

報告 (Note)

化学輸送モデルを用いた PM2.5 の発生源寄与解析

小松宏昭  
(調査研究部)

Source apportionment of PM2.5 using a chemical transport model

Hiroaki KOMATSU  
(Research Division)

キーワード : PM2.5, 化学輸送モデル, 発生源解析

1 はじめに

微小粒子状物質 (以下, 「PM2.5」という。) は粒径が小さく人の健康に影響を及ぼす恐れがあることから 2009 年に環境基準が設定された。神奈川県は 2011 年度から PM2.5 の質量濃度のモニタリングを開始し, 2012 年度からは PM2.5 の構成成分を分析して季節変動や高濃度時の特徴を把握してきた<sup>1, 2)</sup>。

PM2.5 の低減対策を検討するには, 発生源の種類や地域についてそれぞれの寄与割合を把握することが重要となるが, PM2.5 は複数の成分から構成され, 発生源の種類や地域も多岐にわたることから, 成分分析結果を用いた解析のみでは発生源を明らかにすることは困難である。

一方, 化学輸送モデルは, 発生源からの大気汚染物質の排出量を変更した計算を行うことで, 大気中の汚染物質濃度に及ぼす影響 (発生源の寄与程度) を推定することが可能である。

今回, 化学輸送モデルを用いて神奈川県内で観測される PM2.5 の生成に影響を及ぼす発生源地域を推計したので, その結果を報告する。

2 方法

2.1 計算方法及び解析地点

気象モデルとして WRF (Weather Research and Forecasting model) v3.5.1, 化学輸送モデルとして CMAQ (Community Multi-scale Air Quality model) v5.0.1 を用いて大気中の PM2.5 濃度のシミュレーションを行った。計算期間は 2013 年 1 月 1 日から 12 月 31 日までとし, 3 段階のネスト計算を行った。

計算領域は東アジア域 (D1, 60 km mesh), 日本域 (D2, 15 km mesh), 関東域 (D3, 5 km mesh) を設定し (図 1), 鉛直方向は地表～

100 hPa を 34 層に区分した。計算間隔は 1 時間で行った。

計算に使用したデータ及び計算条件を表 1 に示す。なお, 排出量データは森野らが作成したデータを使用した<sup>3)</sup>。

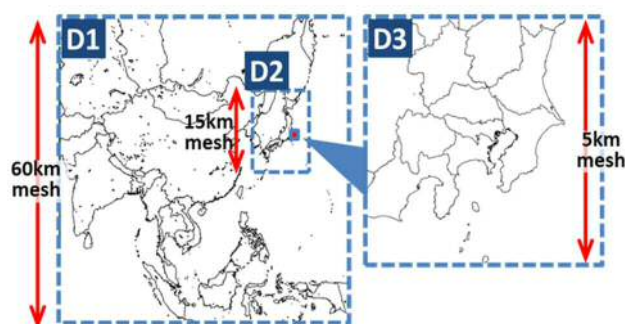


図 1 シミュレーションモデルによる計算領域

表 1 計算に使用したデータ及び反応式等

気象モデル	条件
気象データ	NCEP FNL (D1~3)
反応式等	短波放射 : Dudhia
	長波放射 : PRTM
	積雲対流 : Kain-Fritsch
	境界層 : Mellor-Yamada-Janjic 地表面 : Noah LSM
化学輸送モデル	条件
排出量データ	人為起源 : REASv2.1, JATOP
	船舶 : OPRF
	自然起源 : MEGANv2.10
	火山 : JMA, Aerocom バイオマス燃焼 : GFEDv3.1
反応式等	水平/鉛直拡散 : multiscale/acm2
	水平/鉛直移流 : Yamo/WRF
	光解離定 : Inline 化学反応系 : saprc99/aero5(ebi)

