

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 29 年 6 月 2 日現在

機関番号：14501

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2014～2016

課題番号：26340071

研究課題名（和文）大気中PM2.5濃度予測精度向上のための二次有機粒子シミュレーションの精緻化

研究課題名（英文）Enhancement of secondary organic aerosols simulation to improve prediction of atmospheric PM2.5 concentration

研究代表者

山地 一代（Kazuyo, Yamaji）

神戸大学・海事科学研究科・准教授

研究者番号：40399580

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,900,000円

研究成果の概要（和文）：大気中PM2.5質量濃度予測精度向上のために、人為起源の排出量の更新、気象状況を考慮した植生起源放出量の導入、および、有機物の揮発状態を考慮した有機粒子生成メカニズムを実装したモデルを導入しPM2.5質量濃度予測精度を評価した。排出量の効果は大気中の揮発性有機化合物の増加に現れた。有機エアロゾル成分の大気中濃度レベルの大幅な改善は期待できる結果となったが、逆に、他の成分（例えば、硫酸塩）の過小評価を加速するなど問題も確認できた。これらの結果により、モデルのPM2.5質量濃度の過小評価はわずかながら改善できた。

研究成果の概要（英文）：Reproducibility of PM2.5 concentration due to implementations of updated anthropogenic and biogenic emissions and a new aerosol mechanism including the volatility basis set were evaluated for improving the prediction of atmospheric PM2.5 concentration. Concentration levels of organic aerosol have been improved and that slightly affected on PM2.5 concentration levels. However, reproducibility of the other species (ex. sulfate) was not necessarily improved.

研究分野：大気環境科学

キーワード：大気汚染 PM2.5 エアロゾル CTM

### 1. 研究開始当初の背景

大気環境問題が深刻なアジア諸国のなかでも、人口や産業、交通が集中する、中国やインドにおける Particulate Matter 2.5 (PM2.5) が極めて高濃度となったことは記憶に新しい。また、疫学研究を通して、その地域に居住する人々の健康被害に関しては、近年、ますます注目を集めている。特に、中国中東部における PM2.5 の高濃度状況は、風下に位置するわが国にても常に注目されている大気環境問題の一つある。この種の大気環境問題に関しては、以前より問題視されており、今後も有効な大気環境対策が実施されない限り、問題解決には至らないと考えられている。この問題の理解と解決に向けて、2006 年に、排出量が集中する中国中東部における国際的な大気質観測キャンペーンが実施された。さらに、この結果とリンクさせた、排出量インベントリの精緻化とその影響評価、ソース・レセプタ解析を含む、アジア地域の広域大気汚染の動態に関する多角的な研究が開始した。この成果の一つは、農業残さの野焼き起源の排出量インベントリの精緻化によって、一次汚染物質（例えば、ブラックカーボンや一酸化炭素）濃度のモデル予測精度が大幅に向上した点である。同時に、依然として含まれているモデルの過小評価の原因が、人為起源排出量の過小である点を指摘した。一方、大気中にて二次的に生成されるオゾンや二次生成有機エアロゾルに関しては、野焼き起源の排出量推計の精緻化による効果が、モデル結果に顕著にはあらわれなかった。とりわけ、数値モデルシミュレーションが、有機エアロゾル質量濃度の 2-5 割程度しか説明できていないことが判明した。この後、環境省地球環境研究総合推進費戦略研究課題（数値モデルと観測を総合した東アジア・半球規模のオゾン・エアロゾル汚染に関する研究）にて、モデルと観測による、オゾン・エアロゾルの越境・国内寄与評価研究を実施している。この結果、我が国の比較的清浄な地域にて、モデルが大気汚染塊の到達を表現できていたが、PM2.5 質量濃度を過小評価する事が明らかとなった。さらに、PM2.5 の成分別観測濃度とモデル濃度の詳細な比較と解析の結果は、モデルが有機エアロゾル質量濃度の 5 割程度しか表現できていないことが判明した。加えて、同時期に実施された、別の推進費課題（わが国都市部の PM2.5 に対する大気質モデルの妥当性と予測誤差の評価）にて、我が国の都市域の PM2.5 を対象としたモデル間相互比較実験が実施され、上述の結果と同様に、参加モデルが一律に有機エアロゾル質量濃度を過小評価することを示した。今日の大気環境問題対策にとって数値モデルシミュレーションの担う責任は大きくなりつつあるが、そのモデル再現性に重要な問題が含まれている事が現状である。故に、既知の大幅な PM2.5 の過小評価、特に、最大の

