

— 原 著 —

クリギング法による大津市とその周辺における オゾン濃度の空間分布予測手法の検討

荒木 真^{1*}, 佐々木 哲也², 上田 里實³, 山本 浩平², 東野 達²

A study of the prediction method of the spatial distribution of ozone
by kriging in Otsu city and its surrounding area

Shin Araki^{1*}, Tetsuya Sasaki², Satomi Ueda³, Kouhei Yamamoto², Susumu Tohno²

1 Otsu City Public Health Center, Goryocho 3-1 Otsu, Shiga 520-8575, Japan

2 Graduate School of Energy Science, Kyoto University, Yoshidahonmachi, Sakyo, Kyoto 606-8501, Japan

3 Environment Policy Division, Otsu city, Goryocho 3-1 Otsu, Shiga 520-8575, Japan

*Corresponding author: (E-mail) araki_shin@city.otsu.lg.jp

In recent years, a simple and practical method for optimizing the existing air monitoring network in Japan is required because the photochemical oxidant pollution area is increasing. In this study, the spatial distribution of ozone and potential ozone (PO) were predicted by ordinary kriging based on the data from the monitoring network along with the data from passive samplers supplementing the network. Passive sampler data were confirmed to be equivalent to the monitoring data along with an adequate precision and trueness. Kriging was proved to be an effective method for the prediction of the spatial distribution of ozone and PO. The “Range”, which is obtained during the kriging process, represented the spatial scale and showed a positive correlation with the wind speed. However, in the case when the distribution was influenced by the relatively large air mass or by local emission sources, further analyses using a chemical transportation model or regression kriging with emission inventory as an auxiliary variable was considered to be necessary.

Key words :Kriging, Spatial distribution, Ozone, Passive sampler

1. はじめに

大気環境を的確に把握するために、大気汚染防止法に基づき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。この常時監視システムの設計に関しては環境省から「望ましい測定局数」の算出方法が示されている(環境省, 2010)が、具体的な配置についての考え方の議論は十分でない。

また、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では大気汚染物質濃度の実態が不明であることが多い。しかしながら、光化学オキシダントについては平成 18 年には長崎県と熊本県で、19 年には新潟県と大分県で、20 年には長野県と佐賀県で、21 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る(環境省, 2006-2009)など、汚染の広域化がみられており、測定局の再配置を含めた適正配置を具体的に検討する必要があるが生じている。さらに、昨今の自治体の財政状態の悪化に伴って測定局の見直しも予想され、この点からも、その検討が必要となると考えられる。そのため、ある測定地点の地域代表性の検討や、大気汚染物質の空間分布を得ることが必要である。

その手段として、排出インベントリおよび化学輸送モデル

を用いて大気汚染物質の濃度分布を推定する手法が考えられる。これは濃度分布を計算により求める方法として一般的であり、様々な領域や期間を対象とした報告は多い(例えば Chatani et al., 2008, Yamamoto et al., 2008, Sakamoto et al., 2010)。しかし、これらのモデルを使って解析を行うには、排出インベントリについての多くのデータを整備する必要や高性能の計算機システムを用いて長時間の計算を行う必要があり、特に自治体の環境管理担当者などには実用であるとは言い難い。従って、より簡便かつ実用的な手法の構築が必要である。

そのため本研究では、既存の常時監視システムを有効利用しながら簡便かつ実用的に大気汚染物質の濃度分布を得る手法としてクリギング法に着目した。この手法は多地点で同時に観測されたデータ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, 2001)、地点間の相関である空間的非類似度を算出し大気汚染物質濃度の空間代表スケールに関する情報も得られる。この手法を用いた大気汚染物質濃度分布の定量的検討やその精度について具体的に解析した報告例(Ray, 2001)はあるが多くはない。また、得られた空間代表スケールに関する情報について解析した例は殆どない。

この手法を常時監視システムから得られるデータに適用する場合には、対象とする地域に十分な数の測定局があり、

さらにある程度均等に位置していることが必要である。しかし、一部の大都市など限られた地域を除けばそのような地域はほとんどなく、逆に測定局が配置されていない地域もある。そのため、測定局を補間して大気汚染物質濃度のデータを得る、あるいは測定局のない地域のデータを得る手段が必要となる。本研究ではその手段としてパッシブサンプラーを用いた。パッシブサンプラーは自動測定機のような時間分解能は得られないものの、1) 電源が不要、2) 取り扱いが容易、3) 安価、という特徴を持つ。そのため、多地点同時サンプリングにはその特徴が発揮され、 O_3 や NO_2 の測定で多くの実績もある (Ray, 2001, Vams et al., 2001, Sather et al., 2001, Bytnerowicz et al., 2004)。また、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)。

