

# 全球化学輸送モデルによる二次有機エアロゾルのモデリング

荻原由紀恵 (ogihara.yukie@a.mbox.nagoya-u.ac.jp)、須藤健悟 (名古屋大学大学院・環境学研究科)

## はじめに

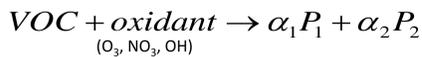
大気中の**エアロゾル**は気候に様々な影響を及ぼすことが知られており、温暖化研究においてもその影響力が注目されている。特に**有機エアロゾル**は熱帯域などを中心にエアロゾルの多くの割合を占めるという点で重要であり、発生源から直接的に粒子として大気中に排出される**一次有機エアロゾル(POA)**の他、大気中の化学反応によって生成される**二次有機エアロゾル(SOA)**が存在する。**二次有機エアロゾル(SOA)**はその発生メカニズムや生成量などについて不明な点が多く、大気に与える影響についても不確実性が大きい。本研究では全球化学輸送モデルCHASERを利用して**SOAの全球生成シミュレーション**を行い、現状の結果について詳細な評価を行った。さらに、芳香族などの**人為起源VOC**の効果、および、過去から現在にかけての**大気化学場の変化**がSOA生成に与える影響について実験・解析を行った。

## SOAの生成モデリング

### SOA(Secondary Organic Aerosol)の生成メカニズム



### 2-product model (Odum et al., 1996) による表現



\* OVOCsの粒子化の割合を決める分離係数  $K_p$

$$K_{p,i} = \frac{P_i}{G_i M}$$

粒子の質量 ( $\mu\text{g m}^{-3}$ ) / 有機エアロゾルの質量 ( $\mu\text{g m}^{-3}$ )

## 実験

全球化学輸送モデルCHASER(Sudo et al., 2002)–SPRINTARS(Takemura et al., 2002)結合モデルを使用した全球シミュレーションを行った。植物起源VOCである**モノテルペン(C10H16)**、**イソプレン(C5H8)**に加え、人為起源VOCの影響を調べるため**芳香族化合物3種(ベンゼン(C6H6)、トルエン(C7H8)、キシレン(C8H10))**についても考慮する。また、SOAの生成速度はVOCの酸化剤であるOH,  $O_3$ ,  $NO_3$ の濃度場にも依存するため、植物起源のVOCエミッションを変えずに $NO_x$ やCOなどの**人為起源エミッション**について**産業革命以前の値**を用いた感度シミュレーションを行うことで、産業革命以前から現在にかけての大気化学場(OH,  $O_3$ ,  $NO_3$ )の変化がSOA生成に与える影響についても考察した。

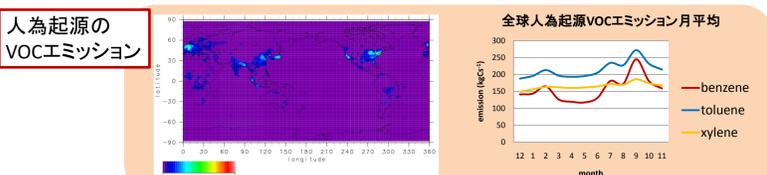
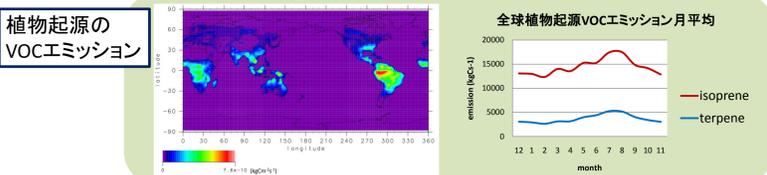
シミュレーション	VOC(SOA前駆体)のエミッション	大気化学場
S1	植物起源(monoterpene & isoprene)	現在
S2	植物起源(monoterpene & isoprene) 人為起源(aromatics)	現在
P1	植物起源(monoterpene & isoprene)	産業革命前

