

Environment Research and Technology Development Fund

環境研究総合推進費 終了研究成果報告書

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

(JPMEERF20195003)

令和元年度～令和3年度

Research and Development of a Simulation Support System for Evaluating Air Pollution Measures

〈研究代表機関〉

国立研究開発法人国立環境研究所

〈研究分担機関〉

一般財団法人日本自動車研究所

一般財団法人日本環境衛生センター

国立大学法人九州大学

一般財団法人電力中央研究所

神奈川県環境科学センター

福岡県保健環境研究所

○図表番号の付番方法について

「Ⅰ．成果の概要」の図表番号は「0．通し番号」としております。なお、「Ⅱ．成果の詳細」にて使用した図表を転用する場合には、転用元と同じ番号を付番しております。

「Ⅱ．成果の詳細」の図表番号は「サブテーマ番号．通し番号」としております。なお、異なるサブテーマから図表を転用する場合は、転用元と同じ図表番号としております。

令和4年5月

目次

I. 成果の概要	1
1. はじめに（研究背景等）	
2. 研究開発目的	
3. 研究目標	
4. 研究開発内容	
5. 研究成果	
5－1. 成果の概要	
5－2. 環境政策等への貢献	
5－3. 研究目標の達成状況	
6. 研究成果の発表状況	
6－1. 査読付き論文	
6－2. 知的財産権	
6－3. その他発表件数	
7. 国際共同研究等の状況	
8. 研究者略歴	
II. 成果の詳細	18
II－1 大気汚染シミュレーション支援システムの開発 （国立研究開発法人国立環境研究所）	
要旨	
1. 研究開発目的	
2. 研究目標	
3. 研究開発内容	
4. 結果及び考察	
5. 研究目標の達成状況	
6. 引用文献	
II－2 排出量変換システムの整備および排出インベントリの精度検討 （国立研究開発法人国立環境研究所、（一財）日本自動車研究所、（一財）日本環境衛生センター）	30
要旨	
1. 研究開発目的	
2. 研究目標	
3. 研究開発内容	
4. 結果及び考察	
5. 研究目標の達成状況	
6. 引用文献	
II－3 大気汚染物質濃度解析データセットの作成および排出量逆推計システムの開発 （国立大学法人九州大学、一般社団法人電力中央研究所）	46
要旨	

1. 研究開発目的
2. 研究目標
3. 研究開発内容
4. 結果及び考察
5. 研究目標の達成状況
6. 引用文献

II-4 関東における光化学オキシダントの発生源種類別・地域別寄与割合の推定 54 (神奈川県環境科学センター)

要旨

1. 研究開発目的
2. 研究目標
3. 研究開発内容
4. 結果及び考察
5. 研究目標の達成状況
6. 引用文献

II-5 九州北部における長距離輸送中の化学反応・濃度変化の影響評価 62 (福岡県保健環境研究所)

要旨

1. 研究開発目的
2. 研究目標
3. 研究開発内容
4. 結果及び考察
5. 研究目標の達成状況
6. 引用文献

III. 研究成果の発表状況の詳細 73

IV. 英文Abstract 77

I. 成果の概要

課題名 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

課題代表者名 菅田 誠治（国立研究開発法人国立環境研究所地域環境保全領域 室長）

重点課題 主：【重点課題⑮】大気・水・土壌等の環境管理・改善のための対策技術の高度化及び
評価・解明に関する研究

副：【重点課題⑦】気候変動への適応策に係る研究・技術開発

行政要請研究テーマ（行政ニーズ） （5-2）地域における大気汚染対策効果評価のためのインベ
ントリと統合システムの開発

研究実施期間 令和元年度～令和3年度

研究経費

94,017千円（合計額）

（各年度の内訳：令和元年度：34,699千円、令和2年度：31,499千円、令和3年度：27,819千円）

研究体制

（サブテーマ1）大気汚染シミュレーション支援システムの開発

（国立研究開発法人国立環境研究所）

（サブテーマ2）排出量変換システムの整備および排出インベントリの精度検討

（国立研究開発法人国立環境研究所、

（一財）日本自動車研究所、（一財）日本環境衛生センター）

（サブテーマ3）大気汚染物質濃度解析データセットの作成および排出量逆推計システムの開発

（国立大学法人九州大学、

（一社）電力中央研究所）

（サブテーマ4）関東における光化学オキシダントの発生源種類別・地域別寄与割合の推定

（神奈川県環境科学センター）

（サブテーマ5）九州北部における長距離輸送中の化学反応・濃度変化の影響評価

（福岡県保健環境研究所）

研究協力機関

研究協力機関はない。

本研究のキーワード 大気汚染シミュレーション支援、インベントリとモデルの統合システム、地域
毎の対策効果評価、大気汚染物質濃度解析データセット、逆推計システム

1. はじめに（研究背景等）

近年、東アジアと国内の大気汚染状況は、劇的な変化を示している。国内の $\text{PM}_{2.5}$ 平均濃度は 2014 年度以降減少傾向にありつつも 2017 年度時点で環境基準未達成局が局数にして 1 割程度残っていた一方で、光化学オキシダントは全国で環境基準達成率がほぼゼロである状況が続いており、両者の対策が求められていた。これらには中国での排出量変化が大きく影響していると考えられるが、国内の大気汚染状況は強い地域性を持つことから、地方自治体等による地域毎の対策が必要である。また、気候変動適応法に伴い、気候変動が大気汚染に及ぼす影響についても地域毎の検討が求められていた。

これらの検討に際して必要な手法の一つが数値シミュレーションである。大気汚染に係るシミュレーションについては環境研究総合推進費（以下「推進費」）C-1101、5-1408 等により大気質モデル精度改良の取組みの蓄積があり、また、推進費 5-1601 では規範的な大気質モデルの利用法に関する知見が集積された。また、環境省の委託調査によって排出インベントリ等のデータ整備が進められてきた。しかし、これらの成果は地方自治体等が簡便に利用できる形としては整備されておらず、シミュレーションに至るまでには幾つかの障壁がある。例えば排出インベントリは、用いるモデルにあわせて物質を細分配し、また、数値シミュレーションの計算格子にあわせた変換が必要である。

これまでの大気質モデルやインベントリ等の蓄積を生かして、それらの成果をワンストップで利用可能とする、大気汚染数値シミュレーションの実施を手助けする仕組みの開発が望まれた。

2. 研究開発目的

本研究は、これまでの大気質モデル、知見や排出インベントリ等の蓄積を生かして、ユーザーフレンドリーなインターフェースを介した簡便な選択や指定に基づいて、国内外の各種インベントリをモデルに使える排出量データに変換し、また、モデルの計算設定ファイルを自動生成する、大気汚染シミュレーションを簡便に利用できるようにするためのシミュレーション支援システムを開発する。これにより大気汚染対策の当事者である地方自治体担当者等が、それぞれの地域における問題を解決するために、多数の施策オプションの総合的・継続的な検討を可能とすることを目的とする。

シミュレーション支援システムの開発と並行して、大気環境常時監視データ等の地上観測データや衛星観測データをデータ同化するシステムを開発した上で、光化学オキシダントや $\text{PM}_{2.5}$ 濃度について大気汚染物質濃度解析データセットを作成し、また、地上観測データや衛星観測データに基づいて日本国内の NO_x 排出量に対する逆推計システムを開発することで、国内 NO_x 排出量の精度の検証と改良を行う。

複数の地方自治体によるケーススタディを数値シミュレーションを用いて実施し、シミュレーション支援システムの検証・実証も兼ねつつ、それぞれの地域における大気汚染問題を解決するための施策検討に資する研究を行う。

3. 研究目標

全体目標	大気質モデルを簡便に利用できるようにするために、ユーザーフレンドリーなインターフェースを介して計算設定等を選択・指定することで、シミュレーションに必要な排出量データと計算設定ファイル等を生成する大気汚染シミュレーション支援システムを開発する。システムの検証・実証も兼ねつつ、複数の自治体によるケーススタディを実施し、それぞれの地域における大気汚染問題を解決するための施策検討に資する研究を行う。 並行して、光化学オキシダントや $\text{PM}_{2.5}$ 濃度について大気汚染物質濃度解析データセットを作成する。また、地上観測データや衛星観測データに基づいて国内
------	--

	NO _x 排出量の精度の検証と改良を行う。
--	----------------------------------

サブテーマ 1	大気汚染シミュレーション支援システムの開発
サブテーマリーダー /所属機関	菅田 誠治/国立環境研究所
目標	仕様について検討を行った上で、ユーザーインターフェースを介した簡便な選択や指定に基づいて国内外の各種インベントリをモデルレディの排出量データに変換し、また、モデルの計算設定ファイルを自動生成するシミュレーション支援システムの初期版を開発する。初期版をサブテーマ 4、5 および地方自治体協力機関に利用して貰い、システムの検証を行いつつ、必要な改良を行い、シミュレーション支援システムを完成させる。シミュレーション支援システムの使用説明会を地方自治体等に対して実施する。 共同実施する大気汚染対策効果評価研究についてサブテーマ 4、5 と相談・検討を行い、最終的に評価研究のとりまとめを行う。

サブテーマ 2	排出量変換システムの整備および排出インベントリの精度検討
サブテーマリーダー /所属機関	茶谷 聡/国立環境研究所
目標	これまでの推進費課題（5-1601 等）で構築された排出量データの変換ツールを拡張させ、複数の排出インベントリデータに対応し、インターフェース上での各種パラメータの設定などが行え、かつ、排出量や関連各種情報の図示もできるユーザーフレンドリーな排出量変換システムを完成させる。 既存の排出インベントリならびにそれを用いた領域化学輸送モデルによる大気汚染物質濃度の計算値と、排出量逆推計結果ならびに大気汚染物質濃度解析データセットとの比較により、既存の排出インベントリにおける排出量の水平分布の問題点を明らかにするとともに、データが存在しない直近年に至るまでの排出量の推移を推定できるようにする。

サブテーマ 3	大気汚染物質濃度解析データセットの作成および排出量逆推計システムの開発
サブテーマリーダー /所属機関	弓本 桂也/九州大学
目標	2次元変分法を用いた大気汚染物質解析システムを開発し、化学輸送モデルの結果を先験情報に、大気汚染物質広域監視システムによる観測データを拘束条件に、PM_{2.5}や光化学オキシダントに対する1時間分解能の客観解析データセットを作成する。作成したデータセットをサブテーマ 4 やサブテーマ 5 に提供する。 地球環境監視衛星TROPOMIで観測された大気微量気体のデータを整備、解析を行う。サブテーマ 2 から提供された排出インベントリおよび化学輸送モデルの結果と、衛星データの比較を行うことで、国内NO_x排出量の精度を検証する。結果をサブテーマ 2 に還元する。 衛星観測データを用いたNO_x 排出量の逆推計システムを構築する。最新のNO_x 排出量を推定し、近年の大気汚染状況および推移を明らかにする。逆推計結果を

	サブテーマ2に還元する。また、SO ₂ 排出量の逆推計システムの開発の検討を行う。
--	--

サブテーマ4	関東における光化学オキシダントの発生源種別・地域別寄与割合の推定
サブテーマリーダー /所属機関	小松 宏昭/神奈川県環境科学センター
目標	計算解析対象とする事例、地域、項目についてサブテーマ1と協議しつつ選定を行い、計算解析に必要な気象データと排出量データを用意する等、計算環境を整備する。シミュレーション支援システムの初期版を用いて、光化学オキシダントの生成に影響を及ぼす発生源の地域別・種類別の寄与割合を算出する計算解析を行い、結果をサブテーマ1にフィードバックする。シミュレーション支援システムの改良版を用いて発生源の寄与割合を算出する計算を実施し、解析結果をもとに関東の光化学オキシダント濃度低減に有効な発生源を明らかにする。

サブテーマ5	九州北部における長距離輸送中の化学反応・濃度変化の影響評価
サブテーマリーダー /所属機関	山村 由貴/福岡県保健環境研究所
目標	九州北部では、越境大気汚染が高い寄与割合を占めている。長距離輸送過程における化学反応・濃度変化について解析するために、PM _{2.5} および光化学オキシダント生成に寄与し、輸送中の変化が大きくモデル再現性の低いHNO ₃ ガスについて、離島および福岡県内において、濃度を高時間分解能で測定する。測定結果と既存観測によるPM _{2.5} 濃度および成分濃度や光化学オキシダント濃度により、サブテーマ1～3で開発したデータセットと支援システムを用いた数値解析結果を、物質・成分ごとに再現性を評価することで、モデル精度を向上させる。 精度を高めたモデルを用いて、季節変化や輸送経路など様々な条件で長距離輸送されるPM _{2.5} および光化学オキシダントの化学反応・濃度変化機構を明らかにし、濃度削減に益する知見を得る。

4. 研究開発内容

推進費S-12-1等で開発されたマルチスケールの大気質モデルを、推進費5-1601（2016-2018年度、茶谷聡代表）の成果である規範的なモデル設定で、簡便に利用できるようにするための大気汚染シミュレーション支援システムを開発した。シミュレーション支援システムは、ユーザーフレンドリーなインターフェースを介して、計算設定等を選択・指定することで、シミュレーションに必要な排出量データと計算設定ファイル等を生成できる。排出量は、環境省のPM_{2.5}インベントリ他の国内外の複数の排出インベントリ（表2.1）を利用可能とし、推進費5-1601が開発した排出量変換ツールを改修・発展させ排出量変換システムとしてシミュレーション支援システムに組み込む用いることで、モデルに使える排出量データに変換できる。

シミュレーション支援システムの開発と並行して、大気環境常時監視データ等の地上観測データや衛星観測データをデータ同化するシステムを開発した上で、光化学オキシダントやPM_{2.5}濃度について大気汚染物質濃度解析データセットを作成した。また、地上観測データや衛星観測データに基づいて日本国

内のNO_x排出量に対する逆推計システムを開発することで、国内NO_x排出量の精度を検証し、改良を行った。

複数の地方自治体によるケーススタディを数値シミュレーションを用いて実施し、シミュレーション支援システムの検証・実証も兼ねつつ、それぞれの地域における大気汚染問題を解決するための施策検討に資する研究を行った。参画機関以外にも、国立環境研と地方環境研とのⅡ型共同研究「光化学オキシダントおよびPM_{2.5}汚染の地域的・気象的要因の解明（2019-2021年度）」のモデル研究グループの参画機関も協力者として検討に加わった。

数値シミュレーションは国立環境研究所の有するスカラー計算機システムおよび各地方自治体等の有する計算システムにおいて実施した。

以下にサブテーマごとにもう少し具体的な研究開発内容を記載する。

4.1 大気汚染シミュレーション支援システムの開発

サブ4、5および地方自治体協力機関と相談し、シミュレーション支援システムの仕様について検討を行い、モデルユーザーの多くが卓上で仕事用に用いている Windows10 を支援システムの動作環境とし、作成されたファイルを Linux 計算機にコピーして計算を実施する仕様とした。対象とする気象モデルには Weather Research and Forecasting Model (WRF)、排出量ツールには推進費 5-1601 の成果、大気質モデルには Community Multiscale Air Quality Modeling System (CMAQ) を選定した。支援システムの開発言語は vb.net2017 とした。また、地図描画にはハワイ大学マノア校が開発する GMT (the Generic Mapping Tools) を用いた。

サブ2から排出量変換システムの提供を受け、シミュレーション支援システムの初期版を開発した。シミュレーション支援システムの初期版をサブ4、5および地方自治体協力機関に利用して貰い、システムの検証を行いつつ、必要な改良を行い、シミュレーション支援システムを完成させた。シミュレーション支援システムの利用講習会を地方自治体等に対して実施した。

また、サブ4、5とそれぞれ共同実施する大気汚染対策効果評価研究について相談・検討を行った。サブ4、5の解析を受けて、共同で事例の解析およびとりまとめを行った。

4.2 排出量変換システムの整備および排出インベントリの精度検討

(1) 排出量変換システムの構築

排出量変換システムを整備するにあたり、推進費5-1601で構築された排出量データ変換ツールを基に、領域化学輸送モデルが必要とする全ての排出量データファイルを揃えるのに不足していた、①水平分解処理の自動化、②植物起源排出量推計への対応、③OCEANファイルへの対応、④排出量データの水平分布の図示について、新たに構築を行った。①は、排出インベントリによって異なる水平解像度のデータをユーザーが指定する計算対象領域のメッシュに割り当てるための水平分解係数を自動で生成させるものである。②は、植物起源の排出量の推計に必要な入力データを自動で生成させるものである。③は、領域化学輸送モデルが海塩粒子の排出量を推計するために必要とする海域および砕波帯の分布データファイル (OCEANファイル) を自動で生成させるものである。④は、排出インベントリに含まれる発生源の分布を簡便に確認できるようにするために、排出量データの水平分布を図示できるようにするものである。これらを構築した上で、最新の排出インベントリー式とデータの変換に必要な全ての係数類を取り揃えてサブテーマ1に提供し、シミュレーション支援システムへのツールの搭載を図った。

(2) マップ調査と排出インベントリにおける固定燃焼発生源情報の直接比較

環境省が3年ごとに実施する「大気汚染物質排出量総合調査 (マップ調査)」では、ある規模以上の煙源からのSO₂、NO_x、ばいじん排出量の実態が調査されている。一方、大気シミュレーションで用いる排出インベントリの煙源は、マップ調査から算出した排出原単位と、統計情報で得られる活動量を乗じて算出した排出量を元に作成されたものである。マップ調査における個別煙源と、排出インベントリの排出量について、発生源位置・高さおよび排出量の違いが、どの程度あるものか、また、大気シミュレ

ーションに、従来の排出インベントリではなく、マップ調査の個別煙源をそのまま用いた場合、大気汚染物質濃度の現況再現性がどの程度向上するか確認した。

（３）排出量逆推計結果との比較による排出インベントリの検証

排出インベントリに含まれている排出量は、発生源の排出係数と活動量などの情報から推計されたものであり、このような排出量の推計方法を一般にボトムアップと呼ぶ。ボトムアップによる排出量の詳細な精度検証をするために、サブテーマ３から提供された NO_x 排出量逆推計結果との比較を行った。ボトムアップ排出量と逆推計排出量の差分を、クラスター別および発生源別の排出量に係数を乗じたものの和で回帰的に説明づけることを試みた。

（４）領域排出インベントリの評価と改良

推進費S-12-1(2)で開発されたアジア域排出インベントリ (Regional Emission inventory in ASia, REAS) version 3 (以降REASv3) について、同じくS-12-1(3)で開発されたアジア域 NO_x 排出量逆推計システムによる結果 (サブテーマ３より提供、以降IM) を使用し、2005-2015年の中国地域別 NO_x 排出量を対象に、両者の比較とその差異の要因について考察を行った。また、地球環境監視衛星TROPOMI

(Tropospheric Monitoring Instrument) による対流圏 NO_2 カラム濃度観測データ (サブテーマ３により整備・加工されたデータ) を用い、REASv3で点源扱いしている発電所周辺の NO_2 カラム月平均濃度分布について考察した。さらに、最新年が2015年であったREASv3について、最新のデータ・情報を収集・整備して2018年まで延伸し、中国の SO_2 、 NO_x 、BC排出量の近年のトレンドを評価した。

4.3 大気汚染物質濃度解析データセットの作成および排出量逆推計システムの開発

（１）大気汚染物質濃度解析データセットの作成

図3.1に大気汚染物質解析システムの概念図を示す。大気汚染物質解析システムでは、化学輸送モデルの予測値を先験情報に、大気汚染物質広域監視システム (以降「そらまめ君」) の測定値を同化することによって、精度の高い客観解析データセットを構築した。同化手法には2次元変分法 (Yumimoto et al., 2017; Yumimoto et al., 2019) を用いた。化学輸送モデルには領域化学輸送モデル CMAQ を採用し、モデルの設定は国立環境研究所が運用する大気汚染予測システム (VENUS) に準拠した。このモデル設定は逆推計システムと同一である。開発したシステムで $\text{PM}_{2.5}$ およびオゾン濃度について再解析を行い、データベースとして整備した。また、長期間の解析で得られたインクリメント (同化による修正量) はモデルバイアスの考察に用いることができる。

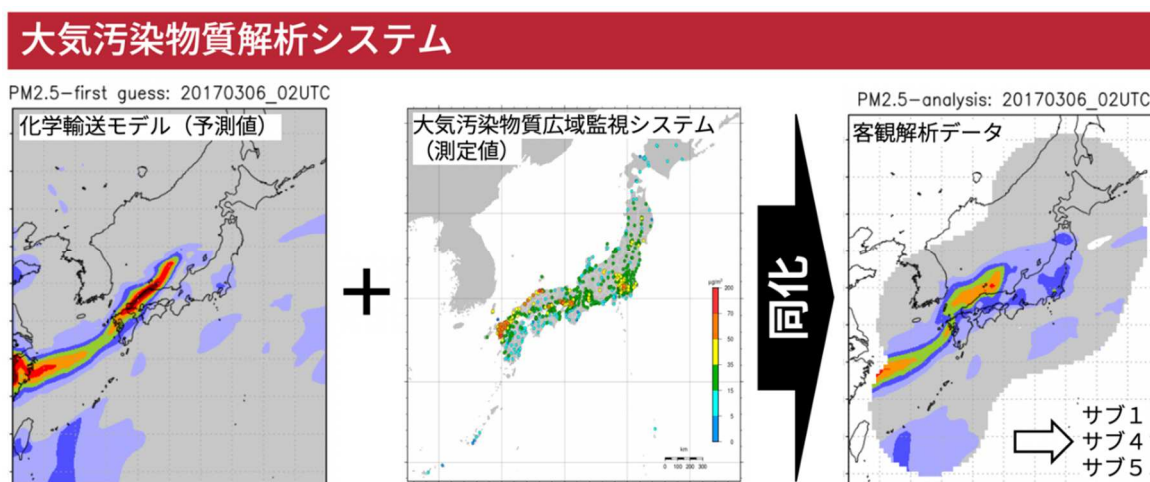


図3.1 大気汚染物質解析システムの概念

(2) 排出量逆推計システムの開発

図3.2に排出量逆推計システムの概念図を示す。排出量逆推計システムでは、経済指標や統計量で算出されたボトムアップ排出インベントリを先見情報とし、衛星観測で得られたカラム濃度を拘束条件に、排出インベントリを最適化した。化学輸送モデル(CMAQ、計算設定はVENUSに準拠)は排出量とカラム濃度の関係性の計算に用いた。本研究課題では、サブテーマ2より提供されたボトムアップ排出インベントリ(NO_x)と、2018年12月にデータ提供を開始したTROPOMIの NO_2 対流圏カラム濃度を用いた。排出量逆推計の空間解像度は0.02度(約3km)とした。この高解像度による逆推計結果を地図上に落とし込み詳細に検証することで、 NO_2 対流圏カラム濃度やボトムアップ排出インベントリと幹線道路や発電所や製造業等の固定発生源との対応関係を調べた。



図3.2 排出量逆推計システムの概念

4.4 関東における光化学オキシダントの発生源種類別・地域別寄与割合の推定

サブテーマ1、2から提供される排出量データやシミュレーション支援システムを活用して感度実験を行い、関東地域の光化学オキシダントの生成に影響を及ぼす発生源の地域や種類を明らかにした。研究当初は計算機及びシミュレーションモデルを導入するなど計算環境を整備した。また計算機等の導入前はモデルの操作・解析技術を習得するため、国立環境研究所と地方環境研究所とのⅡ型共同研究と連携して、国立環境研究所のスカラー計算機を用いたモデル解析($\text{PM}_{2.5}$ の経年推移)を実施した。

計算環境の整備後はサブテーマ1と協議しつつ、解析対象とする高濃度事例や対象業種を選定したうえで、シミュレーション支援システム初期版で作成した排出量データを使ってモデル計算を行い、得られた結果をサブテーマ1にフィードバックした。シミュレーション支援システム完成版を用いて複数のシナリオに沿った排出量データを作成し、モデル計算を行うことで光化学オキシダントの生成に影響を及ぼす発生源の地域別・種類別の寄与割合を算出した。計算を解析することにより関東の光化学オキシダント濃度の低減に有効な発生源を検討した。

4.5 九州北部における長距離輸送中の化学反応・濃度変化の影響評価

九州北部では、冬から春にかけて九州の西に高気圧が位置すると、高気圧性循環に伴い度々高濃度の越境大気汚染が観測される。長崎県対馬（以下、対馬）、福岡県糸島（以下、糸島）は、このような気圧配置においてそれぞれ通過地点と到達地点に位置している。この対馬・糸島において、高時間分解能の測定装置を設置し、1時間ごとの HNO_3 ガスおよび NO_3 粒子濃度測定を行った。

春季の越境汚染事例では、糸島の HNO_3 ガス濃度が、その風上となる対馬の濃度より高くなる現象が観測できた。なお、対馬と糸島の間に HNO_3 発生源はなく、沈着による減衰によって、通常は対馬の方が高濃度になると考えられる。この現象について、数値モデルを用いて解析を行い、対馬と糸島における NH_4NO_3 粒子と HNO_3 ガス濃度に着目して、この現象の原因について推測した。

冬季の越境汚染事例では、環境省によって福大に設置された高時間分解能の測定装置による HNO_3 ガスおよび NO_3 粒子濃度測定結果も用いて、汚染気塊が対馬・糸島・福大と順に輸送される現象を捉えた。対馬・糸島間は海上、糸島・福大間は地上を輸送されたことに着目し、観測結果に合わせてモデル内の海面・地表面への HNO_3 ガス沈着速度を調整し感度計算を行い、沈着速度が計算結果に与える影響について考察した。

5. 研究成果

5-1. 成果の概要

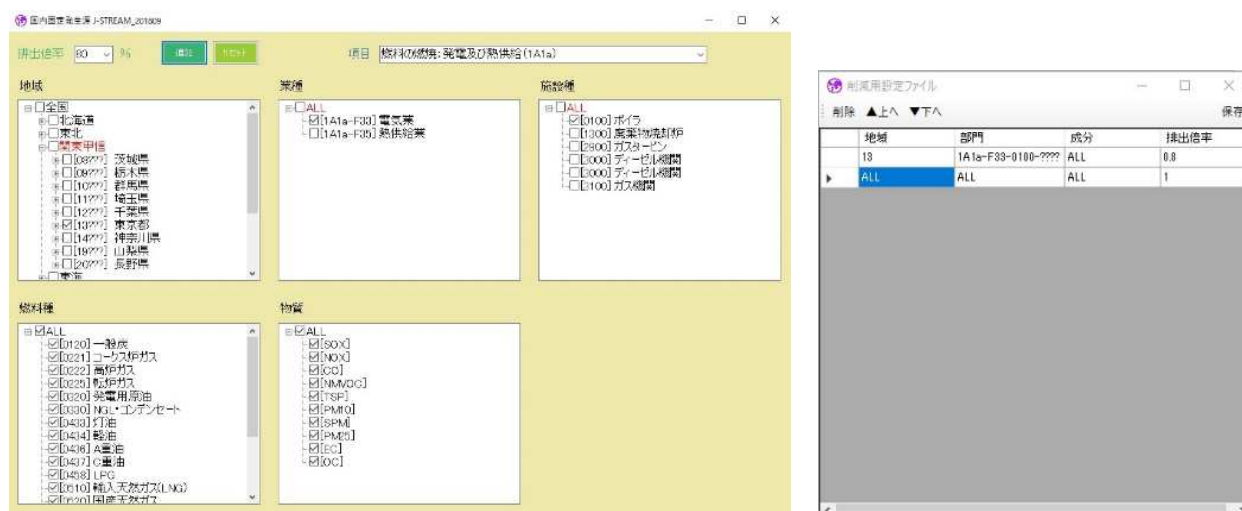


図 1.7 発生源データ J-STREAM に対して排出倍率設定を行ったときの排出倍率設定画面の例（左）と結果として 1 行追加された排出倍率設定ファイルの画面（右）。

5-1-1. 大気汚染シミュレーション支援システムの開発

ユーザーフレンドリーなインターフェースを介して、計算設定等を選択・指定することで、シミュレーションモデルのコンパイルおよび実施に必要なファイルやデータを生成する、大気汚染シミュレーション支援システム（通称 APOLLO、以下 APOLLO）を開発した。APOLLO は、Windows10 上で動作し、生成されたファイルを Linux にコピーして計算等を実施する。現時点で、対象とする気象モデルは Weather Research and Forecasting Model (WRF)、大気質モデルは Community Multiscale Air Quality Modeling System (CMAQ) で、排出量はサブテーマ 2 で開発された排出量変換システムにて生成する。APOLLO が持つ機能は、4 つに大別され、システムで管理する計算設定をパッケージファイルとして読み書きする機能、計算期間や計算領域の変更・編集を行う機能、シミュレーションに用いる数値モデルのコンパイルもしくは実施の設定等を編集する機能、排出量変換システムの排出倍率係数ファイルの編集を行う機能であり、特筆すべきは、排出倍率係数の編集において、地域、業種、施設種、燃料種等を指定しつつ各

物質の排出倍率を自由に設定できること（図 1.7）で、この機能により、複雑な排出量削減シナリオを設定し、削減対策効果評価シミュレーションを行うことが可能になったことである。そのメリットはサブ4の成果（Ⅱ-4）等でも確認できる。

APOLLOの説明文書を作成した。また、APOLLOの講習会をオンラインにて2022年3月に実施し、地方環境研究所関係者を中心に25機関35名の参加があった。参加者アンケートを実施して、APOLLOおよび今後の講習会についての要望等を収集した。

サブ4、5と共同実施する大気汚染対策効果評価研究について、それぞれ相談・検討を行い、また、排出量データの作成と提供を行った。サブ4、5それぞれの解析を受けて、共同で事例のとりまとめを行った。特にサブ4の削減シミュレーションによる感度解析において、APOLLOが詳細な排出量削減シナリオに対応できるメリットを示すことができた。

本推進費終了後のAPOLLOの更新・維持・管理や地方自治体等への講習会・サポートは、国立環境研究所の第5期中長期計画（2022-2026年度）にて実施されている「政策対応研究」の一つである「大気汚染予測に係る地方公共団体等への情報発信と数値シミュレーション支援」の一部として組み込み、継続することとした。

5-1-2. 排出量変換システムの整備および排出インベントリの精度検討

（1）排出量変換システムの構築

領域化学輸送モデルで用いる全ての排出インベントリについて、それぞれ異なる水平解像度に対応したシェープファイルを用意した。このシェープファイルと、CMAQが計算対象領域を定義するために用いるファイル（GRIDDESCファイル）のみを入力として、Community Modeling and Analysis System（CMAS）がCMAQとともに無償で公開しているSpatial Allocatorを用い、水平分解係数を自動で計算し出力するツールを新たに作成した。植物起源の排出量の推計には、排出係数、植生割合、Leaf Area Index（LAI）について、計算対象領域のメッシュ別のデータファイルを必要とする。推進費5-1601で構築された詳細な植生割合と排出係数を排出量データ変換ツールの入力データのフォーマットで構築し、排出量推計のための入力データファイルを排出量データ変換ツールで生成できるようにした。海塩粒子の排出量の推計には、海域と碎波帯の分布データを必要とする。推進費5-1601における議論を踏まえて、海域と碎波帯のデータを組み合わせたシェープファイルを構築した。このファイルから排出量データ変換ツールでOCEANファイルを出力できるようにした。排出インベントリの内容を確認したり、汚染物質濃度の対応関係を調べたりするために、排出量データを無償のGISソフトウェアであるQGISが必要とするデータ書式に変換し、排出量の水平分布を図示できるようにした。

これらについて構築した上で、シミュレーションで必要となる全ての排出インベントリについて必要なデータを取り揃え、サブテーマ1が構築するシミュレーション支援システムへの搭載を図った。また、全てのデータについて説明文書を作成し、公開用データセットとして整備した。

（2）マップ調査と排出インベントリにおける固定燃焼発生源情報の直接比較

マップ調査における個々の煙源の排出量差は非常に大きく、本数ベースで1～5%にあたる上位煙源が排出量の大半を占めることが確認できた。そこで、マップ調査で上位1%の煙源に着目して解析をおこなうこととした。マップ調査で確認された煙源に対し、対応する煙源を排出インベントリ上で特定することは困難であるため、マップ調査、排出インベントリともに3次メッシュ単位の排出量に整理した後、対応を取った。マップ調査の排出量結果を排出インベントリと共に3次メッシュで整理した後に大きい順から並べたところ、マップ調査の排出傾向は排出インベントリでも概ね捉えられていると考えられた。一方、排出量の水平分布については、排出インベントリでは煙源が海沿いの工業地域に多く存在しているが、マップ調査では比較的内陸にも煙源が確認できた。排出インベントリでの代理指標を用いた地域配分では表現しきれない発生源があるものと考えられた。

大気シミュレーションにおいて、マップ調査の上位1%の煙源を、直接、排出量データとして適用

し、従来の排出インベントリによる結果と比較をおこなった。SO₂については内陸部分や神奈川県・静岡県に精度向上地点が多く見られた。NO_xは湾岸部分と静岡県などでは精度向上の地点が見られたが、内陸部分の変化はSO₂ほどには見られなかった。O₃はNO_xと同様の傾向を示したが、茨城県の北部に精度向上地点がいくつか確認された。今後も排出量の上位煙源については精度向上の可能性を検討していく価値は十分にあると考えられた。

（３）排出量逆推計結果との比較による排出インベントリの検証

逆推計の排出量をボトムアップによる排出量と比較したところ、逆推計の排出量は都市部で小さく、それ以外の全域で比較的大きい値を示していた。特に東京近辺で逆推計排出量とボトムアップ排出量の差が大きくなっていた。逆推計排出量の方が大きい都市部以外の全域では、自動車排出量が排出量誤差に占める割合が最も大きい点が多く、逆推計排出量の方が小さい都市部では家庭からの排出量や商業活動による排出量が誤差に占める割合が大きい地点が多かった。自動車の排出量は、他の発生源に比べて日本の全域において発生源全体の排出量に対する割合が大きい。そのため、自動車排出源の排出量はボトムアップと逆推計排出量の誤差に占める割合も大きくなっていると考えられた。一方、都市部の逆推計排出量の方が小さい地域では、排出量は小さいが空間分布が都市部のみに集中している家庭からの排出源等が誤差の多くを占めていた。これら都市部に集中した排出源は全体に占める排出量としては大きくないが空間分布が一致するため、都市部の排出量誤差と大きく関連していることが示唆された。

（４）領域排出インベントリの評価と改良

REASv3及び逆推計によるNO_x排出量推計結果について、中国全域及び中国 6 地理大区別の排出総量を比較した。中国全域については良い一致が見られたが、2005-2015年のトレンドについて、REASv3ではほとんどの地域で類似の傾向であるのに対して、逆推計では地域間で差が生じていた。REASv3の2012-2014年の減少傾向に問題があると想定した場合、発電所への脱硝装置導入のタイミング・稼働率・除去性能の設定、産業に投入された燃料消費量、自動車排ガス規制導入のタイミング・走行量の妥当性などについて検証が必要であることが示唆された。

REASv3では大規模発電所を点源として扱っている。TROPOMIの月平均対流圏NO₂カラム濃度について、日本の大規模発電所を中心とした水平分布を調べた。海や農地及び山地が広がっている発電所周辺では、TROPOMIは発電所を起源とするNO₂を捉えたと考えられた。一方、工場地域や都市域など、NO_xの発生源が幅広く存在している地域においては、TROPOMIによって発電所を起源とするNO₂を捉えることは困難であった。TROPOMIの対流圏NO₂カラム濃度分布は季節によって変動があり、冬季に発生源の識別が困難な傾向が見られた。

