

## B-8 地球温暖化に係わる対流圏オゾンと大気微量成分の変動プロセスに関する研究

### (4) 対流圏物質循環モデルによる対流圏オゾンの分布と動態の解析

研究代表者 国立環境研究所・大気圏環境部大気物理研究室 菅田誠治

環境庁 国立環境研究所

大気圏環境部

大気物理研究室

菅田誠治

九州大学応用力学研究所

鶴野伊津志

平成8-10年度合計予算額 8,998千円  
(平成10年度予算額 2,932千円)

#### [要旨]

1987年5月に観測された日本域の高濃度 $O_3$ を物質輸送モデルシミュレーションにより解析した。観測データ、モデル計算、全球解析データはすべてコンシステントな結果を与え、春季の日本付近の高濃度 $O_3$ には、成層圏起源の $O_3$ の沈降が重要な寄与を示した。

モデルの感度解析から、地上付近の $O_3$ に対する対流圏内の光化学反応の寄与率10~25%が示され、成層圏起源の $O_3$ が支配的であった。 $O_3$ と比湿 $q$ の時空間変化には明瞭な逆相関がみられ、成層圏から対流圏への侵入の3次元構造が示された。上空7000mで輸送フラックス $w \times O_3$ は下向きで最大 $10^{12}$  molecule/cm<sup>2</sup>/secのオーダーを取った。また、トラジェクトリー解析から、成層圏からの沈降が1~2日の極めて短い時間スケールで生じたことが示された。

[キーワード] 対流圏オゾン, 成層圏-対流圏交換, 物質輸送モデル

#### 1 はじめに

成層圏から対流圏下部へ輸送される $O_3$ の寄与は年平均としては少ないが、春季に大きな寄与を占めることが知られている(例えば, Danielsen, 1968)。これは、春季には日本域上空(成層圏下部)の $O_3$ レベル自身が高く(Sunwoo et al., 1992)、移動性高低気圧の通過に伴う成層圏から対流圏への輸送の生じやすい気象条件が頻発するためである。そのため地上での $O_3$ の高濃度には、成層圏から対流圏下部への $O_3$ の輸送が重要な因子として考えられている。

本研究では、1987年5月に日本各地で観測された $O_3$ 濃度を精密な化学反応を含む3次元輸送モデルで解析した。本論文は、まず第2章で、沖縄~北海道にかけて観測された地上の $O_3$ 濃度の特徴を全球客観解析データとともに示す。第3章ではモデルの概要を示す。第4章では、モデルと観測との比較、成層圏 $O_3$ の直接的寄与と対流圏内の反応寄与率の日変化、成層圏 $O_3$ の沈降過程等について議論する。

#### 2 $O_3$ 濃度の観測結果

1987年5月上旬に日本各地で観測された地上 $O_3$ 濃度データと気象変化の関係について示す。表1には測定地点の標高と測定項目( $O_3$ ,  $O_3$ )を、図1には、測定地点を示す。 $O_3$ はオキシダン

表1 測定地点と測定項目

観測地点	標高	経度, 緯度	測定項目
沖縄県石川市 <sup>a)</sup>	3m	127.80, 26.38	O <sub>x</sub>
福岡県小郡国設局 <sup>a)</sup>	20m	130.57, 33.40	O <sub>x</sub>
札幌市野幌国設局 <sup>a)</sup>	20m	141.52, 43.06	O <sub>x</sub>
長崎県雲仙野岳 <sup>b)</sup>	1142m	130.29, 32.77	O <sub>3</sub>
福岡県三郡山 <sup>c)</sup>	920m	130.57, 33.56	O <sub>3</sub>
長野県八方尾根 <sup>d)</sup>	1840m	138.40, 36.45	O <sub>3</sub>
青森県八甲田山田茂菴岳 <sup>e)</sup>	1324m	140.88, 40.65	O <sub>3</sub>
北海道手稲山 <sup>f)</sup>	1000m	141.18, 43.09	O <sub>3</sub>

<sup>a)</sup> 一般環境大気汚染測定局, <sup>b)</sup> 特別観測地点(若松, 1991), <sup>c)</sup> 宇都宮ら(1989),

