く特 集>大気シミュレーション~国環研の取組と地方環境研究所での活用事例~

大気シミュレーションの技術的概要と国立環境研究所での取り組み

茶谷 聡* (*国立研究開発法人 国立環境研究所)

1. はじめに

大気汚染物質のうち,光化学オキシダントの環境基準 の達成率は、ほぼ0%で推移している¹⁾。一方、粒径が2.5 マイクロメートル以下の微小粒子状物質(PM25)の環境 基準の達成率は、2021年度に100%に達した¹⁾。ただし、 アメリカではより厳しい環境基準値が提案されており ²⁾, 世界保健機関 (World Health Organization; WHO) はPM_{2.5}のAir Quality Guidelineとして5µg/m³という値 を示している³⁾。光化学オキシダントとPM。のさらなる 濃度低減が求められる。

光化学オキシダントの主成分であるオゾン(03)と, PM。」に含まれる多くの成分は、大気中での複雑な光化学 反応過程を経て生成される二次生成成分である。二次生 成成分の有効な濃度低減策を検討するためには、大気シ ミュレーションが有用である。本稿では、大気シミュレ ーションの技術的な概要と、国立環境研究所における取 り組みについて紹介する。

2. 大気シミュレーションの技術的概要

大気汚染の原因物質は、自動車、船舶、航空機などの 移動発生源、発電所や工場などの固定発生源の他、植 物、海塩、ダストなどの自然発生源からも大気中に排出 される。大気中に排出された原因物質は、風による移 流、拡散、対流などの物理過程より輸送される。その 間、光化学反応、液相反応、相平衡などの過程を経て変 質し,最終的には沈着により大気中から除去される。大 気シミュレーションは、このような大気中での大気汚染 物質とその原因物質の物理化学的な挙動を計算機上で模 擬したものである。

大気中での光化学反応過程を図1に模式的に示す4)。大 気中の二酸化窒素(NO₂)が紫外線を受けて、一酸化窒 素(N0)と酸素原子(0)に光解離する。0は酸素分子 (02) と反応し、03が生成する。03はNOと反応して消費 され(タイトレーション), NO₂が生成する。この場 合,03の生成と消費が定常状態に達するため,03が高濃 度になることはない。しかし、大気中に揮発性有機化合

物 (Volatile Organic Compound; VOC) が存在する場合 には、VOCから光化学反応を経て生成される過酸化ラジ カル (HO₂やRO₂など) によって, NOがNO₂へと酸化され る。03の消費を伴わずにNOが酸化され、03の元となるNO2 が生成することから、正味で03が増加することになる。



図1 大気中での光化学反応過程の模式図



図2 NOxとVOCに対する0₃の濃度の関係の模式図

このような複雑な光化学反応過程の影響により、03の 濃度は原因物質である窒素酸化物(NO_x)とVOCに対して 非線形な関係を有する。NO_xとVOCに対するO₃の濃度の関 係を等値線で模式的に図2に示す⁵⁾。NO_xとVOCの量的な関 係が、等値線の尾根を境とする「NO₂依存」と示した領 域にある場合には、NO_vを減らすとO₃は減少するが、VOC を減らしても03の濃度はあまり変化しない。逆に、 「VOC依存」と示した領域にある場合には、VOCを減らす と0₃が減少するが、NO_xを減らしても0₃はあまり変化しな

いばかりか,逆に増加するようなことも想定されうる。 0₃の有効な濃度低減策を立案するためには,このような 複雑な光化学反応過程による非線形な関係を考慮する必 要がある。

同じく,大気中での光化学反応や液相反応を経て,二 酸化硫黄(SO₂)が硫酸ガス(H₂SO₄),NO₂が硝酸ガス

(HNO₃) に酸化され、アンモニア(NH₃) などを伴って粒 子化する。VOCも水酸化ラジカル(OH) などによって酸 化され、有機二次粒子(Secondary Organic Aerosol; SOA) が生成する。どれだけの量が粒子化するかは、関 連する成分間の量的関係や相平衡定数、気温や湿度など に依存する。粒子成分によっては、 O_3 と同様に原因物質 との間に強い非線形な関係を有するものもある⁶。

大気シミュレーションの典型的な構成を図3に示す。 大気シミュレーションは3つの主要素で構成される。排 出インベントリは、あらゆる発生源から排出される大気 汚染の原因物質の時々刻々の排出量をとりまとめたもの である。領域気象モデルは、風、気温、湿度、日射量な どの気象要素の時々刻々の変化を計算するものである。 そして、排出インベントリと、領域気象モデルで計算さ れた気象場を入力として、さまざまな物理化学過程によ る大気汚染物質とその原因物質の大気中での時々刻々の 濃度変化を領域化学輸送モデルで計算する。



図3 大気シミュレーションの典型的な構成

領域化学輸送モデルには、複雑な光化学反応過程が組 み込まれており、0₃や二次粒子成分に対する原因物質の 非線形な関係を表現することができる。ただし、大気中 には非常に多くの物質が存在しており、その全てを個別 に表現することは計算負荷が高く不可能である。一般的 には、大気中の物質と光化学反応を適切な数に集約して 表現する化学反応メカニズム^{7,8)}が用いられる。また、 無機成分のガス・粒子相平衡モデル⁹⁾の他、近年では有 機成分の反応による揮発性の変化と粒子化を詳細に表現 するモデル¹⁰⁾が組み込まれており、原因物質からの粒子 化が表現される。

