

【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

平成28～30年度 累積予算額118,169千円

研究代表者

茶谷 聡（国立環境研究所）



2019年3月15日
環境研究総合推進費
平成30年度終了課題成果報告会

研究開発目的

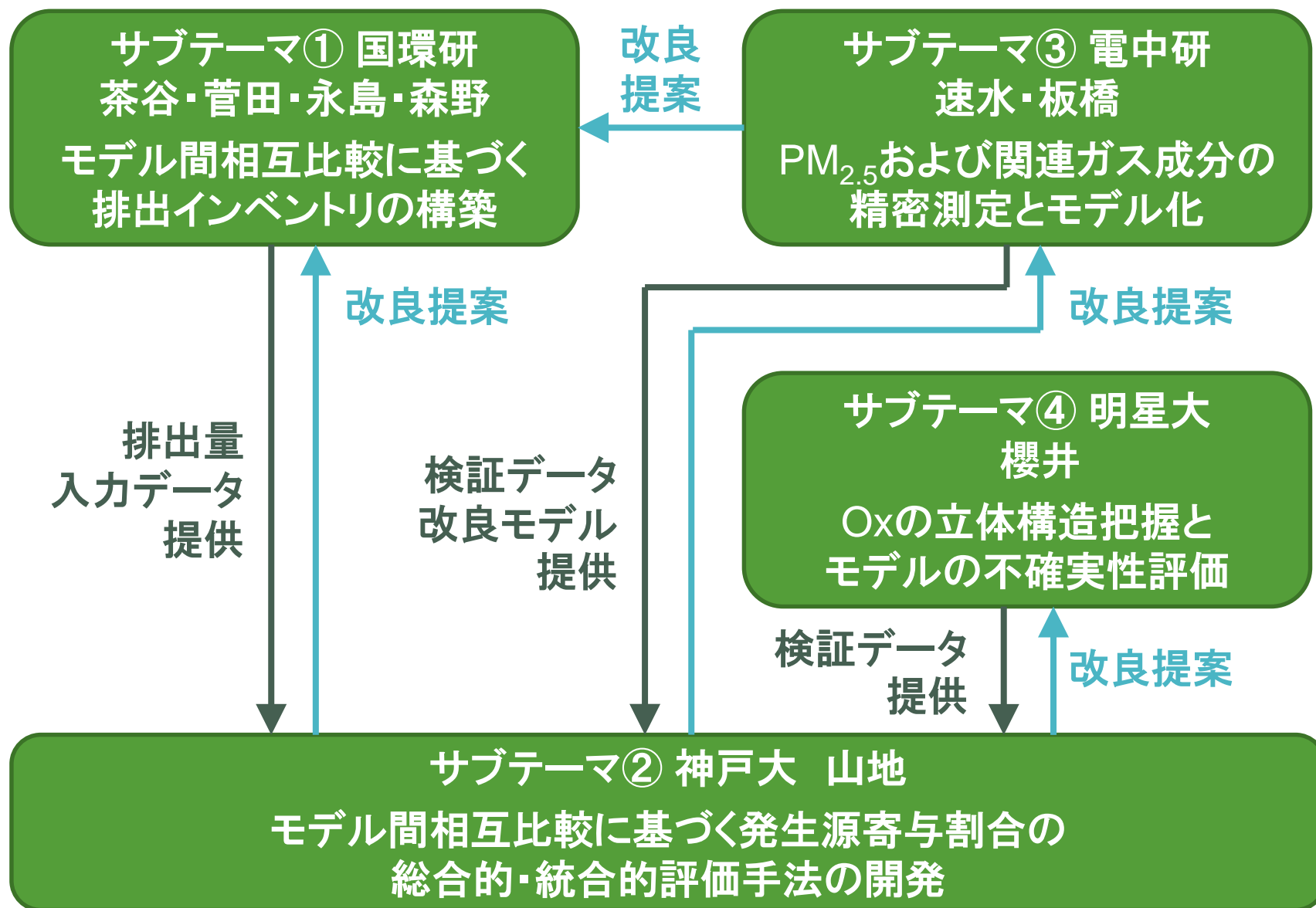
- **モデル間相互比較**を通して、大気中の二次汚染物質について、
 - 高濃度大気汚染のメカニズムの解明
 - 発生源寄与割合の推計と対策の立案に資する、規範的な大気質モデルを確立



