

Title	化学輸送モデルとレセプターモデルによるPM2.5発生源寄与解析
Author(s)	浦西, 克維
Citation	大阪大学, 2019, 博士論文
Version Type	VoR
URL	<a href="https://doi.org/10.18910/72405">https://doi.org/10.18910/72405</a>
rights	
Note	

*Osaka University Knowledge Archive : OUKA*

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

博士学位論文

化学輸送モデルとレセプターモデルによる  
PM<sub>2.5</sub>発生源寄与解析

浦西 克維

2019年3月

大阪大学大学院工学研究科  
環境・エネルギー工学専攻



# 目次

---

第1章 序論.....	1
1.1 本研究の背景.....	1
1.1.1 日本の大気汚染問題の変遷.....	1
1.1.2 PM <sub>2.5</sub> 等の粒子状物質の特性.....	6
1.1.3 PM <sub>2.5</sub> による健康影響と注意喚起のための暫定的な指針.....	10
1.1.4 東アジア地域のエネルギー需給状況と大気汚染対策.....	12
1.1.5 大気汚染の発生源寄与推計手法.....	15
1.2 本研究に関する既往の研究.....	17
1.3 本研究の目的及び方法.....	19
1.4 本論文の構成.....	20
第2章 化学輸送モデルとレセプターモデル.....	22
2.1 化学輸送モデル.....	22
2.1.1 気象モデル (WRF) の概要.....	22
2.1.2 気象モデルの基礎方程式と物理過程.....	25
2.1.3 排出インベントリ.....	29
2.1.4 化学輸送モデル (CMAQ) の概要.....	35
2.1.5 化学輸送モデルの基礎方程式と物理・化学過程.....	37
2.1.6 発生源寄与推計の方法.....	39
2.1.7 モデル性能評価に係る統計指標.....	39
2.2 レセプターモデル.....	41
2.2.1 PMF モデルの概要.....	43
2.2.2 PMF モデルへ投入するデータセットの作成.....	44
2.2.3 観測データに寄与する因子 (発生源) 数の決定.....	47
2.2.4 得られたモデル解 (因子及び寄与割合) の適合度と妥当性評価.....	48
2.2.5 因子の解釈及び発生源寄与推計.....	50
第3章 日本における PM <sub>2.5</sub> (硝酸塩) の発生源寄与推計.....	52
3.1 計算領域と計算条件.....	52
3.1.1 計算領域と計算期間.....	52
3.1.2 WRF の計算条件.....	53
3.1.3 CMAQ の計算条件.....	57

3.1.4	排出量の空間分布 .....	58
3.2	発生源寄与推計の方法 .....	60
3.3	CMAQ の性能評価 .....	62
3.3.1	地上観測データ .....	62
3.3.2	PM <sub>2.5</sub> 濃度の再現性 .....	63
3.4	発生源寄与推計 .....	69
3.4.1	PM <sub>2.5</sub> 濃度の発生源寄与 .....	69
3.4.2	PM <sub>2.5</sub> 中の硝酸アンモニウムの発生源寄与 .....	73
3.4.3	硝酸アンモニウムの前駆物質の発生源寄与 .....	74
3.5	まとめ .....	78
第 4 章 東海・近畿地域における PM <sub>2.5</sub> 発生源寄与推計 .....		79
4.1	PMF モデルによる PM <sub>2.5</sub> 発生源寄与解析 .....	79
4.1.1	解析対象データと計算条件 .....	79
4.1.2	各因子の解釈および発生源寄与推計 .....	85
4.2	CMAQ による PM <sub>2.5</sub> 発生源寄与推計 .....	94
4.2.1	計算領域と計算条件 .....	94
4.2.2	CMAQ の性能評価 .....	100
4.2.3	PM <sub>2.5</sub> 濃度の発生源寄与推計 .....	109
4.3	両モデルを併用した PM <sub>2.5</sub> 発生源寄与解析 .....	109
4.4	まとめ .....	116
第 5 章 国外バイオマス燃焼による国内 PM <sub>2.5</sub> 濃度への影響 .....		117
5.1	CMAQ による PM <sub>2.5</sub> の広域輸送解析 .....	118
5.1.1	計算領域と計算条件 .....	118
5.1.2	バイオマス燃焼起因の PM <sub>2.5</sub> 濃度の寄与推計の方法 .....	129
5.1.3	CMAQ の性能評価 .....	129
5.2	PMF モデルの発生源寄与解析結果を利用した国内 PM <sub>2.5</sub> 濃度への影響解析 .....	135
5.3	まとめ .....	141
第 6 章 結論 .....		142
謝辞 .....		145
参考文献 .....		146
頭字語 (Abbreviations) .....		162

Appendix: WRF の性能評価 .....	1
A.1 WRF の性能評価にかかる統計指標 .....	2
A.2 第 3 章で用いた気象場の再現性 .....	4
A.2.1 地上観測データ .....	4
A.2.2 日本国外の気象場 .....	5
A.2.3 日本国内の気象場 .....	11
A.3 第 4 章で用いた気象場の再現性 .....	15
A.3.1 地上観測データ .....	15
A.2.2 日本国外の気象場 .....	16
A.2.3 日本国内の気象場 .....	23
A.4 第 5 章で用いた気象場の再現性 .....	28
A.4.1 地上観測データ .....	28
A.4.2 日本国外の気象場 .....	29
A.4.3 日本国内の気象場 .....	36
A.5 参考文献 .....	41



## 第1章 序論

---

### 1.1 本研究の背景

#### 1.1.1 日本の大気汚染問題の変遷

日本における大気汚染の歴史は、欧米の近代化を目標に殖産興業政策が推進された明治時代 (1868～1912 年) の初期にまで遡る。当時、紡績業や銅精錬業、製鉄業の規模が次第に拡大し、明治年間から大正年間 (1912～1926 年) にかけて、国内各地で著しい大気汚染が発生した。大阪、東京等の大都市では、紡績業等の近代産業の立地、鍛冶業等各種の町工場の集中した立地、その後の火力発電所の立地が、都市周辺に著しい大気汚染を発生させた。同時に大都市だけでなく地方における大気汚染も大きな問題となった。特に、栃木県の足尾銅山、愛媛県の別子銅山、茨城県の日立鉱山といった銅精錬所周辺地域においては、精錬に伴う硫酸化物の排出が周辺の農林水産業に深刻な被害を発生させた (「日本の大気汚染の歴史」, 大気環境学会史料整理研究委員会編, 2000)。

第二次世界大戦後、経済復興を図るため日本政府主導により、当時の基幹産業である鉄鋼、石炭に資材・資金を重点的に投入され、早期に工業の復興を果たした。一方で、石炭を主要エネルギーとした工業復興は、各地で降下ばいじんや硫酸化物を主とする大気汚染問題を引き起こした。高度経済成長期 (1955～1973 年) に突入すると、産業の重化学工業化が進み、エネルギー源の主役も石炭から石油に切り替わった。このため、大気汚染も硫酸化物 (SO<sub>x</sub>) を中心とした汚染に形態を変化させつつ、広域化、深刻化した (「日本の大気汚染の歴史」, 大気環境学会史料整理研究委員会編, 2000)。この高度経済成長期には、大気汚染だけでなく水質汚濁による被害も深刻化し、四大公害病と言われるメチル水銀による水俣病及び第二水俣病 (新潟水俣病)、カドミウムによるイタイイタイ病、SO<sub>x</sub>による「四日市ぜんそく」の公害問題が表面化し、国や地方自治体の公害対策が推進される契機となった。

1967 年には公害対策基本法が制定され、「国民の健康で文化的な生活を確保するうえにおいて公害の防止がきわめて重要であることにかんがみ、事業者、国及び地方公共団体の公害の防止に関する責務を明らかにし、並びに公害の防止に関する施策の基本となる事項を定めることにより、公害対策の総合的推進を図り、もつて国民の健康を保護するとともに、生活環境を保全することを目的とする」 (同法1条) に基づき、公害行政の体系化が図られた。1969 年には同法の改正および公害防止の行政上の目標として、硫酸化物に係る環境基準 (「1時間値の年間平均値が 0.05 ppm を超えないこと」等) が国内で初めて設けられた。さらに、公害対策基本法に基づき、大気汚染対策を総合的かつ協力に推進するため、「大気汚染防止法」 (1968 年制定) が 1970 年に大幅に改正され、環境基準を達成するために定められた各種排出規制及びばいじんや SO<sub>x</sub> 除去技術といった公害防止技術の進化とも相まっ



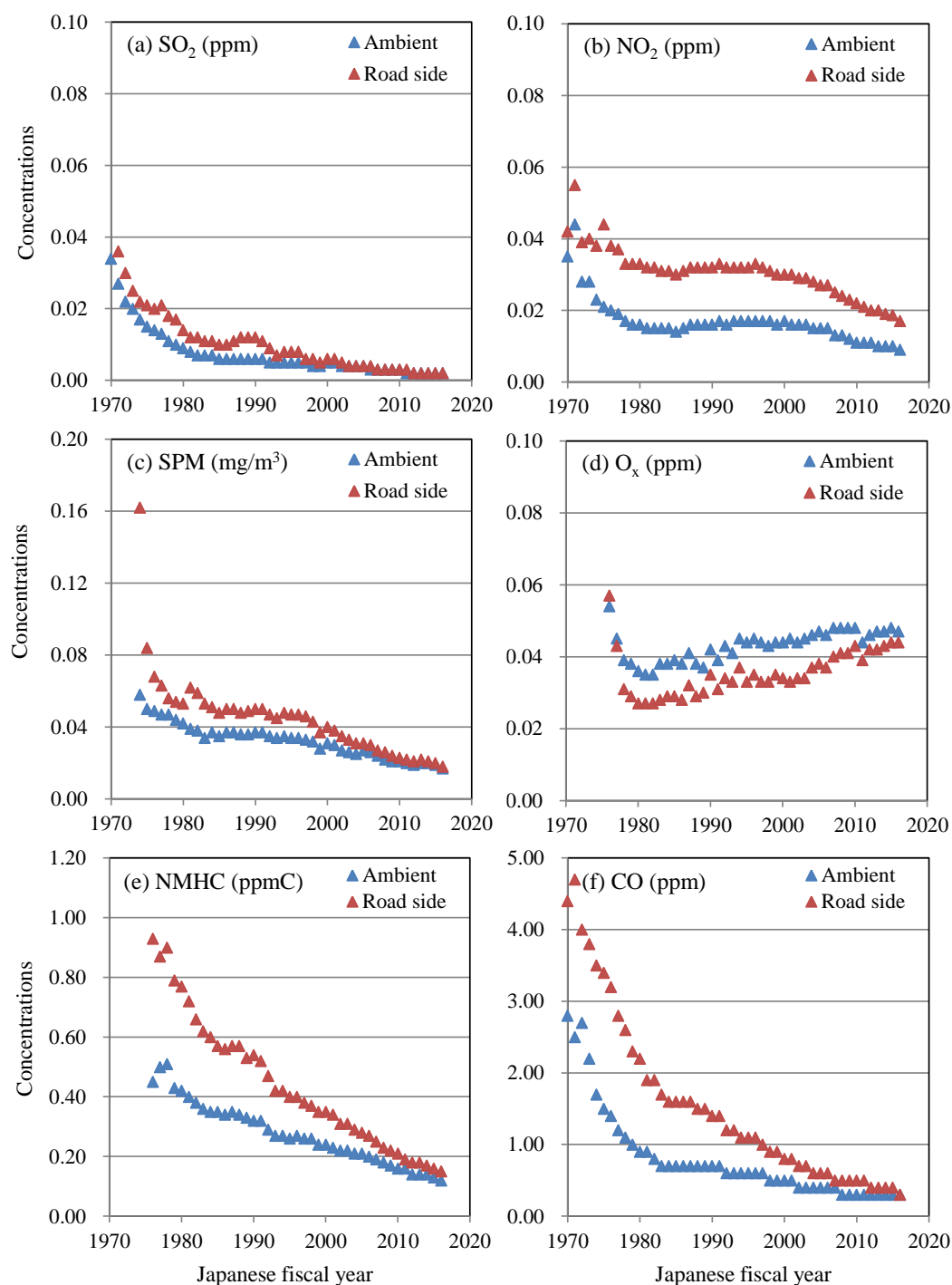
て、日本の大気環境は著しく改善した (Fig. 1.1a、環境省, 2018a を元に作図)。

大気汚染問題は、エネルギー供給量 (需給構造) と密接に関連している。Fig. 1.2 に日本の高度経済成長期以降のエネルギー資源別一次エネルギー供給量の推移 (資源エネルギー庁, 2018a) 及び大気汚染問題等の変遷を示す。エネルギー供給量は高度経済成長期に高い伸びを記録し、1955年 (2,696 PJ) から1975年 (14,378 PJ) の間で5倍以上増加している。その後、2005年までの間に石油危機による省エネルギー化対策等によりエネルギー供給量の伸びは鈍化したものの、2005年の22,095 PJ (原油換算 59,153 万 kl) をピークに2016年現在も19,836 PJ (原油換算 51,227 万 kl) と依然として高い水準を保っている。

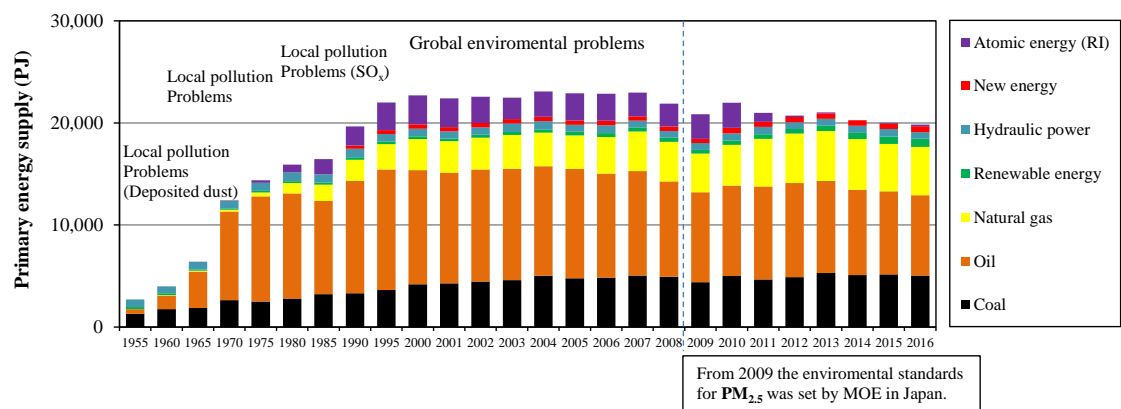
一次エネルギーの資源別構成比をみると、1960年以前は石炭、水力で全エネルギーの60%以上を供給していたが、高度経済成長期以降、産業の重化学工業化が進み、エネルギー源の主役も石炭から石油に変化し、1975年には石油依存率が72%に達した。しかし、石油危機を契機にエネルギーの安定供給の観点から、政府によるエネルギー源の多様化が推進され、2005年の石油依存率は47%、2016年現在では40%にまで減少している。

大気環境に係る環境基準 (Table. 1.1) は他の大気汚染物質 (一酸化炭素 (CO)、浮遊粒子状物質 (SPM, Suspended Particle Matter)、二酸化窒素 (NO<sub>2</sub>)等) にも設けられている。これまでの大気汚染対策、エネルギー源の多様化等によって日本の大気環境は大幅に改善した。2016年度時点で、二酸化硫黄 (SO<sub>2</sub>)、NO<sub>2</sub>、SPM、CO (1983年以降、全地点で環境基準を達成) についてはほぼ全ての地点で環境基準を達成 (Fig. 1.3、環境省, 2018c を元に作図) し、これらの大気中濃度も長期的には減少傾向にある (Fig. 1.1)。しかし、光化学オキシダント (O<sub>x</sub>) の環境基準は0%付近を推移 (Fig. 1.3d) し、大気中濃度も長期的には増加傾向 (Fig. 1.1d) にあるため、引き続き、原因物質 (窒素酸化物 (NO<sub>x</sub>) と揮発性有機化合物 (VOC, Volatile Organic Compounds)) の排出抑制対策が進められている (環境省, 2018c)。

微小粒子状物質 (PM<sub>2.5</sub>) は、近年において、浮遊粒子状物質の中でも粒径2.5 μm以下の微小な粒子状物質の暴露が、一定の健康影響を及ぼしていることを示す科学的知見が蓄積されてきた (環境省, 2008)。そのため、PM<sub>2.5</sub>は、2009年に国内でも新たに環境基準として設定 (Table. 1.1) された。2016年度のPM<sub>2.5</sub>の環境基準達成率は、一般大気環境測定局 (一般局) で88.7%、自動車排ガス測定局 (自排局) で88.3%であった。2013年以降、一般局、自排局ともにPM<sub>2.5</sub>の年平均濃度は減少傾向 (Fig. 1.4b) にあり、環境基準達成率も上昇 (Fig. 1.4a) している。しかし、北部九州地域や四国地方の瀬戸内海に面する地域においては、依然として環境基準達成率 (県別) が一般局で30%から60%程度の低い地域が存在している (環境省, 2018c)。また、「微小粒子状物質の国内における排出抑制策の在り方について 中間取りまとめ」 (環境省, 2015) では、PM<sub>2.5</sub>は原因物質と発生源が多岐にわたり、生成機構も複雑でその解明が不十分であることから、対策に必要な科学的知見の充実が必要であり、高度化した数値モデル (例えば、化学輸送モデル) 等を用いて、PM<sub>2.5</sub>の削減効果をできる限り定量的に評価・検証しつつ、総合的・効果的な排出抑制策を検討することが必要と指



**Fig. 1.1** Air pollutants concentrations over the years for the general environment stations. The concentrations are annual means for  $\text{SO}_2$ ,  $\text{NO}_2$  and SPM, and annual means of daily maximum day-time hourly mean values for  $\text{O}_x$ . Units are ppm for  $\text{SO}_2$ ,  $\text{NO}_2$ ,  $\text{O}_x$ , and CO, ppmC for NMHC, and  $\text{mg}/\text{m}^3$  for SPM.



**Fig. 1.2** Primary energy supply and its composition in Japan (Agency for Natural Resources and Energy in Japan, 2018a)

**Table 1.1** Environmental standard of major air pollutants in Japan. (MOE, 2018b)

Air pollutant	Averaging time	Level	Date of enactment
SO <sub>2</sub>	1 hour	0.1 ppm	May 16th, 1973
	24 hour	0.04 ppm	
CO	8 hour	20 ppm	May 8th, 1973
	24 hour	10 ppm	
SPM	1 hour	0.20 mg/m <sup>3</sup>	May 8th, 1973
	24 hour	0.10 mg/m <sup>3</sup>	
NO <sub>2</sub>	24 hour	within 0.04-0.06 ppm or below	July 11th, 1978
O <sub>x</sub>	1 hour	0.06 ppm	May 8th, 1973
PM <sub>2.5</sub>	24 hour	35 µg/m <sup>3</sup>	September 9th, 2009
	Annual	15 µg/m <sup>3</sup>	

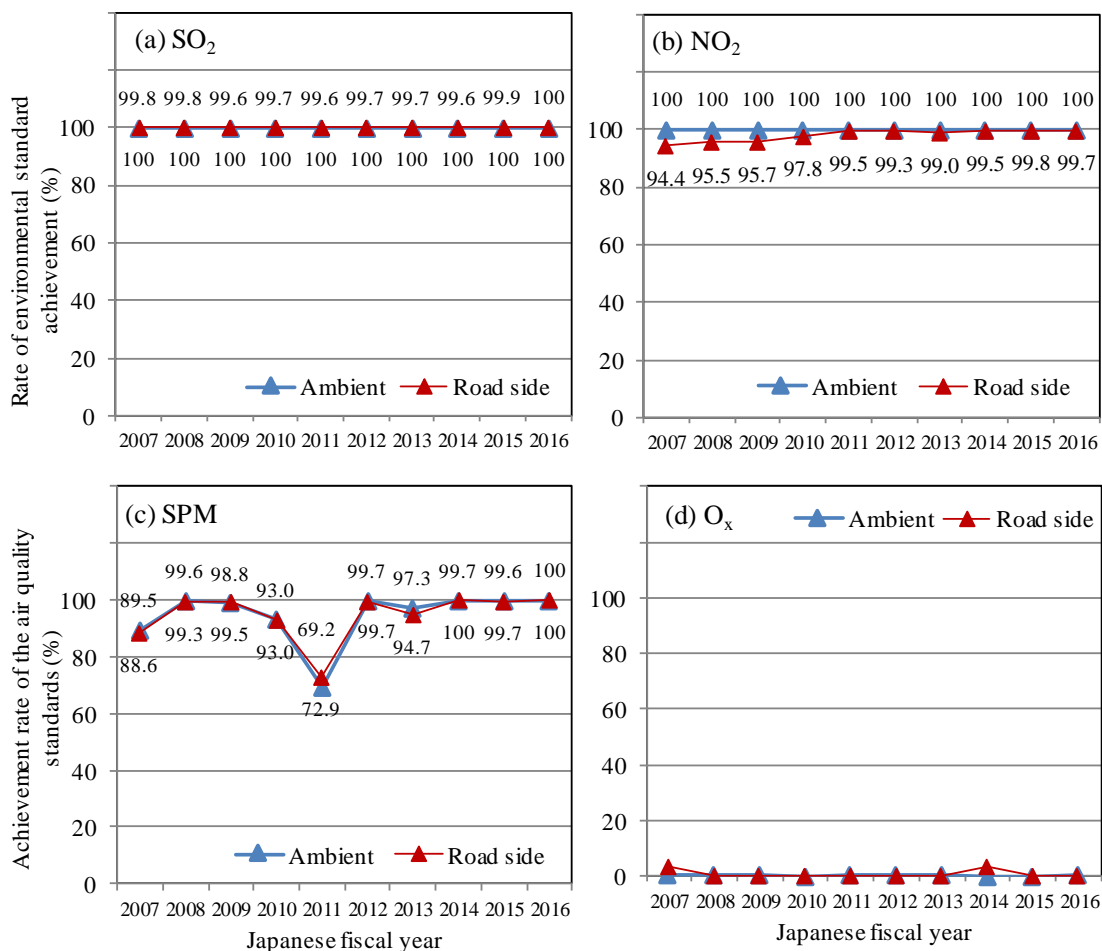


Fig. 1.3 Rate of Environmental Standard Achievement of Major Air Pollutants (F.Y.2007 to 2016)

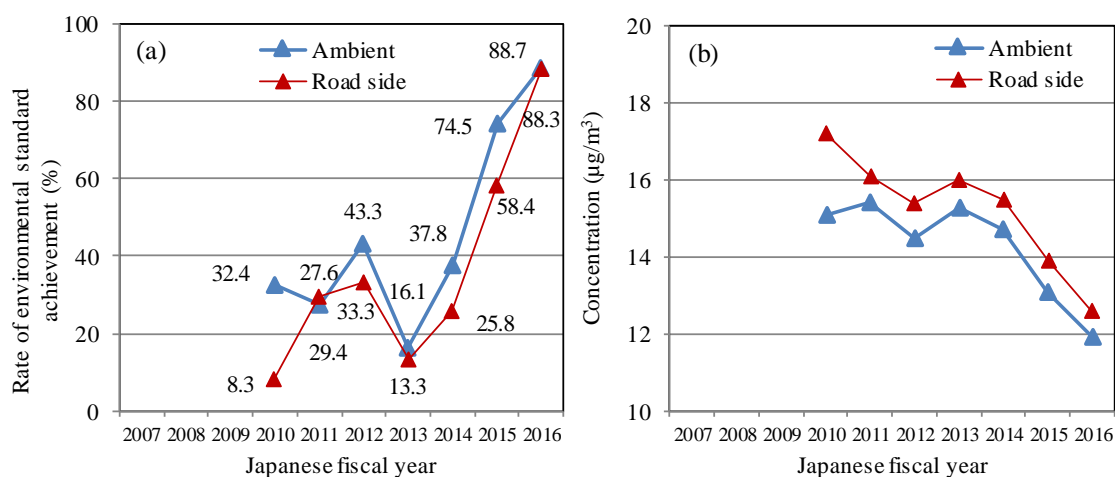


Fig. 1.4 (a) Rate of Environmental Standard Achievement and (b) annual average concentration of PM<sub>2.5</sub>

摘されている。しかし、シミュレーションモデルによる PM<sub>2.5</sub> の解析は発展途上の研究課題であり、現時点では、東アジアスケールの越境大気汚染を定性的に予測・再現する精度はあるものの、都市スケールの精度や定量性については十分とはいえない (例えば、Aikawa et al., 2010; Shimadera et al., 2016)。このような背景から、化学輸送モデル等のさらなる精度向上は重要な課題となっている。

### 1.1.2 PM<sub>2.5</sub> 等の粒子状物質の特性

PM<sub>2.5</sub>、SPM といった粒子状物質 (PM, Particle Matter) は、他の大気汚染物質 (SO<sub>2</sub>、NO<sub>2</sub>、CO 等) とは異なり、単独の化学物質ではない。無機成分 (硫酸アンモニウム: (NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>、硝酸アンモニウム: NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>、塩化アンモニウム: NH<sub>4</sub>Cl 等)、炭素成分 (有機炭素: OC、元素状炭素: EC)、炭酸塩炭素等、金属成分、土壌成分等に分類され、物理的、化学的な性質、発生源が異なる物質の混合体として存在している。そのため、大気中の粒子状物質の幾何学的粒径は、分布範囲が広く、おおよそ 0.001~100 μm の範囲内に存在する。

Fig. 1.5 に示すように、粒径分布にはモードと呼ばれる 3 つのピークが存在し、一般に、破碎過程において生成され、粗大粒子領域である 5~30 μm にピークを持つ粗大粒子モード (Coarse mode)、凝縮や凝固によって形成され、0.15~0.5 μm にピークを持つ蓄積モード (Accumulation mode)、また、主に燃焼過程から出る粒子で、微小粒子領域である 0.015~0.04 μm にピークを持つ核形成モード (Aitken nuclei mode) がある。質量 (体積) 濃度分布において、二つの峰のうち、粒径の大きい方が粗大粒子 (Coarse particles)、小さい方が微小粒子 (Fine particles) に相当する (U.S.EPA, 2004)。日本では、粒径 2.5 μm 以下の粒子状物質を PM<sub>2.5</sub> (測定においては粒径 2.5 μm 以上の粒子を 50%カットして捕集)、粒径 10 μm 以下の粒子状物質を SPM (測定においては粒径 10 μm 以上の粒子を 100%カットして捕集) として、それぞれ環境基準を設定している (環境省, 2018b)。ちなみに、米国で環境基準が設定されている PM<sub>10</sub> は、粒径 10 μm 以上の粒子を 50%カットして捕集された粒子状物質をいい、SPM と PM<sub>10</sub> では粒径が異なる (粒径分布では、PM<sub>2.5</sub> < SPM < PM<sub>10</sub>) ことに留意する必要がある。

また、PM<sub>2.5</sub> を構成する粒子状物質は生成過程の違いから、大気中に直接粒子として放出される一次粒子 (EC 等) と大気中の前駆気体が化学反応を起こし粒子化することで生成される二次粒子 (SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>: 硫酸塩、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>: 硝酸塩、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>: アンモニウム塩、OA: 有機エアロゾル等) に分類される。

一次粒子は、堆積物等の破碎や研磨等の細粒化や物の燃焼に伴って排出される。堆積物の破碎や研磨等による発生は粒径約 6 μm を中心とした粗大粒子領域に分布している。一方、物の燃焼に伴って排出される場合は、粒径が約 2 μm 以下の微小粒子領域に分布している。

二次粒子は、固定発生源、移動発生源等における燃焼に伴って発生する SO<sub>x</sub>、NO<sub>x</sub>、塩化

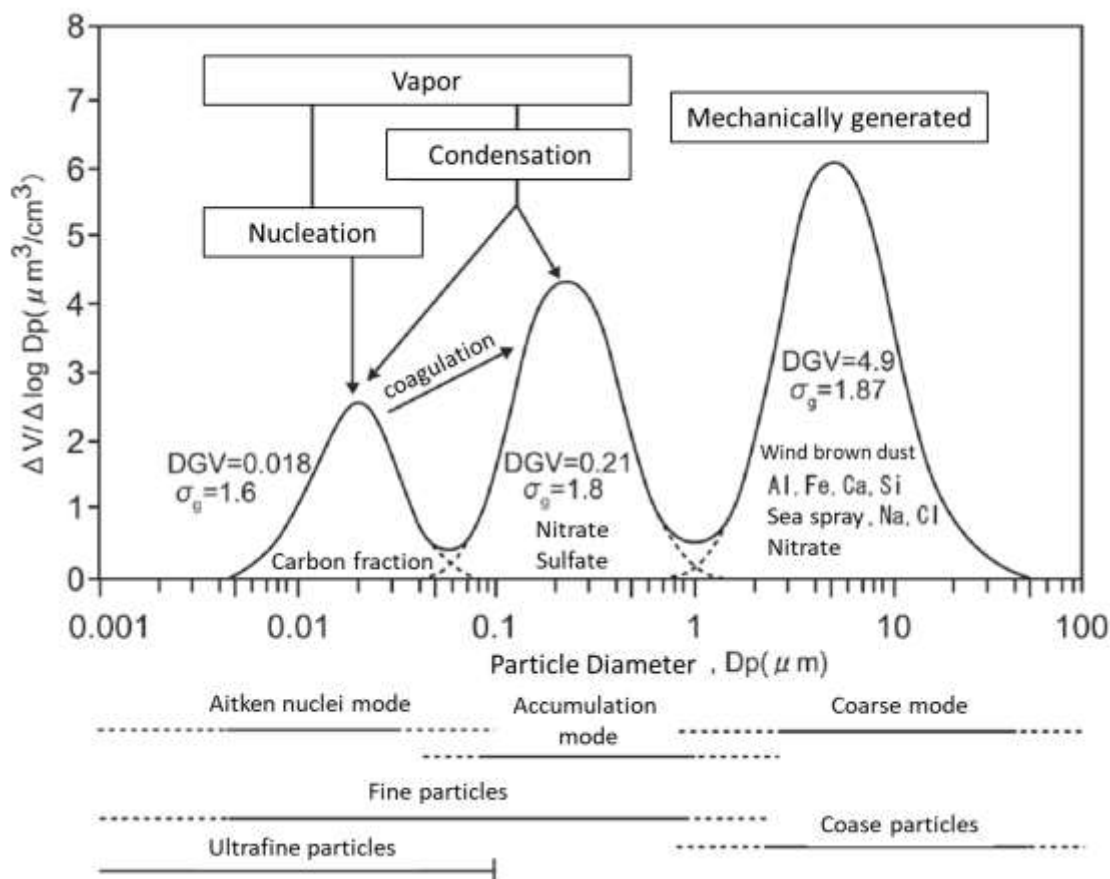


Fig. 1.5 Idealized size distribution of particulate matter (U.S. EPA, 2004)

水素 (HCl)、VOC 等のガス状物質が、主として大気中での化学反応により蒸気圧の低い物質 ( $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{NH}_4^+$ 、OA) に変化して粒子化したものである。

二次粒子の前駆物質としては、 $\text{SO}_x$ 、 $\text{NO}_x$ 、Cl 化合物、アンモニア ( $\text{NH}_3$ )、VOC が挙げられる。VOC は、OH ラジカル、 $\text{O}_x$  等と化学反応を起こし、揮発性の低い含酸素有機化合物を生成し、それらが自ら凝縮して新しい粒子が生成されたり、または大気中の既存粒子上に凝縮したりして、既存粒子が成長していく。また、VOC そのもの、または上記の反応生成物質が既存の微小粒子に吸着または吸収され、粒子の表面上や粒子内部で化学反応を起こし、さらに揮発性の低い有機化合物 (SVOC, Semi-Volatile Organic Compounds) を生成することにより粒子を形成したり、既存粒子を変質させたりする (Fig. 1.6, Meng et al. (1997) を元に作図)。

発生源は人為起源と自然起源に大別され、人為起源には、固定発生源 (工場・事業場等) と移動発生源 (自動車、船舶、航空機等) がある (Table 1.2)。固定発生源としては、ボイラー、焼却炉等のばい煙を発生する施設や、コークス炉、鉱物の堆積場等の粉じんを発生する施

設等が挙げられる。また、移動発生源としては、自動車、船舶、航空機等が挙げられる。自然発生源としては、土壌粒子、海塩粒子、火山噴煙等がある。四方を海に囲まれ、海岸線に沿って都市が発達している日本では、季節特有の風系により飛散する海塩の粗大粒子の影響 (Kajino et al., 2013) に留意する必要がある。さらに、春季に観測される黄砂は中国内陸の乾燥域で発生した後、中国の大都市域や工場地帯の上空、東シナ海を通過する過程で、黄砂粒子の表面に硝酸ガスが取り込まれ、粗大粒子中 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度が増加することが報告されている (鶴野ら, 2016)。また、黄砂に取り込まれた NO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度の増加は、PM<sub>2.5</sub> 中の NO<sub>3</sub><sup>-</sup>の高濃度化にも影響があると報告されている。

このように PM<sub>2.5</sub> は、多くの物質による複雑で非線形な化学反応を通じて生成される。また、その濃度や存在割合は地域特性 (例えば、都市部、郊外、後背地といった土地利用の違い、交通量や地域の産業構造など)、季節等により大きく変化する。そのため、効果的な PM<sub>2.5</sub> の低減対策を立案するためには、PM<sub>2.5</sub> に対する各種発生源の寄与割合を把握する必要がある。

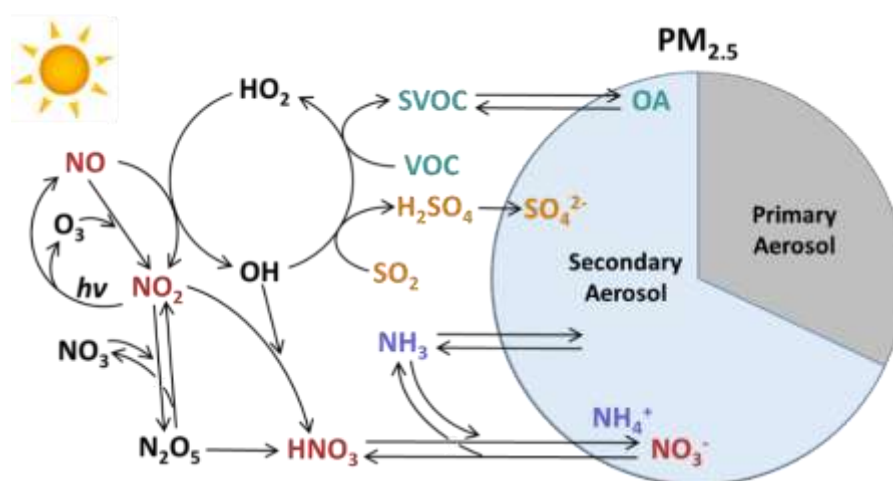


Fig. 1.6 Formation of secondary PM<sub>2.5</sub>. Figure is based on Meng et al. (1997).

**Table 1.2 Sources of particle matter**

	Natural	Anthropogenic
Primary	windblown dust	mineral dust from mining and extraction industries
	sea salt spray	windblown agricultural soil
	pollen, spores	road dust
	wildfire (EC, OC)	tire and brake wear
		dust from construction sites
		fossile fuel combustion (industrial, residential, autos) (EC, OC)
		residential wood combustion (EC, OC)
Secondary	OC from biogenic VOCs	OC from anthropogenic sources from VOCs (autos, industrial processes, solvents)
	nitrate from natural (land soil, lightning)	sulfates and nitrates from anthropogenic sources of SO <sub>x</sub> and NO <sub>x</sub> (autos, power plants etc)
	sulfate from natural (volcanic SO <sub>2</sub> )	



### 1.1.3 PM<sub>2.5</sub> による健康影響と注意喚起のための暫定的な指針

PM<sub>2.5</sub>は前述のとおり、大気中に浮遊している 2.5 $\mu\text{m}$  以下の小さな粒子で非常に小さいため（髪の毛の太さの 1/30 程度、Fig. 1.7）、肺の奥深くまで入りやすく、呼吸器系への影響に加え、循環器系への影響が懸念されている（環境省, 2018d; Talat et al., 2007; Schwartz et al., 2002; Dockery et al., 1993）。

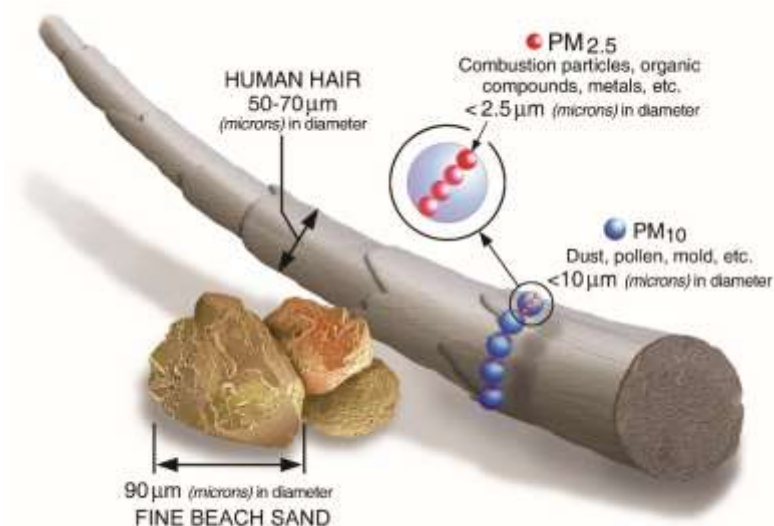


Fig. 1.7 Size comparisons for PM particles (PM<sub>2.5</sub> and PM<sub>10</sub>) (U.S.EPA., 2018)

2013年1月に中国の北京市を中心に発生したPM<sub>2.5</sub>等による大規模な大気汚染が断続的に発生した事案は、西日本でも広域的に環境基準を超える濃度が一時的に観測されたこともあり、PM<sub>2.5</sub>による大気汚染及び健康影響についての国民の関心が急速に高まった（環境省, 2013）。これを受けて「微小粒子状物質 (PM<sub>2.5</sub>) に関する専門家会合」（以下、「専門家会合」という。）が設置され、PM<sub>2.5</sub>の濃度が急激に上昇した場合（短期暴露に対する健康影響）における注意喚起の指針化等について検討がおこなわれた。専門家会合による報告の概要（環境省, 2013）を下記に示す。

#### (1) PM<sub>2.5</sub> への短期曝露による健康影響に関する知見

国内外の研究において、PM<sub>2.5</sub>の短期曝露による健康影響に関する知見は限られており、PM<sub>2.5</sub>への曝露濃度と健康影響の間に一貫した関係は見出されていない。しかし、高感受性者の集団においては、一般集団より低いPM<sub>2.5</sub>濃度の曝露によっても健康影響が生じる可能性は否定できず、PM<sub>2.5</sub>への曝露に対する感受性にも大きな幅が存在すると考えられる。

例えば、呼吸器系疾患や循環器系疾患による入院・受診等とPM<sub>2.5</sub>濃度の日平均値との間に有意な関係が示された複数の疫学研究結果では、高感受性者（呼吸器系や循環器系疾患のある者、小児、高齢者等）を含む集団について、日平均値の98パーセンタイル値が69 $\mu\text{g}/\text{m}^3$

以下において何らかの健康影響が確認されている (Neas et al., 1996)。

他方、健康な成人を対象とした志願者による PM<sub>2.5</sub> の急性曝露試験の結果によると、平均濃度 72.2 µg/m<sup>3</sup> に 2 時間曝露した場合に血液生化学的指標の変化が認められたという知見がある一方で、平均濃度 127 µg/m<sup>3</sup> への 2 時間曝露により血圧、心拍、血流等に変化がみられなかったとする知見、平均濃度 190 µg/m<sup>3</sup> の 2 時間曝露においても血圧・心拍などに変動は認められなかったとする知見もある。

## (2) 注意喚起のための暫定的な指針

上記に示した短期曝露に関する知見等、及び米国における大気質指標 (AQI, Air Quality Index) においてすべての人に対してある程度の健康への影響を与える可能性がある PM<sub>2.5</sub> 濃度として 65.5 µg/m<sup>3</sup> 以上が定められていること等を総合的に勘案し、注意喚起のための暫定的な指針となる値として、日平均値 70 µg/m<sup>3</sup> を提案する (Table. 1.3)。ただし、日平均値 70 µg/m<sup>3</sup> を超える PM<sub>2.5</sub> への曝露によって、すべての人に必ず健康影響が生じるというものではないこと、高感受性者は、日平均値 70 µg/m<sup>3</sup> 以下の場合であっても短期的な影響がみられる可能性があることに留意する必要がある。

## (3) 今後の課題

国内における PM<sub>2.5</sub> の健康影響に関する疫学的な知見が不足しているため、長期継続的に疫学調査等を進める等により、今後も健康影響に関する知見の集積に努める。

**Table 1.3** Temporary evacuation procedures guidelines for PM<sub>2.5</sub> pollution (in Japanese)

Evacuation level	Criteria of daily mean PM <sub>2.5</sub> concentration (µg/m <sup>3</sup> )	Recommended plan	Alert criteria <sup>1)</sup> of PM <sub>2.5</sub> concentration for activities in early morning	Alert criteria <sup>1)</sup> of PM <sub>2.5</sub> concentration for activities in the afternoon
			5:00~7:00 hourly mean concentration (µg/m <sup>3</sup> )	5:00~12:00 hourly mean concentration (µg/m <sup>3</sup> )
II	> 70	Refrain from nonessential and nonurgent outdoor activities as less as possible. In particular, those who have hypersensitivity <sup>2)</sup> to PM <sub>2.5</sub> should refrain from any outdoor activities as less as possible, given their physical state.	85 >	80 >
I	≤ 70	Generally, it's not necessary to refrain from outdoor activities. those who have hypersensitivity <sup>2)</sup> to PM <sub>2.5</sub> should take care of their physical state not to receive a harmful effect on their health from PM <sub>2.5</sub> .	85 ≤	80 ≤
Environmental standard	≤ 35			

1) Alert criteria was provided to decide whether a daily mean PM<sub>2.5</sub> concentration would be over the criteria of the evacuation level.

2) Child, aged people, and people who have respiratory organs illness or circulatory system disease.

### 1.1.4 東アジア地域のエネルギー需給状況と大気汚染対策

アジア地域におけるエネルギー資源別一次エネルギー供給量(IEA, 2018) は 1975 年以降、著しく増加している (Fig. 1.8)。特に、中国、インド等のアジア諸国では経済発展に伴う電力需要の増加に伴い、石炭火力発電所での石炭消費が近年、増加している (資源エネルギー庁, 2018b)。2015 年現在、アジア地域の一次エネルギー総供給量の約 60 % (124,484 PJ) を中国が占め、2009 年以降、世界最大のエネルギー消費大国である。中国のエネルギー消費量の内訳 (Fig. 1.9、National Bureau of Statistics of China (2018) を元に作図) をみると、石炭が 62 % (2016 年) を占める。これは、世界の石炭総消費量の約 48 %が中国で消費されていることに相当する (資源エネルギー庁, 2018b)。そのため、石炭及び石油 (中国国内エネルギー消費量の 18 %) を燃焼することで放出される SO<sub>2</sub> や NO<sub>x</sub> 等が大気中で酸化反応を経ることで生成される人為起源の粒子状物質に起因した大気汚染が深刻な問題となっている。

中国におけるエネルギー消費増加等に伴う大気汚染問題に対応するため、2013 年 10 月に中国の北京市では「北京市大気汚染応急プラン (試行)」を公布し、大気汚染のレベルを示す 4 段階の警報を設けた。2015 年 3 月には、新たな応急プランを公布し、最近数年の石炭燃焼の削減、車両制限/ガソリン消費量の抑制、汚染対策・排出削減、粉じんの清掃等を通じて、大気の状態を継続的に改善したとしつつも、目下の汚染物質の排出量は環境のキャパシティを依然として超えており、極端に不利な気象条件下においては空気の重度の汚染が容易にもたらされるとの認識を北京市政府は示している (在中国日本国大使館, 2015)。また、同年 12 月には最も深刻なレベルである赤色警報が初めて発令され、自動車の使用規制や工場の操業停止等の措置がとられた (毎日新聞, 2015)。

これらの汚染物質は季節風等により風下側の日本へ長距離輸送されることが知られており (Aikawa et al., 2010)、国内大気への影響やそれがもたらす健康への影響が懸念されている。2014 年 2 月には国内 12 府県で PM<sub>2.5</sub> に関する注意喚起が発令され、8 府県の観測点で日平均値が環境基準値の 2 倍にあたる 70 µg/m<sup>3</sup> を超過した (環境省, 2014a)。

PM<sub>2.5</sub> 濃度が上昇する原因には、国内に起因するものと越境汚染によるものがあり、その対応には、国内対策と越境汚染対策の双方を実施していく必要がある。「微小粒子状物質の国内における排出抑制策の在り方について 中間取りまとめ」 (環境省, 2015) では、国内に起因するものとして下記項目等を指摘し、国内における排出抑制対策を着実に進めることが必要と指摘している。

- 「国内の固定発生源 (工場・事業場) や移動発生源 (自動車、船舶等)、NH<sub>3</sub> の発生源等についても、年平均濃度において一定の寄与割合を占めており、特に関東地方などでは寄与割合が大きいと考えられる。
- PM<sub>2.5</sub> の日平均値の年間 98 パーセンタイル値及び年平均値の上位測定局 (10 局) の多くが瀬戸内海沿岸に位置しており、越境汚染の寄与が小さいと考えられる夏季等

において高濃度を観測している事例もあるなど、国内発生源の影響が示唆される。

- $\text{NH}_3$  は、二次生成粒子の原因物質となるが、排出量の不確実性が非常に高い。
- 野焼きにより、地域的、季節的に  $\text{PM}_{2.5}$  の濃度が上昇する可能性がある。

一方、越境汚染対策については、多国間による連携が必要となることから、環境省では、2013年12月に「 $\text{PM}_{2.5}$ に関する総合的な取組（政策パッケージ）」を策定し、越境汚染の軽減を目指した国際協力に取り組んでいる。具体的には、

- ① アジア各国、各都市等のニーズに応じた能力向上に係る取組
- ② 日本の優れた技術、設備等の紹介、導入推進
- ③  $\text{PM}_{2.5}$ 成分分析、凝縮性ダスト等の新たな課題に対する科学的知見の向上
- ④ 政策、技術、科学的知見等に関する情報共有
- ⑤ 多国間でのモニタリングデータの交換、評価

といった国際協力が進められている。

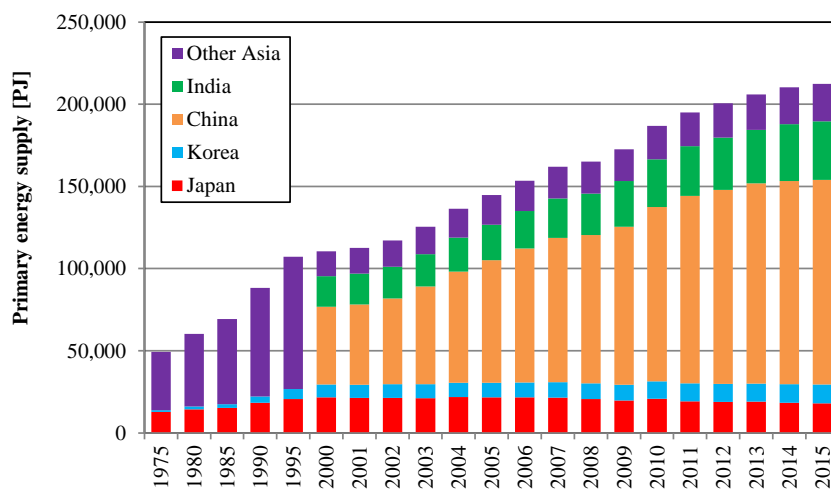


Fig. 1.8 Annual change of primary energy supply and its share in Asia (IEA, 2018)

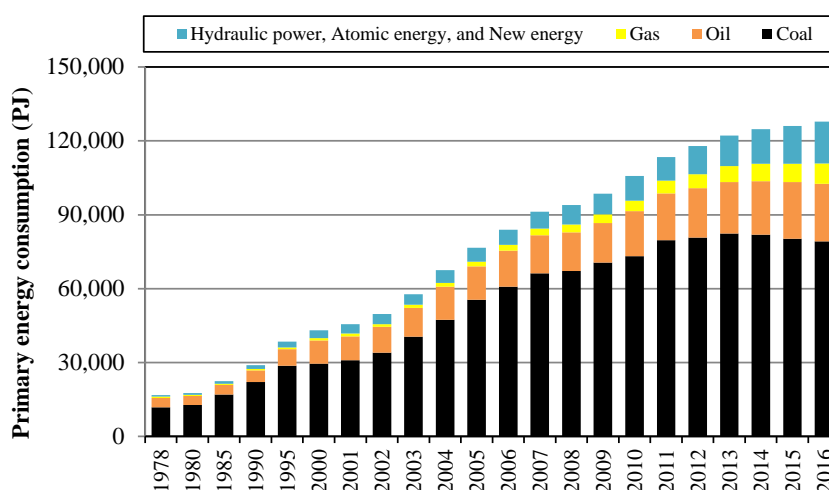


Fig. 1.9 Annual change of primary energy consumption and its composition in China (National Bureau of Statistics of China, 2018)

### 1.1.5 大気汚染の発生源寄与推計手法

PM<sub>2.5</sub>の削減効果をできる限り定量的に評価・検証しつつ、総合的・効果的な排出抑制策を検討していくためには、目的物質の発生源寄与濃度の把握が必須である。大気観測は、大気汚染の現況を把握し、規制や政策の効果を検証するための手段として不可欠ではあるが、物理的、経済的な制約から対象空間全域での観測は不可能である。そのため、大気汚染物質の発生源寄与濃度の把握を行うため、様々なモデルが利用されている (Table 1.4)。代表的なモデルとしては、化学輸送モデルとレセプターモデルに大別され、それぞれのモデルとも他法に対する優位性及び適用限界を持ち合わせている (Burr and Zhang, 2011; Hopke, 2016)。

化学輸送モデルは排出インベントリとよばれる発生源別、大気汚染物質別の時間あたりの排出量情報から目的物質の輸送、拡散、化学反応、沈着過程を計算し、目的地点・領域における大気汚染物質濃度等を模擬的に再現するものであり、米国環境保護庁 (U.S. EPA, United States Environmental Protection Agency) による化学輸送モデル (CMAQ, Community Multiscale Air Quality model) (Byun and Schere, 2006) が国内外で広く利用されている。

**Table 1.4** Summary of existing source apportionment methods that are commonly used. Table is based on Burr and Zhang (2011).

Type	Example	Strength	Limitation
Receptor-Based	CMB,	Observation-based Accurate Conceptually Simple	Sparse Observations Some require prior knowledge of emission sources
	PMF (this study),		
(CTM) 3-Dimensional Sensitivity Analysis	UNIMIX	Conceptually simple Accurate for linear chemistry and small emission changes Directly related to development of control measures Ability in simulating indirect effects and oxidant-limiting effects	Computationally Expensive Results often non-linear and non-additive Not true “source apportionment” Dependence on baseline Uncertainty in emissions
	CMAQ/BFM (this study)		
(CTM) 3-Dimensional Tagged Species	CMAQ- ISAM, (TSSA)	Spatial Distribution Handles non-linearity One model run Variety of “sources” Potential for true source apportionment	Uncertainty in emissions Dependence on baseline simulation Omission of indirect effects and oxidant-limiting effects (for PSAT) assumptions in source apportionment for secondary PM species
	CAMx-PSAT		

CTM: Chemical Transport Model; CMB: Chemical Mass Balance; PMF: Positive Matrix Factorization; CAMx: Comprehensive Air Quality Model with Extensions; PSAT: Particle Source Apportionment Technology; ISAM: Integrated Source Apportionment Method; TSSA: Tagged Species Source Apportionment; BFM: Brute-Force Method; Indirect effects: the reduction of one PM species or PM precursor affecting another through aerosol thermodynamic partitioning processes, gas phase oxidation, and aqueous phase neutralization; Oxidant-limiting effect: the formation of secondary PM species limited by availability of oxidants.

化学輸送モデルを用いた発生源解析手法は複数存在する。国内においては、PM<sub>2.5</sub> に対する発生源解析、特に SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>等の二次粒子の発生源解析には、排出量感度解析法 (BFM, Brute-Force Method) とタグ付きトレーサー法 (tagged species source apportionment) の2種類が広く使用されている。BFM は、特定の前駆物質排出量に変化を与え、その結果として得られる濃度変化を発生源寄与推計に用いる方法である。BFM の一種であるゼロアウト法は、対象発生源の排出量をゼロにした場合の目的物質の濃度変化量 (PM<sub>2.5</sub> 中の二次粒子等) を対象発生源からの寄与とする方法である。一方、タグ付きトレーサー法は、特定の発生源から排出された前駆物質にタグを付けて濃度計算を行い、前駆物質から二次生成した粒子の合計濃度に対するタグの内訳から発生源寄与を求める方法である。しかし、BFM のように、特定の発生源を規制した場合の PM<sub>2.5</sub> 低減対策効果を評価する手法としては利用できない (Clappier et al., 2017)。また、両手法による発生源寄与の推計結果は、排出量に対して目的物質の濃度応答が線形であれば一致するが、非線形の場合は一致しない (Kwok et al., 2013)。そのため、いずれの手法を用いる場合でも発生源寄与の評価には注意を要する。このように化学輸送モデルで発生源別寄与濃度を算出するためには、発生源から排出される一次粒子ならびに二次粒子の前駆ガスが大気中で輸送・変質・沈着する複雑な物理化学過程を適切にモデル化する必要がある、不確実性が伴う。しかし、シミュレーションモデルは、発生源別寄与濃度の時空間分布を計算できること、発生源地域や個々の発生源からの寄与濃度を推計できること、対策効果の評価や将来予測に使用できること、といったレセプターモデルにはない優位性がある。

レセプターモデルは実大気の実測値からさかのぼって各種発生源の寄与濃度を統計的に推計するモデルである。化学輸送モデルは排出量インベントリもしくは物理化学過程のモデル化等の不確実性に起因して、大気汚染物質の推計濃度を過大・過小評価することを考慮しなければならないが、レセプターモデルは観測データを基に各種発生源の寄与濃度を解析するため、これらの問題を考慮する必要がない。レセプターモデルで一般的に広く利用されているのは、化学質量収支 (CMB, Chemical Mass Balance) 法と正値行列因子分解 (PMF, Positive Matrix Factorization) 法 (Paatero and Tapper, 1994) である。

CMB 法は対象地域の発生源プロファイル (発生源からの化学成分組成データ) を利用して、1組の大気質の観測データから発生源の起源解析を行うことが可能である。ただし、推計結果の確からしさはモデルに投入する発生源プロファイルの妥当性に大きく依存する (飯島, 2011)。通常、発生源プロファイルは既往の論文等から引用・編纂して構築されるが、その場合、地域や年代の不一致による不確実性が常に危惧される (Wang et al., 2012)。また、有機成分を解析の対象とした場合、発生源と観測点の間で組成変化が起こらないとしたモデル内の仮定が成立しない可能性にも留意する必要がある (環境省, 2014b)。現在、米国環境保護庁のホームページ上 ([https://www3.epa.gov/scram001/receptor\\_cmb.htm](https://www3.epa.gov/scram001/receptor_cmb.htm)) で Watson et al. (1979) によって開発された CMB モデルのソフトウェア (EPA-CMB8.2) がフリーウェアとして公開されている。

PMF 法は多数の大気観測データを統計処理することにより、主要な発生源 (因子) 数とその発生源プロファイル及び寄与濃度を同時に推算することができる。つまり、対象地域の発生源に関する情報が得られていない場合にも負荷因子をもつ要素の分類が可能である点において、CMB 法に対する優位性がある。ただし、因子数の決定に任意性があり、導出される因子の解釈にモデル使用者の主観が介入する点には注意を要する。また、PMF 法で抽出される発生源因子がすべて観測地点近傍の発生源として解釈できるとは限らず、 $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$  のように遠方の発生源からの影響が因子として解釈される可能性があるが、発生源位置を同定する情報は PMF 法では得られないことに留意しなければならない。現在、米国環境保護庁のホームページ上

(<https://www.epa.gov/air-research/positive-matrix-factorization-model-environmental-data-analyses>)

(Norris et al., 2014) には、Paatero et al. (1994) によって開発された PMF モデルのソフトウェア (EPA-PMF5.0) がフリーウェアとして公開されている。

## 1.2 本研究に関する既往の研究

PM<sub>2.5</sub> 原因物質の発生源は国内の産業や自動車排気などの国内要因だけではなく、アジア大陸を発生源とする大気汚染物質が海を越えて運ばれてくる越境大気汚染が深く関わっていることは既往の研究で指摘されてきた (茶谷ら, 2008; Aikawa et al., 2010; 板橋ら, 2015; Shimadera et al., 2016)。以下では、国内外で広く利用されている化学輸送モデル CMAQ を用いた発生源解析に関する先行研究について紹介する。

茶谷ら (2008) は、排出量を 50 % 増減させた感度解析の結果から、首都圏における 2000 年度の発生源寄与を推計した。その結果、 $\text{SO}_4^{2-}$  については越境汚染の寄与が大きく、その寄与は年平均値の 58 %、冬季は 80 % 近くにまで達しており、日本の人為起源発生源の寄与は年平均値に対して 37 %、越境輸送の感度が小さくなる夏季には 50 % であることを示した。また、茶谷ら (2011) は、2005 年度を対象に、ゼロアウト法を用いて PM<sub>2.5</sub> 濃度に対する発生源寄与解析を実施し、国外人為起源排出量寄与が大阪・兵庫圏、愛知・三重圏、首都圏においてそれぞれ 48 %、31 %、26 % となることを示した。Aikawa et al. (2010) は 2003～2005 年度の日本全国 32 地点における観測結果を解析し、日本の  $\text{SO}_4^{2-}$  濃度は中国からの越境汚染に起因して西から東に向けて減少する傾向にあることを示すと同時に、ゼロアウト法を用いて、国外からの越境汚染の影響を算出し、越境汚染の日本の大気環境濃度への寄与は少なくとも 40 % 以上であることを示した。Shimadera et al. (2016) は、2010 年度の PM<sub>2.5</sub> 構成成分の計算精度の評価と PM<sub>2.5</sub> 濃度の予測誤差評価を行い、 $\text{SO}_4^{2-}$  についてやや過小評価だが日変動を良好に再現し、観測値と良く一致することを示した。また、ゼロアウト法を用いて、越境汚染と国内汚染の影響を算出し、越境汚染時と国内汚染時の PM<sub>2.5</sub> 濃度の予測



誤差評価を行い、国内汚染時に PM<sub>2.5</sub> 濃度の過小評価が著しくなることを示した。以上から、日本における発生源寄与評価については、越境汚染が大きく影響すると想定される日本の西端から、国内の影響を強く受けうる都心部までを網羅した寄与評価が重要である。

さらに、二次粒子については、大気中の多くの前駆物質による複雑で非線形な化学反応を経て生成されることから、前駆物質までを含めた発生源寄与推計が重要であると考えられる。板橋ら (2015) は、CMAQ とは異なる大気質モデル CAMx (Comprehensive Air quality Model with extensions) (ENVIRON, 2013) およびタグ付きトレーサー法を用いて、大気中濃度を対象とし、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の前駆体である SO<sub>2</sub> までを含め、日本の SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の国内外の発生源寄与を推計した。また、Chen et al. (2014) は CMAQ およびゼロアウト法を用いて、台湾における越境汚染の影響を台湾国外からの粒子輸送によるもの (Direct LRT, Direct Long-range transport) と、台湾国外から輸送されてきた国外起源前駆物質と台湾国内から排出された前駆物質の粒子化によるもの (Indirect LRT) に区別し、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>以外の二次粒子のイオン成分 (NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>) を含めた、大陸からの越境汚染と国内からの汚染の複合影響について推計した。その結果、Indirect LRT に占める NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>の割合が高く、台湾国内の PM<sub>2.5</sub> 濃度低減策として、前駆物質 (NO<sub>x</sub>、NH<sub>3</sub>) の排出量削減が有効となる可能性があると報告している。しかし、台湾同様、大陸からの越境汚染の影響が大きい日本においてこのような推計はされていない。他にもアジア域における SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>および NO<sub>3</sub><sup>-</sup>の輸送については、Zhang et al. (2012) が中国国内の排出源別、Ying et al. (2014) が中国国内の発生地域別の寄与解析を実施している。また、Chen et al. (2017) は台湾を対象に前駆物質 (NO<sub>x</sub>、SO<sub>x</sub>、NH<sub>3</sub> 等) 排出量を変化させた場合の PM<sub>2.5</sub> 濃度削減量について解析を行っている。しかし、いずれの研究も解析期間が限定されており、越境汚染と国内汚染の複合影響について通年で推計した報告は筆者の知る限り存在しない。化学輸送モデルを用いて発生源寄与評価をおこなう場合には、通常、化学輸送モデルによって計算された大気汚染物質濃度を観測データと比較し、化学輸送モデルが発生している現象を正しく再現できているかを確認する。しかし、それは同じモデルで実施した発生源寄与の正しさを保証するとは限らない (Cohan and Napeltonok, 2011)。異なるモデル、もしくは、同じモデルであっても内部の設定が異なる場合、個々の発生源寄与が全く異なっていたとしても、モデルによる観測値再現性が同程度である可能性がある。そのため、コンセプトが異なるモデルによる発生源寄与評価の結果と統合し、発生源寄与評価をおこなうことは、得られた結果の信頼性を高めると考えられる (板橋, 2018)。以下では、観測データを基にしたレセプターモデルと化学輸送モデルを組み合わせる発生源寄与解析をおこなった発生源解析に関する先行研究について紹介する。

Balachandran et al. (2012) は、レセプターモデル (CMB、PMF) と CMAQ tracers (タグ付きトレーサー法の一つ) による PM<sub>2.5</sub> の発生源寄与解析を 2001 年 6 月及び 2002 年 1 月の米国アトランタを対象に実施した。その結果、全モデルの発生源寄与解析結果をアンサンブル平均した結果は、個別モデルによる発生源寄与解析結果よりも信頼性が向上すると報告している。Hu et al. (2014) は、CMAQ による発生源寄与解析に CMB モデルによる発生源寄与

解析結果を反映させる手法を提案し、2004年1月の米国を対象にPM<sub>2.5</sub>の発生源寄与解析を実施した。その結果、CMAQ単体の発生源寄与解析と比較して、ダスト、薪ストーブ、バイオマス燃焼等の発生源に対する寄与推計結果に乖離が存在することを報告している。

Bove et al. (2014) は、PMF 及び CAMx-PSAT (Particulate matter Source Apportionment Technology) によるPM<sub>2.5</sub>の発生源寄与解析を2011年5月～10月のイタリアジェノバ市近郊の3地点を対象に実施した。その結果、両手法による発生源解析結果は定性的には整合していることが確認できたものの、PMFにより抽出された発生源(因子)の中にはCAMx-PSATによる結果との比較困難なものが存在することを報告している。Pirovano et al. (2015) はCMB及びCAMx-PSATによるPM<sub>2.5</sub>の発生源寄与解析を2004年～2007年、イタリアのロンバルディア州の9地点を対象に実施した。その結果、両手法による発生源解析結果は定性的には整合していることが確認されたが、冬季のPM<sub>2.5</sub>高濃度事例においてCAMx-PSATの発生源寄与推計には、気象場、排出量インベントリ等に起因する不確実性が存在することを報告している。このように国外の研究においては、化学輸送モデルとレセプターモデルを組み合わせたPM<sub>2.5</sub>の発生源寄与推計に関する報告が散見されるものの、著者の知る限り、東アジア域を対象とした報告は見当たらない。

### 1.3 本研究の目的及び方法

本研究は日本におけるPM<sub>2.5</sub>汚染の発生源寄与解析を行うことが目的である。しかし、発生源寄与解析を行う手法は、「1.1.5 大気汚染の発生源寄与推計手法」で述べたように、様々な手法が存在し、解析の目的に応じて適切に使い分ける必要がある。

PM<sub>2.5</sub>の二次粒子(SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>およびNO<sub>3</sub><sup>-</sup>等)は、大気中の多くの前駆物質による複雑で非線形な化学反応を経て生成される。「1.2 本研究に関する既往の研究」で述べたように、化学輸送モデルを用いた国内を対象とした発生源推計においては、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の国内外の発生源寄与を推計した研究(板橋ら, 2015)は存在するものの、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>に関しては、前駆物質(NO<sub>x</sub>、NH<sub>3</sub>)を含めて越境汚染と国内汚染の複合影響について通年で推計した研究は存在しない。そこで、日本におけるPM<sub>2.5</sub>中のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>に関して、前駆物質(NO<sub>2</sub>、HNO<sub>3</sub>、NH<sub>3</sub>)までを含め、国内・国外発生源からの寄与推計を行うことを第一の目的とした。寄与推計の方法としてCMAQ及びゼロアウト法を用い、国外(東アジア域から)の人為起源排出、国内の人為起源排出および境界流入・自然起源排出を含めたバックグラウンドの寄与を推計した。発生源寄与推計の対象年次は2010年度とした。2010年度は、環境省によるPM<sub>2.5</sub>の成分測定(環境省, 2010)が初めて全国的に行われた年であり、国内の大気汚染常時監視測定局によるPM<sub>2.5</sub>質量濃度だけでなく、PM<sub>2.5</sub>のイオン成分や炭素成分についても再現性を確認することが可能である。

次に、観測データを基にしたレセプターモデルと化学輸送モデルを組み合わせた PM<sub>2.5</sub> の発生源寄与解析をおこない、得られた結果の信頼性向上を試みた。「1.2 本研究に関する既往の研究」で述べたように、東アジア域において化学輸送モデルとレセプターモデルを組み合わせた PM<sub>2.5</sub> の発生源寄与推計に関する報告は確認されていない。一方で、レセプターモデルによる PM<sub>2.5</sub> の発生源寄与解析をおこなうには、PM<sub>2.5</sub> 質量濃度だけでなく、PM<sub>2.5</sub> 成分 (イオン成分、炭素成分、金属成分など) の観測データが必要となる。そこで、地方自治体による PM<sub>2.5</sub> の成分測定 (環境省, 2018e) が全国的に開始された 2013 年度を解析対象年度に、東海・近畿地域の 11 地点を解析対象とした。対象地域の発生源に関する情報は存在しないため、レセプターモデルには PMF を用いた。

第 3 に、レセプターモデルと化学輸送モデルを組み合わせた PM<sub>2.5</sub> の発生源寄与解析の適用事例として、バイオマス燃焼に主眼を置いた発生源寄与解析を行った。バイオマス燃焼は、森林火災、農作業に伴う野焼き等が発生源であり、その発生頻度及び規模等の特定が困難であることから、排出量インベントリの不確実性増加、化学輸送モデルの再現性低下を誘発させやすい (Pimonsree et al., 2017; Vonguang et al., 2017)。そこで、2014 年秋季 (10/20 ~ 11/9) に中国東北部で発生した農作業に伴うバイオマス燃焼による PM<sub>2.5</sub> の広域輸送 (Ikemori et al., 2018) について解析を実施した。

最後に、これらを総合的に評価し、PM<sub>2.5</sub> の発生源寄与解析について包括的に検討することを本研究の目的とする。

## 1.4 本論文の構成

本論文は、Fig. 1.10 に示すように第 1 章から第 6 章で構成されている。

第 1 章は、研究の背景、既往の研究、研究目的、方法について示した。

第 2 章は、化学輸送モデル及びレセプターモデルの概要、それぞれのモデルを用いた発生源寄与解析の方法について示す。

第 3 章は、化学輸送モデルを用いて日本における PM<sub>2.5</sub> (硝酸塩) 前駆物質の発生源寄与推計した結果を示す。

第 4 章は、化学輸送モデル及びレセプターモデルを組み合わせて、2013 年度の東海・近畿地域における PM<sub>2.5</sub> 発生源寄与推計した結果を示す。

第 5 章は、化学輸送モデル及びレセプターモデルを組み合わせて、国外のバイオマス燃焼が国内 PM<sub>2.5</sub> 濃度へ与える寄与を推計した結果を示す。

第 6 章は、本研究で得られた成果を総括し、今後の展望と課題について述べる。

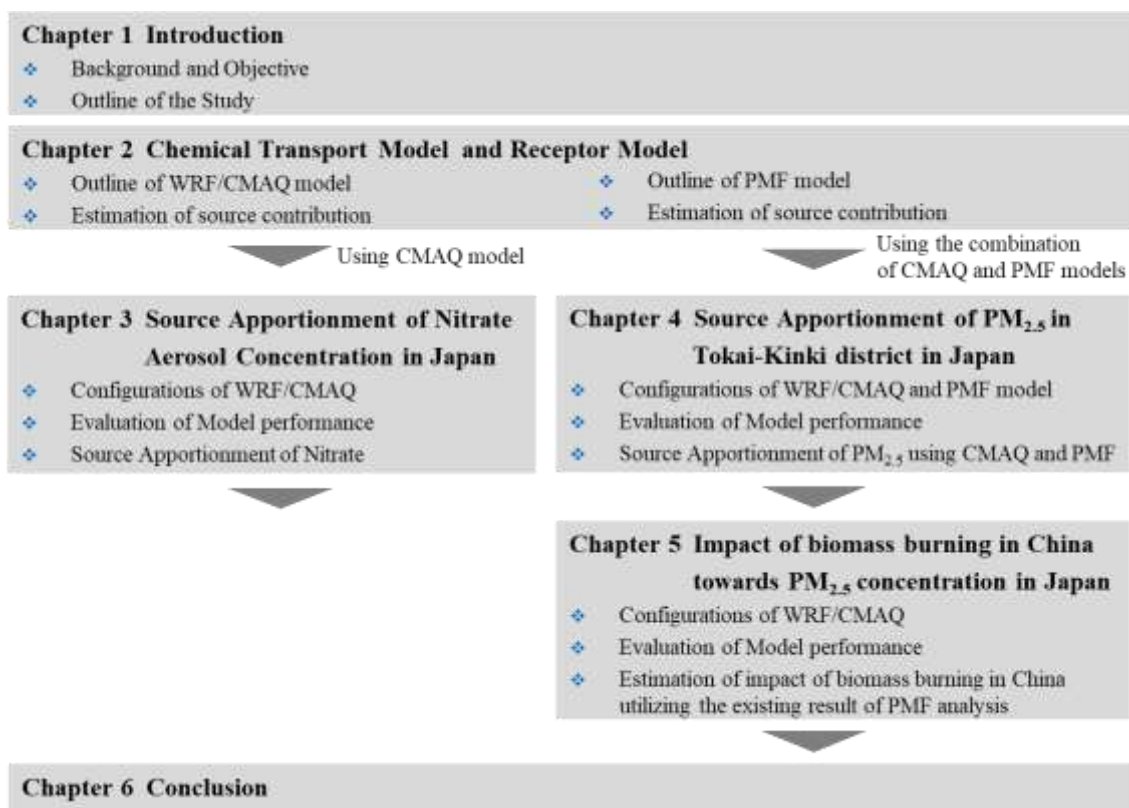


Fig. 1.10 Outline of this thesis

## 第 2 章 化学輸送モデルとレセプターモデル

---

### 2.1 化学輸送モデル

大気環境は極めて複雑であり、産業、運輸、民生などの人為起源、火山活動や動植物等からの自然起源の排出物が、風による輸送、大気化学反応等により形成されている。化学輸送モデル (CTM, Chemical Transport Model) は、大気汚染物質の発生・輸送・化学反応・沈着の諸過程を物理・化学法則に基づいて数学的に解き、任意の 3 次元空間における大気汚染物質濃度の時間変化を推計できる数値モデルである。化学輸送モデルは、取り扱う対象領域から、地球全体を対象とした全球化学輸送モデルと、東アジアなどの領域を対象とした領域化学輸送モデルに分類される。一般的に、全球化学輸送モデルの空間解像度は数十～数百 km 程度と粗く、領域化学輸送モデルの空間解像度は数～数十 km とより細かい (永島, 2011)。また、領域化学輸送モデルの対象とする領域外からの境界条件には、全球化学輸送モデルのデータを利用することが多い。

化学輸送モデルで対象領域内の大気汚染物質濃度の推計をおこなうには、主として 2 つの入力データが必要となる。一つは、気象モデルによって作成された気象パラメータ (風向・風速、気温、湿度等) であり、他方は、排出インベントリ (後述) が提供する物質別、発生源カテゴリ別の汚染物質排出量である。(吉川, 2010)。本研究で用いた化学輸送モデル CMAQ には、領域気象モデル (WRF, Weather Research and Forecasting model) (Skamarock et al, 2008) により作成された気象データを CMAQ 入力用気象データとして加工するプログラム (MCIP, Meteorology-Chemistry Interface Processor) が別途、提供されており、国内外で WRF 及び CMAQ を用いた大気汚染に関する研究が数多く報告されている。本研究でも気象データの作成に WRF を用いた。以降では、気象モデル WRF、排出インベントリについて概要を述べた後、化学輸送モデル CMAQ について概観する。

#### 2.1.1 気象モデル (WRF) の概要

領域気象モデル WRF は、現業用および研究用目的で開発された数値気象予測 (NWP, Numerical Weather Prediction) モデルであり、研究用プログラム (ARW, Advanced Research WRF) と現業用プログラム (NMM, Nonhydrostatic Mesoscale Model) の 2 種が存在する。前者は、主に米国大気研究センター (NCAR, National Center for Atmospheric Research) により開発され、NCAR 内のメソスケール・マイクロスケール気象研究所 (MMM, Mesoscale and Microscale Meteorology Laboratory) によって管理されている。後者は、米国国立環境予測センター (NCEP, National Center for Environmental Prediction) により開発され、DTC

(Developmental Testbed Center) によって管理されていたが、現在、NMM 本体のサポートは打ち切れ、そのプログラムの一部は、HWRF (Hurricane WRF) のプログラム内で利用されている。本研究では WRF-ARW を使用した。WRF-ARW の特徴は、以下のとおりである。

- 1) 完全圧縮性・非静水圧の3次元メソスケールモデル
- 2) Fortran 90 で記述されたオープンソースを用いた数値モデルであり、並列計算も可能
- 3) 入出力ファイル形式は、NetCDF (Network Common Data Form) (<https://www.unidata.ucar.edu/software/netcdf/>) を採用
- 4) NCAR や NCEP 等、世界の多くの研究機関や大学等の協力によって開発が進められ、様々な目的で幅広く利用されるよう、ホームページ (<http://www2.mmm.ucar.edu/wrf/users/>)、メーリングリスト等による管理・サポート体制が充実
- 5) 1-way および 2-way の nesting 機能によって、広域から局所スケールまでの気象予測が可能であり、また全球を対象とした予測も可能
- 6) 実際の気象場シミュレーションの他に、理想化したシミュレーションモデルを利用して LES (Large Eddy Simulation) や対流等の数値実験が可能
- 7) 複数の力学に関するコードが実装されており、計算目的に応じた物理スキームの選択が可能
- 8) 客観解析値あるいは観測値とのデータ同化システムが利用可能

WRF-ARW による気象場のシミュレーションは、地形・土地利用データと気象要素の客観解析データを WPS (WRF Preprocessing System) によって WRF-ARW で読み込み可能な形式に変換・入力された後、実行される。地形・土地利用・土壌区分データには、米国地質調査所 (USGS, United States Geological Survey) により作成された全球データセット、MODIS (Terra Moderate Resolution Imaging Spectro radiometer) 画像から作成された全球データセット等が使用される。また、気象要素の客観解析データには、他の地域あるいは全球スケールの気象モデル等をもとに作成された GRIB (GRIdded Binary) 形式のデータファイルが使用される。

WPS は、`geogrid`、`ungrib`、`metgrid` の 3 つのプログラムで構成される (Fig. 2.1)。各プログラムと概要を以下のとおりである。

- `geogrid`  
計算対象とする水平計算領域・格子解像度を設定することで、地形・土地利用データを各計算格子へ内挿し、対象領域の緯度・経度、地表面高度、土地被覆等の水平方向の空間情報を含むファイルを作成
- `ungrib`  
GRIB 形式の客観解析データファイルから気象変数を抽出し、`metgrid` で読み込み可能な形式の中間ファイルを作成
- `metgrid`  
`ungrib` によって抽出された気象変数を `geogrid` により作成された水平計算格子に内挿することで気象場を作成

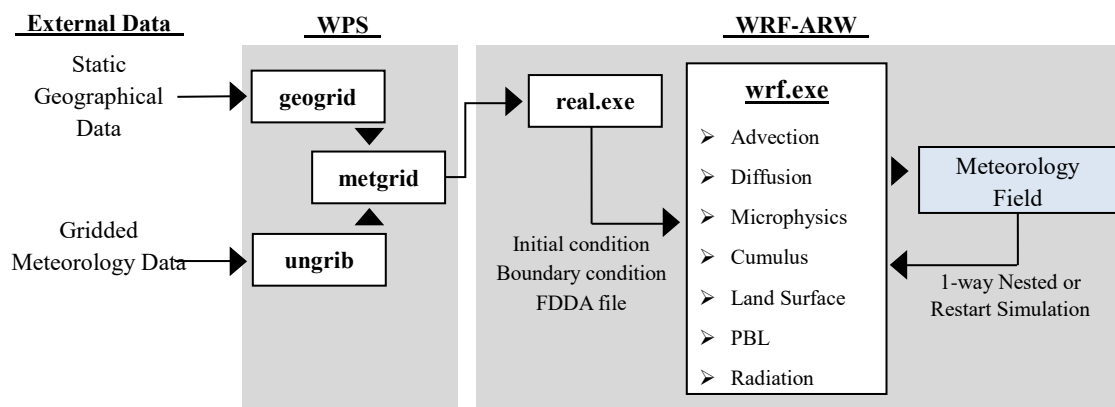


Fig. 2.1 The flowchart of the WRF modeling system

WRF の核となるプログラムは、`real.exe` と `wrf.exe` である。`real.exe` では、WPS の `metgrid` の出力ファイルをもとに初期条件、底面・側面境界条件および 4 次元データ同化 (FDDA, Four-Dimensional Data Assimilation) 用ファイルを作成し、それらのファイルをもとに `wrf.exe` によって移流・拡散・雲微物理・積雲・大気境界層 (PBL, Planetary Boundary Layer) 高さ・地表面・放射過程等について計算が行われる。

### 2.1.2 気象モデルの基礎方程式と物理過程

WRF-ARW の計算は、完全圧縮性・非静水圧の Euler 方程式に基づいて行われる。この方程式は、物質量の時間変化をある微小領域での流出入により算出するフラックス形式の方程式であり、地形に沿った静水圧鉛直座標系 (  $\eta$  座標系) (Laprise, 1992) によって記述されている。本節では、 $\eta$  座標系と WRF-ARW で用いられる支配方程式を示す。

#### (1) 静水圧鉛直座標系 ( $\eta$ 座標系)

WRF-ARW における  $\eta$  座標系の概念図を Fig. 2.2 に示す。 $\eta$  座標系は次式で表される。

$$\eta = \frac{p_{dh} - p_{dht}}{\mu_d}, \quad \mu_d = p_{dhs} - p_{dht} \quad (2.1)$$

ここで、添え字  $d$  は乾燥空気を表し、 $p_{dh}$  : ある高さにおける圧力の静水圧成分、 $p_{dht}$  : 計算領域上端の圧力、 $p_{dhs}$  : 地表面気圧、 $\mu(x, y)$  : 領域  $(x, y)$  における単位面積当たりの空気の質量をそれぞれ示す。 $\eta$  の値は地表面を 1、計算領域上端を 0 として、時間によりその値は変化する (Fig. 2.2)。

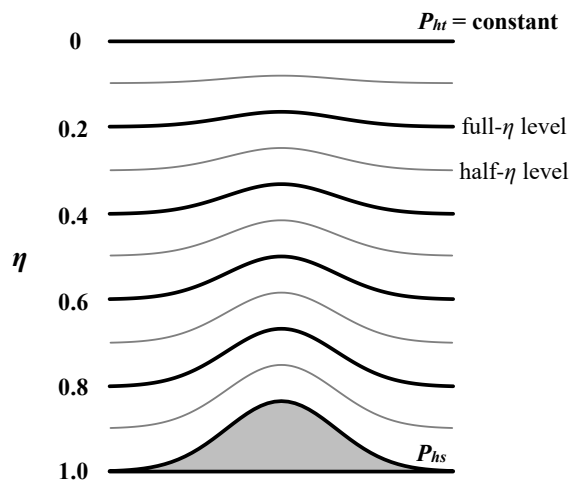


Fig 2.2 Schematic of WRF vertical coordinate (Skamarock et al., 2008).

