

PM_{2.5}に関する化学輸送モデルの現状と問題点

九州大学応用力学研究所 鵜野伊津志

- 2013年1月の中国を例とした化学輸送モデル (CTM:Chemical Transport Model) でのPM_{2.5}の再現性
- NH₃ガスのPM_{2.5}形成への重要性
- 硝酸塩のPM_{2.5}の寄与率の問題点
- モデルの現状のまとめ
- モデルの不確実性を低減するために

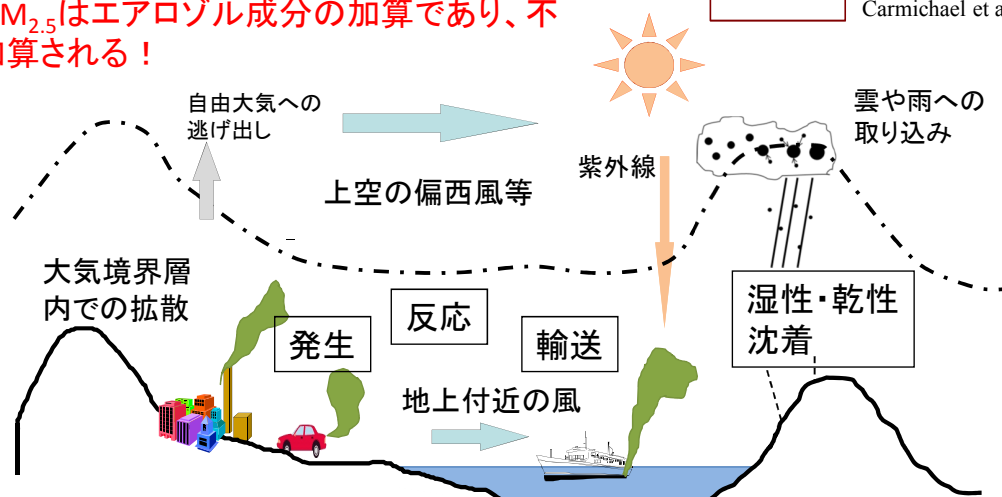
越境輸送モデルの概念と必要な「パーツ」の不確実さ

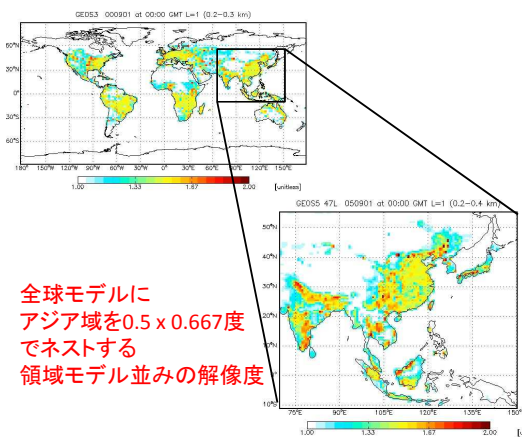
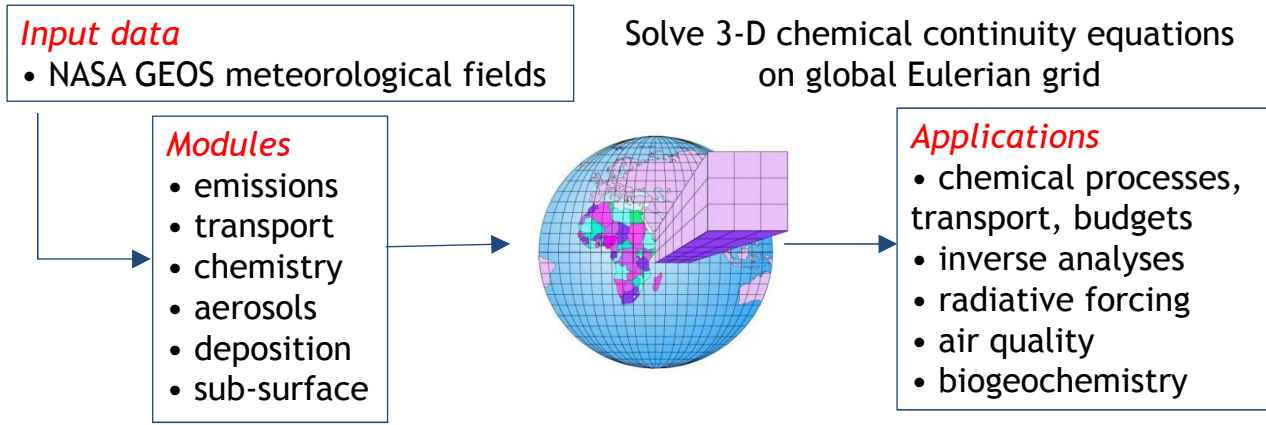
2/13