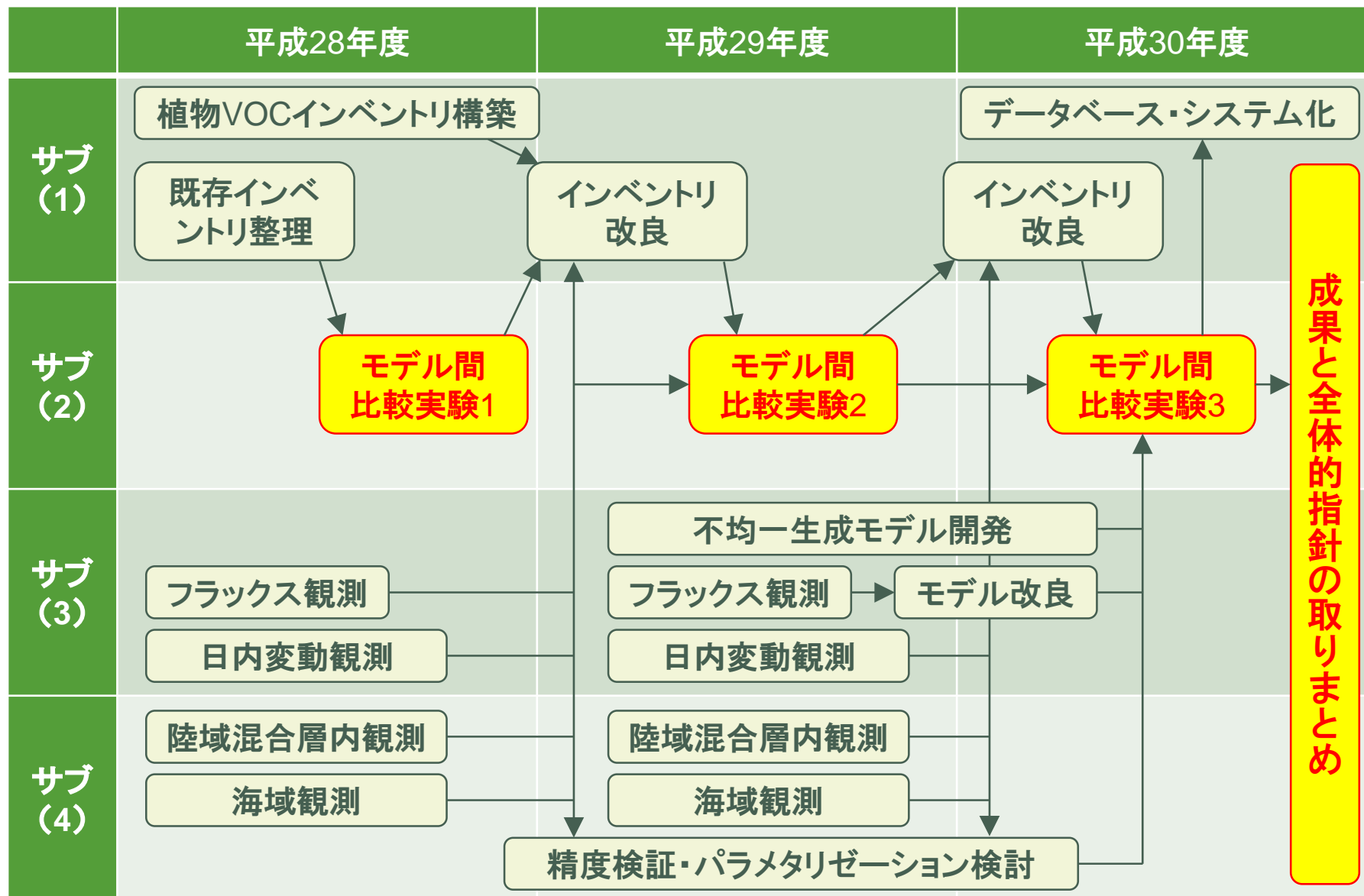
- 大気質モデルを使用した信頼性の高い対策の立案に貢献
- 対策立案業務の効率を向上
- 偏った結果に基づく非効率な対策の立案と多大な社会的損失を未然に防止



研究体制



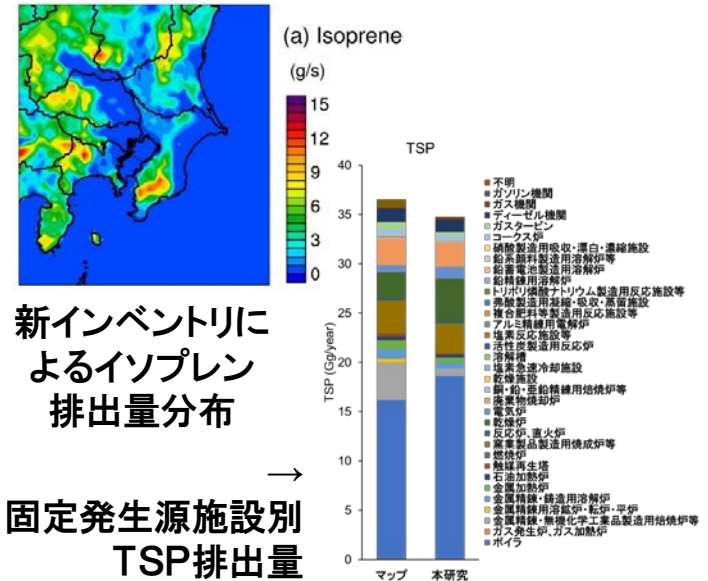
本研究課題の全体計画



相互比較に基づく排出インベントリの改良

□ モデル間相互比較で見出された汚染物質濃度再現性に関する問題点に基づき、排出インベントリを改良

改良内容	関連課題
国内詳細データを用いた植物起源VOC排出インベントリの構築	①
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	② ③
Fe、Mnを含む粒子排出量組成プロファイルの更新	②
架線・線路起因鉄道排出量の考慮	②
未把握VOC発生源の考慮	① ④
GHG排出インベントリとのNH ₃ 排出量推計の統一化	⑤
海塩粒子排出量推計のための砕波帯データ構築	⑥
野焼き排出量と季節変動の更新	⑦

