

B-051 アジアにおけるオゾン・ブラックカーボンの空間的・時間的変動と気候影響に関する研究

(4) 化学輸送モデルによる半球規模オゾン・ブラックカーボン汚染の解明

独立行政法人海洋研究開発機構 地球環境フロンティア研究センター 秋元 肇
名古屋大学 大学院環境学研究科 須藤 健悟

〈研究協力者〉

独立行政法人海洋研究開発機構 地球環境フロンティア研究センター
山地 一代, オリバー ワイル
ド*

(※現在、ランキャスター大学(ランキャスター・英国))

平成17～19年度合計予算額 6,778千円

(うち、平成19年度予算額 2,484千円)

※ 上記の合計予算額には、間接経費 1,564 千円を含む

[要旨] 全球規模での対流圏オゾンのソース・リセプター関係を明らかにするための手法として、全球化学輸送モデルCHASERモデルを用いた「タグ法(Tagged Method)」を開発し、代表的リモート地点における対流圏オゾンに対するそれぞれの発源地域からの寄与を月別に調べた。代表的リモート地点であるMace Head, Bermuda, Samoaなどに対して、北米、ヨーロッパ、アジアの汚染地域からの寄与は、40%以上に達することが分かった。特に中国の境界層、アジアの自由対流圏からの影響は、北半球のほぼ全域で認められた。また、6-9月にはアジアの自由対流圏からのオゾンが、上部対流圏におけるアジアから南半球への半球間長距離輸送によって、南太平洋に5-10ppbの大きな寄与を与えていることが分かった。同様に南米からの半球間輸送が日本、北太平洋、米国に大きな影響を与えていることが分かった。

一方、全球化学輸送モデルFRCGC/UCIモデルを用いたゼロエミッション法によって、我が国の首都圏に対する、ヨーロッパ、北米、中国、南・東南アジア、我が国自身、成層圏などからの寄与を2-4月の3ヶ月間について調べた。平均値では大陸間輸送によるヨーロッパ、北米からの寄与を合わせると中国からの影響を上回ることが示された。但し、ヨーロッパ、北米からの影響には余り大きな日々変動は見られないのに対し、中国からの影響は非常にepisodicであり、日によっては首都圏に対し15ppb以上と非常に大きく、平均値だけではその重要性が議論できない。特にオゾン濃度が80ppbを超える高濃度日に関して見ると、日本起源のオゾンが主要因となっている日と、日本起源と中国起源のオゾンの寄与が重要である日とがあることが分かった。

東アジア域における対流圏オゾンの時間的・空間的変動の定量的な把握のために、サブテーマ3で開発したエミッションデータベースREASを領域化学輸送モデルRAMS/CMAQに導入し、2002年の

通年シミュレーションにより、空間的季節変化を明らかにした後、2020年の排出量予測値を用いた将来予測モデル実験を行なった。現状推移型の場合、中国華北平原のオゾン夏季(6-8月)平均値で約18ppb増加し、わが国ではわが国自身のNO_xの排出量が減少すると予測されるにも関わらず、夏季の3ヶ月平均で約6ppb増加することが分かった。また、サブテーマ1の観測データに対するモデル解析を行った。

[キーワード] 対流圏オゾン、全球化学輸送モデル、領域化学輸送モデル、半球輸送、越境輸送

1. はじめに

地球温暖化や様々なスケールの大気汚染等の環境問題は、人間活動によって排出される物質が大気の構成物質の濃度や組成を変化させる事に起因しており、今後、各国の経済発展に伴う物質の排出量の増大が、将来の大気構成物質の濃度や組成を変動させ、環境問題の深刻化を招くと危惧されている。とりわけ、経済成長や人口増大が続くアジア域では、人間活動に起因する汚染物質の排出量の増大が、深刻な環境問題を生んでいる。この地域は、今後も、更なる経済発展が見込まれており、環境対策の導入状況によっては、大気環境の悪化は避けられない。また、その影響はアジア域内に留まらず、半球レベルの大気環境へ影響を及ぼすと危惧されている。特に、化石燃料消費によって排出されるNO_xやVOC等の汚染物質を前駆体とする二次汚染物質である対流圏オゾンは、光化学スモッグの原因物質であると同時に地域的气候変動に影響を及ぼす短寿命温暖化関連物質として、IPCC等でもその重要性が指摘されている。こうした視点から対流圏オゾンについて、全球・半球・アジア域のそれぞれのスケールにおける時間的・空間的変動を定量的に評価することは極めて重要である。

2. 研究目的

本研究では全球化学輸送モデル及び領域化学輸送モデルを用いて、対流圏オゾンの空間的・時間的変動を解析する。全球モデルを用いた研究においては、全球規模でのオゾンのソース・リセプター関係を明らかにし、大陸間輸送・半球汚染問題に対する科学的知見を提供することを目的とする。また特にわが国の首都圏を対象に成層圏起源、大陸間輸送、アジア大陸からの越境輸送、わが国自身での生成の寄与を明らかにすることを試みる。領域化学輸送モデルを用いた研究では、サブテーマ3で作成されたアジアにおけるエミッション・インベントリ・データベースREASを用いて、アジア域におけるオゾンの現在及び将来の空間的変動と季節変化を明らかにすることを目的とする。また、将来アジアにおける汚染物質の排出量が増加したときのわが国のオゾン汚染に対する影響を評価する。更に領域モデルを用いた研究では、サブテーマ1の観測で得られたデータのモデルによる解析を行い、観測領域におけるオゾンの光化学生成と輸送の寄与をそれぞれ明らかにすることを目的とする。

3. 研究方法

(1) CHASERモデル

全球における対流圏オゾンのソース・リセプターの研究にはCCSR/NIES/FRCGC GCMのフレームワークを元に開発された全球化学輸送モデルCHASER¹⁾が用いられた。本研究で適用された水平分解能はT42($2.8^\circ \times 2.8^\circ$)、鉛直分解能は地表から高度40kmまでを32鉛直層分割(上部対流圏、下部成層圏で分解能約1km)である。対流圏化学反応としては O_3 -HOx-NOx- CH_4 -CO系及び非メタン炭化水素の酸化反応、さらに湿性沈着、 N_2O_5 、 HO_2 のエアロゾル・雲粒上の不均一反応などを含んでいる。人為起源エミッションデータとしては1995年に対するEDGARを、バイオマスバーニングに対しては衛星センサーATSRによるホットスポットの季節変化が、自然発生源としては土壌、雷からのNOx、植物からのイソプレン、テルペンが考慮されている。本研究では、オゾンの輸送の解析に当たりタグ・トレーサー法を開発した。タグを付けるオゾン発生源領域としては、図1のように境界層(PBL)に対して全球を14領域に、自由対流圏(FT)に対しては8領域に分割した。

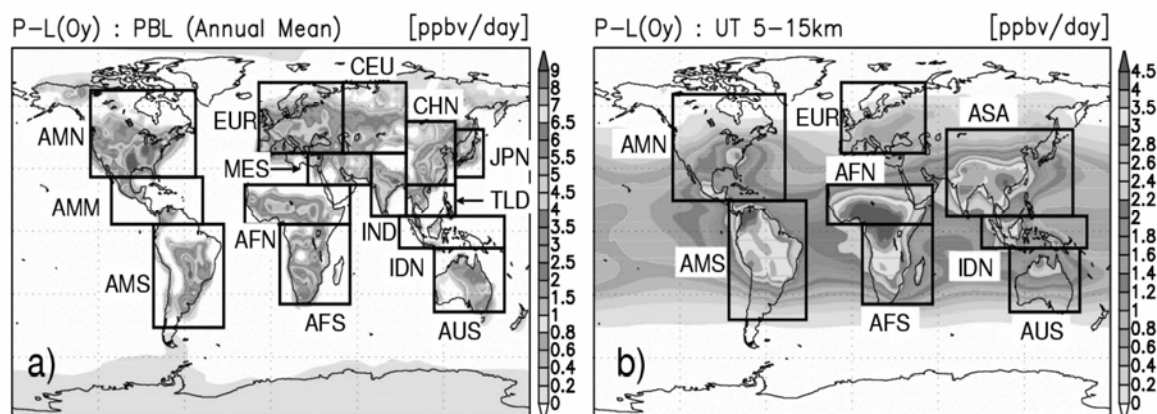


図1. CHASERによるタグ・トレーサー法におけるオゾン生成領域分割。a)境界層，b)自由対流圏。

(2) FRSGC/UCIモデル

我が国の首都圏に対するオゾンの発生源別寄与の解析には、もう一つの全球化学輸送モデルFRSGC/UCI²⁾が用いられた。水平分解能としては、T63($1.9^\circ \times 1.9^\circ$)で計算を行った。モデルの検証には10ヶ所の東アジア酸性雨モニタリングネットワーク(EANET)の O_3 データ及び、4ヶ所のWMO/GAWステーションの O_3 、COの観測値を用いた。各地域からの化石燃料起源大気汚染物質による寄与を推定するために、日本及び韓国(JP)、中