この様な背景から本研究では、測定局の適正配置を検討する上で重要である大気汚染物質の空間分布の予測手法および空間代表スケールに関する知見を得ることを目的とし、パッシブサンプラーによる測定によって測定局を空間的に補間した上で、両者のデータにクリギング法を適用し、空間分布予測精度および空間代表スケールについて検討を行った。

2. 方法

2.1 対象物質

本研究では、大気汚染物質の中で 1) 環境基準達成率が極めて低い (環境省, 2009)、2) 濃度 (昼間の日最高1時間値の年平均値) が漸増している (環境省, 2009)、3) 汚染の広域化、4) パッシブサンプラーで測定可能である、ことから O_3 を対象物質とし、その前駆物質である NO_2 および NO_x についても測定した。なお、光化学オキシダントの大部分は O_3 であるため本研究では特に区別せずに用いた。

2.2 対象地域

大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部には比良山系がそびえている (Fig.1)。オキシダントの自動測定局は市内に4局 (No.22, 101 - 103, 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。

2.3 サンプリング

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 (O_3)、OG-SN-10 (NO_2) および OG-SN-11 (NO_x) を使用した。ろ紙は $-18^\circ C$ 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 (Vams 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。設置・回収日時を記録し

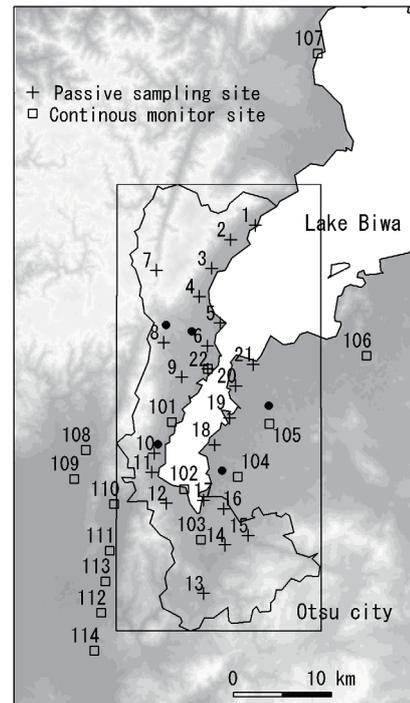


Fig.1 Study area with passive sampling and continuous monitor sites. Numbers correspond to those in Table 1. Colors represent the elevation based on ASTER GDEM, a product of METI and NASA. Black circles without numbers are discussed in section 4.1. The large square shows the area where O_3 and PO concentration is predicted.

Table 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
2	Kitahira	20	Konohama
3	Kido	21	Saizukawa
4	Horai	22	Katata
5	Wani		
6	Mano	101	Shimosakamoto
7	Sakashita	102	Zeze
8	Ikadachi	103	Ishiyama
9	Oginosato	104	Kusatsu
10	Minamishiga	105	Moriyama
11	Goryocho	106	Hachiman
12	Ikenouchi	107	Takashima
13	Oishi	108	Sakyo
14	Haguri	109	Shiyakusho
15	Kamitanakami	110	Yamashina
16	Ichiriyama	111	Daigo
17	Kayanoura	112	Uji
18	Shimogasa	113	Higashiuji
		114	Joyo

* No. 16, 19 and 113 are not available in 2009.

** No. 102 and 107 are monitoring O_3 only.

て暴露時間を求めた。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 以上離れた地上 1.0 m から 2.0 m の開放地点を選定した。Fig.1 および Table 1 にパッシブサンプラーの設置地点を示す。測定地点の緯度・経度は GPS より得た。自動測定局については環境省大気汚染状況報告書 (環境省, 2009) から引用した。いずれも世界測地系である。なお、解析に際しては平面座標 VI 系に投影し計算を行った。

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。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。調査は 4 月から 10 月を中心に月 2 回程度実施した。2008 年は前半は O₃ のみ、後半は O₃ と NO₂ 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 O₃, NO₂, NO_x について 1 週間の暴露期間でサンプリングして、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。サンプリングの詳細を Table 2 に示す。

Table 2 Detail of the samplings

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	1
June 22 - 29, 2009	1 week	O ₃ , NO ₂ , NO _x	1
July 23 - 30, 2009	1 week	O ₃ , NO ₂ , NO _x	1
Aug 18 - 25, 2009	1 week	O ₃ , NO ₂ , NO _x	1
Sep 3 - 10, 2009	1 week	O ₃ , NO ₂ , NO _x	1
Oct 15 - 22, 2009	1 week	O ₃ , NO ₂ , NO _x	1

2.4 濃度の測定

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) 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 ASRS 300 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, カラム温度は 35 °C, 注入量は 250 μL である。