このように、大気シミュレーションにより、原因物質 との複雑で非線形な関係を考慮しながら、ガス状および 粒子状の大気汚染物質濃度の時々刻々の変化を計算する ことができる。これにより、新たな対策の導入により原 因物質の排出量を削減した場合に、二次生成成分を含む 大気汚染物質の濃度がどれぐらい変化するかを予測し、 有効な濃度低減策の立案に資する知見を得ることができ る。また、大気汚染のメカニズムの解明、発生源影響の 評価、大気汚染物質濃度の予報の他、観測が行われてい ない地域を含めて大気汚染物質濃度の空間分布が得られ ることから、常時監視局の適正配置の検討¹¹¹などにも役 立てることができる。

次章では、大気シミュレーションの主要素である領域 化学輸送モデルとして日本国内でも広く用いられている The Community Multiscale Air Quality Modeling System (CMAQ) について紹介する。

3. 領域化学輸送モデルCMAQの概要

アメリカでは、大気汚染物質の環境基準を達成してい ない地域に対して、State Implementation Plan (SIP) の策定が求められる。SIPの策定にあたっては、SIPに掲 げられる様々な対策による大気汚染物質濃度の低減効果 を、大気シミュレーションを用いて評価する必要がある ^{12,13)}。そのような背景もあり、アメリカでは領域化学輸 送モデルの開発が積極的に進められている^{14,15)}。CMAQ は、1998年に最初のバージョンが公開されて以来、アメ リカ環境保護庁により開発が継続されている領域化学輸 送モデルである¹⁶⁾。本稿の執筆時点でversion 5.4まで 開発されている。

CMAQの詳細はアメリカ環境保護庁のウェブサイト (<u>https://www.epa.gov/cmaq</u>) で紹介されているが,本

稿ではその概要について述べる。CMAQの特徴の一つとし て、名称にも含まれているように、コミュニティ (Community)モデルであるということが強く意識され ている。CMAQは、大気を東西方向、南北方向、鉛直方向 の3次元の格子に区切って扱うオイラー型のモデルであ り、それぞれの格子に含まれる大気汚染物質とその原因 物質の移流、拡散、反応、沈着などのさまざまな物理化 学過程による濃度変化を、時間間隔毎に計算する。モデ ルのソースコードの言語にはFortranが使用されてい る。それぞれの物理化学過程はモジュール化されてお り、外部の研究者が着目する過程について自身でソース コードに改良を加えて組み込むということが比較的容易 にできる構成となっている。アメリカ環境保護庁だけで はなく外部の研究者を含むコミュニティでCMAQをよりよ いものに作り上げていくという思想が反映されている。 また、ノースカロライナ大学チャペルヒル校に Community Modeling and Analysis System (CMAS) Centerという組織が設置され、CMAQの配布、メールやウ ェブサイト上での情報交換、トレーニングなどを担って いる。CMASが毎年開催している国際会議には、アメリカ 内外から数百名が参加し、CMAQに限らず大気シミュレー ション全般に関する研究発表と情報交換が行われてお り、CMAQのコミュニティの発展に貢献している。アメリ カだけではなくアジアや南アメリカへの展開も図られて おり、アジアで開催される2回目の国際会議となる2023 International Conference on CMAS-Asia-Pacificが、 2023年7月に埼玉県さいたま市で開催され、国内外から 100名以上の参加があった。

CMAQのもう一つの特徴として、やはり名称に含まれて いるように、マルチスケール (Multiscale) が挙げられ る。モデルによる大気汚染の解析は、単一の発生源から 排出される汚染物質の拡散にはじまり,都市スケールで のオゾンや粒子状物質による大気汚染に拡大し、さらに は越境輸送や半球規模での輸送を考慮する必要性が生じ てきた。時間スケールについても、数日間の高濃度大気 汚染にはじまり、環境基準の達成や対策効果などを評価 する上で、1年から複数年にわたる期間を対象に計算を 行う必要性が生じてきた。計算機能力の向上もあり、こ れらの必要性に応えられるように、空間的には都市から 半球規模17,18),時間的にも1時間から数年にわたるマル チスケールを扱えるようになってきている。ただし、半 球規模に至る広域を全て数kmの高解像度で扱うのは計算 負荷的に現実的ではない。広域は粗い解像度で計算し, その計算結果を境界条件として内側をより細かい解像度 で計算するone-way nestingにより、マルチスケールで の輸送を扱えるようになっている。

また、「one atmosphere」という概念が意識されてい る。大気環境問題として、都市大気汚染、光化学スモッ グ、酸性雨、気候変動との相互作用などがあり、これら の問題に対して複数の大気汚染物質が関わっている。中 には単一の物質が複数の大気環境問題に影響を及ぼして いる場合もある。CMAQは「one atmosphere」の概念の 下、複数の大気汚染物質とその原因物質の大気中での物 理化学的挙動を統一的に扱い、さまざまな大気環境問題 への影響を解析することができるように、開発が継続さ れている。

CMAQの構成を図4に示す。大気汚染物質とその原因物 質の濃度変化を計算するChemistry Transport Model

(CCTM)の他、CCTMへの入力データを作成する複数の
 preprocessorで構成される。図3に示したように、気象
 場は領域気象モデルで計算し、その計算結果を
 Meteorology-Chemistry Interface Processor (MCIP)

¹⁹⁾でCCTMへの入力データへと変換する。MCIPは、領域気 象モデルのWeather Research & Forecasting Model (WRF)²⁰⁾の出力データファイルを直接読み込めるよう になっていることから, CCTMに入力する気象場の計算に はWRFが広く用いられている。CCTMへの入力排出量デー タの作成には, Sparse Matrix Operator Kernel for Emissions (SMOKE) が用いられる。ただし、あらゆる排 出インベントリをSMOKEで変換できるわけではない。ア メリカでは、公式の排出インベントリであるNational Emissions InventoryをSMOKEで変換するための枠組みが 整っており, SMOKEを各国の排出インベントリに対応さ せようという取り組みはあるものの^{21,22)},現時点では SMOKEは日本の排出インベントリには対応していない。 よって、日本の排出インベントリを使用するためには、 独自のデータ変換ツールを用意する必要があり、それに ついては後述する。初期条件はICON、境界条件はBCONで 作成する。時間不変の濃度プロファイルを与えられるよ うになっている他、外側領域の計算結果から内側領域の 初期条件と境界条件を作成することも可能である。海塩 粒子など、気象条件や土地利用に依存する排出量につい ては、モデルの中でオンラインで計算できるようになっ ている。CCTMによる計算結果を評価するための Atmospheric Model Evaluation Tool (AMET), 可視化 するためのVisual Environment for Rich Data Interpretation (VERDI) が用意されている他, Python

