

金属製錬工場周辺地域の粉じん苦情処理における CMB法の適用事例

花石 竜治 早狩 進

八戸市内の金属製錬工場周辺地域で申し立てられた粉じん苦情の処理にあたって、2種類の最小自乗法を用いたCMB法を適用した。用いたCMB計算法は、測定値の誤差を考慮しない簡単な最小自乗法と、環境および発生源のデータの誤差を考慮できる有効分散最小自乗法である。実際の計算は、表計算ソフトExcelのVBAマクロをプログラミングして行った。CMB法は、どちらの方法を用いても、実際に発生源であった工場集塵機ダストの寄与率を、ほかのダストと比べ、抜きん出て高く評価した。ダストの種類にまで言及して発生源を推定できたのはCMB法ならではのことであった。CMB法による発生源寄与推定を気象データと併せて業者に提示し、業者はダストの飛散を認め、粉じん飛散防止処置をして苦情は解決された。以上のことから、CMB法は工場周辺地域の粉じん苦情の処理に威力を発揮するものと結論された。

Key words : CMB, Excel VBA macro, dust

1. はじめに

ケミカルマスバランス (CMB) 法は、環境試料中の化学種の組成と発生源に由来する試料の化学組成とから、環境汚染における発生源の寄与を求めるものである。今回、八戸市内の金属製錬工場周辺地域での粉じん苦情処理に適用したので、その事例を報告する。

2. 粉じん苦情の概要

苦情は、平成11年3月22日朝に申し立てられた。内容は「朝起きたら自動車の上に茶色い粉が付着している」というものであった。申し立て者によれば、その粉じんは21日の夜から22日の朝にかけて付着したとのことであった。その家族からは、近隣の墓地にも同じような粉じんが堆積しているとの情報があった。当所で調査したところ、粉じんの飛散地域はある程度の広がりを持っており、したがって工場などに由来するものと考えられた。21日の夜から22日の朝までの風向きから判断して発生源と考えられる金属製錬工場 (A社およびB社) に操業状況の異状の有無を尋ねたが、両社とも通常の操業状態であった。図1に粉じん飛散地域と、工場の位置関係を示す。

3. 試料の採取および分析

飛散した粉じんは、苦情申し立て者の近隣の墓地から採取した。また、発生源と考えられる工場として、粉じん飛散地域から南東方向のA社、北東方向のB社、および北にあるC社を選び、集塵機ダストを採取した。

粉じんおよびダストは灰化せずに、数10mgないし100mg程度をとり、塩酸・過酸化水素分解を施し、抽出液の

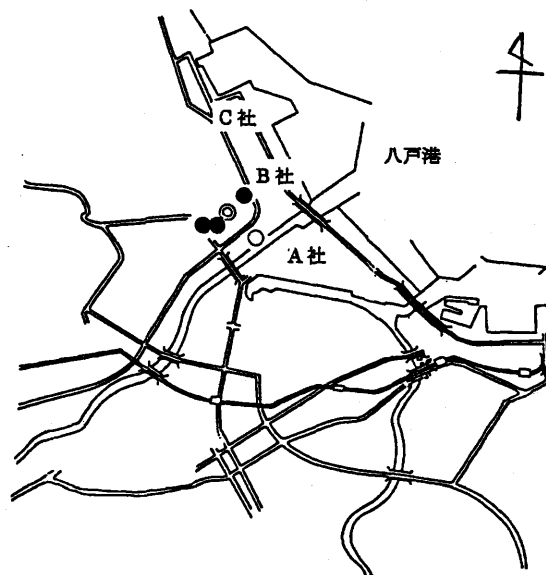


図1 A社、B社およびC社と粉じんが飛散した地域

- 粉じん飛散が確認された場所
- 苦情申し立て者自宅
- 墓地

フレイム原子吸光分析を行って、重金属 (Ni, Fe, Pb, Zn, Cd, MnおよびCu) の抽出量を定量した。また、測定値の標準偏差は、ブランクとして用いた (2 + 98) 硝酸の繰り返し測定に関する標準偏差を用いて算出した。

4. CMB法による発生源の解明

4. 1 最小自乗法を用いたCMB法

CMB法の計算方法には、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ある¹⁻²⁾。最小自乗法は，寄与の算出論理が残差平方和が最小となる必要十分条件であり，多くの元素を考慮できるという長所がある。そこで苦情処理にあたっては，まず，簡易な，測定値の誤差を考慮しない最小自乗法により計算を行った³⁾。すなわち，次の式で定義される χ^2 を最小にする発生源寄与を求めた：

$$\chi^2 = \sum_{i=1}^n \frac{\left[C_i - \sum_{j=1}^p a_{ij} S_j \right]^2}{C_i^2} \quad (1)$$

