

MM5/CMAQ を用いた兵庫県における春季・夏季の 光化学オキシダント濃度変動要因の解析

Analysis of Factors Contributing to High Photochemical Oxidant Concentration in Spring and Summer in Hyogo Prefecture by Using MM5/CMAQ Modeling System

嶋寺 光, 阪大院工, 〒565-0871 大阪府吹田市山田丘 2-1, shimadera@ea.see.eng.osaka-u.ac.jp
坂本 美德, 兵庫環研, 〒654-0037 兵庫県神戸市須磨区行平町 3-1-27, minori_sakamoto@pref.hyogo.lg.jp
近藤 明, 阪大院工, 〒565-0871 大阪府吹田市山田丘 2-1, kondo@see.eng.osaka-u.ac.jp
加賀 昭和, 阪大院工, 〒565-0871 大阪府吹田市山田丘 2-1, kaga@see.eng.osaka-u.ac.jp
シュレスタ クンダン ラル, 阪大院工, 〒565-0871 大阪府吹田市山田丘 2-1, kundan@ea.see.eng.osaka-u.ac.jp
井上 義雄, 阪大院工, 〒565-0871 大阪府吹田市山田丘 2-1, inoue@see.eng.osaka-u.ac.jp
Hikari Shimadera, Graduate School of Engineering, Osaka University, Yamadaoka 2-1, Suita, Osaka, 565-0871
Minori Sakamoto, Hyogo Prefectural Institute of Environmental Sciences, 3-1-27 Yukihira-cho, Suma-ku, Kobe, Hyogo 654-0037
Akira Kondo, Graduate School of Engineering, Osaka University, Yamadaoka 2-1, Suita, Osaka, 565-0871
Akikazu Kaga, Graduate School of Engineering, Osaka University, Yamadaoka 2-1, Suita, Osaka, 565-0871
Kundan Lal Shrestha, Graduate School of Engineering, Osaka University, Yamadaoka 2-1, Suita, Osaka, 565-0871
Yoshio Inoue, Graduate School of Engineering, Osaka University, Yamadaoka 2-1, Suita, Osaka, 565-0871

The Fifth-generation PSU/NCAR Mesoscale Model (MM5) and the EPA models-3 Community Multiscale Air Quality modeling system (CMAQ) modeling system and the Hybrid Single-particle Lagrangian Integrated Trajectory (HYSPLIT) model were utilized to analyze factors contributing to high photochemical oxidant concentration in spring (May 2008) and summer (July 2008) in Hyogo Prefecture. The MM5/CMAQ modeling system generally reproduced meteorological fields and variations of photochemical oxidant concentrations. The results showed that photochemical oxidant concentrations in Hyogo Prefecture were mainly affected by transboundary air pollution and long-range transported air masses that were larger than Hyogo Prefecture in May, and relatively local air mass flows and local photochemical productions in July.

1. はじめに

近年, 大気常時監視測定局データの解析から, 日本における光化学オキシダント(主成分は O_3)濃度は全国的に増加傾向にあり, その原因として, 東アジアにおける大気汚染物質排出量の増加に伴う, 大気汚染の広域化が挙げられている⁽¹⁾. また, 2007 年 5 月 8, 9 日には大分県や新潟県で観測史上初めて光化学スモッグ注意報が発令されるなど, 日本の広域で高濃度の光化学オキシダントが観測され, 大陸起源 O_3 の越境輸送による影響の顕在化が示唆された⁽²⁾. このように, 光化学大気汚染は再び注目を集めており, その実態把握のために広域数値シミュレーションモデルも用いられるようになってきている⁽²⁾.

本研究では, 兵庫県における光化学オキシダントの濃度変動, 特に高濃度の出現の要因を解析するために, 気象/大気質モデルを用いて数値シミュレーションを行った. 対象期間は, 越境大気汚染の影響を受けやすく, 平均 O_3 濃度が高い傾向がある春季として 2008 年 5 月を, 気温の上昇, 日射量の増加, 植生起源揮発性有機化合物 (VOC) の排出量の増加などにより昼間に高濃度 O_3 が出現しやすい夏季として 2008 年 7 月を選んだ.

2. 光化学反応

ここでは, 地表に近い下層大気において O_3 生成に関わる光化学反応について簡単に述べる. より詳細な反応機構については Kley et al.⁽³⁾, Jenkin and Clemmshaw⁽⁴⁾などに記述されている. O_3 生成には, $NO_x (= NO + NO_2)$ および VOC が重要な役割を果たす. O_3 は日中に以下の反応によって生成される.



ここで, $h\nu$ は日射に含まれる紫外線, M は第 3 体 (主に N_2) である. 一方で, NO は以下の反応により O_3 を分解する.



主に光化学反応によって VOC と CO から生成される RO_2 と HO_2 が存在すると以下のように, O_3 を消費せずに NO_2 が生成される.



反応(R1)~(R3)では, O_3 と NO_2 の和は保存されており, この和をオキシダント (O_x) と定義し, 光化学反応の議論に用いられることがある^{(3),(6)}. O_x を用いることで, O_3 の遠方からの移流や, (R4), (R5)による NO_2 生成あるいはそれに伴う O_3 生成を評価することができる.

3. 計算手法

3.1 数値モデルの概要

本研究で使用した数値モデルは, 米国国立大気研究センター (NCAR) およびペンシルバニア州立大学 (PSU) により開発された the Fifth-generation PSU/NCAR Mesoscale Model (MM5)⁽⁶⁾ のバージョン 3.7 と, 米国環境保護庁 (EPA) により開発された the EPA models-3 Community Multiscale Air Quality modeling system (CMAQ)⁽⁷⁾ のバージョン 4.6 である.

MM5 は非静力学平衡・圧縮性のメソスケールモデルであり, 主な特徴としては, 鉛直座標系に気圧準拠の σ 座標系を採用していること, ネスティング手法による計算領域の高解像度化が可能であること, 各物理過程において複数のオプションを有していることなどの点が挙げられる.