成分	発生	湿性除去	鉛直輸送	化学反応	全不確実性	メモ
SO4	1.3	1.3	1.5	1.3	1.8	SO4-NH4-NO3平衡
BC	3	2	1.5	-	3.9	数値は不確実さを示し、1.3は30%程度の誤差を意味する
OC	3.5	2	1.5	-	6.4	
黄砂	5	2	1.5	-	6.0	
海塩	5	1.3	1.5	-	5.4	
NO3	> 2?	> 2?	1.5	> 2?	?	
NH4	> 5?	> 2?	1.5	> 2?	?	SO4-NH4-NO3平衡

モデルのPM_{2.5}はエアロゾル成分の加算であり、不確実さも加算される！

Carmichael et al. (2007)





GEOS CHEM 9-1-1をアジアに適用

Global, 2x2.5 resolution, GEOS-5

Asia, 0.5x0.667 resolution, GEOS-5 Vertical 47 layer

発生源データ

REAS2 for Asia (Monthly emission base) 2000-2008年まで
Global (EDGAR, MEGAN, 森林火災GFED2 など)

化学反応

57 Chemical Reaction with SOA formation

2004.01 - 2013.02年まで計算

PM_{2.5}の日変化の比較で見るモデルの現状

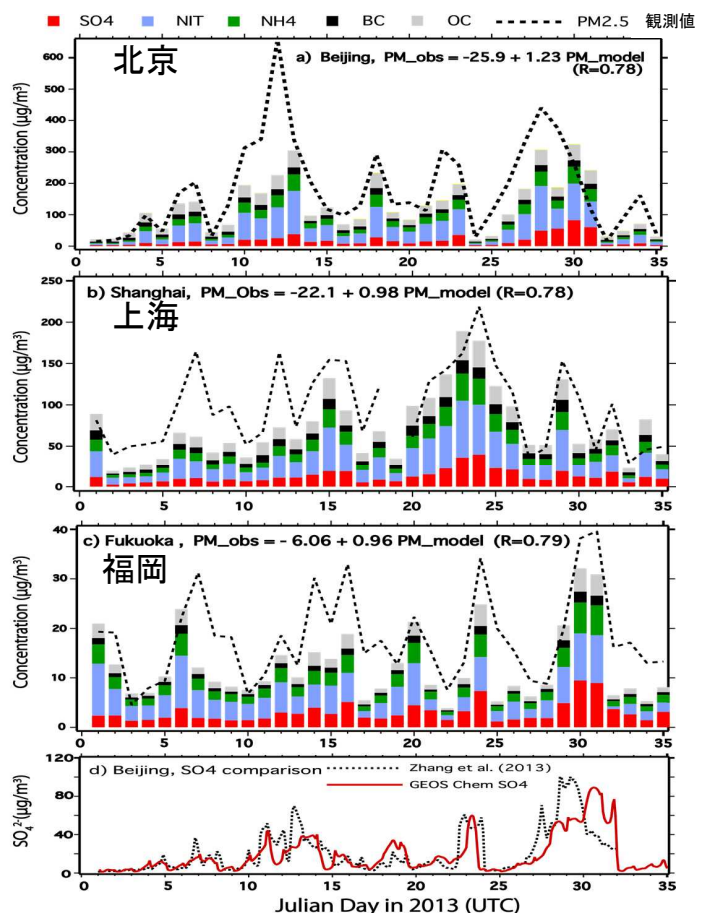
点線はアメリカ大使館のPM_{2.5}と福岡のPM_{2.5}の測定結果(日平均)。カラーの積み上げグラフはモデル計算のエアロゾル濃度。北京の観測では日平均で600 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超える。