#### (2) 支配方程式

$\mu_d(x, y)$  は領域  $(x, y)$  における単位面積当たりの乾燥空気の質量を示すことから、フラックス形式での変数は、(2.2) 式と定義される。

$$\mathbf{V} = \mu_d \mathbf{v} = (U, V, W), \quad \Omega = \mu_d \frac{\partial \eta}{\partial t}, \quad \Theta = \mu_d \theta \quad (2.2)$$

ここで、 $\mathbf{v} (= (u, v, w))$  : 水平 2 方向および鉛直方向の共変速度成分、 $\omega (= \partial \eta / \partial t)$  :



反変鉛直速度成分、 $\theta$  : 温位を表す。

以上より、WRF-ARW での  $\eta$  座標系を用いた方程式系 (運動方程式、温位保存式、質量保存則 (連続の式)、ジオポテンシャル式、スカラー保存式、状態方程式等) はそれぞれ以下のように記述できる。

- 運動方程式

$$\frac{\partial U}{\partial t} + \text{div } \mathbf{V}u + \mu_d \alpha \frac{\partial p}{\partial x} + \frac{\alpha}{\alpha_d} \frac{\partial p}{\partial \eta} \frac{\partial \phi}{\partial x} = F_U \quad (2.3)$$

$$\frac{\partial V}{\partial t} + \text{div } \mathbf{V}v + \mu_d \alpha \frac{\partial p}{\partial y} + \frac{\alpha}{\alpha_d} \frac{\partial p}{\partial \eta} \frac{\partial \phi}{\partial y} = F_V \quad (2.4)$$

$$\frac{\partial W}{\partial t} + \text{div } \mathbf{V}w - g \left( \frac{\alpha}{\alpha_d} \frac{\partial p}{\partial \eta} - \mu_d \right) = F_W \quad (2.5)$$

ここで、 $\alpha (= 1/\rho)$  : 比容 (空気の密度  $\rho$  の逆数)、 $p$  : 圧力、 $\phi (= gz)$  : ジオポテンシャルはいずれも非保存量であり、右辺は、 $\mathbf{F}$  : 各成分に対する外力 (物理過程、乱流混合、球面の投影、地球の自転による強制力) を表す。

- 温位保存式

$$\frac{\partial \theta}{\partial t} + \text{div } \mathbf{V}\theta = F_\theta \quad (2.6)$$

- 質量保存則

$$\frac{\partial \mu_d}{\partial t} + \text{div } \mathbf{V} = 0 \quad (2.7)$$

- ジオポテンシャル式

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} + \frac{1}{\mu_d} (\mathbf{V} \text{ grad } \phi - gW) = 0 \quad (2.8)$$

- スカラー保存式

$$\frac{\partial Q_m}{\partial t} + \text{div } \mathbf{V}q_m = F_{Q_m} \quad (2.9)$$

ここで、 $Q_m (= \mu_d q_m)$  : 水物質であり、 $q_m (= q_v, q_c, q_r, q_i, \dots)$  : 水蒸気・雲・雨・氷等の混合比、 $F_{Q_m}$  : 各水物質に対する外力を表す。

さらに、乾燥空気の比容  $\alpha_d$  の診断方程式として、

$$\frac{\partial \phi}{\partial \eta} = -\alpha_d \mu_d \quad (2.10)$$

が、圧力  $p$  の診断方程式として状態方程式である

$$p = p_0 \left( \frac{R_d \theta_m}{p_0 \alpha_d} \right)^\gamma \quad (2.11)$$

が用いられる。ここで、 $p_0$  : 基準気圧 (= 1000 hPa)、 $\theta_m (= \theta(1 + R_v/R_d)q_v \approx \theta(1 + 1.61q_v))$ : 仮温位、 $\gamma (= C_p/C_v)$ : 定圧比熱  $C_p$  および定積比熱  $C_v$  の比熱比 (= 1.4)、 $R_d$  : 乾燥空気の気体定数、 $R_v$  : 水蒸気の気体定数を表す。

### (3) 物理過程

WRF-ARW の物理過程は以下の 5 つの過程に大別される。Fig. 2.3 に各物理過程の関連性の概略を示す。

#### ① 雲微物理過程

水蒸気、雲水、雨、雲氷、雪、霰、雹などの大気中の水物質およびそれらの混合状態について扱われ、各物質の混合比や個数濃度が計算される。相変化による大気との熱交換や上昇流による雲粒・雨粒の生成・発達過程等が考慮され、水平計算格子で解像されるモデルグリッドスケールの雲による降水が計算される。一般的に格子間隔が 10 km 未満の細かい解像度の場合を想定している。

#### ② 積雲過程

サブグリッドスケールの対流雲の影響が扱われる。水平計算格子では解像不可能な上昇流・下降流および雲の周囲の補償流が考慮され、それに伴う対流性の降水が計算される。格子間隔が 5~10 km 以上の粗い解像度の場合を想定している。

#### ③ 地表面過程

土壌中の状態、土地利用ごとの特性、および接地層の大気の状態、さらに放射過程による下向き放射、雲微物理・積雲過程による降水等の他の過程からの情報をもとに、地表・海・氷面における熱・水分フラックスを計算する。また、上向き放射について、長波放射は土地利用と地表面温度、短波放射は地表面アルベドによる反射から決定する。水平格子間の相互作用は考慮されていない LSM (Land-Surface Model) が用いられる。

#### ④ PBL・接地境界層過程

地表面過程からの熱・水分フラックスをもとに、大気全体での乱流輸送によるサブグリッドスケールの鉛直フラックスが扱われる。PBL スキームは、安定・不安定層における地表面からのフラックスのプロファイルを決定し、大気中の温度・水分・水平方向の運動量の鉛直勾配を計算する。また、接地境界層過程において接地層の大気の状態を決定する。

#### ⑤ 放射過程

地表面過程からの上向き放射および雲微物理過程からの大気中の雲情報をもとに、長波放射について大気中の水蒸気、CO<sub>2</sub>、O<sub>3</sub>等のガスや雲による赤外放射の吸収・放出過程、短波放射について太陽放射の大気における吸収・反射・散乱過程を扱うことで、大気加熱量や地表面熱収支を解くための下向き放射量を決定する。

以上の物理過程には、それぞれに複数のオプションが用意されており、各過程は他の過程と相互に作用し合っている。

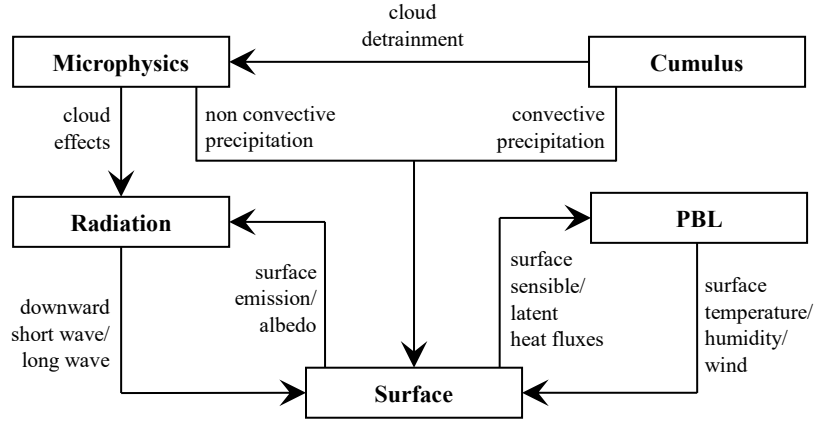


Fig 2.3 Interactions of WRF vertical coordinate.

#### (4) 4次元データ同化手法

WRF-ARWには、計算精度を向上させる手法として4次元データ同化 (FDDA) 手法 (ナッジング) が実装されている。FDDAは、通常モデル予測式に客観解析値または観測値とモデルの予測値の差に係数をかけた外力項を付加することで、モデルでの予測値を客観解析値または観測値に近づける手法である。WRFには、格子状に与えられた客観解析データを用いる解析値ナッジングと、任意の点で得られた観測値を直接用いる観測値ナッジングがあり、風速の東西・南北成分( $u, v$ )、温位、水蒸気混合比にそれぞれに対して、式 (2.12) に基づき、FDDAが適用できるようになっている。

$$\frac{\partial \theta}{\partial t} = F(\theta) + G_{\theta} W_{\theta} (\hat{\theta}_0 - \theta) \quad (2.12)$$

ここで、 $\partial \theta / \partial t = F(\theta)$  : 任意の変数  $\theta$  のモデル予測式、 $G_{\theta}$  : ナッジング係数 ( $s^{-1}$ )、 $W_{\theta}$  : 追加のナッジング制限のための重み、 $\hat{\theta}_0$  : 客観解析値または観測値を表す。

### 2.1.3 排出インベントリ

排出インベントリ (Emission inventory) は、対象とする地域の (大気) 汚染物質排出量を物質別、発生源カテゴリ (セクタ) 別に整理したものをいう。化学輸送モデルの入力データとして必要な情報は、そのものが大気汚染物質である一次物質、化学反応等により生じる二次物質の原因となる前駆物質の排出量、それぞれに関する情報である。発生源は、人為起源と自然起源に大別され、それぞれがさらに細かいカテゴリに分かれる。都市の大気質を論じる場合に考慮されている発生源、汚染物質例を Table 2.1 に示す (森川, 2010)。化学輸送モデルで PM<sub>2.5</sub> 汚染等の大気汚染現象シミュレーションをおこなうには、対象地域の年間総排出量の情報では不十分で、対象地域内の平面分布、時間解像度が高い排出インベントリを準備しなければならない。また、化学輸送モデルでは大気汚染物質の二次生成等の化学反応も考慮されていることから、前駆物質である NO<sub>x</sub>、VOC の組成情報が必要となる。PM は組成情報だけでなく、粒径区分別情報も必要となる (森川, 2010)。

ある汚染物質の排出量は、実態調査等による直接計測もしくは、(2.13) 式で示す単位活動量当たりの汚染物質の排出量を示す排出係数 (EF, Emission Factor) と走行距離、消費量や製造量等を示す活動量 (Activity) の積により算出される。

$$E = A \times EF \quad (2.13)$$

ここで、 $A$  : 活動量 (Activity)、 $EF$  : 排出係数を表す。

活動量には、各種の統計データや調査結果が使用される。排出係数は排出実態調査等による地域の実情に応じたデータを使用することが望ましいが、データが入手できない場合は、文献値 (例えば、IPCC, 2006; EEA, 2016) もしくは、先行研究結果が適用される。なお、排出係数  $A$  がエネルギー消費量のように国や地域単位で与えられる活動量の場合は、(2.13) 式により総排出量を算出した後、地域配分、時間配分を考慮して化学輸送モデル用の排出量データを作成することになる。

このほか個別の排出量推計の方法については、微小粒子状物質健康影響評価検討会報告書 (環境省, 2007) に詳しく述べられている。以下では、森川 (2010) の報告を引用しつつ、現在利用可能な排出インベントリ、化学反応を考慮するための組成分類等について概観する。

**Table 2.1** Air pollutants and emission sources in emission inventories (Morikawa, 2010)

Source sectors		NO <sub>x</sub>	CO	SO <sub>x</sub>	VOC	PM	NH <sub>3</sub>	HCl
Combustion sources	Stationary source							
	Large combustion sources	○	○	○	○	○	○	○
	Small and medium combustion sources	○	○	○	○	○		
	household	○	○	○	○	○		
	Waste incineration	○	○	○	○	○		○
	Mobile source							
	Road: Exhaust	○	○	○	○	○	○	
	Navigation	○	○	○	○	○		
	Aviation	○	○	○	○	○		
	Construction and industrial machines	○	○	○	○	○		
Rail transport	○	○	○		○			
Agricultural source								
open field burning	○	○	○	○	○			○
Agricultural machines	○	○	○	○	○			
Hydrocarbon evaporation sources	Industrial source							
	Oil refinery				○			
	Petrochemical plant				○			
	Gas station				○			
	Painting				○			
	Printing				○			
	Adhesive process				○			
	Industrial solvent for rubber				○			
	Other industrial solvent				○			
	Cleaning				○			
Mobile source								
Road: Evaporative				○				
Construction, industrial, and agricultural machines				○				
Natural source				○				
Others	Agricultural source							
	Livestock						○	
	Fertilizer application						○	
	Industrial source						○	
	Leakage in fertilizer production process						○	
	Urban activities						○	
	Sewage treatment facility						○	
	Latrines						○	
	Human perspiration						○	
	Pet dogs						○	
Cigarette			○		○			
Natural source								
Soil					○			
Sea spray					○			
Volcano			○		○			
Forest fire	○	○	○		○			
Lightning	○							
Mobile source								
Road: Tyre and brake					○			

## (1) アジアの排出インベントリ

### ① EDGAR

EDGAR (Emission Database for Global Atmospheric Research) は、欧州 JRC (Joint Research Center) とオランダ環境評価保護庁が作成した全球対象の排出インベントリである (Olivier et al., 1996)。2009年に EDGAR v4 がリリースされ、水平解像度  $0.1^\circ \times 0.1^\circ$  で排出量が提供された。その後リリースされた EDGAR v4.3 の排出量データは、後述する全球対象の排出インベントリ HTAPv2 (推計年次 2008 年、2010 年) の開発に利用されている (Janssens-Maenhout et al., 2015)。

### ② REAS

REAS (Regional Emission inventory in ASia) は、国立環境研究所や海洋研究開発機構などの研究グループが開発したアジア域の排出インベントリである (Ohara et al., 2007)。対象物質は  $\text{SO}_2$ 、 $\text{NO}_x$ 、 $\text{CO}$ 、 $\text{NMVOC}$ 、 $\text{BC}$ 、 $\text{OC}$ 、 $\text{NH}_3$ 、 $\text{CH}_4$ 、 $\text{N}_2\text{O}$ 、 $\text{CO}_2$ 、対象年は 1980～2003 年 (過去)、2010、2020 年 (将来) で、それぞれについて、各国・地域の年間排出量と、水平解像度  $0.5^\circ \times 0.5^\circ$  の排出量データが作成された。現在は、REAS v1.1 を高度化した REAS v2.1 (Kurokawa et al., 2013) がリリースされている。REAS v2.1 では 2000 年～2008 年を対象に、水平解像度  $0.25^\circ \times 0.25^\circ$  の排出量データが推計 (<https://www.nies.go.jp/REAS/>) されている。

### ③ INTEX-B

INTEX-B (Intercontinental Chemical Transport Experiment-Phase B) (<http://www-air.larc.nasa.gov/missions/intex-b/intexb.html>) は米国航空宇宙局 (NASA, National Aeronautics and Space Administration) が開発したアジア対象排出インベントリであり、アジアを対象とした排出インベントリ TRACE-P (Transport and Chemical Evolution over the Pacific) の後継データにあたる (Zhang et al., 2009)。

排出データの推計基準年は 2006 年、水平解像度  $0.5^\circ \times 0.5^\circ$  で、発生源は発電所、産業、家庭、移動発生源の 4 部門の排出量が月別で提供されている。推計対象物質は  $\text{NO}_x$ 、 $\text{SO}_2$ 、 $\text{CO}$ 、非メタン炭化水素 (NMVOC)、PM である。

### ④ HTAP

HTAP (the Task Force Hemispheric Transport of Air Pollution) (<http://www.htap.org/>) は米国環境保護庁や EC (欧州委員会) 等の協力による、大気汚染物質の半球規模輸送に関するタスクフォース (TF HTAP) のもとで作成された全球インベントリであり、現在、HTAP v2.2 がリリースされている (Janssens-Maenhout et al., 2015)。排出量の推計年次は 2008 年と 2010 年を対象に、水平解像度  $0.1^\circ \times 0.1^\circ$  で月別に提供されている。推計対象物質は  $\text{NO}_x$ 、 $\text{SO}_2$ 、 $\text{CO}$ 、 $\text{NMVOC}$ 、 $\text{BC}$ 、 $\text{OC}$ 、 $\text{PM}_{2.5}$ 、 $\text{PM}_{10}$  である。

これまで大気汚染物質の排出インベントリが作成されてきた背景、各種マニュアル、各排出インベントリの情報入手先については、黒川 (2014) や「排出インベントリとは何か？」(環境省監修) (<http://www.acap.asia/acapjp/doc/emissionjp.pdf>) にまとめられている。

## (2) 日本の排出インベントリ

都市の大気汚染現象に関わる化学反応速度は、数秒から数時間の単位であり、気象条件の変化や、化学輸送モデルによる（国内）観測値の再現性評価を考慮すると、時間的・空間的に高解像度の排出量インベントリを利用することが望ましい（森川, 2010）。そのため、以下では日本国内を対象とした高解像度の排出インベントリを例示する。

### ① EAGrid2000-Japan

EAGrid2000-Japan は、東アジア域をカバーする排出インベントリ EAGrid2000 の日本国内精細版である（Kannari et al., 2007）。Table 2.1 に示される主な発生源カテゴリ別の排出量が、1 時間単位のデータとして約 1 km 四方のメッシュ解像度で整備されている。その後、EAGrid2000-Japan をベースに排出実態の変化を考慮して推計年次 2005 年度及び 2010 年度の排出インベントリが開発、公開されている（福井ら, 2014）。推計対象物質は SO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub>、CO、CO<sub>2</sub>、NH<sub>3</sub>、NMVOC、PM<sub>2.5</sub>、PM<sub>10</sub> である。

### ② JEI-DB

JEI-DB (JATOP Emission Inventory Data Base) は、日本国内の自動車、各種の固定発生源、植物起源 VOC、火山による SO<sub>2</sub> 放出量までを網羅した排出イベントリで、全国 1 km 四方の解像度（自動車以外のデータは 10 km 四方のデータが含まれる。）、月変化、時刻変化を含めたデータで構成されている。JEI-DB は自動車起源 (Automobile Source: AS) と自動車起源以外 (General Source: GS) の 2 種類の排出イベントリに区分けされた形で提供される。現在、JEI-DB2011 及び JEI-DB2014 が公開されている。

JEI-DB2011-AS (JPEC, 2012a) 及び JEI-DB2014-AS (一般財団法人日本自動車研究所, 2013b) は、推計対象年が 2010 年度、解像度は約 1 km×1 km で自動車の排出過程別に推計されているが、排出量算出に用いた統計資料の年次に相違がある (JEI-DB2011-AS は 2005 年度の統計データ、JEI-DB2014-AS は 2010 年度の統計データをもとに排出量を算出)。推計対象物質は NO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub>、SO<sub>x</sub>、CO、CO<sub>2</sub>、NH<sub>3</sub>、NMVOC、SPM、全炭化水素 (THC)、巻き上げ粉塵、タイヤ摩耗等である。

JEI-DB2011-GS (JPEC, 2012b) 及び JEI-DB2014-GS (一般財団法人日本自動車研究所, 2013b) は、自動車以外排出量を対象に解像度は約 1 km×1 km で排出量推計 (JEI-DB2011-GS は 2000 年度及び 2005 年度、JEI-DB2014-GS は 2010 年度が推計年次) されている。ただし、船舶からの排出については推計対象となっていない。推計対象物質は燃焼起源について、NO<sub>x</sub>、SO<sub>x</sub>、CO、NMVOC、PM (電気業、製造業、野焼き、たばこ、調理は NH<sub>3</sub> も推計)、蒸発起源 VOC は NMVOC である。

### ③ 海洋政策研究財団 (OPRF) による船舶排出インベントリ

JEI-DB は、船舶からの排出データは含まれていないため、船舶起源のものは海洋政策研究財団が作成した船舶排出インベントリがよく使用される。このデータは解像度約 1 km×約 1 km で航行船舶、停泊船舶、漁船等由来の排出について 2005 年 (OPRF, 2012)、2010 年 (OPRF, 2013) を対象に推計されている。推計対象物質は NO<sub>x</sub>、SO<sub>2</sub>、CO、メタン (CH<sub>4</sub>)、

NMVOC、亜酸化窒素 (N<sub>2</sub>O)、PM<sub>10</sub>である。

### (3) その他の排出量

#### ① 植物起源 VOC

植物から発生する VOC には反応性の高いイソプレンや、粒子化しやすいモノテルペン類・セスキテルペン類があり、その国内発生量は人為起源の VOC 排出量に匹敵するなど重要性が認識されている (Kannari et al., 2007)。植物起源の VOC 発生量は日射量や気温に大きく依存し、夏季の発生量は大きく冬季には非常に少ない。推計モデルとして、MEGAN (Model of Emissions of Gases and Aerosol from Nature) (Guenther et al., 2006) が広く利用されている。

MEGAN では全球を対象に、解像度 30 秒×30 秒 (1 km×1 km) で月平均排出係数 (EF, Emission Factor)、葉面積指数 (LAI, Leaf Area Index)、植物機能タイプ (PFT, Plant Functional Type) のデータが提供されている。EF、LAI、PFTに加え、気象モデルから得られる対象期間の気温と太陽放射の時間値 (WRF-ARW の出力データは、MCIP によるデータ加工が必要) を利用して植生起源の VOC を推計する。ただし、モデルで提供されている排出係数は、米国の植物種のデータが基になっているため、日本における排出実態と異なる可能性に留意しなければならない。

#### ② バイオマス燃焼由来の大気汚染物質

森林火災や農作物残渣の屋外焼却 (野焼き) 等のバイオマス燃焼からも、大気汚染物質は排出される。国内の野焼きに伴う大気汚染物質の排出量については、EAGrid-2000Japan や JEI-DB でも排出量が推計されている。一方、国外のバイオマス燃焼由来の排出量については、衛星観測データに基づき全球分布を推計した FINN (Fire INventory from NCAR) (Wiedinmyer et al., 2011) 及び GFED (Global Fire Emissions Database) (van der Werf et al., 2010) 等を利用することができる。

FINN (現在、FINN version 1.5 が公開、<http://bai.acom.ucar.edu/Data/fire/>) では、解像度 1 km × 1 km の日別排出量データが利用できる。推計対象物質は SO<sub>2</sub>、NO、NO<sub>2</sub>、CO、CO<sub>2</sub>、NH<sub>3</sub>、CH<sub>4</sub>、NMVOC、BC、OC、PM<sub>2.5</sub>、PM<sub>10</sub>である。

一方、GFED (現在、GFED version 4.1s が公開、<https://www.globalfiredata.org/data.html>) では、解像度 0.25°×0.25°、日別もしくは 3 時間刻みのデータが提供されている。推計対象物質は SO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub>、CO、CO<sub>2</sub>、NH<sub>3</sub>、CH<sub>4</sub>、NMVOC、BC、OC、PM<sub>2.5</sub>、TPM 等である。

野焼きは、燃焼物の特定や発生場所・規模の特定が困難であることから、排出量を正確に推計することは容易ではない。また、国内の事業所や自動車への大気汚染対策が進んだ結果、近年では野焼きも無視できない発生源寄与を持つことが指摘されている (Morino et al., 2010; 高橋ら, 2011)。さらに、バイオマス燃焼由来の大気汚染物質が国外からの越境移流している事例も報告 (Mukai et al., 2014) されており、発生源寄与解析の際、バイオマス燃焼による影響の程度を考慮して、排出インベントリの利用、発生源寄与解析をおこなう必要がある。



### ③ 火山からの SO<sub>2</sub>

火山からの SO<sub>2</sub> 排出量として、[Andres and Kasgnoc \(1998\)](#) を基に、全球エアロゾルモデルの国際的な相互比較プロジェクト (AeroCom, Aerosol Comparisons between Observations and Models) によって作成されたデータが利用可能である。AeroCom は、全球の火山を対象に、1979 年から 2009 年までの日別の火山由来の SO<sub>2</sub> 排出量データ等を提供している。また、国内の火山由来 SO<sub>2</sub> 排出量は気象庁の火山観測データ

([https://www.data.jma.go.jp/svd/vois/data/tokyo/open-data/data\\_index.html](https://www.data.jma.go.jp/svd/vois/data/tokyo/open-data/data_index.html)) が利用可能である。2005 年度の日本の主要 9 火山からの SO<sub>2</sub> 排出量は、国内人為起源排出量の約 2 倍に相当するとの報告 ([森川, 2010](#)) もあるため、三宅島、桜島などの活火山の影響を受けやすい地域における発生源寄与解析には、国内 SO<sub>2</sub> の発生源として考慮しておく必要がある。

## (4) 化学反応を考慮するための組成分類

### ① VOC 組成

VOC の排出イベントリは、一部を除いて VOC もしくは NMHC 総量で提供される。一方化学輸送モデルでは、VOC 成分をいくつかのグループに分類し、グループごとに反応式を与えるスキーム (後述) により化学反応を考慮している。そのため、排出イベントリこれらの反応スキームに応じた VOC 分類表を準備する必要がある。国内の VOC 排出イベントリについては、環境省の揮発性有機化合物 (VOC) 排出イベントリ検討会 (<https://www.env.go.jp/air/osen/voc/inventory.html>) において、最新情報の収集と排出量の推計方法見直しが行われている。また、JEI-DB に付属する化学輸送モデル CMAQ 用の PM・VOC 組成データベース ([JPEC, 2012c](#)) も利用できる。

### ② NO<sub>x</sub> 組成

NO<sub>x</sub> は NO と NO<sub>2</sub> を合計したものであり、燃焼条件により NO<sub>x</sub> の排出量はもとより、NO/NO<sub>2</sub> 比は異なる。一般に高温であるほど NO が生成する割合が高く、酸素濃度が高いと NO<sub>2</sub> 生成割合が増加する。そのため、発生源に応じた NO<sub>x</sub> 組成分類表を準備する必要がある。

### ③ PM 組成

PM の組成及び粒径分布についても、NO<sub>x</sub> と同様に発生源に応じた分類をする必要がある。PM 組成は燃料種別や燃焼方法に依存し、粒径分布はばいじん処理方法に依存するため、煙源ごとの個別情報が重要となる ([森川, 2010](#))。こちらも JEI-DB に付属する化学輸送モデル CMAQ 用の PM・VOC 組成データベース ([JPEC, 2012c](#)) が利用できる。

本研究では、JEI-DB に付属する化学輸送モデル CMAQ 用の PM・VOC 組成データベース ([JPEC, 2012c](#)) のほか、SMOKE における組成データ、VOC・PM の組成分解プログラム SPECIATE (<https://www.epa.gov/air-emissions-modeling/speciate-version-45-through-40>) などをもとにした [森川 \(2005\)](#) による組成分解を参考とした。

### 2.1.4 化学輸送モデル (CMAQ) の概要

CMAQ は、米国環境保護庁によって開発・管理されている第3世代の化学輸送モデルである。当初は、米国州政府等が大気環境改善策を検討するツールとして、また、研究者が気象と大気中の汚染物質の化学的変化・生成および除去プロセス等複雑な挙動との関係性を把握するためのツールとして、1990年代前半に開発が着手された(速水, 2011)。CMAQは、過去の化学輸送モデルが光化学スモッグや酸性沈着など特定の問題を対象に設計されてきたのに対して、CMAQのみで広範な空間スケール(都市～大陸)の様々な大気環境問題(オゾン、粒子状物質、酸性沈着等)に適用できること(すなわち”one atmosphere”)をコンセプトとして開発が続けられている(速水, 2011)。最新版は2018年3月にリリースされた5.2.1である。CMAQの主な特徴は下記のとおりである。

- 1) オイラー型の3次元大気化学輸送モデル
- 2) Fortran 90で記述されたオープンソースを用いた数値モデルであり、並列計算も可能
- 3) 入出力ファイル形式は、NetCDF形式に基づいたI/O API (Input/Output Application Programming Interface) (<https://www.cmascenter.org/ioapi/>)形式が採用
- 4) 1-way nesting機能によって、大陸から局所・都市スケールまで様々なスケールで、複数の大気汚染物質および化学反応を同時に扱うことが可能
- 5) 気象場データの入力として、気象モデルMM5 (Fifth-generation Mesoscale Model) (Grell et al., 1994) や WRF-ARW の計算結果を使用することを前提として設計
- 6) 複数の化学反応に関するコードが実装されており、計算目的に応じた反応スキームの選択が可能
- 7) 移流・拡散・反応・生成・沈着等、プロセス別の濃度変化の解析が可能
- 8) CMAQのユーザーは、CMAS (Community Modeling and Analysis System) (<https://www.cmascenter.org/index.cfm>) センターのサポートを利用して国際的に幅広いコミュニティと情報交換することが可能

CMAQによる化学輸送シミュレーションは、Fig. 2.4に示すフローに沿って計算が進められる。まずは、気象モデルの出力データおよび発生源から大気への化学物質排出データをもとに、CMAQの最終段階のプログラムであるCCTM (CMAQ Chemical Transport Model) で計算を実行するのに必要な入力ファイルを作成しなければならない。CMAQ入力用の排出量データ作成ツールとして、SMOKE (Sparse Matrix Operator Kernel Emissions) (<https://www.cmascenter.org/smoke/index.cfm>) がCMASセンターで提供されているが、発生源別に集計された排出インベントリ等の入力データに詳細な情報が必要となる。SMOKEは米国等を対象とした計算では利用実績があるものの、直接アジア地域を対象に用いることは難しい(速水, 2011)。そこで本研究では、SMOKEを基に作成された計算格子への排出量配

分プログラム (嶋寺, 2011) により、東アジアおよび日本の排出量に関する複数のデータを組み合わせて、CMAQ 入力用の排出量データを作成した。

CMAQ は、MCIP、ICON (Initial CONDitions processor)、BCON (Boundary CONDitions processor)、CCTM の主として 4 つのプログラムで構成されている。各プログラムと概要を以下に示す。

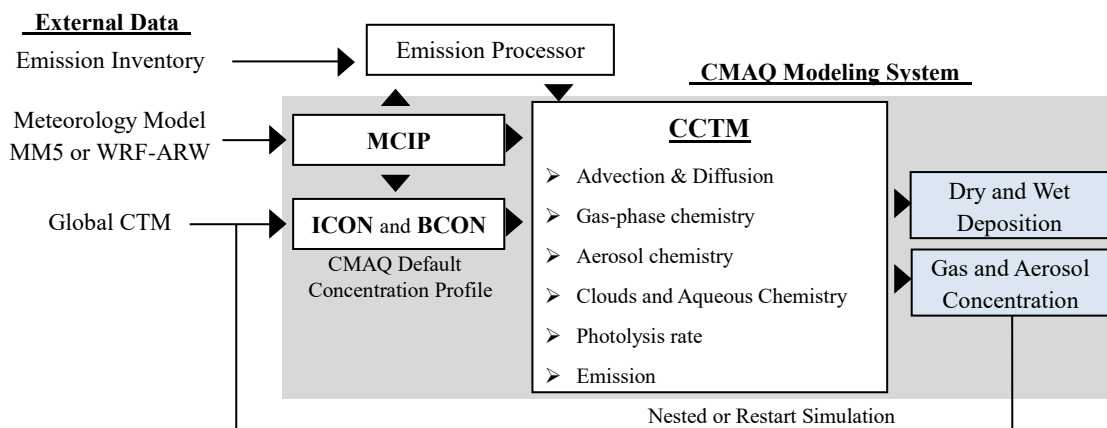


Fig 2.4 The flowchart for the CMAQ modeling system.

- **MCIP (Meteorology-Chemistry Interface Processor)**  
 気象モデル (WRF-ARW) の出力から気象場や空間情報を抽出し、排出データ、初期条件・境界条件の作成および CCTM の入力に必要となるファイルを作成する。その際、気象モデルの境界付近の格子が側面境界値の影響を強く受けることを考慮し、WRF の計算領域よりも CMAQ の計算領域の方が小さくなるよう対象領域を再設定する。
- **ICON/BCON (Initial/ Boundary CONDitions processor)**  
 大気汚染物質およびその前駆物質の濃度の初期条件・境界条件を作成する。外側領域の初期・境界条件の作成は、清浄大気を想定した CMAQ デフォルトの時間変化のない鉛直濃度プロファイル、または全球化学輸送モデルによる計算値 (NCAR による全球化学輸送モデル (MOZART-4, Model for Ozone and Related chemical Tracers version 4) (Emmons et al., 2010) 等) を用いて行う。1-way nesting 計算を行う場合、内側領域の初期・境界条件の作成には、外側領域の CCTM による既往の計算結果を用いて行う。
- **CCTM (CMAQ Chemical Transport Model)**  
 上記に示した排出データおよび 3 つのプログラムにより作成されたファイルを基に、様々な大気汚染物質とその前駆物質について排出・移流・拡散・反応・消滅過程を計算し、大気中の濃度分布や湿性・乾性沈着量等複数の出力ファイルを作成する。

### 2.1.5 化学輸送モデルの基礎方程式と物理・化学過程

CMAQ では、上述した各種入力データをもとに大気汚染物質や前駆体に移流、拡散、気相反応、エアロゾル、雲、湿性・乾性沈着等の過程後、変化した化学物質の濃度推計を、緯度、経度、気圧により設定した3次元の格子ごとに計算を行う。各格子での物質  $c$  の濃度  $C_c$  は次の基礎方程式で計算される。

#### (1) 基礎方程式

$$\frac{\partial C_c}{\partial t} = \text{Adv} + \text{Diff} + R_c + E_c - S_c \quad (2.14)$$

ここで、Adv: 移流、Diff: 拡散であり、物質  $c$  について、 $R_c$ : 化学変化、 $E_c$ : 排出、 $S_c$ : 消滅 (沈着) を表す。移流は MCIP からの入力データ、排出は作成した排出データを基に計算される。拡散、化学変化、消滅は CCTM において計算される。

#### (2) 物理・化学過程

CMAQ での計算は、大気中における物質の様々な物理・化学過程のメカニズムについて必要なオプションを設定することで行われる。主な過程を以下に示す。

##### ① 移流過程 (質量保存調整法を含む)

平均風速場による化学物質輸送に関係し、水平・鉛直方向の要素に分類される。鉛直方向の移流計算方法は、2つの選択肢がある。一つは、鉛直移流に質量保存性を考慮する方法である。他法は、WRF-ARW の計算結果を利用する場合に限り、WRF-ARW の計算で出力された鉛直風速 (omega calculation) と、PPM (Piecewise Parabolic Method) (Colella and Woodward, 1984) を用いて計算する方法である。後者は、WRF-ARW、CMAQ 間で空気密度の計算方法が異なることから、鉛直移流の質量保存性を向上させるために設定されている。水平方向の移流は、MCIP からの気象場データを基に PPM を用いて、各格子間における質量保存性を考慮し計算される。

##### ② 拡散過程

化学物質のサブグリッドスケールの対流混合に関係し、水平・鉛直方向の要素に分類される。鉛直方向の拡散は、ACM (Asymmetric Convective Method) version 2 (Pleim, 2007) が用いられ、対流条件下 (不安定層) では暖気の上昇流に伴う拡散、非対流条件下 (安定層) では PBL 特性に基づく局所混合や乱流拡散が考慮される。水平方向の拡散は、局地風と格子解像度に基づく拡散係数が考慮される。

##### ③ 光解離反応

大気中の化学物質が太陽光の照射により起こす化学反応であり、光解離反応定数は季節・緯度・地形特性、および雲量や大気中のエアロゾルの散乱・吸収等によって左右される太陽放射量や吸収断面積・量子収量等の分子固有の特性に依存する。CCTM

によってオンラインで雲量やオゾン・エアロゾル濃度変化および気温・密度等を考慮した計算が可能である。

#### ④ 気相化学反応

大気中の汚染物質およびその前駆物質の様々な化学変化を扱う。光化学反応モデルとして、CB05 (Carbon Bond chemical mechanism version 2005) (Yarwood et al., 2005)、SAPRC-99 (Statewide Air Pollution Research Center mechanism version 1999) (Carter et al., 2000)、SAPRC-07t (Hutzell et al., 2011) 等が選択でき、オゾンの生成に関わる揮発性有機化合物の取り扱いが異なっている。

#### ⑤ エアロゾル過程

大気中のエアロゾルを構成する粒子状物質について、自然起源・人為起源の一次粒子の排出、前駆物質の反応による二次粒子の生成およびそれらの凝集・乾性沈着等に関する。CCTM では、PM の粒径分布が RPM (Regional Particle Model) (Binkowski and Shankar, 1995) によって、Aitken モード、Accumulation モード及び Coarse モードという 3 つの対数正規分布の重ね合わせで表現される。上記 3 モードの粒径分布は Fig. 1.4 に示したとおりであり、Aitken モードおよび Accumulation モードの和が、PM<sub>2.5</sub> に相当する。また、3 つの粒径モードの和により空気力学径 10 μm 以下の PM<sub>10</sub> が計算される。ガス・粒子の平衡計算は ISORROPIAv2 (Fountoukis and Nenes., 2007) によって行われ、H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>、HNO<sub>3</sub>、NH<sub>3</sub>、HCl、ナトリウム (Na) 等についてガス/粒子の分配が計算される。乾性沈着は、エアロゾルの質量や濃度に基づく粒径分布や気象・土地利用条件等により乾性沈着モジュールで計算される (Pleim and Ran, 2011)。

#### ⑥ 雲過程・液相化学反応

雲過程は、液相化学反応、汚染物質の鉛直混合、湿性沈着による汚染物質除去等に重要な役割をもち、太陽放射量の変化により汚染物質濃度を間接的にも左右する。CCTM では、ACM に基づくサブグリッドスケールの降水性・非降水性の対流雲および気象モデル出力に含まれるモデルグリッドスケールの雲の 3 種類の雲が考慮されている。液相化学反応と湿性沈着は RADM (Regional Acid Deposition Model) (Chang et al., 1987) に基づいている。

#### ⑦ 排出過程

CMAQ は予め作成する排出量データに加え、植生起源排出、プルーム上昇、土壌性ダスト (Foroutan et al., 2017)、海塩粒子 (Kelly et al., 2010) 等の排出量を CCTM の計算においてオンラインで計算を行うことが可能である。

### 2.1.6 発生源寄与推計の方法

CMAQ による発生源寄与推計には、ゼロアウト法を用いた。ゼロアウト法は、「1.1.5 大気汚染の発生源寄与推計手法」で述べたように、全排出量データを使用した通常計算 (Base ケース) に加えて、目的の発生源の排出量のみをゼロにした計算を行い、両者の差分を取ることで目的の発生源の寄与を推計する方法である。本手法による寄与推計結果に不確実性が含まれる点を考慮する必要はあるが、算出された寄与の不確実性の検証については、今後の課題とする。

### 2.1.7 モデル性能評価に係る統計指標

化学輸送モデルを用いて、PM<sub>2.5</sub> の発生源寄与解析をおこなうには、使用したモデルが観測値を適切に再現しているか (求められる性能を満たしているか) を事前に確認しておく必要がある。化学輸送モデルの性能評価に係る統計指標については、速水 (2007) により詳しく述べられている。

次章以降で使用したモデルの性能評価には、観測値および計算値の平均値 (Mean Obs. および Mean Sim.)、相関係数 (R)、MBE (Mean Bias Error)、RMSE (Root Mean Square Error)、NMB (MBE normalized by the mean observed value)、NRMSE (RMSE normalized by the mean observed value)、ファクター2に入る割合 (PF2, the proportion of simulated values within a factor 2 of observation)、IA (Index of Agreement) を統計指標として用いた。各統計指標の算出方法を (2.15) ~ (2.21) 式に示す。

$$R = \frac{\sum_{i=1}^N (M_i - \bar{M})(O_i - \bar{O})}{\sqrt{\{\sum_{i=1}^N (M_i - \bar{M})^2 \sum_{i=1}^N (O_i - \bar{O})^2\}}} \quad (2.15)$$

$$MBE = \bar{M} - \bar{O} \quad (2.16)$$

$$RMSE = \sqrt{\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (M_i - O_i)^2} \quad (2.17)$$

$$NMB = \frac{\sum_{i=1}^N (M_i - O_i)}{\sum_{i=1}^N O_i} \quad (2.18)$$

$$\text{NRMSE} = \sqrt{\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (M_i - O_i)^2} / \bar{O} \quad (2.19)$$

PF2 : 計算値と観測値の全ペア (N)のうち、  
 $0.5 \leq M_i/O_i \leq 2$  を満たすペアの割合 (2.20)

$$\text{IA} = 1 - \frac{\sum_{i=1}^N (M_i - O_i)^2}{\sum_{i=1}^N (|M_i - \bar{O}| + |O_i - \bar{O}|)^2} \quad (2.21)$$

ここで、 $M_i$ 、 $O_i$  : 試料  $i$  (例えば、物質 A のある地点における一時間値) における計算値および観測値、 $\bar{M}$ 、 $\bar{O}$  : 計算値および観測値の平均値、 $N$  : サンプル数である。IA は [Willmott \(1981\)](#) によって考案された統計指標で、0 から 1 の間の値を取り、1 に近いほど計算値は観測値の時間もしくは空間変化 (複数地点の時系列データで評価する場合は、時間、空間変化の両方) をとらえていることを示す。

## 2.2 レセプターモデル

レセプターモデルとは、ある観測点（レセプター）における大気汚染物質に影響を及ぼしたであろう各種発生源の寄与を統計的に推計するモデルをいう。レセプターモデルは、発生源に関する情報の要否から、CMB法もしくは、主成分分析やPMF法の大きく2つに大別される。前者は、レセプターに影響を与える発生源の種別（セクタ）および排出物の化学組成（発生源プロファイル）に関する情報が予め利用可能な場合に限り使用できるが、後者は発生源プロファイルを準備しなくても、モデル計算が可能であるところが両者の特徴である（飯島, 2011）。

CMB法は、予め与えた各発生源セクタのプロファイルについて、個々に寄与濃度を定量できる点に優位性があるが、解析結果の確からしきは、モデルに投入する発生源プロファイルの確からしさに強く依存する。つまり、個々のレセプターを代表する発生源プロファイルに関する情報を事前に収集できるかどうかで解析の成否を決定することになる（環境省, 2014b）。一般に発生源プロファイルは既往の論文等から引用して構築されるが、その場合、地域や年代の不一致による不確実性を常に考慮しなければならない（Wang et al., 2012; 環境省, 2014b）。

一方、PMF法は、堅牢なモデル解を得るために、比較的大きな観測データセットを投入することが求められる（Chan et al., 2011）。そのため、長期間または高時間分解での観測フレーム、もしくは多地点の観測データセットを準備しなければならない。本研究では、発生源プロファイルの不確実性を考慮することなく、発生源寄与推計が可能な、レセプターモデルはPMFモデルを選択した。以下では、PMFモデルの概要等について述べるが、本研究で用いたPMFモデル（EPA-PMF5.0）（Fig. 2.4）での取り扱いを前提に議論を進める。また、PMFモデル解析における留意点等については、飯島（2011）及びNorris et al.（2014）でより詳細に述べられている。



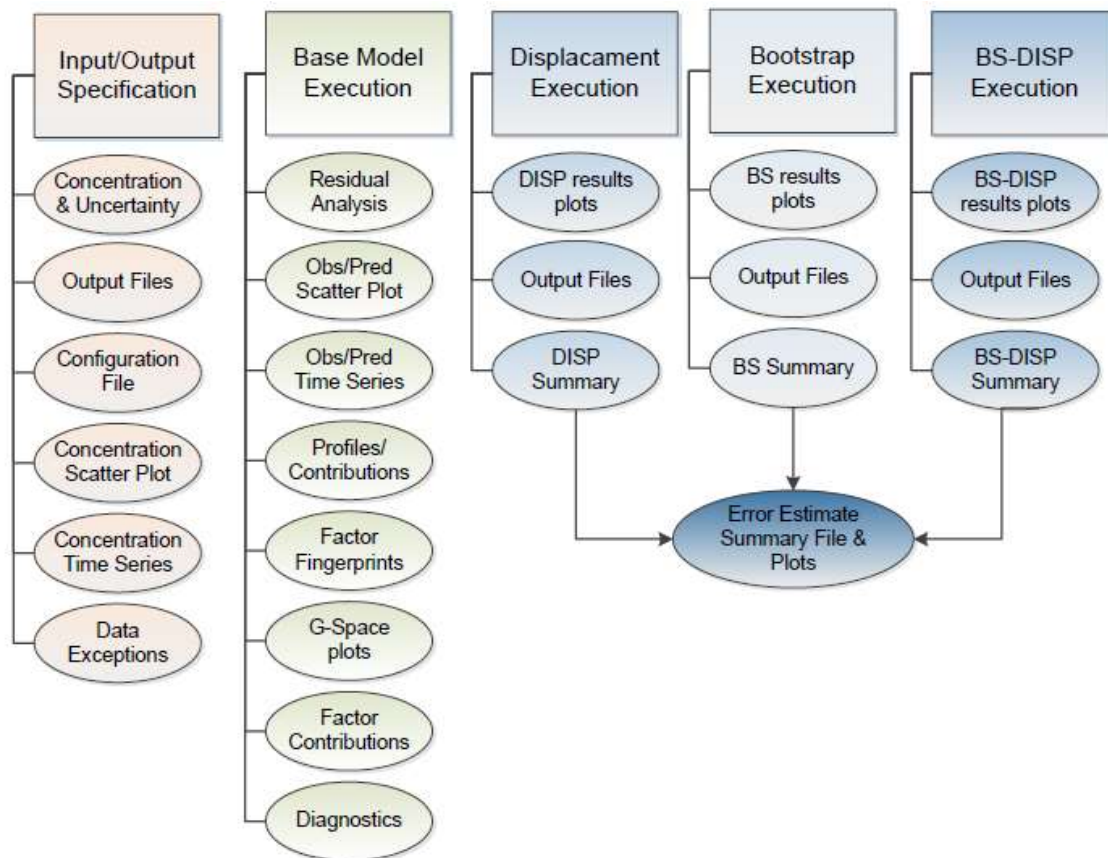


Fig. 2.4 Flow chart of operations within EPA PMF (Norris et al., 2014)

### 2.2.1 PMF モデルの概要

PMF 法は、多数組の観測データセットをいくつかの因子に分解する手法で、因子寄与および因子プロファイルと呼ばれる統計情報を同時に導出することができる (Paatero and Tapper, 1994)。PMF 法では、(2.22) 式のような質量保存式に基づき、観測点 (レセプター) の成分濃度を因子寄与と因子プロファイルに分解し、各種因子 (発生源) の寄与を統計的に推計する。

- 質量保存則

$$x_{ij} = \sum_{k=1}^p g_{ik} f_{kj} + e_{ij} \quad (2.22)$$

ここで、 $x_{ij}$  : 観測点における試料  $i$  ( $i = 1, \dots, n$ ) 中の成分  $j$  ( $j = 1, \dots, m$ ) の観測濃度 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )、 $g_{ik}$  : 試料  $i$  に対する因子  $k$  ( $k = 1, \dots, p$ ) の相対寄与 (単位なし)、 $f_{kj}$  : 因子  $k$  のプロファイルにおける成分  $j$  の濃度 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )、 $e_{ij}$  : 試料  $i$  中の成分  $j$  の観測値とモデル化された計算値の残差を表す。

PMF モデルでは、 $x_{ij}$  を再現できる  $g_{ik}$ 、 $f_{kj}$ 、および因子数  $p$  を見出すことを目的とする。解析者はモデルに  $p$  を与え、(2.23) 式で定義される目的関数  $Q$  を最小にする解 ( $g_{ik}$  および  $f_{kj}$  マトリックス) を繰り返し計算によって求める。

- 目的関数

$$Q = \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^m \left( \frac{e_{ij}}{u_{ij}} \right)^2 = \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^m \left( \frac{x_{ij} - \sum_{k=1}^p g_{ik} f_{kj}}{u_{ij}} \right)^2 \quad (2.23)$$

ここで、 $u_{ij}$  : 観測点における試料  $i$  中の成分  $j$  の測定に伴う不確かさ、 $e_{ij}/u_{ij}$  : スケール化残差を表す。スケール化残差は後述するモデル解の適合度の確認等に利用される。

また、 $g_{ik}$ 、 $f_{kj}$  は共に負の値にならないように制約を受ける。このように、PMF モデルでは観測データセットに含まれる変動要因を統計的にふるい分けて、因子として抽出する作業をおこなっていると解釈することができる。そのため、 $f_{kj}$  で構成される因子プロファイルは同類の発生源に由来した成分濃度分布と考え、因子プロファイル  $\equiv$  発生源プロファイルとみなして発生源寄与推計がおこなわれる。各因子プロファイルがどのような発生源を示しているかの解釈 (後述する) は解析者の手に委ねられる。

## 2.2.2 PMF モデルへ投入するデータセットの作成

PMF モデルで発生源寄与推計をおこなうには、2 種の入力データが必要となる。一つは、観測点において長期間あるいは多地点 ( $i$ ) において様々な成分濃度 ( $j$ ) を測定した観測値  $x_{ij}$  のデータセット ( $x_{ij}$  マトリックス)、もう一つは個々の観測値の不確かさを定めたデータセット ( $u_{ij}$  マトリックス) である。

### (1) 観測値マトリックス

観測値  $x_{ij}$  には、多くの場合、①欠測値、②検出下限値以下の分析値、③原因究明が困難な突発的なはずれ値 (異常値) 等が含まれている。これらの値を適切に処理せずに解析を実施すると、解が収束しないもしくは、後述するモデルの適合度を低下させ、堅牢なモデル解を得ることが困難となる。

欠測値の適切に処理する方法としては、下記 3 種が考えられる (飯島, 2011)。

- ① 欠測となった成分が含まれる試料そのものを解析から除外  
複数の成分が欠測となっている試料がある場合に採用される。
- ② 欠測となった成分を (その成分が欠測となっていない試料も含め) 解析から除外  
欠測率が高い成分を解析に加えるとモデルの適合度を低下させる懸念があるため、欠測率が高い成分に採用される。
- ③ 欠測値を各成分濃度の中央値等の統計値で置換  
①、②の方法が選択できない場合に採用される。ただし、置換した値がモデル解に大きな影響を与えないように、値の重みを低減する必要がある (Polissar et al., 1998; Song et al., 2001)。EPA-PMF5.0 では欠測値が入力データに含まれている場合は、中央値に置換し、値の重みを低減 (不確かさ (後述する) を通常の 4 倍に設定) できるようになっている。値の重みの調整方法については後述する。

検出下限値以下の分析値の取り扱いについては、下限値の 1/2 値で置換する方法がよく採用されている (Polissar et al., 1998)。この場合も、上述したように置換した値の重みは低減しておく必要がある。

異常値については、PMF モデル内で再現することは困難であるため、PMF モデルへ投入する観測値マトリックスにおける各成分の濃度分布を確認し、異常値が含まれていないかを検討しておく必要がある。PM<sub>2.5</sub> 成分測定値における異常値の検出には、下記 2 種の方法が広く利用されている。

#### ① イオンバランス

一般環境では、概ね陽イオンと陰イオンの電荷は等しい状態で存在することから、

代表的なイオン (陰イオン( $\text{Cl}^-$ 、 $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{SO}_4^{2-}$ )、陽イオン ( $\text{Na}^+$ 、 $\text{NH}_4^+$ 、 $\text{K}^+$ 、 $\text{Ca}^{2+}$ 、 $\text{Mg}^{2+}$ )) についての分析結果より、陰イオン、陽イオンの等量濃度の合計比を求め、異常値の有無を検出する方法である。微小粒子状物質曝露影響調査報告書 (平成19年7月) (環境省, 2007) では、等量濃度の合計比が 0.8~1.2 を適合 (異常値ではない) として評価している。しかし、すべてのイオン成分を等量濃度の合計比の算出に用いているわけではないため、未測定成分 (炭酸イオンなど) が多量に存在する場合などは範囲から外れる可能性がある。また、イオンバランスの適合範囲を必要以上に狭くした場合、PMFモデルで堅牢なモデル解を得るのに必要なデータ数が足りなくなる等の問題が生じるため、適合範囲の設定には注意を要する。

## ② 質量濃度推定手法 (CMC, Chemical mass closure) モデル

CMCモデルは、粒子状物質の質量濃度と幾つかの主要成分 (特定のイオン成分、OC、EC、特定の金属成分) との関係を統計的に求めておき、以後の測定において成分測定データから質量濃度を推定し、測定質量濃度の妥当性を評価する。質量濃度推定のために各成分結果に与える係数は、成分元素の環境大気中における代表的化学形態、特定の発生源の影響及び過去の分析結果の集積に基づく知見等により決定される。代表的な手法としては、Harrison et al. (2003) による係数および、米国環境保護庁による係数 (U.S.EPA., 1999) が知られている。しかし、いずれも国外のモデルであるため必ずしも日本の気候風土と合致しているとはいえない。そこで、本研究では、国内の先行研究 (環境省, 2007; Nakatsubo et al., 2014) に倣い、(2.24) 式を用いた。各係数は微小粒子状物質曝露影響調査において検討された全国19ヶ所の測定値に基づいて設定された係数である (環境省, 2007)。

$$PM_{2.5}Mass = 1.375[SO_4^{2-}] + 1.29[NO_3^-] + 2.5[Na^+] + 1.5[OC] + [EC] + [SOIL] \quad (2.24)$$

$$[SOIL] = 9.19[Al] + 1.40[Ca] + 1.38[Fe] + 1.67[Ti]$$

これらのモデルにより求めた粒子状物質の質量濃度の推定値 ( $PM_{2.5}Mass$ ) を実測値 ( $PM_{2.5}$  質量濃度) と比較することにより、その試料がその測定地域での粒子状物質の性状の代表性を有しているかの判定がある程度可能となる。ただし、測定地点、季節などにより粒子状物質の性状は異なる場合があることに留意しなければならない。

①、②の方法で異常値として除外対象となるのは、試料捕集時もしくは、試料分析時等に発生したコンタミネーションが疑われる試料、火災、花火等の非日常的な発生源の影響を受けた試料等が想定される。

上記以外に、重複した測定値 (例えば、K と  $\text{K}^+$ 、Ca と  $\text{Ca}^{2+}$ 等) がある場合は、同一成分の二重評価を回避するため、片方のデータは除外される (Maykut et al., 2003; Kim et al., 2004)。

## (2) 不確かさデータマトリックス

EPA-PMF5.0 では、2 種類の方法で観測値の不確かさデータマトリックスを設定することができる。一つは、各観測値 $x_{ij}$ に個別の不確かさ $u_{ij}$ を与える方法で、もう一つは、観測値 $x_{ij}$ に応じて (2.25)~(2.26) 式により不確かさ $u_{ij}$ を見積もる方法である (Poilssar et al., 1998)。

- 観測値不確かさの推算式

$$u_{ij} = \frac{5}{6} \times MDL_j \quad (x_{ij} \leq MDL_j) \quad (2.25)$$

$$u_{ij} = \sqrt{(Error\ Fraction_j \times x_{ij})^2 + (0.5 \times MDL_j)^2} \quad (x_{ij} > MDL_j) \quad (2.26)$$

ここで、 $MDL_j$  : 各成分の検出下限値、 $Error\ Fraction_j$  : 各成分の誤差フラクション (分析値に対する不確かさの割合) を表す。

後者は、 $Error\ Fraction_j$ を事前に各成分について求めておけば、不確かさ $u_{ij}$ を容易に見積もることができる。 $Error\ Fraction_j$ には、各成分分析における相対標準偏差が用いられる例が多い (飯島, 2011)。

なお、サンプリングや試料前処理等に伴う不確かさについては、モデル全体に係る不確かさ (Extra Modeling Uncertainty) として別途、設定することができる。ただし、モデル全体に過度の不確かさを付与することは得られるモデル解の信頼性を損なうことを考慮しなければならない。このほかに、不確かさの推算方法については、Reff et al. (2007) によって詳細に述べられている。

## (3) 値の重みの調整

前述したとおり、欠測値を中央値で置き換えた場合、検出下限値以下の分析値を、下限値の 1/2 値で置換した場合については、これらのデータの不確か性が大きくなることから、値の重みを調整し、モデルの解に及ぼす影響を小さくする必要がある。また、有意な濃度変動がみられない成分は、因子の分離に寄与しないため、不確かさを大きくする、解析対象から除外する等の対応をおこない、モデル解に及ぼす影響を少なくすることが望ましい (飯島, 2011)。EPA-PMF5.0 では値の重み付けをするために、“Strong”、“Weak”、“Bad” という 3 つの分類を設け、成分ごとに値の重みを設定することができる。Strong の不確かさは解析者が設定した値が適用されるが、Weak は不確かさが 3 倍となり、モデル解への影響が軽減される。また、Bad はモデル解の導出には使用されない。

値の重み付けは成分、試料採取、分析精度等、それぞれの不確かさを踏まえて決定することが望ましい。データセットについての詳細な情報が得られない場合等については、signal-to-noise (S/N) 比を利用することができる (Paatero and Hopke, 2003)。EPA-PMF5.0 では

$S/N$  比を (2.27) ~ (2.28) 式により算出する。

- signal-to-noise 比

$$d_{ij} = \left( \frac{x_{ij} - u_{ij}}{u_{ij}} \right) \quad (x_{ij} > u_{ij}) \quad (2.27)$$

$$d_{ij} = 0 \quad (x_{ij} \leq u_{ij})$$

$$\left( \frac{S}{N} \right)_j = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n d_{ij} \quad (2.28)$$

ここで、 $x_{ij}$  : 試料*i*中の成分*j*の観測値、 $u_{ij}$  : 観測値 $x_{ij}$ の不確かさを表す。

また、算出された  $S/N$  比から、各成分の値の重み付けをする方法は、Norris et al. (2014) が次の方法を提案している。

- $0 \leq S/N < 0.5$  : "Bad" (解析から除外)
- $0.5 \leq S/N < 1$  : "Weak" (不確かさを3倍)
- $1 < S/N$  : "Strong" (不確かさの変更なし)

本研究でも、Norris et al. (2014) による  $S/N$  比に基づく値の重みの調整をおこなった。

### 2.2.3 観測データに寄与する因子（発生源）数の決定

因子数  $p$  を決定するには、まず適当な  $p$  を与えて PMF モデルの予備計算を行う。通常、任意の計算開始位置 (Seed number) から複数回 (EPA-PMF5.0 では予備計算として、計算回数 20 回程度を推奨) の繰り返し計算を行う。計算が収束しない場合、PMF モデルに与えた因子数  $p$  が不適切であると判断される。また、計算が収束しても出力された  $Q$  が繰り返し計算ごとに大きく分散する場合、堅牢なモデル解が得られてないと判断される。

$Q$  の理論値である  $Q_{Theory}$  は、(2.29) 式で定義される。

$$Q_{Theory} = nm - p(n + m) \quad (2.29)$$

ここで、 $n$  : 試料数、 $m$  : 成分数を表す。

(2.23) 式で算出される  $Q$  は、PMF モデルに投入した全観測値マトリックスから算出される値であり、 $Q_{true}$  と呼ばれる。EPA-PMF5.0 では、外れ値 ((2.23) 式で算出される  $e_{ij}/u_{ij}$  が 4 以上の試料) を除外して算出された  $Q_{Robust}$  も同時に出力される。 $Q_{true}$  と  $Q_{Robust}$  の乖離は、スケール化残差が大きいデータ影響が強く働いていることを意味し、設定した因子数  $p$  では外れ値が再現できていない可能性がある。この場合、因子数  $p$  の値を変更するか、外れ値 (異常値) の取り扱いを見直す必要がある。これらの条件を踏まえて、計算が収束し、出力される  $Q$  ( $Q_{Robust}$  と  $Q_{true}$ ) の分散が小さく、 $Q_{Robust} \doteq Q_{true} \doteq Q_{Theory}$  となる因子数  $p$  を決定しなければ

ばならない。

ただし、ここで決定した因子数  $p$  は、「統計的に最適な  $p$ 」にすぎない。分離された因子のプロファイル ( $f_{kj}$  マトリックス) を確認し、それぞれの因子が物理的な意味をなすものであるか (特定の発生源、例えば道路交通に伴う発生源だと説明できるものか)、各因子の寄与 ( $g_{ik}$  マトリックス) の変動パターンが実環境で発生しうるもの (道路交通の因子なら、一般環境よりも沿道の寄与が高くなっている等) であるか等の検証が必要となる。そのため、「統計的に最適な  $p$ 」を多少増減させ、「物理的に最適な  $p$ 」を見いだす試行錯誤が必要となる (Ito et al., 2004; Kim et al., 2003; 飯島, 2011)。

## 2.2.4 得られたモデル解 (因子及び寄与割合) の適合度と妥当性評価

PMF モデルでは、前述のとおり、モデルへ投入する観測値データ内の異常値除去、各観測値の不確かさの設定、データの重み調整、因子数の決定等、様々な行程を経た後、統計処理を行い、(2.22) 式に基づいてモデル解を導出している。よって、得られたモデル解とモデルに投入した観測値マトリックスの間には、(2.23) 式に示した残差  $e_{ij}$  (試料  $i$  中の成分  $j$  の観測値とモデル化された計算値の残差) が発生し、観測値と計算値の間に大きな乖離がある試料もしくは成分が残存してしまうおそれがある。そのため、まず得られたモデル解の適合度を評価した後、モデル解の妥当性評価 (解の安定性、不確実性等の確認) に移行する。モデル解の妥当性を損なう要因には、入力データ自身の不確実性 (観測、測定時のデータのばらつき等) によるものと、回転の自由度によるものがある (Brown et al., 2015)。

PMF モデルでは、 $g_{ik}$ 、 $f_{kj}$  が共に負の値にならない制約を与えて、モデル解を導出するが、これだけでは同一の  $Q$  を得る  $g_{ik}$ 、 $f_{kj}$  の組み合わせは一つに定まらない (Henry, 1987)。ある解 ( $g_{ik}$ 、 $f_{kj}$ ) の組み合わせから別の解 ( $g_{ik}$ 、 $f_{kj}$ ) の組み合わせに変換することを回転といい、その自由度を回転の自由度という。回転の自由度は低いほうが良く、Base factor の  $g_{ik}$  及び  $f_{kj}$  マトリックスに多くのゼロ値があれば回転の自由度は低くなり、解は固有の値から大きく外れることはない (飯島, 2011)。

### (1) モデルの適合度

モデルに投入した観測値マトリックスと得られたモデル解の関係から、モデルの適合度を評価する。EPA-PMF5.0 では、観測値の再現性を評価するためのツールとして、散布図、時系列図、残差分析等が付属している。

#### ① 散布図

散布図は、成分ごとの観測値とモデル解の関係を視覚化して整理することができる。また両者の相関係数、回帰線の傾きから、モデルの適合度を評価することができる。ここで、再現性が低いと判断された成分については、値の重みを調整するもしくは、

観測値マトリックス内に異常値が残っていないか確認して、再解析する必要がある。

## ② 時系列図

時系列図は、成分ごとにモデルで再現することが困難な異常値が残っていないか確認することができる。特に複数の成分において、モデルで再現できていない試料がある場合は、その試料自体をモデルに投入する入力データ（観測値マトリックス）から除外することも検討する必要がある。

## ③ 残差分析

残差分析は、(2.23) 式で計算される  $e_{ij}/u_{ij}$  を基に、モデルの適合度を統計的に検定することができる。まず、 $e_{ij}/u_{ij}$  のヒストグラム及び Kolmogorov-Smirnoff 検定の統計量から、分布の正規性を確認する。 $e_{ij}/u_{ij}$  が正規分布していない場合、その成分にはモデルが適合していない可能性が高く、値の重み等を調整して、再解析することが望ましい（飯島, 2011）。一方、正規分布している場合は、 $e_{ij}/u_{ij}$  の約 95 % は  $\pm 2$ 、約 99 % は  $\pm 3$  の範囲に分布することが期待される。つまり、 $e_{ij}/u_{ij}$  が  $\pm 3$  を超過して分布している成分は、不確かさが過大に設定されていることを示唆している。これは、「2.2.2 PMF モデルへ投入するデータセットの作成」で作成した不確かさデータマトリックス及び値の重みの調整が妥当であったかを確認するのに役立つ（Kim et al., 2003）

## (2) モデル解の妥当性評価

EPA-PMF5.0 では最適と考えられる因子数  $p$  の下で得られたモデル解 (Base run) の妥当性を評価するため、3つの方法が提供されている（Paatero et al., 2014; Brown et al., 2015）。

### ① Bootstrapping (BS)

BS 法は、主に特定の観測値が過度にモデル解に影響を与えていないか（観測データのばらつきによる誤差）を評価する。まず、観測値マトリックスから重複しない任意のデータブロックを選択して、新しい観測値マトリックスを構築した後、これを基に同一の因子数  $p$  の下で PMF モデルを実行 (Bootstrap run) する。次に Bootstrap run で得られた因子 (Bootstrap factor) と Base run で得られた因子 (Base factor) の関連度合い（一般的には、Bootstrap factor と Base factor の寄与の相関が 0.6 以上の場合、両者が関連していると判定）を確認する。全ての Bootstrap factor が対応する Base factor と関連づけられていることが望ましいが、100 回の Bootstrap run において、各 Bootstrap factor の 80 % (80 回) 以上が Base factor と関連づけられていた場合、因数数  $p$  は適切であると解釈される（Norris et al., 2014）。

### ② Displacement (DISP)

DISP 法は、主に因子の回転に起因する誤差を評価する。具体的には、Base factor の成分を変動させた場合の、 $Q$  値が最小 ( $Q_{\text{mod\_min}}$ ) となるモデル解を導出する。ただし、新たなモデル解は Base run 時の  $Q$  値 ( $Q_{\text{base}}$ ) と  $Q_{\text{mod\_min}}$  の差  $dQ (=Q_{\text{base}} - Q_{\text{mod\_min}})$  が



$dQ_{\max}$  以下 (EPA-PMF5.0 では、 $dQ_{\max}$  は 4、8、15、25 に指定。) である必要がある。この計算が Base run で得られた因子数×成分数だけ試行され、条件 (ある Base factor の回転を許容) を満たすモデル解が得られた回数がカウントされる (例えば、20 成分の観測値データセットに対して 7 つの因子が抽出された場合は、 $20 \times 7 = 140$  回の計算が各  $dQ_{\max}$  に対して実施される。)

③ BS-DISP (Bootstrapping with Displacement)

BS-DISP 法では、BS 法と DISP 法が行われ、両者の誤差が総合的に評価される。

## 2.2.5 因子の解釈及び発生源寄与推計

最終的に得られた  $g_{ij}$  及び  $f_{kj}$  マトリックスから発生源の解釈と寄与推計を行う。ただし、この操作は解析者の主観が介入しやすいいため、発生源解釈の根拠を明確することが望ましい (Reff et al., 2007)。

まず、 $f_{kj}$  マトリックスの成分組成に着目し、指標成分の有無から発生源の候補を絞り込む。発生源の成分組成に関する情報は、既存の発生源プロファイル (例えば、U.S.EPA の SPECIATE v4.5 (<https://www.epa.gov/air-emissions-modeling/speciate-version-45-through-40>) といった発生源プロファイルのデータベース) だけでなく、PMF モデルを用いた先行研究で用いられた  $f_{kj}$  マトリックスの成分組成との類似性を参考にできる (例えば、Viana et al., 2008; Iijima et al., 2009; Zhang et al., 2013; Nakatsubo et al., 2014)。

このほか、 $g_{ik}$  マトリックスが表す因子ごとの相対寄与の変動も、発生源の解釈に利用できる。例えば、季節変化 (農作業に伴う野焼きであれば秋季に寄与が高くなる)、平日・週末の差、観測地点による寄与変動 (道路交通の因子なら、一般環境よりも沿道の寄与が高くなっている) に着目すれば、発生源を絞り込むことができる。さらに、気象観測データや大気常時監視測定局の観測データ等との関係も考慮して、発生源を解釈することも可能である (Zhou et al., 2004; Wang et al., 2005)。しかし、上記の観点から因子と発生源の関係が合理的に説明できない場合、因子数  $p$  を再度、見直す必要がある。

各因子がどの発生源を示しているか合理的に説明できる段階になれば、試料  $i$  に対する因子  $k$  の寄与濃度  $a_{ik}$  は、(2.30) 式で求めることができる。

$$a_{ik} = \sum_{j=1}^m g_{ik} f_{kj} \quad (2.30)$$

なお、得られたモデル解において、ひとつの因子に複数の発生源寄与が混在している場合 (Iijima et al., 2008; Nakatsubo et al., 2014) が存在する。これは、異なる発生源に由来する成分であっても、観測された濃度変動パターンが両者で類似している場合、それらを統計的に区別することは困難であることに起因する。混在している発生源が分かれたモデル解

を得るには、観測時間の時間分解能を上げる、多地点で長期間の観測を行う、指標成分となるような物質の測定を行う等の工夫が必要となる。

## 第3章 日本における PM<sub>2.5</sub> (硝酸塩) の発生源寄与推計

本章では、日本における PM<sub>2.5</sub> 中の硝酸塩 (NO<sub>3</sub><sup>-</sup>) に関して、前駆物質 (NO<sub>2</sub>、HNO<sub>3</sub>、NH<sub>3</sub>) までを含め、国内・国外発生源からの寄与を CMAQ により定量的に評価する。寄与推計の方法としてゼロアウト法を用い、国外 (東アジア域から) の人為起源排出、国内の人為起源排出および境界流入・自然起源排出を含めたバックグラウンドの寄与を推計する。特に、国外の人為起源排出の寄与 (Total LRT, Total Long-range transport) は国外からの粒子輸送によるもの (Direct LRT) と、国外から輸送されてきた国外起源前駆物質と日本国内から排出された前駆物質の粒子化によるもの (Indirect LRT) に区別して推計する (Fig. 3.1)。

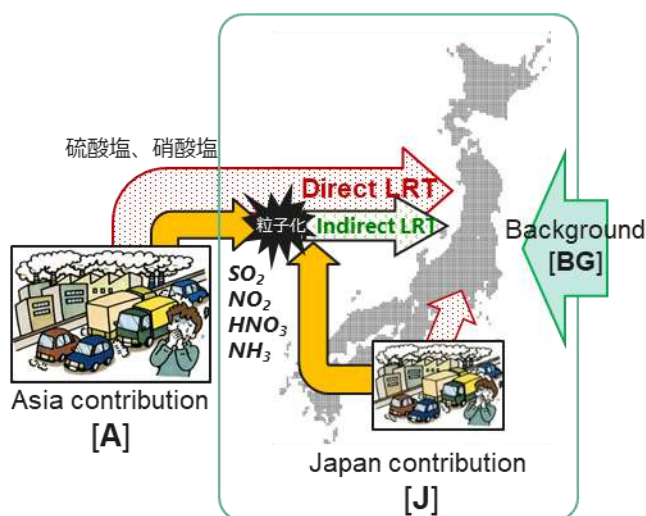
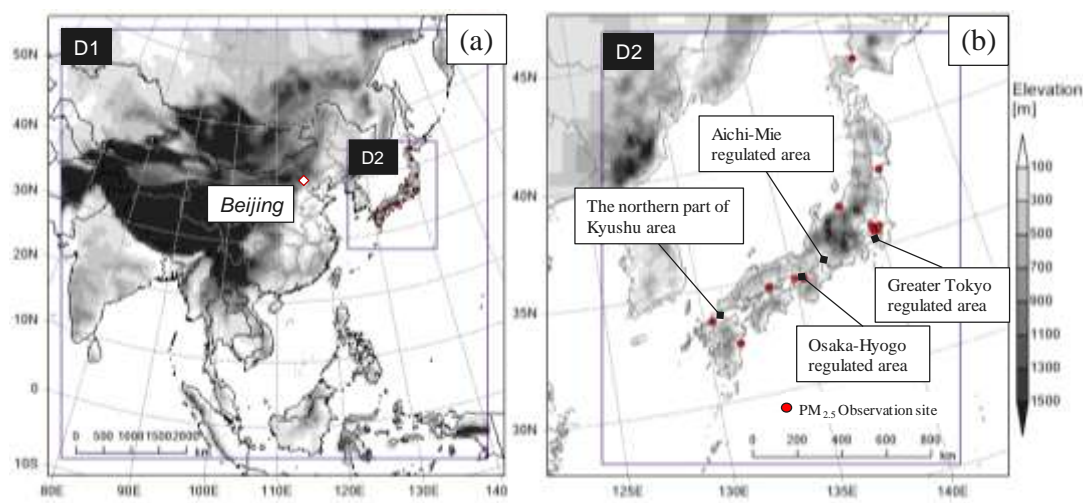


Fig. 3.1 Outline of source contributions for PM<sub>2.5</sub> in Japan

### 3.1 計算領域と計算条件

#### 3.1.1 計算領域と計算期間

CMAQ の計算領域 (Fig. 3.2) は、計算負荷を考慮しつつ、東アジア域は人為起源排出量が多い中国、インドを網羅し、かつ日本域は国内各都市域の発生源の感度差が評価できるよう、東アジア域 (D1、60 km 格子)、日本域 (D2、15 km 格子) に設定した。鉛直層は、地表面から上空 100 hPa までを 34 層に分割した。設定の詳細を Table 3.1 に示す。



**Fig. 3.2** Modeling domains for the CMAQ simulation: (a) East Asia and (b) Japan with the height above sea level and the locations of the observation sites for PM<sub>2.5</sub> components for four seasons in JFY2010.

