

7. 大気化学輸送モデルを用いた排出量インベントリのキャリブレーション法の開発

柳 千絵^{1*}・倉田 学児¹・松岡 譲¹

¹京都大学大学院工学研究科都市環境工学専攻（〒615-8540京都市西京区京都大学桂）

* E-mail: yanagi.chie@t04.mbox.media.kyoto-u.ac.jp

東アジア地域の排出量インベントリを用いてメソスケール気象モデルMM5と3次元オイラー型化学輸送モデルCMAQで大気中のCO濃度を計算し、2001年春に実施されたTRACE-Pの観測値との誤差を求めた。CO排出源を人為起源(中国、中国以外)、バイオマス燃焼、バックグラウンドの4つに分類し、TRACE-Pの軌跡に沿って各排出源の寄与を計算した。そして排出源の寄与を用いて最小二乗法により各排出源の補正係数を求め、排出量インベントリのキャリブレーションを行った。

この結果、今回用いた排出量インベントリの人為起源CO排出量とバックグラウンド濃度は過小評価で、バイオマス燃焼起源CO排出量は観測前半で過小評価、観測後半で過大評価であることがわかった。

Key Words : Calibration, Emission Inventory, Chemical Transport Model, TRACE-P, Contribution Analysis

1. はじめに

近年東アジア地域では、中国やインドをはじめとする多くの国が急速な経済発展を遂げている。これに伴って、工業生産量の増加、生活様式の変化、交通需要の拡大などにより、エネルギー消費量が增大している。これらのエネルギー需要を満たすために大量の化石燃料が消費され、さまざまな大気汚染物質の排出量が増加している。大気汚染物質は、排出源近郊における地域環境問題の原因であるだけでなく、酸性雨、光化学オキシダント汚染などの広域的な地球環境問題の原因ともなっている。大気汚染物質が引き起こす環境問題を解決するためには、これらの現象のメカニズムを解析し、有効な対策を講じることが必要である。

現在までに、大気汚染問題対策のための補助的ツールとして、排出量インベントリと化学輸送モデルを用いた化学輸送シミュレーションが研究、開発されてきた。しかし、化学輸送シミュレーションによって計算された大気汚染物質濃度は実際の観測値に近い値を出しているが、地域による系統的なバイアスや、濃度のピークを表せていないなどの問題がある。その原因は排出量インベントリや気象モデル、モデルパラメータなどが持つ不確実性である。これらによって生じる誤差を解消し、化

学輸送シミュレーションの精度を高めることができれば現在の大気汚染物質の濃度分布の把握のみならず、将来における大気汚染物質の濃度分布の予測などに役立つ情報の提供も可能となる。

化学輸送シミュレーションにおいて大きな役割を果たすのは排出量インベントリである。一般的に排出量インベントリの精度を上げるためには、ボトムアップ的な推計方法の改良が不可欠である。しかし、ボトムアップ的な推計には膨大な社会活動の統計や排出係数などのデータを必要とするうえに、それらのデータ自体の精度の限界もあるため、一定以上の精度の向上は困難である。そこで、ボトムアップ的な推計法を補助する方法として、化学輸送シミュレーションの結果と観測値とを比較し、それらの間の誤差を排出量インベントリにフィードバックするという方法が考えられてきた。本研究では、この誤差のフィードバックを行って、排出量インベントリを改良する方法を構築する。

2. 方法

(1) 対象

対象領域は東アジア地域のほぼ全体を収めるように設

定した．格子サイズは80kmとし，格子数は気象モデルのMM5で100×82，化学輸送モデルのCMAQで97×79(いずれも東西×南北)とした．これを図-1に示す．対象物質は化学反応性が低く空気中で2，3ヶ月の寿命を持つCOである．観測データには2001年2月～4月にNASAによって実施されたTransport and Chemical Evolution over the Pacific (TRACE-P)を用いた．この観測では航空機DC-8とP-3Bが用いられた．これらの飛行経路を図-1中に示す．