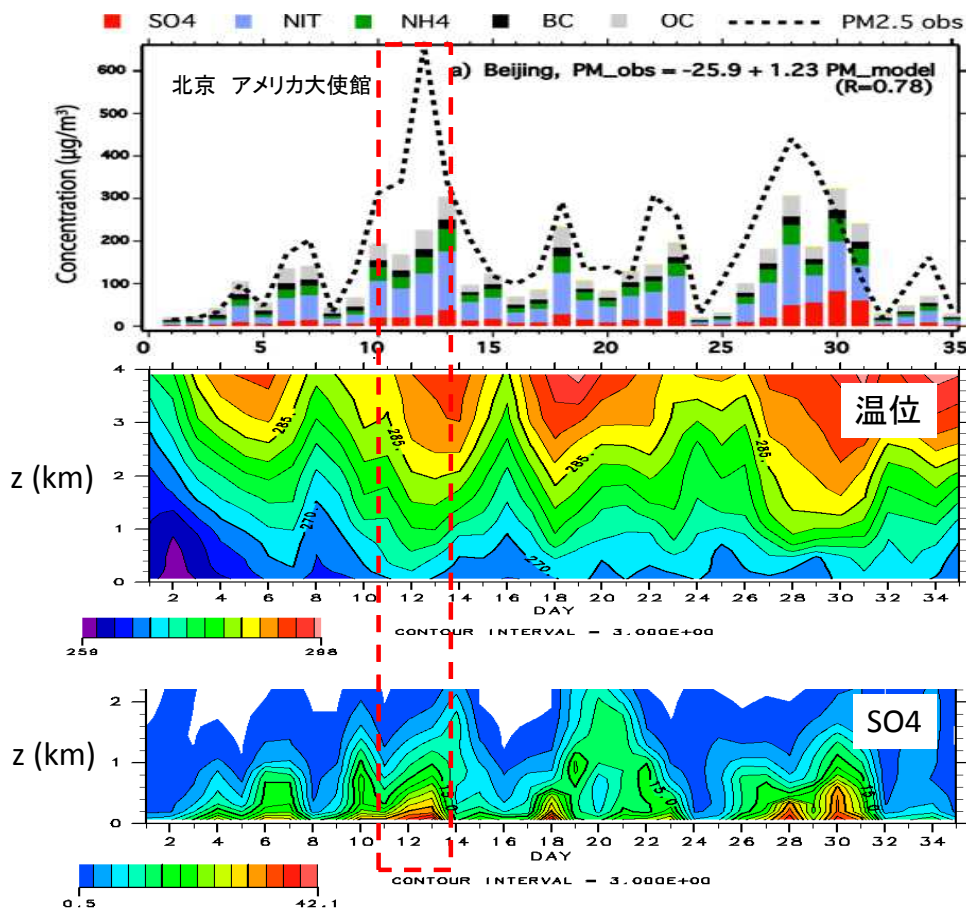
どの地点もエアロゾルの主要成分はSO₄, NO₃, NH₄の二次生成エアロゾルである。モデルではNO₃の寄与大きい。組成の観測必要。