原因である有機エアロゾルの二次生成量の不足量を定量化し、モデルによる濃度再現を向上させる事が急務であるという認識が本研究の着想に至った経緯である。

### 2. 研究の目的

現行の多くの 3 次元大気質動態モデルでは、明らかに PM2.5 質量濃度を過小評価しており、その過小評価の要因が、一般的な大気物質動態モデルが有機エアロゾル質量濃度を大幅に過小していることであると、広く指摘されている。そこで、本研究では、この過小評価の原因を明らかにするとともに、PM2.5 モデル予測精度の向上を目的として次の 2 点に取り組む。モデル評価は、植生起源の放出量が増大する、また、光化学的二次生成が盛んになる夏季（2013 年 7 月 20 日-8 月 20 日）とした。

(1) 有機エアロゾルの二次生成に関係する、非メタン炭化水素の成分ごとの排出量インベントリの精緻化に取り組む。特に、有機エアロゾルの重要なソースである植物起源の非メタン炭化水素について、時間毎の気象状況を考慮した排出推計量を 3 次元大気質動態モデルへの取り込みモデル実験を行なう。その際、新規有機エアロゾルメカニズムに対応した成分分配を行なう。

(2) 新規有機エアロゾルメカニズム (VBS: volatility basis set) を実装した 3 次元大気質動態モデルを東アジア地域へ適応させ、その効果を評価する。

### 3. 研究の方法

(1) 3 次元大気質動態モデル入力用排出量の精緻化のために、既存の衛星・地上観測データとモデルシミュレーション結果の比較・解析を行なった。対象物質は、有機エアロゾルの主要な前駆物質とした。

(2) (1) の結果、夏季、植物由来の非メタン炭化水素の時空間変動の不正確な部分が判明した。この結果に基づき、本研究では、まず、気象モデルの出力値利用した植生起源の大気質放出量を算出し、3 次元大気質動態モデルに導入した。さらに、人為起源の排出量に関しては、最新の排出インベントリを採用した。

(3) 3 次元大気質動態モデルとしては、米国 EPA にて開発されている、CMAQ 採用し、従来利用する、V4.7.1 (化学スキーム: SPRAC99、エアロゾルスキーム: AER05) に加えて、V5.0.2 (化学スキーム: SPRAC07、エアロゾルスキーム: AER06) および、V5.0.2 をベースに揮発性有機化合物の揮発性に応じた粒子生成過程を解く V5.0.2-VBS 化学・エアロゾルスキーム: CB05、エアロゾルスキーム: AER06-VBS) による比較実験を実施した。

(4) 夏季(2013 年 7-8 月)の連続計算を実施し、測定データと比較する事により再現性を評価した。

#### 4. 研究成果

(1) 従来利用している、植物起源排出インベントリは、月平均値や日平均値であったために、気象環境の変化に伴う植物起源の大気物質放出量が表現できていない。そこで、本研究では、3次元大気質動態モデルに入力する気象モデル値を同じ条件にて、植生起源の放出量を1時間値にて算出し、3次元大気質動態モデルの入力値として利用した。加えて、人為起源放出量は最新のものに更新をした。

図1には、各モデル設定にて計算された、揮発性有機化合物(VOC)の全量の夏季の空間分布を示す。3種類の化学-エアロゾルメカニズムの組み合わせの結果のみであるが、各メカニズムによってVOCの計算濃度が大きく異なり、CB05-AER06-VBSの組み合わせにてVOCの大気中濃度が高くなる傾向が見られた。一方、SPRAC99-AER05の組み合わせでは他の設定と比較して、VOCの全量濃度が低くなる傾向が見られた。

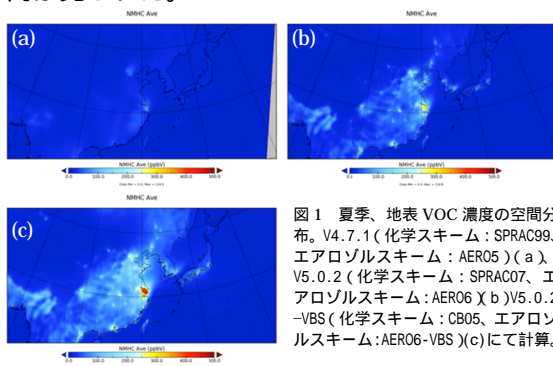


図1 夏季、地表VOC濃度の空間分布。V4.7.1(化学スキーム:SPRAC99、エアロゾルスキーム:AER05)(a)、V5.0.2(化学スキーム:SPRAC07、エアロゾルスキーム:AER06)(b)V5.0.2-VBS(化学スキーム:CB05、エアロゾルスキーム:AER06-VBS)(c)にて計算。