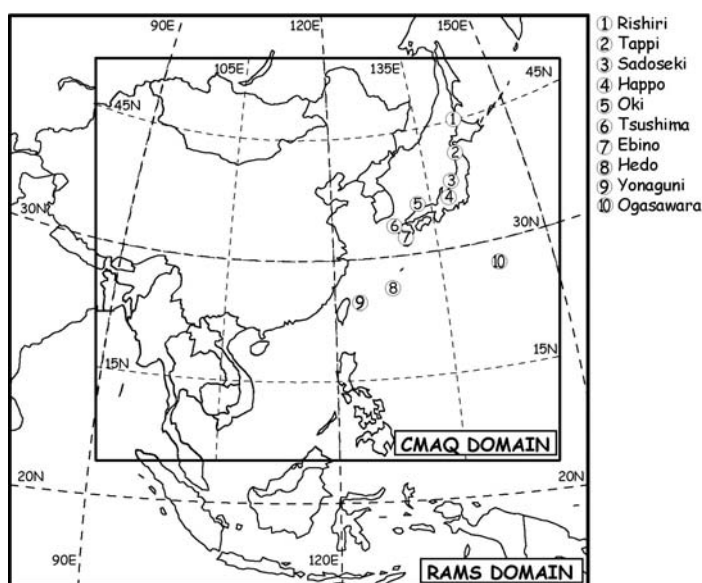


図2. RAMSおよびCMAQのモデル計算領域。図の数字はモデル検証に用いた観測地点を示す。

国(CH)、南アジア(SA)、ヨーロッパ(EU)、北米(NA)の5地域を考慮し、その他に東南アジアのバイオマスバーニングと成層圏・対流圏交換(STE)の寄与を考慮した。これら各地域からの寄与を評価するにあたっては、化石燃料燃焼及びバイオマスバーニングからのNO_x、CO、VOCの発生を地域ごとにゼロにするゼロエミッション法を用いた。

(3) RAMS/CMAQモデル

領域化学輸送モデルとしては、米国環境保護庁(USEPA)で開発されたCMAQ Ver. 4.4を用いた³⁾。東アジア域を対象とした2002年の通年計算においては、初期値等に2002年NCEP/NCAR客観解析気象データを用い、領域気象モデル、Regional Atmospheric Modeling System⁴⁾(RAMS) Ver. 4.3で計算された気象場を利用した。CMAQの計算対象領域は、水平方向に80km格子で78グリッド×68グリッド、鉛直方向に14層(最下層150m、最上部約23km)である。モデル領域の中心は、北緯25°・東経115°である(図2)。本研究では、CMAQ Ver. 4.4モデルシステムで選択可能な化学スキーム(CBM-IV、RADM2、SAPRC-99)のうち、化学種72種、反応数214本を扱う事のできる、SAPRC-99⁵⁾(Statewide Air Pollution Research Center Ver.99)を用いた。人為起源の排出量データは、地球環境フロンティア研究センターで開発し、本研究課題のサブテーマ3において作成されたエミッション・インベントリー、REAS Ver. 1.0(基準年:2000年)⁶⁾を利用した。自然起源VOC排出量とバイオマスバーニング起源の排出量は、それぞれGEIA⁷⁾とACCESS⁸⁾の値を用いた。また、領域モデルの境界濃度条件には、全球化学輸送モデル、CHASER¹⁾の出力濃度を与えた。将来予測実験に関しては、東アジア域からの人為起源排出量の変化による、将来のオゾン濃度変動への影響を調べるために、REAS Ver. 1.0の2020年排出量を導入し、領域モデル計算を行なった。尚、その他のモデル入力条件(気象場、自然起源とバイオマスバーニング起源の排出量、境界濃度)は、上記の2002年に対するモデル計算条件と同じである。

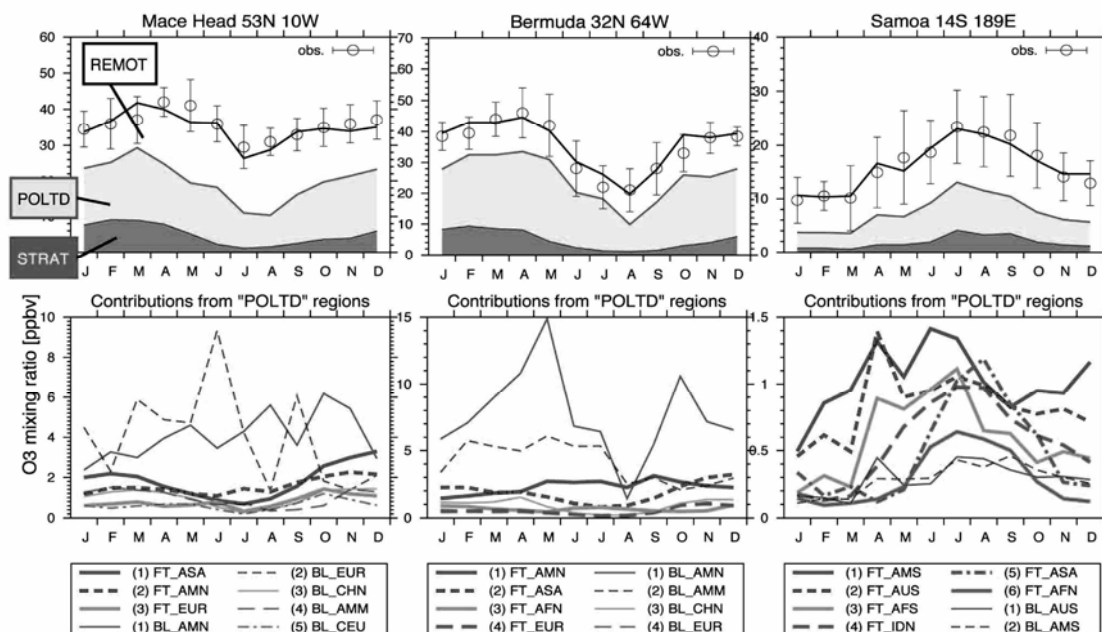


図3. リモート地域(Mace Head, Bermuda, Samoa)における地表オゾン季節変化の観測値と発生源地域寄与別計算値。

(4) MM5/NAQPMSモデル

サブテーマ1で観測が行われた中国三山(泰山、華山、黄山)のオゾンデータのモデル解析は、中国科学院大气物理研究所で開発されたNAQPMS(Nested Air Quality Prediction Modeling System)⁹⁾を用いて行われた。本モデルでは81km×81kmの水平グリッド、対流圏20層の鉛直グリッド(1km以下を7層)を採用した。化学反応スキームには133の化学式、53の化学種を含むCBM-Zを用いた。エミッションデータとして主としてD. Streetsから得られたTRACE-P用の0.1°×0.1°のデータベースを使用し、CO、土壌起源NO_xについてはサブテーマ3で作成したREAS(0.5°×0.5°)を、自然起源炭化水素についてはGEIAのデータを用いた。モデルシミュレーションは2004年3月から2005年2月までの丸1年間について行われた。

4. 結果・考察

(1) CHASERモデルによる各地域からの長距離輸送による対流圏オゾンのグローバル発生源帰属

図3は3つのリモート地点、アイルランドのMace Head、大西洋上のBermuda及び南太平洋のSamoaに対するそれぞれの発生源地域からの寄与の季節変化を示したものである。上段の図では各地点に対し成層圏からのオゾン(STRAT)、汚染地域において生成されたオゾン(POLTD)、及びリモート地域において生成されたオゾン(REMOT)の輸送の寄与がオゾン濃度の観測値の季節変化と共に表されている。また、下段の図はその内POLTD地域からの寄与分について、多い方から8領域からの寄与を境界層(BL)からのものと自由対流圏(FT)からのものとを区別して示したものの

