

— ノート —

関西地域における元素状炭素粒子の排出量推計と大気濃度分布推定

山本浩平, 桑名 潤, 水澤裕太, 東野 達

Estimation of Elemental Carbon Emission and Spatial Distribution of Atmospheric Concentration in Kansai Area

Kouhei Yamamoto, Jun Kuwana, Yuta Mizusawa, and Susumu Tohno

Graduate School of Energy Science, Kyoto University

Gokanoshō, Uji, Kyoto 611-0011, Japan

In this study emission amount of elemental carbon (EC) was estimated for the assessment of human health impacts in Kansai area. The emission inventory consists of two parts, one is emission from mobile sources and the other is stationary sources. Mobile sources were divided in that from roads, which is included not only trunk roads but branchy roads, and that from ships. Emission from stationary sources was reconstructed from the national emission database of soot and dusts. This emission inventory was developed mainly by the statistics in 2000. In Kansai area including 6 prefectures (Shiga, Kyoto, Osaka, Hyogo, Nara, and Wakayama), annual amount of EC emission was estimated at 6.62×10^3 (t). According to the analysis of source contribution, emission intensity in holidays is higher than that in weekdays. And it was also shown that the emission from roads is occupied 92 % in total EC emission, especially trucks are the major source of EC emission.

Moreover, with this inventory, some transport simulations in Kansai area by MM5 and CMAQ models were also conducted episodically in four seasons. Meteorological fields by MM5 had good performance in the comparisons with observed data. In summer simulation by CMAQ, comparably good agreement was shown in the comparison with time-averaged observed data, however, some underestimated points were found. In other seasons calculated values showed underestimated in the comparison with observed values, because air mass was mainly coming from main land of China and Korean peninsula. Therefore, future formation of modeling system, such in the determination of domains and the height of stationary sources, should be refined and other compounds would be included to be a integrated tool for the assessment of human health impacts.

Keywords : Elemental Carbon (EC), Emission inventory, MM5, CMAQ, Kansai area

1. はじめに

日本の粒子状物質 (PM) 汚染は近年改善されてきているが、モータリゼーションが進んだ都市域を中心に局所的、時間的に高濃度の汚染が未だに存在している。最近の浮遊粒子状物質 (SPM) についての環境基準達成率を比べて見ても、自動車排ガス測定局 (自排局) における達成率が一般局に比べ小さくなっている¹⁾。

PM は環境に対して様々な影響を及ぼすが、都市大気汚染問題として見た場合、特にそこに居住する住民に対する健康影響が問題視されている。近年重要視されているディーゼル車からの排出粒子や二次的に生成された粒子はいわゆる微小粒子と呼ばれる直径 $2 \mu\text{m}$ 以下の割合が大きく、この微小粒子は肺の深部まで侵入し沈着する割合が大きく、発ガン性を有する有害成分も多く含まれている。米国を中心とした疫学研究の成果から、 $\text{PM}_{2.5}$ の環境濃度と呼吸器・循環器系疾患による死亡者には有意な相関があることが示され²⁾、米国では 1997 年 7 月に $\text{PM}_{2.5}$ の環境基準が定められた。一方、わが国では SPM の環境基準のみで $\text{PM}_{2.5}$ の環境基準は定まっていないのが現状である。今後さらなる健康被害の拡大を防ぐためには、 $\text{PM}_{2.5}$ についても環境基準を定め、早急に対策をとる必要があるが、そのためには $\text{PM}_{2.5}$ による汚染の実態、および $\text{PM}_{2.5}$ の健康への影響を評価しておくことが重要となる。

ディーゼル車から排出される微小粒子は DEP (Diesel Exhaust

Particles) と呼ばれ、DEP は不完全燃焼の結果としての元素状炭素 (Elemental Carbon ; EC) 成分が核をなして、その表面に有機炭素成分である多環芳香族や硫酸塩を吸着している物質であり、これが呼吸器官に沈着することで、肺ガンや喘息といった健康影響を及ぼすことが問題視されている。また DEP は比較的 low 濃度でも、喘息やアレルギー性鼻炎などの疾患を悪化させる作用を持つともいわれており²⁾、DEP 濃度と健康影響の関連性を評価することは大きな意味を持つことになる。

健康影響の評価のためには、まず対象物質の環境濃度が暴露される人々の空間分布に対応した分解能で得られることが重要である。日本においては $\text{PM}_{2.5}$ 濃度の常時観測地点は少なく、またそれらも現在環境基準が設定されている SPM の測定点であるために、排出インベントリと大気輸送モデルを用いて空間分布を推定する必要がある。DEP のように多様な化学成分で構成される物質は、複雑なプロセスで生成、移動、消滅するため環境中の挙動の理解が困難²⁾である。また、従来は DEP の表面に吸着している有機炭素成分 (ベンゾ (a) ピレン) などの発ガン性物質の影響が懸念されていたが、現在はむしろ核となっている EC の方が発ガンに強く影響を与えているという報告もある³⁾。そこで著者らは、大気中での反応を無視できる不活性な EC を対象として、大気輸送モデルを用いて空間分布を求めることから健康影響の評価へ結びつけていくというアプローチをとることを考えた。

このような背景をふまえて本研究では、PM の健康影響評価の

ための基礎データを構築することを目的として、都市大気中 PM 中で多くの割合を占めると考えられる EC に着目し、その排出量推計と大気輸送モデルを用いた濃度分布推定を地域基準メッシュ (3 次メッシュ) の高い空間解像度の元で行った。元素状炭素の排出源としては、先述のディーゼル車を中心とする自動車 (沿道) からの排出に加え、船舶からの排出、および燃焼施設 (固定発生源) からの排出量についても推計を行い、沿道からの排出量については、主要幹線道路に加え細街路からの排出を考慮した。なお、ディーゼル車から排出される元素状の炭素粒子は黒色をしていることから黒色炭素 (Black Carbon ; BC) と呼ばれることも多いが、本報では EC という用語で統一することにする。

2. EC の排出量推計

2.1 自動車からの排出量推計

自動車からの EC 排出量は、平成 11 年度道路交通センサス⁴⁾の交通量および平成 12 年度自動車輸送統計⁵⁾を基に算出した。本推計では、道路交通センサスに記載されている道路を幹線道路、それ以外の道路を細街路とした。幹線道路については平日休日それぞれについて昼夜間別の 12 時間値として算出されるため、それらを合計して年間値を推計した。なお昼間は 7 時から 19 時、夜間は 19 時から翌朝 7 時までを表す。細街路については、自動車輸送統計より年間走行量を求め、これを 365 で割ることにより 1 日あたりの走行量、EC 排出量を求めた。以下に詳細を述べる。