図2には、上述と同じモデル設定にて計算されたPM2.5濃度の空間分布を示す。PM2.5についても、SPRAC99-AER05にて、他の設定よりも低濃度の傾向が見られた。一方、CB05-AER06-VBSとSPRAC07-AER06間では、大きな差が現れなかったものの、若干ではあるが、CB05-AER06-VBSよりもSPRAC07-AER06にて濃度が高くなる傾向がみられた。

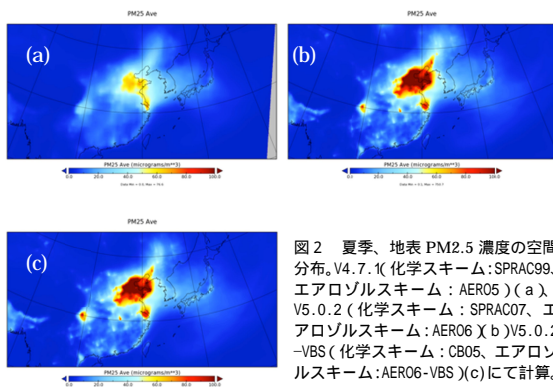


図2 夏季、地表PM2.5濃度の空間分布。V4.7.1(化学スキーム:SPRAC99、エアロゾルスキーム:AER05)(a)、V5.0.2(化学スキーム:SPRAC07、エアロゾルスキーム:AER06)(b)V5.0.2-VBS(化学スキーム:CB05、エアロゾルスキーム:AER06-VBS)(c)にて計算。

(2) PM2.5およびその成分濃度の再現性を評価するために、環境省微小粒子状物質(PM2.5)成分分析調査における大阪府の観測値点(10地点)のデータとの比較を行なった。表1には、SPRAC07-AER06の結果、表

2にはCB05-AER06-VBSの結果を示している。各表にて、各PM2.5成分とPM2.5総質量の観測値、モデル値、および、各種統計指標を示す。

PM2.5の有機エアロゾル(OA)成分に関して、揮発性有機化合物の揮発性に応じた粒子生成過程を解く過程を考慮した化学-エアロゾルメカニズム(SPRAC07-AER06)では、揮発性を考慮しないモデル(CB05-AER06-VBS)と比較して、有機エアロゾルの質量濃度が、2.53  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  増加(約80%増加)し、平均値=5.73  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (MB=0.23  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、NMB=4.4%)と、観測値(5.50  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )に近づいた。観測と解離に関しては改善が見られたが、一方、RMSEは1.56(SPRAC07-AER06)と3.78(CB05-AER06-VBS)、決定係数( $R^2$ )は0.73(SPRAC07-AER06)と0.43(CB05-AER06-VBS)となり、必ずしも再現性が向上したとは言い難い結果となった。

他の成分については、CB05-AER06-VBS(MB=0.73  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )はSPRAC07-AER06(MB=-1.43  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )と比較して、観測値に近づく結果となった。一方、硫酸塩エアロゾル成分( $\text{SO}_4^{2-}$ )では、CB05-AER06-VBS(MB=-3.33  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )はSPRAC07-AER06(MB=-0.34  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )と過小評価傾向が増大する結果となった。これらの結果により、PM2.5の総質量濃度に関しては、平均濃度については若干の改善効果(SPRAC07-AER06:MB=-2.87  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ /CB05-AER06-VBS:MB=-1.83  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )が見られたが、その他の統計指標にては改善効果が見られなかった。

表1 2013年夏季の観測期間におけるPM2.5成分質量とPM2.5総質量のモデル値(SPRAC07-AER06)と観測値の平均濃度( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )および、モデル評価指標。大阪府(10観測地点)における平均値を示す。