計算期間は、助走期間を10日間設けた後、2010年4月～2011年3月(2010年度)を評価対象期間とした。2010年度は、環境省によるPM<sub>2.5</sub>の成分測定(環境省, 2010)が初めて全国的に行われた年であり、国内の大気汚染常時監視測定局によるPM<sub>2.5</sub>質量濃度だけでなく、PM<sub>2.5</sub>主要成分についても再現性を確認することが可能である。さらに、後述する大気質モデルの入力データとなる排出量データの多くは、推計年次を2010年に統一することが可能なことから、当該年度を計算期間に設定した。

### 3.1.2 WRFの計算条件

WRFの地形・土地利用データは、WRF USERS' PAGE ([http://www2.mmm.ucar.edu/wrf/users/download/get\\_sources\\_wps\\_geog\\_V3.html](http://www2.mmm.ucar.edu/wrf/users/download/get_sources_wps_geog_V3.html)) で提供されているUSGSにより作成された全球データセットおよび国土数値情報土地利用細分メッシュデータ(NLMI-LUFMD, National Land Numerical Information Land Use Fragmented Mesh Data) (<http://nlftp.mlit.go.jp/ksj/gml/datalist/KsjTmplt-L03-b.html>)を用いた。前者は、水平解像度0.0083°×0.0083°で整備されており、土地利用が24種に分類されている。後者は、国土地理院(GIAJ, Geospatial Information Authority of Japan)「数値地図(国土基本情報)電子国土基本図(地図情報)、電子地形図25000(地図画像)」および衛星画像データから、100mメッシュ単位で地図記号や衛星画像の色調から判断される11種(田、その他の農用地、森林、荒地、建物用地、道路、鉄道、その他の用地、河川地及び湖沼、海浜、海水域、ゴルフ場)

**Table 3.1** WRF-ARW and CMAQ configurations

	Parameter	Settings
	Spin-up period	22 – 31 March 2010
	Simulation period	1 <sup>st</sup> April 2010 – 31 March 2011
	Output interval	1 hour
	Map projection	Lambert conformal conic
	Central point	30 ° N, 110 ° E (D1) and 36 ° N, 135 ° E (D2)
	Horizontal grid spacing	60 and 15 km
	Vertical domain	34 layers (up to 100 hPa, 1 <sup>st</sup> mid layer height $\cong$ 26 m)
WRF	Version	ARW 3.7.1
	Horizontal grid number	140 × 140 (D1) and 120 × 140 (D2)
	Topography / Landuse	30-sec USGS / 30-sec USGS and 100-m MLIT-GIAJ
	Initial and boundary	NCEP FNL, JMA MSM-GPV, and NCEP/NOAA RTG_SST_HR
	Analysis nudging	$G_{t,q,uv} = 1.0 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ (D1, D2)
	Explicit moisture	WSM6
	Cumulus	Kain-Fritsch (D1, D2)
	PBL and surface layer	YSU PBL and Monin-Obukhov similarity
	Surface	Noah LSM
	Radiation	RRTM (long wave) and Dudhia (short wave)
CMAQ	Version	5.1
	MCIP	Version 4.3
	Horizontal grid number	135 × 135 (D1) and 115 × 135 (D2)
	Initial and boundary	MOZART-4/GEOS5 (D1)
	Emission	Asia: HTAPv2 (2010), Japan: EAGrid2010-JAPAN, JEI-DB-AS (Vehicle), and OPRF2010 (Ship), Biogenic: MEGANv2.04, Biomass burning: FINN v1.5, Volcano: Aerocom (2009)
	Horizontal / vertical advection	Yamartino / WRF-based scheme
	Horizontal / vertical diffusion	Multiscale / ACM 2
	Photolysis rate	On-line photolysis module
	Gas / aerosol phase chemistry	SAPRC07 & AERO6 with aqueous chemistry

(<http://nlftp.mlit.go.jp/ksj/gml/codelist/LandUseCd-09.html>) に分類されている。そのため、国土数値情報土地利用細分メッシュデータについては、USGSの24種の土地利用データのうち6区分(①都市、②湿った農耕地と牧草地、③農耕地と草原、④草原、⑤混合林、⑥水域)に再配分して使用した。

初期・境界条件として、D1にNCEPによる全球客観解析データ(NCEP-FNL)([CLSL Research Data Archive, 2017](#))および海表面温度RTG-SST-HR([NCEP Real-Time SST archives, 2017](#))を使用した。D2には、国内の気象場の再現性を向上させるため、海表面温度にRTG-SST-HRを使用する以外は、気象庁(JMA, Japan Meteorological Agency)により日本・日本周辺域を対象に作成された客観解析値(メソ数値予報モデル(MSM-GPV)([気象庁, 2018](#)))を使用した。ただし、MSM-GPVで取り扱われていないデータは、NCEP-FNLを使用した。また、気圧面はMSM-GPVの気圧面に合うよう、NCEP-FNLのデータを間引いて使用した。各データについての仕様を以下に示す。

- NCEP FNL (NCEP FiNaL operational global analysis data)

水平解像度1°×1°、6時間間隔の全球対象の客観解析データである。全球通信システム(Global Telecommunication System)等から得られた観測値をもとに全球データ同化システム(GDAS, Global Data Assimilation System)によって作成されている。

気圧面は26層(2016/5/11 12:00以降のデータは31層のため気圧面は異なる、[http://www.nws.noaa.gov/os/notification/tin16-11gfs\\_gdasaaa.htm](http://www.nws.noaa.gov/os/notification/tin16-11gfs_gdasaaa.htm))に分割されており(10, 20, 30, 50, 70, 100, 150, 200, 250, 300, 350, 400, 450, 500, 550, 600, 650, 700, 750, 800, 850, 900, 925, 950, 975, 1000 hPa)、絶対渦度、雲水混合比、ジオポテンシャル高度、オゾン混合比、相対・絶対湿度、気温、風速東西・南北成分、上昇流のデータが含まれ、地表面にはアルベド、降水の種類(通常の降水・着氷性の雨・凍雨・降雪のいずれか)、対流有効位置エネルギー、対流性降雨の割合、露点温度、下向き長波・短波放射、氷河割合、陸域割合、気温、PBL高さ・降水量、気圧、相対・絶対湿度、気温、風速東西・南北成分等のデータが含まれている。

土壌は4層(0~10 cm, 10~40 cm, 40~100 cm, 100~200 cm)に分割されており、土壌温度、土壌含水率のデータが含まれている。

- NCEP RTG-SST-HR (NCEP Real-Time, Global, Sea Surface Temperature High Resolution)

水平解像度0.083°×0.083°、24時間間隔の全球の海表面温度のデータである。

- MSM-GPV (Meso Scale Model-Gridded Point Value)

北緯22.4~47.6度、東経120~150度の日本および日本周辺域を対象とし、3時間間隔、水平解像度は地表面においては0.05°×0.0625°、気圧面においては0.1°×0.125°で整備されている。

気圧面は16層に分割されており(100, 150, 200, 250, 300, 400, 500, 600, 700, 800, 850, 900, 925, 950, 975, 1000 hPa)、ジオポテンシャル高度、風速東西・南北成分、気温、上

昇流、相対湿度のデータが含まれている。地表面には海面更正気圧、地上気圧、風速東西・南北成分、気温、相対湿度、時間降水量、雲量が含まれている。

解析値ナッジングは全計算期間、鉛直全層に対して、風速東西・南北成分、気温、混合比についてナッジング係数  $G_{w,i,q} = 1.0 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$  を D1、D2 領域に適用した。

WRF の物理過程に関するオプション設定については、次のように設定した。

- 雲微物理過程

WSM6 (WRF Single-moment 6-class scheme) (Hong and Lim, 2006) を用いた。本スキームでは、水蒸気、雲水、雲氷、雨水、雪、あられの 6 つの混合比と過冷却過程が考慮される。

- 積雲過程

Kain-Fritsch (Kain, 2004) を用いた。本スキームでは、比較的簡易な雲モデルによって上昇流・下降流を表現する。1990 年に Kain と Fritsch によって作成されたスキーム (Kain and Fritsch, 1990) から上昇流のエントレインメント率や非降水性の浅い対流雲および下降流に関する扱い等が改良されている。

- PBL 過程

PBL 高度から拡散係数の形を決めるノン ローカル型の Yonsei University (YSU) PBL (Hong et al., 2006) を用いた。YSU スキームは、Noh et al. (2003) をもとに PBL 上の移行層を考慮している。また WRF の version 3 では、Hong (2007) をもとに強風時に安定境界層内の混合がより促進されるよう拡散係数を算出するアルゴリズムが改良されている。

- 地表面過程

Noah LSM (Chen and Dudhia, 2001) を用いた。Noah LSM では、土壌は深さ 0~10、10~40、40~100、100~200 cm の 4 層に分割される。また、植生区分・割合、根域を考慮し、表面流出、蒸発散、土壌排水などの予測をもとに、土壌温度・含水率の予測を行う。さらに、積雪の状態、樹冠内の水分などの予測も行う。

- 放射スキーム

長波放射スキームには、Mlawer et al. (1997) の RRTM (Rapid Radiative Transfer Model) を用いた。RRTM スキームでは、長波放射スペクトルを 16 に分割し、水蒸気、O<sub>3</sub>、CO<sub>2</sub> などのガスおよび雲の光学的深さが詳細に扱われる。

また、短波放射スキームには、Dudhia (1989) のスキームを用いた。このスキームでは、太陽放射の晴天時の散乱、水蒸気による吸収 (Lacis and Hansen, 1974)、雲による反射・吸収 (Stephens, 1978) を考慮し、簡易的に下向き短波放射フラックスが予測される。

### 3.1.3 CMAQの計算条件

大気中の汚染物質およびその前駆物質の物理・化学反応過程等については、次のように設定した。

- 気相化学反応

SARPC-07 (Hutzell et al., 2011) を用いた。「2.1.3 排出インベントリ」で述べたとおり、CMAQ では計算負荷の軽減のため、個々の VOC 成分ごとに反応式を解くのではなく、VOC 成分をいくつかのグループに分類し、反応式を減らしたスキームにより化学反応を考慮している。CMAQ version5.1 の SARPC-07 スキームの排出過程における VOC 組成は、ホルムアルデヒド (HCHO)、メタノール (MEOH)、エタノール (ETOH)、ケトン類 2 種 (MEK、PRD2)、酢酸 (AACD)、アセトアルデヒド (CCHO)、その他有機酸 (PACD)、アセトン (ACET)、ギ酸 (FACD)、その他アルデヒド類 (RCHO)、グリオキサール (GLY)、メチルグリオキサール (MGLY)、ジアセチル (BACL)、クレゾール (CRES)、芳香族アルデヒド類 (BALD)、メタクロレイン (MACR)、メチルビニルケトン (MVK)、その他不飽和アルデヒド類 (IPRD)、エチレン (ETHE)、イソプレン (ISOP)、モノテルペン (TERP)、パラフィン類 5 種 (ALK1~ALK5)、ベンゼン (BENZ)、トルエン (TOLU)、キシレン類 (OXYL、MXYL、PXYL)、その他芳香族類 2 種 (ARO1、ARO2MN)、オレフィン類 2 種 (OLE1、OLE2)、セスキテルペン (SESQ)、 $\alpha$ -ピネン (APIN)、1,3-ブタジエン (13BDE)、プロペン (PRPE)、1,2,4-トリメチルベンゼン (B124)、アセチレン (ACYE)、アクロレイン (ACRO)、ナフタレン (NAPH)、有機硝酸エステル (RNO3)、二次生成粒子の前駆物質となる有機炭素類 (SOAALK) の合計 46 種となっている。

- エアロゾル過程

AERO6 (Sixth-generation modal CMAQ aerosol model) を用いた。AERO6 では PM<sub>2.5</sub> の一次排出の組成として、新たに 4 種 (H<sub>2</sub>O, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>, Na<sup>+</sup>, Cl<sup>-</sup>) が追加されており、従来の AERO5 ではその他の分類である PM<sub>other</sub> に含まれていた種のうち 9 種 (Mg, Al, Si, K, Ca, Ti, Mn, Fe, NCOM (Non-Carbon Organic Mass)) も追加された。したがって、PM<sub>2.5</sub> の排出には従来から考慮されている SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、EC、OC に上記の種を加えた計 18 種の分配が必要となる (Appel et al., 2013)。

また、ガス粒子の平衡計算は、AERO6 に対応した ISORROPIAv2 (Fountoukis and Nenes., 2007) で行われ、ガス/粒子分配の改善や SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> の液相反応の改良等が施されている。

- 初期・境界条件

大気汚染物質やその前駆物質濃度の初期・境界条件は、NCAR の全球化学輸送モデル MOZART-4 (Emmons et al., 2010) の計算結果を使用した。MOZART-4 では、気象モデルとして NASA の開発した全球大気海洋結合大循環モデル GEOS-5 (Rienecker et al., 2008) を使用し、全球を対象として水平解像度 1.9° × 2.5°、鉛直 56 層で 3 時間間隔の計



算がなされている。MOZART-4 では O<sub>x</sub>、NO<sub>x</sub>、炭化水素や・OH や HO<sub>2</sub>、RO<sub>2</sub> 等のラジカル等 85 種の気相化学種と、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>、炭素類 5 種、海塩 (0.1~10 μm の NaCl を粒径で 4 種に分類) の計 12 種のエアロゾル化学種ならびに 39 種の光分解と 157 種の気相化学反応が考慮されている。排出インベントリには、人為起源排出として ARCTAS (Arctic Research of the Composition of the Troposphere from Aircraft and Satellites) (Jacob et al., 2010)、バイオマス燃焼由来の排出として FINN (Wiedinmyer et al., 2011) の version 1.0 が使用されている。

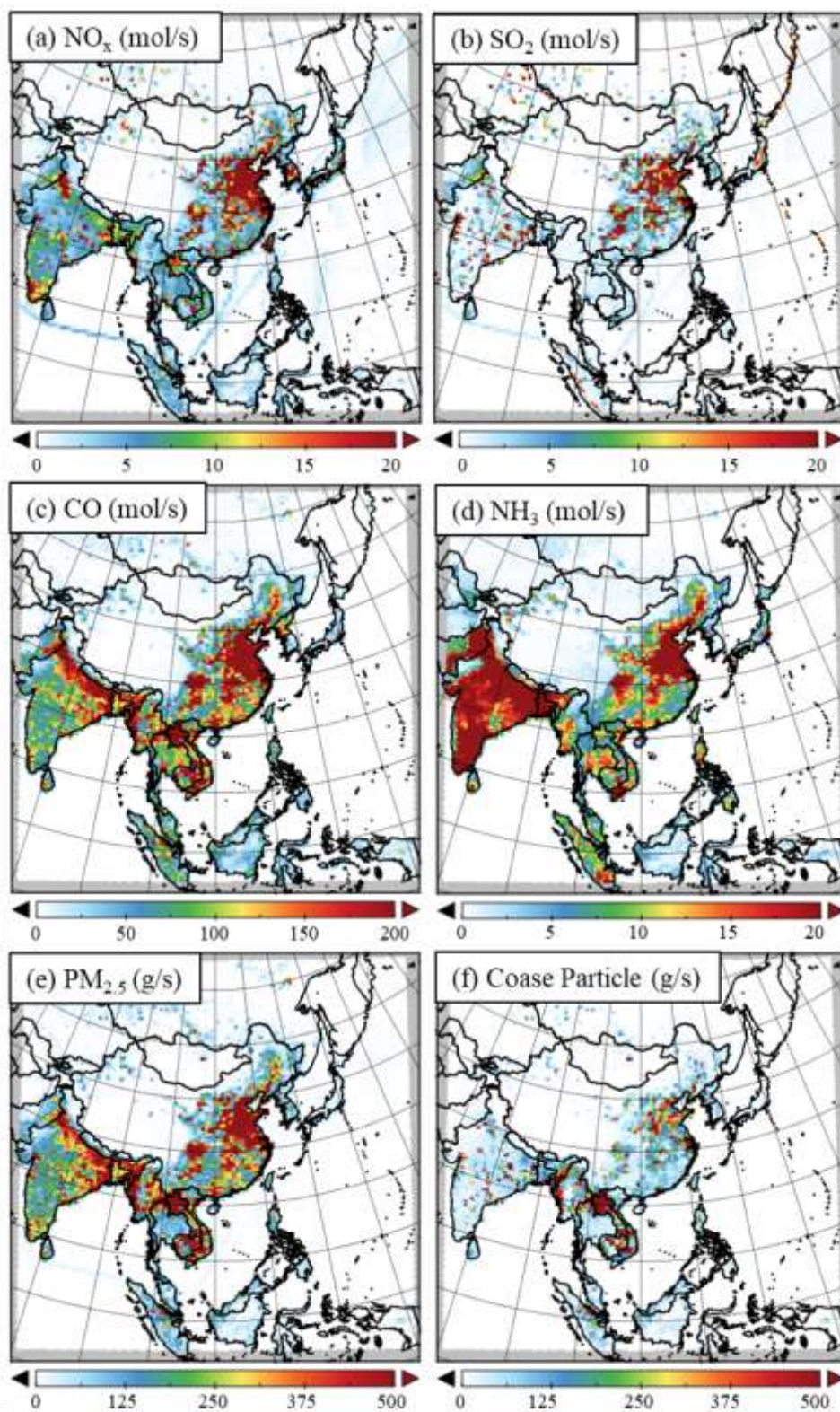
- 排出量データ

排出量データの作成は、推計年次が極力 2010 年の排出量データとなるよう配慮し、東アジア域における人為起源排出量に HTAP version 2 (Janssens-Maenhout et al., 2015) を使用した。日本域における人為起源排出源のうち、自動車起源のものは JEI-DB2011-AS (JPEC, 2012)、船舶起源のものは海洋政策研究財団 (OPRF) が作成した船舶排出インベントリ (OPRF, 2013)、自動車・船舶以外の人為起源排出源は、EAGrid2010-Japan (福井ら, 2014) を使用した。植生起源排出量は MEGAN version 2.04 (Guenther et al., 2006) により推計した。バイオマス燃焼由来の排出量には FINN (Wiedinmyer et al., 2011) version 1.5、火山起源の SO<sub>2</sub> 排出量は AeroCom によって作成されたデータ (Diehl et al., 2012) (AeroCom のみ推計年次が 2009 年) を使用した。

土壌性ダストと海塩粒子は、気象データおよび地形・土地利用データ等に基づき、CMAQ のサブモデル内で排出量を算出し、モデル内の大気汚染物質の濃度計算に使用した。土壌性ダストのサブモデルは Foroutan et al. (2017)、海塩粒子のサブモデルは Kelly et al. (2010) のモデルを基にした。

### 3.1.4 排出量の空間分布

排出量データを基に推計された計算期間における全排出量を使用した計算ケース (Base) の単位格子、単位時間あたりの平均 NO<sub>x</sub>、SO<sub>2</sub>、CO、NH<sub>3</sub>、PM<sub>2.5</sub>、coarse モード粒子排出量を示す (Fig. 3.3)。



**Fig. 3.3** Spatial distributions of yearly mean emission concentrations: (a)  $\text{NO}_x$ , (b)  $\text{SO}_2$ , (c)  $\text{CO}$ , (d)  $\text{NH}_3$ , (e)  $\text{PM}_{2.5}$ , and (f) Coarse Particle in Base case.

### 3.2 発生源寄与推計の方法

PM<sub>2.5</sub> 濃度に対する越境汚染寄与を詳細に推計するため、越境汚染寄与 (Total LRT) を Direct LRT と Indirect LRT に分類して推計した (Fig. 3.1)。PM<sub>2.5</sub> 主要構成成分である硝酸アンモニウム (NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>) を例に、日本における主な生成過程について (3.1) ~ (3.4) 式に示す。

$$E_{NO_x,Japan} + E_{NH_3,Japan} \rightarrow C_{NH_4NO_3,Domestic} \quad (3.1)$$

$$E_{NO_x,East\ Asia} + E_{NH_3,East\ Asia} \rightarrow C_{NH_4NO_3,Direct\ LRT} \quad (3.2)$$

$$E_{NO_x,East\ Asia} + E_{NH_3,Japan} \rightarrow C_{NH_4NO_3,Indirect\ LRT} \quad (3.3)$$

$$E_{NO_x,Japan} + E_{NH_3,East\ Asia} \rightarrow C_{NH_4NO_3,Indirect\ LRT} \quad (3.4)$$

$E$  と  $C$  は前駆物質排出量と濃度を表し、下付きの East Asia、Japan はその物質の発生源を示している。このように、日本で観測される NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub> の発生源寄与は、(3.1) 式に示す国内で排出された前駆物質 (NO<sub>x</sub>、NH<sub>3</sub>) による二次粒子の生成 (Domestic)、(3.2) 式に示す国外起源前駆物質 (NO<sub>x</sub>、NH<sub>3</sub>) のみから生成した二次粒子の移流 (Direct LRT) に加えて、(3.3) 及び (3.4) 式に示す国外から輸送されてきた国外起源前駆物質と国内で排出された前駆物質が国内で粒子として二次生成したもの (Indirect LRT: 間接生成)、Background (境界流入・自然起源排出) の 4 つに分類される。PM<sub>2.5</sub> 濃度に対する各寄与の算出方法を (3.5) ~ (3.9) 式に示す。

$$\text{Total LRT} = [\text{Base}] - [\text{A0}] \quad (3.5)$$

$$\text{Direct LRT} = [\text{J0}] - [\text{BG}] \quad (3.6)$$

$$\begin{aligned} \text{Indirect LRT} &= \text{Total LRT} - \text{Direct LRT} \\ &= \{[\text{Base}] - [\text{J0}]\} - \text{Domestic} \end{aligned} \quad (3.7)$$

$$\text{Domestic} = [\text{A0}] - [\text{BG}] \quad (3.8)$$

$$\text{Background} = [\text{BG}] \quad (3.9)$$

各寄与を算出するため、本研究では、ゼロアウト法を用いた。具体的には、全排出量を使用した計算ケース (Base) に加えて、各発生源 (国外人為起源排出量、国内人為起源排出量、国内・国外人為起源排出量) の排出量をゼロとした計算ケース (A0、J0、BG) の計算を実行し、両ケースで計算された濃度の差分をその発生源の寄与とした。通常、ゼロアウト法では国内人為起源排出量の寄与を [Base] - [J0] により算出するが、(3.8) 式に示す Domestic 寄与の算出方法はそれとは異なる。これは (3.7) 式に示すように Indirect LRT が [Base] - [J0] と Domestic 寄与との差分と定義されること、つまり、[Base] - [J0] には、Indirect LRT 寄与が含まれることに起因する。そのため、(3.6) および (3.8) 式に示すように Direct LRT、Domestic 寄与の推計には、国内外起因のガス状物質の供給をゼロ (100%削減) にした場合の感度解析結果を用いて、各寄与を算出する必要がある。ゼロアウト法は、対

象とする二次粒子濃度が前駆物質の排出量に対して線形的に応答しない場合、二次粒子濃度に対する発生源の寄与を正確に割り当てられないことが報告されている(茶谷ら, 2011; Kwok et al., 2013)。このため、本手法による寄与推計結果に不確実性が含まれる点を考慮する必要はあるが、算出された寄与の不確実性の検証については、今後の課題とする。

D1領域におけるNO<sub>x</sub>排出量は41.4 Mt/year(国外人為起源: 34.1 Mt/year、国内人為起源: 1.5 Mt/year)、NH<sub>3</sub>排出量は28.9 Mt/year(国外人為起源: 26.9 Mt/year、国内人為起源: 0.4 Mt/year)である。

なお、評価対象地域は、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>の国内発生源寄与について国内地域別の特性を明らかにするため、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>の前駆物質となるNO<sub>x</sub>排出量が多いと考えられる自動車NO<sub>x</sub>・PM法対策地域(首都圏、愛知・三重圏、大阪・兵庫圏)および九州北部圏の4地域とした(Fig. 3.2)。

### 3.3 CMAQ の性能評価

本節では、CMAQ の性能評価として、PM<sub>2.5</sub> 濃度の再現性の確認を行った。比較対象となる観測地点として、国外地点は北京、国内は 2010 年に日本で PM<sub>2.5</sub> 成分分析が行われた 12 地点を対象とした。

また、PM<sub>2.5</sub> の前駆物質の観測値との比較では上記成分分析が実施された全国 12 地点の近傍の常時監視測定局の観測値と比較した。以下では、地上観測データの出典について述べた後、CMAQ の性能評価結果について考察する。

#### 3.3.1 地上観測データ

国外 PM<sub>2.5</sub> 濃度の日平均値は、米国国務省ホームページ (US Department of State, 2017) で公開されている北京における PM<sub>2.5</sub> 観測データを用いた。国内における PM<sub>2.5</sub> の観測値は、2010 年度に PM<sub>2.5</sub> の成分測定が行われた全国 12 地点 (北海道札幌市、宮城県仙台市、新潟県上越市、茨城県取手市、埼玉県蓮田市、千葉県市川市、東京都板橋区、大阪府堺市、兵庫県神戸市、岡山県倉敷市、福岡県福岡市、宮崎県日向市) における PM<sub>2.5</sub> 濃度および主要 5 成分 (NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、EC、OA) の観測値 (日平均値) を用いた (環境省, 2010)。成分測定は 24 時間のフィルターサンプリングにより、春期 (2010 年 5 月 14 日～5 月 27 日)、夏期 (2010 年 7 月 26 日～8 月 11 日)、秋期 (2010 年 11 月 5 日～11 月 18 日)、冬期 (2011 年 1 月 26 日～2 月 10 日) の各季節概ね 2 週間の観測が行われている。

また、本研究で焦点をあてている PM<sub>2.5</sub> および NO<sub>3</sub><sup>-</sup> の前駆物質の一つである NO<sub>2</sub> の観測値には、上記成分測定が実施された全国 12 地点の近傍の常時監視測定局 (北海道札幌市、宮城県涌谷町、新潟県新潟市、栃木県宇都宮市、埼玉県八潮市、千葉県市原市、東京都足立区、大阪府大阪市、兵庫県尼崎市、岡山県早島町、福岡県福岡市、熊本県益城町) の観測値を用いた (National Institute for Environmental Studies of Japan, 2017)。NO<sub>2</sub> 以外の前駆物質 (HNO<sub>3</sub>、NH<sub>3</sub>) の観測値には、全国酸性雨データベースの第 5 次調査データセットとして提供されている 30 地点 (北海道札幌市 2 地点、新潟県新潟市 2 地点および長岡市、群馬県前橋市、埼玉県加須市、千葉県市川市、市原市および佐倉市、長野県長野市、静岡県静岡市、富山県射水市、石川県金沢市、福井県福井市、岐阜県山県市、愛知県名古屋市および豊橋市、滋賀県大津市、大阪府大阪市、和歌山県海南市、兵庫県神戸市、鳥取県東伯郡湯梨浜町、山口県山口市、高知県香美市、福岡県福岡市および太宰府市、熊本県宇土市、宮崎県宮崎市、鹿児島県鹿児島市) の観測データを用いた (全国環境研協議会 酸性雨広域大気汚染調査研究部会, 2012)。測定はフィルターパック法により、1 週間単位での採取を原則として実施されており、月別の観測データが提供されている。

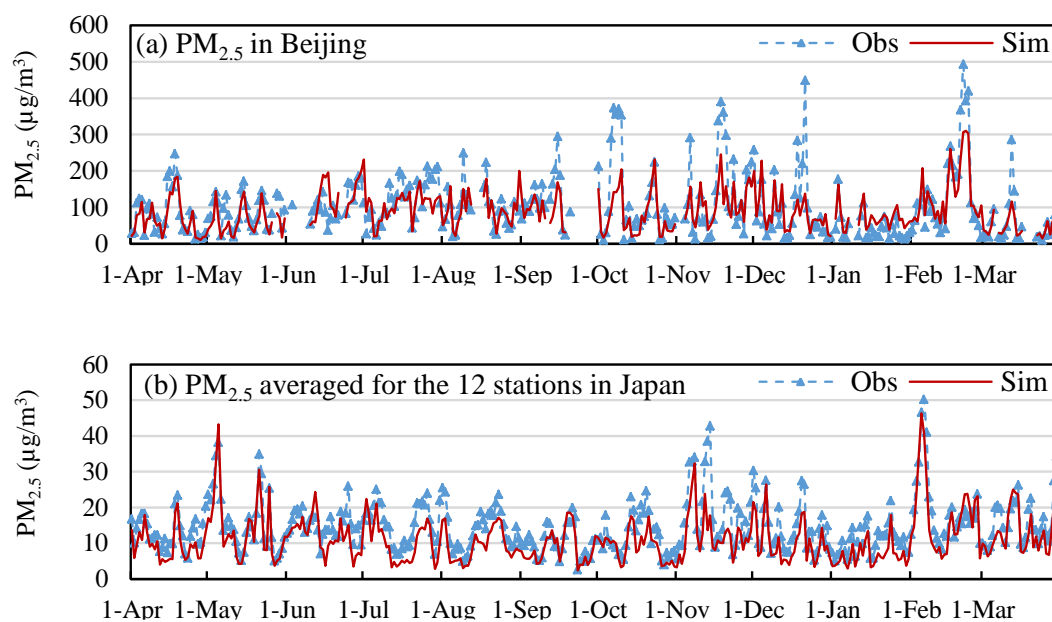
### 3.3.2 PM<sub>2.5</sub>濃度の再現性

#### (1) 国外のPM<sub>2.5</sub>質量濃度

Fig. 3.4a に北京におけるPM<sub>2.5</sub>日平均値を示す。計算値は観測値と良く一致 (IA = 0.83、 $n = 323$ ) しており、濃度ピークのタイミングも良好に再現されていた。NMB の値は-0.13 であり、年間を通じてPM<sub>2.5</sub>濃度の計算値は観測値を過小評価していた。これは10月8日前後など、高濃度ピーク時の濃度全てが、計算値では大幅に過小評価されていたためと考えられた。

#### (2) 国内のPM<sub>2.5</sub>成分濃度

Fig. 3.4b に国内12地点のPM<sub>2.5</sub>日平均値、Table 3.2 に国内PM<sub>2.5</sub>各構成成分の観測値と計算値の統計指標一覧を示す。PM<sub>2.5</sub>濃度の計算値はMBE = -6.0  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  と過小評価傾向にあるものの、PF2 = 0.70 と多くの計算値は観測値の1/2から2倍程度に収まっていた。また、IA = 0.87 で計算値は観測値の時間変動もよく捉えており、再現性は良好であった。以下ではNO<sub>3</sub><sup>-</sup>を中心に構成成分と前駆物質の計算結果を検証する。NH<sub>4</sub><sup>+</sup>については、IA = 0.90 と一年を通じて濃度の日々変動はよく再現できており、PF2 = 0.74 と多くの計算値は観測値の1/2から2倍の間にはほぼ収まっていた。NO<sub>3</sub><sup>-</sup>については、やや過大評価 (MBE = 0.5  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) する傾向にあるものの、IA = 0.88 と一年を通じて濃度の日々変動は良好に再現できていた。しかし、冬期以外の季節で過大評価傾向を示し、PF2 = 0.49 と計算値と観測値に乖離傾向が見られた。PM<sub>2.5</sub>中のイオン成分測定はフィルタによる24時間捕集後、イオン成分を抽出し、濃度測定が行われる。NO<sub>3</sub><sup>-</sup>等の半揮発性成分は気温が高い時期や場所では大部分がフィルタから揮散して捕集されないことは、大気中微小粒子状物質 (PM<sub>2.5</sub>) 成分測定マニュアル (環境省, 2012) でも指摘されており、暖候期NO<sub>3</sub><sup>-</sup>の過大評価の一因であると考えられた。SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>については、やや過小評価 (MBE = -1.2  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) する傾向にあるものの、IA = 0.89 と一年を通じて濃度の日々変動はよく再現できていた。ECは、過小評価傾向 (MBE = -0.6  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) にあるものの、IA = 0.73 と一年を通じて濃度の日々変動はよく再現されていた。OAはEC以上に強い過小評価傾向 (MBE = -2.9  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) を示し、秋期にその傾向が顕著となった。秋は稲わらや籾がら等の農作業に伴う野焼きが盛んとなる季節であるが、その野焼きによる大気汚染物質の排出量データの作成は、野焼きの発生頻度、規模、発生位置等の特定が困難であることから、排出量データの不確実性が高くなりやすい。さらに、第4章で詳細は述べるが、大気質モデルで利用している国内の野焼き排出量データが過小評価されている可能性がある (第4章4.3節両モデルを併用したPM<sub>2.5</sub>発生源寄与解析を参照)。以上から、野焼き排出量データがOAの過小評価の主要因と考えられた。



**Fig. 3.4** Time series of the observed and simulated daily mean concentrations of (a) PM<sub>2.5</sub> in Beijing and (b) PM<sub>2.5</sub> averaged for the 12 ambient air pollution monitoring stations in Japan in JFY2010. Dates in China are in CST (UTC+8), whereas others are in JST (UTC+9). The line shows the simulated values at the grid cell corresponding to each observation site, whereas triangles show the observed values.

**Table 3.2** Statistical comparisons between observed and simulated (Base) daily mean concentrations of PM<sub>2.5</sub> and its major components at the 12 observation sites for PM<sub>2.5</sub> components for four seasons in JFY2010.

	PM <sub>2.5</sub>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	EC	OA
Sample number	674	671	601	674	674	674
Mean obs. (μg/m <sup>3</sup> )	19.9 (15.0)	2.3 (2.2)	2.0 (3.0)	5.1 (4.7)	1.3 (0.9)	5.0 (3.3)
Mean sim. (μg/m <sup>3</sup> )	13.9 (12.8)	1.8 (1.9)	2.5 (3.9)	3.8 (4.2)	0.7 (0.6)	2.0 (2.2)
<i>R</i>	0.85	0.84	0.81	0.82	0.72	0.59
MBE (μg/m <sup>3</sup> )	-6.0	-0.4	0.5	-1.2	-0.6	-2.9
RMSE (μg/m <sup>3</sup> )	9.9	1.3	2.3	2.9	0.9	4.0
NMB	-0.30	-0.17	0.25	-0.24	-0.46	-0.58
NRMSE	0.50	0.57	1.15	0.57	0.69	0.80
PF2	0.70	0.74	0.49	0.72	0.52	0.22
IA	0.87	0.90	0.88	0.89	0.73	0.62

Note: parenthetical values show standard deviations.



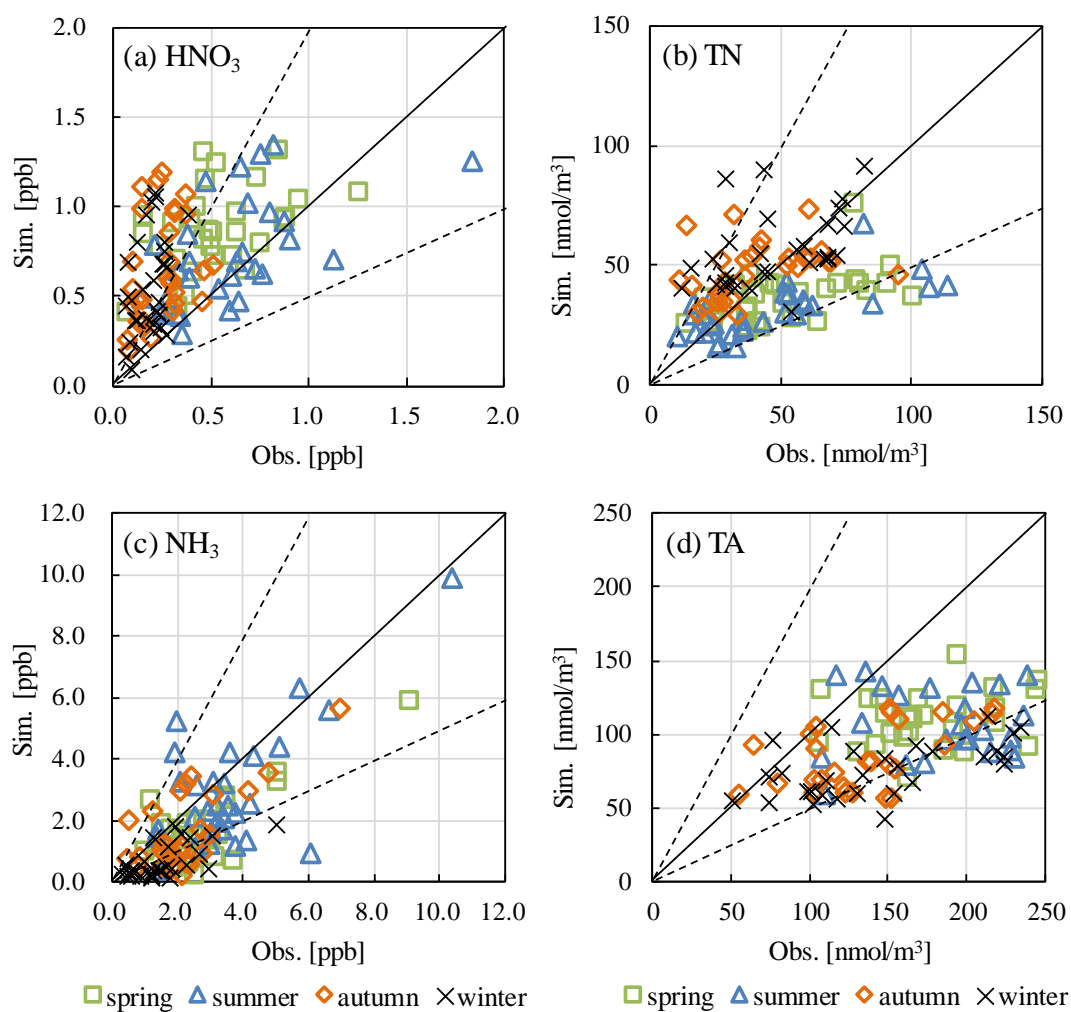
### (3) PM<sub>2.5</sub> の前駆物質濃度

次に、常時監視測定局で通年測定された PM<sub>2.5</sub> および NO<sub>2</sub> の観測値 (日平均値) と計算値の統計指標について結果を考察する。PM<sub>2.5</sub> については、一年を通じて過小評価傾向 (MBE = -3.5 μg/m<sup>3</sup>) であるものの、相関係数  $R = 0.73$ 、IA = 0.81 ( $n = 3,526$ ) と通年の季節および空間変動を良好に再現していた。また、NO<sub>2</sub> も一年を通じて過小評価 (MBE = -5.6 ppbv) であるものの、相関係数  $R = 0.79$ 、IA = 0.79 ( $n = 4,306$ ) と通年の季節および空間変動を良好に再現していた。PM<sub>2.5</sub> および NO<sub>2</sub> の IA の値は国内 12 地点の 2010 年度の濃度変動を反映している。そのため、地点よりも時間による変動幅が大きい PM<sub>2.5</sub> は季節変動の再現性の良否が IA の値の良否に左右されやすく、時間よりも空間による変動幅が大きい NO<sub>2</sub> は地点間の濃度差の再現性の良否が IA の値の良否に左右されやすいことに留意する必要がある。実際、CMAQ が NO<sub>2</sub> を過小評価することについては、Shimadera et al. (2016) の先行研究において、東京、大阪といった大都市圏、大規模工業地帯といった NO<sub>x</sub> 排出量が多い地域での NO<sub>2</sub> 濃度は比較的良好に再現されるものの、小規模都市および NO<sub>x</sub> 排出量が少ない地域にある測定局の NO<sub>2</sub> 濃度が過小評価となることが報告されている。よって、本研究での NO<sub>2</sub> の過小評価も同じ要因と考えられた。

全国酸性雨データベースの第 5 次調査データセットとして提供されている 30 地点の前駆物質 (HNO<sub>3</sub>、NH<sub>3</sub>) のガス濃度、総硝酸 (TN, Total Nitrate) および総アンモニウム (TA, Total Ammonium) 濃度の季節平均値 (春季: 4~6 月、夏季: 7~9 月、秋季: 10~12 月、冬季: 1 月~3 月) と計算値の比較結果を Fig. 3.5 に示す。HNO<sub>3</sub> は PF2 = 0.50 ( $n = 120$ ) で秋季、冬季において過大評価傾向を示した (Fig. 3.5a)。一方、TN は PF2 = 0.84 ( $n = 120$ ) と多くの計算値が観測値の 1/2 から 2 倍の間に収まっていた (Fig. 3.5b)。HNO<sub>3</sub> は、国外から海域を経由して日本に輸送される過程で、海塩・黄砂等の粗大粒子に NO<sub>3</sub><sup>-</sup>として取り込まれることが報告されている (Kajino et al., 2013; 鶴野ら, 2016)。CMAQ 内でも同反応は考慮されているが、海域における HNO<sub>3</sub> 除去量の過小評価もしくは、HNO<sub>3</sub> の生成量が過大評価されていることが秋季、冬季における HNO<sub>3</sub> 濃度の過大評価の一因と考えられた。また、TN の再現性が良好なことから、硝酸ガスと硝酸粒子のモデル内での分配に再現不良を抱えているため、HNO<sub>3</sub> 濃度を過大評価している可能性がある。NH<sub>3</sub> は PF2 = 0.58 ( $n = 120$ ) で、冬季に過小評価傾向を示した (Fig. 3.5c)。一方、TA は PF2 = 0.63 ( $n = 120$ ) とより多くの計算値が観測値の 1/2 から 2 倍の間に収まっていた (Fig. 3.5d)。NH<sub>3</sub> の排出は施肥や生物活動によるものが主であり、排出係数の不確実性が大きい (Kannari et al., 2007; 福井ら, 2014)。そのため、排出量を正確に推計することが困難であることが NH<sub>3</sub> 濃度の過小評価の一因と考えられた。ただし、再現性評価に利用した HNO<sub>3</sub>、NH<sub>3</sub> ガスの観測値はフィルターパック法で測定されていることを考慮する必要がある。フィルターパック法は、測定器材の準備等が比較的容易であるが、最前段の粒子状物質を捕集するフィルタ上での化学反応等に起因してガス成分濃度や粒子状成分濃度のそれぞれの測定値に誤差 (アーティファクト) を含む方法である (環境省, 2012)。また、フィルターパック法はガス成分と粒子状成分の総量 (TN、TA) につ

いては、各成分の個別濃度よりも正確な測定値を求めることができる方法とされている(環境省, 2012)。以上から、季節によりHNO<sub>3</sub>は過大評価、NH<sub>3</sub>は過小評価するという課題は残るが、TN、TAの季節変動が良好に再現されていたことを考慮すると、前駆物質(HNO<sub>3</sub>、NH<sub>3</sub>)の通年の季節変動はCMAQでも再現されていると考えられた。

以上の結果から、Baseケースにおける大気質モデルのPM<sub>2.5</sub>、PM<sub>2.5</sub>構成成分および前駆物質の再現性を評価したところ、OAの再現性にやや課題が残されたものの、概ね良好と判断された。



**Fig. 3.5** Scatter plots for observed and simulated seasonal mean concentrations: (a) HNO<sub>3</sub>, (b) Total Nitrate (TN), (c) NH<sub>3</sub>, and (d) Total Ammonium (TA) at the EANET 30 observation sites in Japan for each season in JFY2010. Reference lines for 1:1, 1:2, and 2:1 are provided.

### 3.4 発生源寄与推計

本節では、自動車NO<sub>x</sub>・PM法対策地域(首都圏、愛知・三重圏、大阪・兵庫圏)および九州北部圏の4地域について、PM<sub>2.5</sub>および本研究で焦点をあてているNO<sub>3</sub><sup>-</sup>について、前駆物質までを含め、国内・国外発生源から発生源寄与を推計する。

#### 3.4.1 PM<sub>2.5</sub>濃度の発生源寄与

九州北部圏、大阪・兵庫圏、愛知・三重圏および首都圏 (Fig. 3.2 参照) の4地域別のPM<sub>2.5</sub>年平均値に対する国内・国外発生源からの発生源寄与推計結果を Table 3.3 に示す。各地域のPM<sub>2.5</sub>年平均値は14.0、11.9、10.6、10.0 μg/m<sup>3</sup>であり、西から東にかけて減少する傾向を示した。Total LRT 寄与は、九州北部圏では年平均PM<sub>2.5</sub>濃度の54%を占めたが、首都圏では32%に留まっており、Domestic 寄与(37%)がTotal LRT 寄与を上回った。つまり、首都圏における大陸からの越境汚染影響は、九州北部圏等の西側地域と比べて限定的であり、Domestic 寄与の影響をより強く受ける地域であることを示している。本結果は同じく2010年度を対象とした Shimadera et al. (2016) の先行研究結果とも整合しており、首都圏が大都市、大規模工業地帯といった国内排出源の影響を強く受けていることに起因していると考えられた。一方、Chen et al. (2014) の先行研究結果では、2007年の台湾について、CMAQによるPM<sub>2.5</sub>年平均値は29.8 μg/m<sup>3</sup>、Domestic、Direct LRT、Indirect LRT 寄与はそれぞれ17.9 μg/m<sup>3</sup> (Base caseの濃度の60%)、8.1 μg/m<sup>3</sup> (同27%)、2.9 μg/m<sup>3</sup> (同9%)と報告されている。Chen et al. (2014) の結果は計算年次、排出量データに加え、計算領域が本研究の計算領域よりも狭く、かつ計算領域外の境界濃度をCMAQのデフォルト設定値を用いていることから、Background 寄与を本研究より過小に見積もっている可能性がある。そのため、本研究の結果と単純に比較はできない。しかし、Total LRT 寄与に占めるDirect LRT 寄与割合が優位である点については、台湾 (Direct LRT 寄与: 74%、Indirect LRT 寄与: 26%) と、台湾同様に大陸からの越境移流影響を強く受ける九州北部圏 (Direct LRT 寄与: 86%、Indirect LRT 寄与: 14%) 等の西側地域が持つ特徴と傾向は一致していた。九州北部圏のDirect LRT 寄与割合が台湾よりも高い要因として、中国のPM<sub>2.5</sub>が高濃度となる地域が中国東北地方、北京、上海一帯に集中していること、さらに、これら地域の高濃度PM<sub>2.5</sub>を含む気塊が西よりの風によって、日本へ移送されやすい地理条件であることが影響していると考えられた。

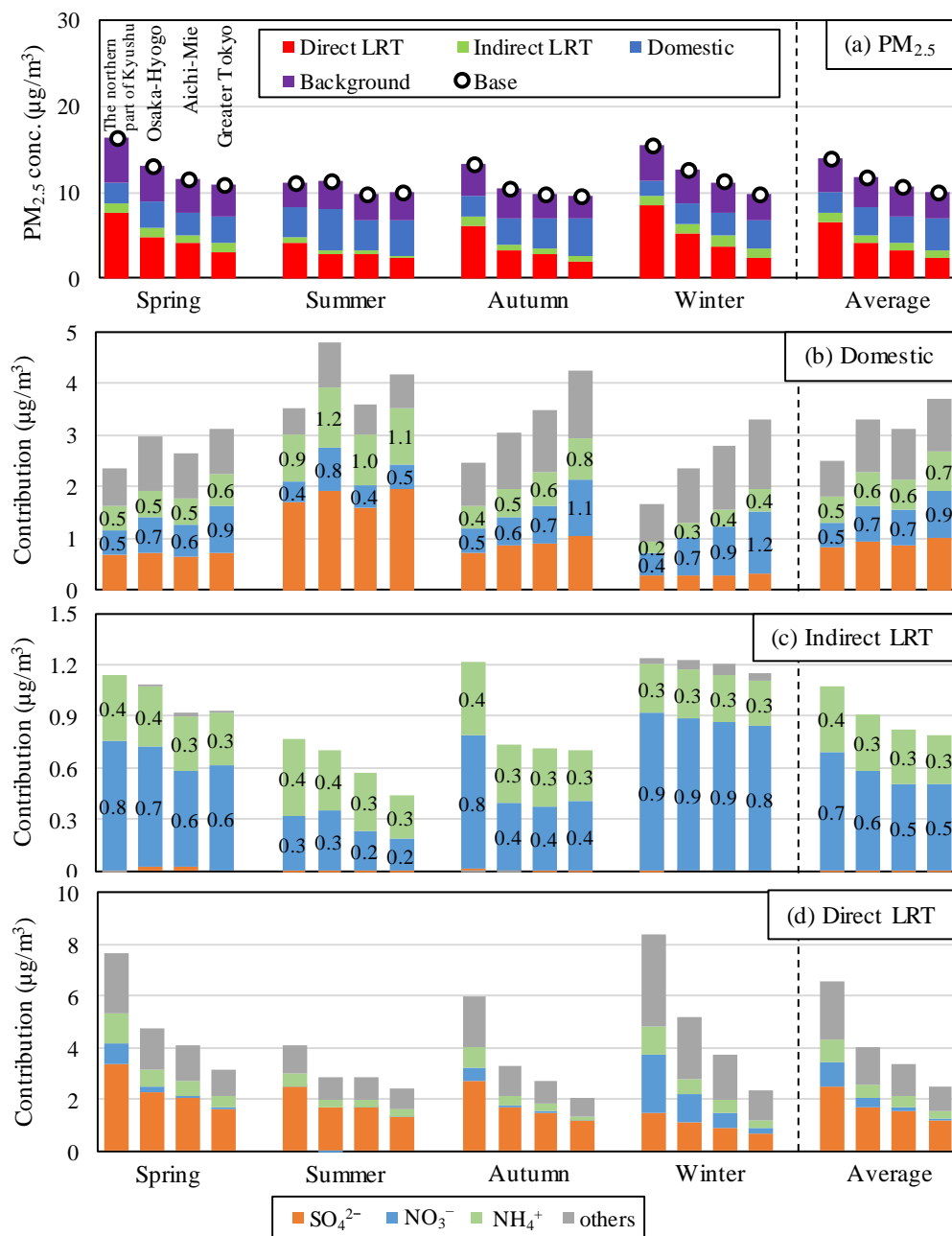
Fig. 3.6 に4地域の季節別PM<sub>2.5</sub>平均濃度に対する発生源寄与推計結果およびDomestic、Indirect LRT、Direct LRT 寄与に占める二次粒子のイオン成分(SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>)の内訳を示す。PM<sub>2.5</sub>平均濃度は、季節別でも西から東にかけて減少する傾向は変わらず、春季10.8~16.3 μg/m<sup>3</sup>、夏季9.9~11.4 μg/m<sup>3</sup>、秋季9.5~13.2 μg/m<sup>3</sup>、冬季9.7~15.5 μg/m<sup>3</sup>の範囲にあ

り、総じて春季に平均濃度が最も高くなった (Fig. 3.6a)。PM<sub>2.5</sub> 平均濃度に占める各寄与割合は、夏季に他の季節と異なる傾向を示した。他の季節と比較して、夏季の Domestic 寄与の割合は 32~42% と高くなる一方、Direct LRT 寄与は 24~37% と低い割合を示した。夏季は他の季節と異なり、南東よりの風が支配的で大陸の人為起源排出量起因の大気汚染物質の越境輸送の寄与が小さくなる。本結果は茶谷ら (2008) が夏季に国外人為起源排出量寄与が減少することを示した内容とも整合しており、夏季特有の気象現象が影響していると考えられた。冬季は、PM<sub>2.5</sub> 濃度に占める Direct LRT 寄与が 24~54% と最も大きくなった。特に、西日本 (九州北部圏、大阪・兵庫圏) でより寄与が大きくなる傾向を示した (Fig. 3.6d)。これは、冬季に発生する北西よりの風の影響と考えられた。一方、Fig. 3.6c に示すように Indirect LRT 寄与は構成成分が NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup> で占有されていた。Indirect LRT 寄与は、Direct LRT 寄与と同様に西から東にかけて寄与が減少する傾向はあるものの、地域間の寄与差が少なく他の寄与とは全く異なる傾向を示した。具体的には、Indirect LRT に対する NH<sub>4</sub><sup>+</sup> 寄与は 0.3~0.4 µg/m<sup>3</sup> と一定であったが、NO<sub>3</sub><sup>-</sup> 寄与は夏季 0.2~0.3 µg/m<sup>3</sup>、冬季 0.8~0.9 µg/m<sup>3</sup> と季節による寄与差が大きくなった。

**Table 3.3** Comparison of annual average concentrations of PM<sub>2.5</sub> in the four areas in the four cases: Base, A0, J0, and BG and comparison of source contribution estimates for Total LRT, Direct LRT, Indirect LRT and Domestic sources in JFY2010.

	Annual average concentration of PM <sub>2.5</sub> (ratio of the contributions in Base case)			
	The northern part of Kyushu	Osaka- Hyogo	Aichi- Mie	Greater Tokyo
Base	14.0	11.9	10.6	10.0
A0	6.5	7.0	6.5	6.8
J0	10.5	7.7	6.7	5.6
BG	4.0	3.7	3.4	3.1
Total LRT:	7.5	4.9	4.1	3.2
(Base- A0)	(54%)	(41%)	(39%)	(32%)
Direct LRT:	6.5	4.0	3.3	2.5
(J0- BG)	(47%)	(34%)	(32%)	(25%)
Indirect LRT:	1.0	0.9	0.8	0.7
Total LRT- Direct LRT	(7%)	(7%)	(7%)	(7%)
Domestic:	2.5	3.3	3.1	3.7
(A0- BG)	(18%)	(28%)	(29%)	(37%)

Note: LRT stands for Long-Range Transport. Units of all values are µg/m<sup>3</sup>.



**Fig. 3.6** (a) Simulated source contributions of PM<sub>2.5</sub> across the northern part of Kyushu, Osaka-Hyogo, Aichi-Mie, and Greater Tokyo area in Japan. Each bar in each season indicates the source contribution from Direct LRT, Indirect LRT, Domestic, and Background. The rate of PM<sub>2.5</sub> components (SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, NO<sub>3</sub><sup>-</sup> and NH<sub>4</sub><sup>+</sup>) in each source contribution from (b) Domestic, (c) Indirect LRT, and (d) Direct LRT across the northern part of Kyushu, Osaka-Hyogo, Aichi-Mie, and Greater Tokyo area in Japan.

### 3.4.2 PM<sub>2.5</sub>中の硝酸アンモニウムの発生源寄与

NO<sub>3</sub><sup>-</sup>およびNH<sub>4</sub><sup>+</sup>について、4地域別の季節別寄与割合を算出した結果をFig. 3.7に示す。首都圏のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>年平均濃度は1.5 μg/m<sup>3</sup>で、それに対するBG、Domestic、LRT寄与はそれぞれ1、60、39% (Direct LRT: 5%、Indirect LRT: 34%)であり、DomesticおよびIndirect LRTによる寄与の割合が他の地域よりも大きくなった。そのため、首都圏のPM<sub>2.5</sub>大気汚染は他の地域よりも国内で生成したNO<sub>3</sub><sup>-</sup>の影響をより強く受けていると考えられた。また、4地域共通して、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>のIndirect LRT寄与は四季を通じて一定量存在するが、夏季のDirect LRT寄与は非常に小さく、冬季はDirect LRT寄与が大きくなった (Fig. 3.7b)。NO<sub>3</sub><sup>-</sup>粒子は主として、半揮発性のNH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>として存在し、夏季の高温時は輸送過程で揮発して気体のHNO<sub>3</sub>とNH<sub>3</sub>に戻りやすく、冬季の低温時は粒子状のまま輸送されやすい性質を有している。この性質が、冬季のDirect LRT寄与の上昇に影響していると考えられた。NH<sub>4</sub><sup>+</sup>年平均濃度は1.4~1.8 μg/m<sup>3</sup>であり、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>と同様、東側の地域ほどDomestic寄与およびIndirect LRT寄与割合が大きくなる傾向を示した (Fig. 3.7a)。

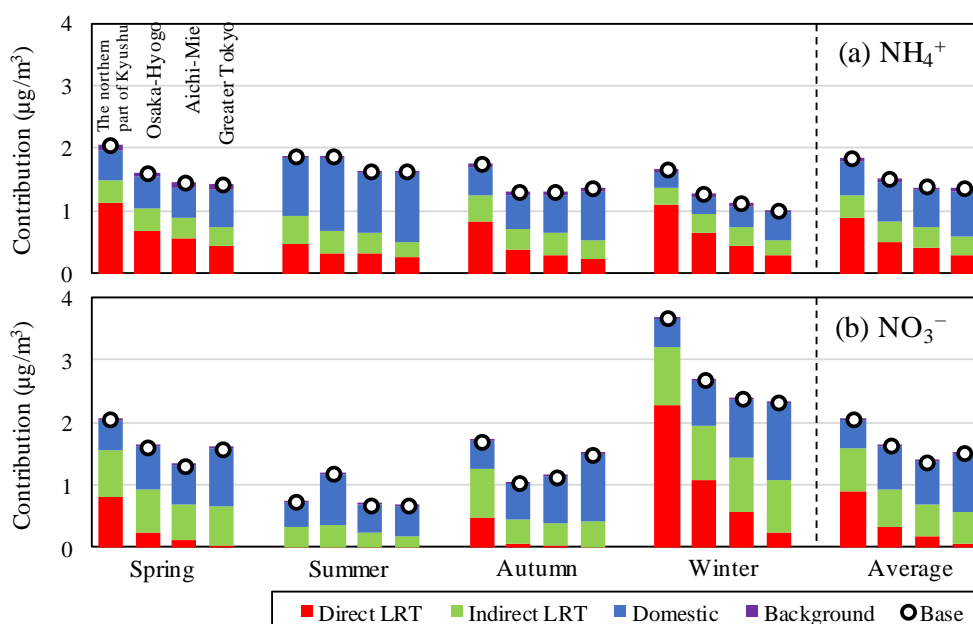


Fig. 3.7 Simulated source contributions of (a) NH<sub>4</sub><sup>+</sup> and (b) NO<sub>3</sub><sup>-</sup> across the northern part of Kyushu, Osaka-Hyogo, Aichi-Mie, and Greater Tokyo area in Japan. Each bar in each season indicates the source contribution from Direct LRT, Indirect LRT, Domestic, and Background.

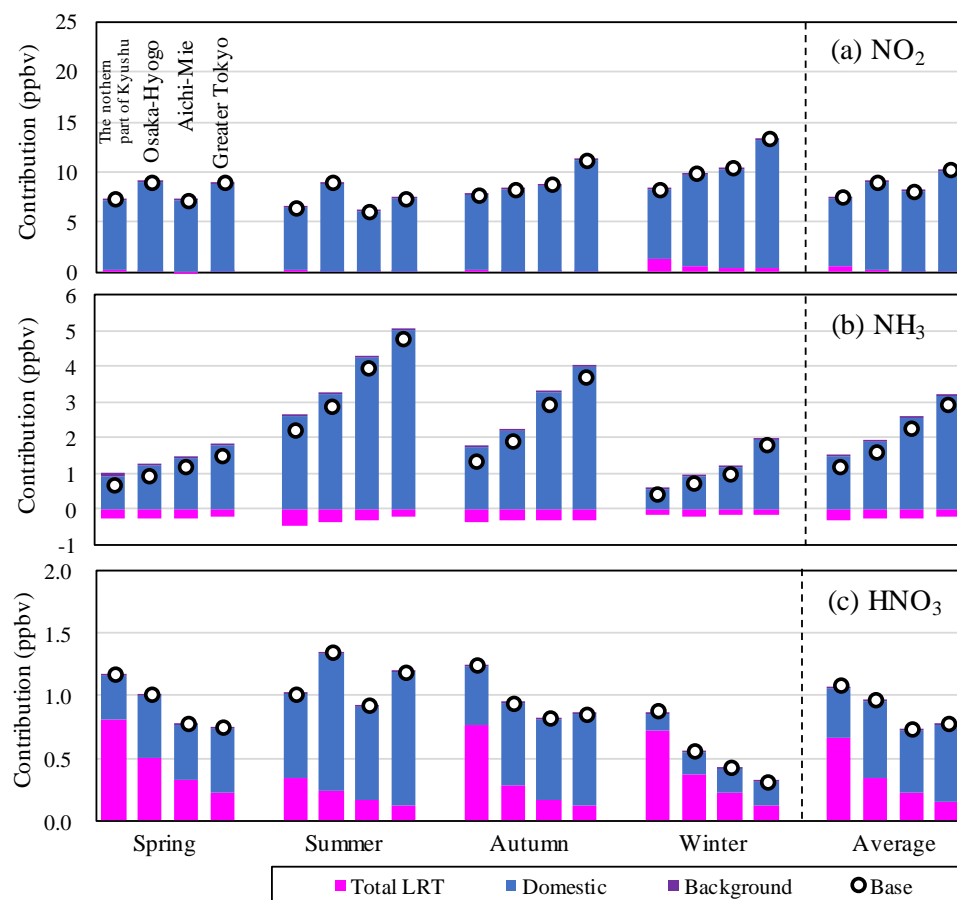


### 3.4.3 硝酸アンモニウムの前駆物質の発生源寄与

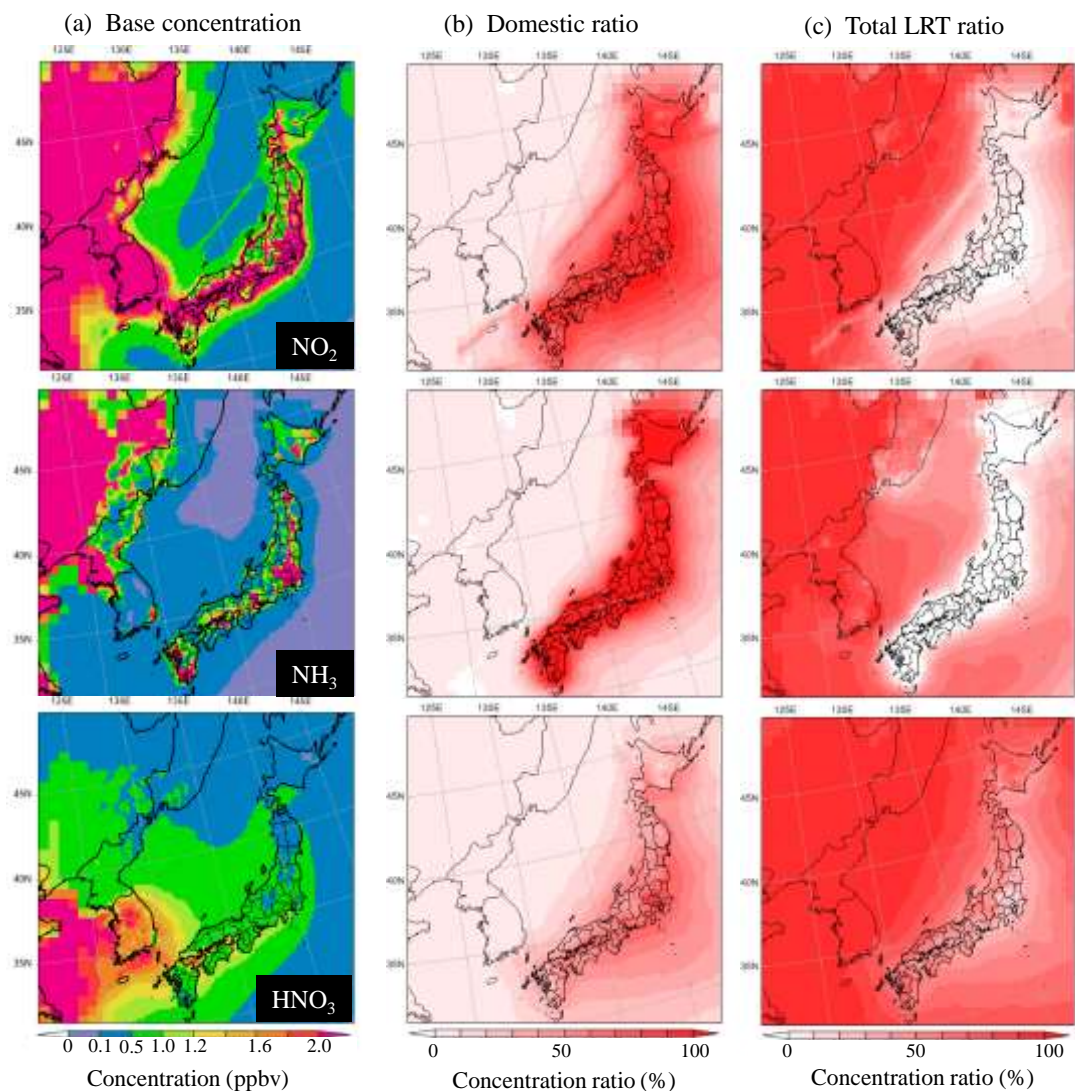
(3.3) および (3.4) 式に示したように、Indirect LRT における NH<sub>4</sub><sup>+</sup> および NO<sub>3</sub><sup>-</sup> の寄与は、国外で排出された NO<sub>x</sub> もしくは NH<sub>3</sub> と、国内で排出された NH<sub>3</sub> もしくは NO<sub>x</sub> が国内で粒子化した総量から算出される。そこで、Indirect LRT 寄与における NO<sub>3</sub><sup>-</sup> 寄与の季節変動要因を解析するため、NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub> の前駆物質 (NO<sub>2</sub>、NH<sub>3</sub>、HNO<sub>3</sub>) の寄与を推計した。発生源は、国外の人為起源排出 (Total LRT)、国内の人為起源排出 (Domestic) および境界流入・自然起源排出を含めたバックグラウンド (Background) を対象とした。Fig. 3.8 に NO<sub>2</sub>、NH<sub>3</sub> および HNO<sub>3</sub> の 4 地域別・季節別の発生源寄与割合を示す。NO<sub>2</sub> は九州北部圏で冬季に Total LRT 寄与が 1.4 ppbv であったほかは、他の地域、季節は全て Domestic 寄与で占有されていた (Fig. 3.8a)。NH<sub>3</sub> も NO<sub>2</sub> と同じく Domestic 寄与で占められたが、四季を通じて、対象地域が西から東へ移るに伴って寄与が増加した (Fig. 3.8b)。さらに、NH<sub>3</sub> の Total LRT 寄与が負の値を示したことから、ほぼ全量が国内発生源から供給されていると考えられた。一方、Fig. 3.8c に示すように、HNO<sub>3</sub> は季節により Domestic、Total LRT 各寄与の配分が大きく変化した。Domestic 寄与は夏季が最も高く、66~89% を占め、冬季は 15~58% に留まった。Total LRT 寄与は、季節に関係なく対象地域が東から西にかけて増加した。特に大陸に最も近い九州北部圏では、通年でも Total LRT 寄与が 0.7 ppbv と全寄与の 66% を占め、国外人為起源から排出された HNO<sub>3</sub> の影響を強く受けていた。Itahashi et al. (2017) は、2015 年 1 月の福岡における PM<sub>2.5</sub> 高濃度事例の解析を行い、大陸で発生した NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub> 粒子が東シナ海を輸送される過程で HNO<sub>3</sub> と NH<sub>3</sub> に分離し、HNO<sub>3</sub> の一部は海塩に取り込まれるものの、残存する国外起源の HNO<sub>3</sub> と、国内起源の NH<sub>3</sub> によって、NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub> が生成する可能性があることを報告している。本研究でも、西よりの風の影響により、国外起因の HNO<sub>3</sub> が日本へ移流、国内で排出された NH<sub>3</sub> と反応し、NO<sub>3</sub><sup>-</sup> の生成に寄与していると考えられた。また、国外起因の HNO<sub>3</sub> の寄与は九州北部圏でもっとも高くなることが明らかとなった。

NO<sub>2</sub>、NH<sub>3</sub> および HNO<sub>3</sub> の年平均濃度および発生源寄与率の空間分布を Fig. 3.9 に示す。ここで、発生源寄与率とは、Base 濃度に対する各発生源 (Domestic、Total LRT) の寄与割合 (= [各発生源寄与] / [Base 濃度]) を表している。Fig. 3.9b に示す Domestic 寄与率の空間分布から、NO<sub>2</sub> 濃度は九州の一部地域を除いて、NH<sub>3</sub> 濃度は本州全域が Domestic 寄与由来で占められており、各物質の濃度のほぼ全量が国内排出量由来であることが明らかとなった。一方、Fig. 3.9a に示すように、HNO<sub>3</sub> 濃度は東シナ海周辺で 2.0 ppbv 以上、朝鮮半島、九州北部周辺は 1.6~2.0 ppbv 前後と他地域と比較して高濃度の分布が見られた。また、NH<sub>3</sub> 濃度は大陸では概ね 2.0 ppbv 以上だが、東シナ海上では 0.5 ppbv 以下となっていた。よって、東シナ海上で大陸由来の NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub> 粒子が HNO<sub>3</sub> と NH<sub>3</sub> に分離し、NH<sub>3</sub> は硫酸アンモニウム生成に消費され、HNO<sub>3</sub> 濃度が上昇する現象 (Itahashi et al., 2017) が発生していると考えられた。また、HNO<sub>3</sub> 濃度の Domestic 寄与率は地域が東になるほど上昇する傾向が見られた。反対に Total LRT 寄与は地域が西になるほど高く、九州地方では 80% 以上の高い寄与率を示

した (Fig. 3.9c)。以上から、前駆物質 (NO<sub>2</sub>、NH<sub>3</sub>、HNO<sub>3</sub>) の空間分布からも、西よりの風の影響により大陸で発生した HNO<sub>3</sub> が日本へ移流、国内で排出された NH<sub>3</sub> と反応し、NO<sub>3</sub><sup>-</sup> の生成に寄与していることが確認された。Chen et al. (2014) は、Indirect LRT に占める NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup> の割合が高く、台湾国内の PM<sub>2.5</sub> 濃度低減策として、前駆物質 (NO<sub>x</sub>、NH<sub>3</sub>) の排出量削減が有効であることを報告している。しかし、前駆物質の発生源寄与割合までは推計していない。日本と同様、国外から HNO<sub>3</sub> が移流してくる国については、それが自国内で排出された NH<sub>3</sub> と反応し、Indirect LRT として PM<sub>2.5</sub> 濃度上昇に寄与している可能性がある。その場合、自国内の NH<sub>3</sub> 規制によって、PM<sub>2.5</sub> 濃度上昇を抑制できる可能性がある。



**Fig. 3.8** Simulated source contributions of (a) NO<sub>2</sub>, (b) NH<sub>3</sub>, and (c) HNO<sub>3</sub> across the northern part of Kyushu, Osaka-Hyogo, Aichi-Mie, and Greater Tokyo area in Japan. Each bar in each season indicates the source contribution from Total LRT, Domestic, and Background.



