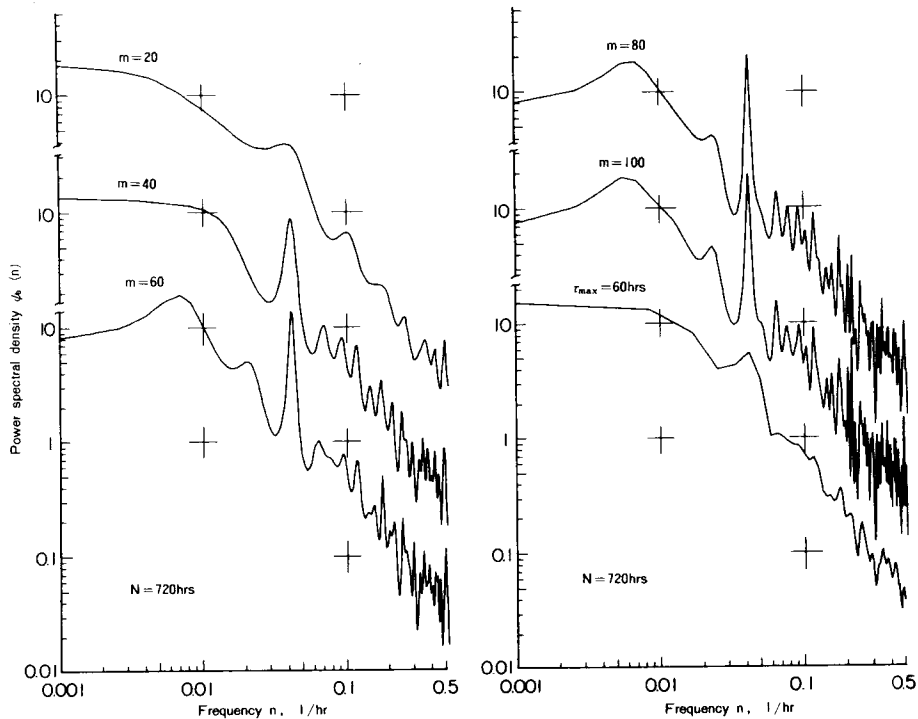


Fig. 4-3 Power spectral density by maximum entropy (ME) method for various term numbers  $m$  of prediction error filter ( $\text{SO}_2$ , Kohjiya, Tokyo, May 1969)  $N$  is the length of the data which are sampled by unit hour interval. The lowest in the right is by BT method.

Fig.4-3は、任意の1カ月間のデータについてME法を適用し、予測誤差フィルターの項数  $m$  を変化させたものである。この項数の最適数については、予測誤差を最小にする赤池の理論があるが、Fig.4-3のような場合には  $m = 2 \sim 5$  のときに誤差が最小となった。しかしこれでは分解能が悪く、

かつ $m$ を増加しても $m=100$ 程度までは予測誤差に大きな変動は認められなかった。そのため分解能と計算時間とから判断して $m=60$ を採用した。

### 第3節 大気汚染濃度のスペクトルと自己相関係数

第3章で述べた大気汚染濃度の頻度分布を求めたすべてのデータについて、時系列解析を行った。その結果を整理すると、自己相関係数の形状を分類するための基準として次に示すClass IからClass IVの分類基準が得られた。殆んど全ての自己相関係数は、これらの分類基準の何れかに属するという新しい知見が得られたので、本節では、時系列解析の結果をこの分類基準に従って述べることにする。

Class I : 自己相関係数 $R(\tau)$ が、 $\tau=0$ 付近で減衰し、その後は0付近で不規則に振動するような場合。

Class II :  $R(\tau)$ が $\tau=0$ 付近で減衰し、その後2.4時間周期の余弦波が卓越する場合。

Class III :  $R(\tau)$ が $\tau=0$ 付近で減衰し、その後は余弦波以外の2.4時間周期の振動を続ける場合。

Class IV :  $R(\tau)$ が $\tau=0$ 付近で減衰し、その後は1.2時間周期の規則的な振動を続ける場合。

なお、このような解析結果と第3章で求めた大気汚染濃度の分布形との間には、地域的にも汚染物質毎にも、明瞭な関連性は認められなかった。時系列と濃度分布形は互いに独立であることがうかがえる。

#### 3-1 Class I に分類される解析例

Class I に分類される自己相関係数の例を、そのスペクトルとともに Figs. 4~7 に示す。

Fig. 4-4 は四日市市における1972年4~9月の $\text{SO}_2$ 濃度に関する計算結果である。春季の自己相関係数 $R(\tau)$ は、 $\tau=1.4$ 日頃まで正の値をとり、 $1.4\text{日} < \tau < 5\text{日}$ では $R(\tau) \sim 0$ 、 $\tau > 5\text{日}$ では $R(\tau) \leq 0$ を示して

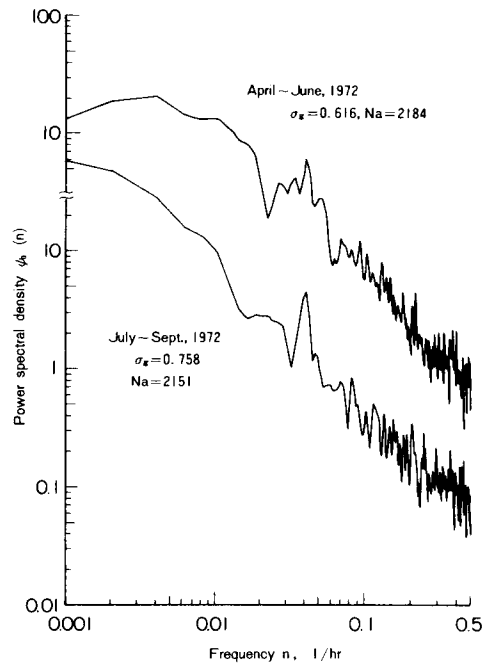


Fig. 4-4-a Power spectral density whose auto-correlation coefficient is classified into Class I ( $\text{SO}_2$ , Isozu, Yokkaichi)  
 $N_a$  is the number of available data.

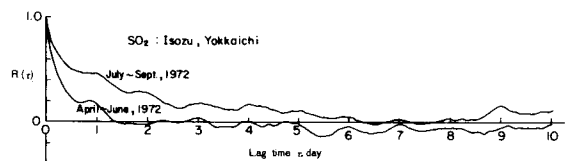


Fig. 4-4-b Auto-correlation coefficient classified into Class I ( $\text{SO}_2$ , Isozu, Yokkaichi)

いる。これに対し夏季の  $R(\tau)$  は、 $\tau = 6.3$  日まで正の値をとっている。このことは Integral scale  $l$  の値が大きいことを示している。スペクトルの形状は、両季節ともに1日周期の成分が若干存在することを示している。

Fig. 4-5はFig. 4-4における測定地点と同じ四日市市内の地点の、大気汚染が激しかった時期の自己相関係数とスペクトルである。Fig. 4-5とFig. 4-4は、Table 3-1に示すとおり、確率密度分布形がPearson Type IからType VIIへの変化し、かつ対数標準偏差 $\sigma_g$ の値も大きく変化した例であるが、スペクトルや自己相関係数の形状には顕著な変化は認められない。このことは、Class Iの自己相関係数のみならず、次に述べるClass IIのFig. 4-9およびその汚染度が改善された時点の

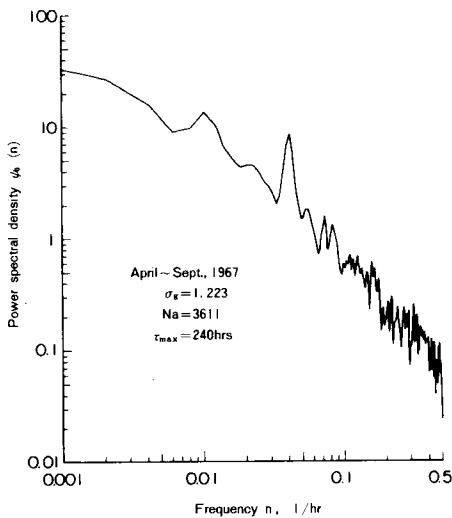


Fig. 4-5-a Power spectral density whose auto-correlation coefficient is in Class I ( $\text{SO}_2$ , Isozu, Yokkaichi)

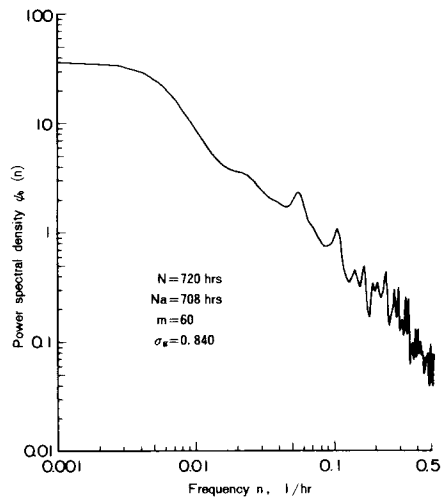


Fig. 4-6-a Power spectral density by ME method, whose auto-correlation coefficient is in Class I (Suspended particulates, Misaki, Osaka)

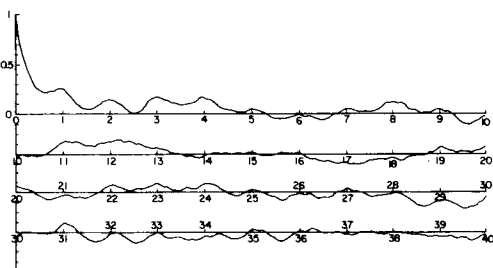


Fig. 4-5-b Auto-correlation coefficient which is classified into Class I ( $\text{SO}_2$ , Isozu, Yokkaichi)

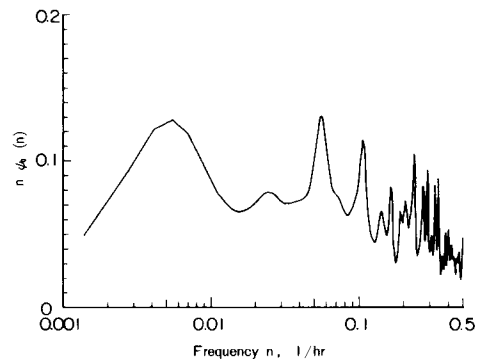


Fig. 4-6-b Power spectral density by ME method to represent the power intensity (Suspended particulates, Misaki, Osaka)

Fig.4-13 (後出)においても同様であった。

$R(\tau)$ はFig.4-5-bに示すように $\tau=40$ 日まで求めてみたが、特に大きな形状の変化は確められないが、 $\tau=14$ 日までみられた4日周期の波がそれ以後はみられなかった。

Class Iに分類される大気汚染物質には、浮遊粉じんが多い。Fig.4-6-aは大阪府岬町のスペクトル例である。Fig.4-6-bは濃度変動のパワーの分布を示したもので、10~6日、18時間、9時間の各周期にピークがみられる。これは24時間周期のピークが認められなかっためずらしい例である。Class Iにあてはまるデータには、Fig.4-6-bにみられるように $n=0.01\sim 0.03$  1/hr付近でパワーの落ちこみがある。Fig.4-7-a,bは、BT法とME法によるスペクトルとパワーの分布例である。

### 3-2 Class II に分類される解析例

スペクトル解析の結果、見かけ上、最も出現頻度が多い類型は、余弦波で近似される自己相関係数をもつものであった。Fig.4-8はその例である。

Fig.4-8はTable 3-1に対応する四日市市の $SO_2$ 濃度から求めたものであるが、特に1972年10~12月の3カ月分のデータは欠測値が多く、当然のことながらスペクトルの安定性が悪くなっている。それでも24時間周期で鋭いスペクトルピークが認められ、自己相関係数に余弦波が含まれていることがわかる。

Fig.4-9はClass IIもしくは後述のClass IIIに分類されるデータについて、対数変換処理の前後のスペクトルと自己相関係数を求めたものである。

対数変換処理前の濃度時系列から直接求めたスペクトルは、低周波数域(すなわち長周期成分)においてパワーが小さく、高周波数域( $n > 0.1$  1/hr)において大きくなっている。これに対し変換処理後には、高周波数域でのスペクトルは周波数の $-\frac{5}{3} \sim 2$ 乗に比例して急激に減少している。また自己相関係数はFig.4-9-bのように、変換処理前のは正のピークが鋭く、負のピークはゆるやかであるが、対数変換処理後には両者のピークの曲率は似かよったものとなる。

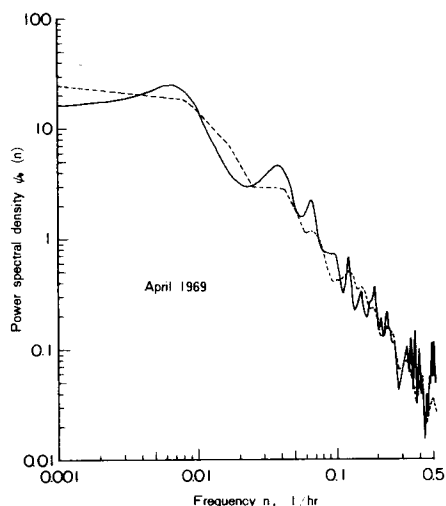


Fig. 4-7-a Power spectral densities by the methods of ME and BT, whose auto-correlation coefficient is in Class I ( $SO_2$ , Kohjiya, Tokyo)  
Solid and dotted lines indicate the spectrums by ME and BT.

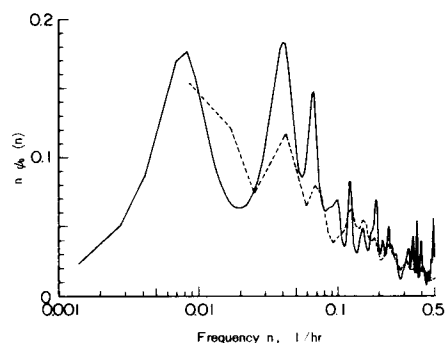


Fig. 4-7-b Power spectral densities to represent the power intensity by the methods of ME (solid) and BT (dotted) ( $SO_2$ , Kohjiya, Tokyo)



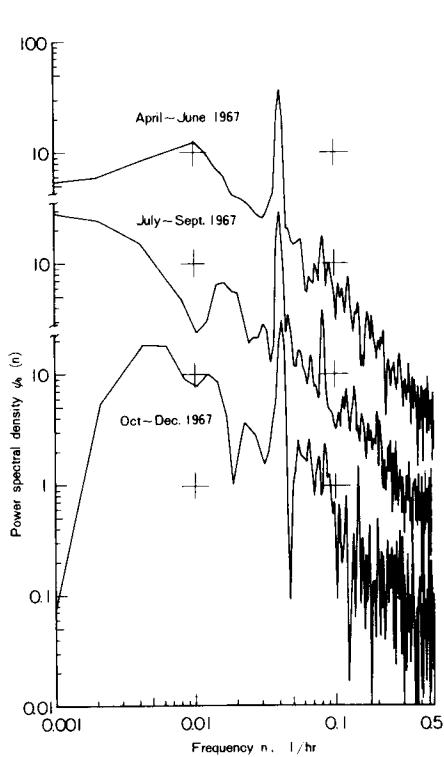


Fig. 4-8-a Power spectral densities whose auto-correlation coefficients are classified into Class II ( $\text{SO}_2$ , Yohgyo shikenjo, Yokkaichi)

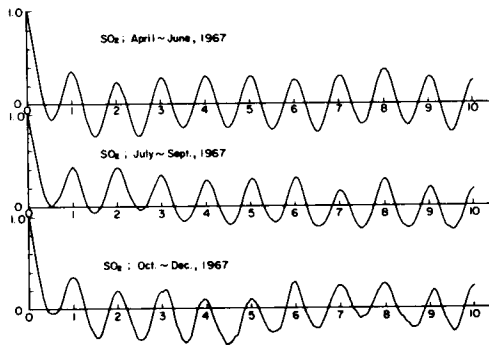


Fig. 4-8-b Auto-correlation coefficients in Class II ( $\text{SO}_2$ , Yohgyo shikenjo, Yokkaichi)

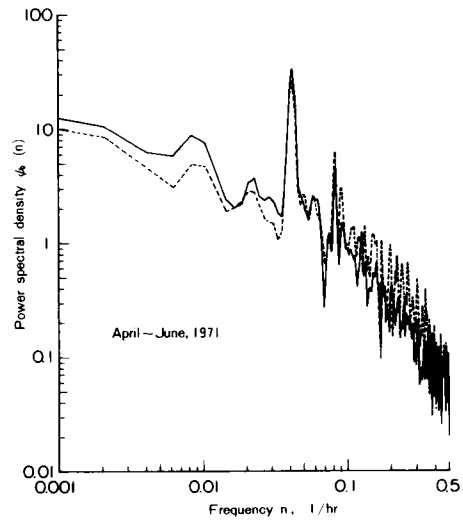


Fig. 4-9-a Comparison of the spectra between original and log-transformed time series of concentration ( $\text{SO}_2$ , Misaki, Osaka)  
Solid and dotted lines are derived from log-transformed and original time series respectively.

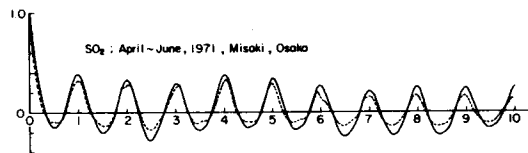


Fig. 4-9-b Comparison of the auto-correlation coefficients between original and log-transformed time series of concentration ( $\text{SO}_2$ , Misaki, Osaka)  
Solid and dotted indicate log-transformed and original time series.

### 3-3 Class III に分類される解析例

Class III は、自己相関係数が余弦波以外の強い 24 時間周期の周期性をもつ関数で近似される

場合である。Fig. 4-10 に示す東京タワーの解析結果のうち、Class III に分類されるものに地上 25 m および 127 m で観測された  $\text{SO}_2$  濃度がある。このような場合、自己相関係数は周期 24 時間の三角波と指数減衰関数の和によって近似される。高周波数域では  $\psi_0(n) \propto n^{-5/3} \sim n^{-2}$  の関係が認められる。

Fig. 4-11-a は 6 カ月間の  $\text{SO}_2$  濃度を解析したものである。スペクトルの安定性は良く、24 時間、

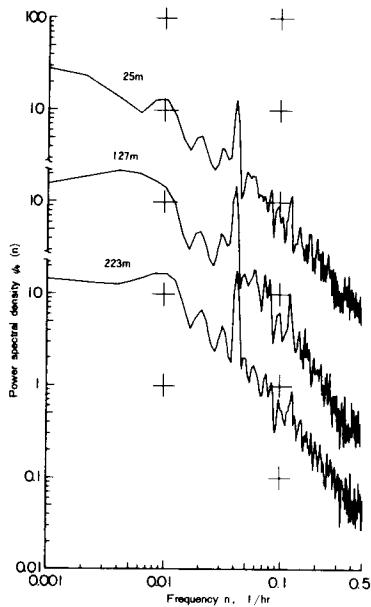


Fig. 4-10-a Power spectral densities whose auto-correlation coefficients are in Class III ( $\text{SO}_2$ , Tokyo Tower)

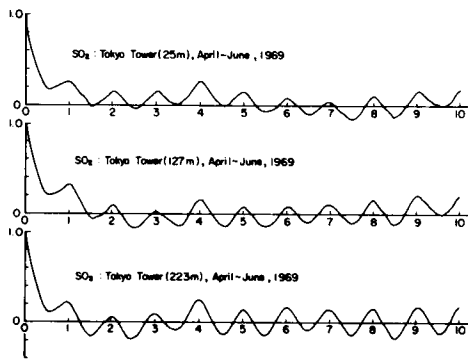


Fig. 4-10-b Auto-correlation coefficients in Class III ( $\text{SO}_2$ , Tokyo Tower)

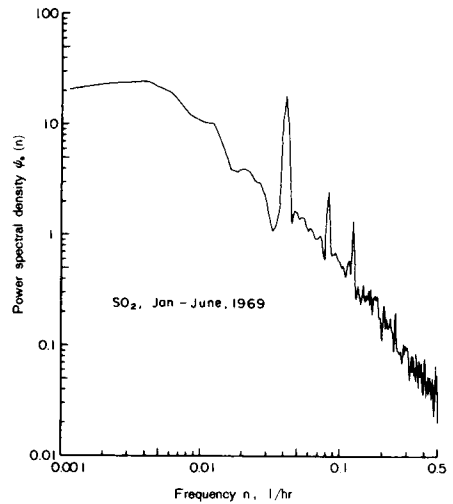


Fig. 4-11-a Power spectral density for long sampling period whose auto-correlation coefficient is in Class II or III ( $\text{SO}_2$ , Kohjiya, Tokyo)

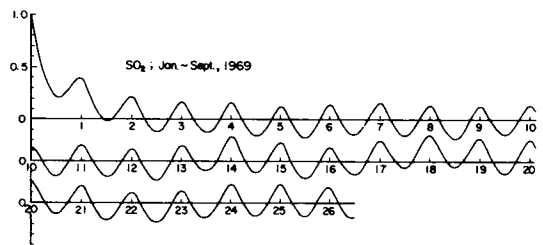


Fig. 4-11-b Auto-correlation coefficient for long sampling period ( $\text{SO}_2$ , Kohjiya, Tokyo)

12時間および8時間を周期とするスペクトルピークが認められる。Fig. 4-11-bは同じ期間を含む9カ月間のデータから自己相関係数を求めたもので、Class IIもしくはIIIに分類される。

### 3-4 Class IV に分類される解析例

このClassは12時間周期の成分が卓越して振動するもので、Fig. 4-12はその例である。このような挙動を示す自己相関係数は $\text{NO}$ 、 $\text{NO}_2$ 濃度の時系列に多く例がみられるので、次節において説明することとする。

自己相関係数のその他の形として大滝ら(1975)は、Table 4-1に示すもののうち1-2として24時間周期をもちながら減衰するパターンを示しているが、これはコレログラム解析において濃度時系列

を定常とみなし、トレンド除去を行わなかったために得られた結果と考えられる。また井上・谷沢(1973)は、減衰項と振動項の積で表わされる自己相関係数を提案している。このような自己相関係数は、本解析全体を通じて例をみなかったが、モデル化の際には注目すべき形であると考えられる。

#### 第4節 汚染物質毎のスペクトルと自己相関係数

人間の諸活動によって大気中に排出された諸種の大気汚染物質の大気中における挙動は、発生源の形態や大気中における物理的・化学的反應機構のちがいで、汚染物質毎に異なっていると考えられる。このことは、第3章において扱った濃度の頻度分布についてもあてはまるが、濃度の時系列についても例外ではない。本節では、大阪府岬町の大気汚染を例にとり、同一地点、同一時間に測定された5種類の大気汚染物質濃度と風速

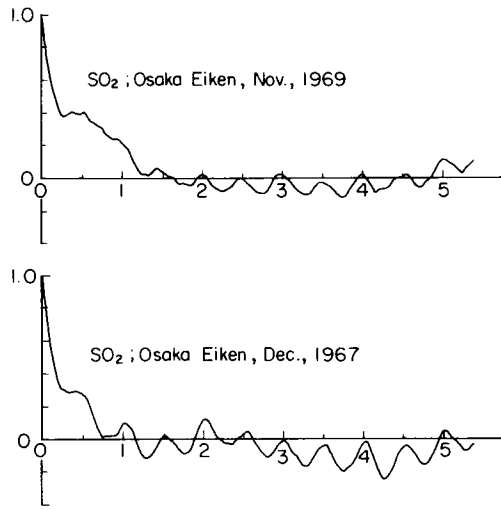


Fig. 4-12 Auto-correlation coefficients which are in Class IV ( $\text{SO}_2$ , Osaka eiken)

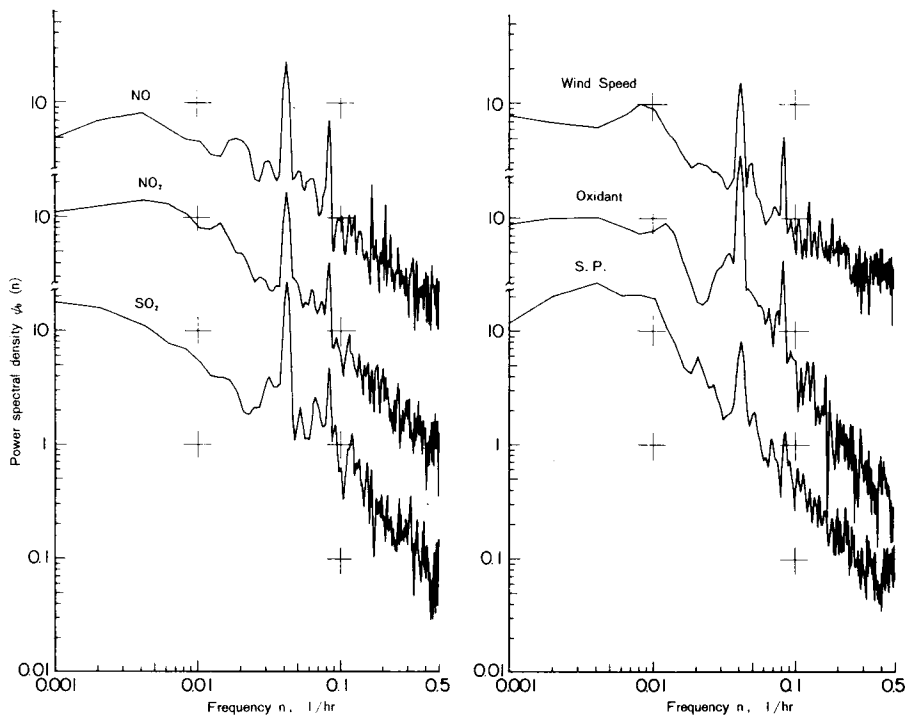


Fig. 4-13 Spectra for each pollutant and for wind speed  
Data are from Kyoshi (Misaki), Osaka, Sept. ~ Nov., 1974.

のスペクトル解析について述べる。

Fig.4-13は、同一地点、同一期間に測定した大気中のNO, NO<sub>2</sub>, SO<sub>2</sub>, Oxidant, 浮遊粉じんの各濃度、および風速のスペクトルである。測定地点は大阪府岬町(孝子)、測定期間は1974年9~11月の3カ月間である。これらのスペクトルに特徴的な点は次のとおりである。

- (1) 何れの汚染物質にも明瞭な24時間周期のピークが認められ、濃度時系列の強い日周期成分の存在が明らかである。これらのピークの強さは、Oxidant, SO<sub>2</sub>, NO, NO<sub>2</sub>, 浮遊粉じん、の順である。また12時間周期の成分も認められるが、浮遊粉じんのそれは極く弱いものである。
- (2) NOには  $n = 0.02$  1/hr 付近の2日周期ピークおよび6時間、5時間周期のピークがみられる。
- (3) 高周波数域におけるスペクトルの形状は、それぞれ  $n^{-1}$  (NO, 風速)、 $n^{-1.5}$  (NO<sub>2</sub>, SO<sub>2</sub>)、 $n^{-5/8}$  (浮遊粉じん)、 $n^{-2}$  (Oxidant) に比例して減少する成分に、一見white noiseに近いランダム成分が重ねられている。
- (4) 風速のスペクトルには4日周期のピークが認められる。また0.1~0.25 1/hr および0.25~0.5 1/hrの周波数域では、ほぼwhite noiseに近い形状を呈し、高周波数域での変動エネルギーが大なることが示されている。

Fig.4-14は、同じく大阪府岬町(役場)のスペクトルである。これはFig.4-13における測定地点から丘陵をはさんで2.1kmの距離にある海岸近くの測定地点のデータから求めたものである。スペクトルの特徴はFig.4-13に関するものと同様である。

Fig.4-15は、ME法によるスペクトルである。ピークの位置は汚染物質毎に少しずつ移動しているが、その中でもSO<sub>2</sub>の2日周期、浮遊粉じんの18時間周期の成分がみられることが特徴である。

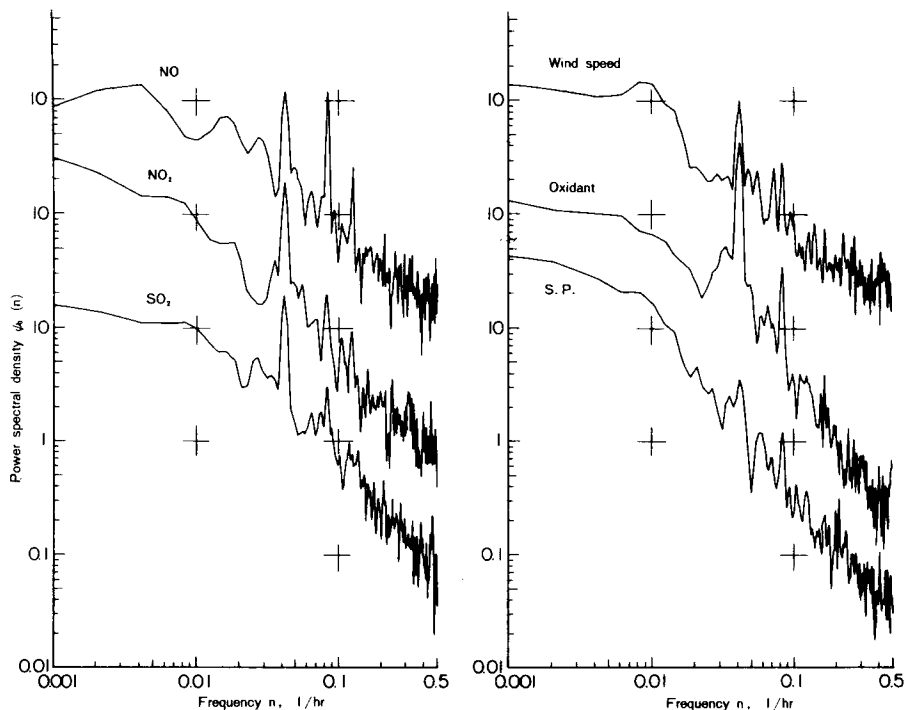


Fig.4-14 Spectra for each pollutant and for wind speed  
Data are from Yakuba (Misaki), Osaka, Sept. ~ Nov., 1974.

スペクトルや自己相関係数の季節変動が最も大きい汚染物質はNOとNO<sub>2</sub>である。その例をFig. 4-16とFig.4-17に示す。Fig.4-17-aの1974年1~3月、4~6月、および1975年1~3月のデータには欠測が多く、滑らかな結果は得られていない。これらの解析結果の特徴を以下に列挙する。

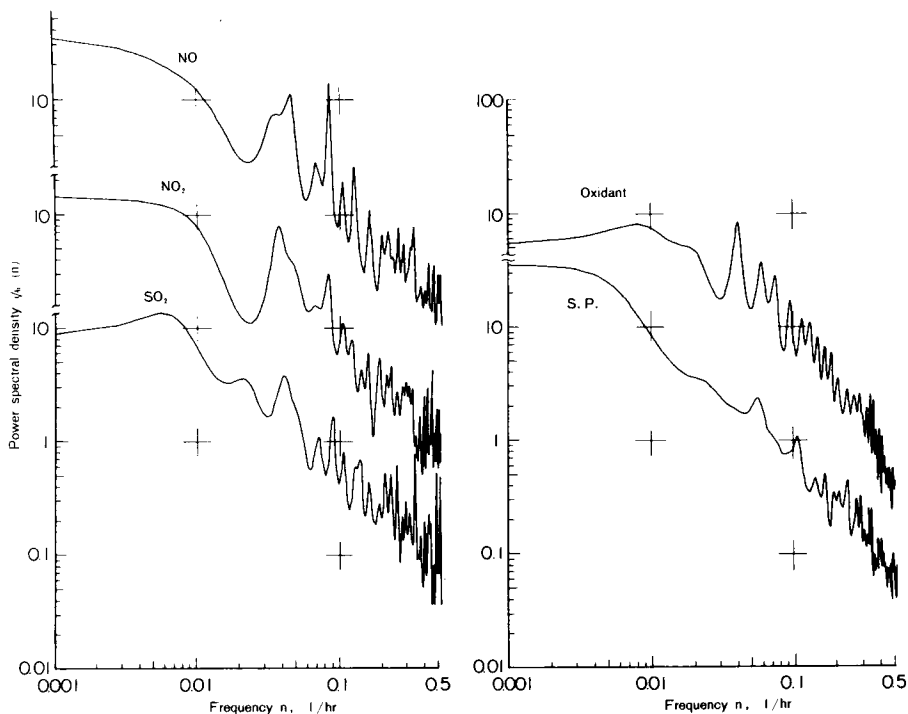


Fig. 4-15 Spectra for each pollutant by ME method  
Data are from Yakuba (Misaki), Osaka in September, 1974.

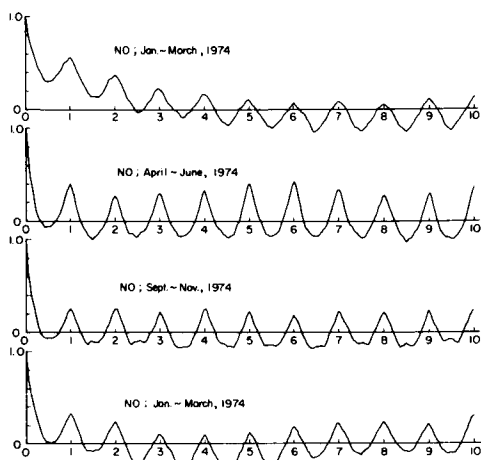


Fig. 4-16-a Seasonal variation of auto-correlation coefficient for NO  
Data are from Kyoshi (Misaki), Osaka.

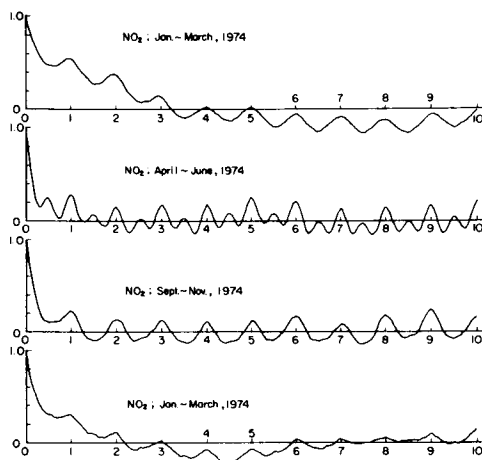


Fig. 4-16-b Seasonal variation of auto-correlation coefficient for NO<sub>2</sub>  
Data are from Kyoshi (Misaki), Osaka.

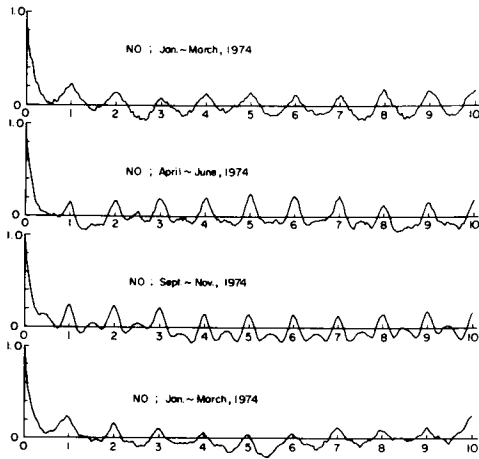


Fig. 4-17-a Seasonal variation of auto correlation coefficient for NO  
Data are from Yakuba (Misaki), Osaka.

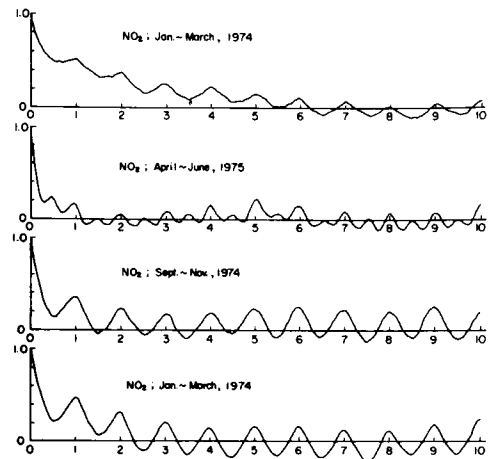


Fig. 4-17-b Seasonal variation of auto correlation coefficient for NO<sub>2</sub>  
Data are from Yakuba (Misaki), Osaka.

- (1) 冬季のNO<sub>2</sub>の自己相関係数の減衰はゆるやかであり、周期成分は三角波とみなすことができる。
- (2) 春季のNO<sub>2</sub>の自己相関係数には、12時間周期の成分が現われる。
- (3) 冬期のNOの自己相関係数は三角波とみなすことができる。
- (4) 春から秋にかけて、NOの周期成分の正のピークは三角波とみなすことができ、12時間周期成分が認められる。

## 第5節 スペクトルと自己相関係数の定式化

大気汚染濃度の時間的変動を、物理的機構をもとにして述べるためには、第2章第5節において触れた大気拡散式もしくは大気拡散方程式から出発するのが一般的である。このような方法にもとづくモデルをMechanistic (source-oriented) modelという。しかしながらBENARIE (1974) が体系的に整理したように、この方法の抱えている課題は多く、例えば拡散式に入れるべきパラメータをとってみても、結局はその時間的変動の情報が必要となる。

大気汚染濃度の時間的変動を統計的に把握する手法には、スペクトル解析がある。本節は、これまでに述べたスペクトルと自己相関係数の解析結果からこれにいくつかの定式化を試み、もって濃度時系列の統計的構造を明らかにしようとするものである。

### 5-1 Class I, II に分類されるスペクトルと自己相関係数

Class I の自己相関係数  $R(\tau)$  は次式で近似される。

$$R(\tau) = \exp\left(-\frac{\tau}{\ell}\right)$$

ここで  $\ell$  は Integral scale である。スペクトル  $\psi_0(n)$  は、マルコフのスペクトルと呼ばれ、

$$\psi_0(n) = \frac{2\ell}{1 + (2\pi n \ell)^2},$$

で表わされる。このスペクトルの形状は Fig. 4-2-a において線スペクトルを除いた右下りの曲線で示される。低周波数域でのスペクトルの値は  $2\ell$  に近づき、高周波数域では  $n^{-2}$  に比例する。縦軸に  $n\psi_0(n)$ 、横軸に  $\ln n$  をとってパワーの寄与率を面積で示す表示をすると Fig. 4-18 に示すように  $n = 1/(2\pi\ell)$  においてピークをもつ対称形となる。

Class II に分類される自己相関係数は次式によって近似できる。

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

これは周期  $\tau_0$ 、振幅  $a$  の余弦波と減衰成分の和であり、そのスペクトルは次のとおりである。

$$\psi_0(n) = \frac{2(1-a)\ell}{1 + (2\pi n \ell)^2} + \frac{a}{2} \delta\left(n - \frac{1}{\tau_0}\right), \quad \delta: \text{delta 関数}$$

このスペクトルの形状は、マルコフのスペクトルに  $n = 1/\tau_0$  の周波数の線スペクトルが加わったもので、Fig. 4-2-a の極限状態として示される。またパワーの寄与率を表わす図は Fig. 4-18 に示されている。

### 5-2 Class III に分類されるスペクトルと自己相関係数

この Class の自己相関係数  $R(\tau)$  を、指数減衰成分  $R_0(\tau)$  と高さ  $h$ 、底辺  $2a$ 、周期  $\tau_0$  なる三角波成分  $R_1(\tau)$  の和によって近似すれば、その式形は次のようになる。

$$R(\tau) = R_0(\tau) + R_1(\tau)$$

$$R_0(\tau) = \left(1 - \frac{h}{2}\right) \exp\left(-\frac{\tau}{\ell}\right)$$

$$\begin{aligned} R_1(\tau) &= \frac{h\tau_0}{\pi^2 a} \sum_{m=1}^{\infty} \frac{1}{m^2} \left\{ 1 - \cos\left(\frac{2\pi m a}{\tau_0}\right) \right\} \cos\left(\frac{2\pi m}{\tau_0}\tau\right) \\ &= \frac{2ah}{\tau_0} \sum_{m=1}^{\infty} \left\{ \frac{\sin(\pi m a / \tau_0)}{(\pi m a / \tau_0)} \right\}^2 \cos\left(\frac{2\pi m}{\tau_0}\tau\right) \end{aligned}$$

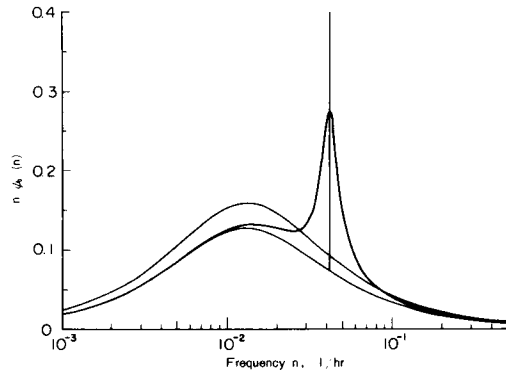


Fig. 4-18 Power spectral density functions corresponding to each auto-correlation coefficient  
Parameters:  $\ell = 12$  hrs,  $\tau_0 = 24$  hrs,  $a = 0.2$ .