CMAQ は 3 次元オイラー型の大気質モデルで、半球から局地スケールまで対応しており、気象モデルから得られた気象場や、発生源などの入力条件をもとに、様々な大気汚染物質濃度の分布、湿性・乾性沈着量が計算できるように設計されている。

3.2 計算条件

計算期間は 春季および夏季としてそれぞれ 2008 年 5 月および 7 月を選び、それぞれの期間で 5 日間の助走計算を行った。Fig. 1 に本研究における計算領域および計算精度の評価に用いた観測地点を示す。計算領域は、ランベルト正角円錐図法で表される 32.0° N, 122.5° E を中心とする東アジア域である。ネスティング手法を用いて、格子数 105 × 81 の 54km 格子領域 (D1)、格子数 72 × 72 の 18km 格子領域 (D2)、および兵庫県域を中心とする格子数 72 × 72 の 6km 格子領域 (D3) の 3 領域で計算を行った。鉛直方向には、地表面から上空 100hPa までを 24 層に分割し、地表面に接する層の中心高さは地上約 15m とした。また、数値計算による気象場の予測精度評価のために、兵庫県下の気象官署 4 地点 (豊岡, 姫路, 神戸, 洲本), および D3 内の高層気象観測官署 3 地点 (米子, 浜松, 潮岬) における観測値を用いた。O₃ 濃度の予測精度評価には、兵庫県下の一般環境大気測定局から南北軸に 5 地点 (豊岡, 柏原, 西脇, 二見, 洲本) を選んだ。

MM5 の初期・境界条件は、D1 には水平解像度 1° × 1° の全球データである米国環境予測センターの最終解析データ (NCEP.FNL) を用いた。D2 には日本域で利用できる高解像度 (地上データは

0.05° × 0.0625°, 各圧力平面のデータは 0.1° × 0.125°) の気象庁メソ数値予報モデルの客観解析値 (GPV-MSM) を用い、GPV-MSM に含まれていない地中・表面温度のみ NCEP.FNL を用いた。D3 の境界条件は、D2 の計算結果を用いた。MM5 の物理スキームには 積雲過程に Grel et al.⁽⁸⁾ 雲微物理過程および放射過程に Dudhia⁽⁹⁾, 大気境界層過程に Hong and Pan⁽¹⁰⁾, 地表面過程に Dudhia⁽¹¹⁾ の手法を用いた。

CMAQ の初期・境界条件は、D1 には CMAQ の初期設定値を用いた。D2 および D3 の境界条件は、それぞれ D1 および D2 の計算結果を用いた。CMAQ の化学反応スキームには、気相反応系に Statewide Air Pollution Research Center version 99 (SAPRC99)⁽¹²⁾, エアロゾル系に AERO4 を用い、雲・液相反応オプションを用いた。

3.3 排出量データ

CMAQ に入力する大気汚染物質の排出量データとして、日本域には EAGrid2000-JAPAN⁽¹³⁾ を用いた。EAGrid2000-JAPAN は、基準年を 2000 年とし、月別および平日・休日別に 24 時間変動が考慮され、日本全国を対象に水平解像度約 1km × 1km で整備されたデータである。日本国内の自動車起源排出量については、自動車 NO_x・PM 法等による規制に伴う排出量削減を反映するために、兵庫県下の自動車排ガス測定局における濃度低下率を乗じて補正し 2008 年度の排出量を算定した。

日本域以外の排出量データについては、SO₂, NO_x, CO, 人為起源 VOC, PM 排出量には、2006 Asia Emissions for INTEX-B⁽¹⁴⁾ を