やRなどの汎用言語で計算結果を処理することも可能で ある。





CMAQのソースコードはCMASのウェブサイト (https://cmascenter.org/index.cfm) より無償でダウ ンロードすることができる。同じくCMASのウェブサイト より参照できるユーザーマニュアルによると, CMAQを実 行するための計算機環境として, 8コアのCPU, 4GBのメ モリ, 400GBのハードディスクを有するLinuxのワークス

テーションが推奨されており、デスクトップのワークス テーションでも実行が可能なレベルである。ただし、対 象とする計算領域の格子数や計算対象期間、実行する計 算ケース数などによって,望まれる計算機環境は大きく 変わってくる。ユーザーマニュアルに挙げられている例 によると、アメリカ南東部の100×80×35格子の対象領 域の1日分の計算に必要な入力データのサイズは6.7GB, 出力データのサイズは6.3GB,計算時間は4コアで47分と されている。筆者が関東地方の51×57×30格子の領域を 対象に行った計算では、1日分の入力データのサイズが 1.0GB, 出力データのサイズが2.5GB, Intel Xeon Platinum 8164 CPUの8コアを使用した計算時間は25分で あった。必要とされるソフトウェアとして, Fortranの ソースコードをコンパイルするためのコンパイラが必要 である。複数のコアを利用した並列計算を行う場合に は, Message Passing Interface (MPI) ライブラリも必 要になる。CMAQの入出力データファイルはnetCDFをベー スとするI/O APIと呼ばれるフォーマットに従ってお り, それらのライブラリも必要である。CMAQの実行は, 計算条件や入出力ファイルを記述した実行スクリプトを コマンドベースで実行させることで行い、計算条件を視 覚的に設定できるようなインターフェースは用意されて いない。よって、Linuxのコマンドに対するある程度の 知識も必要とされる。

CMAQは、アメリカだけではなく世界中の研究者や行政 などによって広く活用されている。CMAQを用いた研究に 関する学術論文は年々増加している。調査²³⁾によれば、 2022年にはCMAQを用いた研究に関する学術論文が194本 発行され、そのうちの97本の著者に中国、75本にアメリ カ、25本に韓国、6本に日本の研究者が名を連ねてい る。

4. 国立環境研究所での取り組み

筆者が所属する国立環境研究所の地域環境保全領域大 気モデリング研究室では、CMAQを用いた大気シミュレー ションによるさまざまな研究を行っている。また、CMAQ で大気汚染物質濃度の予報を行うVisual atmospheric ENvironment Utility System (VENUS)²⁴⁾の開発と運用 を行っており、予報結果をウェブサイト

(<u>https://venus.nies.go.jp/</u>)上で公開している。筆 者は主に,入力データとして重要な排出インベントリの 構築,大気シミュレーションを実行するための枠組みの 整備,大気シミュレーションの実行を通した大気質改善 に資する知見の導出などに取り組んでいる。その中か ら,本稿では環境研究総合推進費(以下,推進費と表記 する)の研究課題として実施したいくつかの研究内容に ついて紹介する。

4.1 領域化学輸送モデル間相互比較

2016~2018年度に実施した推進費研究課題5-1601「大 気中の二次汚染物質に対する発生源寄与推計と対策立案 に資する規範的モデルの確立」では、Japan's Study for Reference Air quality Modeling (J-STREAM)²⁵⁾と 称し、大気中での光化学反応過程を経て二次的に生成す る0₃やPM_{2.5}に対して信頼性の高い規範的な領域化学輸送 モデルを確立し、有効な対策立案に資することを目的と して、領域化学輸送モデル間の相互比較に取り組んだ。 地方環境研究所を含む国内の多くのモデル研究者の参加 を得て、共通の領域化学輸送モデルへの入力データを配 布した。参加者のモデルによって計算された0₃やPM_{2.5}な どの濃度を相互に比較し、その結果についてデータ検討 会を開催して議論を深めることにより、濃度再現性を向 上させるための方向性を明らかにした。



図5 全モデルによって計算された 関東地方の対象常時監視局における 0₃の日最高8時間値の期間平均値と観測値の比較



図6 全モデルによって計算された 関東地方の常時監視局における 0₃の日最高8時間値と観測値の時系列比較

相互比較の一例26)として、参加した全てのモデルによ って計算された関東地方の対象常時監視局における0.濃 度の日最高8時間値の期間(2013年7月23日~8月9日)平 均値と観測値の比較を図5に示す。また、日最高8時間値 の観測値と計算値の時系列比較を図6に示す。全てのモ デルによる計算値の範囲を箱ひげ図で示している。この 相互比較にはM01からM33までの33モデルが参加した。濃 度の日変動傾向については比較的よく再現されたもの の、全てのモデルが濃度の絶対値を過大評価していた。 ただ、モデルによっては計算値が観測値により近いもの もあった。その原因について調べたところ、2013年夏に は西風による大陸からの越境輸送の影響が大きく、CMAQ の新しいバージョンに組み込まれた海上でのハロゲンが 絡む反応と沈着²⁷⁾,モデルに組み込まれている複数の化 学反応メカニズムによる違い²⁸⁾,およびモデルによる鉛 直方向の輸送の扱いの違いが、計算値に違いを生じさせ る主要因であることが明らかになった。

