

科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成25年 6月17日現在

機関番号：82101
 研究種目：若手研究（B）
 研究期間：2011年度 ～ 2012年度
 課題番号：23710024
 研究課題名（和文） 揮発性ビン・詳細反応モデル開発による二次有機エアロゾル計算の精緻化と生成機構解明
 研究課題名（英文） Development of volatility basis model and mechanical model for SOA simulation
 研究代表者
 森野 悠（MORINO YU）
 独立行政法人国立環境研究所・地域環境研究センター・主任研究員
 研究者番号：50462495

研究成果の概要（和文）：二次有機エアロゾル(SOA)の正確な動態把握と発生源解析を目的として、揮発性ビンモデル・詳細反応モデルを、三次元大気質モデル上で開発した。また、ボックスモデル上で従来モデルと比較・評価した結果、揮発性ビンモデルは実測値をよく再現すること、大気中のエイジングが SOA 生成に重要な寄与を持つこと、現状の詳細反応モデル(反応数<20000)は低揮発性生成物の生成量が他モデルに比べて顕著に低く、SOA を顕著に過小評価することなどが明らかとなった。

研究成果の概要（英文）：For the improvement of secondary organic aerosol (SOA) models volatility basis set model and explicit model were developed. From comparison of these SOA models with observation and existing SOA models, we found that (1) volatility basis set model well reproduced the observed SOA, (2) aging process of semi-volatile organic compounds has critical contribution to SOA production, and (3) explicit model largely underestimated the observed SOA concentration, partly due to much smaller production of low-volatile products.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	2,600,000	780,000	3,380,000

研究分野：複合新領域

科研費の分科・細目：環境学・環境動態解析

キーワード：環境モデル・大気化学・有機エアロゾル

1. 研究開始当初の背景

大気中の微小粒子状物質(エアロゾル)は、呼吸器などへの沈着を通じた健康影響、太陽光の散乱・吸収による気候影響、酸性物質や栄養物質の沈着による生態系影響などを持ち、その環境動態把握はこの半世紀にわたって大気環境問題における主要な課題であった。大気中の起源が一次排出と二次生成に分かれるエアロゾルは、その生成量は原因物質

排出量と非線形であるため、発生源解析に統計モデルは適用できず、シミュレーションモデルが有用である。有機エアロゾルの起源を一次排出と二次生成について分子レベルで分離され始めた近年、シミュレーションモデルは観測された二次有機エアロゾル(SOA)の濃度を過小評価する事が報告されており、その原因解明が必要とされている。有機エアロゾルは、多岐にわたるエアロゾル成分の中に

において、全粒子中の主要成分である事、組成が多様であるため生成過程に不明な点が多い事、それに関連して主要な発生源が未解明である事、などから、様々な観測研究・モデリング研究が特に必要とされている。

わが国での先行研究から、現在の大気質シミュレーションモデルは特に日中に生成される化石燃料起源 SOA を顕著に過小評価している事、生物起源 SOA は比較的良く再現する事が明らかとなっており、今後の研究課題として、化石燃料起源 SOA の過小評価要因の解明と、生物起源 SOA の発生源解析に向けた生成過程検証が挙げられていた。このような背景の基、本研究課題では化石燃料起源 SOA、生物起源 SOA それぞれについて、より精緻なモデル計算・評価を実施すべく、モデル開発を実施した。

2. 研究の目的

SOA の正確な動態把握と発生源解析を目的として、揮発性ビンモデル(VBS モデル)、及び詳細反応モデル(MCM モデル)を、三次元大気質モデル上で開発した。化石燃料起源 SOA について、近年、同定されていない揮発性の低い有機化合物(SVOC)から生成された SOA が、大きな寄与を持つ可能性が、希釈実験結果などから示唆されている。この SVOC からの SOA 生成への寄与を数値モデルを用いて定量するために、本研究では VBS モデルを採用した。VBS モデルでは、成分として同定されていない SVOC を揮発性ビンごとに取り扱う事で、従来計算できなかった SVOC 起源の SOA 生成過程を計算可能となる。生物起源 SOA については、これまでに森林域での SOA 濃度増大量が生物起源 VOC 排出量との間に収支が取れている事が報告されているものの、生物起源 SOA の生成過程は実大気中では殆ど検証されていない。本研究では、SOA 濃度を成分別に計算可能な MCM モデルを三次元モデル上に構築する事で、成分別濃度を計算して、生物起源 SOA 生成過程をより精緻に検証することを目的とした。

また、本研究では、VBS モデルや MCM モデルの計算結果を、従来の収率モデルやメカニカルモデルと相互比較して、その計算性能や特性を評価した。

3. 研究の方法

(1) 2つの SOA モデル(VBS モデルと MCM モデル)をボックスモデル上で開発し、粒子化計算手法や化学反応式による常微分方程式の計算手法を検討した。さらに、VBS モデル、MCM モデルとも、三次元化学輸送モデルに実装して、夏季の関東地方を対象と

