



Title	大気環境モニタリングネットワークの最適配置に関する研究
Author(s)	荒木, 真
Citation	大阪大学, 2015, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/53972
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

博士学位論文

大気環境モニタリングネットワークの
最適配置に関する研究

荒木 真

2015年6月

大阪大学大学院工学研究科

目次

第 1 章	序論	1
1.1	日本の大気環境	1
1.2	大気環境のモニタリング	4
1.3	空間分布推定手法	7
1.4	ネットワークの最適化	9
1.5	本論文の目的と構成	10
第 2 章	都市スケールでの空間分布推定	13
2.1	方法	13
2.2	結果と考察 - O ₃ 等 -	21
2.3	結果と考察 - VOCs -	26
2.4	まとめ	32
第 3 章	全国スケールでの空間分布推定	35
3.1	方法	35
3.2	結果と考察	39
3.3	まとめ	47
第 4 章	最適化アルゴリズムの開発	49
4.1	最適化アルゴリズム	49
4.2	アルゴリズムへの入力値	52
4.3	アルゴリズムの適用	53
4.4	結果と考察	55
4.5	まとめ	59
第 5 章	最適化アルゴリズムの適用	61
5.1	対象と設定	61
5.2	モデルによる計算値	62
5.3	ネットワークの評価法	62
5.4	結果と考察	63

5.5	まとめ	67
第 6 章	結論	71

第1章

序論

1.1 日本の大気環境

日本では、人の健康を保護するために環境基本法によって水や大気などの媒体ごとに様々な項目について環境基準が設定され、それらを達成あるいは維持するため数多くの環境政策が実行されている。この原点は、高度成長期に起こった公害による住民の甚大な健康被害を受けての対応にある。当時、四大公害と呼ばれたものは、水俣病、第二水俣病、イタイイタイ病、四日市ぜんそくであるが、このうち大気汚染との関連があるものは四日市ぜんそくである。四日市地域においては、1960年頃より石油化学コンビナートが発展し、その周辺住民は高濃度の二酸化硫黄 (SO_2) や浮遊粒子状物質 (SPM) に暴露されるようになり、1965年頃にかけてしばしば SO_2 が 1 ppm を超える濃度を記録した (松本, 1975)。また、これらの地域には大気汚染の影響と考えられる呼吸器系の疾患が多く見られた (松本, 1975)。

こうした状況に総合的に対応するために、1967年に公害対策基本法が制定され、人の健康を保護し生活環境を保全する上で維持されることが望ましい基準として、「環境基準」が設定された。同じく1967年に制定された大気汚染防止法は、環境基準を達成するために必要な規制等を定めたもので、工場等から排出される大気汚染物質について、物質の種類ごと、施設の種類・規模ごとに排出基準等が定められており、大気汚染物質の排出者等はこの基準を守らなければならない、とされている (環境省, 2012)。こうした排出規制の強化と燃料の低硫黄化対策によって SO_2 による大気汚染は改善された (松本, 1975)。一方で、急速な都市化やモータリゼーションの進行によって窒素酸化物 (NO_x)、炭化水素 (HC) 等の排出量が増加し、特に大都市では広い範囲にわたっての汚染がみられるようになった (松本, 1975)。また、 NO_x と HC は光化学オキシダント (O_x 、その大部分は O_3 であり、以下では特に区別しない) の原因物質であり、1970年には東京の高校で O_x による健康被害が初めて報告され、それ以降光化学大気汚染が大きな社会問題となった (松本, 1975)。こうした状況に対応するためには、工場等の固定発生源だけでなく、都市全体からの排出量を低減することが必須であることから、1974年に硫黄酸化物 (SO_x) の、1981年に NO_x の総量規制がそれぞれ導入された (Wakamatsu et al., 2013)。これらの対策によって SO_2 や SPM 等の一次汚染物質の濃度の低下が見られた一方で、 O_x や NO_x の濃度の低下は見られなかった (Wakamatsu et al., 2013)。そこで、1992年には、自動車交通の増大や大都市への集中による大気汚染に対応するために、自動車から排出される窒素酸化物及び粒子状物質の特定地域における総量の削減等に関する特別措置法 (自動車 NO_x ・PM 法) が制定され、自動車から排出される NO_x と粒子状物質の低減対策が進められ

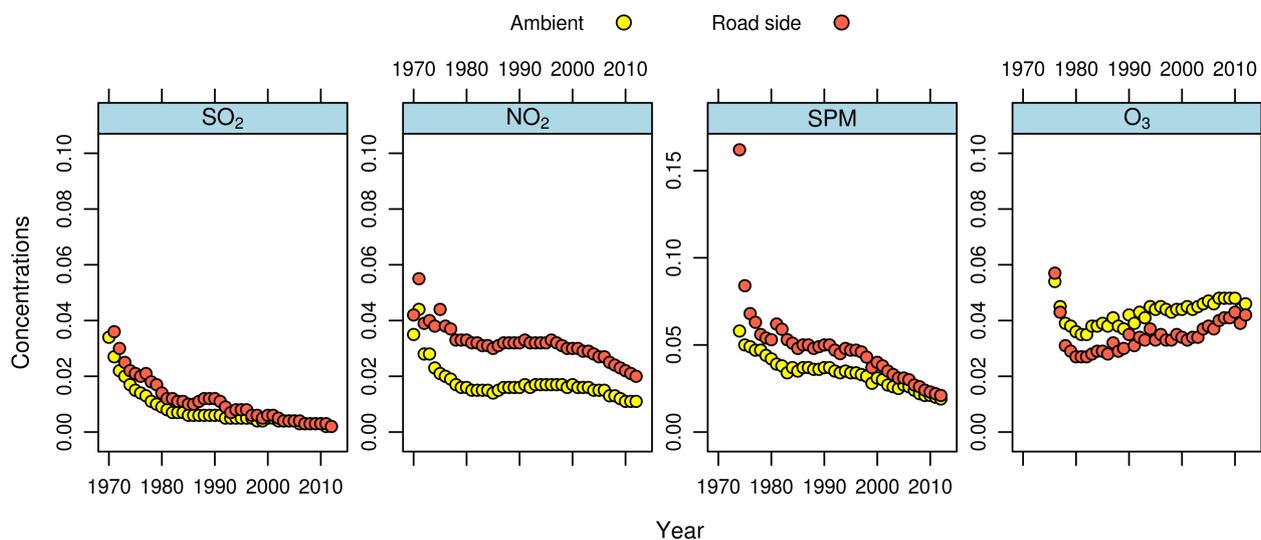


Fig. 1.1 Air pollutants concentrations over the years for the general environment stations. The concentrations are annual means for SO₂, NO₂ and SPM, and annual means of dairy maximum day-time hourly mean values for O₃. Units are ppm for SO₂, NO₂ and O₃, and mg m⁻³ for SPM.

た。その成果もあってか、1995年頃から自動車排ガス局における二酸化窒素（NO₂）の大気中濃度の減少がみられ、一般環境局でも近年減少傾向が認められる（Fig. 1.1, 環境省, 2014 を元に作図）。なお、自動車排ガス局は交差点や道路沿道に設置され、一般環境局は特定の排出源からの直接的な影響を受けない地点に設置されている。

こうして、公害の時代から約40年が経過する中で、日本の大気環境はめざましく改善してきた。SO₂, NO₂, SPMなどは殆どの地点で環境基準を達成しており（環境省, 2014）、これらの物質の大気中濃度も減少傾向にある（Fig. 1.1）。一方で、O_xの環境基準の達成率は0%に近く（環境省, 2014）、さらに濃度には経年的な増加傾向がみられる（Fig. 1.1）。そのため、自動車からのHCの排出規制に加えて、工場等の固定発生源からの揮発性有機化合物（VOCs）の排出規制等の対策が講じられている。なお、ヒト健康への影響という点では、低濃度ではあるが長期暴露によって人の健康を損なうおそれのある物質（有害大気汚染物質）として、ベンゼン、トリクロロエチレン、テトラクロロエチレン及びジクロロメタンに大気環境基準が設けられ、大気汚染防止法に基づいて地方公共団体においてモニタリングが実施されている。

2009年には大気中に浮遊している粒径が2.5 μm以下の粒子（微小粒子状物質、以下ではPM_{2.5}と記す）について新たに環境基準が設定された（環境省, 2009a）。PM_{2.5}は、従来から環境基準が設定されていたSPMよりも小さな粒子であるために、肺の奥深くまで入りやすく、呼吸系への影響に加え、循環器系への影響も懸念されている（環境省, 2013a）。近年、PM_{2.5}への社会的関心が高まっている中で、大気中濃度はわずかに減少傾向が認められ（Fig. 1.3, 環境省, 2014 を元に作図）、環境基準の達成状況は改善が見られるが、達成率は依然として50%以下と低く（環境省, 2014）、O₃と並んで対策が必要とされている。このように、公害の時代に始まり現在に至るまで、大気汚染問題は対象の変遷はあるものの、依然として解決が必要な環境問題であり続けている。なお、公害対策基本法は改正を経て、現在は環境基本法と

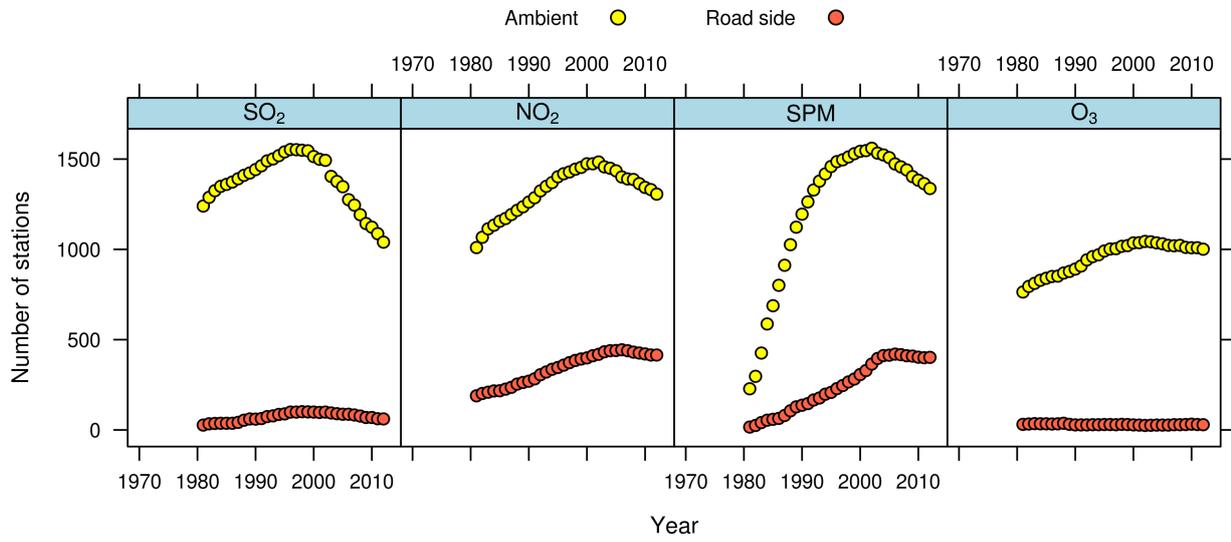


Fig. 1.2 Number of stations over years for SO₂, NO₂, O₃ and SPM for all types of station.

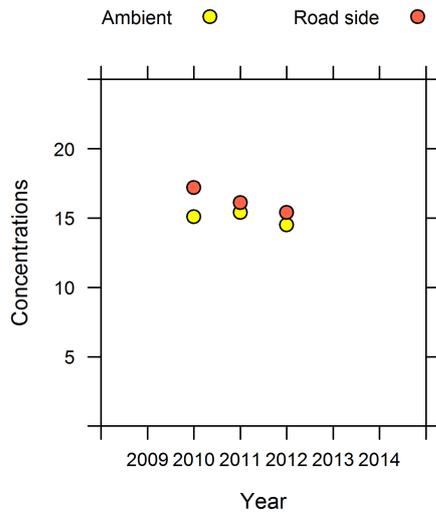


Fig. 1.3 PM_{2.5} concentrations since 2010 for the ambient and road side stations. The concentrations are annual means. Unit is $\mu\text{g m}^{-3}$.

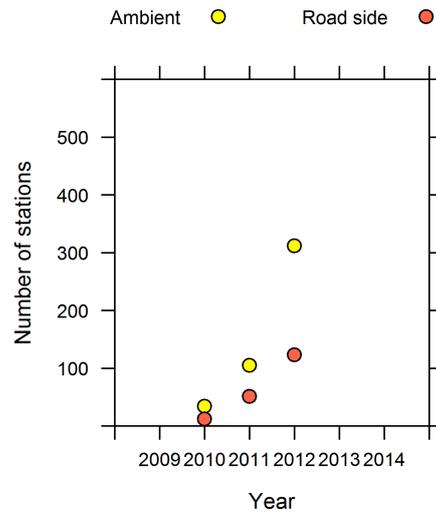


Fig. 1.4 Number of stations since 2010 for PM_{2.5} for ambient and road side stations.

の名称となっている。また、大気汚染に係る現行の環境基準を Table 1.1 に示す。

Table 1.1 Air quality standard in Japan.

Air pollutant	Averaging time	level	date of enactment
SO ₂	1 hour	0.1 ppm	1973.5.16
	24 hour	0.04 ppm	
CO	8 hour	20 ppm	1973.5.8
	24 hour	10 ppm	
SPM	1 hour	0.10 mg m ⁻³	1973.5.8
	24 hour	0.20 mg m ⁻³	
NO ₂	24 hour	within 0.04-0.06 ppm or below	1978.7.11
O _x	1 hour	0.06 ppm	1973.5.8
PM _{2.5}	24 hour	35 µg m ⁻³	2009.9.9
	Annual	15 µg m ⁻³	
benzene	Annual	0.003 µg m ⁻³	1997.2.4
trichloroethylene	Annual	0.2 µg m ⁻³	1997.2.4
tetrachloroethylene	Annual	0.2 µg m ⁻³	1997.2.4
dichloromethane	Annual	0.15 µg m ⁻³	2001.4.20
dioxines	Annual	0.6 pg-TEQ m ⁻³	1999.12.27

1.2 大気環境のモニタリング

1.2.1 自動測定機による常時監視

大気汚染防止法は、その第 22 条で「都道府県知事は大気の汚染の状況を常時監視すること」と定めている。これを法的な根拠として、都道府県および大気汚染防止法上の政令市において大気汚染の常時監視が行われている。このモニタリングシステムで測定されたデータは各自治体での集計はもとより、環境省が全国の測定データを集計し、環境基準の適合状況や経年変化等を毎年公表している（例えば、環境省、2014）。また、この測定データはオンラインで送信され、ほぼリアルタイムで環境省のウェブサイト、環境省大気汚染物質広域監視システム（そらまめ君、<http://soramame.taiki.go.jp/>）で一般に公開されており、過去 1 週間のデータを閲覧することができる。

このモニタリングシステムの設計に関して、環境省から「望ましい測定局数」の算出と測定局の配置についての方法が示されている（環境省、2013b）。測定局数については、全国的視点から算出した必要な測定局数に、地域的視点から算出した測定局数を加算して望ましい測定局数の水準を得る、とされている。その概略を以下に示す。

1. 全国的視点から必要な測定局数の算出

- (a) 人口 75000 人あたり 1 局、および可住地面積 25 km² あたり 1 局として算定した都道府県ごとの測定局数のうち、数の少ない方を基本的な測定局数とする。
- (b) 環境基準を対照として濃度を「高」「中」「低」の 3 段階に区分し、それぞれ係数 1, 1/2 および 1/3 を与え、測定項目ごとに基本的な測定局数に乗じる。

- (c) さらに、測定項目ごとの係数（SO₂、SPM、O₃ および NO₂ は 1、CO と非メタン炭化水素は 1/2）をそれぞれ乗じる。
2. 地域的視点から必要な測定局数の算出
- (a) 地形的および気象的な特性等の自然的状況を勘案し、それに対応するために必要となる測定局数を定める。
- (b) 発生源、住民ニーズ、今後の開発予定等の社会的状況を勘案し、それに対応するために必要となる測定局数を定める。
- (c) 長年継続して測定してきた測定局については、これまでの経緯を勘案し、測定局数の水準に加算することで存続を図る。

ここで示されている人口基準の 75000 人は、全国の測定局数が最も多かった時期の SO₂、NO₂ および SPM の測定局数である約 1700 から 1800 局を今後も確保するとし、1 局あたりの人口として算出されたものである（環境省、2005）。つまり、過去の測定局数の水準を「望ましい」、あるいは適正であるとみなしているに過ぎず、科学的根拠には乏しい。また、面積基準である 25 km² は 1973 年に発出された通知（大気汚染防止法の一部を改正する法律の施行について、1973 年 8 月 25 日付け環境庁大気保全局長通知）で定められた基準を準用したものであるが（環境省、2005）、そもそもの根拠ははっきりしない。

また、測定局数の経年変化と各大気汚染物質濃度の経年変化の関係も興味深い。Fig. 1.2 に SO₂、NO₂、SPM および O₃ の測定局数（一般環境局と自動車排ガス局）の経年変化を示す。データは環境 GIS（国立環境研究所、<http://tenbou.nies.go.jp/gis/>）より得た。SO₂ は 1995 年頃まで増加を続けて 1600 局程度となったあと、2000 年頃から減少に転じており、現在は 1000 局程度である。NO₂ は SO₂ よりも少し遅く、2002 年頃まで増加し 1900 局程度となり、その後すぐに減少に転じて、現在は 1700 局程度となっている。SPM は NO₂ と同様に 2002 年頃まで増加して 1900 局程度となり、その後すぐに減少に転じて、現在 1700 局程度である。O₃ は 2000 年頃まで増加し 1100 局程度となり、その後わずかに減少している。その一方で、SO₂、NO₂ および SPM の大気中濃度は 1970 年頃以降、程度の違いはあるものの一貫して低下しており（Fig. 1.1）、ある程度の時間遅れを考慮しても濃度の低下と測定局数の減少には関係が見いだせない。従って、濃度が低下することで測定の重要度や優先度が下がることによる測定局数の減少ではなく、財政的な事情が影響していると推察される。また、モニタリングに係る国の補助金が 2005 年に廃止されたことも影響していると思われる。

一方、測定局の配置については、所管する各自自治体が測定局数を算定した際の全国的及び地域的視点を踏まえ、地域の実情に応じ「適切」に決定する、と示されているのみであり、具体的な配置方法は一切示されていない。現状では、測定局は主に都市域など人口が集中する地域に設置されることが多く、人口が少ない地域や山間部などには測定局はあまり配置されていない。その例として、Fig. 1.5 および 1.6 に、日本全国および大阪周辺の 2012 年における NO₂ の一般環境局の配置を示す。なお、測定局の位置データは環境 GIS（国立環境研究所、<http://tenbou.nies.go.jp/gis/>）より得た。NO₂ のように排出源から直接排出される一次汚染物質は主要な排出源が都市域に存在するため、都市域に偏った配置であっても、少なくとも高濃度地域を把握することは可能であると考えられる。しかし、光化学反応によって生成される O₃ のような物質は都市域で高濃度となるとは限らないため、都市域以外での濃度の把握も重要である。2006 年には長崎県と熊本県で、2007 年には新潟県と大分県で、2008 年には長野県と佐賀県で、

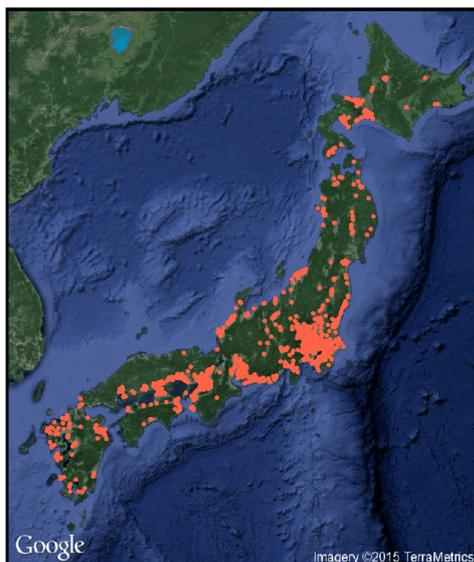


Fig. 1.5 Locations of the monitoring stations for general environment for NO₂ in the year 2012 in Japan.

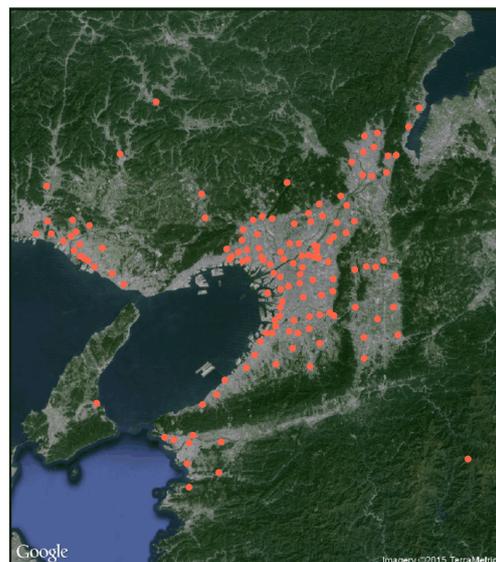


Fig. 1.6 Locations of the monitoring stations for general environment for NO₂ in the year 2012 in Osaka and its surrounding area.

2009年には山形県と鹿児島県で、それぞれ初めて光化学オキシダント注意報が発令されており（環境省, 2006, 2007, 2008, 2009b), 実際到大都市以外で高濃度となっていることが明らかになっている。

PM_{2.5}は2009年に環境基準が設定されて以降、既存測定局へのPM_{2.5}測定機の追加配置を基本として整備され（環境省, 2013b), 測定局数が飛躍的に増加している（Fig. 1.7, 環境省 (2014)を元に作図）。これは、既存のネットワークの配置が適正であることを前提に、他の測定項目との比較を可能とすること（環境省, 2013b)やネットワーク構築の効率性を考慮したものであると思われるが、結果として適正なPM_{2.5}モニタリングネットワークが得られることが担保されているわけではない。Fig. 1.7および1.8に全国および大阪周辺のPM_{2.5}測定局の位置を示す。測定局の位置データは環境GIS（国立環境研究所, <http://tenbou.nies.go.jp/gis/>）より得た。ここでも、NO₂と同様に都市域に偏った配置となっていることがわかる。しかしながら、PM_{2.5}には二次生成の成分も含まれるため、O₃と同様に都市域に偏った配置が必ずしも適切であるとは限らない。

これらを背景として、現在のモニタリングネットワークにおける測定局配置の妥当性の評価、あるいは再配置を含めた適正な配置の検討が大きな課題となっている。また、近年の自治体財政の悪化に伴って測定局の見直し（削減）が行われることも考えられ、この点からも適正配置の検討の必要性はますます大きくなっていくと考えられる。そのためには、1) 適正配置を検討する対象地域における大気汚染物質の空間分布推定、および2) 空間分布から配置を最適化する手法、が必要である。

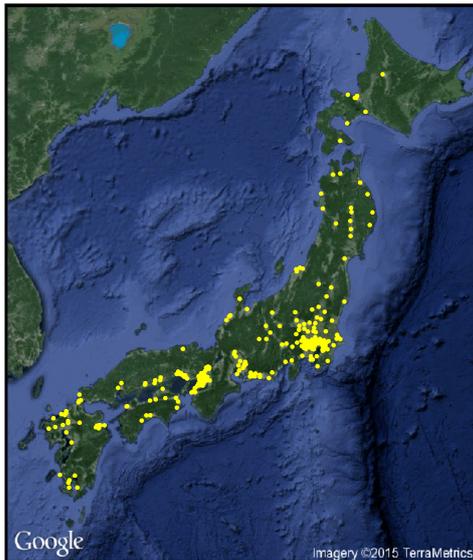


Fig. 1.7 Locations of the monitoring stations for general environment for PM_{2.5} in the year 2012 in Japan.

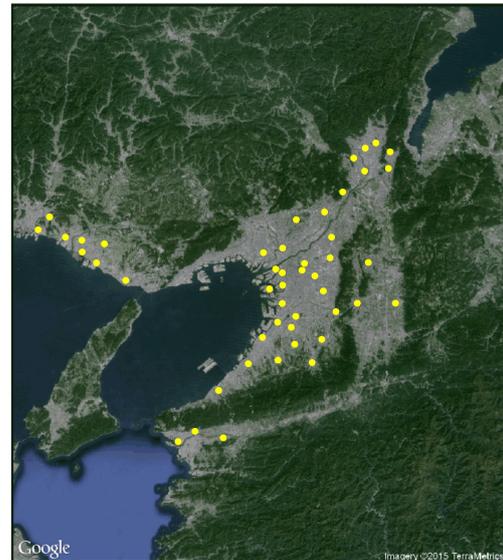


Fig. 1.8 Locations of the monitoring stations for general environment for PM_{2.5} in the year 2012 in Osaka and its surrounding area.

1.3 空間分布推定手法

1.3.1 大気質モデル

空間分布推定の手段として一般的なものは大気質モデルである。大気質モデルは、排出、移流、拡散、変質といった物理・化学過程を数式で表現したシミュレーションモデルで、様々な時間・空間スケールにおいて、濃度の空間分布予測に限らず、大気汚染対策の立案や評価等に幅広く用いられている。例えば、Emmons et al. (2010) は化学反応を組み込んだ全球モデルを開発している。Chatani et al. (2014) は関東地方を対象に元素状炭素の空間分布推定を行っている。Shimadera et al. (2014b) は近畿地方におけるNO₂、O₃、PM_{2.5}等の大気汚染物質の濃度分布を1年間を対象として計算している。こうした研究例ではいずれも良好な予測精度が報告されており、大気質モデルが信頼性の高い空間分布推定手法であることがわかる。

大気質モデルの空間解像度は、200 - 300km スケールでは数 km 程度 (e.g. Chatani et al., 2014; Shimadera et al., 2014b) であることが一般的であり、この場合対象領域は関東地方や近畿地方といった地域である。より広範な範囲を計算領域とする場合には解像度は10 - 20km 程度となることが多く (e.g. Chatani et al., 2014; Shimadera et al., 2014b)、数 km 以下の空間解像度では入力データや計算機能力の制限等により実際的ではない。

モニタリングネットワークの適正配置の検討は様々なスケールで行う必要があると想定される。大気汚染物質はある程度広域的な広がりを持つものであるため、単独、あるいは複数の隣接する都道府県で同時に行う方が適切である場合が多いであろう。こうした場合に、適正配置の検討の基礎資料としての空間分

布推定に大気質モデルを使用することは、数 km の空間解像度の計算値が得られることを考慮すると妥当であるといえる。一方、単独の市等（都市スケール）において検討する必要も想定される。この場合には、1 km 程度のより高解像度の空間分布が求められることや、単独の市においてシミュレーションを行うことは、排出インベントリ等の入力データの整備や高性能の計算機システムの導入が必要であるため実用的ではない。他方、より広範囲、例えば日本全域などで適正配置を検討する必要も考えられる。この場合も、大気質モデルを用いて数 km 程度の空間解像度の計算を行うには計算領域を複数に分割して計算する必要等があり、やはり実際的ではない。また、大気質モデルでは 1 時間以下の時間解像度で計算を行うが、適正配置を検討する上では、必ずしもそのような高時間解像度の計算値が必要ではない。例えば、長期的な濃度変動を把握することでネットワークの目的が果たせる場合には、年平均値等の空間分布が得られれば十分であると考えられる。従って、適正配置検討に際しての空間分布推定については、都道府県域では大気質モデルの適用が適切である一方で、都市域、あるいは日本全域ではそれ以外の手法が必要となる。

1.3.2 測定データの補間

大気質モデルを使用せずに空間分布を推定する手法として、測定値を補間する方法がある。種々の補間方法がある中で、大気汚染物質の空間分布推定に実績のある手法として kriging 法がある (e.g. Ray, 2001; Bytnerowicz et al., 2004)。この手法は多地点で同時に観測された測定値から任意の位置での確率場の値を予測（推定ではなく予測とよばれる）するもので（間瀬・武田, 2001）、本来は鉱山学の手法を指すが、現在では環境科学、水文学、気象学、森林学、水産学などに広く応用されている（間瀬・武田, 2001）。この手法を適用するには、対象とする地域に十分な数の測定地点があることと、ある程度均等に位置していることが必要であり、この条件が満たされれば十分な高解像度の空間分布が得られる。しかし、先に述べたように、日本におけるモニタリングネットワークの測定局は都市域に偏在しており、都市域以外での測定局数は限られているため、測定データに kriging 法を適用して十分な精度の空間分布を得ることが困難である場合も多くなると予想される。その様な場合には簡易測定法等によって、測定地点数を増やすことが必要となる。なお、以下で単に kriging 法と記す場合には ordinary kriging 法（通常 kriging 法と呼ばれることもある）を指すものとする。

主に疫学研究において多くの実績がある空間分布推定手法として、線形回帰モデルを用いる手法がある (e.g. Briggs et al., 2000; Ross et al., 2007)。この手法は、Land Use Regression(LUR) 法と称されることも多く、大気汚染物質の測定濃度を目的変数とし、土地利用区分や交通量などの濃度に影響を与えると考えられる情報を説明変数として線形回帰モデルを構築し、得られたモデルを用いて測定データがない地点の濃度を予測するものである。例えば、NO₂ の場合には、土地利用、交通量、人口などが予想変数として用いられる (e.g. Briggs et al., 2000; Hoek et al., 2008)。また、疫学研究分野での適用のため、主に年平均濃度等の長期平均濃度の分布推定に用いられることが多い。線形回帰モデルは大気質モデルに比べて計算負荷は著しく小さく、年平均値のような長期的な統計値に関しては、線形モデルによる予測値のほうが測定値との相関は高いという報告もある (Cyrus et al., 2005; Marshall et al., 2008)。ただし、線形回帰モデルを 1 時間平均値等の高時間解像度に適用することは、同様の時間解像度の予測変数が通常得られないために困難である。

Regression kriging 法は kriging 法を拡張した手法であり、線形回帰モデルの残差に kriging 法を適用

するものである。この手法では、目的変数は決定論的な成分と確率論的な成分の和であるとして扱われる (Hengl, 2007)。決定論的成分は、目的変数と、目的変数に影響を与える可能性のある予測変数との線形回帰モデルを構築し、得られたモデルによる予測値として得られる。確率論的成分は線形回帰モデルの残差を ordinary kriging 法で内挿して得られる (Hengl, 2007)。Regression kriging 法では、目的変数の空間変動を十分に説明できる説明変数が得られれば、測定地点数が kriging 法よりも少ない場合や均等に配置されていない場合であっても、十分な精度で空間分布を予測することが可能となる (Hengl, 2007)。ただし、空間分布を予測する空間の全ての地点において説明変数が得られている必要がある。

Regression kriging 法を大気汚染物質の空間分布予測に適用した研究例はいくつか存在する。Beelen et al. (2009) はモニタリングデータを用いて、EU 全域を対象として空間解像度 1km という高解像度で NO_2 , PM_{10} , O_3 , SO_2 および CO の年平均値の空間分布を推定している。また、Pearce et al. (2009) は都市スケールで $\text{PM}_{2.5}$ の空間分布を道路交通、標高および土地利用を説明変数として予測している。Regression kriging 法と線形回帰法の予測値を比較した研究では、regression kriging 法の方が予測精度が良好であると報告されている (Beelen et al., 2009; Pearce et al., 2009; Mercer et al., 2011)。また、Beelen et al. (2009) のような EU 全域において空間解像度 1km での濃度分布予測は大気質モデルでは計算負荷が過大であり実用的ではない。これらの点を考慮すると、大気汚染物質の年平均濃度のような長期統計値の空間分布を予測する場合や日本全域のような広範囲を対象として高解像度で空間分布を予測する場合には、regression kriging 法の特徴が発揮されると考えられる。また、測定地点が少ない、あるいは偏りが大きい等の場合であって、測定地点数を増やすことが困難であり kriging 法の適用ができない場合にも、regression kriging 法の適用を検討することは有効であると考えられる。

ところで、regression kriging 法は大気質モデルと異なり、経験的な部分が含まれるために異なる地域で共通のモデルを適用することには限界がある (Hoek et al., 2008) が、これまでに日本はもとよりアジア地域において regression kriging の適用が検討されたことはなかった。従って、日本における大気汚染物質の空間濃度分布予測に regression kriging 法を適用するにはその検討が必要である。なお、他にも universal kriging 法や kriging with external draft (KED) という手法も存在するが、これらは regression kriging と基本的に同一の手法である (Hengl et al., 2003)。

1.4 ネットワークの最適化

モニタリングネットワークの最適化は、「ネットワークデザイン問題 (network design problem)」とも呼ばれ、これまで多くの研究が行われてきた (e.g. Brus and Heuvelink, 2007; Wu et al., 2010; Wu and Bocquet, 2011)。ネットワークデザイン問題は、評価基準の選定、濃度予測法および配置地点選択のアルゴリズムから構成される (Wu and Bocquet, 2011)。評価基準はネットワークのエントロピーの最大化 (e.g. Zidek et al., 2000; Fuentes et al., 2007) やクリギング分散 (kriging variance) の最小化 (e.g. Baume et al., 2011; Wu and Bocquet, 2011) として定義されることが多い。評価基準が定義されると、ネットワークデザイン問題は測定局配置可能地点の集合から最適な配置地点の組み合わせを選ぶ、組み合わせ最適化問題として扱うことができる。全ての組み合わせの比較は小規模なネットワークであれば可能であるが、通常は組み合わせ爆発となり、現在のコンピュータの能力では困難である。そのため、メタヒューリスティックスを用いて近似最適解を求めるといった手法が用いられてきた。例えば、Ruiz-Cárdenas et al.