(2) 概要

本研究の概要を図-2に示す．本研究ではまず大気汚染物質排出量インベントリをArcGISで排出量メッシュデータに変換する．次に，MM5でECMWFの気象データなどから実行領域上に気象場を生成する．そして得られた排出量メッシュデータと気象データをCMAQに入力し，大気中の化学物質の挙動のシミュレーションを行う．また，排出源別にCO排出量を変化させた排出量メッシュデータを用いて各排出源の寄与を求め，この寄与を用いて計算値と観測値との誤差が最小となるように最小二乗法によって補正係数を計算し，排出量インベントリを改良する．

(3) 排出量メッシュデータ

本研究では 2000 年の東アジア地域の排出量インベントリを用いた．人為起源排出量インベントリには Streets *et al.* (2003)¹⁾と EDGAR3.2 Fast Track²⁾のものを 用いた．また，バイオマス燃焼起源の排出量メッシュデータには Asian Biomass Burning Inventory (ABBI)³⁾を使用した．これらのデータから作成した CO, NO_x, SO_x, NMHC, PM の排出量インベントリを 3 つの排出源(人為起源(中国・中国以外)，バイオマス燃焼)に分類した．排出源ごとの CO 排出量を表-1 に示す．また，領域外から流入する物質の境界濃度には Model of Ozone and Related Chemical Tracers (MOZART) Version 2.2 の標準実行の結果⁴⁾を用いた．

(4) 気象モデル・化学輸送モデル

気象モデルには，ペンシルベニア州立大学(PSU)，米国国立大気研究センター(NCAR)が開発したメソスケール気象モデルの 5th Generation Mesoscale Model (MM5)を用いた．また，化学輸送モデルには米国環境保護庁(EPA)が開発した 3 次元オイラー型化学反応・輸送モデルの Community Multiscale Air Quality Model (CMAQ)を使用した．