REASv3を2018年まで年次更新し、中国のSO₂、NO_x、BC排出量について解析した。中国のSO₂排出量は2005年のピーク以降、発電所や大規模工場への脱硫装置の設置により排出量の減少傾向が続いていた。NO_xについては、2010年まで増加傾向が続いた後、発電所への脱硝装置導入などの効果により減少に転じたが、SO₂に比べてピーク時期が遅く、また減少率も小さかった。BCについては、家庭での石炭・バイオマス燃料消費量の低下、産業での対策の強化から、特に2016年以降排出量の減少率が大きくなっていた。今回の更新では中国の発電所及び産業部門における除去率設定に重点を置いてデータ・情報の収集を行ったが、家庭部門など小規模発生源の排出係数は更新されておらず、今後の重要課題として残された。

5-1-3. 大気汚染物質濃度解析データセットの作成および排出量逆推計システムの開発

領域化学輸送モデル(CMAQ、計算設定は国立環境研究所の大気汚染予測システムVENUSに準拠、サブテーマ1と連携)および2次元変分法を用いた大気汚染物質解析システムを開発した。開発したシステムに対し、大気汚染物質広域監視システムによって得られた観測データを同化することで、2013年から2018年までの6年間に渡る大気汚染物質解析データを作成した。この6年に渡る解析データの作成過程で得られたインクリメント情報を解析したところ、領域化学輸送モデルによる計算結果は背景場を含め

た日本全域でオゾン濃度を過大評価していた。PM_{2.5}濃度は地域によってその傾向がことなり、排出源のある都市域ではPM_{2.5}濃度を過小評価、越境大気汚染の影響を受ける北部九州から日本海側の地域では過大評価となった。作成した解析データをデータベースとして整理し、webを通じて公開を行った（図0.1）。

領域化学輸送モデル（サブテーマ1と連携）、排出インベントリ（サブテーマ2と連携）および地球環境監視衛星TROPOMIの観測データを統合する排出量の逆推計システムの構築を行った。構築したシステムを適応し、日本のNO_x排出量の逆推計を0.02度×0.02度（約3km）の高解像度で行った。地域別に見ると関東地方（主に京浜から京葉の地域）で排出量は減少し、都市域よりも郊外での排出量の増加がみられた。この原因として、都市圏は領域の総排出量としてはインベントリの確度が高い一方、空間細分化に問題がある点があげられる。高解像度で実施した逆推計結果には、局所的な排出量の増減が見られ、また、その位置が発電所等の点源と重なる点もみられ、目標としていた逆推計による排出インベントリの空間分布の再配置につながる研究成果が得られた（図0.2）。

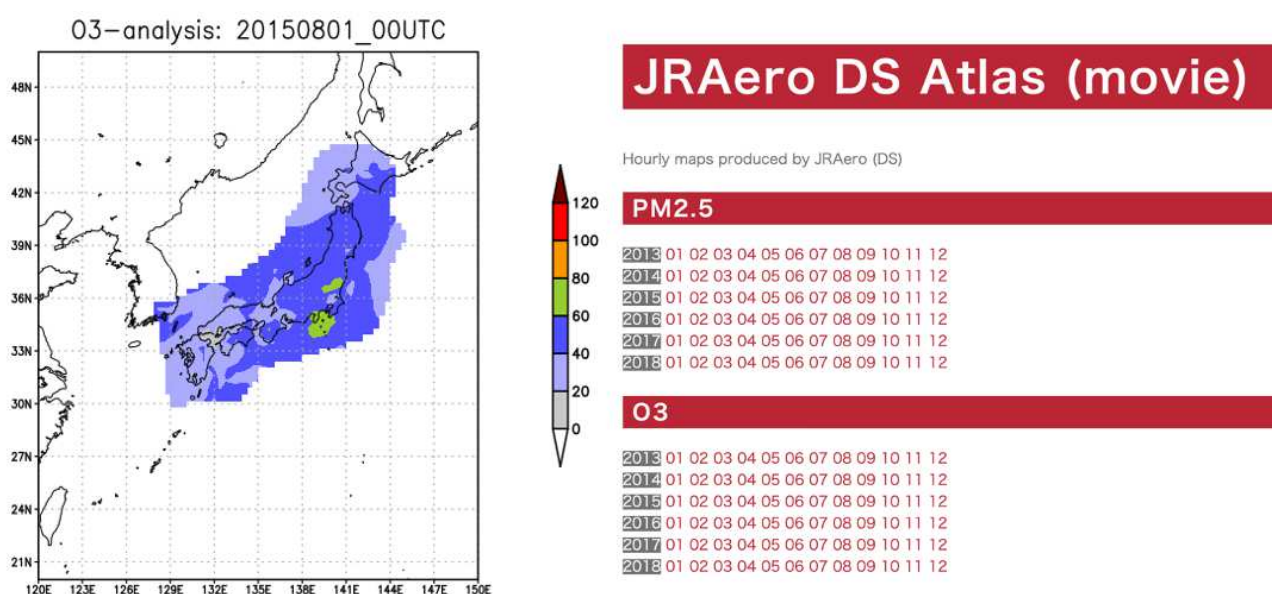


図0.1 （左）大気汚染物質解析データの結果の例(2015年8月1日00UTCにおけるオゾン濃度分布 [ppbv])、（右）大気汚染物質解析データを公開サイト。2013年から2018年までのPM_{2.5}及びオゾン濃度分布を1時間間隔で表示させることができる。

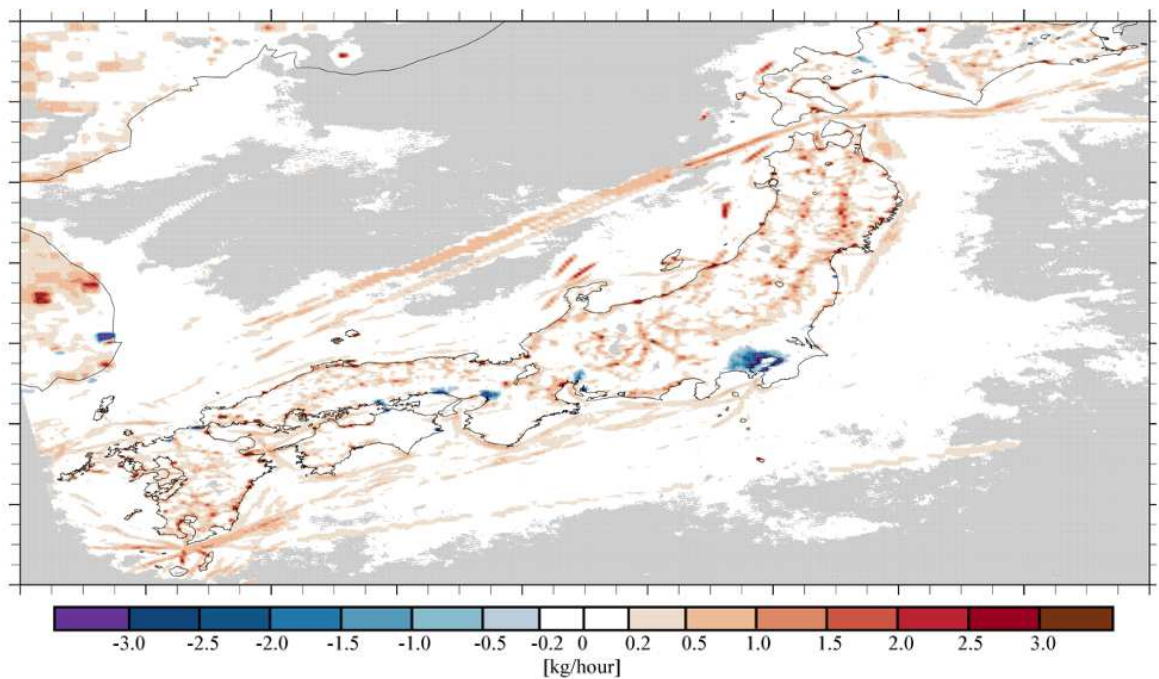


図0.2 逆推計システムから得られた逆推計結果を逆推計で最適化された排出量と先験情報となった排出インベントリの差で示す。寒色は逆推計によって排出量が減少した地域、暖色はその逆を表す。

5-1-4. 関東における光化学オキシダントの発生源種類別・地域別寄与割合の推定

シミュレーション支援システム (APOLLO) を活用して任意の排出量データを作成し、シミュレーション技術を用いた解析を行うことにより、関東地域を対象として光化学オキシダント（以下、 O_3 ）生成に影響を及ぼす発生源の種類別の寄与割合を検討した。2017年7月に発生した高濃度 O_3 事例を対象として WRF_CMAQ による計算結果を解析したところ、光化学スモッグ注意報が発令された日の昼間の平均でみると、関東地域内の NO_x 排出源（固定発生源）の寄与割合が4割を占めていることが明らかとなった（図4.5）。注意報の発令前後で寄与割合の変化をみると、発令前の9時の時点では関東域内の NO_x 発生源全体の寄与割合は30%程度であったが、発令中の13時には45%程度へと高くなっていた（図4.6）。この間、検討したすべての業種で寄与割合は高くなったが、なかでも電気業の割合は3%程度から15%程度へと最も高くなっていた。

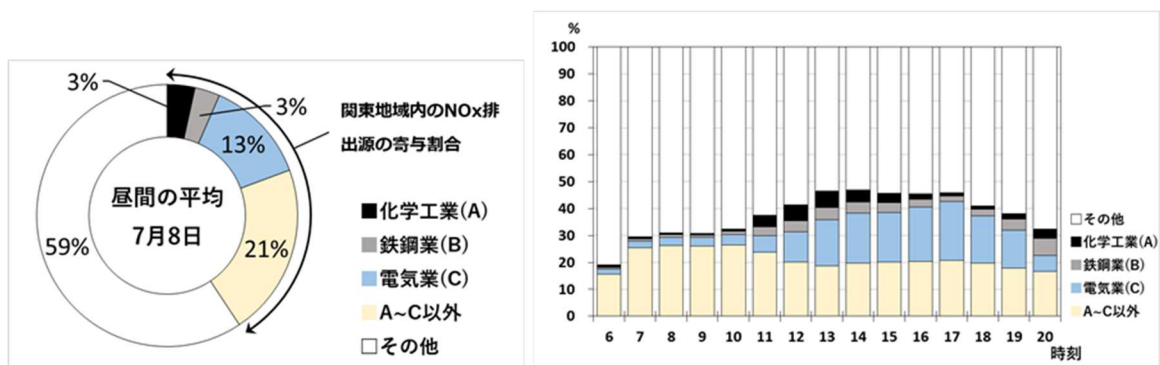


図4.5 業種別の発生源寄与割合(昼間の平均) 図4.6 業種別の発生源寄与濃度(時刻別)

[解析地点：神奈川県川崎市中原区役所保健福祉センター
(現、中原区役所地域みまもり支援センター)]

さらに、関東地域の固定発生源からの NO_x 排出量を20%削減した場合に関東地域内の O_3 濃度がどのように変化するかを検討した。化学工業、鉄鋼業からの排出量を削減した場合は主に千葉県でのみ O_3 濃度の減少がみられたが、電気業からの排出量を削減した場合には東京都、千葉県、神奈川県の東京湾沿岸部

と茨城県の一部で O_x 濃度の減少がみられることなどが明らかとなった(図4.9)。また、前述の3業種以外の固定発生源からの排出量を削減すると関東の広い地域で O_x 濃度の減少がみられることが明らかとなった。

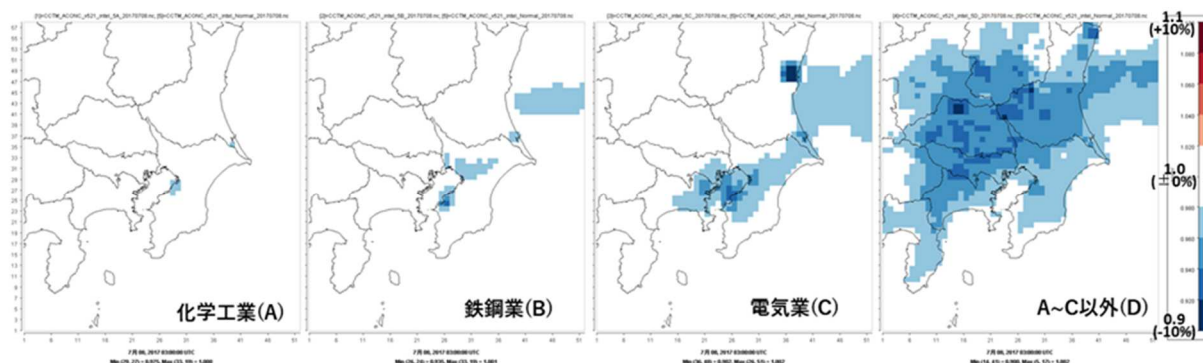


図4.9 NO_x 排出量の削減による O_x 濃度の変化(2017年7月8日12:00)

5-1-5. 九州北部における長距離輸送中の化学反応・濃度変化の影響評価

冬から春にかけての九州の西に位置する高気圧に伴う高濃度の越境大気汚染の通過地点に位置する長崎県対馬(以下、対馬)と到達地点に位置する福岡県糸島(以下、糸島)において、高時間分解能の測定装置を設置し、1時間ごとの HNO_3 ガスおよび NO_3 粒子濃度測定を行った。対馬・糸島における時間分解能の高い HNO_3 ガス観測データを取得したことで、越境汚染時の長距離輸送過程における詳細な濃度変化を把握することができた。春季の越境汚染事例では、糸島の HNO_3 ガス濃度が、その風上となる対馬の濃度より高くなる現象が観測できた。対馬と糸島の間に HNO_3 発生源はなく、沈着による減衰によって、通常は対馬の方が高濃度になると考えられたが、得られたデータとシミュレーション結果を合わせて解析することで、対馬では NH_4NO_3 粒子として存在していた NO_3 が、輸送中の気温変化によって $NH_4NO_3 \rightleftharpoons HNO_3 + NH_3$ の反応が右へ進んだことで、 HNO_3 ガスとして上乘せされて糸島でのガス濃度が対馬よりも高濃度になったと推測できた。また、観測値・計算値を高時間分解能で詳細に比較することにより、モデルの沈着速度を大きくすることが必要であると推測され、実際に感度計算を行って計算値を観測値に近づけられることを確認できた。

福岡県の行政的な事業としてもモデルを活用し、福岡県内の地域別の $PM_{2.5}$ および光化学オキシダント濃度予測を開始した。高濃度が予測される場合には、県公式LINEで県民へ通知を行うという、健康被害を未然に防ぐための対策を実施している。これらの取組みが認められ、令和4年度から5年間の福岡県における環境施策の指針を示す福岡県環境総合ビジョン(第五次福岡県環境総合基本計画)の中で、モデルを用いた大気汚染の原因究明・予測の研究が重点的に推進するプロジェクトの1つとして記載された。

また、国際交流事業やシンポジウムにおいてこれらの成果を発表することで、地方自治体がモデルを活用することは県の環境施策を決めるうえで有益であることを、他の地方自治体に示した。

5-2. 環境政策等への貢献

- ・大気汚染シミュレーション支援システム(APOLLO)は、モデルのインストール以外のシミュレーション参入障壁を軽減し、地方自治体等の担当者が大気汚染対策の効果評価等を地域ごとに行うことを従前より容易にする。よって、地方自治体自体により多数の施策オプションを検討することが可能になり、それぞれの地域における環境政策推進に大きく寄与することが期待できる。また、APOLLOが計算設定等をパッケージファイルとしてまとめて管理することで、国等の検討会でされる検討作業についてもこれまで以上に系統的かつ一貫した数値検討業務を進めることが容易になり、国の環境政策にも大きく貢献できると考えられる。
- ・大気質シミュレーションは環境省等の検討会においても活用されるようになってきているが、必要と

するデータの整備に多大な労力を必要とする。本研究で構築された排出量データの変換システムと係数類は、その労力を大幅に軽減させるものであり、検討会における成果の導出に大いに貢献するものである。なお、本研究の成果は、環境省による光化学オキシダント調査検討作業部会において、既に活用されている。

- ・大気汚染物質解析システムの開発を行い、2013年から2018年の6年間におよぶ客観解析データセットをPM_{2.5}および光化学オキシダントに対して作成し、webを通じて公開した。このデータセットは日本全域および近海域において水平方向に欠損がなく、かつ観測データと整合した長期間データセットであり、大気汚染物質に係る動態研究や対策研究だけでなく、疫学研究等にも活用可能であり、国や地方自治体による各種大気汚染関係の検討に活用可能かつ有益なデータセットである。
- ・大気汚染シミュレーション支援システムを用いた解析により、サブテーマ4により関東地域において光化学オキシダントの低減対策効果の大きい業種や地域が把握できたため、地方自治体が主体的に又は連携しながら、効果的な指導・普及啓発等の施策を検討することができる。
- ・本研究の成果を用いて、越境大気汚染と地域大気汚染の寄与割合が異なる様々な地方自治体において汚染の原因を明らかにする感度解析が行われることで、最も効率的な大気汚染物質削減を試算することが可能となり、施策を検討するうえで非常に有益となる。また、本研究でモデルの精度を高めることにより、大気汚染対策が効果的、効率的に推進されることが期待される。

<行政等が既に活用した成果>

- ・環境省による光化学オキシダント調査検討作業部会において実施されたシミュレーションにおいて、本研究の成果による入力データや計算設定が既に活用されている。
- ・本研究で用いたモデルを使って、福岡県が独自に福岡県内のPM_{2.5}、光化学オキシダント濃度の予測を行い、高濃度が予測される場合、該当する地域の県民に県公式LINEで通知を行うサービスを開始した。（福岡県だより3月号 小特集「黄砂などの予測情報をLINEで発信中！」）
- ・福岡県環境総合ビジョン（第五次福岡県環境総合基本計画）において、モデルを用いた大気汚染の原因究明予測が、県が重点的に推進するプロジェクトとして認定された（福岡県環境総合ビジョン（第五次福岡県環境総合基本計画）p106-107）。
- ・国際交流事業（日韓海峡沿岸県市道環境技術交流事業、デリー準州大気汚染改善協力事業）において、福岡県における大気汚染物質発生源解明等へのシミュレーションの活用について説明を行った。
- ・2020年に神奈川県で異臭事案が発生したことから本研究で開発した支援システム（APOLLO）を用いて気象シミュレーションを実施した。解析結果は「神奈川県東京湾沿岸域の広域異臭に係る連絡会会議」（2021年5月）での会議資料として活用し、異臭発生源の推定に係る情報の共有化を図った。

<行政等が活用することが見込まれる成果>

- ・今回、大気汚染シミュレーション支援システム（APOLLO）を用いて関東地域において高濃度光化学オキシダント発生に影響を及ぼす業種別の発生源の寄与割合を推定することができた。得られた成果は、神奈川県内部での施策検討の資料として活用するだけでなく、関東地方大気環境対策推進連絡会などの会議において施策検討の基礎資料としての情報共有する予定である。

5-3. 研究目標の達成状況

以下のように、研究目標に掲げた全体目標について、目標どおりの成果を上げることができた。

大気質モデルを簡便に利用できるようにするための、ユーザーフレンドリーなインターフェースを介して計算設定等を選択・指定することで、シミュレーションに必要な排出量データと計算設定ファイル等を生成する大気汚染シミュレーション支援システムを開発できた。

⇒ 目標どおりの成果を上げることができた

システムの検証・実証も兼ねつつ、複数の自治体によるケーススタディを実施し、それぞれの地域における大気汚染問題を解決するための施策検討に資する研究を行った。

⇒ 目標どおりの成果を上げることができた

並行して、光化学オキシダントやPM_{2.5}濃度について大気汚染物質濃度解析データセットを作成した。また、地上観測データや衛星観測データに基づいて国内NO_x排出量の精度の検証と改良を行った。

⇒ 目標どおりの成果を上げることができた

6. 研究成果の発表状況

6-1. 査読付き論文

<件数>

5件

<主な査読付き論文>

- 1) S. Chatani, S. Itahashi and K. Yamaji: Asian J. Atmos. Environ., 15, 2, 2021008 (2021) (IF: 2.00) Advantages of continuous monitoring of hourly PM_{2.5} component concentrations in Japan for model validation and source sensitivity analyses.
- 2) 茶谷聡、國分優孝、高橋和清、星純也：大気環境学会誌、57, 2, 35-52 (2022), 東京都内におけるVOC個別成分濃度観測に基づく排出インベントリと大気質シミュレーションの検証
- 3) Itahashi, S., Yumimoto, K., Kurokawa, J, Morino, Y., Nagashima, T., Miyazaki, K., Maki, T., and Ohara, T.: Environ. Res. Lett., 14, 124020 (2019) (IF: 6.192) Inverse estimation of NO_x emissions over China and India 2005-2016: contrasting recent trends and future perspectives,
- 4) 板橋秀一、王哲、弓本桂也、鵜野伊津志：大気環境学会誌、第55巻、6号、239-247 (2020), COVID-19に対する中国のロックダウン期間におけるPM_{2.5}越境輸送の変容
- 5) Itahashi, S., Yamamura, Y., Wang, Z., and Uno, I.: Sci. Rep. 12, 5539 (2022) (IF: 4.379) Returning long-range PM_{2.5} transport into the leeward of East Asia in 2021 after Chinese economic recovery from the COVID-19 pandemic

6-2. 知的財産権

特に記載すべき事項はない。

6-3. その他発表件数

査読付き論文に準ずる成果発表	0件
その他誌上発表（査読なし）	1件
口頭発表（学会等）	27件
「国民との科学・技術対話」の実施	6件
マスコミ等への公表・報道等	0件
本研究に関連する受賞	1件

7. 国際共同研究等の状況

特に記載すべき事項はない。

8. 研究者略歴

研究代表者

菅田 誠治

京都大学大学院理学研究科博士後期課程単位取得退学、博士（理学）、現在国立環境研究所
地域環境保全領域室長

研究分担者

1) 茶谷 聡

名古屋大学大学院環境学研究科修了、博士（理学）、豊田中央研究所主任研究員、
現在、国立環境研究所主幹研究員

2) 森川 多津子

北海道大学工学部衛生工学科卒業、博士（工学）、北海道大学工学部助手、現在、一般財団
法人日本自動車研究所主席研究員

3) 黒川 純一

東京大学大学院理学系研究科修士課程卒業、九州大学大学院総合理工学府・博士（理学）
（論文にて取得）、現在、一般財団法人日本環境衛生センターアジア大気汚染研究センター
総括研究員

4) 弓本 桂也

九州大学大学院総合理工学府大気海洋環境システム学専攻博士後期課程修了、気象庁気象研
究所環境・応用気象研究部主任研究官、現在、九州大学応用力学研究所教授

5) 板橋 秀一

九州大学大学院総合理工学府大気海洋環境システム学専攻博士後期課程修了、現在、電力中
央研究所サステナブルシステム研究本部主任研究員

6) 小松 宏昭

千葉大学大学院園芸学研究科卒業、修士（農芸化学）、現在、神奈川県環境科学センター環境
情報部環境活動推進課兼環境監視情報課 課長

7) 山村 由貴

九州大学工学府卒業、現在、福岡県保健環境研究所大気課主任技師

Ⅱ．成果の詳細

Ⅱ－１ 大気汚染シミュレーション支援システムの開発

国立研究開発法人国立環境研究所

地域環境保全領域 大気モデリング研究室

菅田 誠治

[要旨]

本研究では、これまでの複数の環境研究総合推進費や環境省の委託調査によるデータ整備等の蓄積を生かしつつ、大気汚染シミュレーション支援システム（通称“APOLLO”、以下APOLLO）を開発した。

APOLLOは、Windows10上の簡易なユーザーインターフェースで操作し、作成された各種ファイル・データをLinux計算機にコピーしてシミュレーションを実施する。気象モデルとしてはWeather Research and Forecasting Model (WRF) v3.9.1、大気質モデルとしてはCommunity Multiscale Air Quality Modeling System (CMAQ) 5.1を用いたシミュレーションに使用できる。APOLLOは、地図上で視覚的に計算領域の設定・変更を行い、気象モデルや大気質モデルに必要な設定ファイルや入力ファイル等をそれぞれ生成することが出来る。また、サブテーマ2で開発・改良された排出量変換システムに必要な設定ファイルを生成し、その際にそれぞれの排出源において、地域、業種、施設種、燃料種等を指定しつつ、各物質の排出倍率を設定することで、排出量変換システムで用いられる排出倍率ファイルを自動生成できる。これらの計算設定や排出量設定はパッケージファイルとして一括して保存と読込が出来る。

APOLLOの講習会を地方環境研究所職員を主たる対象に2022年2月に行い、25機関35名が参加した。講習会参加者にアンケートを実施して23件の回答があり、今後のAPOLLOおよび講習会に対する要望を収集した。

研究当初からサブテーマ4および5と、共同実施する大気汚染対策効果評価研究について相談・検討を続け、排出量データの作成を担当し、両サブによる評価シミュレーション結果の検討ととりまとめを行った。

APOLLOの開発により、サブテーマ2による排出量変換システムと合わせ、簡易に排出量削減シミュレーションのための排出量ファイルの作成を行うことができ、また、シミュレーションの設定をパッケージファイルとして容易に共有することができるため、今後、国や地方自治体の検討会等で行われる排出量削減対策効果評価の検討作業において、これまで以上に系統的かつ一貫した数値検討業務を進めることが容易になると期待できる。

本推進費終了後の受け皿として、国立環境研究所の第5期中長期計画（2022-2026年度）にて実施される「政策対応研究」の一つとして、今後のAPOLLOの更新・維持・管理や地方自治体等への講習会・サポートを組み込み、継続することとした。

1．研究開発目的

これまでに環境研究総合推進費等によって得られた大気質モデルやその知見および排出インベントリ等の蓄積を生かして、ユーザーフレンドリーなインターフェースを介した簡便な選択や指定に基づいて、国内外の各種インベントリをモデルレディの排出量データに変換し、また、モデルの計算設定ファイルを自動生成する、大気汚染シミュレーションを簡便に利用できるようにするためのシミュレーション支援システムを開発する。これにより大気汚染対策の当事者である地方自治体担当者等が、それぞれの地域における問題を解決するために、多数の施策オプションの総合的・継続的な検討を可能とすることを目的とする。

また、複数の地方自治体による、それぞれの地域における大気汚染問題を解決するための施策検討に資する研究をケーススタディ的に数値シミュレーションを用いて実施し、シミュレーション支援システムの検証・実証を行うことを目的とする。

2. 研究目標

仕様について検討を行った上で、ユーザーインターフェースを介した簡便な選択や指定に基づいて国内外の各種インベントリをモデルレディの排出量データに変換し、また、モデルの計算設定ファイルを自動生成するシミュレーション支援システムの初期版を開発する。初期版をサブテーマ4、5および地方自治体協力機関に利用して貰い、システムの検証を行いつつ、必要な改良を行い、シミュレーション支援システムを完成させる。シミュレーション支援システムの利用講習会を地方自治体等に対して実施する。

共同実施する大気汚染対策効果評価研究についてサブテーマ4、5と相談・検討を行い、最終的に評価研究のとりまとめを行う。

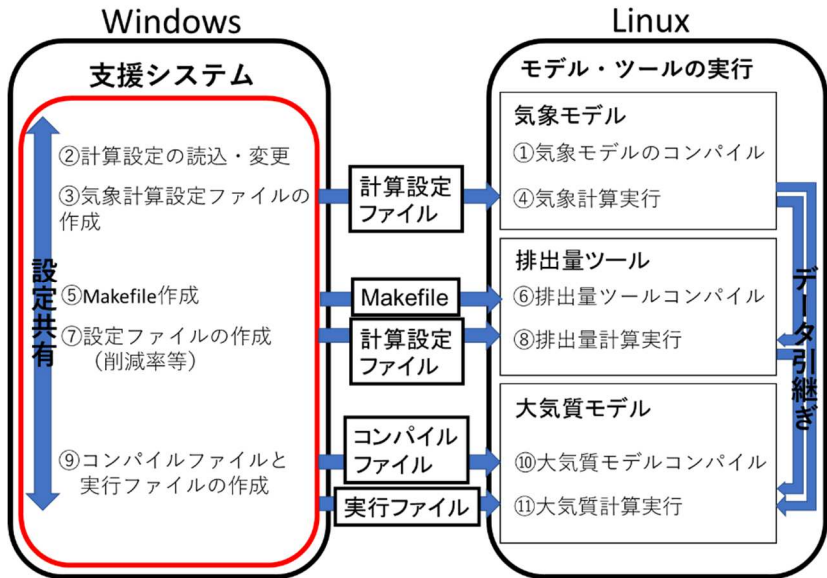


図 1.1 支援システムを用いてシミュレーションを実施する場合の手順（①→⑪）を関連するモデル、ツールおよび計算機環境やファイル・データの流とと共に説明する図。

気象モデルに WRF、排出量ツールに J-STREAM 成果、大気質モデルに CMAQ を用いる場合を想定。

3. 研究開発内容

3.1 大気汚染シミュレーション支援システムの開発

これまでの大気質モデル、知見や排出インベントリ等の蓄積を生かして、ユーザーインターフェースを介した簡便な選択や指定に基づいて国内外の各種インベントリをモデルレディの排出量データに変換し、また、モデルの計算設定ファイルを自動生成するシミュレーション支援システムを開発するため、各サブテーマおよび地方自治体協力機関と相談し、シミュレーション支援システム（以下 APOLLO）の仕様について検討を行った。

システムの開発に際しては、対象とする気象モデルに Weather Research and Forecasting Model（WRF）、排出量ツールに推進費 5-1601 の成果、大気質モデルに Community Multiscale Air Quality Modeling System（CMAQ）を用いることとした。

これらの動作環境は Linux に限定されているので、APOLLO も Linux 上で動作させるのは一案であるが、ユーザーインターフェースの操作性や、APOLLO の開発の容易さを考え、Windows10 を APOLLO の動作環境とした。Windows10 上の APOLLO で作成されたファイルを Linux 計算機にコピーして排出量計算並びに数値シミュレーションを実施する仕様とした。図 1.1 に APOLLO を用いた計算実施の手順を模式図として示す。なお、APOLLO の開発言語は vb.net2017 とした。また、地図描画にはハワイ大学マノア校が開発する GMT (the Generic Mapping Tools) を用いた。

3.2 大気汚染シミュレーション支援システムの講習会の開催

APOLLO の利用マニュアルの整備を進めた。

地方環境研究所職員を主な対象として、支援システムの講習会を 2022 年 2 月にオンライン開催し、25 機関 35 名の参加者があった。開催後に参加者に今回の講習会および今後の講習会と支援システムについてのアンケートを実施し、23 件の回答を得た

3.3 ケーススタディの共同実施

サブテーマ 4 および 5 と共同実施する大気汚染対策効果評価研究について相談・検討を続け、それぞれで使用する排出量データの作成を担当し、両サブによる評価計算後にはシミュレーション結果の検討ととりまとめを共同で行った。

4. 結果及び考察

4.1 大気汚染シミュレーション支援システムの開発

開発を行った大気汚染シミュレーション支援システム（以下 APOLLO）について以下に説明する。

表 1.1 APOLLO の機能一覧

機能		説明
①	フォルダ読み込み	計算設定パッケージファイルの読み込みを行う
②	計算期間設定	気象計算、排出量データ、大気質計算の計算期間を変更する
③	地図編集	計算領域に用いる地図投影法を変更する
	ドメイン編集	地図投影法は変えずに計算領域を変更する
	グリッド整合性チェック	ネスティングされている複数の計算領域の間で位置や大きさと倍率に整合性があることを確認する
④	WRF 編集	
	namelist.wps 編集	namelist.wps を編集する
	namelist.input 編集	namelist.input を編集する
⑤	排出量編集	
	初期設定	排出量変換システムのコンパイル設定や計算用スクリプトを編集する
	排出倍率編集	排出量変換システムで用いる mfac ファイルを作成・変更する
⑥	CMAQ 編集	
	config 編集	CMAQ のコンパイル環境等の設定を行う
	bldit.cctm 編集	cctm のコンパイルを行うための bldit.cctm ファイルを編集する
	run.cctm 編集	cctm の計算を行うための run.cctm ファイルを編集する
	その他編集	cctm 以外の CMAQ のツール (bcon, icon, mcip) のファイルを編集する
⑦	バージョンチェック	APOLLO のバージョンをチェックし、最新であることを確認する

まず、開発した APOLLO が持つ機能（表 1.1）は、システム全体として管理する計算設定をパッケージファイルとして読み込む機能（表中の①、パッケージファイルを書き込む機能は各機能の終了時等に行われる）、計算期間や計算領域の編集を行う機能（②、③）、シミュレーションを行う数値モデルの設

定等を編集する機能（④、⑥）、排出量の削減設定等を行う機能（⑤）の4つに大別される。

APOLLO を起動すると、図 1.2（左上）のように「データファイルを読み込んでください」と表示され、読み込むパッケージファイルのフォルダを指定できる。APOLLO では、各種設定の標準ファイルやデータが準備されたフォルダを複数用意しており、その中からフォルダを指定することにより、これらの標準設定等が図 1.2（右上）のように読み込まれ、また、その計算領域が図 1.2（下）のように図示される。フォルダの指定の仕方は Windows の標準的なファイル選択と同様である。このようなパッケージファイルの読み込みはトップ画面（図 1.2 右上）上部のメニューから「フォルダ読み」を選択することでも行うことができる。



図 1.2 APOLLO を立ち上げたときの画面（左）と設定データファイルパッケージを読み込んだ後のトップ画面（右）および読み込んだ初期計算領域を示す地図（下）。

トップ画面（図 1.2 右上）は、各モデル/ツールで共通もしくは強く関連させつつ用いる情報として上から順に、地図図法情報、計算ドメイン情報、シミュレーション等の名称および化学メカニズム、計算期間情報の4つの情報を表示している。また、画面の最上部には「フォルダ読み」「地図編集」「WRF 編集」「排出量編集」「CMAQ 編集」「バージョンチェック」の6つのボタンが並んでおり、それぞれのボタンは表 1.1 で示す①、③～⑦の機能に対応している。地図編集には「図法編集」と「ドメイン編集」と「グリッド整合性チェック」、WRF 編集には「.wps 編集」と「.input 編集」、エミッション編集には「初期設定」と「削減率設定」のそれぞれのサブ選択肢が用意されており、表 1.1 に示す機能にそれぞれ対応している。

計算領域の図法情報（計算領域の地図投影法の中心緯度経度等のパラメータ）を変更するには、上部の「地図編集」から「図法編集」を選択しチェックを入れることで、トップ画面の図法情報の数値を直接編集できるようになる（図 1.3 左上）。図法情報を任意の数値に変更した後、「作図」ボタンを押すことで変更後の計算領域を図示することができ、「元に戻す」ボタンを押せば作業開始時まで戻すことができる。

The figure consists of three screenshots of the APOLLO software interface, version 1.0.4.1. Each screenshot shows the '図法情報' (Figure Information) section at the top, which includes fields for 'ref_lat', 'ref_lon', 'truelat1', 'truelat2', and 'stand_lon'. Below this is the 'ドメイン情報' (Domain Information) section, which contains four columns for domains 1 through 4, each with fields for 'e_we', 'e_sn', 'i_p_start', 'i_p_end', 'dx', 'dy', 'p_ratio', 'parent_id', and 'TRIM'. At the bottom is the '期間情報 (GMT)' (Time Information) section, which includes fields for 'Start' and 'End' dates and times, and a checkbox for '全て同じ計算期間を使用する' (Use the same calculation period for all).

The top-left screenshot shows the '図法編集' (Figure Editing) mode, where the '図法情報' section is active. The top-right screenshot shows the 'ドメイン編集' (Domain Editing) mode, where the 'ドメイン情報' section is active. The bottom screenshot shows the '期間情報' (Time Information) mode, where the '期間情報 (GMT)' section is active.

