

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 29 年 5 月 31 日現在

機関番号：14401

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2014～2016

課題番号：26740038

研究課題名(和文)大気質モデルによるPM2.5予測における支配的誤差要因の評価

研究課題名(英文)Evaluation of Dominant Factors Causing Error in PM2.5 Simulations by Air Quality Models

研究代表者

嶋寺 光 (SHIMADERA, Hikari)

大阪大学・工学研究科 ・助教

研究者番号：20647367

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：大気質モデルによるPM2.5予測における支配的な誤差要因を抽出するために、大気質モデルCMAQとCAMxによる大気汚染物質濃度再現性の相互比較、日本国内の地域汚染と国外からの長距離輸送時のPM2.5再現性評価、オンライン結合版WRF-CMAQを用いた気象-大気質間の相互作用の影響評価、主要計算条件の変更に伴うPM2.5予測結果の変動評価を実施した。日本国内ではPM2.5濃度が過小評価となる場合が多かったことから、PM2.5予測精度を向上させるために、過小評価改善に寄与すると考えられる要因について更新を行ったところ、大気質モデルによるPM2.5濃度の過小評価は39%軽減された。

研究成果の概要(英文)：In order to identify dominant factors causing error in PM2.5 simulations by air quality models, the following studies were conducted: a comparison of model performances for air quality simulations by CMAQ and CAMx; an evaluation of model performance for simulating local pollution and long-range transport of PM2.5; an impact assessment of meteorology-chemistry feedback on PM2.5 simulation by using the online-coupled WRF-CMAQ; a sensitivity analysis of simulated PM2.5 concentration fields to air quality model configurations. Various air quality simulations in these studies generally underestimated PM2.5 concentration in Japan. Therefore, factors causing the underestimate of PM2.5 concentration was revised for improvement of the air quality model performance, which resulted in mitigation of the underestimate by 39%.

研究分野：大気環境工学

キーワード：大気質モデル PM2.5 感度解析 地域汚染 長距離輸送 鉛直拡散 エアロゾル直接効果 気象モデル

### 1. 研究開始当初の背景

2013年1月、中国において微小粒子状物質(PM<sub>2.5</sub>)の高濃度汚染が発生した。日本においても、越境汚染による健康影響への懸念からPM<sub>2.5</sub>に対する社会的関心が高まった。日本においてPM<sub>2.5</sub>の環境基準が告示されたのは比較的最近の2009年9月のことである。日本では、これまでに様々な大気汚染対策が実施されており、2000年代のPM<sub>2.5</sub>濃度は減少傾向であった。しかし、PM<sub>2.5</sub>環境基準は、2011年度の一般大気環境測定局(一般局)で達成率27.6%であり、多くの地域で未達成となっている。健康リスク低減のためには更なるPM<sub>2.5</sub>濃度低減が求められ、そのためには効率的な対策が必要となる。

PM<sub>2.5</sub>の大半は、元素状炭素(EC)、有機成分(OA)、硫酸塩(SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>)、硝酸塩(NO<sub>3</sub><sup>-</sup>)、アンモニウム塩(NH<sub>4</sub><sup>+</sup>)によって占められている。これらの主要5成分は、発生源、動態、濃度制御要因が大きく異なる。ECについては大気に直接排出される一次粒子であるが、その他の成分は主に多様な前駆物質が大気中で反応して生成する二次粒子であり、PM<sub>2.5</sub>の大気中の挙動はきわめて複雑である。

