

2.6. シミュレーションモデル

2.6.1. モデルの概要

エアロゾルの発生源別寄与濃度や対策効果の評価、将来予測などを行うシミュレーションモデル（化学物質輸送モデル、拡散モデル）についてレビューする。前項 2.5 のレセプターモデルが測定地点（レセプター）での測定結果から発生源寄与を推計するモデルであるのに対し、シミュレーションモデルは、発生源からの汚染物質の輸送と変質をシミュレートしてレセプターでの汚染濃度を推計するモデルである。

各種発生源から排出されたガスやエアロゾルは、風下方向に移流しながら風の乱れによって水平および鉛直方向に拡散する。多くのガスやエアロゾルは大気中において物理的・化学的に変質し、新たなエアロゾルを生成したり他のエアロゾルに変化したりする。最終的にエアロゾルは、雲や降水に取り込まれたり（湿性沈着）、風の乱れ等によって地表面に運ばれたり（乾性沈着）、重力沈降によって大気中から除去される。このように、エアロゾルのライフサイクルは、発生（排出）、移流・拡散、生成・変質、除去の四つのプロセスからなり、エアロゾルのモデリングにおいてはこれらの各プロセスをモデル化することになる。エアロゾルの時空間変化は、発生項、移流・拡散項、生成・変質項、除去項からなる微分方程式で表現され、このモデル式を解くことによって大気中のエアロゾル濃度を計算することができる。

2.6.1.1. 解析型モデルと数値型モデル

シミュレーションモデルは大きく2種類に分類できる。その一つは様々な仮定を設定して解析解が得られるところまで簡略化する解析型モデルである。もう一つは、計算機を使って微分方程式を数値的に計算することによって大気汚染濃度を計算するもので数値型モデルと呼ばれる。

解析型モデルは定常モデルであり、その簡略性のため主として行政目的に使用される頻度が高く、代表例としてはプルームモデルやパフモデルがある。解析型モデルは現象を単純化する様々な仮定のもとで成立するモデルで、複雑な現象（複雑な気流場での現象、非定常現象、複雑な反応・沈着過程を伴う現象等）に対しては基本的に適用できない。また、解析型モデルでは、エアロゾルの粒径分布を考慮せずに単一粒径として取り扱い、また、エアロゾルの生成・成長過程などを無視するのが一般的である。

一方、数値型モデルは非定常モデルで、地表面に固定された座標系に基づくオイラー型モデルと大気の流れと共に動く座標系に基づくラグランジュ型モデルに大別される。オイラー型モデルにはボックスモデル(0次元モデルや1次元モデル)やグリッドモデル(1～3次元モデル)、ラグランジュ型モデルにはトラジェクトリモデル(流跡線上の濃度変化を計算するモデル)などが含まれる。実大気において発生源別寄与率を計算する場合には3次元オイラー型モデル(グリッドモデル)が使用されることが多い。3次元オイラー型モデルは計算領域を多数のグリッド(格子)によって分割し、地表面に固定した座標系に基づく基礎方程式を数値的に積分計算するもので、汚染濃度分布の時空間変化を計算するのに適している。一般的に、3次元オイラー型モデルは計算量が多大となるために高濃度事例のような短期間のシミュレーションに使用されることが多かったが、最近では計算機性能や計算アルゴリズムの進歩によって年間シミュレーションのような長期間計算も行われ

ている。3次元オイラー型モデルは、多くの発生源から排出された多成分の汚染物質が化学反応により相互影響し合う場合や気流構造が複雑な場合にも適用できる。また、一般的に、エアロゾルについては、その粒径分布や生成・成長過程が考慮される。

2.6.1.2. エアロゾルモデル

エアロゾルモデルは、核生成やエアロゾルの凝縮／蒸発、凝集などの諸過程を計算するモデルであり、一般的に、粒径の取り扱いにより modal model と sectional model に区分される。modal model は、対数正規分布などの粒径分布を仮定し、核生成モード、蓄積モード、粗大粒子モードのように区分して、各モード毎の濃度を計算するモデルである。このモデルを使って PM_{2.5} を計算する場合には、蓄積モードが最も重要になる。一方、sectional model は、粒径を複数の粒径幅を分割して各粒径幅の濃度を計算するモデルであり、核生成やエアロゾルの成長・収縮を計算する場合に有効であるが、計算量は modal model よりも増加する。欧米で開発された主なエアロゾルモデルを表 2.6.1 に示す(Holmes & Morawska(2006))。

無機エアロゾルの気相とエアロゾル相の分配を記述する熱力学モデルには平衡モデルと非平衡モデルがあるが、一般的に3次元オイラー型モデルで使用する場合には、計算負荷の小さい熱力学平衡モデル(例えば、ISSOROPIA (Nenes et al.(1998)) が使用され、NO₃⁻, SO₄²⁻, Cl⁻, NH₄⁺, Na⁺のような無機エアロゾル濃度が計算される。NO₃⁻の場合、HNO₃ガスが海塩エアロゾルと反応して NaNO₃ エアロゾルを生成することにより粗大粒子の割合が増加し、地表面に沈着しやすくなるが、このプロセスを無視しているモデルが多い。

表 2.6.1 エアロゾルモデルの例 (Holmes & Morawska(2006))