SO₄については、北京での測定と較べて概ね良い一致。

モデルはSO₄過小、NO₃は過大の傾向があるが、PM_{2.5}としては、相関が0.78以上で再現性は高い。

1月10-13日の北京ではモデルが大幅に過小。それについては次ページ。

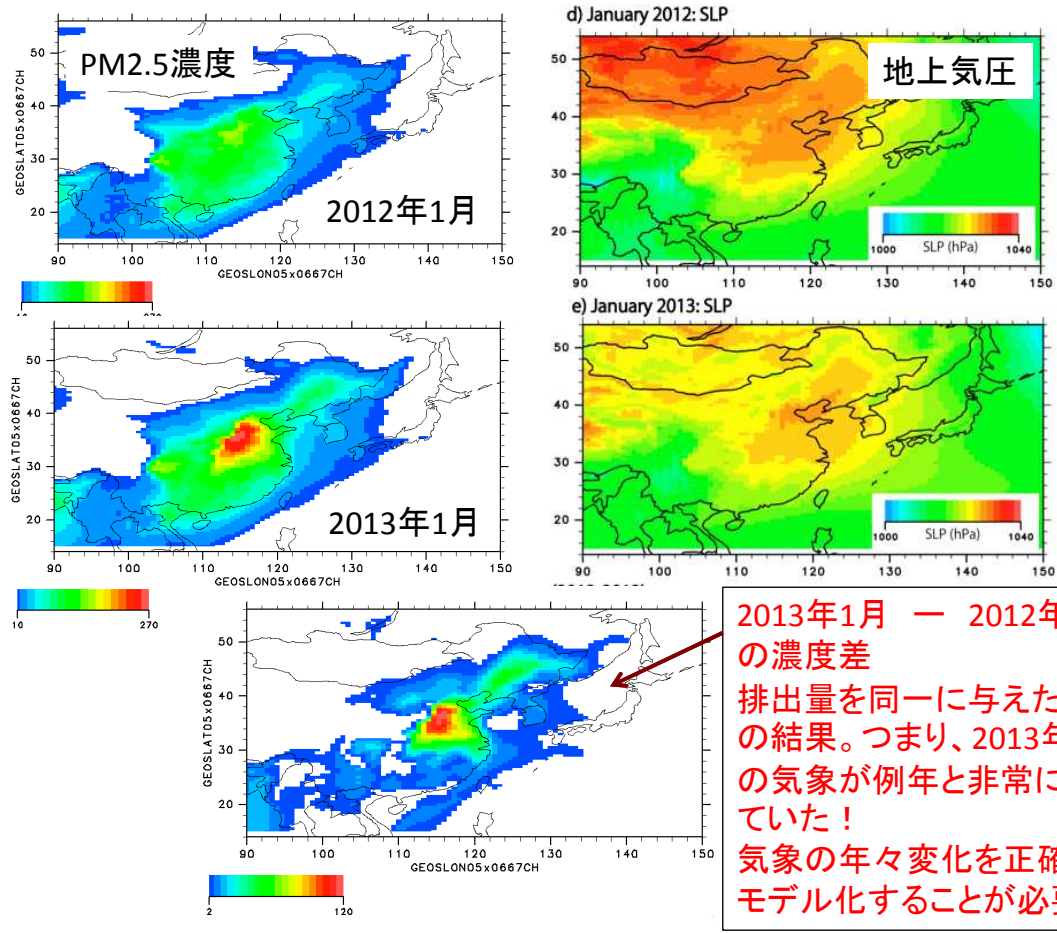




CTMモデルの鉛直解像度100m程度を20-30m程度まで細かくしないと再現できない。

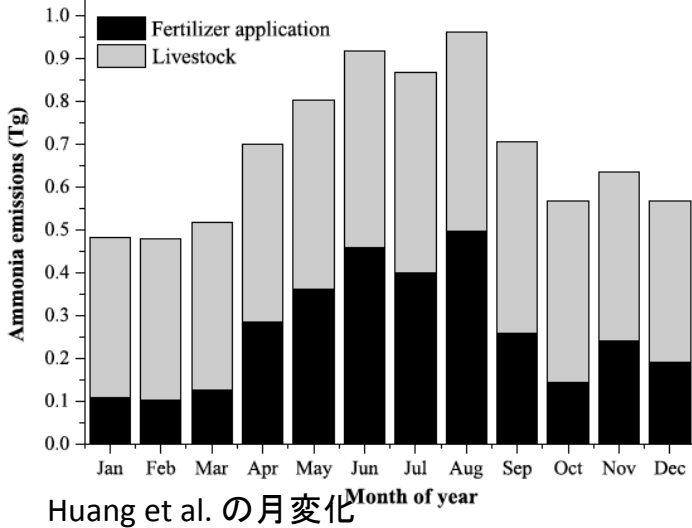
強い大気安定度
11-13日は特に地上付近まで安定

汚染物質は地上付近にトラップされている。北京のライダーデータの活用が課題。公開されていない。