(5) キャリブレーション

排出量インベントリのキャリブレーションは，a)モデル誤差の最小化，b)排出源の寄与解析，c)観測値と計算

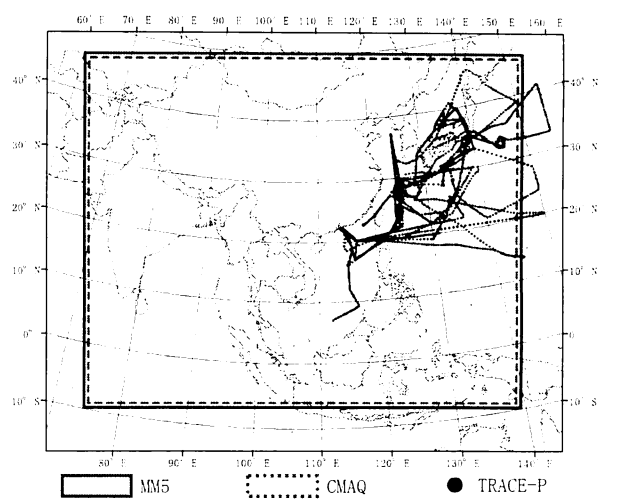


図-1 実行領域と TRACE-P の観測地点

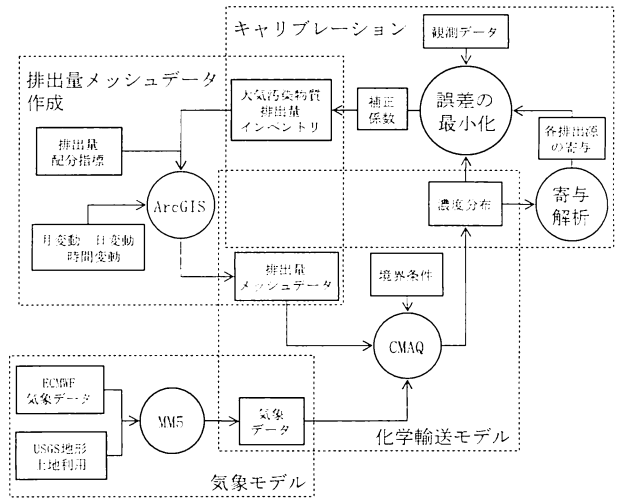


図-2 研究の概要

表-1 排出量インベントリ

排出源		CO排出量 (Gg/year)
人為起源	中国	100005.8
	中国以外	114943.3
バイオマス燃焼起源	3月	35149.9
	4月	93595.1

値の間の誤差の最小化，d)排出量インベントリの改良の4段階で行った．

a) モデル誤差の最小化

化学反応メカニズムの選定や，空間分解能の向上，時間分解能の向上を行い，モデル誤差を最小にする．

b) 排出源の寄与解析

化学輸送計算において CO の化学反応による増減は相対的に小さいことから，排出量と観測値が線形関係で表せると仮定した．以下の 4 つのケースに分けて CO 排出量メッシュデータを作成し，排出量メッシュデータを入れ替えて化学輸送計算を 4 回行った．

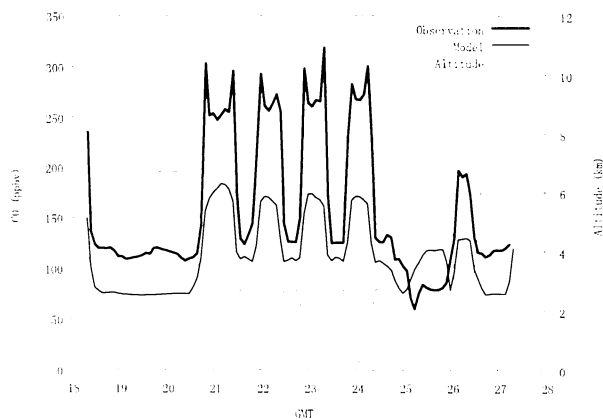


図-3 観測値と計算値との比較

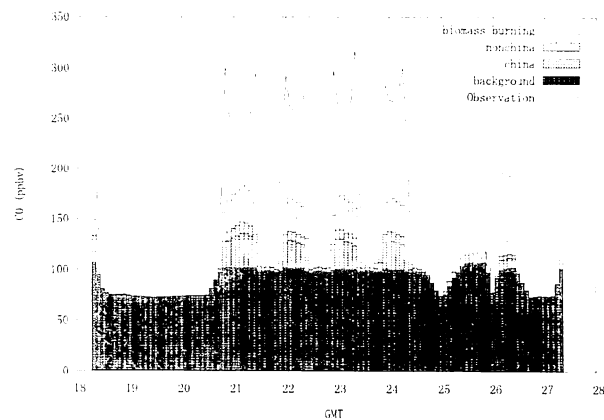


図-4 寄与解析結果

china は中国の人為起源由来の CO の寄与を, nonchina は中国以外
の人為起源由来の CO の寄与を表す. background は領域境界
面で設定した CO 濃度由来する CO の寄与である.

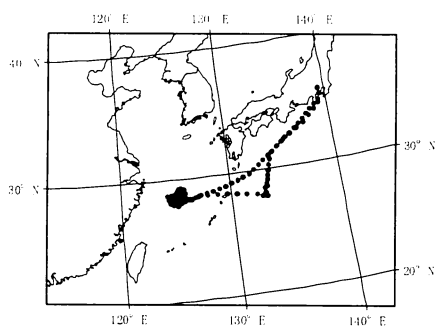


図-5 DC-8 フライト 6 の飛行経路

- 基準ケース…CO 排出量を変化させない
- ケース 1…バイオマス燃焼による CO 排出量をゼロにする
- ケース 2…バイオマス燃焼による CO 排出量をゼロとし, 中国からの人為起源 CO 排出量を 1.1 倍とする
- ケース 3…バイオマス燃焼による CO 排出量をゼロとし, 中国以外からの人為起源 CO 排出量を 1.1 倍とする

