

5-1408

「PM_{2.5}予測精度向上のためのモデル・発生源データの改良とエアロゾル揮発特性の評価」

研究代表者 菅田誠治 (国研)国立環境研究所

研究実施期間: 平成26-28年度

累積予算額: 154,734千円

随行者

森野悠 国立環境研究所 サブ1

佐藤圭 国立環境研究所 サブ2

森川多津子 日本自動車研究所 サブ3

研究提案の背景

環境省PM_{2.5}専門家会合報告書(2013年2月):

「現在のシミュレーションモデルではPM_{2.5}の定量的な予測は困難」

「注意喚起の正確性を高めるためには、実測値だけでなく、シミュレーションモデルによる濃度予測も併用することが有効と考えられる。

そのため、二次生成メカニズムの解明と排出インベントリの整備を早急に進めるとともに、シミュレーションモデルの精緻化を図り、予測精度の向上に早急に取り組んでいく必要がある。」

研究体制

課題代表: 菅田誠治

サブテーマ①

国立環境研究所

菅田誠治*、森野悠、五藤大輔

有機エアロゾル揮発特性の
計算手法の精緻化による
PM_{2.5}予測モデルの改良

シミュレーション成果①

有機エアロゾル
計算スキーム改良
成果③

有機&硝酸塩エアロゾル
排出量データの改良
成果②&④

実験・測定による揮発性評価

サブテーマ②

国立環境研究所

佐藤圭*、猪俣敏、伏見暁洋、
田邊潔、藤谷雄二、近藤美則

有機エアロゾルの揮発特性および化学性状に
関する実験的研究

排出量

サブテーマ③

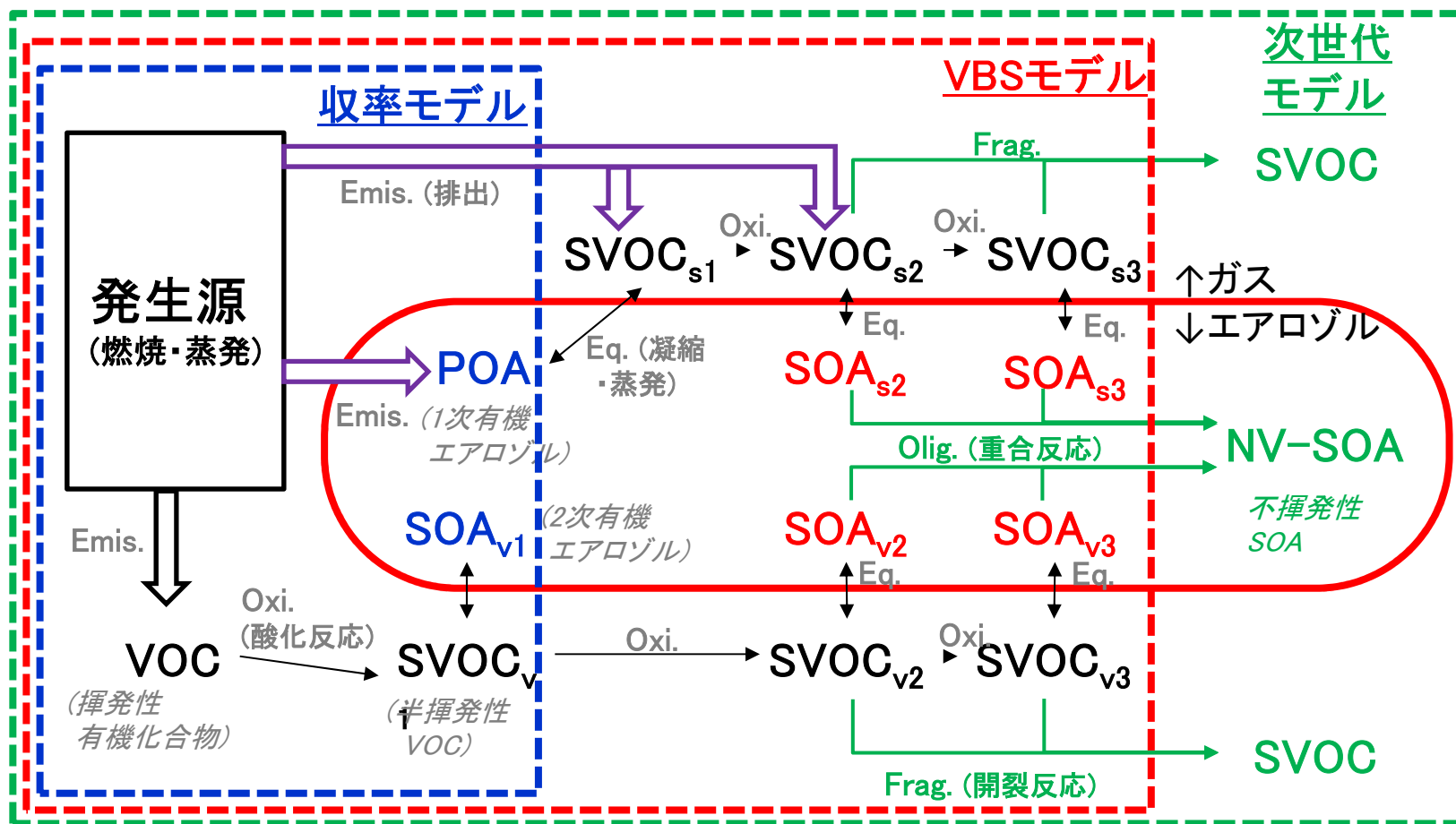
日本自動車研究所

森川多津子*

窒素化合物インベントリ改良
および有機エアロゾルの
揮発特性データ構築

成果前半＝揮発性基底関数 (volatility basis set: **VBS**) モデルの導入・改良

- ① モデル導入の効果確認 (OA総量およびOA揮発性分布の再現性検証)
- ② 排出量の改良 (POA・SVOC・IVOC排出量の揮発性分布の導出)
- ③ モデルの改良 (SOA揮発特性の再現性向上のためのモデル改良)



