大気中の二酸化窒素濃度の 統計的予測モデル

広島大学工学部 岩 瀬 晃 盛

広島県環境センター 瀬 戸 信 也

Statistical Forecasting Model of Atmospheric Nitrogen Dioxide Concentration

Kōsei IWASE and Sinya SETO

要 旨

二酸化窒素の総量規制においては、窒素酸化物濃度から二酸化窒素濃度を何らかの手法により推定することが必要になる。従来からよく用いられている統計モデルによる予測値は系統的な残差を生じる傾向がある。本稿では、データの制約条件に基づく統計モデルを提案し、モデルに含まれる母数の最尤推定量を導き出した。そして、このモデルを全国の大気汚染測定局のデータに適用した。その結果、このモデルは一般環境大気測定局と自動車排出ガス測定局が混在した条件のもとでも、誤差分布は概ね正規分布で近似でき、比較的実測値に適合することが分かった。さらに、母数の性質についても検討を加えた。

1. はじめに

大気中の二酸化窒素 (NO_2) は二酸化硫黄や光化学オキシダント等と同様に主要汚染物質のひとつであり、人の健康を保護するために維持することが望ましい基準、即ち環境基準(1時間値の1日平均値が 0.04 ppm [$1/10^6$; 体積濃度] から 0.06 ppm までのゾーン内またはそれ以下であること。)が定められている。地方公共団体は NO_2 による汚染状況を把握するため、大気汚染測定局を設置し NO_2 濃度を常時監視している。得られたデータは環境基準の適否判断、緊急時の措置、等に使用される。大気中の NO_2 のほとんどは人為的発生源に起因しており、これらの発生源は自動車、船舶等の移動発生源と工場、事業所等の固定発生源に大別できる。一般に、大気中の NO_2 濃度はこれらの発生源の排出強度、排出高度等の発生源条件、及び汚染物質の移流、拡散を支配する風向風速、大気安定度等の気象条件に依存している。近年の NO_2 濃度の変動傾向を年平均値で

Key words: Air pollution, Nitrogen oxides, Log normal distribution.

評価すると昭和 54 年度以降は減少傾向にあったものの、62 年度は増加傾向に転じている。また、環境基準との対応状況をみると昭和 62 年度において基準の上限を超える局数は前年度よりも大きく増加している。（平成元年度環境白書（1989））したがって、窒素酸化物による汚染は今日の大気汚染問題のなかでも重要な課題のひとつと言える。

NO_2 の環境基準を確保するため、高濃度汚染地域においては地域全体の窒素酸化物 ($\text{NO}_x(\text{NO}_2+\text{NO})$) の排出総量を規制する総量規制が導入されており、「窒素酸化物総量規制マニュアル」（1982）（以後は「マニュアル」という。）に従って拡散シミュレーションを行うよう定められている。さらに、拡散シミュレーションは環境アセスメント、公害防止計画の策定などにも用いられることが多い。なお、環境モニタリング、環境影響評価に関しては、統計学辞典(1989)に簡潔な解説があるので参照されたい。

発生源から排出される NO_x のほとんどは一酸化窒素 (NO) であり、時間の経過とともに NO から NO_2 へ変換されるので、マニュアルに記載されたシミュレーションモデルの構築の手順は、まず、排出後比較的短時間の範囲内では保存量と考えられる NO_x に関する拡散モデルを決定し、つぎに NO_x 濃度から NO_2 濃度へ換算するモデルを用いて NO_2 濃度を算定する、とされている。したがって、 NO_2 濃度を精度良く算定するには適切な NO_2 換算モデルを採用することが重要となる。