(2010) は遺伝的アルゴリズム (genetic algorithm, 以下 GA) をアメリカ合衆国のオゾンのモニタリングネットワークに適用している。また, Wu and Bocquet (2011) はフランスにおけるオゾンのモニタリングネットワークを焼きなまし法 (simulated annealing, 以下 SA) を用いて最適化を行っている。こうした研究では最適化対象であるネットワークの観測値を用いており, 多くの場合ではネットワークの効率化, 言い換えれば測定地点の削減が議論されている。また, ネットワークが十分な代表性を持っていることを前提としているため, 構築初期段階や測定局の配置の偏りが大きい場合など, ネットワークが対象領域の濃度を十分に代表しない場合には適用できない。従って, 日本におけるモニタリングネットワークが都市域に顕著に偏在していることを考慮すると, その最適化への適用が適切ではないと考えられる。

観測値の代わりに推定された空間分布を用いた最適化はこれまで検討されてこなかった。しかしながら, 十分な精度の空間分布が得られるならば, 観測値の代わりに用いることは可能である。ただし, 観測値を用いる最適化と比較すると, 探索空間が広大であると同時に連続的であるという特徴に留意しなければならない。これに対応するためには, 大域的探索能力と局所的探索能力を共に備えたアルゴリズムが必要である。GA は大域的探索能力に優れるが局所的な探索能力には劣り (Ruiz-Cárdenas et al., 2010), SA は局所探索能力に優れるが, しばしば局所解に陥ることがある (Ruiz-Cárdenas et al., 2010)。従って, これらのアルゴリズムの特長を融合し, 相互に補完できるように GA と SA を組み合わせたアルゴリズムを開発することで, モデル計算値を用いたネットワーク最適化に適用することが可能である。

1.5 本論文の目的と構成

これまでに述べたように, 日本では高度成長期の公害の時代からは大気環境が大きく改善しているが, O_3 や $PM_{2.5}$ については環境基準達成率も低く, さらなる対策が求められている。また, 大気環境を監視し対策の効果を評価するために構築・運用されているモニタリングネットワークは, 測定局の配置方法について具体的には示されておらず, 現在のネットワークの妥当性についても評価はされていない。これらを背景として, 本論文では測定局配置の科学的根拠を与えることが可能な手法の開発を大きな目的とする。その中で, ネットワークの最適化を検討する上で不可欠である対象領域における空間分布推定を, 大気質モデルでは十分な空間解像度を得ることが難しい都市スケールおよび全国スケールについて, 簡易かつ実用的に推定する手法として kriging 法の適用を検討する。さらに, 推定された濃度分布を用いてモニタリングネットワークを最適化する手法を開発し, 実用問題に適用する。

本論文の構成は以下のとおりである。また, 本論文の流れを Fig. 1.9 に示す。

- 第1章では本論文の背景と目的について述べた。
- 第2章では, 都市スケールにおいて, 測定地点数が十分ではない場合に簡易測定法を用いて測定値を補間し, kriging 法を適用することで空間分布を推定する手法を検討する。
- 第3章では, 全国スケールにおいて, 測定値を補間することによる空間分布推定手法として regression kriging 法の適用を検討する。
- 第4章では, 空間分布推定値に適用できる最適化アルゴリズムとして, GA と SA を組み合わせたハイブリッド・アルゴリズムを開発し, その探索能力と汎用性を GA あるいは SA 単体と比較し評価する。

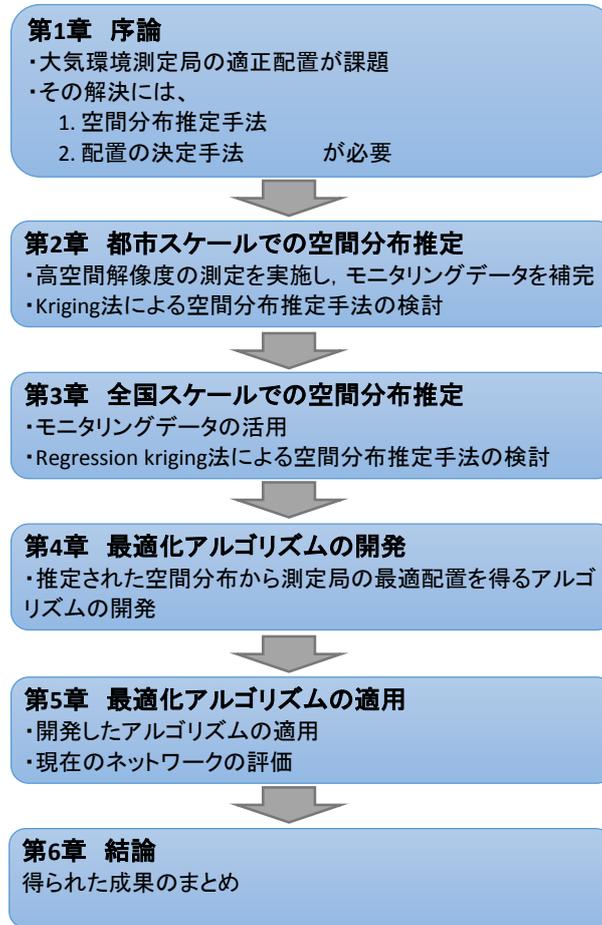


Fig. 1.9 The framework of the dissertation.

- 第5章では、開発したハイブリッド・アルゴリズムを近畿地方のPM_{2.5} ネットワークに実際に適用し最適化を行い、それによって現在のネットワークの評価を試みる。
- 第6章では、得られた成果をまとめ、今後に向けての課題を整理する。

第2章

都市スケールでの空間分布推定

本章では、簡易測定法であるパッシブサンプラー法を用いて測定を行い、大気環境モニタリングネットワークの測定データを補完した上で kriging 法を適用し、都市スケールにおける空間分布推定手法について検討する。

2.1 方法

2.1.1 パッシブサンプラー

パッシブサンプラーは分子拡散、すなわち物質が濃度の高い方から低い方へ移動する現象を利用し、ろ紙や活性炭などの補集材に目的物質を捕集するものである (横浜市環境科学研究所, 2002; スリーエムヘルスケア株式会社, 2004)。パッシブサンプラーの捕集速度は、自動測定機のようなポンプ等を用いた捕集方法 (アクティブサンプリング) に比較して遅いため、高い時間分解能は得られないという欠点はあるものの、電源が不要、取り扱いが容易、安価であるという特徴がある。そのため、自動測定機が設置されていない地域の濃度の把握や、多地点同時サンプリングが必要となる高い空間解像度の濃度分布の把握において、その特徴が発揮されるものである。これまでに、 O_3 や NO_2 の測定では多くの実績があるモニタリング手法であり (e.g. Ray, 2001; Varns et al., 2001; Sather et al., 2001; Bytnerowicz et al., 2004), その測定値は自動測定機による測定値と比較して遜色の無いものであることが報告されている (Bytnerowicz et al., 2004)。また、 O_3 の前駆物質である揮発性有機化合物 (VOCs) のパッシブサンプラーは、低沸点の物質の採取には適さないため容器採取法 (キャニスター法) のように多成分については測定できないものの、大気中 VOCs の測定には同様に多くの実績があるモニタリング手法である (e.g. Yamada et al., 2004; 松下他, 2005; Mukerjee et al., 2004)。

2.1.2 対象

本論文では、大気汚染物質の中でパッシブサンプラーで測定可能であり、かつ現在問題となり低減対策が進められている O_3 を対象物質とし、その前駆物質である NO_2 , NO_x および VOCs についても測定した。対象地域は天津市とその周辺部とした。天津市は滋賀県の南西部にあり西は京都市と接しており、京都や大阪といった大都市圏の周辺部にある都市である。また、南北に細長く、琵琶湖の南西に位置し北西

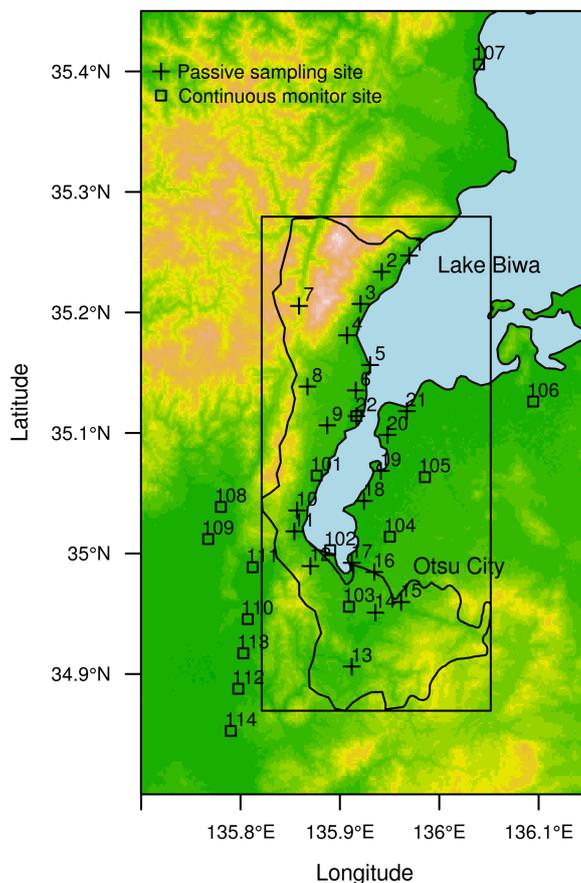


Fig. 2.1 Study area with passive sampling and continuous monitor sites. Numbers correspond to those in Table 1. Colors represent the elevation based on ASTER GDEM, a product of METI and NASA. The large square shows the area where O₃ and PO concentration is predicted.

部には比良山系がそびえている。大津市の中部と南部の境界付近に国道1号線と名神高速道路が位置しており、市街地や大規模な工場も同様の配置となっている。一方で、北部および南部は山林が多く市街地や工場は少ない (Fig.2.1)。オキシダントの自動測定局は市内に4局 (No.22, 101 - 103, うち No.103 は自動車排ガス局) 設置されているが、いずれも人口が多い地域である。

2.1.3 サンプルング

O₃, NO₂ および NO_x のパッシブサンプラーは Ogawa 式パッシブサンプラー (小川商会製 OG-SN-S) を、捕集ろ紙は小川商会製 OG-SN-16 (O₃), OG-SN-10 (NO₂) および OG-SN-11 (NO_x) を使用した。ろ紙は -18 °C で保存し、原則として設置する前日に必要分だけを取り出してサンプラーにセットした (Varns et al., 2001)。サンプラーの設置と回収にあたっては、サンプラーを密閉プラスチック容器に入れ冷却下において運搬し、測定地点で容器から取り出し、雨や直射日光による影響を避けるためポリエチレン製小型シェルター内に設置した。サンプルングは 2008 年および 2009 年の 4 月から 10 月を中心に

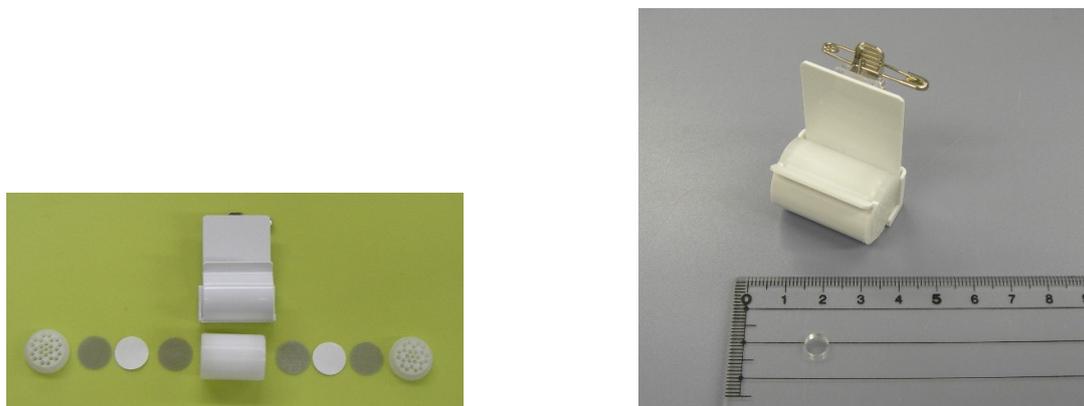


Fig. 2.2 The passive sampler for O_3 , NO_2 and NO_x used in this study.



Fig. 2.3 The passive sampler for VOCs used in this study.

月2回程度実施した。2008年は前半は O_3 のみ、後半は O_3 と NO_2 について1日の暴露期間でサンプリングし、2009年はそれに加えて O_3 、 NO_2 、 NO_x について1週間の暴露期間でサンプリングして、記録した設置・回収日時から暴露時間を求め、それぞれ1日平均濃度と1週間平均濃度を求めた。 NO_x については1日暴露では必要な定量下限値が得られなかったため、1週間のみとした。Fig. 2.2に使用した O_3 、 NO_2 および NO_x サンプラーを示す。Fig. 2.1およびTable 2.1にサンプラーの設置地点を示す。また、サンプリングの詳細をTable 2.2に示す。なお、本章で O_3 等と記したときは、 O_3 、 NO_2 および NO_x を指すものとする。

VOCsのパッシブサンプラーは住友スリーエム製有機ガスモニターOVM3500を使用した。サンプリングは2009年5月から10月に毎月1回、 O_3 等と同時に行った。大気中での暴露期間は1週間とした。設置と回収にあたっては、 O_3 等と同様に、保冷剤を入れた携帯用保温箱で運搬しサンプリング地点で容器から取り出し、雨や直射日光による影響を避けるためポリエチレン製小型シェルター内に設置した。

Table 2.1 Passive sampling sites (No.1-22) and continuous monitor sites applied for this study (No.22, 101-114).

No	Name	No.	Name
1	Kitakomatsu	19	Oroshimo ^{1,3}
2	Kitahira	20	Konohama
3	Kido	21	Saizukawa
4	Horai	22	Katata
5	Wani		
6	Mano	101	Shimosakamoto
7	Sakashita	102	Zeze ²
8	Ikadachi	103	Ishiyama
9	Oginosato	104	Kusatsu
10	Minamishiga	105	Moriyama
11	Goryocho	106	Hachiman
12	Ikenouchi	107	Takashima ²
13	Oishi	108	Sakyo
14	Haguri	109	Shiyakusho
15	Kamitanakami	110	Yamashina
16	Ichiriyama ^{1,3}	111	Daigo
17	Kayanoura	112	Uji
18	Shimogasa	113	Higashiuji ¹
		114	Joyo

¹ Not available in 2009.

² Monitoring O₃ only.

³ VOCs are not monitored.

Fig. 2.3 に使用した VOCs サンプラーを示す。VOCs のサンプラーは、基本的には O₃ 等のサンプラーと同一地点に設置したが、No.16 および No.19 には設置しなかった。これは、VOCs のサンプラーの方が高価であるため、設置可能数が少なかったためであり、出来るだけ近接測定地点との距離が短く影響が少ないと予想される地点を選定して除外した。

測定地点は移動発生源からの影響を直接受けないように、幹線道路から 200 m 以上離れ、且つ大規模な固定発生源に近接しない開放地点を選定し、地上 1.0 m から 2.0 m の高さに設置した。Fig. 2.4 にパッシブサンプラーの設置状態の例を示す。

各測定では、同一地点にサンプラーを 2 個設置する二重測定を行い測定精度を確認した。O₃ 等のサンプリングについては、2008 年の測定では 3 箇所 (No.3, 17, 22)、2009 年は精度が確認できたため 1 箇所 (No.22) で行った。VOCs については 1 箇所 (No.22) で行った。

2.1.4 O₃ 等濃度の定量

暴露後に回収したサンプラーは、回収当日に捕集ろ紙を超純水 10 mL (O₃) および 8 mL (NO₂ および NO_x) でそれぞれ抽出し、O₃ と NO₂ はイオンクロマトグラフ (Dionex, DX-320 および ICS-1500)

Table 2.2 Detail of the sampling

Sampling date	Exposure period	Monitored gas	Number of duplicate samplings
Apr 14 - 15, 2008	1 day	O ₃	3
May 12 - 13, 2008	1 day	O ₃	3
May 26 - 27, 2008	1 day	O ₃	3
May 27 - 28, 2008	1 day	O ₃	3
May 28 - 29, 2008	1 day	O ₃ , NO ₂	3
May 29 - 30, 2008	1 day	O ₃ , NO ₂	3
June 23 - 24, 2008	1 day	O ₃ , NO ₂	3
June 24 - 25, 2008	1 day	O ₃ , NO ₂	3
June 25 - 26, 2008	1 day	O ₃ , NO ₂	3
July 23 - 24, 2008	1 day	O ₃ , NO ₂	3
Oct 30 - 31, 2008	1 day	O ₃ , NO ₂	3
Nov 17 - 18, 2008	1 day	O ₃ , NO ₂	3
Apr 23 - 24, 2009	1 day	O ₃ , NO ₂	1
May 20 - 21, 2009	1 day	O ₃ , NO ₂	1
June 29 - 30, 2009	1 day	O ₃ , NO ₂	1
July 30 - 31, 2009	1 day	O ₃ , NO ₂	1
Aug 25 - 26, 2009	1 day	O ₃ , NO ₂	1
Sep 10 - 11, 2009	1 day	O ₃ , NO ₂	1
Oct 22 - 23, 2009	1 day	O ₃ , NO ₂	1
Apr 7 - 14, 2009	1 week	O ₃ , NO ₂ , NO _x	1
May 13 - 20, 2009	1 week	O ₃ , NO ₂ , NO _x , VOCs	1
June 22 - 29, 2009	1 week	O ₃ , NO ₂ , NO _x , VOCs	1
July 23 - 30, 2009	1 week	O ₃ , NO ₂ , NO _x , VOCs	1
Aug 18 - 25, 2009	1 week	O ₃ , NO ₂ , NO _x , VOCs	1
Sep 3 - 10, 2009	1 week	O ₃ , NO ₂ , NO _x , VOCs	1
Oct 15 - 22, 2009	1 week	O ₃ , NO ₂ , NO _x , VOCs	1

でそれぞれ NO₃⁻ イオンと NO₂⁻ イオンを定量し, NO_x はスルファニル・NEDA 試薬で発色させて分光光度計 (JASCO, V-630) で NO₂⁻ イオンとして定量した (横浜市環境科学研究所, 2002). イオンクロマトグラフの分離カラムは AS12A 4×200 mm, ガードカラムは AG12A 4×50 mm, サプレッサーは ASRS300 4 mm, オートサンプラーは AS, 溶離液は 2.7 mM Na₂CO₃+0.3 mM NaHCO₃, 流速は 1.5 mL min⁻¹, カラム温度は 35°C, 注入量は 250 μL である. 大気中の O₃, NO₂, NO_x 濃度の算出は以下のように行った.

$$C = W \times \frac{1}{f} \times \frac{1}{t} \quad (2.1)$$



Fig. 2.4 Passive samplers during sampling.

ここで、 C は大気中濃度 (ppb) , W は O_3 については捕集ろ紙で生成した NO_3^- (ng), NO_2 , NO_x については捕集された NO_2 , NO_x (ng), f は換算係数 ($ppb \text{ hr ng}^{-1}$), t は暴露時間 (hr) である. 換算係数は, パッシブサンプラーと自動測定機との並行測定を No.22 の地点において実施してその値を計算し, 全測定について算術平均したものをを用いた (Bytnerowicz et al., 2004). また, 換算係数は暴露期間ごとに算出した.

O_3 濃度の空間分布は NO_x の発生源分布の影響を受けると予想される. 本研究では空間分布予測の過程で発生源については考慮していないが, そのため予測精度が影響を受ける可能性がある. そこで, その影響を考慮できるものとしてポテンシャルオゾン (PO) についても空間分布の予測を行った. PO は O_3 が NO と反応して消失する量を考慮した保存量であり, 本研究では既往の研究 (Itano et al., 2007; Take et al., 2010) を参考に,

$$[PO] = [O_3] + [NO_2] - 0.1 \times [NO_x] \quad (2.2)$$

とした. 本研究では暴露期間が1日のサンプリングでは NO_x は測定していないが, その場合については以下のように取り扱った. 2.2 式は

$$\begin{aligned} [PO] &= [O_3] + [NO_2] - 0.1 \times ([NO] + [NO_2]) \\ &= [O_3] + 0.9 \times [NO_2] - 0.1 \times [NO] \end{aligned} \quad (2.3)$$

と変形できる. 本研究の測定結果では 2.3 式の第1項と第2項の和は少なくとも 30 ppb 程度であり, 調査地域内の自動測定機 (一般環境局) の NO の日平均値は数 ppb 以下であり, 測定地点は一般環境局と同様の濃度環境であると考えられることから, 第3項を無視しても PO への影響は十分小さいと判断し, NO_x の測定を行っていない1日暴露のデータについては,

$$[PO] = [O_3] + 0.9 \times [NO_2] \quad (2.4)$$

と近似した.

2.1.5 VOCs 濃度の定量

VOCs の標準物質として Supelco 製室内空気 50 成分 (1000 mg L^{-1}) を, 内部標準物質として関東化学製トルエン-d8 (1000 mg L^{-1}) を使用した. 抽出溶媒はアセトンと二硫化炭素を 2:1 の体積比で混合した溶媒とし, アセトンはシグマアルドリッチ製クロマトグラフィー用, 二硫化炭素はシグマアルドリッチ製 low benzene grade を使用した. 標準物質及び内部標準物質は抽出溶媒で適宜希釈して用いた. 抽出した試料の GC/MS 測定には島津製作所製 GCMS-QP2010-plus 型を使用し, カラムは GL サイエンス製 Aquatic ($1.0 \mu\text{m}$, $0.25 \text{ mmI.D.} \times 60 \text{ m}$) を用いた. サンプラーの活性炭シートを抽出溶媒 2 mL で超音波により 40 分間抽出を行い, 抽出試料 $1 \mu\text{L}$ を GC/MS 法で分析した. 分析条件は, カラム温度 50°C で 9 分間保持, 3°C min^{-1} で 100°C まで昇温, 8°C min^{-1} で 200°C まで昇温し 15 分間保持した. 注入口温度は 200°C , カラム流量は 1.0 mL min^{-1} , スプリット比は 20 とした. 質量分析条件は m/z 45 - 500 のスキャン測定とした. 大気中 VOCs 濃度の算出は以下のように行った (スリーエムヘルスケア株式会社, 2004).

$$c = \frac{103 \times M}{r \times k \times t} \quad (2.5)$$

ここで, C は大気中 VOCs 濃度 ($\mu\text{g m}^{-3}$), M は VOCs 捕集量 (μg), r は脱着率 (-), k はサンプリング速度 (mL min^{-1}), t はサンプリング時間 (min) である. 脱着率は 1 とし, サンプリング速度はパッシブサンプラーの技術資料 (スリーエムヘルスケア株式会社, 2004; 3M, 1994) から得た.

2.1.6 空間分布予測方法

得られた測定値から空間分布を得る手法として, kriging 法を適用しその予測精度を評価した. 予測範囲とした領域は, Fig.2.1 に示した四角形の内部 ($135.82^\circ\text{E} - 136.05^\circ\text{E}$, $34.87^\circ\text{N} - 35.28^\circ\text{N}$) である. kriging 法では測定値からセミバリオグラムを推定する. まず, 全ての測定値の対からその非類似度 $\hat{\gamma}$ を求める. $\hat{\gamma}$ は地点 x_α と x_β の属性値をそれぞれ z_α と z_β とすると,

$$\hat{\gamma}_{\alpha\beta} = \frac{(z_\alpha - z_\beta)^2}{2} \quad (2.6)$$

と表される. 2 地点 x_α , x_β をベクトル $\mathbf{h} = x_\alpha - x_\beta$ として表すと式 2.6 は,

$$\hat{\gamma}(\mathbf{h}) = \frac{1}{2} (z(x_\alpha + \mathbf{h}) - z(x_\alpha)) \quad (2.7)$$

となる. ここで, 相対距離 $|\mathbf{h}|$ をクラス分けし各区間に属する $\hat{\gamma}$ の算術平均 (セミバリアンス) を求め, $|\mathbf{h}|$ に対してプロットして経験セミバリオグラムを得る. 次に, セミバリオグラムのパラメータ推定として, この経験セミバリオグラムへパラメータモデルを当てはめる (間瀬, 2001). パラメータモデルは球形型, ガウス型, 指数型モデルのうち, 当てはめの残差が最も小さくなるモデルを選んだ. Fig. 2.5 に経験バリオグラム (点) とセミバリオグラム (実線) の例を示す. 経験セミバリオグラムを求める際には上記の区間幅 ($\Delta|\mathbf{h}|$) を, セミバリオグラムのパラメータ推定の際にはパラメータモデルへの当ては

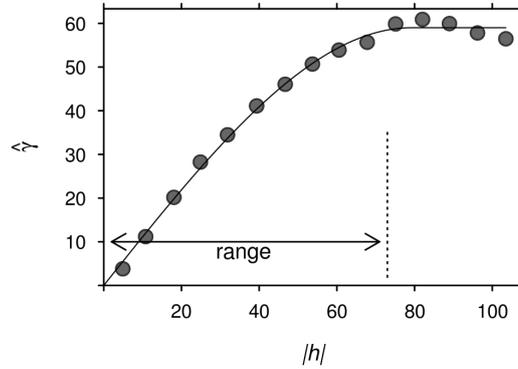


Fig. 2.5 Example of the empirical variogram (circles), fitted semivariogram (solid line) and range.

めに用いる $|h|$ の上限 ($|h|_{max}$) をそれぞれ決定しなければならない。これらの変数は以下のように決定した。これらの変数について、ある組み合わせの下で経験バリオグラムを求めセミバリオグラムのパラメータ推定を行う。得られたセミバリオグラムの下で kriging 法による leave-one-out cross validation (交差検証法) を行い精度評価指標を得る。交差検証法は n 個のデータセットから各測定データを順次取り除き、その位置での値を残りの $n-1$ 個のデータから予測し、取り除いたデータと予測値とを比較する方法である (Wackernagel, 2003)。精度評価指標は平均誤差 (mean error, 0 に近いほど良い, 以下 ME) および平均二乗平方根誤差 (Root mean squared error, 小さいほど良い, 以下 RMSE) と標準化誤差 (mean squared normalized error, 1 に近いほど良い, 以下 MSNE) であり、これらは以下のように定義される (Wackernagel, 2003)。

$$ME = \frac{1}{n} \sum (y_m - y_p) \quad (2.8)$$

$$RMSE = \sqrt{\frac{1}{n} \sum (y_m - y_p)^2} \quad (2.9)$$

$$MSNE = \frac{1}{n} \sum \frac{(y_m - y_p)^2}{\sigma^2} \quad (2.10)$$

ここで、 y_m は測定値、 y_p は予測値、 σ はクリギング標準偏差、 n はデータ数である。複数のパラメータの組み合わせごとに交差検証法で精度を評価して、最も良い精度評価指標が得られたパラメータの組み合わせを採用した。また、その時の評価指標値を空間分布予測精度とした。セミバリオグラムから大気汚染物質の空間代表スケールに関する情報が得られる。縦軸のセミバリアンスが一定値になる $|h|$ をレンジと呼ぶ。例えば、Fig.2.5 の例では 73 km がレンジとなる。球形モデルではセミバリオグラムのパラメータ推定から得られるパラメータ θ がレンジである。指数型とガウス型モデルについては理論的にはレンジは有限ではないが、実用上十分な距離として指数型では 3θ (間瀬, 2001)、ガウス型では 2θ をレンジとし各測定データについてレンジを求めた。

Table 2.3 Result of duplicate sampling and collocated sampling.