図 1.3 APOLLO トップ画面において、「地図編集」から「図法編集」にチェックを入れたとき（左上）、「地図編集」から「ドメイン編集」にチェックを入れたとき（右上）、「期間情報」において「全て同じ計算期間を使用する」のチェックを外したとき（下）のトップ画面。

計算ドメイン（計算領域）を変更するには、「地図編集」から「ドメイン編集」を選択しチェックを入れることで、ドメイン選択画面（図 1.3 右上）に切り替え、ドメインの番号を指定して「描画」ボタンを押すことでドメイン修整用地図画面を表示させる。ドメインとして 1（最も大きい計算領域）を選

んだ場合を図 1.4（上）に示す。ドメイン修整用地図画面では、各パラメータを直接入力することで計算領域を変更することもできるし、選択ドメインを示す直線（図 1.4 左下の場合は緑実線）をクリックすることで、当該直線の四隅ならびにその中間点にマークが表示されるので、そのマークをスライドさせることで変更することもできる（図 1.4 右下）。変更を加えた図法情報とドメイン情報はドメイン修整用地図画面の右側の「確定」ボタンを押すことで、これらの情報が含まれる関連ファイルが一括で保存される。

「アプリケーション名」、「ケース名」、「グリッド名」、「化学メカニズム」は、それぞれシミュレーション時に重要な名称であり、ここで一括して表示している。「アプリケーション名」はシミュレーションの適用例の名前、「ケース名」はシミュレーションのケースの名前であり、それぞれ実施者が任意に指定してシミュレーション実施時に各スクリプト等内で共通で用いるものである。また、「グリッド名」は、計算に用いる計算領域の名称であり、これも実施者が任意に指定するものである。「化学メカニズム」とは、大気質モデルで化学反応の計算時に使用されるシミュレーション用の化学反応計算式を指し、化学メカニズムを変更するには、この「化学メカニズム」のボタンで表示されるメカニズム（本報告書執筆時で saprc07tc_ae6_aq、cb05e51_ae6_aq、saprc07tic_ae7i_aq の 3 種に APOLL0 は対応可能）の中から一つを選択する。

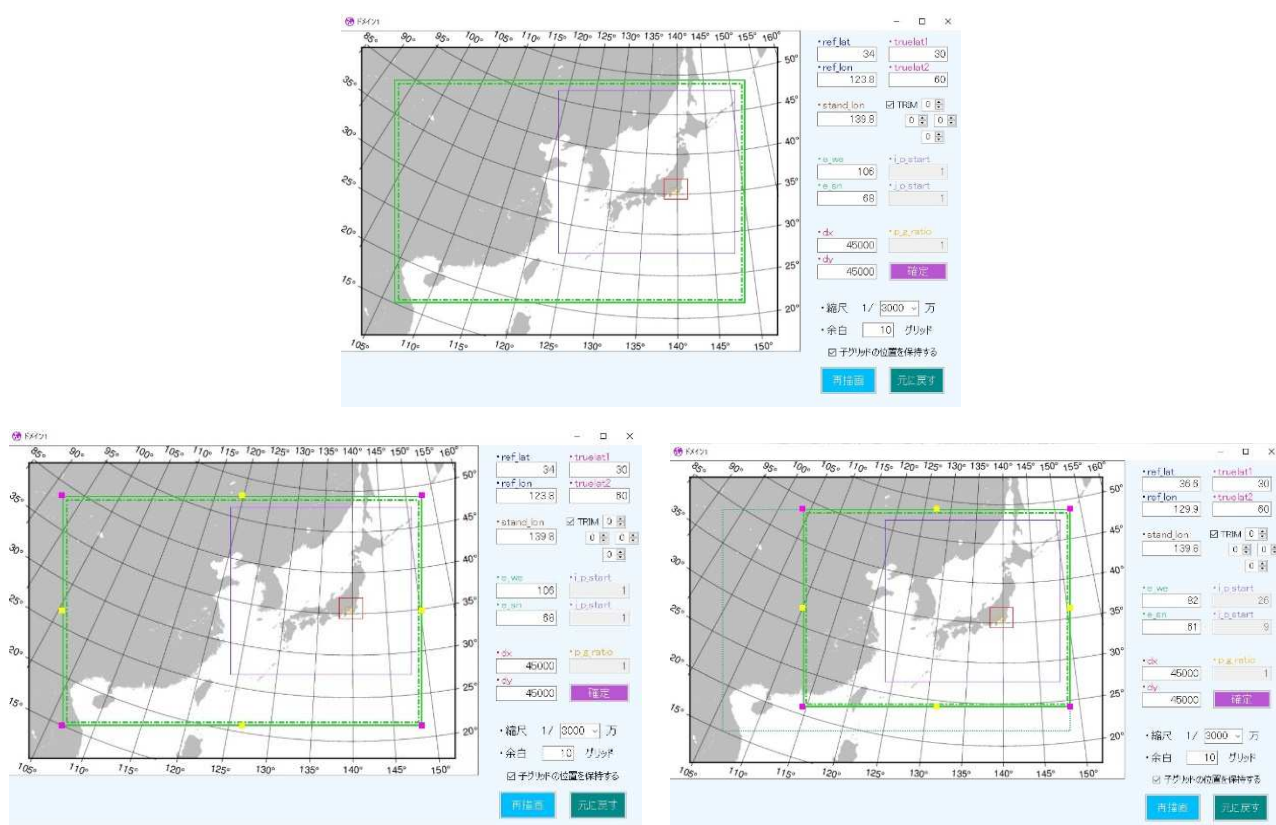


図 1.4 APOLL0 のトップ画面で「地図編集」→「ドメイン編集」を選んだときの図法情報およびドメイン情報の表示部分（上）と、そこで「ドメイン」として「1」を選んで「描画」ボタンを押したときに表示されるドメイン修整用地図画面（右上）。さらにドメイン 1 の外枠（二重線）を右クリックすることで外枠移動用マークが表示された画面（左下）、左下の印を使って領域を狭めた画面（右下）

計算期間は、期間情報表示部分で年月日を直接変更することで変更できる。「全て同じ計算期間を使用する」にチェックが入っている場合には、気象計算、エミッション変換、大気質計算の全てで同じ計算期間を用いることになるが、このチェックを外すことで表示が図 1.3 下のように切り替わり、別個の計算期間を設定することもできる。ただし、エミッション変換には気象計算結果を用いること、および、大気質計算には気象計算結果とエミッションデータの両者を用いるので、大気質計算期間はエミッショ

ン変換期間に含まれる必要があり、エミッション変換期間は気象計算期間に含まれる必要がある。「期間整合 自動修正」ボタンを押すことで、この関係をチェックし、自動修正することができる。

以上のようにトップ画面で変更した各種設定や情報は、画面右上の「一括保存」を押すことで `namelist.input` に共通情報として保存される。

表 1.2 APOLLO で用意され各モデル・システムに引き渡されるファイルの一覧

ファイルの対 象となるモデル等	ファイルの種類	ファイル名	主な共通・関連情報			指定方法等
			計算期間	計算領域	化学メカニズム	
気象モデル (WRF)	計算設定入力ファイル	<code>namelist.wps</code>	○	○		WRF 編集→ <code>wps</code> 編集
		<code>namelist.input</code>	○	○		WRF 編集→ <code>input</code> 編集
排出量変換システム	コンパイル用	<code>Makefile</code>				排出量編集→初期設定
	計算設定入力ファイル	<code>mfac</code>				排出量編集→排出倍率設定 トップ画面での指定・変更に応じて変更が加わる
		<code>gfac</code>	○			
		<code>hfac</code>		○		
		<code>sfac</code>			○	
		<code>tfac</code>	○			
		<code>vfac</code>		○		
大気質モデル (CMAQ)	コンパイル用スクリプト / 実行用スクリプト	<code>bldit/run.MCIP</code>	○	○		CMAQ 編集→その他編集
		<code>bldit/run.ICON</code>	○	○	○	CMAQ 編集→その他編集
		<code>bldit/run.BCON</code>	○	○	○	CMAQ 編集→その他編集
		<code>bldit/run.CCTM</code>	○	○	○	CMAQ 編集→ <code>bldit.cctm</code> 編集 <code>run.cctm</code> 編集

続いては、気象モデル、排出量変換システム、大気質モデルのそれぞれのコンパイルもしくは計算実施に用いる設定ファイルを生成もしくは修整する機能について説明する。それぞれでどのようなファイルが必要としているかは図 1.1 で概要に触れているが、ここでは表 1.2 で個別のファイル名を用いて説明している。それぞれのファイルにおいて、トップ画面での共通設定に対応する反映は自動的に行われる。それ以外は、トップ画面の上部のボタンから選択したツールにて設定を行う。トップ画面の上部の「WRF 編集」「排出量編集」「CMAQ 編集」のボタンから選ぶことで当該するファイルにおいて設定等が変更できるようになっている。

例えば、排出量変換システムにおいて排出量を任意の設定で削減するためには、トップ画面で「排出量編集」を選び、表示されるウインドウ（図 1.5 左）から「排出倍率設定」を選ぶことにより設定画面が表示されるので、そこで編集したい排出量元データを選択し（図 1.5 右）、表示される排出倍率設定画面で、調整したい項目に対して、地域、業種、施設種、燃料種等を指定しつつ各物質の排出倍率を設定してから「追加」ボタンを押すことで、排出量変換システムで用いられる排出倍率ファイル（`mfac`）を自動生成することができる。国内固定発生源 J-STREAM の排出倍率設定を行う場合を例として示す。図 1.5（右）で国内固定発生源を選択すると、図 1.6 のような排出倍率設定ウインドウ（左）と排出倍率設定ファイルの中身を表示するウインドウ（右）が表示される。排出倍率設定ファイルには初期値として、地域コード、部門コード、成分コードの全てが”ALL”で、排出倍率は1である1行のみが示されている。これは、全てに対して排出倍率として1.0が適応されており、排出量調整は行われていない

状態を示している。

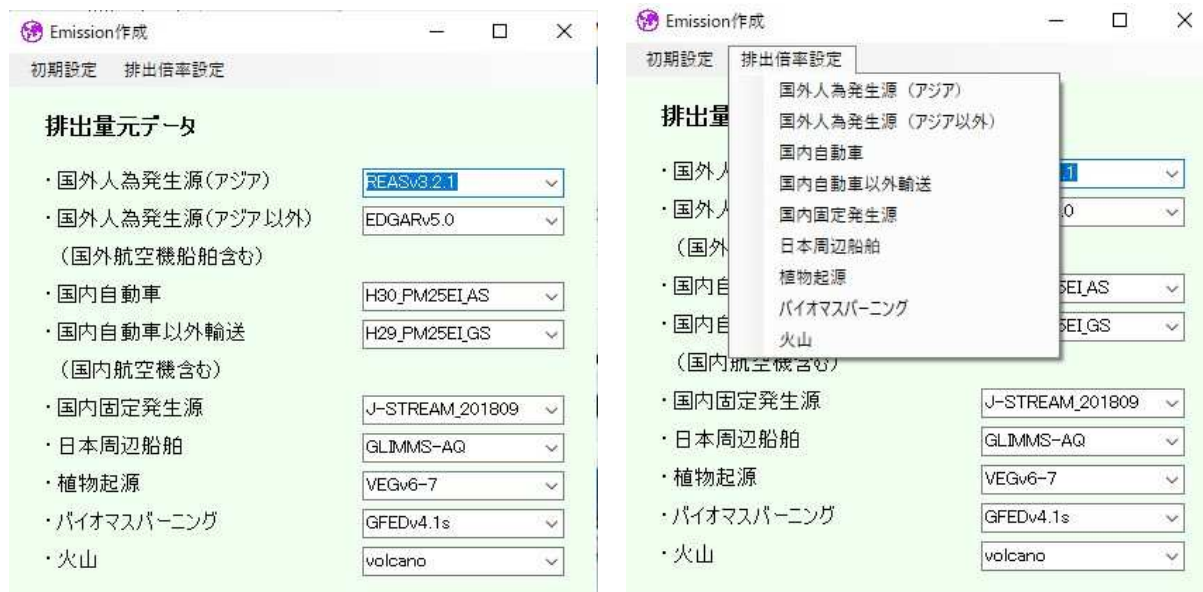


図 1.5 トップ画面で「排出量編集」ボタンを押したときに開くウインドウ（左）と、そこで「排出倍率設定」ボタンを押したときにどの排出量元データを編集するか選択する画面（右）。

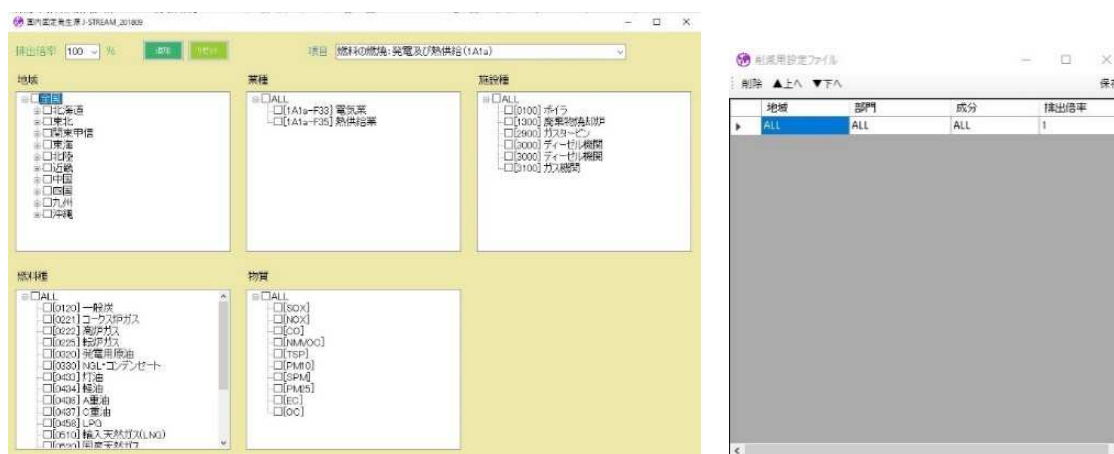


図 1.6 排出倍率設定で J-STREAM を選択したときに表示される排出倍率設定画面（左）と同時に表示される排出倍率設定ファイルの画面（右）。

ここで、この画面において、東京都の電気業のボイラーから出る排出量が 2 割削減されるように設定してみる（図 1.7 左）。地域で「関東甲信」を開いた上で「東京都」をクリックして選択する。業種で「電気業」を、施設種では「ボイラー」をクリックして選択し、燃料種と物質は ALL を選択する。上部の「排出倍率」で 80% を選択した上で、その右の追加ボタンを押すことで、排出倍率ファイル表示画面の一番上に 1 行追加される（図 1.7 右）。排出量変換システムでは、排出量元データに応じてコードの前方一致もしくは“？”によるワイルドカードが認められているので、この例で言うと地域は県コード 13 で東京都が指定され、部門コードは項目 1A1a（燃料の燃焼：発電及び熱供給）、部門コードのうち業種は F33（電気業）、施設種は 0100（ボイラー）が指定されて残りはワイルドカードが指定され、成分は ALL が指定されている。排出量変換システムでは排出倍率ファイルは上の行から順に読み込まれ、地域、部門、成分で条件に当てはまるものがあれば指定され、それより下の行での指定は無視されるようになる仕様である。

APOLLO を用いることにより、詳細な組み合わせによって数百行を超えるような排出倍率ファイルでも半自動で楽に生成することができ、地域ごとや発生源種別ごとに排出倍率を設定することが容易にな

った。

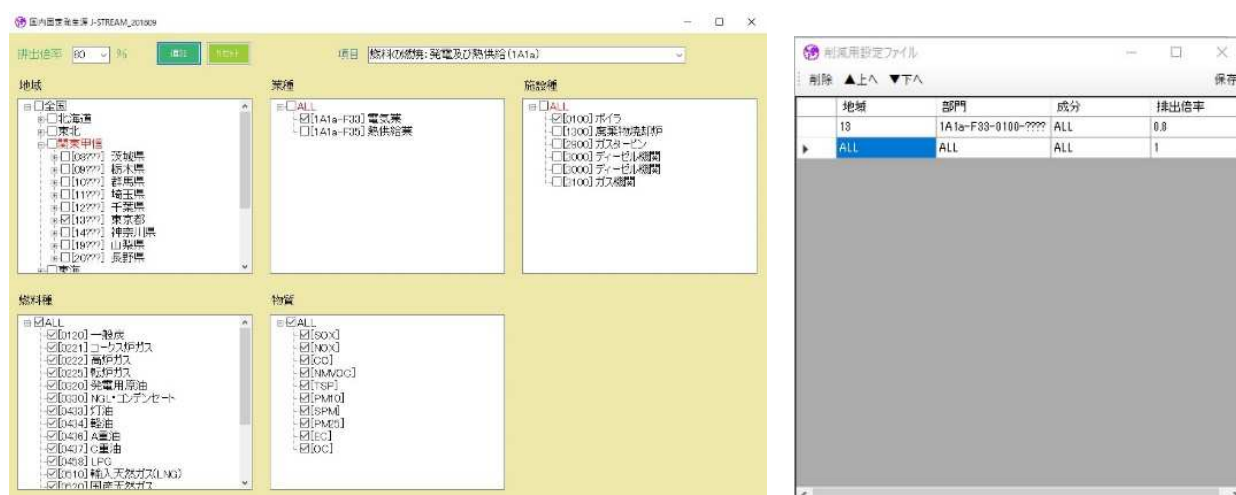


図 1.7 発生源データ J-STREAM に対して排出倍率設定を行ったときの排出倍率設定画面の例（左）と結果として 1 行追加された排出倍率設定ファイルの画面（右）。

4.2 APOLLO の講習会の実施

4.2.1 マニュアルの作成および APOLLO の講習会の実施

APOLLO の公開後の利用者の便益のために、マニュアルの作成を行った。本報告書提出時で、pdf ファイルで 70 ページのマニュアルを作成している。

APOLLO の講習会を 2022 年 2 月 25 日（金）9 時 30 分から 12 時まで、MSTeams 上でのオンラインにて開催した。講習会の案内は、国立環境研究所と地方環境研究所とのⅡ型共同研究「光化学オキシダントおよび PM_{2.5} 汚染の地域的・気象的要因の解明」（2019-2021 年度）の参加者用メーリングリストへのメール通知と、2022 年 2 月 17 日に行われた第 37 回全国環境研究所交流シンポジウムにおける講演時の案内によって行った。35 機関 42 名（うち 1 名は民間で他は地方環境研究所関係者）から参加申し込みがあり、実際の参加は 25 機関 35 名であった。

講習会では、前半 1 時間で本推進費と APOLLO の概要説明を行い、後半 1 時間半で APOLLO の実演・実習を行った。

参加者の多くが Linux 計算環境を持っていないと考えられたため、その対策として、今回は、Windows10 にインストールされた仮想マシン VirtualBox 上にイメージファイルにて配布した LinuxOS を搭載し実習を行うこととした。これは、参加者に同一の環境で参加して貰うためだけでなく、支援システムを Windows 上で使い、作成されたファイル等を同じ PC 上のゲスト OS（Linux）から共有して使用する、より手軽なシミュレーション環境の導入と実施の方法の模索を兼ねていた。

4.2.2 講習会参加者へのアンケートの実施

後日、参加者に対してグーグルフォームにてアンケートを実施した。質問内容は、以下である。

Q1：講習会の開催をどのように知りましたか？

- ・国立環境研と地方環境研とのⅡ型共同研究（光化学オキシダントおよび PM_{2.5}）のメーリングリストへの案内
- ・国立環境研究所の全環研交流シンポジウムでの講演での案内
- ・職場の同僚や知人から

- ・その他

Q2: 回答者は今回の講習会に

- ・参加した
- ・参加しなかったが資料等をダウンロードした
- ・その他

Q3: 大気汚染シミュレーションの経験は？

- ・未経験
- ・使ってみたことがある程度
- ・研究もしくは業務に使っている
- ・その他

Q4: 講習会での APOLLO の説明は？

1. (非常にわかりやすかった) ~ 5. (かなりわかりにくかった) で選択

Q5: APOLLO は、あなたの数値シミュレーションの実施もしくは新規参入の障壁を？

1. (大いに下げてくれそう) ~ 5. (ほとんど下げてくれなさそう) で選択

Q6: 次回の APOLLO 講習会はどのような内容だったら参加しますか？(複数回答可)

- ・今回と同様の導入説明
- ・APOLLO の説明をもっと詳しく
- ・APOLLO の出力ファイルを用いての Linux 側での排出量ツールの使い方
- ・APOLLO の出力ファイルを用いての WRF や CMAQ の使い方
- ・その他

Q7: 次回もしくは今後の講習会への希望をお書きください(自由記述)

Q8: APOLLO への希望がありましたらお書きください(自由記述)

Q9: その他講習会もしくは APOLLO に関して何かありましたら自由にお書きください(自由記述)

これに対し期日までに 23 件の回答があった。回答を図 1.8 および表 1.3 にまとめる。

まず、講習会の開催を知った経緯については、Ⅱ型共同研究のメーリングリストが 15 名と最も多く、続いて交流シンポジウムが 4 名であった。回答者 23 名のうち 22 名が実際に講習会に参加していた。回答者の大気汚染シミュレーションのこれまでの経験についての設問では、研究もしくは業務で使用中と回答した 3 名を除いては、全くの未経験者が 16 名と最も多かった。

講習会での説明のわかりやすさについては、わかりやすいが 16 名、中立が 6 名、わかりにくいのが 1 名であり、ある程度わかりやすい説明が行われたとの評価を得た。また、APOLLO によりシミュレーション参入障壁が下がると思うかの問いに対しては、下がるもしくはおおいに下がるとの答えが 13 名で、中立 7 名、下がる 3 名より多く、APOLLO への期待が伺えた。

どんな内容であれば次回の講習会に参加したいかの問いに対しては、APOLLO を用いての WRF や CMAQ の使い方の講習を望む声が 19 名と最も多く、続いて APOLLO を用いての排出量変換システムの使い方の講習を望む 16 名であった。APOLLO に関する今回と同様の説明(7 名)や今回より詳細な説明(6 名)を望む声も少なからずあった。

自由記述式であった問7から問9までの回答(表1.3.3~表1.3.3)では、講習会については、問6の回答にもあるように、WRFやCMAQの具体的実施法の講習を希望する声が多かった。また、WRFやCMAQの導入(インストール)に対するフォローを求める声が複数あった。今後のAPOLLOへの要望に関して、職場の計算機を必要としないクラウド上での利用を望む声があった。

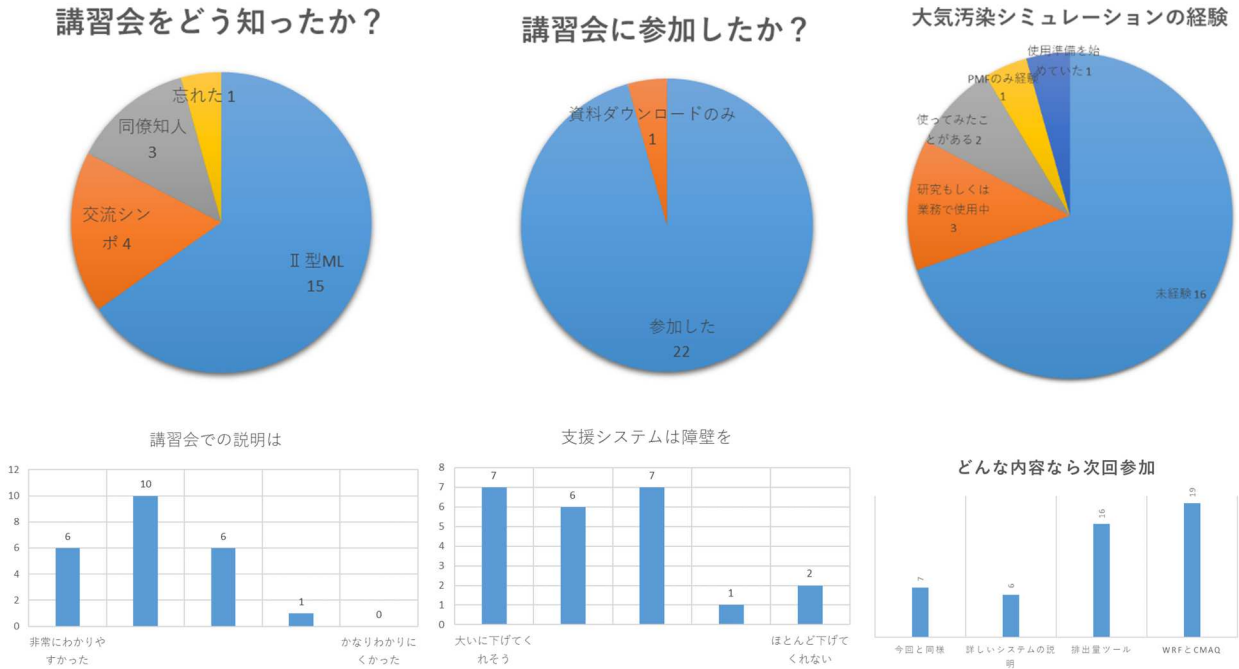


図1.8 アンケートの問1から問6までの回答のグラフによるまとめ。上段は左から問1～3、下段は左から問4～6である。23件の回答であるが、問6（右下）は複数選択可であった。

表1.3.1 次回もしくは今後の講習会に対する希望（10件）

WRFのコンパイルなどであきらめる人が多いと思います。仮想マシンを配布すれば概ねは解決できる+研修も進む と思いますので、ファイルサイズは100GBぐらいになっても全部入りのイメージの配付を希望します。
導入講習会を開催することと同時に実践的な講習会の開催を希望する。
APOLLOもしくはCMAQ等を用いた数値シミュレーションに関する講習会があれば参加したい。
今回講習の後のLinux側での操作についての講習会を希望します。
環境構築など難しい部分も多いと思いますが、WRFやCMAQのインストールやコンパイル、反応の設定オプション等に関しても、初心者向け講習会があると大変助かります。
最大の参入障壁となるWRF、CMAQの導入についてのフォローがあると良いと思います。
実際にモデルを動かした結果を見てみたい
APOLLOで作成したどの出力ファイルを排出量ツール・WRF・CMAQのどこのディレクトリに入れるかぜひ知りたいです。
シミュレーション未経験ですが、ぜひ活用したいと考えています。未経験者が段階的に習熟できるような講習会カリキュラムを希望致します。
シミュレーションは、大変有意義で当県でも実施したいが、そもそもシミュレーションに触ったことがなく、どう始めてよいか、全くわからないところからのスタートです。APOLLOで、シミュレーションに使用するファイル作成が簡便にできることはわかりましたが、まだ、どうやってそれをシミュレーションに使うのか、基本的な常識的な所からわからないので、そのあたりを教えていただけると、新規参入ができそうな気がしています。

表1.3.2 APOLLOへの希望（4件）

WRF/CMAQが並列計算できるlinuxイメージファイルを希望する。
庁内のPCはexeファイルが起動できないため、クラウド上で動作させることを検討いただきたい。
今後、排出量データが更新された場合も、更新版が使えるようにご対応いただけますと助かります。
非常にわかりやすいソフトでした。ウィンドウがスクロールできるようになると良いなと思いました。

表1.3.3 その他講習会もしくはAPOLLOに関して（5件）

継続的に本講習会を開催することを希望する。
このような講習会は、シミュレーションモデルに興味をもつ地環研職員を増やすことにも繋がるか と思います。今後も継続いただけますと幸いです。
講習会を実施して頂きありがとうございました。
ぜひ、研究や行政判断の参考にしたい。特に、 O_x が上がりそうな日、実際に上がった時の対応の判断 に役立ちそうに思います。
APOLLOは今後HPなどで配付予定でしょうか（もうHPで配付されているのでしょうか）。APOLLOを地 方自治体以外の大学等研究機関で使用することは可能でしょうか。地方自治体と大学との共同研究 の際に使用して良いか知りたいです。また、排出量ツールは今回配付されたファイルの中に含まれ ているのでしょうか？それともWRFやCMAQのようにHPからダウンロードするのでしょうか。講習会 の中でお話されていたかもしれないのですが、聞き漏らしてしまい理解ができておりません。来年度 調査の解析にCMAQを用いたシミュレーションが必要になってくるため、APOLLOを用いてWRFやCMAQで ぜひ計算をしたいと思っています。次回の講習会を待ち遠しく思っております。可能ならば今回の 形式と同じでオンライン講習だと参加しやすいので助かります。

4.2.3 APOLLO および講習会の今後について

APOLLOは一旦完成したが、今後もシステムの更新や講習会の継続的開催およびユーザーサポートを継続することが望ましい。そこで、本推進費終了後の受け皿として、国立環境研究所の第5期中長期計画（2022-2026年度）にて実施されている「政策対応研究」の一つである「大気汚染予測に係る地方公共団体等への情報発信と数値シミュレーション支援」に組み込み、年間650万円の研究経費により、今後のAPOLLOの更新・維持・管理や地方自治体等への講習会・サポートを継続することとした。少なくとも2026年度までは、APOLLOの更新や講習会の継続的開催を行う。

APOLLOについては、現時点で以下のような課題があると認識している。

- ・システムの不具合等の修正
- ・ユーザーの要望に基づくシステムの改良の継続
- ・WRFやCMAQの新規バージョンへの対応や、他の数値モデルへの対応検討
- ・ホームページの開設
- ・ユーザーコミュニティの創出
- ・モデルのインストールの障壁への対応検討
- ・計算環境の提供方法の検討（試行した仮想マシン+Linuxだけでなく、クラウド利用等も検討）

5. 研究目標の達成状況

以下のように全ての目標に対して予定通りに実施できた。

仕様について十分検討を行った上で、ユーザーインターフェースを介した簡便な選択や指定に基づいて国内外の各種インベントリをモデルレディの排出量データに変換し、また、モデルの計算設定ファイルを自動生成するシミュレーション支援システムの初期版を予定通り開発した。初期版をサブテーマ4、5および地方自治体協力機関に利用して貰い、システムの検証を行いつつ、必要な改良を行い、シミュレーション支援システムを完成させた。シミュレーション支援システムの利用講習会を地方自治体等に対して実施した。

共同実施する大気汚染対策効果評価研究についてサブテーマ4、5と相談・検討を行い、最終的に評価研究のとりまとめを行った。

6. 引用文献

特に記載すべき事項はない。

Ⅱ－２ 排出量変換システムの整備および排出インベントリの精度検討

国立研究開発法人国立環境研究所

地域環境保全領域 大気モデリング研究室

茶谷 聡、森野 悠

一般財団法人日本自動車研究所

環境研究部

森川 多津子

一般財団法人日本環境衛生センター

アジア大気汚染研究センター 情報管理部

黒川 純一

〈研究協力者〉

国立研究開発法人国立環境研究所

地域環境保全領域 大気モデリング研究室

北山 響（令和３年度）

〔要旨〕

排出量変換システムを整備するにあたり、推進費5-1601で構築された排出量データ変換ツールを基に、領域化学輸送モデルが必要とする全ての排出量データファイルを揃えるのに不足していた、①水平分解処理の自動化、②植物起源排出量推計への対応、③OCEANファイルへの対応、④排出量データの水平分布の図示について、新たに構築を行った。その上で、最新の排出インベントリ一式とともにサブテーマ１に提供し、システムへのツールの搭載を図った。

排出インベントリにおける大規模煙源の位置・高さおよび排出量の精度を検討するため、マップ調査とどの程度違いがあるものなのか、また、大気シミュレーションにマップ調査の個別煙源を直接使用した場合に大気汚染物質濃度の現況再現性がどの程度向上するかを確認した。排出量の水平分布や高さについては、排出インベントリとマップ調査の間で違いが見られた。また、マップ調査を直接使用した場合に、物質や地域によってはシミュレーションによる濃度再現性が向上した。

排出インベントリと排出量の逆推計結果の差分を発生源別の排出量の誤差で説明づけるための回帰分析を行った。逆推計による日本国内の都市部の NO_x 排出量は排出インベントリよりも少なく、それ以外では多い傾向があり、それぞれ家庭と自動車の排出量の誤差が影響を及ぼしている可能性が統計的に示唆された。

推進費S-12-1(2)で開発されたアジア域排出インベントリによる2005-2015年の中国地域別 NO_x 排出量を逆推計結果と比較し、対策導入のタイミングの設定等に検証が必要であることが示唆された。また、点源として扱われている発電所周辺の NO_x 排出量と NO_2 濃度の衛星観測データを比較し、両者は概ね整合的であることが確認された。さらに、最新のデータ・情報を収集・整備して排出量の推計を直近の2018年まで延伸し、中国における対策強化による排出量の減少傾向が示された。

これらの実施内容により、研究目標を概ね達成することができた。

１．研究開発目的

大気汚染に係るシミュレーションは、大気質改善のための対策を検討するために極めて有用であるが、地方自治体等が簡便に利用する形にはまだ至っていない。特に、あらゆる発生源からの原因物質の排出量を収録した排出インベントリは重要な入力データであるが、シミュレーションで使用するにはデータ変換が必要となる。そこで、サブテーマ１が構築するシミュレーション支援システムに搭載される排出量変換システムの開発を行い、大気汚染対策の当事者である地方自治体担当者等によるシミュレーションの実行の敷居を下げ、それぞれの地域における大気質に対する発生源の影響を総合的・継続的に検討できるようにする。また、排出インベントリにはさまざまな不確実性が含まれており、有効な対策

の検討に影響を及ぼしうることから、サブテーマ3が実施する排出量の逆推計結果との比較を通して、排出インベントリの精度の検証と改良を行う。

2. 研究目標

これまでの推進費課題（5-1601等）で構築された排出量データの変換ツールを拡張させ、複数の排出インベントリデータに対応し、インターフェース上での各種パラメータの設定などが行え、かつ、排出量や関連各種情報の図示もできるユーザーフレンドリーな排出量変換システムを完成させる。

既存の排出インベントリならびにそれを用いた領域化学輸送モデルによる大気汚染物質濃度の計算値と、排出量逆推計結果ならびに大気汚染物質濃度解析データセットとの比較により、既存の排出インベントリにおける排出量の水平分布の問題点を明らかにするとともに、データが存在しない直近年に至るまでの排出量の推移を推定できるようにする。

3. 研究開発内容

「排出量変換システムの構築」に加えて、既存の排出インベントリにおける排出量の水平分布の問題点の検証として「マップ調査と排出インベントリにおける固定燃焼発生源情報の直接比較」、排出量逆推計結果との比較による水平分布等の問題点の検証およびデータが存在しない直近年に至るまでの排出量の推移の推定として、日本国内については「排出量逆推計結果との比較による排出インベントリの検証」、国外については「領域排出インベントリの評価と改良」を行った。それぞれについて以下に述べる。

（1）排出量変換システムの構築

推進費5-1601では、各種の排出インベントリデータを領域化学輸送モデルへの入力データに変換するためのツールが構築された。ツールによるデータ処理の概略を図2.1に示す。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、鉛直分解係数を入力とし、排出インベントリデータに年次補正、倍率適用、月変動、週内変動、時刻変動、組成分解、水平分解、鉛直分解を施し、領域化学輸送モデルへの入力データファイルを生成するものである。

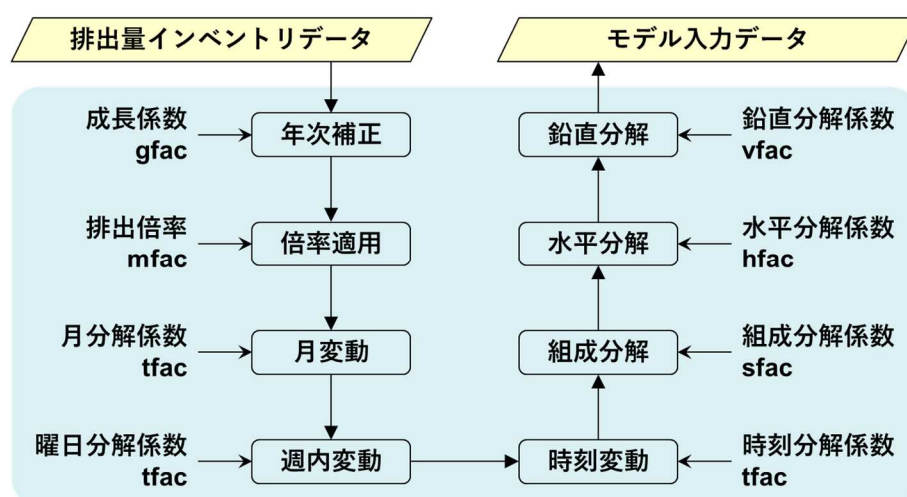


図2.1 排出量データ変換ツールのデータ処理の概略

排出量変換システムを整備するにあたり、この排出量データ変換ツールを基に、領域化学輸送モデルが必要とする全ての排出量データファイルを揃えるのに不足していた、①水平分解処理の自動化、②植物起源排出量推計への対応、③OCEANファイルへの対応、④排出量データの水平分布の図示について