<sup>d)</sup> 栗田ら(1989), <sup>e)</sup> 早狩ら(1989), <sup>f)</sup> Murao et al.(1990)

トを意味するが以下の解析では O<sub>x</sub> を O<sub>3</sub> とし  
て扱う。測定値はいずれも一時間平均値である。

図2には、5月3, 5, 7, 8, 9, 10, 12, 14日のヨ  
ーロッパ中期予報センター ECMWF 2.5 度メッ  
シュの全球客観解析データ (TOGA/COARE  
Basic Level III consolidated data set) の 850 hPa  
と 350 hPa での風速ベクトルとジオポテンシャ  
ル高度を示した。図中の H, L は地上の高低気  
圧位置を示し、350 hPa の図には ECMWF の鉛  
直風速の負の領域 (-0.06m/s 以下と  
-0.06~-0.03m/s の範囲) をトーンで表示した。

図3には、1987年5月1日~15日までの地上  
の O<sub>3</sub> 濃度の時間変化を示す (図にはモデルの  
結果を同時に示しているが、その議論は4で行  
う)。ここで、(a) は北海道札幌近郊の手稲山と札幌郊外の野幌国設一般環境大気測定局 (点線)、(b)  
は青森県の八甲田山、(c) 長野県の八方尾根、(d) 福岡県福岡近郊の三郡山と同県筑後小郡国設一  
般環境大気測定局 (点線)、(e) は長崎県の雲仙野岳、(f) は沖縄県石川市での測定結果である (こ  
れらの地点は点線で示した測定点以外はすべて清浄地点に位置している)。図には、同時に人工  
衛星 Nimbus-7 の TOMS (Total Ozone Mapping Spectrometer) による O<sub>3</sub> 総量(Dobson Unit)を○印で  
プロットしてある。

図4には TOMS の O<sub>3</sub> 総量の水平分布の変化を示す。

まず、この期間の気象変化の特徴を示す。5月1日~4日と13日~15日に低気圧が日本域を通  
過した。特に、1日~4日の低気圧はオホーツク海で 964 hPa まで発達し、それにともない上空の  
ジェット気流が日本上空を南下した (第2図)。この発達した低気圧は、切離低気圧(cut-off-low)  
的になり、第2図(b)~(e)の 350hPa に示されるように北日本からオホーツク・北太平洋にかけて  
トラフ (低温の低圧部) が停滞した。一方、地上では5日~11日にかけて、移動性高気圧が中国

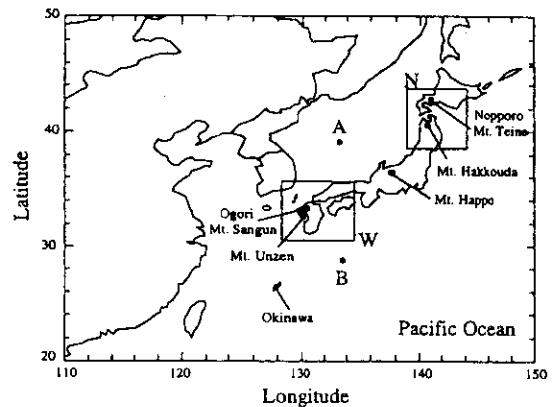


図1 観測地点とモデルの計算領域。図中のWと  
Nは表4の反応寄与率の評価領域。A, B  
は表5の O<sub>3</sub> の鉛直フラックスの評価領域  
を示す。

大陸から日本域をゆっくりと東進した。特に、高気圧は7日から10日にかけて、朝鮮半島から日本上空に位置し、日本域に晴天をもたらし、乾燥した状態が継続した。

このような高低気圧の移動に伴い、図に示されたように風系が変化した。特に、高気圧の時計まわりの吹き出しに伴い、日本海側は西寄り、太平洋側は東寄りの風系が顕著である（図2(d)-(f)）。

