

Environment Research and Technology Development Fund

環境研究総合推進費 終了研究成果報告書

大気中の二次汚染物質に対する発生源寄与推計と対策立案に資する
規範的モデルの確立
(5-1601)

平成28年度～平成30年度

Establishment of a Reference Modeling for Source Apportionment and Effective Strategy Making
to Suppress Secondary Air Pollutants

〈研究代表機関〉

国立研究開発法人国立環境研究所

〈研究分担機関〉

神戸大学

一般財団法人電力中央研究所

明星大学

2019年5月

目次

I. 成果の概要	1
1. はじめに (研究背景等)	
2. 研究開発目的	
3. 研究開発の方法	
4. 結果及び考察	
5. 本研究により得られた主な成果	
6. 研究成果の主な発表状況	
7. 研究者略歴	
II. 成果の詳細	
II-1 モデルの推計精度向上と対策効果の評価に資する排出インベントリの開発 (国立研究開発法人国立環境研究所)	14
要旨	
1. はじめに	
2. 研究開発目的	
3. 研究開発方法	
4. 結果及び考察	
5. 本研究により得られた成果	
6. 国際共同研究等の状況	
7. 研究成果の発表状況	
8. 引用文献	
II-2 モデル間相互比較に基づく発生源寄与割合の総合的・統合的評価手法の開発 (神戸大学)	36
要旨	
1. はじめに	
2. 研究開発目的	
3. 研究開発方法	
4. 結果及び考察	
5. 本研究により得られた成果	
6. 国際共同研究等の状況	
7. 研究成果の発表状況	
8. 引用文献	
II-3 PM _{2.5} および関連ガス成分の地表面フラックスの精密測定とモデル化 (一般財団法人電力中央研究所)	60
要旨	
1. はじめに	
2. 研究開発目的	
3. 研究開発方法	

4. 結果及び考察
5. 本研究により得られた成果
6. 国際共同研究等の状況
7. 研究成果の発表状況
8. 引用文献

II-4 0x高濃度事象の立体構造把握及びモデル不確実性評価を対象とした観測研究 75
(明星大学)

要旨

1. はじめに
2. 研究開発目的
3. 研究開発方法
4. 結果及び考察
5. 本研究により得られた成果
6. 国際共同研究等の状況
7. 研究成果の発表状況
8. 引用文献

III. 英文Abstract

. 97

I. 成果の概要

課題名 5-1601 大気中の二次汚染物質に対する発生源寄与推計と対策立案に資する規範的モデルの確立

課題代表者名 茶谷 聡（国立研究開発法人国立環境研究所地域環境研究センター
大気環境モデリング研究室主任研究員）

研究実施期間 平成28～30年度

累計予算額 118,168千円
（うち平成28年度：40,057千円、平成29年度：40,057千円、平成30年度：38,054千円）
累計予算額は、間接経費を含む。

本研究のキーワード 大気質モデル、二次汚染物質、PM_{2.5}、光化学オキシダント、モデル間相互比較、
排出インベントリ、集中観測

研究体制

- (1)モデルの推計精度向上と対策効果の評価に資する排出インベントリの開発
（国立研究開発法人国立環境研究所）
- (2)モデル間相互比較に基づく発生源寄与割合の総合的・統合的評価手法の開発（神戸大学）
- (3)PM_{2.5}および関連ガス成分の地表面フラックスの精密測定とモデル化
（一般財団法人電力中央研究所）
- (4)O_x高濃度事象の立体構造把握及びモデル不確実性評価を対象とした観測研究（明星大学）

1. はじめに（研究背景等）

微小粒子状物質（PM_{2.5}）の環境基準の達成率は高まりつつあるが、依然として一部の地域では達成されていない。同じく環境基準の達成率が著しく低い光化学オキシダント（O_x）も含めて、早急な対策が求められている。費用対効果の高い対策を立案するためには、PM_{2.5}やO_xに対する寄与の高い発生源を見出す必要がある。しかしながら、PM_{2.5}の大半やO_xは、大気中での複雑な光化学反応を経て二次的に生成される汚染物質（二次汚染物質）であるため、発生源寄与を求めるのは容易ではない。あらゆる発生源からの原因物質の排出実態を正確に表現した排出インベントリと、大気中での二次汚染物質の物理化学的挙動を正確に表現できる大気質モデルが必要になる。大気質モデルを用いた発生源寄与割合の推計は既に行われてきているが、モデルが抱える問題点が適切に考慮されているとは言い難い。例えば、現行のモデルでは、二次汚染物質による高濃度大気汚染を十分に精度よく再現することはできない。この問題点を正しく理解せず、精度の低い発生源寄与割合を鵜呑みにして対策が立案されてしまうと、想定された大気質改善効果が得られず、多大な社会・経済的損失が生じてしまう恐れがある。モデルによる計算結果を有効な対策に結びつけるためには、二次汚染物質の濃度再現性を可能な限り向上させると同時に、モデルの妥当性や不確実性を正確に理解することが求められる。

2. 研究開発目的

大気中の二次汚染物質濃度を効率よく低減させるためには、濃度に対する寄与の大きい発生源の原因物質の排出量を削減するのが有効である。そのためには、二次汚染物質濃度に対する発生源の寄与割合を明らかにする必要がある。本研究では、国内外のモデル研究者が広く参加する大気質モデル間の相互比較を通して、二次汚染物質による高濃度大気汚染のメカニズムの解明に加えて、有効な対策への的確な情報源となり得る発生源寄与割合をより正確に推計できる、信頼性の高い規範的なモデルを確立し、有効な対策立案に資することを目的とする。そのために、サブテーマ(1)では、モデルへの重要な入力データである排出インベントリについ

て、モデル間相互比較結果を踏まえて独自に構築や改良を行い、使いやすい標準的なデータベースとして確立させる。サブテーマ(3)では、ガス状・粒子状硝酸塩の乾性沈着速度の精密測定、粒子組成の日内変動のデータ取得、湿潤粒子表面における硫酸塩不均一生成の評価を行い、モデルによるPM_{2.5}、特に既往研究で課題として指摘されている無機二次粒子濃度の再現性向上を実現する。サブテーマ(4)では、モデルで計算されるO_x濃度に大きく影響する、陸域混合層内におけるO_xの鉛直拡散ならびに海域におけるO_x存在量と陸域への輸送を定量化するための観測を実施し、モデルによるO_x濃度の再現性向上を実現する。各サブテーマの成果を踏まえて、サブテーマ(2)でモデル間相互比較を行い、複数のモデルによる二次汚染物質の濃度再現性の相違の原因を解明し、それをモデルならびに設定や入力データなどの改良に反映させることにより、規範的なモデルを確立させる。さらに、モデルで計算される二次汚染物質の発生源寄与割合についても相互比較も行った上で、モデルによる結果の妥当性や不確かさをどのように理解し有効な対策立案に生かせばよいかという考え方を明確にする。

3. 研究開発の方法

(1) モデルの推計精度向上と対策効果の評価に資する排出インベントリの開発

サブテーマ(2)が実施する大気質モデル間相互比較計算のPhase1に提供するために、国内外のあらゆる発生源について、既存の最新の排出インベントリデータを集約した。全ての排出インベントリデータについて、モデルの対象領域への水平・鉛直分解、月・曜日・時間分解、複数の化学反応メカニズムに対応した組成分解を施し、計算対象期間内の全日別、時間別、対象領域別、化学反応メカニズム別の排出量入力データファイルを作成した。ファイルはサーバーに格納し、モデル間相互比較の参加者がダウンロードして使用できるようにした。サーバーへのアクセスを有しない参加者にはハードディスクでファイルを配布した。4種類の化学反応メカニズムについて、モデルで計算される汚染物質濃度への影響を評価した。

モデル間相互比較のPhase1においては、モデルによるPM_{2.5}中の有機成分の過小評価やO_xの大部分に相当するオゾンの過大評価などの問題点が見出され、関連する原因物質の排出インベントリの改良が求められた。揮発性有機化合物(Volatile Organic Compound、VOC)は、PM_{2.5}中の有機二次粒子とオゾンの両方の重要な原因物質である。日本全国のVOCの排出量総量に対しては、植物から排出されるものが半分以上の寄与を占めていると言われていることから、植物起源VOC排出インベントリに改良を施すことにした。日本国内の詳細な植生分布には、環境省による植生調査データを利用した。主要樹種から排出されるVOCの排出係数には、既往文献における報告値を集約した値を使用した。それらを入力データとして、日本全国の植物起源VOC排出量を排出量推計モデルのModel of Emissions of Gases and Aerosols from Nature(MEGAN)で推計できるようにした。新たに整備した植生分布と排出係数が、MEGANで推計される植物起源VOC排出量、ならびに大気質モデルCommunity Multi-scale Air Quality model(CMAQ)で計算される汚染物質濃度、さらには植生分布データを気象モデルWeather Research and Forecasting(WRF)への土地利用入力データとして使用した際の気象場への影響を評価した。

モデル間相互比較のPhase1においては、モデルによるPM_{2.5}中の硫酸塩の過小評価が見出され、改善が求められた。サブテーマ(3)での検討結果から、硫酸塩の二次生成に対して、鉄とマンガンが絡む不均一反応の重要性が示唆された。日本以外については、既往文献を基に、粒子中の鉄とマンガンを含む組成割合を新たに適用した。日本国内については、固定発生源排出インベントリを改良して対処することにした。従来の固定発生源排出インベントリは、業種別、燃料種別の燃料消費量と排出係数を掛け合わせてばいじんの排出量を推計し、業種別の粒径割合と燃料種別の組成プロファイルを乗じてPM_{2.5}の成分別の排出量を求めていた。しかしながら、この方法では鉄やマンガンを多く排出していると考えられる金属炉などの施設種による排出特性の違いを表現することができないため、施設種別の固定発生源排出インベントリを新たに構築することにした。業種別、燃料種別、施設種別のばいじんの排出量は、燃料種別、施設種別の排出係数に、業種別、燃料種別の燃料消費量を乗じ、さらに業種別、燃料種別、施設種別の燃料消費量割合を乗じることによって求めた。燃料種別、施設種別のばいじんの排出係数と、業種別、燃料種別、施設種別の燃料消費量割合は、環境省より貸与を受けた2012年度(2011年度実績)大気汚染物質排出量総合調査(マップ調査)の調査票データを解析して算出した。ばいじんからPM₁₀、浮遊粒子状物質(Suspended Particulate Matter; SPM)、PM_{2.5}に分解するための比率には、環

境省PM_{2.5}排出インベントリで用いられている値を施設種別に整理したものをを用いた。さらに、PM_{2.5}中の組成割合プロファイルを集約したSPECIATEを用いて、PM_{2.5}を鉄とマンガンを含む成分に分解した。

その他、モデル間相互比較の結果に基づき、未把握VOC発生源やアンモニア排出量推計の見直しなどの検討を行い、排出インベントリの改良を図った。

本研究で新たに構築した排出インベントリは、グリッド別排出量データの形式で整備した。しかしながら、収集した他の排出インベントリを含めて、データを大気質モデルで直接読み込めるわけではなく、モデルが必要とする形式に変換することが求められる。そこで、本研究で構築もしくは収集した排出インベントリのうち、植物起源VOC排出インベントリを除く全てについて、データをモデルが必要とする形式に変換するためのツールを新たに整備した。

(2)モデル間相互比較に基づく発生源寄与割合の総合的・統合的評価手法の開発

国内外の研究者が参加する大気質モデル間相互比較プロジェクト(J-STREAM: Japan's Study for REference Air quality Modeling)を通して、各モデル利用者の設定の違いに起因する汚染物質濃度の計算結果の差異を明らかにし、モデルが扱う各種プロセスや排出インベントリなどの要改良箇所の特定と、最適なモデル設定の提案を図った。そのために、常監局などにおける観測値との比較による季節毎の再現性の検証(Phase1)、関連研究課題にて実施されたPM_{2.5}成分ならびにオゾンの集中観測結果との比較による高濃度の再現性の検証(Phase2)、高濃度時を対象とした発生源影響解析におけるモデルおよび評価手法による違いの検証(Phase3)を実施した。

気象シミュレーションの基本モデルフレームにはWRF、大気質シミュレーションの基本モデルフレームにはCMAQを利用した。対象領域は、東アジア域(D1)、日本域(D2)、関西域(D3)、関東域(D4)にて構成し、空間解像度は45km(D1)、15km(D2)、5km(D3)、5km(D4)、鉛直層は27層とした。Phase1は、2013年冬季～2014年冬季の5季節に実施されたPM_{2.5}成分測定期間、Phase2は2016年冬季、2017年春季、2017年夏季の集中観測期間、Phase3は、PM_{2.5}の濃度上昇をモデルにて比較的良好に再現できた2016年冬季を対象期間とした。また、Phase3では、2016年度の4季節を対象とした複数の発生源影響解析手法の比較実験も実施した。基本モデルフレームにて得られた気象場、初期濃度、境界濃度と、サブテーマ(1)で構築された排出量データを共通入力データセットとして相互比較の参加者に配布し、計算の実行を依頼した。一部の参加者は独自のモデル設定や入力データによる計算も行った。得られた計算結果の提出を受けて解析を行った。

なお、Phase1～2において、気象モデル設定の違いが気象場だけではなく大気質モデルで計算される二次汚染物質濃度に大きな影響を与えることが判明した。そこで、種々の感度実験を行うとともに、相互比較実験参加者、研究協力者の知見、国外研究機関の専門家からの助言に基づき、気象モデル設定の大幅な改良を行った。

(3)PM_{2.5}および関連ガス成分の地表面フラックスの精密測定とモデル化

大気質モデルによるPM_{2.5}濃度予測の課題として、硝酸塩の過大評価が知られており、沈着速度の重要性が指摘されている。乾性沈着とガス粒子平衡の相互作用により、硝酸塩の主成分である硝酸アンモニウムの沈着速度が見かけ上加速すると考えられる。この加速化を観測的に捉えるため、硝酸アンモニウムと関連ガス成分濃度の鉛直勾配を測定した。デニューダ付きフィルタパックを2高度に設置し、ガス状硝酸、ガス状アンモニア、PM_{2.5}を別々に捕集できるようにした。観測は、2016年に茨城県つくば市真瀬の水田で実施した結果を踏まえて仕様を見直し、2018年2月から神奈川県横須賀市長坂の草地で実施した。捕集は隔週の2日間もしくは3日間、昼と夜に分けて行った。

大気質モデルは一般に1時間濃度を出力するが、これを検証可能なPM_{2.5}主要成分の観測濃度データはきわめて限定的である。本研究では、大気質モデル検証用の1時間濃度を複数地点で得るとともに、炭素成分の濃度変動の時間・空間スケールを把握することを目的に、最近開発された炭素成分の自動連続モニタで1時間値の連続観測を行った。測定は東京都狛江市の電力中央研究所(以下、狛江)で実施したが、東京都江東区の東京都環境科学研究所(以下、江東)と埼玉県加須市の埼玉県環境科学国際センター(以下、加須)における測定結果と併せて解析した。本研究の観測は2016年度6月1日に開始し、2017年4月末に終了したが、解析には2016

年2月から独自に行われていたデータも使用した。ECTレーサ法を用い、有機炭素(OC)のうちの二次生成成分(SOC)の推計も行った。

大気質モデルによる冬季の硫酸塩の過小評価の原因を探るため、モデルにおける硫酸塩の不均一生成について検討を行った。近年、硝酸塩の不均一生成に加えて硫酸塩の不均一生成についても見直しが進められており、最新の知見を導入しサブモデルの予測精度改善を図った。

(4)O_x高濃度事象の立体構造把握及びモデル不確実性評価を対象とした観測研究

夏季におけるオゾンの高濃度化メカニズムの解明には、ローカルな二次生成に加えて海域からの輸送、ならびに混合層の発達に伴う上空滞留オゾンの地表付近への取り込みを包括的に評価・解析することが求められる。このような立体的かつ広域的な解析を行うためには大気質モデルが必須となるが、大気質モデルは多くの場合で地表面濃度に対してのみ検証が行われているため、海域および鉛直方向におけるオゾン濃度観測も併せて行う必要がある。そこで本研究では、モデルで計算されるオゾン濃度に大きく影響する陸域混合層内におけるオゾン鉛直分布および海域におけるオゾン存在量と陸域への輸送を定量化するための観測を実施し、その取得データを対象に、モデルの再現性向上を目的としたパラメータ感度解析を実施した。

海域での観測は、オゾンが海域を通じて関東南部に輸送される現象を検証するために、伊豆諸島の新島で行った。2016年度と2017年度の夏に約1週間、新島の西海岸に面する民宿にオゾン測定器を設置して、時間平均濃度の連続測定を実施した。オゾン鉛直分布の観測は、首都圏に近い地域での把握を行うため、2016年度及び2017年度は神奈川県横浜市の横浜国立大学の敷地内、2018年度は神奈川県平塚市において行った。2016年度は3日間、2017年は2日間、2018年度は2日間、各日2～4回、オゾンゾンデを放球し、オゾン濃度と関連気象要素の鉛直分布を観測した。解析には、埼玉県鴻巣市の鴻巣局および神奈川県横浜市の保土ヶ谷局(横浜国立大学最寄り)をはじめとする常時監視局における観測データも用いた。

なお、本報告書では2017年度のデータを「大気質モデルの立体的再現性検証」における検証用データとして、2018年度のデータを「夏季のオゾン高濃度事象の立体構造」を把握するデータとして紹介する。

4. 結果及び考察

(1)モデルの推計精度向上と対策効果の評価に資する排出インベントリの開発

①複数の化学反応メカニズムによる影響評価

新たに構築した4種類の化学反応メカニズム(SAPRC07、CB05、SAPRC99、RACM2)別の排出量入力データを使用し、2013年の夏季を対象に、CMAQで計算されるオゾン濃度への影響を評価した。SAPRC07を使用した場合に比べて、CB05を使用した場合には、全域でオゾン濃度が最大で10ppb程度低くなった。RACM2を使用した場合には、オゾン濃度が日本の内陸部ではSAPRC07と同等、海上では低くなった。SAPRC99を使用した場合には、オゾン濃度が都市部周辺で高く、それ以外の地域では低くなった。CMAQで計算されるオゾン濃度は過大評価であるため、CB05を使用した場合が最も観測値に近くなったが、観測値と計算値の乖離が最大40ppbにも達するのに対して、メカニズムの違いによる影響は最大10ppb程度に留まり、それだけで観測値と計算値の乖離を説明できるものではなかった。CB05だけがVOC排出量の反応性が低く評価されるなどの問題もあり、オゾン濃度が観測値に近いという理由だけでCB05が最適な化学反応メカニズムだと判断するのは妥当ではない。少なくとも、化学反応メカニズムの選択だけでも、モデルで計算されるオゾン濃度に10ppb程度の不確実性が生じうるという認識をしておくことが重要である。

②植物起源VOC排出インベントリの構築

新たに構築した植生分布を土地利用データとして気象モデルのWRFで使用することにより、都市部周辺において、従来に比べて計算される気温が高く、相対湿度が低く、境界層高さが高くなった。気象官署における観測値と比較し、新たな植生分布データによる適切な都市部の表現により気象場の再現性が向上したことが確認された。従来のMEGANに付随する植生分布データを使用した場合に、実際には都市部に相当する関東平野において、推計される植物起源VOC排出量が比較的高い傾向が見られていたが、新たに構築した植生分布データに更新することにより、該当地域の排出量は低く抑えられる結果となった。更新したデータを使用してMEGANで

推計された植物起源VOC排出量を用いることにより、CMAQで計算される関東地方のオゾン濃度が最大5ppb程度低下、有機成分濃度がやや上昇し、それぞれの濃度再現性が向上したものの、観測値と計算値の乖離を全て説明づけるまでには至らなかった。

③業種別・燃料別・施設種別固定発生源排出インベントリの構築

マップ調査データを解析して本研究で新たに導出した大規模固定発生源の排出係数と燃料消費量割合を用いて推計された業種別もしくは施設種別のばいじん排出量の総量は、マップ調査における排出量の集計値とほぼ整合していたものの、従来の排出インベントリにおける推計値よりも大幅に少なくなった。従来の排出係数は、1999年度現在のマップ調査から導出されたものであり、それ以降の対策による排出係数の低下を表現できていないためであると考えられた。ばいじんの排出係数が従来に比べて小さくなったために、推計された鉄の排出量も従来に比べて少なくなった。ただし、従来は燃料種別の組成プロファイルを用いていたために、鉄の排出量に占める電気業の寄与が最も大きいという違和感のある結果になっていたが、本研究では施設種別の組成プロファイルを用いることにより、鉄鋼業の寄与が最も大きいという、より妥当と思われる結果になった。マップ調査に含まれていた個々の発生源の煙突の情報から、大気質モデルが必要とする排出量の鉛直分布も新たに導出した。大気質モデルで計算される汚染物質濃度に対する影響はそれほど大きくなかったが、近年の対策による排出量の削減を考慮し、かつ施設種別にする事で排出特性や大気汚染防止法による規制にも整合した排出インベントリを構築することができた。

④排出量データ変換ツールの整備

排出インベントリをモデル入力データに変換するために、2つのツールを新たに整備した。1つは、排出インベントリそれぞれについて、グリッド別排出量データをモデルの入力データファイルの形式に変換するものである。月変動、週内変動、時間変動、組成分解、水平分解、鉛直分解を施すための係数を適用し、CMAQへの入力データファイルをI/O API形式で出力する。排出量に対する汚染物質濃度の感度解析を行えるように、地域別、物質別、発生源別の排出量に倍率を乗じることも可能である。もう1つは、複数の排出インベントリから作成された個々のファイルを、計算対象日に応じてモデルが必要とする一つのファイルに統合するものである。感度解析を行えるように、ファイル単位で排出量に一律の倍率を乗じることができるようになっている。本研究では、これらの変換ツールだけではなく、上述の改良を加えた排出インベントリと、月変動、週内変動、時間変動、複数の化学反応メカニズムへの組成分解、モデル間相互比較の対象領域への水平分解、鉛直分解を行うための係数データも全て整備し、これらを使って変換して作成したモデル間相互比較のPhase3の共通排出量データとともに公開した。

(2)モデル間相互比較に基づく発生源寄与割合の総合的・統合的評価手法の開発

①季節毎の汚染物質濃度再現性の検証(Phase1)

Phase1では、32種類のモデル設定による計算結果が提出された。地表面オゾン濃度に顕著な差が見られ、化学反応メカニズムの違いに起因することが確認できた。他方、異なるモデルフレームにて同じ化学反応メカニズムを用いた際にも、地表面オゾン濃度に著しいモデル間差が生じ、生成消滅プロセスの扱われ方の違いが、広域的なオゾン濃度の差異を引き起こしたと考えられた。特に、オゾンの洋上消失過程が地表面オゾン濃度の低下をもたらし、わが国周辺地域の暖候期のモデルによるオゾン濃度の過大評価の緩和に寄与する可能性が示された。これらの結果により、広域的なオゾン濃度のモデル間の差異を引き起こす原因は、オゾンとその前駆物質の消滅・生成過程のモデル表現とその速度定数であり、今後、より高精度のモデル表現を追求する場合には、これらの点の改良が不可欠であることが示された。

PM_{2.5}総量に関して、関西地域(D3)と関東地域(D4)における再現性を比較した場合、関東地域(D4)が関西地域(D3)よりもPM_{2.5}総量を大きく過小評価する傾向が示された。一般的に越境輸送の影響を比較的よく再現できる大気質モデルの特徴が反映された結果であろうと思われる。このことから、都市域での精度向上には、発生源近くである都市域内でのモデル表現の向上が重要になると考えられた。PM_{2.5}の成分別では、硫酸塩の再現性は比較的良好であったものの、冬季には過小評価であり、サブテーマ(3)でその改善が図られた。他方、硝酸

塩と有機炭素の濃度再現性はいずれのモデル設定でも低く、ほとんどが硝酸塩を過大評価し、有機炭素を過小評価する傾向が見られた。有機炭素もしくは硝酸塩濃度の再現性が高いモデル設定に関して、必ずしも全てのPM_{2.5}成分濃度の再現性向上が見込まれるわけではなく、硝酸塩の再現性が向上すると有機炭素や硫酸塩の再現性の低下を引き起こすなどの問題が生じることが判明した。したがって、大気中の二次粒子、特に、硝酸塩と有機炭素のモデル表現に関しては、未把握な過程を含めて更なる改良が必要だと思われた。

気象場の違いに関しては、複数の感度実験を実施し、気象モデルにて扱われている降水過程(積雲対流過程と雲微物理過程)にて採用するパラメタリゼーションの違いが、広範囲での降水の分布と強度に作用し、日本周辺地域のPM_{2.5}濃度計算値に対して無視できない影響を与えることが示された。これらの結果と国内外の専門家の意見を得て、気象モデルの降水にかかる設定の検証を行い、積雲対流と雲微粒子をより高次に取り扱うことができる設定を標準計算設定として提案した。

②集中観測結果との比較による高濃度の再現性の検証(Phase2)

Phase1にて、様々な入力値(排出量、境界濃度、気象場)として独自設定を採用した場合に、モデルで計算される汚染物質濃度に著しい差異が確認できた経緯を踏まえ、Phase2では相互比較の参加者に可能な範囲で通常使用している独自のモデル設定での計算実行を依頼し、43種類(2016年冬季)、20種類(2017年春季)、23種類(2017年夏季)の結果が提出された。2016年12月6日～12月25日の間、12/12～13と12/18～21に2回のPM_{2.5}の濃度上昇が観測されており、複数のモデルが前半、後半のピークともにPM_{2.5}濃度の上昇をおおよそ捉えていた。ただし、濃度上昇を捉えられたモデルに限定した場合でも、極端なケースを含めると計算値は観測値の2倍～0.5倍範囲となった。前半のピークに関しては、ほとんどのモデルが硫酸塩の短期間に生じる濃度上昇を捉えていたが、硝酸塩やPM_{2.5}総量に見られる濃度上昇の変化を捉えることができていなかった。後半のピークでは、モデル間のばらつきが大きく、その要因が、用いる排出量データや気象モデル設定の違い(客観解析データや同化強度)に起因する可能性が認められた。標準実験と比較して、無機粒子成分の濃度上昇のタイミングや濃度レベルを比較的良好に再現していたモデル設定では、高空間解像度の客観解析データを利用しており、さらに、同化の強度が異なることが判明した。これらの結果と国内外の専門家の意見を得て、標準計算設定として、高空間解像度の客観解析データを利用し、同化強度を強めることを提案した。

春季のPM_{2.5}の再現性に関しては、Dust粒子のPM_{2.5}濃度への直接影響に加えて、Dust粒子表面での不均質反応による硝酸塩濃度への影響も確認できており、Dustモデルの導入が期待できる結果となった。しかしながら、Dustの発生のタイミングや不均質反応過程にまだ不十分なところもあるために、わが国や周辺地域への適応には改善が必要であると考えられた。2017年7月9日～7月31日の間、モデルはオゾンの濃度変動を非常によく捉えていた。観測されたオゾン濃度が比較的低濃度となる際に、モデル設定間でばらつきが大きく、再現性の良いモデルグループと悪いグループに別れた。7月16日に発生した注意報レベルの高濃度では、参加者が通常利用している気象モデル設定を利用した場合にオゾン濃度の再現性が良くなった事例もあった。このことも踏まえて、標準計算設定を検討した。

③発生源影響解析におけるモデルおよび評価手法による違いの検証(Phase3)

Phase3では、対象発生源の排出量を変化させて大気質モデルで計算される汚染物質濃度への影響を評価するBrute Force Method(BFM)による発生源感度実験を実施した。感度実験の対象は、D4領域内の輸送部門、固定燃焼部門、VOC発生源、NH₃発生源とし、14種類のモデル設定による計算結果が提出された。一部を除いて、PM_{2.5}濃度の期間平均値に対する各発生源からの感度、特に、その割合はどのモデル設定も比較的良好に似た傾向を示した。成分別に見ると、硫酸塩と比較して硝酸塩ではモデル設定間の各発生源の感度のばらつきが大きく、特に、気象モデル設定が異なる場合に大きな差が生じた。CMAQのバージョンの違いによる差も明らかで、ClNO₂不均一反応、NO₂からのHONO生成、N₂O₅不均一反応を介したHNO₃生成などの過程や関連する反応速度の改定による可能性が示唆された。高濃度時に着目すると、PM_{2.5}濃度に対する多くの発生源の感度にモデル設定間差が見られた。

BFM、Decoupled Direct Method(DDM)、Integrated Source Apportionment Method(ISAM)の3種類の発生源影響評価手法を用い、同一の条件で2016年度の4季節を対象に比較計算を行った。しかしながら、DDMで計算

が発散する問題が生じ、2017年冬季のみ3手法の結果が出揃った。BFMとDDMIは発生源感度(対象発生源の排出量の変化に対する汚染物質濃度の変化)、ISAMは発生源寄与(汚染物質濃度に対する対象発生源からの起因分)を評価する手法である。オゾン濃度に対する発生源感度と寄与に手法による明確な違いが現れた。ISAMによる発生源寄与のほとんどが領域外からの輸送で占められている一方、BFMとDDMIによる領域外からの輸送の感度はさらに大きく、自動車や固定燃焼の排出量の感度は負の値として現れた。高濃度のオゾンが流入し、自動車や固定燃焼から排出されるNO_xによるタイトレーションで消費されていると解釈された。PM_{2.5}のうちの一次排出成分については、感度と寄与は一致した。一方、NO₃⁻に対する感度と寄与は大きく異なり、NO_xを全く排出しないNH₃発生源の影響が現れるなど、感度には複雑な傾向が現れた。このように、非線形性を有する光化学反応が絡む場合に、発生源影響評価手法の違いによって、算出される感度や寄与に本質的な違いが生じることが明らかとなり、その意味合いを正しく理解して有効な対策立案につなげる重要性が示された。

(3)PM_{2.5}および関連ガス成分の地表面フラックスの精密測定とモデル化

①ガス状・粒子状物質の鉛直濃度勾配の測定

横須賀での濃度勾配観測は、降水や荒天を除いた54日でデータを得ることができた。ガス態と粒子態を合計した総NO₃⁻濃度は暖候期のほうがやや高く、夜よりも昼のほうが高く、上下間はわずかではあるが上のほうが高いことがほとんどであった。総NH₄⁺濃度は寒候期に高くなることが多く、昼夜で明瞭な相違はみられず、下側で高いことが多かった。実測値から算出される乾性沈着速度を理論値と比較したところ、ガス態のHNO₃については実測値と整合していた。しかしながら、PM_{2.5}の非海塩起源SO₄²⁻およびNO₃⁻は概して実測値のほうが低く、沈着速度の加速化とは反対の結果となった。この結果がNO₃⁻のみであれば、地表面から発生したNH₃によりHNO₃の粒子化が促進された可能性が考えられる。しかしながらSO₄²⁻もNO₃⁻と同じ傾向にあったことから、ガス成分と同様の地表面付近での抵抗をPM_{2.5}成分についても考慮に入れる必要性が示唆された。

②有機炭素濃度の日内変動の把握

炭素成分の連続観測では、狛江におけるOCと元素炭素(EC)の平均濃度は低いレベルであった。狛江に比べて江東のOCはやや高い程度であるが、ECは明らかに高かった。寒候期の加須はOC、ECともに狛江、江東より高かった。江東に対する狛江の濃度比は排出量比と整合していたが、江東に対する加須の濃度比は排出量比よりも大幅に大きく、加須が野焼きなどの局所的な排出の影響を強く受けていることが示唆された。EC濃度は各地点で同様の季節変化を示し、12月に最高となった。OC濃度は、加須の10月と12月を除いて地点間でよく一致し、8月と2月に低く12月に高くなった。ECトレーサ法で求めたSOC濃度はOCに似た季節変化を示し、狛江が最も高く推移した。8月は、江東のECに午前中の濃度上昇を確認できるが、概して日内変動は小さかった。10月は、加須のOCが特徴的で、午前中は江東や狛江と同程度であるのに、昼頃から上がり始め夕刻にピークを示した。12月は、全地点のOCとECに午前と夜とにピークがみられた。この日変化は加須で顕著であるが、周辺の交通量からしてその原因を自動車のみに帰するのは困難であり、10月とは異なる形態の野焼き等の可能性を検討する必要性が示された。3月は8月と同様に日変化が小さいが、SOCの濃度レベルに地点間差が認められた。大気質モデルの検証は統計的に処理して行われることが多いが、こうした平均的な日変化や地点間差を再現できるかの視点も重要と考える。

③湿潤粒子表面における硫酸塩不均一生成の評価

硫酸塩不均一生成過程のサブモデル構築にあたり、現状のCMAQの硫酸塩生成過程を詳細にレビューしたところ、鉄とマンガン触媒とした溶存酸素による気液反応に問題があることがわかった。サブテーマ(2)のモデル間相互比較のphase1において各季の観測値と比較をしたところ、モデルは鉄とマンガン濃度を大幅に過小評価することが明らかとなった。国内の鉄とマンガンの排出量を増加させる感度実験を実施したところ、冬季において、鉄とマンガン濃度が適切に表現されることで、硫酸塩濃度が増加することが示された。その結果を踏まえ、さらに2種類の感度実験を実施した。鉄とマンガンの可溶性について、現実大気で起こりうる最大値を用いたところ、冬季においては気液反応を経た硫酸塩濃度が大幅に増加する結果を得た。また、反応速度定数へのpH依存性の導入を図ったところ、大陸上では気液反応を経た硫酸塩が増加する結果を得た。このように、鉄とマンガン

ンを触媒とする溶存酸素による気液反応に係る感度実験を通じて、既存の大気質モデルが抱える金属成分の排出インベントリの問題点を指摘し、硫酸塩の冬季過小評価の改善につながる可能性を明らかにした。この知見をサブテーマ(1)に提供し、排出インベントリの改良に貢献した。

サブテーマ(2)のモデル間相互比較のphase2では、2016年12月の冬季の高濃度PM_{2.5}汚染事例を対象とした。CMAQの標準計算では、高濃度の硫酸塩が大陸上に示され、風下の韓国や日本、太平洋にかけて硫酸塩濃度が広がる結果となった。Phase1で導入した鉄とマンガンの可溶性の増加および化学反応定数におけるpH依存性の考慮を取り入れると、標準計算に比較して大陸上のみならず、わが国の西側と東北・北海道地方にかけて硫酸塩濃度が増加した。さらに、CMAQで考慮している5つの酸化剤のほかにNO₂を酸化剤として導入すると、硫酸塩はさらに増加することが確認され、観測データとの比較により再現性の向上が検証できた。

CMAQによる過小評価要因をさらに検討するため、別の大気質モデルであるCAMxを用いて詳細な相互比較実験を実施した。CMAQのほうが濃度が低く、CAMxのほうが濃度を高く算出し、硫酸塩の気液反応の点からは本結果を解釈できなかったため、除去過程である乾性・湿性沈着に着目することとした。前駆体であるSO₂について両モデルを比較したところ、CMAQのほうがCAMxよりもSO₂濃度が低いことがわかった。乾性沈着速度を比較すると、海上を除く陸上のほぼ全域でCMAQのほうが沈着速度が大きいことがわかり、前駆体のSO₂については乾性沈着速度差が大気中濃度差に影響している可能性が示された。また、湿性沈着が硫酸塩の圧倒的な除去過程の要因であったため、湿性沈着量について期間積算したものを観測結果と比較したところ、CMAQは過大評価傾向、CAMxは過小評価傾向にあることが明らかとなった。したがって、CMAQでは湿性沈着を経た除去過程が大きいために大気中濃度が過小傾向、一方でCAMxでは除去過程が小さいために大気中濃度が過大傾向となることが明瞭となった。このように、CMAQの硫酸塩濃度再現性には、前駆体であるSO₂の乾性沈着と硫酸塩の湿性沈着が大きく影響していることが明らかとされた。

(4)O_x高濃度事象の立体構造把握及びモデル不確実性評価を対象とした観測研究

①夏季のオゾン高濃度事象の立体構造把握

2018年7月23～24日に神奈川県平塚市で実施したゾンデ観測期間に、神奈川県および東京湾沿岸部で100ppbを超える高濃度のオゾンが観測された。23日にゾンデで観測されたオゾンの最高濃度と高度は12時が上空400m付近で95ppb、14時が上空550m付近で105ppb、16時が上空700m付近で120ppbであり、高濃度を観測した高度はどの時間帯でも南風であり、海風侵入時における高濃度であった。南風が卓越している地点では高濃度となっているのに対し、北風が卓越している地点では低濃度となっている様子が確認できた。23日はドライフェーン現象が確認されており、山風によってオゾン濃度が海域に移流し、海風によって再度内陸に移流してきた可能性が考えられた。また、各時間における最高濃度は混合層の上部に存在していたことが確認できた。24日に観測されたオゾン濃度の最高濃度と高度は、12時が上空450m付近で95ppb、14時30分が上空850m付近で152ppbであり、高濃度を観測した高度はどの時間帯でも東～南寄りの風であった。神奈川県沿岸部で12時から13時にオゾン濃度が上昇した後は、東京湾に面した神奈川県東部、同じく東京湾に面した東京都東部、東京都との県境である千葉県最西部、並びに埼玉県東部にまで濃度上昇の範囲は広がり、14時には神奈川県で100ppb以上のオゾン高濃度が44箇所で見られた。この広範囲かつ高濃度に発生したオゾンの要因として、前日23日に生成されたオゾンが上空に滞留し、翌日の混合層の発達に伴い混合層上部から前日生成のオゾンが取り込まれたため、広範囲かつ高濃度なオゾンが観測された可能性が示唆された。23日は、猛暑日が242地点、観測史上1位の気温が21地点で観測され、埼玉県熊谷市では41.1度という過去最高気温を観測した日でもあり、貴重なデータを取得することができた。

②大気質モデルの立体的再現性検証

新島観測を実施した2017年7月24日～31日におけるオゾンは総じて低濃度であったが、同期間を対象にモデル計算を行ったところ、モデルは海域でのオゾン濃度を過小評価する傾向が確認された。また、同期間の風向の再現性は良好であったのに対し、風速は過大評価する傾向にあることが確認できた。ゾンデ観測を実施した24日および28日において、24日は鴻巣局でのオゾン濃度の再現性は良好だったのに対し、保土ヶ谷局では過大評価している様子が確認できた。他方、28日は鴻巣局および保土ヶ谷局の両地点でオゾン濃度を過小評価して

いることが確認できた。モデルでは東風が卓越しており、神奈川県内陸部まで太平洋の風に支配されている様子が確認でき、それに伴い濃度が低くなっている様子が見て取れた。モデルで再現された高濃度帯は実際よりも首都圏の西側に出現しており、モデルで計算された領域全体を覆う東風が過大に影響したことが要因の一つとして示唆された。また、温位の鉛直分布より、保土ヶ谷局の位置は海風の侵入域に含まれていることが確認できた。これより、28日は計算ではゾンデ観測を実施した横浜国立大学付近まで清浄な海風の侵入域に含まれたこと、さらに海域でのオゾン濃度が過小評価であったことの双方が、保土ヶ谷局におけるモデルのオゾン濃度過小評価の要因につながったものと考えられた。

鉛直方向を含む風況とオゾン濃度に着目し、それらの再現性を向上させるためのモデル設定について、感度解析による検討を行った。土地利用データ、客観解析データ、接地境界層(PBL)スキームについて検討をしたところ、土地利用データにはサブテーマ(1)が植生調査から構築したデータ、客観解析データには米国環境予報センターの全球客観解析データFNL(Final Analyses)、PBLスキームにはMYNN(Mellor-Yamada Nakanishi and Niino)を採用した場合に、気象場やオゾン濃度の再現性が最も良くなることを確認した。これらの設定はサブテーマ(2)が提案した標準計算設定と整合していた。

5. 本研究により得られた主な成果

(1) 科学的意義

- ・ モデル間相互比較における汚染物質濃度再現性の検証結果と科学的な知見に基づき、大気質モデルによる汚染物質濃度の再現性を向上させるべく、必要な改良を排出インベントリに加えることができた。特に、植物起源VOC排出インベントリと業種別・燃料別・施設種別固定発生源排出インベントリについては、本研究で日本国内のデータを独自に解析して構築した詳細なインベントリであり、より精度の高いモデル計算に有用であるとして、学術論文として認められている。
- ・ 気象モデルならびに大気質モデルの異なるバージョン、化学反応メカニズム、入力データ、種々の設定間の比較を通して、これらの差異がPM_{2.5}やオゾン濃度に与える影響量を明らかにすることができた。これは、モデルによる二次汚染物質濃度の予測精度向上を進める際に何に着目すればよいかを示す、重要な科学的知見となり得るものである。化学反応メカニズムの影響については、学術論文としても認められている。
- ・ 最近開発された炭素成分の自動連続装置により、粒子状炭素成分濃度について1時間値の観測データセットが得られたことで、これまできわめて限定的であった日内変動や空間分布について、実態の把握と大気質モデルの検証が行えるようになった。
- ・ 硫酸塩生成における鉄とマンガンの触媒反応、SO₂の乾性沈着過程、硫酸塩の湿性沈着過程など、PM_{2.5}中の硫酸塩濃度の再現性を改善するための具体的な方針が得られ、学術論文としても認められた。また、それに沿って開発したサブモデルは、より精度の高い計算の実行に寄与するものである。
- ・ オゾン濃度の鉛直分布や海域での状況など、オゾンの高濃度化のメカニズムを解明するために有用な観測データを得ることができた。

(2) 環境政策への貢献

<行政が既に活用した成果>

- ・ 環境省の揮発性有機化合物(VOC)排出インベントリ検討会の下に設けられたインベントリ検討WGに検討委員として参画し、本研究での知見を踏まえて、WGでの未把握VOC発生源の検討に貢献した。
- ・ 未把握VOC発生源の検討やNH₃排出量推計の見直しなどについては、環境省のPM_{2.5}排出インベントリ及び発生源プロファイル業務における検討項目に反映されている。
- ・ 本研究で構築された排出量データは、環境省からの委託により国立環境研究所が運用している大気汚染予測システムのVisual atmospheric Environment Utility System(VENUS)への入力データとして活用されている。
- ・ 本研究の成果を踏まえた排出インベントリに関する取り組みや課題について、日本がパートナー国として参加している短寿命気候汚染物質削減のための気候と大気浄化の国際パートナーシップ(CCAC)の科学諮問パネル専門家ワークショップで発表し、関係国に成果を主張することができた。

- ・ 環境省の微小粒子状物質(PM_{2.5})解析ワーキンググループにおいて、本研究で導出された標準モデル設定に準じた構成で大気質モデルによる計算が行われ、PM_{2.5}成分別濃度の自動測定結果の解析に活用された。
- ・ 環境省の光化学オキシダント調査検討業務から、本研究で導出された標準モデル設定や入力データなどに関するヒアリングを受けており、大気質モデルを用いた今後の検討に生かされる見込みである。

<行政が活用することが見込まれる成果>

本研究は、大気中の二次汚染物質濃度に対する発生源寄与割合をより正確に推計できる規範的な大気質モデルを確立させること、ならびにモデルによる結果の妥当性や不確かさをどのように理解し有効な対策立案に生かせばよいかという考え方を明確にすることを通して、有効な対策立案に資するのを目的として取り組んできた。それに対して、行政が活用できる以下のような知見を得ることができた。

- ・ モデル間相互比較の結果に基づいて本研究で構築、改良した排出インベントリにより、モデルによる二次汚染物質濃度の再現性向上と、発生源寄与割合のより正確な推計を実現することができる。環境省のPM_{2.5}排出インベントリ及び発生源プロファイル業務における排出インベントリの構築と改良にも貢献する。
- ・ 本研究で構築した排出量データは、温室効果ガス排出インベントリとの整合性を意識しており、国連気候変動に関する政府間パネル(Intergovernmental Panel on Climate Change, IPCC)で議論されている短寿命気候汚染物質(Short-lived Climate Pollutant, SLCP)を含めた排出インベントリの整備にも貢献する。
- ・ 本研究で整備した排出量データの変換ツールやそのために必要な係数類を利用することにより、行政による大気質モデルを使用した対策検討業務(以下、「対策検討業務」と表現する)において、労力を大幅に軽減させることができる。
- ・ 時間分解能の高い粒子成分濃度や上空や海域におけるオゾン濃度の観測データと解析結果は、常監局からは得られないものであり、対策検討業務におけるモデルのより詳細な検証と、環境省が実施しているPM_{2.5}成分自動測定の検証、解析、活用などへの有用な参考情報になり得る。
- ・ 国内外の大気質モデル研究者の知見を集約して提示した、二次汚染物質濃度の再現性を向上させるための現段階での最良の規範的モデル設定により、発生源寄与割合のより正確な推計を実現することができる。対策検討業務におけるモデル設定を決定するための労力も大幅に軽減する。
- ・ 複数の異なるモデル設定による二次汚染物質濃度のばらつきは、対策検討業務におけるモデルの計算結果の妥当性を判断するためのベンチマークとして機能する。
- ・ 複数の異なるモデル設定により一貫して示された、オゾンの過大評価、硝酸塩の過大評価(冬季の高濃度時には過小評価の場合もあり)、有機粒子の過小評価は、現状の大気質モデルによる限界と理解すべきものである。対策検討業務においてこれらの問題解決に労力を費やすのは効率的ではなく、発生源寄与割合を評価する際にこれらの問題点を考慮に入れて結果を判断することが求められる。
- ・ オゾンや硝酸塩などの一部の二次汚染物質について、発生源寄与(濃度に対する当該発生源の起因分)と発生源感度(当該発生源の排出量が増減した場合の濃度の変化)に大きな違いが生じる。発生源感度は、NO_xのタイトレーションによるオゾン濃度の減少や、アンモニア排出量の変化による硝酸塩濃度の変化など、発生源寄与には決して現れない情報を有するものであり、有効な対策検討に有用である。
- ・ 複数の異なるモデル設定による二次汚染物質濃度に違いが生じる場合においても、発生源感度の割合は比較的整合していることから、信頼性の高い情報として対策の検討に利用されることが望まれる。
- ・ 本研究で得られた知見をとりまとめた規範的モデルの手引書の策定を進めている。大気質モデルの使い方だけでなく、モデルによる計算結果の適切な解釈や政策立案への考え方と指針などの内容が含まれており、モデルユーザーだけでなく、対策検討業務に大気質モデルを利用する行政担当者に対しても有用な情報を提供する。

6. 研究成果の主な発表状況

(1) 主な誌上発表

<査読付き論文>

- 1) S. CHATANI, K. YAMAJI, T. SAKURAI and H. HAYAMI: *Global Environmental Research*, 22, 1&2, 21–30 (2019)
Establishing a Reference Modeling for Source Apportionment and Effective Strategy-Making for Suppressing Secondary Air Pollutants.
- 2) 茶谷聡, P. CHEEWAPHONGPHAN, 小林伸治, 田邊潔, 山地一代, 高見昭憲: *大気環境学会誌*, 54, 2, 62–74 (2019)
日本国内大規模固定発生源の業種別・施設種別・燃料種別大気汚染物質排出インベントリの構築
- 3) 長田和雄, 山神真紀子, 久恒邦裕, 池盛文数, 茶谷聡: *大気環境学会誌*, 54, 2, 55–61 (2019)
名古屋の湾岸部における光学的黒色炭素の起源—海風時の解析—
- 4) K. KITAYAMA, Y. MORINO, K. YAMAJI and S. CHATANI: *Atmos. Environ.*, 198, 1, 448–462 (2019)
Uncertainties in O₃ Concentrations Simulated by CMAQ over Japan Using Four Chemical Mechanisms.
- 5) S. ITAHASHI, K. YAMAJI, S. CHATANI, K. HISATSUNE, S. SAITO and H. HAYAMI: *Atmosphere*, 9, 12, 488 (2018)
Model Performance Differences in Sulfate Aerosol in Winter over Japan Based on Regional Chemical Transport Models of CMAQ and CAMx.
- 6) 吉岡実里, 櫻井達也: *大気環境学会誌*, 53, 4, 111–119 (2018)
2010年夏季に首都圏で発生したオキシダント高濃度事象のモデル解析
- 7) H. SHIMADERA, H. HAYAMI, S. CHATANI, T. MORIKAWA, Y. MORINO, K. YAMAJI, S. NAKATSUKA and T. OHARA: *Asian J. Atmos. Environ.*, 12, 2, 139–152 (2018)
Urban Air Quality Model Inter-Comparison Study (UMICS) for Improvement of PM_{2.5} Simulation in Greater Tokyo Area of Japan.
- 8) S. CHATANI, M. OKUMURA, H. SHIMADERA, K. YAMAJI, K. KITAYAMA and S. MATSUNAGA: *Atmosphere*, 9, 5, 179 (2018)
Effects of a Detailed Vegetation Database on Simulated Meteorological Fields, Biogenic VOC Emissions, and Ambient Pollutant Concentrations over Japan.
- 9) S. ITAHASHI, K. YAMAJI, S. CHATANI and H. HAYAMI: *Atmosphere*, 9, 4, 132 (2018)
Refinement of Modeled Aqueous-Phase Sulfate Production via the Fe- and Mn-Catalyzed Oxidation Pathway.
- 10) S. CHATANI, K. YAMAJI, T. SAKURAI, S. ITAHASHI, H. SHIMADERA, K. KITAYAMA and H. HAYAMI: *Atmosphere*, 9, 1, 19 (2018)
Overview of Model Inter-Comparison in Japan's Study for Reference Air Quality Modeling (J-STREAM).
- 11) 富山一, 田邊潔, 茶谷聡, 小林伸治, 藤谷雄二, 古山昭子, 佐藤圭, 伏見暁洋, 近藤美則, 菅田誠治, 森野悠, 早崎将光, 小熊宏之, 井手玲子, 日下博幸, 高見昭憲: *大気環境学会誌*, 52, 4, 105–117 (2017)
野焼き発生の時間分布調査および稲作残渣野焼きによる大気汚染物質排出量の日変動推計