開発者名称	拡散モデル	核生成 ^a	凝集	凝縮 / 蒸発	沈着 ^b	粒径手法	粒子組成
UHMA Univeresity of Helsinki		B+T	Y	Y	D:Y W:X	ハイリット法/ 移動中心法/ 修正移動中心法 0.7nm-2µm	H ₂ SO ₄ , 無機物, 有機物
MONO32	OSPM に組み 込み	B+T	Y	Y	D:Y W:X	4 粒径モード 単分散 7-450nm	なし
AERO	UAM-IV に組 み込み	Y		Y	D:Y W:X	0.01-10µm	無機物・有機 物・元素状炭素。 内部混合
GATOR	オイラー型	B	Y	Y	D:Y W:X	粒径移動または 粒径固定	なし
MADRID	CMAQ に組み 込み	SOA,B		Y	D:Y W:X	複数区間分割	
AEROFOR	ボックス型	B,T	Y	Y	D:Y W:Y	200 群	内部混合または 外部混合 (各粒 径群内で変化) 内部混合
URM	オイラー型	B	X	Y	D:Y W:Y	4 群<10µm	
RPM	RADMII に組 み込み	B	Y	Y	D:Y W:Y	0.01-0.07µm	硫酸アンモニウ ム、硝酸アンモ ニウム
CIT Californian Institute of Technology		B	X	Y	D:Y W:X	0.5-10µm	有機物、無機物

Y=含まれているプロセス, X=含まれていないプロセス

a 核形成:B=2 成分系, T=3 成分系, SOA=二次有機エアロゾル形成(secondary organic aerosol formation)

b 沈着:D=乾性沈着, W=湿性沈着

二次有機エアロゾル(SOA)の生成モデルは、empirical model (経験的モデル) と mechanism model (詳細反応過程モデル) に大別される。ここで empirical model とは、室内実験の結果を用いて、SOA の前駆気体である VOC の酸化反応で直接的にエアロゾルの生成量を経験的に計算するモデルである(例えば、Odum et al.(1996)、Schell et al.(2001))。従って、このモデルは大気中で生成される中間生成物(半揮発性有機化合物 SVOC など)を考慮せず、酸化する VOC と最終生成物としての仮想的な SOA のみが考慮される。従って、SOA の生成量は基本的に VOC とラジカルの量によって決まるが、その生成効率は温度やエアロゾル量によって変化する。一方、mechanism model は、室内実験で得られた生成効率そのものは使わずに、VOC の酸化生成物に続いて起こる化学反応をできるだけ正確に再現し、エアロゾルを生成しうる蒸気圧の低い酸化物の生成量を算出するモデルである。Mechanism model は empirical model とは異なり、反応で生成される SVOC を考慮し、大気中に実際に存在する成分に対応する形でエアロゾル濃度が計算される。但し、実際に 3次元オイラー型モデルで使う場合には、類似の反応性や反応過程を持つ物質をグルーピングすることによって簡略化したモデルが使用される(例えば、Griffin et al.(2002)、Zhang et al.(2004))。

2.6.1.3. 気象・反応・沈着モデル

気象モデルは、モデルに必要な各種の気象データを計算するモデルである。移流・拡散計算用の風速と拡散係数、乾性沈着計算用の接地気層パラメータ、湿性沈着計算用の降水・雲データ、化学反応計算用の気圧と気温などが気象モデルによって算出される。気象モデルには、①風速・風向・降水量等の気象観測データや客観解析データ(不規則に分布している観測データを規則正しい格子点に内挿したデータ)を使用するモデル、②気象の物理過程を数値的に計算する地域気象モデルがある。②は①に比べて多くの計算量を要するが、大気汚染物質のシミュレーションに必要な各種の気象要素を 3次元高密度データとして計算することができるため、3次元オイラー型モデル用の気象モデルとして利用される。

化学反応モデルは化学反応過程をモデル化し、化学変化による物質濃度の時間変化を計算する。化学反応としては気相反応と液相反応が考慮される。化学反応モデルには、①擬 1 次反応を仮定し一定の変換率を設定する簡略型モデル、②反応系を複数の反応式でモデル化し、物質濃度の時間変化を表す連立常微分方程式系を数値積分する詳細型モデルがある。①の代表例には、簡略的なモデルで使われる $\text{SO}_2 \rightarrow \text{SO}_4$ 反応(変換速度定数 1%/h 程度)がある。②に関しても多数の反応モデルが提案されており、精緻な 3次元オイラー型モデルに使われる気相反応モデルは、反応式 50~150 本、反応種 30~60 成分程度で構成される。

沈着モデルは、ガスとエアロゾルの乾性沈着・湿性沈着による大気中からの除去量を計算するモデルである。ガスとエアロゾルは地表面への乾性沈着により大気から除去される。この乾性沈着フラックスは沈着速度と標準高さの物質濃度の積によって表され、沈着速度は、大気と地表面との間の輸送抵抗を設定し、この抵抗値をモデル式から計算することによって与える。また、エアロゾルの乾性沈着には重力沈着が考慮される。一方、降水がある場合には大気中の物質は雲粒や雨滴に取り込まれ、液相で反応して、雨や雪と共に地表に落下(湿性沈着)する。湿性沈着モデルには、①沈着効果を物質濃度の時間減衰式とし

て表現する簡略モデル（減衰係数は洗浄係数と呼ばれ、降水強度やガスの性質、粒径等によって変化する）と、②物質が液相に取り込まれ、雲水や雨水と一緒に輸送される過程で化学変化し、最終的には地上に落下する一連の物理・化学過程をモデル化した詳細モデルに大別される。

2.6.1.4. 排出モデル

排出インベントリ（2.2. 参照）における排出量データをモデルで使用するためには、時間・空間・組成分解する必要がある。時間分解する場合には、季節変動、週内変動、日内変動を考慮する。また、インベントリデータを空間分解して、モデルメッシュ（水平・鉛直）に割り付ける必要がある。更に、PM と VOC はモデル成分に組成分解する必要がある。我が国の代表的な排出インベントリ EAGRID2000(Kannari et al.(2007))では、季節・週内・日内の時間変動が考慮され、水平メッシュも3次メッシュ（約1kmメッシュ）と精緻であるため、モデルの入力データとして使いやすい。また、環境省の大気汚染物質質量排出総合調査データを使うことにより、大規模発生源の鉛直分解も可能である。しかし、粒子状物質の粒径別化学成分と VOC 成分については、自動車以外の発生源データに関するデータが少ないため、組成分解を如何に行うかが課題となっている。