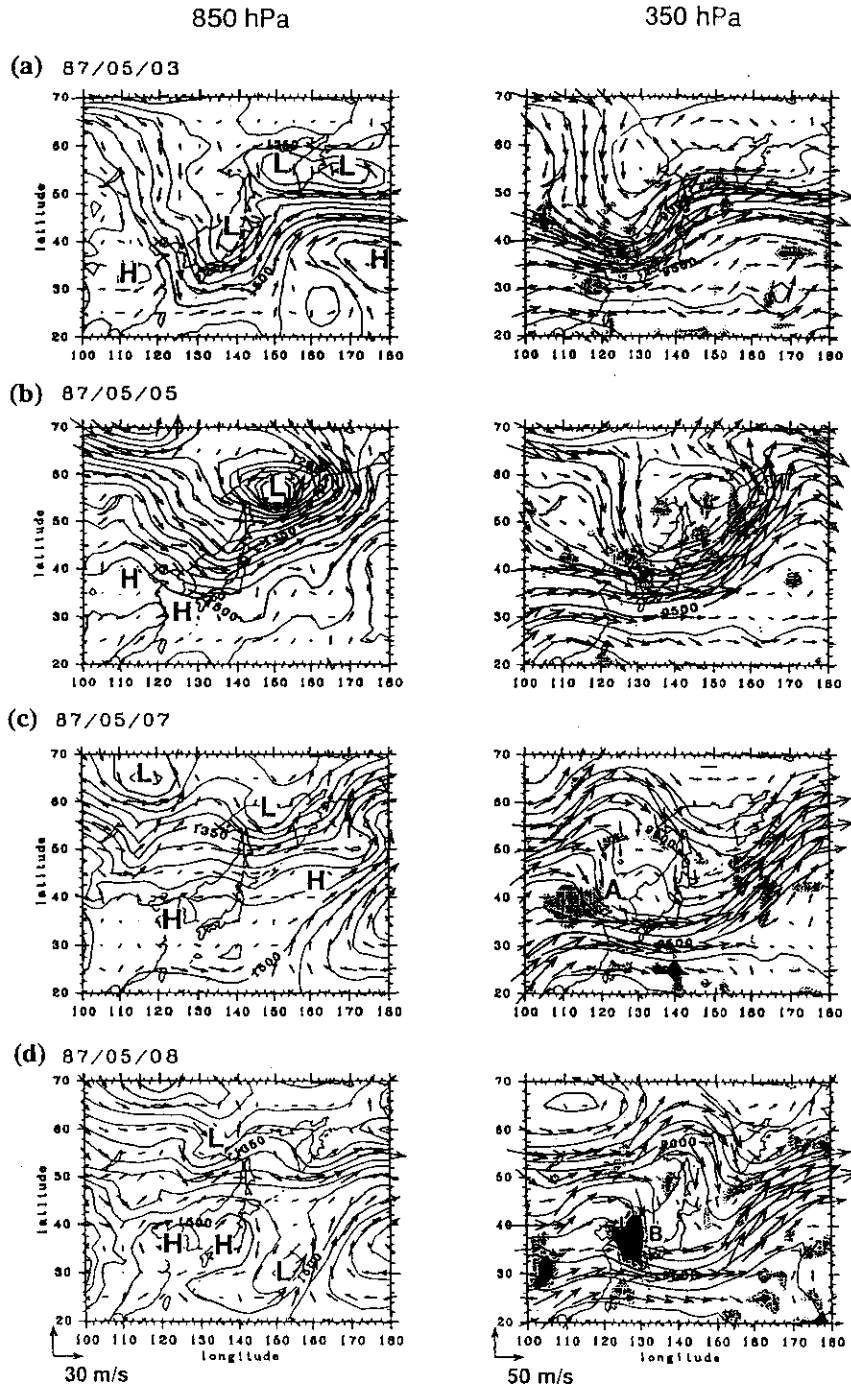


図2 説明は次のページ

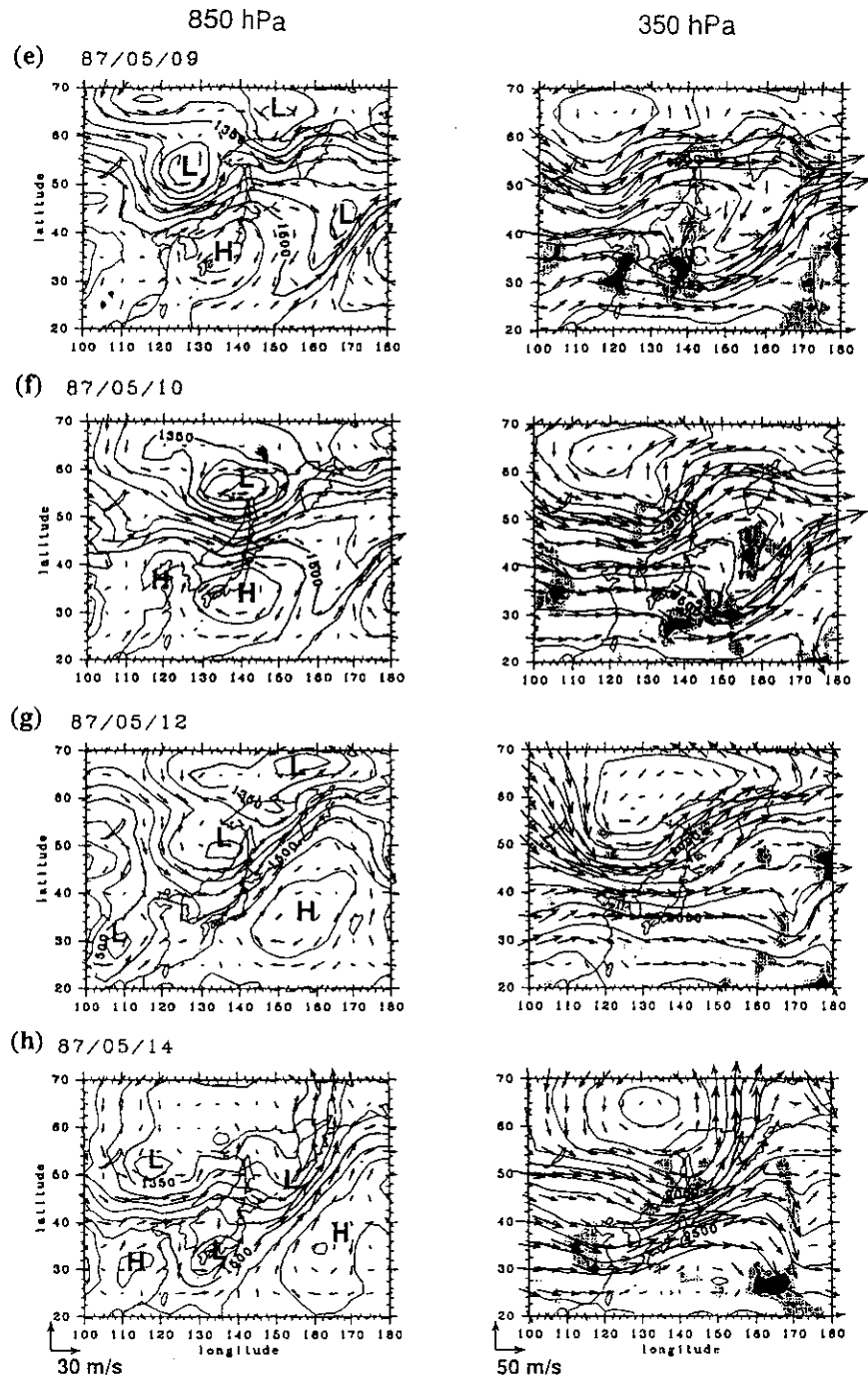


図2 1987年5月3日~14日の850hPaと350hPaでの風速ベクトルとジオポテンシャル高度。図中のH、Lは地上の高低気圧位置を示し、350 hPaの図には鉛直風速の負の領域（濃いトーン：-0.06m/s以下、薄いトーン：-0.06~-0.03m/sの範囲）をトーンで表示した

11日以降は、日本域は高気圧の後面に位置し、850hPaでは南西の気流（太平洋からの気流）が見られる。13日から14日にかけては日本列島を低気圧が通過し（図2(h)）、それに伴い風系が南寄りから北西に急激に変化し、日本全域に降水が観測された。