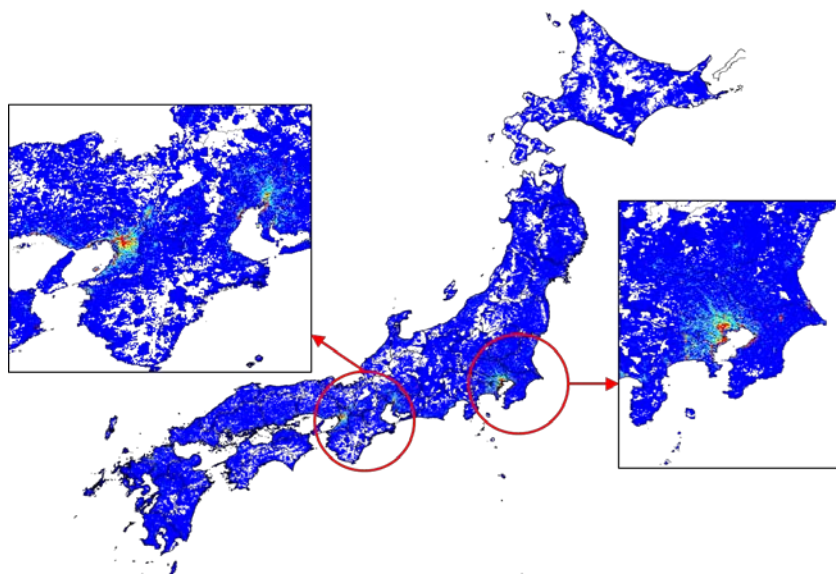


モデル間相互比較で見出された課題

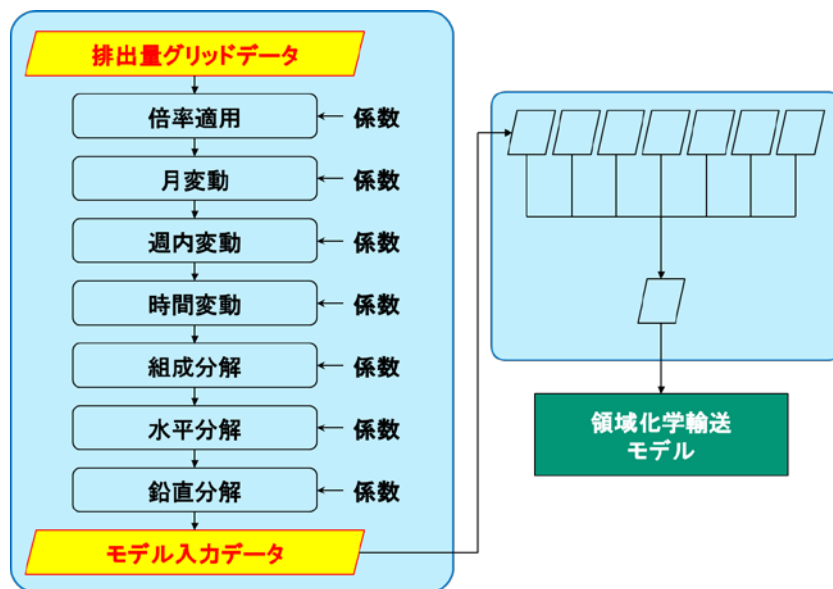
- ① オゾン濃度の過大評価
- ② 硫酸塩の不均一反応の重要性
- ③ 燃焼特性に即した排出量推計
- ④ NMHC濃度の過小評価
- ⑤ NH₃排出量の感度大
- ⑥ Cl濃度の過小評価
- ⑦ OC・野焼きマーカー濃度の過小評価

排出量グリッドデータと変換ツールの構築

- 移動発生源以外の全発生源について、日本全国解像度1x1kmの排出量グリッドデータを構築し公開
- 排出量グリッドデータからモデルへの入力データに変換するためのツールと必要となる全ての係数類を整備し提供



構築した排出量グリッドデータの一例
(NO_x)