従来から、 NO_2 換算モデルとしては、指数近似モデル（横山，山本，林（1976）），定常近似モデル（木村，椎橋（1988）），などが提案されている。両モデルは NO から NO_2 への反応過程を取り入れているところに特徴があるが、ともにオゾンのバックグラウンド濃度を必要とする。しかし、これを正確に把握することは容易ではない。そのため、従来から NO_2 換算モデルとしては NO_x 濃度から NO_2 濃度を回帰分析により推定する統計モデル（マニュアル p. 176 の統計モデル I，以後は「モデル A」という。）が用いられることが多い。このモデルは母数が容易に推定できるので取り扱いが容易ではあるが、マニュアルに指摘されているように一般環境大気測定局（以後は「一般局」という。）と自動車排出ガス測定局（以後は「自排局」という。）とでは回帰線が異なることが知られている。そのため、拡散シミュレーションにより得られた NO_x 濃度からメッシュ毎の NO_2 濃度を求める場合、一般局と自排局のいずれの回帰線を採用するか判断が困難となるような不都合を生じる。

本稿は、2 節で、 NO_2 , NO_x ともに測定されていることを前提とした NO_2 年平均値換算モデルを提案する。このモデルは NO_2 濃度の制約条件 (NO_2 濃度 $<$ NO_x 濃度) の下で導いた統計モデルであり、一般局と自排局のデータをプールした条件下でも、 NO_x 濃度から NO_2 濃度が精度良く推定できる。3 節では本稿で扱うデータの属性について述べ、4 節で 2 節のモデルを首都圏と関西のデータに適用し、従来の統計モデルと比較する。5 節で、10 都府県のデータをもとにしてモデルに含まれる母数の性質について考察し、6 節で総括をする。なお、他のモデルとの優劣が比較できるように解析に用いた原データを付録に記載する。

2. モデル

大気中の NO_x 濃度を NO_2 濃度に統計的に換算する方法のひとつとして、

$$[\text{NO}_2] = a[\text{NO}_x]^b$$

なる関係を仮定し、回帰分析によりパラメータ a, b を求め、関係式を成立させて使用するものがある。ここで記号 $[\]$ は濃度を表わすものとする。

このモデルでは、 $\log ([\text{NO}_x])$ に対する $\log ([\text{NO}_2])$ の点をプロットすると直線的な関係を持たなければならないが、データからは3節で述べるように直線からはずれる傾向が読み取れる。

NO_x 濃度を X ppb $[1/10^3 \text{ ppm}]$ とし、 NO_2 濃度を Y ppb とすれば、前節で述べたように

$$0 < Y < X < \infty$$

の制約がある。前述のモデルではこの基本的な制約条件を考慮していない。この制約条件を考慮して、我々は $[\text{NO}_x]$ と $[\text{NO}_2]$ との間に

$$\frac{[\text{NO}_x] - [\text{NO}_2]}{[\text{NO}_2]} = a[\text{NO}_x]^b$$

なる関係を仮定する。すなわち、 $X=x$ に対する Y のモデルとして

$$\log \left(\frac{x_i}{Y_i} - 1 \right) = -\beta \log \mu_x + \beta \log x_i + \sigma \log \varepsilon_i, \quad \varepsilon_i \sim \text{i.i.d. LN}(1, 1) \quad (2.1)$$

を採用する。ここで、記号 $\text{LN}(\mu, c^2)$ は

$$\frac{1}{c} \log \frac{Z}{\mu} \sim N(0, 1)$$

であるときに Z の従う対数正規分布を表わす。 μ は Z の母中央値であり単位は Z に等しく、 c は $\log(Z/\mu)$ の (すなわち $\log Z$ の) 母標準偏差であり無名数である。

以後は、(2.2) 式のモデルを「モデル B」という。モデル B は

$$Y_i = \frac{x_i}{1 + (x_i/\mu_x)^\beta \varepsilon_i^\sigma}, \quad \varepsilon_i \sim \text{LN}(1, 1) \quad (2.2)$$