2.5 大気中濃度の算出

大気中の O₃, NO₂, NO_x 濃度の算出は以下のように行った。

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

ここで、C は大気中濃度 (ppbv, 以下 ppb とする), W は O₃ については捕集ろ紙で生成した NO₃⁻ (ng), NO₂, NO_x については捕集された NO₂, NO_x (ng), f は換算係数 (ppb hr/ng), 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。

O₃ 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 O₃ 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、

$$[PO] = [O_3] + [NO_2] - 0.1 \times [NO_x] \quad (2)$$

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) 式は

$$[PO] = [O_3] + [NO_2] - 0.1 \times ([NO] + [NO_2]) \\ = [O_3] + 0.9 \times [NO_2] - 0.1 \times [NO] \quad (3)$$

と変形できる。本研究の測定結果では (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,

$$[PO] = [O_3] + 0.9 \times [NO_2] \quad (4)$$

と近似した.

2.6 空間分布予測精度の算出方法

得られた測定値から空間分布を得る手法として, クリギング法を適用しその予測精度を評価した. この手法は空間現象を連続空間確率場でモデル化し, 規則的もしくは不規則的位置で観測されたデータから任意の位置での確率場の値を予測する手法であり, 本来は鉱山学的手法を指すが, 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, 2001).

対象とする領域は, Fig.1 に示した四角形の内部とし, その周縁部での予測精度の向上のために周辺の測定局のデータも併せて使用した. なお, 測定局 No.103 については自動車排ガス局であるので, O_3 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.

空間分布予測と解析には統計解析ソフト R (R Development Core Team, 2010) およびそのパッケージである sp (Pebesma and Binwand, 2005, Binwand et al., 2008), gstat (Pebesma, 2004), rgdal (Keitt et al., 2010), mapproj (Lewin-Koh et al., 2010), lattice (Sarkar, 2008) を使用した.

クリギングに先立って, 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 γ^* を求める. γ^* 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,

$$\gamma_{\alpha\beta}^* = \frac{(z_\alpha - z_\beta)^2}{2} \quad (5)$$

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 (5) 式は,

$$\gamma^*(\mathbf{h}) = \frac{1}{2} \{z(x_\alpha + \mathbf{h}) - z(x_\alpha)\}^2 \quad (6)$$

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 γ^* 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 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. データは 2008 年 7 月 23 日の PO である.

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めに用いる $|\mathbf{h}|$ の上限 ($|\mathbf{h}|_{\max}$) 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通常クリギング (ordinary kriging) によるクロス・バリデーションを行い精度評価指標を得る. クロス・バリデーションは 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, 2004). 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, 2004).

$$ME = \frac{1}{n} \sum (y_M - y_P) \quad (7)$$

$$RMSE = \sqrt{\frac{1}{n} \sum (y_M - y_P)^2} \quad (8)$$

$$MSNE = \frac{1}{n} \sum \frac{(y_M - y_P)^2}{\sigma^2} \quad (9)$$

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. このようにして少なくとも 72 通り以上の変数の組み合わせについてクロス・バリデーションを行い, 最も良い精度評価指標が得られた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 $|\mathbf{h}|$ をレンジと呼び, 以下ではレンジが空間代表スケールを表すとして議論を進める. 例えば, Fig.2 では 9.6 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 30 (間瀬, 2001), ガウス型では 20 をレンジとし各測定データについてレンジを求めた.

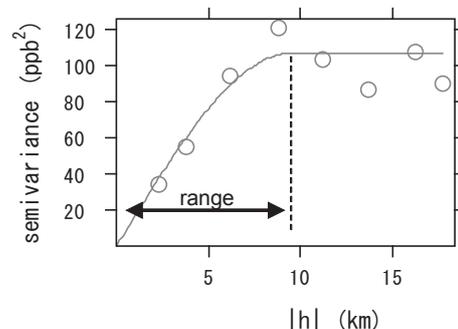


Fig.2 Example of the empirical variogram (circles) and fitted semivariogram (solid line) obtained from PO data on July 23, 2008.

