

10.6 CMB 法

10.6.1 はじめに

大気浮遊粒子状物質の発生源同定のためのレセプターモデルの基本概念は簡単な質量保存の考えである。すなわち、発生源が p 個存在し、それらから排出された粒子状物質間で質量の除去や生成を引き起こす相互作用がないとすると、レセプター（測定点）での粒子状物質濃度 C は (22) 式のようにそれぞれの発生源からの寄与 S_j の線形和となる。

$$C = \sum_{j=1}^p S_j \quad \dots\dots\dots (22)$$

同様に、粒子状物質の成分 i の質量濃度 C_i は (23) 式のようになる。

$$C_i = \sum_{j=1}^p a_{ij} S_j \quad \dots\dots\dots (23)$$

ここで、 a_{ij} は発生源 j からレセプターに来る粒子状物質中の成分 i の含有濃度である。

レセプターモデルには 1 個の観測データを取り扱う CMB (Chemical Mass Balance) モデルと、多数個を取り扱う多変数量モデルとがあり、以下でしばしば発生源寄与解析に利用される CMB モデルに属する代表的な方法について概説する。

10.6.2 CMB モデル

図 10.6.1 は、都市域で採取した多くの粒子状物質試料の分析結果をまとめたものであり、各種の元素について、大気中濃度の幾何平均値と濃度範囲が示されている。また、表 10.6.1 は、都市域における主要発生源排出粒子の成分濃度の測定例である。CMB の基本概念は、このように測定点で採取した試料について多くの化学成分濃度を知ると、その地点での発生源の寄与濃度を同定できるとするもので、表 10.6.1 に掲げた発生源排出粒子の化学成分濃度パターン（発生源プロファイル）が特徴的であることに着目して解析される。

都市域の主要な発生源の排出粒子について、20 種程度以上の化学成分濃度を正確に把握できたとすると、環境中で観測される粒子状物質の化学成分濃度は、これらの発生源粒子の化学成分濃度パターンを重率 S_j で重ね合わせたものである。重率 S_j はある発生源からの排出粒子の寄与濃度である。測定された化学成分数 n が発生源数と同数以上であると、原理的には (23) 式の連立方程式を解いて、それぞれの発生源の質量寄与濃度を求めることができる。実際の計算方法として、指標元素法、線形計画法、最小自乗法、有効分散最小自乗法などが利用される。

