

大気環境の現状評価に関する解析モニタリング - MM5/CMAQ の連携システムによる大気の解析（近畿・滋賀県域） -

園 正・服部達明¹⁾・三田村徳子・五十嵐恵子

要約

本研究の目的は、滋賀県における光化学オキシダントの分布状況を把握し大気常時監視測定局の適正配置を検討することにある。今回は、発生源モデル、気象モデルおよび大気質モデルからなる中間報告（園ら、2008）で示した解析方法に基づき排出源モデルの改良を行い、テストシミュレーションを繰り返し、2001年から2009年までの期間に滋賀県において光化学スモッグ注意報が発令された全40ケースを対象として近畿地区を中心に解析を行った。

その結果、全体の85%にあたる34ケースで阪神方面からの窒素酸化物とオゾン等の移流が大きな要因であると認められたことから、滋賀県での移流による注意報発令パターンを阪神方面からの方向、風速により8パターンに分類した。感度解析の結果は概ね実測データと一致した。そこでこの分類による分布パターンを用いることにより、一般局が設置されていない県南東部に位置する甲賀地域に測定局を設置すること、県面積の2分の1を占める光化学オキシダント注意報未発令地域でも発令レベルに達していた結果から、未発令地域を見直すことの必要性が示された。

また、琵琶湖北岸や日本海沿岸で春から夏季に光化学オキシダントが高濃度になる事例について、貯留窒素化合物の寄与に係るメカニズムを検討し、有機性窒素化合物の挙動、特に水面域での移流が大きく影響していることを確認した。

1. はじめに

本報告は、平成20年度から22年度にかけて実施した解析モニタリング4「大気環境の現状評価に関する解析モニタリング」の最終報告である。

滋賀県における過去10年間の大気常時監視の結果は、光化学オキシダントの原因物質である窒素酸化物および揮発性有機化合物濃度が減少傾向にあるにもかかわらず、オキシダント濃度の1時間値が環境基準を超過する時間数が2倍程度にまで増加していることを示している。今後もこの傾向が継続すれば、光化学オキシダントによる人への被害が県内において発生することが危惧されるだけでなく、オキシダントなどの酸化性物質による、植物、特に森林に与える影響についても検討する必要があることが予想される。

常時監視は、測定局を適切な位置に、適切な数を配置して行う必要があるが、現在の大気自動測定局の配置は、1986年3月に測定値の地域代表性に関する検討会が提出した「一般環境大気測定局における測定値の地域代表性について」に基づいて設定されたものであり、20年以上経過している。ここ数年、県内において交通網の整備や工場の立地、人口の増加等の社会状況が大きく変化していることから、新たにシミュレーションを行うことによって、滋賀県の大気の現状を把握・解析し、大気自動測

定局のより効果的で適正な配置について検討を行い、あわせて光化学オキシダント発令地域の見直し・確定に寄与することを目的とした。

2. 方法

中間報告（園ら、2008）で示した方法で行ったテストシミュレーションを繰り返し行い、感度解析を実施することにより発生源モデルを改良した。改良した主な点は、排出源モデルの多層化と図示の3次元化である。

計算領域は、各モデルとも、東アジア域（72km-mesh）、日本域（24km-mesh）、西日本域（8km-mesh）、近畿域（2.7km-mesh）および滋賀県域（0.9km-mesh）の5段階であり、鉛直方向については、気象モデル・大気質モデルが23層、排出源モデルが6層とした。

なお、対象期間としては、2001年から2009年までの間に滋賀県において光化学スモッグ注意報が発令された全40ケースで、発令日の前日から計算を開始した。

モデル計算に使用した機器はCMAQ v4.6 Operational Guidance Documentを参考に、

- 8dual-CPU 2.8GHz Xeon IBM BladeCenter rack-mounted nodes with Red Hat Enterprise Linux OS
- 8GB RAM

1) 滋賀県防災危機管理局

- 1 TB system storage
 - 2 TB IDE-SCSI hard drive storage
- を設置した。

2.1 気象モデル

米国ペンシルバニア州立大学と NCAR (National Center for Atmospheric Research) により共同開発された気象数値モデル MM5(Fifth Generation Mesoscale Model)を用いた。

現時点においては、次世代モデルである WRF(Weather Research & Forecasting model)が最新であり、CMAQにも対応しているが、研究開始時においては報告がほとんどなく、実績のある MM5 を選定した。

用いたデータは、2001年3月から2007年11月20日の間が GRIB 形式の領域客観解析データ(RANAL)、2007年11月21日からは GRIB2 形式の GSM(日本域)客観解析(GANAL)で、CD-ROM に格納されており、(財)気象業務支援センターから有償で提供されている。解析時刻は 00、06、12、18UTC、RANAL は、領域が東アジア域、格子系がランベルト正角円錐座標、20km 格子(325×257)であり、GANAL は、領域が日本域、格子系が等緯度経度(201×251)である。

提供される物理量は海面更正気圧(Pmsl)、風(U, V)、気温(T)、相対湿度(RH)、P 面物理量は、高度(Z)、風(U, V)、気温(T)が 20 層、相対湿度(RH)は 11 層である。地形データ等は ucar edu から、海面表層温度データは、polar ncep noaa gov から入手した。

方法は、MM5 の外部プロセッサである TERRIN を用い地形領域を決定し、次に REGRID で TERRAIN が決定した領域に客観解析データを読み込み MM5 の初期値に変換し、INTERPF により鉛直圧力座標系を σ 座標系に変換し、MM5 本体に入力した。

MM5 の計算フレームを次に示す。

- ① 東アジア域(ドメイン 1)
 - 領域基準点 北緯 ; 37.0 東経 ; 135.0
 - 格子数 東西 ; 55、南北 ; 79、鉛直 ; 23
 - 格子間隔 72km
- ② 日本域(ドメイン 2)
 - 領域基準点 北緯 ; 37.0 東経 ; 135.0
 - 格子数 東西 ; 73、南北 ; 73、鉛直 ; 23
 - 格子間隔 24km
- ③ 西日本域(ドメイン 3)
 - 領域基準点 北緯 ; 37.0 東経 ; 135.0
 - 格子数 東西 ; 118、南北 ; 73、鉛直 ; 23
 - 格子間隔 8km
- ④ 近畿域(ドメイン 4)

- 領域基準点 北緯 ; 37.0 東経 ; 135.0
- 格子数 東西 ; 85、南北 ; 70、鉛直 ; 23
- 格子間隔 2.7km

⑤ 滋賀県域(ドメイン 5)