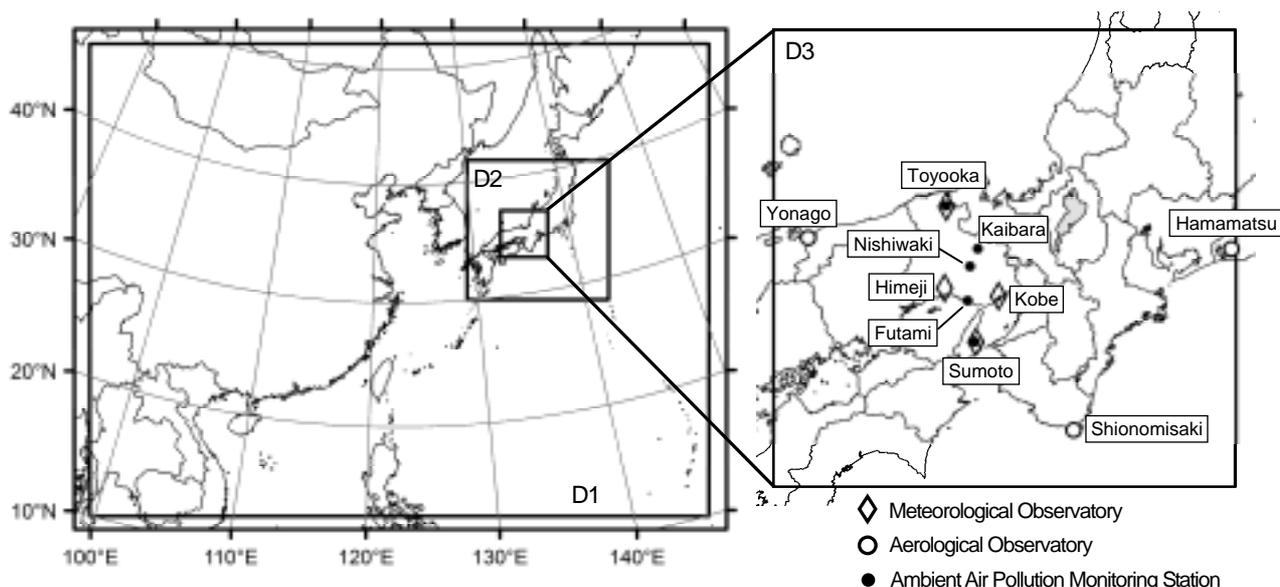


Fig. 1 Modeling domains and locations of observation sites

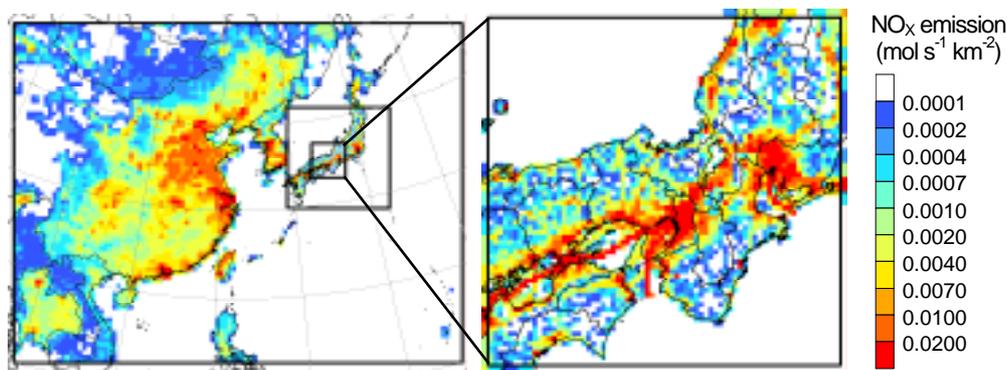


Fig. 2 Spatial distribution of NO_x emission rate for CMAQ simulation on weekdays in May 2008

使用した。アジア域、特に中国における排出量の増加を反映するために、一次エネルギー消費量⁽¹⁵⁾の変化率を乗じて補正し 2008 年度の排出量を算定した。NH₃ 排出量には Regional Emission inventory in Asia (REAS)⁽¹⁶⁾の 2008 年予測値を用い、その季節変動には Streets et al.⁽¹⁷⁾を用いた。植生起源 VOC 排出量には EAGrid2000⁽¹⁸⁾を用いた。これらのデータの水平解像度は 0.5° × 0.5°である。また、バイオマス燃焼起源の排出量には、Streets et al.⁽¹⁹⁾を用いた。さらに、ロシア域の排出量には ARCTAS Pre-mission Emission Inventory⁽²⁰⁾を用いた。これらのデータの水平解像度は 1° × 1°である。

以上のデータを組み合わせ、CMAQ の計算格子に配分した排出量データの一例として、2008 年 5 月平日における平均 NO_x 排出量 (9 割以上は NO として排出) の分布を Fig. 2 に示す。NO_x 排出量は、日本国内では主要道路沿いや瀬戸内海や湾内において排出量が多くなっており、国外では中国の沿岸部、台湾、韓国で排出量が多くなっている。日本国外からの越境大気汚染の影響を明確にするために、上記全ての排出量データを使用する基本ケース (EB) と、日本国外の排出量をゼロとして日本域の排出量データのみを使用するケース (EJ) の 2 ケースで計算を行った。

4. 数値計算による予測精度

4.1 気象場の予測精度

数値計算による気象場の予測精度は、Emery et al.⁽²¹⁾の手法を用いて評価した。統計指標として、Mean Bias Error (MBE, 式(1)), Mean Absolute Error (MAE, 式(2)), Root Mean Square Error (RMSE, 式(3)) および Index of Agreement (IA, 式(4)) を用いた。

$$MBE = \overline{M} - \overline{O} \quad (1)$$

$$MAE = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N |M_i - O_i| \quad (2)$$

$$RMSE = \left[\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (M_i - O_i)^2 \right]^{1/2} \quad (3)$$

$$IA = 1 - \frac{\sum_{i=1}^N (M_i - O_i)^2}{\sum_{i=1}^N (|M_i - \overline{O}| + |O_i - \overline{O}|)^2} \quad (4)$$

Table 1 Performance statistics for meteorological prediction results of the first layer at the meteorological observatories in Hyogo Prefecture and of the sixth layer (~920hPa) at the aerological observatories in D3 in May and July 2008

		Meteorological Observatory		Aerological Observatory		Benchmarks
		May	July	May	July	
Temperature	Mean observation (°C)	18.3	27.3	14.1	22.3	
	Mean prediction (°C)	17.6	26.7	13.6	20.6	
	R	0.83	0.66	0.92	0.73	
	MBE (°C)	-0.7	-0.6	-0.5	-1.8	≤±0.5
	MAE (°C)	1.9	2.0	1.1	1.9	≤2
	IA	0.90	0.81	0.95	0.73	≥0.8
Humidity	Mean observation (g kg ⁻¹)	8.8	17.1	7.5	14.2	
	Mean prediction (g kg ⁻¹)	9.3	17.3	7.5	14.1	
	R	0.81	0.50	0.80	0.54	
	MBE (g kg ⁻¹)	0.5	0.2	0.0	-0.1	≤±1
	MAE (g kg ⁻¹)	1.1	1.5	1.2	1.5	≤2
	IA	0.88	0.70	0.88	0.71	≥0.6
Wind speed	Mean observation (m s ⁻¹)	2.7	2.3	8.7	5.6	
	Mean prediction (m s ⁻¹)	3.7	3.4	8.7	5.5	
	R	0.48	0.44	0.83	0.61	
	MBE (m s ⁻¹)	0.9	1.1	0.1	-0.1	≤±0.5
	RMSE (m s ⁻¹)	2.1	1.9	3.2	3.1	≤2
	IA	0.64	0.58	0.91	0.77	≥0.6
Wind U-component	Mean observation (m s ⁻¹)	-0.3	0.4	-2.0	3.1	
	Mean prediction (m s ⁻¹)	-0.6	0.6	-1.9	2.8	
	R	0.55	0.44	0.91	0.63	
	MBE (m s ⁻¹)	-0.3	0.2	0.1	-0.4	
	RMSE (m s ⁻¹)	2.2	1.6	3.5	3.6	
	IA	0.74	0.57	0.95	0.79	
Wind V-component	Mean observation (m s ⁻¹)	-0.2	0.7	-0.3	0.7	
	Mean prediction (m s ⁻¹)	0.1	2.2	0.0	2.1	
	R	0.68	0.53	0.87	0.74	
	MBE (m s ⁻¹)	0.2	1.5	0.2	1.4	
	RMSE (m s ⁻¹)	2.4	2.7	2.9	3.0	
	IA	0.80	0.62	0.93	0.81	
Precipitation	Monthly observation (mm)	174	78			
	Monthly prediction (mm)	135	74			

