

今後の窒素酸化物対策について
窒素酸化物の大気環境シミュレーションモデルの検討(参考資料)

1 シミュレーションモデルの種類	2
2 代表的な大気汚染モデルの概要	4
3 大気汚染モデルの性能評価の方法.....	6
4 大気汚染モデルの利用実績.....	9
5 シミュレーションモデルの検討結果	12
5.1 大気汚染モデルの利点等の整理	12
5.2 モデルの検討結果のまとめ	17
6 将来予測のための検討事項	18
6.1 過去の二酸化窒素の状況.....	18
6.2 二酸化窒素の推計する際の留意点	19
6.3 二酸化窒素の年間98%の推計方法と留意点.....	24

1 シミュレーションモデルの種類

大気汚染をシミュレーションする方法は図 1-1 に整理される。

大気汚染モデルは、まず、拡散モデルと統計的方法を利用したモデルに分類される。統計的方法を利用したモデルは、SPM の発生源寄与濃度解析に用いられる CMB (Chemical Mass Balance) 法や、光化学オキシダント濃度を重回帰式により予測する方法などが知られている。

拡散モデルには解析解モデルと数値解モデルに分けられる。解析解モデルは、物質輸送の基礎方程式をある一定の仮定を基にして数学的に得られた解(ガウス分布型拡散式=プルームモデル、パフモデル)を基本としたモデルである。このモデルの歴史は長く、国内では硫黄酸化物総量規制マニュアル、窒素酸化物総量規制マニュアル、浮遊粒子状物質汚染予測マニュアルなどのマニュアルとして整理され、大気汚染の改善対策の検討に利用されてきた。また、環境影響評価における大気汚染予測で標準的な予測手法として採用されてきたモデルである。

もうひとつの拡散モデルとして数値解モデルがある。数値解モデルは、物質輸送の基礎方程式である微分方程式を差分化などにより離散化し、コンピュータを利用して数値解析的に解く方法となる。数値解モデルは計算負荷が高く、長時間計算機を稼動する必要があった。コンピュータの発達と共に、比較的容易に計算環境が用意できるようになり、多くのシミュレーションが行われるようになってきた。数値解モデルは、研究者・研究機関が独自モデルの開発を行い、シミュレーションを行ってきた歴史がある。近年は CMAQ などの公開モデルを適用する事例が多くなってきた。複雑での強い非線形性の化学反応により生成される光化学オキシダントや SPM・PM_{2.5} の二次粒子は、多様な化学反応モデルを組み込んだ数値解モデルを用いてシミュレーションする事例が増えている。