ここで， C_i は環境試料中の化学種 i の濃度， a_{ij} は発生源 j の試料中の化学種 i の濃度， S_j は発生源 j の寄与である。 n は化学種の数であり， p は発生源の数である。(1)を最小にする解 S_j は

$$\frac{\partial \chi^2}{\partial S_j} = 0 \quad (j=1,2,\dots,p) \quad (2)$$

なる連立一次方程式（正規方程式）を解くことにより得られる。正規方程式は，対称行列をヤコビ法により対角

化して解いた。計算は，Excel上でVBAマクロを組んで行った。

表1に計算結果を示す。表1の計算結果では，A社2およびB社2というダストの寄与が負になっている。これは発生源として選んだセットのなかに，化学組成が過度に類似している組合せがあるために出てきたものであり，類似した組成を持つことは多重共線性と言われている。

粉じんが飛散した地域は，当所のこれまでの調査結果から，清浄地域に比べて，降下ばいじん中のZn，PbおよびCdの含有量が高いことがわかっている⁴⁾。一方，粉じんの中のこれらの元素の含有量は低かった。そこで，次に，苦情に関係しないと考えられるこれらの元素のうち，PbおよびCdをCMB計算で除外してみた。CMB法では，発生源の数は化学種の数以下でなければならないので，Zn，PbおよびCdの発生源と考えられる非鉄金属製錬工場C社を外して，CMB計算を行った。その結果を表2に示す。

以上の表1および表2の結果から，A社1の工場ダストの寄与が一番高く，したがって，これが粉じんとして飛散した可能性が高いことが判明した。

表1 最小自乗法を用いたCMB法による発生源の寄与率の推定

元素	発生源 (mg/kg)					環境濃度 (mg/kg)		C/O (%)
	A社1	A社2	B社1	B社2	C社	測定値 (O)	予測値 (C)	
Ni	15100	12100	110	82	54	10900	10802	99
Fe	146000	85100	136000	138000	13600	114000	103617	91
Pb	282	4770	28300	21500	258000	183	183	100
Zn	1470	22300	365000	273000	388000	459	458	100
Cb	59	388	567	376	569	7	7	100
Mn	2780	2330	11700	9890	312	1720	1843	107
Cu	52	57	2260	1630	1020	55	56	102
寄与	0.8242	-0.1358	0.1222	-0.1580	0.0021			
寄与率 (%)	126	-21	19	-24	0			

表2 最小自乗法を用いたCMB法による発生源の寄与率の推定 (Pb, CdおよびC社を除外)

元素	発生源 (mg/kg)				環境濃度 (mg/kg)		C/O (%)
	A社1	A社2	B社1	B社2	測定値 (O)	予測値 (C)	
Ni	15100	12100	110	82	10900	11117	102
Fe	146000	85100	136000	138000	114000	102350	90
Zn	1470	22300	365000	273000	459	459	100
Mn	2780	2330	11700	9890	1720	1825	106
Cu	52	57	2260	1630	55	55	101
寄与	0.7928	-0.0705	0.1614	-0.2126			
寄与率 (%)	118	-11	24	-32			

4. 2 有効分散最小自乗法を用いたCMB法

以上で用いたCMB法には問題点があった。まず、①測定値の誤差が考慮されておらず、最小自乗法の重み付けがすべての発生源と化学種にわたって一様になされている、ということである。表1および表2にあげた化学種のなかには、定量下限値が高いものもあれば、低いものもあり、発生源データも、発生源によってデータのばらつきに差がある。そしてつぎに、②共線性の強い発生源を自動的に除去する機能がない、ということである。最小自乗法を用いると、共線性により、物理的に意味のない負の寄与が出てくる。従来、CMB計算では、負の寄与が現れたら、その発生源を除外し、さらにCMB計算を行ってみるのが常道であった。そして最後に、③どの発生源、化学種の組合せを選ぶかの客観的基準が全くない、ということである。発生源や化学種の取捨選択は、従来、CMB法で試行錯誤で行われてきた重要な過程である。こういったことから、測定値の誤差を考慮し、それにより化学種や発生源に統計的な重み付けができる有効分散最小自乗法を試みた¹⁻²⁾。この方法は以下に示す x^2 を最小にする発生源の寄与 S_j を求める：

$$x^2 = \sum_{i=1}^n \frac{\left[C_i - \sum_{j=1}^p a_{ij} S_j \right]^2}{\sigma_{C_i}^2 + \sum_{j=1}^p \sigma_{a_{ij}}^2 S_j^2} \equiv \sum_{i=1}^n \frac{\left[C_i - \sum_{j=1}^p a_{ij} S_j \right]^2}{V_{eff,i}} \quad (3)$$

ここで、 σ_{C_i} 、 $\sigma_{a_{ij}}$ はそれぞれ C_i 、 a_{ij} の測定に伴う誤差の標準偏差である。実際には、 S_j は、次の行列を繰返し計算することによって求める：

$$S = ({}^tAVA)^{-1}{}^tAVC \quad (4)$$

ここでAは要素が a_{ij} の行列、Vは対角要素が $V_{eff,i}^{-1}$ の対角行列、Cは要素が C_i のベクトル、Sは要素が S_j のベク

トルである。 tX は行列Xの転置行列の意味である。

有効分散最小自乗法の計算プログラムは既に作成され、CMB8としてソースコードも公開されている⁵⁾。CMB8には、発生源の選択を自動的に最適化する機能もあるが、欠点もある。すなわち、①環境中の粉じん濃度として議論しているため、粉じんに含まれる化学種の濃度そのものからは計算できない。したがって、今回の苦情処理のように、粉じんそのものが与えられた場合には適用できないということになる。また、②入力ファイルが特定のテキストファイルであり、その作成が面倒である、といったこともある。そこで、われわれは、今回、CMB8をExcel VBAマクロに移植することにより、Excel上での視覚的処理を可能にした。この詳細は別の機会に述べる⁶⁾。