同様のモデル間相互比較をPM2.5についても行い,モデ ルによるPM2.5計算値の違いの要因を明らかにした^{29,30)}。 また,モデルによる濃度再現性に大きな影響を及ぼす気 象場について,領域気象モデルの設定の違いによる気象 場と大気汚染物質濃度の計算値への影響を検討し,その 結果と参加者間での議論を基に規範的なモデル設定とし てとりまとめた。

4.2 大気シミュレーションの枠組みの整備

J-STREAMでは、モデル間相互比較だけではなく、モデ ルの使用者がより容易に大気シミュレーションを実行で きるように、その枠組みを整備することも目的としてい た。そこでネックとなるのが、排出インベントリデータ の変換である。前述の通り、SMOKEは日本の排出インベ ントリには対応していないため、J-STREAMおよび2019~ 2021年度に実施された推進費研究課題5-1903「大気汚染 対策効果評価のためのシミュレーション支援システムの 研究開発」において,日本の排出インベントリに対応し た排出量データ変換ツールの構築を行った。

構築した排出量データ変換ツールの構成を図7に示 す。排出インベントリデータをモデル入力データへと変 換するために、さまざまな処理を行う構成となってい る。排出インベントリの対象年と大気シミュレーション の対象年が異なる場合には、年による排出量の変化率を 乗じて年次補正を行う。大気シミュレーションでは、排 出量を増減させて大気汚染物質濃度への影響を評価する ことが多くあり、排出量に倍率を乗じて増減させる。排 出インベントリの排出量が年総量の形で与えられている 場合には、月別の排出割合を乗じて月変動を考慮する。 曜日による排出量の変動が大きい場合には、曜日別の排 出割合を乗じて曜日変動を考慮する。モデルには1時間 毎の排出量を与える必要があり、時刻別の排出割合を乗 じて時刻変動を考慮する。前述の通り、領域化学輸送モ デルでは, 化学反応メカニズムに基づき成分と光化学反 応を集約して表現する。組成分解は、排出インベントリ で与えられているVOCやPM2.5などの排出量を、モデルが 扱う成分別に分解するものである。一般的に、排出イン ベントリの水平解像度は、大気シミュレーションの対象 領域の水平解像度とは異なる。排出インベントリの水平 解像度での排出量を、大気シミュレーションの対象領域 の格子に割り当てるために、水平分解を行う。鉛直方向 も同様に、排出量を大気シミュレーションの鉛直層に割 り当てるために、鉛直分解を行う。これらの変換を施し た時刻別、成分別、格子別の排出量を、CMAQが必要とす るI/O APIフォーマットでファイルに出力するツールと なっている。



図7 排出量データ変換ツールの構成

図7に示すように、これらの変換をするためには、成 長係数、排出倍率、月分解係数、曜日分解係数、時刻分 解係数、組成分解係数、水平分解係数、鉛直分解係数が 必要となるが、これらの係数類を全てモデルの使用者が 自分で揃えるのは容易ではない。そこで、表1に示す複 数の排出インベントリデータを変換するための全ての係 数類を「排出量データ変換用データセット」として取り 揃えた。環境省の植生調査データから,植物起源VOC排 出量を推計するためのモデルであるModel of Emissions of Gases and Aerosols from Nature (MEGAN)³¹⁾への入 カデータも作成できるようになっている。CMAQで海塩粒 子の排出量をオンラインで推計するために必要な海洋の データファイルも作成することができる。なお,水平分 解係数については、モデル使用者が指定する計算対象領 域に依存するため、CMASが開発しているSpatial allocatorを利用した水平分解係数作成ツールを構築 し、表1に示す全ての排出インベントリについて、モデ ル使用者の計算対象領域に対応した水平分解係数を作成 できるようにしている。

表1 「排出量データ変換用データセット」の 対象排出インベントリ

対象発生源	排出インベントリ
国外(アジア)人為発生源	REAS ³²⁾
国外(アジア以外)人為発生源	EDGAR ³³⁾
バイオマスバーニング	GFED ³⁴⁾
国内自動車	環境省PM2.5排出インベントリ
国内自動車以外輸送	環境省PM2.5排出インベントリ
国内固定発生源	J-STREAM ³⁵⁾
日本周辺船舶	GLIMMS-AQ ³⁶⁾
火山	Carn et al. ³⁷⁾ , 気象庁
国内植生	環境省植生調査
海洋	GSHHG ³⁸⁾ ,国土数值情報

排出量データ変換ツールは、csv形式で入力データを 作成し、CMAQと同様に実行スクリプトをLinuxのコマン ドベースで実行させるようになっており、Linuxになじ みのない利用者には敷居が高く感じられるかもしれな い。そこで、我々の研究室で開発されている大気汚染シ ミュレーション支援システム(APOLLO)では、計算対象 領域の設定に加えて、排出量を増減させて大気汚染物質 濃度の変化を大気シミュレーションで評価することを想 定し、排出量データ変換ツールへの入力データである排 出倍率について、地域別、物質別、部門別の排出倍率を インターフェース上で指定し、csv形式の入力データフ ァイルを作成することができるようになっている。

排出量データ変換ツールやデータセット,水平分解係 数作成ツールなど,J-STREAMおよびその後の推進費研究 課題での成果として構築したツールやデータセットにつ いては、ウェブサイト

(<u>https://www.nies.go.jp/chiiki/jstream.html</u>)より 申請を行い,無償で入手することができる。J-STREAMで のモデル間相互比較のために参加者に配布した入力デー タファイルも公開しており,大気シミュレーションによ る試算などに有用である。