2.6.2. モデルの事例

2.6.2.1. 国内の事例

国内でエアロゾルを対象としたシミュレーションモデルは、行政調査用には解析型モデルが、研究用には数値型モデルが使用されることが多い。このうち、PM_{2.5}を対象とした調査・研究事例は、特に解析型モデルにおいて少ないため、ここではSPMを対象とした事例も含めて取り上げる。

解析型モデルは、環境省や東京都などの地方自治体における調査において頻繁に使用されてきた。とりわけ、浮遊粒子状物質汚染予測マニュアル（環境庁大気保全局大気規制課監修(1997)）は、数値型モデルについても触れてはいるが、解析型モデルを推奨する形で多くのスペースを使って紹介している。最近の環境省調査においても、このマニュアルに準拠する形で解析型モデルを使用して、関東地域や関西地域におけるSPM年平均濃度を計算し、発生源別寄与濃度の推計や将来予測を行なっている（株式会社数理計画(2003)、株式会社数理計画(2006)）。また、東京都においても類似の解析型モデルを使用して、都内を対象とした同様な解析を実施している（財団法人計量計画研究所(2002)）。なお、財団法人計量計画研究所(2002)の解析モデルでは、2次エアロゾル生成モデルの再構築と成分濃度に対する実測データによる再現性の検証がなされ、解析型モデルが改良されている。

これらの解析型モデルは、以下のような特徴がある。

- ①SPM年平均濃度の再現性が高い。
- ②数値型のモデルと比較して単純なモデルのため、少ない情報により環境濃度を推計でき、計算も容易であるが、エアロゾルの変質や粒径分布を考慮していない、領域外からの流入はバックグラウンドとして成分別の一定値を与える、単純な拡散場・輸送場を仮定している、などの課題もある。
- ③二次エアロゾル生成モデルでは、前駆物質質量とエアロゾル生成量の間には比例関係（擬一

次反応)を仮定した解析モデルもしくは統計モデルを使用しており、硝酸・硝酸塩や SOA の生成反応など複雑で非線形な過程を考慮していない。

一方、数値型モデルを使用したシミュレーションとしては、兼保直樹 et al.(2002)、Ohara et al.(2003)、財団法人石油産業活性化センターJCAP 推進部(2005)、大原利眞、望月江里佳(2006)、速水洋(2007)などがあげられ、いずれも 3次元オイラー型モデルが使用されている。兼保直樹 et al.(2002)は、光化学反応モデルをベースにエアロゾル化過程を加えた、3次元オイラー型モデルを開発し、関東地域・冬季の短期高濃度期間を対象としたシミュレーション計算を行った。この研究は、我が国において3次元オイラー型モデルを使用してエアロゾルの動態を解析した先駆的研究である。Ohara et al.(2003)、大原利眞、望月江里佳(2006)、速水洋(2007)はいずれも、米国環境保護庁(US EPA)で開発された3次元オイラー型モデル CMAQ (Community Multiscale Air Quality modeling system; Byun & Ching(1999)) を利用し、関東地域を対象にシミュレーション解析を行っている。このうち、Ohara et al.(2003)が JCAP による観測が実施された 1999 年 12 月の短期高濃度を対象としているのに対し、大原利眞、望月江里佳(2006)、速水洋(2007)では、1年間を対象とした長期間シミュレーションを実施し年間解析している。また、大原利眞、望月江里佳(2006)、速水洋(2007)では、東アジアスケールのシミュレーションを同時に実施し、その結果を関東スケールモデルの境界濃度として与えることにより、越境汚染を含む関東地域外からの流入を考慮している。一方、財団法人石油産業活性化センターJCAP 推進部(2005)ではモデルの特性を考慮して、東アジアスケールから関東スケールを CMAQ で計算し、その計算結果を境界条件として、関東地域内部を高解像度の URM (Urban Regional Model; 米国の Georgia Institute of Technology が開発した3次元オイラー型モデル。モデルメッシュを可変にできる、粒径分布に Sectional model を採用しているといった特徴を持つ) を使って計算する手法を採用した。

環境省が実施した調査では、VOC と SPM 及び光化学オキシダント生成との関係を把握するために、数値モデルを使用したシミュレーションも実施されている(財団法人日本気象協会(2003)、エヌエス環境株式会社(2007))。このうち、平成 14 年度の調査(財団法人日本気象協会(2003))では独自に開発した3次元オイラー型モデル(兼保直樹 et al.(2002)と同様)を使い、関東地域(2000~2002年の夏・冬4期間)、関西地域(2002年の夏・冬2期間)を対象としたシミュレーションを実施した。その報告書によると、SPM のモデル再現性に関して、「日平均濃度レベルで、SPM 濃度を適切に再現しうるものであり、本モデルを用いて SPM 日平均濃度予測シミュレーションを行った場合、その得られる結果の妥当性は十分に確保されるものである」と評価している。更に、この調査では、固定発生源排出削減シミュレーションや代表日 16 日におけるシミュレーションの重ね合わせによる年平均濃度の算出も行われている。一方、平成 18 年度調査(エヌエス環境株式会社(2007))では CMAQ(Ver.4.6)を使い、2001 年 3 期間の関東地域を対象としたシミュレーションを実施している。その結果によると、夏季の光化学オキシダントの再現性は高いが、SPM については引き続き検討が必要である。