第1節にて述べたフーリエ級数表示の自己相関係数と原変動との対応から、 $R_1(\tau)$ で示される正規化した変動 $X_1(t)$ は次のようになる。

$$X_1(t) = \sqrt{\frac{h \tau_0}{a}} \frac{2}{\pi} \sum_{m=1}^{\infty} \frac{1}{m} \sin\left(\frac{\pi m a}{\tau_0}\right) \cos\left(\frac{2 \pi m}{\tau_0} t\right)$$

これは、高さ $H = \sqrt{h \tau_0 / a}$ 、幅 $a$ 、周期 $\tau_0$ なる矩形パルスである。したがって、濃度の時系列には高さ $\bar{X}_g \exp(H \sigma_g)$ 、持続時間 $a$ 、周期 $\tau_0$ の矩形パルスが入っているも解釈できる。

Class IIIの自己相関係数の三角波はFigs.4-16, 4-17に示したように、周期 $\tau_0$ と底辺 $2a$ が等しい場合が多い。この場合の $R_1(\tau)$ は

$$R_1(\tau) = \frac{4h}{\pi^2} \sum_{m=1,3,5,\dots}^{\infty} \frac{1}{m^2} \cos\left(\frac{2\pi m}{\tau_0} \tau\right),$$

となり、スペクトル $\psi_0(n)$ は次のようになる。

$$\begin{aligned} \psi_0(n) &= 2 \int_0^{\infty} R_1(\tau) \cos(2\pi n \tau) d\tau \\ &= \sum_{m=1,3,5,\dots}^{\infty} \frac{4h^2}{m^2 \pi} \delta\left(\frac{2m\pi}{\tau_0} - 2\pi n\right) \end{aligned}$$

よってスペクトルは、周波数が $n = m/\tau_0$  ( $m = 1, 3, 5, \dots$ )のときに線スペクトルとなる。Fig.4-19は $R_0(\tau)$ において $\ell = 12$  hrs,  $R_1(\tau)$ において $2a = \tau_0 = 24$  hrs,  $h = 0.4$ とし、級数を第10項までとって作った自己相関係数モデルである。このようなモデルを1時間間隔で240時間まで発生させ、BT法によってスペクトルを求めた例がFig.4-20である。

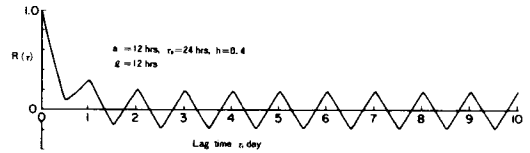


Fig.4-19 Trigonometric auto-correlation coefficient

このような線スペクトルの検出に適した計算法は、既に述べたようにME法である。Fig.4-21は、大阪府岬町の各種汚染物濃度のスペクトルピークをME法によって求めた一部である。0.001~0.5 1/hrの周波数帯域内のパワーの寄与率はNO, NO<sub>2</sub>, O<sub>x</sub>, SO<sub>2</sub>, 浮遊粉じんの順であり、高周波数域での線スペクトルが認められる。

高周波数域での線スペクトルを発生させるため、次式で示される自己相関係数を作り、BT法によってスペクトルを求めた。

$$\begin{aligned} R(\tau) &= \left(1 - \sum_{i=0}^N h_i / 2\right) \exp\left(-\frac{\tau}{\ell}\right) + \sum_{i=1}^N \frac{2a_i h_i}{\tau_{0i}} \sum_{m=1}^{\infty} \left\{ \frac{\sin(\pi m a_i / \tau_{0i})}{\pi m a_i / \tau_{0i}} \right\}^2 \\ &\quad \times \cos\left(\frac{2\pi m}{\tau_{0i}} \tau\right) + 2 h_0 \cos\left(\frac{2\pi}{\tau_0} \tau\right) \end{aligned}$$

Figs.4-22, 4-23はその結果である。Fig.4-23のように高周波数域において鋭いピークが出現す



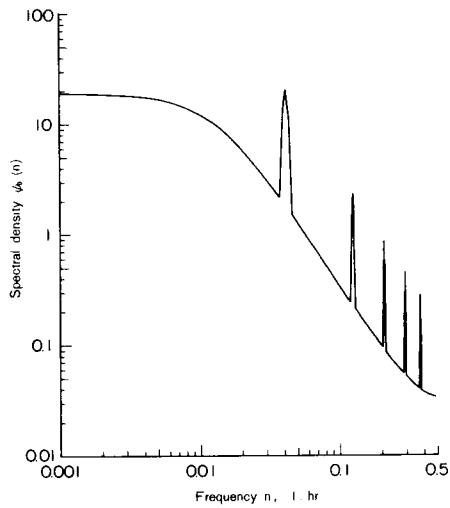


Fig. 4-20-a Spectral density function by BT method for trigonometric auto-correlation coefficient

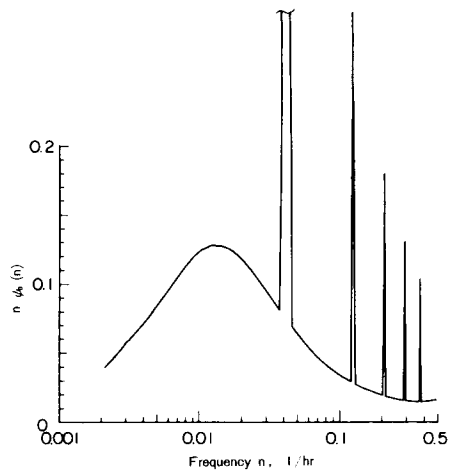


Fig. 4-20-b Power spectral function by BT method for trigonometric auto-correlation coefficient

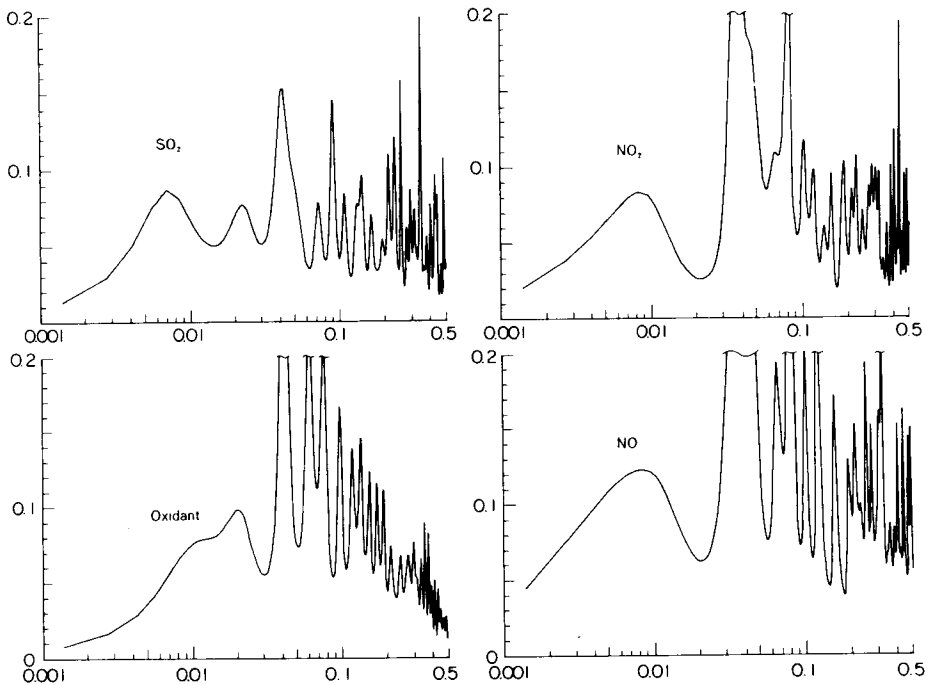


Fig. 4-21 Spectra by ME method showing many peaks in the range of high frequency for each pollutant (Misaki, Osaka, Sept., 1974)

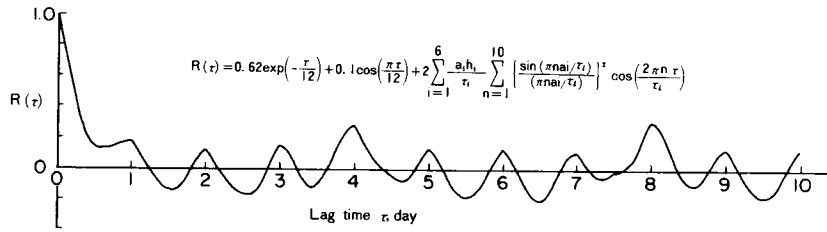


Fig. 4-22 Generated auto-correlation coefficient

$R(\tau)$  includes three components that are exponentially damped, cosine and 6 rectangular series.  $(\tau_i, a_i, h_i)$  are (96, 48, 0.2), (48, 24, 0.1), (24, 12, 0.1), (18, 9, 0.06), (15, 7.5, 0.05) and (12, 6, 0.05) where  $\tau_i$  and  $a_i$  are in hour.

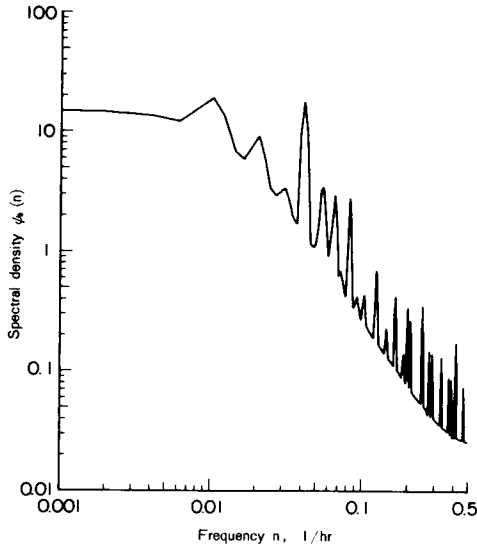


Fig. 4-23-a Power spectral density by BT method for generated auto-correlation coefficient shown in Fig. 4-22

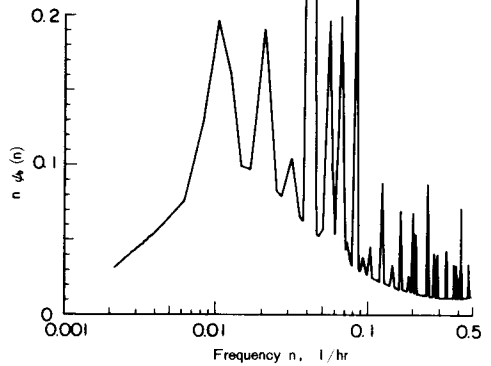


Fig. 4-23-b Power spectral function by BT method for generated auto-correlation coefficient shown in Fig. 4-22

るような場合、自己相関係数をそれぞれのピークに対応する余弦波の和として近似することも可能である。この場合、原系列  $X(t)$  はそれぞれの周期に対応する三角関数の和と解釈できる。原系列  $X(t)$ 、したがってまた濃度時系列  $X(t)$  が、フーリエ数的に三角関数の和であるか、もしくは矩形波の和であるかは解釈の分れるところであるが、各種大気汚染源からの環境中への汚染物質排出が日、周、季節などの人間活動の周期に一致しておおむね矩形波であることを考慮するならば、実際の大気汚染濃度の変動は、このような矩形波が気象要素等によって不規則に乱された結果であるとみなすこともできる。

### 5-3 Class IVおよびその他に分類されるスペクトルと自己相関係数

12時間周期の自己相関係数をもつClass IVの近似式はClass IIに準じたもので、そのスペクトルは、 $n = 1/24$  1/hr および  $n = 1/12$  1/hr に線スペクトルをもつものである。

その他の形として井上・谷沢(1973)が提案している自己相関係数は、次式で示される。

$$R(\tau) = R_0(\tau) + R_1(\tau)$$

$$R_0(\tau) = (1-a) \exp\left(-\frac{\tau}{\ell}\right)$$

$$R_1(\tau) = a \exp\left(-\frac{\tau}{\ell_1}\right) \cos\left(\frac{2\pi}{\tau_1} \tau\right)$$

そのスペクトルは次のようになる。

$$\begin{aligned} \psi_0(n) = & \frac{2(1-a)\ell}{1+(2\pi n\ell)^2} + a\ell_1 \left\{ \frac{1}{1+\left\{2\pi\left(n+\frac{1}{\tau_1}\right)\ell_1\right\}^2} \right. \\ & \left. + \frac{1}{1+\left\{2\pi\left(n-\frac{1}{\tau_1}\right)\ell_1\right\}^2} \right\} \end{aligned}$$

右辺第2項は  $\tau_1 < 2\sqrt{3}\pi\ell$  のときに  $n > 0$  なる周波数  $n_{\max}$  において極大値をとる。 $n_{\max}$  とその極大値は次のようになる。

$$\begin{aligned} n_{\max} &= \frac{1}{2\pi\ell_1\tau_1} \sqrt{4\pi\ell_1\sqrt{\tau_1^2+4\pi^2\ell_1^2-\tau_1^2}-4\pi^2\ell_1^2} \\ &\approx \frac{1}{\tau_1} \\ \psi_0(n_{\max}) &= \frac{\tau_1^2}{4\pi(\sqrt{\tau_1^2+4\pi^2\ell_1^2}-2\pi\ell)} + \frac{1}{1+(2\pi n_{\max}\ell)^2} \end{aligned}$$

スペクトルの形状はFig. 4-18に示すとおりである。

## 第6節 要 約

大気汚染濃度の分布形解析は、濃度の出現頻度の統計的性質を明らかにすることを目的とした。これに対し本章で行った時系列解析は、大気汚染濃度の時間的変動に関する統計的性質を明らかにするためのものである。もし分布形が対数正規分布によって近似されるならば、濃度の出現頻度の統計的性質は幾何平均値と対数標準偏差によって決定することができる。大気汚染制御の見地からいえば、幾何平均値は汚染物排出量とほぼ1対1の対応関係があることが予想される。一方、対数標準偏差は発生源のみならず、大気拡散場の気象や地形によって影響されると考えられ、その情報は本章で解析されたスペク

トルや自己相関係数によって得ることができる。なお付言するならば、スペクトルや相関係数は広く通信、振動、音響、自動制御等の分野で発展せられているが、その概念の物理的現象への応用は大気の乱れに関する Taylor の研究をもって初めとする。本章第 1 節では、Taylor によるスペクトルの概念を略述するとともに、大気乱流および大気汚染に関する最近の時系列解析の研究を概説した。

時系列解析の計算条件を特に詳しく示すために、節を設けて第 2 節とした。スペクトルは、同じデータを 3 人に与えれば相異なる 3 つの結果が得られると言われるほどに、計算条件の選択には広い選択肢がある。本章で使われた計算方法は、Blackman-Tukey 法 (BT 法) と Maximum Entropy 法 (ME 法) である。後者の分解能は前者に比べてはるかに高く、少ないデータで有効な結果が得られるが、計算時間は同じ程度である。そのため自己相関係数は BT 法による一般的方法を用いた。

第 3 節では、大気汚染濃度の自己相関係数の形状を 4 つの Class に分類し、各 Class にあてはまる自己相関係数とスペクトルの例を示した。そのなかでも Class II (自己相関係数が 24 時間周期の余弦波と減衰成分との和で近似される) に分類される例が最も多く、大気汚染濃度が強い周期性をもつことが示された。スペクトルの形状は、高周波数域において周波数  $n$  に対し  $n^{-1} \sim n^{-2}$  に比例して減衰することが認められた。

第 4 節では汚染物質毎の時系列解析を行った。24 時間周期成分の強さは Oxidant,  $\text{SO}_2$ , NO,  $\text{NO}_2$ , 浮遊粉じんの順であり、それぞれ 12 時間周期成分も認められた。また本解析例の場合、高周波数域でのスペクトルの形状は、 $n^{-1}$  (NO, 風速)、 $n^{-1.5}$  ( $\text{NO}_2$ ,  $\text{SO}_2$ )、 $n^{-5/3}$  (浮遊粉じん)、 $n^{-2}$  (Oxidant) に比例し、NO や風速が高周波数域で大きいエネルギーをもっていることが明らかとなった。顕著な季節変動が認められたのは NO および  $\text{NO}_2$  であった。

以上の時系列解析では、高周波数域でのスペクトルにゆっくりした白色雑音が加わることが認められた。このような現象をミシュレートするために、第 5 節では自己相関係数をいくつかの三角波によって合成し、近似スペクトルを求める試みがなされた。このようなモデルは、大気汚染濃度が異なる周期をもついくつかの矩形波とランダム成分から構成されていることに対応するものである。

以上が第 4 章の要約である。

## 第5章 大気汚染濃度の平均化解析

前章までの解析は、固定点において測定された大気汚染濃度の1時間値を基礎に行った。一方、大気汚染の人体影響は一般に、特定期間内ではばく露された大気汚染濃度の総体によって発生すると考えられるために、大気汚染濃度を対象とする研究は、ばく露時間との関連で進められなければならない。

ここでいう「ばく露時間」とは、大気汚染の影響を受ける人体を対象にしたときに使い、大気汚染濃度自体を対象にしたときは「平均化時間」と記すことにするが、両者に関する数学的表現方法は同一である。

ばく露時間もしくは平均化時間の関数として大気汚染濃度を扱う場合、明らかにその分布形もばく露時間や平均化時間の関数となる。とくに濃度 $X$ の分布形を $f(X)$ とすると、次式によって定義されるパーセント濃度 $X_p$ も、ばく露時間や平均化時間の関数であり、影響解明のための大気汚染の定量的表現に重要な位置を占める。

$$p = \int_0^{X_p} f(X) dX, \quad \text{ここでパーセントは } 100p \text{ である。}$$

本章の目的は、大気汚染の定量的表現形式を得るために、ばく露時間もしくは平均化時間の関数としての、濃度分布形やパーセント濃度などの挙動に関する統計的知見を求めることであり、その構成は次のごとくである。

まず第1節においては第2節以降の平均化理論の基礎となる確率密度関数の平均値とパーセント点について述べる。確率密度関数は平均化時間の関数であるが、第2節ではその関数形について種々の自己相関係数を導入して理論解を求める。

第3節では応用問題の展開を行う。本節は4部に分けられ、超過確率の理論と実際、最大値に関するゲンベル分布の応用、超過回数 of the 理論解、大気汚染制御目標への応用などについて扱う。

第4節はパーセント濃度および最大値と平均化時間の関係を総合したアローヘッドチャートについて述べる。アローヘッドチャートは、大気汚染濃度の挙動に関する情報を最も簡便に表現するものである。ここでは他の研究者によるアローヘッドチャート理論の吟味、および実測値との照合を行う。

第5節は以上の要約である。

### 第1節 概 説

大気汚染濃度は一般に、一定の空間中に存在する大気汚染物質質量をもって定義される。大気汚染濃度の実際の測定においては、一定時間に捕集される一定量の空気中に含まれる大気汚染物質を体積比もしくは重量比によって表示する。それゆえ、時刻 $t$ における瞬間的大気汚染濃度を $X(t)$ とすると、実際に測定される大気汚染濃度は時刻 $t$ と平均化時間 $s$ の関数となる。これを $X_s(t)$ と記す。

$$X_s(t) = \frac{1}{s} \int_{t-s}^t X(t) dt \quad (5-1)$$

平均化時間  $s$  を単位時間にとった場合の濃度を、これ以降  $\chi(t)$  と簡略化して表示する。それゆえ  $\chi(t)$  は離散的時系列として測定が可能であるが、単位時間を小さくすることによって、事実上連続の時系列として議論が可能であるとする。

第3章で述べたごとく、大気汚染濃度の時系列  $\chi(t)$  の確率密度関数 (probability density function)  $f(\chi)$  は非負の非対象分布をなす。いま  $f(\chi)$  を対数正規分布によって次のように近似することとする。

$$f(\chi) = \frac{1}{\sqrt{2\pi} \sigma_g \chi} \exp \left\{ -\frac{(\ln \chi - \ln \bar{\chi}_g)^2}{2 \sigma_g^2} \right\} \quad (5-2)$$

ここで、 $\bar{\chi}_g$  は幾何平均 (geometric mean)、 $\sigma_g$  は対数標準偏差 (logarithmic S.D.) である。時系列  $\chi(t)$  を広義定常確率過程であるとする、その平均値 (mean)  $\bar{\chi}$  は次のようになる。

$$\begin{aligned} \bar{\chi} &= E[\chi(t)] \\ &= \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{2T} \int_{-T}^T \chi(t) dt = \int_0^{\infty} \chi f(\chi) d\chi \\ &= \bar{\chi}_g \exp \left[ \frac{\sigma_g^2}{2} \right] \end{aligned} \quad (5-3)$$

また分散 (variance)  $\sigma^2$  は次のようになる。

$$\begin{aligned} \sigma^2 &= \text{Var}[\chi(t)] \\ &= \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{2T} \int_{-T}^T (\chi(t) - \bar{\chi})^2 dt = \int_0^{\infty} (\chi - \bar{\chi})^2 f(\chi) d\chi \\ &= \bar{\chi}_g^2 \left\{ \exp(2\sigma_g^2) - \exp(\sigma_g^2) \right\} \\ &= \bar{\chi}^2 \left\{ \exp(\sigma_g^2) - 1 \right\} \end{aligned} \quad (5-4)$$

パーセントイル濃度 (percentile concentration) は次のようにして求められる。いま、100  $p$  %濃度を  $\chi_p$  と記すと定義によって次式が成立する。

$$\begin{aligned} p &= \int_0^{\chi_p} f(\chi) d\chi \\ &= \int_0^{\chi_p} \frac{1}{\sqrt{2\pi} \sigma_g \chi} \exp \left\{ -\frac{(\ln \chi - \ln \bar{\chi}_g)^2}{2 \sigma_g^2} \right\} d\chi \end{aligned}$$

$u = (\ln \chi - \ln \bar{\chi}_g) / \sigma_g$  なる変数変換を行うと  $d\chi = \sigma_g \chi du$  だから

$$p = \int_{-\infty}^{y_p} \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \exp \left[ -\frac{u^2}{2} \right] du$$

$$= \int_{-\infty}^{y_p} \varphi(u) du \equiv \Phi(y_p),$$

ここで、 $\varphi(u)$ 、 $\Phi(u)$  は標準正規分布  $N(0, 1)$  の確率密度関数および分布関数である。変数変換後の  $y_p$  は

$$y_p = (\ln x_p - \ln \bar{x}_g) / \sigma_g,$$

であるから、 $N(0, 1)$  の  $100p\%$  点を  $u_p$  ( $\equiv \Phi^{-1}(p)$ ) とすると、

$$u_p \sigma_g = \ln x_p - \ln \bar{x}_g$$

が成立する。したがってパーセンタイル濃度は次式によって与えられる。

$$x_p = \bar{x}_g \exp(u_p \sigma_g) \quad (5-5)$$

上式は幾何平均値と対数標準偏差によって表わされたパーセンタイル濃度であるが、平均値  $\bar{x}$  と分散  $\sigma^2$  を用いることもできる。すなわち(5-4)から、

$$\begin{aligned} \sigma_g &= \sqrt{\ln(\sigma^2 / \bar{x}^2 + 1)} \\ &= \sqrt{\ln(1 + C_v^2)}, \end{aligned}$$

ここで、 $C_v$  は変動係数 (coefficient of variation) である。また(5-3)から

$$\begin{aligned} \bar{x}_g &= \bar{x} \exp\left[-\frac{\sigma_g^2}{2}\right] \\ &= \bar{x} / \sqrt{1 + C_v^2}. \end{aligned}$$

よってパーセンタイル濃度は

$$x_p = \bar{x} \exp\left\{u_p \sqrt{\ln(1 + C_v^2)}\right\} / \sqrt{1 + C_v^2}, \quad (5-6)$$

となる。

また逆に、パーセンタイル濃度  $x_p$  と平均値  $\bar{x}$  を用いて  $\sigma_g$  を求める場合には、(5-3)と(5-5)より、

$$\sigma_g = \begin{cases} u_p - \sqrt{u_p^2 - 2 \ln(x_p / \bar{x})}, & p \geq 0.5, \\ u_p + \sqrt{u_p^2 - 2 \ln(x_p / \bar{x})}, & p \leq 0.5, \end{cases} \quad (5-7)$$

となる。但し有限時間における離散的濃度時系列を扱う場合には、上式において  $u_p$  の代りに第3章第2節において述べた順序統計量の期待値  $E[X_{(i/n)}]$  を使わなければならない。

標準正規分布  $N(0,1)$  のパーセント点  $u_p$  は各種の数表に示されている。例えば「新編統計数値表」には 10 D の精度で  $\Phi = 0.5 (0.001) 0.999$  なる上側パーセント点を与えられており、また「統計数値表」には 5 D で  $\Phi = 0.5 (0.001) 0.999$  なる上側パーセント点を与えられている。パーセント点の内挿について竹内啓 (1975) は次のように述べている。

いま  $\Phi(u) = \alpha$  となる  $u$  を求めるため、その付近の近似値を  $u_0$  とし  $\Phi(u_0) = \alpha - \Delta\alpha$ ,  $u - u_0 = \Delta u$  とおくと、

$$\Delta\alpha = \varphi(u_0) \left\{ \Delta u - \frac{u_0}{2} (\Delta u)^2 + \frac{u_0^2 - 1}{6} (\Delta u)^3 \dots \right\} .$$

これを  $\Delta u$  に関して解くと  $h = \Delta\alpha / \varphi(u_0)$  とおくと、

$$u = u_0 + h \left[ 1 + \frac{u_0}{2} h + \frac{2u_0^2 + 1}{6} h^2 + \frac{6u_0^2 + 7u_0}{24} h^3 + \dots \right], \quad (5-8)$$

が求められる。この式は  $u$  に関して 0.1 間隔の数表があれば 5 D の精度で任意のパーセント点を与えるものである。

計算機を用いる実用上の目的からは次のような近似式がある。

1) HASTINGS et al. (1955) の近似式

$0.5 \leq p < 1$  のとき

$$u_p \doteq z - \frac{a_0 + a_1 z}{1 + b_1 z + b_2 z^2}, \quad z = \sqrt{-2 \ln(1-p)} \quad (5-9)$$

$0 < p \leq 0.5$  のとき

$$u_p \doteq -z + \frac{a_0 + a_1 z}{1 + b_1 z + b_2 z^2}, \quad z = \sqrt{-2 \ln p} \quad (5-9')$$

ここで、  
 $a_0 = 2.30753$        $b_1 = 0.99229$   
 $a_1 = 0.27061$        $b_2 = 0.04481$  .

この近似式の最大絶対誤差  $\epsilon(p)$  は次の式でおさえられる。

$$|\epsilon(p)| < 2.9 \times 10^{-8}$$

2) 山内 (1965) の近似式

$$u_p \doteq \operatorname{sgn}\left(p - \frac{1}{2}\right) \left\{ y \left( 2.0611786 - \frac{5.7262204}{y + 11.640595} \right) \right\}^{\frac{1}{2}} \quad (5-10)$$

ここで、 $y = -\ln\{4p(1-p)\}$

$$\operatorname{sgn} x = \begin{cases} 1 & x > 0 \\ -1 & x < 0 \end{cases} .$$



この近似式の相対誤差  $\epsilon_R(p)$  は次の式でおさえられる。

$$| \epsilon_R(p) | < 4.9 \times 10^{-4}$$

3) TODA (1967) の近似式

$$u_p \doteq \operatorname{sgn} \left( p - \frac{1}{2} \right) \left\{ y \left( a_0 + a_1 y + a_2 y^2 + \dots + a_{10} y^{10} \right) \right\}^{\frac{1}{2}} \quad (5-11)$$

ここで、  $y = -\ln \{ 4 p (1-p) \}$

$$\begin{aligned} a_0 &= .15707 \quad 96288_{10} + 1 & a_6 &= -.10452 \quad 74970_{10} - 5 \\ a_1 &= .37069 \quad 87006_{10} - 1 & a_7 &= .83609 \quad 37017_{10} - 7 \\ a_2 &= -.83643 \quad 53589_{10} - 3 & a_8 &= -.32310 \quad 81277_{10} - 8 \\ a_3 &= -.22509 \quad 47176_{10} - 3 & a_9 &= .36577 \quad 63036_{10} - 10 \\ a_4 &= .68412 \quad 18299_{10} - 5 & a_{10} &= .69362 \quad 33982_{10} - 12 \\ a_5 &= .58242 \quad 38515_{10} - 5 \end{aligned}$$

この近似式の相対誤差は次の式でおさえられる。

$$| \epsilon_R(p) | < 1.2 \times 10^{-8}$$

## 第2節 平均化理論

広義定常確率過程とみなされる大気汚染濃度  $\chi(t)$  の時刻  $t_0$  における濃度は、 $t_0$  から以前のばく露時間  $s$  の関数であり、その式形は次のように (5-1) と等値である。

$$\frac{1}{s} \int_{-s}^0 \chi(t_0 + t) dt$$

人や動植物が大気汚染にばく露されるとき濃度も、上の式形から明らかなようにばく露時間  $s$  の関数である。したがって大気汚染の評価は、種々のばく露時間に対応した一定レベル以上の濃度の出現確率や、一定レベルをこえる超過回数、最大濃度などの組み合わせによって行わなければならない。本節の目的は、このような組み合わせの定量的表現の基礎となる分布形のばく露時間による変化について、理論的な証明を行うことにある。

$\chi(t)$  の確率密度関数  $f(\chi)$  が対数正規分布によって近似されるとき平均化理論は次のとおりである。

大気汚染濃度  $\chi$  の対数を取り  $X = \ln \chi$  とすれば、時系列  $\chi(t)$  に対応して時系列  $X(t)$  が得られる。ばく露時間  $s$  で平均化した時系列を  $\chi_s(t)$  と記すと、これに対応して  $X_s(t)$  が定められる。ここで  $f(\chi)$  が対数正規型であるので、平均化操作は次のような幾何平均を用いることとする。

$$\chi_s(t) = \exp \left\{ \frac{1}{s} \int_{-s}^0 \ln \chi(t+u) du \right\} \quad (5-12)$$

$X_s(t)$  の平均値を  $\bar{X}$ 、標準偏差を  $\sigma_g(s)$ 、確率密度関数を  $B(X_s)$  と記すと、 $B(X_s)$  次のように表わすことができる。

$$B(X_s) = \frac{1}{\sqrt{2\pi} \sigma_g(s)} \exp \left\{ -\frac{(X_s - \bar{X})^2}{2 \sigma_g(s)^2} \right\} \quad (5-13)$$

すなわち  $B(X_s)$  は正規分布  $N(\bar{X}, \sigma_g(s)^2)$  であり、(5-12) のような幾何平均操作によって  $\bar{X}$  は一定値  $\exp(\bar{X}_g)$  を保つ。  $X_s(t)$  の標準偏差である  $\sigma_g(s)$  は  $s$  の関数であり、 $s$  の増大について減少することが予想される。  $\sigma_g(s)$  の関数形は次のようにして求められる。

いま  $X(t)$  を次のようにスペクトル表示にて表わす。

$$X(t) = \bar{X} + \int_{-\infty}^{\infty} \exp(i t \lambda) dZ(\lambda)$$

ここで  $Z(\lambda)$  はスペクトル分布関数  $F(\lambda)$  と次のような関係をもつ直交過程であり、 $i$  は虚数単位、 $\lambda$  は波数である。

$$E [ | dZ(\lambda) |^2 ] = dF(\lambda)$$

時系列  $X(t)$  の分散  $\sigma_g^2$  を考えると定義によって、

$$\begin{aligned} \sigma_g^2 &= E [ | X(t) - \bar{X} |^2 ] \\ &= E \left[ \left| \int_{-\infty}^{\infty} \exp(i t \lambda) dZ(\lambda) \int_{-\infty}^{\infty} \exp(-i t \lambda) \overline{dZ(\lambda)} \right|^2 \right] \\ &= \int_{-\infty}^{\infty} dF(\lambda), \end{aligned}$$

となる。これに対し  $X_s(t)$  の分散  $\sigma_g^2(s)$  は

$$\begin{aligned} \sigma_g^2(s) &= E \left[ \left| \frac{1}{s} \int_{-s}^0 X(t) dt - \bar{X} \right|^2 \right] \\ &= E \left[ \left| \frac{1}{s} \int_{-s}^0 \int_{-\infty}^{\infty} \exp(i t \lambda) dZ(\lambda) dt \right|^2 \right] \\ &= E \left[ \left| \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\exp(i \lambda s) - 1}{i \lambda s} dZ(\lambda) \right|^2 \right] \\ &= \int_{-\infty}^{\infty} \left\{ \frac{\sin(\lambda s/2)}{\lambda s/2} \right\}^2 dF(\lambda) \\ &= \sigma_g^2 \int_0^{\infty} \left[ \frac{\sin \pi n s}{\pi n s} \right]^2 \psi(n) dn, \end{aligned}$$

となる。ここで  $\psi(n)$  は  $X(t)$  のスペクトル密度関数、 $n$  は周波数で  $\lambda = 2\pi n$  の関係がある。  $\psi(n)$  をフーリエ変換して上式を相関関数表示に書き換えると、

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

となる。ここで  $R(\tau)$  は  $X(t)$  の自己相関係数 (autocorrelation coefficient) である。いま平均化時間を単位時間にとったときの時系列の分散を特に強調して  $\sigma_g^2(1)$  で表わすと、任意の平均化時間  $s$  の移動平均時系列の対数標準偏差は次のようになる。

$$\sigma_g(s) = \sigma_g(1) \sqrt{G(s)/G(1)} \quad (5-14)$$

$$G(s) = \frac{2}{s} \int_0^s \left(1 - \frac{\tau}{s}\right) R(\tau) d\tau \quad (5-15)$$

第4章で述べたごとく、大気汚染濃度の自己相関係数は地域や発生源の違いによって種々の関数形によって近似される。ここではそれらの中から一般的な式形で表現される2つのケースについて  $G(s)$  の関数形を示す。

1) 自己相関係数が減衰項と振動項の和となる場合

$$R(\tau) = (1-a) \exp\left(-\frac{\tau}{\ell}\right) + a \cos\left(\frac{2\pi}{\tau_0} \tau\right) \quad (5-16)$$

$$G(s) = 2(1-a) \frac{\ell^2}{s^2} \left\{ \frac{s}{\ell} - 1 + \exp\left(-\frac{s}{\ell}\right) \right\} + \frac{a}{2} \left[ \frac{\tau_0}{\pi} \right]^2 \frac{1}{s^2} \left\{ 1 - \cos\left[\frac{2\pi s}{\tau_0}\right] \right\} \quad (5-17)$$

上式は、 $a=0$  のときに  $R(\tau) = \exp(-\tau/\ell)$  に対応し、 $a=1$  のときに周期的振動をする時系列に対応する。

2) 自己相関係数が減衰項と減衰振動項の和として近似される場合

$$R(\tau) = (1-a) \exp\left(-\frac{\tau}{\ell}\right) + a \exp\left(-\frac{\tau}{\ell_0}\right) \cos\left(\frac{2\pi}{\tau_0} \tau\right) \quad (5-18)$$

$$G(s) = 2(1-a) \frac{\ell^2}{s^2} \left\{ \frac{s}{\ell} - 1 + \exp\left(-\frac{s}{\ell}\right) \right\} + 2a \frac{\ell_0^2}{s^2} \left\{ \frac{s}{\ell_0} \left[ 1 + \left(\frac{2\pi \ell_0}{\tau_0}\right)^2 \right] - \frac{4\pi \ell_0}{\tau_0} \exp\left(-\frac{s}{\ell_0}\right) \sin\left(\frac{2\pi s}{\tau_0}\right) - \left[ 1 - \left(\frac{2\pi \ell_0}{\tau_0}\right)^2 \right] \left[ 1 - \exp\left(-\frac{s}{\ell_0}\right) \cos\left(\frac{2\pi s}{\tau_0}\right) \right] \right\} \left\{ 1 + \left(\frac{2\pi \ell_0}{\tau_0}\right)^2 \right\}^2 \quad (5-19)$$

上式は、 $a=0$  のときに単純マルコフ系列の自己相関係数である  $R(\tau) = \exp(-\tau/\ell)$  に対応し、 $a=1$  のときに減衰振動をする自己相関係数に対応する。

大気汚染濃度の確率密度関数が対数正規分布によって近似されるとき、ばくろ時間  $s$  によって平均化された時系列の確率密度関数は (5-13) を変換して、

$$f(x_s) = \frac{1}{\sqrt{2\pi} \sigma_g(s) x_s} \exp \left\{ -\frac{(\ln x_s - \ln \bar{x}_g)^2}{2 \sigma_g(s)^2} \right\}, \quad (5-20)$$

と表わされ、そのパラメータ  $\sigma_g(s)$  は (5-14) ~ (5-19) によって表現される。またパーセント濃度は (5-5), (5-6) に準じて与えられる。種々のばくろ時間  $s$  と  $\ell, \ell_0$  に対する  $G(s)$  の値を計算した結果を Figs. 5-1a, 5-1b, Table 5-1 に示す。また Fig. 5-2 には (5-16), (5-17) において  $a=0$  とした単純マルコフ系列の場合の  $\sigma_g(s)/\sigma_g(1)$  の値を  $\ell = \int_0^\infty R(\tau) d\tau$  の関数として示してある。

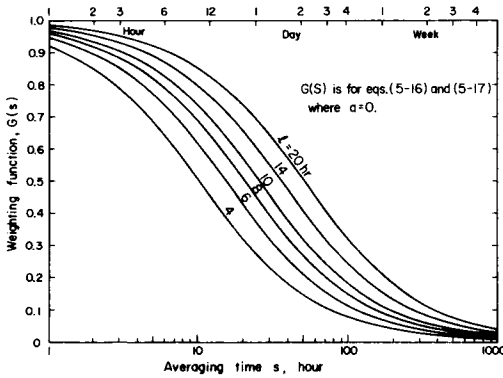


Fig. 5-1-a Weighting function of logarithmic S.D. as a function of averaging time  
 $G(s)$  is expressed by eqs. (5-16) and (5-17) where  $a=0$ .

