

【調査報告】

環境大気測定結果にみる大気汚染物質の動向について

— 第2報 —

Trend of air pollution substance recognized by atmospheric monitoring data
— a second report —

岩崎 英二* 立石 康彦* 谷口 三紀生* 西 隆行*
Eiji IWASAKI, Yasuhiko TATEISHI, Mikio TANIGUCHI and Takayuki NISHI

キーワード：大気汚染物質、データベース化、二酸化硫黄、窒素酸化物、浮遊粒子状物質

1. はじめに

西日本支局では、北部九州を中心として1989年から現在までに大気測定車を用いた環境大気測定業務を行ってきた。当業務も約10年を経過し、収集したデータがかなり蓄積されている。これらのデータを多方面の条件から比較することにより、ある地域で観測・測定された気象データ及び大気汚染物質濃度を検討・評価する際に資料の一つとしてこれらを利用できるよう、現在、データベース化を進めている。第1報では、現在までにデータベース化したものから、二酸化硫黄(SO₂)、一酸化窒素(NO)、二酸化窒素(NO₂)、窒素酸化物(NO_x)及び浮遊粒子状物質(SPM)の各測定データについて時刻別、風向別、大気安定度別に各大気汚染物質濃度の平均値等について検討を行った。今回は各測定データ間の相関や物質濃度の出現状況についての検討を行った。

2. 調査方法

本検討にあたっては、第1報と同様にデータを測定地点別に以下の3通りに分けた。

- ①測定地点周辺が都市部と考えられるもの：a地区 (測定地点数24)
 - ②測定地点周辺は田園地帯と考えられるが、近くに工場群が存在するもの：b地区 (測定地点数18)
 - ③測定地点周辺が田園地帯と考えられるもの：c地区 (測定地点数10)
- 備考1) 平成元年～10年までの環境大気測定の

実施件数は約50件 (測定地点数52) である。

- 2) データベース化にあたっては、Microsoft Excel及びMicrosoft Accessを使用した。

各大気汚染物質の測定方法については、以下のとおりであり、測定値は1時間値である。

- ・二酸化硫黄：溶液導電率方式
- ・窒素酸化物 (一酸化窒素、二酸化窒素)：吸光度法
- ・浮遊粒子状物質：ベータ線吸収方式

3. 結果および考察

検討を行った結果は以下のとおりである。

1) 相関について

各地区及び各物質毎に集計を行ったデータについての相関係数を表1に示した。

数値に若干の違いはみられるが各地点ともNOとNO_x、NO₂とNO_xが第1位又は第2位と相関が高くなっている。また、他の項目間の相関係数はNOとNO₂を除き全て0.5以下の値と低くなっている。

相関係数をみると、NOとNO_x、NO₂とNO_xでは高いが、その他の物質間については、低い値となっている。NO_xはNO+NO₂の算術加算値であるので、相関係数が高いのはある程度当然のことであり、結果もその傾向が出ている。他の物質間の相関係数については、今回は全データを対象としているためか低い値であ

* (財) 日本環境衛生センター西日本支局環境科学部
Department of Environmental Science, West
Branch, Japan Environmental Sanitation Center

表1 各地区及び各物質の相関係数

① a 地区

	SO ₂	NO	NO ₂	NO _x	SPM
SO ₂	1				
NO	0.247	1			
NO ₂	0.319	0.582	1		
NO _x	0.312	0.922	0.846	1	
SPM	0.344	0.343	0.467	0.441	1
データ数	15,762	15,762	15,762	15,762	15,762

② b 地区

	SO ₂	NO	NO ₂	NO _x	SPM
SO ₂	1				
NO	0.129	1			
NO ₂	0.278	0.556	1		
NO _x	0.238	0.841	0.900	1	
SPM	0.341	0.246	0.385	0.360	1
データ数	7,311	7,311	7,311	7,311	7,311

③ c 地区

	SO ₂	NO	NO ₂	NO _x	SPM
SO ₂	1				
NO	0.235	1			
NO ₂	0.282	0.560	1		
NO _x	0.297	0.799	0.935	1	
SPM	0.043	0.122	0.234	0.213	1
データ数	2,732	2,732	2,732	2,732	2,732