ここで、 \bar{M} および \bar{O} は計算値および観測値の平均値、 M_i および O_i はある地点・時間 i における計算値および観測値、 N はサンプル数である。IA は Willmott⁽²²⁾により考案された指標で、0.5 より大きければ数値計算による再現性が良好であるとされる^{(23),(24)}。

Table 1 に兵庫県下の気象官署 4 地点における地上気象の観測値と計算値および D3 内の高層気象観測官署 3 地点における高層気象の観測値(上空 925hPa)と計算値(第 6 層、上空約 920hPa)について、2008 年 5、7 月の月間値、ピアソンの相関係数 (R)、MBE、MAE、RMSE、IA および各ベンチマークを示す。全体として、数値計算による予測精度は 5 月の方が 7 月に比べて良いという結果になった。気温については、計算でやや低く予測されているという傾向はあるが、地上では MBE が 5 月で -0.7、7 月で -0.6 となっており、ベンチマークから大きく外れているわけではなく、MAE、IA のベンチマークは 5 月、7 月とも満たしている。湿度については、地上、高層

のいずれも 5 月、7 月の両方で MBE、MAE、IA の全てでベンチマークを満たしている。以上の点から、気温および湿度は計算によって良好に再現されているといえる。風向風速については、地上における再現性が気温や湿度に比べるとやや悪く、MM5 を用いた他研究においても同様の傾向が確認できる^{(25),(26)}。一方、高層における風向風速の予測精度については、地上の場合に比べ、風速が大きいため RMSE は値が大きくなっているが、R と IA では明らかに良い値を示しており、気温や湿度とほぼ同等の精度となっている。そのため、比較的スケールが大きい風の流れは数値計算によって良好に再現できているといえる。地上における風向風速の予測精度がやや悪いのは、観測値が計算格子サイズよりも細かい地形の起伏や人工構造物の影響を受けやすく、数値計算による予測が困難であるためと考えられる。

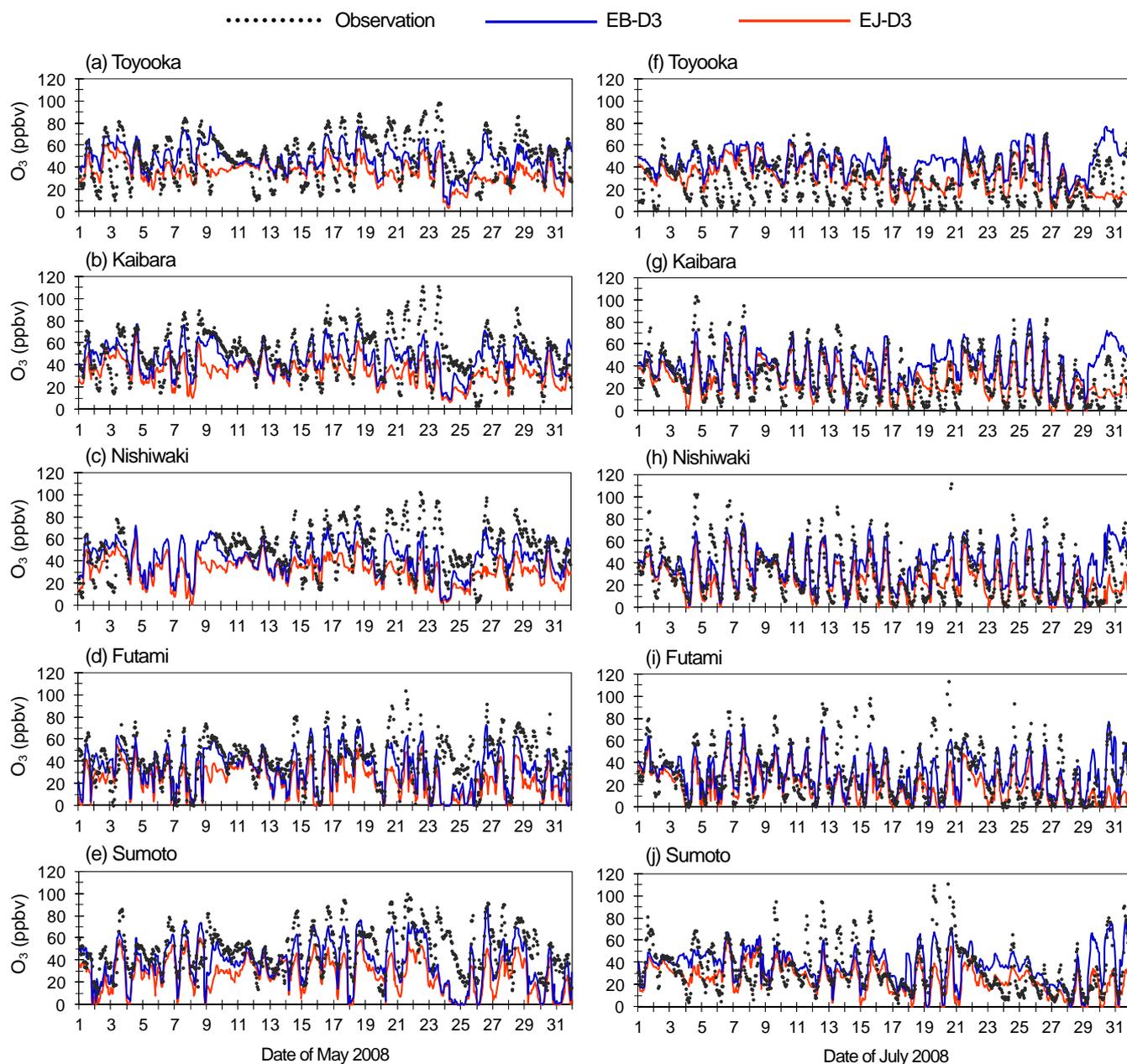


Fig. 3 Hourly time series of observed and predicted O_3 concentrations at the five ambient air pollution monitoring stations in Hyogo Prefecture in May (a-e) and July (f-j) 2008

