

シミュレーションを用いた解析結果

1. モデルのバリデーション	3
1.1. 気象モデル (WRF) の精度検証 (関東および九州領域対象)	3
1.1.1. 解析の目的.....	3
1.1.2. 解析方法	3
1.1.3. 解析結果	3
1.2. 大気質モデルの精度検証 (関東および九州領域対象)	11
1.2.1. 解析の目的.....	11
1.2.2. 解析方法	11
1.2.3. 解析結果	11
1.3. シミュレーションによる前駆物質の再現性の確認.....	21
1.3.1. 解析の目的.....	21
1.3.2. 解析方法	21
1.3.3. 解析結果	23
1.4. 光化学オキシダント濃度の長期トレンドの再現精度の検証	27
1.4.1. 解析の目的.....	27
1.4.2. 解析方法	27
1.4.3. 解析結果	28
1.5. 10km 格子と 60km 格子の O ₃ 濃度再現性の比較.....	30
1.5.1. 解析の目的.....	30
1.5.2. 解析方法	30
1.5.3. 解析結果	30
1.6. MOZART (全球モデル) の精度評価	34
1.6.1. MOZART のリモート観測局を対象とした精度評価	34
1.6.2. MOZART の 2006 年と 2007 年の連続性の確認.....	36
1.7. 東アジア領域におけるバリデーション (海外地点の追加)	39
1.7.1. 解析の目的.....	39
1.7.2. 解析方法	39
1.7.3. 解析結果	41
1.8. 植物起源 VOC 排出量の経年変化.....	46
1.8.1. 解析の目的.....	46
1.8.2. 解析方法	46
1.8.3. 解析結果	46
2. 不確実性の検討.....	47
2.1. 植物起源 VOC の不確実性の検討.....	47
2.1.1. 解析の目的.....	47
2.1.2. 解析方法	47
2.1.3. 解析結果	47
2.2. 未把握 VOC の不確実性の検討	51

2.2.1.	解析の目的.....	51
2.2.2.	解析方法	51
2.2.3.	解析結果	52
3.	越境汚染の寄与の変化について	54
3.1.1.	解析の目的.....	54
3.1.2.	解析方法	54
3.1.3.	解析結果	54
4.	格子間隔の差（5km および 10km）による濃度再現性の評価.....	57
4.1.1.	解析の目的.....	57
4.1.2.	解析方法	57
4.1.3.	解析結果	57

1. モデルのバリデーション

1.1. 気象モデル（WRF）の精度検証（関東および九州領域対象）

1.1.1. 解析の目的

大気汚染物質は気流によって移動、拡散するため、気象場の再現性について把握することが必要である。気象官署を対象に、測定値と気象モデル（WRF）による計算値を比較し、シミュレーションによる気象要素の再現性について把握することを目的とする。

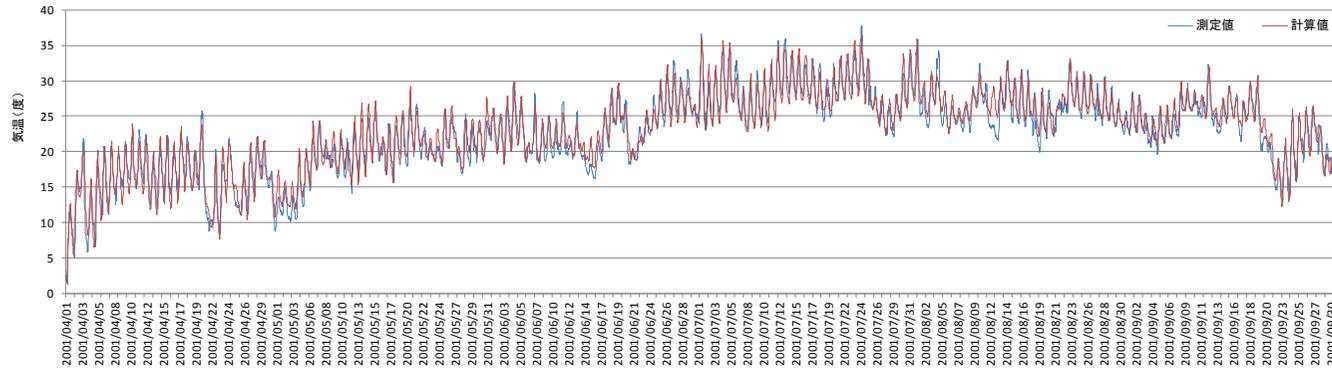
1.1.2. 解析方法

関東領域は、東京、宇都宮および前橋を、また、九州領域は、福岡および下関を対象に、風速、気温の計算値と測定値の経過図および散布図を作成した。風向については方位別に出現頻度を整理し、隣り合う方位を含めた出現割合を算出した。風速および気温については、全日データを対象にした日平均値を対象に、モデルの性能評価でも多く利用されているBIAS、RMSEを算出した（BIASおよびRMSEとも値が小さいほど再現性が高いことを意味する）。

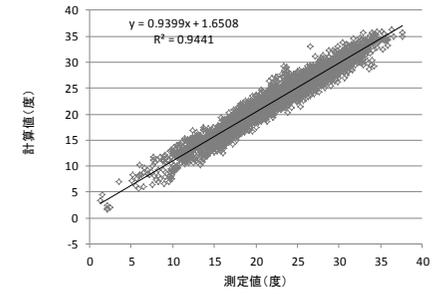
1.1.3. 解析結果

2001年を対象とした検証地点（東京および福岡）の風速、気温の計算値と測定値の経過図および散布図について図1-1～図1-4に示した。図1-1～図1-4から、気温の相関係数は、0.9以上で再現性が高い。風速の相関係数0.5～0.6（ $R^2=0.30\sim0.45$ ）であり、計算値は両地点とも過少傾向であった。風向については、隣り合う方位を含めた出現割合で評価すると40～60%であった。

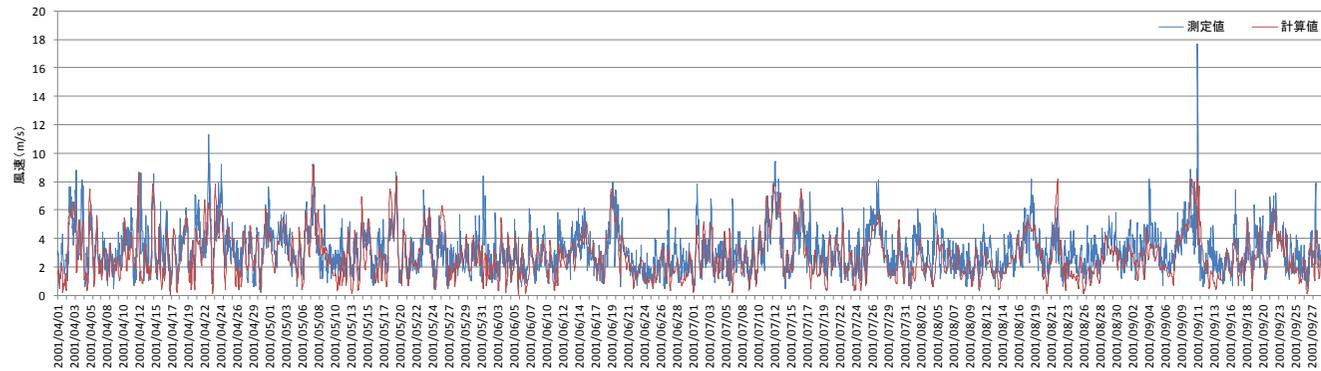
気温



気温



風速



風速

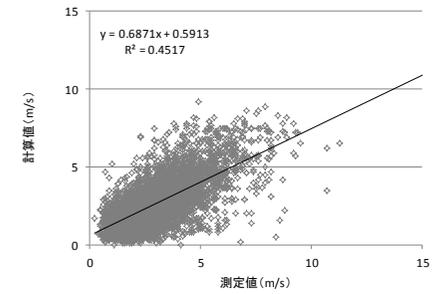


図 1-1 WRF 関東領域の計算結果 (2001年暖候期 東京 その1)

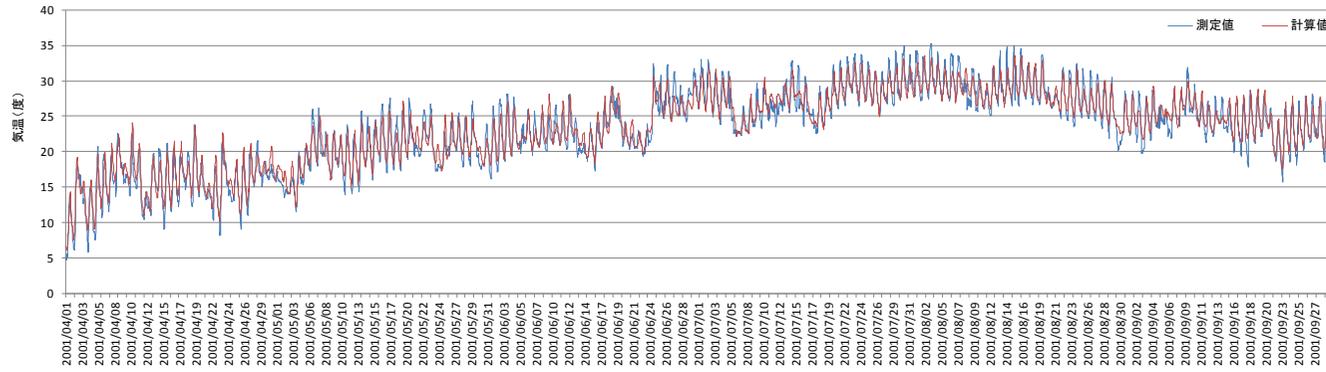
隣り合う方位を含めた風向の一致した割合 62%

風向 (計算値と測定値の風向別出現時間)

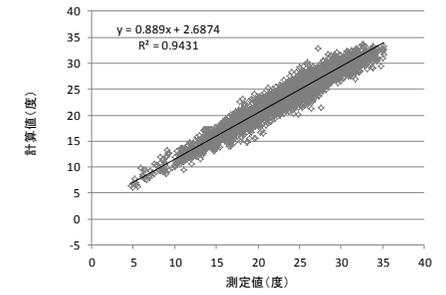
		計算値																
		北北東	北東	東北東	東	東南東	南東	南南東	南	南南西	南西	西南西	西	西北西	北西	北北西	北	静穏
測定値	北北東	89	81	32	15	10	6	4	9	2	0	1	0	0	0	7	48	2
	北東	119	120	67	29	10	6	5	6	4	2	0	0	0	1	7	26	0
	東北東	57	149	173	52	21	10	3	3	2	0	0	0	1	0	1	19	0
	東	20	54	97	47	34	10	6	4	3	5	2	2	1	1	2	6	0
	東南東	9	17	27	55	76	38	36	16	7	0	0	0	2	2	1	2	0
	南東	0	3	3	20	45	47	44	9	7	1	0	0	1	0	1	1	0
	南南東	0	2	2	5	23	34	52	37	6	3	0	2	1	0	0	3	0
	南	0	1	5	14	23	36	101	172	24	4	1	7	2	0	0	0	2
	南南西	0	0	0	7	6	21	67	118	68	11	1	2	0	1	0	0	1
	南西	1	1	2	5	8	35	68	137	266	29	5	8	1	0	2	1	2
	西南西	2	5	2	4	8	10	17	22	27	6	3	3	0	2	1	2	0
	西	5	0	1	0	1	4	4	6	11	4	3	2	0	2	3	1	2
	西北西	1	1	2	2	3	1	1	5	7	5	4	2	1	3	0	4	1
	北西	10	3	3	1	4	2	2	11	2	4	5	4	0	6	4	9	1
	北北西	59	25	24	7	6	4	10	14	12	7	6	6	6	14	50	98	4
	北	94	52	23	11	11	9	5	13	6	4	1	3	1	7	27	94	2
静穏	1	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	

図 1-2 WRF 関東領域の計算結果 (2001年暖候期 東京 その2)

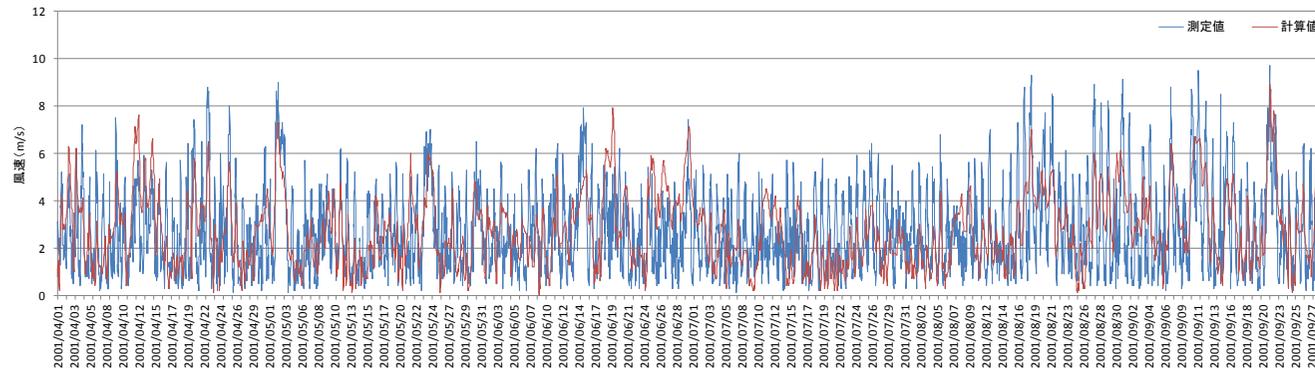
気温



気温



風速



風速

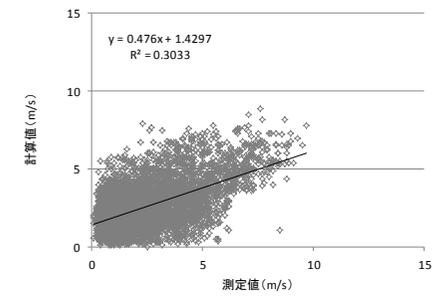


図 1-3 WRF 九州領域の計算結果 (2001年暖候期 福岡 その1)

隣り合う方位を含めた風向の一致した割合 44%

風向 (計算値と測定値の風向別出現時間)

		計算値																
		北北東	北東	東北東	東	東南東	南東	南南東	南	南南西	南西	西南西	西	西北西	北西	北北西	北	静穏
測定値	北北東	52	82	13	7	0	5	1	1	7	6	2	2	1	2	1	2	3
	北東	12	51	13	8	2	1	1	2	3	7	3	1	0	0	2	2	0
	東北東	2	22	8	8	1	0	2	2	4	2	6	0	1	0	0	0	0
	東	4	14	12	10	10	1	7	7	9	1	2	0	0	0	0	1	0
	東南東	3	18	25	29	26	9	10	13	23	7	7	0	1	0	0	3	0
	南東	11	27	44	82	55	51	55	85	77	47	21	14	5	5	2	3	4
	南南東	8	23	29	29	24	21	35	53	76	36	11	9	1	2	5	3	6
	南	7	22	14	7	5	4	8	16	62	35	12	2	3	0	2	3	1
	南南西	21	34	22	3	4	4	4	10	48	38	10	6	0	4	0	11	2
	南西	21	57	13	11	1	2	3	7	13	15	15	8	2	3	2	8	0
	西南西	13	5	1	1	0	0	0	4	2	15	23	15	6	2	2	12	0
	西	10	16	4	3	1	1	0	1	5	7	22	27	19	4	0	7	0
	西北西	13	17	5	3	6	3	1	3	6	7	25	32	18	8	1	8	1
	北西	23	16	6	3	6	2	2	1	2	13	12	20	31	5	14	32	3
	北北西	123	62	14	8	12	2	6	7	16	26	35	36	58	69	78	133	4
	北	363	157	31	10	10	5	3	6	17	32	24	16	20	27	36	177	2
静穏	0	2	7	3	2	0	0	3	0	2	0	0	0	0	0	3	0	

図 1-4 WRF 九州領域の計算結果 (2001年暖候期 福岡 その2)

1.1.3.1. 精度評価指標（BIAS および RMSE）による評価

関東地域（東京）および九州地域（福岡）における気温と風速に対して、全日データを対象に BIAS および RMSE を算出し、月別にとりまとめた（図 1-6）。図 1-6 より、両指標とも、既存調査¹（関東領域 5km 格子の計算で、気温の BIAS は 0~0.9、RMSE は 2.3~3.0、風速の BIAS は-1.2~-0.4、RMSE は 1.4~2.3）と比較して同等の値である。また、2007 年以前と 2008 年以降で BIAS および RMSE の傾向に違いがみられる（2008 年以降を黒枠で表示）。これは、WRF へ入力する気象データとして 2008 年以降、気象庁の毎時大気解析 GPV²を付加したことによる影響と考えられる。

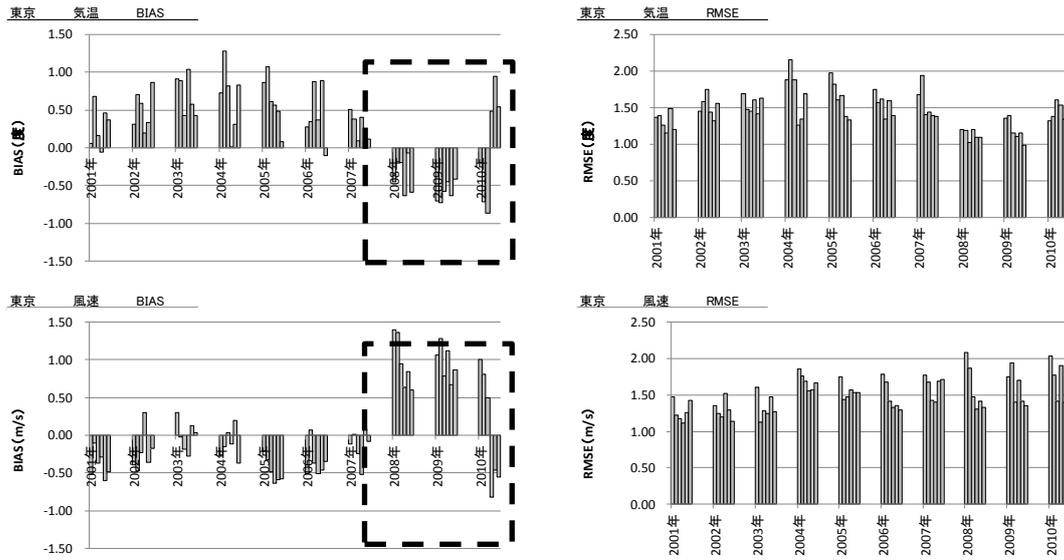


図 1-5 東京における気温と風速の月別統計値(BIAS および RMSE)

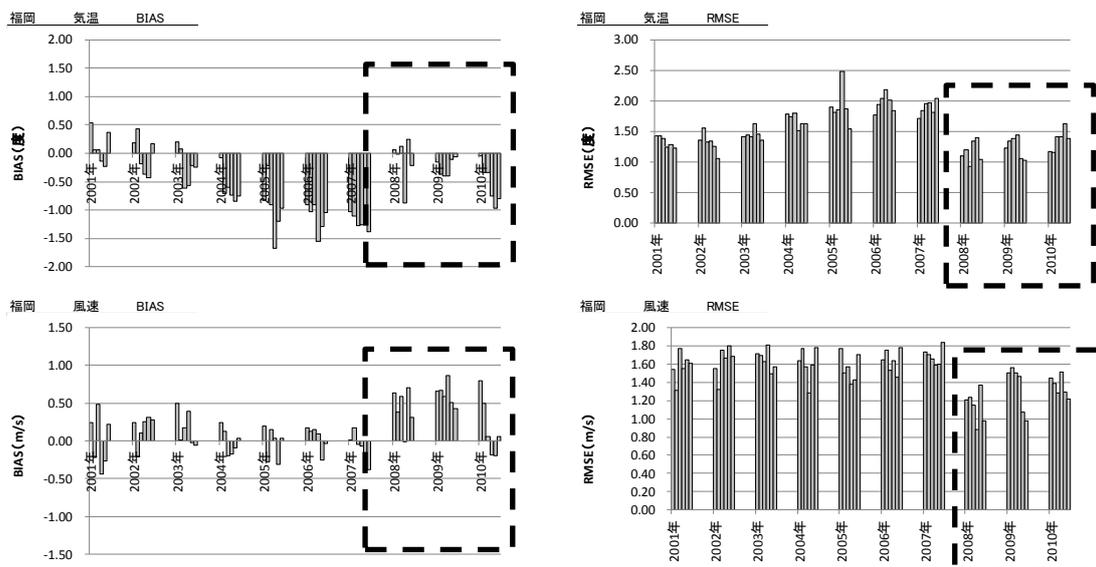


図 1-6 福岡における気温と風速の月別統計値(BIAS および RMSE)

¹ 平成 22 年度 揮発性有機化合物（VOC）の浮遊粒子状物質及び光化学オキシダントの生成に係る調査（環境省）
² 風と気温について 1 日 24 回（毎時）、客観解析されているデータ

1.1.3.2. 混合層高さの比較

地表付近で大気中に排出された汚染物質が大気の乱れや対流活動で鉛直方向に運ばれ、周囲との混合・希釈が行われる高さを混合層高さという。このため、混合層高さの再現性は、大気汚染物質の濃度の再現性に大きな影響を与える。

ここでは、WRFによる混合層高さの再現性を確認するために、上層気象観測（レーウィンゾンデ観測）が行われた2001年（平成13年）の夏季の事例について、測定値と計算値について比較を行った。

(1) 観測の概要

上層気象観測結果は、「平成13年度 浮遊粒子状物質環境汚染実態解析調査（環境省）」を用いた。この観測の概要は以下のとおりである。観測は2001年8月と11月に実施しているが、解析は暖候期（4～9月）に含まれる8月のデータを対象に実施した。

表 1-1 上層気象観測の概要

項目	内容
観測方法	低層レーウィンゾンデ
観測項目	上層風、上層気温、上層湿度
観測高度	0～3000m、100m ごと
観測地点	浦和
観測期間	夏季：2001年8月1～5日
観測時間	夏季：5,9,12,15,18時

(2) 測定値による Lid 高さ（混合層高さ）の算定

Lid 高さ（混合層高さ）は、温位の鉛直分布から求めた。計算方法は「窒素酸化物総量規制マニュアル（増強改訂版）」に従った。以下にマニュアルに示された計算手順を示す。ここで、 θ は温位、 z は高度、Lid 高さ L としている。

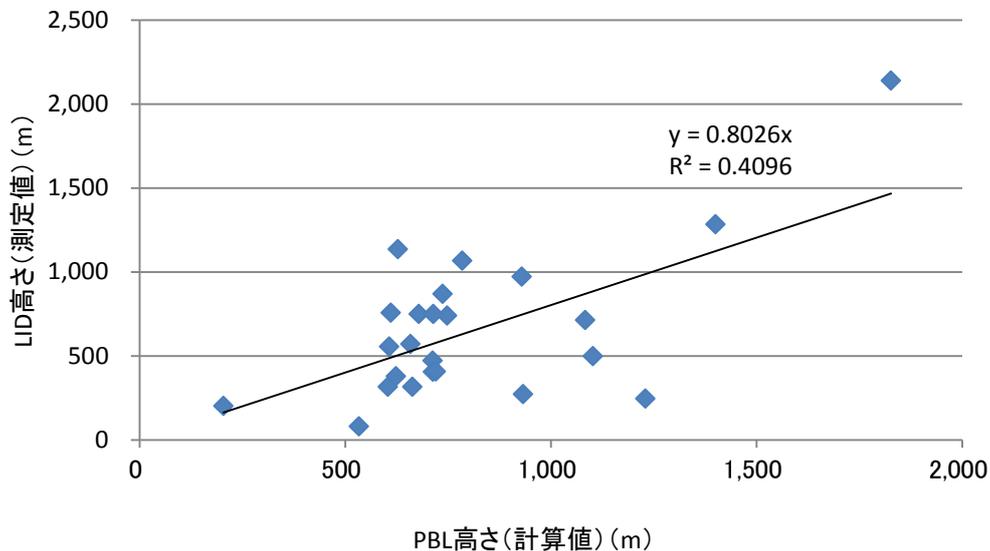
<ol style="list-style-type: none"> 1. 温位 $\theta(z_1)$ を計算. ($z_1=100\text{m}$ 程度) 2. $\theta(z_1)$ にある温位 $\Delta\theta$ を加え、温位の鉛直分布との交点 L' を求める。 すなわち $\theta(L') = \theta(z_1) + \Delta\theta$となる高度 L' を求める。ここで $\Delta\theta$ は 1°C とする。 3. 次に Lid 内の温位勾配 r_L とする時、Lid 高 L を $L = L' - \Delta\theta / r_L$により求める。 r_L は $0.6^\circ\text{C}/100\text{m}$ としている。 	
--	--

(3) WRF モデルによる PBL 高さの算定

PBL (Planetary Boundary Layer) 高さは、地表面の摩擦の影響を直接受ける層のことをいう。WRF には PBL 高さの計算が組み込まれており、PBL 高さは自動的に計算される。選択した境界層モデルにより PBL 高さの計算方法は異なり、Bulk Richardson 数により計算する方法や、乱流エネルギーにより求める方法、温位の鉛直分布により求める方法などが採用されている。本調査では境界層モデルに MYNN2.5 を用いており、温位の鉛直分布と乱流エネルギーによってそれぞれ PBLH を求め、重み付けをして算出している（重み付の割合は温位の鉛直分布による算出値の方が大きい）。

(4) 混合層高さの測定値と計算値の比較

LID 高さ（測定値）と PBL 高さ（計算値）の散布図を図 1-7 に示した。相関係数は 0.64 ($R^2=0.41$) であり、測定された LID 高さを概ね再現していると考えられるが、LID 高さが 500m 以下の場合には PBL 高さが過大となる傾向がみられた。



