

## MF2 大気質モデルを用いた日本における硝酸塩の動態に対する粗大粒子の影響評価

Evaluation of the impact of coarse particles on nitrate in Japan using air quality model

指導教員 嶋寺光准教授・共生環境評価領域

28H21029 小森直哉 (Naoya KOMORI)

**Abstract:** Fine particulate matter (PM<sub>2.5</sub>) causes adverse health effects including respiratory disease. Air quality models play an important role in exploring effective countermeasures to PM<sub>2.5</sub> air pollution. However, the models have failed to accurately reproduce fine-fraction nitrate (fNO<sub>3</sub>), one of the major PM<sub>2.5</sub> components. Coarse particles, such as sea-salt particles, affect the behavior of fNO<sub>3</sub> because they react with gaseous nitric acid (HNO<sub>3</sub>), precursor of fNO<sub>3</sub>, to form coarse-fraction nitrate (cNO<sub>3</sub>). In this study, air quality simulations with and without natural coarse particle emissions (sea salt, windblown dust) were conducted to evaluate their impacts on fNO<sub>3</sub> concentrations. The simulation with the natural emissions overestimated fNO<sub>3</sub>, cNO<sub>3</sub>, total nitrate (tNO<sub>3</sub>), and sea-salt concentrations. In addition, sea-salt particles substantially changed the nitrate partitioning fraction with little change in tNO<sub>3</sub> concentration. It was found that the overestimations in both tNO<sub>3</sub> and sea-salt concentrations deteriorated the model performance for fNO<sub>3</sub> and cNO<sub>3</sub> concentrations.

**Keywords:** PM<sub>2.5</sub>, Nitrate, Sea-salt particles, Windblown dust, Air quality simulation

### 1. はじめに

大気汚染物質である微小粒子状物質 (PM<sub>2.5</sub>) は呼吸器疾患など多くの健康被害をもたらす。大気質モデルは PM<sub>2.5</sub> 汚染に対する有効な施策を検討する上で大きな役割を果たすが、現状の大気質モデルでは PM<sub>2.5</sub> 主要成分のひとつである微小硝酸塩 (fNO<sub>3</sub>) を十分には再現できていない。その前駆物質である硝酸ガス (HNO<sub>3</sub>) は、海塩等の粗大粒子と反応して粗大硝酸塩 (cNO<sub>3</sub>) となるため、粗大粒子は fNO<sub>3</sub> の動態にも影響する。そこで本研究では、大気質モデルにおいて自然起源の粗大粒子が日本における硝酸塩の動態に及ぼす影響を評価し、それを基に fNO<sub>3</sub> 濃度の再現性向上の可能性について検討した。

### 2. 計算方法

本研究では気象モデルに WRF v4.3、大気質モデルに CMAQ v5.3.3 を用いた。計算期間は 2019 年の 1 年間とした。計算領域は水平格子解像度 45km の東アジア域 (D1) と 15km の日本域 (D2) とした。排出量は、国外人為起源に HTAP v2.2 (2010 年基準, 中国のみ 2017 年に補正)、国内人為起源に環境省 PM<sub>2.5</sub> 排出インベントリ (2015 年基準) を用いた。CMAQ の計算は、海塩および土壌性ダストの排出を考慮した標準ケース (Base) に加え、海塩粒子の排出量を 0 にしたケース (SSA\_off)、土壌性ダストの排出量を 0 にしたケース (WBD\_off) で実施した。それらを比較することで fNO<sub>3</sub> の動態に対する海塩・土壌性ダストの影響を評価した。

### 3. 結果と考察

環境省による PM<sub>2.5</sub> 成分自動測定地点平均の cNO<sub>3</sub>・fNO<sub>3</sub>・HNO<sub>3</sub> 濃度の年平均値と海塩・土壌性ダストの寄与および 2018 年度フィルターパック (FP) 法実施地点平均の Na<sup>+</sup>、Ca<sup>2+</sup>、総硝酸 (tNO<sub>3</sub>) 濃度の 1 月から 3 月の平均値と海塩・土壌性ダストの寄与を図 1 に示す。年平均 cNO<sub>3</sub> 濃度は 2.20 μg/m<sup>3</sup> で SSA

寄与はその 82.0%を占めたが、WBD 寄与は 13.1%となり、SSA 寄与が WBD 寄与を上回った。年平均  $f\text{NO}_3$  濃度は  $1.28 \mu\text{g}/\text{m}^3$  で SSA 寄与、WBD 寄与はそれぞれ -57.7%、-8.14%となった。これは硝酸塩の前駆物質である硝酸ガスが海塩粒子と反応し  $c\text{NO}_3$  となることで、 $f\text{NO}_3$  の生成量が減少したことを示している。年平均  $\text{HNO}_3$  濃度は  $1.48 \mu\text{g}/\text{m}^3$  で SSA 寄与、WBD 寄与はそれぞれ -75.5%、-5.85%となった。以上から、 $\text{NO}_3$  濃度に対する粗大粒子の寄与は海塩粒子のほうが土壌性ダストよりも大きいことが示された。 $c\text{NO}_3$ 、 $f\text{NO}_3$  濃度はそれぞれ 174%、23%過大評価されており、海塩粒子の主成分である  $\text{Na}^+$  および  $t\text{NO}_3$  濃度の過大評価が要因と考えられた。 $\text{Na}^+$ 、 $t\text{NO}_3$  濃度に関しては、それぞれ 74%、77%過大評価されていた。