2.1.1 幹線道路における排出量推計

幹線道路からの排出量は Fig. 1 に示したような方法で推計した。

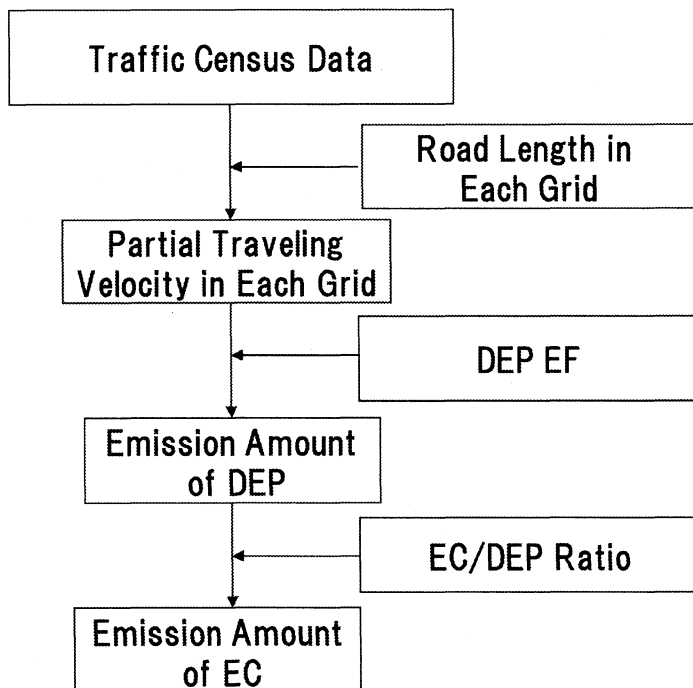


Fig.1 Flow chart of emission estimate from trunk roads

まず平成 11 年度道路交通センサスの平日および休日の昼夜別交通量表から車種別に交通量、区間距離、旅行速度などの値を抽出した。次に、これらの値を国立環境研究所から提供を受けた 3 次メッシュにおける路線別区間長のデータを利用して各メッシュに配分することで、路線別のメッシュ交通量を求めた。この区間長および交通量に、環境省報告書から得た旅行速度別 DEP 排出係数⁶⁾を乗じて、DEP 排出量を算出した。さらに、各メッシュに含まれる全路線の寄与を足しあわせ、メッシュ別、車種別の DEP 排出量として整理した。ここで、DEP の排出係数は Table 1 に示す 4 車種別のパラメータと式(1)の排出係数算出式から算出した。

$$EF_{DEP} = a/v + b + cv + dv^2 \quad (1)$$

EF_{DEP} : DEP emission factor (g/km)

a, b, c, d : parameters v : traveling velocity (km/h)

Table 1 Parameters in estimate of emission factor of DEP⁶⁾

	Car	Bus	Small Truck	Truck
a	0.0946487	4.5770280	0.1457660	3.9444123
b	0.0078530	0.5180324	0.0338241	0.3567991
c	-0.0000887	-0.0024794	-0.0003943	0.0001622
d	0.0000016	0.0000317	0.0000053	0.0000005

こうして得られたメッシュ別、車種別 DEP 排出量に (財) 石油産業活性化センター、Japan Clean Air Program(JCAP)の報告書⁷⁾に記載されているディーゼル車両の 10・15 モードにおける PM 成分分析結果から、大型車と小型車それぞれの DEP 中の EC 比率を算出し (Table 2)、これに乗じることによって EC の排出量をメッシュ別、車種別に算出した。これをすべての車種について足しあわせると、各メッシュにおける EC の 12 時間排出量が求められる。

Table 2 Ratio of EC in DEP

	Large Car	Small Car
	0.675	0.697

次にこの 12 時間排出量から年間排出量を求める方法について述べる。本推計では、松橋ら⁸⁾と同様に、1 年の休日が日曜・祝日のすべてと土曜日の半分を合わせたものと仮定してその平均値として年間 95 日、残りの 270 日を平日と設定し、それぞれの排出量を合計して年間排出量を求めた。その結果を Table 3 に示す。

Table 3 Annual EC emission from trunk road by car type (t)

		Car	Bus	Small Truck	Truck	Total
Weekday	Daytime	0.68	0.72	0.76	7.80	9.95
	Nighttime	0.26	0.16	0.16	3.73	4.31
	Sum	0.94	0.88	0.92	11.53	14.26
Holiday	Daytime	0.79	0.65	0.34	2.17	3.94
	Nighttime	0.27	0.16	0.10	1.59	2.12
	Sum	1.07	0.80	0.44	3.76	6.06
Annual		354	314	289	3470	4427

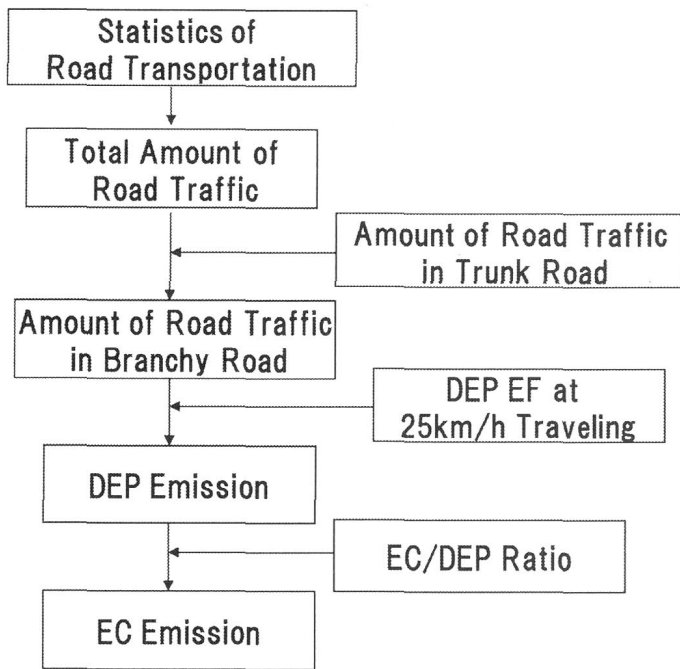


Fig. 2 Flow chart of emission estimate from branchy roads

2.1.2 細街路における排出量推計

細街路からの推計は、Fig. 2 に示す流れで行った。まず平成 12 年度自動車輸送統計の車種別の燃料使用量、燃費などの値から関西地域での年間全走行量を算出し、これから先の項で求めた幹線道路での走行量を引くことで、関西地域での細街路走行量を求めた。その後、細街路では旅行速度が不明であるため、既存研究⁹⁾を参考にし、細街路はすべての路線で平均の旅行速度が 25 km/h であるとして排出係数を与え、幹線道路と同様に EC 排出量を算出した。なお、細街路の旅行速度に関しては、±5 km/h の範囲で感度解析も行ったが、対象領域の総排出量として-5.0 ~7.6%の変化にとどまったため、排出係数に与える影響は小さいと判断した。なお細街路での走行量の時間帯ごとの割合は今回対象とした関西の幹線道路の平均値と等しいものと仮定し推計した。算出された細街路での排出量を Table 4 に示す。

Table 4 Annual emission from branchy road (t)

		Car	Bus	Small Truck	Truck	Total
Weekday	Daytime	0.29	0.21	0.56	2.54	3.60
	Nighttime	0.13	0.05	0.13	1.36	1.67
	Sum	0.42	0.26	0.68	3.90	5.27
Holiday	Daytime	0.35	0.19	0.25	0.73	1.52
	Nighttime	0.13	0.05	0.08	0.58	0.84
	Sum	0.48	0.24	0.33	1.31	2.36
Annual		160	93	216	1178	1646

細街路からの排出量は、関西地域全体での燃料消費量を基に推計を行ったため、走行量が地理的情報を全く持っていない。そこで本研究では、細街路における走行量は自動車を利用する人口に比例すると仮定し、走行量を平成 12 年度国勢調査¹⁰⁾から得た人口データによる重み付けで 3 次メッシュ上に按分した。一例として、平日昼間の推計結果を Fig. 3 に示す。

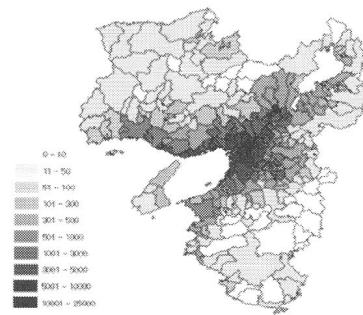


Fig. 3 Distribution of EC emission from branchy road (g/12h, weekday, daytime)

2.2 船舶からの排出量推計

船舶による排出量推計は、化学物質排出把握管理促進法における PRTR 制度の中で行われている船舶による排出量調査¹¹⁾の平成 13 年度報告書の中で算出されている全国港湾種別年間燃料使用量を基に推計を行った。これと平成 12 年度港湾統計¹²⁾のデータを用いて、全国港湾種別燃料消費量を求めたものを Table 5 に示す。

Table 5 Annual fuel consumption in each type of ports (t)