(2) 主な口頭発表(学会等)

- 1) K. YAMAJI, S. CHATANI, K. KITAYAMA, S. ITAHASHI, H. HAYAMI, T. SAKURAI, H. SHIMADERA and M. TAKIGAWA: 17th Annual Community Modeling and Analysis System (CMAS) Conference (2018)
“Model inter-comparison study for urban scale secondary atmospheric pollutants in Japan”
- 2) 茶谷聡, CHEEWAPHONGPHAN PENWADEE, 小林伸治, 田邊潔, 山地一代, 高見昭憲: 第59回大気環境学会年会 (2018)
「固定発生源の業種別・施設種別・燃料種別汚染物質排出インベントリの構築」
- 3) 茶谷聡, 山地一代: 第59回大気環境学会年会 (2018)

「揮発性有機化合物排出インベントリの空間分布および未把握発生源の検討」

- 4) 速水洋、齊藤伸治、長谷川就一: 第59回大気環境学会年会 (2018)
「高時間分解自動モニタで捉えた関東南部におけるPM_{2.5}炭素成分の時間・空間変動」
- 5) 松井駿佑, 嶋寺光, 山地一代, 茶谷聡, 松尾智仁, 近藤明: 第59回大気環境学会年会 (2018)
「関西・関東都市域におけるPM_{2.5}濃度再現性向上のための感度解析～粒子状物質の雲底下洗浄過程～」
- 6) 吉岡実里、櫻井達也、大森大悟、中村大介、五味大雅: 第59回大気環境学会年会 (2018)
「O_xの生成及び循環の立体構造把握とそのモデル再現に関する研究」
- 7) 山地一代, 茶谷聡, 北山響, 板橋秀一, 斎藤正彦, 滝川雅之, 森川多津子, 神田勲, 渡邊茂, 櫻井達也, 嶋寺光, 浦西克維, 藤原禅, 菅田誠治, 桐山悠祐, 秦寛夫, 齊藤伸治, 山神真紀子, 池盛文教, 久恒邦裕, 長田和雄, 速水洋: 第59回大気環境学会年会 (2018)
「2016年12月に観測されたPM_{2.5}濃度上昇のモデル再現性について」
- 8) 速水洋: 第35回エアロゾル科学・技術研究討論会 (2018)
「地表面付近における粒子状物質の鉛直濃度勾配の測定」
- 9) S. CHATANI: Land Cover/Land Use Changes (LC/LUC) and Impacts on Environment in South/Southeast Asia – International Regional Science Meeting (2018)
“Effects of detailed vegetation database on simulated meteorological fields, biogenic VOC emissions, and ambient pollutant concentrations over Japan.”
- 10) S. CHATANI, H. SHIMADERA, K. KITAYAMA and K. YAMAJI: 1st CMAS-Asia-Pacific conference (2018)
“Sensitivity analyses on factors influencing simulated ambient ozone concentrations over Japan in J-STREAM.”
- 11) K. KITAYAMA, S. CHATANI, K. YAMAJI, S. ITAHASHI, M. SAITO, M. TAKIGAWA, T. MORIKAWA, I. KANDA, Y. MIYA, H. KOMATSU, T. SAKURAI, Y. MORINO, H. SHIMADERA, K. URANISHI, Y. FUJIWARA and H. HAYAMI: 1st CMAS-Asia-Pacific conference (2018)
“Inter-comparison of model performance on ambient ozone concentrations over Japan in J-STREAM.”
- 12) K. YAMAJI, S. CHATANI, K. KITAYAMA, S. ITAHASHI, M. SAITO, M. TAKIGAWA, T. MORIKAWA, I. KANDA, Y. MIYA, H. KOMATSU, T. SAKURAI, Y. MORINO, H. SHIMADERA, K. URANISHI, Y. FUJIWARA, and H. HAYAMI: 1st CMAS-Asia-Pacific conference (2018)
“Inter-comparison of model performance for PM_{2.5} and its components over Japan in J-STREAM”
- 13) M. YOSHIOKA and T. SAKURAI: HARMO18 (2017)
“Modeling Study on the characteristics of Ozone pollution in Tokyo metropolitan area”
- 14) S. CHATANI, M. TAKIGAWA, K. KITAYAMA and K. YAMAJI: 16th Annual CMAS Conference (2017)
“Effects of interactions between meteorology and ambient pollutants on simulated air quality over metropolitan regions in Japan.”
- 15) 茶谷聡, 菅田誠治, 永島達也, 森野悠, 山地一代, 速水洋, 板橋秀一, 櫻井達也: 第58回大気環境学会年会 (2017)
「大気質モデル間相互比較研究J-STREAMの概要」
- 16) 茶谷聡, 奥村智憲, 嶋寺光, 山地一代, 北山響, 松永壮: 第58回大気環境学会年会 (2017)
「高解像度植生・植物起源VOC排出インベントリデータベースの構築と気象・大気質シミュレーションへの影響」
- 17) 北山響, 森野悠, 山地一代, 茶谷聡: 第58回大気環境学会年会 (2017)
「大気モデル化学反応メカニズムの違いによるO₃濃度差の評価」
- 18) 板橋秀一, 速水洋, 山地一代, 茶谷聡: 第58回大気環境学会年会 (2017)
「化学輸送モデルの冬季の硫酸塩過小評価要因の検討」
- 19) 松井駿佑, 嶋寺光, 山地一代, 茶谷聡, 松尾智仁, 近藤明: 第58回大気環境学会年会 (2017)
「2013年度関西・関東都市域におけるPM_{2.5}とその成分に対する大気質モデルの再現性評価」
- 20) 吉岡実里, 櫻井達也, 大森大悟, 中村大介, 五味大雅: 第58回大気環境学会年会 (2017)

「ゾンデ観測及び数値モデルによるO_x高濃度化の立体解析」

- 21) 山地一代: 第58回大気環境学会年会(2017)
「大気質モデル間相互比較研究J-STREAMの現状と課題」
- 22) K. YAMAJI, H. UEDE, S. CHATANI, H. HAYAMI and H. SHIMADERA: 2016 IGAC Science Conference (2016)
“Evaluation of performance of simulated secondary pollutants by using air quality models for urban areas in Japan”
- 23) 茶谷聡, 富山一, 小林伸治, 田邊潔, 菅田誠治, 佐藤圭, 高見昭憲: 第57回大気環境学会年会 (2016)
「野焼き起因排出量推計の改良によるPM_{2.5}濃度予測値への影響評価」
- 24) 山地一代, 上出広和, 茶谷聡, 速水洋, 嶋寺光: 第57回大気環境学会年会 (2016)
「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」
- 25) 山地一代, 上出広和, 茶谷聡, 速水洋, 嶋寺光: Japan Geoscience Union Meeting (2016)
「2011年夏季関東地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」

7. 研究者略歴

研究代表者

茶谷 聡

名古屋大学大学院環境学研究科修了、博士(理学)、豊田中央研究所主任研究員、
現在、国立環境研究所主任研究員

研究分担者

1) 山地 一代

岡山大学大学院農学研究科修了、博士(理学)、海洋研究開発機構研究員、
現在、神戸大学海事科学研究科准教授

2) 速水 洋

北海道大学大学院工学研究科修了、博士(工学)、現在、電力中央研究所副研究参事

3) 櫻井 達也

東京理科大学大学院理学研究科修了、博士(理学)、酸性雨研究センター研究員、
日本エヌ・ユー・エス(株)コンサルタント、現在、明星大学工学部准教授

II. 成果の詳細

II-1 モデルの推計精度向上と対策効果の評価に資する排出インベントリの開発

国立研究開発法人国立環境研究所

地域環境研究センター 大気環境モデリング研究室

茶谷 聡

菅田 誠治・永島 達也・森野 悠

<研究協力者>

国立研究開発法人国立環境研究所

地域環境研究センター 大気環境モデリング研究室

北山 響

平成28～30年度累計予算額：40,983千円

(うち平成28年度：11,754千円、平成29年度：12,322千円、平成30年度：16,907千円)

累計予算額は、間接経費を含む。

[要旨]

大気汚染の原因物質がどの発生源からどれだけ排出されているかを表現した排出インベントリは、大気中の汚染物質濃度を計算する大気質モデルへの重要な入力データである。本研究では、既存の最新の排出インベントリを集約して加工を施し、サブテーマ（2）が実施する大気質モデル間相互比較で用いる共通排出量入力データとして整備した。データは複数の化学反応メカニズムに対応したものとし、その違いによる汚染物質濃度計算値への影響を明らかにした。また、モデル間相互比較結果や他のサブテーマの実施内容から見出された排出インベントリの問題点を踏まえ、モデルによる汚染物質濃度の推計精度を向上させるために必要な改良を加えた。植物から排出される揮発性有機化合物（VOC）については、日本国内の詳細な植生データと排出係数の測定例を利用し、新たに排出量を推計できるようにした。大規模固定発生源については、従来の業種別、燃料種別に加え、新たに施設種別にも排出量を推計し、施設による排出特性などの違いを表現できるようにした。その他、未把握VOC発生源の検討やNH₃排出量推計の見直しなどの改良を行った。移動発生源以外の全ての日本国内の固定発生源について、排出量を約1kmの高解像度グリッドデータとして整備するとともに、他の排出インベントリも含めてモデルへの入力データの形式に変換するためのツールと必要となる係数類も全て構築した。

[キーワード]

排出インベントリ、化学反応メカニズム、植物起源VOC、大規模固定発生源、データ変換ツール

1. はじめに

日本国内における微小粒子状物質（PM_{2.5}）の環境基準の達成率は向上しつつあるが、まだ達成できていない地域が残されている。また、光化学オキシダント（Ox）の環境基準はほとんどの地域で達成されていない。PM_{2.5}の大半やOxは、大気中での複雑な光化学反応を経て二次的に生成される汚染物質（二次汚染物質）であり、それらの大気中濃度と原因物質の排出量との間には非線形な関係がある。PM_{2.5}とOxの有効な濃度低減策を立案するためには、原因物質がどの発生源からどれだけ排出されているかを表現した排出インベントリと、大気中での二次汚染物質の複雑な光化学反応過程を含む物理化学的挙動を表現できる大気質モデルが必要になる。特に排出インベントリは、大気質モデルによる汚染物質濃度の再現性を左右する重要な入力データであることから、あらゆる発生源からの原因物質の排出実態を正確に表現することが求められる。

2. 研究開発目的

本研究では、既存の最新の排出インベントリを集約して加工を施し、サブテーマ（2）が実施する大気質モデル間相互比較で用いる共通排出量入力データを整備する。また、モデル間相互比較結果や他のサブテーマの実施内容から見出された排出インベントリの問題点を踏まえ、モデルによる汚染物質濃度の推計精度を向上させるために必要な改良を加え、使いやすい標準的なデータベースとして確立させる。さらに、排出インベントリをモデルへの入力データに変換するためのツールと必要なデータを取り揃え、モデルの使用者がより容易に計算を実行し対策効果の評価に活用できる環境を整えることを目的とする。

3. 研究開発方法

（1）モデル間相互比較用共通排出量入力データの整備

サブテーマ（2）が実施する大気質モデル間相互比較計算のPhase1に提供するために、既存の最新の排出インベントリデータを集約した。使用したデータを表(1)-1に示す。日本以外の各発生源に使用したデータは、いずれも一般に公開され世界的に広く活用されている国際的な排出インベントリである。日本国内の各発生源のうち、自動車以外の人為起源については、環境省の「PM_{2.5}排出インベントリ及び発生源プロフィール策定委託業務」で構築されている排出インベントリ（JEI-DB）¹⁾を基に、改良を施した。非燃焼起源の揮発性有機化合物（VOC）の排出量総量は、環境省の「揮発性有機化合物排出インベントリ」²⁾で整備されている値をそのまま使用したが、その他の発生源については、JEI-DBと同じ排出係数に、本研究で独自に年次更新した活動量を掛け合わせ、排出量総量を改めて推計した。また、排出量総量の空間分配に用いるデータも全て独自に年次更新し、全国3次メッシュ別排出インベントリデータとして作成した。自動車にはJEI-DBをそのまま使用した。船舶には笹川平和財団（旧海洋政策研究財団）が作成したデータ³⁾の提供を受けた。

表(1)-1 モデル間相互比較計算のPhase1に提供するために集約した排出インベントリデータ

発生源	日本以外	日本国内
人為起源	HTAP version 2.2 ⁴⁾	JEI-DB ¹⁾ （自動車） JEI-DB改（自動車以外）
植物起源	MEGAN version 2.1 ⁵⁾	←
船舶	HTAP version 2.2 ⁴⁾	旧海洋政策研究財団 ³⁾
火山	AeroCom ⁶⁾	気象庁
バイオマスバーニング	GFED version 4.1 ⁷⁾	JEI-DB改
海塩粒子	なし（モデル内で算出）	←

表(1)-1に示した全ての排出インベントリデータを大気質モデル用入力データに変換するために、対象領域への水平・鉛直分解、月・曜日・時間分解、組成分解を施し、モデルの入力ファイル形式で出力する変換ツールを新たに作成した。詳細については後述する。モデルには、大気中に数多く存在するVOC等の成分とそれらの光化学反応を一定の考え方にに基づき集約して表現する化学反応メカニズムが搭載されている。本研究での新たな試みとして、変換ツールを用いて、VOC排出量に含まれる個別成分からSAPRC07⁸⁾、SAPRC99⁹⁾、CB05¹⁰⁾、RACM2¹¹⁾、RADM2¹²⁾の5種類のメカニズムに変換できるようにした。この変換ツールを使用し、領域化学輸送モデルのCommunity Multi-scale Air Quality model (CMAQ)¹³⁾で直接使用できる、計算対象期間内の全日別、時間別、対象領域別、5種類のメカニズム別の排出量入力データファイルを作成してサーバーに格納し、モデル間相互比較の参加者がダウンロードして使用できるようにした。サーバーへのアクセスを有しない参加者にはハードディスクでファイルを配布した。

新たに構築した5種類のメカニズム別の排出量入力データファイルのうち、CMAQのversion 5.0.2で使用できないRADM2を除く4種類のメカニズムについて、計算される汚染物質濃度への影響を評価した。

(2) 植物起源VOC排出インベントリの構築

モデル間相互比較のPhase1においては、モデルによるPM_{2.5}中の有機成分の過小評価やO₃の大部分に相当するオゾンの過大評価などの問題点が見出され、関連する原因物質の排出インベントリの改良が求められた。VOCは、PM_{2.5}中の有機二次粒子とオゾンの両方の重要な原因物質である。日本全国のVOCの排出量総量に対しては、植物から排出されるものが半分以上の寄与を占めていると言われている¹⁴⁾。そこで、大気質モデルによる有機二次粒子とオゾンの濃度再現性を向上させるべく、植物起源VOC排出インベントリに改良を施すことにした。

植物起源VOC排出量の推計には、排出量推計モデルのModel of Emissions of Gases and Aerosols from Nature (MEGAN)⁵⁾とそれに付随する入力データが世界的に広く用いられているものの、各地域における詳細な排出状況を正確に反映しているとは言いがたい。本研究では、日本国内の詳細な植生分布データと、樹種別のVOC排出係数データを整備し、それらを入力として、日本全国の植物起源VOC排出量をMEGAN version 2.1⁵⁾で推計できるようにした。

植生分布には、環境省自然環境局生物多様性センターによる第6回および第7回植生調査のGISデータを使用した。植生種別の分布がポリゴンの形式で表現されたものである。58の大分類と、必要に応じて各大分類内の中分類の植生の定義に基づき、MEGAN version 2.1で使用されている16の植生種に割り当てた。植生種別のVOCの排出係数には、日本国内の主要樹種から排出されるVOCを計測した既往研究¹⁵⁻²⁷⁾を集め、樹種別、成分別に平均したものをを使用した。これらのデータと、領域気象モデルのWeather Research and Forecasting (WRF) version 3.7.1²⁸⁾で計算した気象場を入力として、気象条件によって時々刻々と変化する植物起源VOC排出量をMEGAN version 2.1で推計した。なお、WRFによる気象場の計算にも土地利用の情報が必要となる。WRFが用いる24の土地利用種にも植生種を割り当て、WRFの入力データとしても使えるようにした。

構築した植生と排出係数のデータが、WRFで計算される気象場、MEGANで推計される植物起源VOC排出量、そしてそれらを用いて大気質モデルCMAQ version 5.1で計算される汚染物質濃度に及ぼす影響を評価した。

(3) 業種別・燃料別・施設種別固定発生源排出インベントリの構築

モデル間相互比較のPhase1においては、モデルによるPM_{2.5}中の硫酸塩の過小評価が見出され、改善が求められた。サブテーマ(3)での検討結果から、硫酸塩の二次生成に対して、FeとMnが絡む不均一反応の重要性が示唆された。しかしながら、共通排出量データのうち、アジア域のデータにはFeとMnが含まれておらず、日本域のデータには含まれているものの、計算されるFeとMnの濃度が大幅な過小評価であった。そこで、アジア域については、使用した排出インベントリに含まれている黒色炭素と有機炭素以外をその他の成分として扱っていたのを改め、既往の文献情報²⁹⁾を基に、FeとMnを含む組成割合を割り当てるようにした。また、日本域については、固定発生源排出インベントリを改良して対処することにした。

従来の固定発生源排出インベントリ¹⁾は、業種別、燃料種別の燃料消費量に排出係数を乗じてばいじんの排出量を推計し、業種別の粒径割合と燃料種別の組成プロファイルを乗じてPM_{2.5}の成分別の排出量を求めていた。しかしながら、この方法ではFeやMnを多く排出していると考えられる金属炉などの排出特性を表現することができない。また、大気汚染物質の排出特性は業種よりも施設種に強く依存すると考えられ、大気汚染防止法においても、業種ではなく施設種別に排出規制値が設定されている。そこで、従来の業種別、燃料種別に加えて、施設種別の固定発生源排出インベントリを新たに構築することにした。

業種別、燃料種別、施設種別のばいじんの排出量は、燃料種別、施設種別の排出係数に、業種別、燃料種別の燃料消費量を乗じ、さらに業種別、燃料種別、施設種別の燃料消費量割合を乗じることによって求めた。燃料種別、施設種別のばいじんの排出係数と、業種別、燃料種別、施設種別の燃料消費量割合は、環境省より貸与を受けた2012年度(2011年度実績)大気汚染物質排出量総合調査(マップ調査)の調査票データを解析して算出した。ばいじんからPM₁₀、浮遊粒子状物質(Suspended

Particulate Matter; SPM)、PM_{2.5}に分解するための比率には、環境省PM_{2.5}排出インベントリ¹⁾で用いられている値を施設種別に整理したものをを用いた。さらに、PM_{2.5}中の組成割合プロファイルを集約したSPECIATE version 4.5³⁰⁾を用いて、PM_{2.5}をFeとMnを含む成分に分解した。適用するプロファイルを選定するにあたり、ボイラ、ガス発生炉、ガス加熱炉、燃焼炉、乾燥炉、廃棄物焼却炉、ガスタービン、ディーゼル機関、ガス機関、ガソリン機関には燃料種に応じて燃料の燃焼によるプロファイルを適用し、残りの金属炉などの施設種には施設特有のプロファイルを燃料種によらずに適用した。なお、日本国内での計測例がある程度得られているボイラでのA重油、廃棄物焼却炉での一般廃棄物と産業廃棄物、ディーゼル機関でのA重油と軽油の燃焼については、SPECIATEに代わって東京都の発生源プロファイルデータを適用した。

大気質モデルが必要とする排出量の鉛直分布を求めるために、マップ調査の調査票データに含まれている煙突高さや排ガス温度を活用した。煙突の特性は燃料種には依存しないものとし、調査票データを施設種別に分離し、煙突高さ、排ガス温度と排ガス量の全レコードの平均値と標準偏差を求めた。それぞれについて対数正規分布を仮定し、モンテカルロ法により100,000サンプルについて有効煙突高の確率分布を求め、それを排出量の鉛直分布とみなした。

(4) 未把握VOC発生源の検討

モデル間相互比較のPhase1においては、モデルで計算されるオゾンが過大評価な一方で、その前駆物質であるVOCは大幅な過小評価であることが明らかとなった。前駆物質とオゾンの間の量的な非線形関係をモデルでは正確に表現できておらず、前駆物質の排出削減によるオゾン濃度の低減効果を評価する上で問題があることが示唆された。そこで、日本国内のVOC排出量が報告されている温室効果ガス排出インベントリ³¹⁾と、欧州の汚染物質排出量の推計方法をまとめたEuropean Monitoring and Evaluation Programme (EMEP) のguidebook³²⁾を調査し、現状の排出インベントリでは考慮されていない発生源を抽出した。

(5) アンモニア排出量推計の検討

モデル間相互比較のPhase1および2においては、モデルによるPM_{2.5}中の硝酸塩の過大評価が見出された。感度解析の結果から、アンモニアの排出量が硝酸塩の二次生成に大きく影響することが明らかになった。そこで、現状のアンモニア排出量の推計方法や使用データに改良を施すことにした。家畜と施肥起因のアンモニア排出量は、温室効果ガス排出インベントリ³¹⁾でN₂Oの排出量を推計するために付随的に推計されているアンモニア排出量の推計方法と入力データを採用した。それ以外の発生源については、既往の文献情報³²⁾を参考に推計方法の改良を図った。

(6) その他の排出インベントリの改良

上述の他にもモデル間相互比較の結果に基づいて排出インベントリに改良を施した。その内容は次章でまとめて述べる。

(7) 排出量データ変換ツールの整備

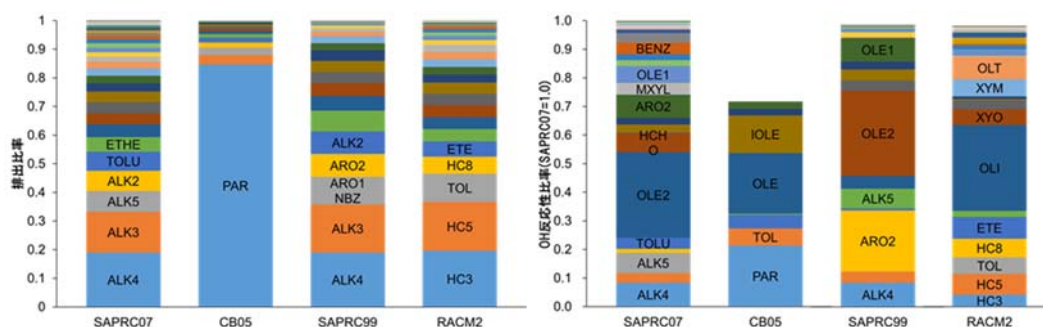
本研究で新たに構築した排出インベントリは、グリッド別データの形式で整備した。しかしながら、収集した他の排出インベントリを含めて、データを大気質モデルで直接読み込めるのではなく、モデルが必要とする形式に変換することが求められる。そこで、本研究で構築、収集した排出インベントリのうち、植物起源VOC排出インベントリを除く全てについて、データを大気質モデルCMAQが必要とする形式に変換するためのツールを新たに整備した。その内容についても次章で述べる。

4. 結果及び考察

(1) モデル間相互比較用共通排出量入力データの整備

新たに構築した5種類の化学反応メカニズム別の排出量入力データについて、CMAQには組み込まれて

いないRADM2を除く4種類のメカニズム別に、2013年8月の国内人為起源VOC排出量総量の成分別内訳を図(1)-1の左側に示す。半分以上を占めるのが飽和炭化水素に相当する成分である。特に、CB05の場合は、炭素原子間の一重結合をそれぞれPARとして計数するため、大半がPARで占められている。一方、各成分の排出量に標準状態でのOHとの反応速度係数を乗じて積み上げ、SAPRC07を1とした相対的な比として表したものを図(1)-1の右側に示す。このようにOHとの反応性で見ると、排出量とは傾向が大きく異なることがわかる。CB05は、全成分のOH反応性合計がSAPRC07の約7割程度しかなく、VOCの個別成分を組成に分解した段階で反応性が低く見積もられていることになる。一方、残り3種類のメカニズムについてはOH反応性合計がほぼ同等である。成分別の内訳を見ると、反応性が低い飽和炭化水素の寄与が相対的に小さくなり、不飽和炭化水素の寄与が大きくなっている。また、SAPRC99での寄与が大きい芳香族炭化水素のARO2が、SAPRC07やRACM2ではトルエン (TOLU、OLT)、m-キシレン (MXYL、XYM) などの個別成分に分解され、より忠実に反応を表現しようとしているのが特徴である。日本における光化学反応を正確に表現する上では、不飽和炭化水素と個別の芳香族炭化水素の排出量が重要であると言える。

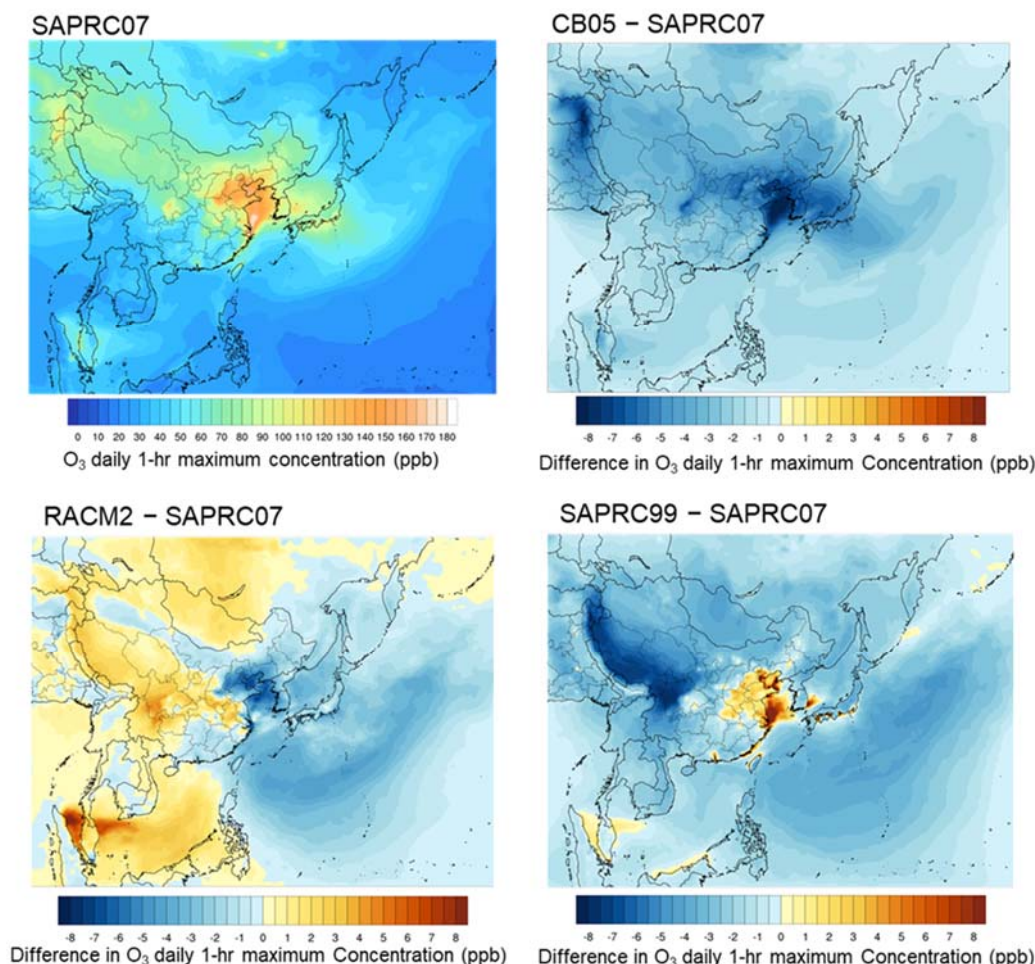


図(1)-1 2013年8月の国内人為起源VOC排出量総量の成分別内訳 (左側) と SAPRC07を1とした場合のOH反応性の相対比率内訳

SAPRC07の排出量データを使用しCMAQで計算された2013年夏のオゾン日最高濃度の期間平均値と、CB05、RACM2、SAPRC99を使用した場合との差の分布を図(1)-2に示す。中国の北東部から東西にオゾンの高濃度が広がる分布となっている。SAPRC07を使用した場合に比べて、CB05を使用した場合には全域でオゾン濃度が最大で10ppb程度低くなっている。RACM2を使用した場合には、オゾン濃度が日本の内陸部ではSAPRC07と同等であるが、海上では低くなっている。SAPRC99を使用した場合には、オゾン濃度が都市部周辺で高く、それ以外の地域では低くなっている。CMAQで計算されるオゾン濃度は過大評価であるため、CB05を使用した場合が最も観測値に近くなるが、観測値と計算値の乖離が最大40ppbにも達するのに対して、メカニズムの違いによる影響は最大10ppb程度に留まり、それだけで観測値と計算値の乖離を説明できるものではない。また、図(1)-1に示したように、CB05だけが反応性が低く評価されるなどの問題もあり、オゾン濃度が観測値に近いというだけでCB05が最適だと判断するのは妥当ではない。少なくとも、メカニズムの選択だけでも、計算されるオゾン濃度に10ppb程度の不確実性が生じうるという認識をしておくことが重要である。

(2) 植物起源VOC排出インベントリの構築

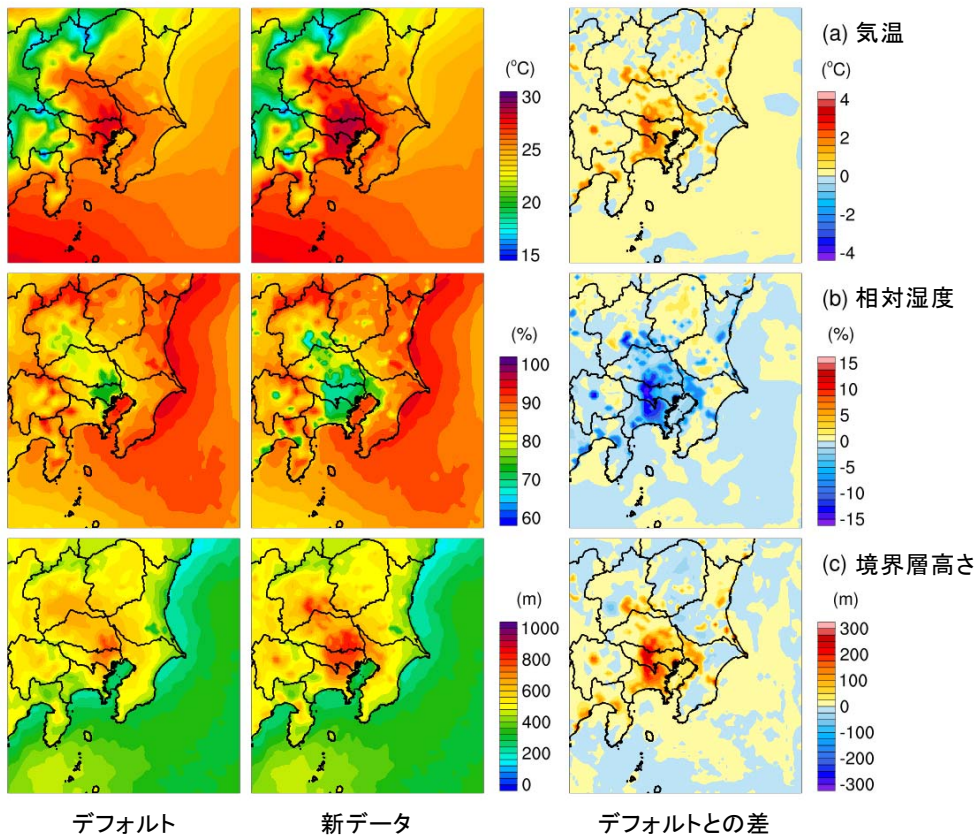
デフォルトの土地利用データを使用した場合、ならびに新たに構築した植生データを土地利用データとして使用した場合に、関東地方を対象にWRFで計算された2013年夏の気温、相対湿度、境界層高さの平均値の分布を図(1)-3に示す。右側の図はデフォルトデータを使用した場合に対する差を表している。新たに構築した植生データを使用することにより、ところどころで気温が高く、相対湿度が低く、境界層高さが高くなっている。差が大きいところは、植生データにおいて新たに都市として表現されている部分に相当する。気象官署における観測値と比較し、新たな植生データにより気象場の再現性が向上したことが確認された。



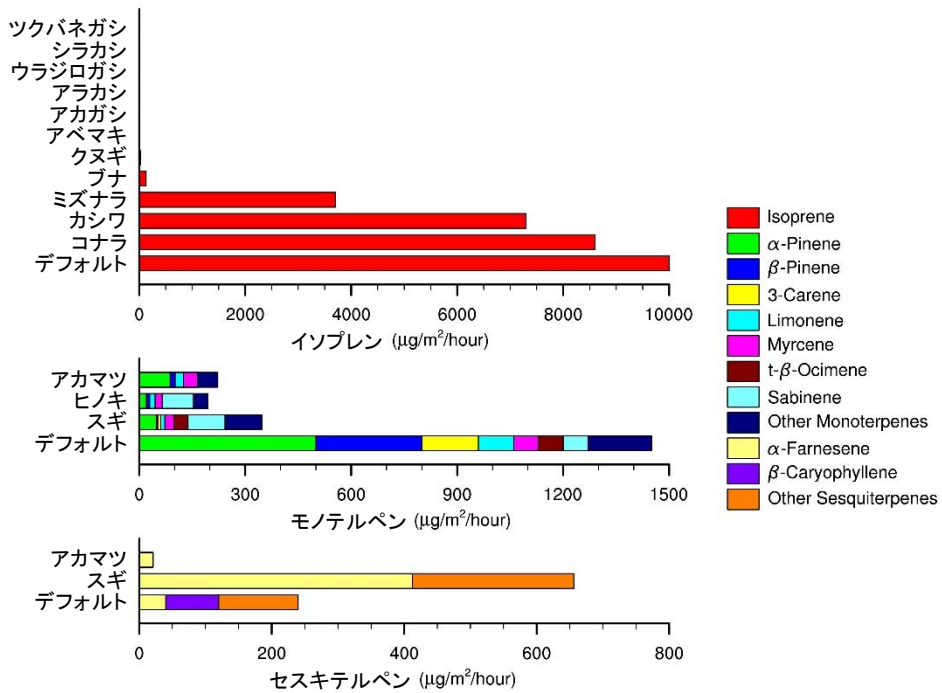
図(1)-2 SAPRC07の排出量データを使用しCMAQで計算された2013年夏のオゾン日最高濃度の期間平均値と、CB05、RACM2、SAPRC99を使用した場合との差の分布

日本国内の主要樹種から排出されるVOCを計測した既往研究を集めて新たに設定したイソプレン、モノテルペン、セスキテルペンの成分別排出係数を図(1)-4に示す。MEGANでデフォルトとして使用されているデフォルトの値も示している。イソプレンの排出係数は、どの樹種についてもデフォルトの値よりも低く、樹種によっては全く排出がないとされている。モノテルペンの排出係数についても、新たに与えた排出係数はデフォルトの値よりもかなり小さくなっている。一方、セスキテルペンの排出係数については、スギからの排出がデフォルトよりも高い値となっている。このような樹種による排出特性の大きな違いを排出量推計に反映させた。

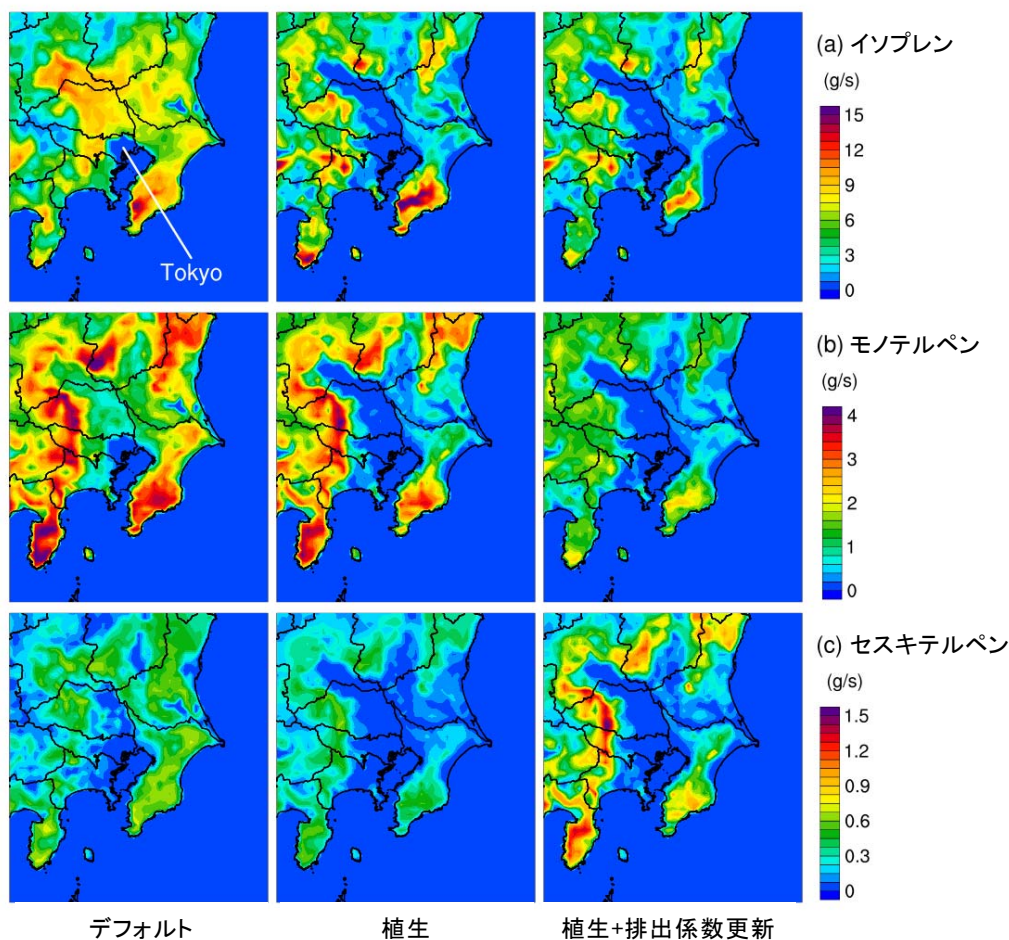
デフォルトのデータを使用した場合、植生データを更新した場合、さらにVOCの排出係数を更新した場合にMEGANで推計された、関東地方におけるイソプレン、モノテルペン、セスキテルペンの排出量分布を図(1)-5に示す。デフォルトのデータを使用した場合に、都心部から埼玉県東部と群馬県南部にかけての関東平野において排出量が比較的高い傾向が見られる。実際にはこれらの地域は主に都市部で構成されることから、デフォルトのデータが実際の土地利用状況を表現できていないことが示唆される。新たに構築した植生データに更新することにより、該当地域の排出量はほぼ無くなり、排出係数の更新により周辺部での排出も少なくなっている。モノテルペンの排出量にも同様の傾向が見られる。一方、セスキテルペンについては、排出係数の更新により、スギが多く存在する森林域において排出量が高くなっている。



図(1)-3 デフォルトの土地利用データを使用した場合、ならびに新たに構築した植生データを土地利用データとして使用した場合に、関東地方を対象にWRFで計算された2013年夏の気温、相対湿度、境界層高さの平均値とその差の分布



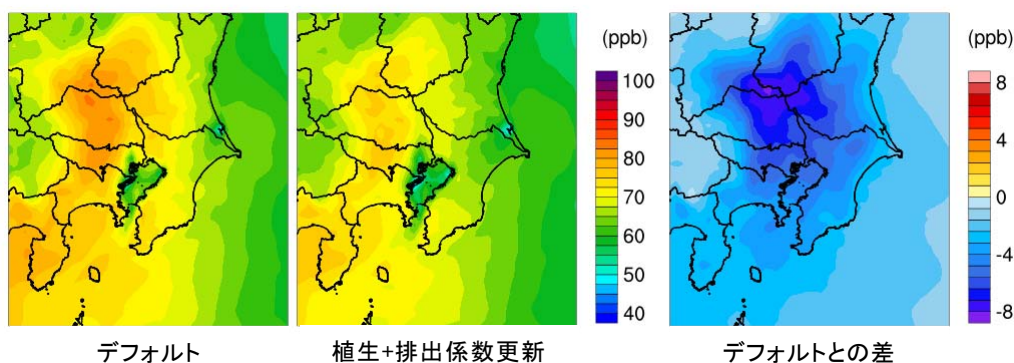
図(1)-4 日本国内の主要樹種から排出されるイソプレン、モノテルペン、セスキテルペンの成分別排出係数



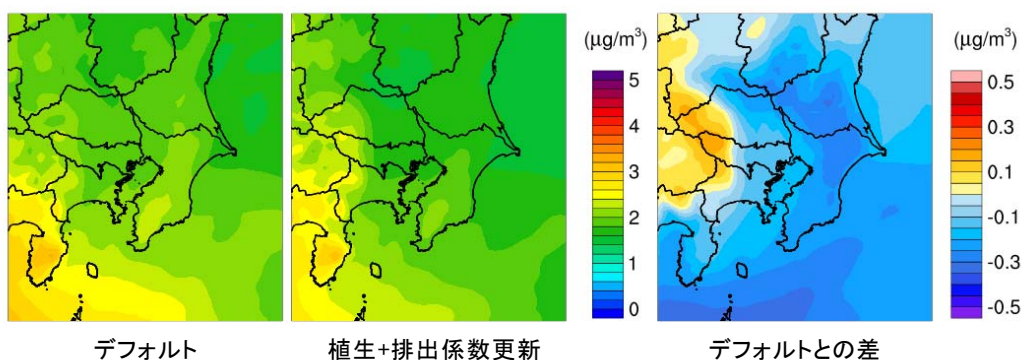
図(1)-5 デフォルトのデータを使用した場合、植生データを更新した場合、さらにVOCの排出係数を更新した場合にMEGANで推計された、関東地方におけるイソプレン、モノテルペン、セスキテルペンの排出量分布

デフォルトのデータを使用して推計された排出量を使用した場合、ならびに植生とVOCの排出係数を更新して推計された排出量を使用した場合について、CMAQで計算された2013年夏の関東地方におけるオゾン濃度の平均値の分布を図(1)-6に示す。右側の図は濃度の差を表している。神奈川県から群馬県南部にかけてオゾン濃度が高く、排出量の更新により、これらの地域におけるオゾン濃度が最大5ppb程度低くなった。ただ、モデルによるオゾン濃度の過大評価は多少改善されるものの、観測値と計算値の乖離を説明づけるには至らなかった。同様に、有機二次粒子濃度の計算値の分布を図(1)-7に示す。対象領域西側のスギの多い地域において濃度が上昇する影響が見られたが、都心部を含めて有機成分濃度の過小評価を解消させるには至らなかった。

新たに構築したデータを用いることにより、モデルによる気象場と汚染物質濃度の再現性のある程度は改善させることができたが、他の要因についても改良の必要性が示された。植生データとVOC排出係数データ、そしてそれらを使用してMEGANで推計された植物起源のVOC排出量データについては、モデル間相互比較計算のPhase2以降で、WRFで計算された共通の気象場、ならびに大気質モデルへの共通の排出量入力データとして反映させた。



図(1)-6 デフォルトのデータを使用して推計された排出量を使用した場合、植生とVOCの排出係数を更新して推計された排出量を使用した場合について、CMAQで計算された2013年夏の関東地方におけるオゾン濃度の平均値とその差の分布

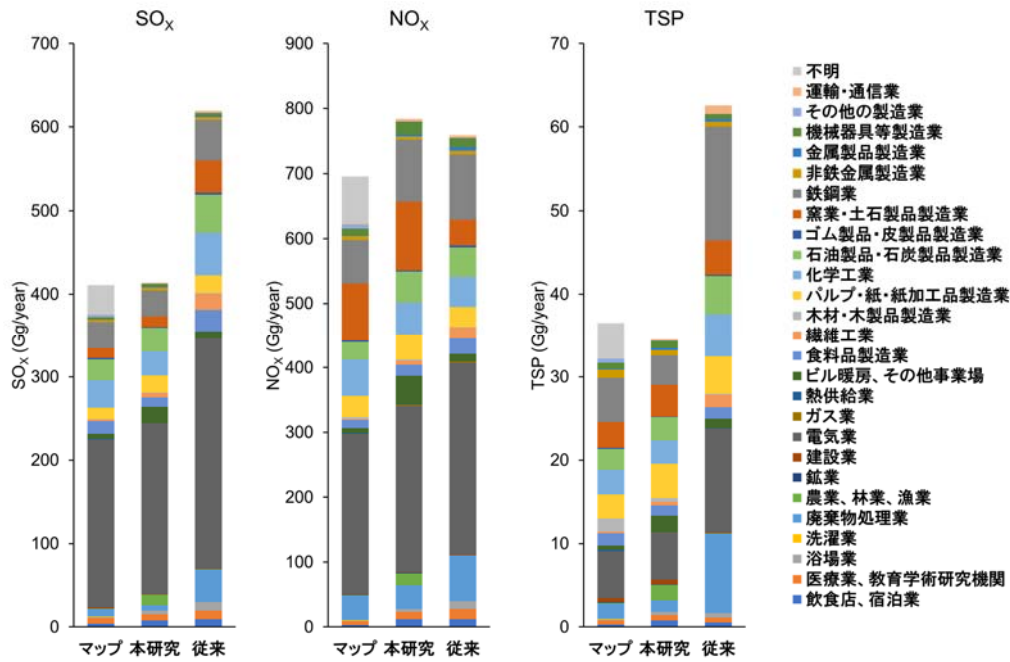


図(1)-7 デフォルトのデータを使用して推計された排出量を使用した場合、植生とVOCの排出係数を更新して推計された排出量を使用した場合について、CMAQで計算された2013年夏の関東地方における有機二次粒子濃度の平均値とその差の分布

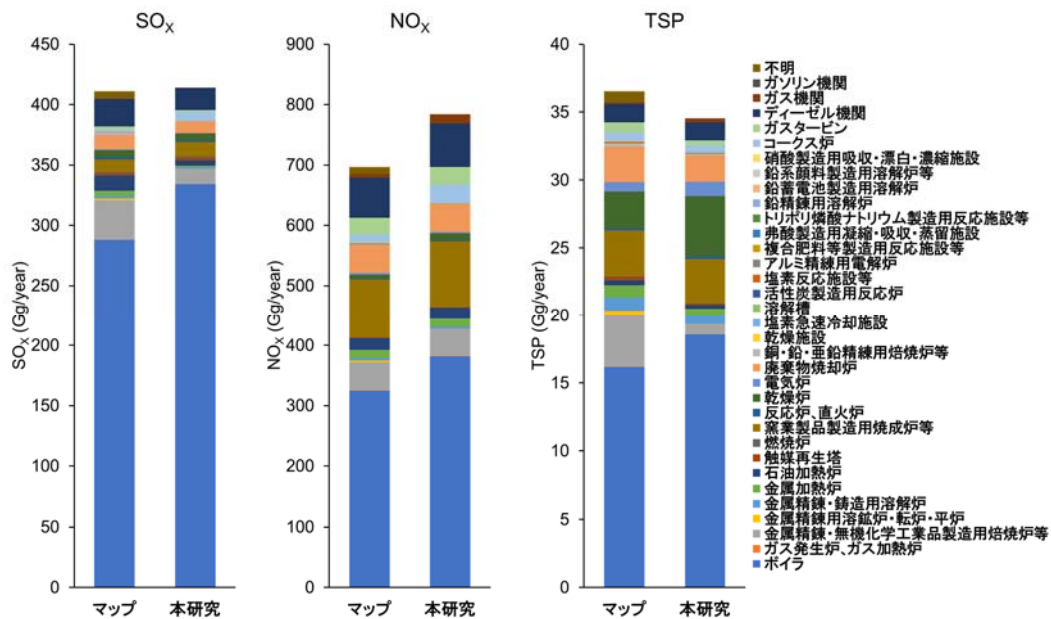
(3) 業種別・燃料別・施設種別固定発生源排出インベントリの構築

本研究で新たに導出した排出係数と燃料消費量割合を用い、2011年度を対象に推計された SO_x 、 NO_x 、ばいじんの業種別排出量総量を図(1)-8に示す。図中には、従来の業種別排出係数を使用して推計された排出量を「従来」、一般に公開されているマップ調査の排出量の集計値を「マップ」として並べて示している。 NO_x を除き、従来よりも本研究で推計された値の方が大幅に少なく、集計値に近くなっている。従来の業種別排出係数は、1999年度現在のマップ調査から導出されたものであり、それ以降の対策による排出係数の低下を表現できていないためであると考えられる。本研究による推計値と集計値を比較すると、不明分を除き、いずれの物質についても本研究の方がやや多くなっている。マップ調査の対象には含まれない小規模の発生源の影響であると考えられる。特に農業・林業・漁業やビル暖房・その他事業場などの小規模の発生源が多く含まれると考えられる業種において、差が大きくなっている。それ以外の業種の排出量と割合は本研究と集計値でほぼ整合している。

同様に、施設種別の排出量総量を図(1)-9に示す。本研究で新たに推計できるようにしたものであり、「従来」は存在しない。施設種別の排出量と割合は集計値と概ね整合しているが、金属精錬・無機化学工業品製造用焙焼炉等については、本研究による推計値がかなり少ない。本施設種は鉄鋼業に多く含まれると考えられる。鉄鋼業の相当数のマップ調査票データが、必要となる情報が不足しているために解析の対象から除外されてしまったことから、十分な精度が得られていないと思われる。