この結果を踏まえて  $t\text{NO}_3$  濃度のみを補正した場合の  $\text{NO}_3$  濃度を式 (1)、 $\text{Na}^+$ 濃度を補正した場合の  $\text{NO}_3$  濃度を式 (2) に基づき算出した。図 2 に  $\text{PM}_{2.5}$  成分自動測定地点平均の  $t\text{NO}_3$  濃度および組成比を示す。海塩粒子によって  $t\text{NO}_3$  濃度はほとんど変化しなかったが、硝酸の分配は大きく変化した。 $c\text{NO}_3$  濃度は 174%過大評価から 41%過小評価となり、 $f\text{NO}_3$  濃度も 23%過大評価から 0.53%過小評価となり、計算値が観測値により近づいた。

$$[\text{NO}_3]_{t\text{NO}_3\text{濃度補正後}} = \frac{[\text{NO}_3]_{\text{補正前}} [\text{tNO}_3]_{\text{obs}}}{[\text{tNO}_3]_{\text{Base}}} \quad (1)$$

$$[\text{NO}_3]_{t\text{NO}_3+\text{Na}^+\text{濃度補正後}} = [\text{NO}_3]_{t\text{NO}_3\text{濃度補正後}} - [\text{NO}_3]_{\text{SSA 寄与}} \left( \frac{[\text{Na}^+]_{\text{Base}} - [\text{Na}^+]_{\text{obs}}}{[\text{Na}^+]_{\text{Base}}} \right) \quad (2)$$

#### 4. 結論

本研究は微小硝酸塩 ( $f\text{NO}_3$ ) 濃度に対する海塩・土壌性ダストの影響を評価した。 $\text{NO}_3$  濃度に対する粗大粒子の寄与は海塩粒子の寄与が土壌性ダストの寄与を上回ると示された。また、 $f\text{NO}_3$  濃度の再現性向上の可能性について検討した。 $\text{Na}^+$ 、 $t\text{NO}_3$  濃度過大を補正した場合の  $f\text{NO}_3$  濃度を算出したところ、計算値が観測値により近づいた。これは、 $\text{Na}^+$ 、 $t\text{NO}_3$  濃度の過大評価を改善することが  $f\text{NO}_3$  濃度の再現性向上につながることを示唆している。

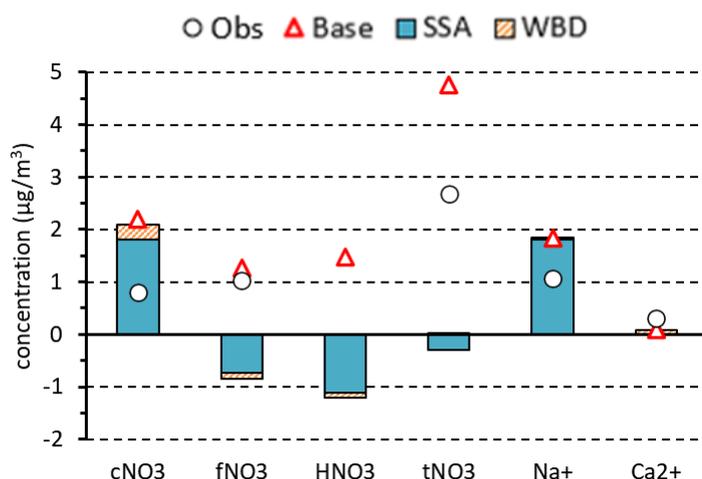


図 1  $\text{PM}_{2.5}$  成分自動測定地点平均の  $c\text{NO}_3$ ・ $f\text{NO}_3$ ・ $\text{HNO}_3$  濃度の年平均値および 2018 年度 FP 法実施地点平均の  $\text{Na}^+$ 、 $\text{Ca}^{2+}$ 、 $t\text{NO}_3$  濃度

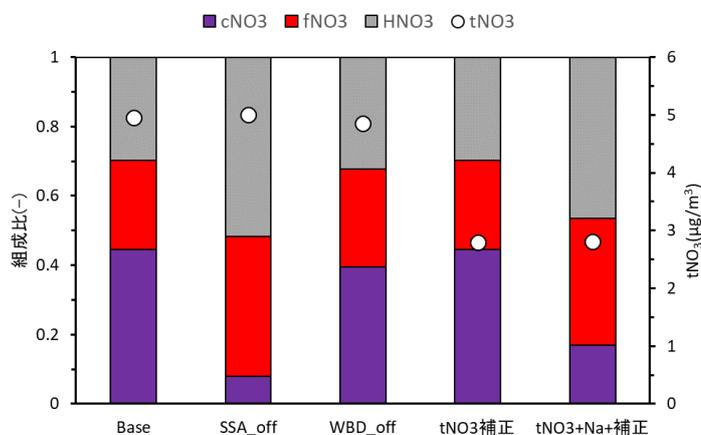


図 2  $\text{PM}_{2.5}$  成分自動測定地点平均の  $t\text{NO}_3$  濃度および組成比