である。図に見られるようにMace Headでは冬季と春季には50-60%のオゾン濃度は汚染地域からの輸送、約30%がリモート地域からの輸送で説明される。夏季にはMace Headに対するPOLTD地域からの寄与は約25%に減少し、REMOT地域からの寄与が60-70%に増加する。これは夏季には汚染地域からの長距離輸送の効率が低くなり、大西洋のリモート地域におけるオゾンの化学生成の効率が高まるためである。POLTD地域からの寄与に焦点を合わせた下段図から、Mace Headに対してはヨーロッパ及び北米の境界層 (BL-EUR及びBL-AMN) からのオゾンが最大の寄与 (2-10ppb) をもたらしめていることが分かるが、大西洋上の風系パターンを反映して両者は時間的に逆相関を示す。また、夏季以外にはアジア (FT-ASA及びBL-CHN) からの寄与が無視できない (1-3ppb) ことが分かる。Mace Head O_3 に対するアジアからの寄与についてはDerwentら¹⁰⁾、Auvay and Bey¹¹⁾によっても見られている。

Bermudaでは、オゾンの季節変化は主としてPOLTD O_3 によって支配されており、REMOTからの寄与は年間ほぼ一定である。POLTDの寄与分の中では、北米及び中米の境界層 (BL-AMN及びBL-AMM) からのアウトフローが最大であり、それぞれ春季にピーク値15、6ppbを与えている。これらのPBL領域からの寄与は夏季には著しく減少し (8月には約1ppb)、代わりに北米の自由対流圏 (FT-AMN) からの寄与が増大する。アジアからの寄与はここでも特に冬季及び春季に見られる (1-3ppb)。Samoaの場合には、オゾンの季節変化は季節的にほぼ同位相で変化しているREMOT、POLTD、STRATからの輸送の組み合わせで説明される (南半球の冬季に最大)。POLTDの寄与は南半球の各地からのものが混じり合っており、一方アジアの自由対流圏 (FT-ASA) からの大きな寄与が、7月から9月にかけて見られている (>1ppb)。これは、アジアからアフリカを経由して南太平洋に達する半球間輸送によるものである。

同様に図4は北極圏カナダのResolute、ドイツのHohenpeissenbergの境界層 (800hPa)、中部対流圏 (500hPa)、上部対流圏 (300hPa) に対するそれぞれの発生源からのオゾンの寄与を示したものである。夏季Resoluteの800hPa、500hPaでは、オゾンは主として北太平洋、大西洋、北極圏で生成したREMOT O_3 で支配されている。しかし夏季以外では800/500hPa O_3 に対して、北米、中米、アジア、ヨーロッパ、中央ユーラシアのFT、PBLからの流入が大きい (1-5ppb)。300hPaでは成層圏起源 O_3 が、オゾンの季節変化を支配しているが、対流圏起源 (POLTD+REMOT) も大きな寄与を与えており (30-50%)、アジアの自由対流圏 (FT-ASA) の寄与も非常に大きい (56-10ppb)。Hohenpeissenbergでは800hPa O_3 の変化は容易に予想されるようにヨーロッパ境界層 (BL-EUR) で大部分説明される。しかしながら、北米及びアジア (BL/FT-AMN、FT-ASA) からの寄与も1-5ppbと無視できない。一方、500、300hPaでは北米とヨーロッパ (FT/BL-AMN、FT/BL-EUR) からの寄与が同程度に混じっており、夏季に増加する。アジア O_3 (FT-ASA及びBL-CHN) の影響はこれらの自由対流圏では明らかに見て取られ、夏季から秋季にかけて増大し、この結果はAuvay and Bey¹¹⁾と一致している。

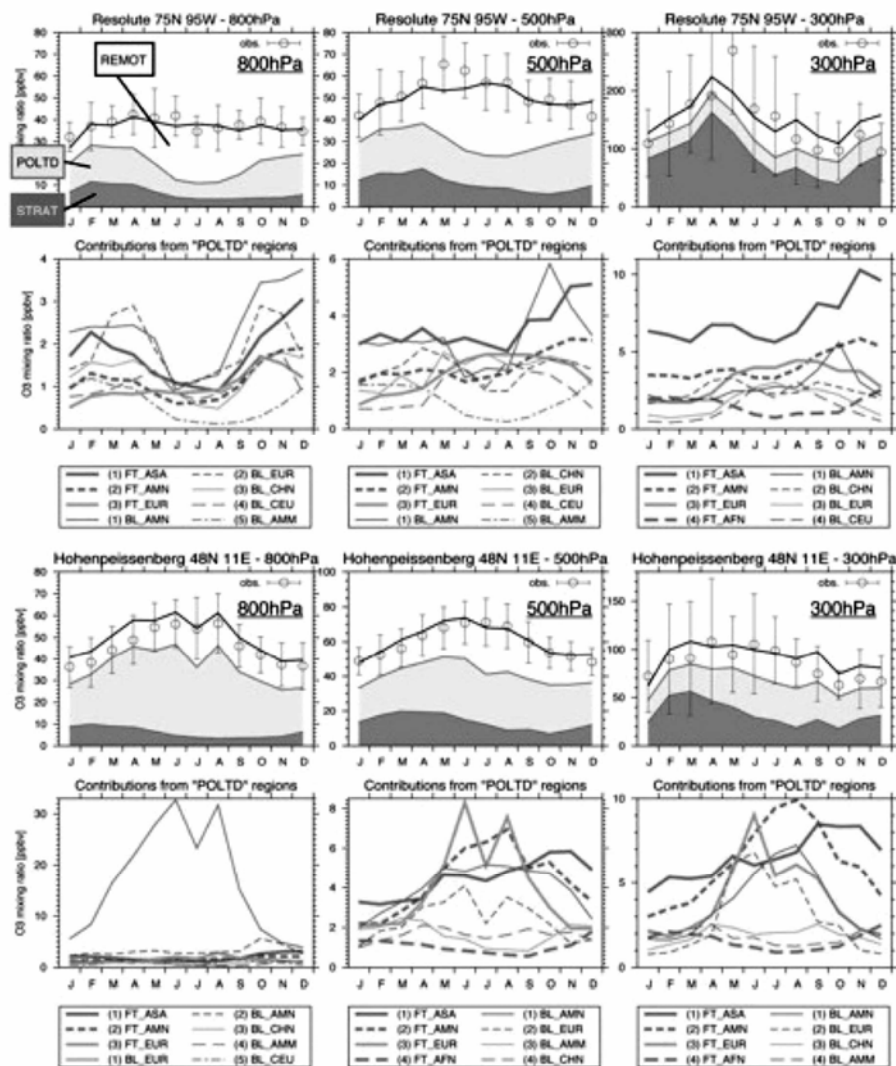


図4. Resolute及びHohenpeissenbergの800, 500, 300hPaにおける対流圏オゾン季節変の観測値と発生源寄与別計算値。

図5には日本の札幌と鹿児島における各領域からの寄与を高度別に示した。札幌と鹿児島では、オゾンの季節変化は主としてアジア自由対流圏(FT-ASA)と中国の境界層(BL-CHN)によって支配されている。Pochanartら¹²⁾の観測研究では、札幌と鹿児島の中間の緯度に位置する隠岐における中国の地域汚染の寄与が推定されている。本研究で計算された隠岐におけるBL-CHN O_3 トレーサーは、冬季に5ppb、夏季に20-25ppbと中国の夏季におけるオゾン生成を反映しており、上の観測に基づく研究結果と良く一致した。札幌の800hPaでは特に夏季以外にヨーロッパ及び中央ユーラシア(EUR及びCEU)からの1-3ppbの大きな寄与が示されており、この結果は冬季にシベリア高気圧によってヨーロッパからアジアへユーラシア大陸を越えて効率よくオゾンが輸送されるというWildらの研究と一致している。800hPaの鹿児島では3月に15ppbのピークを持つ中国PBL(BL-CHN)からの大きな寄与が見られる。このBL-CHN O_3 は札幌と異なって4月から7月には約

5ppbに減少するが、これに変わってアジアの自由対流圏(FT-ASA)がオゾンの大きな化学生成を反映して夏季に増大する。また3月には東南アジアのバイオマスバーニングの影響で生成した、タイのPBLからのオゾンの大きな流入(約5ppb)が見られることが注目される。300hPaの鹿児島では6-9月のオゾンが約10ppb過大評価になっているが、これはこの季節に増大するFT-ASAの寄与が過大評価されているためではないかと思われる。また冬季の過大評価は成層圏からの輸送の過大評価によるものと思われる。