3. 結果

3.1 パッシブサンプラーの測定精度

二重測定および並行測定の結果の概要を Table 3 に示す。また、並行測定の結果を Fig.3 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 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, NO₂ では 0.02 - 0.05 mgNO₂/L であった。NO_x (1 週間暴露) では 0.1 - 0.5 mgNO₂/L 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。

3.2 空間分布予測精度

Table 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。セミバリオグラムのモデルは 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。

Fig 4 に MSNE の統計値を項目, 平均期間別に示す。1 日平均では O₃ より PO の方が 1 に近く、1 週間平均では O₃ の方がやや 1 に近かったが顕著な差はなかった。また、O₃ では 1 週間平均が, PO では 1 日平均の方が 1 に近かったが、顕著な差はなかった。O₃ の 1 週間平均のばらつきが大きいのは、突出して大きいものがあったため、それを除くとその他と同程度であった。MSNE と測定データの特徴 (平均値, 中央値, 標準偏差, 最高値, 最低値, 最高値と最低値の差) との相関を見出すことはできなかった。また、測定精

Table 3 Result of duplicate sampling and collocated sampling

Traget	Year	Precision				Trueness		
		n	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

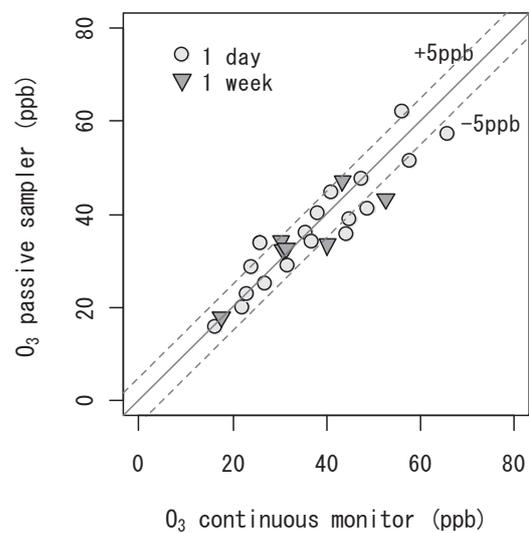


Fig.3 Result of the collocated sampling of O₃. Circles show 1 day exposure samplings and triangles show 1 week exposure samplings.

Table 4 Conversion factors for O₃, NO₂ and NO_x (ppb hr/ng)

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

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。

クロス・バリデーションの結果を地点別に比較すると、測定地点 No.7 で O₃, PO 共に殆どの測定データについて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 18 ppb であった。この地点は山間部に位置し他の測定地点との間には比良山系がある (Fig.1) ことで地理的に隔絶されており、測定値が他の地点と大きく異なることが多く、そのため誤差が大きくなったと考えられる。しかし、この地

Table 5 Variables, models, prediction diagnostic indexes and range obtained from cross validation for O₃ and PO

date	Exposure period	O ₃							PO						
		(km)	l _{max} (km)	model	ME (ppb)	RMSE (ppb)	MSNE (-)	Range (km)	(km)	l _{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

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

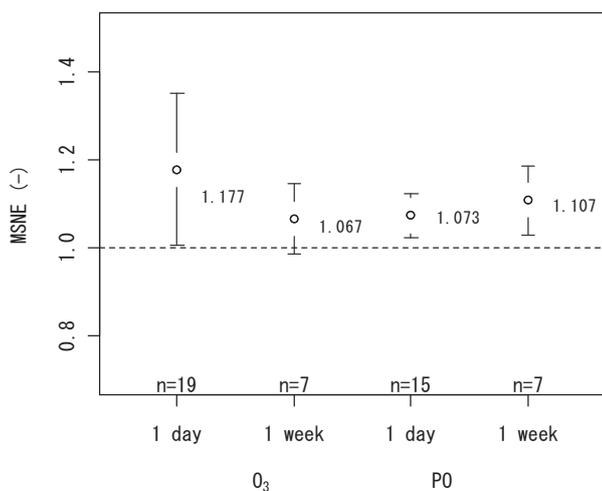


Fig. 4 Statistics of the prediction diagnostic index (MSNE) obtained from cross validation for O₃ and PO for each averaging time (1 day and 1 week). Circles show mean values and error bars show 95 % confidence intervals

点を除外してクロス・バリデーションを行っても精度が改善することはなく、精度に大きな影響を与えていないことを確認している。

4. 考察

4.1 空間分布の地域特性

空間分布予測結果の例を Fig.5 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.5 の様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、得られた空間分布は中部および南部については概ね発生源の分布を反映していたといえる。一方、発生源が少ない北部で比較的高濃度となっていたのは、対象地域の北部以外の発生源の影響か、あるいは対象地域外の影響が考えられた。

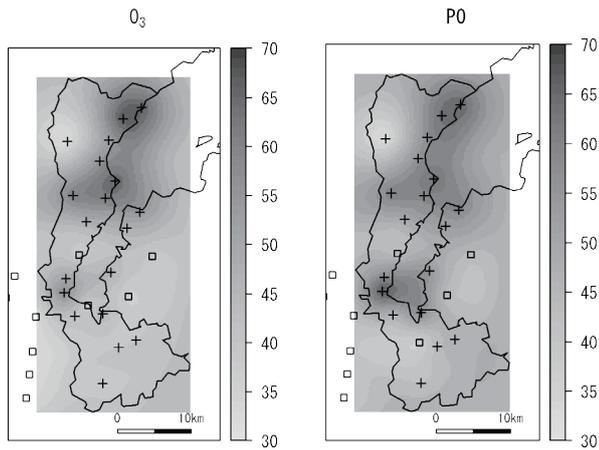


Fig.5 Example of the predicted spatial distribution of O₃ (left) and PO (right) obtained by ordinary kriging applied for the data on July 23, 2008 (1 day average). Crosses show locations of the passive sampling sites and rectangles show that of the continuous monitor sites applied for this study (Unit : ppb).