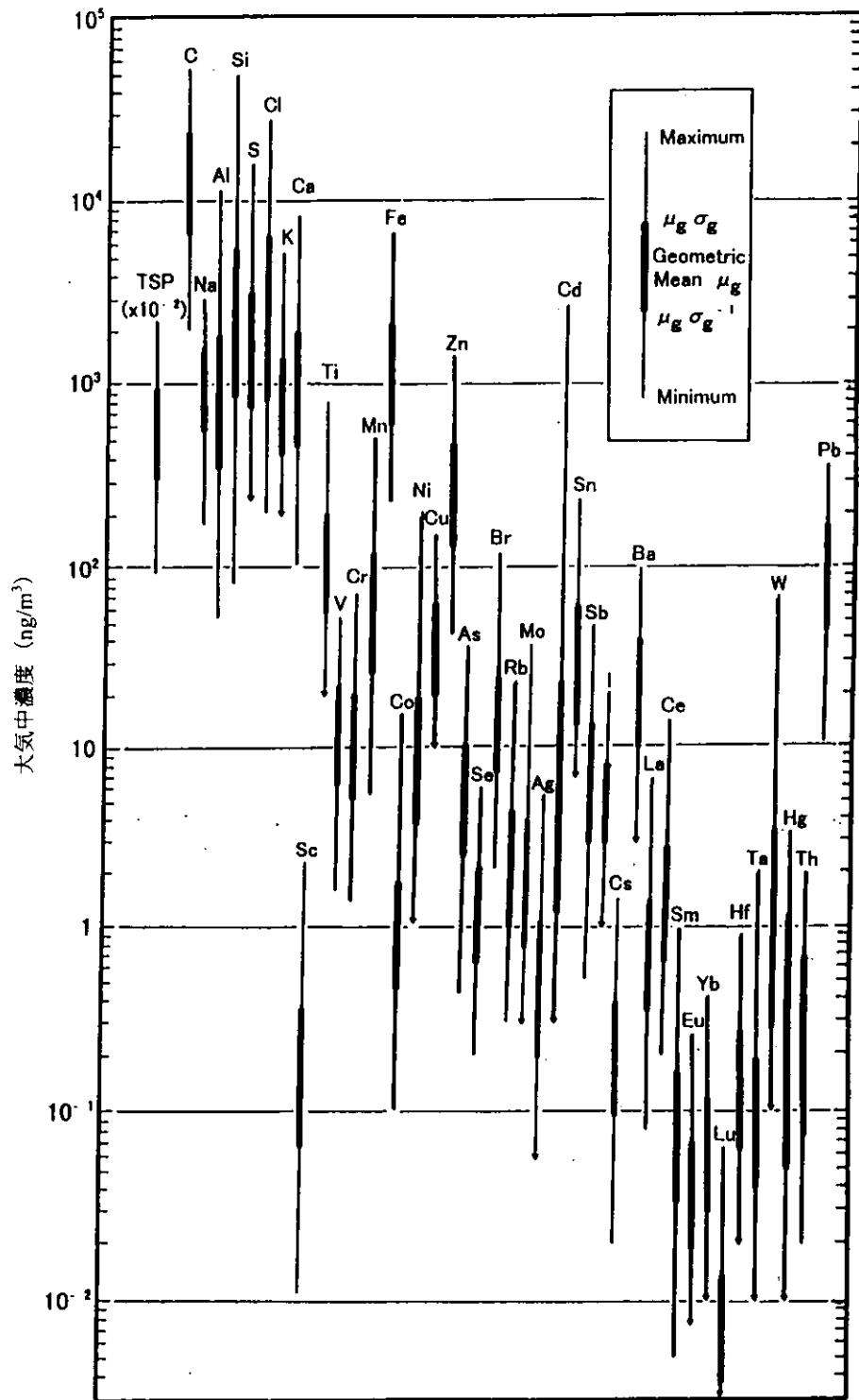


図 10.6.1 都市域の大気浮遊粒子状物質中の各種元素濃度

表 10.6.1 都市域における主要発生源からの排出粒子の成分濃度

成分	土 壌	海 塩	鉄鋼業	廃棄物焼却	石油燃焼	自動車排気	
						加鉛ガソリン	ディーゼル
Na (%)	1.3	30.42	1.4	12	1.0	0.027	0.10
AL (%)	6.8	0.00003	1.0	0.42	0.21	0.15	0.24
S (%)	—	2.6	4.8	13	9.6	—	—
CL (%)	0.023	55.05	3.4	27	0.092	0.34	—
K (%)	1.6	1.1	1.3	20	0.085	0.12	0.090
Ca (%)	1.6	1.2	4.5	1.1	0.085	—	0.20
Sc	8.6	0.001	1.3	0.46	0.09	0.23	0.36
Ti	4200	0.029	1000	900	740	—	190
V	61	0.058	130	27	9200	2.4	9.6
Cr	46	0.001	3200	850	210	16	12
Mn	790	0.058	22000	330	120	36	44
Fe (%)	3.9	0.000029	15.7	0.62	0.46	0.41	0.11
Co	8.9	0.014	44	21	31	1.8	0.70
Ni	—	0.014	2900	—	4900	39	—
Cu	—	0.017	3700	3600	—	190	—
Zn	290	0.029	52000	26000	400	1500	470
As	18	0.029	100	150	23	—	2.8
Se	5.2	0.12	51	—48	—	—	—
Br	1.3	1900	140	830	8.5	6200	38
Rb	86	3.5	77	260	—	—	1.9
Ag	—	0.087	54	150	—	—	—
Cd	—	0.002	250	500	240	—	—
Sn	—	0.087	2800	3000	—	—	—
Sb	37	0.014	90	610	6.9	2.1	4.7
Cs	3.2	0.029	—	12	—	—	0.21
Ba	730	0.86	—	390	920	640	20
La	21	0.009	9.8	7.7	—	—	1.1
Ce	49	0.012	69	170	—	—	2.1
Sm	4.2	—	0.21	0.49	7.6	—	0.13
W	2.5	0.003	47	—	—	—	—
Pb (%)	—	0.087	1.4	1.7	0.033	3.7	—
Th	9.3	0.020	—	—	—	—	0.11
V-C (%)	—	—	—	—	—	—	10.7
NV-C (%)	—	—	—	—	—	—	76.6
SO ₄ ²⁻ (%)	—	—	—	—	—	—	7.7
NO ₃ ⁻ (%)	—	—	—	—	—	—	0.78