1.2. 大気質モデルの精度検証（関東および九州領域対象）

1.2.1. 解析の目的

大気汚染常時監視測定局を対象に、大気汚染物質の測定値と大気質モデル（CMAQ）による計算値を比較し、シミュレーションによる大気汚染物質の再現性について把握することを目的とする。

1.2.2. 解析方法

関東領域は、杉並区久我山（東京都）、衛生研究所（埼玉県さいたま市）および中央小学校（群馬県太田市）について、九州領域は、環境保健センター（山口県山口市）および福岡市役所（福岡県福岡市）について、O₃、PO、NO、NO₂、NO_x、NMHC（非メタン炭化水素）の計算値と測定値の経過図および散布図を作成した。

なお、NMHCについては、CMAQの計算物質に対して、表 1-2 に示したような係数を乗じて算出した（NMHC=ETHENE×2+ISOPRENE×5+・・・+SESQ×15）。

表 1-2 NMHC の算出に用いた計算物質と係数

計算物質	係数	計算物質	係数
ETHENE	2	ARO1	7.31
ISOPRENE	5	ARO2	8.36
TRP1	10	BENZENE	6
ALK1	2	OLE1	5.16
ALK2	2.59	OLE2	5.15
ALK3	4.04	SESQ	15
ALK4	5.19		
ALK5	8.11		

1.2.3. 解析結果

関東領域および九州領域の 5 地点のうち、2001 年の東京都杉並区久我山および福岡県福岡市福岡市役所を対象に、図 1-8～図 1-11 に O₃、PO、NO、NO₂、NO_x、NMHC の計算値と測定値の経過図を示した。

2001 年の関東領域の東京都杉並区久我山において O₃ 濃度の計算値がやや過大であり、200ppb 以上の高濃度になる時間もみられた。一方、NO_x は計算値が過小となる傾向がみられた。また、NMHC も NO_x と同様に計算値がかなり過少となる傾向がみられた。

九州領域の福岡市役所の O₃ 濃度については、関東地域でみられたような 200ppb 以上の高濃度が計算される事例は見られなかったが、計算値が全体的に過大であった。特に 2001 年の計算値が過大で、2005 年、2010 年と最近になるにつれて計算値が測定値に近づく傾向がみられた。また、山口市環境保健センターは O₃、NO_x とともに再現性が高くなかった。また、参考資料 6 示した追加検証地点（福岡県福岡市元岡）においては、O₃、NO_x の再現性は比較的高いことから、地点によって O₃ や NO_x の再現性が異なることが考えられる。

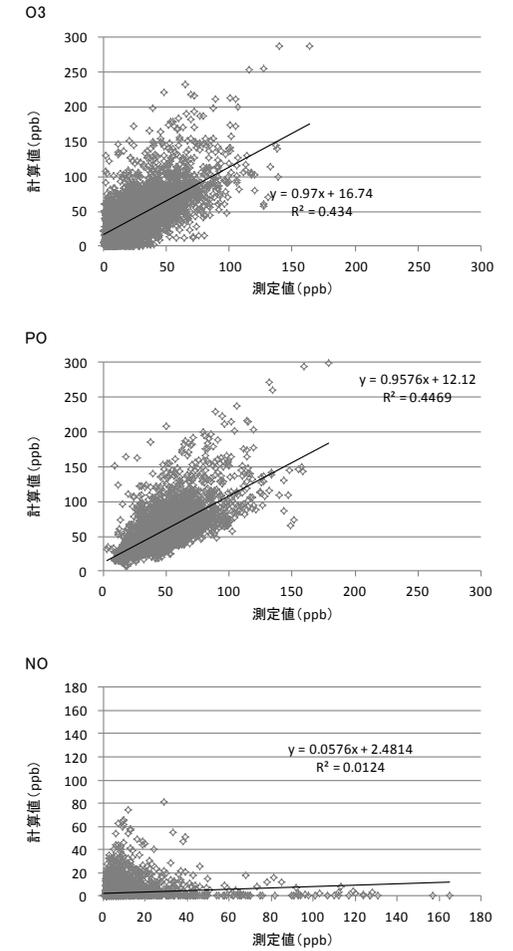
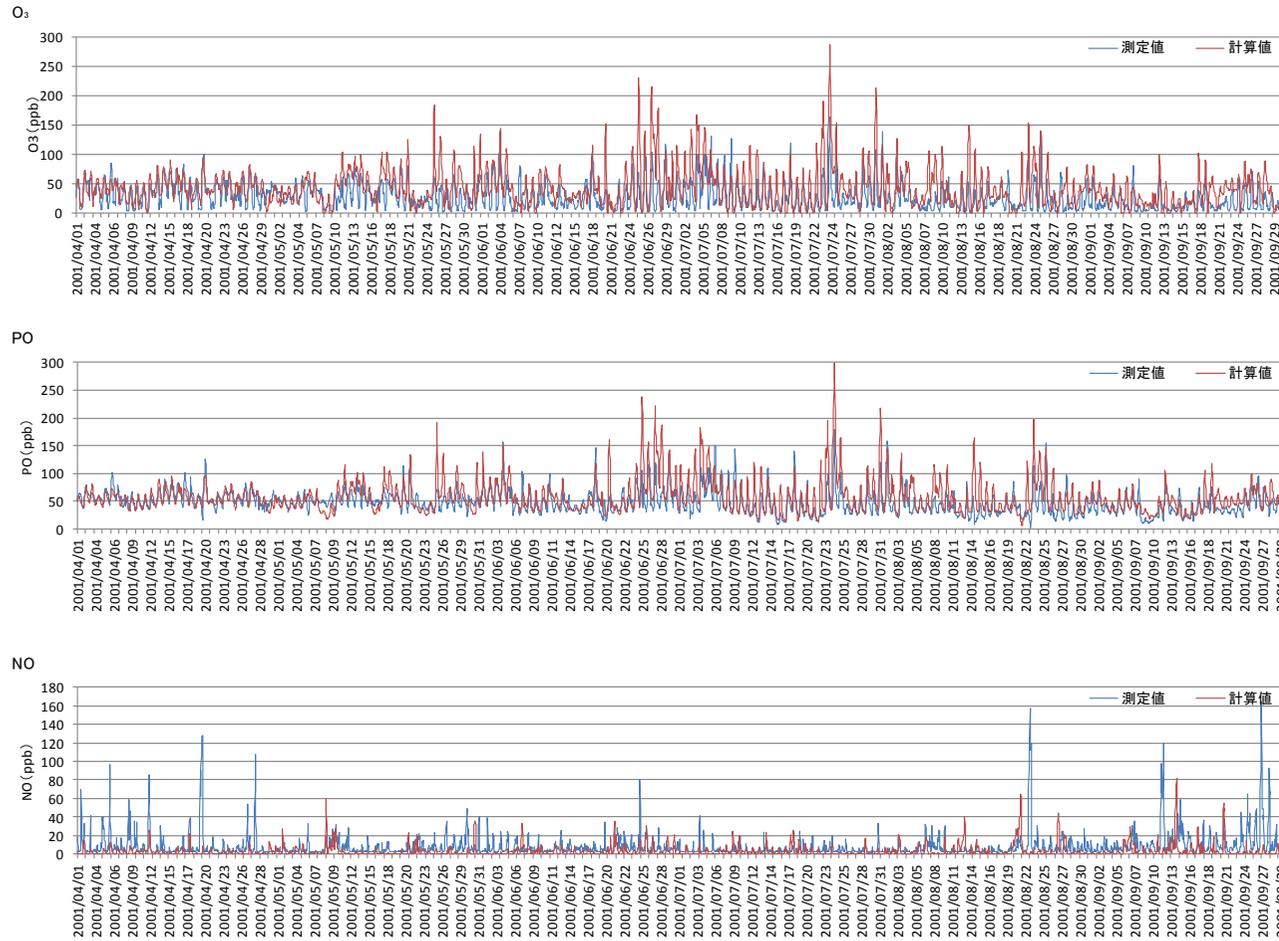


図 1-8 CMAQ 関東領域の計算結果(2001年暖候期 東京都杉並区久我山 その1)

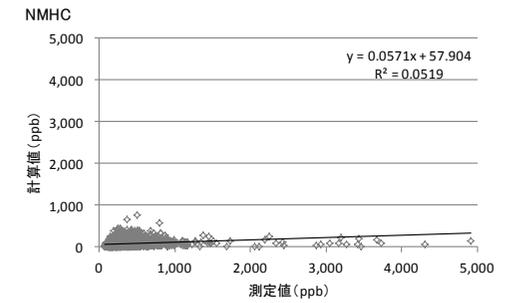
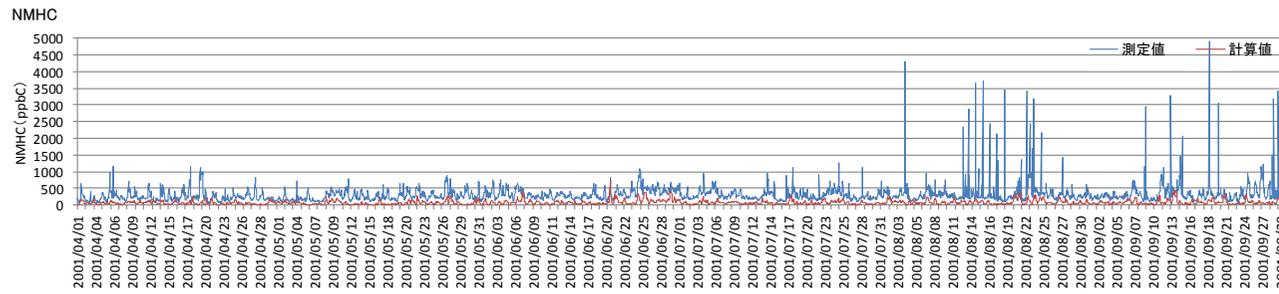
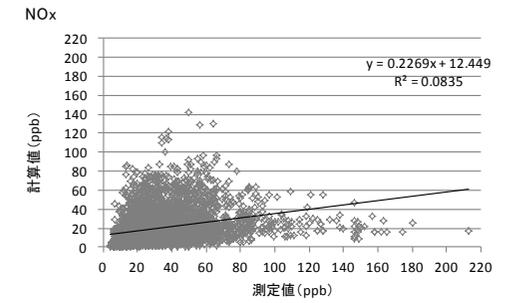
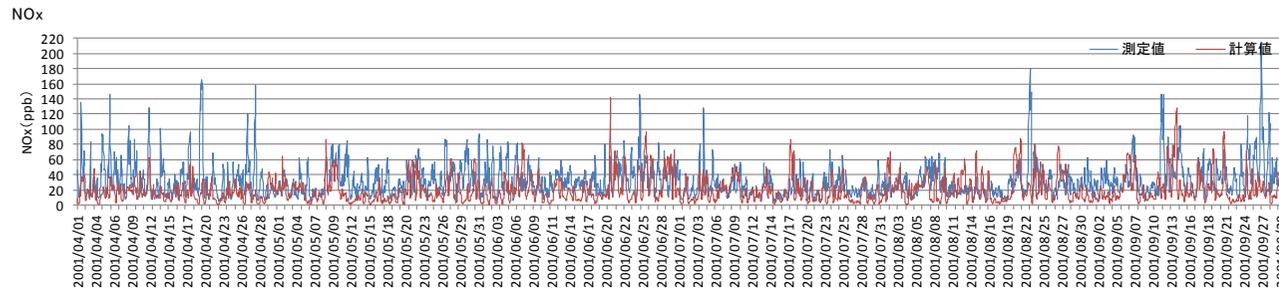
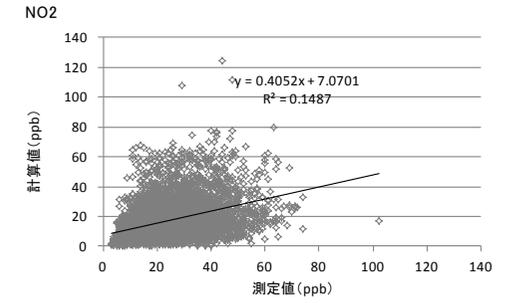
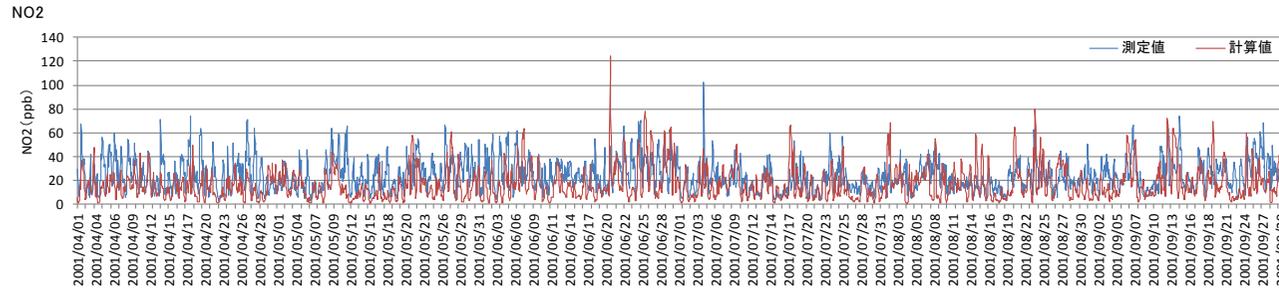


図 1-9 CMAQ 関東領域の計算結果 (2001年暖候期 東京都杉並区久我山 その2)

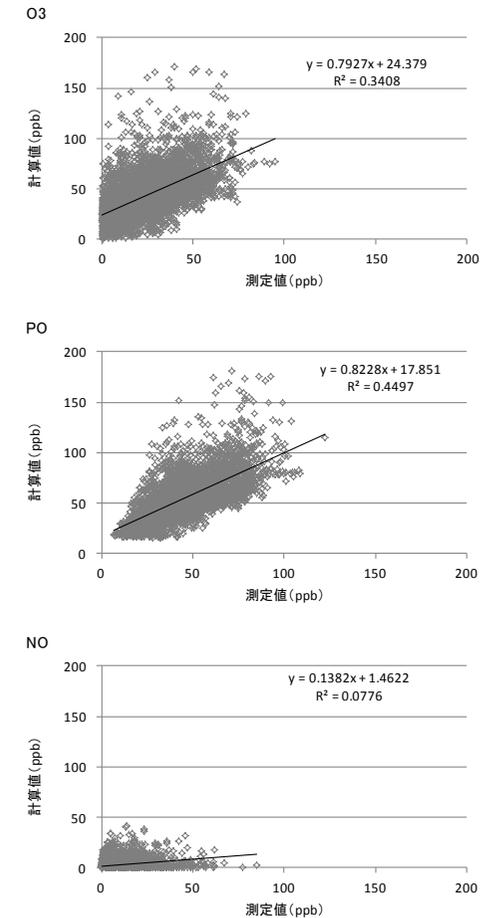
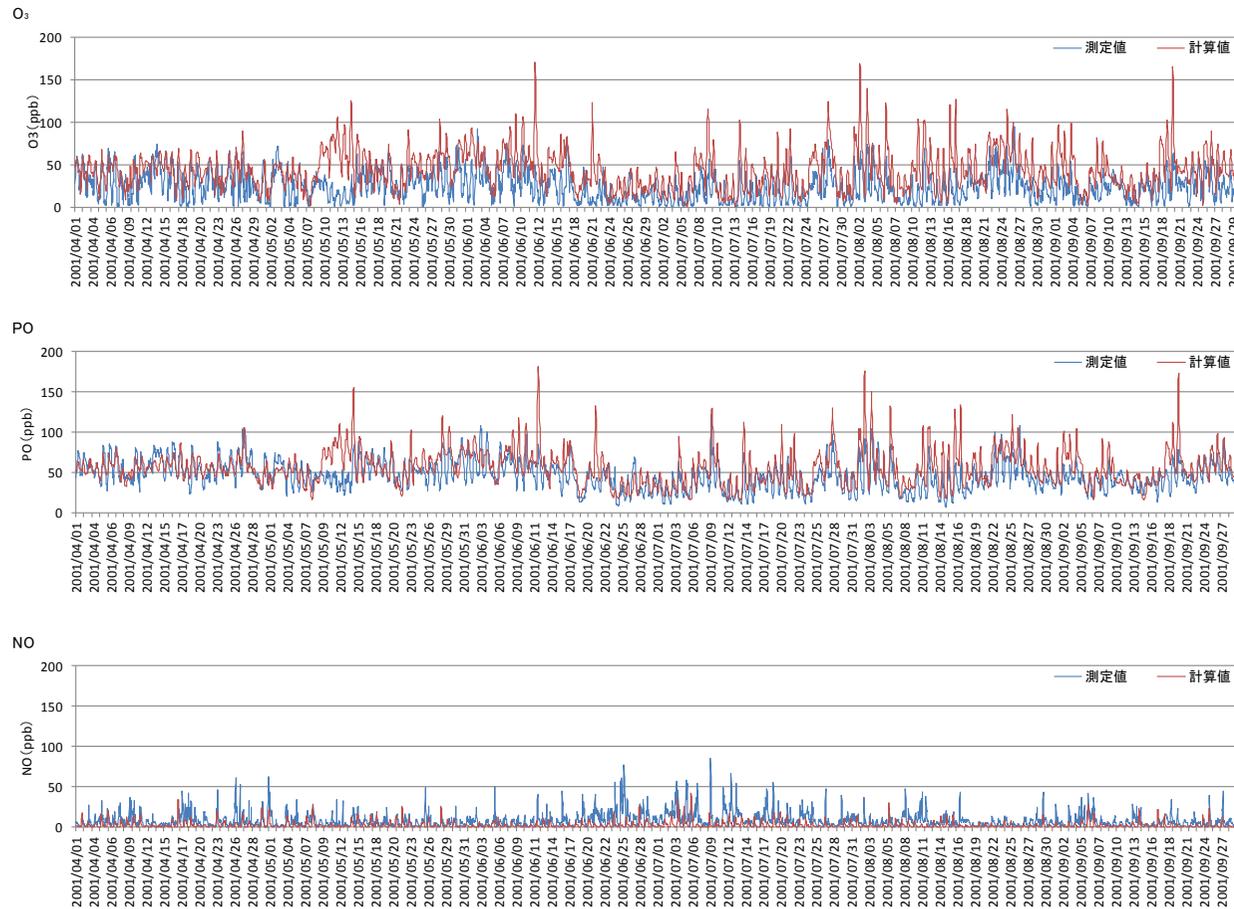


図 1-10 CMAQ 九州領域の計算結果 (2001年暖候期 福岡県福岡市福岡市役所 その1)

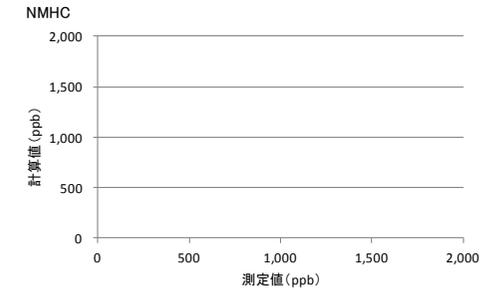
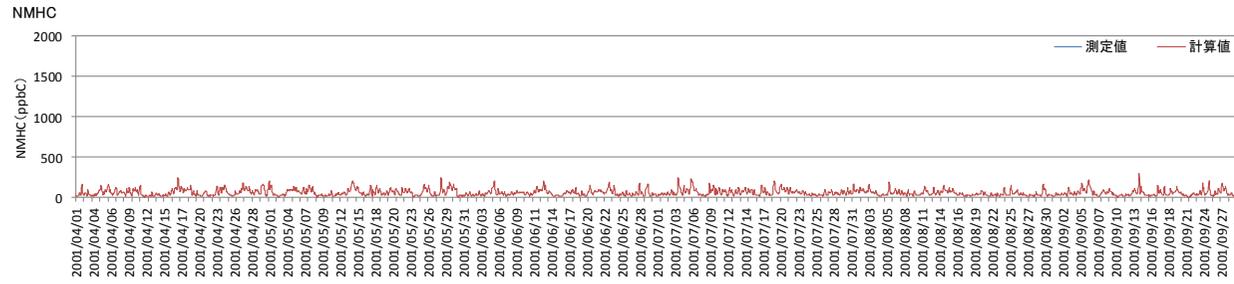
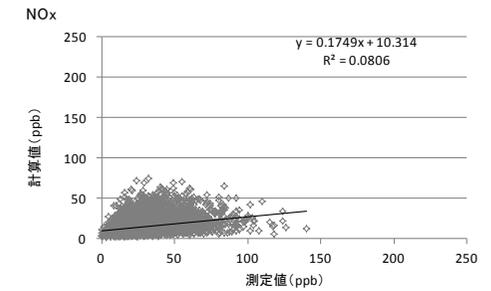
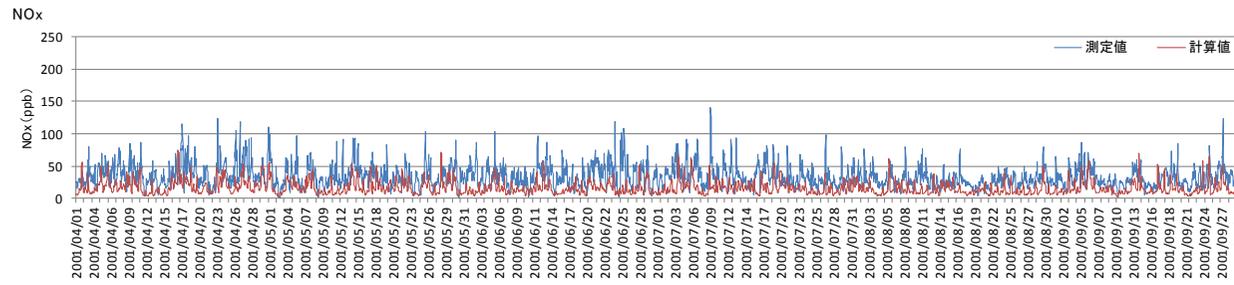
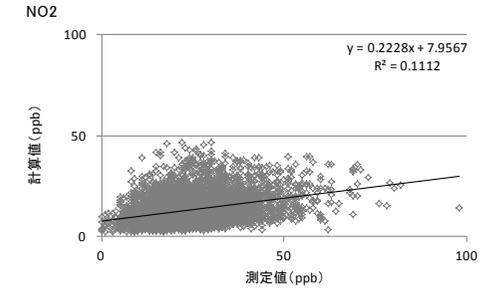
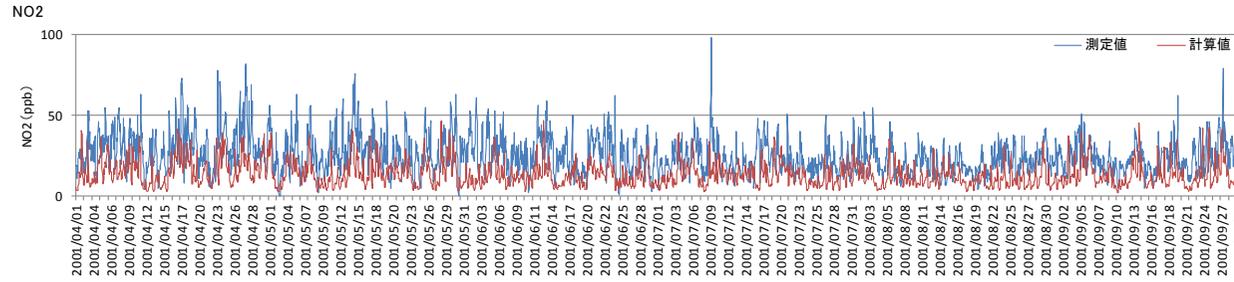


図 1-11 CMAQ 九州領域の計算結果 (2001年暖候期 福岡県福岡市福岡市役所 その2)

1.2.3.1. 精度評価指標（NB、NGE および MPA）による評価

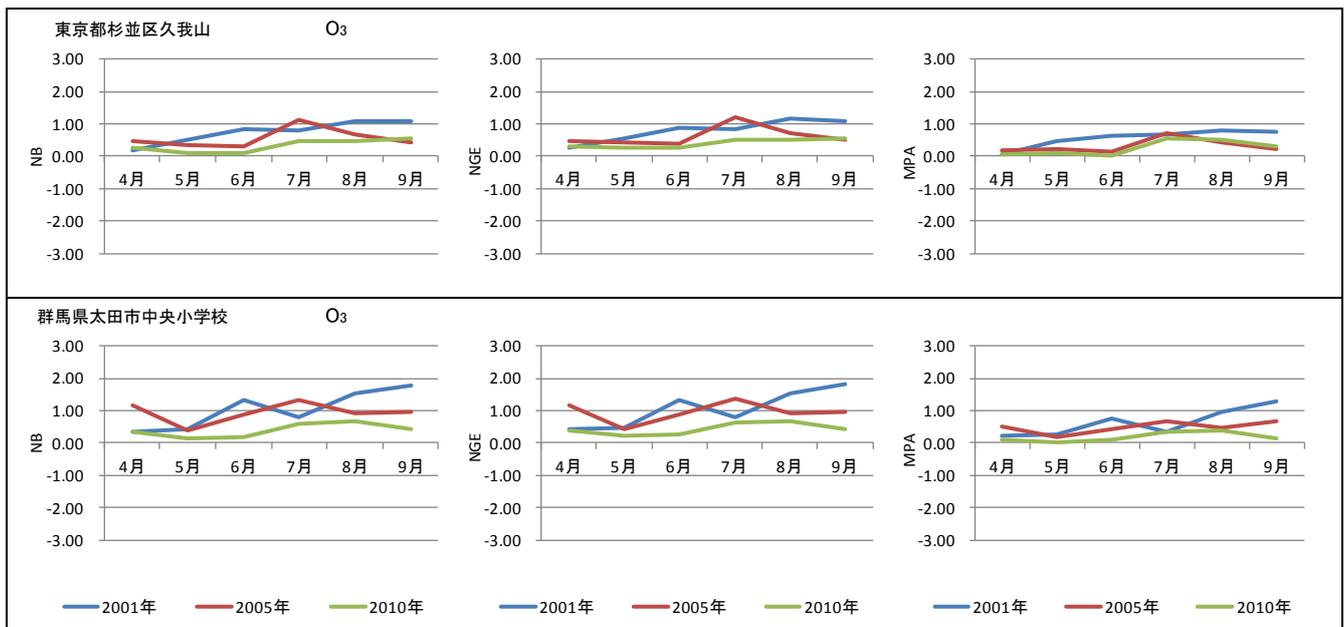
O₃ 濃度について、昼間（5～20 時）のデータを対象に日統計値を算出し、精度評価指標（NB、NGE および MPA）による評価を行った。なお、本解析では、O₃ 濃度を評価するうえで、カットオフ濃度は設定していない。結果を図 1-12 に示した。また、表 1-3 に精度評価に用いた指標について整理した。