Target	Year	n	Precision			Trueness		
			Mean std. dev. (ppb)	Mean RSD (%)	Mean absolute error (ppb)	n	Mean absolute error (ppb)	R
1 day exposure								
O ₃	2008	36	2.2	5.9	3.1	12	4.0	0.97
O ₃	2009	7	1.6	4.2	2.3	8	4.4	0.95
NO ₂	2008	24	0.4	5.7	0.6	8	2.1	0.97
NO ₂	2009	7	0.6	8.4	0.8	8	1.4	0.88
1 week exposure								
O ₃	2009	7	1.3	3.8	1.8	8	3.9	0.89
NO ₂	2009	7	0.4	5.1	0.6	8	1.1	0.87
NO _x	2009	7	0.4	5.2	0.6	8	1.3	0.86

空間分布予測と解析には統計解析ソフト R (R Core Team, 2014) およびそのパッケージである sp (Pebesma and Bivand, 2005), gstat (Pebesma, 2004), rgdal (Bivand et al., 2014), maptools (Bivand and Lewin-Koh, 2015), lattice (Sarkar, 2008) を使用した。

2.2 結果と考察 - O₃ 等 -

2.2.1 測定精度

二重測定および並行測定の結果の概要を Table 2.3 に示す。また、並行測定の結果を Fig. 2.6 に示す。二重測定の結果から精度 (precision) を評価した。全項目で平均標準偏差が 3 ppb 以下、平均相対標準偏差 (RSD) は 10% 以下、平均絶対誤差も 3 ppb 程度以下と小さい値であった。O₃ に比べて NO₂ と NO_x の平均標準偏差と平均絶対誤差が小さいのは、濃度の絶対値が小さいためと考えられる。また、並行測定の結果から測定の真度 (trueness) を評価した。平均絶対誤差が O₃ では 5 ppb 以下、NO₂ と NO_x では 2 ppb 以下と小さい値であった。ここでも O₃ に比べて NO₂ や NO_x の平均絶対誤差の方が小さいが、これも濃度の絶対値が小さいためと考えられる。自動測定機との相関も高く、特に 1 日暴露の O₃ (2008, 2009 年) と NO₂ (2008 年) は R>0.95 と非常に高かった。これらの精度と真度は既往の研究 (Ray, 2001; Bytnerowicz et al., 2004) と同程度であった。こうした結果から、パッシブサンプラーによる測定値は十分な精度と真度を持っており、自動測定機による測定値と同等に取り扱えることが確認できた。また、得られた換算係数は Table 2.4 に示したとおりであった。なお、1 日暴露で得られたサンプル抽出液の濃度は O₃ では 0.05 - 0.25 mgNO₃⁻ L⁻¹, NO₂ では 0.02 - 0.05 mgNO₂⁻ L⁻¹ であった。NO_x (1 週間暴露) では 0.1 - 0.5 mgNO₂⁻ L⁻¹ であった。定量下限値は、捕集ろ紙のブランクの繰り返し測定 (n=10) を実施し、定量値の標準偏差の 10 倍を大気中濃度に換算して求めたところ、O₃ は 1 日暴露で 6 ppb, 1 週間暴露で 1 ppb, NO₂ はそれぞれ 3 ppb, 1 ppb, NO_x は 1 週間暴露で 3 ppb であった。

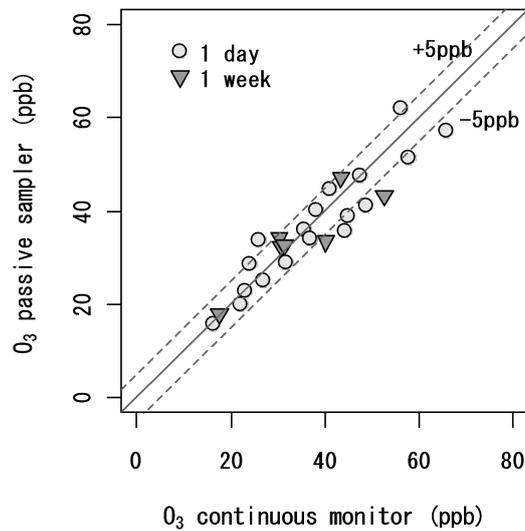


Fig. 2.6 Result of the collocated sampling of O₃. Circles show 1 day exposure samplings and triangles show 1 week exposure samplings.

Table 2.4 Conversion factors for O₃, NO₂ and NO_x (ppb hr ng⁻¹)

Exposure period	O ₃	NO ₂	NO _x
1 day	0.00138	0.00085	-
1 week	0.00164	0.00089	0.00121

2.2.2 空間分布予測

O₃ および PO では、対象領域の周縁部での予測精度の向上のために領域外の測定局のデータ (No.106 - 114) も併せて使用した。なお、測定局 No.103 については自動車排ガス局であるので、O₃ の空間分布の予測においては用いていない。PO については、用いる場合と用いない場合について比較したところ、用いる方が精度が良い場合が多かったため、No.103 を用いることとした。パラメータは少なくとも 72 通りの変数の組み合わせについて交差検証法を行い、得られた精度から決定した。Table 2.5 にクロス・バリデーションの結果によって決定した $\Delta|h|$, $|h|_{max}$, モデル, 予測精度指標および得られたレンジの値を示す。セミバリオグラムモデルは O₃, PO 共に球形モデル, ガウス型モデルの順に多く指数型モデルはいずれも少なかった。精度評価指標については ME (ppb) は O₃ は最小が -0.5, 最大が +0.1, PO はそれぞれ -0.7, 0.3 と小さい値であった。RMSE (ppb) は O₃ では中央値が 5.9, PO は 6.1 であり十分な精度であると考えられた。MSNE (-) については O₃ の 2008 年 11 月 17 日のデータ以外では MSNE は 1 に近く、概ね精度良く予測できたといえる。MSNE は、1 日平均と 1 週間平均、あるいは O₃ と PO で顕著な差はなかった。また、測定精度 (並行測定における誤差, 二重測定における標準偏差と相対標準偏差) との相関も見られず、測定精度が予測精度に影響を与えていないと考えられた。

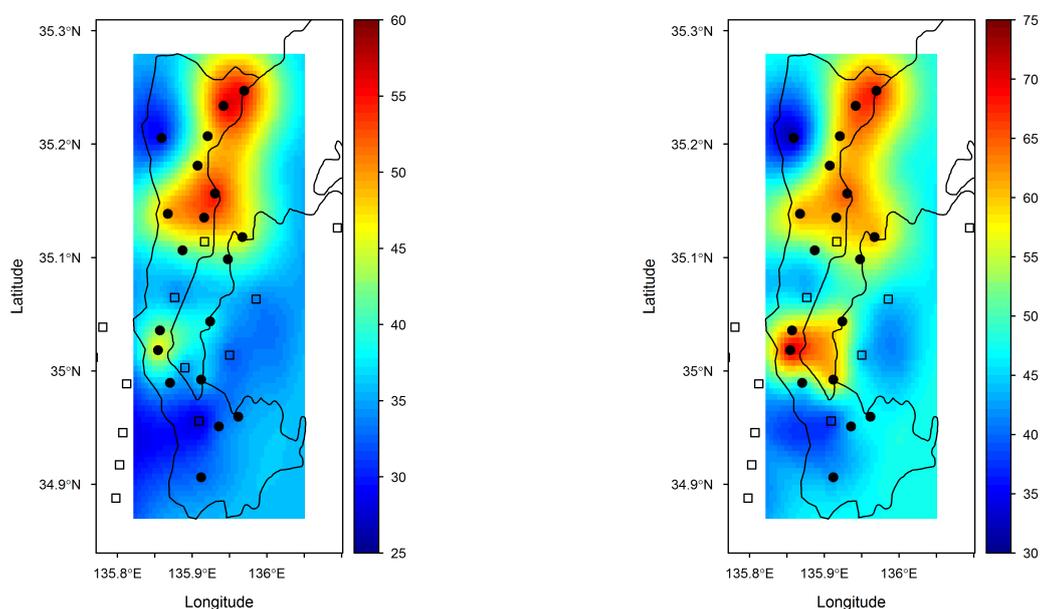


Fig. 2.7 Example of the predicted spatial distribution of O₃ (left) and PO (right) obtained by ordinary kriging applied for the data on July 23, 2008 (1 day average). Crosses show locations of the passive sampling sites and rectangles show that of the continuous monitor sites applied for this study (Unit : ppb).

交差検証法の結果を地点別に比較すると、測定地点 No.7 で O₃、PO 共に殆どの場合に予測値と測定値の誤差が大きく、それぞれ絶対値の平均が 11 および 18ppb であった。この地点だけが山間部に位置しているために、その他の地点とは濃度変動の特徴が異なっていたと考えられる。

Table 2.5 Variables, models, prediction diagnostic indexes and range obtained from cross validation for O₃ and PO

date	Exposure period	O ₃						PO							
		$\Delta h $ (km)	$ h _{max}$ (km)	model	ME (ppb)	RMSE (ppb)	MSNE (-)	Range (km)	$\Delta h $ (km)	$ h _{max}$ (km)	model	ME (ppb)	RMSE (ppb)	MSNE (-)	Range (km)
Apr 14, 2008	1 day	2.8	15	Sph	0.0	8.0	1.110	9.4							
May 12, 2008	1 day	2.3	20	Gau	0.1	5.5	1.210	15.2							
May 26, 2008	1 day	2.9	18	Exp	0.0	7.2	1.192	12.1							
May 27, 2008	1 day	2.3	15	Sph	-0.2	5.6	1.071	10.2							
May 28, 2008	1 day	3.3	20	Gau	0.1	5.0	0.831	7.3	3.4	20	Gau	0.3	4.7	1.003	8.5
May 29, 2008	1 day	2.9	18	Sph	0.1	6.7	1.225	9.2	2.9	18	Gau	0.0	7.2	1.155	11.8
Jun 23, 2008	1 day	2.1	20	Gau	0.1	5.5	1.032	9.6	3.0	18	Sph	0.0	5.1	1.169	10.1
Jun 24, 2008	1 day	2.5	15	Exp	-0.1	6.7	1.001	7.0	3.1	18	Gau	-0.5	7.7	0.992	6.3
Jun 25, 2008	1 day	3.2	15	Sph	0.0	5.7	1.034	7.3	3.2	15	Sph	0.0	6.5	1.159	10.6
Jul 23, 2008	1 day	2.5	15	Sph	-0.4	7.3	0.996	10.0	2.5	18	Sph	-0.7	8.2	1.000	9.6
Oct 30, 2008	1 day	2.1	15	Gau	0.0	4.8	1.012	5.6	2.9	15	Gau	-0.4	5.7	1.000	7.5
Nov 17, 2008	1 day	2.1	15	Gau	-0.5	6.2	2.517	12.7	2.1	20	Sph	-0.4	6.8	1.207	11.4
Apr 23, 2009	1 day	3.1	18	Sph	0.0	4.7	1.061	6.2	2.0	18	Sph	0.0	4.1	0.996	5.0
May 20, 2009	1 day	2.0	15	Sph	0.0	9.4	1.236	11.5	2.0	15	Sph	-0.2	9.1	1.206	10.9
Jun 29, 2009	1 day	1.7	15	Sph	0.0	5.5	1.549	4.9	2.3	15	Gau	0.0	4.7	1.133	4.1
Jul 30, 2009	1 day	2.3	15	Sph	0.0	7.3	1.205	8.4	2.1	15	Gau	-0.1	7.2	1.087	4.2
Aug 25, 2009	1 day	3.3	15	Gau	-0.1	7.0	1.059	8.4	2.7	15	Sph	-0.2	7.2	1.006	10.1
Sep 10, 2009	1 day	3.2	18	Sph	-0.2	8.5	1.016	7.6	3.0	20	Gau	-0.5	8.6	1.000	6.4
Oct 22, 2009	1 day	2.9	18	Sph	-0.1	6.7	1.012	9.3	2.1	15	Sph	-0.2	6.5	0.979	9.6
Apr 07, 2009	1 week	3.3	20	Sph	0.0	5.4	1.110	10.3	2.8	17	Sph	-0.1	4.7	1.138	15.2
May 13, 2009	1 week	2.6	17	Sph	0.0	3.5	1.227	14.5	2.8	17	Sph	0.0	3.8	1.061	14.5
Jun 22, 2009	1 week	3.2	15	Sph	-0.1	7.5	1.105	7.5	2.8	20	Sph	-0.1	7.7	1.058	11.0
Jul 23, 2009	1 week	3.0	15	Gau	0.0	3.3	1.025	5.1	2.1	18	Sph	0.0	3.5	0.992	11.7
Aug 18, 2009	1 week	2.3	20	Gau	0.0	5.0	1.001	12.4	2.1	20	Sph	0.0	5.4	1.247	13.7
Sep 03, 2009	1 week	2.3	18	Sph	0.0	4.8	1.004	8.9	1.9	20	Exp	-0.1	5.1	1.079	11.9
Oct 15, 2009	1 week	2.9	20	Sph	-0.1	6.1	0.994	9.6	2.3	15	Sph	-0.2	5.6	1.174	11.0

¹ Sph, Gau and Exp represent spherical, Gaussian and exponential respectively.

Table 2.6 Number of pairs in each interval ($\Delta|h| = 3.4$ km)

Interval No.	$ h $ (km)	Number of pairs	
		O ₃	PO
1	0 - 3.4	17	18
2	3.4 - 6.8	67	73
3	6.8 - 10.2	77	83
4	10.2 - 13.6	90	94
5	13.6 - 19.0	84	90
6	19.0 - 22.4	70	72

2.2.3 空間分布の地域特性

空間分布予測結果の例を Fig. 2.7 に示す。対象地域を南北方向に約 3 等分しそれぞれ北部，中部，南部とすると，O₃ は中部および北部で高濃度となる傾向が全体的に見られた。また，Fig. 2.7 の例のように北部が最も高濃度となることもあった。一方，北部の西側に位置する比良山系付近および南部では低濃度となる傾向があった。PO は O₃ と同様の傾向であったが，O₃ よりも中部で高濃度となる傾向があった。対象地域には中部と南部の境界付近に国道 1 号線と名神高速道路が位置しており，大規模な工場も同様の配置となっている。一方で北部および南部には発生源は少ない。従って，中部では排出される NO_x がその他の地域よりも多いため，PO が比較的高濃度となっていると考えられる。一方，北部地域では京阪神からの移流の影響が考えられる。

2.2.4 測定地点数の影響

予測精度に影響を及ぼしている要因として，測定地点数が考えられる。 $|h|_{max}$ と $\Delta|h|$ については，1) $|h|_{max}$ は測定地点間距離の最大値 (d_{max}) の 1/2 以下とする，2) $\Delta|h|$ は各区分における測定地点の組み合わせが 30 より多くなるようにとる，という目安がある (Journal and Huijbregts, 1978)。本研究では O₃ については d_{max} は 61.5 (km)，PO については NO_x を測定していない自動測定局があるため 42.8 (km) であり，全データで $|h|_{max}$ は 1) を満たしていた。

2) については，測定地点の各区分における組み合わせは $\Delta|h|$ が大きいほど多くなる。得られた結果における $\Delta|h|$ の最大値は 2008 年 5 月 28 日の PO で 3.4 (km) であり，このときの各区分の組み合わせを Table 2.6 に示す。このように，組み合わせが最も多くなる場合においても，第 1 区分では 30 組以下となっていた。また，第 2 区分でも， $\Delta|h| \leq 2.0$ (km) のとき (2009 年 6 月 29 日の O₃，4 月 23 日，5 月 20 日および 9 月 3 日の PO) には 30 組以下であった。これより，すべての測定データにおいて原点に近い部分でのセミバリオグラムの当てはめ精度が悪くなり予測精度が悪くなっている可能性が考えられる。また，O₃ と PO および平均期間の別で精度に顕著な差がみられなかったのは測定地点数が予測精度に与える影響が相対的に大きかったことが原因である可能性が考えられる。

Table 2.7 Summary of the concentration of atmospheric VOCs.

VOCs	VOCs concentrations ($\mu\text{g m}^{-3}$)		
	Min	Mean	Max
benzene	0.08	0.55	1.17
toluene	0.29	3.38	8.83
xylene	0.04	0.73	1.43
ethylbenzene	0.10	0.67	1.44
1,4-dichlorobenzene	0.04	0.57	1.81
α -pinene	0.37	0.93	2.35

2.3 結果と考察 - VOCs -

O_3 等では自動測定局も含めて 30 地点のデータを使用して空間分布予測を行ったが、測定地点数は十分とはいえなかった。VOCs は自動測定機による測定は行われておらず、空間分布推定に供する測定地点は 20 地点と O_3 等よりもかなり少ない。そのため、kriging 法を適用することは困難であったため、以下では大気中濃度と発生源強度との関係を考察するに留める。

2.3.1 大気中 VOCs 濃度の概要

サンプリング地点 No.20 において同一地点にサンプラーを 2 個設置する二重測定を行い、全期間において個々の測定値が平均値の $\pm 15\%$ 以内 (環境省, 2011) であったベンゼン、トルエン、キシレン、エチルベンゼン、1,4-ジクロロベンゼン、 α -ピネンを解析対象成分とした。Table 2.7 に測定結果の概要を示す。最も大気中濃度が高かったのはトルエンで $3.38 \mu\text{g m}^{-3}$ (全測定結果の平均, 以下同) であった。次いで植物起源である α -ピネンが $0.93 \mu\text{g m}^{-3}$ であった。その他の 4 成分はほぼ同程度であった。環境基準値が定められているベンゼンは最大値でも $1.17 \mu\text{g m}^{-3}$ と環境基準よりも低い濃度であった。ベンゼンは有害大気汚染物質として大気汚染防止法に基づくモニタリングが全国で行われており、本研究の対象地域周辺には堅田局、平野市民センター、草津局と 3 箇所のモニタリング地点がある。これらの地点における同時期のモニタリングデータを環境 GIS (国立環境研究所, <http://tenbou.nies.go.jp/gis/>) から得て、それらの平均値を算出すると $0.78 \mu\text{g m}^{-3}$ であり、本研究と同程度であった。

2.3.2 大気中 VOCs 濃度の成分間の相関とその要因

Fig. 2.8 に大気中 VOCs 濃度の成分間の相関を測定期間の全てについて示す。植物起源の VOCs である α -ピネンはどの成分とも相関は認められなかったが、人為起源であるその他の成分はそれぞれ正の相関が認められた。中でも、トルエン、キシレン及びエチルベンゼンは相互に正の相関が非常に高く R^2 は 0.70 - 0.90 であった。ベンゼンとこれら 3 物質間の相関はそれよりは低く R^2 は 0.38 - 0.53 であった。1,4-ジクロロベンゼンと他の人為起源の成分では R^2 は 0.13 - 0.35 であった。また、月別の測定データに

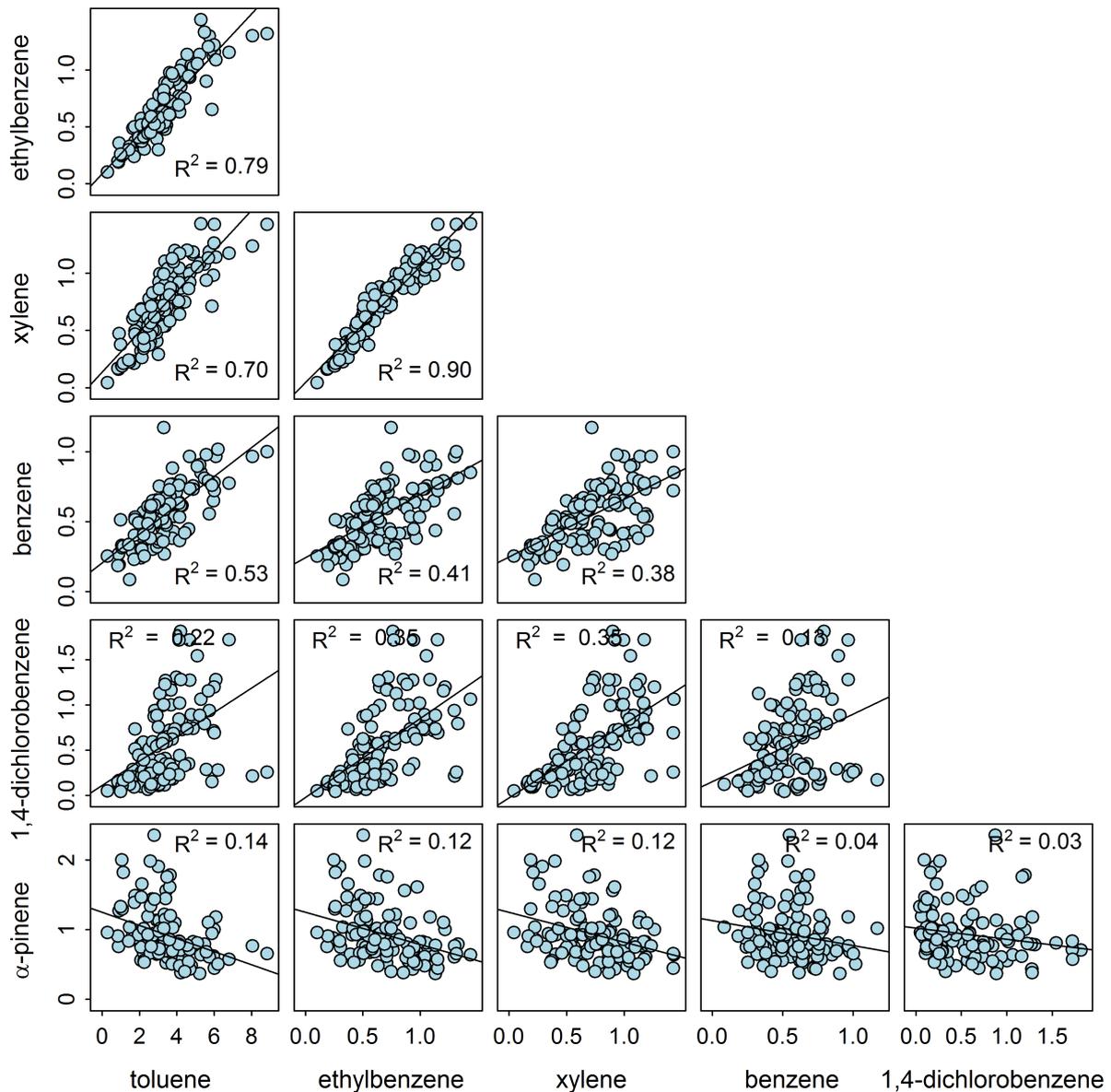


Fig. 2.8 Scatter plot matrix of VOCs concentration observed by passive samplers. Unit is $\mu\text{g m}^{-3}$.

についても同様の傾向が認められた。この結果から、人為起源の VOCs のうちトルエン、キシレン及びエチルベンゼンは類似した発生源プロファイルを持つ一方で、1,4 - ジクロロベンゼンとベンゼンはいずれとも異なる発生源プロファイルを持つと推察される。

ところで、化学物質の初期リスク評価書 (化学物質評価研究機構・製品評価技術基盤機構, 2005, 2006, 2007) では発生源別の排出量を推計している。これを解析対象とした物質について Table 2.8 に整理した。一方、環境中への排出量や移動量については、「特定化学物質の環境への排出量の把握等及び管理の改善の促進に関する法律」(化管法) によって制度化された PRTR (化学物質排出移動量届出制度) に

Table 2.8 Estimated emissions from various sources. Unit is kg year^{-1}

	benzene	toluene	xylene	ethylbenzene	1,4-dichlorobenzene
Industry (PRTR)	2,749 (115)	204,147 (131,669)	95,097 (52,384)	23,512 (12,674)	110 (10)
Household	92	221	1,742	558	20,000
Transportation	16,318	16,080	14,206	6,573	-

よって集計・公表されており、評価書における PRTR 対象業種の届出排出量、届出外排出量及び非対象業種排出量を合計して「産業部門」と分類・集計し、PRTR 届出排出量も併せて示した。PRTR データは環境省 PRTR インフォメーション広場 (<http://www.env.go.jp/chemi/prtr/risk0.html>) より得た。これによると、ベンゼンは 85% が運輸部門からの排出、トルエン、キシレン及びエチルベンゼンは 80 - 90% が産業部門からの排出、1,4-ジクロロベンゼンは 99% 以上が家庭部門からの排出とそれぞれ推計されており、成分によって明確な特徴が見られる。これは全国平均であり、本研究の対象地域が概ねこの構成比であると仮定すると、排出量の発生部門比が類似した VOCs 成分については大気中濃度の相関が高いといえる。

2.3.3 大気中 VOCs 濃度と排出量の関係

VOCs 成分ごとに大気中濃度と発生源からの排出量との関係について、発生源の位置を考慮して解析を行った。

ベンゼン、トルエン、キシレン、エチルベンゼン

化学物質の初期リスク評価書 (化学物質評価研究機構・製品評価技術基盤機構, 2005, 2006, 2007) によると、トルエン、キシレン及びエチルベンゼンの排出量のうち 40-60% が PRTR 届出排出量であると推計されている (Table 2.8)。PRTR 届出排出量では年間の排出量とともに発生源の位置情報が得られるので、このデータを用いて発生源の位置を考慮した上で大気中濃度との関係を解析した。ベンゼンについては PRTR 届出排出量が推計排出量全体の 10% 以下であるが、参考として同様の解析を行った。PRTR データはサンプリングの実施年度と同じ 2009 年度のデータを環境省 PRTR インフォメーション広場より得た。Fig. 2.9 にトルエンのデータを示す。ドットの大きさが排出量 (kg year^{-1}) を表している。また、本研究のサンプリング地点も併せて示した。ここには示さないが、ベンゼン、エチルベンゼン及びキシレンについてもトルエンに類似した分布となっていた。このデータについて、各サンプリング地点から半径 d (km) 以内に位置する発生源からの排出量を合計して測定値に対してプロットした。 d を順に大きくし測定値と合計排出量との相関を検討したところ、概ね 30 km で最も相関が高くなった。Fig. 2.10 にベンゼン、Fig. 2.11 にトルエン、Fig. 2.12 にキシレン、Fig. 2.13 にエチルベンゼンの結果を示す。縦軸が測定値で横軸が合計排出量である。概ね正の相関を示し、 R^2 はベンゼンで 0.15 - 0.65、トルエンで 0.15 - 0.66、キシレンで 0.29 - 0.59、エチルベンゼンで 0.36 - 0.64 であった。これは、大気中濃度は周囲の排出量が多い地点ほど高くなることを示唆している。また、10 月は高濃度となる外れ値があり、

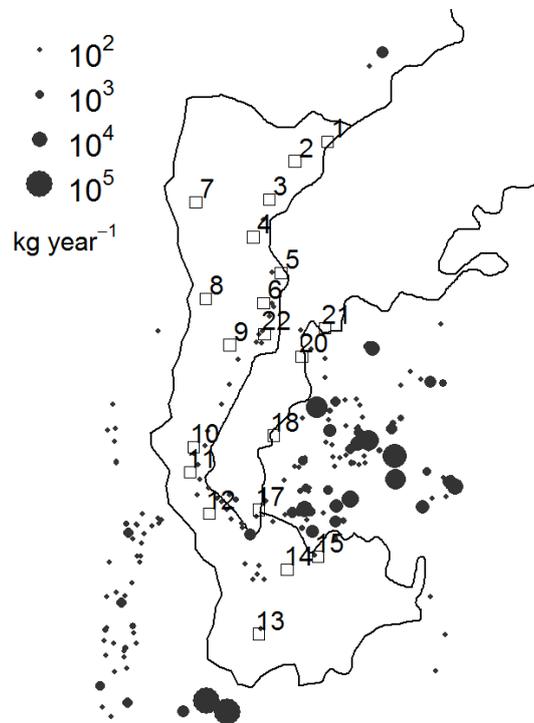


Fig. 2.9 Toluene emissions based on PRTR 2009.