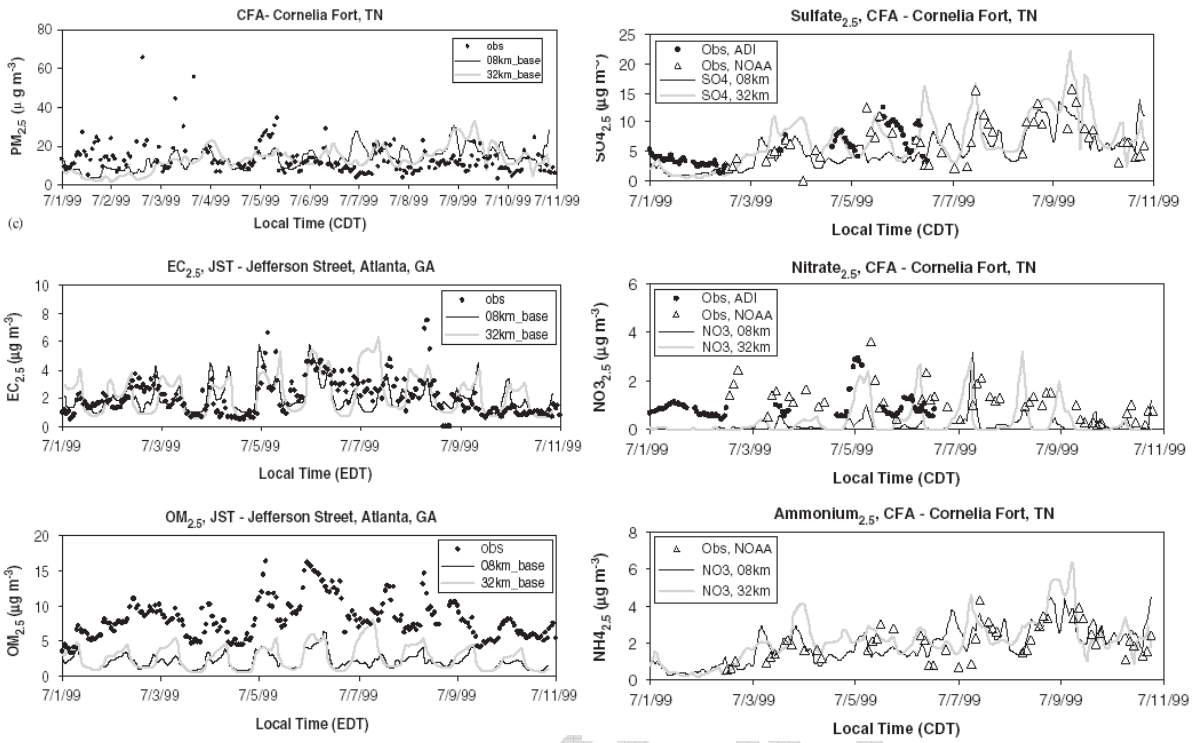
2.6.2.2. 欧米の事例

Holmes & Morawska(2006)は、エアロゾルのシミュレーションモデルについてレビュー

一している。そこでは、エアロゾルモデルを含まない拡散モデルとして、ボックスモデル 3 種類、ガウス型モデル 9 種類、ラグランジュ/オイラー型モデル 3 種類、流体力学モデル 3 種類、エアロゾルモデルを含むシミュレーションモデルとして 11 種類のモデルを取り上げている。このうち、詳細なエアロゾルモデルを含む領域モデルとして以下のようなモデルについて概説している。

- CIT (California/Carnegie-Mellon Institute of Technology)
- URM-1ATM (Urban-Regional Model)
- UAM IV (Urban Airshed Model with Aerosols Version 4)
- CALGRID (California Photochemical Grid Model)
- UNI-AERO (EMEP Aerosol Dynamics Model)
- RADMI + RPM (Regional Acid Deposition Mechanism + Regional Particulate Model)
- AEROFOR2 (Model for Aerosol Formation and Dynamics)
- CMAQ-MADRID (Community Multiscale Air Quality model - Model for Aerosol Dynamics, Reaction, Ionization and Dissolution)

上記には含まれていないが、米国では CMAQ を使用した多数のモデルシミュレーションが実施されており、その例を紹介する。CMAQ(ver.4.4)による PM_{2.5} の再現性を示す事例を図 2.6.1 と表 2.6.2 に示す。図 2.6.1 は、米国南東域で実施された観測キャンペーン SOS(Southern Oxidants Study)中の 1999 年夏季 10 日間における PM_{2.5} 濃度のモデル再現性を示す(Zhang et al.(2006))。ここでは、モデル領域が異なる 2 種類 (水平メッシュ 32km で全米をカバーしたケースと水平メッシュ 8km で米国南東域を計算領域としたケース) のモデル結果が示されている。図 2.6.1 から、モデル再現性は比較的高いが、OM (有機エアロゾル) を過小評価していることがわかる。一方、表 2.6.2 は 2001 年 1 年間の計算結果を米国の 3 種類の PM モニタリングネットワーク (IMPROVE, CASTNet, STN, AQS) の観測結果と比較した結果を整理したものである(Eder & Yu(2006))。この表から、米国におけるモデル再現性の現況について、おおよそ把握できる。例えば、PM_{2.5} の平均バイアス ($=[(\text{モデル値}-\text{観測値})\text{の平均}]/\text{観測平均値}$) は-3%と非常に小さいが、平均エラー ($=[(\text{モデル値}-\text{観測値})\text{の絶対値の平均}]/\text{観測平均値}$) は 45%程度と大きい。



※横軸は現地時間

(CDT: Central Daylight Time 米国中央夏時間, EDT: Eastern Daylight Time 米国東部夏時間)

図 2.6.1 PM_{2.5}成分の観測濃度とモデル濃度の比較結果 (Zhang et al.(2006))

表 2.6.2 米国モニタリングネットワーク観測濃度とモデル濃度の比較(Eder & Yu(2006))