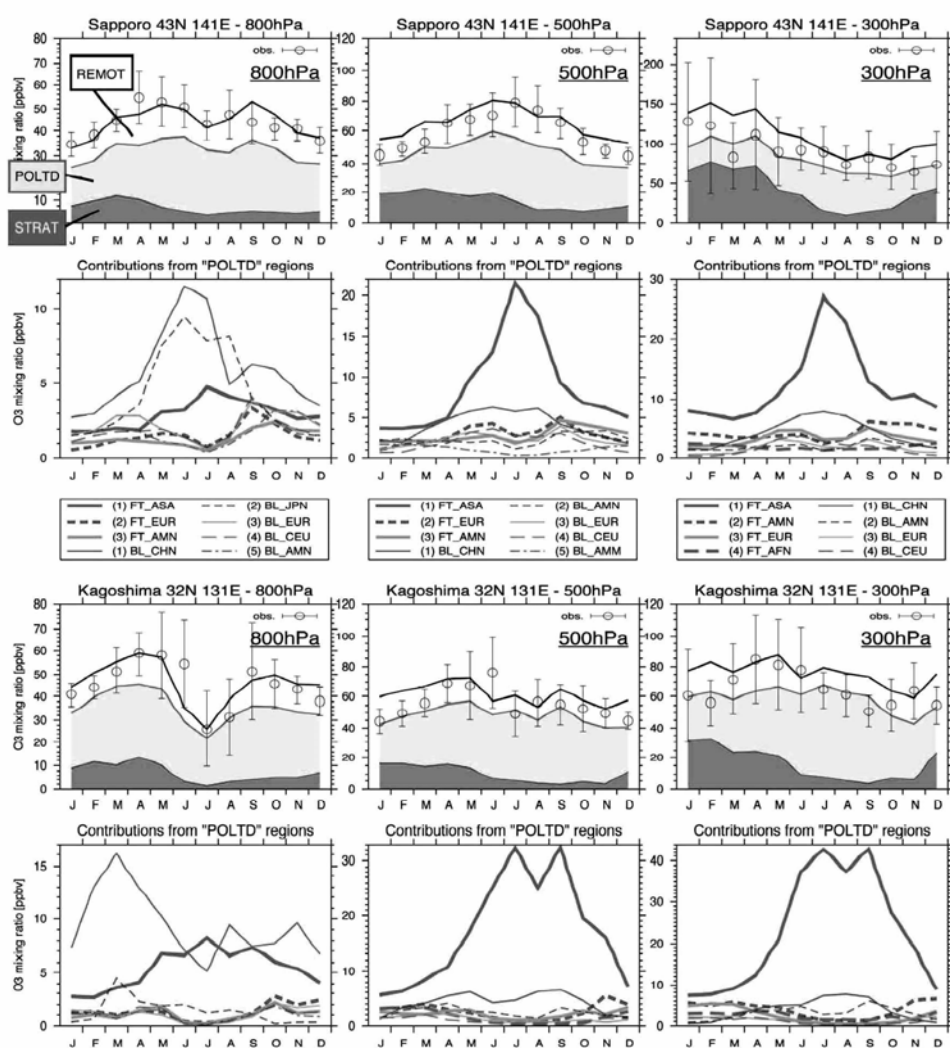


図5. 札幌及び鹿児島での800, 500, 300hPaにおける対流圏オゾン季節変の観測値と発生源寄与別計算値。

(2) 首都圏のオゾンに対するリージョナル輸送及び大陸間輸送の寄与

図6はFRCGC/UCIモデルを用いゼロエミッション法によって、180kmグリッドでの東京首都圏の2-4月のオゾンに対する日本及び韓国(JPN)、中国(CHN)、南アジア(SA)、ヨーロッパ(EUR)、北米(NAM)、東南アジア(SEA)、成層圏(STR)からの寄与を計算した結果を示したものである。図5の上段には東京グリッドの代表値としてつくばにおける観測値とJPN、non-JPN (=EUR+NAM+CHN+STR)の寄与を、また図5bにはSTR、CHN、EUR、NAM、SEAのそれぞれの寄与を示されている。2月には我が国周辺におけるオゾンの光化学生成は小さいが、3、4月になるにつれてその寄与は増大する。一方中国からの寄与は日々変動が大きく、日によっては15ppbと非常に大きく、日によっては2ppb以下と小さく非常にepisodicである。これは我が国周辺のシノプティックスケールの風系によって、中国からの輸送が非常に効率よく行われる日と、ほとんど輸送がもたらされない日とがあることを示している。一方、ヨーロッパ、北米からの大陸間輸送には日々変動は小さく3-5ppbのほぼ一定の量が輸送されていることが分かる。これに対し、東南アジアからの影響は首都圏に対しては非常に小さいことが分かった。

表1にはこれらのそれぞれの地域からの寄与を月別平均値として示した。表に見られるように3ヶ月平均でのヨーロッパ、北米、中国、日本、東南アジア、成層圏からの寄与は、それぞれ3.9、3.0、4.4、0.8、9.4、12.2 ppbと見積もられ、平均値では大陸間輸送によるヨーロッパ、北

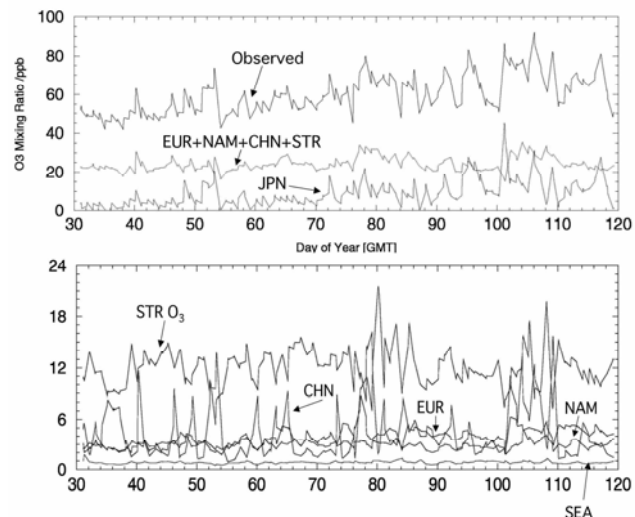


図6. 2-4月の東京首都圏グリッドにおける、それぞれの発生源地域からのオゾンの寄与の日々変動。

表1. 午後の東京グリッドの地表オゾンに対するそれぞれの発源地域からの寄与。

Source Region	February	March	April	The Whole Period
Total	52.3 ppbv	61.2 ppbv	68.0 ppbv	60.5 ppbv
EUR	2.8 ppb (5.4%)	4.2 ppb (6.9%)	4.5 ppb (6.6%)	3.9 ppb (6.4%)
NAM	3.1 ppb (5.9%)	3.1 ppb (5.1%)	3.0 ppb (4.4%)	3.0 ppb (5.1%)
CHN	4.2 ppb (8.0%)	4.6 ppb (7.4%)	4.5 ppb (6.5%)	4.4 ppb (7.3%)
JPN	5.6 ppb (10.6%)	8.2 ppb (13.3%)	14.7 ppb (21.6%)	9.4 ppb (15.6%)
SEA	0.8 ppb (1.5%)	0.9 ppb (1.4%)	0.9 ppb (1.3%)	0.8 ppb (1.4%)
Stratosphere	11.7 ppb (22.5%)	13.2 ppb (21.5%)	12.0 ppb (17.6%)	12.2 ppb (20.2%)

米からの寄与は中国からの影響を上回ることが示された。但し、上に図5で見たようにヨーロッパ、北米からの影響は毎日ほぼ一定で、あるのに対し、中国からの影響は非常にepisodicであるので、我が国の首都圏に対する影響は平均値では評価できない。

そこでこれら3ヶ月間でオゾン濃度が80ppbを越える高濃度日についてそれぞれの発生源地域からの寄与を見てみたのが、表2である。表に見られるように、例えば、Day101ではオゾンの高濃度はほとんど日本の寄与で占められており、中国からの影響はほとんど無いのに対し、Day106では中国の寄与が日本の約42、63%に達する。一方ヨーロッパ、北米からの大陸間輸送の影響は合わせて5-8ppb(6-9%)、成層圏起源は8-11ppb(9-11%)である。このように特にオゾン濃度が80ppbを超える高濃度日に関して見ると、日本起源のオゾンが主要因となっている日と、日本起源と中国起源のオゾンの寄与が重要である日とがあることが分かった。但し、表1,2に見られるように、本研究の範囲ではここで考慮されている各発生源地域からの寄与の和が、オゾン濃度の60%以下しか説明できておらず、これ以外の発生源地域の影響も重要であることを意味している。上のタグ法による解析で見られたように、中央ユーラシアその他の北半球発生源地域を初めとするその他の地域で放出される前駆体物質に起因するオゾンが無視できないことが分かったので、ゼロエミッション法においても今後それらを含んだ解析を行うことが必要であることが分かった。