- 領域基準点 北緯 ; 37.0 東経 ; 135.0
- 格子数 東西 ; 97、南北 ; 70、鉛直 ; 23
- 格子間隔 0.9km

2.2 発生源モデル

テストシミュレーションにおいては、排出源モデルは 1 層モデルで行ったが、今回は、表層から 21 m までを第 1 層とし、その上層からそれぞれ 48 m まで、73 m まで、146m まで、220 m まで、および 294 m までの 6 層モデルに変更した。

東アジア、日本域のデータとしては GEIA(Global Emission Inventory Activity) / ACCENT(Atmospheric Composition Change The European Network Excellence) が提供する REAS (Regional Emission inventory in ASia Version1.11) の 2007 年版を使用した。提供される項目としては、NOx(REAS_anthrop_NOX_2007_.0.5x0.5)、SO2(REAS_anthrop_SO2_2007_.0.5x0.5)、CO(REAS_anthrop_CO_2007_.0.5x0.5)、NH3(REAS_anthrop_NH3_2007_.0.5x0.5)、BC(REAS_anthrop_BC_2007_.0.5x0.5)、OC(REAS_anthrop_OC_2007_.0.5x0.5)、CH4(REAS_anthrop_CH4_2007_.0.5x0.5)、NMVOC(REAS_anthrop_NMV_2007_.0.5x0.5)であり、すべてのデータは、年度値で、単位は kg/m²/sec である。

NMVOC には、Ethane、Propane、Butanes、Pentanes、Other Alkanes、Ethene、Propene、Terminal Alkenes、Internal Alkenes、Acetylene、Benzene、Toluene、Xylene、Other Aromatics、HCHO、Other Aldehydes、Ketones、Harocarbons、Others、Total の 20 種があり、Biomass Burning は含まれていない。

このうち、BIOGENIC データである isoprene、terpens は、GEIA が提供する EAGrid 2000 から BIOVOC 1995 monthly30min を得たが、十分なカーボン量が得られず、200%に変更した。これらを CB2005 の規定に基づき次の 28 種の項目に分けた。

ALD2、ALDX、CO、ETH、ETHA、ETOH、FORM、IOLE、ISOP、MEOH、NASN、NH3、NO、NO2、NR、OLE、PAR、PEC、PMC、PMFINE、PN03、POA、PSO4、SO2、SULF、TERP、TOL、XYL

西日本、近畿および滋賀県域についても、NO、NO2、SO2 以外は GEIA のデータを配分して使い、NO、NO2、SO2 については、工場・事業場からのばい煙由来の発生量把握のために「大気汚染物質排出量総合調査(マップ調査)」

自動車等の輸送に伴う排出量把握のために「平成 17 年度道路交通情勢調査票(交通センサス)」、生活要因からの排出量把握のために「総務省平成 12 年国勢調査に関する地域メッシュ統計結果」および植物由来の発生量把握のために「植生データ(GIS)」を用いた。ここで、自動車排ガスに伴う排出は第 1 層から、ばい煙由来の発生は、煙突の高さを 1.2 倍した高度に応じた層から排出することとした。東アジアおよび日本域においても、西日本、近畿および滋賀県域を参考に 6 層に配分した。

なお、マップ調査の計算には、南斉ら(2007)、交通センサスからの計算には松橋ら(2007)の係数を利用した。

得られたデータは、CMAS センターが提供する raw データを参考に 24 時間に分割し、CMAQ の標準入力である netCDF にフォーマットした。

2.3 大気質モデル

米国環境保護庁(EPA)が 1998 年に公開を始めたオイラー型大気質シミュレーションモデル CMAQ (Community Multiscale Air Quality Model)v4.6 を CMAS センターから入手し使用した。

最初に気象モデルで使用した MM5 からの出力を気象化学インターフェースの MCIP (Meteorology-Chemistry Interface Processor) でフォーマット変換し、入力データを作成した。次に、光化学反応係数プロセッサー JPROC (photolysis rate)により JTABLE を作成後、初期条件作成のため ICON (Initial Condition)を、また、境界条件作成のため BCON (Boundary Condition)を作動させた。その後、発生源モデルからの出力を与え、CMAQ の本体である光化学反応・移流・拡散モデルである CCTM (CMAQ Chemical Transport Model)で計算した。

化学反応モデルとしては表 2.1 の CMAQ 選択オプションに示したように CB05_AE4_AQ を使用し、大気汚染物質の光化学反応、移流、拡散および沈着(乾性・湿性)を計算した。

結果の表示には、主に CMAS が提供する VERDI (Visualization Environment for Rich Data Interpretation)1.2 を使用したが、図としては 1 層のみの表示となり、鉛直方向の分布や地形による移流の変化が図示しがたいことから、UCAR が提供する VAPOR (Visualization and Analysis Platform for Ocean, Atmosphere, and Solar Researchers)による立体図作成を試みた。

表 2.1 CMAQ 選択オプション

ModDriver	ctm	
	ctm_yamo	0
ModInit	init	
	init_yamo	0
ModAdjc	adjcon_noop	
	denrate	
	yamo_option	0
ModCpl	gencoor	0
ModHadv	hppm	
	hyamo	0
ModVadv	vppm	
	vyamo	0
ModHdiff	hdiff_noop	
	multiscale	0
ModVdiff	eddy	
	acm2	0
ModPhot	phot_noop	
	phot	0
ModPing	ping_noop	0
	ping_smvgear_aero3	
	ping_smvgear_aero4	
ModChem	smvgear	
	ros3	
	ebi_cb4	
	ebi_cb05	0
ModAero	ebi_saprc99	
	aero3	
	aero4	0
ModAdepv	aero_dep_v_noop	
	aero_dep_v2	0
ModCloud	cloud_radm	
	cloud_acm	0
ModPa	pa	0
ModUtil	util	0
Mechanism	cb4_ae3_aq	
	cb4_ae4_aq	
	cb05_ae4_aq	0
	saprc99_ae3_aq	
	saprc99_ae4_aq	

表 3.1 各パターンに分類された発生日（西暦、月、日）

A3	7	090602	010703	020607	050626	080522	090512	090612	
A2	4	090626	040706	040724	050625				
B3	7	020610	010705	020712	050728	050730	070509	070621	
B2	8	020722	010603	010714	030902	050715	060621	070725	080704
C3	5	010604	010704	030823	060620	070628			
C2	3	060810	060531	070728					
D3	3	050805	050903	090521					
X1	3	090520	060601	060804					

3. 結果

3.1 発生パターン

光化学オキシダントは、ある地域で発生した一酸化窒素が二酸化窒素に変わり、この二酸化窒素が光・紫外線の影響を受け、ラジカル反応により移流しながら5から6時間をかけて最高値を示す。