種類	測定		IMPROVE		CASTNET		STN	
PM _{2.5}	数		13,217			6419		
	モデル平均		5.64			12.55		
	観測平均		5.81			12.89		
	r		0.70			0.51		
	MB(μgm^{-3})	NMB(%)	-0.17	-3.0		-0.34	-3.0	
	RMSE(μgm^{-3})	NME(%)	4.11	45.0		8.83	46.0	
SO ₄	数		13,447		3736	6970		
	モデル平均		1.60		2.88	3.33		
	観測平均		1.69		3.21	3.40		
	r		0.85		0.92	0.77		
	MB(μgm^{-3})	NMB(%)	-0.09	-5.0	-0.32	-10.0	-0.07	-2.0
	RMSE(μgm^{-3})	NME(%)	1.28	39.0	1.15	25.0	2.25	42.0
NH ₄	数				3736	6970		
	モデル平均				1.12	1.44		
	観測平均				1.16	1.26		
	r				0.79	0.51		
	MB(μgm^{-3})	NMB(%)			-0.04	-4.0	0.17	14.0
	RMSE(μgm^{-3})	NME(%)			0.58	35.0	1.27	63.0
NO ₃	数		13,398		3735	6130		
	モデル平均		0.50		1.04	1.48		
	観測平均		0.48		0.99	1.77		
	r		0.52		0.67	0.37		
	MB(μgm^{-3})	NMB(%)	0.02	4.0	0.05	5.0	-0.29	-16.0
	RMSE(μgm^{-3})	NME(%)	0.99	94.0	1.11	71.0	2.94	80.0
EC	数		13,441					
	モデル平均		0.22					
	観測平均		0.24					
	r		0.47					
	MB(μgm^{-3})	NMB(%)	-0.02	-6.0				
	RMSE(μgm^{-3})	NME(%)	0.27	58.0				
OC	数		13,427					
	モデル平均		1.26					
	観測平均		1.12					
	r		0.35					
	MB(μgm^{-3})	NMB(%)	0.14	12.0				
	RMSE(μgm^{-3})	NME(%)	1.59	68.0				

RMSE : 二乗平均平方根誤差 (Root Mean Square Error)

MB : 平均バイアス (Mean Bias)

NME : 正規化平均誤差 (Normalized Mean Error)

NMB : 正規化平均バイアス (Normalized Mean Bias)

2.6.3. シミュレーションモデル

2.6.3.1. 国内の事例

これまで、国内においてシミュレーションモデルを用いて SPM や PM_{2.5} の発生源別寄与濃度を計算した事例は少なく、解析型モデルを用いて簡略推計した行政的調査結果がほとんどである。

最近の環境省調査結果において、関東地域や関西地域における SPM の発生源別寄与濃度が推計されている (株式会社数理計画(2003)、株式会社数理計画(2006))。ここで使用したモデルの概要は 2.6.2.1. に示したとおりである。平成 12 年度の関東地域における推計結

果によると、寄与率は自然起源 31%、工場・事業場 29%、自動車 28%となっており、一次エアロゾルと二次エアロゾルの割合は 43%と 57%である。また、発生源別の一次エアロゾルと二次エアロゾルの割合は、工場・事業場では 1:8 と二次エアロゾルの割合が高く、自動車ではおおよそ 7:5 と逆に一次エアロゾルの割合が高い。また、平成 17 年度対象の関東 4 都県平均（一般局）の結果を表 2.6.3 のとおりである。この結果によると、関東地域では自然起源 37%、工場・事業場 38%、自動車 11%で、平成 12 年度の結果に比べると SPM 濃度レベルが約 2/3 となったことにより、自然起源の寄与率が増加したのに対し、自動車対策効果による排出減のため自動車寄与率が急減した結果となっている。一次エアロゾルと二次エアロゾルの割合は 37%と 63%であり、二次エアロゾルの割合が平成 12 年度よりも増加している。

表 2.6.3 平成 17 年度の発生源種類別 SPM 寄与濃度（関東：一般局平均）（株式会社数理計画(2006)）

発生源	ばいじん(PM)		粉じん・ダスト		硫酸塩		硝酸塩		塩化物塩		HC由来		土壌・海塩		合計		実測値
	($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	(%)	($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	(%)	($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	(%)	($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	(%)	($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	(%)	($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	(%)	($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	(%)	($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	(%)	
工場・事業場	0.48	2.1	0.57	2.5	2.50	10.7	1.37	5.9	1.17	5.0	2.84	12.2			8.93	38.4	
自動車	0.83	3.6	0.47	2.0	0.01	0.0	1.11	4.8	0.00	0.0	0.14	0.6			2.56	11.0	
浅薄	0.10	0.4	0.00	0.0	0.57	2.4	0.12	0.5	0.00	0.0	0.00	0.0			0.79	3.4	
群小等	0.27	1.1	0.00	0.0	0.15	0.6	0.21	0.9	0.03	0.1	0.04	0.2			0.70	3.0	
航空機	0.21	0.9	0.01	0.0	0.14	0.6	0.19	0.8	0.00	0.0	0.01	0.0			0.56	2.3	
屋外燃焼	0.25	1.1	0.00	0.0	0.00	0.0	0.00	0.0	0.00	0.0	0.00	0.0			0.25	1.1	
建設機械類	0.30	1.3	0.00	0.0	0.01	0.0	0.57	2.4	0.00	0.0	0.04	0.2			0.92	4.0	
自然界起源					3.53	15.2							5.02	21.6	8.54	36.7	
合計	2.44	10.5	1.05	4.5	6.90	29.6	3.57	15.4	1.21	5.2	3.08	13.2	5.02	21.6	23.26	100.0	29.88

一方、平成 12 年度の東京都区部の一般局を対象とした SPM の発生源別寄与濃度の推計結果（財団法人計量計画研究所(2002)）によると、自動車 35%、自然起源などのバックグラウンド(BG)33%、工場・事業場（都外の民生を含む） 20%であり、平成 12 年度対象の環境省調査結果に比較的近い結果となっている。更に、東京都調査では PM_{2.5}濃度も推計されている。PM_{2.5}の発生源別寄与率は、自動車 38%、自然起源などの BG24%、工場・事業場（都外の民生を含む） 25%であり、自然起源などの BG 以外は SPM の場合と近い。