解析解モデルの模式図を図 1-2、数値解モデルの模式図を図 1-3 に示す。

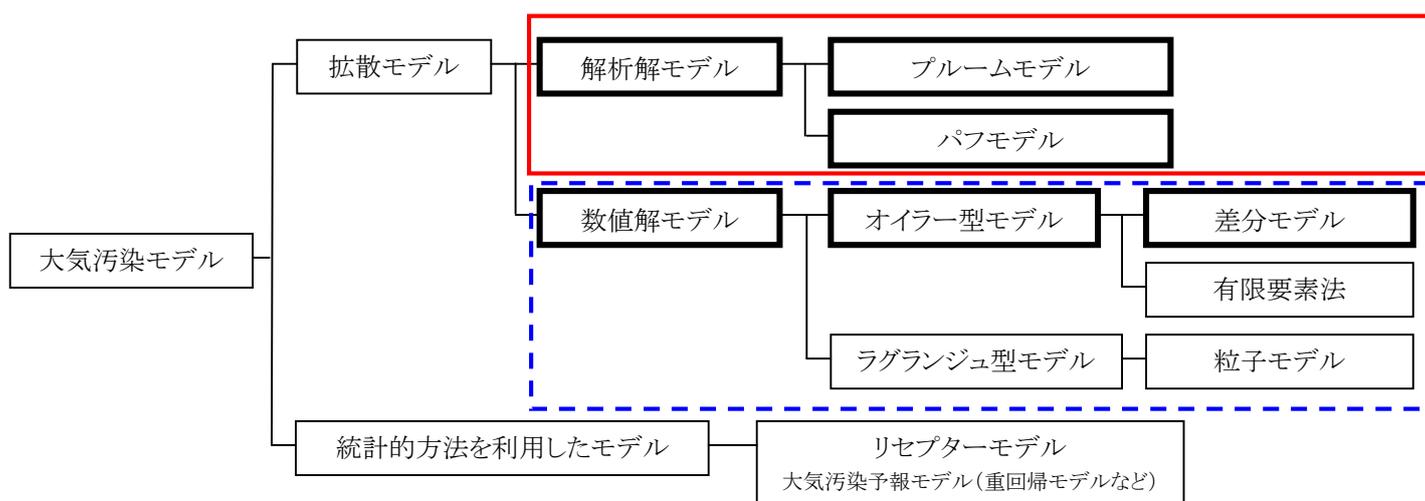


図 1-1 大気汚染モデルの分類

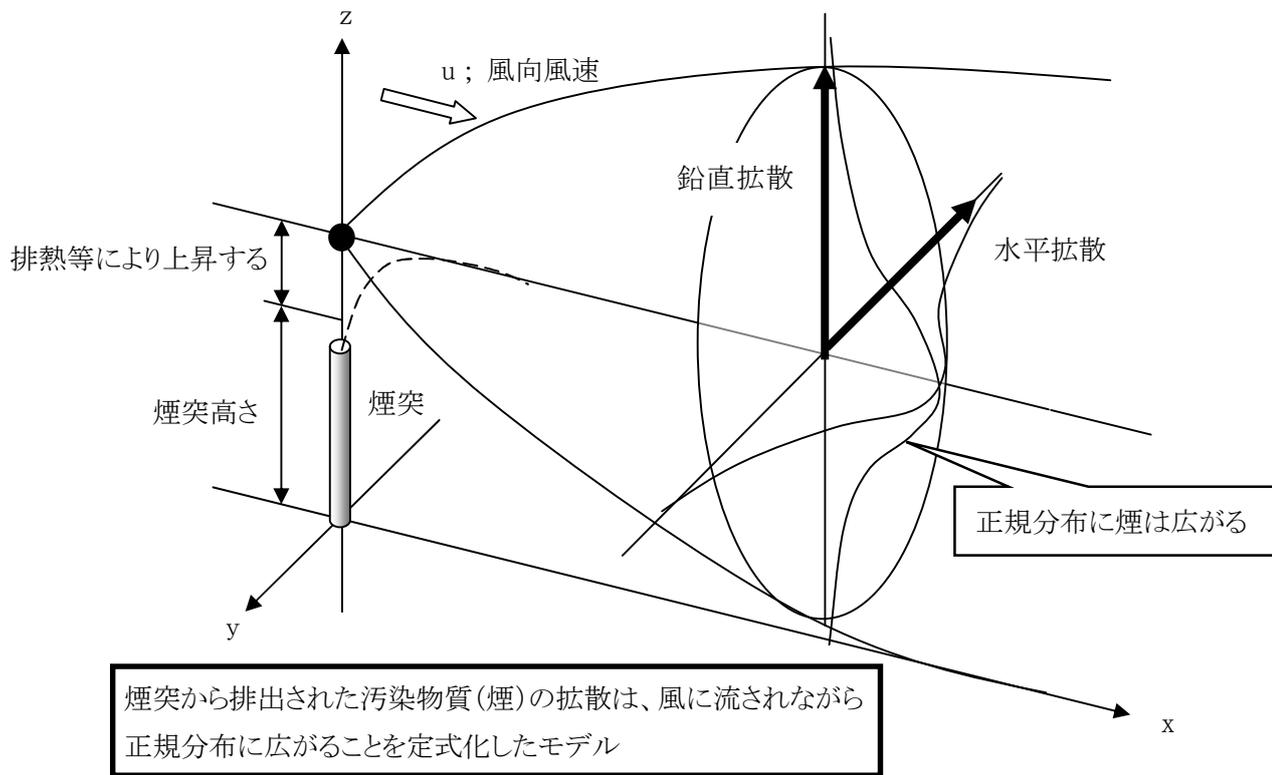


図 1-2 解析解モデルの模式図

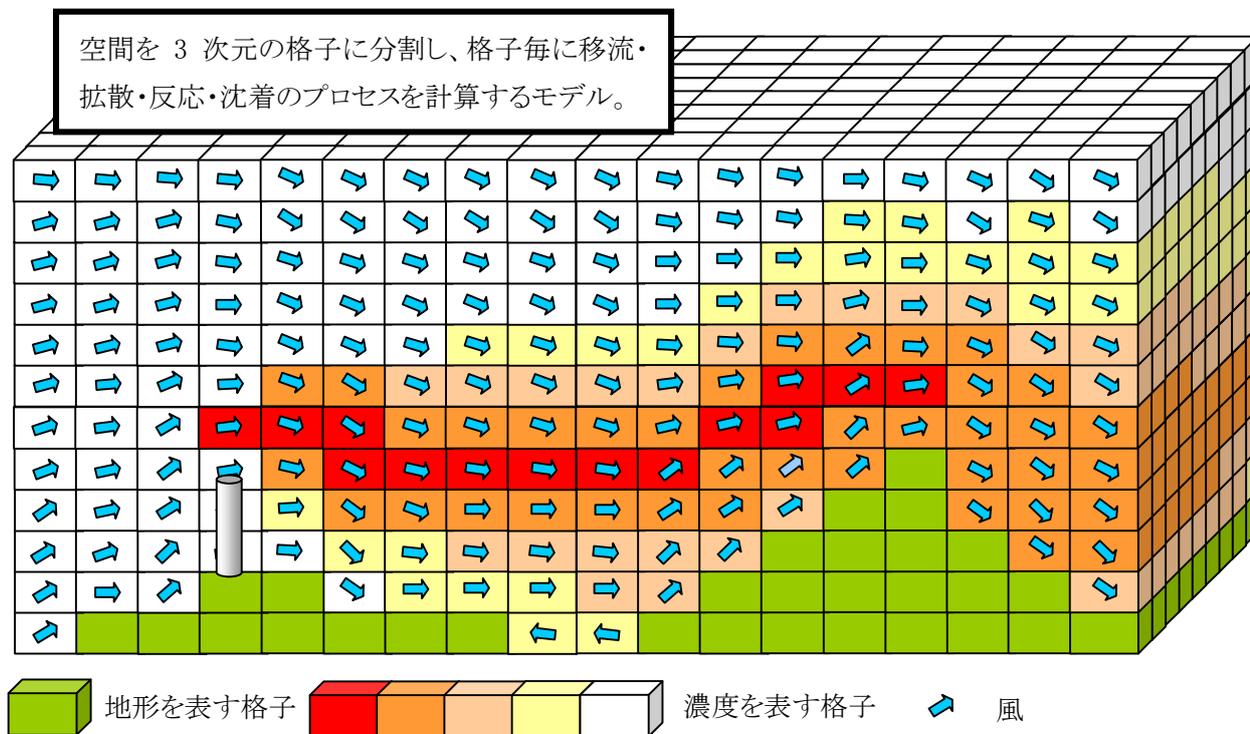


図 1-3 数値解モデル(オイラー型モデル)の模式図

2 代表的な大気汚染モデルの概要

代表的なモデルとして、解析解モデルと数値解モデルがある。これらのモデルの例を表 2-1 に示す。このモデルの代表例として、窒素酸化物総量規制マニュアル方式のモデル(NO_xマニュアルモデル)と、化学物質輸送モデル(CMAQ)についての概要を表 2-2 に示す。

解析解モデルの代表的なモデルとして窒素酸化物総量規制マニュアル方式のモデル(NO_xマニュアルモデル)がある。このモデルに SPM 二次粒子生成モデルを組み込んだモデルが浮遊粒子状物質汚染予測マニュアルにまとめられている。このモデルは、行政上の対策検討や環境影響評価における大気汚染予測に用いられてきた。解析解モデルは、期・時間帯の長期平均値を予測するモデルであり、期間平均濃度や年平均濃度を予測する。解析解を基本としていることから空間分解能は自由に設定ができるが、実際には発生源の解像度(500m~1km メッシュ)に依存する。発生源の対象とする物質は、NO_x、SO_x、SPM などの都市汚染が卓越する汚染が対象となっている。

数値解モデルとして、数値気象モデル(WRF、MM5、RAMS など)と化学物質輸送モデル(CMAQ など)を組み合わせ利用されることが多くなってきた。CMAQ(Community Multiscale Air Quality モデリングシステム)は、米国 EPA が開発を主導する大気質モデリングシステムである。この他、独自に開発されたモデルや気象モデルに物質輸送と化学反応モデルを独自に組み込むモデルを利用されることがある。これらのモデルは、ネスティングを利用して東アジアから影響などより広域からの影響を考慮できるマルチスケールモデルである。化学反応についても SAPRC 99や CB05 などの多成分の反応式が組み込まれており、大気中の化学反応により生成する O₃ や SPM の二次粒子を計算することができる。時間分解能は時間ステップ 30 秒などと設定できるが、実際には 1 時間毎程度でファイル出力とすることが多い。空間解像度は、都市スケールで 5km 程度が設定されることが多い。1km メッシュも可能ではあるが、計算時間が長くなり実用性が低くなる。

表 2-1 モデルの例

項目	解析解モデル	数値解モデル
広域モデルの例	窒素酸化物総量規制マニュアルモデル 硫黄酸化物総量規制マニュアルモデル 浮遊粒子状物質汚染予測マニュアルモデル METI-LIS モデル ADMER	CMAQ CAMx WRF-Chem UAM ANEMOS-AERO (いずれも気象モデル(WRF,MM5,RAMS など)と組み合わせ用いる)
局地モデルの例	METI-LIS モデル JEA モデル(NO _x マニュアル等)	オイラー型拡散モデル JCAP/JATOP 沿道大気質予測モデル ラグランジュ型拡散モデル 環境再生保全機構 沿道拡散モデル

表 2-2 モデルの概要

項目		解析解モデル	数値解モデル
モデル例		NOx マニュアルモデル SPM マニュアルモデル など	CMAQ(+WRF) など
対象領域		都市汚染(例:関東、千葉県) 局地汚染(例:道路沿道)	越境汚染(例:東アジア、日本全域) 都市汚染(例:関東、関西)
発生源 モデル	空間分解	点煙源(煙突などの排出位置) 面煙源(1km メッシュ) 線煙源(線状の排出位置)	面煙源(格子内排出量の集計) 分解能は、気象・拡散モデルに合わせる。例、5km メッシュなど
	時間分解	季節別(例、4期) 時間帯別(例、4時間帯)	月別 時刻別(例、1時間毎)
	排出高さ	上昇高さ推計式+実高	上昇高さ推計式+実高
	対象物質	NOx,SOx,PM,HC,HCL	NO,NO2,SO2,CO,NH3,VOC 各成分、 EC,POA,PMC,PMFINE など 47 物質
気象 モデル	空間分解	水平:気象ブロック別 (例;県内11ブロック) 鉛直:4高度程度 (例;地上、下層、中層、高層)	水平:5km 程度 鉛直:20~1000m 程度
	時間分解	季節別(例、4期) 時間帯別(例、4時間帯)	1時間
	気象要素	地上気象(風向、風速、大気安定度) 上層風速はべき法則により推定	地上及び上層気象(風向、風速、気 温、湿度、PBL、日射量、降水など)
	気象データ	ブロック別代表局の観測値	数値予報モデル(WRF、MM5、RAMS など)による数値シミュレーション結果
拡散 モデル	拡散式	解析解モデル 例:プルーム式 $C = \frac{Q_p}{2\pi\sigma_x\sigma_z u} \cdot \exp\left(-\frac{y^2}{2\sigma_y^2}\right) \times \left[\exp\left\{-\frac{(z-He)^2}{2\sigma_z^2}\right\} + \exp\left\{-\frac{(z+He)^2}{2\sigma_z^2}\right\} \right]$	微分方程式 $\frac{\partial C}{\partial t} + u \frac{\partial C}{\partial x} + v \frac{\partial C}{\partial y} + w \frac{\partial C}{\partial z} = \frac{\partial}{\partial x} \left(K_x \frac{\partial C}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left(K_y \frac{\partial C}{\partial y} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(K_z \frac{\partial C}{\partial z} \right)$
	空間分解	格子点濃度 (1km 程度)	グリッド平均濃度 (5km 程度)
	時間分解	季節別・時間帯別平均濃度(地上)	1時間値(3次元)
	対象物質	NOx,SOx,SPM	NO,NO2,SO2,O3,EC,POA,SOA など 122 成分
化学反 応 モデル	気相反応	定常近似 NO2 変換モデル 統計型 NO2 変換モデル 指数近時 NO2 変換モデル	気相反応モデル: SAPRC99 (反応式 224 式)、CB05(反応式 187 式)など
	粒子化	指数近似型変換モデル(硫酸塩、硝酸 塩、有機粒子、塩化物) 統計型モデル(硫酸塩、硝酸塩)	粒子化反応:aero5 など

3 大気汚染モデルの性能評価の方法

代表的なモデルとして、解析解モデルと数値解モデルの性能評価方法を整理した。これらのモデルの性能評価方法を表 3-1 に示す。

解析解モデルにおいては、窒素酸化物総量規制マニュアル等により、モデルの整合性についての判定条件が示されており、計算値と測定値の平均値の差や変動などにより評価を行い、A、B、C、ランク外の判定を行う。本調査の対象となる窒素酸化物と二酸化窒素の年平均値についてはAランクが必須条件として記載されている。

一方、数値解モデルでは、EPA の手引書 (Guidance for Demonstrating Attainment of Air Quality Goals for Ozone, PM2.5 and Regional Haze) が用いられることが多いようである。以前の手引書においては、指標の目標値が提示されていたが、現在の手引書ではその提示がなくなっている。これは、性能を評価する明確な基準はないこと、統計指標の評価は他の適用事例と比較すべきであること、モデルを総合的に評価するためには統計指標は診断的評価や他の定性的解析と併用することからであるとされている。