**Fig. 3.9** Simulated spatial distributions of source contributions of (a) yearly mean concentrations in Base case, (b) Domestic ratio, and (c) Total LRT ratio for nitrate precursors compounds:  $\text{NO}_2$ ,  $\text{NH}_3$ , and  $\text{HNO}_3$ .

### 3.5 まとめ

本章では、2010 年度日本を対象に通年シミュレーションを実施し、PM<sub>2.5</sub> 質量濃度および PM<sub>2.5</sub> 中の NO<sub>3</sub><sup>-</sup> 濃度に対する日本国内・国外発生源の寄与解析を前駆物質 (NO<sub>2</sub>、NH<sub>3</sub>、HNO<sub>3</sub>) も対象に含めて実施した。CMAQ による PM<sub>2.5</sub> 計算値は、日本国内外で概ね良好な再現性を示した。北京では、観測値の年平均値 102.2 μg/m<sup>3</sup> に対して、計算値の年平均値は 89.4 μg/m<sup>3</sup> であり、一部の期間における高濃度ピークを過小評価していたものの、通年では PM<sub>2.5</sub> 濃度の季節変動を良好に再現した。国内において PM<sub>2.5</sub> 濃度および、主要構成成分および前駆物質 (NO<sub>2</sub>、NH<sub>3</sub>、HNO<sub>3</sub>) の計算精度の評価を行った。PM<sub>2.5</sub> 濃度の計算値は観測値の 1/2 から 2 倍程度に収まっており、季節変動も良好に再現していた。PM<sub>2.5</sub> 構成成分別では OA の再現性にやや課題が残されたものの、他の PM<sub>2.5</sub> 構成成分の再現性は良好であり、PM<sub>2.5</sub> 全体として季節変動を良好に再現した。NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub> の前駆物質の再現性についても、季節により HNO<sub>3</sub> は過大評価、NH<sub>3</sub> は過小評価する傾向はあるが、通年の季節変動は CMAQ で再現されていた。

また、ゼロアウト法を用いて、日本国外の人為起源排出、日本国内の人為起源排出および境界流入・自然起源排出を含めたバックグラウンドの寄与を推計した。特に、NO<sub>3</sub><sup>-</sup> の日本国外の人為起源排出の寄与については Direct LRT と Indirect LRT に分類し推計し、九州北部圏、大阪・兵庫圏、愛知・三重圏および首都圏における寄与を比較した。日本の PM<sub>2.5</sub> 濃度に対する大陸からの越境汚染の影響 (Total LRT) は、濃度の約 40~50 % を占めており、そのうち約 30~40 % が Direct LRT、約 10 % が Indirect LRT の影響であることが分かった。Direct LRT は主に SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、Indirect LRT は NO<sub>3</sub><sup>-</sup> による寄与が大きい。また、Direct LRT の寄与は日本の東から西にかけて大きくなったが、Indirect LRT 寄与は首都圏でもその寄与割合は大きく、Domestic 寄与に似た分布を示した。前駆物質に対する発生源寄与推計結果から、Indirect LRT は大陸から輸送されてくる HNO<sub>3</sub> と国内排出起源の NH<sub>3</sub> との粒子化によるものであることが分かった。NO<sub>3</sub><sup>-</sup> の Direct LRT 寄与の越境汚染は国内の排出規制では抑制することはできないが、Indirect LRT 寄与の越境汚染は、国内の NH<sub>3</sub> 規制によって、抑制できる可能性がある。ただし、本推計に用いた NH<sub>3</sub> 排出量は不確実性が大きく、NH<sub>3</sub> 規制の有効性については現在のモデル推計の限界を踏まえた上で判断されるべきである。また、ゼロアウト法による寄与推計結果に不確実性が含まれる点も考慮しなければならない。

本章では、日本における大気中 PM<sub>2.5</sub> と NO<sub>3</sub><sup>-</sup> および、NO<sub>3</sub><sup>-</sup> の前駆物質までを含め、日本国内・国外発生源からの寄与を大気質モデルにより定量的に評価することが出来た。今後、大気汚染物質に対し、さらに有用な発生源寄与解析を行うには、高解像度かつ長期間を対象としたシミュレーションを実施することが必要と考えられる。また、発生源寄与推計手法として、本研究ではゼロアウト法を用いたが、トレーサー法による推計結果との比較を行い、発生源寄与推計手法による違いを検討することも重要であると考えられる。

## 第4章 東海・近畿地域における PM<sub>2.5</sub> 発生源寄与推計

本章では、観測データを基にして PM<sub>2.5</sub> の発生源寄与解析を行うレセプターモデル、各種排出イベントリ、気象データを入力データとして大気中の PM<sub>2.5</sub> 濃度を推計、発生源寄与解析をおこなう化学輸送モデルを組み合わせ、PM<sub>2.5</sub> の発生源寄与解析結果の信頼性向上を試みた。レセプターモデルによる PM<sub>2.5</sub> の発生源寄与解析をおこなうには、PM<sub>2.5</sub> 質量濃度だけでなく、PM<sub>2.5</sub> の成分観測データが必要となる。そこで、地方自治体による PM<sub>2.5</sub> の成分測定 (環境省, 2018e) が全国的に開始された 2013 年度を解析対象年度に、東海・近畿地域の 11 地点 (Fig. 4.1b、Table 4.1) を解析対象とした。また、対象地域の発生源に関する情報は存在しないため、レセプターモデルには PMF を用いた。

本章では、まず、PMF モデルによる PM<sub>2.5</sub> の発生源寄与解析をおこなった。次に、化学輸送モデルである CMAQ の計算条件の設定、性能評価をおこない、観測値を妥当に再現していることを確認した。さらに、PMF モデルが示唆した PM<sub>2.5</sub> 発生源に対応した発生源寄与解析を CMAQ とゼロアウト法により実施した。最後に両者の結果を比較し、PM<sub>2.5</sub> の発生源寄与解析結果の信頼性向上について述べる。

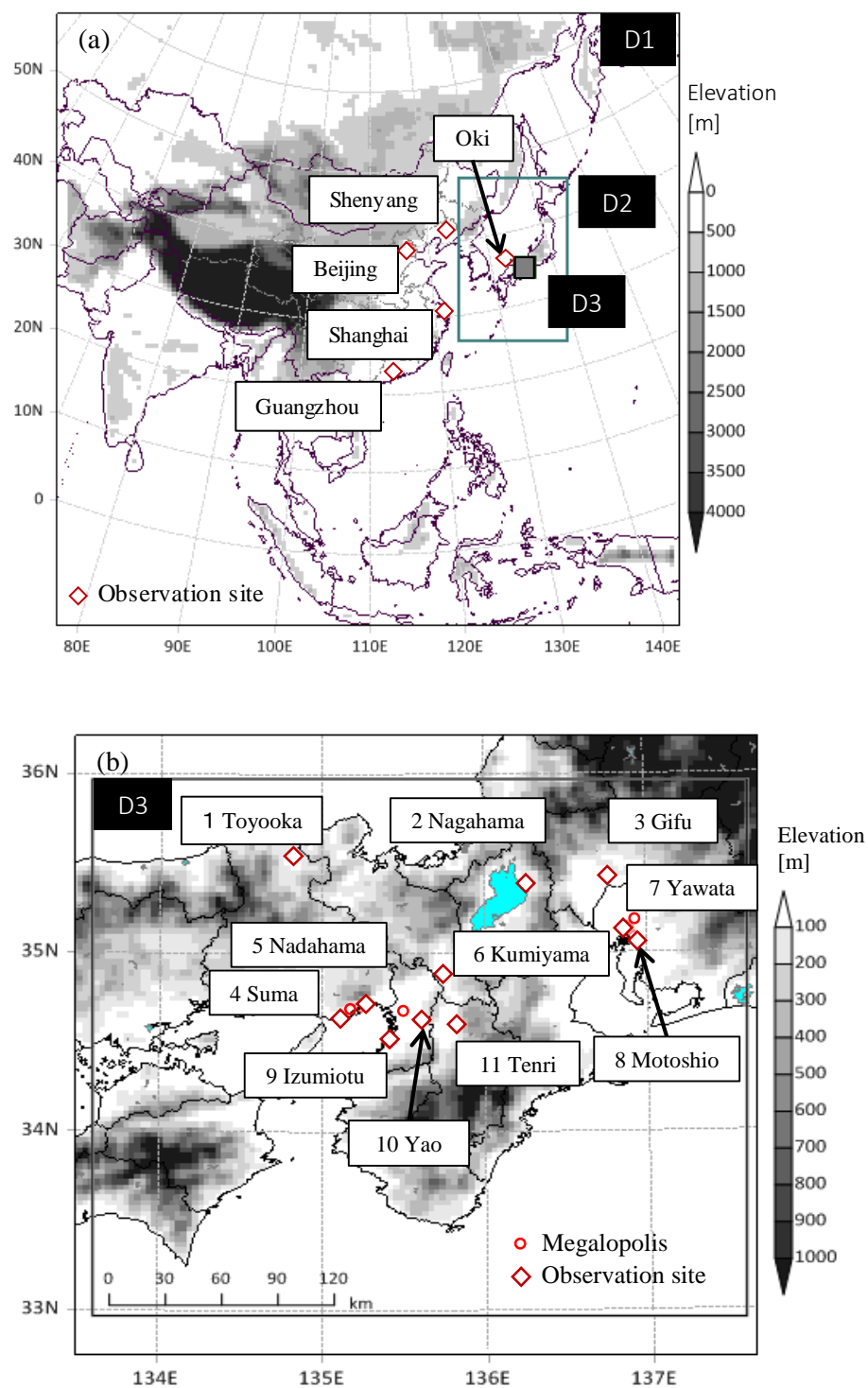
### 4.1 PMF モデルによる PM<sub>2.5</sub> 発生源寄与解析

本節では、米国環境保護庁が開発した PMF モデル (EPA-PMF5.0) (Fig. 2.4) を用いて、東海・近畿地域 11 地点の PM<sub>2.5</sub> 発生源寄与解析した方法、結果について述べる。

#### 4.1.1 解析対象データと計算条件

##### (1) 発生源解析に用いた観測データ

2013 年度に地方自治体により実施された PM<sub>2.5</sub> の成分測定 (環境省, 2018e) データのうち、東海・近畿地域の 11 地点の PM<sub>2.5</sub> 成分観測データを対象とした (Table 4.1、Fig. 4.1b)。東海・近畿地域は日本の中央に位置しており、地域内には様々な大気汚染発生源が存在している。大阪、神戸、名古屋といった大都市における道路交通、大都市に隣接する大型港湾周辺を航行する船舶、工業地帯やその他交通渋滞が頻発する道路、他にも農業地域における施肥、野焼き等、様々な発生源が PM<sub>2.5</sub> 濃度に影響を与えていると考えられる。また、国内だけでなく国外からの広域汚染の影響も先行研究で報告されてきた地域でもある



**Fig. 4.1** Modeling domains for CMAQ simulation: (a) East Asia (D1) and Japan (D2), and (b) Kinki-Tokai district (D3) with height above sea level and locations of observation sites. Fig. 4.1b represents D3 highlighted by the gray box in Fig. 4.1a.

**Table 4.1** Location and classification of monitoring sites.

Domain	Place	Type <sup>a</sup>	Latitude (°N)	Longitude (°E)	Use to PMF
East Asia (D1)	Beijing	Urban	39.95	116.47	
	Shenyang	Urban	41.78	123.42	
	Shanghai	Urban	31.21	121.44	
	Guangzhou	Urban	23.12	113.32	
Japan (D2)	Okii	Remote	36.28	133.18	
Kinki–Tokai District In Japan (D3)	1 Toyooka	Rural background	35.54	134.82	●
	2 Nagahama	Suburban background	35.39	136.27	●
	3 Gifu	Rural background	35.42	136.76	●
	4 Suma	Suburban background	34.65	135.12	●
	5 Nadahama	Suburban industrial	34.71	135.23	●
	6 Kumiyama	Suburban industrial	34.89	135.74	●
	7 Yawata	Urban background	35.14	136.88	●
	8 Motoshio	Urban traffic and industrial	35.08	136.92	●
	9 Izumiotu	Suburban industrial	34.50	135.41	●
	10 Yao	Suburban traffic	34.63	135.60	●
	11 Tenri	Rural background	34.59	135.83	●

<sup>a</sup>All sites in D3 are classified according to two criteria: the nature of the surrounding area (urban, suburban, rural) and the types of pollution sources involved (traffic, industrial emissions, or “background”). Background stands for the place which is not located close to any specific emission source.





## (2) PMFモデルに投入するデータセットの作成

第2章で述べたとおり、PMFモデルで堅牢なモデル解を得るには多くの観測データを必要とする。EPA PMF 5.0 User Guide (Norris et al., 2014) は、PM<sub>2.5</sub>の発生源解析用データセットとして、一般的に10から20種の成分データを有する100試料以上のデータが用いられると述べているが、経験的には300試料以上のデータを投入すると堅牢なモデル解を得やすい。地方自治体により行われているPM<sub>2.5</sub>の成分測定は季節ごとに約2週間となっているため、通年のデータは14試料×4=56試料が得られるのみで100試料にも満たない。そこで、本研究では、より堅牢なモデル解を導出するため、複数地点のデータを一つのデータセットとして解析する手法を用いた。本手法は、Kara et al. (2015) によりトルコ西部地域におけるPM<sub>10</sub>の発生源寄与解析に利用されたほか、国内でも、豊永ら (2017) により、九州地域のPM<sub>2.5</sub>発生源寄与解析に利用されている。本手法の利点は、複数の解析地点(レセプター)に影響を与えている共通の因子(発生源)をPMFモデルにより抽出できることにある。ただし、限られた地点のみに比較的小さな影響を及ぼす因子を抽出することは困難となるおそれがある。本研究の目的であるCMAQによる発生源寄与解析との比較及び信頼性の向上には、まずは主要なPM<sub>2.5</sub>発生源因子の特定と寄与割合の定量化が優先されること、現時点で入手できる観測データでは単一地点でのPMF解析を行うことは困難であることから、本研究で解析した以外の発生源因子の特定については今後の課題とする。

Table 4.2にPM<sub>2.5</sub>の質量濃度及び成分測定の平均値、中央値、最大値、最小値および検出下限値を下回った観測値の割合(BDL)、PMFモデルで最終解を得るため用いた成分を示す。観測値には、多くの場合、①欠測値、②検出下限値以下の分析値、③原因究明が困難な突発的なはずれ値(異常値)等が含まれている。これらの値を適切に処理せずに解析を実施すると、解が収束しないもしくは、後述するモデルの適合度を低下させ、堅牢なモデル解を得ることが困難となる。そこで、Polissar et al. (1998)、Kim et al. (2003)、Kotchenruther (2013, 2016)、Nakatsubo et al. (2014) らの方法を参考に下記のとおり異常値の除去、観測値の不確かさおよび値の重みの調整をおこなった。

- ① イオンバランス、質量濃度推定手法による異常値を含む試料の除外
- ② 検出下限値以下の分析値は、下限値の1/2値で置換
- ③ 定量下限値が50%未満の成分(Sc、Sm、Hf、Ta、Th)を除外
- ④ 欠測値を含む試料の除外
- ⑤ 同一成分の二重評価を回避するため、重複した測定値(KとK<sup>+</sup>、NaとNa<sup>+</sup>、MgとMg<sup>2+</sup>、CaとCa<sup>2+</sup>)については、検出下限値以上の観測値割合が多いイオン成分のデータのみモデル投入データとして利用

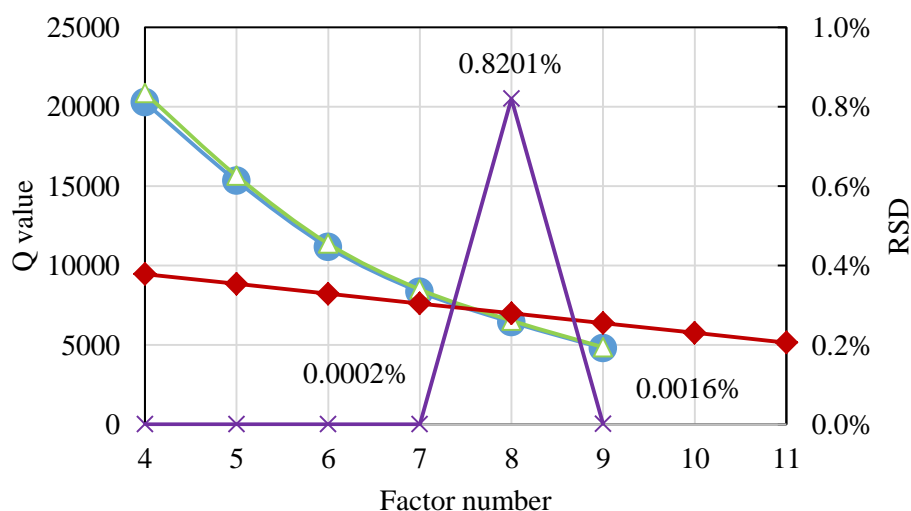
観測値に対する不確かさデータマトリックスについては、(2.25)～(2.26)式に示す推算式により設定した。なお、Error Fraction<sub>j</sub>は、それぞれ15%と設定し、Extra Modeling

Uncertainty は 0% と設定した。また、値の重み (Category) の調整については、各成分の S/N 比から Norris et al. (2014) の方法に倣い、原則、下記のとおり設定した。

- $0 \leq S/N < 0.5$  : "Bad" (解析から除外)
- $0.5 \leq S/N < 1$  : "Weak" (不確かさを 3 倍)
- $1 < S/N$  : "Strong" (不確かさの変更なし)

### (3) 因子数 (発生源) の決定

最適な因子数  $p$  を決定するため、因子数を 4 から 9 に設定して PMF モデルの予備計算をおこなった。(2.29) 式から算出される  $Q_{Theory}$  および予備計算から得られた  $Q_{Robust}$  と  $Q_{true}$  の推移を Fig. 4.3 に示す。因子数  $p$  を決定するには、計算が収束し、出力される  $Q$  ( $Q_{Robust}$  と  $Q_{true}$ ) の分散が小さく、 $Q_{Robust} \doteq Q_{true} \doteq Q_{Theory}$  となる必要がある。よって、これらの条件をみたす因子数  $p$  は、7 が最適であると考えられた。



**Fig. 4.3** Robust (circle), true (triangle) and theory (diamond) Q value for the different factor numbers (left axis). The relative standard deviation of the Q value for the different factor numbers (right axis, cross).

### (4) モデル解の妥当性の確認

上記で設定した計算条件および入力データをもとにモデル解を導出し、散布図、時系列図、残差分析等のツールを利用してモデルの適合度の確認をおこなった。次に、各因子の成分組成から解釈される発生源と因子の日別・地点別寄与変動から、モデル解が示す発生源およびその寄与が解析対象地域の現状と整合するかを、先行研究による PMF 解析結果および地点の属性を踏まえて検証した。例えば、大型港湾、工場が隣接する大阪、神戸、名古屋周辺の観測地点であれば、工場、船舶等から排出される重油燃焼由来の放出物による寄与が高くなることが期待される。最後に、Bootstrapping 法を用いて、モデル解の妥当性を

確認した。具体的には、得られたモデル解とは別に、**Bootstrapping** 法によるモデル解の導出を100回試行 (**Bootstrap run**) した。その後、得られた因子 (**Bootstrap factor**) と **Base run** で得られた因子 (**Base factor**) の寄与の相関が0.6以上となった割合が80%以上となっているかを確認した (**Table 4.5**)。各因子これらの条件を満たさなかった場合については、計算条件の変更、入力データの見直しを繰り返しおこない、条件を満たす最終モデル解を導出した。

最終解を得た際の計算条件、統計指標の一覧を **Table 4.3** に示す。最終解を導出には、591試料 (**Fig. 4.2**内の橙色セル) から20の成分データ (**Table 4.2**および**Table 4.3**) を使用した。最終解を得るまでの過程で、再現性の悪い指標については値の重み (**Category**) を **Strong** から **Weak** もしくは **Bad** に変更し、得られるモデル解の妥当性について繰り返し検証をおこなった。ただし、発生源の特徴を表す指標成分 (**Table 4.4**、後述する。) については、各因子が示す発生源の重要な情報となることから、原則、以下の条件を付加して最終解を導出した。

- モデル解における指標成分の再現性が良好に保つため、値の重み (**Category**) を可能な **Strong** に固定する。ただし、PM<sub>2.5</sub>については個別の発生源の特徴を抽出する因子ではないため **Weak** とする。
- **Bootstrapping** 法で得られる **Bootstrap factor** の構成成分の変動幅の四分位範囲 (**IQR**, **Interquartile Range** : データを昇順に並べた際、下から1/4と3/4の間の範囲) 内に **Base factor** の構成成分が存在していること。つまり、入力データの選択方法によって、指標成分の構成割合が大きく変動することなく、発生源の特徴を保持すること。

**Norris et al. (2014)** は、**IQR** に収まっていない成分が存在する場合は、さらなるモデル解の不確実性を検証する必要があると指摘しているが、**Table 4.4** で指定した各発生源の指標成分については、**Table 4.6**、**Fig. 4.6** に示すように各因子の指標成分がすべて **IQR** に収まっていた。また、**Table 4.5** に示すように **Bootstrap run** において、各因子の99%以上が同一の因子と関連づけられていたことから、本モデル解を最終解とした。

#### 4.1.2 各因子の解釈および発生源寄与推計

PMFモデルが導出した7つの因子が示す発生源は、先行研究の結果を参照しつつ、各因子の成分組成および地点・季節別濃度変化から特定、解釈した。特に、因子の成分組成については、日本国内を対象にPMF解析を実施した **Iijima et al. (2009)** や **Nakatsubo et al. (2014)** の結果を参考にした。各因子が示す発生源および発生源となる指標因子の一覧を **Table 4.4** に示す。また、各因子の成分組成を **Fig. 4.4** に、地点別、季節平均別の寄与濃度を **Fig. 4.5** に示す。以下では、各因子を特定の発生源と解釈するに至った成分組成、地点・季節別濃度変化について述べる。

① 硫酸系二次粒子 1

この因子は Fig. 4.4 に示すように、構成成分が SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>と NH<sub>4</sub><sup>+</sup>で占められ、全地点共通して、夏期の濃度が最も高くなっている (Fig. 4.5a)。構成成分から、(NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> を主成分としていると解釈された。(NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> は PM<sub>2.5</sub> の主要構成成分の一つで、化石燃料等の燃焼で発生した SO<sub>2</sub> が大気中で反応した後、(NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> となって長距離輸送されることが知られている。また、観測地点が北西から南東にかけて、寄与濃度が下がる傾向を示している。例えば、Fig. 4.5a において、豊岡 (Site 1)、長浜 (Site 2)、岐阜 (Site 3) を比較した場合、アジア大陸に最も近い豊岡は因子の濃度が最も高いが、東に位置する長浜、岐阜は濃度が下がっていく傾向にある。先行研究においても、Aikawa et al. (2010) や Shimadera et al. (2016) により、大陸から広域輸送された SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度は西日本から東日本にかけて、減少傾向を示すことが報告されている。以上から、この因子は主として、アジア大陸の人為起源排出された大気汚染物質が (NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> として広域輸送される過程で粒子化したものと解釈された。この因子が PM<sub>2.5</sub> 濃度に占める寄与割合は、36.7%であった。

② 硫酸系二次粒子 2

この因子は Fig. 4.4 に示すように、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>と NH<sub>4</sub><sup>+</sup>濃度が高いほか、硫酸系二次粒子 1 と比較して、ヒ素 (As) および鉛 (Pb) の寄与割合が高い。また、硫酸系二次粒子 1 と同様に、多くの地点で夏期の寄与が最も高くなっている (Fig. 4.5a)。そのため、(NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> が主成分と解釈された。一般的に、As を多く含む粒子状物質の発生源は、石炭燃焼と言われている (Mastalerz et al., 2004; Suzuki et al., 2014; Nakatsubo et al., 2014)。石炭は、アジア大陸の工業地帯および石炭火力発電所の燃料として広く利用されている (Ohara et al., 2007; Zhang et al., 2009)。また、Zhang et al. (2013) は、北京における PMF 解析で、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、Pb の寄与が高い因子を石炭燃焼因子として解釈している。以上から、この因子は主として、中国等での石炭燃焼由来の (NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> が広域輸送されたものと解釈された。この因子が PM<sub>2.5</sub> 濃度に占める寄与割合は、10.3%であった。

③ 重油燃焼

この因子は Fig. 4.4 に示すように、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>と NH<sub>4</sub><sup>+</sup>濃度が高いほか、硫酸系二次粒子 1 と比較して、バナジウム (V) およびニッケル (Ni) の寄与割合が高い。また、須磨 (Site 4)、灘浜 (Site 5)、泉大津 (Site 9) といった港湾付近の地点における濃度が高くなっている (Fig. 4.5b)。一般的に V および Ni を多く含む粒子状物質の発生源は、重油燃焼と言われている (Mamuro et al., 1979)。また、重油を燃料とする船舶からの排出を示唆する物質として V を利用した先行研究 (Zhao et al., 2013; Nakatsubo et al., 2014) が報告されている。以上から、この因子は、船舶等からの重油燃焼由来の (NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> が輸送されたものと解釈された。この因子が PM<sub>2.5</sub> 濃度に占める寄与割合は、6.9%であった。

④ 道路交通

この因子は Fig. 4.4 に示すように、OC、EC、アンチモン (Sb) の寄与割合が高いほか、

他成分の寄与も散見される。OC、ECの寄与割合が高い場合、(燃料の) 燃焼寄与が示唆される。また、Sbは自動車のブレーキパッドの素材に含まれ、自動車のブレーキダストからSbが排出されることから、道路交通を発生源と判断する際の指標物質となりうることは先行研究でも報告されている (Iijima et al., 2009)。さらに、Fig. 4.5c に示すように久御山 (Site 6)、元塩 (Site 8) といった交通量が比較的多い道路沿道の地点における濃度が高くなっている。以上から、この因子は、道路交通および自動車の排ガス由来のものと解釈された。この因子がPM<sub>2.5</sub>濃度に占める寄与割合は、17.2%であった。

⑤ バイオマス燃焼

この因子は Fig. 4.4 に示すように、OC、EC、カリウムイオン (K<sup>+</sup>) の寄与割合が高い。また、Fig. 4.5d に示すように豊岡 (Site 1)、岐阜 (Site 3)、天理 (Site 11) といった郊外において、秋期、冬期の濃度が高くなる傾向が見られた。先行研究において、生活および農業廃棄物の焼却等に伴うバイオマス燃焼には、OC、EC、K<sup>+</sup>が関連していることが報告されている (Zhang et al., 2010, 2013; Tsai et al., 2012)。さらに、Ikemori et al. (2016) は、名古屋で捕集したTSP試料について、OC、EC、<sup>14</sup>C濃度、バイオマス燃焼の指標物質であるレボグルコサン濃度を測定した結果、秋から冬においてバイオマス燃焼の寄与が高くなることを報告している。同様に、名古屋市内に位置する八幡 (Site 7)、元塩 (Site 8) においても秋期、冬期の濃度が高くなる傾向が見られる。以上から、この因子は、バイオマス燃焼由来のものと解釈された。この因子がPM<sub>2.5</sub>濃度に占める寄与割合は、13.8%であった。

⑥ 土壌、工業系粉じん

この因子は Fig. 4.4 に示すように、カルシウムイオン (Ca<sup>2+</sup>)、アルミニウム (Al)、チタン (Ti)、鉄 (Fe) といった土壌を示す因子と解釈された成分 (Bove et al., 2014) で構成されている。また、Fig. 4.5e に春期に濃度が高くなる傾向を示し、須磨 (Site 4)、灘浜 (Site 5)、八幡 (Site 7)、元塩 (Site 8) といった工業地域が隣接する地点の寄与割合が高くなっている。一般的に、大気中に浮遊する土壌粒子の多くは、道路交通、建設現場、風の巻き上げによる排出に由来する。以上から、この因子は、土壌、工業系粉じん由来のものと解釈された。この因子がPM<sub>2.5</sub>濃度に占める寄与割合は、2.7%であった。

⑦ 硝酸系二次粒子

この因子は Fig. 4.4 に示すように、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>とNH<sub>4</sub><sup>+</sup>濃度が高いため、硝酸アンモニウム：NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>が主成分と考えられた。NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>は半揮発性で暖候期にガス状NH<sub>3</sub>とHNO<sub>3</sub>へと容易に変化する性質を有している。これは、全地点共通して、秋期、冬期の気温が低い時期に濃度が高く、春期、夏期に濃度が大きく低下している (Fig. 4.5f) 結果と整合している。また、Nakatsubo et al. (2014) もNO<sub>3</sub><sup>-</sup>とNH<sub>4</sub><sup>+</sup>を指標物質として、因子を硝酸系二次粒子と解釈している。以上から、この因子は、硝酸系二次粒子と解釈された。この因子がPM<sub>2.5</sub>濃度に占める寄与割合は、12.4%であった。

**Table 4.2** Summary statistics for concentrations of PM<sub>2.5</sub> and its main components.

	Concentration <sup>a</sup> (PM <sub>2.5</sub> : µg/m <sup>3</sup> , main components: ng/m <sup>3</sup> )				BDL <sup>b</sup> (%)	Use to PMF
	Mean	Median	Maximum	Minimum		
PM <sub>2.5</sub>	19.36	18.85	52	1.9	100 %	●
OC	3631	3532	13000	540	100 %	●
EC	1463	1302	5100	130	100 %	●
Cl <sup>-</sup>	221	75	2500	1	64 %	
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	1204	410	11000	19	93 %	●
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	5811	4850	21000	89	100 %	●
Na <sup>+</sup>	131	120	1700	6	94 %	●
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	2429	2200	8800	53	100 %	●
K <sup>+</sup>	145	130	673	8.1	96 %	●
Mg <sup>2+</sup>	23.7	21	120	2.9	65 %	●
Ca <sup>2+</sup>	59.7	50	330	5.9	93 %	●
Na	159	140	780	7.7	90 %	
Al	62.4	45.5	450	1.8	87 %	●
K	181	170	658	18	99 %	
Ca	46.3	35	230	0.26	91 %	
Ti	5.12	4.1	27	0.17	75 %	●
V	4.50	2.6	37	0.06	99 %	●
Cr	2.75	2	18	0.05	66 %	
Mn	9.16	7.4	43	0.35	99 %	
Fe	134	110	670	7.2	98 %	●
Co	0.142	0.0675	1.7	0.005	69 %	
Ni	3.59	2.3	28	0.075	92 %	●
Cu	6.68	4.5	80	0.26	90 %	
Zn	46.4	31	560	0.54	89 %	●
As	1.44	1.2	6.2	0.066	98 %	●
Se	1.19	1	5.7	0.086	90 %	
Rb	0.543	0.44	3.3	0.023	93 %	●
Sr	5.69	2.24	71.3	0.50	100 %	
Mo	0.990	0.71	8.7	0.03	80 %	
Cd	0.384	0.35	2.2	0.024	85 %	
Sb	1.40	1.1	19	0.069	91 %	●
Cs	0.103	0.073	0.54	0.0038	72 %	
Ba	3.68	3	32	0.09	95 %	
La	0.121	0.095	0.65	0.0062	69 %	
Ce	0.222	0.17	1.8	0.0088	87 %	
W	0.384	0.22	3.2	0.01	61 %	
Pb	12.3	10	54	0.36	99 %	●

<sup>a</sup>Data below the limit of detection were replaced by half of the reported detection limit values for the mean calculation.

<sup>b</sup>BDL stands for Percentage of the below-detection limit. The components of less than 50 % of BDL was excluded from the table.

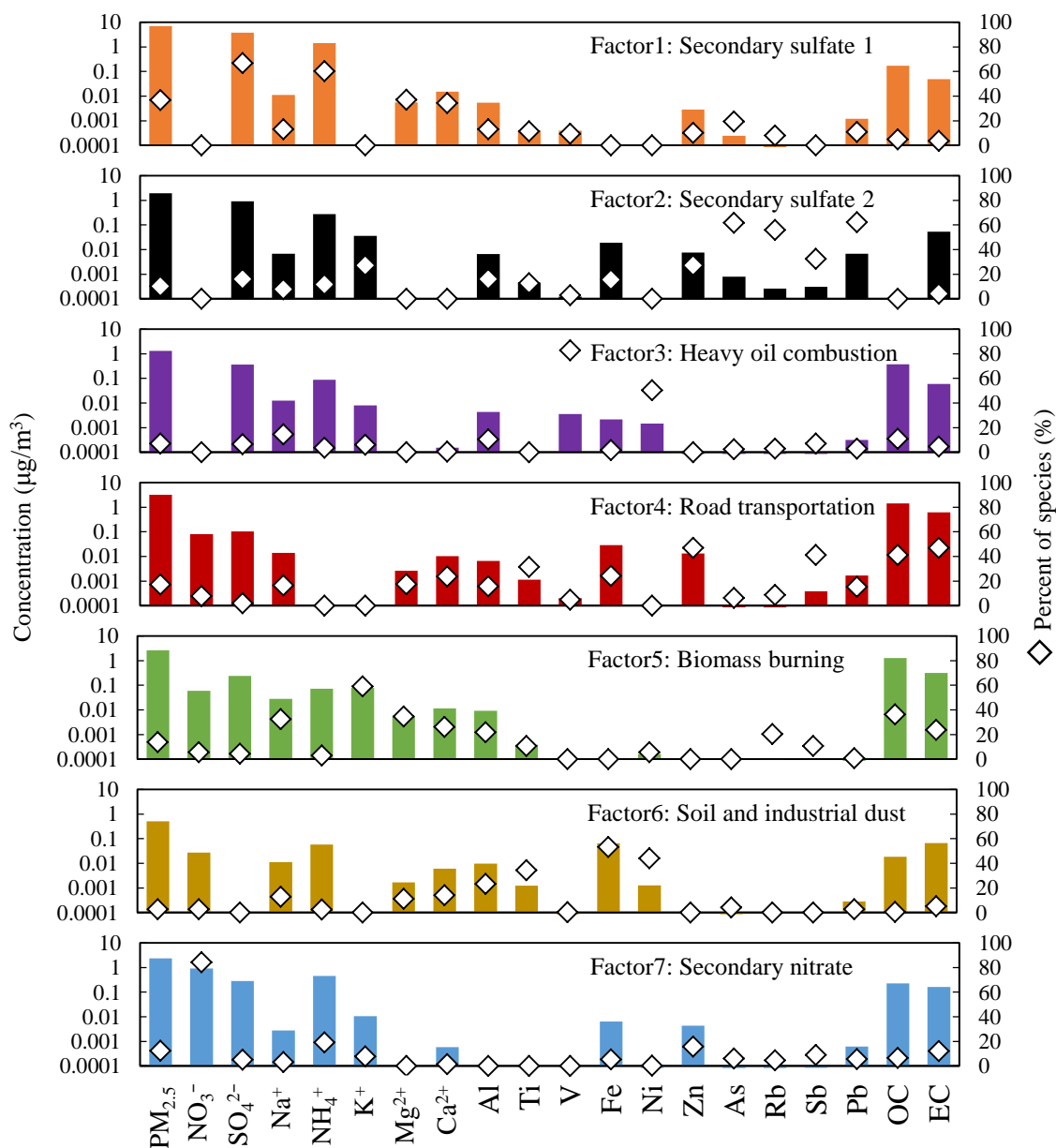
**Table 4.3** Summary statistics of PM<sub>2.5</sub> and its main components in the final solution by PMF.

	Category	<i>S/N</i>	LOD <sup>a</sup> ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	Raw Samples	Slope	SE <sup>b</sup>	<i>R</i> <sup>2</sup>	KS Test <sup>c</sup>	
								Stat	P value
PM <sub>2.5</sub>	Weak	5.66	0.1	100 %	0.97	1.93	0.95	0.04	0.42
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Strong	4.58	0.0315	93 %	0.99	0.10	1.00	0.25	0.00
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	Strong	5.66	0.025	100 %	0.96	0.35	0.99	0.09	0.00
Na <sup>+</sup>	Weak	4.24	0.021	98 %	0.20	0.04	0.14	0.04	0.25
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	Strong	5.66	0.0093	100 %	0.98	0.19	0.98	0.13	0.00
K <sup>+</sup>	Strong	4.35	0.02	95 %	0.82	0.03	0.87	0.10	0.00
Mg <sup>2+</sup>	Weak	1.90	0.01	65 %	0.31	0.01	0.27	0.04	0.44
Ca <sup>2+</sup>	Weak	3.46	0.0144	89 %	0.30	0.02	0.32	0.03	0.53
Al	Weak	2.91	0.0014	79 %	0.33	0.00	0.39	0.02	0.91
Ti	Strong	5.41	$5.70 \times 10^{-5}$	97 %	1.00	0.00	0.99	0.11	0.00
V	Strong	4.61	0.012907	93 %	0.78	0.03	0.87	0.09	0.00
Fe	Strong	3.74	0.00041	82 %	0.74	0.00	0.86	0.11	0.00
Ni	Weak	4.76	0.0035	94 %	0.21	0.01	0.34	0.07	0.01
Zn	Strong	5.35	$5.12 \times 10^{-5}$	89 %	0.85	0.00	0.85	0.07	0.01
As	Strong	4.56	$5.96 \times 10^{-5}$	94 %	0.71	0.00	0.73	0.07	0.01
Rb	Weak	4.20	0.00018	94 %	0.33	0.00	0.43	0.04	0.43
Sb	Strong	5.32	0.00046	97 %	0.84	0.00	0.86	0.09	0.00
Pb	Strong	5.25	0.3	99 %	0.99	0.48	0.90	0.03	0.58
OC	Strong	5.23	0.1	99 %	0.68	0.29	0.82	0.05	0.13
EC	Weak	5.66	0.1	100 %	0.97	1.93	0.95	0.04	0.42

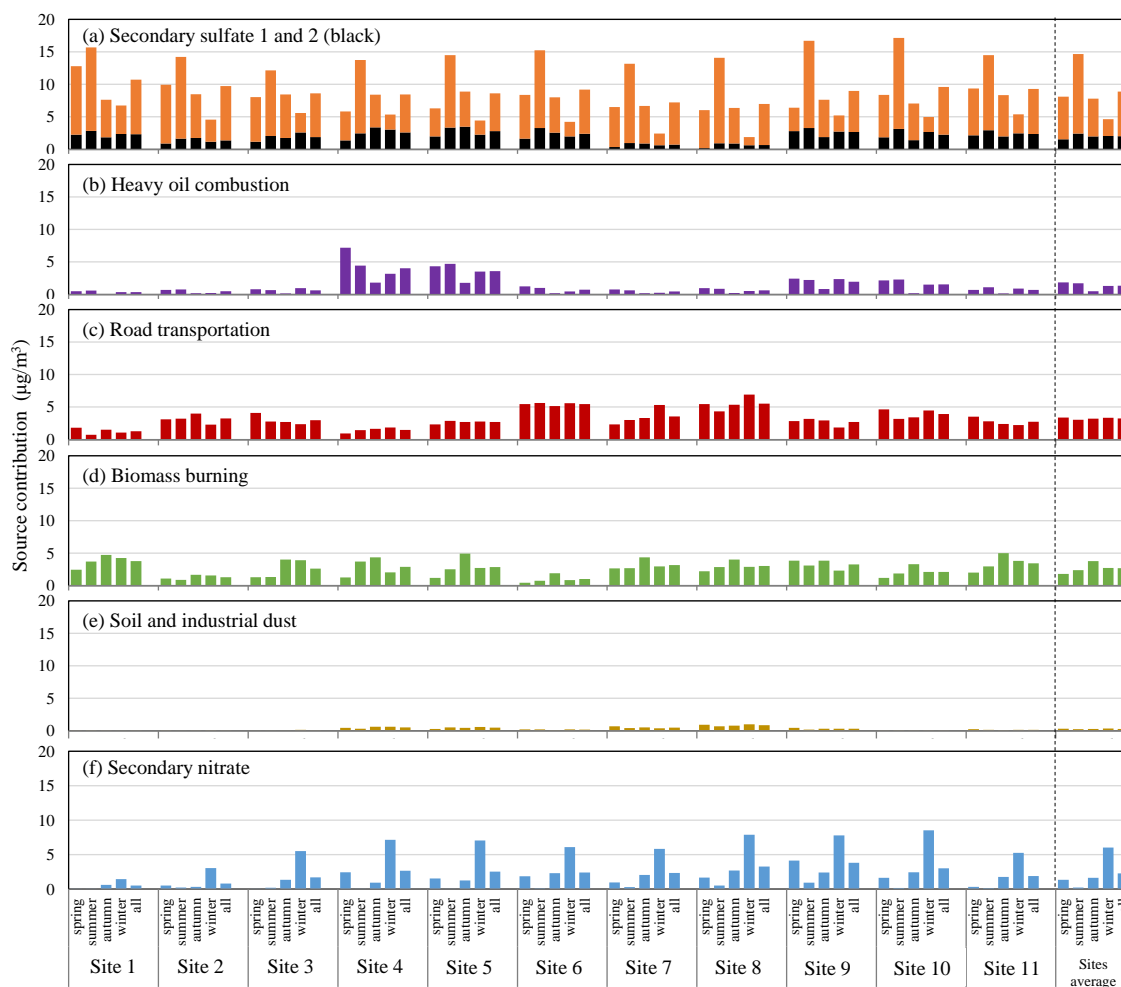
<sup>a</sup>Data below the limit of detection (LOD).<sup>b</sup>Standard error (SE).<sup>c</sup>Kolmogorov-Smirnoff test.**Table 4.4** Average source contribution (both in percentage (%) and mass ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )) estimated to PM<sub>2.5</sub> at the 11 sites in Kinki–Tokai District in Japan based on PMF.

Source	Contribution, % ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	Tracer chemicals
1 Secondary sulfate 1	36.7 (6.92)	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> , NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>
2 Secondary sulfate 2	10.3 (1.93)	As, Pb, SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> , NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>
3 Heavy oil combustion	6.9 (1.30)	V, Ni, SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> , NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>
4 Road transportation	17.2 (3.24)	Sb, Fe, Zn, OC, EC
5 Biomass burning	13.8 (2.60)	K <sup>+</sup> , OC, EC
6 Soil and industrial dust	2.7 (0.50)	Ca <sup>2+</sup> , Ti, Al, Fe
7 Secondary Nitrate	12.4 (2.33)	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> , NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>





**Fig. 4.4** Source profiles (left axis, bars) and percent of species on each factor (right axis, diamonds) of PM<sub>2.5</sub> sources classified in the 11-multisite dataset.



**Fig. 4.5** Source contributions ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) to the PM<sub>2.5</sub> mass concentrations for each season and for the four seasons on each site and the average of the 11 sites in Kinki-Tokai district in Japan in JFY2013. The 11 sites are listed in order by site number, as shown in Fig. 4.1b.

**Table 4.5** The factors in PMF modeling and percentage of BS runs for the 11 sites in Kinki–Tokai district that mapped back to the original factor on the condition of 100 bootstrap model runs and *R* set at the default value of 0.6.

	Secondary sulfate 1	Secondary sulfate 2	Heavy oil combustion	Road transportation	Biomass burning	Soil and industrial dust	Secondary nitrate
Mapped	100	100	100	99	99	100	100
Unmapped	0	0	0	0	0	0	0

**Table 4.6** Analyzed species, category setting in PMF modeling (strong: default, weak: ), determination whether the base run is within the interquartile ranges (IQR) around the profiles (Yes: within IQR, No: without IQR). Cells highlighted in gray represents the tracer chemicals for each factor in PMF analysis.

	Category	Secondary sulfate 1	Secondary sulfate 2	Heavy oil combustion	Road transportation	Biomass burning	Soil and industrial dust	Secondary nitrate
PM <sub>2.5</sub>	Weak	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Strong	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	Strong	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes
Na <sup>+</sup>	Weak	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	Strong	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes
K <sup>+</sup>	Strong	Yes	Yes	No	Yes	Yes	Yes	Yes
Mg <sup>2+</sup>	Weak	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes
Ca <sup>2+</sup>	Weak	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes
Al	Weak	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes
Ti	Strong	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes
V	Strong	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes
Fe	Strong	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes
Ni	Weak	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes
Zn	Strong	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes
As	Strong	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes
Rb	Weak	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes
Sb	Strong	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes
Pb	Strong	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes
OC	Strong	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes
EC	Weak	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes

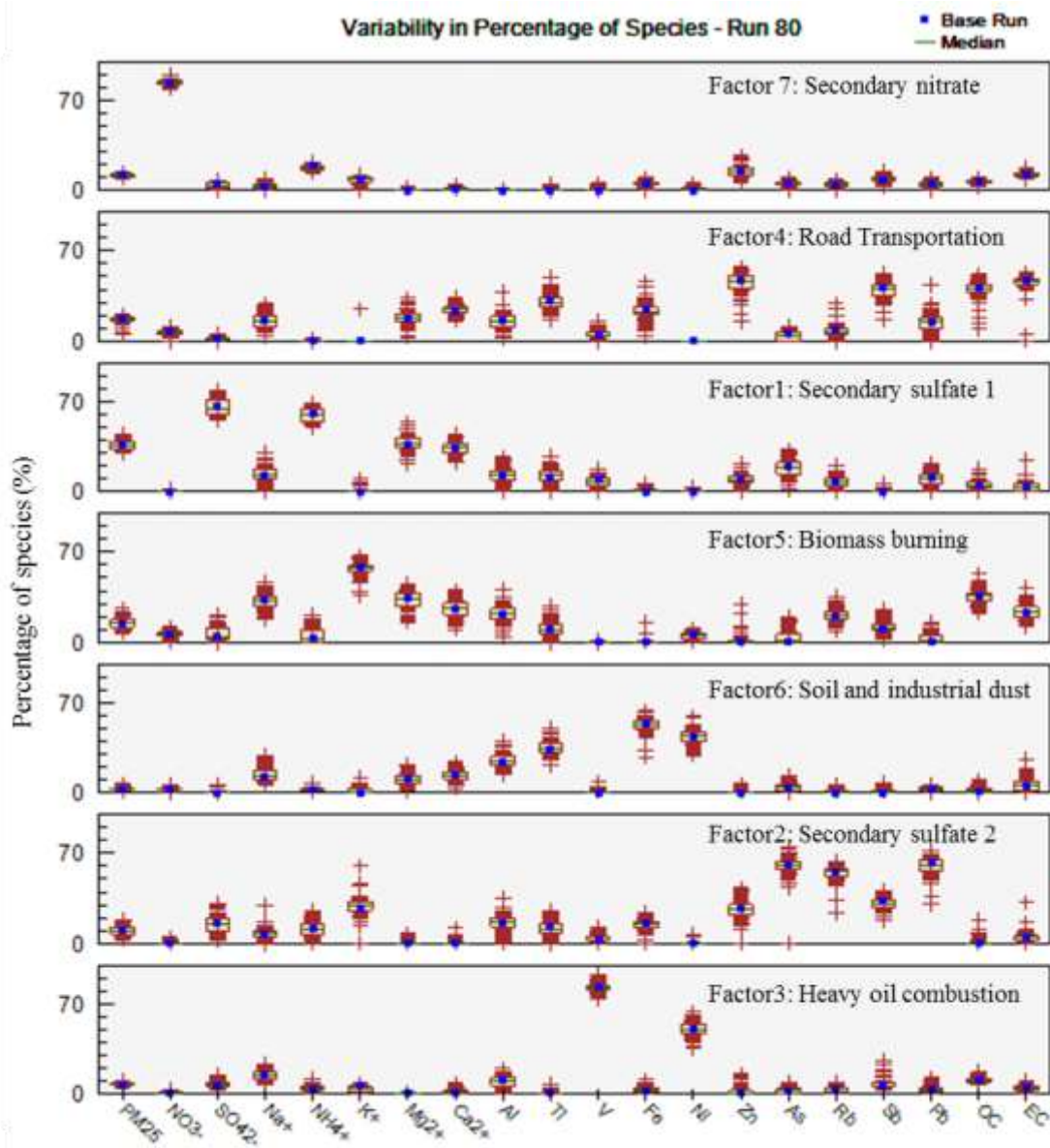


Fig. 4.6 Bootstrapped % of species mass at the 11 multisite dataset (100 bootstrapped runs, block size = 5, total samples = 591).

## 4.2 CMAQ による PM<sub>2.5</sub> 発生源寄与推計

### 4.2.1 計算領域と計算条件

#### (1) 計算領域と計算期間

CMAQ の計算領域 (Fig. 4.1) は、第 3 章と同じく、計算負荷を考慮しつつ、東アジア域は人為起源排出量が多い中国、インドを網羅し、かつ日本域は国内各都市域の発生源の感度差が評価できるよう、東アジア域 (D1、60 km 格子)、日本域 (D2、15 km 格子) に設定した。また、PMF モデルによる解析対象地点との比較をおこなうため、D2 領域内に東海・近畿地域 (D3、5 km 格子) を設定した。鉛直層は、第 3 章と同じく、地表面から上空 100 hPa までを 34 層に分割した。設定の詳細を Table 4.7 に、計算値の再現性確認等に利用した地点の一覧 (PMF モデルで利用した観測データと同一地点) を Table 4.1 に示す。

計算期間は、助走期間を 10 日間設け、2013 年 4 月～2014 年 3 月 (2013 年度) に設定した。2013 年度は、地方自治体による PM<sub>2.5</sub> の成分測定 (環境省, 2018e) が全国的に開始された年であり、国内の大気汚染常時監視測定局による PM<sub>2.5</sub> 質量濃度だけでなく、PM<sub>2.5</sub> 主要成分についても再現性を確認することが可能である。ほかにも、PM<sub>2.5</sub> の観測データについては、米国国務省ホームページ (U.S. Department of State Air Quality Monitoring Program, <http://www.stateair.net/web/post/1/1.html>) から、北京市、瀋陽市、上海市・広州市の 4 地点における PM<sub>2.5</sub> 質量濃度、環境省環境研究総合推進費「5B-1101 全国の環境研究機関の有機的連携による PM<sub>2.5</sub> 汚染の実態解明と発生源寄与評価」で実施された離島の PM<sub>2.5</sub> 観測データ等が利用できる (<http://www.nies.go.jp/pmdep/ctype/>)。

#### (2) WRF の計算条件

WRF の地形・土地利用データは、USGS により作成された全球データセット ([http://www2.mmm.ucar.edu/wrf/users/download/get\\_sources\\_wps\\_geog\\_V3.html](http://www2.mmm.ucar.edu/wrf/users/download/get_sources_wps_geog_V3.html)) を用いた。初期・境界条件として、D1 に NCEP-FNL (CLSL Research Data Archive, 2017) および RTG-SST-HR (NCEP Real-Time SST archives, 2017) を使用した。D2、D3 には、国内の気象場の再現性を向上させるため、海表面温度に RTG-SST-HR を使用する以外は、MSM-GPV (気象庁, 2018) を使用した。ただし、MSM-GPV で取り扱われていないデータは、NCEP-FNL を使用した。また、気圧面は MSM-GPV の気圧面に合うよう、NCEP-FNL のデータを間引いて使用した。

解析値ナッジングは全計算期間、鉛直全層に対して、風速東西・南北成分、気温、混合比についてナッジング係数  $G_{w,t,q} = 3.0 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$  を全領域に適用し、D1 は単独、D2、D3 について 2-way nesting させた計算を実施した。

WRF の物理過程に関するオプション設定については、以下のとおり設定した。

- 雲微物理過程  
WSM3 (WRF Single-moment 3-class scheme) (Hong et al, 2004; Hong and Lim, 2006) を用いた。本スキームでは、水蒸気、雲水/雲氷、雨/雪の区分で3種類の大気中水分の予測を行う。
- 積雲過程  
Kain-Fritsch (Kain, 2004) を用いた。、本スキームでは、比較的簡易な雲モデルによって上昇流・下降流を表現する。1990年にKainとFritschによって作成されたスキーム(Kain and Fritsch, 1990)から上昇流のエントレインメント率や非降水性の浅い対流雲および下降流に関する扱い等が改良されている。
- PBL過程  
Mellor-Yamada-Janjić (MYJ) (Janjić, 2002) を用いた。本スキームでは乱流運動エネルギーの輸送方程式を解いて乱流粘性係数・乱流拡散係数を決定する。
- 地表面過程  
Noah LSM (Chen and Dudhia, 2001) を用いた。Noah LSMでは、土壌は深さ0~10、10~40、40~100、100~200 cmの4層に分割される。また、植生区分・割合、根域を考慮し、表面流出、蒸発散、土壌排水などの予測をもとに、土壌温度・含水率の予測を行う。さらに、積雪の状態、樹冠内の水分などの予測も行う。
- 放射スキーム  
長波放射スキームには、Mlawer et al. (1997) のRRTMを用いた。RRTMスキームでは、長波放射スペクトルを16に分割し、水蒸気、O<sub>3</sub>、CO<sub>2</sub>などのガスおよび雲の光学的深さが詳細に扱われる。  
また、短波放射スキームには、Dudhia (1989) のスキームを用いた。このスキームでは、太陽放射の晴天時の散乱、水蒸気による吸収 (Lacis and Hansen, 1974)、雲による反射・吸収 (Stephens, 1978) を考慮し、簡易的に下向き短波放射フラックスが予測される。

**Table 4.7** WRF-ARW and CMAQ configurations

	Parameter	Settings
	Spin-up period	22 – 31 March 2013
	Simulation period	1 <sup>st</sup> April – 31 March 2014
	Output interval	1 hour
	Map projection	Lambert conformal conic
	Central point	30 ° N, 110 ° E (D1) and 36 ° N, 135 ° E (D2, D3)
	Horizontal grid spacing	60 km, 15 km, and 5 km
	Vertical domain	34 layers (up to 100 hPa, 1 <sup>st</sup> mid layer height $\cong$ 26 m)
WRF	Version	ARW 3.5.1
	Horizontal grid number	140 × 140, 120 × 140, and 119 × 109
	Topography / Landuse	30-sec USGS / 30-sec USGS
	Initial and boundary	NCEP FNL, JMA MSM-GPV, and NCEP/NOAA RTG_SST_HR
	Analysis nudging	$G_{t,q,uv} = 3.0 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$
	Explicit moisture	WSM3
	Cumulus	Kain-Fritsch
	PBL and surface layer	MYJ PBL and Monin-Obukhov similarity
	Surface	Noah LSM
	Radiation	RRTM (long wave) and Dudhia (short wave)
CMAQ	Version	5.0.1
	MCIP	Version 4.2
	Horizontal grid number	135 × 135, 115 × 135, and 114 × 104
	Initial and boundary	CMAQ default concentration profile
	Emission	Asia: INTEX-B (2006), REASv1.1 (NH <sub>3</sub> ), and ARCTAS, Japan: EAGrid2000-JAPAN, JEI-DB-AS (Vehicle), and OPRF2005 (Ship), Biogenic: MEGANv2.04, Biomass burning: FINN v1.5, Volcano: JMA and Aerocom (2009)
	Horizontal / vertical advection	Yamartino / WRF-based scheme
	Horizontal / vertical diffusion	Multiscale / ACM 2
	Photolysis rate	On-line photolysis module
	Gas / aerosol phase chemistry	SAPRC99 & AERO5 with aqueous chemistry

### (3) CMAQ の計算条件

大気中の汚染物質およびその前駆物質の物理・化学反応過程等については、次のように設定した。

- 気相化学反応及びエアロゾル過程

大気中の汚染物質およびその前駆物質の反応過程として、気相化学反応に SAPRC-99 (Carter, 2000)、エアロゾル過程に AERO5 を使用した。CMAQ version 5.0.1 の SAPRC-99 スキームの排出過程における VOC 組成は、ホルムアルデヒド (HCHO)、メタノール (MEOH)、ケトン類 2 種 (MEK、PROD2)、酢酸 (CCO<sub>2</sub>OH)、アセトアルデヒド (CCHO)、その他有機酸 (RCO<sub>2</sub>OH)、アセトン (ACET)、フェノール (PHEN)、ギ酸 (HCOOH)、その他アルデヒド類 (RCHO)、グリオキサール (GLY)、メチルグリオキサール (MGLY)、ジアセチル (BACL)、クレゾール (CRES)、芳香族アルデヒド類 (BALD)、メタクロレイン (MACR)、メチルビニルケトン (MVK)、その他不飽和アルデヒド類 (IPROD)、エチレン (ETHENE)、イソプレン (ISOPRENE)、モノテルペン (TRP1)、パラフィン類 5 種 (ALK1~ALK5)、ベンゼン (BENZENE)、その他芳香族類 2 種 (ARO1NBZ、ARO2)、オレフィン類 2 種 (OLE1、OLE2)、セスキテルペン (SESQ) の合計 33 種となっている。

- 初期・境界条件

大気汚染物質やその前駆物質濃度の初期・境界条件は、北米の清浄大気を想定した CMAQ デフォルトの濃度プロファイルを使用した。D2、D3 の側面境界条件は、それぞれ D1、D2 における大気中ガス・粒子濃度の 1 時間間隔の計算結果から作成した。第 3 章で利用した全球化学輸送モデル MOZART-4 (Emmons et al., 2010) の計算結果を用いないことの影響については、4.2.2 CMAQ の性能評価で述べる。

- 排出量データ

アジア域における人為起源 SO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub>、CO、PM、NMVOC の排出量には、INTEX-B (Zhang et al., 2009) および ARCTAS ([http://mic.greenresource.cn/arctas\\_premission](http://mic.greenresource.cn/arctas_premission)) の排出インベントリを使用した。日本以外のアジア域の NH<sub>3</sub> 排出量は、Ohara et al. (2007) の値を用いた。日本域における人為起源排出源のうち、自動車起源のものは JEI-DB2011-AS (Japan Petroleum Energy Center, 2012)、船舶起源排出量に海洋政策研究財団 (OPRF) が作成した船舶排出インベントリ (OPRF, 2012) を使用した。自動車・船舶以外の人為起源排出源は、EAGrid2000-Japan (Kannari et al., 2007) を使用した。植生起源排出量は MEGAN version 2.04 (Guenther et al., 2006) により推計した。バイオマス燃焼由来の排出量には FINN (Wiedinmyer et al., 2011) version 1.5、火山起源の SO<sub>2</sub> 排出量は AeroCom によって作成されたデータ (Diehl et al., 2012) を使用し、日本国内については気象庁火山活動解説資料で活動が活発な火山のみ排出を考慮した。

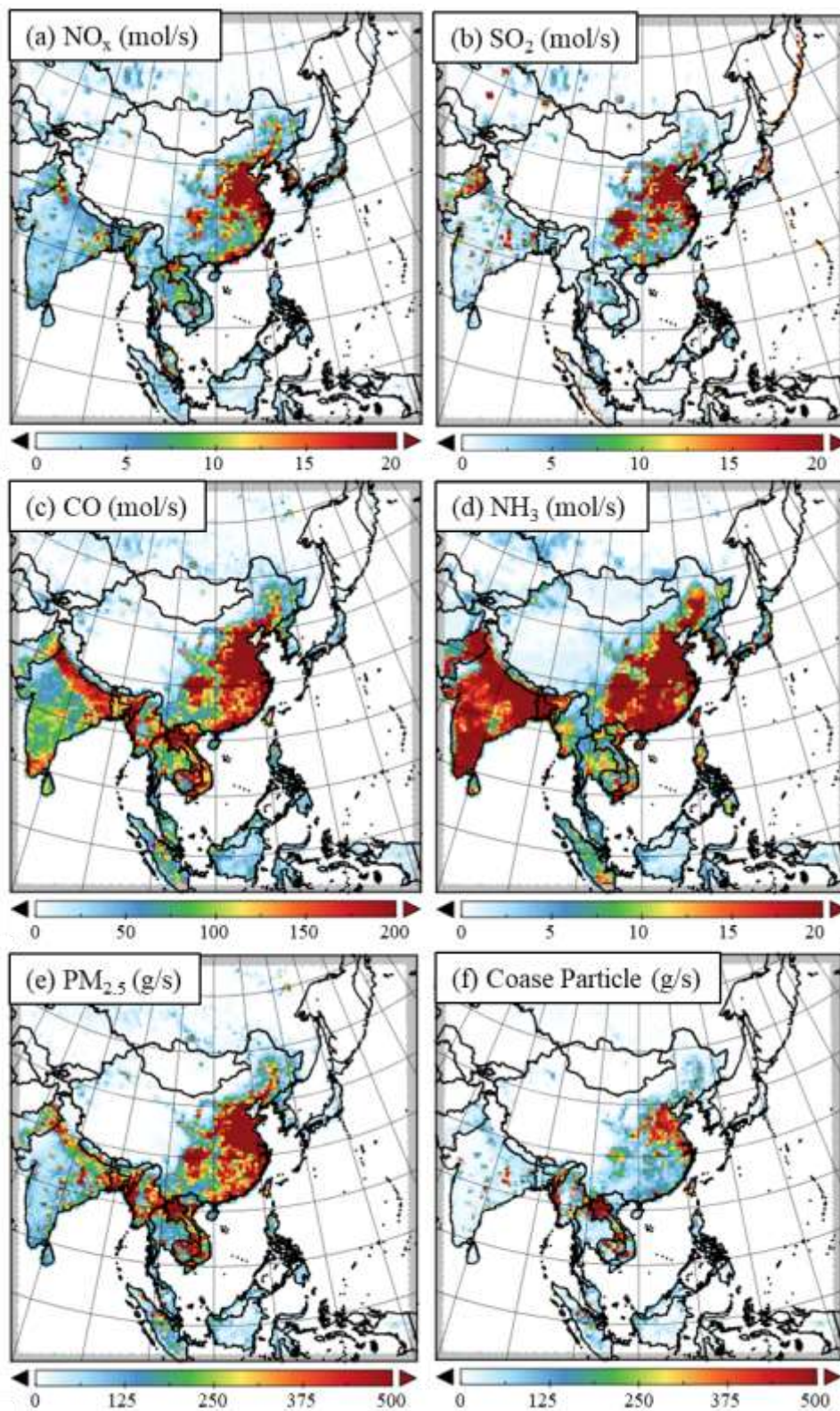
なお、大気汚染物質濃度の推計対象期間 (2013 年度) と利用した排出量データの推計年次は一致していない。そのため、実排出量の年変動等に伴って、CMAQ による大気汚染物質



推計濃度の再現性が低下する可能性がある。

#### (4) 排出量の空間分布

排出量データを基に推計された計算期間における全排出量を使用した計算ケースの単位格子、単位時間あたりの平均 NO<sub>x</sub>、SO<sub>2</sub>、CO、NH<sub>3</sub>、PM<sub>2.5</sub>、coarse モード粒子排出量を示す (Fig. 4.7)。



**Fig. 4.7** Spatial distributions of yearly mean emission concentrations: (a)  $\text{NO}_x$ , (b)  $\text{SO}_2$ , (c) CO, (d)  $\text{NH}_3$ , (e)  $\text{PM}_{2.5}$ , and (f) Coarse Particle in the Base case.

## 4.2.2 CMAQ の性能評価

### (1) 地上観測データ

国外の観測データとして、米国国務省ホームページ (U.S. Department of State Air Quality Monitoring Program, <http://www.stateair.net/web/post/1/1.html>) で公開されている中国 4 都市 (北京市、瀋陽市、上海市・広州市) (Table 4.1、Fig. 4.1a) の PM<sub>2.5</sub> 濃度の日平均値を用いた。

国内の観測データには、下記の 2 つの観測データを用いた。

- 環境省環境研究総合推進費「5B-1101 全国の環境研究機関の有機的連携による PM<sub>2.5</sub> 汚染の実態解明と発生源寄与評価」で実施された大気エアロゾル化学成分連続自動分析装置 ACSA-07 (紀本電子工業株式会社製) による離島 (隠岐) (Table 4.1、Fig. 4.1a) での PM<sub>2.5</sub> 質量濃度、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度の観測データ (<http://www.nics.go.jp/pmdep/ctype/>)。
- 2013 年度に地方自治体により実施された PM<sub>2.5</sub> の成分測定 (環境省, 2018e) データのうち、PMF 解析に用いた東海・近畿地域の 11 地点の PM<sub>2.5</sub> 成分観測データ (Fig. 4.2)。

### (2) 国外の PM<sub>2.5</sub> 質量濃度

中国 4 都市における PM<sub>2.5</sub> 質量濃度の日変動について、観測値と計算値の比較を Fig. 4.8 に、統計指標による比較結果を Table 4.9 に示す。各都市の計算値は観測値と良く一致 (北京 : IA = 0.78、 $n = 364$ 、瀋陽 : IA = 0.77、 $n = 313$ 、上海 : IA = 0.79、 $n = 363$ 、広州 : IA = 0.77、 $n = 361$ ) していた。また、Fig. 4.8 に示すように各都市とも通年において、PM<sub>2.5</sub> 質量濃度ピークのタイミングも良好に再現されていた。MBE の値は北京が  $-18.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、瀋陽が  $-9.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$  であり、年間を通じて過小評価傾向にあった。特に、10 月から 3 月にかけて発生した PM<sub>2.5</sub> の高濃度ピークを CMAQ では大幅に過小評価していた。一方、上海の MBE の値は、 $11.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、広州は  $5.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$  と、年間を通じて CMAQ は観測値を過大評価する傾向を示した。CMAQ は、6 月から 8 月にかけて PM<sub>2.5</sub> 濃度を過大評価する日が多数存在していた。国外 PM<sub>2.5</sub> 濃度について、CMAQ が過大評価、過小評価していることが、東海・近畿地域 (D3 領域) にどのように影響するかについては、以降でさらに検証する。

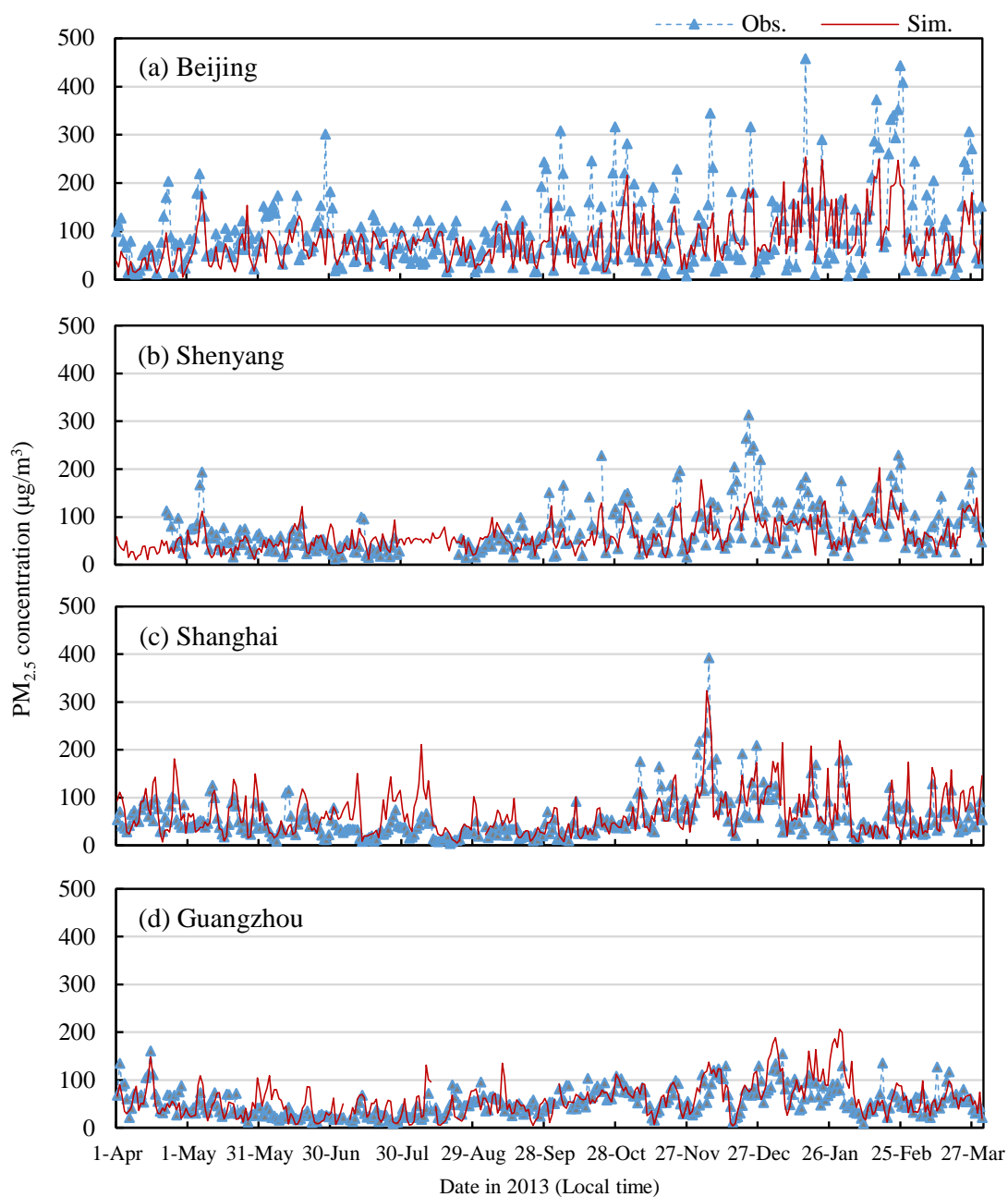
**Table 4.8** Statistical comparisons between observed and simulated daily mean PM<sub>2.5</sub> or SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> concentrations at the observation sites in JFY2013 where are Beijing, Shenyang, Shanghai, and Guangzhou in China and Oki in Japan.