Table 2 Performance statistics for O₃ predictions of at the five ambient air pollution monitoring stations in Hyogo Prefecture in May and July 2008

		May		July	
		EB	EJ	EB	EJ
Hourly O ₃	Mean observation (ppbv)	47.9	47.9	31.4	31.4
	Mean prediction (ppbv)	42.6	30.7	39.0	26.1
	R	0.58	0.52	0.60	0.61
	MBE (ppbv)	-5.4	-17.2	7.6	-5.3
	MAE (ppbv)	14.7	20.7	15.1	13.3
	IA	0.72	0.58	0.75	0.74
Daily maximum O ₃	Mean observation (ppbv)	73.4	73.4	64.2	64.2
	Mean prediction (ppbv)	59.1	44.5	57.8	42.8
	R	0.58	0.38	0.50	0.42
	MBE (ppbv)	-14.3	-28.9	-6.4	-21.4
	MAE (ppbv)	15.5	28.9	14.9	22.6
	IA	0.63	0.46	0.63	0.54

4.2 O₃濃度の予測精度

Fig. 3 に 2008 年 5, 7 月の兵庫県下の一般環境大気測定局 5 地点における O₃ 濃度の時系列変化を示す。EB と EJ の濃度差が、数値計算における越境汚染の影響を示している。数値計算によって濃度の日内変動や一カ月と通じての変動の傾向は概ね再現できている。しかし、昼間には強いピークが現れる場合にしばしば計算で濃度上昇を再現できず、過小評価となっており、また夜間には計算で濃度が下がらずに過大評価となっている場合が多い。同様の傾向が CMAQ を用いた他研究^{(2), (27)}においても確認でき、CMAQ が抱える課題の一つであるといえる。EB と EJ における濃度の違いをみると、5 月は一カ月と通じて 5 地点全てで差が大きく、越境汚染の影響で兵庫県域のバックグラウンド O₃ 濃度が上昇しているような状態となっている。それに対して 7 月は、18~20 日、29~31 日に 5 月以上に差がみられるが、差があまり明確でない日も多い。また、5 月には 5 地点で昼間に同じようにピークが現れることが多いのに対して、7 月には昼間に西脇と柏原で強いピークが現れ、豊岡ではピークが現れないなど、濃度変動の傾向が異なる場合が多い。

Table 2 に 2008 年 5, 7 月の兵庫県下の一般環境大気測定局 5 地点における O₃ 濃度の 1 時間値と日最大 1 時間値の観測値と EB および EJ の計算値について、月間値、R、MBE、MAE、IA を示す。5 月には EB は EJ に比べて、1 時間値、日最大値ともに R、MBE、MAE、IA の全てで良い結果を示しており、越境汚染による影響を概ね再現できているといえる。7 月には、日最大値では 5 月の場合と同様に、EB の方が良い結果となっているが、上でも述べたように夜間の濃度減少の再現性に問題があるため、1 時間値では MBE が 7.6 と計算で過大評価になっており、EB と EJ における予測精度にあまり差はない。IA を用いて数値計算による O₃ 濃度予測精度が評価されている他研究と比較すると、本研究における IA の値は 5 月に 0.72、7 月に 0.75 であるのに対し、Kukkonen et al.⁽²⁸⁾は 0.62、Sokhi et al.⁽²⁷⁾は 0.69-0.70、Yu et al.⁽²⁹⁾は 0.79、Beckx et al.⁽³⁰⁾は 0.69-0.80 であった。したがって、本研究の計算結果は、他研究と同程度の精度で O₃ 濃度を予測できているといえる。

5. 濃度変動要因の解析

気塊の流入経路による光化学オキシダント濃度変動の傾向の違いを明らかにするために、CMAQ に用いた気象場と the Hybrid Single-particle Lagrangian Integrated Trajectory (HYSPPLIT)⁽³¹⁾ のバージョン 4.9 を用いて、2008 年 5, 7 月の昼間について兵庫県下の一般環境大気測定局 5 地点の上空 300m を始点にバックトラジェク

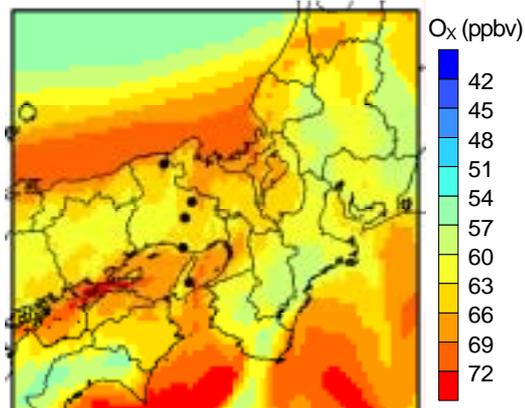
トリ解析を行った。その結果、(i)ほぼ 5 地点ともアジア大陸から日本海を経て到達、(ii)ほぼ 5 地点ともアジア大陸沿岸から東シナ海を経て日本列島に沿って到達、(iii)主に豊岡には日本海側から、その他の地点には瀬戸内海・太平洋側から到達、という特徴的なトラジェクトリを複数の日で確認できた。(i)のパターンが確認できたのは、5 月 6, 7, 9, 17, 20, 21, 26, 27 日などで、これらの日は大陸からスケールの大きい気塊が流入してくるため、5 地点で同様の濃度変化を示し、大陸で O₃ が高濃度となっている場合に 5 地点でも高濃度となりやすい。(ii)のパターンが確認できたのは、5 月 16 日、7 月 19, 20, 29, 30, 31 日などで、大陸で O₃ が高濃度となっている場合に高濃度となりやすいが、NO_x 排出量が多い瀬戸内海などを気塊が通る経路もあるため地点間で濃度変化の傾向が異なる。(iii)のパターンが確認できたのは、5 月 14, 22 日、7 月 4, 5, 6, 7, 11, 13, 14, 15, 19, 20, 27, 28 日(7 月 15 日、20 日は柏原にも日本海側から到達)などで、気塊が日本海側から到達する地点では低濃度、NO_x 排出量が多い瀬戸内海、瀬戸内海沿岸の都市部を経て到達する地点では高濃度となりやすい。Fig. 3 から、トラジェクトリが特徴的なパターンを示す場合の濃度変動の傾向が概ね読み取れる。