表 3-1 モデルの性能評価方法

項目	解析解モデル	数値解モデル													
文献	NOx マニュアルモデル SPM マニュアルモデル	EPA 手引書 「Guidance for Demonstrating Attainment of Air Quality Goals for Ozone, PM2.5 and Regional Haze」													
評価方法・統計指標	① $a_0 \leq 1/3(Y-BG)+BG$ ② $a_0 \leq 2/5(Y-BG)+BG$ ③ 回帰直線の傾きが0.8から1.2の範囲内でできるだけ1に近く、かつ、相関係数が少なくとも0.71以上であり、可能な限り0.8以上であること。 ④ $s'/Y \leq 1/5$ ⑤ $s'/Y \leq 1/4$ ⑥ $s'/Y \leq 1/3$ Y: 測定局についての実測値の平均値 X: 測定局についての計算値の平均値 a_0 : $=Y-X$ BG: バックグラウンド値等 s'/Y : $Y=X+a_0$ からの変動	モデルの性能評価に使われる統計指標 Mean Normalized Bias Mean Normalized Gross Error Average Peak Prediction Bias and Error Mean Observation and Prediction Ratio of Means Mean Bias Normalized Mean Bias Mean Fractional Bias Mean Error Normalized Mean Error Mean Fractional Error Correlation Coefficient Root Mean Square Error Normalized Ratio of Standard Deviation Percentage within a Factor of 2													
評価	(ア) Aランクの条件 ①と③と⑤、または①と④の条件を満足すること。 (イ) Bランクの条件 ②と⑤の条件を満足すること。 (ウ) Cランクの条件 ②と⑥の条件を満足すること。	現在のEPA手引書において具体的な目標値は提示されておらず、他の適用事例を参考に、統計指標を評価する。なお、参考に、以前の手引書で示されていた値は次のとおりである。 <table border="1" style="margin-top: 10px;"> <tr> <td>Mean Normalized Bias</td> <td>$\leq 15\%$</td> </tr> <tr> <td>Mean Normalized Gross Error</td> <td>$\leq 30\%$</td> </tr> </table>	Mean Normalized Bias	$\leq 15\%$	Mean Normalized Gross Error	$\leq 30\%$									
Mean Normalized Bias	$\leq 15\%$														
Mean Normalized Gross Error	$\leq 30\%$														
判定条件	NOx・NO2については、年平均値Aランクは必須条件 期間ごとの判定条件 <table border="1" style="margin-top: 10px;"> <thead> <tr> <th colspan="2" rowspan="2"></th> <th colspan="2">期区分</th> </tr> <tr> <th>各期</th> <th>年</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <th rowspan="2">時間帯区分</th> <th>各時間帯</th> <td>C</td> <td>B</td> </tr> <tr> <th>日</th> <td>B</td> <td>A</td> </tr> </tbody> </table>			期区分		各期	年	時間帯区分	各時間帯	C	B	日	B	A	
				期区分											
		各期	年												
時間帯区分	各時間帯	C	B												
	日	B	A												

表 3-2 EPA 手引書等に示された統計量

名称	計算式
Mean Normalized Bias	$MNB = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \frac{M_i - O_i}{O_i}$
Mean Normalized Gross Error	$MNGE = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \frac{ M_i - O_i }{O_i}$
Average Peak Prediction Bias and Error	日最高値に対する MNB と MNGE
Mean Observation and Prediction	$\bar{O} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N O_i, \bar{M} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N M_i$
Ratio of Means	$RATIO = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \frac{M_i}{O_i}$
Mean Bias	$BIAS = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (M_i - O_i)$
Normalized Mean Bias	$NMB = \frac{BIAS}{\bar{O}}$
Mean Fractional Bias	$FBIAS = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \frac{(M_i - O_i)}{(M_i + O_i)}$
Mean Error	$ERR = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N M_i - O_i $
Normalized Mean Error	$NME = \frac{ERR}{\bar{O}}$
Mean Fractional Error	$FERROR = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \frac{ M_i - O_i }{(M_i + O_i)}$
Correlation Coefficient	$CORRcoef = \frac{\sum_{i=1}^N (M_i - \bar{M})(O_i - \bar{O})}{\sqrt{\sum_{i=1}^N (M_i - \bar{M})^2} \sqrt{\sum_{i=1}^N (O_i - \bar{O})^2}}$
Root Mean Square Error	$RMSE = \sqrt{\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (M_i - O_i)^2}$
Normalized Ratio of Standard Deviation	$\sigma^* = \frac{1}{\bar{M}} \sqrt{\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (M_i - \bar{M})^2} \Big/ \frac{1}{\bar{O}} \sqrt{\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (O_i - \bar{O})^2}$
Percentage within a Factor of 2	計算値と観測値の全ペアのうち、 $0.5 \leq M_i/O_i \leq 2$ を満たすペアの割合
M_i	計算値
O_i	観測値

4 大気汚染モデルの利用実績

解析解モデルと数値解モデルの利用実績を表 4-1 及び表 4-2 にまとめた。

表 4-1 は、行政上の利用実績である。このモデルは歴史が古く適用事例も非常に多いため、ここでは千葉県的事例及び最近の事例などについて記載した。解析解モデルは昭和 40 年代の公害の時代より利用があり、硫黄酸化物総量規制から窒素酸化物、浮遊粒子状物質の規制や対策まで、行政上の対策検討に多く利用されてきた。また、環境影響評価の大気汚染予測において技術指針、マニュアル等で標準手法として採用されることが多く、これまで多くの環境影響評価で利用されている。

一方、数値解モデルの行政利用はあまり進んでいない。規制に利用された例として平成 14 年度に環境省が行った SPM のシミュレーションがある。また、近年は CMAQ など多くのモデルがインターネット等を通じて公開されたことから、O_x などの対策検討でも利用されつつある。また、インターネットを通じて、数値解モデルによる O_x や NO₂ の予測計算を提供する機関もある。

最近の研究実績を把握するために、2007～2010 年までの大気環境学会誌に掲載された論文について整理した。この結果を表 4-2 にまとめた。解析解モデルの最近の研究事例ではあまりなく NO_x の化学反応を組み込んだもの、METI-LIS モデルや ADMER に関する論文となっている。数値解モデルについては、数多くの論文が発表されており、関心の高さが伺うことができる。

表 4-1 大気環境予測モデルの実績(行政利用)

モデル	文献
解析解モデル	<ol style="list-style-type: none"> 1. 昭和 55 年度 千葉県窒素酸化物対策専門委員会報告書 2. 平成元年度 千葉県窒素酸化物対策専門委員会報告書(第二次) 3. 平成 8～10 年度 第三次窒素酸化物総合調査(千葉県) 4. 平成 13 年度浮遊粒子状物質対策推進事業(千葉県) 他、東京都、埼玉県、神奈川県、愛知県、三重県、大阪府、兵庫県でも自動車 NOx・PM 法に係る総量削減計画策定のための調査が実施されている。 5. 平成 14 年度浮遊粒子状物質総合対策検討に係る調査(環境省) 6. 平成 18 年度 窒素酸化物及び粒子状物質の環境濃度予測調査(環境省) 7. 窒素酸化物・浮遊粒子状物質の環境濃度推計に係る調査報告書(東京都) 8. 平成 22 年度 大気中微小粒子状物質(PM_{2.5})検討会(東京都) 9. 窒素酸化物総量規制マニュアル 10. 硫黄酸化物総量規制マニュアル 11. 浮遊粒子状物質汚染予測マニュアル 12. 産業公害総合事前調査における大気に係る環境濃度予測手法マニュアル 13. 道路環境影響評価の技術手法 14. 面整備事業環境影響評価技術マニュアル
数値解モデル	<ol style="list-style-type: none"> 1. 平成 14 年度浮遊粒子状物質環境汚染実態解析調査(環境省) 2. 平成 18～21 年度 揮発性有機化合物(VOC)の浮遊粒子物質及び光化学オキシダントの生成に係る調査(環境省) 3. 平成 18 年度富士市大気質改善事業 4. 平成 20 年度 光化学オキシダント対策調査(愛知県) 5. 平成 22 年度 大気中微小粒子状物質(PM_{2.5})検討会(東京都) 6. 気象研究所 光化学スモッグ気象予測モデルによる地上オゾン分布予測(O₃) (http://ds.data.jma.go.jp/pco/mri_ccm2/index.html) 7. 国立環境研究所 大気汚染予測システム(VENUS)(O₃,NO₂) (http://www-gis5.nies.go.jp/osenyosoku/) 8. 海洋研究開発機構による大気汚染予測(化学天気予報)(O₃,NO₂)、 (http://www.jamstec.go.jp/frcgc/gcwm/jp/index.html) 9. 九州大学 大気汚染予測(SPRINTARS)(粒子) (http://sprintars.riam.kyushu-u.ac.jp/index.html)

表 4-2 大気環境予測モデルの最近の研究実績(大気環境学会誌)

