

(76)

ランダムパフモデルによる自動車起源 SPM 二次粒子の数値シミュレーション

A NUMERICAL SIMULATION OF SECONDARY SPM ORIGINATED FROM AUTOMOBILES WITH RANDOM-PUFF MODEL

玉井昌宏*, 有光 剛**

Masahiro TAMAI*, Tsuyoshi ARIMITSU**

ABSTRACT; Air pollution is getting serious in urban areas by increase of automobile traffic. A variety of methods to control the traffic have been proposed, but efficiency of the methods has not been examined quantitatively yet. It's important to develop a system to simulate a series of pollution processes from an occurrence of automobile traffic to diffusion and deposition of pollutants. In this study, in order to simulate SPM originated from automobiles, we constructed an integrated model composed of a mesoscale meteorological simulation model (HOTMAC), a random-puff model to calculate transport process of pollutants (RAPTAD), a photochemical reaction model (CBM-IV), SPM generation model proposed by Japan Environmental Agency and an automobile pollutant emission model. We calculated behavior of secondary SPM originated from automobiles in Osaka Prefectural area under various meteorological conditions to examine validity of the simulation model.

KETWORDS; air pollution, SPM, photochemical reaction, three-dimensional simulation model

1. はじめに

大気汚染の数値シミュレーションに関する研究は数多く行われてきており、対象とする汚染物質や評価量、現象の時空間スケール、結果の利用目的等により、これまで多種多様なモデルが提案されている。¹⁾ オイラー型モデルの代表的なモデルは、アメリカ環境保護庁（EPA）の推奨モデルであるUAM (Urban Airshed Model)²⁾である。同モデルは、数多くの地域に適用され、豊富な実績を有している。大原ら³⁾はUAMで使用されている光化学反応モデルCBM-IV (Carbon Bond Model-IV) とメソスケール気象モデルCSUMM (Colorado State University Mesoscale Model) を用いて数値計算を行い、関東地域の夏季晴天日の光化学オキシダント、 NO_x 、 NO_2 濃度の地域分布や時間変動パターン等について良好な再現性を得ている。その他、近藤ら⁴⁾の冬季の高濃度二酸化窒素のシミュレーション、林、柳ら^{5), 6)}や北林⁷⁾による自動車排ガスの大気環境に及ぼす影響把握を目的としたシミュレーションなど、オイラー型モデルについては既に多くの研究実績がある。

オイラー型モデルは、都市スケール程度以上の空間スケールの現象解析には適しているものの、特定の汚染点源や線源の影響分析のような小さな空間スケールの現象解析には不向きである。例えば、既に、無数の発生源による広域的な大気汚染があり、その中に新たな道路建設の大気環境に及ぼす影響評価を行うような状況を想像して欲しい。高々数百mの沿道地域からメソスケール以上の広域的な汚染現象までの広域の空間スケールを同時に解析するには、たとえ、ネスティング手法などを駆使して計算メッシュを削減しても、極めて大きな計算資源を必要とするであろうと思われる。

*大阪大学大学院工学研究科 (Graduate School of Engineering, Osaka University)

**関西電力株式会社電力技術研究所 (Power Engineering R&D Center, Kansai Electric Power Co., Inc.)

ラグランジエ型解析は光化学スモッグや酸性雨の解析に利用されてきているものの、光化学反応を考慮した研究例は少ない。本研究では、沿道スケールでの光化学反応を含む大気汚染現象の数値解析を目指しており、広域的現象をオイラー型、小スケールの現象についてはラグランジエ型ということで役割分担ができれば、計算資源を大幅に削減するとともに、多様なタイプの大気汚染分析が可能になるであろうと期待される。

本研究では、光化学反応やSPM生成、消滅過程をラグランジエ型の解析に組み込むことを試みた。その内容は、粒子追跡を行う個々の気体塊に対して、従来のボックスモデル⁸⁾⁹⁾と同様な解析を行うことである。移流拡散から変質、消失に至る過程に関する数値解析には、ベースモデルとしてモンテカルロ法とパフモデルを組み合わせたRAPTAD (Random Puff Transport and Diffusion) を用い、各汚染物質の光化学反応等の過程については、パフ内部において生じると仮定した。提案したモデルを用いて、大阪湾岸地域の自動車起源の大気汚染物質排出量を対象としたSPM二次粒子生成に関する数値計算を行った。観測データとの比較によってモデルの検証を行った。