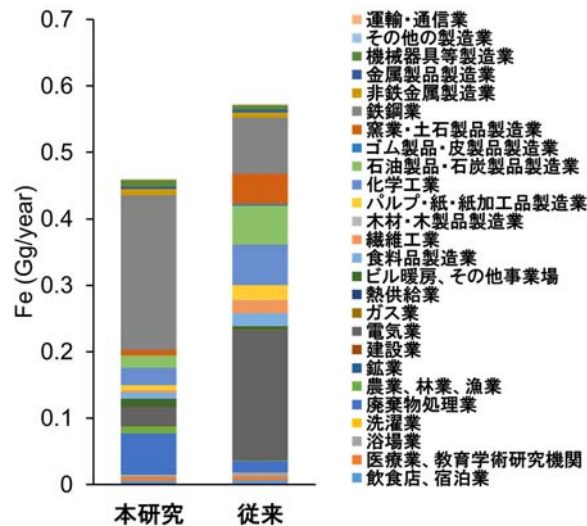


図(1)-8 本研究で新たに導出した排出係数と燃料消費量割合を用いて2011年度を対象に推計されたSO_x、NO_x、ばいじんの業種別排出量総量



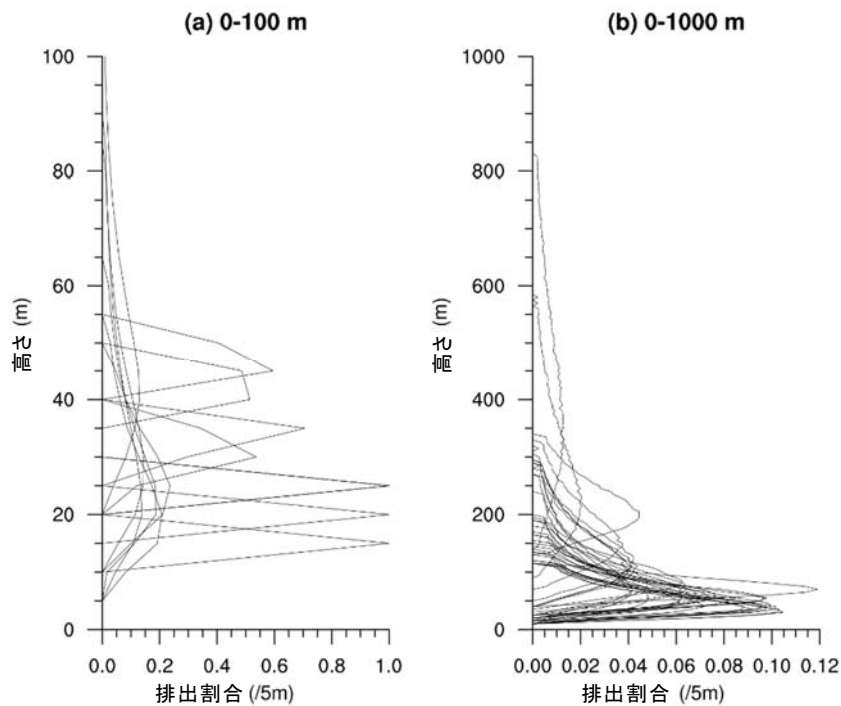
図(1)-9 本研究で新たに導出した排出係数と燃料消費量割合を用いて2011年度を対象に推計されたSO_x、NO_x、ばいじんの業種別排出量総量

硫酸塩の不均一反応生成に寄与するPM_{2.5}中のFeについて、業種別の排出量総量を図(1)-10に示す。本研究で導出したばいじんの排出係数が従来に比べて小さくなったために、Feの排出量も従来に比べて少なくなっている。一方、従来は燃料種別の組成プロファイルを用いていたために、電気業の寄与が最も大きいという違和感のある結果になっていたが、本研究では施設種別の組成プロファイルを用いることにより、鉄鋼業の寄与が最も大きいという、より妥当と思われる結果になった。



図(1)-10 硫酸塩の不均一反応生成に寄与するPM_{2.5}中のFeの業種別の排出量総量

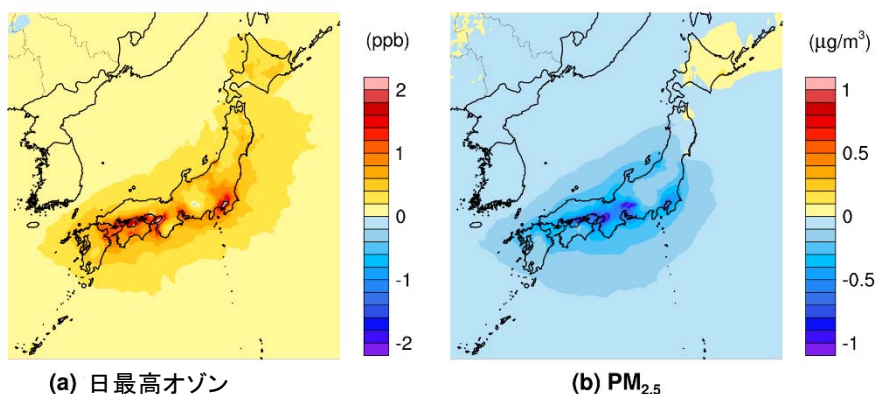
本研究で得られた全施設種の排出量鉛直分布を図(1)-11に示す。分布が高さ100mまでの間に収まる小規模の施設種とそれ以外の施設種に分けて示している。値は高さ5mあたりの排出割合として表している。小規模の施設種だけではなく、分布が高さ100m以上に達している施設種についても、分布のピークは高さ100m以下に現れているものが多い。ただし、大規模の施設については上空まで裾の広い分布となっており、電気業のボイラは580m、ガスタービンは825mにまで達している。従来の鉛直分布は1999年度現在のマップ調査から業種別に導出されたものであったが、本研究により、最近の状況を反映し施設種別の状況を表現できる鉛直分布を新たに得ることができた。



図(1)-11 本研究で得られた全施設種の排出量鉛直分布

本研究で得られた排出量を使用して大気質モデルで計算された2013年度のPM_{2.5}と日最大オゾン濃度の年間平均値について、従来の排出量を使用して計算された値との差の分布を図(1)-12に示す。本研究で

得られた排出量を使用することにより、PM_{2.5}濃度は最大で1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 低下し、日最高オゾン濃度は最大で2ppb上昇する結果となった。大気質モデルによる汚染物質濃度の再現性を大きく変化させるものではないものの、施設種別の発生源の特徴を反映し大気汚染防止法に基づく対策の立案にもつながるデータを構築することができた。



図(1)-12 本研究で得られた排出量を使用して大気質モデルで計算された2013年度のPM_{2.5}と日最高オゾン濃度の年間平均値について、従来の排出量を使用して計算された値との差の分布

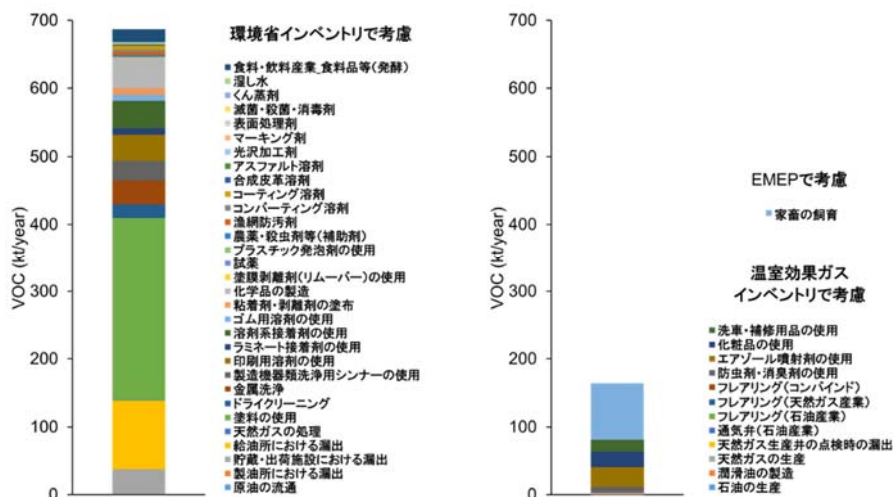
新たに構築した業種別・燃料別・施設種別固定発生源排出インベントリデータと鉛直分布については、モデル間相互比較計算のPhase3において、大気質モデルへの共通の排出量入力データとして反映させた。

(4) 未把握VOC発生源の検討

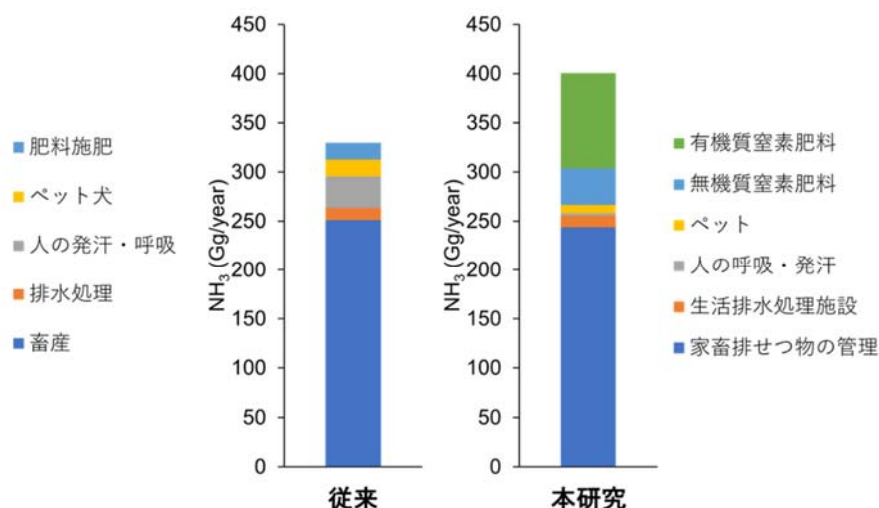
従来の非燃焼起源のVOC排出量は、環境省の揮発性有機化合物排出インベントリ²⁾で報告されている値をそのまま使用している。把握されていない発生源として、温室効果ガス排出インベントリ³¹⁾では考慮されている民生品（エアゾール噴射剤、化粧品、洗車・補修用品）の使用などに伴う排出量、また、EMEPのguidebook³²⁾で考慮されている発生源のうち、家畜の飼育に伴う排出量の寄与が比較的大きいことが示唆されたため、これらの発生源からの排出量を試算した。図(1)-13の左側に従来の非燃焼起源VOC排出量総量、右側に本研究で新たに考慮した発生源からのVOC排出量総量を示す。本研究で新たに考慮した発生源からの排出量は、従来の排出量の2～3割に相当すると推計された。右側の新たに考慮した排出量については、モデル間相互比較計算のPhase3において、大気質モデルへの共通の排出量入力データとして反映させた。なお、家畜の飼育については、VOCだけではなくPMについても、EMEPの手法に基づき推計した排出量を追加した。

(5) アンモニア排出量推計の検討

本研究で新たに推計したアンモニアの発生源別排出量総量を、従来の推計値と併せて図(1)-14に示す。従来の値とは発生源の分け方が少し異なっている。従来の「畜産」には、肥料として施肥されるものも区別されずに含まれていた。一方、本研究の「家畜排せつ物の管理」は糞尿等から直接排出されるものに相当し、肥料として施肥されるものは「有機質窒素肥料」として分離されている。なお、「有機質窒素肥料」には、従来は考慮されていなかった下水汚泥、堆肥副資材、その他有機質肥料由来分も含まれている。これらを含めて家畜と施肥に関する排出量は従来よりも4割程度増加した。一方、従来の排出量総量に対する寄与が1割程度あった人の発汗・呼吸に伴う排出は、本研究における排出係数の見直しにより排出量が大幅に減少した。これらの排出量の変化が、大気質モデルで計算されるアンモニアだけではなく硝酸塩の濃度にも大きく影響すると考えられる。本研究で新たに推計した排出量は、モデル間相互比較計算のPhase3において、大気質モデルへの共通の排出量入力データとして反映させた。



図(1)-13 従来の非燃焼起源VOC排出量総量(左側)と
本研究で新たに考慮した発生源からのVOC排出量総量(右側)

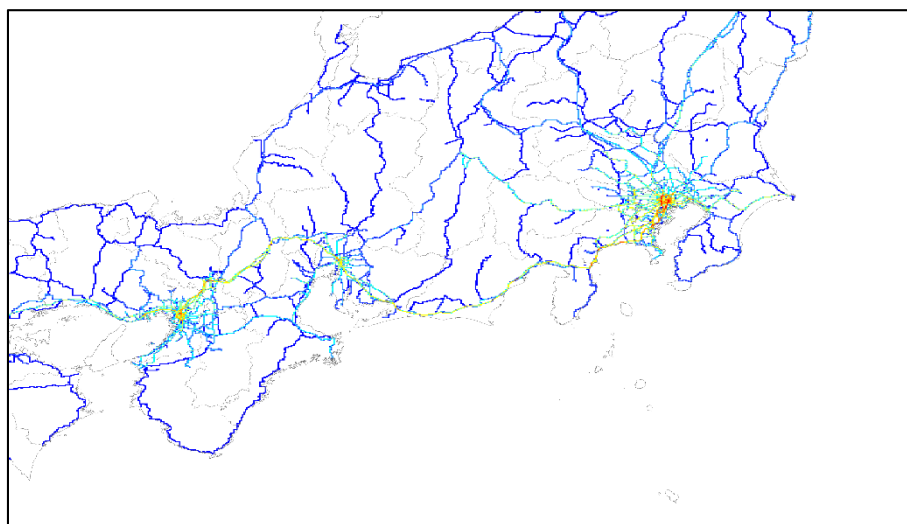


図(1)-14 本研究で新たに推計したアンモニアの発生源別排出量総量(右側)と従来の推計値(左側)

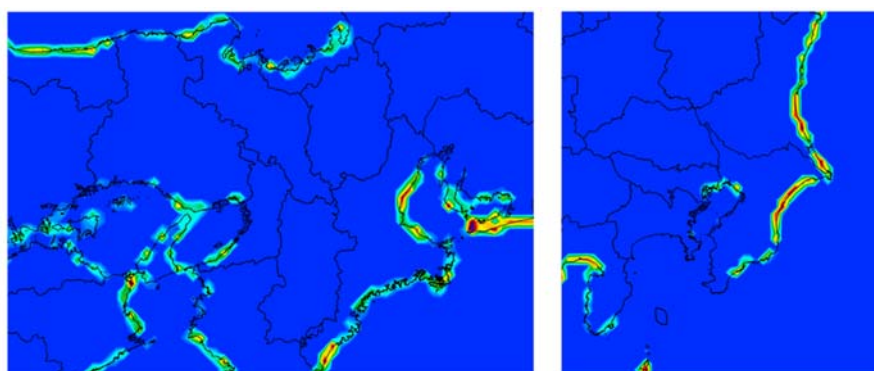
(6) その他の排出インベントリの改良

モデル間相互比較のPhase1において、モデルによるPM_{2.5}中の硫酸塩の過小評価が見出され、サブテーマ(3)での検討結果から、FeとMnが絡む不均一反応による硫酸塩の二次生成の重要性が示唆された。FeやMnの発生源として、鉄道の線路、車輪、ブレーキ、トロリ線の摩耗に伴い発生する粉じんを新たに考慮した。排出係数には東京都の値を用い、活動量として、JR新幹線は鉄道輸送統計年報の路線別旅客車キロ、JR在来線は鉄道統計年報の会社別車両走行キロを路線別旅客人キロで配分したもの、民営・公営鉄道は鉄道統計年報の路線別車両走行キロを用いた。排出量分布を図(1)-15に示す。都市部で排出が多いものの、全発生源の排出量総量に対する寄与は軽微であった。

モデル間相互比較のPhase1において、モデルによるPM_{2.5}中の塩化物イオンの過小評価が見出された。主要な発生源の一つとして、海塩粒子の排出量を見直した。CMAQなどの大気質モデルでは、海塩粒子の排出量がモデル内で計算される。必要な入力データとして、従来の海面の分布に加え、国土数値情報の土地利用データにおける海浜に隣接するものとして、図(1)-16に示す砕波帯の分布データを新たに作成した。沿岸部における海塩粒子の排出量が増加したが、大気質モデルで計算されるPM_{2.5}濃度に対する影響は軽微であった。



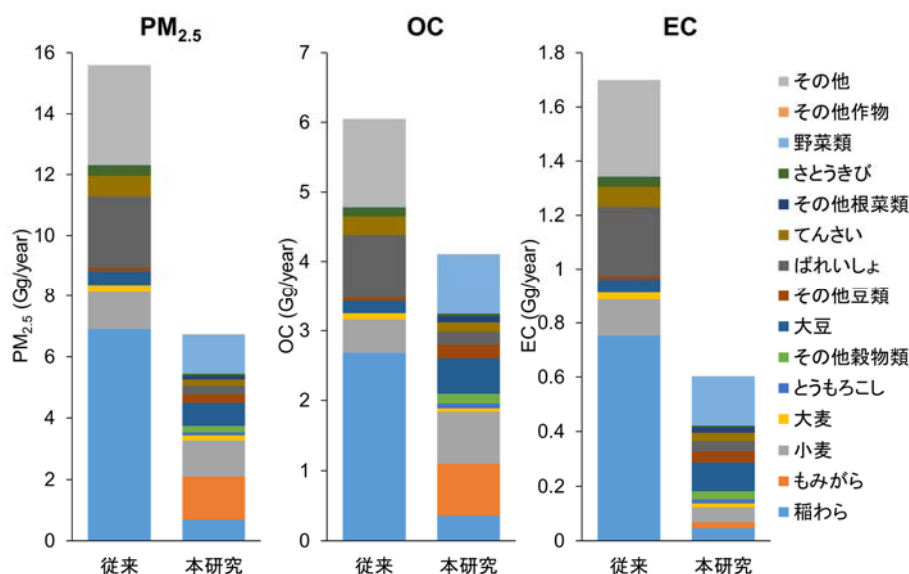
図(1)-15 鉄道の線路、車輪、ブレーキ、トロリ線の摩耗に伴い発生する粉じんの排出量分布



図(1)-16 新たにデータを作成した碎波帯の分布

モデル間相互比較のPhase1および2において、モデルによるPM_{2.5}中の有機成分の過小評価が見出された。主要な発生源の一つとして、野焼きによる排出量を見直した。温室効果ガス排出インベントリ³¹⁾の手法に基づき、活動量として従来の農作物の収穫量ではなく作付面積を用いるように改めた。排出係数には文献値^{33,34)}を採用した。季節変動には文献値³⁵⁾を採用し、秋の稲の野焼きの最盛期における排出量は相対的に多くなったが、図(1)-17の野焼き起因PM_{2.5}、有機炭素 (Organic Carbon, OC)、元素状炭素 (Elemental Carbon, EC) 年間排出量総量に示すように、主に活動量の見直しにより排出量総量は従来に比べて大幅に減少する結果となった。

これらの改良を含めて、本研究の最終成果として、モデル間相互比較のPhase3に提供した排出インベントリデータを改めて表(1)-2にまとめる。植物起源と日本国内の固定発生源以外については、元データを(7)のツールで読み込める形式に変換したものを整備した。日本国内の固定発生源については、JEI-DB¹⁾を基に上述の改良を加え、2015年度の活動量を用いて本研究で独自にデータの構築を行った。空間解像度は3次メッシュに市区町村の情報を加えたものを最小単位とし、市区町村別の感度解析も可能な形式とした。発生源の構成は温室効果ガス排出インベントリ³¹⁾に準じたものとし、国際的な比較等にも対応できるようにした。

図(1)-17 野焼き起因PM_{2.5}、OC、EC年間排出量総量

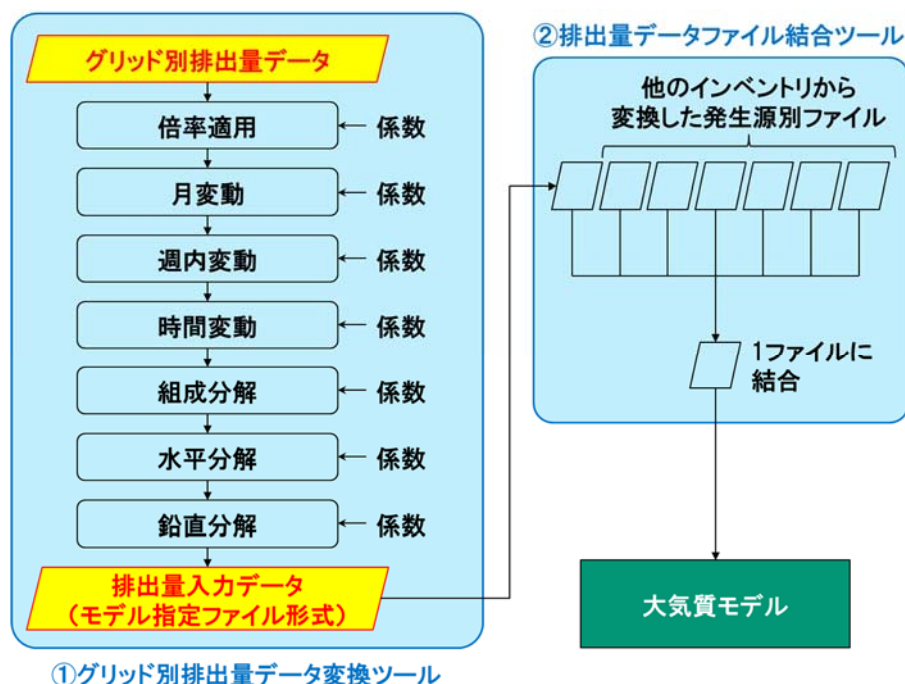
表(1)-2 モデル間相互比較計算のPhase3に提供した排出インベントリデータ

地域	発生源	データ
日本以外	人為起源	HTAP version 2.2 ⁴⁾ 中国は文献値 ³⁶⁾ 、韓国はClean Air Policy Support System (CAPSS) を用いて総量を2015～2017年に年次補正
日本以外	植物起源	MEGAN version 2.1 ⁵⁾
日本周辺海域以外	船舶	HTAP version 2.2 ⁴⁾
日本以外	火山	AeroCom ⁶⁾
日本以外	バイオマスバーニング	GFED version 4.1s ⁷⁾
日本国内	自動車	環境省PM _{2.5} インベントリ ^{37, 38)} 2012年度の3次メッシュデータを2015年度との排出量総量の比で年次補正
日本国内	自動車以外輸送 (航空機・機械)	環境省PM _{2.5} インベントリ ³⁸⁾
日本国内	固定発生源	JEI-DB ¹⁾ を基に以下の上述の改良を加え2015年度を対象に本研究で推計 (3) 業種別・燃料別・施設種別固定発生源 (4) 未把握VOC発生源 (5) アンモニア排出量 (6) 鉄道排出量 (6) 野焼き排出量
日本国内	植物起源	MEGAN version 2.1 ⁵⁾ (2) の植生・排出係数データを使用
日本周辺海域	船舶	旧海洋政策研究財団 ³⁾
日本国内	火山	気象庁
全域	海塩粒子	モデル内で算出 日本周辺は(6)の砕波帯使用

(7) 排出量データ変換ツールの整備

排出インベントリは、一般的に、インベントリ固有のメッシュ別、年、月、時間などの時間解像度別、物質別の排出量データとして整備されている。一方、大気質モデルCMAQは、計算対象領域の水平方向のメッシュ別、鉛直方向の層別、化学反応メカニズムに基づく成分別に、ガス状物質はmol/s、

粒子状物質はg/sの単位での排出量データを必要とする。また、計算対象時間における排出量を格納した1ファイルのみを読み込むようになっており、全ての発生源の排出量を予め統合する必要がある。そこで本研究では、図(1)-18に示す青枠で囲んだ2つのツールを新たに整備した。



図(1)-18 排出量データの変換ツールの概念図

左側の青枠で囲んだツールは、排出インベントリそれぞれについて、グリッドデータをモデルへの入力データの形式に変換するものである。月変動、週内変動、時間変動、組成分解、水平分解、鉛直分解を施すための係数を適用し、CMAQへの入力データファイルをI/O API形式で出力する。排出量に対する汚染物質濃度の感度解析を行えるように、地域別、物質別、発生源別の排出量に倍率を乗じることがもできる。この変換ツールを用い、月別、月別かつ平日休日別など、元データの時間解像度別にファイルを作成する。右側の青枠で囲んだツールは、複数の排出インベントリから作成された個々のファイルを、計算対象日に応じて一つのファイルに統合するものである。感度解析を行えるように、ファイル単位で排出量に一律の倍率を乗じることができるようにもなっている。

本研究では、これらの変換ツールだけではなく、表(1)-2に示した植物起源VOC排出インベントリを除く全ての排出インベントリについて、月変動、週内変動、時間変動、複数の化学反応メカニズム(SAPRC07、SAPRC99、CB05)への組成分解、モデル間相互比較の対象領域への水平分解、鉛直分解を行うための係数データも全て整備し、これらを使って変換して作成したモデル間相互比較のPhase3の共通排出量データとともに公開した。

5. 本研究により得られた成果

(1) 科学的意義

モデル間相互比較における汚染物質濃度再現性の検証結果と科学的な知見に基づき、大気質モデルによる汚染物質濃度の再現性を向上させるべく、必要な改良を排出インベントリに加えることができた。特に、植物起源VOC排出インベントリと業種別・燃料別・施設種別固定発生源排出インベントリについては、本研究で日本国内のデータを独自に解析して構築した詳細なインベントリであり、いずれも既に学術論文として認められている。複数の化学反応メカニズムによる排出量データ構築とその影響評価も日本国内では初の試みであり、これまでに評価できていなかった不確実性を明らかにすることがで

きた。さらに、全ての排出インベントリを大気質モデルが必要とする形式に変換するためのツールとデータの整備は、モデル研究者が計算を実行する際の敷居を低くし、モデル研究の発展につながる成果であると言える。

(2) 環境政策への貢献

<行政が既に活用した成果>

環境省の揮発性有機化合物（VOC）排出インベントリ検討会の下に設けられたインベントリ検討WGに検討委員として参画し、本研究での知見を踏まえてWGでの未把握VOC発生源の検討に貢献した。未把握VOC発生源の検討やNH₃排出量推計の見直しなどについては、環境省のPM_{2.5}排出インベントリ及び発生源プロファイル業務における検討項目に反映されている。本研究で構築された排出量データは、環境省からの委託により国立環境研究所が運用している大気汚染予測システムのVisual atmospheric Environment Utility System（VENUS）への入力データとして既に活用されている。本研究の成果を踏まえた排出インベントリに関する取り組みや課題について、日本がパートナー国として参加している短寿命気候汚染物質削減のための気候と大気浄化の国際パートナーシップ（CCAC）の科学諮問パネル専門家ワークショップ「Metrics for Evaluating and Reporting on Black Carbon and Methane Interventions」で発表し、関係国に成果を主張することができた。

<行政が活用することが見込まれる成果>

既に反映されている内容も含めて、本研究の成果が、環境省のPM_{2.5}排出インベントリ及び発生源プロファイル業務における排出インベントリの構築に役立てられることが期待される。また、排出量データの変換ツールや必要な係数類により、行政による大気質モデルを使用した対策検討業務において、労力を大幅に軽減させることが可能になる。さらに、本研究で構築したデータは、温室効果ガス排出インベントリとの整合性を意識しており、国連気候変動に関する政府間パネル（Intergovernmental Panel on Climate Change）で議論されている短寿命気候汚染物質（Short-lived Climate Pollutant、SLCP）を含めた排出インベントリの整備にも貢献しうるものである。

6. 国際共同研究等の状況

特に記載すべき事項はない。

7. 研究成果の発表状況

(1) 誌上発表

<論文（査読あり）>

- 1) S. CHATANI, K. YAMAJI, T. SAKURAI and H. HAYAMI: Global Environmental Research, 22, 1&2, 21-30 (2019)

Establishing a Reference Modeling for Source Apportionment and Effective Strategy-Making for Suppressing Secondary Air Pollutants.

- 2) 茶谷聡, P. CHEEWAPHONGPHAN, 小林伸治, 田邊潔, 山地一代, 高見昭憲: 大気環境学会誌, 54, 2, 62-74 (2019)

日本国内大規模固定発生源の業種別・施設種別・燃料種別大気汚染物質排出インベントリの構築

- 3) 長田和雄, 山神真紀子, 久恒邦裕, 池盛文数, 茶谷聡: 大気環境学会誌, 54, 2, 55-61 (2019)
名古屋の湾岸部における光学的黒色炭素の起源—海風時の解析—

- 4) K. KITAYAMA, Y. MORINO, K. YAMAJI and S. CHATANI: Atmos. Environ., 198, 1, 448-462 (2019)

Uncertainties in O₃ Concentrations Simulated by CMAQ over Japan Using Four Chemical

Mechanisms.

- 5) S. CHATANI, M. OKUMURA, H. SHIMADERA, K. YAMAJI, K. KITAYAMA and S. MATSUNAGA:
Atmosphere, 9, 5, 179 (2018)
Effects of a Detailed Vegetation Database on Simulated Meteorological Fields, Biogenic VOC Emissions, and Ambient Pollutant Concentrations over Japan.
- 6) S. CHATANI, K. YAMAJI, T. SAKURAI, S. ITAHASHI, H. SHIMADERA, K. KITAYAMA and H. HAYAMI: Atmosphere, 9, 1, 19 (2018)
Overview of Model Inter-Comparison in Japan's Study for Reference Air Quality Modeling (J-STREAM).
- 7) 富山一, 田邊潔, 茶谷聡, 小林伸治, 藤谷雄二, 古山昭子, 佐藤圭, 伏見暁洋, 近藤美則, 菅田誠治, 森野悠, 早崎将光, 小熊宏之, 井手玲子, 日下博幸, 高見昭憲: 大気環境学会誌, 52, 4, 105-117 (2017)
野焼き発生の時間分布調査および稲作残渣野焼きによる大気汚染物質排出量の日変動推計

<その他誌上発表(査読なし)>

- 1) 茶谷聡: 大気環境学会誌, 52, 3, A79-A82 (2017)
領域化学輸送モデルができることと課題

(2) 口頭発表(学会等)

- 1) 茶谷聡, CHEEWAPHONGPHAN PENWADEE, 小林伸治, 田邊潔, 山地一代, 高見昭憲: 第59回大気環境学会年会 (2018)
「固定発生源の業種別・施設種別・燃料種別汚染物質排出インベントリの構築」
- 2) 茶谷聡, 山地一代: 第59回大気環境学会年会 (2018)
「揮発性有機化合物排出インベントリの空間分布および未把握発生源の検討」
- 3) S. CHATANI: Land Cover/Land Use Changes (LC/LUC) and Impacts on Environment in South/Southeast Asia - International Regional Science Meeting (2018)
“Effects of detailed vegetation database on simulated meteorological fields, biogenic VOC emissions, and ambient pollutant concentrations over Japan.”
- 4) S. CHATANI, H. SHIMADERA, K. KITAYAMA and K. YAMAJI: 1st CMAS-Asia-Pacific conference (2018)
“Sensitivity analyses on factors influencing simulated ambient ozone concentrations over Japan in J-STREAM.”
- 5) K. KITAYAMA, S. CHATANI, K. YAMAJI, S. ITAHASHI, M. SAITO, M. TAKIGAWA, T. MORIKAWA, I. KANDA, Y. MIYA, H. KOMATSU, T. SAKURAI, Y. MORINO, H. SHIMADERA, K. URANISHI, Y. FUJIWARA and H. HAYAMI: 1st CMAS-Asia-Pacific conference (2018)
“Inter-comparison of model performance on ambient ozone concentrations over Japan in J-STREAM.”
- 6) S. CHATANI, M. TAKIGAWA, K. KITAYAMA and K. YAMAJI: 16th Annual CMAS Conference (2017)
“Effects of interactions between meteorology and ambient pollutants on simulated air quality over metropolitan regions in Japan.”
- 7) 茶谷聡, 菅田誠治, 永島達也, 森野悠, 山地一代, 速水洋, 板橋秀一, 櫻井達也: 第58回大気環境学会年会 (2017)
「大気質モデル間相互比較研究J-STREAMの概要」
- 8) 茶谷聡, 奥村智憲, 嶋寺光, 山地一代, 北山響, 松永壮: 第58回大気環境学会年会 (2017)
「高解像度植生・植物起源VOC排出インベントリデータベースの構築と気象・大気質シミュレーションへの影響」

- 9) 北山響, 森野悠, 山地一代, 茶谷聡: 第58回大気環境学会年会 (2017)
「大気モデル化学反応メカニズムの違いによる O_3 濃度差の評価」
- 10) 茶谷聡, 富山一, 小林伸治, 田邊潔, 菅田誠治, 佐藤圭, 高見昭憲: 第57回大気環境学会年会 (2016)
「野焼き起因排出量推計の改良による $PM_{2.5}$ 濃度予測値への影響評価」
- 11) 茶谷聡: 平成27年度大気環境学会関東支部講演会 (2016)
「領域化学輸送モデルができることと課題」

(3) 知的財産権

特に記載すべき事項はない。

(4) 「国民との科学・技術対話」の実施

- 1) 平成27年度大気環境学会関東支部講演会「大気汚染モデルの現状と課題」(2016年6月3日、ムーブ町屋ムーブホール、観客約100名)にて講演
- 2) 国立環境研究所夏の大公開「環境博士が君を待っている！」(2016年7月23日、国立環境研究所、参加者約5000名)にて研究紹介
- 3) 国立環境研究所公開シンポジウム「私たちの安心・安全な環境づくりとは—持続可能性とその課題—」(2017年6月16日、滋賀県立芸術劇場びわ湖ホール、観客266名)(2017年6月23日、メルパルクホール、観客569名)にて成果紹介
- 4) 国立環境研究所夏の大公開「来てみて触ってエコチャレンジ！」(2017年7月22日、国立環境研究所、参加者5486名)にて研究紹介
- 5) 第15回環境研究シンポジウム(主催:環境研究機関連絡会、2017年11月21日、一橋大学一橋講堂)にて成果紹介
- 6) 国立環境研究所夏の大公開「キミの知っている環境問題は氷山の一角かもしかかもしれない」(2018年7月21日、国立環境研究所、参加者約5320名)にて研究紹介
- 7) 市民公開講座「大気エアロゾルの環境管理・改善に関する研究最前線—より良い大気環境に向けて—」(主催:日本エアロゾル学会、2018年8月2日、名古屋大学シンポジオン、観客約50名)にて講演
- 8) 国際シンポジウム「効果的な大気改善策の立案に資するモデルの開発と適用」(主催:国立環境研究所、2019年2月18日、東京国際フォーラム、観客約40名)にて研究紹介

(5) マスコミ等への公表・報道等

特に記載すべき事項はない。

(6) その他

特に記載すべき事項はない。

8. 引用文献

- 1) 石油エネルギー技術センター (2015)
平成26年度 $PM_{2.5}$ 排出インベントリ及び発生源プロファイル解説書.
- 2) 環境計画研究所 (2018)
平成29年度揮発性有機化合物 (VOC) 排出インベントリ作成等に関する調査業務報告書.
- 3) 海洋政策研究財団 (2013)
平成24年度排出規制海域 (ECA) 設定による大気環境改善効果の算定事業報告書.
- 4) G. JANSSENS-MAENHOUT, M. CRIPPA, D. GUIZZARDI, F. DENTENER, M. MUNTEAN, G. POULIOT, T. KEATING, Q. ZHANG, J. KUROKAWA, R. WANKMÜLLER, H. DENIER VAN DER GON, J. J. P. KUENEN,

- Z. KLIMONT, G. FROST, S. DARRAS, B. KOFFI and M. LI: *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 19, 11411-11432 (2015)
HTAP_v2.2: A Mosaic of Regional and Global Emission Grid Maps for 2008 and 2010 to Study Hemispheric Transport of Air Pollution.
- 5) A.B. GUENTHER, X. JIANG, C.L. HEALD, T. SAKULYANONTVITTAYA, T. DUHL, L.K. EMMONS and X. WANG: *Geosci. Model Dev.*, 5, 6, 1471-1492 (2012)
The Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature Version 2.1 (MEGAN2.1): An Extended and Updated Framework for Modeling Biogenic Emissions.
- 6) T. DIEHL, A. HEIL, M. CHIN, X. PAN, D. STREETS, M. SCHULTZ and S. KINNE: *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 12, 24895-24954 (2012)
Anthropogenic, Biomass Burning, and Volcanic Emissions of Black Carbon, Organic Carbon, and SO₂ from 1980 to 2010 for Hindcast Model Experiments.
- 7) G.R. VAN DER WERF, J.T. RANDERSON, L. GIGLIO, T.T. VAN LEEUWEN, Y. CHEN, B.M. ROGERS, M. MU, M.J.E. VAN MARLE, D.C. MORTON, G.J. COLLATZ, R.J. YOKELSON and P.S. KASIBHATLA: *Earth Syst. Sci. Data*, 9, 2, 697-720 (2017)
Global Fire Emissions Estimates during 1997-2016.
- 8) W.P.L. CARTER: *Atmos. Environ.*, 44, 40, 5324-5335 (2010)
Development of the SAPRC-07 Chemical Mechanism.
- 9) W.P.L. CARTER: California Environmental Protection Agency: Sacramento, CA, USA (2000)
Documentation of the SAPRC-99 Chemical Mechanism for VOC Reactivity Assessment.
- 10) G.Z. WHITTEN, G. HEO, Y. KIMURA, E. MCDONALD-BULLER, D.T. ALLEN, W.P.L. CARTER and G. YARWOOD: *Atmos. Environ.*, 44, 40, 5346-5355 (2010)
A New Condensed Toluene Mechanism for Carbon Bond CB05-TU.
- 11) W.S. GOLIFF, W.R. STOCKWELL and C.V. LAWSON: *Atmos. Environ.*, 68, 174-185 (2013)
The Regional Atmospheric Chemistry Mechanism, Version 2.
- 12) W.R. STOCKWELL, P. MIDDLETON, J.S. CHANG and X. TANG: *J. Geophys. Res. Atmos.* 95, D10, 16343-16367 (1990)
The Second Generation Regional Acid Deposition Model Chemical Mechanism for Regional Air Quality Modeling.
- 13) D. BYUN and K.L. SCHERE: *Appl. Mech. Rev.*, 59, 2, 51-77 (2006)
Review of the Governing Equations, Computational Algorithms, and Other Components of the Models-3 Community Multiscale Air Quality (CMAQ) Modeling System.
- 14) S. CHATANI, S.N. MATSUNAGA and S. NAKATSUKA: *Atmos. Environ.*, 120, 38-50 (2015)
Estimate of Biogenic VOC Emissions in Japan and Their Effects on Photochemical Formation of Ambient Ozone and Secondary Organic Aerosol.
- 15) H. BAO, K.L. SHRESTHA, A. KONDO, A. KAGA and Y. INOUE: *Atmos. Environ.*, 44, 3, 421-431 (2010)
Modeling the Influence of Biogenic Volatile Organic Compound Emissions on Ozone Concentration during Summer Season in the Kinki Region of Japan.
- 16) M. OKUMURA, A. TANI, Y. KOMINAMI, S. TAKANASHI, Y. KOSUGI, T. MIYAMA and S. TOHNO: *J. Agric. Meteorol.*, 64, 2, 49-60 (2008)
Isoprene Emission Characteristics of *Quercus Serrata* in a Deciduous Broad-Leaved Forest.
- 17) A. TANI and Y. KAWAWATA: *Atmos. Environ.*, 42, 19, 4540-4550 (2008)
Isoprene Emission from the Major Native *Quercus* Spp. in Japan.
- 18) S.N. MATSUNAGA, O. MULLER, S. CHATANI, M. NAKAMURA, T. NAKAJI and T. HIURA: *Geochem.*

- J., 46, 2, 163-167 (2012)
 Seasonal Variation of Isoprene Basal Emission in Mature *Quercus Crispula* Trees under Experimental Warming of Roots and Branches.
- 19) 井田明, 岡島美咲, 岸本伊織, 呉偉嘉, Ramasamy Sathiyamurthi, 中嶋吉弘, 加藤俊吾, 茶谷聡, 横内陽子, 奥村智憲, 梶井克純: 大気環境学会誌, 51, 2, 132-143 (2016)
 スギから放出される揮発性有機化合物のOH反応性測定および化学分析.
- 20) C.Y. LIN, T.C. CHANG, Y.H. CHEN, Y.J. CHEN, S.S. CHENG and S.T. CHANG: *Atmos. Environ.*, 122, 163-170 (2015)
 Monitoring the Dynamic Emission of Biogenic Volatile Organic Compounds from *Cryptomeria Japonica* by Enclosure Measurement.
- 21) S.N. MATSUNAGA, T. MOCHIZUKI, T. OHNO, Y. ENDO, D. KUSUMOTO and A. TANI: *Atmos. Pollut. Res.*, 2, 1, 16-23 (2011)
 Monoterpene and Sesquiterpene Emissions from Sugi (*Cryptomeria Japonica*) Based on a Branch Enclosure Measurements.
- 22) S.N. MATSUNAGA, S. NIWA, T. MOCHIZUKI, A. TANI, D. KUSUMOTO, Y. UTSUMI, T. ENOKI and T. HIURA: *Atmos. Environ.*, 69, 124-130 (2013)
 Seasonal Variation in Basal Emission Rates and Composition of Mono- and Sesquiterpenes Emitted from Dominant Conifers in Japan.
- 23) 奥村智憲, 井勢卓也, 谷晃, 深山貴文, 小南裕志, 東野達: *Eco-Engineering*, 25, 4, 117-121 (2013)
 スギ葉のモノテルペン放出に葉温と光強度が与える影響.
- 24) T. MOCHIZUKI, Y. ENDO, S. MATSUNAGA, J. CHANG, Y. GE, C.A. HUANG and A. TANI: *Geochem. J.*, 45, 3, E15-E22 (2011)
 Factors Affecting Monoterpene Emission from *Chamaecyparis Obtusa*.
- 25) 奥村智憲, 谷晃, 小杉緑子, 高梨聡, 深山貴文, 小南裕志, 東野達: *Eco-Engineering*, 20, 2, 89-95 (2008)
 ヒノキ葉から放出されるモノテルペンの日変化と季節変化.
- 26) J.H. LIM, J.C. KIM, K.J. KIM, Y.S. SON, Y. SUNWOO and J.S. HAN: *Chemosphere*, 73, 4, 470-478 (2008)
 Seasonal Variations of Monoterpene Emissions from *Pinus Densiflora* in East Asia.
- 27) 柴田美穂, 藤井富秀, 岸本伊織, 鶴丸央, 坂本陽介, 梶井克純: *ELCAS J.*, 1, 1, 76-80 (2016)
 アカマツから放出される揮発性有機化合物の包括的な評価—化学分析とOH 反応性測定—.
- 28) W.C. SKAMAROCK, J.B. KLEMP, J. DUDHIA, D.O. GILL, D.M. BARKER, M.G. DUDA, X.Y. HUANG, W. WANG and J.G. POWERS: NCAR/TN-475+STR, National Center for Atmospheric Research Boulder Co., Mesoscale and Microscale Meteorology Div., Boulder, CO, USA (2008)
 A Description of the Advanced Research WRF Version 3.
- 29) X. FU, S. WANG, B. ZHAO, J. XING, Z. CHENG, H. LIU and J. HAO: *Atmos. Environ.*, 70, 39-50 (2013)
 Emission Inventory of Primary Pollutants and Chemical Speciation in 2010 for the Yangtze River Delta Region, China.
- 30) H. SIMON, L. BECK, P.V. BHAVE, F. DIVITA, Y. HSU, D. LUECKEN, J.D. MOBLEY, G.A. POULIOT, A. REFF, G. SARWAR and M. STRUM: *Atmos. Pollut. Res.*, 1, 4, 196-206 (2010)
 The development and uses of EPA' s SPECIATE database.
- 31) 温室効果ガスインベントリオフィス (2018)
 日本国温室効果ガスインベントリ報告書.
- 32) European Environment Agency: EEA Report No 21/2016 (2016)

EMEP/EEA Air Pollutant Emission Inventory Guidebook 2016, Technical Guidance to Prepare National Emission Inventories.

- 33) A. FUSHIMI, K. SAITOH, K. HAYASHI, K. ONO, Y. FUJITANI, A.M. VILLALOBOS, B.R. SHELTON, A. TAKAMI, K. TANABE and J.J. SCHAUER: Atmos. Environ., 163, 118-127 (2017)
Chemical Characterization and Oxidative Potential of Particles Emitted from Open Burning of Cereal Straws and Rice Husk under Flaming and Smoldering Conditions.
- 34) K. HAYASHI, K. ONO, M. KAJIURA, S. SUDO, S. YONEMURA, A. FUSHIMI, K. SAITOH, Y. FUJITANI and K. TANABE: Atmos. Environ., 95, 36-44 (2014)
Trace Gas and Particle Emissions from Open Burning of Three Cereal Crop Residues: Increase in Residue Moistness Enhances Emissions of Carbon Monoxide, Methane, and Particulate Organic Carbon.
- 35) 富山一, 田邊潔, 茶谷聡, 小林伸治, 藤谷雄二, 古山昭子, 佐藤圭, 伏見暁洋, 近藤美則, 菅田誠治, 森野悠, 早崎将光, 小熊宏之, 井手玲子, 日下博幸, 高見昭憲: 大気環境学会誌, 52, 4, 105-117 (2017)
野焼き発生の時間分布調査および稲作残渣野焼きによる大気汚染物質排出量の日変動推計.
- 36) B. ZHENG, D. TONG, M. LI, F. LIU, C. HONG, G. GENG, H. LI, X. LI, L. PENG, J. QI, L. YAN, Y. ZHANG, H. ZHAO, Y. ZHENG, K. HE and Q. ZHANG: Atmos. Chem. Phys., 18, 14095-14111 (2018)
Trends in China's Anthropogenic Emissions Since 2010 as the Consequence of Clean Air Actions.
- 37) 石油エネルギー技術センター (2017)
平成28年度PM2.5排出インベントリ及び発生源プロファイル策定委託業務報告書.
- 38) 社会システム株式会社 (2018)
平成29年度PM2.5排出インベントリ及び発生源プロファイル策定委託業務報告書.