て、新たに構築を行った。①は、排出インベントリによって異なる水平解像度のデータを、ユーザーが指定する計算対象領域のメッシュに割り当てるための水平分解係数を生成するもので、これまでは有償のGeographic Information System (GIS) ソフトウェアを用いて手動で生成させていたが、それを無償で自動化させるものである。②は、推進費5-1601において、日本独自の植生データと排出係数のデータから、Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature (MEGAN) version 2.1¹⁾で植物起源の排出量を推計できるようになされたものの、①と同じく有償のGISソフトウェアを用いて手動で入力データを作成する必要があるため、それを自動化させるものである。③は、領域化学輸送モデルのCommunity Multiscale Air Quality Modeling System (CMAQ) が海塩粒子の排出量を推計するために必要とする、海域および砕波帯の分布データ (OCEANファイル) について、推進費5-1601においてデータ構築がなされたものの、①②と同じく有償のGISソフトウェアを用いた手動での処理が必要であったため、それを自動化させるものである。④は、排出インベントリに含まれる発生源の分布を簡便に確認できるようにするために、排出量データの水平分布を図示できるようにするものである。これらの構築を行った上で、最新の排出インベントリ一式とデータの変換に必要な全ての係数類を取り揃えてサブテーマ1に提供し、システムへのツールの搭載を図った。

(2) マップ調査と排出インベントリにおける固定燃焼発生源情報の直接比較

環境省が3年ごとに実施する「大気汚染物質排出量総合調査 (マップ調査)」は大気汚染防止法に定める「ばい煙発生施設」を対象とした承認統計調査であり、ある規模以上の煙源からのSO₂、NO_x、ばいじん排出量の実態を反映したものと言える。一方、大気シミュレーションで用いる排出インベントリの煙源は、マップ調査から算出した排出原単位と、統計情報で得られる活動量を乗じて算出した排出量を元に作成されたものである。活動量は全国値であることが多いため、火力発電所や清掃工場など位置や規模が特定できる一部の発生源を除き、経済センサス就業者数などの代理指標を利用して、位置情報と排出量を与えている。煙源高さについてはマップ調査から業種ごとの高さ分布を適用している。

本研究では、マップ調査における個別煙源と、排出インベントリの排出量について、発生源位置・高さおよび排出量の違いが、どの程度あるものか、また、大気シミュレーションに、従来の排出インベントリではなく、マップ調査の個別煙源をそのまま用いた場合、大気汚染物質濃度の現況再現性がどの程度向上するか確認した。利用したマップ調査は、環境省から提供を受けた平成23年度実績のもので125,445本の煙源データである。比較対象に用いた排出インベントリは、推進費5-1601にて構築した「J-STREAM」、および、環境省で整備している「PM_{2.5}等大気汚染物質排出インベントリ (PM2.5EI)」である。

(3) 排出量逆推計結果との比較による排出インベントリの検証

排出インベントリに含まれている排出量は、発生源の排出係数と活動量などの情報から推計されたものであり、このような排出量の推計方法を一般にボトムアップと呼ぶ。ボトムアップによる排出量の詳細な精度検証をするために、サブテーマ3から提供された、直近年の2019年3～10月を対象としたNO_x排出量逆推計結果との比較を行った。なお、排出量の逆推計では、通常は発生源別の排出量の情報は得られない。そこで、次式に従い、発生源別のボトムアップ排出量と逆推計排出量の差分を、クラスター別および発生源別の排出量に係数を乗じたものの和で説明づけることを試みた。

$$E_{post} - E_{pri} = \sum_{k=1}^C \sum_{i=1}^n \alpha_{ik} \times E_{ik} \quad (2.1)$$

ここで E_{post} は逆推計により求めた排出量、 E_{pri} はボトムアップ排出量、 α は回帰分析により得られる比例係数、 E は発生源別のボトムアップ排出量、 n は発生源種別の総数、 C は回帰を部分別に行うためのクラスターの総数を表す。発生源別の誤差は回帰分析により α を求めることで得られるが、それではボトムアップ排出量の発生源分布と一律一様となり、空間的な誤差の解析等は困難である。そこで水平グリッド毎の排出量を(2.1)式に適用して、クラスター毎の部分的な回帰によりそれぞれの比例係数を決定

し、発生源の誤差の地域差を表せるようにした。

解析には2015年のNO_x排出量を用いて、日本の陸地全域を対象とした。対象領域内の0.1°格子グリッドの年間排出量を(2.1)式に適用して、グリッド毎の発生源別の排出量誤差を算出した。

回帰分析にはLasso回帰²⁾を用いた。Lasso回帰は係数決定の最適化の際に、通常の重回帰分析の最小二乗法に係数の絶対値の和を小さくする条件を加える。(2.1)式では係数 α の大きさが発生源別の誤差に影響を与えてしまう。そのため、極端に大きい α を算出する通常の重回帰分析ではなく、なるべく小さい α が得られるLasso回帰を使用した。

各グリッドの排出量を部分別の回帰を行うためのクラスターに分ける方法は、Gaussian Mixture法²⁾を利用した。このクラスター分析法は、変数の距離が近いサンプルをクラスターに分ける条件に加えて、変数間が正規分布に当てはまるようなサンプルのクラスターに分ける。そのため、クラスターに分かれたサンプルは変数間で相関がとれて、回帰の際の誤差が小さくなりやすい。

(4) 領域排出インベントリの評価と改良

推進費S-12-1(2)で開発されたアジア域排出インベントリ(Regional Emission inventory in ASia, REAS) version 3 (以降REASv3)について、同じくS-12-1(3)で開発されたアジア域NO_x排出量逆推計システムによる結果(サブテーマ3より提供、以降IM)を使用し、2005-2015年の中国地域別NO_x排出量を対象に、両者の比較とその差異の要因について考察を行った。まず、中国の6地理大区(東北、華北、華東、中南、西北、西南地区)別にNO_x排出量のトレンドを比較し、続いて比較的差異の大きかった東北・華東地区について、省別に同様の比較を行った。更に、最も差異の大きかった東北地区の吉林省について、REASv3システムを用いてセクター別排出量に対する考察を行った。また、地球環境監視衛星TROPOMI(Tropospheric Monitoring Instrument)による対流圏NO₂カラム濃度観測データ(サブテーマ3により整備・加工されたデータ)を用い、REASv3における日本域排出量推計結果を評価するためのケーススタディを行った。具体的には、REASv3で点源扱いしている発電所を中心に、20×20観測点(約45km×55km: REASv3では6格子点分)のNO₂カラム月平均濃度を点源位置の濃度で規格化してプロットし、特徴的な分布を見せた2つのケースについて考察した。最新年が2015年であったREASv3について、最新のデータ・情報を収集・整備して2018年まで延伸し、中国のSO₂、NO_x、BC排出量の近年のトレンドを評価した。

4. 結果及び考察

(1) 排出量変換システムの構築

① 水平分解処理の自動化

領域化学輸送モデルで用いる全ての排出インベントリについて、それぞれ異なる水平解像度に対応したシェープファイルを用意した。このシェープファイルと、CMAQが計算対象領域を定義するために用いるファイル(GRIDDESCファイル)のみを入力として、水平分解係数を自動で計算し出力するツールを新たに作成した。なお、本ツールは、有償のGISのソフトウェアであるArcGISのライブラリを使用するため、ArcGISのライセンスを所有しないユーザーは実行することができない。ライセンスを有さないユーザーでも水平分解係数を生成させることができるように、Community Modeling and Analysis System(CMAS)がCMAQとともに無償で公開しているSpatial Allocatorの利用可能性を検討した。同じくシェープファイルとGRIDDESCファイルを入力として、水平分解係数が出力されることを確認した。その値を上記のArcGISのライブラリを使用したツールの出力値と比較したところ、違いは単精度の数値誤差以内に収まっており、Spatial Allocatorの有用性が実証された。

Spatial Allocatorを容易に実行できるように、図2.2に示す新たな枠組みを構築した。点線で囲まれた部分がSpatial Allocatorに相当する。面で表現される発生源(面源)について、排出量の収録単位である市区町村などの任意の形状を表すシェープファイルとGRIDDESCファイルを入力とし、空間サロゲートファイルに水平分解係数を出力するものである。なお、別途Pythonプログラムを用意して、排出

量データ変換ツールが必要とする水平分解係数の形式に合わせるようにし、Spatial AllocatorとPythonプログラムの全体をCシェルのスクリプトで実行できるようにした。大規模煙源や火山など、点で表現される発生源（点源）についても、それぞれの点源を含む計算対象領域のメッシュを同定するSpatial Allocatorの機能を用い、同じくPythonプログラムで排出量データ変換ツールが必要とする形式で水平分解係数を出力するようにした。全体の構成とスクリプト内で指定すべき項目やスクリプトの実行方法を記述したマニュアルも新たに作成した。

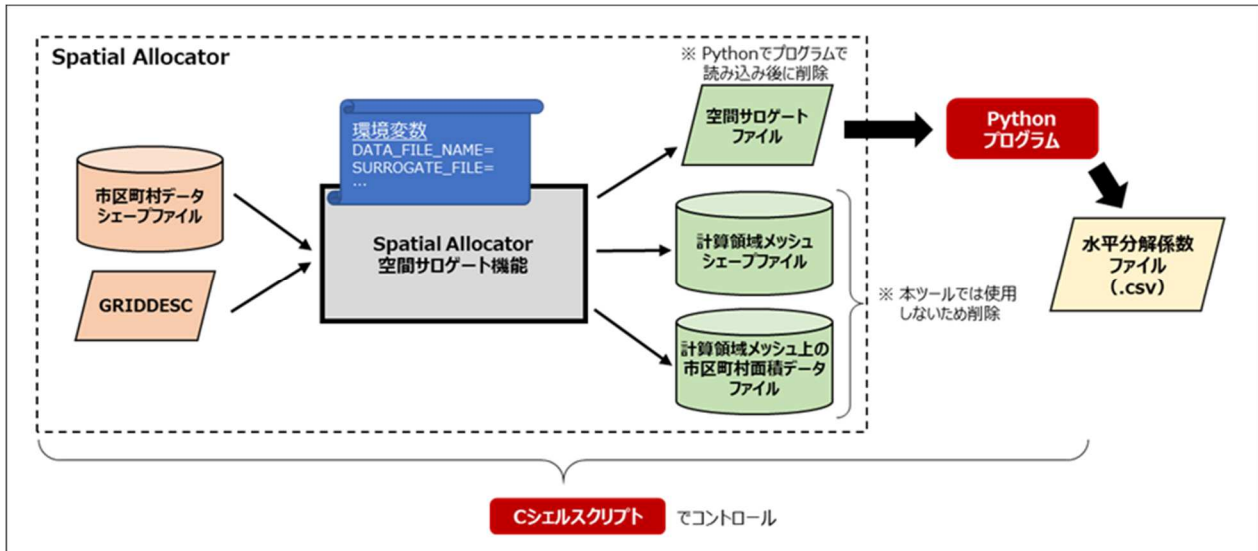


図2.2 Spatial Allocatorの実行枠組み（面源の場合）

②植物起源排出量推計への対応

MEGANは、入力データとして、排出係数、植生割合、Leaf Area Index (LAI) について、計算対象領域のメッシュ別のデータファイルを必要とする。環境省生物多様性センターの植生調査データをベースとし、推進費5-1601で構築された詳細な植生割合を、同じく推進費5-1601で構築された人為固定発生源の排出インベントリと同様に、市区町村と基準地域メッシュを重ね合わせたポリゴン別にまとめ、排出量データ変換ツールの入力データのフォーマットで構築した。MEGANが必要とする排出係数と植生割合に変換するための係数類も取り揃え、他の排出インベントリと同一の排出量データ変換ツールで、MEGANへの入力データファイルを生成できるようにした。LAIについては、領域気象モデルのWeather Research and Forecasting Model (WRF) のデータを利用していたのに代わり、Moderate-resolution Imaging Spectroradiometer (MODIS) 衛星観測によるLAIデータから直接、市区町村と基準地域メッシュを重ね合わせたポリゴン別にまとめ、同じく排出量データ変換ツールでMEGANへの入力データファイルを生成できるようにした。これにより、従来よりも水平解像度の向上も図ることができた。例として、新たに構築した基準地域メッシュ別のスギ・ヒノキ・サワラ植生の割合とLAIの水平分布、またそれらをツールで水平解像度5kmの計算対象領域におけるFarneseneの排出係数とLAIに変換したものを図2.3に示す。高解像度のデータから適切に変換されていることがわかる。

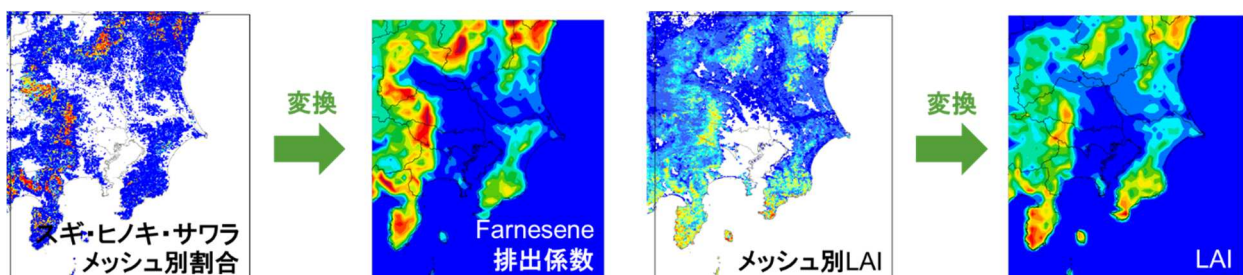


図2.3 基準地域メッシュ別のスギ・ヒノキ・サワラ植生の割合とLAI、それらをツールで水平解像度5kmの計算対象領域におけるFarneseneの排出係数とLAIに変換したものの水平分布

③OCEANファイルへの対応

CMAQは、海域に加えて、海塩粒子の排出が多い白波発生部分に相当する砕波帯の分布データを必要とする。推進費5-1601における議論を踏まえ、国土数値情報の土地利用データにおける海浜に隣接する幅25mの部分の砕波帯と定義することにした。それに、アメリカのNational Oceanic and Atmospheric Administration (NOAA) が公開しているGlobal Self-consistent, Hierarchical, High-resolution Geography Database (GSHHG)³⁾の海域のデータを組み合わせ、海域と砕波帯の分布を表現するシェープファイルを構築した。このファイルから①で述べたツールを用いて、計算対象領域のメッシュに対する海域と砕波帯の水平分解係数を生成させ、他の排出インベントリと同一の排出量データ変換ツールで、OCEANファイルを出力できるようにした。構築した海域と砕波帯の分布と、それを計算対象領域のメッシュにおける砕波帯の割合に変換した例を図2.4に示す。図2.3の植生と同様に、高解像度のデータから適切に変換されていることがわかる。①②③により、CMAQが必要とする全ての排出量関連データを単一の排出量データ変換ツールで変換できるようになった。

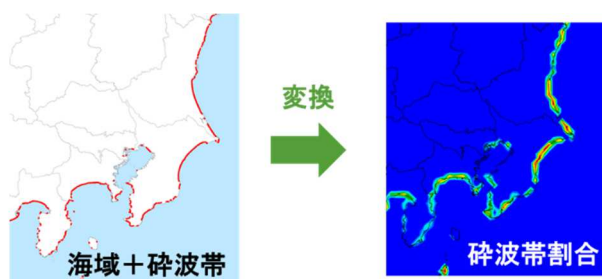
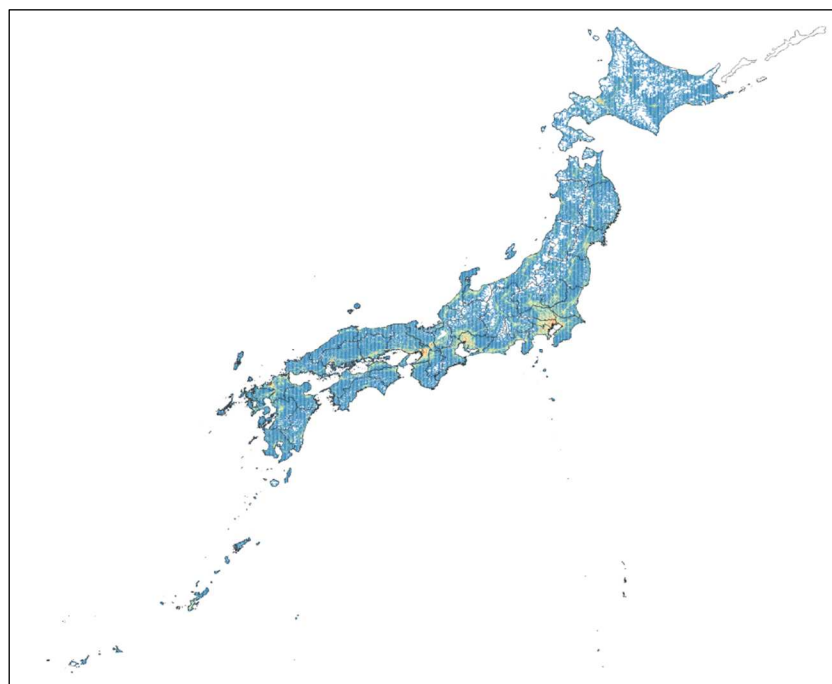


図2.4 構築した海域と砕波帯の分布と、計算対象領域のメッシュにおける砕波帯の割合への変換結果

④排出量データの水平分布の図示

排出インベントリの内容を確認したり、汚染物質濃度の対応関係を調べたりするために、排出インベントリに含まれる排出量の水平分布を図示できるのが好ましいが、排出インベントリには部門別、物質別、場所別の多次元の排出量データが含まれており、排出インベントリによって水平解像度も異なることから、一元的に図示するのは容易ではない。そのため、まずは次元を物質別および場所別の二次元に集約するデータ処理ツールを新たに作成した。このツールでは、排出量データ変換ツールが使用する排出倍率も読み込み、排出倍率適用後の二次元の排出量分布を確認できるようにcsv形式で出力するのに加え、無償のGISソフトウェアであるQGISが必要とするデータ書式に関するcsvtファイルも併せて出力するようにした。QGISのインストール方法や、出力させた排出量データの水平分布をQGISで表示し加工するための一連の手順について記述したマニュアルも新たに作成した。例として、自動車からの NO_x 排出量の水平分布をQGISで図示させたものを図2.5に示す。

図2.5 自動車からのNO_x排出量の水平分布の表示例

⑤最新の排出インベントリー式の整備

推進費5-1601以来、一部の排出インベントリに更新があったため、改めてシミュレーションで必要となる全ての排出インベントリについてデータを取り揃えた。その構成を表2.1に示す。全ての排出インベントリについて、ツールが必要とする成長係数、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、鉛直分解係数の他、シェープファイル、排出量図示用ファイルを準備した。組成分解係数は、saprc07tic_ae7i_aq、saprc07_ae6_aq、cb05e51_ae6_aqの3種類の化学反応メカニズム・粒子オプションに対応させた。対象年は2010～2020年とし、排出インベントリに同期間のデータが含まれている場合には、変換を行えるようにした。なお、REAS v3.2.1については2015年までを対象としているが、既往文献¹⁰⁾を基に2017年までの年次補正を施した。全てのデータについて説明文書を作成し、公開用データセットとして整備した。

表2.1 新たに取り揃えた排出インベントリの構成

発生源	排出インベントリ
国外（アジア）人為発生源	REAS v3.2.1 ⁴⁾
国外（アジア以外）人為発生源	EDGAR v5.0 ⁵⁾
バイオマスバーニング	GFED v3.1s ⁶⁾
国内自動車	環境省PM2.5EI
国内自動車以外輸送	環境省PM2.5EI
国内固定発生源	J-STREAM ⁷⁾
日本周辺船舶	GLIMMS-AQ ⁸⁾
火山	MSDEGS02L4 ⁹⁾ 、気象庁
国内植生	環境省植生調査
海洋	GSHHG ³⁾ 、国土数値情報

(2) マップ調査と排出インベントリにおける固定燃焼発生源情報の直接比較

マップ調査はアンケート調査であるため、個々の記載項目が必ずしも揃ってはいない。そのため、産業区分、施設種、稼働実績、排出ガス量、物質濃度、燃原料名、年間燃原料使用量、の記載があるものをベースにスクリーニングしたものを利用した。スクリーニングにより煙源数は125,445本から91,846本と、約73%となった。排出量ベースでは、SO₂、NO_x、ばいじん排出量がそれぞれ78%、78%、69%に減少したが、ここではスクリーニングによるデータの偏りは生じていないものとした。個々の煙源の排出量差は非常に大きく、本数ベースで1～5%にあたる上位煙源が排出量の大半を占めることが確認できた（表2.2、図2.6）。

表2.2 マップ調査の煙源数

	煙源数	SO ₂ 排出量 t	NO _x 排出量 t	ばいじん 排出量 t
全体の状況	91,845	322,536	544,163	25,185
排出量が上位 1%の煙源	918	267,982	381,862	15,455
同 3%	2,755	291,377	458,343	19,739
同 5%	4,592	300,042	487,226	21,369
残りの 95%の煙源	87,253	22,493	56,938	3,816

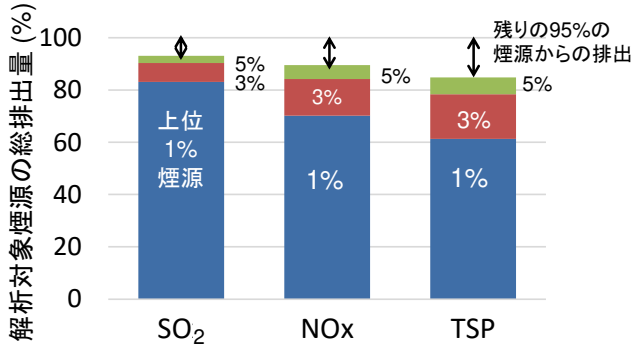


図2.6 マップ調査上位煙源の排出量比率

以上の結果より、マップ調査で上位1%の煙源に着目して解析をおこなうこととした。マップ調査で確認された煙源に対し、対応する煙源を排出インベントリ上で特定することは困難であるため、マップ調査、排出インベントリともに3次メッシュ単位の排出量に整理した後、対応を取った。また、上位1%煙源は汚染物質により異なるため、SO₂、NO_x、ばいじんのどれかが1%以上である煙源をすべて解析対象とした。その結果、対象煙源は1497本となった。

図2.7はマップ調査のNO_x排出量結果を、J-STREAMとPM2.5EIの2種の排出インベントリと共に3次メッシュで整理した後に大きい順から並べたものである。それによると、マップ調査の排出傾向は排出インベントリでも概ね捉えられていると考えられる。J-STREAMとPM2.5EIでは使用した排出係数と地域配分手法が異なるために若干の違いが生じている。

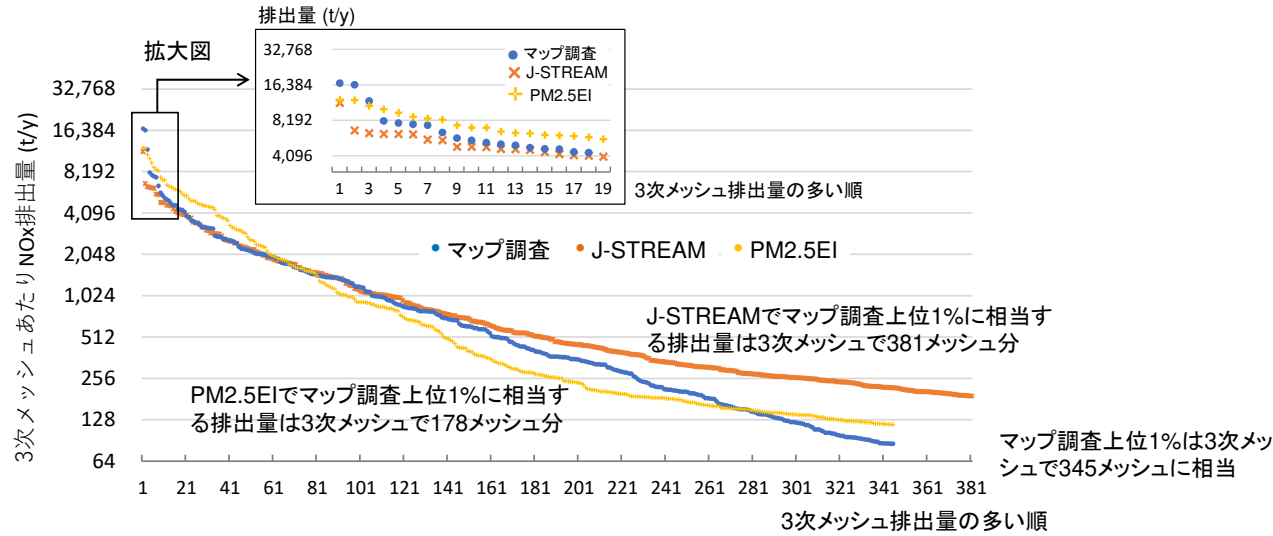


図2.7 マップ調査の上位1%のNO_x排出量と排出インベントリの直接比較
(3次メッシュの排出量に整理後)

3次メッシュの位置について、図2.8に示す。図2.7ではマップ調査上位1%煙源と同一排出量となる3次メッシュ数のプロットを示したが、図2.8は地域のばらつきを確認するため、マップ調査と等しい345メッシュの位置を示した。それによると煙源は海沿いの工業地域に多く存在しているが、マップ調査では比較的内陸にも煙源が確認できる。それに対し、排出インベントリは2種類とも沿岸に集中する傾向にあった。対象年の違いによる影響も考えられるが、代理指標を用いた地域配分では表現しきれない発生源があるものと考えられる。

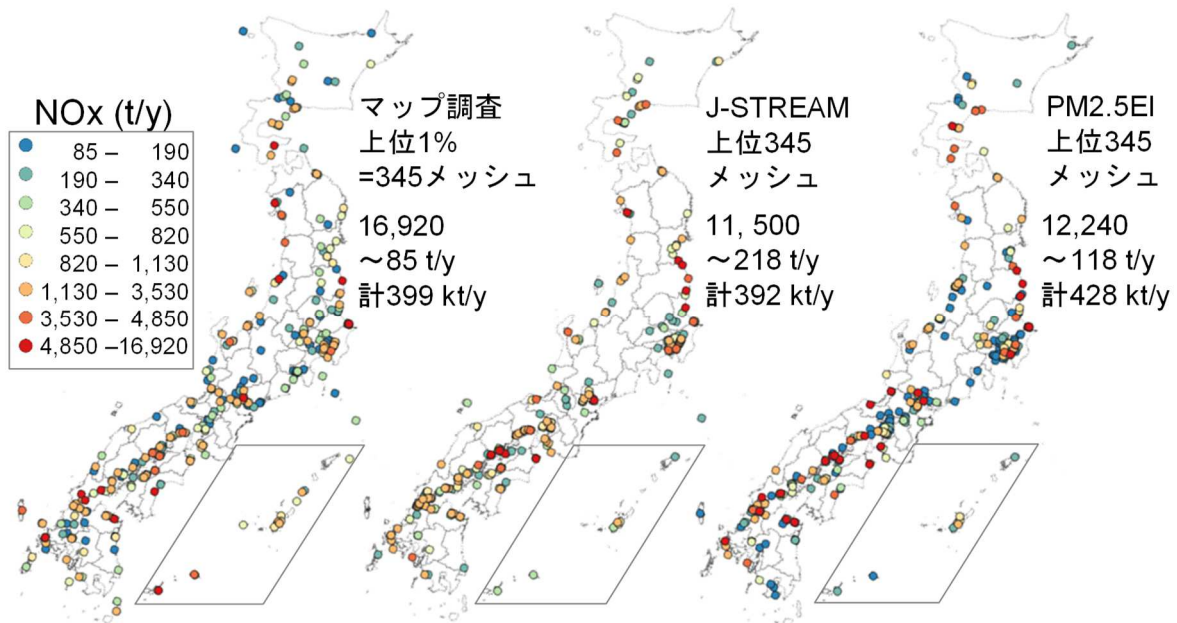


図2.8 NO_x排出量上位1%煙源の地点分布

煙突の高さ情報についても関東の煙源について確認した。図2.9は一般廃棄物処理施設と火力発電所の例だが、煙突高さが高い煙源が都心に集中している傾向にあることがわかる。

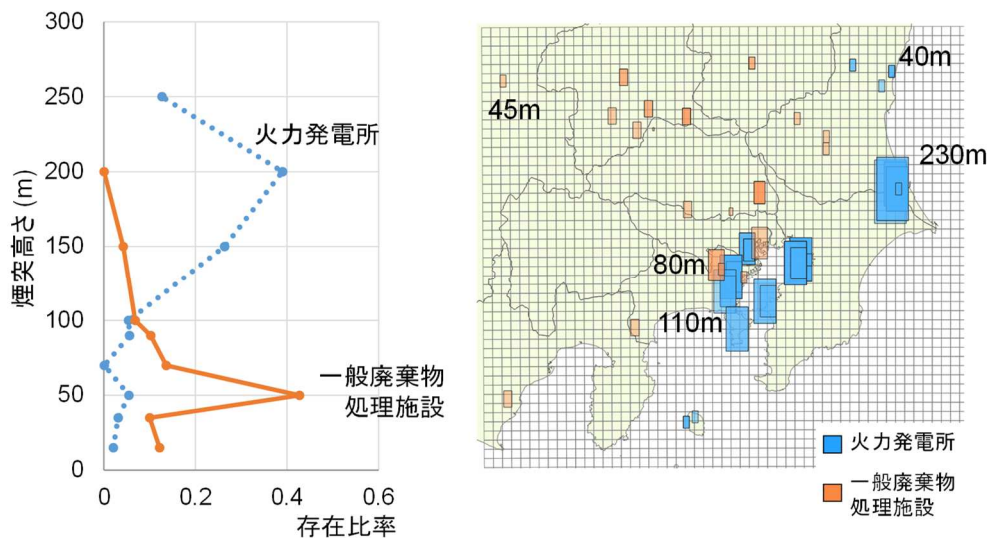


図2.9 左図：PM_{2.5}等大気汚染物質排出インベントリの煙突高さ分布、
右図：マップ調査に記載された実際の煙突高さ

大気シミュレーションにおいて、マップ調査の上位1%の煙源を、直接、排出量データとして適用し、従来の排出インベントリによる結果と比較をおこなった。大気シミュレーションはCMAQ ver5.2.1

を用いた。化学反応スキームはSAPRC07tc-aero6、気象データは米国大気研究センターNCARが主に開発したWRF (Weather Research and Forecasting) ver3.8.1によった。計算領域は関東領域のみであるが、境界条件は東アジア-日本領域の計算結果によった¹¹⁾。計算対象期間は2015年度の4季節3週間とした。排出量データは、従来の排出インベントリとしてPM2.5EIから作成したベースケースと、マップ調査の結果を反映したマップケースの2種類を比較した。

マップケースの排出量データは次のように作成した。まず、マップ調査はSO₂、NO_x、ばいじんの排出量しか記載されていないため、それ以外のCO、VOC、NH₃の排出と、月・時刻配分は、排出インベントリの作成手順に基づいて各煙源の業種・燃料から推計した。煙源高さはマップ調査に記載されていた煙突高さ、排煙温度、排出ガス量と、推計日時の気象データを用い、CONCAWE式により求めた有効煙突高さを入力データとした。一部、排煙温度の記載のないものは、同じ業種・燃料種のデータを当てはめた。有効煙突高さの算出にあたり、CONCAWE式以外の算出方法も検討したが、利用可能な気象要素は各鉛直層の代表値であったためか、有効煙突高さが時々刻々でかなり上下する結果となり、採用を見送った。

マップ調査に相当する排出量データを排出インベントリから削除する方法は、SO₂、NO_x、ばいじんそれぞれで3次メッシュ排出量を上位からマップ調査と同数分削除することとした。その際、該当する3次メッシュの排出量は全体を削除している。

マップ調査から新たに考慮された3次メッシュデータは栃木県・群馬県・静岡県に比較的多く配置され、排出インベントリから削除された3次メッシュデータは湾岸や神奈川県に多い結果となった（図2.10のa））。計算結果は、対象領域内の一般環境大気測定局における1時間毎の観測結果と比較し、各種統計指標（NMB、NME、RMSE、相関係数）を算出し、それらの数値の変化でスコアリングし、マップケースで効果がなかったもの（効果不明）、精度向上したもの、統計指標により判断が分かれるもの（一部精度向上）、に分類した。

結果をSO₂、NO_x、O₃について図2.10のb)～d)に示す。SO₂についてはマップ調査の入れ替えが多かった内陸部分や神奈川県・静岡県に精度向上地点が多い傾向にあった。NO_xは湾岸部分と静岡県などでは精度向上の地点が見られたが、内陸部分の変化はSO₂ほどには見られなかった。O₃はNO_xと同様の傾向を示したが、茨城県の北部に精度向上地点がいくつか確認された。

今回は従来の排出インベントリと同様に、煙源を3次メッシュからの排出として検討した。現状で本数としては数%の煙源が、排出量の大部分を占めているため、今後も排出量の上位煙源については精度向上の可能性を検討していく価値は十分にあると考えられる。