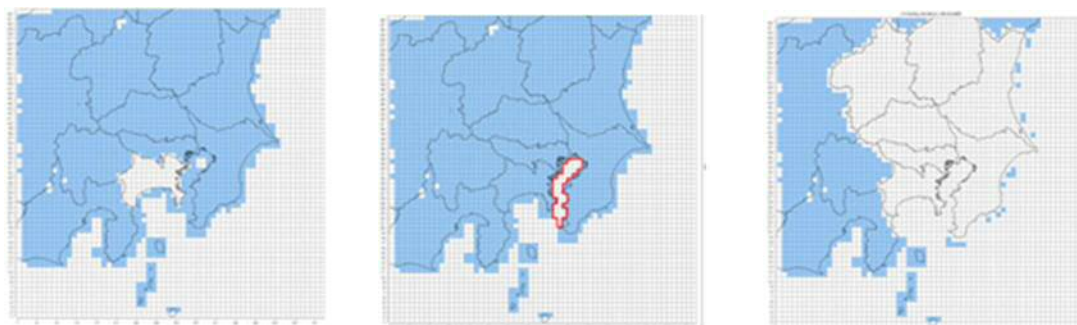


図2 発生源の削減対象地域 (左：神奈川県, 中央：東京湾, 右：関東域)

発生源の対象地域として神奈川県, 東京湾, 関東域の3地域を設定した(図2)。

各地域の発生源寄与割合を算出するために, まず排出量を操作しない計算(通常計算)と対象地域からの排出量を一律50%削減した計算とを行い, 両者の濃度差を2倍することで各地域からのPM2.5の生成濃度を算出した<sup>4)</sup>(式

1)。次いで, 各地域からの生成濃度と通常計算による濃度との割合から各地域の発生源寄与割合を算出した(式2)。

なお, 関東域外(結果の図では「その他」と表記)の寄与割合は通常計算から関東域内の寄与割合を除いて算出した(式3)。

$$\text{各地域*からの生成濃度} = (\text{通常計算結果} - \text{各地域の排出量を50\%削減した計算結果}) / 0.5 \cdot (1)$$

$$\text{各地域*の発生源寄与割合} = (\text{各地域*からの生成濃度}) / (\text{通常計算結果による濃度}) \cdot \dots (2)$$

$$\text{関東域外の発生源寄与割合} = 1 - (\text{関東域内の発生源寄与割合}) \cdot \dots (3)$$

\*各地域：神奈川県, 東京湾, 関東域

計算再現性の確認は, 自動濃度測定機によるPM2.5質量濃度及び成分分析結果と計算値との比較により行った。対象地点は大和市役所測定局(一般環境測定局, 緯度35°29'14", 経度139°27'78", 以下「大和」という。)とした。

発生源解析は大和を対象に行ったのち, より広域的な傾向を把握するため, 関東平野を中心にした計16地点についても検討を行った(表2及び図3)。

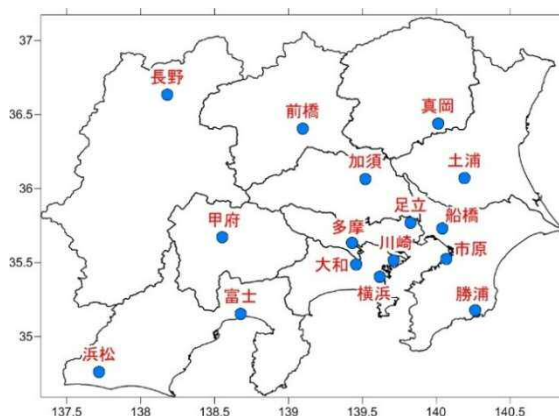


図3 発生源寄与解析の実施地点

表2 発生源寄与解析の実施地点 (所在地の詳細は国環研ウェブサイト<sup>5)</sup>を参照)

名称	測定局名 (所在地)	名称	測定局名 (所在地)
土浦	土浦保健所 (茨城県土浦市)	多摩	多摩市愛宕 (東京都多摩市)
真岡	真岡市役所 (栃木県真岡市)	横浜	磯子区総合庁舎 (神奈川県横浜市)
前橋	衛生環境研究所 (群馬県前橋市)	川崎	国設田島 (神奈川県川崎市)
加須	環境科学国際センター (埼玉県加須市)	大和	大和市役所 (神奈川県大和市)
市原	市原岩崎西 (千葉県市原市)	甲府	甲府富士見 (山梨県甲府市)
船橋	船橋高根台 (千葉県船橋市)	長野	環境保全研究所 (長野県長野市)
勝浦	勝浦小羽戸 (千葉県勝浦市)	富士	救急医療センター (静岡県富士市)
足立	足立区綾瀬 (東京都足立区)	浜松	浜北 (静岡県浜松市)