4.3 発生源感度解析

大気汚染物質の有効な濃度低減策を立案するために は、まず、大気汚染物質濃度に対する発生源の影響を把 握する必要がある。発生源の影響を評価する主な指標と して、発生源寄与と発生源感度がある³⁹⁾。発生源寄与 (source apportionment)は、大気汚染物質濃度のう ち、各発生源に由来するものの割合に相当する。一方、 発生源感度(source sensitivity)は、各発生源の排出 量が変化した場合に、大気汚染物質濃度がどれぐらい変 化するかに相当する。いずれも大気シミュレーションで 評価することが可能であるが、本稿では発生源感度を評 価した研究例⁴⁰⁾を紹介する。

大気シミュレーションで発生源感度を評価する方法は いくつか存在するが、ここではBrute Force Method

(BFM) を採用した。BFMでは、まず全ての発生源の排出 量データを使用したベースケースの計算を実行する。そ の後、対象とする発生源の排出量を変化させた計算を実 行する。計算された大気汚染物質濃度のベースケースと の差を、その対象発生源の感度として評価する。2016年 4月から翌2017年3月までの1年間を計算対象期間とし、 表2に示す12発生源の感度を評価した。

表2 発生源感度解析の対象発生源

主力	社会恋生涯	
衣記	对家発生源	
s01	自動車	
s02	船舶	
s03	自動車以外輸送(機械,鉄道,航空機)	
s04	固定燃焼(発電,産業,業務)	
s05	バイオマス燃焼(喫煙,調理,野焼き)	
s06	家庭での燃料燃焼	
s07	蒸発VOC発生源	
s08	農業(野焼きを除く)・蒸発NH』(施肥,家畜など)	
s09	自然(火山,植物,土壤)	
s10	朝鮮半島からの越境輸送	
s11	越境輸送(朝鮮半島を除く)	
s12	海塩粒子	

首都圏の0₃とPM_{2.5}の月平均濃度の計算値に対する発生 源感度を図8に示す。0₃に対しては越境輸送(s11)の感 度が支配的である。一方,国内の自動車(s01)や固定 燃焼(s04)の感度は負になっている。これらの発生源 から排出されるNOにより0₃が消費されるタイトレーショ ンによるものである。ただし,負の感度には季節変動が あり,光化学反応が活発な夏季には負の感度はほとんど 見られない。0₃の月平均濃度に対しては越境輸送の影響 が大きく,国内発生源の排出量を削減しても0₃の月平均 濃度を低減させるのは難しいことを示唆している。PM_{2.5} についても越境輸送(s11)の感度が大きいが,自動車 (s01),船舶(s02),固定燃焼(s04)の他,農業・
 蒸発NH₃(s08),自然(s09)もある程度の感度を有している。これらの排出量を削減することにより,PM_{2.5}濃度を低減できる可能性を示唆している。



図8 首都圏の0₃とPM2.5月平均濃度に対する発生源感度



図9 首都圏のPM2.5成分別月平均濃度に対する 発生源感度

PM_{2.5}はさまざまな成分の集合体であり,図9に示すように,成分によって発生源感度が大きく異なる。国内発 生源のうち,自動車(s01),船舶(s02),固定燃焼 (s04)の他,SO₄²⁻に対しては火山の影響による自然 (s09),元素状炭素(EC)に対しては自動車以外輸送 (s03),一次排出有機成分(POA)に対してはバイオマ ス燃焼(c05)の感度も比較的大きい。また,NH₃を排出 しないにもかかわらず,NH₄⁺に対して船舶(s02)や固定 燃焼(s04)が感度を有している他,NO_xを排出しないに もかかわらず、NO₃で対して農業・蒸発NH₃が感度を有している。NH₄NO₃の粒子化に対してNH₃とNO_xの両者が相互に影響を及ぼすためである。このように、PM_{2.5}の成分によって発生源感度が異なるだけではなく、NH₃とNO_xのように複雑な影響も現れうることから、各成分の濃度を低減するためには、このような発生源感度の特徴を理解する必要がある。

4.4 対策によるオゾン濃度低減効果の評価

光化学オキシダントの環境基準達成率は極めて低い状 態で推移している。常時監視局で観測されている光化学 オキシダントの昼間の日最高1時間値の年平均値はやや 上昇もしくは近年ではほぼ横ばいの状態にある1)。03の 原因物質であるNO_vとVOCに対してこれまでにさまざまな 対策が施され、排出量が削減されてきた。特にVOCにつ いては、2000年比で排出量を3割削減することを目標 に,規制と自主的取組のベストミックスによる対策が行 われてきたが、目標は既に達成されたにもかかわらず、 光化学オキシダントの環境基準の達成率は依然として低 いままであり、対策の効果が問われている。ただし、光 化学オキシダント濃度の長期的な改善傾向を評価する新 指標値(8時間値の日最高値の年間99パーセントタイル 値の3年平均値)で見れば、地域によっては低減傾向が 見られている¹⁾。濃度の見方によって変化傾向が異なる ことが示唆される。

このような0₃の長期的な濃度変化を,対策などによる 排出量の変化によって説明づけることができるのか, 2021年度から2023年度までの予定で実施している推進費 研究課題5-2105「対策によるオゾン濃度低減効果の裏付 けと標準的な将来予測手法の開発」において,検討を行 っている。本研究では,2000年以降の長期間を対象に, 対策などによる排出量の変化を表現した排出インベント リを構築し,長期間連続の大気シミュレーションを実行 することにより,0₃濃度の長期的な変動傾向に対する国 内発生源対策,および越境輸送や気象条件の影響を明ら かにしようとしている。本稿ではその前段階として,排 出量の変化による0₃濃度の変化を簡易的に評価した結果 ⁴¹について紹介する。