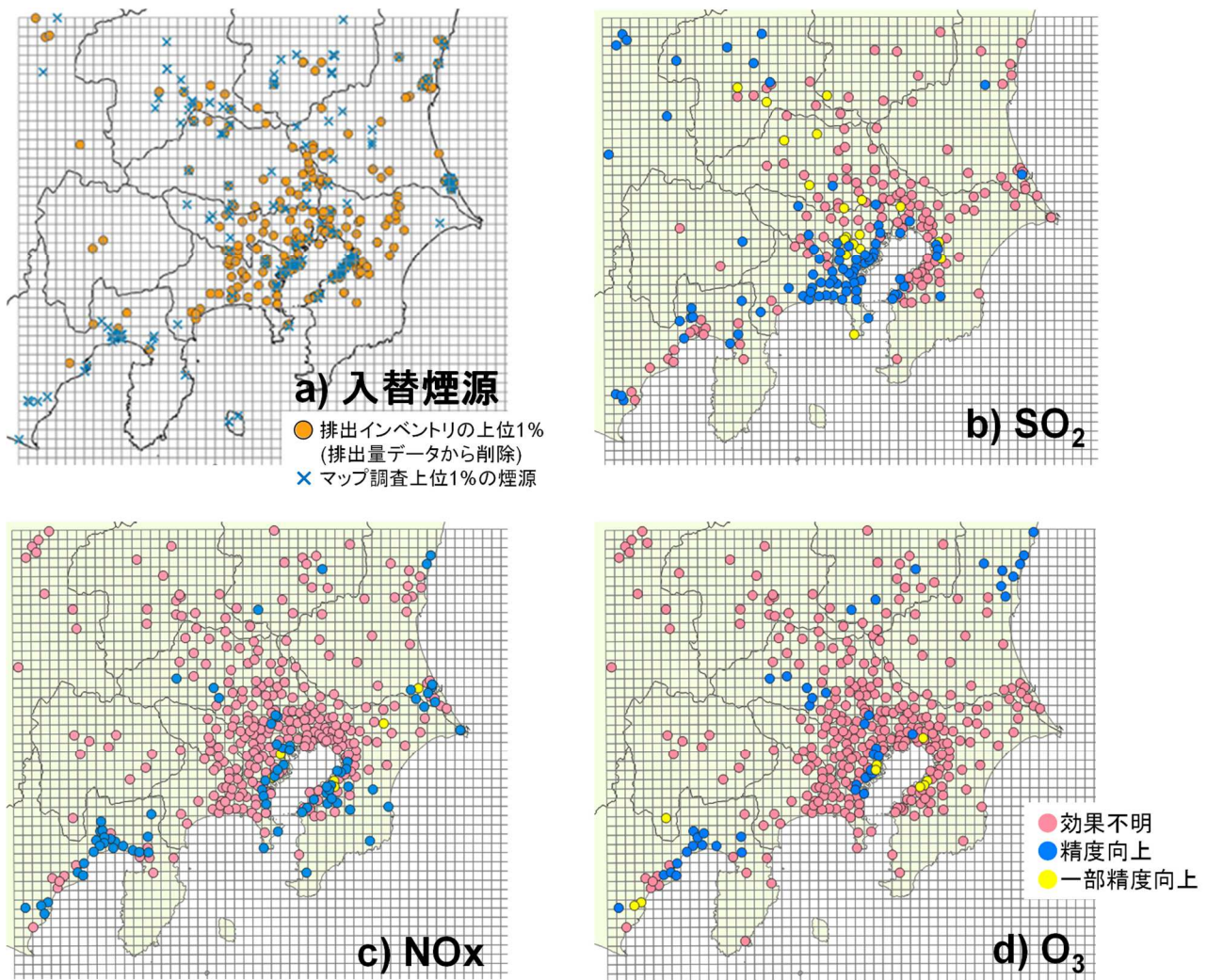


図2.10 大気シミュレーションCMAQの排出量データとしてマップ調査を直接利用した結果

a) 排出量の入替え結果 b)～d) それぞれSO₂、NO_x、O₃濃度の計算結果

(3) 排出量逆推計結果との比較による排出インベントリの検証

図2.11にボトムアップ排出量と逆推計排出量の差のグリッド全体の総和に対するグリッド内の割合 ($E_{post} - E_{pri}$)の空間分布、回帰分析で得られた発生源別の排出量誤差の相対値 ($(|\alpha| \times E) / |E_{post} - E_{pri}|$)がグリッド内で最も大きい発生源の空間分布、その分布で多くを占めている自動車と家庭からの排出量の空間分布をそれぞれ示す。

逆推計の排出量は都市部で小さく、それ以外の全域で比較的大きい値を示していた。特に東京近辺で逆推計排出量とボトムアップ排出量の差が大きくなっていた。逆推計排出量の方が大きい都市部以外の全域では、自動車排出量が排出量誤差に占める割合が最も大きい点が多く、逆推計排出量の方が小さい都市部では家庭からの排出量や商業活動による排出量が誤差に占める割合が大きい地点が多かった。自動車の排出量は、他の発生源に比べて日本の全域において発生源全体の排出量に対する割合が大きい。そのため、自動車排出源の排出量はボトムアップと逆推計排出量の誤差に占める割合も大きくなっていると考えられる。一方、都市部の逆推計排出量の方が小さい地域では、排出量は小さいが空間分布が都市部のみに集中している家庭からの排出源等が誤差の多くを占めている。これら都市部に集中した排出源は全体に占める排出量としては大きくないが空間分布が一致するため、都市部の排出量誤差と大きく関連していることが示唆される。

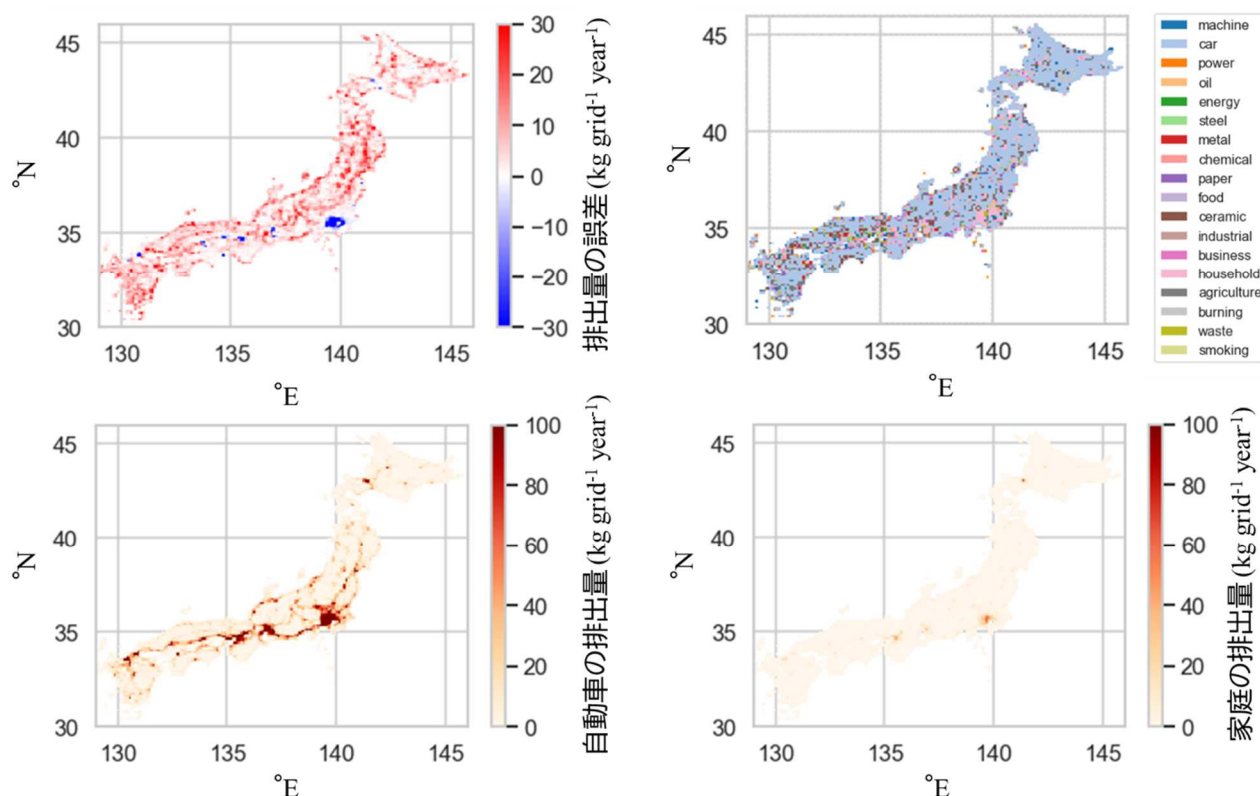


図2.11 ボトムアップと逆推計の排出量誤差のグリッド総和に対する割合の分布(左上)、
グリッド内で排出量誤差の割合が最も大きい排出源(右上)、
自動車排出源の排出量分布(左下)、家庭排出源の排出量(右下)

(4) 領域排出インベントリの評価と改良

図2.12は、REASv3及びIMによる NO_x 排出量推計結果について、中国全域及び中国6地理大区別の排出総量を比較したものである。中国全域については、2005年から2011年まで排出量が増加した後減少に転じる傾向について、REASv3とIMとで良い一致を見せている。一方、地域別に見ると、2005-2015年のトレンドについて、REASv3ではほとんどの地域で類似の傾向であったが、IMでは地域間で差が生じていた。華北及び中南地区ではREASv3とIMのトレンドは近かったが、東北地区のIMでは2011年以降も微増、華東地区のIMでは2011年以降横ばいの傾向が続き、排出量が減少に転ずるのは2014年からであった。逆に、西北・西南地区では、IMの方がREASv3よりやや早く排出量が減少に転じていた。比較的差の大きい東北・華東地区を省別に見た所、河北省、内モンゴル自治区のように、REASv3とIMのトレンドが比較的良く一致する地域もあったが、遼寧省、吉林省、山東省、江蘇省など、排出量が減少するタイミングについて、REASv3の方がIMより早い地域がやや多い傾向にあった。

図2.13は、REASv3とIMの乖離が特に大きかった吉林省について、REASv3の発生源別排出量とIMとを比較したものである。2005-2011年の傾向は比較的近かったが、2012-2014年の傾向に大幅な乖離が見られており、REASv3では2012年から2014年で約12%排出量が減じたのに対し、IMでは逆に約11%の増加となった。REASv3の変化を発生源別に見ると、2012-2014年の減少量 $[\text{TgNO}_2]$ は、発電0.08、産業0.03、輸送-0.04 (0.04の増加)、家庭他0.0であった。そこで、変化の大きい発電所において、仮に発生源対策が何も行われないと想定して排出量の推計を行った所(図2.13b)、2012-2014年の変化はほぼ横ばいとなった。更に、他の発生源の影響を調べるため、仮に全ての発生源対策が行われないと想定した排出量の推計も行った(図2.13c)。その結果、2012-2014年の減少量は、発電0.00、産業0.03、輸送-0.06、総量-0.03となった。以上より、REASv3の2012-2014年の減少傾向に問題があると想定した場合、発電所への脱硝装置導入のタイミング・稼働率・除去性能の設定、産業に投入された燃料消費量、自動車排ガス規制導入のタイミング・走行量の妥当性などについて検証が必要であることが示唆された。

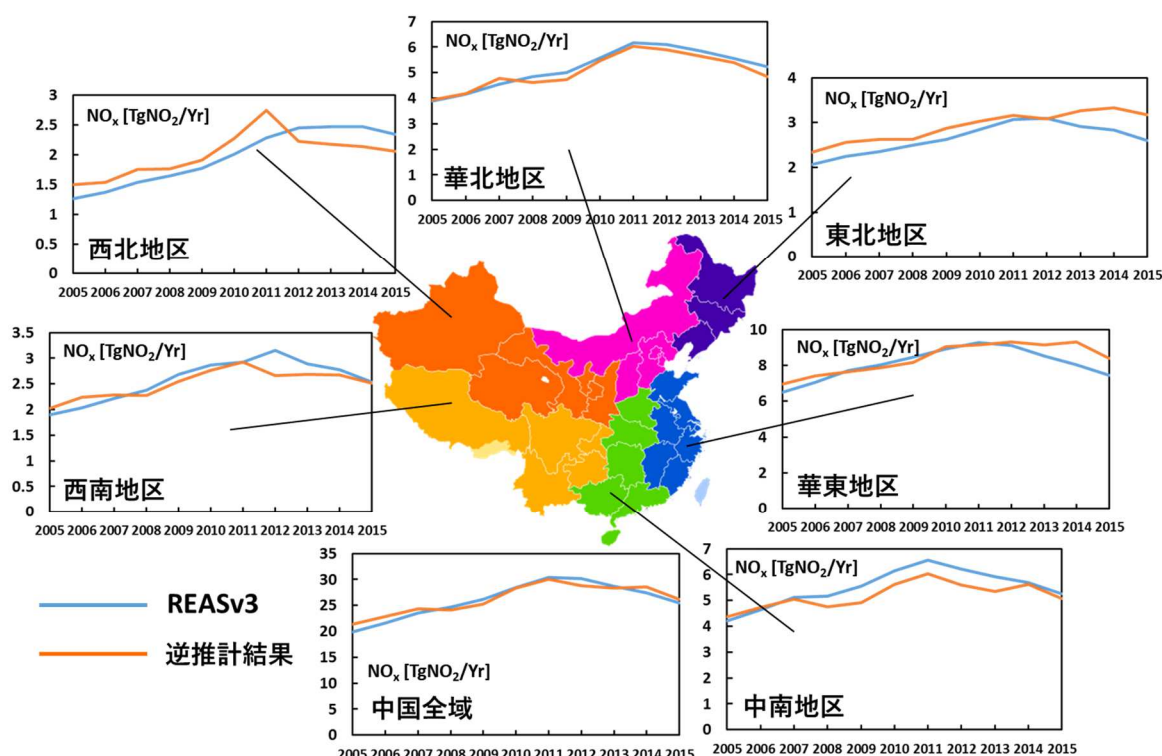


図2.12 REASv3及び排出量逆推計結果による中国全域及び中国6地理大区域NO_x排出量の比較

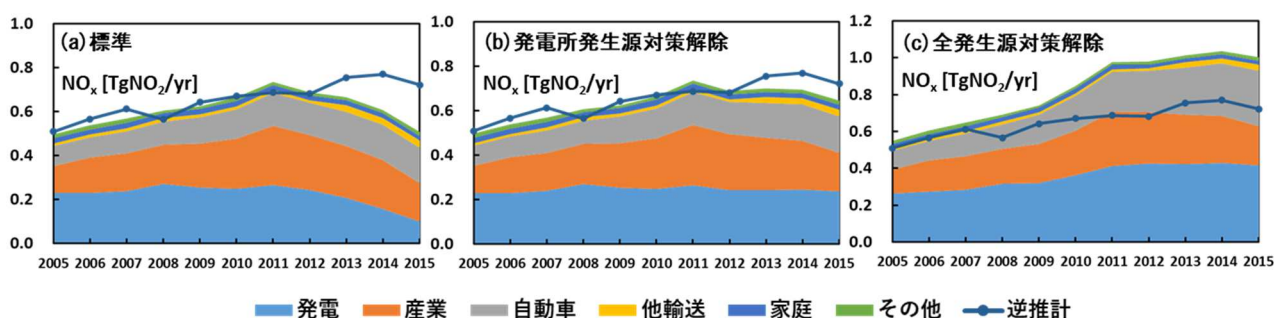


図2.13 吉林省におけるNO_x排出量のREASv3発生源別排出量と排出量逆推計結果との比較
(a) REASv3標準の排出量、(b) REASv3で発電所のみ発生源対策解除を想定した場合の排出量、
(c) REASv3で全ての発生源対策解除を想定した場合の排出量（排出量逆推計結果は(a)-(c)で共通）

REASv3では大規模発電所を点源として扱っている。図2.14は、TROPOMIの月平均対流圏NO₂カラム濃度について、日本の点源位置を中心に東西南北各10観測点をプロットしたものの内、特徴的な分布を見せた2019年7月における二つの発電所A、Bの周辺（それぞれ(a)、(b)）の結果を示したものである。図2.14aでは、点源位置の近辺において明白な濃度ピークが見られている。図2.14a内の地域では、点源の周辺に工場は存在しているが大規模なものは無く、南東に市街地が存在する以外は、西側は海、東側は農地及び山地が広がっており、TROPOMIは発電所Aを起源とするNO₂を捉えたものと考えられる。REASv3において、図2.14aを含む6格子のセクター別排出量を見ると、点源発電所50%、自動車30%、産業10%、その他10%となっており、地域内の特徴と整合的である。一方、図2.14bでは、濃度ピークは点源位置の近傍ではなく、その北東位置に見られており、そこを中心に高濃度域が広がっている。図2.14b内の地域の様子は図2.14aとは大きく異なっており、工場地域、都市域で占められている。NO_xの発生源が幅広く存在しているため、TROPOMIによって発電所Bを起源とするNO₂を捉えることが困難であったと考えられる。図2.14b内のREASv3の排出量は、点源発電所が20%なのに対し、産業、自動車がそれぞれ33%、21%を占めており、図2.14aの場合と同様、地域内の特徴と整合的であった。なお、図2.14の右側の格子

は、REASv3で図2.14bの領域に対応する6格子点内の NO_x 排出量比を示したものである。図2.14bの高濃度域内には大規模製鉄工場が複数存在しているが、REASv3では大規模製鉄工場を点源としては扱っていないものの、排出量グリッド分配においてそれらの位置は考慮している。その効果も含めて、REASv3の水平分布とTROPOMIの分布は概ね整合していることが見て取れる。なお、TROPOMIの対流圏 NO_2 カラム濃度分布は季節によって変動があり、発電所A、Bの周辺では冬季に発生源の識別が困難な傾向が見られた。よって、TROPOMIによる観測データは排出インベントリの点源・都市スケールの水平分布の評価において有用ではあるが、適切なデータの選別については、地域の特性なども含めて検討・検証が必要である。

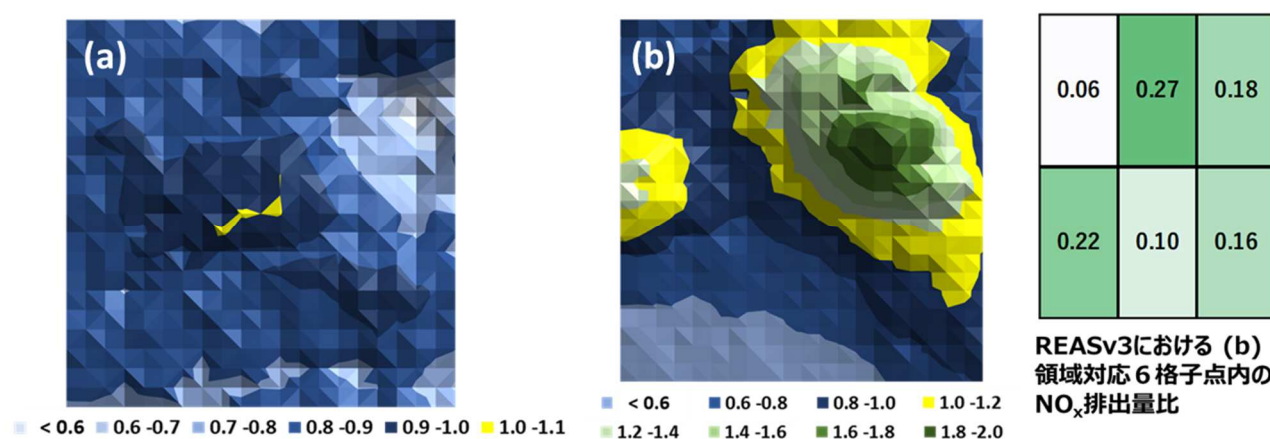


図2.14 (a) 発電所A及び(b) 発電所B周辺の2019年7月における対流圏 NO_2 カラム濃度月平均分布
(点源発電所位置(各図中心位置)の濃度で規格化)
右格子は、REASv3において(b)の領域内に対応する6格子点内の NO_x 排出量比

図2.15は、本研究で2018年まで年次更新されたREASv3における中国の SO_2 、 NO_x 、BC排出量を、セクター別、燃料種類別に1990-2018年の期間について示したものである。中国の SO_2 排出量はほぼ発電及び産業部門の石炭燃焼起源であるが、2005年のピーク以降、まず発電所、次いで大規模工場への脱硫装置の設置により排出量の減少傾向が続いており、REASv3では、2018年に中国の排出量はインドの排出量を下回ったと推計された。 NO_x については、2010年まで増加傾向が続いた後、発電所への脱硝装置導入などの効果により減少に転じているが、 SO_2 に比べてピーク時期が遅く、また減少率も小さい。インド、東南アジアの NO_x 排出量は増加傾向が続いているため、中国の排出量がアジア全体に占める割合はピーク時よりも減少しているが、 NO_x については、2018年でもインドの倍近くとなっている。BCについては、中国では産業での石炭、家庭での石炭及びバイオマス燃料燃焼の寄与が同等で、次いでディーゼル車からの排出が見られるが、家庭での石炭・バイオマス燃料消費量の低下、産業での対策の強化から、特に2016年以降排出量の減少率が大きくなっている。他の物質同様インドの排出量は増加傾向が続いており、中国とインドのBC排出量は差が縮まってきている。なお、本更新では中国の発電所及び産業部門における除去率設定に重点を置いてデータ・情報の収集を行った(例えばWang et al. (2020)¹²⁾) が、家庭部門など小規模発生源の排出係数は更新されておらず、今後の重要課題となっている。

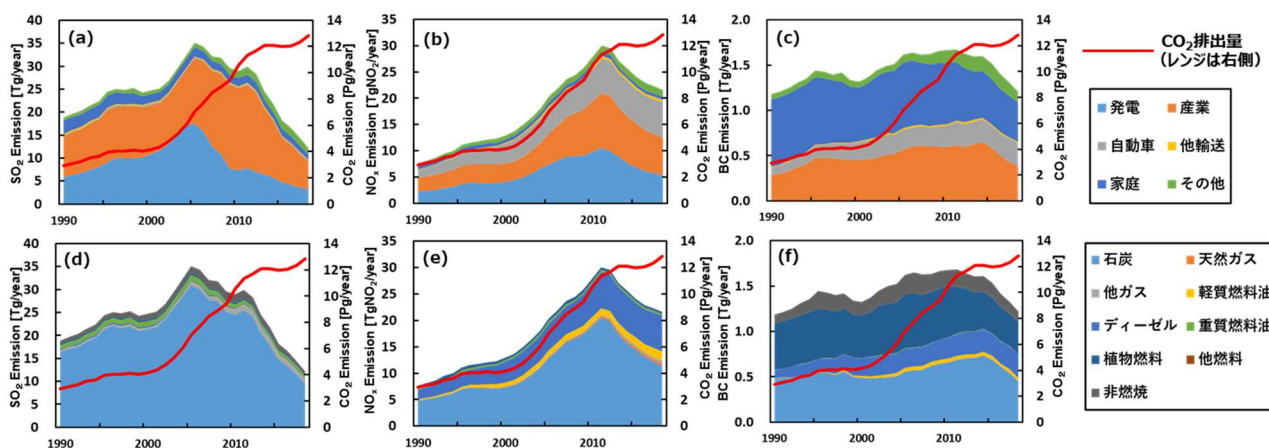


図2.15 1990-2018年における (上) 中国セクター別(a)SO₂、(b)NO_x、(c)BC排出量、及び (下) 燃料種類別(d)SO₂、(e)NO_x、(f)BC排出量 (赤線は中国人為起源CO₂総排出量)

5. 研究目標の達成状況

推進費5-1601で構築された排出量データの変換ツールを拡張させ、領域化学輸送モデルが必要とする全ての排出インベントリについて入力データへの変換を行えるようにした。また、サブテーマ1が開発するシステムへの搭載により、インターフェース上でのパラメータの設定が可能となり、排出量の図示もできるようにした。これにより、研究目標としていた排出量変換システムを完成させることができた。また、地上観測データや排出量逆推計結果との比較により、排出量の水平分布の問題点を明らかにすることができた他、サブテーマ3で推計されたデータが存在しない近年の排出量について、排出インベントリとの比較による問題点の検討も行うことができた。これらの実施内容により、研究目標を達成することができた。

6. 参考文献

- 1) Guenther, A. B., Jiang, X., Heald, C. L., Sakulyanontvittaya, T., Duhl, T., Emmons, L. K., and Wang, X.: Geosci. Model Dev., 5, 1471-1492 (2012), The model of emissions of gases and aerosols from nature version 2.1 (MEGAN2.1): An extended and updated framework for modeling biogenic emissions.
- 2) Pedregosa et al.: JMLR 12, 2825-2830 (2011), Scikit-learn: Machine Learning in Python.
- 3) Wessel, P., and Smith, W. H. F.: J. Geophys. Res., 101(B4), 8741-8743 (1996), A global, self-consistent, hierarchical, high-resolution shoreline database.
- 4) Kurokawa, J., and Ohara, T.: Atmos. Chem. Phys., 20, 12761-12793 (2020), Long-term historical trends in air pollutant emissions in Asia: Regional Emission inventory in ASia (REAS) version 3.
- 5) Crippa, M., Guizzardi, D., Muntean, M., Schaaf, E., and Oreggioni, G.: European Commission, Joint Research Centre (JRC) [Dataset] PID: <http://data.europa.eu/89h/377801af-b094-4943-8fdc-f79a7c0c2d19> (2019), EDGAR v5.0 Global Air Pollutant Emissions.
- 6) 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., and Kasibhatla, P. S.: , Earth Syst. Sci. Data, 9, 697-720 (2017), Global fire emissions estimates during 1997-2016.
- 7) Chatani S., Shimadera H., Itahashi S., Yamaji K.: Atmospheric Chemistry and Physics,

- 20, 10311-10329 (2020), Comprehensive analyses of source sensitivities and apportionments of PM_{2.5} and ozone over Japan via multiple numerical techniques.
- 8) Sakurai T., Ito, M., and Hanayama, S.: Asian J. Atmos. Environ., 15, 2020096, (2021), Development of air pollutants emission inventories for ships around Japan on a high geographical resolution.
- 9) Carn, S., Fioletov, V., McLinden, C., Li, C., and Krotkov, N. A.: Sci. Rep., 7, 44095 (2017), A decade of global volcanic SO₂ emissions measured from space.
- 10) Zheng, B., Tong, D., Li, M., Liu, F., Hong, C. P., Geng, G. N., Li, H. Y., Li, X., Peng, L. Q., Qi, J., Yan, L., Zhang, Y. X., Zhao, H. Y., Zheng, Y. X., He, K. B., and Zhang, Q.: Atmos. Chem. Phys., 18, 14095-14111 (2018), Trends in China's anthropogenic emissions since 2010 as the consequence of clean air actions.
- 11) 森川多津子ほか、自動車技術会論文集, 52(6) (2021), 2050年の将来推計シナリオにおける大気環境－自動車技術会2050年チャレンジと大気質予測－
- 12) G. Wang, J. Deng, Y. Zhang, Q. Zhang, L. Duan, J. Hao, and J. Jiang: Science of the Total Environment, 741, 140326 (2020), Air pollutant emissions from coal-fired power plants in China over the past two decades.

Ⅱ－３ 大気汚染物質濃度解析データセットの作成および排出量逆推計システムの開発

国立大学法人九州大学応用力学研究所 教授 弓本 桂也

一般社団法人電力中央研究所サステナブルシステム研究本部主任研究員 板橋 秀一

〔要旨〕

大気環境の動態解析や大気汚染予測等に用いられる化学輸送モデルには、依然として不確実性が残されており、それらが誤差として予測やシミュレーション結果に反映されている。本課題ではこれら本課題では、これらの不確実性を減少させシミュレーションの確度を上昇させるため、化学輸送モデルへのデータ同化手法の導入と客観解析データセットの開発、および排出量逆推計システムの開発と最新の地球環境監視衛星を用いたNO_x排出量の最適化を研究目標とする。

二次元変分法を用いた大気汚染物質解析システムを開発した。開発したシステムに用い、大気汚染物質広域監視システムによる観測データを同化することで、2013年から2018年の6年間にわたるPM_{2.5}および光化学オキシダント濃度分布を高い精度で再現した。同化過程で得られた統計量は対象とした化学輸送モデルにはPM_{2.5}と光化学オキシダントで傾向の異なるバイアスが存在することを明らかにした。同化で得られた濃度場を再解析データプロダクトとして整備し、webを通じて公開した。

排出インベントリを先験情報に化学輸送モデルと衛星観測データから排出量を最適化する排出量逆推計システムの開発を行った。逆推計の解像度は0.02度(約3km)とし、都市スケールで排出量の逆推計が行えるようにした。逆推計の結果、都市域よりも郊外での排出量の増加が目立った。この原因として、都市圏は領域の総排出量としてはインベントリの確度が高い一方、空間細分化に問題がある点があげられる。各地域を細かく見てみると、局所的な排出量の増減が見られ、また、その位置が発電所等の大規模排出源と重なる点もみられ、目標としていた逆推計による排出インベントリの空間分布の再配置につながる研究成果が得られた。

1. 研究開発目的

化学輸送モデルを用いた大気環境に対する数値シミュレーションは光化学オキシダントを始めとする大気質の動態解析や大気汚染予測等に用いられている。特に近年では地方自治体がそれぞれの大気環境改善のために研究ツールとして、予測ツールとして活用するケースも増えつつある。しかし、化学輸送モデルとその入力データには様々な不確実性が残されており、誤差として数値シミュレーション結果に反映されている。本課題では、これらの不確実性を減少させシミュレーションの確度を上昇させるため、化学輸送モデルへのデータ同化手法の導入と客観解析データセットの開発、および排出量逆推計システムの開発と最新の地球環境監視衛星を用いたNO_x排出量の最適化を研究目的とする。

2. 研究目標

2次元変分法を用いた大気汚染物質解析システムを開発し、化学輸送モデルの結果を先験情報に、大気汚染物質広域監視システムによる観測データを拘束条件に、PM_{2.5}や光化学オキシダントに対する1時間分解能の客観解析データセットを作成する。作成したデータセットをサブテーマ4やサブテーマ5に提供する。

地球環境監視衛星TROPOMIで観測された大気微量気体のデータを整備、解析を行う。サブテーマ2から提供された排出インベントリおよび化学輸送モデルの結果と、衛星データの比較を行うことで、国内NO_x排出量の精度を検証する。結果をサブテーマ2に還元する。

衛星観測データを用いたNO_x 排出量の逆推計システムを構築する。最新のNO_x 排出量を推定し、近年の大気汚染状況および推移を明らかにする。逆推計結果をサブテーマ2に還元する。また、SO₂ 排出量の逆推計システムの開発の検討を行う。

3. 研究開発内容

●大気汚染物質解析システムの開発および大気汚染物質濃度解析データセットの作成

図3.1に大気汚染物質解析システムの概念図を示す。大気汚染物質解析システムでは、化学輸送モデルの予測値を先験情報に、大気汚染物質広域監視システムの測定値を同化することによって、精度の高い客観解析データセットを構築する。同化手法には2次元変分法（Yumimoto et al., 2017¹⁾；Yumimoto et al., 2018²⁾）を用いた。次式に2次元変分法における評価関数を示す。

$$J_{\tau}(\tau) = \frac{1}{2}(\tau - \tau^f)^T \mathbf{P}_{\tau}^{-1}(\tau - \tau^f) + \frac{1}{2}(\tau^o - \mathbf{H}_l \tau)^T \mathbf{R}^{-1}(\tau^o - \mathbf{H}_l \tau), \quad (1)$$

ここで τ は化学輸送モデルで計算されたPM_{2.5}または光化学オキシダント濃度の予測値、 τ^o は大気汚染物質広域監視システムで得られたPM_{2.5}または光化学オキシダント濃度の測定値、 $\mathbf{P}_{\tau}$ PM_{2.5}または光化学オキシダント濃度の予測値に対する背景誤差共分散、 $\mathbf{H}_l$ はモデル空間から観測空間への写像を表す。式(1)から2次元変分法における解析値は、背景誤差共分散（ $\mathbf{P}_{\tau}$ ）および、観測誤差共分散（ $\mathbf{R}$ ）の逆数で重み付けされた評価関数によって決まることがわかる。そのため、両者の見積もりが解析値の精度を大きく左右する。なかでも、背景誤差共分散はモデルの予測精度を測るものである。本研究では、予測開始時刻の“ズレ”を利用し、擬似的なアンサンブルを作成することで、モデルの背景誤差共分散を計算する手法（Yumimoto et al., 2018）を採用した。

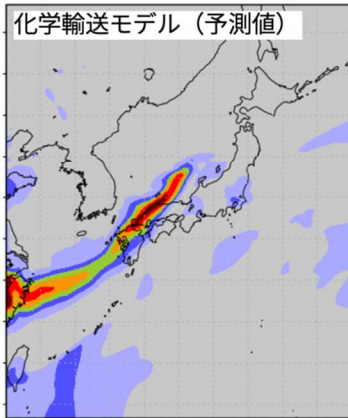
開発したシステムを用い、大気汚染物質広域監視システムで得られた観測データを同化することでPM_{2.5}または光化学オキシダント濃度の客観解析データを作成した。化学輸送モデルには領域化学輸送モデルであるCMAQを用い、計算設定は国立環境研究所が運用する大気汚染予測システム（通称VENUS）に準拠した。この化学輸送モデルの設定は排出量逆推計システムとも共通である。客観解析データは2013年から2018年の6年間を対象とし、作成したデータをサブテーマ間で共有する一方、webページを通じて公開を行った。

●排出量逆推計システムの開発とNO_x排出量の最適化

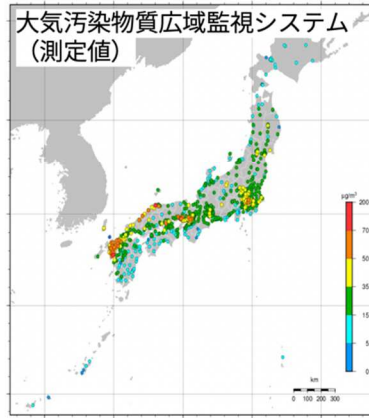
図3.2に排出量逆推計システムの概念図を示す。排出量逆推計システムでは、経済指標や統計量で算出されたボトムアップ排出インベントリを先見情報とし、衛星観測で得られたカラム濃度を拘束条件に、排出インベントリを最適化する。化学輸送モデルは排出量とカラム濃度の関係性の計算に用いる。本研究課題では、サブテーマ2より提供されたボトムアップ排出インベントリ（NO_x）と、2018年12月にデータ提供を開始したTROPOMIのNO₂対流圏カラム濃度を用いる。化学輸送モデルは大気汚染物質解析システムと共通とした。輸送の影響を極力減らすため、風速が3m/sec以下にデータに限り逆推計に用いる等の工夫を行った。逆推計の空間解像度は0.02×0.02度（約3km）であり、都市スケールでの推計を行った。これにより、実際の地図上での比較が可能となり、NO₂対流圏カラム濃度やボトムアップ排出インベントリと幹線道路や発電所や製造業等の固定発生源との対応関係を調べるができる。

大気汚染物質解析システム

PM2.5-first guess: 20170306_02UTC



+



同化

PM2.5-analysis: 20170306_02UTC

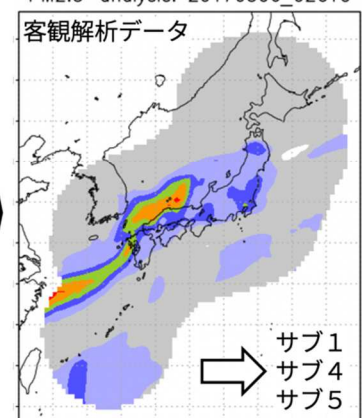


図3.1 大気汚染物質解析システムの概念

排出量逆推計システム

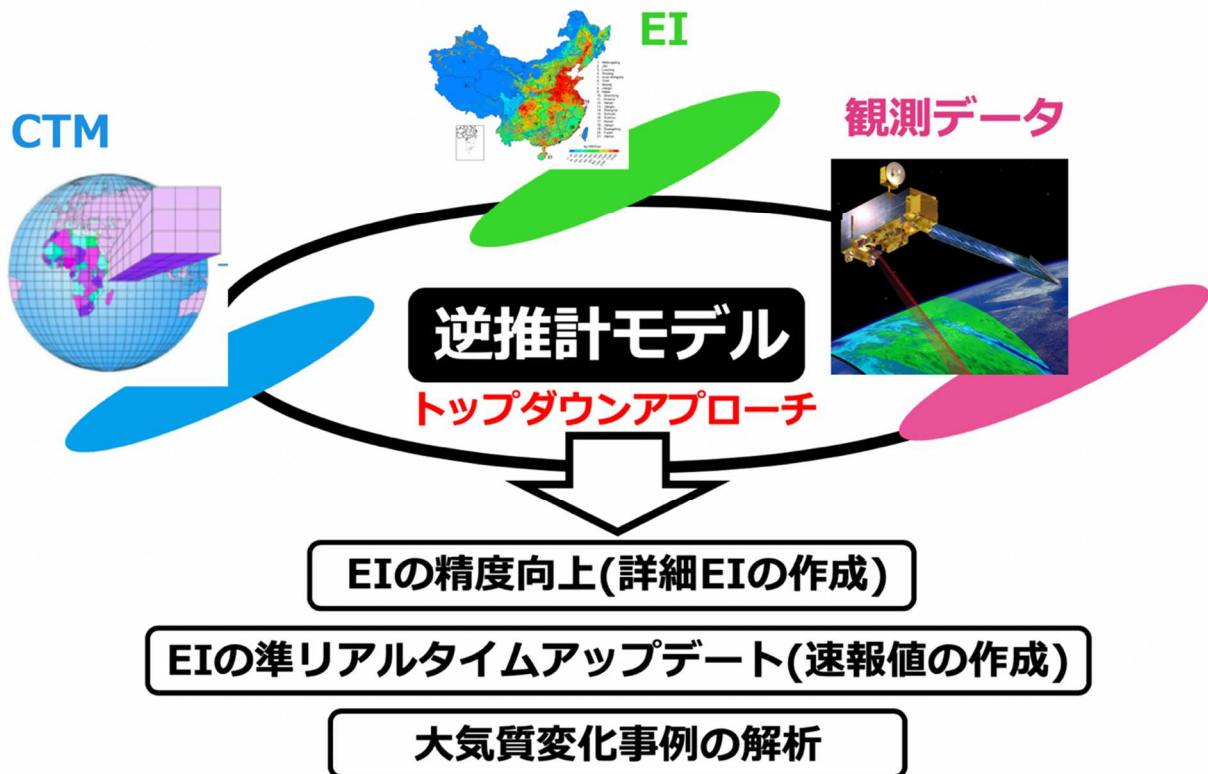


図3.2 排出量逆推計システムの概念

4. 結果及び考察

●大気汚染物質解析システムの開発および大気汚染物質濃度解析データセットの作成

研究開発内容で述べた大気汚染物質解析システムの開発を行い、大気汚染物質広域監視システムから得られた観測データを同化することで大気汚染物質濃度解析データセットの作成を行った。図3.3 東京、福岡における観測値（黒線）、解析データセット（赤線）、モデル予測値（同化無し、青線）の比較を示す。モデル予測値は観測で得られた時間変動を再現出来ているが、全体的に濃度を過大評価している。一方、観測データを同化した解析値は、モデル予測値に見られた過大評価を改善し、良い一致を見せている。観測値を横軸とした散布図をみると、モデル予測値は大きなばらつきを見せ、