ったが、風速階級別や高濃度発生時を対象とした場合等ではまた違った結果となる可能性もある。

2) 相関係数の検定について

1) で求めた相関係数について検定を行った結果は以下のとおりである。

(1) 検定方法

検定は以下の手順で行った。

- ① 帰無仮説H₀: $\rho = 0$ (両項目間に相関がない)
- ② 対立仮説H₁: $\rho \neq 0$ (両項目間に相関がないとはいえない→両項目間に相関がある)
これにより両側検定で行う。

③ 統計量Tを求める。

$$T = r \sqrt{\frac{n-2}{1-r^2}} \quad \begin{array}{l} r : \text{相関係数} \\ n : \text{データ数} \end{array}$$

④ 有意水準 $\alpha = 0.05$

⑤ 棄却域の設定

棄却域は本来 $t(n-2, \alpha/2)$ であるが、n数が最も少ないc地区で2,000データ以上であるので、ここでは棄却域を $t(\infty, 0.025) = 1.96$ と設定する。

⑥ $T > t(\infty, 0.025) = 1.96$ の時、仮説を棄却する。

(2) 検定結果

各項目間の相関係数について、統計量Tを求めた結果を表2に示した。

統計量Tが最も低いc地区のSO₂とSPMの場合でもT=2.3>1.96となり、帰無仮説H₀は全ての場合において棄却される。従って、相関係数の大小に係わらず、全ての場合において「有意水準0.05で両項目間に相関がある」といえる。

3) 各地区における各物質の相関等について

2)の検討結果から、全ての物質間に相関があると判断されたので、a、b、c地区における各物質の相関等について検討を行った結果を表3に示す。

1)でも述べたようにNOとNO_x、NO₂とNO_xが相関係数が高い。地区別にみた場合の特徴として、相関係数がNOとNO_xではa地区>b地区>c地区となっているのに対し、NO₂とNO_xでは逆にc地区>b地区>a地区の順となっている。これは、NOとNO₂の変動幅の違いがNO_xに影響を与えていることが考えられる。すなわち、NO_xが高濃度になる程NOの占める割合が高くなっており、原因としてはNOに対する影響の大きい自動車台数の違い(一般的に自動車から排出されるNO_xの大部分はNOといわれている)により、a地区>b地区>c地区となっているものと考えられる。

表2 各項目間の統計量T

① a 地区

	SO ₂	NO	NO ₂	NO _x	SPM
SO ₂					
NO	32.1				
NO ₂	42.2	89.8			
NO _x	41.2	297.9	199.2		
SPM	46.0	45.9	66.2	61.7	
データ数	15,762	15,762	15,762	15,762	15,762

② b 地区

	SO ₂	NO	NO ₂	NO _x	SPM
SO ₂					
NO	11.1				
NO ₂	24.8	57.1			
NO _x	21.0	132.9	176.2		
SPM	31.0	21.7	35.6	33.0	
データ数	7,311	7,311	7,311	7,311	7,311

③ c 地区

	SO ₂	NO	NO ₂	NO _x	SPM
SO ₂					
NO	12.6				
NO ₂	15.3	35.3			
NO _x	16.3	69.5	137.3		
SPM	2.3	6.4	12.6	11.4	
データ数	2,732	2,732	2,732	2,732	2,732

表3 各地区及び各物質の相関係数

① a 地区

	SO ₂	NO	NO ₂	NO _x	SPM
SO ₂	1				
NO	0.247	1			
NO ₂	0.319	0.582	1		
NO _x	0.312	0.922	0.846	1	
SPM	0.344	0.343	0.467	0.441	1
データ数	15,762	15,762	15,762	15,762	15,762
平均値	0.006 ppm	0.008 ppm	0.014 ppm	0.021 ppm	0.037 mg/m ³
最大値	0.160 ppm	0.283 ppm	0.065 ppm	0.335 ppm	0.263 mg/m ³
最小値	0 ppm	0 ppm	0 ppm	0 ppm	0 mg/m ³
標準偏差	0.0046	0.0144	0.0103	0.0220	0.0242
95%	-0.0030	-0.0206	-0.0066	-0.0220	-0.0103
信頼区間	0.0152	0.0359	0.0337	0.0644	0.0846
分散	0.0214	0.2073	0.1058	0.4856	0.5862