4.2 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 (Journel 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 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はじ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ためと考えられる。

こうした点から、第 1 および第 2 区分の組み合わせ、つまり相対距離が短い測定局の組み合わせが増えるように測定地点を追加することで予測精度を改善できると思われる。しかし、測定地点を増やすと物的また人的コストが増加する問題があり、無闇に増やすわけにもいかない。そこで、設置が可能でかつサンプリングの負荷があまり増えないと想定される地点を具体的に 5 箇所選定し (Fig.1 に ● で示す)、 $\Delta|h| = 3.4$ (km) のときの組み合わせを試算したところ、第 1 区分で

O₃ が 28 組, PO が 29 組へと増加していた。また、第 2 区分についても増加していたが、 $\Delta|h| \leq 1.8$ (km) では 30 組以下であった。このように、測定地点を 5 箇所増やしても上記の 2) の条件はまだ満たさないものの、それでも精度の向上を期待できると思われる。その検証は今後測定を継続して実施する中で行う予定である。また、測定地点の選定に際しては、各区分で十分な組み合わせになるように選定することが重要であるといえる。

Table 6 Number of pairs in each interval ($\Delta|h| = 3.4$ km)

Interval No.	Range of $ 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

次に、測定地点を 1 地点ずつ順次取り除き、得られる空間分布予測精度との関係を考察した。取り除く測定地点はパッシブサンプラーおよび自動測定機を区別せず、測定地点の中で最も距離が短い組み合わせのうち、ペア以外の地点との距離がより短い方を選んだ。また、1 箇所取り除くごとに 2.6 に示した方法により精度指標 (ME, RMSE, MSNE) およびレンジを得た。これらについて、測定地点を取り除かない場合からの変化量をそれぞれに対して設定した基準値と比較した。基準値は測定日ごとに得られた精度指標およびレンジ (Table 5 に示したものの) の標準偏差とした。精度指標の 3 指標のうち 2 指標について変化量が基準以内であり、かつレンジの変化量が基準以内である場合に、得られた精度および空間分布は同等であると判定し、同等でない判定されるまで測定地点を順次取り除いた。

精度指標は測定地点を取り除くに伴い悪化するが、あまり変化しないかのいずれかであったが、精度指標の全てが同じように変化することはなく、また測定日によってもその挙動は異なっていた。また、精度および空間分布が同等であると判定されたのは除外地点数が O₃ では最小 1, 最大 12, 平均 6 地点まで、PO はそれぞれ 1, 10, 4 地点までであった。本研究での測定地点数は測定日によって異なるが概ね 32 地点であり、従って O₃ では概ね 26, PO では概ね 28 地点までは同等の空間分布予測精度および空間分布が得られることがわかった。

4.3 濃度の空間代表スケール

空間代表スケールは風速の影響を受けると考えられる。そこで、得られたレンジを期間中の平均風速に対してプロット

した (Fig. 6). 風速は対象領域内の北部を代表する地点として地点 No.22 の測定局 (堅田局), 中部として自動車排ガス局の逢坂局, 南部として地点 No.103 の測定局 (石山局) の風速データをスカラー量として平均し, 期間中の対象領域内の風速を代表する値とした. 一部のデータ (2008 年 5 月 28 日, 2009 年 4 月 23 日, 5 月 20 日, 以下 Day 1, Day 2, Day 3 とする. また, Fig.6 にそれぞれ \square , ∇ , \triangle で示す.) を除くと, 風速とレンジには正の相関が認められ, 特に O_3 で顕著であった. これは, 風速が大きいほど空間代表スケールが大きくなることを示している. 外れ値については以下のように考察する.

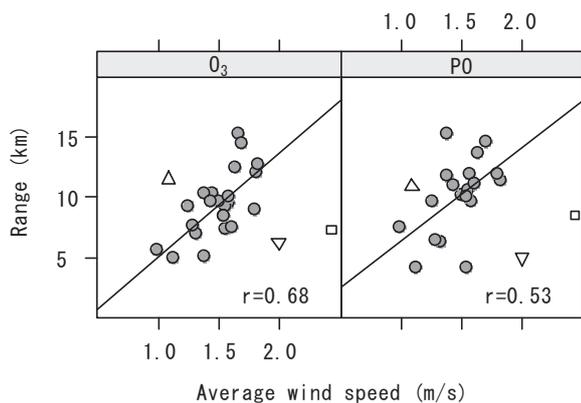


Fig.6 Scatter plot of the obtained range versus average wind speed for O_3 (left panel) and PO (right panel). Triangles and squares show outliers and solid lines show regression lines without outliers. Correlation coefficients are calculated without outliers.