II-2 モデル間相互比較に基づく発生源寄与割合の総合的・統合的評価手法の開発

神戸大学

海事科学研究科 山地一代

<研究協力者>

国立研究開発法人国立環境研究所 北山響、兼松透江

一般財団法人日本自動車研究所 森川多津子、木村真（平成28年度）、
早崎将光（平成29-30年度）

大阪大学 嶋寺光、浦西克維

愛媛大学 斎藤正彦

名古屋大学 須藤健悟、長田和雄

国立研究開発法人海洋研究開発機構 滝川雅之

国立研究開発法人産業技術総合研究所 井上和也

国立研究開発法人理化学研究所 足立幸穂

気象庁気象研究所 梶野瑞王

神奈川県環境科学センター 小松宏昭

東京都環境科学研究所 秦寛夫

埼玉県環境科学国際センター 原政之

一般財団法人日本気象協会 佐々木寛介、宮由可子、渡邊茂

株式会社数理計画 藤原禅、西沢利治、橋本知明

日本気象株式会社 神田勲

一般財団法人日本環境衛生センターアジア大気汚染研究センター 桐山悠祐

東京都環境公社東京都環境科学研究所 齊藤伸治

名古屋市環境科学調査センター 久恒邦裕

中国科学院大気物理研究所 Li Jie

North Carolina State University Yang Zhang

United States Environmental Protection Agency Rohit Mathur、Christian Hogrefe

Konkuk University Jung-Hun Woo

Tsinghua University Huan Liu

平成28～30年度累計予算額：25,262千円

（うち平成28年度：8,288千円、平成29年度：8,487千円、平成30年度：8,487千円）

累計予算額は、間接経費を含む。

[要旨]

仕様や設定の異なる複数の大気質モデルにて計算された大気中の二次汚染物質濃度を相互に比較することにより、一つのモデルの一つの設定による結果だけでは得ることができないモデル・モデル設定間のばらつきと、有機成分の過小評価や硝酸塩の過大評価など、複数のモデル設定にて共通する問題点が明らかになった。他方、各大気質モデルが採用する化学・エアロゾルメカニズムの差異と同程度、もしくは、それ以上に、利用する排出インベントリや気象モデル設定の違いがPM_{2.5}の成分濃度に影響をおよぼすことが示された。この結果を踏まえて、気象モデルの再現性の向上に取り組み、最適な気象モデルのパラメータ設定や高解像度の入力データの選定を行い、モデル間相互比較へ反映させた。同時に、これらの結果に基づき、サブテーマ（1）での排出量の精緻化とサブテーマ（3）でのサブモデルの構築が進められた。国内外の大気質モデル研究者の知見を集約したこれらの試みが、わが国の都市域を対象とした大気質モデルの弱点を鮮明にし、また、部分的ではあるが大気質モデルの濃度の再現性を向上

させた。

同時に、CMAQなどの大気質モデルの開発段階（バージョン）が進むに従い、新たなメカニズムの導入や反応速度の適正化などが進み、その違いが大気中二次汚染物質濃度に与える影響が大きいことが示された。ただし、一部の強化された機能は、二次汚染物質濃度の予測精度を向上させることが期待できるが、一方で、わが国の都市域における全ての種の二次汚染物質濃度の再現性を必ずしも向上させる結果とならなかったことに注意が必要である。故に、更なる二次汚染物質濃度の予測精度の向上を追求する場合には、これらの過程を含む未把握過程の詳細解明を進めると同時に、これらの過程を対象とした、わが国や周辺地域に適応したサブモデルやパラメータの構築など、大気質モデルの更なる改良が今後必要であると考え

他方、モデルの計算結果にどの程度のばらつきや限界が存在するのかを把握したうえで、計算結果を有効な対策の立案に生かすという考え方も、時には必要となる。本研究では、高濃度時を対象とした発生源感度評価のモデル間相互比較を実施した。一部の結果を除いて、各発生源からの感度を割合（base case計算を100%）として見た場合、全てのモデル結果は比較的良く似た傾向を示した。冬季硫酸塩濃度の上昇時には、定量的にもモデル設定間差は僅かで、日中にはモデル領域外からの移流の感度が高く、夜間には輸送の感度が増大し、域外からの移流影響と同程度となることが全てのモデル設定にて確認できた。他方、硝酸塩に関しては、モデル間のばらつきが大きく、特に気象条件が異なる場合やモデルの開発段階（バージョン）が異なる場合に、発生源感度評価にも大きな違いが見られることが判明した。故に、この種のモデルを用いた発生源感度評価を行う際には、このような不確かな要素が含まれることを考慮する必要があると考える。

[キーワード]

大気質モデル、相互比較、二次汚染物質、PM_{2.5}、Ox

1. はじめに

微小粒子状物質（PM_{2.5}）に含まれる種々の成分（硫酸塩、硝酸塩、アンモニウム塩、有機成分など）、および、Oxは、大気中にて光化学反応を経て生成される短寿命二次大気汚染物質である。このような二次物質を含む汚染物質の大気中濃度の上昇を予測し、また、有効な濃度低減策を立案するためには、あらゆる発生源からの原因物質の排出実態を正確に表現した排出インベントリを入力情報とする、複雑な光化学反応が組み込まれた大気質モデルの利用が必須となる。この種のモデルでは、気象力学、光化学反応、エアロゾル生成、ならびに、物質の消失過程といった、大気中の物理的、化学的、複数のプロセスが組み込まれており、個々のモデル利用者が選択するメカニズムやパラメータによっては、その解である大気中の物質濃度が大きく異なる可能性が高い。ゆえに、ただ一つのモデル設定に頼ってしまった場合には、極端に偏った結果に基づく解釈となる危険性を有する。

複数の大気質モデル利用者らが通常利用している環境下での仕様や設定の異なる複数のモデル設定にて、共通の大気事象を対象としたモデル実験を実施し、その結果を相互に比較することにより、一つのモデルや一つの設定による計算結果だけでは得ることができないモデル・モデル設定間のばらつきと、複数のモデル設定に共通する問題点が明らかになることが期待できる。本研究では、モデル間相互比較を通して、モデル・モデル設定間のばらつきと利用上の限界を把握した上で、大気汚染物質の濃度上昇をより正確に予測できるモデル設定を提案する。他方、本研究だけで、モデルの問題点を完全に解消するのは困難である。モデルの計算結果にどの程度のばらつきや限界が存在するのかを把握した上で、計算結果を有効な対策の立案に生かすという考え方も必要である。そこで、濃度低減策に期待されている発生源感度解析に関して、複数のモデル実験を実施し、複数のモデル・モデル設定間に生じるばらつきを把握する。これらの結果は、今後、環境政策にてモデルが利用される際に計算結果の妥当性を評価するためのベンチマークとして活用されることが期待できると考えている。

2. 研究開発目的

PM_{2.5}やO_xなどの短寿命大気二次汚染物質の濃度を大気質モデルにて表現しようとした場合に、モデルフレームの違いのみならず、同一のモデルフレームを利用した場合にも、入力データの与え方や各種パラメータの設定など、各モデル利用者によるモデルの使い方の違いがシミュレーション結果へ与える影響は軽視出来ない。そこで、本研究では、モデル間相互比較プロジェクト（J-STREAM: Japan's Study for REference Air quality Modeling）を通して、各モデル利用者の設定間に生じる結果の差異を明らかにし、モデルが扱う各種プロセスや排出インベントリなどの要改良箇所を特定し、最適なモデル設定を提案することを目的とする。特に、PM_{2.5}やO_xの高濃度時の予測精度の向上と、有効な高濃度汚染対策へ向けた発生源に関する的確な情報を提供し得る信頼性の高いモデルの提案、および、そのモデル利用上の限界について、本相互比較実験プロジェクト参加研究者の知見を集約する。このために、大気汚染モニタリング局（常監局など）の観測値との比較による季節毎の再現性の検証 [J-STREAM Phase1]、2016-2017年度環境省環境研究総合推進費にて実施された集中観測との比較による高濃度の再現性の検証 [J-STREAM Phase2]、高濃度時を対象としたBrute-Force Method (BFM) 発生源寄与解析におけるモデル間差の検証、および、複数の手法 (BFM、Integrated Source Apportionment Method (ISAM)、Decoupled Direct Method (DDM)) に基づく発生源感度実験の比較 [J-STREAM Phase3 (相互比較) / 感度実験比較] を実施した。

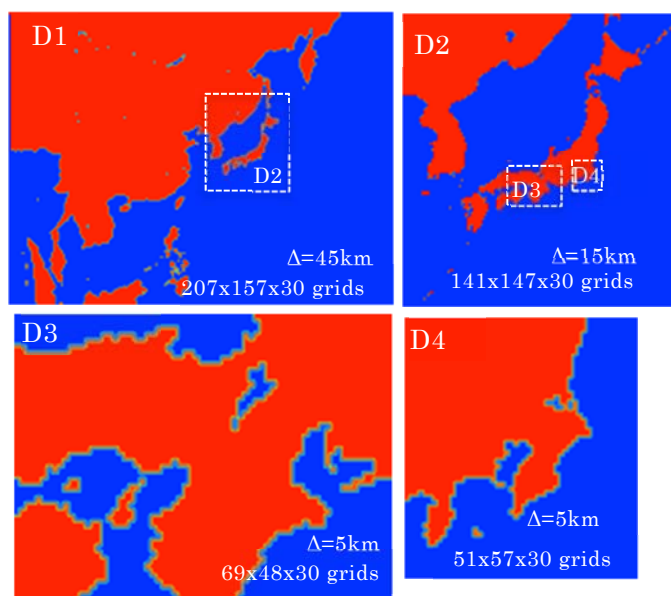
3. 研究開発方法

(1) 基本モデル設定

1) J-STREAM共通モデル設定

J-STREAM標準計算設定は、表(2)-1 (WRF・CMAQ共通設定 (標準実験))、表(2)-2 (WRFの設定 (標準実験))、および、表(2)-3 (WRFの設定 (標準実験)) に示す。

気象シミュレーションの基本モデルフレームには、米国大気研究センター (National Center for Atmospheric Research: NCAR) などによる領域気象予報モデル、Weather Research and Forecasting model (WRF) ver. 3.7.1¹⁾を利用した。なお、標準出力されていないが、大気質モデルの入力値として必要とされている、fractional land use (LANDUSEF)、aerodynamic resistance (RA)、stomatal resistance (RS)、roughness length (ZNT)、inverse Monin-Obukhov length (RMOL) の値は、Registryを修正することにより追加出力して利用した。WRFモデルの水平領域は、



図(2)-1 CMAQの計算領域(J-stream標準実験)

東経135.6度、北緯34.8度を中心としたランベルト座標系で投影され、東アジア域 (220×170 grids/D1)、日本域 (154×160 grids/D2)、関西域 (82×61 grids/D3)、関東域 (64×70 grids/D4) にて構成し、空間解像度は、それぞれ45km (D1)、15km (D2)、5km (D3)、5km (D4) とした (図(2)-1)。これらは、Phase1~3を通じた共通モデル設定である。Phase1~2の結果を踏まえて、Phase3では、複数項目の改良を提案した。(表(2)-1、表(2)-2、表(2)-3を参照)

表(2)-1 WRF・CMAQ共通設定 (J-STREAM標準実験)

	Phase1	Phase2	Phase3
horizontal domain	D1:東アジア域(220×170 grids/45km), D2:日本域(154×160 grids/15km) D3:関西域(82×61 grids/5km), D4:関東域(64×70 grids/5km)		
vertical domain	p top:100hPa, 27 layers, eta levels:デフォルト		p top:50hPa, 27 layers, eta levels:設定
land use	USGS準拠	植生調査	植生調査+国土数値情報(湖)

表(2)-2 WRFの設定 (J-STREAM標準実験)

	Phase1	Phase2	Phase3
Model	WRF ver. 3.7.1		
analysis data	ds083.2(every 6hr, 1degree)		ds083.3 (every 6hr, 0.25degree)
SST	RTG High Res(every 6hr, 1/12 degree)		GHRSSST(every 24hr, 1km)
Ocean	open+surf zone		
grid nudging	<ul style="list-style-type: none"> for uv, t, q <ul style="list-style-type: none"> D1: 1-10 levels switched off nudging coefficient: 1.0e-4 sec⁻¹ D2: 1-10 levels switched off nudging coefficient: 5.0e-5 sec⁻¹ D3, D4: switched off 		<ul style="list-style-type: none"> for uv <ul style="list-style-type: none"> ALL: All level switched on nudging coefficient: 1.0e-4 sec⁻¹ for t, q <ul style="list-style-type: none"> D1: All level switched on nudging coefficient: 5.0e-5 sec⁻¹ D2: All level switched on nudging coefficient: 3.0e-5 sec⁻¹ D3, D4: All level switched on nudging coefficient: 1.0e-5 sec⁻¹
physics (pbl, surface, sfclay)	MYNN 3rd level, TKE Noah Land-Surface, MYNN surface layer		
radiation(LW, SW)	RRTM, Dudhia		rrtmg, rrtmg
Microphysics	WSM 5		Thompson graupel
Cumulus	Kain-Fritsch (new Eta)		Grell-Devenyi ensemble
sf_surface_mosaic	Off		On

表(2)-3 CMAQの設定 (J-STREAM標準実験)

	Phase1	Phase2	Phase3
Model	CMAQ ver. 5.0.2		
chemistry	SAPRC-07		
Aerosol	AER06		

大気質シミュレーションの基本モデルフレームは、米国環境保護庁 (United States Environmental Protection Agency : US EPA) などが開発する マルチスケール大気質モデル、Community Multiscale Air Quality (CMAQ) ²⁾ ver. 5.0.2を利用し、光化学反応モジュールとエアロゾルモジュールはそれぞれ State-wide Air Pollution Research Center (SAPRC) 07³⁾とCommunity Multiscale Air Quality Aerosol Module ver. 6 (AER06) ⁴⁾を採用した。CMAQモデル領域は、WRF設定と共通であるが、水平南北・東西方向に各13格子内側をCMAQ計算領域とした(図(2)-1)。CMAQ D1の側面境界濃度は、全球化学輸送モデル (Chemistry Coupled Climate Model: CHASER^{5,6)}の1日平均値より作成、初期濃度はCMAQデフォルト値を用いた。D2の側面境界濃度は、D1の出力濃度より作成、初期濃度はCMAQデフォルト値を用いた。D3、D4の側面境界濃度と初期濃度はともにD2の出力濃度より作成した。

排出量データ、および、土地利用、海域データなどの静的データは、サブテーマ(1)より提供されたものを利用した。サブテーマ(1)より提供されるデータ、および、その改良点に関しては、本報告書サブテーマ(1)にて詳細に記述している。

2) J-STREAM Phase1・2共通モデル設定

モデルの鉛直格子設定は、都市域を対象とした過去の相互比較研究 (Urban Air Quality Model Inter-Comparison Study : UMICS) ⁷⁾ に倣って、地表面から100 hPaまでを27層に分けた。

WRF計算の入力値には、米国国立環境予測センター (National Centers for Environmental Prediction : NCEP) による水平解像度1×1度、6時間毎の全球客観解析データ (FNL (Final) Operational Global Analysis data: ds083.2) と水平解像度1/12×1/12度、24時間毎の海水面温度 (Real-time, global, sea surface temperature : RTG_SST_HR) を使用した。下層領域を除く、水平風速 (u, v)、気温 (t)、比湿 (q) の要素について、3D grid nudging を用いて同化した。WRF計算の詳細設定は、表(2)-2に示す。

3) J-STREAM Phase3共通モデル設定

Phase3では、Phase1～2にて得られた知見に基づくモデル改良を行なったうえで、発生源寄与解析を実施する。Phase1～2の結果、排出量と気象モデル設定の違いが、二次汚染物質の大気中濃度に与える影響が無視できないことが判明した。そこで、再現性を向上させるために、排出量と気象モデル設定の大幅な改良を行った。排出量の改良に関しては、サブテーマ(1)にて詳細に記述した。気象モデルの設定に関しては、種々の感度実験を行うとともに、相互比較実験参加者・研究協力者の知見、US EPAなど国外研究機関の専門家からの助言に基づき、以下の設定を提案した。

モデルの鉛直格子設定は、より上層部分を含めるように、地表面から100 hPaまでを27層に分け、加えて、地表近くを密に解くことができるように設定した。

WRF計算の初期値、境界値、および、3D grid nudgingに利用するデータに関しては、空間分解能の高いデータ (FNL ds083.3/0.25 × 0.25度, Group for High Resolution Sea Surface Temperature (GHRSSST)/1km×1km) を採用し、さらに、3D grid nudgingを強めに設定した。物理オプションに関しては、各放射、積雲対流、微物理過程のメカニズムの見直しを行った。WRF計算の詳細設定は、表(2)-2に示す。

4) J-STREAM Phase3発生源影響評価手法比較

Phase3では、モデル間相互比較に加え、汚染物質濃度に対する発生源の影響を大気質モデルで評価する複数の手法の比較も行った。発生源の影響を評価する手法は、発生源の感度、すなわち対象発生源の排出量の変化に対する汚染物質濃度の変化を評価するものと、発生源の寄与、すなわち汚染物質濃度のうち対象発生源に起因する分を評価するものに大別される。本研究では、発生源感度を評価する手法として、対象発生源の排出量を実際に変化させてモデルで汚染物質濃度を計算し差分を評価するBrute Force Method (BFM) と、排出量の変化に対する汚染物質濃度の変化の微分値をモデル内で算出するDirect Decoupled Method (DDM) を採用した。また、発生源寄与を評価する手法として、Integrated Source Apportionment Method (ISAM) を採用した。DDMとISAMの両方が搭載されているCMAQのversion 5.0.2を用い、全ての入力データや計算条件を統一させた上で、日本域 (D2) にて計算される発生源感度と寄与の比較を行った。

(2) 比較計算対象期間

表(2)-4は、Phase1～3の計算対象期間を示す。Phase1では、2013冬季～2014年冬季の5季節に実施されたPM_{2.5}成分測定期間を対象とし、助走期間を含む5季節40日間 (2013年1月11日～2月20日、2013年4月27日～6月6日、2013年7月12日～8月21日、2013年10月11日～11月20日、2014年1月10日～2月19日) を計算対象期間とした。Phase2では、PM_{2.5}とOxの濃度上昇を対象とした、2016-2017年度環境省環境研究総合推進費にて実施された集中観測期間 (2016年12月6日～12月25日、2017年4月29日～5月23日、2017年7月9日～8月1日) を計算対象期間とした。Phase3 (相互比較実験) は、PM_{2.5}の濃度上昇をモデルにて比較的よく再現できた、2016年12月15日～12月24日を計算対象とした。発生源影響評価手法の比較では、4季節 (2016年4月22日～5月21日、2016年7月7日～7月21日、2016年10月6日～11月4日、2017年1月5日～

2月3日)を対象とした、CMAQの複数の手法(BFM、ISAM、DDM)による比較実験も実施した。

表(2)-4計算対象期間

Phase1	Phase2	Phase3
2013年 1月11日- 2月20日 2013年 4月27日- 6月 6日 2013年 7月12日- 8月21日 2013年10月11日-11月20日 2014年 1月10日- 2月19日	2016年12月 6日-12月25日 2017年 4月29日- 5月23日 2017年 7月 9日- 8月 1日	相互比較 2016年12月15日-12月24日
		発生源影響評価手法比較 2016年 4月22日- 5月21日 2016年 7月 7日- 7月21日 2016年10月 6日-11月 4日 2017年 1月 5日- 2月 3日

4. 結果及び考察

(1) J-STREAM Phase1

J-STREAM Phase1では、32種類(CMAQ(28)、WRF-chem(3)、CAMx(1))のモデル結果が提出された。一部の計算結果を除いて、入力データは標準実験と同じものが利用されている。CMAQでは、異なる開発段階のモデルフレーム(ver. 4. 7. 1、ver. 5. 0. 1、ver. 5. 0. 2、ver. 5. 1. 0)にて、複数の化学メカニズム(saprc99、saprc07tb、cb05tbc、RACM)とエアロゾルメカニズム(AERO5、AERO6、AERO6-VBS)を利用した結果が提出された。WRF-chemでは、異なる開発段階のモデルフレーム(ver. 3. 7. 1、ver. 3. 8. 1)にて、同じ化学・エアロゾルメカニズム(RADM2、MADE/SORGAM)が利用されていた。CAMxは、CMAQにて多くの利用者が採用している化学メカニズム(SAPRAC-07)を利用していた。Phase1の参加モデルのほとんどが、こちらで準備した入力値を用いており、一部の参加モデルのみが独自に作成した入力値(排出量、側面境界濃度、気象条件)、および、格子設定を採用している。

表(2)-5 提出されたシミュレーション結果とモデル設定(一部)

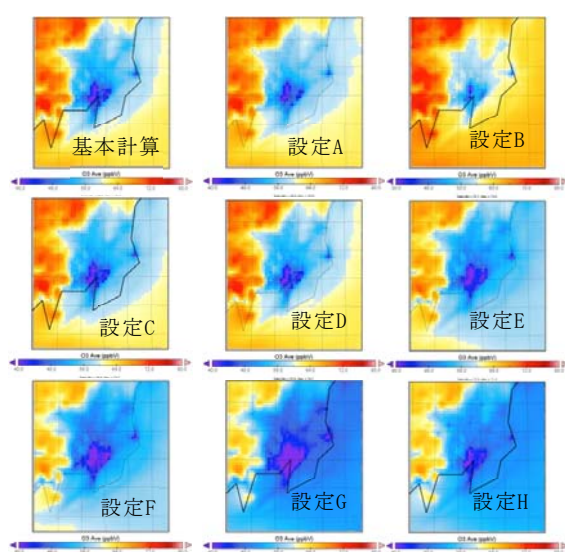
設定	標準実験	A	B	C	D	E	F	G	H
モデルフレーム	CMAQver. 5. 0. 2	CMAQver. 5. 1	CMAQver. 5. 0. 1	CMAQver. 5. 1	CMAQver. 5. 0. 2	CMAQver. 5. 0. 2	CMAQ ver. 5. 0. 2	CMAQ ver. 5. 1	CMAQ ver. 5. 1
気象	配布	配布	配布	配布	配布	配布	配布	配布	配布
排出量	配布	配布	配布	配布	配布	配布	配布	配布	独自
初期値	配布	配布	配布	配布	配布	配布	配布	配布	配布
境界値	配布(D1) D1より計算	配布(D4) D4のみ計算	配布(D4) D4のみ計算	配布(D4) D4のみ計算	配布(D1) D1より計算	配布(D1) D1より計算	配布(D1) D1より計算	配布(D1) D1より計算	配布(D1) D1より計算
化学反応	saprc07tb	saprc07tb	saprc07tb	saprc07tb	saprc07tb	cb05tbc1	saprc99	saprc07tb	saprc07tb
エアロゾル	AERO6	AERO6	AERO6	AERO6	AERO6	AERO6	AERO6	AERO6	AERO6

J-STREAM Phase1にて提出されたCMAQの結果の一部を紹介する(表(2)-5)。図(2)-2と図(2)-3には、モデルフレーム(CMAQの開発段階)、排出量、関東地域(D4)に対する境界物質濃度の与え方、化学・エアロゾルメカニズムなど、複数の異なるモデル設定における、それぞれ地表 O_3 と地表 $PM_{2.5}$ の期間平均濃度を示す。

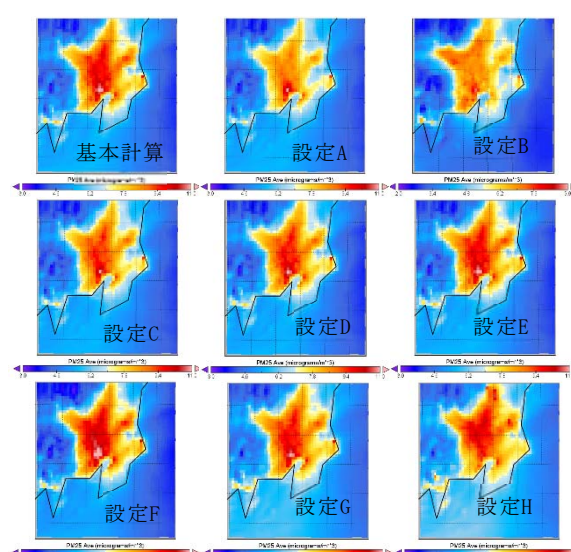
図(2)-2は、春季(2013/5/8~5/21)、関東地域(D4)における、地表 O_3 濃度を示す。地表面 O_3 の顕著な差は、化学メカニズムの違い(saprc99、saprc07tb、cb05tbc)に起因することが確認できた。saprc07tbは、cb05tbcに対して3.5~5.4ppbv、saprc99に対して1.8~4.4ppbvそれぞれ高濃度となり、この傾向は O_3 前駆物質の発生量の少ない海洋上など清浄地域にて特に強く現れた。また、他の季節においても同様の傾向が見られた。SAPRAC化学メカニズムが、他のメカニズムと比較して高濃度なる傾向をもち、CB化学メカニズムが低濃度となる傾向は、他の地域を対象とした比較実験の結果⁸⁾と一致する。Kitayama et al. (2019)⁹⁾は、この化学メカニズム間の差異をCMAQに搭載されたprocess analysisにて調査し、 O_3 消滅・生成および関連する前駆物質の反応速度定数の違いが原因である可能性を示した。他方、異なるモデルフレームにて同じ化学メカニズム(例えば、saprc07tb)を用いた際にも、地表 O_3 濃度に著しいモデル間差(4.6~11.9ppbv)が生じた。これは、各モデル開発段階における、 O_3 の前駆物質を含めた、生成消滅ブ

プロセスの扱われ方の違いが、広域的な O_3 濃度のモデル間の差異を引き起こしたと考えられた。特に、CMAQver. 5.1以降に導入された O_3 の洋上消失過程がモデルの地表 O_3 濃度の低下をもたらし、わが国周辺地域の暖候期のモデルによる O_3 濃度の過大評価の緩和に寄与する可能性が示された。しかしながら、本研究対象期間においては、この種の O_3 消失過程を考慮した場合でも、モデルと観測の相関が逆に低くなるなどの問題を生じる場合もあった。排出データの違いは、発生源近くにて局所的に O_3 の-2~11.3ppbvの差を生じる結果となった。これらの結果により、広域的な O_3 濃度のモデル間の差異を引き起こす原因は、 O_3 とその前駆物質の消滅・生成過程のモデル表現とその速度定数であり、今後、より高精度のモデル表現を追求する場合にはこれらの点の改良が不可欠であることが示された。

図(2)-3は、冬季(2014/1/22~2/4)、関東地域(D4)における、地表 $PM_{2.5}$ 濃度を示す。 O_3 の場合と比較すると、モデル設定間の濃度差は明確でないが、排出量データの違いが局所的な濃度差を生じさせていることが伺えた。これらのことより、発生源近傍地域のモデル精度の向上には、排出量データの精度向上が重要であると考えられる。



図(2)-2 9種類の異なるモデル設定(標準実験および設定A-H)による春季関東地域(D4)の地表 O_3 濃度。

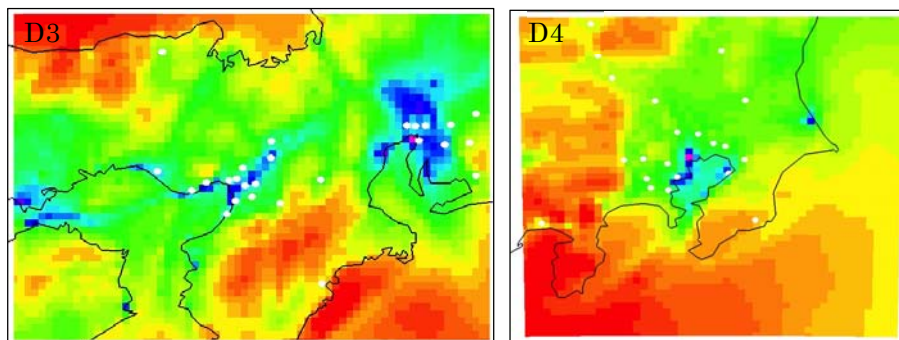


図(2)-3 9種類の異なるモデル設定(標準実験および設定A-H)による冬季関東地域(D4)の地表 $PM_{2.5}$ 濃度。

J-STREAM Phase1では、提出された $PM_{2.5}$ およびその成分のモデル結果について、環境省にて取りまとめている、 $PM_{2.5}$ 成分測定値の日平均値を用いて、モデル再現性を確認した。関西地域(D3)と関東地域(D4)内の常時監視局一般局に属する観測地点のうち、各季節の観測期間(2週間)に10日間以上の観測データが取得された地点を評価対象観測地点とした(図(2)-4)。季節や成分によってデータ取得状況は異なるが、関西地域と関東地域の評価対象観測地点は、それぞれ24~31地点と18~30地点となった。図(2)-5と図(2)-6には、それぞれ関西地域(D3)と関東地域(D4)における、 $PM_{2.5}$ とその成分の季節毎のモデルの再現性をindex of agreement (IoA)
$$IoA = 1 - \left[\frac{\sum_1^n (O-M)^2}{\sum_1^n (|M-\bar{O}| + |O-\bar{O}|)^2} \right]$$
 指標にて示している。

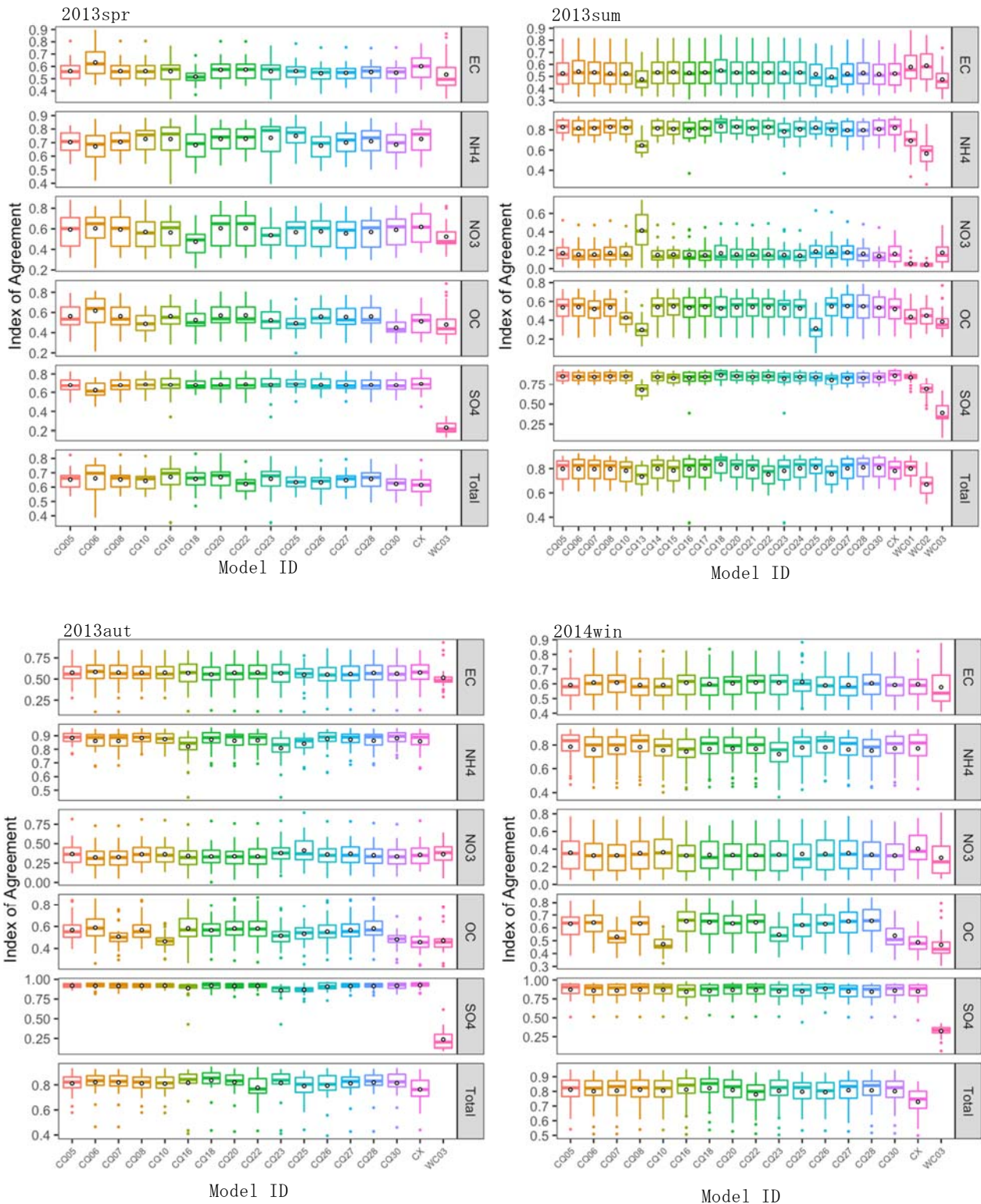
$PM_{2.5}$ 総量(Total)に関して、関西地域(D3)と関東地域(D4)のモデル再現性を比較した場合、モデル設定や季節間に多少のばらつきは見られるものの、関西地域(D3)がより高い一致を示した。Bias評価においても、同様に、関東地域(D4)が関西地域(D3)よりも $PM_{2.5}$ 総量を大きく過小評価する傾向が示された。関西地域は、関東地域よりも西側に位置しているために、越境影響を強く受けており、地域的な影響が相対的に小さくなる。このために、一般的に越境影響を比較的良好に再現できるこれらの領域大気質モデルの特徴が反映された結果であろうと思われる。このことから、都市域でのモデル精度の向上には、発生源近くである、都市域内でのモデル表現の向上が重要になると考える。季節毎に見た場

合、両地域ともに、秋季にモデルの再現性は非常に良く、IoAの全モデル平均値は、関西地域（D3）にて、0.81 [0.84(max)/0.78 (min)]、関東地域（D4）にて、0.81 [0.84 (max) /0.78 (min)] となった。他方、冬季に再現性が悪く、IoAの全モデル平均値は、関西地域（D3）にて、0.65 [0.67 (max) /0.61 (min)]、関東地域（D4）にて、0.58 [0.65(max)/0.41 (min)] となった。



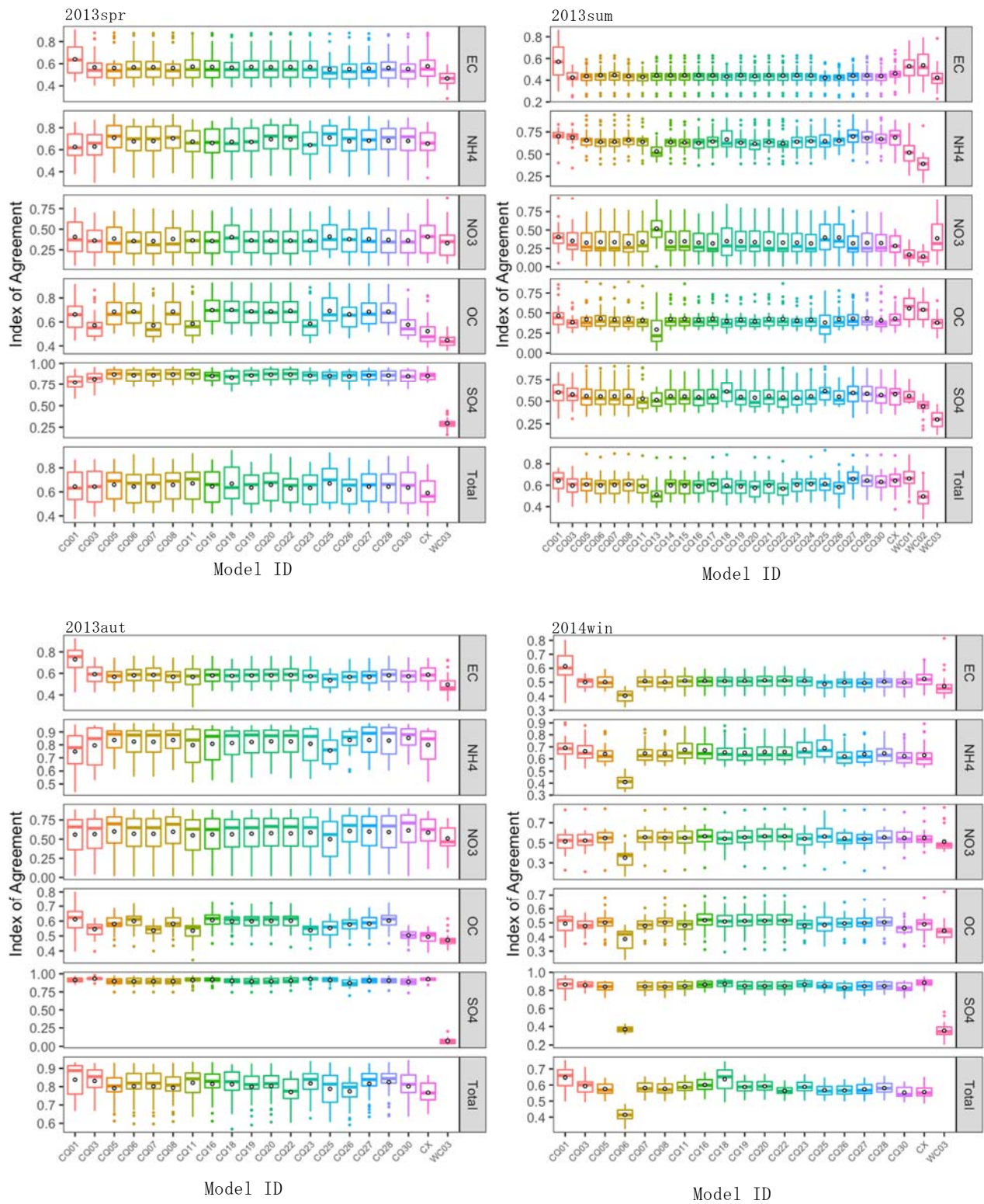
図(2)-4 関西地域（D3）と関東地域（D4）における評価対象観測地点（○）とオゾン濃度分布

PM_{2.5}の成分別では、一部のモデル設定を除いて、硫酸塩の再現性は良好で、特に、秋季には、IoAが0.9を超えるモデル設定が複数存在した。硫酸塩濃度のモデル設定間の差異に着目して、異なるモデルフレーム間の比較から要改良点を見出し、サブテーマ（3）にてサブモデルの改良に取り組み、特に、CMAQに特有に見られた冬季の硫酸塩の過小評価の改善に成功した。^{10),11)} 他のモデル（ここでは、CMAQとCAMx）と比較して、WRF-chemの硫酸塩が大幅に過大評価する点に関しては、修正がなされていないソースコードのバグであり¹²⁾、Yang et al(2016)¹²⁾が提案する修正を加えることで、他のモデルと同程度の値に落ち着いた。これらの改良、修正を加えることで、季節間の再現性にばらつきは見られるものの、モデル間のばらつきは小さくなり、モデルの再現性の向上に成功した。WRF-chemの最新バージョンでもこの修正が付加されていない点注意を促したい。他方、硝酸塩と有機炭素のモデル再現性はいずれのモデル設定でも低く、ほとんどが硝酸塩を過大評価し、有機炭素を過小評価する傾向が見られた。有機炭素、もしくは、硝酸塩濃度の再現性が高いモデル設定に関して、必ずしも全てのPM_{2.5}成分濃度の再現性向上が見込まれるわけではなく、例えば、硝酸塩の再現性が向上すると、有機炭素や硫酸塩の再現性の低下を引き起こすなどの問題が生じることが判明した。故に、大気中の二次粒子、特に、硝酸塩と有機炭素のモデル表現に関しては、未把握な過程を含めて更なる改良が必要だと思われる。



図(2)-5 関西地域 (D3) におけるPM_{2.5}とその成分データのモデルのindex of agreement (IoA*)。D3内の各観測地点のうち10日間以上観測データが取得された地点 (24-31地点) における、観測とモデルの日平均値のIoA。各モデル (Model ID) 毎の統計値 (中央値、平均値、25%値、75%値)。

$$*IoA = 1 - \left[\frac{\sum_1^n (O-M)^2}{\sum_1^n (|M-\bar{O}| + |O-\bar{O}|)^2} \right]$$

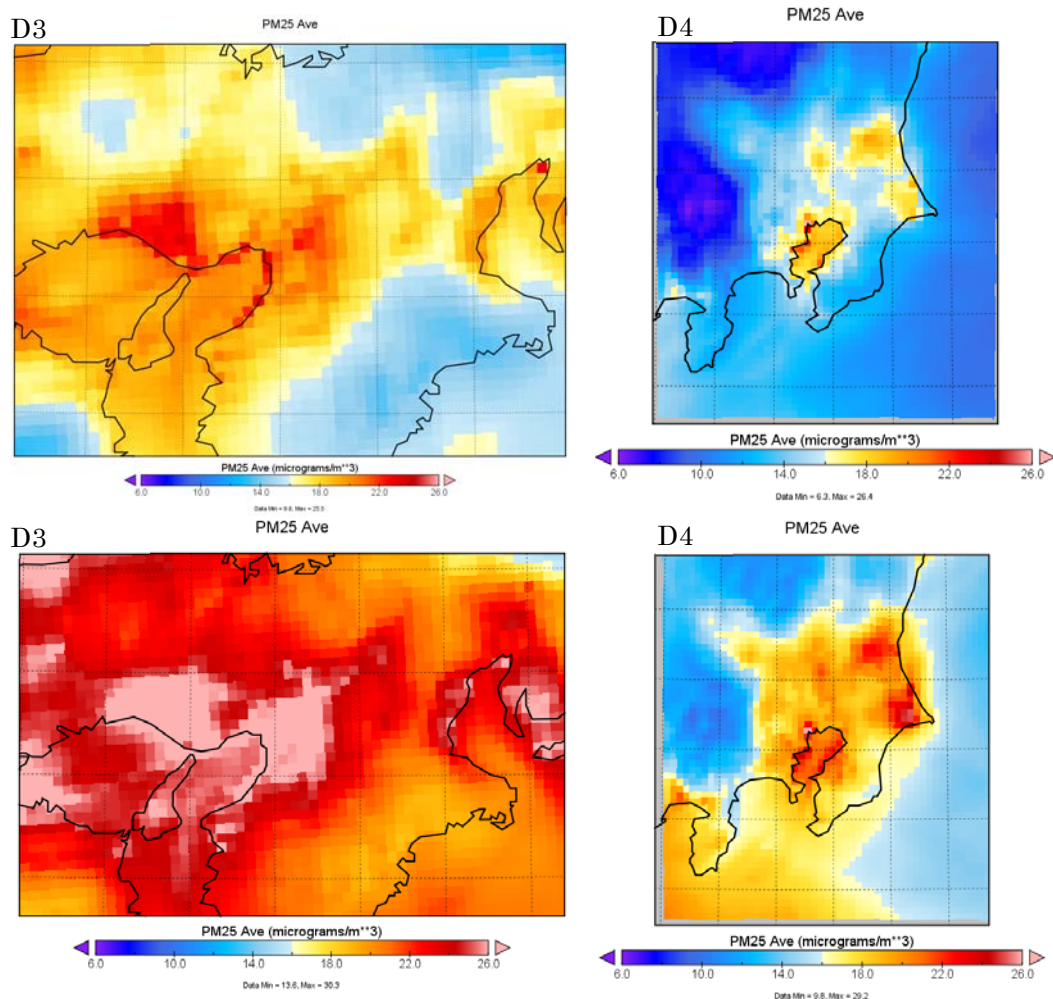


図(2)-6 関東地域 (D4) におけるPM_{2.5}とその成分データのモデルのindex of agreement (IoA*)。D4内の各観測地点のうち10日間以上観測データが取得された地点 (18-30地点) における、観測とモデルの日平均値のIoA。各モデル (Model ID) 毎の統計値 (中央値、平均値、25%値、75%値)。

$$*IoA = 1 - \left[\frac{\sum_1^n (O-M)^2}{\sum_1^n (|M-\bar{O}| + |O-\bar{O}|)^2} \right]$$

大気質モデルの入力値（排出量、気象場、側面境界条件）が異なるモデル設定にて、標準実験と大きく異なる結果が得られた。この結果を踏まえて、サブテーマ（1）にて排出量の改良を実施し、J-STREAM Phase1、Phase2に反映させた。

気象場の違いに関しては、複数の感度実験を実施し、気象モデルにて扱われている降水過程（積雲対流過程、雲微物理過程）にて採用するパラメタリゼーションの違いが、広範囲の降水の分布と強度に作用し、日本周辺地域のPM_{2.5}のシミュレーション結果に対して無視できない影響を与えることが示された。図(2)-7には、異なる2種類の降水過程を採用した気象場を利用したPM_{2.5}シミュレーション結果を示す。これらの降水過程は、J-STREAM Phase1標準実験とJ-STREAM Phase1に参加しているWRF-chemが採用したパラメタリゼーションの組み合わせである。WRF-chemにて採用したパラメタリゼーション(Grell-3+Lin)が、J-STREAM Phase1標準実験が採用したパラメタリゼーション (Kain-Fritsch (new Eta)+WSM 5) より降水量が少なくなる結果となった。この降水過程の違いが、WRF-chemのPM_{2.5}が高濃度である原因の一つであることが考えられた。これらの結果とJ-STREAM参加者らの知見、さらに、国外の専門家の意見をj得て、気象モデルの降水にかかる設定の検証を行い、J-STREAM Phase3では、参加者らの知見を得て、積雲対流と雲微粒子をより高次に取り扱うことができる設定 (Grell-Devenyi ensemble+Thompson graupel) を標準計算設定として提案した。ただし、このパラメタリゼーションの組み合わせを採用した場合、計算機コストが増大する点の注意が必要である。

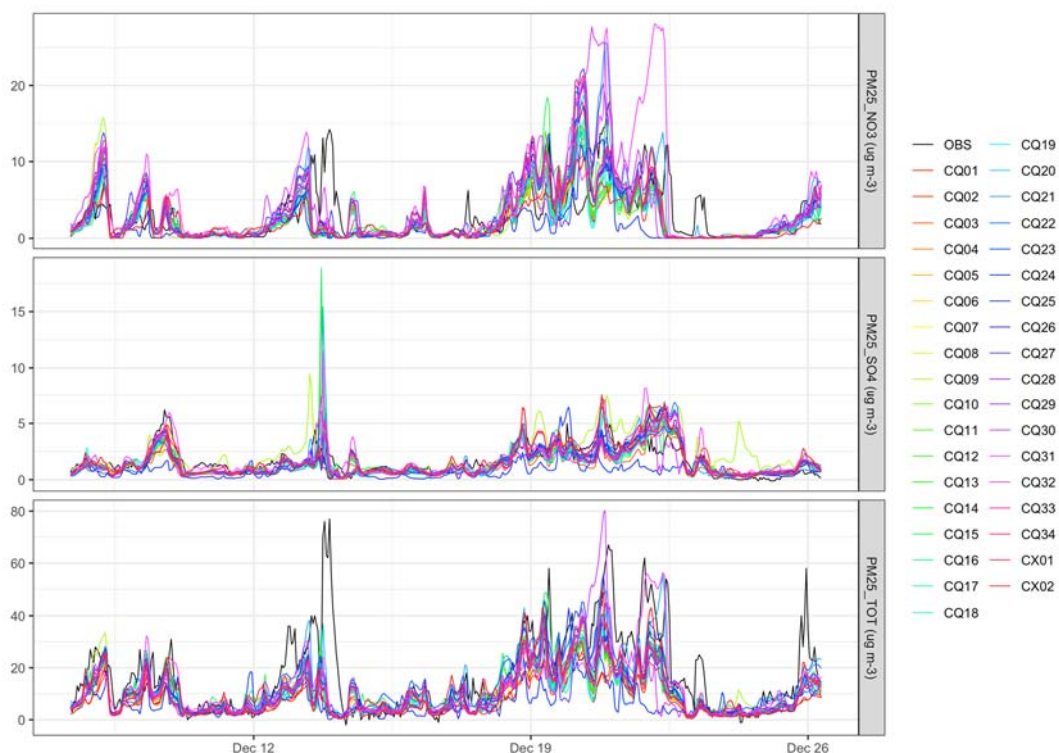


図(2)-7 (上段)J-stream Phase1標準実験(積雲対流スキームにKain-Fritsch (new Eta)、雲微物理スキームにWSM 5を利用)の気象場を利用したCMAQによるPM_{2.5}シミュレーション結果、(下段)J-stream Phase1WRF-chem計算が利用した降水過程(積雲対流スキームにGrell-3、雲微物理スキームにLinを利用)採用した気象場を利用したCMAQによるPM_{2.5}シミュレーション結果。積雲対流スキームと雲微物理スキーム以外の条件は全て統一している。

(2) J-STREAM Phase2

J-STREAM Phase 2 では、2016年冬季（2016年12月6日～12月25日）、2017年春季（2017年4月29日～5月23日）、2017年夏季（2017年7月9日～8月1日）の相互比較実験を実施した。それぞれ、43種類（CMAQ(39)、WRF-chem(1)、CAMx(2)、NHM-chem(1)）（冬季）、20種類（CMAQ(17)、CAMx(2)、NHM-chem(1)）（春季）、23種類（CMAQ(23)）（夏季）の結果が提出された。Phase1にて、様々な入力値（排出量、側面境界濃度、気象）として独自設定を採用した場合に、著しいモデル設定間差異が確認できた経緯を踏まえ、Phase 2 では、モデル参加者らに可能な範囲で通常使用している独自の設定でのモデル実験の実施を依頼した。

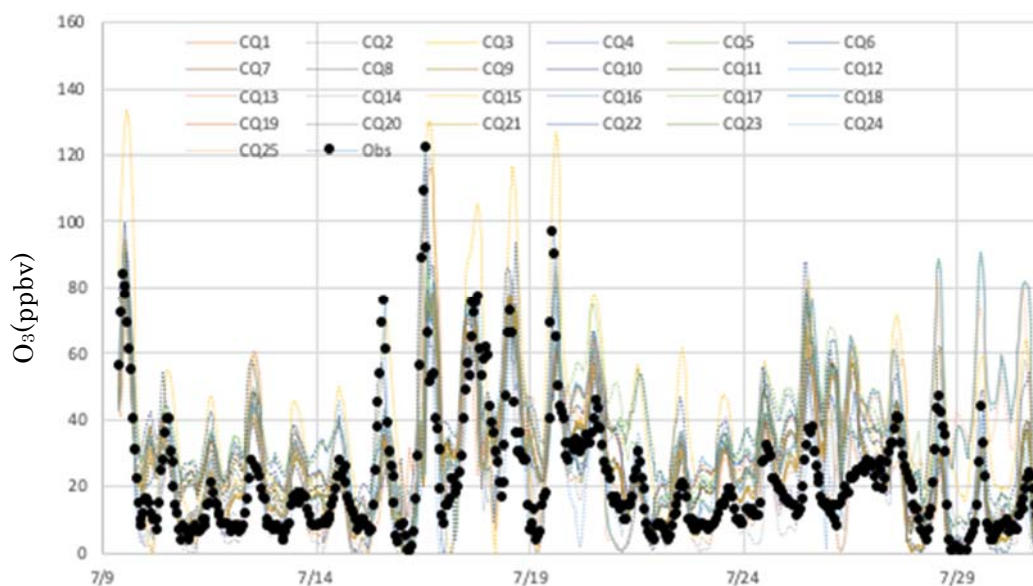
図(2)-8は、サブテーマ(3)にて実施した、東京都向島におけるACSA12（紀本電子工業）による観測（PM_{2.5}硝酸塩、PM_{2.5}硫酸塩）、および、近隣大島三丁目常時監視局でのPM_{2.5}測定（PM-712（紀本電子工業））について、観測とモデルの1時間値を示す。2016年12月6日～12月25日の間、PM_{2.5}濃度は、12/12-13と12/18-21、2回の濃度上昇が確認できた。Phase1と比較して、モデル設定間のばらつきは大きいですが、複数のモデルが、前半、後半のピークともに、PM_{2.5}濃度の上昇をおおよそ捉えていた。ただし、濃度上昇を捉えられたモデルに限定した場合でも、極端なケースを含めるとモデル値は観測値の2倍～0.5倍範囲となった。前半のピーク（12/12-13）に関しては、ほとんどのモデルが硫酸塩の短期間に生じる濃度上昇を捉えていたが、硝酸塩やPM_{2.5}総量に見られる濃度上昇の変化を捉えることができていなかった。後半のピーク（12/18-21）では、モデル間のばらつきが大きく、その要因が、用いる排出量の違いや気象モデルの違い（解析データや同化強度）に起因する可能性が認められた。標準実験と比較して、無機成分の濃度上昇のタイミングや濃度レベルを比較的よく再現していたモデル設定では、高空間解像度の解析値利用しており、さらに、同化の強度が異なることが判明した。これらの結果とJ-STREAM参加者らの知見、さらに、国外の専門家の意見を得て、Phase3では、気象計算入力用データに関しては、高空間解像度データ（ds083.3 (0.25degree)+GHRSSST(1km)）を利用し、また、同化強度を強めることを提案した。ただし、この提案に基づいた気象場にて計算した場合にも、その改善効果は僅かであったことにも言及したい。



図(2)-8（上段）向島におけるPM_{2.5}硝酸塩、（中段）向島におけるPM_{2.5}硫酸塩、（下段）大島三丁目（常時監視局）におけるPM_{2.5}総量。