(1) 指標元素法

指標元素法は最も簡単な計算法であり、化学成分に関してそれぞれの発生源には他の発生源にはないユニークな成分(指標成分)が存在すると仮定する。指標成分 t を持つ発生源 j の寄与濃度 S_j は(23)式を変形した(24)式で与えられる。

$$S_j = \frac{C_t}{a_{tj}} \dots \dots \dots (24)$$

この方法は、指標元素について、①レセプターで測定される発生源粒子の a_{ij} がよく知られていて発生源とレセプター間で変化しない、② C_i が環境試料で正確且つ精度良く測定できる、③レセプターにおける成分 i の濃度は発生源 j のみからもたらされるとする条件を満足するとき、有効である。

実際にはこれらの条件は完全に満足されないし、モデルを 1 発生源に 1 指標元素と限ることはエアロゾルに含まれるその他の元素の貴重な情報が利用されないことを意味する。しかし、例えば第一近似を求めるとか、発生源寄与の上限值を求める場合には有効である。

(2) 線形計画法 (Linear Programming method)

線形計画法では (25) 式、(26) 式の条件下で発生源寄与の和を最大にする組み合わせを求める。

$$0 \leq S_j \leq M \quad \dots\dots\dots (25)$$

$$C_i + 3\sigma_{C_i} \geq \sum_{j=1}^p a_{ij} S_j \quad \dots\dots\dots (26)$$

ここで、 M は粒子状物質濃度、 σ_{C_i} は C_i の測定誤差である。これらの条件は発生源寄与が満足すべき必要条件ではあるが十分条件ではなく、得られる結果の物理的な意味は明確でない。

(3) 最小自乗法 (Ordinary linear least-squares method)

最小自乗法では、 $n > p$ の場合の発生源寄与 S_j の最確値を (27) 式で計算される x^2 を最小にすることによって求める。

$$x^2 = \sum_{i=1}^n \frac{(C_i - \sum_{j=1}^p a_{ij} S_j)^2}{\sigma_{C_i}^2} \quad \dots\dots\dots (27)$$

CMB の (23) 式は行列表示すると (28) 式のようになる。

$$C = AS \quad \dots\dots\dots (28)$$

ここで、 C は、 $n \times 1$ の環境粒子の成分濃度観測地ベクトル、 A は $n \times p$ の発生源粒子の成分濃度行列、 S は $p \times 1$ の発生源寄与濃度ベクトルである。(28) 式に対する最小自乗法の解は (29) 式のようになる。

$$S = (A'WA)^{-1} A'WC \quad \dots\dots\dots (29)$$

ここで、 W は対角行列であり、その対角成分は $\sigma_{C_i}^{-2}$ である。また、肩付きの i および -1 はそれぞれ転置行列および逆行列を示す。発生源粒子の成分濃度行列には誤差がなく、環境粒子の成分濃度観測値のみに誤差があるとする最小自乗法によって計算される発生源寄与の推定誤差は (30) 式の行列の