No.20 及び 21 はトルエン，キシレン及びエチルベンゼンで共通して高濃度となっていた．PRTR データによると，これらの地点は 3 km 程度の比較的近傍に大規模な発生源があり (Fig. 2.9)，10 月にはこれらの影響が特に大きかったと推察される．ベンゼンは，検討に用いた PRTR 届出排出量は全体の推計排出量の 10% 以下であり，運輸部門からの排出が 85% を占めるが，本研究では自動車等からの影響を直接受けないように測定地点を選定したことで，正の相関が得られたと考えられる．切片は月によって変動しており，PRTR 届出排出量以外の排出量の大气中濃度への寄与割合が変化していたと考えられる．また，風向・風速等の気象条件の影響も考えられる．

1,4-ジクロロベンゼン

1,4-ジクロロベンゼンの排出源は殆どが家庭で使用される防虫剤，消臭剤からの揮発と推計されている (化学物質評価研究機構・製品評価技術基盤機構, 2007)．そこで，人口分布と大气中濃度との関係を検討した．人口データは 2005 年国勢調査の 500 m メッシュデータを用いた (Fig. 2.14, 図中の数字は Table 2.4 のサンプリング地点を表す)．サンプリング地点の位置するメッシュにおける人口と測定値との関係を解析した．メッシュの人口が 0 であるサンプリング地点が 4 地点あったが，そのうち No. 7 は周囲のメッシュでも人口は少なく山間部に位置するのでバックグラウンドと考えられ，濃度も低濃度であった．残りの 3 地点 (No.18,20,21) では近傍に商業施設等があること，また周囲のメッシュ人口は少

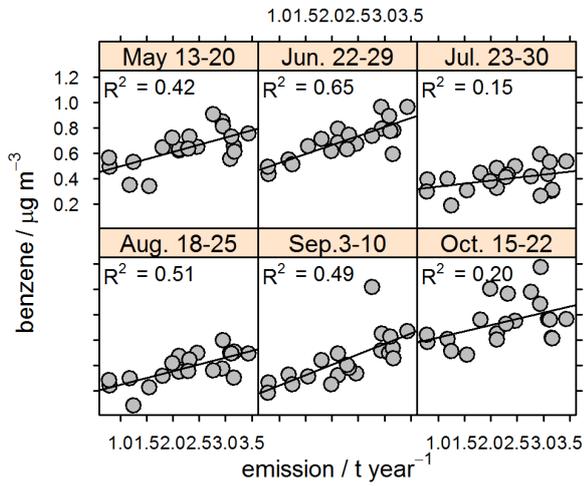


Fig. 2.10 Correlation between the sum of the neighboring emissions and atmospheric concentration of benzene.

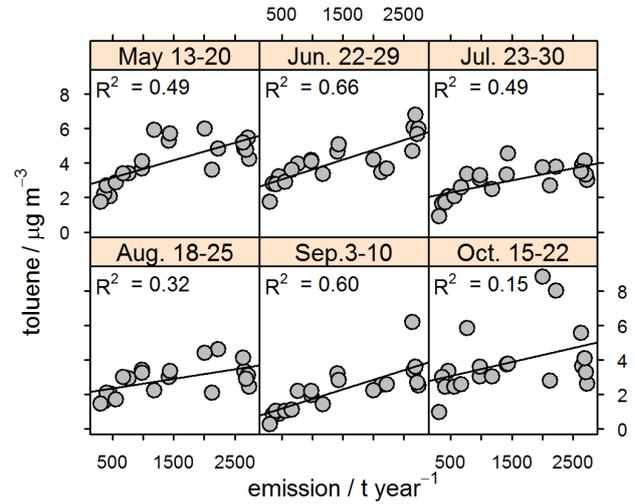


Fig. 2.11 Correlation between the sum of the neighboring emissions and atmospheric concentration of toluene.

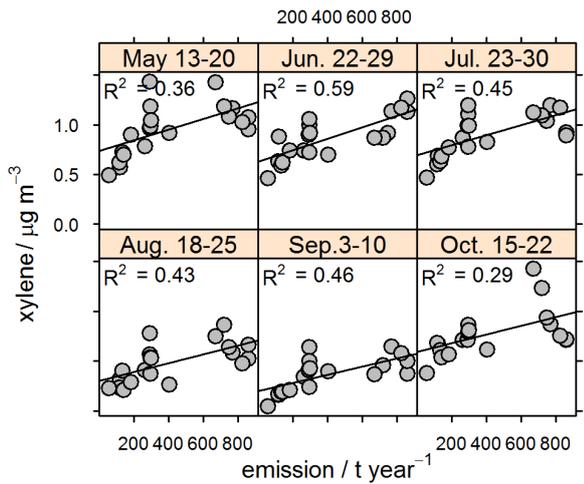


Fig. 2.12 Correlation between the sum of the neighboring emissions and atmospheric concentration of xylene.

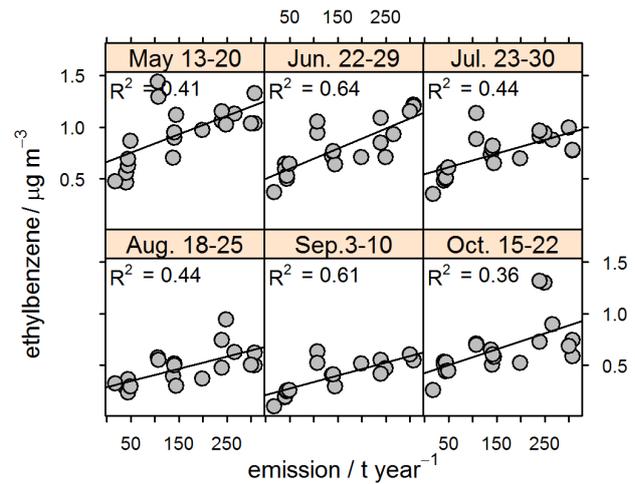


Fig. 2.13 Correlation between the sum of the neighboring emissions and atmospheric concentration of ethylbenzene.

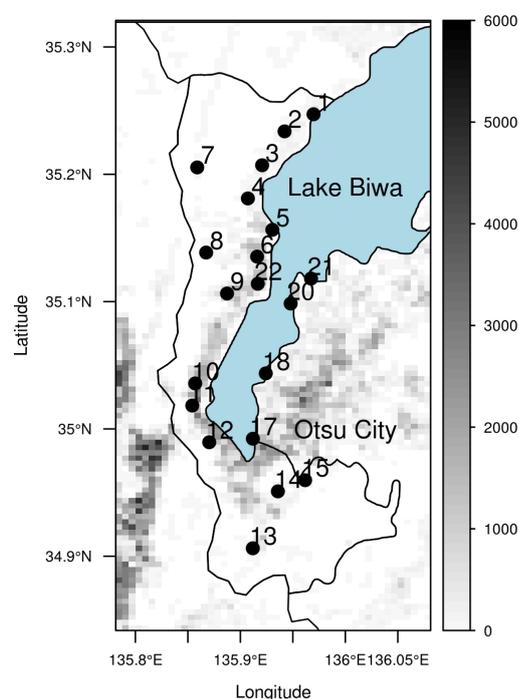


Fig. 2.14 Distribution of population in 500 m square mesh. The numbers correspond to the sampling site numbers and represent the sampling locations.

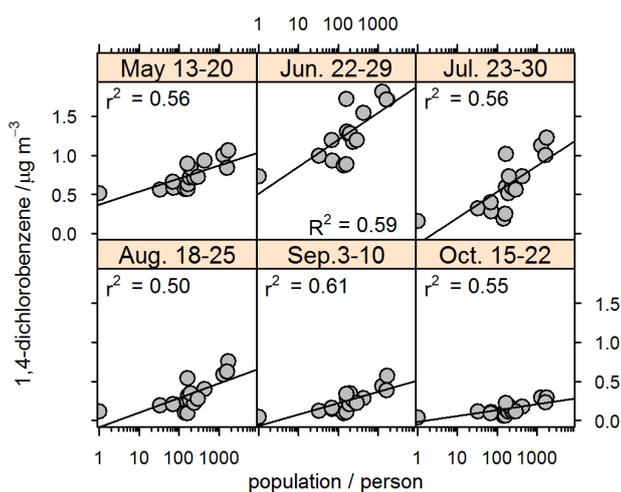


Fig. 2.15 Correlation between population in a 500 × 500m mesh and atmospheric concentration of 1,4-dichlorobenzene

なくないことから、これらの影響を受けていることが考えられ、得られた濃度は他の地点と比べて低くはなかった。従って、メッシュ内の人口が排出量を表していないと考えられるので、No.18,20,21を除外した。人口は常用対数変換を行った。No.7のメッシュ人口は1人として対数変換した。結果をFig. 2.15に示す。いずれの月も測定値はメッシュ内人口と R^2 が0.50 - 0.61と正の相関を示した。この結果は周囲に人口が多い、すなわち1,4-ジクロロベンゼンの排出量が多いと考えられる地点ほど大気中濃度が高くなることを示している。回帰直線の傾きは6,7月が大きかった。これは人口あたりの排出量が多いということであり、気温による揮発量の増加や住宅等の換気の増加が要因として推察される。一方、回帰直線の切片は7月以降はほぼ0であったが、5,6月は0.5程度でありメッシュ外からの影響が示唆される。

α -ピネン

α -ピネンは主にヒノキや松等の針葉樹から放出されるテルペン類の一種である。そこで、針葉樹の分布状況と大気中濃度との関係を検討した。本研究の対象領域に1 km 正方メッシュを作成し、環境省第6回・第7回自然環境保全基礎調査植生調査のデータを使用して各メッシュ内に針葉樹が占める面積割合を算出した。これによると、対象地域の南西部や天津市北西部にある比良山系で割合が高く、琵琶湖東部は割合が0の地域が広がっていた。これをもとに、サンプリング地点の位置するメッシュの針葉樹の面積割

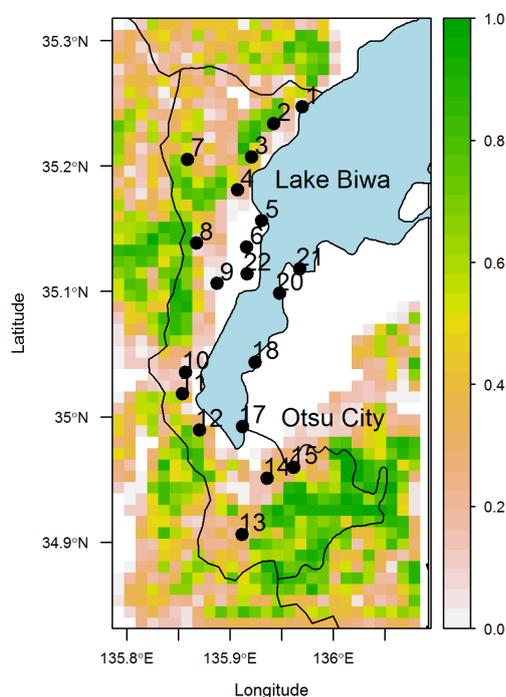


Fig. 2.16 Distribution of conifer area ratio in grid cells. The numbers correspond to the sampling site numbers and represent the sampling locations.

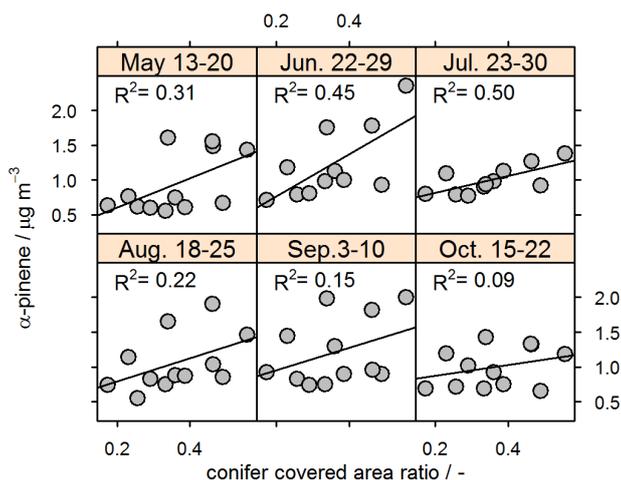


Fig. 2.17 Correlation between conifer area ratio and atmospheric concentration of α -pinene.

合と大気中濃度との関係を解析したが、特に関係は見出せなかった。そこで、測定地点の周囲 2 km 以内に位置するメッシュの面積割合を平均し、これに対して月ごとに大気中濃度をプロットした (Fig. 2.17)。 R^2 は 0.09 - 0.50 であり、概ね周囲に針葉樹が多い、すなわち排出量が多い地点ほど大気中濃度が高くなると解釈できる。回帰直線の傾きは月によって異なっている。 α -ピネン等のモノテルペンの放出速度は葉温に依存し (奥村他, 2008), 平均気温や日照時間の違いにより葉温が異なっていた可能性が考えられる。なお、対応する面積割合が 0 である地点が 7 地点 (No.5, 6, 16, 17, 18, 19, 20) あったが、中でも No.5, 6 及び 20 では大気中濃度は低くはなかった。この 3 地点は針葉樹が比較的多く分布する地域に近く、その他の地点でも現地では周囲に針葉樹が認められるので、これらの地点を除外し解析した。

2.4 まとめ

本章では、都市スケールにおける大気汚染物質の空間分布推定手法として O_3 , PO および VOCs を対象とし、パッシブサンプラー測定で得た測定値に kriging 法を適用する手法を検討した。 O_3 , NO_2 , NO_x では、十分な精度と真度で測定でき、自動測定機による測定値と同等に取り扱えることが確認できた。また、自動測定機とパッシブサンプラーのデータに対して kriging 法を適用し交差検証法によって予測精度を評価したところ、精度は概ね良好であった。ただし、相対距離が短い測定局の組み合わせが少ないこと

が精度に影響していたと考えられた。本章の測定では、平野部には比較的多くの測定地点が得られているが、山間部の地点は1地点だけであった。そのため、交差検証法による評価ではその地点における予測精度が良くない結果となった。従って、山間部以外の測定地点では山間部の濃度を十分に代表することはできず、山間部での予測精度が十分ではなかったと考えられる。kriging法は測定データに大きく依存する手法であるため、測定地点の配置が極めて重要となることが示唆された。

VOCsについてはO₃等の結果からkriging法を適用するには測定地点数が十分ではないことがわかったため空間分布の推定は行わず、その代わりに大気中濃度と発生源からの排出量との関係について成分ごとに解析した。排出量の発生部門比が類似したVOCs成分については、大気中濃度の相関が高いことがわかった。また、大気中のVOCs濃度は比較的近傍の発生源の影響を強く受けていることが示唆された。

第3章

全国スケールでの空間分布推定

第2章では、パッシブサンプラーによる測定値に kriging 法を適用し、都市スケールでの空間分布推定手法の検討を行った。全国スケールでは、サンプラーの設置と回収にかかる人的・物的資源や精度管理などが制約となり、パッシブサンプラーを用いることは困難である。一方、regression kriging 法では適切な説明変数が得られれば、少ない測定地点数であっても精度よく空間分布を推定できる (Hengl, 2007)。そこで、本章では日本全域を対象として regression kriging 法による空間分布推定手法を検討する。

3.1 方法

3.1.1 対象地域

対象地域は日本全体とするが、離島や面積の小さい島は除外した。対象地域内の陸上部に空間解像度 1km のグリッドを構築し、各セルにおける大気汚染物質濃度を予測した。

3.1.2 測定データ

大気汚染物質の測定データは、国立環境研究所「環境数値データベース」大気環境データファイルの 2009 年および 2010 年のデータを利用した。測定局には一般環境局と自動車排ガス局があり、前者は特定の排出源からの直接的な影響を受けない地点に設置され、後者は交差点や道路沿道に設置されている。道路付近の空間的な変動を 1 km の空間解像度で十分に再現することは難しいため、本研究では一般環境局のデータのみを使用した。なお、2010 年における一般環境局は 1503 局であった。

対象物質は NO_2 と O_3 である。 NO_2 は環境基準が設定されている日平均値の年間 98 パーセンタイル値（以下、98% 値という）の空間分布を予測した。環境基準の適否判定の対象となる年間測定時間が 6000 時間以上の測定局のデータのみを使用した。一方、 O_3 の環境基準は 1 時間平均値に対して設定されている。Regression kriging 法を O_3 の 1 時間平均値に適用するには、時間解像度が 1 時間である気象データ等の変数が必要となる。しかし、日本全土を含む高時間分解能の気象データは一般には公開されておらず、気象モデルによって計算することが必要となるが、これは計算負荷が非常に高いため、regression kriging 法の利点である効率性を損なうことになる。さらに、気象モデルを用いるならば、気象モデルと連動することが前提である大気モデルを適用する方がより合理的である。これらの理由から、1 時間平均

Table 3.1 Summary of the data used in this study

Description	Source	Field	Spatial scale	Time periode
Measured air quality data	Ministry of Environment	NO ₂ , O ₃	point	2009-2010
MODIS Land Product	NASA/USGS	NDVI	1 km	2009-2010
JASMES Products	JAXA/Tokai University	UV-A	1 km	2009-2010
TRMM Product	JAXA/NASA/NICT	Precipitation	0.25 deg	2009-2010
GLDAS Product	NASA	Temperature	0.25 deg	2009-2010
		Wind speed		
ASTER GDEM	MTI and NASA	Altitude	1 arcsec	2011(ver.2)
National Census 2005	Statistics Bureau of Japan	Population	500 m	2005
Global Map Japan	Geographical Information	Land use	30 arcsec	2006(ver.1.1)
	Authority of Japan	Road lines	Vector	2011(ver.2)
		Coast lines	Vector	2011(ver.2)
National Land Numerical Information	Ministry of Land, Infrastructure, Transportation and Tourism	Road length	1 km	2010

値ではなく、EUの基準値でもある日最大8時間値の年間26番目に高い値を対象とした。また、これによってEUの基準値に regression kriging 法を適用した既往の研究 (De Smet et al., 2010, 2011) との比較が可能となるという利点がある。日最大8時間値は、有効な測定データが1日あたり20時間以上ある日について計算し、日最大8時間値が年間で250日以上得られる測定局のデータだけを解析に供した。NO₂ および O₃ の各年間統計値は環境省の年間統計値の算出方法に従い、年度ごとに算出した。

3.1.3 使用データ

予測変数のグリッドデータを構築するために使用したデータを Table 3.1 に示す。予測変数は、排出、輸送、変質、沈着という大気汚染物質の濃度を決定する重要な要素を主に考慮して選択した。それと同時に、入手が容易であることと使用しやすさも考慮した。これらのデータは必要に応じて解像度を予測グリッドに合致するように変換し、また月平均値等から年平均値を算出するという処理を行った。

植物は O₃ の前駆体である VOCs の主要な排出源である。正規化植生指数 (NDVI) は植生の量を表す指標であり、NASA Land Processes Distributed Active Archive Center (LP DAAC) and USGA/Earth Resource Observation and Science (EROS) Center から NDVI の年平均値をダウンロードし、VOCs の発生量を表す予測変数として使用した。

また、O₃ の予測変数として、光化学反応において O₃ の生成を促進する紫外線 (UV) 量を用いた。波長が 320 - 400 nm である UV-A の半月平均データを宇宙航空研究開発機構 (JAXA) / 東海大学 (TSIC/TRIC) の提供により使用した。

気象データについては、降雨データ TRMM 3B43 (JAXA/NASA/NICT) を Goddard Earth Science (GES) Data and Information Service Center (DISC) より入手した。月平均の地表面温度と風速の再解析データである GLDAS NOAH025_M (Rodell et al., 2004) データは同じく GES DISC より入手した。

標高は経済産業省および NASA による ASTER 全球デジタル標高モデル (ASTER GDEM) version 2 を用いた。人口データは 2005 年の国勢調査データを総務省統計局よりダウンロードし使用した。標高

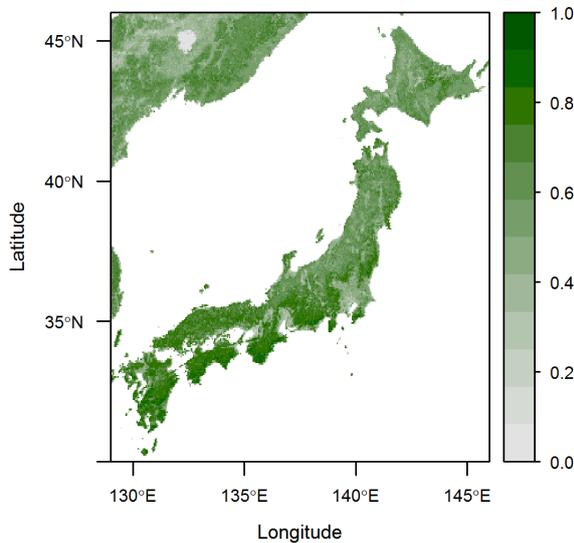


Fig. 3.1 Distribution of the NDVI for the year 2010.

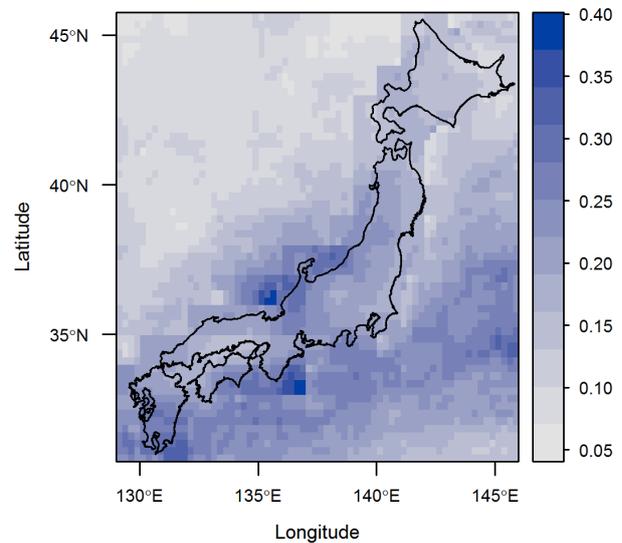


Fig. 3.2 Distribution of the precipitation for the year 2010.

データと人口データは0に偏っているため、自然対数変換を行ってから解析に供した。都市化割合は、国土地理院からダウンロードした地球地図 (Global Map Japan) version 1.2.1 の土地利用データから算出した。

自動車は NO_x ($\text{NO} + \text{NO}_2$) の重要な排出源であり、一般的には NO_2 の濃度は道路から離れるほどに低下し、 O_3 は NO による消失反応により道路に近いほど濃度が低下すると考えられる。従って、道路近接距離を予測変数として用いた。道路データは国土地理院の Global Map Japan version 2 データを使用した。このデータでは道路は、1)primary, 2)secondary, 3)highway という3つのカテゴリーに分類されており、道路近接距離はこれらのカテゴリーごとに予測グリッドの中心までの距離として算出した。同様に、道路延長は国土交通省の国土数値地図から得た。この道路延長データは道路幅員によって10のカテゴリーに分類されているが、解析ではこれらを以下の3つのカテゴリーに再分類した: Road A (幅員 $\geq 19.5\text{m}$, Road B ($13 \leq \text{幅員} < 19.5\text{m}$), Road C ($5.5 \leq \text{幅員} < 13\text{m}$)。)

典型的な海陸風が卓越する気象条件下では、汚染された気塊は沿岸部に位置する工業地帯や都市域から内陸部へ輸送され、 O_3 濃度は輸送中に光化学反応によって増加する (神成, 2006)。そのため、 O_3 の予測変数として海岸線からの距離を使用した。この海岸線近接距離は、Global Map Japan version 2 から得た海岸線データを用いて各予測グリッドの中心点との最短距離として算出した。

これらの予測変数の例として、Fig.3.1にNDVI, Fig.3.2に降雨量, Fig.3.3に海岸線近接距離, Fig.3.4に道路近接距離 (highway) の空間分布を示す。

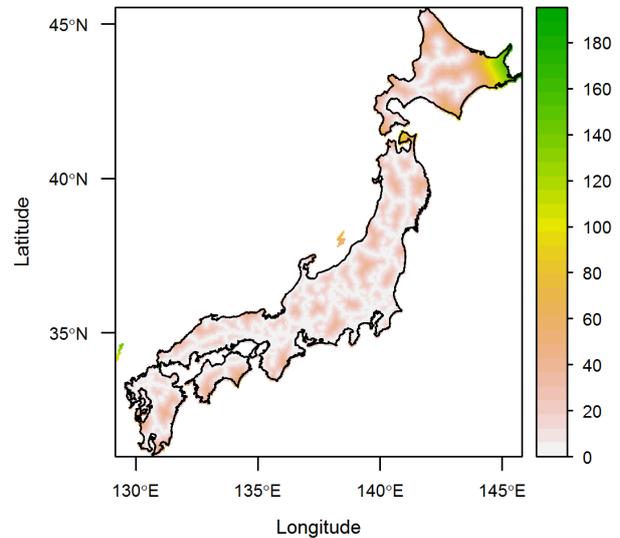
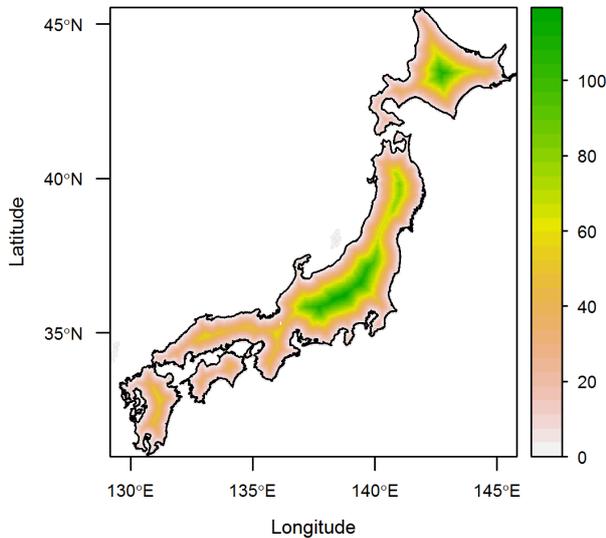


Fig. 3.3 Distribution of the distance to coastline. Fig. 3.4 Distribution of the distance to highway.

3.1.4 Regression Kriging 法

Regression kriging 法には線形回帰モデルが必要であり、まずこのモデルを構築した。線形回帰モデルの予測変数の候補と、これらの予測変数と NO_2 および O_3 との物理的あるいは化学的な関係から予め設定した予測変数の濃度に与える影響の方向 (Beelen et al., 2009) を Table 3.2 に示す。ここに示した予測変数を用いて backward stepwise 法により統計的に有意な変数を選び出した (Hengl, 2007)。さらに、Table 3.2 で設定した影響の方向と変数の係数の正負が一致したものだけを最終的な回帰モデルの変数とし、backward stepwise 法により有意とされた変数であっても、影響の方向と係数の正負が一致しないものは除外した (Beelen et al., 2009)。こうして得られた線形回帰モデルの残差に ordinary kriging 法を適用し、線形回帰モデルによる予測値との和を得た。目的物質の濃度は予め自然対数に変換し、予測値を算出後に定数に再変換した。これは対数変換を行わないと予測値が必ずしも正になるとは限らないためである (Beelen et al., 2009)。

3.1.5 予測値の評価

予測値の評価は多くの研究でモデルの評価に用いられている手法である、交差検証法によって行った (e.g., Pearce et al. (2009); De Smet et al. (2011))。この手法では、観測値の中から1つ観測点を除いて、その他の観測点だけを用いて除いた観測点の値を予測することを、すべての観測値に対して繰り返すを行い、得られた予測値と観測値を比較するものである。交差検証法の結果から予測精度の指標として、予測値と観測値の二乗平均誤差 (RMSE) および R^2 を算出した。

データ解析は統計解析環境 R 2.15.1 (R Core Team, 2014) を用い、予測変数のグリッドデータの構築にはそのパッケージである raster (Hijmans, 2015) を、regression kriging 法の実行には gstat (Pebesma,

Table 3.2 Predictor variables and predefined directions of effect.

Predictor variables	Unit	NO ₂	O ₃
NDVI	None		+
Built-up area ratio ²	None	+	
Population	Person	+	
UV-A	W/m ²		+
Precipitation	mm/hr	-	
Temperature	°C		+
Wind speed	m/sec	-	-
Altitude	m	±	±
Distance to coastline	km		+
Distance to highway	km	-	+
Distance to primary road	km	-	+
Distance to secondary road	km	-	+
Road length A	m/km ²	+	-
Road length B	m/km ²	+	-
Road length C	m/km ²	+	-

¹ +:positive direction, -:negative direction

² ratio of land use type

2004) を用いた。

3.2 結果と考察

3.2.1 NO₂

得られた NO₂ の線形回帰モデルの R² は 2009 年と 2010 年でそれぞれ 0.53 と 0.58 であった。Table 3.3 に得られた線形回帰モデルの説明変数とその係数を示す。予測変数の候補の多くは有意な変数として線形回帰モデルの説明変数となったが、道路近接距離 (distance to primary road) と道路延長 C (road length C) は除外された。いずれの年も同じ説明変数が選択され、それらの係数も変数ごとに概ね同様の値となった。Regression kriging 法の評価結果を Table 3.4 に示す。比較のため、線形回帰モデルの評価結果も併せて示した。Regression kriging 法の R² は 0.79 と 0.78 と十分に高く、線形回帰モデルの R² よりも高かった。Fig 3.5 の (a) と (b) はそれぞれ 2009 年および 2010 年における交差検証法により得られた予測値と観測値の関係を示したものである。これらの散布図から、予測値が観測値と良い相関が得られていることがわかるが、高濃度域でやや過大評価がみられる。この過大評価は主に高速道路への距離が短く、かつ道路延長 A および B が長い地点で起こっていた。これらの変数は回帰モデルに選択された変数であり、基本的に道路交通という同じ発生源を表している。そのため、これらの変数が同時に回帰モデ

Table 3.3 Regression models for NO₂ (ppb).

Predictor variables	2009		2010	
	Parameter estimate	Standard error	Parameter estimate	Standard error
Intercept	3.252	0.098	3.332	0.096
Built-up area ratio	0.213	0.026	0.200	0.024
Population	0.072	0.008	0.080	0.007
Precipitation	-1.438	0.303	-2.761	0.265
Wind speed	-0.068	0.012	-0.047	0.011
Altitude	-0.053	0.009	-0.046	0.009
Distance to highway	-0.023	0.001	-0.022	0.001
Distance to secondary road	-0.016	0.006	-0.020	0.006
Road length A	0.078	0.022	0.075	0.021
Road length B	0.058	0.008	0.060	0.008
R ²	0.53		0.58	

Table 3.4 Validation results for linear regression methods and regression kriging.

