

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

平成 19 年 3 月

エヌエス環境株式会社



## - 目次 -

1. シミュレーションフレームの検討	3
1.1 シミュレーションの目的	3
1.2 基準年・対象年について	3
1.3 対象地域について	3
1.4 評価する物質と統計量について	3
1.5 目標とする精度について	4
1.6 使用する発生源データについて	4
1.7 フィールド調査データの整理・解析について	6
1.8 越境汚染モデル化について	6
1.9 今後のスケジュールについて	7
2. 大気質モデルの検討	9
2.1 大気質モデルの概要比較	11
2.2 CMAQ の適応性について	18
2.3 大気質モデルの選定	28
3. 気象モデルの検討	30
3.1 気象モデルの概要比較	30
3.2 気象モデルの精度比較	32
3.3 MM5 の適応性について	39
3.4 気象モデルの選定	40
4. VOC 粒子化モデル(化学反応モデル)の検討	42
4.1 粒子化モデルの検討	42
4.2 気相化学反応モデルの検討	44
5. 国内の発生源インベントリデータ	48
5.1 国内で整備されている発生源インベントリの仕様	48
5.2 国内発生源インベントリの排出量比較	51
5.3 CMAQ 運用を想定した発生源インベントリの整備	52
6. 海外から移流する汚染物質の影響と海外の排出インベントリ	55
6.1 粒子状物質と越境汚染の関係	55
6.2 オキシダントと越境汚染の関係	58
6.3 海外の排出インベントリ	63
7. これまでの VOC・SPM フィールド調査の整理	73
7.1 VOC フィールド調査	73
7.2 PM フィールド調査	76
7.3 大気常時監視局データのトレンド	78

8	テストシミュレーション	85
8.1	計算対象日の選定	85
8.2	発生源ファイルの作成	93
8.3	計算条件	95
8.4	事例日毎の再現結果	102
8.5	精度検証	106
8.7	今後の課題	116
9	今後の検討事項	118
9.1	発生源インベントリの精緻化	118
9.2	環境測定データの充実	120
9.3	その他	121
10	全体まとめ	122
	文献リスト(再掲)	124

## 資料編

資料1 テストシミュレーションの結果

資料2 気象モデルの改良点

## 1. シミュレーションフレームの検討

本業務を進めるに当たり、実施しようとするシミュレーションの目的、対象とする物質などの大枠について、以下のとおり整理した。

### 1.1 シミュレーションの目的

本シミュレーションにより、最終的に得たい成果としては、次の2点である。

- VOC 排出抑制対策(改正大気汚染防止法 平成 18 年 4 月施行)により、平成 22 年度までに、O<sub>x</sub> および SPM の環境濃度(高濃度日数、環境基準達成率)がどれだけ変化するか
- 平成 22 年度までに O<sub>x</sub> および SPM の環境濃度低減が不十分と判断された場合、どのような追加対策が有効と考えられるか

また、あわせて PM<sub>2.5</sub> と VOC の関係についても把握する。

### 1.2 基準年・対象年について

シミュレーションを実施するに当たり、基準年は平成 12 年度とする。これは、平成 18 年 4 月より施行されている VOC 排出抑制対策(改正大気汚染防止法)に関連し、国の VOC 排出量削減目標が、平成 12 年度を基準として、平成 22 年度までに 3 割と設定されているためである。同様の理由により、シミュレーションの対象年は平成 22 年度とする。また、中間年の平成 17 年度を対象に、シミュレーションを実施し、実際の O<sub>x</sub> および SPM 環境濃度との比較を行い、シミュレーションモデルの有効性の確認、VOC 排出抑制対策の効果検討(中間評価)を実施する。

### 1.3 対象地域について

VOC 排出抑制対策の効果を推定するためのものであることから、日本全国を対象とするが、データの有無及び作業量を考慮して、実作業上は”日本の代表地域”という位置づけで関東・関西を選定し、シミュレーションを行い、環境基準達成率や高濃度日数の変化などを評価する。

### 1.4 評価する物質と統計量について

今回必要とされるのは、SPM の年平均値・環境基準達成率、O<sub>x</sub> 120ppb 以上の日数である。これらの統計量を算出する手法としては、現状では年間 365 日を日射量、地衡風等を基準に気象パターン分類を行い、各パターンの代表日についてシミュレーションを実施し、各パターンの出現頻度の重みで重合する方法を想定している。統計量の算出手法については、他にも、年間 365 日についてシミュレーションを実施する方法や、O<sub>x</sub> については 120ppb 以上の日を対象としたシミュレーションが考えられるが、今後の計算機性能の進歩も考慮し、これらの計算を実際に行う予定である平成 20 年度までに最終的に判断する。

### 1.5 目標とする精度について

SPM の予測モデルとして、ブルーム・パフ等の従来型モデルによる予測結果を評価する指標としては、SPM マニュアルの評価基準(表 1-1)が多く利用されている。SPM マニュアルの評価基準は、本業務において実施しようとしている、ある特定の事例日を対象とした評価には必ずしも適した指標ではないが、過去に実施された環境アセスメント等でも、物理モデルによる特定事例日の予測精度評価に利用された実績もあり、本業務での SPM のシミュレーション結果の精度評価も、SPM マニュアルの判定条件を満たすことを目安とする。

一方、オキシダント(オゾン)については、国内ではオーソライズされたモデルの精度評価の指標はないため、国内の研究機関が実施しているシミュレーションの予測精度評価の指標としては EPA の評価基準(表 1-2)が多く利用されている。したがって、本業務でのオキシダントのシミュレーション結果の精度評価についても、EPA の評価基準を満たすことを目安としたい。

なお、米国 EPA では、モデル評価のためのガイドラインを策定中(2006 年 9 月現在 Draft3.2)であり、今後は本調査でもこのガイドラインを参考にした評価指標により SPM および Ox についてモデルの予測精度を評価する。

### 1.6 使用する発生源データについて

今年度は H14 年度に環境省が実施した、「平成 14 年度浮遊粒子状物質環境汚染実態解析調査」において作成した平成 12 年度ベースの発生源データを用いてシミュレーションを行ったが、今後は基準年については、環境省以外の既存インベントリを利用する方針とする(候補としては、JCAP 公開データ、EAGrid2000-Japan)。中間年、将来年については、基準年の既存インベントリを基に補正を加えて作成する。なお、VOC については、環境省内で平成 17 年度を対象とした固定発生源からの成分別(196 物質)の排出インベントリが集計される(全国または都道府県単位)のでこちらの情報を優先的に使用する予定である。また、海外の発生源インベントリについては少なくとも基準年ベースの排出量インベントリについては何らかの形で考慮する。なお、将来予測をするにあたっては、発生源の設定をどのようにするか(低公害車の普及見込みなど)および、海外からの影響をどの程度見込むかによって、結果が大きく変わる可能性もあるため、この点については次年度以降に作業を予定する、発生源インベントリの作成において議論したい。また、発生源インベントリの作成にあたっては、シミュレーション結果を考慮しながら、随時修正を加えながら進める。

表 1-1 SPM の計算値と実測値の整合性に係る判定条件等

1 . 計算値と実測値の整合性に係る個別条件			
$a_0 = 1/3 (Y - BG) + BG$ $a_0 = 2/5 (Y - BG) + BG$ 回帰直線の傾きが 0.8 から 1.2 の範囲内でできるだけ 1 に近く、かつ、相関係数が少なくとも 0.71 以上であり、可能な限り 0.8 以上であること。 $s' / Y = 1/5$ $s' / Y = 1/4$ $s' / Y = 1/3$ $Y$ : 測定局についての実測値の平均値 $X$ : 測定局についての計算値の平均値 $a_0$ : バックグラウンド濃度 ( = $Y - X$ ) $BG$ : 自然界バックグラウンド値等 $s' / Y$ : $Y = X + a_0$ からの変動係数 $s'$ : 標準誤差			
2 . 計算値と実測値の整合性に係る精度ランク			
Aランクの条件： と と 、又は と の条件を満足すること。 Bランクの条件： と の条件を満足すること。 Cランクの条件： と の条件を満足すること。			
3 . 評価期間ごとの判定条件			
		季(期)区分	
		各季(期)	年
時間帯区分	各時間帯	C	B
	日	B	A

出典：「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，1997)

表 1-2 オゾンの EPA 指標による評価法

<p>1) Normalized Bias ( 評価基準 : NB ± 0.15 )</p> $NB = \frac{1}{N} \sum_N \frac{C_{obs} - C_{cal}}{C_{obs}}$ <p>2) Normalized Gross Error ( 評価基準 : NGE 0.35 )</p> $NGE = \frac{1}{N} \sum_N \frac{ C_{obs} - C_{cal} }{C_{obs}}$ <p>3) Maximum Prediction Accuracy ( 評価基準 : MPA ± 0.20 )</p> $MPA = \frac{C_{obs,max} - C_{cal,max}}{C_{obs,max}}$ <p>ここで、  <math>C_{obs}, C_{cal}</math> : 各地点、時刻における濃度の実測値と計算値  <math>N</math> : 評価対象としたデータ数</p>
--

### 1.7 フィールド調査データの整理・解析について

モデル検証用として利用可能な、過去のフィールド調査のリストアップを今年度の作業として行った。今後は、環境省及び自治体で継続実施あるいは、あらたに実施されるフィールド調査の中でモデルの精度向上・検証用として活用出来るような調査について情報収集をおこない、データベースの充実を図る。一方で、過去の種々のフィールド調査結果に基づく大気質の経年変化、地域別特徴等の解析についても、VOC 排出抑制対策をはじめとした、種々の施策効果検証のためにも重要であると認識しており、これについては、別の検討会等で議論する。

### 1.8 越境汚染モデル化について

今年度実施した、海外からの越境汚染の影響についてのレビューの結果から、日本国内の大気環境を考えるうえで、特に東アジア域から移流してくる汚染物質の影響は無視し得ないことが明らかとなった(第 6 章参照)。そこで、本シミュレーションを進めるにあたって、海外からの移流については、何らかの形で考慮する方針とする。具体的には、既存の海外排出インベントリを用いたネスティングによる計算、あるいは他の研究機関において実施されたアジア域の濃度予測結果を用いたネスティングや境界値の設定が考えられる。越境汚染の影響を本シミュレーションの中にどう取り込んでゆくかについての詳細は次年度に決定する。



### 1.9 今後のスケジュールについて

本調査で実施するシミュレーション全体のスケジュールを表 1-3 に示す。このうち、今年度については、シミュレーションフレームの検討、テストシミュレーション、問題点の整理を実施した(図 1-1)。

**表 1-3 大気質シミュレーションのスケジュール**

	H18 年 度	H19 年 度	H20 年 度	H21 年 度	H22 年 度
シミュレーションフレームの検討					
テスト計算					
問題点の整理					
基準年発生源データの整備(既存データの活用)					
中間年発生源データの整備					
将来発生源データの整備					
モデルの改良(気象モデル、CMAQ オプションの変更等)					
基準年現況再現(エピソード解析)と精度検証					
基準年の SPM 年平均、Ox120ppb 以上の日数計算					
中間年度の SPM 年平均、Ox120ppb 以上の日数計算					
将来年度の SPM 年平均、Ox120ppb 以上の日数計算					
VOC 削減に伴う SPM/Ox の低減効果検証					
感度解析					
新たな施策の必要性検討(シミュレーション)					
これまでの施策評価とりまとめ					
フィールド調査データの整理					

基準年:H12 中間年:H17 将来:H22

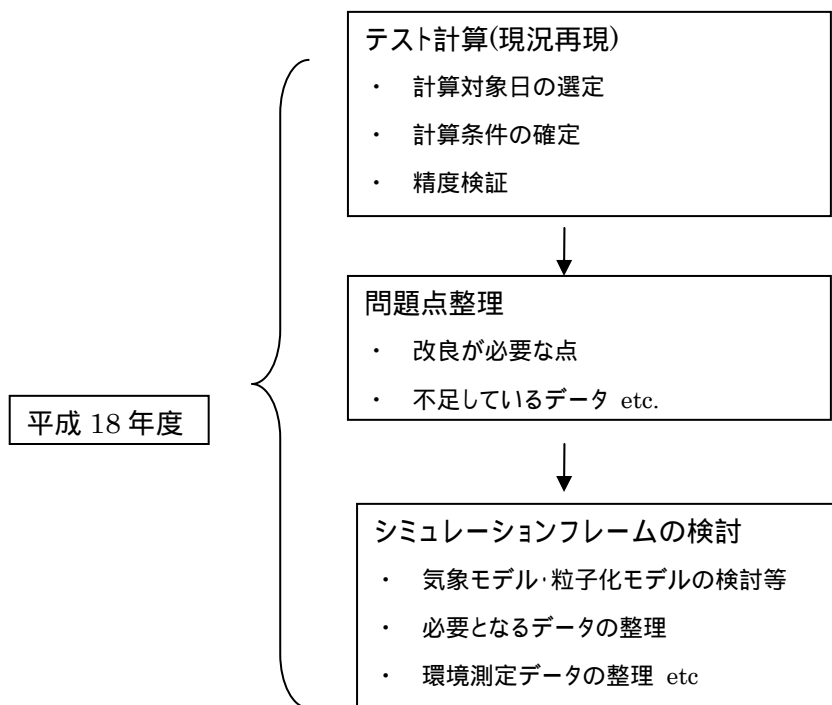


図 1-1 今年度の作業工程

## 2. 大気質モデルの検討

平成 17 年度にとりまとめられた「平成 17 年度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報告書」に、環境省で使用実績のある大気質モデルについては、以下通り整理されている。

表 2-1 に環境省が過去に行ってきたオゾン、SPM に関するモデルについて整理した。それぞれのモデルは、実施した時点では、最新の知見を反映し、かつ、目的に合致したものであるが、現在の時点で今後の利用を行うことを念頭に評価を行うと以下ようになる。

- ・ 定常モデル（H14 年）に関しては、気象ならびに輸送・拡散過程を簡略化したモデルであり、計算量が少ないことから、大量の計算（たとえば年間を通じた計算など）が可能であるが、ある特定の高濃度日における時間変動と言った精細な計算をするには適さない。定常モデル（H14）では、化学反応には CBM-IV を、有機粒子の二次生成に関しては、解析型/統計型モデルを用いている。
- ・ 非定常モデル（H14 年）に関しては、気象ならびに輸送・拡散過程については、現代的なモデルであると言えるが、化学反応については CBM-IV を利用しており、精細な評価を行うことができない点が最大の問題である。また、有機粒子の二次生成に関しては物質群ごとにエアロゾル収率を用いて、CBM-IV で解く方法を用いている。
- ・ SAPRC-99 ボックスモデル(H16 年)は、化学反応については SAPRC-99 を用いて、化学物質ごとの精細な評価を行うことができるが、ボックスモデルを用いていることから、気象場としてはボックス内一様・完全混合となっており、広域的な大気汚染の状況を再現するには不適である。ただし、除外物質の検討にはこのモデルを用いて算出した評価指標 MIR(Maximum Incremental Reactivity)を用いており、今後も新たな指標への変更を行わない限り、除外物質の検討には SAPRC-99 ボックスモデルを用いることとなると考えられる。
- ・ 長距離輸送モデルは、単独で計算・評価が行われており、長距離輸送モデルと地域モデル（定常モデル、非定常モデル）との連携は非常に煩雑である。

なお、浮遊粒子状物質についての環境基準によれば、年間の 2%除外値を用いることとなっているが、シミュレーションの精度、あるいは、環境基準は最低限守るべき基準であって、更なる汚染の低減が好ましいことから、シミュレーションを行う場合に 2%除外値を精密に計算する必要はないものと考えられる。

表 2-1 環境省過去調査におけるオゾン/SPM モデルの比較イメージ

	定常モデル	非定常モデル	SAPRC-99 ボックスモデル	長距離輸送
実施事業者	数理計画	日本気象協会	日本エヌ・ユー・エス	数理計画
実施年度	H14	H14	H16	H14
対象物質	SPM	オゾン/SPM	オゾンのみ	SPM
目的	二次生成粒子解析型モデルによる年平均値の導出により、排出量の変化による効果を評価	物理化学的過程に基づく、VOC削減量に対する環境基準達成状況の変化の評価	各 VOC によるオゾン最大生成能の評価 NO <sub>x</sub> 量を増減させ、付加生成量の最大を探索する	排出・輸送・光化学反応・沈着過程を含んだ輸送モデルによる東アジア域における長距離輸送の評価
対象領域	関東(39 ブロック) 関西(29 ブロック)	関東(200km × 200km)	関東(70km × 70km) 関西(30km × 40km)	東アジア
対象期間	年(年平均値)	1日から数日	1日から数日程度	
対象となる現象	観測点ごとの年平均値	メッシュごとの時間値	地域的高濃度現象の再現	
空間表現	気象ブロック	メッシュ	ボックス(全領域一様)	東アジア域(3段階のメッシュ)
気象モデル	ブロック代表観測局の年間の気象	局地気象モデル(600km × 600km)	高濃度日の代表的気象 全領域一様	NCAR/PSU MM5
拡散・輸送モデル	ブルーム式	オイラー型輸送モデル	なし(全領域一様)	RAQM(東アジア域における酸性雨モデル)
化学反応モデル	CBM-IV	CBM-IV	SAPRC99	CBM-IV(簡略版)
有機粒子生成モデル	解析型/統計型モデル	CBM-IV(物質群ごとにエアロゾル収率を設定)	なし(対象外)	なし
VOC の扱い	炭素結合種(物質群)	炭素結合種(物質群)	物質群 / 物質ごと	炭素結合種(物質群)
排出源モデル	SO <sub>x</sub> , NO <sub>x</sub> , PM, 粉じん等(Dust), 塩化物塩(HCl), 炭化水素(HC)	CO, EC, OC, NH <sub>3</sub>	NO <sub>x</sub> , 炭化水素(HC) H14 データ	アイオワ州立大学(地球・地域規模の環境調査センター)による
総評	解析型モデルであり、年平均値以外には適さない。	空間的には詳細 化学変化は粗い	化学変化：詳細 空間表現：粗い	長距離輸送される粒子のみを対象としている

- 長距離輸送モデルは、他のモデルとは目的が大きく異なるため、参考として記述した。
- NCAR:米国大気研究センター、PSU:ペンシルバニア州立大学、MM5 第5世代メソスケールモデル

また、過去に行われてきたシミュレーション内容とあわせて、今後高度化が必要な点として、以下の項目を挙げている。

- モデルの信頼性、最新の知見を含んだものかどうか。
    - 特にこれまで簡易的な取扱であった、SPMのうち有機二次粒子の生成過程について、新たな知見を含んだもの
    - SPM/O<sub>x</sub>の原因物質としてのVOCを個別に扱うことができるもの
  - 越境大気汚染と国内起源のVOC、NO<sub>x</sub>との寄与について評価が可能であること。
  - より多い地域・計算ケース（気象条件、削減ケース等）を網羅すること
- SPM/O<sub>x</sub>のシミュレーションを行うには、いろいろなメカニズムを対象とした複数のモデルを組み合わせて計算を行うことが必要とされることから、上記のような条件に加えて、
- いろいろなメカニズムを対象とした複数のモデルを、統一的なフレームワークでとりまとめた統合的なモデルであること
  - 信頼性、知見、越境汚染の評価、計算ケースの充実など、種々の要求を踏まえ、信頼できる機関がとりまとめを行っていること
- の二点が満たされることが、大変望ましい。

このような点を踏まえ、本節ではこれまで世界的に実績のある大気質モデルについて、情報整理を行い、本業務で利用する大気質モデルについて検討を行った。

## 2.1 大気質モデルの概要比較

大気質モデルとしては、大きく解析解型のモデルと数値解型のモデルに分類出来る。さらに、解析解型、数値解型の分類の中でいくつかのモデルが存在し、それぞれ適切な使用目的、長所、短所があり、表2-2のように整理出来る(大原ら, 1997)。一般的に解析解型モデルはその簡略性のため、主として行政目的に使用される頻度が高い一方で、現象を単純化する様々な仮定の下に成立するモデルで、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・沈着現象を伴う現象等)には適用出来ないケースが多いとされている(大原ら, 1997)。また、Seigneur(2001)は、数値解型のモデルでもボックスモデルやラグランジュ型モデルは特定の事例に対しては有効であるが、広範囲にわたる化学輸送プロセスを取り扱うには、3Dオイラー型モデルが最適であると述べている。そこで、Seigneur(2001)の文献を基に、これまでに適用実績の多い、3-D オイラー型大気質モデル 11 について、特徴を整理した(表 2-3)。なお、表 2-3 の reference のリストは節末に整理した。

表2-2 大気汚染シミュレーションモデルのタイプ (大原ら, 1997)

方法	モデル	概要	使用目的 研究⇄実用	スケール 大⇄小	適用される流れ場	使用される気象モデル	長所	短所	
解析解	ブルーム	拡散状態を煙流で表現する。計算は非常に簡単であるが、多くの仮定のもとでのみ成立する。複雑地形場に対応したモデルとしてガウス型流跡モデルがある。	—	—	水平スケール 10km程度までの単純場	実測結果に基づく設定	計算が容易	複雑な現象には適用が困難	
	パフ	拡散状態を煙塊で表現する。ブルームモデルとは異なり、非定常場や静穏時にもある程度適用できる。	—	—	ブルームモデルよりもやや大きい	〃	〃	〃	
数値解	ラグランジュ型	トラジェクトリー	トラジェクトリー（流跡線）に沿って濃度変化を計算する。	—	—	スケールによらない比較的単純な場	・数値気象モデル ・客観解析モデル	移流項の計算が不要。ソース・リセプター関係が明確	生成するトラジェクトリーの精度に限界
		ラグランジュ型粒子	大気中の物質を模擬した粒子を平均風と乱れにより移動させて濃度分布を計算する。	—	—	複雑な場でも適用可	・数値気象モデル ・客観解析モデル	疑似拡散なし	大きなスケールで濃度分布を得るには計算コスト大
	オイラー型	渦拡散(グリッド)	勾配拡散(1次のクロージャー)の方程式を差分法等により数値的に解く。なお、このモデルを簡略化したモデルとして、拡散方程式を空間平均しボックス内の物質収支を計算するボックスモデルがある。	—	—	基本的にあらゆる場	・数値気象モデル ・客観解析モデル	適用性が広い	・計算コスト大 ・疑似拡散
2次クロージャー		渦拡散モデルと異なり、勾配拡散関係を仮定せずに濃度の2次モーメント量まで計算対象にするモデルで、構造はかなり複雑となる。	—	—	〃	数値気象モデルの乱れの2次モーメントを計算可能なこと	勾配-フラックス仮定が不要	計算コスト非常に大。乱流統計量を与える必要あり	

表 2 - 3 (1) 主要な大気質モデルの概要(Seigneur, 2001)

Table 3. Summary of the major characteristics of selected air quality models for PM.

Model	Spatial and Temporal Characteristics	Gas-Phase Chemistry (Mechanism and Number of Reactions)	Aqueous-Phase Chemistry	Inorganic PM (Thermodynamic Module and Species)	Organic PM	Size Distribution (Processes Treated)	Applications to Date	References
CIT	Urban scale, episodic	CACM (361 reactions)	None	SCAPE2 ( $\text{SO}_4^{2-}$ , $\text{NO}_3^-$ , $\text{NH}_4^+$ , $\text{Cl}^-$ , $\text{Na}^+$ , $\text{K}^+$ , $\text{Mg}^{2+}$ , $\text{Ca}^{2+}$ , $\text{CO}_3^{2-}$ , BC, $\text{H}_2\text{O}$ , other)	42 condensable species grouped into 5 hydrophobic and 5 hydrophilic surrogate species, primary OC	Sectional (nucleation, condensation, kinetic mass transfer)	Los Angeles Basin, CA	19
DAQM-V2	Urban to regional scale, episodic	RADM2 (158 reactions)	19 equilibria and 5 reactions for $\text{SO}_4^{2-}$	MARS ( $\text{SO}_4^{2-}$ , $\text{NO}_3^-$ , $\text{NH}_4^+$ , $\text{H}_2\text{O}$ , BC, other)	6 hydrophobic condensable species, primary OC	Modal (nucleation, condensation, coagulation)	Denver, CO	62
GATOR	Urban, regional to global scale, episodic	Augmented CBM-IV (more than 200 reactions)	67 reactions	EQUISOLV II ( $\text{SO}_4^{2-}$ , $\text{NO}_3^-$ , $\text{NH}_4^+$ , $\text{Cl}^-$ , $\text{Na}^+$ , $\text{K}^+$ , $\text{Mg}^{2+}$ , $\text{Ca}^{2+}$ , $\text{CO}_3^{2-}$ , BC, $\text{H}_2\text{O}$ , other)	10 soluble VOC species, several nonvolatile species, primary OC	Sectional (nucleation, condensation, coagulation, kinetic mass transfer)	Los Angeles Basin, CA	63
Models-3/CMAQ	Urban to regional scale, episodic to long-term	CBM-IV (93 reactions) or RADM2 (158 reactions)	19 equilibria and 5 reactions for $\text{SO}_4^{2-}$	MARS ( $\text{SO}_4^{2-}$ , $\text{NO}_3^-$ , $\text{NH}_4^+$ , $\text{H}_2\text{O}$ , BC, other)	6 hydrophobic condensable species, primary OC	Modal (nucleation, condensation, coagulation)	Eastern United States; western United States; contiguous United States; Los Angeles Basin, CA; Nashville, TN; Vancouver, Canada	64
Models-3/CMAQ EPR/CARB version <sup>a</sup>	Urban to regional scale, episodic	CBM-IV (93 reactions) or CACM (361 reactions)	35 equilibria and 99 reactions for $\text{SO}_4^{2-}$ and $\text{NO}_3^-$	ISORROPIA ( $\text{SO}_4^{2-}$ , $\text{NO}_3^-$ , $\text{NH}_4^+$ , $\text{Cl}^-$ , $\text{Na}^+$ , $\text{H}_2\text{O}$ , BC, other)	38 hydrophobic condensable species or 42 condensable species grouped into 5 hydrophobic and 5 hydrophilic surrogate species, primary OC	Sectional (nucleation, condensation, hybrid mass transfer)	Los Angeles Basin, CA; Nashville, TN	65
SAQM-AERO	Urban to regional scale, episodic	CBM-IV (~90 reactions)	None	SEUILIB ( $\text{SO}_4^{2-}$ , $\text{NO}_3^-$ , $\text{NH}_4^+$ , $\text{Cl}^-$ , $\text{Na}^+$ , $\text{H}_2\text{O}$ , BC, other)	Nonvolatile species, primary OC	Sectional (nucleation, condensation, hybrid mass transfer)	San Joaquin Valley, CA; Los Angeles Basin, CA	3,66

表 2 - 3(2) 主要な大気質モデルの概要(Seigneur, 2001)

Table 3. (cont.)

Model	Spatial and Temporal Characteristics	Gas-Phase Chemistry (Mechanism and Number of Reactions)	Aqueous-Phase Chemistry	Inorganic PM (Thermodynamic Module and Species)	Organic PM	Size Distribution (Processes Treated)	Applications to Date	References
UAM-AERO CRC Version <sup>b</sup>	Urban scale, episodic	SAPRC97 (185 reactions)	35 equilibria and 99 reactions for $\text{SO}_4^{2-}$ and $\text{NO}_3^-$	ISORROPIA ( $\text{SO}_4^{2-}$ , $\text{NO}_3^-$ , $\text{NH}_4^+$ , $\text{Cl}^-$ , $\text{Na}^+$ , $\text{H}_2\text{O}$ , BC, other)	6 hydrophobic condensable species, primary OC	Sectional (nucleation, condensation, hybrid mass transfer)	Los Angeles Basin, CA (CRC, CARB, and Sun/Wexler versions); San Joaquin Valley, CA; Salt Lake City, UT; Tokyo, Japan (CARB version)	12,56
REMSAD Version 6	Regional scale, long-term	$\mu\text{CB4}$ (60 reactions)	3 reactions for $\text{SO}_4^{2-}$	MARS ( $\text{SO}_4^{2-}$ , $\text{NO}_3^-$ , $\text{NH}_4^+$ , $\text{H}_2\text{O}$ , BC, other)	Primary OC	Fine and coarse (condensation)	Eastern United States; contiguous United States	67,68
UAMAERO-LT	Urban scale, long-term	CBM-IV (~90 reactions)	Simple parameterization for $\text{SO}_4^{2-}$	Parameterization ( $\text{SO}_4^{2-}$ , $\text{NO}_3^-$ , $\text{NH}_4^+$ , $\text{Cl}^-$ , $\text{Na}^+$ , $\text{H}_2\text{O}$ , BC, other)	2 hydrophobic condensable species, primary OC	Fine and coarse (condensation)	Los Angeles Basin, CA	69
UAM-LC	Urban scale, long-term	Parameterized chemistry	Simple parameterization for $\text{SO}_4^{2-}$	Parameterization ( $\text{SO}_4^{2-}$ , $\text{NO}_3^-$ , $\text{NH}_4^+$ , $\text{Cl}^-$ , $\text{Na}^+$ , $\text{H}_2\text{O}$ , BC, other)	Primary OC	One section (condensation)	Los Angeles Basin, CA; Phoenix, AZ	70
URM	Urban to regional scale, episodic	LLC (~100 reactions)	2 reactions for $\text{SO}_4^{2-}$	ISORROPIA ( $\text{SO}_4^{2-}$ , $\text{NO}_3^-$ , $\text{NH}_4^+$ , $\text{Cl}^-$ , $\text{Na}^+$ , $\text{H}_2\text{O}$ , BC, other)	Nonvolatile species, primary OC	Sectional (condensation)	Eastern United States (southern Appalachian Mountains)	71,72

<sup>a</sup>EPRI is formerly Electric Power Research Institute, Palo Alto, CA; CARB is California Air Resources Board, Sacramento, CA; <sup>b</sup>CRC is Coordinating Research Council, Alpharetta, GA; the CARB version<sup>55</sup> has a parameterized aqueous-phase chemistry; the version by Sun and Wexler<sup>22</sup> (UAM-AIM) uses the results of a Gibbs energy minimization for inorganic aerosol thermodynamics.

### (1) 空間・時間スケール

4つのモデル(CIT, UAM-AERO, UAM-LC, UAMAERO-LT)については、大気境界層以下あるいは下層対流圏のみを考慮しているため、対象範囲は urban-scale に限定される。他の7つのモデルについては自由対流圏から下層成層圏までを考慮しているため、regional-scale の計算が可能である。対象とする時間スケールは、3つのモデル(REMSAD, UAMAERO-LT, UAM-LC)については、簡易的な気相反応、粒子化反応を用いているため、比較的長期間(例えば通年)を対象とした事例解析に用いられる。他のモデルについては詳細な化学反応を扱っており、エピソード解析(例えば数日)に適している。ただし、CMAQ については、36km の解像度で、全米を対象とした通年の計算を行った実績がある。



## (2) 気相反応

UAM-LC 以外のモデルはオキシダント生成や  $\text{H}_2\text{SO}_4$  や  $\text{HNO}_3$ 、OC 等の凝縮性粒子を再現するために詳細な気相反応を扱っている。最も詳細な気相反応モデルを導入しているのは CIT と CMAQ である。

## (3) 液相反応

CIT, SAQM-AERO, UAMAERO-LT, UAM-LC 以外のモデルでは、液相反応を理論的に扱っている。このうち REMSAD は  $\text{SO}_4^{2-}$  の反応のみを扱っているが、CMAQ, UAM-AERO については、 $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{Cl}^-$ 、 $\text{CO}_3^{2-}$  およびいくつかの有機物の反応機構を取り入れている。

## (4) 粒子の化学組成(無機成分)

全てのモデルで  $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{NH}_4^+$ 、 $\text{H}_2\text{O}$ 、BC を無機成分として扱っており、いくつかのモデル(CIT, GATOR, CMAQ, SAQM-AERO, UAM-AERO, UAM-LC)では、 $\text{Na}^+$  と  $\text{Cl}^-$  についても扱っている。 $\text{Ca}^{2+}$ 、 $\text{Mg}^{2+}$  などの土壌粒子を扱っているのは 2 つのモデル(CIT, GATOR)である。

## (5) 粒子の化学組成(有機成分)

全てのモデルで一次 OC は取り扱っているが、二次生成の OC(SOA) の取り扱いはモデルによって扱いが異なる。REMSAD や UAM-LC などいくつかのモデルでは SOA の生成には考慮していない。URM や SAQM-AERO については、前駆物質である VOC に固定の粒子収率を仮定している。DAQM, CMAQ, UAM-AERO では、凝縮性有機化合物の気相 / 粒子の分配係数を仮定して、SOA を考慮している。凝縮性有機化合物について、最も包括的なアプローチは、粒子の有機相に取り込まれる疎水性有機化合物と、水相に取り込まれる親水性化合物の 2 つのカテゴリーに分けて取り扱う方法であり、CIT および CMAQ ではこの考え方が導入されている。

## (6) 粒子の粒径分布

粒子の粒径分布の扱いは以下の 3 つに分類出来る。

simple (fine and coarse)

REMSAD, UAM-LC, UAMAERO-LC

modal

DAQM, CMAQ

sectional

CIT, GATOR, CMAQ, SAQM-AERO, UAM-AERO, URM

米国の環境保護庁(EPA)は、精緻・包括化の進んでいる最近の三次元オイラー型の大気質モデルを第三世代と称している。EPA によれば、1980 年代以降開発が続けられてきた RADM, UAM といったモデルは第二世代であり、それ以前のパフ型、プリューム型のラグランジュ型モデルが第一世代である。第三世代のモデルには CMAQ やこれら第二世代のモデルの後継バージョンが含まれている(国立環境研究所, 2000)。これらのモデルの世代交代に伴い、モデルの適用実績についても、UAM は 2000 年前後の報告事例が多いが(例えば、Wakamatsu *et al.*, 1999; Streets *et al.*, 2001; Biswas *et al.*, 2001)、EPA が CMAQ の開発を進めたことで、ここ数年は CMAQ の適用事例が非常に多くなっている。そこで、次節では CMAQ に的を絞って、モデルの内容、適応事例等について情報を整理した。

### Reference (Seigneur, 2001)

- 19 : Griffin, R.J., Dabdub, D., Fraser, M.P., Kleeman, M., Cass, G.R., Seinfeld, J.H. Thermodynamic Simulation of Secondary Organic Aerosol Using a Three-Dimensional Air Quality Model for Los Angeles. Presented at the 19th Annual American Association for Aerosol Research Conference, St. Louis, MO, Paper No. 8D2, November 6-10 (2000)
- 62 : Regional Air Quality Council(RAQC). Development of the Denver Air Quality Model, version 2, Final Report to the State of Colorado, Office of Energy Conservation: Denver, CO (1999)
- 63 : Jacobson, M.Z., Development and Application of a New Air Pollution Modeling System - , Aerosol Module Structure and Design, *Atmos. Environ.*, 31, 131-144 (1997)
- 64 : Byun, D.W., Ching, J.K.S. Science Algorithms of the EPA Models-3 Community Multiscale Air Quality (CMAQ) Modeling System, EPA/600/R-99/030, U.S. Environmental Protection Agency, Office of Research and Development: Washington, DC, (1999)
- 65 : Pun, B.; Zhang, Y.; Vijayaraghavan, K.; Wu, S.-Y; Seigneur, C.; Seinfeld, J.H. Development and Initial Application of the Model for Aerosol Dynamics, Reaction, Ionization, and Dissolution (MADRID), Presented at the A&WMA/AGU International Specialty Conference on Regional Haze and Global Radiation Balance, Bend, OR, October 2-5 (2001)
- 3 : Pai, P.; Vijayaraghavan, K.; Seigneur, C. Particulate Matter Modeling in the Los Angeles Basin Using SAQM-AERO; *J. Air & Waste Manage. Assoc.* 50, 23-42 (2000)
- 66 : Dabdub, D.; Dehaan, L.L.; Kumar, N.; Lurmann, F.; Seinfeld, J.H. Computationally Efficient Acid Deposition Model for California, Draft; California Air Resources Board: Sacramento, CA (1997)
- 12 : Strader, R.; Gurciullo, C.; Pandis, S.; Kumar, N.; Lurmann, F.W. Development of Gas-Phase Chemistry, Secondary Organic Aerosol and Aqueous-Phase Chemistry

- Modules for PM Modeling; Coordinating Research Council: Alpharetta, GA (1998)
- 56 : Lurmann, F.W.; Wexler, A.S.; Pandis, S.N.; Musarra, S.; Kumar, N.; Seinfeld, J.H. Modeling Urban and Regional Aerosols - . Application to California's South Coast Air Basin; Atmos. Environ., 31, 2695-2715 (1997)
- 67 : Guthrie, P.D.; Axelrad, D.; Mansell, G.E.; Gao, D.; Brauerman, T.; Cocca, P.; Atkinson, R.D. Integrated Air Quality Modeling for Regulatory Applications: 1. Description of REMSAD; ICF Consulting/SAI, San Francisco, CA. Unpublished manuscript (1999)
- 68 : Seigneur, C.; Hidy, G.; Tombach, I.; Vimont, J; Amar, P. Scientific Peer-Review of the Regulatory Modeling System for Aerosols and Deposition (REMSAD); U.S. Environmental Protection Agency, Office of Air Quality Planning and Standards: Research Triangle Park, NC (1999)
- 69 : Lurmann, F.W. Simplification of the UAMAERO Model for Seasonal and Annual Modeling: The UAMAERO-LT Model; Final Report; South Coast Air Quality Management District: Diamond Bar, CA (2000)
- 70 : Lurmann, F.W.; Kumar, N. Development of Chemical Transformation Algorithms for Annual PM<sub>10</sub> Dispersion Models; Report STI-95410-1602-FR; South Coast Air Quality Management District: Diamond Bar, CA (1997)
- 71 : Odman, M.T.; Russell, A.G. A Multiscale Finite Element Pollutant Transport Scheme for Urban and Regional Modeling; Atmos. Environ., 25, 2385-2394 (1991)
- 72 : Odman, M.T. Georgia Institute of Technology, School of Civil and Environmental Engineering, Atlanta, GA. Private communication (1999)

## 2.2 CMAQ の適応性について

### (1) モデルの概要

鶴野ら (2005) により、CMAQ については、以下のようにまとめられている。

Community Multiscale Air Quality model (CMAQ) は、米国環境保護庁 (EPA) が 1998 年にリリースを行ったオイラー型大気質シミュレーションモデルで、地形、土地利用、発生源、気象とその他の入力条件をもとに大気環境の様々な問題に適用され、様々な大気汚染物質濃度の分布と湿性・乾性沈着量を与える (Byun and Ching, 1998)。従来の大気質モデルでは対象となる汚染物質の種類や、考慮すべき物理化学過程は、個々のモデルで個別に扱われていた。これに対して、CMAQ では都市や地域が直面する大気中の様々な大気汚染を、汚染物質相互の影響も含めて同時に取り扱い、また、それらに関係する多くの物理・化学過程を含めて扱うことにより現象を解明することを目指した一つの大气 (One Atmosphere) の概念に基づいている。そのため CMAQ は局地的なスケール-都市スケール-地域スケールを一つのフレームワークでまとめて扱うことができるマルチスケールのモデルで、一つの格子サイズの想定解像度は 1km ~ 100km 程度である。

CMAQ は第 3 世代の物質輸送モデルと言われ、これは、気象モデルの利用を前提として、気象モデルの出力として、雲・降水、乱流拡散係数、摩擦速度などの物理量を積極的に用い、かつ、後述のように化学反応系、差分・積分スキームなどの主要なモジュールが選択可能 (プラグコンパチブル) で設計されている点にある。ソースコードは完全に公開されており、ユーザーが新たなモジュールを追加することも可能である。また、CMAQ はモデルの設計段階から、従来米国で広く使われていた UAM (Urban Airshed Model) と RADM (Regional Acid Deposition Model) の物理・化学過程を包含するように設計されており、UAM や RADM の代わりに使うことも可能である。さらに CMAQ は、one-way nesting することにより様々な空間スケールの現象が重層的に関与している対流圏オゾンや大気エアロゾルのようなマルチスケール大気汚染をシミュレートできること、移流・拡散・反応などのプロセス別濃度変化率をプロセス解析 (Process Analysis) できること、モデル格子内における大規模点源からの汚染プルームの挙動を表現する機能 (Plume-in-Grid) を有すること、バク情報やモデル更新情報が迅速に公開されモデルユーザー間の情報交換も活発に行われていること (<http://www.epa.gov/asmdnerl/models3/>) などの長所がある。

### (2) CMAQ のインターフェース

CMAQ の光化学反応・移流・拡散モデル (CCTM : CMAQ Chemical Transport Model) の入力ファイルの作成のために、CMAQ はインターフェースを予め提供している。インターフェースとその機能を表 2-4 にまとめた。また、インターフェースと CCTM の関係を図 2-1 に示した。

表 2-4 CMAQ のインターフェース

インターフェース名	機能
ECIP (Emission-Chemistry Interface Processor)	<u>発生源データ作成</u> ECIP は MEPPS (Models3 Emission Processing and Projection System) の結果を用いて 1 時間毎の CCTM 用の 3 次元発生源データを作成する。 MEPPS : 米国の発生源データベースから半ば自動的に計算領域に対応した発生源データを作成するツール。ただし、領域が米国を対象としているため、本業務では用いていない。
MCIP (Meteorology-Chemistry Interface Processor)	<u>気象データ作成</u> MM5 の出力ファイルを CCTM 用のファイルに変換する。MCIP は MM5 の結果を必要な場合に内挿し、座標系変換を行う。
ICON (Initial Conditions)	<u>初期条件作成</u> 各化学種の初期濃度分布を与える。ICON では初期条件作成のため、清浄大気 (対流圏) における鉛直分布または CCTM の出力結果を用いる。
BCON (Boundary Conditions)	<u>境界条件作成</u> モデル境界の各化学種の濃度分布を与える。BCON では境界条件作成のため、清浄大気 (対流圏) における鉛直分布または CCTM の出力結果を用いる。
JPROC (photolysis processor)	<u>光解離定数データ作成</u> JPROC は光解離定数の計算のために、オゾンの鉛直分布、温度プロファイル、エアロゾルの数密度の鉛直分布および地表面のアルベドのデータを必要とする。また、JPROC は光解離定数を計算するために必要な紫外線のフラックスを放射伝達モデルを用いて計算している。
CCTM (CMAQ Chemical Transport Model)	<u>光化学反応・移流・拡散モデル</u> CMAQ のモデル本体。大気汚染物質予測に係わる光化学反応、移流、拡散過程を解いている。

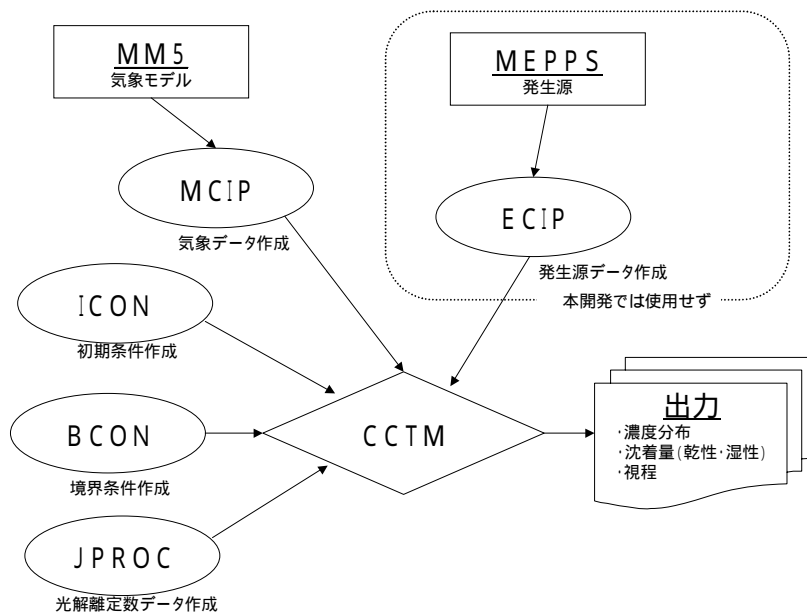


図 2-1 CMAQ のインターフェースを CCTM の関係

### (3) 光化学反応・移流・拡散モデル(CCTM)の概要

CCTM は気象モデル(MM5)の結果及び発生源データを入力値として、大気汚染物質の光化学反応、移流・拡散及び沈着（乾性・湿性）の非線形・非定常場を解くモデルである。これらの各物理化学過程を計算するため CCTM は表 2-5 に示す各プロセスから構成されている。また、各プロセス間の関係を図 2-2 に示す。

表 2-5 CCTM に含まれるプロセス

プロセス名	機能
DRIVER	タイムステップの最適化、データの I/O 制御
HADV	水平方向の移流
VADV	鉛直方向の移流（対流）
ADJCON	移流プロセスにおける物質混合比の保存
HDIFF	水平拡散
VDIFF	鉛直拡散、地表面への沈着
CHEM	気体の光化学反応
CLOUD	粒子化における液滴の効果
AERO	無機粒子、有機粒子の生成と粒径分布及び視程の計算
PING	プリュームの効果