## 2. 2 大気試料の採取と成分分析法

PM2.5の大気試料は年4回、開始時刻を10時とした24時間単位の採取を14日間連続して行った。試料採取期間を表3に示す。

表3 大気試料の採取期間(2013年)

季節	採取月日
春季	1月22日～2月5日
夏季	5月8日～22日
秋季	7月25日～8月7日
冬季	10月23日～11月6日

成分分析は「成分測定マニュアル<sup>6)</sup>」に基づき実施した。なお、シミュレーションモデルによる計算結果に揃えるため、成分分析結果で得られる有機炭素成分濃度を1.6倍することで有機エアロゾルに換算して解析に使用した<sup>7)</sup>。

## 3 結果及び考察

### 3.1 計算結果の再現性

大和を対象として、自動濃度測定機によるPM2.5質量濃度や成分分析結果と計算値とを比較した。この項では、計算結果は測定値を100とした場合の相対値で表記する。

質量濃度の計算値は測定値と同様の日変動を示し、両者の相関係数は0.68と概ね良好な再現

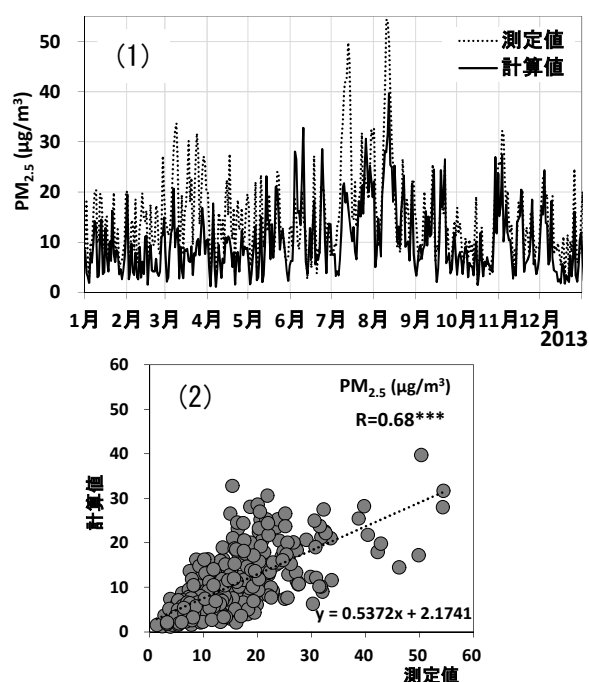


図4 PM2.5構成成分の再現性(大和)  
(1)濃度推移, (2)散布図

性を示したが、高濃度日(3, 7, 8月)の再現性は十分でなかった(図4)。

年平均値は測定値100(14.9 µg/m³)に対して計算値は68(10.2 µg/m³)であった。茶谷らの報告によれば<sup>8)</sup>、同様の解析により2005年度の年平均値は計算値が62~68の範囲にあり(対象地点は東京都町田市及び神奈川県綾瀬市)、本研究で得られた再現性と同程度であった。

次いでPM2.5の成分分析結果(各季節2週間の平均)と計算値とを比較した(図5)。

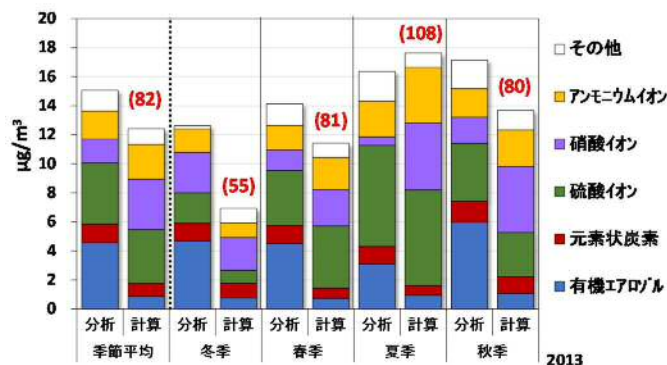
質量濃度をみると分析値を100とした場合の計算値は、55(冬季)から108(夏季)の範囲にあり、四季平均は82であった。