2. SPM挙動モデル

2.1 モデルの概要

汚染物質の移流拡散計算は、RAPTAD (Random-Puff Transport and Diffusion) を用いた。SPMや NO_x 等の全ての汚染物質はパフに含まれているとして、パフ中心を乱流によるランダム成分を含む流速ベクトルにより移流させるとともに、乱流成分によってパフ体積が拡大する。一つのパフを一つのボックスモデルのように取り扱い、その中で光化学反応、SPM二次粒子の生成や乾性沈着など一連の過程が生じるものとする。パフ間の相互作用は無視するものとし、汚染物質濃度は個別のパフによる濃度を単純に重ね合わせることによって求められるものとする。

大気汚染物質はすべての道路からランダムに発生するが、計算容量の面からも、道路別に排出量時系列を与えることは困難である。また本研究では、都市以上の空間スケールを対象としているため、それ以下の空間分布は無視している。そこで、パフ発生点は汚染物質各市町村庁舎の位置を中心とし、市町村面積に等しい円内より、一様な確率分布でランダムに発生するものとする。また、パフの沈降速度は考慮していない。

第k番パフの濃度分布は、次式に示すガウス分布である。

$$c_k(x, y, z) = \frac{Q\Delta t}{(2\pi)^{3/2} \sigma_{xk} \sigma_{yk} \sigma_{zk}} \exp \left\{ -\frac{1}{2} \left(\frac{(X_k - x)^2}{\sigma_{xk}^2} + \frac{(Y_k - y)^2}{\sigma_{yk}^2} + \frac{(Z_k - z)^2}{\sigma_{zk}^2} \right) \right\} \quad (2-1)$$

ここに、 $c_k(x, y, z)$: (x, y, z) 点の第k番パフによる濃度、 Q : 第k番パフの発生する地域の単位時間あたりの負荷量、 Δt : パフの発生時間間隔、 σ_{xk} : 第k番パフのx方向拡がり幅（ガウス分布の標準偏差） (X_k, Y_k, Z_k) : 第k番パフの中心位置である。パフの鉛直拡散幅 σ_{zk} は100m、鉛直方向の中心位置 z は10mに固定している。したがって、円盤状のパフが地表面を這って移動するような状況を計算していることになる。パフの発生時間間隔は、排出源ごとに3600s/個とした。

2.2 光化学反応モデル (CBM-IV)¹⁰⁾

オゾン(O_3)は酸化窒素(NO_x)と揮発性有機物質(VOC)との化学反応によって生成される。オゾンの生成には、非常に多くの物質とそれらの反応が関与している。一般的に、多数の物質と反応を取り扱い可能なレベルにするために、ランプアプローチ(the lump approach)と炭素結合法(the carbon-

bond approach) の二つの方法がある。前者については既に多くの研究により有効性が実証されている。一方後者の利点は、前者に比べてより少ない有機物質グループによって光化学反応を表示できることにある。炭素結合法では、有機物質は炭素一重結合を含むパラフィンボンド (Paraffinic bonds : PAR)、二重結合を含むオレフィンボンド (Olefinic bonds : OLE)、エタン (Ethene : ETH)、mono-alkyl-benzeneを含むトルエン (Toluene : TOL)、di,tri-alkyl-benzeneを含むキシレン (Xylene : XYL) 等に分類される。本研究では後者の一般的モデルであるCBM-IVを用いる。後述のSPM二次粒子生成過程を除き、23種類の化学物質と85本の反応式により計算を行う。