(3) 東アジア域におけるオゾン濃度の季節変動

本研究ではまずモデル計算結果を東アジア酸性雨ネットワーク (EANET) およ

表2. 首都圏グリッドのオゾン高濃度日 (>80ppb) におけるそれぞれの発生源地域からの寄与。

	Day 101	Day 106	Day 109
	ppbv	ppbv	ppbv
Total	86 (100%)	93 (100%)	83 (100%)
JPN	44 (51 %)	31 (33 %)	23 (28 %)
CHN	2 (<1 %)	13 (14 %)	16 (19 %)
EUR	4 (5 %)	5 (5 %)	3 (4 %)
NAM	3 (4 %)	3 (3 %)	2 (2 %)
STR	8 (9 %)	11 (11 %)	9 (11 %)

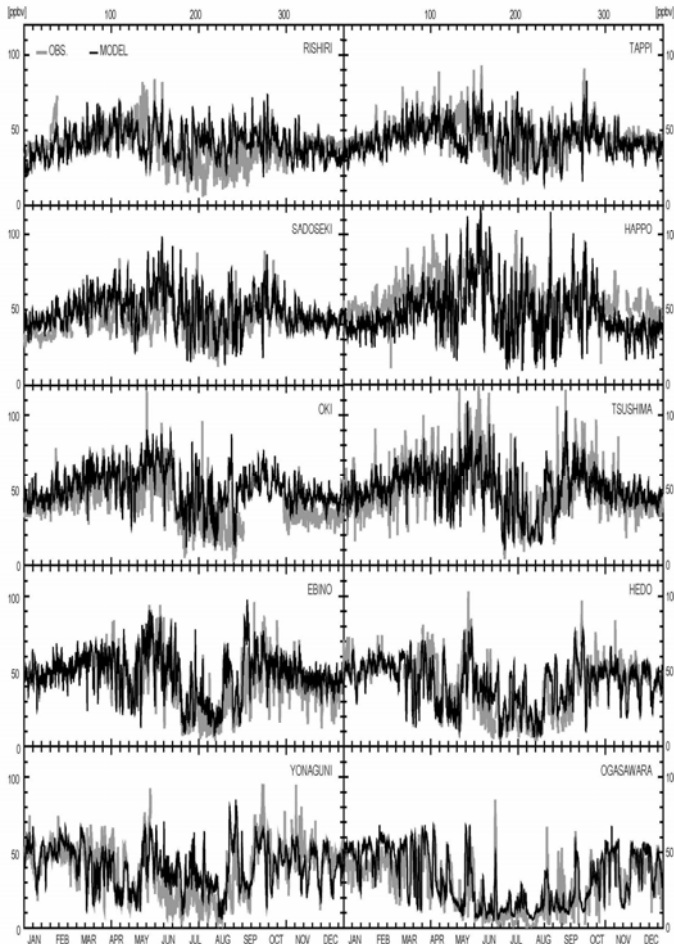


図7. CMAQによるモデル (Model) と観測 (OBS.) のオゾン濃度日平均値の比較。

び World Data Centre for Greenhouse Gasesと比較することで、領域モデル計算によるオゾン濃度の再現性の確認を行った。図7は2002年の観測とモデルのオゾン濃度の時系列変化を、日平均濃度を用いて示す。本モデルシステムは、オゾン濃度レベルや濃度の季節変動特性を非常によく再現していた。また、数日周期で変動する、オゾン濃度の変動を比較的良く

捕らえられていた。個々の地点に関して詳しく見ると、日本の遠隔観測地におけるオゾン濃度のモデルによる再現性は非常に良く、特に、小笠原とえびのにおいて、計算値と観測値に間の相関係数は0.9で、モデルはオゾン濃度を非常に良く再現できていた。しかし、北日本域における相関係数は0.3-0.5程度で、日本の低緯度域と比較してモデルの再現性は劣っていた。北日本域において、夏季のオゾン濃度を過大評価し、また初夏から秋の間に日々変動を時折再現できない等の原因による事が明らかになった。一方、オゾン濃度の季節変動が大きく、その変動特性をモデルが再現できている低緯度域において、特に、観測とモデルの相関が良いことが判明した

13)。

図8は、モデルによって計算され

た、2002年の大気境界層内（2km以下）における、1、3、5、8、10月の月平均オゾン濃度（ppb）を示す。冬季（1月）、北緯30°付近は、比較的高いオゾン濃度（50-60ppb程度）に覆われる。春期（3-5月）、中国～朝鮮半島～日本（特に、北緯30°-45°付近）にかけて、オゾン濃度増大が見られ、また、オゾン濃度の高い領域が、1月の北緯30° 付近から高緯度域（北緯30°-45°付近）へシフトする。5月、中国東部において、オゾン濃度は最大値（70-75ppb）を示す。夏季（8月）の特徴は、海洋性気団の影響下にある地域（中国南部～韓国～日本）において、オゾン濃度の減少が確認され、オゾン濃度は20-40ppb程度にまで減少する。一方、海洋性気団の影響の薄い中国中部

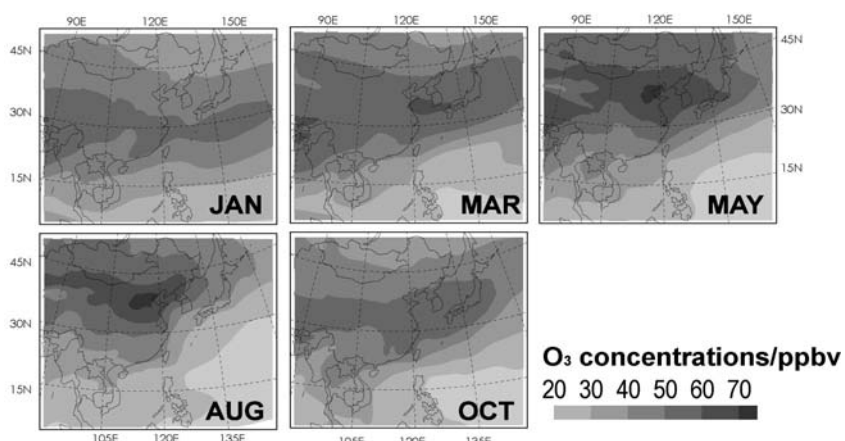


図8. 2002年の東アジアにおける、大気境界層（2km以下）の月平均オゾン濃度（ppb）。

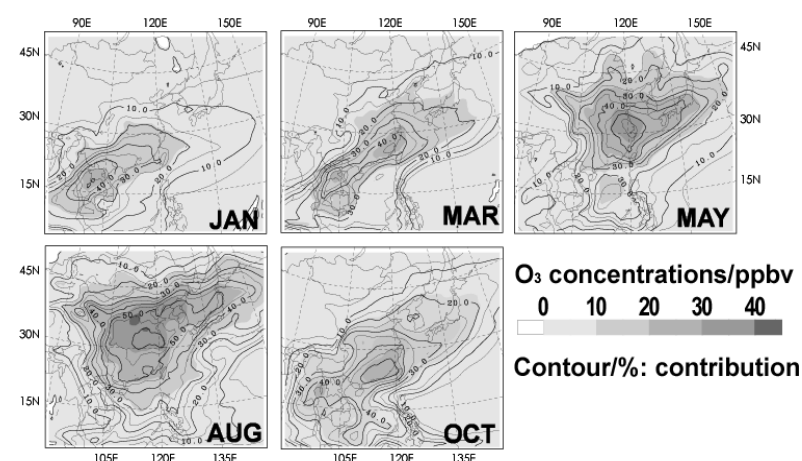


図9. 東アジアにおける、大気境界層内（2km以下）の領域内排出量に起因する光化学生成オゾンの月平均濃（ppb）。コンターは、オゾン濃度に対する域内排出量の寄与率(%)を示す。

から北部（華北平原域）にかけて、この時期、かなり高濃度のオゾンに覆われたままである。秋季（10月）には、夏の期間、海洋性の清浄な大気に覆われていた領域において、再び、オゾン濃度が増大する事がモデルによって表された。モデル結果が示すように、東アジアのオゾン濃度の季節変動特性は、光化学生成に影響する日射と気団（大陸性気団と海洋性気団のどちらの影響下にあるか）によって大いに支配されていることが判明した。この様に、本モデルシステムによって、東アジア域におけるオゾン濃度の季節変動、空間変動が示された¹³⁾。