PM<sub>2.5</sub>の大気中の挙動を解析するには、多様な前駆物質の排出から大気中での移流・拡散、化学反応、粒子生成と成長、地表面への沈着といった各物理・化学過程を同時に考慮する必要がある。これらの諸過程を対象に計算機上でシミュレーションを行うためのソフトウェアが、いわゆる大気質モデルである。大気質モデルは大気環境改善対策を検討する上で有用であるが、現状の大気質モデルはPM<sub>2.5</sub>の主要成分のうち特にEC、OA、NO<sub>3</sub>の再現性が悪く、PM<sub>2.5</sub>濃度低減対策の検討に用いることは適切とは言えない。そこで国内の大気質モデリング研究者によって、関東におけるPM<sub>2.5</sub>主要5成分を対象に、大気質モデル本体の不確実性評価および改良を目的とする、大気質モデル比較研究(UMICS)が実施されてきた。その中で、ECについては鉛直拡散および関東における排出量の影響が大きいこと、NO<sub>3</sub>については前駆物質であるアンモニアガスの排出および硝酸ガス・アンモニアガスの乾性沈着の影響が大きいこと、OAについては従来考慮されていなかった発生源の影響が大きいことなどが明らかとされてきた。

### 2. 研究の目的

上述の通り、大気質モデル改良のためにUMICSが実施されてきたが、UMICSでは検討が十分ではない点もある。世界的に使用されている大気質モデルには、Community Multiscale Air Quality model(CMAQ)、Comprehensive Air Quality Model with Extensions(CAMx)、Weather Research and Forecasting model coupled to Chemistry(WRF-Chem)などがあるが、日本国内での使用実績としては圧倒的にCMAQが多い。

UMICSにおいてもほぼ全ての参加モデルがCMAQであったため、他の大気質モデルを用いた検討も必要である。またUMICSでは、大気質モデル本体に着目するために、主要入力条件である気象場、大気汚染物質排出量が統一された。しかし、これらの主要入力条件もPM<sub>2.5</sub>予測において支配的な誤差要因になり得ると考えられるため、大気質モデル本体と同様に複数条件での検討が必要である。

本研究では、上記のUMICSの課題を踏まえ、複数大気質モデルのPM<sub>2.5</sub>予測精度の評価および主要計算条件の変更によるPM<sub>2.5</sub>予測への影響評価を包括的に行うことで、大気質モデルによるPM<sub>2.5</sub>予測において支配的な誤差要因を抽出する。さらに、それらを改善することによって、大気質モデルによるPM<sub>2.5</sub>予測精度の向上を実現することを目的とする。

### 3. 研究の方法

#### (1) 複数大気質モデルの大気汚染再現性比較

国内では大気質モデルとしてCMAQが使用されることが多く、他の大気質モデルによる計算事例は限られている。そこで、2010年度の近畿圏を対象に大気質モデルCMAQ v5.0.1およびCAMx v6.00による通年計算を実施し、両モデルによる大気汚染物質濃度の再現性を評価した。CMAQについては、東アジア領域(解像度64km)、日本領域(解像度16km)、近畿領域(解像度4km)の3領域で計算を行った。CAMxについては、CMAQの日本領域の計算結果を境界濃度で使用し、近畿領域の計算を行った。気象場は、気象モデルWRF v3.5.1を用いて作成した。東アジア領域の境界濃度には、全球化学輸送モデルMOZART-4を用いた。排出量は、INTEX-B、JATOP自動車排出インベントリ、EAGrid2000-JAPAN、OPRF船舶排出インベントリ、MEGAN v2.04等を組み合わせ用いた。反応過程として、気相反応にはいずれのモデルもSAPRC99を選択し、エアロゾル過程にはCMAQはAERO5、CAMxはCFを選択した。

#### (2) 地域・越境汚染別のPM<sub>2.5</sub>再現性評価

大気質モデルによるPM<sub>2.5</sub>濃度予測誤差の原因解明のために、日本国内の排出由来の大気汚染(地域汚染)と国外からの長距離輸送による大気汚染(越境汚染)に着目し、それぞれが支配的な場合について大気質モデルによるPM<sub>2.5</sub>再現性の評価を行った。大気質モデルにはCMAQ v5.0.2を用い、計算期間は2010年度、計算領域は東アジア領域(解像度64km)、日本領域(解像度16km)の2領域とした。気象場には気象モデルWRF v3.5.1、東アジア領域の境界濃度には全球化学輸送モデルMOZART-4、排出量にはINTEX-B、EAGrid2010-JAPAN、JATOP自動車排出インベントリ、OPRF船舶排出インベントリ、MEGAN v2.04等を組み合わせ