Port type		Fuel Consumption (t)
Specially-designated port	Domestic	502486
	Outward	276887
Designated port	Domestic	798261
	Outward	107747
Local port	Domestic	617788
	Outward	3911
Total		2307080

次に船舶の燃料使用量は港湾種別船舶入港トン数に比例するとして、平成 12 年度港湾統計の、全国と関西地域における入港トン数の比 (Table 6) から関西地域での燃料使用量を算出した。

船に用いられる燃料は重油の中でも、発熱量が高い C 重油が一般的である。独立行政法人石油天然ガス・金属鉱物資源機構 (JOGMEC) によると、重油の単位発熱量は 10000-11000 (kcal/kg)¹³⁾であるため、本研究では C 重油の単位発熱量を 11000 (kcal/kg) と設定した。これから船舶輸送に関する全発熱量を算出し、これに単位発熱量あたりの EC 排出係数 2.28×10^{-5} (t/MJ)¹⁴⁾ を乗じることで関西地域での EC 排出量を推計した。計算結果を Table 7 に示す。

2.3 固定発生源からの排出量推計

固定発生源からの排出量は大気汚染物質排出量総合調査 (MAP 調査)¹⁵⁾のばいじん排出量の値を基に推計しているため、最終的な EC 排出量は年間値として推計した。

Table 6 Annual amount of arrival at the port in Kansai from other ports in Japan (10^6 t)¹²⁾

	Japan	Kansai	Ratio
Specially-designated port	1860	494	0.27
Designated port	1441	41	0.03
Local port	733	110	0.15

Table 7 Annual EC emission from ships (t)

Type of ports		Energy consumed in Kansai (t)	EC emission(t)
Specially-designated port	Domestic	133511	140
	Outward	73569	77
Designated port	Domestic	22918	24
	Outward	3093	3
Local port	Domestic	92695	97
	Outward	587	1
Total		326372	343

著者らは平成 11 年度 MAP 調査の使用許可を得て、調査結果からばいじん排出量、施設別使用燃料種、3 次メッシュコードを抽出した。このばいじん排出量と、Bond et al.¹⁶⁾による EC 排出係数算定パラメータを整理することにより得られた、使用燃料種別の PM 中微小 EC 粒子存在割合 (F_{EC}) を乗じることにより、固定発生源からの EC 排出量を推計した。燃料消費部門ごとの F_{EC} の値を Table 8 に示す。

Table 8 を元にして、固定発生源からの燃料種別 EC 排出量を整理したものを Table 9 に示す。Table 9 では各燃料種と、本推計で用いた Bond et al.¹⁶⁾ の PM に関する排出係数 (EF_{PM}) および燃焼技術 (technology) を併せて示している。これより全燃料種の合計では年間 203 (t) の排出量と推計された。都市ガス、コークス炉ガスなどの気体燃料は、単位燃料消費量当たりの EC 排出量は小さなものであるが、燃料消費量が多いために固定発生源全体の 25% 程度を占めるという結果になった。

GIS を用いて固定発生源からの排出分布を作成したものが Fig. 4 である。後に詳細に分析するが、固定発生源からの EC 排出量は自動車からの排出量に対して 3% である。しかしメッシュ別に見ると固定発生源からの排出量が大きな割合を占めているメッシュもあり、一部の地域では影響が非常に大きい。

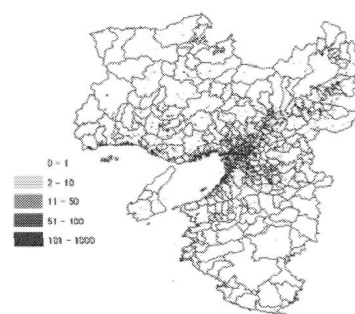


Fig. 4 Distribution of EC emission from stationary sources (g/y)

Table 8 Fraction of EC in the total particulate matter¹⁶⁾

Fuel Type	Technology	F_{EC}
Biofuel	stoler	0.043
Biofuel	traditional	0.085
Briqurttes	stoler	0.0025
Brown Coal	cyclone	0.00102
Brown Coal	pulverized	0.00054
Brown Coal	stoler	0.0055
Hard coal	cyclone	0.0009
Hard coal	pulverized	0.00054
Hard coal	stoler	0.066
Hard coal	traditional brick kiln	0.45
Coking coal	coke oven	0.168
Coking coal	coke oven(uncaptured)	0.24
Coke	blast furnace	0.0784
Heavy fuel oil	all	0.036
middle dist. Oil	industry/power	0.054
middle dist. Oil	generator	0.5676
Middle/light dist	external combustion	0.261
kerosene	residential	0.13
LPG	residential	0.13
Natural gas	all	0.06
Solid waste	all	0.0035
Solid waste	open burning	0.185

Table 9 Annual EC emission by the types of fuels (kg)

Fuel Type	Technology	EF_{PM} (g/kg)	Emission	Ratio
A-fuel oil	all	1.1	28878.2	0.14
B-fuel oil	all	1.1	276.6	0.00
C-fuel oil	all	1.1	34496.3	0.17
Gas Oil	external combustion	0.25	3185.0	0.02
Kerosene	residential	0.9	20678.8	0.10
Other liquid fuel	all	1.1	8060.1	0.04
Coal	cyclone	1.3	449.3	0.00
Coke	coke oven	5.8	34543.5	0.17
Wood	stoler	2.2	3355.1	0.02
Other solid fuel	cyclone	1.3	169.1	0.00
City gas	all	0.002	20865.3	0.10
Coke gas	all	0.002	24805.3	0.12
Furnace slag	all	0.002	6778.8	0.03
LNG	all	0.002	2040.1	0.01
LPG	all	0.002	4177.0	0.02
Converter gas	all	0.002	5396.0	0.03
Waste	all	12.6	4647.6	0.02
Total			202802.0	1.00

2.4 EC 排出構造分析

2.4.1 既存研究との排出量の比較

本研究で対象とした、各発生源からの排出量及び排出寄与率は Table 10 の通りであり、関西 2 府 4 県における EC 粒子の年間排出量は 6.62×10^3 (t) となった。その中でも、幹線道路および細街路からの排出を合わせた自動車からの排出量が全体の 92% を占める結果になった。Table 10 には兼保ら¹⁷⁾による関東地域を対象に行われた既存研究と比較した結果(Former Study)も挙げているが、関西地域では細街路の割合がやや高く、固定発生源の割合が小さいという結果になった。全体的には各発生源の寄与について同程度の割合を示しており、本研究における推計手法は妥当ではないかと考えている。

関西地域で EC の排出量を推計したものとしては、濱¹⁸⁾による研究例がある。この研究では EC の発生源として自動車のみを考慮しており、排出量は 3.0×10^4 kg/day であると報告されている。本推計では 1.8×10^4 kg/day であるため、推計結果の相違は小さくないが、濱による排出量推計の領域が本研究の領域より 2 割程度大きいことや、この報告において、この推計値を用いてシミュレーションを行い求めた関西における空間分布が、やや過大評価であると考察していることを考慮すると、本推計が過小評価とは判断することは難しい。

一方、東アジア排出インベントリ(EAGrid2000-Japan)¹⁹⁾では、日本においてもメッシュ別 $PM_{2.5}$ 排出量が算出されているが、本研究で対象としたメッシュにおける EAGrid2000-Japan の自動車起源 $PM_{2.5}$ 排出量の推計値は 9065 t/y であった。自動車から排出される PM はほぼ $PM_{2.5}$ であると考えられることができるが、自動車起源の $PM_{2.5}$ の中に含まれる EC の割合は、Table 2 に示したとおり約 70% であるので、これを EAGrid2000-Japan の推計結果に乗じると約 6300 t/y となる。この推算より、本研究の自動車からの EC 排出量の推計結果である 6073 t/y は妥当な推計値であると考えている。

Table 10 Annual EC emission by the source types (t)