表 1-3 精度評価について

指標	計算式	O _x の評価基準の例	備考
NB (Normalized Bias)	$NB = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \frac{C_{calc,i} - C_{obs,i}}{C_{obs,i}}$	NB ≤ ±0.15	<ul style="list-style-type: none"> 測定値と計算値の差を測定値で標準化した値の和 モデルの系統的な誤差を表す
NGE (Normalized Gross Error)	$NGE = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \frac{ C_{calc,i} - C_{obs,i} }{C_{obs,i}}$	NGE ≤ 0.35	<ul style="list-style-type: none"> 測定値と計算値の差の絶対値を測定値で標準化した値 値が 0 に近ければ、測定値と計算値の差は小さく、精度がよいと考えられる
MPA (Maximum Prediction Accuracy)	$MPA = \frac{C_{calc,max} - C_{obs,max}}{C_{obs,max}}$	MPA ≤ ±0.20	<ul style="list-style-type: none"> 5～20 時の最高値に関して測定値と計算値の差を測定値で標準化した値 値が 0 に近ければ、測定値と計算値の差は小さく、精度がよいと考えられる

評価基準の目安は、EPA のガイドラインに示されていた目安である
(最新のガイドラインでは、この値は採用されていない)

図 1-12 より、全地点で 2010 年の再現性が高い傾向がみられる。また、月別では、4～6 月の再現性が 7～8 月と比べて高い。山口市の環境保健センターの 2001 年の 8 月と 9 月は、計算値が過大であり、再現性が低い。評価基準の目安より値が大きい理由の一つとして、カットオフ濃度を設定していないことが考えられる。



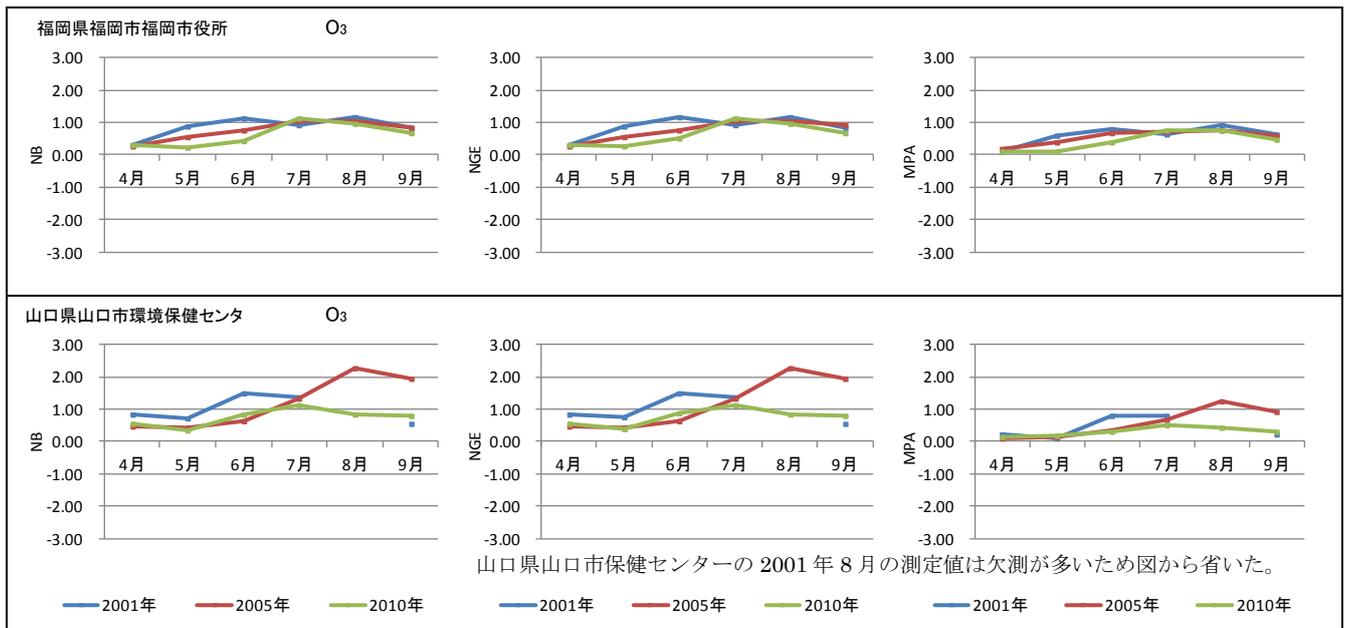


図 1-12 精度評価指標による評価 (O₃)

1.2.3.2. 平日休日別濃度の評価

(1)解析の目的

O₃ 濃度が休日に上昇する現象を「週末効果」と呼んでいる。これは、NO によるタイトレーション効果が要因の一つではないかと考えられている。ここでは、シミュレーションによって週末効果が再現されているか検討した。

(2)解析方法

2001 年、2005 年および 2010 年を対象に、関東領域（東京都杉並区久我山、埼玉県さいたま市衛生研究所、群馬県太田市中央小学校）および九州領域（福岡県福岡市福岡市役所、山口県山口市環境保全センター）について、平日および休日（土曜日および日曜日）の全日データを対象に O₃ 濃度および NO_x の平均値を算出した。

(3)解析結果

平日および休日（土曜日および日曜日）別に、全日データを対象とした O₃ 濃度および NO_x の平均値（計算値および測定値）を図 1-13 および図 1-14 に示した。また、昼間（5～20 時）を対象とした O₃ 濃度および NO_x の平均値（計算値および測定値）を図 1-15 および図 1-16 に示した。

図 1-13 および図 1-14 から、関東地域においては、すべての測定地点で平日よりも休日の O₃ 濃度測定値が高い傾向がみられる。計算値についても、2001 年の杉並区久我山以外の結果は、測定値よりも高い濃度ではあるが、平日よりも休日の O₃ 濃度が高い傾向がみられる。NO_x 濃度は、計算値および測定値ともに平日の方が高い濃度であった。

九州地域の O₃ 濃度測定値については、2001 年は週末効果がみられるが、2005 年以降、

明確な週末効果はみられない。計算値については、福岡市役所では平日よりも休日の O₃ 濃度測定値が高い傾向がみられるが、山口市環境保健センターにおいては、3 か年とも平日の O₃ 濃度計算値が高い結果となった。NO_x 濃度は、関東地域と同様に、計算値および測定値ともに平日の方が高い濃度であった。

図 1-15 および図 1-16 から、昼間（5～20 時）を対象とした場合、計算値、測定値ともに、全日を対象とした場合と比較して、平日休日の O₃ 濃度の傾向は変わらないが、O₃ 濃度は高くなった。

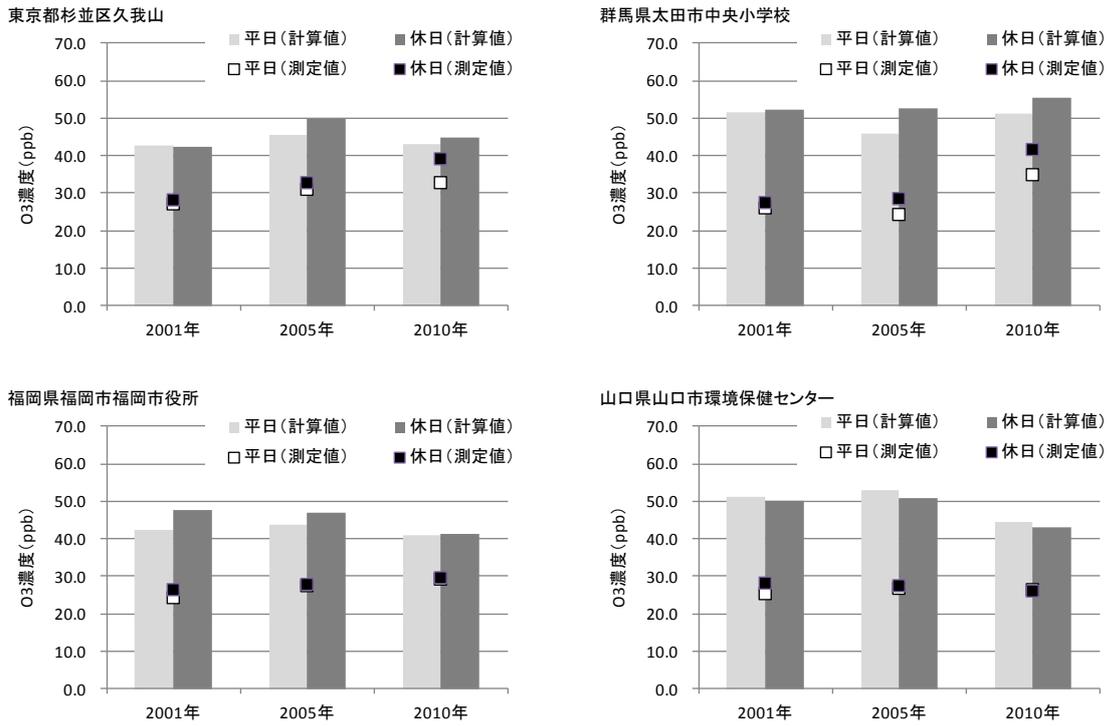


図 1-13 平日休日別の O₃ 濃度平均値 (全日データ対象)

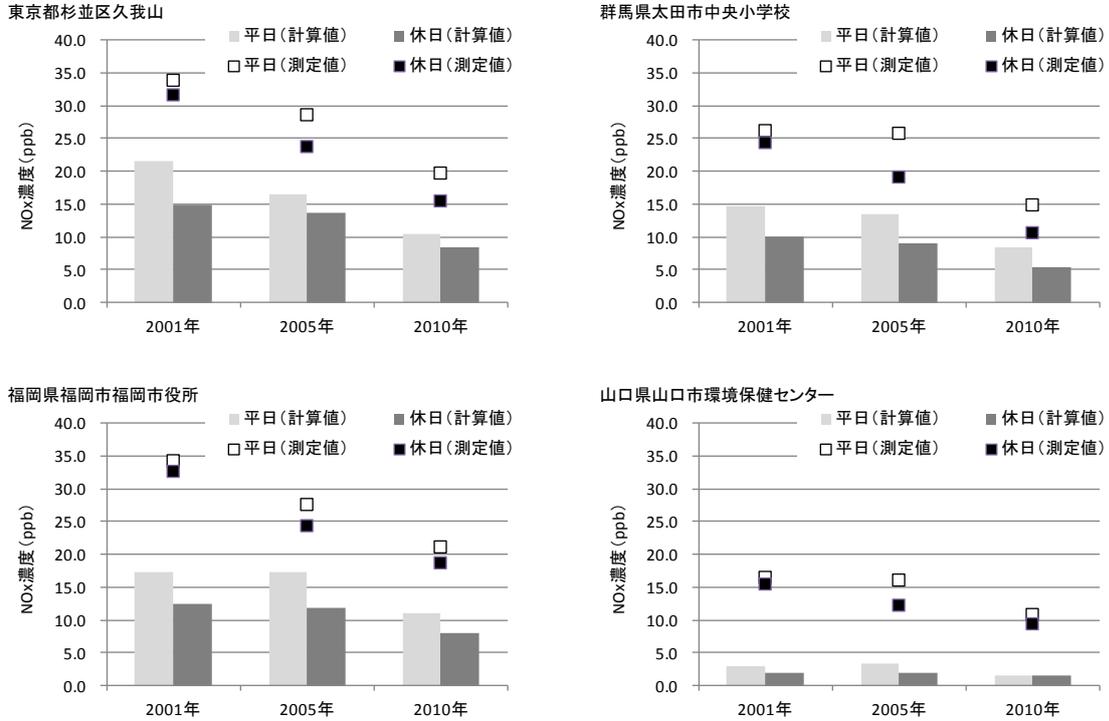


図 1-14 平日休日別の NO_x 濃度平均値 (全日データ対象)

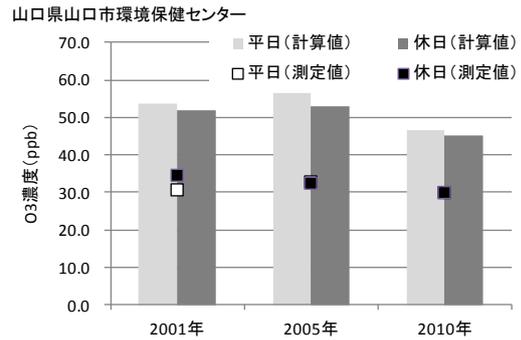
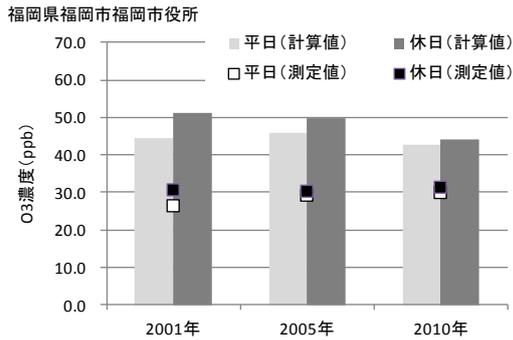
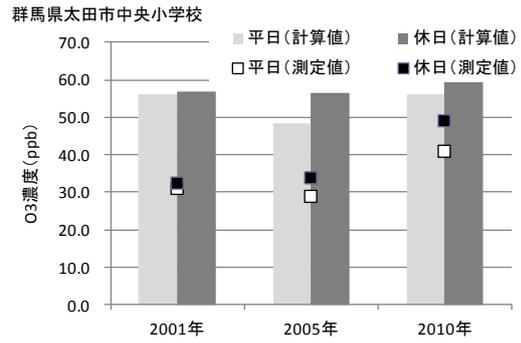
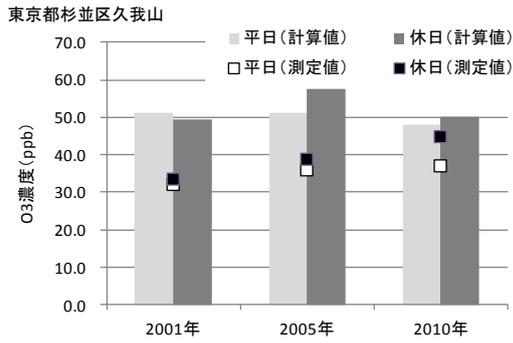


図 1-15 平日休日別の O₃ 濃度平均値 (昼間 (5~20 時) データ対象)

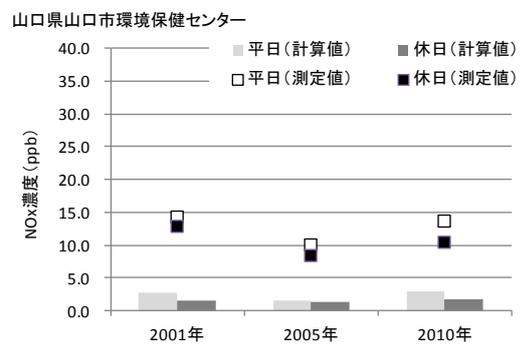
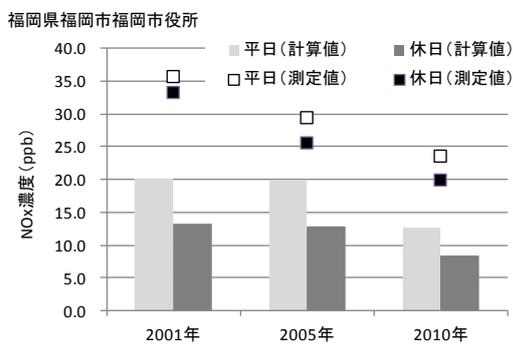
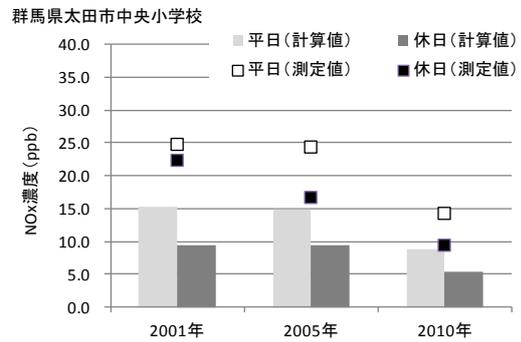
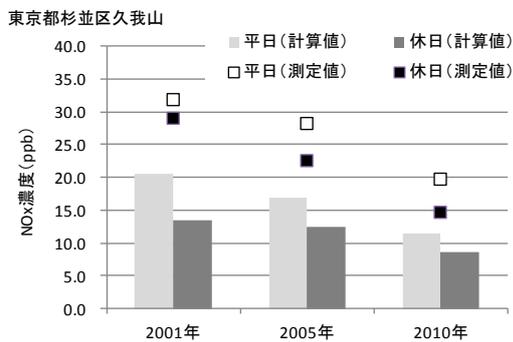


図 1-16 平日休日別の NO_x 濃度平均値 (昼間 (5~20 時) データ対象)

1.3. シミュレーションによる前駆物質の再現性の確認

1.3.1. 解析の目的

シミュレーションによる VOC および NO_x の再現性について確認することを目的として、本解析を実施した。特に VOC については個別成分について計算値と測定値の比較を行った。

1.3.2. 解析方法

解析は、①VOC 成分の集中観測結果、②環境省 VOC モニタリング調査結果および③一般環境大気常時監視局の観測結果を対象に実施した。

<①VOC 成分の集中観測結果との比較³>

2007 年 8 月 21 日～29 日に東陽町で実施された VOC 成分の集中観測結果を対象に、シミュレーション結果との比較を行った。VOC 成分の測定値は、表 1-4 に示すような気相反応モデル SAPRC99 で用いられている VOC 成分別に分類、集計し、計算値と比較した。

表 1-4 気相反応モデル SAPRC99 で用いられている VOC 成分の一覧

Species group	SAPRC99 species	Measured species
NO ₂	NO2	NO ₂
NO	NO	NO
O ₃	O3	O ₃
CO	CO	CO
SO ₂	SO2	SO ₂
AVOC	ALK1	ethane
	ALK2	acetylene, propane
	ALK3	isobutane, n-butane, 2,2-dimethylbutane
	ALK4	2,3-dimethylbutane, isopentane, n-pentane, cyclopentane, 2-methylpentane, 3-methylpentane, n-hexane, methylcyclopentane, 2,4-dimethylpentane, 2,2,4-trimethylpentane
	ALK5	cyclohexane, 2-methylhexane, 2,3-dimethylpentane, 3-methylhexane, n-heptane, methylcyclohexane, 2,3,4-trimethylpentane, 2-methylheptane, 3-methylheptane, n-octane, n-nonane
	ETHENE	Ethene
	OLE1	propylene, 1-butene, 3-methyl-1-butene, 1-pentene, 4-methyl-1-pentene
	OLE2	butadiene, trans-2-butene, cis-2-butene, trans-2-pentene, cis-2-pentene, 2-methyl-2-butene, cyclopentene, 2-methyl-1-pentene, trans-2-hexene, cis-2-hexene, styrene
	ARO1	benzene, toluene, ethylbenzene, iso-propylbenzene, n-propylbenzene
	ARO2	p,m-xylene, o-xylene, 1,3,5-trimethylbenzene, 1,2,4-trimethylbenzene
BVOC	ISOPRENE	Isoprene
	TRP1	α-pinene, camphene, β-pinene, limonene
OVOC	MEOH	methanol
	HCHO	formaldehyde
	CCHO	acetaldehyde
	ACET	acetone
Missing sinks	NO3, HNO3, HONO, HO2, HNO4, HO2H, COOH, ROOH, RNO3, MEK, PROD2, CCO.OOH, RCO.OH, PHEN, HCOOH, RCHO, GLY, MGLY, CRES, BALD, METHACRO, MVK, ISOPROD, DCB1, DCB2, DCB3	

³ S. Chatani, N. Shimo, S. Matsunaga, Y. Kajii, S. Kato, Y. Nakashima, K. Miyazaki, K. Ishii, and H. Ueno: Sensitivity analyses of OH missing sinks over Tokyo metropolitan area in the summer of 2007, Atmos. Chem. Phys., 9, 8975–8986, 2009

<②環境省 VOC モニタリング調査結果との比較>

関東領域および九州領域における VOC 成分測定局の測定値を対象に、シミュレーション結果との比較を行った。対象期間は、2006～2010年、対象測定局は、関東領域は大袋局（埼玉県越谷市）、南千住局（東京都荒川区）および足利市役所局（栃木県足利市）である。九州領域は、下関長府東局（山口県下関市）、福岡県黒崎局（福岡県北九州市八幡西区）および八本局（福岡県大牟田市）を対象とした。比較に用いる統計値は、測定値については VOC 成分の測定が実施された期間の平均値を算出し、表 1-5 に示すような気相反応モデル SAPRC99 で用いられている VOC 成分別に分類、集計した値を設定した。計算値については、VOC 成分を測定した月の平均値を比較に用いる統計値に設定した。

表 1-5 測定物質と気相反応モデル SAPRC99 で用いられている VOC 成分との対応

測定物質	SAPRC99のVOC成分
酢酸エチル	ALK2
n-ブタン	ALK3
イソブタン	
イソプロピルアルコール	ALK4
酢酸ブチル	
n-ヘキサン	
n-ペンタン	
デカン	ALK5
n-ブタノール	
ウンデカン	
トルエン	ARO1
キシレン	ARO2
1, 3, 5トリメチルベンゼン	
メチルエチルケトン	MEK
メチルイソブチルケトン	MVK
cis-2-ブテン	OLE2
アセトン	ACET

<③一般環境大気常時監視局の観測結果との比較>

関東領域に含まれる測定局（計 363 測定局）を対象に NO_x および NMHC の全日データを対象として、年平均値および 3 年平均値を算出し、経年変化について比較した。

1.3.3. 解析結果

<①VOC 成分の集中観測結果との比較>

表 1-4 に示した対応関係に従って、VOC 測定値と計算値の比（計算値/測定値）を算出した（図 1-17）。図 1-17 より OLE1、ISOPRENE、TRP1、MEOH、ACET の計算値は測定値と比べて大幅に過小であるが、その他の成分の計算値は、測定値に対して 50～150%程度であった。

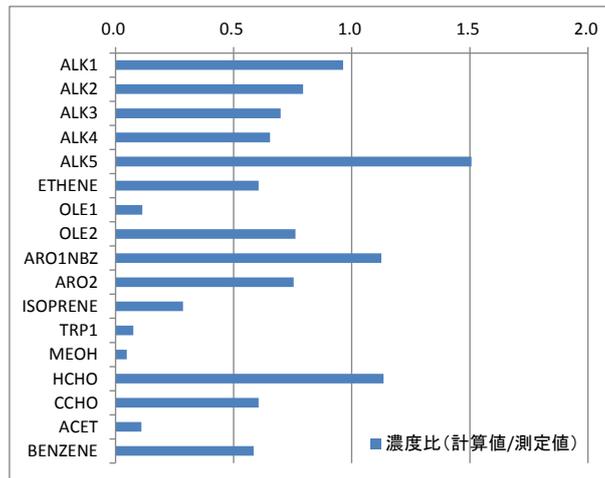


図 1-17 VOC 成分濃度測定値に対する計算値の比（計算値/測定値）

<②VOC 成分測定局の測定データとの比較>

東京都南千住局および福岡市黒崎局の結果を示した。ALK2、ALK3 および ACET は測定値の方が濃度が高い傾向は、①VOC 成分の集中観測結果との比較と同様の傾向である。