この期間で特徴的なことは、ジェット気流が、7日頃から分岐し日本南岸と北緯50~60度付近を流れるようになった点である（図2(c)~(f)）。これは、先に述べた切離低気圧の回りを迂回す

る流れのためであり、8日の朝鮮半島上空には 0.1 m/sec 程度の下降気流をもつ北風ゾーンが見られている（この下降気流域は図に示したA→B→C→Dの順に移動した）。このような、日本付近のジェット気流の分岐は、11日以降に解消した。

図3に示した全国の地上のO<sub>3</sub>濃度レベルは沖縄を除いて、いずれも100ppb程度のピークを取り、その時間変化には1日~2日の差があるが、驚くほど類似している。雲仙と三郡山では8日~9日にかけて同時に濃度増加を示し、特に、三郡山では9日に最高濃度110ppbを取っている。八方尾根では、ピークが10~11日、八甲田山は8日~12日にかけて高原状のピークをとる。一方、手稲山では、10日未明にピークをとる（手稲での測定は10日で終了した）。このようなピーク濃度の出現日時の差は、シノプティックスケールの高低気圧の動きと気圧配置に関連しているが、単純ではない。

一方、13日にはいずれの地点でも最低濃度を示し、これは日本列島を急速に通過した低気圧に向けて南西海上のオゾンの少ない海洋性の気塊が流れ込んだためである。

図3に同時に示したTOMSのO<sub>3</sub>総量のプロットは興味深い。まず、日本南部では、TOMSと地上のO<sub>3</sub>観測結果には正の相関が見られる。これは次のように説明できる。図4に示したようにO<sub>3</sub>総量は、北緯35度付近を境として、南北勾配が急でかつ低緯度ほど変動が少ない。更に、観測期間中のNimbus-7のSBUV (Solar Backscatter Ultraviolet Instrument) データから沖縄付近の成層圏(top - 0.0625 atm)のオゾン総量の変動は14DU (平均値228DU)で、TOMSの変動幅約30DUに比較して小さいことが判る。従って、低緯度では対流圏内のO<sub>3</sub>の量がオゾン総量に相対的に大きく寄与し、地上のO<sub>3</sub>観測値とTOMSが正相関を有すると考えられる。

これに対して、八方尾根以北の高緯度ではTOMSと地上のO<sub>3</sub>濃度のピーク出現日時には時間遅れが見られる。これらの高緯度での成層圏と対流圏内のO<sub>3</sub>の関係については、4.3と4.4でO<sub>3</sub>の時空間変化とともに示す。

図3(a), (d)に同時に示した都市域に近接する野幌と小郡のO<sub>3</sub>濃度(点線)は日中に極大、夜間に極小をとる。夜間の

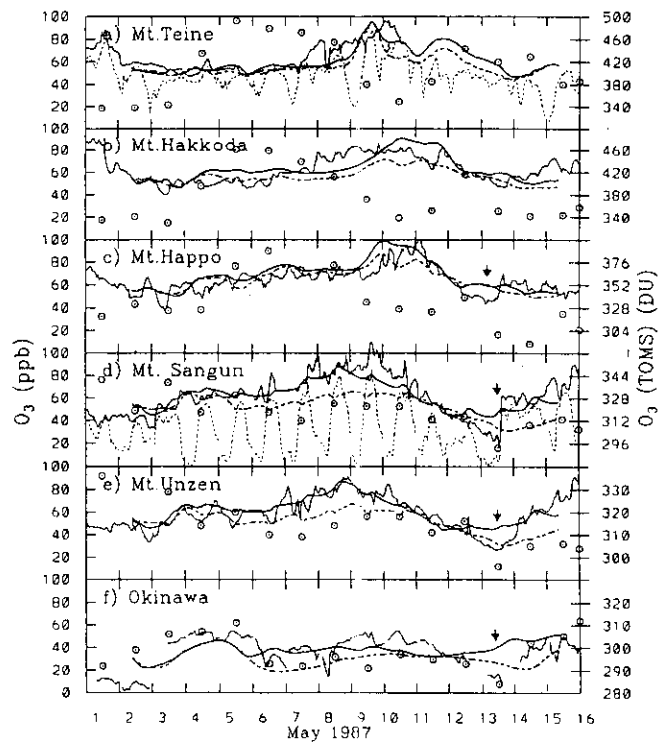


図3 1987年5月1日~15日までの地上のO<sub>3</sub>濃度(細い実線と点線)、TOMS O<sub>3</sub>総量(○印)、モデルの結果(CHEM=太い実線, TRANS=太い点線)の時間変化(モデル結果は、観測点の緯度・経度と高度に補間した)。