② b 地区

	SO ₂	NO	NO ₂	NO _x	SPM
SO ₂	1				
NO	0.129	1			
NO ₂	0.278	0.556	1		
NO _x	0.238	0.841	0.900	1	
SPM	0.341	0.246	0.385	0.360	1
データ数	7,311	7,311	7,311	7,311	7,311
平均値	0.005 ppm	0.003 ppm	0.008 ppm	0.011 ppm	0.036 mg/m ³
最大値	0.033 ppm	0.087 ppm	0.052 ppm	0.155 ppm	0.323 mg/m ³
最小値	0.001 ppm	0 ppm	0 ppm	0 ppm	0 mg/m ³
標準偏差	0.0026	0.0059	0.0073	0.0117	0.0195
95%	-0.0004	-0.0081	-0.0065	-0.0118	-0.0021
信頼区間	0.0098	0.0148	0.0219	0.0340	0.0744
分散	0.0067	0.0342	0.0526	0.1365	0.3807

③ c 地区

	SO ₂	NO	NO ₂	NO _x	SPM
SO ₂	1				
NO	0.235	1			
NO ₂	0.282	0.560	1		
NO _x	0.297	0.799	0.935	1	
SPM	0.043	0.122	0.234	0.213	1
データ数	2,732	2,732	2,732	2,732	2,732
平均値	0.005 ppm	0.001 ppm	0.002 ppm	0.003 ppm	0.024 mg/m ³
最大値	0.068 ppm	0.043 ppm	0.033 ppm	0.050 ppm	0.159 mg/m ³
最小値	0.001 ppm	0 ppm	0 ppm	0 ppm	0 mg/m ³
標準偏差	0.0033	0.0014	0.0025	0.0035	0.0137
95%	-0.0019	-0.0017	-0.0025	-0.0034	-0.0032
信頼区間	0.0111	0.0038	0.0072	0.0101	0.0504
分散	0.0110	0.0020	0.0061	0.0120	0.1871

また、各地区毎及び物質毎に求めた平均値及び標準偏差から95%信頼区間を求めた結果は、図1のとおりである。

特徴として、SO₂を除いたNO、NO₂、NO_x、SPMでは95%信頼区間の大きさがa地区>b地区>c地区の順となっている。この結果は、発生要因（自動車、工場群等）がa地区>b地区>c地区の順で多いと考えられることと傾向的に一致している。これに対し、SO₂では95%信頼区間の大きさが、a地区>c地区>b地区の順であり、かつ、最大値の差が小さいためにそのような傾向がみられない。従って、SO₂では工場群等によるa、b、c地区といった区分けは適当ではないと考えられる。このことは、工場群に対する二酸化硫黄の排出規制もあり、一般環境大気測定局15局の平均値が昭和42年の0.059ppmをピークとして現在ではおよそ1/5~1/6となっていることから分かる。なお、区分けにあたっては、いくつかの論

文（参考文献番号5）、6))で九州内でSO₂の高濃度観測時には、影響要因として火山を発生源とする場合が多いことが発表されていること等から、自然発生源等の有無といったことを考慮する必要があると思われる。