モデル	文献
解析解モデル	<ol style="list-style-type: none"> 1. 北林(2007) バックグラウンド濃度を考慮したNOx 積分プルーム反応・拡散モデルとその性能評価(大気環境学会誌 第 42 巻、第 5 号、p283-291) 2. 梶原ら(2008) METI-LIS モデルを用いた高濃度観測地点周辺での発生源逆解析(大気環境学会誌 第 43 巻、第 4 号、p238-244) 3. 東野(2009) リスク評価ツールとしての大気拡散モデルの開発(大気環境学会誌 第 44 巻、第 1 号、p59-66)
数値解モデル	<ol style="list-style-type: none"> 1. 片山ら(2007) 冬季・九州地域で観測された高濃度エピソードに対する中国メガシティの影響(大気環境学会誌 第 42 巻、第 3 号、p175-187) 2. 速水(2007) 首都圏における人為燃焼発生源の排出量抑制と二次粒子無機イオン成分濃度の関係(大気環境学会誌 第 42 巻、第 4 号、p234-252) 3. 足立ら(2007) 寒冷前線に沿ったダスト輸送:北東アジアで 2000 年 4 月 19-20 日に観測された低気圧の事例解析(大気環境学会誌 第 42 巻、第 6 号、p327-338) 4. 栗林ら(2008) 中国におけるオゾンによる稲作影響の現状評価と将来予測(大気環境学会誌 第 43 巻、第 1 号、p55-66) 5. 茶谷ら(2008) わが国の汚染物質濃度に対する発生源・越境輸送の感度解析(大気環境学会誌 第 43 巻、第 2 号、p79-91) 6. 片山ら(2008) 日本の SO42-沈着量における経年変動のモデル解析(大気環境学会誌 第 43 巻、第 3 号、p136-146) 7. 鶴野ら(2008) 随伴モデリングを用いた東アジア域のダストの発生・輸送の逆推定(大気環境学会誌 第 43 巻、第 4 号、p191-197) 8. 2007 年 5 月 8,9 日に発生した広域的な光化学オゾン汚染ーオーバービューー(大気環境学会誌 第 43 巻、第 4 号、p198-208) 9. 黒川ら(2008) ネスト版 RAMS/CMAQ 連携モデルによる 2007 年 5 月 8,9 日に発生した広域的な光化学オゾン汚染の解析(大気環境学会誌 第 43 巻、第 4 号、p209-224) 10. 山本ら(2008) 関西地域における元素上炭素粒子の排出量推計と大気濃度分布推定(大気環境学会誌 第 43 巻、第 4 号、p245-256) 11. 板橋ら(2009)2007 年春季に発生した東アジア域スケールの広域越境汚染の化学輸送モデル CMAQ による解析(大気環境学会誌 第 44 巻、第 4 号、p175-185) 12. 坂本ら(2010) 数値解析による兵庫県内の光化学オキシダントの濃度分布及び季節変動要因の検討(大気環境学会誌 第 45 巻、第 2 号、p89-95) 14. 嶋寺ら(2010) 森林地域における霧による硫黄および窒素沈着量の数値予測(大気環境学会誌 第 45 巻、第 6 号、p247-255) 15. 井上ら(2010) 関東地方における夏季地表オゾン濃度の NOx、VOC 排出量に対する感度の地理分布(第 I 報、第 II 報)(大気環境学会誌 第 45 巻、第 5 号、p183-204) 16. 森野ら(2010) 大気質モデルにおける相互比較実験による O3、PM2.5 予測性能の評価ー2007 年夏季、関東の事例(大気環境学会誌 第 45 巻、第 5 号、p212-226)

5 シミュレーションモデルの検討結果

シミュレーションモデルは、対象とする汚染の時間・空間スケールや化学反応などの様々な種類がある(「1 シミュレーションモデルの種類(2 ページ)」)。このうち、千葉県における窒素酸化物の濃度をシミュレーションするために次のモデルについて検討を行った。

- ① 窒素酸化物総量規制マニュアル方式のモデル(NO_x マニュアルモデル)
- ② 化学物質輸送モデル(CMAQ) + 数値気象モデル(WRF)

①の窒素酸化物総量規制マニュアル方式のモデル(NO_x マニュアルモデル)は大気環境行政では従来から利用され実績の多いモデルである。②は国内での研究実績が増えつつあり複雑な汚染を扱える化学物質輸送モデルであり、国内ではCMAQの利用が増えている。このモデルは数値気象モデル(WRF など)と組み合わせて用いる。

5.1 大気汚染モデルの利点等の整理

解析解モデルの代表例として窒素酸化物総量規制マニュアル方式(NO_xマニュアルモデル)、数値解モデルとして CMAQ を取り上げ、利点・欠点について評価した。この結果を、表 5-1～表 5-2 に整理した。

表では、適用性が高い場合は○、工夫することで適用可能は△、適用できない・困難な場合を×として表記している。

5.1.1 モデル自身の評価

本県の窒素酸化物濃度を予測するためのモデルとしての評価を表 5-1 に示す。NO_x マニュアルモデルは、沿道などの局地汚染から千葉県や関東地方などの都市スケール汚染を予測可能なモデルである。一方、隣接都府県や国外からの長距離輸送などを再現することはできない。(「2 代表的な大気汚染モデルの概要(4 ページ)」)

汚染物質の排出が直接汚染の原因となる一次汚染や比較的単純な化学反応を伴う汚染については、比較的再現性は高い。一方、光化学オキシダントなどの大気中の化学反応により発生する汚染物質の再現はモデル上不可能である。しかし、二次粒子(硫酸塩、硝酸塩、有機炭素、塩化物)については簡易モデルが組み込まれている。二酸化窒素については、NO_x-NO₂変換モデルによって計算される。全国的には光化学オキシダント濃度は経年的に増加傾向が見られ「6.1 過去の二酸化窒素の状況(18 ページ)」、NO-NO₂-O₃ の関係も変化している恐れがある。シミュレーションを行う際には、この関係について経年的な変化を把握しておく必要がある。(「6.2 二酸化窒素の推計する際の留意点(19 ページ)」)

時間分解能としては、期別・時間帯別を最小単位として、年平均値を予測する。1時間

値などの短期平均値については、滞留や煙軸の変化などを扱うことができないため、個別の事例での再現性はあまり高くない。

空間分解能は、発生源の分解能に依存するためおよそ 1km 程度となるが、計算上はどの格子間隔でも計算可能である。対策検討においては、工場や道路の影響をある程度細かく検討するために 1km 程度の空間分解は必要となる。

環境基準を評価するためには日平均値の年間98%値を計算する必要がある。解析モデルでは、測定値における年平均値と98%値との関係式から、98%を推計する方法がとられる。なお、近年、規制の効果から窒素酸化物は大きく変化しており、この関係は変化しつつあることから、将来推計においては注意が必要である。（「6.3 二酸化窒素の年間 98%の推計方法と留意点(24 ページ)」）

対策検討で必要となる発生源別寄与濃度は、環境濃度は個別発生源の寄与濃度の和で表されることから、容易に求めることが可能である。

このほか、NO_x マニュアルモデルは、平坦地の拡散をモデル化したものであるため、複雑な気流や地形の影響については、通常では対応できず、特別なモデルを組み込む工夫が必要となる。

NO_x マニュアルモデルの欠点については、CMAQ では解決されている点が多いが、実用上の空間解像度が5km 程度であり、また計算時間が長い点が最大のネックとなる。また、対策検討で必要となる発生源別寄与濃度についてはゼロアウト法(対象発生源の寄与濃度 = 全発生源の予測濃度 - 対象発生源を除いた予測濃度)は、対象とする発生源ごとに繰り返す必要があるために、計算時間がより長くなる点が欠点となる。

表 5-1 大気環境予測モデルの利点及び欠点

評価項目	窒素酸化物総量規制マニュアル方式		CMAQ + WRF	
	評価	特徴	評価	特徴
局地汚染(沿道など)	○	JEA 式を利用	×	別モデルが必要
都市汚染(千葉県)	○		○	
隣県からの輸送	○		○	
長距離輸送(国内、国外)	×	越境汚染などは評価できない。	○	ネスティング技術により評価可能
従来型汚染 (一次汚染、単純な化学反応)	○	NO _x 、SO _x 、一次粒子など	○	NO _x 、SO _x 、一次粒子など
複雑な汚染 (複雑な化学反応)	△	O _x は計算できない。 二次粒子推定可能	○	O _x 、二次粒子とも計算可
空間分解能	○	特定地点まで可能	△	格子サイズまで可能
短期評価(1 時間値、日平均値)	×	長期予測モデルのため不可	○	1 時間値を直接評価
長期評価(季別平均、年平均)	○	年平均値を直接評価	△	長期予測を行った場合は可能
日平均値の年間 98%値	△	実測値の統計結果から推定	△	長期予測を行った場合は直接評価できる。
バックグラウンド濃度 の評価	△	越境汚染などの長距離輸送は困難。(BG として与える)	○	ネスティング技術により評価可能
発生源別寄与濃度	○	容易	△	ゼロアウト法では発生源数分の計算が必要
化学反応	△	簡易な反応のみを扱う。	○	複雑な反応が扱える。
O ₃ 変化への対応	△	NO ₂ 変換式で考慮	○	標準で可能
海陸風循環、風向変化、長時間 滞留	×	モデルの性能上不可。BG として評価する。	○	数値気象モデルの結果を利用できる。
複雑な地形	△	別モデルが必要 (例 ERT-PSDM など)	○	格子サイズまでの地形を考慮可能
特殊な気象状況	△	別モデルが必要 (例 EPA-OCD モデルなど)	○	数値気象モデルの再現可能な現象
○の集計		7		12
△の集計		7		4
×の集計		3		1
モデル自身の評価		△		○

5.1.2 行政利用上の評価

利用上の評価を表 5-2 に示す。

NO_x マニュアルモデルは、プルーム・パフ式を基本としており、排出強度と濃度計算地点の座標を入力すると濃度は自動的に求まる。このため、計算はシンプルでわかりやすく、計算も容易なことが特徴となっている(「2 代表的な大気汚染モデルの概要(4 ページ)」)。これらの点から評価として○とした。また、研究実績、利用実績共に歴史が長く(「4 大気汚染モデルの利用実績(9 ページ)」)、その基本性能が把握されている点から利用上の限界がわかりやすい。NO_x マニュアルなど利用するためのマニュアルも整備され、性能評価の方法がマニュアルに明記されているなど行政利用上の観点から使いやすいモデルとなっている(「3 大気汚染モデルの性能評価(6 ページ)」)。