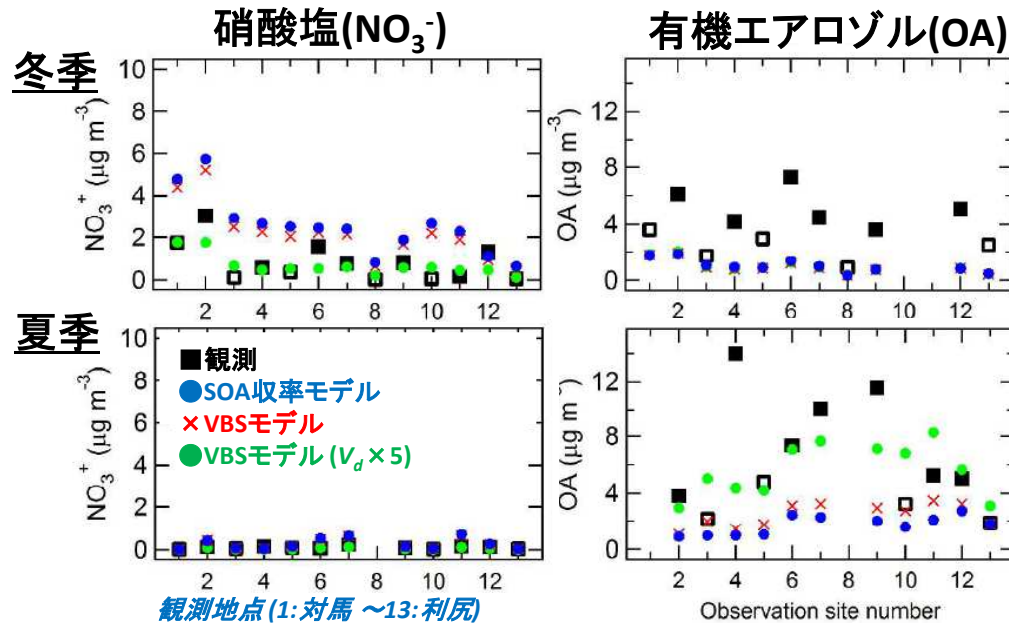
成果① VBSモデル導入の効果確認(OA総量およびOA揮発性分布の再現性検証)

問題意識

SOAモデルにおいて、SVOC(半揮発性有機化合物)の多段階酸化反応(エイジング反応)が未考慮→VBSモデルで多段階酸化反応の寄与を評価

三次元モデルによるPM_{2.5}成分濃度の再現性検証

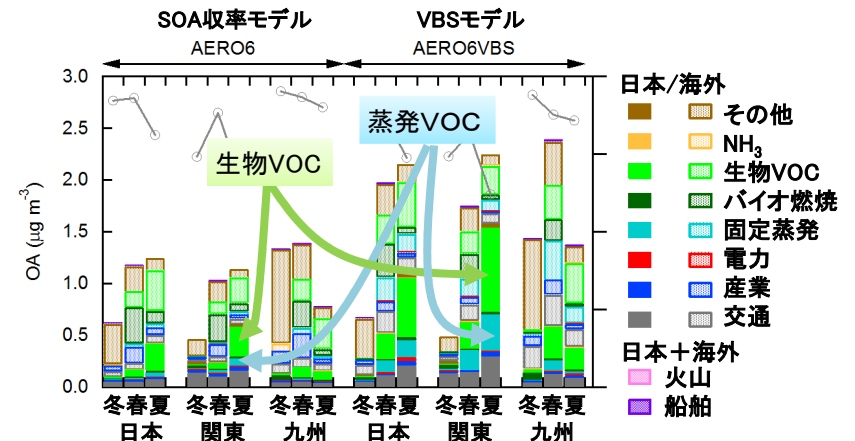
気象モデル(WRF v3.3.1)–化学輸送モデル(CMAQ v5.0.2)



HNO₃, NH₃乾性沈着速度を変更した結果、モデル/観測比が15→**3.7**(冬季)、3.5→**0.9**(夏季)に改善

VBSモデルでSVOCのエイジングを考慮した結果、モデル/観測比が0.37→**1.16**(夏季)に改善

有機エアロゾル濃度に対する発生源寄与推計



VBSモデルを用いることにより、PM_{2.5}に対する**固定蒸発VOC**(VOC規制対象)や**生物VOC**の寄与が春季・夏季に顕著に増大→有機マーカーなどの観測データを基に今後検証。

成果

- ✓ SVOCのエイジング反応を導入することにより、OA再現性が顕著に向上
- ✓ VBSモデルを用いて、人為・生物VOCのPM_{2.5}濃度に対する重要性を解明

成果③ 実験・測定との比較検証に基づくモデルの改良 (SOA揮発特性の再現性向上のためのモデル改良)

- (i) プロトン移動反応質量分析計 (PTR-MS) および
液体クロマトグラフ質量分析計 (LC-MS) での
生成物の化学分析による揮発性分布の評価
- (ii) SOAの加熱実験による加熱応答の測定 (TD-AMS) およ
び既知成分の加熱応答との比較
- (iii) SOAの希釈実験による希釈応答(揮発)の検証



国立環境研
6m³チャンバー

全実験リスト

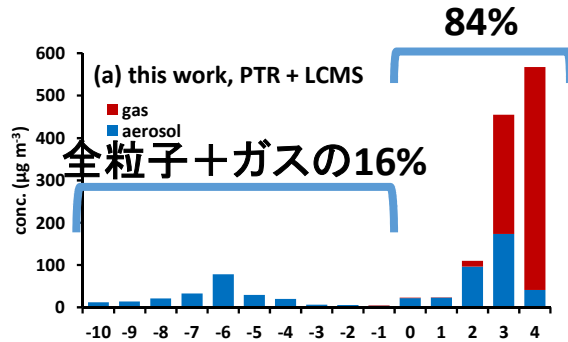
No.	反応系	RH	[HC] ₀ (ppb)	[O ₃] ₀ (ppb)	[NO] ₀ (ppb)
1	α-pinene/O ₃ /Et ₂ O	<1%	1,063	1,237	-
2	α-pinene/O ₃ /Et ₂ O	<1%	839	949	-
3	α-pinene/O ₃ /Et ₂ O	<1%	544	1,023	-
4	α-pinene/O ₃ /Et ₂ O	<1%	510	1,078	-
5	α-pinene/O ₃ /Et ₂ O	<1%	529	1,133	-
6	α-pinene/O ₃	<1%	107	580	-
7	α-pinene/O ₃ /CO	<1%	309	646	-
8	α-pinene/O ₃	<1%	318	589	-
9	α-pinene/O ₃	<1%	154	622	-
10	α-pinene/O ₃ (+ aging)	<1%	163	530	-
11	TMB/NO + light	<1%	1,479	-	1,085
12	TMB/NO + light (+ aging)	<1%	1,484	-	1,191
13	TMB/NO + light	<1%	1,500	-	1,208
14	TMB/NO + light	<1%	1,526	-	1,214
15	TMB/NO + light	<1%	1,515	-	1,195
16	TMB/NO + light	<1%	1,488	-	1,203
17	TMB/NO + light	<1%	1,513	-	1,184
18	α-pinene/O ₃ /Et ₂ O	~40%	未評価	1,091	-
19	α-pinene/O ₃ /Et ₂ O	~40%	455	1,091	-
20	α-pinene/O ₃ /Et ₂ O	~40%	455	1,091	-
21	α-pinene/O ₃ /Et ₂ O	~40%	455	1,091	-
22	α-pinene/O ₃	~40%	142	1,091	-

Et₂O: ジエチルエーテル(OH捕捉剤), CO(OH捕捉剤), 1,3,5-TMB: 1,3,5-トリメチルベンゼン

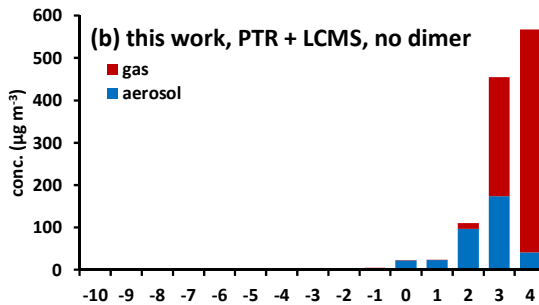
成果③ 実験・測定との比較検証に基づくモデルの改良(続き)

(i) PTR-MSおよびLC-MSでの生成物の化学分析による揮発性分布の評価

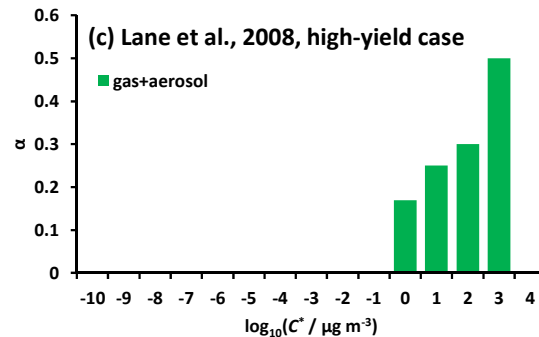
PTR-MSとLC-MSで測定された揮発性分布の合成



上図からダイマー相当成分を除いた分布



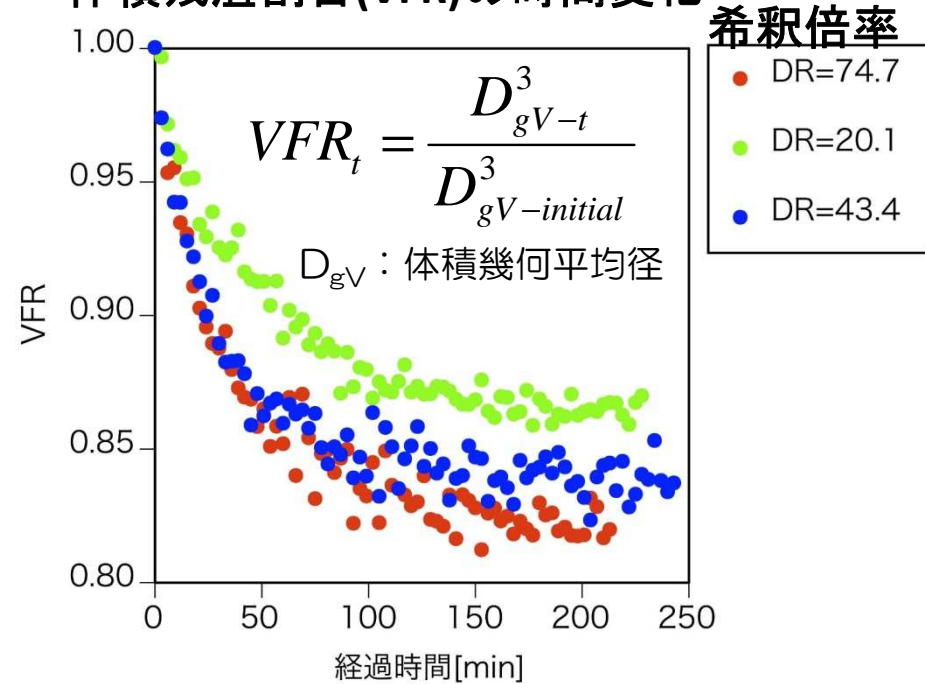
VBSモデルで採用しているα-ピネンSOAの揮発性分布



⇒化学分析で得られた揮発性分布から現状のVBSモデルに採用されている分布に似た成分(84%)とダイマーによる成分(16%)があることが明らかになった。

(iii) SOAの希釈実験による希釈応答(揮発)の検証

Ex-chamber法による体積残渣割合(VFR)の時間変化



得られたVBSモデルへの示唆

1. **ダイマー生成を取り込むべきである。**
2. **ガス粒子平衡までに数時間かかることから、(平衡でない)動力学的な計算が必要。**
→ **モノマー⇔ダイマーの重合、分解に時間スケール差がある**と考えるのが妥当。

成果後半＝有機 & NO₃-エアロゾルに係る排出量の時空間分解の改良

VBSモデル用PM & SVOC排出量作成 ⇒紹介済み
(成果②)

NO_x:火力発電所排出時刻分布見直し ⇒成果④-1
として紹介

NH₃:畜産からの排出地域分布見直し ⇒成果④-2
として紹介

NH₃:作物別施肥時期を考慮した改良 ⇒成果④-3
として紹介

調理からのPM_{2.5}排出量の日変化見直し

本日
紹介せず

野焼きの有機エアロゾル発生の調査・数値化

成果④ 硝酸塩エアロゾル(NO₃⁻)に係る排出量データの改良

④-1 火力発電所からのNO_x排出量の月・時刻変化

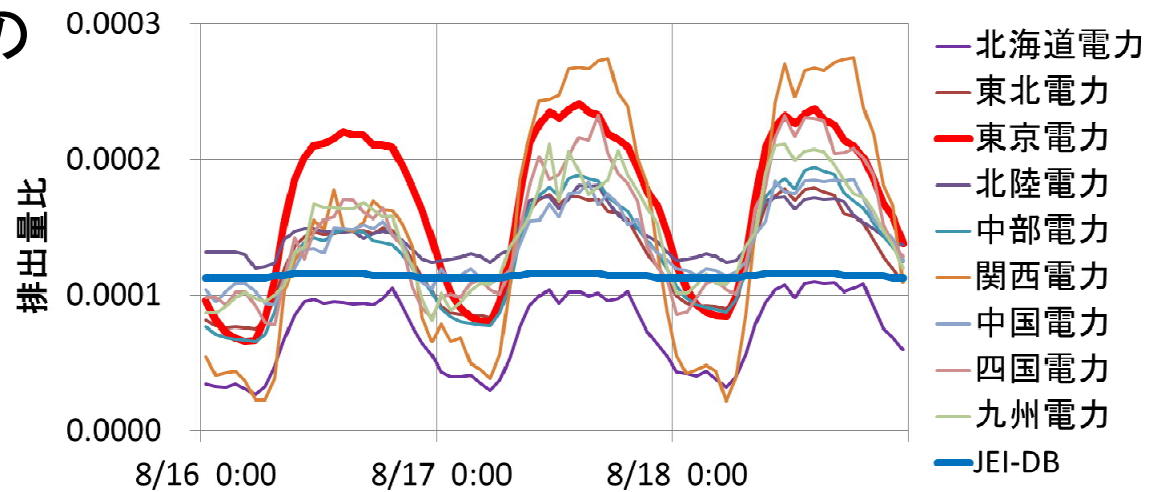
事業者別火力発電所の
1時間単位排出量比
(年間排出量を1とした比)
←電気事業者公開の需給電力データ

得られた詳細なNO_xの
時間変化の影響を
見積るために



計算方法

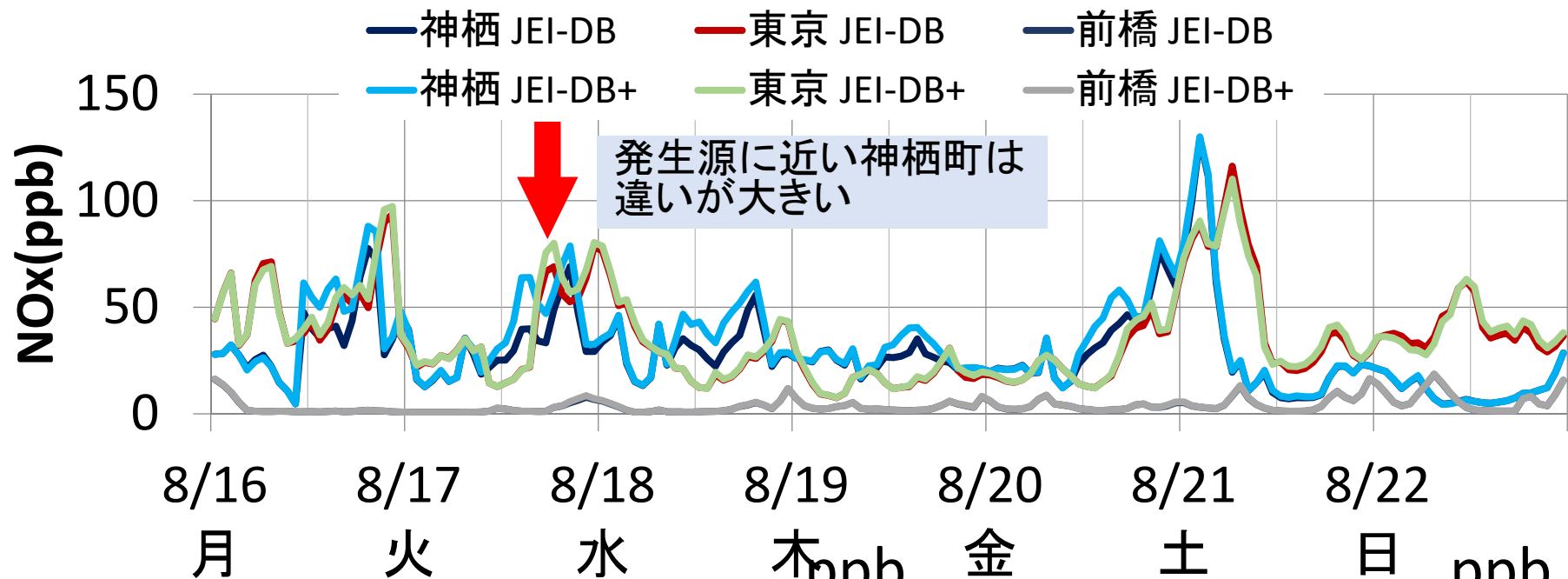
- 化学輸送モデル : CMAQv4.7.1
- 気象モデル : WRFv3.3
- 客観解析データ : JMA GPV MSM
- 化学モジュール : SAPRC99
- 粒子モジュール : aero5
- 水平分解能 : 5km
- グリッド数 : 水平62 × 62 鉛直34



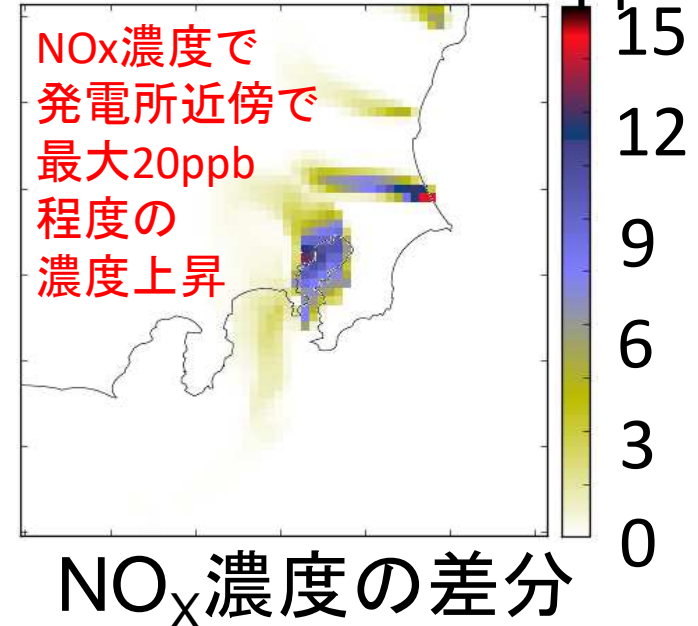
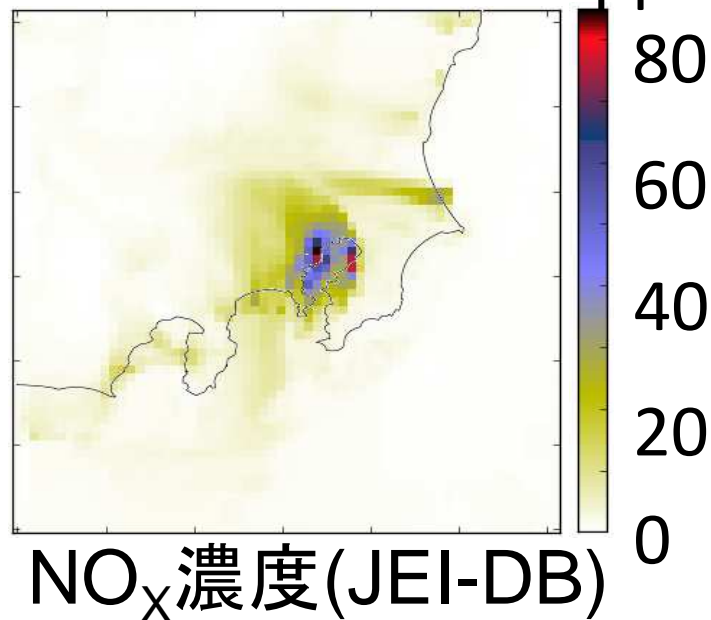
計算領域 ●は火力発電所



④-1 火力発電所からのNOx排出量の月・時刻変化(続き)



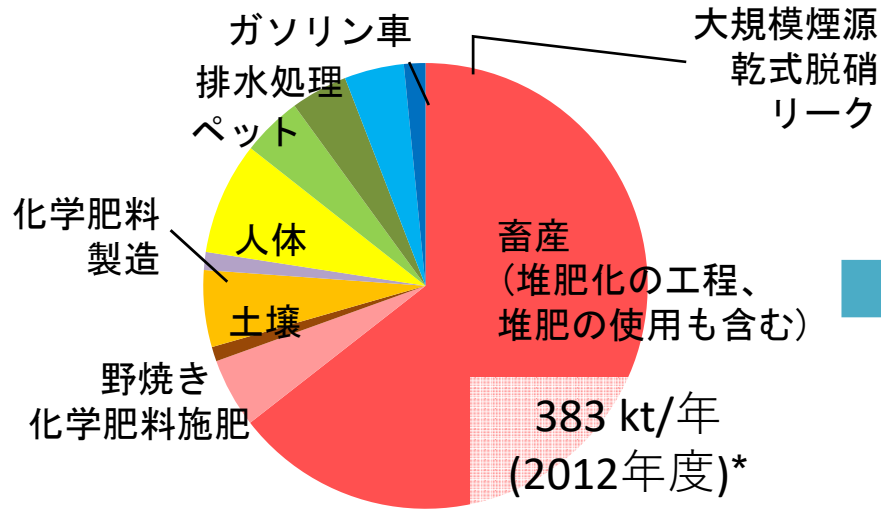
2010年
8月17日
17時



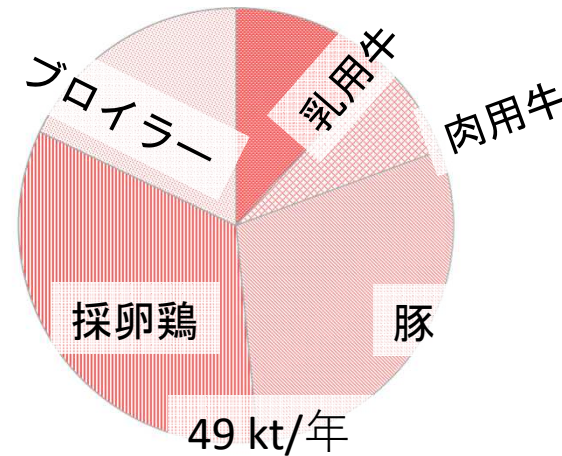
④ 硝酸塩エアロゾル (NO₃⁻) に係る排出量データの改良

④-2 NH₃時空間分布の改良 (畜産からの排出地域配分見直し)

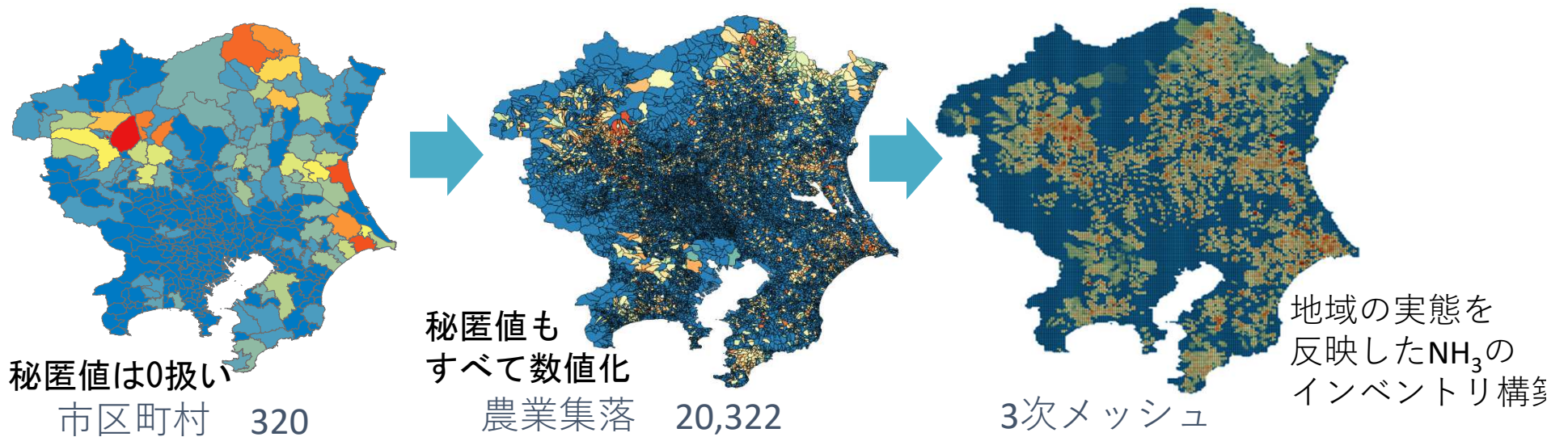
全国のNH₃排出量内訳



関東の畜産からのNH₃排出量内訳



農業センサス農業集落データを用いた地域配分の見直し



※ 平成27年度環境省PM2.5排出インベントリ及び発生源プロファイル策定業務

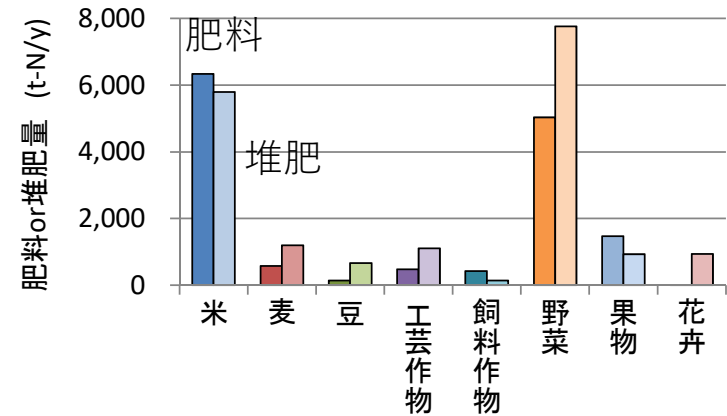
④-3 NH₃時空間分布改良(施肥時期の考慮)