て用いた。また、気相反応過程には CB05、エアロゾル過程には AERO6 を用いた。CMAQ による計算は、上述の排出量データを全て考慮した標準条件 (Ebase) と人為起源については日本国内の排出量データのみを考慮した条件 (Ejapan) について行った。各測定局で日平均 PM<sub>2.5</sub> 濃度測定値が 15 μg m<sup>-3</sup> 以上の日から、PM<sub>2.5</sub> 主要成分の中でもモデルによる再現性が良好であり比較的大気中寿命が長い硫酸塩の濃度計算結果について Ejapan/Ebase 比が上位 30 日間を地域汚染日、下位 30 日間を越境汚染日と判定し、それぞれにおける PM<sub>2.5</sub> 再現性を評価した。

### (3) 気象-大気質間の相互作用の影響評価

大気エアロゾルは、太陽放射を散乱・吸収することで地球上の放射収支に作用する直接効果によって、気温や大気境界層 (PBL) 高さなど大気環境動態を支配する気象場に影響を及ぼしている。しかし、(1)および(2)で使用した CMAQ および CAMx は、気象と大気質の計算を個別に行うオフラインモデルであり、このような気象-大気質間の相互作用が考慮されていない。そこで、2014 年 1~3 月の東アジア領域 (解像度 45km) において、気象モデル WRF v3.4 および化学輸送モデル CMAQ v5.0.2 からなるオンラインモデルを用いた通年計算を行った。WRF から CMAQ への単一方向のみの計算を行う 1-way と、CMAQ により得られたエアロゾル濃度場を WRF の放射計算にフィードバックすることでエアロゾル直接効果を考慮した 2-way で計算を実施し、それらの結果を比較することで、気象-大気質間の相互作用の影響を評価した。境界濃度、排出量、反応過程の条件は(2)の Ebase ケースと同一である。

### (4) 主要計算条件の影響評価

大気質モデルによる予測結果は、気象場や排出量といった主要入力条件、あるいは物理・化学サブモデルの設定条件によって変動する。大気質モデルを活用する上で、主要な計算条件の変更に伴う予測結果の変動幅を把握しておくことは重要である。また、予測結果に及ぼす影響が大きい入力条件、物理・化学過程を把握することは、大気質モデルの改善のためにも必要となる。そこで、中国で高濃度 PM<sub>2.5</sub> 汚染が観測された 2013 年 1 月を対象に、大気質モデル CMAQ を用いて複数の条件で計算を行い、計算条件の違いが PM<sub>2.5</sub> 予測結果に及ぼす影響を評価した。計算領域は水平方向 120×100 格子 (解像度 45km) 鉛直方向 30 層 (地表~上空 100hPa、第 1 層高さ約 55m) の東アジア領域とした。標準計算 (Base) では、気象場に WRF v3.4 (客観解析値 NCEP FNL、気象庁 MSM; PBL/地表面スキーム ACM2/PX; 大気全層の温位・混合比・水平風速にナッジング)、境界濃度に MOZART-4、排出量に INTEX-B、EAGrid2010-JAPAN、JATOP (自動車)、

OPRF、MEGAN v2.04 等、化学輸送に CMAQ v5.0.2 (気相反応 CB05; エアロゾル AERO6) を用いた。Base ケースから一部の条件を変更した計算として、FNL (客観解析値 FNL のみ)、ERA (客観解析値 ECMWF ERA-Interim のみ)、ERA+MSM (客観解析値 ERA-Interim、MSM)、SnowFNL1 (積雪情報を FNL より取得、Soil ナッジングあり、PBL 内ナッジングなし)、SnowFNL2 (積雪情報を FNL より取得、Soil ナッジングなし、PBL 内ナッジングなし)、SnowFNL3 (積雪情報を FNL より取得、Soil ナッジングなし、PBL 内ナッジングあり)、YSU (PBL/地表面スキーム YSU/Noah)、MYJ (PBL/地表面スキーム MYJ/Noah)、MYNN25 (PBL/地表面スキーム MYNN25/Noah)、Online1 (1-way オンライン WRF-CMAQ)、Online2 (2-way オンライン WRF-CMAQ)、Z1mod (第 1 層高さ約 40m)、KZUmin (都市域の鉛直拡散係数最小値を 1.0 m<sup>2</sup> s<sup>-1</sup> から他の土地利用と同じ 0.01 m<sup>2</sup> s<sup>-1</sup> に変更)、REASv2 (アジア域排出量 REAS v2)、HTAPv2 (アジア域排出量 HTAP v2)、W37 (WRF v3.7)、C51 (CMAQ v5.1)、W37C51 (WRF v3.7、CMAQ v5.1)、SP07 (気相反応 SAPRC07tc)、C51SP07 (CMAQ v5.1、気相反応 SAPRC07tc) の 20 条件で実施した。