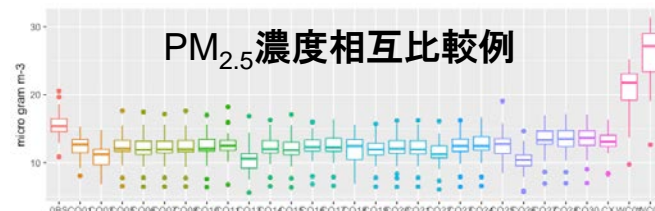


排出量グリッドデータの変換ツールの構成

モデル再現性の要改良箇所の提案

□ 国内モデル研究者の参加による相互比較遂行

- 1回目: 季節別再現性把握
- 2回目: 本研究の詳細観測データとの比較
- 3回目: 発生源感度・寄与解析

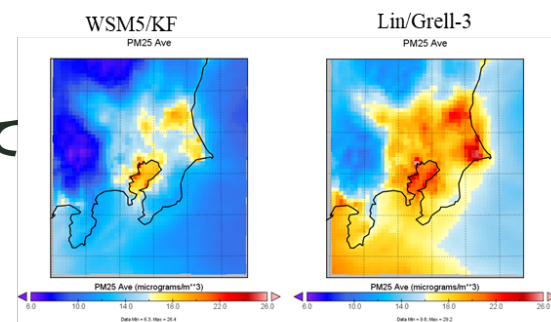


□ わが国の大気質モデル利用者らが使っているモデル(モデル設定)の再現性の要改良箇所を提案

- 気象モデル設定
 - 降水過程の表現の違いが, PM_{2.5}濃度に対して数~10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ の差を生じさせる点を指摘
 - 気象場の不正確さを指摘

【要改良・検討箇所の提案】

- 雲微物理過程と積雲対流過程の設定の見直し
- 高空間分解モデル入力データ(再解析・SST)の利用
- 同化強度の見直し
- モデル鉛直格子設定の見直し



2種類の異なる降水過程による気象場を利用した夏季地表PM_{2.5}濃度

数~10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ の差

気象モデル設定に起因する物質濃度の差が大

モデル再現性の要改良箇所の提案

■ 大気化学過程(夏季 O_3 の過大評価問題)

- 洋上ハロゲンによる O_3 消失をパラメタ化した過程を組み込んだモデルによる夏季 O_3 の過大評価緩和

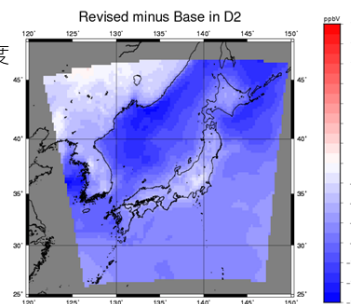
【要改良箇所の提案】

- 洋上消失過程(O_3 の乾性沈着、化学的消失過程)を導入

一定の消失速度を与えているのみ
地域差を反映する必要あり

洋上過程導入前後の比較
夏季(7月)、関東の O_3 濃度

	Base	Revised
Obs. Mean [ppb]	20.7	20.7
Sim. Mean [ppb]	23.3	20.6
MB [ppb]	2.54	-0.11
ME [ppb]	9.66	9.15
IA [-]	0.79	0.79



2~3ppbv減少@関東

夏季(7月)洋上過程導入の効果(O_3 濃度減少量)

■ エアロゾル過程($PM_{2.5}$ の過小評価問題)

- Dustモデルによる $PM_{2.5}$ の過小評価の緩和(黄砂飛来時、5~20 $\mu g/m^3$ 増加)
- VBSモデル利用によるOCの過小評価の緩和(夏季、1~4 $\mu g/m^3$ 増加)

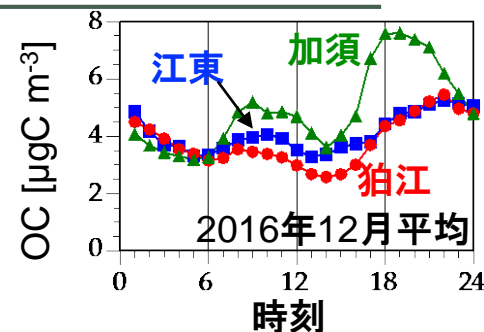
【要改良・検討箇所の提案】

- Dustモデル導入
 - 直接効果に加えて、Dust表面での硝酸塩粒子生成へも影響
 > Dust表面の不均質反応精緻化が必要
 - Dust発生タイミングが不十分
- VBSモデルの導入(振舞いに多少の注意が必要)

OC/EC 日内変動とガス・粒子鉛直濃度分布

□ PM_{2.5} 中OC/EC濃度の日内変動

- モデルの1時間値を検証できる観測値を取得
 - 時差解析で野焼きOCの南下を確認
 - 地点間EC濃度比から内陸の排出量不足が示唆

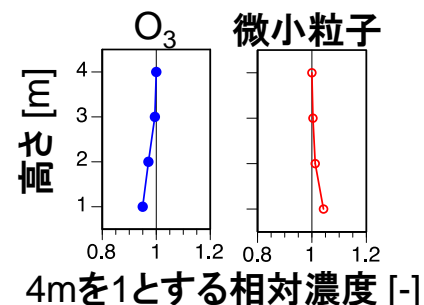
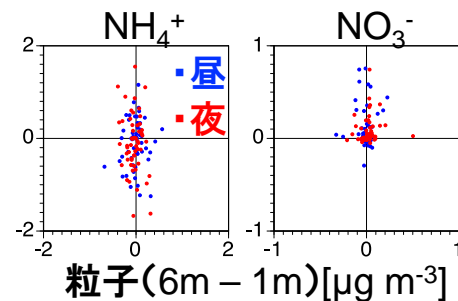