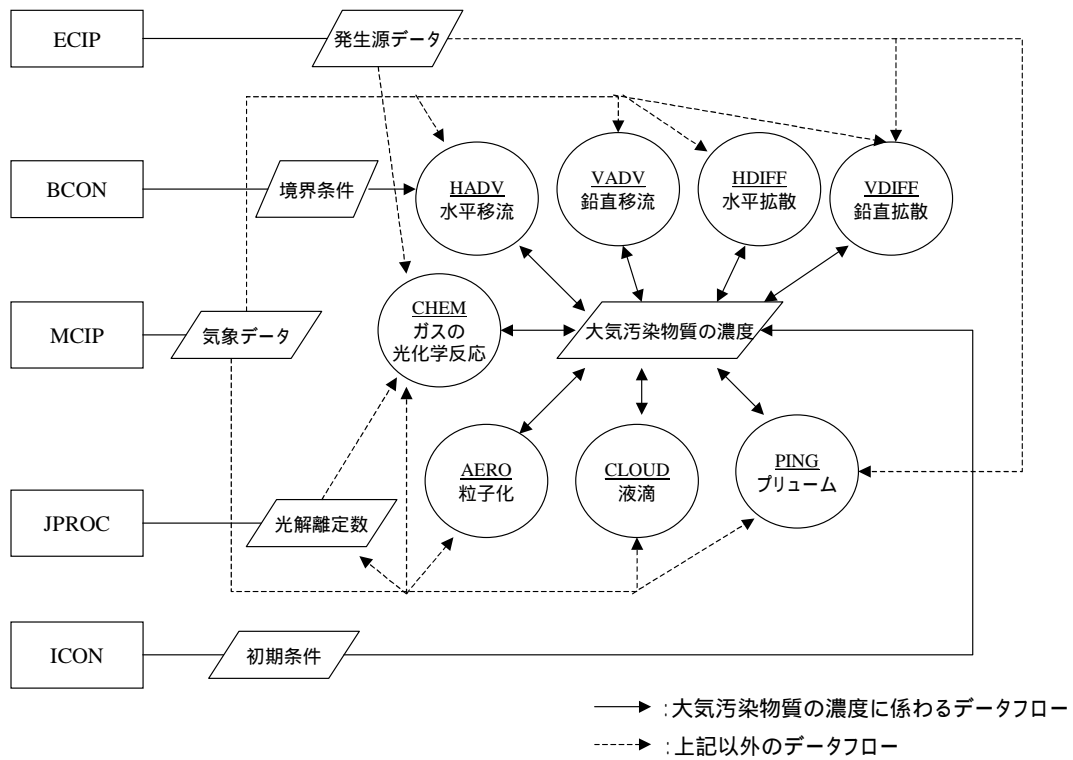


図 2-2 CCTM の各プロセス間の関係

(4) 適用事例

日本国内を対象とした CMAQ の適応事例を表 2 - 6 に示した。また、海外の適応事例については節末にまとめた。

表 2-6(1) 日本国内を対象とした CMAQ の適応事例

論文タイトル	A case study of high ammonia concentration in the nighttime by means of modeling analysis in the Kanto region of Japan
著者名	Tatsuya Sakuraida, Shinichi Fujitaa, Hiroshi Hayami, Noritaka Furuhashi
出典	Atmospheric Environment, 37, 4461-4465 (2003)
概要	都心部では夏季の夜間にアンモニア濃度が高濃度で観測される現象が見られた。MM5-CMAQ によるシミュレーションを行った結果この現象が再現された。
シミュレーション	<ul style="list-style-type: none"> <li>計算領域は MM5 が 915 × 915km(水平解像度 15km) 365km × 365km(水平解像度 5km)、CMAQ が 255 × 205km( Fig. 1)</li> <li>発生源は Kannari <i>et al.</i>(2001)を利用(1994 年ベース、資源エネルギー庁「窒素酸化物等環境影響評価実証調査」の成果の一部)。</li> <li>化学反応モデルは CBM- を使用。</li> <li>初期値、境界値には気象庁客観解析データを利用。</li> <li>シミュレーションの結果、神楽坂において夜間にアンモニア濃度が上昇する現象が再現出来た。</li> </ul> <p>( Fig. 3)</p> <div style="display: flex; justify-content: space-around;"> <div data-bbox="443 1211 788 1563"> <p>□ Akagi ○ Kagurazaka</p> <p>D-1: 915×915km D-2: 365×365km D-3: 255×205km</p> </div> <div data-bbox="798 1093 1326 1585"> </div> </div> <p>Fig. 1. Modeling domain system, consisting of nested 15 and 5 km grids.</p> <p>Fig. 3. Time variation for observed and calculated concentrations of NH<sub>3</sub> at Akagi and Kagurazaka. The numbers on the horizontal axis indicate the start time of each sampling. The observed wind velocity and wind direction averaged during every 3 h are also shown.</p>
備考	<ul style="list-style-type: none"> <li>都心部で夜間にアンモニア濃度が上昇するのは日中に関東北部で生成したアンモニアが、夜間に陸風により都心部に移流することが大きな原因である。</li> </ul> <p>Kannari, A., Baba, T., Hayami, H., 2001. Estimation of ammonia emission in Japan. Journal of Japan Society for Atmospheric Environment 36, 29 – 38 (in Japanese).</p>



表 2-6(2) 日本国内を対象とした CMAQ の適応事例

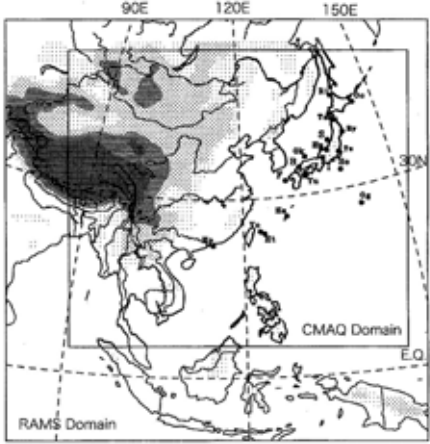
論文タイトル	RAMS/CMAQ の連携システムによるアジア域の物質輸送シミュレーションシステムの構築
著者名	鵜野伊津志, 大原利眞, 菅田誠治, 黒川純一, 古橋規尊, 山地一代, 谷本直隆, 弓本桂也, 植松光
出典	大気環境学会誌, 40(4), 148-164 (2005)
概要	RAMS の結果をもとにした CMAQ のアジア域に適用可能な連携システムを構築した。80km 格子の水平分解能で 2001 年 3,4 月の 2 ヶ月間に適用し、計算結果は、観測された濃度変動の特徴を再現することを確認した。
シミュレーション	<ul style="list-style-type: none"> <li>・計算領域は RAMS が東アジア域を全て含む東西 8000km、南北 7200km (80km 格子)。CMAQ はインドシナ半島を含む東南アジアの領域 (水平 80km 格子で 78×68、鉛直方向に 14 層、23km まで) ( Fig.2 )</li> <li>・発生源は、Streets <i>et al.</i> ( 2003a,b ) の結果を使用。</li> <li>・化学反応モデルは SAPRC-99 化学反応スキームと AERO3 エアロゾルモデル。</li> <li>・初期値、境界値には ECMWF の客観解析データを使用。</li> <li>・シミュレーションの結果は、東アジア酸性雨モニタリングネットワーク ( EANET ) や、VMAP 観測 ( Matsumoto <i>et al.</i>, 2003 ) のデータと比較を行い、観測された濃度変動の特徴を再現していた。</li> </ul> <div style="text-align: center;">  <p>Fig. 2 Numerical model domain of RAMS (outer grid) and CMAQ (inner grid). Character symbols are the location of observation sites (R=Rishiri, T=Tappi, Ry= Ryori, S=Sado, Hp=Happo, Ts=Tsukuba, Ha=Hachijo, Og=Ogasawara, Ok=Oki, B=Banryu, Yu=Yuzuhara, F=Fukue, He=Hedo/Okinawa, Ht=Hateruma and Yo=Yonaguni)</p> </div>
備考	三宅島の噴火の影響の有無を含む感度解析から、三宅島の SO <sub>2</sub> の影響が中部日本から北日本の広範囲に渡ることが示された。

表 2-6(3) 日本国内を対象とした CMAQ の適応事例

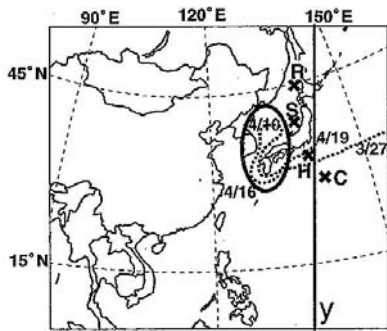
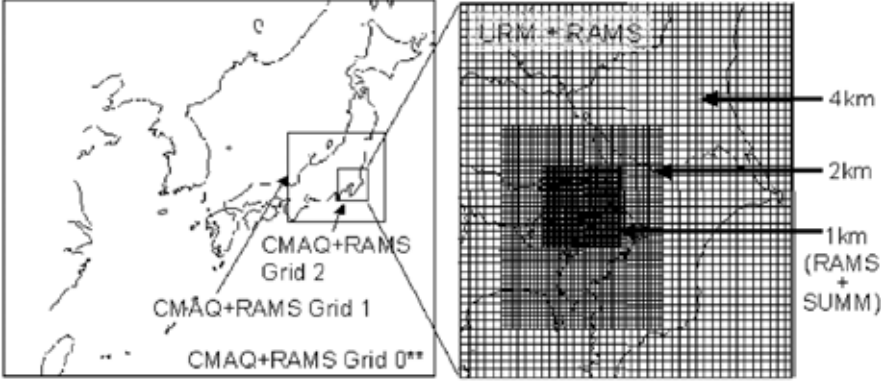
論文タイトル	東アジアにおける炭素粒子動態のモデル解析
著者名	谷本直隆, 大原利眞, 鶴野伊津志, 菅田誠治, 植松光夫
出典	大気環境学会誌,39(5),229-245 (2004)
概要	RAMS と CMAQ によって、2001 年 4 月の EC と OC の動態を解析した。結果として、東シナ海や日本海上で観測された濃度の時間変動パターンをよく再現した。2001 年 4 月の濃度分布の特徴を解析した。EC と OC の濃度に対するバイオマスバーニングの寄与率を求めた。OC を一次粒子、人為起源二次粒子、植物起源二次粒子に分類し、構成割合を解析した。
シミュレーション	<ul style="list-style-type: none"> <li>・計算領域は RAMS が北緯 25 度、東経 115 度を中心とした東アジア領域で、水平間隔 80km で 100×90、鉛直方向に 20 層、23km まで。CMAQ は北緯 31 度、東経 121 度を中心とし、水平間隔 80km で 79×72、鉛直方向に 16 層、20km まで。( Fig.1 )</li> <li>・発生源は、Streets <i>et al.</i> ( 2003a ) の結果を使用。</li> <li>・化学反応モデルは CB4_AE_AQ ( Byun and Ching,1999 ) を使用。</li> <li>・初期値、境界値には ECMWF の客観解析データを使用。</li> <li>・シミュレーションの結果は、東アジアにおける 2001 年 4 月の EC と OC の濃度の基本的な特徴を再現できた。地上においては EC が過少、OC は過大であったが、EC + OC に関してはモデルと実測は比較的良く一致する。</li> </ul> <div style="text-align: center;">  <p>The figure is a map of East Asia showing the CMAQ simulation domain. The map covers longitudes from 90°E to 150°E and latitudes from 15°N to 45°N. A dotted line indicates the flight path of the ship R/V Ronald H. Brown, with dates 4/16, 4/19, and 3/27 marked. A circled area indicates the flight area of the Twin Otter. A vertical line labeled 'y' is shown near 140°E. Cross points on the map indicate surface observation sites: R (Rishiri), S (Sado), H (Hachijo), and C (Chichijima).</p> </div> <p>Fig. 1. CMAQ domain. Cross points indicate the surface observation sites (R: Rishiri, S: Sado, H: Hachijo, C: Chichijima), dotted line is drawn along course of ship (R/V Ronald H. Brown), and a circled area shows flight area of Twin Otter. Y line shows a north-south line near the 140°E.</p>
備考	OC のモデル濃度が過大となるケースがしばしばあり、その原因は、モデルの EC と OC がともに過大の場合は、モデルにおける湿性沈着過程が実際より過少に計算されており、モデルの OC だけが過大の場合は中国北部でのバイオマスバーニングによる排出量が過大評価されていると推測される。

表 2-6(4) 日本国内を対象とした CMAQ の適応事例

論文タイトル	CMAQ を用いた広域大気汚染解析技術の構築
著者名	森川多津子
出典	JCAP 技術報告書 PEC-2004AQ-09 Japan Clean Air Program
概要	広域大気質予測モデルである CMAQ を気象モデル RAMS との組み合わせで、東アジア～東日本～関東の領域に三重ネストによる計算を実施し、都心の大気質予測モデルである URM に境界条件を提供した。
シミュレーション	<ul style="list-style-type: none"> <li>・計算領域は東アジアの計算領域を最も外側の領域とした、東日本領域、関東領域と三重のネスティング領域を解いた。領域の投影法はポーラステレオ座標系、投影中心点は北緯 36 度東経 139 度。グリッドサイズは東アジア 80km 格子 (66×56)、鉛直 20 層、東日本領域 8km (66×66)、鉛直 19 層、関東領域 2km (62×62)、鉛直 19 層。( Fig.4.1 )</li> <li>・発生源は、JCAP で推計した全国領域の汚染物質排出量データ (ベースとなる年度は 2000 年度) を使用。</li> <li>・化学反応モデルは SAPRC-99 を使用。</li> <li>・シミュレーションの結果として、計算対象期間中の神田・深谷の 2 地点の計算結果・観測値の時系列変化は、NO<sub>x</sub> はおおむね、大気汚染物質濃度を再現していると考えられる。しかしながら特に神田における O<sub>x</sub> は過大であり、深谷における SPM は過小評価となっている。</li> </ul>
	 <p style="text-align: center;">Fig.4.1 計算対象領域</p>
備考	<p>東アジアの計算は、静岡大学工学部の大原利真教授らによる。</p> <p>今後、長距離輸送の精度を向上させるとともに、夏季を対象とした計算の実行、および長期間にわたる計算により年平均値の算出までを実施していく予定。</p>

## (海外の適用事例)

Meigen Zhang, Itsushi Uno, Yasuhiro Yoshida, Yongfu Xu, Zifa Wanga, Hajime Akimoto, Timothy Bates, Trish Quinn, Alan Bandy, Byron Blomquist, Transport and transformation of sulfur compounds over East Asia during the TRACE-P and ACE-Asia campaigns, *Atmospheric Environment*, 38, 6947 – 6959 (2004)

RAMS-CMAQ を用いて東アジア域の硫黄化合物( $\text{SO}_2$  及び  $\text{SO}_4^{2-}$ )の長距離輸送をシミュレーションし、日本国内の実測データや航空機による観測データとの比較を行った。計算領域は  $6240 \times 5440\text{km}$  で水平解像度は  $80\text{km}$ 。

Pedro Jimenez, Rene Parra, Santiago Gasso, Jose M. Baldasano, Modeling the ozone weekend effect in very complex terrains: a case study in the Northeastern Iberian Peninsula, *Atmospheric Environment*, 39, 429 – 444 (2005)

MM5-CMAQ により、 $\text{O}_3$  濃度の weekend effect を検証。対象地域はスペインイベリア地方の  $272 \times 272\text{km}$  の領域とし、化学反応モデルは CBM- を使用。Weekend effect の主な原因は週末に  $\text{NO}_x$  が減少し、 $\text{NO}_x/\text{VOC}$  比が変化することであると結論。

Qi Mao, Larry L. Gautney, Torea M. Cook, Mary E. Jacobs, Shandon N. Smith, Jimmie J. Kelsoe, Numerical experiments on MM5-CMAQ sensitivity to various PBL schemes, *Atmospheric Environment*, 40, 3092 – 3110 (2006)

MM5-CMAQ において、種々の PBL スキームを利用した場合の計算結果を比較。対象領域はアメリカ南東部で水平解像度は  $36\text{km}$  で計算。結果として本研究で対象とした広領域の計算では、PBL スキームの違いによる濃度計算結果への影響は少ないことがわかった。

Daniel Q. Tong, Denise L. Mauzerall, Spatial variability of summertime tropospheric ozone over the continental United States: Implications of an evaluation of the CMAQ model, *Atmospheric Environment*, 40, 3041 - 3056 (2006)

MM5-CMAQ を用いて、夏季の対流圏オゾン濃度をシミュレーションし、実測値と比較。対象領域はアメリカ全土で  $36\text{km}$  メッシュで計算。

Meigen Zhang, Hajime Akimoto, Itsushi Uno, A three-dimensional simulation of HOx concentrations over East Asia during TRACE-P, *Journal of Atmospheric Chemistry*, 54, 233 - 254 (2006)

RAMS-CMAQ を用いて、東アジア領域の OH ラジカルおよび  $\text{HO}_2$  ラジカル濃度を計算し、航空機観測による実測データと比較。計算領域は  $6240 \times 5440\text{km}$  で水平解像度は  $80\text{km}$ 、化学反応モデルには RADM2 を利用。

Pedro Jimenez, Oriol Jorba, Rene Parra, Jose M. Baldasano, Evaluation of MM5-EMICAT2000-CMAQ performance and sensitivity in complex terrain: High-resolution application to the northeastern Iberian Peninsula, Atmospheric Environment, 40, 5056 - 5072 (2006)

MM5-CMAQ によりスペインイベリア地方の約 300×300km の領域における O<sub>3</sub> をシミュレーション。化学反応モデルには CBM<sub>v</sub> を使用し、水平解像度は 8km,4km,2km の 3 通りで計算。計算結果を実測値と比較した結果、海風が発達する期間においては、2km メッシュの計算結果の優位性が示された。

Yang Zhang, Ping Liu, Betty Pun, Christian Seigneur, A comprehensive performance evaluation of MM5-CMAQ for the Summer 1999 Southern Oxidants Study episode—Part I: Evaluation protocols, databases, and meteorological predictions, Atmospheric Environment, 40, 4825 - 4838 (2006)

MM5-CMAQ による気象の計算結果(気温、湿度、風向風速等)を、観測データと比較。対象領域はアメリカ全土(水平解像度 32km)とアメリカ南東部(水平解像度 8km)。比較の結果、気温や湿度の日変化は良く再現されているが、最高気温を過大に予測する傾向がみられた。

Yang Zhang, Ping Liu, Ashley Queen, Chris Misenis, Betty Pun, Christian Seigneur, Shiang-Yuh Wu, 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 (2006)

MM5-CMAQ によるガス状物質(O<sub>3</sub>,NO<sub>x</sub>,HNO<sub>3</sub>等)とエアロゾルの計算結果を実測データと比較。対象領域はアメリカ全土(水平解像度 32km)とアメリカ南東部(水平解像度 8km)で化学反応モデルは CBM<sub>v</sub> を使用。

Yang Zhang, Ping Liu, Betty Pun, Christian Seigneur, A comprehensive performance evaluation of MM5-CMAQ for the summer 1999 southern oxidants study episode, Part III: Diagnostic and mechanistic evaluations, Atmospheric Environment, 40, 4856 - 4873 (2006)

MM5-CMAQ による PM の計算結果(数濃度、体積濃度、表面積)を実測データと比較。対象領域はアメリカ南東部(水平解像度 8km)で比較した結果、数濃度は過大、体積、表面積は過小に予測する傾向がみられた。

Meigen Zhang, Itsushi Uno, Renjian Zhang, Zhiwei Han, Zifa Wang, Yifen Pu, Evaluation of the Models-3 Community Multi-scale Air Quality(CMAQ) modeling system with

observations obtained during the TRACE-P experiment: Comparison of ozone and its related species, Atmospheric Environment, 40, 4874 - 4882 (2006)

RAMS-CMAQ による東アジア域を対象とした化学種の濃度(O<sub>3</sub>、OH ラジカル、NO<sub>x</sub> 等)の計算結果を航空機観測による実測データと比較した。計算領域は 6240 × 5440km で水平解像度は 80km。化学反応モデルには RADM2 を利用。

Saravanan Arunachalam, Andrew Holland, Bebhinn Do, Michael Abraczinskas, A quantitative assessment of the influence of grid resolution on predictions of future-year air quality in North Carolina, USA, Atmospheric Environment, 40, 5010 - 5026 (2006)

MM5-MAQSIP(CMAQ のプロトタイプモデル)を用いて、水平解像度を変化させた場合の計算結果の比較を行った。対象領域はアメリカ南東部で水平解像度は 36/12/4km とし、化学反応モデルは CBM<sub>v</sub> を使用した。将来発生源シナリオを反映した計算結果は 4km と 12km の解像度で大きな差は認められなかった。

T.W. Tesche, Ralph Morris, Gail Tonnesen, Dennis McNally, James Boylan, Patricia Brewer, CMAQ/CAMx annual 2002 performance evaluation over the eastern US, Atmospheric Environment, 40, 4906 - 4919 (2006)

MM5-CMAQ と MM5-CAM<sub>x</sub> による PM の濃度計算結果の検証を行った。アメリカ全土(水平解像度 32km)とアメリカ南東部(水平解像度 8km)で化学反応モデルは CB<sub>v</sub> を使用し、2002 年の 1 年間で評価を行った。両モデルともバイアスは冬季に大きく、夏季に小さくなる傾向がみられた。

### 2.3 大気質モデルの選定

これまでの検討結果から、本業務では化学輸送モデルとしては CMAQ を選定することとした。CMAQ 選定の主な理由は以下の通りである。

- ・ 本章冒頭でとりあげたシミュレーション高度化が必要な項目を、すべて満たしている
- ・ 他の大気質モデルと仕様を比較しても、CMAQ が最も先進的な知見を反映している
- ・ 日本国内をはじめ、世界的にも使用実績が近年増加している
- ・ 現在もバージョンアップが進められており、発展性が期待される
- ・ オープンソースであり、モデルの移植性、扱いやすさに優れる

## 引用文献

- 環境省, 平成 17 年度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報告書,  
(2006)
- Christian Seigneur, Current status of air quality models for particulate matter, *Journal of Air & Waste Management Association*, 51, 1508 – 1521 (2001)
- Shinji Wakamatsu, Itsushi Uno, Toshimasa Ohara, Kenneth L. Schere, A study of the relationship between photochemical ozone and its precursor emissions of nitrogen oxides and hydrocarbons in Tokyo and surrounding areas, *Atmospheric Environment*, 33, 3097-3108 (1999)
- Jhumoor Biswas, Christian Hogrefe, S. Trivikrama Rao, Winston Hao, Evaluating the performance of regional-scale photochemical modeling systems. Part III - Precursor predictions, *Atmospheric Environment*, 35, 6129 - 6149 (2001)
- D. G. Streets, Y.-S. Chang, M. Tompkins, Y. S. Ghim, L. D. Carter, Efficient regional ozone control strategies for the eastern United States, *Journal of Environmental Management*, 61, 345–365 (2001)
- 大原利眞, 鵜野伊津志, メソスケール大気汚染の数値シミュレーション, *大気環境学会誌*, 32, A40 – A57 (1997)
- 国立環境研究所, 都市域における VOC の動態解明と大気質に及ぼす影響評価に関する研究, 国立環境研究所特別研究報告, SR-42-2001, pp.24 (2001)
- 鵜野伊津志, 大原利眞, 菅田誠治, 黒川純一, 古橋規尊, 山地一代, 谷本直隆, 弓本桂也, 植松光夫, RAMS/CMAQ の連携システムによるアジア域の物質輸送シミュレーションシステムの構築, *大気環境学会誌*, 40, 148 -164 (2005)

### 3 気象モデルの検討

#### 3.1 気象モデルの概要比較

主要なメソスケールモデルとしてこれまでに実績のある MM5, RAMS, NHM, ANEMOS について、モデルの概要を表 3-1 に整理した。なお、近年は MM5 の後継モデルとして WRF が利用され始めているが(例えば Kusaka *et al.*, 2006)、現状では開発途上であり実績が他のモデルと比較して少ないため、表 3-1 では割愛した。



表 3-1 主要なメソスケールモデルの概要(出典: (財)日本気象協会 社内資料)

項目	MM5	RAMS	NHM	anemos
基本方程式系	非静力学	非静力学	非静力学	静力学 非静力も選択可
圧縮の扱い	圧縮	圧縮	圧縮	非圧縮
座標系	水平：直角格子 鉛直： p	水平：ポーラステレオ 鉛直： z *	水平：ポーラステレオ 鉛直： z *	水平：直角格子 鉛直： z *
観測データ同化機能	ナッジング法 オプションで3次元変分法、 4次元変分法	ナッジング 4次元変分法	4次元変分法	無し
雲物理	水の4相（水蒸気、水、雪、 あられ）の濃度を個別に予 測することができる	cold rain 相変化：雲水、雨水、雲氷 晶、雪、集塊氷、あられ、 ひょう	cold rain 水蒸気・雲水・雲氷・雨・ 雪・あられの混合比（数密 度）	格子内の部分凝結を考慮 Warm rain
乱流 *1	Mellor-Yamadaレベル2.5乱 流クロージャーモデル	Mellor-Yamadaレベル2.5乱 流クロージャーモデル	レベル2.5乱流クロージャー モデル	Mellor-Yamadaレベル2.5乱 流クロージャーモデル
並列処理対応	並列計算処理の標準的な方 法であるMPI（Message Passing Interface）に対応	並列計算処理の標準的な方 法であるMPI（Message Passing Interface）に対応	並列計算処理の標準的な方 法であるMPI（Message Passing Interface）に対応	無し
ソースの公開	公開	公開	大学・研究機関にのみ公開	非公開
シェア・フリー	フリー	シェア（近年、フリーに なった）	-	-
実績	オープンソースで現業・研 究用を含め世界で最も普 及・データ同化、2-wayネス ティングや並列機対応等、 高機能・物理過程も多様な オプション選択可能。	研究レベルでは世界的に普 及した。商用化のためかMM5 ほど伸びなかったが、最近 オープンソース化された。 大気汚染分野ではユーザ数 が多い。	研究用モデルをベースに現 業仕様化され気象庁MSMとし て運用。大学・研究機関に は無償公開済み。商用利用 は現時点ではできない。	日本気象協会業務での使用 実績が豊富。風力や太陽光 のNEDO公認モデル。環境省 業務（SPM関連調査、そらま め君）でも実績有り。ただ し、ソースを公開していな いため、国内外での認知度 は低い。
開発元	NCAR/Pennsylvania State Univ.	Colorado State Univ.	気象研究所	日本気象協会

\*1 乱流過程は(財)日本気象協会で作成した設定。モデルによって複数のオプションが用意されている。

### 3.2 気象モデルの精度比較

#### (1)事例1

第47回大気環境学会年会にて発表された「気象モデル間の予測評価と大気質モデルへの影響 (Sheretha *et al.*, 2006)」による結果を示す。

この発表では RAMS4.4 と MM5(Ver3.7)の比較計算を実施し、その計算結果と観測値の再現性についてまとめている。図3-1に計算領域、表3-2に計算の概要、比較結果を図3-2に示す。

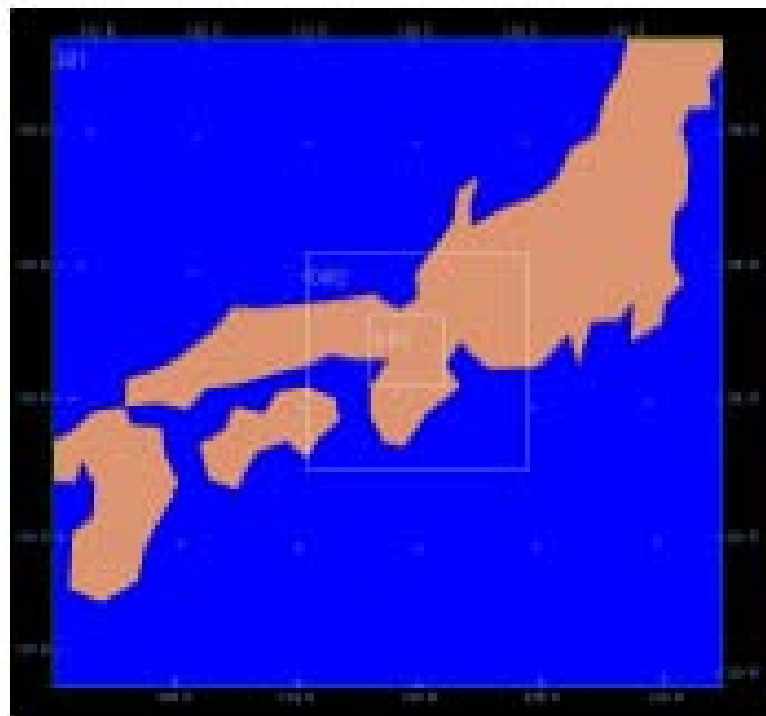


Fig. 1. Three nested domains

図3-1 計算領域

表3-2 計算の概要

項目	内容
計算対象期間	夏季：2002年7月27日～8月1日 冬季：2002年12月16日～21日
計算領域とグリッドサイズ	領域1：9km 領域2：3km 領域3：1km

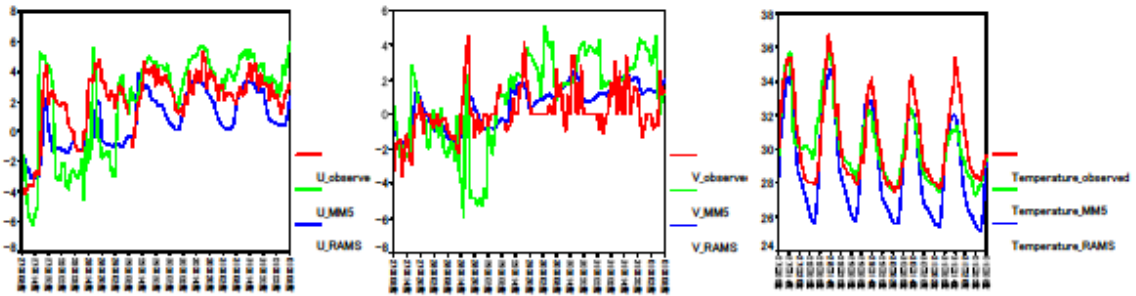


Fig. 2. Summer simulation results of surface u- and v-component (m/s) of wind, and temperature (deg. C) in Osaka

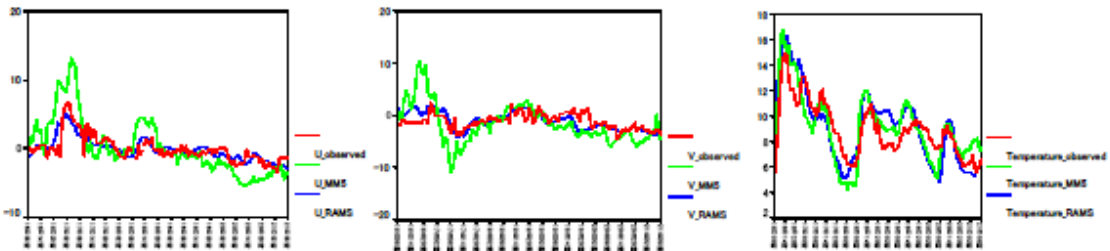


Fig. 3. Winter simulation results of surface u- and v-component (m/s) of wind, and temperature (deg. C) in Osaka

### 図 3-2 モデル(RAMS, MM5)と観測値の比較

(赤：観測値、緑：MM5、青：RAMS； 上段：夏季、下段：冬季)

図 3-2 より下記のことが言える。

- ・ 夏季の風系場の日変化の再現性は MM5 のほうが精度が良い。
- ・ しかし、MM5 は冬季の風系場では大きなバイアスが見られる。
- ・ 2 つのモデル共、風速（観測値）が最小値付近では良い再現性を示している。一方で、MM5 は風速（観測値）が最大値付近のとき、過大評価を示している。
- ・ 両モデルとも、気温の日変化は良く再現できている。しかし、RAMS は最低気温を過小評価している。

#### (2)事例 2

(財)日本気象協会において過去に実施した、3 つのメソスケールモデル (MM5、NHM、ANEMOS) についての比較検討結果を以下に示す。

3 つのメソスケールモデル (MM5、NHM、ANEMOS) について、2002 年の 3 季節各 2 週間を対象に RSM/GPV 00Z を初期値・境界値とし、24 時間予測計算を行った。計算高度は 100 ~ 300hPa (モデルにより異なる) までとし、水平 5km × 5km 格子で九州全域を含む東西 400km × 南北 600km (80 × 120 格子) を計算領域とした。同一期間、同一地域、同一条件 (可能な限り) で各モデルによる計算を実施し、主要な要素についての精度、スキル及び計算時間を比較した。モデル間の精度比較結果を整理したものを表 3-3 に示した。

表 3-3(1) モデルの比較結果 (降水量)

降水量予測スコア比較表

No.	地点	2002/4/1 ~ 2002/4/15						2002/8/18 ~ 2002/9/1						2002/12/10 ~ 2002/12/24					
		スレットスコア			バイアススコア			スレットスコア			バイアススコア			スレットスコア			バイアススコア		
		anemos	NHM	MM5	anemos	NHM	MM5	anemos	NHM	MM5	anemos	NHM	MM5	anemos	NHM	MM5	anemos	NHM	MM5
754	萩	0.38	0.30	0.32	0.57	0.55	0.61	0.00	0.00	0.02	0.36	0.48	0.14	0.23	0.22	0.30	1.03	0.24	1.27
762	下関	0.26	0.28	0.19	0.34	0.30	0.24	0.14	0.04	0.03	0.39	0.39	0.14	0.20	0.33	0.40	0.48	0.43	0.71
784	山口	0.33	0.31	0.36	0.47	0.44	0.39	0.15	0.04	0.04	0.54	0.51	0.26	0.14	0.29	0.50	0.16	0.30	0.74
800	厳原	0.17	0.22	0.41	0.21	0.31	0.49	0.30	0.28	0.13	0.52	0.47	0.14	0.22	0.19	0.22	0.36	0.30	0.52
805	平戸	0.31	0.19	0.27	0.36	0.50	0.32	0.21	0.27	0.23	0.56	0.61	0.39	0.22	0.41	0.32	0.63	0.50	0.85
807	福岡	0.20	0.25	0.23	0.22	0.40	0.25	0.03	0.24	0.16	0.09	0.58	0.30	0.27	0.41	0.27	0.53	0.56	0.87
809	飯塚	0.14	0.31	0.29	0.24	0.60	0.38	0.13	0.14	0.20	0.25	1.07	0.48	0.30	0.45	0.42	0.46	0.62	0.78
812	佐世保	0.25	0.22	0.24	0.29	0.26	0.33	0.15	0.27	0.28	0.60	0.37	0.47	0.28	0.48	0.54	0.41	0.59	0.78
813	佐賀	0.23	0.14	0.28	0.34	0.34	0.41	0.19	0.14	0.22	0.35	0.30	0.35	0.34	0.41	0.42	0.46	0.43	0.59
814	日田	0.08	0.22	0.20	0.18	0.43	0.34	0.11	0.03	0.10	0.27	0.05	0.27	0.31	0.47	0.42	0.43	0.54	0.84
815	大分	0.17	0.05	0.22	0.24	0.13	0.35	0.25	0.16	0.17	0.44	0.18	0.24	0.34	0.52	0.43	0.46	0.55	1.11
817	長崎	0.12	0.17	0.20	0.12	0.23	0.26	0.27	0.29	0.28	0.51	0.34	0.30	0.30	0.33	0.38	0.36	0.35	0.60
819	熊本	0.14	0.25	0.24	0.15	0.25	0.45	0.25	0.07	0.17	0.47	0.07	0.27	0.38	0.27	0.33	0.41	0.27	0.92
821	阿蘇山	0.03	0.27	0.36	0.03	0.33	0.45	0.17	0.42	0.42	0.18	1.42	0.61	0.18	0.39	0.44	0.18	0.65	0.90
822	延岡	0.12	0.00	0.25	0.27	0.13	0.61	0.20	0.09	0.14	0.55	0.17	0.23	0.45	0.48	0.43	0.54	0.65	0.85
823	阿久根	0.25	0.07	0.32	0.29	0.16	0.47	0.33	0.32	0.21	0.45	0.35	0.36	0.36	0.29	0.36	0.43	0.35	0.85
824	人吉	0.21	0.23	0.32	0.30	0.38	0.43	0.24	0.44	0.38	0.31	0.46	0.45	0.45	0.35	0.40	0.47	0.44	1.12
827	鹿児島	0.13	0.11	0.19	0.28	0.28	0.43	0.34	0.38	0.26	0.46	0.42	0.32	0.36	0.26	0.37	0.44	0.30	0.75
829	都城	0.19	0.03	0.27	0.32	0.15	0.68	0.25	0.34	0.33	0.42	0.34	0.40	0.36	0.26	0.32	0.52	0.47	0.92
830	宮崎	0.17	0.03	0.25	0.40	0.11	0.51	0.23	0.14	0.04	0.43	0.20	0.04	0.41	0.36	0.41	0.54	0.52	0.74
831	枕崎	0.16	0.11	0.15	0.40	0.31	0.58	0.43	0.38	0.41	0.68	0.40	0.59	0.26	0.14	0.25	0.59	0.35	0.91
835	油津	0.21	0.04	0.16	0.48	0.16	0.58	0.30	0.04	0.05	0.35	0.06	0.05	0.37	0.29	0.37	0.46	0.50	0.76
836	屋久島	0.21	0.38	0.28	0.29	0.67	0.52	0.36	0.41	0.18	0.46	0.87	0.25	0.31	0.48	0.45	0.39	0.68	0.59
837	種子島	0.31	0.17	0.35	0.45	0.28	0.60	0.45	0.24	0.27	0.54	0.29	0.28	0.28	0.19	0.40	0.41	0.28	0.59
838	牛深	0.33	0.13	0.29	0.38	0.38	0.45	0.38	0.16	0.26	0.63	0.17	0.29	0.37	0.31	0.36	0.52	0.37	0.91
843	福江	0.11	0.15	0.20	0.17	0.23	0.32	0.39	0.46	0.42	0.52	0.46	0.43	0.29	0.34	0.41	0.38	0.37	0.73
	単純平均	0.20	0.18	0.26	0.30	0.32	0.44	0.24	0.22	0.21	0.44	0.42	0.31	0.31	0.34	0.38	0.46	0.45	0.82

\* SDP降水量-777(現象なし)は0.0に、0.0(0.5mm未満)は0.1に置き換えた

\* 閾値=0.1

\* グレー欄はスレットスコア0.4以上

出典: (財) 日本気象協会社内資料

表 3-3(2) モデルの比較結果 (気温)

気温予測比較表1

No.	地点	2002/4/1 ~ 2002/4/15									2002/8/18 ~ 2002/9/1										
		観測値	相関係数			RSME			バイアス誤差			観測値	相関係数			RSME			バイアス誤差		
			anemos	NHM	MM5	anemos	NHM	MM5	anemos	NHM	MM5		anemos	NHM	MM5	anemos	NHM	MM5	anemos	NHM	MM5
754	萩	14.22	0.92	0.90	0.93	1.90	1.77	2.02	-0.76	-0.69	1.45	26.41	0.86	0.87	0.80	2.02	1.99	3.48	-1.15	-0.99	2.75
762	下関	14.86	0.87	0.82	0.80	1.75	2.66	1.55	-0.25	-0.85	0.22	26.95	0.92	0.87	0.77	1.05	1.92	1.94	-0.45	-1.39	1.12
784	山口	14.26	0.92	0.88	0.92	2.01	3.09	2.20	0.06	-1.47	1.26	26.51	0.89	0.86	0.88	1.80	2.49	2.87	-0.60	-1.61	2.26
800	萩原	15.03	0.85	0.73	0.81	2.32	2.56	1.91	-1.57	-1.41	0.28	25.40	0.88	0.81	0.76	1.14	1.39	2.89	-0.32	-0.02	2.45
805	平戸	14.44	0.90	0.88	0.90	1.38	1.76	2.12	0.37	-0.96	1.70	25.18	0.87	0.80	0.80	1.36	1.36	3.01	0.90	-0.04	2.74
807	福岡	15.64	0.90	0.85	0.83	1.65	3.87	2.07	-0.34	-2.97	0.47	26.90	0.88	0.79	0.66	1.26	3.82	2.76	-0.03	-3.22	1.93
809	飯塚	14.81	0.89	0.83	0.91	2.37	3.39	2.67	0.00	-2.01	1.95	25.98	0.89	0.86	0.79	1.69	2.65	4.24	0.08	-1.88	3.65
812	佐世保	15.26	0.85	0.82	0.86	2.21	2.04	2.13	-0.78	-0.67	1.17	26.79	0.84	0.79	0.78	1.92	1.67	3.35	-1.14	-0.49	2.57
813	佐賀	15.03	0.88	0.85	0.91	2.64	2.65	2.85	0.96	-0.30	2.26	26.34	0.88	0.84	0.82	2.02	2.08	3.51	0.70	-0.49	3.04
814	日田	14.47	0.88	0.83	0.89	2.89	3.43	3.69	1.06	-0.57	2.67	25.99	0.89	0.83	0.80	1.82	2.47	4.73	0.39	-0.86	4.09
815	大分	14.46	0.84	0.78	0.86	3.27	3.16	3.69	1.88	0.40	3.07	26.54	0.91	0.81	0.79	1.22	2.07	3.30	-0.14	-1.04	2.79
817	長崎	15.31	0.87	0.77	0.87	1.81	2.25	2.40	-0.14	0.10	1.68	26.50	0.85	0.76	0.79	1.45	1.53	3.42	-0.33	0.24	2.90
819	熊本	15.66	0.87	0.79	0.91	2.46	3.29	3.37	0.58	-0.16	2.78	27.09	0.89	0.82	0.82	1.63	2.32	4.64	0.02	-0.89	4.14
821	阿蘇山	9.11	0.75	0.73	0.88	5.63	4.48	5.71	4.07	2.80	5.28	19.03	0.85	0.86	0.78	5.52	3.42	7.50	4.94	2.97	7.20
822	延岡	15.43	0.90	0.87	0.93	2.68	2.64	3.54	1.89	0.40	3.12	26.20	0.87	0.79	0.77	1.75	2.10	4.16	0.86	-0.62	3.61
823	阿久根	15.21	0.88	0.78	0.90	1.97	2.28	3.04	1.21	0.71	2.68	26.13	0.86	0.78	0.77	1.50	1.53	4.23	0.85	0.46	3.82
824	人吉	14.50	0.85	0.80	0.89	3.35	3.33	3.90	1.70	0.52	3.00	25.28	0.85	0.79	0.75	2.27	2.43	4.92	1.26	-0.01	4.31
827	鹿児島	16.73	0.91	0.81	0.92	2.02	2.35	2.74	0.87	-0.31	1.89	27.70	0.84	0.70	0.77	1.41	1.87	2.30	0.14	-0.76	1.70
829	都城	15.86	0.93	0.89	0.95	2.09	2.43	3.30	0.83	0.02	2.84	26.01	0.87	0.82	0.78	1.93	2.13	4.81	0.71	-0.08	4.35
830	宮崎	17.11	0.92	0.89	0.93	1.85	2.18	3.00	0.76	-0.23	2.58	26.93	0.86	0.77	0.78	1.45	1.94	4.04	0.46	-0.38	3.70
831	枕崎	15.92	0.90	0.70	0.88	1.94	3.38	3.10	0.88	1.51	2.44	26.56	0.76	0.66	0.66	1.71	2.30	3.83	0.32	1.20	3.16
835	油津	17.16	0.91	0.86	0.86	1.98	2.44	3.26	0.64	0.63	2.02	27.03	0.84	0.72	0.58	1.13	1.43	2.78	0.22	0.34	2.20
836	屋久島	17.31	0.86	0.83	0.74	2.91	3.79	3.27	2.03	-3.20	2.04	26.47	0.77	0.80	0.51	2.19	3.29	2.81	1.67	-3.04	2.14
837	種子島	17.94	0.90	0.78	0.80	1.35	1.92	2.24	0.38	0.58	1.38	27.36	0.86	0.67	0.66	0.96	1.42	2.22	0.22	0.59	1.76
838	牛深	15.71	0.87	0.62	0.79	1.73	2.58	2.53	0.46	0.40	1.17	26.86	0.83	0.58	0.69	1.50	1.97	2.34	0.10	0.36	1.50
843	福江	15.02	0.83	0.71	0.83	2.31	2.45	2.56	0.42	0.22	1.71	25.94	0.86	0.75	0.82	1.45	1.57	3.05	0.23	0.53	2.71
	単純平均	15.25	0.88	0.81	0.87	2.33	2.78	2.88	0.66	-0.29	2.04	26.16	0.86	0.78	0.75	1.74	2.12	3.58	0.38	-0.43	3.02