	This study		Former study ¹⁷⁾	
	Annual Emission	Ratio	Annual Emission	Ratio
Trunk Road	4427	0.67	14773	0.68
Branchy Road	1646	0.25	4236	0.20
Ship	343	0.05	673	0.03
Stationary	203	0.03	1781	0.08
Aircraft	-	-	282	0.01
Total	6619	1.00	21725	1.00

2.4.2 沿道起源 EC 排出量の構造分析

2.4.1 で述べたように EC 排出量の 92% は沿道から排出である。そこで沿道からの排出について詳細に検討する。

Table 3 の幹線道路のみの推計結果からは、平日と休日の日数比を考慮すると、排出強度(単位時間あたりの EC 排出量)は平日より休日の方が大きいことが分かる。車種別にみても、普通

貨物車(Truck)以外の車種では同様の傾向を示している。普通貨物車については、昼間に関して逆の傾向を示しているが、夜間では休日の方が大きな排出強度を示している。また Table 4 の細街路の推計結果についても同じ傾向を示している。これは当該時間帯における交通量の差によるためと思われるが、交通センサス中の交通量データとの比較による詳細な検討は、今後行いたいと考えている。

次に Table 3 と Table 4 を整理し、車種別寄与率を求めた結果を Table 11 に示す。全体の 77% を普通貨物車(Truck)からの排出が占めるという結果になり、EC 濃度の低減を図るには普通貨物車に対して何らかの対策をとることが非常に重要であることが示された。また、府県別に EC 排出量を比較すると Table 12 のようになった。地域内に大都市を有し物流量の多い大阪府や兵庫県からの排出量が全体の 63% と大きな割合を占めていることが分かる。

Table 11 Contribution of each type of cars

Bus (Trunk)	Small Truck (Trunk)	Truck (Trunk)	Car (Branchy)	Bus (Branchy)	Small Truck (Branchy)	Truck (Branchy)
5.2	4.8	57.1	2.6	1.5	3.6	19.4

Table 12 Annual EC emission by prefectures (t)

	Trunk Road	Branchy Road	Stationary	Total
Shiga	693	106	22	821
Kyoto	527	209	10	745
Osaka	1377	695	54	2126
Hyogo	1312	438	68	1819
Nara	311	114	2	428
Wakayama	206	84	46	337
Total	4427	1646	203	6276

3. 関西地域における EC 大気濃度分布

3.1 シミュレーション概要

本研究では、前項で述べた排出インベントリを用いた大気輸送計算を行い、関西地域における EC 粒子の空間分布の推定を行った。ただし船舶からの排出に関しては海上での航路の推定が困難であったため分布は得られておらず、また排出量は Table 10 のとおり総 EC の 5% と少ないため、大気輸送計算の入力データにも加えていないが、空間分布の定量的評価に大きな影響を与えないと考えている。

本研究で採用した大気化学輸送計算モデルは、気象モデル MM5ver. 3²⁰⁾(以後 MM5 と記述)および大気化学輸送モデル CMAQ4. 5. 1²¹⁾(以後 CMAQ と記述)である。特に CMAQ については、気象モデル RAMS と連携させたシミュレーションが、その対象領域をアジアスケールとしたものを中心として行われていること^{22, 23)}、また CMAQ モデルの概要についても既報²⁴⁾に詳しいことを考慮し、本稿ではモデルシステムの詳細については省略する。

3.2 計算手法・条件

本研究では、春期、夏期、秋期、冬期から各期 76 時間、2005

年4月4日17:00~7日21:00, 8月1日17:00~4日21:00, 11月7日17:00~10日21:00, および2006年1月8日17:00~11日21:00の3日間, 降雨の観測されなかった期間を選択してシミュレーションを行った。これは, 大気輸送解析を単純化することで推計排出量の定量的評価を単純にしようと考えたためである。

解析の対象領域としては, 前項の排出インベントリで考慮した近畿2府4県を包括する領域をとりあげ, 東経135.37°, 北緯33.61°を中心とした, ランベルト正角座標系による投影面による解析を行い, 水平方向には投影面における3次メッシュ格子の東西方向距離である1.19km四方の正方格子系を設定し, 東西に178, 南北に219の格子を設定する, 空間解像度の高いシミュレーションを行った。鉛直方向の層分割は上空10000mまでを, MM5では最下層厚さ100m, 最大層厚さ500mの23層, CMAQにおいては最下層厚さ100m, 最大層厚さ2000mの14層に区分した。

ECの排出源は, この領域外にも存在し, これを考慮するためにはJCAP II²³⁾で行われているようにネスティングを行うことが必要であると思われるが, 計算機のリソースの制約があり, 本解析では行なわなかった。

MM5による気象場の再現においては, NCEPのGRIBデータFinal Analysis(ds083.2)と観測データSurface and Ship data(ds464.0)およびUpper Air data(ds353.4)を入力として計算を行なった。気象庁の観測値等のデータ同化は行っていない。上記の格子系における風速や気温分布を1時間値として求めたものを保存しておき, CMAQの入力ファイルとした。

本研究で構築した3次メッシュ別のEC排出量は, 1時間値に換算後CMAQの計算の格子系に合うように面積按分し, さらに沿道からのEC排出が支配的であることからすべて最下層から排出され则认为, CMAQのデータフォーマットであるnetCDF形式に変換した。本研究では, 前節で推計されたインベントリは, 平日, 休日別, また昼夜別に整理されて大気輸送計算の入力データとなる。これらの一例についてGISで可視化した結果をFig. 5~8に示す。

CMAQのオプションとしては, 移流・拡散についてはディフォルト値を基本として, PinG(Plume in Grid)やガス・エアロゾルの化学反応, 雲内プロセスを外して計算を行った。なお本研究では, 各計算期間とも領域全体で濃度を0として計算を開始し, 24時間の予備計算の後, 計算値を結果として取り出した。

3.3 気象モデルMM5の再現性

CMAQによる計算を行う前に, 入力データとして必要な気象データをMM5により計算し, 計算値と観測値を比較することでMM5のモデルパフォーマンスの検証を行った。観測値は, 京都府宇治市にある京都大学宇治キャンパス屋上(地上18m)にて観測している気象観測データのうち, 当該期間の気温風速および気温のデータを抽出したものをを用いた。比較結果をFig. 9およびFig. 10に示すが, 気温については, ほぼ観測値と合致しており, また風速についてはピーク出現時刻のズレや過大評価となつて

いる時刻もあるが, 概ね良好な結果と考えられる。

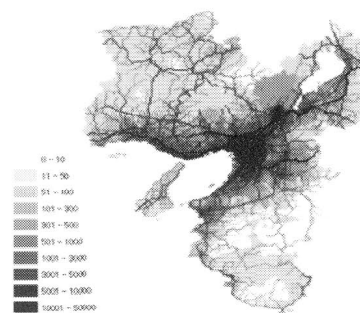


Fig.5 Distribution of total EC emission in Kansai area(g/12h, weekday, daytime)

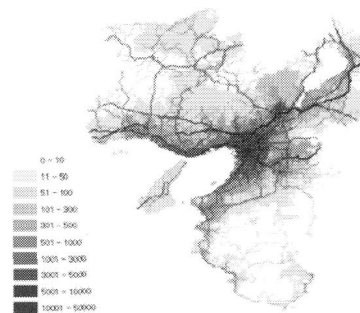


Fig.6 Distribution of total EC emission in Kansai area(g/12h, weekday, nighttime)

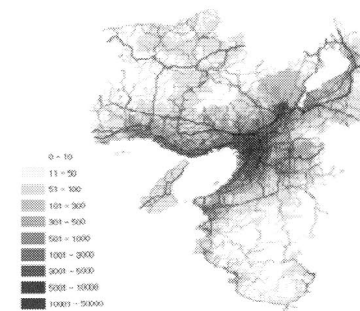


Fig.7 Distribution of total EC emission in Kansai area (g/12h, holiday, daytime)