2. 3 SPM二次粒子生成モデル

SPM生成については、環境庁モデル、DeMoreモデル、平衡モデル等がある⁹⁾が、環境庁モデル¹¹⁾にならって次式により計算を行う。

ある密閉された空間で時刻t=0に発生したガス状物質(GAS)は、一次反応(反応速度k_t)によってSPMに変換される。ここでSPMの一部は昇華のためGASとなるため、反応速度はk_tのP_k倍と小さくなる。ただし、密閉空間は完全混合で、t=0以外にGASの発生がなく沈着現象も考慮しないものとする。さらに1[ppb]のGASからA[μg/m³]のSPMが生成されるとすると、以下に示す式が導かれる。

$$\frac{d[GAS]}{dt} = -P_k k_t [GAS] + (1 - P_k) \frac{k_t}{A} [SPM] \quad (2-2)$$

$$\frac{d[SPM]}{dt} = P_k A k_t [GAS] - (1 - P_k) k_t [SPM] \quad (2-3)$$

ここに、[GAS]：気体濃度[ppb]、[SPM]：粒子濃度[μg/m³]、A：気体から粒子への変換係数[μg/m³/ppb]、k_t：気体から粒子への反応速度[1/h]、P_k：粒子状物質の存在率である。ここでNO_x、SO_xから硝酸塩、硫酸塩への変化に対して上式を適用し、NO₂とSO₂を、それぞれ硝酸塩、硫酸塩の前駆気体として考える。環境庁編マニュアル¹¹⁾と原田⁹⁾に従い、表2-1の値を用いる。なおSO_xの粒子状物質存在率は1とした。

表2-1 環境庁モデルのパラメータの意味と値

A _S	SO _x からSO ₄ ²⁻ への換算係数	4.29
A _N	NO _x からNO ₃ ⁻ への換算係数	2.76
K _s	SO _x からSO ₄ ²⁻ への変換率	表2-2
K _{in}	NO _x からNO ₃ ⁻ への変換率	
P _{kn}	NO _x の粒子状物質存在率	

表2-2 変換率と粒子状物質存在比

	K _s	K _{in}	P _{kn}
夏季	0.05	0.065	0.6
秋季	0.04	0.05	0.8

表2-3 乾性沈着速度

Species	V _d (m/s)
NO	0.001
NO ₂	0.001
O ₃	0.006
SO ₂	0.008
HC	0.002
HNO ₃	0.002
SPM	0.001

2. 4 乾性沈着

ここでは、晴天日のみを対象として、湿性沈着の影響についてはこれを無視する。環境庁編マニュアル¹¹⁾と同様に、乾性沈着はパフに内包される汚染ガスやSPMの総量が減少することによって表示される。総量の低下分 ΔQ は次式のように、乾性沈着速度分の高さに含まれる汚染ガスが削減されると考える。

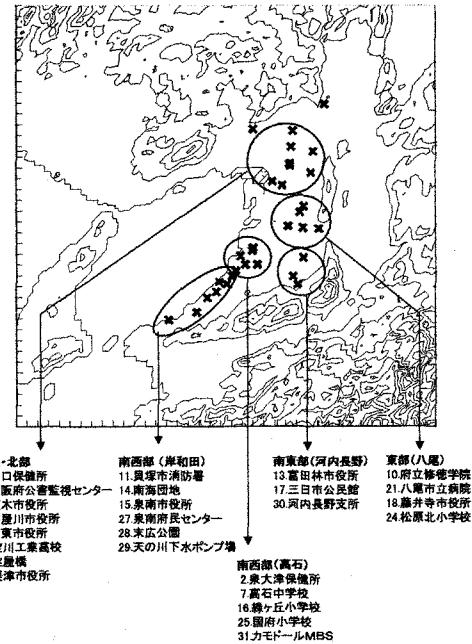
$$\Delta Q/Q = V_d dt / \sigma_{z_k} \quad (2-4)$$

ここに、 V_d (m/s) : 乾性沈着速度であり、沈着モデルを使わずに各種汚染物質の沈着速度を日平均した表2-3に示す値を与える。また、 dt (s) : 計算時間間隔である。

3. 大阪湾岸地域のSPM観測データの概要

図3-1に示したように大阪府は28地点において大気汚染常時監視データを収集している。観測結果が、測定装置の設置場所や周辺の住宅や道路等の条件等によって大きく変化すること、さらに、後述する数値解析の空間解像度を考慮して、図3-1のように、各観測点をその位置によって5つのグループに分けた。以下の観測結果の考察、数値計算との比較は、このグループ内で単純平均された値を用いることとする。異なる気流場を対象とするために、1995年8月18-19日(Case1)、1995年11月1-2日(Case2)の2つの検討対象期間を選定した。表3-1は各ケースの気象条件であり、いずれのケースも晴天日である。季節は異なるが、Case1は風の弱い夏季晴天日であり、Case2は冬型の気圧配置で強い西風の吹く状況となっている。