重相関係数 (R^2) も0.23(東京)、0.28(福岡)と低い値であった。解析値は1対1の直線上に集まり、重相関係数 (R^2) も0.81(東京)、0.90(福岡)と大きく改善した。

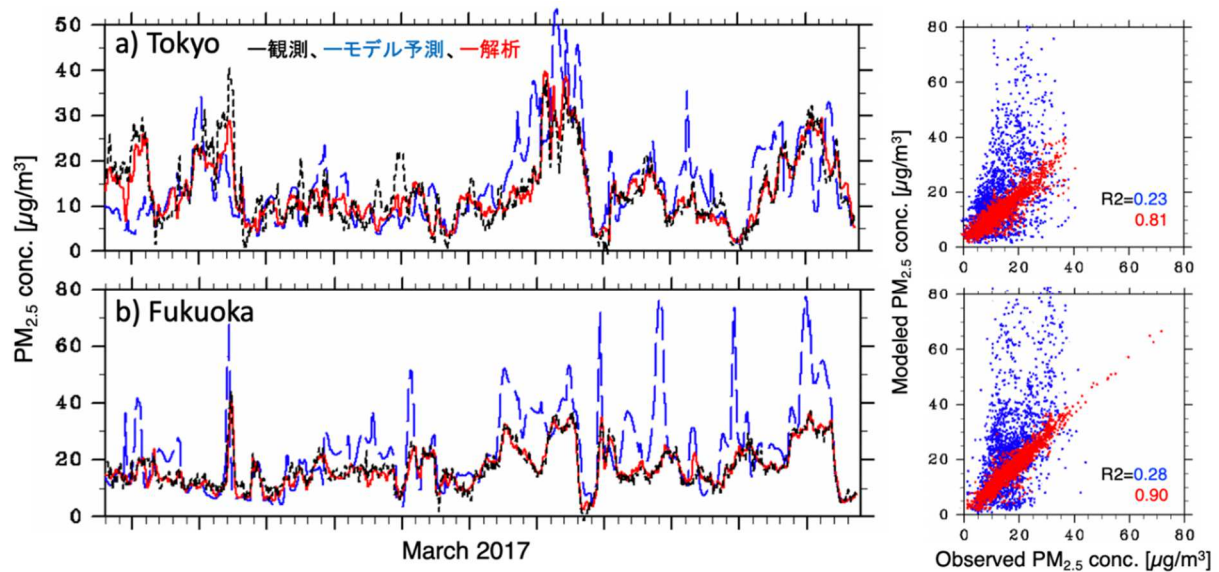


図3.3 東京および福岡におけるPM_{2.5}濃度の観測値（黒）、解析値（赤）、モデル予測値（赤）の2017年3月における比較。左図は時系列、右図は散布図。散布図中の数字は重相関係数(R^2)を示す。

図3.4に、2017年3月6日11時における大気汚染物質広域監視システムのPM_{2.5}観測値の分布と、作成した客観解析データセットのPM_{2.5}濃度観測値の分布を示す。大気汚染物質広域監視システムの観測値から、九州北部から山陰地方にかけて、関西（大阪、神戸）、関東地方に高濃度が観測されている。九州北部から山陰地方の高濃度は、大陸からの越境大気汚染がその要因であることが推察できるが、海上に観測点のないこともあり、その全体像を得ることは出来ない。また、関西および関東地方の高濃度が独立した（ローカルな）ものなのか？越境汚染の影響を受けたものであるのかも、地上観測網からでは断定することは難しい。客観解析データのPM_{2.5}濃度を見てみると、九州北部から山陰地方の高濃度は日本海から東シナ海へと細長く伸びた大陸起源の高濃度帯が原因であることがわかる。また、関西および関東地方の高濃度も越境大気汚染の影響よりも、ローカルな汚染が原因である可能性が高いことがわかる。このように、客観解析データセットは、観測地点の存在しない領域もカバーするため、汚染イベントの全体像やその起源等を知る上で重要な知見を提供することが出来る。

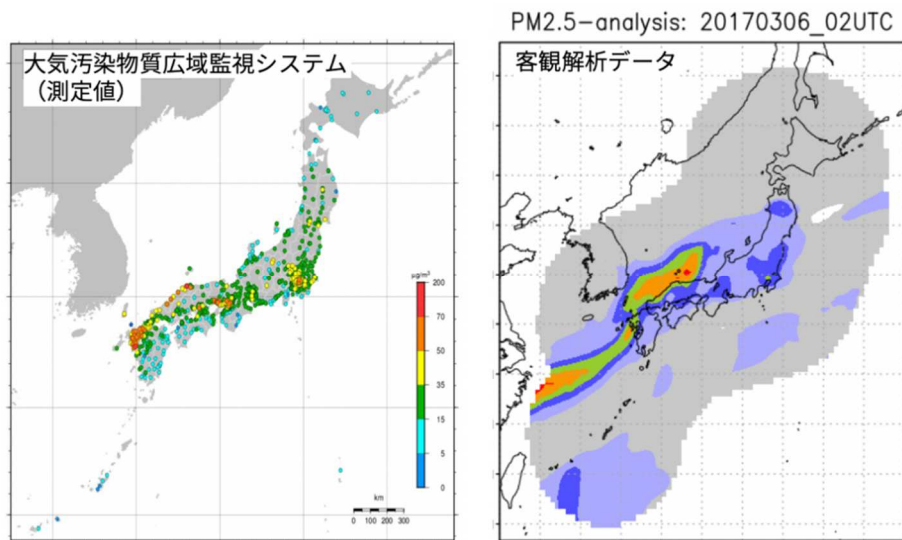


図3.4 2017年3月6日11時における大気汚染物質広域監視システムおよび客観解析データセットのPM_{2.5}濃度観測値の分布。

長期間の同化結果を解析することで系統誤差等、モデルの改良につながる情報が得られる。図3.5に2018年における同化で得られたインクリメント(同化による濃度の修正量)の分布を示す。オゾン濃度については都市域から地方までを含め、日本全域でモデルが過大評価であった。大気汚染物質の放出源の乏しい日本近海でも同様の過大評価が見られたため、バックグラウンドのオゾンを含めたモデルのポジティブバイアスの存在が推察される。一方、PM_{2.5}の濃度は地域によって異なる傾向を見せた。関東および関西地方では過小評価が見られた。これは排出源の過小評価が原因であると考えられる。鹿児島でみられた過小評価は、桜島の噴火の影響の過小評価が主な原因であると考えられる。中でも着目すべきは日本海側にみられた過大評価の地域である。北部九州から山陰地方、能登半島に至るまで帯状に続いており、日本海を渡って到来した、すなわち越境大気汚染の過大評価が推察される。

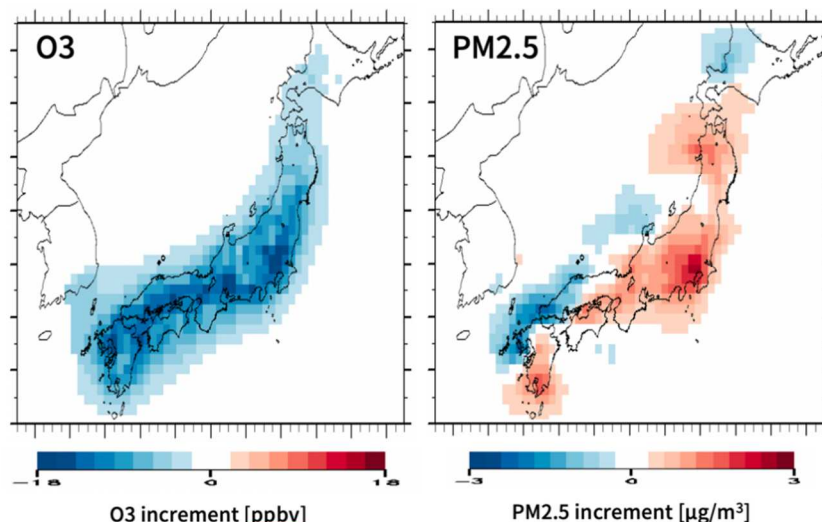


図3.5 2018年における解析インクリメントの空間分布。(左)オゾン、(右)PM_{2.5}。

これら、構築したデータセットはデータベースとして整備し、webを通じて公開している(図0.1)。データベースを活用した大気環境の動態解析や疫学研究等の影響評価への活用が期待できる。

●排出量逆推計システムの開発とNO_x排出量の最適化

排出量逆推計システムの開発の準備作業として、拘束条件に使う衛星観測データの整備および、ボトムアップ排出量(サブテーマ2より提供)、化学輸送モデルの結果との比較を行った。図3.6に仮想地球儀上にTROPOMIによるNO₂対流圏カラム濃度、ボトムアップNO_x排出量、ボトムアップNO_x排出量を用いて計算したCMAQの結果(NO₂対流圏カラム濃度)を示す。期間は2018年12月から2019年2月までの3ヶ月間である。CMAQによる計算結果は、太平洋ベルトを中心とした高濃度帯をよく再現している。一方、朝鮮半島の高濃度をCMAQは再現できていない。これは排出量の過小評価が原因の第一と考えられ、越境大気汚染時に予測計算に影響すると思われる。

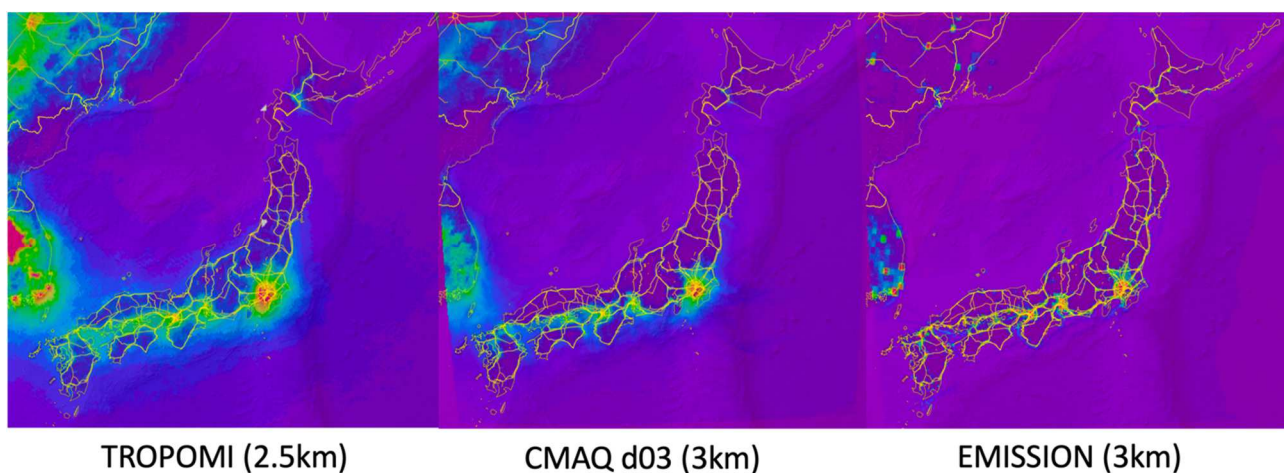


図3.6 仮想地球儀上に描画した（左より）TROPOMIによる NO_2 対流圏カラム濃度、ボトムアップ NO_x 排出量、ボトムアップ NO_x 排出量を用いて計算したCMAQの結果（ NO_2 対流圏カラム濃度）。

図3.7に図3.6の関東地方を拡大したものを示す。都心および幹線道路に沿って高濃度が見られ、CMAQでもよく再現されている。また、東京湾の東岸、日立市周辺など工業地域の高濃度も衛星観測、モデル両方で捉えられている。TROPOMIでは、東京都および神奈川県西部（国道16号線沿い）に高い濃度の領域が見られるが、CMAQの結果には見られず、対応する排出源もボトムアップ NO_x 排出量にも見られない。この国道16号線沿いのモデルの過小評価の原因を調べるため、サブテーマ2と連携のもと排出インベントリの見直しを行い、圏央道の開通の影響などを反映させたところ、当該地域の排出量が約10%増加し、その結果 NO_2 の濃度は3-5%増加し、過小評価を補う結果となった。最新の衛星観測とモデルの結果を都市スケールで比較することで、モデルの再現性を空間的にも（幹線道路や発電所等の大規模排出源）、時間的にも（操業や供用開始時期など）を詳細に検証することができる。

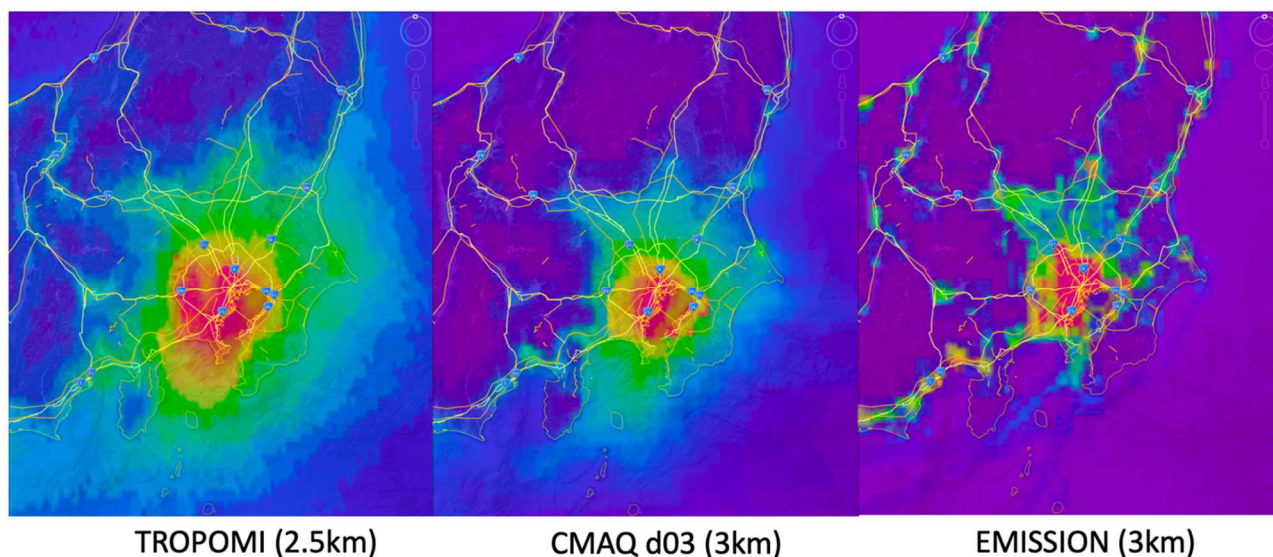


図3.7 図3.6と同一。ただし、関東地方を拡大。

前述の準備作業をうけて、逆推計システムの構築を行った（図3.2にシステムの概念図）。手法にはGreen関数法を採用し、移流の影響を排除するために風速が3m/sec以下のデータのみを用いた。逆推計の解像度は0.02度（約3km）とし、都市スケールで排出量の逆推計が行えるようにした。図0.2に逆推計システムから得られた逆推計結果を逆推計で最適化された排出量と先験情報となった排出インベントリの差で示す。逆推計によって日本全体の NO_x 排出量は33.9%増加した。地域別に見ると関東地方（主に京浜から京葉の地域）で排出量は減少し、都市域よりも郊外での排出量の増加がみられた。この原

因として、都市圏は領域の総排出量としてはインベントリの確度が高い一方、空間細分化に問題がある点あげられる。

図3.8に逆推計結果を関東地方および中部地方で拡大したものを示す。関東地方は京浜・京葉の工業地帯を中心に NO_x 排出量が減少した。これは、排出インベントリがこの地域の排出量を過大評価していることを意味する。一方、東京湾から相模灘にかけての航路と思われる地域で排出量が増大している。これは関東地方に限らず全国的にみられたが、船舶起源の排出量を過小評価しているためであると考えられる。鹿島では排出量を増やす地域と減らす地域が近接しており、排出インベントリのアロケーションが実際とは異なる可能性がある。関東地方の郊外では排出量を増やす傾向があり、秩父では大きく増加した。これは現地で操業しているセメント工場等が寄与している可能性がある。

中部地方は東の名古屋や半田・碧南で排出量が減少（インベントリの過大評価）、西の四日市で増加（インベントリの過小評価）している。碧南には世界最大級の石炭火力発電所があり、そこからの排出量を過大評価している可能性がある。名古屋や四日市は広域で過大・過小評価が生じている。

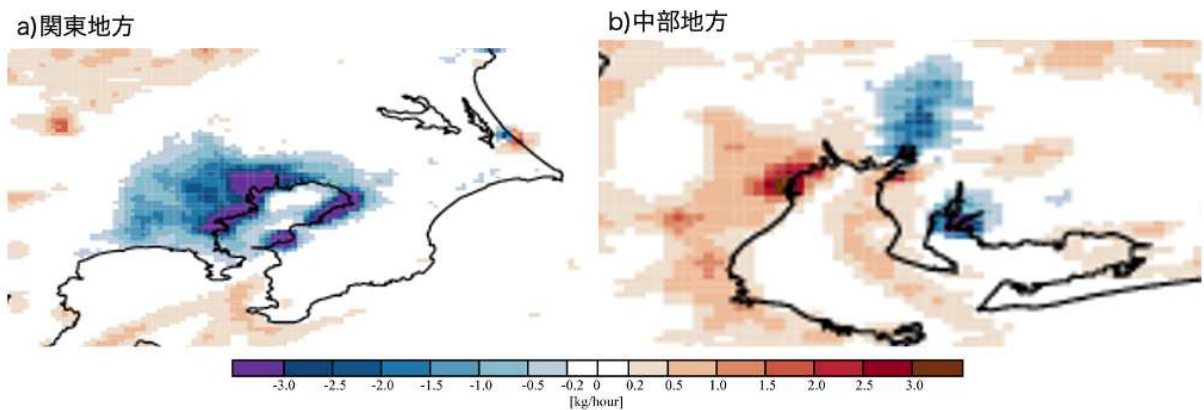


図3.8 図0.2と同一。ただし、関東地方および中部地方を拡大。

図3.9に逆推計結果を関西・中国地方および北部九州地方で拡大したものを示す。大阪や神戸では排出量が減少した。関東や中部地方でもそうであったが、大都市圏の中心では排出量を減らす傾向がある。徳島に見られる排出量の減少はこの地で操業している石炭・石油発電所群の排出量の過大評価によるものだと考えられる。香川坂出および対岸の倉敷付近でも排出量減少が見られるが、同様に当地の石油発電所の排出量の過大評価によるものだと考えられる。一方、地方都市（新居浜、西条など）では排出量が増えている。北部九州地方は、山口の美祿で特徴的な排出量の増加がみられる。これは当地のセメント工場の排出量を過小評価したことが原因であると考えられる。北九州は関門海峡を挟んで、北部で減少、南部で増加となった。南部の増加は当地のセメント工場や空港の影響が考えられる。別府湾の南岸の発生量が増加している地域は火力発電所や製鉄所が操業している地域である。

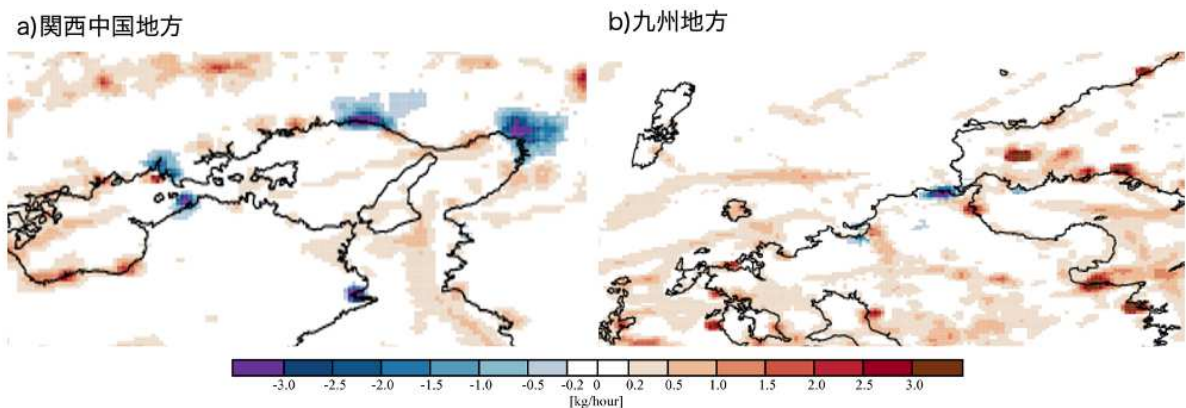


図3.9 図0.2と同一。ただし、関西中国地方および北部九州地方を拡大。

NO_xに加え、SO₂の排出量逆推計実行の検討を行った。衛星によるSO₂の観測は、NO₂と比べてもノイズが非常に多く、その結果、逆推計で最適化された排出量にもノイズが含まれ、これが実際の排出量の過小・過大評価によるものであるのか、衛星観測に含まれるノイズによるものなのかの判別が困難であった。今後は、衛星観測の技術発展に加え、対象期間を延ばしデータ数を増やすことでノイズの統計的除去等が正確なSO₂排出量の推定には必要である。

5. 研究目標の達成状況

研究目標で掲げた課題をすべて達成した。

大気汚染物質解析システムの開発を行い、2013年から2018年の6年間におよぶ客観解析データセットをPM_{2.5}および光化学オキシダントに対して作成し、webを通じて公開した。

地球環境監視衛星TROPOMIおよび化学輸送モデルのシミュレーションから得られたNO₂対流圏カラム濃度を比較し、化学輸送モデルに含まれるバイアスとその地域性を明らかにした。

排出量の逆推計システムを構築しTROPOMIの観測データを用いたNO_x 排出量の逆推計を行った。また、SO₂ 排出量逆推計の実行の検討を行った。

6. 引用文献

- 1) Yumimoto, K., Tanaka, T. Y., Oshima, N. and Maki, T.: JRAero: The Japanese Reanalysis for Aerosol v1.0, Geosci. Model Dev., 10(9), 3225-3253, doi:10.5194/gmd-10-3225-2017, 2017.
- 2) Yumimoto, K., Tanaka, T. Y., Yoshida, M., Kikuchi, M., Nagao, T. M., Murakami, H. and Maki, T.: Assimilation and forecasting experiment for heavy siberian wildfire smoke in may 2016 with himawari-8 aerosol optical thickness, J. Meteorol. Soc. Japan, 96B, 133, doi:10.2151/jmsj.2018-035, 2018.

Ⅱ－４ 関東における光化学オキシダントの発生源種別・地域別寄与割合の推定

神奈川県環境科学センター 小松 宏昭

【要旨】

サブテーマ 1 が開発するシミュレーション支援システム(以下、APOLL0)を活用して任意の排出量データを作成し、シミュレーション技術を用いた解析を行うことにより、関東地域を対象として光化学オキシダント(O_x)生成に影響を及ぼす発生源の種類の寄与割合を明らかにすることを目的とした研究を実施した。

はじめに関東地域における高濃度 O_x の発生状況を把握するため、大気の時常監視データを用いた解析を実施した。その結果、近年は大規模な高濃度事例が減少傾向にあり、比較的規模が小さい、より地域的な汚染の影響を受けた高濃度事例が発生していること、月最高 O_x 濃度(8月)の経年変化は地域によって異なり、関東北部では減少傾向にあるものの南部の東京湾沿岸部などでは明確な減少傾向を示していないことが明らかとなった。

次に2017年7月に発生した高濃度 O_x 事例を対象として、APOLL0を用いて排出量データを作成し、シミュレーションモデルを活用して発生源寄与解析を行った。その結果、光化学スモッグ注意報が発令された時刻の O_x 濃度のうち、関東地域の NO_x 固定発生源の寄与割合が45%を占めていること、解析対象とした業種の中では電気業の寄与割合が高かったことなどが明らかとなった。

さらに、関東地域の固定発生源からの NO_x 排出量を20%削減した場合に関東域内の O_x 濃度がどのように変化するか検討したところ、化学工業、鉄鋼業からの排出量を削減した場合は主に千葉県でのみ O_x 濃度の減少がみられ、電気業からの排出量を削減した場合には東京都、千葉県、神奈川県の東京湾沿岸部と茨城県の一部で O_x 濃度の減少がみられることなどが明らかとなった。

また、当初計画になかったが、開発中であったAPOLL0の初期版を使用して2020年に神奈川県で発生した異臭事案を対象とした気象シミュレーションを実施した。その結果、発生源の推定地域は事例により異なり、複数の発生源が関与している可能性を示唆する結果が得られた。

1. 研究開発目的

光化学オキシダント(O_x)は全国的に環境基準達成率が低く、大気環境における喫緊の課題となっている。 O_x 生成の原因物質である窒素酸化物(NO_x)や揮発性有機化合物(VOC)の大気中濃度は減少傾向にあるものの、 O_x 濃度は原因物質ほど減少しておらず、神奈川県内には毎年注意報が発令されている。

O_x 濃度低減に向けた施策を検討するうえで、高濃度の O_x の生成に影響を及ぼす発生源を把握することは重要なテーマである。しかし、地方自治体等による大気汚染物質のモニタリングデータや各種統計データを用いて各発生源の影響を把握することには限界があり、仮想的に排出量を操作して発生源からの寄与割合を推定するシミュレーション技術を活用した解析が望まれる。

O_x の発生源の寄与割合を推計するには、複雑に構成された排出量データを設定した削減シナリオに従って複数作成する必要があるが、この操作には専門的な知識と技術が求められる。本県は2016年度から国立環境研究所等とのⅡ型共同研究に参加し、シミュレーションモデルを用いて $PM_{2.5}$ 高濃度の発生状況などを解析してきたが、排出量データを任意の条件で作成するのは困難であった。

そこで、サブテーマ 4 では、サブテーマ 1 で開発するAPOLL0を活用して任意の排出量データを作成し、シミュレーション技術を用いた解析を行うことにより、関東地域を対象として O_x 生成に影響を及ぼす発生源の種類の寄与割合を明らかにすることを目的とした研究を行うこととした。

2. 研究目標

計算解析対象とする事例、地域、項目についてサブテーマ 1 と協議しつつ選定を行い、計算解析に必要な気象データと排出量データを用意するなど、計算環境を整備する。

シミュレーション支援システムの初期版を用いて、 O_x の生成に影響を及ぼす発生源の地域別・種別別

の寄与割合を算出する計算解析を行い、結果をサブテーマ1にフィードバックする。シミュレーション支援システムの改良版を用いて発生源の寄与割合を算出する計算を実施し、解析結果をもとに関東の O_x 濃度低減に有効な発生源を明らかにする。

3. 研究開発内容

(1) 計算環境の整備及び高濃度発生状況の把握

本研究に使用する計算機や通信環境を所内に整備した。次いで関東地域における高濃度の発生状況の特徴を解析するとともに、発生源寄与解析の対象とする高濃度事例を選定した。高濃度の特徴把握に係る解析は2010～2018年度までの期間について、関東地域(1都6県)及び近隣県(山梨県・静岡県・長野県)の大気常時監視測定局(一般局：332局)の測定データを用いて実施した。

(2) 発生源寄与解析

発生源解析の対象とする業種を大気汚染物質排出量総合調査(環境省)の排出量データ¹⁾をもとに、表4.1に示す NO_x の固定発生源として4業種を選定した。 VOC は発生源種類が多岐にわたることから、今回は NO_x (固定発生源)を対象とした解析を優先して実施した。計算領域および計算条件は環境研究総合推進費(5-1601)の成果²⁾に基づき表2.1、表4.2、図4.1のとおり設定した。計算は助走期間を含め2017年6月23日から7月11日まで実施し、このうち解析は関東地域に光化学スモッグ注意報が発令された7月7日を中心に行った。詳細な発生源寄与解析は、神奈川県内で注意報が発令された川崎市内の常時監視測定局(川崎市中区役所保健福祉センター※¹139° 39' 21", 35° 34' 34")を対象として実施した。

発生源寄与の割合は、排出量を操作せず計算した結果と排出量をシナリオ別に削減して求めた計算結果とを用いて、 O_x 濃度の変化(感度≡寄与程度)から次式により求めた。

式) 発生源寄与(%)={通常計算濃度(d03領域)-シナリオ別に排出量を削減した計算濃度}*100 / {通常計算濃度(d03領域)*削減率※²⁾}

※1 現在、中原区役所地域みまもり支援センターに名称変更(本文では以降、中原Cと略す)

※2 削減率として0.2(20%削減)を設定した。

表4.1 発生源解析用のシナリオ及びシミュレーション支援システム(APOLLO)の設定

物質	シナリオ区分	業種(目標設定時)	APOLLOの設定				
			業 種	項 目	施設種	燃料種	物質
NO_x	N-A	化学工業	E16化学工業	燃料の燃焼：化学(1A2c)	ALL	ALL	NO_x
	N-B	鉄鋼業	E22鉄鋼業	燃料の燃焼：鉄鋼(1A2a)	ALL	ALL	NO_x
	N-C	電気業	F33電気業	燃料の燃焼：発電及び熱供給(1A1a)	ALL	ALL	NO_x
				燃料の燃焼：業務(1A4a)			
	N-D	その他(5A～C以外の全て)	上記以外の全業種	ALL	ALL	ALL	NO_x

表4.2 シミュレーションモデル及び計算条件

WRFv3.9.1		CMAQv5.2.1	
気象データ	NCEP FNL(ds083.3) CFSv2(ds094.0)	スキーム、モデル	水平/鉛直拡散: multiscale/acm2 水平/鉛直移流: Yamo / WRF 光解離定数: Inline 化学反応系: saprc07_ae6_aq(ebi)
土地利用データ	USGS対応土地利用データ (veg_jstream_usgs※)		
設定条件	短波波長:Dudhia 長波放射:RRTM 積雲対流:Kain-Fritsch 境界層:MYNN 3rd level TKE 地表面:Noah LSM		
領 域	d01(45km), d02(15km) d03(5km), 100hPa(34層)		

※d01の計算に使用する初期・境界条件はNCARによるMozart-4³⁾から作成。

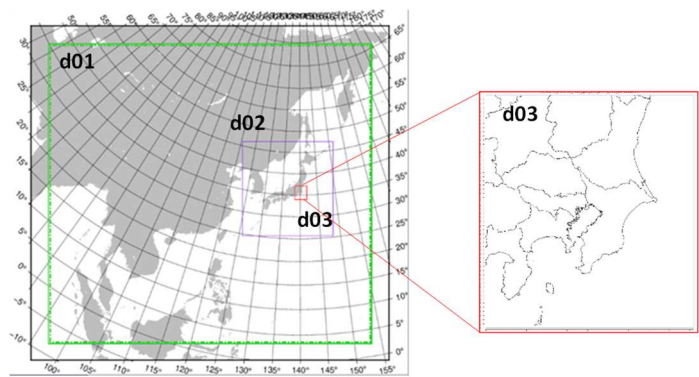


図4.1 計算領域

(3) 異臭事案の解析

2020年に神奈川県三浦半島を中心とした異臭事案が発生した。県環境科学センターは発生原因の究明に向けた解析を行う必要があったが、異臭通報が寄せられた三浦半島の沿岸部は周囲を海で囲まれており、地上の気象観測データだけでは発生源の範囲を検討できない状況にあった。そこで、本研究の当初計画になかったが、開発中であったAPOLL0の初期版を使用して異臭発生時の気象シミュレーションを実施した。具体的には2020年6月から10月までに発生した異臭事案のうち、通報件数の多い5事例を対象とした解析を行った。解析結果は行政機関の会議⁴⁾、大気環境学科年会⁵⁾及び県民を対象とした業績発表会⁶⁾において報告した。

4. 結果及び考察

(1) 高濃度発生事例の整理

O₃濃度が120ppbを2時間以上継続した場合に高濃度が発生したとみなして高濃度事例を整理した(表4.1)。対象期間中に高濃度日は182日発生した。年間の高濃度発生日数は、変動はあるものの2011年以降、概ね20日程度で推移していた。月別の発生状況をみると7月が最も多く全体の約38%(70日)であり、次いで8月の30%(55日)、6月の12%(22日)の順であった。高濃度が多く発生する7、8月について、高濃度の発生規模の推移をみたところ(図4.2)、同一日に40局以上で高濃度が観測された日数は、近年、減少する傾向がみられた。大規模な高濃度が発生しにくい状況となっていることから、最近では規模が小さい、より地域的な汚染の影響を受けた高濃度が発生していると推察された。次いで高濃度の経年変化に地域的な差異がみられるか検討した。測定地点別に月最高濃度の経年変化をO₃濃度と時間(年)との回帰直線の傾きとして求め、分布図としてまとめた(図4.3)。その結果、関東平野の北部は月最高濃度が減少傾向にあるものの、南部は特に東京湾沿岸部などで明確な減少傾向を示しておらず、濃度変化には地域差のあることが明らかとなった。

発生源解析の対象とする高濃度事例については、排出量データが概ね2016年度の統計値を基に作成されていることから、計算精度への影響を考慮して2015年以降に発生した事例から選定することとした。2015年以降の高濃度事例について、発生規模(同一日に高濃度が観測された局数)を目安に整理した(表4.4)。本研究では整理した期間のうちで規模が大きく、年度の新しい2017年7月の事例を選定した。

表4.3 高濃度日の発生日数(月別・年別)

	2010	2011	2012	2013	2014	2015	2016	2017	2018	計
3月								1		1
4月									2	2
5月	1	2			1	3	1	6	1	15
6月	3	3			5	2	1	5	3	22
7月	10	5	6	11	8	12	4	6	8	70
8月	12	11	1	11	4	5	2	3	6	55
9月	9	2	3				1		1	16
10月							1			1
計	35	23	10	22	18	22	10	21	21	182