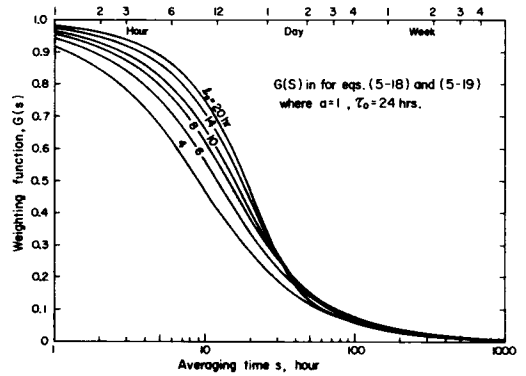


Fig. 5-1-b Weighting function of logarithmic S.D. as a function of averaging time  
 $G(s)$  is expressed by eqs. (5-18) and (5-19) where  $a=1$  and  $\tau_0=24$  hrs.

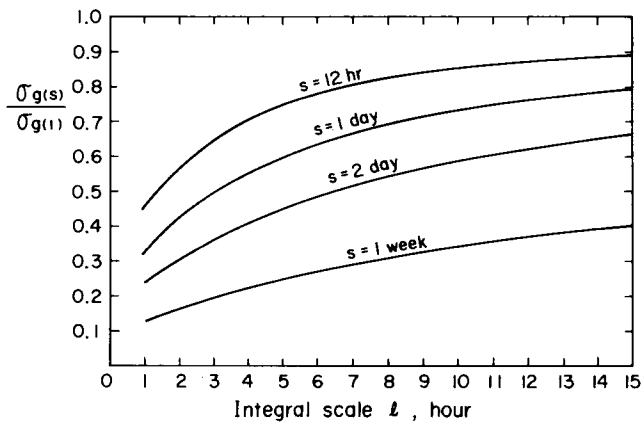


Fig. 5-2 Ratio of  $\sigma_g(s)$  to  $\sigma_g(1)$  as a function of integral scale.

Table 5-1 Computed values of G(s) for various integral scales

Averaging time	l = 4 h		l = 5 h		l = 6 h		l = 7 h	
	G (s)	$\sqrt{G(s)/G(1)}$	G (s)	$\sqrt{G(s)/G(1)}$	G (s)	$\sqrt{G(s)/G(1)}$	G (s)	$\sqrt{G(s)/G(1)}$
1 h	0.92163	1.00000	0.93654	1.00000	0.94668	1.00000	0.95403	1.00000
2	0.85225	0.96162	0.87700	0.96880	0.89756	0.97371	0.91119	0.97729
3	0.79064	0.92621	0.82673	0.93955	0.85225	0.94881	0.87123	0.95562
4	0.73576	0.89349	0.77915	0.91211	0.81038	0.92521	0.83390	0.93492
6	0.64278	0.83513	0.69610	0.86213	0.73576	0.88159	0.76635	0.89625
12	0.45551	0.70303	0.51761	0.74343	0.56767	0.77436	0.60867	0.79875
1 day	0.27792	0.54914	0.33058	0.59412	0.37729	0.63130	0.41871	0.66248
2	0.15278	0.40715	0.18663	0.44641	0.21876	0.48071	0.24918	0.51106
3	0.10494	0.33743	0.12924	0.37149	0.15278	0.40172	0.17554	0.42895
4	0.07986	0.29437	0.09874	0.32470	0.11719	0.35183	0.13520	0.37645
1 week	0.04649	0.22458	0.05775	0.24833	0.06888	0.26973	0.07986	0.28932
2	0.02353	0.15977	0.02932	0.17693	0.03508	0.19249	0.04080	0.20680
1 month	0.01090	0.10875	0.01360	0.12053	0.01630	0.13123	0.01899	0.14110
2	0.00546	0.07700	0.00683	0.08537	0.00819	0.09239	0.00954	0.10001
4	0.00274	0.05449	0.00342	0.06042	0.00410	0.06589	0.00478	0.07081

Averaging time	l = 8 h		l = 9 h		l = 10 h		l = 12 h	
	G (s)	$\sqrt{G(s)/G(1)}$	G (s)	$\sqrt{G(s)/G(1)}$	G (s)	$\sqrt{G(s)/G(1)}$	G (s)	$\sqrt{G(s)/G(1)}$
1 h	0.95960	1.00000	0.96397	1.00000	0.96748	1.00000	0.97279	1.00000
2	0.92163	0.98001	0.92986	0.98215	0.93654	0.98388	0.94668	0.98649
3	0.88589	0.96083	0.89756	0.96494	0.90707	0.96828	0.92163	0.97335
4	0.85225	0.94240	0.86695	0.94834	0.87900	0.95318	0.89756	0.96056
6	0.79064	0.90770	0.81038	0.91688	0.82673	0.92440	0.85225	0.93599
12	0.64278	0.81844	0.67155	0.83465	0.69610	0.84823	0.73576	0.86968
1 day	0.45551	0.68897	0.48829	0.71172	0.51761	0.73144	0.56767	0.76390
2	0.27792	0.53816	0.30503	0.56252	0.33058	0.58454	0.37729	0.62277
3	0.19753	0.45371	0.21876	0.47638	0.23923	0.49726	0.27792	0.53450
4	0.15278	0.39901	0.16992	0.41935	0.18663	0.43921	0.21876	0.47421
1 week	0.09070	0.30744	0.10140	0.32434	0.11196	0.34018	0.13265	0.36927
2	0.04649	0.22010	0.05214	0.23256	0.05775	0.24432	0.06888	0.26609
1 month	0.02168	0.15030	0.02435	0.15895	0.02702	0.16712	0.03234	0.18232
2	0.01090	0.10657	0.01225	0.11274	0.01360	0.11858	0.01630	0.12946
4	0.00546	0.07546	0.00615	0.07984	0.00683	0.08400	0.00819	0.09173

Averaging time	l = 14 h		l = 16 h		l = 20 h		l = 24 h	
	G (s)	$\sqrt{G(s)/G(1)}$	G (s)	$\sqrt{G(s)/G(1)}$	G (s)	$\sqrt{G(s)/G(1)}$	G (s)	$\sqrt{G(s)/G(1)}$
1 h	0.97661	1.00000	0.97949	1.00000	0.98354	1.00000	0.98625	1.00000
2	0.95403	0.98837	0.95960	0.98980	0.96748	0.99180	0.97279	0.99315
3	0.93224	0.97702	0.94032	0.97980	0.95182	0.98374	0.95960	0.98640
4	0.91119	0.96593	0.92163	0.97001	0.93654	0.97581	0.94668	0.97973
6	0.87123	0.94451	0.88589	0.95102	0.90707	0.96034	0.92163	0.96668
12	0.76635	0.88583	0.79064	0.89844	0.82673	0.91682	0.85225	0.92958
1 day	0.60867	0.78946	0.64278	0.81009	0.69610	0.84128	0.73576	0.86372
2	0.41871	0.65478	0.45551	0.68194	0.51761	0.72545	0.56767	0.75867
3	0.31371	0.56677	0.34678	0.59501	0.40545	0.64206	0.45551	0.67960
4	0.24918	0.50512	0.27792	0.53267	0.33058	0.57975	0.37729	0.61850
1 week	0.15278	0.39552	0.17234	0.41946	0.20976	0.46181	0.24494	0.49835
2	0.07986	0.28596	0.09070	0.30431	0.11196	0.33739	0.13265	0.36674
1 month	0.03762	0.19627	0.04287	0.20922	0.05329	0.23278	0.06359	0.25393
2	0.01899	0.13946	0.02168	0.14877	0.02702	0.16575	0.03234	0.18107
4	0.00954	0.09885	0.01090	0.10549	0.01360	0.11761	0.01630	0.12857

### 第3節 平均化理論の大気汚染への応用

ばく露時間もしくは平均化時間の变化によって、大気汚染濃度の分布形やパーセントイル濃度が変化するのみならず、大気汚染に関するその他の統計量も変化する。本節は、そのような統計量のうち、超過確率、最大値および超過回数<sup>3</sup>に関する統計的性質について考察することを目的とする。本節で得られた知見は、大気汚染の影響解明の手法に資するばかりでなく、例えば最大値や超過回数を指標にとって大気汚染制御をする場合の発生源における排出量削減の合理的算定にも資するものである。以下に展開する理論の数学的前提は、濃度の時系列  $X(t)$  が有限期間  $0 \leq t \leq T$  において定常であり、その分布は対数正規分布をなす、というものである。

#### 3-1 超過確率の挙動

確率密度関数  $f(X)$  をもつ濃度の時系列  $X(t)$  が期間  $T$  においてある基準値  $X_0$  を超過するときの総時間は、CRAMÉR and LEADBETTER (1967) の方法に従って次のように求められる。

いま時系列  $X(t)$  に対応してもう1つの関数  $u(t)$  を次のように定義する。

$$u(t) = \begin{cases} 1 & (X(t) > X_0) \\ 0 & (X(t) \leq X_0) \end{cases} \quad (5-21)$$

このとき  $X(t)$  が期間  $T$  において  $X_0$  を超過する時間の割合を表わす関数  $Z_0(T)$  を次のように定義する。

$$Z_0(T) = \frac{1}{T} \int_0^T u(t) dt \quad (5-22)$$

$f(X)$  が対数正規分布をなすとき、 $Z_0(T)$  の平均値は次のようにして求められる。

$$\begin{aligned} E[Z_0(T)] &= \frac{1}{T} \int_0^T E[u(t)] dt \\ &= E[u(t)] = \text{prob} \{ X(t) > X_0 \} \\ &= \int_{X_0}^{\infty} f(X) dX \\ &= \int_y^{\infty} \varphi(v) dv \equiv 1 - \Phi(y), \end{aligned} \quad (5-23)$$

$$\left. \begin{aligned} \text{ここで } y &= (\ln X_0 - \ln \bar{X}_g) / \sigma_g, \\ \text{もしくは } y &= (\ln X_0 - \ln \bar{X} + \sigma_g^2 / 2) / \sigma_g, \end{aligned} \right\} \quad (5-24)$$

$$\varphi(v) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{v^2}{2}\right), \quad \Phi(y) = \int_{-\infty}^y \varphi(v) dv.$$

次に  $Z_0(T)$  の分散  $\text{Var}[Z_0(T)]$  は次のようにして求められる。

$$\begin{aligned}
E [ Z_0^2(\tau) ] &= E \left[ \frac{1}{T} \int_0^T u(t) dt \frac{1}{T} \int_0^T u(s) ds \right] \\
&= \frac{1}{T^2} \iint_0^T dt ds E [ u(t) u(s) ] \\
&= \frac{1}{T^2} \iint_0^T dt ds \text{Prob} \{ \chi(t) > \chi_0, \chi(s) > \chi_0 \} \\
&= \frac{1}{T^2} \iint_0^T dt ds \iint_y^\infty p(v, w, R) dv dw,
\end{aligned}$$

ここで  $y = (\ln \chi_0 - \ln \bar{\chi}_g) / \sigma_g$ ,

$$p(v, w, R) = \frac{1}{2\pi \sqrt{1-R^2}} \exp \left\{ -\frac{v^2 - 2vwR + w^2}{2(1-R^2)} \right\}$$

$R$  は  $(t-s)$  を遅れ時間とする時系列  $\{ \ln \chi(t) \}$  の自己相関係数であり、上式中の2次元正規分布  $p(v, w, R)$  に関する2重積分は次のとおりである。

$$\begin{aligned}
&\iint_y^\infty p(v, w, R) dv dw \\
&= \left\{ \int_y^\infty \varphi(v) dv \right\}^2 + \frac{1}{2\pi} \int_0^R \frac{1}{\sqrt{1-t^2}} \exp \left( -\frac{y^2}{1+t} \right) dt,
\end{aligned}$$

もしくはエルミート (Hermitte) 多項式の性質を使って、

$$\begin{aligned}
&\iint_y^\infty p(v, w, R) dv dw \\
&= \left\{ \int_y^\infty \varphi(v) dv \right\}^2 + \sum_{n=1}^\infty \frac{\{ \vartheta^{(n)}(y) \}^2}{n!} R^n.
\end{aligned}$$

上式を使って  $E [ Z_0^2(\tau) ]$  を求め、(5-23) を利用すると、 $Z_0(\tau)$  の分散は次のようになる。

$$\begin{aligned}
\text{Var} [ Z_0(\tau) ] &= E [ Z_0^2(\tau) ] - \{ E [ Z_0(\tau) ] \}^2 \\
&= \frac{1}{2\pi T^2} \iint_0^T dt ds \int_0^R \frac{1}{\sqrt{1-t^2}} \exp \left( -\frac{y^2}{1+t} \right) dt \\
&= \frac{1}{\pi T} \int_0^T \left( 1 - \frac{\tau}{T} \right) d\tau \int_0^{R(\tau)} \frac{1}{\sqrt{1-t^2}} \exp \left( -\frac{y^2}{1+t} \right) dt, \quad (5-24)
\end{aligned}$$

もしくは

$$\text{Var} [ Z_0(\tau) ] = \sum_{n=1}^\infty \frac{\{ \vartheta^{(n)}(y) \}^2}{n!} \frac{2}{T} \int_0^T \left( 1 - \frac{\tau}{T} \right) R^n(\tau) d\tau. \quad (5-25)$$

Tが充分に大きるとき上式は次のようになる。

$$\lim_{T \rightarrow \infty} T \cdot \text{Var}[Z_0(\tau)] = 2 \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\{\varphi^{(n)}(y)\}^2}{n!} \int_0^{\infty} R^n(\tau) d\tau \quad (5-26)$$

いま大気汚染濃度の対数変換後の自己相関係数について、第4章で求めた関係形のうち最も単純なものをあてはめると

$$\int_0^{\infty} R^n(\tau) d\tau = \int_0^{\infty} \exp(-n\tau/\ell) d\tau = \frac{\ell}{n},$$

となり、

$$\varphi^{(n)}(y) = \varphi^{(n-1)}(y) = \varphi(y)^{\left[\frac{(n-1)}{2}\right]} \frac{(n-1)! (2y)^{n-1-2m}}{(-2)^{n-m-1} m! (n-1-2m)!},$$

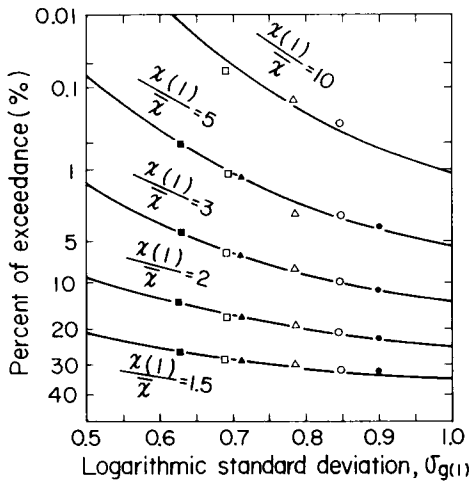
ここで、 $[(n-1)/2]$ は $(n-1)/2$ をこえない最大の整数を示す、  
なので(5-26)は次のようになる。

$$\begin{aligned} \lim_{T \rightarrow \infty} T \cdot \text{Var}[Z_0(\tau)] &= \frac{\ell}{\pi} \exp(-y^2) \left\{ 1 + \frac{y^2}{4} + \frac{(y^2-1)^2}{18} + \frac{(-y^3+3y)^2}{96} + \frac{(y^4-6y^2+3)^2}{600} \right. \\ &+ \frac{(-y^5+10y^3-15y)^2}{4,320} + \frac{(y^6-15y^4+45y^2-15)^2}{35,280} \\ &\left. + \frac{(-y^7+21y^5-105y^3+105y)^2}{322,560} + \frac{(y^8-28y^6+210y^4-420y^2+105)^2}{3,265,920} + \dots \right\} \end{aligned}$$

ある基準値 $\lambda_0$ を超過する時間の割合を、 $T=1$  month にとって $\sigma_g(s)$ の関数として表わした時の理論値と実測値をFig.5-3-a~Fig.5-3-cに示す。Fig.5-3-aは1時間平均値に関するもので、Fig.5-3-bおよびFig.5-3-cはそれぞれ12時間平均値および24時間平均値に関するものである。Fig.5-3-a~Fig.5-3-cともに基準値は平均値の1.5, 2, 3, 5, 10倍にとってあり、横軸の $\sigma_g$ は全て1時間値の最尤推定値である。

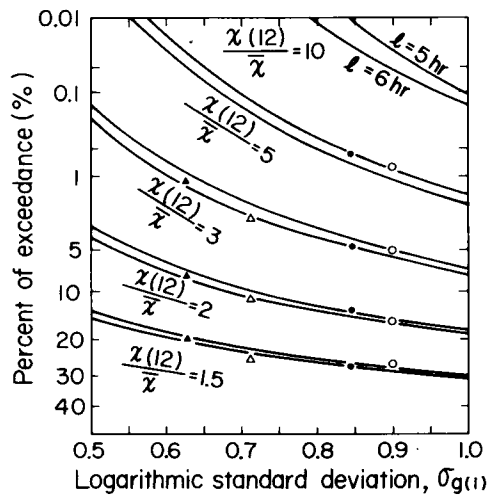
Table 5-2には(5-23), (5-26)によって $T=1$  year (8760 hrs),  $R(\tau) = \exp(-\tau/\ell)$ ,  $\ell = 12$  hrs. の場合の超過率とその標準偏差を種々の $y$ について示してある。Table 5-2によれば、超過確率1% (非超過確率99%,  $y \cong 2.33$ ) 付近の変動は3割弱、超過確率2% (同98%,  $y \cong 2.05$ ) では2割、超過確率10% (同90%,  $y \cong 1.28$ ) では1割程度である。





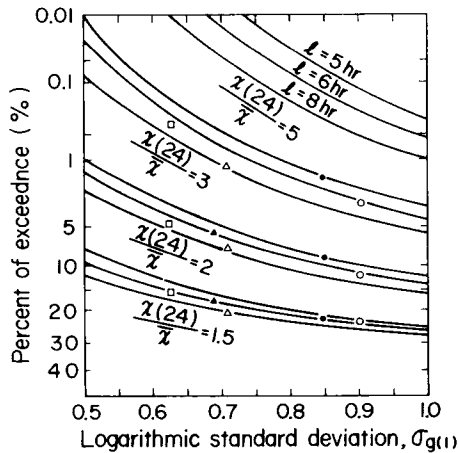
- : Kansai Ika Daigaku 1968.1
- : Tokyo Tower 225m 1969.5
- △ : Osaka City Eiken 1968 (S.S)
- ▲ : Tokyo Tower 125m 1969.5
- : Tokyo Tower 25m 1969.5
- : Osaka Fucho 1968.10

Fig. 5-3-a Exceedance proportion for each hourly fixed level  
Curves are drawn by eqs. (5-23) and (5-24).



- : Kansai Ika Daigaku 1968.1 l=5.5hr
- : Tokyo Tower 225m 1969.5 l=5.4hr
- △ : Tokyo Tower 125m 1969.5 l=7.0hr
- ▲ : Osaka Fucho 1968.10 l=5.8hr

Fig. 5-3-b Exceedance proportion for each half day fixed level  
Curves are from eqs. (5-23), (5-24), (5-14) and (5-16) where a for (5-16) is supposed to be zero.



- : Kansai Ika Daigaku 1968.1 l=5.5hr
- : Tokyo Tower 225m 1969.5 l=5.4hr
- △ : Tokyo Tower 125m 1969.5 l=7.0hr
- ▲ : Tokyo Tower 25m 1969.5 l=5.4hr
- : Osaka Fucho 1968.10 l=5.8hr

Fig. 5-3-c Exceedance proportion for each daily fixed level  
Curves are drawn by the same equations as in Fig. 5-3-b.

Table 5-2 Exceeding probability and its coefficient of variation

y	$\frac{\tau}{\ell}$	Var [ Z <sub>0</sub> (T) ]	E [ Z <sub>0</sub> (T) ]	$\sqrt{\text{Var } Z_0(T)}$	C.V. (%)
0.01		0.3438	0.4960	0.0217	4.38
0.1		0.3411	0.4602	0.0216	4.70
0.2		0.3328	0.4207	0.0214	5.07
0.3		0.3195	0.3821	0.0209	5.48
0.4		0.3018	0.3446	0.0203	5.90
0.5		0.2807	0.3085	0.0196	6.36
0.6		0.2570	0.2743	0.0188	6.84
0.7		0.2316	0.2420	0.0178	7.36
0.8		0.2056	0.2119	0.0168	7.92
0.9		0.1797	0.1841	0.0157	8.52
1.0		0.1546	0.1587	0.0146	9.17
1.2		0.1094	0.1151	0.0124	10.64
1.4		0.07296	0.08076	0.01000	12.38
1.6		0.04604	0.05480	0.00794	14.49
1.8		0.02760	0.03593	0.00615	17.11
2.0		0.01576	0.02275	0.00465	20.42
2.2		0.00858	0.01390	0.00343	24.65
2.4		0.00445	0.00820	0.00247	30.13
2.6		0.00222	0.00466	0.00174	37.37
2.8		0.00106	0.00256	0.00121	47.23
3.0		0.00049	0.00135	0.00082	60.94
3.2		0.00022	0.00069	0.00055	80.25
3.4		0.00010	0.00034	0.00036	107.61

The time series is supposed to have an auto-correlation  $R(\tau) = \exp(-\frac{\tau}{\ell})$ , where  $\ell$  is 12 hrs.

$$Y_n = (\ln z_n - \ln \bar{x}_g) / \sigma_g \quad (5-27)$$

$$\xi = n \{ 1 - \phi_y(y_n) \}$$

このとき CRAMÉR (1946) は次の関係式を得ている。

$$\begin{cases} \lim_{n \rightarrow \infty} Y_n = \alpha_n - \beta_n \ln \xi \\ \text{Prob} \{ \xi \leq u \} = 1 - \exp(-u), \quad u > 0 \end{cases} \quad (5-28)$$

ここで

$$\alpha_n = \sqrt{2 \ln n} - \frac{B + \frac{1}{2} \ln \ln n}{\sqrt{2 \ln n}}, \quad B = -\frac{1}{2} \ln 4\pi$$

$$\beta_n = 1 / \sqrt{2 \ln n}$$

$z_n$  の分布形を SINGPURWALLA (1972) の方法に従い、次のようにして求める。

(5-28) を整理すると

$$\text{Prob} \{ Y_n \leq y \} = \exp \left\{ -\exp \left( -\frac{y - \alpha_n}{\beta_n} \right) \right\}, \quad -\infty < y < \infty \quad (5-29)$$

### 3-2 最大値の挙動

有限時間に観測される大気汚染濃度は、平均化時間が有限であるかぎり、その観測個数は有限であり、これら観測値の中には最大値が存在する。一定観測期間における観測個数は平均化時間によって変化し、したがって最大濃度も平均化時間によって変化する。

濃度の時系列を離散的に  $x_1, x_2, x_3, \dots, x_n$  と表わし、そのうちの最大値を  $z_n$  と記す。すなわち、

$$z_n = \max(x_1, x_2, x_3, \dots, x_n),$$

ここで  $n$  個の濃度は幾何平均値  $\bar{x}_g$ 、対数標準偏差  $\sigma_g$  をもつ対数正規分布からの互いに独立な変量であるとする。 $Y_n$  と  $\xi$  を次のように定義する。

(5-29) を (5-27) に代入して整理すると、

$$\text{Prob} \{ z_n \leq x \} = \exp \left[ - \left\{ x^{-\frac{1}{\beta_n \sigma_g}} \exp \left( \frac{\ln \bar{x}_g}{\beta_n \sigma_g} + \frac{\alpha_n}{\beta_n} \right) \right\} \right], \quad x > 0 \quad (5-30)$$

ここで  $\Omega_n$  と  $\lambda_n$  を次のように定義し、また  $z_n$  の代りに新しい変数  $K_n$  を導入する。

$$\Omega_n = \exp \left[ \frac{\ln \bar{x}_g}{\beta_n \sigma_g} + \frac{\alpha_n}{\beta_n} \right]$$

$$\lambda_n = 1 / (\beta_n \sigma_g)$$

$$z_n = 1 + \frac{K_n}{\lambda_n}$$

(5-30) は変形されて次のようになる。

$$\begin{aligned} \text{Prob} \{ K_n \leq k \} &= \text{Prob} \left\{ z_n \leq 1 + \frac{k}{\lambda_n} \right\} \\ &= \exp \left\{ - \left( 1 + \frac{k}{\lambda_n} \right)^{-\lambda_n} \Omega_n \right\} \end{aligned}$$

これより

$$\text{Prob} \left\{ z_n \leq \Omega_n^{\frac{1}{\lambda_n}} \left( 1 + \frac{k}{\lambda_n} \right) \right\} = \exp \left\{ - \left( 1 + \frac{k}{\lambda_n} \right)^{-\lambda_n} \right\}, \quad -\infty < k < \infty$$

したがって、

$$\lim_{n \rightarrow \infty} \text{Prob} \left\{ z_n \leq \Omega_n^{\frac{1}{\lambda_n}} \left( 1 + \frac{k}{\lambda_n} \right) \right\} = \exp \left\{ - \exp(-k) \right\}, \quad -\infty < k < \infty$$

上式は最大値の第1漸近分布、すなわちグンベル (Gumbel) 分布に他ならない (GUMBEL (1957))。

よって  $z_n$  のモード (mode)  $M(z_n)$  は  $k=0$  なる条件を代入して、

$$M(z_n) = \Omega_n^{1/\lambda_n} = \bar{x}_g \exp(\alpha_n \sigma_g),$$

となる。最大値のモードと平均値の比は次式で示される。

$$\begin{aligned} \frac{M(z_n)}{\bar{x}_g} &= \exp(\alpha_n \sigma_g) \\ &= \exp \left[ \sigma_g \sqrt{2 \ln n} - \frac{\ln \ln n + \ln 4 \pi}{2 \sqrt{2 \ln n}} \sigma_g \right] \end{aligned} \quad (5-31)$$

$$\begin{aligned} \frac{M(z_n)}{\bar{x}} &= \exp \left[ \alpha_n \sigma_g - \frac{\sigma_g^2}{2} \right] \\ &= \exp \left[ \sigma_g \sqrt{2 \ln n} - \frac{\ln \ln n + \ln 4 \pi}{2 \sqrt{2 \ln n}} \sigma_g - \frac{\sigma_g^2}{2} \right] \end{aligned} \quad (5-32)$$

(5-31), (5-32) によって  $n$  を固定したときの最大値のモードが近似できる。

次に平均化時間が変化したときの  $M(z_n)$  の挙動は次のようにして求められる。一定期間  $T$  において単位時間毎に測定された濃度の観測個数を  $N$ 、平均化時間  $s$  によって平均した濃度の個数を  $n_s$  とする。ここで濃度の平均化は移動平均ではなく、

$$\frac{x_1 + x_2 + \dots + x_s}{s}, \frac{x_{s+1} + x_{s+2} + \dots + x_{2s}}{s}, \dots,$$

というように行うものとする。但し第3章で述べたごとく、上記の算術平均系列が対数正規分布を保てないときは幾何平均操作を行うものとする。このような平均操作の結果、 $n_s$  は次のようになる。

$$n_s = \left[ \frac{N}{s} \right] \quad (5-33)$$

ここで  $[N/s]$  は  $N/s$  をこえない最大の整数を示す。  $s=1$  のときの  $n_s$  を  $n$  で表わし、  $\sigma_g(1)$  を  $\sigma_g$  で表わすと (5-31), (5-32) は  $s=1$  に対応する最大値モードを近似するものであり、任意の平均時間に対応する最大値モードは両式の  $n$  に (5-33) で与えられる  $n_s$  および  $\sigma_g$  に (5-14), (5-15) で与えられる  $\sigma_g(s)$  をそれぞれ代入することによって求められる。

以上のような最大値の理論について、Fig. 5-4 には最大値のモードと平均値との比  $M(z_n)/\bar{x}$  を観測個数  $n$  と対数標準偏差  $\sigma_g$  の関数として (5-32) にもとづいて示してある。また Fig. 5-5 には平均化時間のちがいでよる年間の最大値の挙動の一例を示した。

最大値に関する実測値と計算値との対応については、Fig. 5-6 に例を示した。これは 1972 年度と 1973 年度の大阪府下における  $SO_2$  濃度の 1 時間値の最大値を示したものである。  $\sigma_g$  は 99% 値と平均値を使い、(5-7) より求めた。

### 3-3 超過回数の挙動

大気汚染濃度の時系列  $x(t)$  が期間  $T$  においてある基準値  $x_0$  を超過する個数  $N$  を、  $x(t)$  が  $x_0$  をこえて上昇してから再び  $x_0$  以下に下降するまでを 1 回と数えることとする。容易に推察できるように、  $N$  は  $x_0$  が 0 のときに 0 であり、  $x_0$  の増大とともに  $N$  は増大し  $x_0 = x_*$  のときに極大値  $N_{max}$  をとり、それ以降は  $x_0$  の増大とともに  $N$  は減少する。

CRAMÉR and LEADBETER (1967) は、平均 0 の正規確率過程の自己相関関係数  $r(\tau)$ 、スベ

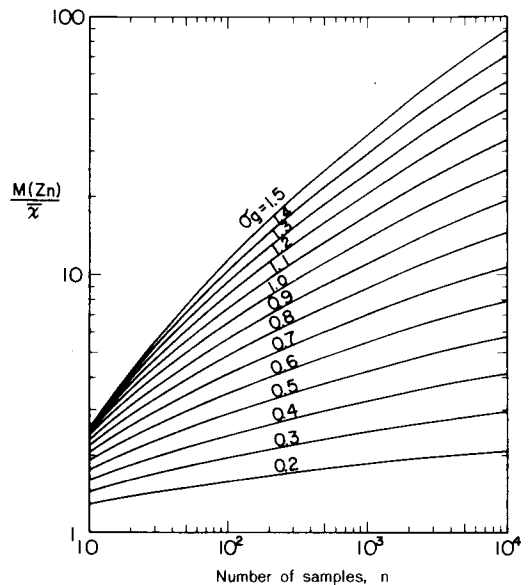


Fig. 5-4 Ratio of mode of maximum to mean as a function of number of samples and logarithmic S.D. for averaging time of unit length.

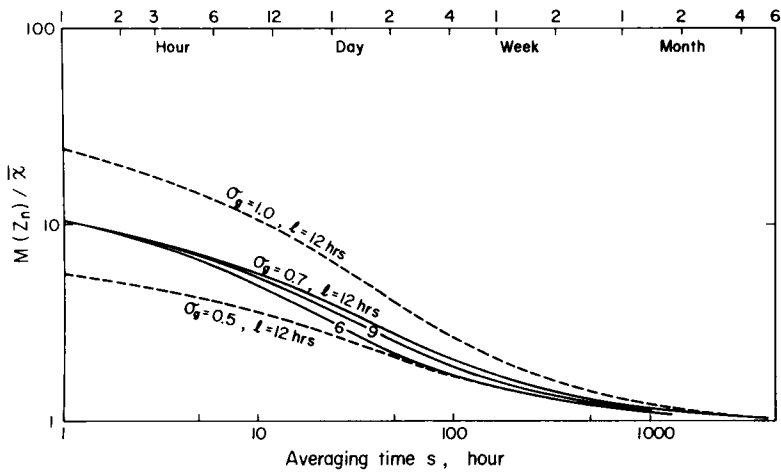


Fig. 5-5 Maximum concentration as a function of averaging time

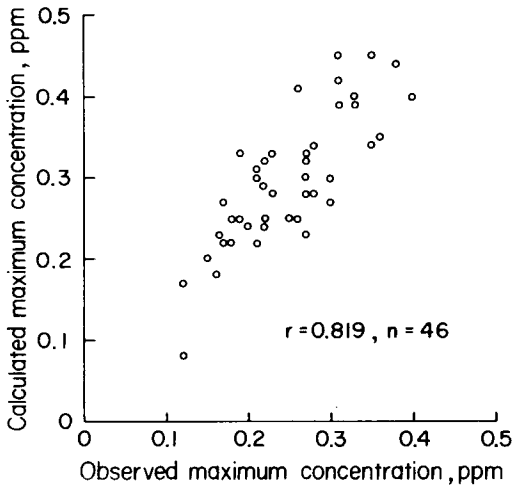


Fig. 5-6 Observed and estimated hourly maximum concentrations for annual SO<sub>2</sub> data of 1972 and 1973 in Osaka.

クトル分布関数  $F(\lambda)$  を用い、 $r(\tau)$  が  $\tau = 0$  付近で

$$r(\tau) = \lambda_0 - \lambda_2 \frac{\tau^2}{2!} + \lambda_4 \frac{\tau^4}{4!} + 0(\tau^4),$$

ここで

$$\lambda_{2i} = \int_0^{\infty} \lambda^{2i} dF(\lambda)$$

と展開されるとき単位時間当りの超過回数について論じている。それによれば基準値  $u$  を超過する回数  $N$  の期待値は次のように与えられる。

$$E[N] = \frac{1}{2\pi} \left( \frac{\lambda_2}{\lambda_0} \right)^{\frac{1}{2}} \exp\left(-\frac{u^2}{2\lambda_0}\right)$$

一定期間  $T$  において大気汚染濃度  $x(t)$  が  $x_0$  を超過する回数  $N_T$  の期待値は、(5-2) もしくは (5-20) を変数変換して正規型に直し  $r(\tau)$  の代わりに自己相関係数  $R(\tau)$  を用いれば次のように定式化できる。

$$E[N_T] = \frac{\sqrt{\lambda_2} T}{2\pi \sigma_g(s) x_0} \exp\left\{ -\frac{(\ln x_0 - \ln \bar{x} + \sigma_g(s)^2/2)^2}{2 \sigma_g(s)^2} \right\}, \quad (5-34)$$

ここで、

$$\lambda_2 = - \left. \frac{\partial^2 R(\tau)}{\partial \tau^2} \right|_{\tau=0}$$

上式の両辺の対数をとって整理すると、

$$\begin{aligned} \ln E[N_T] = & - \frac{1}{2 \sigma_g(s)^2} (\ln \chi_0 - \ln \bar{\chi} + 1.5 \sigma_g(s)^2)^2 \\ & + \ln \frac{\sqrt{\lambda_2} T}{2 \pi \sigma_g(s) \bar{\chi}} + \sigma_g(s)^2, \end{aligned} \quad (5-35)$$

となる。すなわち  $N_T$  と  $\chi_0$  を両対数紙上に描くと上に凸なる放物線となる。よって超過回数の期待値の極大値  $N_{\max}$  とその時の濃度  $\chi_*$  は次のようになる。

$$N_{\max} = \frac{\sqrt{\lambda_2} T}{2 \pi \sigma_g \bar{\chi}} \exp \{ \sigma_g(s)^2 \} \quad (5-36)$$

$$\chi_* = \bar{\chi} \exp \left\{ - \frac{3}{2} \sigma_g(s)^2 \right\} = \bar{\chi}_g \exp \{ - \sigma_g(s)^2 \} \quad (5-37)$$

LARSEN (1967) は  $N_T$  と  $\chi_0$  の関係について  $T = 1 \text{ year}$ ,  $s = 1 \text{ hr}$  の場合、次のような式で表わされることを経験的に導いた。

$$N_T = \frac{7000 \bar{\chi}_g^{0.7}}{\exp \left\{ \frac{4 \ln^2 (\chi_0 / 0.6 \bar{\chi}_g^{0.75})}{\exp(2 \sigma_g)} \right\}}$$

Larsenの式の両辺の対数をとって整理すると、

$$\ln N_T = - \frac{4}{\exp(2 \sigma_g)} \left\{ \ln \chi_0 - \ln (0.6 \bar{\chi}_g^{0.75}) \right\}^2 + \ln (7000 \bar{\chi}_g^{0.7}), \quad (5-38)$$

となり、やはり両対数紙上で放物線が描ける。

(5-35) と (5-38) を比較するために両者の放物線の頂点の係数値を  $\sigma_g$  の関数として Fig. 5-7 に示した。それによれば  $\sigma_g$  が 0.65 から 1.5 の範囲では良い一致を示している。しかし放物線の軸の位置 ( $\chi_*$  の値) や頂点の位置 ( $N_{\max}$  の値) については、Larsen は幾何平均濃度のみ関数によって近似しており、(5-36) や (5-37) で示される  $N_{\max}$  や  $\chi_*$  は表現できていない。Fig. 5-8 には (5-35) から求めた超過回数の例を示してある。

濃度変動が基準値を超過しているときの経続時間  $D$  の期待値は、超過時間と超過回数より次のように求められる。

$$E[D] = T \cdot E[Z_0(T)] / E[N_T]$$

Fig. 5-8 には (5-23) と (5-35) から求めた  $E[D]$  が示してある。

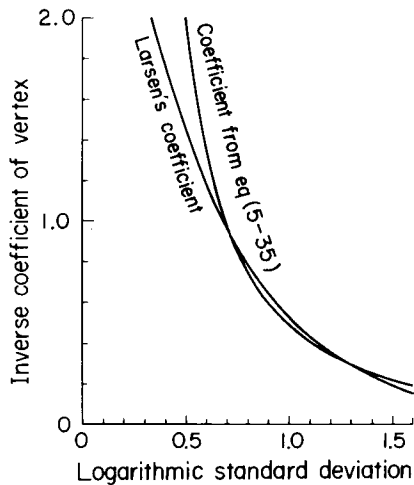


Fig. 5-7 Comparison of the coefficient of vertex between Larsen's empirical equation and eq. (5-35)

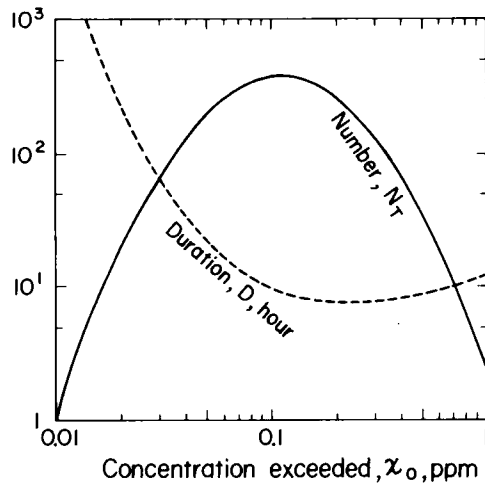


Fig. 5-8 Number  $N$  and duration  $D$  of events versus the critical concentration  $\chi_0$  where  $T_0 = 4,380$  hrs,  $\bar{\chi} = 0.23$  ppm,  $\sigma_g = 0.7$  and  $\lambda_2 = 0.0027$

#### 第4節 アローヘッドチャート理論

大気汚染の評価は本章第2節冒頭に述べた観点から行わなければならない。そのような条件の全てではないにしても、評価要素の多くを1つの図にまとめたものとしてアローヘッドチャート(Arrowhead Chart)がある。アローヘッドチャートは、縦軸に濃度、横軸に平均化時間をそれぞれ対数目盛でとり、非超過確率をパラメータとして、実測値もしくは理論値を入れ、同一非超過確率の線を結んで1つの図に表現したものである。Larsenが最初に提案し、北海道大学の井上が命名したものである。

アローヘッドチャート理論には、大別して2つの理論がある。第1のものは、Larsenおよび井上らによって提案されたもので、各平均化時間毎に実測されたパーセンタイル濃度を求めて両対数紙上にプロットし、同一非超過確率を直線で結んだものである。これらの理論は、時間関数とする大気汚染濃度の構造的性質には立入らず、単に実測された値を直線で結ぶという。経験的なものであるために、本節後半で述べるように実測値との対応が悪い。特に、平均化時間が大なるところでの高パーセンタイル濃度は、実測値に比べて2倍程度の過大評価となり、またわが国の実測値との照合例も少ない。

第2のものは本節において述べる庄司・塚谷モデルに関する理論である。第1の理論に比べたこの理論の最大の特徴と優位性は、大気汚染濃度の時系列の統計的性質を基礎にした厳密な理論解を求めた点にある。したがってすべての平均化時間に対するアローヘッドチャートの実測値への適合度もよく、既存の理論のうちでは最も現実的なものである。

本節の目的は、前半部で庄司・塚谷モデルの理論を述べ、後半部ではLarsenおよび井上らの理論を整理して実測値との比較を行うことである。

##### 4-1 平均化解析による分布形の変化

大気汚染濃度の実測値をもとに、平均化時間  $s$  によって移動平均して得られる時系列の例を Figs.5-

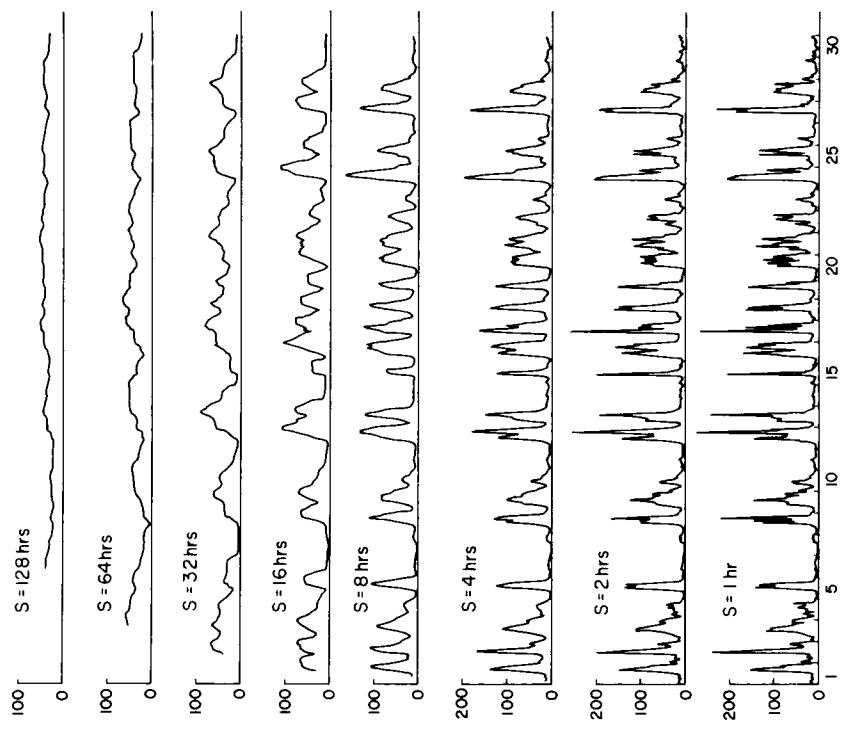


Fig. 5-9-b Examples of the concentration time series processed by arithmetic moving average (Yokkaichi, Mie, June 1967) Ordinate is in ppb and abscissa is in day.