（4）東アジア域内の排出量に起因する光化学生成オゾン濃度

上に示されたような、オゾン濃度の季節変動および空間変動に与える東アジア域内の排出量の寄与を調べるために、モデル実験を実施し、モデル領域内からの排出量に起因する光化学生成オゾン濃度を算出した。図9は、大気境界層内（2km以下）における、モデル領域内の排出量に起因する光化学生成オゾンの月平均濃度（ppb）とオゾン濃度に対するその寄与率（%）を示す（1、3、5、8、10月）。冬季、東アジアにおいて、光化学生成の寄与は小さく、特に、北緯30°以北の地域において、10ppb以下（10%以下）であった。春から夏にかけて、光化学生成濃度は増大した。特に、長江河口域や華北平原において、その寄与は、30-45ppbに達した。日本域に着目すると、光化学生成オゾン濃度は、九州で25-30ppb（5月）、関東以南で20-25ppb（5月）、日本海側や東北で20-25ppb（8月）に達した。この結果、夏季に領域内の排出量による寄与は増大するものの、東アジアの対流圏オゾンは、年間を通して長距離輸送による影響を受けており、特に、冬季から早春にかけてその寄与が大きい事が示された¹²⁾。

（5）東アジアの人為起源排出量の将来変化に伴うオゾン濃度将来予測

地球環境フロンティア研究センターが開発している、社会経済シナリオに基づいた排出量の2020年予測値（REAS Ver.1.0）を利用し、オゾン濃度の将来予測モデル実験を行った。シナリオとしては中国に対して Reference case（REF）、Policy Succeed Case（PSC）、Policy Failure Case（PFC）の3つのシナリオが設定され、その他の国に対しては Reference Case のみが設定されている。中国における2020年のPSC、REF、PFCシナリオに対する

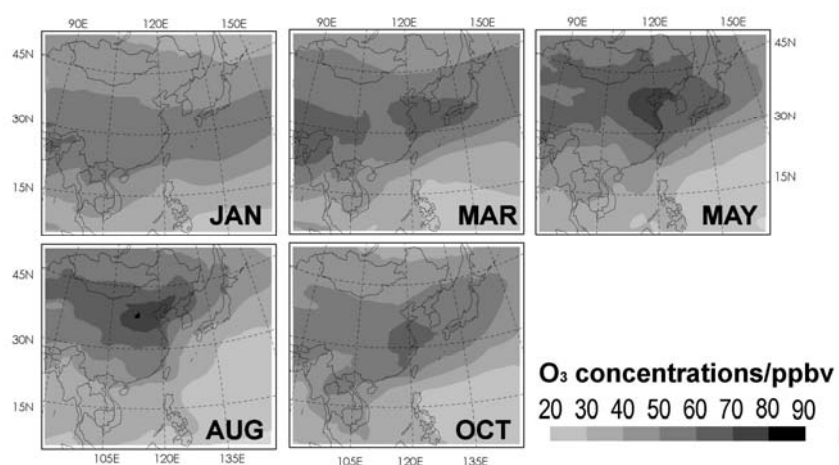


図10. 東アジア域、2020年における、オゾン濃度将来予測。大気境界層内（2km以下）の月平均濃度（ppb）。

NO_xおよびNMVOCの排出量は2000年に比べてそれぞれ、-2、 39、 128%、 97、 139、 163%の増加が設定されている。図10は、大気境界層内（2km以下）における、2020年のオゾンの月平均濃度（ppb）を示す（1、 3、 5、 8、 10月）。2020年のオゾン濃度は、特に、夏季の増加傾向が著しく、中国大都市周辺では、月平均で7-9ppb程度の増加が確認された。5、 8月には、2000年の濃度レベルに比較して、月平均濃度が70ppb（70-90ppb）を超える領域が、中国華北平原を中心に大幅に拡大することが示された。日本域の3月から6月のオゾン濃度の月平均値は、九州では60-62ppb、関東では60-66ppbになり、光化学オキシダントの我が国の環境基準（60ppb：1時間値）を超える と予測された。

このように我が国のオゾン濃度が、中国の排出量のシナリオによって大きな影響を受けることが分かった。このオゾンの増加に対してはNO_xの増加が制限因子になっており、NO_xの増加率が同程度の場合、NMVOCの増加率の差による影響は小さいことが示された。

(6) 中国三山におけるオゾンの光化学生成と輸送

サブテーマ1の観測から得られた中国三山におけるオゾン濃度の光化学生成と輸送による季節変化を領域モデルによって解析した。用いられたモデルは水平解像度81 km × 81 kmのNAQPMSモ

デルで1年間の通年シミュレーションを行った。本モデルを用い、東アジアにおけるWMO/GAW局及びEANET局のデータによる検証を経て、中国三山の計算値と観測値との比較を行った(図11)。図に見られるように泰山、華山の6月ピーク、黄山の春季ピークは良く再現された。泰山、黄山では夏季の極小、秋季の第2ピークが見ら

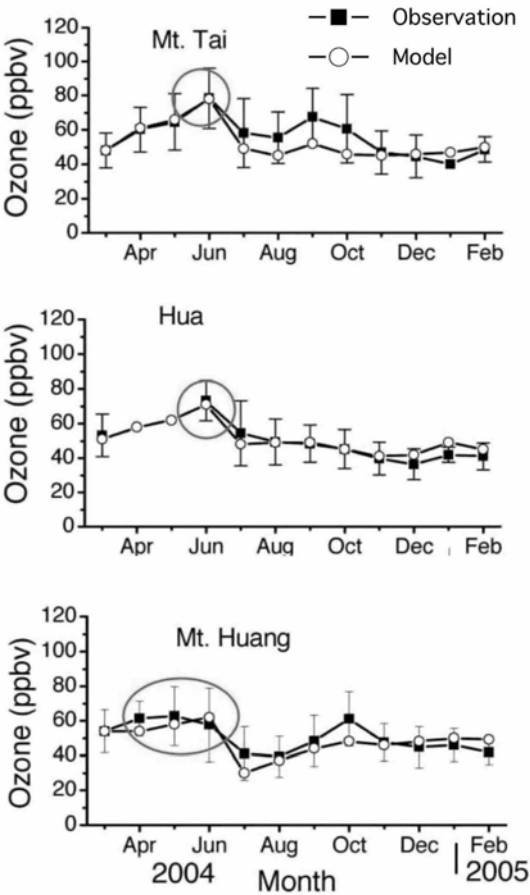


図11. 泰山、華山、黄山のオゾン季節変化の観測とモデルの比較。

表4. 泰山、華山、黄山におけるオゾンの光化学生成と輸送 (kt/day)

地点	月	光化学生成	輸送
泰山	6月	25.4	0.6
	7月	20.7	-4.0
華山	6月	12.1	-1.3

	7 月	10.0	-2.1
黄山	6 月	10.4	8.1
	7 月	9.1	4.2

れるのに対し華山では夏季の極小が見られていない。これは比較的沿岸に近い泰山、黄山では夏季モンスーンによる海洋性気塊の影響を受けるのに対し、内陸部の華山ではその影響を殆ど受けないためと考えられる。

モデルから得られた夏季(6-8月)におけるオゾンの1日当たり正味の平均生成濃度分布は、泰山、華山を含む中国中東部が1日当たり15ppb以上と、東アジアにおける最も激しいオゾン生成領域となっていることが分かった。これに対し韓国から日本では8-15ppb/dayの平均オゾン生成となっている。

表4は泰山、華山、黄山における6、7月のオゾンの光化学生成と輸送の寄与をモデル計算によって評価したものである。泰山、華山においては6、7月のオゾンは光化学生成がほとんどで輸送はむしろ流出である。また、泰山の光化学生成量は、華山の約2倍であることが見積もられた。これに対し、黄山では光化学生成量は華山よりやや少ないが、輸送による流入量が6月には光化学生成量に匹敵し、7月でもその約半分の量を占めていることが分かるなど、本研究によって中国中東部におけるオゾン汚染の特徴が解析された¹⁴⁾。