### モデル概要

基本モデル	CCSR/NIES/FRCGC GCM (5.7b) : 気候モデル
空間解像度	水平: T42(2.8x2.8) 鉛直: 32 layers (地表~40km)
輸送過程	グリッドスケール (flux-form semi-Lagrangian) + 積雲対流, 鉛直拡散
気象場: NCEP客観解析データ (2001-2002)	56化学種, 142化学反応(気相, 液相, 不均一) (S2: +3化学種, 3化学反応) (1) $O_3 + HO_x \rightarrow NO_x + CO + CH_4$ (2) 非メタン炭化水素(NMHCs)酸化 (3) $SO_2$ , DMS酸化(硫酸エアロゾルシミュレーション) *不均一反応は $NO_2O_5$ , $HO_2$ , $RO_2$ ラジカルについて雲粒子, 硫酸エアロゾル, および海塩粒子表面上で考慮(高度20km以上の $O_3$ , $NO_y$ については衛星データなどでprescribe)
化学過程	GCM放射スキーム中の紫外光を用いたオンラインで計算放射スキーム中では化学過程で計算されたオゾン, メタン, 硫酸エアロゾルの分布を使用。
光解離定数	産業・交通, 森林火災, 植生/土壌/海洋, 雷からの $NO_x$ ( $NO_x$ , CO, $CH_4$ , $C_2H_6$ , $C_2H_4$ , $C_3H_8$ , $C_3H_6$ , アセトン, イソプレン, テルペン, メタノール, $SO_2$ , DMS)
エミッション (人為・自然)	地表面の植生タイプ, 気温, 太陽光入射, 積雪などの関数 [Wesely, 1989]
乾性沈着	Rain-out (in-cloud), wash-out (below-cloud), ice-sedimentation Reevaporation & remission processes considered.
湿性沈着	

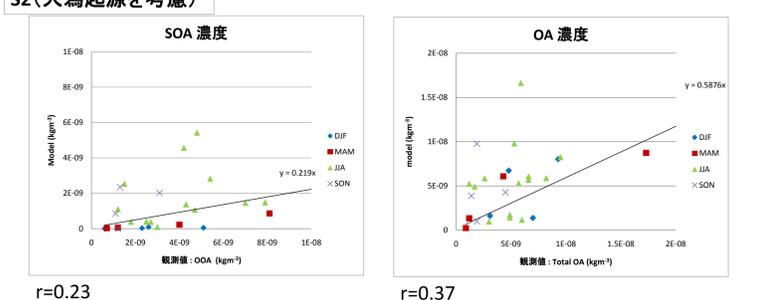
### VOCエミッションはインベントリを使用

VOC エミッション	物質	エミッションインベントリ
植物起源	イソプレン, モノテルペン	GEIA [Guenther et al., 1995]
人為起源・バイオマスバーニング	ベンゼン, トルエン, キシレン	RETRO [Schultz et al., 2007] (スケーリング用に CO2 Andres et al., GICC[A.Mieville et al., 2009])



## 結果1: 観測値との比較

観測データ: AMSIによる地上観測23箇所(北半球)のデータ



## 結果2:

シミュレーション	モノテルペン ( $\alpha$ -pinene)			イソプレン		ベンゼン	トルエン	m-キシレン	合計
	OH	$O_3$	$NO_3$	OH	$NO_3$	OH	OH	OH	
S1	0.93	3.86	3.15	14.12	1.70	-	-	-	23.76
S2	0.93	3.89	3.19	14.18	1.72	0.48	0.40	0.21	24.99
P1	0.75	4.34	0.27	12.19	0.18	-	-	-	17.73

