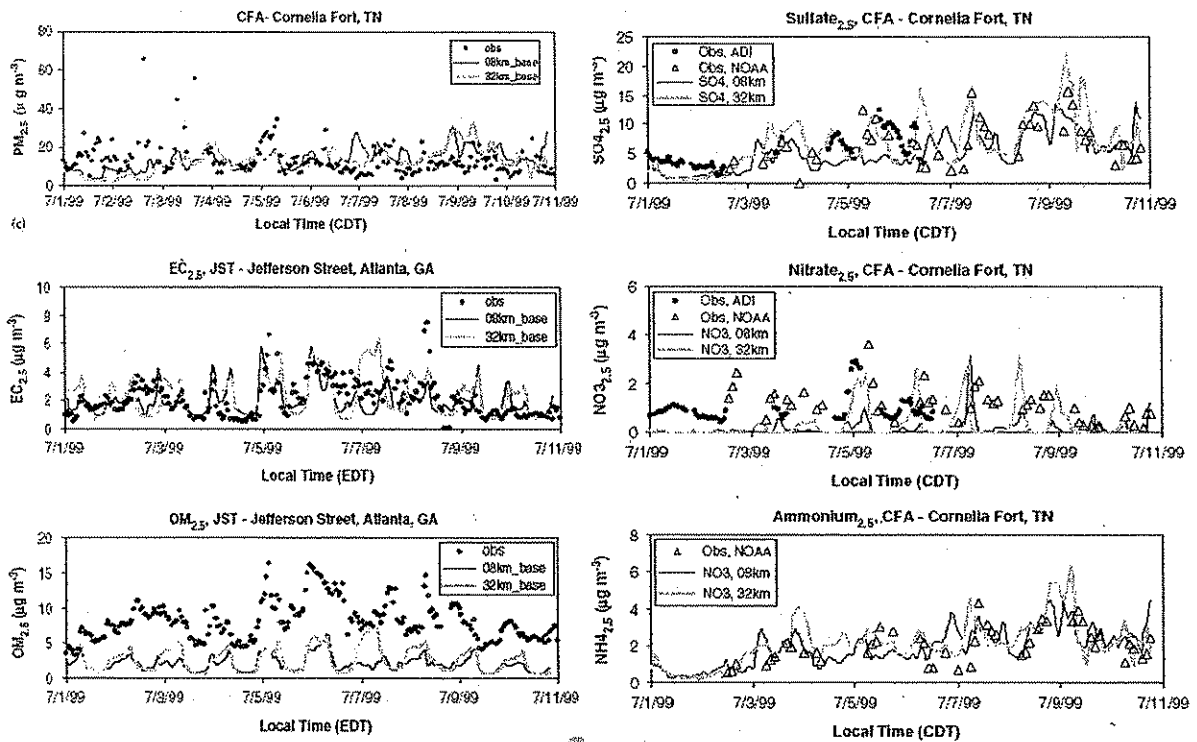


- CIT (California/Carnegie-Mellon Institute of Technology)
- URM-1ATM (Urban-Regional Model)
- UAM IV (Urban Airshed Model with Aerosols Version 4)
- CALGRID (California Photochemical Grid Model)
- UNI-AERO (EMEP Aerosol Dynamics Model)
- RADMI + RPM (Regional Acid Deposition Mechanism + Regional Particulate 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 ら (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 (有機粒子) 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 種類の粒子状物質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 と 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(=[(モデル値-観測値)の平均]/観測平均値)は-3%と非常に小さいが、平均エラー(=[(モデル値-観測値)の絶対値の平均]/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 ら (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と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、一次粒子と二次粒子の割合は43%と57%である。また、発生源別の一次粒子と二次粒子の割合は、工場・事業場では1:8と二次粒子の割合が高く、自動車ではおおよそ7:5と逆に一次粒子の割合が高い。また、平成17年度対象の関東4都県平均(一般局)の結果は表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。一次粒子と二次粒子の割合は37%と63%であり、二次粒子の割合が平成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・泥塩 | | 合計 | | 実測値 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) |
|--------|------------------------------|------|------------------------------|-----|------------------------------|------|------------------------------|------|------------------------------|-----|------------------------------|------|------------------------------|------|------------------------------|-------|-------------------------------------|
| | ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) | (%) | ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) | (%) | ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) | (%) | ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) | (%) | ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) | (%) | ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) | (%) | ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) | (%) | ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) | (%) | |
| 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 | | | 8.92 | 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 | |
| 浅海 | 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 | |
| 建設機種類 | 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の場合に近い。

数値モデルを使用した計算結果は、速水(2007)の他には見当たらない。速水(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粒子(NO₃, SO₄²⁻, NH₄⁺)の変化に着目し、次のような結論を得ている。