### (5) PM<sub>2.5</sub> 再現性向上

PM<sub>2.5</sub> 濃度が過小評価された(2)の計算条件 (条件(2)) から、PM<sub>2.5</sub> 濃度の再現性を向上させるために、CMAQ の最新版の v5.1 への更新、アジア域排出の HTAP v2 への変更、反応過程のイソプレン由来 OA 二次生成改良版 SAPRC07tc への変更、土壌性ダスト飛散モデルの CMAQ v5.2beta 版からの移植、都市域鉛直拡散係数最小値の変更等を行った (条件(5))。

## 4. 研究成果

### (1) 複数大気質モデルの大気汚染再現性比較

大気質モデルの再現性評価には、近畿領域内の一般局のうち、国設局および PM<sub>2.5</sub> 濃度測定局の観測データを使用した。図 1 に、測定局平均での月別平均濃度を示す。夏季の O<sub>3</sub> および冬季の SO<sub>2</sub> で過大評価、夏季の PM<sub>2.5</sub> で過小評価の傾向となったが、全体としては季節変動が概ね再現された。両モデルで季節変動の傾向はほぼ同様となったが、CAMx は CMAQ に比べて、O<sub>3</sub> 以外の地上濃度を 10~20%程度高く計算する傾向があった。その原因のひとつとして、CMAQ では都市部で拡散係数の最小値が高く設定されていることが考えられる。図 2 に、大阪府堺市における PM<sub>2.5</sub> 主要 5 成分の季節平均濃度を示す。CMAQ と CAMx でともに、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> はやや過少、NO<sub>3</sub><sup>-</sup> は過大、OA は明らかに過小となり、課題は両モデルで共通であることが明らかとなった。

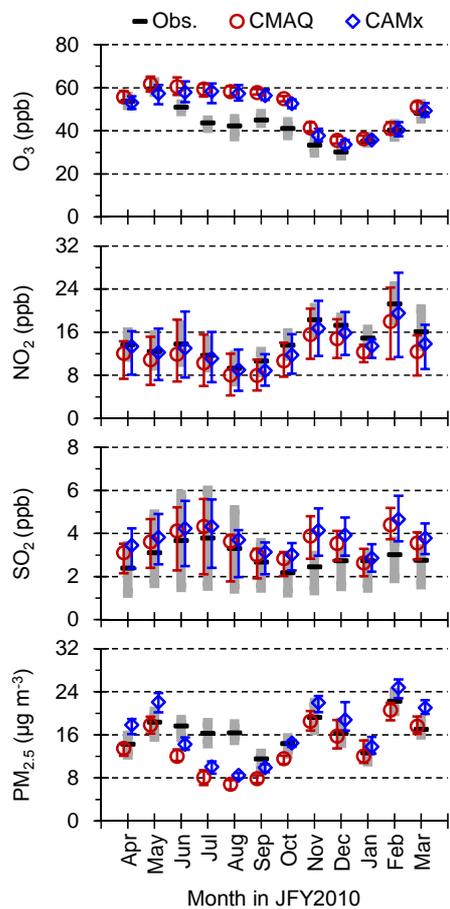


図 1 2010 年度月別全測定局平均濃度と測定局別平均濃度の 25～75 パーセンタイル値 (O<sub>3</sub>は日最大 8 時間値平均)