□ PM_{2.5} 無機イオン成分の鉛直濃度分布

- 2高度×3サンプルでガス・粒子濃度を昼夜別に捕集
 - HNO₃: ほぼ下向きフラックス⇒沈着
 - NH₃: 上向きと下向きがある⇒発生と沈着
 - 粒子: 上向きと下向きがある⇒生成と沈着
- 自動昇降リフトによる濃度分布のシームレス測定
 - O₃は下向き
 - OPCによる微小粒子体積濃度は上向きと下向きがある⇒粒子成分の結果と一致



ガス(6m-1m)
[μg m⁻³]



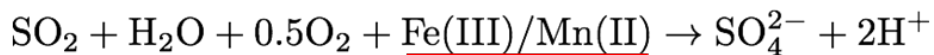
冬季硫酸塩過小評価への取り組み

□ 排出量インベントリに不足する金属成分の情報が硫酸塩に及ぼす影響を精査

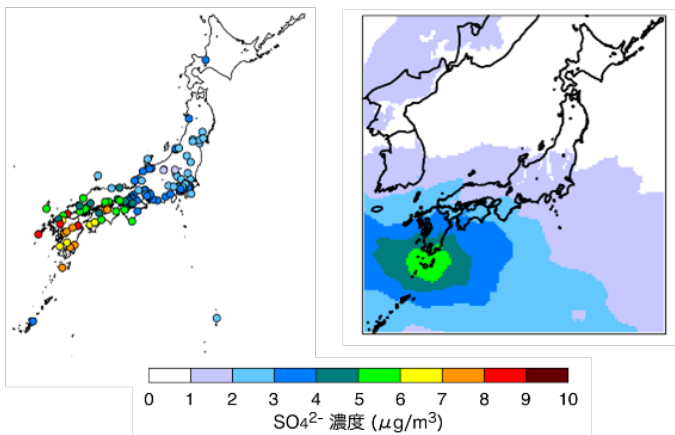
環境省成分分析

CMAQモデル

⇒ SO₄²⁻生成に係る気相反応 (1つ) ・ 液相反応 (5つ)

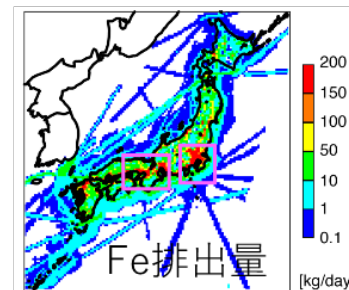


- ・以前：バックグラウンド濃度を仮定
- ・現在：モデル内部で陽に計算



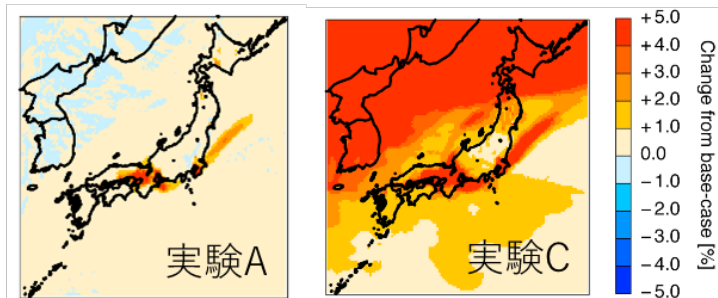
既存のインベントリには
アジア域の金属成分の情報が不足

→ Phase 2以降でのサブ1の検討
事項に反映・排出量改良へ



CMAQモデルの改良に資する感度実験を実施

感度実験A	Fe・Mn濃度の調節 (Fe x 7, Mn x 20) * 成分分析結果の濃度に合うように排出量を調節
感度実験B	Fe・Mnの可溶性の検討 * 文献調査よりアジア域における最大値を仮定
感度実験C	液相反応系でのpHの考慮