春季のPM_{2.5}の再現性に関しては、Dust粒子のPM_{2.5}濃度への直接影響に加えて、Dust粒子表面での不均質反応による硝酸塩濃度への影響も確認できており、Dustモデルの導入が期待できる結果となった。しかしながら、Dustの発生タイミングや不均質反応過程にまだ不十分なところも有るために、わが国や周辺地域への適応には改善が必要であると考えられる。

図(2)-9は、国設東京局(新宿)における観測とモデルの1時間値を示す。一部のモデル設定を除いては、2017年7月9日～7月31日の間、モデルはO₃の濃度変動を非常によく捉えられていた。例えば、7月15～19日の日中のO₃の上昇を多くのモデルは再現できていたが、一部のモデルが大きく過大評価(20～30ppbv)するものが見られた。観測O₃濃度が比較的低濃度(<40ppbv)となる際に、モデル設定間でO₃濃度のばらつきが大きく、再現性の良いモデルグループと悪いグループに別れた。期間全体では、J-STREAM標準計算に近いモデル設定のものが比較的良好に観測値を表現できていたが、7月16日に発生した注意報レベルの高濃度では参加者が通常利用している気象モデル設定を利用した場合に、O₃濃度の再現性が良くなった事例もある。このことも踏まえて、Phase3での気象モデル設定を検討した。CMAQがわが国周辺地域において、暖候期のO₃濃度を過大評価する問題は広く知られている。¹³⁾ CMAQ ver. 5.1.x以降に強化された洋上でのO₃沈着過程や洋上ハロゲンによるO₃消失を仮定したパラメタリゼーションは、米国を対象としたモデル実験にてO₃濃度過大評価を緩和する効果が期待できると報告されている。¹⁴⁾ J-STREAMにおいては、国設東京局(新宿)の期間平均O₃濃度のモデル値は、23.3ppbvから20.6ppbvに低下し、観測濃度(20.7ppbv)と同程度となることが示された。このように、CMAQ ver. 5.1.x以降に強化されたO₃消失メカニズムは、わが国周辺地域のCMAQによるオゾン濃度の過大評価を緩和することが確認できた。



図(2)-9 2017年7月9日～7月31日、国設東京局(新宿)におけるO₃濃度の1時間値

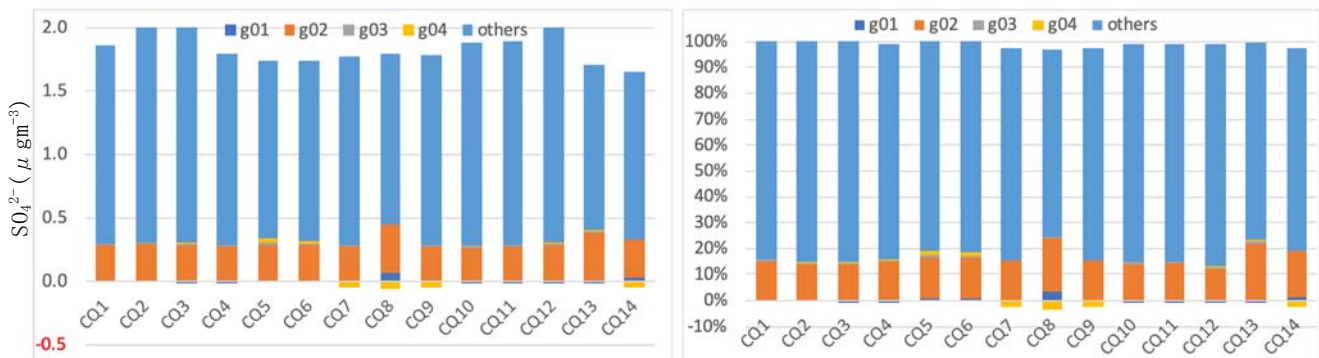
(3) J-STREAM Phase3

J-STREAM Phase3では、Phase2にて、多くのモデル設定にてPM_{2.5}とその成分の濃度の上昇が比較的良好に再現された、2016年12月15日～12月24日を計算対象とした排出源感度実験(BFM)を実施した。発生源感度実験は、サブテーマ(1)より提供された感度実験用排出量データを利用した。感度実験の対象は、D4領域内の輸送(g01)、固定燃焼(g02)、VOC(g03)、NH₃(g04)とした。現在、異なる2種類のCMAQ開発段階(ver. 5.0.2, ver. 5.2.1)、2種類の化学メカニズム(saprc07tb, cb05tbc)による、14種類の結果が提出されている。独自開発をした化学メカニズムを採用^{10), 11)}、異なる気象場やモデル条件を採用したモデル結果も含まれているが、いずれも排出量の条件は統一している。多くのモデル設定では、D4のみの計算が行なわれていたが、D1から感度実験用排出量を利用した計算結果も含まれている。一部の結果を

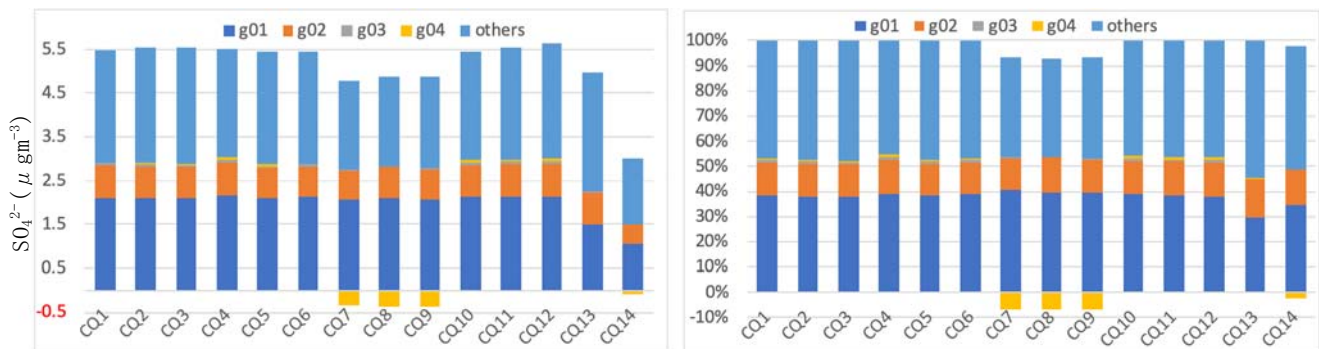
除いて、各発生源からの感度、特に、割合はどのモデル設定も比較的良く似た傾向を示した。大きく異なる結果を示したモデル設定は、気象場やモデル格子条件が異なるモデル結果であり、気象モデルから得られる気象条件の違いが発生源感度実験結果に与える影響が大きいことが示唆された。

図(2)-10は、向島における、日中高濃度時（2016/12/21 12:00）、夜間高濃度時（2016/12/22 0:00）、および、高濃度時の24時間平均値（12/21 19:00- 12/22 18:00）のPM_{2.5}の硫酸塩成分濃度の各発生源からの感度実験結果である。一部の結果を除いて、各発生源からの発生源感度は同程度であることが示された。日中、夜間の高濃度時1時間値に対しては、CMAQのバージョン間の差が明らかで、ver. 5.0.2が、ver. 5.2.1と比較して、その他（主に領域外からの寄与）の影響をおおよそ0.4~0.5 μgm⁻³程度低く見積もり、また、NH₃の感度が負値（約0.1~0.4 μgm⁻³）となることが判明した。日中高濃度時（2016/12/21 12:00）において、いずれのモデルもその他（主に領域外からの輸送）の感度が大きく、

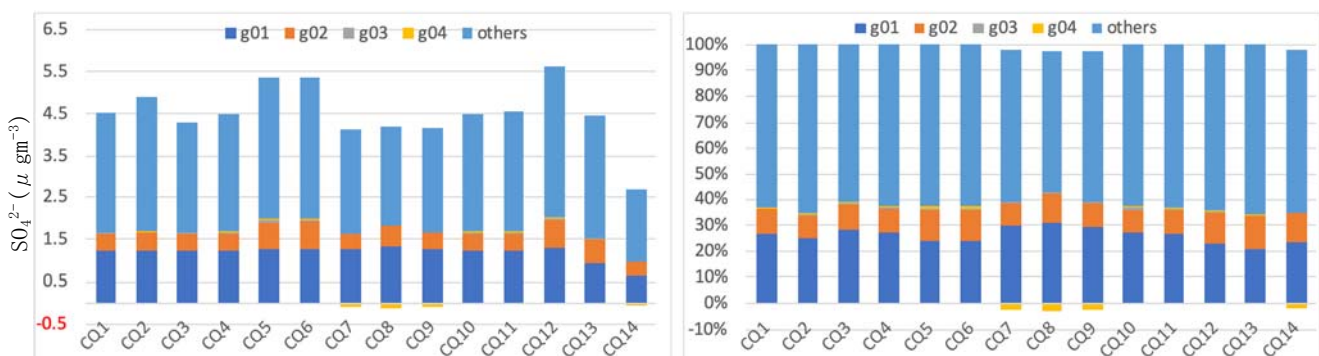
■ 2016/12/21 12:00（日中高濃度時）



■ 2016/12/22 0:00（夜間高濃度時）



■ 12/21 19:00- 12/22 18:00（高濃度時24時間平均値）

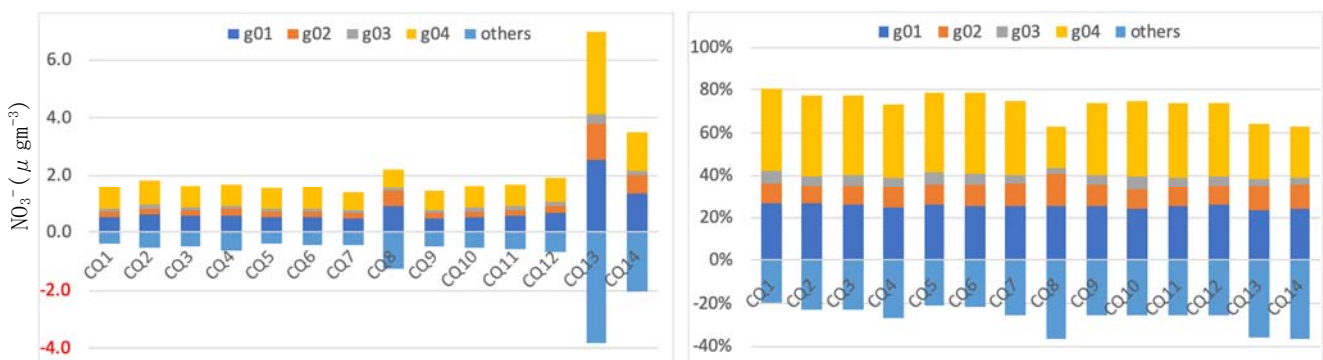


図(2)-10 向島における、日中高濃度時（2016/12/21 12:00）、夜間高濃度時（2016/12/22 0:00）、および、高濃度時の24時間平均値（12/21 19:00- 12/22 18:00）のPM_{2.5}硫酸塩の発生源感度モデル実験（BFM）結果。PM_{2.5}硫酸塩濃度（μgm⁻³）（右）、割合（%）（左）。g01、g02、g03、g04は、それぞれ輸送、固定燃焼、VOC、NH₃、の発生源感度を意味する。othersは、領域外からの移流影響を含むその他からの影響である。

73～86%を占めていた。次いで固定燃焼の感度が大きく（12～22%）、全てのモデルにて同様の結果が得られた。夜間高濃度時（2016/12/22 0:00）において、各発生源からの感度は、それぞれ30～40%（輸送）、13～15%（固定）、0～1%（VOC）、-7～1%（NH₃）で、輸送の感度にモデル設定間差が見られた。他方、いずれのモデル設定においても、夜間高濃度時に輸送セクターからの感度が増大することが確認できた。

図(2)-11は、向島における、日中高濃度時（2016/12/21 12:00）、夜間高濃度時（2016/12/22 0:00）、および、高濃度時の24時間平均値（12/21 19:00- 12/22 18:00）のPM_{2.5}の硝酸塩成分濃度の各発生源からの感度実験結果である。硫酸塩と比較して、硝酸塩では、モデル設定間の各発生源の感度のばらつきが大きく、特に、気象条件の異なる計算設定にて大きな差が生じた。他方、CMAQの開発段階（バージョン）の違いによる差も明らかで、これは、CMAQver. 5.1以降にアップデートされた、ClNO₂不均一反応、NO₂からのHONO生成、N₂O₅不均一反応を介したHNO₃生成などの過程や関連する反応速度の改定による可能性がある。

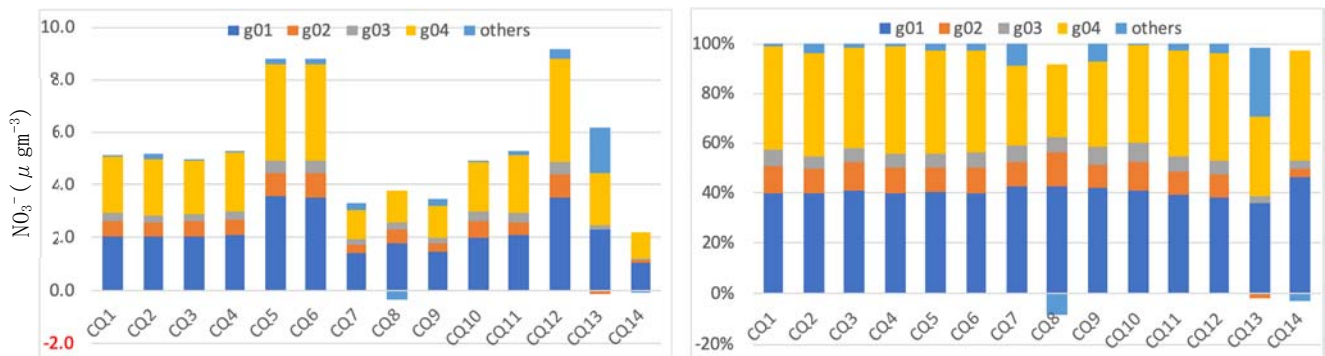
■ 2016/12/21 12:00（日中高濃度時）



■ 2016/12/22 0:00（夜間高濃度時）



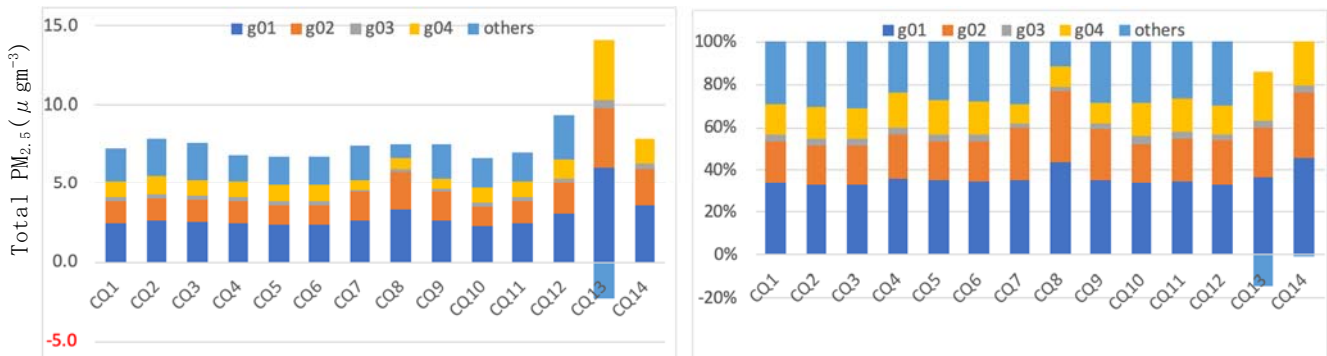
■ 12/21 19:00- 12/22 18:00（高濃度時24時間平均値）



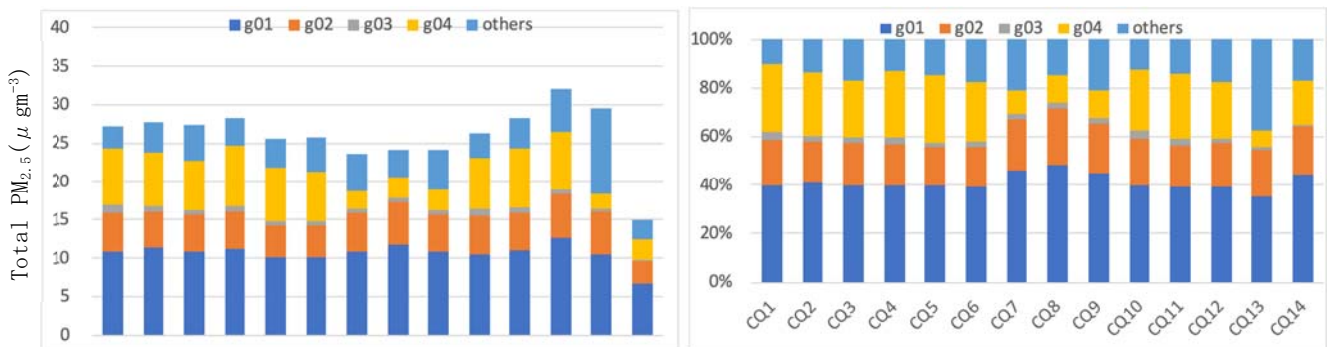
図(2)-11 向島における、日中高濃度時（2016/12/21 12:00）、夜間高濃度時（2016/12/22 0:00）、および、高濃度時の24時間平均値（12/21 19:00- 12/22 18:00）のPM_{2.5}硝酸塩の発生源感度モデル実験（BFM）結果。PM_{2.5}硝酸塩濃度（ $\mu\text{g m}^{-3}$ ）（右）、割合（%）（左）。g01、g02、g03、g04は、それぞれ輸送、固定燃焼、VOC、NH₃、の発生源感度を意味する。othersは、領域外からの移流影響を含むその他からの影響である。

その一つである、 ClNO_2 不均一反応の効果が硝酸塩濃度を $0.23 \mu\text{g m}^{-3}$ 低減する^{13),14)}とされているが、今回のモデル実験では、ver. 5.2.1の硝酸塩濃度が、ver. 5.0.2と比較して、高くなるという結果となった。日中高濃度時に関しては、base case計算においても大きな濃度差が生じている点に注意が必要であるが、寄与割合(%)を比較すると同程度の値(24~26%(輸送)、9~16%(固定)、3~7%(VOC)、20~39%(NH_3))となった。夜間高濃度時(2016/12/22 0:00)において、各発生源からの感度は、それぞれ31~47%(輸送)、-2~16%(固定)、2~7%(VOC)、24~65%(NH_3)で、輸送や NH_3 の感度にモデル設定間差が見られた。

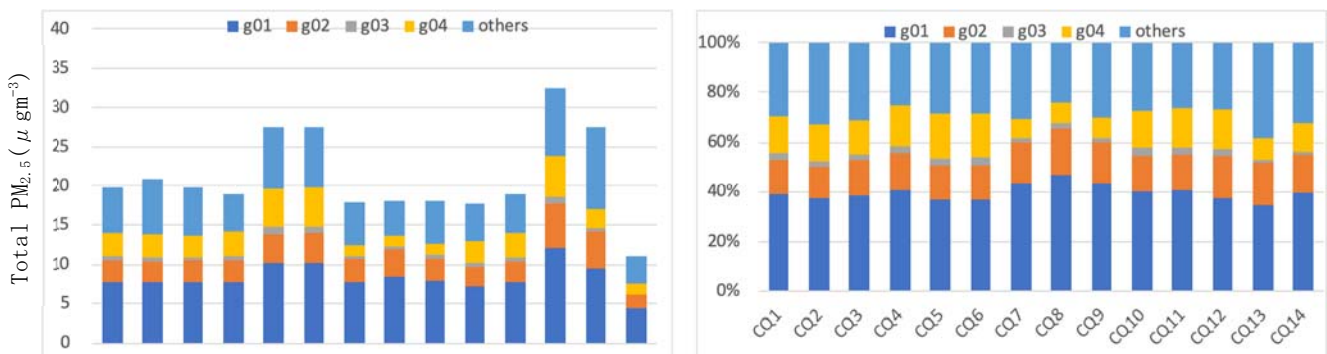
■ 2016/12/21 12:00 (日中高濃度時)



■ 2016/12/22 0:00 (夜間高濃度時)



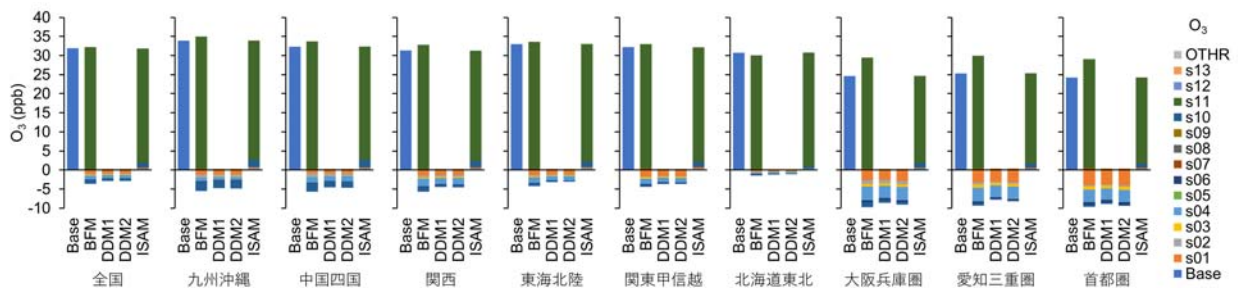
■ 12/21 19:00- 12/22 18:00 (高濃度時24時間平均値)



図(2)-12 大島3丁目における、日中高濃度時(2016/12/21 12:00)、夜間高濃度時(2016/12/22 0:00)、および、高濃度時の24時間平均値(12/21 19:00-12/22 18:00)の $\text{PM}_{2.5}$ の発生源感度モデル実験(BFM)結果。 $\text{PM}_{2.5}$ 濃度($\mu\text{g m}^{-3}$) (右)、割合(%) (左)。g01、g02、g03、g04は、それぞれ輸送、固定燃焼、VOC、 NH_3 の発生源感度を意味する。othersは、領域外からの移流影響を含むその他からの影響である。

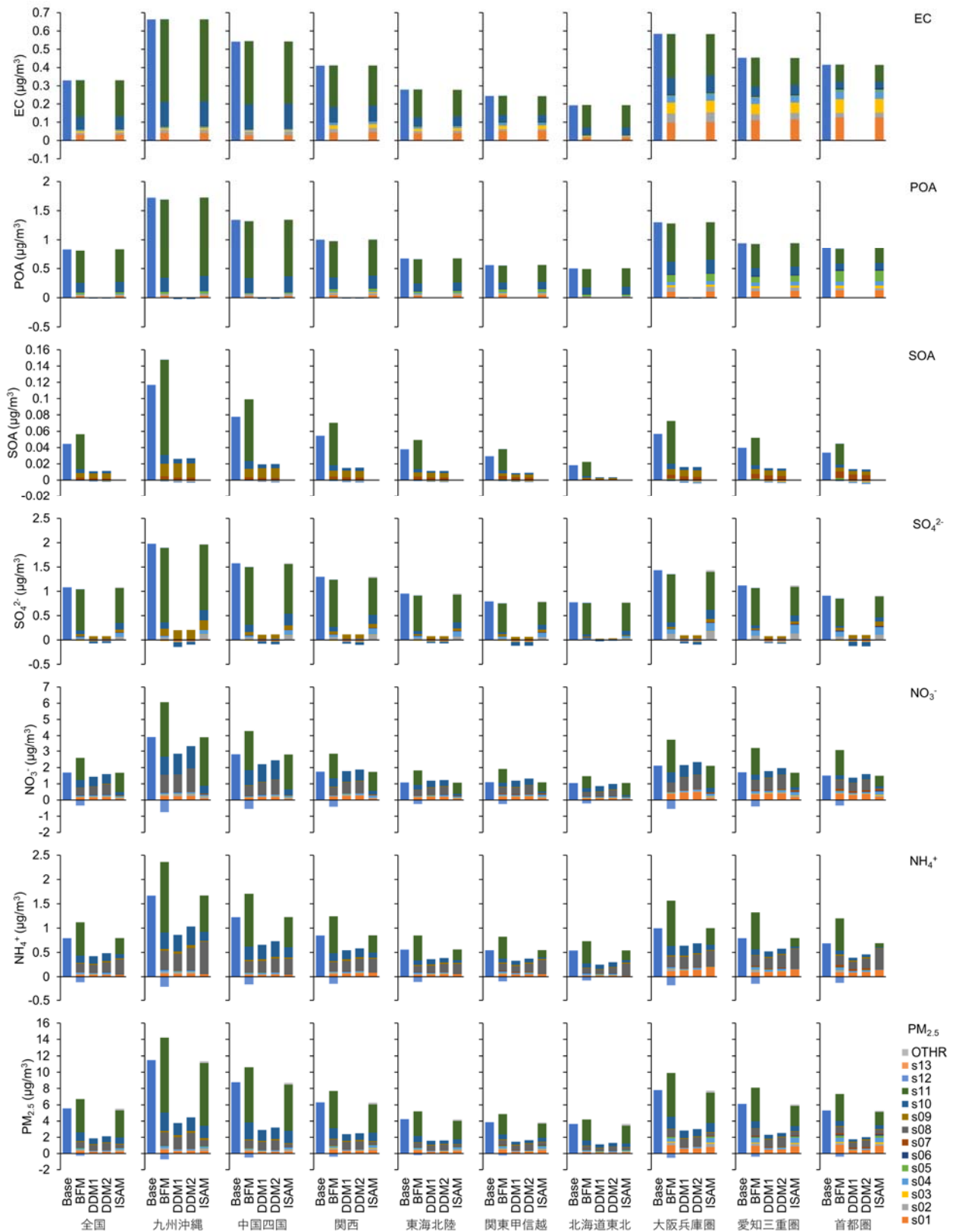
表(2)-6 個別に発生源感度もしくは寄与を評価した発生源の定義
(ISAMとDDMの欄のXで示した発生源は対象外)

	発生源 (BFM)	ISAM	DDM
s01	自動車		
s02	船舶		
s03	その他輸送 (特殊自動車・鉄道・航空機)		
s04	固定燃焼 (発電・産業・業務)		
s05	バイオマス燃焼 (野焼き・喫煙・調理)		
s06	その他固定燃焼 (家庭)		
s07	非燃焼VOC		
s08	非燃焼NH ₃ (農業VOC・PM含む)		
s09	自然 (火山・植物・土壌)		
s10	日本以外 (D2内)		X
s11	D2外からの輸送		X
s12	海塩	X	X
OTHR	その他		X



図(2)-14 O₃濃度に対する発生源感度もしくは寄与の計算結果

同様に、PM_{2.5}ならびに成分別濃度に対する発生源感度もしくは寄与の計算結果を図(2)-15に示す。なお、DDMによる感度には一次排出分が含まれておらず、ISAMでは二次OA (SOA) に対する寄与が算出されないことに注意を要する。成分による特徴が明確に現れている。ECや一次OA (POA) に対する感度と寄与はほぼ一致し、かつ感度もしくは寄与の総和が濃度に一致している。一次排出のみの影響を受け、排出量と大気中濃度との間に線形関係が成り立つ場合には、感度と寄与はほぼ一対一で対応することがわかる。一方、複雑な影響が現れているのがNO₃⁻である。NO_xを全く排出しないs08の非燃焼NH₃について、ISAMによる寄与は全く無いのに対し、BFMとDDMによる感度は大きく現れている。NH₃の排出量が変わると、NH₄⁺だけでなく対となるNO₃⁻の粒子化にも影響を及ぼすためである。s12の海塩の感度はNO₃⁻の粒子化を抑制するため負に現れている。SO₄²⁻に対しては、BFMによる感度がs12を除いてISAMによる寄与よりも小さい傾向があり、DDMによる感度には負の値も見られるが、その原因は不明である。SOAに対してはs12の他、s07の非燃焼VOCやs09の自然の感度も比較的高い。PM_{2.5}に対する感度と寄与は、これらの成分別の複雑な傾向が混じり合ったものである。



図(2)-15 PM_{2.5}ならびに成分別濃度に対する発生源感度もしくは寄与の計算結果

このように、発生源影響評価手法の違いによって、算出される感度や寄与に本質的な違いが生じることから、その意味合いを正しく理解して、有効な対策立案につなげることが重要である。

5. 本研究により得られた成果

(1) 科学的意義

本サブテーマではモデル間相互比較実験(J-STREAM)を通して、モデルの高精度化を進めると同時に、モデル設定間に生じる大気中二次汚染物質濃度の差や発生源感度の差を評価した。気象モデルの降水過程のパラメタリゼーションの違いがわが国の粒子状物質濃度に数 $\sim 10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ の差を生じさせることを示した。大気質モデルの種々の化学メカニズム、CMAQの異なる開発段階(バージョン差)を採用したモデル設定間の比較を通して、これらの差異がPM_{2.5}、その成分、および、O₃濃度に与える影響量を評価した。この結果、わが国の都市域における、これら二次物質の再現性向上に關与するメカニズムが特定された。これらは、更なる大気質モデルの予測精度向上を進める際の重要な科学的知見となり得る。

(2) 環境政策への貢献

<行政が既に活用した成果>

環境省の微小粒子状物質(PM_{2.5})解析ワーキンググループにおいて、本研究で導出されたモデル設定に準じた構成で大気質モデルによる計算が行われ、PM_{2.5}成分別濃度の自動測定結果の解析に活用された。また、環境省の光化学オキシダント調査検討業務から、本研究で導出されたモデル設定や入力データなどに関するヒアリングを受けており、大気質モデルを用いた今後の検討に生かされる見込みである。

<行政が活用することが見込まれる成果>

本サブテーマではモデル間相互比較実験(J-STREAM)を通して、国内外の大気質モデル研究者の知見を集約し、現段階での最良のモデル設定とその限界を提示した。排出インベントリ(サブテーマ(1))やサブモデルのソースコード(サブテーマ(3))、および、各種ツール群を含むJ-STREAMの成果は、環境政策に大気質モデルを使う際に利用される大気質モデルシステムの候補として期待される。他方、本計算結果を各種計算結果の妥当性を評価するためのベンチマークとして活用し、種々の業務における計算結果の再現性の評価・確認に利用することは、モデルの精度向上や精度比較のための労力を大幅に軽減できるだけでなく、モデルのばらつきや限界を踏まえた適切な対策の立案に資することが見込まれる。

6. 国際共同研究等の状況

アジア大気汚染研究センターと中国の中国科学院大気物理研究所が主導する国際的なモデル間相互比較プロジェクトであるMICS-Asia(A model inter-comparison study in Asia)との連携を強化している。日本国内のJ-STREAMへの参加者の一部はMICS-Asiaにも参加している他、中国科学院大気物理研究所の中国最大の大気質モデル開発グループに属するLi Jie博士のJ-STREAMへの参加が実現し、中国にて利用されているモデルシステムにてモデル間比較計算を実行している。また、MICS-AsiaのワークショップにおいてJ-STREAMの活動について紹介し、今後も知見の共有等を行うことで合意している。

7. 研究成果の発表状況

(1) 誌上発表

<論文(査読あり)>

- 1) S. Chatani, K. Yamaji, T. Sakurai, S. Itahashi, H. Shimadera, K. Kitayama, and H. Hayami: Overview of Model Inter-Comparison in Japan's Study for Reference Air Quality Modeling (J-STREAM) *Atmosphere*, 9, 1, 19 (2018).
- 2) S. Itahashi, K. Yamaji, S. Chatani and H. Hayami: *Atmosphere*, 9, 4, 132 (2018)
Refinement of Modeled Aqueous-Phase Sulfate Production via the Fe- and Mn-Catalyzed

Oxidation Pathway.

- 3) S. Chatani, M. Okumura, H. Shimadera, K. Yamaji, K. Kitayama, and S. Matsunaga: Atmosphere, 9, 5, 179 (2018) Effects of a Detailed Vegetation Database on Simulated Meteorological Fields, Biogenic VOC Emissions, and Ambient Pollutant Concentrations over Japan.
- 4) H. Shimadera, H. Hayami, S. Chatani, T. Morikawa, Y. Morino, K. Yamaji, S. Nakatsuka, and T. Ohara: Asian J. Atmos. Environ., 12, 2, 139-152 (2018) Urban Air Quality Model Inter-Comparison Study (UMICS) for Improvement of PM2.5 Simulation in Greater Tokyo Area of Japan.
- 5) S. Itahashi, K. Yamaji, S. Chatani, K. Hisatsune, S. Saito, and H. Hayami: Atmosphere, 9, 12, 488 (2018) Model Performance Differences in Sulfate Aerosol in Winter over Japan Based on Regional Chemical Transport Models of CMAQ and CAMx.
- 6) K. Kitayama, Y. Morino, K. Yamaji, and S. Chatani: Atmos. Environ., 198, 1, 448-462 (2019) Uncertainties in O3 Concentrations Simulated by CMAQ over Japan Using Four Chemical Mechanisms.

<その他誌上発表（査読なし）>

特に記載すべき事項はない。

(2) 口頭発表（学会等）

- 1) 山地一代, 上出広和, 茶谷聡, 速水洋, 嶋寺光: Japan Geoscience Union Meeting (2016)
「2011年夏季関東地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」
- 2) 山地一代, 上出広和, 茶谷聡, 速水洋, 嶋寺光: 第57回大気環境学会年会 (2016)
「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」
- 3) K. YAMAJI, H. UEDE, S. CHATANI, H. HAYAMI, and H. SHIMADERA: 2016 IGAC Science Conference (2016)
「Evaluation of performance of simulated secondary pollutants by using air quality models for urban areas in Japan」
- 4) 山地一代: アジア域の化学輸送モデルの現状と今後の展開に関する研究集会 (2016)
「モデル間相互比較J-STREAMの紹介とお誘い」
- 5) 松井駿佑, 山地一代, 茶谷聡: 大気環境学会近畿支部第5回支部研究発表会 (2016)
「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」
- 6) K. YAMAJI: 8th International Workshop on Atmospheric Modeling Research in East Asia (2017)
「Preliminary results of O3 comparison in J-STREAM project」
- 7) S. CHATANI: 8th International Workshop on Atmospheric Modeling Research in East Asia (2017)
「Introduction of J-STREAM - Japan's study for reference air quality modeling -」
- 8) 山地一代: 第58回大気環境学会年会 (2017)
「大気質モデル間相互比較研究J-STREAMの現状と課題」
- 9) 茶谷聡, 菅田誠治, 永島達也, 森野悠, 山地一代, 速水洋, 板橋秀一: 第58回大気環境学会年会 (2017)
「大気質モデル間相互比較研究J-STREAMの概要」
- 10) 北山響, 森野悠, 山地一代, 茶谷聡: 第58回大気環境学会年会 (2017)
「大気モデル化学反応メカニズムの違いによるO3濃度差の評価」
- 11) 松井駿佑, 嶋寺光, 山地一代, 茶谷聡, 松尾智仁, 近藤明: 第58回大気環境学会年会 (2017)

- 「2013年度関西・関東都市域におけるPM2.5とその成分に対する大気質モデルの再現性評価」
- 12) S. CHATANI, M. TAKIGAWA, K. KITAYAMA, and K. YAMAJI : 16th Annual Community Modeling and Analysis System (CMAS) Conference (2017)
「Effects of interactions between meteorology and ambient pollutants on simulated air quality over metropolitan regions in Japan」
- 13) 柿花諒太郎, 山地一代, 茶谷聡 : 大気環境学会近畿支部第6回支部研究発表会 (2017)
「夏季の大阪におけるNO_x・VOC排出削減によるオゾン濃度に与える影響」
- 14) S. CHATANI, H. SHIMADERA, K. KITAYAMA, and K. YAMAJI : Joint International Conference on the Air Benefit and Cost and Attainment Assessment (ABaCUS) and the Community Modeling and Analysis System (CMAS) (2018)
「Sensitivity analysis on factors influencing simulated ambient ozone concentrations over Japan in J-STREAM」
- 15) K. YAMAJI, S. CHATANI, K. KITAYAMA, S. ITAHASHI, M. SAITO, M. TAKIGAWA, T. MORIKAWA, I. KANDA, Y. MIYA, H. KOMATSU, T. SAKURAI, Y. MORINO, H. SHIMADERA, K. URANISHI, Y. FUJIWARA, and H. HAYAMI : Joint International Conference on the Air Benefit and Cost and Attainment Assessment (ABaCUS) and the Community Modeling and Analysis System (CMAS) (2018)
「Inter-comparison of model performance for PM2.5 and its components over Japan in J-STREAM」
- 16) K. KITAYAMA, S. CHATANI, K. YAMAJI, S. ITAHASHI, M. SAITO, M. TAKIGAWA, T. MORIKAWA, I. KANDA, Y. MIYA, H. KOMATSU, T. SAKURAI, Y. MORINO, H. SHIMADERA, K. URANISHI, Y. FUJIWARA, and H. HAYAMI : Joint International Conference on the Air Benefit and Cost and Attainment Assessment (ABaCUS) and the Community Modeling and Analysis System (CMAS) (2018)
「Inter-comparison of model performance on ambient ozone concentrations over Japan in J-STREAM」
- 17) 松井駿佑, 嶋寺光, 山地一代, 茶谷聡, 松尾智仁, 近藤明 : 第59回大気環境学会年会 (2018)
「関西・関東都市域におけるPM2.5濃度再現性向上のための感度解析～粒子状物質の雲底下洗浄過程～」
- 18) 山地一代, 茶谷聡, 北山響, 板橋秀一, 斎藤正彦, 滝川雅之, 森川多津子, 神田勲, 渡茂, 櫻井達也, 嶋寺光, 浦西克維, 藤原禅, 菅田誠治, 桐山悠祐, 秦寛夫, 斉藤伸治, 山神真紀子, 池盛文教, 久恒邦裕, 長田和雄, 速水洋 : 第59回大気環境学会年会 (2018)
「2016年12月に観測されたPM2.5濃度上昇のモデル再現性について」
- 19) K. YAMAJI, S. CHATANI, K. KITAYAMA, S. ITAHASHI, H. HAYAMI, T. SAKURAI, H. SHIMADERA and M. TAKIGAWA : 17th Annual Community Modeling and Analysis System (CMAS) Conference (2018)
「Model inter-comparison study for urban scale secondary atmospheric pollutants in Japan」
- 20) 新谷創磨, 山地一代, 茶谷聡, 嶋寺光 : 大気環境学会近畿支部第7回支部研究発表会 (2018)
「アジア域地表O₃濃度過大評価における洋上消失過程の有用性の検討」
- 21) 阪口未帆, 山地一代, 茶谷聡 : 大気環境学会近畿支部第7回支部研究発表会 (2018)
「2017年5月の黄砂飛来時における粒子物質のモデル再現性の評価」
- 22) 新谷創磨, 山地一代, 茶谷聡, 嶋寺光 : 日本エアロゾル学会「大気-海洋境界層における大気物質の役割-現場観測の視点から-」 (2019)
「アジア域地表O₃濃度過大評価における洋上消失過程の有用性の検討」
- 23) K. YAMAJI : 10th International Workshop on Atmospheric Modeling Research in East Asia

(2019)

「J-stream: Model inter-comparison study for urbanized area in Japan」

(3) 知的財産権

特に記載すべき事項はない。

(4) 「国民との科学・技術対話」の実施

- 1) 神戸大学海事科学研究科オープンキャンパスにおける研究紹介（2016年8月10日、計648名（学生451名、保護者197名））
- 2) 神戸大学海事科学研究科オープンキャンパスにおける研究室訪問ツアー・模擬/講義（2016年8月10日、計20名）
- 3) 科学塾2018／女子中高生のための関西科学塾における研究紹介（2017年8月2日、計27名）
- 4) 神戸大学海事科学研究科オープンキャンパスにおける研究紹介（2017年8月10日、計682名（学生361名、保護者321名））
- 6) 神戸大学海事科学研究科オープンキャンパスにおける研究紹介（2018年8月10日、計564名（学生407名、保護者157名））
- 7) 「第11回サイエンスフェアin兵庫」にて研究紹介（2019年1月27日）

(5) マスコミ等への公表・報道等

特に記載すべき事項はない。

(6) その他

- 1) 阪口未帆：大気環境学会近畿支部第7回支部研究発表会，ベストプレゼン賞

8. 引用文献

- 1) W. C. Skamarock, J. B. Klemp, J. Dudhia, D. O. Gill, D. M. Barker, M. G. Duda, X. Y. Huang, W. Wang, and J. G. Powers: NCAR Technical Note, NCAR/TN-475+STR. Mesoscale and Microscale Meteorology Division, National Center for Atmospheric Research, Boulder (2008) A Description of the Advanced Research WRF Version 3.
- 2) D. Byun and K. L. Schere: Appl. Mech. Rev., 59, 51-77 (2006) Review of the governing equations, computational algorithms, and other components of the models-3 community multiscale air quality (CMAQ) modeling system.
- 3) W. P. L. Carter: Atmos. Environ., 44, 5324-5335 (2010) Development of the SAPRC-07 chemical mechanism.
- 4) D. B. Sonntag, D. B. Sonntag, R. W. Baldauf, C. A. Yanca, and C. R. Fulper: J. Air Waste Manage., 64, 529-545 (2014) Particulate matter speciation profiles for light-duty gasoline vehicles in the United States.
- 5) K. Sudo, M. Takahashi, J. Kurokawa, and H. Akimoto: CHASER: J. Geophys. Res. 107 (2001) A global chemical model of the troposphere 1. Model description
- 6) K. Sudo, M. Takahashi, and H. Akimoto: J. Geophys. Res. 107 (2001) CHASER: A global chemical model of the troposphere 2. Model results and evaluation.
- 7) H. Shimadera, H. Hayami, S. Chatani, T. Morikawa, Y. Morino, Y. Mori, K. Yamaji, S. Nakatsuka, and T. Ohara: Asian J. Atmos. Environ., 12(2), 139-152 (2018) Urban Air Quality Model Inter-Comparison Study (UMICS) for Improvement of PM2.5 Simulation in Greater Tokyo Area of Japan.
- 8) S. Yu, R. Mathur, G. Sarwar, D. Kang, D. Tong, G. Pouliot, and J. Pleim: Atmos. Chem.

- Phys., 10, 3001-3025 (2010) Eta-CMAQ air quality forecasts for O₃ and related species using three different photochemical mechanisms (CB4, CB05, SAPRC-99): comparisons with measurements during the 2004 ICARTT study.
- 9) K. Kitayama, Y. Morino, K. Yamaji, and S. Chatani: Atmos. Environ., 198, 448-462 (2019) Uncertainties in O₃ concentrations simulated by CMAQ over Japan using four chemical mechanisms.
- 10) S. Itahashi, K. Yamaji, S. Chatani, and H. Hayami: Atmosphere, 9, 4, 132 (2018) Refinement of Modeled Aqueous-Phase Sulfate Production via the Fe- and Mn-Catalyzed Oxidation Pathway.
- 11) S. Itahashi, K. Yamaji, S. Chatani, K. Hisatsune, S. Saito, and H. Hayami: Atmosphere, 9, 12, 488 (2018) Model Performance Differences in Sulfate Aerosol in Winter over Japan Based on Regional Chemical Transport Models of CMAQ and CAMx.
- 12) Y. Zhang, J. He, S. Zhu, and B. Gantt: J. Geophys. Res., 121(10), 6014-6048, doi:10.1002/2016JD024882 (2016) Sensitivity of Simulated Chemical Concentrations and Aerosol-Meteorology Interactions to Aerosol Treatments in WRF/Chem.
- 13) G. Sarwar, H. Simon, P. Bhave, and G. Yarwood: Atmos. Chem. Phys., 12, 1-19 (2012) Examining the impact of heterogeneous nitryl chloride production on air quality across the United States.
- 14) G. Sarwar, H. Simon, J. Xing, and R. Mathur: Geophys Res Lett, 41, 4050-4058 (2014) Importance of tropospheric ClNO₂ chemistry across the Northern Hemisphere.