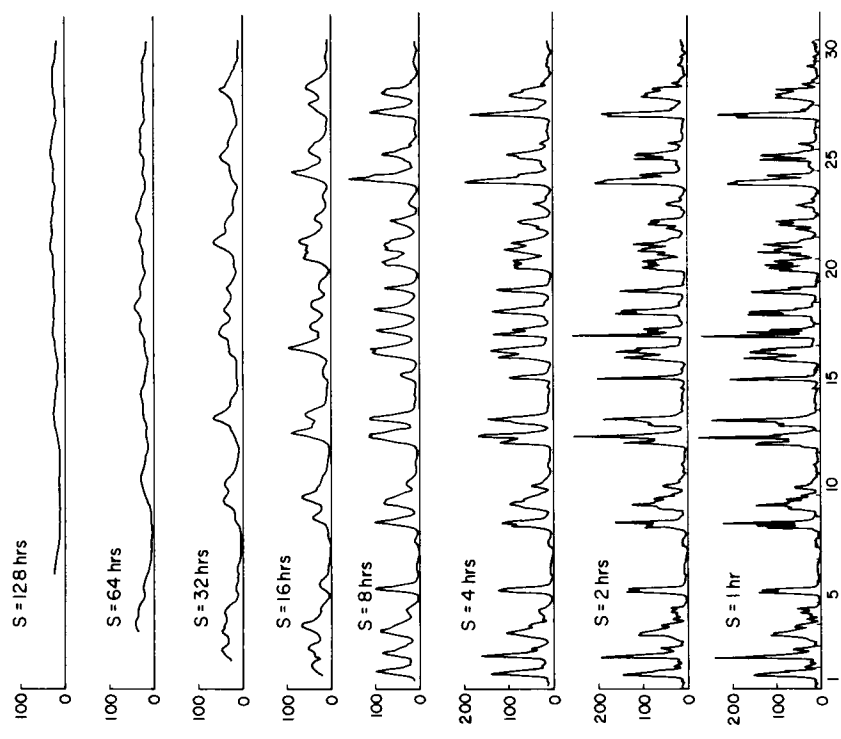


Fig. 5-9-a Examples of the concentration time series processed by geometric moving average (Yokkaichi, Mie, June 1967) Ordinate is in ppb and abscissa is in day.



-9-a, 5-9-bに示す。平均化時間によって時系列の性状は大きく変化している。このような時系列の挙動について次の3種類の解析を行った。

ここで使用した実測値は、大阪府岬町、京都市、四日市市のSO<sub>2</sub>濃度1時間値で、観測期間は5ないし6カ月である。移動平均操作は(5-1)に示す算術平均を離散化して行い、 $x_s(t)$ を求めるに際し欠測が0.8 s以上ある場合は時刻tの $x_s(t)$ を欠測として扱った。

第1の解析は、分布形の変化を対数正規確率紙上で求めるものであり、その結果はFigs.5-10, 5-11, 5-12のとおりである。Fig.5-10は対数正規分布への適合性が良い1時間値の分布をもつものの例、Fig.5-11は確率紙上で上に凸、Fig.5-12は下に凸の分布を示すものの例である。各図中の○印は対数正規分布で近似した場合の1, 50, 99 %点であり、曲線はピアソン系分布で近似した場合の理論分布関数である。

第2の解析は、対数標準偏差および3次モーメントの挙動を求めるものであり、その結果はFigs.5-13, 5-14, 5-15のとおりである。またFigs.5-16, 5-17は(5-14), (5-16)によって求めた理論曲線である。

第3の解析は、 $\delta_2 - \delta_3$  判定図上で分布形の変化をみるものであり、その結果は、Figs.5-18, 5-20, 5-21に示すとおりである。多くの場合、( $\delta_2, \delta_3$ )の値は対数正規分布を示す曲線に平行して減少し、この傾向は平均化時間48時間まで持続している。平均化時間が96時間以上の場合には $\delta_3 \sim 0$ となり、分布形が正規分布によっても表現できる可能性が示されている。

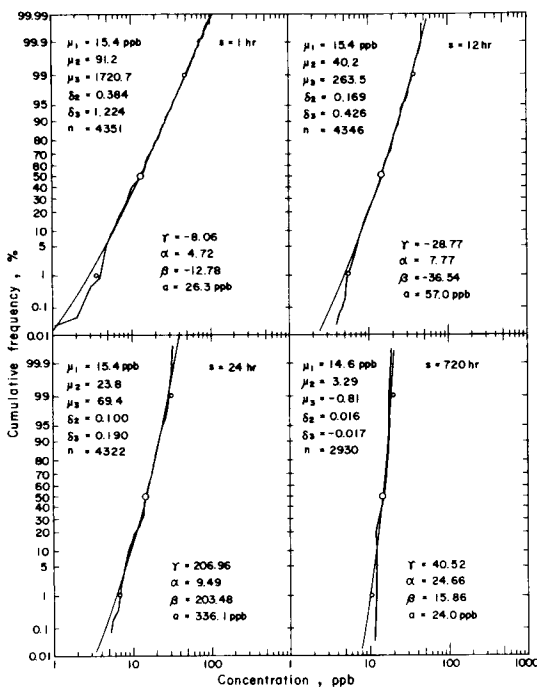


Fig. 5-10 Inspection of conformity to Pearson and log-normal distributions for various averaging times (Misaki, Osaka, Jan. ~ June 1972)

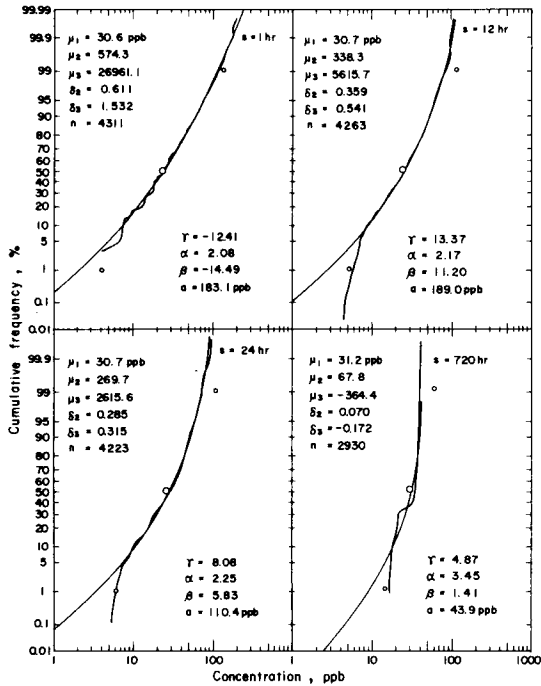


Fig. 5-11 Inspection of conformity to Pearson and log-normal distributions for various averaging times (Isozu, Yokkaichi, April~ Sept. 1972)

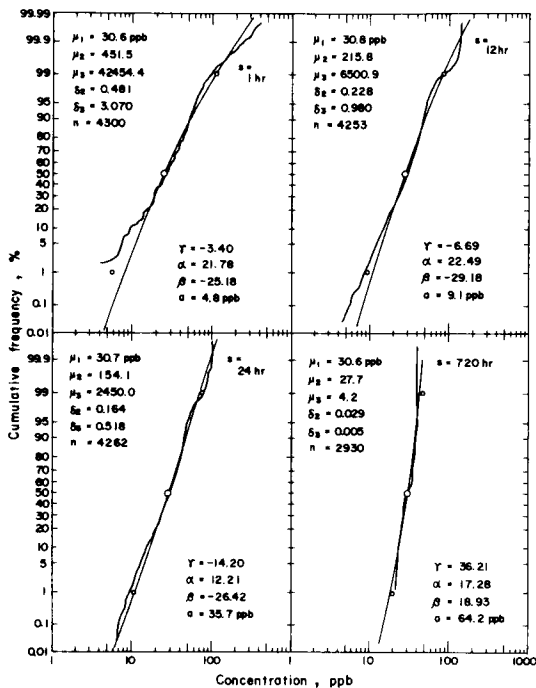


Fig. 5-12 Inspection of conformity to Pearson and log-normal distributions for various averaging times (Isozu, Yokkaichi, Oct, 1972- March 1973)

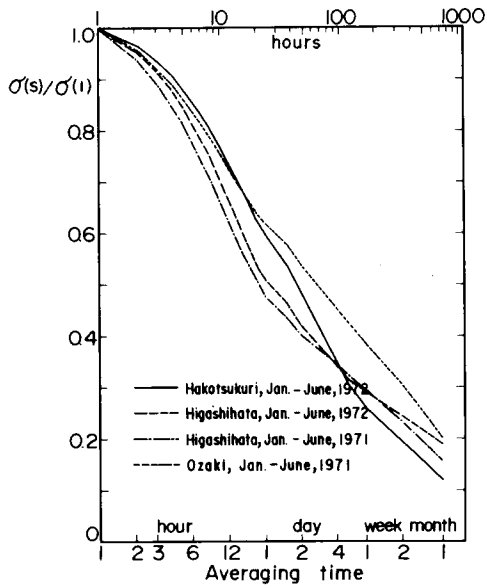


Fig. 5-13 Ratios of logarithmic S.D. as a function of averaging time (Misaki, Osaka)

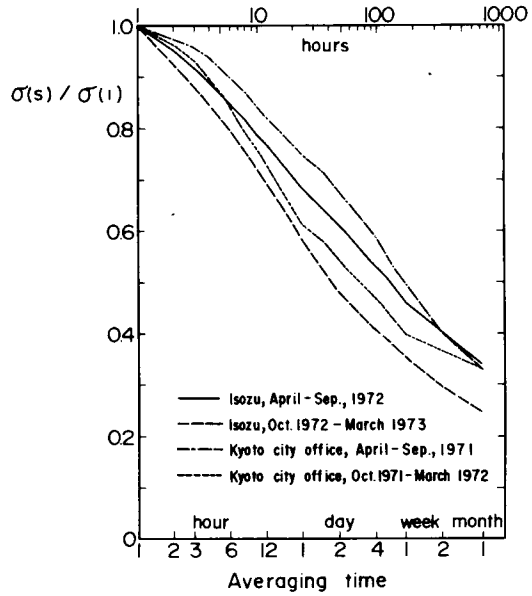


Fig. 5-14 Ratios of logarithmic S.D. as a function of averaging time (Yokkaichi and Kyoto)

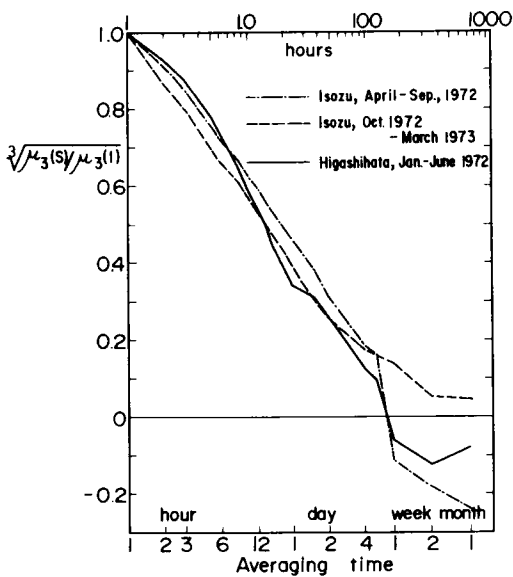


Fig. 5-15 Ratios of cube root of the third moment about mean as a function of averaging time (Yokkaichi and Misaki)

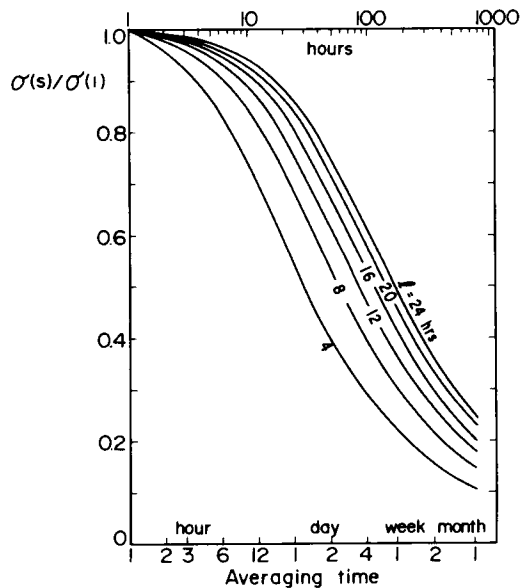


Fig. 5-16 Theoretical ratio of logarithmic S.D. as a function of averaging time. Curves are derived from eqs. (5-14), (5-15), and (5-16) in which  $a$  is supposed to be zero.

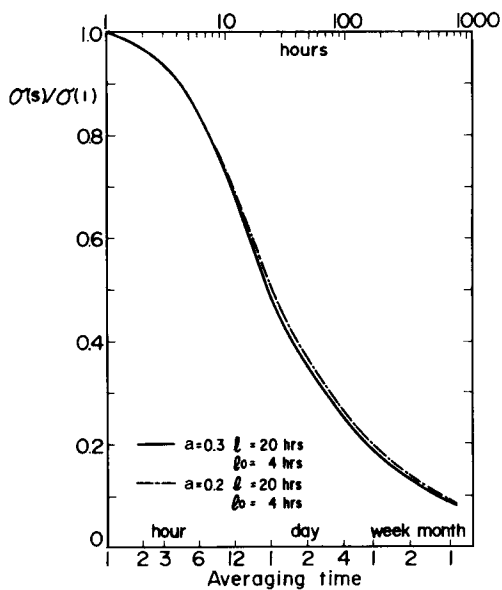


Fig. 5-17 Theoretical ratio of logarithmic S.D. as a function of averaging time. Curves are drawn by eqs. (5-14) ~ (5-17) in which  $\tau_0$  is 24 hrs.

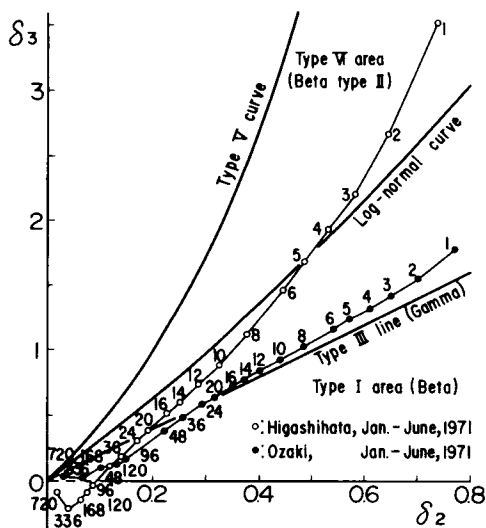


Fig. 5-18 Classification of  $s$  hours averaged  $\text{SO}_2$  concentrations on  $\delta_2$ - $\delta_3$  diagram (Misaki, Osaka). Numerals in the figure indicate the value of averaging time  $s$ .

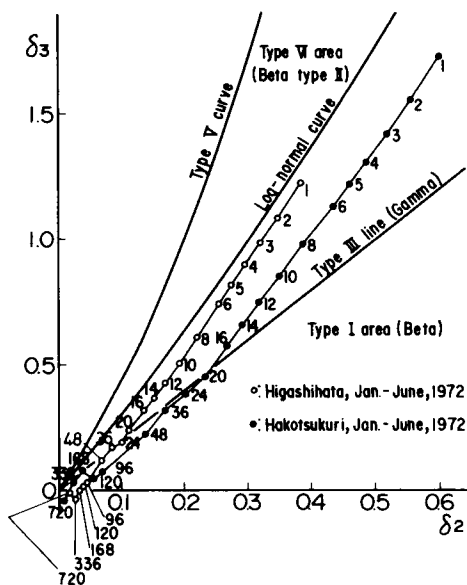


Fig. 5-19 Classification of  $s$  hours averaged  $\text{SO}_2$  concentrations on  $\delta_2$ - $\delta_3$  diagram (Misaki, Osaka).

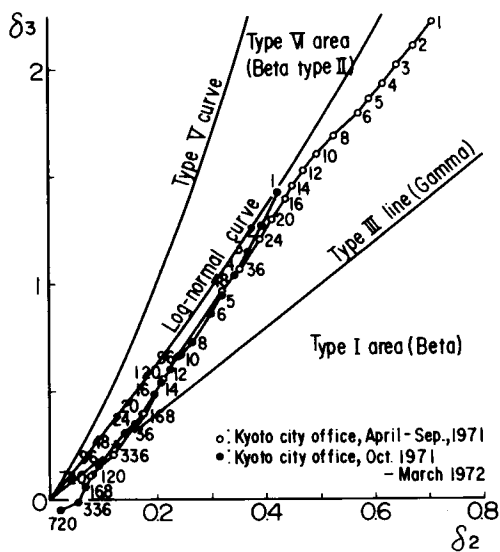


Fig. 5-20 Classification of  $s$  hours averaged  $\text{SO}_2$  concentrations on  $\delta_2$ - $\delta_3$  diagram (Kyoto).

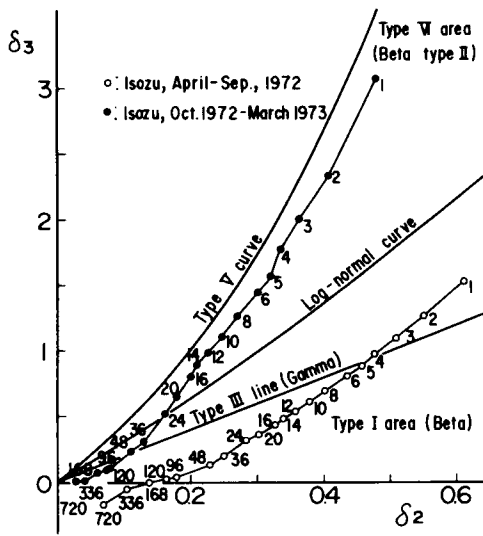


Fig. 5-21 Classification of s hours averaged SO<sub>2</sub> concentrations on  $\delta_2$ - $\delta_3$  diagram (Yokkaichi, Mie)

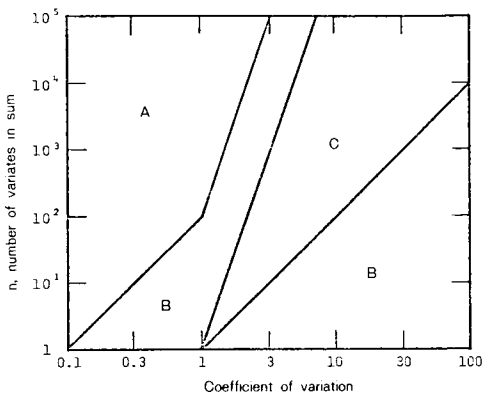


Fig. 5-22 Regions of convergence where the sum of n log-normal variates is approximately log-normal

- A : convergence for both normal and log-normal approximations,
- B : convergence for log-normal approximation,
- C : convergence is uncertain.

以上に述べた3種類の解析は、算術平均操作によって行ったものである。このような算術平均操作を行うと、一般には、原系列が対数正規分布を示すものであっても平均操作後には対数正規分布は保存されない。このことについてMARCUS(1974)は、lag time  $\tau$  が大きい時の自己相関係数が次式で示されるような時系列であり、

$$R(\tau) = a\tau^{-b}, \quad a > 0, \quad 0 < b < 1,$$

平均化時間が2.4時間程度以内であれば、対数正規性は近似的に保存されると述べている。又、MITCHELL(1968)は、対数正規分布をなす独立な変量の和の分布について次のように述べている。すなわちn変数の和の理論分布と、1,2次モーメントが等しい対数正規分布とを比較し、3次モーメントによって誤差を評価した。その結果、対数正規分布で近似できる範囲がFig.5-22のように求められた。大気汚染濃度の分散係数 $\delta_2$ は第3章にみられるごとく $\delta_2 < 2$ の場合が多いので、変動係数 $C_v$ は $C_v < 1.4$ となる。大気汚染濃度が仮に互いに独立であるとみなせば、 $n > 100$ の場合にはFig.5-22の領域Aによって、対数正規分布もしくは正規分布が近似分布となる。

#### 4-2 アローヘッドチャート(庄司・塚谷モデル)

アローヘッドチャート理論は次のように展開される。すなわち、時間を関数とする大気汚染濃度の分布形が対数正規分布によって近似できることが、第2章および第4章において確かめられ、またそのパーセンタイル濃度が本章第1節で求められた。よってsなる平均化時間で観測された大気汚染濃度の時系列が、定常的かつ対数正規分布に従うという前提の下では、100 $\xi$ パーセンタイル濃度 $\chi_{s,\xi}$ は(5-5),(2-3)によって次のように定式化される。

$$\frac{\chi_{s,\xi}}{\bar{\chi}_g} = \exp \{ u_\xi \sigma_g(s) \} \quad (5-39)$$

$$\frac{\chi_{s,\xi}}{\bar{\chi}} = \exp \left\{ u_{\xi} \sigma_g(s) - \frac{1}{2} \sigma_g^2(s) \right\} \quad (5-40)$$

ここで  $\chi_{s,\xi}$  は平均化時間  $s$  の関数であるので、本章第2節で導いた対数標準偏差  $\sigma_g(s)$  に関する式(5-14)、(5-15)が成立する。

$$\sigma_g(s) = \sigma_g(1) \sqrt{G(s)/G(1)} \quad (5-14)$$

$$G(s) = \frac{2}{s} \int_0^s \left(1 - \frac{\tau}{s}\right) R(\tau) d\tau \quad (5-15)$$

以上がアローヘッドチャート理論を定式化したものである。任意の平均化時間  $s$  および任意のパーセンタイル値  $100\xi$  に対応するパーセンタイル濃度  $\chi_{s,\xi}$  を求めるためには、先ず自己相関係数  $R(\tau)$  を(5-15)に代入して  $G(s)$  を求め、次に平均化時間が1時間である大気汚染濃度時系列の実測値から対数標準偏差を第3章第5節に述べた手法によって推定し、(5-14)から  $\sigma_g(s)$  の値を求める。そして  $\xi$  に対応する  $u_{\xi}$  と  $\sigma_g(s)$  を式(5-39)もしくは(5-40)に代入すれば良い。

$u_{\xi}$  は正規分布  $N(0,1)$  の下側  $100\xi$  パーセント点であって、数表もしくは(5-9)~(5-11)による近似式によって求められる。 $\xi \approx 1$  のときは(5-11)を使用することがのぞましい。

$G(s)$  の値は Table 5-1, Figs. 5-1-a, 5-1-b に示してある。但し  $R(\tau)$  の式形が(5-16)もしくは(5-18)のように複雑であって、かつ計算機において graphic display を行う場合には、(5-17)もしくは(5-19)に示した  $G(s)$  を採用するのが良い。

以上のような式によって求めたアローヘッドチャートの例を Fig. 5-23 に示す。これは  $R(\tau)$  として(5-16)を採用し、原系列が Markoff 系列である場合、原系列が 2.4 時間周期の正弦波である場合、および両者の重ね合わせである場合を模式的に示したものである。

東京都における  $\text{SO}_2$  濃度の半年間の実測値、およ

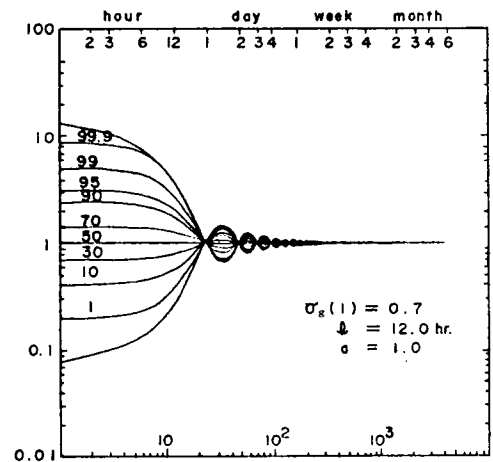
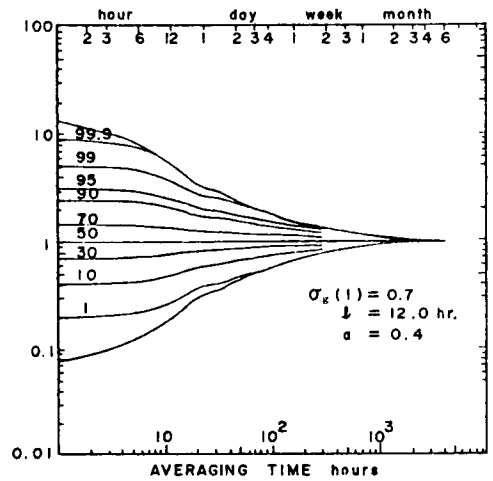
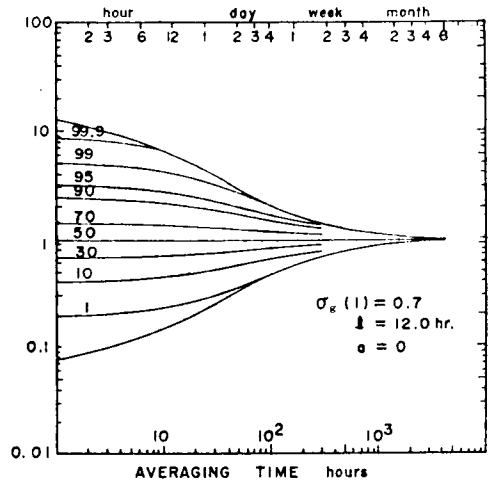


Fig. 5-23 Examples of an arrowhead chart model

び大阪市における浮遊粉じん濃度の1年間の実測値をもとにして、次の手順で $\chi_{s,\xi}$ の実測値と理論値とを比較した。すなわち1時間平均値の実測値から、(5-12)にもとづいて移動平均時系列を求め、各平均化時間に対応した分布形を対数正規確率紙に描き、1, 10, 30, 50, 70, 90, 95, 99, 99.9%に対応する各パーセント濃度を内挿して求めた。平均化時間は3, 6, 12時間および1, 2, 4, 7日である。こうして求めた実測値(半実測値)を両対数紙上にプロットした。次に幾何平均濃度 $\bar{\chi}_g$ 、対数標準偏差 $\sigma_g(1)$ を第3章第5節に述べた方法で求め、第4章第5節に述べた方法で自己相関係数 $R(\tau)$ の式形を決定した。このようにして求めた時系列のパラメータを(5-39)に代入し、平均化時間 $s$ を連続的に変化させて理論値(半理論値)を求めた。これらの結果を示したのが、Figs. 5-24, 5-25である。

ここに述べたモデルの基本形は、SHOJI and TSUKATANI (1973)が示したもので、以後、庄司・塚谷モデルという。

ここに述べたアローヘッドチャート理論の衛生工学的応用は2つある。第1は、大気汚染影響解明のための汚染濃度情報を、平均値のみならず、ばく露時間に対応するパーセント濃度の一括表現法として提示する点である。このような情報を数値化して示すならば、その量は膨大であり、かつ相異なる地点や期間、汚染物の間での相互比較ははなはだ困難である。この点で、アローヘッドチャートおよびその理論は有用である。但し、これはあくまで影響解明のための定性的表現方法であって、定量的表現については第6章において理論を展開する。

第2の応用は、大気汚染制御のための指針提示である。大気汚染影響のうち避けねばならない影響に対応する大気汚染濃度は、ばく露時間および出現頻度と組み合わせて示される。一方、大気汚染物質の排出量は一般に、大気汚染濃度の平均値と対応関係があり、大気汚染制御も平均濃度の削減に焦点をあて

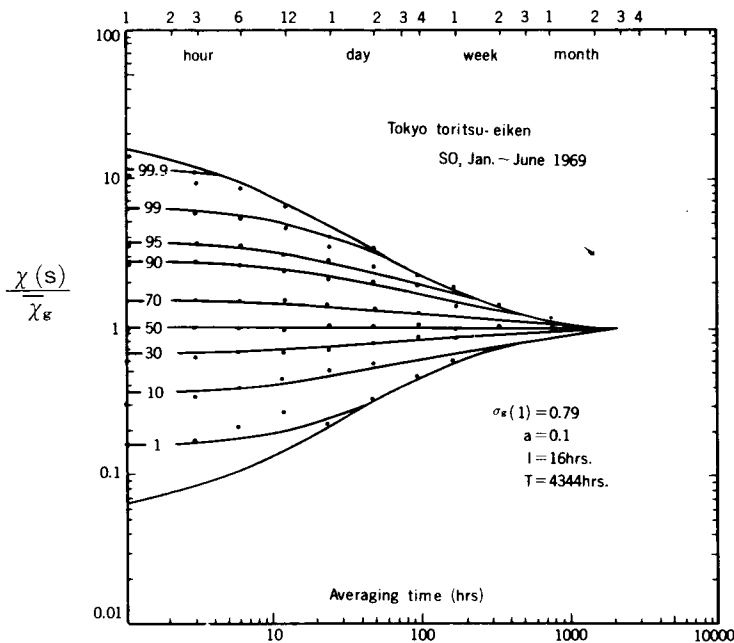


Fig. 5-24 Percentile concentrations for various averaging times ( $SO_2$ , Tokyo)

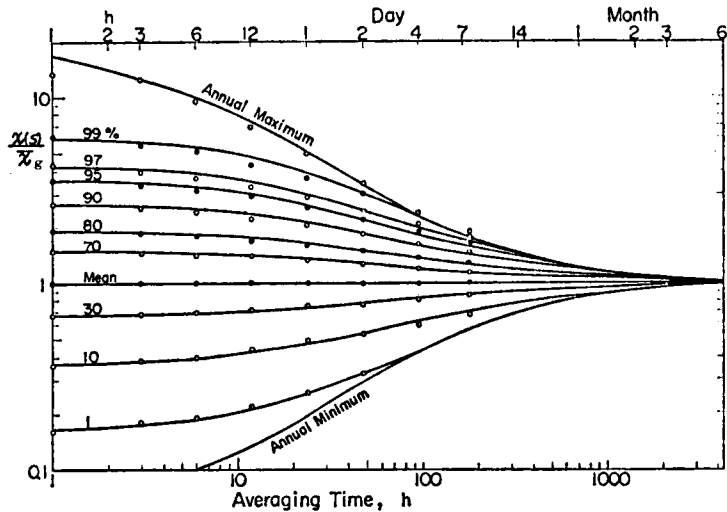


Fig. 5-25 Percentile concentrations for various averaging times  
(Suspended particulates, Osaka)

○, ●, data from April, 1967 to March, 1968 at Osaka, in which  $l = 12.3$  h and  $\sigma_g(1) = 0.7701$ . Curves are derived from equations (5-14) and (5-39) in which  $l = 12$  h and  $\sigma_g(1) = 0.77$ .