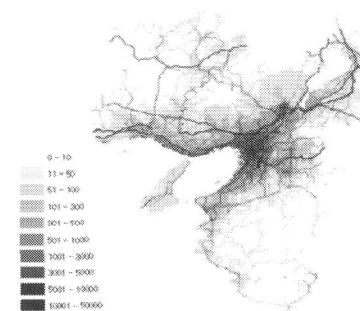
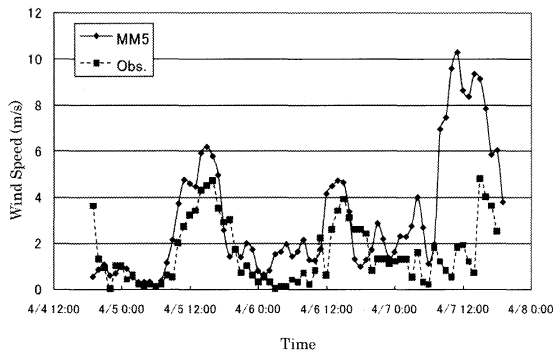
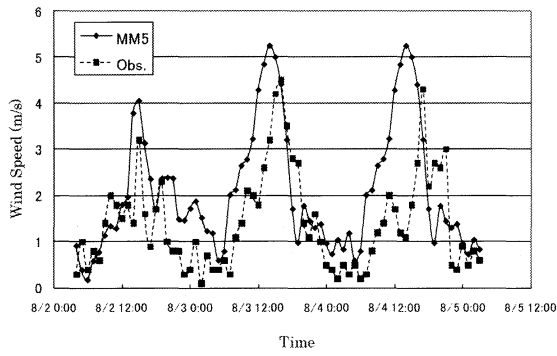


Fig.8 Distribution of total EC emission in Kansai area (g/12h, holiday, nighttime)

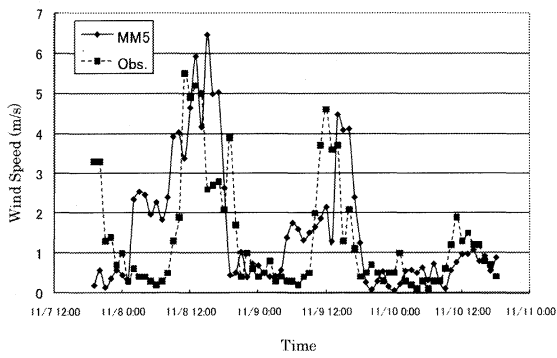
(a) Apr. 4~7



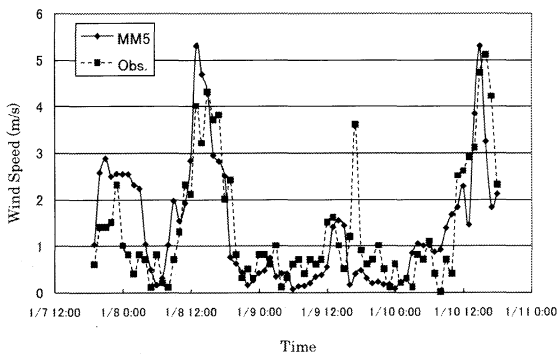
(b) Aug. 2~5



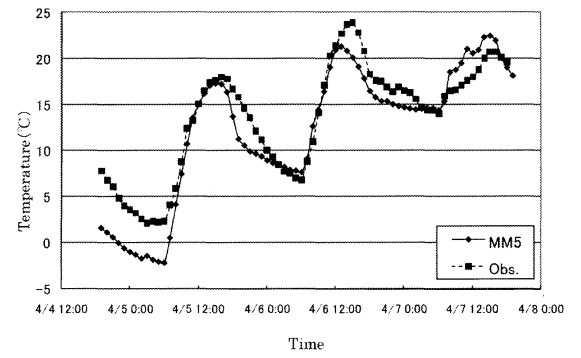
(c) Nov. 7~10



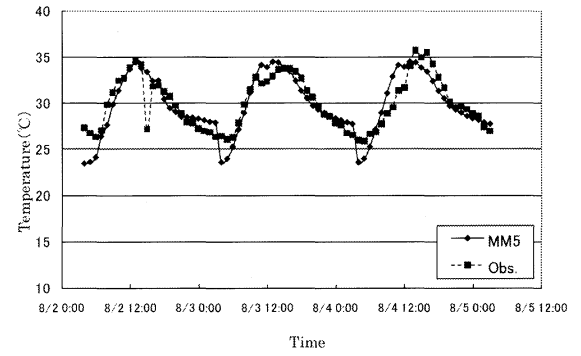
(d) Jan. 7~10



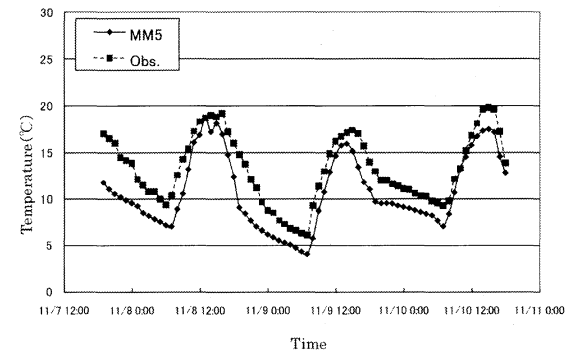
(a) Apr. 4~7



(b) Aug. 2~5



(c) Nov. 7~10



(d) Jan. 7~10

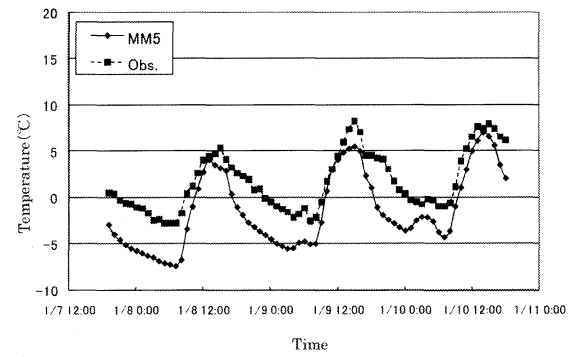


Fig.9 Comparison of wind speeds between calculated values by MM5 and observed in Uji

Fig.10 Comparison of temperature between calculated values by MM5 and observed in Uji

3.4 CMAQ による計算結果および観測 EC 濃度との比較

次に今回推計した EC 排出インベントリを用いて, MM5 および CMAQ により 3.2 で述べた 4 期間において関西地域における大気輸送計算を行った. 計算期間の一例として, 8 月の計算期間における 1 時間値を平均したものを Fig. 11 に示した. 名神高速道路や国道 1 号を中心とする主要道路近傍で高濃度となっており, これは, 排出量分布と同じ傾向を示している.

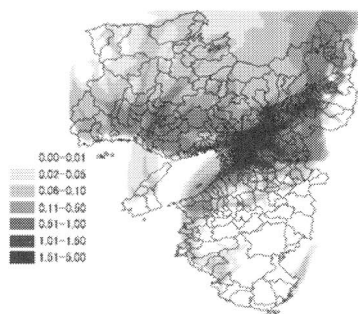


Fig.11 Averaged concentration of EC in August ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)

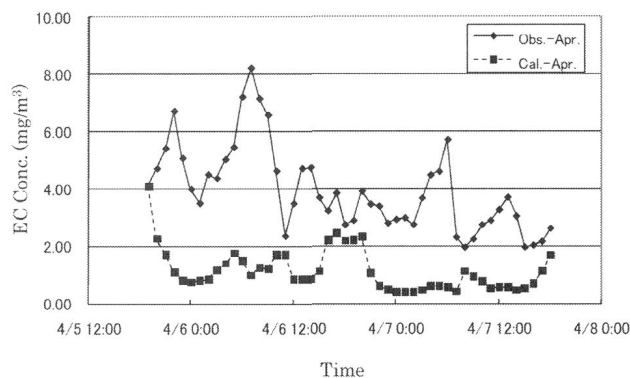
次に, シミュレーションの定量的評価のために, 実観測データと計算値の比較を行った. 京都大学宇治キャンパス 5 階(地上 15m)に設置されている, 日本サーモエレクトロニクス社製ブラックカーボンモニター Model 5012 においては, サイクロンによる分級で $2.5\mu\text{m}$ 以下の EC 粒子濃度が 1 時間値として継続的に測定されている. 本研究では, このデータを計算値との比較に使用した.