II-3 PM_{2.5}および関連ガス成分の地表面フラックスの精密測定とモデル化

一般財団法人 電力中央研究所 環境科学研究所 速水 洋・板橋秀一

<研究協力者>

農業・食品産業技術総合研究機構

農業環境変動研究センター

小野圭介・林健太郎（平成28年度）

東京都環境公社東京都環境科学研究所

齊藤伸治

埼玉県環境科学国際センター

長谷川就一

平成28～30年度累計予算額：30,150千円

（うち平成28年度：10,887千円、平成29年度：10,126千円、平成30年度：9,137千円）

累計予算額は、間接経費を含む。

[要旨]

本サブテーマでは、大気質モデルのPM_{2.5}予測精度を改善するため、硝酸塩粒子の乾性沈着、粒子状炭素の時間・空間分布、硫酸塩の生成・沈着過程について、観測とモデリングから検討を進めた。ガス状・粒子状物質の鉛直濃度勾配の観測から、予想していた硝酸塩粒子の乾性沈着速度の加速とは反対に、沈着速度の過大を示唆する結果が得られ、さらなる精査の必要性が示された。また、自動モニタにより関東地方の3地点で同時測定された粒子状炭素成分濃度の1時間値のデータセットが得られ、日内変動や地点間差について把握することができた。さらに、硫酸塩生成における鉄とマンガンの触媒反応を考慮することでモデルの硫酸塩濃度予測が改善し、これら微量成分についてもインベントリを整備する必要性が示された。また、SO₂の乾性沈着過程と硫酸塩の湿性沈着過程が硫酸塩濃度の予測値に影響することが改めて示された。

[キーワード]

硝酸塩、乾性沈着速度、硫酸塩、不均一生成、粒子状炭素

1. はじめに

PM_{2.5}は、多種多様な物質が関与し、生成や消滅に非線形の過程を含み、広範囲の空間・時間スケールで輸送される。そのため、PM_{2.5}の濃度予測や発生源解析には、非定常三次元オイラー型の枠組みで多くの物質と物理・化学過程を考慮して物質収支を解いて濃度や沈着量を計算する大気質モデルの使用が最も適している。PM_{2.5}を扱う大気質モデルはその登場から20年以上経つが、依然として濃度予測に課題のあることが知られている。具体的には、硝酸塩の過大予測、有機炭素の過小予測、そして冬季の硫酸塩の過小予測である¹⁾。こうした課題へは、モデリングのみならず、モニタリングや排出インベントリの面からも取り組む必要がある。本サブテーマでは、モデリングとモニタリングから各課題に取り組み、大気質モデルのPM_{2.5}予測精度の改善と、さらなる改善に向けた取り組みの方向性を得る。

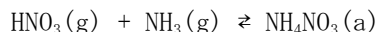
2. 研究開発目的

本サブテーマでは前述の各課題への取り組みとして、硝酸塩の過大予測改善のためにガス状・粒子状物質の鉛直濃度勾配を測定し、有機炭素の過小予測改善のために有機炭素濃度の日内変動の把握し、硫酸塩の過小予測改善のために湿潤粒子表面における硫酸塩不均一生成を評価する。

(1) ガス状・粒子状物質の鉛直濃度勾配の測定

Shimadera et al.¹⁾は大気質モデルを用いて膨大な数の感度計算を行い、硝酸塩の過大評価はアンモニアと硝酸ガスの乾性沈着速度をモデルによる予測値より大きくすると改善することを見出した。これ

は、次のように考えることができる。まず、PM_{2.5}の硝酸塩は硝酸アンモニウムであり、硝酸アンモニウムは固相または液相の粒子態で大気中に存在し、対応するガス成分（アンモニア、硝酸）とほぼ平衡関係にあるとする。



ここで、g：ガス相、a：粒子相である。いま、硝酸アンモニウム粒子がこの関係を保ちながら地表面に沈着しようとしているとする。一般に、粒子の乾性沈着速度はガスより2～3桁も小さい。そのため、硝酸およびアンモニアのガスは硝酸アンモニウム粒子よりも速く大気中から除去される。すると、ガス・粒子平衡状態を維持するため、硝酸アンモニウム粒子のガス化（蒸発）が促進され、結果的に粒子でいるよりも速く除去されることになる。すなわち、粒子状硝酸塩の沈着速度は見かけ上、加速する。本サブテーマでは、この沈着速度の加速化を観測的に捉えるため、硝酸アンモニウムと関連ガス成分の濃度の鉛直勾配を測定する。

（2）有機炭素濃度の日内変動の把握

大気質モデルは一般に1時間濃度を出力するが、これを検証可能なPM_{2.5}主要成分の観測濃度データはきわめて限定的である。近年ようやくイオン成分の1時間平均濃度の自動連続モニタが普及し始め、今後は時間値に対する検証が進むものと期待される。炭素成分については比較的早くから自動連続モニタが市販され、手分析（フィルタ採取＋熱分離光学補正法）との比較検証も行われている²⁾。本サブテーマでは、大気質モデル検証用の1時間濃度を複数地点で得るとともに、炭素成分の濃度変動の時間・空間スケールを把握することを目的に、最近開発された炭素成分の自動連続モニタを関東南部の複数地点に配置して、1時間値の連続観測を行う。

（3）湿潤粒子表面における硫酸塩不均一生成の評価

大気中でSO₂から硫酸塩が生成する反応過程には、気相反応、SO₂が雲水や霧滴に溶け込んで酸化される液相反応、SO₂が固体粒子表面に取り込まれて酸化され変質する気固反応がある。近年、硝酸塩の不均一生成に加えて硫酸塩の不均一生成についても見直しが進められている。そこで本サブテーマでは、不均一生成について最新の知見を導入し、モデルの予測精度改善を図る。

3. 研究開発方法

（1）ガス状・粒子状物質の鉛直濃度勾配の測定

硝酸アンモニウム粒子の沈着速度の加速メカニズムを観測的に捕らえるには、地表面付近における硝酸アンモニウム濃度をガス態と粒子態に分けて測定する必要がある。こうした測定はわが国でもいくつか行われており、たとえばHayashi et al.³⁾は水田上の二高度にフィルタパックを設置し、昼夜別に濃度を測定した。また、坂本ら⁴⁾は森林上の一高度にデニューダ付きフィルタパックを設置し、緩和渦集積法により上向きと下向き別に濃度を測定した。本研究ではこれらを参考に、デニューダ付きフィルタパックを二高度に設置する濃度勾配法を採用した。

デニューダ（URG、URG-2000-30x150-3CSS）はガラス三重管で、内壁はエッチング処理されている。2管を直列に接続し、上流側デニューダはガス状硝酸を捕集するため内壁に1%炭酸ナトリウム溶液を、下流側デニューダはガス状のアンモニアを捕集するため内壁に1%クエン酸溶液をそれぞれ塗布した。上流側デニューダのさらに上流側には、粗大粒子（ここではPM_{2.5}よりも大きな粒子；PMc）を除去するためのインパクト（東京ダイレック、NL-25）を接続した。インパクトの衝突板には石英フィルタ（Pa11 2500QAT-UP）を装填して、PMcを捕集した。下流側デニューダの後流側にはPM_{2.5}を捕集するためフィルタパック（URG、URG-2000-30）を接続し、上流側から順にPTFEフィルタ（Pa11, Teflo）、ナイロンフィルタ（Pa11, NylasorbもしくはULTIPOR）、クエン酸含浸石英フィルタ（Pa11, 2500QAT-UP）を装填した。特にアンモニアによる汚損を抑制するため、デニューダおよび含浸フィルタの作成はすべ

て窒素置換したグローブボックス内で行い、使用前後のすべてのデニューダとフィルタは同じく窒素置換した密閉庫に保管した。デニューダとフィルタの前処理等はU. S. EPA⁵⁾に準じた。イオン分析には Thermo Scientific Dionex ICS-5000+を使用した。

この観測は、農業・食品産業技術総合研究機構農業環境変動研究センターの協力により2016年8月15日から11月25日に茨城県つくば市真瀬の水田で実施した結果を踏まえて仕様を見直し、2018年2月から神奈川県横須賀市長坂の草地で実施した。真瀬での観測では各高度1セットとしたが、高度間の濃度差が微小であったことから、横須賀では高さ1 mと6 mに3セットずつ設置してそれらの平均値をその高度の濃度とした。吸引流量は10 L min⁻¹で、昼（10～16時の6時間）と夜（22～翌4時の6時間）に分けて捕集した。捕集は隔週の二日間もしくは三日間行った。

横須賀では、Optical Particle Counter (OPC ; TSI 9306) を用いた粒子数濃度および紫外吸光法 (2B Technology 205) によるオゾン濃度の鉛直分布測定も併行して実施した。粒子数濃度の鉛直分布を測定する場合、複数高度に同一仕様の測器を設置するのが一般的であるが、各測器の機差を確認する必要がある。本観測では、ひとつの測器を自動昇降するリフトに搭載し、連続的な濃度分布を得ることとした。OPCの濃度測定は1秒、オゾン計は2秒とし、10秒平均値をロガー (Campbell CR1000) に記録した。リフト (ユニパー UP620) は高さ約0.6 mから6.0 mをエンドレスウインチ (マックスプル EMX) により約2 cm/sで昇降するので、ひとつの測定値は厚さ約20 cmの層の平均値となる。架台には測距計 (村上技研 LDS-7H) を搭載し、地表面からの高さを計測した。リフトの運転は、原則としてデニューダ付きフィルタパックの採取期間に合わせた。なお、上端付近は電動リフトなどを格納するための雨除けに覆われているため、高さ5.5 mまでの測定値を採用した。

(2) 有機炭素濃度の日内変動の把握

有機炭素成分濃度の1時間値は、紀本電子工業APC-710により測定した。APC-710はテープフィルタにPM_{2.5}を捕集し、紫外 (275 nm) と近赤外 (890 nm) の反射・透過光を測定してOCとEC (元素状炭素) の濃度に換算する。テープフィルタを毎時巻き取ることで、OC/EC濃度の1時間値を得ることができる。APC-710の測定値は、東京都環境科学研究所における従来法との比較結果に基づき、OCは0.75、ECは2.63をそれぞれ掛けて濃度値とした。本研究の測定地点は東京都狛江市の電力中央研究所 (以下、狛江) で実施したが、東京都江東区の東京都環境科学研究所 (以下、江東) と埼玉県加須市の埼玉県環境科学国際センター (以下、加須) のAPC-710測定結果と併せて解析した⁶⁾。狛江と江東は直線距離で21.8 km、加須とはそれぞれ49.5 kmおよび51.6 km離れている。また、本研究の観測は2016年度6月1日に開始し、2017年4月末に終了したが、解析には2016年2月から独自に行われていたデータも使用した。

OCには一次発生 (POC) と二次生成 (SOC) のものがあり、発生源解明においては両者を仕分けることが重要である。また、モデルはそれらを分けて扱っており、それぞれについてモデル計算濃度を検証することで、どちらにどの程度の改善が必要か知ることができる。測定したOCをPOCとSOCとに分画する方法として、ECトレーサ法⁷⁾が古くから知られている。この方法は、POCはECと同時に発生し、かつ、POC/EC比は一定と仮定し、POCとSOCを求めるものである。

$$\text{POC} = (\text{OC}/\text{EC})_{\text{pri}} \text{EC} \quad (\text{Eq. 1})$$

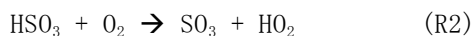
$$\text{SOC} = \text{OC} - \text{POC} \quad (\text{Eq. 2})$$

ここで、 $(\text{OC}/\text{EC})_{\text{pri}}$ は排出時のOC/EC比で、観測されたOC/EC比の最低値などから決定されることが多い。近年、Wu and Yu⁸⁾は、SOCとECは相互依存しないと考え、SOCとECの決定係数が最小となる $(\text{OC}/\text{EC})_{\text{pri}}$ を求める方法を提示した。本研究では、この方法により $(\text{OC}/\text{EC})_{\text{pri}}$ を地点別月別に求め、SOC濃度を推計した。

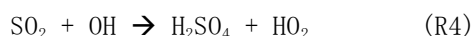
なお、この観測の後に、狛江地点のAPC-710は東京都墨田区向島に移動し、大気エアロゾル化学成分連続自動分析装置 (紀本電子工業 ACSA-12) とともに観測を行い、サブテーマ (2) に検証データとして提供した。

(3) 湿潤粒子表面における硫酸塩不均一生成の評価

大気中でSO₂から硫酸塩が生成する反応過程には、気相反応、気液反応、気固反応がある。気相反応は、以下の一連の反応による。

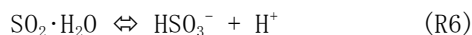


生成したH₂SO₄は蒸気圧が低い液体状の硫酸ミストとして新粒子を生成するか、既往の粒子に凝縮して粒子化する。(R2)および(R3)はO₂や水蒸気が大気中に豊富に存在するために早く進行するので、OHラジカルとの反応である反応(R1)がこの一連の過程の律速となる。大気質モデル、たとえば国内でもユーザが多くわが国の大気環境研究への実績も多い米国環境保護庁の大気質モデルCommunity Multi-scale Air Quality (CMAQ) は、この気相反応過程を



と簡略化して取り扱う。H₂SO₄の粒子化は二段階に分けて扱い、1タイムステップの間にH₂SO₄が生成すると、まず新粒子の生成反応を進行させ、余剰があれば凝縮させる。

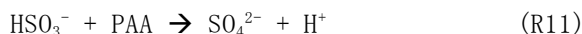
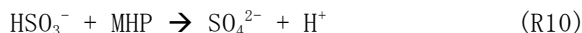
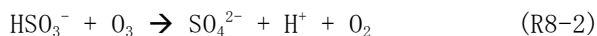
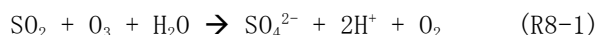
次に気液反応であるが、SO₂は雲水や霧滴に溶け込んで、HSO₃を生成する。



ここに過酸化水素H₂O₂が共存すると、



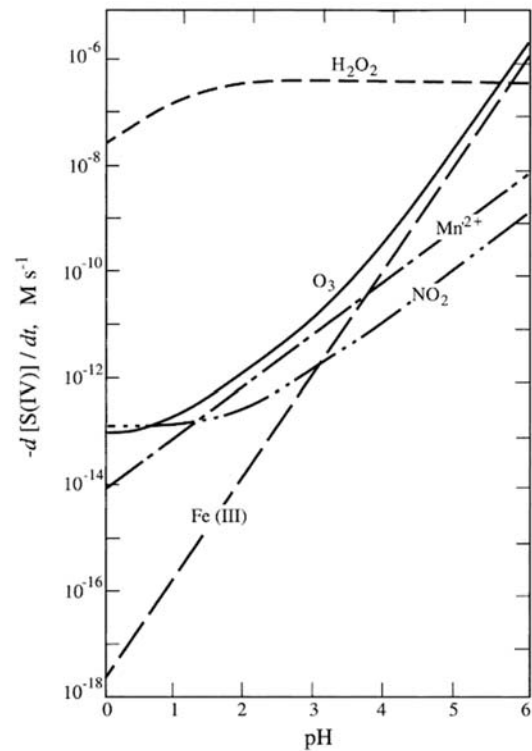
により酸化が進んでSO₄²⁻が生成する。CMAQでは酸化剤としてH₂O₂のほか、オゾン(O₃)、溶存酸素(O₂)、過酸化物であるメチルヒドロペルオキシド(MHP; methyl hydroperoxide)、過カルボン酸である過酢酸(PAA; peracetic acid)の計5物質を考慮している。



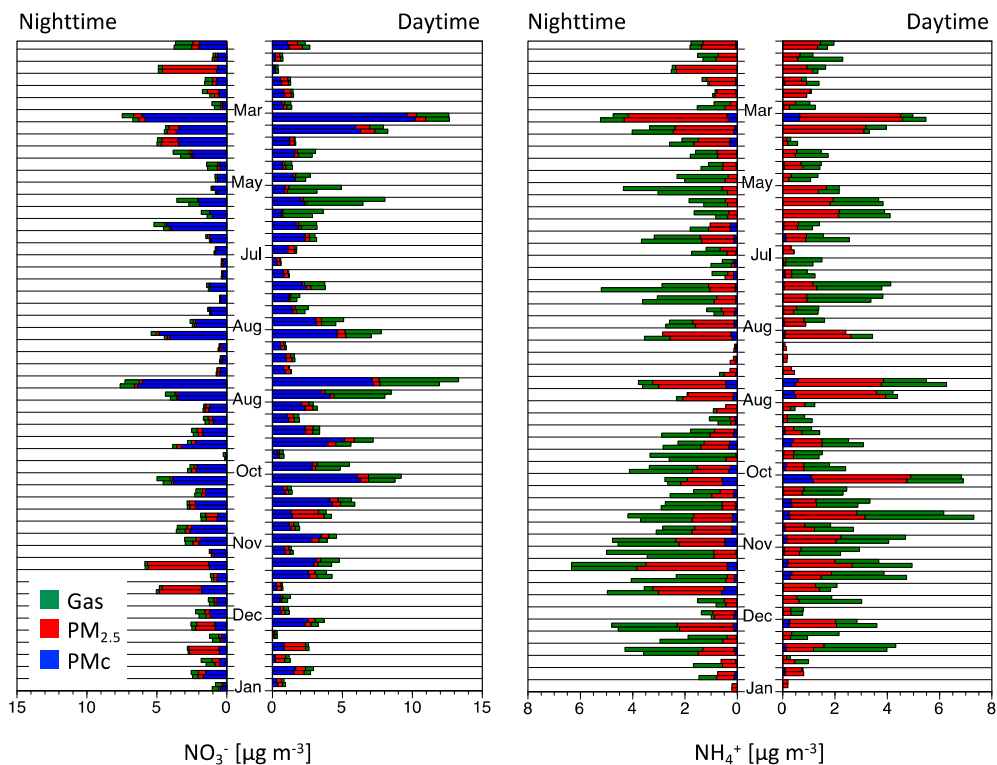
雲水に溶け込んだSO₂は(R5)の通りSO₂・H₂O(aq)や(R6)の通りHSO₃⁻、ほかSO₃²⁻などとして存在し、これらの酸化数が+4であることから一般にS(IV)と総称する。このS(IV)の気液反応での酸化速度d(S(IV))/dtのpH依存性を示したものが図(3)-1である(Seinfeld and Pandis⁹より引用)。このようにあらゆるpHの範囲においてH₂O₂による酸化過程が重要であることがわかる。pHが5以上となると、H₂O₂による酸化過程のほかに、O₃や溶存酸素、またCMAQでは考慮されていないがNO₂による酸化反応も重要となってくるのがわかる。こうして生成したSO₄²⁻は雲水や霧滴の蒸発により、硫酸塩粒子が生成する。CMAQは液相へのSO₂の取り込みからの生成までと、雲水の蒸発による粒子生成の過程を扱っている。

最後に気固反応は、SO₂が固体粒子表面に取り込まれて酸化され硫酸塩に変質する反応である。しかし

ながら数値実験によると、SO₂の乾燥粒子表面への吸着速度が遅く、硫酸塩生成に及ぼす効果は高濃度ダスト時に限られるとする報告がある¹⁰⁾。そのため、現状のCMAQでは気固反応は取り扱っていない。しかしながら、報道等を通じて広く国民にも周知された2013年1月の中国大陸における超高濃度PM_{2.5}の事例は、日照のほとんどないどんよりとした曇りで、オゾン濃度はほぼゼロに近く、降水をとまなう雲がわずかであったことから、硫酸塩の生成原因として気相反応や気液反応は考えにくく、気固反応の可能性が指摘された。このような中国大陸の高濃度PM_{2.5}の事例については、CMAQに硫酸塩に係る不均一反応系を導入することで、計算値の再現性を改善したとする報告がある¹¹⁾。わが国の濃度レベルは中国大陸に比べるとはるかに低いものの、冬季の曇天・高湿度下でPM_{2.5}濃度が高濃度になることがある。たとえば2015年12月10日の首都圏では、いわゆる房総前線の寒冷域側で高さ200 m程度の接地逆転層が形成され、PM_{2.5}濃度が90 μg/m³に達していた¹²⁾。こうしたわが国の事例について不均一過程を適用し、その効果を検証する必要がある。



図(3)-1 S(IV)の酸化速度のpH依存性



図(3)-2 NO₃⁻ (左) とNH₄⁺ (右) の昼夜別・形態別濃度
上端の2018年2月から下端の2019年1月まで時系列に列ぶ。各棒の上側と下側は、それぞれ高さ6 mと1 mの濃度を示す。

4. 結果及び考察

(1) ガス状・粒子状物質の鉛直濃度勾配の測定

横須賀での観測は、降水や荒天を除いた54日でデータを得ることができた。NO₃⁻とNH₄⁺のガスおよびPM_{2.5}、PM_c別濃度を図(3)-2に示す。ガス態と粒子態を合計した総NO₃⁻濃度は暖候期のほうがやや高く、夜よりも昼のほうが高く、上下間はわずかではあるが上のほうが高いことがほとんどであった。形態別では、全体的にPM_cに多いが、暖候期の日中はガス態に、寒候期の夜間はPM_{2.5}に多く分配されていた。総NH₄⁺濃度は寒候期に高くなることが多く、昼夜で明瞭な相違はみられず、下側で高いことが多い。形態別では、ガス態とPM_{2.5}がほとんどであるが、5月や8月を除いてガス態に多く分配されていた。

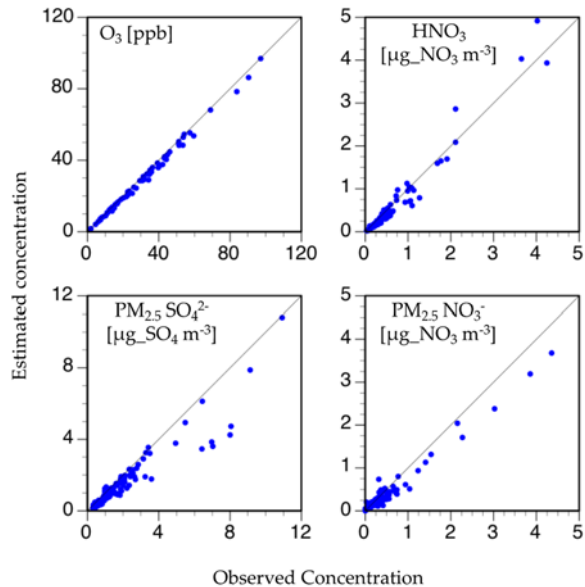
次に、沈着速度の見かけ上の加速について検証する。地表面から発生のない物質の乾性沈着フラックス F は、ある高さ z での濃度 C と沈着速度 v_d の積で表される。フラックスは高さ方向に一定であるから、

$$F = v_d(B) C(B) = v_d(T) C(T)$$

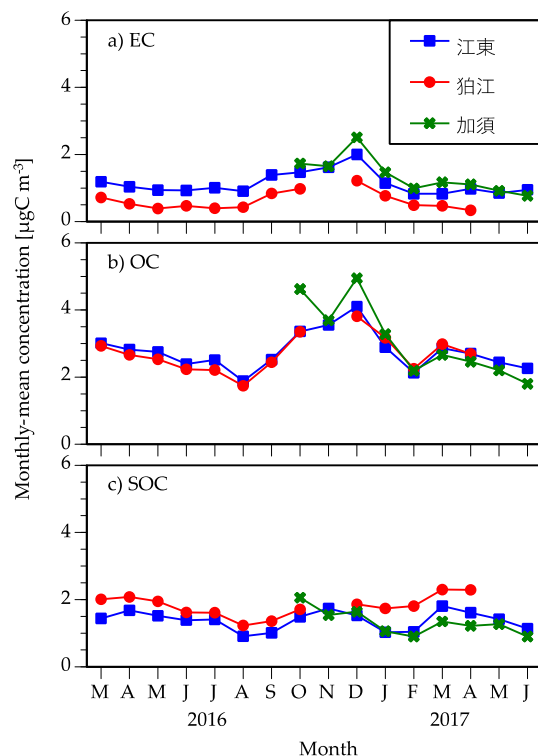
となる。ここで、BとTはそれぞれ下側と上側の観測値を指す。もし、この式から推測される $C(B)' (= v_d(T) C(T) / v_d(B))$ よりも実測された $C(B)$ が低い場合、 $v_d(B)$ よりも速く沈着したことになる。図(3)-3は、推計された $C(B)'$ と実測された $C(B)$ を比較したものである。ここで、 v_d は野口ら¹³⁾により算出した。まず、オゾンについて見ると、推計値と実測値がよく整合しており、ほぼ理論通りに沈着しているといえる。ガス態のHNO₃についても高濃度側で若干推計値が過大なものの、両者はほぼ整合する。しかしながら、PM_{2.5}の非海塩起源SO₄²⁻およびNO₃⁻は概して実測値のほうが高く、沈着速度の加速化とは反対の結果となった。この結果がNO₃⁻のみであれば、地表面から発生したNH₃によりHNO₃の粒子化が促進された可能性が考えられる。しかしながらSO₄²⁻もNO₃⁻と同じ傾向にあったことから、ガス成分と同様の地表面付近での抵抗をPM_{2.5}成分についても考慮に入れる必要が示唆される。

(2) 有機炭素濃度の日内変動の把握

狛江における平均濃度はOCが暖候期（2016年4月～9月）2.30 μgC m⁻³、寒候期（2016年10月～2017年3月）3.14 μgC m⁻³、ECが暖候



図(3)-3 沈着理論による地表付近の推計濃度（縦軸）と実測濃度（横軸）の関係
左上：O₃，右上：ガス状HNO₃，左下：PM_{2.5}中SO₄²⁻，右下：PM_{2.5}中NO₃⁻



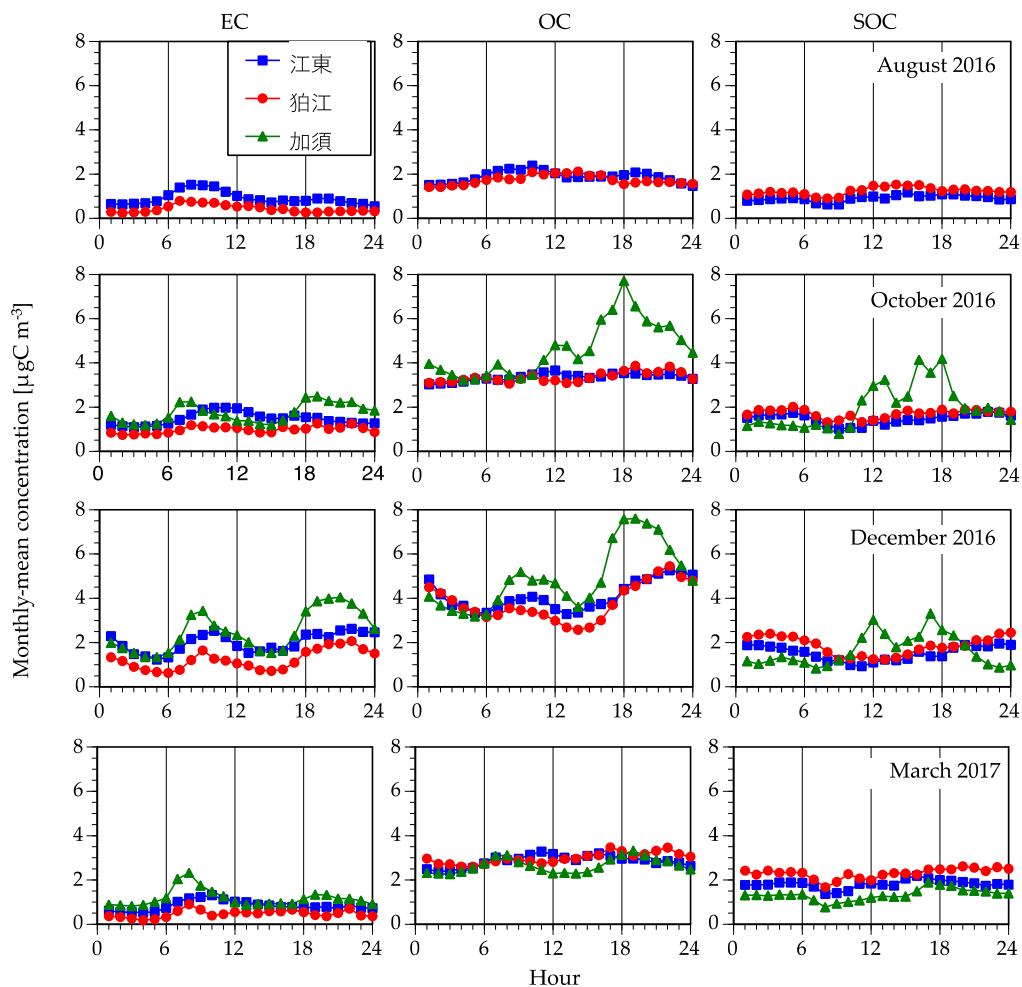
図(3)-4 各地におけるPM_{2.5}炭素成分の月平均濃度

期 $0.51 \mu\text{gC m}^{-3}$ 、寒候期 $0.80 \mu\text{gC m}^{-3}$ と低いレベルであった。狛江に比べて江東のOCはやや高い程度であるが、ECは明らかに高かった。加須は寒候期のみ比較可能であるが、OC/ECともに狛江、江東より高かった。

各地点を含む15 km四方からのEC発生量は、2010年度で247トン、111トン、31トンである¹⁴⁾。狛江と江東とで比をとると、EC濃度が暖候期 $0.50 (=0.51/1.03)$ 、寒候期 $0.60 (=0.80/1.33)$ であるのに対し、排出量比は $0.45 (=111/247)$ で、両者はほぼ整合する。ところが、加須と江東とで比べると、EC濃度が寒候期 $1.20 (=1.59/1.33)$ であるのに対し、排出量比は $0.13 (=31/247)$ と小さく、9倍もの違いがあった。排出量が2010年度の年間値であることや測定誤差がこれほどの違いをもたらすとは考えにくく、加須が野焼きなど局所的な排出の影響を強く受けていることが示唆される（サブテーマ（1）参照）。

各地点におけるEC、OC、SOCの月平均濃度を図(3)-4に示す。EC濃度は各地点で同様の季節変化を示し、12月に最高となった。OC濃度は、加須の10月と12月を除いてよく一致し、8月と2月に低く12月に高くなった。ECトレーサ法で求めたSOC濃度はOCに似た季節変化を示し、狛江が最も高く推移した。

次に、代表的な月について時刻別平均濃度を図(3)-5に示す。8月は、江東のECに午前中の濃度上昇を確認できるが、概して日内変動は小さい。SOC濃度は、光化学オキシダント濃度との連動から光化学生成が示唆されるが、月平均でみると変動幅はわずかである。10月は、加須のOCが特徴的で、午前中は江東や狛江と同程度であるのに、昼頃から上がり始め夕刻にピークを示した。12月は、全地点のOC/ECに午前と夜とにピークがみられる。この日変化は加須で顕著であるが、周辺の交通量からしてその原因を自動車のみに帰するのは困難であり、10月とは異なる形態の野焼き等の可能性を検討する必要がある。3月は8月同様に日変化が小さいが、SOCの濃度レベルに地点間差が認められる。

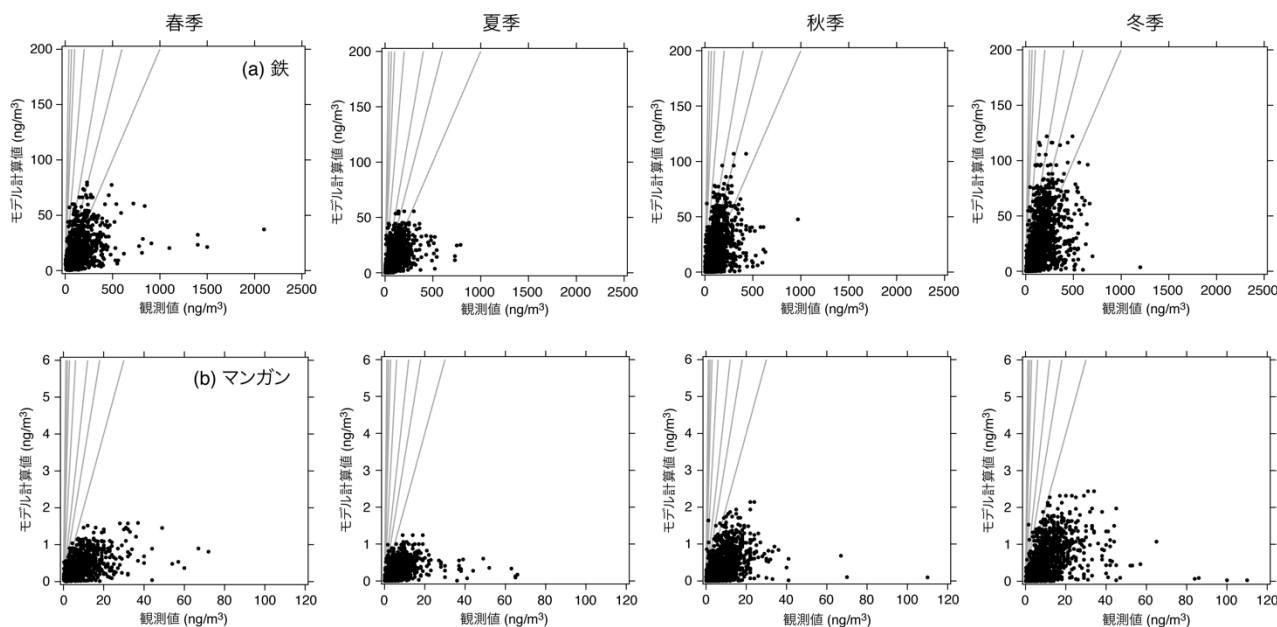


図(3)-5 各地におけるPM_{2.5}炭素成分の月別時刻別平均濃度

モデルの検証は統計的に処理して行われることが多いが、こうした平均的な日変化や地点間差を再現できるかの視点も重要と考える。

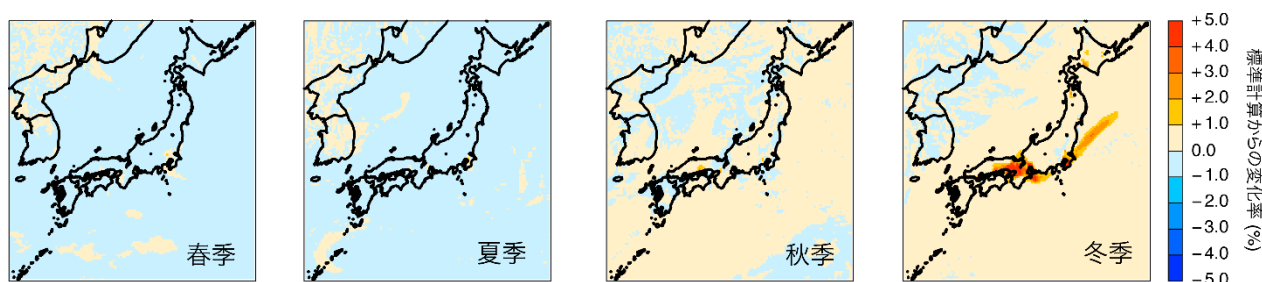
(3) 湿潤粒子表面における硫酸塩不均一生成の評価

硫酸塩不均一生成過程のサブモデル構築にあたり、現状のCMAQの硫酸塩生成過程を詳細にレビューしたところ、鉄とマンガンを触媒とした溶存酸素による気液反応に問題があることがわかった。これは、アジア域の排出インベントリには鉄やマンガンなどの金属成分のデータがなく、また、国内の排出インベントリについても金属成分の検証が不十分な点があるためである。CMAQは2012年2月にversion 5.0がリリースされ、これより以降は無機イオン成分のガス・粒子分配を計算する熱力学平衡モデルISORROPIAのアップデート¹⁵⁾に伴いCMAQのモデル内部で微量金属成分を陽に取り扱うように変更された。なお、これ以前は鉄とマンガン濃度をバックグラウンド濃度としてそれぞれ10 ng/m³と5.0 ng/m³と仮定していた。サブテーマ(2)モデル間相互比較実験のPhase1の対象である2013年度環境省成分分析結果について各季の観測値と比較をしたところ、モデルは鉄とマンガン濃度を大幅に過小評価することが明らかとなった(図(3)-6)。



図(3)-6 2013年度各季の環境省成分分析結果に対する(a)鉄、(b)マンガンのモデル計算値の検証

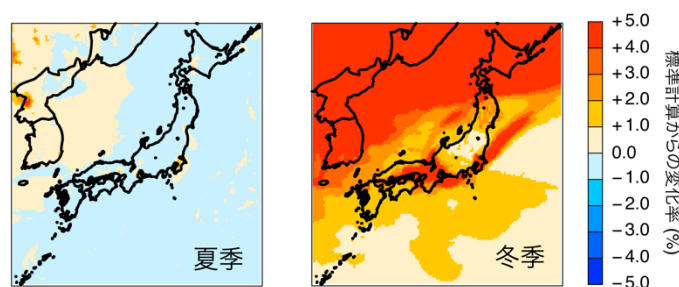
このことから、まず鉄とマンガン濃度が観測値と整合するよう、国内の排出量をそれぞれ7倍および20倍とする感度実験を実施した。その結果、主要な酸化剤であるH₂O₂濃度が小さい冬季において、鉄とマンガン濃度が適切に表現されることで、硫酸塩濃度が増加することが示された(図(3)-7)。



図(3)-7 鉄とマンガン濃度を観測値に整合させた感度実験の気液反応に由来する硫酸塩濃度の変化率

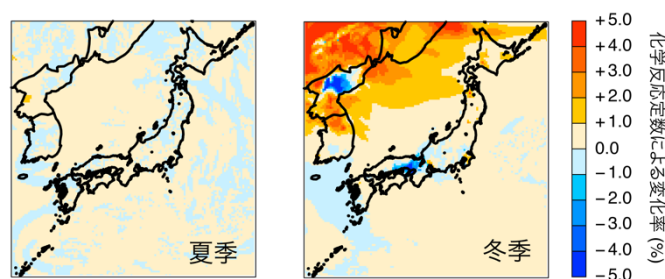
なお、この手法では関西および関東地方を中心に濃度変化が見られるが、本来ならば鉄とマンガン濃度は国内外の発生源に複合的に影響を受けた濃度となるはずである。国外の排出量については既存の排出量インベントリが存在していないため、国内の排出量のみを考慮することで観測値に整合するような感度実験の設定としたが、国外排出量を考慮できれば越境輸送される硫酸塩濃度として変化することが期待できる。

鉄とマンガンが硫酸塩の気液反応として冬季に重要な役割を担う可能性が検討できたため、さらに2種類の感度実験を実施した。まず1つ目は気液反応における鉄とマンガンの可溶性の検討である。現状のCMAQでは、鉄とマンガンの可溶性についてそれぞれ10%と50%と設定されている。文献調査をもとに、これらについて現実大気で起こりうる最大値として25%と100%と増加させた設定とした¹⁶⁻¹⁸⁾。その結果、冬季においては気液反応を経た硫酸塩濃度が大幅に増加する結果を得た(図(3)-8)。



図(3)-8 鉄とマンガンの可溶性を増加させた感度実験での気液反応に由来する硫酸塩濃度の変化率

これに加えて2つ目の感度実験として、現状のCMAQでは考慮されていない反応速度定数へのpH依存性の導入を図った¹⁹⁾。pH依存性の考慮の有無についての変化率を見てみると、大陸上ではさらに気液反応を経た硫酸塩が増加、一方で関西や朝鮮半島の一部では若干生成が抑えられるような結果を得た(図(3)-9)。

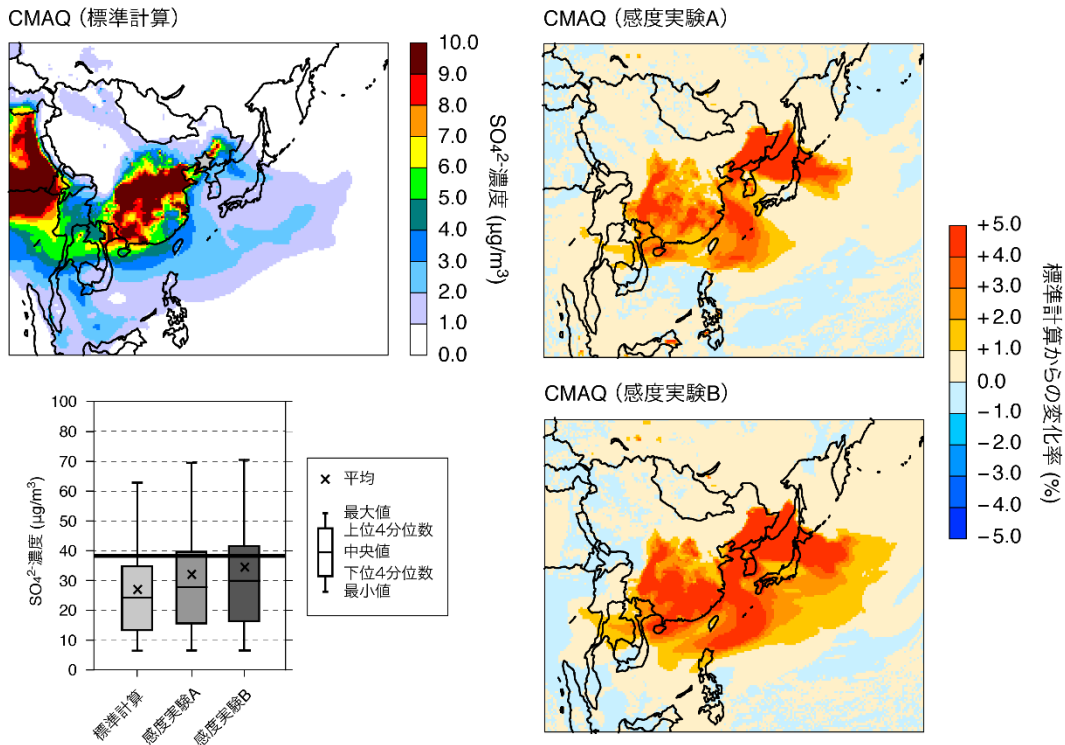


図(3)-9 反応速度定数に pH を考慮した感度実験での気液反応に由来する硫酸塩濃度の変化率

以上に示したように、鉄とマンガンを触媒とする溶存酸素による気液反応に係る感度実験を通じて、既存のモデルが抱える金属成分の排出量インベントリの問題点を指摘し、硫酸塩の冬季過小評価の改善につながる可能性を明らかとした。この内容については学術論文としてとりまとめを行った²⁰⁾。また、Phase1における本成果をもとに、サブテーマ(1)にアジア域排出インベントリに金属成分の情報を付加することを依頼し、サブテーマ(1)はPhase2においては文献で報告されている金属成分の割合²¹⁾をもとにアジア域の排出インベントリを再構築した。

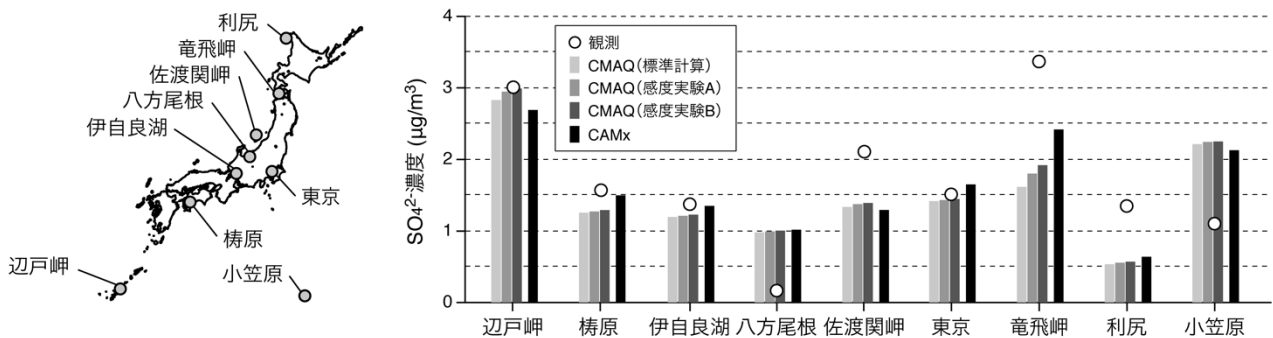
サブテーマ(2)モデル間相互比較実験のPhase2では2016年12月の冬季の高濃度PM_{2.5}汚染事例を対象とした。この事例解析の結果について示す(図(3)-10)。CMAQの標準計算では、高濃度の硫酸塩が大陸上に示され、風下の韓国や日本、太平洋にかけて硫酸塩濃度が広がっていることがわかる。感度実験Aでは、Phase1で導入した鉄とマンガンの可溶性の増加および化学反応定数におけるpH依存性の考慮を取り入れた。この結果、標準計算に比較して大陸上のみならず、わが国の西側と東北・北海道地方にかけ

て硫酸塩濃度が増加した。さらに、感度実験Aに加えて、CMAQで考慮している5つの酸化剤のほかにNO₂を酸化剤として導入する感度実験Bを実施した。このことで、硫酸塩はさらに増加することが確認された。このNO₂による気液反応の酸化過程は、従前より知られていたものではあったが、特にアジア域のようにアンモニアが豊富に存在しpHが大きき場合には重要となることが、近年になって中国の高濃度汚染時を対象に見直されているためである^{22,23)}。2016年12月の高濃度PM_{2.5}の事例については中国瀋陽において集中観測結果が報告されていた。風上におけるモデル再現性を検証するため、CMAQの標準計算と2種類の感度実験結果について比較を行った。図(3)-10(左下)中の太線で観測結果を示しており、2016年12月17日から21日までの平均濃度は37.9 μg/m³であった。同期間中のCMAQの標準計算では28.5 μg/m³であったが、感度実験AおよびBでは32.1 μg/m³と33.1 μg/m³と硫酸塩濃度の増加が見られ、風上における再現性の向上が検証できた。



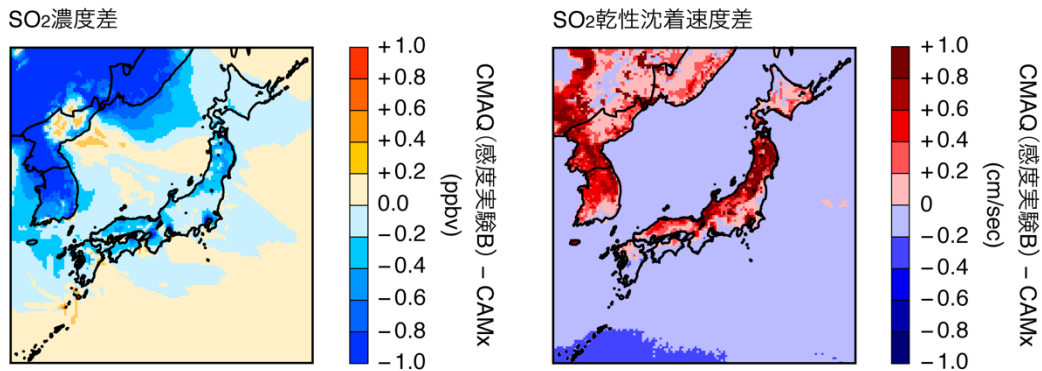
図(3)-10 2016年12月の事例解析におけるCMAQモデルの再現性向上

CMAQの過小評価要因をさらに検討するため、別の大気質モデルである米国ENVIRON社のCAMxを用いて、気象場や排出量などの入力データは統一した上での詳細な相互比較実験を実施した。CAMxの気液酸化過程は、CMAQの感度実験Aとほぼ同等であり、感度実験Bと比較すれば気液反応は弱い。しかしながら、東アジアモニタリングネットワーク(EANET)の観測値と比較すると、CMAQのほうが濃度が低く、CAMxのほうが濃度を高く算出することがわかった(図(3)-11)



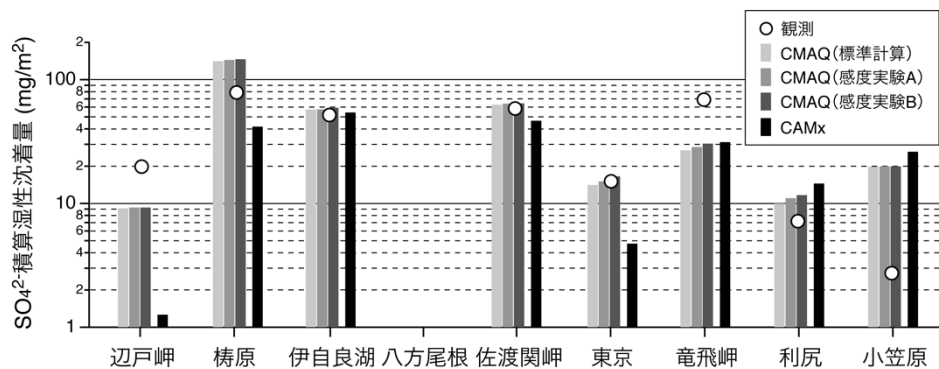
図(3)-11 2016年12月のCMAQおよびCAMxのEANET観測値との大気中濃度の比較

本モデル相互比較研究では、入力データを統一していることから、このようなモデルの結果の違いはモデル内部に起因すると考えられる。硫酸塩の気液反応の点からは本結果を解釈できないため、除去過程である乾性・湿性沈着に着目することとした。前駆体であるSO₂について、両モデルを比較したところ、CMAQのほうがCAMxよりもSO₂濃度が低いことがわかった。乾性沈着速度を比較すると、海上を除く陸上のほぼ全域でCMAQのほうが沈着速度が大きいことがわかり、前駆体のSO₂については乾性沈着速度差が大気中濃度差に影響している可能性が示された（図(3)-12）



図(3)-12 CMAQ および CAMx の SO₂ 濃度と SO₂ 乾性沈着速度の差

硫酸塩の除去過程としては乾性・湿性沈着のうち、湿性沈着が圧倒的な除去過程の要因であったため、湿性沈着量について期間積算したものをEANET観測結果と比較した。その結果、観測値と比較すればCMAQは過大評価傾向、CAMxは過小評価傾向にあることが明らかとなった（図(3)-12）。したがって、CMAQでは湿性沈着を経た除去過程が大きいために大気中濃度が過小傾向、一方でCAMxでは除去過程が小さいために大気中濃度が過大傾向となることが明瞭となった。



図(3)-13 2016年12月のCMAQおよびCAMxのEANET観測値との積算湿性沈着量の比較

以上のようにCMAQの硫酸塩濃度再現性には、前駆体であるSO₂の乾性沈着と硫酸塩の湿性沈着が大きく影響していることが明らかとされた。この内容について、学術論文としてとりまとめを行った²⁴⁾。なお、2本の学術論文としてとりまとめた硫酸塩の気液反応に係るサブモデルの開発については、わが国の大気質コミュニティで使用してもらうため、そのサブモデルコードを公開する。

5. 本研究により得られた成果

(1) 科学的意義

本サブテーマでは、大気質モデルのPM_{2.5}予測精度を改善するための取り組みを観測とモデリングから進めた。観測側からは、予想していた硝酸塩粒子の乾性沈着速度の加速とは反対に、沈着速度の過大を

示唆する結果が得られ、さらなる精査の必要性が示された。また、粒子状炭素成分濃度について1時間値のデータセットが得られたことで、これまできわめて限定的であった日内変動や空間分布についてモデルの検証が行えるようになった。モデリング面からは、硫酸塩生成における鉄とマンガンの触媒反応を考慮することで予測が改善し、これら微量成分についてもインベントリを整備する必要性が示された。また、SO₂の乾性沈着過程と硫酸塩の湿性沈着過程についても精査が必要なことが示された。以上のように、本サブテーマによりPM_{2.5}成分の予測精度を改善するための具体的な方針が得られた。

(2) 環境政策への貢献

<行政が既に活用した成果>

特に記載すべき事項はない。

<行政が活用することが見込まれる成果>

粒子状炭素成分濃度の日内変動パターンと地点間差異については、観測値と計算値の単なる比較とは異なる視点での大気質モデルの精度検証に活用が見込まれる。また、硫酸塩生成に関するサブモデルの公開により、これを対策検討で使用される大気質モデルに組み込むことで予測の改善が見込まれる。

6. 国際共同研究等の状況

特に記載すべき事項はない。

7. 研究成果の発表状況

(1) 誌上発表

<論文(査読あり)>

- 1) S. ITAHASHI, K. YAMAJI, S. CHATANI and H. HAYAMI: Atmosphere, 9, 4, 132 (2018)
Refinement of modeled aqueous-phase sulfate production via the Fe- and Mn-catalyzed oxidation pathway.
- 2) S. ITAHASHI, K. YAMAJI, S. CHATANI, K. HISATSUNE, K. SAITO and H. HAYAMI: Atmosphere, 9, 12, 488 (2018)
Model performance differences in sulfate aerosol in winter over Japan based on regional chemical transport models of CMAQ and CAMx

<その他誌上発表(査読なし)>

特に記載すべき事項はない。

(2) 口頭発表(学会等)

- 1) 板橋秀一, 速水洋, 山地一代, 茶谷聡: 第58回大気環境学会年会(2017)
「化学輸送モデルの冬季の硫酸塩過小評価要因の検討」
- 2) 速水洋: 第35回エアロゾル科学・技術研究討論会(2018)
「地表面付近における粒子状物質の鉛直濃度勾配の測定」
- 3) 速水洋, 齊藤伸治, 長谷川就一: 第59回大気環境学会年会(2018)
「高時間分解自動モニタで捉えた関東南部におけるPM_{2.5}炭素成分の時間・空間変動」

(3) 知的財産権

特に記載すべき事項はない。

(4) 「国民との科学・技術対話」の実施

特に記載すべき事項はない。

(5) マスコミ等への公表・報道等

特に記載すべき事項はない。

(6) その他

特に記載すべき事項はない。

8. 引用文献

- 1) H. SHIMADERA, H. HAYAMI, S. CHATANI, Y. MORINO, Y. MORI, T. MORIKAWA, K. YAMAJI and T. OHARA: J. Air Waste Manage. Assoc., 64, 4, 374-387 (2014)
Sensitivity Analyses of Factors Influencing CMAQ Performance for Fine Particulate Nitrate.
- 2) P.A. SOLOMON and C. SIOUAS: J. Air Waste Manage. Assoc., 58, 2, 164-195 (2012)
Continuous and Semicontinuous Monitoring Techniques for Particulate Matter Mass and Chemical Components: A Synthesis of Findings from EPA' s Particulate Matter Supersites Program and Related Studies.
- 3) K. HAYASHI, K. ONO, K. MATSUDA, T. TOKIDA and T. HASEGAWA: Asian J. Atmos. Environ., 11, 3, 202-216 (2017)
Characteristics of Atmosphere-Rice Paddy Exchange of Gaseous and Particulate Reactive Nitrogen in terms of Nitrogen Input to a Single-Cropping Rice Paddy Area in Central Japan.
- 4) 坂本泰, 中原聡仁, 高橋章, 反町篤行, 堅田元喜, 松田和秀: 大気環境学会誌, 53, 4, 136-143 (2018)
デニューダ・緩和渦集積法を用いたフラックス観測による東京郊外の森林におけるPM_{2.5}硝酸塩および硝酸ガスの沈着速度
- 5) U.S. EPA.: EPA/625/R-96/010a (1999)
Compendium of Methods for the Determination of Inorganic Compounds in Ambient Air.
- 6) H. HAYAMI, S. SAITO and S. HASEGAWA: Submitted to Asian J. Atmos. Environ. (2019)
Spatiotemporal Variations of Fine Particulate Organic and Elemental Carbons in Greater Tokyo.
- 7) B.J. TURPIN and J.J. HUNTZICKER: Atmos. Environ., 29, 23, 3527-3544 (1995)
Identification of Secondary Organic Aerosol Episodes and Quantitation of Primary and Secondary Organic Aerosol Concentrations during SCAQS.
- 8) C. WU and J.Z. YU: Atmos. Chem. Phys., 16, 8, 5453-5465 (2016)
Determination of Primary Combustion Source Organic Carbon-to-Elemental Carbon (OC/EC) Ratio Using Ambient OC and EC Measurements: Secondary OC-EC Correlation Minimization Method.
- 9) J.H. SEINFELD and S.N. PANDIS: John Wiley & Sons: New York, NY, USA (2006)
Atmospheric Chemistry and Physics-From Air Pollution to Climate Change, 2nd ed.
- 10) Y. ZHANG and G. CARMICHAEL: J. Appl. Meteorol., 38, 3, 353-366 (1999)
The Role of Mineral Aerosol in Tropospheric Chemistry in East Asia - A Model Study.
- 11) B. ZHENG, Q. ZHANG, Y. ZHANG, K.B. HE, K. WANG, G.J. ZHENG, F.K. DUAN, Y.L. MA and T. KIMOTO: Atmos. Chem. Phys., 15, 4, 2031-2049 (2015)
Heterogeneous Chemistry: A Mechanism Missing in Current Models to Explain Secondary Inorganic Aerosol Formation during the January 2013 Haze Episode in North China.

