

- Maykut, N.N., Lewtas, J., Kim, E. & Larson, T.V. (2003). Source Apportionment of PM_{2.5} at an Urban IMPROVE Site in Seattle, Washington. *Environmental Science and Technology*, 37, 5135-5142.
- Mizohata, A., Ito, N. & Masuda, Y. (1995). Quantitative determination of the airborne particulate matter sources by motor vehicles using TTFA. In J Jpn Soc Atmos Environ, Vol. 30. pp. 243-255.
- Morandi, M.T., Daisey, J.M. & Lioy, P.J. (1987). Development of a modified factor analysis / multiple regression model to apportion suspended particulate matter in a complex urban airshed. *Atmospheric Environment*, 21, 1821-1831.
- Mukai, H., Machida, T., Tanaka, A., Vera, Y.P. & Uematsu, M. (2001). Lead isotope ratios in the urban air of eastern and central Russia. *Atmospheric Environment*, 35, 2783-2793.
- Mukerjee, S., Norris, G.A., Smith, L.A., Noble, C.A., Neas, L.M., Ozkaynak, A.H. & Gonzales, M. (2004). Receptor Model Comparisons and Wind Direction Analyses of Volatile Organic Compounds and Submicrometer Particles in an Arid, Binational, Urban Air Shed. *Environmental Science & Technology*, 38, 2317 - 2327.
- Okamoto, S., Hayashi, M., Nakajima, M., Kainuma, Y. & Shiozawa, K. (1990). A factor analysis-multiple regression model for source apportionment of suspended particulate matter. *Atmospheric Environment*, 20A, 2089-2097.
- Paatero, P., Hopke, P.K., Begum, B.A. & Biswas, S.K. (2005). A graphical diagnostic method for assessing the rotation in factor analytical models of atmospheric pollution. *Atmospheric Environment*, 39, 193-201.
- Paatero, P. & Tapper, U. (1994). Positive matrix factorization: A non-negative factor model with optimal utilization of error estimate of data values. *Environmetrics*, 5, 111-126.
- Park, S.S., Bae, M.S. & Kim, Y.J. (2001a). Chemical Composition and Source Apportionment of PM_{2.5} Particles in the Sihwa Area, Korea. *Journal of Air & Waste Management Association*, 51, 393-405.
- Park, S.S., Kim, Y.J. & Fung, K. (2001b). Characteristics of PM_{2.5} carbonaceous aerosol in the Sihwa industrial area, Korea. *Atmospheric Environment*, 35, 657-665.
- Pinto, J.P., Stevens, R.K., Willis, R.D., Kellogg, R., Mamane, Y., Novak, J., Santroch, J., Bene, I., Leniek, J. & Bure, V. (1998). Czech Air Quality Monitoring and Receptor Modering Study. *Environmental Science & Technology*, 32, 843-854.
- Poirot, R.L., Wishinski, P.R., Hopke, P.K. & Polissar, A.V. (2001). Comparative Application of Multiple Receptor Methods to Identify Aerosol Sources in Northern Vermont. *Environmental Science and Technology*, 35, 4622-4636.

- Polissar, A.V., Hopke, P.K. & Poirot, R.L. (2001). Atmospheric Aerosol over Vermont: Chemical Composition and Sources. *Environmental Science and Technology*, 35, 4604-4621.
- Ramadan, Z., Song, X.-H. & Hopke, P.K. (2000). Identification of Sources of Phoenix Aerosol by Positive Matrix Factorization. *Journal of Air & Waste Management Association*, 50, 1308-1320.
- Rees, S.L., Robinson, A.L., Khlystov, A., Stanier, C.O. & Pandis, S.N. (2004). Mass balance closure and the Federal Reference Method for PM_{2.5} in Pittsburgh, Pennsylvania. *Atmospheric Environment*, 38, 3305-3318.
- Sattler, M.L. & Liljestr and, H.M. (2005). Chemical Mass Balance Model with Fractionation for Apportioning PM_{2.5}: A Test Case for Los Angeles Traffic Sources. *Journal of Air & Waste Management Association*, 55, 1335-1344.
- Schauer, J.J. & Cass, G.R. (2000). Source Apportionment of Wintertime Gas-Phase and Particle-Phase Air Pollutants Using Organic Compounds as Tracers. *Environmental Science & Technology*, 34, 1821-1832.
- Schauer, J.J., Lough, G.C., Shafer, M.M., Christensen, W.F., Arndt, M.F., DeMinter, J.T. & Park, J.-S. (2006). Characterization of Metals Emitted from Motor Vehicles. In HEI Research Report, Vol. No. 133, pp. 1-88.
- Schauer, J.J., Rogge, W.F., Hildemann, L.M., Mazurek, M.A., Cass, G.R. & Simoneit, B.R.T. (1996). Source Apportionment of Airborne Particulate Matter Using Organic Compounds as Tracers. *Atmospheric Environment*, 30, 3837-3855.
- Sillanp aa, M., Hillamo, R., Saarikoski, S., Frey, A., Pennanen, A., Makkonen, U., Spolnik, Z., Grieken, R.V., Branis, M., Brunekreef, B., Chalbot, M.-C., Kuhlbusch, T., Sunyer, J., Kerminen, V.-M., Kulmala, M. & Salonen, R.O. (2006). Chemical composition and mass closure of particulate matter at six urban sites in Europe. *Atmospheric Environment*, 40, S212-S223.
- Song, X.-H., Polissar, A.V. & Hopke, P.K. (2001). Sources of fine particle composition in the northeastern US. *Atmospheric Environment*, 35, 5277-5286.
- Song, Y., Zhang, Y., Xie, S., Zeng, L., Zheng, M., Salmon, L.G., Shao, M. & Slanina, S. (2006). Source apportionment of PM_{2.5} in Beijing by positive matrix factorization. *Atmospheric Environment*, 40, 1526-1537.
- Stevens, R.K. & Pace, T.G. (1984). Overview of the mathematical and empirical receptor models workshop (Quail Roost II). In *Atmospheric Environment*, Vol. 18, pp. 1499-1505.
- Subramanian, R., Donahue, N.M., Bernardo-Bricker, A., Rogge, W.F. & Robinson, A.L. (2006). Contribution of motor vehicle emissions to organic carbon and fine particle