	East Asia (D1)				Japan (D2)	
	Beijing <sup>a</sup>	Shenyang <sup>a</sup>	Shanghai <sup>a</sup>	Guangzhou <sup>a</sup>	Oki <sup>b</sup> (PM <sub>2.5</sub> )	Oki <sup>b</sup> (SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> )
Sample number	364	313	363	361	332	324
Mean Obs. (μg/m <sup>3</sup> )	98.1	72.8	55.4	53.7	13.9	4.1
Mean Sim. (μg/m <sup>3</sup> )	79.8	63.0	67.0	59.6	7.0	3.6
<i>R</i>	0.72	0.67	0.66	0.62	0.78	0.75
MBE (μg/m <sup>3</sup> )	-18.3	-9.8	11.6	5.9	-6.9	-0.5
NMB	-0.18	-0.13	0.21	0.11	-0.50	-0.12
RMSE (μg/m <sup>3</sup> )	57.1	38.1	38.9	30.1	8.5	2.6
IA	0.78	0.77	0.79	0.77	0.72	0.86

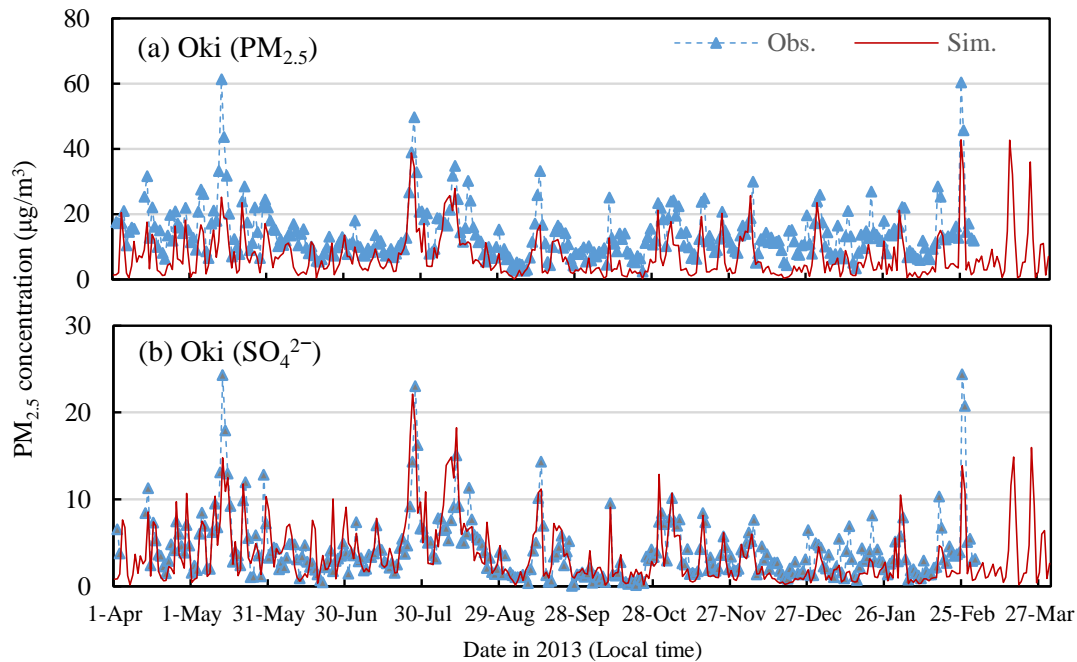
<sup>a</sup>The daily mean values are for dates in CST (UTC+8).

<sup>b</sup>The daily mean values are for dates in JST (UTC+9).

The grid cell corresponding to each observation site.



**Fig. 4.8** Time series of the observed and simulated daily mean PM<sub>2.5</sub> concentrations in (a) Beijing, (b) Shenyang, (c) Shanghai, and (d) Guangzhou in China. Dates are in CST (UTC+8). The line shows the simulated values at the grid cell corresponding to each observation site, whereas triangles show the observed values.



**Fig. 4.9** Time series of the observed and simulated daily mean concentrations of (a) PM<sub>2.5</sub> and (b) SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> in Oki. Dates are in JST (UTC+9). The line shows the simulated values at the grid cell corresponding to each observation site, whereas triangles show the observed values.

### (3) 隠岐におけるPM<sub>2.5</sub>質量およびPM<sub>2.5</sub>中のSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度

次に、隠岐におけるPM<sub>2.5</sub>濃度について確認する。隠岐は、D3領域とアジア大陸の中間に位置 (Fig. 4.1、Table 4.1) する離島であり、季節風等による大気汚染物質の広域輸送、例えば、化石燃料の燃焼に伴うSO<sub>2</sub>が輸送過程で酸化され、粒子化する等の現象解析に適した地点である。

PM<sub>2.5</sub>質量濃度及びPM<sub>2.5</sub>中のSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度の日変動について、観測値と計算値の比較を Fig. 4.9 に、統計指標による比較結果を Table 4.8 に示す。PM<sub>2.5</sub>質量濃度の計算値は観測値と時間変動の傾向についてはよく一致しており、IA = 0.72 で濃度ピークのタイミングの再現性も良好であった。しかし、NMB の値は-0.50 であり、年間を通じて大幅に過小評価していた。これはCMAQ が5月に発生している高濃度ピーク時の濃度を大幅に過小評価していることに加え、通年でのPM<sub>2.5</sub>質量濃度も常に過小評価していたことが影響している。

PM<sub>2.5</sub>中のSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度の計算値も観測値とよく一致しており、IA = 0.86 であり、濃度ピークのタイミングの再現性も良好であった。また、NMB の値は-0.12 でPM<sub>2.5</sub>質量濃度のNMB よりも遙かに小さく、過小評価傾向にあるものの、PM<sub>2.5</sub>質量濃度よりも再現性は良好であった。また、前述の中国4都市の計算値と比較しても、IA の値が最も高く、CMAQ の計算

値が観測値と最も一致していた。以上から、隠岐では PM<sub>2.5</sub> 質量濃度を過小評価する傾向にあるものの、広域輸送される PM<sub>2.5</sub> 中の SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 濃度については総じて良好に再現されていた。

#### (4) 東海・近畿地域における PM<sub>2.5</sub> 質量および PM<sub>2.5</sub> 成分濃度

PM<sub>2.5</sub> の成分分析が行われた東海・近畿地域の 11 地点 (Table 4.1) における PM<sub>2.5</sub> 濃度ならびに主要 5 成分 (SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、OA、EC) の観測値と計算値の季節平均値の比較を散布図で Fig. 4.10 に示す。Table 4.9 に、各成分の日平均値を全地点分集計し、統計指標を算出した結果を示す。また、11 地点の中央に位置する京都府久御山市 (Table 4.1 内で Site 6 と表記) を D3 領域の代表地点として、PM<sub>2.5</sub> 濃度ならびに主要 5 成分の日平均値の時系列変化を Fig. 4.11 に示す。以下では、成分ごとに観測値と計算値を比較する。

- PM<sub>2.5</sub> 質量濃度
 

地点別の季節平均値では、計算値は観測値の 1/2 から 2 倍の範囲内に収まっていた (Fig. 4.10a)。さらに、IA の値が 0.80 (Table 4.9) を示したことから、CMAQ は PM<sub>2.5</sub> 質量濃度を良好に再現していると考えられた。NMB の値は -0.20 で、年間を通じて CMAQ は過小評価傾向を示した。特に、冬期に過小評価されている傾向が強かった (Fig. 4.10a)。実際、久御山市における計算値も冬期は総じて観測値よりも低い値を推移していた (Fig. 4.11a)。
- SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>

地点別の季節平均値では、計算値は観測値の 1/2 から 2 倍の範囲内に収まっていた (Fig. 4.10b)。さらに、IA の値が 0.89 (Table 4.9) を示したことから、CMAQ は SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 濃度を良好に再現していると考えられた。NMB の値は -0.068 であり、年間を通じて CMAQ は過小評価傾向を示したものの、PM<sub>2.5</sub> 質量濃度の NMB の値よりは低かった。また、季節による明確な再現性の違い (過大評価および過小評価など) は確認されなかった (Fig. 4.10b)。
- NO<sub>3</sub><sup>-</sup>

地点別の季節平均値では、計算値は冬期を除いて観測値の 1/2 から 2 倍の範囲内に収まらず、全て過大評価となった (Fig. 4.10c)。また、IA の値は 0.32 (Table 4.9) で、日平均値の時系列変化も、計算値と観測値は冬期を除いて著しく乖離 (CMAQ が過大評価) していた (Fig. 4.11c)。前述のとおり、PM<sub>2.5</sub> 中のイオン成分測定はフィルタによる 24 時間捕集後、イオン成分を抽出し、濃度測定が行われる。NO<sub>3</sub><sup>-</sup> 等の半揮発性成分は気温が高い時期や場所では大部分がフィルタから揮散して捕集されないことは、大気中微小粒子状物質 (PM<sub>2.5</sub>) 成分測定マニュアル (環境省, 2012) でも指摘されており、暖候期 NO<sub>3</sub><sup>-</sup> の過大評価の一因であると考えられた。
- NH<sub>4</sub><sup>+</sup>

地点別の季節平均値では、計算値は観測値の 1/2 から 2 倍の範囲内に収まっていた (Fig. 4.10d)。さらに、IA の値が 0.75 (Table 4.9) を示したことから、CMAQ は NH<sub>4</sub><sup>+</sup> 濃度を良

好に再現していると考えられた。NMB の値は 0.21 で、CMAQ は冬期に過小評価傾向が強く、それ以外の季節では過大評価傾向が強い特徴が見られた (Fig. 4.10d)。CMAQ の過大評価の要因として、対イオンとなる NO<sub>3</sub><sup>-</sup>が暖候期に過大評価されていることが影響していると考えられた。

- OA

地点別の季節平均値では、計算値は夏期の一部を除いて観測値の 1/2 から 2 倍の範囲内に収まらなかった (Fig. 4.10e)。また、IA の値は 0.45 (Table 4.9) で、NMB の値は-0.75 であり、年間を通じて CMAQ は著しく過小評価していた。CMAQ の過小評価の要因としては、秋期の過小評価傾向が強いことから、観測地点周辺で発生した農業廃棄物の焼却行為の影響が一因と考えられた。先行研究において、二次生成した有機炭素成分 (SOA) の計算値が観測値の約 1/5 に過小評価されるという報告 (Matsui et al., 2009) がされており、その要因として、SOA の原因物質 (VOC) の排出や SOA の生成過程に対する科学的な知見不足等も指摘されている (伏見ら, 2011)。以上から、OA の再現性不良については今後の課題とする。なお、久御山市における計算値が日平均値も観測値を再現できていない (Fig. 4.11e) 要因として、観測地点周辺に点在する農地で行われた野焼きの影響が考えられた。

- EC

地点別の季節平均値では、計算値は観測値の 1/2 から 2 倍の範囲内に収まっていた (Fig. 4.10e)。さらに、IA の値が 0.74 (Table 4.9) を示したことから、CMAQ は EC 濃度を良好に再現していると考えられた。NMB の値は-0.21 であり、年間を通じて過小評価傾向を示した。しかし、季節による明確な特徴の違い (過大評価および過小評価など) は確認されなかった (Fig. 4.10f)。

- 以上から、D3 領域内の 11 地点については、CMAQ は PM<sub>2.5</sub>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、EC の濃度を良好に再現しており、初期・境界条件に全球化学輸送モデルの計算結果を用いなかった影響及び使用した排出インベントリの推計年度の乖離については、解析対象期間 (2013 年度)および対象区域 (D3 領域内) において、大きな影響はないと考えられた。

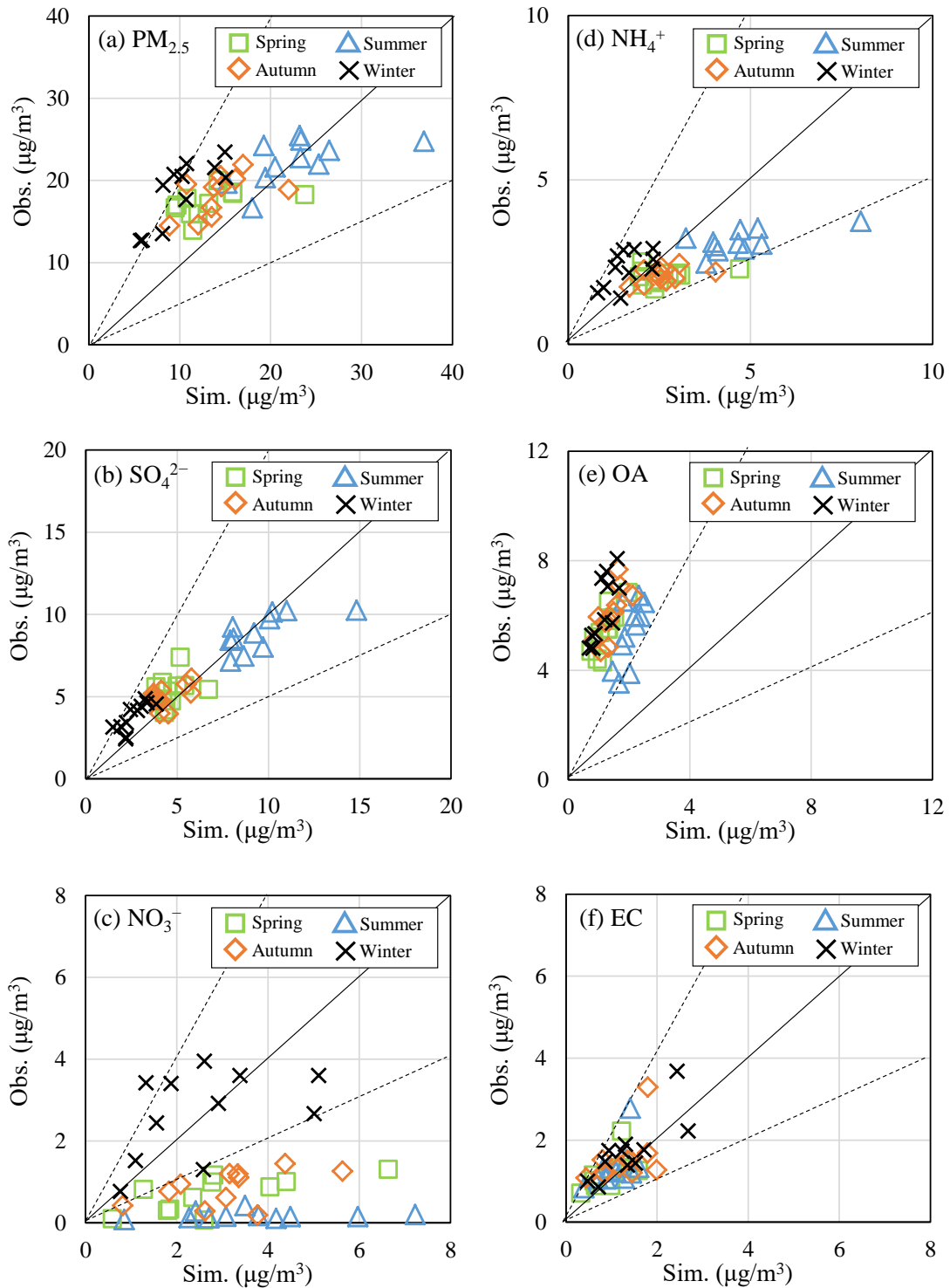


**Table 4.9** Statistical comparisons between observed and simulated daily mean PM<sub>2.5</sub> mass and components at the 11 sites in Kinki–Tokai district in Japan.

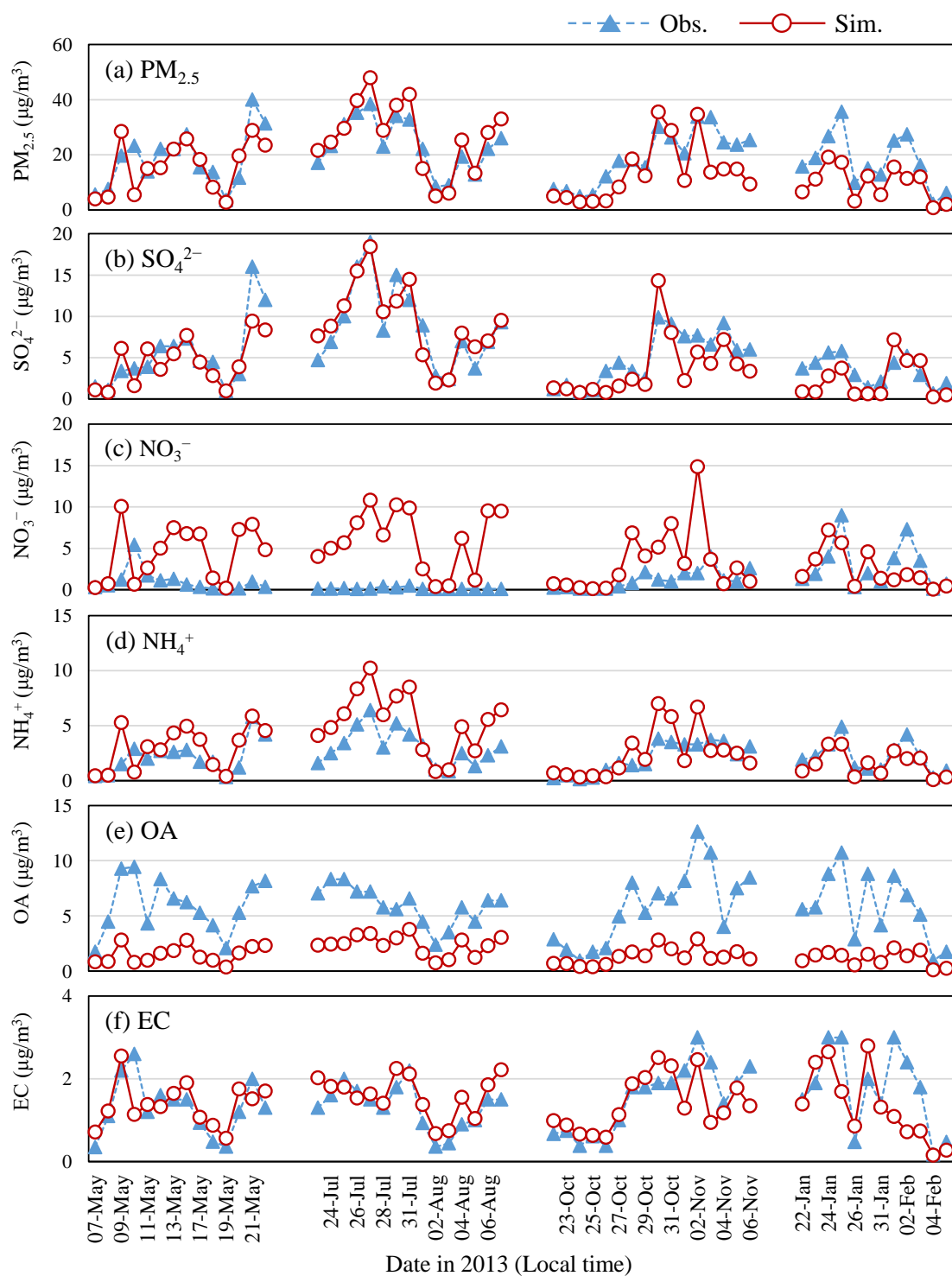
	PM <sub>2.5</sub>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	OA	EC
Sample number	591	591	591	591	591	591
Mean Obs. (µg/m <sup>3</sup> )	19.1	5.8	1.1	2.4	5.7	1.4
Mean Sim. (µg/m <sup>3</sup> )	15.2	5.4	3.0	2.9	1.5	1.1
<i>R</i>	0.71	0.80	0.14	0.68	0.53	0.62
MBE (µg/m <sup>3</sup> )	-3.9	-0.4	1.9	0.5	-4.3	-0.3
NMB	-0.20	-0.068	1.7	0.21	-0.75	-0.21
RMSE (µg/m <sup>3</sup> )	8.8	2.7	4.0	1.8	4.8	0.8
IA	0.80	0.89	0.32	0.75	0.45	0.74

<sup>a</sup>The daily mean values are for dates in JST (UTC+9).

The grid cell corresponding to each observation site.



**Fig. 4.10** Scatter plots for the observed and simulated seasonal mean concentrations of PM<sub>2.5</sub> and its major components at the 11 sites: (a) PM<sub>2.5</sub>, (b) SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, (c) NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, (d) NH<sub>4</sub><sup>+</sup>, (e) OA, and (f) EC. Open squares, open triangles, open diamonds, and crosses show mean concentrations during spring, summer, autumn, and winter, respectively. Reference lines for 1:1, 1:2, and 2:1 are provided.



**Fig. 4.11** Time series of the observed and simulated daily mean concentrations of (a) PM<sub>2.5</sub>, (b) SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, (c) NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, (d) NH<sub>4</sub><sup>+</sup>, (e) OA, and (f) EC at Kumiyama (called Site 6 in Table 4.1). Dates are in JST (UTC+9). Open circles show the simulated values at the grid cell corresponding to Kumiyama, whereas the triangles show the observed values.

### 4.2.3 PM<sub>2.5</sub>濃度の発生源寄与推計

CMAQ による PM<sub>2.5</sub> 発生源寄与推計にはゼロアウト法 (CMAQ/BFM) を用いた。ゼロアウト法は、全排出量を使用した計算ケース (Base) に加えて、寄与を推計したい発生源の排出量をゼロとした計算ケースの計算を実行し、両ケースで計算された濃度の差分をその発生源の寄与とする方法である。ゼロアウト法は、対象とする二次粒子濃度が前駆物質の排出量に対して線形的に応答しない場合、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>等の二次粒子濃度に対する発生源の寄与を正確に割り当てられないことが報告されている (茶谷ら, 2011; Kwok et al., 2013)。しかし、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>および EC の寄与推計にゼロアウト法を適用した場合は、タグ付きトレーサー法の結果とほぼ一致する (Kwok et al., 2013) ことや、ゼロアウト法で推計した各排出量寄与の合計と Base ケースの濃度とがほぼ一致する (茶谷ら, 2011) ことが報告されていることから、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>および EC の寄与推計については、発生源推計手法の違いは考慮する必要がないと考えられた。CMAQ の性能評価でも、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>および EC の再現性が良好であるため、両物質を中心に各発生源の寄与解析を進める。

寄与推計の対象となる発生源は、CMAQ の入力データである排出インベントリと PMF モデルが抽出した因子の間に高い関連があるものである必要がある。そのため、Table 4.10 に示す 4 つの発生源の寄与を推計した。具体的には、国外人為起源排出、日本周辺の船舶排出、国内の自動車からの排出、国内のバイオマス燃焼排出である。これら以外の排出源からの寄与 (Others) としては、植物起源の排出、国外のバイオマス燃焼排出、国内の焼却炉等からの燃焼起源排出、航空機からの排出、塗料等からの蒸発性 NMVOC の排出、畜産業、施肥等からの NH<sub>3</sub> の排出等が該当する。これらはその他の寄与として、Base ケースと 4 つの発生源寄与の差分を Table 4.10 に集計した。各発生源からの寄与推計結果については、観測値を基に発生源寄与推計をおこなう PMF モデルによる寄与推計結果を基準とした、次項で考察する。

## 4.3 両モデルを併用した PM<sub>2.5</sub>発生源寄与解析

Table 4.10 に、PMF と CMAQ 双方に共通する 4 つの発生源の寄与推計結果 (全 11 地点の年平均値) を示す。4 つの発生源に含まれない寄与については、CMAQ はその他 (Others)、PMF は⑥土壌、工業系粉じんと⑦硝酸系二次粒子とした。PM<sub>2.5</sub> 濃度への寄与を比較した場合、4 つの排出源のうち、硫酸系二次粒子 (国外人為起源排出)、重油燃焼 (日本周辺の船舶排出)、道路交通 (国内の自動車からの排出) については、両モデルの寄与推計値に差はあるものの、硫酸系二次粒子の寄与が一番大きく、次いで重油燃焼もしくは、道路交通からの寄与が大きいという傾向は一致していた。しかし、バイオマス燃焼の寄与については

CMAQ が大きく過小評価していた。EC 濃度の寄与を比較した場合、4 つの排出源のうち、硫酸系二次粒子、重油燃焼、道路交通の両モデルの寄与順は一致していた。しかし、バイオマス燃焼の寄与については CMAQ が大きく過小評価していた。また、CMAQ と PMF の 11 地点の季節平均値 (11 × 4 = 44) の相関係数も、成分に関係なく、硫酸系二次粒子、重油燃焼、道路交通はいずれもバイオマス燃焼よりも高い値を示した。以上から、両モデルのバイオマス燃焼寄与に何らかの乖離があると考えられた。

この要因をさらに考察するため、CMAQ および PMF の季節別排出源寄与を比較した。結果を Fig. 4.12 に示す。また、両モデルが推計した地点別の季節別排出源寄与を散布図にしたものを Fig. 4.13 に示す。以下では、PM<sub>2.5</sub>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、EC に注目して、各発生源における両モデルの寄与推計結果の違いを考察する。

- 硫酸系二次粒子

季節別排出源寄与 (Fig. 4.12) は、CMAQ が PM<sub>2.5</sub>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>を過小評価する傾向にあったが、両モデルの四季の変動は類似していた。散布図 (Fig. 4.13a, b, c) でも CMAQ による発生源寄与推計値は、PMF による発生源寄与推計値の概ね 1/2 から 2 倍の範囲内に収まっており、両モデルの相関係数の値も高かった (PM<sub>2.5</sub> は  $R = 0.91$ 、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> は  $R = 0.92$  (Table 4.10))。以上から、両モデルは国外人為起源排出により生成した硫酸系二次粒子の寄与を捉えており、両モデルの結果の整合性は高いと考えられた。

- 道路交通

季節別排出源寄与 (Fig. 4.12) は、両モデルとも季節変動は少ないものの、PM<sub>2.5</sub>、EC の濃度レベルは両モデルとも同レベルで推移していた。また、散布図 (Fig. 4.13g, i) でも CMAQ による発生源寄与推計値は、PMF による発生源寄与推計値の概ね 1/2 から 2 倍の範囲内に収まっており、両モデルの相関係数の値も高かった (PM<sub>2.5</sub> は  $R = 0.75$ 、EC は  $R = 0.75$  (Table 4.10))。一方、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>は両モデルとも、ほとんど寄与がみられなかった。この要因として、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の前駆物質である SO<sub>x</sub> の自動車からの排出量が他の排出源と比較して非常に少ない (D3 領域内の SO<sub>x</sub> 総排出量は 204 Gg/year に対して、自動車からの排出は 0.32 Gg/year) ことが影響していると考えられた。以上から、両モデルが自動車から排出の寄与を捉えており、両モデルの結果の整合性は高いと考えられた。

- 重油燃焼

季節別排出源寄与 (Fig. 4.12) は、夏期に両モデルの濃度レベルに差がみられるものの、両モデルの相関係数は比較的高い値を示していた (SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> は  $R = 0.53$ 、EC は  $R = 0.61$  (Table 4.10))。また、散布図 (Fig. 4.13d, e, f) では、夏期の一部の地点で両モデルの結果が大きく乖離していた。この要因として、CMAQ の計算に用いた船舶排出量の推計年次が 2005 年と古く、船舶排出量が過大となっていた可能性が挙げられる。船舶排出量の推移については、国土交通省による内航船舶輸送統計調査で、2005 年度の内航海運による C 重油消費量が 287 万 kL だったのに対し、2013 年度は 156 万 kL と消費量が 46 %

減少していることが報告されている(国土交通省, 2018)。ただし、統計の調査対象が総トン数20トン以上の船舶を使用する内海運送事業者に限られ、地域別の統計値が利用できないことから、本結果と直接照らし合わせることは困難であることに留意する必要がある。また、PMFモデルは、大阪湾周辺に位置する3地点(須磨、灘浜、泉大津)のうち、泉大津(Site 9)の重油燃焼寄与をかなり低く推計しており、観測に起因する問題が含まれている可能性を示唆していた。実際に、泉大津を除外して両モデルの相関係数を算出した場合、PM<sub>2.5</sub>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、ECともに相関係数が上昇することが確認された(Table 4.10)。以上から、両モデルが重油燃焼の寄与を捉えており、両モデルの結果は整合していると考えられた。

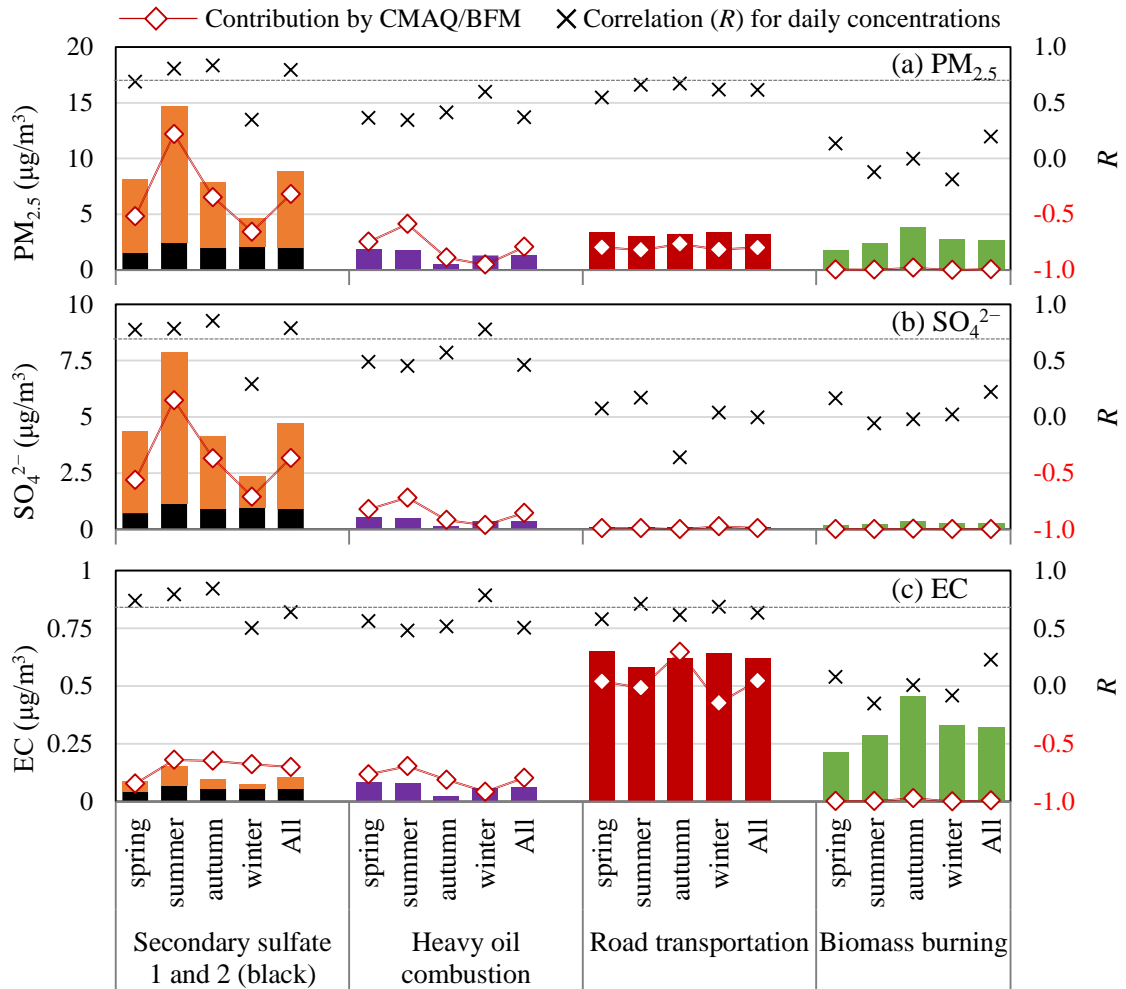
- バイオマス燃焼

季節別排出源寄与(Fig. 4.12)は、PMFの寄与推計結果に対して、CMAQは季節に関係なくほとんど寄与が見られなかった。両モデルの相関係数も上記の3つの発生源と比較して著しく低い値を示した(PM<sub>2.5</sub>は $R=0.26$ 、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>は $R=0.09$ 、ECは $R=0.31$ (Table 4.10))。また、散布図(Fig. 4.13j, k, l)でもCMAQによる発生源寄与推計値は、地点・季節に関係なく、PMFモデルによる発生源寄与推計値の1/2から2倍の範囲から外れていた。特に、秋期のECの寄与推計値の乖離が大きくなっている(Fig. 4.12, Fig. 4.13l)。一般的に、秋は稲わら等の野焼きが不定期におこなわれる時期であり、野焼きがPM<sub>2.5</sub>濃度を上昇させる可能性も指摘されている(環境省, 2015)。国内における野焼きがPM<sub>2.5</sub>濃度に影響を与える事例については、先行研究(Kumagai et al., 2010; Ikemori et al., 2016)による報告もあることから、観測値を基に発生源寄与を導出するPMFモデルの結果の信頼性は、CMAQよりも高いと考えられた。CMAQでは、野焼きによる排出データとして、EAGrid2000-Japanを利用している。EAGrid2000-Japanでは、野焼きによる排出量を見積もるために、作物別の農業残差量、野焼きの頻度に加え、農林水産省の調査に基づく稲わらの焼却量等を利用している。東海・近畿地域はFig. 4.14a(国土数値情報ダウンロードサービスのデータを基に作図、<http://nlftp.mlit.go.jp/ksj-e/index.html>)に示すように農地が点在しており、小規模な野焼きが各地で発生する可能性があり、EAGrid2000-Japanによる推計(Fig. 4.14b)でも、点在する農業地域からの野焼きが適切に推計されているように見受けられる。しかし、点在する農地で行われる野焼きの規模、回数、場所を正確に把握することは困難であり、排出量を推計する際に利用できるような統計資料は著者の知る限り存在しない。ゆえに、バイオマス燃焼由来の排出量は不確実性が高く、今回のようにCMAQによる推計値が著しく過小評価するに至ったと考えられた。以上から、CMAQの推計値は、PMFモデルによるバイオマス燃焼寄与を著しく過小評価しており、両モデルの結果の不整合は、CMAQが利用したバイオマス燃焼排出量が過小評価されていたことが原因と考えられた。

**Table 4.10** Summary statistics (avg. ± st. dev.) of seasonal contributions to PM<sub>2.5</sub> for sources commonly recognized by PMF and CMAQ/BFM at the 11 sites in Kinki-Tokai district in Japan (CMAQ/BFM: normal typing; PMF: italic typing).

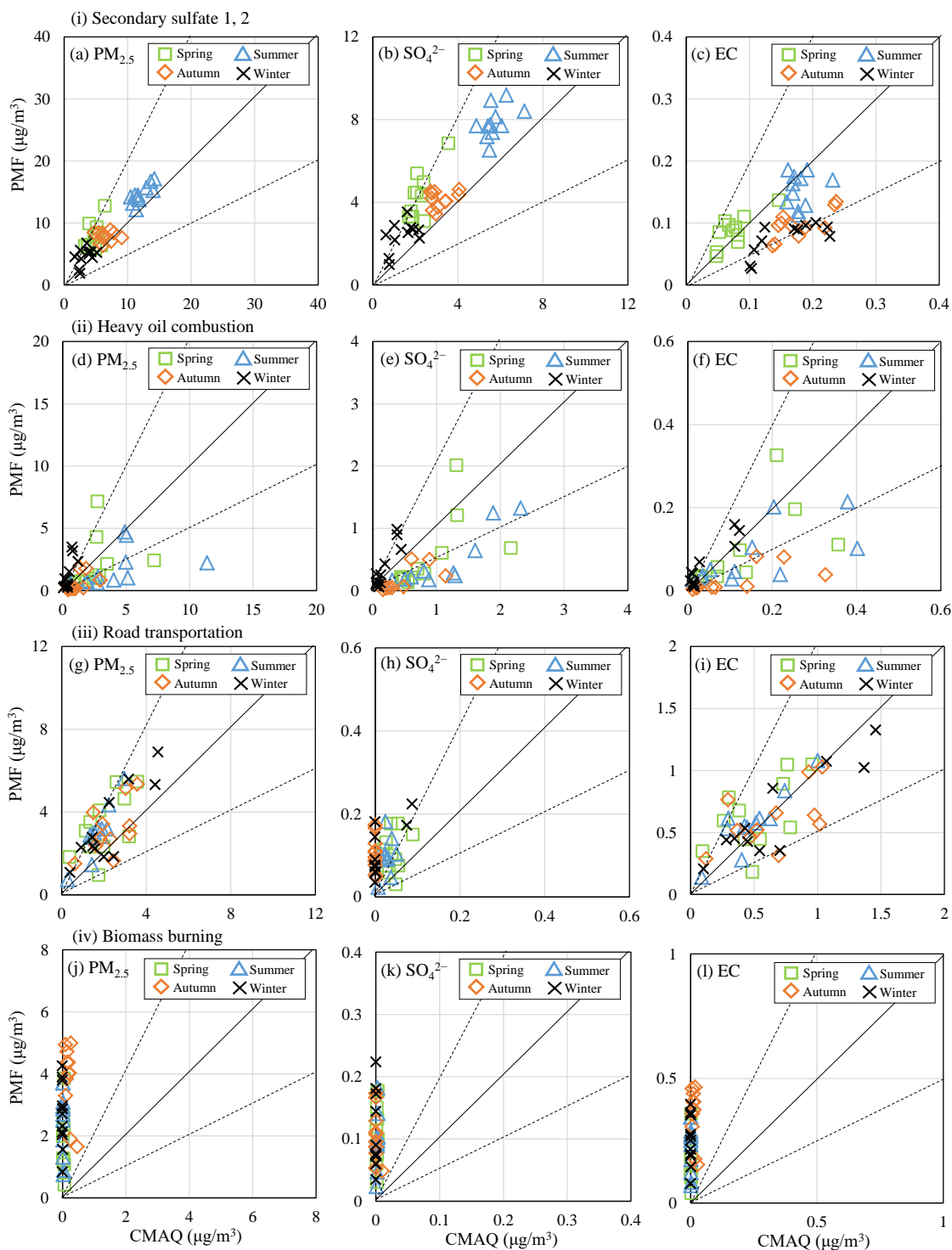
CMAQ emission sources	Corresponding to PMF factors	Site-averaged contribution (µg/m <sup>3</sup> ) CMAQ/BFM, <i>PMF</i>			Site-by site correlation <i>R</i> ( <i>n</i> = 44)		
		PM <sub>2.5</sub>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	EC	PM <sub>2.5</sub>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	EC
1 Anthropogenic emission outside Japan	Secondary sulfate 1,	6.7 ± 3.6	3.1 ± 1.7	0.15 ± 0.05	0.91	0.92	0.50
	Secondary sulfate 2	8.8 ± 4.0	4.7 ± 2.2	0.10 ± 0.04			
2 Ship	Heavy oil	2.1 ± 2.2	0.7 ± 0.8	0.10 ± 0.11	0.41	0.53	0.61
	combustion	1.4 ± 1.5	0.4 ± 0.4	0.06 ± 0.07			
3 Domestic automobile	Road transportation	2.1 ± 1.0	0.01 ± 0.03	0.58 ± 0.33	0.75	0.31	0.75
		3.2 ± 1.4	0.10 ± 0.05	0.62 ± 0.28			
4 Biomass burning	Biomass burning	0.06 ± 0.09	0.01 ± 0.01	0.00 ± 0.01	0.26	0.09	0.31
		2.67 ± 1.26	0.10 ± 0.05	0.25 ± 0.12			
Others	Secondary nitrate,	4.2 ± 1.6	1.5 ± 0.8	0.27 ± 0.14	0.09	-0.25	0.23
	Soil and industrial dust	3.2 ± 3.0	0.3 ± 0.4	0.25 ± 0.22			

<sup>a</sup>Site-by-site correlation for the observation sites except Izumiotsu (*n* = 40).

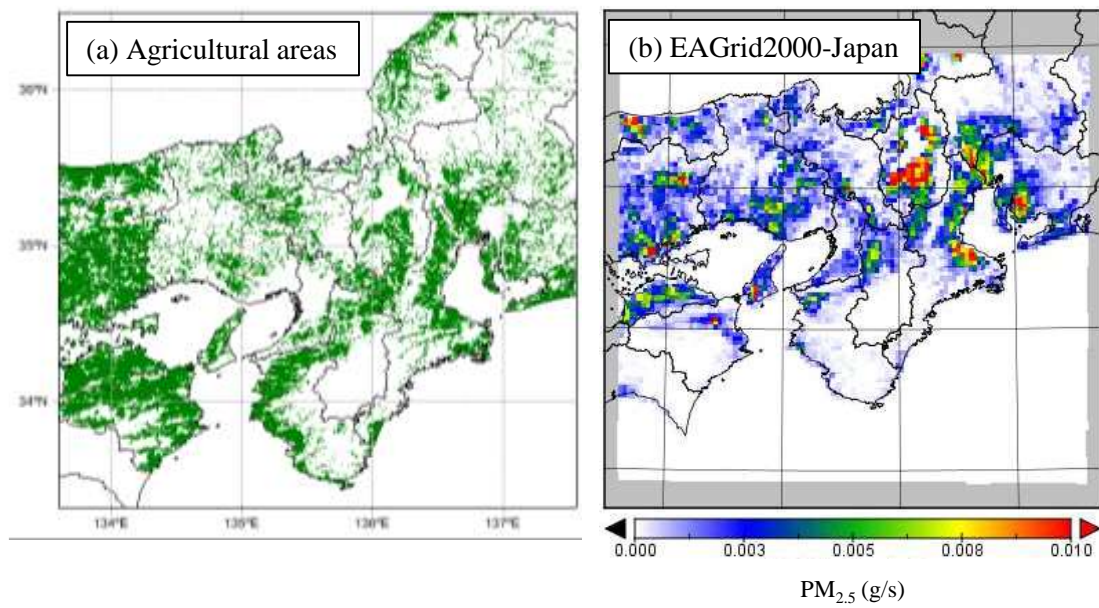


**Fig. 4.12** Comparison of the PM<sub>2.5</sub> source apportionment by PMF and CMAQ/BFM. Each bar shows the seasonal mean PM<sub>2.5</sub> components of each factor classified by PMF at the 11 sites: (a) PM<sub>2.5</sub> mass, (b) SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, and (c) EC. Open diamonds show the seasonal mean concentration of the contribution of each emission source by CMAQ/BFM as shown in Table 4.10. The crosses show the correlation (*R*) for daily concentrations between PMF and CMAQ/BFM. Reference lines at 0.7 are provided for *R*.





**Fig. 4.13** Comparison of the seasonal contributions for PM<sub>2.5</sub>, SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, and EC at the 11 sites for the sources common to PMF and CMAQ/BFM: (i) secondary sulfates, (ii) heavy oil combustion, (iii) road transportation, and (iv) biomass burning. Open squares, open triangles, open diamonds, and crosses show spring, summer, autumn, and winter, respectively. Reference lines for 1:1, 1:2, and 2:1 are provided.



**Fig. 4.14** (a) Agricultural areas highlighted by the green dot in the Kinki-Tokai district. (b) Spatial distributions of seasonal mean PM<sub>2.5</sub> emissions from biomass burning in the autumn in EAGrid2000-Japan in D3

## 4.4 まとめ

本章では、2013 年度の東海・近畿地域を対象に PMF モデルと CMAQ を用いた PM<sub>2.5</sub> 発生源解析をおこなった。PMF モデルに入力する観測データとして、2013 年度に地方自治体により実施された PM<sub>2.5</sub> の成分測定 (環境省, 2018e) データのうち、東海・近畿地域の 11 地点の PM<sub>2.5</sub> 成分観測データを用いた。PMF モデルによる解析結果から、11 地点の PM<sub>2.5</sub> 観測データに影響を与えている 7 つの因子 (硫酸系二次粒子 1、硫酸系二次粒子 2、重油燃焼、道路交通、バイオマス燃焼、土壌・工業系粉じん、硝酸系二次粒子) を特定した。

同時に、同領域内の PM<sub>2.5</sub> 発生源解析を CMAQ とゼロアウト法を用いて実施するため、CMAQ の性能評価を実施した。CMAQ による PM<sub>2.5</sub> 計算値は、日本国内外で概ね良好な再現性を示した。特に、隠岐における SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 観測値の再現性は IA = 0.86 と良好な結果を示し、アジア大陸から広域輸送される PM<sub>2.5</sub> 中の SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 濃度については総じて良好に再現されていると考えられた。PM<sub>2.5</sub> の成分分析が行われた東海・近畿地域の 11 地点 (Table 4.1) における PM<sub>2.5</sub> 濃度ならびに主要 5 成分 (SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、OA、EC) の中で、CMAQ は、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、OA をそれぞれ過大評価、過小評価したものの、PM<sub>2.5</sub> 濃度、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、EC の濃度変化を良好に再現していた。

最後に、両モデルに共通する 4 つの発生源 (硫酸系二次粒子、重油燃焼、道路交通、バイオマス燃焼) の寄与推計結果について比較をおこなった。両モデルは硫酸系二次粒子、重油燃焼、道路交通の寄与については、整合していることが確認されたが、バイオマス燃焼寄与については大きく乖離していた。この要因として、東海・近畿地域は農業地域が点在しており、野焼きの発生規模、回数、場所の特定が現段階では困難で、排出インベントリによる正確な推計が困難であることが影響していると考えられた。このように両者モデルの結果を比較することにより、化学輸送モデルの計算に必要な排出インベントリの不確実性を特定することが可能であることを本章では示した。このように複数のモデルを組み合わせた発生源寄与解析を行うことで、両モデルの解析結果の信頼性を向上させることができると考えられる。

## 第5章 国外バイオマス燃焼による国内PM<sub>2.5</sub>濃度への影響

---

本章では、PMFモデルとCMAQを組み合わせたPM<sub>2.5</sub>の発生源寄与解析の適用事例として、バイオマス燃焼に主眼を置いた発生源寄与解析を行った。バイオマス燃焼は、森林火災、農作業に伴う野焼き等が発生源であり、その発生頻度及び規模等の特定が困難であることから、排出量インベントリの不確実性増加、化学輸送モデルの再現性低下を誘発させやすい (Pimonsree et al., 2017; Vonguang et al., 2017)。「第4章第4.3節 両モデルを併用したPM<sub>2.5</sub>発生源解析」においても、東海・近畿地域の野焼き (バイオマス燃焼) 排出量が過小評価されている可能性を指摘している。一方、バイオマス燃焼は世界の至る所で発生しており、大規模なバイオマス燃焼が発生した場合、国外 (アジア大陸) から海を渡って日本 (沖縄) へ広域輸送されるという事例 (Zhu et al., 2015) も報告されている。そこで、2014年秋季 (10/20~11/9、以下、「解析対象期間」という。) に中国東北部 (Northeast China, 以後NE China という。遼寧省、吉林省、黒竜江省の東北三省を指す。) で発生した農作業に伴うバイオマス燃焼によるPM<sub>2.5</sub>が能登半島へ広域輸送された事例 (Ikemori et al., 2018) について注目し、CMAQによるPM<sub>2.5</sub>の広域輸送解析を実施した。農作業に伴う野焼きは、農業が盛んな地域において作物収穫後に発生する作物残渣の処分のためにおこなわれることが多い。中国は農業が盛んで野焼きによる大気汚染物質の排出量が多く、PM<sub>2.5</sub>の排出量は0.88 Tg/year (2008年) と推計されている (Ni et al., 2015)。中国におけるPM<sub>2.5</sub>総排出量は、14.5 Tg/year (2008年) と推計されている (Kurokawa et al., 2013) ことから、その6%が野焼きによるPM<sub>2.5</sub>排出量が占めている。ただし、作物収穫後の野焼きは発生する時期が特定されるため、PM<sub>2.5</sub>総排出量に占める割合はさらに高くなり、野焼きがPM<sub>2.5</sub>濃度に与える影響がさらに大きくことが予想される。また、アメリカ航空宇宙局のFIRMS (NASA Fire Information for Resource Management System, <https://earthdata.nasa.gov/earth-observation-data/near-real-time/firms>) で提供されているホットスポット (≒火災) データでも、2014年秋季に中国東北部やその周辺地域で無数のホットスポットが観測されている (Fig. 5.1)。

本章では、化学輸送モデルであるCMAQの計算条件の設定、性能評価をおこない、2014年の中国国内のPM<sub>2.5</sub>濃度をCMAQが妥当に再現しているかを確認した。次に、PMFモデルで推計された能登半島におけるバイオマス燃焼起源のPM<sub>2.5</sub>濃度 (Ikemori et al., 2018) とCMAQによるバイオマス燃焼の寄与推計結果とを組み合わせ、国外のバイオマス燃焼の広域輸送が国内PM<sub>2.5</sub>濃度にどのような影響を与えているかを推計した。なお、CMAQによるバイオマス燃焼によるPM<sub>2.5</sub>濃度に対する寄与推計には第3章、第4章と同じくゼロアウト法を用いた。以降、本章の本文中ではバイオマス燃焼 (Biomass burning) をBBと表現する。

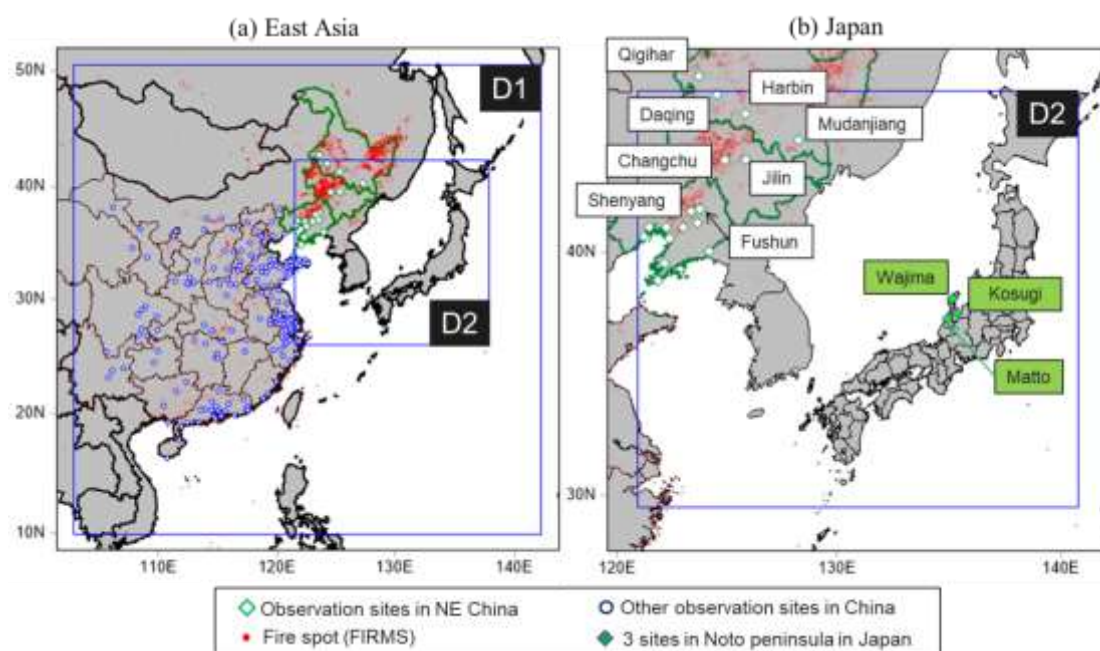
## 5.1 CMAQ による PM<sub>2.5</sub> の広域輸送解析

### 5.1.1 計算領域と計算条件

#### (1) 計算領域と計算期間

CMAQ の計算領域 (Fig. 5.1) は、計算負荷を考慮しつつ、東アジア域は、中国東北部および、大規模な森林火災が観測されている東南アジアを網羅し、かつ日本域は国外の BB による PM<sub>2.5</sub> が広域輸送される範囲を把握できるように設定した。具体的には、東アジア域 (D1、60 km 格子)、日本域 (D2、15 km 格子) とし、鉛直層は地表面から上空 100 hPa までを 34 層に分割した。Fig 5.1 に示されている中国東北部の PM<sub>2.5</sub> 観測地点と Ikemori et al. (2018) が PMF モデルに利用した観測地点の一覧を Table 5.1 に示す。また、WRF、CMAQ の設定の詳細を Table 5.2 に示す。

計算期間は、2013 年 12 月を助走期間として設けた後、2014 年 1 月～2014 年 12 月 (2014 年) を評価対象期間とした。



**Fig. 5.1** Modeling domains with locations of observation sites for PM<sub>2.5</sub> (listed in Table 5.1) and fire spots (MCD14DL) provided by FIRMS during the target period (October 20 – November 9 in 2014): (a) East Asia and (b) Japan. Green lines indicates the three provinces of NE China (Liaoning, Jilin, and Heilongjiang).

**(2) WRF の計算条件**

WRF の地形・土地利用データは、USGS により作成された全球データセットを使用した。

初期・境界条件として、D1 に NCEP による NCEP-FNL (CLSL Research Data Archive, 2017) および RTG-SST-HR (NCEP Real-Time SST archives, 2017) を使用した。D2 には、国内の気象場の再現性を向上させるため、海表面温度に RTG-SST-HR を使用する以外は、MSM-GPV (気象庁, 2018) を使用した。ただし、MSM-GPV で取り扱われていないデータは、NCEP-FNL を使用した。また、気圧面は MSM-GPV の気圧面に合うよう、NCEP-FNL のデータを内挿して使用した。

解析値ナッジングは全計算期間、鉛直全層に対して、風速東西・南北成分、気温、混合比についてナッジング係数  $G_{w,t,q} = 3.0 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$  を D1、D2 領域に適用した。

WRF の物理過程に関するオプション設定については、次のように設定した。

- 雲微物理過程
 

WSM6 (Hong and Lim, 2006) を用いた。本スキームでは、水蒸気、雲水、雲氷、雨水、雪、あられの 6 つの混合比と過冷却過程が考慮される。
- 積雲過程
 

Kain-Fritsch (Kain, 2004) を用いた。本スキームでは、比較的簡易な雲モデルによって上昇流・下降流を表現する。1990 年に Kain と Fritsch によって作成されたスキーム (Kain and Fritsch, 1990) から上昇流のエントレインメント率や非降水性の浅い対流雲および下降流に関する扱い等が改良されている。
- PBL 過程
 

PBL 高度から拡散係数の形を決めるノン ローカル型の YSU PBL (Hong et al., 2006) を用いた。YSU スキームは、Noh et al. (2003) をもとに PBL 上の移行層を考慮している。また WRF の version 3 では、Hong (2007) をもとに強風時に安定境界層内の混合がより促進されるよう拡散係数を算出するアルゴリズムが改良されている。
- 地表面過程
 

Noah LSM (Chen and Dudhia, 2001) を用いた。Noah LSM では、土壌は深さ 0~10、10~40、40~100、100~200 cm の 4 層に分割される。また、植生区分・割合、根域を考慮し、表面流出、蒸発散、土壌排水などの予測をもとに、土壌温度・含水率の予測を行う。さらに、積雪の状態、樹冠内の水分などの予測も行う。
- 放射スキーム
 

長波放射スキームには、Mlawer et al. (1997) の RRTM を用いた。RRTM スキームでは、長波放射スペクトルを 16 に分割し、水蒸気、O<sub>3</sub>、CO<sub>2</sub> などのガスおよび雲の光学的深さが詳細に扱われる。

また、短波放射スキームには、Dudhia (1989) のスキームを用いた。このスキームでは、太陽放射の晴天時の散乱、水蒸気による吸収 (Lacis and Hansen, 1974)、雲による反射・吸収 (Stephens, 1978) を考慮し、簡易的に下向き短波放射フラックスが予測される。

**Table 5.1** Location and classification of monitoring sites.

Domain	Place	Type <sup>a</sup>	Latitude (°N)	Longitude (°E)	Use to PMF
Northeast China (D1)	1. Qiqihar	Urban	47.35	123.92	
	2. Daqing	Urban	46.58	125.00	
	3. Harbin	Urban	45.75	126.63	
	4. Mudanjiang	Urban	44.55	129.63	
	5. Jilin	Urban	43.86	126.55	
	6. Changchun	Urban	43.88	125.35	
	7. Shenyang	Urban	41.78	123.42	
	8. Fushun	Urban	41.86	123.90	
	9. Anshan	Urban	41.11	122.98	
	10. Benxi	Urban	41.30	123.77	
	11. Dalian	Urban	38.92	121.64	
	12. Dandong	Urban	40.11	124.38	
	13. Huludao	Urban	40.71	120.83	
	14. Jinzhou	Urban	41.11	121.13	
	15. Panjin	Urban	41.11	122.05	
	16. Wafangdian	Urban	39.63	121.97	
	17. Yingkou	Urban	40.67	122.23	
Noto peninsula in Japan (D2)	Wajima	Remote	136.95	37.29	●
	Matto	Rural	136.56	36.51	●
	Kosugi	Rural	137.10	36.70	●
Other observation sites in Japan (D2)	Yawata	Urban	136.88	35.13	●
	Motoshio	Urban	136.92	35.08	●
	Nagahama	Suburban	136.27	35.39	●
	Izumiotu	Urban	135.41	34.50	●
	Yodogawa	Urban	135.56	34.73	●
	Toyooka	Rural	134.82	35.54	●
	Kobe	Suburban	135.23	34.70	●
	Tenri	Rural	135.83	34.59	●
	Kainan	Suburban	135.20	34.16	●
Seiken	Suburban	135.54	34.70	●	

<sup>a</sup>All Japanese sites in D2 are classified according to the nature of the surrounding area (urban, suburban, rural, and remote). Remote stands for the place which is not located close to any specific emission source.

**Table 5.2** WRF-ARW and CMAQ configurations

	Parameter	Settings
	Spin-up period	1 – 31 December 2013
	Simulation period	1 January 2014 – 31 December 2014
	Output interval	1 hour
	Map projection	Lambert conformal conic
	Central point	40 ° N, 120 ° E (D1, D2)
	Horizontal grid spacing	60 and 15 km
	Vertical domain	34 layers (up to 100 hPa, 1 <sup>st</sup> mid layer height $\cong$ 26 m)
WRF	Version	ARW 3.8.1
	Horizontal grid number	119 $\times$ 119 (D1) and 144 $\times$ 138 (D2)
	Topography / Landuse	30-sec USGS
	Initial and boundary	NCEP FNL, JMA MSM-GPV, and NCEP/NOAA RTG_SST_HR
	Analysis nudging	$G_{t,q,uv} = 3.0 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ (D1, D2)
	Explicit moisture	WSM6
	Cumulus	Kain-Fritsch (D1, D2)
	PBL and surface layer	YSU PBL and Monin-Obukhov similarity
	Surface	Noah LSM
	Radiation	RRTM (long wave) and Dudhia (short wave)
CMAQ	Version	5.0.2
	MCIP	Version 4.3
	Horizontal grid number	107 $\times$ 107 (D1) and 132 $\times$ 126 (D2)
	Initial and boundary	MOZART-4/GEOS5 (D1)
	Emission	Asia: HTAPv2 (2010), Japan: EAGrid2010-JAPAN, JEI-DB-AS (Vehicle), and OPRF2010 (Ship), Biogenic: MEGANv2.04, Biomass burning (BB): FINN v1.5, Volcano: Aerocom(2009)
	Horizontal / vertical advection	Yamartino / WRF-based scheme
	Horizontal / vertical diffusion	Multiscale / ACM 2
	Photolysis rate	On-line photolysis module
	Gas / aerosol phase chemistry	SAPRC07 & AERO6 with aqueous chemistry



### (3) CMAQ の計算条件

大気中の汚染物質およびその前駆物質の物理・化学反応過程等については、次のように設定した。大気中の汚染物質およびその前駆物質の反応過程として、気相化学反応に SAPRC-07 (Hutzell et al., 2011)、エアロゾル過程に AERO6 を使用した。大気汚染物質やその前駆物質濃度の初期・境界条件は、NCAR による MOZART-4 (Emmons et al., 2010) の計算結果を使用した。

排出量データについては、極力最新の推計年次のデータとなるよう配慮し、東アジア域における人為起源排出量に HTAP version 2 (Janssens-Maenhout et al., 2015)、船舶起源排出量に海洋政策研究財団 (OPRF) が作成した船舶排出インベントリ (OPRF, 2013) を使用した。日本域における人為起源排出源のうち、自動車起源のものは JEI-DB2011-AS (Japan Petroleum Energy Center, 2012)、自動車・船舶以外の人為起源排出源は、EAGrid2010-Japan (福井ら, 2014) を使用した。植生起源排出量は MEGAN version 2.04 (Guenther et al., 2006) により推計した。火山起源の SO<sub>2</sub> 排出量は AeroCom によって作成されたデータ (Diehl et al., 2012) を使用した。BB 由来の排出量の取り扱いについては、次に述べる。

### (4) バイオマス燃焼排出量

本章で寄与推計の対象となっている国外の BB 由来の排出量には FINN (Wiedinmyer et al., 2011) version 1.5 の 2014 年版のデータを用いた。FINN では、衛星観測データから日別のバイオマス燃焼由来の排出量が推計され、全球 1 km の水平解像度のデータが提供されている。同じく衛星観測データを用いて BB 排出量を推計している GFED version 4.1s (Giglio et al., 2013) の平面解像度は 0.25°であるため、高解像度のデータが利用できる FINN が本研究には最適と考えられた。なお、FINN と GFED 等の他の BB 排出インベントリとは、全球を対象とした比較において、両者の BB 排出量に整合性があると報告されている (Wiedinmyer et al., 2011)。

また、BB により排出された大気汚染物質濃度は、PBL 内で一律に分布しているものと仮定した。先行研究において、農地や草原で発生する BB による大気汚染物質は、その多くが PBL 内に放出されると報告されている (Paugam et al., 2016)。さらに、モデル計算において、BB 排出量を大気境界層内に配分したケースと上層の自由大気にまで配分したケースで両者の結果はほぼ差がないことも報告されている (Yang et al., 2011; Garcia-Menendez et al., 2014)。以上から、上記の仮定は妥当であると考えられた。

FINN version 1.5 では、7種の土地利用区分 (①草原・サバンナ、②樹木の多いサバンナ・灌木地、③熱帯雨林、④温帯林、⑤亜寒帯林、⑥温帯地域の常緑樹林、⑦農耕地) 別の BB 排出量が提供されている。Fig. 5.2 に D1 領域および中国東北部における月別の土地利用別 BB からの PM<sub>2.5</sub> 排出量寄与割合と PM<sub>2.5</sub> 総排出量を、Fig. 5.3 に D1 領域内の BB からの年平均 PM<sub>2.5</sub> 排出量の分布を示す。D1 領域では、6~10 月以外は、熱帯雨林からの BB (森林火災) が主要な排出源となっている (Fig. 5.2a)。中国東北部では、農耕地からの BB (野焼き) が

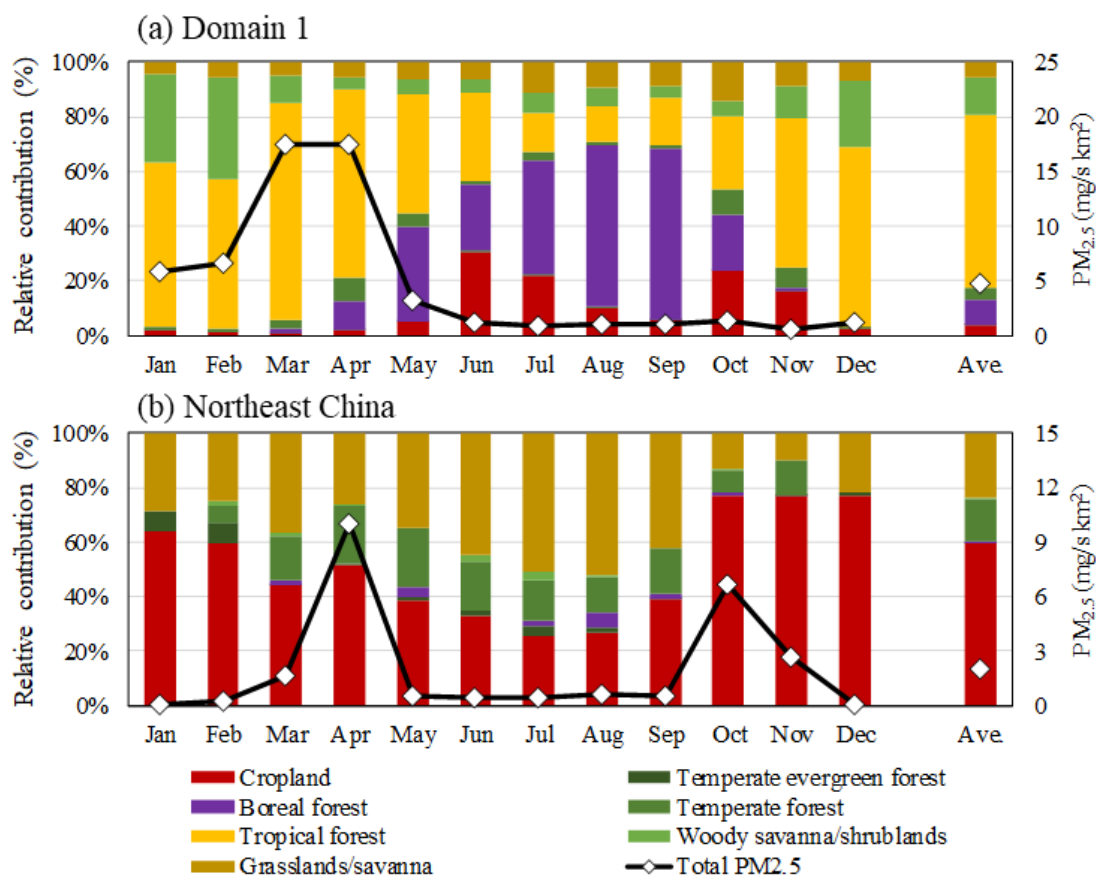
主要な排出源となっており、特に 10～12 月にはその割合が 70 %以上となっている (Fig. 5.2b)。

一方、中国国内の BB 排出量のみを対象に詳細な推計をおこなった先行研究 (Zhou et al., 2017; Qiu et al., 2016) でも、地域別の BB 排出量が推計され、中国東北部の BB 由来の PM<sub>2.5</sub> 排出量の値も報告されている。これら排出インベントリの推計には、地域の実情に応じた活動量 (例えば、国による統計調査結果など) や排出係数等が考慮され、前述の全球対象の BB 排出インベントリよりもさらに綿密な推計がおこなわれている。これら排出インベントリ別の BB 由来の PM<sub>2.5</sub> 排出量の比較結果を Table 5.3 に示す。中国東北部の BB 由来の PM<sub>2.5</sub> 排出量については、FINN と中国国内のみの BB 排出インベントリ (Zhou et al., 2017; Qiu et al., 2016) で 7～11 倍程度の乖離していた。具体的には、2012 年の BB 由来の PM<sub>2.5</sub> 排出量は FINN version 1.5 が 61 Gg/year に対し、Zhou et al. (2017) は 691 Gg/year、2013 年は FINN version 1.5 が 48 Gg/year に対し、Qiu et al. (2016) は 349 Gg/year と推計されていた。また、GFED version 4.1s の BB 排出インベントリでも FINN と同水準の BB 由来の PM<sub>2.5</sub> 排出量が推計され、中国国内のみの BB 排出インベントリ (Zhou et al., 2017; Qiu et al., 2016) との乖離が同じく発生していた (Table 5.3)。よって、全球対象とした BB 排出インベントリを用いて、中国東北部を対象とした計算をおこなうには、BB 排出量を総量で 10 倍程度増加させたケースについても、CMAQ による PM<sub>2.5</sub> 濃度の再現性を確認し、FINN version 1.5 の BB 排出量が過小に推計されているかを確認する必要がある。しかし、Vongruang et al. (2017) は FINN version 1.5 を用いて、2012 年 3 月の東南アジアを含む領域を対象にした計算をおこなったところ、FINN version 1.5 が東南アジア (タイ北部、中部、ベトナム周辺) で発生した熱帯雨林由来の BB 燃焼を過大評価していると報告している。本計算領域でも一部、東南アジアを含んでいることから、FINN version 1.5 の BB 排出量を一律に増加させた場合、BB 排出量の過大評価の影響が隣接する中国の PM<sub>2.5</sub> 濃度の再現性にも影響する可能性がある。また、中国東北部はとうもろこし収穫後の作物残渣の焼却による BB 排出量の割合が高いことが Zhou et al. (2017) により報告されている。前述したとおり FINN version 1.5 では、土地利用別の BB 排出量が提供され、そこには農耕地からの BB 排出量が含まれている。そこで、農耕地からの BB 排出量のみを増加させたケースについて、CMAQ による PM<sub>2.5</sub> 濃度の再現性を確認することとした。中国東北部において農耕地からの BB 排出量が総 BB 排出量に占める割合は 50 %を超過している (Fig. 5.2b)。よって、BB 排出量を総量で 10 倍程度増加させたケースと総排出量が同程度となるよう、農耕地からの BB 排出量を 20 倍したケースの計算をおこなうこととした。以上、BB 排出量については次の 3 ケースについて計算を実施し、CMAQ による PM<sub>2.5</sub> 濃度の再現性を確認する。

- ① 標準ケース (Base) : BB 排出量を増加させずに CMAQ の計算を実施するケース
- ② 全土地利用からの BB 排出量を一律に 10 倍 (FINN10) : 7 つの土地利用から BB 排出量を一律 10 倍し、CMAQ の計算を実施するケース
- ③ 農耕地からの BB 排出量のみを 20 倍 (FINN20\_crop) : 農耕地からの BB 排出量を 20 倍

し、CMAQ の計算を実施するケース

なお、②、③については、計算領域全域、計算期間に一律に適用した。

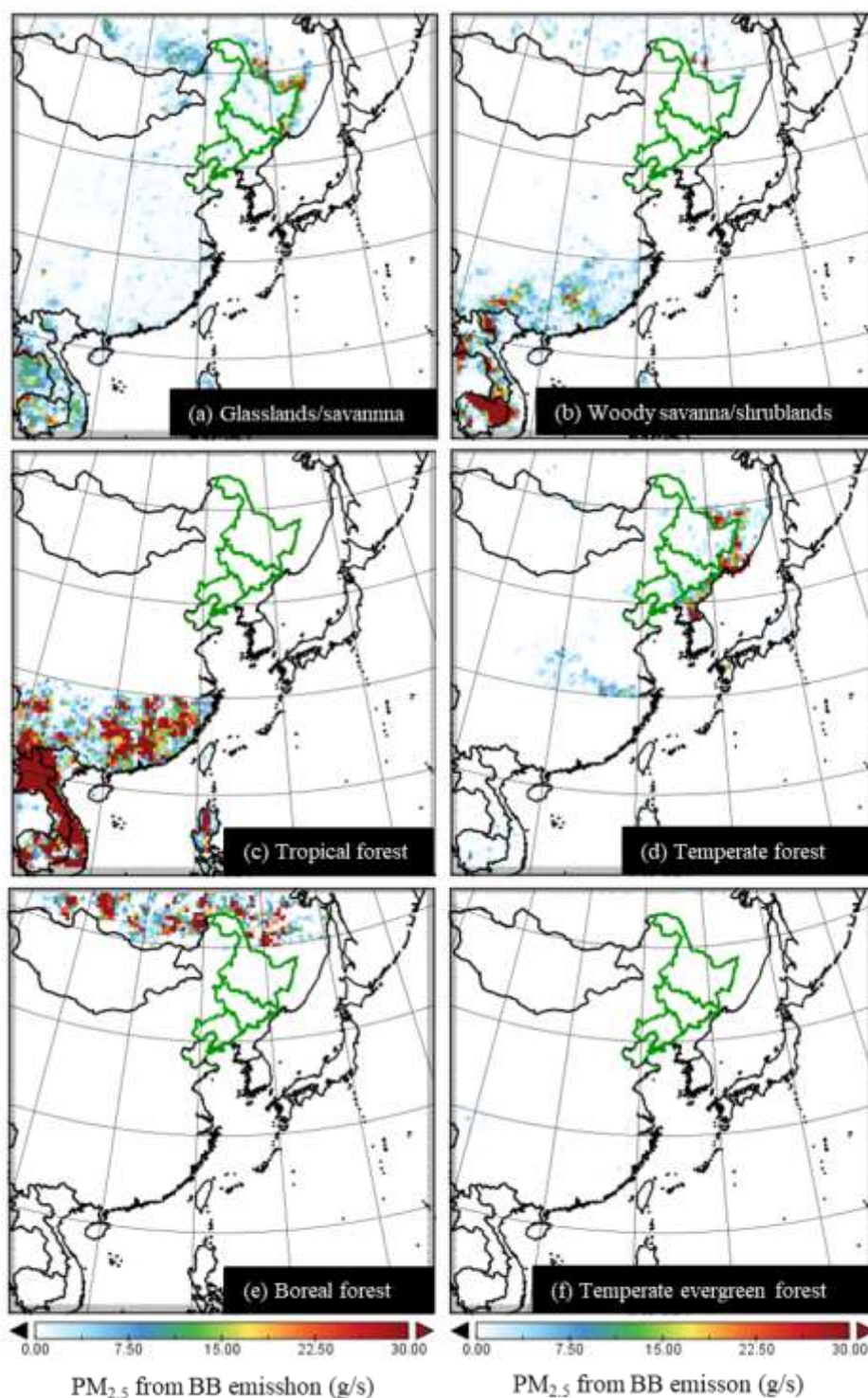


**Fig. 5.2** The relative contributions for monthly averaged PM<sub>2.5</sub> from BB sources in 2014 for the seven land cover types (left axis) and monthly variation of the total amount of emission (right axis) over (a) Domain 1 in Fig. 5.1a and (b) NE China.