これらの排出量メッシュデータを用いて化学輸送計算を行い, 得られた CO 濃度から観測点ごとに各排出源の寄与を求めた.

c) 観測値と計算値の間の誤差の最小化

寄与解析によって得られた各排出源の寄与を用いて, 観測値と計算値との間の誤差が最小となるように最小二乗法で補正係数を求めた. 用いた式を (1a) と (1b) に示す.

$$\text{Min} \sum_n (C_{Mn} - C_{On})^2 \quad (1a)$$

$$C_{Mn} = \sum_i p_i k_{i,n} x_i \quad (1b)$$

C_{Mn} : 化学輸送モデル計算値に補正係数を乗じた値
(改良後の計算値)

C_{On} : 観測値

$k_{i,n}$: 観測地点 n に対する排出源 i の寄与

p_i : 排出源 i の補正係数

x_i : 排出源 i の CO 排出量

i : 大気汚染物質の排出源(地域区分)

n : 観測地点

補正係数を求めるときに以下の 3 点に留意した.

- 人為起源(中国・中国以外)とバックグラウンドの補正係数は TRACE-P のフライト全てにわたって 1 つである.
- バイオマス燃焼の日変動が大きいことを考慮し, バイオマス燃焼の補正係数はフライト別である.
- 排出量が非負であるから補正係数も非負である.

d) 排出量インベントリの改良

得られた各排出源の補正係数を CO 排出量に乗じた.

3. 結果と考察

(1) 寄与解析

図-3 に DC-8 のフライト 16 の計算値と観測値との比較を, 図-4 に寄与解析結果の例を示す. DC-8 フライト 16 の飛行経路を図-5 に示す.

図-3 より、計算値は観測値と大体同じ傾向を示しているものの、観測値に比べて値が大幅に小さい。特にピークの値の差が大きい。この主な原因は排出量インベントリの値が実際の排出量よりも小さいことにあると考えられる。

図-4 より、バックグラウンド濃度は全体的に一定で高度や緯度経度による変化は緩やかである。一方、観測高度が低いところでバックグラウンド以外の排出源からのCO濃度が大きい。特にバイオマス燃焼と人為起源(中国)からの寄与は、高度が上がるにつれ減少する割合が大きい。これは、中国や東南アジアから排出されるCOが上空まであまり輸送されないことを示していると考えられる。

(2) 補正係数

全ての観測地点にわたって観測値と計算値との間の誤差を最小にし、各排出源の補正係数を求めた。人為起源(中国・中国以外)とバックグラウンドの結果を表-2に示す。また、フライト毎に求めたバイオマス燃焼の補正係数はDC-8の結果を図-5に、P3-Bの結果を図-6に示す。補正係数が1より大きいならば、用いた排出量インベントリは過小評価であり、補正係数が1より小さいならば、用いた排出量インベントリは過大評価である。

表-2より、用いた排出量インベントリの人為起源CO排出量とバックグラウンド濃度は過小評価であることがわかる。中でも、中国以外の人為起源CO排出量の補正係数は3.411と大きく、改良後の排出量は用いた排出量インベントリの値の約3.5倍となる。

また、図-6と図-7よりバイオマス燃焼の補正係数は日変動がとて大きいことがわかる。しかし、フライト初期の補正係数が1より大きいのに対して、それ以降のフライトの補正係数はほとんどが1より小さいという傾向があることが判明した。DC-8のフライト6～8と、P3Bのフライト8～10はそれぞれ3月4日、7日、9日に観測が行われている。このことから、この期間のバイオマス燃焼によって排出されたのCOは過小評価であることがわかる。反対に、それ以降のCO排出量は全体的に過大評価であると考えられる。