5. 本研究により得られた成果

(1) 科学的意義

本研究により対流圏オゾンに関して、アジア大陸からの越境輸送と同時に大陸間輸送による半球汚染の視点からの解析が重要であることが分かった。CHASERモデルを用いた研究では、対流圏オゾンのソース・リセプター関係を全球規模で初めて明らかにすることが出来た。これまで、ヨーロッパ、北米、アジアの大陸毎に他の大陸からの影響を評価した研究はいくつか見られるが、全球規模でそれぞれの発源地域、リモート地域からの影響を定量的に明らかに出来たことは本研究の大きな科学的成果である。本研究では例えばアジアの対流圏オゾンに対し、ヨーロッパ、北米、中央ユーラシアの他にリモート地域及び南半球大陸からの影響が無視出来ないことが明ら

かになり、北半球内のみならず半球間輸送の重要性が指摘された。一方、FRCGC/UCIモデルを用いた研究では、我が国の首都圏に対する大陸間輸送を含む、それぞれの発生源地域からのオゾンの輸送の寄与が初めて試算され、我が国自身の排出による影響、中国を初めとするアジア内の長距離越境輸送、大陸間輸送の相対的な大きさが初めて定量的に議論された。具体的に光化学スモッグが問題となっている地域に対するこうした全球モデルによる解析は本研究が初めてである。本研究で開発したアジア域エミッション・インベントリー（REAS Ver. 1.0）を領域化学輸送モデルCMAQへ導入し、東アジア域を対象としたモデルシミュレーションを行なった。日本の遠隔地モニタリングステーションで観測されたオゾン濃度と比較することで、領域モデル計算によるオゾン濃度の再現性を確認した。その結果、本モデルシステムがオゾンの濃度レベルや濃度の季節変動をよく再現できていることが確認でき、東アジア域のオゾンの動態変動解析および将来予測実験のためのモデルの構築が完了した。このモデル計算結果の解析により、東アジア域における大気境界層内のオゾン濃度の季節変動は、特に日射と気団の影響を強く受けていることが判明した。冬から春・初夏にかけてオゾン濃度が増大し、夏季に海洋性気団に覆われる領域ではオゾン濃度が減少する、一方、中国華北平原域では、海洋性気団の影響が少なく、観測によって見いだされた夏季にオゾン濃度が最大となるヨーロッパ型の季節変化がモデルでも再現された。中国華北平原における夏季のオゾンはほとんどがその領域で生成されたものであり輸送による影響は小さいことが分かるなど、中国中東部のオゾン汚染の実態が初めて定量的に明らかにされた。

REAS Ver. 1.0の2020年排出量を用いた将来予測実験結果において、中国の排出が現状推移型（PFC）で推移した場合、わが国自身のNO_xの排出量が減少すると予測されるにもかかわらず、夏季平均で数 ppb増加し、日本域では、3月から6月のオゾン濃度は月平均値で環境基準の60ppbを超えること予測された。

（2）地球環境政策への貢献

本研究の結果は、最近光化学オキシダント注意報の発令件数の増加によって再び注目を集めている我が国の光化学スモッグに対する今後の抑止戦略の議論の方向に大きな影響を与えるものと思われる。これまで、光化学スモッグ対策は国内のNO_x及びVOCの削減によって行われてきたが、国内においてこれら前駆体物質の大気中濃度が減少しているにもかかわらず、オゾン濃度が増加している原因として、アジア大陸からの長距離輸送の影響の増加がその要因である可能性が高く、本研究はこの問題に向けての考え方の基盤を与えることが出来た。本研究はこの観点からはまだ予備的研究に留まり、我が国のオゾンの増加原因そのものを明らかにしたものではないが、今後の科学的知見に基づいた環境政策への方向性を与えるものと思われる。

他方、国際的には欧米各国が批准している長距離越境大気汚染条約の下に「大気汚染の半球輸送タスクフォース（TF-HTAP）」が形成され、特にオゾン汚染に関して半球汚染の観点からの対応へ向けての国際取り組みがなされている。本研究の結果はHTAPに対して、アジアの視点からの科学的成果を提供してきており、今後我が国の光化学スモッグ抑止対策を、このような国際的政策

と整合性のとれた文脈の中で進める上で大きな貢献を果たしてきた。

6. 引用文献

- (1) Sudo, K., M. Takahashi, and H. Akimoto, CHASER: A global chemical transport model for the troposphere 1. Model description, *J. Geophys. Res.*, 107 (D17), 10.1029/2001JD001113, 2002.
- (2) Wild O., and H. Akimoto, Intercontinental transport of ozone and its precursors in a three dimensional global CTM, *J. Geophys. Res.*, 106, 27,729-27,744, 2001.
- (3) Byun, D.W., Ching, J.K.S. (Eds.), 1999. Science algorithms of the EPA Models-3 community multi-scale air quality (CMAQ) modeling system. NERL, Research Triangle Park, NC. EPA/600/R-99/030
- (4) Pielke, R.A., Cotton, W. R., Walko, R.L., Tremback, C.J., Lyons, W.A., Grasso, L.D., Nicholls, M.E., Moran, M.D., Wesley, D.A., Lee, T.J., Copeland, J.H., A comprehensive meteorological modeling system-RAMS. *Meteorology and Atmospheric Physics* 49, 69-91, 1992.
- (5) Carter, W.P.L., Documentation of the SAPRC-99 chemical mechanism for VOC reactivity assessment. Final report to California Air Resource Board. Contract No. 92-329 and 95-308, 2000.
- (6) Ohara, T., H. Akimoto, J. Kurokawa, N. Horii, K. Yamaji, and T. Hayasaka, An Asian emission inventory of anthropogenic emission sources for the period 1980-2020, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 4419-4444, 2007
- (7) Guenther A., Hewitt C.N., Erickson D., Fall R., Geron C., Graedel T., Harley P., Klinger L., Lerdau M., McKay W.A., Pierce T., Scholes B., Steinbrecker R., Tallmraju R., Taylor J., Zimmerman P., A global model of natural volatile organic compound emissions. *Journal of Geophysical Research* 100, 8873-8892, 1995.
- (8) ACCESS, [http://www.cgrrer.uiowa.edu/ACCESS/ACCESS_index.htm], 2002.
- (9) Wang, Z.-F., Huang, M., He, D., Xu, H., Zhou, L., Sulfur distribution and transport studies in East Asia using Eulerian model. *Advance of Atmospheric Science* 13, 399-409, 1996.
- (10) Derwent, R.G., D.S. Stevenson, W.J. Collins, and C.E. Johnson, Intercontinental transport and the origin of the ozone observed at surface sites in Europe, *Atmos. Environ.*, 38, 1891-1901, 2004.
- (11) Auvray, M. and I. Bey, Long-range transport to Europe: Seasonal variations and implications for the European ozone budget, *J. Geophys. Res.*, 110 (D11303), doi:10.1029/2004JD005503, 2005.
- (12) Pochanart, P., J. Hirokawa, Y. Kajii, and H. Akimoto, Influence of regional-scale anthropogenic activity in northeast Asia on seasonal variation of surface ozone and carbon

monoxide observed at Oki, Japan, J. Geophys. Res., 104, 3621-3631, 1999.

(13) Yamaji, K., Ohara, T., Uno, I., Tanimoto, H., Kurokawa, J., Akimoto, H., 2006. Analysis of the seasonal variation of ozone in the boundary layer in East Asia using the Community Multi-scale Air Quality model: What controls surface ozone levels over Japan? Atmospheric Environment 40(10), 1856-1868, 2006.

(14) Li, J., Z.F. Wang, H. Akimoto, C. Gao, P. Pochanart, and X. Wang,, Modeling study of the seasonal cycle of ozone in the boundary layer over East Asia, J. Geophys. Res. 112, D22S25, doi:10.1029/2006JD008209, 2007.