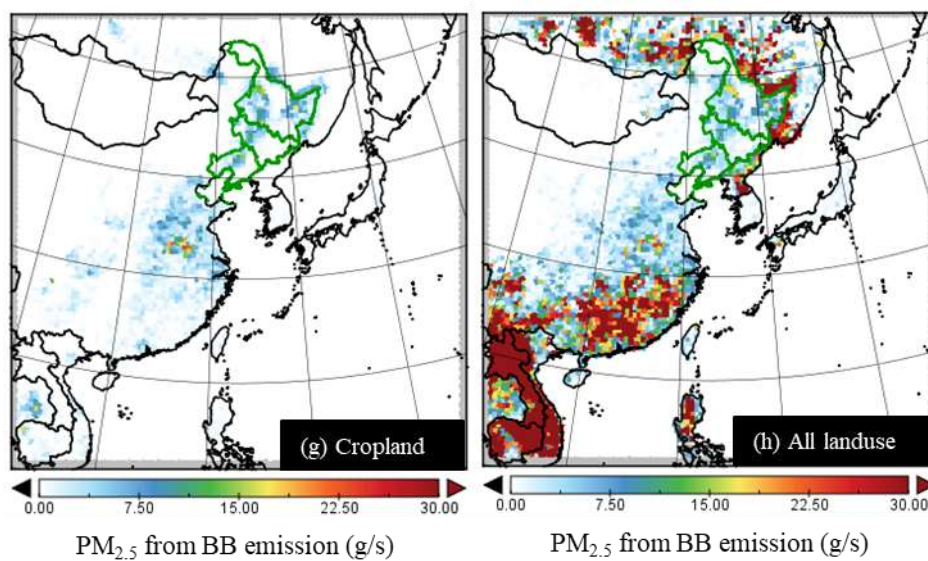
**Table 5.3** Comparison of the yearly PM<sub>2.5</sub> emission from each BB emission inventory for D1 and Northeast China in this study.

PM <sub>2.5</sub> in BB emission (Gg/year)	D1			Northeast China		
	2012	2013	2014	2012	2013	2014
FINN v1.5 (original)	5,317	4,918	3,473	61	48	51
FINN_crop20	8,760	8,510	5,795	395	512	622
GFED v4	2,739	1,508	2,376	46	44	126
Zhou et al., (2017)	3,527 <sup>a</sup>	-	-	691	-	-
Qiu et al., (2016)	-	1,446 <sup>a</sup>	-	-	349	-

<sup>a</sup>BB emission was estimated for the whole China excluded the other countries in D1.



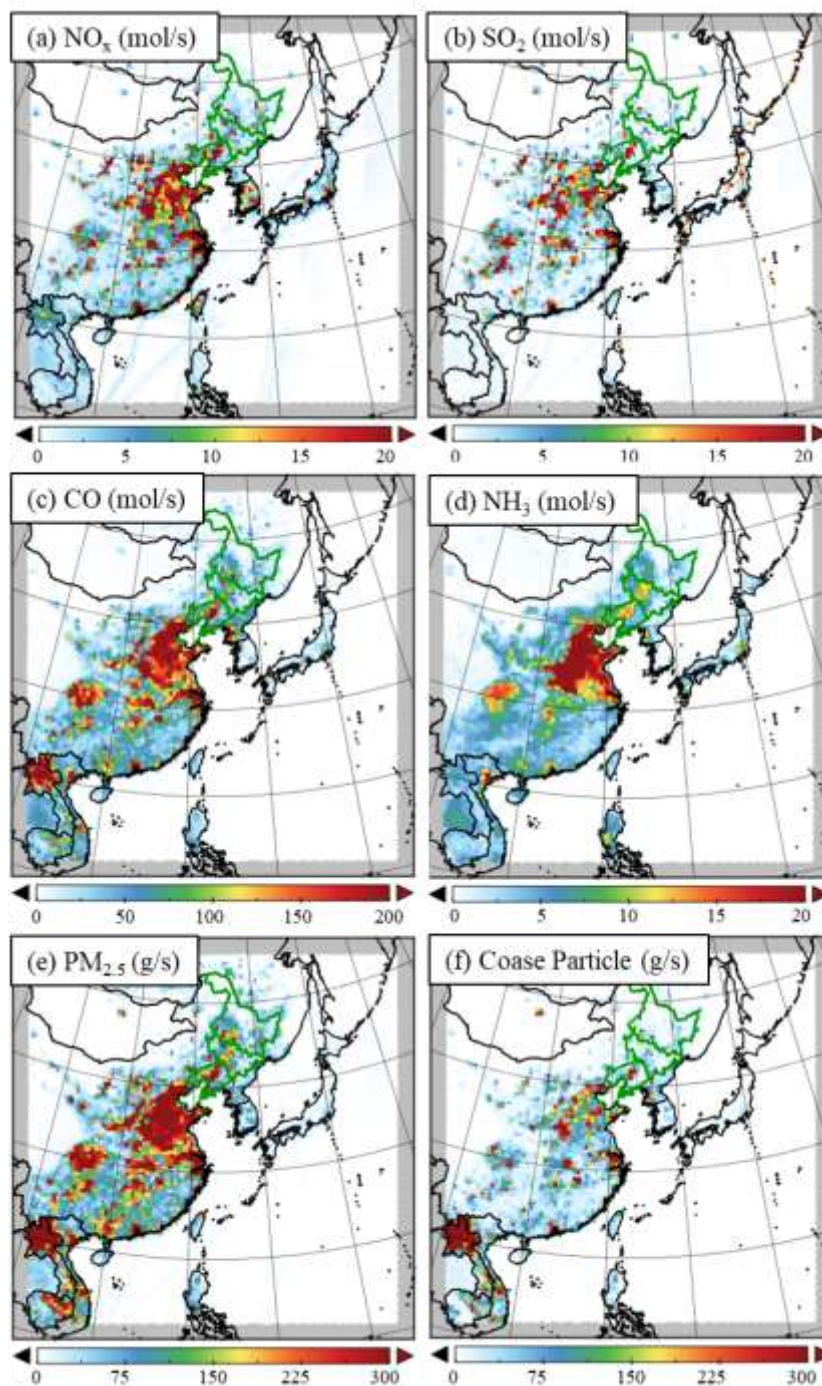
**Fig. 5.3** Spatial distributions of yearly mean PM<sub>2.5</sub> in D1 from BB emissions for seven landuse categories and all landuse: (a) Glasslands/savanna, (b) Woody savanna/shrublands, (c) Tropical forest, (d) Temperate forest, (e) Boreal forest, (f) Temperate evergreen forest, (g) Cropland, and (h) All landuse (Total PM<sub>2.5</sub> from BB). Green lines indicates the three provinces of NE China (Liaoning, Jilin, and Heilongjiang).



**Fig. 5.3 (continued)** Spatial distributions of yearly mean PM<sub>2.5</sub> in D1 from BB emissions for seven landuse categories and all landuse: (a) Grasslands/savanna, (b) Woody savanna/shrublands, (c) Tropical forest, (d) Temperate forest, (e) Boreal forest, (f) Temperate evergreen forest, (g) Cropland, and (h) All landuse (Total PM<sub>2.5</sub> from BB). Green lines indicates the three provinces of NE China (Liaoning, Jilin, and Heilongjiang).

(5) 排出量の空間分布

排出量データを基に推計された計算期間における全排出量を使用した標準ケース (Base) の単位格子、単位時間あたりの平均 NO<sub>x</sub>、SO<sub>2</sub>、CO、NH<sub>3</sub>、PM<sub>2.5</sub>、coarse モード粒子排出量を示す (Fig. 5.4)。



**Fig. 5.4** Spatial distributions of yearly mean emission concentrations: (a) NO<sub>x</sub>, (b) SO<sub>2</sub>, (c) CO, (d) NH<sub>3</sub>, (e) PM<sub>2.5</sub>, and (f) Coarse Particle in Base case.

### 5.1.2 バイオマス燃焼起因のPM<sub>2.5</sub>濃度の寄与推計の方法

CMAQによるBBによるPM<sub>2.5</sub>濃度に対する寄与推計には第3章、第4章と同じくゼロアウト法を用いた。前述の3つのケース (Base、FINN10、FINN20\_crop) 以外に、BB排出量のみゼロにしたケース (noFINN) の計算をおこない、3つのケースとの差分をBBによる寄与として推計した。ただし、推計されたBBによる寄与は国内BBによる寄与は含まれないものとして取り扱った。FINN version 1.5により推計されている国内BB排出量 (0~1.8 t/day) は別途、国内BB排出量として利用しているEAGrid2010-Japanの排出量 (75 t/day) と比較して2桁以上少ない。そのため、FINN version 1.5による国内BBの寄与は計算結果にほとんど影響を与えない。また、FINNでは衛星観測データを基にBB排出量を推計しているが、国内 (Fig. 5.1b) では、ホットスポットがほとんど確認できないことから、FINN version 1.5による国内BBの寄与は計算結果にほとんど影響を与えないことを裏付けている。

### 5.1.3 CMAQの性能評価

#### (1) 地上観測データ

Air quality data of China で公開されている中国国内の観測地点のPM<sub>2.5</sub>濃度観測データ (<https://www.aqistudy.cn/historydata/index.php>) を用いた。Air quality data of China では、PM<sub>2.5</sub>濃度のほかにもPM<sub>10</sub>、SO<sub>2</sub>、CO、NO<sub>2</sub>の日平均値、O<sub>3</sub>の8時間平均値およびAQI (Air Quality Index) の2013年12月以降の観測データが公開されている。CMAQの中国国内のPM<sub>2.5</sub>濃度の再現性を評価するため、D1に含まれる118地点 (Fig. 5.1a) と中国東北部に含まれる17地点 (Fig. 5.1b、Table 5.1) のデータを利用した。以降では、D1は中国西部の一部領域を含んでいないが、D1に含まれる118地点を便宜上、中国東北部 (17地点) に対して中国全域 (118地点) のデータを示すものとして取り扱う。

#### (2) 中国国内の通年のPM<sub>2.5</sub>濃度

中国全域 (118地点) におけるPM<sub>2.5</sub>質量濃度 (全地点の平均値) の日変動について、観測値と計算値の比較を Fig. 5.5a に、統計指標を Table 5.4 に示す。計算値は観測値と良く一致 (Table 5.4、IA = 0.73、n = 67,861) し、Fig. 5.5a に示すように通年において、PM<sub>2.5</sub>質量濃度ピークのタイミングも良好に再現されていた。NMBの値は-0.15であり、年間を通じて過小評価傾向にあった。一方、中国東北部 (17地点) におけるPM<sub>2.5</sub>質量濃度の日変動は、観測値と計算値に乖離が見られた。統計指標については、IA = 0.58 (n = 6,203) と低い値を示し、NMB = -0.30 と過小評価傾向が強くなっていた。特に、10月に中国東北部で発生したPM<sub>2.5</sub>の高濃度ピークをCMAQでは大幅に過小評価していた (Fig. 5.5b)。中国東北部における作物残渣の焼却によるBB排出量は4月、10月、11月に他の月よりも高いことが Zhou et



al. (2017) により報告されている。また、中国東北部では、作物生産の多くが、2 エーカー (≒ 0.81 ヘクタール) 未満の小さな規模でおこなわれている (United States Department of Agriculture, 2014)。Lasko et al. (2017) は、衛星観測データを基に BB 排出インベントリを作成する場合、野焼きの排出量を過小評価してしまう要因として次の事項を挙げている。

- ①雲による衛星観測の欠測
- ②衛星が検知できないごく小規模もしくは短時間の野焼き
- ③衛星が観測していない期間に発生した野焼き など

以上から、秋季に不定期に発生した農作業に伴う小規模な野焼きで排出された BB 排出量が Base ケースの計算における中国東北部の顕著な過小評価の原因となっている可能性がある。

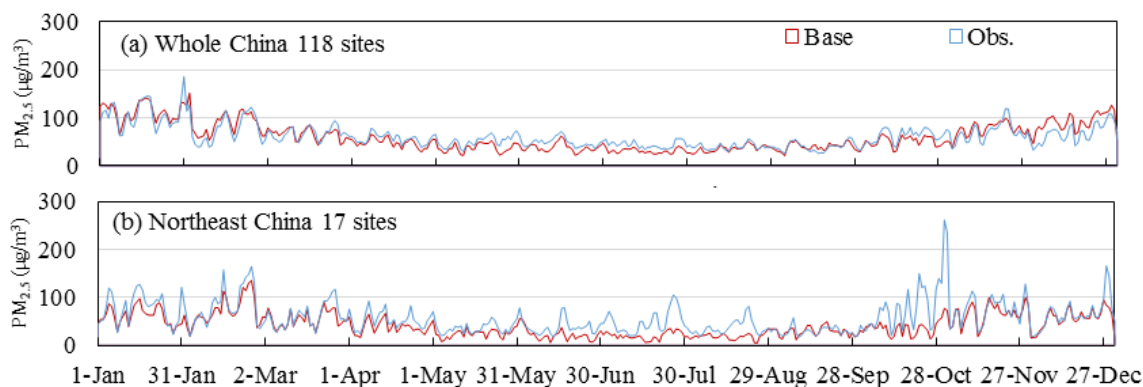
中国東北部の PM<sub>2.5</sub> 質量濃度の過小評価の要因をさらに解析するため、BB 排出量を増加させたケース (FINN10、FINN20\_crop) における CMAQ による PM<sub>2.5</sub> 質量濃度の再現性を確認した。具体的には、3つのケース (Base、FINN10、FINN20\_crop) における PM<sub>2.5</sub> 濃度の月平均値、日平均値の標準偏差および観測値と各ケースにおける日平均値の IA を比較した (Fig. 5.6)。BB 排出量を増加させたケース (FINN10、FINN20\_crop) よりも Base ケースでは、CMAQ は中国東北部の PM<sub>2.5</sub> 濃度を最も過小評価していた。特に、中国東北部の農耕地由来の BB 排出量の影響が最大となる 10 月 (Fig. 5.2b) においては、計算値と観測値の乖離幅は最も大きくなった (Fig. 5.6b)。観測値と各ケース間の IA を比較した場合、中国東北部における Base ケースの IA は、BB 排出量を増加させたケース (FINN10、FINN20\_crop) の IA と比較して、10 月のみ著しく低い値 (Base では 0.52 に対し、FINN10 は 0.74、FINN20\_crop は 0.80、Table 5.5 および Fig. 5.6b) を示した。しかし、中国全域 (118 地点) を対象に IA を算出した場合、各ケースにおける 10 月の IA は中国東北部ほど値が乖離していなかった (Base では 0.76 に対し、FINN10 は 0.80、FINN20\_crop は 0.79、Table 5.5 および Fig. 5.6a)。以上の結果から、Base ケースにおける中国東北部での 10 月の PM<sub>2.5</sub> 濃度過小評価は、FINN version 1.5 が中国東北部の農耕地からの BB 排出量の過小評価に起因していることが判明した。

一方、FINN10 では、中国全域 (118 地点) の 1 月～3 月および 12 月の PM<sub>2.5</sub> 濃度の月平均値が過大となる傾向が強く、IA の値も他のケース (Base、FINN20\_crop) よりも著しく低下していた (例えば 1 月の IA は、FINN10 では 0.46 に対し、Base は 0.83、FINN20\_crop は 0.82、Table 5.5 および Fig. 5.6a)。中国全域 (118 地点) を含む D1 領域において、1 月～3 月および 12 月は、熱帯雨林で発生した森林火災に伴う BB 排出量の排出量が支配的で (Fig. 5.2a)、その発生地域は中国南部、タイ、ミャンマー、ベトナム一帯に集中している (Fig. 5.3c)。以上の結果は、FINN10 における 1 月～3 月および 12 月の PM<sub>2.5</sub> 濃度の過大評価が、FINN version 1.5 が熱帯雨林からの BB 排出量の過大評価に起因していることを示唆していた。

以上の結果から、CMAQ の PM<sub>2.5</sub> 濃度再現性がより良好であった FINN20\_crop を、BB 排出量を増加させたケースとして、以降の解析をおこなう。

**(3) 中国東北部における2014年秋季(10/20~11/9)のPM<sub>2.5</sub>濃度**

解析対象期間(10/20~11/9)におけるPM<sub>2.5</sub>濃度の平均値、標準偏差および観測値と各ケース(BaseおよびFINN20\_crop)における日平均値のIAを測定地点別に比較した結果をFig. 5.7に示す。Baseケースでは、CMAQは解析対象期間の観測値を著しく過小評価していた。一方、FINN20\_cropでは、中国東北部の17地点を対象としたIAが0.77とBaseケースのIA(=0.50)よりも高い値を示し、中国東北部の各観測地点のIAについても総じてBaseケースよりも高い値を示していた。農作業に伴う野焼きは主に、作物収穫後の作物残渣の焼却処分により発生する。Zhou et al. (2017)は、中国東北部において、トウモロコシや米の収穫を終えた10月から11月に、作物収穫後の作物残渣の焼却処分によるBB排出量が高くなることを報告している。上記の結果は、Baseケースにおける中国東北部での解析対象期間のPM<sub>2.5</sub>濃度過小評価は、FINN version 1.5が中国東北部の農耕地からのBB排出量の過小評価に起因していることを示唆している。



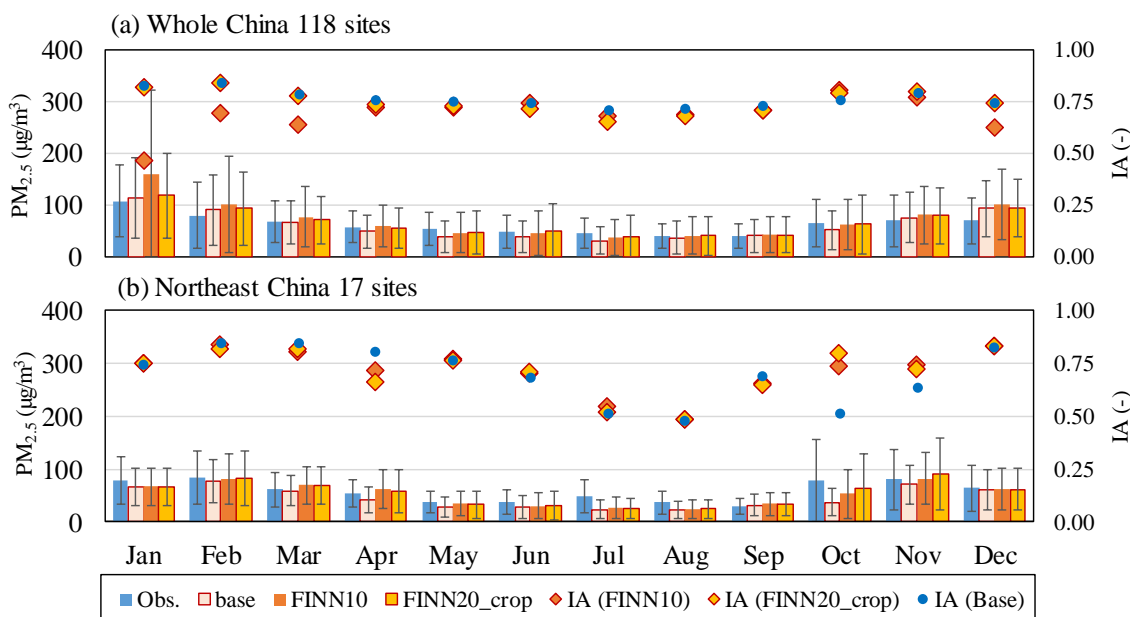
**Fig. 5.5** Time series of the observed and simulated daily mean concentrations of (a) PM<sub>2.5</sub> over whole China 118 sites and (b) PM<sub>2.5</sub> in Northeast China 17 sites in the year 2014. The red lines show the simulated values in Base at the grid cell corresponding to each observation site, whereas the blue lines show the observed values.

**Table 5.4** Statistical comparisons between observed and simulated daily mean PM<sub>2.5</sub> concentrations averaged for the air pollution monitoring stations in China in the year 2014: (a) the whole China (118 sites) and (b) Northeast China (17 sites).

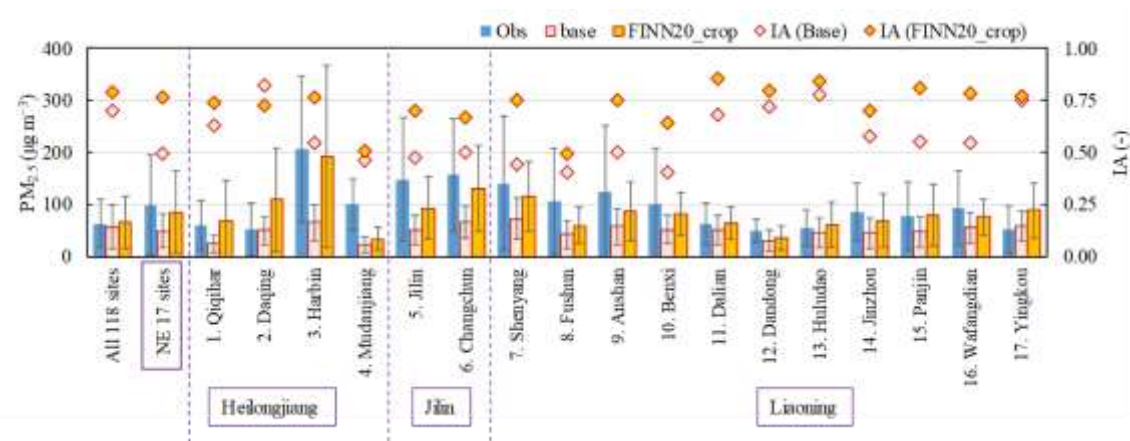
	East Asia (D1)	
	(a) The whole China <sup>a</sup>	(b) Northeast China <sup>a</sup>
	(118 sites)	(17 sites)
Sample number	67,861	6,203
Mean Obs. (µg/m <sup>3</sup> )	61.4	57.2
Mean Sim. (µg/m <sup>3</sup> )	51.5	40.1
<i>R</i>	0.59	0.58
MBE (µg/m <sup>3</sup> )	-9.5	-17.1
NMB	-0.15	-0.30
RMSE (µg/m <sup>3</sup> )	49.5	55.1
IA	0.73	0.58
PF2	0.67	0.69

<sup>a</sup>The daily mean values are for dates in CST (UTC+8).

The grid cell corresponding to each observation site.



**Fig. 5.6** Monthly variation of the observed and simulated mean concentrations, the standard deviations, and IA of PM<sub>2.5</sub> for (a) Whole China 118 sites and (b) NE China 17 sites in the year 2014. The blue bars show the observed values, whereas the red, orange, and yellow bars show the simulated values in the Base, FINN10, FINN20\_crop cases, respectively.



**Fig. 5.7** Comparison of the results of Base and FINN20\_crop versus the observed values in terms of the mean concentrations, the standard deviations, and IA of PM<sub>2.5</sub> on the observation sites in China during the target period. The blue bars show the observed values, whereas the red and orange bars show the Base and FINN20\_crop cases, respectively.

**Table 5.5** Statistical comparisons (IA) between observed and simulated<sup>a</sup> daily mean PM<sub>2.5</sub> concentrations in each month of 2014 over (a) the whole China and (b) Northeast China.

(a) The whole China (118 sites)												
	Jan	Feb	Mar	Apr	May	Jun	Jul	Aug	Sep	Oct	Nov	Dec
Sample number	5,764	5,208	5,766	5,576	5,756	5,573	5,765	5,764	5,577	5,566	5,580	5,766
Base	0.83	0.85	0.79	0.76	0.75	0.74	0.71	0.72	0.73	0.76	0.79	0.75
FINN10	0.46	0.70	0.64	0.72	0.72	0.74	0.68	0.68	0.71	0.80	0.77	0.62
FINN20_crop	0.82	0.84	0.78	0.74	0.73	0.71	0.65	0.68	0.71	0.79	0.80	0.74
(b) Northeast China (17 sites)												
	Jan	Feb	Mar	Apr	May	Jun	Jul	Aug	Sep	Oct	Nov	Dec
Sample number	525	476	527	510	527	510	527	527	510	527	510	527
Base	0.75	0.85	0.85	0.81	0.77	0.69	0.51	0.48	0.69	0.52	0.64	0.83
FINN10	0.75	0.84	0.81	0.72	0.77	0.70	0.55	0.49	0.66	0.74	0.74	0.83
FINN20_crop	0.75	0.82	0.82	0.66	0.77	0.71	0.52	0.48	0.65	0.80	0.72	0.83

<sup>a</sup>The daily mean values are for dates in CST (UTC+8).

The grid cell corresponding to each observation site.

## 5.2 PMFモデルの発生源寄与解析結果を利用した国内PM<sub>2.5</sub>濃度への影響解析

PMFモデルで推計された能登半島の3地点（輪島、松任、小杉、Fig. 5.1bに観測地点の位置を示す。）におけるBB由来のPM<sub>2.5</sub>濃度（Ikemori et al., 2018）とCMAQとゼロアウト法（CMAQ/BFM）によるBB由来のPM<sub>2.5</sub>濃度推計結果とを組み合わせ、国外のバイオマス燃焼の広域輸送が国内PM<sub>2.5</sub>濃度に与える影響を考察した。

### (1) PMFモデルによるPM<sub>2.5</sub>発生源解析に利用された観測データ

Ikemori et al. (2018) によるPMFモデル（EPA-PMF5.0）を用いた発生源解析には、2014年度に地方自治体により実施されたPM<sub>2.5</sub>の成分測定（環境省, 2018e）データのうち、北陸・東海・近畿地域の13地点のPM<sub>2.5</sub>成分観測データが利用された（Table 5.1）。このほかにBB発生源の指標成分として利用可能なレボグルコサン（Simoneit et al., 1999）の測定データもPMFモデルへの入力データとして利用されている。

Ikemori et al. (2018) がPMFモデルによる解析結果からBBとして解釈した因子には、レボグルコサン以外にK<sup>+</sup>、EC、OCが主要な成分として含まれている。また、能登半島の3点において、BBを発生源とするPM<sub>2.5</sub>の寄与が10/27～10/29の期間に高くなっていたことを報告している（Ikemori et al., 2018）。

上記のPM<sub>2.5</sub>の成分測定データは、「大気中微小粒子状物質（PM<sub>2.5</sub>）成分測定マニュアルの策定について（通知）」（平成24年4月19日付け環水大大発第120419002号環境省水・大気環境局大気環境課長、環水大自発第120419001号自動車環境対策課長）（環境省, 2012）に基づき、試料の捕集・分析が行われている。具体的には、①各観測地点において四ふっ化エチレン樹脂（PTFE）製ろ紙および石英繊維製ろ紙による24時間の試料捕集、②試料捕集したPTFE製ろ紙については、PM<sub>2.5</sub>質量濃度の秤量、ICP質量分析（ICP-MS）法による金属元素濃度の分析、イオンクロマトグラフ（IC）法によるイオン成分分析、③試料捕集した石英繊維製ろ紙については、サーマルオプティカル・リフレクタンス法により、粒子状物質中の炭素成分をOCとECに区別して分析するよう定められている。なお、レボグルコサンの分析については、PTFE製ろ紙で捕集された試料を対象に、誘導体化/GC-MS法もしくはIC-MS法によって分析がおこなわれた（Ikemori et al., 2018）。

### (2) 能登半島へ広域移流した国外バイオマス燃焼由来のPM<sub>2.5</sub>の影響

PMFモデルおよびCMAQにより寄与推計された能登半島3地点におけるBB由来のPM<sub>2.5</sub>寄与（濃度）の日変動をFig. 5.8に示す。PMFモデルでは、10/27～10/29の3日間のみが3地点共通してBB由来のPM<sub>2.5</sub>寄与が高くなっていた。一方、CMAQでは、10/27～10/29の3日間においても、BaseケースにおけるBB由来のPM<sub>2.5</sub>寄与はPMFモデルほど上昇せず、

観測期間中は一貫して PMF モデルが推計した PM<sub>2.5</sub> 寄与を下回っていた。しかし、FINN20\_crop では、CMAQ が推計した BB 由来の PM<sub>2.5</sub> 寄与は PMF モデルの推計値と近い水準に上昇し、PMF モデルおよび CMAQ の推計結果に整合性がみられた。

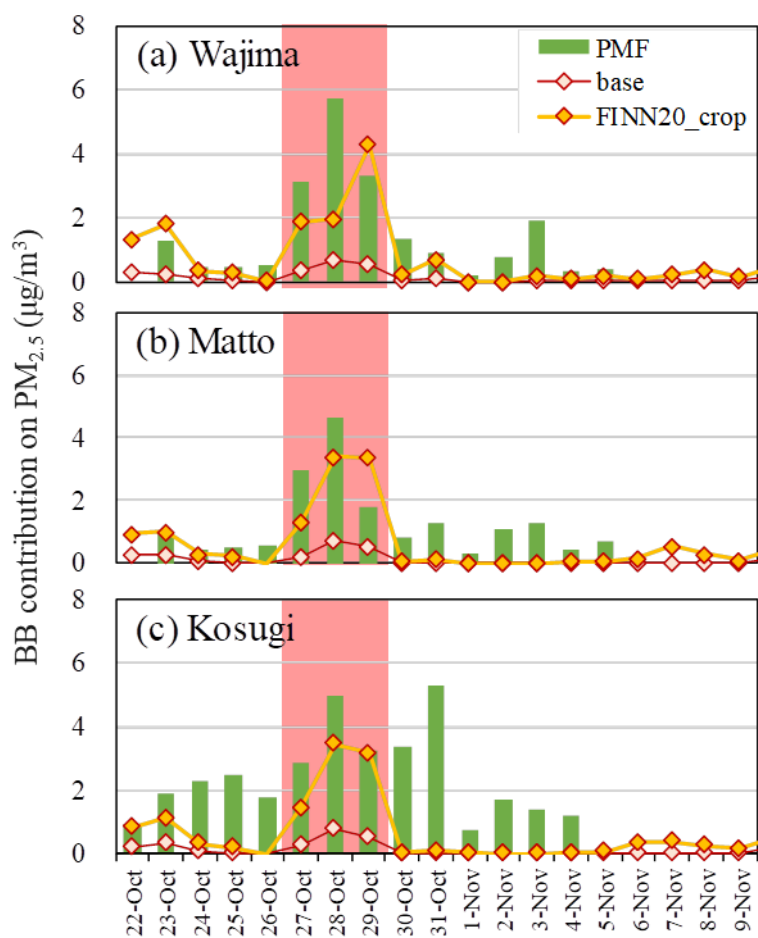
PMF モデルによる発生源寄与推計結果は、小杉において 10/30、10/31 にも 10/27~10/29 に近い BB 由来の PM<sub>2.5</sub> 寄与の存在を示していた。能登半島の他 2 地点では同じ水準の PM<sub>2.5</sub> 寄与が存在していない。そのため、小杉周辺で発生した小規模な野焼きの影響と考えられた。実際に、小杉周辺は農耕地が点在しており、観測時期に作物残渣の処分等を目的とした野焼きが発生しうる環境に位置している。このため、PMF モデルが推計した BB 由来の PM<sub>2.5</sub> 寄与には、国内で発生した BB による PM<sub>2.5</sub> 寄与が一部、含まれている可能性がある。しかし、「第 4 章第 4.3 節 両モデルを併用した PM<sub>2.5</sub> 発生源寄与解析」で述べたように、現在利用可能な国内の BB 排出インベントリは過小評価されている可能性があり、CMAQ で寄与推計をおこなうにはより正確な国内の BB 排出量の推計方法を検討する必要がある。また、現時点で、PMF モデルを用いて、国外で発生した BB と国内で発生した BB を区別できる有力な指標成分は、著者が知る限り存在しない。以上から、国内の BB 由来の PM<sub>2.5</sub> 寄与の影響を推計する点については今後の課題とする。

Fig. 5.9 に、10/25 から 10/30 の FINN20\_crop での PM<sub>2.5</sub> 寄与の日平均の分布に加えて、輪島への気塊輸送経路を表す後方流跡線 (起点高度 1,500 m) を示す。後方流跡線の作成には、Table 5.2 に示した WRF の計算条件により作成した D1、D2 領域の気象場と Trajstat version 1.2.2.6 (Wang et al., 2009) を使用した。PMF モデルが能登半島における BB 由来の PM<sub>2.5</sub> 寄与が高いと推定した期間 (10/27~10/29) において、後方流跡線は中国東北部から日本海を経由して、輪島まで最短のルートで到達していた (Fig. 5.9c, d, e)。同期間の CMAQ による BB 由来の PM<sub>2.5</sub> 寄与分布からも、中国東北部から能登半島に向けて、BB 由来の PM<sub>2.5</sub> の気塊が輸送されていることが確認できた。さらに、10/27~10/29 以外の後方流跡線は中国東北部を経由していないもしくは、中国東北部から輪島に到達するまでに別の経由地を辿っていた。以上から、10/27~10/29 における BB 由来の PM<sub>2.5</sub> 寄与は中国東北部で発生した BB であることが判明した。

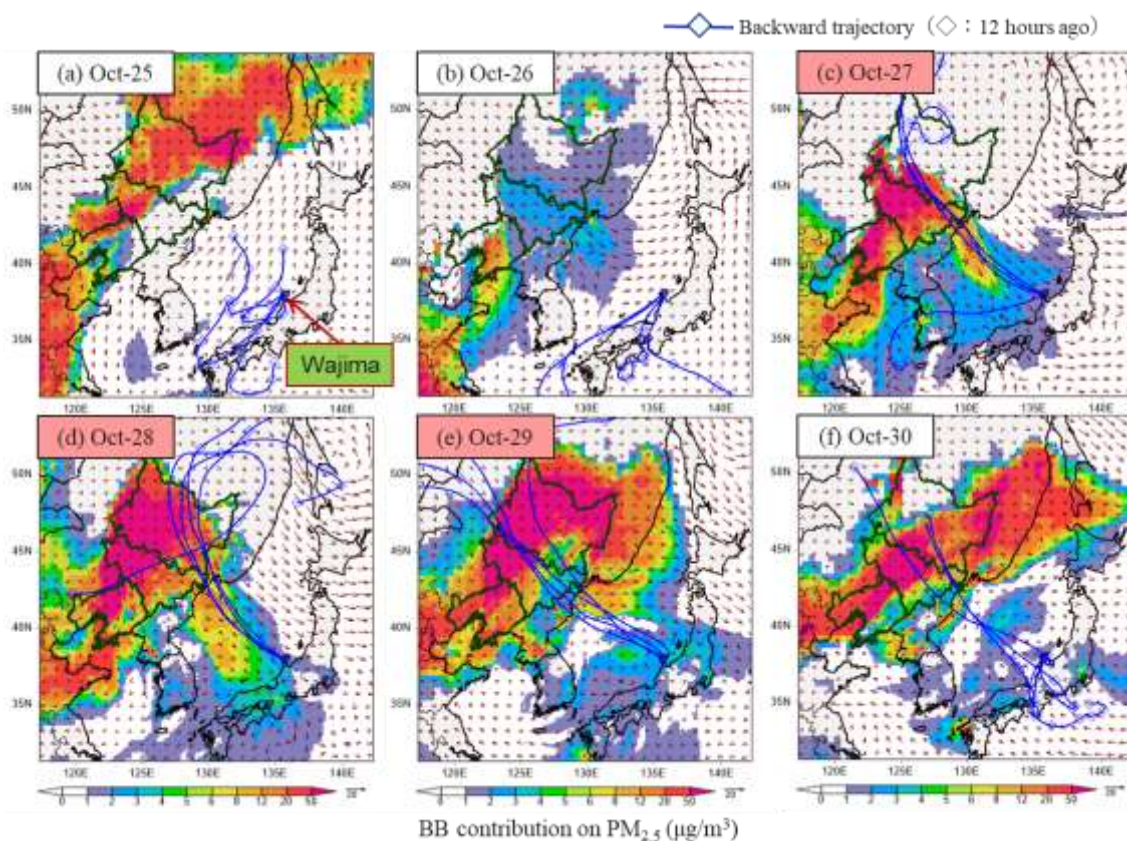
10/27~10/29 に中国東北部で発生した BB が能登半島に移流した事例については、PMF と CMAQ の推計結果に整合が見られたが、能登半島以外の地点 (10 地点) についても整合しているかを確認する必要がある。そこで、当該期間における PMF および CMAQ が推計した BB 由来の PM<sub>2.5</sub> 寄与の整合性について、PMF モデルで解析した全 13 地点を対象に、散布図 (Fig. 5.10) および PF2 (CMAQ/BFM で推計された値が PMF で推計された値の 0.5 から 2 倍の範囲内となっている割合) により評価した。Base ケースでは、PF2 = 0 で全 13 地点で CMAQ は PMF が推計した寄与を下回っていた (Fig. 5.10)。一方、FINN20\_crop では、PF2 = 0.70 で両モデルの推計値の乖離が改善していることが確認された。以上から、BB 排出量を増加させたケース (FINN20\_crop) では、CMAQ は、能登半島の 3 地点だけでなく東海・近畿地域の 10 地点についても中国東北部で発生した BB による PM<sub>2.5</sub> の移流の影響を一定、

再現していることが確認された。ただし、能登半島3地点以外の東海・近畿地域の10地点についても、国内で発生したBBによる影響を受けている可能性がある。

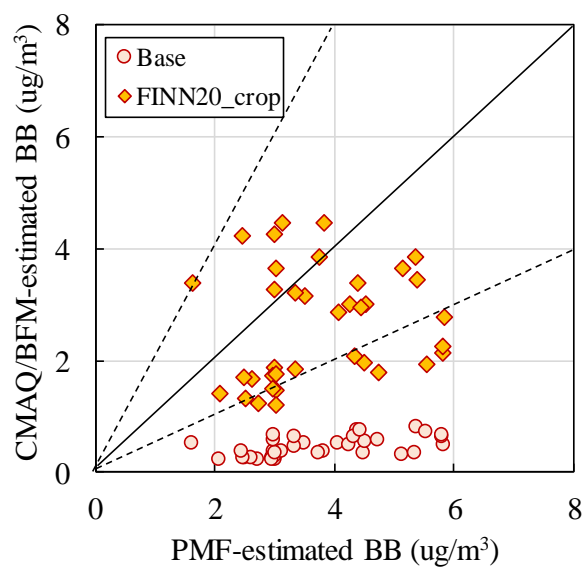




**Fig. 5.8** Comparison of the daily mean BB contributions on PM<sub>2.5</sub> concentrations at three sites in Noto peninsula in Japan in 2014: (a) Wajima, (b) Matto, and (c) Kosugi. The green bars show PMF-estimated daily mean BB contributions, whereas the red and orange diamonds show CMAQ/BFM-estimated daily mean contributions in the Base and FINN20\_crop case, respectively. The red shading shows the period for long-range transport from BB sources in NE China focused on in this study.



**Fig. 5.9** Spatial distributions of CMAQ/BFM-estimated daily mean BB contributions on PM<sub>2.5</sub> concentrations in FINN20\_crop case and 2-day backward trajectories started at an altitude of 1,500 m at Wajima in Noto peninsula in Japan. The green lines show the province's boundary lines in NE China. The blue lines show the backward trajectories run four times a day (0, 6, 12, and 18 UTC) for each day (October 25 – October 30), whereas the diamonds show the air parcels position back in 12 hours ago for each backward trajectories.



**Fig. 5.10** Scatter plots for the PMF-estimated and CMAQ/BFM-estimated daily mean BB contributions on PM<sub>2.5</sub> concentrations on the 13 sites (shown in [Table 5.1](#)) in Japan during the long-range transport of BB pollution from Northeast China towards Japan (27 – 29 October). Open red squares show the plots in Base case, whereas open yellow diamonds show the ones in FINN20\_crop case, respectively. Reference lines for 1:1, 1:2, and 2:1 are provided.

### 5.3 まとめ

本章では、PMF モデルと CMAQ を組み合わせた PM<sub>2.5</sub> の発生源寄与解析の適用事例として、バイオマス燃焼に主眼を置いた発生源寄与解析を行った。解析対象事例として、2014 年秋季に中国東北部で発生した農作業に伴うバイオマス燃焼による PM<sub>2.5</sub> が能登半島へ広域輸送された事例 (Ikemori et al., 2018) について注目し、CMAQ による PM<sub>2.5</sub> の広域輸送解析を実施した。

2014 年通年の中国国内の PM<sub>2.5</sub> 濃度については、Base ケースで、CMAQ は概ね PM<sub>2.5</sub> 濃度を良好に再現していた。しかし、農耕地からの野焼きが頻発する 10 月の中国東北部については、CMAQ は PM<sub>2.5</sub> 濃度を著しく過小評価していた。農耕地由来の BB 排出量を増加させたケース (FINN20\_crop) において、過小評価が改善したことから、FINN version 1.5 が農耕地からの BB 排出量を過小評価していることが影響していることが明らかとなった。

また、中国東北部で発生した BB が日本へ広域移流した影響を解析するため、PMF モデルで推計された能登半島における BB 起源の PM<sub>2.5</sub> 濃度 (Ikemori et al., 2018) と CMAQ/BFM による BB の寄与推計結果との比較をおこなった。Base ケースとは対照的に FINN20\_crop では、CMAQ は PMF モデルが推計した 10/27~10/29 の能登半島 3 地点における BB 起源の PM<sub>2.5</sub> 寄与と同レベルの寄与を示した。さらに、PMF モデルが同期間に能登半島以外の地点について推計した BB 起源の PM<sub>2.5</sub> 寄与についても、FINN20\_crop における寄与推計結果は PF2 = 0.70 と良好 (Base ケースでは PF2 = 0) であった。以上から、日本に広域移流した BB 由来の PM<sub>2.5</sub> の解析結果からも、FINN version 1.5 が中国東北部の農耕地からの BB 排出量を過小評価していることが裏付けられた。また、BB 排出量を増加させたケースにより、BB による PM<sub>2.5</sub> の広域移流を CMAQ で再現できることを示した。ただし、日本への BB による広域移流をさらに解析するには、国内で発生した BB による影響を受けている可能性を考慮する必要があり、そのためにはより正確に国内 BB 排出量を推計することが必要である。

## 第 6 章 結論

---

国内の PM<sub>2.5</sub> 濃度は、2013 年以降、減少傾向傾向を維持し、環境基準達成率も上昇しているものの、北部九州地域や四国地方の瀬戸内海に面する地域等で、依然として環境基準達成率が低い地域が存在している (環境省, 2018c)。また、「微小粒子状物質の国内における排出抑制策の在り方について 中間取りまとめ」(環境省, 2015) では、PM<sub>2.5</sub> は原因物質と発生源が多岐にわたり、生成機構も複雑でその解明が不十分であることから、対策に必要な科学的知見の充実が必要であり、化学輸送モデル等を用いた PM<sub>2.5</sub> の削減効果をできる限り定量的に評価・検証しつつ、総合的・効果的な排出抑制策を検討することが必要と指摘している。日本は、経済発展が著しく、多くの大気汚染物質の排出する東アジア地域の風下に位置しているため、国内の産業や自動車排気などの国内要因だけではなく、海や大陸を越えて運ばれてくる越境大気汚染が国内の PM<sub>2.5</sub> 濃度に深く関与している。国内の PM<sub>2.5</sub> 汚染の範囲内では、PM<sub>2.5</sub> への曝露濃度と健康影響の間に一貫した関係は見出されていないものの、高感受性者の集団においては、一般集団より低い PM<sub>2.5</sub> 濃度の曝露によっても健康影響が生じる可能性は否定できないとの指摘もあり、PM<sub>2.5</sub> がもたらす健康への影響が懸念されている。このような背景から、本研究では、日本における PM<sub>2.5</sub> 汚染の発生源寄与解析を行うことが目的とし、発生源寄与解析を行う手法として、化学輸送モデル及びレセプターモデルの複数の方法を使い分け、発生源寄与推計結果の信頼性を向上させることを試みた。

第 1 章では、研究の背景として、日本の大気汚染の変遷や現況、PM<sub>2.5</sub> の構成成分と生成メカニズム、健康影響、発生源寄与推計方法について述べ、既存の研究事例を紹介したうえで本研究の目的および方法、本論文の構成について述べた。

第 2 章では、本研究で使用した気象モデル WRF、化学輸送モデル CMAQ、レセプターモデル PMF の概要について述べた。WRF、CMAQ については、各モデルの計算に使用される支配方程式、座標系、物理過程および化学反応過程等についてまとめた。また、PMF については、PMF モデルの数学的取り扱い、モデルへ投入する観測データセットの作成、因子数の決定及び、各因子特性に基づいた発生源の解釈、寄与推計方法等についてまとめた。

第 3 章では、PM<sub>2.5</sub> 中の二次粒子の成分の一つである硝酸塩について、前駆物質 (NO<sub>2</sub>、NH<sub>3</sub>、HNO<sub>3</sub>) を含め、越境汚染と国内汚染の複合影響について、CMAQ/BFM による解析をおこなった。その結果、大陸からの越境汚染の影響は、PM<sub>2.5</sub> 濃度の約 40~50 % を占めており、そのうち約 30~40 % が国外で粒子化した PM<sub>2.5</sub>、約 10 % が国内で粒子化した PM<sub>2.5</sub> の影響であることが判明した。また、国内で粒子化した PM<sub>2.5</sub> は大陸から輸送されてくる HNO<sub>3</sub> と国内排出起源の NH<sub>3</sub> との粒子化が主要因であり、国内の NH<sub>3</sub> 規制によって、国内で粒子化する PM<sub>2.5</sub> の生成を抑制できる可能性があることを示した。

第 4 章では、2013 年度の東海・近畿地方を対象に、PMF 及び CMAQ/BFM を用いて PM<sub>2.5</sub>

発生源寄与解析を実施した。PMF モデルは、11 地点の PM<sub>2.5</sub> 観測データに影響を与えている 7 つの因子 (硫酸系二次粒子 1、硫酸系二次粒子 2、重油燃焼、道路交通、バイオマス燃焼、土壌・工業系粉じん、硝酸系二次粒子) を特定した。同時に、PM<sub>2.5</sub> 発生源解析を CMAQ とゼロアウト法を用いて実施し、両モデルに共通する 4 つの発生源 (硫酸系二次粒子、重油燃焼、道路交通、バイオマス燃焼) の寄与推計結果について比較をおこなった。両モデルは硫酸系二次粒子、重油燃焼、道路交通の寄与については、整合していることが確認されたが、バイオマス燃焼寄与については大きく乖離していた。この要因として、東海・近畿地域は農業地域が点在しており、野焼きの発生規模、回数、場所の特定が現段階では困難で、排出イベントリによる正確な推計が困難であることが影響している。このように両者モデルの結果を比較することにより、化学輸送モデルの計算に必要な排出イベントリの不確実性を特定することが可能であることを示した。また、複数のモデルを組み合わせた発生源寄与解析を行うことで、両モデルの解析結果の信頼性を向上させることができることを示した。

第 5 章では、2014 年秋季に中国東北部で発生した農作業に伴うバイオマス燃焼による PM<sub>2.5</sub> の広域輸送解析を CMAQ で実施した。中国国内の PM<sub>2.5</sub> 濃度については、Base ケースで、CMAQ は概ね PM<sub>2.5</sub> 濃度を良好に再現していたものの、10 月の中国東北部の PM<sub>2.5</sub> 濃度を CMAQ は著しく過小評価していた。農耕地由来の BB 排出量を増加させたケース (FINN20\_crop) において、過小評価が改善したことから、FINN version 1.5 が農耕地からの BB 排出量を過小評価していることが影響していることが明らかとなった。また、中国東北部で発生した BB が日本へ広域移流した影響を解析するため、PMF モデルで推計された能登半島における BB 起源の PM<sub>2.5</sub> 濃度 (Ikemori et al., 2018) と CMAQ/BFM による BB の寄与推計結果との比較をおこなった。Base ケースとは対照的に FINN20\_crop では、CMAQ は PMF モデルが推計した 10/27~10/29 の能登半島 3 地点における BB 起源の PM<sub>2.5</sub> 寄与と同レベルの寄与を示した。以上から、既存のバイオマス燃焼排出量 (FINN version 1.5) では PM<sub>2.5</sub> 高濃度現象を過小評価していることが判明した。さらに、農業起因のバイオマス燃焼排出量を増加させることで、モデル再現性が向上することを明らかにした。ただし、日本への BB による広域移流についてさらに解析するには、国内で発生した BB による影響を受けている可能性を考慮する必要がある、そのためにはより正確に国内 BB 排出量を推計することが必要である。

本研究は、国内外の PM<sub>2.5</sub> 汚染問題を解決するための基礎研究となるものであり、対象地域を拡大させることで、より信頼性の高い排出イベントリの構築及び化学輸送モデルの精度向上に寄与するものと考えられる。今後、化学輸送モデルを用いた発生源解析には、ゼロアウト法だけでなく、タグ付きトレーサー法などの別の発生源寄与解析手法を用いた研究との相互比較、レセプターモデルによる発生源解析には、特定の発生源を指標となる物質の観測データを活用した発生源解析 (第 5 章で利用した PMF 解析結果に用いられたバイオマス燃焼の指標物質であるレボグルコサンの観測データの利用など) をおこな

うことにより、発生源解析結果の信頼性をさらに向上させることが可能である。また、第5章で明らかとなったバイオマス燃焼排出インベントリの過小評価についても、他の推計年次もしくは地域でも同様の過小評価が発生しているかを確認する必要がある。より正確にかつ効率的に大気環境保全の施策を進めていくためにも、数値モデルの精度がさらに向上していくことを願ってやまない。

## 謝辞

---

本研究を進めるにあたり、懇切丁寧な御教授、御指導を賜わると共に、高い御見識より貴重な助言、教示を賜りました大阪大学大学院工学研究科教授の近藤明先生に心より感謝いたします。本研究を行うにあたって不可欠であった化学輸送モデルの入力データ作成プログラム、入出力スクリプト及び、解析プログラム等のご提供、研究全般にわたって的確で丁寧なご指導を賜りました大阪大学大学院工学研究科助教の嶋寺光先生に厚く感謝いたします。本研究の過程を通じて、特に国際学会での研究発表等における貴重な助言やご指導を賜りました同専攻の松尾智仁助教に厚く感謝致します。

大阪大学大学院工学研究科教授の東海明宏先生、池道彦先生には、本論文をまとめるにあたり、御専門の立場からの御教示を賜りました。ここに深く感謝の意を表します。

事務補佐の荻野礼加様には当初 2 年間、丸岡久枝様には最終年に、数多くの事務処理をサポートしていただき研究に専念できる環境を作っていただきました。心より感謝の意を表します。また、大阪大学大学院工学研究科環境・エネルギー工学専攻の共生環境評価領域の博士後期課程 3 回生 (当時) の公江仁一様をはじめ学生の皆様には学生生活を送るにあたり、様々な形でお世話になりました。ここに心より感謝の意を表します。

国立環境研究所地域環境研究センター大気環境モデリング研究室長の菅田誠治様には、化学輸送モデルの計算実施にあたり、国立環境研究所が保有する計算機利用にご尽力いただいたほか、国立環境研究所と地方環境研究所との第 II 型共同研究において、本論文をまとめるに至るまで丁寧なご助言を賜りました。心より感謝いたします。また、同研究室の曾我稔様には、第 4 章第 4.3 節 両モデルを併用した PM<sub>2.5</sub> 発生源寄与解析において、PMF と CMAQ の寄与推計結果を比較する際のデータ処理方法についてご助力を賜りました。心より感謝いたします。

名古屋市環境科学調査センター環境科学室の池盛文数様、兵庫県環境研究センター大気環境課の中坪良平様には、PMF モデルの導入・解析を進めるにあたり様々な視点から助言いただきました。心より感謝いたします。特に池盛さまには、2014 年秋に中国から能登半島に広域輸送されたバイオマス燃焼起源の PM<sub>2.5</sub> 汚染に関する最新の研究動向に加え、当該事例の PMF 解析結果をご提供いただきました。心より感謝いたします。また、PM<sub>2.5</sub> のサンプリング、成分分析等を共に行った奈良県景観・環境総合センター大気係 (当時) の関係者の皆様に、ここに感謝の意を表します。

最後に、研究を行う上で家族には多くの負担をかけることとなりました。こうして博士論文を完成させることができたのは、家族の協力の賜です。感謝しています。本研究に関っていたいただいた全ての方々に厚く御礼申し上げます。



## 参考文献

---

- Aikawa, M., Ohara, T., Hiraki, T., Oishi, O., Tsuji, A., Yamagami, M., ... Mukai, H. (2010). Significant geographic gradients in particulate sulfate over Japan determined from multiple-site measurements and a chemical transport model: Impacts of transboundary pollution from the Asian continent. *Atmospheric Environment*, 44(3), 381–391.  
<http://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2009.10.025>
- Andres, R. J., & Kasgnoc, A. D. (1998). A time-averaged inventory of subaerial volcanic sulfur emissions. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 103(D19), 25251–25261.  
<http://doi.org/10.1029/98JD02091>
- Appel, K. W., Pouliot, G. A., Simon, H., Sarwar, G., Pye, H. O. T., Napelenok, S. L., ... Roselle, S. J. (2013). Evaluation of dust and trace metal estimates from the Community Multiscale Air Quality (CMAQ) model version 5.0. *Geoscientific Model Development*, 6(4), 883–899.  
<http://doi.org/10.5194/gmd-6-883-2013>
- Araujo, J. A., & Nel, A. E. (2009). Particulate matter and atherosclerosis: Role of particle size, composition and oxidative stress. *Particle and Fibre Toxicology*, 6, 1–19.  
<http://doi.org/10.1186/1743-8977-6-24>
- Balachandran, S., Pachon, J. E., Hu, Y., Lee, D., Mulholland, J. A., & Russell, A. G. (2012). Ensemble-trained source apportionment of fine particulate matter and method uncertainty analysis. *Atmospheric Environment*, 61, 387–394. <http://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2012.07.031>
- Binkowski, F. S., & Shankar, U. (2018). The Regional Particulate Matter Model: 1. Model description and preliminary results. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 100(D12), 26191–26209. <http://doi.org/10.1029/95JD02093>
- Bove, M. C., Brotto, P., Cassola, F., Cuccia, E., Massabò, D., Mazzino, A., ... Prati, P. (2014). An integrated PM<sub>2.5</sub> source apportionment study: Positive Matrix Factorization vs. the chemical transport model CAMx. *Atmospheric Environment*, 94, 274–286.
- Brown, S. G., Eberly, S., Paatero, P., & Norris, G. A. (2015). Methods for estimating uncertainty in PMF solutions: Examples with ambient air and water quality data and guidance on reporting PMF results. *Science of the Total Environment*, 518–519, 626–635.  
<http://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2015.01.022>
- Burr, M. J., & Zhang, Y. (2011). Source apportionment of fine particulate matter over the Eastern U.S. Part I: source sensitivity simulations using CMAQ with the Brute Force method. *Atmospheric Pollution Research*, 2(3), 300–317. <http://doi.org/10.5094/apr.2011.036>
- Byun, D., & Schere, K. L. (2006). Review of the Governing Equations, Computational Algorithms, and Other Components of the Models-3 Community Multiscale Air Quality (CMAQ) Modeling

- System. *Applied Mechanics Reviews*, 59(2), 51–77.  
Retrieved from <http://dx.doi.org/10.1115/1.2128636>
- Carter W.P.L. (2000). Implementation of the SAPRC-99 chemical mechanism into the models-3 framework. Report to the United States Environmental Protection Agency.
- Chan, Y., Hawas, O., Hawker, D., Vowles, P., Cohen, D. D., Stelcer, E., ... Christensen, E. (2011). Using multiple type composition data and wind data in PMF analysis to apportion and locate sources of air pollutants. *Atmospheric Environment*, 45(2), 439–449.  
<http://doi.org/10.1016/J.ATMOSENV.2010.09.060>
- Chang, J. S., Brost, R. A., Isaksen, I. S. A., Madronich, S., Middleton, P., Stockwell, W. R., & Walcek, C. J. (2018). A three-dimensional Eulerian acid deposition model: Physical concepts and formulation. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 92(D12), 14681–14700.  
<http://doi.org/10.1029/JD092iD12p14681>
- 茶谷聡, 森川多津子, 芦崎翠, 平井洋, 國見均. (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*, 43(2), 79–91.  
<http://doi.org/10.11298/taiki1995.43.79>
- 茶谷聡, 森川多津子, 中塚誠次, 松永壮. (2011). 3次元大気シミュレーションによる2005年度日本三大都市圏PM<sub>2.5</sub>濃度に対する国内発生源・越境輸送の感度解析. *大気環境学会誌*, 46(2), 101–110. <http://doi.org/10.11298/taiki.46.101>
- Chen, D., Liu, X., Lang, J., Zhou, Y., Wei, L., Wang, X., & Guo, X. (2017). Estimating the contribution of regional transport to PM<sub>2.5</sub> air pollution in a rural area on the North China Plain. *Science of the Total Environment*, 583, 280–291. <http://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2017.01.066>
- Chen, F., & Dudhia, J. (2001). Coupling an Advanced Land Surface–Hydrology Model with the Penn State–NCAR MM5 Modeling System. Part I: Model Implementation and Sensitivity. *Monthly Weather Review*, 129(4), 569–585.  
[http://doi.org/10.1175/1520-0493\(2001\)129<0569:CAALSH>2.0.CO;2](http://doi.org/10.1175/1520-0493(2001)129<0569:CAALSH>2.0.CO;2)
- Chen, T. F., Chang, K. H., & Tsai, C. Y. (2014). Modeling direct and indirect effect of long range transport on atmospheric PM<sub>2.5</sub> levels. *Atmospheric Environment*, 89, 1–9.  
<http://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2014.01.065>
- CISL: Research Data Archive, <http://rda.ucar.edu/datasets/ds083.2/> (accessed November 1, 2018)
- Clappier, A., Belis, C. A., Pernigotti, D., & Thunis, P. (2017, November 24). Source apportionment and sensitivity analysis: Two methodologies with two different purposes. *Geoscientific Model Development*. <http://doi.org/10.5194/gmd-10-4245-2017>
- Cohan, D. S., & Napelenok, S. L. (2011). Air Quality Response Modeling for Decision Support. *Atmosphere*, 2(4), 407–425. <http://doi.org/10.3390/atmos2030407>
- Colella, P., & Woodward, P. R. (1984). The Piecewise Parabolic Method (PPM) for gas-dynamical simulations. *Journal of Computational Physics*, 54(1), 174–201.

- [http://doi.org/10.1016/0021-9991\(84\)90143-8](http://doi.org/10.1016/0021-9991(84)90143-8)
- Diehl, T., Heil, A., Chin, M., Pan, X., Streets, D., Schultz, M., & Kinne, S. (2012). Anthropogenic, biomass burning, and volcanic emissions of black carbon, organic carbon, and SO<sub>2</sub> from 1980 to 2010 for hindcast model experiments. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 12(9), 24895–24954. <http://doi.org/10.5194/acpd-12-24895-2012>
- Dockery, D. W., Pope, C. A., Xu, X., Spengler, J. D., Ware, J. H., Fay, M. E., ... Speizer, F. E. (1993). An Association between Air Pollution and Mortality in Six U.S. Cities. *New England Journal of Medicine*, 329(24), 1753–1759. <http://doi.org/10.1056/NEJM199312093292401>
- Dudhia, J. (1988). Numerical Study of Convection Observed during the Winter Monsoon Experiment Using a Mesoscale Two-Dimensional Model. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 46(20), 3077–3107. [http://doi.org/10.1175/1520-0469\(1989\)046<3077:NSOCOD>2.0.CO;2](http://doi.org/10.1175/1520-0469(1989)046<3077:NSOCOD>2.0.CO;2)
- Emmons, L. K., Walters, S., Hess, P. G., Lamarque, J.-F., Pfister, G. G., Fillmore, D., ... Kloster, S. (2010). Description and evaluation of the Model for Ozone and Related chemical Tracers, version 4 (MOZART-4). *Geoscientific Model Development*, 3(1), 43–67. <http://doi.org/10.5194/gmd-3-43-2010>
- EEA (European Environment Agency). (2016). EMEP/EEA air pollutant emission inventory guidebook 2016. *Technical report* No 21/2016. <https://www.eea.europa.eu/publications/emep-eea-guidebook-2016> (accessed November 1, 2018).
- ENVIRON, 2013. CAMx (Comprehensive Air Quality Model with extensions) User's Guide Version 6.3. ENVIRON International Corporation, Novato, CA. <http://www.camx.com/> (accessed November 1, 2018)
- Foroutan, H., Young, J., Napelenok, S., Ran, L., Appel, K. W., Gilliam, R. C., ... Pleim, J. E. (2017). Development and evaluation of a physics-based windblown dust emission scheme implemented in the CMAQ modeling system. *Journal of Advances in Modeling Earth Systems*, 9(1), 585–608. <http://doi.org/10.1002/2016MS000823>
- Fountoukis C. and Nenes A. (2007). ISORROPIA II: a computationally efficient thermodynamic equilibrium model for K<sup>+</sup>-Ca<sup>2+</sup>-Mg<sup>2+</sup>-NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-Na<sup>+</sup>-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>-NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-Cl<sup>-</sup>-H<sub>2</sub>O aerosols. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 7, pp.4639-4659.
- 福井哲央, 國領和夫, 馬場剛, 神成陽容. (2014). 大気汚染物質排出インベントリ EAGrid2000-Japan の年次更新. *大気環境学会誌*, 49(2), 117–125. <http://doi.org/10.11298/taiki.49.117>
- 伏見暁洋, 森野悠, 高見昭憲, 大原利眞, 田邊潔. (2011). PM<sub>2.5</sub> の実態解明に向けて. *大気環境学会誌*, 46(2), 84–100. <http://doi.org/10.11298/taiki.46.84>
- Garcia-Menendez, F., Hu, Y., & Odman, M. T. (2014). Simulating smoke transport from wildland fires with a regional-scale air quality model: Sensitivity to spatiotemporal allocation of fire

- emissions. *Science of the Total Environment*, 493, 544–553.  
<http://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2014.05.108>
- Grell, G. A., Dudhia, J., Stauffer, D. R. (1994). A description of the fifth-generation Penn State/NCAR Mesoscale Model (MM5). *NCAR Technical Note* NCAR/TN-398+STR..
- Guenther, A., Karl, T., Harley, P., Wiedinmyer, C., Palmer, P. I., & Geron, C. (2006). Estimates of global terrestrial isoprene emissions using MEGAN (Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature). *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6(11), 3181–3210.  
<http://doi.org/10.5194/acp-6-3181-2006>
- Harrison, R. M., Jones, A. M., & Lawrence, R. G. (2003). A pragmatic mass closure model for airborne particulate matter at urban background and roadside sites. *Atmospheric Environment*, 37(35), 4927–4933. <http://doi.org/10.1016/J.ATMOSENV.2003.08.025>
- 速水洋. (2007). 解説 大気質モデルの性能評価について 第Ⅱ部, *大気環境学会誌*, 42(4), A30-A33.
- 速水洋. (2011). 大気モデル — 第3講 広域輸送モデル—. *大気環境学会誌*, 46(1), A1–A5.  
<http://doi.org/10.11298/taiki.46.A1>
- Henry, R. C. (1987). Current factor analysis receptor models are ill-posed. *Atmospheric Environment* (1967), 21(8), 1815–1820. [http://doi.org/10.1016/0004-6981\(87\)90122-3](http://doi.org/10.1016/0004-6981(87)90122-3)
- Hong, S.-Y., & J. Lim, J.-O. (2006). The WRF single-moment 6-class microphysics scheme (WSM6). *J. Korean Meteor. Soc.* (Vol. 42).
- Hong, S.-Y., Dudhia, J., & Chen, S.-H. (2004). A Revised Approach to Ice Microphysical Processes for the Bulk Parameterization of Clouds and Precipitation. *Monthly Weather Review*, 132(1), 103–120. [http://doi.org/10.1175/1520-0493\(2004\)132<0103:ARATIM>2.0.CO;2](http://doi.org/10.1175/1520-0493(2004)132<0103:ARATIM>2.0.CO;2)
- Hong, S.-Y., Noh, Y., & Dudhia, J. (2006). A New Vertical Diffusion Package with an Explicit Treatment of Entrainment Processes. *Monthly Weather Review*, 134(9), 2318–2341.  
<http://doi.org/10.1175/MWR3199.1>
- Hong, S., & Kim, S. (2007). Stable Boundary Layer Mixing in a Vertical Diffusion Scheme. *The Korea Meteorology Society*, Fall conference, Seoul, Korea, Oct. 25-26.
- Hopke, P. K. (2016). A Review of Receptor Modeling Methods for Source Apportionment. *Journal of the Air & Waste Management Association*, 2247(January), 10962247.2016.1140693.  
<http://doi.org/10.1080/10962247.2016.1140693>
- Hu, Y., Balachandran, S., Pachon, J. E., Baek, J., Ivey, C., Holmes, H., ... Attribution, C. C. (2014). Fine particulate matter source apportionment using a hybrid chemical transport and receptor model approach. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14(11), 5415–5431.  
<http://doi.org/10.5194/acp-14-5415-2014>
- Hutzell, W. T., Luecken, D. J., Appel, K. W., & Carter, W. P. L. (2012). Interpreting predictions from the SAPRC07 mechanism based on regional and continental simulations. *Atmospheric*

- Environment*, 46, 417–429. <http://doi.org/10.1016/J.ATMOSENV.2011.09.030>
- IEA (International Energy Agency) (2018). World Energy Balances (2017 Edition), [http://www.iea.org/media/statistics/IEA\\_HeadlineEnergyData\\_2017.xlsx](http://www.iea.org/media/statistics/IEA_HeadlineEnergyData_2017.xlsx) (accessed November 1 2018)
- Iijima, A., Tago, H., Kumagai, K., Kato, M., Kozawa, K., Sato, K., & Furuta, N. (2008). Regional and seasonal characteristics of emission sources of fine airborne particulate matter collected in the center and suburbs of Tokyo, Japan as determined by multi-element analysis and source receptor models. *Journal of Environmental Monitoring*, 10(9), 1025–1032. <http://doi.org/10.1039/b806483k>
- Iijima, A., Sato, K., Fujitani, Y., Fujimori, E., Saito, Y., Tanabe, K., ... Furuta, N. (2009). Clarification of the predominant emission sources of antimony in airborne particulate matter and estimation of their effects on the atmosphere in Japan. *Environmental Chemistry*, 6(2), 122–132. <http://doi.org/10.1071/EN08107>
- 飯島明宏. (2011). -大気モデルー 第5講 レセプターモデル-. 大気環境学会誌, 46(4), A53–A60. <http://doi.org/10.11298/taiki.46.A53>
- Ikemori, F., Honjyo, K., Asakawa, D., & Yamagami, M. (2016). Seasonal Variation and Source Analysis of Carbonaceous Aerosol at Urban Site in Nagoya Using Radiocarbon. *Eaorozu Kenkyu*, 31(1), 47–58. [in Japanese]
- Ikemori, F., Nakatsubo, R., Asakawa, D., Uranishi, K., Makino, M., Kido, M., Mitamura, T., Asano, K., Nonaka, S., Nishimura, R., Sugata, S. (2018). Source apportioning analysis of biomass burning in PM<sub>2.5</sub> based on PMF using levoglucosan. manuscript in preparation
- IPCC (Intergovernmental Panel on Climate Change). (2006). 2006 IPCC Guidelines for National Greenhouse Gas Inventories. <https://www.ipcc-nggip.iges.or.jp/public/2006gl/> (accessed November 1, 2018)
- 一般財団法人日本自動車研究所 (2013a). 「自動車排出量推計業務(2010年度版)」報告書 (平成 25 年 3 月).
- 一般財団法人日本自動車研究所 (2013b). 「自動車以外排出量推計業務 (2010 年度版)」報告書 (平成 25 年 3 月).
- Islam, T., Gauderman, W. J., Berhane, K., McConnell, R., Avol, E., Peters, J. M., & Gilliland, F. D. (2007). Relationship between air pollution, lung function and asthma in adolescents. *Thorax*, 62(11), 957–963. <http://doi.org/10.1136/thx.2007.078964>
- 板橋秀一, 速水洋. (2015). トレーサー法を用いたわが国の硫酸塩濃度に対する国内外の発生源寄与評価. 大気環境学会誌, 50(3), 138–151. <http://doi.org/10.11298/taiki.50.138>
- Itahashi, S., Uno, I., Osada, K., Kamiguchi, Y., Yamamoto, S., Tamura, K., ... Kanaya, Y. (2017). Nitrate transboundary heavy pollution over East Asia in winter. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 17(6), 3823–3843. <http://doi.org/10.5194/ACP-17-3823-2017>

- 板橋秀一. (2018). 化学輸送モデルを用いた東アジアにおける広域大気汚染の発生源寄与評価. *大気環境学会誌*, 53(2), 54–61. <http://doi.org/10.11298/taiki.53.54>
- Ito, K., Xue, N., & Thurston, G. (2004). Spatial variation of PM<sub>2.5</sub> chemical species and source-apportioned mass concentrations in New York City. *Atmospheric Environment*, 38(31), 5269–5282. <http://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2004.02.063>
- Ivey, C. E., Holmes, H. a., Hu, Y. T., Mulholland, J. a., & Russell, a. G. (2015). Development of PM<sub>2.5</sub> source impact spatial fields using a hybrid source apportionment air quality model. *Geoscientific Model Development*, 8(7), 2153–2165. <http://doi.org/10.5194/gmd-8-2153-2015>
- Jacob, D. J., Crawford, J. H., Maring, H., Clarke, A. D., Dibb, J. E., Emmons, L. K., ... Fisher, J. A. (2010). The Arctic Research of the Composition of the Troposphere from Aircraft and Satellites (ARCTAS) mission: design, execution, and first results. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10(11), 5191–5212. <http://doi.org/10.5194/acp-10-5191-2010>
- Janjić, Z. I. (1994). The Step-Mountain Eta Coordinate Model: Further Developments of the Convection, Viscous Sublayer, and Turbulence Closure Schemes. *Monthly Weather Review*, 122(5), 927–945. [http://doi.org/10.1175/1520-0493\(1994\)122<0927:TSMECM>2.0.CO;2](http://doi.org/10.1175/1520-0493(1994)122<0927:TSMECM>2.0.CO;2)
- Janssens-Maenhout, G., Crippa, M., Guizzardi, D., Dentener, F., Muntean, M., Pouliot, G., ... Li, M. (2015). HTAP-v2.2: A mosaic of regional and global emission grid maps for 2008 and 2010 to study hemispheric transport of air pollution. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15(19), 11411–11432. <http://doi.org/10.5194/acp-15-11411-2015>
- JPEC (Japan Petroleum Energy Center) (2012a). Technical report of the Japan Auto-Oil Program: emission inventory of road transport in Japan. *Technical Report*, JPEC-2011AQ-02-06. [in Japanese].
- JPEC (Japan Petroleum Energy Center) (2012b). Technical report of the Japan Auto-Oil Program: emission inventory of general source in Japan, *Technical Report*, JPEC-2011AQ-02-07. [in Japanese].
- JPEC (Japan Petroleum Energy Center) (2012c). Technical report of the Japan Auto-Oil Program: Speciation profiles of VOC, PM, and NO<sub>x</sub> emissions for atmospheric simulations of PM<sub>2.5</sub>, *Technical Report*, JPEC-2011AQ-02-08. [in Japanese].
- Kain, J. S., & Fritsch, J. M. (1989). A One-Dimensional Entraining/Detraining Plume Model and Its Application in Convective Parameterization. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 47(23), 2784–2802. [http://doi.org/10.1175/1520-0469\(1990\)047<2784:AODEPM>2.0.CO;2](http://doi.org/10.1175/1520-0469(1990)047<2784:AODEPM>2.0.CO;2)
- Kain, J.S. and J.M. Fritsch. (1990). A one-dimensional entraining/detraining plume model and its application in convective parameterization. *Journal of Atmospheric Science*, 47, pp.2784–2802.
- Kain, J. S. (2004). The Kain–Fritsch Convective Parameterization: An Update. *Journal of Applied Meteorology*, 43(1), 170–181. [http://doi.org/10.1175/1520-0450\(2004\)043<0170:TKCPAU>2.0.CO;2](http://doi.org/10.1175/1520-0450(2004)043<0170:TKCPAU>2.0.CO;2)

- Kajino, M., Sato, K., Inomata, Y., & Ueda, H. (2013). Source-receptor relationships of nitrate in Northeast Asia and influence of sea salt on the long-range transport of nitrate. *Atmospheric Environment*, 79, 67–78. <http://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2013.06.024>
- 環境省 (2007). 微小粒子状物質健康影響評価検討会報告書 報告書 (平成 20 年 4 月), <https://www.env.go.jp/air/report/h20-01/> (accessed November 1, 2018).
- 環境省 (2008). 微小粒子状物質に係る環境基準の設定について (諮問) (平成 20 年 12 月 9 日付け諮問第 251 号、環水大総発第 081209001 号), <http://www.env.go.jp/council/former2013/07air/y078-01/mat01-2.pdf> (accessed November 1, 2018).
- 環境省 (2009). 微小粒子状物質暴露影響調査 報告書 (平成 19 年 7 月), <https://www.env.go.jp/air/report/h19-03/> (accessed November 1, 2018).
- 環境省. (2010). 微小粒子状物質 (PM<sub>2.5</sub>) 測定データ 平成 22 年度, <http://www.env.go.jp/air/osen/pm/monitoring/data/h22.html> (accessed November 1, 2018).
- 環境省. (2012). 大気中微小粒子状物質 (PM<sub>2.5</sub>) 成分測定マニュアルの策定について, <http://www.env.go.jp/air/osen/pm/ca/120419.html> [in Japanese] (accessed November 1, 2018).
- 環境省 (2013). 最近の微小粒子状物質 (PM<sub>2.5</sub>) による大気汚染への対応 (平成 25 年 2 月), [https://www.env.go.jp/air/osen/pm/info/attach/rep\\_20130227-main.pdf](https://www.env.go.jp/air/osen/pm/info/attach/rep_20130227-main.pdf) (accessed November 1, 2018).
- 環境省 (2014a). 平成 26 年 2 月 25～27 日の PM<sub>2.5</sub> の濃度上昇について, <http://www.env.go.jp/air/osen/pm/info/attach/info140304-01.pdf> (accessed November 1, 2018)
- 環境省 (2014b). 平成 25 年度微小粒子状物質 (PM<sub>2.5</sub>) 二次生成粒子の挙動解明に関する文献調査 報告書 (平成 26 年 3 月).
- 環境省 (2015). 微小粒子状物質の国内における排出抑制策の在り方について (中間とりまとめ) 及び意見募集 (パブリックコメント) の結果について, <http://www.env.go.jp/press/100783.html> (accessed November 1, 2018).
- 環境省 (2018a). 平成 30 年版環境白書・循環型社会白書・生物多様性白書, <http://www.env.go.jp/policy/hakusyo/> (accessed November 1, 2018).
- 環境省 (2018b). 大気汚染状況に係る環境基準, <https://www.env.go.jp/kijun/taiki.html> (accessed November 1, 2018).
- 環境省 (2018c). 平成 28 年度 大気汚染状況について (一般環境大気測定局、自動車排出ガス測定局の測定結果報告), <https://www.env.go.jp/press/105288.html> (accessed November 1, 2018).
- 環境省 (2018d). 微小粒子状物質 (PM<sub>2.5</sub>) に関する情報, <https://www.env.go.jp/air/osen/pm/info.html> (accessed November 1, 2018).
- 環境省 (2018e). 微小粒子状物質 (PM<sub>2.5</sub>) 測定データ, <https://www.env.go.jp/air/osen/pm/monitoring.html> (accessed November 1, 2018).