と同等である。したがって、大気中の NO_x 濃度を NO_2 濃度に変換する式のひとつとして

$$[\text{NO}_2] = \frac{[\text{NO}_x]}{1 + a[\text{NO}_x]^b}$$

のようなタイプのものが得られる。(2.2) 式で $\beta > 1$ の場合は、説明変数の値が $\mu_x \{a(\beta-1)\}^{-1/\beta}$ のとき最大値を取り、 X の増大と共にゼロに近づく回帰曲線になる。すなわち、 NO_x 濃度が NO_2 濃度の最大値を与える値を超えて増加し続けると、 NO_2 濃度と比較して相対的に NO 濃度の割合が増加していく関係を示す。これは、自動車等の排気管にきわめて接近した位置で NO_x 濃度を測定した場合、濃度は大変高く、しかも酸化率が小さいのでその大部分は NO で占められることに相当する。反対に、 NO_x 濃度が NO_2 濃度の最大値を与える値よりも低い濃度領域では NO_2 濃度は $\beta \leq 1$ の場合よりも相対的に低くなる。 $\beta = 1$ の場合は従属変数の値が μ_x に単調に近づく単調増加関数の回帰直線になる。本稿で考察するデータのほとんどの場合は $0 < \beta < 1$ であり、単調に増加する回帰曲線を考えていることになる。 β の値と回帰曲線の概形との関係を知るために図1を示す。(2.1) 式での μ_x は尺度を認識するためのパラメータであり、 β は回帰曲線の全体的振舞いを認識するための無名数パラメータである。したがって、 NO_2 濃度の値そのものを論ずるときは μ_x が重要であるし (すなわち、 NO_2 濃度および NO_x 濃度を表現する単位を決定するのは μ_x である。)、一方、 NO_x 濃度に対する NO_2 濃度の相対的な関係に注目する場合には β が重要と考

図 1. モデル (2.2) の関数 $y = \frac{x}{1+k(x/\mu)^\beta}$ の形状:

- $0 < \beta < 1$ (原点で傾き=1, 単調増大),
- $\beta = 1$ (原点で傾き=1, $x \rightarrow \infty$ で $y = \mu/k$),
- $\beta = 0$ (傾き=1/(1+k)),
- $\beta < 0$ (原点で傾き=0, $x \rightarrow \infty$ で傾き=1),
- $\beta > 1$ (原点で傾き=1, $x = \mu(k(\beta-1))$ で極大値, $x \rightarrow \infty$ で $y=0$)

なお, $x = \mu$ のとき β に無関係に $y = \mu/(1+k)$ を通る.

えられる.

ここで, $\sigma \log \varepsilon_i \sim N(0, \sigma^2)$ であるから, (2.1) 式より β, μ_x および σ^2 の最尤推定量は次のように与えられる.

$$\hat{\beta} = \frac{\sum_{i=1}^n \left(\log x_i - \frac{1}{n} \sum_{j=1}^n \log x_j \right) \left\{ \log \left(\frac{x_i}{Y_i} - 1 \right) - \frac{1}{n} \sum_{j=1}^n \log \left(\frac{x_j}{Y_j} - 1 \right) \right\}}{\sum_{i=1}^n \left(\log x_i - \frac{1}{n} \sum_{j=1}^n \log x_j \right)^2},$$

$$\hat{\mu}_x = \exp \left((1/\hat{\beta}) \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n \left\{ \hat{\beta} \log x_i - \log \left(\frac{x_i}{Y_i} - 1 \right) \right\} \right),$$

$$\hat{\sigma}^2 = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n \left\{ \hat{\beta} \log x_i - \log \left(\frac{x_i}{Y_i} - 1 \right) \right\}^2 - \left(\frac{1}{n} \sum_{j=1}^n \left\{ \hat{\beta} \log x_j - \log \left(\frac{x_j}{Y_j} - 1 \right) \right\} \right)^2.$$

3. データ

大気汚染測定局のうち, 一般局は大気汚染の一般的状況を把握するため全国に設置されており, 中でも市街地やその周辺地域, 大発生源の近辺に多い. 一方, 自排局は道路周辺における大気汚染を把握するため道路近傍に設置されている. これらの測定局はわが国の経済の発展による大気汚染の深刻化あるいは汚染現象の広域化に伴い数が増加し, 例えば昭和 62 年度の全国の NO_2 測定局数を集計すると, 一般局が 1345 (昭和 62 年度一般環境大気測定局測定結果報告 (1988)), 自排局が 301 (昭和 62 年度自動車排出ガス測定局測定結果報告 (1988)) である. 本報では, 1) 一般