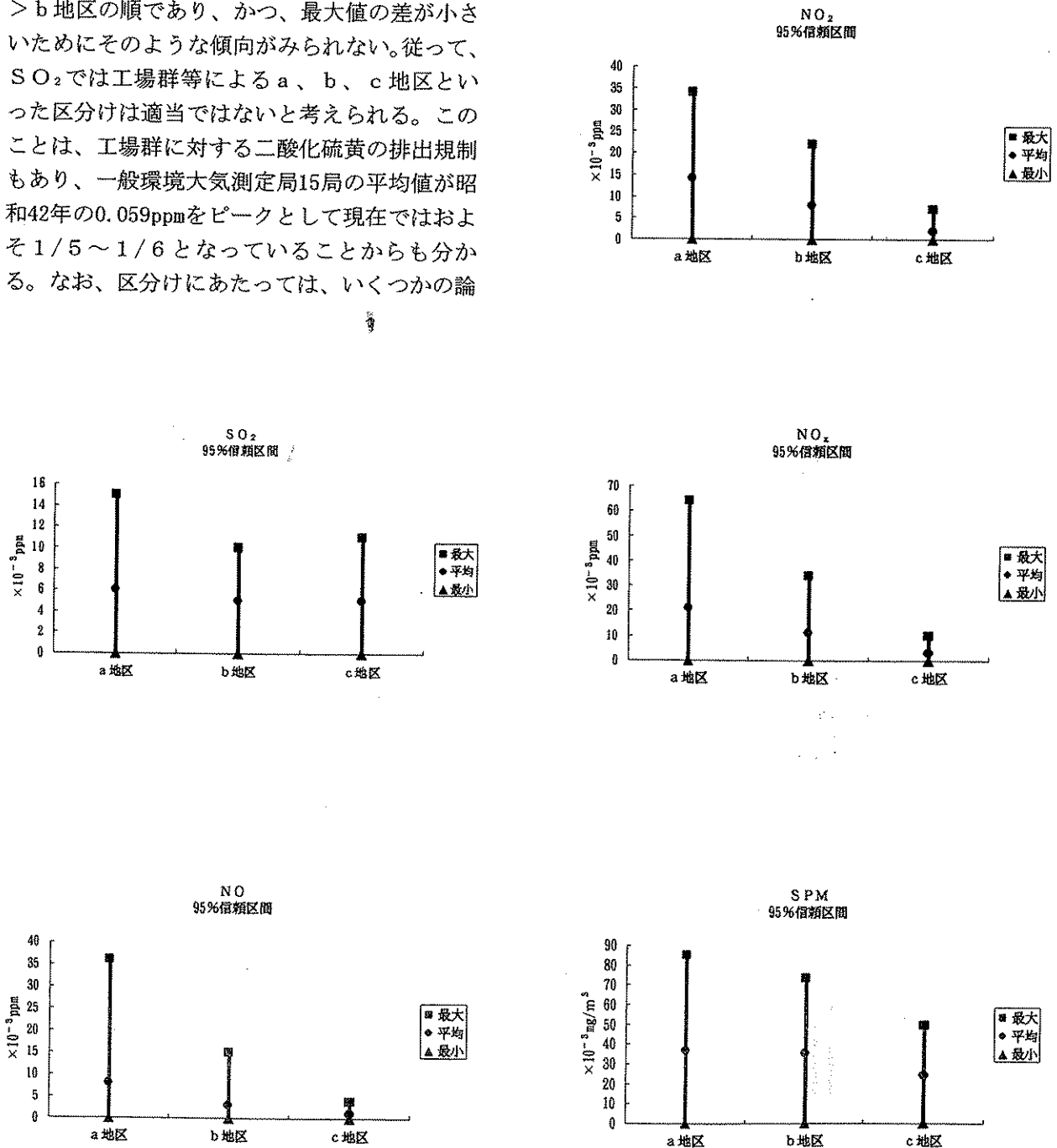


図1 各物質濃度毎の95%信頼区間

4) データ全体に対する物質濃度の出現頻度について

各物質濃度の出現頻度(回)及びデータ全体に対する累積(%)は図2~4のとおりである。

結果からある一定濃度以上から出現頻度が非常に少なくなっていることがわかる。また、高濃度側で全体の1%となる具体的な濃度は表4のとおりであり、同表の値を上回る値が測定された際は、何か突発的な要因があると考えられる方

が適当であろう。これは、第1報で上位10位までのデータの出現状況を調べた際、その原因は突発的な要因と考えられる結果となったことと一致している。

今後現地での環境大気測定時に高濃度出現が記録された際に、突発的な要因の可能性を考える上での判断材料の一つとして利用できるのではないかと考えられる。

表4 各物質の高濃度側1%以下となる濃度

	SO ₂	NO _x	SPM
a地区	0.022ppm以上	0.104ppm以上	0.126mg/m ³ 以上
b地区	0.014ppm以上	0.055ppm以上	0.095mg/m ³ 以上
c地区	0.015ppm以上	0.016ppm以上	0.069mg/m ³ 以上
環境基準 (1時間値)	0.100ppm以下	—	0.200mg/m ³ 以下