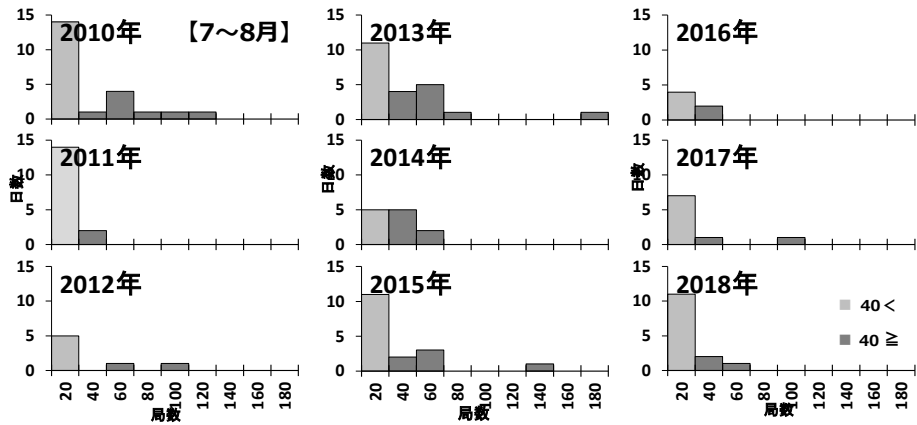


図4.2 同一高濃度事例における高濃度の発生日数(局数別)

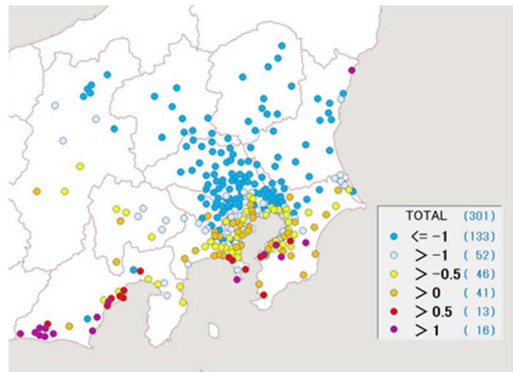


図4.3 月最高濃度の経年変化(8月)

表4.4 高濃度の発生事例

年	発生日と発生日数
2015年	①5/27(44)、②7/24~8/4(123)
2016年	①7/1(33)、②7/14(23)
2017年	①7/3(23)、②7/7~9(82)、③8/9(20)
2018年	①7/20~24(22)、②8/1~4(41)

カッコ内数値は同一日に高濃度が発生した局数

(2) 発生源寄与解析

通常の排出量を用いた計算結果と測定値を図4.4に示す。計算値は概ね日内変動を再現していたが、7月7日前後については、測定値の夜間濃度が20ppb以上を示したのに対し計算値は低下しており、過小評価する傾向がみられた。

神奈川県内に光化学スモッグ注意報が発令された7月8日の、中原Cにおける昼間のオキシダント濃度(6時~20時)の業種別の発生源寄与割合を図4.4に示す。関東域内のNO_x発生源の寄与割合は全体の4割を占めていた。業種別の内訳をみると今回検討した業種の中では電気業が最も多く(13%)、次いで鉄鋼業(3%)及び化学工業(3%)となった。関東域内の「その他業種(NO_x排出)合計」は21%を占めていた。

次いで時刻別の寄与割合と寄与濃度を検討した(図4.6、4.7)。注意報が発令された時刻は11時20分から15時20分にかけてであり、発令前の9時の時点で関東域内のNO_x発生源全体の寄与割合は30%程度であったが、発令中の13時には45%程度へと高くなっていた。この間、設定したすべての業種で寄与割合は高くなったが、なかでも電気業の割合が3%程度から15%程度へと高くなっていた。

さらに、NO_x排出量の削減が関東地域のO₃濃度に及ぼす影響を検討した。解析対象とした7月8日の11時から14時までのオキシダント濃度を図4.8に示す。この期間中は高濃度のO₃が東京湾沿岸部に集中して発生していたことが確認できた。NO_x排出量を削減した場合に、どの地域でO₃濃度に変化を及ぼすのかを把握するために、通常の排出量で計算したO₃濃度と排出量を削減して計算したO₃濃度の比を業種別に図4.9に示す。化学工業(A)、鉄鋼業(B)からのNO_x排出量を削減した場合、O₃濃度の減少は主に千葉県でみられたが、電気業(C)からのNO_x排出量を削減した場合には東京湾沿いの東京都、千葉県、神奈川県に加え茨城県でもO₃濃度の減少がみられた。設定したA~C以外の全業種のNO_x排出量を削減した

場合(D)には、関東平野内の広い地域で O_3 濃度の減少がみられた。同様の比較を夜間についてみたところ、主に千葉県において O_3 濃度が増加する結果となった(図4.10)。これは排出量を削減したことで大気中の NO_x 濃度が低下し、 NO_x によるオゾンのタイトレーション効果が抑制されたためと推察された。

今回、シミュレーションモデルを用いて業種別の発生源寄与割合を検討したところ、高濃度の O_3 生成に及ぼす発生源として関東地域の NO_x 固定発生源の寄与割合が高いこと、検討した業種のうち電気業の割合が高いことを示す結果が得られた。電気業は各種の事業活動や県民の生活を支える基幹産業であり、排出量の削減を行うには企業、県民を含めて幅広く取り組みを進める必要がある。一方で設定した大規模な排出業種の除いた業種でも NO_x の排出量を削減した場合に関東平野の広い地域で O_3 濃度が低下する結果も得られており、関東全体で O_3 濃度を低減するためには、地域全体で業種を問わず広く連携して取り組みを進める必要があると考えられた。

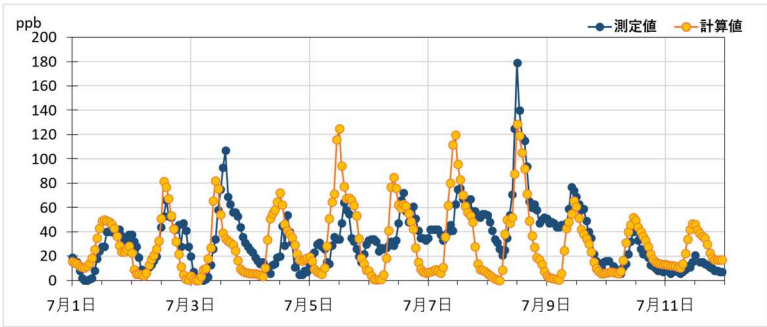


図4.4 対象期間中の O_3 濃度(測定値及び計算値) 川崎市中原区

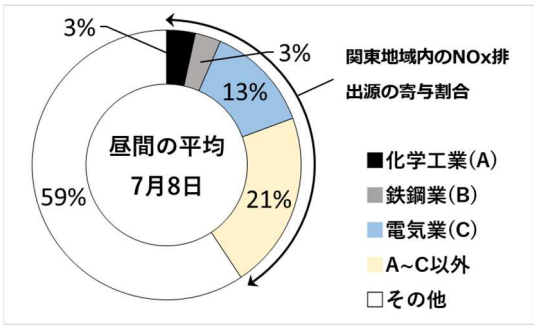


図4.5 業種別の発生源寄与割合(昼間の平均)

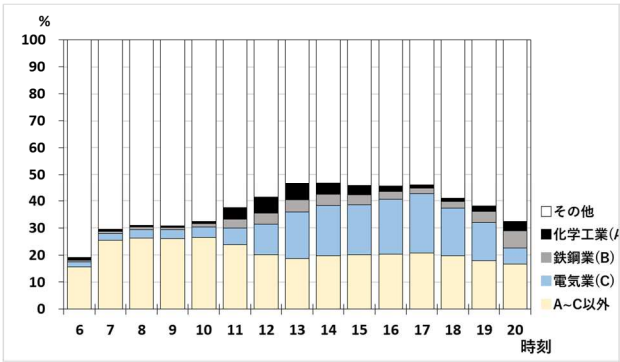


図4.6 業種別の発生源寄与割合(時刻別)

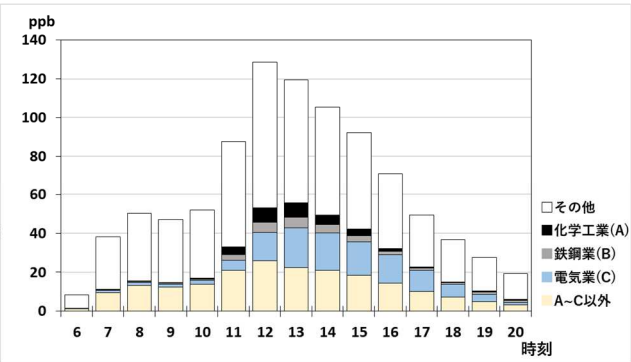


図4.7 業種別の発生源寄与濃度(時刻別)

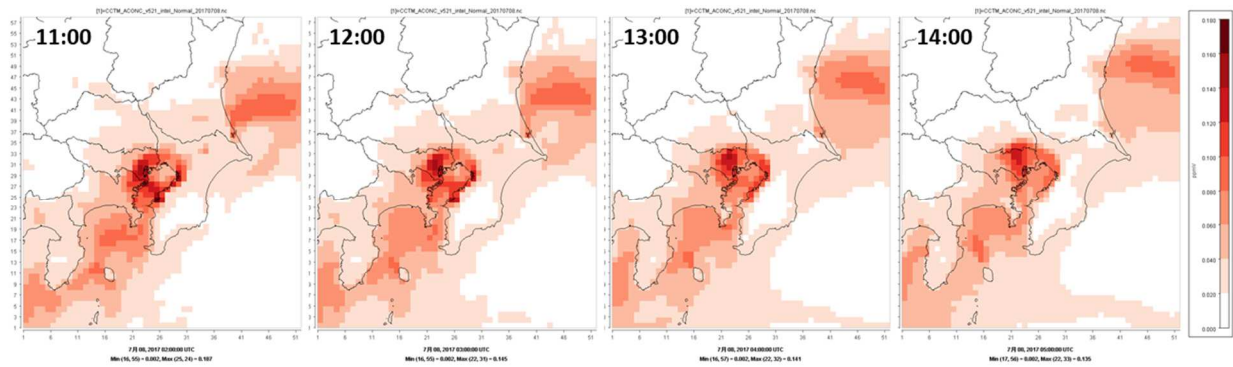


図4.8 オキシダント濃度分布

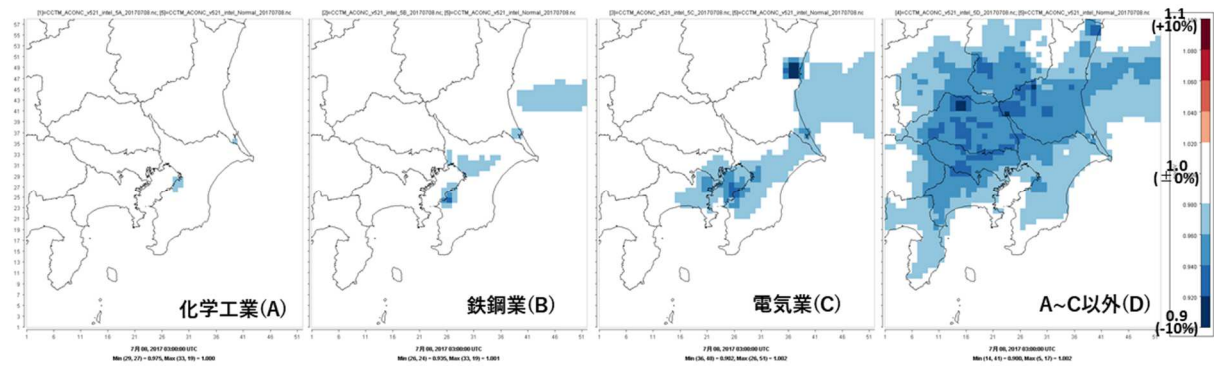


図4.9 NO_x排出量の削減によるO_x濃度の変化(2017年7月8日12:00)

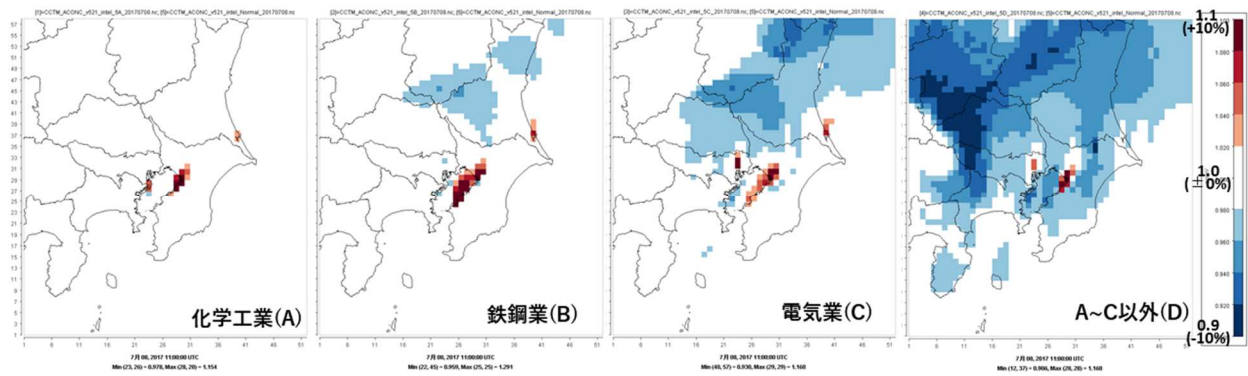


図4.10 NO_x排出量の削減によるO_x濃度の変化(2017年7月8日20:00)

(3) 異臭事案の解析

異臭通報件数の多かった5事例について、気象モデルによる計算結果を風向別に整理して図4.11に示す。通報件数が200件を超えた6月4日の事例をみると、通報地点は時間によって三浦半島の東側から西側に異動しており、この時の風向を考慮すると発生源は三浦半島の南側の広い範囲①②にあった可能性が考えられた。さらに、その他4事例を含めて異臭発生時の風向をみると、発生源の推定地域(図中の破線地域①)は事例により異なることが確認された。通報時のにおい質も一致していないことから、異臭の発生源は事例によって異なり複数存在する可能性が考えられた。したがって、異臭発生の原因究明に向けた検討には複数のアプローチ(ヒアリングを行う際の対象事業者や分析機器(特に検出器の種類))を想定して取り組む必要があると考えられた。

今回、県として県民ニーズの高い異臭事案への対応が求められる中で、シミュレーション支援システム(APOLLO)を利用することで迅速に気象シミュレーションを実施することが可能となった。また、

解析結果は県が主催する行政会議の資料として活用することができた。

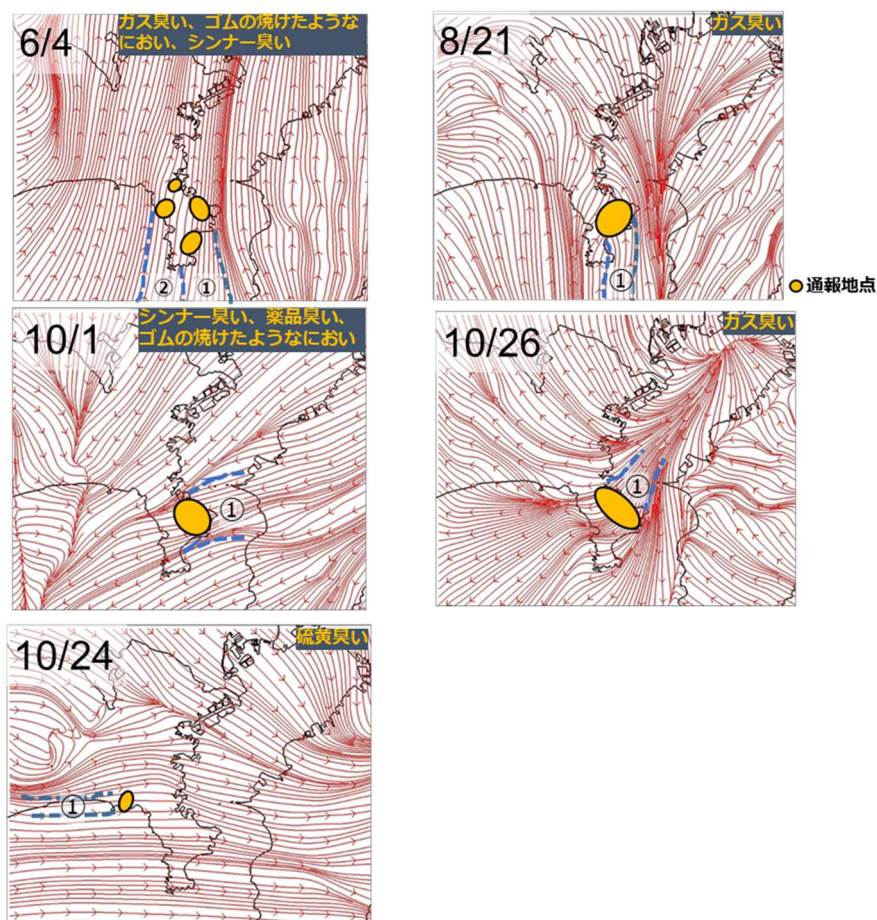


図4.11 異臭発生時の風向解析

上段：南風(6/4、8/21)、中段：東風(10/1、10/2)、下段：西風(10/24)

5. 研究目標の達成状況

計算環境の整備については、計画通り実施することができた。発生源寄与割合の算出については、開発されたシミュレーション支援システム(APOLLO)を活用することにより、光化学スモッグ注意報発令時の高濃度 O_x のうち、関東地域の NO_x 固定発生源が45%の影響を及ぼしていること、なかでも電気業の寄与割合が高いことなどが確認され、研究目標である O_x 濃度低減に有効な対象業種を推定することができた。

また、当初の研究計画にはなかったが、神奈川県として緊急対応を要する異臭事案に対して、本研究で開発されたAPOLLOを活用することとで、迅速な気象シミュレーションの実施が可能となり、県が主催する会議で解析結果を活用することができた。

6. 引用文献

- 1) 大気汚染物質排出量総合調査: <https://www.env.go.jp/air/osen/kotei/index.html>, 環境省(2022.4アクセス)
- 2) 環境研究総合推進費(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」成果公開: <https://www.nies.go.jp/chiiki/jstream.html>, 国立環境研究所(2022.4アクセス)
- 3) MOZART-4/MOPITT Chemical Forecasts: <https://www.acom.ucar.edu/acresp/forecast/>, NCAR (2022.4アクセス)

- 4) 神奈川県東京湾沿岸域の広域異臭に係る連絡会会議、令和3年5月
- 5) 小松宏昭、武田麻由子、石割隼人、菅田誠治、第 62 回大気環境学会(2021)
2020 年に神奈川県で発生した異臭事案について
- 6) 小松宏昭、神奈川県環境科学センター業績発表会、(2021)
2020 年に神奈川県で発生した異臭事案について

II-5 九州北部における長距離輸送中の化学反応・濃度変化の影響評価

福岡県保健環境研究所

大気課	山村 由貴
環境科学部長	濱村 研吾
大気課	力 寿雄（平成31年度～令和2年度）
大気課	宮崎 康平（令和3年度）
水質課	中川 修平

〔要旨〕

九州北部では、冬から春にかけて九州の西に高気圧が位置すると、高気圧性循環に伴い度々越境移流に起因する高濃度の大气汚染が観測される。長崎県対馬（以下、対馬）、福岡県糸島（以下、糸島）を、このような気圧配置において海上を輸送された越境汚染の通過地点と到達地点に位置付け、この両地点において、高時間分解能の測定装置により1時間毎の HNO_3 ガスおよび NO_3^- 粒子濃度測定を行った。その結果、複数の越境汚染事例において、 HNO_3 ガスおよび NO_3^- 粒子濃度の詳細な時間変化を捉えることができた。

対馬と糸島の HNO_3 ガス濃度の関係において、両地点間には発生源がないことから、濃度の増減は沈着による減衰のみであり、通常は対馬の方が高濃度になると考えられる。しかし、春季の越境汚染事例では、糸島の HNO_3 ガス濃度が、その風上となる対馬の濃度より高くなる現象が観測された。この現象についてモデルを用いた解析を行ったところ、対馬では粒子として存在していた NH_4NO_3 が、輸送中の気温変化によって HNO_3 ガスと NH_3 ガスになり、糸島ではこの HNO_3 が上乘せされて観測されたことが現象の原因と推測された。冬季の越境汚染事例では、環境省が福岡大学（以下、福大）に設置した高時間分解能の測定装置による HNO_3 ガスおよび NO_3^- 粒子濃度測定結果も用いて、汚染気塊が対馬→糸島→福大と順に輸送される現象を捉えることができた。対馬・糸島間は海上、糸島・福大間は地上を輸送されたことに着目し、観測結果に合わせてモデル内の海面・地表面への HNO_3 ガス沈着速度を調整した。その結果、海面沈着速度を4.6倍、地表面沈着速度を16倍にすると、モデルの HNO_3 ガス濃度の観測再現性が向上することが分かった。

また、福岡県の行政的な事業としてもモデルを活用し、福岡県内の地域別の $\text{PM}_{2.5}$ および光化学オキシダント濃度予測を開始した。高濃度が予測される場合には、県公式LINEで県民へ通知を行うという、健康被害を未然に防ぐための対策を実施している。

以上のことから、観測・計算結果から化学的な知見を得る研究としての成果と、行政の環境施策に対する貢献の両方を得ることができたと考えられる。

1. 研究開発目的

大気汚染問題の対策検討に際し、発生源の寄与割合や将来予測が可能な数値モデルの活用は重要な手法の一つである。しかし、条件によっては数値モデル計算結果と観測結果に乖離がみられ、特に硝酸系粒子およびガスについてはその差が大きい傾向がある。このことから、数値モデルの精度向上を図るため、これらの物質について時間分解能の高い観測を行い、長距離輸送中の化学反応・濃度変化を詳細に把握し、数値モデル計算へ反映することを目的としている。

2. 研究目標

九州北部では、越境大気汚染が高い寄与割合を占めている。長距離輸送過程における化学反応・濃度変化について解析するために、 $\text{PM}_{2.5}$ および光化学オキシダント生成に寄与し、輸送中の変化が大きくモデル再現性の低い HNO_3 ガスについて、糸島および福岡県内において、濃度を高時間分解能で測定する。測定結果と既存観測による $\text{PM}_{2.5}$ 濃度および成分濃度や光化学オキシダント濃度と、サブテーマ1～3で開発したデータセットと支援システムを用いた数値解析結果を、物質・成分ごとに比較検討し

再現性を評価する。

精度を高めたモデルを用いて、季節変化や輸送経路など様々な条件で長距離輸送される $\text{PM}_{2.5}$ および光化学オキシダントの化学反応・濃度変化機構を明らかにし、濃度削減に益する知見を得る。

3. 研究開発内容

3. 1 HNO_3 ガス濃度測定

HNO_3 ガス濃度の測定には、1時間毎に自動で HNO_3 ガス濃度が測定可能な、紀本電子工業製反応性窒素酸化物自動計測器（以下、NA-724）を用いた。観測地点は、大陸から福岡への長距離輸送の経由地点であり、周囲に大規模な発生源がない「長崎県国設対馬酸性雨測定所」（以下、対馬）および九州北部沿岸で都市汚染の影響を受けにくい「糸島市志摩局」（以下、糸島）とした。対馬には、 $\text{PM}_{2.5}$ に含まれる成分を1時間毎に自動で測定可能な、紀本電子工業製大気エアロゾル化学成分連続自動分析装置（以下、ACSA-14）も設置した。観測は2019年9月から2021年9月まで2年余り実施した。また、地上輸送時の HNO_3 ガス濃度変化のモデル再現性を検証するため、環境省が福岡大学（以下、福大）に設置したURG社製浮遊粒子&ガス成分モニター（以下、URG-9000D）の観測データも使用した。URG-9000DもNA-724と同様に、1時間毎に自動で HNO_3 ガス濃度を測定することが可能である。観測地点位置を図5.1に示す。



図5.1 観測地点位置

なお、NA-724は測定結果について評価した結果、 HNO_3 ガス濃度が過大評価となっていることが疑われたため、2019年3月、以下に示すように機器の改良を行った。

NA-724には、採気した大気から粒子を除去するためのダストフィルターが装備されている。しかし、 330°C に温度制御しているコンバータ（ NO_2 を NO へ変換するもの）がダストフィルターの近くに配置されており、ダストフィルターが 40°C 付近まで加熱されていたことがわかった。その結果、ダストフィルター上に捕集された NH_4NO_3 粒子がこの温度状態で分解し、 HNO_3 ガスになることで、 HNO_3 濃度が過大評価となっていたと推定された。そのため、NA-724の前に別途粒子除去装置を設置し、 NH_4NO_3 を含む粒子を除去するとともに、分解しない状態でNA-724へ試料大気を送られるよう機器を改良した。粒子除去装置および測定器外観を図5.2に示す。



図5.2 粒子除去装置（左）および装置外観（右）

粒子除去装置では、試料大気中の粒子はバーチャルインパクターによって微小粒子と粗大粒子に分離され、テープ状のろ紙で除去される。さらに、1時間毎にろ紙の捕集面を自動送りすることで、ろ紙上に粒子が長時間存在しないようにしている。HNO₃濃度に対する改良の効果については4. 1で示す。

3. 2 気象／大気質モデルによるシミュレーション

気象モデルにはWRF、大気質モデルにはCMAQv5.0.2を用いた。気象データはNCEP-GDAS/FNL0.25 degreeを使用した。排出量データは、サブテーマ1～3で開発したデータセットを使用した。

計算領域はサブテーマ1と協議し、環境研究総合推進費研究課題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」で実施された領域大気質モデル間相互比較プロジェクトJ-STREAMの計算領域に準じたd01（東アジア域、45km×45km）、d02（日本域、15km×15km）に、NA-724を設置した対馬・糸島を含むd03（九州北部、5km×5km）を加えた。計算領域を図5.3に示す。

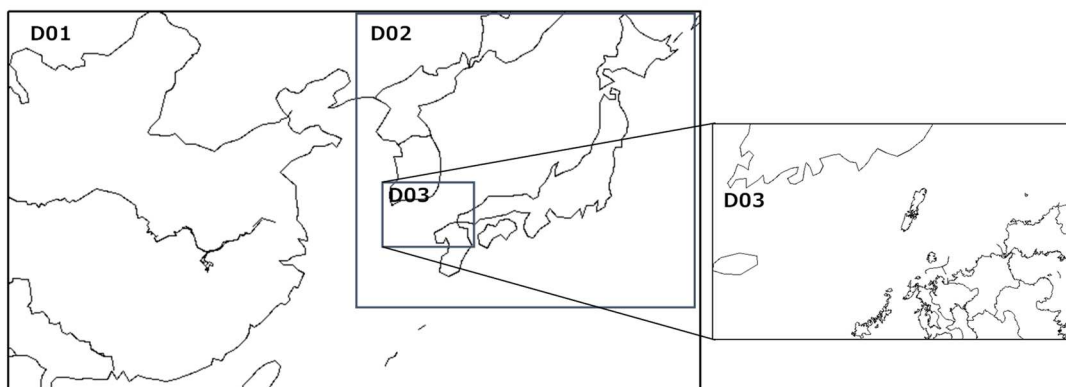


図5.3 WRF/CMAQ計算領域

4. 結果及び考察

4. 1 NA-724機器改良

対馬において粒子除去装置を設置したNA-724と従来のNA-724で並行運転を行った結果を、ACSA-14による微小粒子状NO₃濃度測定結果と共に図5.4に示す。NO₃濃度が上昇した時のHNO₃濃度は、従来の測定器の方が高濃度となる傾向がみられた（図5.4中矢印）。これは、従来の測定器はダストフィルター上に捕集されたNH₄NO₃粒子が変化し、HNO₃ガスとして測定されていたためと考えられる。この結果から、粒子除去装置の設置は、過大評価の改善に効果的であると判断し、2019年4月以降のHNO₃ガス観

測は、対馬・糸島共に粒子除去装置を設置したNA-724を用いて行った。

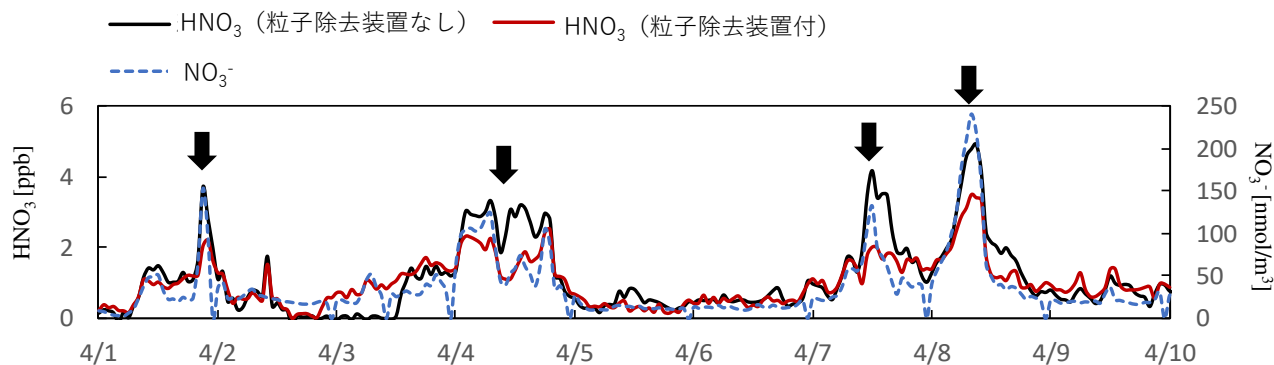


図5.4 粒子除去装置の有無によるNA-724でのHNO₃濃度比較及びACSA-14でのNO₃⁻濃度測定結果

4. 2 HNO₃ガスおよび粒子状NO₃⁻濃度の季節変化

NA-724改良後の2019年4月から2021年9月までの、対馬におけるHNO₃ガス及び微小粒子状NO₃⁻濃度の経月変化を図5.5に示す。また、図5.5のうち3-5月を春季、6-8月を夏季、9-11月を秋季、12月-2月を冬季として平均したものを図5.6に示す。

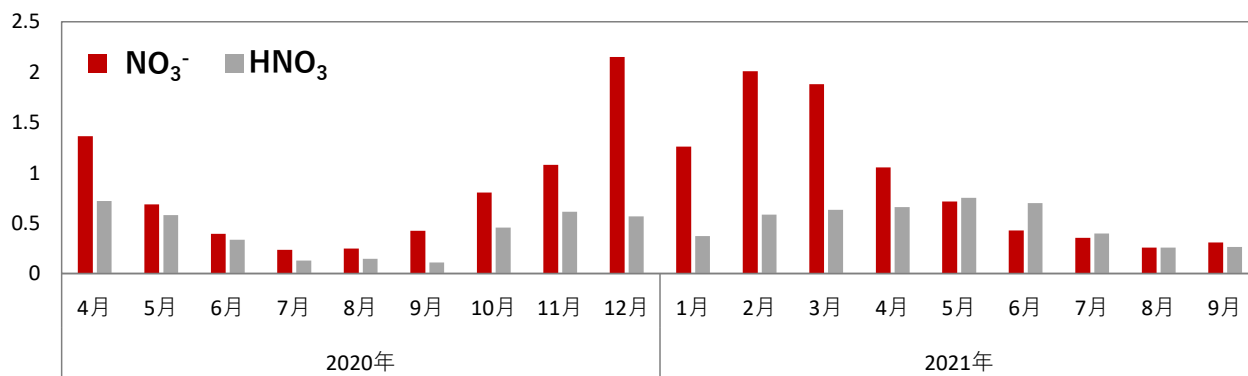


図5.5 対馬におけるHNO₃ガス、微小粒子状NO₃⁻濃度の経月変化

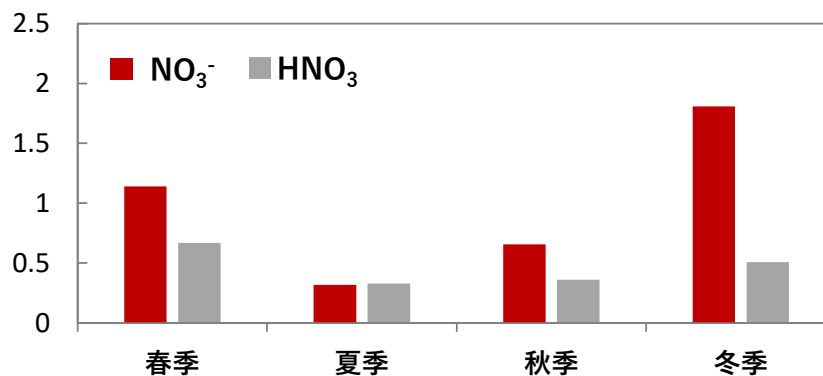


図5.6 対馬におけるHNO₃ガス、微小粒子状NO₃⁻濃度の季節変化

図5.6から、微小粒子状NO₃⁻は冬季に最も高く、次いで春季に高い傾向がみられ、一方HNO₃ガスは、春季に最も高く、次いで冬季に高くなる傾向がみられたが、季節による変動は微小粒子状NO₃⁻より小さい。

春季・冬季共に気圧配置等によって越境汚染の寄与割合が多い季節であるが、最も高濃度となった季節が微小粒子状 NO_3^- と HNO_3 ガスで異なる原因として、気温の差が考えられる。 NH_4NO_3 粒子は、気温が上がると $\text{NH}_4\text{NO}_3 \rightleftharpoons \text{HNO}_3 + \text{NH}_3$ の反応が右へ進み、 NH_3 ガスと HNO_3 ガスとして存在するようになる。図5.5の2021年3から5月の変化をみると、微小粒子状 NO_3^- は3月、4月、5月と気温が高くなるにつれて濃度が下がっていることが分かる。2020年4、5月についても同様の傾向がみられた。これは、気温の上昇に伴い、前述のような NH_4NO_3 の分解に起因すると考えられる。2020年4月には、越境輸送中に NH_4NO_3 の分解が起きたと推測される事例を捉えることができた。この詳細については、4. 2で記述する。

4. 2 長距離輸送中の化学反応・濃度変化機構

図5.7に2020年4月6日から10日の対馬、糸島における HNO_3 ガスと微小粒子状 NO_3^- 測定結果を示す。また、図5.8に糸島の上空1500mを起点とし、(a)は7日20:00、(b)は8日12:00から、どちらも72時間遡及した後方流跡線を示す。7日、8日共に中国大陆から朝鮮半島南部、対馬を経由し、糸島へ気塊が輸送されていた。7日については、対馬では微小粒子状 NO_3^- の鋭いピーク（図5.7中左側の青矢印）がみられた。 HNO_3 ガスは、濃度は上昇していたが、ピークはみられなかった。その後、糸島では対馬の微小粒子状 NO_3^- に類似した形状の HNO_3 の鋭いピーク（図5.7中左側の赤矢印）がみられ、その濃度は対馬の HNO_3 より高かった。一方8日については、7日と異なり、対馬で微小粒子状 NO_3^- 、 HNO_3 ガス共にピーク（図5.7中右側の青矢印）がみられ、その後糸島では対馬よりやや濃度の下がった HNO_3 のピーク（図5.7中右側の赤矢印）が観測された。