Table 7 Mean correlation coefficients of hourly O_3 concentration between the continuous monitors applied for this study and standard deviation of daily or weekly mean O_3 concentration of the continuous monitors for Day 1 – 3 together with some statistical values of all the sampling data. Numbers in parentheses show percentile ranks of these values to those in the period from April to November in 2008 and 2009.

	r (-)	Std Dev (ppb)
Day 1	0.76 (17)	2.1 (9)
Day 2	0.95 (90)	3.2 (33)
Day 3	0.95 (86)	8.8 (99)
min	0.32 (13)	1.2 (1)
mean	0.83 (58)	3.9 (54)
max	0.97 (97)	8.8 (99)

本研究の手法から得られるレンジは, 対象領域のスケールによってその範囲が限定される. レンジは, 経験バリオグラムにパラメータモデルを当てはめて得られたセミバリオグラムにおいて, 縦軸セミバリエーションが増加後に一定値となる横

軸 $|h|$ の値として得られる (Fig.2). そのため, 経験バリオグラムにおける $|h|$ の最大値以上の値にはならない. この最大値は $|h|_{\max}$ に相当する. また, プロットされた中で, $|h|$ が最も小さい点の値以下にもならない. このときの $|h|$ は $\Delta|h|$ にほぼ等しい. これより, 本研究の測定データおよび手法から得られるレンジは $\Delta|h|$ から $|h|_{\max}$ の範囲に限定されることがわかる. 従って, 空間代表スケールがこの範囲にない場合に得られたレンジは, 空間代表スケールを表さない. 本研究ではこの範囲は測定データおよび項目によって異なるが, 概ね 2.0 から 20 km であった. そのため, 空間代表スケールが 2.0 km 以下あるいは 20 km 以上である場合には, 得られたレンジが空間代表スケールを表さず, 風速との間に相関が認められない可能性がある. これは, Fig.6 で得られた関係から風速が概ね 0.5 m/s 以下あるいは 2.5 m/s 以上の場合に相当する. しかし, 外れ値の風速はこの範囲になく, 別の要因が考えられる.

長距離輸送等により対象領域全体が同一の気塊の影響を受ける場合には通常よりも空間代表スケール, つまりレンジが大きくなり, Fig.6 において回帰直線の上側にシフトすると考えられる. 一方, ローカルの影響が大きい場合には逆に回帰直線の下側にシフトすると考えられる. Fig.6 では Day 1, 2 は下にシフトし, Day 3 は上にシフトしている.

そこで, これを検証するため, 空間分布予測に利用した自動測定局のオキシダントの 1 時間値データについて解析を行った. パッシブサンプラーの測定期間に合わせて 2008 年と 2009 年のそれぞれ 4 月から 11 月を解析対象期間とし, 測定開始日の 11 時から終了日の 10 時までの 1 時間値について測定局間の相関係数の平均と, 測定日における日平均値あるいは週平均値について測定局間の標準偏差を求め, さらにそれらの解析対象期間の全データに対するパーセンタイル値を求めた. 相関係数が高く標準偏差が小さい場合には対象領域が同一の気塊の影響を受けている可能性が考えられる. 一方で, 相関係数が低く標準偏差が大きい場合にはローカルの影響が大きい可能性がある. Day 1-3 の結果と全測定日の結果に対する最小値, 平均値, 最大値を Table 7 に示す. 表の括弧内にパーセンタイル値である. Day 1 は他の測定日および解析対象期間に対して, 相関係数はやや低かったが, 標準偏差は小さく, Day 2 は相関係数は高く標準偏差はやや小さかった. 一方, Day 3 は, 相関係数は高かったが標準偏差は大きかった. また, アメリカ海洋大気庁 (NOAA) の HYSPLIT (Draxler et al., 2010) により後方流跡線を解析し長距離輸送の影響を検討したところ, Day 3 では大陸からの気塊の到達が見られたが, 他の測定日の約半数においても同様であり, Day 3 だけに長距離輸送の影響があるとはいえなかった.