本研究で新たに推計した,2000~2019年の日本国内の NO_xとVOCの排出量を図10に示す。いずれもさまざまな対 策によって排出量が減少していることがわかる。特に自 動車に対する対策の効果が顕著に現れている。非燃焼 VOCについては,規制や自主的取組などの対策によっ て,目標を上回る排出量の削減を達成している。その結 果,近年ではVOC排出量総量に対する植物起源の寄与が 相対的に大きくなってきている。



図10 2000~2019年の日本国内のNO_xとVOCの排出量

2018年の1年間を対象とし、図10に示した自動車、固 定燃焼,非燃焼V0Cについて,2018年の排出量を使用し たケースと2000年の排出量を使用したケースの2ケース の計算を大気シミュレーションで実行し、両年間の排出 量の変化による0.の濃度変化を評価した。なお、濃度の 見方によって変化傾向が異なることが示唆されているた め、濃度変化を表3に示す6種類のタイムスケールで評価 した。このうち, MEAN_ALL, MEAN_MDA8, MEAN_PEAKが日 別値の年間平均値、99P_MDA8、TOP10_MDA8、MAX_PEAKが 年間の高濃度にあたる。MEAN_PEAKが,環境省の「大気 汚染状況について」¹⁾で示されている日最高1時間値の年 平均値, 99P MDA8の3年平均値が新指標値に相当する。 アメリカでSIPによる大気汚染物質濃度の低減効果を大 気シミュレーションで評価する際には、TOP10 MDA8の日 最大8時間値の年間上位10日の計算結果が採用される ^{12,13)}。MAX PEAKは環境基準達成の評価に用いられる。

表3 0₃濃度変化を評価したタイムスケール

表記	定義	用途
MEAN_ALL	年平均値	
MEAN_MDA8	日最大8時間値の	
	年間平均値	
MEAN_PEAK	日最大1時間値の	環境省
	年間平均値	「大気汚染状況について」
99P_MDA8	日最大8時間値の	3年平均値が
	年間99%タイル値	新指標値に相当
TOP10_MDA8	日最大8時間値の	アメリカSIPの
	年間上位10日平均	対策効果評価に使用
MAX_PEAK	日最大1時間値の	環境基準達成の評価
	年間最大値	

〔全国環境研会誌〕 Vol. 48 No. 4 (2023)

関東地方周辺で計算された03濃度の分布と観測値との 比較を図11に示す。上がMEAN_ALL(年平均値),下が 99P_MDA8(日最大8時間値の年間99%タイル値)のタイム スケールで評価したもので、それぞれ左から、2018年の 0.濃度計算値の分布,2018年に対する2000年の0.濃度計 算値の差分の分布,常時監視局における2018年に対する 2000年の光化学オキシダント濃度観測値の差分の分布を 示している。MEAN_ALL(年平均値)の場合は、都心部の 方が0。濃度が低くなっており、都心部で多く排出される NO_xによって0₃が消費されるタイトレーションの影響が強 く現れている。また、2018年に対する2000年の差分が負 の値となっており、2000年の方が2018年よりも0濃度が 低いことを示している。NOx排出量の削減により、タイ トレーションによる03の消費量が少なくなり、2000年か ら2018年にかけて03濃度が上昇する結果となっている。 このような傾向は、観測値とも定性的に整合している。 一方, 99P_MDA8(日最大8時間値の年間99%タイル値)で 見た場合には、MEAN_ALLとは逆の傾向となっている。都 心部近傍で濃度が高く,高濃度時には活発な光化学反応 による03の生成の方がタイトレーションよりも影響が大 きいことを示しており、排出量の削減が03の濃度低減を もたらしている。その傾向は観測値とも定性的に整合し ている。



図11 関東地方の2018年における0₃濃度計算値と 2000~2018年の排出量の変化による0₃濃度変化の 水平分布

2000~2018年の排出量の変化による03濃度計算値の変 化率を関東地方と東海~関西地方の都道府県別に整理し て図12に示す。都道府県別に左から6種類のタイムスケ ールでの評価結果を並べて示している。図の右側には, 地域内の全常時監視局における計算値と観測値の変化率 を示している。埼玉,千葉,東京,神奈川,愛知,大阪 など、人口が多く発生源の多い都道府県において、日別 値の年間平均値に負の傾向が見られるが、年間高濃度に ついては、排出量の削減によって低減している。その傾 向は観測値と計算値で定性的に整合しているが、観測値 の変化率が計算値に比べて関東地方ではやや小さめ、東 海~関西地方ではやや大きめに現れている。本計算では 考慮していない越境輸送や気象条件の変化の影響も受け ている可能性が考えられる。

図7に示したように、03の月平均濃度に対して国内の N0x発生源が負の感度を有していたのに対応して、03の濃 度平均値が都心部で低く、排出量の削減によって上昇す る結果となり、環境省の「大気汚染状況について」¹⁾で 示されている日最高1時間値の年平均値の傾向と整合し ていた。逆に、年間高濃度については、これまでの対策 による排出量の削減により、有効に低減されてきている ことが示唆され、新指標値の変動傾向と整合する結果と なった。2000~2018年の間のN0xとV0Cの排出量削減によ り、03濃度の平均値は下がらない一方で年間高濃度は低 減される傾向が、大気シミュレーションで説明づけられ た。