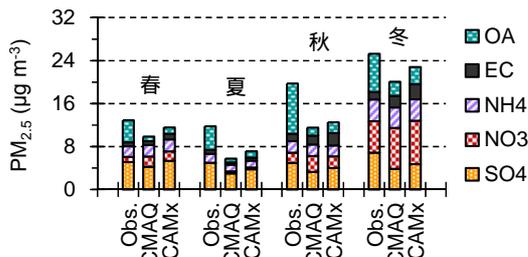


図 2 大阪府堺市における PM<sub>2.5</sub> 主要 5 成分の 2010 年度季節別 2 週間平均濃度

(2) 地域・越境汚染別の PM<sub>2.5</sub> 再現性評価

大気質モデルの再現性評価には、日本域の一般局のうち、PM<sub>2.5</sub> 濃度測定が実施された 42 局の観測データを使用した。図 3 に、地域・越境汚染日の日別判定局数を示す。夏季に地域汚染日、春季・冬季に越境汚染日の判定が集中している。図 4 に地域・越境汚染日の平均 PM<sub>2.5</sub> 濃度と正規化平均バイアス (NMB) を示す。大陸に近い西側で、越境汚染日の PM<sub>2.5</sub> 濃度は、地域汚染日より明らかに高くなった。一方、PM<sub>2.5</sub> 濃度の予測誤差は、地域汚染日で平均  $-5.5 \pm 5.1 \mu\text{g m}^{-3}$  ( $-26 \pm 24\%$ )、越境汚染日で平均  $2.8 \pm 3.1 \mu\text{g m}^{-3}$  ( $-10 \pm 12\%$ ) であり、地域汚染時に PM<sub>2.5</sub> 濃度の過小評価が顕著となることが明

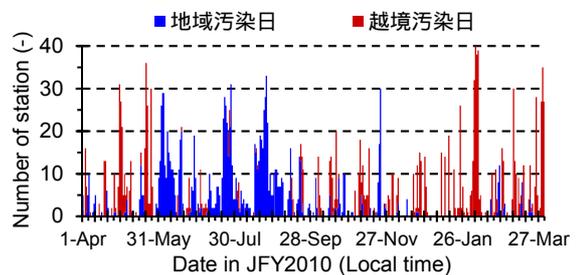


図 3 日本域における地域・越境汚染日の 2010 年度日別判定局数 (対象 42 局中)

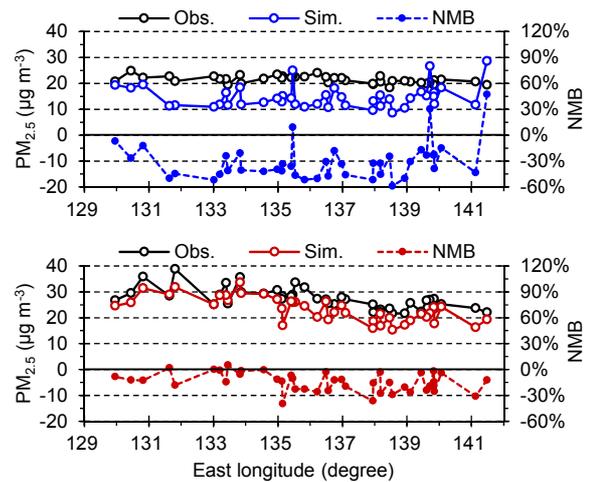


図 4 地域汚染日 (上) と越境汚染日 (下) の平均 PM<sub>2.5</sub> 濃度と NMB

らかとなった。したがって、PM<sub>2.5</sub> 濃度の過小評価を改善するためには、日本国内における一次排出・二次生成過程の解明について引き続き取り組みが必要である。