Air pollutants	Year	Linear regression methods		Regression kriging	
		RMSE	R ²	RMSE	R ²
NO ₂ (ppb)	2009	7.2	0.53	4.6	0.79
	2010	6.5	0.58	4.6	0.78
O ₃ (ppb)	2009	6.2	0.23	4.9	0.52
	2010	6.2	0.40	4.8	0.66

ルの説明変数となったことによって予測値に正の誤差を生じた可能性がある。

環境基準値である 60 (ppb) と比較すると、2009 年と 2010 年のいずれの年においても予測値が環境基準値を超過することはなかった。Fig. 3.6 および Fig. 3.7 に regression kriging 法による 2009 年および 2010 年における NO₂ 濃度の予測値の空間分布をそれぞれ示す。東京周辺の都市域や高速道路沿いに比較的高濃度の地域がみられるが、これは回帰モデルの説明変数の空間分布を概ね反映したものとなっている。

3.2.2 O₃

線形回帰モデルの O₃ の日最大 8 時間平均値の年間 26 番目に高い値の予測精度は、2009 年では R² は 0.23 と精度は悪かったが、2010 年では R² は 0.40 とある程度の精度であった。回帰モデルの説明変数は年によって異なっており、UV-A と標高は 2009 年のみ、道路近接距離 (primary road) は 2010 年のみとなっていた (Table 3.5)。気温、風速、海岸線距離および道路延長 B はいずれの年でも回帰モデルの説明変数となった。

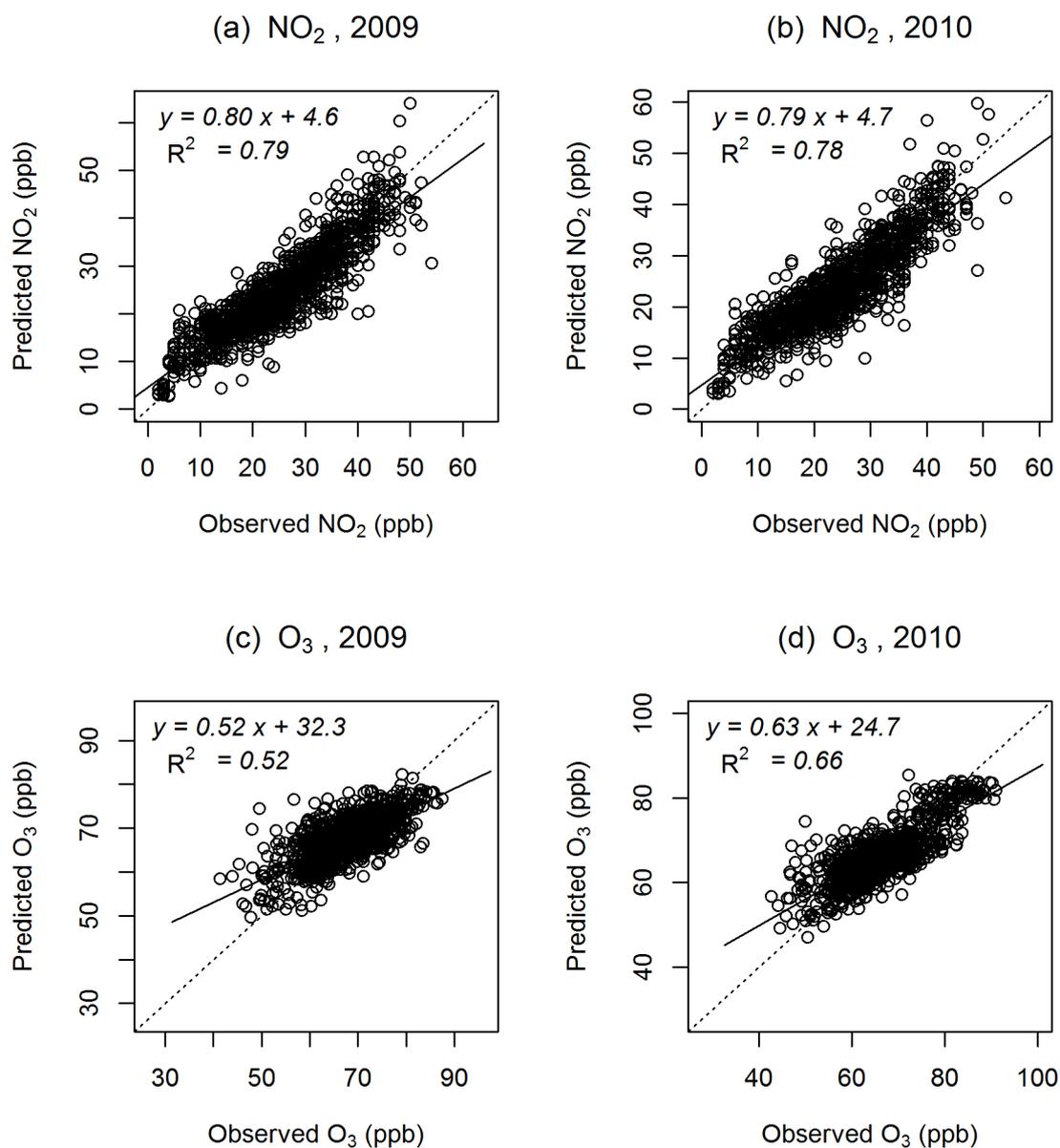


Fig. 3.5 Scatter plot of the predicted and observed concentrations of the annual 98 percentile daily mean NO_2 in the years a) 2009 and b) 2010, and the annual 26th highest daily maximum 8-hour mean O_3 in the years c) 2009 and d) 2010. The solid lines represent regression lines and dotted lines are 1:1 lines.

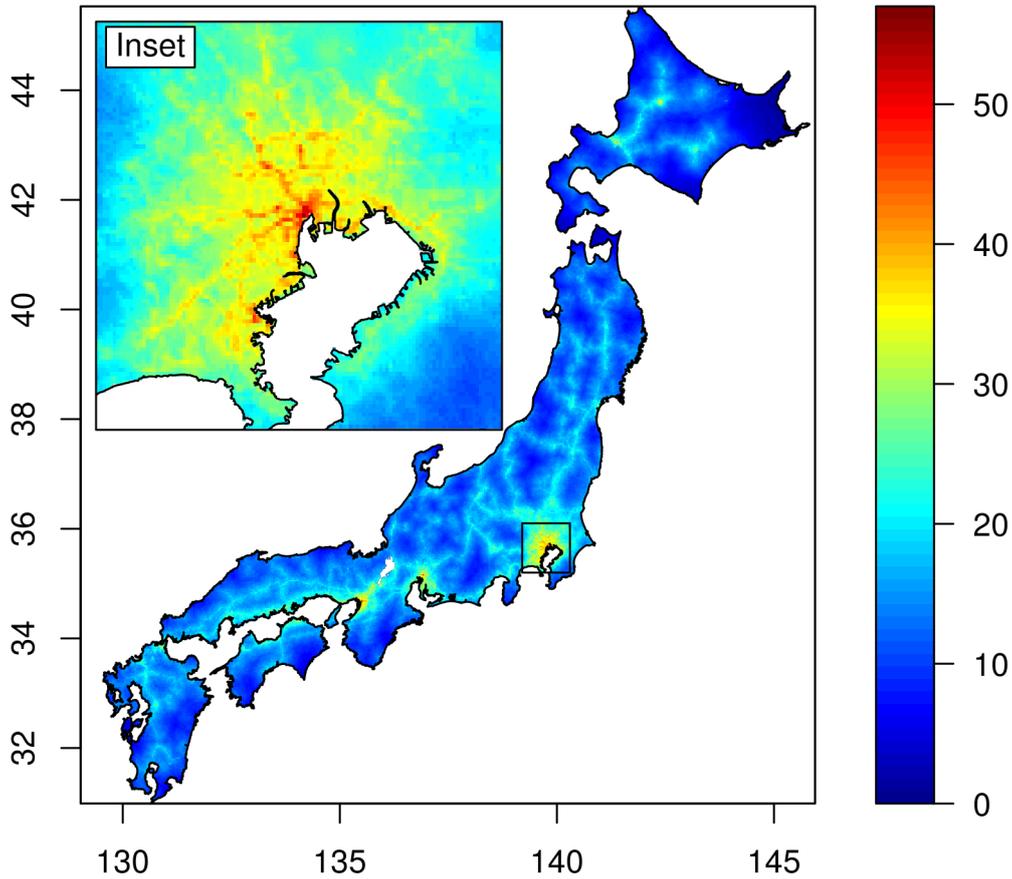


Fig. 3.6 The spatial distribution of the annual 98 percentile daily mean concentrations of NO_2 for the year 2009 predicted using regression kriging at 1×1 km resolution (ppb).

Regression kriging 法の評価結果を Table 3.4 に示す。比較のため、線形回帰モデルの評価結果も併せて示した。Regression kriging の予測値と観測値の R^2 は 2009 年と 2010 年でそれぞれ 0.52 と 0.66 と比較的高く、線形回帰モデルによる結果より予測精度は良好であった。Regression kriging 法による予測値の RMSE は 2009 年と 2010 年においてそれぞれ 4.9 および 4.8 (ppb) であり、線形回帰モデルによる RMSE よりもわずかに小さかった。Fig. 3.5 の (c) と (d) はそれぞれ 2009 年および 2010 年における交差検証法により得られた予測値と観測値の関係を示したものである。ここでは高濃度域での過小評価と、低濃度域での過大評価がみられる。これは、空間内挿法で起こりうる典型的な平滑化の影響と考えられる。回帰モデルの R^2 が高い NO_2 では、過大あるいは過小評価が顕著でない (Fig. 3.5 の (a) と (b)) ことからわかるように、回帰モデルの精度が向上することで改善されるとされている (De Smet et al.,

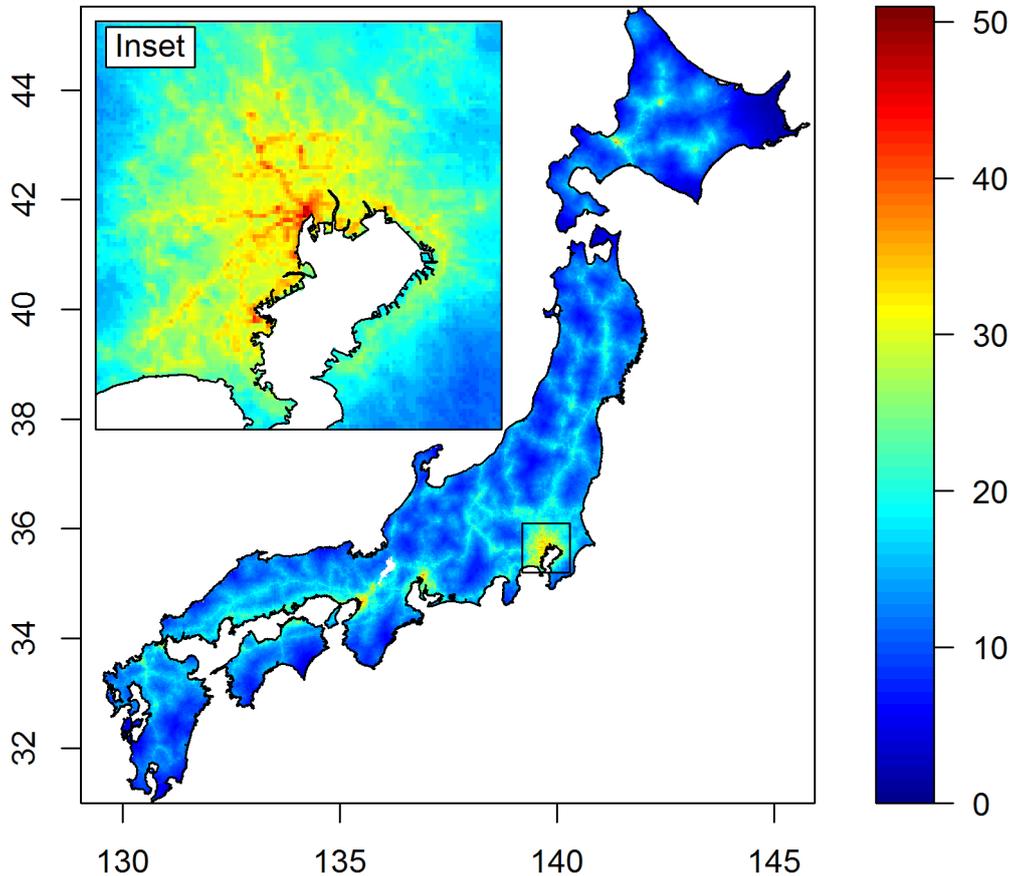


Fig. 3.7 The spatial distribution of the annual 98 percentile daily mean concentrations of NO_2 for the year 2010 predicted using regression kriging at 1×1 km resolution (ppb).

2011). しかしながら、低濃度域で見られる顕著な過大評価については、これだけでは説明できない。その要因は、これらの過大評価がみられる観測点近傍の固定発生源から排出された NO との O_3 の消失反応による可能性が考えられるが、本研究では固定発生源を表す説明変数を導入していないため、こうした挙動を再現することはできない。

予測濃度を EU における基準値である $120 \mu\text{g m}^{-3}$ と比較した。この濃度は、 1 ppb O_3 を $2 \mu\text{g m}^{-3}$ と換算すると 60 ppb となる（以下では、必要な場合にはこの換算を行う）。予測値が 60 ppb 以上となったセルは 2009 年と 2010 年で全体のそれぞれ 74% と 65% であった。予測変数として構築した人口データを用いて、EU 基準値以上の地域に居住する人口割合を計算すると、2009 年と 2010 年でそれぞれ 94% と 91% であった。日本と同緯度付近に位置するギリシャにおける同様の人口割合は 2008 年と 2009 年でそ

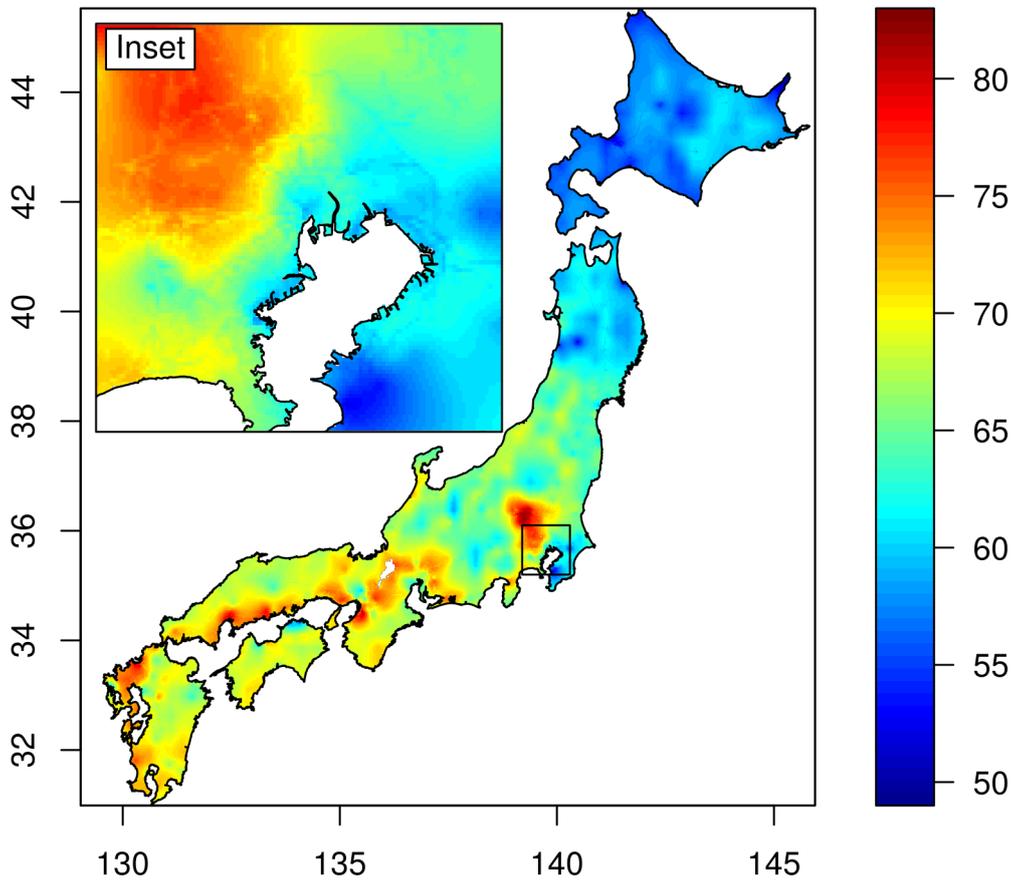


Fig. 3.8 The spatial distribution of the annual 26th highest daily maximum 8-hour mean concentrations of O_3 for the year 2009 predicted using regression kriging at 1×1 km resolution (ppb).

れぞれ 85% と 59% であると報告されている (De Smet et al., 2010, 2011).

Fig. 3.8 および Fig. 3.9 に regression kriging 法による 2009 年および 2010 年における O_3 濃度の予測値の空間分布をそれぞれ示す。高濃度域は回帰モデルの説明変数である海岸線までの距離を反映し、概ね大都市の内陸部にみられている。この空間分布の特徴は東京圏の内陸部でより顕著であり (Fig. 3.8 および 3.9 の拡大図)、典型的な陸海風がこの地域の高濃度に寄与していることを示唆している。

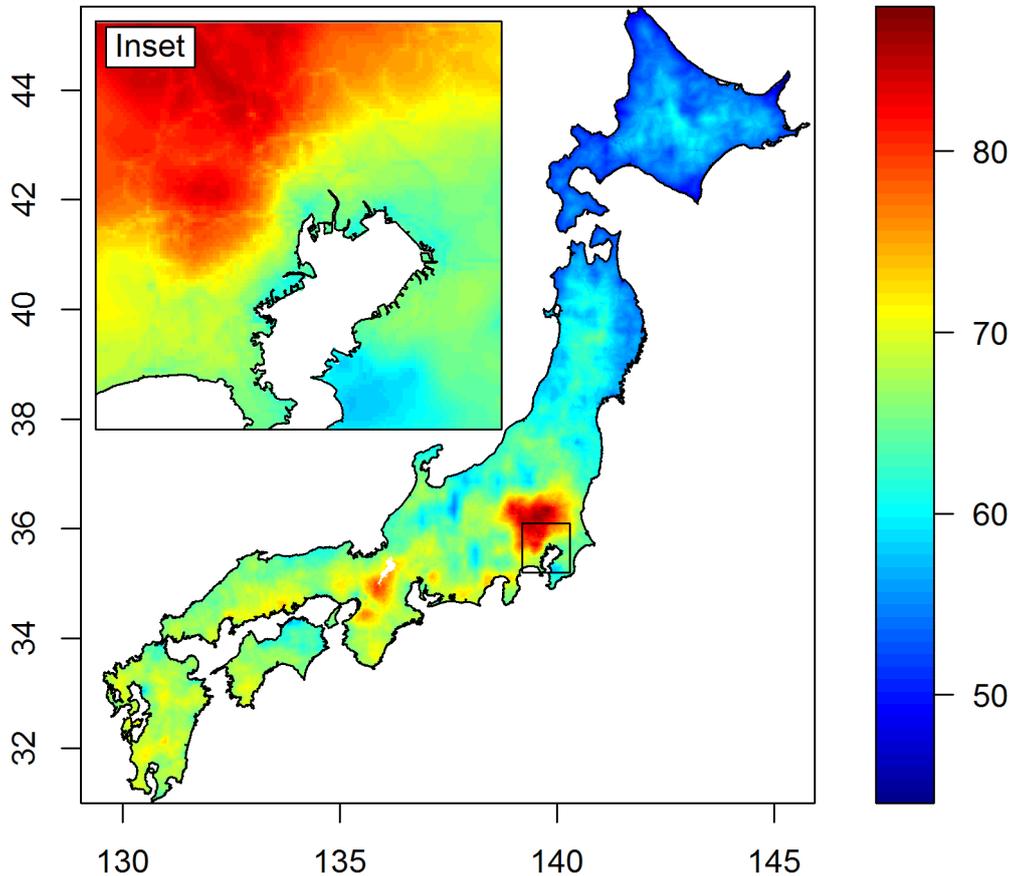


Fig. 3.9 The spatial distribution of the annual 26th highest daily maximum 8-hour mean concentrations of O_3 for the year 2010 predicted using regression kriging at 1×1 km resolution (ppb).

3.2.3 予測精度

NO_2 の回帰モデルで選択された説明変数は 2009 年と 2010 年で同じであり (Table 3.3), それらの係数も概ね同様であった. さらに, R^2 もいずれの年でも比較的高かった (Table 3.3). これらの結果は, 本研究で構築した線形回帰モデルの頑強性を示している. 一方で, O_3 の説明変数は 2009 年と 2010 年で異なっており (Table 3.5), R^2 は NO_2 より低かった. NO_2 と O_3 での差はこれらの汚染物質の特性が原因として考えられる. NO_2 は一次汚染物質であるが, O_3 は NO_2 と VOC が関与する複雑な光化学反応によって生成される二次汚染物質である. 本論文では UV-A および気温を二次粒子生成に関する説明変

Table 3.5 Regression models for O₃ (ppb).

Predictor variables	2009		2010	
	Parameter estimate	Standard error	Parameter estimate	Standard error
Intercept	3.936	0.061	3.845	0.025
UV-A	0.018	0.007		
Temperature	0.016	0.002	0.032	0.002
Wind speed	-0.038	0.004	-0.045	0.004
Altitude	0.002	0.004		
Distance to coastline	0.001	0.000	0.003	0.000
Distance to primary road			0.008	0.002
Road length B	-0.009	0.002	-0.004	0.002
R ²	0.23		0.40	

数として導入したが、回帰モデルの予測精度に対しては十分に寄与せず、NO₂ に比較して O₃ の予測精度が悪くなったと考えられる。

Regression kriging 法と線形回帰モデルを比較すると、前者の RMSE は小さく、R² は顕著に大きかった (Table 3.4)。これより、regression kriging の方が線形回帰モデルよりも予測精度が良いといえる。この結果は、既往の研究 (Beelen et al., 2009; Pearce et al., 2009; Mercer et al., 2011) の結果とも一致する。

次に、本研究で得られた予測精度を regression kriging 法を用いた既往の研究と比較する。Beelen et al. (2009) は O₃ の年平均値を regression kriging 法により EU 全域で予測し、R² として 0.70 を得ている。De Smet et al. (2010, 2011) は O₃ の日最大 8 時間値の年間 26 番目の値を都市域と郊外に分けて予測し、RMSE は 4.1-4.7、R² は 0.56-0.69 との結果を得ている。これらの RMSE および R² は本研究で得られた値と同程度であり、本研究の regression kriging 法の予測精度は既往の研究と同等であるといえる。

3.2.4 今後の課題

本論文では、NO₂ の発生源として道路交通からの排出を表す説明変数を導入したが、発電所等の固定発生源を表す変数は導入していない。日本における道路交通からの NO_x の排出量は全 NO_x 排出量の約 40% と見積もられている (Kannari et al., 2007)。つまり、全排出量の 50% 以上は線形回帰モデルにおいて考慮できていないことになる。また、植物起源の VOCs の発生源として NDVI を予測変数として導入したが、人為起源の VOCs を表す説明変数は導入していない。Kannari et al. (2007) は日本における植物起源および人為起源の VOCs の発生量をそれぞれ 1.5 および 2.1 (Tg year⁻¹) と見積もっている。つまり、50% 以上の VOCs 排出量を本研究では考慮していないことになる。従って、予測精度の向上には排出源を表す変数をさらに導入することを考慮する必要がある。一方で、実用的な観点からは、予測変数が必要以上に多いことは regression kriging 法の効率性を損なうことにもなる。そのため、十分な空間解像度を持ったインベントリを用いることも考慮されるべきである。また、インベントリは排出源のセク

ター間の排出量を定量的に比較することができるという利点がある。本研究では道路交通に関連する説明変数を複数導入しているが、これらは基本的には同じ発生源を表している。そのため、これらのうちの複数の変数が同時に線形回帰モデルの予測変数となった場合に、予測濃度に対する誤差要因となっている可能性がある。この点においてもインベントリの導入による精度向上が期待できる。

気温や風速等の気象に関するパラメータは回帰モデルにおいて有意な説明変数となった (Table 3.3, 3.5)。しかしながら、これらの変数の空間解像度は 0.25° であり、予測グリッドの 1km と比較してかなり粗い。従って、より高解像度の気象パラメータを導入することで予測精度の向上が期待できる。

本論文では、交差検証法により予測精度を評価したが、交差検証法はあくまでも測定地点での検証であり、測定地点以外での精度の検証を行っているのではない。測定地点が空間分布を予測する対象領域全体を十分に代表する地点に配置されていれば、交差検証法の結果は対象領域全体の結果として解釈することができる。しかしながら、日本では測定局が都市部に偏在しているため、本論文での交差検証法による評価は都市部における予測精度の評価に過ぎない可能性がある。すなわち、山間部のように測定局がほとんど設置されていないようなエリアでの予測精度を十分に評価できていない可能性がある。

3.3 まとめ

本章では、日本における $1 \times 1\text{km}$ の空間解像度での大気汚染物質の空間分布推定のために regression kriging 法の適用を検討した。大気汚染物質の空間分布に寄与する重要なファクターである発生源、輸送、変質および沈着を表す予測変数を用いて、 NO_2 および O_3 濃度に regression kriging 法を適用した。交差検証法によって評価した regression kriging 法の予測精度は良好であり、これまで多く用いられてきた線形回帰法よりも良好で、また既往の研究とも同様であった。日本では、都市部以外には測定局がほとんど配置されていないために、都市域以外での精度検証が不十分である可能性があるが、少なくとも都市部においては regression kriging 法は大気汚染物質の空間分布を十分な精度と空間解像度で予測する上で実用的な手法であると結論付けられる。精度の向上の余地は残されているものの、regression kriging 法はリスク評価や政策評価の重要なツールと成り得るであろう。

第 4 章

最適化アルゴリズムの開発

本章では、空間分布推定値に適用可能である最適化手法として遺伝的アルゴリズム (GA) と焼きなまし法 (SA) を組み合わせたハイブリッド・アルゴリズムを開発し、単体の GA および SA と探索能力および汎用性について比較することで、開発したアルゴリズムを評価する。第 2 章および第 3 章で検討した測定値補間による空間分布推定では、測定地点が都市部に偏在しているため、それ以外での精度検証が十分ではないと考えられることから、空間分布推定値には大気質モデルの出力値を用いる。

4.1 最適化アルゴリズム

大気質モデルの出力値として得られた空間分布推定値を各セルの中心点の値として最適化アルゴリズムに入力し、入力値の集合から最適な部分集合をアルゴリズムによって探索する。入力値は 0 と 1 で構成されるバイナリデータで表現した。データ長は設置可能格子数に等しく、0 は設置しない格子 (不設置格子)、1 は設置する格子 (設置格子) を表し、バイナリデータの各要素の位置が設置可能格子の位置に対応する。要素が 1 の格子の集合がモニタリングネットワークとなる。

評価基準は多くの研究で実績のある kriging 分散とした (e.g. Brus and Heuvelink, 2007; Wu et al., 2010; Wu and Bocquet, 2011)。Kriging 分散は測定局における濃度から領域全体の濃度を推定した時の誤差であり、これを最小化することで、地理的な位置と濃度のバランスが取れたネットワークが得られることになる (Brus and Heuvelink, 2007)。すべての設置可能格子における入力値から得た経験バリオグラムに理論バリオグラムをフィッティングした。設置格子の組み合わせにおける kriging 分散を、設置格子の WRF/CMAQ 計算値と理論バリオグラムを用いて算出した。この kriging 分散は各組み合わせの評価値であり、適応度と呼ばれる。この時、対象領域の周辺部でのクリギング分散の過大評価を避けるために、領域の外縁部の格子から等間隔に選んだ 15 地点を含めてクリギング分散を算出した。

4.1.1 遺伝的アルゴリズム

本論文で用いた遺伝的アルゴリズム (GA) は一般的な遺伝的アルゴリズムと同様であり、初期世代の生成、淘汰、交叉、突然変異から構成される。各世代は一定数の個体の集合で、各個体がそれぞれ解の候補、すなわち最適化ネットワークの候補である。初期世代はランダムに生成し、淘汰は線形順位選択を用

いた。交叉では、親となる現世代の2個体において共通の設置格子は次世代の子においても設置格子とし、共通の不設置格子は同様に不設置格子とした。また、一方の個体では設置格子で、もう一方の個体では不設置格子となった格子は、それらの中からランダムに選択された半数の格子について、その設置／不設置を入れ替えた。突然変異では、設置格子数の5%に相当する数の格子を設置格子および不設置格子からそれぞれランダムに選び、設置／不設置を入れ替えた。各世代の個体数は100、交叉の確率は0.9、突然変異の確率は0.2とした。また、各世代の上位5%の適応度をもつ個体は無条件で次世代に残るとした。世代数が400となった時にアルゴリズムを停止し、適応度が100世代に渡って向上しない場合にもアルゴリズムを停止した。

4.1.2 焼きなまし法

焼きなまし法 (SA) は溶融状態にある物質を冷却して安定な構造を得るプロセスに着想を得たアルゴリズムであり (Ruiz-Cárdenas et al., 2010), ランダムに選択された初期集団から探索を繰り返し各集団に対して適応度が計算される。現個体の設置格子から1格子をランダムに選び、その格子を中心とする半径 $r = n \times \Delta d$ 以内に位置する不設置格子からランダムに選んだ1格子と入れ替えて新しい個体が生成される。ここで、 n は格子数、 Δd は格子の解像度である。この探索範囲は、繰り返し回数の増加に合わせて次式のように n を変化させることによって範囲を段階的に狭くした。

$$n = \begin{cases} 7 & (k \leq 500) \\ 5 & (500 < k \leq 1000) \\ 3 & (k > 1000) \end{cases} \quad (4.1)$$

ここで、 k は繰り返し回数である。入れ替え前後の個体の適応度を比較し、適応度が向上すれば新しい個体が受け入れられる。また、適応度が向上しない場合でも、次式で計算される適応度の低下量に反比例した確率で受け入れられる。

$$p = \exp\left(\frac{-\Delta f}{T}\right) \quad (4.2)$$

ここで、 Δf は適応度の変化量 (低下量)、 T は調整パラメータである (Brus and Heuvelink, 2007)。 T は次式のように繰り返し回数によって減少する。

$$T_{k+1} = \alpha T_k \quad (4.3)$$

ここで、 α は0.9である。 T の初期値 (すなわち、 T_1) は式4.2における p の値が0.8となるように設定した (Brus and Heuvelink, 2007)。

繰り返し回数が10000回に到達するとアルゴリズムは停止し、500回繰り返しても適応度が向上しないときにもアルゴリズムは停止するとした。

4.1.3 ハイブリッド・アルゴリズム

ハイブリッド・アルゴリズム (HGS) では、GAで大域的探索を行いSAによって局所的探索を行う。HGSの基本的なスキームと操作は上記のGAと同一であり、初期集団 (初期世代) の生成、適応度の評価、選択、交叉、突然変異で構成される。また、用いたパラメータも同一である。Fig. 4.1はアルゴリズム

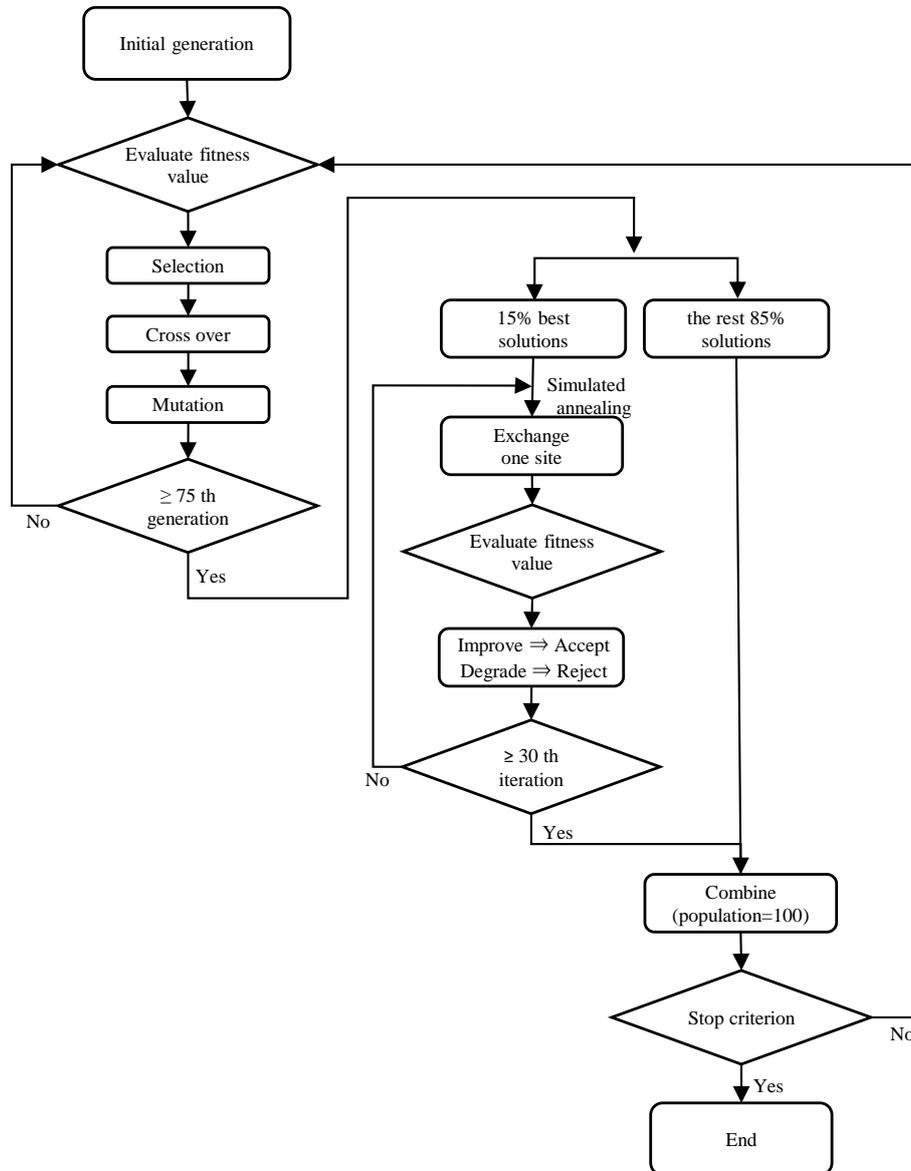


Fig. 4.1 Flowchart of the hybrid algorithm.