- \* ANEMOSのデータ高度は地上高約10mと地表面温度の平均値
- \* NHMのデータ高度は地上高約10mと地表面温度の平均値
- \* MM5の抽出高度 2m (境界層ルーチンの出力)
- \* グレー欄は相関係数0.9以上

表 3-3(3) モデルの比較結果 (気温)

気温予測比較表 2

No.	地点	2002/12/10 ~ 2002/12/24									
		観測値	相関係数			RSME			バイアス誤差		
			anemos	NHM	MM5	anemos	NHM	MM5	anemos	NHM	MM5
754	萩	8.24	0.89	0.87	0.88	1.62	1.95	3.20	-0.41	1.25	2.85
762	下関	9.14	0.91	0.83	0.79	1.35	1.80	4.03	0.50	-0.30	3.70
784	山口	6.75	0.89	0.89	0.88	2.02	2.00	3.00	0.76	0.12	2.43
800	萩原	9.31	0.93	0.86	0.91	1.56	2.34	3.38	-0.13	1.07	2.87
805	平戸	9.57	0.95	0.90	0.92	1.54	1.35	3.41	1.22	0.10	3.20
807	福岡	9.06	0.91	0.86	0.85	1.69	3.02	4.60	0.99	-2.31	4.28
809	飯塚	7.20	0.88	0.86	0.88	2.26	2.12	3.61	0.96	-0.58	3.11
812	佐世保	9.63	0.92	0.83	0.90	1.53	2.15	2.16	-0.51	1.00	1.59
813	佐賀	8.03	0.89	0.85	0.90	2.23	2.19	3.08	0.91	0.77	2.63
814	日田	6.36	0.86	0.83	0.81	2.97	2.72	4.13	1.65	1.00	3.28
815	大分	8.81	0.84	0.83	0.84	2.31	2.16	3.31	0.56	0.34	2.75
817	長崎	9.73	0.93	0.82	0.90	1.38	3.05	2.48	0.14	2.37	1.98
819	熊本	8.56	0.93	0.90	0.91	1.99	2.25	3.11	0.73	0.65	2.47
821	阿蘇山	1.84	0.82	0.80	0.91	5.01	3.91	6.11	3.85	2.79	5.85
822	延岡	8.94	0.88	0.85	0.87	2.77	2.44	3.42	1.95	0.41	2.76
823	阿久根	10.05	0.91	0.85	0.87	3.18	2.60	3.44	2.85	1.76	3.03
824	人吉	7.49	0.82	0.82	0.78	3.81	3.33	4.38	2.09	1.45	3.37
827	鹿児島	11.63	0.92	0.84	0.76	3.28	2.28	5.29	2.81	0.37	4.65
829	都城	8.55	0.90	0.85	0.83	2.74	2.93	4.28	1.52	1.17	3.36
830	宮崎	9.98	0.90	0.87	0.86	2.48	2.34	4.02	1.55	1.05	3.40
831	枕崎	11.54	0.92	0.80	0.86	1.99	4.30	3.41	1.07	3.49	2.65
835	油津	11.10	0.90	0.77	0.77	3.27	4.23	6.20	2.70	3.38	5.64
836	屋久島	14.15	0.87	0.81	0.82	3.90	4.16	4.95	3.50	-3.59	4.56
837	種子島	14.10	0.90	0.84	0.83	2.27	2.90	4.66	1.90	2.48	4.38
838	牛深	10.62	0.91	0.84	0.81	3.11	3.56	4.95	2.81	3.12	4.58
843	福江	10.43	0.93	0.77	0.86	1.56	3.37	4.18	0.52	2.31	3.60
	単純平均	9.26	0.90	0.84	0.85	2.45	2.75	3.95	1.40	0.99	3.42

\* ANEMOSのデータ高度は地上高約10mと地表面温度の平均値

\* NHMのデータ高度は地上高約10mと地表面温度の平均値

\* MM5の抽出高度 2m (境界層ルーチンの出力)

\* グレー欄は相関係数0.9以上

表 3-3(4) モデルの比較結果 (風速)

風速予測比較表1

No.	地点	風速計 高度	2002/4/1 ~ 2002/4/15										2002/8/18 ~ 2002/9/1									
			観測値		相関係数			RMSE			バイアス誤差			観測値		相関係数			RMSE			バイアス誤差
		m	m/s	anemos	NHM	MM5	anemos	NHM	MM5	anemos	NHM	MM5	m/s	anemos	NHM	MM5	anemos	NHM	MM5	anemos	NHM	MM5
754	萩	18.1	2.94	0.49	0.35	0.62	1.90	1.86	1.67	0.71	0.21	0.10	3.34	0.76	0.69	0.44	2.04	1.57	2.17	1.07	0.13	0.23
762	下関	30.6	3.38	0.68	0.46	0.52	1.44	2.14	1.96	0.30	-1.29	0.59	3.29	0.80	0.82	0.68	2.18	1.36	2.51	1.32	-0.66	1.54
784	山口	15.3	1.83	0.69	0.62	0.50	1.72	1.07	1.69	1.28	0.18	0.74	2.81	0.85	0.79	0.63	1.81	1.63	1.87	1.20	-0.47	0.35
800	萩原	12.9	3.77	0.49	0.28	0.50	2.31	3.39	2.24	0.85	1.61	0.19	3.38	0.82	0.76	0.81	3.02	4.16	2.68	2.01	3.08	1.69
805	平戸	11.0	3.88	0.57	0.45	0.61	1.89	2.05	2.07	0.57	-0.16	0.67	4.51	0.82	0.82	0.74	2.24	1.64	2.43	1.17	-0.52	1.16
807	福岡	24.5	2.90	0.67	0.58	0.50	1.35	1.44	1.62	0.27	-0.29	0.07	4.17	0.80	0.77	0.81	1.63	2.03	1.54	-0.24	-1.20	-0.19
809	飯塚	11.1	2.65	0.57	0.42	0.60	1.72	1.66	1.52	0.61	-0.33	-0.06	3.33	0.78	0.70	0.76	1.77	1.55	1.55	0.49	-0.48	0.33
812	佐世保	13.1	3.45	0.69	0.66	0.63	1.73	1.93	1.92	0.07	0.58	-0.52	4.43	0.86	0.87	0.77	1.66	1.69	2.20	0.38	0.32	-0.96
813	佐賀	25.5	2.63	0.51	0.47	0.53	1.69	1.87	1.69	-0.06	-1.05	-0.37	4.57	0.82	0.80	0.79	2.02	3.38	2.32	-0.88	-2.45	-1.29
814	日田	10.6	1.55	0.57	0.24	0.45	1.96	1.59	1.24	1.40	0.85	0.19	1.85	0.68	0.57	0.58	2.75	1.42	1.44	1.87	0.79	0.50
815	大分	19.8	2.23	0.56	0.50	0.42	1.61	1.18	1.70	0.72	-0.30	0.13	3.48	0.88	0.83	0.65	1.41	1.81	1.87	0.56	-1.22	0.26
817	長崎	18.7	2.26	0.49	0.48	0.41	2.09	3.19	2.07	1.31	2.44	0.97	2.65	0.61	0.61	0.60	3.36	4.19	2.47	2.17	2.69	1.38
819	熊本	14.8	2.27	0.51	0.44	0.50	1.40	1.42	1.43	0.05	-0.63	-0.44	3.56	0.74	0.76	0.77	1.67	2.02	1.55	-0.10	-1.42	-0.04
821	阿蘇山	10.3	4.48	0.48	0.26	0.49	2.46	3.23	2.67	-0.97	-2.26	-1.72	5.50	0.76	0.77	0.72	2.55	2.84	2.77	-0.52	-1.98	-1.69
822	延岡	13.2	2.53	0.48	0.33	0.32	1.87	1.84	1.83	0.81	-0.87	-0.64	3.86	0.77	0.80	0.70	2.25	2.62	2.11	1.19	-1.81	-0.84
823	阿久根	13.4	2.94	0.65	0.54	0.63	1.84	1.54	1.30	1.14	0.38	-0.03	3.73	0.74	0.73	0.72	3.37	1.92	1.40	2.10	0.26	0.17
824	人吉	12.1	1.66	0.55	0.19	0.52	1.98	1.77	1.23	1.39	1.12	0.21	2.27	0.72	0.60	0.66	3.31	2.02	1.86	2.18	0.62	0.46
827	鹿児島	22.0	3.52	0.60	0.45	0.57	1.50	1.82	1.69	-0.25	-0.74	-0.42	4.60	0.85	0.86	0.83	2.21	2.70	2.15	0.35	-1.46	0.02
829	都城	11.7	1.97	0.65	0.63	0.49	1.83	1.01	1.61	1.07	0.11	0.68	2.84	0.87	0.86	0.63	2.27	1.63	2.31	1.38	-0.53	0.76
830	宮崎	21.2	3.36	0.50	0.37	0.24	1.75	2.43	2.10	-0.57	-1.75	-0.46	4.07	0.87	0.89	0.79	1.56	2.84	1.98	-0.04	-2.03	-0.02
831	枕崎	10.4	4.21	0.68	0.50	0.62	1.44	3.01	1.89	-0.33	1.62	-1.16	5.39	0.90	0.89	0.88	2.04	3.31	2.95	0.14	1.60	-1.23
835	油津	19.0	4.53	0.51	0.25	0.36	2.00	2.60	2.55	-0.75	0.28	-1.27	6.16	0.89	0.86	0.83	2.46	2.80	3.23	-0.68	-0.70	-1.39
836	屋久島	9.9	4.56	0.55	0.31	0.63	2.53	2.79	2.65	0.64	-0.74	0.61	6.11	0.93	0.79	0.89	2.39	4.06	2.58	0.83	-1.55	0.02
837	種子島	10.6	4.43	0.40	0.38	0.46	2.18	3.32	2.06	0.30	1.82	-0.32	3.96	0.91	0.90	0.79	3.09	4.02	1.92	1.85	2.66	0.03
838	牛深	20.6	2.53	0.55	0.35	0.44	2.32	4.47	2.79	1.61	3.41	1.65	3.55	0.78	0.79	0.60	3.28	4.52	3.98	2.20	3.20	2.26
843	福江	10.3	3.27	0.67	0.51	0.71	1.74	3.67	1.55	0.87	2.63	0.42	4.64	0.91	0.88	0.91	1.98	3.54	1.59	0.98	2.50	0.25
	単純平均		3.07	0.57	0.42	0.51	1.86	2.24	1.87	0.50	0.26	-0.01	3.93	0.81	0.79	0.73	2.32	2.59	2.21	0.88	-0.02	0.14

- \* ANEMOSのデータ高度は地上高約10m
- \* NHMのデータ高度は地上高約10m
- \* MM5の抽出高度=10m(境界層ルーチンの出力)
- \* グレー欄は相関係数0.6以上

表 3-3(5) モデルの比較結果 (風速)

風速予測比較表2

No.	地点	風速計 高度	2002/12/10 ~ 2002/12/24									
			観測値	相関係数			RSME			バイアス誤差		
				m/s	anemos	NHM	MM5	anemos	NHM	MM5	anemos	NHM
		m										
754	萩	18.1	3.53	0.56	0.10	0.68	1.94	2.45	1.80	0.77	0.75	0.66
762	下関	30.6	3.47	0.73	0.19	0.46	2.02	2.33	2.81	0.95	-0.84	1.23
784	山口	15.3	1.38	0.39	0.41	0.22	2.04	1.31	2.09	1.51	0.70	1.26
800	巖原	12.9	3.39	0.64	0.49	0.51	3.14	4.98	2.35	2.45	4.03	1.11
805	平戸	11.0	4.03	0.67	0.55	0.54	2.94	1.82	2.66	2.06	0.63	1.34
807	福岡	24.5	2.67	0.57	0.43	0.44	2.05	1.51	2.35	1.20	0.38	1.31
809	飯塚	11.1	1.87	0.54	0.17	0.52	1.82	2.27	1.44	1.13	1.28	0.49
812	佐世保	13.1	3.56	0.50	0.45	0.27	2.35	2.83	2.59	0.72	1.49	0.23
813	佐賀	25.5	3.41	0.62	0.76	0.74	2.02	2.17	1.80	-0.76	-1.34	-0.66
814	日田	10.6	1.23	0.63	0.41	0.31	2.07	1.63	1.32	1.76	1.28	0.62
815	大分	19.8	2.69	0.48	0.40	0.42	1.70	1.23	1.50	0.85	-0.49	0.38
817	長崎	18.7	2.09	0.47	0.47	0.29	2.92	4.29	2.52	2.26	3.67	1.66
819	熊本	14.8	2.72	0.56	0.52	0.69	1.53	1.84	1.54	-0.39	-1.00	-0.83
821	阿蘇山	10.3	5.94	0.46	0.58	0.62	3.77	3.84	3.67	-2.00	-2.42	-2.33
822	延岡	13.2	2.79	0.46	0.43	0.41	2.21	1.69	1.88	1.25	-0.66	0.29
823	阿久根	13.4	4.07	0.55	0.51	0.53	2.20	1.63	1.46	1.08	-0.38	-0.31
824	人吉	12.1	1.27	0.47	0.36	0.31	2.18	1.68	1.26	1.65	1.36	0.24
827	鹿児島	22.0	3.49	0.42	0.38	0.39	2.34	1.79	2.63	0.80	-0.35	1.22
829	都城	11.7	2.10	0.76	0.76	0.68	1.59	1.13	1.57	1.03	0.19	0.80
830	宮崎	21.2	3.10	0.21	0.02	0.13	2.12	2.28	2.59	0.03	-1.04	0.79
831	枕崎	10.4	4.15	0.54	0.47	0.50	1.88	4.93	1.74	0.18	3.75	-0.37
835	油津	19.0	5.42	0.43	0.36	0.42	2.63	3.75	3.13	-0.50	1.44	-0.01
836	屋久島	9.9	6.54	0.57	0.64	0.60	3.00	2.97	3.08	0.29	-1.25	-0.88
837	種子島	10.6	4.35	0.72	0.57	0.70	2.66	5.15	2.32	1.90	4.05	1.17
838	牛深	20.6	2.86	0.25	0.30	0.41	3.69	4.81	4.09	2.74	4.07	3.39
843	福江	10.3	3.82	0.75	0.73	0.65	2.08	4.88	1.79	1.27	4.31	0.59
	単純平均		3.31	0.54	0.44	0.48	2.34	2.74	2.23	0.93	0.91	0.52

- \* ANEMOSのデータ高度は地上高約10m
- \* NHMのデータ高度は地上高約10m
- \* MM5の抽出高度=10m(境界層ルーチンの出力)
- \* グレー欄は相関係数0.6以上



比較結果をまとめると表 3-4 のようになる。計算時間については、物理過程のオプションの選び方によっては変動することがあるので参考値である。ANEMOS の非静力学版では他のモデルと同等とみられる。

表 3-4 から ANEMOS については、ある範囲のスケールの現象を対象として気温や風を予測する場合には依然として有力なモデルであることが示唆されるが、降水量予測を対象とする場合には、NHM か MM5 が有利となることがわかる。

本調査での利用を考える場合、NHM の商用利用は許されていないため、現時点では採用することができない。また、ANEMOS は並列処理未対応のため、コストパフォーマンスのよい並列計算機での計算効率が悪い。よって、MM5 が降水予測のスキル、並列処理対応、スケラビリティ、データ同化機能の面で現段階では最も有利なモデルと判断される。

**表 3-4 モデルの予測要素別ランク（要素別の順位）**

モデル	気温予測	風速予測	降水予測	計算時間	備考
ANEMOS	1	1	3	1	静力学モデル
NHM	3	3	2	3	
MM5	2	2	1	2	

### 3.3 MM5 の適応性について

「3.2 気象モデルの精度比較」より、現時点では MM5 の有用性が示された。そこで、本節では、本調査での MM5 の利用可能性について検討を行った。

MM5 はその前身を含めれば古いモデルであるが、常に最新の技術を取り入れて新しい版を公開しており、同種のメソスケールモデルの中でも高性能かつ高機能のものである。メソスケールモデルとしての主な特徴を表 3-5 にまとめた。

モデルで表現している物理過程は標準的なものであるが、対象とする現象のスケールによってオプション選択やパラメータ変更が可能であり、一つの雷雲の構造を表現するような小スケールのものから高・低気圧スケールのものまで、いわゆるスケラビリティに優れたものであること、最近の数値計算で主流となりつつある並列処理で高速計算が可能な機能、小スケールの現象で重要な数時間先までの予測の精度向上に有利なデータ同化機能など、必要とする機能をすべて有しているモデルである。計算精度は気象条件や計算領域にもよるが、他のメソスケールモデルと同等か優れている。

表 3-5 MM5 の数値モデルとしての特徴

項目	MM5 の特徴	同種モデルとの優劣等
基本方程式系	非静力学（鉛直風も陽に解く）	静力学近似モデルより計算時間がかかるが、小スケールの現象にも対応
予測要素	風の 3 成分、圧力、気温、地表面温度、水蒸気量、雲水量、雪、あられ	
座標系	水平は直角格子、鉛直は系（地面に沿って計算層を重ね、上端は水平にする）	一般的な方法
計算可能範囲	10km 程度～数千 km（全球も可能）	特定範囲対応のものが多い
水平分解能	100m～200km 程度	特定範囲対応のものが多い
数値計算法	差分法	一般的な方法（総観モデルではスペクトル法が多い）
観測データ同化機能	ナッジング法は標準装備。数時間先までの予測精度向上に有利（オプションで 3 次元変分法、4 次元変分法）	ナッジング法は一般的だが、変分法を組込めるメソスケールモデルは少ない
雲物理	水の 4 相（水蒸気、水、雪、あられ）の濃度を個別に予測することができる	一般的な方法（高分解能モデルでは各相の粒径分布を予測するが時間がかかる）
放射	太陽放射、赤外放射、雲による散乱吸収の効果を考慮	一般的な方法
並列処理対応	並列計算処理の標準的な方法である MPI（Message Passing Interface）に対応	MPI 対応モデルはまだ少ない

「2. 大気質モデルの検討」で述べた CMAQ との適応性を考えた場合、オリジナルの Models3/CMAQ は、気象モデル MM5 の出力を MCIP によりフォーマット変換し、入力データを作成する。MCIP は CMAQ と同様に CMAS Center (Community Modeling & Analysis System)より配布されている。最新のバージョンは MCIP3.1 が 2006 年 3 月にリリースされている。また、CMAQ は MM5 の次世代モデルである WRF(Weather Research & Forecasting model)への移行を進めており、MCIP3.0 より CMAQ 用の気象モデルとして MM5、WRF 両方が入力可能になった。RAMS を CMAQ の気象モデルとして利用する場合、MCIP に相当する変換ツールを作成する必要がある。国内の事例として、国立環境研究所が作成した MCIP for RAMSver4.3 がある。

### 3.4 気象モデルの選定

本章におけるこれまでの結果をまとめると下記のとおりである。

- ・ MM5 が降水予測のスキル、並列処理対応、スケラビリティ、データ同化機能の面で当初の課題をクリアできるモデルとして現段階では最も有利なモデルと言える。
- ・ オリジナルの Models3/CMAQ は、気象モデル MM5 の出力を MCIP によりフォーマット変換し、入力データを作成する。（つまり、CMAQ は MM5 を標準の気象モデルとし

ている。)

- ・ CMAQ は MM5 の次世代モデルである WRF(Weather Research & Forecasting model) への移行を進めており、MCIP3.0 より CMAQ 用の気象モデルとして MM5、WRF 両方が入力可能になった。

したがって、将来的には WRF が主流になると見込まれるが、現状では WRF 自体が開発途上であること、MM5 はユーザー数も多く実績や安定性に優れている点も考慮すると、本調査における CMAQ 用の気象モデルとしては MM5 を選択するのが最も妥当と判断した。

なお、(財)日本気象協会では MM5 をベースに独自の改良を施した SYNFOSS(Synthetic Numerical Forecasting System)をメソスケールモデルとして開発し、現在、数値予報システムとして運用している。したがって SYNFOSS を用いることで、オリジナルの MM5 から導入・開発を進めるより、計算の精度、時間的制約(コスト)の面で有利であると判断し、今年度作業においては SYNFOSS を用いることとした。なお、オリジナルの MM5 と SYNFOSS との相違点については、資料編として巻末に記載した。

#### 引用文献

- Kusaka,H., H. Hayami, Numerical Simulation of Local Weather for a High Photochemical Oxidant Event Using the WRF Model, JSME international journal. Ser. B, Fluids and thermal engineering, 49, 72 - 77 (2006)
- Shrestha Kundan Lal, Kondo Akira, Morikawa Tazuko, Kunimi Hitoshi, Nakatsuka Seiji, Kaga Akikazu, Inoue Yoshio, Evaluating and comparing the predictions of meteorological models and their suitability for air quality modeling, 第 47 回大気環境学会年会講演要旨集, 1F1012 (2006)

#### 4. VOC 粒子化モデル(化学反応モデル)の検討

大気質シミュレーションモデルにおいて、粒子化モデルおよび化学反応モデルは、予測精度を左右する重要なコンポーネントである。ここでは、テスト計算で用いる CMAQ(v.4.6) で選択可能なコンポーネントについて、情報を整理し、今年度のシミュレーションで使用するモデルについて検討した。

##### 4.1 粒子化モデルの検討

CMAQ(v.4.6)では粒子化モデルとして、AERO3、AERO4 が選択可能である。また、CMAQ では、これとは別に CMAQ-MADRID と呼ばれる、従来よりも精緻化した粒子化モデルを組み込んだバージョンが存在するが、MADRID については現状ではモデルの性能を評価できる実績や、資料が不足しているため、今年度については採用を見送ることとした。従来の粒子化モデル(AERO3)と MADRID の概要を比較した資料を表 4-1 に示す。MADRID は、二次生成有機エアロゾルの計算、粒子表面上での不均一反応の取扱いなどで、AERO3 から精緻化を図っている。

表 4-1 AERO3 と MADRID の概要比較(Schwartz *et al.*, 2005)

	<b>AERO3</b>	<b>MADRID 1, 1a</b>	<b>MADRID 2</b>
<b>Size distribution</b>	modal (3 modes) number PDF	sectional (2, 8 sections) mass PDF	sectional (2 sections) mass PDF
<b>Nucleation</b>	absolute rate	relative rate	relative rate
<b>Condensational growth</b>	modal	moving-center	not treated
<b>Coagulation</b>	modal	not treated	not treated
<b>Gas-particle mass transfer</b>	full equilibrium	CIT equilibrium or CMU hybrid	CIT equilibrium or CMU hybrid
<b>Inorganics</b>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> , NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> , NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> , NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> , NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> , Na <sup>+</sup> , Cl <sup>-</sup>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> , NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> , NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> , Na <sup>+</sup> , Cl <sup>-</sup>
<b>Secondary Organic Aerosol</b>	“parameterized” (Schell <i>et al.</i> 2001)  2 predicted species: 1 anthropogenic 1 biogenic	“parameterized” (Odum <i>et al.</i> 1997, Griffin <i>et al.</i> 1999)  38 predicted surrogate species: 4 anthropogenic 34 biogenic	“first principles” (Pun <i>et al.</i> 2002) hydrophilic / hydrophobic 42 predicted explicit species: 31 anthropogenic 11 biogenic
<b>Gas-phase chemistry</b>	CBM-IV (46, 96) RADM2 (75, 200) SAPRC-99 (79, 214)	CBM-IV (92, 117) RADM2 (121, 221)	CACM (191, 361) (Griffin <i>et al.</i> 2002)
<b>Aqueous chemistry</b>	RADM (33, 23)	RADM (33, 23) CMU (55, 133)	CMU (55, 133)
<b>Heterogeneous chemistry</b>	not treated	HO <sub>2</sub> /NO <sub>2</sub> /NO <sub>3</sub> /N <sub>2</sub> O <sub>5</sub> on surfaces N <sub>2</sub> O <sub>5</sub> in droplets (Jacob 2000)	HO <sub>2</sub> /NO <sub>2</sub> /NO <sub>3</sub> /N <sub>2</sub> O <sub>5</sub> on surfaces N <sub>2</sub> O <sub>5</sub> in droplets (Jacob 2000)
<b>Features to be added</b>	alternate nucleation schemes	coagulation increased size resolution	coagulation increased size resolution

出典:([http://www.asp.bnl.gov/ASP\\_ST\\_mtg\\_pres\\_2005/Wright-Schwartz/Wright\\_presentation.pdf](http://www.asp.bnl.gov/ASP_ST_mtg_pres_2005/Wright-Schwartz/Wright_presentation.pdf))

また、CMAQ(v.4.6)で選択可能な AERO4 について、AERO3 からの変更点は以下の通りである。

- ・ 海塩粒子の考慮
- ・ 粒子の乾性沈着アルゴリズムの改良
- ・ ISORROPIA(粒子平衡反応モジュール)のアップデート
- ・ PM<sub>2.5</sub> 濃度計算モジュールに新サブルーチン追加
- ・ AERO\_EMIS(粒子排出量モデル)のバグフィックス
- ・ Mode\_crossover(粒径モード計算モジュール)のバグフィックス
- ・ ISORROPIA の硫酸塩の入力方法の変更
- ・ MINIL2SG(エアロゾル粒径分布)の変更
- ・ Sulfate tracking オプションの追加
- ・ 粒子中炭素成分の発生源別寄与率算出オプションの追加

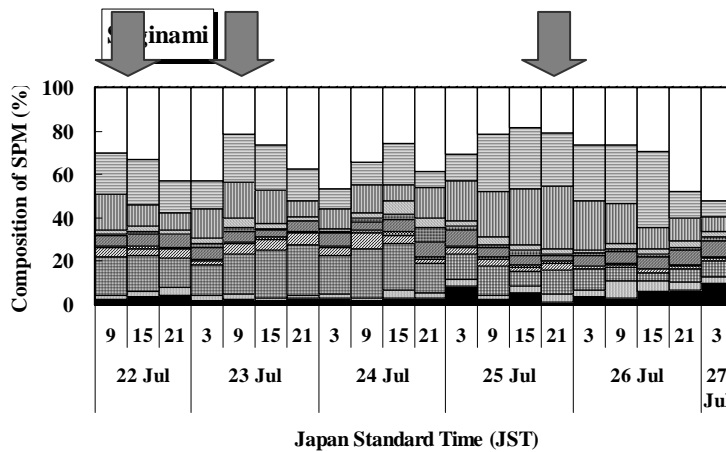
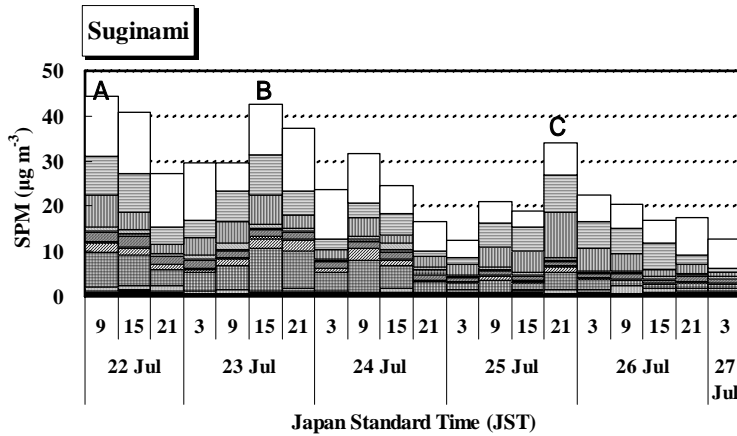
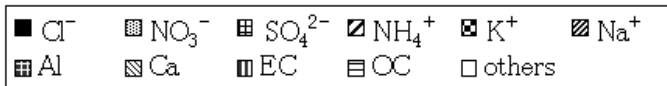
これらの変更点のうち、AERO3 との最も大きな違いは海塩粒子のモデル化であるが、AERO4 で海塩粒子の計算をするには、“OCEANfile”と呼ばれるファイルをプリプロセスで作成する必要がある。しかし、自動的に OCEANfile を作成するツールは開発途上であり、現在は、暫定的なプログラムが公開されている。また、AERO4 は、CMAQ(v.4.5)から選択可能となっているが、使用実績の報告例が少なく、AERO3 との計算結果の比較資料が少ないのが現状である。

環境省の過去の調査では、関東地方における平成 12 年度の SPM に占める発生源別寄与割合で海塩粒子の寄与は 14.5%であることが報告されている。また、関東地方環境対策推進本部の報告では、粗大粒子に占める海塩粒子の寄与は夏季では 10%以上、冬季はほぼ 0%と推定されている。一方で、環境省により実施されたフィールド調査の結果によると、夏季の関東における SPM 高濃度事例においては、二次生成粒子の寄与と思われる OC や SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の割合が増大するケースとローカルな自動車排ガスの影響と考えられる EC 割合の増加するケースが報告されている(図 4-1)。

また、海塩粒子の Cl がオゾン生成に与えるインパクトについては、カリフォルニアの都市域を対象としたシミュレーションの結果からは、大半のモニタリングステーションで最大 2-4ppb のオゾン増加であったことが報告されている (Knipping *et al.*, 2003)。

そこで、今年度のテストシミュレーションの実施にあたっては、現状では OCEANfile の作成ファイルが困難なことや、AERO4 の精度が未知数な点、今年度実施する SPM 高濃度事例やオキシダント高濃度事例においては、海塩粒子の寄与は相対的に小さいものと判断し、AERO3 を選択することとした。

ただし、AERO3 と比較して、MADRID や AERO4 の方が現実にも物理過程を取り込んでいることから、今後はこれらのモデルについても利用を検討する。



6 時間毎にフィルターサンプリングを行い、SPM の組成を調査。

- 高濃度サンプル A,B では、OC や SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> の割合が増大  
二次生成粒子の寄与が大
- 高濃度サンプル C では、EC の割合が増大  
自動車排ガスの影響が
- 海塩粒子起源と見られる Na<sup>+</sup> については、低濃度サンプルの方が、相対的に割合が高くなる

図 4-1 フィールド調査による SPM 組成の時系列変化の例(H14 年夏季、杉並)

#### 4.2 気相化学反応モデルの検討

気相化学反応モデルについては、CMAQ(v.4.6)では、CB4、CB05、SAPRC99 が選択可能である。このうち、CB05 は、2005 年にリリースされた比較的新しいモデルで、前身の CB4 からの変更点は以下の通りである。

- Kinetic Updates
- Photolysis Updates
- Extended Inorganic Reaction Set
- Simple Alkanes (Methane and Ethane)
- Higher Aldehydes
- Alkenes with Internal Double Bonds
- Oxygenated Products and Intermediates
- Terpene Chemistry

ボックスモデルによる MIR(Maximum Incremental Reactivity)の算出結果を CB4 と CB05 比較した場合、CB05 の方がオゾン生成の立ち上がりが早い、最終的なオゾン生成量はほとんど同じであることが報告されている(Yarwood *et al.*, 2005)。また、米国を対象としたシミュレーションでは CB05 のオゾン濃度が CB4 と比べて夏季は 8%増加することが報告されている。ただし、最新のモデルであるため、他のシミュレーション実績の報告例はほとんどないのが現状である。

また、CBM- (CB4)と SAPRC99 の概要の比較を表 4-2 に示す。両者の大きな違いは、個々の VOC 成分のグルーピングの手法にあり、CBM- では、VOC 各成分の分子構造に着目し、炭素原子の結合状態によってグルーピングする方法(Lumped structure mechanism)を採用し、SAPRC99 では、反応性の類似した成分を 1 つのグループとして扱う方法(Lumped molecule mechanism)が採用されている。また、無機化学反応については両者の差異は少ないが、有機化学種については、SAPRC の方が多くの種類を取り扱っている。

表 4-2 化学反応モデルの概要比較

	CBM-IV	SAPRC99	CB05
フルネーム	Carbon Bond Mechanism, version IV	Statewide Air Pollution Research Center, version 99	Carbon Bond Mechanism, version 2005
出典	Gery et al.(1989)	Carter (2000)	U.S.EPA (2005)
type	LS <sup>a</sup>	LM <sup>b</sup>	LS <sup>a</sup>
反応式数	81	198	156
物質数	33	72	51
Constant species	2	4	-
安定無機物質	9	14	-
無機中間体(短寿命)	5	6	-
安定有機物質	6	25	-
有機中間体(短寿命)	5	14	-
PAN とその類似物質	1	4	-
芳香族安定物質	4	4	-
植物起源安定物質	1	1	-

a: Lumped structure mechanism.

Jimenez et al.(2003)より

b: Lumped molecule mechanism

出典: 環境省、「平成 17 年度浮遊粒子状物質及び光化学オキシダントの生成にかかる調査報告書」に CB05 の情報を追加

CB4 と SAPRC99 による計算結果の比較はいくつかの報告例があるが、Dodge は、清浄大気～代表的な都市大気の下では、気相化学反応モデルの違いによるオゾンの予測値の差は多くの報告では大部分は 10%以内であることを報告している。また、同様に Jimenez *et al.*も、ボックスモデルによる検証では化学反応モデルの違いによるオゾン濃度の違いは 20%以下であることを報告している(図 4-2)。

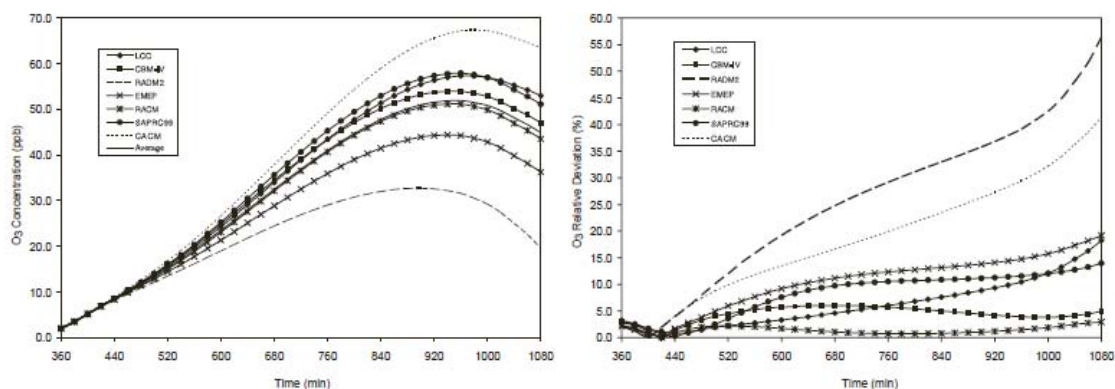


Fig. 2. Simulation results for ozone concentrations (ppb) and relative deviations with respect to the average behavior (%) during daylight hours. Simulation was initiated at 0h LST with the parameters and initial conditions specified in Table 2.

#### 図 4-2 化学反応モデルの違いによるオゾンシミュレーション結果の比較

以上のレビューより、化学反応モデルとしては、CB4 と比較して CB05 あるいは SAPRCの方がより、詳細なモデルと判断出来る。このため、本業務においても CB05、SAPRC の選択が望ましいと考えられるが、下記に示す理由により、今年度のテストシミュレーションでは CB4 を選択することとして、CB05、SAPRC の利用は次年度以降の検討課題とした。

- ・ テスト計算に用いる発生源インベントリ(H14 年度に環境省が実施した、「平成 14 年度浮遊粒子状物質環境汚染実態解析調査」において作成した平成 12 年度ベースの発生源データ作成したデータ)は、CB4 を用いることを前提で整備されており、化学種の再分類は不要でそのまま利用可能である(データフォーマットの変換は必要)。
- ・ 歴史が古い分、実績が豊富で精度的にも一定の評価はされている。

#### 引用文献

環境省: 平成 14 年度浮遊粒子状物質総合対策検討にかかる調査(平成 15 年 3 月)

関東地方環境対策推進本部大気環境部会浮遊粒子状物質調査会議:平成 16 年度浮遊粒子状物質合同調査報告書(平成 18 年 3 月)

環境省: 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(平成 15 年 3 月)

E.M.Knipping, D.Dabdub, Impact of chloribe emissions from sea-salt aerosol on coastal urban ozone, Environmental Science and Technology, 37, 275 – 284 (2003)



Yarwood, G., S. Rao, M. Yocke, and G. Whitten, Updates to the Carbon Bond Chemical Mechanism: CB05. Final Report to the US EPA, RT-0400675 (2005)  
(Available at [http://www.camx.com/publ/pdfs/CB05\\_Final\\_Report\\_120805.pdf](http://www.camx.com/publ/pdfs/CB05_Final_Report_120805.pdf).)  
[http://www.cmascenter.org/help/model\\_docs/cmaq/4.5.1/CB05\\_NOTES.txt](http://www.cmascenter.org/help/model_docs/cmaq/4.5.1/CB05_NOTES.txt)

Dodge M.C., Chemical oxidant mechanisms for air quality modeling: critical review, *Atmospheric Environment*, 34, 2103-2130 (2000)

Jimenez, P., Baldasano, J.M., Dabdub, D., Comparison of photochemical mechanisms for air quality modeling, *Atmospheric Environment*, 37, 4179-4194 (2003)

## 5 国内の発生源インベントリデータ

三次元の非定常大気質モデルでは、モデルへの入力データとして、物質別、メッシュ別の発生源インベントリが必要となる。日本国内において、数 100km 四方(たとえば、関東地方、関西地方)といった領域で、シミュレーションを行うことを想定して構築された発生源インベントリとして、基準年が比較的新しいデータ(2000 年以降)としては、環境省、産業技術総合研究所(産総研)、国立環境研究所(国環研)、JCAP 作成のデータがあげられる。本資料では、これら 4 つの発生源インベントリの仕様を整理し、今後、CMAQ を利用したシミュレーションを実施するうえで収集が必要となるデータ等について検討した。

### 5.1 国内で整備されている発生源インベントリの仕様

表 5-1 に先にあげた 4 つのインベントリの概要、表 5-2 に対象物質、表 5-3 に対象発生源について整理した。

**表 5-1 国内の発生源インベントリの概要**

	環境省	産総研	国環研	JCAP
基準年	2000 年	2002 年	2000 年	2000 年
対象領域	関東・関西	全国	関東	全国
空間分解能	1km メッシュ	1km メッシュ	1km メッシュ	1km メッシュ
時間分解能	夏季・冬季・時刻別	月別・時刻別	月別・時刻別	月別・時刻別

**表 5-2 対象物質**

	環境省	産総研	国環研	JCAP
NOx				
SOx				
CO				
CO <sub>2</sub>	-		-	-
PM		-		
VOC				
NH <sub>3</sub>		-		
HCl		-		

:粒径別

表 5-3 対象発生源

	環境省	産総研	国環研	JCAP
大規模固定発生源				
群小燃焼(業務系)				
群小燃焼(家庭系)				
自動車				
建設・作業機械				
船舶				
航空機				
小型焼却炉				
野焼き	-		-	
固定蒸発発生源(VOC)				
植物(VOC)				
下水・尿尿処理施設(NH <sub>3</sub> )		-		
肥料・家畜(NH <sub>3</sub> )		-		
浄化曹(NH <sub>3</sub> )	-	-		
肥料等製造施設(NH <sub>3</sub> )	-	-		
人間(NH <sub>3</sub> )		-		
ペット・犬(NH <sub>3</sub> )	-	-		
その他	*1	*2		

: NO<sub>x</sub>, SO<sub>x</sub>, PM, VOC, (HCl), (NH<sub>3</sub>)

: VOC を除く

\*1: 粉じん発生施設(堆積場、コンベア、破砕機など)からの PM を推計

\*2: 喫煙

#### (1) 環境省発生源

平成 14 年度に実施された、「浮遊粒子状物質総合対策にかかる調査」((株)数理計画、平成 15 年 3 月)および「浮遊粒子状物質環境汚染実態解析調査」((財)日本気象協会、平成 15 年 3 月)の中で作成されたものであり、前者では解析解/統計モデル、後者では非定常モデルによるシミュレーション(対象物質は SPM およびオキシダント)に使用された。自動車の排出原単位は、「自動車排出ガス原単位および総量に関する調査報告書」((株)野村総合研究所、平成 10 年 3 月)から引用されており、また当時同時に進行していた「大気シミュレーション用自動車排出ガスインベントリ検討会」での知見を反映し、コールドスタート時、ホットソーク等による排出量増分が加味されている。

PM については、シミュレーションの対象が SPM であったため、粒径別の情報は付加されていない。成分としては、EC、OC、その他の 3 区分で集計されている。なお、自動車

のタイヤ摩耗粉じんの原単位には SPM マニュアルの値を採用している。

固定蒸発発生源については「平成 14 年度揮発性有機化合物(VOC)排出に関する調査報告書」((社)環境情報科学センター、平成 15 年 3 月)を基礎資料としている。

## (2) 産総研発生源

産総研がオゾン等の大気中生成物質の詳細リスク評価への活用を図る目的で開発を進めている、オイラー型次世代広域大気評価モデル用の発生源インベントリで、平成 17 年度に整備された。当面はオゾンの影響評価が主な目的であるため、PM と NH<sub>3</sub> については集計対象外である。対象発生源として、船舶には主要港湾を利用する船舶以外にも漁船についても集計されているほか、喫煙も対象に加えるなど環境省発生源と比較して広範な発生源まで考慮している。また、近年議論されている、オキシダントが週末に上昇する現象(ウィークエンドエフェクト)についても検討できるように、自動車については、平日・休日別の排出量が設定されている。自動車の排出係数には、東京都環境局(2000 年)の係数が使用されている。コールドスタート時、ホットソーク等による排出量増分も考慮されており、この基礎資料としては環境省と同様に、「JCAP 技術報告書 大気モデル(2) 自動車排出ガス推計モデルの開発」(JCAP 推進室、1999 年 10 月)、「自動車の排出管以外からの炭化水素等排出量推計調査業務委託」((財)計量計画研究所、2002 年 3 月)が引用されている。

## (3) 国環研発生源

関東地方を対象とした数値シミュレーション入力用の排出量データ。自動車の排出係数には、東京都環境局(2000 年)の係数が使用されている。JCAP による知見を引用し、コールドスタート時、ホットソーク等による排出量増分も考慮されている。PM については、PM<sub>10</sub> と PM<sub>2.5</sub> の粒径別に集計がされており、組成としては EC, OC, 硫酸塩が考慮されている。なお、自動車のタイヤ摩耗粉じんの原単位には EPA の値を採用している。

## (4) JCAP 発生源

JCAP で広域大気モデルとして採用された RAMS-CMAQ 入力用の排出量データ。自動車関係の排出量推計については特に詳細に検討されている。具体的にはマクロ交通流モデルで推計した交通量推計結果から JCAP で開発された排出量推計モデルで自動車排出量を求めるが、この際の排出係数には、ハイエミッター車を考慮するなど、JCAP 独自に測定・観測されたデータが反映されている。また、タイヤ摩耗粉じんの排出係数についても、独自調査に基づいて SPM マニュアルの値の約 1/10 の係数が採用されている。なお PM については、TSP, SPM, PM<sub>10</sub>, PM<sub>2.5</sub> の 4 粒径で集計されている。

## 5.2 国内発生源インベントリの排出量比較

先に挙げた4つの発生源インベントリのうち、JCAPを除く3つについて、NO<sub>x</sub>、VOC、PM(国環研はPM<sub>10</sub>)の関東地方を対象とした年間排出量を比較した結果を図5-1に示す。JCAPについては、全国集計値のデータしかないため、関東地方に限定した比較はできないが、自動車以外の排出量の推計方法は、国環研と類似しており、基準年も同一であることから、国環研の排出量推計値に近いものと考えられる。

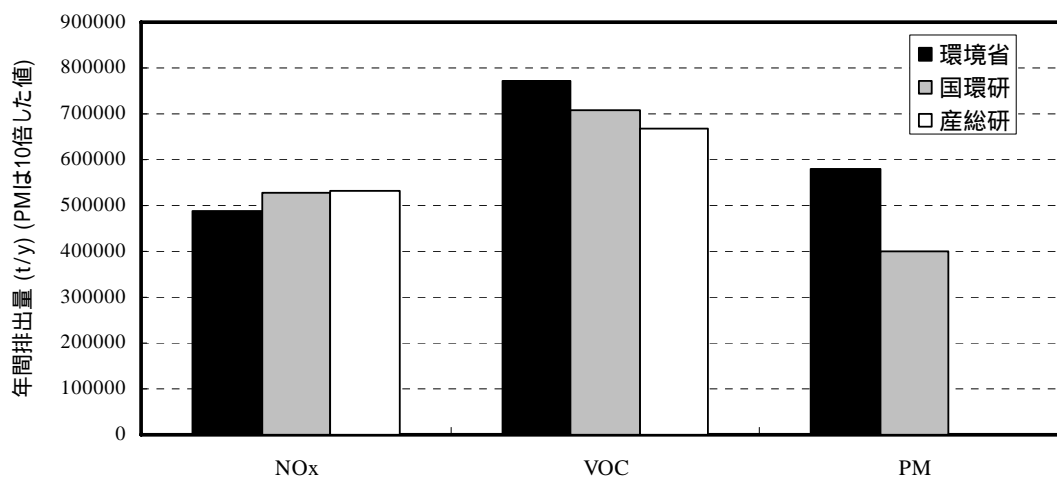


図5-1 関東地方年間排出量の比較

NO<sub>x</sub>の排出量については、産総研>国環研>環境省 であるが、年間排出量としての差は、最大で1割程度と比較的小さい。VOCの排出量については、環境省>国環研>産総研であり、年間排出量としては最大で1.5割程度の差が生じている。発生源別に排出量を比較した場合、炭化水素発生施設からの排出量推計にやや差が見られるが、これは基準年の違いに起因するものと考えられる。