(3) 気象-大気質間の相互作用の影響評価

図 5 に、中国の 21 都市 (北京、上海、重慶等) と日本の 6 都市 (福岡、大阪、名古屋、東京、仙台、札幌) における観測値と 1-way および 2-way での計算値について平均 PM<sub>2.5</sub> 濃度を示す。1-way、2-way の計算でともに、大きく過大あるいは過小評価となった地点もあるが、全体として空間変動は良好に再現されている。対象 27 地点中 25 地点で 2-way が 1-way よりも PM<sub>2.5</sub> 濃度が高くなり、その傾向は高濃度地点でより顕著となった。図 6 に、2-way における平均 PM<sub>2.5</sub> 濃度の空間分

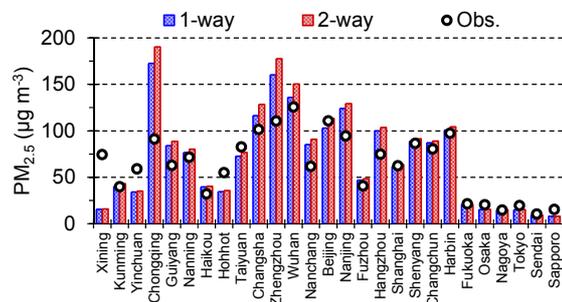


図 5 中国の 21 都市および日本の 6 都市における 2014 年 1～3 月の平均 PM<sub>2.5</sub> 濃度

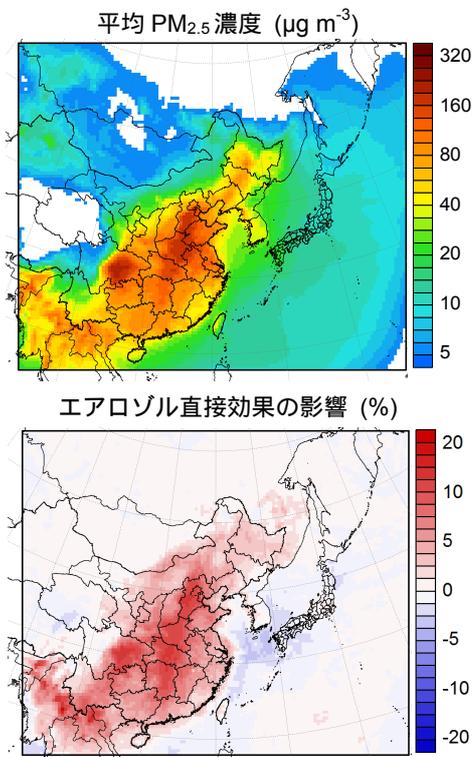


図6 2-wayにおける平均 PM<sub>2.5</sub> 濃度(上)とそれに対するエアロゾル直接効果の影響(下)

布と、1-way に対する 2-way の平均 PM<sub>2.5</sub> 濃度変化率の空間分布を示す。後者は、エアロゾル直接効果の PM<sub>2.5</sub> 予測に対する影響を示している。PM<sub>2.5</sub> 濃度は、大気汚染物質の発生源が集中する中国中央～東部で高くなった。エアロゾル直接効果の影響については、特に高 PM<sub>2.5</sub> 濃度地域で大きく、平均 PM<sub>2.5</sub> 濃度が 1-way に比べて 2-way で 20%以上上昇する地域も見られた。これらの地域では、高濃度エアロゾルによる散乱によって地表面に到達する太陽放射が減少し、地表温度が低下した。それに伴い、地上気温が低下し、地上大気が安定な状態となり、大気汚染物質が地表付近に滞留することで、より PM<sub>2.5</sub> 濃度が上昇した。一方、日本においては、2-way で平均 PM<sub>2.5</sub> 濃度が低下する場合も多かった。これは、風上の高濃度地域で PM<sub>2.5</sub> とその前駆物質が滞留し、日本への長距離輸送量が減少したためと考えられる。

#### (4) 主要計算条件の影響評価

図7に、北京と大阪における PM<sub>2.5</sub> 濃度の時系列変化について、観測値、Base 計算値および全ケース計算値の最小～最大を示す。図8に、各計算ケース間の比較として、北京と大阪における PM<sub>2.5</sub> 濃度再現性を NMB と Index of Agreement( IA )で示す。北京では、期間中で最も濃度が高かった 1月12日は過小評価となったが、計算条件によって結果が大きく異なった。このとき、全計算ケースで最も濃度が高くなったのは Online2 ( Base の約 1.5 倍 ) であり、高濃度エアロゾルの直