成分によって再現性は異なり、春季から夏季にかけてPM2.5の主要成分である硫酸イオン<sup>1)</sup>の計算値は、この時期113~94の範囲にあり再現性は良好だったが、冬季は43と低く再現性は悪かった(四季平均は82)。

秋季から冬季の主要成分である硝酸イオン<sup>1)</sup>の計算値は、冬季は81であったが、その他の季節は過大評価され、四季平均で211となった。

一方、有機エアロゾル(OA)は四季を通じて過小評価される傾向にあり、四季平均で19となった。

硝酸イオンや有機エアロゾルは気温の影響を受け、粒子状とガス態とで容易に存在状態が変わることから、計算再現性が悪いと考えられた。特に有機エアロゾルの計算結果が過小評価される傾向にあることが報告されている<sup>9)</sup>。



(数値)は測定値を100とした場合の計算値

図5 PM2.5構成成分の再現性(大和)

### 3. 2 発生源寄与割合の推計

#### 1) 発生源寄与割合の推計 (大和)

大和を対象として地域別の発生源寄与割合を算出した(図6)。

PM2.5の質量濃度は関東域内の寄与割合が63%(神奈川県36%,東京湾2%,関東(神奈川県,東京湾を除く地域)25%),関東域外(図中の「その他」を示す,以下同じ。)の割合が36%を占めており,関東域内の発生源の影響をより受けていることが示された。成分によって寄与割合は異なり,硫酸イオンは関東域外の割合が78%と高かったが,硝酸イオンや元素状炭素は関東域内の割合が高く90%以上を占めていた。硝酸イオンや元素状炭素は神奈川県内の寄与割合も高く,硝酸イオンの43%,元素状炭素の70%は県内の発生源の影響を受けていると考えられた。