ここで、風速 2m/sec で1時間経過すると7.2km、風速 3m/sec で10.8km 到達することになるので、朝9時に大阪を起点とした場合、最高値を示す15時までの間に進む範囲は、風速 2m/sec で滋賀県南部地域の43.2km 地点、3m/sec では滋賀県北部に至る64.8km 地点となる。このことから、図 3.1.1^Hに示したように、風速を1、2、3m/sec の3分類、方向を、大阪方面から琵琶湖方向へのA、琵琶湖東岸方向へのB、東方向へのC、中京方面から湖北方向へのDの4分類とし、風速 1m/sec のときのみ大阪方面からの方向分類をXとした。

2001年から2009年の間に滋賀県において光化学注意報が発令された全40ケースの15時におけるオキシダント濃度分布を分類すると表 3.1になる。

濃度分布パターンに大きく影響を与えるのは、風向・風速による移流であるが、これには地形の影響も強く受ける。

滋賀県は、大阪の北東に位置する。図 3.1.2^Hに近畿地方を真上から見た図、図 3.1.3^Hには若狭湾上空から見た図、図 3.1.4^Hには大阪湾上空から見た図、および図 3.1.5^Hには伊勢湾上空から見た図を示した。このうち、盆地である滋賀県が、風が通過しやすい低地につながり、移流の影響を受けやすいと考えられるのは、図 3.1.4^Hの大阪湾上空から見た図が示すように、南西方向からである。琵琶湖から瀬田川、淀川に沿って大阪平野につながる低い地形が続いている。一方、図 3.1.5^Hの名古屋方面からは、伊吹山と霊山の間、JR東海道線が通過するわずかなV字谷が見られるに過ぎない。また、図 3.1.3^Hの福井方面からは、国道8号線沿いと国道303号線の谷筋があるが、高低差が大きく拡散の影響を受けやすいと考えられる。表 3.1の典型的なパターン図を図 3.1.6から図

3.1.13に示す。

3.1.1 A3, A2 グループ

このパターンは、全体の27%にあたる11ケース（A3；7、A2；4）あり、大阪方面から琵琶湖方面・南西の風を受けた日に見られた。

A3のパターンの典型として、図 3.1.6に2005年6月26日の15時のオキシダント分布を、図 3.1.14^Hに2009年6月2日の11時、13時、15時および17時の、真上、大阪湾上空からの鳥瞰図および若狭湾上空からの鳥瞰図を示した。図 3.1.6のように、最盛期の15時には、高濃度域が滋賀県全域に広がっている。これを図 3.1.14^Hで見ると、11時では、滋賀県南部に高濃度域があり、さらに高濃度である地域が、奈良盆地付近に見られる。13時になると、滋賀県内では、琵琶湖北湖まで高濃度域が広がり、15時から17時には近江盆地全域に及んでいる。一方、11時に高濃度域であった奈良盆地では、15時以降低濃度となり、17時には高濃度域が消滅している。15時から17時の鳥瞰図は、オキシダントの高濃度雲が、近江盆地に満たされている状況がうかがえる。

A2のパターンの典型として、図 3.1.7に2004年7月4日の15時のオキシダント分布を、図 3.1.15^Hに2009年6月26日の15時の、真上、大阪湾上空からの鳥瞰図および若狭湾上空からの鳥瞰図を示した。A3の場合とは異なり、15時の時点でオキシダントの高濃度域は、滋賀県の南半分にとどまっている。

A3とA2の差は、鳥瞰図に示した後方流蹟線（青線）の長さを見てわかるように、風速による差（A3が3m/sec、A2が2m/sec）と考えられる。注目すべき点は、オキシダント雲の高さである。光条件が同一の日を比較しなければならないが、この後示すB3とB2、C3とC2、X1でも、いずれの場合も2の方が3に比べて高度が高く、高密度を示している。両者に共通していえるのは、琵琶湖西岸域でも高濃度が観察されるパターンである。図では示していないが、午前中の鳥瞰図では、中高度に大陸か