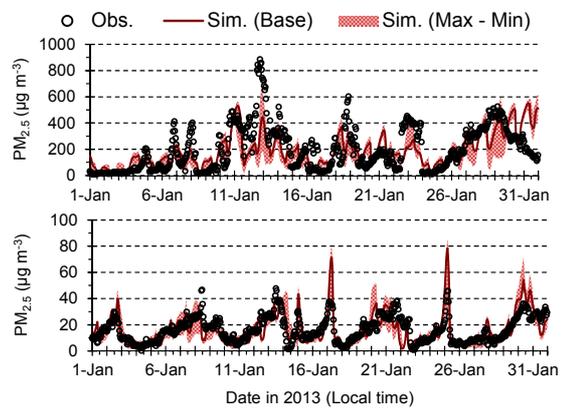


図7 北京(上)と大阪(下)における 2013 年 1 月の PM<sub>2.5</sub> 濃度の時系列変化

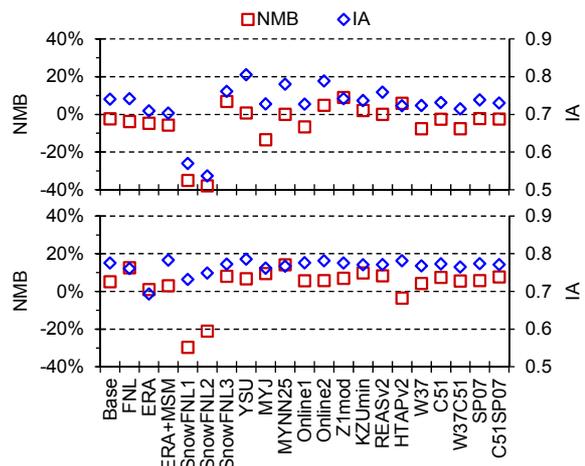


図8 北京(上)と大阪(下)における 2013 年 1 月の PM<sub>2.5</sub> 濃度再現性

接効果による地表面短波放射の減少が強く影響した。次いで濃度が高くなったのは YSU ( Base の約 1.3 倍 ) であった。以上の結果は、地域的な高濃度汚染に対しては、大気境界層内の鉛直混合の扱いによって地上濃度の計算結果が大きく変化することを示している。SnowFNL1 および SnowFNL2 については、Base に比べて大幅に濃度が低くなった。SnowFNL3 では Base に近い結果となったことから、PBL 内のナッジング条件によっても、地上濃度の計算結果が大きく変化することがわかる。大阪については、地域汚染だけでなく、長距離輸送の影響も強く受けることから、北京に比べて濃度の日内変動が小さくなった。また、各ケースの PM<sub>2.5</sub> 濃度再現性についても、大阪では北京に比べて計算条件の違いによる影響が小さく、本研究におけるいずれの計算条件でも、長距離輸送については概ね良好に再現された。

#### (5) PM<sub>2.5</sub> 再現性向上

条件(2)と条件(5)の計算結果の比較として、図9に、一般局平均での日平均 PM<sub>2.5</sub> 濃度時系列変化を、図10に、各一般局における年平均 PM<sub>2.5</sub> 濃度を示す。日平均 PM<sub>2.5</sub> 濃度については、越境汚染時(図3)の高濃度を含め、時間変動が良好に再現されている。また、