図3-2は、各期間における各地域別のSPM濃度の時間変化である。Case2は両日ともに比較的風速が大きかったために、全体的な濃度レベルは低くなっている。Case1においては、気圧傾度が小さく陸海風の卓越する気象条件であったが、濃度レベルはCase1の方が2倍程度大きくなっている。両者の濃度変動パターンも著しく異なっている。加えて、観測地点によってピークの発生時間や、濃度変動傾向などが異なっている。例えば、Case1では、中央・北部や東部において比較的顕著なピークが、他の地点に比べて早い時刻に現れる。これに対して、南西部や南東部においては、ピークはそれほど明瞭ではなく、その発生時刻も比較的遅い。Case2では、全体的に、平坦な分布となっており、東部と中央・北部の濃度が高くなっている。Case1の変動傾向は、伏ら¹²⁾によって指摘されている広域高濃度日の典型的な変動パターンと概ね一致し、このケースでは海陸風の影響が顕著であることが予想される。



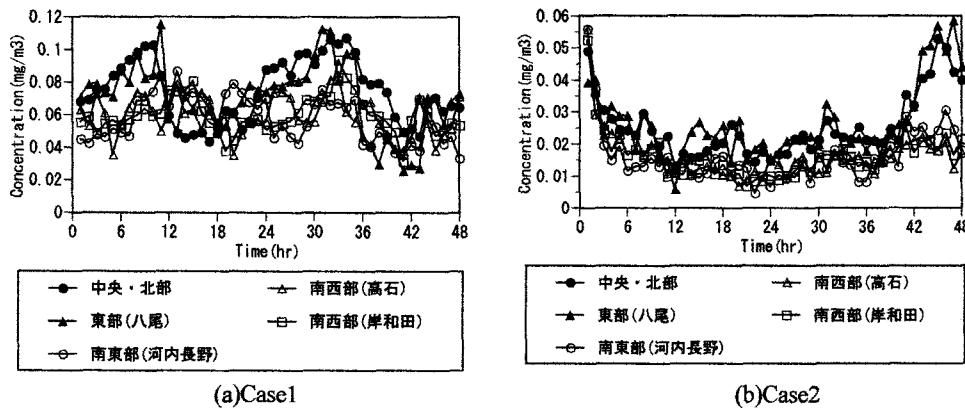


図3-2 SPMの観測データ

4. 計算条件

4. 1 計算対象領域と条件

計算領域は北緯34.7度、東経135.39度を原点とする水平方向240km×320km、鉛直方向11kmである。水平格子間隔は8kmと2km、鉛直方向は不等間隔で15層に分割してある。また、各メッシュの土地利用に関しては、国土地理院の土地利用情報により与えている。3. の観測データに合わせて、1995年8月18-19日(Case1)、1995年11月1-2日(Case2)の2つの計算対象条件を設定した。

4. 2 自動車交通による大気汚染物質排出量の推計方法

自動車の排気ガスに含まれる浮遊粒子状物質の大坂府下の時間排出量を平成2年度道路交通センサス¹³⁾の車種別時間交通量を用いて推計した。なお、二酸化炭素、窒素酸化物、二酸化硫黄についても同様に算出できる。各観測リンク別の時間交通量を松井ら¹⁴⁾によって推計された道路タイプ別（都市間高速道路、都市高速道路、幹線多車線道路、幹線2車線道路、準幹線多車線道路、準幹線2車線道路）の時間BPR関数に代入してリンク平均旅行速度を算出する。次に、この平均旅行速度推計値とドイツの道路プロジェクトに対し、経済的な評価を行う経済性調査指針RAS-W¹⁵⁾ (Richtlinien für die Anlage von Straßen : Wirtschaftlichkeitsuntersuchungen) で採用されている燃料消費関数よりリンク別燃料消費量を求め、さらに同指針で示されている大気汚染物質の排出係数を