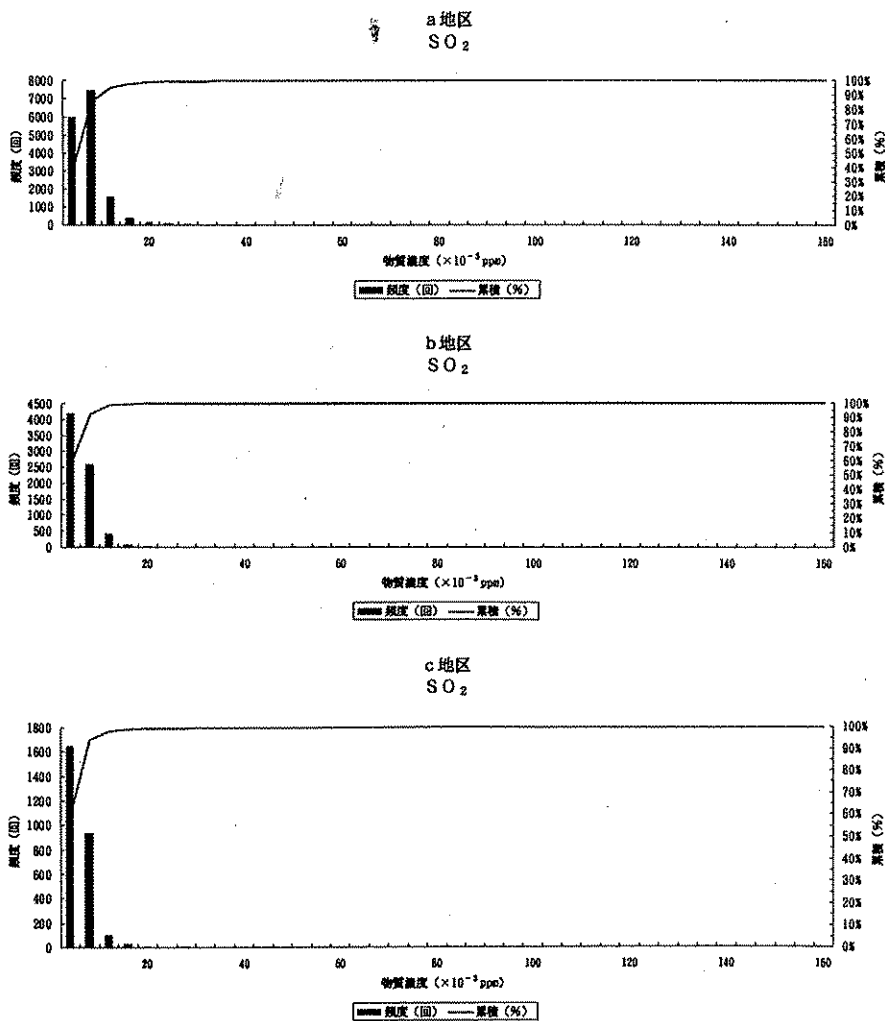


図2 データ区間毎の出現頻度及び全体データに対する累積(二酸化硫黄)