Fe・Mnの取り扱いを精緻化し、
冬季のSO₄²⁻再現性を改良

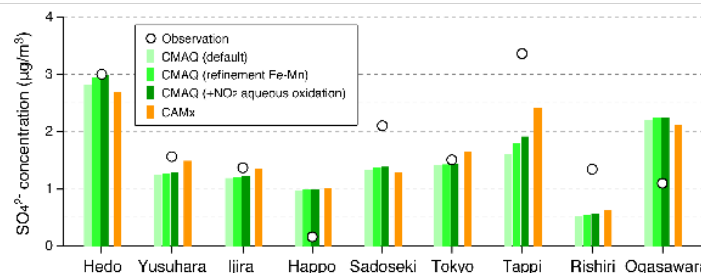
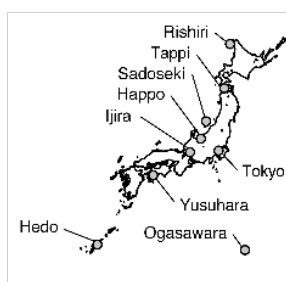
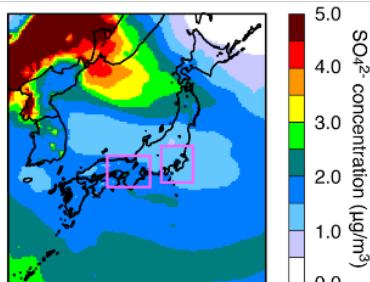
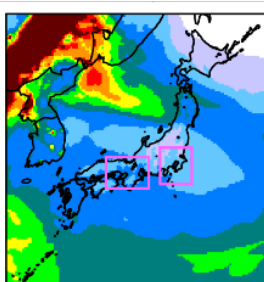
冬季硫酸塩過小評価への取り組み(続き)

□ モデル間相互比較実験(サブ2連携)から沈着過程の大気濃度への影響を明示

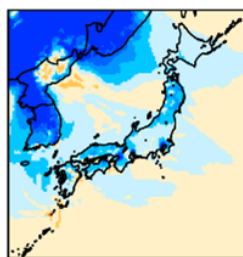
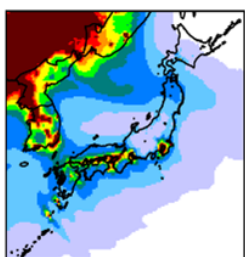
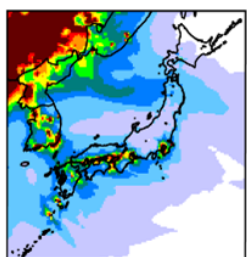
CMAQモデル

CAMxモデル

EANETと比較・検証：CMAQはCAMxより過小傾向



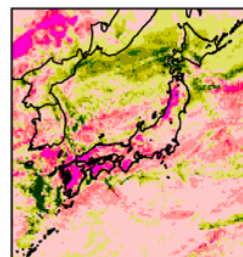
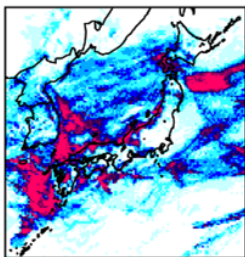
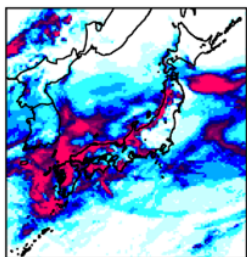
SO₂濃度



CMAQ - CAMx

前駆体であるSO₂濃度：
CMAQはCAMxより過小傾向
→ CMAQの乾性沈着速度が
CAMxよりも大きいため

SO₄²⁻湿性沈着量

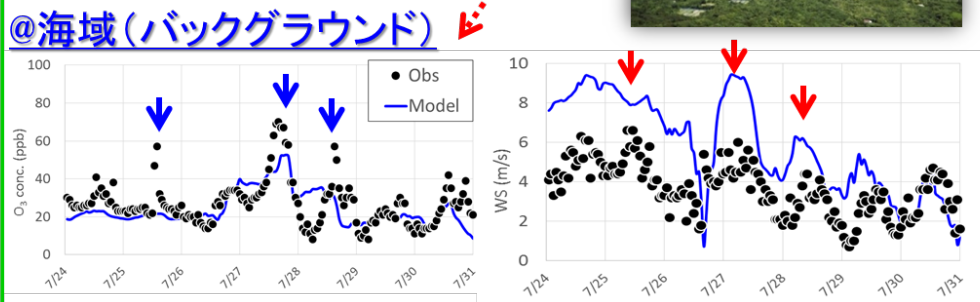
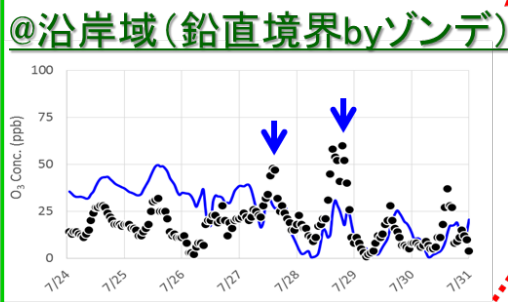
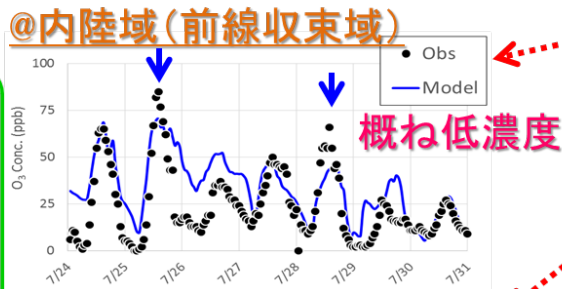
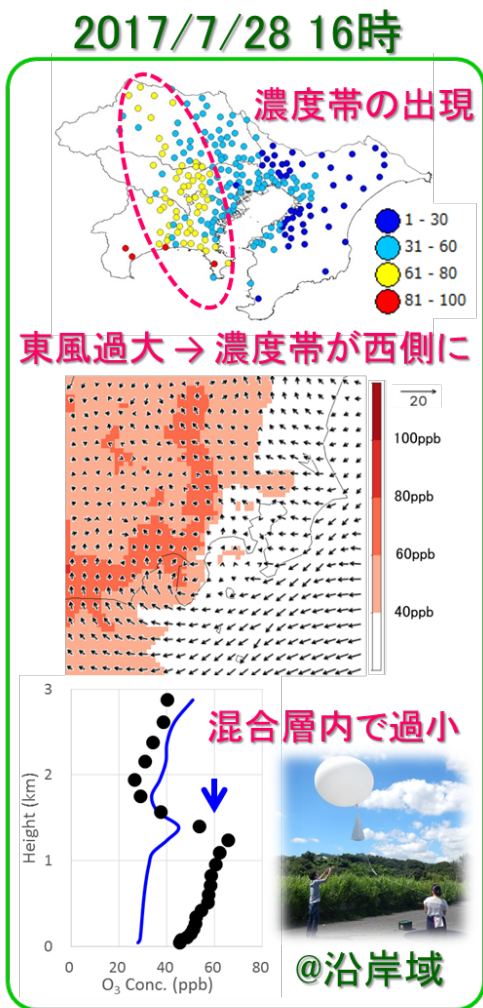