モデルによる地上(最下層)における EC 濃度の計算結果を宇治市における観測値と比較した結果を, Fig. 12 に示す. 4 月, 11 月, および 1 月のはかなりの過小評価となっている. 一方 8 月については若干過小評価とはいえ, 計算期間平均値としてはまずまずの値といえるが, 時間変動に関しては追従できない点も存在している. 以下この原因について考察を行った.

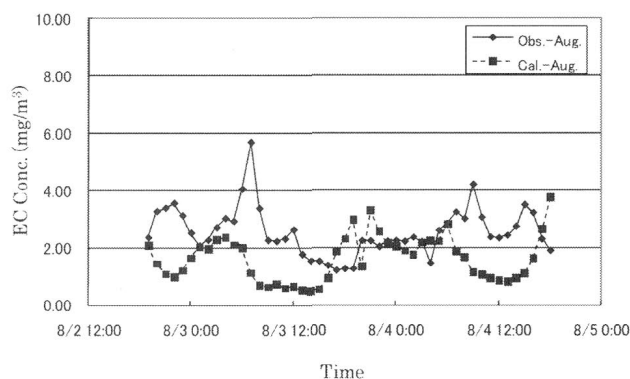
a) 解析領域外の影響

本研究では, 推計を行った関西 2 府 4 県からのみ EC の排出があるとし, 領域端での境界条件について, 領域外からの流入分を考慮に入れていない. そのため, 後方解析線を解析することで領域外からの寄与について検討した. Fig. 13 に, アメリカ海洋大気庁 (NOAA) の HYSPLIT²⁵⁾ による宇治市の地上 500m, 1000m, 2000m を出発点とし, 各期間計算開始直後の 2005 年 4 月 6 日 00:00JST, 8 月 3 日 00:00JST, 11 月 9 日 00:00JST, および 2006 年 1 月 9 日 00:00JST のそれぞれから 72 時間前までの気塊の軌跡を示す. 8 月 3 日以外では汚染気塊が中国北部から東シナ海, もしくは朝鮮半島を経由し関西に至る経路を輸送されてきている. 中国における EC 排出量は, D. G. Streets et al.²⁶⁾ では 1995 年において $1.34 \times 10^6 \text{ t/y}$ と推計されており, 気塊の輸送経路を考慮すると, 中国大陆で排出された EC の関西地域への寄与は無視できないものと予想される. 従って 8 月期以外のシミュレーション, 特に 4 月期および 1 月期の計算結果がかなりの過小評価となっているのは, 今回の解析領域外の寄与を考慮に入れて

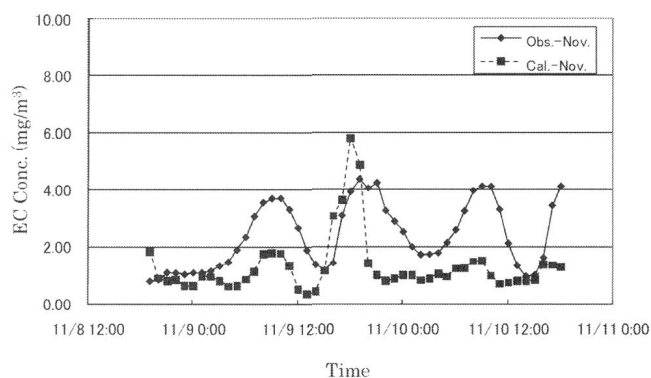
(a) Apr. 5~7



(b) Aug. 2~4



(c) Nov. 8~10



(d) Jan. 8~10

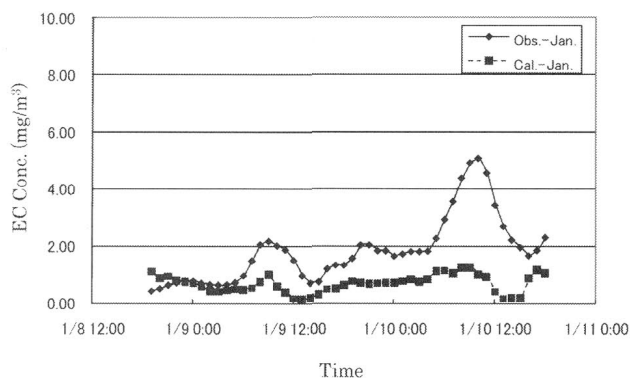
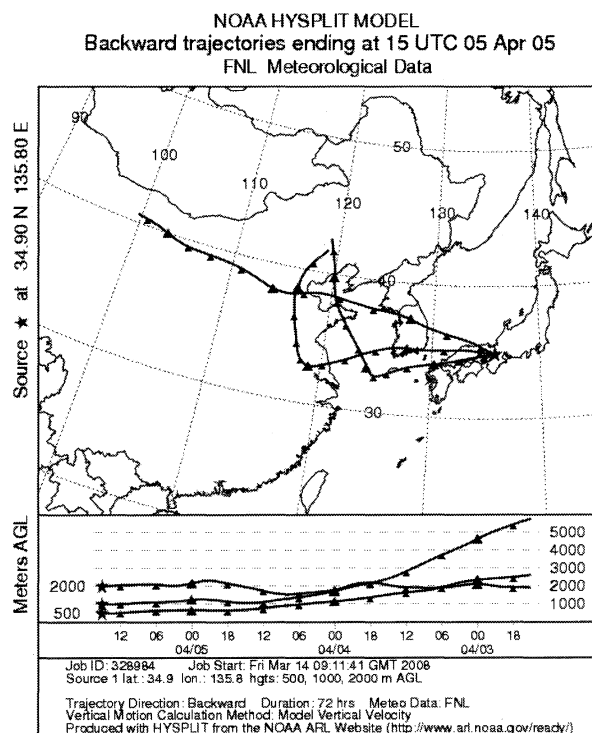
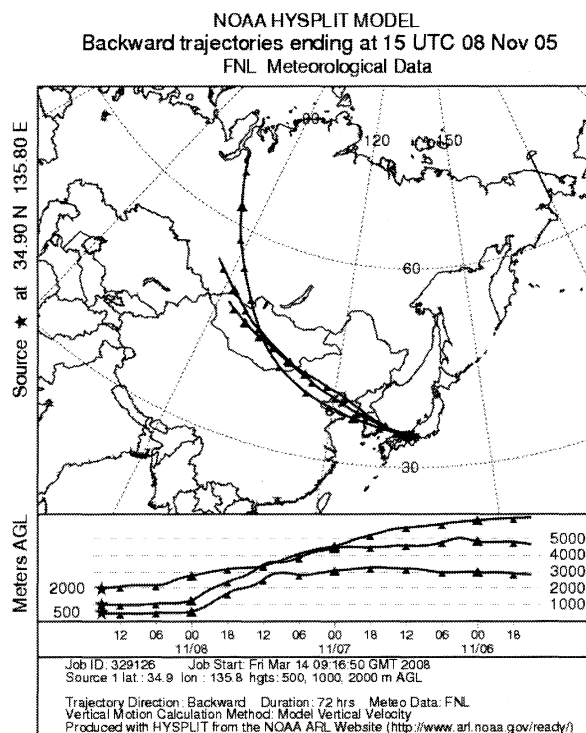


Fig.12 Comparison of EC concentrations between calculated values by CMAQ and observed in Uji