図12 2000~2018年の排出量の変化による 都道府県別の03濃度計算値の変化率

5. おわりに

本稿では、大気シミュレーションと、重要な要素であ る領域化学輸送モデルとして広く用いられているCMAQに ついて、技術的な概要を紹介した。また、大気シミュレ ーションの適用研究例として、領域化学輸送モデル間相 互比較、発生源感度解析、対策によるオゾン濃度低減効 果の評価の内容を紹介した。大気汚染物質の濃度低減策 を立案するために、大気シミュレーションが有用な知見 を提供しうることを理解してもらえるとありがたく思 う。地方環境研究所の皆様にも大気シミュレーションの枠組 みの整備を進めており、その成果を公表している。大気 シミュレーションに触れてもらい、ご意見やご要望、ご 質問にお応えすることにより、大気シミュレーションを 実行する上での障壁を取り除き、日本でも大気シミュレ ーションのコミュニティを発展させることができれば幸 いである。

6. 謝辞

本稿で紹介した内容は、環境省・(独)環境再生保全 機構の環境研究総合推進費(JPMEERF20165 001, JPMEERF20195003, JPMEE RF20215005)により実施した。

7. 引用文献

- 環境省: 大気汚染状況について, https://www.env.go.jp/air/osen/index.html (2023.11.13アクセス)
- Environmental Protection Agency: Reconsideration of the national ambient air quality standards for particulate matter. *Federal Register*, 88, 5558-5719, 2023
- 3) World Health Organization: WHO global air quality guidelines. Particulate matter ($PM_{2.5}$ and PM_{10}), ozone, nitrogen dioxide, sulfur dioxide and carbon monoxide. World Health Organization, Geneva, 2021
- Meng Z., Dabdub D., Seinfeld J.H.: Chemical coupling between atmospheric ozone and particulate matter. Science, 277, 116-119, 1997
- Sillman S.: The relation between ozone, NOx and hydrocarbons in urban and polluted rural environments. *Atmospheric Environment*, 33, 1821-1845, 1999
- 6) Wang S., Xing J., Jang C., Zhu Y., Fu J.S., Hao J.: Impact assessment of ammonia emissions on inorganic aerosols in East China using response surface modeling technique. *Environmental Science & Technology*, 45, 9293-9300, 2011
- Carter W. P. L. : Development of the SAPRC-07 chemical mechanism. *Atmospheric Environment*, 44, 5324-5335, 2010
- Luecken D. J., Yarwood G., Hutzell W.H.: Multipollutant of ozone, reactive nitrogen and HAPs across the continental US with CMAQ-CB6. *Atmospheric Environment*, 201, 62-72, 2019
- 9) Fountoukis C., Nenes A.: ISORROPIA II: a

145

computationally efficient thermodynamic equilibrium model for $K^+-Ca^{2+}-Mg^{2+}-NH_4^+-Na^+-SO_4^{2-}-NO_3^--C1^--H_2O$ aerosols. Atmospheric Chemistry and Physics, **7**, 4639-4659, 2007

- 10) Donahue N.M., Robinson A.L., Stanier C.O., Pandis S.N.: Coupled partitioning, dilution, and chemical aging of semivolatile organics. *Environmental Science & Technology*, **40**, 2635-2643, 2006
- Araki S., Iwahashi K., Shimadera H., Yamamoto K., Kondo A.: Optimization of air monitoring networks using chemical transport model and search algorithm. *Atmospheric Environment*, **122**, 22-30, 2015
- Environmental Protection Agency: Modeling guidance for demonstrating air quality goals for ozone, PM_{2.5}, and regional haze. EPA 454/R-18-009, 2018
- 速水洋:米国環境保護庁モデリング手引書
 「Modeling Guidance for Demonstrating Air Quality Goals for Ozone, PM_{2.5}, and Regional Haze」抄訳 オゾンとPM_{2.5}を中心に、大気環境学会

 誌, 56, 57-67, 2021
- 14) Chang J.S., Brost R.A., Isaksen I.S.A., Madronich S., Middleton P., Stockwell W.R., Walcek C.J.: A three-dimensional Eulerian acid deposition model: Physical concepts and formulation, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, **92**, 14681-14700, 1987
- 15) Scheffe R.D., Morris R.E.: A review of the development and application of the Urban Airshed Model, Atmospheric Environment. Part B. Urban Atmosphere, 27, 23-39, 1993
- 16) Byun D.W., Schere K.L.: Review of the governing equations, computational algorithms, and other components of the Models-3 Community Multiscale Air Quality (CMAQ) modeling system. *Applied Mechanics Reviews*, **59**, 51-77, 2006
- 17) Itahashi S., Mathur R., Hogrefe C., Zhang Y.: Modeling stratospheric intrusion and trans-Pacific transport on tropospheric ozone using hemispheric CMAQ during April 2010 - Part 1: Model evaluation and air mass characterization for stratosphere-troposphere transport. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **20**, 3373-3396, 2020
- 18) Itahashi S., Mathur R., Hogrefe C., Napelenok

S.L., Zhang Y.: Modeling stratospheric intrusion and trans-Pacific transport on tropospheric ozone using hemispheric CMAQ during April 2010 -Part 2: Examination of emission impacts based on the higher-order decoupled direct method. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **20**, 3397-3413, 2020