(3) キャリブレーション結果

図-8にDC-8フライト16のキャリブレーション後のCO濃度を示す。図-4と比較すると、キャリブレーションによって計算値が観測値に近づいたことがわかる。特にピークにおいて計算値と観測値がよく一致している。

表-2 補正係数(人為起源・バックグラウンド)

排出源		補正係数
人為起源	中国	2.203
	中国以外	3.411
バックグラウンド		1.276

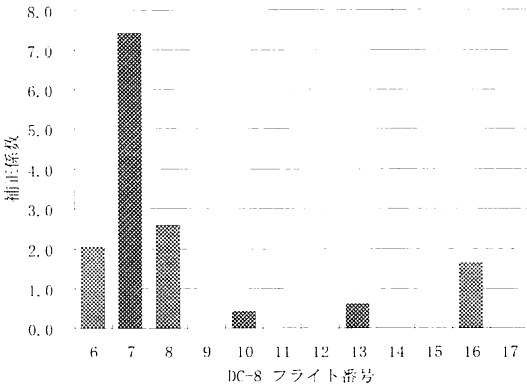


図-6 バイオマス燃焼の補正係数(DC-8)

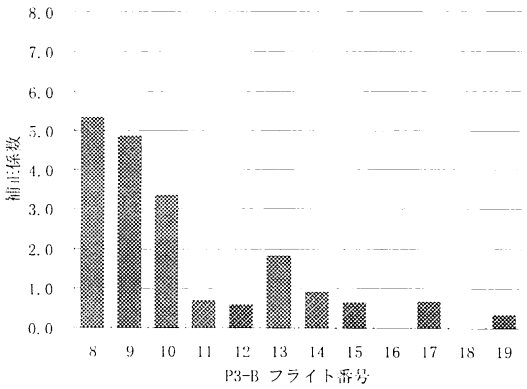


図-7 バイオマス燃焼の補正係数(P3-B)

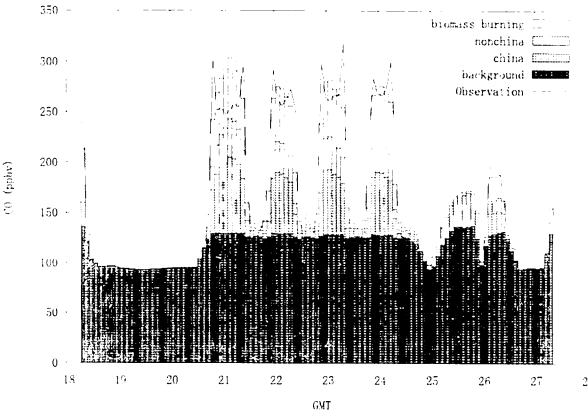


図-8 キャリブレーション後のCO濃度

(4) キャリブレーションの前後での計算値と観測値との誤差

表-3にキャリブレーションの前後での誤差の平均値、中央値、分散、誤差率をそれぞれ示す。誤差の最小化を行ったことで、誤差率が約9パーセント改善し、誤差の平均値は-57.190(ppbv)から-2.655(ppbv)となり、ゼロに近づいたことがわかる。

次に、キャリブレーションの前後での高度別の”計算値－観測値”の平均と標準偏差を示す。図-9がキャリブレーション前、図-10がキャリブレーション後の図である。グラフの右側の数字はその高度の標本数を示す。これを見ると、全ての高度で誤差が0に近づいたことがわかる。本研究の手法では、観測値と計算値との誤差の2乗を最小とするので、上空の小さい誤差が、低空の大きな誤差に引っ張られて、キャリブレーションで改善されないかもしれないという恐れがあったが、これらを見てわかるように、上空でも誤差が小さくなっている。

4. 結論

- キャリブレーションによって、すべての高度にわたり誤差を0に近づけることができた。
- 今回用いた排出量インベントリは、人為起源CO排出量が過小評価で、バイオマス燃焼によるCO排出量が観測期間の前半で過小評価、後半で過大評価であることがわかった。また、バックグラウンド濃度は過小評価であることがわかった。