PMの年間排出量は環境省インベントリが国環研インベントリのおよそ1.5倍となっている。大きな差が生じている最大の原因は、自動車のタイヤ摩耗粉じんの排出係数が、環境省(SPMマニュアルの排出例数)の方が、国環研(EPAの排出係数)の約10倍となっていることによる。この他に大きな差が生じている原因としては、粉じん発生施設を考慮しているかどうか、凝縮性粒子の算出式の違い、粒径分布の有無(環境省はほとんどの発生源でPM=TSPとしている)が挙げられる(図5-2)。

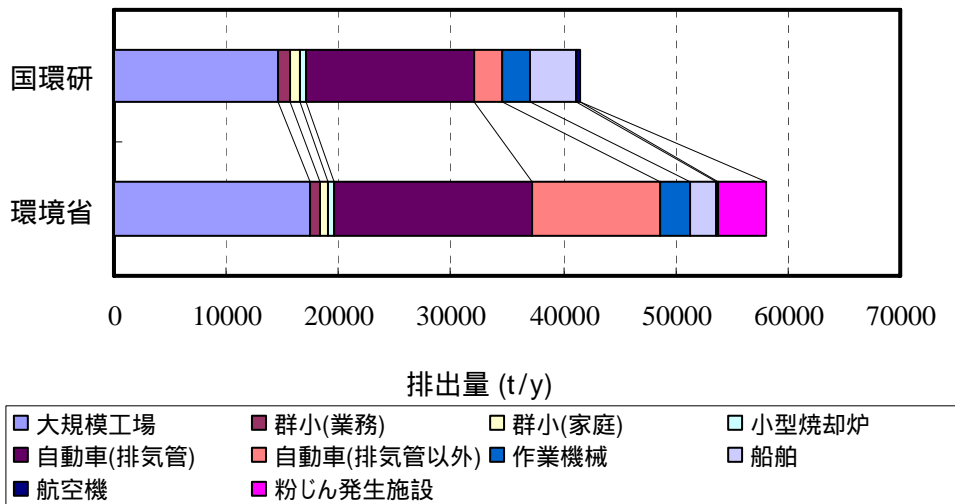


図 5-2 PM 排出量の内訳比較

### 5.3 CMAQ 運用を想定した発生源インベントリの整備

#### (1)対象物質・対象発生源

CMAQ によるシミュレーションの際に入力する必要がある物質は表 5-4 に示すとおりであり、これらの物質について発生源インベントリを整備する必要がある。VOC については、モデルに入力する際には、選択する化学反応モデルに対応した化学種に成分分解する必要がある(例えば、CB4 では、[PAR][OLE][ETH][FORM][ALD2][ISOP][TOL][XYL][UNR] の 9 分類)ため、VOC 排出量は総量の他に、発生源別の VOC 組成データが必須となる。

また、PM については、微小粒子(PM<sub>2.5</sub>)および粗大粒子(PM<sub>10</sub> - PM<sub>2.5</sub>)に分類し、微小粒子については 5 成分(粗大粒子は質量のみ)の排出量が必要となる。

表 5-4 CMAQ 排出量入力成分

ガス状物質	微小粒子	粗大粒子
	NO	硝酸塩
NO <sub>2</sub>	硫酸塩	
SO <sub>2</sub>	EC	
CO	OC	
NH <sub>3</sub>	その他	
VOC <sup>*1</sup>		

\*1 利用する化学反応モデルに応じて成分分解を行う

また、排出量推計の対象とする発生源としては、表 5-3 に示した JCAP の発生源インベントリが、現状で考え得る(大気質に影響を与えうる)発生源を網羅的に集計しているものと考えられる。今後は、各発生源からの排出量の推計精度を向上させることが課題であると考えられる。特に、排出量推計の際に必須となる、各種排出係数(原単位)、PM の粒径分布、VOC の成分組成等については、海外の調査事例や、国内の古い知見に基づく場合が多く、これらを国内の最新の知見に置き換えること、およびそのための実測調査が必要であると思われる。さらに、業種別の VOC の削減効果等を検討することを想定して、発生源インベントリのデータとして業種区分の情報も付加しておく必要がある。

## (2) 対象領域・空間分解能

現在、浮遊粒子状物質やオキシダントによる大気汚染が顕著であるのは、関東地方、および関西地方であり、影響人口も多いことを踏まえると、これらの地域について優先的にインベントリデータの整備を進め、大気環境改善のための施策を検討する必要があるものと考えられる。前述したとおり、関東地方(あるいは関西地方)を対象としたシミュレーションを実施するためには、最低でも 5km メッシュ程度の分解能で計算を行う必要がある。発生源インベントリを整備する際に、基礎となる統計資料が日本国内では国土数値情報の 3 次メッシュ単位(およそ 1km メッシュ)で提供される場合が多いことを考慮すると、これにあわせた空間分解能(1km メッシュ)で、排出量を集計することが妥当であると考えられる。

## (3) 時間分解能

従来、オキシダントの高濃度は夏季、SPM については、夏季および冬季に高濃度事例の発生頻度が高かったため、環境省発生源では夏季および冬季を対象として排出量の推計を行っていた。今後もオキシダントや SPM の高濃度エピソードを解析対象とする場合には、同様に夏季・冬季別の発生源データで最低限シミュレーションが可能であるが、近年はオキシダントや SPM の高濃度が春季にも現れる点や、将来的には計算機能力の向上により、年間シミュレーションも十分可能となることが予測されることを考慮すると、月別の発生源データの整備が望ましい。また、最近議論されているオキシダント濃度が週末に高くなる現象(ウィークエンドエフェクト)についてのシミュレーションを視野に入れる場合には、平日・休日別の発生源データも必要となる。なお、シミュレーションの対象としてオキシダントや SPM の高濃度エピソードの解析を行ううえでは、時刻別の排出量データが必須である。

本章でのこれまでの検討結果を踏まえ、今後整備することが望ましい発生源インベントリの仕様を表 5-5 にまとめた。

**表 5-5 目標とする発生源データの仕様**

対象成分	CMAQ 対応成分(表 3-1)
対象発生源	JCAP と同等(表 1-3)
対象領域	関東・関西が必須
対象年	H12 年度、H17 年度、H22 年度
空間分解能	3 次メッシュ単位(約 1km メッシュ)
時間分解能	月別・時刻別



## 6 海外から移流する汚染物質の影響と海外の排出インベントリ

### 6.1 粒子状物質と越境汚染の関係

春先に中国大陸から飛来してくる黄砂については、日本のSPM濃度に大きな影響を与えることは以前から指摘されている(環境省,2005)。特に日本海側の地方や九州地方では影響が大きく、例えば富山県では、2006年4月には黄砂の飛来により、環境基準を超えるSPMが観測された(図6-1:富山県環境科学センター、2006)。

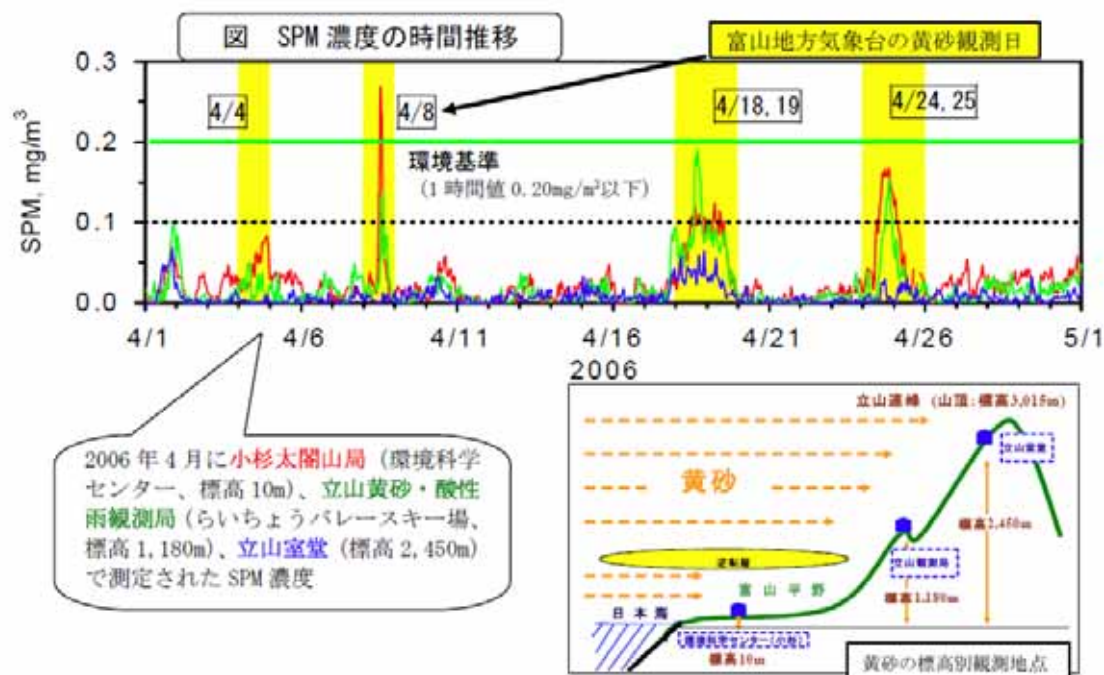


図6-1 富山県における黄砂飛来時のSPM濃度推移

黄砂イベント発生時の日本への影響の度合いについては、フィールド調査やシミュレーションにより種々の研究がなされ報告されている(文末の調査事例リスト参照)。ここでは、東アジア域の3次元シミュレーションモデル(CFOR3)による黄砂イベントを含む、越境汚染のシミュレーション例を表6-1(1)、粒子状SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>を含めた大陸からの硫黄化合物の沈着量の推定例を表6-2(2)に整理した。

表 6-1(1) 粒子状物質の越境汚染の報告例

論文タイトル	Characteristics of Asian aerosol transport simulated with a regional-scale chemical transport model during the ACE-Asia observation
著者名	S. Satake, I. Uno, T. Takemura, G. R. Carmichael, Y. Tang, D. Streets, N. Sugimoto, A. Shimizu, M. Uematsu, J.-Seok Han, S. Ohta
出典	Journal of Geophysical Research, 109, D19S22, 2004.
概要	ACE-Asia 集中観測期間中の対流圏エアロゾルの輸送と光学的深度が、CFORS 化学輸送モデルを使ってシミュレートされた。その結果、大陸からの移流に伴ういくつかの高濃度事例、エアロゾルの鉛直プロファイルやダストと硫酸塩輸送の強い相関をなど多く点で観測された特徴が再現された
シミュレーション	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ 気象モデルは RAMS を使用</li> <li>・ 計算領域は東アジア全体で水平解像度は 80km</li> <li>・ 排出量データは Streets <i>et al.</i>(2003)を利用。</li> <li>・ 集中観測が行われた ACE-Asia2001(2001 年春)を対象にシミュレーションを実施</li> <li>・ シミュレーションの結果と PM<sub>10</sub> の観測値は良く一致した。( Fig4) 硫酸塩、炭素成分を含め、粒子状物質が大陸から日本へ輸送される過程が再現された。</li> <li>・ 排出された炭素成分の多くが、計算領域を越えて輸送されることから、放射収支に大きな影響を与える( Fig.11)</li> </ul>

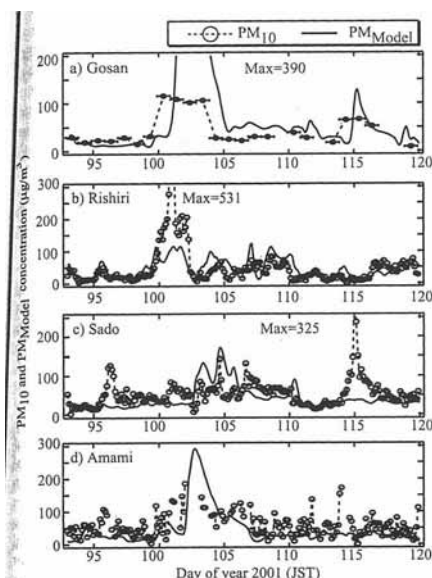


Figure 4. Time variation for simulated total aerosol concentrations ( $PM_{model}$ ) (by solid line) ( $\mu g/m^3$ ) and for observed  $PM_{10}$  concentrations ( $\mu g/m^3$ ) (open circle and dot line) for (a) Gosan, (b) Rishiri, (c) Sado, and (d) Amami.

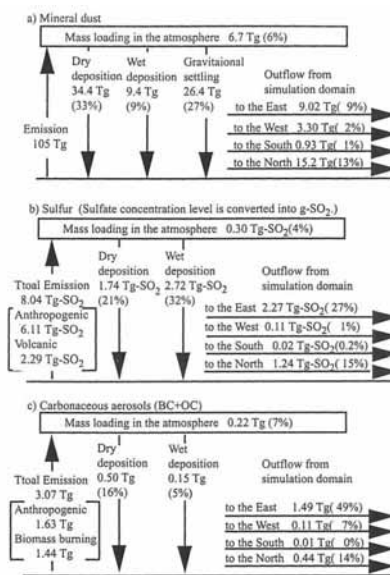


Figure 11. Regional budgets for (a) mineral dust, (b) sulfur, and (c) carbonaceous aerosols. Emission, deposition, and outflow are shown by arrows in Tg (Tg- $SO_2$  for sulfur cycle). Numbers in parentheses under each deposition and outflow indicate the ratio to emission.

表 6-1(2) 粒子状物質の越境汚染の報告例

論文タイトル	東アジアにおける硫黄化合物のソース・リセプター解析 - 地域気象モデルと結合した物質輸送モデルによるシミュレーション -
著者名	片山学, 大原利眞, 村野健太郎
出典	大気環境学会誌,39(4),200-217 (2004)
概要	地域気象モデルRAMS と結合した物質輸送モデルHYPACT を用いて東アジアにおける硫黄化合物の動態をシミュレートし、1995年7月と12月におけるソース・リセプター関係を定量化することにより、日本列島への沈着量の発生源地域別構成とその季節変動を解析した。
シミュレーション	<ul style="list-style-type: none"> <li>・計算領域は、東アジア域を含む東西 4800km、南北 4400km (80km 格子) 鉛直 23 層で上空 20km までの同一座標系と計算スキームで運用し、RAMS の各種気象パラメータを HYPACT に精緻に与える。( Fig.2 )</li> <li>・SO<sub>2</sub> 排出量は、中国、日本、南北朝鮮、台湾、モンゴルの人為起源は Klimont <i>et al.</i> (2001) による 1995 年推計結果、その他の国と海上人為起源は EDGAR3.2 (2003) による 1995 年推計結果、火山起源は藤田ら (1992) の結果を使用。</li> <li>・反応・沈着モデルは、市川ら (1994) 池田 (2001) による簡略モデルを、一部改良して使用。</li> <li>・側面・上部境界条件は、ECMWF の全球客観解析データを使用。</li> <li>・全国 6 気象官署と溝畑 (2004) の SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> の測定データとの比較によれば、時間変動などを良く再現している。</li> <li>・日本への硫黄沈着量の発源地域別寄与率は 7 月には火山 36%、日本 28%、中国 18%、朝鮮半島 12%、12 月には中国 58%、朝鮮半島 17%、日本 13%、火山 8% となり、季節によって大きく変化する。12 月には越境汚染の寄与率が 75% に達する。</li> </ul>

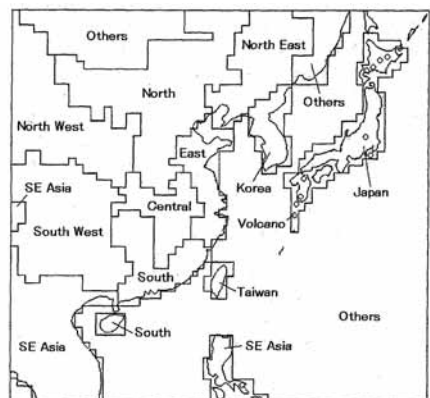


Fig. 2. Model domain and regional zone for source-receptor analysis by HYPACT. Circles denote the volcanoes having SO<sub>2</sub> emission.

これまでの報告例から、SPMのシミュレーションを行うにあたり、黄砂の影響(黄砂により環境基準を超過する可能性)を議論するためには、東アジア域からの越境汚染を考慮することが必須であるといえる。一方で、黄砂の影響を考慮しないのであれば、夏季については大陸からの移流の影響が小さくなるものの、平均的な濃度レベルには、無視し得ない影響を与えているものと考えられる。また、冬季のSPM高濃度事例においては、硫黄化合物の沈着量から推定される大陸からの寄与は大きくなるが、これまでのフィールド調査の結果からは関東における冬季の高濃度事例の発生原因としては、接地逆転層の形成などローカルな気象条件による一次排出粒子(主としてEC)の滞留や硝酸塩の粒子化によるものが支配的であると推測される。しかし、冬季についても平均的な濃度レベルを議論するうえでは、越境汚染の影響は大きいものと考えられるため、今後、モデルの計算精度を向上させていく過程では、後述するような海外の発生源インベントリを用いて、越境汚染についてもなんらかの考慮することが必要になるものと判断される。

## 6.2 オキシダントと越境汚染の関係

近年の日本におけるオキシダント濃度の上昇には、東アジアからのオキシダントまたはその前駆物質の越境汚染も寄与していることが指摘されている(秋元、2000; 大原ら、2003; 若松ら、2004)。表 6-2 に東アジア域からの越境汚染が日本のオキシダント濃度に与える影響についての報告例を示す。

表 6-2(1) オキシダントの越境汚染の報告例

論文タイトル	Surface ozone at four remote island sites and the preliminary assessment of the exceedances of its critical level in Japan
著者名	P. Pochanart, H. Akimoto, Y. Kinjo, H. Tanimoto
出典	Atmospheric Environment, 36, 4235 – 4250 (2002)
概要	<p>日本の4箇所の遠隔サイト(利尻、隠岐、沖縄及び小笠原)における最近の地表オゾンデータの解析結果は、東アジアの人為的排出が日本における大気境界層内のオゾン濃度に明確に影響していることを示している。リージョナルスケールの排出により、人為的に汚染された大陸の空気塊がシベリアやヨーロッパから各サイトに移流する秋季、冬季と春季の期間に、オゾン濃度の上昇が観測されている。ATO40とSUM06の暴露インデックスを用いたオゾン基準レベルの超過に関する予備的解析では、オゾン閾値が様々な地点や年で超過していた。東アジアにおける人為的排出の増加は、近い将来に状況をより悪化させる可能性がある。</p>
内容	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ リモートサイトのオゾン濃度は、春季に最大、夏季に低下する傾向がみられる ( Fig.3)。</li> <li>・ トラジジェクトリー解析の結果、夏季に濃度が低下するのは清浄な海洋からの移流の影響が大きくなるためと考えられる</li> <li>・ 一方、夏季以外のオゾン濃度の上昇は大陸からの人為的に汚染された空気塊の影響を受けている。</li> <li>・ 対流圏上層からのオゾンの沈降による地表オゾンの濃度への影響はそれほど大きくはなかった(&lt;7%)。</li> </ul> <div style="text-align: center;"> </div> <p>Fig. 3. Multi-year monthly averaged O<sub>3</sub> seasonal variations at Rishiri, Oki, Okinawa, and Ogasawara. The symbols indicate the average and the whiskers indicate <math>\pm 1</math> standard deviation. The periods of O<sub>3</sub> monitoring varied among sites from 1994 to 2000. The data at most sites were collected for the entire years except at Ogasawara where O<sub>3</sub> was monitored from July 1997 to August 1998.</p>

表 6-2(2) オキシダントの越境汚染の報告例

論文タイトル	Contribution of regional pollution and long-range transport to the Asia-Pacific region: Analysis of long-term ozonesonde data
著者名	M. Naja, H. Akimoto
出典	Journal of Geophysical Research, 109, D21306 (2004)
概要	<p>札幌、筑波、鹿児島及び那覇における長期間（1970～2002年）オゾンデータのバックトラジェクトリーに基づく解析が行われた。日本における1970年代から1990年代にかけての、地域的汚染塊のオゾン濃度レベル11～20%（5～11ppbv）の増加は、1990年代の中国におけるNO<sub>x</sub>排出の大きな増加のためと推測される。地域的汚染オゾンの1970年と1990年間の長期間傾向は、日本とヨーロッパで大きな違いはない。しかしながら、札幌でのユーラシア大気塊における1990年代中の下層対流圏の冬季増加傾向（年当たり0.2～0.4ppbv）は、ヨーロッパや北アメリカからの大陸間輸送によるものと示唆される。</p>
内容	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ トラジェクトリー解析の結果、夏季のつくばでは日本周辺の空気塊の寄与割合が高い。一方で札幌ではユーラシア大陸からの寄与が大きい（Fig.3）。</li> <li>・ 近年の日本におけるオゾン濃度の上昇は、中国・東アジアからのNO<sub>x</sub>排出量の増大によるものと考えられるが、排出量の急激な増加とオゾン濃度の上昇傾向は必ずしも一致していない（Fig.15）。</li> </ul>

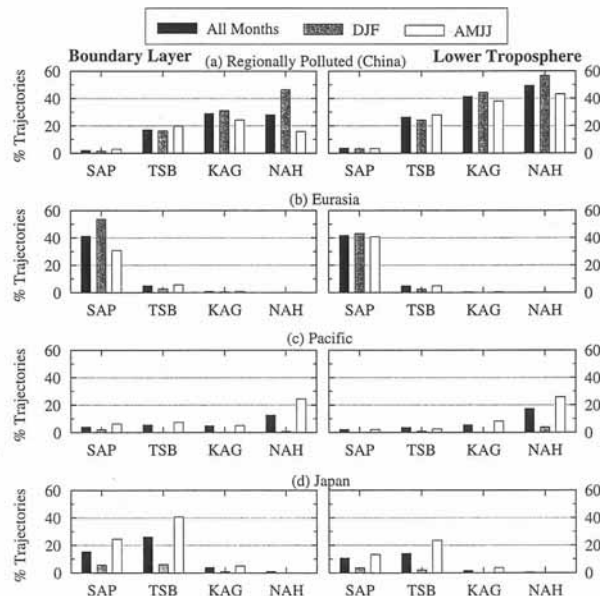


Figure 3. Relative contributions of air masses from (a) regionally polluted, (b) Eurasia, (c) Pacific, and (d) Japan regions at Sapporo (SAP), Tsukuba (TSB), Kagoshima (KAG), and Naha (NAH) in the boundary layer (left column) and lower troposphere (right column). Results are shown using data for all months, wintertime (December–January–February (DJF), when photooxidation is least active), and late spring/early summer (April–May–June–July (AMJJ), when it is most active). These estimates are made for days with valid ozone measurements.

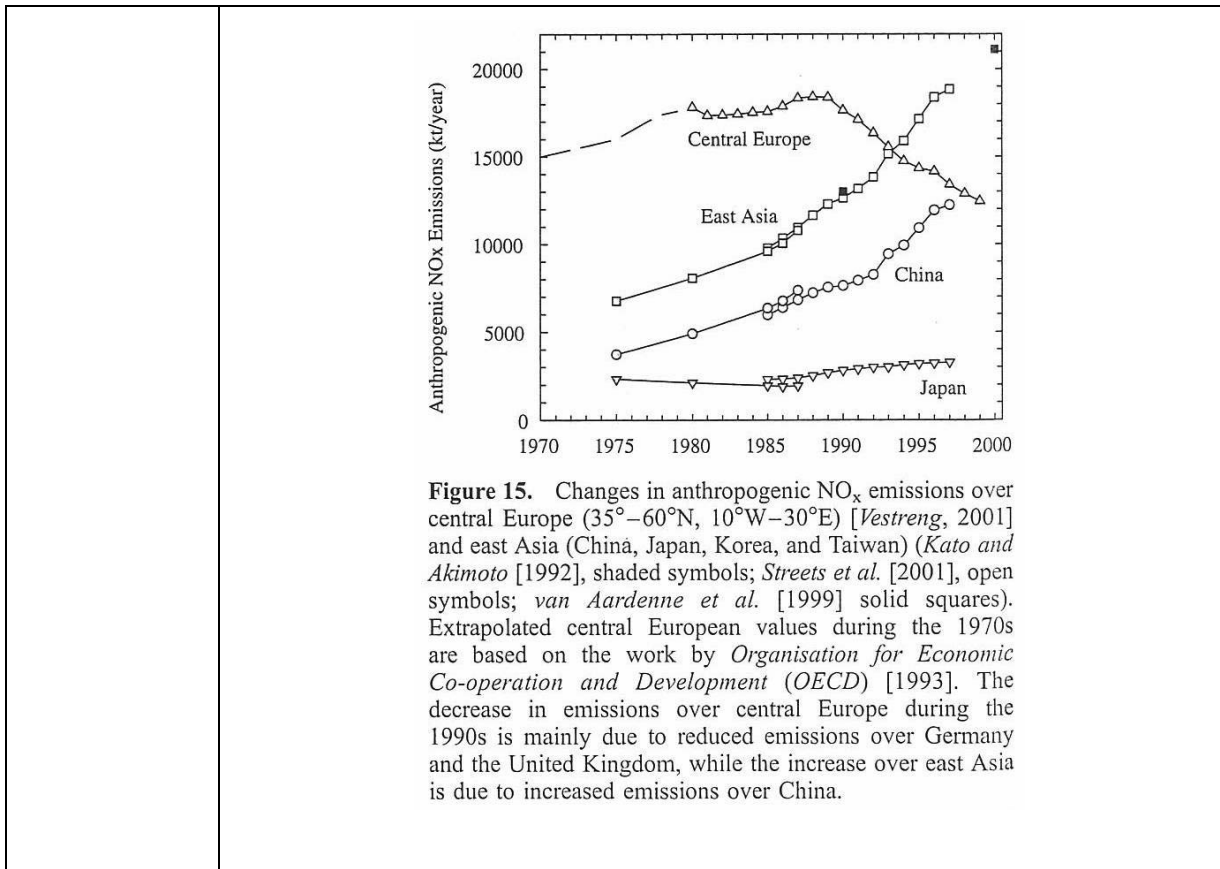


表 6-2(3) オキシダントの越境汚染の報告例

論文タイトル	Analysis of the seasonal variation of ozone in the boundary layer in East Asia using the Community Multi-scale Air Quality model: What controls surfacezone levels over Japan ?
著者名	K. Yamaji, T. Ohara, I. Uno, H. Tanimoto, J. Kurokawa, H. Akimoto
出典	Atmospheric Environment, 40, 1856 – 1868 (2006)
概要	東アジアのオゾン濃度について RAMS/CMAQ を使用してシミュレートした。東アジアにおける地表オゾン分布は、季節ごとの気象条件に応じてダイナミックに変化する。東アジアのリージョナルな排出によるオゾン生成の寄与についての季節変化を見積もった。

内容

- CMAQ の計算領域は東アジア全域(6240 × 5440km<sup>2</sup>)で、水平解像度は 80 × 80km
- 排出量データは Streets *et al.*(2003)の 1° × 1° のグリッド排出量を利用。
- 月別のオゾン濃度分布からは、日本では大陸からの移流が弱くなり、清浄な海洋大気の寄与が大きくなるため、濃度が低下する( Fig.3)。
- 日本を含む東アジアからの汚染物質の排出により生成されるオゾンは、夏季に最大となり、中国や韓国では最大 35ppbv に達する。一方で冬季については東アジア以外の領域からのオゾンまたは前駆物質の長距離輸送が寄与していることが示唆される。また、対流圏上層からのオゾンの沈降の寄与は小さいと考えられる。( Table 1)。

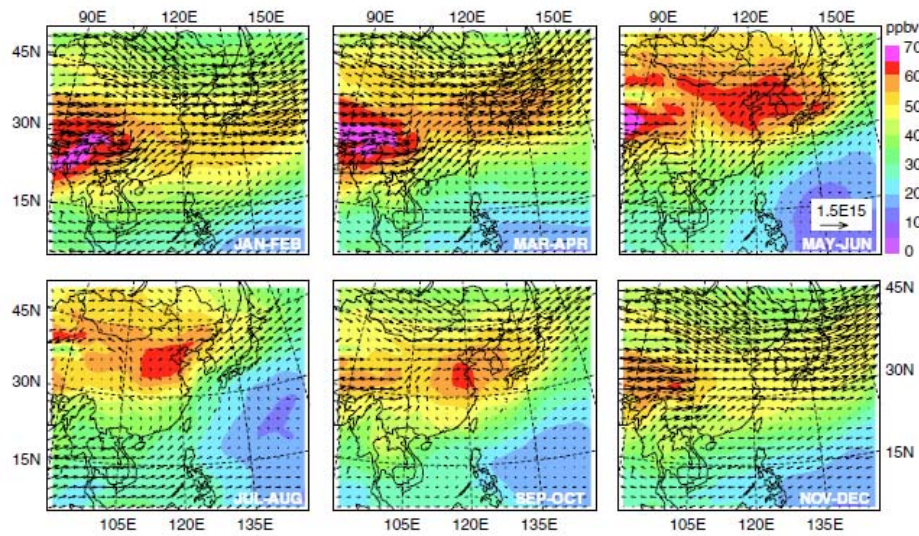


Fig. 3. Spatial distributions of ozone concentrations (ppbv, colors) and ozone fluxes (molecule cm<sup>-2</sup>s<sup>-1</sup>, arrows) in the boundary layer (below 2km), averaged over 2 months.

Table 1  
Ozone concentrations (C<sub>A</sub> and C<sub>B</sub>) and eastward (FRU) and upward (FRW) ozone flow rates

	O <sub>3</sub> concentration		C <sub>B</sub> /C <sub>A</sub> (%)	O <sub>3</sub> flow rate		(FRW/FRU) (%)
	C <sub>A</sub> (control) (ppbv)	C <sub>B</sub> (Asia_ emissions) (ppbv)		FRU (molecules s <sup>-1</sup> )	FRW (molecules s <sup>-1</sup> )	
Jan-Feb	47.1	5.9	12.5	4.36E+28 (13.1)	-2.80E+27 (5.2)	6.4
Mar-Apr	56.4	12.1	21.4	4.56E+28 (22.9)	-1.73E+27 (9.4)	3.8
May-Jun	58.1	19.7	34.0	1.96E+28 (36.1)	-9.09E+26 (16.1)	4.6
Jul-Aug	38.2	20.4	53.6	1.46E+28 (57.9)	2.50E+27 (24.6)	-17.1
Sep-Oct	53.3	16.4	30.7	1.76E+28 (26.8)	-7.63E+26 (13.1)	4.3
Nov-Dec	50.0	4.8	9.7	4.32E+28 (9.0)	-5.42E+27 (7.1)	12.5

C<sub>A</sub>: ozone concentrations on a latitudinal cross-section (Fig. 1) in the boundary layer (below 2km). C<sub>B</sub>: concentrations of chemical ozone produced by east Asian emissions on the latitudinal cross-section in the boundary layer. C<sub>B</sub>/C<sub>A</sub>: contribution ratios of east Asian emissions to ozone concentrations on the latitudinal cross-section. FRU: eastward ozone flow rates on a latitudinal cross-section in the boundary layer, numerals in brackets are contribution ratios of east Asian emissions (%). FRW: upward ozone flow rates at top of the boundary layer over Japan (closed by dotted line in Fig. 1), numerals in brackets are contribution ratios of east Asian emissions (%).



これまでの報告例から、日本のオキシダント濃度に与える越境汚染の影響については、バックグランド濃度を上昇させている要因となっていることは間違いないと判断される。しかし、この影響の度合いは、地域や季節により異なり、特に夏季については比較的影響が少ない。また、東アジアからの移流だけではなく、北日本や冬季については、ヨーロッパなどからの長距離輸送も影響しているものと考えられる。

したがって、オキシダント濃度のシミュレーションを実施するにあたって、年平均値の議論をする場合や、ある閾値以上の積算濃度(AOT40、SUM06 など)を議論する場合、あるいは 60ppb 以上の環境基準達成率を議論する場合は、越境汚染の影響を考慮することは必須であると判断される。一方で、夏季の都市域における高濃度エピソード(120ppb 以上)のみを計算対象とする場合には、ローカルな気象条件や発生源の状況が重要となり、越境汚染の影響は相対的に小さくなるものと考えられる。

今年度のテストシミュレーションについては、関東地方を対象としてSPMについては黄砂の影響を除いた、夏季及び初冬季の高濃度事例、オキシダントについては夏季の高濃度事例のみを対象とすることから、越境汚染を考慮するためのアジア域からのネスティングはしないこととした。ただし、今後(次年度以降)については、越境汚染を考慮したシミュレーションも想定し、次章で参考になるとと思われる海外の排出インベントリの情報について整理した。

### 6.3 海外の排出インベントリ

大陸からの越境汚染をシミュレーションで考慮するには、東アジア域を含む排出インベントリが必要となる。そこで、これまでに構築された海外の排出インベントリのうち、今後越境汚染を考慮する上で利用可能と思われるデータについて整理した。

基準年が比較的新しく、東アジア域を含むデータが整備されているインベントリの概要を表 6-3 に整理した。

表 6-3(1) 海外のインベントリの概要(対象発生源、グリッドサイズ、対象エリア、基準年)

発生源	TRACE-P	REAS	EDGAR	EAGrid2000	LTP
工業部門					
民生部門					
輸送部門					
農業					
バイオマス燃焼					
ごみ処分場					
下水処理場					
自然起源	-				
グリッドスケール(最小)	30s × 30s	0.5° × 0.5°	1° × 1°	30s × 45s	1° × 1°
対象エリア	東アジア	東アジア	全世界	東アジア	日中韓
基準年(最新)	2000	2000	2000	2000	1998

表 6-3(2) 海外のインベントリの概要(対象物質)

	TRACE-P	REAS	EDGAR	EAGrid	LTP
SO <sub>2</sub> (SO <sub>x</sub> )					
NO <sub>x</sub>					
CO					
NMVOG					
BC			-		*
OC			-		
NH <sub>3</sub>					
その他(温室効果ガス)					-

\*PM10,Dust として集計

(1) TRACE-P

TRACE-P および ACE-Asia プロジェクトのデータ解析、シミュレーションモデルの開発のために構築された。作成されたインベントリは、Sateke *et al.*(2004) 表 6-1(1)や Yamaji *et al.*(2006) 表 6-2(3)でシミュレーションに用いられた。排出量の集計結果の例を図 6-2 に示す。

出典:

- D.G. Streets, T.C. Bond, G.R. Carmichael, S.D. Fernandes, Q. Fu, D. He, Z. Klimont, S.M. Nelson, N.Y. Tsai, M.Q. Wang, J.-H. Woo, and K.F. Yarber, An inventory of gaseous and primary aerosol emissions in Asia in the year 2000. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 108, (D21) Art. No. 8809 (2003)
- [http://www.cgrer.uiowa.edu/EMISSION\\_DATA/index\\_16.htm](http://www.cgrer.uiowa.edu/EMISSION_DATA/index_16.htm)

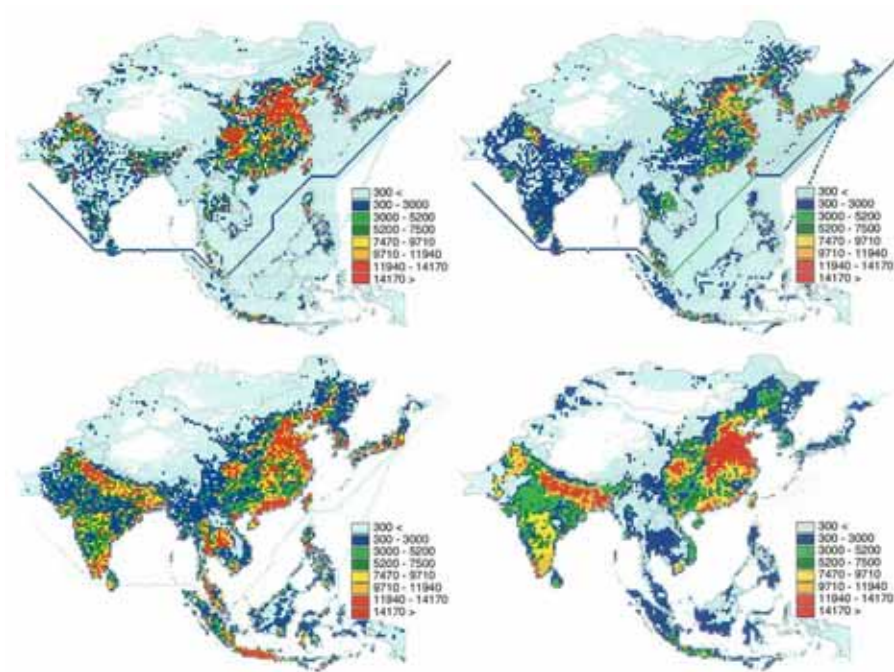


Figure 9. Area source emission distributions at 30 min  $\times$  30 min resolution of selected gaseous species: (top left)  $\text{SO}_2$ , (top right)  $\text{NO}_x$ , (bottom left) NMVOC, and (bottom right)  $\text{NH}_3$ . The scale is the same for each species in units of  $\text{Mg yr}^{-1}$  per grid cell.

図 6-2 排出量分布の例 (Street *et al.*, 2003)

## (2) REAS

地球環境フロンティア研究センターの大気組成変動予測研究プログラムにより、作成されたインベントリ。一部 1995 年版 EDGAR(後述)のデータベースをリバイスして集計されている。地球温暖化や大気中微量成分の変動を予測するモデルで利用することを想定。現在、国立環境研でのシミュレーションで使用。図 6-3 に、NMVOC の排出量集計結果を示す。

出典

- <http://www.jamstec.go.jp/frsgc/research/d4/emission.htm>

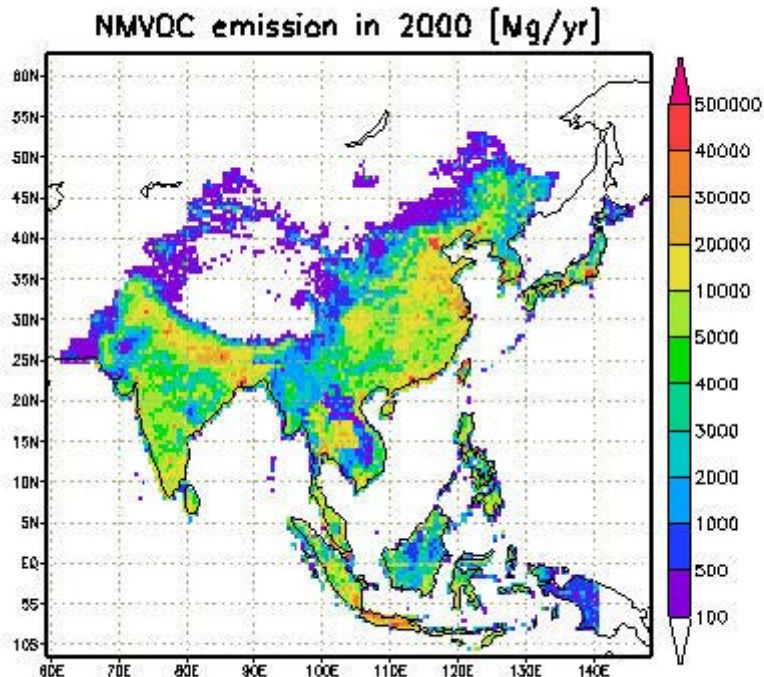


図 6-3 NMVOC の排出量集計結果

(<http://www.jamstec.go.jp/frsgc/research/d4/emission.htm>)

(3) EDGAR

ヨーロッパの複数の研究機関 MNP(オランダ)、TNO(オランダ)、RC-IES(イタリア)、MPIC-AC(ドイツ)によるジョイントプロジェクトにより作成された。地球温暖化やオゾン層の破壊などグローバルスケールの大気環境モデルで利用することを想定した全球のグリッド排出量データベース。片山ら(2001) 表 6-1(2)で使用実績がある。

図 6-4 に排出量の集計結果の例を示す。

出典

- <http://www.mnp.nl/edgar/model/v32ft2000edgar/>

(4) EAGrid

神成らにより作成された東アジア域のインベントリデータ。当初 1995 年ベースで集計されていたものが、その後 2000 年ベースに更新されている。国立環境研究所と京都大学の共同研究により、開発されたアジア太平洋統合評価モデル(AIM)で使用実績がある他、RAMS/HYPACT による東アジア域における硫黄化合物と窒素酸化物のソース・リセプター解析に用いられた。

出典

- [http://www-iam.nies.go.jp/aim/AIM\\_workshop/11thAIM/Session9/9-2-AIMAIR2005\\_Fujiwara.pdf](http://www-iam.nies.go.jp/aim/AIM_workshop/11thAIM/Session9/9-2-AIMAIR2005_Fujiwara.pdf)
- [http://www.suiri.tsukuba.ac.jp/terc\\_em02/terc\\_em02\\_10.pdf](http://www.suiri.tsukuba.ac.jp/terc_em02/terc_em02_10.pdf)
- <http://www.iiasa.ac.at/rains/meetings/7thMICS-Asia/papers/kannari.pdf>

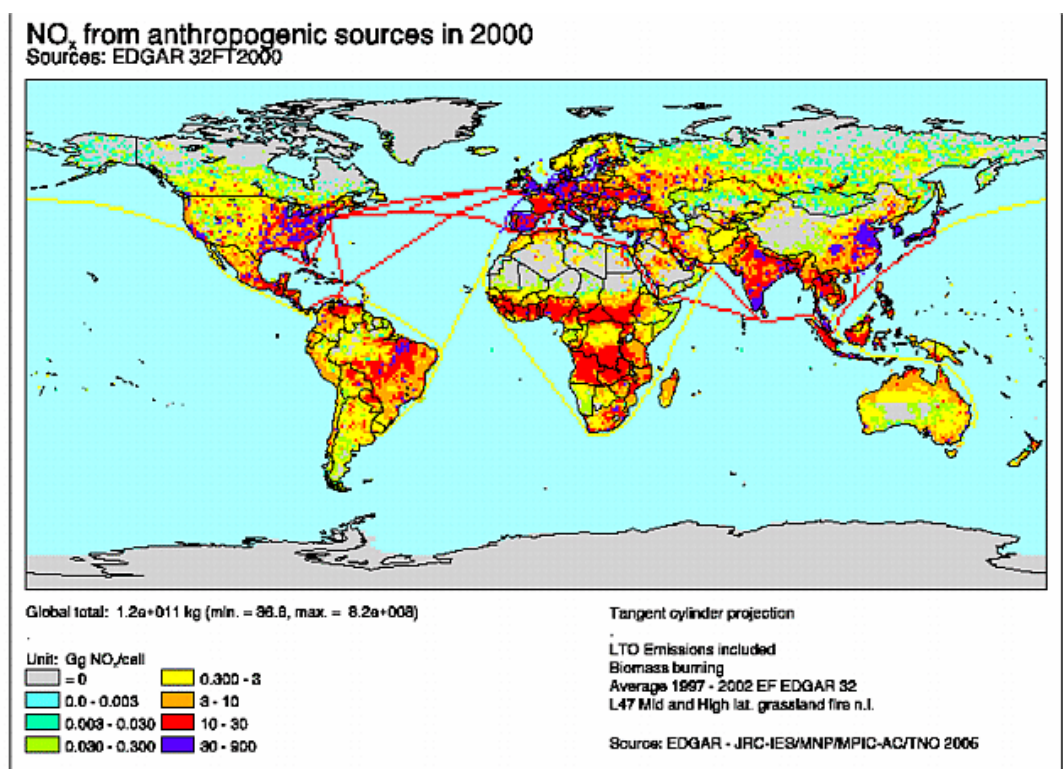


図 6-4 NO<sub>x</sub> の排出量集計結果( <http://www.mnp.nl/edgar/model/v32ft2000edgar/>)

### (5) LTP

日中韓 3 カ国による長距離大気汚染(LTP)専門家会合における国際共同調査への対応のために環境省が平成 11 年度に整備したインベントリーデータ。UNDP(国連開発計画)の東アジア諸国向け排出インベントリー作成マニュアル(ドラフト)に準拠して推計。日本国内の集計結果については、報告書があるが、中国、韓国のデータについては、Web サイトでは公開されていない。

出典:

- <http://eng.nier.go.kr/eng/index.html>

図 6-5 に表 6-3 に整理した、5 つのインベントリーのうち、LTP を除いた 4 つについて、中国の排出量(2000 年)の集計結果(NO<sub>x</sub>、SO<sub>2</sub> および VOC)を比較した(LTP については日本以外の排出量推計結果未入手のため)。

図 6-5 より、物質別に比較した場合、NO<sub>x</sub> についてはインベントリ間の差は比較的小さいが、SO<sub>2</sub> と NMVOC については、差が大きい。特に、EAGrid で集計されている NMVOC は、他のインベントリと比較すると推計値は突出して大きくなっている。これは、燃烧系からの NMVOC の排出係数を中国国内の小規模炉の使用実態を反映して、従来よりも大きな値に設定したためであると考えられる。なお、Street *et al.*(2003)によると中国における排出量の推計誤差範囲(95%信頼区間)は、NO<sub>x</sub> について ±23%、SO<sub>2</sub> について ±13%、NMVOC については ±59%とされており、SO<sub>2</sub> と NMVOC については、誤差範囲を考慮しても差が大きいと言える。

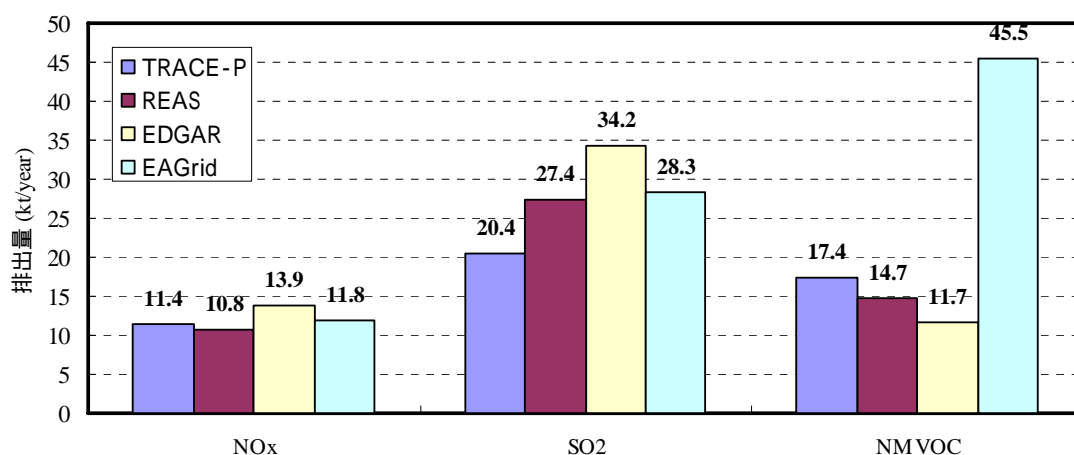


図 6-5 NO<sub>x</sub>・NMVOC の中国における排出量集計結果の比較

#### 大陸からの越境汚染調査事例リスト(本文で取り上げたものを除く)

M. Liu, D.L. Westphal, S. Wang, A. Shimizu, N. Sugimoto, J. Zhou, Y. Chen, A high-resolution numerical study of the Asian dust storms of April 2001, *Journal of Geophysical Research*, 108, ACE21-1 – ACE21-21 (2003)

包括的なダストエアロゾルモデルが開発され、本モデルを 2001 年 4 月のアジア砂嵐(ゴビ砂漠とタクラマカン砂漠起源)の事例に使用したところ、その性能は衛星写真や PM<sub>10</sub> の観測値などにより証明された。質量的見積では、75%がアジア砂漠に再び堆積し、20%が非砂漠地域に堆積し、1.6%が中国と日本海に沈着することが示された。

I. Uno, G. R. Carmichael, D. G. Streets, Y. Tang, J. J. Yienger, S. Satake, Z. Wang, Jung-Hun Woo, S. Guttikunda, M. Uematsu, K. Matsumoto, H. Tanimoto, K. Yoshioka, T. Iida, Regional chemical weather forecasting system CFORS: Model descriptions and analysis of surface observation at Japanese island stations during the ACE-Asia experiment, *Journal of Geophysical Research*, 108, ACE36-1 – ACE36-17 (2003)

CFORS は野外実験計画や観測値の解釈や事後解析の目的で設計された。このシステムはリージョナルな化学輸送モデルや RAMS 内に構築されたオンラインシステムを統合したものである。CFORS の適用結果は、硫黄酸化物、BC や CO の人為起源汚染物質及びラドンやミネラルダストを含んだ自然構成物の両者の時間変化についての説明に役立つ。総観的スケールの天気変化は、東アジアの春季における大陸スケールの汚染物質輸送に重要な役割を演じていることが認められた。

I. Uno, H. Amano, S. Emori, K. Kinoshita, I. Matsui, N. Sugimoto, Trans-Pacific yellow sand transport observed in April 1998: A numerical simulation, *Journal of Geophysical Research*, 106, 18331 – 18344 (2001)

1998 年 4 月に発生した、アジア大陸から日本と北アメリカへの黄砂輸送事例をシミュレートした。地域スケール気象モデルと連動した新オンラインダストトレーサモデルが開発されこの砂嵐事例に適用した。自然起源のミネラルダストとアジアで放出された人為起源のトレーサ物質はともに、排出地域は異なっても同時に輸送されることがわかった。

K. Matsumoto, Y. Uyama, T. Hayano, H. Tanimoto, I. Uno, M. Uematsu, Chemical properties and outflow patterns of anthropogenic and dust particles on Rishiri Island during the Asian Pacific Regional Aerosol Characterization Experiment (ACE-Asia), *Journal of Geophysical Research*, 108, ACE34-1 – ACE34-15 (2003)

大陸のエアロゾルの化学特性と輸送メカニズムを解明するため、2001 年の 3～5 月に実施した集中的な測定が行われた。これにより、 $\text{nss-SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NH}_4^+$ 、 $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{nss-Ca}^{2+}$ 等の動態についての測定データを取得した。

K. Osada, M. kido, H. Iida, K. Matsunaga, Y. Iwasaka, M. Nagatani, H. Nakada, Seasonal variation of free tropospheric aerosol particles at Mt. Tateyama, central Japan, *Journal of Geophysical Research*, 108, ACE35-1 – ACE35-9 (2003)

中央日本の立山において、1999 年 1 月から 2002 年 11 月まで、大気中エアロゾル粒子の粒径分布とオゾン濃度を測定した。測定結果から、日本近くの黄海上の夏季における大気の停滞、三宅島の  $\text{SO}_2$  の排出、黄砂などが影響していることがわかった。

M. Takigawa, K. Sudo, H. Akimoto, K. Kita, N. Takegawa, Y. Kondo, M. Takahashi, Estimation of the contribution of intercontinental transport during the PEACE campaign by using a global model, *Journal of Geophysical Research*, 110, D21313 (2005)

3次元化学輸送モデルを使用して、オゾンとその前駆物質及び非メタン炭化水素の地球的分布予測システムを新たに開発した。本モデルは、NCEPの気象データ及び毎日の化学種分布週間予報により運用される。本モデルはPEACEキャンペーンの毎日の飛行計画及び2002年1月と3~5月の航空機測定に、それぞれ適用された。この結果、汚染物質の大陸間輸送分布などを再現できることが示された。

O. Wild, P. Pochanart, H. Akimoto, Trans-Eurasian transport of ozone and its precursors, *Journal of Geophysical Research*, 109, D11302 (2004)

ヨーロッパ及びアジア大陸を横切る大気の大規模輸送は、ヨーロッパと北アメリカ方面の風上から北東アジアへ相当量のオゾン及び他のオキシダント類をもたらす。ヨーロッパの前駆物質発生源からのオゾンの形成と輸送についての化学輸送モデルで、ユーラシア大陸へのインパクトの広がりについて調査した。

P. Pochanart, J. Hirokawa, Y. Kajii, H. Akimoto, M. Nakao, Influence of regional-scale anthropogenic activity in northeast Asia on seasonal variations of surface ozone and carbon monoxide observed at Oki, Japan, *Journal of Geophysical Research*, 104, 3621 - 3631 (1999)

隠岐(日本)で1994年3月から1996年2月に地表O<sub>3</sub>とCOの測定が実施された。トラジェクトリー解析などにより、北東アジアの人為的活動に伴う光化学オゾンなどを見積もったが、光化学オゾンの生成には大規模輸送の前駆物質の排出が非常に重要であるとの論点を支持することが示された。

G.R. Carmichael, I. Uno, M. J. Phadnis, Y. Zhang, Y. Sunwoo, Tropospheric ozone production and transport in the springtime in east Asia, *Journal of Geophysical Research*, 103, 10649 - 10671 (1998)

東アジア春季におけるオゾンの輸送と化学についてSTEM-地域スケール輸送化学モデルを用いて研究した。低気圧の通過に伴う東アジアで強いオゾンの沈降があった1987年5月1~15日の期間を対象として適用した。

M. Fujihara, S. Wakamatsu, K. Yamaguchi, M. Nakao, T. Tatano, T. Sagawa, Annual and seasonal variations in oxidant concentration in Matsue, Japan, *Atmospheric Environment*, 37, 2725 - 2733 (2003)

1989年1月から1997年12月の間で、西風が卓越する日本海沿岸に位置する松江において、地表オキシダント濃度の年々及び季節的傾向を調査した。オキシダント濃度の年々の増加率は、(韓国と中国が風上となる)西風時の方が、(日本が風上となる)南東から南西にかけての風向と比較して、大きくなっていった。これは、松江の西に位置する東アジアの、



特に韓国と中国における NO<sub>x</sub> 排出量の増加によるものと結論される。

S. Kato, Y.i Kajii, R. Itokazu, J. Hirokawa, S. Koda, Y. Kinjo, Transport of atmospheric carbon monoxide, ozone, and hydrocarbons from Chinese coast to Okinawa island in the Western Pacific during winter, *Atmospheric Environment*, 38, 2975 – 2981 (2004)

CO、O<sub>3</sub>と炭化水素の測定が、2000年の冬季に南日本の沖縄島で実施された。O<sub>3</sub>と散発的な高濃度 CO 間に負の相関が観測されるなど、観測された空気は、中国沿岸地域から速い速度で輸送された汚染物質に影響されていることが示唆された。

I. Mori, M. Nishikawa, H. Quan, M. Morita, Estimation of the concentration and chemical composition of kosa aerosols at their origin, *Atmospheric Environment*, 36, 4569 – 4575 (2002)

黄砂エアロゾルはアジア大陸上で起こる砂嵐によって大気中に巻き上げられたミネラルダストから成る。黄砂粒子を大気中に巻き上げた強い砂嵐が、1998年4月14から15日にかけて中国の Badain Jaran 砂漠で起こった。その輸送ルート上の中国と日本の7箇所で黄砂エアロゾルを捕集し、エアロゾルの質量濃度と化学組成濃度を調査した。

T. Ohara, I. Uno, S. Wakamatsu, K. Murano, Numerical simulation of the springtime trans-boundary air pollution in East Asia, *Water, Air, and Soil Pollution*, 130, 295 – 300 (2001)

1993年4月の事例を対象に、地域気象モデルと化学輸送モデルにより東アジアにおける越境大気汚染を裏付けるための数値シミュレーションを行った。その結果、以下の点が示された。(1)硫酸塩エアロゾル、硝酸塩エアロゾル及びオゾンのような大気汚染物質が、総観的気象条件下でアジア大陸から日本列島に輸送されている。(2)越境大気汚染物質は日本の都市の大気汚染を増加させている。(3)将来、日本の大気質は開発途上のアジアにおいて増加する排出により大きく影響を受ける。

M. Zhang, I. Uno, Y. Yoshida, Y. Xu, Z. Wang, H. Akimoto, T. Bates, T. Quinn, A. Bandy, B. Blomquist, Transport and transformation of sulfur compounds over East Asia during the TRACE-P and ACE-Asia campaigns, *Atmospheric Environment*, 38, 6947 – 6959 (2006)

最近見積もられた東アジアの排出インベントリに基づき、2001年2月22日から5月4日の期間中の東アジアにおける硫黄化合物の輸送と変質について、RAMS及びModels-3/CMAQを用いて調査した。

鵜野伊津志, アジアスケールの越境物質輸送モデリング, 大気環境学会誌, 38, 1 – 12 (2003)

アジアスケールの越境大気汚染の研究、特にモデル研究についてまとめたもの。人為起源汚染物質の代表としての硫酸塩の化学輸送モデル結果をもとに総観規模の気象変化との関係、春季の大きな大気環境問題となっている黄砂の輸送モデル開発、さらに化学天気予報の活用についても簡潔にまとめた。

谷本直隆, 大原利眞, 鵜野伊津志, 菅田誠治, 植松光夫, 東アジアにおける炭素粒子動態のモデル解析, 大気環境学会誌, 39, 229 – 245 (2004)

RAMS/CMAQ によって、ACE-Asia 期間中である 2001 年 4 月の元素状炭素 EC と有機炭素 OC の動態を解析したもの。EC 及び OC の東アジアにおける時間変動パターンや空間的分布などの解析を行った。

#### 引用文献

環境省、大気環境モニタリングの在り方に関する検討会、大気環境モニタリングの在り方について報告書、平成 17 年 3 月

富山県環境科学センター、環境とやま、25、2006 年 6 月

秋元肇、光化学オキシダントの逆襲、大気環境学会誌、35、A48 – A51 (2000)

大原利眞・坂田智之、光化学オキシダントの全国的な経年変動に関する解析、大気環境学会誌、38、47 – 54 (2003)

若松伸司編、西日本及び日本海側を中心とした地域における光化学オキシダント濃度等の経年変動に関する研究、国立環境研究所 (2004)

## 7 これまでの VOC・SPM フィールド調査の整理

環境省や自治体では、これまでに VOC や SPM について、大気常時監視局によるモニタリングだけではなく、多くのフィールド調査を実施してきた(表 7-1)。ここでは、環境省で最近実施したフィールド調査を中心に、シミュレーションモデルの構築、検証に活用可能と考えられる事例について整理した。

### 7.1 VOC フィールド調査

#### (1) 揮発性有機化合物(VOC)に係る大気質調査(平成 16 年度、環境省)

関東(世田谷・さいたま・騎西・横浜・船橋)、関西(大阪・西ノ宮・寝屋川・京都)において、季節別の VOC 平均組成を把握するために調査を実施した。サンプリングはキャニスターで行い、GC-MS 法で 63 成分の定量を行った。本調査は成分別 VOC の季節別代表値を取得する目的で、各季 1 日おきに 24 時間サンプリングでのべ 10 日間(正味 5 日間)で調査を実施した。例として図 7-1 に、世田谷地点における夏季の測定結果を示す。この結果から、VOC の成分濃度や組成は日によって大きく変動していることがわかる。

また、図 7-2 に関東における季節別の VOC 平均濃度および組成を示す。関東では、春季、夏季は VOC 濃度が低く、秋季、冬季に高い傾向を示した。成分別割合に着目した場合、夏季はプロピレン～n-ペンタンの割合が比較的高く、自動車排ガスやガソリン蒸気の寄与が高い可能性が示唆された。一方冬季は、プロパンの割合が高かった。原因としては、冬季にプロパンガスの使用量が増大することを反映した可能性が考えられ

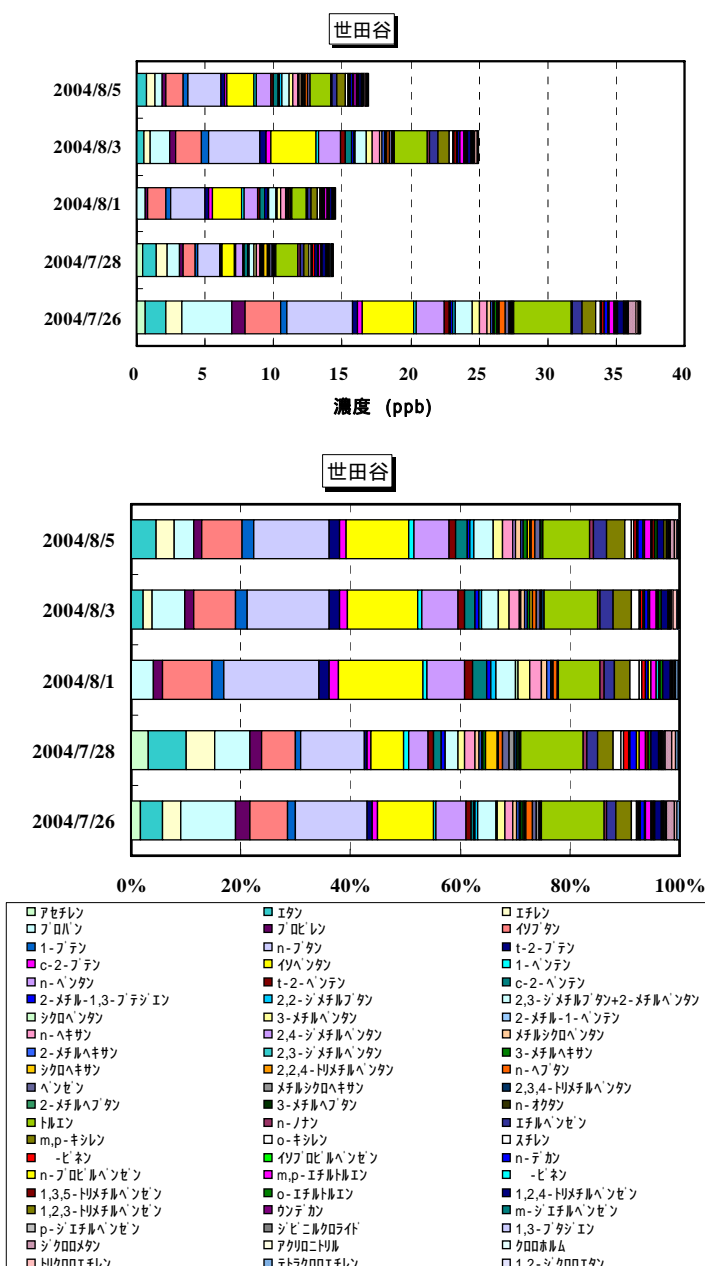


図 7-1 夏季世田谷における VOC 成分別濃度と組成

る。また、トルエンは年間を通じて、割合が高いが、特に秋季には大きな割合を占めた。春季、秋季の組成は類似しており、夏季、冬季の中間的特徴を示した。

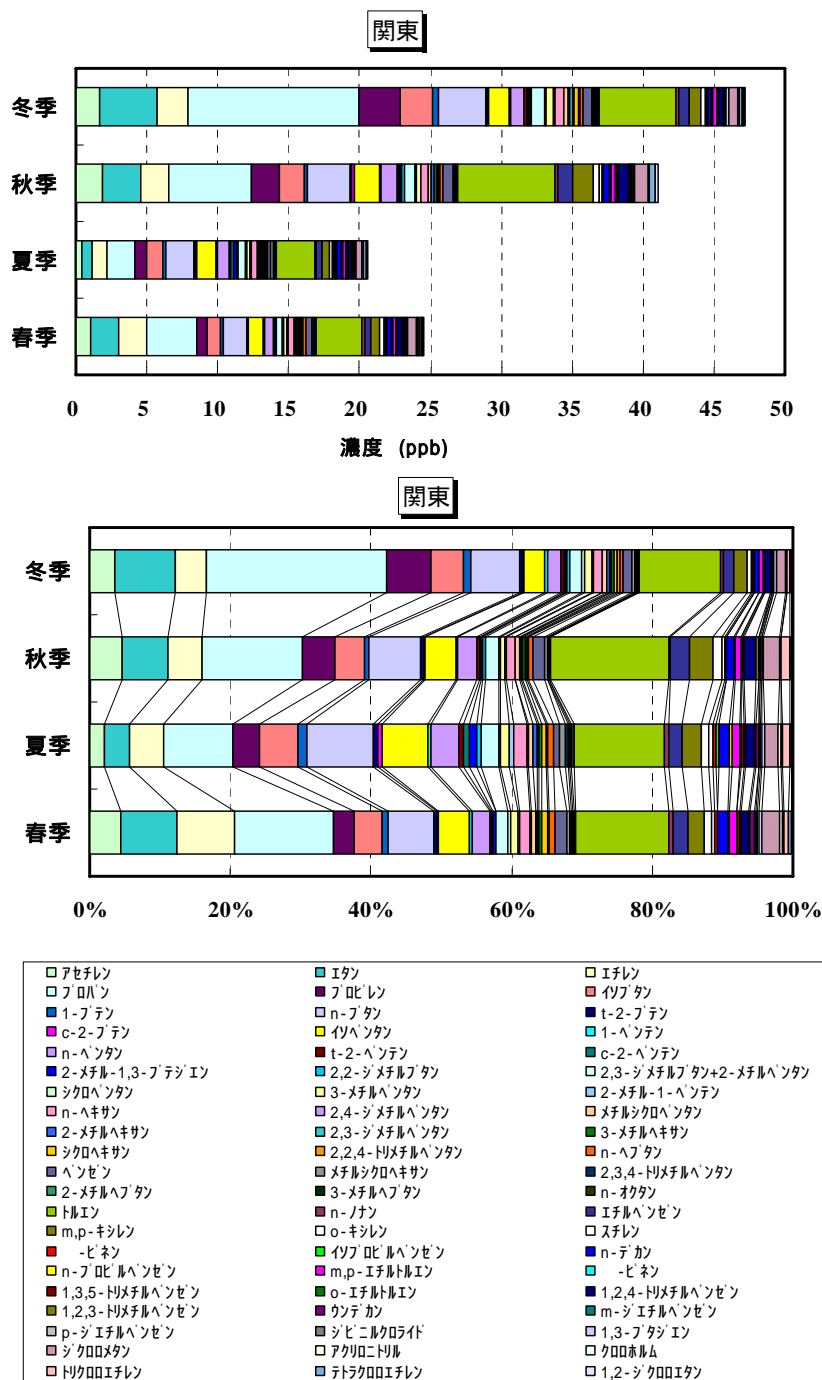
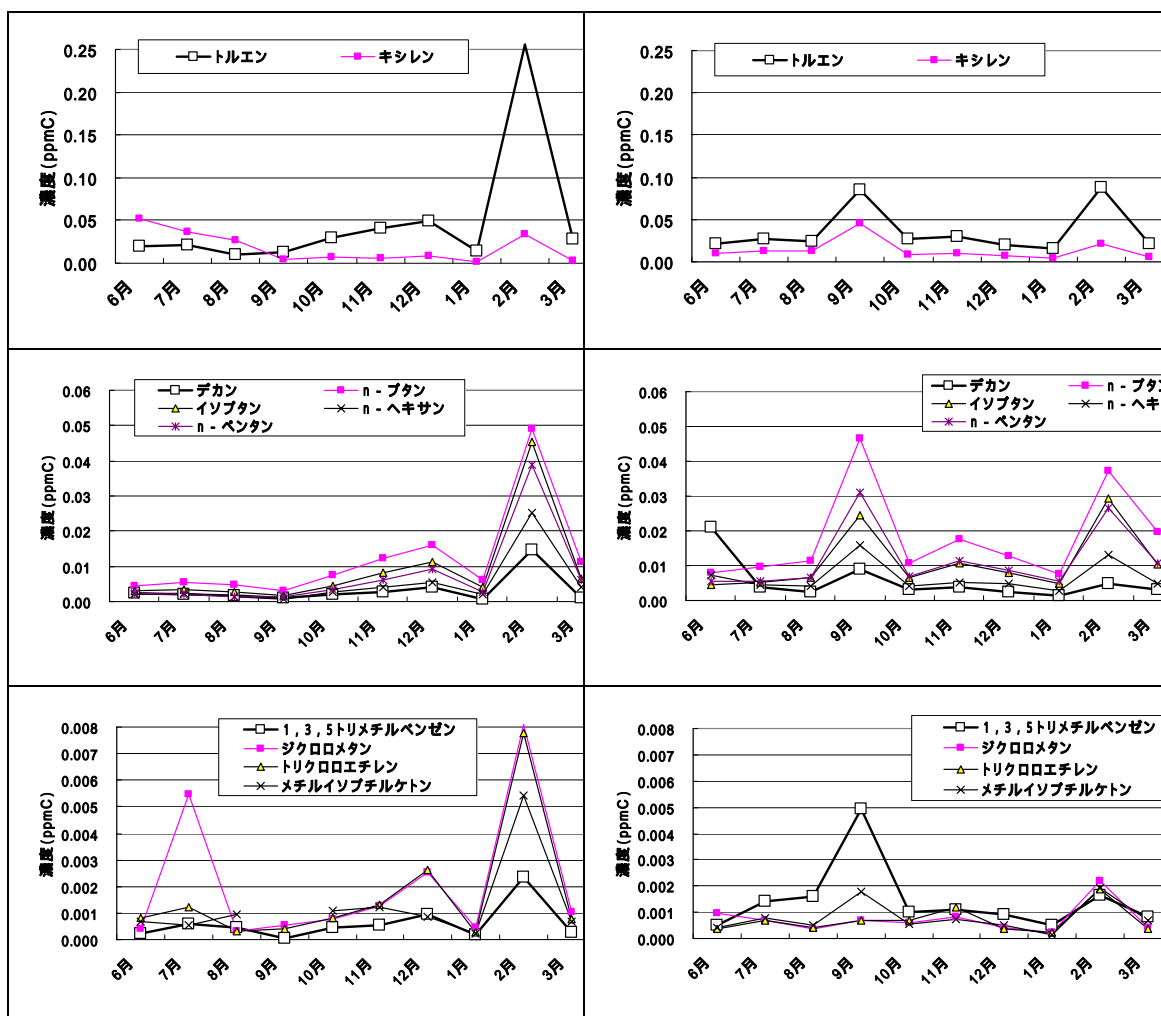


図 7-2 夏季関東における VOC 成分別濃度と組成

(2) 有害大気汚染物質及び揮発性有機化合物モニタリング実施事業(平成 17 年度、環境省)

平成 17 年度より、VOC の排出インベントリ上位 19 物質について、毎月(1 回)測定を行うものであり、各都道府県で実施されている。図 7-3 に東京都南千住(一般環境)と松原橋(道路沿道)における測定結果を示す。図 7-3 より一般環境、道路沿道で、濃度レベルはほぼ同等であり、本調査の対象物質については、発生源として自動車の寄与はそれほど大きくないことが示唆される。季節別変化に着目した場合、春季から夏季にかけて濃度が低く、秋季～冬季にかけて濃度が上昇する傾向がみられる。なお、松原橋では 9 月に多くの成分で高濃度が観測された点が特徴であるが、前節で示唆されたとおり、月 1 回のサンプリングでは、必ずしもその月の代表値としては扱えない可能性も考えられる。本事業は H18 年度以降も継続的に実施予定であり、データが蓄積されることにより、今後統計的な解析が可能になるものと期待される。



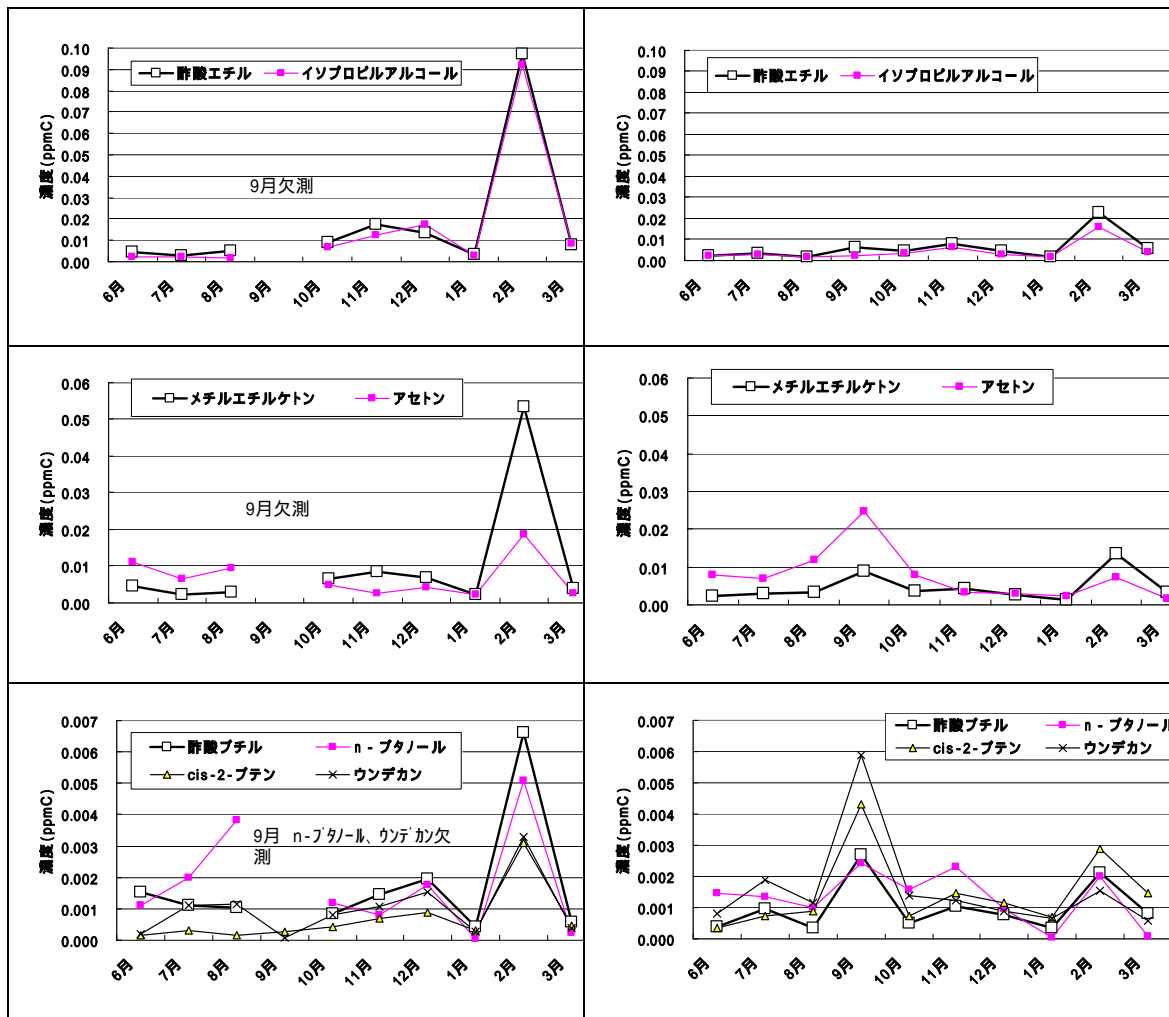


図 7-3 南千住(左)と松原橋(右)における測定結果

## 7.2 PM フィールド調査

### (1) 浮遊粒子状環境汚染実態解析調査(環境省、平成 13 年度、14 年度)

高濃度エピソードを狙って、関東地方を中心に夏季又は冬季に連続 5 日(6 時間サンプリング)のフィルター観測を行った。SPM、PM<sub>2.5</sub> の成分別濃度の時系列変化、観測期間中の成分別粒径分布、レーウィンゾンデによる気象観測等を実施した。

取得したデータの一部は、「4.VOC 粒子化モデル(化学反応モデル)の検討」の図 4-1 に示した。

### (2) 浮遊粒子状物質成分別環境濃度解析調査(環境省、平成 15 年度、17 年度)

関東・関西地域において、季節別の SPM 及び PM<sub>2.5</sub> の成分別の平均濃度・組成を把握するために調査を実施した。本調査は、各季 1 日おきに 24 時間サンプリングでのべ 10 日間(正味 5 日間)で調査を実施した。図 7-4 に世田谷地点における SPM の成分別濃度および組成の推移を示す。平成 15 年度と 17 年度を比較した場合、粒子濃度については変動が大きく、

一定の傾向はみられない。成分に着目した場合は、硫酸塩の割合が減少する一方で硝酸塩の割合が増加している傾向が示唆される。また、炭素成分については、平成15年の冬季以降は、それ以前と比べるとECの割合が減少しており平成15年10月から施行されたディーゼル車規制の影響を反映している可能性が考えられる。

本調査についても平成18年以降も継続される予定であり、今後データの蓄積により、より詳細なトレンドの解析が可能になるものと考えられる。

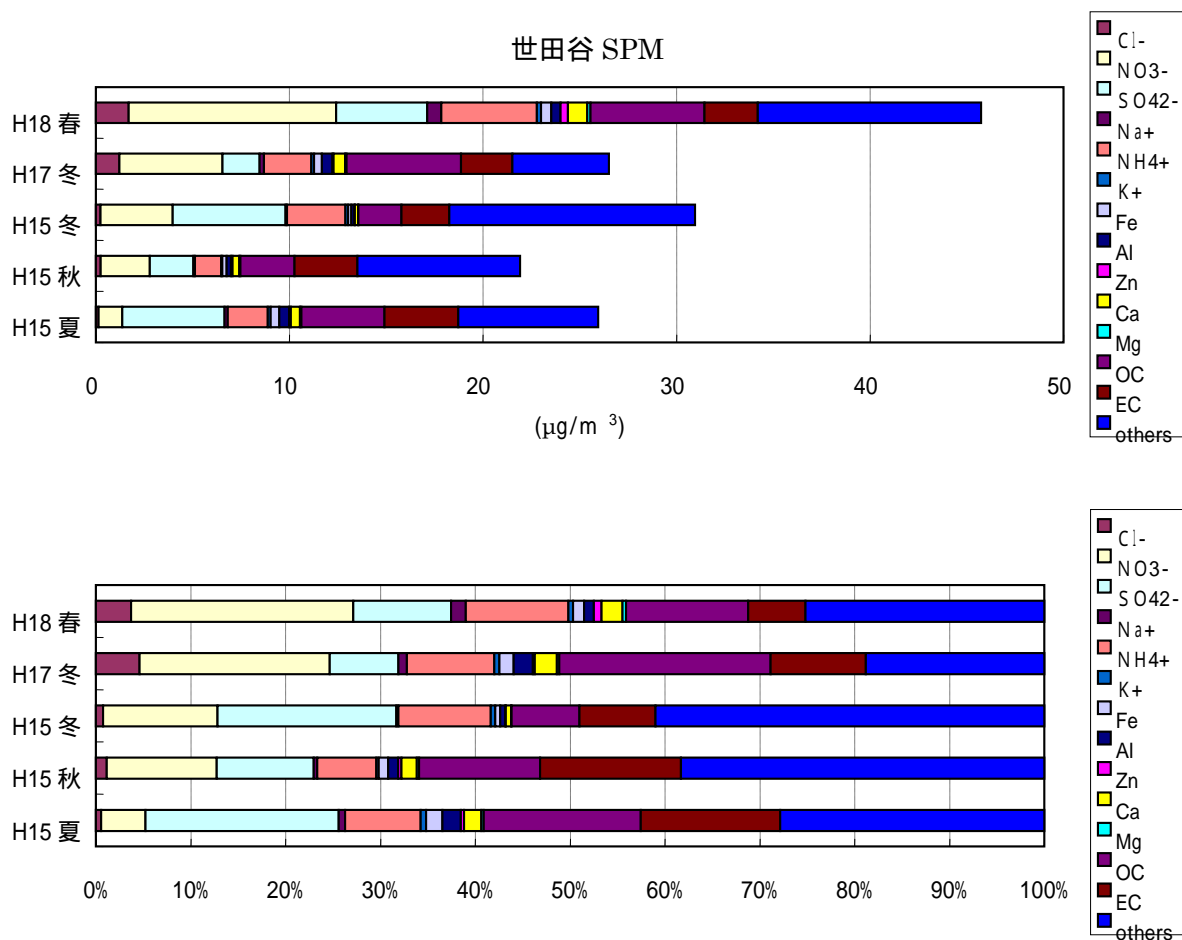


図 7-4 世田谷における SPM の成分別濃度・割合の推移

### 7.3 大気常時監視局データのトレンド

#### (1) SPM測定データのトレンド

図 7-5 に、関東 1 都 3 県の SPM 濃度の月別平均値の推移を示す。図 7-5 からは、自排局、一般局共に、SPM 濃度は平成 9 年度以降減少トレンドである(平成 15 年のディーゼル車規制の前から減少し始めている)。減少の割合は 自排局 > 一般局 であることから、自動車由来の SPM が減少していることが示唆される。また、平成 9 年～10 年度は、夏季(7 月前後)と初冬季(11 月前後)で、月平均濃度が上昇する傾向がみられたが、平成 12 年度以降は初冬季のピークが不明瞭になってきている。一方で、図 7-6 に示すとおり、NO<sub>x</sub> の月別平均値は依然として初冬季の濃度ピークが明瞭であるのとは対照的である。

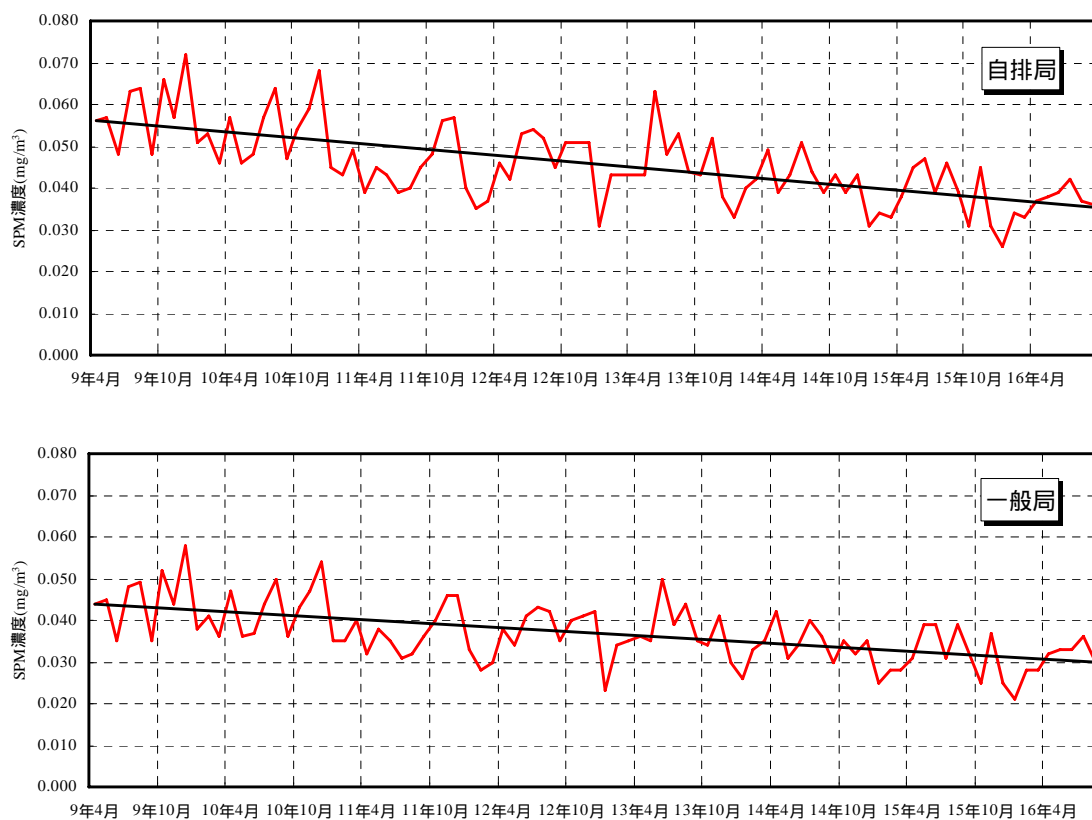


図 7-5 関東 1 都 3 県における SPM 月別平均濃度の推移



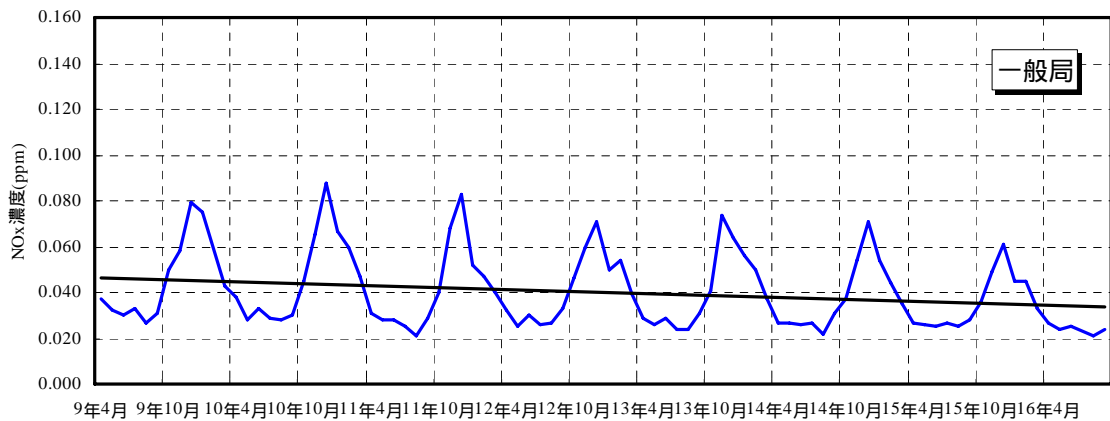
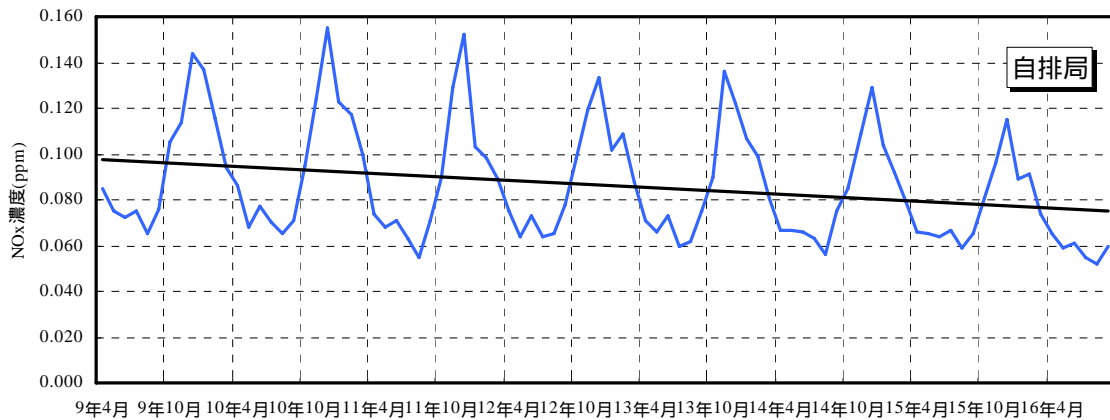


図 7-6 関東 1 都 3 県における NOx 月別平均濃度の推移

## (2) オキシダント測定データのトレンド

東京都で平成 16 年度に実施された光化学オキシダント対策検討会では、常時監視局の測定データから、オキシダント濃度のトレンド解析が詳細に報告されている(東京都、2005)。図 7-7 に関東地方における季節別の平均濃度の推移を示す。この図より、近年の年平均レベルでのオキシダント濃度の上昇は、春季～夏季における濃度上昇の影響が大きいと考えられる一方で、秋季～冬季の平均濃度については、あまり変化していないことが示唆される。また、地域別のオキシダント濃度に着目した場合には、1980 年代以降、高濃度の発生する地域が拡大し、広域化していることを指摘している(図 7-8)。さらに、1980 年と 2000 年で高濃度日の時刻別のオキシダント濃度に着目した場合には、ピークとなる時間帯は 14 時頃でほとんど変わっていないが、2000 年には 18 時以降も高濃度が継続する傾向があることを指摘している。