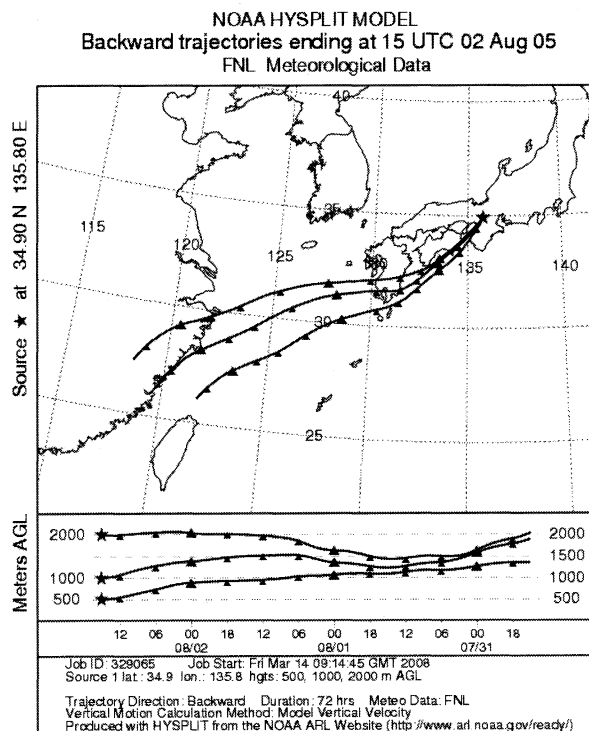
(a)



(c)



(b)



(d)

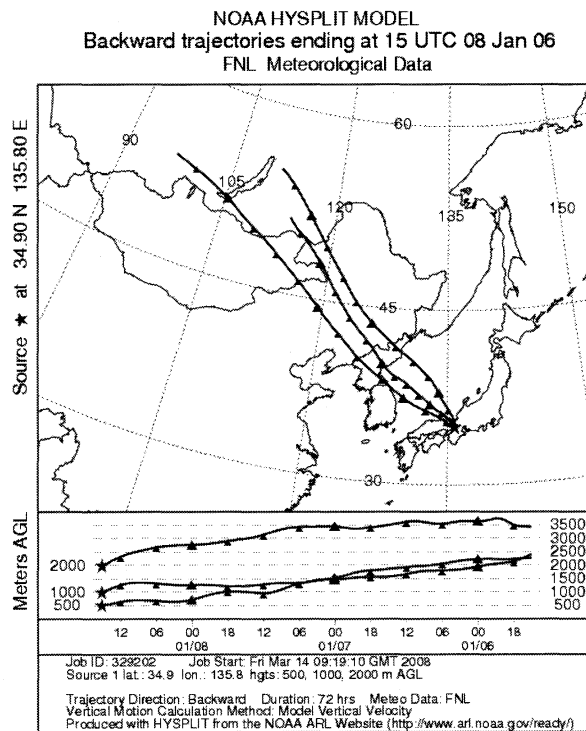


Fig. 13 Representative back trajectories on

(a): Apr. 6, 2005, 00:00JST, (b): Aug. 3, 2005, 00:00JST,

(c): Nov. 9, 2005, 00:00JST, (d): Jan. 9, 2006, 00:00JST

いないことが主要な原因と考えられ、今後中国大陆を含む東アジアにおける排出量推計と大気輸送解析を合わせて行うことが必要であると考えられる。

b) 風速場の推定誤差

3.3 で検証したように、MM5 による気象場推定はまずまずの結果と考えられるが、特に推定風速場については、変動パターンやピーク風速を再現できなかった時刻が存在した。本解析では、MM5 の入力データとして NCEP の客観解析データのみを使用しており、

観測データによるデータ同化は行っていない。本研究では、関西地域全体の推定風速場についての検証は行っていないが、特に排出量の多い都市域近郊や主要幹線道路沿道における風速場の推定が適当でなかったことが考えられる。今後多地点で気象要素のパフォーマンスチェックを行い、この点について検討したいと考えている。

c) 計算条件の設定

本解析では燃焼起源の固定発生源および沿道由来の移動発生源とも、最下層本研究での排出源をすべて最下層（地上0～100m）から排出すると考えて計算したが、そのためにCMAQで乾性沈着量が過剰に評価された可能性も考えられる。

今回、計算領域全体における乾性沈着速度およびフラックスの評価は行っていないが、今回使用した乾性沈着モジュールはCMAQの標準となっている2nd generation CMAQ aerosol deposition velocity routineであり、ECの92%が沿道起源であることを考慮すると、今回の排出源高度設定により乾性沈着量を過大評価し、大気中EC濃度を過小評価したとは考えにくい。ただし、排出量総量に占める割合が小さいとはいえ、燃焼施設からのECは最下層以外からも排出される。この排出源高度の設定方法について、今後検討を行う必要があると思われる。

また、本解析では鉛直方向の層分割について詳細な検討を行っていないが、最下層の層厚が100mと設定したため、ECの観測地点の濃度を評価できていない可能性も考えられる。これについても、特に下層の層厚設定について検討する必要がある。

d) 推計に使用したデータ

本研究においては、幹線道路からの排出量推計における基礎資料として、平成11年度版交通センサスを用いている。推計で使った統計が必ずしも最新でなかったこと、特にEC排出量に大きな影響を持つ幹線道路からの排出量および排出分布が変化したことの影響が考えられる。

最新の平成17年度版道路交通センサス²⁷⁾では、関西の交通状況の変化として、1)貨物車の減少、2)高速道路における平均交通量の減少、3)夜間交通量の減少、4)全道路平均での旅行速度が減少していること、5)細街路が含まれる人口密集地域における旅行速度は上昇していること、が挙げられている。今回、平成17年度版を用いた排出量推計と本推計との比較は行なっていないが、これについては今後交通量データを更新し、またTable 1の排出係数算出のパラメータを最新の知見に基づいて見直すことで、その排出総量および空間分布について比較・検討することが課題として残っている。

リスク評価のためには、濃度の詳細な時間変動情報が必ずしも必要であるとは限らないが、本シミュレーションのように大気環境情報としてのECやPM濃度の1時間値を求めようとすると、排出源情報についても対応した時間解像度のデータが必要になる。本推計では、使用した統計資料が交通センサスの12時間交通量や年間燃料消費量などを元に計算し、それを単純に1時間値に換

算することで排出量データを入力しており、排出量の時間変動について十分な議論ができなかった。これについても適当な代理指標を探索し、排出量の時間変動による影響を検討する必要がある。

4. まとめ

本研究では、平成11年度における関西地域における元素状炭素の排出量を推計し、またこの排出量を気象モデルMM5および大気化学輸送モデルCMAQからなるモデルシステムに入力することにより、EC濃度分布の推定を行った。またその結果と実測結果とを比較することにより、排出インベントリの精度の評価を試みた。

排出量推計においては、主要幹線道路に加え細街路からの排出および燃焼施設からの排出を考慮に入れ、さらに船舶からの排出量も推計した。その結果、関西2府4県におけるEC粒子の排出量は 6.62×10^3 (t)であった。排出強度は平日より休日の方が大きく、これは交通量の差によるものと考えられる。また、総EC排出量において、沿道起源の排出量が全体の約92%を占める結果となり、特に普通貨物車からの寄与が大きいことが明らかになった。

この構築されたインベントリと大気化学輸送モデルを用いたシミュレーションにおいては、ほぼ計算領域からの排出が支配的と考えられる夏期においては、定量的に若干の過小評価といえる程度の計算結果が得られた。ただし、詳細な時間変動については、高い時間・空間解像度の元でのシミュレーションであることもあり、追従できない点が存在した。一方、冬期や春期におけるシミュレーションでは計算値が過小評価となったが、これは大きな排出源である大陸からの寄与が大きいと考えられた。また、本推計では排出源高度の設定についてすべてが最下層からの排出と考えたが、燃焼施設の排出源高度について詳細な検討が必要である。