また,アンモニウムイオンや有機エアロゾルも関東域内の割合が60%前後を占めており,地域的な影響を受けていることが示された。

東京湾の影響は硫酸イオン,硝酸イオン,アンモニウムイオンなどでみられたものの,数%

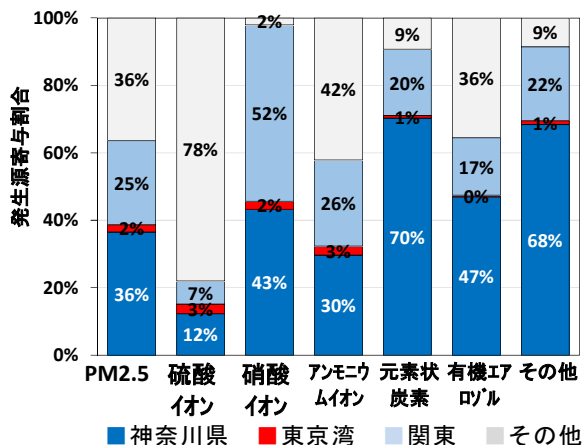


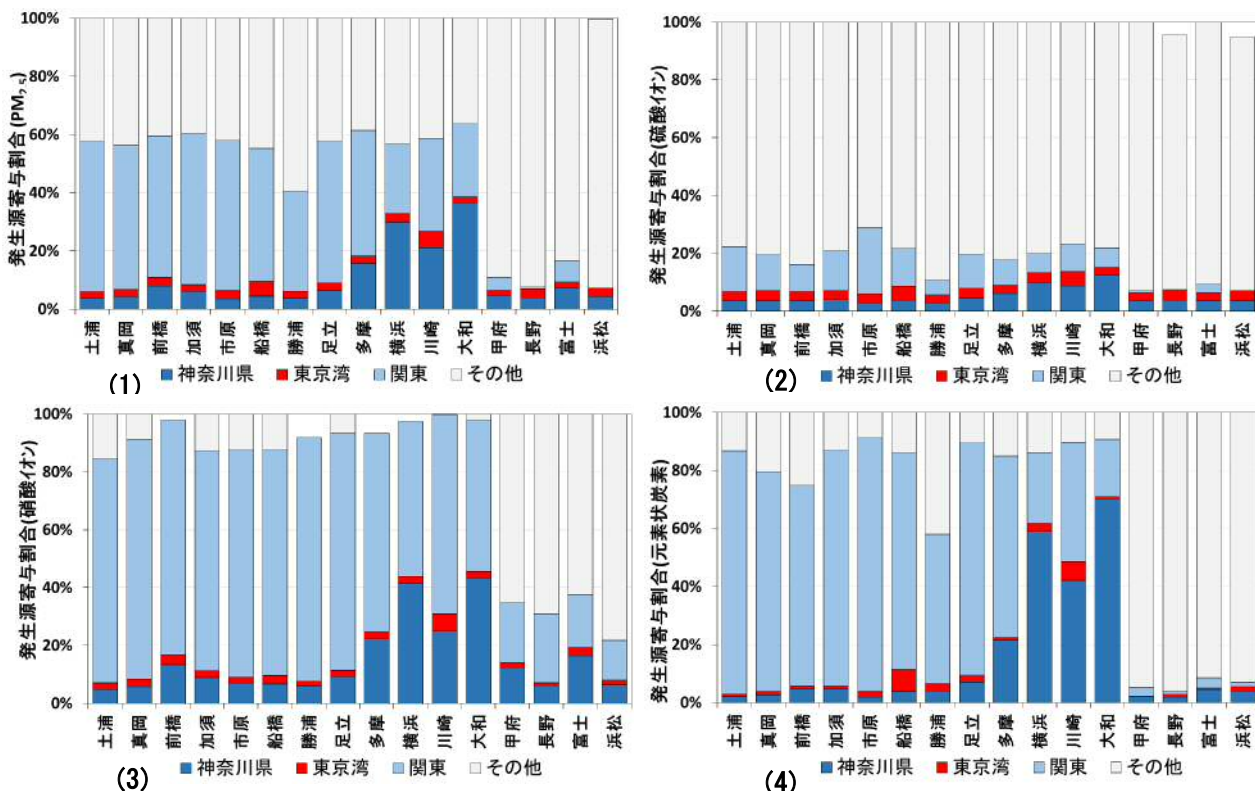
図6 地域別の発生源寄与割合 (大和)

程度であり,年平均値に及ぼす影響は少なかった。

#### 2) 発生源寄与割合の推計 (関東甲信静)

解析地点を県外まで広げ,関東甲信静を対象として地域別の寄与割合を推計した(図7)。

解析の結果,各発源地域が及ぼす影響の度合いは関東平野の内外で異なることが確認された。PM2.5の質量濃度をみると,関東平野内の地点は関東域の影響を4割(勝浦)から6割(大



一部のデータは排出量の削減により濃度が増加したため合計が100%となっていない

図7 地域別の発生源寄与割合 (関東甲信静)

(1) PM2.5, (2) 硫酸イオン, (3) 硝酸イオン, (4) 元素状炭素

和)の範囲で受けていた。特に神奈川県内の横浜、川崎、大和は神奈川県内の発生源の影響を2から3割程度受けていた。一方、甲信静の各地点は関東域外の影響を大きく受けており、関東の影響は2割以下であった。

茶谷らは2005年度を対象にした解析の結果、東京23区における越境汚染の影響を26%と報告している<sup>8)</sup>。また、浦西らは2010年度を対象にした解析により、首都圏における越境汚染の影響は32%と報告している<sup>10)</sup>。本研究では越境汚染の寄与割合を直接算出していないが、関東平野内の各地点における関東域外の寄与割合は4から6割となっており、ここには越境汚染が多く含まれている可能性が考えられた。