対角成分として与えられる。

$$(A'WA)^{-1} \dots\dots\dots (30)$$

(4) 有効分散最小自乗法 (Effective variance least-squares method)

環境粒子の成分濃度測定値のみならず発生源プロファイル・データにも誤差を伴うので、計算に際してはこれら両方の誤差を考慮する必要がある。有効分散最小自乗法では、それぞれの化学成分に発生源プロファイル・データおよび環境濃度測定データの精度に比例した重率をかけて (23) 式を解く。すなわち、(31) 式の関数 x^2 を最小にする S_j を繰り返し計算によって求める。

$$x^2 = \sum_{i=1}^n \frac{(C_i - \sum_{j=1}^p a_{ij} S_j)^2}{\sigma_{C_i}^2 + \sum_{j=1}^p \sigma_{a_{ij}}^2 S_j^2} \dots\dots\dots (31)$$

ここで、 $\sigma_{a_{ij}}$ は a_{ij} の測定に伴う誤差であり、(31) 式の右辺の分母が有効分散 V_{eff} と呼ばれるものである。(31) 式から求められる解を行列で表示すると (32) 式のとおりである。

$$S = (A'VA)^{-1} A'VC \dots\dots\dots (32)$$

ここで、 V は V_{eff}^{-1} を対角成分に持つ対角行列である。また、計算される S_j の推定誤差は (33) 式の行列の対角成分として与えられる。

$$(A'VA)^{-1} \dots\dots\dots (33)$$

10.6.3 指標元素

CMBでは、指標成分の選択が結果を決定づける。指標成分は、①特定の発生源に特徴的であり、他の発生源と区別できること、②精度よく測定できること、③大気中で成分濃度が変化しないことなどを考慮して選定される。用いる分析法によって感度・精度が異なるために、②の条件を満足する成分は必ずしも濃度の高いものになるとは限らない。③の条件は、気体状で放出されたものが大気中で粒子状に変化したり、また逆に大気中で粒子から逃散する成分では満足されない。現実には①の条件を満足するいくつかの成分のうちから、②および③を満足する最適なものが選ばれる。

指標として従来からよく利用される成分は、Al、Sc、Ti、Th (土壌および石炭燃焼)、Na (海塩)、V、Ni (石油燃焼)、Fe、Mn、Zn (製鉄・製鋼業)、K、Zn (廃棄物燃焼)、Pb、Br、C (自動車排気) などであり、これらが単独あるいは組み合わせて用いられる。

(10.1~5) 参考文献

- 1) 通商産業省環境立地局監修；公害防止の技術と法規（大気編），産業環境管理協会（1996）
- 2) 大気汚染実時間監視制御システムについて，産業公害，11，(9) 43-52 (1975)
- 3) 大原利真，若松仲司，鶴野伊津志，伊藤保，泉川碩雄，神成陽容，外岡豊；光化学オキシダント・シミュレーションモデルの構築と検証，大気環境学会誌，32，(1) 6-28 (1997)
- 4) Kondo, H.; The Thermally Induced Local Wind and Surface Inversion over the Kanto Plain on Calm Winter Nights, J. of Applied Meteorology, 34, (6) 1439-1448 (1995)
- 5) Yamada, T. and S. Bunker; Development of a Nested Grid, Second Moment Turbulence Closure Model and Application to the 1982 ASCOT Brush Creek Data Simulation, J. of Applied Meteorology, 27, (5) 562-578 (1988)

(10.6) 参考文献

- 1) 溝畑朗；レセプターモデルの現状，大気汚染学会誌，26，(2) 59-71 (1991)
- 2) 浮遊粒子状物質対策検討会，環境庁大気保全局大気規制課監修「浮遊粒子状物質汚染予測マニュアル」，pp267-284, 322-370, 東洋館出版社（1997）