- Kannari, A., Tonooka, Y., Baba, T., & Murano, K. (2007). Development of multiple-species 1 km × 1 km resolution hourly basis emissions inventory for Japan. *Atmospheric Environment*, 41(16), 3428–3439. <http://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2006.12.015>
- Kelly, J. T., Bhave, P. V., Nolte, C. G., Shankar, U., & Foley, K. M. (2010). Simulating emission and chemical evolution of coarse sea-salt particles in the Community Multiscale Air Quality (CMAQ) model. *Geoscientific Model Development*, 3(1), 257–273. <http://doi.org/10.5194/gmd-3-257-2010>
- Kim, E., Hopke, P. K., & Edgerton, E. S. (2003). Source identification of atlanta aerosol by positive matrix factorization. *Journal of the Air and Waste Management Association*, 53(6), 731–739. <https://doi.org/10.1080/10473289.2003.10466209>
- Kim, E., Hopke, P. K., & Edgerton, E. S. (2004). Improving source identification of Atlanta aerosol using temperature resolved carbon fractions in positive matrix factorization. *Atmospheric Environment*, 38(20), 3349–3362. <http://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2004.03.012>
- 国土交通省. (2018). 内航船舶輸送統計年報, <http://www.mlit.go.jp/k-toukei/naikou/naikou.html> (accessed November 1, 2018).
- 気象庁. (2018). メソモデル, [https://www.data.jma.go.jp/add/suishin/cgi-bin/catalogue/make\\_product\\_page.cgi?id=MesModel](https://www.data.jma.go.jp/add/suishin/cgi-bin/catalogue/make_product_page.cgi?id=MesModel) (accessed November 1, 2018)
- Kotchenruther, R. A. (2016). Source apportionment of PM<sub>2.5</sub> at multiple Northwest U.S. sites: Assessing regional winter wood smoke impacts from residential wood combustion. *Atmospheric Environment*, 142, 210–219. <http://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2016.07.048>
- Kotchenruther, R. A. (2013). A regional assessment of marine vessel PM<sub>2.5</sub> impacts in the U.S. Pacific Northwest using a receptor-based source apportionment method. *Atmospheric Environment*, 68, 103–111. <http://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2012.11.067>
- Kumagai, K., Iijima, A., Shimoda, M., Saitoh, Y., Kozawa, K., Hagino, H., & Sakamoto, K. (2010). Determination of dicarboxylic acids and levoglucosan in fine particles in the Kanto plain, japan, for source apportionment of organic aerosols. *Aerosol and Air Quality Research*, 10(3), 282–291. <http://doi.org/10.4209/aaqr.2009.11.0075>
- Kurokawa, J., Ohara, T., Morikawa, T., Hanayama, S., Janssens-Maenhout, G., Fukui, T., ... Akimoto, H. (2013). Emissions of air pollutants and greenhouse gases over Asian regions during 2000-2008: Regional Emission inventory in ASia (REAS) version 2. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13(21), 11019–11058. <http://doi.org/10.5194/acp-13-11019-2013>
- 黒川純一. (2014). アジアにおける排出インベントリに関する研究. *大気環境学会誌*, 49(4), 167–175. <http://doi.org/10.11298/taiki.49.167>
- Kwok, R. H. F., Napelenok, S. L., & Baker, K. R. (2013). Implementation and evaluation of PM<sub>2.5</sub> source contribution analysis in a photochemical model. *Atmospheric Environment*, 80, 398–407. <http://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2013.08.017>



- Lacis, A. A., & Hansen, J. (1974). A Parameterization for the Absorption of Solar Radiation in the Earth's Atmosphere. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 31(1), 118–133. [http://doi.org/10.1175/1520-0469\(1974\)031<0118:APFTAO>2.0.CO;2](http://doi.org/10.1175/1520-0469(1974)031<0118:APFTAO>2.0.CO;2)
- Laprise, R. (1992). The Euler Equations of Motion with Hydrostatic Pressure as an Independent Variable. *Monthly Weather Review*, 120(1), 197–207. [http://doi.org/10.1175/1520-0493\(1992\)120<0197:TEEOMW>2.0.CO;2](http://doi.org/10.1175/1520-0493(1992)120<0197:TEEOMW>2.0.CO;2)
- Lasko, K., Vadrevu, K. P., Tran, V. T., Ellicott, E., Nguyen, T. T. N., Bui, H. Q., & Justice, C. (2017). Satellites may underestimate rice residue and associated burning emissions in Vietnam. *Environmental Research Letters*, 12(8), 085006. <http://doi.org/10.1088/1748-9326/aa751d>
- Maier, M. L., Balachandran, S., Sarnat, S. E., Turner, J. R., Mulholland, J. A., & Russell, A. G. (2013). Application of an ensemble-trained source apportionment approach at a site impacted by multiple point sources. *Environmental Science and Technology*, 47(8), 3743–3751. <http://doi.org/10.1021/es304255u>
- 毎日新聞 (2015). 中国 北京市、大気汚染 初の「最悪」警報, <http://mainichi.jp/articles/20151208/k00/00m/030/189000c> (accessed November 1, 2018)
- 真室哲雄, 松田八束, 溝畑朗, 武内孝之, 藤田晃. (1971). 大気浮遊塵の放射化分析. *RADIOISOTOPES*, 20(3), 117–123. [http://doi.org/10.3769/radioisotopes.20.3\\_117](http://doi.org/10.3769/radioisotopes.20.3_117)
- Mastalerz, M., Hower, J. C., Drobnik, A., Mardon, S. M., & Lis, G. (2004). From in-situ coal to fly ash: a study of coal mines and power plants from Indiana. *International Journal of Coal Geology*, 59(3–4), 171–192. <http://doi.org/10.1016/J.COAL.2004.01.005>
- Matsui, H., Koike, M., Takegawa, N., Kondo, Y., Griffin, R. J., Miyazaki, Y., ... Ohara, T. (2009). Secondary organic aerosol formation in urban air: Temporal variations and possible contributions from unidentified hydrocarbons. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 114(4), 1–22. <http://doi.org/10.1029/2008JD010164>
- Maykut, N. N., Lewtas, J., Kim, E., & Larson, T. V. (2003). Source Apportionment of PM<sub>2.5</sub> at an Urban IMPROVE Site in Seattle, Washington. *Environmental Science and Technology*, 37(22), 5135–5142. <http://doi.org/10.1021/es030370y>
- Meng, Z., Dabdub, D., & Seinfeld, J. H. (1997). Chemical coupling between atmospheric ozone and particulate matter. *Science*, 277(5322), 116–119. <http://doi.org/10.1126/science.277.5322.116>
- Mlawer, E. J., Taubman, S. J., Brown, P. D., Iacono, M. J., & Clough, S. A. (1997). Radiative transfer for inhomogeneous atmospheres: RRTM, a validated correlated-k model for the longwave. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 102(D14), 16663–16682. <http://doi.org/10.1029/97JD00237>
- 森川多津子 (2005). CMAQ を用いた広域大気汚染解析技術の構築. JCAP 技術報告書, JPEC-2004AQ-09.
- 森川多津子. (2010). 大気モデル ー第 1 講 排出インベントリー. *大気環境学会誌*, 45(5),

- A75–A82. <http://doi.org/10.11298/taiki.45.A75>
- Morino, Y., Takahashi, K., Fushimi, A., Tanabe, K., Ohara, T., Hasegawa, S., ... Kobayashi, S. (2010). Contrasting Diurnal Variations in Fossil and Non-fossil Secondary Organic Aerosol in Urban Outflow, Japan. *Environmental Science & Technology*, 44(22), 8581–8586. <http://doi.org/10.1021/es102392r>
- Mukai, S., Yasumoto, M., & Nakata, M. (2014). Estimation of Biomass Burning Influence on Air Pollution around Beijing from an Aerosol Retrieval Model. *Scientific World Journal*, 2014(1537–744X (Electronic)), 649648. <http://doi.org/10.1155/2014/649648>
- 永島達也. (2011). 大気モデル — 第 4 講 全球規模の大気化学モデル—. *大気環境学会誌*, 46(3), A41–A49. <http://doi.org/10.11298/taiki.46.A41>
- Nakatsubo, R., Tsunetomo, D., Horie, Y., Hiraki, T., Saitoh, K., Yoda, Y., & Shima, M. (2014). Estimate of regional and broad-based sources for PM<sub>2.5</sub> collected in an industrial area of Japan. *Asian Journal of Atmospheric Environment*, 8(3), 126–139. <http://doi.org/10.5572/ajae.2014.8.3.126>
- National Bureau of Statistics of China (2018). China Statistical Yearbook 2017, <http://www.stats.gov.cn/tjsj/ndsj/2017/indexeh.htm> (accessed November 1, 2018)
- National Institute for Environmental Studies of Japan: Environmental Numerical Databases, <http://www.nies.go.jp/igreen/index> [in Japanese] (accessed November 1, 2018)
- NCEP: Real-Time SST archives, [http://polar.ncep.noaa.gov/sst/rtg\\_high\\_res/](http://polar.ncep.noaa.gov/sst/rtg_high_res/) (accessed November 1, 2018)
- Neas, L. M., Dockery, D. W., Burge, H., Koutrakis, P., & Speizer, F. E. (1996). Fungus spores, air pollutants, and other determinants of peak expiratory flow rate in children. *American Journal of Epidemiology*, 143(8), 797–807. <http://doi.org/10.1093/oxfordjournals.aje.a008818>
- Ni, H., Han, Y., Chen, L.-W. A., Tian, J., Wang, X., Chow, J. C., ... Huang, R.-J. (2015). Emission characteristics of carbonaceous particles and trace gases from open burning of crop residues in China. *Atmospheric Environment*, 123, 399–406. <http://doi.org/10.1016/J.ATMOSENV.2015.05.007>
- Noh, Y., Cheon, W. G., Hong, S. Y., & Raasch, S. (2003). Improvement of the K-profile Model for the Planetary Boundary Layer based on Large Eddy Simulation Data. *Boundary-Layer Meteorology*, 107(2), 401–427. <http://doi.org/10.1023/A:1022146015946>
- Norris, G., Duvall, R., Brown, S., Bai, S. (2014). EPA Positive Matrix Factorization (PMF) 5.0 Fundamentals and User Guide. U.S. Environmental Protection Agency. EPA/600/R-14/108.
- Ohara, T., Akimoto, H., Kurokawa, J., Horii, N., Yamaji, K., Yan, X., & Hayasaka, T. (2007). An Asian emission inventory of anthropogenic emission sources for the period 1980–2020. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 7(16), 4419–4444. <http://doi.org/10.5194/acp-7-4419-2007>
- Olivier, J.G.J., Bouwman, A.F., Van der Maas, C.W.M., Berdowski, J.J.M., Veldt, C., Bloos, J.P.J.,

- Visschedijk, A.J.H., Zandveld, P.Y.J. and Haverlag, J.L. (1996). Description of EDGAR Version 2.0: A set of global emission inventories of greenhouse gases and ozone-depleting substances for all anthropogenic and most natural sources on a per country basis and on 1ox1o grid. *National Institute of Public Health and the Environment (RIVM) report no. 771060 002 / TNO-MEP report no. R96/119*.
- OPRF (Ocean Policy Research Foundation (Ship and Ocean Foundation)) (2012). Report for comprehensive study for environmental impact lead by the establishment of emission control area in Japan. *Technical Report*. [in Japanese].
- OPRF (Ocean Policy Research Foundation (Ship and Ocean Foundation)) (2013). Report for comprehensive study for environmental impact lead by the establishment of emission control area in Japan. *Technical Report*. [in Japanese].
- Paatero, P., & Tapper, U. (1994). Positive matrix factorization: A non-negative factor model with optimal utilization of error estimates of data values. *Environmetrics*, 5(2), 111–126. <http://doi.org/10.1002/env.3170050203>
- Paatero, P., Hopke, P. K., Song, X. H., & Ramadan, Z. (2002). Understanding and controlling rotations in factor analytic models. *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems*, 60(1–2), 253–264. [http://doi.org/10.1016/S0169-7439\(01\)00200-3](http://doi.org/10.1016/S0169-7439(01)00200-3)
- Paatero, P., & Hopke, P. K. (2003). Discarding or down-weighting high-noise variables in factor analytic models. *Analytica Chimica Acta*, 490(1–2), 277–289. [http://doi.org/10.1016/S0003-2670\(02\)01643-4](http://doi.org/10.1016/S0003-2670(02)01643-4)
- Paatero, P., Eberly, S., Brown, S. G., & Norris, G. A. (2014). Methods for estimating uncertainty in factor analytic solutions. *Atmospheric Measurement Techniques*, 7(3), 781–797. <http://doi.org/10.5194/amt-7-781-2014>
- Paugam, R., Wooster, M., Freitas, S., & Val Martin, M. (2016). A review of approaches to estimate wildfire plume injection height within large-scale atmospheric chemical transport models. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 16(2), 907–925. <http://doi.org/10.5194/acp-16-907-2016>
- Pimonsree, S., Vongruang, P., & Sumitsawan, S. (2018). Modified biomass burning emission in modeling system with fire radiative power: Simulation of particulate matter in Mainland Southeast Asia during smog episode. *Atmospheric Pollution Research*, 9(1), 133–145. <http://doi.org/10.1016/j.apr.2017.08.002>
- Pirovano, G., Colombi, C., Balzarini, A., Riva, G. m., Gianelle, V., & Lonati, G. (2015). PM<sub>2.5</sub> source apportionment in Lombardy (Italy): Comparison of receptor and chemistry-transport modelling results. *Atmospheric Environment*, 106, 56–70. <http://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2015.01.073>
- Pleim, J. E. (2007). A combined local and nonlocal closure model for the atmospheric boundary layer. Part I: Model description and testing. *Journal of Applied Meteorology and Climatology*,

- 46(9), 1383–1395. <http://doi.org/10.1175/JAM2539.1>
- Pleim, J., & Ran, L. (2011). Surface flux modeling for air quality applications. *Atmosphere*, 2(3), 271–302. <http://doi.org/10.3390/atmos2030271>
- Polissar, A. V., Hopke, P. K., Paatero, P., Malm, W. C., & Sisler, J. F. (1998). Atmospheric aerosol over Alaska: 2. Elemental composition and sources. *Journal of Geophysical Research*, 103(D15), 19045. <http://doi.org/10.1029/98JD01212>
- Qiu, X., Duan, L., Chai, F., Wang, S., Yu, Q., & Wang, S. (2016). Deriving High-Resolution Emission Inventory of Open Biomass Burning in China based on Satellite Observations. *Environmental Science & Technology*, 50(21), 11779–11786. <http://doi.org/10.1021/acs.est.6b02705>
- Reff, A., Eberly, S. I., & Bhave, P. V. (2007). Receptor modeling of ambient particulate matter data using positive matrix factorization: Review of existing methods. *Journal of the Air and Waste Management Association*, 57(2), 146–154. <http://doi.org/10.1080/10473289.2007.10465319>
- Reff, A., Bhave, P. V., Simon, H., Pace, T. G., Pouliot, G. A., Mobley, J. D., & Houyoux, M. (2009). Emissions Inventory of PM<sub>2.5</sub> Trace Elements across the United States. *Environmental Science & Technology*, 43(15), 5790–5796. <http://doi.org/10.1021/es802930x>
- Rienecker M.M, Suarez M.J., Todling R., Bacmeister J., Takacs L., Liu H.-C., Gu W., Sienkiewicz M., Koster R.D., Gelaro R., Stajner I. & Nielsen J.E. (2008). The GEOS-5 Data Assimilation System - Documentation of Versions 5.0.1, 5.1.0, and 5.2.0. *Technical Report Series on Global Modeling and Data Assimilation*, volume 27, NASA/TM-2008-104606.
- Schwartz, J., Laden, F., & Zanobetti, A. (2002). The concentration-response relation between PM<sub>2.5</sub> and daily deaths. *Environmental Health Perspectives*, 110(10), 1025–1029. <http://doi.org/10.1289/ehp.021101025>
- 資源エネルギー庁 (Agency for Natural Resources and Energy) (2018a). 総合エネルギー統計 (需給関連) 集計結果又は推計結果, [http://www.enecho.meti.go.jp/statistics/total\\_energy/results.html](http://www.enecho.meti.go.jp/statistics/total_energy/results.html) (accessed November 1, 2018).
- 資源エネルギー庁 (Agency for Natural Resources and Energy) (2018b). 平成 29 年度エネルギーに関する年次報告 (エネルギー白書 2018), <http://www.enecho.meti.go.jp/about/whitepaper/> (accessed November 1, 2018).
- 嶋寺光 (2011). 霧水沈着を考慮した近畿圏における酸性物質沈着量の数値モデルによる評価 (博士論文), 大阪大学大学院.
- Shimadera, H., Kojima, T., & Kondo, A. (2016). Evaluation of Air Quality Model Performance for Simulating Long-Range Transport and Local Pollution of PM<sub>2.5</sub> in Japan. *Advances in Meteorology*, 2016. <http://doi.org/10.1155/2016/5694251>
- Shimomura, M. (2011). Systematic dependences of the elliptic flow. *Proceedings of Science*, 2011–Sept(24), 1753–1759. <http://doi.org/10.1056/NEJM199312093292401>

- Simoneit, B. R. T., Schauer, J. J., Nolte, C. G., Oros, D. R., Elias, V. O., Fraser, M. P., ... Cass, G. R. (1999). Levoglucosan, a tracer for cellulose in biomass burning and atmospheric particles. *Atmospheric Environment*, 33(2), 173–182. [http://doi.org/10.1016/S1352-2310\(98\)00145-9](http://doi.org/10.1016/S1352-2310(98)00145-9)
- Skamarock, W. C., & Klemp, J. B. (2008). A time-split non-hydrostatic atmospheric model for weather research and forecasting applications. *Journal of Computational Physics*, 227(7), 3465–3485. <http://doi.org/10.1016/j.jcp.2007.01.037>
- Song, X.-H., Faber, N. (Klaas) M., Hopke, P. K., Suess, D. T., Prather, K. A., Schauer, J. J., & Cass, G. R. (2001). Source apportionment of gasoline and diesel by multivariate calibration based on single particle mass spectral data. *Analytica Chimica Acta*, 446(1–2), 327–341. [http://doi.org/10.1016/S0003-2670\(01\)01270-3](http://doi.org/10.1016/S0003-2670(01)01270-3)
- Stephens, G. L. (1978). Radiation Profiles in Extended Water Clouds. II: Parameterization Schemes. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 35(11), 2123–2132. [http://doi.org/10.1175/1520-0469\(1978\)035<2123:RPIEWC>2.0.CO;2](http://doi.org/10.1175/1520-0469(1978)035<2123:RPIEWC>2.0.CO;2)
- 大気環境学会史料整理研究委員会 (2000). 「日本の大気汚染の歴史」
- 高橋 克行, 伏見 暁洋, 森野 悠, 飯島 明宏, 米持 真一, 速水 洋, ... 小林 伸治. (2011). 北関東における微小粒子状物質のレセプターモデルと放射性炭素同位体比を組み合わせた発生源寄与率推定. *大気環境学会誌*, 46(3), 156–163. Retrieved from <http://ci.nii.ac.jp/naid/130004554409>
- 豊永悟史, 出納由美子, 北岡宏道, 村岡俊彦. (2017). レセプターモデルを用いた熊本県における PM<sub>2.5</sub> 発生源寄与の推定—離島との比較による越境/地域汚染の影響の解析—. *大気環境学会誌*, 52(5), 150–165. <http://doi.org/10.11298/taiki.52.150>
- Tsai, J. H., Huang, K. L., Lin, N. H., Chen, S. J., Lin, T. C., Chen, S. C., ... Lin, W. Y. (2012). Influence of an Asian dust storm and Southeast Asian biomass burning on the characteristics of seashore atmospheric aerosols in Southern Taiwan. *Aerosol and Air Quality Research*, 12(6), 1105–1115. <http://doi.org/10.4209/aaqr.2012.07.0201>
- Ulbrich, I. M., Canagaratna, M. R., Zhang, Q., Worsnop, D. R., & Jimenez, J. L. (2009). Interpretation of Organic Components from Positive Matrix Factorization of Aerosol Mass Spectrometric Data. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9, 2891. <http://doi.org/10.5194/acp-9-2891-2009>
- 鵜野伊津志, 長田和雄, 弓本桂也, 板橋秀一, 桑原昇平, Pan, X., ... 山本重一. (2016). 九州北部で2014年5月下旬から1週間継続した黄砂期間の硝酸塩の越境輸送のモデル解析. *大気環境学会誌*, 51(4), 181–189. <http://doi.org/10.11298/taiki.51.181>
- Uno, I., Osada, K., Yumimoto, K., Wang, Z., Itahashi, S., Pan, X., ... Nishizawa, T. (2017). Importance of long-range nitrate transport based on long-term observation and modeling of dust and pollutants over East Asia. *Aerosol and Air Quality Research*, 17(12), 3052–3064. <http://doi.org/10.4209/aaqr.2016.11.0494>

- U.S.EPA (United States Environmental Protection Agency) (1999). Visibility Monitoring Guidance EPA-454/R-99-003.
- U.S.EPA (United States Environmental Protection Agency) (2004). Air quality criteria for particulate matter (Final Report, Oct 2004). U.S. Environmental Protection Agency, Washington, DC, EPA 600/P-99/002aF-bF; 2004.
- U.S.EPA (United States Environmental Protection Agency) (2018). Particle Matter (PM) Basics, <https://www.epa.gov/pm-pollution/particulate-matter-pm-basics> (accessed November 1, 2018).
- Van Der Werf, G. R., Randerson, J. T., Giglio, L., Collatz, G. J., Mu, M., Kasibhatla, P. S., ... Van Leeuwen, T. T. (2010). Global fire emissions and the contribution of deforestation, savanna, forest, agricultural, and peat fires (1997-2009). *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10(23), 11707–11735. <http://doi.org/10.5194/acp-10-11707-2010>
- Viana, M., Kuhlbusch, T. A. J., Querol, X., Alastuey, A., Harrison, R. M., Hopke, P. K., ... Hitzenberger, R. (2008). Source apportionment of particulate matter in Europe: A review of methods and results. *Journal of Aerosol Science*, 39(10), 827–849. <http://doi.org/10.1016/j.jaerosci.2008.05.007>
- Vongruang, P., Wongwises, P., & Pimonsree, S. (2017). Assessment of fire emission inventories for simulating particulate matter in Upper Southeast Asia using WRF-CMAQ. *Atmospheric Pollution Research*, 8(5), 921–929. <http://doi.org/10.1016/j.apr.2017.03.004>
- Wang, H., & Shooter, D. (2005). Source apportionment of fine and coarse atmospheric particles in Auckland, New Zealand. *Science of the Total Environment*, 340(1–3), 189–198. <http://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2004.08.017>
- Wang, Y. Q., Zhang, X. Y., & Draxler, R. R. (2009). TrajStat: GIS-based software that uses various trajectory statistical analysis methods to identify potential sources from long-term air pollution measurement data. *Environmental Modelling & Software*, 24(8), 938–939. <http://doi.org/10.1016/J.ENVSOFT.2009.01.004>
- Wang, Y., Hopke, P. K., Xia, X., Rattigan, O. V., Chalupa, D. C., & Utell, M. J. (2012). Source apportionment of airborne particulate matter using inorganic and organic species as tracers. *Atmospheric Environment*, 55, 525–532. <http://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2012.03.073>
- Watson, J. (1979). Chemical element balance receptor model methodology for assessing the sources of fine and total suspended particulate matter in Portland, Oregon. *Oregon Graduate Center, Beaverton, OR., Ph.D. dissertation.* <http://doi.org/10.6083/M41G0J7Q>
- Whitby, K. T. (1978). The physical characteristics of sulfur aerosols. *Atmospheric Environment* (1967), 12(1–3), 135–159. [http://doi.org/10.1016/0004-6981\(78\)90196-8](http://doi.org/10.1016/0004-6981(78)90196-8)
- Wiedinmyer, C., Akagi, S. K., Yokelson, R. J., Emmons, L. K., Al-Saadi, J. a., Orlando, J. J., & Soja, a. J. (2010). The Fire INventory from NCAR (FINN) – a high resolution global model to estimate the emissions from open burning. *Geoscientific Model Development Discussions*, 3(4), 2439–

2476. <http://doi.org/10.5194/gmdd-3-2439-2010>
- Willmott, C. J. (1981). On the validation of models. *Physical Geography*, 2(2), 184–194. <http://doi.org/10.1080/02723646.1981.10642213>
- Yang, E. S., Christopher, S. A., Kondragunta, S., & Zhang, X. (2011). Use of hourly Geostationary Operational Environmental Satellite (GOES) fire emissions in a Community Multiscale Air Quality (CMAQ) model for improving surface particulate matter predictions. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 116(4), 1–13. <http://doi.org/10.1029/2010JD014482>
- Yarwood G., Rao S., Yocke M. & Whitten G.Z. (2005). Updates to the Carbon Bond chemical mechanism: CB05. Final Report to the US EPA, RT-0400675.
- Ying, Q., Wu, L., & Zhang, H. (2014). Local and inter-regional contributions to PM<sub>2.5</sub> nitrate and sulfate in China. *Atmospheric Environment*, 94, 582–592. <http://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2014.05.078>
- 吉川康雄, 茶谷聡, 伊藤晃佳. (2010). 大気モデル —第2講— 都市の大気質に関する化学輸送モデル—. *大気環境学会誌*, 45(6), A83–A92. <http://doi.org/10.11298/taiki.45.A83>
- 在中国日本国大使館 (2015). 北京市大気汚染応急プランについて, [https://www.cn.emb-japan.go.jp/consular\\_j/joho1503\\_j.htm](https://www.cn.emb-japan.go.jp/consular_j/joho1503_j.htm) (accessed November 1, 2018)
- 全国環境研協議会酸性雨広域大気汚染調査研究部会. (2012). 第5次酸性雨全国調査報告書 (平成22年度), *全国環境研会誌*, 36(3), 106–146. <http://db.cger.nies.go.jp/dataset/acidrain/ja/05/>
- Zhang, H., Li, J., Ying, Q., Yu, J. Z., Wu, D., Cheng, Y., ... Jiang, J. (2012). Source apportionment of PM<sub>2.5</sub> nitrate and sulfate in China using a source-oriented chemical transport model. *Atmospheric Environment*, 62, 228–242. <http://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2012.08.014>
- Zhang, Q., Streets, D. G., Carmichael, G. R., He, K., Huo, H., Kannari, A., ... Yao, Z. (2009). Asian emissions in 2006 for the NASA INTEX-B mission. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9, 5131–5153. <http://doi.org/10.5194/acp-9-5131-2009>
- Zhang, R., Jing, J., Tao, J., Hsu, S. C., Wang, G., Cao, J., ... Shen, Z. (2013). Chemical characterization and source apportionment of PM<sub>2.5</sub> in Beijing: Seasonal perspective. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13(14), 7053–7074. <http://doi.org/10.5194/acp-13-7053-2013>
- Zhang, X., Hecobian, A., Zheng, M., Frank, N. H., & Weber, R. J. (2010). Biomass burning impact on PM<sub>2.5</sub> over the southeastern US during 2007: Integrating chemically speciated FRM filter measurements, MODIS fire counts and PMF analysis. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10(14), 6839–6853. <http://doi.org/10.5194/acp-10-6839-2010>
- Zhao, M., Zhang, Y., Ma, W., Fu, Q., Yang, X., Li, C., ... Chen, L. (2013). Characteristics and ship traffic source identification of air pollutants in China's largest port. *Atmospheric Environment*, 64, 277–286. <http://doi.org/10.1016/J.ATMOSENV.2012.10.007>

- Zhou, L., Hopke, P. K., Paatero, P., Ondov, J. M., Pancras, J. P., Pekney, N. J., & Davidson, C. I. (2004). Advanced factor analysis for multiple time resolution aerosol composition data. *Atmospheric Environment*, 38(29), 4909–4920. <http://doi.org/10.1016/J.ATMOENV.2004.05.040>
- Zhou, Y., Xing, X., Lang, J., Chen, D., Cheng, S., Wei, L., ... Liu, C. (2017). A comprehensive biomass burning emission inventory with high spatial and temporal resolution in China. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 17(4), 2839–2864. <http://doi.org/10.5194/acp-17-2839-2017>
- Zhu, C., Kawamura, K., & Kunwar, B. (2015). Effect of biomass burning over the western North Pacific Rim: wintertime maxima of anhydrosugars in ambient aerosols from Okinawa. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15(4), 1959–1973. <http://doi.org/10.5194/acp-15-1959-2015>



## 頭字語 (Abbreviations)

---

ACM	Asymmetric Convective Method
AeroCom	Aerosol Comparisons between Observations and Models
AQI	Air Quality Index
ARW	Advanced Research WRF
AS	Automobile Source
BB	Biomass Burning
BCON	Boundary CONditions processor
BDL	Below-Detection Limit
BFM	Brute-Force Method
BS	Bootstrap
CAMx	Comprehensive Air quality Model with extensions
CB05	Carbon Bond chemical mechanism version 2005
CCTM	CMAQ Chemical Transport Model
CMAQ	Community Multiscale Air Quality model
CMAS	Community Modeling and Analysis System
CMB	Chemical Mass Balance
CMC	Chemical Mass Closure
CTM	Chemical Transport Model
DISP	Displacement
DTC	Developmental Testbed Center
EC	Elemental Carbon
EDGAR	Emission Database for Global Atmospheric Research
EF	Emission Factor
FDDA	Four-Dimensional Data Assimilation
FINN	Fire INventory from NCAR
GDAS	Global Data Assimilation System
GEOS-Chem	Goddard Earth Observing System Chemical Transport model
GFED	Global Fire Emissions Database
GRIB	GRIdded Binary
GS	General Source
HTAP	the Task Force Hemispheric Transport of Air Pollution
IA	Index of Agreement
IC	Ion Chromatography

ICON	Initial CONditions processor
IEA	International Energy Agency
ICP-MS	Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometry
IMPROVE	Interagency Monitoring of PROtected Visual Environments protocol
INTEX-B	Intercontinental Chemical Transport Experiment phase B
I/O API	Input/Output Application Programming Interface
IQR	Interquartile Range
JEI-DB	Japan Auto-Oil Program (JATOP) Emission Inventory-Data Base
JFY	Japanese Fiscal Year
JMA	Japan Meteorological Agency
JPEC	Japan Petroleum Energy Center
JRC	Joint Research Center
LAI	Leaf Area Index
LES	Large Eddy Simulation
LRT	Long-range transport
LSM	Land-Surface Model
MBE	Mean Bias Error
MCIP	Meteorology-Chemistry Interface Processor
MEGAN	Model of Emissions of Gases and Aerosol from Nature
MLIT-GIAJ	
MMM	Mesoscale and Microscale Meteorology Laboratory
MM5	Fifth-generation Mesoscale Model
MODIS	Terra Moderate Resolution Imaging Spectro radiometer
MOE	Ministry of Environment in Japan
MOZART	the Model for Ozone and Related chemical Tracers
MSM GPV	Mesoscale Model Grid Point Value
MYJ	Mellor–Yamada–Janjić
NASA	National Aeronautics and Space Administration
NCAR	National Center for Atmospheric Research
NCEP	National Centers for Environmental Prediction
NCEP FNL	NCEP FiNaL operational global analysis data
NE China	Northeast China
NetCDF	Network Common Data Form
NIES	National Institute for Environmental Studies
NMB	Normalized Mean Bias
NMHC	Non-Methane HydroCarbons

NMM	Nonhydrostatic Mesoscale Model
NMVOC	Non-Methane Volatile Organic Compounds
NRMSE	RMSE normalized by the mean observed value
NWP	Numerical Weather Prediction
OA	Organic Aerosol
OC	Organic Carbon
OPRF	Ocean Policy Research Foundation
PBL	Planetary Boundary Layer
PFT	Plant Functional Type
PF2	the proportion of simulated values within a factor 2 of observation
PMF	Positive Matrix Factorization
PM <sub>10</sub>	Fine particulate Matter of less than 10 μm in diameter
PM <sub>2.5</sub>	Fine particulate Matter of less than 2.5 μm in diameter
PPM	Piecewise Parabolic Method
PTFE	Polytetrafluoroethylene
<i>R</i>	Pearson's correlation coefficient
RADM	Regional Acid Deposition Model
REAS	Regional Emission inventory in ASia
RMSE	Root Mean Square Error
RPM	Regional Particle Model
RRTM	Rapid Radiative Transfer Model
RSD	Relative Standard Deviations
RTG-SST-HR	Real-Time, Global, Sea Surface Temperature High Resolution
SAPRC-99	Statewide Air Pollution Research Center version 99
SAPRC-07t	Statewide Air Pollution Research Center version 07 toxics
SMOKE	Sparse Matrix Operator Kernal Emissions
SPM	Suspended Particulate Matter
SVOC	Semi-Volatile Organic Compounds
TA	Total Ammonium
THC	Total Hydrocarbon
TN	Total Nitrate
TOR	Thermal Optical Reflectance
TPM	Total Particle Matter
TRACE-P	Transport and Chemical Evolution over the Pacific
U.S.EPA	United States Environmental Protection Agency
USGS	United States Geological Survey

VOC	Volatile Organic Compounds
WPS	WRF Preprocessing System
WRF	Weather Research and Forecasting model
WSM6	WRF Single-moment 6-class scheme
YSU	YonSei University



## Appendix: WRF の性能評価

---

CMAQ の入力データとして利用する気象データは、CMAQ が大気汚染物質の輸送および解析対象地点における大気汚染物質濃度を再現する上で、大きな影響を与える。日本は経済発展が著しいアジア圏の東側に位置し、季節風や気圧配置の影響により、国外起源の大気汚染物質が移流される可能性がある。例えば、以下の場合、日本に大気汚染物質が輸送される可能性がある。

- 春季、秋季：大陸からの移動性高気圧や北西の季節風の影響で、日本列島から見て北西・西の都市を經由した気塊が日本列島に到達する場合
- 夏季：太平洋高気圧の影響で、南東からの気塊、もしくは高気圧を迂回して台湾近辺を經由した気塊が日本列島に到達する場合
- 冬季：日本の北東の海上に発達した低気圧があり、西高東低の気圧配置となり、北西の季節風の影響で大陸から気団が達する場合

このように、解析地点周囲だけでなく国外の地点も含めて、WRF が気象場を適切に再現できているかを確認しておく必要がある。以降では、WRF の性能評価に用いた統計指標、第 3 章から第 5 章において WRF による気象場の再現性について述べる。

## A.1 WRF の性能評価にかかる統計指標

モデルの性能評価には、観測値および計算値の平均値 (Mean Obs.および Mean Sim.)、相関係数 (R)、MBE、MAE (Mean Absolute Error)、RMSE、IA を統計指標として用いた。算出方法を、(A.1)~(A.5) 式に示す。

$$R = \frac{\sum_{i=1}^N (M_i - \bar{M})(O_i - \bar{O})}{\sqrt{\sum_{i=1}^N (O_i - \bar{O})^2}} \quad (\text{A.1})$$

$$\text{MBE} = \bar{M} - \bar{O} \quad (\text{A.2})$$

$$\text{MAE} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N |M_i - O_i| \quad (\text{A.3})$$

$$\text{RMSE} = \left\{ \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (M_i - O_i)^2 \right\}^{\frac{1}{2}} \quad (\text{A.4})$$

$$\text{IA} = 1 - \frac{\sum_{i=1}^N (M_i - O_i)^2}{\sum_{i=1}^N (|M_i - \bar{O}| + |O_i - \bar{O}|)^2} \quad (\text{A.5})$$

ここで、 $M_i$ 、 $O_i$ はある観測地点の時間*i*における計算値と観測値を、 $\bar{M}$ 、 $\bar{O}$ は計算値の平均値と観測値の平均値を、 $N$ はサンプル数を表す。

先行研究において、気象モデルによる予測精度評価のための統計指標の基準 (以下、ベンチマーク基準という。Table A.1 にその内容を示す。) が提案されている (Emery et al., 2001)。当初、このベンチマーク基準は気象モデル MM5 の予測精度を月単位で評価するために利用された。その後の研究において、WRF の予測精度評価に本ベンチマーク基準がよく引用されている (例えば、Zhang et al., 2012; Kumar et al., 2012; Zhang et al., 2014)。しかし、地域特性に関係なく一律のベンチマーク基準で気象モデルの予測精度評価をおこなうことは適切でないとの見解も存在する (McNally, 2009; Zhang et al., 2014)。

第3章~第5章で利用した WRF による気象データの計算期間は一年で、ベンチマーク基準が通年の再現性評価に適用できるかは不明であることから、以降の性能評価には、参考ベンチマーク基準の適合状況は参考として表に示すのみとした。また、観測データには欠測のため、データが存在しない期間、地点が存在する。欠測期間のデータについては統計指標の算出対象からは除外した。

**Table A.1** Benchmark standards for the evaluation of meteorological model (WRF) performance (Emery et al., 2001).

Benchmark standards	
Temperature	MAE $\leq 2$ K
	MBE  $\leq 0.5$ K
	IA $\geq 0.8$
Mixing ratio	MAE $\leq 2$ g/kg
	MBE  $\leq 1$ g/kg
	IA $\geq 0.6$
Wind speed	RMSE $\leq 2$ m/s
	MBE  $\leq 0.5$ m/s
	IA $\geq 0.6$

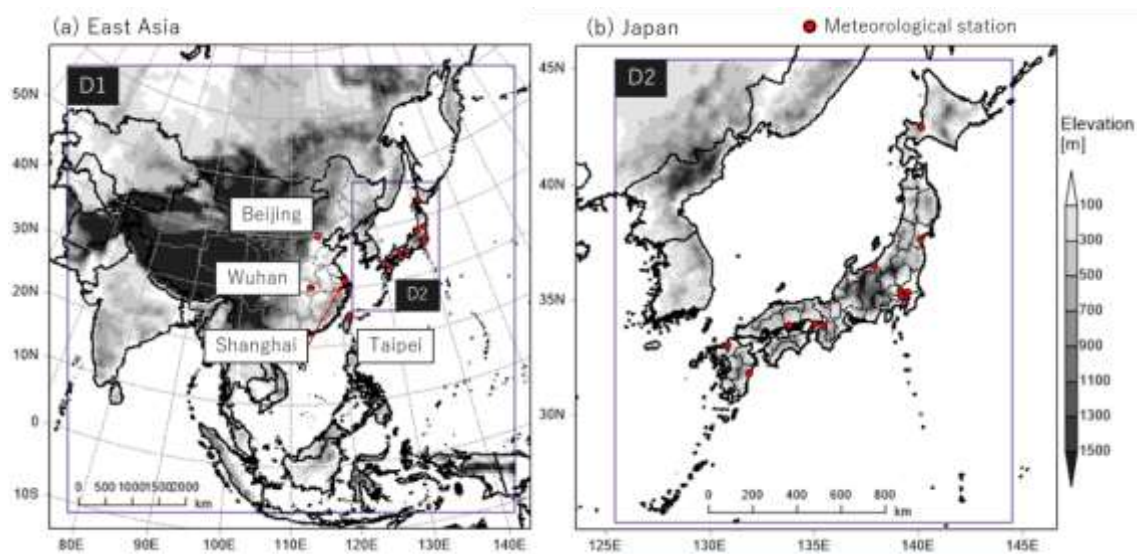


## A.2 第3章で用いた気象場の再現性

### A.2.1 地上観測データ

日本国外における気象データはワイオミング大学大気科学科ホームページ (<http://weather.uwyo.edu/upperair/sounding.html>) より得た。同ホームページでは、世界各地の観測地点ごとの標準時0時と12時のラジオゾンデ観測データが整備されている。本項では2010年度の中国3地点(北京、上海、武漢)および台湾1地点(台北)における地表面の気象観測データを利用した (Fig. A.1a)。北京、上海、武漢はそれぞれ人口が中国第2位、第1位、第5位の大都市、台北は台湾最大の都市であり、大気汚染物質の排出量が比較的多い。

また、日本国内における気象観測データは気象観測月報 (一般財団法人気象業務支援センター, <http://www.jmbc.or.jp/jp/offline/cd0061.html>) より得た。比較した地点は2010年度にPM<sub>2.5</sub>の成分分析が行われた北海道札幌市、宮城県仙台市、新潟県上越市、茨城県取手市、埼玉県蓮田市、千葉県市川市、東京都板橋区、大阪府堺市、兵庫県神戸市、岡山県倉敷市、福岡県福岡市、宮崎県日向市の12地点の近傍の気象観測所12地点(札幌、仙台、新潟、熊谷、水戸、千葉、東京、大阪、神戸、岡山、福岡、延岡)である。Fig. A.1bにその位置関係を示す。



**Fig. A.1** Modeling domains for WRF simulation and the locations of meteorological stations: (a) East Asia (D1), and (b) Japan (D2) with height above sea level and locations of observation sites.

## A.2.2 日本国外の気象場

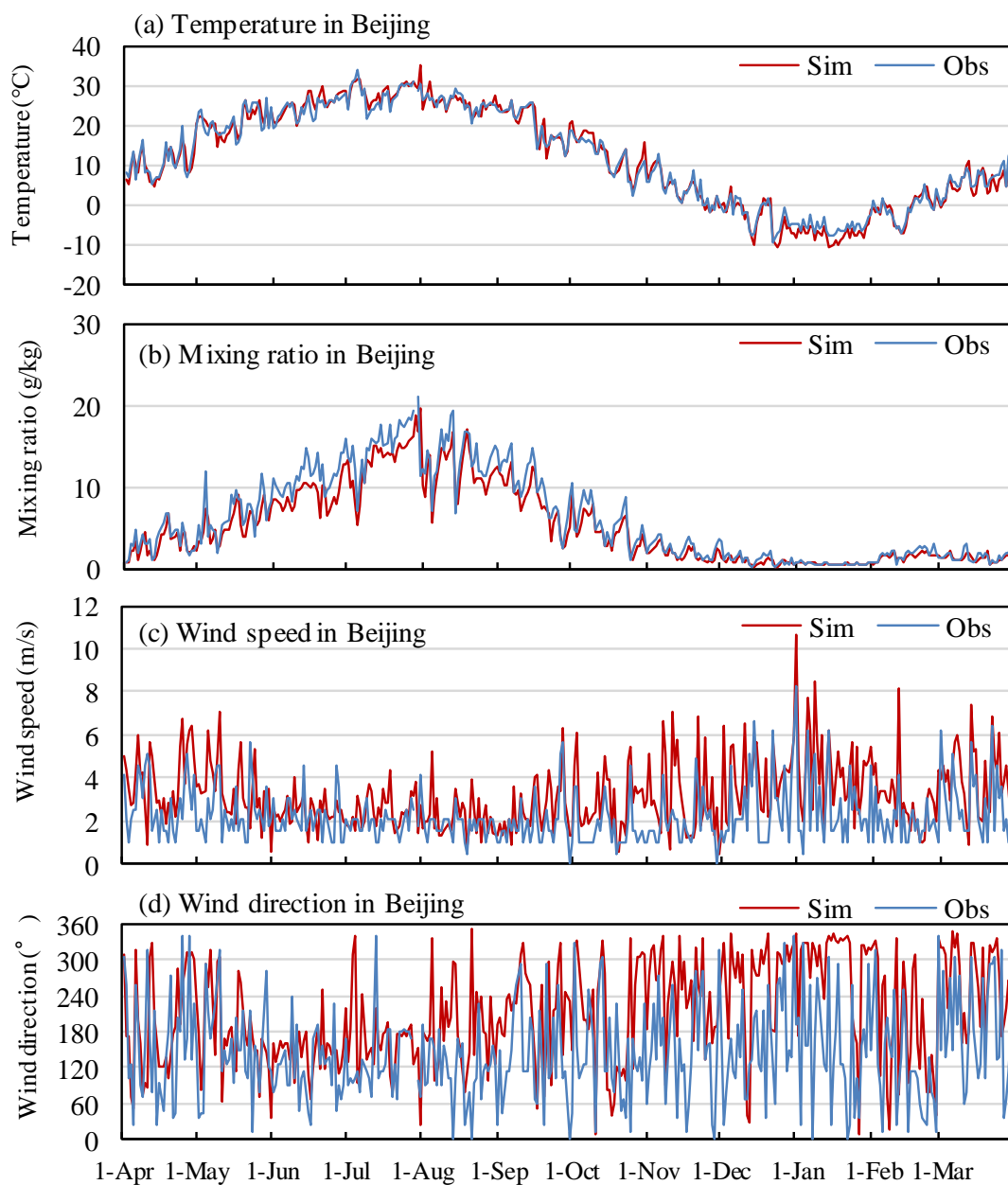
北京、上海、武漢、台北における、気温・混合比・風速の統計指標一覧を **Table A.2** に示す。気温・混合比・風速・風向の計算値と観測値の時系列変化をそれぞれ、**Fig. A.2**、**Fig. A.3**、**Fig. A.4**、**Fig. A.5** に示す。日平均値の算出には、観測値と同様に計算値も標準時 0 時と 12 時の値の平均とした。

気象モデルによる計算結果は日々変化を捉えており、観測値とおおむね良好な一致が見られた (**Fig A.2 ~ A.5**)。気温および混合比の IA については、全 4 地点で 0.97 以上で良好な再現性を示した。風速の IA については、気温および混合比と比べて総じて低い値を示した (**Table A.2**)。これは計算領域 D1 が 60 km 格子で計算を行っているため、土地の起伏を正確に解像できていないことが影響している。特に、台北盆地は東西に約 40 km、南北に約 40 km と計算格子よりも小さく、土地の起伏を正確に解像できていない影響をより強く受けている。さらに、台北、上海ともに海の近くに位置しており、同一メッシュに海メッシュが入っていることが、北京および武漢の IA よりも値が低くなった原因と考えられた。今後、台北を解析対象としてモデル計算を行う場合にはより細かい格子解像度を設定することが必要である。

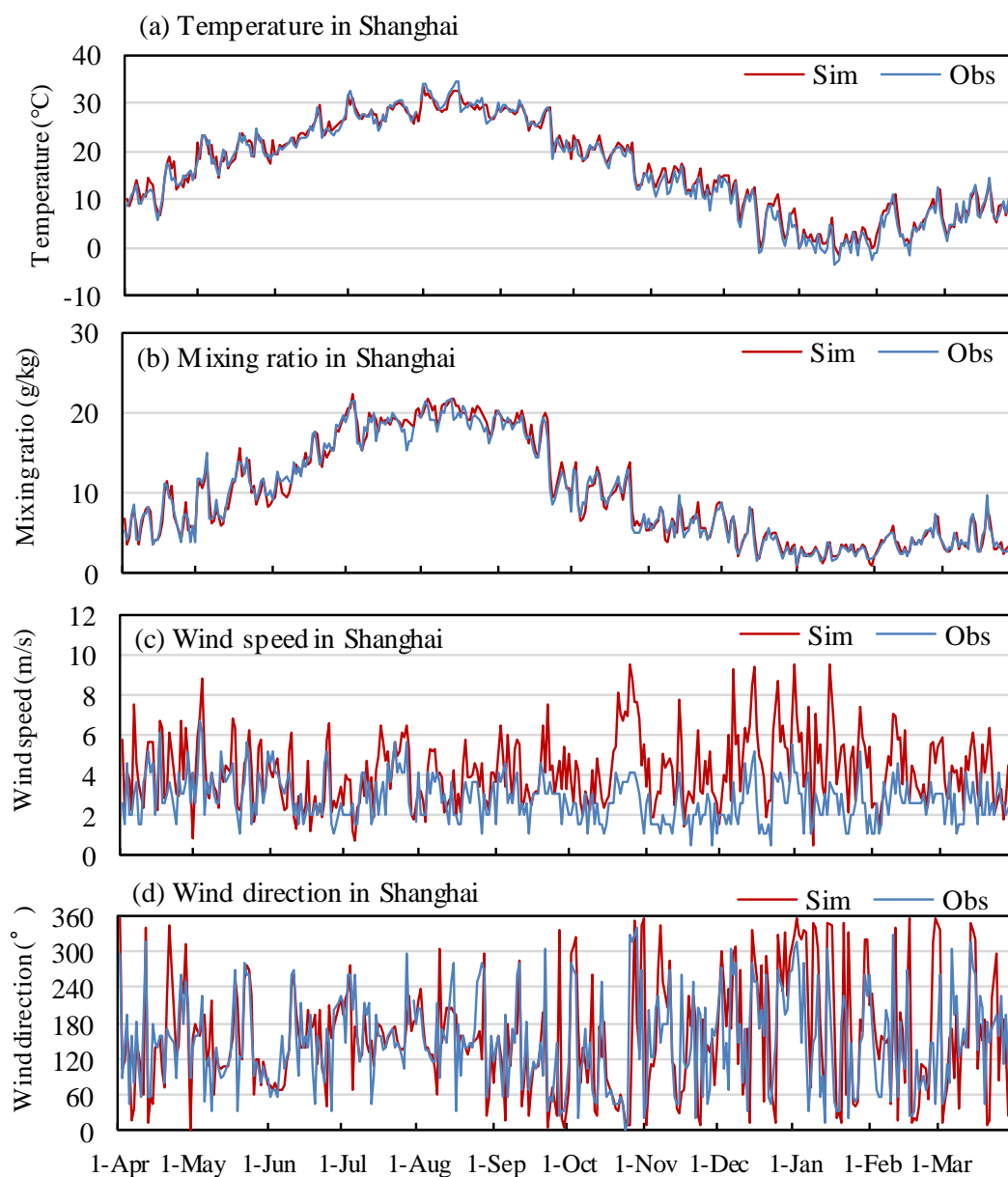
**Table A.2** Statistical comparisons between observed and simulated daily mean values of temperature, mixing ratio, and wind speed at the meteorological stations in China and Taiwan in JFY2010. Colored cells represent that the statistical values meet the benchmark standard shown in [Table A.1](#).

		Beijing	Shanghai	Wuhan	Taipei
N <sup>a</sup>		364	364	364	363
Temperature	$\bar{O}$ (°C)	12.2	16.0	15.4	21.5
	$\bar{M}$ (°C)	12.1	16.6	17.7	22.1
	$R$	0.99	0.99	0.99	0.98
	MBE (°C)	-0.14	-0.55	2.2	0.56
	MAE (°C)	1.4	1.2	2.3	1.1
	RMSE (°C)	1.7	1.5	2.7	1.4
	IA	0.99	0.99	0.98	0.99
	Mixing ratio	$\bar{O}$ (g/kg)	6.2	9.6	10.2
$\bar{M}$ (g/kg)		5.2	9.8	9.4	13.6
$R$		0.98	0.99	0.98	0.98
MBE (g/kg)		-0.98	0.17	-0.87	0.45
MAE (g/kg)		1.2	0.72	1.1	0.72
RMSE (g/kg)		1.6	0.95	1.5	0.93
IA		0.97	0.99	0.99	0.99
Wind speed		$\bar{O}$ (m/s)	2.2	2.8	1.7
	$\bar{M}$ (m/s)	3.2	4.2	2.7	7.2
	$R$	0.54	0.50	0.73	0.59
	MBE (m/s)	0.97	1.4	1.1	4.9
	MAE (m/s)	1.3	1.6	1.2	4.9
	RMSE (m/s)	1.7	2.1	1.4	5.6
	IA	0.66	0.55	0.73	0.33

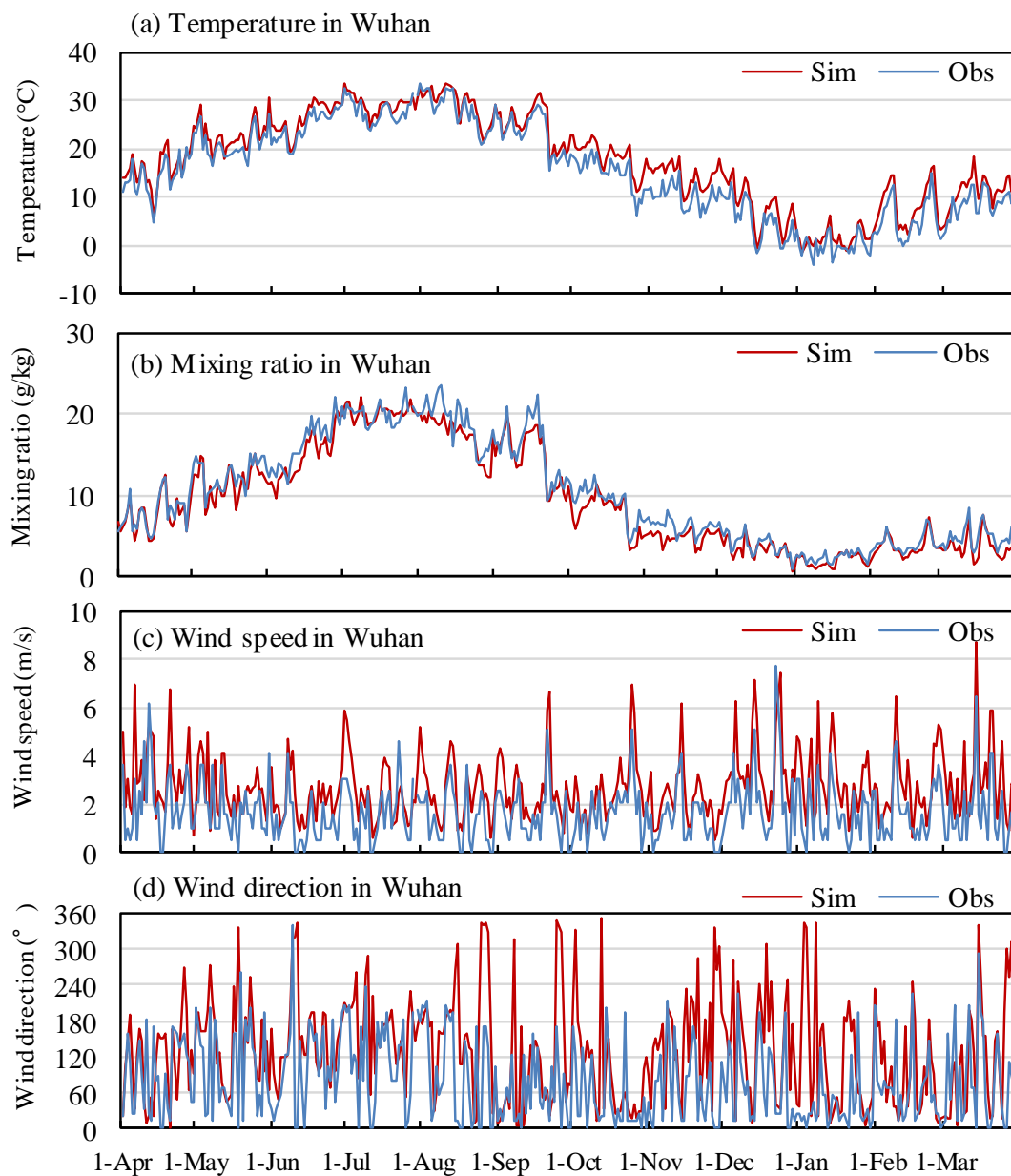
<sup>a</sup>Missing observation data was excluded for the evaluation of every statistical value.



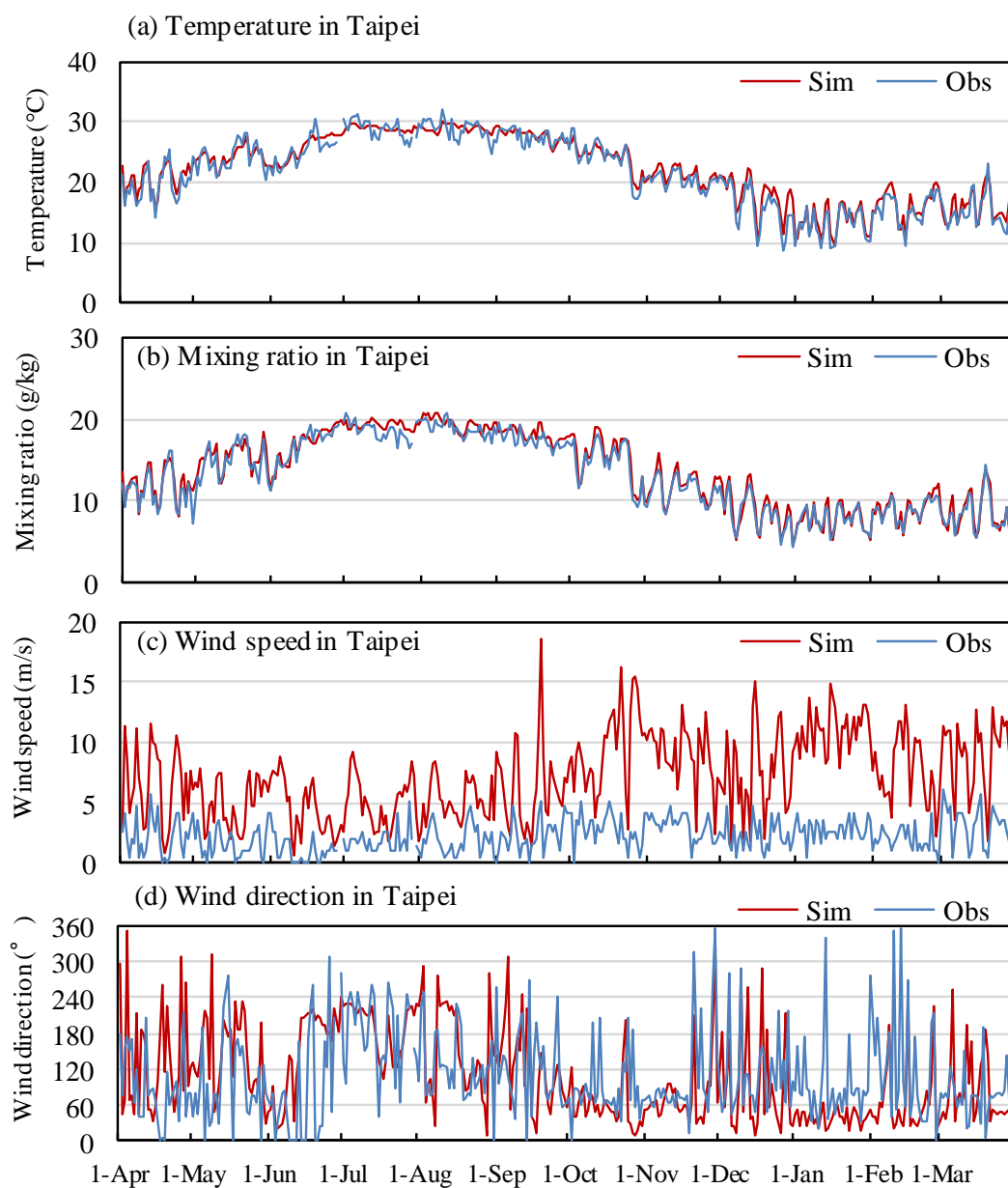
**Fig. A.2** Time series of the observed and simulated daily mean values: (a) Temperature, (b) Mixing ratio, (c) Wind speed, and (d) Wind direction in **Beijing** in China in JFY2010. Dates in China are in CST (UTC+8). The red line shows the simulated values at the grid cell corresponding to each observation site, whereas the blue line shows the observed values without missing data points



**Fig. A.3** Time series of the observed and simulated daily mean values: (a) Temperature, (b) Mixing ratio, (c) Wind speed, and (d) Wind direction in **Shanghai** in China in JFY2010. Dates in China are in CST (UTC+8). The red line shows the simulated values at the grid cell corresponding to each observation site, whereas the blue line shows the observed values without missing data points.



**Fig. A.4** Time series of the observed and simulated daily mean values: (a) Temperature, (b) Mixing ratio, (c) Wind speed, and (d) Wind direction in **Wuhan** in China in JFY2010. Dates in China are in CST (UTC+8). The red line shows the simulated values at the grid cell corresponding to each observation site, whereas the blue line shows the observed values without missing data points.



**Fig. A.5** Time series of the observed and simulated daily mean values: (a) Temperature, (b) Mixing ratio, (c) Wind speed, and (d) Wind direction in **Taipei** in Taiwan in JFY2010. Dates in Taiwan are in CST (UTC+8). The red line shows the simulated values at the grid cell corresponding to each observation site, whereas the blue line shows the observed values without missing data points.

### A.2.3 日本国内の気象場

国内 12 地点 (札幌、仙台、新潟、熊谷、水戸、千葉、東京、大阪、神戸、岡山、福岡、延岡) における、気温・混合比・風速・降水量の統計指標一覧を Table A.3、Table A.4 に示す。また 12 地点平均した気温・混合比・風速・降水量の計算値と観測値の日平均値の時系列変化を Fig. A.6 に示す。

日本国外の気象場と比べて、WRF はより良好に国内の気象場を再現できていた。気温は MBE の値が負となっている地点が多く、WRF は気温の季節変化を捉えているものの、12 地点平均でみた場合、過小評価している傾向が見られた (Table A.3, Fig. A.6)。混合比は全 12 地点で IA が 0.98 以上で WRF は混合比の季節変化を良好に再現していたが、12 地点中 11 地点で MBE の値が負となっており、気温と同様、過小評価傾向を示していた (Table A.3)。風速は、気温および混合比の IA 値よりは低いものの、0.73 以上の値を示し、WRF は季節変化を良好に再現性していた。降水量は観測値と比べて、過小評価していた (Table A.4)。CMAQ で大気汚染物質の湿性沈着量を算出する際、降水量も入力値として使用されることから、降水量の過小評価が大気汚染物質の湿性沈着量の過小評価および大気中濃度の過大評価を誘発する可能性に留意する必要がある。



**Table A.3** Statistical comparisons between observed and simulated daily mean values of temperature, and mixing ratio at the meteorological stations in Japan in JFY2010. Colored cells represent that the statistical values meet the benchmark standard shown in [Table A.1](#).

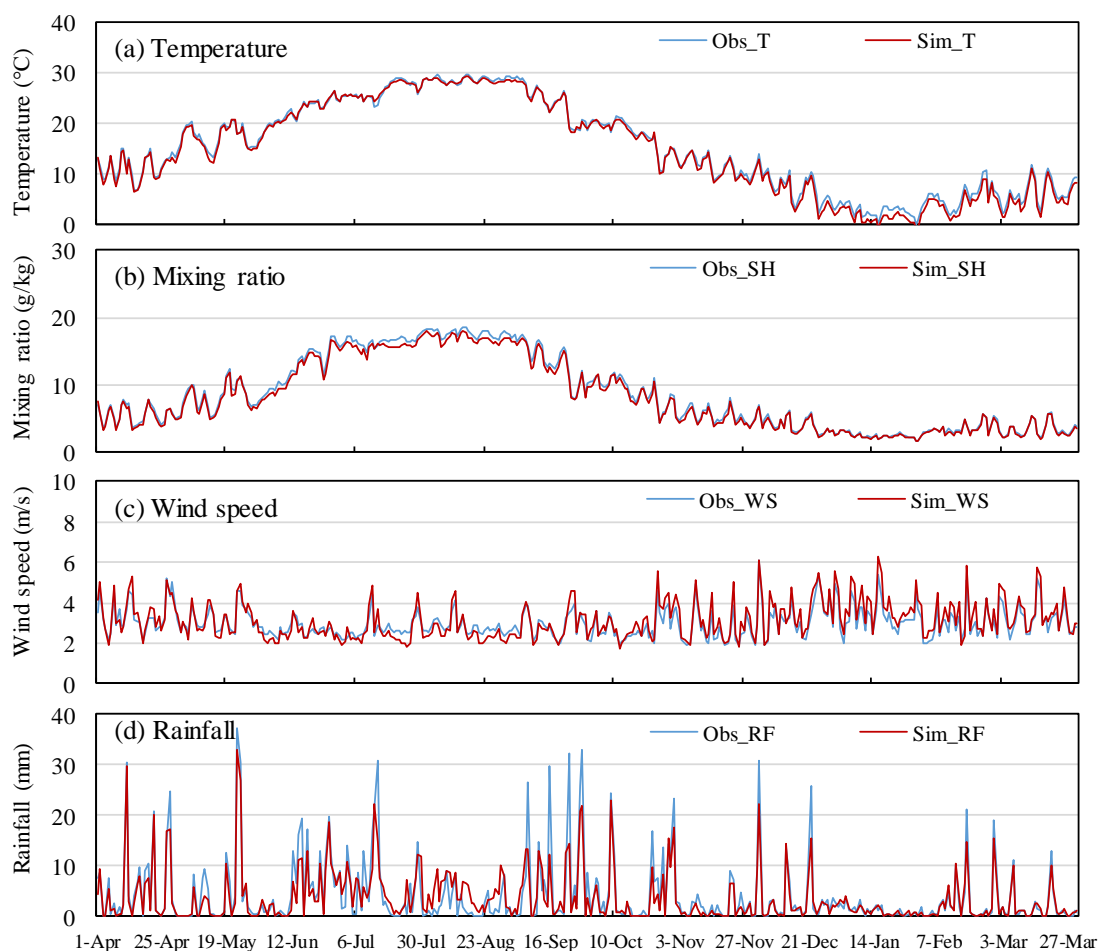
	SAPPORO	SENDAI	NIIGATA	KUMAGAYA	MITO	TOKYO	CHIBA	OKAYAMA	KOBE	OSAKA	FUKUOKA	NOBEOKA	All 12 stations	
N <sup>a</sup>	364	364	365	364	365	365	364	364	365	365	364	365	4,374	
Temperature (°C)	$\bar{O}$ (°C)	9.9	13.2	14.2	15.7	14.3	16.7	16.6	16.5	16.9	17.0	17.0	16.5	15.4
	$\bar{M}$ (°C)	8.5	13.4	13.7	16.6	14.1	17.0	16.9	14.1	14.2	17.2	16.5	15.6	14.8
	R	0.99	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	0.99	0.99
	MBE (°C)	-1.43	0.26	-0.57	0.87	-0.23	0.29	0.37	-2.35	-2.69	0.23	-0.53	-0.94	-0.56
	MAE (°C)	1.69	0.90	0.88	1.00	0.67	0.76	0.73	2.35	2.69	0.67	0.78	1.09	1.18
	RMSE (°C)	2.30	1.11	1.07	1.24	0.84	0.92	0.89	2.46	2.80	0.84	0.96	1.32	1.55
	IA	0.99	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	0.98	0.98	1.00	1.00	0.99	0.99
N <sup>a</sup>	364	364	365	364	365	365	363	363	365	364	364	365	4,371	
Mixing ratio (g/kg)	$\bar{O}$ (g/kg)	6.42	8.08	8.55	8.50	8.65	8.49	9.10	8.73	9.50	8.63	9.09	10.14	8.66
	$\bar{M}$ (g/kg)	6.05	7.57	8.21	7.59	8.58	8.18	8.65	8.74	8.82	8.38	8.82	9.40	8.25
	R	1.00	0.99	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	0.99	0.99	0.99
	MBE (g/kg)	-0.36	-0.51	-0.34	-0.91	-0.08	-0.30	-0.45	0.00	-0.68	-0.25	-0.27	-0.74	-0.41
	MAE (g/kg)	0.45	0.59	0.45	0.91	0.33	0.42	0.51	0.33	0.69	0.37	0.48	0.79	0.53
	RMSE (g/kg)	0.65	0.83	0.66	1.13	0.44	0.58	0.67	0.44	0.86	0.51	0.65	1.03	0.74
IA	0.99	0.99	1.00	0.99	1.00	1.00	1.00	1.00	0.99	1.00	1.00	0.99	1.00	

<sup>a</sup>Missing observation data was excluded for the evaluation of every statistical value.

**Table A.4** Statistical comparisons between observed and simulated daily mean values of wind speed, and rainfall at the meteorological stations in Japan in JFY2010. Colored cells represent that the statistical values meet the benchmark standard shown in [Table A.1](#).

	SAPPORO	SENDAI	NIIGATA	KUMAGAYA	MITO	TOKYO	CHIBA	OKAYAMA	KOBE	OSAKA	FUKUOKA	NOBEOKA	All 12 stations	
N <sup>a</sup>	364	364	365	364	365	365	363	365	365	364	364	365	4,373	
Wind speed (m/s)	$\bar{O}$ (m/s)	3.36	3.00	3.18	2.42	2.34	2.93	3.96	3.09	3.65	2.46	2.85	2.65	2.99
	$\bar{M}$ (m/s)	3.58	2.88	4.32	2.39	2.96	2.90	3.23	2.71	3.09	2.68	3.74	3.08	3.13
	$R$	0.79	0.84	0.88	0.89	0.72	0.88	0.88	0.85	0.60	0.85	0.87	0.74	0.75
	MBE (m/s)	0.21	-0.12	1.14	-0.03	0.63	-0.03	-0.73	-0.39	-0.56	0.22	0.89	0.42	0.14
	MAE (m/s)	0.82	0.54	1.23	0.40	0.75	0.41	0.85	0.66	0.96	0.48	1.01	0.73	0.74
	RMSE (m/s)	1.05	0.72	1.60	0.52	0.98	0.51	1.07	0.82	1.26	0.63	1.25	0.94	1.00
	IA	0.88	0.91	0.82	0.93	0.77	0.93	0.86	0.88	0.73	0.89	0.81	0.82	0.85
N <sup>a</sup>	365	364	365	364	365	365	362	365	365	365	364	365	4,374	
Rainfall (mm)	$\bar{O}$ (mm)	3.63	3.93	5.22	3.39	4.08	4.49	3.92	2.91	3.87	3.90	4.58	5.66	4.13
	$\bar{M}$ (mm)	2.71	3.15	4.55	2.99	2.96	3.01	3.31	3.07	3.84	3.40	4.72	6.44	3.68
	$R$	0.73	0.86	0.80	0.77	0.84	0.84	0.74	0.84	0.87	0.82	0.66	0.71	0.77
	MBE (mm)	-0.92	-0.78	-0.67	-0.40	-1.12	-1.49	-0.62	0.16	-0.03	-0.50	0.14	0.78	-0.45
	MAE (mm)	2.29	2.03	2.90	2.24	2.19	2.42	2.34	1.83	2.04	2.15	3.68	4.46	2.55
	RMSE (mm)	5.66	6.62	6.01	5.59	6.45	8.16	8.15	5.17	5.88	5.97	10.16	11.20	7.32
	IA	0.81	0.90	0.89	0.86	0.87	0.84	0.82	0.91	0.93	0.90	0.77	0.83	0.86

<sup>a</sup>Missing observation data was excluded for the evaluation of every statistical value.