- 12) 田中清敬, 速水洋, 齋野広祥, 三浦和彦, 板橋秀一, 齋藤伸治: 大気環境学会誌, 52, 2, 51-58 (2017)
都心上空と地上の大気質観測によるPM_{2.5}等の高濃度時の立体解析—2015年12月上旬の事例—
- 13) 野口泉, 山口高志, 川村美穂, 松本利恵, 松田和秀: 環境科学研究センター所報, 1, 21-31 (2011)
乾性沈着量評価のための沈着速度推計プログラムの更新
- 14) S. CHATANI, K. YAMAJI, T. SAKURAI, S. ITAHASHI, H. SHIMADERA, K. KITAYAMA and H. HAYAMI: Atmosphere, 9, 1, 19 (2018)
Overview of Model Inter-Comparison in Japan's Study for Reference Air Quality Modeling (J-STREAM).
- 15) C. FOUNTOUKIS and A. NENES: Atmos. Chem. Phys., 7, 17, 4639-4659 (2007)
ISORROPIA II: A Computationally Efficient Thermodynamics Equilibrium Model for K⁺-Ca²⁺-Mg²⁺-NH₄⁺-Na⁺-SO₄²⁻-NO₃⁻-Cl⁻-H₂O Aerosols.
- 16) R. L. SIEFERT, A. M. JOHANSEN, M. R. HOFFMAN and S. O. PEHKONEN: J. Air Waste Manage. Assoc., 48, 2, 128-143 (1998)
Measurements of Trace Metal (Fe, Cu, Mn, Cr) Oxidation States in Fog and Stratus Clouds.
- 17) K. V. DESBOEUF, A. SOFIKITIS, R. LOSNO, J. L. COLIN and P. AUSSET: Chemosphere, 58, 2, 195-203 (2005)
Dissolution and Solubility of Trace Metals from Natural and Anthropogenic Aerosol Particulate Matter.
- 18) B. ALEXANDER, R. J. PARK, D. J. JACOB and S. GONG: J. Geophys. Res., 114, D2, D02309 (2009)
Transition Metal-Catalyzed Oxidation of Atmospheric Sulfur: Global Implications for the Sulfur Budget.
- 19) T. IBUSUKI and K. TAKEUCHI: Atmos. Environ., 21, 7, 1555-1560 (1987)
Sulfur Dioxide Oxidation by Oxygen Catalyzed by Mixtures of Manganese(II) and Iron(III) in Aqueous Solutions at Environmental Reaction Conditions.
- 20) S. ITAHASHI, K. YAMAJI, S. CHATANI and H. HAYAMI: Atmosphere, 9, 4, 132 (2018)
Refinement of modeled aqueous-phase sulfate production via the Fe- and Mn-catalyzed oxidation pathway.
- 21) X. FU, S. WANG, B. ZHAO, J. XING, Z. CHENG, H. LIU and J. HAO: Atmos. Environ., 70, 39-50 (2013)
Emission Inventory of Primary Pollutants and Chemical Speciation in 2010 for the Yangtze River Delta Region, China.
- 22) Y. CHENG, G. ZHENG, C. WEI, Q. MU, B. ZHENG, Z. WANG, M. GAO, Q. ZHANG, K. HE, G. CARMICHAEL, U. POSCHL AND H. SU: Sci. Adv., 2, 12, e1601530 (2016)
Reactive Nitrogen Chemistry in Aerosol Water as a Source of Sulfate during Haze Events in China.
- 23) S. SONG, M. GAO, W. XU, J. SHAO, G. SHI, S. WANG, Y. WANG, Y. SUN and M. B. MCELROY: Atmos. Chem. Phys., 18, 10, 7423-7438 (2018)
Fine-Particle pH for Beijing Winter Haze as Inferred from Different Thermodynamic Equilibrium Models.
- 24) S. ITAHASHI, K. YAMAJI, S. CHATANI, K. HISATSUNE, K. SAITO and H. HAYAMI: Atmosphere, 9, 12, 488 (2018)
Model Performance Differences in Sulfate Aerosol in Winter over Japan based on

Regional Chemical Transport Models of CMAQ and CAMx.

II-4 O_x高濃度事象の立体構造把握及びモデル不確実性評価を対象とした観測研究

明星大学

理工学部 櫻井 達也

平成28～30年度累計予算額：21,773千円

(うち平成28年度：9,128千円、平成29年度：9,122千円、平成30年度：3,523千円)

累計予算額は、間接経費を含む。

[要旨]

関東の夏季におけるO₃高濃度化メカニズムの解明には、ローカルな二次生成に加えて海域からの輸送、並びに混合層の発達に伴う上空滞留O₃の地表付近への取り込みを包括的に評価・解析することが重要となる。このような立体的かつ広域的な解析を行うためには数値モデルが必須となるが、数値モデルは現状、多くの場合で地表面濃度に対してのみ検証が行われているため、海域および鉛直方向におけるO₃濃度観測も併せて行う必要があると考えた。このような背景のもと、本サブテーマではモデルで計算されるO₃濃度に大きく影響する「陸域混合層内におけるO₃鉛直分布」および「海域におけるO₃存在量と陸域への輸送」を定量化するための観測を実施し、その取得データを対象に、モデルの再現性向上を目的としたパラメータ感度解析を実施することとした。

海域（東京都新島）、沿岸域（神奈川県保土ヶ谷）、内陸域（埼玉県鴻巣）での地表観測データ、並びに横浜国立大学のキャンパス内（神奈川県保土ヶ谷）にて実施したゾンデ観測データを対象に大気質モデルWRF/CMAQの再現性を確認したところ、風速の過大評価に伴うO₃濃度の過小評価が確認された。また、混合層上端で観測された風況やO₃濃度をモデルが再現できなかったことから、O₃濃度の再現性向上には混合層内における風況の再現性向上が必要であると考え、土地利用データ、客観解析データ、並びにPBLスキームに着目して気象モデルWRFの感度解析を行った。結果、土地利用データにはサブテーマ（1）で準備されたものを、客観解析データにはFNLを、PBLスキームにはMYNNを採用した場合に、気象場やO₃濃度の再現性が最も良くなることを確認した。しかしながらその精度は十分とは言い難く、今後はデータ同化やキャノピーモデルの効果検証を実施する必要があると考えた。

[キーワード]

光化学オキシダント、ゾンデ観測、数値モデル、鉛直拡散、常時監視局

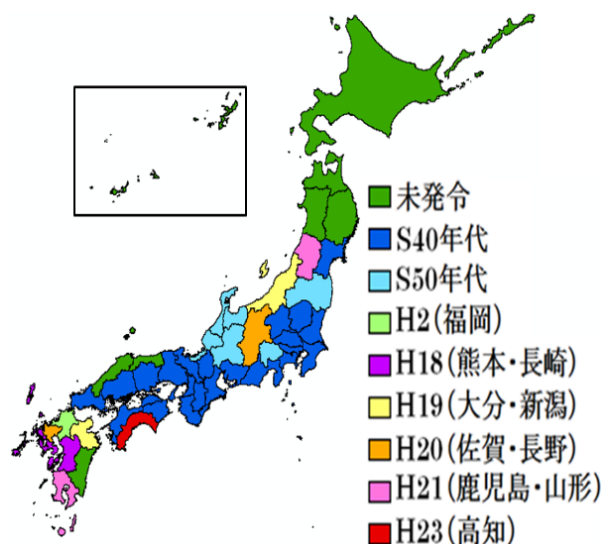
1. はじめに

通常、O₃は春季及び夏季に高濃度となる。春季については、越境大気汚染による広域的なバックグラウンド濃度の上昇が Itahashi et al. (2009)¹⁾にて指摘されている。図(4)-1に各都道府県において光化学オキシダント注意報が初めて発令された年代を示したが、これより近年光化学オキシダント注意報がはじめて発令された都市が増加していることが確認できた。同注意報は、大気汚染防止法 第23条に基づき0.12ppm以上のO₃濃度が継続する見込みで発令され、昭和から平成初期にかけての注意報は、太平洋工業ベルト地帯を中心とした、いわゆるローカル汚染が起因となったものである。これに対し、直近10年における発令地域の広域化については、春季における越境大気汚染の顕在化が要因として考えられる。

一方、夏季は太平洋高気圧によって日本列島広域に南風が卓越するため、西方向に位置する大陸からの輸送現象は関与しない場合が多い。そのため、夏季に発生するO₃高濃度事象においては、国内での対策が有効であると考えられる。

本研究で着目した関東地方に関しては、Wakamatsu et al. (1981)²⁾ やOhara et al. (1995)³⁾ など、これまでも多くの研究が行われており、高濃度が多く出現する地域であることが指摘されている。

Yoshikado (2015)⁴⁾ 及びYoshikado (2016)⁵⁾ は、関東内陸部で発生する海風前線の収束域において前駆物質が蓄積し、微風条件下において光化学反応が促進することで O_3 が高濃度化するメカニズムを指摘した。またKiryama et al. (2015)⁶⁾ は、早朝から日中にかけて発達する混合層内部に、上空に滞留している前日生成の O_3 が取り込まれることで、関東内陸の濃度が沿岸部よりも先行して上昇することをモデル解析より示唆した。更に、Yoshioka and Sakurai (2018)⁷⁾ は2010年夏季における高濃度事象を解析し、前日に首都圏、中京圏、近畿圏などで生成された O_3 が海域へ輸送され、翌日の海風に乗って戻ってくることで関東域のバックグラウンド濃度を押し上げるメカニズムを指摘した。



図(4)-1 各都道府県で初めて O_3 注意報が発令された年推移 (H28年度時点)

これら先行先行より指摘できることは、夏季における O_3 高濃度化メカニズムの解明には、ローカルな二次生成に加えて海域からの輸送、並びに混合層の発達に伴う上空滞留 O_3 の地表付近への取り込みを包括的に評価・解析することが求められるということである。このような立体的かつ広域的な解析を行うためには数値モデルが必須となるが、数値モデルは現状、多くの場合で地表面濃度に対してのみ検証が行われているため、海域および鉛直方向における O_3 濃度観測も併せて行う必要性があると考えられる。このような背景のもと、本研究ではモデルで計算される O_3 濃度に大きく影響する「陸域混合層内における O_3 鉛直分布」および「海域における O_3 存在量と陸域への輸送」を定量化するための観測を実施し、その取得データを対象に、モデルの再現性向上を目的としたパラメータ感度解析を実施することとした。

2. 研究開発目的

(1) 海域および陸域上空を対象とした O_3 濃度観測

本研究では「陸域混合層内における O_3 鉛直分布」および「海域における O_3 存在量と陸域への輸送」を定量化、更にはそれらデータを用いた大気質モデルの再現性確認を目的として、関東沿岸部でのゾンデ観測、並びに伊豆諸島・新島での O_3 濃度連続観測を実施した。

(2) 大気質モデルの立体的再現性検証

関東の夏季における O_3 高濃度化メカニズムの解明には、ローカルな二次生成に加えて海域からの輸送、並びに混合層の発達に伴う上空滞留 O_3 の地表付近への取り込みを包括的に評価・解析することが求められる。これらのメカニズムを考察するためには立体的な解析と広域的な解析が必要であると考えられ、そのためには数値モデルが必要となる。しかしながら現状、数値モデルは多くの場合で地表面濃度に対してのみ検証が行われている。そこで本研究では独自に取得したゾンデ観測結果と新島観測の結果を用いて、大気質モデルWRF/CMAQの再現性検証を行うことを目的とした。

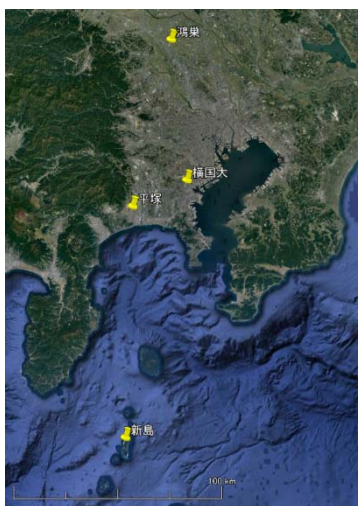
3. 研究開発方法

(1) 海域および陸域上空を対象とした O_3 濃度観測

(a) 東京都新島（海域）での O_3 濃度観測

図(4)-2に、モデル検証で使用した常時監視局の鴻巣局および保土ヶ谷局（横浜国立大学最寄り）も含めて、本研究における観測地点の地理分布を示した。新島観測は、 O_3 が海域を通じて関東南部に輸送される現象を検証する目的で実施した。観測は、伊豆諸島・新島の西海岸に面する民宿にオゾン測定器を設置して時間平均濃度の連続測定を実施した。観測の風景を図(4)-3に、観測を行った期間を表(4)-1に記した。

なお、本報告書では2017年度のデータのみ「大気質モデルの立体的再現性検証」における検証用データとして紹介することとする。



図(4)-2 本研究における観測地点の地理分布
(横浜国立大学に最寄りの保土ヶ谷常監局データも使用)



図(4)-3 新島観測風景

表(4)-1 2016年及び2017年における新島観測実施日程

年度	観測日程
2016年	7月26日～8月4日
2017年	7月24日～7月30日

(b) 関東沿岸部でのゾンデ観測

ゾンデ観測は、上空に存在する高濃度 O_3 の検証を行うことを目的として実施した。首都圏に近い地域でのオゾンの鉛直分布の把握を行うため、2016年度及び2017年度は横浜国立大学の敷地内、2018年度は神奈川県平塚市においてゾンデ放球観測を実施した。

ゾンデ放球の様子を図(4)-4に示した。ゾンデ放球実施日の決定においては (i) 梅雨明け以降の晴天日に行うこと、(ii) 当日に陸上落下が予想される場合は中止することの2つの条件を設定した。結果、表(4)-2に示すスケジュールでゾンデ観測を実施するに至った。

なお、本報告書では2017年度のデータを「大気質モデルの立体的再現性検証」における検証用データとして、2018年度のデータを「夏季の O_3 高濃度事象の立体構造」を把握するデータとして紹介する。



図(4)-4 ゾンデ観測の様子

表(4)-2 2016年～2018年におけるゾンデ観測実施日程(赤字: O_3 濃度欠損値)

年度	日付	放球時間 (赤字は欠損値)
2016年 @横国大	7月28日	6時・10時・14時
	7月29日	6時・8時・14時
	7月30日	6時・8時・14時・16時
2017年 @横国大	7月24日	10時・12時・14時
	7月28日	10時・12時・14時・16時
2018年 @平塚	7月23日	12時・14時・16時
	7月24日	12時・14時30分

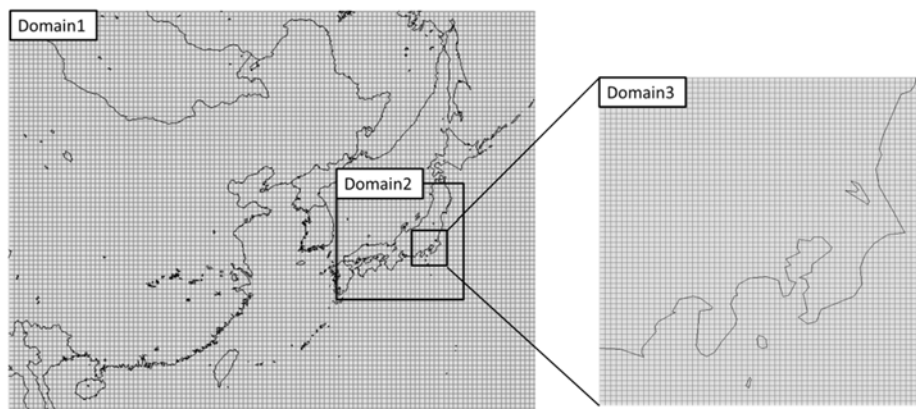
(2) 大気質モデルの立体的再現性検証

大気質シミュレーションはCMAQ (Community Multiscale Air Quality)の第4.7.1版を用いて実施した。選択した化学反応スキームは Sakurai et al. (2015)⁸⁾ と同一とした。計算対象となる3次元空間の気象データは、気象モデルWRF (Weather Research Forecast model)の第3.7.1版を使用して作成した。WRFの入力値として、初期値・側面境界条件には米国環境予報センター (NCEP:National Center for Environmental Predictions)の全球客観解析データ (FNL: Final Analyses)を、海面水温には同じくNCEPのRTG_SST_HR (Real-Time, Global Sea Surface Temperature- High-Resolution Analysis)を使用した。RTG_SST_HRの時間間隔は1日、空間解像度は1/12度となっている。

WRFの計算対象領域は、図(4)-5に示すような東アジア域 (Domain 1:45 km格子) から日本域 (Domain 2:15 km格子) 及び関東域 (Domain 3:5 km格子) への3重ネスティング構造とした。鉛直層は上空100 hPaまでを30層に分割し、最下層高度は概ね22 mとなった。CMAQの計算については、2016及び2017年に対するDomain1 (アジア域)の排出量インベントリを準備できなかったため、Domain2 (国内域)～Domain3 (関東域)の2重ネスティングを採用した。Domain2に対する空気質の境界条件は全球モデルMOZARTの計算結果より作成した。国内の人為起源排出量データは、EAGrid-Japan2010⁹⁾について自動車起源のNOx排出量を15%減少させたものをベースに作成した。この15%の減少は、2010年から2015年に対する自排局での年平均NOx濃度の回帰直線より算定したものである。

船舶起源排出量には、海洋政策研究財団が推計した2010年版排出データを適用した¹⁰⁾。その他、植物

起源VOCsとしてGEIA (Global Emission Initiative database) を、バイオマスバーニング起源としてGFED (Global Fire Emission Database) Ver. 3.1を、火山起源SO₂排出量としてChatani et al. (2011)¹¹⁾の報告値に気象庁観測データ (三宅島及び浅間山) を組み合わせたものを使用した。



図(4)- 5 モデルの計算領域

4. 結果及び考察

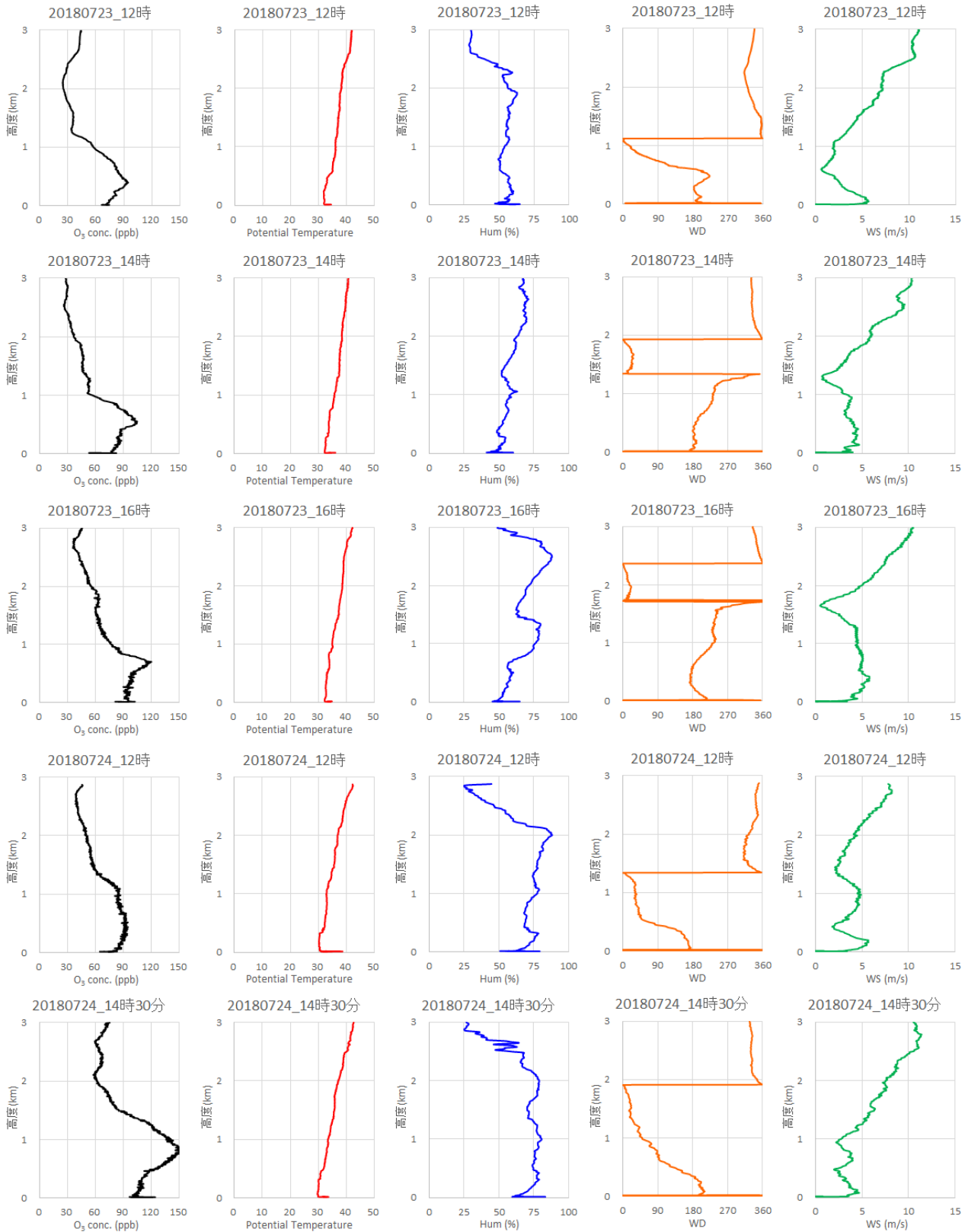
(1) 2018年度ゾンデ観測から見る夏季のO₃高濃度事象の立体構造把握

図(4)- 6に、2018年度夏季に神奈川県平塚で実施したゾンデ観測の結果を示した。観測地点は沿岸に近く、地表付近では概ね南風(海風)が観測されていたことから、結果として観測時間の混合層高さは500m程度と低い状態であった。O₃濃度を確認すると、地表面より上空でO₃濃度が高くなっていたが、その要因には海風が影響していると考えた。陸域を支配する空気塊に比べ、海域の空気塊は低温であるため、この空気塊が陸域に侵入すると低温の空気塊が下に入り込むように侵入してくる。そのため、陸域の空気塊は上に押し上げられるように移流するため、地表面よりも上空でO₃濃度が高くなったと考えられ、観測からもその様子が見て取れた。また、図(4)- 7に23日及び24日におけるO₃濃度の水平分布図を示したが、神奈川県及び東京湾沿岸部で100ppbを超える高濃度のO₃が観測された。この高濃度を観測したメカニズムを考察するため、さらなる解析を行った。

(a) 2018年7月23日におけるO₃高濃度事象のメカニズム解析

本観測で得られたO₃濃度上昇は、海風前線収束域における前駆物質の蓄積、もしくは朝方卓越した北東風によって関東内陸部の前駆物質およびO₃が相模湾海上に移流し、前駆物質は太陽光にて二次生成されながら、日中に神奈川県で観測された海風によって神奈川県沿岸部へ流入してきた可能性が考えられた。

7月23日は、猛暑日242地点で、観測史上1位が21地点で観測され、埼玉県熊谷では41.1度という過去最高気温を観測した日でもあった。23日に観測されたO₃の最高濃度と高度は12時が上空400m付近で95ppb、14時が上空550m付近で105ppb、16時が上空700m付近で120ppbであり、高濃度を観測した高度はどの時間帯でも南風であり、海風侵入時における高濃度であった。また、図(4)- 8に7月23日における風向の水平分布図を示したが、図(4)- 7と比較すると、南風が卓越している地点では高濃度となっているのに対し、北風が卓越している地点では低濃度となっている様子が確認できた。関東において山風が流入すると、地上の汚染は海側に押され、あるいは上空に押し上げられる場合が考えられる。23日はドライフェーン現象が確認されており、山風によってO₃濃度が海域に移流し、海風によって再度内陸に移流してきた可能性が考えられる。また、濃度上昇は東京都と神奈川県の県境から生じており、海風である南風と山風である北風の収束域が発生した。その後、収束域は東京・埼玉方面の内陸部で観測され、16時以降は神奈川県および東京都にて南風が卓越する様子が見て取れた。また、各時間における最高濃度は混合層の上部に存在していたことが確認できた。そのため、上空に滞留した高濃度のO₃が翌24日の高濃度に起因した可能性が示唆された。



図(4)- 6 2018年夏季に神奈川県平塚で実施したゾンデ観測の結果

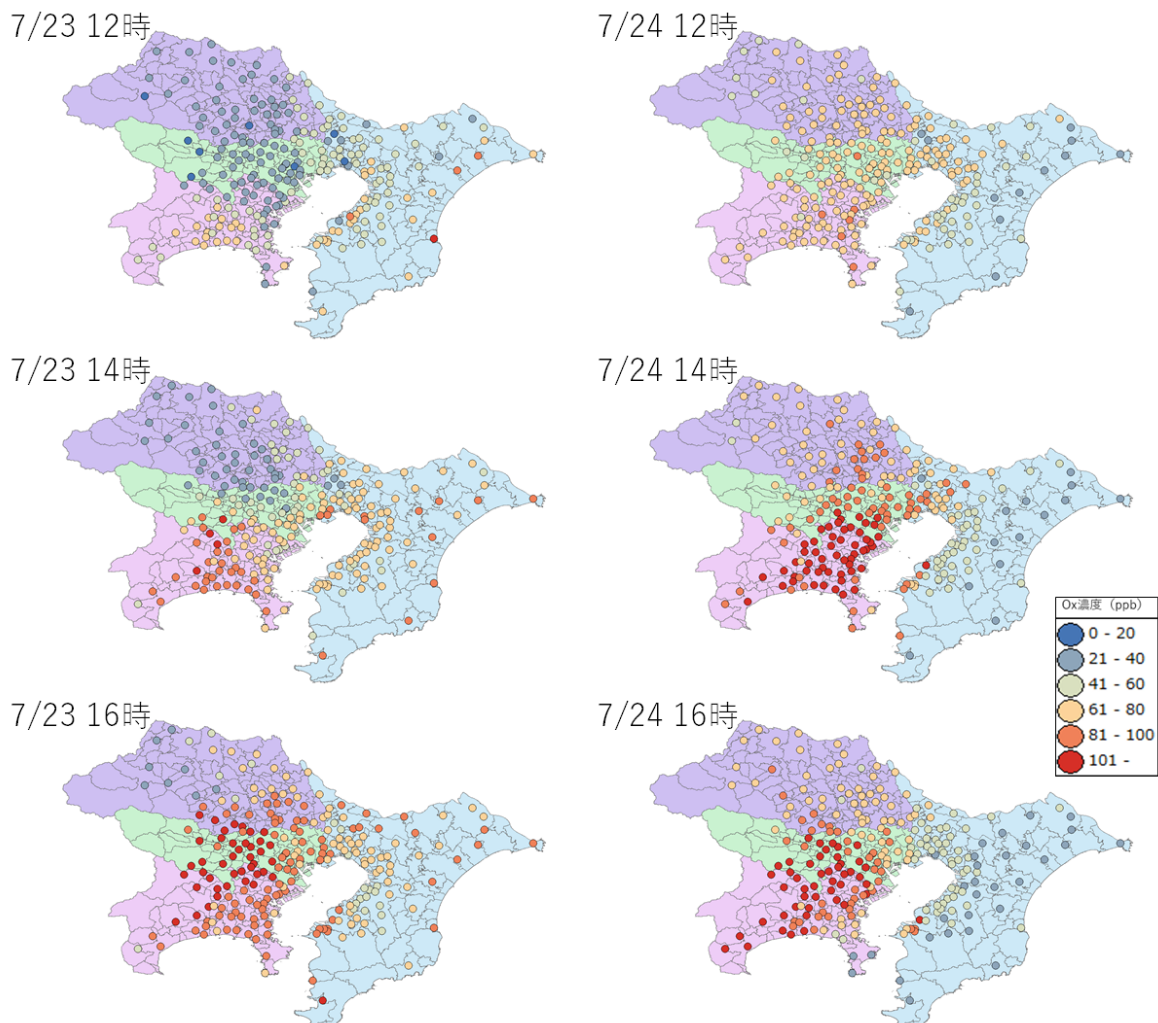
(b) 2018年7月24日におけるO₃高濃度事象のメカニズム解析

7月24日に観測されたO₃濃度の最高濃度と高度は、12時が上空450m付近で95ppb、14時30分が上空850m付近で152ppbであり、高濃度を観測した高度はどの時間帯でも東～南寄りの風であった。図(4)- 9に7月24日における風向の水平分布図を示したが、図(4)- 7と比較すると、北風が卓越している地点では濃度が上昇しておらず、そのあと卓越した南風の影響によってO₃濃度が西に移流していく様子が確認でき

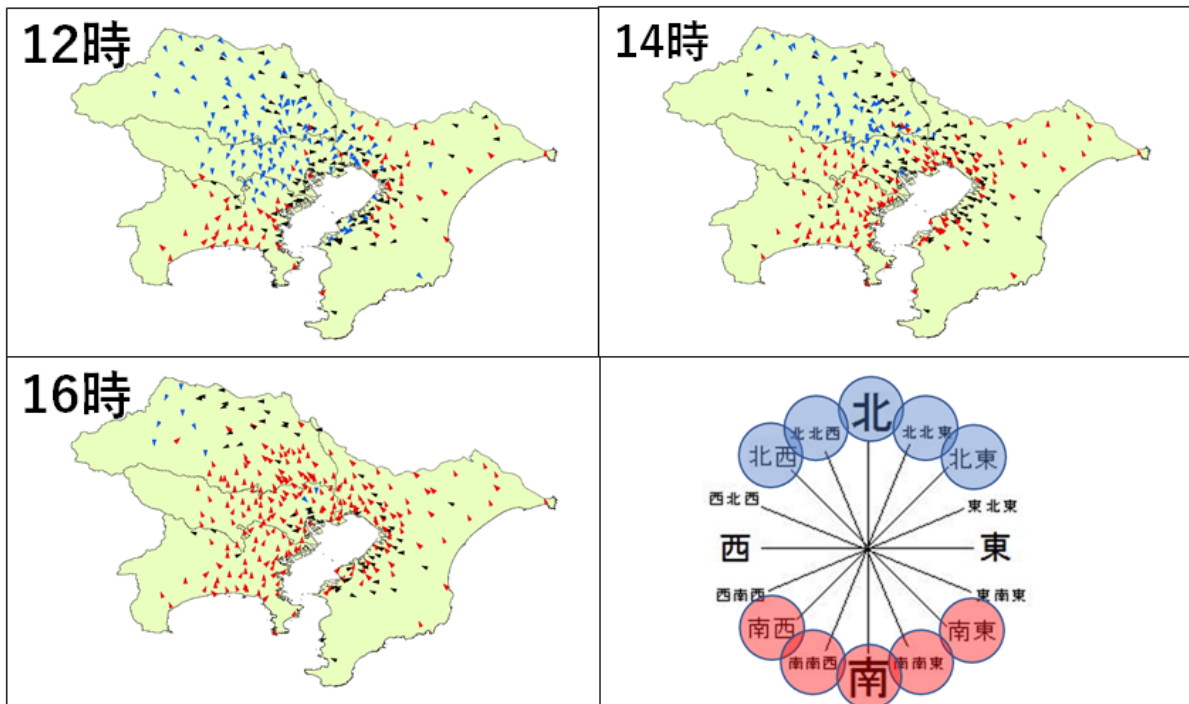
た。

神奈川県沿岸部で12時から13時に O_3 濃度が上昇した後は、東京湾に面した神奈川県東部、同じく東京湾に面した東京都東部、東京都との県境である千葉県最西部、並びに埼玉県東部にまで濃度上昇の範囲は広がり、14時には神奈川県で100ppb以上の O_3 高濃度が44箇所で見られた。この広範囲かつ高濃度に発生した O_3 の要因として、前日23日に生成された O_3 が上空に滞留し、翌日の混合層の発達に伴い混合層上部から前日生成の O_3 が取り込まれたため、広範囲かつ高濃度な O_3 が観測された可能性がある。

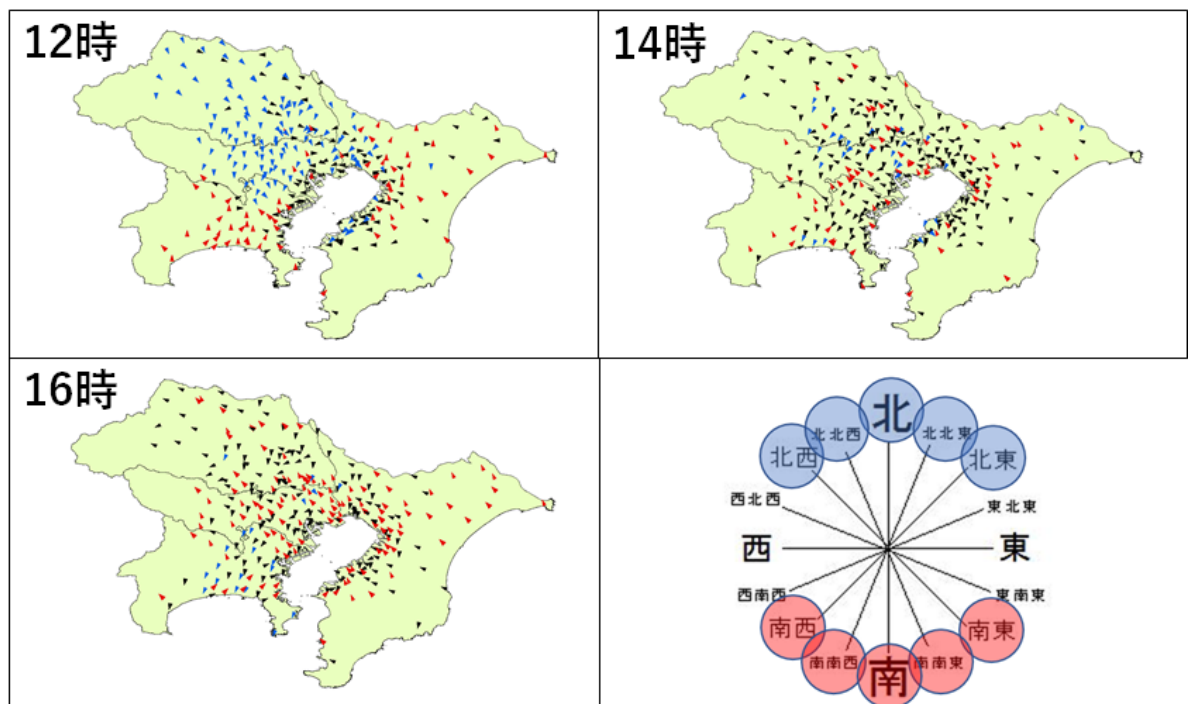
ゾンデ観測結果から、12時時点で地上と上空の O_3 濃度に大きな差は見られなかった。その理由として、混合層の発達に伴う上空滞留 O_3 の取り込みが考えられたが、12時時点での混合層高さは図(4)-6の温位より約400mほどであり、23日16時のゾンデ観測結果から、 O_3 が最も高濃度を観測した高度は700mであった。23日の夜間に、上空の O_3 を含む空気塊がどのような動向を示したかは夜間の鉛直データがないため判断できない。しかしながら現状あるデータから、23日の神奈川県沿岸部上空にあった高濃度 O_3 は神奈川県沿岸部で取り込まれた、もしくは夜間間に内陸部に移流し、内陸部にて混合層に取り込まれた可能性が考えられる。14時30分の O_3 濃度は地上より上空にて非常に高濃度の O_3 が確認された。24日は23日より高い濃度が観測されており、この要因として前日の高濃度事象が影響していると考えられる。23日は山風が観測されており、山風が流入することで地上の汚染気塊は海側に押され、あるいは上空に押し上げられる場合が考えられる。また、23日のゾンデ観測結果から、混合層の上部に高濃度の O_3 が滞留している様子が見て取れる。このことから、24日の高濃度メカニズムは、前日23日に上空に押し上げられた O_3 が夜間はそのまま上空に滞留し、翌24日明け方の混合層の発達に伴い、地表付近に取り込まれたことが要因の一つとして示唆される。



図(4)-7 2018年7月23日及び24日における O_3 濃度の水平分布図



図(4)- 8 2018年7月23日12時・14時・16時における風向の水平分布図

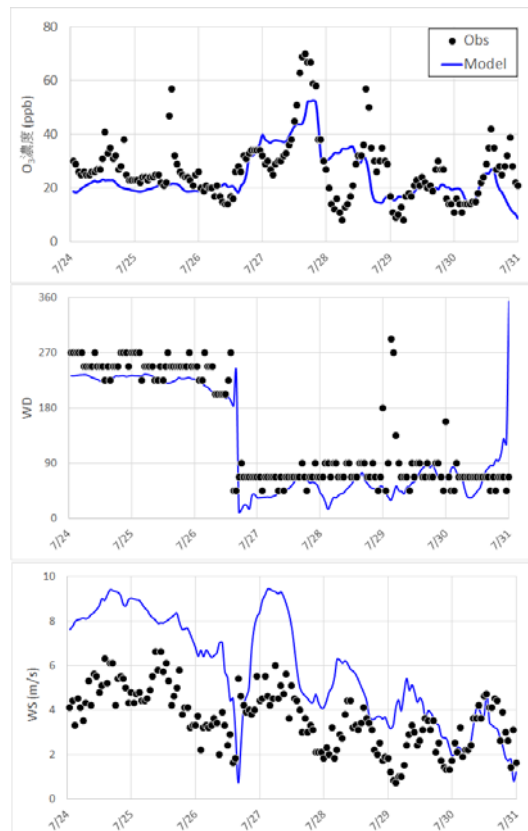


図(4)- 9 2018年7月24日12時・14時・16時における風向の水平分布図

(2) 大気質モデルの立体的再現性検証

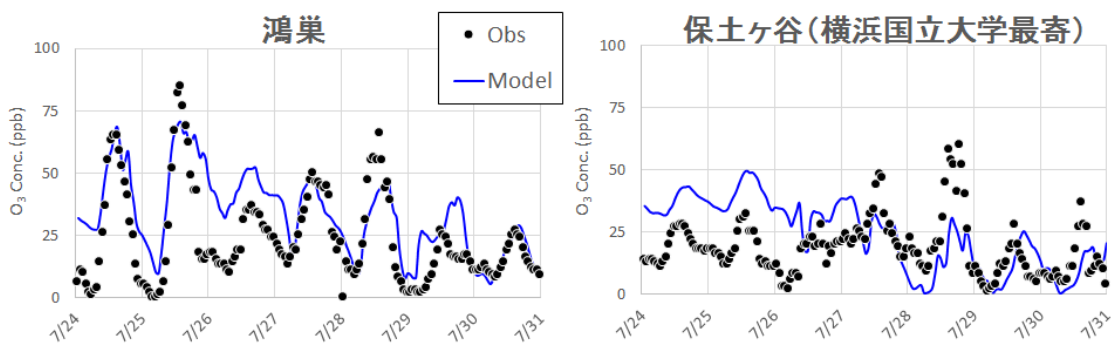
(a) 2017年度夏季の観測データを対象とした大気質モデルの再現性確認

新島観測を実施した7月24日～31日におけるモデル計算結果及び観測結果を図(4)- 10に示した。観測期間中は総じて低濃度であったが、モデルは海域での O_3 濃度を過小評価する傾向が確認された。この要因を考察するため、同時期における風向および風速の再現性を併せて確認したところ、計算対象期間中、風向の再現性は良好であったのに対し、風速は過大評価する傾向にあることが確認できた。



図(4)- 10 2017年7月24日～31日における新島観測結果とシミュレーション結果との比較
(上：O₃濃度 中：風向 下：風速)

図(4)- 11に、7月24日～31日における鴻巣局及び保土ヶ谷局でのO₃濃度の再現性を示した。ゾンデ観測を実施した7月24日及び28日において、24日は鴻巣局での再現性は良好だったのに対し、保土ヶ谷局では過大評価している様子が確認できた。他方、28日は鴻巣局及び保土ヶ谷局の両地点でO₃濃度を過小評価していることが確認できた。



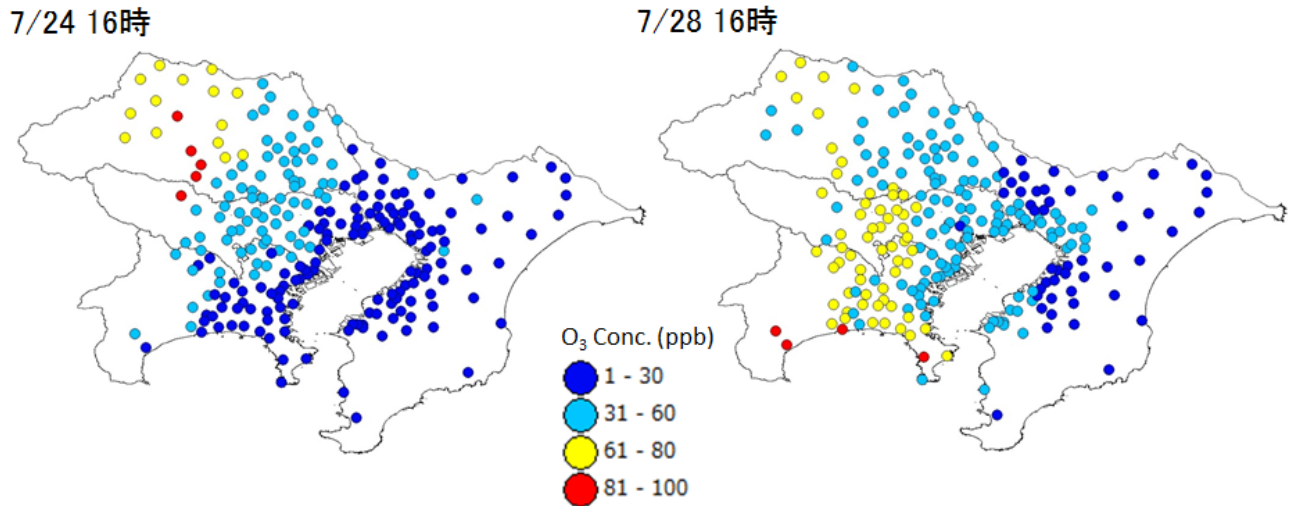
図(4)- 11 2017年7月24日～31日の鴻巣局及び保土ヶ谷局におけるモデル再現性

図(4)- 12に、ゾンデ観測を実施した7月24日及び28日の16時における常時監視局でのO₃観測値を示した。24日は埼玉県の内陸部、28日は神奈川県や相模湾沿岸部で比較的高濃度が観測された。ただし、どちらの日程でもゾンデ観測を実施した横浜国立大学近辺（保土ヶ谷局近傍）では高濃度は観測されなかった。

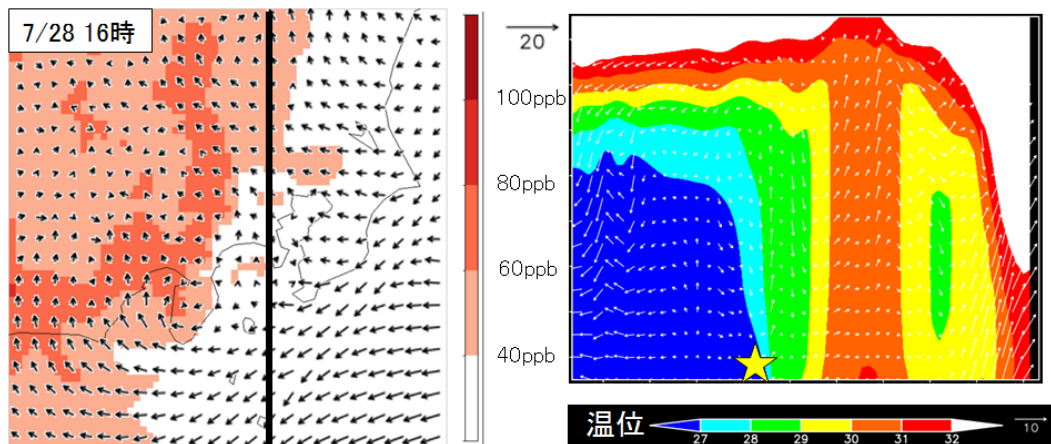
まず、保土ヶ谷局におけるモデルのO₃濃度過小評価の要因を考察するために、Domain3におけるO₃濃度と風況のシミュレーション結果を図(4)- 13に示した。尚、右図は左図の黒線で切った断面の温位を表したものである。図(4)- 13左図より、モデルでは東風が卓越しており、神奈川県内陸部まで太平洋の風に

支配されている様子が確認でき、それに伴い濃度が低くなっている様子が見て取れた。図(4)-12右図の観測濃度分布と見比べてみると、モデルで再現された高濃度帯は実際よりも首都圏の西側に出現しており、これにはモデルで再現された領域全体を覆う東風が過大に影響したことが要因の一つとして示唆される。更に、図(4)-13右図より温位の鉛直分布図を確認すると、保土ヶ谷局の位置は海風の侵入域に含まれていることが確認できた。これより、28日はゾンデ観測を実施した横浜国立大学付近まで清浄な海風の侵入域に含まれていると再現されたことが、 O_3 濃度の過小評価につながったと考えた。

図(4)-10にて先述した通り、7月28日における海域での O_3 濃度はモデルが過小評価であったため、海風侵入域の範囲と海域 O_3 濃度のモデル過小評価の双方が、保土ヶ谷におけるモデルの O_3 濃度過小評価の要因につながったものと考えた。

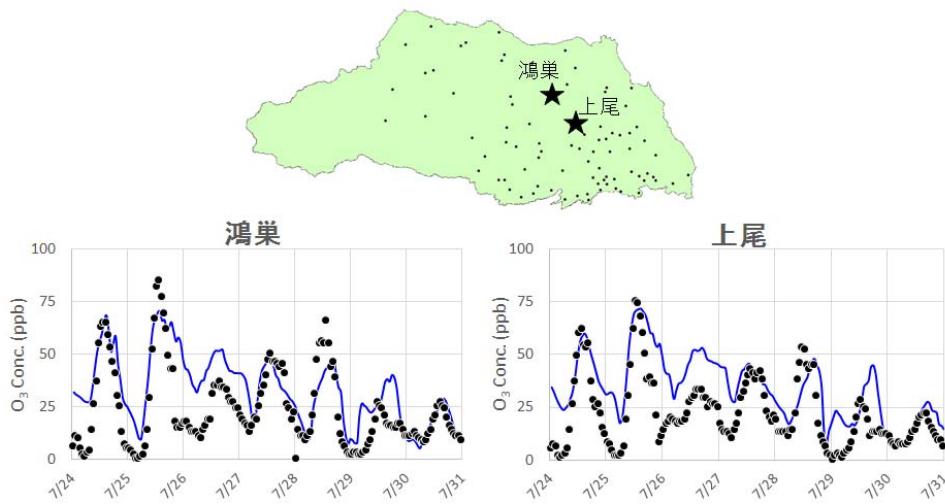


図(4)-12 2017年7月24日16時及び28日16時における O_3 濃度分布図



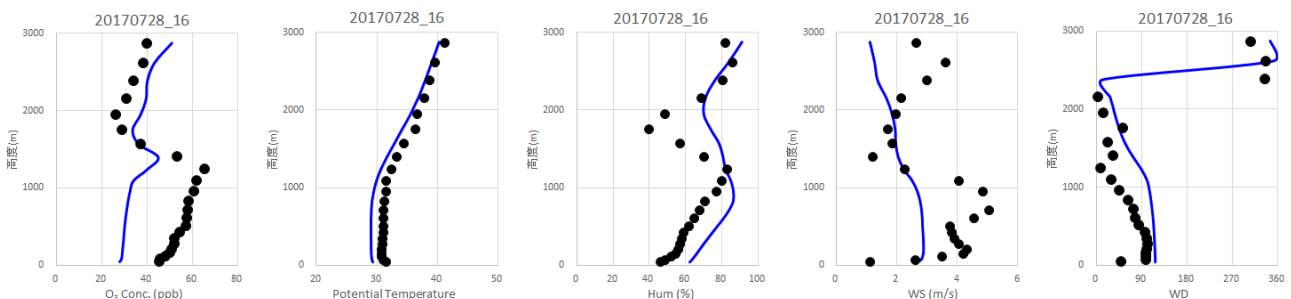
図(4)-13 2017年7月28日16時におけるシミュレーション結果
(左： O_3 濃度の水平分布図 右：温位の鉛直分布図)