※本文中の図の右にHと記載されているものはカラーで巻頭部分（7から8ページ、13から18ページ）に掲載。

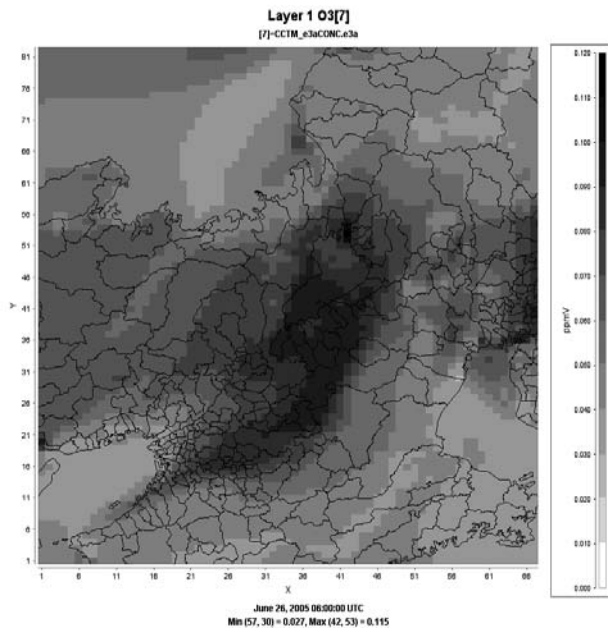


図 3.1.6 A2

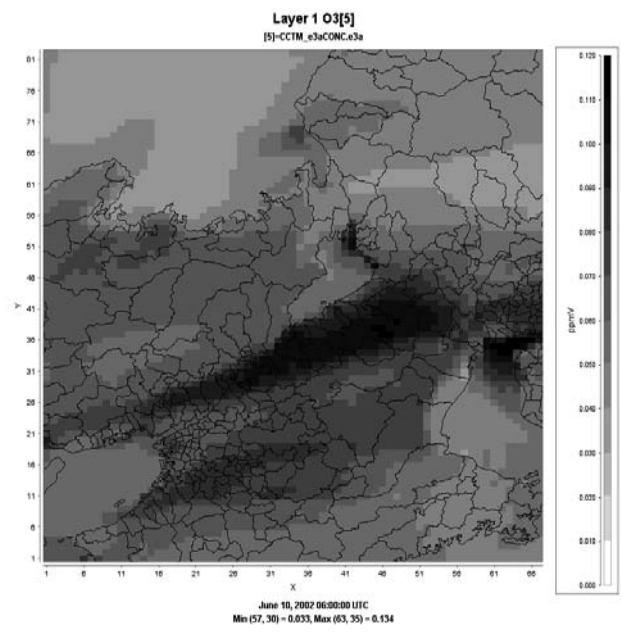


図 3.1.8 B3

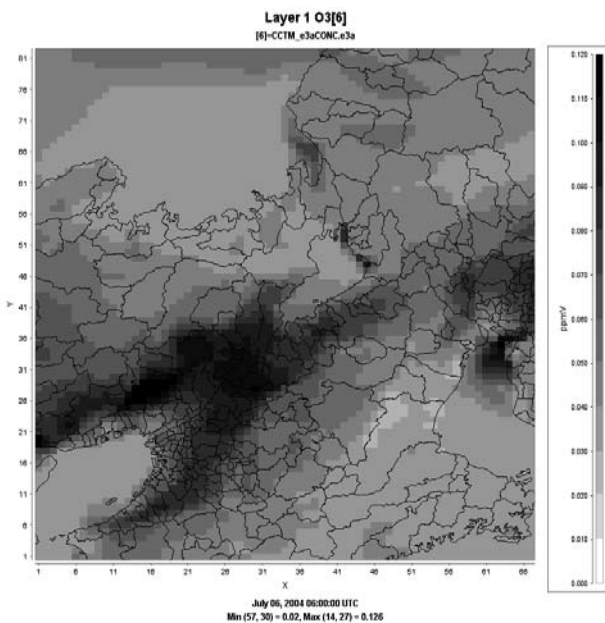


図 3.1.7 A2

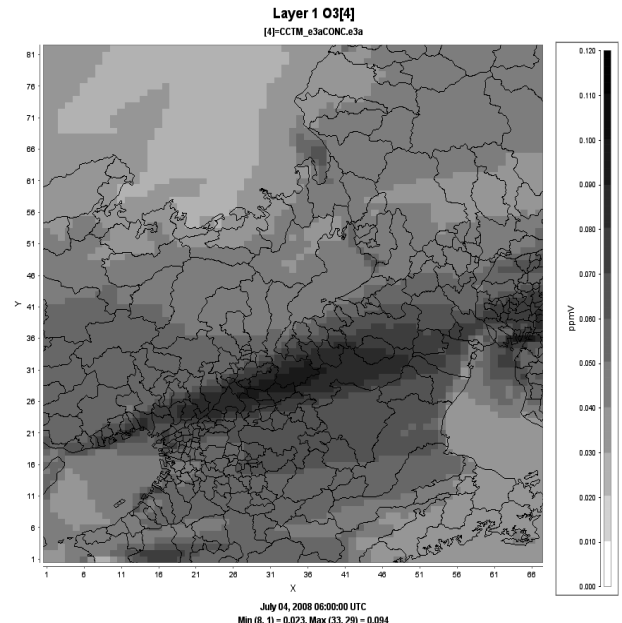


図 3.1.9 B2

ら越境したと考えられる 70ppb を超えるオキシダント濃度域がみられた。

3.1.2 B3, B2 グループ

Bグループに分類されるのは、琵琶湖東岸方向に延びる線上で高濃度を示す場合で、全体の 37.5% を占める 15 ケースあった。

B3 のパターンの典型として、図 3.1.8 に 2002 年 6 月 10 日の 15 時のオキシダント分布を、図 3.1.16^h に 2007 年 5 月 9 日の 15 時の鳥瞰図を示した。2007 年 5 月 9 日は、テストシミュレーションを行った日でもあるが、前

日には西日本の九州北部、瀬戸内地域、および阪神地域を中心に高濃度を示し、9 日には滋賀県だけでなく関東および北陸を含む全国的に高濃度を示した日である。

A のパターンと同じく、B3 が 3m/sec、B2 が 2m/sec の風速を受け、B3 では、滋賀県東部の米原付近まで高濃度域が広がっている。特徴的なのは、図 3.1.8 の平面分布ではわかりにくいですが、図 3.1.16^h の鳥瞰図を見ると、上空の風はまっすぐ北東方向に流れているにもかかわらず、表層の風は鈴鹿、伊吹山系に当たり、左に曲がり琵琶湖北岸地域にまでオキシダント高濃度域が広がっていることである。