大阪	SO4	NO3	NH4	OC	EC	PM25
モデル	9.17	1.18	3.52	3.20	0.77	20.05
観測	9.51	0.23	3.51	5.50	2.20	22.92
MB	-0.34	0.95	0.01	-2.30	-1.43	-2.87
ME	1.96	0.98	0.78	1.31	1.43	4.99
RMSE	2.48	1.38	1.01	1.56	1.51	6.14
FB	-2.04	115.66	-0.61	-28.62	-95.96	-16.00
FE	0.11	0.61	0.12	0.21	0.48	0.12
NMB	-3.03	471.16	0.76	-40.91	-64.08	-12.47
NME	20.72	481.34	22.54	23.79	64.08	21.79
MNB	1.54	—	3.57	-18.46	-63.72	-11.91
MNE	22.26	—	23.94	33.80	63.72	21.98
UPA	-0.11	421.44	9.32	20.56	-54.76	2.90
I of A	0.90	0.60	0.89	0.87	0.46	0.88
$r^2$	0.69	0.40	0.62	0.73	0.03	0.63

表2 2013年夏季の観測期間におけるPM2.5成分質量とPM2.5総質量のモデル値(CB05-AERO6-VBS)と観測値の平均濃度(μg/m<sup>3</sup>)、および、モデル評価指標。大阪府(10観測地点)における平均値を示す。

大阪	S04	NO3	NH4	OC	EC	PM25
モデル	6.19	4.05	3.51	5.73	2.90	21.10
観測	9.51	0.23	3.51	5.50	2.20	22.92
MB	-3.33	3.82	0.00	0.23	0.70	-1.83
ME	4.01	3.82	1.08	3.14	3.23	6.18
RMSE	4.99	5.08	1.35	3.78	3.64	7.50
FB	-34.86	170.57	1.37	5.08	-64.41	-8.23
FE	0.24	0.85	0.17	0.25	0.48	0.15
NMB	-34.35	1804.42	0.60	4.41	41.42	-7.91
NME	41.89	1804.42	31.04	56.59	154.16	26.95
MNB	-22.20	—	11.47	46.72	46.99	-1.43
MNE	40.79	—	37.46	79.51	154.63	29.95
UPA	-41.58	1666.51	2.21	101.24	87.09	-0.76
I of A	0.54	0.62	0.76	0.69	0.40	0.80
r <sup>2</sup>	0.07	0.56	0.36	0.43	0.01	0.44

- 人為起源の排出量の更新、および、気象状況を考慮した植生起源放出量を利用する事で、従来の排出量と比較して、有機エアロゾルの大気中濃度が大幅に増大した。
- 有機物の揮発性状態を考慮した有機エアロゾルメカニズム(VBS: volatility basis set)を実装した3次元大気質動態モデルを東アジア地域へ適応させることで、有機エアロゾル(PM2.5成分とした)が大幅に増加した。加えて、EC濃度も増加した。
- 一方、硫酸塩エアロゾル成分濃度が減少し、過小評価となる傾向を示した。これは化学スキーム(SAPRACとCB5)の違いに起因するのではなく、同一化学メカニズムにVBS有機粒子生成メカニズムを加えた際にも確認されているが、原因が分かっていない。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[学会発表](計6件)

山地一代 他、都市域を対象とした大気質モデルによる二次大気汚染物質の再現性の評価、第57回大気環境学会年会、札幌、2016  
Kazuyo YAMAJI et al., Evaluation of performance of simulated secondary pollutants by using air quality models for urban areas in Japan, 2016 IGAC Science Conference, Breckenridge, 2016

松井駿佑、山地一代、茶谷聡、WRF CMAQによる関西都市域のPM2.5とその成分の再現性について、大気環境学会近畿支部第5回支部研究発表会、大阪、2016

Kazuyo YAMAJI, et al., Study on factors of overestimated summertime ozone

concentration by a regional chemical transport model over Southwestern seas of Japan, The 13 th International Conference on Atmospheric Sciences and Applications to Air Quality, Kobe, 2015

山地一代、排出インベントリの概要及び化学輸送モデルへの活用について、講演会「全環研酸性雨データの活用例と排出インベントリを活用した大気質予測について」、鳥羽、2015

Kazuyo YAMAJI, et al., 福江島でのオゾン・PM2.5、前駆物質の通年観測のモデル解析、第55回大気環境学会年、松山、2014

#### 6. 研究組織

##### (1)研究代表者

山地 一代 (KAZUYO YAMAJI)

神戸大学・海事科学研究科・准教授

研究者番号：40399580