今後は、交通量データの更新を含めたインベントリの改良、ネスティングを含めた解析領域の拡張と、他の物質を含めた大気化学輸送解析を行い、日本の都市域における大気汚染物質の定量的寄与の解析を行う予定である。将来的には、このモデルシステムを発展させて、多種の化学物質を含んだ総括的なシミュレーションを行い、健康リスク評価のためのツールとして発展させていくことが望まれる。

謝辞

本研究の遂行にあたり、道路交通センサス収録道路の3次メッシュ上のメッシュカットデータの使用をご快諾頂いた、独立行政法人・国立環境研究所の松橋啓介、南齊規介の両氏に深く感謝いたします。

参考文献

- 1) <http://www.env.go.jp/air/osen/index.html>
- 2) 国立環境研究所：大気中微小粒子状物質・ディーゼル排気粒子に関する研究動向と今後の課題，国立環境研究所研究報告，第172号（2002）。
- 3) 岩井和郎：ディーゼル排気微粒子による人肺癌リスク試算＜予測＞，大気環境学会誌，**35**，229-241（2000）。
- 4) 国土交通省：平成11年度道路交通センサス（全国道路交通情勢調査）一般交通量調査（2000）。
- 5) <http://toukei.mlit.go.jp/jidousya/jidousya.html>
- 6) 環境省：平成16年度局地的な大気汚染の健康影響に関する調査研究報告書（2005）。
- 7) （財）石油産業活性化センター：ディーゼル車における既存車と既存燃料が排出ガスに与える影響の研究，JCAP技術報告書1-3-1（2000）。
- 8) 松橋啓介，田邊潔，森口祐一，小林伸治：自動車に起因する大気汚染物質排出量推計手法の開発（I），大気環境学会誌，**39**，280-293（2004）。
- 9) 数理計画：自動車排出ガス原単位及び総量算出検討調査，平成16年度環境省委託業務結果報告書（2005）。
- 10) 総務省統計局：平成12年度国勢調査（2002）
- 11) 経済産業省：化学物質排出把握管理促進法のPRTR制度における平成13年度届出外排出量の推計方法等に係る資料（2002）。
- 12) 国土交通省：平成12年度港湾統計年報（2001）。
- 13) JOGMEC（独立行政法人石油天然ガス・金属鉱物資源機構）：石油・天然ガス用語辞典（<http://oilresearch.jogmec.go.jp/glossary/index.html>）。
- 14) Cass, G. R., Boone, P. M., and Macias, E. S.: Emissions and air quality relationships for atmospheric carbon particles in Los Angeles, In: *Particulate Carbon - Atmospheric Life Cycle*, eds. G. T. Wolff and R. L. Klimisch, Plenum, New York, pp.207-240（1982）。
- 15) 環境省：平成11年度大気汚染物質排出量総合調査（MAP調査）（2000）。
- 16) T. C. Bond, D. G. Streets, K. F. Yarber, S. M. Nelson: A technology-based global inventory of black and organic carbon emissions from combustion, *J. Geophys. Res.*, **109**, D14203（2004）。
- 17) 兼保直樹，吉門洋，近藤裕昭，守屋岳，鈴木基雄，白川泰樹：組成別SPM濃度シミュレーション・モデルの開発と初冬季高濃度大気汚染への適用（I），大気環境学会誌，**37**，167-183（2002）。
- 18) 濱安武：近畿地域を対象とした浮遊粒子状物質（SPM）の3次元モデルによる濃度シミュレーション，大阪大学大学院工学研究科環境エネルギー工学専攻修士論文（2003）。
- 19) A. Kannari, Y. Tonooka, T. Baba, K. Murano: Development of multiple-species 1km × resolution hourly basis emissions inventory for Japan, *Atmospheric Environment*, **41**, 2428-3439（2007）。
- 20) Grell, G. A., J. Dudhia, and D. R. Stauffer: A Description of the Fifth-Generation Penn State/NCAR Mesoscale Model (MM5), NCAR/TN-398+STR, NCAR TECHNICAL NOTE, 122pp.（1995）。
- 21) USEPA: Science Algorithms of the EPA Models-3 Community Multiscale Air Quality (CMAQ) Modeling System, EPA/600/R-99/030（1999）。
- 22) 兼保直樹，吉門洋，近藤裕昭，守屋岳，鈴木基雄，白川泰樹：組成別SPM濃度シミュレーション・モデルの開発と初冬季高濃度大気汚染への適用（II），大気環境学会誌，**37**，302-319（2002）。
- 23) （財）石油産業活性化センター：CMAQを用いた広域大気汚染解析技術の構築，PEC-2004AQ-09（2005）。
- 24) 鶴野伊津志，大原利真，菅田誠治，黒川純一，古橋規尊，山地一代，谷本直隆，弓本桂也，植松光夫：RAMS/CMAQの連携システムによるアジア域の物質輸送シミュレーションシステムの構築，大気環境学会誌，**40**，148-164（2005）。
- 25) Draxler, R. R. and Rolph, G. D., 2003. HYSPLIT (HYbrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory) Model access via NOAA ARL READY Website (<http://www.arl.noaa.gov/ready/hysplit4.html>). NOAA Air Resources Laboratory, Silver Spring, MD.
- 26) D. G. Streets, S. Gupta, S. T. Waldhoff, M. Q. Wang, T. C. Bond, B. Yiyun: Black carbon emissions in China, *Atmospheric Environment*, **35**, 4281-4296（2001）。
- 27) <http://www.mlit.go.jp/road/ir/data/koutu/index06.html>

関西地域における元素状炭素粒子の排出量推計と大気濃度分布推定

山本浩平, 桑名 潤, 水澤裕太, 東野 達

京都大学大学院エネルギー科学研究科, 611-0011 京都府宇治市五ヶ庄

本研究では, PM の健康影響を評価するための基礎データを構築するため, 都市大気中 PM 中で多くの割合を占めると考えられる元素状炭素 (Elemental Carbon ; EC) に着目し, 関西 2 府 4 県における排出量の推計と大気輸送モデルを用いた濃度分布推定を高い空間解像度のもとで行った. 元素状炭素の排出源としては, 自動車 (沿道) からの排出に加え, 船舶からの排出, および燃焼施設 (固定発生源) からの排出量についても推計を行い, 沿道からの排出量については, 幹線道路に加え細街路からの排出を考慮した. 推計は平成 11 年度について行い, 3 次メッシュにおける排出量として整理した. この結果, 関西 2 府 4 県における年間 EC 排出量は 6.62×10^3 (t) と見積もられた. 排出構造分析の結果, 沿道からの排出について, 平日より休日の方が単位時間あたりの排出量が大きいことが明らかとなった. また, 総 EC 排出量において, 沿道起源の排出量が全体の約 92% を占める結果となり, 特に普通貨物車からの寄与が大きいことが示された.

次にこの構築されたインベントリを入力として, 気象モデル MM5 と大気化学輸送モデル CMAQ からなるモデルシステムを用い, 各季節から代表的な期間を選んで関西における EC の空間分布の推定を行った. 観測データとの比較において, 気象モデル MM5 は一定のパフォーマンスを示した. CMAQ による大気輸送計算においては, ほぼ計算領域からの排出が支配的と考えられる夏期において, 実測値と定量的に同程度の計算結果が得られたが, 詳細な時間変動については追従できない点も存在した. また他の季節のシミュレーションにおいては, 大陸起源の寄与が大きいと予想されるため過小評価となった. 今回推計した排出インベントリのさらなる検証のためには, ネスティングや排出源高度の設定を含めた, 大気輸送計算の条件設定について詳細な検討が必要であることが分かった. 今後は, 多種の化学物質を含んだ総括的なシミュレーションを行い, 健康リスク評価のためのツールとして発展させていくことが望まれる.