

JATOPⅢ成果発表会

# 大気研究WG報告

— Part1 —

2018年3月8日

大気研究WG

伊藤 晃佳



**JATOP**

JAPAN AUTO-OIL PROGRAM

# 本日の報告内容

## 1. JATOPⅢ大気研究の取り組み

JATOPⅡの成果・課題／JATOPⅢ大気研究の方向性／JATOPⅢ成果概要

## 2. 排出インベントリの改善

排出インベントリの改善／都内沿道でのPM<sub>2.5</sub>の継続観測

## 3. 大気質モデルの改善

SOA生成モデル改良／気象モデルWRF／改善効果の検証

## 4. 2025年度を対象とした将来PM<sub>2.5</sub>濃度推計

推計シナリオ／2025年大気質予測／発生源感度解析

## 5. 大気研究成果の活用

排出インベントリの公開／情報提供

## 6. まとめと今後の課題

# 【用語説明】大気シミュレーションの構造

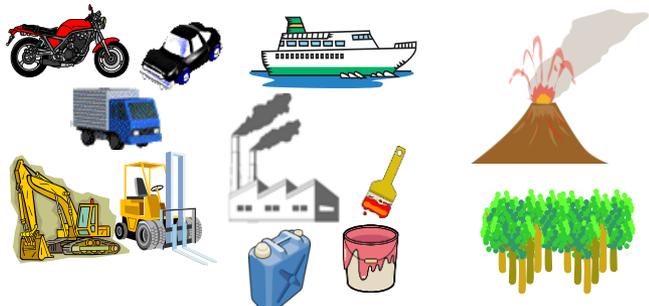
## 大気シミュレーション

### 気象モデル

時々刻々変化する気象を再現。  
(風速・風向、気温、湿度、降水等)

### 排出インベントリ

大気汚染物質が、いつ、どこから、  
どれだけ排出されたか。



自動車

自動車以外

自然発生源

入力

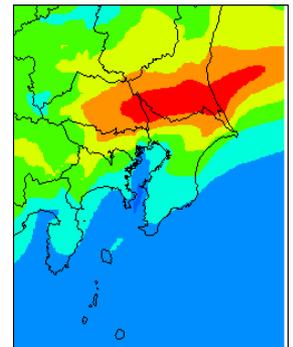
### 大気質モデル

時々刻々変化する大気中の  
汚染物質濃度を計算。  
(NO、NO<sub>2</sub>、O<sub>3</sub>、VOC、SO<sub>2</sub>、CO、  
PM<sub>2.5</sub>、SPM等)

入力

出力

汚染物質  
濃度



## JATOP II 大気研究(2012~2014年度)の成果

### (1) 大気シミュレーションの改善

- ・ 排出インベントリ(2010年度対象)作成
- ・ 大気質モデルCMAQ ver5.0に更新
- ・ 将来PM<sub>2.5</sub>濃度の推計(2020年度を対象)

⇒ [次ページへ](#)

### (2) PM<sub>2.5</sub>の大気実態の解明

- ・ PM<sub>2.5</sub>の高濃度時の成分組成の実地観測
- ・ PM<sub>2.5</sub>の成分毎の発生由来(圈内生成成分と圏外流入分)の解析

### (3) 二次有機粒子の生成メカニズムの解明

- ・ 植物起源VOCからの粒子生成収率のチャンバ試験とモデル化に向けた定式化

### (4) JATOP排出インベントリの公開・提供

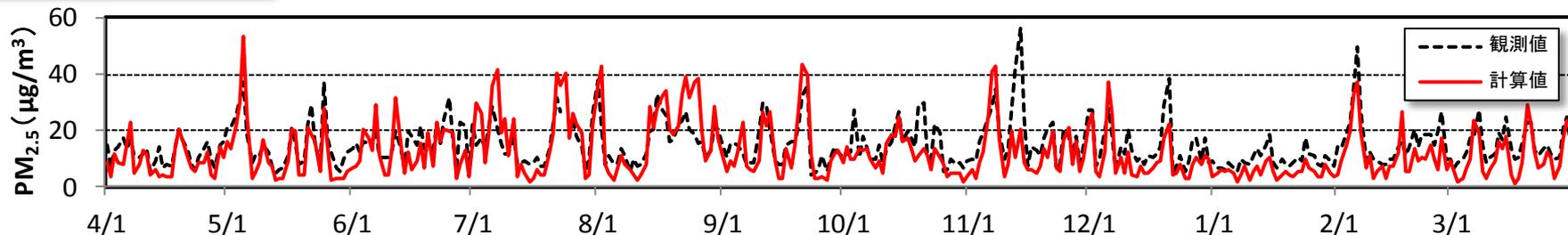
## 排出インベントリ整備事業

- ・ 従来は、JATOP大気研究において、独自に排出インベントリの整備・改良を実施。
- ・ 2013年度以降、環境省\*において、JATOP排出インベントリをベースとして、整備・改良・年次更新が進められている。

## 大気シミュレーションによる濃度計算値と観測値の比較(2010年度を対象)

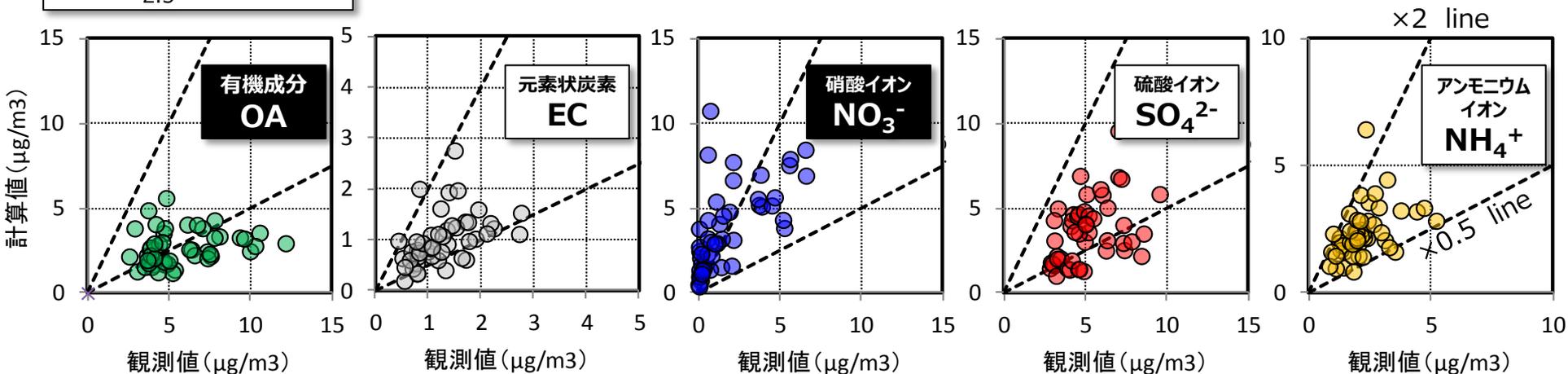
### PM<sub>2.5</sub>重量濃度

東京都綾瀬一般局、2010年度の日平均濃度。



### PM<sub>2.5</sub>成分濃度

全国12観測局、2010年度の季節平均濃度。グラフ上のラインは、観測値の2倍および0.5倍の範囲を表す。



- PM<sub>2.5</sub>重量濃度: 大気シミュレーションによる日平均濃度の現況再現性は概ね良好。
- PM<sub>2.5</sub>成分濃度: 大気シミュレーションによる計算値は、改善が必要。  
特に、有機成分(OA)の過小評価、硝酸イオン(NO<sub>3</sub><sup>-</sup>)の過大評価の改善が必要。

## JATOP II 終了時点での研究課題

### 1. 排出インベントリの改善

- ・排出量や組成の実測データが不足
- ・発生源毎の不確実性改善、測定法整備が必要

### 2. 大気質モデルの改善

- ・PM<sub>2.5</sub>中の有機成分(OA)の過小評価
- ・PM<sub>2.5</sub>中の硝酸イオン(NO<sub>3</sub><sup>-</sup>)の過大評価

### 3. 植物起源VOC\*からのSOA\*\*生成モデルを構築

- ・光化学チャンバ実験による科学的なメカニズムの解明が必要

### 4. 将来大気質推計

- ・推計手法や手順が未確立(原単位、活動量推定)

## JATOP III 大気研究の方向性

- ・ JATOP III 大気研究の実施を通じ、大気質モデル研究/国の排出インベントリ整備が加速するように貢献する。
- ・ フレームワークをステークホルダーと分担し、研究の重複を避ける。
- ・ 外部の研究結果も積極的に活用する。

\* VOC: Volatile Organic Compounds, 揮発性有機化合物

\*\*SOA: Secondary Organic Aerosol, 二次有機成分

## JATOPⅡモデルを改善 (発表 Part 1)

## JATOPⅢモデルの活用 (発表 Part 2)

### 排出インベントリの改善

- ・稼動実態に基づき、排出の時間変動や地域分布を精緻化
- ・排出インベントリ改善の方向性を見出した

### 沿道PM<sub>2.5</sub>の継続観測

### 大気質モデルの改善

- ・気象モデル改良 (客観解析データ高精度化)
- ・植物起源VOCからのSOA生成モデルを構築・実装

### 光化学チャンバ実験

### 成果の活用

- ・ガソリン車PM
- ・アンモニア排出係数見直し

情報提供

### 環境省 排出インベントリ 検討会

インベントリの整備・更新

### 改善効果の検証

- ・有機成分(OA)の改善
- ・硝酸イオン(NO<sub>3</sub><sup>-</sup>)の改善

### 2025年将来大気質推計

- ・将来推計シナリオに基づく、自動車及び自動車以外発生源からの将来排出量 (PM<sub>2.5</sub>, NO<sub>x</sub>, SO<sub>x</sub>, VOC, NH<sub>3</sub>)
- ・将来PM<sub>2.5</sub>濃度の推計

### 発生源感度解析

- ・国外人為起源、自動車、自動車以外燃焼、非燃焼蒸発、船舶の発生源寄与解析

### 大気研究成果の活用

- ・官公庁、自治体、研究所、大学での成果の活用

### 今後の改善に向けた 課題の整理

# 本日の報告内容

## 1. JATOPⅢ大気研究の取り組み

JATOPⅡの成果・課題／JATOPⅢ大気研究の方向性／JATOPⅢ成果概要

## 2. 排出インベントリの改善

排出インベントリの改善／都内沿道でのPM<sub>2.5</sub>の継続観測

## 3. 大気質モデルの改善

SOA生成モデル改良／気象モデルWRF／改善効果の検証

## 4. 2025年度を対象とした将来PM<sub>2.5</sub>濃度推計

推計シナリオ／2025年大気質予測／発生源感度解析

## 5. 大気研究成果の活用

排出インベントリの公開／情報提供

## 6. まとめと今後の課題

# 排出インベントリの改善

## 排出インベントリの改善取組み

以下の排出インベントリの改善を、JATOPⅢ大気シミュレーションに取り入れた。

### ① 自動車

対象物質：ガソリン乗用車からの一次PM\*  
アンモニア(PM中のアンモニウムイオンの前駆物質)

実施内容：環境省排出インベントリ検討会の結果を取り入れた

### ② 非メタン炭化水素(NMHC)の固定発生源(30種類のうち17種類)

対象物質：非メタン炭化水素(PM中の有機成分(OA)の前駆物質)

実施内容：排出の時刻変動を実態を元に改善

### ③ その他

環境省排出インベントリ検討会での改善結果を全面的に取り入れた  
火山からの塩化水素(PM中塩化物イオンの前駆物質)排出量の検討

\* 一次PM: 一次とは、「発生源から直接排出される」の意味。  
PMは、Particulate Matter(粒子状物質)の略。

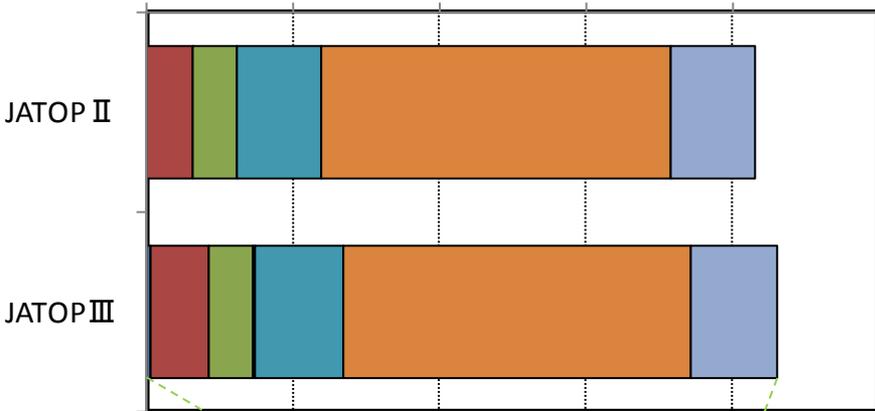
# 排出インベントリの改善(①自動車)

## ガソリン乗用車の排出原単位

環境省排出インベントリ検討会で取りまとめられたガソリン乗用車からの一次PMとアンモニアの排出原単位を、JATOPⅢ大気シミュレーションに取り入れた。

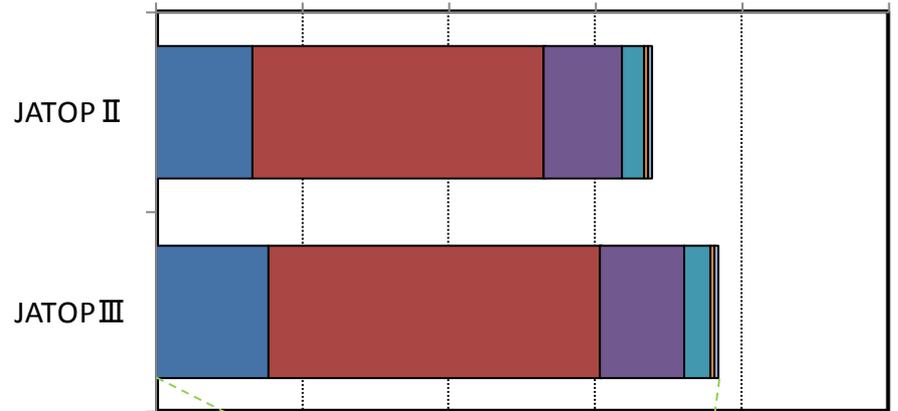
自動車からの年間排出量 PM<sub>2.5</sub> (t/年)

0 5,000 10,000 15,000 20,000 25,000



自動車からの年間排出量 アンモニア (t/年)

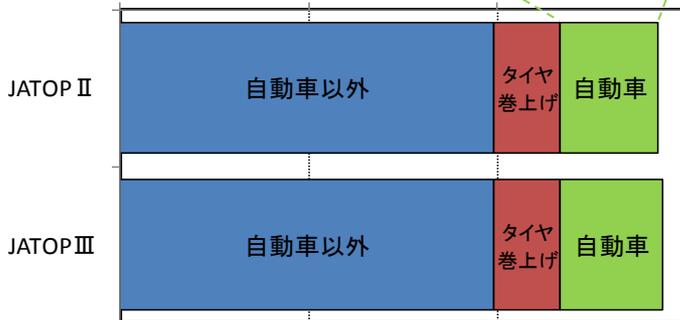
0 5,000 10,000 15,000 20,000 25,000



■ 軽乗用車 ■ 乗用車 ■ バス ■ 軽貨物車 ■ 小型貨物車 ■ 普通貨物車 ■ 特種車

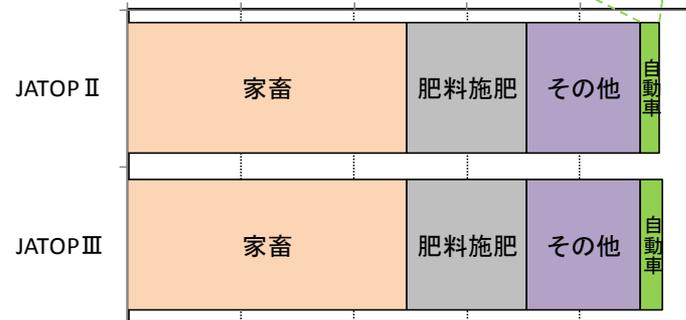
全国年間排出量 -PM<sub>2.5</sub> (t/年)

0 40,000 80,000 120,000



全国年間排出量 アンモニア (t/年)

0 100,000 200,000 300,000 400,000 500,000

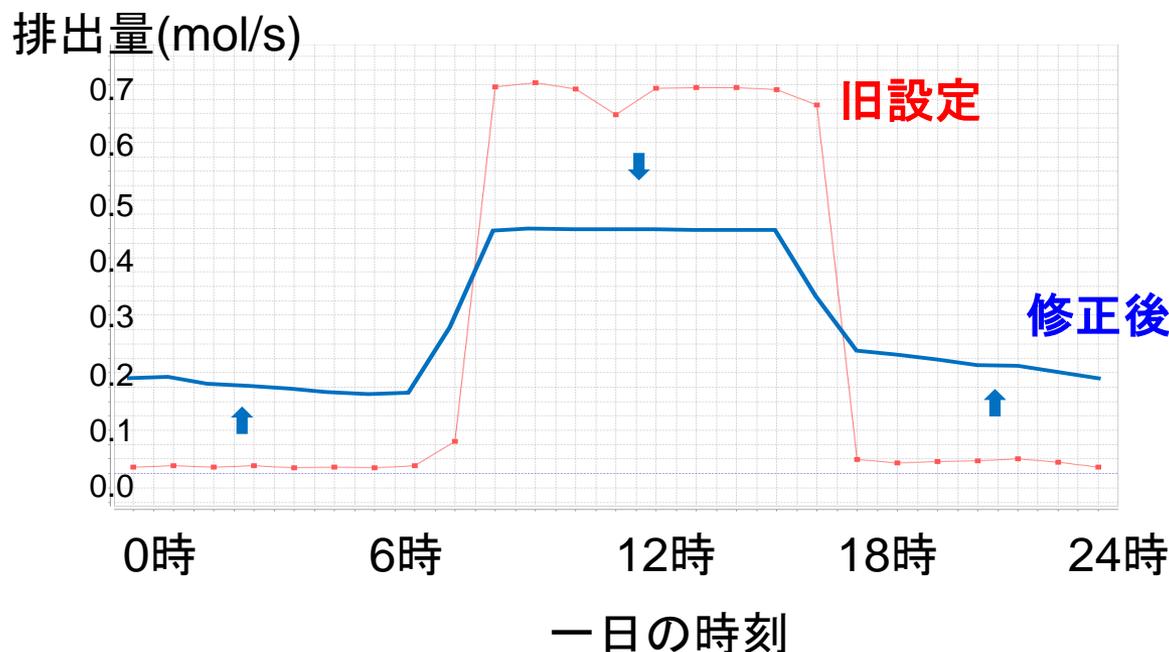


# 排出インベントリの改善(②NMHC固定発生源)

大気質モデルへの入力データの作成方法は、トップダウンアプローチ。  
年間排出量を基に、より細かく按分して作成する。

(例:年間排出量 ⇒ 月別排出量に配分 ⇒ 日別排出量に配分 ⇒ 時刻別排出量に配分)

## NMHC排出量の時刻別配分の修正の例

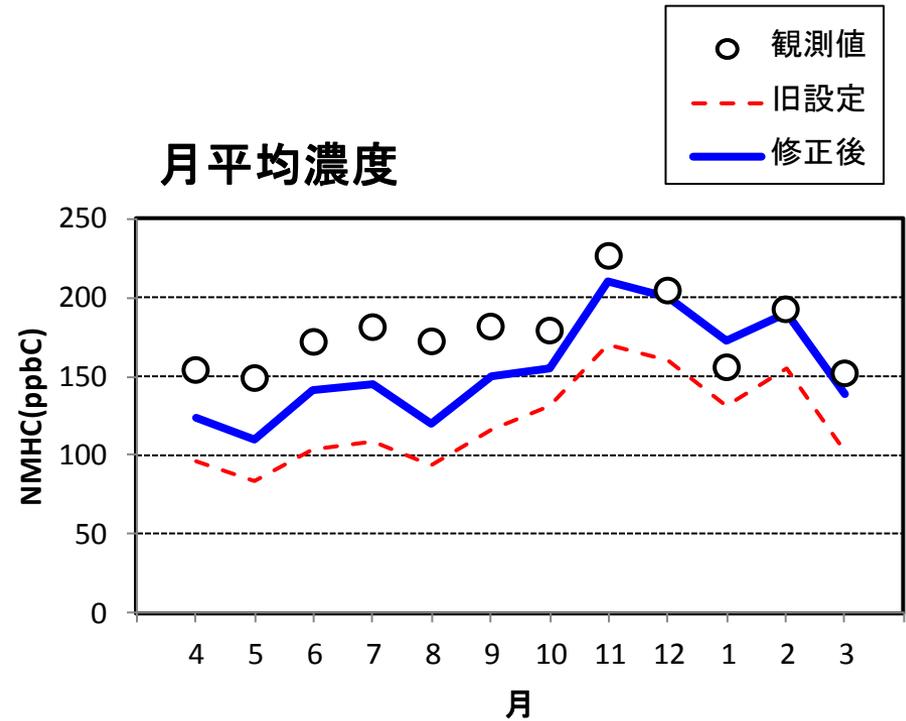
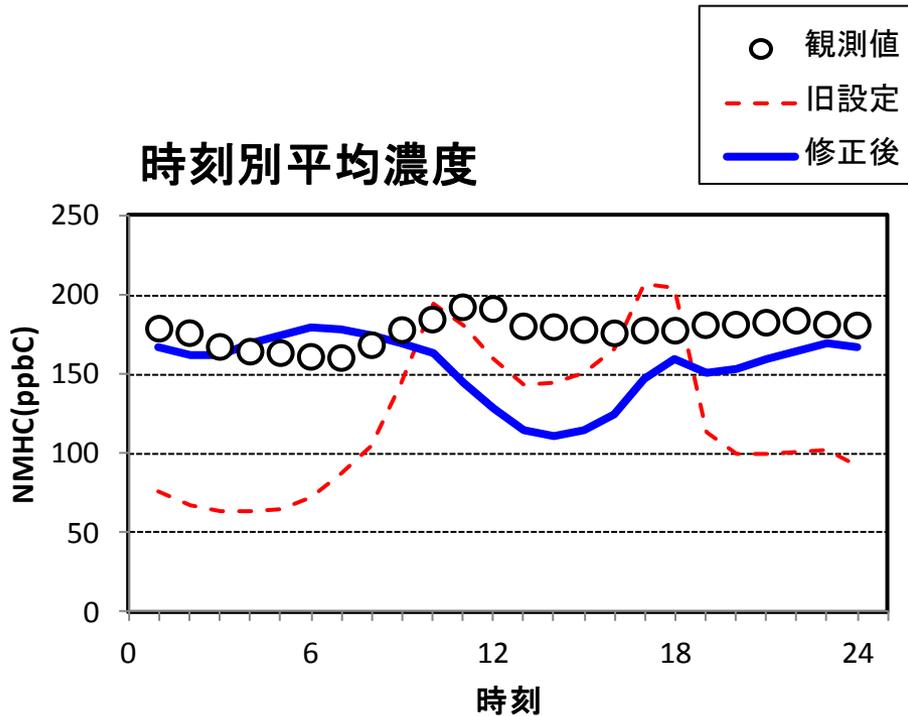


年間排出量の総量は変えず、時刻別排出量への配分を実態に応じて修正。  
(対象:NMHC発生源30種類のうち、17種類の時刻別配分を修正)

\* NMHC: Non-Methane Hydro Carbon, 非メタン炭化水素

# 排出インベントリの改善(②NMHC固定発生源)

- ・ NMHC固定発生源からの排出量の時刻変動を修正した。
- ・ 排出量修正の効果を、大気シミュレーションで計算したNMHC濃度により評価。



2010年4月～2011年3月、国設東京でのNMHC濃度を元に算出。

- ・ 排出インベントリの修正により、NMHC濃度の時刻別変化や月別変化の現況再現性が改善された(大気シミュレーションのNMHC濃度の過小評価を改善する方向)。
- ・ 但し、日中及び夏季の過小評価については、さらに改善の余地がある。

# 都内沿道でのPM<sub>2.5</sub>の継続観測

## PM<sub>2.5</sub>継続観測の概要

地点: 東京都世田谷区 玉川野毛公園

(環状八号線に面した観測局を設置)

期間: 2013年7月～2017年7月

(1週間フィルターサンプリングを4年間継続実施)

観測対象:

### ① PM<sub>2.5</sub>中の主要成分

- ・無機イオン (SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, Cl<sup>-</sup>, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>等)
- ・炭素成分 (OA, EC)

### ② PM<sub>2.5</sub>中の炭素詳細成分

- ・水溶性のOA、非水溶性のOA
- ・放射性炭素同位体 (<sup>14</sup>C)

観測のねらい:

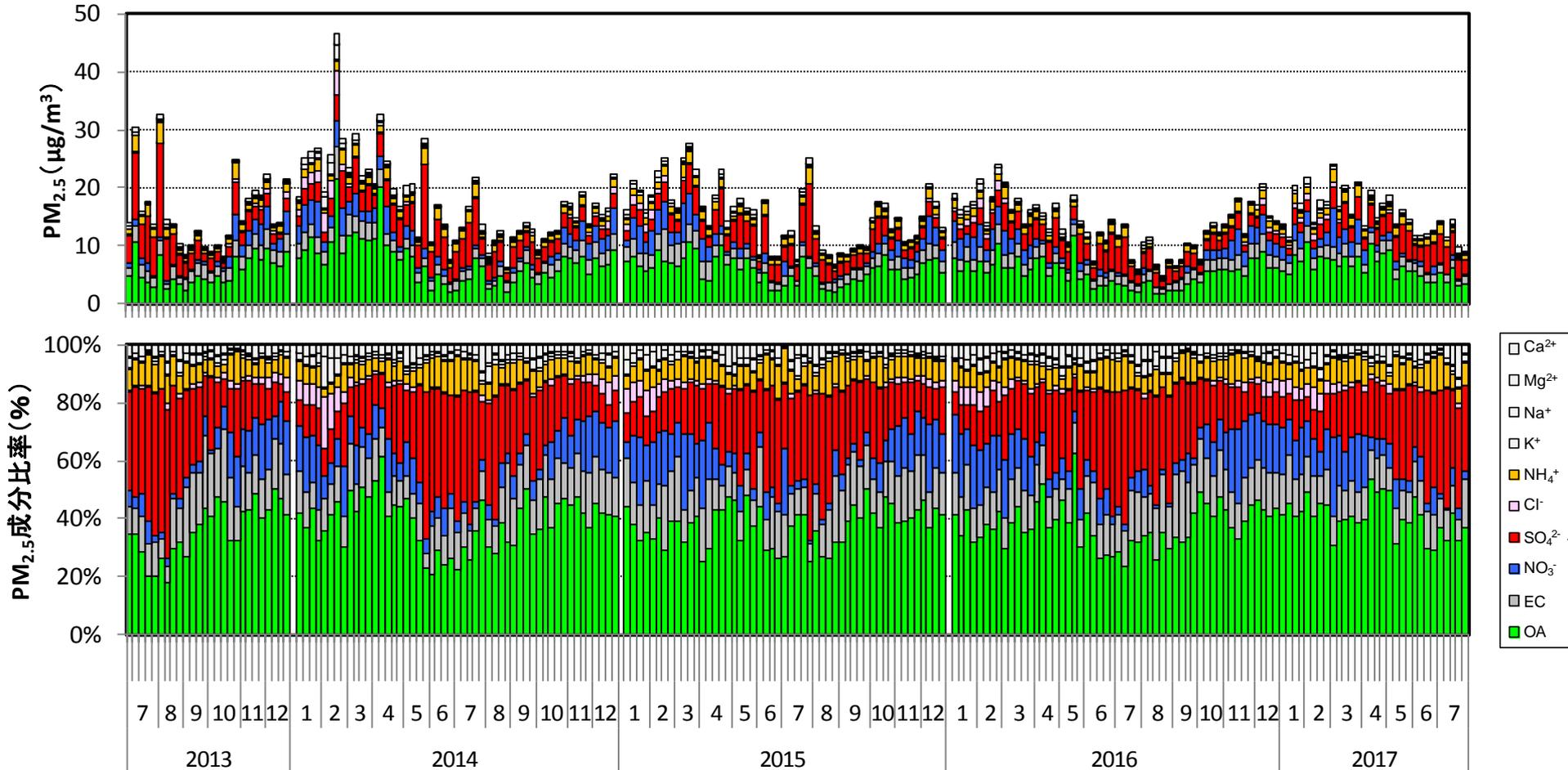
- ① 沿道PM<sub>2.5</sub>中の主要成分の濃度実態を毎年連続して把握
- ② 炭素詳細成分分析により、発生起源別の解析を実施

(例: 一次・二次粒子、化石燃料起源と植物起源)



# 継続観測の結果 (PM<sub>2.5</sub>主要成分)

観測のねらい: ① 沿道PM<sub>2.5</sub>中の主要成分の濃度実態を通年連続して把握。



4年間継続することで、主要成分の周期性(通年OA, 夏SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, 冬NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, 1~2月Cl<sup>-</sup>)や、2016年以降のPM<sub>2.5</sub>高濃度週の発生頻度が減少傾向にあることが分かった。

# 継続観測の結果 (PM<sub>2.5</sub> 中炭素詳細成分)

観測のねらい: ② 炭素詳細成分分析により、発生起源別の解析を実施。

## PM<sub>2.5</sub> 中炭素詳細成分分析による発生源の分別

		EC (元素状炭素)	一次OA (一次有機成分)	二次OA (二次有機成分)
			非水溶性 一部、水溶性	水溶性
化石燃料 由来		<sup>14</sup> Cが ゼロ	水溶性考慮	水溶性考慮
植物 起源	燃焼 由来	<sup>14</sup> Cが 含まれる	EC	一次OA
	非燃焼 由来			

### 【用語】

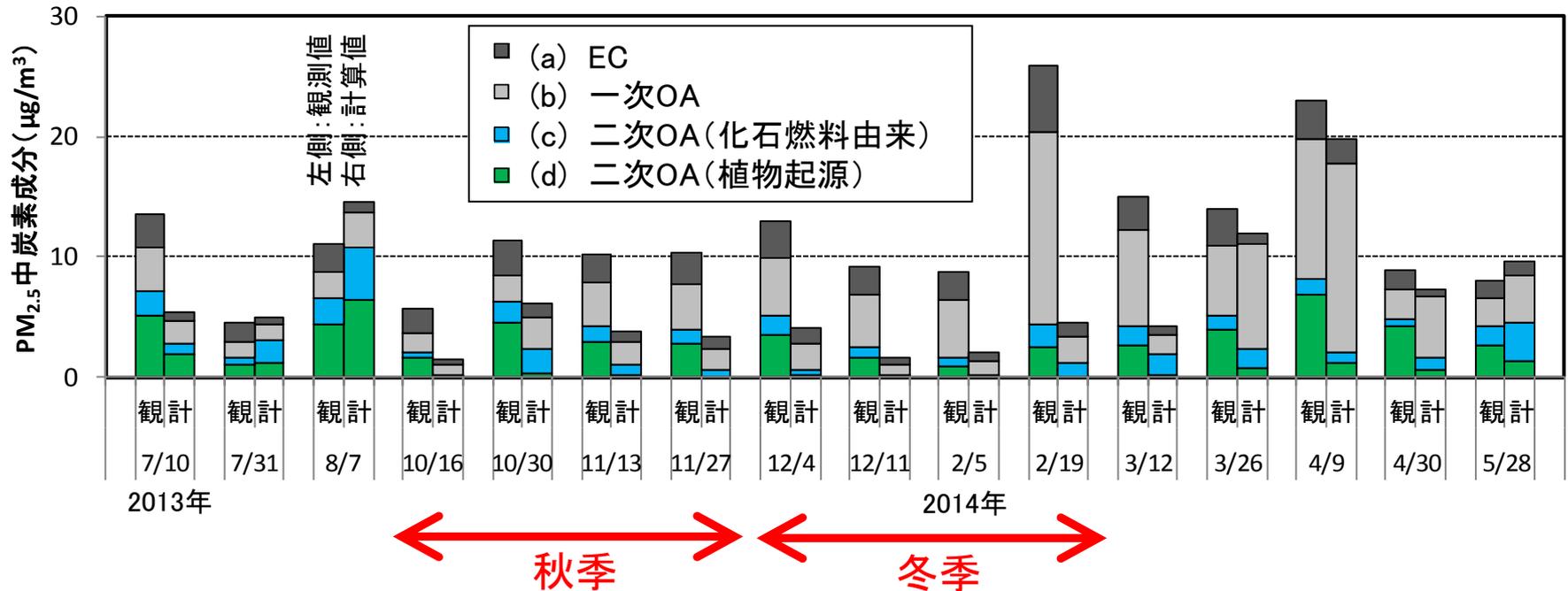
一次OA : PM<sub>2.5</sub> 中の有機成分のうち、排出源から直接排出されたもの

二次OA : PM<sub>2.5</sub> 中の有機成分のうち、大気中での反応により生成されたもの

<sup>14</sup>C : 放射性炭素同位体

# 継続観測の結果 (PM<sub>2.5</sub>中炭素詳細成分)

炭素詳細成分分析の結果を、大気シミュレーションの結果と比較。



(1) 冬季の (b)一次OA: 観測値に比べ、計算値は過小評価

⇒ 要因の一つとして、未把握の発生源の影響(例: 固定発生源の凝縮性ダスト)が考えられる。

(2) 秋季～冬季の (d)二次OA(植物起源): 観測値に比べ、計算値は過小評価

⇒ 前駆物質である植物起源のVOCが、ほぼゼロとなっていることが要因と判明。

⇒ 今後の植物起源VOC排出インベントリの改善の方向性を見出せた。

# 本日の報告内容

## 1. JATOPⅢ大気研究の取り組み

JATOPⅡの成果・課題／JATOPⅢ大気研究の方向性／JATOPⅢ成果概要

## 2. 排出インベントリの改善

排出インベントリの改善／都内沿道でのPM<sub>2.5</sub>の継続観測

## 3. 大気質モデルの改善

SOA生成モデル改良／気象モデルWRF／改善効果の検証

## 4. 2025年度を対象とした将来PM<sub>2.5</sub>濃度推計

推計シナリオ／2025年大気質予測／発生源感度解析

## 5. 大気研究成果の活用

排出インベントリの公開／情報提供

## 6. まとめと今後の課題

# 大気質モデルの改善

## 大気質モデルの改善取組み

以下の大気質モデルの改善を検討し、二次有機成分(SOA)生成モデルの改良をJATOPⅢ大気シミュレーションに取り入れた。

- ① 植物起源VOCからの二次有機成分(SOA)生成モデルの改良
  - (1) **光化学チャンバ**を用いたSOA生成実験を基に、SOA生成モデルを修正・改良した。
  - (2) 大気質モデル(CMAQ)に、(1)のSOA生成モデルを搭載。
- ② 気象モデルの客観解析データの高精度化/データ同化強度(ナッジング係数)の適正化を検討
- ③ その他のモデル修正

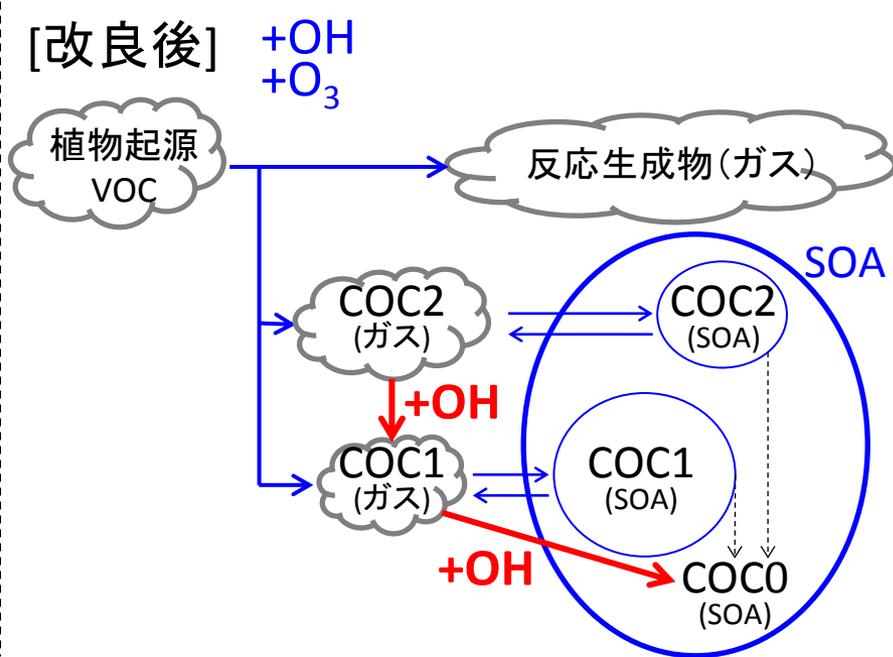
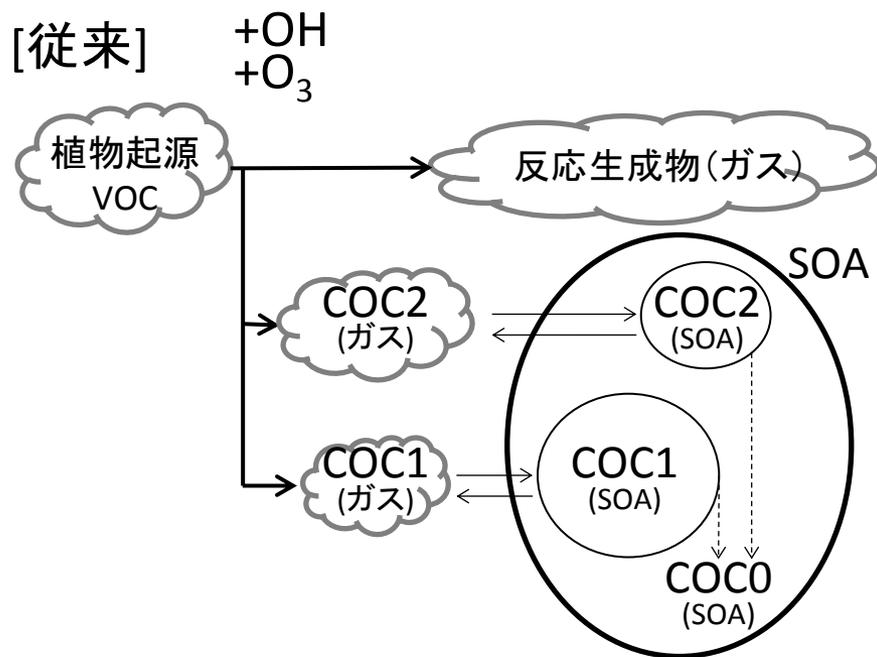


実験装置(光化学チャンバシステム)

# 大気質モデルの改善 (①SOA生成モデル改良)

光化学チャンバ実験の結果を元に、大気質モデル(CMAQ)搭載のSOA生成モデルを修正・改良した。

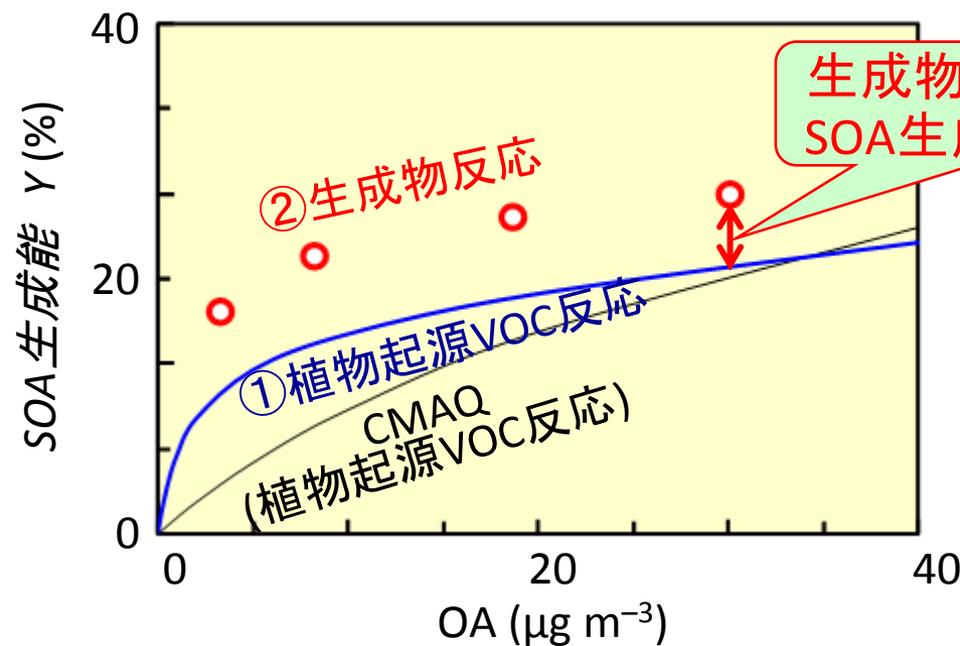
- ① 植物起源VOCからSOAが生成される際の反応パラメータを更新した。
- ② 反応生成物がさらにOHと反応する経路を追加した。



# 大気質モデルの改善 (①SOA生成モデル改良)

デフォルト(CMAQ搭載のSOA生成モデル)との\*SOA生成能 Yの比較

- ① 植物起源VOC反応: 実大気レベルのOA濃度では、SOA生成能が高い。
- ② 生成物反応: 反応経路の追加によりさらにSOA生成能が増加。



SOA生成パラメータ<sup>1)</sup>

<i>i</i>	$\alpha$ (%)	$K_{om}^*$ ( $m^3 \mu g^{-1}$ )	$\Delta H_{vap}$ ( $kJ mol^{-1}$ )	$k_{OH}$ ( $cm^3 molec^{-1} s^{-1}$ )
①	11.3	0.72		
②	22.3	0.011	20	$2.9 \times 10^{-12}$

<sup>1)</sup> 第58回大気環境学会年会要旨集P278

$\alpha$ : 凝縮性生成物(COC)の生成収率

$K_{om}^*$ : COCの粒子になりやすさ

$\Delta H_{vap}$ :  $K_{om}$ の温度依存

$k_{OH}$ : OHとの反応速度定数

植物起源VOCのSOA生成能 (30°C)

夏季・日中条件 ( $[OH] = 6 \times 10^6 \text{ molec cm}^{-3}$ )

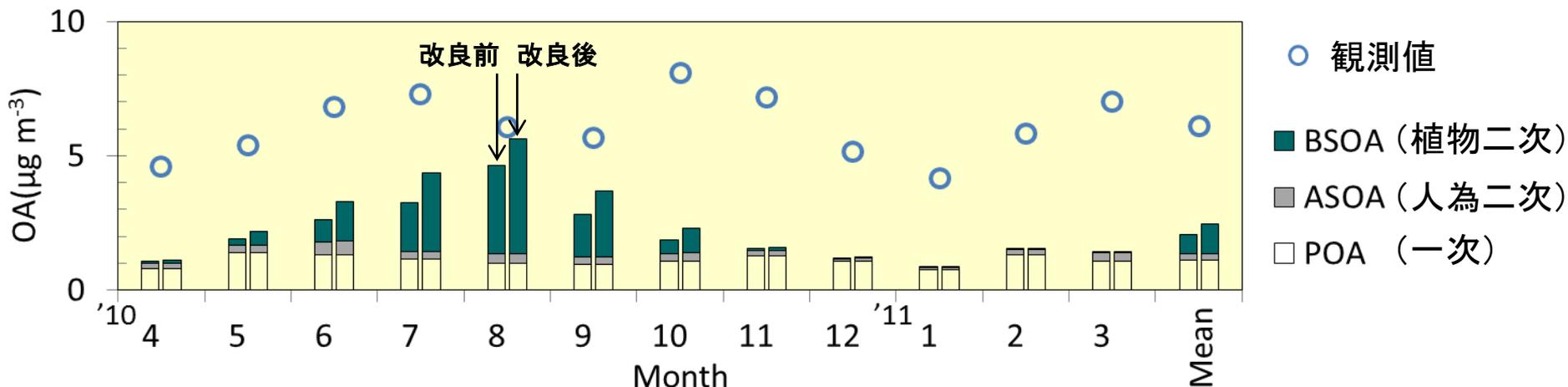
で6時間反応後

\* SOA生成能  $Y = (\text{SOA生成量}) / (\text{前駆物質の炭化水素のHC反応量})$

# 大気質モデルの改善 (①SOA生成モデル改良)

SOA生成モデルを改良した効果を、大気シミュレーションで計算した有機成分(OA)濃度により評価した。

(2010年4月～2011年3月、愛知県長久手での月平均OA濃度)



BSOA: Biogenic SOA 植物起源VOCから生成した二次有機成分(SOA)。  
ASOA: Anthropogenic SOA 人為起源VOCから生成した二次有機成分(SOA)。  
POA: Primary OA 発生源から直接排出された有機成分(OA)。

- SOA生成モデルの改良により、BSOA濃度が年平均で5割増加。  
→ OAの過小評価を改善する方向。
- 但し、観測値との差は大きく、SOA生成モデルや排出インベントリの更新が必要。

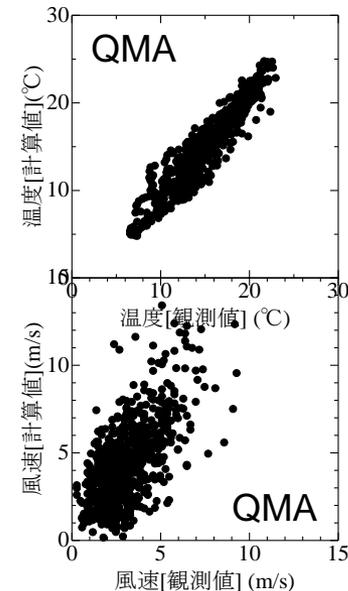
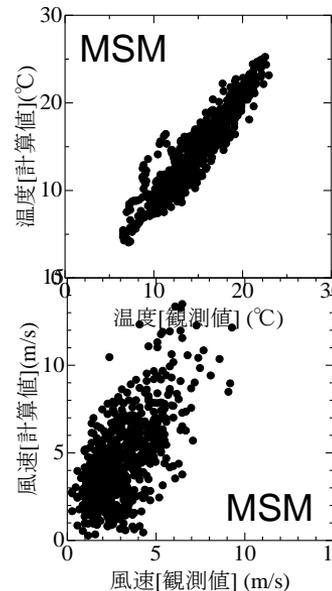
# 大気質モデルの改善(②気象モデル)

客観解析データの高精度化/データ同化強度(ナッジング係数)の適正化を検討。

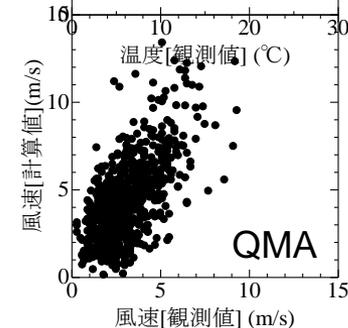
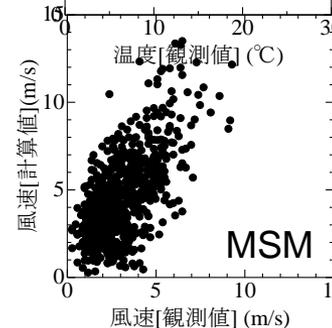
	GPV-MSM-Pall (従来データ)	GPV-QMA (高精度データ)
領域	北緯22.4~47.6度、東経120~150度	
格子解像度	0.1×0.125度	0.05度×0.0625度
時間解像度	3時間	1時間
気圧面物理量	風(水平、鉛直)、気温、 相対湿度	風(水平)、気温
配布	無償(研究用途)	有償

客観解析データの違いによる  
気温・風速の計算結果の違い  
(東京、2014年4月)

気温



風速

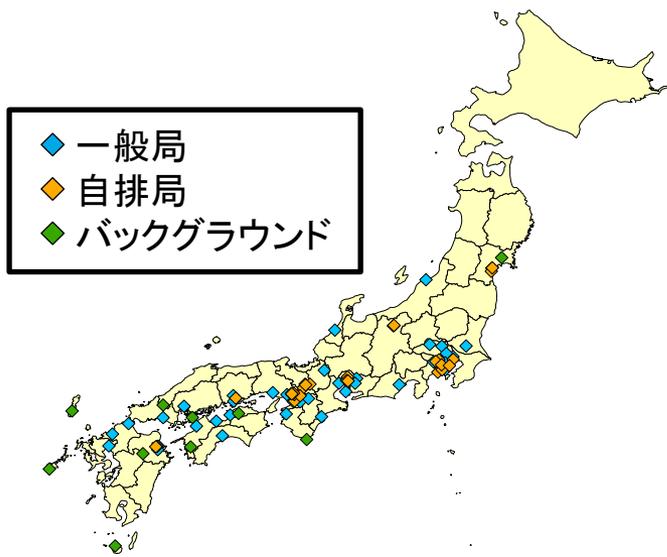


# 改善効果の検証

排出インベントリ改善と、大気モデル改善を取り入れた大気シミュレーションを実施し、改善前のモデル(JATOP IIモデル)の結果と比較した。

対象期間：2012年4月～2013年3月の1年間

対象地点：2012年度PM<sub>2.5</sub>成分観測局(88地点)のうち、マスクロージャ法で観測データの有効性が確認された11箇所を対象地点とした。



対象地点11箇所

- ・宮城県仙台市
- ・埼玉県寄居市
- ・神奈川県横浜市
- ・愛知県名古屋市
- ・大阪府富田林市
- ・福岡県福岡市
- ・茨城県土浦市
- ・東京都八王子市
- ・神奈川県大和市
- ・三重県川越市
- ・山口県周南市

## 排出インベントリ改善

- ・ガソリン乗用車からの一次PM、アンモニア排出を考慮。
- ・固定発生源からの非メタン炭化水素(NMHC)の時刻変動を改善。
- ・環境省排出インベントリ検討会の改善結果を取り入れ。(空間・時間配分の精緻化、曜日考慮の拡大)
- ・火山からの塩化水素排出を考慮。

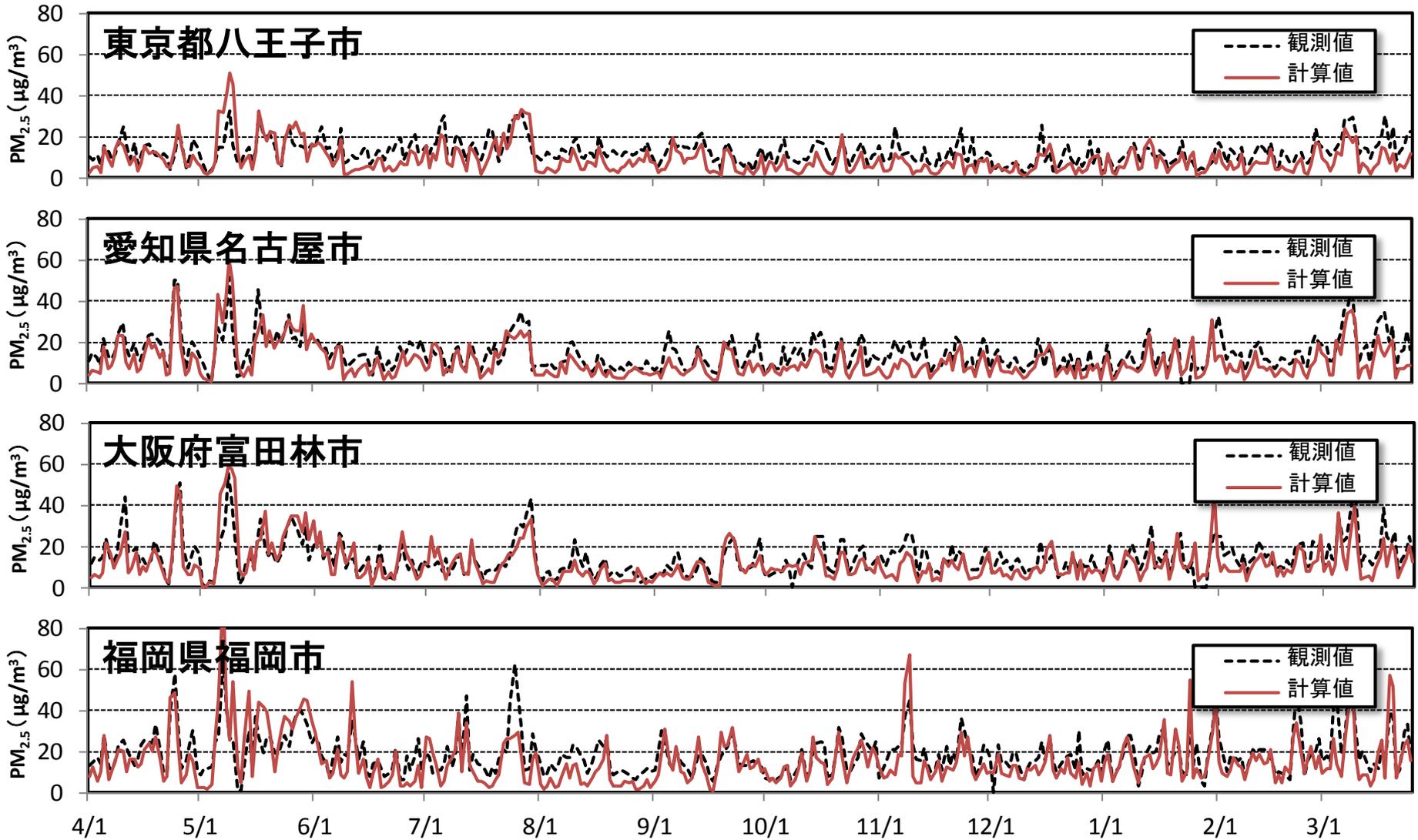
## 大気モデル改善

- ・SOA生成モデルの改良。

マスクロージャー法

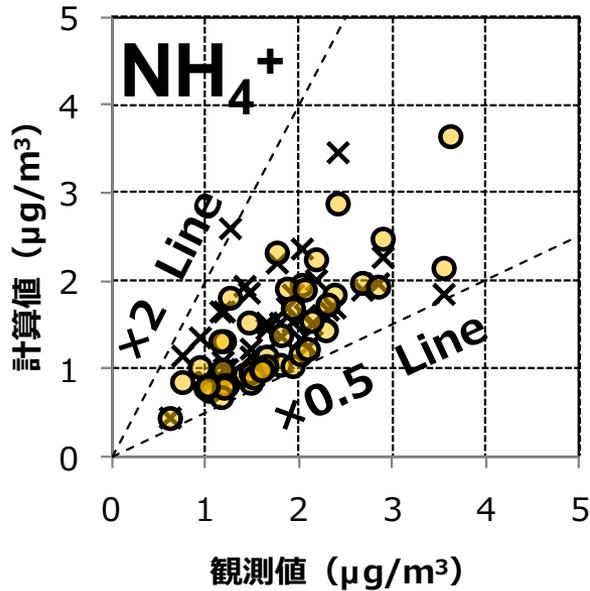
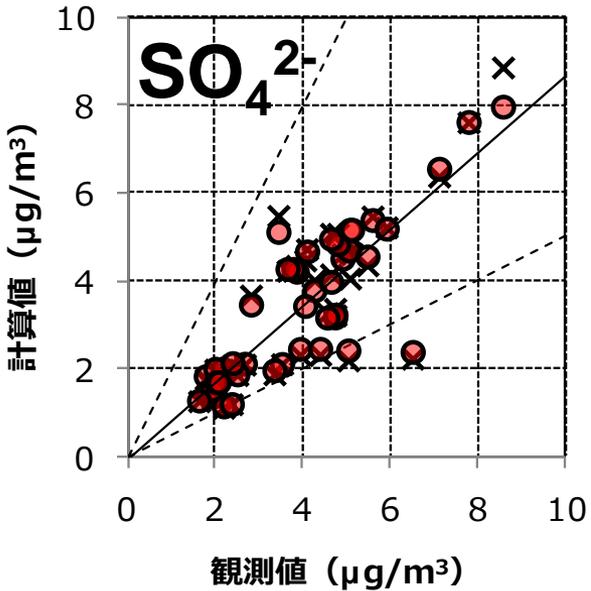
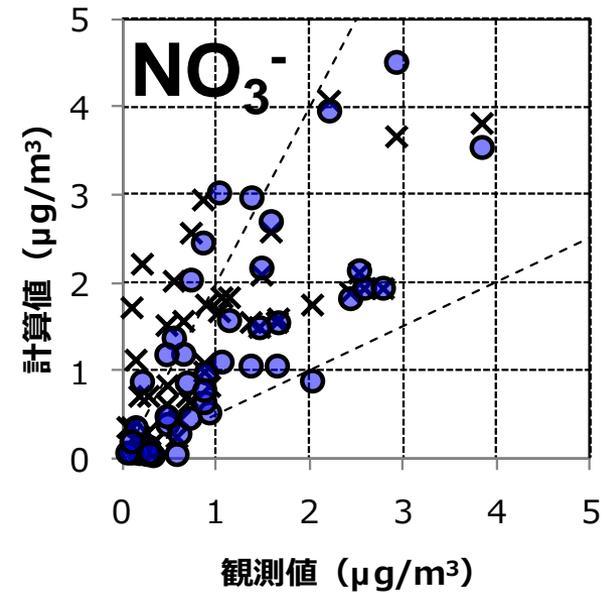
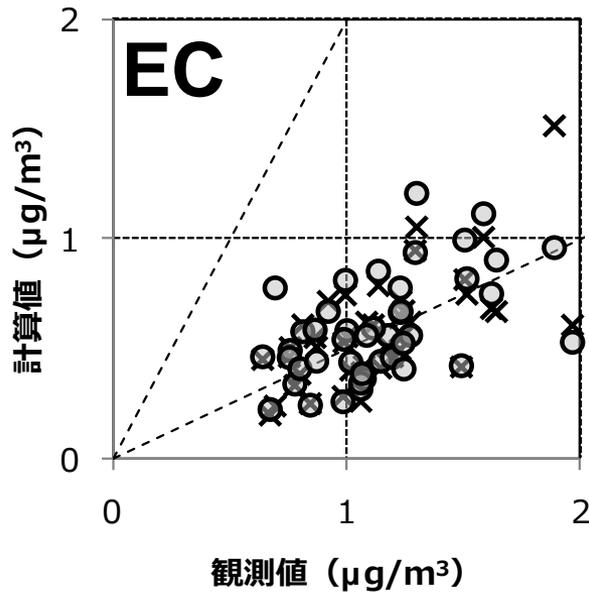
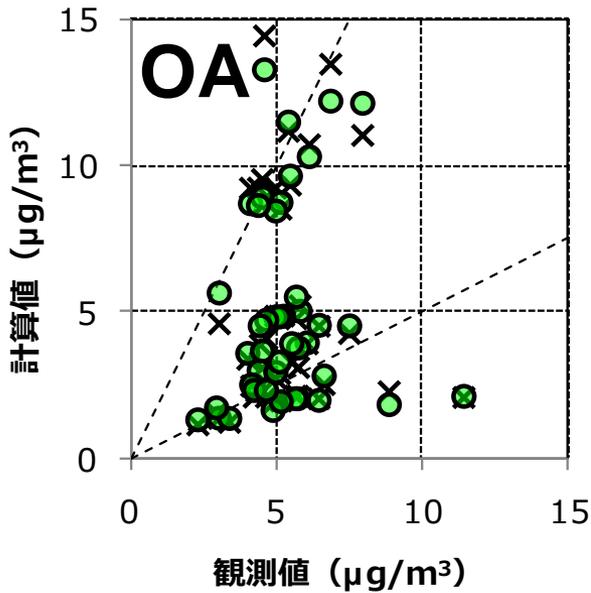
PM<sub>2.5</sub>重量濃度と成分濃度を比較し、測定結果の妥当性を判断する方法

# PM<sub>2.5</sub>重量濃度(観測値と計算値の比較)



PM<sub>2.5</sub>重量濃度(日平均値)の現況再現性は良好(JATOP II と同等の傾向)。

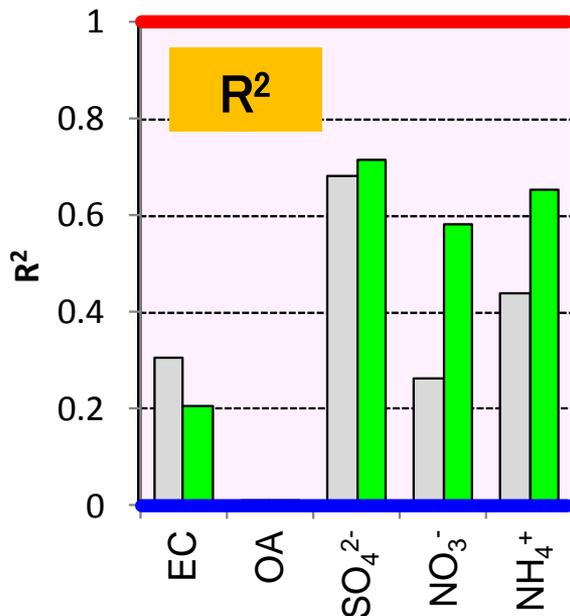
# PM<sub>2.5</sub>成分濃度(観測値と計算値の比較)



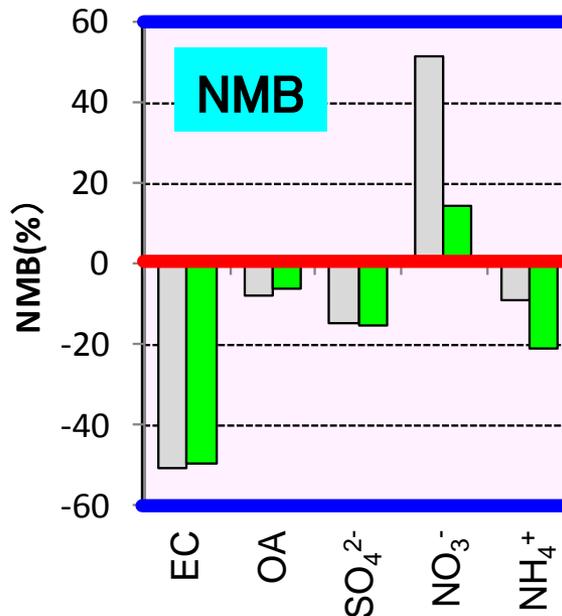
- × JATOP IIモデル (改良前)
- JATOP IIIモデル (改良後)

# PM<sub>2.5</sub>成分濃度(統計指標での比較)

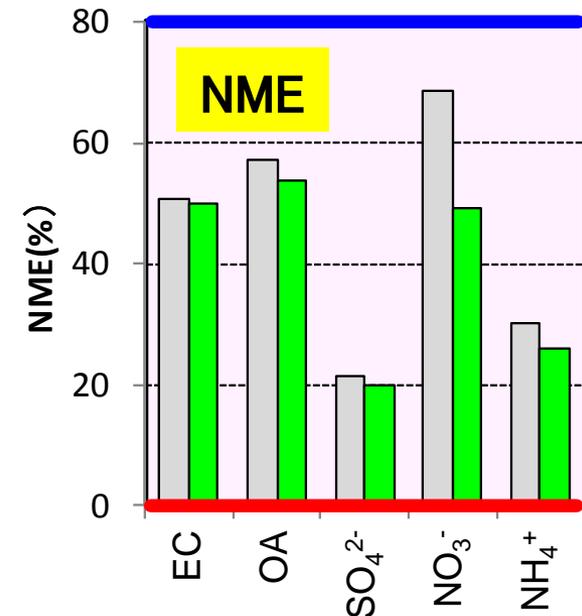
決定係数  
(R<sup>2</sup>)



正規化平均バイアス  
(Normalized Mean Bias)



正規化平均誤差  
(Normalized Mean Error)



	EC		OA		SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>		NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>		NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	
	JATOP II (改良前)	JATOP III (改良後)	JATOP II (改良前)	JATOP III (改良後)	JATOP II (改良前)	JATOP III (改良後)	JATOP II (改良前)	JATOP III (改良後)	JATOP II (改良前)	JATOP III (改良後)
<b>R<sup>2</sup> (-)</b>	<u>0.306</u>	0.208	<u>0.013</u>	0.012	0.684	<u>0.714</u>	0.263	<u>0.581</u>	0.437	<u>0.653</u>
<b>NMB (%)</b>	-50.9	<u>-49.6</u>	-7.8	<u>-6.4</u>	<u>-14.7</u>	-15.0	51.2	<u>14.6</u>	<u>-9.3</u>	-20.8
<b>NME (%)</b>	50.9	<u>49.9</u>	57.2	<u>53.7</u>	21.5	<u>20.0</u>	68.5	<u>49.1</u>	30.2	<u>26.1</u>

グラフの見方: 赤いラインに近い値ほど現況再現性がよく、青いラインに近い値ほど現況再現性が悪い。  
表の見方: 赤文字の値が現況再現性がよく、青文字が現況再現性が悪い。

1. JATOP II での研究課題を元に、排出インベントリの改善や大気質モデルの改善により、JATOP III 大気シミュレーションを構築した。
  - ・ 排出インベントリの改善として、環境省排出インベントリ検討会での成果の活用や、稼動実態に基づいた固定発生源の非メタン炭化水素(NMHC)の改善を行った。また、今後の更なる改善の方向性として、冬季の一次OA(未把握の発生源の考慮)や植物起源VOC排出インベントリの改善が必要であることが見出された。
  - ・ 大気質モデルの改善として、光化学チャンバ実験に基づく二次粒子生成のモデル化や気象モデルの改善を実施した。
2. これらの改善を取り入れた結果、JATOP IIIモデルは、JATOP IIモデルに比べ、改善が見られ、特に、硝酸イオン( $\text{NO}_3^-$ )の過大評価の改善が見られた。一方、有機成分(OA)の過小評価については、更なる改善が必要であることがわかった。