Fig. 4 に 5 月の代表的なトラジェクトリのパターンである(i)の例として、5 月 9 日 13 時、20 日 11 時のトラジェクトリと、7 月の代表的なトラジェクトリのパターンである(iii)の例として、7 月 4 日 14 時、15 日 14 時のトラジェクトリを示し、あわせて同日付時刻における O₃ 濃度と NO₂ 濃度の和である O_x 濃度の数値計算による空間分布を示す。5 月 9 日 13 時には、北北東から O₃ を含んだ大きな気塊が流入しており、兵庫県では O_x 濃度がほぼ均一となっていることがわかる。5 月 20 日 11 時には、北西から O₃ を含んだ大きな気塊が流入してきており、D3 全体で低かった O_x 濃度が上昇していることがわかる。このとき、NO_x 排出量が多い瀬戸内海や都市部では、移流してきた O₃ が反応(R3)によって分解され NO₂ が生成されるため、空間分布を O₃ 濃度のみでみた場合は瀬戸内海や都市部で他地域に比べて低濃度となる。7 月 4 日 14 時には、兵庫県北部へは日本海側から、兵庫県中部・南部へは瀬戸内海側から気塊が流入している。7 月 15 日 14 時には、兵庫県北部から柏原周辺までは日本海側から、兵庫県南部から西脇周辺までは瀬戸内海側から気塊が流入している。いずれの場合も、気塊が NO_x 排出源がない日本海側から流入している地域では O_x 濃度が低く、気塊が NO_x 排出量が多い瀬戸内海から沿岸の都市部を経て流入している地域では O_x 濃度が高くなっている。また、NO_x 排出源近傍よりも風下地域で O_x 濃度が高くなる傾向があるが、これ