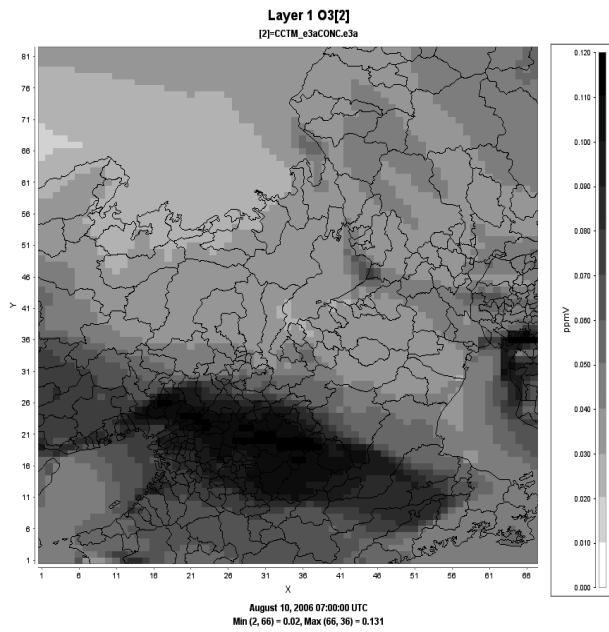


図 3.1.10 C2

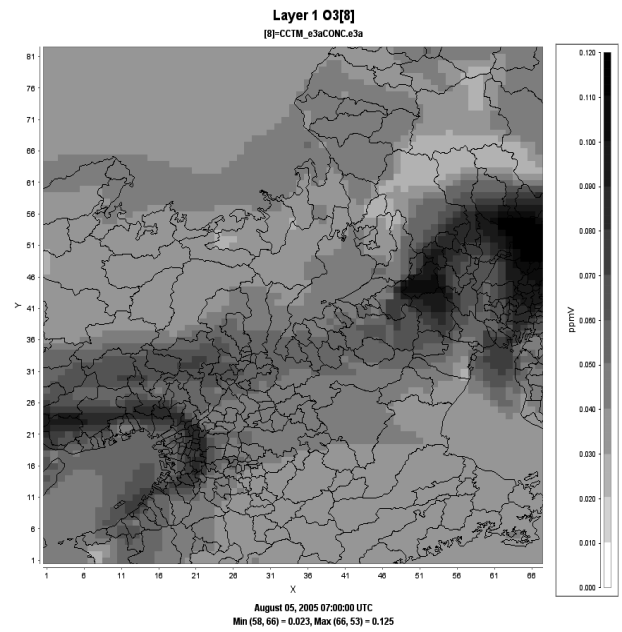


図 3.1.12 D3

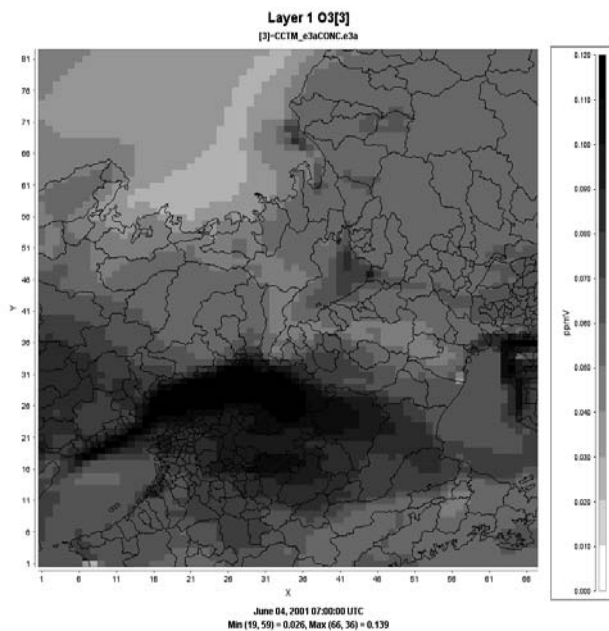


図 3.1.11 C3

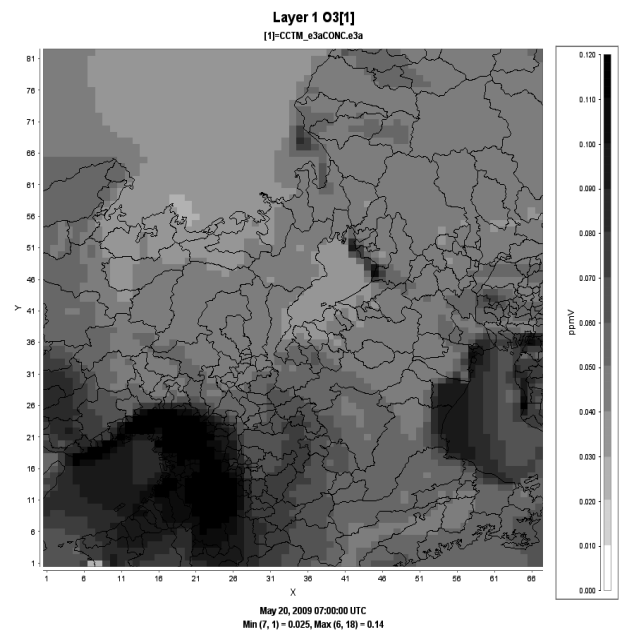


図 3.1.13 X1

3.1.3 C2, C3グループ

C2グループに分類されるのは、西風を受けた場合であり、C3は西風を受けた後、北に方向を変えた場合であり、C3で5、C2で3ケースあった。

C2のパターンの典型として、図3.1.10に2001年8月10日の15時のオキシダント分布を、図3.1.19^hに2006年8月1日の15時の鳥瞰図を示した。

また、C3のパターンの典型として、図3.1.11に2001年6月4日の15時のオキシダント分布を、図3.1.18^hにも同じ2001年6月4日の15時の鳥瞰図を示した。

C2は阪神、奈良地域で高濃度域が広がり、C3では

C2の地域に加えて京都および県南部地域で高濃度を示している。このグループでは、鳥瞰図では最低濃度の表示の関係で確認しがたいが、表面分布の図3.1.10および図3.1.11で大きな塊の高濃度域から離れた琵琶湖北部沿岸に高濃度域が分散している。

琵琶湖北部にオキシダントの高濃度塊から分離して現れる高濃度域は、Cグループだけでなく、他のすべてのグループにも見られ、滋賀県のオキシダント分布の大きな特徴となっている。このことについては、考察の項で解析する。