- mass in Pittsburgh, Pennsylvania: Effects of varying source profiles and seasonal trends in ambient marker concentrations. *Atmospheric Environment*, 40, 8002-8019.
- Sweet, C.W. & Vermette, S.J. (1992). Toxic volatile organic compounds in urban air in Illinois. *Environmental Science and Technology*, 26, 165-173.
- Takahashi, K., Hirabayashi, M., Tanabe, K., Shibata, Y., Nishikawa, M. & Sakamoto, K. (2007). Radiocarbon content in urban atmospheric aerosols. *Water, Air, & Soil Pollution*, 185, 305-310.
- Thurston, G.D. & Spengler, J.D. (1985). A quantitative assessment of source contributions to inhalable particulate matter pollution in metropolitan Boston. *Atmospheric Environment*, 19, 9-25.
- Turpin, B. & Lim, H.-J. (2001). Species contributions to PM_{2.5} mass concentrations: revisiting common assumptions for estimating organic mass. *Aerosol Science and Technology*, 35, 602-610.
- U.S.EPA Office of Air Quality Planning and Standards. (1990). CMB7 User's Manual. Receptor model technical series vol. III (1989 revision), Vol. EPA-450/4-90-004.
- U.S.EPA Office of Air Quality Planning and Standards. (2001). CMB8 User's Manual. Vol. EPA-454/R-01-XXX: Research Triangle Park, NC 27711.
- Vega, E., García, I., Apam, D., Ruíz, M.E. & Barbiaux, M. (1997). Application of a Chemical Mass Balance Receptor Model to Respirable Particulate Matter in Mexico City. *Journal of Air & Waste Management Association*, 47 524-529.
- Wang, Y.Q., Zhang, X.Y., Arimoto, R., Cao, J.J. & Shen, Z.X. (2005). Characteristics of carbonate content and carbon and oxygen isotopic composition of northern China soil and dust aerosol and its application to tracing dust sources. *Atmospheric Environment*, 39, 2631-2642.
- Ward, T.J. & Smith, G.C. (2005). The 2000/2001 Missoula Valley PM 2.5 chemical mass balance study, including the 2000 wildfire season-seasonal source apportionment. *Atmospheric Environment*, 39, 709-717.
- Watson, J.G. (1979). Chemical element balance receptor model methodology for assessing the sources of fine and total suspended particulate matter in Portland, Oregon., Vol. Ph.D.dissertation. Oregon Graduate Center: Beaverton, Oregon.
- Watson, J.G., Blumenthal, D.L., Chow, J.C., Cahill, C.F., Richards, L.W., Dietrich, D., Morris, R., Houck, J.E., Dickson, R.J. & Andersen, S.R. (1996). Mt. Zirkel Wilderness Area reasonable attribution study of visibility impairments Vol. II: Results of data analysis and modeling. Prepared for Colorado Department of Public Health and Environment, Denver, CO. Desert Research Institute: Reno, NV.