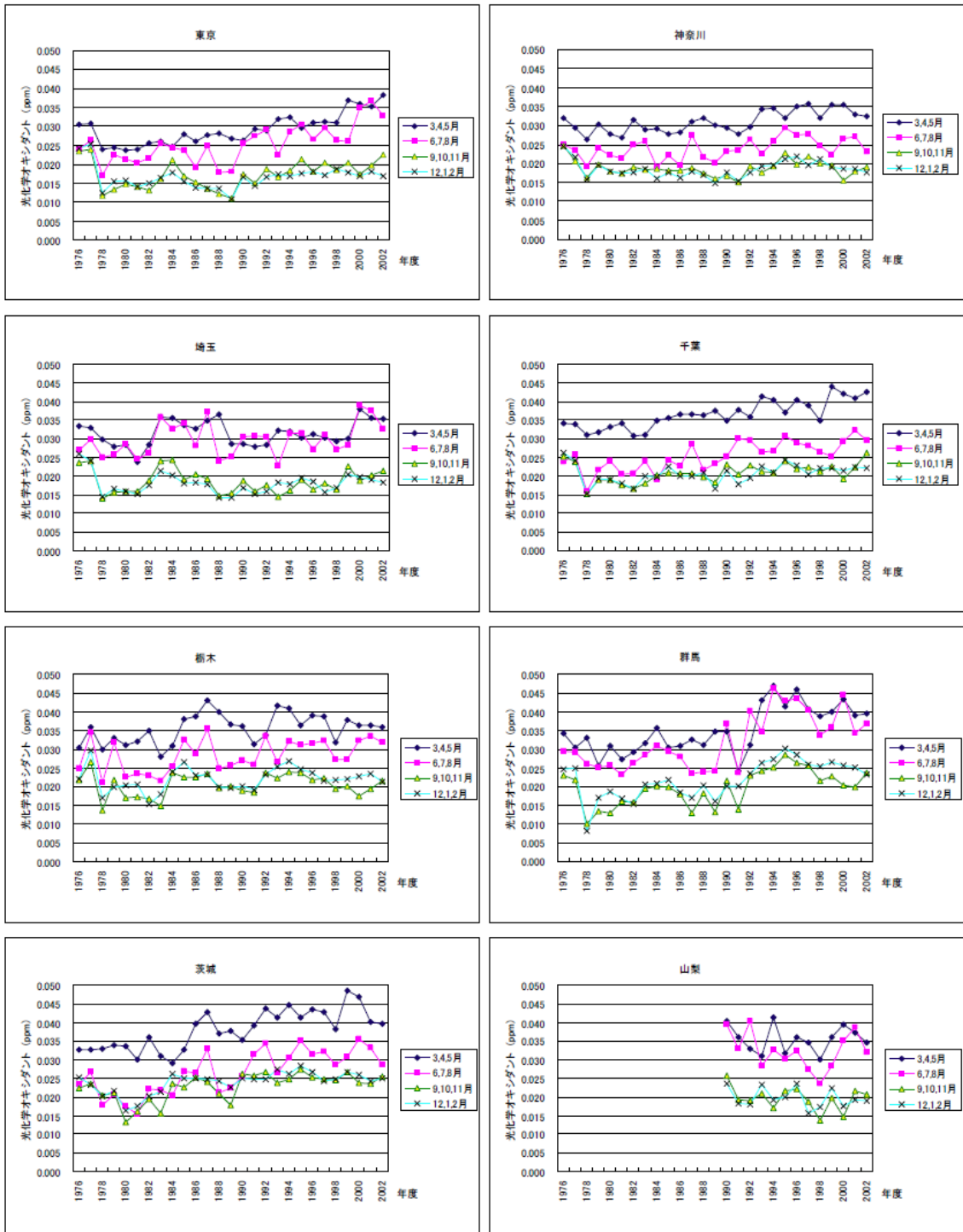


図 7-7 関東地方における季節別のオキシダント濃度の推移

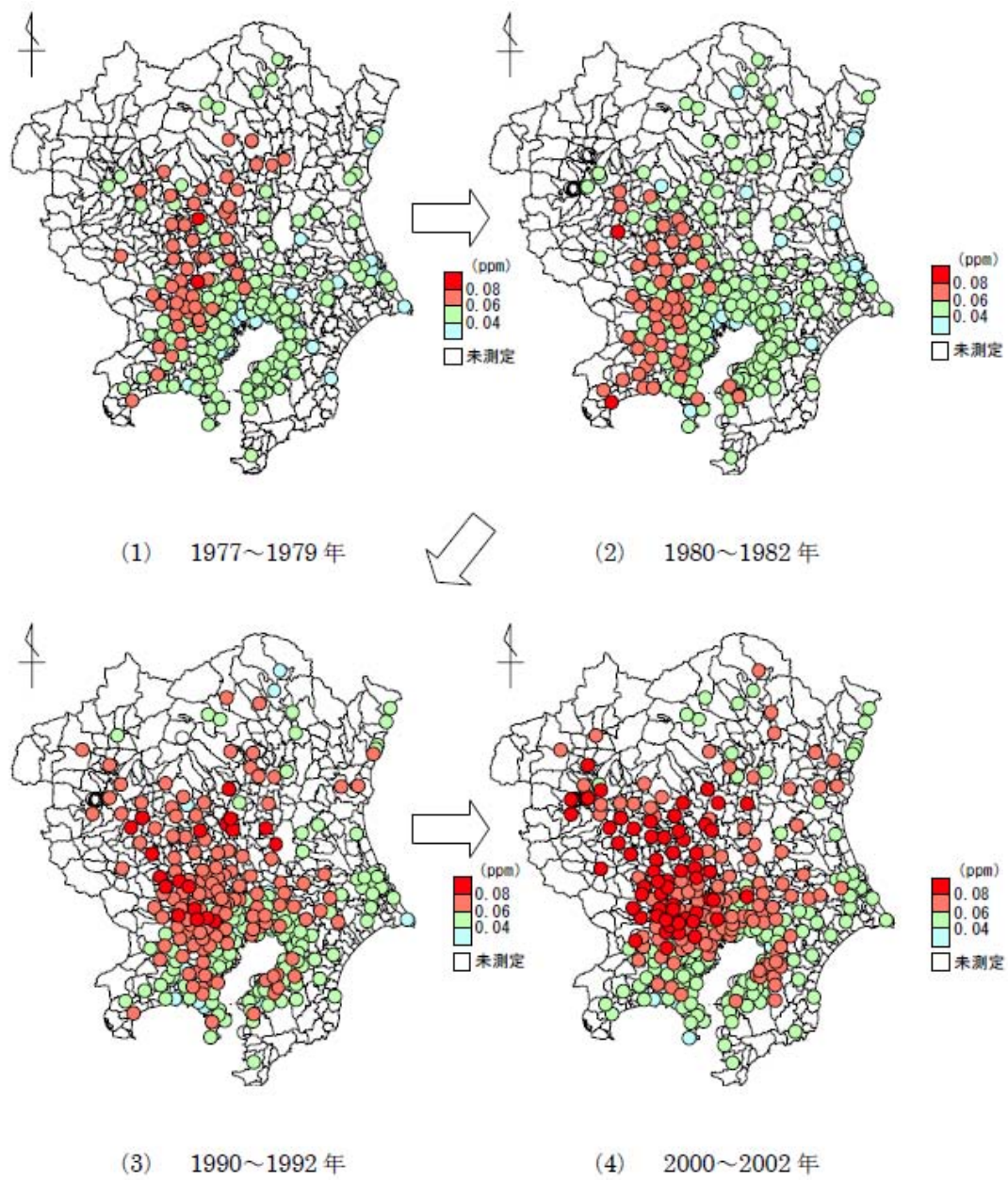


図 7-8 「高濃度日」における 13~16 時の光化学オキシダント濃度の 3 年平均値

常監局データによる SPM やオキシダント濃度の解析は、近年いろいろな機関、研究者によって報告されている(例えば大原ら、2003; 若松ら、2004; 吉門、2004; 水野、2006)。特にオキシダントについては、いずれの報告でも上昇トレンドが明らかである。一方でこの原因については、いくつかの仮説が提示されているが、支配的な要因が何であるかについては未だ議論が続いている。以下にこれまでに提示されている、オキシダント濃度上昇に寄与する可能性のある原因を挙げる。

- ・ 東アジア域の大気汚染物質排出量の増大
- ・ VOC/NO<sub>x</sub> 比の変化
- ・ オキシダント測定方法の切り替え
- ・ 成層圏オゾンの沈降
- ・ 局地的な気象パターンの変化

これらの可能性のうち、はじめの 2 点については、今後開発するシミュレーションモデルによっても検証が可能となる項目であると考えられる。

#### (4) 自治体で実施されたフィールド調査

平成 9 年から施行された改正大気汚染防止法により、現在各自治体では、有害大気汚染物質(重金属類を含めて全 19 物質)について毎月調査を行っている。ただし、現在対象となっている物質は主として健康影響の面から影響の大きいと考えられる物質が選定されているため、SPM や O<sub>x</sub> 生成に寄与すると思われる物質が必ずしも含まれていない。そこで、有害大気汚染物質モニタリング調査以外で、自治体(東京都・埼玉県)で過去に実施された(継続中も含む)、粒子状物質、VOC の組成分析を中心とした実態調査のリストを整理した(表 7-1)。

表 7-1 環境省・東京都・埼玉県で実施された PM・VOC に関するフィールド調査

実施機関	調査年度	調査項目	サンプリング	測定成分	概要
環境省	H13	PM	H13.8.1～H13.8.5 H13.11.19～H13.11.24	SPM,PM2.5,粒径分布,イオン成分,金属成分(Al,Fe),炭素成分,HNO3,HCl,SO2,NH3	関東地方の8地点(冬季は3地点)で調査を実施。SPM、PM2.5のフィルターサンプリングは4～6時間間隔(冬季は4～8時間間隔)で実施。また、同時にレーウィンゾンデやドップラーソーダによる高層気象観測も実施した。
環境省	H14	PM・(VOC)	H14.7.22～H14.7.27(関東) H14.8.5～H14.8.10(関西) H14.12.2～H14.12.7(関西のみ)	SPM,PM2.5,粒径分布,イオン成分,金属成分(Al,Ca),炭素成分,HNO3,HCl,SO2,NH3	関東地方の3地点、関西3地点で詳細調査を実施。SPM、PM2.5のフィルターサンプリングは24時間間隔で実施。また、同時にドップラーソーダによる高層気象観測も実施した。VOCについては夏季・冬季共に2日間実施。キャニスターによる24時間サンプリングで33成分を定量
環境省	H15	PM・(VOC)	H15.7.28～H15.8.6(関東) H15.8.20～H15.8.29(関西) H15.11.10～H15.11.19(関東) H15.10.20～H15.10.29(関西) H16.2.16～H16.2.25(関東) H16.1.26～H16.2.4(関西)	SPM,PM2.5,粒径分布,イオン成分,金属成分(Al,Ca,Fe,Zn),炭素成分	PMの季節別平均組成を調査する目的で、各季隔日24時間×5日(のべ10日間)のフィルターサンプリングを実施。調査地点は関東3地点、関西3地点。VOCは各季1日のみ実施。キャニスターによる24時間サンプリングで35成分を定量。炭素成分の分析方法はIMPROVEプロトコルに変更(H14まではCHNコーダーによる熱分離法)
環境省	H16	VOC	H16.5.17～H16.5.26(関東) H16.4.19～H16.4.28(関西) H16.7.26～H16.8.6(関東) H16.7.26～H16.8.8(関西) H16.10.14～H16.10.20(関東) H16.10.12～H16.10.20(関西) H17.1.24～H17.2.2(関東) H17.1.24～H17.2.2(関西)	VOC(63成分)	VOCの季節別平均組成を調査する目的で、各季隔日24時間×5日(のべ10日間)のキャニスターサンプリングを実施。調査地点は関東5地点、関西4地点。
環境省	H17～	VOC	毎月1回	VOC(19成分)	全国の自治体で従来の有害大気汚染物質モニタリング調査と同時に、VOC排出インベントリ上位19物質の測定を実施。また、メタン、アルデヒド類も同時に測定。
関東1都9県	S56～	PM	7月下旬～8月上旬 11月下旬～12月中旬	微小粒子,粗大粒子,イオン成分,金属成分(V,Al,Mn,Cl,Na,Ca,Br,Ti,Mg,Cu),PAH	関東地方を対象に夏季と冬季に微小粒子(PM2.5)と粗大粒子(PM10-PM2.5)をフィルター捕集して成分分析。サンプリングは各季72時間×5回。一般環境と道路沿道のデータあり。炭素成分は熱分離法、一般環境については金属元素を放射化分析で定量。スタート時は1都3県で実施。
東京都	S44～	PM	毎月1回	TSP,Cd,Cr,Fe,Mn,Ni,Pb,Zn	東京都内の7地点(H14以降は4地点)で月1回TSPをフィルター捕集(72時間サンプリング)して成分分析(炭素成分は非対象)。測定点は都心の一般環境～リモートサイト(小笠原)まで含まれる。また、H13までは東京タワーでの高度別観測についても実施。
東京都	H15～H16	VOC	毎月1回	VOC(54成分,アルデヒド類を含む)	国設東京(一般局)と八幡山(自排局)において月1回(24時間サンプリング)、アルデヒド類を含めた54成分のVOCを測定。
東京都	H16	VOC	H16.8.4～H16.8.18～22 H16.11.25～H16.11.28	VOC(58成分)	都内の5地点(一般環境)において、夏季と冬季にキャニスターGC-MS法により58成分のVOC組成を調査。サンプリングは夏季10日間、冬季4日間で、日中(9-17時)、夜間(17時-翌9時)の時間帯別に行った。なお、1989～1992年にかけても同種の調査を実施しているが、サンプリング方法や分析方法が異なる。
東京都	H16	VOC	-	VOC(51成分,アルデヒド類を含む)	シャーシダイナモ上で、使用過程車(ディーゼル・ガソリン)から排出される51成分のVOCを測定し、排出係数を算出。分析法は、固体捕集-熱脱離-GCMS法による。測定時の走行モードは東京都モードによる。
東京都	H11～H16	VOC	1時間毎 (観測期間は地点によって異なる)	VOC(17成分)	大気濃縮装置とGC-MSを組み合わせた連続VOC計により、16成分のVOCを連続測定(1日24回)。設置地点は白金(一般局)と八幡山(自排局)。
埼玉県	H13～H17	PM	5月中旬～下旬 7月下旬～8月上旬 10月中旬～下旬 12月上旬～中旬	SPM,PM2.5,イオン成分,金属成分(Ag,Al,As,Br,Ca,Cl,Fe,La,Mn,Sb,Sc,Se,Ti,V,Zn,K,Na他),炭素成分	県内3地点(一般環境、道路沿道)において、四季で粗大粒子(PM10-PM2.5)をフィルター捕集して成分分析(PM2.5については、SupperSASSでも別途捕集)。サンプリングは各季72時間×5回。金属元素については放射化分析、炭素成分については熱分離/光補正法(IMPROVEプロトコル)により定量。H13以前はスポット的に実施。
埼玉県	H17	VOC	H17.7.21 H17.7.29 H17.8.4	VOC(99成分、アルデヒド類、フロン類を含む)	Ox高濃度事例日にトレーサーガスを用いた広域拡散実験を実施。拡散実験と同期して、県内3地点で、3時間毎にVOC組成を調査。分析はキャニスター-GCMS法(アルデヒド類は除く)で行い、全99成分を分析(フロン類を含む)

## 引用文献

光化学オキシダント対策検討会、光化学オキシダント対策検討会報告、東京都、平成 17 年  
2 月

大原利眞、坂田智之、光化学オキシダントの全国的な経年変動に関する解析、大気環境学  
会誌、38、47-54 (2003)

若松伸司編、西日本及び日本海側を中心とした地域における光化学オキシダント濃度等の  
経年変動に関する研究、国立環境研究所 (2004)

吉門洋、近年の光化学オキシダント濃度変化の一要因、大気環境学会誌、39、188-199 (2004)

水野健樹、常時監視局の環境濃度の解析による関東都市部における最近の S P M 濃度経年  
変化とその原因に関する考察、大気環境学会誌、41、249-258 (2006)

## 8 テストシミュレーション

### 8.1 計算対象日の選定

今年度のテストシミュレーションではSPMおよびオキシダント(Ox)の高濃度エピソードの再現性チェックを目的とする。また、利用する発生源インベントリ(H14に環境省で作成)は、対象年が2000年(H12)であるため、計算対象日についても2000年から選定する方が整合がとれる。しかし、気象モデルによる計算の際に、境界値データとして用いる予定である、気象庁の客観解析データが入手出来るのは2001年3月以降である。また、SPMについては、H13年度(2001年)~H14年度(2002年)のフィールド調査により、時間帯別の粒子組成が得られており、モデル検証用のデータとして活用出来る。このようなことから、Oxについては2001年、SPMについては2001年~2002年を対象として、計算対象日を選定することとした。

図8-1に2001年の関東地方の大気常時監視局の測定データから算出した日単位のOx汚染スコア(1時間値が100ppb以上の延べ時間・局数と定義した)を示す。2001年のOx汚染スコア第1位は6月4日であった。この日のOx濃度の分布を図8-2、気象状況を図8-3に示す。図8-2、図8-3から、当日は午前中に陸風と海風がぶつかってできた収束線により、汚染物質が蓄積し、日中に海風が支配的になるに従って、内陸に移流していく過程で光化学反応が進行した、典型的なOx高濃度事例の1つであると考えられる。

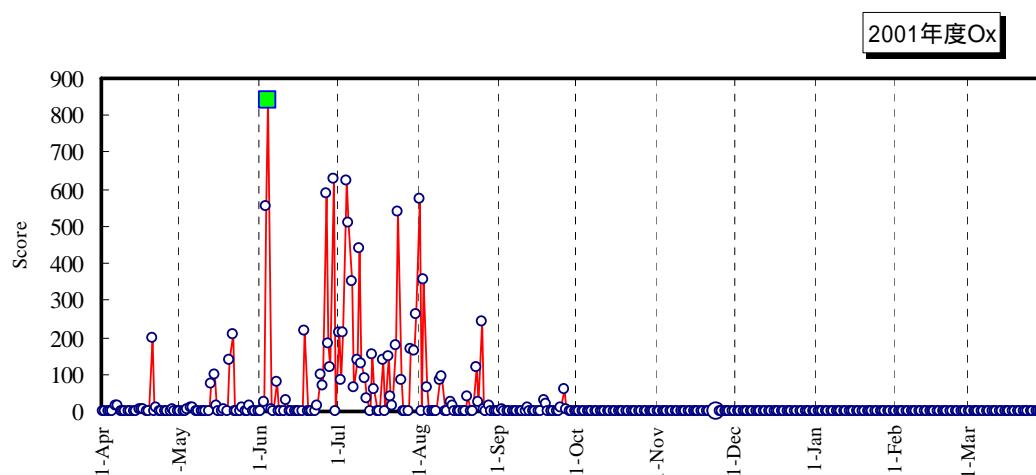


図8-1 2001年Ox汚染スコア

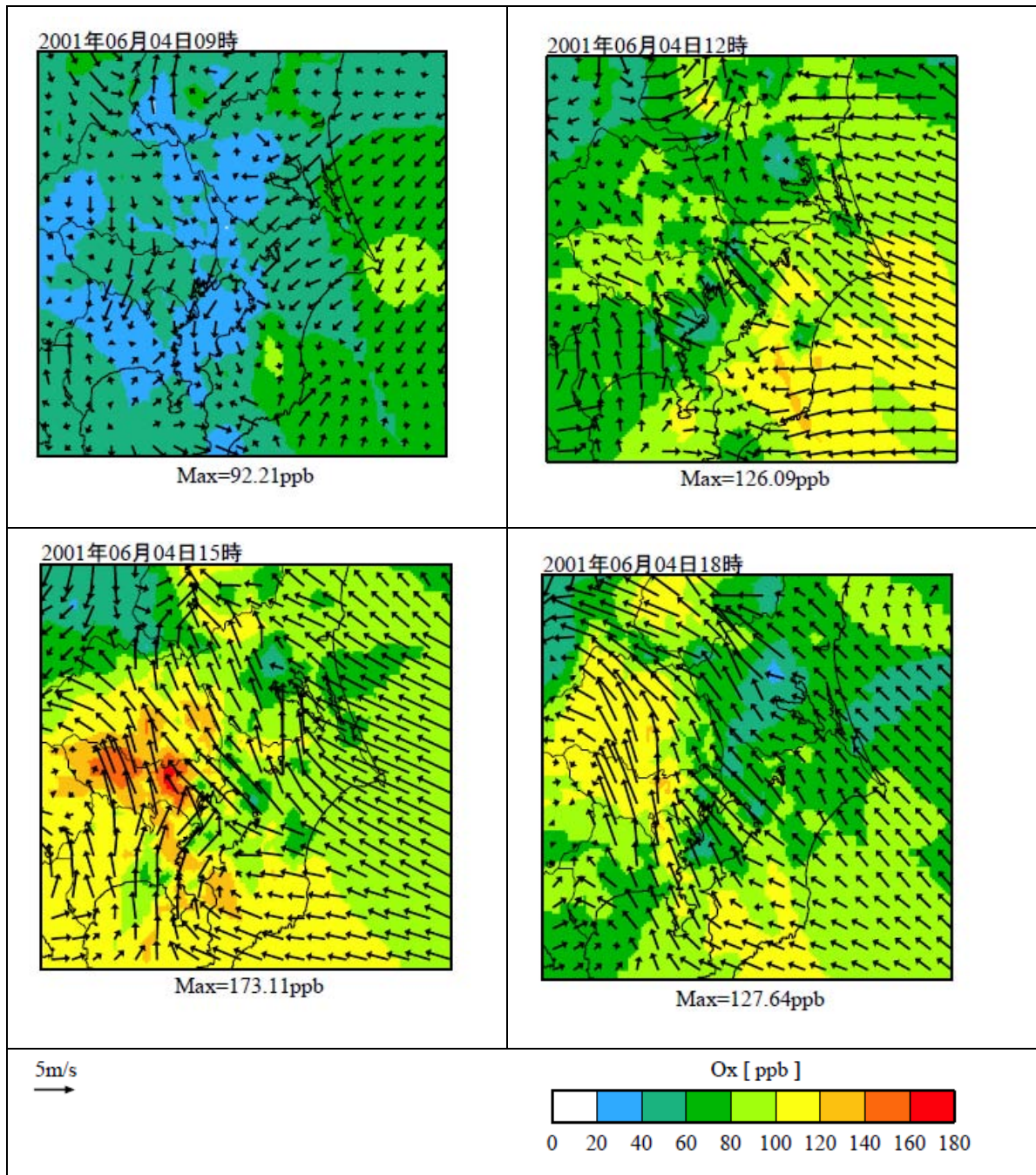


図 8-2 2001 年 6 月 4 日の O<sub>3</sub> 濃度の分布(アメダス及び常監局の観測値から内挿)



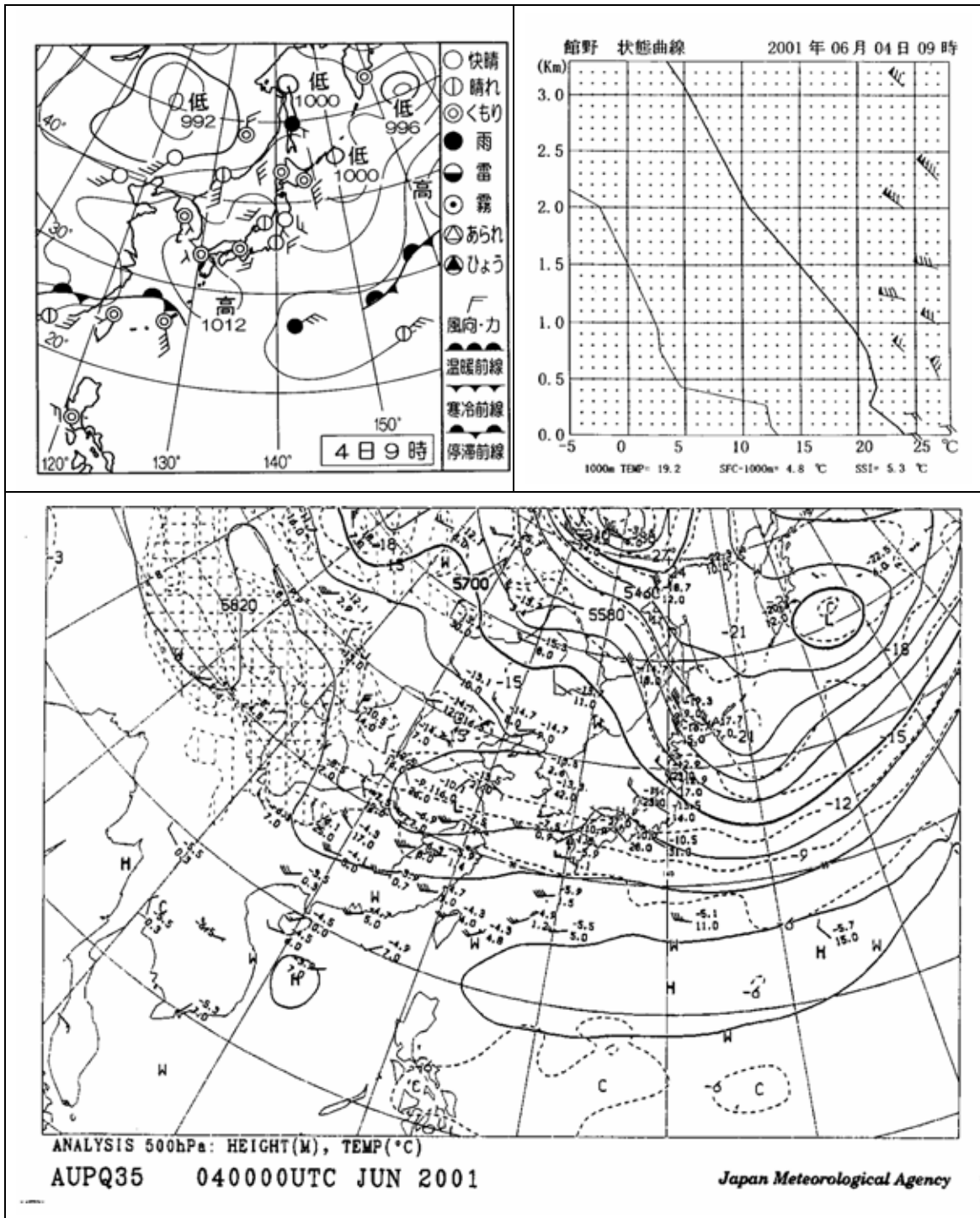
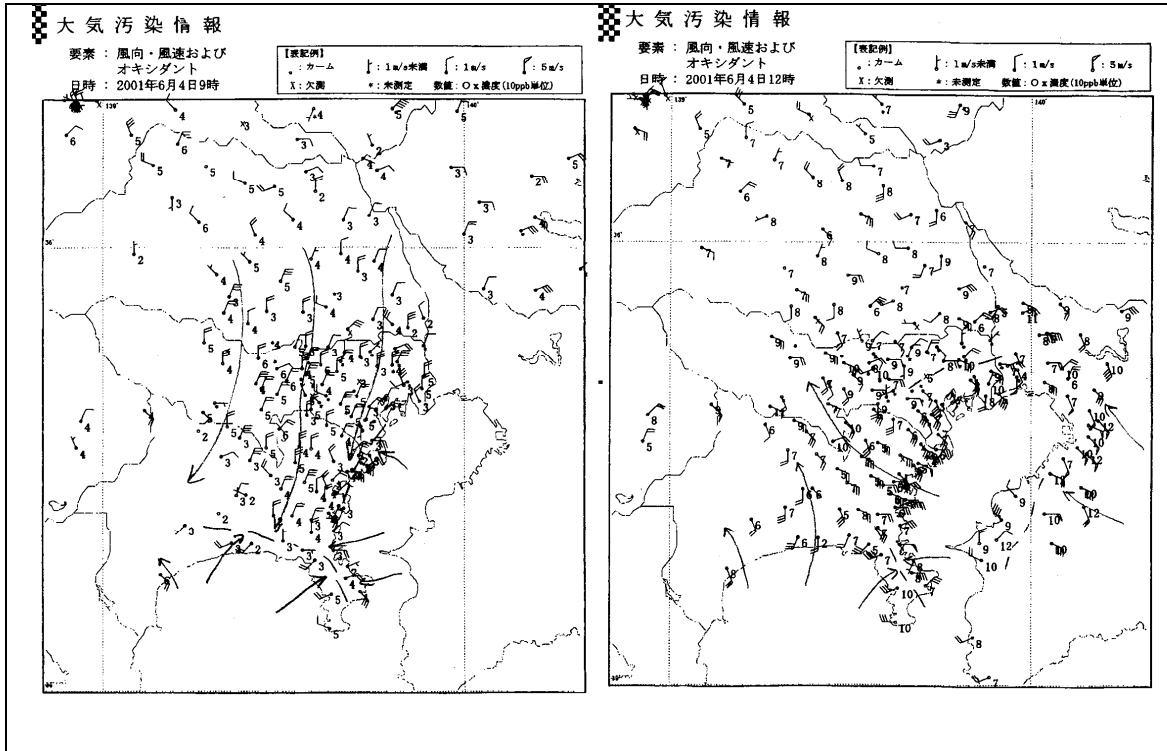


図 8-3(1) 2001 年 6 月 4 日の気象状況



大気汚染情報  
要素：風向・風速およびオキシダント  
日時：2001年6月4日15時

- ・地上天気図  
西日本から本州南海上に広がる高気圧が本州付近を覆い、関東地方は全般に晴天が続いた。東京での最高気温は31.1（平年値24.7）まで上がった。
- ・安定度と上層風  
9時の館野の状態曲線によると、高度250-750mにかけて逆転層を含む安定層が形成されており、地上と高度1000mとの温度差は4.8で、下層大気の状態は安定であった。また、上層風は、地上から約200mでは東よりの風が2m/s、それより上空では北西の風で、1000m付近までは6-7m/s、1000mより上空では8m/s以上であった。
- ・風と濃度の状況  
朝9時では、関東南部は概ね北よりの風で、東京湾や相模湾のごく沿岸部で海風が入り始めていた。その後海風はゆっくりと広がり、12時になると東京湾北部からの海風は23区へ、また、横浜沿岸部からは東京都多摩方面へ広がった。相模湾からの海風は神奈川県内へ広がった。14時には東京、神奈川は全般に海風域内となった。O<sub>x</sub>濃度は、9時には多摩部で60ppbに上昇し、その後も区部、多摩部とも上がり、12時には学校情報が、13時には120ppbを超えたため区部で注意報、14時には更に濃度が上昇し区部、多摩部の全域で注意報となった。

図8-3(2) 2001年6月4日の気象状況

次に H13 年度の夏季フィールド観測期間中の SPM 濃度、EC 濃度、OC 濃度を図 8-4 に示す。図 8-4 より、8 月 3 日の午後から粒子濃度が上昇し、その後も夜間から翌 4 日まで高濃度が継続する事例が観測されている。また、この時の SPM 汚染スコア(1 時間値が  $100\mu\text{g}/\text{m}^3$  以上の延べ時間・局数と定義した)と  $\text{O}_x$  の汚染スコアを図 8-5 に示す。汚染スコアから、8 月 3 日~4 日については、2001 年度の年間を通じて、SPM、 $\text{O}_x$  ともに比較的高い事例日であったことがわかる。なお、H14 年度の夏季フィールド調査期間中は、観測期間を通じて、SPM 濃度がそれほど高くなく(図 8-6)、SPM 汚染スコアも低かった(図 8-7)。

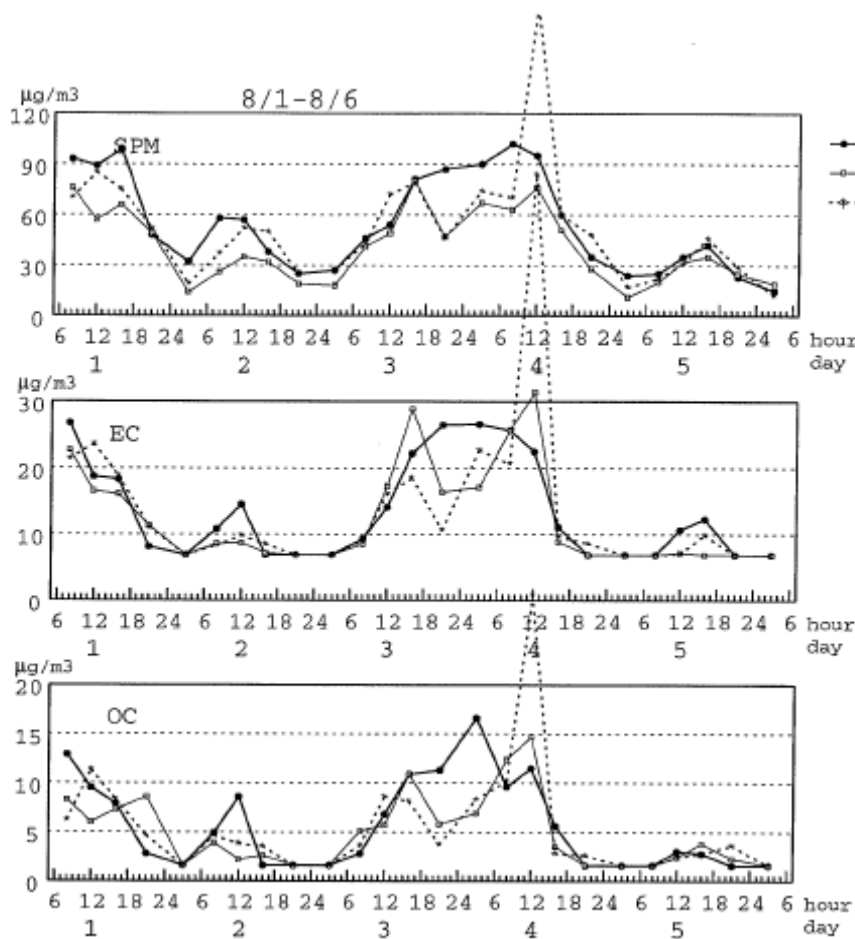


図 8-4 H13 年度夏季フィールド調査期間中の測定結果

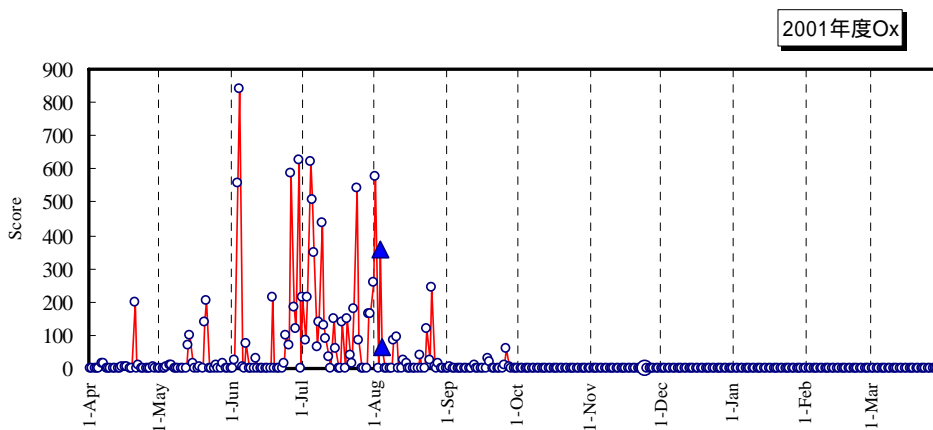
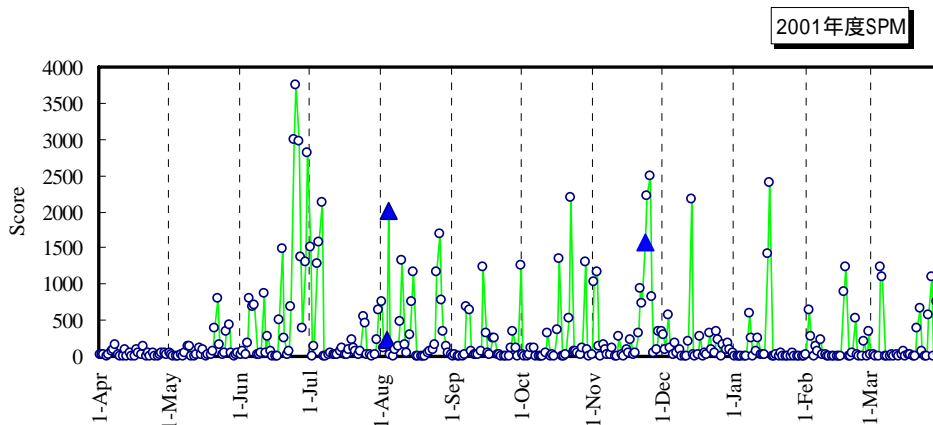


図 8-5 2001 年汚染スコア(上段：SPM 下段：Ox)

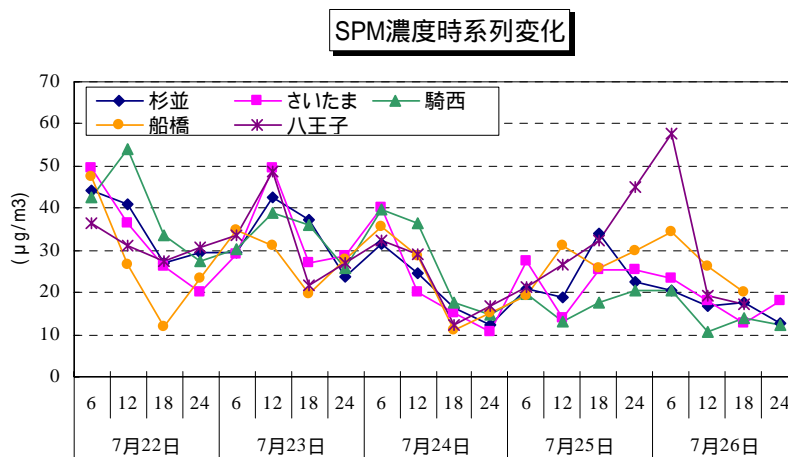


図 8-6 H14 年度夏季 SPM フィールド調査の結果

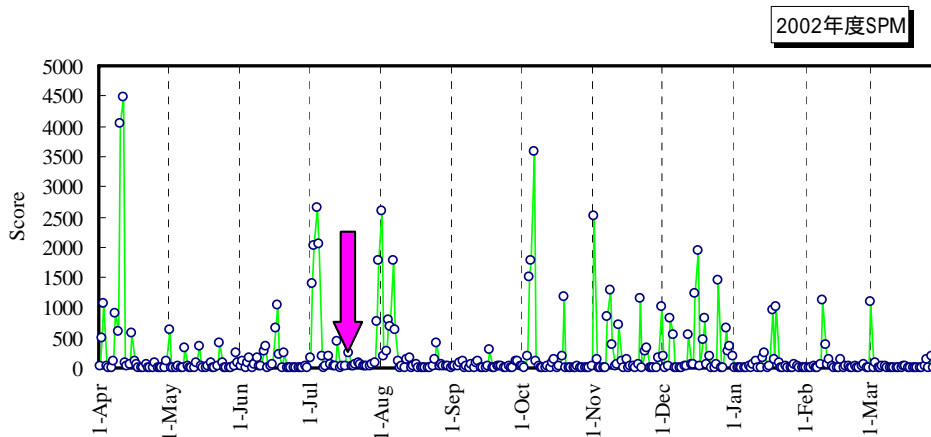


図 8-7 2002 年 S P M 汚染スコア

また、図 8-8 に H13 年度の冬季フィールド観測期間中の SPM 濃度、EC 濃度、OC 濃度を示す。図 8-8 より調査期間中においては 11 月 22 日～23 日に S P M 濃度が高く、図 8-5 上段に示した SPM の汚染スコアでも年間を通じて、高スコアの事例日あったことがわかる。

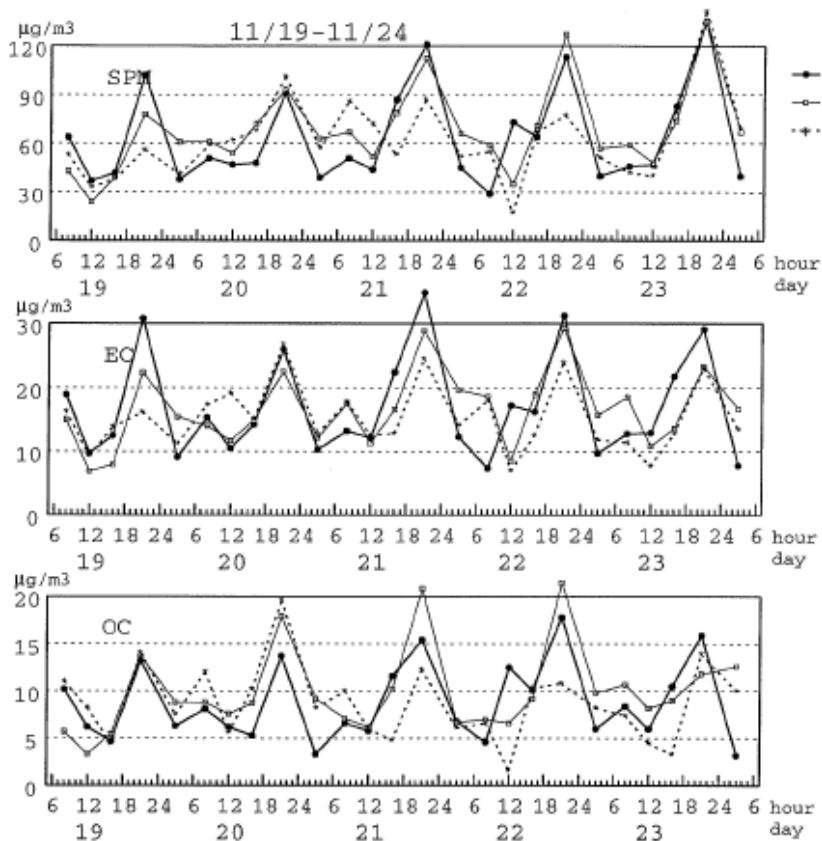
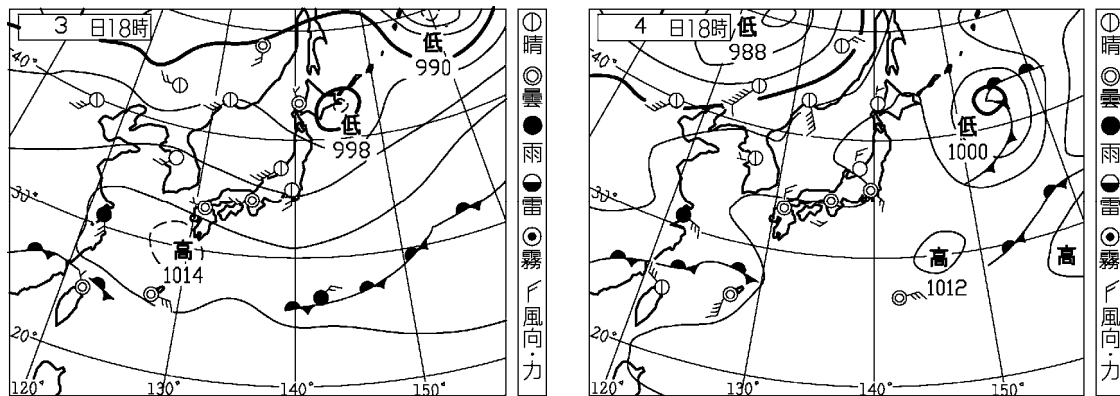


図 8-8 H13 年度冬季フィールド調査期間中の測定結果

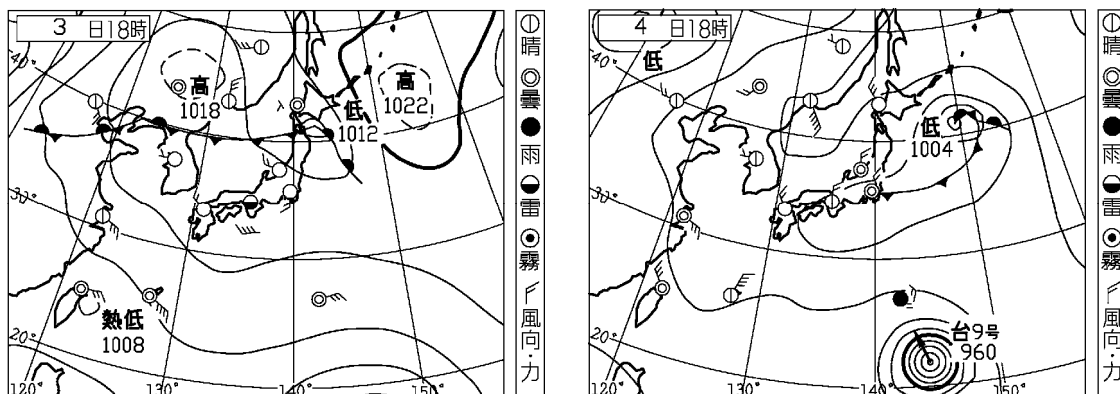
以上の検討から、今年度のシミュレーションの計算対象日としては表 8-1 に示す事例日を対象とした。また、参考として、選定した計算対象日の地上天気図を図 8-9 に示す。

表 8-1 テストシミュレーションの計算対象日

年月日	選定理由
2001年6月3日～4日	汚染スコアが年間第1位であり、典型的なOx高濃度エピソードであると考えられる。
2001年8月3日～4日	夏季フィールド調査期間中で最もSPM濃度が上昇し、Oxの高濃度も同期間中に観測されている。
2001年11月22～23日	冬季フィールド調査期間中で最もSPM濃度が上昇し、汚染スコアも高いことから、冬季のSPM高濃度エピソードと考えられる。