局——有効測定局（1年間の測定時間数が6000時間以上の測定局）数が30以上、2）自排局——有効測定局数が8以上、の2つの条件を共に満たす10都府県（埼玉、東京、神奈川、千葉、愛知、大阪、兵庫、岡山、広島、福岡）のデータを解析の対象とした。

NO_2 、 NO 濃度の測定法は JIS によりザルツマン試薬を用いる吸光光度法と規定されており、大気汚染測定局では、この測定原理に基づく自動測定機を用いて NO_2 、 NO 濃度が同時に測定されている。両汚染物質濃度は1時間毎に得られており、 NO_x 濃度は両汚染物質濃度の和として求められる。2節の回帰モデルに適用したデータは NO_x 、 NO_2 濃度ともに、年平均値（1時間値の年間算術平均値）である。

なお、これらのデータをモデル化するに当たってはデータの精度が問題となる。 NO_x 濃度は有効数字1～3の範囲、 NO_2 濃度は有効数字1～2の範囲、にあり、低濃度域では、計算時の誤差が増大することが予想される。例えば、広島において付録の原データ（年平均値）のもとになる月平均値までさかのぼり改めて年平均値を算出し、有効数字1桁のデータを2桁にしてモデル B を適用した結果バラツキが小さくなることが確認できた。したがって、以後の解析では NO_2 濃度の有効数字が2桁以上のデータのみを取り扱う。実際、 NO_2 の高濃度汚染が問題となることを考慮すれば、低濃度域を解析の対象から除くことはさほどの障害にはならないと考えられる。

4. モデルの適用結果

対象地域の NO_x 、 NO_2 濃度の集合を母集団と考えた場合、データは母集団からの標本とみなし得る。ここで、我々が知り得るデータは測定局が位置している地点の濃度のみであり、これらの測定局は予めなんらかの基準にしたがって配置されていることを考慮するならば、個々の標本は母集団からのランダムサンプルとは考え難い。したがって、(2.1)式の説明変数は特定の確率分布に従う確率変数としてではなく確定された変数として取り扱うことが妥当であろう。本節では、首都圏（東京、神奈川、千葉）と関西（大阪、兵庫）に位置する一般局および自排局のデータに2節のモデルを適用した結果について述べる。

まず、首都圏を対象として、一般局、自排局を個別にモデル化した結果について述べる。 NO_x 、 NO_2 濃度の実測値と両モデルによる予測値を同時に示したのが図2,3である。実線はモデル B を表し、同時にデータの両側95%区間（ただし、推定値を代入しているので厳密な意味での両側95%区間ではない。）を破線で表している。さらに、モデル A による予測値を点線で示す。また、図中の直線は NO_2 濃度の上限直線である。データの存在領域を比較すると、 NO_x 濃度は一般局

図2. 一般局を対象とした場合のモデルの適用結果
実線：モデル B，点線：モデル A

図3. 自排局を対象とした場合のモデルの適用結果
実線：モデル B，点線：モデル A

の場合、1 例を除いて 100 ppb 以下であるが、自排局の場合は 33~261 ppb の広範囲に分布している。一般局と自排局間のモデル B の形状を比較すると、自排局の高濃度域では回帰線の NO_2 増加率が極めて緩やかとなる、といった特徴がある。この現象は自排局では未酸化の NO が多く存在することに起因している。一般局、自排局ともに、データの存在領域内では両モデルによる予

図 4. $\log(\text{NO}_x)$ と $\log((\text{NO}_x - \text{NO}_2)/\text{NO}_2)$ の散布図

測値の差異は小さい。

つぎに、一般局と自排局をブールした場合のモデル化を行う。図4は首都圏と関西を対象にした、(2.1)式の両辺にある、 $\log([NO_x])$ と $\log([NO_x] - [NO_2])/[NO_2])$ との散布図であり、個々の点は1つの測定局に対応している。なお、関西では回帰直線からかなりはずれている測定局がひとつあるが原因が不明なので除去しないことにした。図中の直線は最小自乗法による回帰直線