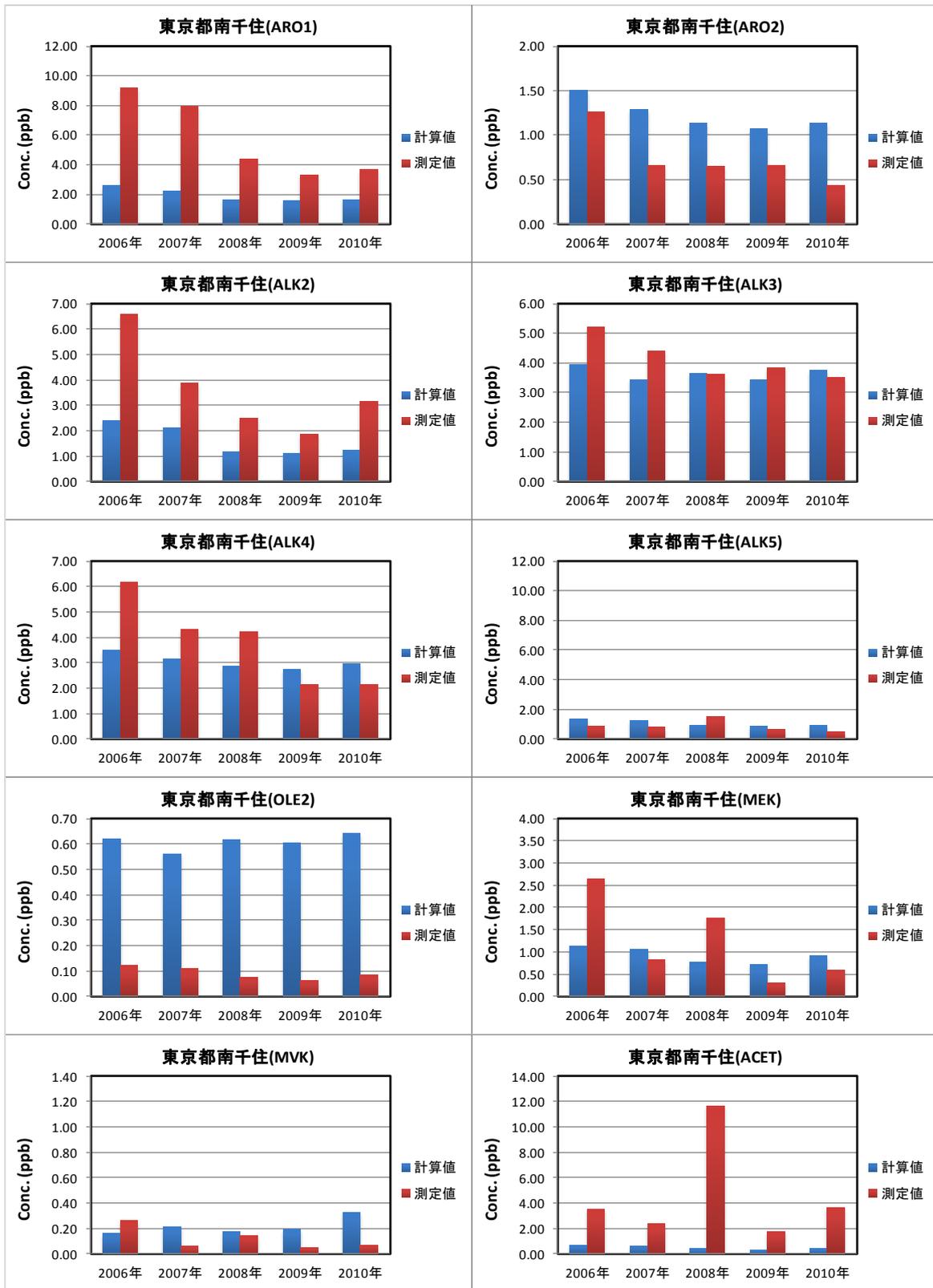


図 1-18 VOC 成分測定局の測定値と計算値 (東京都南千住局)

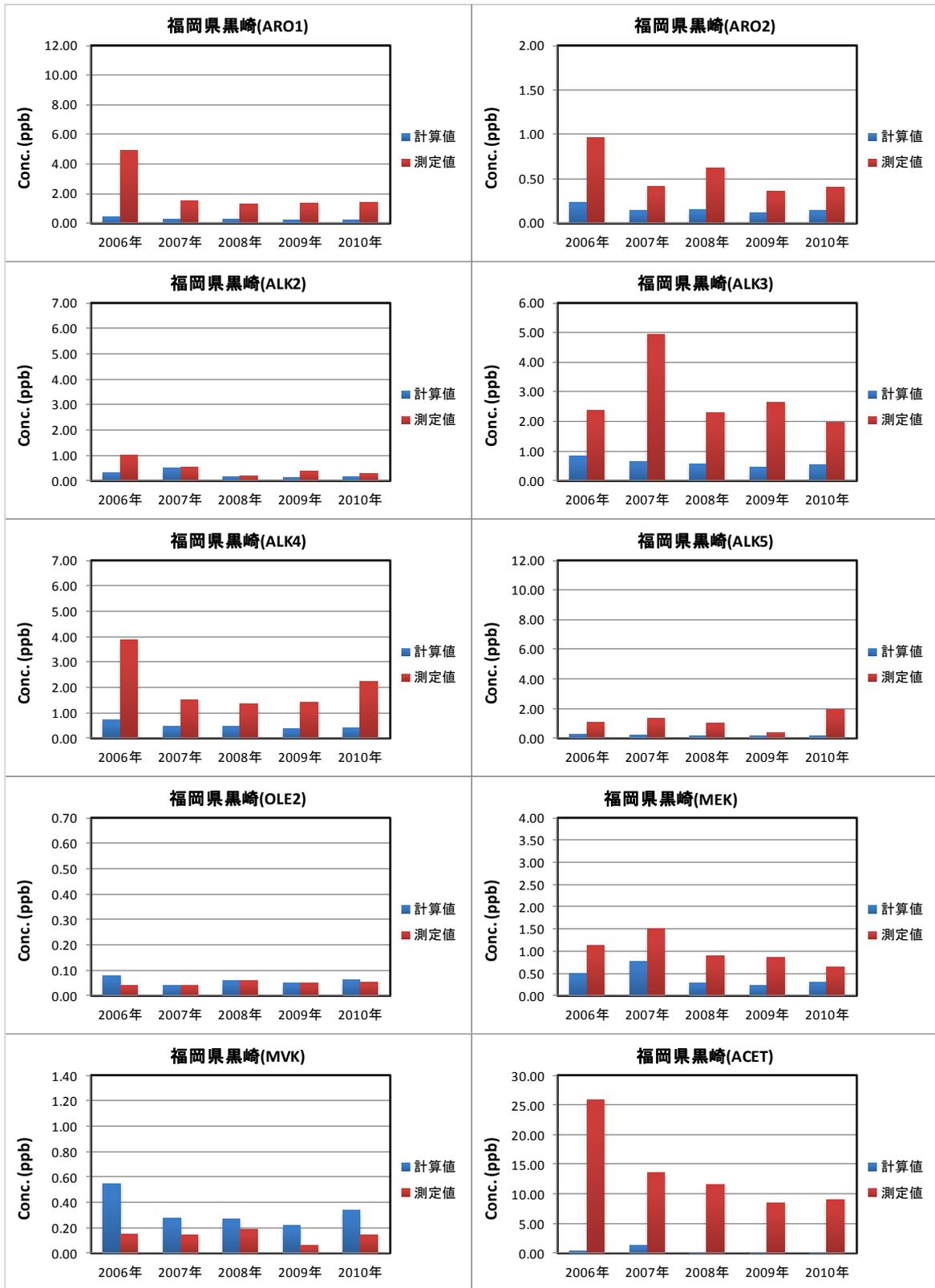


図 1-19 VOC 成分測定局の測定値と計算値 (福岡県黒崎局)

<③一般環境大気常時監視局の観測結果との比較>

図 1-20 に一般環境大気常時監視局を対象とした、NO、NO₂、NO_x および NMHC の年平均値の濃度推移（計算値および測定値）を示した（黒枠が 2001～2010 年に対応）。NO_x および NMHC とともに 2001～2010 年にかけて濃度が低下する傾向は、計算値においても再現している。表 1-6 に NO_x および VOC の濃度低下率を示した。計算値は概ね測定値と同様の低下率を示している。ただし、濃度の絶対値については、計算値は過小評価である。

既報⁴によると NO 計算値は測定値の 10～60%程度、NO₂ 計算値は測定値の 10～70%程度である。また、NO 計算値は測定値の 50%程度、NO₂ 計算値は測定値の 90%程度とした報告⁵もある。それらと比較すると、本解析の NO、NO₂、NO_x はやや過小である。

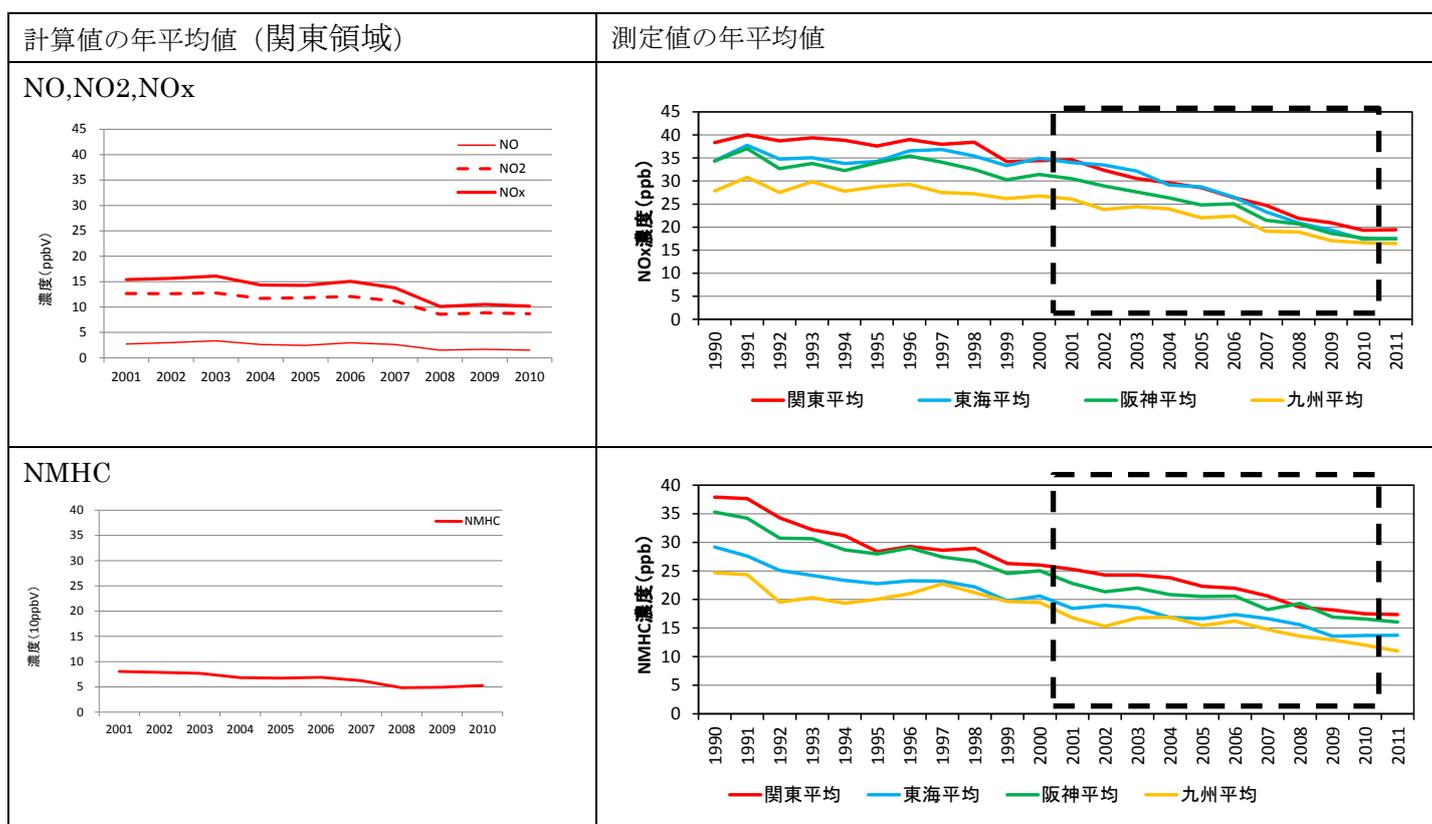


図 1-20 NO_x および NMHC の年平均値の濃度推移（計算値および測定値）

表 1-6 NO_x および NMHC の濃度低下率（関東領域）

	NO _x (ppbV)		NMHC (ppbV)	
	計算値	測定値	計算値	測定値
2001 年	16	35	80	250
2010 年	10	20	50	180
濃度低下率	63%	57%	63%	68%

⁴森野悠,茶谷聡,速水洋,佐々木寛介,森康彰,森川多津子,大原利眞,長谷川就一,小林伸治(2010),大気質モデルの相互比較実験による O₃, PM_{2.5} 予測性能の評価—2007 年夏季、関東の事例,大気環境学会誌,45(5),212-226

⁵ JATOP 大気研究グループ, JATOP1 報告資料「JATOP の最終報告と今後の課題」(2012)

1.4. 光化学オキシダント濃度の長期トレンドの再現精度の検証

1.4.1. 解析の目的

昨年の調査検討会で検討した新指標（日最高 8 時間平均値の暖候期 98 パーセンタイル値の 3 年平均値）による統計値を用いて、シミュレーションによる O₃ 濃度の長期トレンドの再現性について確認することを目的とする。

1.4.2. 解析方法

解析は、格子間隔 10km および格子間隔 60km の計算値を対象に実施した。それぞれの解析方法を以下に示した。

＜格子間隔 10km の計算値を対象にした場合＞

格子間隔 10km の計算値（関東領域および九州領域）を対象に関東（茨城、栃木、群馬、埼玉、千葉、東京、神奈川および山梨の合計 363 測定局）および九州（山口および福岡の合計 66 測定局）に含まれる測定局を対象に新指標による統計値を算出し、経年変化について検討した。

＜格子間隔 60km の計算値を対象にした場合＞

格子間隔 60km の計算値を対象に、関東領域および九州領域が含まれる計算格子のデータを対象に新指標による統計値を算出し、経年変化について検討した。

なお、日最高 8 時間平均値の暖候期 98 パーセンタイル値の 3 年平均値は、昨年度の解析と同様に、以下に示す手順に従って算出した。

8 時間値の算出

- ・ 8 時間値は、前 8 時間のデータを対象とし、平均値を求めた。
- ・ 8 時間値を求めるにあたっては、8 時間のうち 6 時間以上のデータがある場合有効とした。

↓

日最高 8 時間値の算出

- ・ 日最高 8 時間値を求めるにあたっては、24 時間のうち、一つでもデータがある場合を対象とした。

↓

暖候期代表値（日最高 8 時間値の暖候期 98 パーセンタイル値）の算出

- ・ 日最高 8 時間値の暖候期 98 パーセンタイル値を求めるにあたっては、183 日のうち、146 日分以上（8 割以上）のデータがある場合対象とした。

↓

暖候期代表値（日最高 8 時間値の暖候期 98 パーセンタイル値）の 3 年平均値の算出

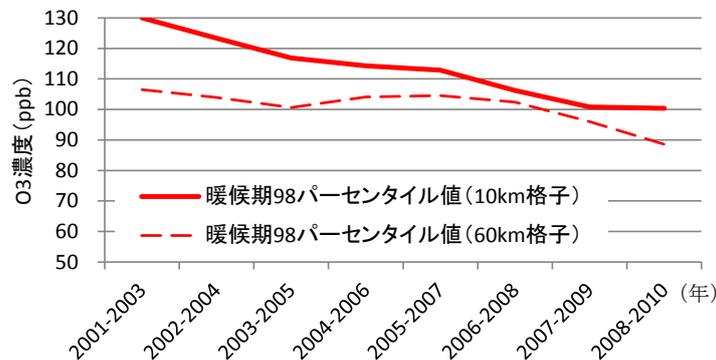
- ・ 暖候期代表値の 3 年平均値を求めるにあたっては、3 年分のデータがある場合を対象とした。

1.4.3. 解析結果

格子間隔 10km および格子間隔 60km の計算値を対象に、新指標の域内平均値について、測定値を対象にした解析結果と併せて図 1-21 および図 1-22 示した（黒枠が 2001～2010 年に対応）。なお、測定値を対象にした解析は年間データを対象としている。昨年の調査検討会において、年間の 99 パーセンタイル値は、暖候期の 98 パーセンタイル値とほぼ等しいことが確認されているため、年間の 99 パーセンタイル値（測定値）と暖候期の 98 パーセンタイル値（計算値）を比較した。

図 1-21 および図 1-22 より、10km 格子による計算値を対象にした解析では、関東領域および九州領域共に新指標による統計値が減少する傾向がみられるが、60km 格子による計算値を対象にした解析では、関東は、（2003～2005 年）～（2006～2008 年）にかけて横ばい、九州は、（2003～2005 年）～（2005～2007 年）にかけて増加、（2005～2007 年）以降は減少する傾向がみられる。時間のずれがあるものの 10km 格子よりも 60km 格子による計算値の方が、O₃ 濃度のトレンドを再現していると考えられる。

<計算値>



<測定値>

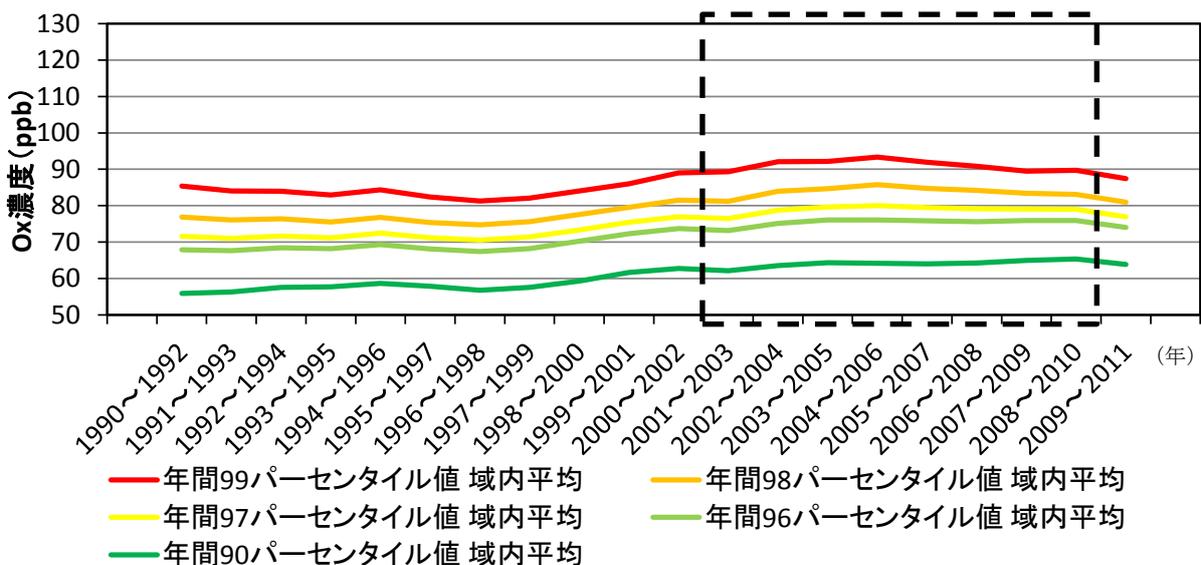
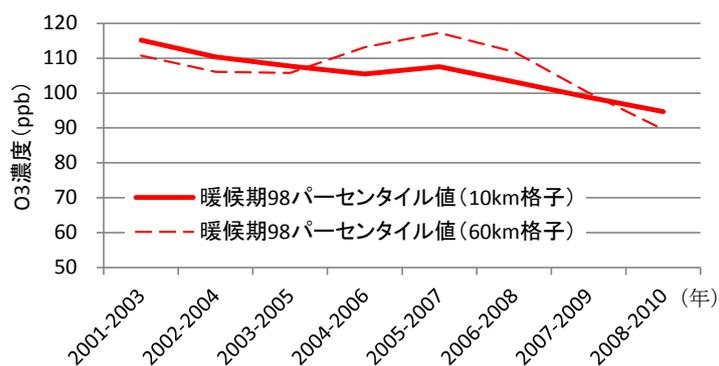


図 1-21 関東領域の新指標による O₃ 濃度推移（上図：計算値 下図：測定値）

<計算値>



<測定値>

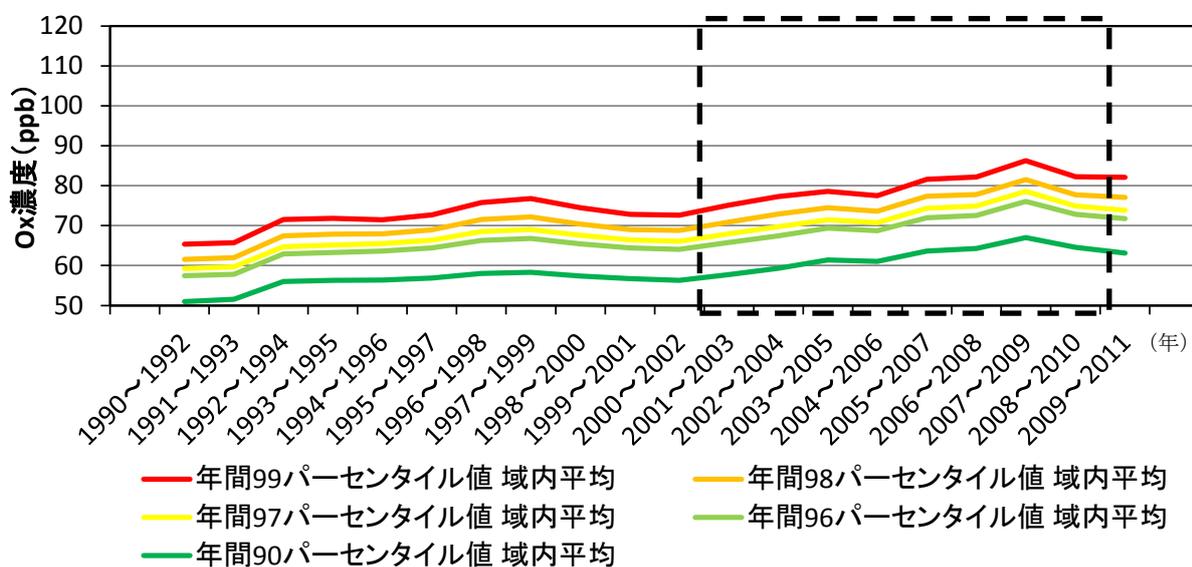


図 1-22 九州領域の新指標による O₃濃度推移 (上図：計算値 下図：測定値)

1.5. 10km 格子と 60km 格子の O₃ 濃度再現性の比較

1.5.1. 解析の目的

格子間隔の違い（10km および 60km）によって O₃ 濃度の再現性がどのように変化するか把握することを目的とする。

1.5.2. 解析方法

東アジア領域（格子間隔 60km）および関東領域（格子間隔 10km）の CMAQ の計算結果を対象に東京都杉並区久我山、埼玉県さいたま市衛生研究所および群馬県太田市立中央小学校に該当するメッシュデータを抽出し、経過図を作成するとともに、昼間（5～20 時）のデータを対象に日統計値を算出し、精度評価指標（NB、NGE および MPA）による評価を実施した。

1.5.3. 解析結果

東京都杉並区久我山における O₃ 濃度の経過図を図 1-23 に示した。また、東京都杉並区久我山および群馬県太田市立中央小学校における時間別平均値を図 1-25 に示した。

図 1-23 より杉並区久我山における測定値と計算値の相関係数は、10km 格子の方が若干高い結果となった。また、図 1-25 より、群馬県太田市立中央小学校と比較して杉並区久我山では夜間における 60km 格子の O₃ 濃度の低下が顕著である。

図 1-26 に東京都杉並区久我山、埼玉県さいたま市役所および群馬県太田市立中央小学校の精度評価指標の比較図を示した。3 地点の評価結果から総合的に判断すると、10km 格子よりも 60km 格子の O₃ 濃度計算値の再現性が高いが、郊外に位置する太田市立中央小学校の日中の高濃度については 10km 格子の方が再現性が高い結果となっており、さらなる検討が必要である。

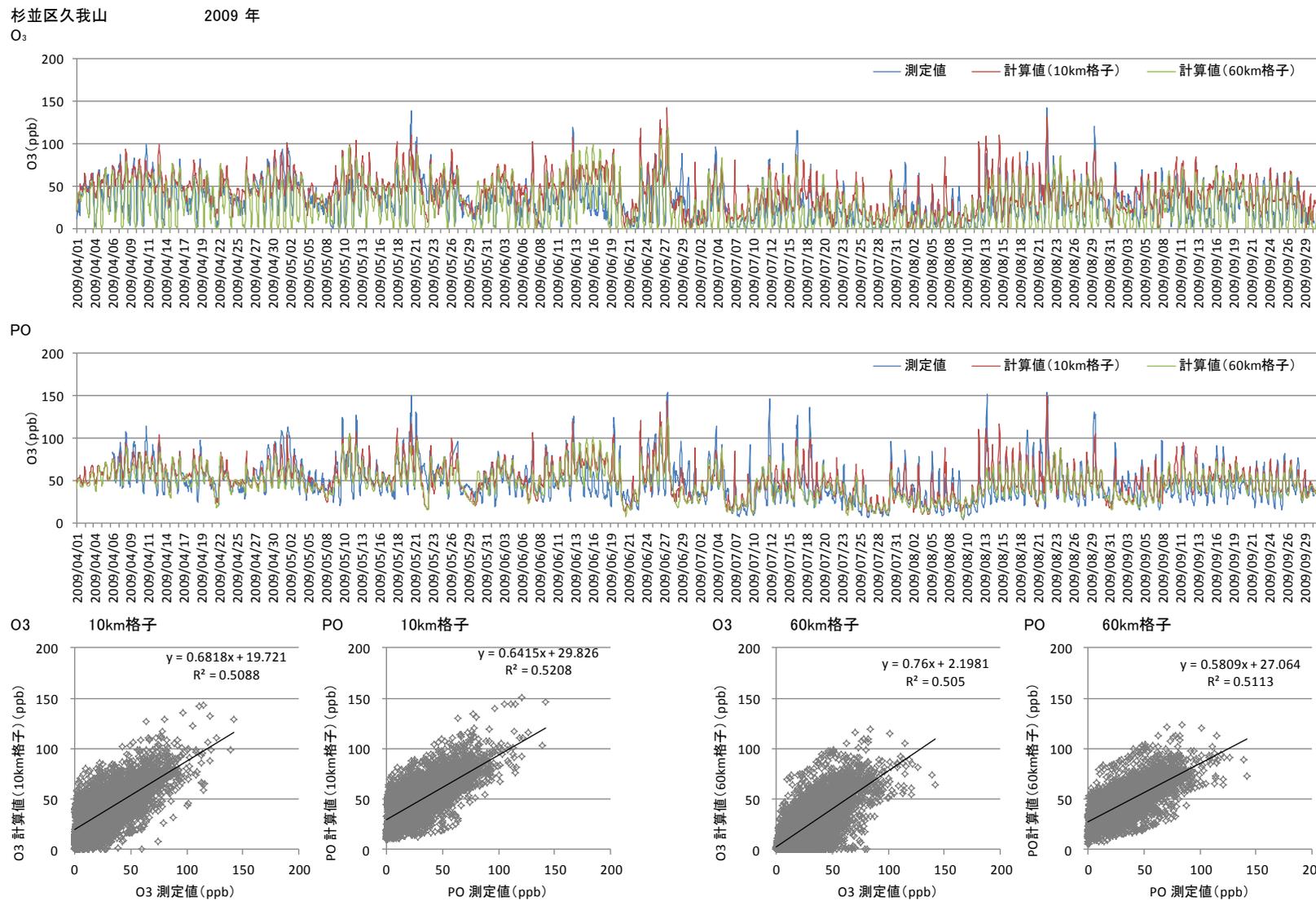


図 1-23 O₃濃度の経過図 (10km 格子と 60km 格子の比較 杉並区久我山)