数値モデルを使用した計算結果は、速水洋(2007)の他には見当たらない。速水洋(2007)は関東地域における人為起源排出量の削減による二次生成無機エアロゾル (NO₃, SO₄²⁻, NH₄⁺) に変化に着目し、次のような結論を得ている。

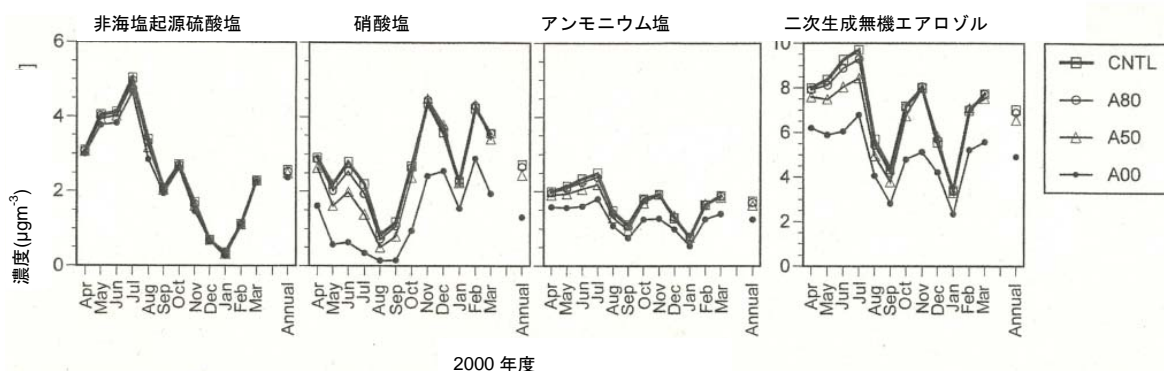


図 2.6.2 人為起源排出量を抑制した場合の二次生成無機エアロゾル(SIA)濃度の変化（関

東地域；年平均濃度の地域平均)。A80,A50,A00 は各々、人為起源排出量を 80%、50%、0%にしたケースを示す(速水洋(2007))。

- ・二次生成無機エアロゾル(SIA: Secondary Inorganic Aerosol)合計の年平均値は排出量抑制に伴って減少するが、人為排出量を全くなした場合でも、その減少量は 30%にすぎない。また、濃度の減少は夏季に大きい、冬季には排出量を極端に減少しない限り濃度は減少せず、逆に上昇する場合もある。こうした SIA 濃度の変化は、主に NO_3^- の変化に支配されている。一方、 SO_4^{2-} と NH_4^+ は関東地域外からの流入の影響が大きいため、関東地域内の排出量抑制効果は小さい。(図 2.6.2)
- ・ NO_3^- と原因物質である NO_x 排出量の関係が非線形なため、SIA 濃度に対する発生源寄与を、対象発生源を除外する方法(いわゆる、ゼロエミッション法)で推計することは問題がある。排出量を徐々に変えたシミュレーション計算を繰り返して、排出量と濃度の関係を求める方法が有用であると考えられる。

道路沿道においても、一般環境と同様に、行政目的では解析型モデルが、また、研究目的には CFD (Computer Fluid Dynamics) モデルのような数値型モデル(例えば、財団法人石油産業活性化センター JCAP 推進部(2005))が使用されることが多い。SPM の発生源別寄与濃度を推計した平成 18 年度の環境省調査(株式会社数理計画(2006))では、既述したような一般局における推計結果とともに、自動車排出ガス測定局(自排局)を対象とした計算結果も解析型モデルを用いて算出している。平成 17 年度対象の関東 4 都県平均(自排局)の結果によると、自然起源 29%、工場・事業場 34%、自動車 24%であり、自動車寄与率が一般局平均の約 2 倍になっている。

2.6.3.2. 国外の事例

Kleeman & Cass(1998)、Kleeman & Cass(2001)は、ラグランジュ型モデルもしくは 3 次元オイラー型モデル CIT をベースに、10 種類の発生源から排出される一次エアロゾルの動態を発生源種類毎に計算することにより、レセプターにおける発生源別寄与濃度を推計している。このモデルでは、最大 10 種類のエアロゾル成分数、最大 15 の粒径セクション数で計算している。図 2.6.3、図 2.6.4 は米国ロスアンゼルス周辺地域を対象に計算した時の結果を示す。ここで、図 2.6.3 は、大気中で気相からエアロゾル相に変化し、一次エアロゾルに凝縮した二次エアロゾルも、その一次エアロゾルの発生源寄与分として計上されている。一方、図 2.6.4 では、一次エアロゾルと二次エアロゾルを区分して評価した場合である。この図で示されるように、一次エアロゾルについて、粒径別成分別に発生源別寄与濃度を計算することが可能である。

Lane et al.(2007)は、3 次元オイラー型モデル PMCAMx を用いて、米国東部地域の 17 日間における EC と一次 OC(POC)の発生源別寄与濃度を計算し、この結果をレセプターモデル CMB と比較した。その結果によると、PMCAMx によって計算された POC 濃度は、実測の全濃度及び CMB による寄与濃度に比べて全体的に過大である。また、発生源寄与率についても CMB と PMCAMx の違いは大きい。EC についても同様な傾向を示す。このような違いが生じる最大の原因は排出インベントリにあると考えられ、特に、天然ガス、