謝辞：本研究は、環境省地球環境研究BC-088「統合評価モデルを用いた気候変動統合シナリオの作成及び気候変動政策分析」による研究成果の一部である。ここに記して感謝の意を示す。

参考文献

1) Streets, D.G., T.C. Bond, G.R. Carmichael, S.D. Fernandes, Q. Fu, D. He, Z. Klimont, S.M. Nelson, N.Y. Tsai, M.Q. Wang, J.H. Woo, and K.F. Yarber (2003): An Inventory of Gaseous and Primary Aerosol Emissions in Asia in the Year 2000, *JOURNAL OF GEOGRAPHIC RESEARCH*, **108**(D21), 8809.

2) Olivier, J. G. J., J. A. van Aardenne, F. Dentener, L. Ganzeveld, and J.A.H.W. Peters (2005): Recent Trends in Global Greenhouse Gas Emissions: Regional Trends and Spatial Distribution of Key Sources, Non- CO₂ Greenhouse Gases NGGG-4, *Millpress*, 325-330.

表-3 キャリブレーション前後での統計的比較

	キャリブレーション前	キャリブレーション後
誤差の平均値 (ppbv)	-57.190	-2.655
誤差の中央値 (ppbv)	-41.990	5.450
誤差の分散	4422.518	2941.660
誤差率(%)	32.40	23.43

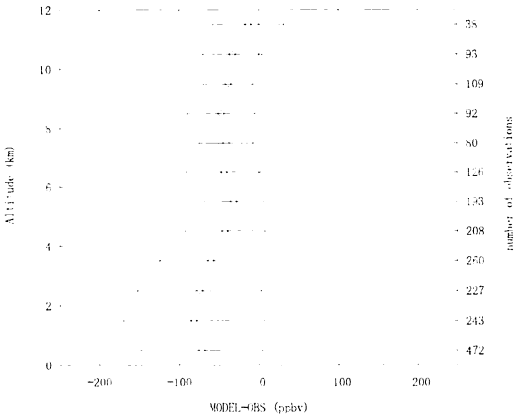


図-9 高度別の”計算値－観測値”の平均値 (キャリブレーション前)

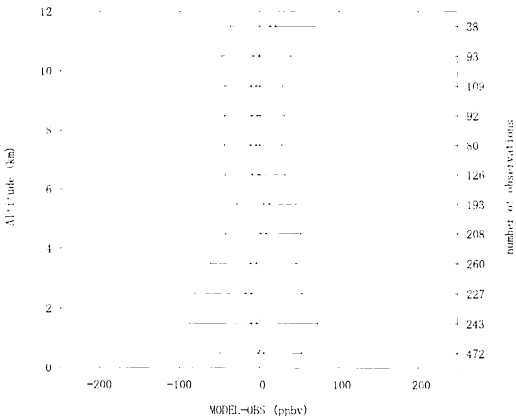


図-10 高度別の”計算値－観測値”の平均値 (キャリブレーション後)

3) Michel, C., C. Lioussse, J.-M. Grégoire, K. Tansey, G.R. Carmichael, and J.-H. Woo (2005): Biomass burning emission inventory from burnt area data given by the SPOT-VEGETATION system in the frame of the TRACE-P and ACE-Asia campaigns, *J. Geophys. Res.*, **110**(D09304)

4) Horowitz, L.W., S. Walters, D.L. Mauzerall, L.K. Emmons, S. Walters, L.K. Emmons, P.J. Rasch, C. Granier, X. Tie, J.-F. Lamarque, M.G. Schultz, G.S. Tyndall, J.J. Orlando and G.P. Brasseur (2003): A Global Simulation of Tropospheric Ozone and Related Tracers: Description and Evaluation of MOZART, Version 2, *Journal of Geophysical Research*, **108**(D24), 4784.