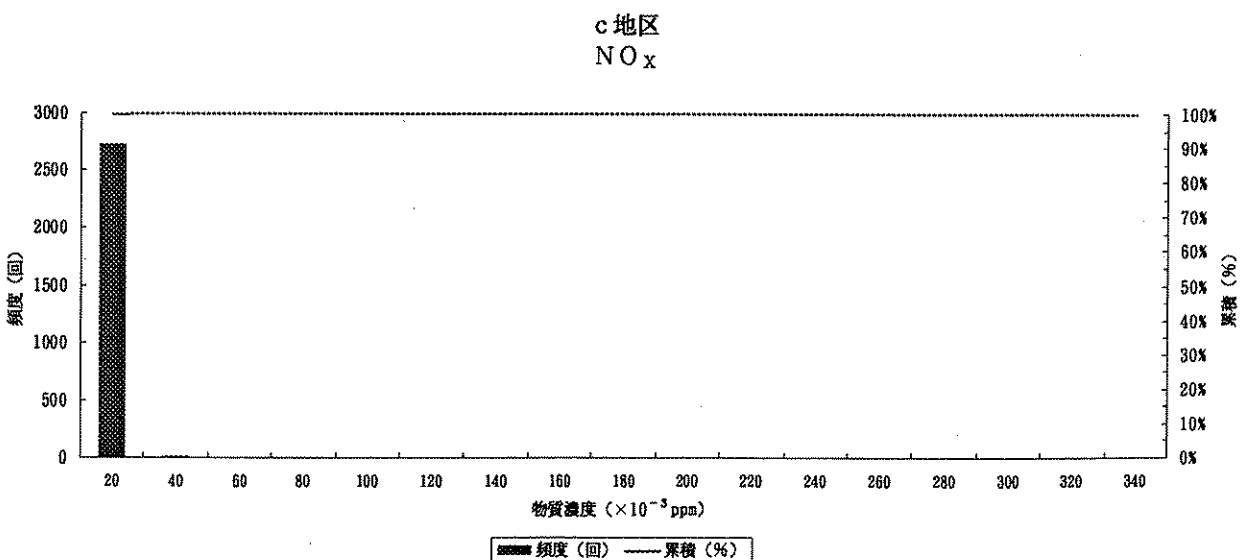
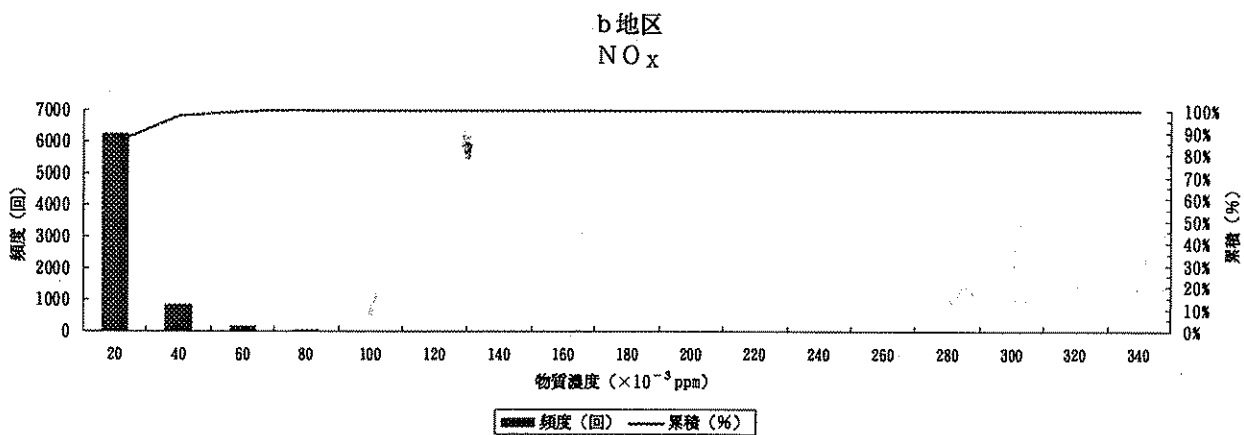
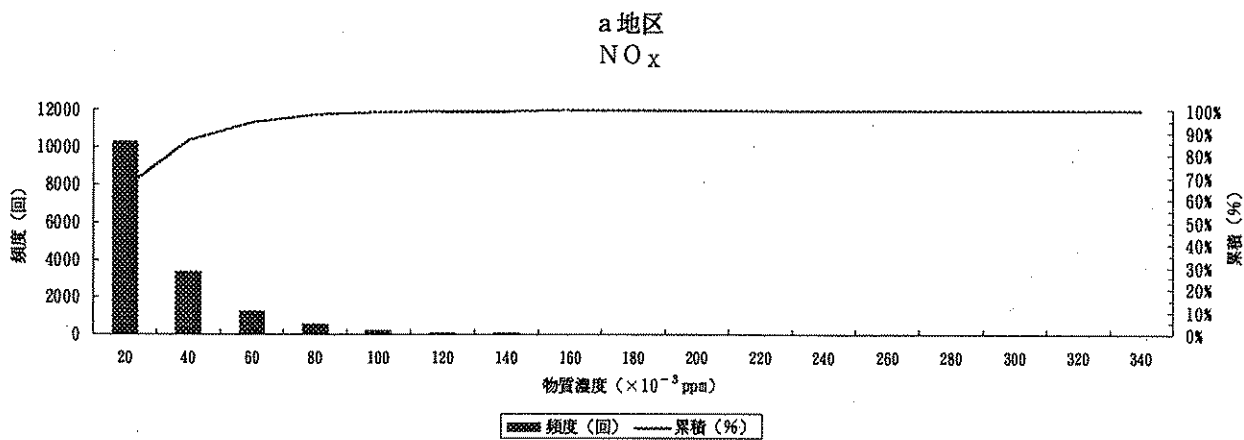