一方、CMAQ は多くのサブモデル(拡散、気相反応、粒子反応、沈着などの複数のモデルが選択可)が組み合わされたモデルであり、計算は複雑で中身を理解することは専門家や研究者以外には難しい(「2 代表的な大気汚染モデルの概要(4 ページ)」)。また、解析解モデルに比べ計算に必要な時間(計算時間)が長く、長期的評価を行うためには膨大な計算時間が必要となる。しかし、数値解モデルの研究は盛んに行われており改良が加えられ、最新の研究成果が導入されたモデルである(「4 大気汚染モデルの利用実績(9 ページ)」)。行政上での利用は、計算時間の長さや、コスト的に割高、モデルの複雑さから利用する事例はまだ少ないが、今後は増加していくと思われる。(「2 代表的な大気汚染モデルの概要(4 ページ)」)

表 5-2 大気環境予測モデルの行政利用上の利点及び欠点

評価項目	窒素酸化物総量規制マニュアル方式 (NO _x マニュアル)		CMAQ+WRF	
	評価	特徴	評価	特徴
計算のしやすさ	○	拡散式がシンプル	×	計算は複雑
わかりやすさ	○	拡散式がシンプル	×	計算は複雑
モデルの限界	○	古くから利用され性能が把握されている。	×	発展途上。
費用	○	計算時間が短く、低コスト	△	計算時間が長く、高コスト
計算時間	○	計算時間が短い。	△	年間計算では計算時間が膨大となる。
実績	○	歴史が長く研究実績、行政目的の利用実績共に豊富にある。	△	研究は盛んに行われているが、行政利用は少ない。
先進性	△	解析解型モデルの研究は少なくなっている。	○	数値解モデルを利用した研究が盛んに行われている。
モデル評価	○	マニュアルに基準がある	△	EPA においては、他の事例と比較して評価を進めている。
標準化 (マニュアル化)	○	マニュアルが整備され、解説本も多い	×	国内でのマニュアル整備は進んでいない。
○の集計	8		1	
△の集計	1		4	
×の集計	0		4	
行政利用上の評価	○		△	

5.2 モデルの検討結果のまとめ

以上の点から、千葉県の窒素酸化物対策を検討するために用いるシミュレーションモデルを検討した。

モデル自身の評価としては、解析解モデルの課題を解決できる数値解モデルの方がよいと考えられる。しかしながら、行政利用上の評価においては、実績や扱いやすさの点から解析解モデルの方がよく、本県の検討に用いるモデルとしてこれらの点を総合的に判断すると、本県の対策調査において用いるモデルは、解析解モデルである窒素酸化物総量規制マニュアル方式が適していると考ええる。

ただし、利用に際しては、光化学オキシダントとの関係や、環境基準等に相当すると年平均値の推定方法などには注意して解析を行う必要がある。

なお、CMAQ などの数値解モデルは、複雑なモデルが組み込まれ、複雑な汚染を解析するには適している。Ox やPM_{2.5}などの対策を検討する場合にはこのようなモデルの活用も検討すべきと考ええる。

表 5-3 大気環境予測モデルの検討結果(まとめ)

評価項目	窒素酸化物総量規制マニュアル方式	CMAQ + WRF
	評価	評価
モデル自身の評価	△	○
行政利用上の評価	○	△
○の計	15	13
△の計	8	8
×の計	3	5
総合評価	◎	○

6 将来予測のための検討事項

6.1 過去の二酸化窒素の状況

二酸化窒素の濃度の状況を図 6-1 に示す。平成 8～20 年度の県内の一般局と自動車排ガス局(自排局)の年平均値と日平均値の年間 98%値¹の推移を示している。また、参考に光化学オキシダントの昼間の 1 時間値の年平均値の推移も示している。

二酸化窒素濃度は減少傾向が見られ、自排局でその傾向は顕著である。光化学オキシダントは、増加傾向が見られていたが、現在は横ばいとなっている。

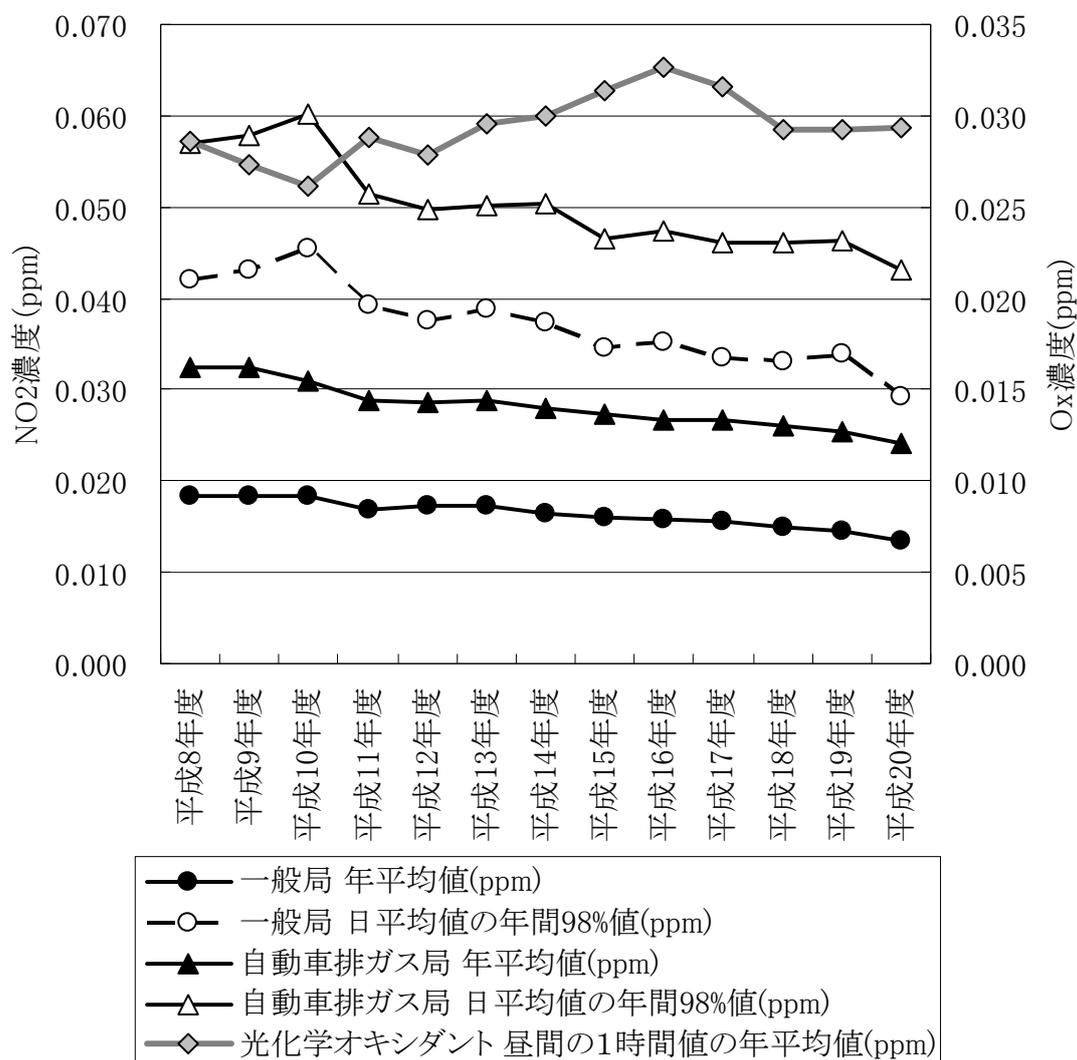


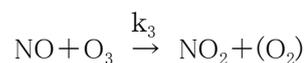
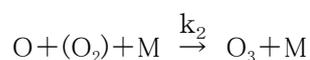
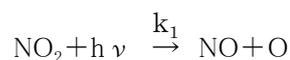
図 6-1 二酸化窒素と光化学オキシダント濃度の経年変化

¹ 日平均値の年間 98%値: 日平均値を低い順に並べ、低いほうから 98%目となる日の濃度のこと。365 日の測定値がある場合は、低いほうから 358 番目の日の濃度となる。

6.2 二酸化窒素の推計する際の留意点

NO_x マニュアルモデルは、窒素酸化物の年平均値を予測するモデルである。二酸化窒素を予測するためには、指数近似モデルを組み込むか、窒素酸化物の計算値から二酸化窒素を推定する式(統計モデル)を適用し、二酸化窒素濃度を推定する必要がある。

二酸化窒素の生成は化学反応によって起こる。通常、NO_x が排出される段階ではほとんどが NO の形をしており、放出後に大気中で酸化され NO₂ となる。放出後の短い時間における NO の酸化は O₃ によるものとされている。大気中には NO_x や O₃ 以外にも多くの物質があり炭化水素、アルデヒド、OH 等のフリーラジカルなどが知られている。これらの物質が複雑に絡み合った反応系が構成されている。