次に大和の発生源解析で地域別の寄与割合に違いのみられた硫酸イオン、硝酸イオン、元素状炭素について関東甲信静を対象とした解析を行った。

硫酸イオンは関東平野内の各地点とも大和と同様に関東域外の影響を7~8割受けている結果となった(図7(2))。甲信静の地点は関東域外の発生源の影響がさらに大きく、関東域内の影響は1割程度であった。

硫酸イオンは石油や石炭の燃焼によって生じた硫黄酸化物(ガス状物質)が酸化され、硫酸粒子となった後、アンモニアガスを吸収して硫酸塩として存在していることが知られており<sup>11)</sup>、さらに硫酸塩は大気中で比較的安定で、長距離輸送されることが報告されている<sup>12)</sup>。

したがって、春季から夏季にかけてPM2.5の主要成分である硫酸イオンの低減対策を検討するには、関東域内の連携では十分でなく広域的に対策を検討する必要があると考えられた。

一方、硝酸イオンや元素状炭素をみると関東平野内の各地点は関東域内の発生源の影響を大きく受けていた(図7(3)、(4))。

筆者らはこれまでに神奈川県内の市街地(大和及び茅ヶ崎駅前測定局)と山間地(西丹沢犬越路測定局)とを比較し、広域的影響を受ける硫酸イオンとは異なり、硝酸イオンや元素状炭素は山間地まで到達せず地域的な汚染であることを示唆する結果を得ており<sup>2)</sup>、今回のシミュレーションモデルを使用した解析結果とも一致している。これらのことから、秋季から冬季にかけてPM2.5の主要成分となる硝酸イオンの

低減対策を検討するには、関東域内の自治体等と連携した取組みが重要と考えられた。

### 3.3 発生源対策によるPM2.5の低減効果

地域的な発生源対策を講じた場合の低減効果を検証するため、関東域からの排出量を一律に50%削減した際のPM2.5等の濃度変化を大和を対象として推定した(図8)。

PM2.5質量濃度は年平均値でみると約 $3\mu\text{g}/\text{m}^3$ (質量濃度の約3割に相当)の減少が見込める結果となった。ただし、削減計算では6~9月にかけて硝酸イオン濃度が減少する結果となったが、計算値は夏季の硝酸濃度を過大評価する傾向にあり(図5)、全体的な低減効果も過大に評価されている可能性がある。

一方で、関東域内の汚染物質の排出量を一律削減したことにより、オキシダント濃度は約7ppb程度上昇する結果となった。これはNO排出量が減少することで、NOによるオキシダントのタイトレーション効果が減少したためと考えられた<sup>13)</sup>。

今回は地域的な対策を講じた場合の効果を、関東域を一律に50%削減した計算から推定したが、より具体的な施策を検討するには、発生源の種類別に対策効果を算出するなど詳細な検討が必要である。

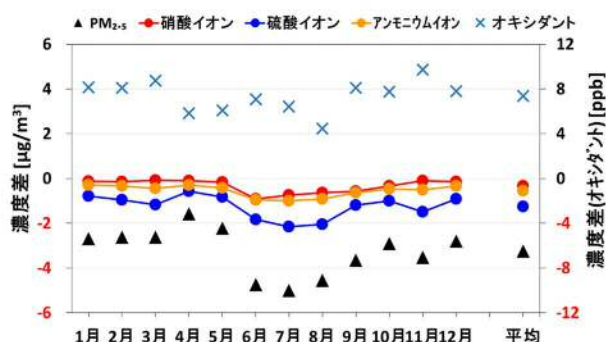


図8 発生源対策による低減効果

## 4 まとめ

本研究では、WRF-CMAQによるPM2.5のシミュレーションを行い、地域別の発生源寄与割合を推定した。

計算精度は概ね良好であったが、有機エアロゾルなど一部の成分の再現性は不十分であった。解析の結果、硫酸イオンは本県を含めた関東平野の各地点とも、関東域外の寄与割合が高

いことが明らかとなった。一方、硝酸イオンは関東域内の寄与割合が高い結果が得られており、PM<sub>2.5</sub>の低減対策を検討するうえで、広域的な対策と地域内で連携した対策の双方からのアプローチが重要であることが示された。また、関東域からの大気汚染物質の排出量を一律削減することでPM<sub>2.5</sub>の濃度は減少するものの、オキシダント濃度は増加する結果が得られた。