した計算を実施した。

(2) 本研究では 5 種のモデル(MCM, CACM-MADRID2, SAPRC99-AERO4, SAPRC99-AERO5, SAPRC99-VBS)を利用し、0次元ボックスモデル上で SOA モデルの相互比較・精度評価を行った。化学反応モジュールの大きな違いとして、CACM と SAPRC99 では多種の揮発性有機化合物(VOC)をグルーピングしているのに対して、MCM では一次排出物質・二次生成物質とも多数の VOC をグルーピングせずに計算していることが挙げられる。また、VBS モデルでは、一次 OA(POA)の蒸発を考慮するため、揮発性の低い VOC(SVOC と IVOC)として排出させていること、及び酸化生成物のエイジングを計算していることが特徴であり、一次排出される SVOC と IVOC、及び VOC からの酸化生成物は飽和濃度 $C^*(0.01-10^6 \mu\text{g m}^{-3}$ の範囲)ごとにグルーピングされている。0次元ボックスモデルでは 2004 年 7 月 22 日—8 月 14 日の期間、東京都中心部の 30km 四方のグリッドにおいて化学過程・エアロゾル過程・バックグラウンド空気塊との交換を計算した。

4. 研究成果

(1) VBS、MCM とともに、3次元モデルに適用可能な高速のソルバーでも十分な計算性能が得られることが明らかとなった。また、三次元化学輸送モデルの入力データである、揮発性有機化合物(VOC)、および半揮発性の VOC(SVOC・IVOC)の排出プロファイルの詳細成分別に収集して、発生源データを整備した。また、先行研究を基に、VBS での酸化速度・蒸発エンタルピーなど、粒子化モジュール中のパラメタを整備した。なお、当初は VBS の用途を SVOC、IVOC からの SOA 生成計算と想定していたが、VOC からの SOA 生成計算にも有効であるという最新の先行研究報告を基に、その粒子化計算モジュールを VBS に追加した。関東地方における 3次元モデル計算を実施した。

(2) 各モデルは、 O_3 ・窒素酸化物・OH ラジカル・VOC など気相成分の実測値を平均的に再現しており、またモデル間の差も比較的小さかった。それに対して、SOA 濃度の計算結果はモデルごとに大きくばらついていった。SOA と $\text{O}_x(\text{O}_3+\text{NO}_2)$ の比を指標として観測値とモデル計算結果を比較したところ、VBS モデルで計算される SOA/ O_x 比は実測値を比較的良く再現していたが、他のモデルは顕著に過小評価していた(図)。特に MCM で計算される SOA 濃度は他のモデルと比べて

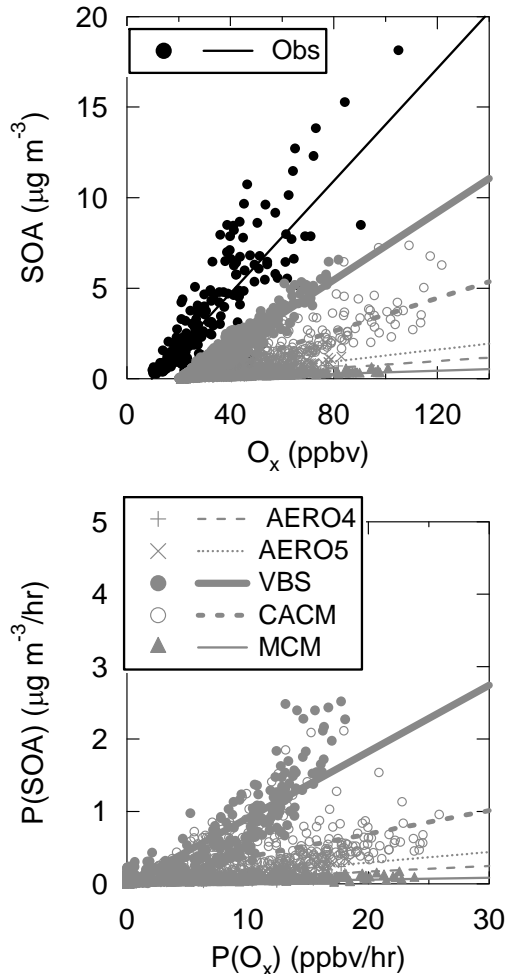


図. SOA と $O_x(=O_3+NO_2)$ の大気濃度(上図)と生成速度(下図)の関係

顕著に低かった。これは、MCM モデルでは他モデルと比べて低揮発性生成物の濃度が顕著に低かったためであり、今回の計算システムでは粒子相反応など重要な SOA 生成過程が抜けている可能性が示唆される(収率モデルでは、室内実験より収率を求めているので、これらの過程の一部は間接的に考慮されている)。他モデルと比べて SAPRC99-VBS が高い SOA 濃度を示す理由は、主にエイジングで、人為起源 VOC の酸化生成物のエイジングが SOA 生成に大きな寄与を持つ可能性が示唆された。ただ、VBS モデルにおける酸化生成物の生成収率には既にエイジングの寄与が含まれているため、VBS でのエイジングは酸化反応をダブルカウントしている可能性がある。さらに、東京における SOA の発生源解析を実施したところ、従来広く使われていた収率モデルと VBS モデル・MCM モデルの計算結果は大きく異なっていた。この結果は、PM_{2.5} などの発生源解析において、SOA モデルの選択によって推計結果が大き