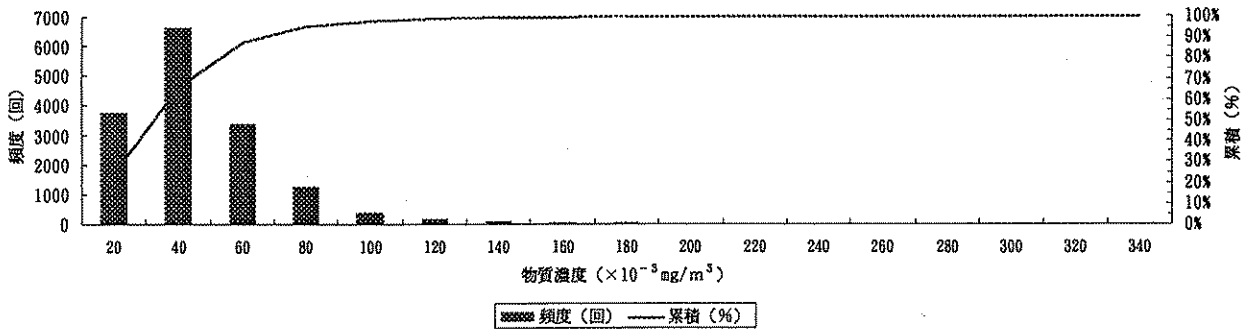
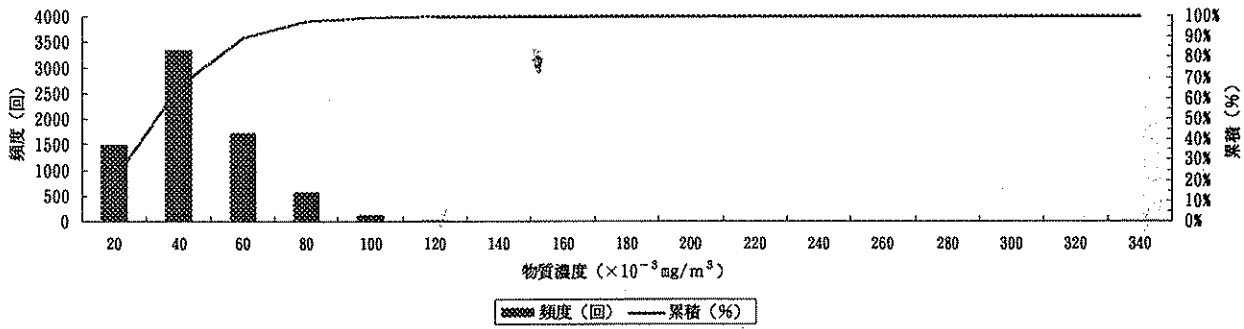