従って, これらの解析からでは Day 1, 2 ではローカルの影響が大きかったこと, あるいは Day 3 では対象領域が同一の気塊の影響を受けていたことを示すことはできなかった. これには, 気象条件の解析や化学輸送モデルによる解析が必

要であると考えられる。また、ローカルの発生源の影響については、高い空間解像度をもつ排出インベントリ (Kannari et al., 2007) を補助変数としてクリギングシステムに組み込む回帰クリギング法 (Hengl, 2009) を適用し得られる精度指標およびレンジを本研究の通常クリギング法から得られたものと比較する等による解析が必要であると考えられる。

5. まとめと今後の課題

本研究では、簡便かつ実用的な大気汚染物質の空間分布推定手法として O_3 と PO を対象として既存の自動測定局をパッシブサンプラーで補間し、クリギング法を用いた空間分布予測手法についてその予測精度を評価した。また、クリギングの過程で得られるレンジについて検討を行った。

パッシブサンプラーによる測定では O_3 , NO_2 , NO_x ともに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クリギング法を適用しクロス・バリデーション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り、クリギング法が O_3 および PO の空間分布予測に有効な手法であることがわかった。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、その影響が相対的に大きかったことで、 O_3 と PO および平均期間の別で精度に顕著な差がなかったと考えられた。また、測定地点を O_3 では 6 地点、 PO では 4 地点取り除いても、取り除く前と同等の空間分布予測精度および空間分布が得られることがわかった。

クリギングの過程で得られるレンジは空間代表スケールを表し、風速との間に正の相関が認められた。しかし、長距離輸送等により対象領域全体が同一の気塊の影響を受ける、あるいはローカルの発生源の影響が大きい場合には、本研究で用いた通常クリギング法だけでは空間代表スケールの解析には十分ではなく、化学輸送モデルによる解析や排出インベントリを補助変数とする回帰クリギング法を用いた解析が必要であると考えられた。

本研究で解析したデータは 1 日ならびに 1 週間平均値であるが、 O_3 については 1 時間値がより重要である。また、異なる空間スケールや他の地域における本研究の手法の適用可能性を検討する必要があると考えている。

謝 辞

本研究で使用した自動測定機の測定データは各所管自治体である滋賀県、京都府、京都市の主管部局より提供いただきました。ここに深く感謝いたします。また、本稿の図で用いたシェイプファイルデータの作成に当たっては、ESRI ジャパン株式会社の全国市区町村界データを使用しました。

(受稿日 2011.3.18) (掲載決定日 2011.8.8)

参考文献

- Bivand, R. S., Pebesma, E. J. and Gomez-Rubio, V.: Applied spatial data analysis with R, Springer, New York, <http://www.asdar-book.org/> (2008).
- Bytnerowicz, A., Arbaugh, M., Padgett, P., Alonso, R., Frączek, W., Takemoto, B., Procter, T., Pronos, J. and Reiner, J.: Evaluation of Ozone and HNO_3 Vapor Distribution and Ozone Effects on Conifer Forests in the Lake Tahoe Basin and Eastern Sierra Nevada, California Air Resources Board (2004).
- Chatani, S., Morikawa, T., Ashizaki, M., Hirai, H. and Kunimi, H.: Sensitivity analysis of emission sources and transboundary transport on pollutant concentration in Japan, *J. Japan Soc. Atmos. Environ.*, **43**, 79-91 (2008). [in Japanese]
- Draxler, R. R. and Rolph, G. D.: HYSPLIT (Hybrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory) Model access via <http://ready.arl.noaa.gov/HYSPLIT.php>, NOAA Air Resource Laboratory, Silver Spring, MD.
- Hengl, T.: A practical guide to geostatistical mapping, University of Amsterdam, Amsterdam (2007).
- Itano, Y., Bandow, H., Takenaka, N., Saitoh, Y., Asayama, A. and Fukuyama, J.: Impact of NO_x reduction on long-term ozone trends in an urban atmosphere, *Sci. Total Environ.*, **379**, 46-55 (2007).
- Keitt, T. H., Bivand, R. S., Pebesma, E. J. and Rowlingson, B.: rgdal: Bindings for the Geospatial Data Abstraction Library, R package version 0.6-28, <http://cran.r-project.org/package=rgdal> (2010).
- Lewin-Koh, N. J., Bivand, R. S., contributions by Pebesma, E. J., Archer, E., Baddeley, A., Bibiko, H., Dray, S., Forrest, D., Friendly, M., Giraudoux, P., Golicher, D., Gomez-Rubio, V., Hausmann, P., Jagger, T., Luque, S. P., MacQueen, D., Niccolai, A., Short, T. and Stabler, B.: mapproj: Tools for reading and handling spatial objects, R package version 0.7-38, <http://cran.r-project.org/package=mapproj> (2010).
- 間瀬茂, 武田純: 空間データモデリング - 空間統計学の応用, 1 版, 共立出版, pp 135, 142 (2001).
- 環境省: 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 (2010).
- 環境省: 光化学大気汚染の概要, 環境省報道発表資料, 環境省 (2006, 2007, 2008, 2009).
- 環境省: 平成 20 年度大気汚染状況報告書, 環境省水・大気環境局 (2009).
- Journel, A. G. and Huijbregts, C. J.: Mining Geostatistics, Academic Press, London (1978).
- Kannari, A., Tonooka, Y., Baba, T., Murano, K.: Development of multiple-species 1 km \times 1 km resolution hourly basis emissions inventory for Japan, *Atmos. Environ.*, **41**, 3428-3439 (2007).
- Pebesma, E.J.: Multivariable geostatistics in S: the gstat package,