- Watson, J.G., Chow, J.C. & Fujita, E.M. (2001). Review of volatile organic compound source apportionment by chemical mass balance. *Atmospheric Environment*, 35, 1567-1584.
- Watson, J.G., Chow, J.C., Lowenthal, D.H., Pritchett, L.C., Frazier, C.A., Neuroth, G.R. & Robbins, R. (1994). Differences in the Carbon Composition of Source Profiles for Diesel- and Gasoline-Powered Vehicles. *Atmospheric Environment*, 28, 2493-2505.
- Watson, J.G., Cooper, J. & Huntzicker, J. (1984). The effective variance weighting for least squares calculations applied to the mass balance receptor model. *Atmos Environ*, 18, 1347-1355.
- Watson, J.G., Fujita, E.M., Chow, J.C., Zielinska, B., Richards, L.W., Neff, W.D. & Dietrich, D. (1998). Northern Front Range Air Quality Study. Final report. Prepared for Colorado State University, Fort Collins, CO. Desert Research Institute: Reno, NV.
- Widory, D., Roy, S.e., Moullec, Y.L., Goupil, G., Cocherie, A. & Guerrot, C. (2004). The origin of atmospheric particles in Paris: a view through carbon and lead isotopes. *Atmospheric Environment*, 38, 953-961.
- Xie, Y.-L., Hopke, P.K., Paatero, P., Barrie, L.A. & Li, S.-M. (1999). Identification of source nature and seasonal variations of Arctic aerosol by positive matrix factorization. *Journal of Atmospheric Sciences*, 56, 249-260.
- Xie, Y. & Berkowitz, C.M. (2006). The use of positive matrix factorization with conditional probability functions in air quality studies: An application to hydrocarbon emissions in Houston, Texas. *Atmospheric Environment*, 40, 3070-3091.
- Zhang, Q., Alfarrar, M.R., Worsnop, D.R., Allan, J.D., Coe, H., Canagaratna, M.R. & Jimenez, J.L. (2005). Deconvolution and Quantification of Hydrocarbon-like and Oxygenated Organic Aerosols Based on Aerosol Mass Spectrometry. *Environmental Science & Technology*, 39, 4938-4952.
- Zheng, M., Cass, G.R., Ke, L., Wang, F., Schauer, J.J., Edgerton, E.S. & Russell, A.G. (2007). Source Apportionment of Daily Fine Particulate Matter at Jefferson Street, Atlanta, GA, during Summer and Winter. *Journal of Air & Waste Management Association*, 57, 228-242.
- Zheng, M., Salmon, L.G., Schauer, J.J., Zeng, L., Kiang, C.S., Zhang, Y. & Cass, G.R. (2005). Seasonal trends in PM_{2.5} source contributions in Beijing, China. *Atmospheric Environment*, 39, 3967-3976.
- 財団法人日本環境衛生センター. (1987). 環境庁大気保全局大気規制課監修: 浮遊粒子状物質汚染の解析・予測.

2.6. シミュレーションモデル

2.6.1. モデルの概要

粒子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粒子は、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。多くのガスや粒子は大気中において物理的・化学的に変質し、新たな粒子を生成したり他の粒子に変化したりする。最終的に粒子は、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、粒子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、粒子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。粒子の時空間変化は、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粒子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、代表例としてはブ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、粒子の粒径分布を考慮せずに単一粒径として取り扱い、また、粒子の生成・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、粒子については、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、核生成や粒子の凝縮/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に分割して各粒径幅の濃度を計算するモデルであり、核生成や粒子の成長・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 と Morawska (2006))。

無機粒子の気相と粒子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ら (1998))が使用され、NO₃, SO₄²⁻, Cl, NH₄⁺, Na⁺のような無機粒子濃度が計算される。NO₃の場合、HNO₃ガスが海塩粒子と反応してNaNO₃粒子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 と 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	ハイブリッド法 / 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 む込み	Y		Y	D:Y W:X	0.01-10µm	無機物・有機 物・元素状炭素。 内部混合 なし
GATOR	オイラー型	B	Y	Y	D:Y W:X	粒径移動または 粒径固定	
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; Secondary Organic Aerosol)の生成モデルは、empirical model (経験的モデル) と mechanistic 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粒子の生成量を経験的に計算するモデルである(例えば、Odum ら (1996)、Schell ら (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粒子量によって変化する。一方、mechanistic 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、粒子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。Mechanistic 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粒子濃度が計算される。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 ら (2002)、Zhang ら (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、ガスと粒子の乾性沈着・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。ガスと粒子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られる。また、粒子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、粒子状物質と 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 ら (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
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

国内で粒子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、三次粒子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。

- ① SPM 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、粒子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 二次粒子生成モデルでは、前駆物質質量と粒子生成量の間に比例関係（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、兼保ら（2002）、Ohara ら
（2003）、財団法人石油産業活性化センター JCAP 推進部（2005）、大原と望月（2006）、速水
（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。兼保ら（2002）
は、光化学反応モデルをベースに粒子化過程を加えた、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粒子の動態を解析した先駆的研究

である。Ohara ら (2003)、大原と望月(2006)、速水(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 と 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 ら (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、大原と望月(2006)、速水(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、大原と望月(2006)、速水(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 (兼保ら(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 と Morawska (2006)は、粒子のシミュレーションモデルについてレビューしている。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。