て実施される。好ましくない影響を避けるために大気汚染制御を実施するにあたっては、このように任意のばく露時間に対応する基準濃度と、削減すべき平均濃度との間の関連性を明らかにしなければならないが、アローヘッドチャートはこの関連性を直接的に示すものである。

#### 4-3 LARSENモデルと井上・渡辺モデル

LARSEN (1971) は、米国CAMPの莫大な量のデータをもとに、大気汚染濃度に関する次のような特性を導き、アローヘッドチャートの数学モデルを提唱している。

- (1) 大気汚染濃度は全ての平均化時間にわたって対数正規分布をなす。
- (2) 濃度分布の中央値と平均化時間は、両対数紙上で直線関係にある。
- (3) 算術平均濃度は全ての平均化時間に対して一定である。
- (4) 平均化時間を最大にとったとき、平均値、幾何平均値、最大値、最小値は全て同一である。
- (5) 平均化時間が1カ月以内のときは、最大値と平均化時間は、両対数紙上で負の直線関係にある。

平均化時間  $s$  に対応する対数標準偏差  $\sigma_g(s)$  は、上記(2), (4)の特性を使って求められる。すなわち対象とする期間  $T$  とすると次式が成立する。

$$\frac{\ln \bar{x} - \ln \bar{x}_g(s)}{\ln T - \ln s} = \frac{\ln \bar{x} - \ln \bar{x}_g(1)}{\ln T - \ln 1}$$

上式の両辺の分子は、(1)の特性よりそれぞれ  $\frac{1}{2} \sigma_g^2(s)$ ,  $\frac{1}{2} \sigma_g^2(1)$  であるから、 $\sigma_g(s)$  が次のように求められる。

$$\sigma_g(s) = \sigma_g(1) \sqrt{\frac{\ln(T/s)}{\ln T}}$$



かくて任意の平均化時間  $s$  における 100  $\xi$  パーセント濃度  $\chi_{s,\xi}$  は次のようになる。

$$\frac{\chi_{s,\xi}}{\bar{\chi}} = \exp \left\{ u_{\xi} \sigma_g(s) - \frac{1}{2} \sigma_g^2(s) \right\} \quad (5-41)$$

ここで

$$\sigma_g(s) = \sigma_g(1) \sqrt{\frac{\ln(T/s)}{\ln T}} \quad (5-42)$$

Larsen のモデルの特色の 1 つは、最高濃度の予測であり、これは次のように定式化されている。すなわち、Larsen は、時間区切りの離散的な平均操作を行い、平均時間  $s$  に対応し (5-33) で与えられる  $n_s$  個のサンプル中の第  $r$  番目のデータの超過確率の期待値  $f$  を

$$f = \frac{r - 0.4}{n_s}, \quad E[X_{(r/n_s)}] = \Phi^{-1}(f),$$

で近似した。これは第 3 章第 5 節に述べた順序統計量の近似式に近いものであり、 $n_s = 8760$  ( $s = 1$  hr),  $365$  ( $s = 1$  day) の場合の  $E[X_{(1/n)}]$  としてはそれぞれ 3.81, 2.94 を与える。期間  $T$  における平均化時間  $s$  の時系列の最高濃度を  $\chi_{\max}(s)$  とすると、特性(6)より次式が成立する。

$$\chi_{\max}(s) = \chi_{\max}(1) \cdot s^q$$

上式の  $q$  は (5-41), (5-42) に  $u_{\xi} = 3.81, 2.94$  を代入して

$$q = 0.055 \sigma_g^2(1) - 0.453 \sigma_g(1),$$

が得られる。

以上が Larsen モデルの概要である。次に井上・渡辺によって提唱されているアローヘッドチャートについて述べる。

井上・渡辺 (1975) は、第 1 次近似として、単に年平均値一要素のみによるアローヘッドチャートモデルを提唱している。モデルに設けられた特性は次の 3 つである。

- (a) 全ての平均化時間に対し対数正規分布が近似的に保存され、その平均値は一定である。
- (b) 平均化時間が  $s$  である時系列の幾何平均濃度  $\bar{\chi}_g(s)$  と平均濃度との間には次の 1 次式が成立する。

$$\bar{\chi}_g(s) = a_s \bar{\chi} - b_s$$

- (c) 任意の 2 つの平均化時間  $s, s'$  に対応する幾何平均濃度  $\bar{\chi}_g(s)$  と  $\bar{\chi}_g(s')$  には次の近似関係が存在する。

$$\frac{\bar{\chi} - \bar{\chi}_g(s)}{\bar{\chi} - \bar{\chi}_g(s')} = \left[ \frac{\ln T - \ln s}{\ln T - \ln s'} \right]^r$$

特性(b)に関し井上らは、わが国の数 100 地点における  $SO_2$  濃度 1 時間値の 99% 値と平均値から (5-7) および (2-3) によって  $\sigma_g(1)$  と  $\bar{\chi}_g(1)$  を求め、各年度毎に特性(b)の回帰係数  $a, b$  を決定した。

次に井上らは、 $\bar{\chi}_g(s)$  の様相を求めるために札幌市と室蘭市の  $\text{SO}_2$  実測値を用いて  $s = 1, 4, 8, 12$  時間および 1, 7, 30 日に対する  $\bar{\chi}_g(s)$  を直接計算し、特性(c)における  $r$  の値を  $r=2$  と決定した。かくて任意の平均化時間  $s$  における 100 $\xi$  パーセント濃度  $\chi_{s,\xi}$  は次のようになる。

$$\chi_{s,\xi} = \bar{\chi}_g(s) \exp \{ u_\xi \sigma_g(s) \}$$

ここで、 $\bar{\chi}_g(s)$  は特性(2), (3)によって

$$\bar{\chi}_g(s) = \left\{ 1 - (1-a) \left[ \frac{\ln T/s}{\ln T} \right]^2 \right\} \bar{\chi} - b \left[ \frac{\ln T/s}{\ln T} \right]^2$$

また  $\sigma_g(s)$  は特性(b)および(2-3)から

$$\sigma_g(s) = \sqrt{\ln \left[ \frac{\bar{\chi}}{\bar{\chi}_g(s)} \right]^2}$$

上式は井上・渡辺が強調するように、更に地域的・気候的特性を考慮して精度を挙げなければならないことはいうまでもないが、平均値のみによって第1次近似を与える点では示唆に富むモデルである。

以上が井上・渡辺モデルの概要である。次にアローヘッドチャートに関する庄司・塚谷モデル、Larsen および井上・渡辺モデルの相互の比較を行う。

比較の対象とした実測値は大阪府岬町の半年間の  $\text{SO}_2$  濃度 1 時間値である。このデータを用い、1, 3, 6, 12, 24, 48, 96, 168, 730 時間の各平均化時間による算術移動平均操作を行い、1, 10, 30, 50, 70, 80, 90, 95, 99, 99.9 の各パーセント濃度に相当する濃度を内挿して求めた。この結果に対応し、上記3つのモデルによる理論値を Fig. 5-26, 5-27, 5-28 に示した。3つのモデルは、それぞれ異なった基本形と異なった処理法によるものであり、直接的な比較はできないが、特徴を列挙すると次のようになる。

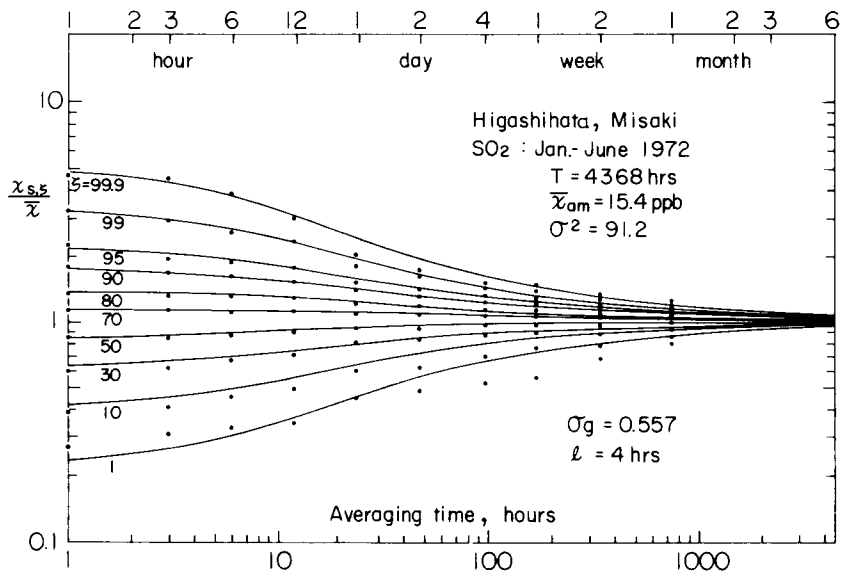


Fig. 5-26 Arrowhead chart proposed by Shoji and Tsukatani ( $\text{SO}_2$ , Misaki, Osaka)

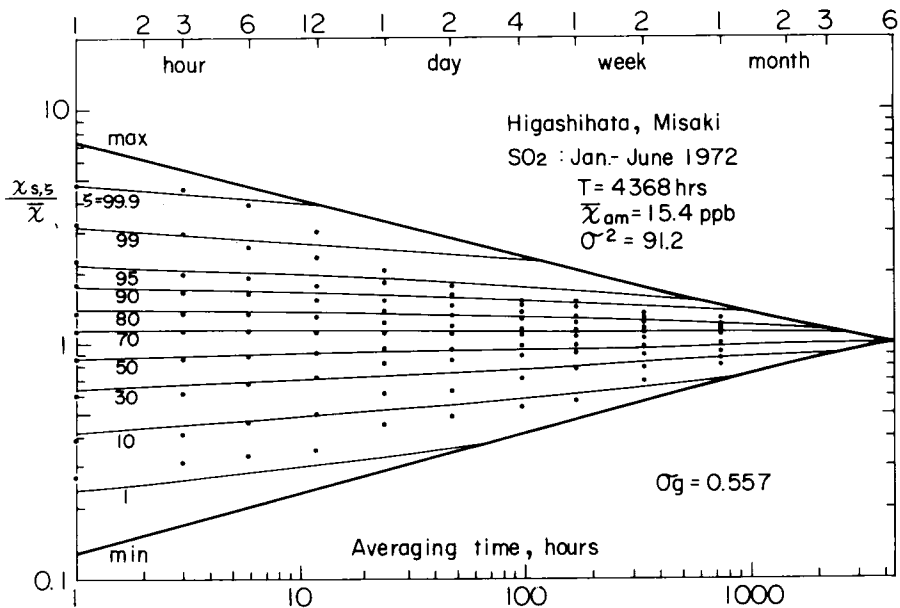


Fig. 5-27 Arrowhead chart proposed by Larsen  
(SO<sub>2</sub>, Misaki, Osaka)

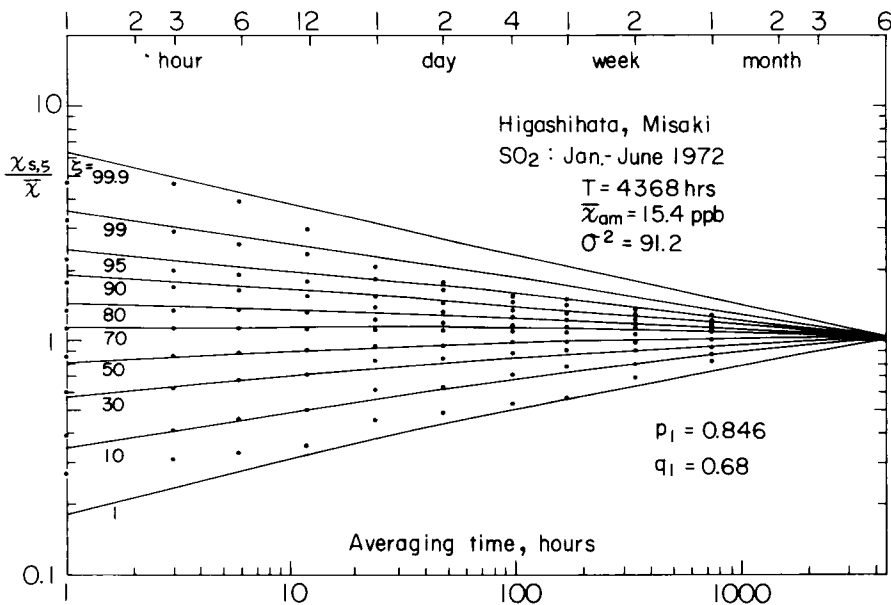


Fig. 5-28 Arrowhead chart proposed by Inoue and Watanabe  
(SO<sub>2</sub>, Misaki, Osaka)

庄司・塚谷モデルの特徴は、第1に平均操作を幾何平均で行っている点が挙げられる。従って対数正規分布は平均化時間の変化によっても保存されている。第2の特徴は、濃度時系列の性質を考慮している点である。そのため、平均化時間が大きい場合にも、適合性は良い。

Larsen モデルの特徴は、4-3に述べた5つの特性に示されているように、理論的根拠よりむしろ経験則に基いたモデルである点である。5つの特性のうち(4)以外の理論的妥当性は説明されておらず、Fig.5-27にみられる実測値とモデルとのズレは上記特性の現実からのズレが反映したものであると考えられる。

井上・渡辺モデルの特徴も、4-3に述べた3つの特性から明らかなように、経験則を基礎にしている点である。そのうちで特性(b)については、詳細な検討がなされており、その根拠は確かであると評価できる。これに対し特性(c)において  $r=2$  とした点は、例数が少なく、このモデルの弱点といえよう。

以上のような各モデルの特徴点を整理したものがTable 5-3である。実測値への適合性は、全ての平均化時間にわたって、庄司・塚谷モデルが優れていることが明らかである。

Table 5-3 Characteristics of each arrowhead chart model

Model	Sampling period	Logarithmic S.D.	Properties of time series	Averaging procedure	Conformity of the model			
					s=1hr	1<s<24hrs	s=24hrs	s>24hrs
LARSEN	Considered	Considered	Not Considered	Arithmetic & discrete	Fair	Fair	OEHC*	OEHC*
SHOJI & TSUKATANI	Not Considered	Considered	Considered	Geometric & moving	Fair	Fair	Fair	Fair
INOUE & WATANABE	Considered	Not Considered	Not Considered	Arithmetic & moving (s≤24hrs) or, discrete (s>24hrs)	OEHC*	Fair	OEHC*	OEHC*

OEHC\*: Overestimate in higher concentration range.

## 第5節 要 約

現象の背後にかくされた規則性を見出すための手法の1つに、その現象の部分的側面に関するモデル(仮説)を作り、そのモデルから演繹される現象の特殊的性質を予測して実際の現象と比較することが行われる。本章は、大気汚染濃度の確率密度分布を対数正規分布で表わし、またその時系列の自己相関係数を減衰項と振動項との和によって表わすことにより大気汚染濃度のモデルを構成し、任意の平均化時間における大気汚染濃度現象の諸性質をモデルから導いて、これと実測された諸性質とを比較対照したものである。

すなわち第1節においては、与えられた平均値と対数標準偏差に対する、任意のパーセント濃度を求める手法を提示した。

第2節においては、平均化時間によって変化する分布形の挙動を定式化した。すなわち大気汚染濃度を定常時系列とみなすと、平均操作を幾何平均によって行うときの対数標準偏差  $\sigma_g$  が重み関数  $G(s)$  によって表現され、 $G(s)$  は自己相関係数の積分関数であることが示された。

以上の2節で提示された大気汚染濃度モデルをもとに、第3節において超過確率、最大濃度、超過回数それぞれについて数学的性質を導き、実測値との比較対照をおこなった。超過確率については、その平均値が変数を変換した正規分布によって示され、その分散はエルミート多項式を使って近似されることが明らかとなった。

最大濃度は特定期間におけるデータの個数とその時系列的性質によって変化する。ここではまず最大値のモードと時系列の平均値との比をデータ個数の関数として求め、ついで平均化時間による最大値の挙動について考察した。

超過回数は、大気汚染濃度が特定濃度を超過して時間とともに上昇し、持続時間の如何にかかわらず再び特定濃度まで下降したときをもって1回と数える。第3節の後半では、超過回数の対数が特定濃度の対数に対して近似的に放物線をなすことが誘導された。このことはこれまでの経験側と一致する結果であった。最大超過回数とそのときの超過濃度についても定式化することができた。

第4節では、大気汚染濃度の時間的統計的挙動に関する情報を最も多く、かつ最も簡便に表現するものとしてアローヘッドチャートに関する新しい理論を示した。アローヘッドチャートは、両対数紙上に描かれたパーセントイル濃度と平均化時間との関係を示す曲線群もしくは直線群の形状を擬して命名されたものである。ここでは第1節、第2節の大気汚染濃度モデルによって求められたアローヘッドチャートの理論値と、実測濃度から直接求めた値との比較を行った。また他の研究者による2つのモデル(Larsenモデル、井上・渡辺モデル)を紹介し、同一のデータに対応する3つのモデルの適合性を論じた。これらのアローヘッドチャートモデルは、何れも簡単な卓上計算機によって求めることができる。その結果、実測値との適合性の点においても、庄司・塚谷モデルの優位性が示された。



## 第6章 大気汚染制御目標の衛生工学的設計

大気汚染制御のための行動をおこす際、主要な検討課題の1つとして大気環境状態の目標を定めることがあげられる。行動の目的が人の健康を保護することであるならば、そのような目標は、大気汚染を説明変数とし健康影響を目的関数とする定量的な関数関係をもとにして定められるべきである。本章は、このような関係を解明するための説明変数を定義することを内容とする。

すなわち第1章では、健康の変動性質について述べ、大気汚染制御における目標基準の種々の概念を明らかにする。

第2節では、先ずdose-response relationと閾値を定義し、閾値を内包するdoseとして「超過測度」の概念を提示する。超過測度は大気汚染濃度の分布形の関数である。第2章および第3章で吟味した対数正規分布とピアソン系分布について、超過測度の定式化を行う。

第3節では、第5章の結果をもとに大気汚染濃度のいくつかの表現方法を述べ、doseと超過確率との関係に触れる。

第4節は応用例である。ここでは、影響をおよぼす大気汚染状態の平均値への換算、環境基準の平均値への換算、および濃度と影響のデータから閾値を求める手法の3例を示す。

第5節は要約である。

### 第1節 概 説

健康の定義は、自然科学の決定範囲をこえて時代の価値観によって決まる。WHO(世界保健機構)憲章ではこのことが「健康とは、肉体的、精神的および社会的に完全に良い状態にあることであり、単に病気または虚弱でないということではない」と述べられ、健康状態が動的なものであることが示唆されている。HATCH(1962)は、労働衛生学の見地からFig.6-1によって、個人における損傷(im-pairment)と能力損失(disability)との関係を概念的に説明している。すなわち、損傷は加齢や環境汚染等の負荷(stress)によっておこるが、初期段階では正常な調節作用が働いたため能力は低下せず、またこのような恒常性(homeostasis)の範囲をこえた場合であっても代償作用(compensation)によって重大な能力損失をうむことなく全体の機能が保たれる。しかしながら代償作用の限界をこえて損傷が増大すれば、急激な能力が発生し人は死を頂点とする病気の段階に至る。健康状態がA点とB点にある個人に対し、大気汚染ばく露等の負荷が同じように与えられれば、A点にいる人は健康悪化には至らず負荷が除かれた後には以前の状態に戻るが、その負荷はB点にいる人にとっては致命的なものになる。大気汚染に対し感受性の高い老人、乳幼児、病人等は、B点もしくはその近傍に位置するものと考えられる。しかしながら、Fig.6-1は動的な健康状態を説明するものではあるが、損傷軸(im-pairment scale)と能力損失軸(disability scale)とは質的な尺度で表わされており、直ちに大気汚染の影響と結びつくものではない。

1963年に開かれたWHOの「大気性状の判定条件と測定方法に関するシンポジウム(The WHO Interregional Symposium on Criteria for Air Quality and Methods of

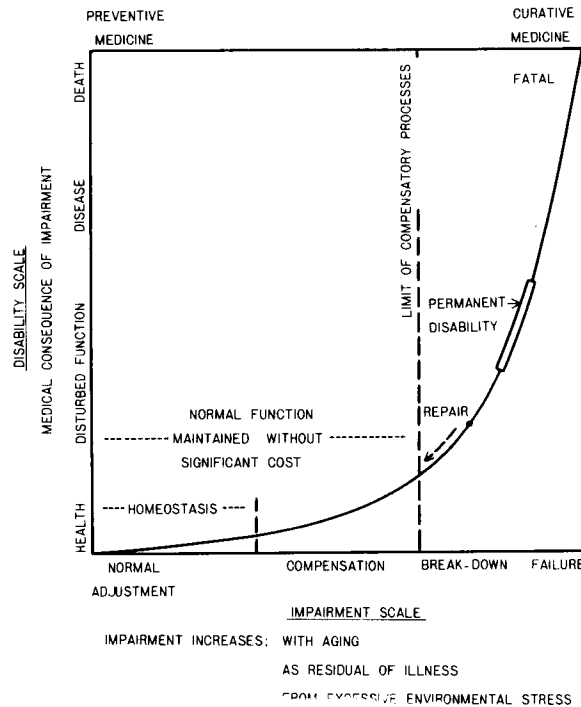


Fig. 6-1 Suggested relationship between impairment and disability by T. HATCH

Considerable movement along the scale of impairment is accompanied by relatively little disability. Basic man-environment relationship is between environmental stress and impairment, the precursor of disease.

Measurement)」は、大気汚染の人体影響について抽象的ではあるが示唆に富む報告をまとめた。庄司(1969)はその概要を次のように紹介した。

1. 大気性状に対する指針をきめる判定条件(Criteria for Guides to Air Quality)は、大気汚染の人体、環境におよぼす影響の性質と大きさを決定できる試験法である。
2. 大気性状に対する指針(Guides to Air Quality)は、大気汚染の人体、動植物および環境全般におよぼす種々の程度の特定影響と関連づけられた、濃度とばく露時間の組み合わせである。
3. 現在の知見によれば、大気性状に対する指針は、濃度、ばく露時間および対応する影響によって4つのカテゴリーで示される。これらの4つのカテゴリーは限界値(limiting value)によって定義されるが、その限界値は、特定汚染物に対しても共存汚染物や物理的要因に関連して予想される影響もしくは影響示標のとり方により変化するものである。また以下に示す4つのカテゴリーは、人の各集団の種々の程度の反応をも考慮するものである。

第1レベル その値またはそれ以下の値ならば、現在の知見では直接または間接の影響(反射又は適応あるいは防御反応の変化を含める)が観察されなかった濃度とばく露時間。

第2レベル その値またはそれ以上の値ならば、感覚器の刺激、植物への害作用、視程減少または環境に対する他の害作用がおこりやすい濃度とばく露時間。

第3レベル その値またはそれ以上の値ならば、重要な生理的機能の障害あるいは慢性疾患、または生命の短縮をもたらす変化がおこりやすい濃度とばく露時間。

第4レベル その値またはそれ以上の値ならば、住民のうち感受性の強い集団に急性疾患あるいは



死亡がおこりやすい濃度とばく露時間。

4. ある種の汚染物に対しては、これら4つのレベル全てに対応した濃度とばく露時間を述べることは不可能であるかもしれない。その理由としては、(a)問題となる物質の上記レベルに対応する影響が未知の場合、(b)あるレベルに対応する影響をおこすばく露が、同時により強い影響をおこす場合、(c)現在の知識では根拠ある定量的評価ができない場合（例えば発ガン性物質の閾レベル）が挙げられる。
5. ある種の汚染物が遺伝的影響をもつ可能性も考慮しなければならないが、この点に関する知見は少なく、このような汚染物は上記カテゴリーには分類できない。
6. WHOは、人間の活動によって生ずる汚染は可能な最大限まで除去しなければならないことを強調している。

以上が1963年のWHOシンポジウムの概要である。WHOのシンポジウム報告書による「Criteria」と「Guides」の用語はやや混乱をまねくものであり、上記1.および2.の英文の正確な語句はそれぞれ「Indexes of air pollution」および「Air quality criteria」であると考えられる。また大気性状に対する指針（用語を正確にすれば「大気性状の判定条件」）の表現方法には、超過確率もしくは濃度分布形概念がなく、上記4つのレベルの限界値を定義するには不十分であった。

健康の定義が時代的背景とともに変化するとともに、大気汚染制御の手法にも技術的、科学および社会的条件によって種々の発展段階がある。WHOシンポジウムで強調された可能な最大限(maximum extent possible)まで大気汚染を制御するための、衛生工学的な基準設定の手法にはSTERN(1968)が整理するように次のような段階がある。

1. 大気質の判定条件の充実。大気質の判定条件は、大気汚染濃度とその影響との関係を示すものであり、影響自体もしくは影響の指標のとり方によって質的に異なった判定条件が作られる。大気汚染物質もしくは大気汚染指標のとり方によっても同様である。
2. 目標基準の設定。目標基準は大気質の判定条件から導かれるもので、人の健康と生活に悪影響を与えないと考えられる大気汚染濃度をもって設定される。この基準は明らかに、「悪影響を与えない」ことの時代的背景および科学的進歩による判断にもとづいて設定されるものである。
3. 規制指針の設定。規制指針も大気質の判定条件をもとに導入されるものであるが、目標基準達成のため当面短期に達成されるべき大気汚染濃度をもって設定される。また、大気質の判定条件の充実したかつて目標基準の設定が不可能の場合、当面達成が必要とされる大気汚染濃度をもって規制指針が設定されることもある。
4. 排出目標基準の設定。この基準は目標基準から導かれ、大気汚染発生源に対する汚染物質削減目標値である。これは将来の発生源を含め、発生源の形態と気象・地形等の条件によって設定される発生源基準である。
5. 排出規制基準の設定。この基準は、規制指針を達成するため、個々の発生源に対し法的規制を伴って設定されるものである。
6. 設計基準の設定。設計基準は、排出規制基準を遵守するために設けられるもので、発生源の立地条件、装置および原燃料等に対して設けられる上限の条件である。
7. 測定基準の整備。上記の諸基準を設定し、環境汚染の程度およびその影響の度合、発生源制御等を把握・実施するためには、統一された測定基準が整備されなければならない。

以上に述べた基準設定の諸段階のうち、本章において扱う項目は1.～5.に関連しており、その範囲は次のとおりである。

すなわち、大気質の判定条件のうち、特定の影響と関連した大気汚染の状態を記述する方法を第2節に

において述べる。また目標基準や規制指針は、前述のWHOの4つのレベルの限界値 (limiting value) の表現方法では不十分であり、更に concreteな方法を第3節において述べる。排出目標基準もしくは排出規制基準は、大気環境と大気汚染発生源との関連を明らかにすることによって定められるべきものである。この関連性を明らかにする手法には、第3章第1節に述べた大気拡散式を使ったシミュレーションがある。既往のシミュレーションによって得られる結果のうち比較的安定な値は長期平均濃度である。このような長期平均値と短時間値との統計的関係については、第3節において述べることとする。

## 第2節 大気汚染濃度のDoseと超過測定

生物の個体もしくはその器官に対し、0から徐々に増大する負荷を加えるとき、0.1の生物反応がおこることがある。更にその負荷を増大させると、生物反応は影響が強まり、反応には質的变化がおきる。鈴木(1976)はこれを量-効果関係 (dose-effect relation) とよんでいる。反応が0から1に変化するときの負荷量を、本来の意味の閾値 (threshold value) という。反応によっては、対象とする負荷の量が0であっても反応が認められる場合がある。これを0反応 (zero response) という。

一方閾値は、庄司(1966)が述べるように、個体や器官の動的状態によって変化し、その結果集団における個体の閾値には時間的にも変動する分布が存在する。個体の集団に対し0から徐々に増大する負荷を加えるとき、対象とする特定の生物反応を呈する個体の割合が増大する。鈴木(1976)はこれを量-反応関係 (dose-response relation) とよんでいる。量-反応関係における反応は、単に生物反応にとどまらず、人間の精神的不快反応や生活上の不便反応をも包含することができる。個体の閾値の最下限が0である場合や個体に0反応がある場合には、集団に対する負荷が0であっても特定の生物反応や精神的反応を呈する個体の割合は正の値をとる。これを集団における0反応率 (zero response rate) とよぶことができる。量-反応関係において、負荷量を増大させたとき、生物反応や精神的反応を呈する個体の割合に0反応率からの急増点、すなわち立ち上り点が認められる場合のその負荷量を、集団における閾値と定義することができる。山本ら(1977)は、このような集団のもつ閾値を個体のもつ閾値と区別して「安全基準としての閾値」とよんでいる。以下に述べる閾値とは、集団におけるこのような閾値のことを指し、本来の意味の閾値とは異なるものである。

大気汚染の特定影響に関し集団における閾値が存在するとき、閾値である大気汚染濃度を $x_c$ とし、濃度の確率密度関数を $f(x)$ とすれば、ばくろ期間 $0 \leq t \leq T$ におけるdose  $D$ は $T$ が十分に大きいとき次のように定義できる。ここで、 $x(t) \leq x_c$ のとき $x(t) - x_c = 0$ である。

$$D = \int_0^T \{ x(t) - x_c \} dt \quad (6-1)$$

$$= T \int_{x_c}^{\infty} (x - x_c) f(x) dx \quad (6-1')$$

閾値が0であるとみなせる場合には上式から明らかなように、dose  $D$ は平均濃度とばくろ期間との積となる。

$$D = \bar{x} T$$

量-効果関係は、doseの変域においては、例えばBUECHLEY(1971)がS字型曲線を提示しているよ

うに、非線型であると予見することが合理的であろう。

そこで試みに、大気汚染の評価関数として濃度のべき乗に比例する次のような量を定義する。

$$D_k = \int_{x_c}^{\infty} (x - x_c)^k f(x) dx$$

$D_k$  は CRAMER and LEADBETTER (1967) によって  $D_k$  - exceedance measures として導入された概念であり、これを  $k$  次の超過測度とよぶことにする。明らかに 0 次の超過測度は第 5 章第 3 節で述べた濃度の  $x_c$  に対する超過確率であり、 $T \cdot D_1$  は上に述べた dose である。

### 2-1 対数正規分布のDoseと超過測度

確率密度関数が対数正規分布である場合、 $k$  次の超過測度は  $k$  が 0 もしくは正の整数であれば、 $(x - x_c)^k$  の 2 項展開によって次のようになる。

$$\begin{aligned} D_k &= \sum_{i=0}^k {}_k C_i (-x_c)^{k-i} \bar{x}_g^i \exp\left(-\frac{i^2 \sigma_g^2}{2}\right) \left\{ 1 - \Phi\left(\frac{\ln x_c - \ln \bar{x}_g - i \sigma_g^2}{\sigma_g}\right) \right\} \\ &= \sum_{i=0}^k {}_k C_i \bar{x}^k (-\delta_c)^{k-i} \exp\left\{\frac{i(i-1)}{2} \sigma_g^2\right\} \left\{ 1 - \Phi\left(\frac{\ln \delta_c - (i-1/2) \sigma_g^2}{\sigma_g}\right) \right\} \end{aligned} \quad (6-3)$$

ここで、 $\delta_c = x_c / \bar{x}$ 、 $\Phi$  は正規分布の下側確率である。

Fig. 6-2 は、閾値濃度を  $x_c = 10$  のとり平均濃度を  $1 \leq \bar{x} \leq 100$  の範囲で変化させたときの、3 次までの超過測度の例である。

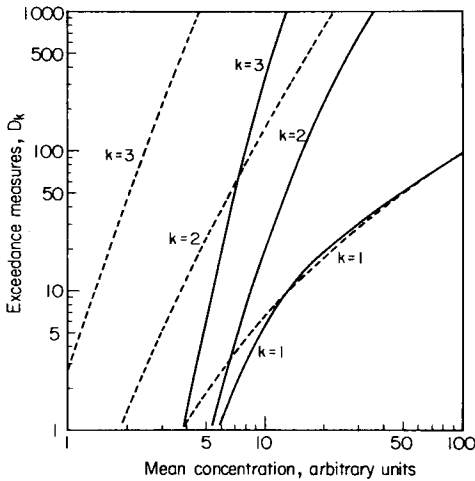


Fig. 6-2 Exceedance measures of dose as a function of mean concentration where threshold value is supposed to be 10 units. The logarithmic S.D. of solid and broken lines are 0.5 and 1.0 respectively.

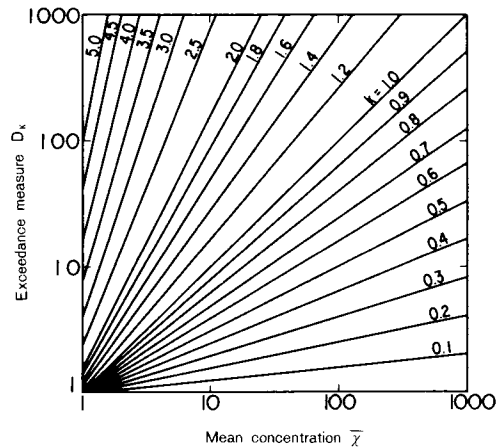


Fig. 6-3 Exceedance measures of dose as a function of mean concentration where threshold value is zero and logarithmic S.D. is 1.0

また  $x_c = 0$  のとき、 $D_k$  は (2-2) に示すような原点まわりの  $k$  次モーメントに一致する。よって実数  $k$  に対し、 $D_k$  は次のように示される。

$$D_k = \bar{x}_g^k \exp \left\{ \frac{k^2}{2} \sigma_g^2 \right\}$$

$$= \bar{x}_g^k \exp \left\{ \frac{k(k-1)}{2} \sigma_g^2 \right\}$$

Fig. 6-3 は  $x_c = 0$  のときの測度を 0.1 から 5 までの  $k$  について求めたものである。

濃度の時間積分値である dose  $D$  は、(6-3) より次のような式形となる。

$$D = \bar{x}_g \exp \left( \frac{\sigma_g^2}{2} \right) \left\{ 1 - \Phi \left( \frac{\ln x_c - \ln \bar{x}_g - \sigma_g^2}{\sigma_g} \right) \right\} T$$

$$- x_c \left\{ 1 - \Phi \left( \frac{\ln x_c - \ln \bar{x}_g}{\sigma_g} \right) \right\} T$$

(6-4)

上式を閾値が 0 のときの dose で除して無次元 dose  $D^*$  を導入すれば、 $D^*$  は次のようになる。

$$D^* = \left\{ 1 - \Phi \left( \frac{\ln \delta_c - \sigma_g^2/2}{\sigma_g} \right) \right\}$$

$$- \delta_c \left\{ 1 - \Phi \left( \frac{\ln \delta_c + \sigma_g^2/2}{\sigma_g} \right) \right\}$$

(6-5)

(6-5) を  $\sigma_g$  をパラメータとして図示すると Fig. 6-4 のようになる。閾値  $x_c$  が平均濃度  $\bar{x}$  の 3 割以下であれば、 $\sigma_g$  の影響は僅小であることがわかる。

閾値  $x_c$ 、したがって dose  $D$  は平均化時間の関数である。Fig. 6-5 は大阪府岬町の  $SO_2$  濃度の 1 時間平均値と 24 時間平均値について、 $x_c$  を 0 ppb から 100 ppb まで変化させつつ (6-1) によって求めた実測 dose と、(6-4) に  $\bar{x}$  と  $\sigma_g$  を代入して求めた理論 dose とを比較したものである。これらの図は、(6-4) の妥当性を示すとともに、対数標準偏差  $\sigma_g$  の dose に対する影響の大きさを示している。

次に平均値と dose との関係を図 6-6

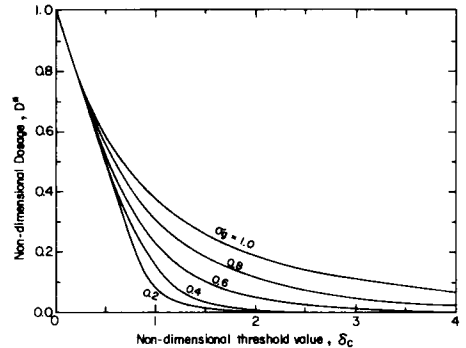


Fig. 6-4 Non-dimensional dose versus non-dimensional threshold for various logarithmic S.D.

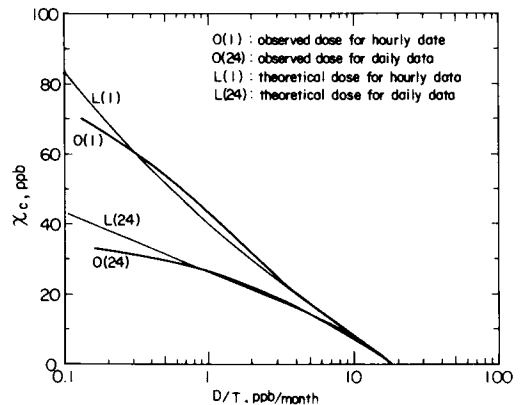


Fig. 6-5-a Comparison of theoretical dose from log-normal distribution with observed ones for various level of threshold value (Misaki, Osaka)

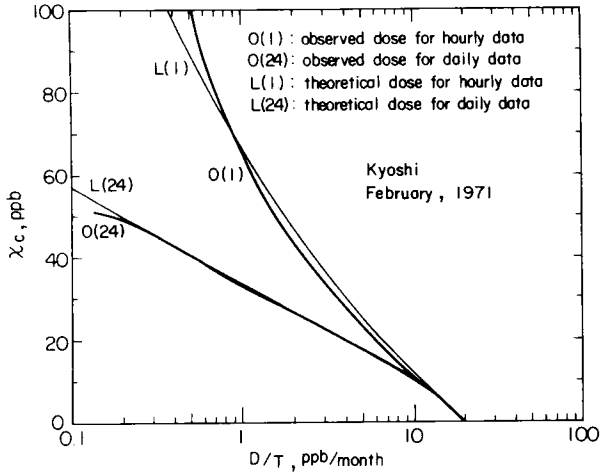


Fig. 6-5-b Comparison of theoretical dose from log-normal distribution with observed ones for various levels of threshold value (Kyoshi, February, 1971)

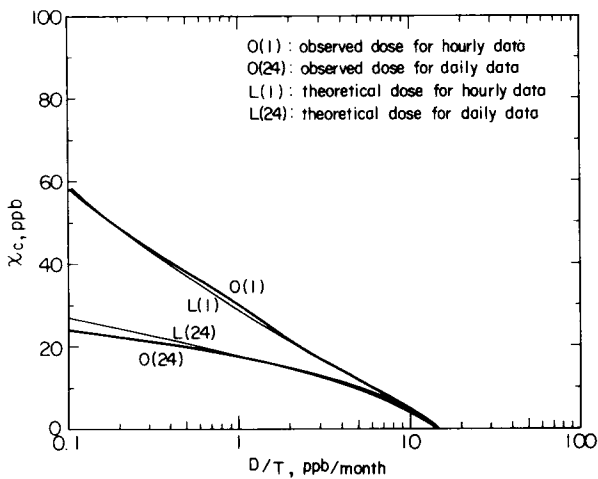


Fig. 6-5-c Comparison of theoretical dose from log-normal distribution with observed ones for various levels of threshold value (Misaki, Osaka)

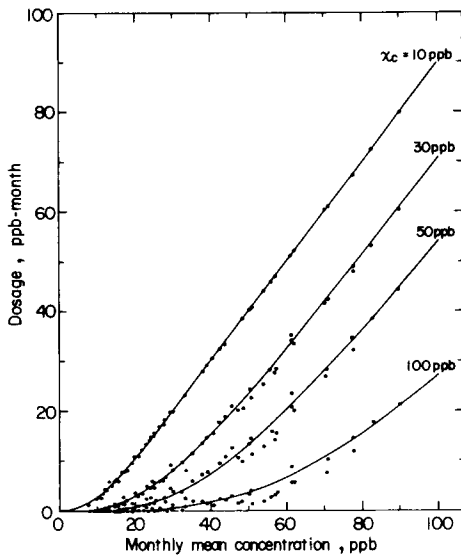


Fig. 6-6 Relations between dose and mean concentration for various threshold levels (Misaki and Sakai, Osaka) Curves are derived from eq. (6-5) in which logarithmic S.D. is supposed to be 0.686.