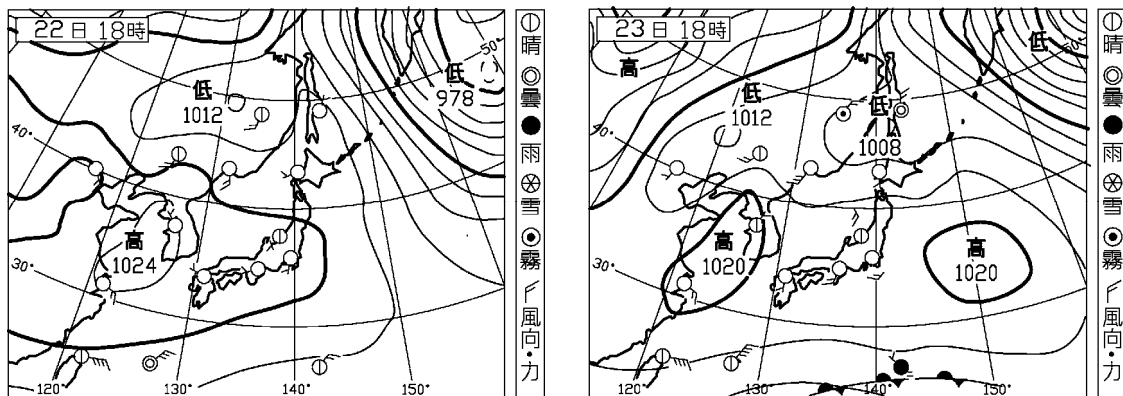


2001年6月3日～4日の地上天気図



2001年8月3日～4日の地上天気図

図 8-9(1) 計算対象日の地上天気図



2001年11月22日～23日の地上天気図

図 8-9(2) 計算対象日の地上天気図

## 8.2 発生源ファイルの作成

今年度のテストシミュレーションにおいては、平成14年度に環境省で整備した発生源インベントリデータ(H12年ベース)を使用した。ただし、環境省インベントリとCMAQで入力する対象物質では、表8-2に示すとおり相違がある。

表 8-2 CMAQ 入力データと環境省発生源データの相違

CMAQ への入力データ		環境省発生源
ガス成分	NO	NO <sub>x</sub> として集計
ガス成分	NO <sub>2</sub>	
ガス成分	SO <sub>2</sub>	SO <sub>x</sub> として集計
ガス成分	CO	
ガス成分	NH <sub>3</sub>	
ガス成分	VOC	(CB4 の化学種に対応)
微小粒子	硝酸塩	粒径区分はなし。 EC、OC、Other の3成分 で集計
微小粒子	硫酸塩	
微小粒子	EC	
微小粒子	OC	
微小粒子	その他	
粗大粒子	全成分	

特に粒子については、環境省発生源では粒径別に集計されていないため、CMAQへ入力するためには、環境省のOther成分について、「微小粒子のその他」と「粗大粒子の全成分」に分ける必要がある。このため、今年度はJCAPの排出インベントリで採用された発生源

毎のフラクション( $PM_{2.5}/SPM$  比)を用いて、配分することとした。表 8-3 に発生源毎の配分フラクションを示す。

表 8-3 発生源別の微小粒子割合

発生源	$PM_{2.5}/SPM$ 比
大規模固定発生源*	0.759
群小(家庭系)	0.862
群小(業務系)	0.862
自動車(排気管由来)	0.852
自動車(排気管以外)	0.294
建設・作業機械	0.882
船舶	0.937
航空機	0.937
小型焼却炉	0.700

\*本来は業種毎に比が異なるが、環境省のファイルでは業種を判別するフラグが省略されているため、JCAP の大規模工場からの  $PM_{2.5}$ 、SPM の全国排出量から推定した比率

また、硫酸塩( $PSO_4$ )および硝酸塩( $PNO_3$ )については、EPA の SPECIATE(v3.2)データベースを基に、発生源毎に適切と考えられる PM の組成データより、SPM 排出量からの配分比率を設定した(表 8-4)。

表 8-4 発生源別の硫酸塩、硝酸塩配分比率

発生源	$PSO_4/PM_{10}$	$PNO_3/PM_{10}$	引用プロファイル
大規模固定発生源	9.053%	0.208%	Industrial Manufacturing-Average
群小(家庭系)	-	-	
群小(業務系)	0.100	0.003	Industrial Manufacturing-Average
自動車(排気管由来)	1.950%	1.070%	Heavy Duty Diesel Trucks と Light Duty Vehicle の平均
自動車(排気管以外)	-	-	
建設・作業機械	1.950%	1.070%	Heavy Duty Diesel Trucks と Light Duty Vehicle の平均
船舶	1.950%	1.070%	Heavy Duty Diesel Trucks と Light Duty Vehicle の平均
航空機	1.950%	1.070%	Heavy Duty Diesel Trucks と Light Duty Vehicle の平均
小型焼却炉	0.084%	-	Municipal Incinerator

さらに、 $NO_x$  については、95%を  $NO$ 、5%を  $NO_2$  とみなし、 $SO_2$  については、 $SO_x$  の 97%を配分した(Byun *et al.*, 1999)。



排出量の単位は、環境省ファイルでは、基本的に kg/s で集計されているため、CMAQ 入力用にガス成分は mol/s、粒子成分は g/s に変換した。また、ファイルフォーマットについても環境省ファイルは独自フォーマットであるため、CMAQ の標準入力フォーマットである、NetCDF 形式に変換した。

### 8.3 計算条件

計算領域は、関東地方の大気汚染状況を再現するために図 8-10 に示すように、関東地方を中心とする領域とした。局地気象モデル MM5 の計算領域は 2 つの計算領域 (領域 1、領域 2) を設定した。「領域 1」は関東地方を中心に南東北から中部地方までを包含する 675km × 675km (格子サイズ 15km × 15km) の広領域、「領域 2」は東京都を中心に南関東全体と北関東の南半分を包含する 275km × 275km (格子サイズ 5km × 5km) の狭領域である。これら 2 つの領域の詳細を表 8-5、表 8-6 に示す。MM5 の計算では領域 1、2 を 2Way-Nesting で同時に解き、風、日射、温度等の気象要素を 3 次元かつ 1 時間ごとのデータとして出力した。なお、初期値および境界値データとしては気象庁領域客観解析値(RANAL)を用いたほか、「領域 1」については、RANAL を同化データとして、ナッジングを行った。

CMAQ の計算領域は、MM5 の計算格子「領域 2」をベースとした。水平方向について、CMAQ の計算領域は「領域 2」の最外格子から 2 メッシュ分以上内側の領域を再設定する必要がある。これは、MCIP (MM5 の出力ファイルを CMAQ の入力ファイルに変換するツール)による計算領域設定の制約によるものである。再設定した CMAQ の計算領域は「領域 2」をベースとした 250km × 250km (格子サイズ 5km × 5km) の領域とした。その詳細を表 8-7 に示す。



図 8-10 計算領域の設定

表 8-5 局地気象モデル(MM5) 領域1 の計算フレーム

パラメータ	設定値
領域基準点 (緯度、経度)	35.7N, 139.9E
格子数 (東西、南北、鉛直)	(MX,MY,MZ)=(45,45,24)
格子間隔	DX=15000m, DY=15000m (等格子間隔)
鉛直層 (座標系) 鉛直層数は MZ+1	= (1.000,0.998,0.995,0.990,0.980,0.950,0.900,0.850,0.800, 0.750,0.700,0.650,0.600,0.550,0.500,0.450,0.400,0.350, 0.300,0.250,0.200,0.150,0.100,0.050,0.000)
領域基準点から領域南西端 までの距離	X <sub>0</sub> = - 337,500m Y <sub>0</sub> = - 337,500m

表 8-6 局地気象モデル(MM5) 領域 2 の計算フレーム

パラメータ	設定値
領域基準点 (緯度、経度)	35.7N, 139.9E
格子数 (東西、南北、鉛直)	(MX,MY,MZ)=(55,55,24)
格子間隔	DX=5000m, DY=5000m (等格子間隔)
鉛直層 (座標系) 鉛直層数は MZ+1	= (1.000,0.998,0.995,0.990,0.980,0.950,0.900,0.850,0.800, 0.750,0.700,0.650,0.600,0.550,0.500,0.450,0.400,0.350, 0.300,0.250,0.200,0.150,0.100,0.050,0.000)
領域基準点から領域南西端 までの距離	X <sub>0</sub> = - 137,500m Y <sub>0</sub> = - 137,500m

表 8-7 光化学大気汚染モデル(CMAQ)の計算フレーム

パラメータ	設定値
領域基準点 (緯度、経度)	35.7000007629395N, 139.899993896484E mcip (MM5 出力を CMAQ 用フォーマットに変換する ツール) 実行後
格子数 (MX,MY,MZ)	(MX,MY,MZ) =(50,50,24)
格子間隔	DX=5000m, DY=5000m (等格子間隔)
鉛直層 (座標系) 鉛直層数は MZ+1	=(1.000,0.998,0.995,0.990,0.980,0.950,0.900,0.850,0.800, 0.750,0.700,0.650,0.600,0.550,0.500,0.450,0.400,0.350, 0.300,0.250,0.200,0.150,0.100,0.050,0.000)
領域基準点から領域南西 端までの距離	X <sub>0</sub> = - 130,000m Y <sub>0</sub> = - 130,000m

CMAQ の光化学反応・移流・拡散モデル(CCTM)の実行時には、計算対象領域に対する初期条件、境界条件の設定が必要になる。CMAQ では、これらの条件を設定するインターフェースとして ICON (初期条件作成ツール)、BCON (境界条件作成ツール) が提供されている。これらのインターフェースの入力値として、本業務では、以下のように設定を行った。

- 化学種別濃度の設定に、大気常時監視測定局（一般局）の測定値（SO<sub>2</sub>、NO、NO<sub>2</sub>、CO、O<sub>x</sub>、NMHC、SPM）を反映した。
- 非メタン炭化水素(NMHC)の測定値から CB4 の NMHC の組成比に、過去のフィールド調査で実測した関東地方の VOC 組成を反映した。
- PM の成分別組成比について、過去のフィールド調査で実測した関東地方の VOC 組成を反映した。

これらの設定方法の詳細を下記に示す。

#### （１）大気常時監視測定局（一般局）測定値による設定

測定局の測定値は地点ごとの情報のため、数値計算モデルで扱う 3 次元メッシュ情報を算定する必要がある。本業務では、各メッシュの中心位置と測定局位置の 2 点間の距離の 2 乗の逆数による重みづけにより、モデルの第 1 層（地上）のメッシュ別濃度を設定する方法を用いた。その方法のフローを図 8-10 に示す。

次に、第 2 層以上のメッシュ別濃度について、第 1 層のメッシュ別濃度に CMAQ で提供されているデフォルトの鉛直分布の濃度比（上空の濃度 / 地上濃度）を乗ずることにより算定した。なお、本業務では時間に対して不変の境界値を設定している。これは、本業務の CCTM の計算を非ネスティングモードで実行したため<sup>1</sup>である。

#### （２）NMHC の成分別濃度の設定

本業務ではガス成分の反応モデルとして CB4 を選択した。CB4 では炭化水素類の化学結合の状態に着目し、NMHC を 8 成分に分割している。よって、常監局の NMHC の測定値を CCTM の初期条件、境界条件に反映するために、CB4 に対応した 8 成分に配分する必要がある。この配分比は、「平成 16 年度揮発性有機化合物(VOC)に係る大気質調査」より、関東地方の季節別平均 VOC 成分別組成から設定した。NHMC1ppbC を CB4 の成分別濃度(ppm)に変換する夏季の配分比を表 8-8 に、冬季の配分比を表 8-9 に示す。

<sup>1</sup> CCTM をネスティングモードでコンパイルすることで、時間変化の境界値を設定することが可能。

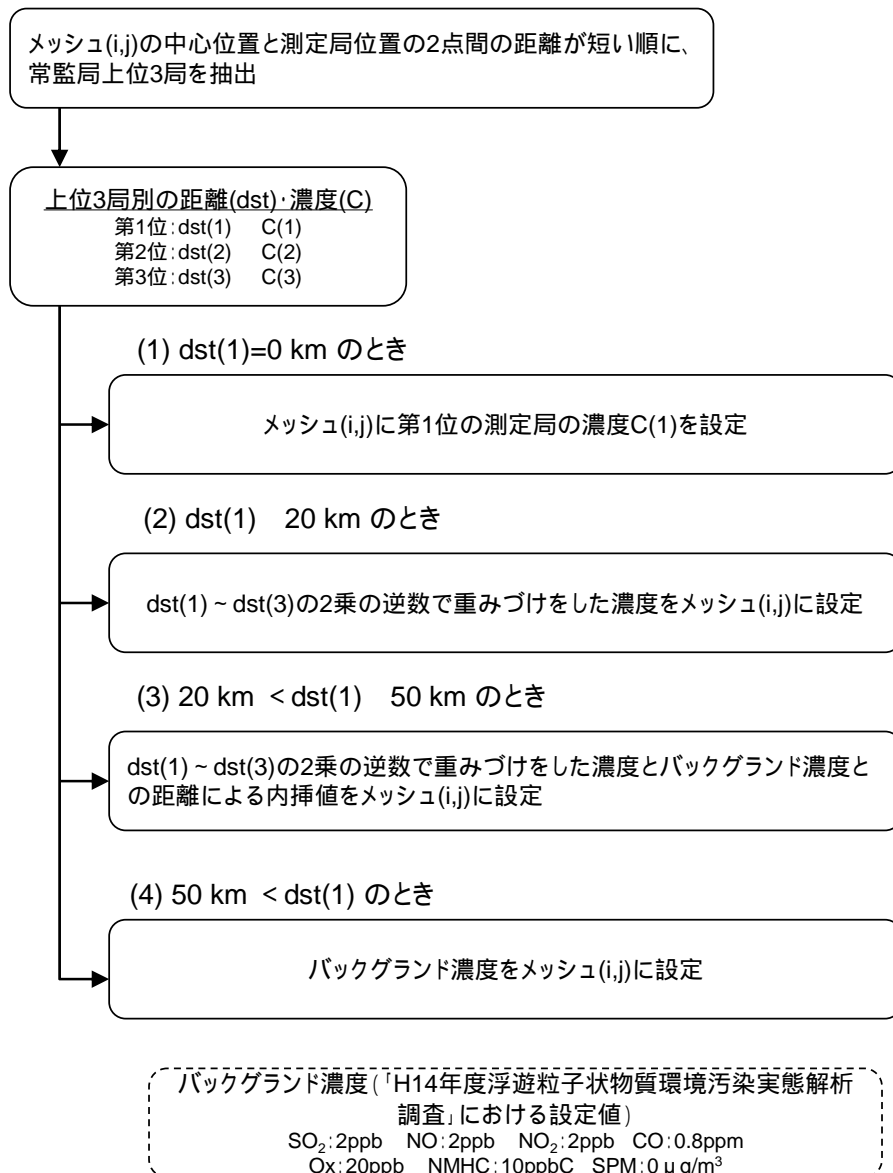


図 8-10 大気常時監視測定局（一般局）の測定値の設定フロー

表 8-8 NMHC の配分比（夏季）

成分	ETH	OLE	ISOP	TOL
配分比	1.240E-05	2.172E-05	2.055E-06	3.136E-05
成分	XYL	PAR	FORM	ALD2
配分比	1.476E-05	5.569E-04	0.000E+00	8.066E-06

NMHC 1ppbC を成分別濃度(ppm)に変換する係数

表 8-9 NMHC の配分比 (冬季)

成分	ETH	OLE	ISOP	TOL
配分比	1.228E-05	2.310E-05	7.278E-07	3.138E-05
成分	XYL	PAR	FORM	ALD2
配分比	1.011E-05	5.941E-04	0.000E+00	5.188E-06

NMHC 1ppbC を成分別濃度(ppm)に変換する係数

( 3 ) PM の成分別濃度の設定

本業務での初期条件、境界条件として設定した成分は、EC、OC、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、PMFine、PMCoarse(デフォルトでは SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>と土壌成分のみの設定)とした。また、成分別濃度は、常監局の SPM 濃度に「平成 15 年浮遊粒子状物質成分別環境濃度解析調査」(環境省)において測定された関東地方の季節別 SPM 組成の成分比を乗ずることにより求めた。今回設定した夏季の成分比を表 8-10 に、冬季の成分比を表 8-11 に示す。

表 8-10 SPM の成分比 (夏季)

成分	EC	OC	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>
配分比	0.14674	0.14185	0.16047	0.02297
成分	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	PM_FINE	PM_Coarse	
配分比	0.06165	0.19494	0.27138	

表 8-11 SPM の成分比 (冬季)

成分	EC	OC	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>
配分比	0.08442	0.08947	0.18112	0.10883
成分	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	PM_FINE	PM_Coarse	
配分比	0.09855	0.34226	0.09535	

また、CMAQ での選択オプションは表 8-12 に整理した。

表 8-12 CMAQ 選択オプション一覧

Variable	Settings	Selection
ModDriver	ctm	
	ctm_yamo	
ModInit	init	
	init_yamo	
ModAdjc	adjcon_noop	
	denrate yamo option does not need denrate	
ModCpl	gencoor	
ModHadv	hadv_noop	
	hppm hyamo	
ModVadv	vadv_noop	
	vppm	
	vyamo	
ModHdiff	hdiff_noop	
	multiscale	
ModVdiff	vdiff_noop	
	eddy	
	acm2	
ModPhot	phot_noop	
	phot	
ModPing	ping_noop	
	ping_smvgear_aero3	
	ping_smvgear_aero4	

Variable	Settings	Selection
ModChem	chem_noop	
	smvgear	
	ros3	
	ebi_cb4	
	ebi_cb05	
ModAero	ebi_saprc99	
	aero_noop	
	aero3 aero4	
ModAdepv	aero_dep_v_noop	
	aero_dep_v2	
ModCloud	cloud_noop	
	cloud_radm	
	cloud_acm	
ModPa	pa	
ModUtil	util	
Mechanism	cb4_ae3_aq	
	cb4_ae4_aq	
	cb05_ae4_aq	
	saprc99_ae3_aq saprc99_ae4_aq	

#### 8.4 事例日毎の再現結果

テストシミュレーションの結果を検証するにあたって、対象物質と CMAQ で出力される物質の対応は表 8-13 に示す通りとした。

なお、計算結果の詳細は資料編にまとめて掲載した。

表 8-13 対象物質と計算値の対応一覧

対象物質	計算値	単位	備考
NO	NO	ppb	
NO <sub>2</sub>	NO <sub>2</sub>	ppb	
NO <sub>x</sub>	NO+NO <sub>2</sub>	ppb	
O <sub>x</sub>	O <sub>3</sub>	ppb	
PO	O <sub>3</sub> + (NO <sub>2</sub> - 0.05*NO <sub>x</sub> )	ppb	Potential Ozone
SPM	PM <sub>2.5</sub> +ACORS+ASEAS+ASOIL	ug/m <sup>3</sup>	
Sulfate	ASO4J+ASO4I	ug/m <sup>3</sup>	
Nitrate	ANO3I + ANO3J	ug/m <sup>3</sup>	
Ammonium	ANH4I + ANH4J	ug/m <sup>3</sup>	
POA	AORGPJ+AORGPJAI	ug/m <sup>3</sup>	Primary Organic Aerosols
SOA	AORGAJ+AORGAI	ug/m <sup>3</sup>	Anthropogenic Secondary Organic Aerosols
SOA_B	AORGBJ+AORGBI	ug/m <sup>3</sup>	Biogenic Secondary Organic Aerosols
EC	AECJ+AECI	ug/m <sup>3</sup>	Elemental Carbon
PM <sub>2.5</sub>	ASO4I + ASO4J + ANH4I + ANH4J + ANO3I + ANO3J + AORGAI + AORGAJ + 1.167*AORGPJAI + 1.167*AORGPJ + AORGBI + AORGBJ + AECI + AECJ + A25I + A25J	ug/m <sup>3</sup>	

出典: U.S. EPA, Technical Support Document for the Proposed PM NAAQS Rule Response Surface Modeling, 2006 より設定



(1) 2001年6月3日～4日の再現結果

• 気象場の再現結果

気流の分布に着目した場合、6月3日については、朝方の弱風場から、12時、15時と徐々に海風が内陸に進入していく様子がよく再現されている。6月4日については、前日夜間からの弱風場が12時頃まで継続し、15時～18時にかけて海風が卓越する様子が再現されている。また、気温の分布は計算期間を通じて概ね再現されている。

地点毎の再現性に着目した場合、風向・風速は各地点共に変動の傾向は比較的良好に再現されている。気温については、6月4日に東京、千葉で最高気温がやや過大であるが、これは日射量が計算値でやや過大となっていることとリンクしている。なお、横浜については、計算値の変動幅が観測値と比較して小さいが、これは、南寄りの風(海風)により、計算値では海上の気温の影響を実際よりも大きく反映しているためと考えられる。

• 濃度場の再現結果

O<sub>x</sub>の濃度分布については、6月3日、4日ともに、9時頃から濃度が上昇し始め、15時頃にピークとなる状況が概ね再現されている。高濃度が出現しているエリアについても全般的には再現されているが、両日ともに18時頃は観測値と計算値の相違がみられる。地点毎の再現性に着目した場合、杉並、浦和、騎西の各地点ともに、O<sub>x</sub>の濃度の変化傾向、ピーク時間、最高濃度について、比較的良好に再現されている。

SPMの濃度分布については、計算値の方は全般的に濃度変化が少なく、計算時間を通じて、観測値よりも過小で推移している。高濃度の出現するエリアも、時間帯によっては観測値と計算値で一致している場合もあるが、全体としては相違がある。地点毎の再現性に着目した場合、杉並、浦和、騎西の各地点ともに、計算値の方が観測値よりも低濃度で推移しており、観測値の濃度ピークに対応する計算値濃度の上昇が不明瞭である。計算値のPN組成に着目した場合、6月3日、4日ともに夜間に硝酸塩の割合が増大しており、PM全体の質量濃度を押し上げていることがわかる。この硝酸塩は日中の光化学反応によりNO<sub>x</sub>から生成したHNO<sub>3</sub>ガスが夜間の気温低下に伴い、粒子化し、NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>を生成したものと考えられる。

## (2) 2001年8月3日～4日の再現結果

### ● 気象場の再現結果

気流の分布に着目した場合、8月3日については、朝方の弱風場が日中も継続し、海風の進入が比較的弱い状況が概ね再現されているが、埼玉県北部から群馬県にかけては、計算値の風速がやや過大となっている。8月4日についても、日中でも海風の進入が弱い状況は、概ね再現されているが、埼玉県北部から群馬県にかけては、計算では陸風が過大となっている。また、18時以降は東関東で観測された北東寄りの風があまり再現されていない。4日午後は寒冷前線が関東地方を通過しており、気象場の再現性が低下したものと考えられる。また、気温の分布は8月3日、4日ともに、日中に計算値の方がやや高い傾向がみられる。

地点毎の再現性に着目した場合、風向・風速は各地点共に変動の傾向は比較的良好に再現されているが、寒冷前線通過後の4日18時以降で風向の乖離がやや目立つ。気温については、横浜を除く地点で日中に計算値の方が高くなる傾向がみられるが、日射量の比較より、対象期間中に観測された雲が計算では十分に再現されていないことによるものと考えられる。

### ● 濃度場の再現結果

O<sub>x</sub>の濃度分布については、8月3日、4日ともに、9時頃から濃度が上昇し始め、15時頃にピークとなる状況が概ね再現されている。ただし、高濃度が出現しているエリアに着目した場合、8月3日は埼玉県北部～群馬県と千葉県から茨城県の太平洋側で計算値が過大となる傾向がみられ、8月4日は神奈川県内で計算値が過大となる傾向がみられた。これは計算値による気流の収束が実際よりも強調されて再現されていることによるものと考えられる。地点毎の再現性に着目した場合、杉並、浦和、騎西、川崎の各地点ともに、O<sub>x</sub>の濃度の変化傾向は比較的良好に再現されている。ピーク濃度については、各地点とも8月3日については、観測値と計算値の差は小さいが、8月4日は計算値がやや過大となっている。これは、8月4日については日射量が過大に計算されていることが影響しているものと考えられる。

SPMの濃度分布については、観測値では8月3日午後から8月4日日中にかけて、関東南部を中心に、徐々にSPM濃度が上昇しているが、計算値では関東北部でSPM濃度の上昇傾向がみられるものの、関東南部での濃度上昇は不明瞭である。地点毎の再現性に着目した場合、騎西を除いて計算値の方は全般的に濃度変化が少なく、計算時間を通じて、観測値よりも過小で推移している。騎西については、8月3日午後から8月4日日中にかけてのSPM濃度の上昇傾向が再現されている。PMの組成に着目した場合、観測値では8月3日午後から8月4日日中にかけて、硫酸塩、EC、OCの増加が、SPM高濃度につながっているが、計算値ではこれらの成分の増減は比較的小さく、主として、硝酸塩濃度の変化がSPM濃度全体の変化に支配的であることが示唆された。

(3) 2001年11月22日～23日の再現結果

• 気象場の再現結果

気流の分布に着目した場合、11月22日～23日にかけての全体としての弱風場や、群馬県、栃木県内の北西寄りの陸風について比較的よく再現されている。また、気温の分布は計算期間を通じて概ね再現されている。

地点毎の再現性に着目した場合、風向・風速は各地点共に変動の傾向は概ね再現されている。気温については、各地点ともに変動の傾向はよく再現されているが、東京では夜間に計算値の方が過小となっている。これは、都心部はいわゆるヒートアイランド現象により夜間の気温が低下しにくい状況であるが、今回用いた気象モデルでは都市キャノピーの効果を十分に考慮していないため、観測値との乖離が顕著になったものと考えられる。

• 濃度場の再現結果

SPMの濃度分布については、11月23日および24日において東京湾岸を中心にSPM濃度が上昇する傾向は概ね再現されているが、計算値の濃度レベルは観測値と比べると過小になっている。地点毎の再現性に着目した場合、杉並、浦和の計算値については11月23日および24日の夜間にSPM濃度が上昇する傾向がみられるが、騎西についてはほとんど再現されていない。騎西についてはNO、NO<sub>2</sub>の再現性についても他の2地点と比較すると悪く、気流場の再現性が十分ではない可能性が考えられる。

PMの組成に着目した場合、観測値より22日夜間の高濃度は、硝酸塩、EC、OCの増大によるものであることが示唆される。杉並、浦和については、計算値でも同時間帯に硝酸塩、EC、OCが増大する傾向は再現されているものの、濃度レベルが過小であった。一方、23日夜間の高濃度は、観測値では杉並、浦和では硫酸塩の増加が顕著であったが、計算値では硫酸塩の増加が再現されていない(10時間程度ピークがずれている)。

## 8.5 精度検証

### (1)SPM 濃度の検証

SPM マニュアルの評価基準(表 8-14)に従い、3つの計算事例(のべ6日間)を対象として、シミュレーション結果の評価を行った。なお、評価の対象とした地点としては関東地方の気象常時監視局(一般局)のうち、128局(表 8-15、図 8-11)を用いた。評価結果を図 8-12 に示す。

今回のテストシミュレーション結果では、評価を行った6日間で、ランク外1事例、Bランク2事例、Cランク3事例となり、シミュレーションの結果を施策効果検討・評価に利用するには、さらなる再現性向上が必要であることが示された。

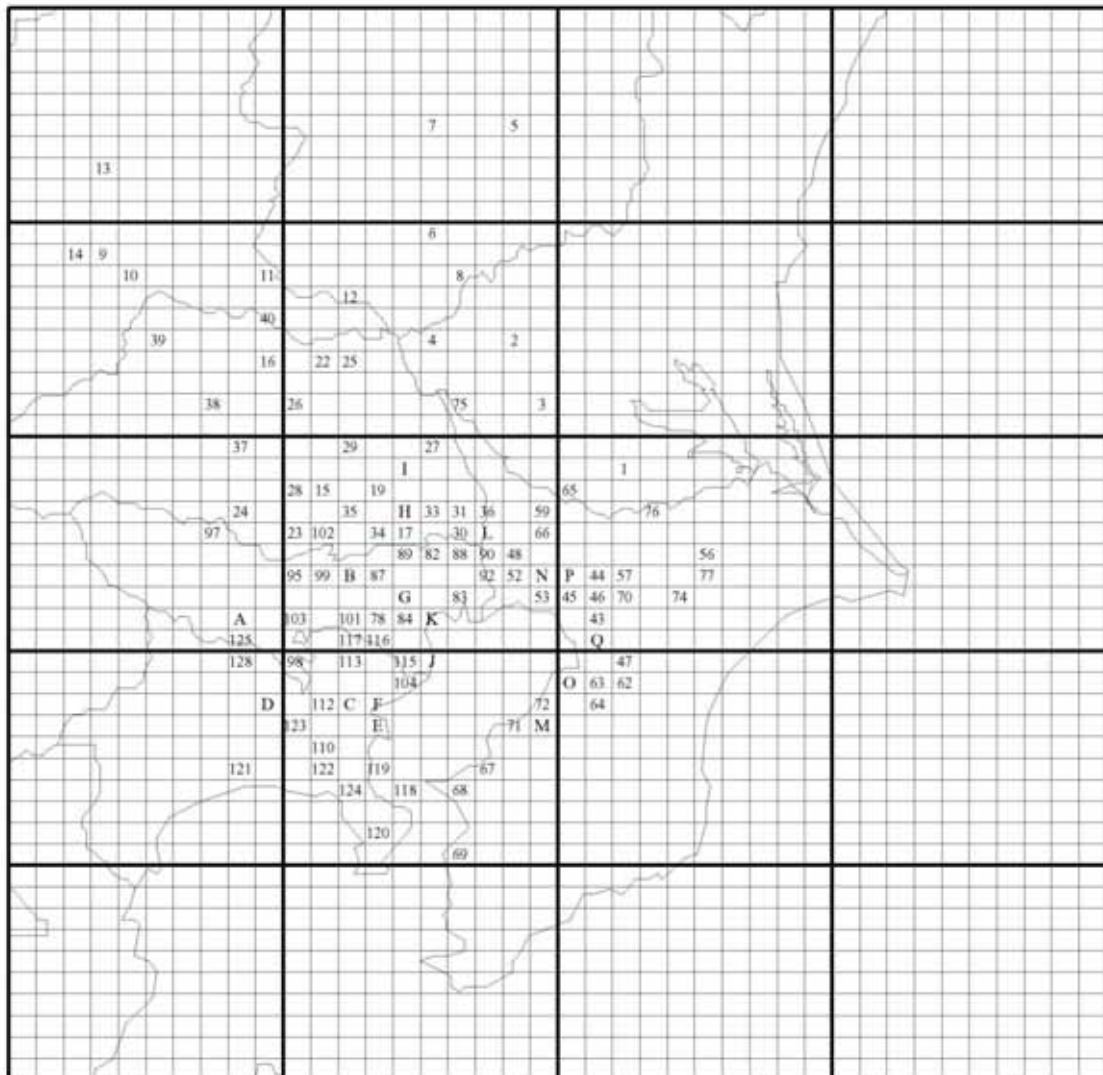
表 8-14 SPM の計算値と実測値の整合性に係る判定条件等

1. 計算値と実測値の整合性に係る個別条件			
$a_0 = 1/3 (Y - BG) + BG$ $a_0 = 2/5 (Y - BG) + BG$ 回帰直線の傾きが 0.8 から 1.2 の範囲内できるだけ 1 に近く、かつ、相関係数が少なくとも 0.71 以上であり、可能な限り 0.8 以上であること。 $s' / Y = 1/5$ $s' / Y = 1/4$ $s' / Y = 1/3$ Y : 測定局についての実測値の平均値 X : 測定局についての計算値の平均値 $a_0$ : バックグラウンド濃度 (= Y - X) BG : 自然界バックグラウンド値等 $s' / Y$ : $Y = X + a_0$ からの変動係数 $s'$ : 標準誤差			
2. 計算値と実測値の整合性に係る精度ランク			
Aランクの条件: と と 、又は と の条件を満足すること。 Bランクの条件: と の条件を満足すること。 Cランクの条件: と の条件を満足すること。			
3. 評価期間ごとの判定条件			
		季(期)区分	
		各季(期)	年
時間帯区分	各時間帯	C	B
	日	B	A

出典:「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, 1997)  
表 1-1 の再掲

表 8-15 評価対象測定局一覧

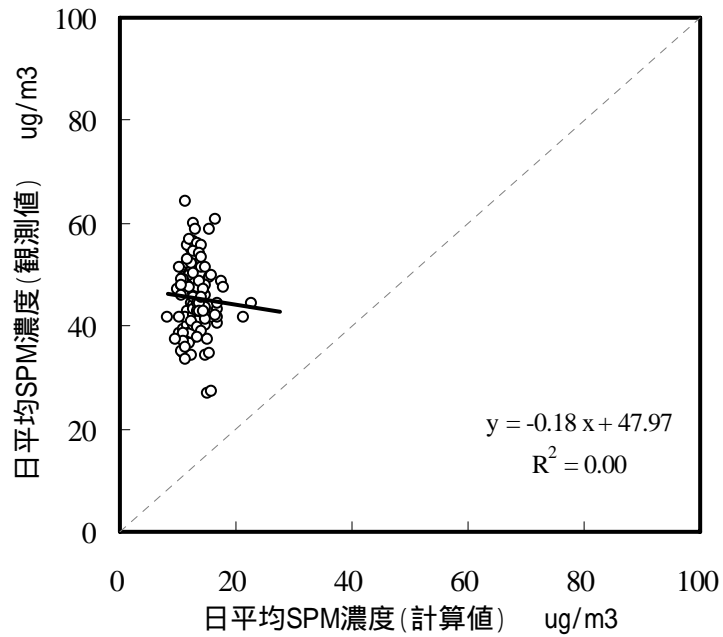
都道府県	NO	測定局名称	NO2	SPM	Ox	都道府県	NO	測定局名称	NO2	SPM	Ox	
茨城県	1	竜ヶ崎保健所				千葉県	65	我孫子湖北台				
	2	下妻					66	鎌ヶ谷軽井沢				
	3	水海道保健所					67	君津久保				
	4	総和町役場					68	富津市富津			-	
栃木県	5	泉が丘小学校	-	-	-	69	富津釜谷					
	6	栃木市役所				70	四街道鹿渡					
	7	鹿沼市役所				71	袖ヶ浦坂戸市場					
	8	小山市役所				72	袖ヶ浦代宿					
群馬県	9	勤労ホーム駐車場				73	袖ヶ浦三ツ作					
	10	倉賀野公民館	-	-	-	74	八街市八街					
	11	中央小学校				75	関宿桐ヶ作					
	12	市民センター				76	栄安食台					
	13	渋川1232-1	-	-	-	77	芝山山田					
	14	若野谷公民館	-	-	-	東京都	78	世田谷区世田谷				
埼玉県	15	川越市高階					79	港区白金				
	16	熊谷					80	港区台場				
	17	川口市横曽根					81	国設東京(新宿)				
	18	川口市芝					82	文京区本駒込				
	19	浦和市役所					83	江東区大島				
	20	大宮市春里					84	目黒区碑文谷				
	21	大宮市片柳					85	大田区東糎谷				
	22	行田					86	渋谷区宇田川町				
	23	所沢市けやき台					87	中野区若宮				
	24	飯能					88	荒川区南千住				
	25	加須					89	練馬区北町				
	26	東松山					90	葛飾区鎌倉				
	27	春日部					91	葛飾区水元			-	
	28	狭山					92	江戸川区鹿骨				
	29	上尾					93	片倉				
	30	草加市瀬崎					94	館町				
	31	草加市新田			-		95	立川市錦町				
	32	戸田・蕨					96	武蔵野市関前				
	33	鳩ヶ谷					97	青梅市東青梅				
	34	和光					98	町田市中町				
	35	富士見					99	小平市小川町				
	36	三郷					100	西東京市田無町				
	37	毛呂山					101	狛江市中和泉				
	38	小川					102	清瀬市上清戸				
	39	児玉					103	多摩市愛宕				
	40	妻沼					104	鶴見区潮田プラザ				
	千葉県	41	蘇我中学校				-	105	神奈川区総合庁舎			
		42	蘇我保育所				-	106	神奈川県庁			
		43	都公園				-	107	中区加曽台			-
		44	花見川第一小学校					108	保土谷区桜丘高校			
		45	検見川小学校					109	磯子区総合庁舎			
		46	宮野木					110	戸塚区汲沢小学校			
		47	千葉県警学校				-	111	旭区鶴ヶ峯小学校			
		48	市川大野					112	南瀬谷小学校			
		49	船橋高根					113	都筑区総合庁舎			
		50	船橋高根台					114	大師健康プラザ			
51		船橋前原					115	幸保健所				
52		船橋印内					116	中原保健所				
53		船橋若松					117	鷺沼プール				
54		木更津井尻	-	-	-	118	横須賀市役所					
55		松戸根本				119	追浜行政C					
56		成田大清水				120	西行政C					
57		佐倉江原新田				121	平塚市役所					
58		習志野東習志野			-	122	藤沢市役所					
59		柏永楽台				123	御所見小学校					
60		市原五井				124	逗子市役所					
61		市原甘五里				125	橋本					
62		市原瀧井戸				126	厚木市役所					
63		市原辰巳台				127	座間市役所					
64		市原松崎				128	愛川町角田					



A(93,94) B(96,100) C(108,111) D(126,127) E(107,109) F(105,106) G(81,86) H(18,32) I(20,21)  
 J(85,114) K(79,80) L(55,91) M(54,73) N(49,51) O(60,61) P(50,58) Q(41,42)

图 8-11 評価対象測定局位置图

2001年6月3日



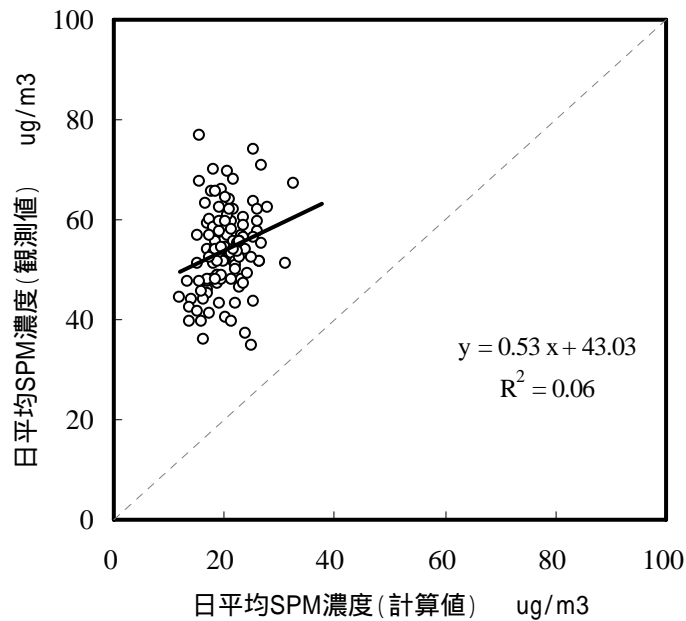
相関係数	-0.06
Y:測定局についての実測値の平均値	45.51
X:測定局についての計算値の平均値	13.30
a0:バックグラウンド濃度(=Y-X)	32.22
BG:自然界バックグラウンド濃度	20.00

条件 $a_0 \leq 1/3(Y-BG)+BG$	
$1/3(Y-BG)+BG$	28.50
a0	32.22
判定	×
条件 $a_0 \leq 2/5(Y-BG)+BG$	
$2/5(Y-BG)+BG$	30.20
a0	32.22
判定	×
条件 回帰直線の傾き 及び相関係数	
回帰直線の傾き (0.8 ~ 1.2)	-0.18
相関係数(0.71 ~ )	-0.06
判定	FALSE
条件 変動係数	
計算値の変動係数	0.165
変動係数のランク	
精度ランク	-

精度ランク ( A,B,C, - : ランク外)

図 8-12(1) SPM 再現性評価結果

2001年6月4日



相関係数	0.24
Y:測定局についての実測値の平均値	53.88
X:測定局についての計算値の平均値	20.43
a0:バックグラウンド濃度(=Y-X)	33.45
BG:自然界バックグラウンド濃度	20.00

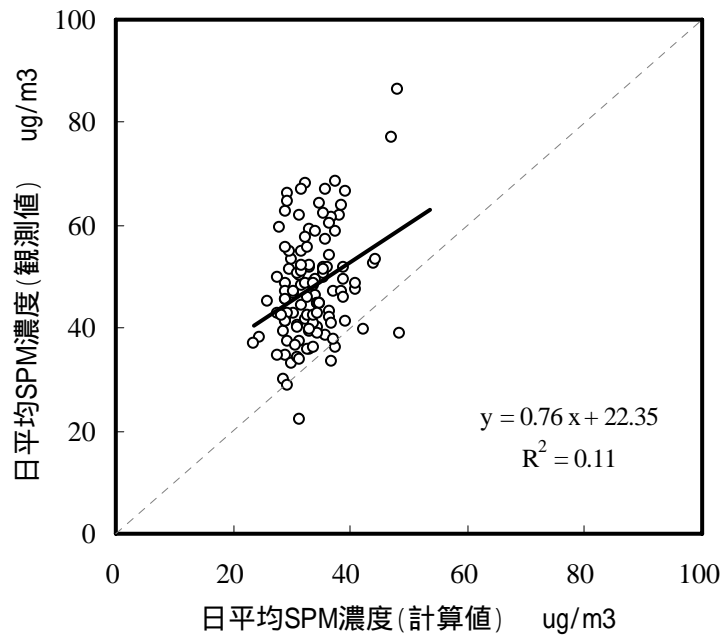
条件 $a_0 \leq 1/3(Y-BG)+BG$	
$1/3(Y-BG)+BG$	31.29
a0	33.45
判定	×
条件 $a_0 \leq 2/5(Y-BG)+BG$	
$2/5(Y-BG)+BG$	33.55
a0	33.45
判定	
条件 回帰直線の傾き及び相関係数	
回帰直線の傾き(0.8~1.2)	0.53
相関係数(0.71~)	0.24
判定	FALSE
条件 変動係数	
計算値の変動係数	0.149
変動係数のランク	
精度ランク	B

精度ランク ( A,B,C, - : ランク外)

図 8-12(2) SPM 再現性評価結果



2001年8月3日



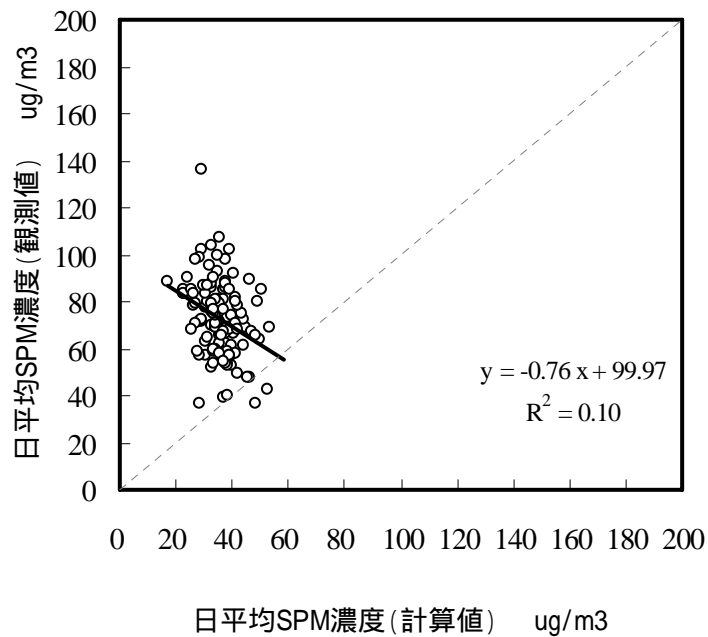
相関係数	0.33
Y:測定局についての実測値の平均値	47.97
X:測定局について計算値の平均値	33.52
a0:バックグラウンド濃度(=Y-X)	14.45
BG:自然界バックグラウンド濃度	20.00

条件 $a0 \leq 1/3(Y-BG)+BG$	
$1/3(Y-BG)+BG$	29.32
a0	14.45
判定	
条件 $a0 \leq 2/5(Y-BG)+BG$	
$2/5(Y-BG)+BG$	31.19
a0	14.45
判定	
条件 回帰直線の傾き及び相関係数	
回帰直線の傾き(0.8~1.2)	0.76
相関係数(0.71~)	0.33
判定	FALSE
条件 変動係数	
計算値の変動係数	0.208
変動係数のランク	
精度ランク	B

精度ランク ( A,B,C, - : ランク外)