群馬県太田市立田中央小学校

2009

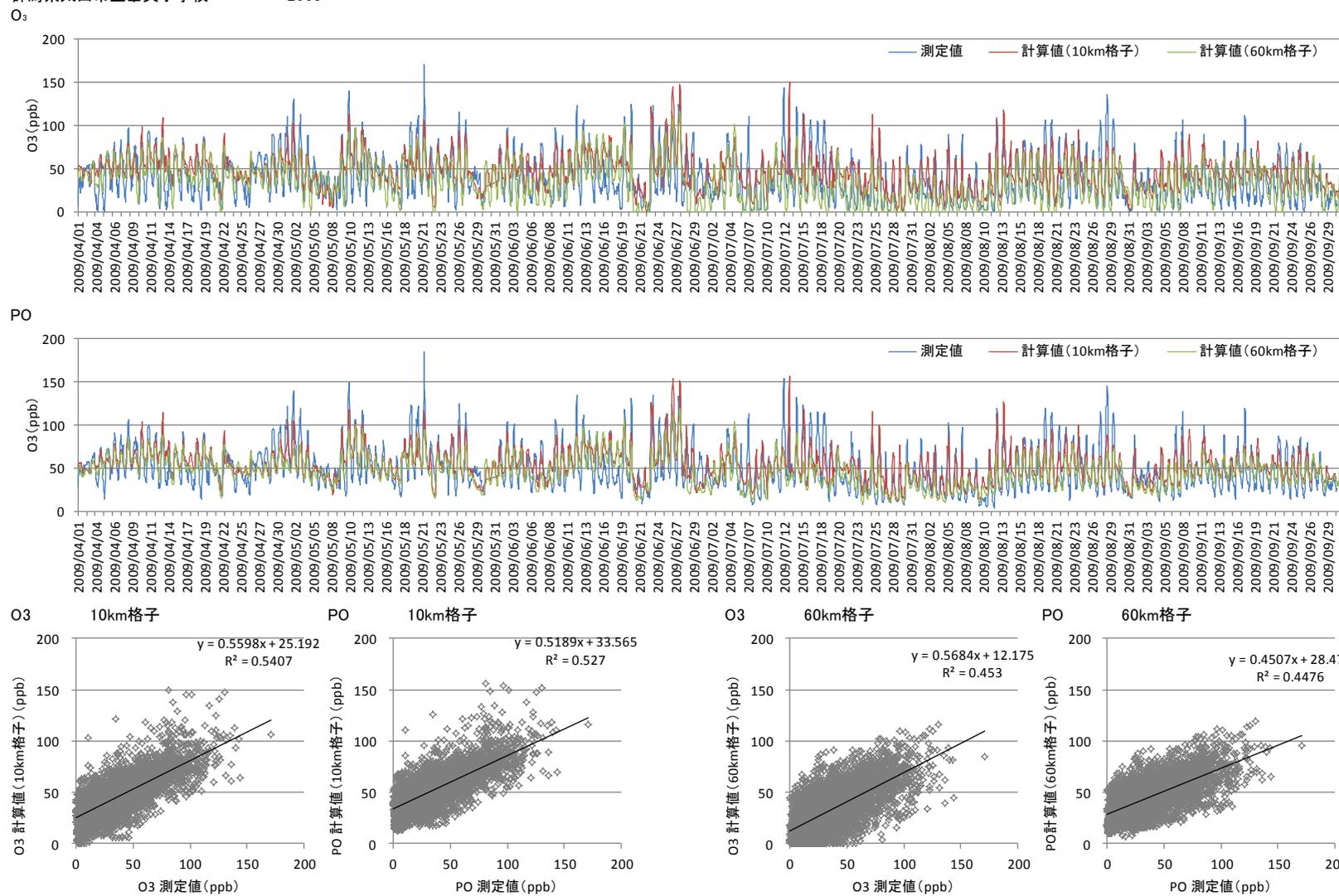
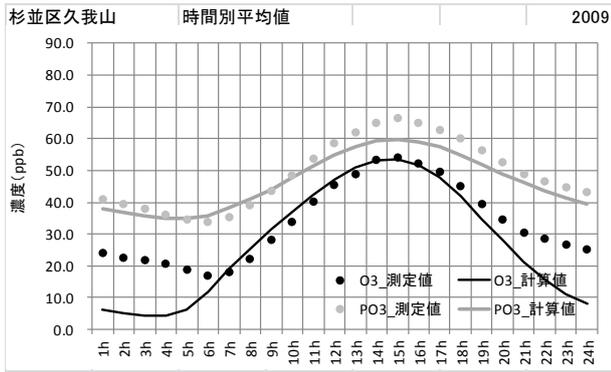


図 1-24 O₃濃度の経過図 (10km 格子と 60km 格子の比較 群馬県太田市中心小学校)

60km 格子による計算値



10km 格子による計算値

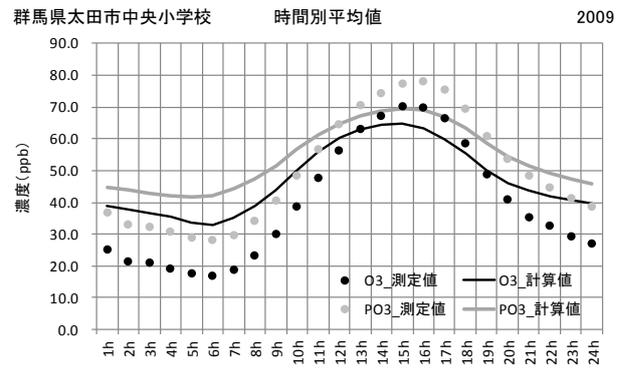
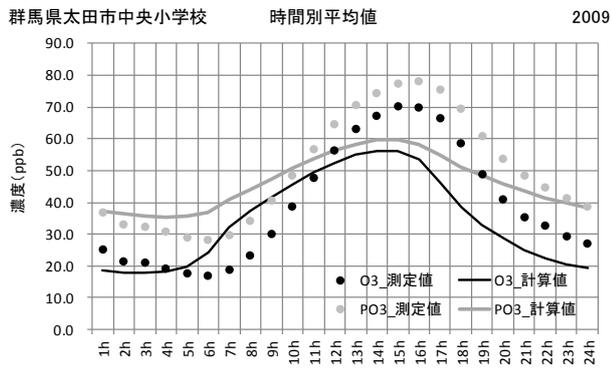
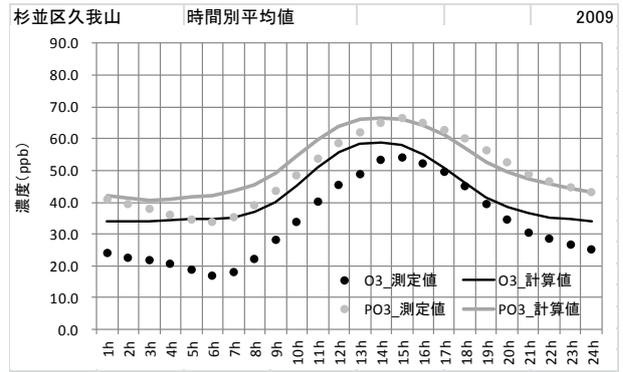


図 1-25 時間別平均濃度 (10km 格子と 60km 格子の比較)

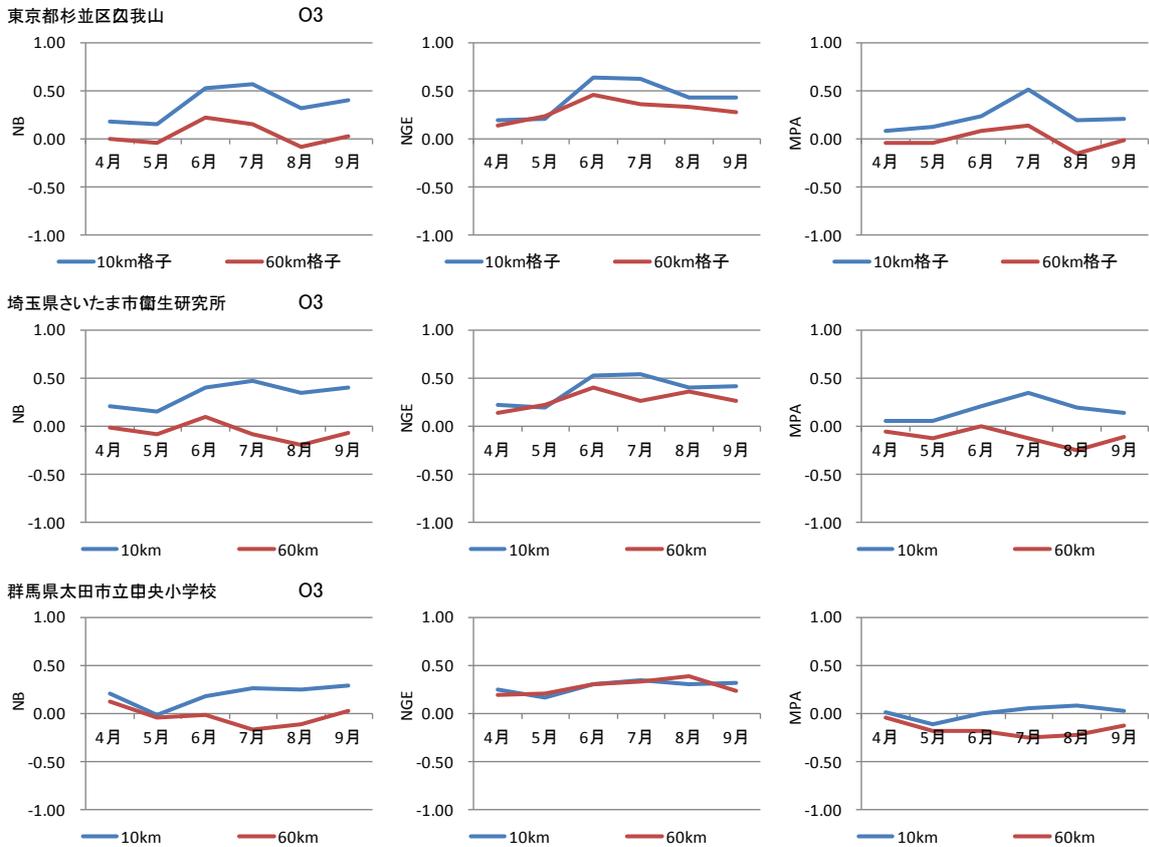


図 1-26 精度評価結果 (5~20 時の日統計値対象、左から NB,NGE,MPA)

1.6. MOZART（全球モデル）の精度評価

1.6.1. MOZARTのリモート観測局を対象とした精度評価

1.6.1.1. 解析の目的

本解析で東アジア領域の境界値として使用している MOZART（全球モデル）の再現性を確認することを目的とする。

1.6.1.2. 解析方法

MOZART（全球モデル）のバリデーション対象地点として、人為起源の大気汚染物質の影響が小さいリモート観測局（図 1-27）を設定した。対象物質は O₃ で、MOZART の計算値および測定値ともに全日データを対象として月平均値を算出した。なお、MOZART のデータ格子間隔は大きいため（2003～2006 年は、経度緯度共に約 3 度、2007～2010 年は、経度は 2.5 度、緯度は約 3 度）、バリデーションの対象地点のデータは 4 点線形内挿方法により求めた。参考に CMAQ の O₃ 濃度計算値を示した。

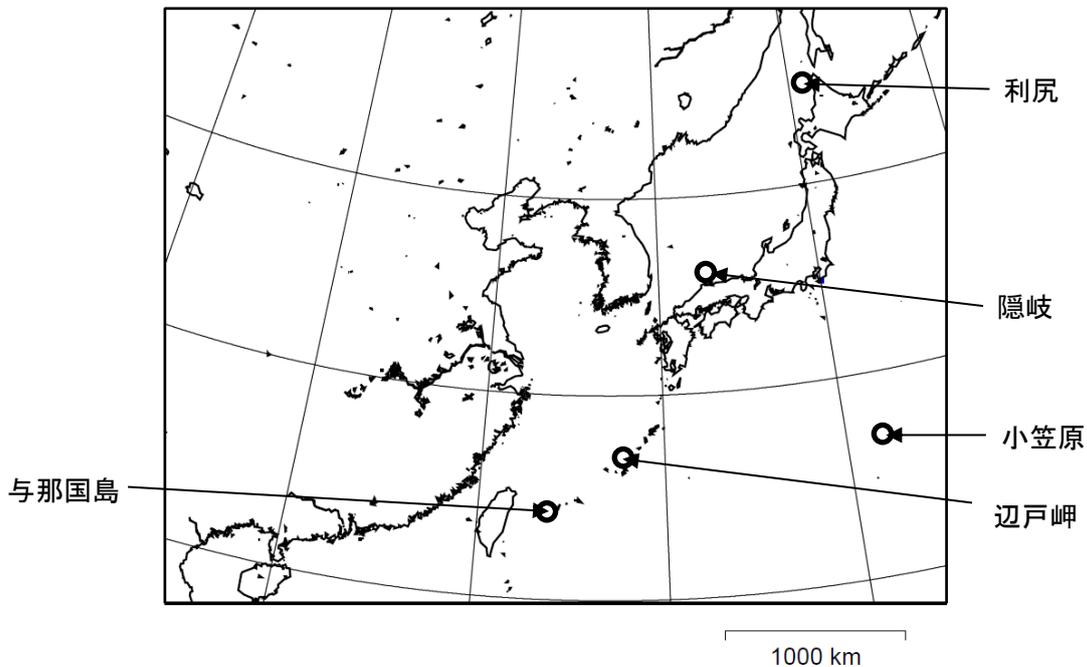


図 1-27 バリデーション対象地点の位置

1.6.1.3. 解析結果

バリデーションの対象地点について、計算値および測定値の月平均値を図 1-28 に示した。あわせて CMAQ による計算値も示した。図 1-28 から、小笠原は再現性が高く、隠岐、辺戸岬および与那国については MOZART 計算値が測定値に比べて過大な傾向がみられる。これは、小笠原は人為起源の影響を受けない地点（メッシュに陸地等が含まれない地点）であり、その他の地点は、人為起源の影響を受ける地点（メッシュに陸地等が含まれる地点）であることが理由であると考えられる。

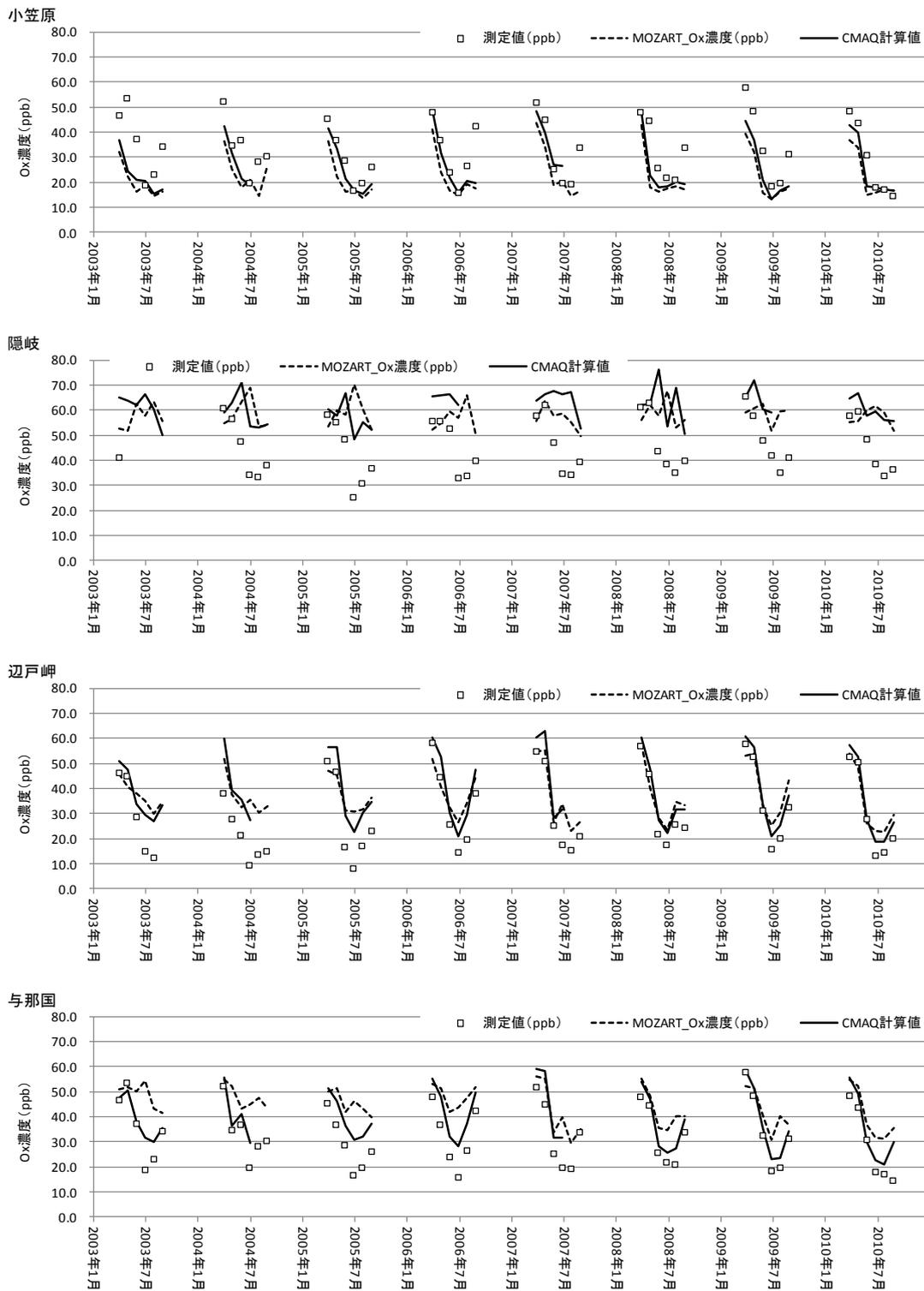


図 1-28 MOZART 計算値と測定値の比較 (O₃ 月平均値)

1.6.2. MOZART の 2006 年と 2007 年の連続性の確認

1.6.2.1. 解析の目的

本解析で東アジア領域の境界値として使用している MOZART（全球モデル）は、2007 年を境に使用するデータが異なっている（2006 年以前は NCEP、2007 年以降は GEOS5 を使用）。2001～2010 年の O₃ 濃度の長期トレンドを把握するうえで、シミュレーションに用いるデータは連続性を持ったものが望ましい。以上のことから、MOZART のデータを対象に、東アジア領域の境界（東経 100 度、東経 150 度、北緯 20 度および北緯 50 度）のデータが、2006 年以前と 2007 年以降でどのように変化したか確認することを目的とする。

1.6.2.2. 解析方法

2005～2008 年の期間を対象に、東アジア領域の境界に沿った MOZART のデータを対象に O₃ 濃度を抽出し月平均値を算出した。なお、4 点線形内挿方法によって境界上のデータを算出した。

1.6.2.3. 解析結果

東アジア領域の境界（東経 100 度および北緯 20 度）に沿った MOZART の O₃ 濃度のデータを図 1-29～図 1-30 に示した。実線は 2006 年以前、破線は 2007 年以降を表わす。

日本への影響が相対的に大きいと考えられる領域の西端（東経 100 度 図 1-29）と南端（北緯 20 度 図 1-30）の結果に着目（該当部分を黄色で網掛け）すると、領域の西端では、日本が位置する北緯 30～40 度の O₃ 濃度は、2007 年以降、暖候期を通じて 10ppb ほど高くなる傾向がみられる。また、領域の南端では、日本が位置する東経 130～150 度の O₃ 濃度は 2007 年以降、顕著な変化はみられない。

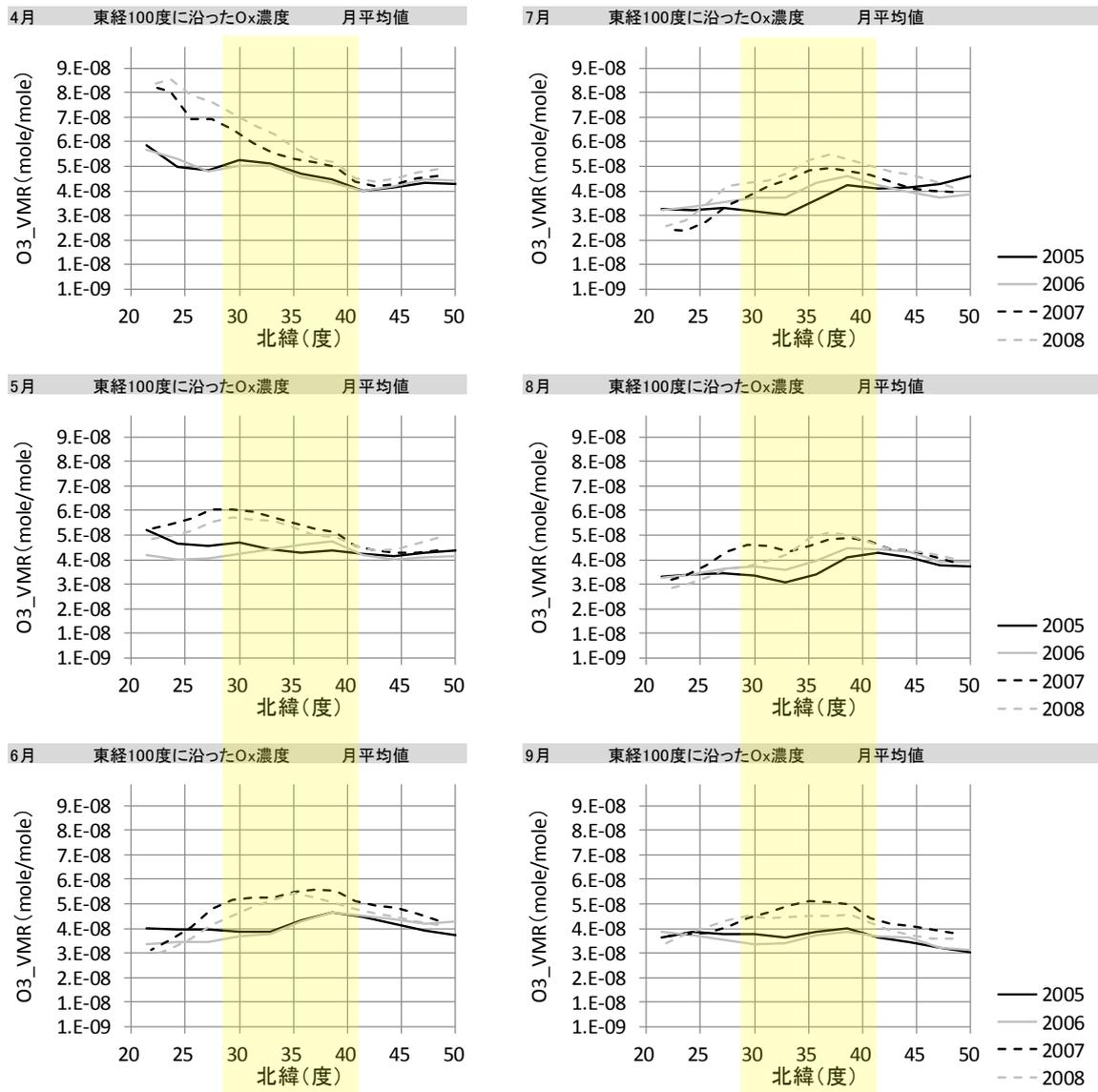


図 1-29 東経 100 度（領域の西端）に沿った O₃ 濃度の推移（2005～2008 年）

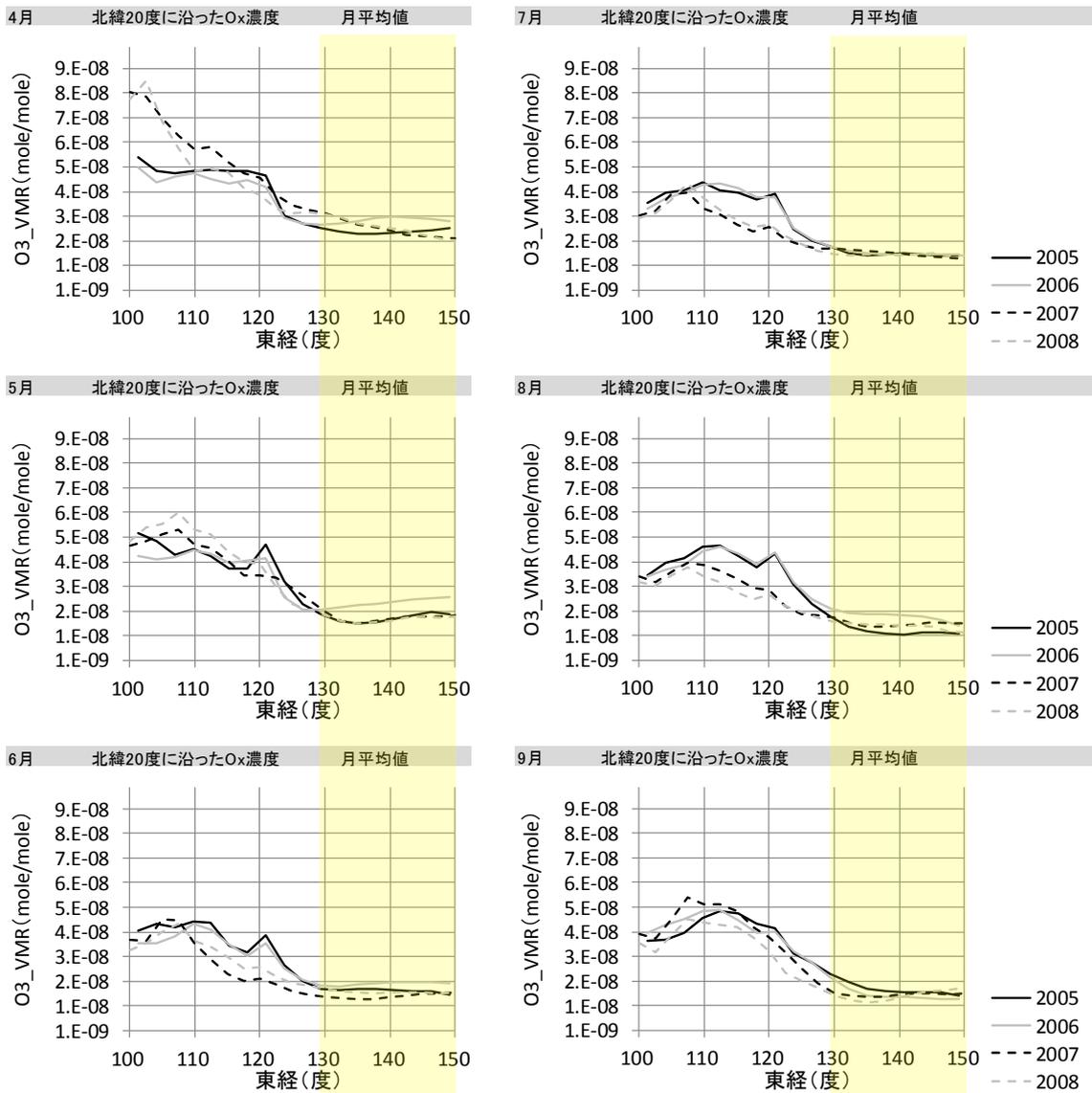


図 1-30 北緯 20 度 (領域の南端) に沿った O_3 濃度の推移 (2005~2008 年)