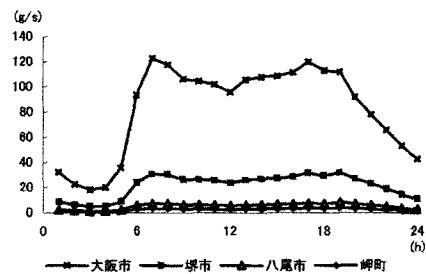


図4-1 NOxの時間変化

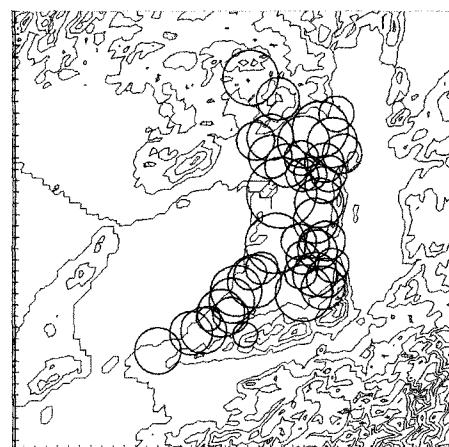


図4-2 パフ(中心)の発生ポイント

掛け合わせることによって道路延長1kmあたりの時間大気汚染物質排出量を推計する。燃料消費関数と排出係数は、乗用車、バス、貨物車の車種別に設定されており、車種構成の影響を大気汚染物質排出量に反映できるよう配慮している。

こうして求められた各観測リンクの時間排出量推計値を道路種別ごとに平均し、大気汚染物質の時間排出量原単位を定めた。この原単位を大阪府下の市町村ごとに把握されている道路延長¹⁶⁾にかけあわせることで、自動車から排出される大気汚染物質時間排出量を市町村別に推計した。この方法によると大阪府下市町村別の窒素酸化物の合計は9500t/年と推計され、大阪府環境白書¹⁷⁾による大阪府下の窒素酸化物排出量15290tと概ね一致し、本研究で用いた推計方法は妥当であると判断できる。図4-1は一部の市町村におけるNOx排出量の日変化の算定値である。図4-2は市町村庁舎の位置を中心とするパフの発生円である。発生源の鉛直高さは10mとして一定とする。

4. 3気流場計算法

本研究では、HOTMAC¹⁹⁾ (Higher Order Turbulence Model for Atmospheric Circulation) を用いて、気流場の計算を行った。気流場の境界条件をできるかぎり再現するために、ナッジングにより気象庁観測による高層気象観測データとアメダスデータを取り込んでいる。ナッジングとは、計算値と観測値の差をニュートン緩和法で補正する手法である。気象庁の高層観測データ（風向、風速）は1日4回、3時、9時、15時、21時に観測されており、ここでは、計算領域周辺の3観測点（潮岬、米子、輪島）のデータを、距離の2乗の逆数の重みをつけて内挿し、計算領域を代表する高層風とした。また、時間方向に線形内挿して1時間ごとのデータを求めた。気流の再現性についての詳細は、参考文献15において検証を済ませている。

各ケースの気象状況の概略を表示するために、図4-3に大阪市におけるアメダスデータと計算結果を示す。風向図の縦軸は、アメダスと同様に風向を16方位で表しており、北東が風向1、北が風向16であり、時計回りに増加する。

各ケースにおいてFDDA、NO-FDDAとあるのはアメダスデータでナッジングしているか、していないかを表している。ただしNO-FDDAの計算においても高層気象観測データを用いたナッジングは行っている。また、side-onとあるのは、高層気象観測データを用いて逆転層高度以上の格子点に加え、側面境界格子点においてもナッジングを行っている。一方side-offの計算では側面境界のナッジングを行っていない。