ムの概略を示したフローチャートである。各世代は一定数の個体の集合で、各個体がそれぞれ解の候補、すなわち最適化ネットワークの候補である。初期集団の個体はランダムに生成される。SAは解の質がある程度向上してから適用する方が効率は良いと考え、75世代以降に繰り返し回数30回としてSAを適用した。また、アルゴリズムの探索時間を考慮して、適応度が上位15%の個体に対してのみSAを適用した。75世代以降はGAのパラメータのうち交叉確率を0.3、突然変異確率を0とした。SAの基本的なスキームは4.1.2と同様であるが、探索範囲 $r = n \times \Delta d$ は世代数に従って段階的に小さくし、SA適用後の最初の25世代では $n = 7$ 、次の25世代では $n = 5$ 、それ以降は $n = 3$ とした。世代数は300世代としたが、75世代以降のSA適用後において10世代にわたって適応度の向上がない場合にもアルゴリズムは終了するとした。

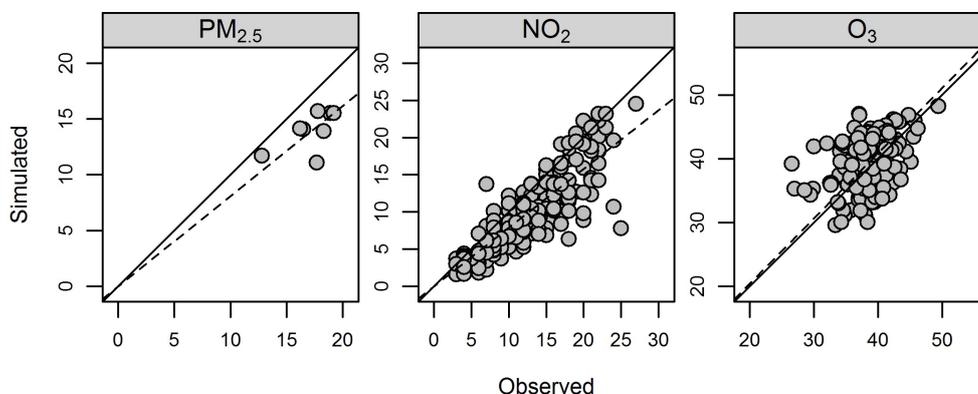


Fig. 4.2 The scatter plots of the simulated and observed values for annual means of $\text{PM}_{2.5}$ and NO_2 , and annual means of daily maximum 8-hr mean concentrations for O_3 . Units are $\mu\text{g m}^{-3}$ for $\text{PM}_{2.5}$ and ppb for NO_2 and O_3 .

4.2 アルゴリズムへの入力値

アルゴリズムへの入力値は大気質モデルの計算値である。大気質モデルは CMAQv5.0.1 (Byun and Ching, 1999) を用いた。大気質モデルへの入力値となる気象モデルは WRFv3.5.1 (Skamarock et al., 2009) を用いた。気象場の計算、大気質モデルへの入力となる発生源データの作成は Shimadera et al. (2014a) と同様である。他の設定の詳細は Shimadera et al. (2014b) と同様である。計算期間は 2010 年 4 月 1 日～2011 年 3 月 31 日 (助走期間 10 日)、計算領域は東アジア域 (水平格子解像度 64km)、日本域 (水平格子解像度 16km)、関西域 (水平格子解像度 4km) であり、関西域の格子数は 68×72 である。

計算値と観測値の比較から得られる統計値によると、モデルは $\text{PM}_{2.5}$ 、 NO_2 および O_3 の時間的、空間的変動を十分に再現していた。モデルの現況再現性については Shimadera et al. (2014b) にその詳細が報告されている。Fig. 4.2 に $\text{PM}_{2.5}$ および NO_2 の年平均値、 O_3 の日最大 8 時間値の年平均値 (以下で O_3 の年平均値と記す場合には、特に断らない限り、日最大 8 時間値の年平均値のことを指す) について、モデル計算値と観測値との比較を示す。いずれの物質でも計算値は観測値と良い相関を示しており、最適化アルゴリズムへの入力値として問題ないことを確認した。Fig. 4.3 に WRF/CMAQ モデルから得られた $\text{PM}_{2.5}$ 、 NO_2 および O_3 の年平均値を示す。物質によって空間分布の特徴は大きく異なっており、 $\text{PM}_{2.5}$ は高濃度域と低濃度域が概して一様に分布している一方で、 NO_2 の高濃度域は大都市である大阪、神戸、京都に限られている。 O_3 は NO_2 とは概ね逆の分布であり、 NO_2 が高濃度である地域では O_3 は低濃度で、 NO_2 が低濃度である地域では O_3 は高濃度である。これは、 O_3 濃度は NO_x によるタイトレーションの影響を受けるために、比較的大きな人為排出源が位置する大都市部では NO_x の濃度が高く、そのために O_3 濃度が低下するためであると考えられる。対象領域内における WRF/CMAQ の計算値の頻度分布を Fig. 4.4 に示す。物質ごとの頻度分布はそれぞれの空間分布の特徴を反映している。すなわち、 $\text{PM}_{2.5}$ は正規分布に近く、 NO_2 は低濃度側に大きく偏り、 O_3 は高濃度側に大きく偏っている。

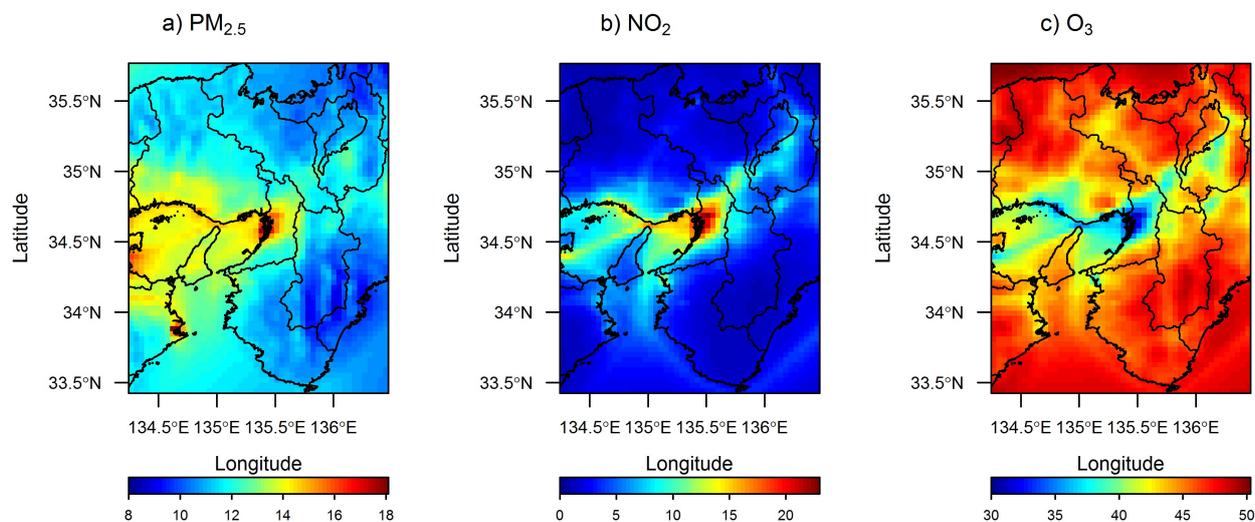


Fig. 4.3 The spatial distribution of $PM_{2.5}$, NO_2 and O_3 concentrations obtained by WRF/CMAQ for the Japanese fiscal year 2010. The values for $PM_{2.5}$ and NO_2 are annual means and that for O_3 is annual mean of daily maximum 8-hr means. The points indicates the observations. Units are $\mu g m^{-3}$ for $PM_{2.5}$ and ppb for NO_2 and O_3 .

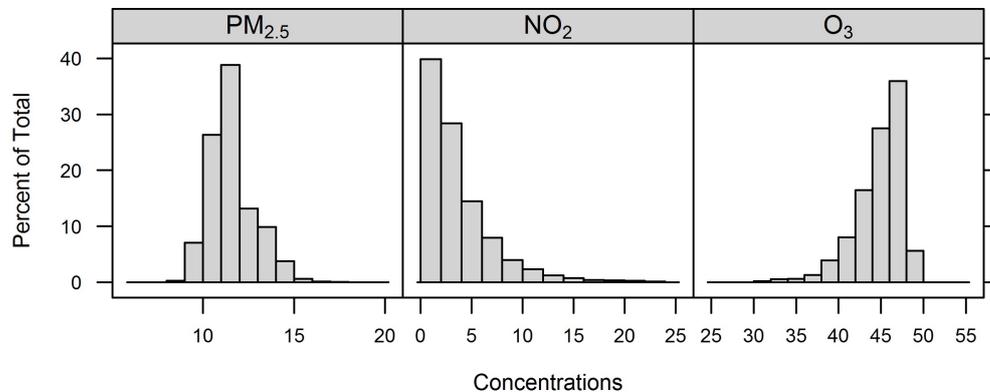


Fig. 4.4 Histograms of the simulated values for $PM_{2.5}$, NO_2 and O_3 . Units are $\mu g m^{-3}$ for $PM_{2.5}$ and ppb for NO_2 and O_3 .

4.3 アルゴリズムの適用

アルゴリズムを適用する領域は近畿 2 府 4 県を含む範囲 ($134.2^{\circ}E - 136.5^{\circ}E$, $33.4^{\circ}N - 35.8^{\circ}N$) とし、隣接する県は含めた。行政界は考慮していない。また、陸域のみを測定局の設置可能域とした。Fig. 4.5 に対象領域を示す。対象領域内の NO_2 と O_3 の一般環境局数は 2011 年ではそれぞれ 221 局と 187 局であり、それほど大きな変動はなかった。一方、 $PM_{2.5}$ の一般環境局は 2011 年では 57 局であったものが、2013 年には 117 局と飛躍的に増加していた。

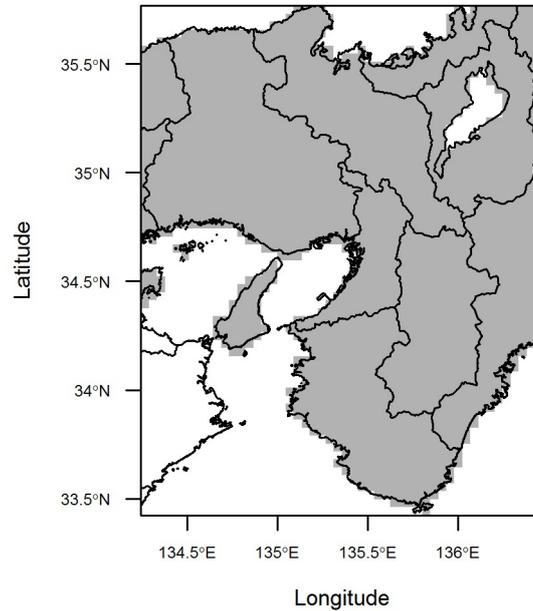


Fig. 4.5 The study domain and the potential locations (shaded area) for monitoring stations in the network optimization.

この対象領域について、GA, SA および HGS を以下に示す 3 つのケース、および 3 物質 (PM_{2.5}, NO₂ および O₃) に対して適用した。それぞれについて、20 回のランダムな試行を行い、その動作を最小値、平均値および標準偏差について比較し評価した。

1. 測定局数 57 局 (2011 年における対象領域内の PM_{2.5} 測定局のうち一般環境局数に等しい)
2. 測定局数 117 局 (同じく 2013 年)
3. 測定局数 150 局 (最初のケースの約 3 倍)

なお、本論文では、測定データに依存しない最適化手法を検討するため、既存の測定局の位置は考慮しない。また、アルゴリズムへの入力値はあらかじめ自然対数変換してから解析を行い、終了後に常数に再変換した。これによって、kriging 法による予測値は必ず正となるが、自然対数変換を行わない場合には、必ずしも正の予測値が得られるとは限らない (Beelen et al., 2009) からである。

データ解析には統計解析環境 R (R Core Team, 2014) を用い、遺伝的アルゴリズムの基本スキームはパッケージ GA (Scrucca, 2013) を、ラスターデータの処理にはパッケージ raster (Hijmans, 2015) を、クリギングにはパッケージ gstat (Pebesma, 2004) を使用した。

Table 4.1 The standard deviations of the fitness values ($\times 10^{-6}$) for a set of 20 trials using GA, SA and HGS for each network size and pollutant. Units are $\mu\text{g m}^{-3}$ for $\text{PM}_{2.5}$ and ppb for NO_2 and O_3 .

N	$\text{PM}_{2.5}$			NO_2			O_3		
	GA	SA	HGS	GA	SA	HGS	GA	SA	HGS
57	6.2	15.6	2.1	20.2	49.0	10.8	4.9	8.0	1.8
117	3.5	15.3	1.6	11.1	55.4	5.3	2.6	5.8	1.3
150	2.8	7.9	1.0	8.6	35.5	5.1	1.8	4.5	1.0

4.4 結果と考察

4.4.1 アルゴリズムの評価

各物質，各測定局数について GA, SA および HGS の各アルゴリズムを適用し，ランダムな 20 回の試行を行って得られた適応度をボックスプロットとして Fig. 4.6 に示す．20 回の試行の平均値と標準偏差は点と矢印でそれぞれ示した．また，標準偏差のみを Table 4.1 に示した．GA と SA を比較すると，すべてのケースにおいて SA の方が最小値および平均値は小さかった．しかし，標準偏差はすべてのケースで GA の方が SA よりもかなり小さかった．例えば，測定局数が 117 局で NO_2 を対象とした場合には，GA の標準偏差は SA の 20% 程度であった．これらの結果は，SA は GA より良い解を発見することができるが解の質にはばらつきが大きく，GA の方が動作が安定していることを示している．

GA と HGS を比較すると，最小値と平均値は常に HGS の方が小さく，HGS の標準偏差は GA の 30 から 60% 程度であった．SA と HGS との比較では，HGS の平均値は SA のそれよりも小さく，最小値は SA のそれよりもわずかに小さかった．標準偏差は SA の 10 - 20% 程度と顕著に小さかった．これらの結果より，HGS は GA や SA に比べて，すべての物質と測定局数のケースで，より高い探索能力と安定性を持っていることを示している．

HGS による各 20 回の試行で最良の適応度が得られた解における測定局の配置を Fig. 4.7 に示す．得られた測定局の配置は概ね均一であった．各物質の WRF/CMAQ モデルの計算値の空間分布の特徴は，互いに大きく異なっている (Fig. 4.3) が，最適化によって得られた測定局配置の違いはあまりなかった．

4.4.2 最適化ネットワークの空間代表性

モニタリングネットワークは大気汚染物質の空間分布をどの程度再現できるか，によって評価できる．すなわち，最適化ネットワークの各設置格子における WRF/CMAQ 計算値を用いて対象領域の陸域の濃度分布を kriging 法により推定し (以下，推定濃度といい，その空間分布を推定濃度分布という)，これを元の WRF/CMAQ モデルの計算値 (以下，モデル計算値といい，その空間分布をモデル濃度分布という) と比較した．経験バリオグラムは最適化ネットワークの測定局位置におけるモデル計算値を用いて得た．このとき，4.1 に示したように，領域の外縁部の格子から等間隔に選んだ 15 地点を含めてクリギング分散を算出した．

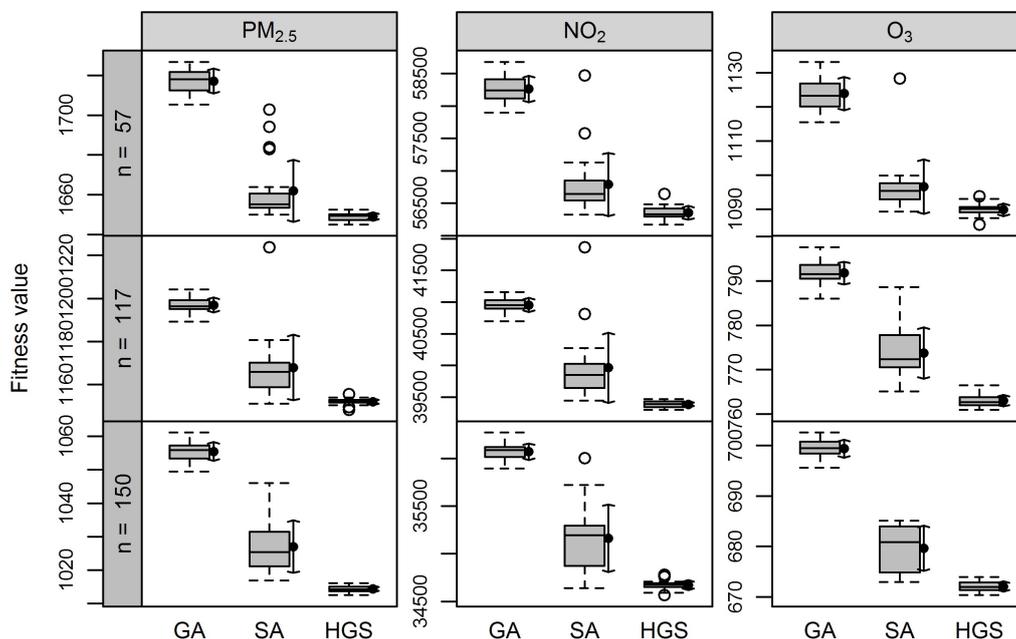


Fig. 4.6 Box plots of fitness values ($\times 10^{-6}$) for a set of 20 trials by GA, SA and HGS for the network size of $n=57$, 117 and 150, and for $PM_{2.5}$, NO_2 and O_3 . The lower, middle and upper horizontal lines in each box represent 25th percentile (Q1), median and 75th percentile (Q3) values respectively. The whiskers below and above each box represent the smallest and largest values in the range between $1.5 \times$ box height ($Q3 - Q1$) below Q1 and above Q3 respectively. Any value out of this range is shown as a point. Mean and standard deviation of each set of trials are shown as dots and arrows respectively.

各 20 回の試行ごとにモデル計算値と推定濃度との二乗平均誤差 (Root mean squared error, 以下 RMSE) と R^2 を計算した。その結果をボックスプロットとして Fig. 4.8 に示す。 $PM_{2.5}$ ではすべてのアルゴリズムで RMSE は $0.6 \mu\text{g m}^{-3}$ 以下であり、 O_3 では 1.8 ppb 以下、 NO_2 では 1.7 ppb であった。モデル計算値の範囲は $PM_{2.5}$ は $8 - 18 \mu\text{g m}^{-3}$ 、 NO_2 は $0 - 23 \text{ ppb}$ 、 O_3 は $30 - 50 \text{ ppb}$ であったことを考慮すると、各物質、各測定局数における RMSE のアルゴリズム間の差は非常に小さかった。また、 R^2 はすべてのケースで概ね 0.7 以上であり、アルゴリズム間の差は RMSE と同様に小さかった。さらに、各物質、各測定局数における推定濃度分布は、いずれのアルゴリズムでも差は小さく、対応するモデル濃度分布を概ね再現出来た。その例として、測定局数が 57 局で HGS の場合について、推定濃度分布を Fig. 4.9 に示す。これらの結果から、GA, SA および HGS で得られた最適化ネットワークは、定量的および定性的に概ね同等であることが示された。

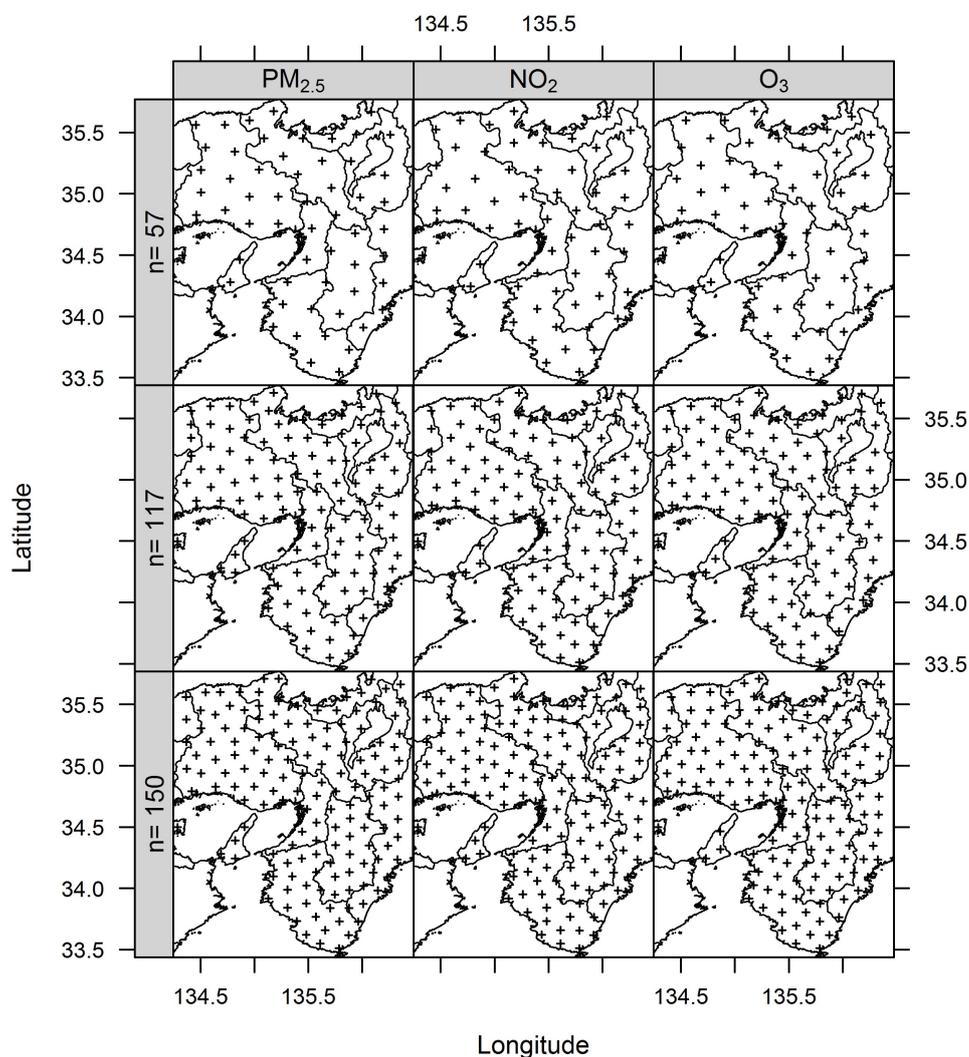


Fig. 4.7 The optimized network by HGS for $\text{PM}_{2.5}$ (in the left row panels), NO_2 (in the middle row panels) and O_3 (in the right row panels) for the network size of $n=57$ (in the upper column panels), $n=117$ (in the middle column panels) and $n=150$ (in the lower column panel). The crosses represent the selected sites.

4.4.3 アルゴリズムの汎用性

Fig. 4.7 に示したように、GA、SA および HGS によって最適化されたネットワークは、いずれも概ね均一に配置されており、相互に類似したものであった。この結果から、「ある物質について最適化して得られたネットワークは、他の物質においても最適か？」という興味深い疑問が生じる。そこで、ある物質の適応度について、他の物質について最適化されたネットワークを用いて、その適応度を計算し比較した。例えば、 NO_2 に対して最適化したネットワークの配置のもとで $\text{PM}_{2.5}$ の適応度を計算し、それを

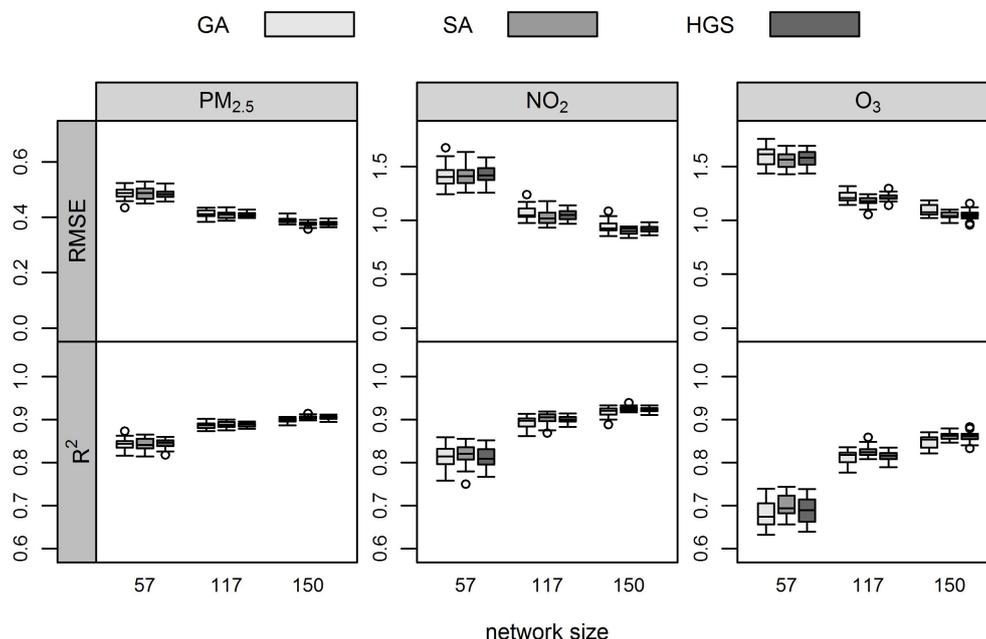


Fig. 4.8 Box plots of RMSE and R^2 between CTM simulated field and kriged field with the simulated values at the selected sites of the optimized network of each set of trials by GA, SA and HGS for the network size of $n=57$, 117 and 150, and for PM_{2.5}, NO₂ and O₃. The lower, middle and upper horizontal lines in each box represent 25th percentile (Q1), median and 75th percentile (Q3) values respectively. The whiskers below and above each box represent the smallest and largest values in the range between $1.5 \times$ box height ($Q3 - Q1$) below Q1 and above Q3 respectively. Any value out of this range is shown as a point. Mean and standard deviation of each set of trials are shown as dots and arrows respectively. Units of RMSE for PM_{2.5} are $\mu\text{g m}^{-3}$ and ppb for NO₂ and O₃.