NO:一酸化窒素

NO₂;二酸化窒素

hν;紫外線のエネルギー

M;反応エネルギー吸収のための第三体

k₁: NO₂の光乖離速度

k₂: O と O₂の反応速度定数

k₃: NO と O₃の反応速度定数

NO₂ の生成するひとつの原因である光化学オキシダント(オゾン)濃度は経年的に変化しており、全国的には濃度の増加傾向が指摘されている。

反応に大きな影響を及ぼしているオゾンが変化しており、VOC 排出量や NO_x 排出量の削減が期待されている将来においては、NO₂ 推計方法は十分な検討が必要である。

窒素酸化物総量規制マニュアルには、窒素酸化物から二酸化窒素を推定するモデルとして、定常近似モデル、統計モデル、指数近似モデルがある。定常近似モデルは、NO_x とポテンシャルオゾン²の保存則を表す式を平衡反応を表す式と連立して解いたモデルである。統計モデルは、NO_xとNO₂の実測濃度の関係を統計的に求め、NO_x濃度の計算値からNO₂濃度を求めるモデルとなる。指数近似モデルは、NO_xから NO₂ への変化を指数関数により表したモデルである。それぞれ一長一短はあるが、いずれのモデルを用いる場合でも以下の留意点について検討が必要と考える。

² 仮想的な物質で、オゾン濃度と二酸化窒素濃度の和とした物質を表す。

6.2.1 定常近似モデルを用いる場合の留意点

NO_x から NO₂ を求める方法のひとつとして定常近似モデルがある。窒素酸化物マニュアルでは次式が示されている。

NO_x マニュアルによると、NO の酸化反応について、酸素原子に準定常近似を適用した反応拡散方程式を考察し、NO_x の排出から比較的短時間では NO_x と仮想的物質 PO (ポテンシャルオゾン; O₃+NO₂) が近似的に不活性ガスのように振舞うとみなせることから、この変換モデルを与えている。

このモデルは NO_x と PO の保存則を表す式

$$\begin{aligned} [\text{NO}_x] &= [\text{NO}] + [\text{NO}_2] = [\text{NO}_x]_D + [\text{NO}_x]_B \\ [\text{PO}] &= [\text{O}_3] + [\text{NO}_2] = (1-\alpha)[\text{NO}_x]_D + [\text{O}_3]_B + [\text{NO}_2]_B \end{aligned}$$

及び [NO_x][NO₂][O₃] の平衡反応を表す式

$$\begin{aligned} [\text{O}_3] &= \beta_0 [\text{NO}_2] / [\text{NO}] \\ \beta_0 &= k_1 / k_3 \end{aligned}$$

を連立させて解いたもので、

$$\begin{aligned} [\text{NO}_2] &= S/2 - (S^2/4 - [\text{NO}_x] \cdot [\text{PO}])^{1/2} \\ S &= [\text{NO}_x] + [\text{PO}] + \beta_0 \end{aligned}$$

により NO₂ 濃度を与える。以上が、定常近似モデルの原型となるが、従来あまり使用されてこなかった。その理由は、

1. 個別発生源の NO₂ 寄与濃度を算定できないため、行政上不便である。
2. 夜間の NO₂ の再現性があまりよくない
3. 使用実績が少ないため、パラメータ設定等の方法が十分検討されていない。

とされている。NO_x マニュアルでは 2, 3 を解決するために改良を加え、次式としている。もともとの [NO₂] 変換式を次のように表す。

$$[\text{NO}_2] = f([\text{NO}_x], [\text{PO}], \beta_0) = S / 2 - (S^2 / 4 - [\text{NO}_x] \cdot [\text{PO}])^{1/2}$$

このとき長期平均値については、

$$[\text{NO}_2] = 1/4 \sum \sum f([\text{NO}_x] \cdot (1 \pm s), [\text{PO}] \cdot (1 \pm s), \beta_0)$$

α : NO の初期割合 (0.8~0.95 の範囲で設定)

β_0 : NO₂ 光分解効果 ($\beta_0 = 0.02 \times$ 日射量 (kW/m²))

[PO] ポテンシャルオゾン濃度 (バックグラウンド)

$$[\text{PO}]_B = [\text{O}_3]_A + [\text{NO}_2]_A - (1-\alpha)[\text{NO}_x]_A$$

$$[\text{O}_3]_A = [\text{O}_x]_A - a[\text{NO}_x]_A$$

[O_x]_A: O_x 実測値、[NO₂]_A: NO₂ 実測値、[NO_x]_A: NO_x 実測値

a=0.04~0.06

S : NO_x, PO の変動係数 (0.4~0.7)

となる。それぞれのパラメータ値の NO_x マニュアルによったが、使用にあたっては再現性を確認して利用することが必要である。

6.2.2 統計モデルを用いる場合の留意点

NO_xからNO₂を求める方法のもうひとつとして統計モデルがある。窒素酸化物マニュアルでは次式が示されている。

$$[\text{NO}_2] = a \times [\text{NO}_x]^b$$

この式のaとbは、測定値のNO₂とNO_xを回帰分析することにより求めることができる。この式にモデルのNO_x濃度計算値を代入することでNO₂濃度を予測する。

実際の計算では、高濃度用と低濃度用のa、bを使い分けたり、期別時間帯別にa、bを使い分けたりしている。

この式を使用するに当たっての留意点として、統計モデルではオゾン濃度を直接関与させられない点がある。濃度が基準年から大きく変化したり、発生源構造が大きく変化する場合には、NO_xとNO₂の関係が維持されるかどうか定かでない点も課題である。

そこで、年度毎の年平均値を用いてa、bを算定した。この結果を図6-3と図6-4に示す。図6-3は平成20年度の一般局と自排局の統計結果であり、図6-4は年度ごとに求めた係数a・bの経年変化である。a・bは年度毎のばらつきがあり、また、a・b共に大きくなる傾向が見られる。これを模式的に示す図6-2となる。NO_xが低いところではNO₂濃度は今より低く評価され、NO_xが高いところではNO₂濃度が高く評価される傾向となることを意味している。

以上のとおり、係数a・bに経年変化の傾向も見られることから、使用の際には、十分な検討が必要である。

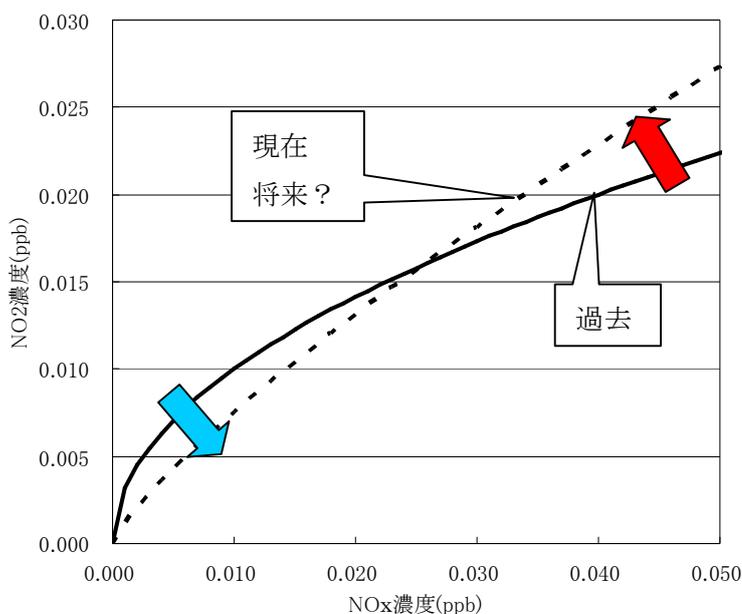


図 6-2 NO_x—NO₂変換式(統計モデル)の経年傾向(模式図)