以下の計算では、FDDA(side-on)の結果を用いている。

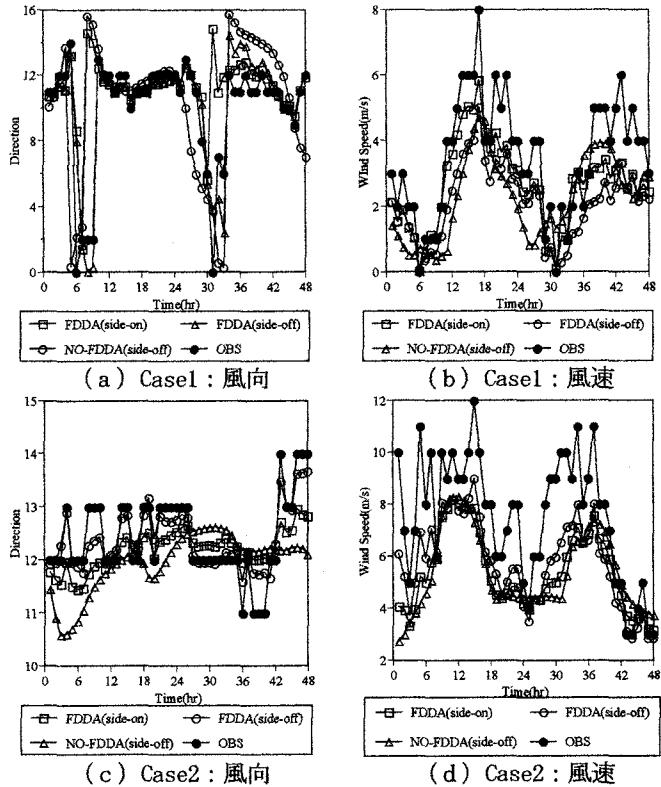


図4-3 気流の計算結果とアメダスデータの比較（大阪市）

5. SPM二次粒子計算結果

図5-1は、夏季晴天日Case 1のSPM濃度の時間変化を表している。

(a)は大阪府大気汚染監視汚染データ28点の中で、図3-1に示した中央部・北部地域（大阪市、北摂地域等）における地点平均濃度(OBS.)と、同地域における二次粒子の計算結果(CAL.)との比較を示している。(b)は東部地域（河内地域）の地点平均濃度(OBS.)と、二次粒子の計算結果(CAL.)との比較である。計算結果がSPM濃度変動の傾向を良好に再現していることがわかる。午前中に濃度上昇が生じているが、混合層の厚さの増加と海風の発達などによって、午前9～10時ごろから濃度は急激に減少する。12時～23時の間で、計算値は観測値を大きく下回っているが、これは、数値計算においては、大阪湾から吹き込む海風の汚染物質が無視されている上に一次粒子を考慮していないからである。また、塩化物の生成が無視されていることにも関係している。

図5-2は、Case 2のSPM濃度変化を示している。秋季の晴天日であるが、西高東低の冬型の気圧配置で、西向きの風が比較的強い。このために、Case 1に比較して全般的に濃度は低い。両計算ケースを比較すると、本モデルが季節・気象条件によるSPM濃度変動特性の差異を良好に再現していることがわかる。

図5-3はCase 1における中央部・北部地域NO_x濃度の時系列変化である。実測値に比較して計算の変動がより大きくなっているものの、変動特性の傾向を概ね再現している。

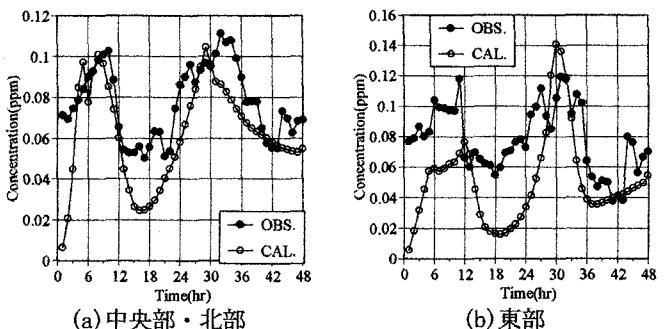


図5-1 計算結果と観測値の比較、Case 1

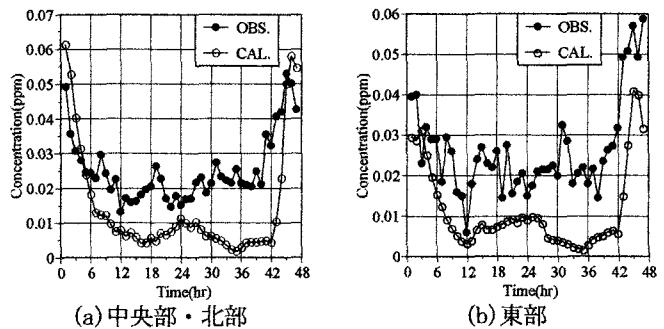


図5-2 計算結果と観測値の比較、Case 2

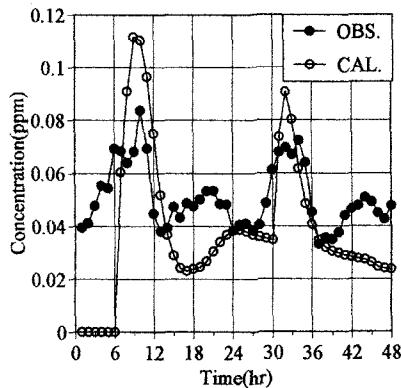


図5-3 計算結果と観測値の比較 (Case 1, NO_x)