PM<sub>2.5</sub>の削減対策を検討するには、さらに発生源の種類別に影響を把握するなど、詳細な検討が必要である。また、有機エアロゾルなど再現性の十分でない成分もあり、今後は計算再現性の向上も図る必要がある。

## 5 謝辞

本研究は国立環境研究所と地方環境研究所によるⅡ型共同研究の一部として国立環境研究所が保有するスカラ計算機を用いて実施しました。排出量データは国立環境研究所の森野悠氏、野口幸良氏に作成いただきました。計算再現性の確認及び結果の解析には国立環境研究所の菅田誠治氏、曾我稔氏にご協力いただきました。また、CMAQの実行および入出力データ処理は大阪大学大学院工学研究科 嶋寺光助教にご協力いただきました。ここに記して感謝申し上げます。

## 参考文献

- 1) 小松宏昭, 武田麻由子, 岡敬一, 辻祥代, 石割隼人: 神奈川県における微小粒子状物質の特徴について, 神奈川県環境科学センター研究報告, 36, 11-17(2013)
- 2) 小松宏昭, 武田麻由子, 石割隼人: 神奈川県におけるPM<sub>2.5</sub>の季節変動と高濃度時の特徴について(1), 神奈川県環境科学センター研究報告, 38, 1-6(2015)
- 3) 森野悠, 永島達也, 菅田誠治, 高見昭憲, 谷本浩志, 大原利真: 化学輸送モデルによるPM<sub>2.5</sub>成分濃度の再現性と時間空間分解能の関係, 第55回大気環境学会年会講演要旨集, 504(2014)
- 4) 小松宏昭, 常松展充, 原政之, 浦西克維, 菅田誠治: 神奈川県における化学輸送モデルを用いたPM<sub>2.5</sub>の発生源寄与解析: 第57回大気環境学会年会講演要旨集, 198(2016)
- 5) 国立環境研究所: 環境数値データベース, <https://www.nies.go.jp/igreen/> (参照: 2018.8)

- 6) 環境省: 大気中微小粒子状物質成分測定マニュアル, <https://www.env.go.jp/air/osen/pm/ca/manual.html> (参照: 2018.8)
- 7) Barbara, J. Turpin, Ho-Jin, Lim: Species Contributions to PM<sub>2.5</sub> Mass Concentrations: Revisiting Common Assumptions for Estimating Organic Mass, *Aerosol Sci Tech*, 35, 602-610(2001)
- 8) 茶谷聡, 森川多津子, 中塚誠次, 松永壮: 3次元大気シミュレーションによる2015年度日本三大都市圏PM<sub>2.5</sub>濃度に対する国内発生源・越境輸送の感度解析, *大気環境学会誌*, 46(2), 101-110(2011)
- 9) 伏見暁洋, 森野悠, 高見昭憲, 大原利真, 田邊潔: PM<sub>2.5</sub>の実態解明に向けて, *大気環境学会誌*, 46(2), 84-100(2011)
- 10) 浦西克維, 嶋寺光, 斎木脩平, 松尾智仁, 近藤明: 大気質モデルを用いた2010年度の日本における硝酸塩濃度に対する発生源寄与解析, *大気環境学会誌*, 53(3), 88-99(2018)
- 11) 笠原三紀夫, 東野達: 大気と微粒子の話, 京都大学出版会, 29-31(2008)
- 12) 粒子状物質の特性について: 中央環境審議会大気環境部会微小粒子状物質環境基準専門委員会, 資料2-1, 環境省, (2009), <http://www.env.go.jp/council/former2013/07air/y078-02.html> (参照: 2018.10)
- 13) 光化学オキシダント調査検討会: 光化学オキシダント調査検討会報告書, (2017), [http://www.env.go.jp/air/osen/pc\\_oxidant.html](http://www.env.go.jp/air/osen/pc_oxidant.html) (参照: 2018.8)