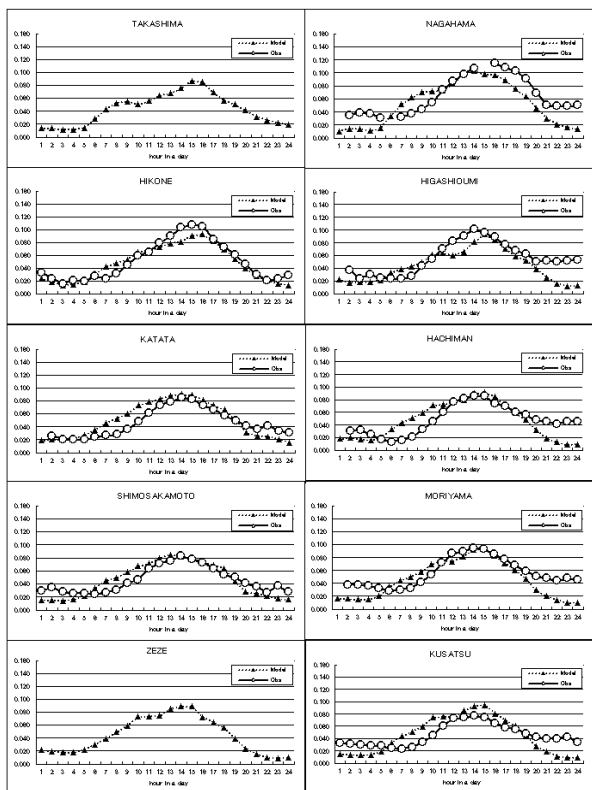


図 3.2.1 観測データ (Obs) とシミュレーション結果 (Model) との比較 : 2005 年 6 月 26 日 (A3 グループ) ※

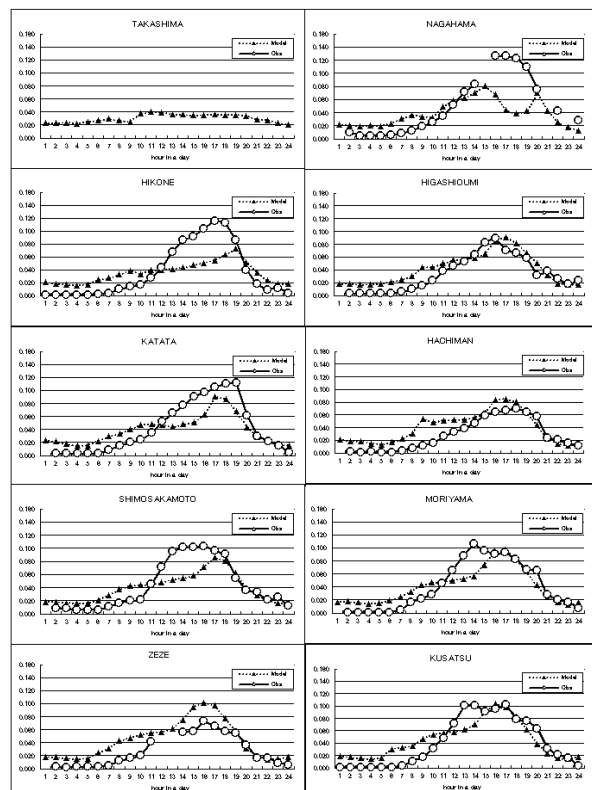


図 3.2.3 観測データ (Obs) とシミュレーション結果 (Model) との比較 : 2002 年 7 月 12 日 (C3 グループ) ※

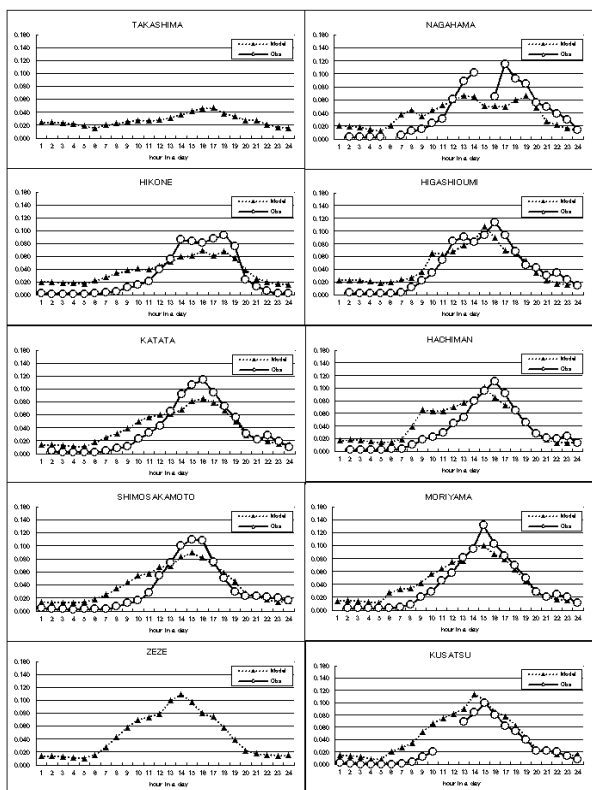


図 3.2.2 観測データ (Obs) とシミュレーション結果 (Model) との比較 : 2005 年 7 月 28 日 (B3 グループ) ※

※図 3.2.1 から 3.2.3 のグラフの○印は、観測データを、▲はシミュレーション結果を示す。

3.1.4 D3 および X1 グループ

D3 のグループは、唯一中京地域からの移流の影響を示しているが、全体の 7.5% である 3 ケースと少ない。これは 1 年を通じて、東南の風の日が少ないことも理由の一つではあるが、前述した図 3.1.5^H に示す名古屋方面からの風は、伊吹山と霊山の間、JR 東海道線が通過するわずかな V 字谷を通過し、それ以外の地域は標高が高く、拡散の影響を強く受けるため、と考えられる。

X1 についても 3 ケースと少ない。図 3.1.13 および図 3.1.21^H に示したように、風速が 1m 前後と遅いため、阪神地区、中京地区に高濃度域がとどまっているが、他のパターンに見られるように、大きな塊の高濃度域から離れた琵琶湖北部沿岸に中濃度域が分散している。

3.2 感度解析

滋賀県内には、図 3.2.4^H に示したように、大気自動測定局は 10 局設置されている。その配置は南部で密となっており、北部は 2008 年 3 月に新設された高島局と長浜局だけであり、甲賀地域には自排局は設置されているものの一般局は設置されていない。

図 3.2.1 から図 3.2.3 に測定局のオキシダント濃度とモデルから得られた値を比較し、モデルの精度を確認するため感度解析の結果を示した。

図 3.2.1 は、2005 年 6 月 26 日の結果で、この日の発生パターンとしては A3 グループに属している。南部の草津局では、モデルから得られる値は、観測データに比べて若干高く、彦根局以北では、逆に低くなっているものの、時間変化等の傾向はよく一致している。

B3 グループに属する図 3.2.2 の 2005 年 7 月 28 日の結果は、時間変動のパターンは両者で一致するものの、守山～彦根局でモデルから得られる値は、観測データと比較して約 20ppb 程度低く、長浜局ではその差が 40ppb と、観測データと大きく乖離している。

2002 年 7 月 12 日の結果を示す図 3.2.3 は C3 グループでの比較である。両者の乖離は、さらに大きくなり、南北方向だけでなく、東西方向にも見られるようになり、琵琶湖西岸の堅田、下阪本局でも 40ppb 程度の差が見られた。

A3 グループは、県全域で高濃度を示し、B3 は、琵琶湖東岸に沿って形で上昇が見られ、C3 は遅い時間に南部から上昇するパターンであり、モデルが高濃度塊を示した地域では、乖離が少なく、塊から離れた地域で乖離が大きくなる結果となっている。

3.3 適正配置

図 3.3.1¹ に滋賀県における大気自動測定局の配置を赤丸で示した。黄色に塗られた地域は、光化学オキシダント注意報発令対象地域であるが、白色の地域は県面積の約 2分の1に相当するが発令対象地域となっていない。図 3.3.1¹の右には、シミュレーションによって区分けした高濃度域が占める区域である。これによると、発令対象となっていない白色の区域のうち、人家のある地域では、120ppb 以上の高濃度になる可能性があることを示している。

また、青丸で示した水口局は、国道 1 号線沿いの自排局であることから、オキシダントが排ガスに含まれる NO_x によって分解されることから、ここ 30 年間注意報を発令していないが、B および C タイプに分類されたパターンの日には高濃度になるとの結果がシミュレーションによって示された。

以上のことから、図 3.3.2¹ に示したように、現在発令対象となっていない区域も、近隣の測定局が 120ppb を超え、継続することが予想されるときには発令対象区域とすること、甲賀地域に一般局を開設することが、妥当と考え、2011 年 6 月の県環境審議会に報告した。県では、現在、次年度に備え報告内容の実現に向け措置を開始している。