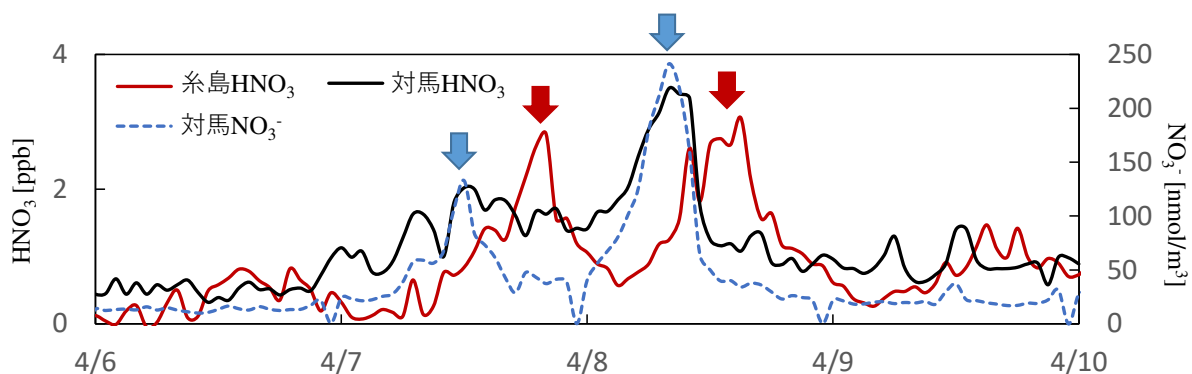


図5.7 対馬・糸島における HNO_3 ガス、微小粒子状 NO_3^- 濃度測定結果

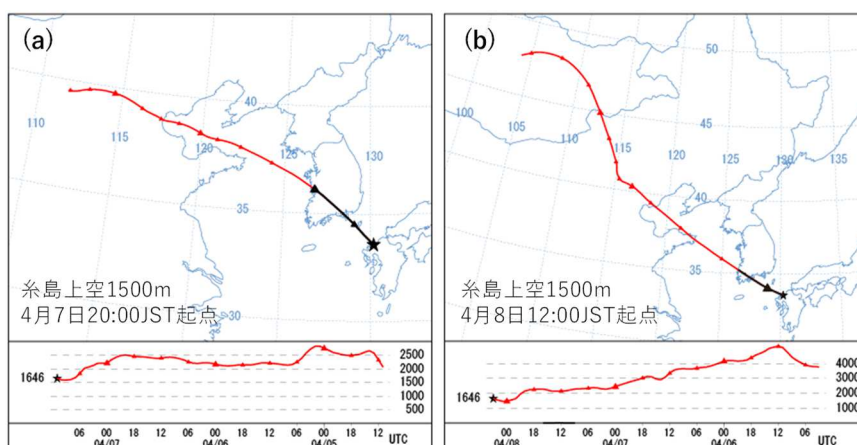


図5.8 糸島の上空1500mを起点とした後方流跡線解析結果

(a) 7日20:00から、(b) 8日12:00から 72時間遡及

図5.9に、図5.8の後方流跡線のうち、黒で示した期間の流跡線に沿った気温（コンター線）と湿度（赤コンター）のWRF計算結果（d03）を示す。7日は8日に比べて、気塊の移動速度がやや遅く、気温

の上がる昼過ぎから夕方にかけて対馬海峡を吹走していた。また、対馬海峡吹走中、気塊の地表面付近の湿度は、8日に比べて低かった。以上のことから、7日は対馬海峡付近で微小粒子状 NO_3^- の分解が促進され、糸島到達前に微小粒子状 NO_3^- の多くは分解し、越境輸送された HNO_3 ガスに上乘せされたと考えられる。一方8日は、7日に比べて微小粒子状 NO_3^- の分解により上乘せされた HNO_3 ガスが少なかったため、糸島では対馬よりやや低いピークが観測されたと推測された。

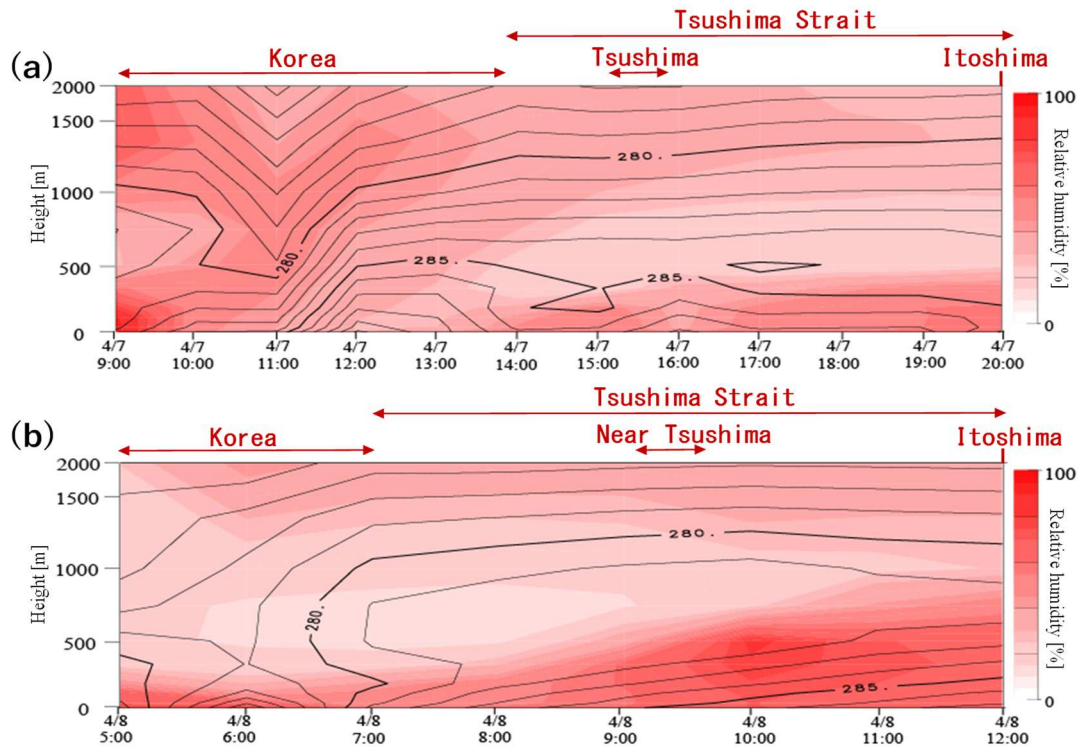


図5.9 後方流跡線に沿った気温[K]と湿度[%]計算結果

(a) 4月7日、(b) 4月8日

4. 3 大気質モデルの HNO_3 ガス沈着速度検証

4. 3. 1 検証対象事例の状況

モデル再現性が低い硝酸系粒子 (NH_4NO_3 等) および HNO_3 ガスについて、観測によって得られた高時間分解能の HNO_3 ガス濃度データと計算結果を比較し、モデルの HNO_3 ガス沈着速度を調整することによって再現性を向上させる試みを行った。検証対象事例は、4. 2で述べたような輸送中の NH_4NO_3 の分解による HNO_3 ガス濃度上昇の影響が少ない冬季で、高濃度 HNO_3 ガスを含む汚染気塊が対馬→糸島→福大と順に移動していた2021年1月16日の越境汚染事例とした。1月15日、16日9:00の天気図を図5.10に示す¹⁾。15日9:00に朝鮮半島に存在した前線を伴う低気圧が、16日9:00には北海道へ移動している。この低気圧の移動に伴い、15日に中国北東部から朝鮮半島にかけて伸びた寒冷前線が、16日には南西へ進み、九州まで移動していたことが分かる。

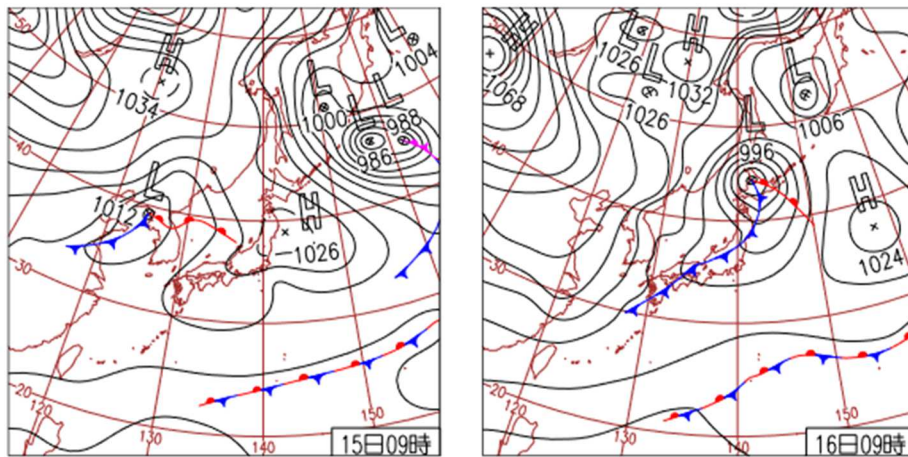


図5.10 2021年1月15日、16日9:00の天気図

このときの、対馬、糸島、福大における HNO_3 ガス、微小粒子状 NO_3^- の観測結果を図5.11に示す。

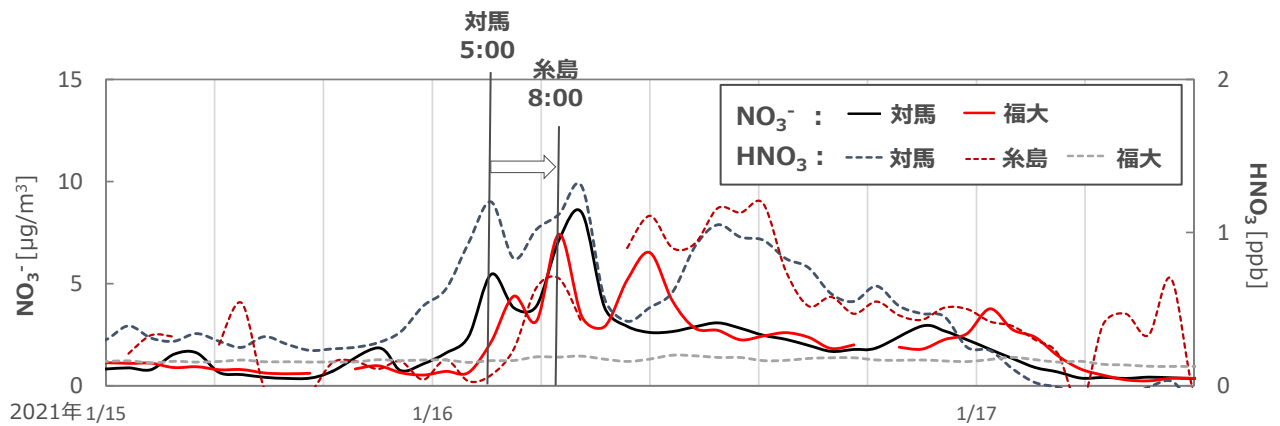
図5.11 対馬、糸島、福大における HNO_3 ガス、微小粒子状 NO_3^- の観測結果

図5.11から、対馬において1月16日5:00付近に HNO_3 ガス、微小粒子状 NO_3^- のピーク、その後8:00付近に糸島で HNO_3 ガス、福大で微小粒子状 NO_3^- のピークが確認できる。寒冷前線が中国大陸から日本に到達した場合、寒冷前線の後面に蓄積された高濃度汚染質により、寒冷前線通過後に高濃度が観測されることが多い²⁾。図5.11のピークから、図5.10の寒冷前線は5:00頃に対馬を通過し、その後8:00頃に糸島、福大を通過したと推測される。1月16日8:00の福大上空2000mを起点とした後方流跡線を図5.12に示す。

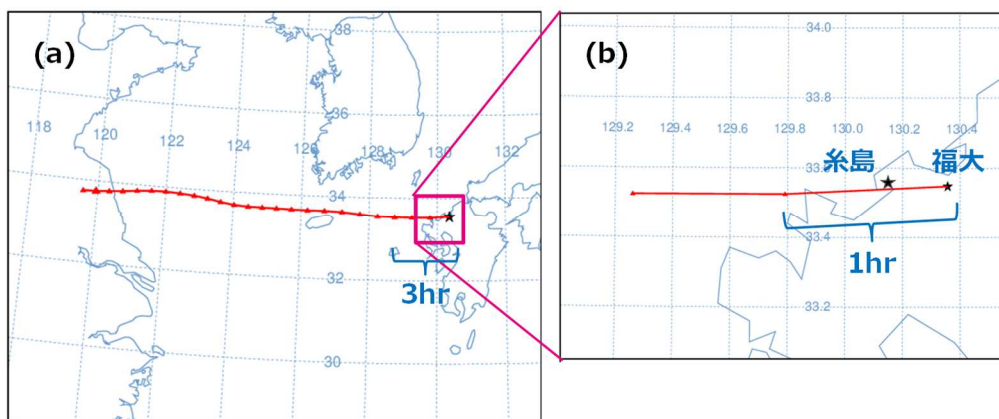


図5.12 1月16日 8:00 福大上空2000mを起点とした後方流跡線
((a) 24時間遡及、(b) 2時間遡及)

後方流跡線から、気塊が対馬付近→糸島→福大と順に輸送されていたことが分かる。また、対馬付近から糸島までは約3時間、糸島から福大までは1時間以内で輸送されており、これは図5.11の各地点のピークが観測された時間とも整合している。なお、福大では微小粒子状NO₃⁻のピークは確認されたが、糸島と異なり、HNO₃ガスのピークは確認されなかった。糸島からの輸送過程における地表面への沈着や、NH₃との反応によるNH₄NO₃への粒子化などが起きたためと考えられる。

4. 3. 2 大気質モデルのHNO₃ガス濃度計算結果

対馬、糸島、福大におけるHNO₃ガス、微小粒子状NO₃⁻のWRF/CMAQによる計算結果(d03)を図5.13に示す。図5.13から、微小粒子状NO₃⁻については観測と同様に対馬で5:00、糸島で8:00にピークが確認された。HNO₃ガスについてもピークを再現することはできていたが、出現時間が観測より1時間早くなっていた。モデル内のガスの輸送速度が実際よりも速い可能性が考えられる。また、各地点のHNO₃ガス、微小粒子状NO₃⁻濃度のピーク時の観測値・計算値を表5.1中に観測、計算CNTLとして示す。なお、ピーク時とは、HNO₃ガス、微小粒子状NO₃⁻観測値および計算値については対馬5:00、糸島及び福大8:00の値、HNO₃ガス計算値については対馬4:00、糸島及び福大7:00の値を示している。表5.1から、HNO₃ガス、微小粒子状NO₃⁻共に観測に対して計算が過大であることが分かる。

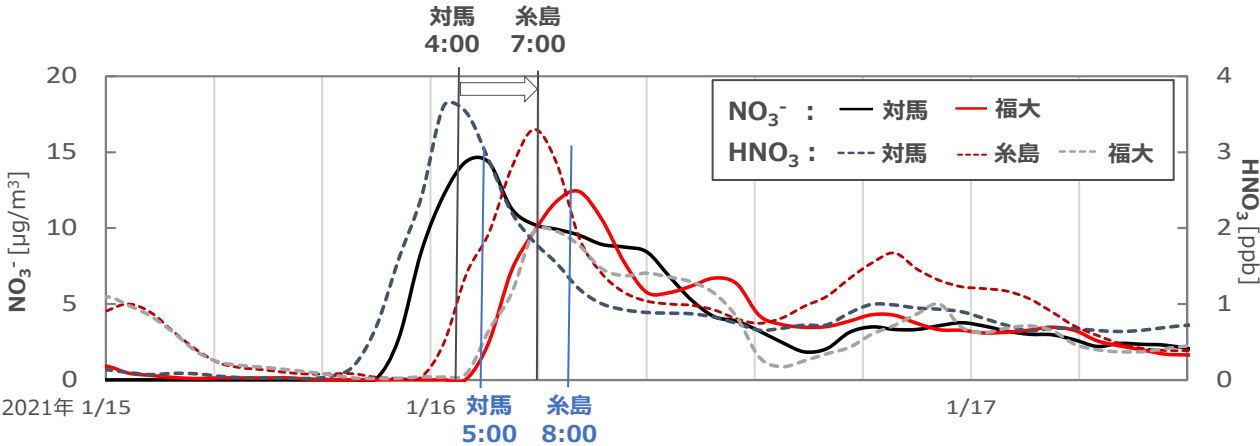


図5.13 対馬、糸島、福大におけるHNO₃ガス、微小粒子状NO₃⁻の計算結果

表5.1 対馬、糸島、福大における濃度ピーク時のHNO₃ガス、微小粒子状NO₃⁻濃度

		HNO ₃ [ppb]			NO ₃ ⁻ [µ g/m ³]	
		対馬	糸島	福大	対馬	福大
観測		1.2	0.7	0.2	5.4	7.4
	CNTL	3.5	3.3	2.0	14.3	12.4
計算	Dev_1	2.8	2.7	1.5	14.0	12.2
	Dev_2	1.5	1.6	0.5	13.2	10.9

HNO₃ガスを含む越境汚染気塊が対馬→糸島→福大と輸送される場合の概念図を図5.14に示す。越境輸送された汚染気塊は、対馬から糸島までは海上、糸島から福大までは地上を通過する。4. 2 で述べたような輸送中のNH₄NO₃粒子の分解が起こらない場合、糸島と対馬のHNO₃ガス濃度の差は主に海面への沈着によって生じると考えられる。



図5.14 HNO₃ガスの対馬→糸島→福大への越境輸送イメージ

4. 3. 3 (1) 大気質モデルの海面へのHNO₃ガス沈着速度検証

表5.1から、各地点間のHNO₃ガス濃度比を求めると、糸島／対馬の観測値は0.58、一方計算（CNTL）では0.94であった。このことから、モデルに含まれているHNO₃ガスの海面への沈着速度が過小である可能性が考えられる。そこで、各地点間の濃度比が沈着速度に反比例すると仮定し、モデル内の沈着速度を調整し、精度向上に対する検証を行った。HNO₃ガス濃度比は、観測0.58に対し計算0.94であり、計算が観測の1.6倍であることから、モデルの海面への沈着速度を1.6倍として再計算した。計算結果を、表5.1に計算Dev_1として示す。表5.1から、対馬、糸島のHNO₃ガス濃度がそれぞれ2.8ppb、2.7ppbであり、調整前に比べて過大評価の改善はみられたものの、まだ観測値より高い値となっていた。また、各地点間の濃度比は再計算後（Dev_1）が0.96であり、沈着速度変更前（0.94）からの変化は小さかった。沈着量は濃度に比例するため、海面沈着速度を大きくしたことで、対馬へ到達する気塊中のHNO₃ガス濃度は下がり、同時に対馬→糸島間の沈着量も減少したものと考えられた。

そこで、今度は沈着速度の変化と各地点のHNO₃ガス濃度の相関に着目し、沈着速度の値を調整することとした。対馬と糸島について、沈着速度調整前の濃度はそれぞれ4.5ppb、3.3ppb、調整後は2.8ppb、2.7ppbであることから、どちらも沈着速度調整により、濃度が0.80倍になっていた。対馬と糸島の濃度に対しては、ほとんどが海面沈着の影響であると考えられる。このことから、海面沈着速度を1.6倍すると、濃度は0.8倍になると仮定する。対馬と糸島の観測値は1.2ppb、0.7ppbであり、これは沈着速度調整前の計算値の0.34倍と0.21倍であり、平均すると0.28倍である。海面沈着速度を1.6倍すると濃度は0.8倍になるという反比例関係が維持されると仮定すると、濃度を0.28倍にするためには、海面沈着速度は4.6倍にする必要がある。

モデルのHNO₃ガスの海面への沈着速度を4.6倍して再計算した結果を、表5.1に計算Dev_2として示す。HNO₃ガスについては、CNTLに比べて過大評価が大きく改善されている。

4. 3. 3 (2) 大気質モデルの地表面へのHNO₃ガス沈着速度検証

4. 3. 3 (1)と同様に、表5.1から、各地点間のHNO₃ガス濃度比を求めると、福大／糸島の観測値は0.28、計算では0.61であった。このことから、モデルに含まれているHNO₃ガスの沈着速度は、地表面においても過小である可能性が考えられる。そこで、4. 3. 3 (1)と同様に、モデル内の沈着速度を調整し、精度向上に対する検証を行った。HNO₃ガス濃度比は、観測0.28に対し計算0.61であり、計算が観測の2.2倍であることから、モデルの地表面への沈着速度を2.2倍とした。なお、糸島から福大までの地上輸送においては、糸島・対馬間と異なり、地点間に市街地や田畑等のHNO₃ガスやNH₃ガスの発生源を含んでいる。そのため、輸送過程では、地表面への沈着以外にも発生源からのHNO₃ガス濃度増加や、NH₃ガスとの反応による粒子化に伴う濃度減少等の影響を含むと推測されるが、本検証においては、沈着以外の現象はモデルで再現できているものと仮定した。

モデルのHNO₃ガスの地表面への沈着速度を2.2倍して再計算した結果を、表5.1に計算Dev_1として示す。表5.1から、糸島、福大のHNO₃ガス濃度がそれぞれ2.7ppb、1.5ppbであり、調整前に比べて過大評価の改善はみられたものの、まだ観測値より高い値となっていた。また、各地点間の濃度比について

は、再計算後（Dev_1）が0.56であり、4. 3. 3（1）と同様に、沈着速度変更前（0.61）からの変化は小さかった。

そこで、今度は沈着速度の変化とHNO₃ガス濃度の相関に着目し、沈着速度の値を調整することとした。福大について、沈着速度調整前の濃度は2.0、調整後は1.5で調整前の0.75倍となっていた。福大に対しては、海面沈着より地表面沈着速度の影響が大きいと考えられるため、地表面沈着速度を2.2倍すると、濃度は0.75倍になると仮定する。福大の観測値は0.2であり、これは沈着速度調整前の計算値の0.1倍である。海面沈着速度と同様に考えると、濃度を0.1倍にするためには、地表面沈着速度は16倍にする必要がある。

モデルのHNO₃ガスの海面への沈着速度を4.6倍、地表面への沈着速度を16倍して再計算した結果を、表5.1に計算Dev_2として示す。HNO₃ガスについては、CNTLに比べて過大評価が大きく改善されている。一方微小粒子状NO₃については濃度の減少が小さく、沈着速度調整後も大きく過大評価となっている。微小粒子状NO₃濃度へのHNO₃ガス沈着速度変化の影響が小さいことは、微小粒子状NO₃の多くが、輸送中にHNO₃ガスから微小粒子状NO₃になったものではなく、国外のNO_x発生源付近で既にHNO₃ガスから微小粒子状NO₃になっており、粒子として長距離輸送されたことを意味していると考えられる。このことから、越境汚染などの長距離輸送過程での微小粒子状NO₃過大評価改善のためには、HNO₃ガスのみでなく、微小粒子状NO₃の沈着速度調整も必要と考えられた。

4. 3. 4 大気質モデルのHNO₃ガス沈着速度検証結果

16日0:00~23:00の1時間毎のデータに対して、観測値と計算値を比較し、誤差Mean Fractional Error（以下、MFE）を求めた結果を表5.2に示す。なお、MFEは以下の式によって求めた。iは時間、M_iはi時点におけるモデルの計算値、O_iはi時点における実測値、Nはデータ数を示す。この定義により、MFEは正の値をとり、値が小さいほど再現性が高いことを示す。

$$MFE = \frac{2}{N} \sum_{i=1}^N \frac{|M_i - O_i|}{(M_i + O_i)} \times 100$$

表5.2 1月16日における各沈着速度でのMFE

	HNO ₃			NO ₃ ⁻	
	対馬	糸島	福大	対馬	福大
CNTL	57.4	81.9	120.6	75.7	90.0
Dev_1	50.2	80.0	111.5	74.1	85.2
Dev_2	40.4	77.5	88.7	71.4	82.2

表5.2から、1月16日全体に対しても、観測結果に基づく沈着速度の調整によってモデルの再現性が向上していることが分かった。

5. 研究目標の達成状況

本研究によって、対馬・糸島における時間分解能の高いHNO₃ガス観測データを取得したことで、越境汚染時の長距離輸送過程における詳細な濃度変化を把握することができた。さらに、得られたデータとシミュレーション結果を合わせて解析することで、長距離輸送中の温度変化に伴うNH₄NO₃粒子のHNO₃ガス、NH₃ガスへの分解過程を把握することができた。また、HNO₃ガス、微小粒子状NO₃観測値・計算値を高時間分解能で詳細に比較することにより、観測データに基づく効果的なモデルの沈

着速度の調整を行うことができた。これらは、モデル精度向上に資する重要なデータといえる。

また、福岡県の行政的な事業としてもモデルを活用し、福岡県内の地域別のPM_{2.5}および光化学オキシダント濃度予測を開始した。高濃度が予測される場合には、県公式LINEで県民へ通知を行うという、健康被害を未然に防ぐための対策を実施している。これらの取り組みが評価され、令和4年度から5年間の福岡県における環境施策の指針を示す福岡県環境総合ビジョン（第五次福岡県環境総合基本計画）の中で、モデルを用いた大気汚染の原因究明・予測の研究が「重点的に推進するプロジェクト」の1つとして掲載された。

以上のことから、観測・計算結果から化学的な知見を得る研究としての成果、行政の環境施策に対する貢献ともに得られており、研究目標を達成することができたと考えられる。

6. 引用文献

- 1) 気象庁：日々の天気図(2021), <https://www.data.jma.go.jp/fcd/yoho/data/hibiten/2021/202101.pdf>
- 2) 鵜野伊津志、山村由貴、王哲：入門講座 大気環境の気象学-第3講 越境汚染の理解のための気象学-, 大気環境学会誌, 53, A80-88 (2018).

Ⅲ. 研究成果の発表状況の詳細

(1) 誌上発表

<査読付き論文>

【サブテーマ1】

特に記載すべき事項はない。

【サブテーマ2】

- 1) S. Chatani, S. Itahashi and K. Yamaji: Asian J. Atmos. Environ., 15, 2, 2021008 (2021) (IF=2.00), Advantages of continuous monitoring of hourly PM_{2.5} component concentrations in Japan for model validation and source sensitivity analyses.
- 2) 茶谷聡、國分優孝、高橋和清、星純也：大気環境学会誌、57, 2, 35-52 (2022), 東京都内におけるVOC個別成分濃度観測に基づく排出インベントリと大気質シミュレーションの検証

【サブテーマ3】

- 1) Itahashi, S., Yumimoto, K., Kurokawa, J., Morino, Y., Nagashima, T., Miyazaki, K., Maki, T., and Ohara, T.: Environ. Res. Lett., 14, 124020 (2019) (IF: 6.192) Inverse estimation of NO_x emissions over China and India 2005-2016: contrasting recent trends and future perspectives,
- 2) 板橋秀一、王哲、弓本桂也、鶴野伊津志：大気環境学会誌、第55巻、6号、239-247 (2020), COVID-19に対する中国のロックダウン期間におけるPM_{2.5}越境輸送の変容
- 3) Itahashi, S., Yamamura, Y., Wang, Z., and Uno, I.: Sci. Rep. 12, 5539 (2022) (IF: 4.379) Returning long-range PM_{2.5} transport into the leeward of East Asia in 2021 after Chinese economic recovery from the COVID-19 pandemic

【サブテーマ4】

特に記載すべき事項はない。

【サブテーマ5】

特に記載すべき事項はない。

<その他誌上発表（査読なし）>

【サブテーマ1】

特に記載すべき事項はない。

【サブテーマ2】

特に記載すべき事項はない。

【サブテーマ3】

- 1) 板橋秀一：大気環境学会誌（資料）57巻、1号、A56-A61 (2022) 「COVID-19の感染拡大・対策に伴う大気質変化」

【サブテーマ4】

特に記載すべき事項はない。

【サブテーマ5】

特に記載すべき事項はない。

(2) 口頭発表 (学会等)

【サブテーマ1】

- 1) 菅田誠治、茶谷聡、第62回大気環境学会年会 (2021)
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開発

【サブテーマ2】

- 1) J. Kurokawa, K. Yumimoto, S. Itahashi, T. Maki, T. Nagashima, and T. Ohara: CEOS Atmospheric Composition Virtual Constellation AC-VC-15, Tokyo, Japan, 2019
Development of a historical emission inventory in Asia and its evaluation using inverse modeling with satellite observation
- 2) 黒川純一、弓本桂也、板橋秀一、眞木貴史、永島達也、大原利眞、第60回大気環境学会年会 (2019)
排出量逆推計結果によるアジアを対象とした地域別NO_x排出インベントリの評価
- 3) J. Kurokawa, K. Yumimoto, S. Itahashi, T. Nagashima, and T. Ohara: Workshop on regional impact assessment of atmospheric deposition and air pollution on forest ecosystems, Niigata, Japan, 2019
Long-term trends of anthropogenic emissions of air pollutants in Asia
- 4) 菅田誠治、茶谷聡、第62回大気環境学会年会 (2021)
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開発
- 5) 茶谷聡、板橋秀一、山地一代、第62回大気環境学会年会 (2021)
モデルの検証と発生源感度解析に対する日本のPM_{2.5}成分濃度時間値の連続モニタリングの有用性
- 6) 森川多津子、茶谷聡、第62回大気環境学会年会 (2021)
マップ調査と排出インベントリにおける固定燃焼発生源情報の直接比較
- 7) 森川多津子、第5回アジア域の化学輸送モデルの現状と今後の展開に関する研究集会 (2022)
マップ調査の直接利用と大気モデルへの影響
- 8) 黒川純一、弓本桂也、板橋秀一、第61回大気環境学会年会 (2020)
高分解能衛星観測データを用いた排出インベントリ評価の可能性について
- 9) 黒川純一、桐山悠祐、第62回大気環境学会年会 (2021)
アジア域排出インベントリREASの更新と課題点
- 10) 黒川純一、第5回アジア域の化学輸送モデルの現状と今後の展開に関する研究集会 (2022)
アジア域排出インベントリREASの更新状況及び関連する最近の動き

【サブテーマ3】

- 1) Yumimoto K. et al.: Air quality Forecasting in Japan, Weather and Air Quality Forecasting Applications Workshop, College Park, MD, USA, 22-24 July, 2019.
- 2) Yumimoto K. et al.: Aerosol monitoring, forecasting and estimate of its impacts with multispectral imager data, Japan Geoscience Union Meeting 2019, Chiba, Japan, 26-30 May, 2019.
- 3) 弓本桂也: 衛星・地上観測と数値シミュレーションを融合させた大気環境統合研究, RIAMフォーラム2019, 九州大学, 春日, 6月6日, 2019
- 4) 板橋秀一, 王哲, 弓本桂也, 鶴野伊津志: 地上計測・衛星計測から見たロックダウン時の中国の排出量変化とわが国への影響評価, 第61回大気環境学会年会, オンライン開催, 9月14日, 2020
- 5) Itahashi S., Wang Z. Yumimoto K. and Uno I: Changes in trans-boundary air pollution over Japan during COVID-19 lockdown in China, AGU Fall Meeting 2020, e-Poster, 12, December, 2020.
- 6) 板橋秀一: 中国のロックダウン時の排出量変化がPM_{2.5}越境大気汚染に及ぼした影響, 第48回大気環境学会環境大気モニタリング分科会「COVID-19感染症流行が大気質に与えた影響」, オンライン

ライン開催，3月18日，2021

- 7) 板橋秀一，山村由貴，鶴野伊津志：東アジアスケールのエアロゾル組成の変化：新型コロナ感染対策による排出量変化の影響，第38回エアロゾル科学・技術研究討論会，オンライン開催，8月27日，2021
- 8) 板橋秀一：COVID-19の感染拡大・対策に伴う大気質変化，第62回大気環境学会年会 株式会社 R O K I 公開シンポジウム「COVID-19と大気環境」，オンライン開催，9月16日，2021

【サブテーマ4】

- 1) 小松宏昭、原政之、浦西克維、菅田誠治：第60回大気環境学会（2019）
化学輸送モデルを用いた近年のPM_{2.5} 濃度減少の解析について
- 2) 小松宏昭、武田麻由子、石割隼人、菅田誠治、第62回大気環境学会（2021）
2020 年に神奈川県で発生した異臭事案について

【サブテーマ5】

- 1) 山村由貴、濱村研吾、力寿雄、中川修平、菅田誠治：第61回大気環境学会年会（2020）高時間分解能観測による九州北部へのHNO₃輸送事例の解析
- 2) 中川修平、山村由貴、力寿雄、濱村研吾、菅田誠治：第61回大気環境学会年会（2020）反応性窒素酸化物自動計測器（NA-724）を用いたガス状硝酸の観測及び検証
- 3) 山村由貴：日韓海峡沿岸環境技術交流協議会第1回実務者会議（2021）福岡県における地域汚染由来の高濃度オゾンに対するNO_x、VOC排出量削減の効果
- 4) 山村由貴、中川修平、宮崎康平：第62回大気環境学会年会（2021）大気モデルによる火山由来PM_{2.5}の生成・移流過程の解析
- 5) 中川修平、山村由貴、浅川大地、徳永友貴、森兼祥太、竹本光義、二村綾美、藍川昌秀、菅田誠治：第62回大気環境学会年会（2021）2020 年夏季における瀬戸内海周辺のPM_{2.5}高濃度事例の解析
- 6) 山村由貴：第37回全国環境研究所交流シンポジウム（2021）地方環境研究所での大気シミュレーション活用について

（3）「国民との科学・技術対話」の実施

【サブテーマ1】

- 1) 国立環境研究所研究所夏の大公開（2019年7月20日、来場者6165名）にてポスターで成果紹介（コーナー来場者約300名）

【サブテーマ2】

- 1) 国立環境研究所研究所夏の大公開（2019年7月20日、来場者6165名）にてポスターで成果紹介（コーナー来場者約300名）（サブテーマ1と同じ）
- 2) 令和元年度化学物質環境実態調査環境科学セミナー（主催：環境省大臣官房環境保健部環境安全課、2020年1月23日、KFCホール、観客約200名）にて講演

【サブテーマ3】

- 1) 弓本桂也：東アジアの大気環境予測について、第9回STI政策シンポジウム「総合知で創る東アジアの環境イノベーション」（主催：九州大学科学技術イノベーション政策教育研究センター、2022年3月10日アクロス福岡大会議室、現地50名、オンライン300名）

【サブテーマ4】

- 1) 小松宏昭、神奈川県環境科学センター業績発表会、（2021）
2020年に神奈川県で発生した異臭事案について

【サブテーマ5】

- 1) 福岡県公式LINEで、WRF/CMAQモデルを用いたPM_{2.5}、光化学オキシダント高濃度予測情報を配信（2022年2月15日より運用開始）。また、この旨を福岡県保健環境研究所公式Twitterで県民へ周知した。

(4) マスコミ等への公表・報道等＞

特に記載すべき事項はない。

(5) 本研究費の研究成果による受賞

【サブテーマ1】

特に記載すべき事項はない。

【サブテーマ2】

特に記載すべき事項はない。

【サブテーマ3】

- 1) 2021年9月 大気環境学会誌 論文賞（ノート・速報部門）、COVID-19に対する中国のロックダウン期間におけるPM_{2.5}越境輸送の変容、板橋秀一, 王哲, 弓本桂也, 鶴野伊津志

【サブテーマ4】

特に記載すべき事項はない。

【サブテーマ5】

特に記載すべき事項はない。

IV. 英文Abstract

Research and Development of a Simulation Support System for Evaluating Air Pollution Measures

Principal Investigator: Seiji SUGATA

Institution: 16-2 Onogawa, Tsukuba, Ibaraki, JAPAN

Tel: +81-29-850-2457 / Fax: +81-29-850-2569

E-mail: sugatas@nies.go.jp

Cooperated by: Japan Automobile Research Institute

Japan Environmental Sanitation Center

Kyushu University

Central Research Institute of Electric Power Industry

Kanagawa Environmental Research Center

Fukuoka Institute of Health and Environmental Sciences

[Abstract]

Key Words: Air pollution simulation support, Integrated inventory and modeling system, Evaluation of effectiveness of measures for each region, Air pollutant concentration re-analysis data set, Inverse estimate system

Based on the knowledge obtained from the Environment Research and Technology Development Fund and other sources, we have developed a simulation support system for air pollution simulation to facilitate the use of multiscale air quality models. The simulation support system allows users to generate emissions data and calculation setup files necessary for simulations by selecting and specifying calculation setups, etc. via a user-friendly interface. In parallel with the development of the simulation support system, we developed a data assimilation system for ground and satellite observation data such as air quality monitoring data and created a data set for analyzing air pollutant concentrations for photochemical oxidants and PM_{2.5} concentrations. We also developed an inverse estimate system for NO_x emissions in Japan based on ground and satellite observation data, and verified and improved the accuracy of domestic NO_x emissions. Case studies by several municipalities were conducted using numerical simulations to contribute to the study of measures to solve air pollution problems in their regions, while also verifying and demonstrating the simulation support system.