1.7. 東アジア領域におけるバリデーション（海外地点の追加）

1.7.1. 解析の目的

人為起源の大気汚染物質の影響が小さい地点を対象に、東アジア領域のシミュレーションによる大気汚染物質の再現性について把握することを目的とする。

1.7.2. 解析方法

人為起源の大気汚染物質の影響が小さい EANET モニタリングサイトを含む地点(表 1-7)を対象に、O₃ を対象物質としてシミュレーションの再現性について検討した。なお、標高の高い場所にある測定地点の計算値については、一般的に O₃ 濃度は上空ほど高くなる傾向があるため、地上のデータ（第一層目）ではなく、該当する標高に位置する層のデータを対象とした。

図 1-32 に中国の測定地点について把握するために、NO₂ 排出量分布図に場所をプロットした。図 1-32 より、泰山は NO₂ 排出量が極めて多い地域に位置し、華山と黄山は NO₂ 排出量が極めて多い地域の西端に位置することが分かる。バリデーション対象地点の計算値と測定値の経過図および散布図を作成した。

表 1-7 遠隔地測定地点の諸元

測定地点	緯度	経度	標高	データ期間
利尻	45 度 07 分	141 度 12 分	40m	2001～2010 年
小笠原	27 度 05 分	142 度 13 分	230m	2001～2010 年
八方尾根	36 度 42 分	137 度 48 分	1,850m	2001～2010 年
隠岐	36 度 17 分	133 度 11 分	90m	2001～2010 年
辺戸岬	26 度 52 分	128 度 15 分	60m	2001～2010 年
与那国島	24 度 28 分	123 度 01 分	30m	2001～2010 年
ルーリン（台湾）	23 度 28 分	120 度 52 分	2,867m	2006～2010 年
泰山（Mt.Tai）（中国）	36 度 13 分	117 度 07 分	1,534m	2004～2007 年
黄山（Mt.Huang）（中国）	30 度 10 分	118 度 16 分	1,840m	2004～2007 年
華山（Mt.Hua）（中国）	34 度 29 分	110 度 05 分	2,065m	2004～2007 年

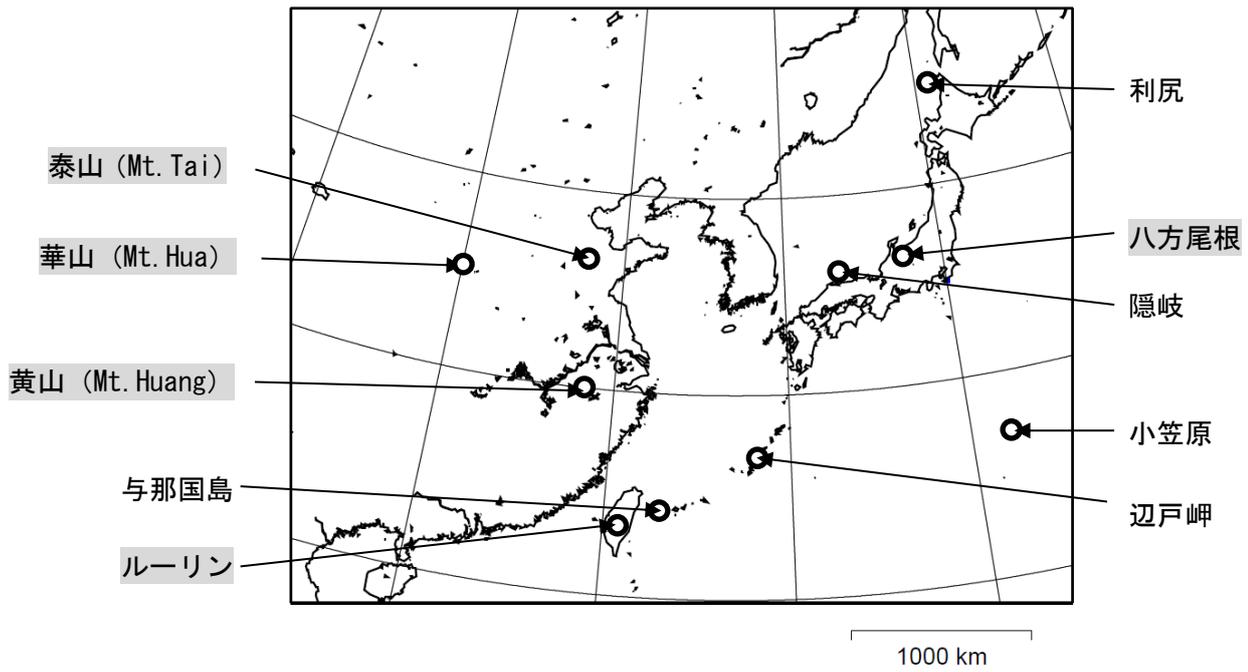


図 1-31 バリデーション対象地点の位置

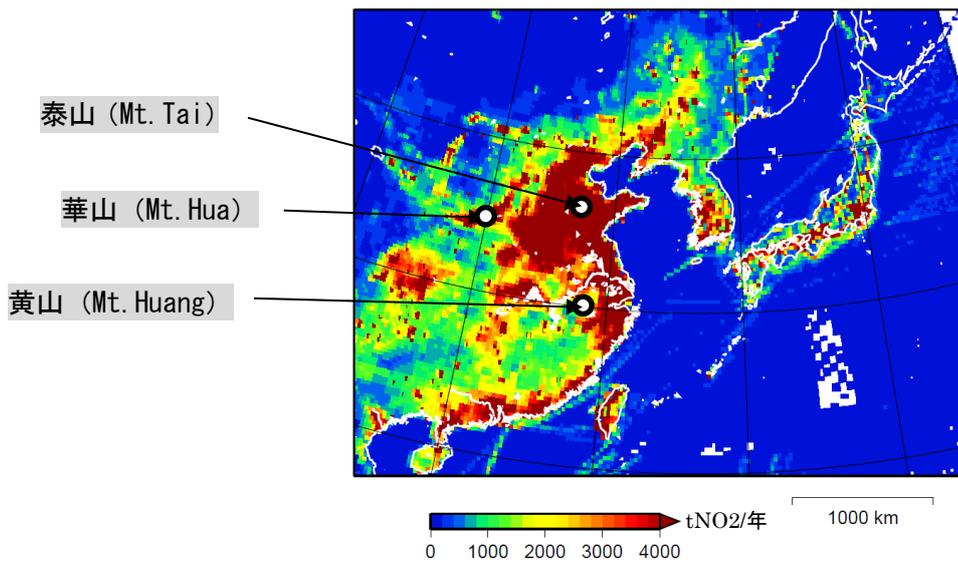


図 1-32 中国の測定地点と NO₂ 排出量の分布

1.7.3. 解析結果

追加検証地点である八方尾根、ルーリン、Mt.Tai(泰山)、Mt.Hua(華山)およびMt.Huang(黄山)のうち、八方尾根およびMt.Tai(泰山)の経過図および散布図を図 1-33 に示した。また、計算値および測定値の月平均値(全日データを対象に算出)を比較した表を表 1-8 に示した。さらに、バリデーションを実施した全測定地点について、4~6月、7~9月および4~9月の平均値(計算値および測定値)をプロットした図を図 1-35 および図 1-36 に示した。

図 1-33 および図 1-34 の経過図および散布図から、1時間値を対象とした相関係数は0.6程度であり、O₃濃度の変化傾向を概ね再現していることが分かる。表 1-8 から八方尾根は、4~6月の高濃度の再現性が低い。一方、泰山は6月に高濃度となる傾向は再現しているが、全体的に過大である。

図 1-35 および図 1-36 から、利尻、小笠原、辺戸岬および与那国の地点については、高濃度となる4~6月(図中赤色の実線)のO₃濃度の再現性は比較的良好であることが分かる。夏季(7~9月)においてO₃濃度を過大評価している点、隠岐において計算値が過大になっている点などは、既存の調査結果と同様の傾向である。

八方尾根 2001年 暖候期 O₃

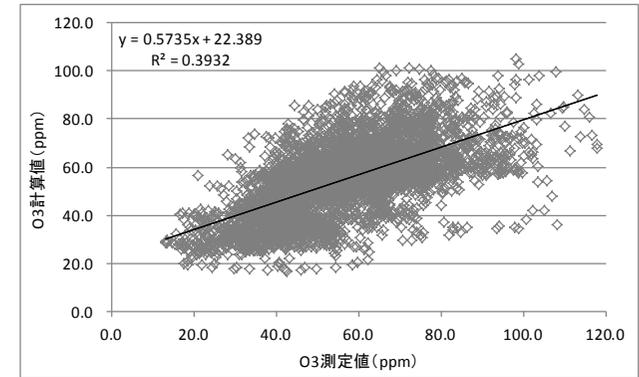
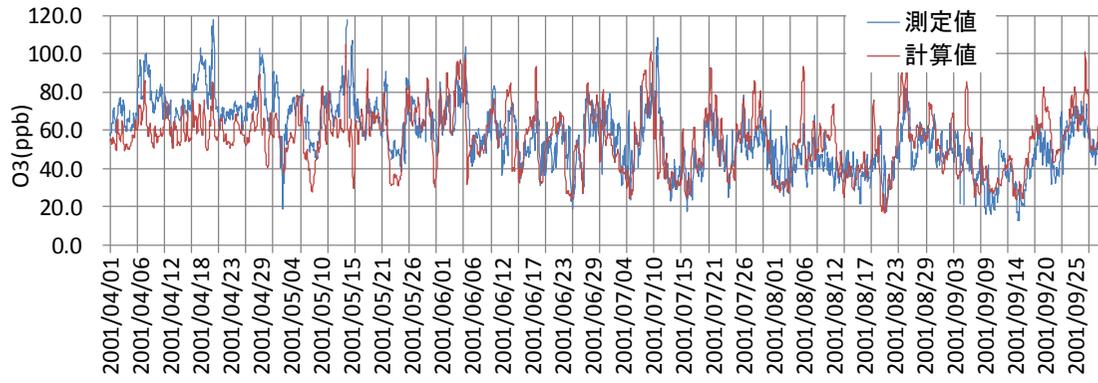


図 1-33 計算結果(2001年暖候期 八方尾根)

Mt.Tai 2004年暖候期 O₃

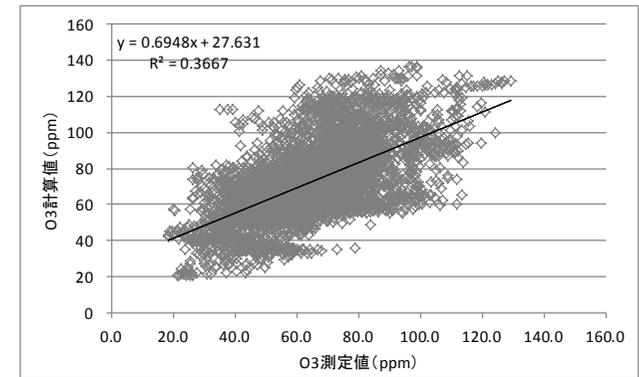
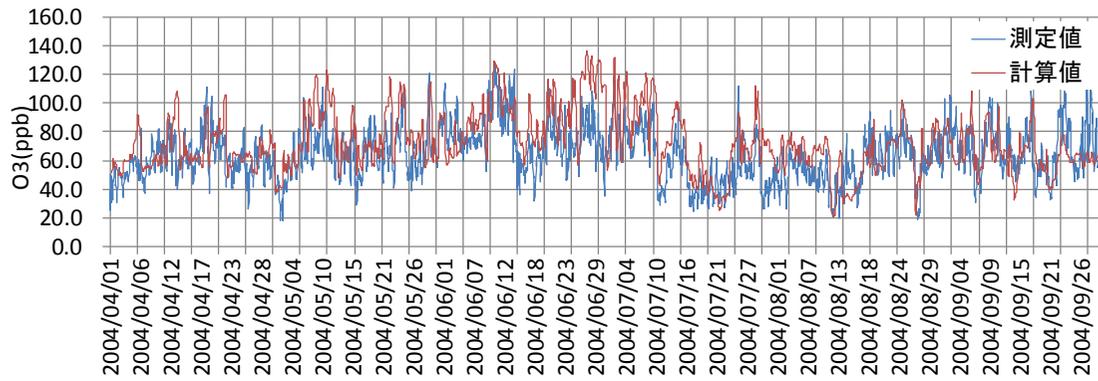
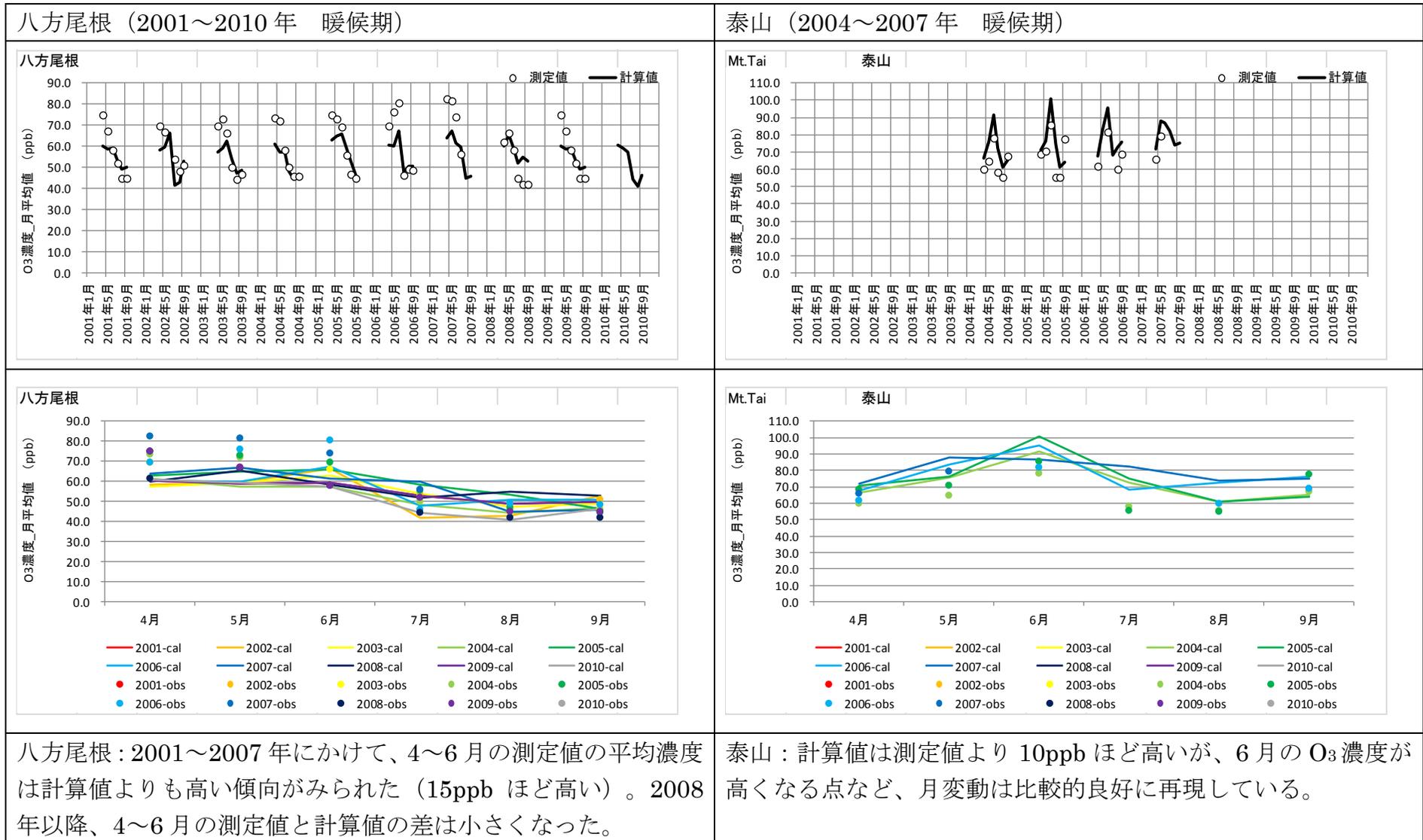
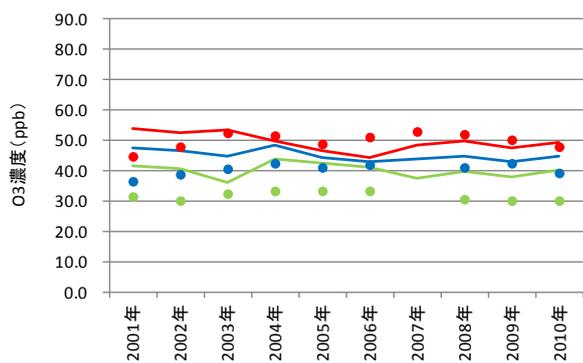


図 1-34 計算結果(2004年暖候期 泰山(Mt.Tai))

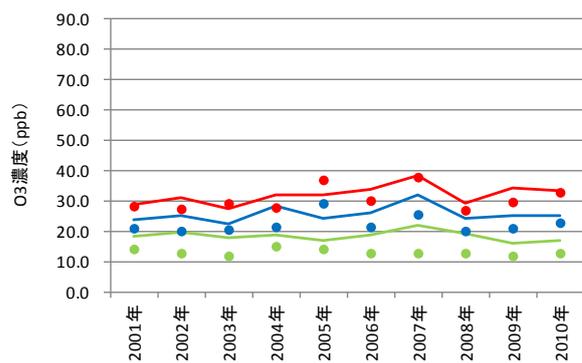
表 1-8 計算値および測定値の月平均値の比較(八方尾根および泰山)



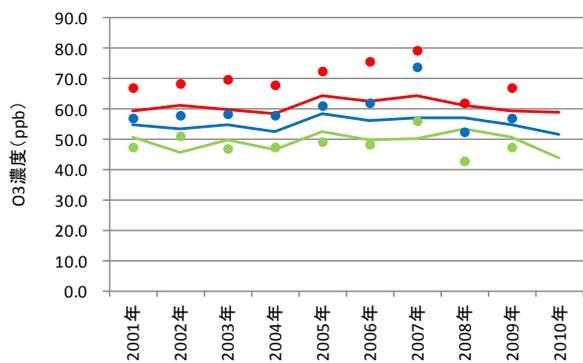
利尻



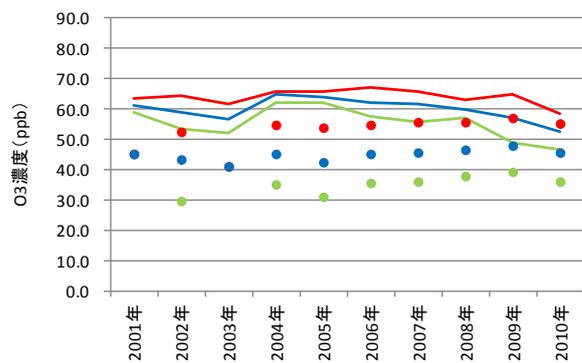
小笠原



八方尾根

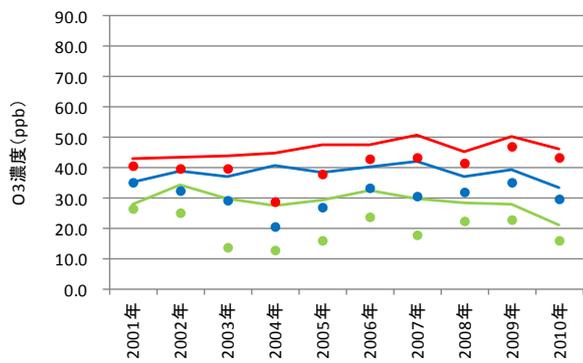


隠岐

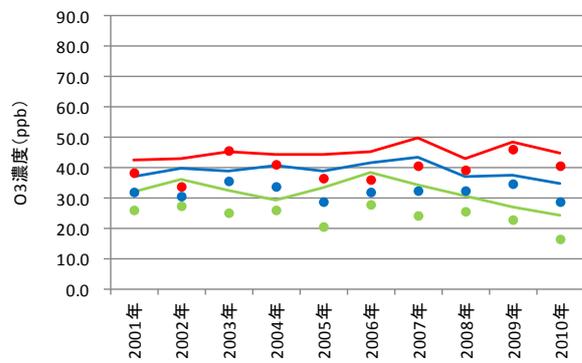


2007年は8.9月が欠測

辺戸岬



与那国

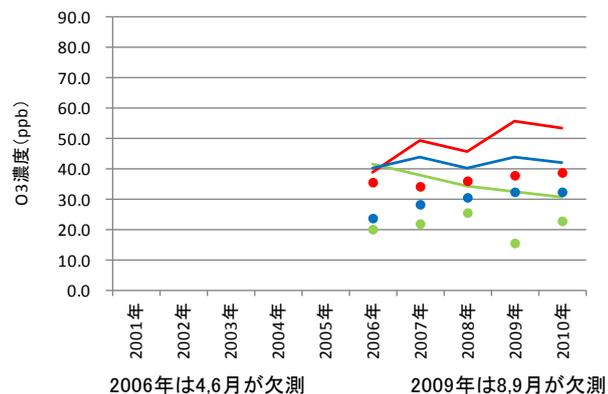


凡例

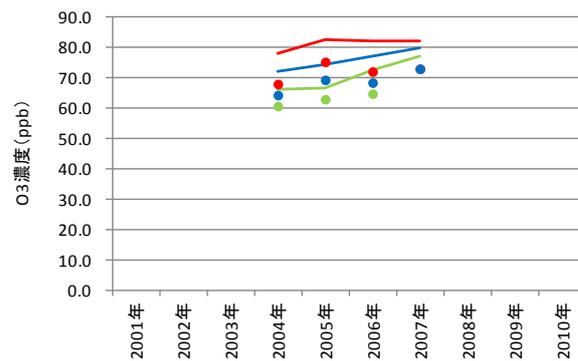
- : 4~6月の測定値
- : 7~9月の測定値
- : 4~9月の測定値
- : 4~6月の計算値
- : 7~9月の計算値
- : 4~9月の計算値

図 1-35 計算値および測定値の3か月平均値および暖候期平均値の比較 (その1)