6. まとめ

ここでは、光化学反応モデルとSPM二次粒子生成モデルを組み込んだパブモデルを開発し、大阪府域の自動車起源の汚染物質によって生成されるSPM二次粒子の発生と挙動を計算した。自動車起源の

SPMのみを対象とし、パフの発生については市町村毎に面的な取り扱いをしたにもかかわらず、計算結果は気象条件による濃度変動特性の差異を良好に表現した。固定発生源からのSPMの発生の考慮や、一次粒子の存在の考慮、さらにパフ発生モデルの精度向上により、SPM濃度の定量的な計算を可能にすることが今後の課題である。

参考文献

- 1) 大原利眞・鶴野伊津志：メソスケールの大気汚染シミュレーション，大気環境学会誌，第32巻，第3号，A39-A57，1997.
- 2) EPA(1990) : Users guide for the urban Airshed model, EPA-450/4-90-007A.
- 3) 大原利眞・若松伸司・鶴野伊津志：光化学オキシダント・シミュレーションモデルの構築と検証，大気環境学会誌，第32巻，第1号，pp. 6-28，1997.
- 4) 近藤裕昭・兼保直樹：関東地方の冬季二酸化窒素大気汚染のシミュレーション，環境管理，第3巻，第6号，pp. 57-68，1996.
- 5) 林誠司・柳漢呉：自動車排出ガスの大気環境影響シミュレーション-鉛直方向計算格子数の影響-, 自動車研究，第19巻，第2号，pp. 6-9，1997.
- 6) 柳漢呉・林誠司：関東圏における大気環境シミュレーション-拡散係数の検討-, 自動車研究，第19巻，第11号，pp. 8-11，1997.
- 7) 北林興二：道路沿道における大気拡散の実測及びシミュレーションモデル，公害，第25巻，第1号，pp. 1-23，1990.
- 8) 金道龍，山口克人，近藤明，惣田訓：大阪兵庫地域における光化学オキシダント濃度と一次原因物質排出量の関係に関する研究，大気環境学会誌，36(3)，pp. 156-165，2001.
- 9) 原田幸平：大阪地域を対象とした浮遊粒子状物質SPMの数値シミュレーション，大阪大学大学院工学研究科修士論文，2002.
- 10) Gery et al. : A photochemical kinetics mechanism for urban and regional scale computer modeling, J. Geophysical Research, 94, pp. 12925-12956, 1989.
- 11) 環境庁大気保全局大気規制課：浮遊粒子状物質汚染予測マニュアル，1997.
- 12) 犬伏宏行，多田久代，片田正巳：東部海岸沿いに出現する浮遊粒子状物質の高濃度汚染について，徳島県保険環境センター年報，No. 16, pp. 33-38, 1998.
- 13) 建設省道路局編・(社)交通工学研究会：平成2年度道路交通センサス全国道路交通情勢調査，1991.
- 14) 松井寛・山田周治(1998)：道路交通センサスデータに基づくBPR関数の設定，交通工学，Vol. 33, No. 6, pp. 9-16.
- 15) 建設省：道路投資の効果分析手法の検討，1996
- 16) 大阪府警察：大阪の交通白書，1991.
- 17) 大阪府：大阪府環境白書，1992.
- 18) 横山長之，近藤裕昭，鈴木基雄，山田哲二：大気環境シミュレーション-大気の流れと拡散-, 白亜書房，1992.
- 19) 玉井昌宏，松村暢彦，石井義裕，足達晋平：ランダム-パフモデルを用いた自動車起源のSPMの輸送過程に関する数値シミュレーション，水工学論文集，pp. 55-60，2000.