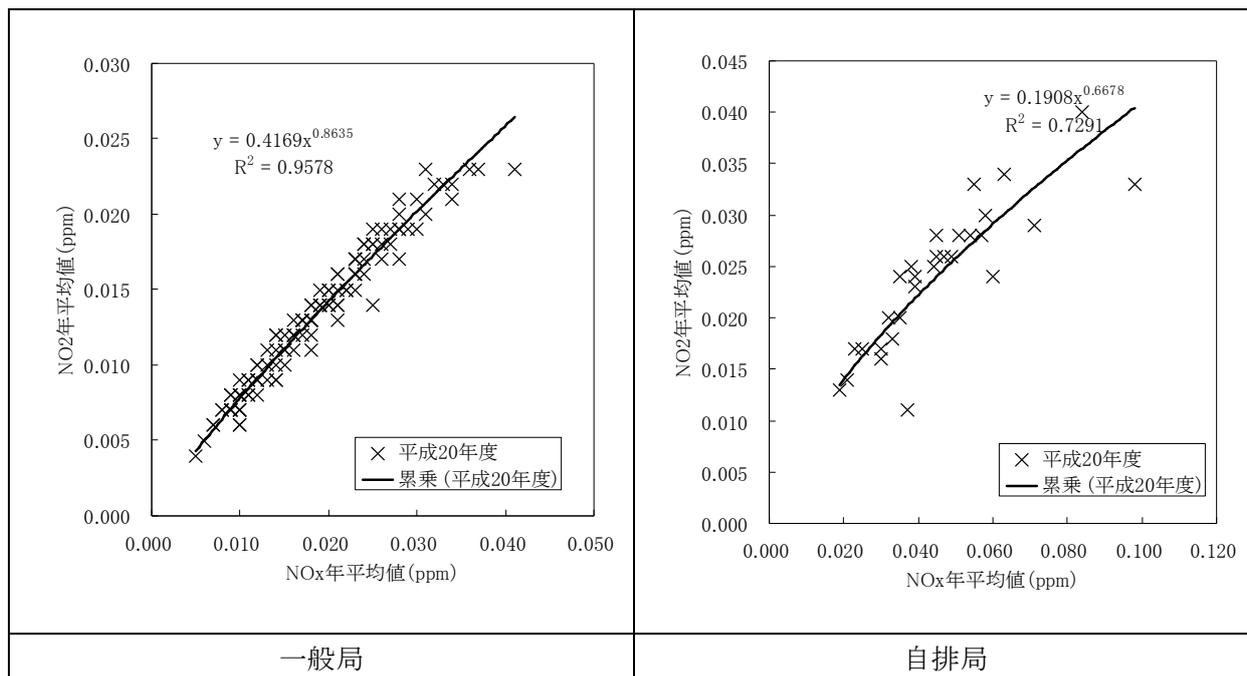


図 6-3 統計モデル(平成 20 年度)の例

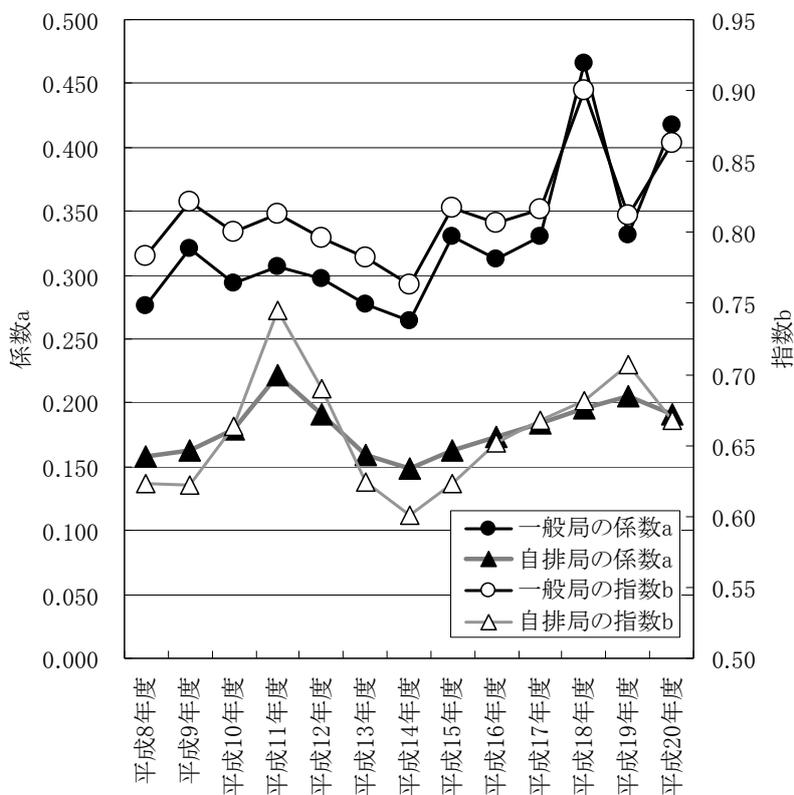


図 6-4 統計モデルの係数 a・b の経年変化

6.2.3 指数近似モデルを用いる場合の留意点

NO_x から NO₂ を求める方法のひとつとして指数近似モデルがある。窒素酸化物マニュアルでは次式が示されており、反応速度を表す係数 K にオゾン濃度を反映させることができる。この点で、オキシダント濃度に対応することができる。一方で、バックグラウンドオゾンを一定に与えるために、都市部で NO₂ の過大評価を引き起こすことが指摘されており、また、NO_x と NO₂ の関係が線形である点も課題となっている。

$$[NO_2] = [NO_x]_D \cdot \left[1 - \frac{\alpha}{1 + \beta} \{ \exp(-Kt) + \beta \} \right]$$

$K = 0.00618 \cdot u \cdot [O_3]_B$; 固定・船舶

$K = 0.00618 \cdot u \cdot [O_3]_B$; 自動車・家庭

$\alpha = 0.9$

$\beta = 0.3$

t; 時間

u; 風速

$[O_3]_B$; オゾンのバックグラウンド濃度

$[NO_2]$; NO₂ 濃度

$[NO_x]_D$; NO_x 寄与濃度

6.3 二酸化窒素の年間 98% の推計方法と留意点

二酸化窒素の環境基準等は日平均値の年間 98% 値により評価する。NO_x マニュアルモデルでは年平均値が計算されるため、98% 値を直接評価することができない。

そこで、測定値において年平均値と 98% 値の関係式を求め、この式にモデルによる年平均値を代入することで 98% 値を予測する方法がとられている。

$$\text{NO}_2 \text{ 年間 98\% 値} = \alpha \times \text{NO}_2 \text{ 年平均値} + \beta \text{ (ppb)}$$

ここでの課題として、窒素酸化物対策の効果により前述のとおり NO₂ 濃度が低減してきており、その傾向は年平均値よりも 98% 値で顕著となっている点である。これは、経年的にこの関係式が変化している可能性を意味している。

そこで、年度毎の一次回帰分析を行い、各年度の推計式を求めた。この結果を図 6-6 に示す。参考に平成 20 年度の回帰式の算定例も示している。この結果、年度によって回帰式にばらつきが見られることが確認できる。各年度の傾き α と切片 β についての経年変化を図 6-7 に示す。この結果、傾き α は増加傾向にあり、切片 β は減少傾向が確認できる。模式であらわすと図 6-5 となる。

以上の点から、98% 値の推計においては、複数年の傾向を把握することや、将来傾向について複数案を検討するなどの工夫が必要である。

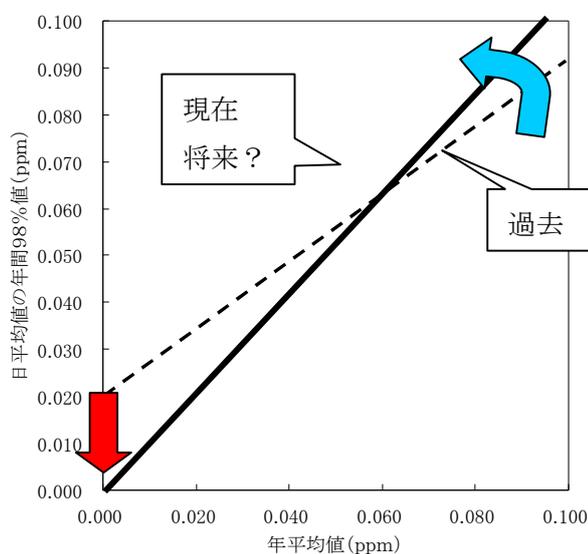


図 6-5 NO₂ 年間 98% 値推計式の経年傾向 (模式図)