4. 考察

4.1 モデルの課題

使用したモデルの内、パラメーターを調整して行ったのは排出源モデルだけである。また、感度解析において、差が大きかったのは、高濃度塊から離れた位置で観測された、特に琵琶湖北岸地域である。ここでは、この理由について、排出源モデルでの課題と CMAQ モデルでの課題として考察する。

なお、MM5 については、日本域から滋賀県域までの気象データを、客観解析データ（4 回/日）より解析時刻の多い（8 回/日）、格子が 0.5 度（約 20km）に比べ 10km と狭い範囲を提供できるメソ客観解析データに変えること、およびナッジングを行うことにより、さらに精度のよい解析が可能になる。また、次世代モデルである WRF を使用することによっても気象モデルにおいて精度が高くなると考えられる。

CMAQ については、2010 年 6 月にリリースされた Ver4.7.1 を、また、2011 年 5 月に beta 版がリリースされ、大きく改良されていることが期待される CMAQ5.0 の使用によっても精度向上が期待される。

4.1.1 排出源モデルでの課題

排出源モデルにおいて、GEIA が提供する EAGrid2000 の値を主に用いたが、BIOGENIC データである isoprene、terpens のみ、BIOVOC1995monthly30min の値を 2 倍にし、排出時間パターンも変更して使用した。

Jeffries & Chouse (1990) は、オキシダント濃度が最低限、注意報発令レベルである 120ppb に上昇するためには、VOC の初期濃度として 400ppbC 必要であるとしているが、BIOVOC1995monthly30min をそのまま用いると、最大 200ppbC 程度であり、低すぎると判断した。

谷 (2007) は、GC-MS 分析に加えて、PTR-MS を用い、ウバメガシ等からの放出量の把握を進めているが、植物が生産する非メタン系揮発性炭化水素である isoprene、terpens は、反応性が高く、挙動の把握が十分でなく、特にアジアでは基礎データが欠如しているため低く見積もられているのではないかと指摘している。

また、排出時間パターンも、夜明けとともに活発化する空気拡散に伴い夜間に林内に蓄積されたテルペン類が上空大気に輸送され、フラックスに寄与するが、夕方には放出されたテルペン類が空気拡散の低下とともに逆に林内に蓄積し、実際の放出速度に比べてフラックスが低い傾向にあると指摘していることから、EPA の提供するパターンも変更し、夜明けからの早い時間に配分を多くした。

4.1.2 CMAQ モデルでの課題

最も大きいと考えられる CMAQ4.6 での課題は、ICON において有機ラジカル物質の一部や NTR 等の有機物質の値が渡されないことにある。特に、日本域における計算開始時刻、UTC0 は朝の 9 時に該当する。オキシダント生成において紫外線により 9 時から 16 時までは最も反応が推進される時間であるが、その初期において反応に強くかかわるこれらの物質濃度が 0 になっている。前日の 9 時までの濃度に比べ大きな差となることから、改善が必要と思われ、このことが観測値との乖離を引き起こす一つの要因ではないかと考えられる。

4.2 得られた知見

オキシダントの発生メカニズムは、オキシダントの移流・沈着だけでなく、発生原因物質である NO₂ の移流・沈着および貯留窒素酸化物の移流・沈着も大きく関与していると考えられることから、東アジア域および滋賀県域について以下の考察を行った。

4.2.1 窒素化合物の分布

近年、東アジア地域は工業化が進展し、その影響が日本に及んでいるのではないかと危惧されている。

図 4.2.1¹⁾に、2007 年 5 月 9 日の東アジアにおけるオキシダント、無機窒素酸化物および有機窒素酸化物の動きを示した。13 時におけるオキシダント濃度分布は、NO 発生地と考えられる大都市付近にあり、19 時の時点では東方向に流れ、高度も増している。1 時になるとさらに東進し、全体の濃度の低下がみられる。7 時の時点では大陸ではさらに濃度の低下が見られ、日本付近では大陸発生のオキシダントと日本で発生したオキシダントが重なり 1 時の時点より濃度の上昇がみられる。大陸から連続した高濃度帯が見られるのは 19 時だけである。

無機窒素酸化物としては、光化学反応の最盛期である 13 時では、大都市付近で高濃度域を示しているが、その後の 19 時、1 時および 7 時に比べ、範囲は狭く最も低い濃度を示している。わずかに東進しながら 19 時で高濃度域が最も大きくなるが、それでも各隕の連続性が見られない。その後 1 時、7 時と東進するものの濃度低下がみられる。

一方、有機窒素化合物濃度分布は、13 時の時点では中国、韓国および日本起源と考えられる大きな塊に分離しているが、その後の 19 時、1 時および 7 時にはほぼ連続した塊になり、その高さも無機窒素酸化物の分布に比べ高くなっている。

図 4.4.2²⁾にモデルで用いた窒素酸化物の反応系を示した。中央の NO と NO₂ のサイクルがオキシダントを発生

させる主反応である。NO を NO₂ に酸化させるラジカルは NO₃、RO₂、NO₂+OH と O₃ 自体であり、このうち O₃ 以外の反応速度は ×10⁴ppm/min と紫外線によって NO₂ が NO に反応する速度 ×10 に比べてはるかに早く、NO の形で排出された窒素酸化物がラジカル反応によって速やかに NO₂ に変化する。この図において、NO₃ は NO₂ と O₃ との反応により生成し、さらに NO₃+NO₂ の反応により N₂O₅ を生成する。これら 2 つの窒素酸化物は紫外線によって容易に NO₂ に光解離するため、主に夜間のみ存在する。また、HNO₃ は NO₂ と OH ラジカルによって生成され、分解は遅いもののやはり紫外線により NO₂ に分解される。図 4.2.1¹⁾に示した無機窒素酸化物は、NO、NO₂、NO₃、N₂O₅、HNO₃ の合計であり、大半を占める NO+NO₂ の寿命は 1~2 日と言われており、これが大陸から連続した塊が見られない原因と考えられる。

秋元ら(2002)によると PAN、PANX および NTR は、有機窒素化合物で、例えば PAN はペルオキシアセチルラジカルと NO₂ との反応により生成し、光解離、熱分解、NO との反応によって NO₂ を生成することから、昼間のみに消失が起こる。PAN の寿命は、高度 0.5km で 2 時間、5.5km で 1 週間、7km で 1 か月と言われており、このことによって大陸から連続した塊となっていると考えられる。光解離により NO₂ を生成するこれらの NO₃、N₂O₅、HNO₃、PAN、PANX および NTR は、貯留窒素酸化物と呼ばれる。