CMAQ - CAMx

SO₄²⁻湿性沈着量：
CMAQはCAMxより過大傾向
* EANET観測値と比較：
CMAQは過大評価，CAMxは過小評価

地表/ゾンデデータに基づくO₃再現性の検証

□ O₃の鉛直プロファイルと離島での実態を観測し、モデルによる再現性を検証



海域の風速過大 → オゾン過小?

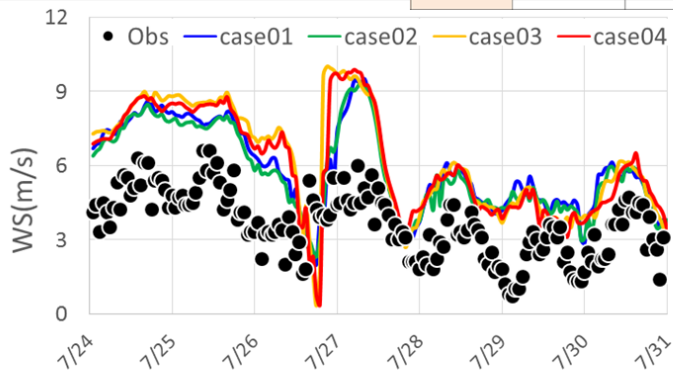
↓ : モデル過小
↓ : モデル過大

気象モデルによる再現性向上への検討

- モデルでの感度解析により、観測されたO₃濃度を再現するための方策を検討

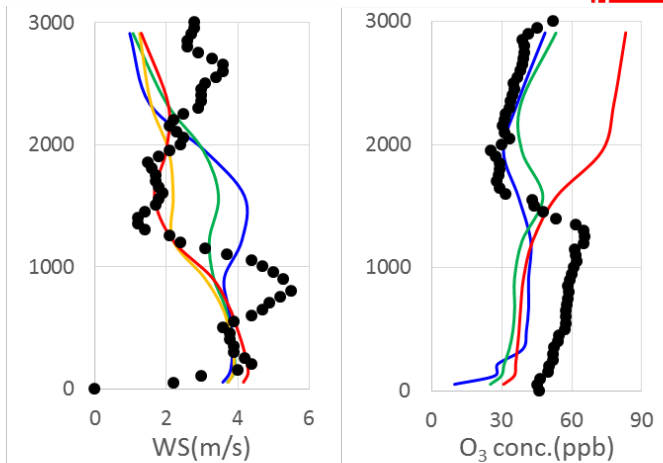
	Land Use	
	USGS	J-STREAM
FNL	case01	case02
MANAL	case03	case04

@海域



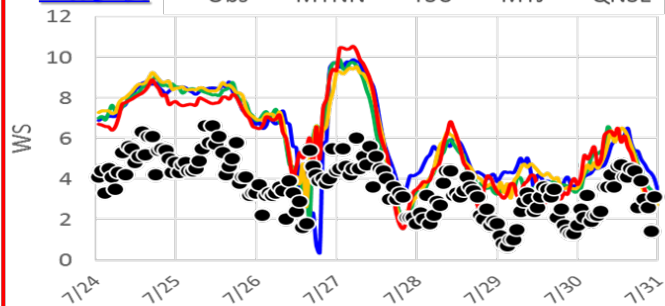
Case2でPBLスキームの感度計算を実施
→大きな改善は得られず

@沿岸域 (2017/7/28 16時)