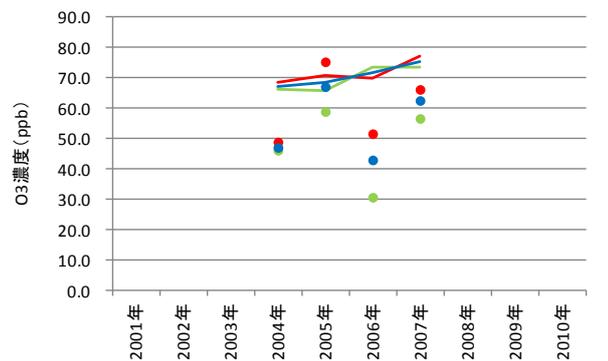
ルーリン



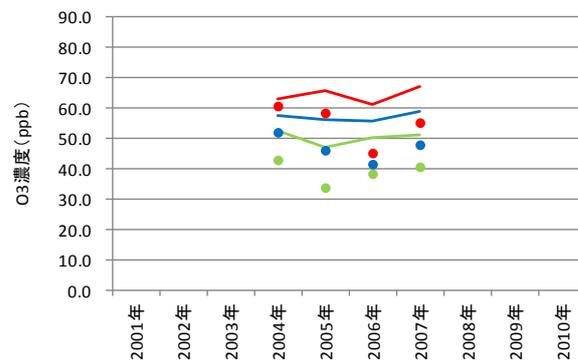
泰山



華山



黄山



凡例	●: 4~6月の測定値	●: 7~9月の測定値	●: 4~9月の測定値
	—: 4~6月の計算値	—: 7~9月の計算値	—: 4~9月の計算値

図 1-36 計算値および測定値の3か月平均値および暖候期平均値の比較 (その2)

1.8. 植物起源 VOC 排出量の経年変化

1.8.1. 解析の目的

植物起源 VOC は気象の影響を受け、排出量変動することが考えられる。本解析では、植物起源 VOC 排出量の経年変化について把握することを目的とする。

1.8.2. 解析方法

シミュレーションにおける植物起源 VOC の排出量の暖候期の総量（単位は mol）を集計した。具体的には関東領域の第一層目の排出量の暖候期合計値を算出した。

1.8.3. 解析結果

植物起源 VOC の排出量は年による変動がみられる。植物起源 VOC 排出量の年変動は、2001 年を基準とすると、最大で 1.2（2010 年）、最小で 0.7（2009 年）であった。

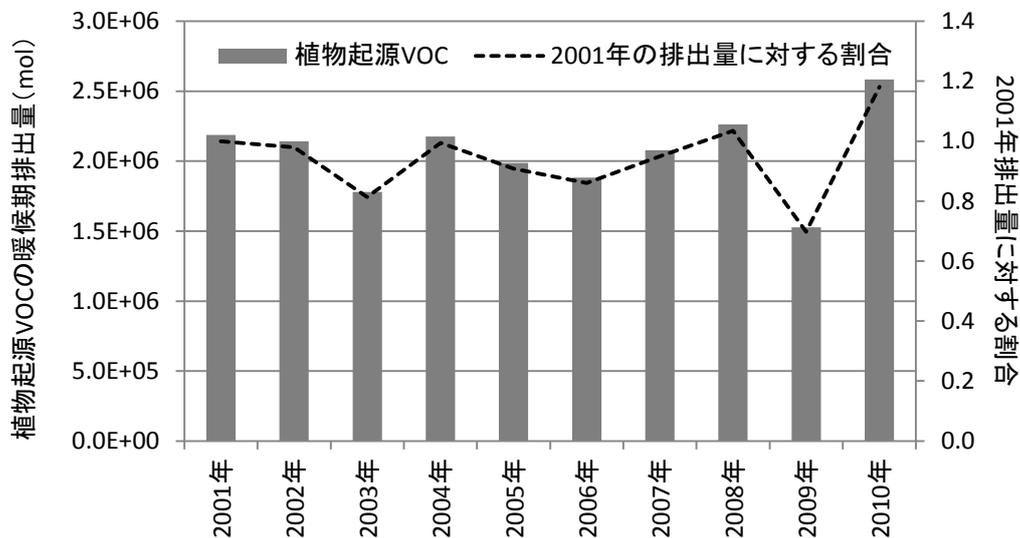


図 1-37 植物起源 VOC の排出量の推移

2. 不確実性の検討

2.1. 植物起源 VOC の不確実性の検討

2.1.1. 解析の目的

植物起源 VOC が O₃ 濃度に与える影響を検討することを目的として、東アジアおよび関東領域における植物起源 VOC の排出量を変化させた条件でシミュレーションを実施した。

2.1.2. 解析方法

異常年検定で標準年として判定された 2009 年の暖候期を対象期間として、東アジアおよび関東領域における植物起源 VOC の排出量を 2.0 倍および半分にした条件でシミュレーションを実施し、O₃ 濃度がどのように変化するか検討した。

検証地点としては、杉並区久我山（東京都）、衛生研究所（埼玉県さいたま市）および群馬県太田市中央小学校（群馬県太田市）を設定した。

2.1.3. 解析結果

植物起源 VOC 排出量を変化させた場合の杉並区久我山における O₃ および PO 濃度の経過図を図 2-1 に示した。また、図 2-1 には、植物起源 VOC 排出量を変化させた場合の O₃ および PO 濃度の変化を把握するために、植物起源 VOC 排出量デフォルト値からの濃度差（植物起源 VOC を変化させた場合－基準値（植物起源 VOC 排出量デフォルト値における O₃ 濃度））を算出し、経過図に示した。

図 2-1 より、植物起源 VOC 排出量を 2.0 倍にした場合、O₃ 濃度が上昇する一方、植物起源 VOC 排出量を 0.5 倍にした場合、O₃ 濃度が低下する結果となった。O₃ 濃度の上昇は最大で 50ppb 程度、低下の度合いは、杉並区久我山で 50ppb であった。また、月平均濃度と日最高値の月平均濃度を求めたところ、日最高値の月平均濃度の変化量が大きかった。

図 2-2 に O₃ および PO 濃度の濃度差（植物起源 VOC を変化させた場合－基準値（植物起源 VOC 排出量デフォルト値における O₃ 濃度））を整理した。図 2-2 より 3 地点で比較すると、群馬県太田市中央小学校（青色）の変化量が小さく、さいたま市衛生研究所（赤色）の変化量が大きい。このことから、地点によって植物起源 VOC 排出量を変化させた場合の O₃ 濃度に及ぼす影響の大きさが異なることが示唆される。

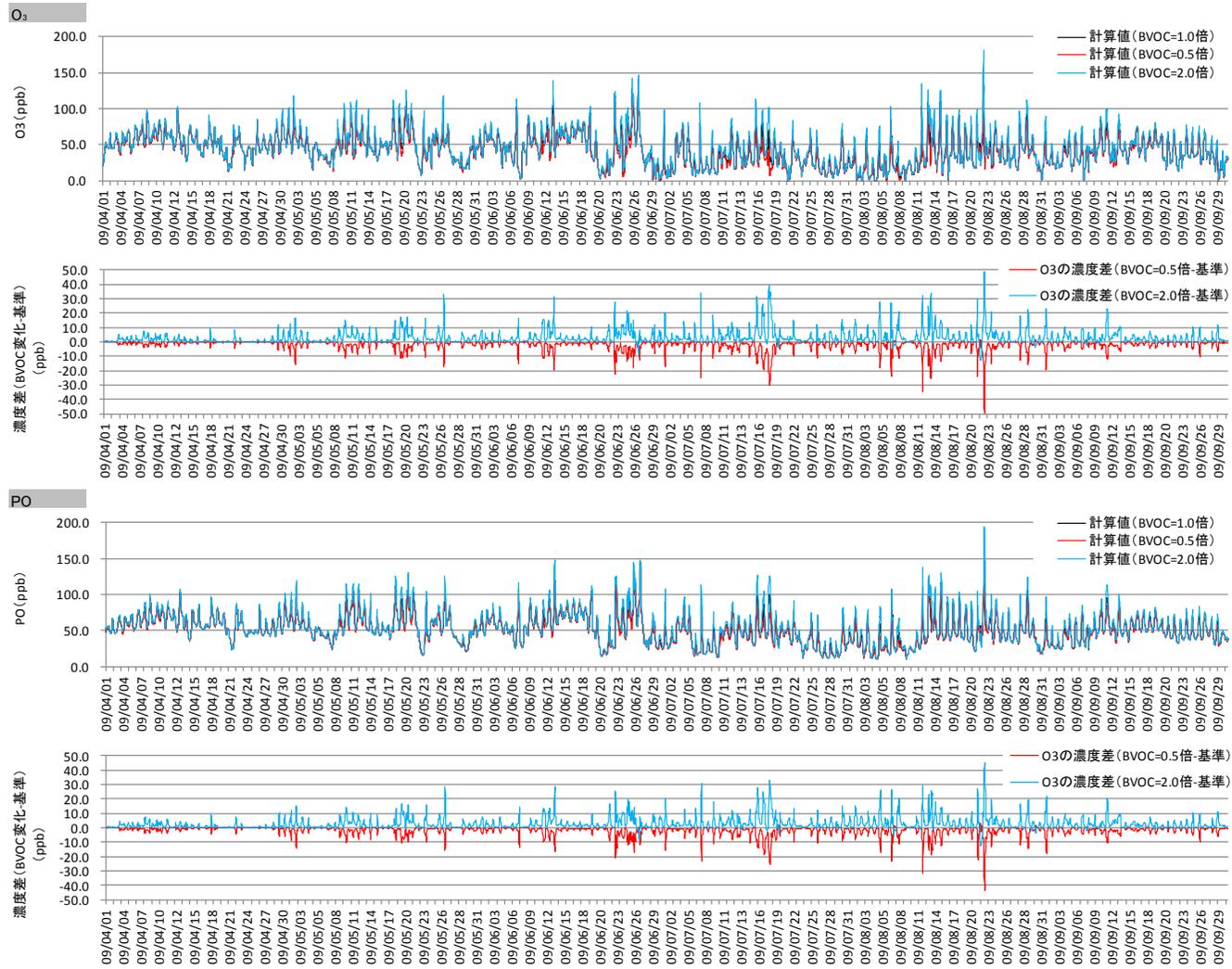


図 2-1 O₃および PO 濃度の経過図 (植物起源 VOC 排出量を変化させた場合 東京都杉並区久我山)

O₃月平均濃度

BVOC	濃度			濃度差	
	0.5倍	1.0倍	2.0倍	0.5倍	2.0倍
4月	52.3	53.0	54.1	-0.7	1.1
5月	47.1	48.8	51.5	-1.8	2.6
6月	47.3	49.5	52.6	-2.2	3.1
7月	27.3	30.1	33.8	-2.7	3.7
8月	30.9	33.9	37.9	-3.0	4.0
9月	38.2	39.8	42.2	-1.6	2.4

O₃日最高値の月平均濃度

BVOC	濃度			濃度差	
	0.5倍	1.0倍	2.0倍	0.5倍	2.0倍
4月	69.3	70.7	73.6	-1.4	2.9
5月	67.8	72.5	79.7	-4.7	7.2
6月	69.7	74.3	81.3	-4.6	7.0
7月	49.3	55.9	64.8	-6.6	9.0
8月	57.0	65.8	78.1	-8.8	12.2
9月	57.1	61.2	67.8	-4.1	6.6

PO月平均濃度

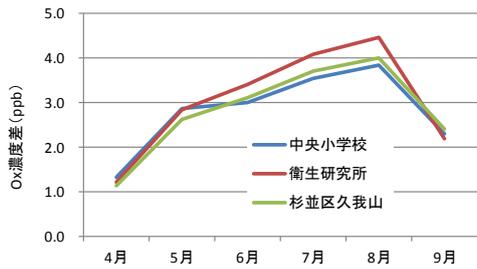
BVOC	濃度			濃度差	
	0.5倍	1.0倍	2.0倍	0.5倍	2.0倍
4月	59.0	59.6	60.7	-0.6	1.1
5月	54.8	56.4	58.8	-1.6	2.4
6月	56.4	58.4	61.3	-2.1	2.9
7月	37.5	40.0	43.4	-2.5	3.4
8月	41.5	44.4	48.2	-2.9	3.8
9月	47.3	48.8	51.1	-1.5	2.2

PO日最高値の月平均濃度

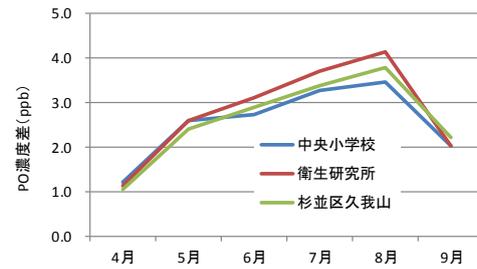
BVOC	濃度			濃度差	
	0.5倍	1.0倍	2.0倍	0.5倍	2.0倍
4月	73.6	75.1	78.0	-1.6	2.9
5月	72.5	77.4	84.6	-4.9	7.3
6月	76.6	81.5	88.8	-5.0	7.3
7月	56.4	63.1	72.4	-6.7	9.3
8月	65.6	74.6	86.4	-9.0	11.8
9月	64.1	68.2	74.5	-4.2	6.2

植物起源VOCを2.0倍にした場合

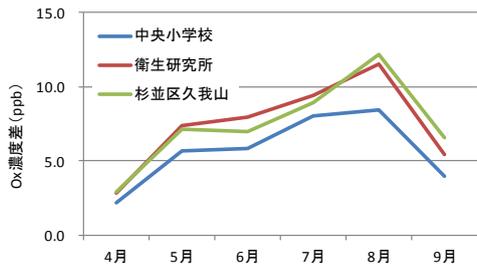
月平均濃度



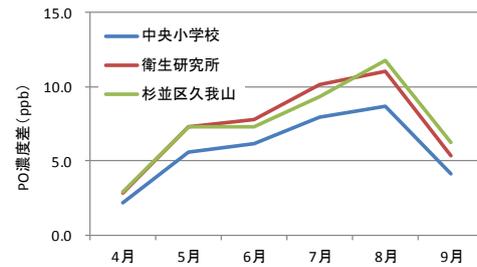
月平均濃度



日最高値の月平均濃度

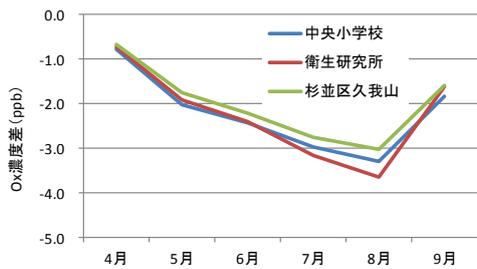


日最高値の月平均濃度

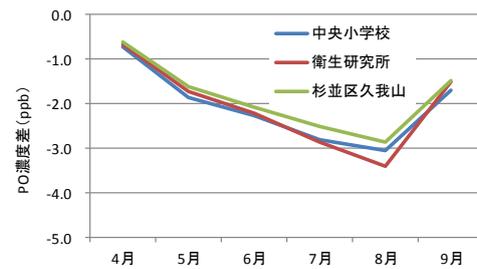


植物起源VOCを0.5倍にした場合

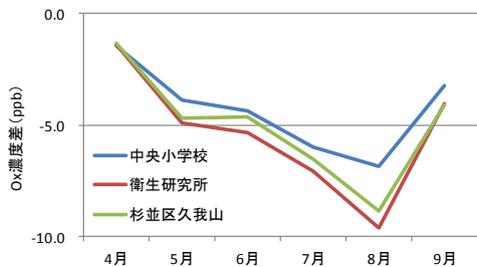
月平均濃度



月平均濃度



日最高値の月平均濃度



日最高値の月平均濃度

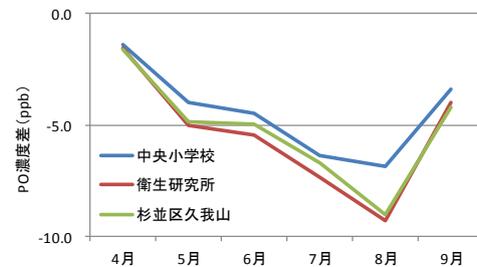


図 2-2 O₃およびPO濃度の濃度差

(植物起源VOCを変化させた場合—基準値(植物起源VOC排出量デフォルト値におけるO₃濃度))

2.1.3.1. 98 パーセンタイル値による評価

植物起源 VOC の排出量を 2.0 倍および半分にした場合について、O₃ および PO 濃度の日最高 8 時間値の暖候期 98 パーセンタイル値を算出した（表 2-1 および表 2-2）。表 2-1 および表 2-2 の括弧内の数値は（植物起源 VOC を変化させた場合－基準値（植物起源 VOC 排出量デフォルト値における O₃ 濃度））を表わす。これらの結果から、植物起源 VOC の排出量を 2.0 倍にした場合、日最高 8 時間値の暖候期 98 パーセンタイル値として、O₃ の場合、10～12ppb 程度の増加、PO の場合、13～15ppb 程度の増加となった。また、植物起源 VOC の排出量を 0.5 倍にした場合、O₃ の場合、9～12ppb の減少、PO の場合、9～10ppb 程度の減少となった。

表 2-1 植物起源 VOC 排出量を変化させた場合の日最高 8 時間値の暖候期 98 パーセンタイル値 (O₃)

	O ₃ の日最高 8 時間値の暖候期 98 パーセンタイル値		
植物起源 VOC	東京都杉並区 久我山	埼玉県さいたま市 衛生研究所	群馬県太田市 中央小学校
2.0 倍	107 (+10)	120 (+12)	114 (+12)
1.0 倍	97	108	102
0.5 倍	86 (-9)	96 (-12)	92 (-10)

表 2-2 植物起源 VOC 排出量を変化させた場合の日最高 8 時間値の暖候期 98 パーセンタイル値 (PO)

	PO の日最高 8 時間値の暖候期 98 パーセンタイル値		
植物起源 VOC	東京都杉並区 久我山	埼玉県さいたま市 衛生研究所	群馬県太田市 中央小学校
2.0 倍	115 (+13)	128 (+14)	122 (+15)
1.0 倍	102	114	107
0.5 倍	92 (-10)	105 (-9)	98 (-9)

2.2. 未把握 VOC の不確実性の検討

2.2.1. 解析の目的

シミュレーションによって把握しきれていない VOC の個別成分について、濃度不足分をモデルに反映させた場合に O₃ 濃度がどのように変化するか把握することを目的とする。

2.2.2. 解析方法

解析は、S. Chatani (2009)⁶らの方法を参考に行った。具体的な手順を以下に示した。

- ① 集中観測（2007年8月21日～29日に東陽町で実施された集中観測のうち、南風が卓越していた2007年8月21、22、26および27日の日中を解析対象期間とする）によって取得した VOC 成分測定値について、
- ② 表 2-3 に従って、気相反応モデル SAPRC99 で用いられている VOC 成分別に濃度を集計する。
- ③ 集中観測と同じ期間の大気質シミュレーションを実施する。
- ④ 「②」のシミュレーション結果と「①」の集計結果から、計算値と測定値の OH ラジカルとの反応速度定数 (kOH) と濃度の積 (kOH×濃度) および計算値と測定値の濃度比を算出する。
- ⑤ 計算値と測定値の濃度比を発生源データおよび境界値データに反映させ、集中観測時期を対象に、再度、大気質シミュレーションを実施する。
- ⑥ 「④」での計算結果から O₃ 濃度および (kOH×濃度) を算出し、「②」の計算と比較して、これらがどのように変化するか検討する。

⁶ S. Chatani, N. Shimo, S. Matsunaga, Y. Kajii, S. Kato, Y. Nakashima, K. Miyazaki, K. Ishii, and H. Ueno: Sensitivity analyses of OH missing sinks over Tokyo metropolitan area in the summer of 2007, Atmos. Chem. Phys., 9, 8975–8986, 2009

表 2-3 気相反応モデル SAPRC99 で用いられている VOC 成分と測定値の対応表

Species group	SAPRC99 species	Measured species
	NO ₂	NO ₂
	NO	NO
	O ₃	O ₃
	CO	CO
	SO ₂	SO ₂
AVOC	ALK1	ethane
	ALK2	acetylene, propane
	ALK3	isobutane, n-butane, 2,2-dimethylbutane
	ALK4	2,3-dimethylbutane, isopentane, n-pentane, cyclopentane, 2-methylpentane, 3-methylpentane, n-hexane, methylcyclopentane, 2,4-dimethylpentane, 2,2,4-trimethylpentane
	ALK5	cyclohexane, 2-methylhexane, 2,3-dimethylpentane, 3-methylhexane, n-heptane, methylcyclohexane, 2,3,4-trimethylpentane, 2-methylheptane, 3-methylheptane, n-octane, n-nonane
	ETHENE	Ethene
	OLE1	propylene, 1-butene, 3-methyl-1-butene, 1-pentene, 4-methyl-1-pentene
	OLE2	butadiene, trans-2-butene, cis-2-butene, trans-2-pentene, cis-2-pentene, 2-methyl-2-butene, cyclopentene, 2-methyl-1-pentene, trans-2-hexene, cis-2-hexene, styrene
	ARO1	benzene, toluene, ethylbenzene, iso-propylbenzene, n-propylbenzene
	ARO2	p,m-xylene, o-xylene, 1,3,5-trimethylbenzene, 1,2,4-trimethylbenzene
BVOC	ISOPRENE	Isoprene
	TRP1	α -pinene, camphene, β -pinene, limonene
OVOC	MEOH	methanol
	HCHO	formaldehyde
	CCHO	acetaldehyde
	ACET	acetone
Missing sinks	NO ₃ , HNO ₃ , HONO, HO ₂ , HNO ₄ , HO ₂ H, COOH, ROOH, RNO ₃ , MEK, PROD ₂ , CCO ₂ OOH, RCO ₂ OH, PHEN, HCOOH, RCHO, GLY, MGLY, CRES, BALD, METHACRO, MVK, ISOPROD, DCB ₁ , DCB ₂ , DCB ₃	

2.2.3. 解析結果

<計算値と測定値の濃度比の算出>

VOC 個別成分について、計算値と測定値の濃度比（計算値/測定値）を算出した（図 2-3）。図 2-3 より、OLE1、ISOPRENE、TRP1、MEOH、ACET の計算値は測定値と比べて過小であるが、その他の成分の計算値は、測定値に対して 50～150%程度であった。

S. Chatani (2009) らの結果と比較すると、本解析では全体的に濃度比が 1 に近付いており、物質ごとの濃度比の大小は概ね同様の傾向であった。濃度比の逆数である係数（表 2-4）を、境界値および排出量データの該当物質に乗じて、VOC 濃度比を反映した条件で再計算を実施した。

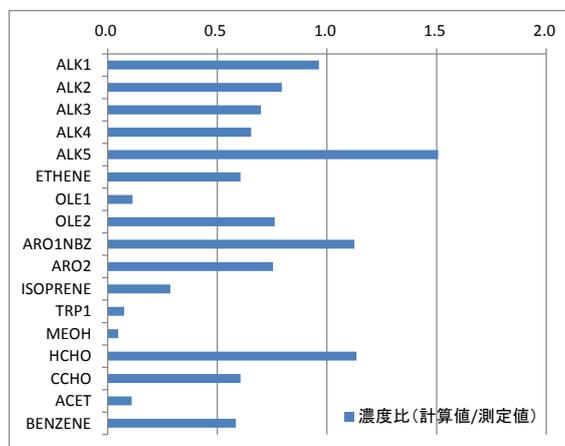


図 2-3 VOC 成分濃度測定値に対する計算値の濃度比（計算値/測定値）（1.3.3 の図 1-17 を再掲）

表 2-4 気相反応モデル SAPRC99 で用いられている VOC 成分と係数

VOC 成分	係数	VOC 成分	係数
ALK1	1.1	ARO1	0.9
ALK2	1.2	ARO2	1.3
ALK3	1.3	ISOPRENE	3.5
ALK4	1.4	TRP1	13.3
ALK5	0.6	MEOH	21.0
ETHENE	1.4	HCHO	0.9
OLE1	7.5	CCHO	1.7
OLE2	1.1	ACET	9.1
		BENZENE	1.7

<VOC 濃度比反映後の O₃ 濃度の算出>

VOC 濃度比の反映前と反映後の O₃ 濃度の計算値の経過図を図 2-4 に示した。あわせて O₃ 濃度の測定値も示した。図 2-4 より VOC 濃度比を反映した後、O₃ 濃度は期間を通じて高くなる傾向がみられた。特に 2007 年 8 月 26 日の最高濃度は、150ppb から 270ppb 程度まで大きく上昇した。S. Chatani (2009) らの解析結果と比較すると、本解析では VOC 濃度比反映前の O₃ 濃度計算値が全体的に高い傾向がみられる。ただし、VOC 濃度比反映後の O₃ 濃度の変化は、2007 年 8 月 26 日に上昇割合が高くなるなど同様の傾向がみられた。

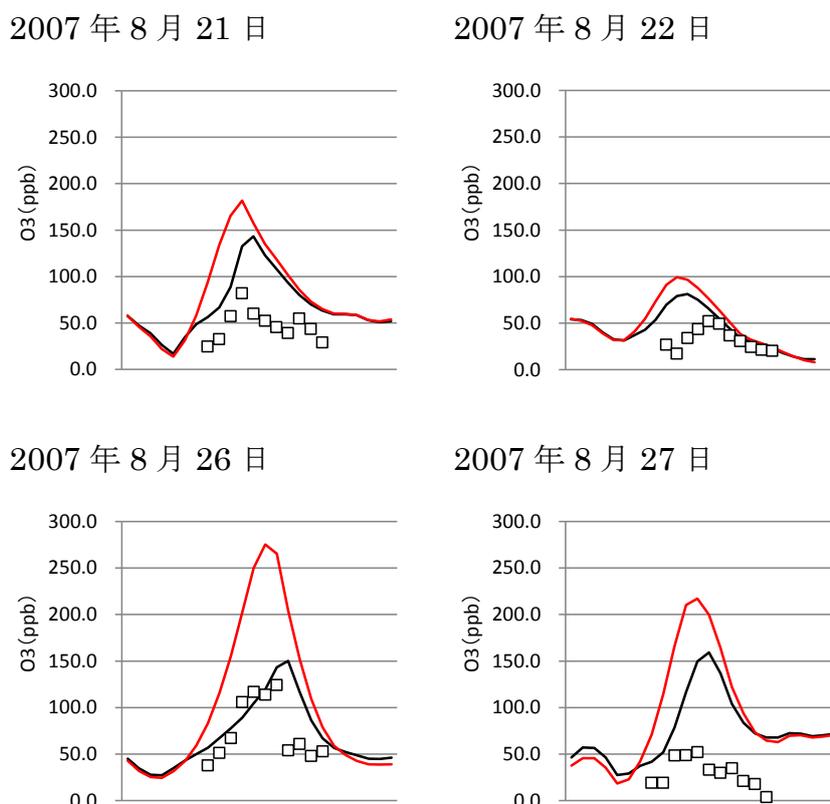


図 2-4 VOC 測定値反映前と VOC 測定値反映後の O₃ 濃度

(2007 年 8 月 21、22、26 および 27 日の日中を解析対象期間とした)