図 4.2.3³⁾にラジカルの反応系を示した。isoprene、terpens、トルエン、キシレン等の揮発性有機物質は、OH ラジカルにより、RO₂ ラジカルに急速に変化するが、この RO₂ ラジカルも図には表示していないが、大陸から連続した帯となって日本列島に到着している。

東アジアからの越境大気的光化学オキシダントに対する影響は、直接に O₃ が移流していることもあるが、貯留窒素酸化物、中でも有機窒素酸化物および RO₂ ラジカルの移流に起因する方が強く、このことが、今までなかった北陸地方での光化学スモッグ注意報の発令につながっているのではないかと考えられる。

4.2.2 滋賀県におけるオキシダント分布の特性

滋賀県においてオキシダント濃度が高濃度を示す日の分布特性は、琵琶湖北岸にある。感度解析の項でも述べたが、琵琶湖北岸では、大きな高濃度塊から離れた形で高濃度域が出現する。一つには、図 3.1.8、図 3.1.16⁴⁾に示す B タイプでみられ、上空の風が東北方向に直進しているときに、鈴鹿山系や伊吹山系に当たり、地表付近の風が北、北西、西と方向を変え、それにしたがってオキシダントの高濃度域が広がるパターンである。この場合においても、先端部でより高濃度を示す場合が多い。

これとは異なり、図 3.1.6 に示す A3 のパターンでは、滋賀県全体を覆う大きな塊の北、琵琶湖の北端部に周囲と比べると低濃度である区域が現れている。これを A2 のパターンである図 3.1.7 でみると、北湖の南半分の地域で陸域が高濃度、湖内が低濃度となり、北岸で離れた高濃度域が出現している。

また、図 3.1.11 の C3 においても、滋賀県南部域までしか高濃度塊が広がっていないにもかかわらず北岸で離れた高濃度域が出現している。さらに、図 3.1.13 の X1 では、風速が 1m/sec 前後であり、高濃度塊も大阪付近にだけあり、滋賀県には達していないにもかかわらず、やはり北岸で離れた高濃度域が出現している。

今回は、MCIP に M3dry の ADOM (Acid Deposition and Oxidant Model) を使用した。このモデルは土地利用によって異なるモニン - オブコフの相似則を用い、各物質の水面では遅く、陸域で速い沈着速度を与えている。

図 4.2.4^h と図 4.2.5^h に 12 時に大阪付近にあった大気が時間経過とともに移動した地点での窒素酸化物濃度と乾性沈着量の変動と、15 時に大気塊が達した地点での時間変動を示した。図 4.2.4^h に示した 2001 年 6 月 3 日の移流経路は琵琶湖内を通過していないが、図 4.2.5^h に示した 2009 年 6 月 2 日においては 14 時以降琵琶湖上に移流経路がある。

両者の差を左上の大気中の濃度変化でみると、陸上だけを移流した図 4.2.4^h では、大気中濃度は時間経過とともに低下が見られ、沈降水量も 15 時から 16 時にかけて 0.006kg/ha 以上となっている。一方、図 4.2.5^h では、大気中の濃度であまり低下が見られず、陸域に達した 17 時での時点で濃度が低下している。また、琵琶湖内を通過した時間における沈降水量も少なくなっている。

この沈降水量の差は、右下の 15 時に移流した地点で沈降水量を比べると 3 倍程度陸域の方が多くなっている。

また、移流先大気濃度変動の 17 時の時点で窒素化合物の組成をみると、ほとんどが図 4.2.2^h で示した貯留窒素酸化物である。このことは、南西方向からの風を受けた日には、山地が迫る琵琶湖北岸では貯留窒素酸化物が集積し、日中には光解離を受けて NO₂ に変化し、その場で排出される NO₂ が加わり紫外線によりオキシダントが発生しているのではないかと推察される。このため、大きな塊から離れても琵琶湖北岸付近では、光化学オキシダントが高濃度になると考えられ、その複雑さのため、感度解析でみられる誤差になったものと思われる。

5. まとめ

- ① 滋賀県のオキシダント濃度分布を把握するために 3 次元排出モデルを作成するとともに、気象モデルと

して MM5、大気質モデルとして CMAQ を使用し、東アジア、日本、西日本、近畿、滋賀県域の 5 段階にスケールダウンして計算する方法を確立した。

- ② 2001 年から 2009 年までに滋賀県において光化学注意報を発令した全 40 ケースを風向・風速により 8 パターンに分類した。
- ③ 感度解析例の結果は、南部地域で一致するケースが多く北部では乖離が見られた。
- ④ シミュレーションから得られたオキシダントの分布特性から、県南東部の甲賀地域に測定局が必要なこと、および居住区域全域で注意報を発令するレベルになるという結果から、県全域を対象とすることが必要であるとの結論を得た。
- ⑤ 発生源モデルの課題として感度解析の結果から、植物由来の isoprene、terpens の発生量を GEIA のデータを変更して 2 倍として使用した。
- ⑥ アジアからの越境大気的光化学オキシダントに対する影響は、直接に O₃ が移流していることもあるが、貯留窒素酸化物、中でも有機窒素酸化物および R02 ラジカルの移流に起因する方が強いのではないかと考えた。
- ⑦ 琵琶湖北岸では貯留窒素酸化物が集積し、日中には光解離を受けて NO₂ に変化し、その場で排出される NO₂ も加わり、紫外線によりオキシダントが発生しているのではないかと考え、大きな塊から離れても琵琶湖北岸付近では、光化学オキシダントが高濃度になり、その複雑さのため、感度解析でみられる誤差になったものと推察した。

6. 引用文献

- 秋元肇, 河村公隆, 中澤高, 鷺田伸明編 (2002), 対流圏大気の化学と地球環境, 学会出版センター
- 黒川純一, 大原利真, 早崎将光, 鶴野伊津志 (2008), 大気環境学会誌 43:4
- 松橋啓介, 田邊潔, 森口祐一, 小林伸治 (2007), 自動車に起因する大気汚染物質排出量推計方法の開発 (I) - 重量区分
- 南斉規介, 森口祐一 (2007), 固定発生源 NO_x, SO_x, PM 排出係数データベース (EF-JASS, ver. 1), 地球環境研究センター, 独立行政法人国立環境研究所。
- 園正, 服部達明, 三田村徳子, 五十嵐恵子, MM5/CMAQ の連携システムによる大気の解析 (東アジア～滋賀) (2008), 滋賀県琵琶湖環境科学研究センター研究報告書、滋賀県琵琶湖環境科学研究センター。
- 谷晃 (2007), 植物によるイソプレンとモノテルペン類の放出、静岡県立大学環境科学研究所。