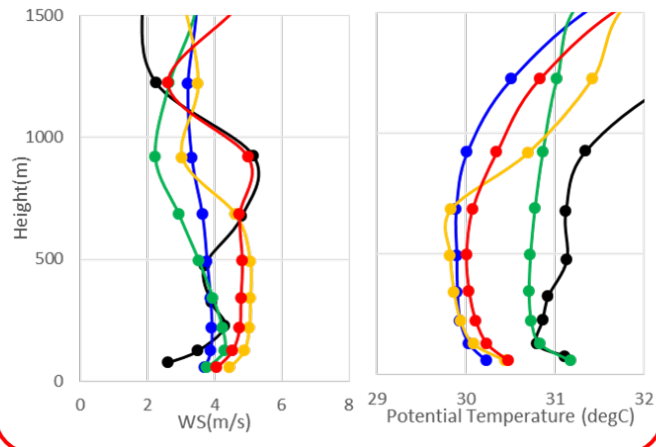


Case2

@海域



@沿岸域 (2017/7/28 16時)



→ キャンピアーモデルの効果検証が必要

査読付き論文発表

□ 現時点で研究成果を10本の査読付き論文で発表

- 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.
- 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).
- 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.
- 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.
- 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.
- 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.
- 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.
- 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.
- 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—.
- 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.

本研究により得られた成果の主な活用

- 相互比較結果に基づき導出した望ましいモデル設定を提供
 - PM_{2.5}や特定成分の過小評価、O₃の過大評価を緩和するための設定や手法
 - 環境省の一部業務においてモデル設定を既に活用
 - 微小粒子状物質解析ワーキンググループ
 - 光化学オキシダント調査検討業務
- 季節別や高濃度時のモデル再現性と不確実性を提供
 - 各種業務での計算実行の際のベンチマークとして機能
- 排出量データ変換用ツールと各種係数の提供
- 国の排出インベントリへの反映
- モデル検証用観測データの提供

モデルを用いた対策立案の手引書策定

- 本研究の成果に基づき、モデルを対策立案に用いる際の手引書を策定



- 内容

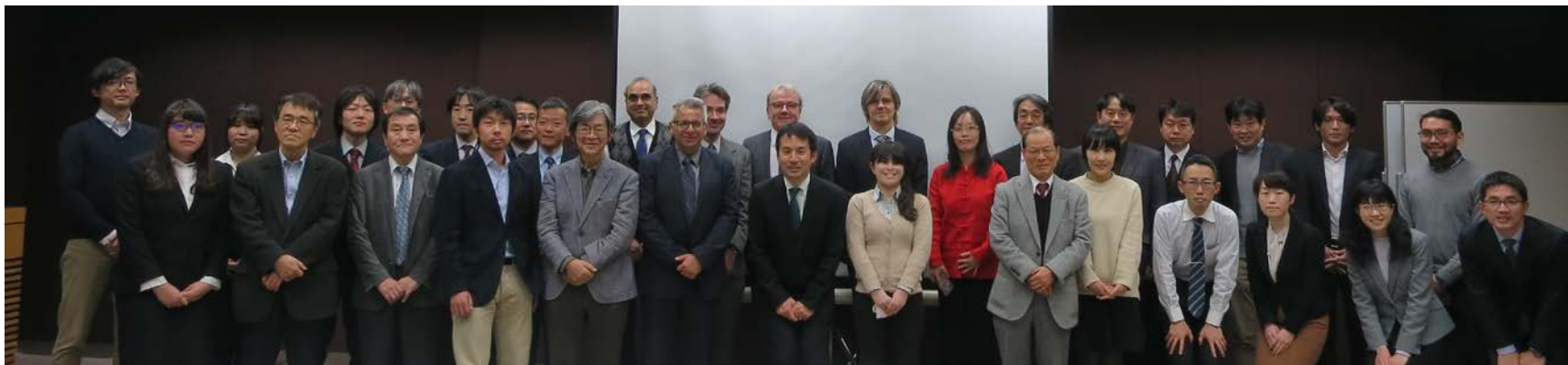
- 相互比較計算結果の整理
- 望ましい(規範的)設定によるサンプル計算
- 発生源寄与割合
- 政策立案への考え方と指針
- 付録
 - シミュレーションの流れ
 - 排出インベントリ
 - 計算データの前処理
 - 計算の実行
 - 計算データの後処理

政策立案者がモデルを活用する際の一助として

モデル実務担当者が理解を深め計算を実行する一助として

「国民との科学・技術対話」の実施

- 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」の開催(2019年2月18日)



- アメリカ、欧州、中国、韓国から研究者を招待
- 本研究で得られた成果を主張
- 化学輸送モデルだけではなく政策検討のための統合モデルの開発状況や今後の課題などについて議論
- 参加者35名

「国民との科学・技術対話」の実施

- 国立環境研究所公開シンポジウムでのポスター発表
- 研究所の一般公開、大学のオープンキャンパスなどでの研究紹介(計24回)
- 一般向け講演会での研究紹介(計2回)
- データ検討会の実施(計5回)
 - モデル間相互比較内容の詳細を議論
 - 関連分野の研究者と情報交換