- 19) Otte T.L., Pleim, J.E.: The Meteorology-Chemistry Interface Processor (MCIP) for the CMAQ modeling system: updates through MCIPv3.4.1. *Geoscientific Model Development*, 3, 243-256, 2010
- 20) Skamarock W.C., Klemp J.B., Dudhia J., Gill
 D.O., Liu Z., Berner J., Wang W., Powers J.G.,
 Duda M.G., Barker D.M., Huang X.-Y.: A
 description of the advanced research WRF version
 4. NCAR Tech. Note NCAR/TN-556+STR, 2019
- 21) Kim S., Moon N., Byun D.W.: Korea emissions inventory processing using the US EPA's SMOKE system. Asian Journal of Atmospheric Environment, 2, 34-46, 2008
- 22) Woo J.-H., Choi K.-C., Kim H.K., Baek B.H., Jang M., Eum J.-H., Song C.H., Ma Y.-I., Sunwoo Y., Chang L.-S., Yoo S.H.: Development of an anthropogenic emissions processing system for Asia using SMOKE. *Atmospheric Environment*, 58, 5-13, 2012
- 23) EPA-RTP Library: Community Multiscale Air Quality Modeling System, A 2022 research impact metrics analysis, 2023
- 24) 菅田誠治,大原利眞,黒川純一,早崎将光:大気 汚染予測システム (VENUS)の構築と検証.大気環境 学会誌,46,49-59,2011
- 25) Chatani S., Yamaji K., Sakurai T., Itahashi S., Shimadera H., Kitayama K., Hayami H.: Overview of model inter-comparison in Japan's study for reference air quality modeling (J-STREAM). Atmosphere, 9, 19, 2018
- 26) Chatani S., Yamaji K., Itahashi S., Saito M., Takigawa M., Morikawa T., Kanda I., Miya Y., Komatsu H., Sakurai T., Morino Y., Nagashima T., Kitayama K., Shimadera H., Uranishi K., Fujiwara Y., Shintani S., Hayami H.: Identifying key factors influencing model performance on groundlevel ozone over urban areas in Japan through model inter-comparisons. *Atmospheric Environment*, 223, 117255, 2020

- 27) Sarwar G., Gantt B., Schwede D., Foley K., Mathur R., Saiz-Lopez A.: Impact of enhanced ozone deposition and halogen chemistry on tropospheric ozone over the northern hemisphere. *Environmental Science & Technology*, **49**, 9203-9211, 2015
- 28) Kitayama K., Morino Y., Yamaji K., Chatani S.: Uncertainties in O₃ concentrations simulated by CMAQ over Japan using four chemical mechanisms. *Atmospheric Environment*, **198**, 448-462, 2019
- 29) Yamaji K., Chatani S., Itahashi S., Saito M., Takigawa M., Morikawa T., Kanda I., Miya Y., Komatsu H., Sakurai T., Morino Y., Kitayama K., Nagashima T., Shimadera H., Uranishi K., Fujiwara Y., Hashimoto T., Sudo K., Misaki T., Hayami H.: Model inter-comparison for PM_{2.5} components over urban areas in Japan in the J-STREAM framework. *Atmoshere*, **11**, 222, 2020
- 30) Itahashi S., Yamaji K., Chatani S., Kitayama K., Morino Y., Nagashima T., Saito M., Takigawa M., Morikawa T., Kanda I., Miya Y., Komatsu H., Sakurai T., Shimadera H., Uranishi K., Fujiwara Y., Hashimoto T., Hayami H.: Model performance differences in fine-mode nitrate aerosol during wintertime over Japan in the J-STREAM model inter-comparison study. *Atmosphere*, **11**, 511, 2020
- 31) Guenther, A.B., Jiang X., Heald C.L., Sakulyanontvittaya T., Duhl T., Emmons L.K., Wang X.: The Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature version 2.1 (MEGAN2.1): an extended and updated framework for modeling biogenic emissions. *Geoscientific Model Development*, 5, 1471-1492, 2012
- 32) Kurokawa J., Ohara T.: Long-term historical trends in air pollutant emissions in Asia: Regional Emission inventory in ASia (REAS) version 3. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 20, 12761-12793, 2020
- 33) Crippa M., Guizzardi D., Muntean M., Schaaf E., Oreggioni G.: EDGAR v5.0 global air pollutant emissions. European Commission, Joint Research Centre (JRC) [Dataset] PID: <u>http://data.europa.eu/89h/377801af-b094-4943-</u> <u>8fdc-f79a7c0c2d19</u>, 2019

- 34) van der Werf G.R., Randerson J.T., Giglio L., van Leeuwen T.T., Chen Y., Rogers B.M., Mu M., van Marle M.J.E., Morton D.C., Collatz G.J., Yokelson R.J., Kasibhatla P.S.: Global fire emissions estimates during 1997-2016. *Earth System Science Data*, 9, 697-720, 2017
- 35) 茶谷聡, Cheewaphongphan P., 小林伸治, 田邊潔, 山地一代, 高見昭憲: 日本国内大規模固定発生源の業 種別・施設種別・燃料種別大気汚染物質排出インベン トリの構築. 大気環境学会誌, 54, 62-74, 2019
- 36) Sakurai T., Ito M., Hanayama, S.: Development of air pollutants emission inventories for ships around Japan on a high geographical resolution. *Asian Journal of Atmospheric Environment*, 15, 2020096, 2021
- 37) Carn S., Fioletov V., McLinden C., Li C., Krotkov, N.A.: A decade of global volcanic SO₂ emissions measured from space. *Scientific Reports*, 7, 44095, 2017
- 38) Wessel P., Smith W.H.F.: A global, selfconsistent, hierarchical, high-resolution shoreline database. *Journal of Geophysical Research*, 101, 8741-8743, 1996
- 39) Clappier A., Belis C.A., Pernigotti D., Thunis P.: Source apportionment and sensitivity analysis: two methodologies with two different purposes. *Geoscientific Model Development*, 10, 4245-4256, 2017
- 40) Chatani S., Shimadera H., Itahashi S., Yamaji K.: Comprehensive analyses of source sensitivities and apportionments of PM_{2.5} and ozone over Japan via multiple numerical techniques. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 20, 10311-10329, 2020
- 41) Chatani S., Kitayama K., Itahashi S., Irie
 H., Shimadera H.: Effectiveness of emission controls implemented since 2000 on ambient ozone concentrations in multiple timescales in Japan: An emission inventory development and simulation study. Science of the Total Environment, 894, 165058, 2023