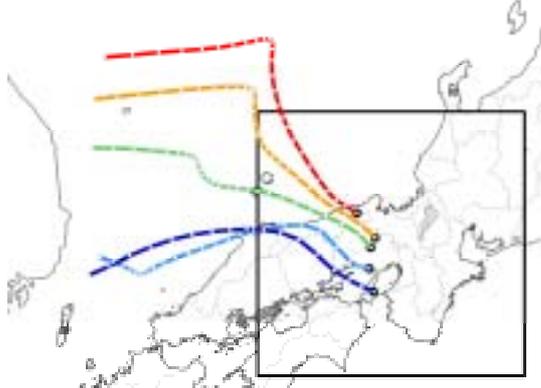
(a) 1300 hours on May 9



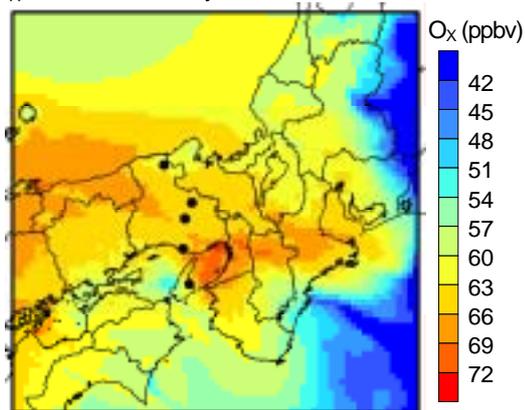
(e) 1300 hours on May 9



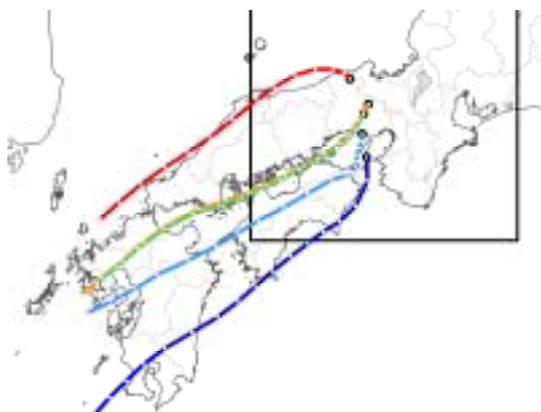
(b) 1100 hours on July 20



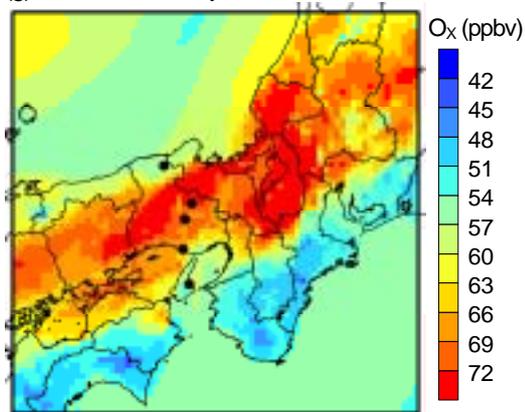
(f) 1100 hours on May 20



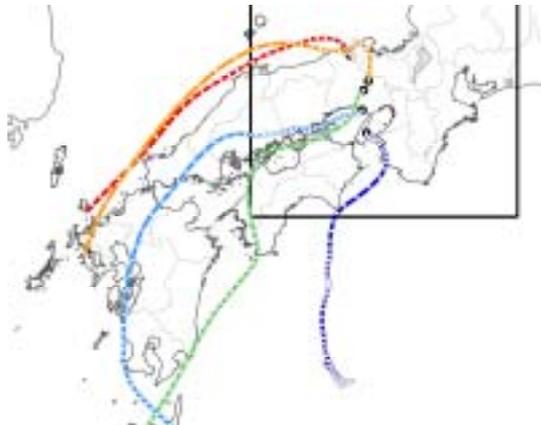
(c) 1400 hours on July 4



(g) 1400 hours on July 4



(d) 1400 hours on July 15



(h) 1400 hours on July 15

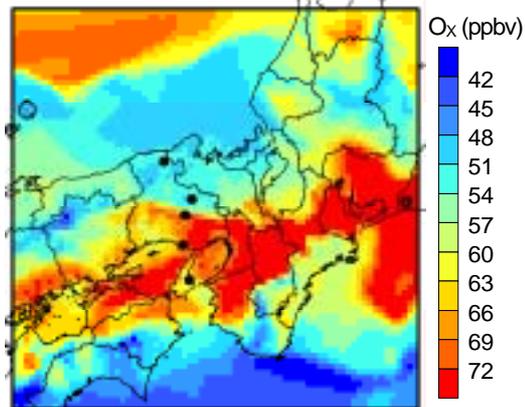


Fig. 4 Backward trajectories for the five ambient air pollution monitoring stations in Hyogo Prefecture (a-d) and spatial distributions of predicted O_x concentration in D3 (e-h) at 1300 hours on May 9, 1100 hours on May 20, 1400 hours on July 4 and 1400 hours on July 15, 2008

は排出された NO が移流される過程で、光化学反応により VOC や CO から生成されるラジカルと、反応(R4), (R5)を生じ、NO₂ が生成されているためと考えられる。この NO₂ からさらに反応(R1), (R2)によって O₃ が生成されると風下地域で高濃度の O₃ が観測される。Fig. 3 から、特に 7 月 4 日にはこの傾向が顕著であることがわかる。

以上のように、兵庫県における光化学オキシダント濃度は、5 月には兵庫県よりも大きいスケールの気塊の移流による影響が比較的大きく、大陸からの越境汚染の影響を受ける場合には兵庫県全体で濃度が上昇する。7 月には都市スケール程度の気塊の移流による影響が比較的大きく、越境汚染の受ける場合でも、5 月に比べて兵庫県内で地域差が大きくなる。そして、NO_x 排出量の多い瀬戸内海から沿岸の都市部を通過した気塊が内陸の柏原や西脇周辺に到達する場合に高濃度となりやすい。

6. まとめ

本研究では、兵庫県における春季および夏季の光化学オキシダントの濃度変動の要因について、MM5/CMAQ と HYSPLIT を用いて解析を行った。

気象場の計算結果と、兵庫県下の気象官署 4 地点および D3 内の高層気象観測官署 3 地点の観測結果と比較を行ったところ、数値計算による気象場の再現性は、地表付近の風向風速についてはやや悪かったが、気温、湿度、および上空の風向風速は良好に再現されていた。O₃ 濃度の計算結果と、兵庫県下の一般環境大気測定局から南北軸に選んだ 5 地点の観測結果と比較を行ったところ、夜間の濃度減少の再現性などに問題はあつたものの、他研究と同程度の再現性は得られていた。

HYSPLIT を用いて、兵庫県下の南北 5 地点の測定局上空 300m を始点にバックトラジェクトリ解析を行ったところ、(i)ほぼ 5 地点ともアジア大陸から日本海を経て到達、(ii)ほぼ 5 地点ともアジア大陸沿岸から東シナ海を経て日本列島に沿って到達、(iii)主に豊岡には日本海側から、その他の地点には瀬戸内海・太平洋側から到達、という特徴的なトラジェクトリを複数の日で確認できた。(i)は 5 月、(ii)は 7 月で越境汚染の影響を受けている場合、(iii)は 7 月に多かった。この結果と濃度変動の傾向をあわせて考えると、兵庫県における光化学オキシダント濃度は、5 月には兵庫県よりも大きいスケールの気塊の移流による影響が比較的大きく、大陸からの越境汚染の影響を受ける場合には兵庫県全体で濃度が上昇する。7 月には都市スケール程度の気塊の移流による影響が比較的大きく、排出量の多い瀬戸内海から沿岸の都市部を通過した気塊が内陸の柏原や西脇周辺に到達する場合に高濃度となりやすいということがわかった。

参考文献

- (1) 大原, 坂田, “光化学オキシダントの全国的な経年変動に関する解析”, 大気環境学会誌, 38(1) (2003), pp. 47-54
- (2) 黒川, 大原, 早崎, 鶴野, “ネスト版 RAMS/CMAQ 連携モデルによる 2007 年 5 月 8,9 日に発生した広域的な光化学オゾン汚染の解析”, 大気環境学会誌, 43(4) (2008), pp. 209-224
- (3) Kley, D., Kleinmann, M., Sanderman, H., Krupa, S., “Photochemical oxidants: State of the science”, Environ Pollut, 100 (1-3) (1999), pp. 19-42
- (4) Jenkin, M.E. and Clemmshaw, K.C., “Ozone and other secondary photochemical pollutants: Chemical processes governing their formation in the planetary boundary layer”, Atmos Environ, 34 (16) (2000), pp. 2499-2527
- (5) White, W.H., “NO_x-O₃ photochemistry in power plant plumes: Comparison of theory with observation”, Environ Sci Technol, 11