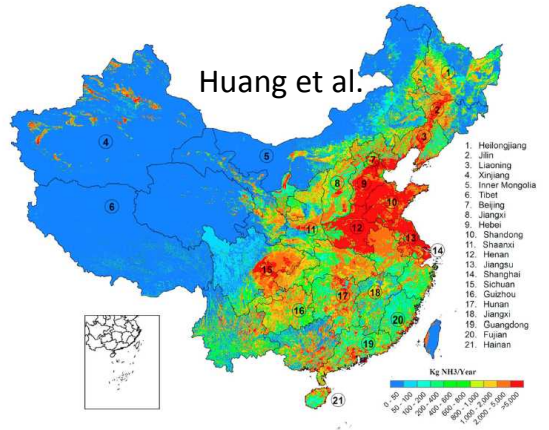
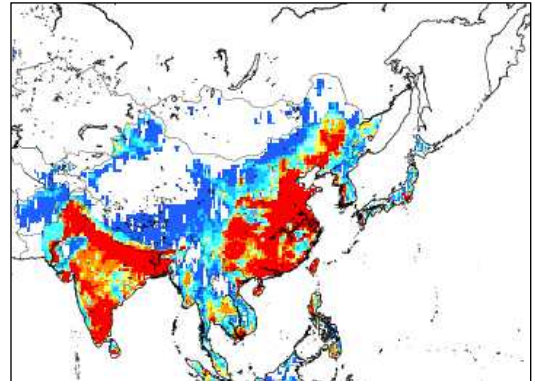
NH₃については、Huangらの論文 (GBC 2011)の総量と月変化を参考に、東アジア大気汚染物質排出推計 (REAS) の排出量を調整している。年平均値をそのまま利用するとモデルではNH₄-NO₃の再現がうまくいかない。

排出量に適切な季節変化を与えないと、冬季のNO₃が過大になった。**HNO₃ + NH₃ - NH₄NO₃の平衡に依存する。夏でもNH₃が多いと粒子化する。NH₃は、PM_{2.5}を再現する上で非常に重要！**