のように求めた。これは、大阪府堺市と岬町のSO<sub>2</sub>濃度の1時間値に対し、 $\chi_c = 10, 30, 50, 100$  ppbの4ケースについて1カ月毎のdoseを(6-1)によって求めて実測値をプロットし、ついで $C_V^2 = 0.6$  ( $\sigma_g = 0.686$ )の場合のdose Dを(6-5)によって計算したものである。

## 2-2 ピアソン系分布のDoseと超過測度

第3章で述べたように、大気汚染濃度分布は対数正規分布のほかピアソン系Ⅵ型分布やⅠ型分布によって近似される。

ピアソン系Ⅵ型分布(第2ベータ分布)のk次の超過測度は、kが0もしくは正の整数のとき次のようになる。

$$D_k = \sum_{i=1}^k {}_k C_i (-\chi_c)^{k-i} \int_{\chi_c}^{\infty} x^i f(x) dx$$

右辺の積分は不完全ベータ関数比  $I_z(\alpha, \beta)$  によって次のように整理される。ここで  $f(x)$  の式形は Table 2-7 に示すとおりである。不完全ベータ関数比については後述する。

$$\begin{aligned} \int_{\chi_c}^{\infty} x^i f(x) dx &= \int_0^{\infty} x^i f(x) dx - \int_0^{\chi_c} x^i f(x) dx \\ &= a^i \frac{B(\alpha + i, 1 - \alpha - \beta - i)}{B(\alpha, 1 - \alpha - \beta)} \{1 - I_z(\alpha + i, 1 - \alpha - \beta - i)\}. \end{aligned}$$

ここで、 $z = \chi_c / (a + \chi_c)$  である。

よって、

$$D_k = \sum_{i=1}^k {}_k C_i (-\chi_c)^{k-i} a^i \frac{B(\alpha + i, 1 - \alpha - \beta - i)}{B(\alpha, 1 - \alpha - \beta)} \{1 - I_z(\alpha + i, 1 - \alpha - \beta - i)\}.$$

なお、 $\chi_c = 0$  のときの  $D_k$  は、原点まわりのk次モーメント  $\mu_k'$  に一致する。

ばくろ期間 T における dose D は、上式から次のようになる。

$$D = \bar{x} T \{1 - I_z(\alpha + 1, -\alpha - \beta)\} - \chi_c T \{1 - I_z(\alpha, 1 - \alpha - \beta)\} \quad (6-6)$$

無次元 dose  $D^*$  は

$$D^* = \{1 - I_z(\alpha + 1, -\alpha - \beta)\} - \delta_c \{1 - I_z(\alpha, 1 - \alpha - \beta)\}. \quad (6-7)$$

ピアソン系Ⅰ型分布(ベータ分布)に関するk次の超過測度は、kが0もしくは正の整数のとき次のように定式化される。ここで  $f(x)$  の式形は Table 2-7 に示す通りである。

$$\int_{x_c}^a x^i f(x) dx = \int_0^a x^i f(x) dx - \int_0^{x_c} x^i f(x) dx$$

$$= a^i \frac{B(\alpha+i, \beta)}{B(\alpha, \beta)} \{1 - I_z(\alpha+i, \beta)\}, \quad z = \frac{x_c}{a},$$

であるから

$$D_k = \sum_{i=0}^k {}_k C_i (-x_c)^{k-i} a^i \frac{B(\alpha+i, \beta)}{B(\alpha, \beta)} \{1 - I_z(\alpha+i, \beta)\}.$$

また  $x_c = 0$  のときの  $D_k$  は、原点まわりの  $k$  次モーメント  $\mu'_k$  に一致する。

以上の結果から、ばくろ期間  $T$  におけるピアソン系 I 型分布の dose  $D$ 、および無次元 dose  $D^*$  はそれぞれ次のように表わされる。

$$D = \bar{x} T \{1 - I_z(\alpha+1, \beta)\} - x_c T \{1 - I_z(\alpha, \beta)\} \quad (6-8)$$

$$D^* = \{1 - I_z(\alpha+1, \beta)\} - \delta_c \{1 - I_z(\alpha, \beta)\} \quad (6-9)$$

対数正規分布とピアソン系 I 型および II 型分布との比較を行うと次のとおりである。対数正規分布による無次元 dose を  $D_L^*$ 、ピアソン系分布による無次元 dose を  $D_P^*$  とし、両者の dose の差の  $D_L^*$  に対する比を誤差  $E_r$  とする。すなわち、

$$E_r = \frac{D_P^* - D_L^*}{D_L^*} \times 100 (\%)$$

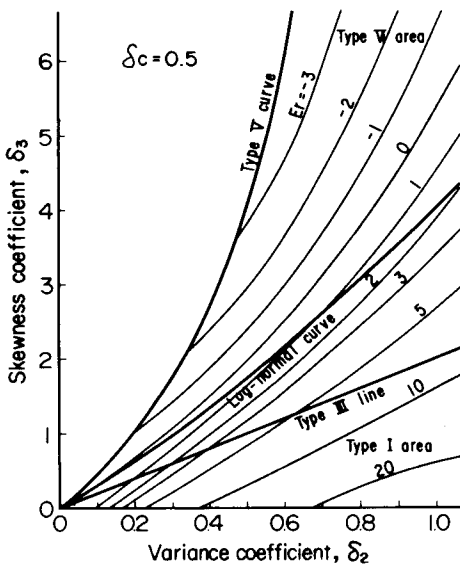


Fig. 6-7 Evaluation of relative error of Pearson to log-normal distributions by the dose analysis where  $\delta_c = 0.5$

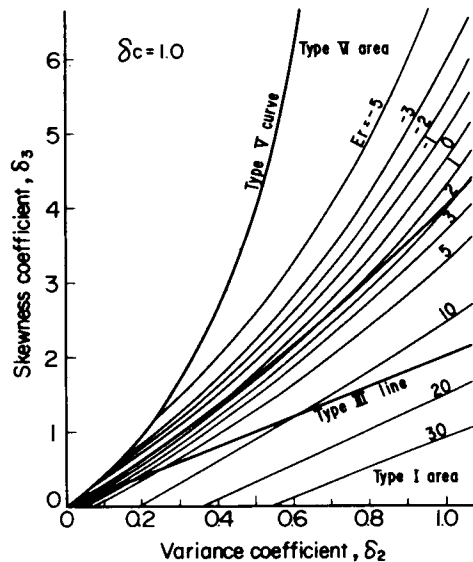


Fig. 6-8 Evaluation of relative error of Pearson to log-normal distributions by the dose analysis where  $\delta_c = 1.0$

このような誤差を定義して、 $\delta_c = x_c / x$  を一定にした  $E_r$  を  $\delta_2 - \delta_3$  判定図上に求めると Figs. 6-7, 6-8 となる。これは各  $\delta_2$  に対し、 $\delta_3$  を変化させて  $E_r$  を求め、等誤差線を求めたものである。これらの図は第 3 章における Figs. 3-26, 3-27 に対応して対数正規分布の適用範囲を示しているものである。Figs. 3-26, 3-27 ではパーセントイル濃度の誤差が評価されたのに対し、Figs. 6-6, 6-7 では閾値以上の分布形全体の誤差が評価されており、大気汚染影響を考慮した評価法であるといえる。

次に  $\delta_2$ 、したがって対数標準偏差もしくは変動係数を固定し、dose の誤差  $E_r$  に対する閾値と歪み係数  $\delta_3$  の影響を示すと Figs. 6-9, 6-10, 6-11 のようになる。これらの誤差評価図は、大気汚染濃度分布がピアソン系である場合、これを対数正規分布によって近似するときの dose の誤差を示すものであって、 $E_r > 0$  のとき対数正規分布による近似は実際の dose を過少評価することになる。

以上に述べた誤差評価をもとに、実測された大気汚染濃度分布についてピアソン系分布と対数正規分布との適合度の比較を行った。その結果を Fig. 6-12 に示した。使用した実測濃度は Fig. 3-25 に使用したものと同じく、大阪府堺市および岬町の  $SO_2$  1 時間値の 1 カ月分である。適合度

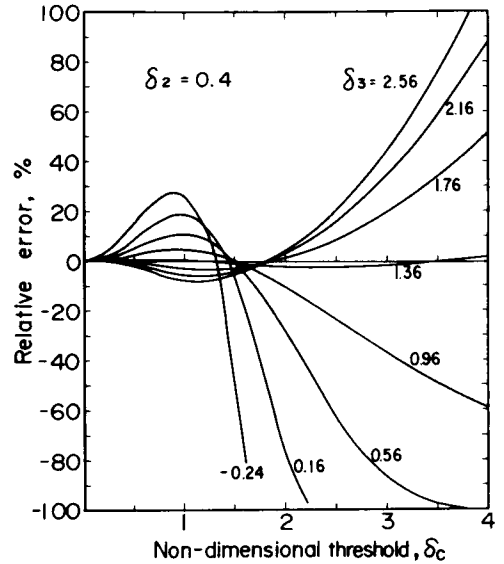


Fig. 6-9 Relative error of Pearson to log-normal distributions for various values of  $\delta_3$  in which  $\delta_2 = 0.4$

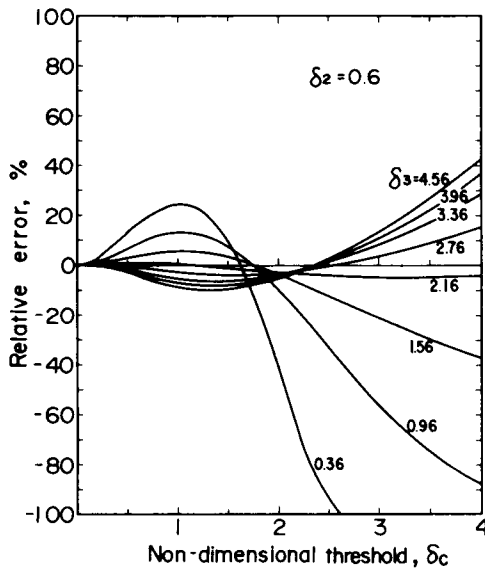


Fig. 6-10 Relative error of Pearson to log-normal distributions for various values of  $\delta_3$  in which  $\delta_2 = 0.6$

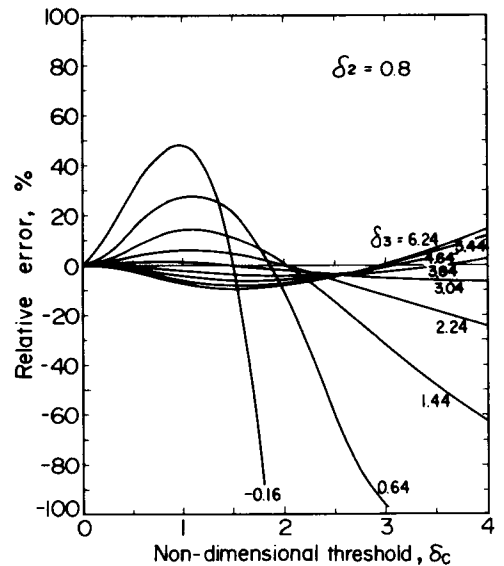


Fig. 6-11 Relative error of Pearson to log-normal distributions for various values of  $\delta_3$  in which  $\delta_2 = 0.8$



の比較は第3章第4節に述べたLYNN(1974)の方法により、 $x_c$ を10(10)110 ppbと11段階に変化させて対数正規分布のdoseおよびピアソン系分布のdoseと実測されたdoseとの差の絶対値総和を求めて比較したものである。適合性を示す記号もFig.3-25と同じもので、岬町のうちピアソン系分布のほうが適合度が良いものを○、①で対数正規分布のほうが適合度が良いものを●、●で示し、堺市については●および①で示した。

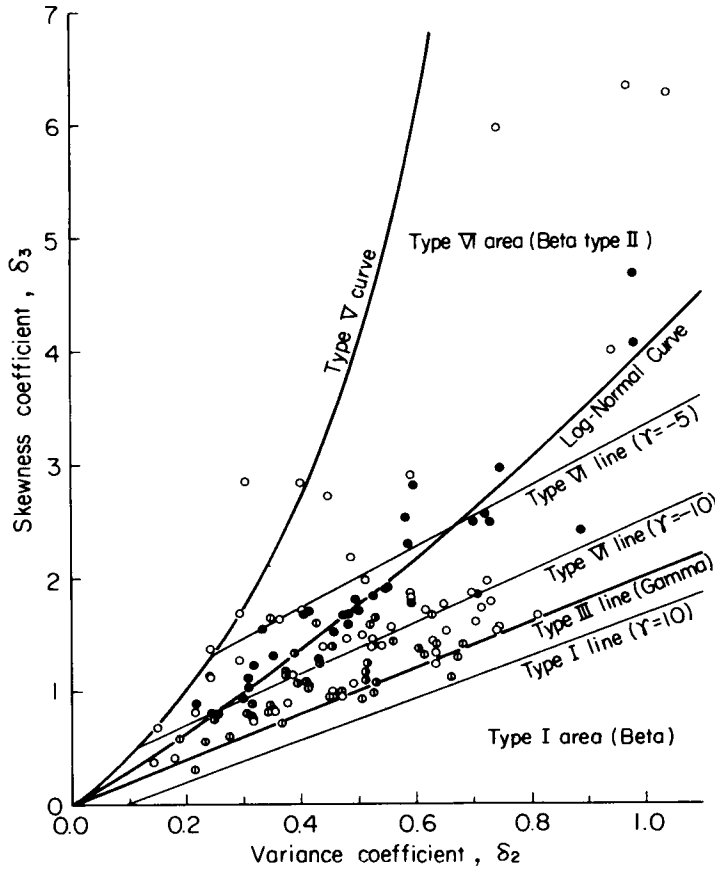


Fig.6-12 Classification of distribution on  $\delta_2$ - $\delta_3$  diagram by the dose analysis

○ and ① indicate Pearson distribution is better to approximate while ● and ◐ indicate log-normal is better, at Misaki and Sakai respectively.

本節で用いた関数のうち、不完全ベータ関数比 (imcomplete beta function ratio)  $I_x(\alpha, \beta)$  の定義と計算法は次のとおりである。

$$I_x(\alpha, \beta) = \frac{B_x(\alpha, \beta)}{B(\alpha, \beta)}$$

ここで、 $B(\alpha, \beta)$  はFig.2-7に示すベータ関数であり、 $B_x(\alpha, \beta)$  は次のような不完全ベータ関数である。

$$B_x(\alpha, \beta) = \int_0^x t^{\alpha-1} (1-t)^{\beta-1} dt \quad (0 < x < 1)$$

山内(1972)はこれを次のように級数表示した。

$$B_x(\alpha, \beta) = x^\alpha (1-x)^\beta \left\{ 1 + \sum_{n=0}^{\infty} \prod_{i=0}^n \left( \frac{\alpha + \beta + i}{\alpha + 1 + i} x \right) \right\} \quad (6-10)$$

$I_x(\alpha, \beta)$ の計算は、上式による $B_x(\alpha, \beta)$ を $\max\{n\} = 60$ にとって求め、 $B(\alpha, \beta)$ を雨宮・田中(1969)の方法によって行った。

不完全ベータ関数比がピアソン系I型および同VI型分布の分布関数を与えることは、定義によって明らかである。

### 第3節 大気汚染濃度の等価表示と超過確率

#### 3-1 大気汚染濃度の等価表示と超過確率

大気汚染の環境基準は、集団における閾値の存在が認められる場合と認められない場合とでは、その表現方法が異なり、したがって大気汚染制御のあり方にも差異があると考えられる。閾値の存在が認められない場合、もしくはその閾値が低濃度であって實際上無視される場合は、大気汚染濃度レベルの高低に拘らず、大気汚染濃度と出現頻度の各組み合わせが総体として集団に影響を及ぼしていると考えられる。このことは換言すれば、集団に対する大気汚染の負荷量が、大気汚染濃度時系列の時間積分値であることと同一である。但しここでは、回復の作用は考慮していない。

このような場合、大気汚染の負荷は、平均化時間 $s$ に対応する濃度 $x$ の非超過確率 $p$ (もしくは超過確率 $\eta$ )をもって表現でき、したがってこれらの組み合わせによって大気汚染濃度の等価表示ができる。

$\{s, x, p(\text{もしくは}\eta)\}$ の3量の1つの組み合わせに対し、これと等価な他の組み合わせ $\{s', x', p'\}$ は次のような場合に分けられ、それぞれの関係式は以下のようになる。

(1)  $s = s'$  の場合

$$\frac{x}{x'} = \exp \left[ \{ \Phi^{-1}(p) - \Phi^{-1}(p') \} \sigma_g(s) \right] \quad (6-11)$$

(2)  $p = p'$  の場合

$$\frac{x}{x'} = \exp \left[ \Phi^{-1}(p) \left\{ \sqrt{\frac{G(s)}{G(s')}} - 1 \right\} \right] \quad (6-12)$$

(3)  $x = x'$  の場合

$$\frac{\Phi^{-1}(p)}{\Phi^{-1}(p')} = \frac{\sigma_g(s')}{\sigma_g(s)} = \sqrt{\frac{G(s')}{G(s)}} \quad (6-13)$$

ここで $\Phi^{-1}(p)$ は正規分布のパーセント点であり(5-9)~(5-11)によって近似値が求められる。また $G(s)$ は(5-15)で定義され、その式形は(5-17), (5-19)等に示されている。Fig.6-13は、超過確率を一定にした場合の濃度と平均化時間との関係を、 $s = 1 \text{ hr}$ ,  $s' = 1 \sim 1000 \text{ hrs}$  について示

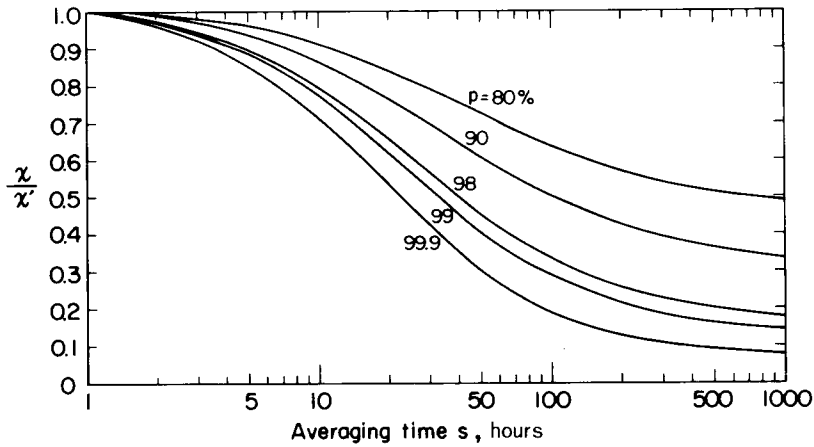


Fig. 6-13 Concentration ratio of unit averaging time to other averaging time for constant percentile value  
 $G(s)$  is calculated from eq. (5-17) where  $a=0$  and  $\ell = 12$  hrs.

したものである。(6-12)の計算を行うにあたって、 $G(s)$ の式形は(5-17)を使い、 $a = 0$ 、 $\ell = 12$  hrsとした。

平均化時間  $s$  の大気汚染濃度時系列  $x_s(t)$  が一定濃度  $x_0$  を超過する確率  $\eta (= 1-p)$  とするとき、時系列  $x_s(t)$  の平均値  $\bar{x}$  と超過確率  $\eta$  との間には(5-23)、(5-24)もしくは(6-3)によって次のような関係がある。

$$\bar{x} = x_0 \exp \left\{ \frac{\sigma_g^2(s)}{2} - \Phi^{-1}(1-\eta) \sigma_g(s) \right\} \quad (6-14)$$

もしくは、

$$\eta = 1 - \Phi \left\{ \frac{\ln(x_0/\bar{x}) + \sigma_g^2(s)/2}{\sigma_g(s)} \right\} \quad (6-15)$$

ここで、 $\sigma_g(s)$  は対数標準偏差、 $\Phi$  は正規分布の下側確率である。

(6-15) から明らかなように、一定濃度と平均濃度との比は対数正規確率紙上で直線関係にある。Fig. 6-14 は、対数標準偏差をパラメータとして(6-15)を図示したものである。また Figs. 6-15, 6-16, 6-17 は、 $\text{SO}_2$  濃度について  $s = 1$  hr,  $x_0 = 0.1$  ppm および  $s = 24$  hrs,  $x_0 = 0.04$  ppm,  $\text{NO}_2$  濃度について  $s = 24$  hrs,  $x_0 = 0.02$  ppm を採用し、年間平均値と超過確率との関係を示したものである。データは大阪府下における実測値であり、曲線は(6-15)によるものである。

DRUFUCA and GIUGLIANO (1977) は Milano 市の半年間 ( $T_0 = 4380$  hrs) の  $\text{SO}_2$  濃度について、Fig. 6-18 のように一定濃度  $x_0$  を 6 段階にとって各時系列の超過時間を求めた。その結果をもとに、超過時間  $T$  の近似式が次のように提案されている。

$$T = 10,000 \exp \{ -k(x_0 + 0.1) \}$$

$$k = 17.4 \exp(-4.86\bar{x})$$

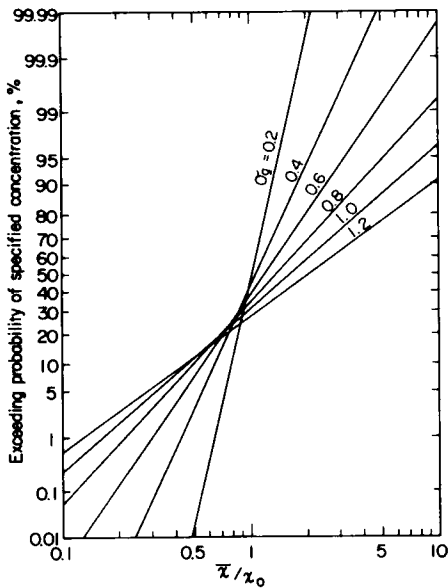


Fig. 6-14 Relationship between the ratio of mean to specified concentration and the exceeding probability of specified concentration

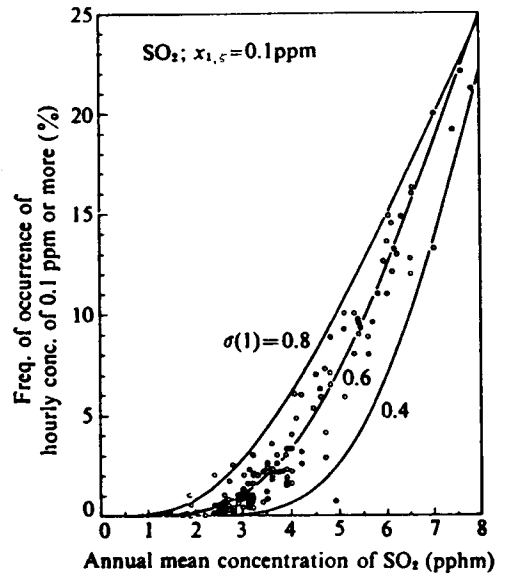


Fig. 6-15 Exceeding probability and annual mean concentration for hourly  $\text{SO}_2$ . Data are from April 1969 to March 1973 in Osaka.

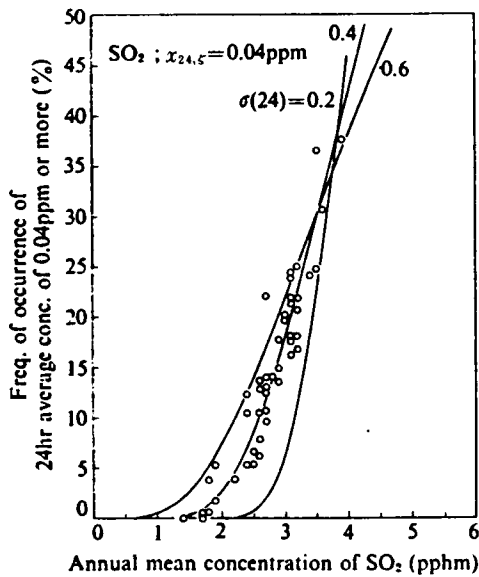


Fig. 6-16 Exceeding probability and annual mean concentration for daily  $\text{SO}_2$ . Data are from April 1972 to March 1974 in Osaka.

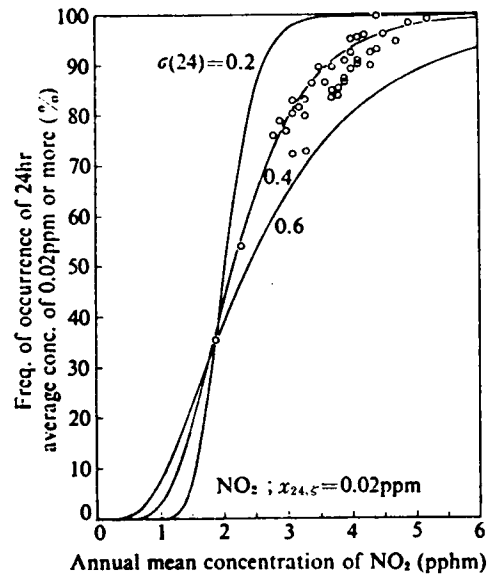


Fig. 6-17 Exceeding probability and annual mean concentration for daily  $\text{NO}_2$ . Data are from April 1972 to March 1974 in Osaka.

ここで $\chi_0$ ,  $\chi$ の単位は ppmである。このような近似式は大気汚染制御の緊急性からみれば、その形式の簡便さのゆえに評価されてしかるべきであるが、 $\chi_0 < 0.1$  ppmの範囲では実測値からはずれる難点がある。Drufuca and Giuglianoのこのような表現方法は、(6-15)によって次のように整理することができる。

$$T = T_0 \{ 1 - \Phi(y) \}$$

$$y = (\ln \chi_0 - \ln \bar{\chi} + \sigma_g^2 / 2) / \sigma_g$$

Fig.6-19はこのようにして求めたもので、 $\sigma_g$ の値には試みに0.7を採用している。各曲線は、 $\chi_0 = 0$  ppmで $T = 4380$  hrsに収束しており、Drufuca and Giuglianoの式は $\chi_0$ の変域が小さければ妥当性をもつことが認められる。

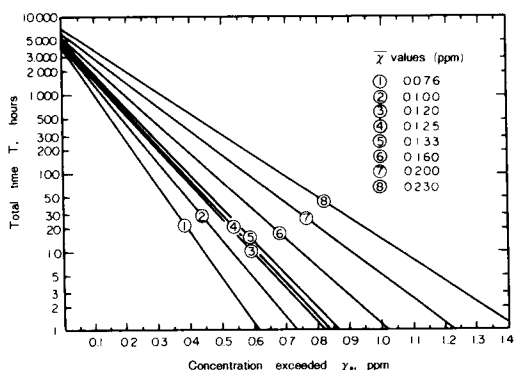


Fig. 6-18 Total time T that the instantaneous concentration  $\chi_0$  is exceeded for each of the time series (from Drufuca and Giugliano)

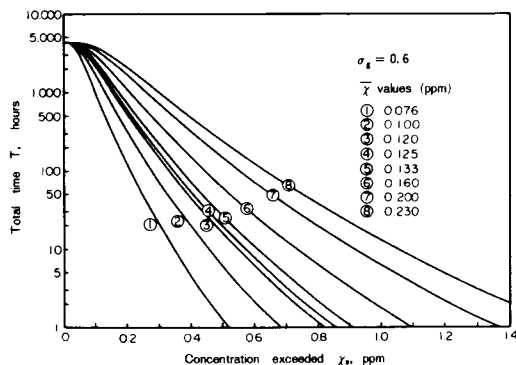


Fig. 6-19 Total time T that the instantaneous concentration  $\chi_0$  is exceeded for each of the time series Logarithmic S.D. for each time series is assumed to be constant.

### 3-2 大気汚染濃度のDoseと超過確率

(6-11)~(6-13)のような大気汚染濃度の等価表示は、大気汚染のdoseが濃度時系列の時間積分値であることを前提としたものである。これに対し、大気汚染濃度分に集団に対する閾値が存在する場合は、これらの式を直接用いることはできない。ここでは大気汚染濃度分布が対数正規分布であることを前提とし、閾値の存在が認められる場合のdoseと超過確率との関係について述べる。

大気汚染濃度が対数正規分布をなすとき、無次元dose  $D^*$  と閾値  $\chi_c$  に対する非超過確率  $p$  ( $p = 1 - \eta$ ,  $\eta$ : 超過確率) との関係は、(6-5)および(6-15)から次式によって示される。

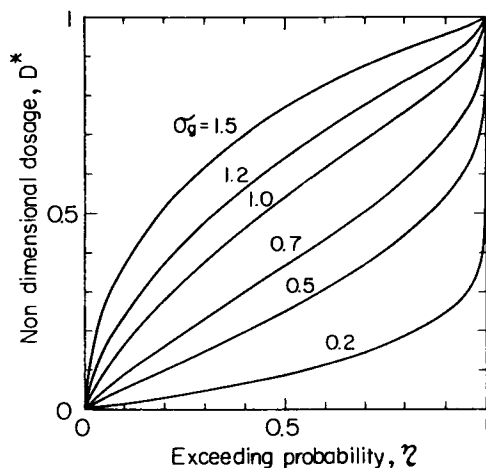


Fig. 6-20 Relationship between non-dimensional dose and exceeding probability.

$$D^* = 1 - \Phi \{ \Phi^{-1}(p) - \sigma_g \} - (1-p) \exp \{ \sigma_g \Phi^{-1}(p) - \sigma_g^2 / 2 \} \quad (6-16)$$

$D^*$  および  $p, \eta$  の変域はそれぞれ  $0 \sim 1$  である。明らかに  $\lim p = 0$  ( $\lim \eta = 1$ ) のとき  $\lim D^* = 1$ ,  $\lim p = 1$  ( $\lim \eta = 0$ ) のとき  $\lim D^* = 0$  である。

Fig.6-20 は (6-16) の関係を  $\sigma_g = 0.2, 0.5, 0.7, 1.0$  について図示したものである。 $\sigma_g$  の値が小さいとき、超過確率が 1 に近づくとき (閾値が小さくなるか、平均値が大きくなる場合) dose の値が急激に増大することが認められる。Fig.6-21 は、

非超過確率を正規確率 scale にとって無次元 dose  $D^*$  の関数として示したものである。パラメータは分散係数  $\delta_2$  ( $\delta_2 = \exp(\sigma_g^2) - 1$ ) である。

大気汚染の影響に関して集団に対する閾値が設定されれば、閾値をこえる濃度の dose  $D$  の上限の値を定めることにより大気汚染濃度の閾値  $x_c$  に対する非超過確率  $p$  ( $p = 1 - \eta$ ) が定まる。このような基準は、(6-11)~(6-13) によって他の値による等価表現、および (6-14) によって年間平均値として表現することができる。

大阪府岬町と堺市の  $SO_2$  1 時間値について、閾値を連続的に変化させてその dose と非超過確率を求めた結果を Fig.6-22 に示す。また Fig.6-23 は大阪府堺市の  $SO_2$  1 時間値について、 $x_c = 50$  ppb と設定して dose と非超過確率を求めたものである。

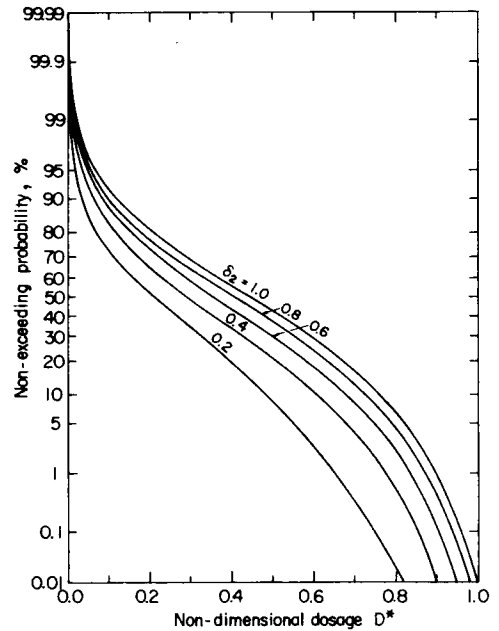


Fig. 6-21 Relationship between non-dimensional dose and non-exceeding probability on the normal probability paper

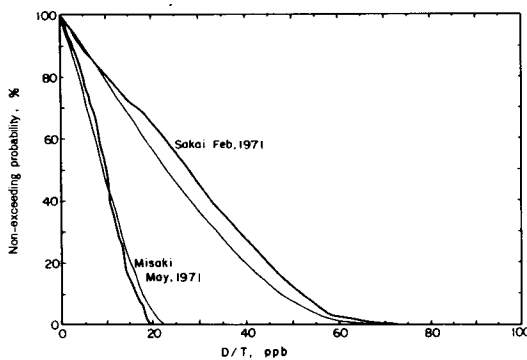


Fig. 6-22 Non-exceeding probability and dose (Sakai and Misaki, Osaka)

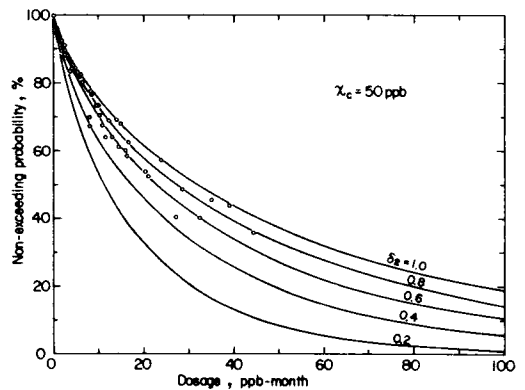


Fig. 6-23 Relationship between non-exceeding probability and dose whose threshold value is supposed to be 50 ppb (Sakai, Osaka)

## 第4節 環境基準に関するいくつかの応用例

本節では、わが国で行政的に定められている大気汚染に係る環境基準に関連していくつかの応用例を述べる。わが国の環境基準は、第1節に述べた衛生工学的基準設定の諸段階のうち「目標基準」に相当するものであるが、その行政的運用面においては一部「規制指針」としての性格を帯びている。また影響の指標としては、NO<sub>2</sub>、SO<sub>2</sub>などの環境基準は地域人口集団における慢性的呼吸器疾患有症率を有力な指標として採用している。このため庄司(1978)は、これらの環境基準はWHOのカテゴリーでは第3レベルに相当すると評価している。大気汚染の判定条件(air quality criteria)が十分に整備されていない現状では、わが国の環境基準が第3レベルより高いレベル(第4レベルと第3レベルの間)に位置している可能性もあり、逆に環境基準の設定過程から明らかなようにSO<sub>2</sub>やNO<sub>2</sub>などは2倍程度の安全率が見込まれているために第2レベルと第3レベルの間位置している可能性もあり、この点はなお議論の残るところである。汚染物質毎に設定されている現行の環境基準は、SO<sub>2</sub>およびNO<sub>2</sub>のように大気汚染の総合指標として示されている場合と、COのように特定物質の影響を考慮して示されている場合とがあることはいうまでもない。

### 4-1 SO<sub>2</sub>に関する判定条件

中央公害対策審議会大気部会のいおう酸化物に係る環境基準専門委員会は、1973年3月にSO<sub>2</sub>の環境基準について日平均値0.04 ppm, 1時間平均値0.1 ppmなる条件を報告した。この報告の中で三重県四日市市の疫学調査結果は次のように述べられている。

a) 時間的濃度変化の大きい四日市市においては、年間を通じて日最高値(1時間値)の平均値が0.1 ppmで、また1時間値の24時間平均値の10%が0.07 ppmを越えると、気道炎症の有症率が2倍以上に増加した。

この調査結果のうち、後者の大気汚染の状態を長期平均値で示すと、(6-14)および(5-14)から次のようになる。

$$\bar{x} = 0.07 \exp \left\{ \sigma_g^2(24) / 2 - \Phi^{-1}(0.9) \sigma_g(24) \right\} \quad (\text{ppm}) \quad (6-17)$$

$$\sigma_g(24) = \sigma_g(1) \sqrt{G(24)/G(1)}$$

$\sigma_g(1)$ を0.5~1.2にとり、(5-17)に  $a=0$ ,  $\ell=12$  hrs,  $s=24$  hrsを代入してG(24)を求め、幾何平均濃度とともに示すとTable 6-1のようになる。ここで $\Phi^{-1}(0.9) = 1.28155$ である。

Table 6-1 Marginal mean concentrations

	$\sigma_g(1)$	0.5	0.6	0.7	0.8	0.9	1.0	1.2
Eg(6-17)	$\bar{x}_g$ (ppm)	0.043	0.039	0.035	0.032	0.029	0.026	0.022
	$\bar{x}$ (ppm)	0.046	0.043	0.041	0.039	0.037	0.035	0.033
Eg(6-18)	$\bar{x}_g$ (ppm)	0.053	0.046	0.041	0.036	0.032	0.028	0.022
	$\bar{x}$ (ppm)	0.060	0.056	0.052	0.049	0.047	0.046	0.044

b) 四日市市における閉塞性呼吸器疾患の  
新期患者の発生数(3年移動平均値)

とその年の二酸化いおう濃度の年平均値とは、おおむね0.04 ppmをこえたところでは濃度と発生患者数は正の関連性があり、かつ、1時間平均値0.1 ppmを越えた回数が年間おおむね10%以上測定されたところで、新期患者数は1時間平均値0.1 ppmを越えた回数と正の関連性が認められた。

この調査結果のうち、後半部で述べられている大気汚染の状態を長期平均値で示すと、(6-14)から次のようになる。

$$\bar{x} = 0.10 \exp \left\{ \sigma_g^2(1)/2 - \Phi^{-1}(0.9) \sigma_g(1) \right\} \quad (\text{ppm}) \quad (6-18)$$

長期平均値とその幾何平均値を示すと Table 6-1 のようになる。Table 6-1 の結果は、b の前半部に指摘されている年平均値 0.04 ppm の値を根拠づけるものである。

#### 4-2 SO<sub>2</sub> 環境基準の等価表示例

SO<sub>2</sub> の環境基準のうち、日平均値 0.04 ppm については超過確率を 2% 以内にとって行政施策が行われているが、1 時間値 0.1 ppm の数値については超過確率は定められていない。そこでこの値に関して次の 2 つの条件を設定して、長期平均濃度を求めてみる。

a) 超過確率を 1/8760 にした場合。

この場合は (6-14) から平均値は次のようになる。

$$\bar{x} = 0.1 \exp \left\{ \sigma_g^2(1)/2 - \Phi^{-1} \left( \frac{8759}{8760} \right) \sigma_g(1) \right\} \quad (\text{ppm}) \quad (6-19)$$

ここで  $\Phi^{-1} \left( \frac{8759}{8760} \right) = 3.6854$  である。

b) 1 時間値 0.1 ppm の超過回数を年間で 1 回にした場合。

この場合の条件式は (5-34) である。(5-34) から年平均値は次のようになる。

$$\bar{x} = 0.1 \exp \left\{ \sigma_g^2(1)/2 - \sigma_g(1) \sqrt{2 \ln \left[ \frac{\sqrt{\lambda_2} T_0}{2\pi \sigma_g(1) \chi_0} \right]} \right\} \quad (\text{ppm}) \quad (6-20)$$

ここで、 $T_0 = 8760$  hrs である。

Fig. 6-24 は (6-19) および (6-20) によって求めた年平均値を  $\sigma_g(1)$  を変数として示したものである。

#### 4-3 SO<sub>2</sub> と NO<sub>2</sub> の閾値解析例

吉田ら (1977) は、千葉県における呼吸器症状有症率調査から有症率  $y$  と SO<sub>2</sub>, NO, NO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub> との相関関係を相関分析によって求め、更に「5+10」有症率を 3% 以下に維持するための環境条件について考按し、例えば SO<sub>2</sub> と NO<sub>2</sub> については Table 6-2 に示す重回帰式から  $y = 3\%$  に相当する SO<sub>2</sub> と NO<sub>2</sub> の年平均値の組み合わせを提示した。吉田らが用いた同じ有症率と環境濃度のデータを用い、SO<sub>2</sub> と NO<sub>2</sub> の閾値を求めるために、(6-4) で定義される dose  $D$  と有症率との相関分析を次のように行った。

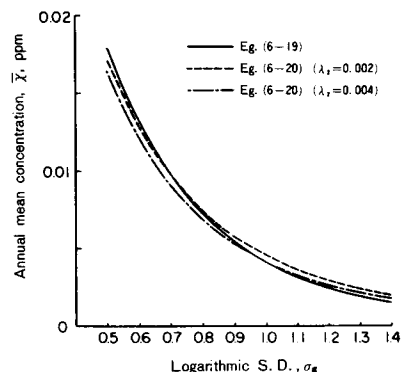


Fig. 6-24 Restrictive annual mean concentrations to satisfy the air quality guide line for hourly SO<sub>2</sub> of 0.1 ppm.



すなわち先ず、(6-4)の $\chi_g$ と $\sigma_g$ を、 $SO_2$ については1時間最高値と年平均値、 $NO_2$ については日平均値の98%値と年平均値をもとにして求めた。したがって、 $SO_2$ の閾値は1時間値、 $NO_2$ については日平均値によって表わされる。次に $SO_2$ と $NO_2$ が有症率に対し相加的に作用しているとみなしてFig.6-25のような重回帰分析の分散比を求めた。これは $SO_2$ と $NO_2$ について、それぞれ閾値 $\chi_c$ を0~50 ppbの範囲で変化させ、(6-4)から $SO_2$ のdose  $D_s$  および $NO_2$ のdose  $D_N$ を求め、有症率 $y$ に対して重回帰分析を行ったものである。分散比が最大値をとるときの閾値は $SO_2$ について0.020 ppm,  $NO_2$ について0.012 ppmであった。そのときの回帰式はTable 6-2のとおりである。

以上の閾値解析の結果では、 $NO_2$ より $SO_2$ のほうが呼吸器疾患に寄与していると評価されるが、吉田らの寄与率とは異なっている。これは吉田らの解析において $SO_2$ 濃度が $PbO_2$ 法測定値から換算した部分があるためと考えられる。Table 6-2に示した閾値はtentativeなものであって、測定状態や影響指標としての $NO_2$ ,  $SO_2$ 濃度に関する今後の検討が必要であることはいうまでもない。

## 第5節 要 約

大気汚染が総体として、人間の健康や社会活動および他の自然界の諸活動に悪影響をおよぼすものであることは、もはや自明とされている。しかしながら、汚染と影響との定量的な関係はそれほど解析されているわけではない。就中、微量・長期の大気汚染が人体に与える影響の定量化は、国の内外でいくつかのすぐれた成果が挙げられているものの、体系化されるには至っていない。これは、人体実験が認められないという倫理的理由のみならず、20年程度の長期の慢性的影響を考えれば解明には相当長期の時間が必要であるからである。

本章は、大気汚染影響に関し、説明変数としての大気汚染濃度に注目して衛生工学的考察を行うことを目的とした。

Table 6-2 Results of multiple linear regression analysis for  $SO_2$  and  $NO_2$  concentrations and percentage of inhabitants with symptoms of chronic bronchitis in Chiba

Multiple regression equation	R*	NPRC**	
		$SO_2$	$NO_2$
(Result by YOSHIDA et al.)			
$y = 0.198 SO_2 + 0.114 NO_2 - 1.63$	0.85	0.65	0.29
(Result from dose analysis)			
$y = 0.286D_{SO_2} + 0.097D_{NO_2} + 2.47$	0.88	0.71	0.23

\*: Multiple correlation coefficient.