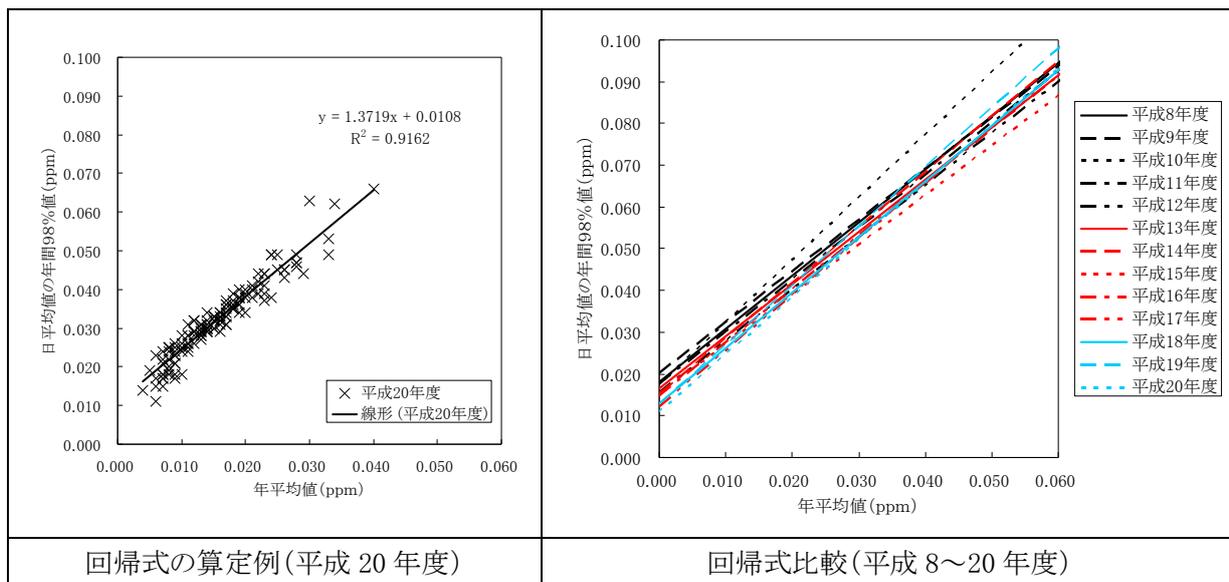


図 6-6 NO₂年間98%値推計式の算定結果

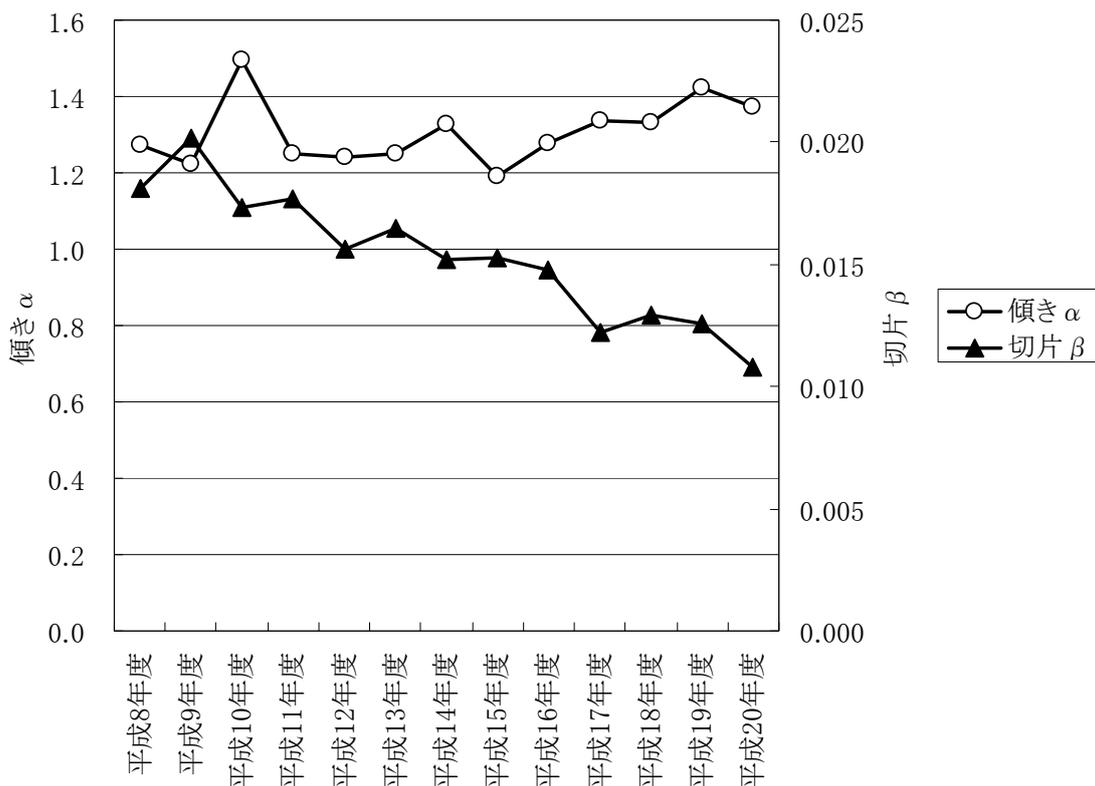


図 6-7 NO₂年間98%値推計式の回帰係数の経年変化

千葉県における過去の調査においては、測定値において98%値と年平均値の関係式を求め、この式に基準値となる0.04ppmまたは0.06ppmを代入することで、環境基準に相当する年平均値を求めて評価を行っていた。すなわち、前の式の関係で、NO₂年間98%値が0.04ppmまたは0.06ppmとなるとき、その年平均値は環境基準等に相当する。

$$\text{NO}_2 \text{ 年間 98\% 値}(0.04\text{ppm}) = \alpha \times \text{NO}_2 \text{ 年平均値(環境目標値)} + \beta \text{ (ppb)}$$

$$\text{NO}_2 \text{ 年間 98\% 値}(0.06\text{ppm}) = \alpha \times \text{NO}_2 \text{ 年平均値(環境基準値)} + \beta \text{ (ppb)}$$

この関係式より環境基準等に相当する年平均値の経年変化を求めた。この結果を図 6-9 に示す。この結果、環境基準等に相当する年平均値は上昇傾向にある。

以上の点から、98%値の推計においては、最新年度を含めた複数年の傾向を把握し、将来の予測を検討することが望ましいと考える。

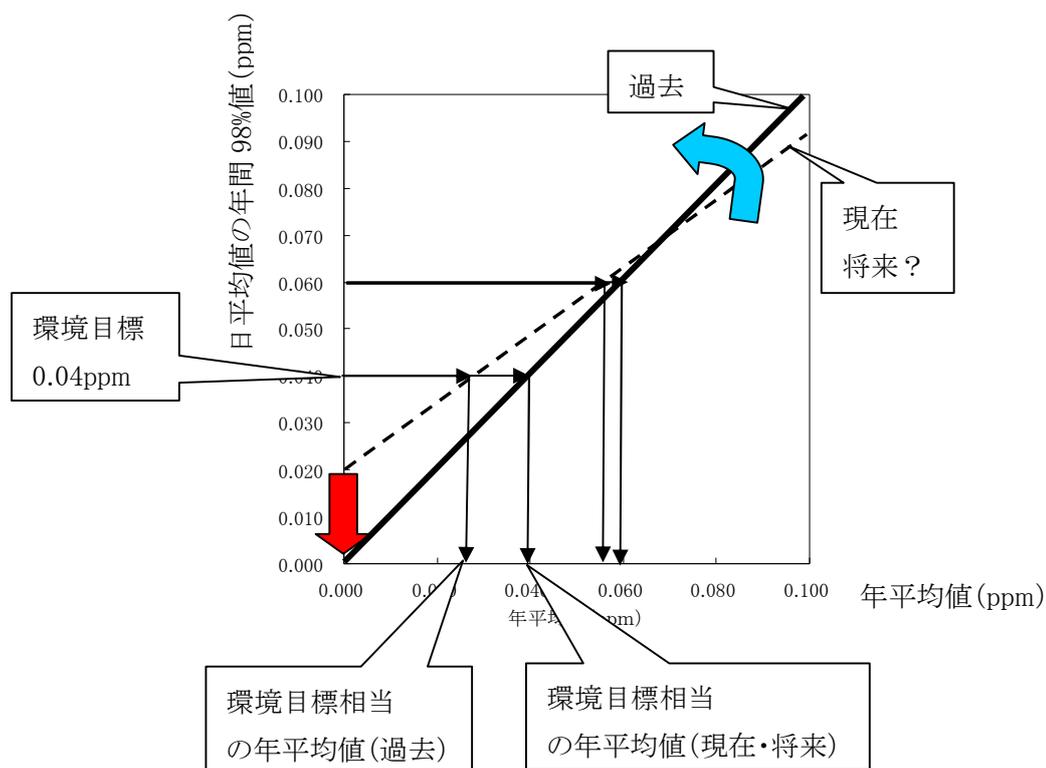


図 6-8 NO₂年間98%値推計式の経年傾向(模式図)

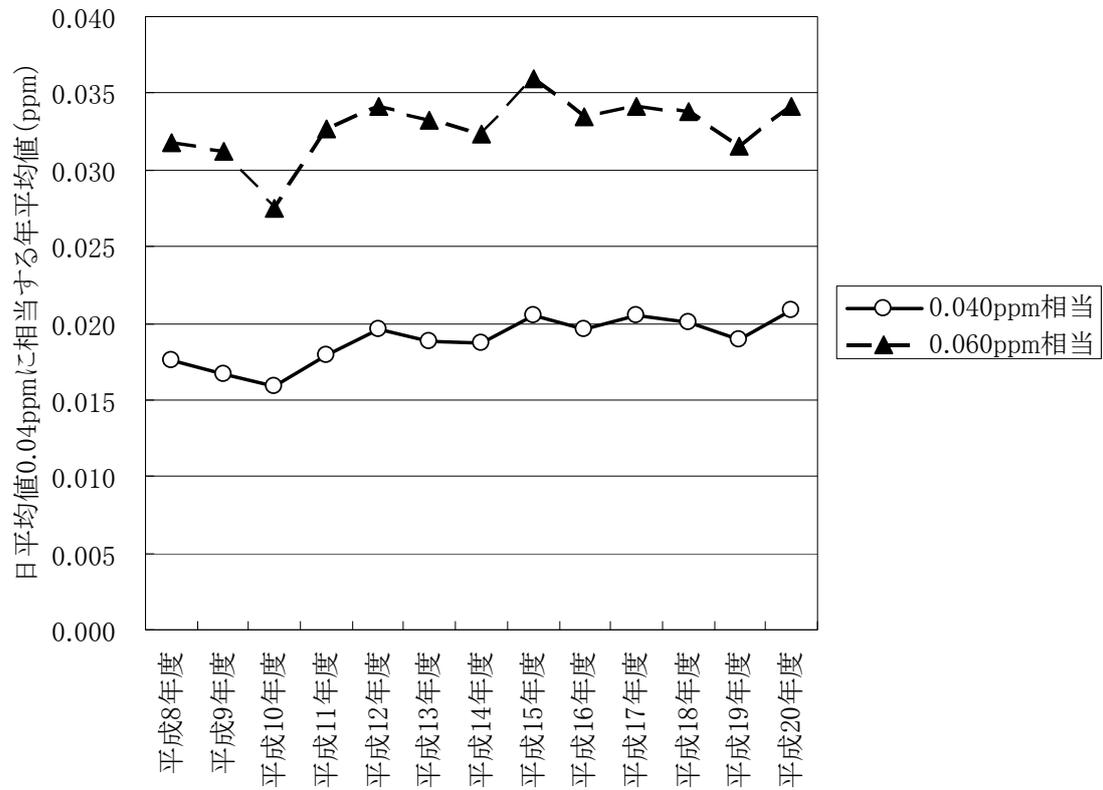


図 6-9 環境基準に対応する年平均値の推移