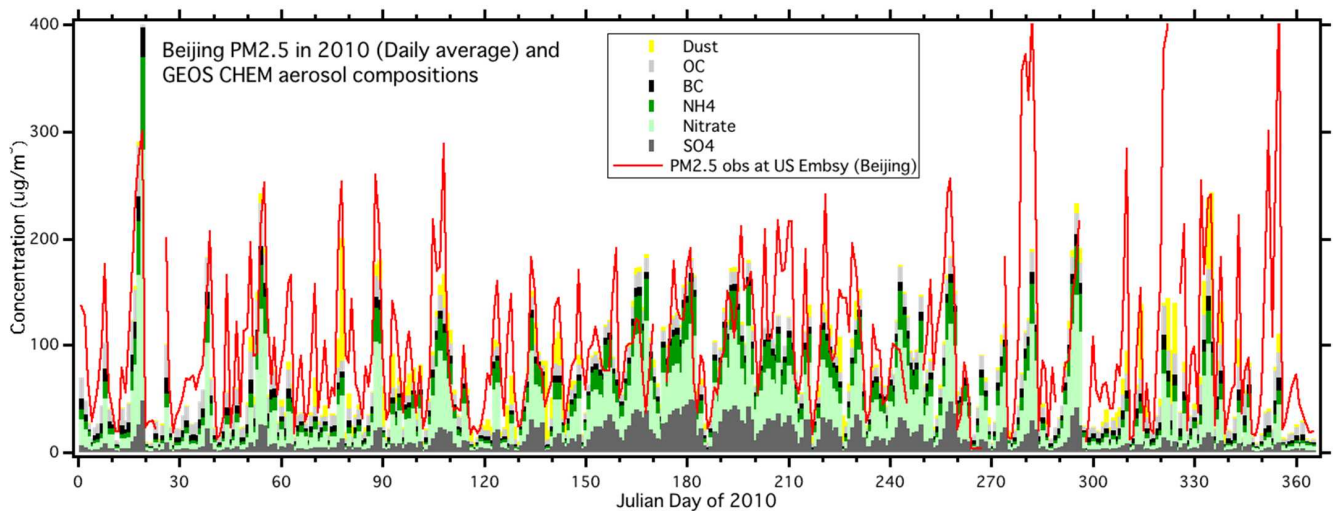


NH₃

REAS

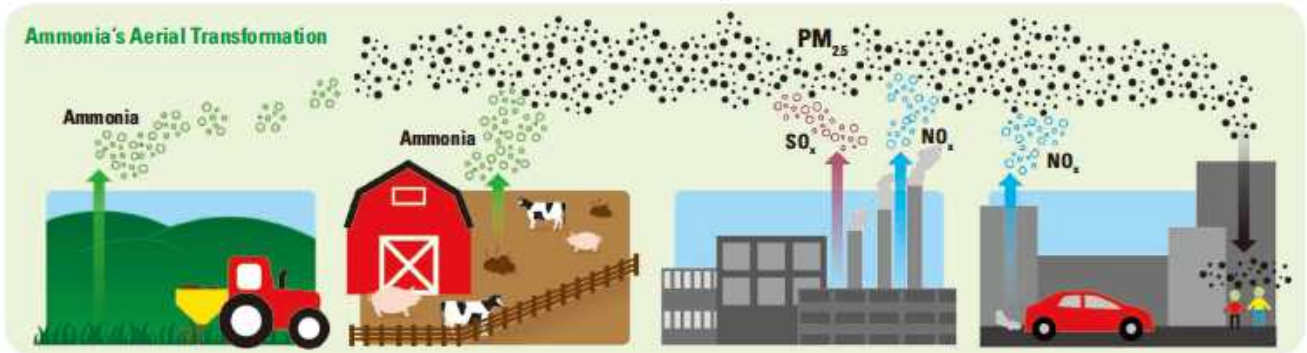


2010年の通年計算の結果(北京)



硫酸塩が夏に高濃度になる。モデル計算では、PM_{2.5}の大凡の変化を再現はしているが、著しい高濃度は再現が出来ていない。

モデル計算では、夏にも硝酸塩が高い濃度を示す (R.Zhang et al., 2013の夏季の観測ではそうっていない)。これはアンモニアの排出量の与え方にも大きな感度があり、排出量の与え方に課題が多いことを意味する。(信頼のおけるエアロゾル組成の観測データが必要)

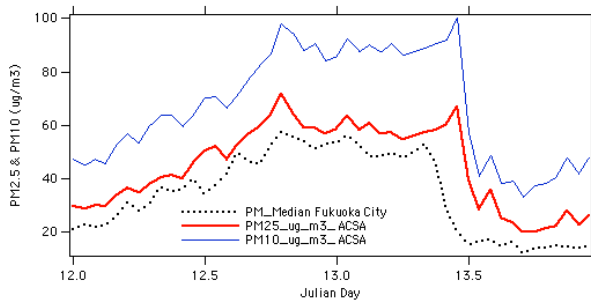


Science 2014, Vol. 343 より

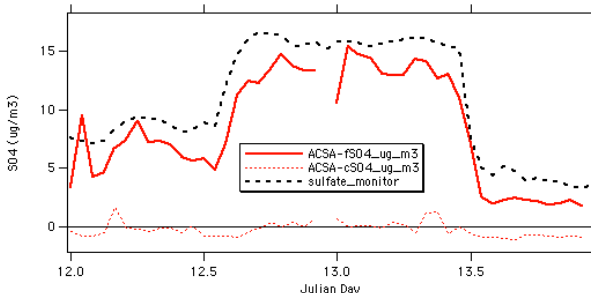
農業活動などから発生するNH₃などが引き金となって、HNO₃ガスなどの粒子化が加速して、PM_{2.5}の濃度が上昇する可能性がある

中国でのNH₃は増大していると考えられる(正確な排出量推定は課題)。それに伴って硝酸ガスの硝酸塩への粒子化がどの程度加速しているか、また、中国で生成された硝酸塩が日本までどの程度輸送され、日本でのPM_{2.5}濃度に影響を及ぼすか、まだ良くわかっていない。