\*\* : Normalized partial regression coefficient.

$SO_2$  (ppb),  $NO_2$  (ppb),  $D_{SO_2}$  (ppb),  $D_{NO_2}$  (ppb)

The threshold values in the dose analysis are 0.020 ppm/hr for  $SO_2$  and 0.012 ppm/day for  $NO_2$ .

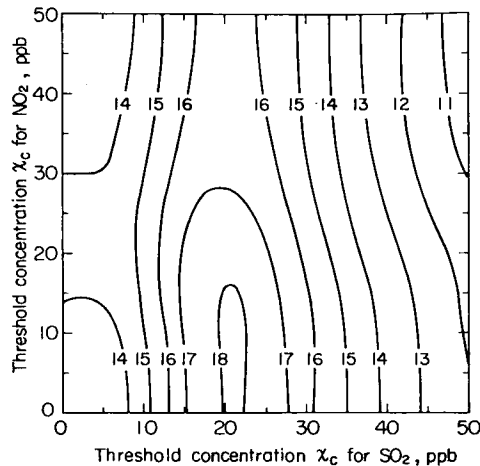


Fig. 6-25 Distribution of the variance ratio for various threshold values of  $SO_2$  and  $NO_2$

Critical variance ratio for  $\alpha = 0.01$  is equal to 7.56

第1節においては、大気汚染の人体影響に関する基本事項が述べられた。すなわちWHOの大気汚染の判定条件の定義を行い、4つのカテゴリーで示される影響に関連した大気性状の記述の必要性を前半部分で強調した。環境基準にはいくつかの異なった概念があり、従来それが混同される傾向にあったので、後半では大気汚染制御において使われる「基準」の概念を整理した。

第2節では、大気汚染影響の説明変数として、「集団に対する閾値」を設定したときのk次の超過測度を定義し、対数正規分布とピアソン系分布についてその定式化を行った。超過測度は、閾値以上の濃度に関する閾値まわりのモーメントと考えることができる。第3章で導入された $\delta_2 - \delta_8$ 判定図による誤差評価は、0次の超過測度すなわち超過確率を指標にとったものであったが、ここでは1次の超過測度すなわちdoseを指標にとって、ピアソン系分布を対数正規分布で近似したときの誤差を評価した。

特定された影響の個体反応の強度を捨象し、影響の有無のみを0 - 1反応とみなせば、集団における大気汚染のdose-response（量 - 効果）関係を得ることができる。第3節の後半では、dose-response関係におけるdose（1次の超過測度）と超過確率との関係が求められた。閾値の存在の有無にかかわらずdoseの上限が定められれば、それに対応する超過確率を任意の濃度と任意の平均化時間の関数として定めることができる。第3節前半部で示した等価表示の式は、このような濃度・平均時間・超過確率という3量の組み合わせで示される大気汚染現象を、他の値の組み合わせで表示するための式である。

第4節では、環境基準に関連した3つの応用例が示されている。第1と第2の例は等価表示に関するもので、前者は四日市市において呼吸器疾患の増大に関連すると考えられる大気汚染の状況を平均濃度に換算した例である。後者はSO<sub>2</sub> 1時間0.1 ppmという環境基準に、これの出現確率を年間1回以内という条件を加えて大気環境条件を定義し、その等価表示として年間平均値を求めたものである。

第3の応用例はSO<sub>2</sub>とNO<sub>2</sub>の集団に関する閾値を求めたものである。dose-response関係が線型関係にあるとみなし、最もprobableな回帰式が得られるということを条件として両汚染物質の閾値を求めると、SO<sub>2</sub>については1時間値0.015 ppm、NO<sub>2</sub>については1日平均値0.012ppmが得られる。

以上が第6章の要約である。

## 第7章 二酸化窒素に係る環境基準の統計的検討

本章は、わが国の大気汚染対策の最大課題の1つである窒素酸化物対策の基本である、二酸化窒素の環境基準に関する検討を行うことを目的とする。

まず第1節においては、二酸化窒素などの大気汚染物質の健康影響を評価する手法について、その特徴と制約を考察する。特に人体実験などでは社会的・医学的弱者を評価の対象とすることは困難であるが、わが国における環境基準の概念は、そのような弱者の健康保護をも対象としている。そのため第2節において、一般健康人に関して得られた知見に安全係数を考慮することの必要性を、量・反応関係の視点から考察する。

第3節は、昭和53年3月に中央公害対策審議会が答申した、二酸化窒素に係る指針値の根拠について考察し評価する。しかしこの指針値導入に際して前提とされたモデルには、論理的整合性に欠ける部分があるため、第4節において、量・反応関係にいくつかの数学モデルを採用して観測値と比較検討することとする。

第5節は以上の要約である。

### 第1節 概 説

わが国の環境基準は、国民の健康を保護するとともに、生活環境を保全するという公害対策基本法の目的を達成するための基本的施策として設定されるものであり、同法第9条において、環境基準は常に適切な科学的判断が加えられ、必要な改定がなされなければならない、と定められている。この条項に則り、昭和53年7月11日付で二酸化窒素に係る環境基準が改定されたが、改定にあたっての行政的手続きや科学的判断に適切さを欠く面があったとして、東京都(1979)などからいくつかの問題点が指摘されている。この改定は、昭和53年3月22日付の二酸化窒素の人の健康影響に係る判定条件等についての中央公害対策審議会答申にある長期暴露についての指針値、年平均0.02～0.03 ppmをそのまま日平均値として等価表示したものであって、東京都などが指摘している問題点の1つは、環境基準は指針値に安全係数を考慮して設定しなければならないというものである。本章では、以上に述べた二酸化窒素に係る判定条件と指針値に関して衛生工学的な検討を行う。

二酸化窒素(以下単にNO<sub>2</sub>という)もしくは二酸化窒素を指標とする大気汚染の人の健康への影響を評価する手法には、評価の対象が動的な生体現象であるので、一般の自然科学的な実験手法とは異なった特徴と制約がある。実験には動物実験と人体実験があり、検定手法には直接法と間接法がある。直接法とは0から徐々に増加するNO<sub>2</sub>に人や動物をばく露し、影響が出現したときの濃度をもって閾値とする方法である。FINNEY(1978)も述べるように、この方法は最も単純であるが制約も大きい。なぜなら人体実験においては、不可逆的な障害を惹きおこす恐れのある濃度ではこれを適用することができず、動物実験による直接法も実験成績の再現性は保証されず、誤差もさげられないからである。

間接法は、影響の測定方法によって、計量法と計数法に分類される。計量法は、人や動物をいくつかの段階のNO<sub>2</sub>濃度にばく露させて対応する影響の強度を計測し、量・効果関係を求めるものである。こ

の方法は検定手法として最も一般的であり、かつデータ解析は容易である。しかし一方、対応する影響は体重、血液成分、肺機能などの定量可能なものに限定される。特に人体実験においては、定量的検査の機会が特定の設備をもつ施設に限定され、多人数を対象とすることが困難である。また、その影響が生理的反応や代償能力の範囲をこえないよう、直接法と同様の制約がある。

障害の発現機序が不明であったり、検査設備の制約などで、特定の影響強度が計量できない場合には、計数法が採用される。計数法の対象は集団に限られる。この手法は、集団を複数の段階のNO<sub>2</sub>濃度によく露させ、対応する集団中で特定の影響を受けている個体数を計数し、量・反応関係を求めるものである。計量法に比べて、得られる医学・生物学的情報量は少なく、データ解析もやや複雑であるが、影響の有無のみを判定すれば良いという簡便さがあり、BMRC法による呼吸器症状有症率調査の検定などに使われている。

## 第2節 量・反応関係と安全係数

NO<sub>2</sub>による影響のうち特定の反応に着目し、NO<sub>2</sub>があるべく露量に達したときにその反応を開始する個体の、集団中の割合を図示すればFig. 7-1のようになることが予想される。これを耐性

曲線 (tolerable curve) という。NO<sub>2</sub> が  $x$  に達したとき、それまで反応しなかった個体のうち、 $ndx$  だけが刺激に耐え切れなくなるとすれば、NO<sub>2</sub> に関し鋭敏なものは左の裾に集まり、多くの個体は曲線の中央値付近に集まるであろう。反応の強度は問わず、単にその有無のみを判定することとし、NO<sub>2</sub> が  $x$  のときに反応を呈する個体の数を求めれば、それは各  $n$  を  $x$  まで積分したものになる。このような概念は、 $N$  個の集団のうち  $r$  個が反応を呈しているときの有症率  $p = r/N$  を説明するものであり、量・反応関係とは  $x$  と  $p$  との関係を目指すものである。

遺伝的素因の選択ができ、飼育と環境の条件を管理できる動物実験では、量・反応関係は比較的得られ易く、その成績も精度が高い。しかし人体実験では、倫理的、社会経済的制約が大きいため、量・反応関係を求めることは難かしく、直接法による短期的な可逆反応をみている程度である。

大気汚染に関する疫学研究の1つに、慢性呼吸器症状の有症率調査がある。環境条件をほとんど制御できないこのような疫学的調査では、精度を高めるために対象者の層別化が行われる。すなわち、性、年齢、喫煙習慣などによって対象者を分け、その中で無作為抽出をするのであるが、各層の調査数に制限があるため、現在では各層の成績に重みをつけた標準化有症率を求めることが多い。このとき、量・反応関係として  $p = \alpha + \beta x$  なる1次式が仮定されるが、この仮定はFig. 7-1の耐性曲線に一様分布を仮定することと同義である。現行の疫学的調査の精度を考えれば、 $p = \alpha + \beta x$  による外推をしない限りこの仮定は止むを得ないものであるが、 $dp/dx = n/N = \beta$  (一定) になる点で論理的整合性に欠けることは否定できない。

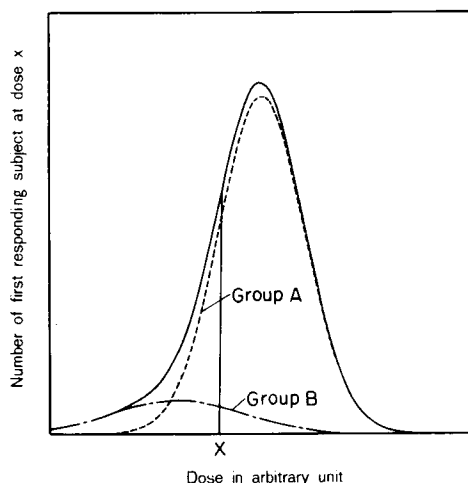


Fig. 7-1 A schematic example of tolerance distribution

NO<sub>2</sub>の影響評価のためには、動物実験でも疫学研究でも、対象とする場の調整が必要である。すなわち動物実験は均一系(クローズドコロニー)などを使用し、飼育や環境条件を均一化しなければならない。同様に疫学研究においても、調査地域は相互にNO<sub>2</sub>以外の要因が一様であり(等分散性)、地域内対象者を層別化すること(均質性)が必要である。このような場の調整の下に、一応の量・反応関係が確立して、影響が認められない最大のNO<sub>2</sub>濃度や、自然有症率に対応するNO<sub>2</sub>濃度が求められたとしても、それらの値が直ちにNO<sub>2</sub>の環境基準値になるわけではない。なぜなら、そのような値は、学童、30歳以上女子、40～59歳の病人以外の成人などを対象として、調整された場の下で得られた成績であって、NO<sub>2</sub>影響に関する社会的・医学的弱者集団にそのまま適用できるものではないからである。

量・反応関係に関する知見をもとに、弱者の保護を考慮した環境基準を設定する際には、安全係数の配慮が必要となる。安全係数に関する従来の考えは以下の通りである。

宮木(1976)は、食品、農薬などに含まれる有害物質の許容量設定に際して用いられる安全係数を紹介している。この場合の安全係数は、最も感受性の高い動物の最も鋭敏に現われる毒性に関する最大無作用量を求め、動物実験結果を人間に適用する場合の種差による安全係数を10、人間の個人差による安全係数を10とし、両者を合わせて100としている。特に重大な毒性については、これを更に2倍し200の安全係数が採用される。最大無作用量は、量・反応関係により最小反応率に対応し、統計学的に求められる。MANTELら(1975)は発ガン性物質に関する最大無作用量の統計的推測法を開発している。

NO<sub>2</sub>に関する安全係数には、2つの異なった考えがある。1つはWHOの専門家会議(1977)が提案したものである。同会議では、動物に影響が認められる短期的最低濃度0.5 ppmに対し、NO<sub>2</sub>のバックグラウンド濃度は、0.0025 ppmであるから安全係数は200をこえることはなく、汚染源から離れた小村でも0.025 ppmに達することがあるので、実際の最大安全係数は20であるとされた。次いで同会議は、動物実験成績を人間に適用する場合の最小の安全係数を3～5と提案し、公衆の健康保護のためのNO<sub>2</sub>単独1時間ばく露限界を0.10～0.17 ppmとした。同時に同会議は、複合汚染の場合や感受性の高い者の保護には、更に大きい安全係数が必要であると述べている。

他の1つは、わが国の中央公害対策審議会が大気汚染に係る環境基準設定の際にとってきた慣行的考えである。それは、各大気汚染物質を大気汚染の指標として用い、単純性慢性気管支炎などの有症率に差が認められたときの平均濃度を、安全側にとって日平均値として提案する手法である。この手法の特徴は、①単体の汚染物質を複合大気汚染の指標とし、②その単体物質自体の有害性を動物実験と人体実験の判定条件によって確め、③影響に関する限界濃度は疫学調査成績から求め、④環境基準値は結果的に、この限界濃度に安全係数2を含ませたものになった、という点にある。

弱者は、人体実験においては倫理的制約があって実験対象となることは稀であり、疫学調査においては個人差が拡大されて人口集団相互における等分散性と均質性が乱されるため、調査対象から除外されるのが通例である。よって弱者集団のみを対象とする耐性曲線、もしくは弱者集団を含んだ一般人口集団の耐性曲線を求めることは稀であり、特に慢性影響に関しては不可能である。安全係数は弱者集団の健康保護のために必要であるが、弱者集団に関する耐性曲線が求められないがために、科学研究の対象としては恣意的な(arbitrary)値である。従来の大気汚染に係る環境基準において、わが国で2なる安全係数が用いられてきたが、例えば1.5や1.8なる安全係数が科学研究の対象となり得ないという意味で、2なる係数は最低値であるということもできよう。

試みに、人口集団を健康人集団と弱者集団の2つに分けてその人口比を9:1とする。両集団の耐性

曲線にそれぞれ対数正規分布をあてはめ、ばく露の対数値を  $X, X'$ 、 $X$  と  $X'$  の平均値 (ED50 の対数値) を  $\bar{X}, \bar{X}'$ 、対数標準偏差を  $\sigma, \sigma'$  とする。このとき全集団の耐性曲線の密度関数は次式で示される。

$$f_0(X) = \frac{0.9}{\sqrt{2\pi}\sigma} \exp\left\{-\frac{(X-\bar{X})^2}{2\sigma^2}\right\} + \frac{0.1}{\sqrt{2\pi}\sigma'} \exp\left\{-\frac{(X-\bar{X}')^2}{2\sigma'^2}\right\}$$

$$\equiv f(X) + f'(X)$$

いま健康人集団に対する弱者集団の ED 50 の比を  $\alpha$ 、同じく対数標準偏差の比を  $\beta$  とすれば、ばく露量が  $\exp y$  のときの有症率  $p$  は次のようになる。

$$p = \int_{-\infty}^y f_0(X) dX \equiv \int_{-\infty}^y f(X) dX + \int_{-\infty}^y f'(X) dX$$

$$= 0.9 \int_{-\infty}^u \varphi(x) dx + 0.1 \int_{-\infty}^{u'} \varphi(x) dx$$

ここで  $\varphi$  は標準正規分布、

$$u = \frac{y - \bar{X}}{\sigma}, \quad u' = \frac{y - \bar{X}'}{\sigma'} = \frac{u}{\beta} - \frac{\ln \alpha}{\beta \sigma}$$

以上にもとづき、全体の有症率 3% に対応する濃度を環境基準値に設定した場合の両集団に予想される有症率を Table 7-1 に示す。このモデル自身が恣意的であるが、安全係数の必要性を示す結果であるといえよう。すなわち、弱者集団の ED 50 は健康人集団に比べて小さく、また弱者集団の個人差は健康人集団に比べて大きいと考えられるため、弱者集団の対数標準偏差は健康人集団に比べて大きいと考えられる。両集団が同じ量の大气汚染にばく露されたとき、影響が出現する個人の割合は、弱者集団に偏ることが Table 7-1 から予想される。

Table 7-1 Comparison of prevalence rates between the weak and normal groups

$k_1$	$k_2$	prevalence rate for the weak	prevalence rate for the normal
0.6	1.0	23.3 %	0.8 %
0.6	1.6	26.8	0.4
0.8	1.0	10.2	2.2
0.8	1.6	17.9	1.3
1.0	1.0	3.0	3.0
1.0	1.6	10.4	2.2

Model is supposed that the tolerance distribution is of log-normal and that there exists 10% of subjects, which belong to the weak group, whose ratios of ED50 and logarithmic S.D. to the normal group are  $k_1$  and  $k_2$  respectively. Prevalence rates of each group correspond to 3% for the total.

### 第 3 節 二酸化窒素に係る指針値の根拠と評価

中央公害対策審議会大气汚染部会二酸化窒素に係る判定条件等専門委員会（以下単に専門委員会という）は、昭和 53 年 3 月 20 日に二酸化窒素に係る判定条件等についての専門委員会報告（以下単に専門委員会報告という）をとりまとめて同大气部会に報告し、大气部会がこれを了承した後に同年 3 月 22 日付で中央公害対策審議会会長は環境庁長官あてに審議結果を答申した。

専門委員会は、二酸化窒素（以下NO<sub>2</sub>という）に係る14項目に整理した判定条件の他に、NO<sub>2</sub>濃度の指針を次のように報告している。

### 「③ 指針の提案

以上の動物実験、人の志願者における研究、疫学的研究などの成果を総合的に判断し、本専門委員会は、地域の人口集団の健康を適切に保護することを考慮し、環境大気中の二酸化窒素濃度の指針として、次の値を参考とし得ると考えた。

短期暴露については1時間暴露として、0.1～0.2 ppm

長期暴露については、種々の汚染物質を含む大気汚染の条件下において、二酸化窒素を大気汚染の指標として着目した場合、年平均値として0.02～0.03 ppm」

この指針はNO<sub>2</sub>に係る判定条件を総合判断して提案されたものであるが、人の健康の保護との関連でいかなる性格をもつものであるかについては明確な定義はされていない。そのため本節においては、特に長期ばく露の指針値について、それが求められた経過と内容について検討し、指針の性格について考察することとする。

### 3-1 長期ばく露の指針値設定の経過

専門委員会は、内外の成人を対象とした慢性呼吸器症状有症率調査のうち、次の4つの疫学調査結果を重視した。

- (1)千葉県における調査とそれに関する吉田ら（1976）の報告、
- (2)大阪府および赤穂市における調査とそれに関する常俊ら（1977）の報告、
- (3)岡山県における調査とそれに関する坪田ら（1979）の報告、
- (4)全国6都市における調査とそれに関する鈴木ら（1978）の報告。

各調査とも、調査対象地域はいくつかの地区に分割され、各地区毎に大気汚染濃度と持続性せき・たん等の有症率が求められている。

専門委員会はまず、各地区の有症率のうちの最低有症率に着目し、この最低有症率に対し差が認められない各地区の有症率を求めた。次に専門委員会は、この最大有症率に0.5%、1.0%程度の誤差を加味し、それぞれの報告書で示されているNO<sub>2</sub>濃度と有症率との直線回帰式によって、誤差を加味した最大有症率に対応するNO<sub>2</sub>濃度を求めた。専門委員会は、このようにして求めたNO<sub>2</sub>濃度をもとに、他の大気汚染物質の共存下では、NO<sub>2</sub>年平均濃度が0.02～0.03 ppm以上の地域では、NO<sub>2</sub>濃度が増大すれば持続性せき・たんの有症率も増大するものと判断した。これが長期ばく露の指針の有力な根拠となったものであるが、解析内容の詳細は公表されていないため、ここでは解析内容を手順を追って吟味することとする。

呼吸器症状の有症率調査は、一般に対象地区の住民を無作為抽出した計数調査であるため、等分散性と均質性が成立する場合には、求めた有症者数は2項分布に従うとみなすことができる。2つの地区A、Bにおけるサンプル数をn<sub>A</sub>、n<sub>B</sub>、有症者数をr<sub>A</sub>、r<sub>B</sub>（したがって有症率はp<sub>A</sub> = r<sub>A</sub> / n<sub>A</sub>、p<sub>B</sub> = r<sub>B</sub> / n<sub>B</sub>）とすると、

$$u_0 = \frac{p_A - p_B \pm \frac{1}{2} \left( \frac{1}{n_A} + \frac{1}{n_B} \right)}{\left\{ \bar{p} (1 - \bar{p}) \left( \frac{1}{n_A} + \frac{1}{n_B} \right) \right\}^{\frac{1}{2}}}$$

但し複号は  $u_0$  の絶体値を小さくするように採用する,

は近似的に正規分布に従う。母有症率  $P_A$ ,  $P_B$  に関する片側検定は、次のようになる。

$H_0: P_A = P_B$ ,  $H_1: P_A > P_B$ , に対し、 $u_0 \geq u(2\alpha)$  ならば  $H_0$  を棄却し、

$u_0 < u(2\alpha)$  ならば  $H_0$  を採択する。ここで有意水準  $\alpha = 0.05$  の場合、 $u(2\alpha) = 1.645$ ,  $\alpha = 0.10$  の場合、 $u(2\alpha) = 1.282$  である。

上記(1)~(4)の各疫学調査の地区毎のサンプル数、有症率、最低有症率に対する検定結果は Table 7-2~7-5 のとおりであって、最低有症率に対し差が認められない地区の有症率のうち、最大の有症率は次のとおりである。

千葉県における調査	3.49 %
大阪・赤穂	3.3 %
岡山県	6.8 %
全国6都市	2.0 %

Table 7-2 Prevalence of respiratory symptom and test of significance for the survey in Chiba prefecture

Area	No. of subjects	Prevalence 1)	$u_0$ 2)
Kohitsu	512	1.71 %	(minimum)
Takataki	317	2.83	0.84
Anezaki	213	2.86	0.71
Kimitsu	739	2.92	1.18
Katsushika	205	3.49	1.18
Goi	353	3.76	1.66**
Tanedai	427	4.41	2.25**
D-area	402	5.08	2.69**
Yawata	201	5.56	2.55**
Minato	320	6.94	3.69**
E2-area	357	7.85	4.25**
A-area	382	10.92	5.76**
Kojo-area	528	11.45	6.18**

1) Age, sex, and smoking adjusted prevalence rates of persistent cough and phlegm in adults aged from 40 to 59 years old.

2) Symbol of\*\* indicates that the prevalence is significantly greater than the minimum rate at the level of 5%.

Table 7-3 Prevalence of respiratory symptom and test of significance for the survey in Osaka and Akoh

Area	No. of subjects	Prevalence 1)	$u_0$
Akoh	3,915	3.3 %	(minimum)
Izumiohtsu	1,812	4.4	1.99**
Moriguchi-Kasuga	3,563	4.7	3.04**
Higashihsaka	2,223	5.2	3.59**
Suita	6,379	5.4	4.89**
Takaishi	2,336	5.8	4.68**
Moriguchi-Doi	1,853	6.0	4.72**

1) Age, sex, and smoking adjusted prevalence rates of chronic bronchitis in adults aged 40 years old and over.

Table 7-4 Prevalence of respiratory symptom and test of significance for the survey in Okayama prefect.

Area	No. of subjects	Prevalence 1)	$u_0$ 2)
Fukushima	419	4.6 %	(minimum)
Shiromi	372	5.1	0.16
Enami	404	5.4	0.37
Katagami	398	6.6	1.09
Kasaoka	358	6.8	1.17
Mitsuishi	435	6.8	1.24
Tamashima	375	6.8	1.19
Mizushima-B	173	8.2	1.53**
Nambu-rinkai	402	8.8	2.02**
Unotsu	334	8.5	2.03**
Mizushima-A	213	10.7	2.74**
Yobimatsu	335	11.5	3.40**

1) Prevalence is same as in Table 7-2.

2) Symbols of\* and\*\* indicate the significance at the level of 10 and 5% respectively.

Table 7-5 Prevalence of respiratory symptom and test of significance for the survey in six communities

Area	Year of survey	No. of subjects	Prevalence 1)	$u_0$
Ichihara	1974	345	0.87	(minimum)
Sakura	1973	291	1.03	-0.20
Ichihara	1973	380	1.05	-0.13
Sakura	1974	303	1.32	0.17
Ichihara	1972	400	2.00	0.97
Ohmuta	1974	200	4.00	2.19**
Higashihsaka	1972	327	5.20	3.07**
Ohmuta	1972	238	5.46	3.08**
Ohmuta	1973	209	5.74	3.15**
Higashihsaka	1974	273	5.86	3.33**
Higashihsaka	1973	296	6.76	3.78**

(1) Crude prevalence rates of persistent cough and phlegm in females aged 30 years old and over.



次に、NO<sub>2</sub>濃度（ $x$ , ppm）と有症率（ $y$ , 比率）との直線回帰式は、各調査毎に次のようになっている。

千葉県における調査	$y = -0.0123 + 2.82x$
大阪・赤穂	$y = 0.0354 + 0.37x$
岡山県	$y = -0.0194 + 4.37x$
全国6都市	$y = -0.0083 + 1.90x$

専門委員会は、有症率に対応するNO<sub>2</sub>濃度を求める際、 $x$ の $y$ への回帰式を使い、上で求めた最大有症率に対応するNO<sub>2</sub>濃度を求めた。この手法によるNO<sub>2</sub>濃度はTable 7-6のようになる。以後これを限界NO<sub>2</sub>濃度という。

以上が専門委員会の解析手法による追計算の結果である。この手法を是認して論ずれば、Table 7-6に示したように有症率が増加を始める限界濃度は0.015～0.020 ppmであるといえる。また最低有症率に対し差が認められない有症率のうち、最大値を示す有症率のみが各調査毎に1%程度低めに求められたとすると、有症率が増加を始める限界濃度は0.020～0.022 ppmとなる。

Table 7-6 Mean NO<sub>2</sub> concentration corresponding to the maximum non-significant prevalence rate

Name of survey	Prevalence error: 0%	Prevalence error: 0.5%	Prevalence error: 1.0%
Chiba prefecture	0.0167 ppm	0.0185 ppm	0.0203 ppm
Osaka and Akoh	——	0.0070	0.0205
Okayama prefecture	0.0200	0.0212	0.0223
Six communities	0.0149	0.0175	0.0202

長期ばく露の指針0.02～0.03 ppmの下限濃度の根拠は、以上の解析によって明らかであるが、上限濃度の根拠は専門委員会報告には述べられておらず不明である。

### 3-2 長期ばく露の指針値に対する評価

専門委員会が採用した解析手法には、2つの前提条件が設けられていると考えられる。第1は、NO<sub>2</sub>濃度が増大すれば有症率も増大し、かつ各対象地区のうちの最低有症率はNO<sub>2</sub>濃度が低い地区にある、という条件である。この前提条件は、大気汚染が有症率を高め、かつNO<sub>2</sub>濃度が大気汚染の指標となりうる、ということと同義であって、4つの疫学調査にも適用できる条件である。第2の前提は、NO<sub>2</sub>濃度が低い地区では、NO<sub>2</sub>濃度と有症率との関係は存在しないか存在しても検出できない、という条件である。これは換言すれば、有症率に影響する因子が大気汚染以外にも存在することを述べているものであり、一般に妥当な条件である。

最低有症率と差のない最大有症率を求めるには、統計的仮説検定を行う。このような統計的推論自体は一般性を有するが、専門委員会の解析における推論には次のような不確定さがともなうと考えられる。

- 1) 限界NO<sub>2</sub>濃度より低位にあるところの有症率は、前提の第2によって観測誤差を伴ない、最大有症率が限界NO<sub>2</sub>の直近にあることが必ずしも保証されない。
- 2) 最低有症率が観測誤差以外の要因によって低く観測される場合があり得る。
- 3) 母有症率がNO<sub>2</sub>濃度の増大とともに滑らかに増大する場合、もしくは最低有症率を示す地区のサンプル数が他地区に比べて多い場合には、有症率の差の検出力は弱くなる。
- 4) 有症率の差の検定における有意水準が小さい場合、もしくはサンプル数が少ない場合には、有症率の差の検出力は弱くなる。

以上のうち、限界NO<sub>2</sub>濃度を低めに出す怖れのある(1)および(2)の不確定さについては、専門委員会は

これを避けるため、最大有症率にそれぞれ 0.5 %、1.0 % を加えた有症率を求め、対応する限界NO<sub>2</sub>濃度を求めている。最大有症率に加えた 0.5 %、1.0 % の有症率は、千葉県における調査を除く各疫学調査有症率の回帰式からの誤差の標準偏差推定値が約 1 % であることに対応している。しかしこのような操作には、得られた結果の妥当性を判断する検定手法が未確立であるという弱点がある。

そのために、専門委員会の解析手法を修正した簡易な手法によって、限界NO<sub>2</sub>濃度を求めれば以下のようになる。

限界NO<sub>2</sub>濃度を求めるにあたっての前提条件を整理すれば次のとおりである。

- (1) 有症率調査における対象者の抽出は、無作為抽出であること、
- (2) 症状の認識とその観測に地区差がないこと、NO<sub>2</sub>濃度の観測値が地区内の大気汚染を反映していること、
- (3) 有症率増加に関連した大気汚染以外の因子は、調査地域全体に一樣であること、もしくは有症率がこれらの因子に関して標準化されていること、
- (4) 大気汚染へのばく露条件は、調査地域全体に一樣であること、
- (5) NO<sub>2</sub>濃度が増大すればそれに対応して有症率が増大すること。

以上の前提条件のうち(1)、(3)および(5)は各疫学調査報告において成立することが確認されており、(2)および(4)については、千葉県と岡山県の調査が調査地域を行政区単位にしていること、全国 6 都市調査では対象者を区域外に職業をもたない女子にしたこと、などにより概ね成立しているとみなせよう。なお大阪・赤穂における調査は、最低NO<sub>2</sub>濃度が高いことなどの理由によって、以下の解析にまじまないため、検討しないこととする。

解析の手法は次のとおりである。すなわち、NO<sub>2</sub>濃度の低い順に有症率調査結果を並べ、地区間の有症率に差がないという帰無仮説を設ける。次にNO<sub>2</sub>濃度を徐々に増加させ、増加した濃度に対応する有症率はそれまでの有症率より高いという対立仮説を設ける。限界NO<sub>2</sub>濃度はこの帰無仮説が棄却されるころの濃度であるといえることができる。以上の結果を Table 7-7 ~ 7-9 に示す。解析結果のうち、NO<sub>2</sub>濃度がある値をこえた後に有症率の差が連続して有意であるのは、NO<sub>2</sub>濃度が増大するにつれて有症率が増加しているこ

Table 7-7 NO<sub>2</sub> concentration and its corresponding test of significance for the survey in Chiba prefecture

Area No.	Mean NO <sub>2</sub> concentration	Cumulative No. of subjects	Cumulative prevalence	Prevalence	u <sub>0</sub>
1	0.013 ppm	317	2.83 %	2.83 %	
2	0.015	530	2.84	2.86	-0.25
3	0.016	1,042	2.29	1.71	-1.02
4	0.018	1,444	3.06	5.08	2.59**
5	0.018	1,645	3.37	5.56	1.63*
6	0.012	2,384	3.23	2.92	-0.45
7	0.013	2,737	3.30	3.76	0.36
8	0.014	3,164	3.45	4.41	1.03
9	0.014	3,521	3.89	7.85	3.93**
10	0.019	4,049	4.88	11.45	7.41**
11	0.010	4,369	5.03	6.94	1.49*
12	0.011	4,574	4.96	3.49	-0.83
13	0.011	4,956	5.42	10.92	4.82**

Prevalence of area i is compared with cumulative prevalence of area i+1.

Table 7-8 NO<sub>2</sub> concentration and its corresponding test of significance for the survey in Okayama prefecture

Area No.	Mean NO <sub>2</sub> concentration	Cumulative No. of subjects	Cumulative prevalence	Prevalence	u <sub>0</sub>
1	0.016 ppm	358	6.80 %	6.8 %	
2	0.016	730	5.93	5.1	-0.82
3	0.017	1,149	5.45	4.6	-0.82
4	0.020	1,547	5.74	6.6	0.73
5	0.020	1,982	5.98	6.8	0.71
6	0.022	2,386	5.88	5.4	-0.33
7	0.022	2,559	6.04	8.2	1.07
8	0.022	2,961	6.34	8.3	1.62*
9	0.023	3,295	6.56	8.5	1.39*
10	0.023	3,670	6.59	6.8	0.07
11	0.027	3,883	6.81	10.7	2.18**
12	0.030	4,218	7.18	11.5	3.08**

とを示すものである。

以上のように求めた限界NO<sub>2</sub>濃度を整理するとTable 7-10となる。濃度幅の下限は有症率の増加が認められない濃度であり、上限は増加が明らかな濃度である。Table 7-10には専門委員会の解析手法による限界NO<sub>2</sub>濃度も整理してある。専門委員会の手法にはいくつかの不確定さがあり、統計的推論にも不明確な個所があるが、ここで求めた結果とほぼ同じ値が求められたことは注目すべきである。但し専門委員会の解析手法およびそれを修正した手法の何れにも、NO<sub>2</sub>濃度が低い地区での有症率はNO<sub>2</sub>濃度と関連性が無いという前提があり、これが限界濃度を高めに出す不確定さに連なっていることも留意すべき点である。

Table 7-9 NO<sub>2</sub> concentration and its corresponding test of significance for the survey in six communities of Japan

Area No.	Mean NO <sub>2</sub> concentration	Cumulative No. of subjects	Cumulative prevalence	Prevalence	u <sub>0</sub>
1	0.013 ppm	845	0.87 %	0.87 %	
2	0.014	725	0.97	1.05	-0.13
3	0.015	1,125	1.33	2.00	1.18
4	0.016	1,416	1.27	1.08	-0.12
5	0.016	1,719	1.28	1.32	-0.21
6	0.020	1,957	1.79	5.46	4.30**
7	0.022	2,116	2.17	5.74	3.48**
8	0.029	2,366	2.32	4.00	1.40*
9	0.031	2,693	2.67	5.20	2.84**
10	0.037	2,989	3.08	6.76	3.68**
11	0.042	3,262	3.31	5.86	2.28**

Table 7-10 Critical mean NO<sub>2</sub> concentrations at which prevalence corresponds to begin to increase

Name of survey	Modified method	Technical committee method*
Chiba prefecture	0.016-0.018 ppm	0.017-0.020 ppm
Okayama prefecture	0.020-0.022	0.020-0.022
Six communities	0.016-0.020	0.015-0.020

\* ) Concentrations in Table 7-6 are arranged down to third places of decimals.