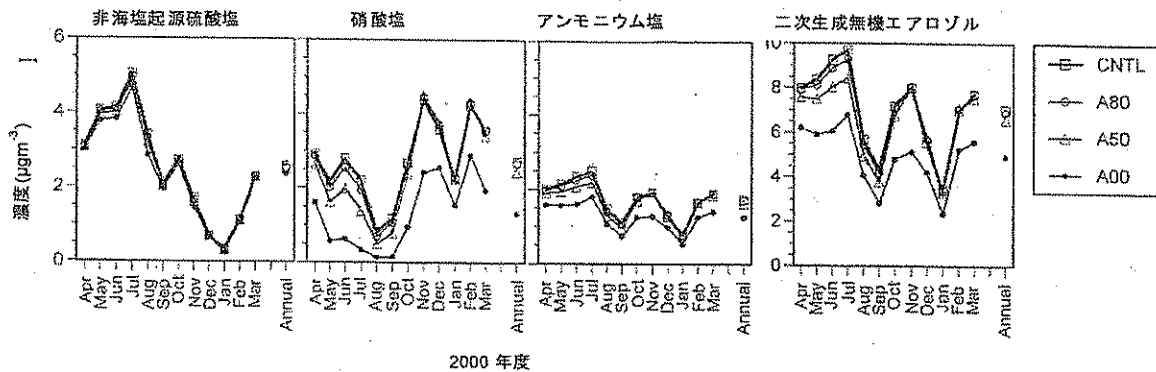


図 2.6.2 人為起源排出量を抑制した場合の二次生成無機粒子(SIA)濃度の変化 (関東地域; 年平均濃度の地域平均)。A80、A50、A00 は各々、人為起源排出量を 80%、50%、0%にしたケースを示す (速水(2007))。

- 二次生成無機粒子(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くした場合でも、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、冬季には排出量が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 と Cass (1998)、Kleeman と 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粒子の動態

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 種類の粒子成分数、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 は米国ロサ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、大気中で気相から粒子相に変化し、一次粒子に凝縮した二次粒子も、その一次粒子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、一次粒子と二次粒子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、一次粒子について、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 ら (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、バイオマス燃焼の不確かさが大きいと指摘されている。

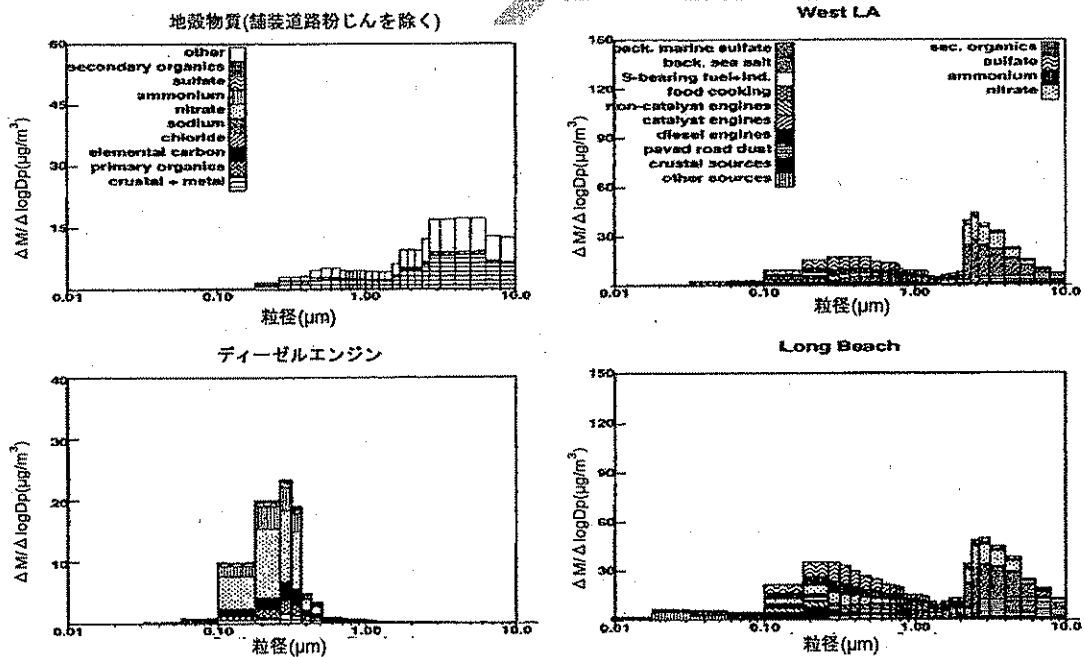


図 2.6.3 発生源種類別粒径別成分別 PM 濃度の例(Kleeman と Cass (2001))
(一次粒子に凝縮した二次粒子も発生源寄与分として計上した場合)

図 2.6.4 発生源種類別粒径別成分別 PM 濃度の例(Kleeman と Cass (2001))
(二次粒子を区分して評価した場合)

2.6.4. まとめ

本節では、粒子の発生源別寄与濃度や対策効果の評価、将来予測などを行なうシミュレ

ーションモデルの概要を紹介した。

粒子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二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、不確実性は大きい。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。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、粒子の変質や粒径分布を考慮していない、前駆物質量と粒子生成量の間比例関係を仮定した簡略な二次粒子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)粒子の変質や粒径分布、二次粒子生成、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粒子が低減し、相対的に二次粒子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、粒子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、有機粒子、特に SOA を過少評価することがあげられる。例えば、近藤ら(2006)は、東京・駒場で夏季に観測された SOA に対し、mechanistic 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 ら (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 $\text{PM}_{2.5}$ 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、国内において一次粒子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. *Atmospheric Environment*, 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:4310.1029/2001JD000541.
- 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. *Atmospheric Environment*, 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. *Atmospheric Environment*, 41, 3428-3439.
- Kleeman, M.J. & Cass, G.R. (1998). Source contributions to the size and composition distribution of urban particulate air pollution. *Atmospheric Environment*, 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, 4834-4848.
- 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. *Atmospheric Environment*, 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 Pollution*, 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., Misernis, 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. *Atmospheric Environment*, 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. 東洋館出版社: 東京.
- 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, 1B1700-1702.