PM_{2.5} に対して最適化したネットワークの適応度と比較する。適応度はそれぞれのケースについて行った 20 回の試行の結果に対して計算した。Fig. 4.10 に、各物質について、他の物質の最適化配置を用いて算出した適応度を示す。また、各物質の配置の適応度も合わせて示し、その背景を網掛けにした。

各物質の適応度は測定局数ごとに同様の範囲にあり、測定局数が 57 局の時は適応度の平均値は同程度の値であり、117 局および 150 局の時は物質にかかわらず PM_{2.5} の測定ネットワークの配置がいずれの物質に対しても最良（最小）であった。また、標準偏差は PM_{2.5} の配置を用いて適応度を算出した時に概ね最小であった。各物質の適応度よりも、他の物質の配置から算出した当該物質の適応度の方が優れている（小さい）こともあった。例えば、測定局数が 57 局のときの PM_{2.5} の最小（最良）の適応度と、57 局のときの O₃ の配置から計算した PM_{2.5} の最小の適応度を比べると、後者の方が小さかった。これは、ある物質に対する最適なネットワークの配置は、他の物質に対しても同じ測定局数では最小の適応度を与える、ということである。測定局数が 57 局のときは O₃ の最適な配置が PM_{2.5} と NO₂ に対しても最小の適応度を与えていた。117 局のときは PM_{2.5} の最適な配置が、150 局の時は NO₂ の最適な配置が、それぞれ他の物質に対しても最適な配置となっていた。これらの結果から、ある物質についての最適な配置

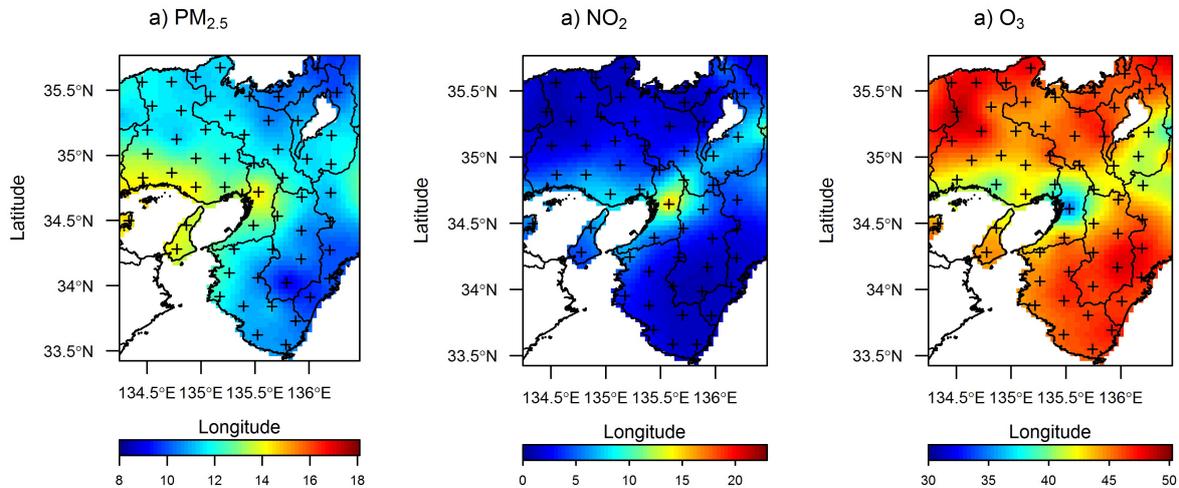


Fig. 4.9 The concentration fields generated by ordinary kriging with the simulated values at the selected sites of the optimized network of a)PM_{2.5}, b)NO₂ and c)O₃ by the HGS for the network size of n=57. The crosses represent the selected sites. Units of concentrations are $\mu\text{g m}^{-3}$ for PM_{2.5} and ppb for NO₂ and O₃.

は、他の物質に対して少なくともある程度は適正であること、および最適な配置は今回検討した3物質について共通であることを示している。

4.5 まとめ

本章では、空間分布推定値に適用できるアルゴリズムとして、GAとSAを組み合わせた最適化アルゴリズムを開発し、近畿地方のモデル計算の出力値（PM_{2.5}、NO₂およびO₃）に適用し、GAおよびSAと比較することで、その探索能力と汎用性を評価した。HGSは、検討した様々なケースにおいて常に最良の解を発見することができた。このことから、本研究で開発したHGSはGAおよびSAの特長を融合することに成功し、大気質モデルの出力値に適用することに適していることが明らかになった。また、空間分布の特徴が大きく異なるPM_{2.5}、NO₂およびO₃に対して、いずれもGAおよびSAよりHGSの方がより良い解を発見できたことから、HGSの汎用性が確認された。

GA,SAおよびHGSで得られた最適配置での測定局位置におけるモデル計算値を用いて全体の濃度分布をkriging法で推定し、もとのモデル計算値と比較すると、アルゴリズム間の違いはほとんどなく、空間代表性の点では概ね同等であることがわかった。また、ある物質に対して最適である配置は、他の物質でも最適であった。これより、複数の物質について同時最適化を行う場合でも、1物質のみ検討すれば十分である可能性が示唆された。

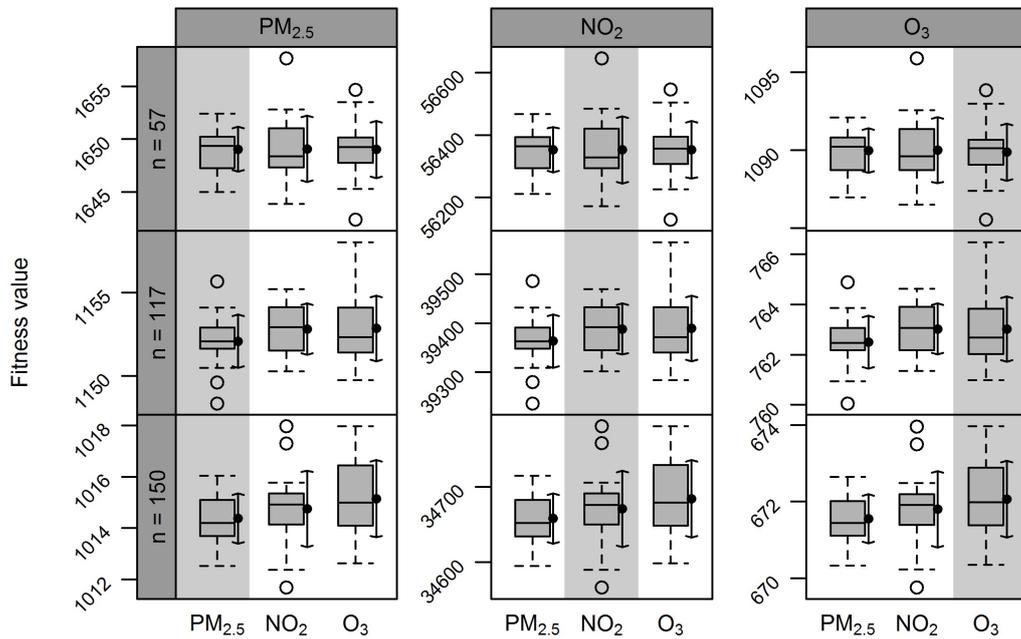


Fig. 4.10 Box plots of fitness values ($\times 10^{-6}$) for a set of 20 trials for $\text{PM}_{2.5}$, NO_2 and O_3 obtained using the optimized network placement for the pollutants other than the specific pollutant itself, and those obtained using the optimized placement of the pollutant itself (indicated by shaded area). The lower, middle and upper horizontal lines in each box represent 25th percentile (Q1), median and 75th percentile (Q3) values respectively. The whiskers below and above each box represent the smallest and largest values in the range between $1.5 \times$ box height ($Q3 - Q1$) below Q1 and above Q3 respectively. Any value out of this range is shown as a point. Mean and standard deviation of each set of trials are shown as dots and arrows respectively.

第5章

最適化アルゴリズムの適用

本章では、第4章で開発した最適化アルゴリズムを、実用問題として近畿地方のPM_{2.5}モニタリングネットワークに適用する。設置可能地点を土地利用を考慮して詳細に設定し、その上で現行ネットワークの評価を試みる。

5.1 対象と設定

最適化の対象領域は、第4章と同様で、近畿2府4県を含む範囲(134.2°E -136.5°E, 33.4°N 35.8°N)とし、隣接する県は含めた。行政区は考慮していない。四国は海域を挟み近畿2府4県との距離が大きく空間的に不連続であるために除外し、対象領域内の格子のうち陸上に位置するものを測定局の設置可能格子の候補とした。

さらに、第4章とは異なり、測定局を設置可能な地理的特性を考慮した。まず、国土数値情報土地利用3次メッシュデータ(国土交通省)を用い、各格子において土地利用種別が田、その他農用地、建物用地およびその他用地である種別について、それらの面積を合計した。測定局の設置は、これらの利用種別の土地のすべて可能ではなく、公有地等がかつ設置可能なスペースを確保できる場合に限られる。しかし、個別の格子について設置の可否を具体的に検討することは困難であるため、合計面積が一定以上の場合に格子内に測定局の設置が可能であるとして一律に扱い、面積の閾値は1.6 km²と設定した。こうして得られた設置可能格子数は1000であった。Fig. 5.1に設置可能格子を示す。

PM_{2.5}の環境基準が2009年に設定されて以降にモニタリングネットワークの整備が始まり、急速に測定数が増加している。そのため、他の物質よりも最適配置のニーズが高いと考えられるため、最適化の対象物質としてPM_{2.5}を選定した。また、PM_{2.5}の環境基準は年平均値と日平均値の年間98%値(以下、98%値という)のそれぞれに設定されているが、経年的な変動がより小さいと考えられる年平均値を対象として最適化を行い、98%値はその評価に用いた。モニタリングネットワークの最適化は、1) 測定局数57局(2011年における対象領域内のPM_{2.5}測定局のうち一般環境局数に等しい)、2) 測定局数117局(同じく2013年)の2つのケースについて実施した。測定局の位置(緯度・経度)データは国立環境研究所「環境数値データベース」大気環境データファイルを利用した。また、2013年におけるPM_{2.5}測定局の位置は環境省大気汚染物質広域監視システム(そらまめ君)から局コードを取得し、測定局の位置データと照合することで緯度・経度を得た。

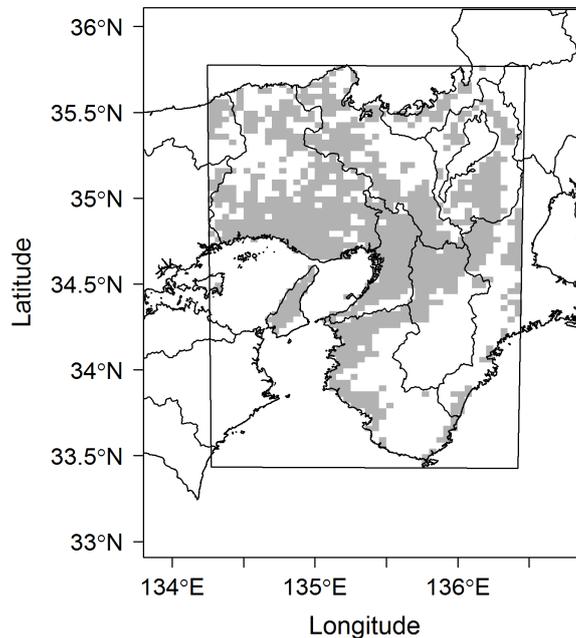


Fig. 5.1 The potential locations (shaded area) for monitoring stations determined by the categories of land use.

5.2 モデルによる計算値

数値モデルによる計算値は第4章で用いたものと同じのものを用いた。すなわち、気象モデル WRFv3.5.1 (Skamarock et al., 2009) および大気質モデル CMAQv5.0.1 (Byun and Ching, 1999) を用い、計算期間は 2010 年 4 月 1 日～2011 年 3 月 31 日 (助走期間 10 日)、計算領域は東アジア域 (水平格子解像度 64 km)、日本域 (水平格子解像度 16 km)、関西域 (水平格子解像度 4 km) であり、関西域の格子数は 68×72 である。

4.2 に示したとおり、WRF/CMAQ モデルは十分に時間的・空間的濃度変動を再現しており、ネットワーク最適化への入力値として問題ないと判断した。WRF/CMAQ モデルによる $PM_{2.5}$ の年平均値は大都市部で高い傾向があり、大阪の港湾部のごく限られた地域には特に高い濃度がみられる (Fig. 4.3 a)。

5.3 ネットワークの評価法

ネットワークの評価は、第4章と同様に、ネットワークの空間代表性によって評価した。すなわち、最適化ネットワークの各設置格子における WRF/CMAQ 計算値を用いて対象領域の陸域の濃度分布を kriging 法により推定し (以下、推定濃度といい、その空間分布を推定濃度分布という)、これを元の WRF/CMAQ モデルの計算値 (以下、モデル計算値といい、その空間分布をモデル濃度分布という) と比較した。定性的な評価として、推定濃度分布とモデル濃度分布の特徴を比較した。また、定量的な評価として、推定濃度とモデル計算値との誤差を二乗平均誤差 (RMSE) で、モデル計算値に対する相対的な

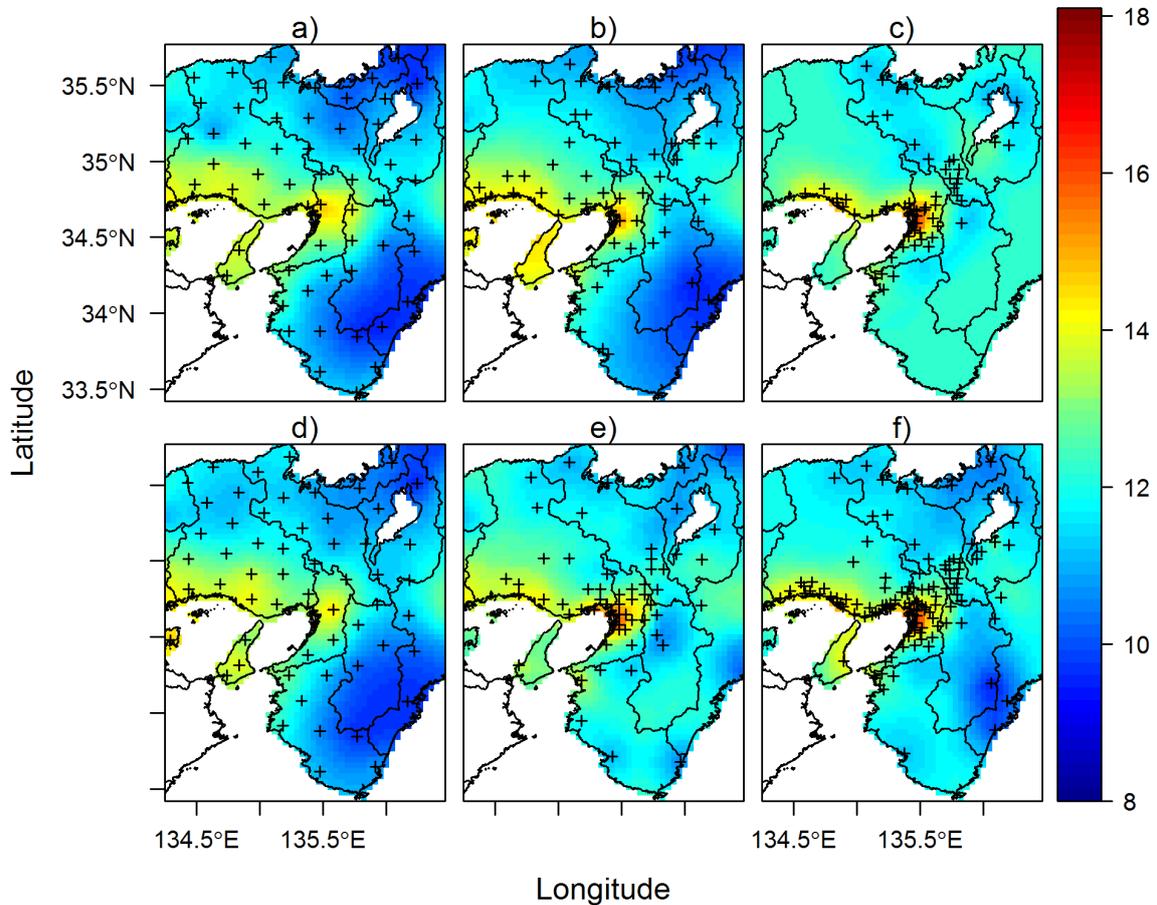


Fig. 5.2 The optimized network for the size of a) $n=57$ and d) $n=117$, the optimized network that are selected among the existing stations for the size of b) $n=57$ and e) $n=117$, and the actual network in operation in the year c) 2011 ($n=57$) and f) 2013 ($n=117$). The crosses represent the places of the selected sites. The concentration fields are generated by ordinary kriging with the simulated values at the sites. Unit is $\mu\text{g m}^{-3}$.

誤差として相対二乗平均誤差 (RE) で、また推定濃度とモデル計算値との一致を R^2 でそれぞれ表し、これらを評価指標とした。

5.4 結果と考察

5.4.1 最適化結果

測定局数を 57 局および 117 局としてモニタリングネットワークの最適化を行い、得られた測定局の配置と推定濃度分布をそれぞれ Fig. 5.2 a) および d) に示す。また、モデル計算値と推定濃度の比較を散布図として Fig. 5.3 a) および d) に示す。精度の指標値としてモデル計算値と推定濃度との RMSE, RE および R^2 を Table 5.1 に示す。

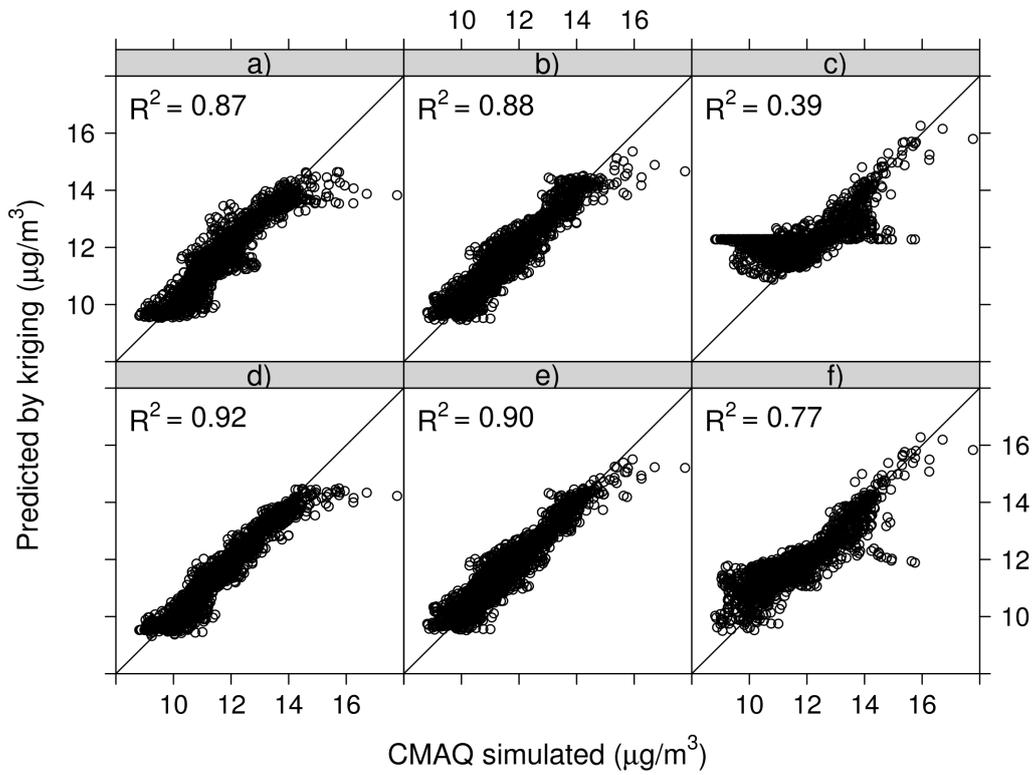


Fig. 5.3 The scatter plots of the WRF/CMAQ simulated values and the predictions by kriging with the simulated values at the gauged sites in the optimized network for the size of a) $n=57$ and d) $n=117$ stations, in the optimized network that are selected among the existing stations for the size of b) $n=57$ and e) $n=117$, and the actual network in operation in the year c) 2011 ($n=57$) and f) 2013 ($n=117$).

Table 5.1 The standard deviations of the fitness values ($\times 10^{-6}$) for a set of 20 trials using GA, SA and HGS for each network size and pollutant. Units are $\mu\text{g m}^{-3}$ for $\text{PM}_{2.5}$ and ppb for NO_2 and O_3 .

N	Optimized network		Best combination of the existing network		Current network	
	RMSE	R^2	RMSE	R^2	RMSE	R^2
57	0.44	0.87	0.44	0.88	1.19	0.39
	(3.8%)		(3.8%)		(10.3%)	
117	0.36	0.92	0.41	0.90	0.66	0.77
	(3.1%)		(3.5%)		(5.7%)	

最適化によって得られたネットワーク（以下、最適化ネットワークという）は、いずれの局数でも比較的一様に測定局が配置された。推定濃度分布は、モデル濃度分布 (Fig. 4.3 a) の特徴をよく捉えていた。推定濃度分布は 57 局と 117 局の場合であり違いはなかった。モデル計算値と推定濃度の比較では、いずれの局数でも良い一致を示しており、これは得られた RMSE, RE および R^2 から確認できる (Table 5.1)。局数による差は小さかったが、117 局の方がやや良い結果であった。また、いずれの局数でも大阪の港湾部の限られた範囲にみられる高濃度域をやや過小評価しており、これは Fig. 5.3 a) および d) から確認される。この要因は、kriging 分散を適応度として最適化を行うことにより領域全体での推定誤差が最少となる配置が得られる、すなわち低濃度域も含めた領域全体について濃度分布の再現性が高い測定局配置が得られるためである、と考えられる。

5.4.2 ネットワークの評価

現行ネットワークの評価を 2011 年 ($n=57$ 局) と 2013 年 ($n=117$ 局) のネットワークについて行った。対象は一般環境局のみとした。2011 年および 2013 年の測定局の配置と推定濃度分布を Fig. 5.2 c) および f) にそれぞれ示す。また、モデル計算値と推定濃度の比較を散布図として Fig. 5.3 c) および f) にそれぞれ示し、RMSE, RE および R^2 を Table 5.1 に示す。

現行ネットワークはいずれの年でも測定局が大都市部に偏っており、推定濃度分布はモデル濃度分布を十分には再現できず、測定局が少ない地域の濃度を過大評価する結果となった。この傾向は、測定局数が少ない 2011 年で顕著であり、測定局数が約 2 倍に増加した 2013 年では改善が見られた。これは RMSE, RE および R^2 が 2013 年に向上していることにも表れている (Table 5.1)。最適化ネットワークと比較すると、より再現性の良かった 2013 年の配置でも RMSE は 1.5 倍程度大きく R^2 はやや小さい。一方で、特に大阪の港湾部の限られた地域で見られる高濃度域については、2011 年の配置でもある程度再現できていた。

PM_{2.5} 測定機は既存測定局に追加で設置することが原則とされている (環境省, 2013b)。そこで、2011 年に稼働中であった全ての一般環境局が位置する格子を PM_{2.5} 測定機の設置可能格子としてモニタリングネットワークの最適化を行った (以下、これにより得られたネットワークを既存選択ネットワークという)。対象領域内の稼働中の既存一般環境局は 235 局であったが、同一格子内に複数の測定局が設置されている場合があるため、設置可能格子数は 175 格子であった。測定局数は比較のため、 $n=57$ 局および $n=117$ 局とした。得られたネットワークと推定濃度分布について、 $n=57$ 局の結果を Fig. 4.3 b) に、 $n=117$ 局の結果を Fig. 4.3 e) にそれぞれ示す。また、モデル計算値と推定濃度の比較を散布図として Fig. 5.3 b) および e) にそれぞれ示し、RMSE, RE および R^2 を Table 5.1 に示す。 $n=57$ および $n=117$ のいずれの場合も推定濃度分布はモデル濃度分布を概ね再現しているが、既存測定局が都市部に偏っているために測定局がない地域において濃度をやや過大評価する傾向が認められる。一方で、高濃度域の再現性は比較的良好である。これは、大阪の港湾部の高濃度域に位置する既存測定局の数が全体に占める割合が高いことで、この地域から多くの測定局が選択された結果と考えられる。推定濃度とモデル計算値の R^2 は高く RMSE は $1 \mu\text{g m}^{-3}$ 以下であり、最適化ネットワークの R^2 と RMSE および RE との差はほとんどない。推定濃度分布も概ね同様の分布である。

現行ネットワークを既存選択ネットワークと比較すると、より再現性の良かった 2013 年の配置で

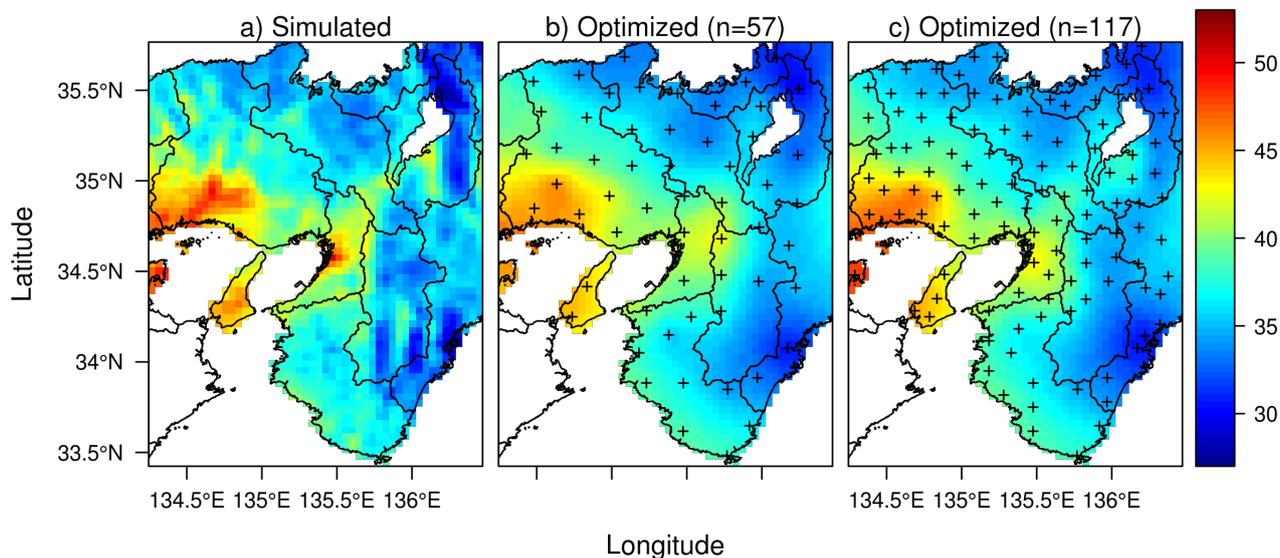


Fig. 5.4 The spatial distribution of the annual 98 percentile daily mean of a)WRF/CMAQ simulated concentrations, kriging predicted concentrations with simulated values at the optimized network using annual mean values for the size of b)n=57 and c)n=117. The crosses in b)and c)represent the places of the stations in the optimized network. Unit is $\mu\text{g m}^{-3}$.