く異なることを意味しており、SOA モデルの精緻化が重要であることを強く示唆するものである。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 3 件)

(1) Shimadera H., Hayami H., Chatani S., Morino Y., Mori Y., Morikawa T., Yamaji K., Ohara T. (2013) Sensitivity Analyses of Factors Influencing CMAQ Performance for Fine Particulate Nitrate. Journal of the Air and Waste Management Association, DOI:10.1080/10962247.2013.778919, accepted, 査読有.

(2) Shimadera H., Hayami H., Morino Y., Ohara T., Chatani S., Hasegawa S., Kaneyasu N. (2012) Analysis of summer-time atmospheric transport of fine particulate matter in Northeast Asia. Asia-Pacific Journal of Atmospheric Sciences, 49(3), 1-14, 査読有.

(3) Kondo Y., Rama K., Takegawa N., Sahu L., Morino Y., Liu X., Ohara T. (2012) Reduction of black carbon aerosols in Tokyo: Comparison of real-time observations with emission estimates. Atmospheric Environment, 54, 242-249, 査読有.

〔学会発表〕(計 8 件)

(1) 森野悠, 田邊潔, 大原利真 (2012) ボックスモデル上での二次有機エアロゾルモデルの比較・検討. 第 18 回大気化学討論会, 2012 年 11 月 6 日, 福岡県朝倉市.

(2) Morino Y., Ohara T., Hasegawa S., Fushimi A., Kondo M., Uchida M., Tanabe K., Kazuyo Yamaji, Bin Zhao, Jiayu Xu, Jiming Hao (2012) Source Apportionment of EC and OC in Beijing: Comparison between 14C Measurement and Chemical Transport Model. 2012 IGAC conference, 2012 年 10 月 11 日, Beijing, China.

(3) Morino Y., Ohara T., Hasegawa S., Fushimi A., Kondo M., Uchida M., Tanabe K., Kazuyo Yamaji, Bin Zhao, Jiayu Xu, Jiming Hao (2012) Source Apportionment of EC and OC in Beijing: Comparison between 14C Measurement and Chemical Transport Model. 2012 AAAR Annual Conference, 2012 年 9 月 17 日, Minneapolis, USA.

(4) 森野悠, 大原利真, 長谷川就一, 伏見暁洋, 近藤美由紀, 内田昌男, 田邊潔, 山地一代, B. Zhao, J. Xu, J. Hao (2012) 北京での炭素性エアロゾルの発生源解析. 第 53 回大気環境学会年会, 2012 年 9 月 13 日,

神奈川県横浜市.

(5) 森野悠, 田邊潔, 大原利眞 (2012) ボックスモデル上での二次有機エアロゾルモデルの比較・検討. 第 53 回大気環境学会年会, 2012 年 9 月 13 日, 神奈川県横浜市.

(6) Morino Y., Ohara T., Hasegawa S., Fushimi A., Kondo M., Uchida M., Tanabe K., Zhao B., Xu J., Hao J. (2012) Source apportionment of EC and OC in Tokyo and Beijing: comparison between observation and simulation model.. Joint Seminar on Formation Mechanism of Photochemical ozone, VOCs, PM2.5 in Mexico, China and Japan, 2012 年 3 月 26 日, 愛媛県松山市.

(7) 森野悠, 大原利眞 (2011) MCMを用いた関東地方における二次有機エアロゾルの成分別シミュレーション. 第 17 回大気化学討論会, 2011 年 10 月 19 日, 京都府宇治市.

(8) 森野悠, 大原利眞 (2011) MCMを用いた関東地方における二次有機エアロゾルの成分別シミュレーション. 第 52 回大気環境学会年会, 2011 年 9 月 14 日, 長崎県長崎市.

[図書] (計 2 件)

(1) Zhu T., Cayetano M. G., Chen C., Guttikunda S., Hu M., Kim Y. J., Kondo Y., Louie P. K.K., Molina L., Morino Y., Oanh N. T. K., Olaguer E.P., Permadi D. A., Pongkiatkul P., Salam A., Shao M., Sun X., Wakamatsu S., Wang H., Zawar-Reza P. (2012) CHAPTER 3- ASIA. In: World Meteorological Organization, WMO/IGAC Impacts of Megacities on Air Pollution and Climate, World Meteorological Organization, 59-140.

(2) 大原利眞, 森野悠 (2012) 第 4 章 都市と大気汚染. 気象研究ノート, 都市の気象と気候, 224, 85-102.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

森野 悠 (MORINO YU)

独立行政法人国立環境研究所・地域環境研究センター・主任研究員

研究者番号: 50462495

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし