

6. 全球化学輸送エアロゾルモデル：人為起源および自然起源発生源

Global Scale Chemical Transport Model for Aerosols: With Man-made and Natural Emission Sources

北田 敏廣*、倉田 学児*

Toshihiro KITADA, Gakuji KURATA

ABSTRACT; To evaluate relative contribution of both anthropogenic and natural emission sources on aerosol concentration, AGCTM (Aerosol Global scale Chemical Transport Model) has been developed. The model can trace source-receptor relations on various chemical species forming aerosol particles. Numerical simulations of transport/chemistry/deposition of aerosols and other chemical species were performed during 20 February to 31 March in 2001. Performance of the AGCTM has been evaluated by comparing the calculation results mainly with TSP (Total Suspended Particulates) concentration at various observation sites in China and Tokyo and Osaka in Japan. Effect of sea salt particles is also evaluated.

KEYWORDS; Global chemical transport model, Organic carbon, Black carbon, Sulfate, Nitrate, Soil dust, Sea salt

1. はじめに

ホームメイド全球化学輸送モデルの開発を行っている。研究は、人為、自然の各種の排出源を持つエアロゾルの組成に対するこれら排出源の寄与を、東アジアを主対象に、全球スケールの中で明らかにすることを目的としている。自然の排出源として土壌粒子、火山等を含めているが、あらたに海塩起源の物質を含めることを試みた。

2001年2-4月にかけておこなわれた TRACE-P 観測の期間に合わせて全球の化学輸送計算を行い、北京、上海、ウルムチ、ラサ、太原、西安、合肥、昆明、アモイ、ハルビンなど中国国内の多数の地上観測点での TSP 濃度および東京、大阪での SPM 濃度と計算エアロゾル濃度を比較検討することによって、開発した全球エアロゾルモデルのパフォーマンスを検討した。全粒子の濃度だけでなく、モデルによって得られたエアロゾル組成の提示も行った。特に上海のエアロゾル濃度の海塩粒子に対する感度解析を試みた。

エアロゾル粒子には、地球の温暖化に対して抑制の効果があると認識されているが、その定量的評価には、大きな不確実性がある。その一つの原因は、エアロゾル粒子の粒径・組成・混合状態の違いによる、(1)太陽放射に対する“直接効果”の違い、(2)凝結核としての作用（能力）の違いに基づく雲生成の違い（放射に対する“間接効果”）にある。本研究は、上記の研究の基礎とするため、人為、自然の各種の排出源のこれらのエアロゾルの組成に対する寄与を、東アジアを主対象に、全球スケールの中で明らかにすることを目的とする。

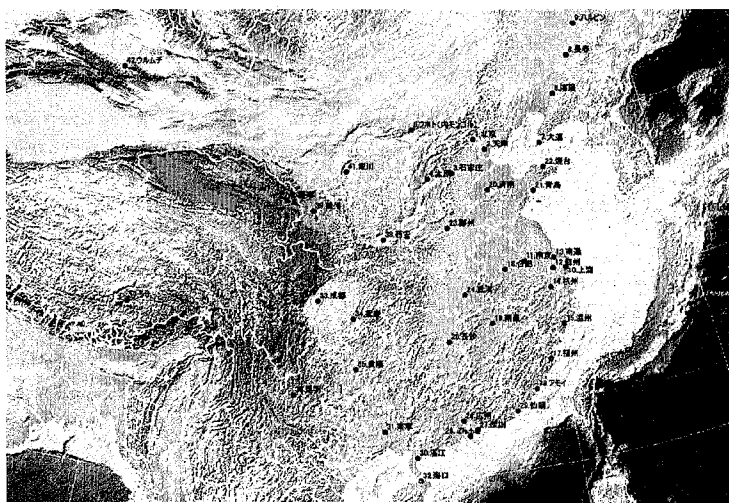


Fig.1. 中国の TSP 等観測点

*豊橋技術科学大学 エコロジー工学系 Department of Ecological Engineering, Toyohashi University of Technology, Japan;

2. 全球化学輸送計算

全球輸送計算は、2001年2月20日00Z—3月31日10Zまで行った。流れ場はECMWFの $2.5^\circ \times 2.5^\circ$ 、鉛直23層（上端10hPa）である。輸送化学種は30、化学反応（97化学反応；ラジカル種については定常状態近似を適用。これらは地域規模モデル¹⁾を簡単化したものである）、移流拡散、乾性・湿性沈着等を含む。タイムステップは輸送30分、化学反応12秒である。

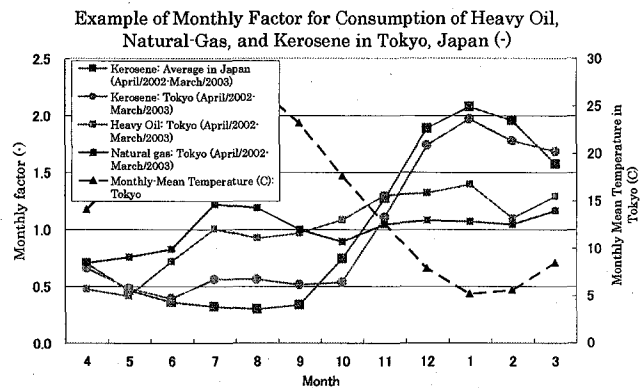


Fig. 2 日本における灯油等燃料使用量
月別指数（年平均を1で表す）

3. 排出源

(1) 人為排出源

排出源分布はEDGARのデータベースを中心に神成らの中国ソースを埋め込んだ。人為排出量は燃料使用量が冬季に増えるため大きな変動幅を示す。たとえば、Fig. 2は年平均月使用量を1とした場合の灯油等の月別変動の例を示す。冬季の係数としては、札幌、東京、全国平均等いずれも大差がないことが知られる。これらの情報を基に2月の平均気温をベースにして季節排出係数を導入した。

(2) バイオマス火災による排出源

衛星によるファイアスポットの観測データを用いてバイオマス火災による大気化学物質の排出源分布を3日単位で推定した。格子面積あたりのファイアスポット数をカウントし、排出源強度分布を求めた。EDGARおよびGEIAの地球全体推定排出量をファイアスポット数密度に応じて分配した。

(3) 土壌粒子の排出フラックスの推定

土壌粒子の排出フラックスについては、いくつかのモデルが提案されており²⁾、いずれも摩擦速度、土壌の状態（土壌粒子の粒子径分布、土壌水分など）等が関与するファクターとして取り上げられている。ただ、大気輸送モデルにサブモジュールとして導入するとき、これらのファクターはモデルの格子長にも依存せざるを得ず、したがって、モジュールに含まれる係数は経験的（あるいは、結果を観測と適合させるための）パラメーターの要素を持たざるを得ないと考えられる。常用される u_* に関する4乗モジュール³⁾、およびShao²⁾に引用されている土壌フラックス観測データにフィットさせた3.75乗のモジュールをテストした。いずれも臨界摩擦速度は、仮に土壌によらず0.25 m/sと仮定した。

(4) 海塩粒子フラックスモデル

推定されている海塩粒子の総量は巨大であるが、ほとんどが粗大粒子とみなされる。しかしながら、沿岸都市のエアロゾル環境に対しては、時に重要な影響を及ぼすと考えられる。本研究では、Gong and Barrie (1997)⁴⁾にまとめられている海塩粒子発生モデルを基にシミュレーションに海塩粒子を加えた。

海塩起源の微小粒子（半径 $r < 10 \mu\text{m}$ ）はほとんどが“泡 (bubbles)”から発生すると考えられている。

この発生モデルとして以下の経験式を組み込んだ。

$$\frac{dF}{dr} = 1.373 U_{10}^{3.41} r^{-3} (1 + 0.057 r^{1.05}) \times 10^{1.19e^{-B^2}}$$

ここに、 $B = (0.380 - \log r) / 0.65$ である。 dF/dr : particles $m^{-2} s^{-1} \mu m^{-1}$, r : μm , U_{10} : wind velocity at 10 m ($m s^{-1}$)。

2. TRACE-P 観測時の全球化学輸送計算：中国各地のエアロゾル濃度比較

(1) 2001 年 3 月

中国域で、2001 年 3 月に 2 度の高濃度エピソードのあったことが知られている。3 月 1-8 日と同 20-22 日を中心とする数日である。上海付近では 18-21 日まで連続して気圧傾度が小さく（南に高、北に低気圧）、Fig. 4b 上海の高濃度は、三日分の人為汚染物質の滞留により形成されたと考えられる。一方、すでに多くの報告があるように、北京等の北部の諸都市では、北方に中心を持つ強い低気圧に伴う強風から 20 日に発生した土壌粒子の巻上げが主因となり高濃度となったと言える (Fig. 3)。3 月 20 日—23 日までの流れ場は、50N, 130E に中心を持つこの低気圧の東への移動と上海付近の弱風域を示している (Fig. 3)。

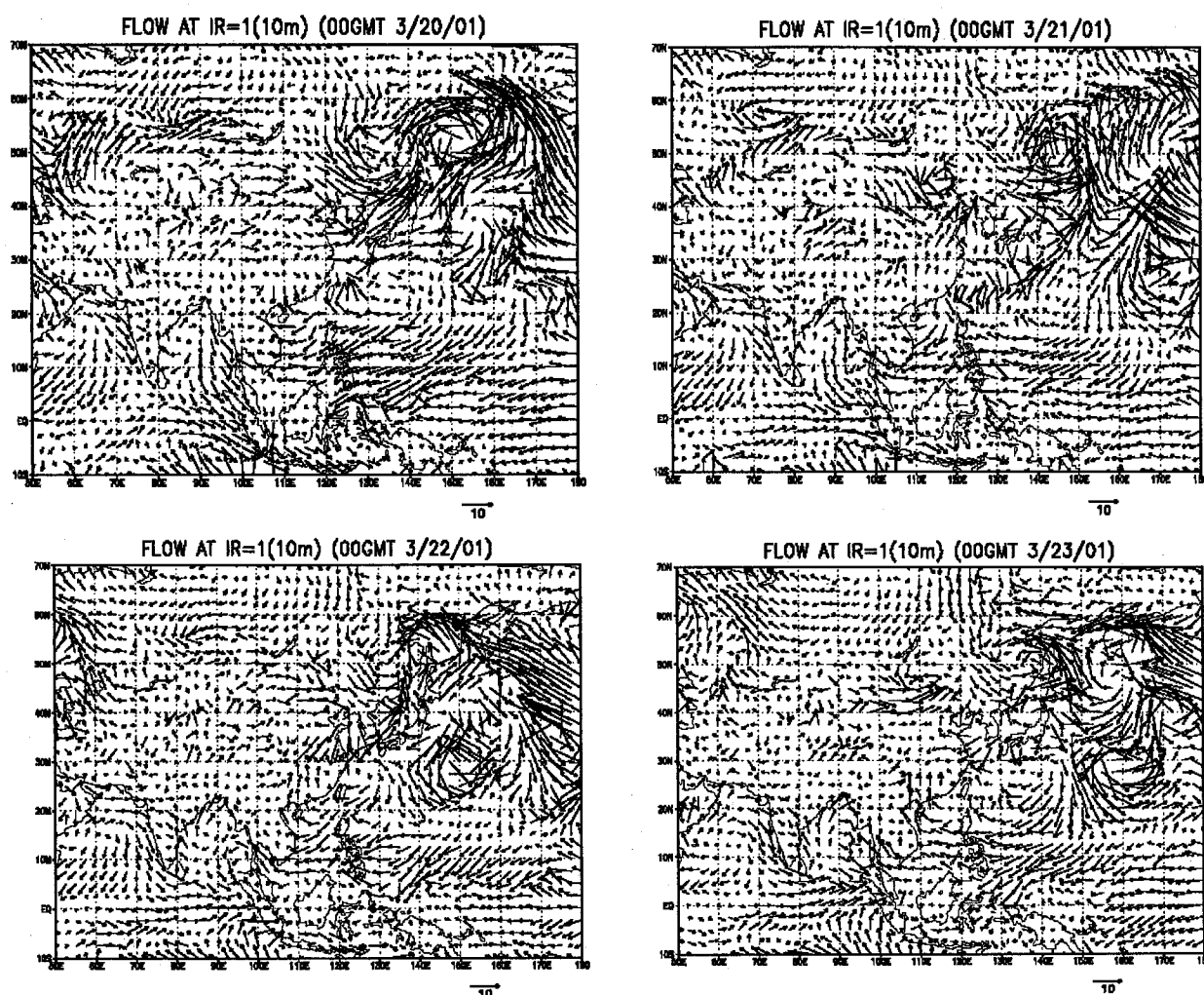


Fig. 3. 2001 年 3 月 20-23 日の地上流れ場（計算に用いた流れ場の一部分を示す）

(3) 全球化学計算と中国および日本の実測値との比較

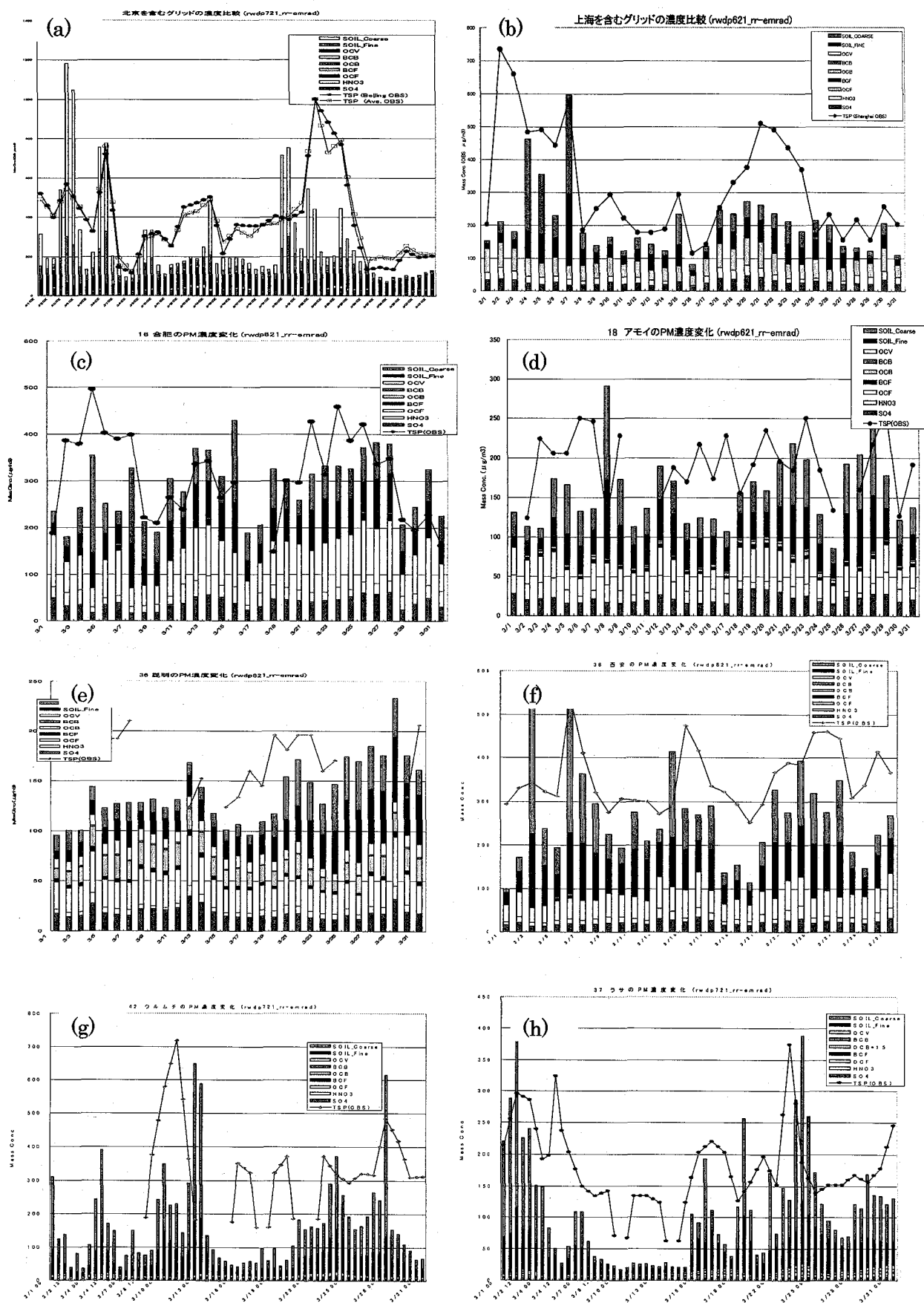


Fig. 4. 2001年3月1日—31日の観測 TSP（一部 SPM）と計算 SPM の比較。計算値（棒グラフ）はエアロゾルの組成も示す。観測値は実線。(a)北京、(b)上海、(c) 合肥、(d)アモイ、(e)昆明、(f)西安、(g)ウルムチ、(h)ラサ。

Fig. 4 (a)–(j)は、それぞれ北京、上海、合肥、アモイ、昆明、西安、ウルムチ、ラサ、東京、大阪での観測 TSP（東京、大阪は SPM≒PM10）と計算 SPM の比較を示す。計算値をそれぞれの成分寄与を

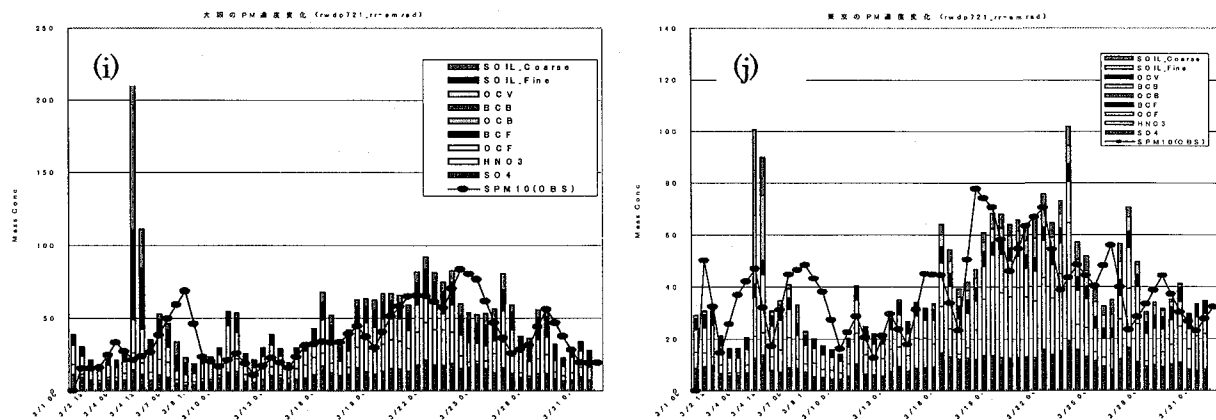


Fig. 4. 続き。(i)東京、(j)大阪。

示す棒グラフで表している。土壌粒子は、計算では4つの粒径区分で表しているが、グラフでは、“ファイン”と“コース”の2分表示をしている。成分分類は、人為(化石燃料燃焼、2次生成)、バイオマス燃焼起源、自然植生起源、土壌粒子である。以下、評価を示す。

北京(Fig.4a)については、月前半のピークの時期はかなり良く追従しているが、後半の3月22-24日の高濃度時には逆に過少評価で、かつピークの時期が少しずれている。超高濃度イベントのほとんどが、土壌粒子の寄与によると考えられるので(棒グラフの上部2つ分、すなわち、Fig.4aの場合、ピンクと黄色が土壌粒子分を表す)、2.5度という土地利用の解像度も含めて土壌モデルに伴う不確実性が重要な原因と考えられる。

上海(Fig.4b)の場合、3月の最初のピークを除き、高濃度の時期には比較的良く追従していると考えられるが、この場合も3月21-23日について過小評価となっている。この時期の流れ場(Fig.3)および観測SO₂濃度とTSP濃度との対応により、土壌粒子のみならず人為大気汚染物質の蓄積が主因と考えられる。3月22-24日の北京の高濃度と少し原因に違いがある。

合肥(Fig.4c)は上海の西に位置する内陸の都市であり、3月のピーク濃度の出現時期は上海に近い。有機炭素粒子の寄与が総じて高く、計算値の約30%を占める。

上海より南の沿岸部の例として Fig.4d にアモイ(台湾の対岸部)の結果を示す。アモイには上海や北京の観測に見られる月間の抜き出たピークはなく濃度レベルも北京、上海、合肥等に比べて低い。計算結果より、土壌粒子の影響は受けるものの、北の諸都市にくらべてその影響濃度は低くことが示されている。

昆明(Fig.4e)は中国南端の山に位置する内陸都市であり、ベトナム、ラオス、ミャンマーの国境に近い。ここでも、特に3月後半に土壌粒子の影響を受けることをシミュレーションは示す。特徴的であるのは、他の地点ではほとんど問題にならないバイオマス燃焼起源および植生起源の有機エアロゾルがコンスタントに存在し、多い日ではSPM全量の20-30%を占めることである。観測日数は少ないが、計算濃度レベルは観測と同程度である。

土壌粒子排出源に近い場所の例として、西安(Fig.4f)とウルムチ(Fig.4g)の結果を示す。いずれも土壌粒子が大きな部分を占めるが、特にウルムチではほとんどが土壌粒子と推測できる。昆明などと比べて

粗い粒子の比率がむしろ高い。計算結果より、ヒマラヤの北側に位置するラサ(Fig.4h)のエアロゾル特性もウルムチに近いと推測される。ウルムチ、ラサともに計算値が過小評価であることが多い。

日本のSPM濃度について、観測値と計算値の対応を見るために、東京(Fig.4i)、大阪(Fig.4j)を取り上げた。観測値については、計算格子内の大気汚染常時監視局のデータを平均したものをを用いている。東京、大阪いずれも、時折、高い土壌粒子の寄与が見られるが、総じてそれ程大きくなく、人為起源のイオン類、有機炭素、ブラックカーボン等がほとんどを占める。観測値と計算値との対応は、大体、良好と言って良い。このときの実測値はないものの、この季節の愛知県内(6箇所)での硝酸イオンのPM10に対する寄与が、多くて15%程度であることから、計算値における硝酸イオン寄与分はやや過大評価の可能性はある。

4. まとめ

全球エアロゾルモデルを作成し、シミュレーションを行った。昨年に引き続き中国各地の都市および日本の2都市(東京、大阪)について、2001年3月の1か月分の観測と計算の比較を行った。粒子状物質の総質量濃度だけでなく、その組成についても表示した。組成を、直接比較するデータはないが、中国北部諸都市に対する土壌粒子の影響の相対的な割合、南部内陸都市でのバイオマス燃焼等を起源とする粒子の寄与、日本の都市でのエアロゾル組成の特徴などを示した。沿岸都市のエアロゾル濃度に対する海塩粒子の影響についても検討している。以上、ホームメイドの全球エアロゾルモデルの開発を行った⁵⁾。

参考文献

- 1) Kitada, T., and R.P. Regmi (2003). Dynamics of air pollution transport in late winter time over Kathmandu valley, Nepal: As revealed with numerical simulation. *J. Applied Meteorology*, **42**, 1770-1798.
- 2) Shao, Y. (2000) *Physics and Modelling of Wind Erosion*, Kluwer Academic Publishers, 393p.
- 3) Gillette, D.A., and R. Passi (1988). Modeling dust emission caused by wind erosion, *J. Geophys. Res.*, **93**, 14233-14242.
- 4) Gong, S.L., and L.A. Barrie (1997) Modeling sea-salt aerosols in the atmosphere. 1. Model development, *J. Geophys. Res.*, **102**, 3805-3818.
- 5) Kitada, T. et al. (2006) Predicted aerosol concentrations over East Asia and evaluation of relative contribution of various sources with global chemical transport model, *Proc. 28th NATO ITM on Air Pollution Modelling and Its Application*, Kluwer Academic Pub., in press.