表3に、全発生源を用いて計算した結果、負の寄与を与える発生源を自動的に除去した結果、および相関係数を最大化する発生源の組合せを求めた結果を示す。表に示されているとおり、有効分散最小自乗法を用いたCMB計算を行っても、A社1のダストが抜き目出で最も高い寄与率を与えることがわかった。

5. 苦情の解決

一方、粉じんが飛散したと考えられる21日夜から22日朝までの風向は、飛散地域では南東の風であった。この気象データとCMB計算による結果から、A社の工場ダスト1が発生源と考えられる旨を、A社に説明した。A社は再度、工場内を点検した結果、集塵ダストを炉に戻す過程で点検口が開いている箇所を発見し、そこからのダストの飛散を認めた。A社は、ダストが飛散したと考えられる箇所を密閉するという対策を講じ、苦情は解決された。気象データからは、A社が発生源であったらしいということは推定可能であるが、A社工場のどこの

表3 有効分散最小自乗法を用いたCMB法による発生源の寄与率の推定

元 素	発生源 (mg/kg)					環境濃度
	A社1	A社2	B社1	B社2	C社	測定値 (O)
N i	15100	12100	110	82	54	10900
F e	146000	85100	136000	138000	13600	114000
P b	282	4770	28300	21500	258000	153
Z n	1470	22300	365000	273000	388000	459
C d	59	388	567	376	569	7
M n	2780	2330	11700	9890	312	1720
C u	52	57	2260	1630	1020	55
寄与率 (%)						
全国発生源による推定	137	-26	37	-48	0	
負の寄与の発生源除去	100					
相関係数最大ケース	137	-26	37	-48	0	

ダストが発生源なのかは全く情報が得られない。今回、われわれは発生源をA社ダスト1と推定したが、ダストの種類にまでに言及できたのはCMB法ならではであった。

6. 結 論

八戸市内の金属製錬工場周辺地域で粉じん苦情が申し立てられ、飛散した粉じんと、周辺工場から採取した集塵機ダストの分析を行った。分析結果に、CMB法を適用し、発生源の解明に努めた。CMB計算は、Excel VBAマクロプログラミングにより、簡単な最小自乗法と有効分散最小自乗法を行った。その結果、粉じんの発生源が、工場としてのみならず、ダストの種類まで特定され、CMB法は苦情処理に威力を発揮した。今後は、最小自乗法以外のCMB計算方法も検討しながら、八戸地域における降下ばいじんや浮遊粉じん中の重金属の発生源解明に適用したいと考えている。なお、CMB8を移植したExcelマクロは、原著者の了解を得て、以下のホームページにアップロード済みであり、ここからダウンロードして使用可能である：

ドして使用可能である：

[http://www.jomon.ne.jp/~ hayakari/index.html](http://www.jomon.ne.jp/~hayakari/index.html)

文 献

- 1) 浮遊粒子状物質対策検討会：浮遊粒子状物質汚染予測マニュアル，初版，267-269，東洋館出版社，東京，1997.
- 2) Henry, R. C. et al. : Review of receptor model fundamentals, *Atmos. Environ.*, **18**, 1507-1515, 1984.
- 3) 環境庁大気保全局：スパイクタイヤによる浮遊粉じん中の各成分濃度等測定方法指針，1983.
- 4) 工藤隆治他：八戸市内の降下ばいじん（2）－不溶性重金属について－，青森県環境保健センター研究報告，**2**，105-110，1991.
- 5) CMB8のftpサイト：ftp://eafs.dri.edu/cmb80
- 6) 花石竜治他：CMB計算用Excelマクロの紹介，第26回環境保全・公害防止研究発表会講演要旨集，p56，1999.

Abstract

Application of CMB Methods to Management of a Dust Grievance Complained by Inhabitants Around Smelting Factory Districts

Ryuji HANAISHI and Susumu HAYAKARI

In the course of management of a grievance on a dust scattered around smelting factory districts in Hachinohe-city, two kinds of CMB methods were applied to the source estimation. One was the most simple least square method that did not take into consideration of the errors in the measurement of metal contents. The other was the effective variance least square method that considered measurement errors of both ambient and source profiles. In the actual calculation, Excel VBA macros were coded for the CMB apportionment. By the use of both of two CMB methods, a distinguished contribution of a factory dust was obtained. The dust was collected in a dust separator of the factory that turned out to be the actual source. The CMB methods estimated not only the factory but also the type of the dust. The grievance came to a settlement since the factory protected against scattering of the dust after we indicated the CMB result as well as data of weather conditions. The CMB apportionment is concluded to exercise the power over management of the grievance on the dust flied around factory districts.

Key words : CMB, Excel VBA macro, dust