図5. $\log(NO_x)$ と $\log(NO_2)$ の散布図

である。首都圏、関西ともに低濃度域でややバラツキが大となる傾向（前節で述べたようにこの傾向は NO_x 濃度が低下するに伴いデータの精度が低下すること起因している。より精度の高い推定を試みようとするならば、有効数字が3桁程度必要であろう。）はあるものの両変数は概ね直線で近似できることが読み取れる。これに対し、モデルAの妥当性を調べるため、 $\log([\text{NO}_x])$ と $\log([\text{NO}_2])$ との散布図を図5に示す。図中の直線は図4と同様な回帰直線である。プロットされたデータは明らかに首都圏、関西ともに上に凸であり回帰直線からの系統的なズレを生じており、このモデルは予測値を高濃度域と低濃度域においては過大に、中濃度域においては過小に見積ることになる。

一般局と自排局をプールして NO_2 濃度を予測した結果を図6に示す。図中の記号の意味は図2と同様である。首都圏では、 NO_x 濃度が概ね120 ppb以下では両モデル間の NO_2 濃度の予測値の差異はわずかであるがこの値を超えると両者の差はしだいに大きくなり例えば250 ppbでモデルAの予測値が約5 ppb高い。一方、関西では、 NO_x 濃度が概ね120 ppb以下ではモデルBの予測値の方が相対的に高いが、濃度がより高くなると逆の現象が生じる。 NO_x 濃度が200 ppb以上の高濃度域における両モデル間の差異を地域別にみると関西の方がやや大きい。モデルAによる NO_2 濃度の予測値が NO_x 濃度の高濃度域では顕著な正の残差を持つ現象は、既に述べたように図5の散布図の形状に起因している。なお、モデルBの両側95%区間内に含まれるデータの全データに対する比率は、首都圏で97.0%、関西で96.2%であり、ともに理論値よりもやや大であるがほぼ妥当な値であろう。また、(2.1)式の残差分布をより詳しく調べるため正規確率紙にプロットしたのが図7である。残差は、両地域ともに0の点が累積確率50%の近傍にあり正規分布で概ね近似できることがわかる。以上の結果から、一般局と自排局をプールした条件のもとではモデルBがモデルAよりも優れていると言える。

一般に、総量規制シミュレーションは高濃度地点が環境基準を満足するよう汚染物質の排出総量を削減するものである。高濃度領域における数 ppb の濃度差が汚染物質削減計画に大きく影響

図6. 一般局と自排局をプールした場合のモデルの適用結果（上図：首都圏，下図：関西）
実線：モデルB，点線：モデルA

図 7. $\log \left[\frac{(\text{NO}_x/\text{NO}_2-1)}{(\text{NO}_x/\mu_x)^\beta} \right]$ の累積確率

すると考えられるので、とりわけ高濃度地点の NO_2 濃度を正確に予測することが望まれる。図 6 の高濃度領域における両モデル間の NO_2 濃度の予測値の差異は汚染物質排出量の削減計画にある程度の影響を及ぼすものと思われる。メッシュ毎の NO_2 濃度の推定に当たっては、モデル B の残差 (S^2) に注目すれば一般局と自排局を個別にモデル化した方がより小さいので、第一義的にはこの方法を採用すべきであろう。その際、モデル A、B のいずれを用いても予測値に顕著な差異は認められない。しかし、都市域では、通常、移動発生源と固定発生源（主としてビル暖房用ボイラーなどの面源）とが混在しているので任意のメッシュにおいていずれの発生源の影響が支配的であるかの判断が困難になる事態が想定される。また、実際の測定局の配置状況を見ると、一

一般局に区分されていても自動車排ガスの影響が著しい測定局、あるいは自排局に区分されていても交通量が極端に少ない、道路からの距離が長いなどのため自動車排ガスの影響が相対的に小さい測定局もみうけられる。したがって、このような条件のもとでは、一般局と自排局とをプールした後にモデルBを適用するのが合理的と考える。なお、高濃度域ではモデルBがモデルAよりもNO₂濃度を低く見積る結果となったが、我々はデータに適合するモデルを作成する以外の動機は何ら持っていないことを付記しておく。