3. 越境汚染の寄与の変化について

3.1.1. 解析の目的

国内の O₃ 濃度における東アジア大陸由来の寄与割合の変化を算出し、越境汚染の影響の程度を解析することを目的とする。

3.1.2. 解析方法

評価対象地域は、九州、阪神、東海および関東地域とした。検証対象地点は、福岡市福岡市役所（九州）、大阪市国設大阪（阪神）、名古屋市国設名古屋（東海）および杉並区久我山（関東）である。

東アジア大陸の大気汚染物質排出量を 2001 年に設定した「ケース A」と 2009 年に設定した「ケース B」の 2 ケースについて東アジア領域（60km 格子）の計算を実施した。なお、東アジア領域のインベントリデータの整備に用いた REAS2.1 においては、東アジア大陸における大気汚染物質排出量は 2009 年の方が 2001 年より多い。

また、両ケースとも国内の大気汚染物質排出量および気象場については、2009 年で固定した（異常年検定で標準年として判定された 2009 年の暖候期を対象期間とした）。

ケース A とケース B の計算値を比較することで、国内の O₃ 濃度における東アジア大陸由来の寄与割合の変化を算出し、越境汚染の影響の程度を解析した。大気汚染物質排出量および気象場の設定内容について表 3-1 にまとめた。

表 3-1 大気汚染物質排出量および気象場の設定内容

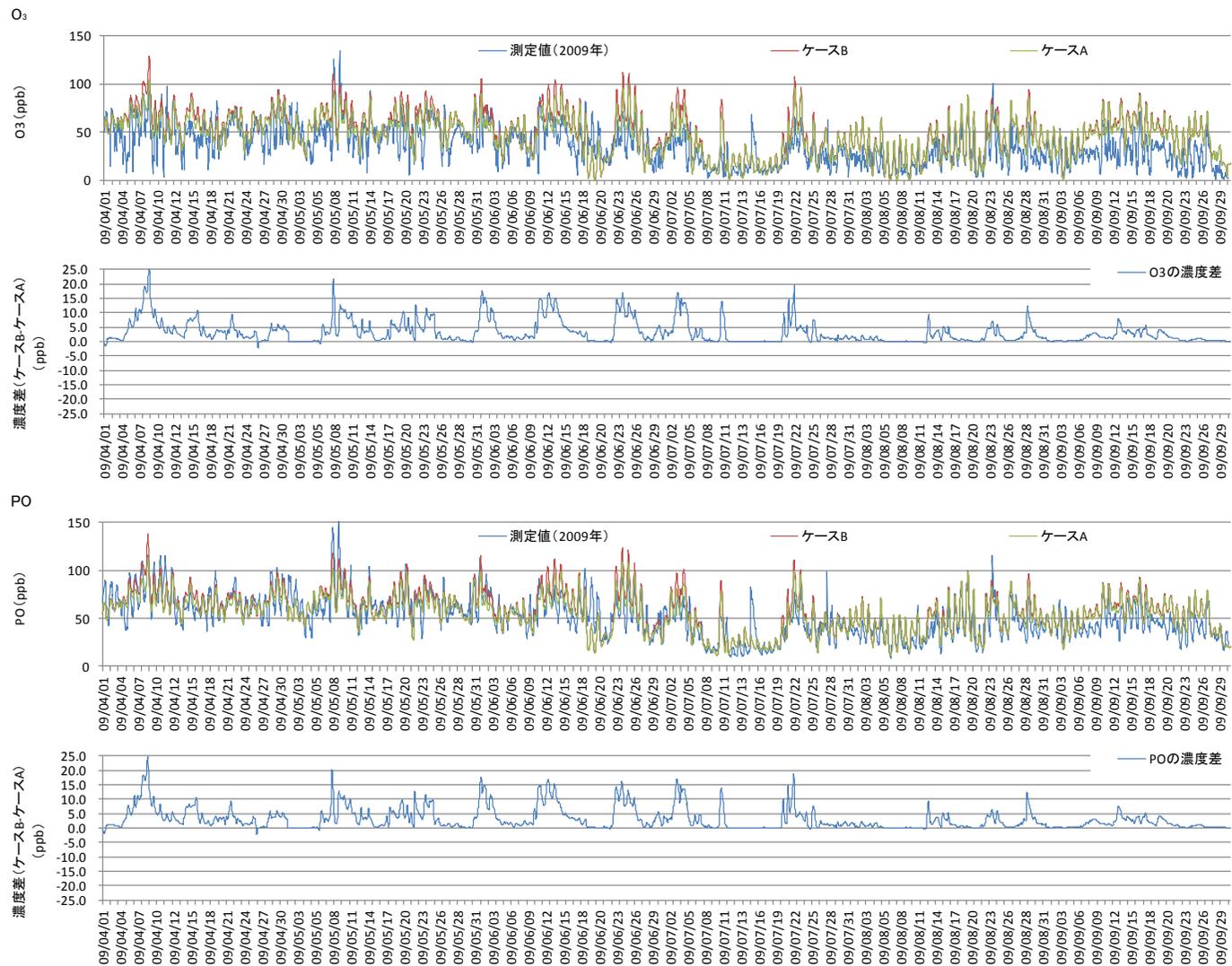
ケース	大気汚染物質排出量		気象場
	東アジア大陸	国内	
A	2001 年	2009 年	2009 年
B	2009 年		

3.1.3. 解析結果

O₃ と PO 濃度の経過図（福岡市役所）を図 3-1 に示した。また、月平均値と日最高値の月平均値についてケース A とケース B の濃度差（ケース B の計算値－ケース A の計算値）を算出し、併せて経過図に示した。

福岡市役所を含む全検証地点で、ケース B の O₃ および PO 濃度が高い結果となった。また、O₃ 濃度の上昇幅の最大は、福岡市市役所で 25ppb、国設大阪で 15ppb、国設名古屋および杉並区久我山で 10ppb であった。

図 3-2 に地点別および月別に O₃ および PO の濃度差について整理した。図 3-2 から、東アジア大陸に近い西に位置する地点ほど濃度差が大きいことが分かる。



O₃月平均濃度

東アジアインベントリ 気象場	2001年 2009年	2009年 2009年	濃度差
4月	60.3	64.8	4.5
5月	56.2	59.7	3.5
6月	46.5	51.7	5.2
7月	31.7	34.5	2.8
8月	36.5	38.0	1.5
9月	45.1	46.6	1.5

O₃日最高値の月平均濃度

東アジアインベントリ 気象場	2001年 2009年	2009年 2009年	濃度差
4月	72.2	77.5	5.3
5月	71.0	75.8	4.8
6月	64.2	70.8	6.6
7月	47.2	51.6	4.4
8月	58.6	60.5	1.9
9月	61.0	62.4	1.4

PO月平均濃度

東アジアインベントリ 気象場	2001年 2009年	2009年 2009年	濃度差
4月	67.4	71.7	4.3
5月	63.5	66.9	3.4
6月	56.2	61.2	5.1
7月	38.1	40.9	2.8
8月	46.5	48.0	1.4
9月	53.0	54.4	1.4

PO日最高値の月平均濃度

東アジアインベントリ 気象場	2001年 2009年	2009年 2009年	濃度差
4月	78.1	83.3	5.2
5月	76.2	81.0	4.8
6月	71.9	78.4	6.5
7月	51.5	55.8	4.3
8月	65.0	66.9	1.9
9月	65.9	67.2	1.4

図 3-1 O₃および PO の経過図 (東アジア大陸の大気汚染物質排出量を変化させた場合 福岡県福岡市福岡市役所)

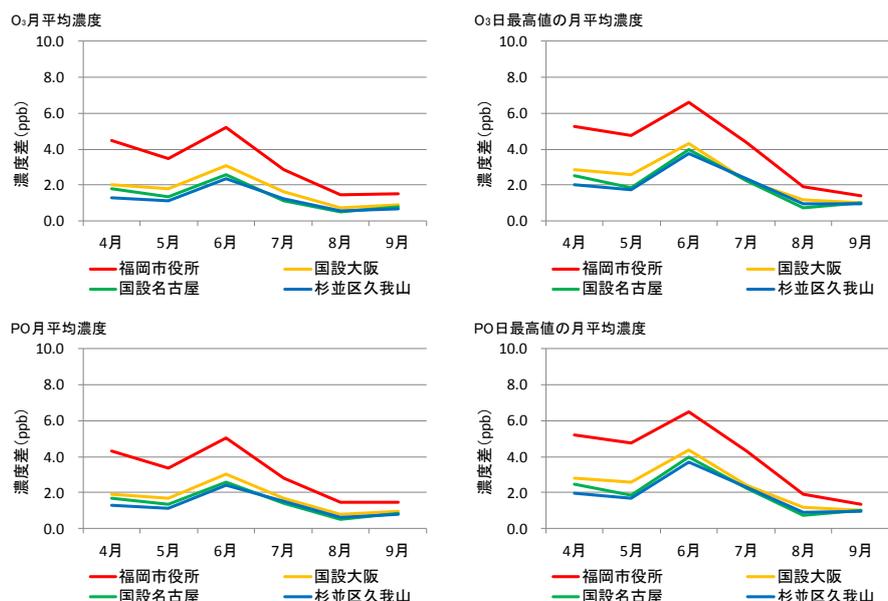


図 3-2 O₃および PO の月平均値の濃度差

3.1.3.1. 98 パーセンタイル値による評価

東アジア大陸の排出量を変化させた場合について、表 3-2 に O₃濃度の、表 3-3 に PO 濃度の日最高 8 時間値の暖候期 98 パーセンタイル値を算出した。

表内の括弧内の数値はケース A からケース B の増分を表わしている。これらから、東アジア大陸の排出量を変化させた場合、日最高 8 時間値の暖候期 98 パーセンタイル値として O₃濃度については、5~14ppb 上昇し、PO については、5~15ppb 程度上昇することが分かる。福岡県福岡市福岡市役所の増分が大きく (+14ppb)、大阪府より東の地域は、日最高 8 時間値の暖候期 98 パーセンタイル値で評価すると増分について顕著な差はみられない (+5~6ppb)。

表 3-2 東アジア大陸の排出量を変化させた場合の日最高 8 時間値の暖候期 98 パーセンタイル値 (O₃)

	O ₃ の日最高 8 時間値の暖候期 98 パーセンタイル値			
計算 ケース	福岡県福岡市 福岡市役所	大阪府大阪市 国設大阪	愛知県名古屋市 国設名古屋	東京都杉並区 久我山
A	88	81	77	83
B	102 (+14)	87 (+6)	82 (+5)	88 (+5)

表 3-3 東アジア大陸の排出量を変化させた場合の日最高 8 時間値の暖候期 98 パーセンタイル値 (PO)

	PO の日最高 8 時間値の暖候期 98 パーセンタイル値			
計算 ケース	福岡県福岡市 福岡市役所	大阪府大阪市 国設大阪	愛知県名古屋市 国設名古屋	東京都杉並区 久我山
A	95	87	82	89
B	110 (+15)	92 (+5)	88 (+6)	95 (+6)

4. 格子間隔の差（5km および 10km）による濃度再現性の評価

4.1.1. 解析の目的

格子間隔の違い（5km および 10km）によって O₃ 濃度の再現性がどのように変化するか把握することを目的とする。

4.1.2. 解析方法

異常年検定で標準年として判定された 2009 年の暖候期を対象期間とした。5km 格子の計算を行うにあたって、60km 格子および 15km 格子の計算を実施した。

東アジア領域の計算に使用したインベントリは REAS2.1 である。また、15km 格子および 5km 格子の計算に使用したインベントリは過去の環境省調査⁷で整備したものである。検証地点として、杉並区久我山（東京都）、衛生研究所（埼玉県さいたま市）および群馬県太田市中央小学校（群馬県太田市）を設定した。

4.1.3. 解析結果

東京都杉並区久我山を対象に、O₃、PO 濃度の計算値と測定値および濃度差（5km 格子計算値-10km 格子計算値）の経過図を図 4-1 に示した。図 4-1 の 2 段目の経過図から、5km 格子計算値と 10km 格子計算値の差は-20~20ppb の範囲にあることが分かる。また、相関係数については 10km 格子計算値の方が若干大きい傾向がみられる。

月平均値を対象に評価指標（NB,NGE,MPA）による評価を実施した。結果を図 4-2 に示した。3 地点とも NB および NGE は 5km 格子の計算の再現性が高い傾向がみられた。MPA については、東京都杉並区久我山では、10km 格子による計算の再現性が高い傾向がみられた。

図 4-3 に O₃ および PO の濃度差（5km 計算値-10km 計算値）の時間別平均値を示した。一般に格子間隔を細かくすると、濃度分布にメリハリがつくこと、また、O₃ 濃度については、NO タイトレーション効果の再現性が向上し、夜間～早朝において O₃ 濃度が低下することが想定される。本調査では、5km 格子による計算値では、地点によって傾向は異なるが、夜間～早朝においては、O₃ 濃度の低下はみられず、日中～夕方にかけての O₃ 濃度の低下がみられる結果となり、NO タイトレーションの再現性の差は不明瞭であった。

格子間隔の違いによる O₃ 濃度の再現性について評価した研究結果として、米国の北カロライナを対象とした、気象モデル MM5、大気質モデル CMAQ による計算の場合、格子間隔 4km と 12km で O₃ 濃度の計算結果は大きく変わらない報告⁸や大阪を対象とした、気象モデル MM5、大気質モデル CMAQ による計算の場合、格子間隔 9km、3km、1km の結果

⁷ H19 年度 揮発性有機化合物（VOC）の浮遊粒子状物質及び光化学オキシダントの生成に係る調査（環境省）

⁸ Xiao-Huan Liu, Yang Zhang, Kristen M. Olsen, Wen-Xing Wang, Bebhinn A. Do, George M. Bridgers: Responses of future air quality to emission controls over North Carolina, Part I: Model evaluation for current-year simulations, Atmospheric Environment 44 (2010) 2443-2456

Yang Zhang a, Xiao-Huan Liu, Kristen M. Olsen, Wen-Xing Wang, Bebhinn A. Do, George M. Bridgers: Responses of future air quality to emission controls over North Carolina, Part II: Analyses of future-year predictions and their policy implications, Atmospheric Environment 44 (2010) 2767-2779

は、格子間隔が小さくなるほど精度が高いという報告⁹、また、丹沢山地を対象としたオゾンの挙動解析を行った結果、丹沢山地では 15km と 5km で O₃ 濃度の再現性がほぼ変わらないとしている¹⁰。

⁹ SHRESTHA Kundan Lal, KONDO Akira, KAGA Akikazu, INOUE Yoshio : High-resolution modeling and evaluation of ozone air quality of Osaka using MM5-CMAQ system

¹⁰ 斎藤 正,若松 伸司,岡崎 友紀代,堀越 信治,山根 正伸,相原 敬次 : 数値モデルを用いた丹沢山地のオゾンの挙動解析 , 大気環境学会誌 Vol. 47 (2012) No. 5 p. 217-230

東京都杉並区久我山
O₃

2009 年

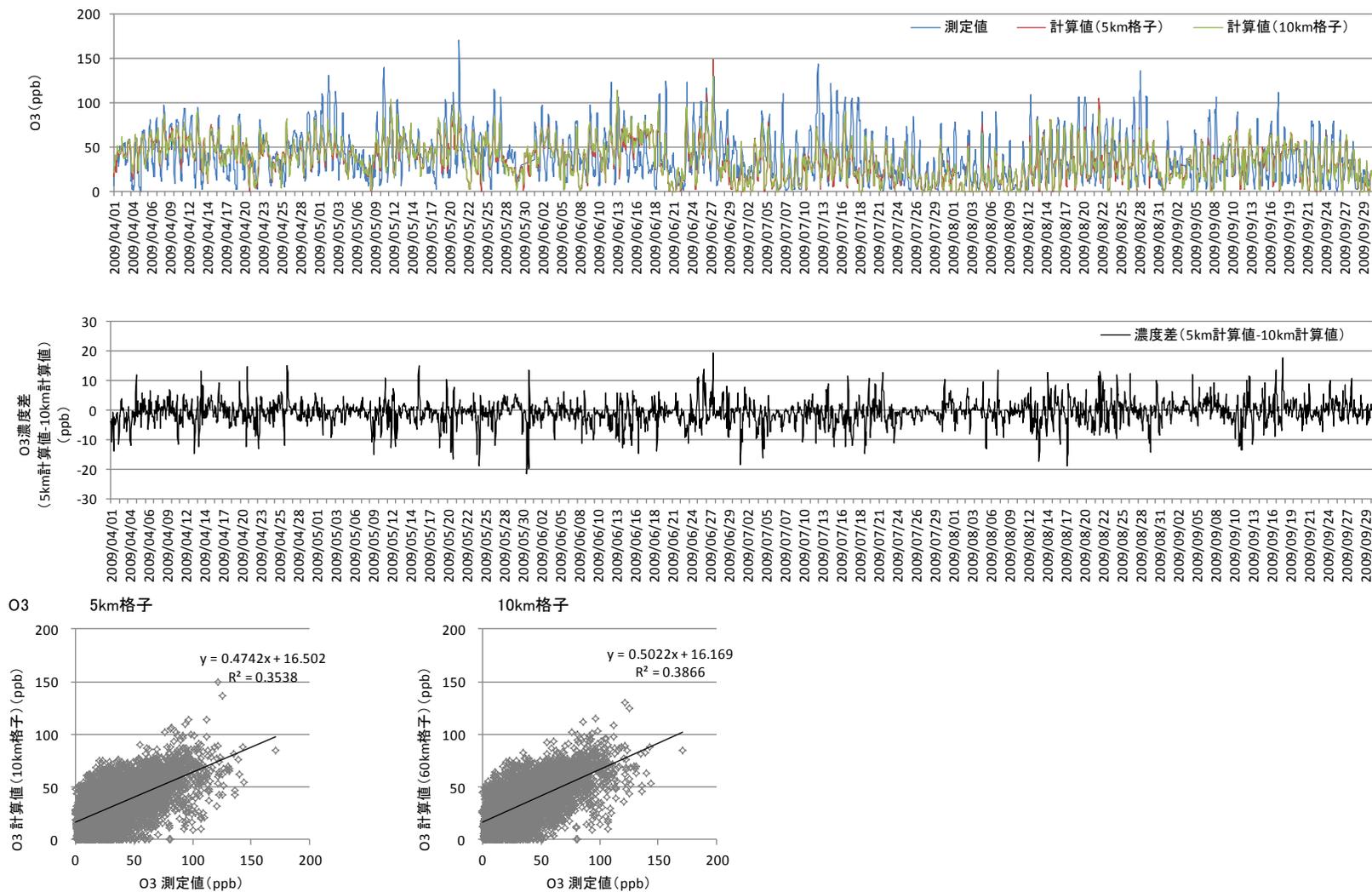


図 4-1 O₃濃度および濃度差の経過図 (格子間隔の違いによる濃度の再現性評価 杉並区久我山)

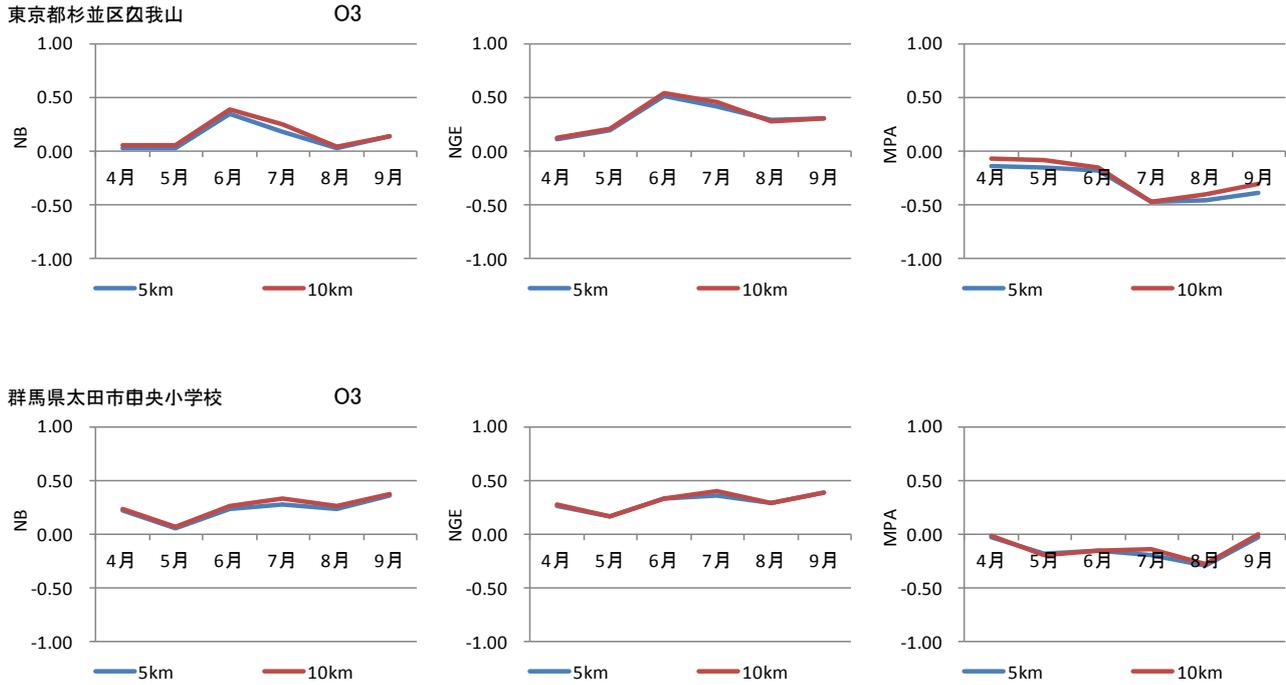


図 4-2 評価指標 (NB,NGE,MPA) による再現性評価

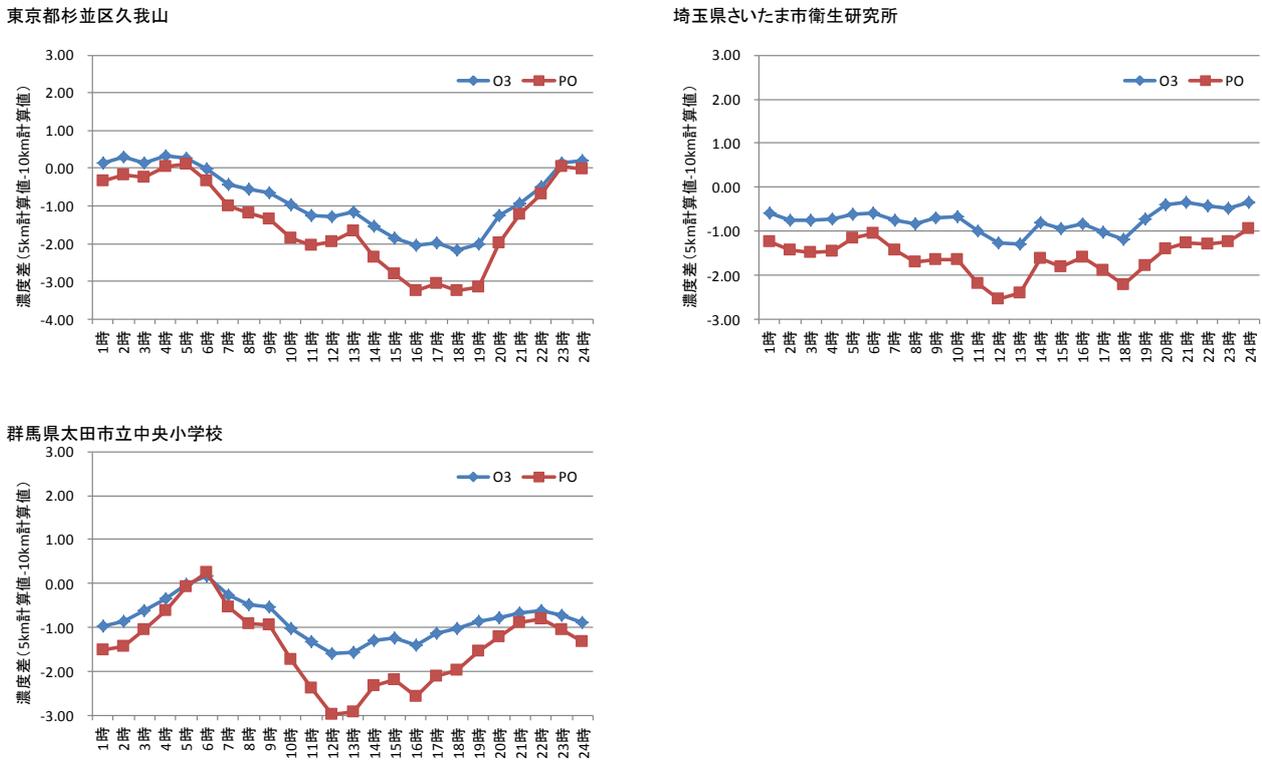


図 4-3 O₃およびPOの濃度差(5km計算値-10km計算値)の時間別平均値