も RMSE は 1.5 倍程度大きく R^2 もやや小さい。推定濃度分布は、2013 年では既存選択ネットワーク (n=117 局) の推定濃度分布に比較的近い分布であるが、より都市部に測定局が集中しているために、測定局がない地域ではより過小評価となっている。これは、Fig. 5.2 e) および f) にも表れている。

5.4.3 98% 値の再現性

モニタリングネットワークの最適化は年平均値を用いて行ったが、環境基準は 98% 値にも設定されている。そのため、最適化ネットワークは 98% 値の空間分布についても十分に把握できる必要がある。そこで、最適化ネットワークの測定局設置格子における WRF/CMAQ モデルによる 98% 値から推定濃度分布を得て、98% 値のモデル濃度分布と比較した。Fig. 5.4 a) にモデル濃度分布、Fig. 5.4 b) および c) にそれぞれ n=57 および n=117 の場合の推定濃度分布を示す。また、Fig. 5.4 b) および c) にはそれぞれの場合の最適化ネットワークの配置を示す。いずれの場合も、モデル濃度分布の特徴をよく捉えていた。また、モデル計算値と推定濃度の RMSE, RE および R^2 は、57 局ではそれぞれ $1.8 \mu\text{g m}^{-3}$, 5.3% および 0.78, 117 局ではそれぞれ $1.5 \mu\text{g m}^{-3}$, 4.7% および 0.84 であった。年平均値による最適化結果 (Table 5.1) と比較すると R^2 はやや低いものの同程度であり、相関は十分に高いといえる。RMSE は年平均値の場合より 4 倍程度大きいですが、RE では大きな差はなかった。これらの結果から、年平均値をもとに最適化を行ったネットワークでも、98% 値の空間変動を十分に捉えられることが示された。

5.4.4 濃度および人口による重み付け

本研究では、対象領域全体の濃度分布を代表するように kriging 分散を適応度として用いてモニタリングネットワークの最適化を行った。対象領域全体の代表性よりも高濃度域の把握を優先する場合には、濃度による重み付け係数を導入することで対応が可能である。同様に、人口の多い地域に優先して測定局を設置する場合には、人口で重み付けすることで対応が可能である。

そこで、測定局数 $n=57$ の場合について濃度および人口による重み係数を導入し、重み係数の動作について検証した。この時、重み付き適応度 MKV_w は kriging 分散に重み係数を乗じて得られ、

$$MKV_w = \frac{\sum_{i=1}^n w(s_i) \times KV(s_i)}{n} \quad (5.1)$$

として計算される。ここで、 $KV(s_i)$ は格子 s_i における kriging 分散、 n は対象領域の陸域の総格子数である。 $w(s_i)$ は重み係数で、濃度による重み付けの場合は、

$$W(s_i) = \frac{C(s_i) - C_{min}}{C_{sd}} \quad (5.2)$$

として得られる。ここで、 $C(s_i)$ は格子 s_i における WRF/CMAQ 計算濃度、 C_{min} は対象領域内での WRF/CMAQ 計算値の最小値、 C_{sd} は同じく標準偏差である。また、人口による重み付けの場合は、

$$w(s_i) = \frac{P(s_i)}{\sum_{i=1}^n P(s_i)} \quad (5.3)$$

として得られる。ここで、 $P(s_i)$ は格子 s_i における人口である。

濃度による重み係数を用いた時の結果を Fig. 5.5 a) に、人口による重み係数を用いた時の結果を Fig. 5.5 b) に示す。また、推定濃度分布も併せて示す。濃度による重み係数を用いた場合は、Fig. 5.2 a) に示した重み付けがない場合と比べると、高濃度域に多くの測定局が配置されることはなく、あまり違いはない結果となった。人口による重み係数の場合は、人口集中域である大阪中心部等に測定局が多く配置される結果となった。この配置は、Fig. 5.2 c) に示した 2011 年の現行ネットワーク ($n=57$) に比べると広がりのある配置ではあるものの、全体的には類似した配置となっている。

Fig. 5.6 に濃度による重み係数と人口による重み係数の分布を示す。濃度による重み係数は正規分布に近い分布であるが、人口による重み係数は偏りが極端に大きい。重み係数の動作の違いは、この分布の違いによると考えられる。

5.5 まとめ

本章では、第 4 章で開発したハイブリッド・アルゴリズムを、WRF/CMAQ シミュレーションにより得られた $PM_{2.5}$ の年平均値に適用し、近畿地方における $PM_{2.5}$ モニタリングネットワークの最適化を行った。また、最適化されたネットワークを用いて現行ネットワークの評価を試みた。

最適化ネットワークは比較的均一な配置となった。これは、kriging 分散を評価基準としたことにより対象領域全体の濃度の再現性が高いネットワークが得られたためである。また、98% 値の濃度分布につ

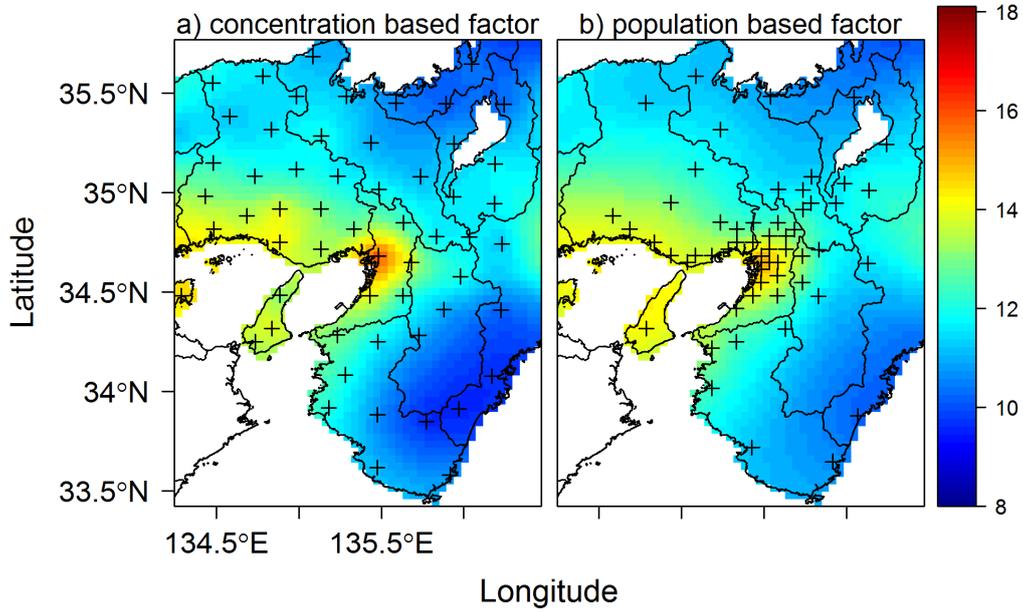


Fig. 5.5 The optimized network for the size of $n=57$ using the weighing factor based on a) concentrations and b) population. The crosses represent the places of the selected sites. The concentration fields are generated by ordinary kriging with the simulated values at the sites. Unit is $\mu\text{g m}^{-3}$.

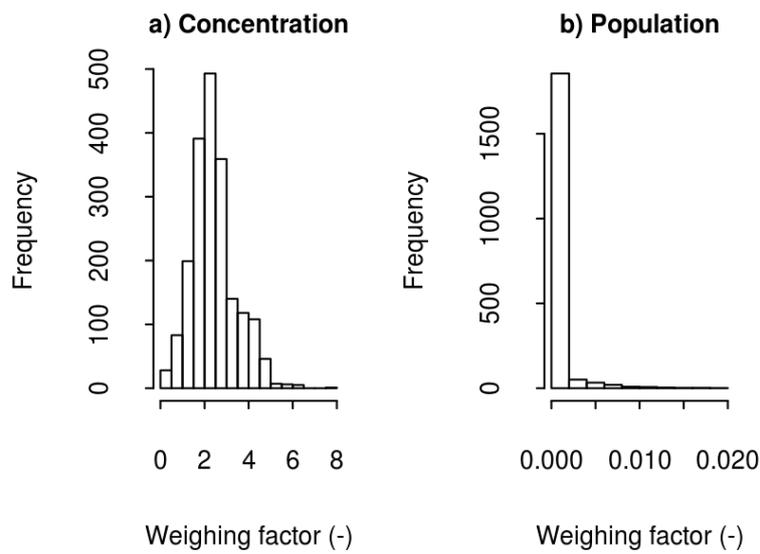


Fig. 5.6 The histograms of the weighing factor based on a) concentration and b) population. The weighing factors are unit less.

いても十分に把握できる配置が得られることが確認された。現行のネットワークは、2011年では低濃度域を十分に把握できなかったが、2013年には大幅に改善された一方で、高濃度域は2011年においても一定程度把握できる配置となっていた。さらに、2013年のネットワークは、既存選択ネットワークに比較的類似していたが、都市部への偏りは大きく測定局の少ない地域で過小評価が認められ、既存選択ネットワークの方がより代表性のあるネットワークであった。従って、現行ネットワークは高濃度域が出現する傾向がある大都市部では濃度分布を把握できる配置であるが、対象領域全体の代表性には向上の余地があり、それは既存測定局への再配置によって実現可能であると考えられる。

既存選択ネットワークは最適化ネットワークと比較すると、低濃度域での過大評価の傾向がある一方で、高濃度域でのWRF/CMAQ計算値との一致は良く、RMSEおよび R^2 にほとんど差がなかった。また、得られた配置は最適化ネットワークの配置に類似していた。これらの結果は、PM_{2.5}測定機を既存測定局に設置することを原則とした配置方法が概ね妥当であることを示している。

濃度による重み付け係数では、高濃度域により多くの測定局が配置される結果とはならなかったが、人口による重み係数では人口が多い地域に多くの測定局が配置されたネットワークが得られ、それは現行ネットワークに類似した配置であった。また、WRF/CMAQによる空間分布では大都市部に高濃度域が出現する傾向がある。これより現行ネットワークは人口集中域あるいは高濃度域、もしくはその両方を考慮して配置された結果と解釈することができる。

本章では、経年変動が比較的少ないと考えられる年平均値について1年間の計算結果を用いてモニタリングネットワークの最適化を行ったが、より信頼性の高い結果を得るためには複数年の結果を用いて最適化を行うことが望ましい。従って、複数年を対象として、同時に最適化できる手法を開発することが、本論文での最適化手法をより実用的な手法とするためにも必要である。

本論文で用いた手法は、既存ネットワークの測定局数やネットワークの充実度に関係なく様々なネットワークに対して適用可能な手法である。重み係数の設定にはさらなる検討も必要であるが、対象領域全体の代表性を優先するだけでなく高濃度域に多くの測定局を配置する、あるいは人口集中域に多くの測定局を配置するといった様々な配置方針にも柔軟に対応できる。今後、PM_{2.5}だけに限らず、他の大気汚染物質のモニタリングネットワークの構築や再配置等に適用されることが期待される。

第6章

結論

大気環境問題が未だに対策が必要とされる重要な課題である中で、現況の把握や対策の評価等の重要な役割が期待されるモニタリングネットワークであるが、国が示す測定局の必要数や配置方法には科学的な根拠や具体性が欠けていると言わざるを得ない。そのため、あるべきネットワークについてのコンセンサスも形成されておらず、現在のネットワークの評価も困難となっている。

本研究では、大気環境モニタリングネットワークの配置について科学的な根拠を与えることが可能な手法の開発を最終的な目的とした。その上で、適正配置の検討に必要な空間分布の推定手法について、都市スケールと全国スケールで検討し、さらに日本の現在のネットワーク配置の特性を考慮した最適化アルゴリズムを開発した。開発したアルゴリズムを実用問題に適用し、現在のネットワークの評価を試みた。以下に、本論文の内容を要約する。

第1章では、過去から現在までの日本における大気環境の変遷を簡潔にまとめた。さらに、大気環境モニタリングネットワークの問題点を指摘し、ネットワークの最適配置や適正配置を検討する必要性を述べた。その上で、最適配置を検討するために必要となる空間分布推定手法として大気質モデルと測定値の補間法である kriging 法について説明した。また、測定データに基づいた最適化手法の限界と、日本におけるネットワークの最適化に必要なとされるアルゴリズムについて述べた。

第2章では、簡易測定法であるパッシブサンプラーを用いて測定を行い、kriging 法を用いて都市スケールにおける空間分布推定手法について検討した。O₃ 等については、交差検証法によって予測精度を評価したところ精度は概ね良好ではあったが、測定地点数が十分ではなかったことが精度に影響していた可能性が考えられた。また、山間部の地点は1地点だけであったため、交差検証法による評価ではその地点における予測精度が良くない結果となった。kriging 法は測定データに大きく依存する手法であるため、測定地点の配置が極めて重要となることが示唆された。

VOCs については O₃ 等の結果から kriging 法を適用するには測定地点数が十分ではないことが明らかとなったため、空間分布の推定は行わず、その代わりに大気中濃度と発生源からの排出量との関係について成分ごとに解析した。排出量の発生部門比が類似した VOCs 成分については、大気中濃度の相関が高いことを示した。また、大気中の VOCs 濃度は比較的近傍の発生源の影響を強く受けていることが示唆された。

第3章では、全国スケールを対象として regression kriging 法による空間分布推定手法を検討した。大気汚染物質の空間分布に寄与する重要なファクターである発生源、輸送、変質および沈着を表す予測変数

を用いて、NO₂ および O₃ に regression kriging 法を適用し、1×1km の空間解像度で空間分布を予測した。交差検証法によって評価した予測精度は良好で、疫学研究で広く用いられている線形回帰法（LUR法）よりも良好であった。また、既往の研究における予測精度とも同等と考えられた。日本では、都市部以外には測定局がほとんど配置されていないために、そこでの精度検証が不十分である可能性があるが、少なくとも都市部においては regression kriging 法が大気汚染物質の空間分布を十分な精度と空間解像度で予測できる実用的な手法であることが確認された。

第4章では、空間分布推定値に適用可能である最適化手法として GA と SA を組み合わせたハイブリッド・アルゴリズム（HGS）を開発し、単体の GA および SA と探索能力および汎用性を比較することで、開発したアルゴリズムを評価した。空間分布推定値として大気質モデルの出力値を用い、PM_{2.5}、NO₂ および O₃ のモデル出力値にアルゴリズムを適用した。本論文で開発した HGS アルゴリズムは検討した様々なケースにおいて常に最良の解を発見することができ、優れた探索能力を持つことが明らかになった。また、空間分布の特徴が大きく異なる PM_{2.5}、NO₂ および O₃ に対して、GA および SA より HGS の方が常により良い解を発見できたことから、HGS の汎用性が確認された。GA、SA および HGS で得られる最適化ネットワークの空間代表性は概ね同等であった。また、ある物質に対して最適である配置は、他の物質でも最適であった。これより、複数の物質について同時最適化を行う場合でも、1物質のみ検討すれば十分である可能性が示された。

第5章では、第4章で開発した最適化アルゴリズムを近畿地方の PM_{2.5} モニタリングネットワークに適用した。土地利用を考慮して設置可能地点を詳細に設定し得られた最適化ネットワークと比較することで現行ネットワークの評価を試みた。最適化ネットワークは比較的均一な配置となり、98% 値の濃度分布についても十分に把握できる配置であった。現行のネットワークは、2011年では低濃度域を十分に把握できなかったが、2013年には大幅に改善されていた。一方で、高濃度域は2011年においても一定程度把握できる配置となっていた。さらに、2013年のネットワークは、既存選択ネットワークに比較的類似していたが、都市部への偏りは大きく測定局の少ない地域で過小評価が認められ、既存選択ネットワークの方がより代表性のあるネットワークであった。従って、現行ネットワークは高濃度域が出現する傾向がある大都市部では濃度分布を把握できる配置であるが、対象領域全体の代表性には向上の余地があり、それは既存測定局への再配置によって実現可能であると考えられた。また、PM_{2.5} 測定機を既存測定局に設置することを原則とした配置方法が概ね妥当であることが示唆された。

Kriging 法の空間分布予測精度は、測定値そのものや測定地点の数および配置に大きく依存する。現在の日本におけるモニタリングネットワークは都市域に偏在しているために、kriging 法を用いた空間分布予測では都市部以外での予測精度は十分ではないと考えられる。しかしながら、簡易に空間分布を推定する手法として実用性は高く、大気質モデルを補完するものとしても有用であり、より適正な配置のネットワークのもとでは、さらに重要な役割を果たすことができるであろう。

本論文では、モニタリングネットワークの配置について主に議論した。本来、最適配置には測定局を配置する場所と必要十分な測定局数の両方が必要である。国が示す「望ましい測定局数」の科学的根拠が十分ではないことを鑑みると、最適な測定局数を客観的に得ることができる手法の検討が今後の課題である。また、本論文では PM_{2.5} のネットワークについてのみ評価を行ったが、空間分布の特徴が大きく異なる NO₂ や O₃ についても同様の評価は必要である。

大気環境問題は今日でも未解決の喫緊の課題であることから、今後も大気環境モニタリングネットワー

クの重要性は不変である。より効率的に大気環境を監視し把握するためにも、ネットワークがより適正なものとして運営されることを願ってやまない。

謝辞

本研究を進めるにあたり、終始懇切丁寧で親身な御指導を賜りました大阪大学大学院工学研究科教授の近藤明先生に心より感謝いたします。本研究を行うにあたって不可欠であった大気質モデルに関するご協力と、研究全般にわたって的確で丁寧なご指導を賜りました大阪大学大学院工学研究科助教の嶋寺光先生に厚く感謝いたします。昨年度まで本研究の過程において懇切な御指導をいただきました大阪大学大学院工学研究科助教の井上義雄先生に厚く感謝いたします。

京都大学大学院エネルギー科学研究科助教の山本浩平先生には、京都大学在学中の学士論文および修士論文においての温かいご指導に始まり、本学への入学から本研究の過程ならびに本論文をまとめるに至るまで根気強く丁寧なご指導を賜り、心より感謝いたします。

大阪大学大学院工学研究科教授の池道彦先生、下田吉之先生には、本論文をまとめるにあたり、御専門の立場からの御教示を賜りました。ここに深く感謝の意を表します。

事務補佐の荻野礼加様には、数多くの事務処理をサポートしていただき研究に専念できる環境を作っていただきました。心より感謝の意を表します。また、大阪大学大学院工学研究科環境・エネルギー工学専攻の共生環境評価領域の博士前期課程2回生の岩橋香季様をはじめ学生の皆様には様々な形でお世話になりました。ここに心より感謝の意を表します。

京都大学大学院エネルギー科学研究科修士課程（当時）の佐々木哲也様には、パッシブサンプラーによるサンプリングと分析、中でも困難を伴うVOCsの溶媒抽出-GC/MS測定を実施していただきました。心より感謝致します。また、サンプリングを共に行った天津市環境保全課（当時）の関係者の皆様には、ここに感謝の意を表します。

最後に、研究を行う上で家族には迷惑を掛けることも多々ありましたが、こうして博士論文を完成させることができたのも、家族みんなのおかげです。感謝しています。

本研究に関っていただいた全ての方々に厚く御礼申し上げます。

参考文献

- 3M 1994. 3M organic vapor monitor sampling rate validation protocol.
- Baume, O., Gebhardt, A., Gebhardt, C., Heuvelink, G. B., Pilz, J. 2011. Network optimization algorithms and scenarios in the context of automatic mapping. *Computers & Geosciences*, 37 (3), 289–294.
- Beelen, R., Hoek, G., Pebesma, E., Vienneau, D., de Hoogh, K., Briggs, D. J. 2009. Mapping of background air pollution at a fine spatial scale across the european union. *Science of the Total Environment*, 407 (6), 1852–1867.
- Bivand, R., Keitt, T., Rowlingson, B. 2014. rgdal: Bindings for the Geospatial Data Abstraction Library. R package version 0.9-1.
- Bivand, R., Lewin-Koh, N. 2015. mapproj: Tools for Reading and Handling Spatial Objects. R package version 0.8-34.
- Briggs, D. J., de Hoogh, C., Gulliver, J., Wills, J., Elliott, P., Kingham, S., Smallbone, K. 2000. A regression-based method for mapping traffic-related air pollution: application and testing in four contrasting urban environments. *Science of the Total Environment*, 253 (1), 151–167.
- Brus, D. J., Heuvelink, G. B. 2007. Optimization of sample patterns for universal kriging of environmental variables. *Geoderma*, 138 (1), 86–95.
- Bytnerowicz, A., Arbaugh, M., Padgett, P. 2004. Evaluation of ozone and hno₃ vapor distribution and ozone effects on conifer forests in the lake tahoe basin and eastern sierra nevada. Technical report.
- Byun, D., Ching, J. 1999. Science algorithms of the EPA models-3 Community Multi-scale Air Quality (CMAQ) modelling system. Research Triangle Park, NC. NERL.
- Chatani, S., Morino, Y., Shimadera, H., Hayami, H., Mori, Y., Sasaki, K., Kajino, M., Yokoi, T., Morikawa, T., Ohara, T. 2014. Multi-model analyses of dominant factors influencing elemental carbon in tokyo metropolitan area of japan. *Aerosol Air Qual. Res*, 14 (1), 396–405.
- Cyrys, J., Hochadel, M., Gehring, U., Hoek, G., Diegmann, V., Brunekreef, B., Heinrich, J. 2005. Gis-based estimation of exposure to particulate matter and no₂ in an urban area: stochastic versus dispersion modeling. *Environmental Health Perspectives*, 987–992.
- De Smet, P., Horlek, J., Cokov, M., Kurfrst, P., de Leeuw, F., Denby, B. 2010. European air quality maps of ozone and pm₁₀ for 2008. Technical report, European Topic Centre on Air and Climate

- Change, ETC/ACC Technical paper.
- De Smet, P., Horlek, J., Kurfrst, P., Schreiberov, M., de Leeuw, F. 2011. European air quality maps of ozone and pm10 for 2009. Technical report, European Topic Centre on Air and Climate Change, ETC/ACC Technical paper.
- Emmons, L., Walters, S., Hess, P., Lamarque, J.-F., Pfister, G., Fillmore, D., Granier, C., Guenther, A., Kinnison, D., Laepple, T. et al. 2010. Description and evaluation of the model for ozone and related chemical tracers, version 4 (mozart-4). *Geoscientific Model Development*, 3 (1), 43–67.
- Fuentes, M., Chaudhuri, A., Holland, D. M. 2007. Bayesian entropy for spatial sampling design of environmental data. *Environmental and Ecological Statistics*, 14 (3), 323–340.
- Hengl, T. 2007. A practical guide to geostatistical mapping of environmental variables.
- Hengl, T., Heuvelink, G. B., Stein, A. 2003. Comparison of kriging with external drift and regression-kriging. Technical note, ITC, 51.
- Hijmans, R. J. 2015. raster: Geographic data analysis and model. R package version 2.3-24.
- Hoek, G., Beelen, R., de Hoogh, K., Vienneau, D., Gulliver, J., Fischer, P., Briggs, D. 2008. A review of land-use regression models to assess spatial variation of outdoor air pollution. *Atmospheric Environment*, 42 (33), 7561–7578.
- Itano, Y., Bandow, H., Takenaka, N., Saitoh, Y., Asayama, A., Fukuyama, J. 2007. Impact of no x reduction on long-term ozone trends in an urban atmosphere. *Science of the total Environment*, 379 (1), 46–55.
- 化学物質評価研究機構・製品評価技術基盤機構 2005. 「化学物質の初期リスク評価書（独立行政法人 新エネルギー・産業技術総合開発機構委託事業）」.
- 化学物質評価研究機構・製品評価技術基盤機構 2006. 「化学物質の初期リスク評価書（独立行政法人 新エネルギー・産業技術総合開発機構委託事業）」.
- 化学物質評価研究機構・製品評価技術基盤機構 2007. 「化学物質の初期リスク評価書（独立行政法人 新エネルギー・産業技術総合開発機構委託事業）」.
- 環境省 2005. 「大気環境モニタリングの在り方について」, URL: <http://www.env.go.jp/air/report/h17-01.pdf> (アクセス日: 2015年3月18日).
- 環境省 2006. 「平成18年度光化学大気汚染の概要」, URL: <https://www.env.go.jp/press/8014.html> (アクセス日: 2015年3月18日).
- 環境省 2007. 「平成19年度光化学大気汚染の概要」, URL: <https://www.env.go.jp/press/9359.html> (アクセス日: 2015年3月18日).
- 環境省 2008. 「平成20年度光化学大気汚染の概要」, URL: <https://www.env.go.jp/press/10615.html> (アクセス日: 2015年3月18日).
- 環境省 2009a. 「微小粒子状物質による大気汚染に係る環境基準について」, URL: <http://www.env.go.jp/kijun/taiki4.html> (アクセス日: 2015年3月18日).
- 環境省 2009b. 「平成21年度光化学大気汚染の概要」, URL: <https://www.env.go.jp/press/12019.html> (アクセス日: 2015年3月18日).
- 環境省 2011. 「有害大気汚染物質測定方法マニュアル」, URL: <http://www.env.go.jp/air/osen/>

- manual2/ (アクセス日: 2015 年 3 月 15 日).
- 環境省 2012. 「大気汚染防止法の概要」, URL : <http://www.env.go.jp/air/osen/law/> (アクセス日: 2015 年 3 月 18 日).
- 環境省 2013a. 「最近の微小粒子状物質 (PM_{2.5}) による大気汚染への対応」, URL : <http://www.env.go.jp/air/osen/pm/info/attach/report20130227.pdf> (アクセス日: 2015 年 3 月 18 日).
- 環境省 2013b. 「大気汚染防止法第 22 条の規定に基づく大気汚染の状況の常時監視に関する事務の処理基準について」, URL : http://www.env.go.jp/air/osen/law22_kijun/1308303d.pdf (アクセス日: 2015 年 3 月 17 日).
- 環境省 2014. 「平成 24 年度大気汚染状況」, URL : http://www.env.go.jp/air/osen/jokyo_h24/index.html (アクセス日: 2015 年 3 月 18 日).
- 神成陽容 2006. 「関東・関西地域における光化学オキシダント濃度の週末効果に関する解析 第 2 報 ダイナミックに変化するオゾン生成レジームの検証」, 『大気環境学会誌』, 41 (4), 220–233.
- Kannari, A., Tonooka, Y., Baba, T., Murano, K. 2007. Development of multiple-species resolution hourly basis emissions inventory for japan. *Atmospheric Environment*, 41 (16), 3428–3439.
- Marshall, J. D., Nethery, E., Brauer, M. 2008. Within-urban variability in ambient air pollution: comparison of estimation methods. *Atmospheric Environment*, 42 (6), 1359–1369.
- 間瀬茂・武田純 2001. 『空間データモデリング 空間統計学の応用』, 共立出版.
- 松本敬信 1975. 『大気汚染防止』, 技報堂.
- 松下和正・仲村恭輝・布施泰朗・山田悦 2005. 「パッシブサンプラー採取による大気中揮発性有機化合物濃度の経年変化観測 (2001–2004)」, 『分析化学』, 54 (9), 849–854.
- Mercer, L. D., Szpiro, A. A., Sheppard, L., Lindström, J., Adar, S. D., Allen, R. W., Avol, E. L., Oron, A. P., Larson, T., Liu, L.-J. S. et al. 2011. Comparing universal kriging and land-use regression for predicting concentrations of gaseous oxides of nitrogen (no_x) for the multi-ethnic study of atherosclerosis and air pollution (mesa air). *Atmospheric Environment*, 45 (26), 4412–4420.
- Mukerjee, S., Smith, L. A., Norris, G. A., Morandi, M. T., Gonzales, M., Noble, C. A., Neas, L. M., Özkaynak, A. H. 2004. Field method comparison between passive air samplers and continuous monitors for vocs and no₂ in el paso, texas. *Journal of the air & waste management association*, 54 (3), 307–319.
- 奥村智憲・谷晃・小杉緑子・高梨聡・深山貴文・小南裕志・東野達 2008. 「ヒノキ葉から放出されるモノテルペンの日変化と季節変化」, 『生態工学会誌』, 20 (2), 89–95.
- Pearce, J. L., Rathbun, S. L., Aguilar-Villalobos, M., Naeher, L. P. 2009. Characterizing the spatiotemporal variability of pm 2.5 in cusco, peru using kriging with external drift. *Atmospheric Environment*, 43 (12), 2060–2069.
- Pebesma, E. J. 2004. Multivariable geostatistics in s: the gstat package. *Computers & Geosciences*, 30, 683–691.
- Pebesma, E. J., Bivand, R. S. 2005. Classes and methods for spatial data in r. *R news*, 5 (2), 9–13.
- R Core Team 2014. R: A Language and Environment for Statistical Computing. R Foundation for

- Statistical Computing, Vienna, Austria.
- Ray, J. D. 2001. Spatial distribution of tropospheric ozone in national parks of california: interpretation of passive-sampler data. *The Scientific World Journal*, 1, 483–497.
- Rodell, M., Houser, P., Jambor, U. e. a., Gottschalck, J., Mitchell, K., Meng, C., Arsenault, K., Cosgrove, B., Radakovich, J., Bosilovich, M. et al. 2004. The global land data assimilation system. *Bulletin of the American Meteorological Society*, 85 (3), 381–394.
- Ross, Z., Jerrett, M., Ito, K., Tempalski, B., Thurston, G. D. 2007. A land use regression for predicting fine particulate matter concentrations in the new york city region. *Atmospheric Environment*, 41 (11), 2255–2269.
- Ruiz-Cárdenas, R., Ferreira, M. A., Schmidt, A. M. 2010. Stochastic search algorithms for optimal design of monitoring networks. *Environmetrics*, 21 (1), 102–112.
- Sarkar, D. 2008. *Lattice: Multivariate Data Visualization with R*. New York, Springer, ISBN 978-0-387-75968-5.
- Sather, M. E., Varns, J. L., Mulik, J. D., Glen, G., Smith, L., Stallings, C. 2001. Passive ozone network of dallas: a modeling opportunity with community involvement. 2. *Environmental science & technology*, 35 (22), 4426–4435.
- Scrucca, L. 2013. GA: A package for genetic algorithms in R. *Journal of Statistical Software*, 53 (4), 1–37, URL: <http://www.jstatsoft.org/v53/i04/>.
- Shimadera, H., Hayami, H., Ohara, T., Morino, Y., Takami, A., Irei, S. 2014a. Numerical simulation of extreme air pollution by fine particulate matter in china in winter 2013. *Asian Journal of Atmospheric Environment*, 8, 25–34.
- Shimadera, H., Kojima, T., Kondo, A., Inoue, Y. 2014b. Performance comparison of cmaq and camx for one-year pm_{2.5} simulation in japan.. Submitted to *International Journal of Environment and Pollution*.
- Skamarock, W., Klemp, J., Dudhia, J., Gill, D., Baker, D., Duda, M., Huang, X.-Y., Wang, W., Powers, J. 2009. A description of the advanced research wrf version 3.. NCAR Tech. Note, NCAR/TN-475+STR.
- スリーエムヘルスケア株式会社 2004. 『有機ガスモニター No.3500, No.3520 定量分析説明書』.
- Take, N., Itano, Y., Yamagami, M., Ohara, T. 2010. Screening method for outliers in photochemical oxidant monitoring using potential ozone. *J. Japan Soc. Atmos. Environ*, 45, 264–270.
- Varns, J. L., Mulik, J. D., Sather, M. E., Glen, G., Smith, L., Stallings, C. 2001. Passive ozone network of dallas: a modeling opportunity with community involvement. 1. *Environmental science & technology*, 35 (5), 845–855.
- Wackernagel, H. 2003. 『地球統計学』, 森北出版, (地球統計学研究委員会・青木謙治訳).
- Wakamatsu, S., Morikawa, T., Ito, A. 2013. Air pollution trends in japan between 1970 and 2012 and impact of urban air pollution countermeasures. *Asian Journal of Atmospheric Environment*, 7 (4), 177–190.
- Wu, L., Bocquet, M. 2011. Optimal redistribution of the background ozone monitoring stations over

- france. *Atmospheric Environment*, 45 (3), 772–783.
- Wu, L., Bocquet, M., Chevallier, M. 2010. Optimal reduction of the ozone monitoring network over france. *Atmospheric Environment*, 44 (25), 3071–3083.
- Yamada, E., Hosokawa, Y., Furuya, Y., Matsushita, K., Fuse, Y. 2004. Simple analysis of volatile organic compounds (vocs) in the atmosphere using passive samplers. *Analytical Sciences*, 20 (1), 107–112.
- 横浜市環境科学研究所 2002. 『短期暴露用拡散型サンプラーを用いた環境大気中の NO, NO₂, SO₂, O₃ 及び NH₃ 濃度の測定方法』.
- Zidek, J. V., Sun, W., Le, N. D. 2000. Designing and integrating composite networks for monitoring multivariate gaussian pollution fields. *Journal of the Royal Statistical Society: Series C (Applied Statistics)*, 49 (1), 63–79.