池田、平岡(1980)は本稿と同様、年平均値を対象として、NO_x濃度からNO₂濃度を予測する指数関数近似式を提案している。彼らのモデルと本稿の図2, 3を比較すると、両モデルの形状は良く似ていることがわかる。取り扱ったデータが異なるので両者の優劣を直接比較することはできないが、もし、適合度に顕著な違いがないものと仮定すれば、一般局と自排局のデータが1本の回帰曲線で表現することができ、しかも母数が容易に推定できるモデルBの方が取り扱い易いと考えられる

5. モデルに含まれる母数の性質

一般に、確率的に変動する現象をモデル化するに際しては、モデルに含まれる母数の実質的意味に関する考察を行うことは、現象を的確に理解し予測結果に基づいて行動するうえで重要となる。本節ではモデルBを個々の都府県のデータに適用し、母数の解釈を試みる。図は省略するがモデルの適合度を誤差分布により調べた結果、各都府県ともに図5と同様に正規分布で概ね近似できた。

まず、 β と尺度を記述する濃度データの“中心”を示す指標のひとつである幾何平均との散布図を図8に示す。幾何平均は

$$\bar{x}_G = \exp\left(\frac{1}{n} \sum_{i=1}^n \log x_i\right)$$

から求めた。ここで、 $\bar{x}_G$ はNO_x濃度の幾何平均、 x_i は*i*局のNO_x濃度、*n*はデータの大きさである。NO_x濃度の幾何平均を尺度にすれば、60 ppb を境として一般局と自排局に区分できることが特徴的である。 β はほとんどの県で0.6~0.9の範囲内にあるが、埼玉、福岡、兵庫では0.5未満となっている。なお、愛知の自排局の β は例外的に1を超えているが、データの範囲内ではNO₂濃度は単調に増加している。愛知の自排局の β が他県と顕著に異なる原因のひとつとして試料採取口位置が関係していると考えられる。すなわち、他県の自排局では試料採取口位置は道路端から数m以内の場合が多いが愛知では道路からの距離が長く、例えば14局中の9局が10m以上である。また、一般局、自排局ともにNO_x濃度の幾何平均と $\hat{\beta}$ との間にはほとんど相関関係が認められないことが読み取れ、このことから β は平均的挙動を表す母数とは無関係であることが推測される。実際、 β は単位に依存しない母数であり、測定局の位置を固定した条件のもとで発生源から排出される汚染物質質量を一律に削減しても変化しない、という性質を持っている。このことは、例えば、東京、大阪の汚染物質排出量を一律に減少させて自排局の $\bar{x}_G$ を広島、愛知の一般局と同レベルにしても β は変化せず、NO_x濃度とNO₂濃度との相対的な関係は変わらない、ということを意味している。

つぎに、 μ_x と β の散布図を図9に示す。一般局においては両母数間に負の直線的な関係が認め

図 8. NO_x 濃度の幾何平均と β の散布図

図 9. μ_x と β の散布図

られるものの、自排局では正のより強い比例関係が認められる。このことから、自排局の NO_x から NO₂ への換算モデルは本質的に 1 個の母数のみで表現できる可能性が示唆される。これは自排局の汚染構造が一般局のそれと比べて比較的単純であることに由来するものと考えられる。一般局では工場などの大煙源、市街地の群小煙源など多種多様な発生源の影響が重合しており、さらに設置条件も測定局毎に異なる場合が多いのに対し、自排局は道路の近傍に設置されており自動車の排出ガスの影響が支配的であるため、このような現象が起きるのであろう。