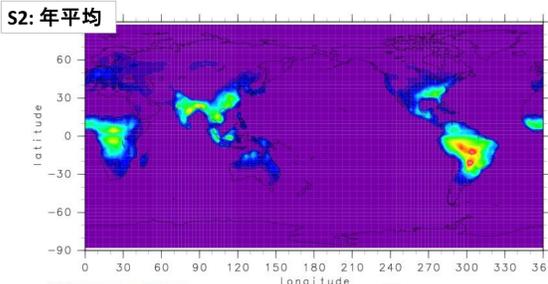
単位: Tgyr<sup>-1</sup>

### 人為起源VOCの影響

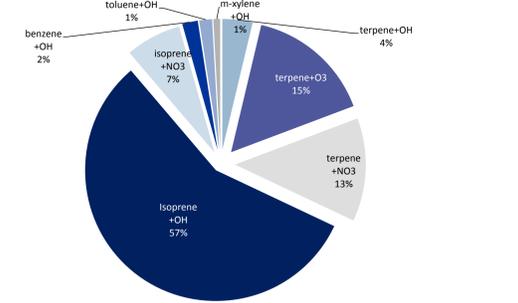
人為起源VOCの追加により、全球のSOA生成量は**5.2%増加**

### SOAプロダクション(鉛直積算量):

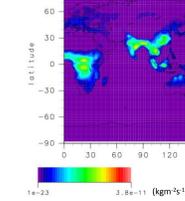
S2: 年平均



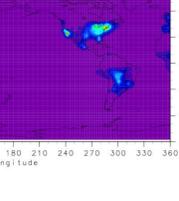
S2: 全球年平均SOAプロダクションへの寄与



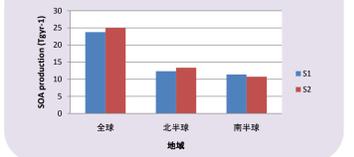
S2: 植物起源 SOA



S2: 人為起源 SOA

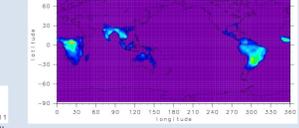


地域別SOAプロダクション

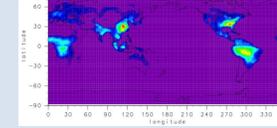


季節変化 →

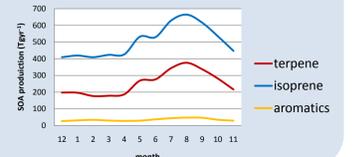
DJF



JJA

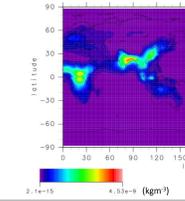


S2: SOAプロダクション(月平均)

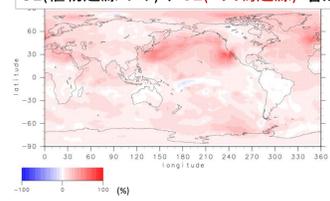


### SOA濃度:

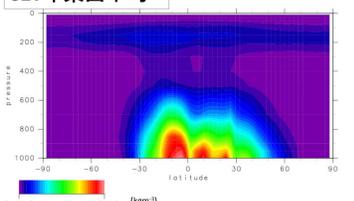
S2: 年平均



S1(植物起源のみ) → S2(+人為起源) 増加率



S2: 年東西平均

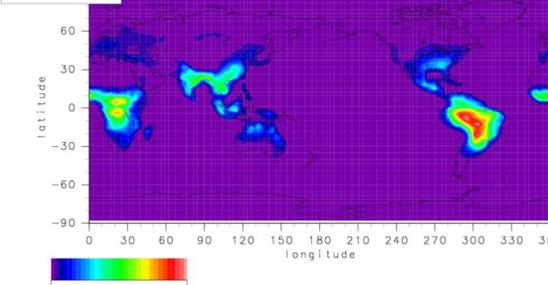


### 大気化学場変動の影響

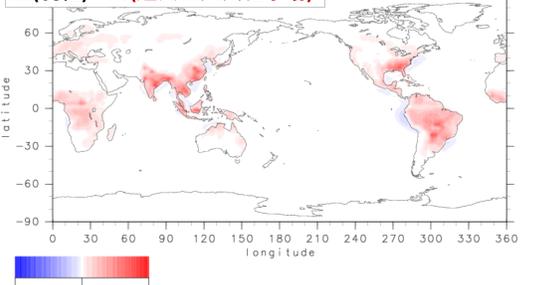
産業革命前～現在の大気化学場の変化により**全球SOA生成量は25%増加**

### SOAプロダクション(鉛直積算量):

S3: 年平均

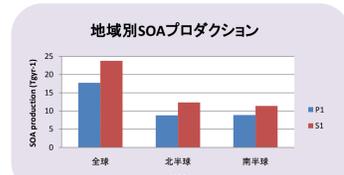


S1(現在) - P1(過去の大気化学場)

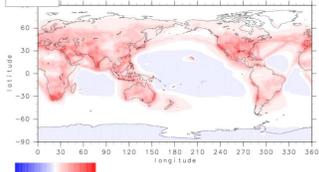


化学場の変化とSOAプロダクションの比較 →

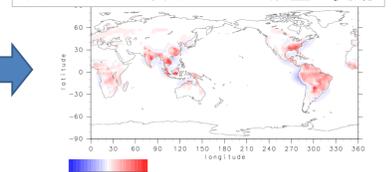
モノテルペン+ $O_3$ 反応は一部地域で減少傾向



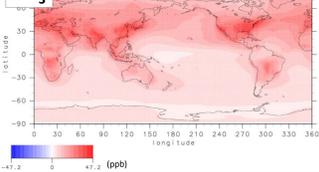
$\Delta OH$



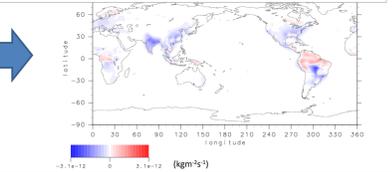
イソプレン+OH反応のSOA生成量の変動



$\Delta O_3$



モノテルペン+ $O_3$ 反応のSOA生成量の変動



## まとめ

- 観測値と比較すると、SOAのみで見ると全体的に過小評価気味
- いずれのケースでもイソプレン+OH反応が最も寄与が大きい
- 人為起源VOCの考慮により、植物起源VOCのみと比較して、SOA生成量が5.2%増加した
- 過去から現在にかけての大気化学場の変化により、SOA生成量が25%増加した