7. 国際共同研究等の状況

本サブテーマは個別的には国際共同研究に位置づけられていないが、本推進費研究課題は課題全体として、UNAP/ABC (Atmospheric Brown Cloud-Asia) の一環として位置づけられている。本サブテーマ研究 (4) の一部は、サブテーマ課題 (1) の中国における観測研究と共に中国科学院大気物理研究所王自發教授をカウンターパートとする日中科学技術協力協定の下に日中双方から提案していたが、昨年度末に開催された日中科学技術協力委員会で採択された。

8. 研究成果の発表状況

(1) 誌上発表

<論文 (査読あり)>

- 1) Yamaji, K., T. Ohara, I. Uno, H. Tanimoto, J. Kurokawa, and H. Akimoto, Analysis of seasonal variation of ozone in the boundary layer in East Asia using the Community Multi-scale Air Quality model: What controls surface Ozone level over Japan?, Atmos. Env., 40(10), 1856-1868, 2006.
- 2) 秋元 肇大気汚染物質の大陸間輸送と半球規模汚染、大気環境学会誌、41、A1-A8、2006.
- 3) Uno, I., Y. He, T. Ohara, K. Yamaji, J. Kurokawa, M. Katayama, Z. Wang, K. Noguchi, S. Hayashida, A. Richter, and J. P. Burrows, Systematic analysis of interannual and seasonal variations of model-simulated tropospheric NO₂ in Asia and comparison with GOME-satellite data, Atmos. Chem. Phys., 7, 1671-1681, 2006.
- 4) Uno, I., T. Ohara, K. Yamaji, and J. Kurokawa, Recent Trends and Future Projections in Asian Air Pollution, Journal of Disaster Research, 2(3), 163-172, 2007.
- 5) Sudo, K., and H. Akimoto, Global source attribution of tropospheric ozone: Long-range transport from various source regions, J. Geophys. Res., 112, D12302, doi:10.1029/2006JD007992, 2007.
- 6) 栗林 正俊、大原 利眞、山地 一代、中国におけるオゾンによる稲作影響の現状評価と将来予測、大気環境学会誌、43(1)、55-66、2008.
- 7) Yamaji, K., T. Ohara, I. Uno, J. Kurokawa, P. Pochanart, and H. Akimoto, 2008, Future

Prediction of Surface Ozone over East Asia using Models-3 Community Multiscale Air Quality Modeling System (CMAQ) and Regional Emission Inventory in ASia (REAS), J. Geophys. Res., 113, D08306, doi:10.1029/2007JD008663, 2008.

<その他誌上発表（査読なし）>

1) 山地 一代、秋元肇「最近のモデル研究による東アジアオゾン汚染の現状と将来予測」資源環境対策、43、28-35、2007.

(2) 口頭発表（学会）

- 1) 山地 一代、大原 利眞、鶴野 伊津志、谷本 浩志、黒川 純一、秋元 肇：第46回大気環境学会年会(2005)、“東アジアにおける対流圏オゾンの季節変動”
- 2) Sudo, K., Akimoto H., and Takahashi M.: International Association of Meteorology and Atmospheric Sciences, Beijing, China (2005), “Source attribution of global tropospheric O₃ and CO: where do they come from?”
- 3) 山地 一代、大原 利眞、鶴野 伊津志、谷本 浩志、黒川 純一、秋元 肇：第16回大気化学シンポジウム(2006)、“CMAQを用いた東アジアにおける対流圏オゾンの季節変動特性の解析”
- 4) 山地 一代、大原 利眞、鶴野 伊津志、堀井 伸浩、黒川 純一、秋元 肇：日本気象学会 2006年度春季大会(2006)、“東アジアにおける対流圏オゾン濃度の将来予測”
- 5) Yamaji, K., T. Ohara, I. Uno, J. Kurokawa, and H. Akimoto: Joint CACGP/IGAC and WMO conference -ATMOSPHERIC CHEMISTRY AT THE INTERFACES, Cape Town, South Africa (2006), “Spatial-temporal variations of tropospheric ozone over East Asia”
- 6) 須藤健悟、秋元肇、高橋正明：第16回大気化学シンポジウム(2006)、“オゾン・COの全球分布・収支の起源と全球規模長距離輸送”
- 7) Sudo, K., Akimoto H., Hirenzaki M., K. Iwao, and Takahashi M.: Joint IGAC/CACGP/SOLAS/WMO Symposium(2006), “Source attribution of global O₃ and CO: climatology and interannual variability”
- 8) 吉富萌子、オリバーワイルド、秋元肇：大気化学討論会(2006)、全球化学輸送モデルによる我が国の地表オゾンに対する大陸間・大陸内長距離輸送の解析”
- 9) Akimoto, H., M. Yoshitomi, and O. Wild: Joint IGAC/CACGP/WMO Symposium (2006), Contribution to surface ozone in Japan by different sources, inter- and intra-continental transport, stratospheric intrusion, and in situ formation”
- 10) Akimoto, H.: The 2nd APN Symposium on Asian Ozone Pollution in Eurasian Perspective (2006), Inter-continental Transport and Global Source Attribution of Tropospheric Ozone”
- 11) Akimoto, H., Overview of Intercontinental Transport and Emissions, TF HTAP Workshop,

Beijing, 2006.

- 12) 山地 一代、大原 利眞、鵜野 伊津志、劉 宇、金谷 有剛、ポチャナート パクボン、駒崎 雄一、秋元 肇、王 自発、泰山集中観測サイエンスチーム：第17回大気化学シンポジウム(2007)、“中国泰山集中観測：CMAQによるガス・エアロゾル成分の再現性の検証”
- 13) 山地 一代、大原 利眞、鵜野 伊津志、黒川 純一、秋元 肇：第17回大気化学シンポジウム(2007)、“CMAQ/REASを用いた東アジアにおける対流圏オゾンの将来予測”
- 14) 山地 一代、大原 利眞、鵜野 伊津志、黒川 純一、秋元 肇：日本地球惑星科学連合2007年大会(2007)、CMAQ/RAMS およびRegional “Emission inventory in Asia (REAS) を用いた対流圏オゾンの将来変動予測”
- 15) Yamaji, K.: HAMS-2007, Beijing, P. R. China (2007), “Model simulation of gases and aerosols at Taishan using CMAQ/RAMS and REAS”
- 16) Yamaji, K., T. Ohara, I. Uno, J. Kurokawa, and H. Akimoto: The 10th International Conference on Atmospheric Sciences and Applications to Air Quality (ASAAQ), Hong Kong (2007), “Impacts of future anthropogenic emission changes on surface ozone level over east Asia”
- 17) Yamaji, K., T. Ohara, I. Uno, Y. Liu, Y. Kanaya, P. Pochanart, Y. Komazaki, H. Tanimoto, S. Kato, J. Suthawaree, Z. Wang, and H. Akimoto: The 10th International Conference on Atmospheric Sciences and Applications to Air Quality (ASAAQ), Hong Kong (2007), “Modelling study using CMAQ/RAMS and REAS during the intensive observation campaign at Taishan”
- 18) 山地 一代、大原 利眞、鵜野 伊津志、金谷 有剛、ポチャナート パクボン、劉 宇、駒崎 雄一、秋元 肇、王 自発：第48回大気環境学会年会 (2007)、“中国泰山集中観測におけるガス・エアロゾル濃度のモデル解析”
- 19) Yamaji, K., T. Ohara, I. Uno, J. Kurokawa, and H. Akimoto: 6th Annual CMAS Conference, North Carolina (2007), “Future Prediction of Surface Ozone over East Asia up to 2020”
- 20) Yamaji, K.: International Seminar on Air Quality Measurements and Simulations in China (2007), “Model simulation using biomass-burning emission inventories based on several fire spot information for Taishan field campaign in June 2006”
- 21) 山地 一代、滝川 雅之、李 杰、金谷 有剛、ポチャナート パクボン、劉 宇、駒崎 雄一、大原 利眞、鵜野 伊津志：第13回大気化学討論会 (2007)、“領域化学輸送モデルを用いた中国泰山におけるガス・エアロゾル濃度変動要因の解析”
- 22) 山地一代、滝川雅之、李 杰、金谷有剛、ポチャナート パクボン、劉 宇、駒崎 雄一、大原 利眞、鵜野 伊津志、王 自発、秋元肇：日本地球惑星科学連合2008年大会 (2008)、“Model simulation using biomass-burning emission inventories based on fire spot information for Taishan field campaign in June 2006”

(3) 出願特許

なし

(4) シンポジウム、セミナーの開催（主催のもの）

なし

(5) マスコミ等への公表・報道等

プレスリリース：“アジア域の大気汚染物質排出シナリオを用いた将来のオゾンの増加予測”、

2008年04月24日

- 1) 朝日新聞（2007年4月28日、夕刊）
- 2) 毎日新聞（2007年4月25日、朝刊）
- 3) 日本経済新聞（2007年4月25日、朝刊）
- 4) 産経新聞（2007年4月25日、朝刊）
- 5) フジサンケイビジネスアイ（2007年4月25日、朝刊）
- 6) 日刊工業新聞（2007年4月25日、朝刊）
- 7) 化学工業日報（2007年4月28日、朝刊）
- 8) 株式新聞（2007年5月01日、朝刊）

(6) その他

なし