薪燃焼、バイオマスバーニングの不確かさが大きいと指摘されている。

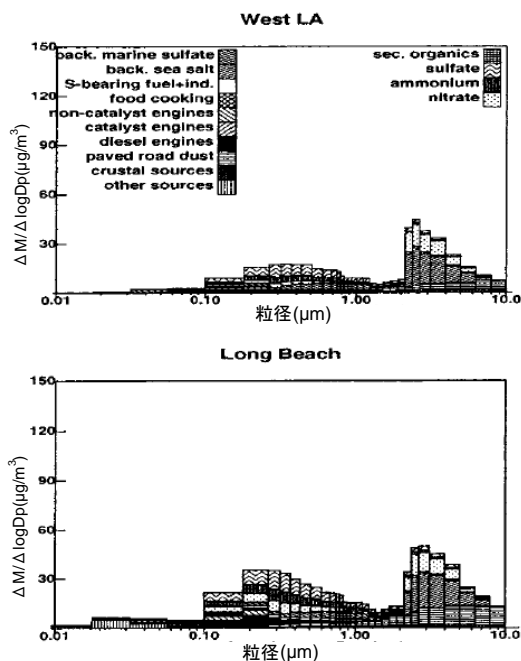
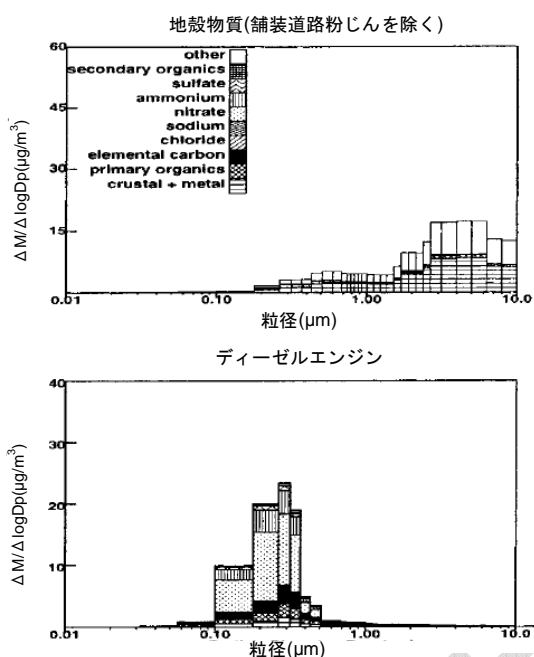


図 2.6.3 発生源種類別粒径別成分別 PM 濃度の例(Kleeman & Cass(2001))
(一次エアロゾルに凝縮した二次エアロゾルも発生源寄与分として計上した場合)

図 2.6.4 発生源種類別粒径別成分別 PM 濃度の例(Kleeman & Cass(2001))
(二次エアロゾルを区分して評価した場合)

2.6.4. まとめ

本節では、エアロゾルの発生源別寄与濃度や対策効果の評価、将来予測などを行なうシミュレーションモデルの概要を紹介した。

エアロゾルの発生源別寄与濃度を推計する場合には、一般的に、前項 2.5. のレセプターモデルが使用される(U.S.EPA(2004))。一方、シミュレーションモデルで発生源別寄与濃度を算出するためには、発生源から排出される一次粒子ならびに 2 次粒子の前駆ガスが大気中で輸送・変質・沈着する複雑な物理化学過程をシミュレートする必要があり、不確か性は大きい。しかし、シミュレーションモデルは、発生源別寄与濃度の時空間分布を計算できること、発生源地域や個々の発生源からの寄与濃度を推計できること、対策効果の評価や将来予測に使用できること、といったレセプターモデルにはないメリットがある。

国内でエアロゾルを対象としたシミュレーションモデルは、行政調査用には解析型モデルが、研究用には数値型モデルが使用されることが多い。一般的に、解析モデルは SPM 年平均濃度の再現性が高く、少ない情報で環境濃度を推計でき計算も容易である。しかし、エアロゾルの変質や粒径分布を考慮していない、前駆物質とエアロゾル生成量の間に関係を仮定した簡略な二次エアロゾル生成モデルを使用している、領域外からの流入はバックグラウンドとして成分別の一定値を与える、単純な拡散場・輸送場を仮定している、などの課題がある。また、国内で使用されている解析モデルは、国際的に充分、認知され

ていないと考えられる。

一方、数値モデルは解析モデルでは扱わない（もしくは、非常に簡略化して扱う）エアロゾルの変質や粒径分布、二次エアロゾル生成、領域外からの流入、複雑な拡散場・輸送場での物質輸送などを詳細にモデル化でき、排出データや気象データが正確であれば、より確かな結果が得られる。特に、発生源対策により一次エアロゾルが低減し、相対的に二次エアロゾルの割合が増加している現状を考慮すると、数値モデルの必要性・重要性が増していると考えられる。しかし、数値モデルは、解析モデルに比べて計算負荷が大きく、例えば、年平均値のような長期評価や多数ケースの感度解析を行う場合に問題となることがある。また、エアロゾル濃度の現況再現性が不十分な場合があり、その一つとして、有機エアロゾル、特に SOA を過少評価することがあげられる。例えば、近藤豊 et al.(2006) は、東京・駒場で夏季に観測された SOA に対し、mechanism model を用いても 1/3~1/6 程度しか説明できないと指摘している。この原因としては、SOA モデルとともに SOA 前駆物質の排出インベントリの問題も考えられる。一方、Takahashi et al.(2007)による ^{14}C を使った解析結果によると、東京都心で初冬季に観測された $\text{PM}_{2.1}$ 中の炭素粒子のうち、生物起源が約 50%を占めており、これらの知見から生物起源の影響があることも指摘されている。

なお、国内において一次エアロゾルの発生源別寄与率をシミュレーションモデルで評価した場合、レセプターモデルによる結果と大きな乖離が生じる可能性がある。国内では、このような比較資料が皆無であるため、第一に両者の比較研究を実施することが重要であり、その結果も踏まえて、排出インベントリの改良を進める必要がある。