- Computers & Geosciences*, **30**, 683-691 (2004).
- Pebesma, E. J. and Bivand, R.S.: Classes and methods for spatial data in R, *R News* 5 (2), <http://cran.r-project.org/doc/Rnews/> (2005).
- Ray, J.D.: Spatial distribution of tropospheric ozone in national parks of California: interpretation of passive sampler data, In Proceedings of the International Symposium on Passive Sampling of Gaseous Air Pollutants in Ecological Effects Research. *TheScientificWorld* **1**, 483-497 (2001).
- R Development Core Team: R: A language and environment for statistical computing, R Foundation for Statistical Computing, Vienna, Austria, <http://www.r-project.org/> (2010).
- Sakamoto, M., Shimadera, H., Seto, F., Kondo, A., Lal, S. K. and Hiraki, T.: A study of the spatial distribution and seasonal variation of the concentration of photochemical oxidants by numerical analysis in Hyogo Prefecture, *J. Japan Soc. Atmos. Environ.*, **45**, 89-95 (2010). [in Japanese]
- Sarkar, D.: *Lattice: Multivariate Data Visualization with R*, Springer, New York (2008).
- Sather, M. E., Varns, J. L., Mulik, J. D., Glen, G., Smith, L. and Stallings, C.: Passive ozone network of Dallas: A modeling opportunity with community involvement 2, *Environ. Sci. Technol.*, **35**, 4426-4435 (2001).
- Take, N., Itano, Y., Yamagami, M. and Ohara, T.: Screening method for outliers in photochemical oxidant monitoring using potential ozone, *J. Japan Soc. Atmos. Environ.*, **45**, 264-270 (2010). [in Japanese]
- Varns, J. L., Mulik, J.D., Sather, M. E., Glen, G., Smith, L. and Stallings, C.: Passive ozone network of Dallas: A modeling opportunity with community involvement. 1, *Environ. Sci. Technol.*, **35**, 845-855 (2001).
- Wackernagel, H 原著, 地球統計学研究委員会訳, 青木謙治監訳: 地球統計学, 1 版, 森北出版, pp 87 (2004).
- Yamamoto, K., Kuwana, J., Mizusawa, Y. and Tohno, S.: Estimation of elemental carbon emission and spatial distribution of atmospheric concentration in Kansai area, *J. Japan Soc. Atmos. Environ.*, **43**, 245-256 (2008). [in Japanese]
- 横浜市環境科学研究所: 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 (2002).

クリギング法による大津市とその周辺部における

オゾン濃度の空間分布推定手法の検討

荒木 真¹, 佐々木 哲也², 上田 里實³, 山本 浩平², 東野 達²

1 大津市保健所 520-8575 滋賀県大津市御陵町 3-1

2 京都大学大学院エネルギー科学研究科 606-8501 京都市左京区吉田本町

3 大津市環境政策課 520-8575 滋賀県大津市御陵町 3-1

近年, 光化学オキシダント汚染の広域化がみられる中で, 簡便かつ実用的に測定局の最適配置を検討する方法が必要とされている. 本研究では, 大津市とその周辺においてオゾンと窒素酸化物について既存の測定局のデータをパッシブサンプラーで補間した上でクリギング法を適用して, オゾンおよびポテンシャルオゾンを対象に濃度の空間分布予測手法を検討し, その予測精度について評価した. パッシブサンプラーによる測定は十分な精度と真度であり, 自動測定機のデータと同等に扱えることが確認出来た. クリギング法による空間分布予測精度は概ね良好で O₃ および PO の空間分布予測に有効な手法であることがわかった. クリギングの過程で得られるレンジは空間代表スケールを表し, 風速との間に正の相関が認められた. ただし, 長距離輸送等により対象領域全体が同一の気塊の影響を受ける場合, あるいはローカルの発生源の影響が大きい場合には, 化学輸送モデルによる解析や排出インベントリを補助変数とする回帰クリギング法を用いた解析が必要であると考えられた.