図 8-12(3) SPM 再現性評価結果

2001年8月4日



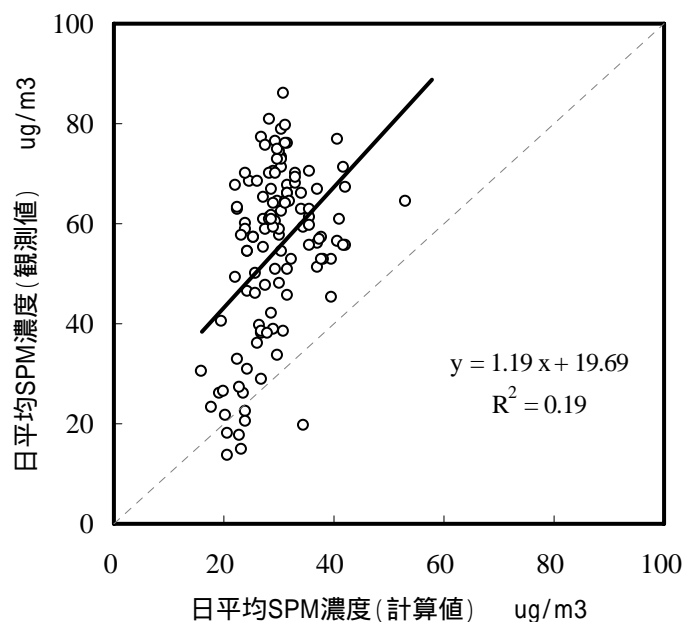
相関係数	-0.31
Y:測定局についての実測値の平均値	72.69
X:測定局についての計算値の平均値	35.73
a0:バックグラウンド濃度(=Y-X)	36.96
BG:自然界バックグラウンド濃度	20.00

条件 $a0 \leq 1/3(Y-BG)+BG$	
$1/3(Y-BG)+BG$	37.56
a0	36.96
判定	
条件 $a0 \leq 2/5(Y-BG)+BG$	
$2/5(Y-BG)+BG$	41.08
a0	36.96
判定	
条件 回帰直線の傾き及び相関係数	
回帰直線の傾き(0.8~1.2)	-0.76
相関係数(0.71~)	-0.31
判定	FALSE
条件 変動係数	
計算値の変動係数	0.266
変動係数のランク	
精度ランク	C

精度ランク ( A,B,C, - : ランク外)

図 8-12(4) SPM 再現性評価結果

2001年11月22日



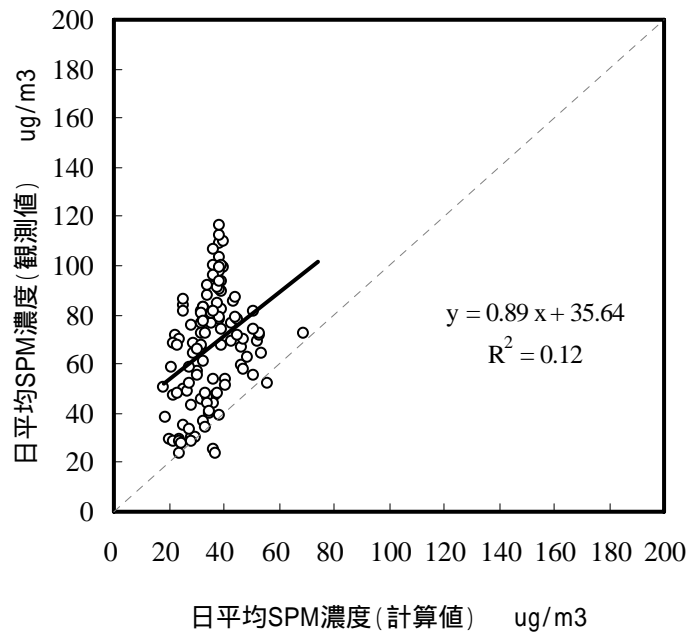
相関係数	0.43
Y:測定局についての実測値の平均値	54.96
X:測定局についての計算値の平均値	29.66
a0:バックグラウンド濃度(=Y-X)	25.30
BG:自然界バックグラウンド濃度	20.00

条件 $a0 \leq 1/3(Y-BG)+BG$	
$1/3(Y-BG)+BG$	31.65
a0	25.30
判定	
条件 $a0 \leq 2/5(Y-BG)+BG$	
$2/5(Y-BG)+BG$	33.98
a0	25.30
判定	
条件 回帰直線の傾き及び相関係数	
回帰直線の傾き (0.8 ~ 1.2)	1.19
相関係数(0.71 ~ )	0.43
判定	FALSE
条件 変動係数	
計算値の変動係数	0.277
変動係数のランク	
精度ランク	C

精度ランク ( A,B,C, - : ランク外)

図 8-12(5) SPM 再現性評価結果

2001年11月23日



相関係数	0.35
Y:測定局についての実測値の平均値	67.08
X:測定局についての計算値の平均値	35.45
a0:バックグラウンド濃度(=Y-X)	31.64
BG:自然界バックグラウンド濃度	20.00

条件 $a0 \leq 1/3(Y-BG)+BG$	
$1/3(Y-BG)+BG$	35.69
a0	31.64
判定	
条件 $a0 \leq 2/5(Y-BG)+BG$	
$2/5(Y-BG)+BG$	38.83
a0	31.64
判定	
条件 回帰直線の傾き及び相関係数	
回帰直線の傾き(0.8~1.2)	0.89
相関係数(0.71~)	0.35
判定	FALSE
条件 変動係数	
計算値の変動係数	0.318
変動係数のランク	
精度ランク	C

精度ランク ( A,B,C, - : ランク外)

図 8-12(6) SPM 再現性評価結果

(2)オキシダント濃度の検証

オキシダントについては、6月3日～4日、8月3日～4日の計算対象日について、表8-17に示すEPAの評価基準(表8-16)に従い、シミュレーション結果の評価を行った。評価に用いた地点はSPMと同様に128局の大気常時監視局として、カットオフ濃度を60ppbに設定し、スコアの算出を行った。評価結果の一覧を表8-17に示す。今回のテストシミュレーション結果では、6月3日～6月4日の事例で一部基準に達しない項目があったが、8月3日～4日の計算事例については、EPAの評価基準を満たす結果となった。

表8-16 オゾンのEPA指標による評価法

1)Normalized Bias (評価基準：NB ±0.15)
$NB = \frac{1}{N} \sum_N \frac{C_{obs} - C_{cal}}{C_{obs}}$
2)Normalized Gross Error (評価基準：NGE 0.35)
$NGE = \frac{1}{N} \sum_N \frac{ C_{obs} - C_{cal} }{C_{obs}}$
3)Maximum Prediction Accuracy (評価基準：MPA ±0.20)
$MPA = \frac{C_{obs,max} - C_{cal,max}}{C_{obs,max}}$
ここで、 $C_{obs}, C_{cal}$ :各地点、時刻における濃度の実測値と計算値 $N$ :評価対象としたデータ数

\*表1-2の再掲

表8-17 オキシダント濃度再現結果の評価

	2001/6/3	2001/6/4	2001/8/3	2001/8/4
データ数	1164	1109	643	330
$\Sigma(C_{obs}-C_{cal})/C_{obs}$	241.64	-47.44	-76.62	-42.27
$\Sigma C_{obs}-C_{cal} /C_{obs}$	384.47	282.56	180.59	105.54
ObsMax	142	194	164	140
CalMax	130.9	137.1	158.6	139.0
<b>NB ( ±0.15)</b>	<i>0.21</i>	<b>-0.04</b>	<b>-0.12</b>	<b>-0.13</b>
<b>NGE ( 0.35)</b>	<b>0.33</b>	<b>0.25</b>	<b>0.28</b>	<b>0.32</b>
<b>MPA ( ±0.20)</b>	<b>0.08</b>	<i>0.29</i>	<b>0.03</b>	<b>0.01</b>

\*斜体は目標を満たしていない項目

## 8.7 今後の課題

今年度のテストシミュレーションの結果から、オキシダントについては、今回選択した計算対象日については、ほぼ再現性が確保され、EPA の評価基準も概ね満足する結果が得られた。一方で、SPM については、観測値と比較すると計算値は全ての対象日について過小となっており、今後は SPM の再現性向上に努める必要がある。そこで、SPM の再現性向上に関連する項目を以下に整理した。

### (1) 気象場の再現性向上

環境大気中の SPM 濃度は気流場のみならず、気温や日射量といった気象要素も二次生成粒子の動態に関わる重要なファクターである。今年度のテストシミュレーションでは、一般的には概ね良好な再現性が確保されたが、部分的には観測値との乖離が顕著となる時間帯や地域があった。このため、気象モデルの選択オプションやパラメーターの最適化、境界値、同化データの見直し等により、さらなる気象場の再現性向上が、SPM 濃度の計算精度の向上にもつながるものと考えられる。

### (3) 発生源データの見直し

今年度のテストシミュレーションでは、今年度は H14 年度に環境省が実施した、「平成 14 年度浮遊粒子状物質環境汚染実態解析調査」において作成した平成 12 年度ベースの発生源データを用いてシミュレーションを行ったが、本来 CMAQ 入力用に整備された発生源ではないため、粒径分布や PM 組成については文献値等から暫定的に設定した。今後は、ベースとなる発生源インベントリについては、より新しい知見や多くの発生源を考慮したデータを用いることで、SPM の再現性向上にも寄与するものと考えられる。

### (4) 境界値の見直し

今年度のシミュレーションでは、境界値を大気常時監視局の観測値や過去のフィールド調査の結果を反映した推定値を設定したが、計算領域の境界に相当する地域については、データが乏しく、推定精度が十分でない可能性がある。そこで、今後は境界値について実測データを取得することも含め、精度の高い情報を入力することが必要であると考えられる。この際、海外からの長距離輸送も含めた計算対象領域外からの汚染物質の移流について定量的に見積もることが必要になるものと考えられる。また、今年度のテスト計算の結果から、計算領域の中心付近においても、境界濃度の変更による、大気質濃度への影響が示唆されたことから、計算対象領域をより大きく設定することも検討する。

### (5) 二次生成過程の見直し

今回のテスト計算の結果から、SPM について観測値よりも計算値の方が大幅な過小となる傾向について、粒子の二次生成がモデルで十分に再現されていないことが原因の 1 つと

して考えられた。このうち有機エアロゾルの過小評価については、前駆物質である VOC から粒子化する過程が、理論的にも十分に解明されていないことも含め、現状の大気質モデルの大きな課題であるといえる。一方で、無機の二次生成粒子についても、計算値の硝酸塩が夏季には過大、冬季には過小の傾向がみられた。前駆物質である  $\text{HNO}_3$  と  $\text{NH}_3$  濃度を見ると(図 8-13)、夏季・冬季ともに  $\text{NH}_3$ -rich の条件下であり、日中に生成する  $\text{HNO}_3$  が夏季は過大、冬季は過小であることが  $\text{NH}_4\text{NO}_3$  粒子の過多または過小につながっていることが示唆される。したがって、無機の二次生成粒子についても、前駆ガスの二次生成が適切に再現出来るような、オプションの選択やスキームの導入が必要であると考えられる。

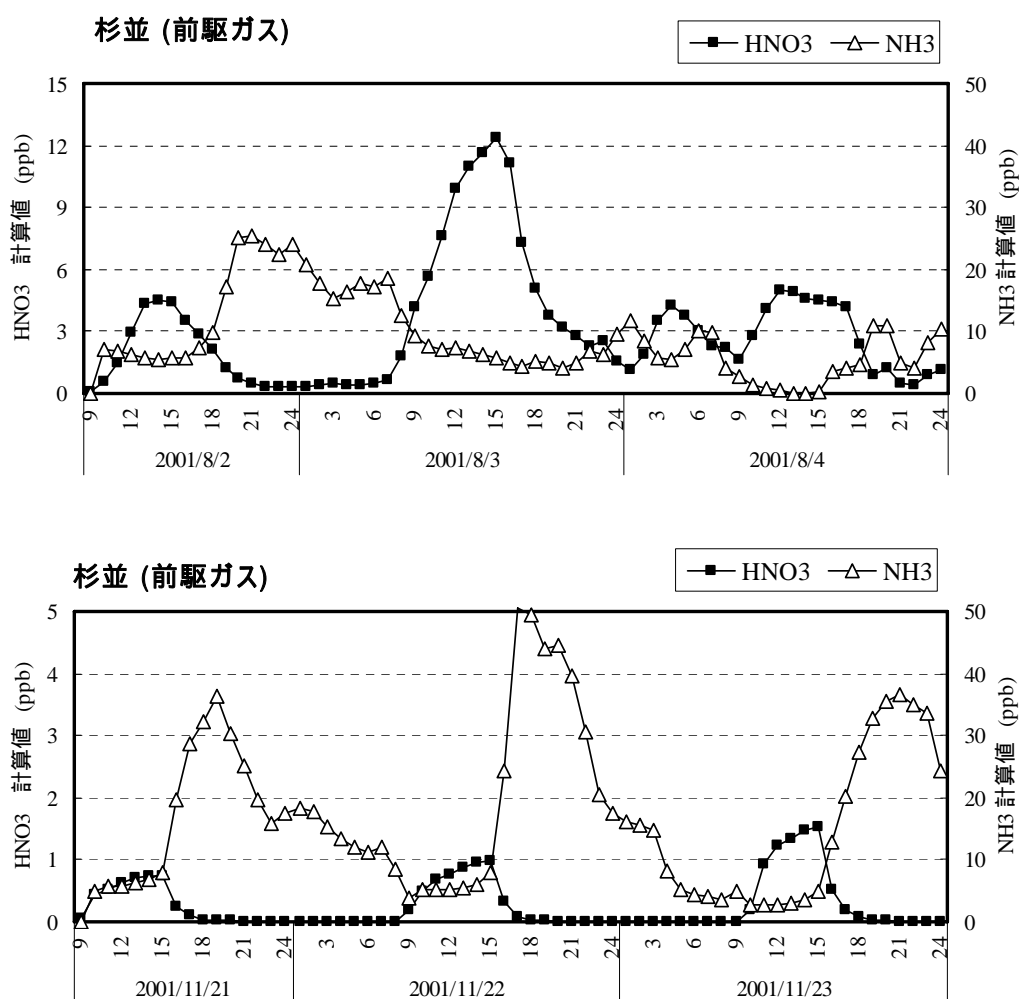


図 8-13  $\text{HNO}_3$  および  $\text{NH}_3$  濃度の時系列変化

#### 引用文献

D. W. Byun, J. K. S. Ching, Science algorithms of the EPA Models-3 Community multiscale air quality (CMAQ) modeling system, EPA/600/R-99/030, ch.4 (1999)

## 9 今後の検討事項

ここでは、VOC 規制による O<sub>x</sub> および SPM の環境濃度低減効果のシミュレーション、PM<sub>2.5</sub> と VOC の関係把握を進めていくうえで、今後取り組むべき課題や問題点について整理した。

### 9.1 発生源インベントリの精緻化

大気質シミュレーションを実施するうえで、発生源インベントリの推計精度は、シミュレーションモデル全体の精度に大きな影響を与える重要なファクターである。本章では発生源インベントリに関する、今後の課題を整理した。

#### (1) VOC 排出量の推計精度向上

特に、オキシダントや二次生成エアロゾルに着目する場合には VOC のメッシュ別排出量推計精度が重要となるが、国内において、固定発生源の VOC 排出量については、固定発生源からの全国ベースの年間排出量の集計結果が基礎資料となっている。シミュレーションモデルの入力用としては、メッシュ別・時刻別に配分する必要があり、少なくとも都道府県別の正確な排出量の把握が必要と考えられる。

また、移動発生源については、排出量の多くを占める自動車については、排出量算定の基礎となる最新の国内の VOC 排出係数や VOC 組成の実測データが十分とは言えず、まずは建設機械等を含めた実測データの充実が望まれる。

さらに、植物起源の VOC については、排出量、大気中の反応性の観点からも非常に重要であるが、排出量算定のモデルとなっている BEIS が、米国で開発されてきたこともあり、植物毎の排出係数や、日射や気温による排出量の補正方法が、日本国内の植生にも適合するかどうかについては、検証されないまま利用されているのが実態である。このような点も含め、JCAP の報告でも植物起源の VOC 排出量についてはファクター2 程度の推計誤差があるとされており、今後は植物起源 VOC の排出量推計精度の向上についても課題である。

#### (2) PM 排出量の推計精度向上

これまで環境省で整備してきた発生源インベントリでは、PM 排出量として集計を行ってきた。CMAQ も含めた最新の大気質シミュレーションモデルでは、PM 全量だけでなく、粒径別(最低限、粗大・微小の2 粒径区分)の情報と、成分組成の情報を入力する必要がある。日本国内においては、発生源別の粒径分布や成分組成についての新しい情報は、非常に少なく、これまでの国内を対象とした排出インベントリでも、欧州 CORINAIR や米国 EPA の SPECIATE データベースといった海外の調査事例が引用されていることが多い。今後は国内の発生源について(固定発生源については施設規模・種類毎)の PM 粒径分布や成分組成の実態把握調査が必要であると考えられる。



### (3) NO<sub>x</sub> 排出量の推計精度向上

これまで、NO<sub>x</sub> については自動車や固定発生源を中心として、行政としても排出量の把握に努めてきたところであるが、大気質モデルに入力するという観点では、NO と NO<sub>2</sub> の存在比率の把握も重要である。自動車から排出される NO<sub>x</sub> については、これまでは NO<sub>x</sub> の 5%～10%を NO<sub>2</sub> として換算していたが、近年のディーゼル車に対する PM 排出規制強化により、酸化触媒を装着した車種が増加し、これに伴い、排出される NO<sub>x</sub> に占める NO<sub>2</sub> の割合が増加することが報告されている(Department for Environment, Food and Rural Affairs; Welsh Assembly Government; and Department of the Environment in Northern Ireland, 2006)。特に、大気中のオゾンの動態には NO と NO<sub>2</sub> の存在比率が大きな影響を与えると考えられるため、今後は自動車から排出される NO<sub>x</sub> については排出量のみならず、NO と NO<sub>2</sub> の存在比についても最新の知見を反映していく必要がある。

### (4) アンモニア排出量推定精度向上

大気中のアンモニアは二次生成粒子の前駆物質として重要な役割を果たしているが、現状のアンモニアの排出量の推計結果には大きな誤差が含まれている可能性が指摘されている。特に、主要な発生源である、農業起源の排出量については、排出係数の不確実性が問題となっている(Kannari *et al.*)。大気中のアンモニアについては、濃度測定データが少ないことも合わせ、各発生源からの排出係数について、妥当性の検証を行い、アンモニア排出量の推計精度向上を図ることが重要である。

### (5) 未把握発生源の把握

排出量を推計する際の発生源として、国内ではこれまでは通常は考慮してこなかった野焼きや小規模港湾における漁船を含む小型船舶からの排出量が、環境大気中のオゾンや PM にどのようなインパクトがあるのかについては、これまで検証された事例がなく、将来的には調査が必要になってくるものと思われる。このためには、まずこれらの発生源からの排出量がどの程度になるかを把握する必要がある。また、従来から排出量が推計されてきた発生源のうち、自動車や船舶についても、いわゆる ”ハイエミッター車(船)” が現実の排出量には大きな寄与を与えていることが指摘されており(JCAP, 2007)、今後の実態把握調査が期待される。さらに固定発生源から排出される VOC については、大気中での反応性が比較的高い、エチレンやプロピレンが平成 14 年に集計した VOC 排出インベントリでは集計対象とはなっておらず、特にこれらの物質を排出する可能性のある石油関連プラントや自動車排ガスについては排出量についての実態調査が望まれる。

## 9.2 環境測定データの充実

### (1) VOC 組成の調査

大気中の VOC については、平成 17 年度より、排出量インベントリ上位 19 物質について、毎月 1 回濃度が測定されており、今後測定データが蓄積されることで、これまでの VOC 対策の効果検証の基礎データと活用出来るものと考えられる。一方で  $O_x$  や SPM の二次生成の観点からは、排出量としては、それほど多くなくても、大気中での反応性が高い物質であるエチレンやプロピレン、アルデヒド類についても補完的な調査が必要であると考えられる。また、大気質モデルの検証用データとして活用することを考えた場合には、高時間分解能のデータが必要であり、特に  $O_x$  や SPM の二次生成が問題となる夏季においては、1 週間程度の期間で計算対象地域の代表地点(少なくとも都心・郊外・山間部の 3 地点)において、3 時間間隔程度の時間分解能の VOC 組成を把握できることが理想的である。

### (2) PM 粒径分布・成分組成調査

大気中の PM 組成についても平成 17 年度より、関東、関西地域において、季節別の PM 組成の実態把握調査が実施されており、今後測定データが蓄積されることによって、組成の経年変化や地域別の特徴が明らかになっていくものと期待される。一方で、大気質モデルの検証用データとして活用することを考えた場合には、VOC と同様に高時間分解能のデータが必要であり、PM 高濃度の出現しやすい夏季と初冬季においては、1 週間程度の期間で計算対象地域の代表地点(少なくとも都心・郊外・山間部の 3 地点)において、PM の成分別粒径分布と 3 時間間隔程度の時間分解能の PM 組成を把握できることが理想的である。また、二次生成粒子の寄与を検証するうえでは、前駆物質である  $NH_3$  や  $HNO_3$ 、 $HCl$  についても、合わせてデータが取得出来ることが望ましい。

### (3) $PM_{2.5}$ 環境測定データの充実

日本においてはこれまで、粒子状物質の環境基準は SPM について定められていたため、大気常時監視局によるモニタリングやフィルターサンプリングによる測定事例についても、SPM を中心に蓄積されてきた。一方で、近年、欧米を中心に規制が導入(検討)されている  $PM_{2.5}$  については、SPM と比較すると我が国では測定データが非常に少ないのが現状である。したがって、今後日本においても  $PM_{2.5}$  の議論を進めるにあたっては、まずは実態把握調査が必要と考えられる。具体的には、 $NO_x$  や SPM と同様に自動測定機による質量濃度のモニタリングとフィルターサンプリングによる組成調査が必要であろう。これらのうち自動測定機による測定地点数は、「大気環境モニタリングの在り方に関する検討会」(平成 17 年、環境省)で提示された、ガイドラインに基づき全国的視点からの測定局を SPM と同様に算定する方法が考えられる。また、フィルターサンプリングによる組成調査については、平成 17 年度から実施されている「浮遊粒子状物質成分別濃度環境濃度解析調査」の継続実施が不可欠であると考えられる。なお、現状では  $PM_{2.5}$  については、フィルターサンブ

リングによる質量濃度の測定法については環境省の暫定マニュアルがあるが、これ以外に標準的な測定方法は定められていないため、実態把握調査に先立ち、基準となる PM<sub>2.5</sub> の測定方法を早急に策定する必要がある。

#### (4) モデル境界付近の実測調査

大気質モデルでは計算領域の外縁に相当するメッシュの物理量(風や濃度)を境界値(境界条件)とよび、通常はより広い領域の計算結果を入力する方法(ネスティング)や、実測データに基づく推定値を入力する方法が用いられる。しかし、計算領域の周縁部(関東領域であれば、山間部や海上)については、通常はほとんど観測値がないため、ネスティングや領域内の実測値により推定した境界値が、実際の値と整合しているかどうかは検証出来ないことが多い。O<sub>x</sub> や SPM については、海外からの汚染物質の移流を含め、計算対象領域外からの流入の影響が大きい可能性があり、モデル境界値の妥当性を検証出来るような実測データの取得が望まれる。

### 9.3 その他

#### (1) 大気質モデルの精緻化

本調査では大気質モデルとしては CMAQ の最新バージョン(v4.6)を用いたが、夏季の二次生成有機エアロゾル(SOA)については、過小評価の傾向がある。SOA 生成モデルも CMAQ のバージョンアップとともに確実に進歩しているが、再現精度は未だ十分であるとは言えない。この分野については、現在も海外の研究者を中心に改良が進められているが、海外の調査事例に基づいて開発されたモデルが、そのまま日本においても精度が確保できる保証がないことを考慮すれば、今後、モデル開発に必要なデータを独自に収集し、日本オリジナルのモデルを開発する体制の構築(あるいは支援)を期待したい。

#### 引用文献

Department for Environment, Food and Rural Affairs; Welsh Assembly Government; and Department of the Environment in Northern Ireland, Trends in Primary Nitrogen Dioxide in theUK (2006)

A.Kannari, Y.Tonoka, T.Baba, K.Murano, Development of multiple-species 1km×1km resolution hourly basis emissions inventory for Japan, Atmospheric Environment (*in press*)

(財)石油産業活性化センター JCAP 推進部, JCAP 第5回成果発表会予稿集 (2007)

## 10 全体まとめ

### シミュレーションフレームの検討

シミュレーションを実施するにあたり、下記の項目について検討を行い、方向性を定めた。

- ・ シミュレーションの目的
- ・ 基準年・対象年について
- ・ 対象地域について
- ・ 評価する物質と統計量について
- ・ 目標とする精度について
- ・ 使用する発生源データについて
- ・ フィールド調査データの整理解析について
- ・ 越境汚染のモデル化について
- ・ 今後のスケジュールについて

### 大気質モデルの検討

シミュレーションを実施するにあたり、利用する大気質モデルについて検討を行い、CMAQを選定した。

### 気象モデルの検討

シミュレーションを実施するにあたり、利用する気象気象モデルについて検討を行い、MM5(SYNFOS)を選定した。

### VOC 粒子化モデル(化学反応モデル)の検討

シミュレーションを実施するにあたり、利用する粒子化モデルと化学反応モデルの検討を行った。その結果、粒子化モデルについては AERO4、化学反応モデルについては CB05 または SAPRC の優位性が示唆されたが、今年度のテストシミュレーションについては、過去データの活用や作業工程上の利点を優先し、AERO3 および CB4 を選択することとした。

### 国内の発生源インベントリデータについて

現在までに整備されている日本国内を対象とした発生源インベントリの概要を整理した。また、本業務のシミュレーションを実施するに当たり、必要となる発生源インベントリの仕様をまとめた。なお、今年度のテストシミュレーションでは、環境省で実施された「平成 14 年度浮遊粒子状物質環境汚染実態解析調査」で作成された平成 12 年度ベースの発生源データを利用することとした。

## 海外から移流する汚染物質の影響と海外の排出インベントリについて

海外から移流してくる汚染物質が、日本国内の SPM 濃度やオキシダント濃度に与える影響について検討した。その結果、SPM については高濃度エピソードに限定した場合には、越境汚染の影響は相対的には小さくなるものの、年平均値レベルの議論をする場合には無視し得ない影響があることが示唆された。同様にオキシダントについても、海外からの汚染物質の移流が日本国内のバックグラウンド濃度に、大きく影響していることが明らかとなった。また、海外からの越境汚染の影響をシミュレーションにより定量的に把握することを想定した場合に利用可能と考えられる、海外の発生源インベントリの概要について整理した。

## VOC および SPM フィールド調査の整理

これまでに環境省を中心に実施された、VOC および SPM 関連のフィールド調査事例の概要を整理した。また、自治体で実施された同様の調査についても情報を収集し、シミュレーションモデルの検証用として活用可能な調査事例のリストアップを行った。

## テストシミュレーション

オキシダントおよび SPM の高濃度エピソードとして、3 つの計算事例(2001 年 6 月 3 日～4 日、2001 年 8 月 3 日～4 日、2001 年 11 月 22 日～23 日)を選定し、CMAQ によるテストシミュレーションを実施した。精度検証の結果、オキシダントについては全般的に良好な再現性が得られた。一方で SPM については計算値が観測値と比較して過小となっており、シミュレーションモデルを施策評価・検討に利用するにはさらなる再現性向上が必要であることが示された。

文献リスト(再掲)

秋元肇、光化学オキシダントの逆襲、大気環境学会誌、35、A48 – A51 (2000)

Arunachalam, S., Holland, A., Do, B., Michael Abraczkinskas, A quantitative assessment of the influence of grid resolution on predictions of future-year air quality in North Carolina, USA, *Atmospheric Environment*, 40, 5010 - 5026 (2006)

Biswas, J., Hogrefe, C., Rao, S.T., Hao, W., Evaluating the performance of regional-scale photochemical modeling systems. Part III - Precursor predictions, *Atmospheric Environment*, 35, 6129 - 6149 (2001)

Byun, D. W., Ching, J. K. S., Science Algorithms of the EPA Models-3 Community Multiscale Air Quality (CMAQ) Modeling System, EPA/600/R-99/030, U.S. Environmental Protection Agency, Office of Research and Development: Washington, DC, (1999)

Carmichael, G. R., Uno, I., Phadnis, M. J., Zhang, Y., Sunwoo, Y., Tropospheric ozone production and transport in the springtime in east Asia, *Journal of Geophysical Research*, M. Fujihara, S. Wakamatsu, K. Yamaguchi, M. Nakao, T. Tatano, T. Sagawa, Annual and seasonal variations in oxidant concentration in Matsue, Japan, *Atmospheric Environment*, 37, 2725 – 2733 (2003)

Dabdub, D.; Dehaan, L. L.; Kumar, N.; Lurmann, F.; Seinfeld, J. H., Computationally Efficient Acid Deposition Model for California, Draft; California Air Resources Board: Sacramento, CA (1997)

Dodge, M.C., Chemical oxidant mechanisms for air quality modeling: critical review, *Atmospheric Environment*, 34, 2103-2130 (2000)

Griffin, R. J., Dabdub, D., Fraser, M. P., Kleeman, M., Cass, G. R., Seinfeld, J. H., Thermodynamic Simulation of Secondary Organic Aerosol Using a Three-Dimensional Air Quality Model for Los Angeles. Presented at the 19th Annual American Association for Aerosol Research Conference, St. Louis, MO, Paper No. 8D2, November 6-10 (2000)

Guthrie, P. D.; Axelrad, D.; Mansell, G. E.; Gao, D.; Brauerman, T.; Cocca, P.; Atkinson, R. D., Integrated Air Quality Modeling for Regulatory Applications: 1. Description of REMSAD; ICF Consulting/SAI, San Francisco, CA. Unpublished manuscript (1999)

Jacobson, M. Z., Development and Application of a New Air Pollution Modeling System - , Aerosol Module Structure and Design, *Atmos. Environ.*, 31, 131-144 (1997)

Jimenez, P., Baldasano, J.M., Dabdub, D., Comparison of photochemical mechanisms for air quality modeling, *Atmospheric Environment*, 37, 4179-4194 (2003)

Jimenez, P., Parra, R., Gasso, S., Baldasano, J. M., Modeling the ozone weekend effect

- in very complex terrains: a case study in the Northeastern Iberian Peninsula, *Atmospheric Environment*, 39, 429 – 444 (2005)
- Jime'nez, P., Jorba, O., Parra, R., Baldasano, J. M., Evaluation of MM5-EMICAT2000-CMAQ performance and sensitivity in complex terrain: High-resolution application to the northeastern Iberian Peninsula, *Atmospheric Environment*, 40, 5056 - 5072 (2006)
- 環境省: 平成 14 年度浮遊粒子状物質総合対策検討にかかる調査(平成 15 年 3 月)
- 環境省: 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 (平成 15 年 3 月)
- 環境省、大気環境モニタリングの在り方に関する検討会、大気環境モニタリングの在り方について報告書 (平成 17 年 3 月)
- 関東地方環境対策推進本部大気環境部会浮遊粒子状物質調査会議:平成 16 年度浮遊粒子状物質合同調査報告書 (平成 18 年 3 月)
- 片山学, 大原利真, 村野健太郎、東アジアにおける硫黄化合物のソース・リセプター解析 - 地域気象モデルと結合した物質輸送モデルによるシミュレーション -、大気環境学会誌, 39(4), 200-217 (2004)
- Kato, S., Kajii, Y., Itokazu, R., Hirokawa, J., Koda, S., Kinjo, Y., Transport of atmospheric carbon monoxide, ozone, and hydrocarbons from Chinese coast to Okinawa island in the Western Pacific during winter, *Atmospheric Environment*, 38, 2975 – 2981 (2004)
- 国立環境研究所, 都市域における VOC の動態解明と大気質に及ぼす影響評価に関する研究, 国立環境研究所特別研究報告, SR-42-2001, pp.24 (2001)
- 光化学オキシダント対策検討会、光化学オキシダント対策検討会報告、東京都 (平成 17 年 2 月)
- Knipping, E. M., Dabdub, D., Impact of chloride emissions from sea-salt aerosol on coastal urban ozone, *Environmental Science and Technology*, 37, 275 – 284 (2003)
- Kusaka, H., Hayami, H., Numerical Simulation of Local Weather for a High Photochemical Oxidant Event Using the WRF Model, *JSME international journal. Ser. B, Fluids and thermal engineering*, 49, 72 - 77 (2006)
- Liu, M., Westphal, D. L., Wang, S., Shimizu, A., Sugimoto, N., Zhou, J., Chen, Y., A high-resolution numerical study of the Asian dust storms of April 2001, *Journal of Geophysical Research*, 108, ACE21-1 – ACE21-21 (2003)
- Lurmann, F. W.; Wexler, A. S.; Pandis, S. N.; Musarra, S.; Kumar, N.; Seinfeld, J. H., Modeling Urban and Regional Aerosols - Application to California's South Coast Air Basin; *Atmos. Environ.*, 31, 2695-2715 (1997)
- Lurmann, F.W.; Kumar, N., Development of Chemical Transformation Algorithms for Annual PM10 Dispersion Models; Report STI-95410-1602-FR; South Coast Air

- Quality Management District: Diamond Bar, CA (1997)
- Lurmann, F. W., Simplification of the UAMAERO Model for Seasonal and Annual Modeling: The UAMAERO-LT Model; Final Report; South Coast Air Quality Management District: Diamond Bar, CA (2000)
- Mao, Q., Gautney, L. L., Cook, T. M., Jacobs, M. E., Smith, S. N., Kelsoe, J. J., Numerical experiments on MM5-CMAQ sensitivity to various PBL schemes, *Atmospheric Environment*, 40, 3092 – 3110 (2006)
- Matsumoto, K., Uyama, Y., Hayano, T., Tanimoto, H., Uno, I., Uematsu, M., Chemical properties and outflow patterns of anthropogenic and dust particles on Rishiri Island during the Asian Pacific Regional Aerosol Characterization Experiment (ACE-Asia), *Journal of Geophysical Research*, 108, ACE34-1 – ACE34-15 (2003)
- 水野健樹、常時監視局の環境濃度の解析による関東都市部における最近のSPM濃度経年変化とその原因に関する考察、*大気環境学会誌*、41、249-258 (2006)
- Mori, I., Nishikawa, M., Quan, H., Morita, M., Estimation of the concentration and chemical composition of kosa aerosols at their origin, *Atmospheric Environment*, 36, 4569 – 4575 (2002)
- 森川多津子、CMAQ を用いた広域大気汚染解析技術の構築、*JCAP 技術報告書 PEC-2004AQ-09 Japan Clean Air Program* (2004)
- Naja, M., Akimoto, H., Contribution of regional pollution and long-range transport to the Asia-Pacific region: Analysis of long-term ozonesonde data, *Journal of Geophysical Research*, 109, D21306 (2004)
- Odman, M.T.; Russell, A. G., A Multiscale Finite Element Pollutant Transport Scheme for Urban and Regional Modeling; *Atmos. Environ.*, 25, 2385-2394 (1991)
- Odman, M. T., Georgia Institute of Technology, School of Civil and Environmental Engineering, Atlanta, GA. Private communication (1999)
- Office of Energy Conservation: Denver, CO, Regional Air Quality Council(RAQC). Development of the Denver Air Quality Model, version 2, Final Report to the State of Colorado, (1999)
- 大原利眞、鶴野伊津志、メソスケール大気汚染の数値シミュレーション、*大気環境学会誌*、32、A40 – A57 (1997)
- Ohara, T., Uno, I., Wakamatsu, S., Murano, K., Numerical simulation of the springtime trans-boundary air pollution in East Asia, *Water, Air, and Soil Pollution*, 130, 295 – 300 (2001)
- 大原利眞・坂田智之、光化学オキシダントの全国的な経年変動に関する解析、*大気環境学会誌*、38、47 – 54 (2003)
- Osada, K., Kido, M., Iida, H., Matsunaga, K., Iwasaka, Y., Nagatani, M., Nakada, H.,



- Seasonal variation of free tropospheric aerosol particles at Mt. Tateyama, central Japan, *Journal of Geophysical Research*, 108, ACE35-1 – ACE35-9 (2003)
- Pai, P.; Vijayaraghavan, K.; Seigneur, C., Particulate Matter Modeling in the Los Angeles Basin Using SAQM-AERO; *J. Air & Waste Manage. Assoc.* 50, 23-42 (2000)
- Pochanart, P., Hirokawa, J., Kajii, Y., Akimoto, H., Nakao, M., Influence of regional-scale anthropogenic activity in northeast Asia on seasonal variations of surface ozone and carbon monoxide observed at Oki, Japan, *Journal of Geophysical Research*, 104, 3621 - 3631 (1999)
- Pochanart, P., Akimoto, H., Kinjo, Y., Tanimoto, H., Surface ozone at four remote island sites and the preliminary assessment of the exceedances of its critical level in Japan, *Atmospheric Environment*, 36, 4235 – 4250 (2002)
- Pun, B.; Zhang, Y.; Vijayaraghavan, K.; Wu, S.-Y.; Seigneur, C.; Seinfeld, J. H., Development and Initial Application of the Model for Aerosol Dynamics, Reaction, Ionization, and Dissolution (MADRID), Presented at the A&WMA/AGU International Specialty Conference on Regional Haze and Global Radiation Balance, Bend, OR, October 2-5 (2001)
- Sakuraia, T., Fujitaa, S., Hyami, H., Furuhashi, N., A case study of high ammonia concentration in the nighttime by means of modeling analysis in the Kanto region of Japan, *Atmospheric Environment*, 37, 4461-4465 (2003)
- Satake, S., Uno, I., Takemura, T., Carmichael, G. R., Tang, Y., Streets, D., Sugimoto, N., Shimizu, A., Uematsu, M., Seok Han, J., Ohta, S., Characteristics of Asian aerosol transport simulated with a regional-scale chemical transport model during the ACE-Asia observation, *Journal of Geophysical Research*, 109, D19S22 (2004)
- Seigneur, C.; Hidy, G.; Tombach, I.; Vimont, J; Amar, P., Scientific Peer-Review of the Regulatory Modeling System for Aerosols and Deposition (REMSAD); U.S. Environmental Protection Agency, Office of Air Quality Planning and Standards: Research Triangle Park, NC (1999)
- Seigneur, C., Current status of air quality models for particulate matter, *Journal of Air & Waste Management Association*, 51, 1508 – 1521 (2001)
- Shrestha, K. L., Kondo, A., Morikawa, T., Kunimi, H., Nakatsuka, S., Kaga, A., Inoue, Y., Evaluating and comparing the predictions of meteorological models and their suitability for air quality modeling, 第 47 回大気環境学会年会講演要旨集, 1F1012 (2006)
- Strader, R.; Gurciullo, C.; Pandis, S.; Kumar, N.; Lurmann, F. W., Development of

- Gas-Phase Chemistry, Secondary Organic Aerosol and Aqueous-Phase Chemistry Modules for PM Modeling; Coordinating Research Council: Alpharetta, GA (1998)
- Streets, D. G., Chang, Y.-S., Tompkins, M., Ghim, Y.S., Carter, L. D., Efficient regional ozone control strategies for the eastern United States, *Journal of Environmental Management*, 61, 345–365 (2001)
- Streets, D. G., Bond, T. C., Carmichael, G. R., Fernandes, S. D., Fu, Q., He, D., Klimont, Z., Nelson, S. M., Tsai, N. Y., Wang, M. Q., Woo, J. H., Yarber, K. F., An inventory of gaseous and primary aerosol emissions in Asia in the year 2000. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 108, (D21) Art. No. 8809 (2003)
- Takigawa, M., Sudo, K., Akimoto, H., Kita, K., Takegawa, N., Kondo, Y., Takahashi, M., Estimation of the contribution of intercontinental transport during the PEACE campaign by using a global model, *Journal of Geophysical Research*, 110, D21313 (2005)
- 谷本直隆, 大原利眞, 鵜野伊津志, 菅田誠治, 植松光夫, 東アジアにおける炭素粒子動態のモデル解析, *大気環境学会誌*, 39(5), 229-245 (2004)
- Tesche, T. W., Morris, R., Tonnesen, G., McNally, D., Boylan, J., Brewer, P., CMAQ/CAMx annual 2002 performance evaluation over the eastern US, *Atmospheric Environment*, 40, 4906 - 4919 (2006)
- Tong, D. Q., Mauzerall, D. L., Spatial variability of summertime tropospheric ozone over the continental United States: Implications of an evaluation of the CMAQ model, *Atmospheric Environment*, 40, 3041 - 3056 (2006)
- 富山県環境科学センター、環境とやま、25 (2006年6月)
- Uno, I., Amano, H., Emori, S., Kinoshita, K., Matsui, I., Sugimoto, N., Trans-Pacific yellow sand transport observed in April 1998: A numerical simulation, *Journal of Geophysical Research*, 106, 18331 – 18344 (2001)
- Uno, I., Carmichael, G. R., Streets, D. G., Tang, Y., Yienger, J. J., Satake, S., Wang, Z., Woo, J.-H., Guttikunda, S., Uematsu, M., Matsumoto, K., Tanimoto, H., Yoshioka, K., Iida, T., Regional chemical weather forecasting system CFORS: Model descriptions and analysis of surface observation at Japanese island stations during the ACE-Asia experiment, *Journal of Geophysical Research*, 108, ACE36-1 – ACE36-17 (2003)
- 鵜野伊津志, アジアスケールの越境物質輸送モデリング, *大気環境学会誌*, 38, 1-12 (2003)
- 鵜野伊津志, 大原利眞, 菅田誠治, 黒川純一, 古橋規尊, 山地一代, 谷本直隆, 弓本桂也, 植松光夫, RAMS/CMAQ の連携システムによるアジア域の物質輸送シミュレーションシステムの構築, *大気環境学会誌*, 40, 148-164 (2005)

- Wakamatsu, S., Uno, I., Ohara, T., Schere, K. L., A study of the relationship between photochemical ozone and its precursor emissions of nitrogen oxides and hydrocarbons in Tokyo and surrounding areas, *Atmospheric Environment*, 33, 3097-3108 (1999)
- 若松伸司編、西日本及び日本海側を中心とした地域における光化学オキシダント濃度等の経年変動に関する研究、国立環境研究所 (2004)
- Wild, O., Pochanart, P., Akimoto, K., Trans-Eurasian transport of ozone and its precursors, *Journal of Geophysical Research*, 109, D11302 (2004)
- Yamaji, K., Ohara, Y., Uno, I., Tanimoto, H., Kurokawa, J., Akimoto, H., Analysis of the seasonal variation of ozone in the boundary layer in East Asia using the Community Multi-scale Air Quality model: What controls surfacezone levels over Japan ?, *Atmospheric Environment*, 40, 1856 – 1868 (2006)
- Yarwood, G., S. Rao, M. Yocke, and G. Whitten, Updates to the Carbon Bond Chemical Mechanism: CB05. Final Report to the US EPA, RT-0400675 (2005)  
(Available at [http://www.camx.com/publ/pdfs/CB05\\_Final\\_Report\\_120805.pdf](http://www.camx.com/publ/pdfs/CB05_Final_Report_120805.pdf).)
- 吉門洋、近年の光化学オキシダント濃度変化の一要因、*大気環境学会誌*、39、188-199 (2004)
- Zhang, M., Uno, I., Yoshida, Y., Xu, Y., Wanga, Z., Akimoto, H., Bates, T., Quinn, T., A. Bandy, B. Blomquist, Transport and transformation of sulfur compounds over East Asia during the TRACE-P and ACE-Asia campaigns, *Atmospheric Environment*, 38, 6947 – 6959 (2004)
- Zhang, M., Akimoto, H., Uno, I., A three-dimensional simulation of HO<sub>x</sub> concentrations over East Asia during TRACE-P, *Journal of Atmospheric Chemistry*, 54, 233 - 254 (2006)
- Zhang, Y., Liu, P., Pun, B., Seigneur, C., A comprehensive performance evaluation of MM5-CMAQ for the Summer 1999 Southern Oxidants Study episode—Part I: Evaluation protocols, databases, and meteorological predictions, *Atmospheric Environment*, 40, 4825 - 4838 (2006)
- Zhang, Y., Liu, P., A. Queen, C. Misenis, B. Pun, C. Seigneur, S.-Y. Wu, 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 (2006)
- Zhang, Y., Liu, P., Pun, B., Seigneur, C., A comprehensive performance evaluation of MM5-CMAQ for the summer 1999 southern oxidants study episode, Part III: Diagnostic and mechanistic evaluations, *Atmospheric Environment*, 40, 4856 - 4873 (2006)
- Zhang, M., Uno, I., Zhang, R., Han, Z., Wang, Z., Pu, Y., Evaluation of the Models-3

Community Multi-scale Air Quality(CMAQ) modeling system with observations obtained during the TRACE-P experiment: Comparison of ozone and its related species, *Atmospheric Environment*, 40, 4874 - 4882 (2006)

Zhang, M., Uno, I., Yoshida, Y., Xu, Y., Wang, Z., Akimoto, H., Bates, T., Quinn, T., Bandy, A., Blomquist, B., Transport and transformation of sulfur compounds over East Asia during the TRACE-P and ACE-Asia campaigns, *Atmospheric Environment*, 38, 6947 – 6959 (2006)