- (10) (1977), pp. 995-1000
- (6) Grell, G.A., Dudhia, J., Stauffer, D.R., “A description of the fifth generation Penn State/NCAR mesoscale model (MM5)”, NCAR Technical Note NCAR/TN-398+STR, National Center for Atmospheric Research, Boulder, CO (1995)
- (7) Byun, D. and Ching, J., “Science algorithms of the EPA Models-3 Community Multiscale Air Quality (CMAQ) modeling system”, EPA/600/R-99/030, US Environmental Protection Agency, Office of Research and Development, Washington DC (1999)
- (8) Grell, G.A., Kuo, Y-H., Pasch, R., “Prognostic evaluation of assumptions used by cumulus parameterizations”, Mon Wea Rev, 121 (1993), pp. 764-787
- (9) Dudhia, J., “Numerical study of convection observed during the winter monsoon experiment using a mesoscale two-dimensional model”, J Atmos Sci, 46 (1989), pp. 3077-3107
- (10) Hong, S-Y. and Pan, H-L., “Nonlocal boundary layer vertical diffusion in a medium-range forecast model”, Mon Wea Rev, 124, (1996), pp. 2322-2339
- (11) Dudhia, J., “A multi-layer soil temperature model for MM5. Preprints”, The Sixth PSU/NCAR Mesoscale Model Users' Workshop, 22-24 July 1996, Boulder, Colorado, 49-50
- (12) Carter, W.P.L., “Documentation of the SAPRC-99 chemical mechanism for VOC reactivity assessment”, Final Report to California Air Resources Board Contract No. 92-329, and (in part) 95-308 (2000)
- (13) Kannari, A., Tonooka, Y., Baba, T., Murano, K., “Development of multiple-species 1 km × 1 km resolution hourly basis emissions inventory for Japan”, Atmos Environ, 41(16) (2007), pp. 3428-3439
- (14) Zhang, Q., Streets, D.G., Carmichael, G.R., He, K., Huo, H., Kannari, A., Klimont, Z., Park, I., Reddy, S., Fu, J.S., Chen, D., Duan, L., Lei, Y., Wang, L., Yao, Z., “Asian emissions in 2006 for the NASA INTEX-B mission”, Atmos Chem Phys Discuss, 9 (1) (2009), pp. 4081-4139
- (15) BP, Statistical Review of World Energy 2009. <http://www.bp.com/productlanding.do?categoryId=6929&contentId=7044622>
- (16) Ohara, T., Akimoto, H., Kurokawa, J., Horii, N., Yamaji, K., Yan, X., Hayasaka, T., “An Asian emission inventory of anthropogenic emission sources for the period 1980-2020”. Atmos Chem Phys, 7 (16) (2007), 4419-4444
- (17) Streets, D.G., Bond, T.C., Carmichael, G.R., Fernandes, S.D., Fu, Q., He, D., Klimont, Z., Nelson, S.M., Tsai, N.Y., Wang, M.Q., Woo, J.-H., Yarber, K.F., “An inventory of gaseous and primary aerosol emissions in Asia in the year 2000”, J Geophys Res, 108 (D21) (2003), pp. GTE 30-1-GTE 30-23
- (18) 地球環境研究センター, 東アジア大気汚染物質排出量グリッドデータベース, http://www.cger.nies.go.jp/cger-j/db/enterprise/eagrid/eagrid_index_j.html
- (19) Streets, D.G., Yarber, K.F., Woo, J.-H., Carmichael, G.R., “Biomass burning in Asia: Annual and seasonal estimates and atmospheric emissions”. Glob Biogeochem Cyc 17 (4) (2003), pp. 10/1-10/20
- (20) M.I.C. – Modeling, Inventory, and Constraint on anthropogenic emissions http://mic.greenresource.cn/arctas_premission (last updated in Jun. 2008)
- (21) Emery, C., Tai, E., Yarwood, G., “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 (2001)

- (22) Willmott, C.J., "On the validation of models", *Phys Geograph*, 2 (1981), pp. 184-194
- (23) Zawar-Reza, P., Kingham, S., Pearce, J., "Evaluation of a year-long dispersion modelling of PM10 using the mesoscale model TAPM for Christchurch, New Zealand", *Sci Total Environ*, 349 (2005), pp. 249-259
- (24) Park, O.H. and Seok, M.G., "Selection of an appropriate model to predict plume dispersion in coastal areas", *Atmos Environ*, 41 (2007), pp. 6095-6101
- (25) Lee, S.-H., Kim, Y.-K., Kim, H.-S., Lee, H.-W., "Influence of dense surface meteorological data assimilation on the prediction accuracy of ozone pollution in the southeastern coastal area of the Korean Peninsula", *Atmos Environ*, 41 (21) (2007), pp. 4451-4465
- (26) Wu, S.-Y., Krishnan, S., Zhang, Y., Aneja, V., "Modeling atmospheric transport and fate of ammonia in North Carolina-Part I: Evaluation of meteorological and chemical predictions", *Atmos Environ*, 42 (14) (2008), pp. 3419-3436
- (27) Sokhi, R.S., San José, R., Kitwiroon, N., Fragkou, E., Pérez, J.L., Middleton, D.R., "Prediction of ozone levels in London using the MM5-CMAQ modelling system", *Environ Model Soft* 21 (4) (2006), pp. 566-576
- (28) Kukkonen, J., Partanen, L., Karppinen, A., Walden, J., Kartastenpää, R., Aarnio, P., Koskentalo, T., Berkowicz, R., "Evaluation of the OSPM model combined with an urban background model against the data measured in 1997 in Runeberg Street, Helsinki", *Atmos Environ*, 37 (8) (2003), pp. 1101-1112
- (29) Yu, Y., Sokhi, R.S., Kitwiroon, N., Middleton, D.R., Fisher, B., "Performance characteristics of MM5-SMOKE-CMAQ for a summer photochemical episode in southeast England, United Kingdom", *Atmos Environ*, 42 (20) (2008), pp. 4870-4883
- (30) Beckx, C., Int Panis, L., Van De Vel, K., Arentze, T., Lefebvre, W., Janssens, D., Wets, G., "The contribution of activity-based transport models to air quality modelling: A validation of the ALBATROSS-AURORA model chain", *Sci Total Environ*, 407 (12) (2009), pp. 3814-3822
- (31) Draxler, R.R. and Hess, G.D., "Description of the Hysplit_4 modeling system", NOAA Technical Memorandum ERL ARL-224 (1997)