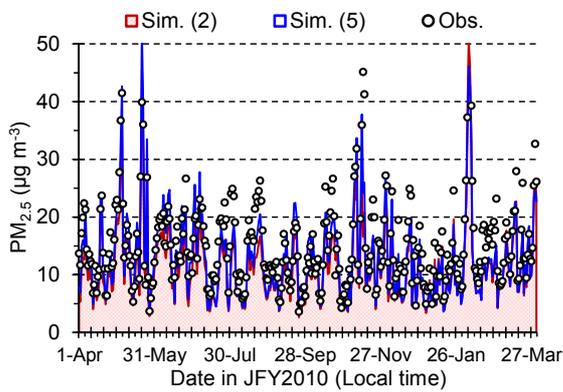


図9 2010年度における日本域一般局平均での日平均PM<sub>2.5</sub>濃度時系列変化

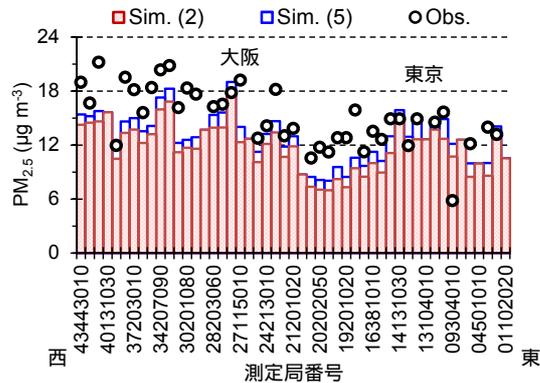


図10 2010年度における日本域各一般局の年平均PM<sub>2.5</sub>濃度

条件(5)では、OA二次生成の改良による夏季の過小評価の改善や土壌性ダスト飛散の改良による11月の黄砂イベント時の過小評価の改善等が見られる。年平均PM<sub>2.5</sub>濃度については、西から東にかけての空間変動が良好に再現されている。また、条件(5)では、多くの地点で過小評価が改善され、全局平均のPM<sub>2.5</sub>濃度に対して誤差は39%減少した。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計8件)

Shimadera H., Kojima T., Kondo A., 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*, 査読有, Vol. 2016, 2016, Article ID 5694251, 13 pages

DOI: 10.1155/2016/5694251

Shimadera H., Kojima T., Kondo A., Inoue Y., Performance comparison of CMAQ and CAMx for one-year PM<sub>2.5</sub> simulation in Japan, *International Journal of Environment and Pollution*, 査読有, Vol. 57 (3-4), 2015, pp. 146-160

DOI: 10.1504/IJEP.2015.074498

Araki S., Iwahashi K., Shimadera H., Yamamoto K., Kondo A., Air monitoring network optimization method using

chemical transport model and metaheuristics, *Atmospheric Environment*, 査読有, Vol. 122, 2015, pp. 22-30

DOI: 10.1016/j.atmosenv.2015.09.030

Nishimura H., Shimadera H., Kondo A., Bao H., Shrestha K.L., Inoue Y., Evaluation of light dependence of monoterpene emission and its effect on surface ozone concentration, *Atmospheric Environment*, 査読有, Vol. 104, 2015, pp. 143-153

DOI: 10.1016/j.atmosenv.2015.01.011

〔学会発表〕(計40件)

Shimadera H., Sensitivity of Simulated Severe PM<sub>2.5</sub> Pollution to WRF-CMAQ model Configurations, 15th Annual CMAS Conference, 24-26 October 2016, Chapel Hill, U.S.

Shimadera H., Evaluation of Air Quality Model Performance for PM<sub>2.5</sub> Simulation by Focusing on Long-range Transport and Local Pollution in Japan, 13th Atmospheric Sciences and Application to Air Quality, 10-13 November 2015, Kobe, Japan

Shimadera H., Evaluation of air quality model performance for long-term PM<sub>2.5</sub> simulation in Japan, 16th International Conference on Harmonisation within Atmospheric Dispersion Modelling for Regulatory Purposes, 8-11 September 2014, Verna, Bulgaria

Shimadera H., Comprehensive sensitivity analyses on air quality model performance for PM<sub>2.5</sub> simulation, 16th International Conference on Harmonisation within Atmospheric Dispersion Modelling for Regulatory Purposes, 8-11 September 2014, Verna, Bulgaria

## 6. 研究組織

(1) 研究代表者

嶋寺 光 (SHIMADERA, Hikari)

大阪大学・大学院工学研究科・助教

研究者番号: 20647367