最後に、NO_x 濃度の幾何平均と μ_x の散布図を図 10 に示す。自排局についてみると、広島、埼玉は東京、大阪、神奈川などと比べて NO_x 濃度の幾何平均では区別できないが、 μ_x が相対的に小さい。これは、 μ_x が NO_x 濃度のバラツキを表す母数であることを考慮すれば広島、埼玉の自排局が同程度の汚染場所に配置されていることを示していると思われる。実際、広島、埼玉の自排局の大半は幹線道路から数 m 以内に配置されている。つぎに、一般局については 2 つのグルー

図 10. NO_x 濃度の幾何平均と μ_x の散布図

プに区分できる。福岡、兵庫は東京、神奈川、大阪のグループに属しており、両県の一般局の配置は大都市と同程度のバラツキを持つことがわかる。一方、岡山、愛知、埼玉、広島、千葉の一般局は大都市を含むグループと比べて NO_x 濃度のバラツキが相対的に小さい。例えば、広島では大発生源が瀬戸内沿岸域に集中しているため、ほとんどの一般局はこの地域に配置されていることが μ_x を小さくさせた要因と考えられる。以上の結果から、 μ_x は測定局の配置のされかたを結果として反映する母数といえる。

6. ま と め

大気中における NO_x 濃度から NO_2 濃度を予測する統計モデルを提案し、モデルに含まれる母数の最尤推定量を求めた。このモデルを実測データに適用して、その有効性を検討した。その結果、このモデルは一般局および自排局のデータに比較的良く適合し、またこれらの測定局が混在する場合にも適用できることが分かった。さらに、モデルに含まれる2個の母数の解釈を試み、ひとつは NO_x 濃度と NO_2 濃度との相対的な関係を表しており、他のひとつは測定局の配置のされかたを反映していると推測した。

謝 辞

不備な点を指摘し、適切な助言をいただいた査読者の方々に深く感謝いたします。

参 考 文 献

- 池田有光, 平岡正勝(1980): 大気中の二酸化窒素の汚染濃度予測モデル (II) —経験公式—, 大気汚染学会誌 **15**, 35-40.
- 環境庁大気保全局自動車公害課編 (1988): 昭和 62 年度自動車排出ガス測定局測定結果報告, 266-285.
- 環境庁大気保全局大気規制課編 (1988): 昭和 62 年度一般環境大気測定局測定結果報告, 184-263.
- 環境庁大気保全局大気規制課編 (1982): 窒素酸化物総量規制マニュアル, 302 pp.
- 環境庁編 (1989): 平成元年版環境白書, 2-4, 大蔵省印刷局.
- 木村富士男, 椎橋正幸: 定常近似法による NO , NO_2 の反応拡散モデルの長期平均濃度への適用, 大気汚染学会誌 **23**, 41-51.
- 竹内 啓, 他編 (1989): 統計学辞典, 655-661, 東洋経済新報社.
- 横山長之, 山元 晋, 林 正康 (1976): 大気中の NO 酸化速度について, 産業公害 **12**, 867-872.

付録 首都圏の NO_x, NO₂ 濃度 (年平均値)