参考文献

- Byun, D.W. & Ching, J.K.S. (1999)[Science algorithms of the EPA Models-3 Community Multiscale Air Quality (CMAQ) Modeling System. In *EPA/600/R-99/030*. EPA Office of Research and Development: Research Triangle Park, NC,U.S. .
- Eder, B. & Yu, S. (2006)[A performance evaluation of the 2004 release of Model-3 CMAQ. *Atmos Environ*, 40, 4811-4824.
- Griffin, R.J., Dabdub, D. & Seinfeld, J.H. (2002)[Secondary organic aerosols 1. Atmospheric chemical mechanism for production of molecular constituents. *J Geophys Res*, 107, 4332,doi:10.1029/2001JD000541.
- Holmes, N.S. & Morawska, L. (2006)[A review of dispersion modelling and its application to the dispersion of particles: An overview of different dispersion models available. *Atmos Environ*, 40, 5902-5928.
- Kannari, A., Tonooka, Y., Baba, T. & Murano, K. (2007)[Development of multiple-species 1 km x 1 km resolution hourly basis emissions inventory for Japan. *Atmos Environ*, 41, 3428-3439.
- Kleeman, M.J. & Cass, G.R. (1998)[Source contributions to the size and composition distribution of urban particulate air pollution. *Atmos Environ*, 32, 2803-2816.
- Kleeman, M.J. & Cass, G.R. (2001)[A 3D Eulerian source-oriented model for an externally mixed aerosol. *Environ Sci Technol*, 35, 4834-48.
- Lane, T.E., Pinder, R.W., Shrivastava, M., Robinson, A.L. & Pandis, S.N. (2007)[Source contributions to primary organic aerosol: Comparison of the results of a source-resolved model and the chemical mass balance approach. *Atmos Environ*, 41, 3758-3776.
- Nenes, A., Pandis, S.N. & Pilinis, C. (1998)[ISORROPIA: A new thermodynamic equilibrium model for multiphase multicomponent inorganic aerosols. *Aquatic Geochem*, 4, 123-152.
- Odum, J.R., Hoffmann, T., Bowman, F., Collins, D., Flagan, R.C. & Seinfeld, J.H. (1996)[Gas/particle partitioning and secondary organic aerosol yields. *Environ Sci Technol*, 30, 2580-2585.
- Ohara, T., Sugata, S. & Morikawa, T. (2003)[Urban pollution modeling in winter - Japan experience-. *2nd Workshop on Air Quality Modelinhg Challenges*, Tsukuba, Japan, 36-27.
- Schell, B., Ackermann, I.J., Hass, H., Binkowski, F.S. & Ebel, A. (2001)[Modeling the formation of secondary organic aerosol within a comprehensive air quality model system. *J Geophys Res*, 106, 28275-28294.
- Takahashi, K., Hirabayashi, M., Tanabe, K., Shibata, Y., Nishikawa, M. & Sakamoto, K. (2007)[Radiocarbon content in urban atmospheric aerosols. *Water, Air, Soil Pollut*, 185, 305-310.
- U.S.EPA. (2004)[*Air quality criteria for particulate matter*. EPA report no.

EPA/600/P-99/002aF.

- Zhang, Y., Liu, P., Queen, A., Misenis, C., Pun, B., Seigneur, C. & Wu, S.-Y. (2006)[A comprehensive performance evaluation of MM5-CMAQ for the Summer 1999 Southern Oxidants Study episode - Part II: Gas and aerosol predictions. *Atmos Environ*, 40, 4839-4855.
- Zhang, Y., Pun, B., Vijayaraghavan, K., Wu, S.-Y., Seigneur, C., Pandis, S.N., Jacobson, M.Z., Nenes, A. & Seinfeld, J.H. (2004)[Development and application of the model of aerosol dynamics, reaction, ionization, and dissolution (MADRID). *J Geophys Res*, 109, doi:10.1029/2003JD003501.
- エヌエス環境株式会社. (2007)[環境省委託業務報告書 平成18年度 揮発性有機化合物(VOC)の浮遊粒子状物質および光化学オキシダント生成にかかる調査報告書.
- 株式会社数理計画. (2003)[環境省委託業務結果報告書 平成14年度浮遊粒子状物質総合対策検討に係る調査報告.
- 株式会社数理計画. (2006)[平成18年度環境省委託業務結果報告書 窒素酸化物及び粒子状物質の環境濃度予測調査.
- 環境庁大気保全局大気規制課監修. (1997)[浮遊粒子状物質汚染予測マニュアル, 浮遊粒子状物質対策検討会編集 (ed). 東洋館出版社.
- 近藤豊, 竹川暢之, 小池真, 宮崎雄三 & 駒崎雄一. (2006)[都市域における炭素性エアロゾル生成過程. *エアロゾル研究*, 21, 287-296.
- 兼保直樹, 吉門洋, 近藤裕昭, 守屋岳, 鈴木基雄 & 白川泰樹. (2002)[組成別 SPM 濃度シミュレーションモデルの開発と初冬季高濃度大気汚染への適用 (II) : モデルの概要および予備的計算結果. *大気環境学会誌*, 37, 302-319.
- 財団法人計量計画研究所. (2002)[東京都環境局契約業務 窒素酸化物・浮遊粒子状物質の環境濃度推計に係る調査報告書.
- 財団法人石油産業活性化センターJCAP 推進部. (2005)[2004 JCAP 技術報告.
- 財団法人日本気象協会. (2003)[環境省委託業務報告書 平成14年度浮遊粒子状物質環境汚染実態解析調査報告書 (第2編 SPM 濃度予測モデル) .
- 速水洋. (2007)[首都圏における人為燃焼発生源の排出量抑制と二次粒子無機イオン成分濃度の関係. *大気環境学会誌*, 42, 234-252.
- 大原利眞, 望月江里佳. (2006)[ネスト CMAQ による関東地域における PM2.5 の年間シミュレーション. 第47回大気環境学会年会講演要旨集, 1B1700-2.