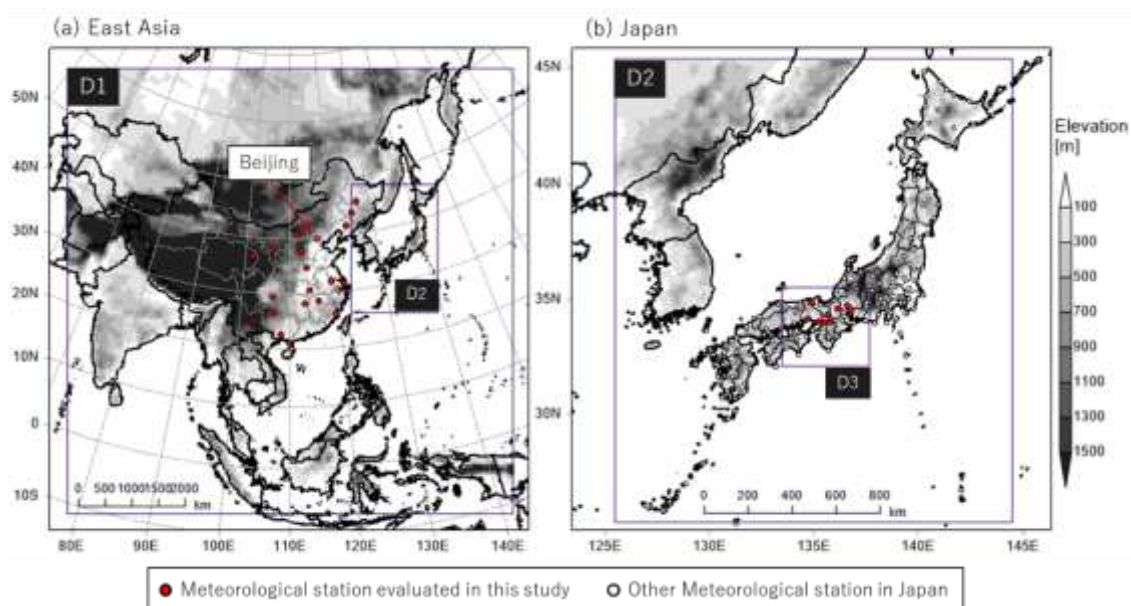
**Fig. A.6** Time series of the observed and simulated daily mean values: (a) Temperature, (b) Mixing ratio, (c) Wind speed, and (d) Rainfall **averaged for the 12 meteorological stations** in Japan in JFY2010. Dates in Japan are in JST (UTC+9). The red line shows the simulated values at the grid cell corresponding to each observation site, whereas the blue line shows the observed values without missing data points.

## A.3 第4章で用いた気象場の再現性

### A.3.1 地上観測データ

日本国外における気象データはワイオミング大学大気科学科ホームページ (<http://weather.uwyo.edu/upperair/sounding.html>) より得た。同ホームページでは、世界各地の観測地点ごとの標準時0時と12時のラジオゾンデ観測データが整備されている。本項では2013年度の中国国内の21都市(北京、上海、瀋陽、フフホト、杭州、重慶、福州、貴陽、長沙、南京、南昌、太原、昆明、西寧、銀川、ハルビン、長春、武漢、鄭州、海口、南寧)における地表面の気象観測データを利用した (Fig. A.7a)。

日本国内における気象観測データは気象観測月報 (一般財団法人気象業務支援センター, <http://www.jmbc.or.jp/jp/offline/cd0061.html>) より得た。比較した地点はPMFモデルの入力データ利用した11の観測地点 (Table 4.1) 近傍の気象観測所9地点 (岐阜、名古屋、豊岡、京都、彦根、姫路、神戸、大阪、奈良) である。Fig. A.7b にその位置関係を示す。



**Fig. A.7** Modeling domains for WRF simulation and the locations of meteorological stations: (a) East Asia (D1), and (b) Japan (D2) and Kinki-Tokai district (D3) with height above sea level and locations of observation sites.

## A.2.2 日本国外の気象場

中国国内の 21 地点 (北京、上海、瀋陽、フフホト、杭州、重慶、福州、貴陽、長沙、南京、南昌、太原、昆明、西寧、銀川、ハルビン、長春、武漢、鄭州、海口、南寧) における、気温・混合比・風速の統計指標一覧を Table A.5、Table A.6 に示す。また、21 地点平均した気温・混合比・風速・風向の計算値と観測値の日平均値の時系列変化を Fig. A.8 に、北京における気温・混合比・風速・風向の計算値と観測値の日平均値の時系列変化を Fig. A.9 に示す。日平均値の算出には、観測値と同様に計算値も標準時 0 時と 12 時の値の平均とした。WRF による計算結果は日々変化を捉えており、観測値との一致が見られたものの、気温は過小評価、風速は大幅に過大評価していた (Fig A.8、A.9)。

各地点の気温および混合比の IA は、昆明の気温 (IA = 0.83) 以外の地点で 0.93 以上と非常に良好な再現性を示した (Table A.5)。風速の IA については、気温および混合比と比べて総じて低い値を示した (Table A.6)。これは計算領域 D1 が 45 km 格子で計算を行っているため、土地の起伏を正確に解像できていないことが影響している。フフホト、長沙、太原の 3 地点では、IA の値が比較的 low、WRF は風速を過大評価 (MBE > 0) していた。長沙および太原は、いずれも盆地もしくは近辺に山脈が存在する環境に位置することから、土地の起伏を正確に解像できていない影響をより強く受け、IA の値が低下したと考えられた。また、フフホトについては 4 月～12 月の風速を大幅に過剰評価しており、IA の低下の要因となっていた。

**Table A.5** Statistical comparisons between observed and simulated daily mean values of temperature, and mixing ratio at the 21 meteorological stations in China in JFY2013. Colored cells represent that the statistical values meet the benchmark standard shown in [Table A.1](#).

	Beijing	Shanghai	Shenyang	Hohhot	Hangzhou	Chongqing	Fuzhou	Guiyang	Changsha	Nanjing	Nanchang	Taiyuan	All 21 stations	
	N <sup>a</sup>	364	364	364	364	364	364	364	364	363	361	364	7,634	
Temperature (°C)	$\bar{O}$ (°C)	12.89	16.94	8.19	7.47	17.33	16.85	19.65	14.02	18.29	16.21	18.36	11.82	14.08
	$\bar{M}$ (°C)	11.07	16.34	8.05	2.49	16.39	17.51	17.27	12.57	17.63	15.43	18.23	6.94	12.64
	$R$	0.99	0.99	0.99	0.99	0.99	0.99	0.98	0.99	0.99	0.99	0.99	0.99	0.98
	MBE (°C)	-1.82	-0.60	-0.14	-4.98	-0.94	0.65	-2.38	-1.46	-0.66	-0.78	-0.13	-4.88	-1.44
	MAE (°C)	1.99	1.17	1.17	4.99	1.18	1.05	2.49	1.61	1.16	1.09	0.81	4.88	2.05
	RMSE (°C)	2.53	1.52	1.48	5.45	1.47	1.30	2.78	1.93	1.41	1.41	1.00	5.26	2.80
	IA	0.99	0.99	1.00	0.96	0.99	0.99	0.96	0.98	0.99	0.99	1.00	0.94	0.99
	N <sup>a</sup>	364	364	364	364	364	364	364	364	363	361	364	7,634	
Mixing ratio (g/kg)	$\bar{O}$ (g/kg)	6.92	9.96	6.38	4.64	9.79	11.05	11.72	10.32	10.99	9.70	10.85	5.97	8.89
	$\bar{M}$ (g/kg)	5.93	10.50	6.23	3.86	10.80	10.64	12.31	10.20	10.54	9.91	10.96	5.21	8.72
	$R$	0.98	0.99	0.99	0.98	0.98	0.98	0.98	0.99	0.99	0.99	0.99	0.98	0.98
	MBE (g/kg)	-1.00	0.54	-0.15	-0.78	1.01	-0.41	0.58	-0.12	-0.45	0.21	0.11	-0.76	-0.17
	MAE (g/kg)	1.07	0.74	0.57	0.86	1.18	0.97	0.87	0.62	0.88	0.63	0.57	0.90	0.85
	RMSE (g/kg)	1.54	1.09	0.82	1.29	1.80	1.23	1.13	0.76	1.14	0.97	0.77	1.31	1.20
	IA	0.98	0.99	0.99	0.97	0.98	0.99	0.99	0.99	0.99	0.99	1.00	0.98	0.99

<sup>a</sup>Missing observation data was excluded for the evaluation of every statistical value.

**Table A.5 (continued)** Statistical comparisons between observed and simulated daily mean values of temperature, and mixing ratio at the 21 meteorological stations in China in JFY2013. Colored cells represent that the statistical values meet the benchmark standard shown in Table A.1.

	Kunming	Xining	Yinchuan	Harbin	Changchun	Wuhan	Zhengzhou	Haikou	Nanning	All 21 Stations	
	N <sup>a</sup>	364	362	361	364	364	363	364	364	7,634	
Temperature (°C)	$\bar{O}$ (°C)	15.22	5.03	10.29	4.43	6.52	16.66	15.73	23.27	20.49	14.08
	$\bar{M}$ (°C)	10.73	2.34	8.84	2.80	3.99	17.45	14.93	24.43	19.95	12.64
	$R$	0.96	0.98	0.99	0.99	0.99	0.99	0.99	0.95	0.98	0.98
	MBE (°C)	-4.49	-2.69	-1.45	-1.63	-2.52	0.79	-0.80	1.15	-0.54	-1.44
	MAE (°C)	4.49	2.84	2.08	2.03	2.70	1.20	1.49	1.59	1.14	2.05
	RMSE (°C)	4.76	3.59	2.72	2.66	3.74	1.61	1.95	1.89	1.48	2.80
	IA	0.83	0.97	0.99	0.99	0.98	0.99	0.99	0.95	0.99	0.99
	N <sup>a</sup>	364	362	361	364	364	363	364	364	7,634	
Mixing ratio (g/kg)	$\bar{O}$ (g/kg)	9.16	4.69	4.96	5.49	6.00	11.01	7.94	16.04	13.15	8.89
	$\bar{M}$ (g/kg)	9.14	4.05	4.08	5.20	5.75	10.01	7.20	17.36	13.27	8.72
	$R$	0.96	0.98	0.97	0.98	0.99	0.98	0.99	0.97	0.99	0.98
	MBE (g/kg)	-0.01	-0.64	-0.88	-0.29	-0.24	-0.99	-0.74	1.32	0.12	-0.17
	MAE (g/kg)	0.84	0.79	0.97	0.61	0.56	1.19	0.89	1.42	0.69	0.85
	RMSE (g/kg)	1.07	1.11	1.41	0.94	0.77	1.53	1.27	1.68	0.92	1.20
	IA	0.98	0.97	0.96	0.99	0.99	0.99	0.99	0.96	0.99	0.99

<sup>a</sup>Missing observation data was excluded for the evaluation of every statistical value.

**Table A.6** Statistical comparisons between observed and simulated daily mean values of wind speed, and rainfall at the 21 meteorological stations in China in JFY2013. Colored cells represent that the statistical values meet the benchmark standard shown in [Table A.1](#).

	Beijing	Shanghai	Shenyang	Hohhot	Hangzhou	Chongqing	Fuzhou	Guiyang	Changsha	Nanjing	Nanchang	Taiyuan	All 21 stations
N <sup>a</sup>	364	364	364	364	364	364	364	364	364	363	361	364	7,272
$\bar{O}$ (m/s)	2.00	2.92	2.58	1.94	2.13	2.93	1.93	2.64	1.08	2.69	1.75	1.21	2.21
$\bar{M}$ (m/s)	2.78	4.45	3.53	3.17	2.42	2.05	2.36	2.71	2.58	3.11	3.00	2.70	3.04
$R$	0.48	0.76	0.74	0.33	0.70	0.71	0.47	0.68	0.71	0.83	0.86	0.51	0.67
MBE (m/s)	0.78	1.54	0.95	1.23	0.29	-0.88	0.43	0.07	1.50	0.42	1.25	1.49	0.84
MAE (m/s)	0.99	1.59	1.15	1.88	0.63	1.01	0.86	0.59	1.52	0.71	1.28	1.54	1.13
RMSE (m/s)	1.30	1.86	1.43	2.20	0.80	1.31	1.12	0.76	1.70	0.89	1.50	1.76	1.43
IA	0.61	0.68	0.77	0.52	0.81	0.70	0.66	0.81	0.53	0.88	0.76	0.51	0.75

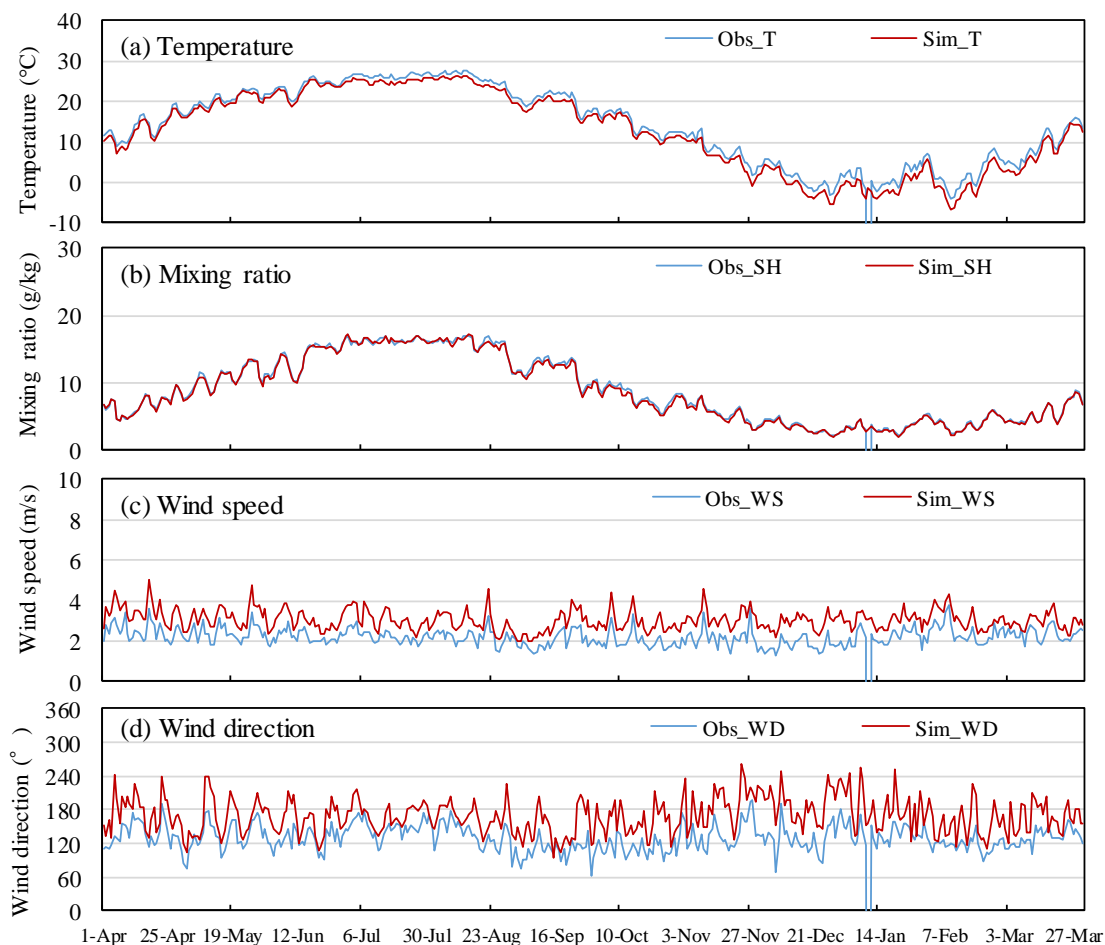
<sup>a</sup>Missing observation data was excluded for the evaluation of every statistical value.



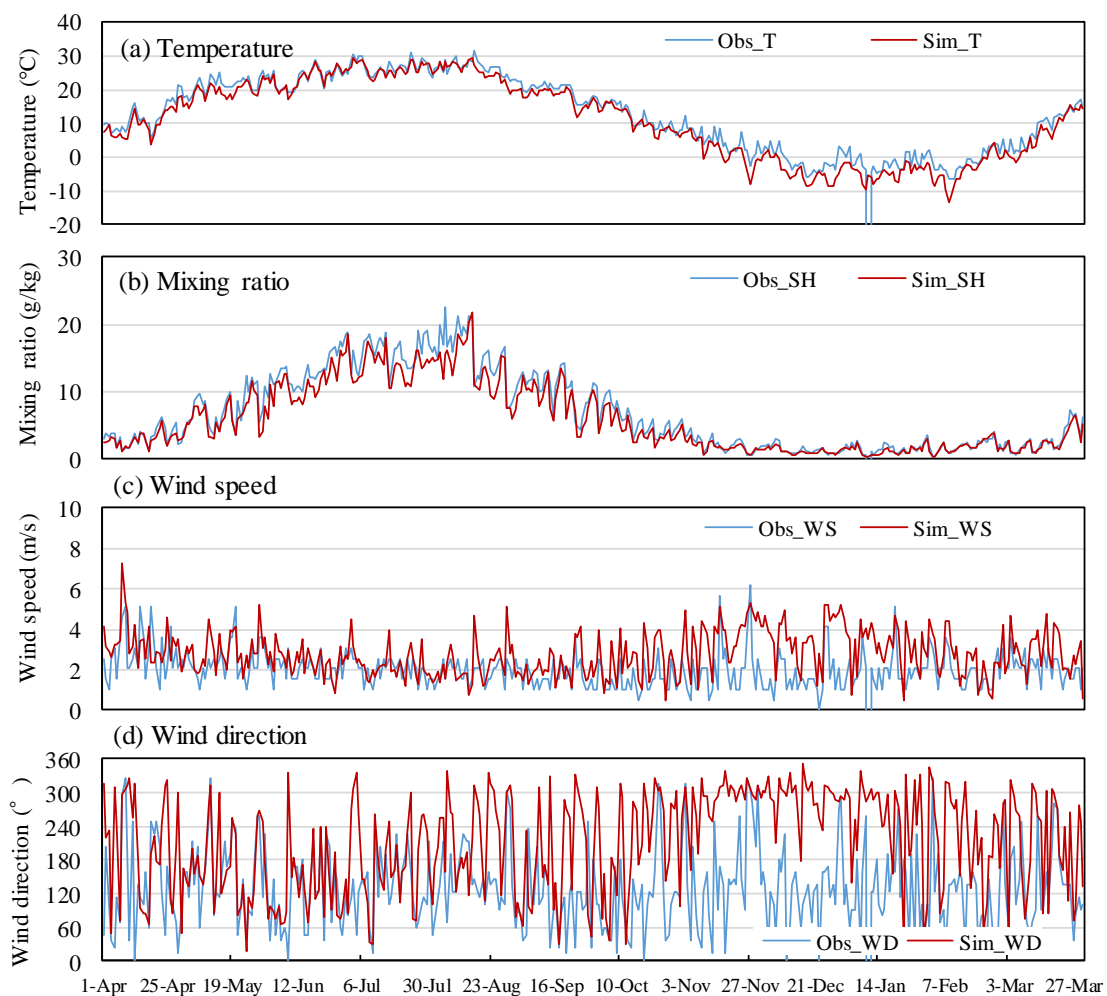
**Table A.6 (continued)** Statistical comparisons between observed and simulated daily mean values of wind speed, and rainfall at the 21 meteorological stations in China in JFY2013. Colored cells represent that the statistical values meet the benchmark standard shown in [Table A.1](#).

	Kunming	Xining	Yinchuan	Harbin	Changchun	Wuhan	Zhengzhou	Haikou	Nanning	All 21 Stations
N <sup>a</sup>	364	-	361	364	364	363	364	364	364	7,272
$\bar{O}$ (m/s)	2.38	-	1.68	2.66	2.68	1.77	1.88	3.40	1.91	2.21
$\bar{M}$ (m/s)	3.08	-	2.70	3.63	3.60	2.64	2.89	5.11	2.37	3.04
$R$	0.65	-	0.49	0.83	0.86	0.79	0.66	0.79	0.69	0.67
MBE (m/s)	0.70	-	1.01	0.97	0.93	0.87	1.01	1.71	0.46	0.84
MAE (m/s)	0.96	-	1.12	1.14	1.02	0.96	1.09	1.78	0.73	1.13
RMSE (m/s)	1.19	-	1.41	1.36	1.23	1.18	1.32	2.17	0.91	1.43
IA	0.74	-	0.60	0.83	0.84	0.79	0.64	0.71	0.79	0.75

<sup>a</sup>Missing observation data was excluded for the evaluation of every statistical value.



**Fig. A.8** Time series of the observed and simulated daily mean values: (a) Temperature, (b) Mixing ratio, (c) Wind speed, and (d) Wind direction for **the 21 meteorological stations in China** in JFY2013. Dates in China are in CST (UTC+8). The red line shows the simulated values at the grid cell corresponding to each observation site, whereas the blue line shows the observed values without missing data points.



**Fig. A.9** Time series of the observed and simulated daily mean values: (a) Temperature, (b) Mixing ratio, (c) Wind speed, and (d) Wind direction in **Beijing** in China in JFY2013. Dates in China are in CST (UTC+8). The red line shows the simulated values at the grid cell corresponding to each observation site, whereas the blue line shows the observed values without missing data points.

### A.2.3 日本国内の気象場

D3 領域内の 9 地点 (岐阜、名古屋、豊岡、京都、彦根、姫路、神戸、大阪、奈良) における、気温・混合比・風速・降水量の統計指標一覧を Table A.7、Table A.8 に示す。また 9 地点平均した気温・混合比・風速・降水量の計算値と観測値の日平均値の時系列変化を Fig. A.10 に、D3 の中央に位置する大阪の気温・混合比・風速・降水量の計算値と観測値の日平均値の時系列変化を Fig. A.11 に示す。

日本国外の気象場と比べて、WRF はより良好に国内の気象場を再現できていた。気温は神戸以外で IA の値が 1.00 と、WRF は気温の季節変化を良好に再現していた (Table A.7, Fig. A.10)。しかし、全 9 地点の MBE が -0.4 であることから、WRF が過小評価している傾向が見られた (Table A.7, Fig. A.10)。混合比も神戸を除く 8 地点の IA は 1.00 で WRF は混合比の季節変化を良好に再現していたが、全 9 地点の MBE の値が負となっており、気温と同様、過小評価傾向を示していた (Table A.7)。神戸における気温および混合比の IA の値は他の 8 地点の IA よりも明らかに低くなっていた。神戸は海岸近傍に観測地点が位置し、神戸を含む計算格子には一部、海が含まれていることが IA の低下に寄与していた。全 9 地点の風速は、気温および混合比の IA 値よりは低いものの、IA = 0.85 と WRF は季節変化を良好に再現性していた (Table A.8)。降水量については、全 9 地点の MBE が -0.7 と WRF は降水量を過小評価していた (Table A.8)。CMAQ で大気汚染物質の湿性沈着量を算出する際、降水量も入力値として使用されることから、降水量の過小評価が大気汚染物質の湿性沈着量の過小評価および大気中濃度の過大評価を誘発する可能性に留意する必要がある。

**Table A.7** Statistical comparisons between observed and simulated daily mean values of temperature, and mixing ratio at the meteorological stations in Japan in JFY2013. Colored cells represent that the statistical values meet the benchmark standard shown in Table A.1.

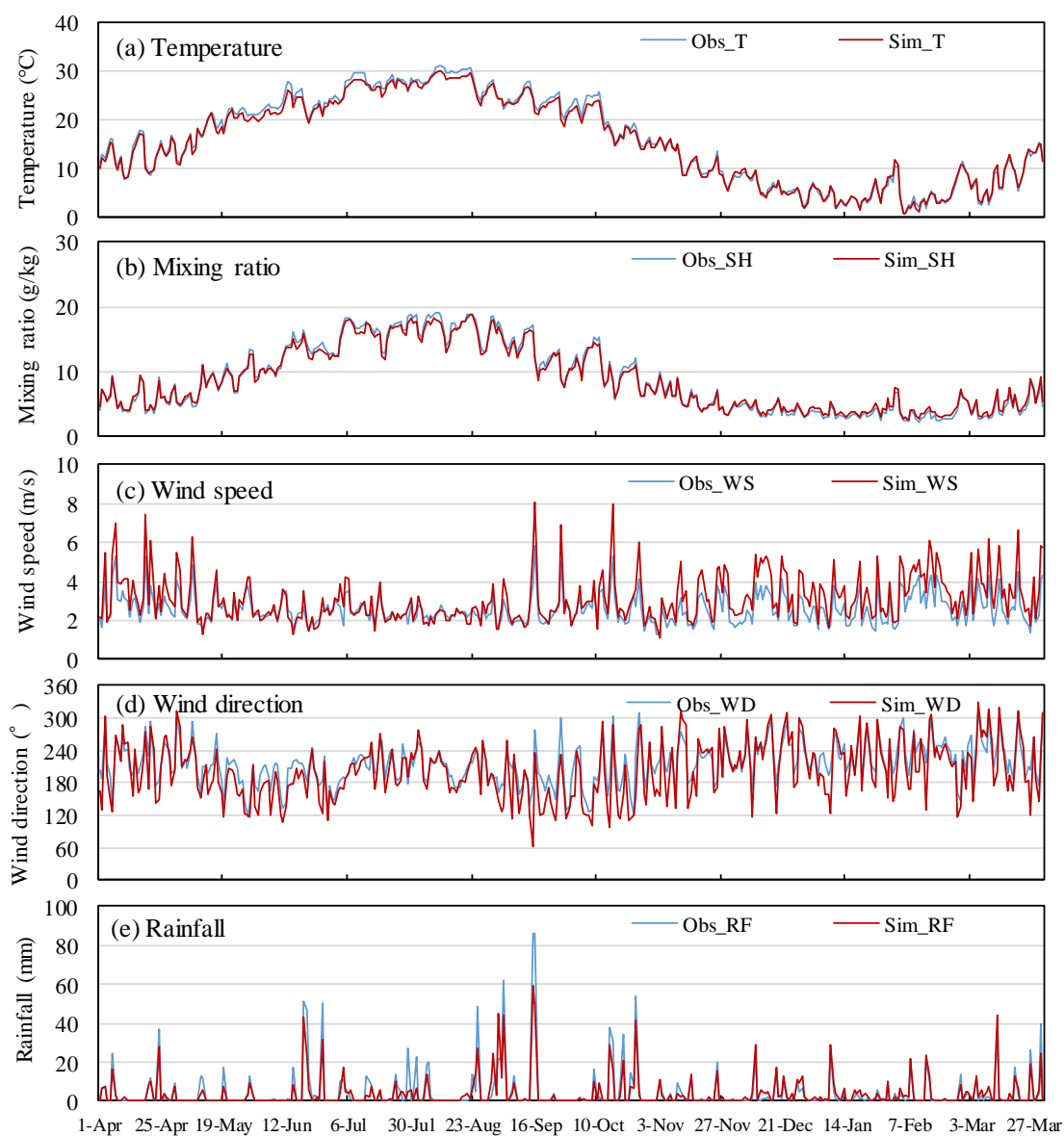
	GIFU	NAGOYA	TOYOOKA	KYOTO	HIKONE	HIMEJI	KOBE	OSAKA	NARA	All 9 stations	
N <sup>a</sup>	365	365	364	364	365	365	365	365	365	3,283	
Temperature (°C)	$\bar{O}$ (°C)	16.4	16.4	15.0	16.3	15.2	15.6	17.1	17.1	15.3	16.1
	$\bar{M}$ (°C)	16.1	16.4	14.3	16.3	14.9	14.8	15.7	17.0	15.1	15.6
	<i>R</i>	1.00	1.00	1.00	1.00	0.99	1.00	0.89	1.00	1.00	0.97
	MBE (°C)	-0.3	0.0	-0.7	-0.06	-0.3	-0.8	-1.4	-0.1	-0.27	-0.4
	MAE (°C)	0.6	0.5	0.9	0.6	0.9	0.9	5.1	0.5	0.7	1.2
	RMSE (°C)	0.8	0.7	1.1	0.8	1.2	1.1	5.6	0.7	0.9	2.1
	IA	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	0.79	1.00	1.00	0.99
	N <sup>a</sup>	365	365	364	364	365	365	365	365	365	3,283
Mixing ratio (g/kg)	$\bar{O}$ (g/kg)	8.55	8.71	9.22	8.48	9.02	9.10	9.05	8.75	9.05	8.88
	$\bar{M}$ (g/kg)	8.36	8.36	9.07	8.31	9.12	9.03	9.82	8.49	8.82	8.82
	<i>R</i>	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	0.99	0.85	1.00	1.00	0.97
	MBE (g/kg)	-0.18	-0.35	-0.15	-0.17	0.09	-0.07	0.77	-0.26	-0.24	-0.06
	MAE (g/kg)	0.39	0.46	0.42	0.33	0.41	0.4	3.0	0.42	0.40	0.7
	RMSE (g/kg)	0.5	0.6	0.5	0.42	0.5	0.6	3.5	0.5	0.5	1.3
	IA	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	0.81	1.00	1.00	0.98

<sup>a</sup>Missing observation data was excluded for the evaluation of every statistical value.

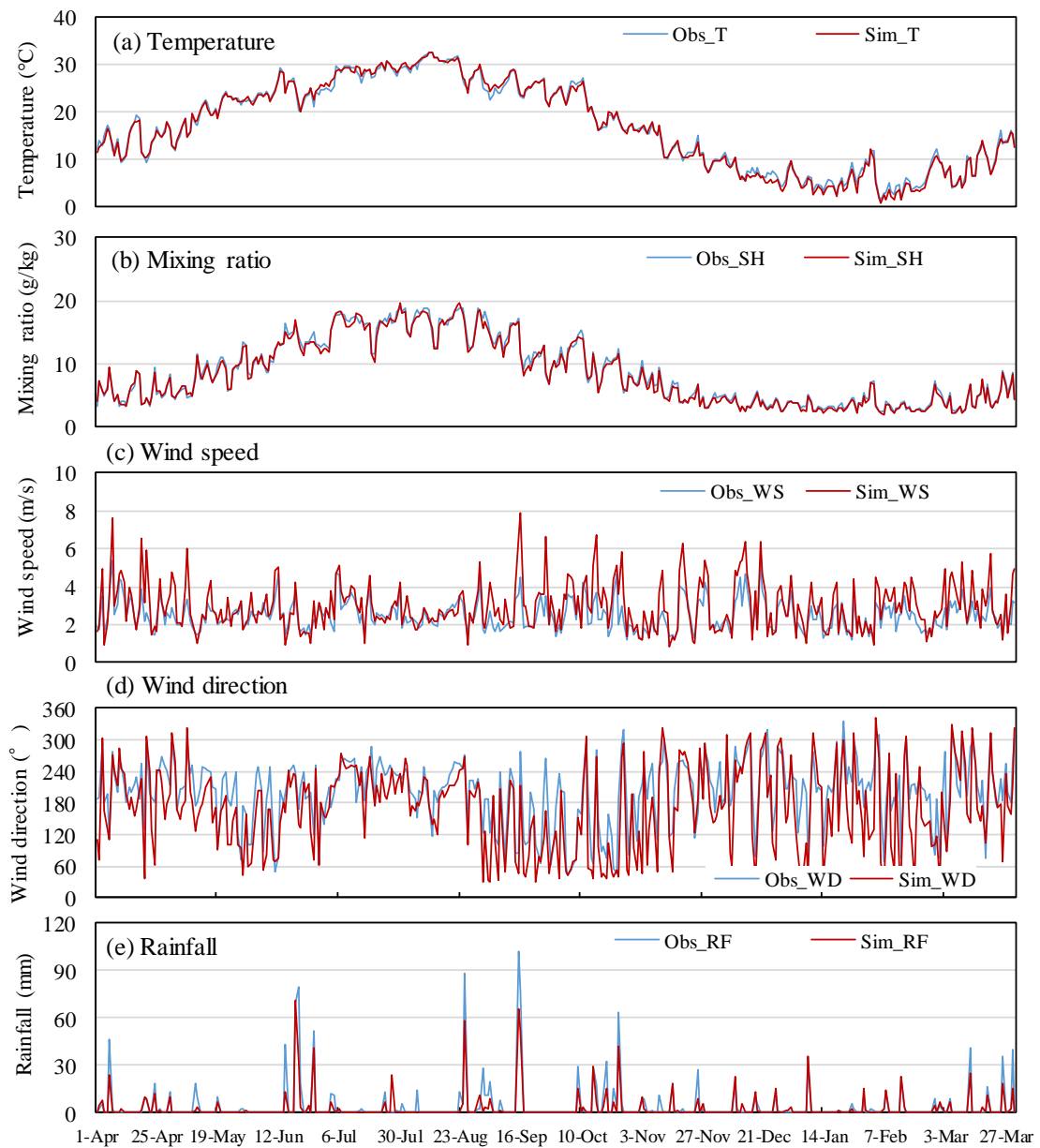
**Table A.8** Statistical comparisons between observed and simulated daily mean values of wind speed, and rainfall at the meteorological stations in Japan in JFY2010. Colored cells represent that the statistical values meet the benchmark standard shown in Table A.1.

	GIFU	NAGOYA	TOYOOKA	KYOTO	HIKONE	HIMEJI	KOBE	OSAKA	NARA	All 9 stations	
N <sup>a</sup>	365	365	361	363	365	365	364	365	365	3,278	
Wind speed (m/s)	$\bar{O}$ (m/s)	2.7	3.2	2.0	2.1	3.1	2.5	3.7	2.5	1.4	2.6
	$\bar{M}$ (m/s)	2.9	3.5	2.9	2.5	4.0	3.0	3.7	3.0	2.5	3.1
	$R$	0.94	0.95	0.86	0.85	0.88	0.76	0.63	0.85	0.77	0.81
	MBE (m/s)	0.14	0.31	1.0	0.4	0.91	0.4	-0.01	0.47	1.1	0.5
	MAE (m/s)	0.40	0.50	1.0	0.5	1.2	0.6	1.1	0.6	1.1	0.8
	RMSE (m/s)	0.5	0.7	1.2	0.7	1.6	0.8	1.4	0.9	1.3	1.1
	IA	0.96	0.95	0.74	0.82	0.86	0.79	0.77	0.82	0.49	0.85
N <sup>a</sup>	365	365	364	364	365	365	365	365	365	3,283	
Rainfall (mm)	$\bar{O}$ (mm)	5.5	4.4	6.1	4.1	4.1	4.1	3.8	4.0	4.1	4.5
	$\bar{M}$ (mm)	3.8	3.1	5.8	2.8	5.1	3.5	3.6	2.6	3.4	3.8
	$R$	0.74	0.82	0.80	0.80	0.61	0.77	0.63	0.92	0.76	0.75
	MBE (mm)	-1.7	-1.3	-0.2	-1.29	1.05	-0.6	-0.14	-1.4	-0.70	-0.7
	MAE (mm)	3.2	2.2	3.3	2.4	3.8	2.4	2.8	1.9	2.6	2.7
	RMSE (mm)	10.8	7.4	8.6	8.4	9.3	9.3	10.4	5.9	8.2	8.8
	IA	0.82	0.88	0.89	0.83	0.76	0.87	0.78	0.92	0.86	0.85

<sup>a</sup>Missing observation data was excluded for the evaluation of every statistical value.



**Fig. A.10** Time series of the observed and simulated daily mean values: (a) Temperature, (b) Mixing ratio, (c) Wind speed, (d) Wind direction, and (e) Rainfall **averaged for the 9 meteorological stations** in D3 in Japan in JFY2013. Dates in Japan are in JST (UTC+9). The red line shows the simulated values at the grid cell corresponding to each observation site, whereas the blue line shows the observed values without missing data points.



**Fig. A.11** Time series of the observed and simulated daily mean values: (a) Temperature, (b) Mixing ratio, (c) Wind speed, (d) Wind direction, and (e) Rainfall in **Osaka** in D3 in Japan in JFY2013. Dates in Japan are in JST (UTC+9). The red line shows the simulated values at the grid cell corresponding to each observation site, whereas the blue line shows the observed values without missing data points.



## A.4 第5章で用いた気象場の再現性

### A.4.1 地上観測データ

日本国外における気象データはワイオミング大学大気科学科ホームページ (<http://weather.uwyo.edu/upperair/sounding.html>) より得た。同ホームページでは、世界各地の観測地点ごとの標準時0時と12時のラジオゾンデ観測データが整備されている。本項では2014年の中国国内の21都市(北京、上海、瀋陽、フフホト、杭州、重慶、福州、貴陽、長沙、南京、南昌、太原、昆明、西寧、銀川、ハルビン、長春、武漢、鄭州、海口、南寧)における地表面の気象観測データを利用した (Fig. A.12a)。

日本国内における気象観測データは気象観測月報 (一般財団法人気象業務支援センター, <http://www.jmbasc.or.jp/jp/offline/cd0061.html>) より得た。比較した地点はPMFモデルの入力データとして利用した13の観測地点 (Table 5.1) 近傍の気象観測所12地点 (輪島、金沢、富山、岐阜、名古屋、豊岡、京都、彦根、姫路、神戸、大阪、奈良) である。Fig. A.12b にその位置関係を示す。

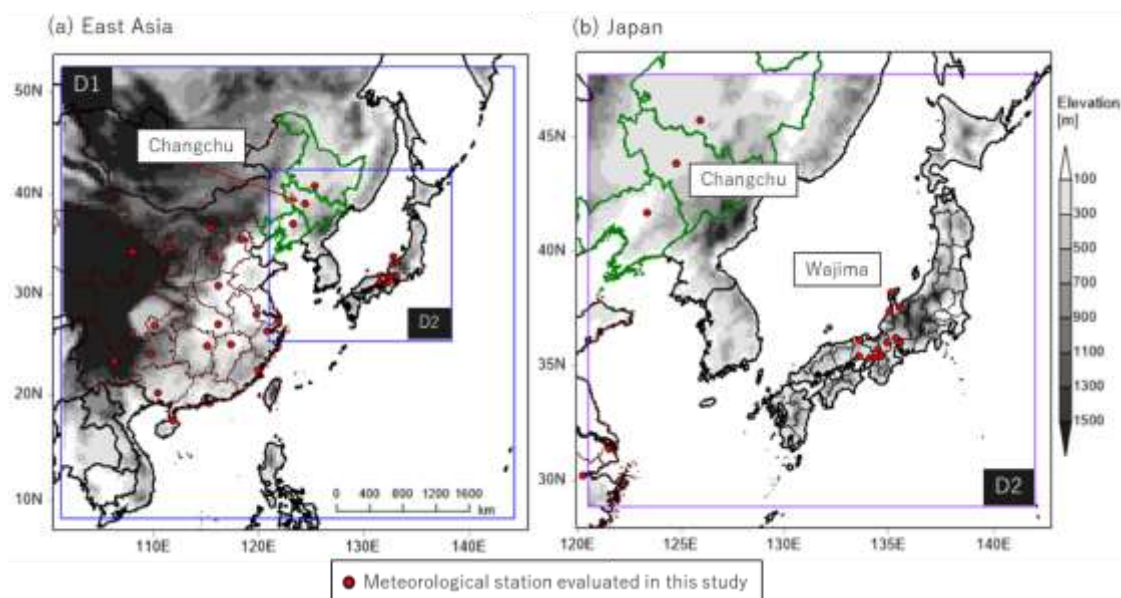


Fig. A.12 Modeling domains for WRF simulation and the locations of meteorological stations: (a) East Asia (D1), and (b) Japan (D2) with height above sea level and locations of observation sites.

#### A.4.2 日本国外の気象場

中国国内の 21 地点 (北京、上海、瀋陽、フフホト、杭州、重慶、福州、貴陽、長沙、南京、南昌、太原、昆明、西寧、銀川、ハルビン、長春、武漢、鄭州、海口、南寧) における、気温・混合比・風速・降水量の統計指標一覧を Table A.9、Table A.10 に示す。また、21 地点平均した気温・混合比・風速の計算値と観測値の日平均値の時系列変化を Fig. A.13 に、長春における気温・混合比・風速の計算値と観測値の日平均値の時系列変化を Fig. A.14 に示す。日平均値の算出には、観測値と同様に計算値も標準時 0 時と 12 時の値の平均とした。WRF による計算結果は日々変化を捉えており、観測値との一致が見られたものの、気温は過小評価、風速は過大評価していた (Fig A.13、A.14)。

気温および混合比の IA については、全 21 地点で 0.87 以上と良好な再現性を示した。風速の IA については、気温および混合比と比べて総じて低い値を示した (Table A.2)。これは計算領域 D1 が 45 km 格子で計算を行っているため、土地の起伏を正確に解像できていないことが影響している。長沙、太原、西寧の 3 地点では、IA の値が低く、WRF は風速を過大評価 (MBE > 0) していた。この 3 地点は、いずれも盆地もしくは近辺に山脈が存在する環境に位置することから、土地の起伏を正確に解像できていない影響をより強く受け、IA の値が低下したと考えられた。重慶については、季節に関係なく WRF は風速を常に過小評価し、IA の低下の要因となっていた。

**Table A.9** Statistical comparisons between observed and simulated daily mean values of temperature, and mixing ratio at the 21 meteorological stations in China in the year 2014. Colored cells represent that the statistical values meet the benchmark standard shown in [Table A.1](#).

	Beijing	Shanghai	Shenyang	Hohhot	Hangzhou	Chongqing	Fuzhou	Guiyang	Changsha	Nanjing	Nanchang	Taiyuan	All 21 stations	
N <sup>a</sup>	364	364	364	364	364	364	364	364	364	363	363	364	7,632	
Temperature (°C)	$\bar{O}$ (°C)	13.33	16.25	8.41	6.94	16.74	16.08	19.80	14.23	17.76	15.69	18.03	11.61	13.95
	$\bar{M}$ (°C)	10.04	13.83	7.13	4.74	15.48	17.04	17.92	12.70	17.43	15.13	18.20	8.52	12.45
	$R$	0.99	0.99	0.99	0.99	0.99	0.99	0.98	0.99	0.99	0.99	0.99	0.99	0.99
	MBE (°C)	-3.29	-2.42	-1.29	-2.20	-1.25	0.96	-1.88	-1.53	-0.33	-0.56	0.17	-3.09	-1.50
	MAE (°C)	3.31	2.69	1.83	2.32	1.48	1.22	2.01	1.62	0.97	0.86	0.84	3.13	1.98
	RMSE (°C)	3.78	3.33	2.32	2.83	1.83	1.47	2.28	1.96	1.24	1.11	1.08	3.61	2.65
	IA	0.97	0.95	0.99	0.99	0.99	0.99	0.97	0.98	0.99	1.00	1.00	0.97	0.99
N <sup>a</sup>	364	364	364	364	364	364	364	364	364	363	363	364	7,632	
Mixing ratio (g/kg)	$\bar{O}$ (g/kg)	6.51	10.11	5.86	4.21	10.46	11.15	12.23	10.75	11.37	10.02	11.32	5.61	9.04
	$\bar{M}$ (g/kg)	5.43	10.03	5.98	3.88	9.82	10.52	12.71	10.52	10.51	9.55	11.02	5.41	8.56
	$R$	0.98	0.99	0.98	0.97	0.99	0.98	0.99	0.99	0.99	0.99	0.99	0.98	0.98
	MBE (g/kg)	-1.08	-0.08	0.12	-0.33	-0.64	-0.63	0.49	-0.23	-0.86	-0.48	-0.31	-0.21	-0.48
	MAE (g/kg)	1.13	0.53	0.63	0.60	0.79	0.86	0.73	0.66	0.95	0.60	0.62	0.63	0.83
	RMSE (g/kg)	1.54	0.69	0.91	0.96	0.98	1.06	0.91	0.81	1.22	0.82	0.84	0.87	1.15
	IA	0.97	1.00	0.99	0.98	0.99	0.99	0.99	0.99	0.99	0.99	0.99	0.99	0.99

<sup>a</sup>Missing observation data was excluded for the evaluation of every statistical value.

**Table A.9 (continued)** Statistical comparisons between observed and simulated daily mean values of temperature, and mixing ratio at the 21 meteorological stations in China in the year 2014. Colored cells represent that the statistical values meet the benchmark standard shown in [Table A.1](#).

		Kunming	Xining	Yinchuan	Harbin	Changchun	Wuhan	Haikou	Nanning	All 21 Stations
	N <sup>a</sup>	364	361	364	361	363	363	362	364	7,632
Temperature (°C)	$\bar{O}$ (°C)	15.78	4.75	10.04	4.13	6.81	16.13	23.78	21.13	13.95
	$\bar{M}$ (°C)	12.08	0.54	8.07	2.25	4.29	16.57	23.43	21.28	12.45
	<i>R</i>	0.96	0.98	0.99	1.00	0.99	0.99	0.98	0.99	0.99
	MBE (°C)	-3.71	-4.21	-1.97	-1.88	-2.52	0.44	-0.35	0.15	-1.50
	MAE (°C)	3.71	4.26	2.30	2.11	2.67	1.00	0.85	0.95	1.98
	RMSE (°C)	4.03	4.90	3.03	2.87	3.42	1.29	1.04	1.20	2.65
	IA	0.87	0.94	0.98	0.99	0.99	0.99	0.99	0.99	0.99
	N <sup>a</sup>	364	361	364	361	363	363	362	364	7,632
Mixing ratio (g/kg)	$\bar{O}$ (g/kg)	9.58	5.03	5.41	5.31	5.70	10.86	16.48	14.03	9.04
	$\bar{M}$ (g/kg)	9.77	3.85	4.02	5.25	5.49	9.36	16.31	13.58	8.56
	<i>R</i>	0.97	0.98	0.96	0.98	0.99	0.98	0.98	0.99	0.98
	MBE (g/kg)	0.19	-1.18	-1.39	-0.06	-0.22	-1.51	-0.18	-0.45	-0.48
	MAE (g/kg)	0.71	1.23	1.43	0.62	0.58	1.53	0.65	0.76	0.83
	RMSE (g/kg)	0.93	1.59	1.88	0.92	0.80	1.92	0.83	0.98	1.15
	IA	0.99	0.93	0.93	0.99	0.99	0.97	0.99	0.99	0.99

<sup>a</sup>Missing observation data was excluded for the evaluation of every statistical value.

**Table A.10** Statistical comparisons between observed and simulated daily mean values of wind speed at the 21 meteorological stations in China in the year 2014. Colored cells represent that the statistical values meet the benchmark standard shown in [Table A.1](#).

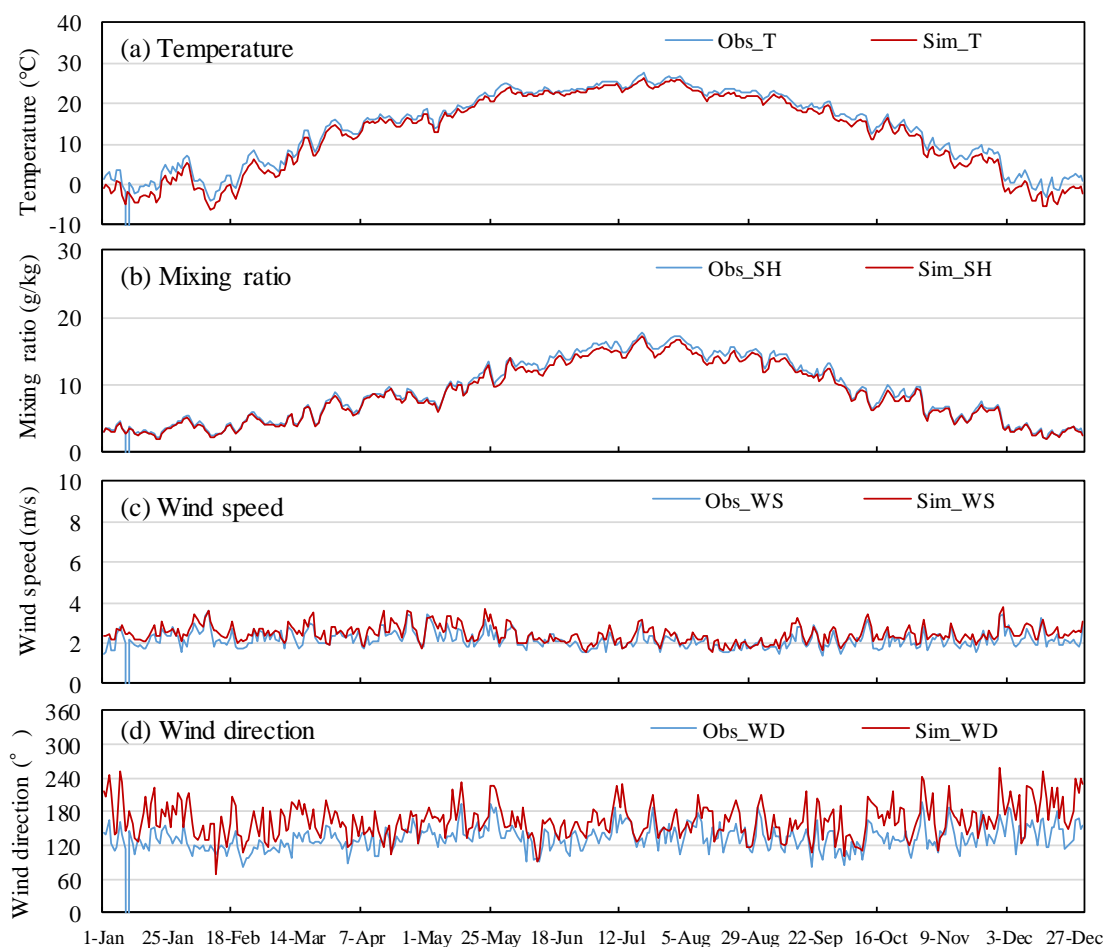
	Beijing	Shanghai	Shenyang	Hohhot	Hangzhou	Chongqing	Fuzhou	Guiyang	Changsha	Nanjing	Nanchang	Taiyuan	All 21 stations
N <sup>a</sup>	364	364	364	364	364	364	364	364	364	363	363	364	7,632
$\bar{O}$ (m/s)	2.01	2.76	2.37	3.44	2.14	2.76	2.20	2.57	0.95	2.57	1.73	1.24	2.17
$\bar{M}$ (m/s)	2.26	4.25	2.95	2.29	2.84	1.66	2.08	2.40	2.22	2.38	2.13	2.13	2.44
$R$	0.52	0.69	0.73	0.62	0.54	0.64	0.37	0.62	0.70	0.79	0.84	0.40	0.54
MBE (m/s)	0.25	1.50	0.57	-1.15	0.70	-1.10	-0.12	-0.17	1.27	-0.19	0.39	0.89	0.27
MAE (m/s)	0.77	1.55	0.91	1.46	0.92	1.18	0.72	0.60	1.28	0.70	0.58	1.04	0.94
RMSE (m/s)	0.98	1.87	1.12	1.93	1.18	1.45	0.94	0.75	1.45	0.89	0.72	1.24	1.22
IA	0.71	0.63	0.81	0.64	0.66	0.59	0.62	0.77	0.54	0.86	0.88	0.56	0.72

<sup>a</sup>Missing observation data was excluded for the evaluation of every statistical value.

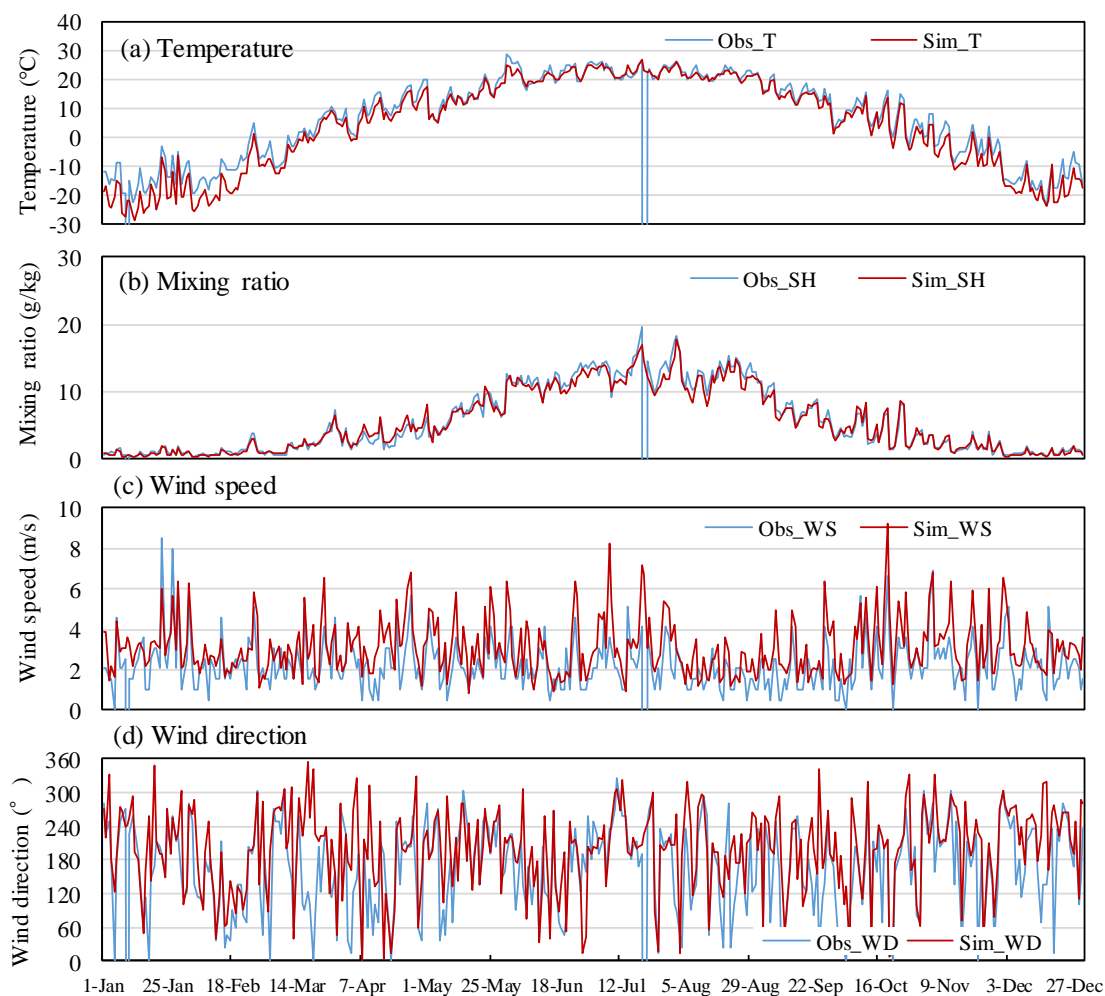
**Table A.10 (continued)** Statistical comparisons between observed and simulated daily mean values of wind speed at the 21 meteorological stations in China in the year 2014. Colored cells represent that the statistical values meet the benchmark standard shown in [Table A.1](#).

	Kunming	Xining	Yinchuan	Harbin	Changchun	Wuhan	Haikou	Nanning	All 21 Stations
N <sup>a</sup>	364	361	364	361	363	363	362	364	7,632
$\bar{O}$ (m/s)	2.44	1.10	1.84	2.55	2.28	1.51	3.32	2.03	2.17
$\bar{M}$ (m/s)	2.40	2.34	2.42	2.81	3.09	1.98	2.12	2.15	2.44
$R$	0.68	0.17	0.51	0.79	0.76	0.72	0.74	0.66	0.54
MBE (m/s)	-0.04	1.25	0.59	0.26	0.82	0.48	-1.21	0.12	0.27
MAE (m/s)	0.65	1.43	0.92	0.83	0.99	0.66	1.24	0.70	0.94
RMSE (m/s)	0.87	1.71	1.17	1.03	1.23	0.84	1.44	0.93	1.22
IA	0.80	0.46	0.67	0.86	0.79	0.79	0.66	0.80	0.72

<sup>a</sup>Missing observation data was excluded for the evaluation of every statistical value.



**Fig. A.13** Time series of the observed and simulated daily mean values: (a) Temperature, (b) Mixing ratio, (c) Wind speed, and (d) Wind direction for **the 21 meteorological stations in China** in the year 2014. Dates in China are in CST (UTC+8). The red line shows the simulated values at the grid cell corresponding to each observation site, whereas the blue line shows the observed values without missing data points.



**Fig. A.14** Time series of the observed and simulated daily mean values: (a) Temperature, (b) Mixing ratio, (c) Wind speed, and (d) Wind direction in **Changchu** in China in the year 2014. Dates in China are in CST (UTC+8). The red line shows the simulated values at the grid cell corresponding to each observation site, whereas the blue line shows the observed values without missing data points.



### A.4.3 日本国内の気象場

D2 領域内の 12 地点 (輪島、金沢、富山、岐阜、名古屋、豊岡、京都、彦根、姫路、神戸、大阪、奈良) における、気温・混合比・風速・降水量の統計指標一覧を Table A.11、Table A.12 に示す。また 12 地点平均した気温・混合比・風速・降水量の計算値と観測値の日平均値の時系列変化を Fig. A.15 に、輪島の気温・混合比・風速・降水量の計算値と観測値の日平均値の時系列変化を Fig. A.16 に示す。

日本国外の気象場と比べて、WRF はより良好に国内の気象場を再現できていた。気温は全地点で IA の値が 0.98 以上で、WRF は気温の季節変化を良好に再現していた (Table A.11, Fig. A.15)。しかし、MBE の値が負となっている地点が多く、12 地点平均でみた場合、WRF が過小評価している傾向が見られた (Table A.11, Fig. A.15)。混合比は全 12 地点で IA が 0.99 以上で WRF は混合比の季節変化を良好に再現していたが、全 12 地点で MBE の値が負となっており、気温と同様、過小評価傾向を示していた (Table A.11)。風速は、気温および混合比の IA 値よりは低いものの、京都、奈良を除いて 0.65 以上の値を示し、WRF は季節変化を良好に再現性していた (Table A.12)。京都、奈良については、他地点と比較して IA 値はさらに低くなった。これは、両観測地点が盆地内に存在し、計算領域 D2 の格子解像度 15 km では、土地の起伏を正確に解像できていないことが影響し、IA の値の低下を誘発したと考えられた。また、能登半島周辺の降水量を WRF は過小評価していた (Table A.12)。CMAQ で大気汚染物質の湿性沈着量を算出する際、降水量も入力値として使用されることから、降水量の過小評価が大気汚染物質の湿性沈着量の過小評価および大気中濃度の過大評価を誘発する可能性に留意する必要がある。

**Table A.11** Statistical comparisons between observed and simulated daily mean values of temperature, and mixing ratio at the meteorological stations in Japan in the year 2014. Colored cells represent that the statistical values meet the benchmark standard shown in [Table A.1](#).

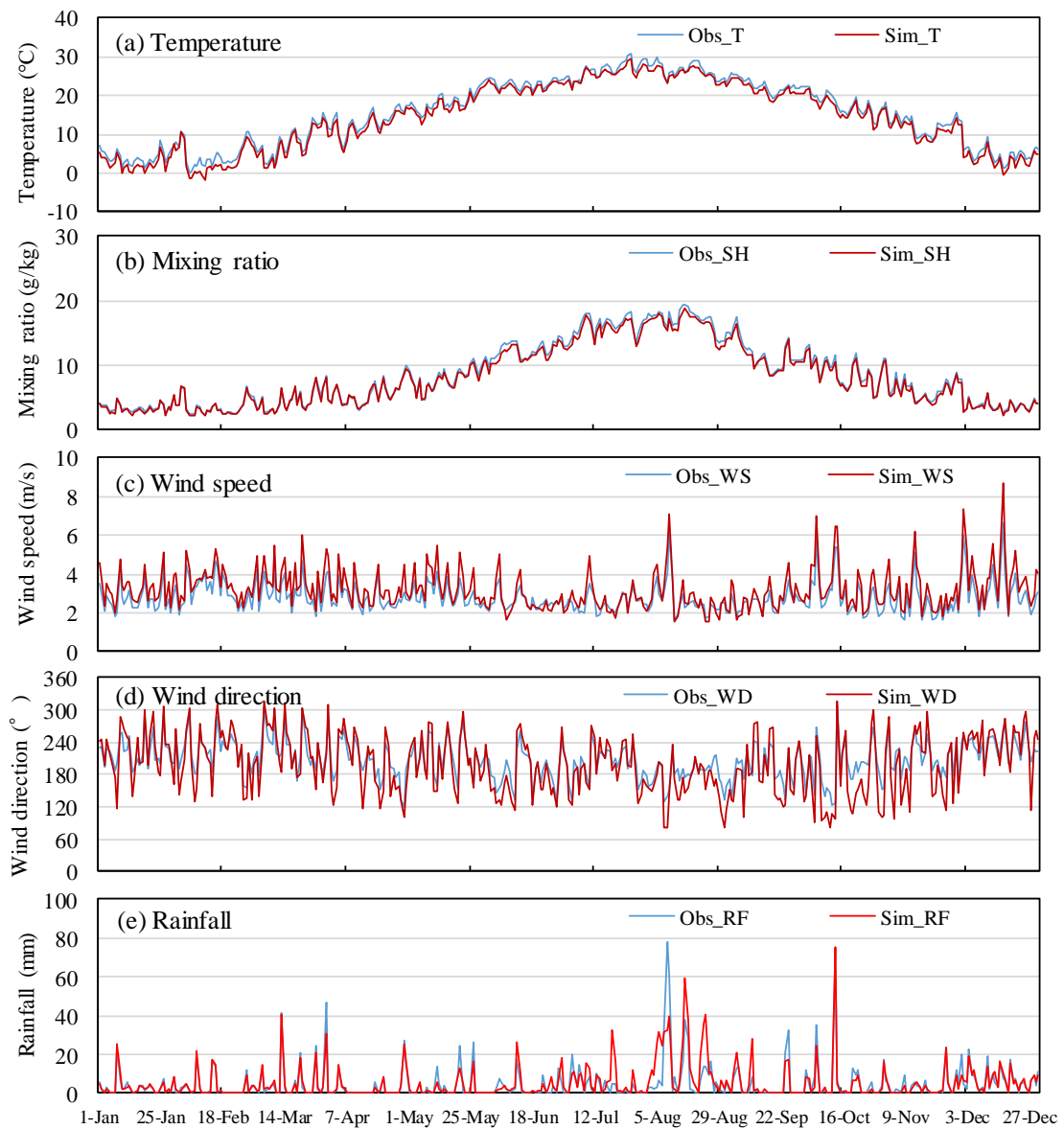
	WAJIMA	KANAZAWA	TOYAMA	GIFU	NAGOYA	TOYOOKA	KYOTO	HIKONE	HIMEJI	KOBE	OSAKA	NARA	All 12 Stations	
N <sup>a</sup>	363	365	365	365	365	365	364	365	364	365	365	365	4,376	
Temperature (°C)	$\bar{O}$ (°C)	13.6	14.8	14.3	16.1	16.1	14.4	16.2	14.9	15.3	16.8	16.7	15.0	15.4
	$\bar{M}$ (°C)	12.2	14.6	12.7	13.7	16.1	13.0	14.9	13.4	13.4	15.8	16.9	13.7	14.2
	R	1.00	1.00	1.00	0.99	1.00	0.99	1.00	0.99	1.00	1.00	1.00	1.00	0.99
	MBE (°C)	-1.4	-0.2	-1.6	-2.4	0.0	-1.4	-1.2	-1.5	-1.9	-0.97	0.20	-1.3	-1.1
	MAE (°C)	1.4	0.7	1.6	2.4	0.7	1.4	1.2	1.6	1.9	1.0	0.6	1.4	1.3
	RMSE (°C)	1.6	1.0	1.8	2.5	0.9	1.6	1.4	1.8	2.1	1.3	0.7	1.6	1.6
	IA	0.99	1.00	0.99	0.98	1.00	0.99	0.99	0.99	0.99	0.99	1.00	0.99	0.99
	N <sup>a</sup>	363	365	365	365	365	365	364	365	364	365	365	365	4,376
Mixing ratio (g/kg)	$\bar{O}$ (g/kg)	8.28	8.38	8.26	8.37	8.44	9.07	8.38	8.74	8.70	8.73	8.80	8.90	8.59
	$\bar{M}$ (g/kg)	8.10	7.69	7.86	8.21	8.08	8.35	7.96	8.48	8.56	8.51	8.45	8.41	8.22
	R	1.00	0.99	0.99	1.00	0.99	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	0.99
	MBE (g/kg)	-0.18	-0.68	-0.40	-0.17	-0.36	-0.73	-0.42	-0.26	-0.14	-0.22	-0.35	-0.49	-0.37
	MAE (g/kg)	0.34	0.71	0.56	0.39	0.49	0.8	0.5	0.40	0.35	0.37	0.51	0.5	0.5
	RMSE (g/kg)	0.5	0.9	0.7	0.52	0.7	0.9	0.6	0.5	0.4	0.5	0.7	0.7	0.7
	IA	1.00	0.99	0.99	1.00	1.00	0.99	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00

<sup>a</sup>Missing observation data was excluded for the evaluation of every statistical value.

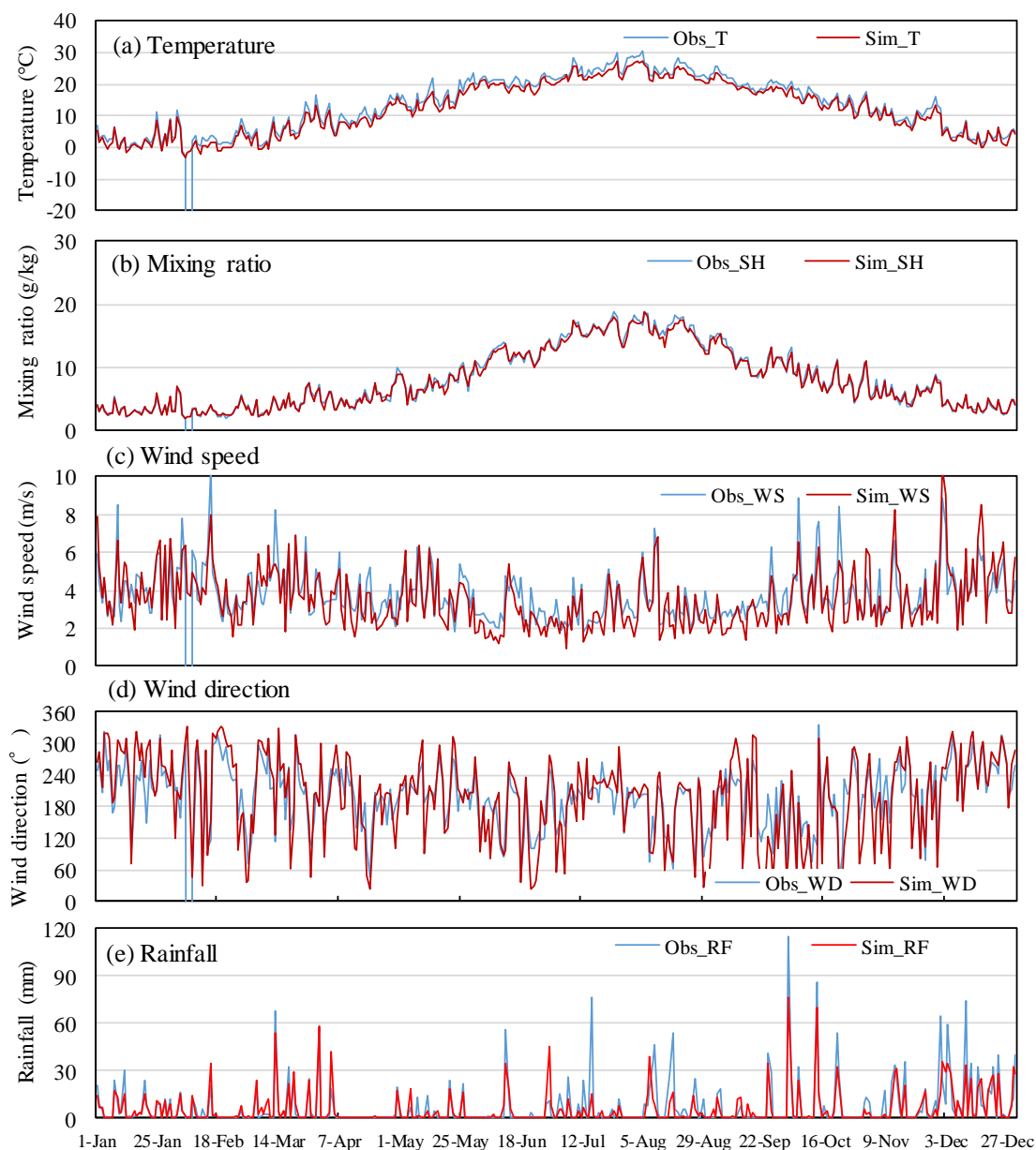
**Table A.12** Statistical comparisons between observed and simulated daily mean values of wind speed, and rainfall at the meteorological stations in Japan in the year 2014. Colored cells represent that the statistical values meet the benchmark standard shown in [Table A.1](#).

		WAJIMA	KANAZAWA	TOYAMA	GIFU	NAGOYA	TOYOOKA	KYOTO	HIKONE	HIMEJI	KOBE	OSAKA	NARA	All 12 Stations
	N <sup>a</sup>	363	365	365	365	365	364	363	365	364	365	365	365	4,374
Wind speed (m/s)	$\bar{O}$ (m/s)	3.8	3.8	2.8	2.7	3.1	1.8	2.1	3.1	2.6	3.8	2.4	1.4	2.8
	$\bar{M}$ (m/s)	3.5	3.9	2.7	2.4	3.6	2.8	3.5	3.4	2.2	4.1	3.9	2.5	3.2
	$R$	0.83	0.89	0.84	0.85	0.95	0.79	0.79	0.82	0.84	0.74	0.87	0.80	0.75
	MBE (m/s)	-0.23	0.17	-0.1	-0.4	0.50	1.0	1.34	0.25	-0.4	0.3	1.4	1.1	0.4
	MAE (m/s)	0.72	0.63	0.5	0.5	0.6	1.0	1.4	0.7	0.5	0.9	1.4	1.2	0.8
	RMSE (m/s)	0.9	0.8	0.6	0.7	0.8	1.2	1.6	1.0	0.6	1.2	1.7	1.4	1.1
	IA	0.90	0.94	0.91	0.88	0.92	0.67	0.56	0.90	0.86	0.84	0.65	0.50	0.84
	N <sup>a</sup>	363	365	365	365	365	365	364	365	364	365	365	365	4,376
Rainfall (mm)	$\bar{O}$ (mm)	6.9	7.2	6.9	4.7	4.1	5.5	3.8	4.0	3.2	3.3	3.5	3.6	4.7
	$\bar{M}$ (mm)	5.6	7.1	6.3	6.2	5.0	5.1	5.2	3.9	4.9	5.8	4.0	3.3	5.2
	$R$	0.83	0.76	0.58	0.76	0.57	0.76	0.79	0.68	0.53	0.55	0.73	0.65	0.67
	MBE (mm)	-1.3	-0.2	-0.7	1.5	0.83	-0.4	1.4	0.0	1.7	2.4	0.46	-0.4	0.5
	MAE (mm)	3.7	4.2	4.9	3.8	3.8	3.2	3.2	2.6	3.7	4.4	2.7	2.6	3.6
	RMSE (mm)	8.3	9.7	11.2	10.1	11.2	7.7	9.0	7.4	11.9	14.2	8.4	8.7	10.0
	IA	0.88	0.87	0.74	0.85	0.73	0.85	0.88	0.81	0.67	0.69	0.85	0.78	0.81

<sup>a</sup>Missing observation data was excluded for the evaluation of every statistical value.



**Fig. A.10** Time series of the observed and simulated daily mean values: (a) Temperature, (b) Mixing ratio, (c) Wind speed, (d) Wind direction, and (e) Rainfall **averaged for the 12 meteorological stations** in D2 in Japan in the year 2014. Dates in Japan are in JST (UTC+9). The red line shows the simulated values at the grid cell corresponding to each observation site, whereas the blue line shows the observed values without missing data points.



**Fig. A.11** Time series of the observed and simulated daily mean values: (a) Temperature, (b) Mixing ratio, (c) Wind speed, (d) Wind direction, and (e) Rainfall in **Wajima** in D2 in Japan in the year 2014. Dates in Japan are in JST (UTC+9). The red line shows the simulated values at the grid cell corresponding to each observation site, whereas the blue line shows the observed values without missing data points.

## A.5 参考文献

- Emery C., Tai E. & Yarwood G. (2001). Enhanced meteorological modeling and performance evaluation for two Texas ozone episodes. *Prepared for The Texas Natural Resource Conservation Commission* 12118 Park 35 Circle Austin, Texas 78753.
- Kumar, R., Naja, M., Pfister, G. G., Barth, M. C., & Brasseur, G. P. (2012). Simulations over South Asia using the Weather Research and Forecasting model with Chemistry (WRF-Chem): Set-up and meteorological evaluation. *Geoscientific Model Development*, 5(2), 321–343. <http://doi.org/10.5194/gmd-5-321-2012>
- McNally, D. E. (2009, June). 12km MM5 Performance Goals. Presented at the Ad-Hoc Meteorology Group. <https://www3.epa.gov/scram001/adhoc/mcnally2009.pdf>
- Zhang, H., Li, J., Ying, Q., Yu, J. Z., Wu, D., Cheng, Y., ... Jiang, J. (2012). Source apportionment of PM<sub>2.5</sub> nitrate and sulfate in China using a source-oriented chemical transport model. *Atmospheric Environment*, 62, 228–242. <http://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2012.08.014>
- Zhang, H., Chen, G., Hu, J., Chen, S. H., Wiedinmyer, C., Kleeman, M., & Ying, Q. (2014). Evaluation of a seven-year air quality simulation using the Weather Research and Forecasting (WRF)/Community Multiscale Air Quality (CMAQ) models in the eastern United States. *Science of the Total Environment*, 473–474, 275–285. <http://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2013.11.121>