標本 番号	NO _x (ppb)	NO ₂ (ppb)	標本 番号	NO _x (ppb)	NO ₂ (ppb)	標本 番号	NO _x (ppb)	NO ₂ (ppb)	標本 番号	NO _x (ppb)	NO ₂ (ppb)
1	46	21	71	32	17	141	47	28	211*	94	40
2	41	21	72	25	15	142	62	30	212*	69	34
3	66	27	73	27	18	143	53	30	213*	128	40
4	40	19	74	20	12	144	70	30	214*	93	41
5	49	21	75	34	21	145	37	24	215*	92	41
6	30	16	76	18	11	146	80	38	216*	151	50
7	25	14	77	18	11	147	50	29	217*	225	52
8	24	14	78	23	16	148	49	30	218*	145	48
9	30	16	79	26	18	149	57	30	219*	73	36
10	22	13	80	19	13	150	55	30	220*	240	59
11	45	25	81	19	12	151	59	32	221*	165	51
12	42	21	82	14	10	152	66	36	222*	142	46
13	45	23	83	30	20	153	66	36	223*	153	48
14	32	17	84	56	29	154	68	36	224*	69	32
15	41	21	85	31	16	155	70	34	225*	114	41
16	45	23	86	28	15	156	67	32	226*	84	34
17	51	24	87	14	10	157	67	32	227*	95	42
18	44	21	88	20	14	158	61	30	228*	179	52
19	47	21	89	19	13	159	63	30	229*	261	59
20	17	10	90	22	15	160	38	24	230*	171	51
21	41	21	91	18	12	161	40	23	231*	111	40
22	17	11	92	19	13	162	49	26	232*	92	37
23	39	21	93	16	11	163	30	19	233*	76	30
24	49	25	94	18	11	164	36	20	234*	42	25
25	49	26	95	17	11	165	42	23	235*	61	28
26	58	30	96	23	15	166	51	26	236*	52	23
27	32	19	97	115	47	167	38	25	237*	102	38
28	49	25	98	73	37	168	48	27	238*	67	30
29	54	24	99	67	35	169	29	19	239*	116	33
30	45	23	100	61	33	170	45	27	240*	158	40
31	43	23	101	70	34	171	34	21	241*	85	30
32	30	19	102	66	35	172	39	23	242*	112	44
33	31	17	103	57	29	173	40	21	243*	215	52
34	45	25	104	66	32	174	44	24	244*	184	52
35	43	24	105	78	37	175	27	19	245*	168	45
36	53	24	106	62	32	176	62	27	246*	116	40
37	31	19	107	67	35	177	52	29	247*	81	34
38	19	13	108	59	31	178	69	33	248*	152	38
39	24	16	109	54	27	179	53	25	249*	106	33
40	19	12	110	67	37	180	43	26	250*	87	41
41	22	14	111	76	36	181	18	13	251*	126	49
42	44	24	112	57	29	182	24	16	252*	197	54
43	40	22	113	53	27	183	30	17	253*	104	37
44	43	24	114	60	30	184*	110	36	254*	90	38

大気中の二酸化窒素濃度の統計的予測モデル

標本 番号	NO _x (ppb)	NO ₂ (ppb)	標本 番号	NO _x (ppb)	NO ₂ (ppb)	標本 番号	NO _x (ppb)	NO ₂ (ppb)	標本 番号	NO _x (ppb)	NO ₂ (ppb)
45	41	21	115	56	30	185*	80	28	255*	152	43
46	23	15	116	63	29	186*	96	36	256*	123	41
47	31	16	117	67	31	187*	66	27	257*	98	38
48	20	12	118	54	24	188*	71	29	258*	60	27
49	20	12	119	54	26	189*	62	29	259*	80	34
50	22	12	120	23	16	190*	86	30	260*	48	25
51	35	19	121	52	28	191*	77	32	261*	102	40
52	40	23	122	51	26	192*	93	37	262*	61	27
53	55	28	123	29	19	193*	85	31	263*	98	36
54	63	28	124	67	32	194*	83	37	264*	71	33
55	36	19	125	56	26	195*	82	37	265*	86	33
56	32	18	126	42	26	196*	46	22	266*	132	41
57	33	19	127	48	26	197*	224	48	267*	33	21
58	29	17	128	43	24	198*	67	31	268*	145	40
59	22	14	129	48	27	199*	115	38	269*	81	35
60	27	15	130	39	23	200*	58	25			
61	23	14	131	59	28	201*	53	25			
62	21	14	132	39	22	202*	44	20			
63	17	10	133	43	25	203*	142	52			
64	15	10	134	40	24	204*	77	34			
65	38	23	135	80	40	205*	225	51			
66	25	16	136	73	39	206*	75	36			
67	43	21	137	84	38	207*	137	46			
68	31	17	138	79	37	208*	76	35			
69	29	15	139	80	40	209*	75	31			
70	23	14	140	53	31	210*	79	40			

*：自排局

東京：97-134, 203-241, 千葉：1-96, 184-202, 神奈川：135-183, 242-269（標本番号）

（1990年4月10日受付 8月21日最終修正）

著者連絡先：〒754 東広島市西条町大字下見広島大学工学部