図3 データ区間毎の出現頻度及び全体データに対する累積(窒素酸化物)

a地区
SPM



b地区
SPM



c地区
SPM

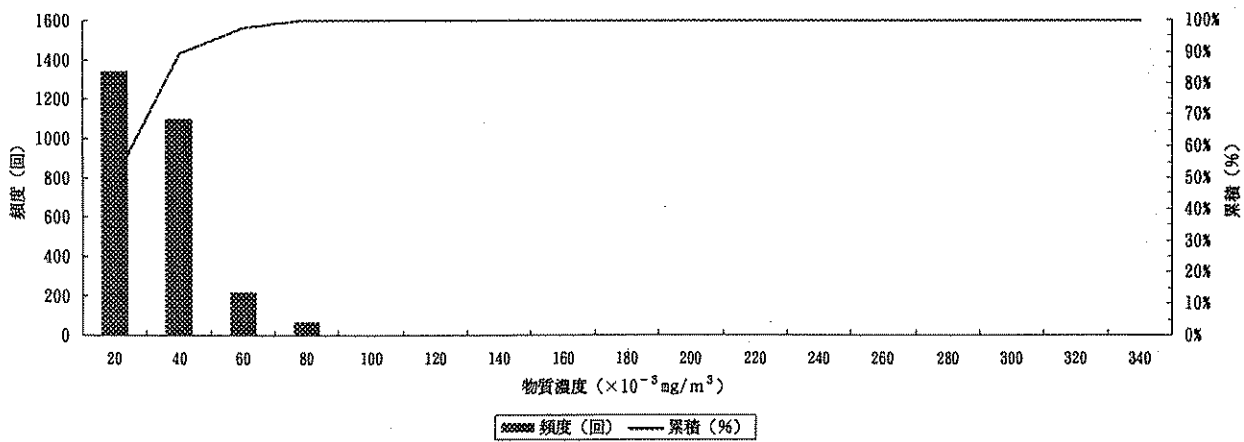


図4 データ区間毎の出現頻度及び全体データに対する累積 (浮遊粒子状物質)

4. まとめ

今回の結果をまとめると以下のとおりである。

- ・相関係数をみると、NOとNO_x、NO₂とNO_xでは高いが、その他の物質間については、低い値となった。
- ・相関係数の低いものについても、検定の結果から全ての物質間の相関に有意性が認められた。
- ・NO_xが高濃度になる程NOの占める割合が高くなる傾向が認められた。
- ・95%信頼区間の大きさでみた場合、SO₂を除いてa地区>b地区>c地区の順となった。
- ・測定データが一定濃度以上となると、出現頻度が急減している（その境は高濃度側で出現頻度が概ね1%以下となる）傾向がみられた。そこで、高濃度側でデータ全体の1%以下となる値を算出したところ、それを超える値については、データの連続性が殆どみられなかった。従って、算出した98%上端値については、データの突発性（異常性）の一応の目安として捉えることができるのではないかと考えられる。

5. おわりに

各物質間の相関については、NO_xが高濃度になる程NOとNO_xの相関係数が高くなる等の一般的にいわれている傾向の裏付けが得られた。また、データの分布形態による解析の結果、値の突発性（異常性）に係る判断基準を得ることができた。

また、これまで都市規模による区分けを行ってきたが、SO₂については、この区分に従う明確な傾向がみられないため、これまでの区分による

a、b、c地区による区分けとは違った形での区分けが必要と思われる。

なお、測定データが突発的要因であるかの判断材料となる値の分布が得られたので、今後の環境大気測定時の高濃度出現の際に、利用可能かどうか検討を進めていきたいと考えている。

参考文献

- 1) 大喜多敏一 (1982)、大気保全学、産業図書
- 2) 環境庁大気保全局大気規制課 (1995)、窒素酸化物総量規制マニュアル、公害研究対策センター
- 3) 通商産業省立地公害局 (1987)、新訂公害防止の技術と法規—大気編—社団法人 産業公害防止協会
- 4) 環境庁大気保全局大気規制課 (1995)、平成7年版 日本の大気汚染状況、ぎょうせい
- 5) 水野建樹・田中ちえ・藤村満 (1996)、関東平野で観測された粒子状硫酸黄高濃度の事例解析—桜島からの長距離輸送の影響—大気環境学会誌31(1), pp20-29
- 6) 大石興弘・今村由貴子・宇都宮彬・石橋龍吾 (1993)、九州北部におけるSO₂の高濃度現象と気象、全国公害研究誌Vol.18, pp2-7
- 7) 今村由貴子・宇都宮彬・大石興弘・岩本真二・大久保彰人・田辺敏久・松浦聰朗 (1993)、福岡県における二酸化硫黄高濃度現象について、福岡県保健環境研究所年報第19号, pp55-59
- 8) 大村平 (1969)、統計のはなし、日科技連
- 9) 菅民郎 (1990)、入門 パソコン統計処理 上・下、科学技術評論社)