農業生産物別の施肥基準
市区町村別農業生産物作付面積+月別出荷量

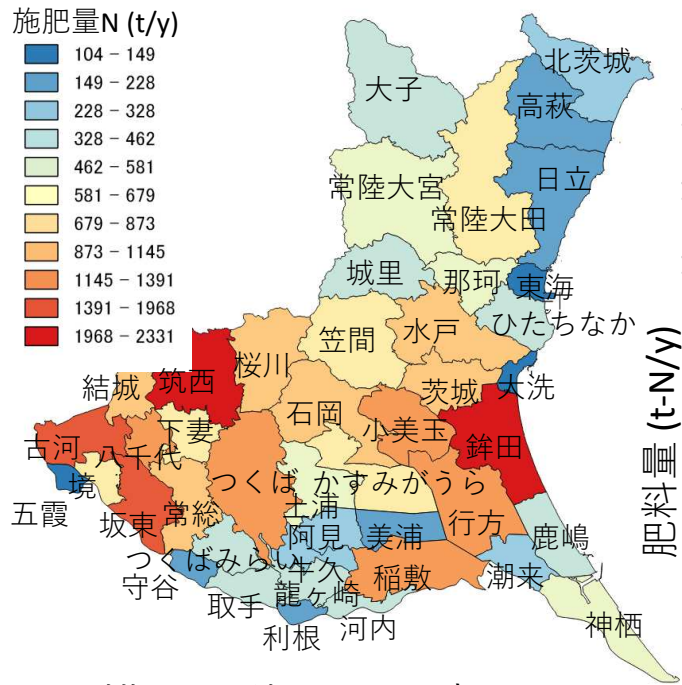


茨城県における市区町村別の134作物別の
施肥量と施肥時期を算出

作物種類別の肥料および堆肥量

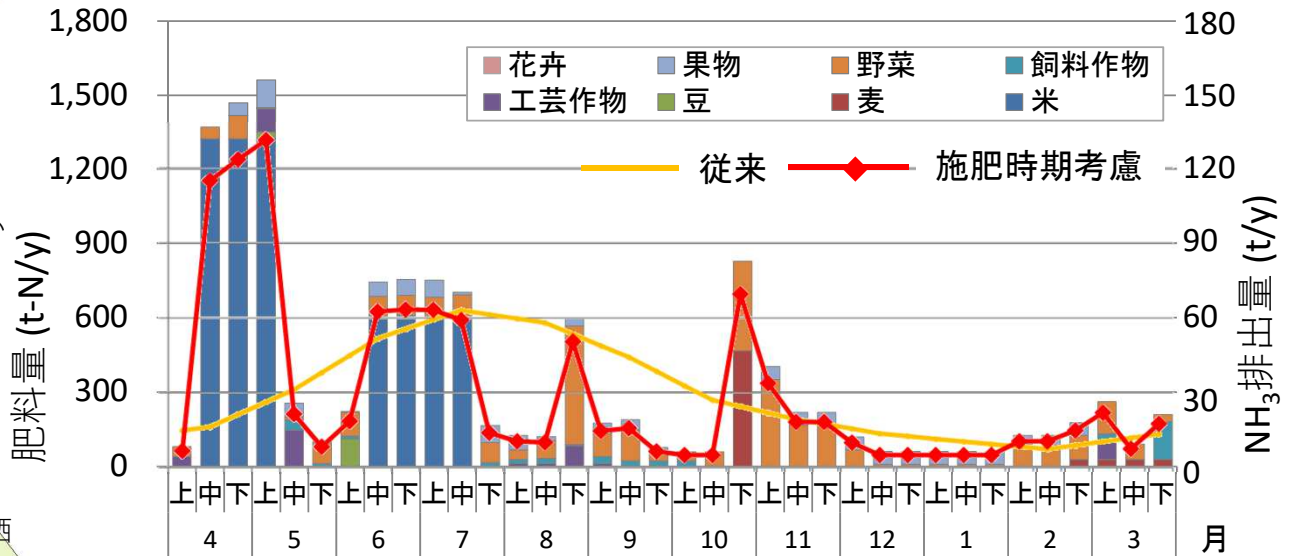


施肥量の分布



耕地面積とは対応しない

作物種類別に時期を考慮した肥料使用量およびNH₃排出量



春季は稲、秋季は野菜への施肥実施
→ NH₃排出量に反映

本課題による主な成果

VBSモデル導入⇒

効果を強いて
定量的に書くと

有機エアロゾル(OA)の再現性が向上
凝縮性ダスト考慮しVBS用排出量改良⇒

観測1/3⇒1程度

冬季のOA過小が改善される可能性

都市で最大数倍

VBSモデルにオリゴマーの遅い分解を考慮⇒

二次生成OAの揮発特性を再現

10%程度増大

火力発電所からのNO_x排出量⇒

地域別時刻別の時間変化

近傍で最大20ppb

畜産起源の地域配分の見直し⇒

詳細な地域分布を反映したNH₃分布

かなり細かな
水平分布

施肥時期の考慮⇒

詳細な月旬別のNH₃変化

施肥分は時期毎に
数倍～数分の一

⇒ 課題： 不確定性を詰めつつ、さらに改良する必要性

本課題の成果に係る「査読付」論文(国際誌・国内誌)の発表

執筆者名	発行年	論文タイトル	ジャーナル名等
Morino Y. <i>et al.</i>	2015	Verification of Chemical Transport Models for PM2.5 Chemical Composition Using Simultaneous Measurement Data over Japan	Aerosol and Air Quality Research (15), pp.2009-2023
Sato K. <i>et al.</i>	2016	Terpenylic acid and nine-carbon multifunctional compounds formed during the aging of β -pinene ozonolysis secondary organic aerosol	Atmospheric Environment (130), pp.127-135

他6(含む投稿中1)本。 以上は全て、脚注又は謝辞に「環境省」・「環境研究総合推進費」・「課題番号」を記載。

国内外における口頭発表(学会等)

学会等名称	年月	発表タイトル	その他特記事項(あれば)
International Co-Design Workshop on Earth observation in Support of the Sustainable Development Goals	2017.1	Improving Observation networks and Numerical models to meet atmospheric environmental standards.	
32nd Symposium on Chemical Kinetics and Dynamics	2016.6	Volatility of alpha-pinene ozonolysis secondary organic aerosol: Importance of heterogeneous reactions	

他33件。 以上は全て「環境省」・「環境研究総合推進費」・「課題番号」を明示。

研究成果を用いた、日本国民との科学・科学技術対話の活動(研究開始～プレゼン前日まで)

③大学・研究機関の一般公開での研究成果の講演

実施日	主催者名	講座名	開催地	参加者数	講演した「研究成果」、「参加者との対話の結果」等
H26.7.19 H27.7.18 H28.7.23	国立環境研究所	夏の大公開	茨城県	当該企画へは毎年数百名	・PCコーナーのスライドショーでシミュレーション結果を含む研究成果を紹介

⑤インターネット上での研究成果の継続的な発信

開始日	種類	アクセス/参加者数	発信した「研究成果」等
H29.3.	研究情報誌	近日公開	<p>・「環境儀」で課題の成果について紹介</p>  

国立環境研究所における「PM_{2.5}の動態把握およびシミュレーションに関する研究」のあゆみ

国立環境研究所では、微小粒子状物質 (PM_{2.5}) の動態把握に関する研究を行っています。ここでは、その中から、観測および数値シミュレーションに関するものについて、そのあゆみを紹介します。

年度	概要
2001～2005	PM _{2.5} -DEP 単の大粒状粒子状物質の動態解析と影響評価プロジェクト (重点研究プロジェクト)
2007～2009	光化学オキシダントと粒子状物質等の汚染特性解析に関する研究 (気象庁等との共同研究)
2008～2010	都市大気環境中における微小粒子二次生成物質の動態解析と予測 (物質研究)
2010～2012	PM _{2.5} と化学オキシダントの動態解析と発生源解明に関する研究 (気象庁等との共同研究)
2011～2013	気象の環境研究部門の有機物動態による PM _{2.5} 汚染の動態解析と発生源解明と評価 (気象庁等との共同研究)
2013～2015	PM _{2.5} の動態解析、発生の環境影響評価をもちいたす汚染源解明の取り組み (共同研究)
2014～2016	PM _{2.5} 動態解析向上のための PM _{2.5} 発生源解明とエアロゾル特性の解析 (環境省等との共同研究)
2016～	PM _{2.5} の環境影響評価をもちいたす気象庁 / 広域的汚染源解明の取り組み (共同研究)

行政ニーズに即した 環境政策への貢献事例

概要(簡潔に)	その他特記事項(あれば)
<p>中央環境審議会大気・騒音振動部会微小粒子状物質等専門家委員会(第3回)において、本課題の取組を委員に説明</p>	

他1件。

行政ニーズに即した 今後の環境政策への貢献「見込み」

概要(簡潔に)	その他特記事項(あれば)
<p>成果の一つである有機エアロゾル計算精度向上に精度の向上した数値予測はPM2.5の注意喚起の判断に貢献できる可能性がある。</p>	