2014年1月12-13日のPM_{2.5}高濃度時の硫酸塩と硝酸塩の挙動 (福岡での自動測定器での1時間毎の測定結果)

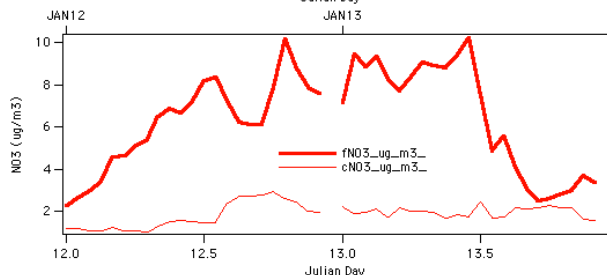


福岡ではPM_{2.5}が50-60 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ になった。硫酸塩に同期して、硝酸塩も上昇した。測定は自動測定器を利用して、フィルターに捕らえた粒子を直ぐに分析している。「通常観測では、1日-7日後に分析(フィルター上での揮発の可能性あり)」



冬季でも硫酸塩と同じ濃度レベルの硝酸塩が福岡でも観測されている。

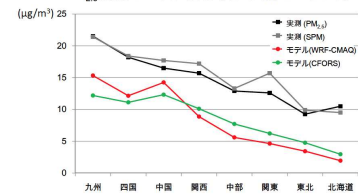
観測ではNH₄を測定していないが、(NH₄)₂SO₄ + NH₄NO₃の形態であると考えると、PM_{2.5}の60%程度を両者の和で占める。



硫酸塩の測定法の点検と硝酸塩のレベルが経年的に増加しているかどうか調べる必要がある！

- モデルはPM_{2.5}の面的・時間的な変化は再現できるレベルにある。
- しかし、モデルでのPM_{2.5}濃度は観測よりも過小(20-30%程度)である。

図7. 日本の8地域におけるPM_{2.5}、SPM濃度の観測値とPM_{2.5}濃度のモデル計算値(2種類のモデル)。



平成25年2月21日国立環境研記者発表資料

- PM_{2.5}の濃度レベルは、気象条件に大きく依存する。2013年1月の中国の「激甚汚染」は、特異な気象条件の影響が大きいことが判明。
- 中国域の排出量を変更した感度解析からPM_{2.5}の越境大気汚染の寄与が九州・西日本ほど高いことが示されている(越境寄与は50%を超える: 金谷氏の資料)
- 環境基準達成のための排出量削減の目安を与えることが可能(金谷氏のグループのS-7プロジェクトでのモデル計算結果参照)。
- 観測されたガスやエアロゾル濃度をもとに、排出量を逆推計する効果的な方法の開発が進行しつつある(幾つかの論文が出始めている)。

- 直近の排出量(特に中国国内からの)の推計値が利用できない(2010年までの推計しかない)。中国の大規模な発電所等への脱硫装置の導入でSO₂は減少し、それに伴い硫酸塩濃度が減少している。これは人工衛星からのエアロゾルの光学的厚さの経年変化で報告されている。これに対して、中国でのNO_xの排出量の推計結果は依然として入手困難。
- NH₃の排出量(不確かさが大きい)の与え方により、PM_{2.5}の濃度が大きく変わる可能性が高い。NH₄(NH₃) - HNO₃ - NO₃のガス・エアロゾルの配分がどの程度正しいかを含めて検討する必要がある(観測にも課題はある)。
- (中国の)PM_{2.5}の再現性をあげるにはモデルの水平・鉛直解像度を細かくする必要がある(同時に正確な気象条件の再現も重要)

- 越境・国内起源のPM_{2.5}濃度の見積もりの精緻化
- 硝酸塩(NO₃)の測定結果のモデルでの検証
- 排出量推計の更新(2010年以降の)。NH₃排出量も
- モデルのPM_{2.5}過小の原因の究明
- エアロゾル組成の観測データ(特に、中国国内の観測データ)の整備
- ライダーや地上設置偏光OPC観測結果の利用(既存の黄砂ライダーネットワークは、比較的簡単にPM_{2.5}ライダーネットワークに変更可能)
- 衛星観測データの活用(エアロゾルの光学的厚さの観測など面的な把握の活用)