#### 第4節 二酸化窒素に係る量・反応関係

専門委員会の解析手法では、NO<sub>2</sub>濃度が低い場合の慢性呼吸器症状有症率はNO<sub>2</sub>濃度に関連して増大しない、との前提が設けられている。この前提は、将来においてNO<sub>2</sub>を指標とする大気汚染が低減されたときにその妥当性が吟味されるべきものであり、低濃度長期ばく露下における呼吸器症状に関する研究が進展途上にある限在では、その妥当性を検討することは不可能である。

いま地区数kなるうちの第i地区でn<sub>i</sub>人の調査対象者が無作為に抽出されて、有症率p<sub>i</sub>が観測されたとする。ここで大気汚染xは呼吸器症状の有症率pに関連しているとの帰無仮説を設け、その関連性に

$$p = F(x),$$

なる関数関係をあてれば、各地区の統計量の和

$$\chi^2_{\ell} = \sum_{i=1}^k \frac{n_i \{ p_i - F(x_i) \}^2}{F(x_i) \{ 1 - F(x_i) \}},$$

は漸近的にχ<sup>2</sup>分布となり、F(x)に関する検定が可能である。一般に従来の疫学調査ではF(x)としてα+βxなる直線関係が想定されている。この場合のχ<sup>2</sup><sub>ℓ</sub>は帰無仮説の下では、n<sub>i</sub>(α+βx<sub>i</sub>)(1-α-βx<sub>i</sub>)が大きければ、自由度k-2のχ<sup>2</sup>分布で近似される。このことを岡山県および全国6都市の疫学調査結果にあてはめたものをFigs.7-2, 7-3に示す。図中の1点鎖線はχ<sup>2</sup><sub>ℓ</sub>が最小となると

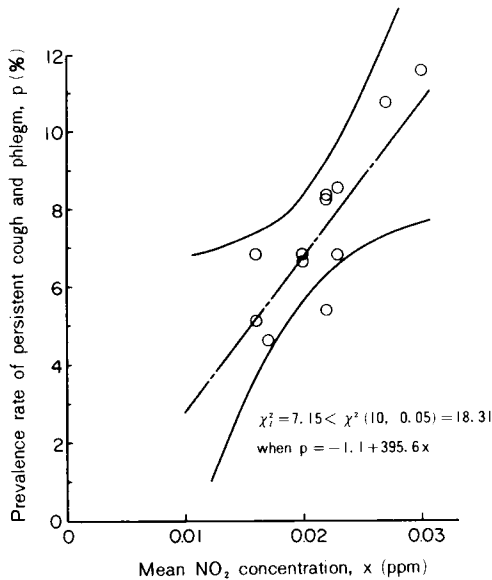


Fig. 7-2 Regression line between NO<sub>2</sub> concentration and prevalence of respiratory symptom in Okayama prefecture

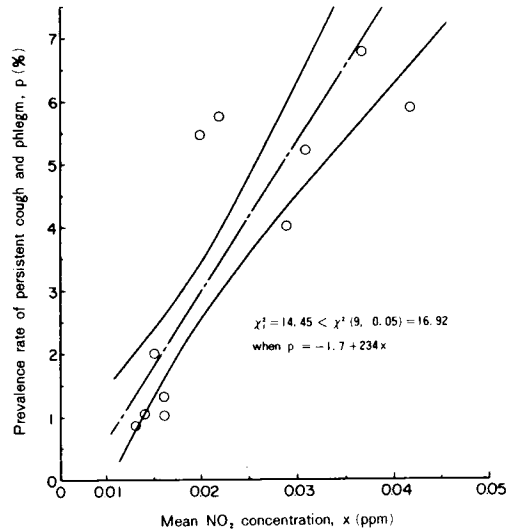


Fig. 7-3 Regression line between NO<sub>2</sub> concentration and prevalence of respiratory symptom in six communities of Japan

きのもので、そのときの $\alpha, \beta, \chi^2_{\ell}$ の値は図中に示してある。上側、下側の双曲線は $\chi^2_{\ell} < \chi^2(k-2, 0.05)$ を満足する領域を示すものである。すなわち、現在の調査結果からは、有症率とNO<sub>2</sub>濃度との関連性は否定することができないことが示された。

なお以上の直線関係における回帰係数 $\alpha, \beta$ の値を求めるには、次の3つの方法が考えられる。第1は

$$\frac{\partial \chi^2_{\ell}}{\partial \alpha} = 0, \quad \frac{\partial \chi^2_{\ell}}{\partial \beta} = 0,$$

なる連立方程式を解いて、 $\alpha, \beta$ を求める方法である。

第2は、修正 $\chi^2$ 法である。

$$\chi^2_m = \sum \frac{n_i (p_i - \alpha - \beta x_i)^2}{p_i (1 - p_i)},$$

なる修正 $\chi^2$ 統計量も、漸近的に $\chi^2$ 分布となることを利用して

$$\frac{\partial \chi^2_m}{\partial \alpha} = 0, \quad \frac{\partial \chi^2_m}{\partial \beta} = 0,$$

を解いて $\alpha, \beta$ を求める方法である。

第3は、最尤法である。すなわち $y_i = n_i p_i$ が母有症率 $\pi_i = \alpha + \beta x_i$ をもつ2項分布に従うため、 $y_i$ の分布関数

$$B(y_i) = \binom{n_i}{y_i} \pi_i^{y_i} (1 - \pi_i)^{n_i - y_i},$$

の尤度関数  $L = \prod_{i=1}^k B(y_i)$  を最大にするようにすればよい。それには、

$$\frac{\partial}{\partial \alpha} \ln L = \sum \frac{y_i}{\alpha + \beta x_i} - \sum \frac{n_i - y_i}{1 - \alpha - \beta - x_i} = 0,$$

$$\frac{\partial}{\partial \beta} \ln L = \sum \frac{x_i y_i}{\alpha + \beta x_i} - \sum \frac{(n_i - y_i) x_i}{1 - \alpha - \beta - x_i} = 0,$$

を解いて  $\alpha, \beta$  を求めればよい。

解析的に  $\alpha, \beta$  が求められるのは、修正  $x^2$  法のみであり、他の2つは逐次解法によらねばならない。

しかし  $F(x) = \alpha + \beta x$  なる1次式の仮定が、量・反応関係としては整合性に欠けることは、本章第2節に述べたとおりである。いま unimodal な耐性曲線を想定し、その標準密度関数を  $f(u)$  とする。

$$\int_{-\infty}^{\infty} f(u) du = 1$$

次に大気汚染濃度もしくはその対数値を  $x$  とし、1次式

$$Y = a + bx,$$

を用いて有症率  $p$  を表わすと、次のようになる。

$$p = F(x) = \int_{-\infty}^Y f(u) du = \int_{-\infty}^x b f(a + bx) dx$$

このようにして有症率  $p$  をプロビット  $Y$  (probability unit) に変換することにより、量・反応関係は  $Y = a + bx$  という新しい1次式に要約される。実際のデータから回帰係数  $a, b$  を求めるには逐次法によらねばならない。耐性曲線として正規分布、ロジスティック分布 (WILSON and WORCESTER (1943)), Wilson-Worcester 分布 (WILSON and WORCESTER (1943)) およびコーシー分布をあてはめた場合の  $f(u), p, Y$  の関数形を Table 7-11 に示し、これらを用いて全国6都市の調査結果

Table 7-11 Transformation models for dose response relation

Model	Probability density, $f(u)$	Probability $P$	Probit $Y$
NORMAL	$\frac{1}{\sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{u^2}{2}\right)$	$\Phi(Y) = \int_{-\infty}^Y f(u) du$	$\Phi^{-1}(p)$
LOGISTIC	$\frac{1}{2} \operatorname{sech}^2 u$	$\frac{1}{2}(1 + \tanh Y)$	$\tanh^{-1}(2p-1)$
WILSON-WORCESTER	$\frac{1}{2} (1+u^2)^{-\frac{3}{2}}$	$\frac{1}{2} \left\{ 1 + \frac{Y}{\sqrt{1+Y^2}} \right\}$	$\frac{2p-1}{2\sqrt{2(1-p)}}$
CAUCHY	$\frac{1}{\pi(1+u^2)}$	$\frac{1}{2} + \frac{\tan^{-1} Y}{\pi}$	$-\cot(\pi p)$

を解析した結果を Figs. 7-4, 7-5 に示す。Fig. 7-4 は  $\text{NO}_2$  濃度の対数を取り、Fig. 7-5 は  $\text{NO}_2$  濃度そのものをもとにしている。何れも逐次解法によって、最小の  $\chi^2$  値が得られるようにした。図中の中心曲線はそのときの量・反応関係を示し、プロビットと  $\text{NO}_2$  濃度との回帰式は図中に記したとおりである。また両側の破線および実線で示した曲線は、それぞれ  $x$  の  $p$  に対する 95% 信頼限界および  $p$  の  $x$  に対する 95% 信頼限界の上限、下限である。 $\chi^2(9, 0.05) = 16.92$  であるから、Fig. 7-4, 7-5 によれば、ばく露量を  $\text{NO}_2$  平均濃度の対数にとった正規分布モデルとロジスティック分布モデルの 2 つのみが、全国 6 都市の調査結果に適合するものと判断され、その他のモデルは全て棄却される。

以上から明らかなように、 $\text{NO}_2$  濃度と呼吸器症状有症率との関係に、単純な 1 次式を想定した帰無仮説や、濃度の対数値をとった正規分布モデルやロジスティックモデルの帰無仮説も、実際の観測値からは棄却できなかった。このことは、低濃度域における  $\text{NO}_2$  を指標とする大気汚染影響は、現段階では積極的に否定することができないことを示すものである。

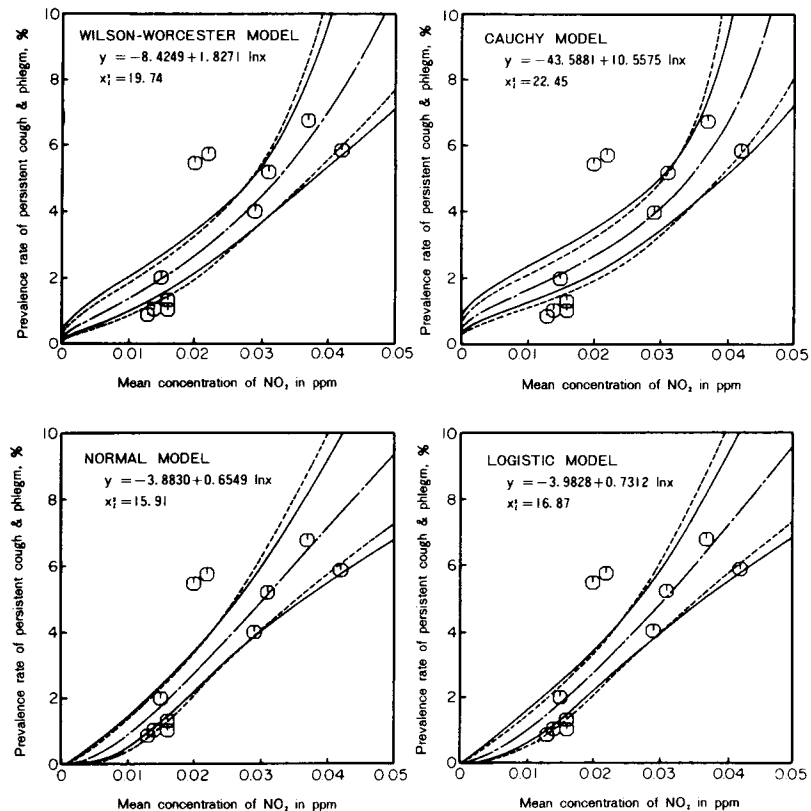


Fig. 7-4 Dose-response relations of the six communities survey  
Dose metameter is log-transformed mean  $\text{NO}_2$  concentration.  
Significance levels for 0.05 and 0.01 of  $\chi^2$ -distribution of 9 degrees of freedom are 16.9 and 21.7.

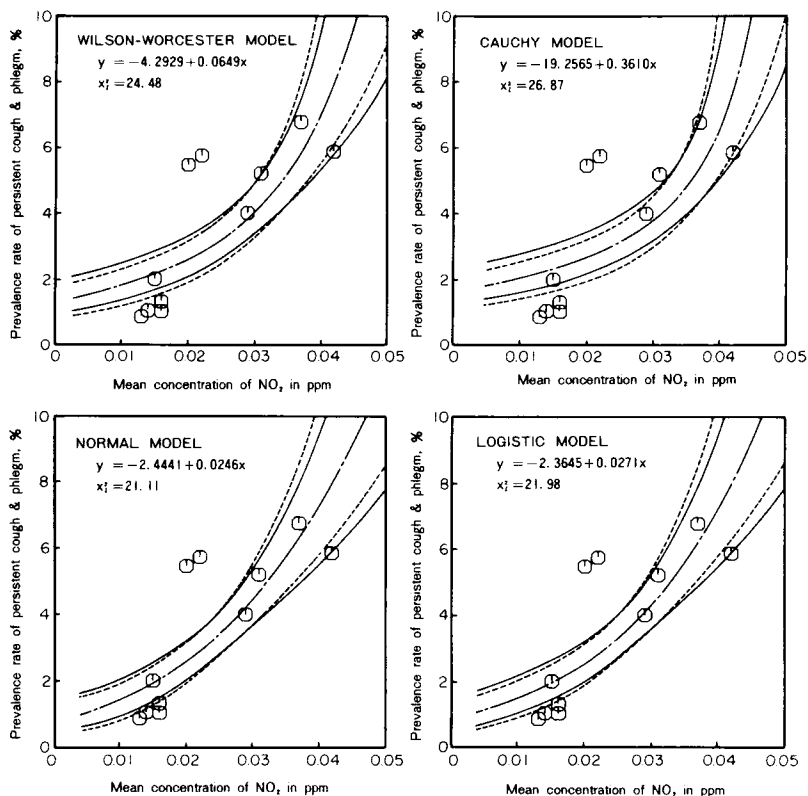


Fig. 7-5 Dose response relations of the six communities survey  
 Dose metameter is simple mean NO<sub>2</sub> concentration.  
 Significance level for 0.05 and 0.01 of  $\chi^2$ -distribution  
 of 9 degrees of freedom are 16.9 and 21.7.

## 第 5 節 要 約

大気汚染の人の健康に与える影響を評価するには、動物実験と人体実験があるが、実験自体にいくつかの制約があるため、実験結果をもとにして環境基準の設定など予防的行動をとる場合には、慎重な配慮が必要である。

本章第 1 節において、このような制約条件を吟味したところ、動物実験結果を人に適用する場合には種差の問題があり、人体実験は短期的な可逆反応を特定の対象について評価するにとどまることが示された。

疫学的研究は広義の人体実験ということができよう。しかし従来の疫学調査結果の解析には、量・反

応関係をもとにした統計的推論を行った例が少なく、またその結果を直接に人口集団全体に適用することはできない。第2節においては安全係数に関する考察を行った。すなわち、疫学的知見から指針値が求められても、弱者集団にそれを適用することはできない。一方、弱者集団を人体実験や疫学調査の対象とすることは困難であるから、弱者保護のための安全係数は恣意的なものにならざるを得ない。そのため、簡単なモデルを想定して一般健康集団と弱者集団との有症率を比較したのがTable 7-1である。

二酸化窒素に係る環境基準が昭和53年7月に改定された。この改定に際して重要な判断材料となったのは、専門委員会が提案した指針値である。この指針値の導入に際して得られた解析結果は公表されていないため、第3節において、わが国の4つの疫学調査結果をもとに解析を行った。その結果、指針値の上限の根拠は不明であるものの、専門委員会が提案した指針値は、影響が認められない濃度の上限（最大無作用量）を示すのではなく、単純性慢性気管支炎（持続性せき・たん）の有症率が増大を開始する濃度であることが明らかとなった。なお、この指針値導入の手法は検出力が弱いため、実際に有症率が増加を開始する濃度は、指針値に対しより低位にあることもある。

第4節においては、大気汚染に係る疫学研究ではこれまで考慮されていなかった量・反応関係の数学モデルを定式化した。これは、耐性曲線に正規分布やコーシー分布などを想定するものであるが、統計的検定が可能である点に特徴がある。実際に全国6都市調査結果に適用した結果、ロジスティックモデルやWilson-Worcesterモデルは棄却されたが、耐性曲線に対数正規分布を想定したモデルが最も妥当であることが示された。

以上が第7章の要約である。



## 第 8 章 結 論

大気汚染は、人間の諸活動に起因して発生する汚染物質が大気環境中に排出され、それらが広いスペクトルをもつ大気運動により移流、拡散、化学変化等をなすことによって生ずる現象である。このような大気中の汚染現象解明に関する従来の工学的手法は、主として大気拡散理論によって移流、拡散等の発生機序を説明することに力点がおかれている。すなわちこの手法は、発生源から排出される汚染物質の大気中における挙動に関する拡散方程式の解を求めることに帰着するもので、いわば *source oriented analysis* というべきものである。

近年に至りわが国をはじめ各国で多くの拡散実験が実施され、また気象構造に関する知見も観測技術の開発とともに多く得られるようになり、大気拡散理論は急激な発展をとげようとしている。しかしながら、現在の大気拡散理論は大気汚染制御の見地から見て必要にして十分な情報を我々に与える段階には未だ到達し得ていないことも指摘されなければならない。例えば大気汚染の実測値と大気拡散理論による計算値との相関は、実用可能で最も精密な手法であっても、年平均濃度が漸く 5% の水準で有意になることが保証されている段階であり、最大値や各種のパーセンタイル値に関する計算値が実測値とよい対応を示すまでに至っていない。

これに対して本研究は *receptor oriented analysis* ともいうべきもので、従来の大気拡散理論の手法とは異なり、測定される大気汚染濃度それ自体に着目してその性質を明らかにし、大気汚染制御に資する知見を得ようとするものである。すなわち本研究の目的は、第 1 に、環境大気中において測定される大気汚染濃度の時間的変化の挙動を統計的手法によって明らかにし、第 2 に、大気汚染制御の指針提示の手法および大気汚染影響解明の指標提示の手法を開発することである。本論文の第 2 章から第 7 章にかけて得られた本研究の成果を述べれば次のとおりである。

第 2 章では大気汚染濃度の確率分布に関する理論的考察を行った。大気汚染濃度分布形のモデルとしては、従来から対数正規分布が先験的に用いられているが、非対称確率分布全体を占める位置については必ずしも明らかでなかった。それに対して本章では、非対称確率分布モデルであるピアソン系分布を標準として、対数正規分布、ワイブル分布が占める位置について理論的考察を行った。一般にピアソン系分布を適用する場合には、4 次までのモーメントを求めることが必要であるが、大気汚染濃度における 4 次モーメント推定の不安定性を避けるため本章では修正ピアソン系分布を新たに導入し、3 次までのモーメントによる簡便な分布形解析手法を示した。また分布形の型判別については、分散係数  $\delta_2$  および歪み係数  $\delta_3$  を新たに定義し、 $\delta_2 - \delta_3$  判別図を提示した。Fig. 2-8 (24 ページ) に示されるこの  $\delta_2 - \delta_3$  判別図により、実測された大気汚染濃度をよく近似する分布形の型が決定でき、また対数正規分布やワイブル分布等の分布形全体に占める位置が明らかになった。このような分布形を *source oriented model* によって説明するために、最後に、従来の大気拡散理論をもとに単一汚染源を対象として、一様で等方的な拡散場における濃度分布の理論解を求めた。その結果、この分布形はベータ分布をなすことが明らかとなった。

第 3 章では臨海工業地域、都市域、単一汚染源地域の 3 種類の地域における大気汚染濃度実測値の分布形解析を行った。その結果、大気汚染濃度の確率分布はピアソン系 I 型 (ベータ分布) および VI 型 (第 2 ベータ分布) によって近似されることが明らかとなった。分布形の地域毎の特性は顕著であり、

臨海工業地域は分散係数  $\delta_2$ 、歪み係数  $\delta_3$  ともに大きな値をとってⅠ型およびⅥ型で近似され、単一汚染源地域は  $\delta_3$  が大きな値をとるⅥ型で近似されることが明らかとなった。これらの定性的な分類は Table 3-9 (48 ページ) に示されるとおりである。汚染物質毎の分布形は、特に顕著な相互の差は認められなかった。このような実測値の解析結果をもとにして、ピアソン系分布に対する対数正規分布の availability が考察され、 $\delta_2 - \delta_3$  判定図における対数正規分布の適用範囲が明らかとなった。大気汚染において問題となる高濃度域に着目するならば、確率分布モデルに対数正規分布を採用することは単一汚染源地域では過少評価、臨海工業地域と都市域では過大評価となることが明らかとなった。最後に対数正規分布のパラメータ推定法、および有限個のデータに関する順序統計量について概説がなされている。

第4章では大気汚染濃度変動の時系列解析がなされ、その結果をもとに自己相関係数とスペクトルの定式化がなされた。時系列解析においては、自己相関係数やスペクトルの形状には分布形解析でみられたほどの地域毎の特徴は認められないが、一方窒素酸化物をはじめとする汚染物質毎の形状には明瞭な特徴が認められた。第5章以後の展開のために、これらの形状は4つの class に分類され、各 class 毎の式形が提示された。その中でも、自己相関係数が24時間周期の余弦波と減衰成分との和によって近似されるものの例が最も多いことが明らかとなった。またスペクトルの高周波数域における多数の線スペクトルをシミュレートするために、濃度変動の原系列がいくつかの矩形波パルスから成るとの仮説を設けた。これは汚染物質の大気環境中への排出が、日、週、季節等の人間活動の周期に一致しておおむね矩形波であることを対応すると考えることができる。

第5章では前章までの解析結果にもとづいて、大気汚染濃度の確率分布を対数正規分布によって表わし、またその時系列の自己相関係数を減衰項と振動項との和によって表わすことにより、大気汚染濃度変動の統計モデルを開発した。すなわち平均化時間の変化による分布形の挙動が対数標準偏差  $\sigma_g$  に対する重み関数  $G(s)$  を導入することにより表現できることが示された。この統計モデルにより、大気汚染に係る種々の特性の理論解が得られるようになった。すなわち平均化時間の変化に伴う超過確率、最大濃度、および超過回数の統計量の挙動が明らかにされた。超過確率は、0次の超過測度であることが次章で示される。超過回数とその超過濃度については、両者を両対数紙上に描くと上に凸なる放物線をなすことが示された。

また大気汚染濃度変動に関する情報を最も多くかつ簡便に表現するものとして、アローヘッドチャートが提示された。アローヘッドチャートは、両対数紙上に描かれたパーセントイル濃度と平均化時間との関係を示す曲線群を指すもので、本章で提示されたものは、簡単な卓上計算機によって求めることができる実用的なものである。本章で提示された統計モデルは、従来の経験的なモデルに比して時系列的考察を行っているために、実測値への適合が良いことが指摘された。

第6章では前章までに得られた成果をもとに、集団に対する閾値と dose に関する定式化を行い、大気汚染制御のための手法を考察した。先ず  $k$  次の超過測度の概念を導入し、大気汚染濃度の確率分布が対数正規分布である場合とピアソン系分布である場合とのそれぞれについて dose の理論式を提示した。次に理論式相互の比較、および実測値との誤差の評価を行い、dose 解析における対数正規分布の availability を考察した。これは第3章における分布形自体の誤差評価に対応し、影響の面から対数正規分布の適用範囲を明らかにしたものである。

大気汚染の程度は、濃度、ばく露時間、出現頻度の3量によって規定することができる。このことを

応用として大気汚染濃度の等価表示方法を提示した。これにより大気汚染に係る指針値（guideline）もしくは環境基準を、地域の特性に応じて、影響が等価な他の表現に換算することが可能となった。このような理論は、大気汚染制御目標を設計するうえで有用なものとなろう。以上の理論の応用として次の3例を最後に述べた。すなわち、わが国のSO<sub>2</sub>に係る判定条件の平均値表示法、SO<sub>2</sub>環境基準の平均値への換算方法、そして有症率調査結果による集団に関する閾値設定方法、以上3つがそれである。

第7章では、わが国の二酸化窒素に係る環境基準に関し、主として統計学的見地からの考察を行った。大気汚染の人体影響に関する知見を吟味する場合は、いくつかの特徴と制約条件を念頭におかねばならない。この章では、一般健康集団に関して得られた知見を弱者集団に適用する際に考慮される安全係数の考察を行い、次に中央公害対策審議会が答申した、二酸化窒素に係る指針値について考察した。その結果、指針値は影響が認められない環境条件を表現したものではなく、40～59歳の成人男女、もしくは30歳以上の女子などの集団において、単純性慢性気管支炎の有症率が増大を開始する濃度を示すものであることが明らかとなった。わが国の環境基準は、国民の健康の保護と生活環境の保全を目標として設定されるべきものであるから、指針値から環境基準を導出する場合には、弱者の健康保護を考慮する必要のあることはいうまでもない。

以上が本研究によって得られた成果である。

## 参 考 文 献

- Aitchison, J. and Brown, J. A. C. (1957). *The lognormal distribution with special reference to its uses in economics*. Cambridge Univ. Press.
- 赤池弘次 (1968). スペクトル解析. 磯部 孝 (編) 相関函数およびスペクトル, 28, 東京大学出版会.
- 雨宮綾夫・田口武夫 (編) (1969). 数値解析とFORTRAN, 丸善.
- Ash, D., Bloomfield, P. and McNeil, D. R. (1972). On the statistical analysis of air pollution data. Technical Report 19, Series 2, Department of Statistics, Princeton University.
- Barry, P. J. (1969). A statistical approach to the air pollution problem of chimney emission. *Discussions, Atm. Env.*, 3, 328.
- Barry, P. J. (1971). Use of Argon-41 to study the dispersion of stack effluents. *Nuclear techniques in environmental pollution*, Int. Atomic Energy Agency, Vienna, 241.
- Bath, M. (1974). *Spectral analysis in geophysics*, Developments in solid earth geophysics 7. Elsevier Scientific Pub. Co., Amsterdam.
- Benarie, M. (1969). Le calcul de la dose et de la nuisance du polluant émis par une source ponctuelle. *Atm. Env.*, 3, 467.
- Benarie, M. (1971). Sur la validité de la distribution logarithmico-normale des concentrations de polluant. *Proceedings of the 2nd Int. Clean Air Congress, 1970, Washington D. C.*, 68. Academic press, New York.
- Benarie, M. (1974). The use of the relationship between wind velocity and ambient pollutant concentration distributions for the estimation of average concentrations from gross meteorological data. *Proceedings of the symposium on statistical aspects of air quality data, 5-1, U.S. EPA - 650/4 - 74 - 038*.
- Bendat, J. S. and Piersol, A. G. (1971). *Random data: Analysis and measurement procedures*. Wiley-Interscience.
- Blackman, R. B. and Tukey, J. W. (1958). *The measurement of power spectra from the point of view of communication engineering*. Dover Publications, Inc., New York.
- Blom, G. (1958), *Statistical estimates and transformed Beta-variables*. John Wiley and Sons, New York.
- Busch, N. E. (1973). On the mechanics of atmospheric turbulence. *Workshop on micrometeorology*, Haugen, D. A. (ed.), 1-61. American Met. Soc., Boston.
- Chow, V. T. (1955). The log-probability law and its engineering applications. *Proc. ASCE*, 80, 536-1.

- Cramer, H. (1946). *Mathematical methods of statistics*. Princeton Univ. Press, Princeton.
- Cramer, H. and Leadbetter, M. (1967). *Stationary and related stochastic processes*. John Wiley and Sons, New York.
- Csanady, G. T. (1968). Turbulent diffusion from a cross-wind line source in shear flow at Fort Wayne, Indiana. *Atm. Env.*, 2, 273.
- Csanady, G. T. (1969). Dosage probabilities and area coverage from instantaneous point sources on ground level. *Atm. Env.*, 3, 25.
- Drufuca, G. and Giugliano, M. (1977). The duration of high SO<sub>2</sub> concentrations in an urban atmosphere. *Atm. Env.* 11, 729.
- Elderton, W. P. (1927). *Frequency curves and correlation, 2nd edition*. Harren, Washington.
- Fellor, W. (1971). *An introduction to probability theory and its applications*, vol. II. Wiley, New York.
- Filippov, A. F. (1961). On the distribution of the sizes of particles which undergo splitting. *Theory of probability and its applications*, 6, 3, 275.
- Finney, D. J. (1941). On the distribution of a variate whose logarithm is normally distributed. *Suppl. J.R. Statist. Soc.*, 7, 155.
- Finney, D. J. (1978). *Statistical method in biological assay*. Charles Griffin & Co. Ltd., London.
- Fortak, G. (1970). Numerical simulation of temporal and spatial distributions of urban air pollution concentration. *Proceedings of symposium on multiple-source urban diffusion models*. U.S. EPA, Pub. No. AP-86.
- 藤江喜美子 (1971). 大阪におけるHigh Volume Air Sampler による浮遊粉塵測定結果の解析、*大気汚染研究*, 5, 2, 290.
- Galton, F. (1879). The geometric mean in vital and social statistics. *Proc. Roy. Soc.*, 29, 365.
- Geiger, R. (1965). *The climate near the ground*. Harvard Univ. Press, Cambridge.
- Gifford, F. A. (1959). Statistical properties of a fluctuating plume model. *Proceedings of symposium on atmospheric diffusion and air pollution*, *Advances in Geophysics*, 6, 117.
- Gifford, F. A. (1974). The form of the frequency distribution of air pollution concentrations. *Proceedings of the symposium on statistical aspects of air quality data*, 3-1. U. S. EPA-650/4-74-038.
- Goroshko, B. B. and Zaitsev, A. S. (1973). Some characteristics of contaminant

- concentration distribution over a territory. *Air pollution and atmospheric diffusion 2*, Berlyand, M. E. (ed.), 50. John Wiley & Sons, New York.
- Gumbel, E. (1958). *Statistics of extremes*. Columbia University Press, New York.
- 花房竜男 (1977). スペクトル解析の方法と気象要素のスペクトル、気象研究ノート、131, 1.
- Harter, H. L. (1961). Expected values of normal order statistics. *Biometrika*, 48, 1 and 2, 151.
- Hastings, C. Jr., Haywood, J. T. and Wong, J. P. Jr. (1955). *Approximations for digital computers*. Princeton Univ. Press, Princeton.
- Hatch, T. (1962). Changing objectives in occupational health. *Ind. Hygiene Journal*, Jan. Feb., 1.
- 日野幹雄 (1976). MEM・最大エントロピー法による新しいスペクトルの計算法、土木学会誌、61, 50.
- Hoadley, A. B. (1968). Use of the Pearson densities for approximating a skew density whose left terminal and first three moments are known. *Biometrika*, 55, 559.
- Hunt, W. F. (1972). The precision associated with the sampling frequency of log-normally distributed air pollutant measurements. *J. APCA.*, 22, 9, 687.
- 碓宏八郎 (1977). 唐津地区のSO<sub>2</sub>汚染と発生源規制、大気汚染研究、11, 6, 49.
- 井上力太・谷沢平八郎 (1973). 私信.
- 井上力太・渡辺有治 (1973). 自動測定器による硫黄酸化物濃度測定値の統計的性質について(I). 大気汚染研究, 8, 4, 28.
- 井上力太・渡辺有治 (1975). 自動測定器による硫黄酸化物濃度測定値の統計的性質について(II). 大気汚染研究, 10, 3, 25.
- 石崎澆雄・光田 寧・花房竜男 (1968). 風速変動の長周期成分について. 京都大学防災研究所年報, 11, 489.
- 岩井重久 (1947). 水文学における非対称分布について, 土木学会論文集, 第1~2号, 101.
- 岩井重久 (1948). 継続曲線の水文統計学的研究, 京都大学学位論文.
- 岩井重久 (1949). Slade型分布の非対称性の吟味及其の2, 3の新解法. 土木学会論文集, 第4号, 84.
- 岩井重久 (1953). 対数正規型継続曲線の推定法とその流況洪水資料への応用. 発電水力, 2, 3, 8, 2, 5, 15.
- 岩井重久・石黒政儀 (1970). 応用水文統計学. 森北出版.
- 岩井重久・川本正身 (1949). 流況より見た本邦河川の特性について、建設工学, 2, 213, 42.
- Kendall, M. G. and Stuart, A. (1969). *The advanced theory of statistics, vol. 1, 3rd ed.* Charles Griffin & Co., London.

- Kimball, B. F. (1960). On the choice of plotting positions on the probability paper. *J. Am. Statist. Assoc.*, 55, 546.
- Koch, R. C. and Thayer, S. D. (1972). Validation and sensitivity analysis of the Gaussian plume multiple source urban diffusion model, Final report. U.S. EPA, Pub. No. APTD-0935.
- Kolmogoroff, A. N. (1941). Über das logarithmisch normale Verteilungsgesetz der Dimensionen der Teilchen bei Zerstückelung. *Comptes Rendus (Doklady) de l'Académie des Sciences de l'URSS*, 31, 2, 99.
- Lacoss, R. T. (1971). Data adaptive spectral analysis methods. *Geophysics*, 36, 661.
- Larsen, R. I. (1961). Parameters of aerometric measurements for air pollution research. *Am. Ind. Hygiene Assoc. Journal*, 22, 2, 97.
- Larsen, R. I. (1969). A new mathematical model of air pollutant concentration averaging time and frequency. *J. APCA*, 19, 1, 24.
- Larsen, R. I. (1971). A mathematical model relating air quality measurements to air quality standards. U. S. EPA, Pub. No. AP-89.
- Liedmeier, G. P. and Gammelgard, P. N. (1968). A perspective of air pollution and oil. *Pollution prevention*, Hepple, P. (ed.), 21, The Inst. Petroleum, London.
- Lynn, D. A. (1974). Fitting curves to urban suspended particulate data. Proceedings of the symposium on statistical aspects of air quality data, 13. 1. U.S. EPA-650/4-74-038.
- 真壁 肇 (1966). ワイブル確率紙の使い方. 日本規格協会.
- Mann, N. R. (1969). Optimum estimators for linear functions of location and scale parameters. *Annals of Mathematical Statistics*, 40, 2149.
- Mantel, N. et al. (1975). An improved Mantel Bryan procedure for "Safety" testing of carcinogens. *Cancer Research*, 35.
- Marcus, A. H. (1973). Air pollutant averaging times: Notes on a statistical model. *Atm. Env.*, 7, 265.
- Marcus, A. H. (1974). *Private communications*.
- Martin, A. and Barber, F. R. (1966). Investigations of sulphur dioxides around a modern power station. *J. Inst. Fuel*, 39, 294.
- Martin, A. and Barber, F. R. (1967). Sulphur dioxide concentrations measured at various distances from a modern power station, *Atm. Env.*, 1, 655.
- McAlister, D. (1897). The law of the geometric mean. *Proc. Roy. Soc.*, 29, 367.
- Mitchell, R. L. (1968). Permanence of the log-normal distribution. *J. of the Optical Soc. of America*, 58, 9, 1267.

- 宮木高明(編)(1976). 薬物と生体, 現代生物科学 14, 岩波書店
- Monin, A. S. and Yaglom, A. M. (1971). *Statistical fluid mechanics: Mechanics of turbulence, vol. 1*. The MIT Press, Cambridge.
- 森 征洋(1975). 潮岬における風速変動の長周期成分のスペクトル解析, 香川大学教育学部研究報告, 25, 1, 31.
- 大志野章・佐藤 功・水間満郎・塚谷恒雄(1975). 単一大発生源と大気汚染 I, II, 科学, 45, 5, 302., 45, 6, 352.
- 太田久雄・長尾 隆(1974). 公害と気象: 観測と調査の実際, 地人書館.
- 大滝 厚・塩沢清茂・岡本真一(1975). 大気汚染濃度の統計的予測方式に関する研究(I), 大気汚染研究, 9, 3, 544.
- Oldham, P. D. (1953). The nature of the variability of dust concentration at the coal face. *Brit. J. Industr. Med.*, 10, 227.
- Oldham, P. D. (1965). On estimating the arithmetic means of log-normally distributed populations. *Biometrics*, 21, 235.
- Pasquill, F. (1974). *Atmospheric diffusion, 2nd ed.*, Ellis Horwood, Chichester.
- Pearson, E. S. and Hartley, H. O. (1954). *Biometrika tables for statisticians vol. 1*. Cambridge Univ. Press, London.
- Pollack, R. I. (1975). Studies of pollutant concentration frequency distributions. U. S. EPA-650/4-75-004.
- Radoski, H. R., Fougere, P. F. and Zawalick, E. J. (1975). A comparison of power spectral estimates and applications of the maximum entropy method. *J. Geophys. Res.*, 80, 4, 619.
- Ramberg, J. S. (1975). A probability distribution with application to Monte Carlo simulation studies. *Statistical distributions in scientific work vol. 2*, Patil, G. P, (ed.), 51, Reidel, Dordrecht.
- Scriven, R. A. (1965). Some properties of ground level pollution patterns based upon a fluctuating plume model. CERE Note No. RD/L/N 60/65.
- 島貫 陸(1973). 境界層と乱流. 気象研究ノート, 114, 1.
- 新村秀一・清水忠彦(1977). 自己回帰モデルによる汚染物質濃度のスペクトル解析について, 大気汚染研究, 12, 2, 1.
- 庄司 光(1966). 衛生工学(上): 環境汚染制御. コロナ社
- 庄司 光(1969). 許容度と環境基準. 戒能通孝(編)公害法の研究, 253, 日本評論社.
- 庄司 光(1978). 公衆衛生学の立場からの証言. 公害研究, 7, 3, 9.
- 庄司 光・塚谷恒雄(1970). 大気汚染環境基準に関する確率論的一考察, 第6回衛生工学研究討論講演論文集, 120.
- Shoji, H. and Tsukatani, T (1973). Statistical model of air pollutant concentration and its application to the air quality standards. *Atm.*



- Env. 7, 485.
- Shoji, H. and Tsukatani, T. (1975). Statistical model of air pollutant concentration. Technology Report of Kansai University, No. 17, 121.
- Singpurwalla, N. D. (1972). Extreme values from a log normal law with applications to air pollution problems. *Technometrics*, 14, 3, 703.
- Stern, A. C. (1968). Air pollution standards. *Air pollution vol. II*, Stern, A. C. (ed.), 601, Academic Press, New York.
- 鈴木武夫 (1975). 大気汚染の環境基準についての1つの考察. *生活衛生*, 19, 1, 1.
- 鈴木武夫・塚谷恒雄 (1976). 大気汚染の環境基準, *公害研究*, 5, 4, 55.
- 高橋幹二 (1972). 基礎エアロゾル工学, 養賢堂.
- 竹内 啓 (1975). 確率分布と統計解析, 日本規格協会.
- Taylor, G. I. (1935). Statistical theory of turbulence. *Proc. Roy. Soc., A*, 151, 421.
- Taylor, G. I. (1938). The spectrum of turbulence. *Proc. Roy. Soc., A*, 164, 476.
- 寺部本次 (1969). 大気汚染測定法の実際, 技報堂.
- Toda, H. (1967). An optimal rational approximation for normal deviates for digital computers. *Bull. Electrotech. Lab.*, 31, 12, 1259.
- 東京都 NO<sub>x</sub> 検討委員会 (1979). NO<sub>2</sub> 環境基準改定に関する検討結果報告書, 東京都.
- Tsukatani, T. (1978). The duration of high SO<sub>2</sub> concentration in an urban atmosphere. *Discussions, Atm. Env.* 12, 1242.
- 塚谷恒雄 (1977). コンビナートの公害と災害. 宮本憲一(編)大都市とコンビナート, 227, 筑摩書房.
- 塚谷恒雄 (1979). 環境基準の安全性. *労働の科学*, 34, 11, 11.
- Tsukatani, T. and Shigemitsu, K. (1979). Simplified Pearson distributions applied to air pollutant concentration. *Atm. Env.* (in press).
- Tsukatani, T. and Shigemitsu, K. (1980). Dosage analysis of air pollutant concentration. *Atm. Env.* (in press).
- Tsukatani, T. and Shoji, H. (1977). Statistical model of air pollutant concentration. *Proceedings of the 4th Int. Clean Air Congress*, 315, JUAPPA.
- Ulrych, T. J. (1972). Maximum entropy power spectrum of truncated sinusoids. *J. Geophys. Res.*, 77, 1396.
- Van der Hoven, I. (1956). Power spectrum of horizontal wind speed in the frequency range from 0.0007 to 900 cycles per hour, *J. Met.*, 14, 160.
- Vinnichenko, N. K. (1970). The kinetic energy spectrum in the free atmosphere - 1 second to 5 years. *Tellus*, 2, 158.
- WHO (1964). *Atmospheric Pollutants*. Technical report series No. 271.
- WHO (1977). *Oxides of nitrogen*. Environmental health criteria 4.

- 山本英二・竹島克郎・柳本武美(1977). 安全基準としての閾値とホッケースティック回帰法の検討, 安全性の評価と安全基準に関する統計学的研究, 1, 統計数理研究所.
- 山内二郎(1965). 正規分布の百分率点の有理関数近似. 第6回プログラミングシンポジウム報告集, D 15-17, 情報処理学会.
- 山内二郎(編)(1972). 統計数値表 JSA-1972, 日本規格協会.
- 矢田部照夫(1975). 低濃度域におけるAPメータ指示値の補正方法. 電力中央研究所技術第1研究所, 研究報告 74095.
- 吉田克己(1967). 四日市公害の現況とその問題点. 西尾雅七・庄司 光(編)人災と健康, 125, 光生館
- 吉田 亮・安達元明・仁田善雄・村井雅子・岩崎明子(1977). 千葉県における慢性気管支炎症状の疫学的研究. 日本公衆衛生誌, 23, 7, 435.
- Yoshino, M. M. (1975). *Climate in a small area: An introduction to local meteorology*. University of Tokyo Press, Tokyo.
- Zimmer, C. E. and Larsen, R. I. (1965). Calculating air quality and its control. J. APCA, 15, 12, 565.

## 謝 辞

本研究は、その遂行にあたって次の方々から幾多の御援助をたまわった。ここに記して著者の謝意を表する。

Dr. Y. Horie (Stanford Research Institute, U.S.A.).

井上力太教授 (北海道大学) .

岩井重久教授 (京都大学名誉教授)

Dr. D.H. Lucas (Central Electricity Research Laboratories, GB).

重光和之氏 (広島県環境保健部)

庄司 光教授 (京都大学名誉教授)

筒井天尊教授 (京都大学)

若松伸司氏 (国立公害研究所)

渡辺有治氏 (苫小牧市環境局)

山本剛夫教授 (京都大学)

大気環境の濃度と基準に関する  
基礎的研究

著者 塚谷恒雄

印刷所 尚文館工房

堺市中田出井町1丁3番25号

電話 (0722) 38-9404・33-4553