鴻巣局におけるモデルの O_3 濃度過小評価については、図(4)-13より、海風侵入が大きく影響したとは考えにくい。近傍の上尾局におけるモデルの再現性を図(4)-14に示したが、 O_3 濃度のピーク時間にずれはあるものの、28日の濃度上昇を再現できているものと考えた。28日は上尾局で12時に53ppbのピークを観測した後、14時に鴻巣局で66ppbが観測されており、鴻巣局に先行して上尾で濃度が上昇していた。鴻巣局での過小評価の要因には、上尾局から移流する際の化学反応や乾性沈着による除去効果、また NO_x タイトレーションの程度なども考えられるが、明確な要因を特定するには至らなかった。



図(4)-14 2017年7月24日～31日における鴻巣局及び上尾局のモデル再現性

鉛直方向のモデルの再現性を確認するため、最も高濃度を観測した7月28日16時のゾンデ観測結果との比較を図(4)-15に示した。同時刻における O_3 濃度の再現性を確認した結果、 O_3 濃度は上空1,250m付近まで過小評価をしており、最も高濃度を観測した1,250m付近では O_3 濃度の上昇の変動は再現できているものの、過小評価となった。また、温位を確認したところ、モデルは観測値と同様に上空約1,000m付近まで一定になっていることが確認でき、混合層の高度をモデルは再現できていたことが確認できた。混合層は、層内を一様に混合するため、地表面濃度の過小評価が上空まで影響している可能性が考えられる。図(4)-11より、モデルは保土ヶ谷局にて約20～30ppbほど地表面濃度を過小評価しており、鉛直方向も同程度の過少評価であったことから、地表面の過小評価が上空まで影響した可能性が考えられる。



図(4)-15 2017年7月28日16時におけるゾンデ観測結果とモデル再現性比較
(左から濃度、温位、相対湿度、風速、風向)

(b) 風況を対象とした気象モデルの感度解析

モデルの再現性向上には海域における O_3 濃度の過小評価、並びに鉛直拡散および風況の再現性向上が有効である可能性が示唆された。鉛直拡散及び風況の再現性は気象モデルによって計算されるため、気象モデル内の再現性に問題があると考えられる。一方、海域における O_3 濃度の過小評価は、風向が再現できていることから他地域からの移流ではなく、海域そのものに存在する O_3 濃度の過小評価が考えられ、大気質モデル内の再現性に問題があると考えられるが、大気質モデルは気象モデルを用いて計算するため、大気質モデルの再現性向上にあたって、まずは気象モデルの再現性向上が必要であると考えた。そのため、ここでは気象モデルWRF内の風況に関するパラメータに着目し、各パラメータが風況に与える影響を確認することを目的とした。

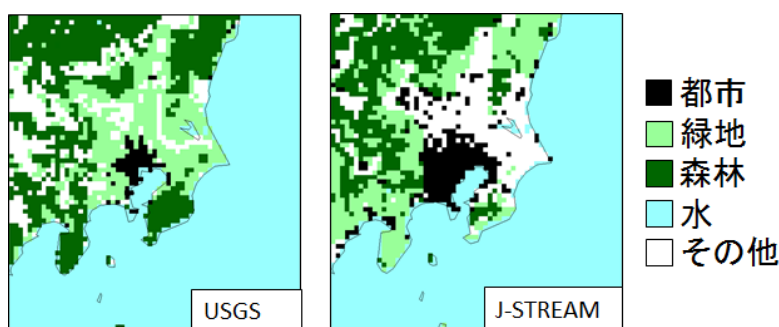
風況が濃度に及ぼす影響を見るために、まず「客観解析データ」および「土地利用データ」に着目し、図(4)-16に示す4ケースについて比較計算を行った。

対象年度: 2017年7月		土地利用データ	
		USGS	J-STREAM
客観解析データ	FNL	case01	case02
	MANAL	case03	case04

図(4)- 16 WRF 感度解析における case 分類表

シミュレーションを行うためには、初めに三次元空間のすべての格子点で、初期値を与える必要があるが、実際の観測地点は不規則に分布しているため、すべての格子点に初期値を与えることが出来ない。不規則に分布した観測データから、規則的な格子点での大気の状態を与える過程を客観解析と言い、その結果得られたデータのことを「客観解析データ」という。客観解析データは、シミュレーションの計算を行うための初期値として用いられるものであるため、これが風況に及ぼす影響は大きいと考え、ここではNCEP/NOAAによるFNL(NCEP Global Tropospheric final analyses)と気象庁によるMANAL(Meso-ANALysis)を感度解析の対象とした。

「土地利用データ」とは、全国の利用状況について各メッシュにいくつかの利用区分(森林、市街地など)で分類したものである。土地利用データが変化すると、地表面の粗度や陸面温度などに変化が生じるため風況に及ぼす影響が大きいと考え、感度解析の対象とした。J-STREAMでは国土地理院のデータを用いて、実際の土地利用に合わせた土地利用データを作成した。J-STREAMとUSGSの関東計算域における土地利用データの違いを図(4)- 17に示した。



図(4)- 17 USGS と J-STREAM による土地利用データの違い

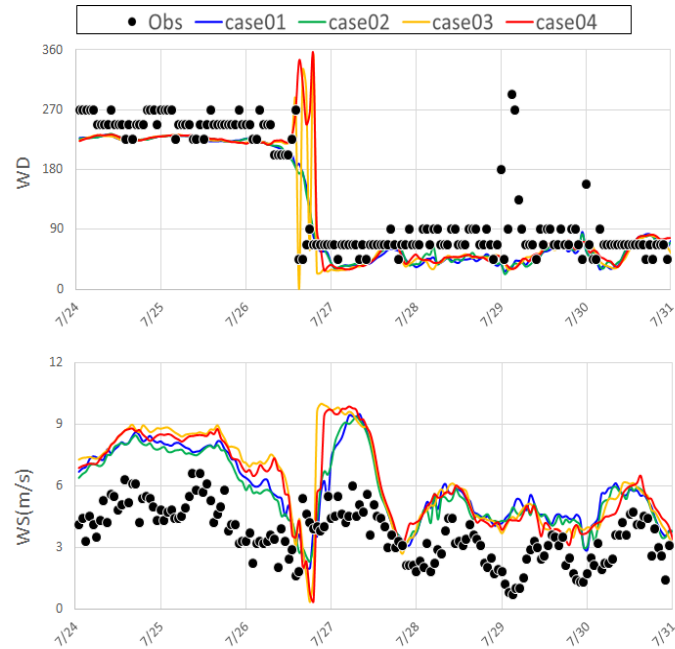
(i) 新島観測結果を用いたモデルのcase間比較

新島観測を実施した7月24日～31日における風向・風速のモデル計算結果及び観測結果を図(4)- 18に示した。グラフは黒丸が観測値、青線がcase01、緑線がcase02、黄線がcase03、赤線がcase04となっている。グラフの色分けは今後も同様の色分けを行った。また、表(4)- 3には各CaseのRMSE、相関係数、並びに計算結果の平均値をまとめた。

4ケースとも相関係数が約0.7であることから、風速の変動は概ね再現できていることが考えられる。土地利用データによる影響を考察するためにcase01とcase02、そしてcase03とcase04を比較した結果、土地利用データにJ-STREAMを用いたcase02とcase04の方が、再現性が良くなる結果となった。また、新島で観測された風速の平均値が3.164であったことより、観測期間におけるシミュレーション結果の平均値を見ると、土地利用データにJ-STREAMを用いたcase02、case04の方が観測の平均値に近づいていることが確認できた。次に客観解析データによる影響を考察するためにcase01とcase03、そしてcase02とcase04を比較した結果、RMSEはどちらも客観解析データにFNLを用いたcase01とcase02の方が再現性は良好であった。一方、case01とcase03の相関係数はほぼ同程度の値を示していたが、case02とcase04の相関係数はRMSEと同様にFNLを用いたcase02の再現性が良くなる結果となった。以上のことから、客観解析データはFNL、土地利用データはJ-STREAMを用いたモデルの再現性が良好であることが確

認できた。

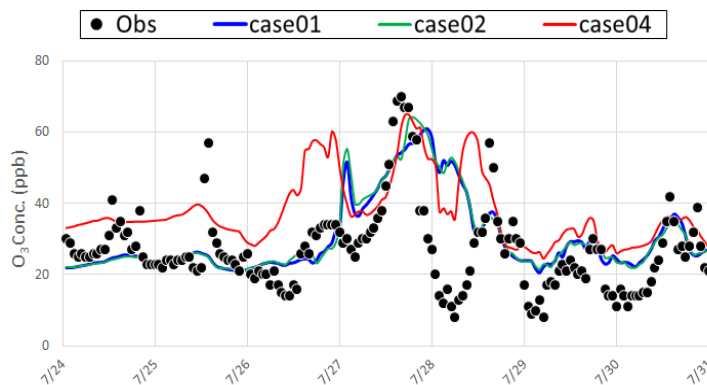
次に大気質モデルの再現性を確認した。尚、風向及び風速の再現性より、最も再現できていなかった case03を除いた3caseで計算を行い、その結果を図(4)-19に示した。風況の再現性以上に、MANALを使用したcase04は、FNLを使用したcase01およびcase02と比べて O_3 濃度が大きく異なる結果となり、客観解析データの違いが濃度再現結果に大きく影響することが示された。



図(4)-18 2017年7月24日～31日における新島観測のモデル間 case 比較 (風向・風速)

表(4)-3 2017年7月24日～31日の新島における風速の再現性検証(case間比較)

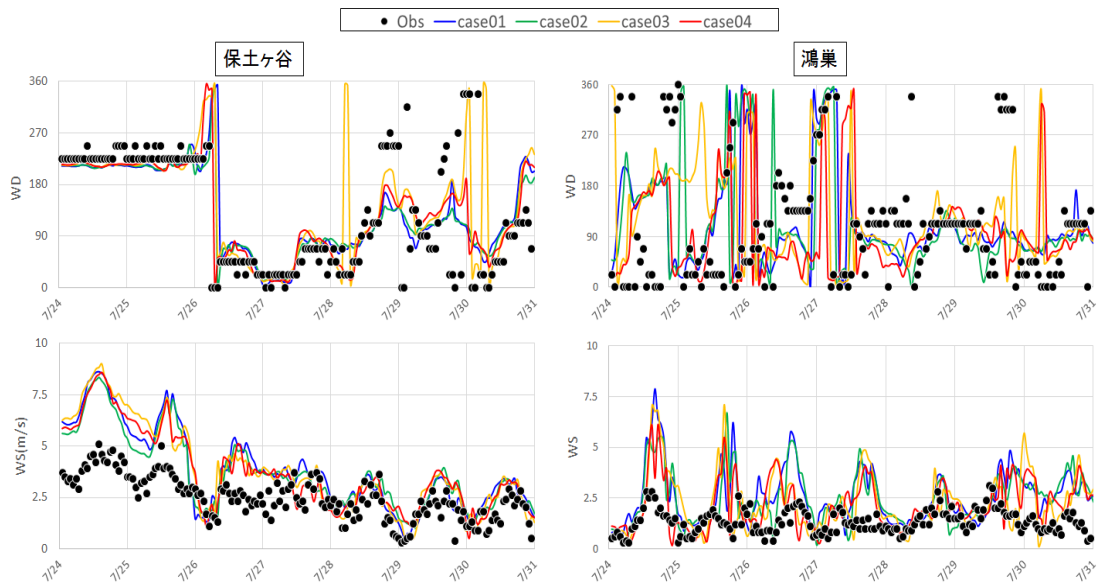
	Case01	Case02	Case03	Case04
RMSE	2.632	2.463	3.050	2.887
相関係数	0.699	0.729	0.697	0.705
計算結果の平均値 (m/s)	5.927	5.778	6.237	6.092



図(4)-19 2017年7月24日～31日における新島観測結果のモデル case 間比較 (O_3 濃度)

(ii) 鴻巣及び保土ヶ谷における水平方向のモデルcase間比較

次に内陸部である鴻巣局と保土ヶ谷局における風向・風速の再現性を確認した。対象期間は新島観測に合わせ7月24日～31日とし、風向・風速のモデル計算結果及び観測結果を図(4)-20に示した。



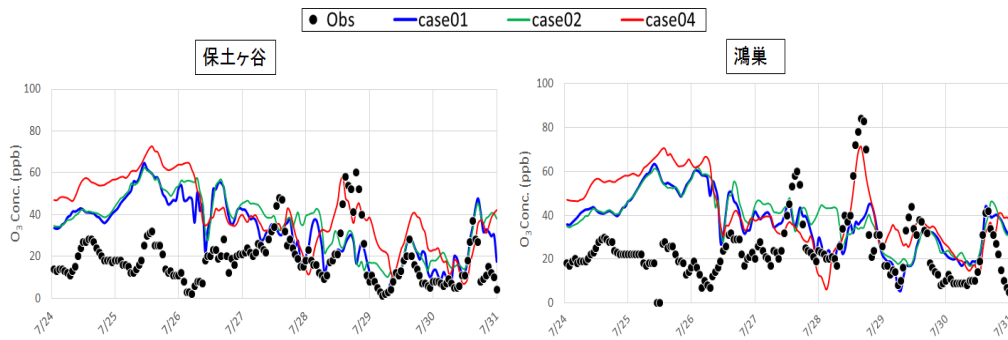
図(4)- 20 2017年7月24日～31日における保土ヶ谷局及び鴻巣局でのモデル間 case 比較(風向・風速)

Case間比較より、保土ヶ谷局における風向は概ね良好であったが、鴻巣局では保土ヶ谷局よりも風向にばらつきが生じたことが確認できた。次に風速を確認すると、保土ヶ谷局では7月24日～26日にかけて大幅な過大評価をしていたが、それ以降の再現性は徐々に向上していく様子が見て取れた。一方、鴻巣局では全体を通して大幅な過大評価が確認できた。これより、内陸に行くにつれてcase間でばらつきが生じることが確認できた。Case間での予測精度と地点による再現性の違いを評価するため、RMSEと相関係数及びシミュレーション結果の平均値を求め表(4)- 4にまとめた。保土ヶ谷局では新島と同様、客観解析データはFNL、土地利用データはJ-STREAMを用いたモデルの再現性が良好であることが確認できた。一方鴻巣局では、土地利用データはJ-STREAMを用いたcase02、case04の再現性が良好であったのに対し、客観解析データはRMSEを比較するとMANALを用いたモデルの再現性が良くなる結果となった。

表(4)- 4 2017年7月24日～31日の保土ヶ谷局及び鴻巣局における風速の再現性検証(case間比較)

		Case01	Case02	Case03	Case04
保土ヶ谷	RMSE	1.840	1.647	1.890	1.723
	相関係数	0.829	0.828	0.839	0.827
	計算結果の平均値 (m/s)	3.825	3.723	3.823	3.720
鴻巣	RMSE	1.748	1.633	1.669	1.452
	相関係数	0.390	0.389	0.278	0.292
	計算結果の平均値 (m/s)	2.566	2.461	2.280	2.168

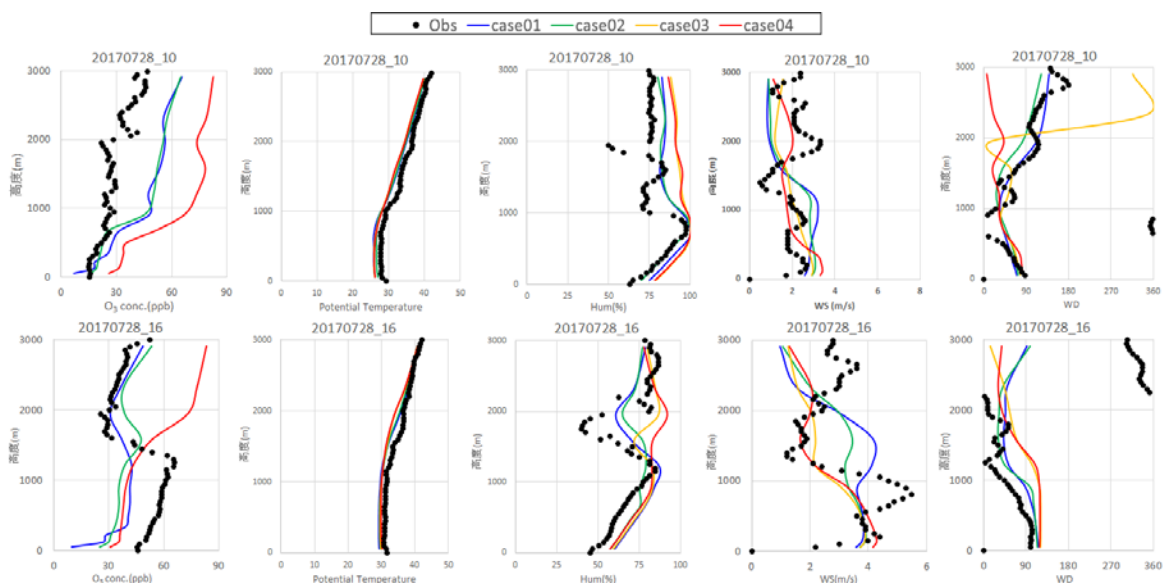
次に大気質モデルの再現性を確認した結果を図(4)- 21に示した。MANALを用いたcase04は低濃度を観測した7月24日～27日にかけて、case01・case02よりも過大評価する傾向にあった。しかし、最も高濃度を観測した7月28日においてはcase04が最も良く再現できており、新島と同様の結果が得られた。またcase01とcase02を比較すると、case01はcase02より濃度を低く予測していた。これについて、平均風速はcase02の方がcase01より弱く、これは土地利用での変化によって生じた粗度の変化が影響していると考えられる。そのためcase02はcase01と比べ海風が侵入しにくく、かつ O_3 を含む空気塊が滞留しやすい状態であったと考えられ、結果より高い濃度を再現した可能性が考えられる。



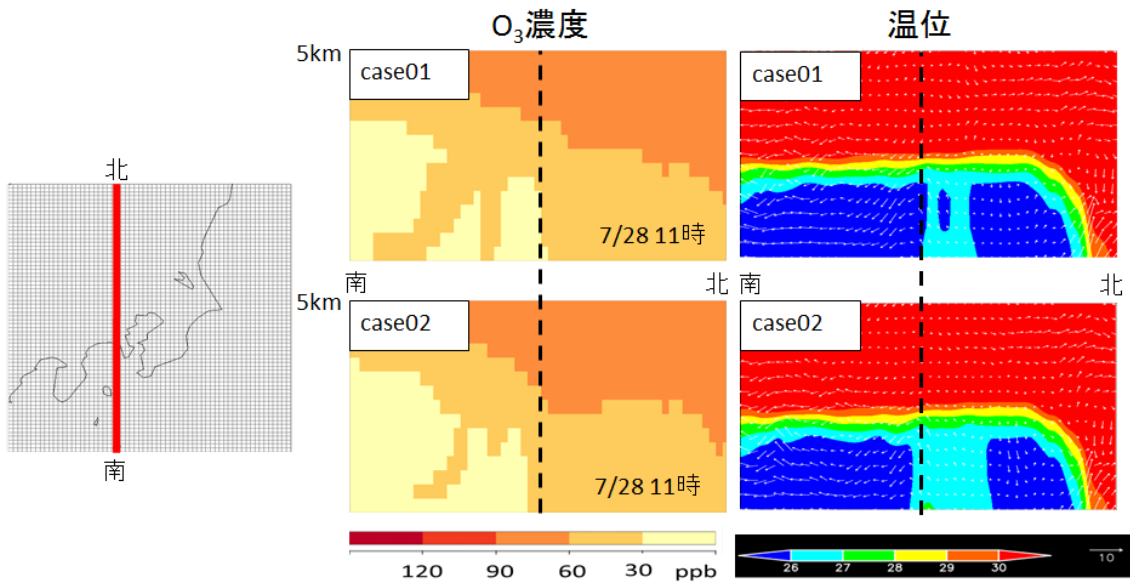
図(4)- 21 2017年2017年7月24日～31日における保土ヶ谷局及び鴻巣局でのモデル間 case 比較

(iii) ゾンデ観測結果を用いたモデルのcase間比較

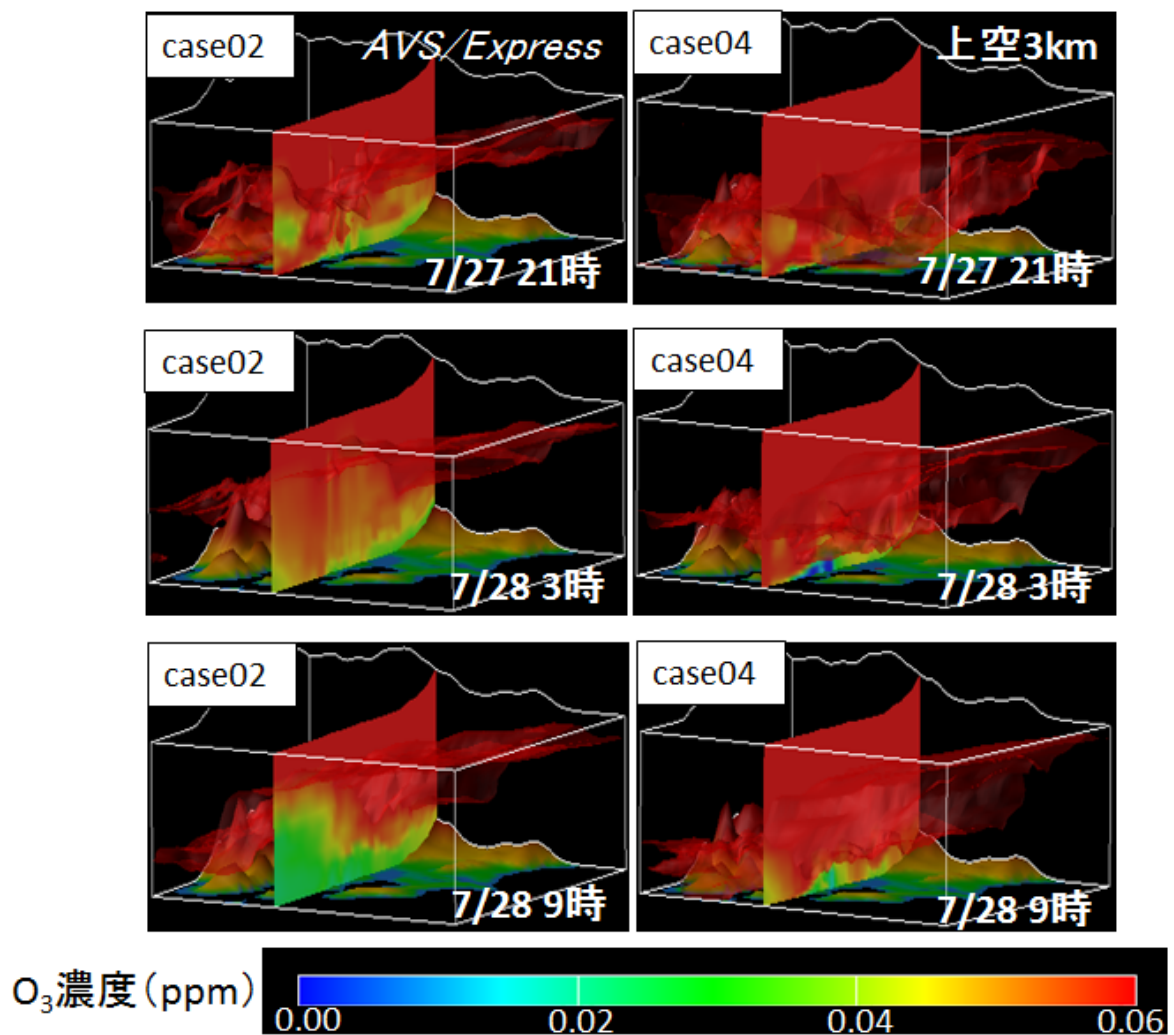
鉛直方向におけるcase間比較を行うため、2017年7月28日10時及び16時のゾンデ観測結果との比較を図(4)- 22に示した。case01はどちらの時間でもcase02に比べ地表面濃度が低くなっている。図(4)- 23に、7月28日11時における O_3 濃度と温位の鉛直分布図を示した。尚、図(4)- 23右図は、図(4)- 23左図の赤線で切った鉛直方向の断面図を示したものである。case01はcase01よりも海風の侵入域がわずかながら大きく、これは土地利用データを変更したことによって粗度が増加したことが影響した可能性が考えられる。モデル計算では総じて海域の O_3 濃度を過小評価したため、海風の侵入が多いcase01の方がより O_3 濃度を過小評価したものと考えた。16時の結果では、上空1500mを超えるとcase04が最大約60ppbの過大評価をしていることが確認でき、case04は上空に行くほど O_3 濃度を過大評価していく傾向にあることが確認できた。また、10時における結果を確認しても16時同様、上空で過大評価をしており、case04では午前中から上空に高濃度の O_3 が存在していることを示していた。図(4)- 24に、7月27日21時、28日3時及び9時における O_3 濃度の三次元可視化図を示した。7月27日21時の図より、case04はcase02に比べ高濃度の空気塊が低い位置に存在していることが確認できた。また、28日3時にはcase02は高濃度の空気塊が上空に滞留し地表面付近の濃度が減少し始めており、海域の濃度も減少し始めていることが確認できた。case04では21時とほぼ同じ分布になっており、低い高度に高濃度の空気塊が存在していたため、海域の濃度が減少していなかった。9時になるとcase02では海域の濃度が下がりきっており、陸域の高濃度空気塊は3時に比べ高度が下がり始めていることが確認できた。一方case04では海域の濃度は下がらず、海域から陸域にかけて高濃度の空気塊が同じ高度で存在していた。一般に混合層は海域から内陸にかけて高度が高くなっていくが、case04では上空の高濃度 O_3 が低い高度で滞留していること、並びに夜間になっても O_3 濃度が減少していないことから、上空で大幅な過大評価となる結果となった。



図(4)- 22 2017年7月28日10時及び16時におけるモデルの再現性検証(case比較)



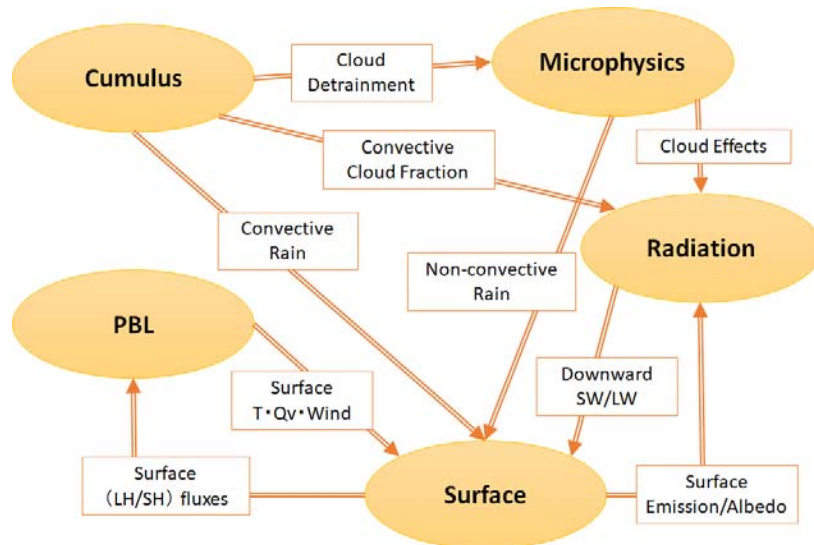
図(4)- 23 2017年7月28日11時における O_3 濃度と温位の鉛直分布



図(4)- 24 2017年7月27日及び28日における O_3 濃度の三次元可視化図
(赤い気塊は O_3 濃度が60ppb以上となっているもの)

(iv) 境界層スキームの感度解析

WRF内には複数の計算スキームがあり、図(4)-25に示す通り、それらは相互に作用しあっている。今回はその中で地表面での風況に関与するものとしてPBLスキームを選定し、感度解析を行った。PBLスキームと対応する地表面スキームを表(4)-5にまとめた。

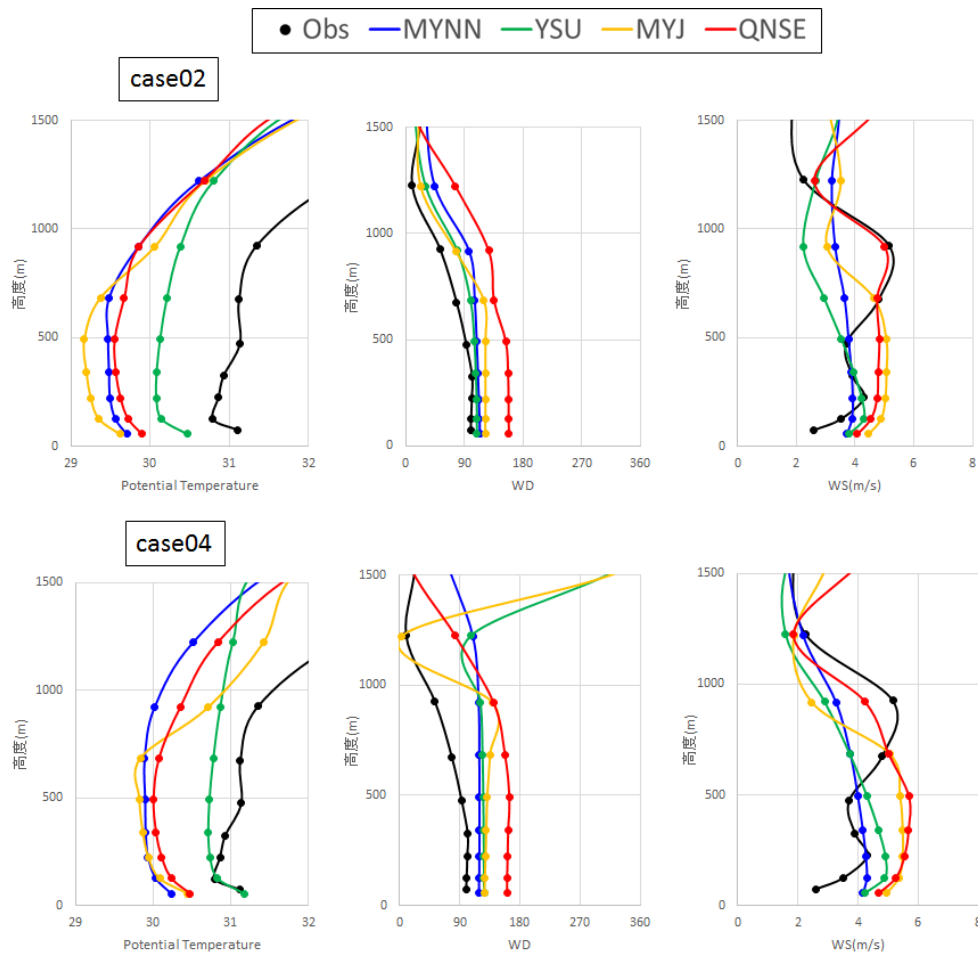


図(4)-25 WRF内の各スキームによる相互作用

表(4)-5 PBLスキームの感度解析対象

name	sf_sfclay_physics	bl_pbl_physics
MYNN (J-STREAMで使用)	Eta Similarity Scheme	Mellor-Yamada Nakanishi Niino Level 3
YSU	MM5 Similarity Scheme	Yonsei University
MYJ	Eta Similarity Scheme	Mellor-Yamada-Janjic
QNSE	QNSE Scheme	Quasi-normal Scale Elimination

図(4)-26に、7月28日16時の温位、風向及び風速を対象としたゾンデ観測結果との比較を示した。なお、地表面付近のPBLによる違いを見やすくするため、上空1500mまでをグラフ化の対象とした。風向を比較するとcase02ではQNSEを除いた3つのPBLスキームが実測値を比較的再現しており、QNSEは他のPBLに比べ南風をシミュレートする結果となった。case04では上空に行くほどスキーム間での風向のばらつきが確認できた。これは、客観解析データとして用いたMANALがFNLに比べて鉛直方向の解像度が低かったことが影響したものと考えられる。温位を見ると、YSUが他のPBLスキームに比べ、混合層高度をより高く再現した。今回用いた4種類のPBLスキームの中でYSUのみがnon-localであり、局所的な混合ではなく広域的な混合を予想することから、他のPBLに比べ混合層高度が高くなったと考えられる。そのためYSUを用いて大気質シミュレーションを行った場合、上空に滞留している空気塊を他のPBLよりも高い高度まで取り込むことが予測されるため、地表面濃度の再現性にも影響してくる可能性が考えられる。風速を確認すると、MYJとQNSEが同じような変動を示していたことが確認できた。地表面付近の風速においては、MYJとQNSEは過大評価する傾向にあることが確認でき、鉛直方向においても地表面と同様、移流効果の過大による影響が生じる可能性が考えられた。



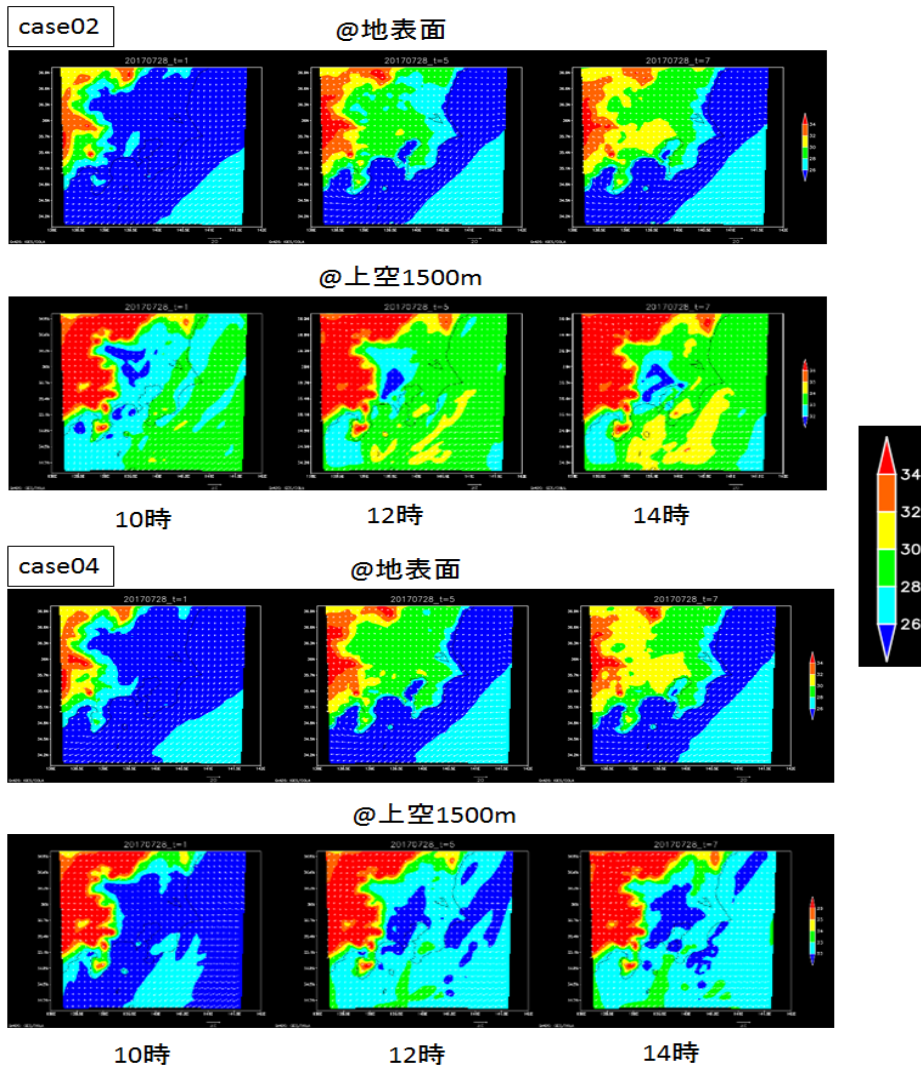
図(4)- 26 2017年7月28日16時におけるモデルの再現性検証(PBL比較)

ここまでで述べたとおり、水平方向及び鉛直方向のどちらにおいてもMYJ、QNSEが風速を大幅に過大評価する傾向にあることが確認できた。また、YSUに関しては水平方向の再現性はMYNNと大きな違いが確認できなかったが、鉛直方向においては混合層を高く予想する傾向にあることが確認できた。これにより本研究では、最も再現性の良いPBLスキームはMYNNとなった。

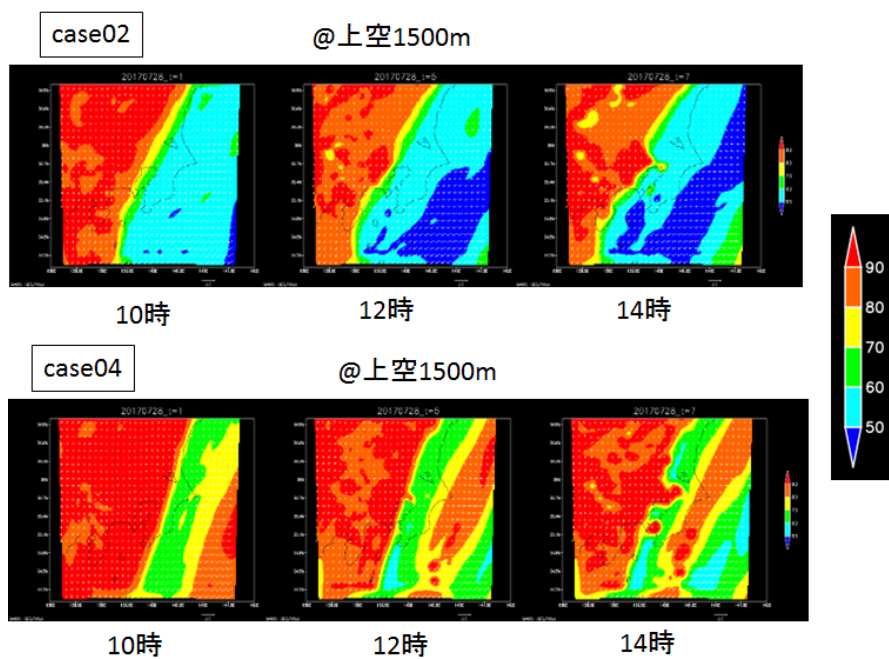
客観解析データによる O_3 濃度の再現性は、低濃度域ではFNL、高濃度域ではMANALの再現性が良くなる結果となった。客観解析データによる違いを考察するため、図(4)- 27及び図(4)- 28にゾンデ観測を実施した7月28日10時、14時、16時における地表面及び上空1500m付近の温位及び湿度の水平分布図を示した。地表面における温位の分布図にはcase02とcase04で大きな違いが確認できなかった。一方、上空1500mになると客観解析データによる違いが確認でき、case04では10時の時点で神奈川県及び東京都西部と千葉県にて上空1500m付近まで一様な空気塊が存在していることが確認できた。case04はcase02と比べ、上空1500m付近で温位が低くなっていることから、太平洋の空気に支配されている可能性が考えられる。

湿度の水平分布では、case04では陸域での湿度が90%を超えており、ゾンデ観測値が50%程度であったことから大幅な過大評価が見取れる。これより、鉛直方向においてはcase02のMYNNが最も再現できていると考えられる。以上のことより本研究では、客観解析データにFNL、土地利用データにJ-STREAM、PBLスキームにMYNNを用いたモデルの再現性が最も良くなることとなった。

これ以上モデルの再現性を上げる方法としてはナッジングや他のパラメータ、他の物理オプションの変更により再現性が向上する可能性も考えられるため、今後も各種パラメータを対象に感度解析を行っていく必要があると考えられる。



図(4)- 27 2017年7月28日10時・14時・16時における温位の水平分布図



図(4)- 28 2017年7月28日10時・14時・16時における湿度の水平分布図

5. 本研究により得られた成果

(1) 科学的意義

関東地方における O_3 高濃度化のメカニズムには「①朝方の上空滞留オゾン沈降によるバックグラウンド濃度の押し上げ」、「②海風前線の侵入に伴う風の収束域の形成と前駆物質の滞留」、「③海風による他地域からの高濃度 O_3 の輸送」が既往研究より報告されている。本研究において、これらの現象に関するモデルの計算結果を検証できる観測データを得たことは科学的に意義があったと考える。特に2018年夏季は、埼玉県熊谷にて歴代最高気温である41.1度を記録した7月23日にゾンデ観測を実施するに至っており、そこで得られたデータは地球温暖化と大気汚染のコベネフィットアプローチに係る研究にも貢献し得る科学的知見であると考えられる。

(2) 環境政策への貢献

夏季における O_3 高濃度化メカニズムの解明には、ローカルな二次生成に加えて海域からの輸送、並びに混合層の発達に伴う上空滞留 O_3 の地表付近への取り込みを包括的に評価・解析することが求められるということである。このような立体的かつ広域的な解析を行うためには数値モデルが必須となるが、数値モデルは現状、多くの場合で地表面濃度に対してのみ検証が行われているため、海域および鉛直方向における O_3 濃度観測も併せて行う必要があると考える。第五次環境基本計画においても「対策効果の定量的予測・評価を可能とするシミュレーションの高度化」が目標に挙げられているが、本研究で蓄積された離島や上空での O_3 濃度の観測データは、 O_3 の3次元的な挙動の理解と大気質モデルの検証や改良に有益なものである。これにより、大気中での O_3 の生成・輸送・除去過程を踏まえた、大気質モデルの計算結果を基に立案される有効な濃度低減策の信頼性を高めることができる。

<行政が既に活用した成果>

特に記載すべき事項はない。

<行政が活用することが見込まれる成果>

環境省が実施する各種委員会では、上空や海域を含めたモデル検証は行われていない。ここで蓄積された観測データは、常時監視局では得られない観点で、二次汚染物質とその原因物質の大気中での挙動を明らかにしたものであり、モデルによる濃度再現性の向上に資するものである。

6. 国際共同研究等の状況

特に記載すべき事項はない。

7. 研究成果の発表状況

(1) 誌上発表

<論文(査読あり)>

- 1) 吉岡実里、櫻井達也：大気環境学会誌，53巻4号，pp111-119（2018），2010年夏季に首都圏で発生したオキシダント高濃度事象のモデル解析

<査読付論文に準ずる成果発表>

特に記載すべき事項はない。

<その他誌上発表(査読なし)>

特に記載すべき事項はない。

(2) 口頭発表(学会等)

- 1) 櫻井達也：第57回大気環境学会都市大気モデリング分科会(2016)， O_x 高濃度化の立体構造把握とそのモデル再現を目指して

- 2) 吉岡実里、櫻井達也、大森大悟、中村大介、五味大雅：第58回大気環境学会年会（2017），ゾンデ観測及び数値モデルによるO_x高濃度化の立体解析
- 3) Misato YOSHIOKA, Tatsuya SAKURAI：HARMO18（2017），Modeling Study on the characteristics of Ozone pollution in Tokyo metropolitan area
- 4) 吉岡実里、櫻井達也、大森大悟、中村大介、五味大雅：第59回大気環境学会年会（2018），O_xの生成及び循環の立体構造把握とそのモデル再現に関する研究

（3）知的財産権

特に記載すべき事項はない。

（4）「国民との科学・技術対話」の実施

- 1) 櫻井達也：明星大学オープンキャンパス，2017年4月23日，5月28日，7月16日，8月6日，8月27日，「シミュレーション結果を360度VR体験！」
- 2) 櫻井達也：明星大学オープンキャンパス，2018年3月18日，4月22日，5月27日，7月15日，7月29日，8月5日，8月26日，「シミュレーション結果を360度VR体験！」

（5）マスコミ等への公表・報道等

特に記載すべき事項はない。

（6）その他

- 1) 吉岡実里：第59回大気環境学会年会(九州大学)，学生・若手口頭発表賞

8. 引用文献

- 1) Itahashi, S., Yumimoto, K., Uno, I., Ohara, T., Kurokawa, J., Shimizu, A., Yamamoto, S., Oishi, O., Iwamoto, S.: Analysis of transboundary air pollution occurred during Spring 2007 over East Asia using CMAQ., Journal of Japan Society for Atmospheric Environment, Vol. 44, No. 4, 175-185 (2009). [in Japanese]
- 2) Wakamatsu, S., Ogawa, Y., Murano, K., Okuda, M., Tsuruta, H., Goi, K., Aburamoto, Y.: Aircraft Survey of Photochemical Smog in Tokyo Metropolitan Area., Journal of Japan Society for Atmospheric Environment, Vol. 16, No. 4, 199-214 (1981). [in Japanese]
- 3) Ohara, T., Wakamatsu, S., Uno, I., Ando, T., Izumikawa, S.: An Analysis of Annual Trends of Photochemical Oxidants in the Kanto and Kansai Areas., Journal of Japan Society for Atmospheric Environment, Vol. 30, No. 2, 137-148 (1995). [in Japanese]
- 4) Yoshiokado, H.: Summertime Behavior of the Prefectures (Non-methane Hydrocarbons and Nitrogen Oxides) Related with High Concentrations of Ozone in Tokyo Metropolitan Area., Journal of Japan Society for Atmospheric Environment, Vol. 50, No. 1, 44-51 (2015). [in Japanese]
- 5) Yoshikado, H.: How Much Did the VOC Emission Control Executed Since 2006 Affect the High Levels of Local Ozone Formation -Details of Exclusion of Meteorological Effect-. , Journal of Japan Society for Atmospheric Environment, Vol. 51, No. 5, 230-237 (2016). [in Japanese]
- 6) Kiriyama, Y., Shimadera, H., Itahashi, S., Yahami, H., Miura, K.: Evaluation of the Effect of Regional Pollutants and Residual Ozone on Ozone Concentrations in the Morning in the Inland of the Kanto Region., Asian Journal of Atmospheric Environment, Vol. 9, No. 1, 1-11 (2015).
- 7) Yoshioka, M and Sakurai, T.: Modeling study of severe ozone pollution during the summer of 2010 in Tokyo metropolitan area, Journal of Japan Society for Atmospheric

- Environment, Vol. 53, No. 4, 111-119 (2018). [in Japanese]
- 8) Sakurai, T., Satake, S., Matsuda, K.: Measurement of the Inorganic Ions in PM2.5 at Western Tokyo and the Evaluation for AQM Performance Based on the Measurement., Earozoru Kenkyu, 30, 134-141 (2015). [in Japanese]
 - 9) Fukui, T., Kokuryo, K., Baba, T., Kannari, A.: Updating EAGrid2000-Japan emissions inventory based on the recent emission trends, Journal of Japan Society for Atmospheric Environment, Vol. 49, No. 2, 117-125 (2014). [in Japanese]
 - 10) Ocean Policy Research Foundation (OPRF): Report for comprehensive study for environmental impact lead by the establishment of emission control area in Japan. ISBN978-4-88404-299-8 (2013). [in Japanese]
 - 11) Chatani, S., Morikawa, T., Nakatsuka, S., Matsunaga, S.: Sensitivity Analyses of Domestic Emission Sources and Transboundary Transport on PM2.5 Concentrations in Three Major Japanese Urban Areas for the Year 2005 with the Three-Dimensional Air Quality Simulation, Journal of Japan Society for Atmospheric Environment, Vol. 46, No. 2, 101-110 (2011). [in Japanese]

III. 英文Abstract

Establishment of a Reference Modeling for Source Apportionment and Effective Strategy Making to Suppress Secondary Air Pollutants

Principal Investigator: Satoru CHATANI

Institution: National Institute for Environmental Studies (NIES)
16-2 Onogawa, Tsukuba-City, Ibaraki 305-8506, JAPAN
Tel: +81-29-850-2740
E-mail: chatani.satoru@nies.go.jp

Cooperated by: Kobe University, Central Research Institute of Electric Power Industry, Meisei University

[Abstract]

Key Words: Air quality model, Secondary pollutant, PM_{2.5}, Photochemical oxidant, Model intercomparison, Emission inventory, Measurement campaign

PM_{2.5} and ozone, secondary pollutants formed in the atmosphere via complex photochemical reactions, remain a concern in Japan. This study aimed to establish reference air quality modeling, which can be utilized to investigate heavy air pollution caused by secondary pollutants, and to evaluate source apportionments and sensitivities to ambient pollutant concentrations. The aim of the study was accomplished by conducting model intercomparisons in which many modeling researchers participated.

Sub-theme (1) prepared emission inventories, which are critical inputs to air quality modeling. Based on the results of model intercomparisons, various developments and improvements were made for emissions, including those of volatile organic compounds emitted from vegetation and large anthropogenic stationary sources. Convenient numerical tools for converting emission inventories to model inputs were also developed.

Sub-theme (3) conducted measurements of ambient aerosol components, because existing models face challenges in reproducing their concentrations. Measured vertical gradients of gas- and aerosol-phase components revealed the importance of dry and wet depositions. Datasets of measured hourly concentrations of carbonaceous components contributed to better understanding of their spatial and temporal variations. Model simulations implied that incorporating heterogeneous reactions involving Fe and Mn realizes better model performance for sulfate concentrations.

Sub-theme (4) measured ambient ozone, for which also the existing models are lacking in reproducing concentrations. They clarified vertical profiles and backgrounds of ozone concentrations in remote islands, which are important factors for reproducing ozone concentrations in urban areas. Model simulations implied that better model performance on wind speeds, which are affected by various model configurations, is important to reproduce horizontal and vertical profiles of measured ozone concentrations.

By utilizing the knowledge and data obtained in the aforementioned sub-themes, sub-theme (2) comprised of performing model intercomparisons. They revealed uncertainties in modeled pollutant concentrations, which cannot be evaluated by a single model. Large uncertainties were observed in modeled ozone and nitrate concentrations, which were highly

affected by model configurations of meteorology as well as emission inputs. Optimal configurations were derived based on the results of the model intercomparisons. The characteristics of the source apportionments and sensitivities calculated by different models and numerical techniques were also clarified.

The outcomes of this study could serve as references when governments utilize air quality modeling for proposing and implementing effective strategies for improved air quality. The tools, sub-models, and datasets developed in this study could contribute to obtaining better model performance and minimizing efforts in executing air quality modeling.