(a)北海道札幌近郊の手稲山と札幌郊外の野幌国設一般環境大気測定局(点線)、(b)八甲田山、(c)八方尾根、(d)福岡近郊の三郡山と筑後小郡国設一般環境大気測定局(点線)、(e)雲仙野岳、(f)沖縄県石川市

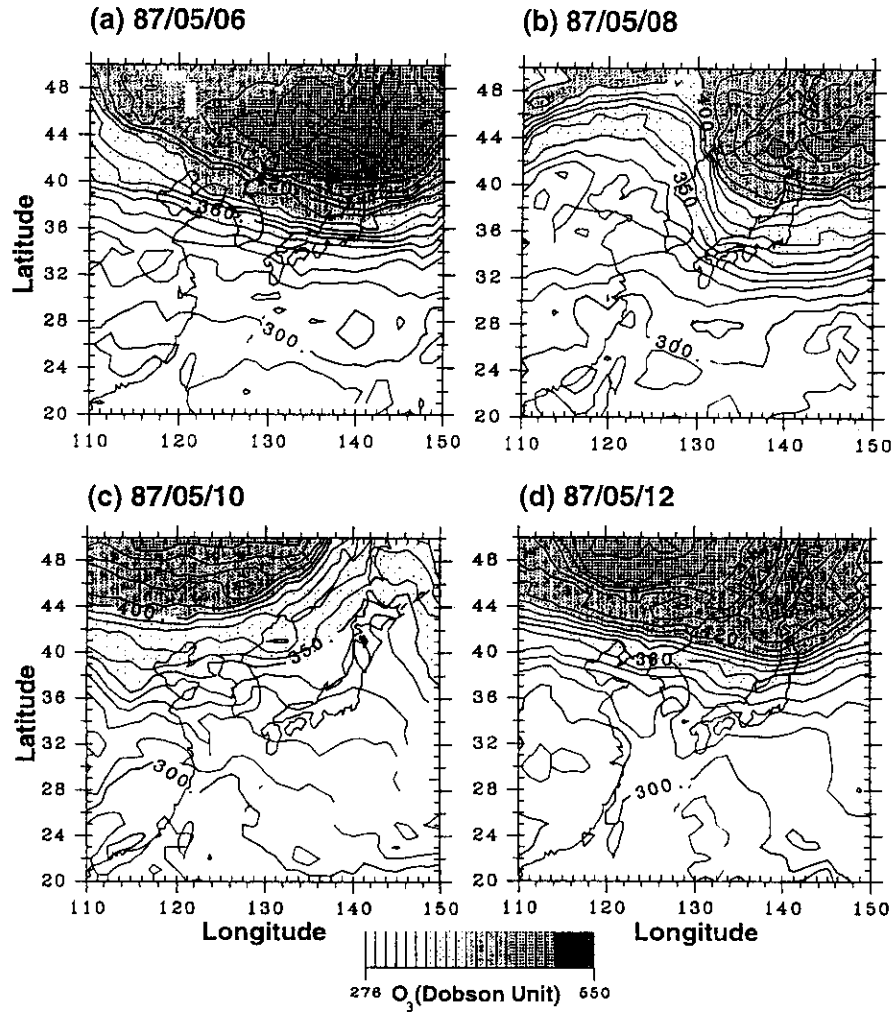


図4 TOMS の O<sub>3</sub> 総量の水平分布の変化

O<sub>3</sub> 濃度の減少は、接地逆転層形成に伴う上空からの O<sub>3</sub> 輸送量の減少と地上での乾性沈着による除去、及び、逆転層中に排出される人為起源の NO との反応( $O_3 + NO \rightarrow NO_2 + O_2$ ) によると考えられる。一方、日中の O<sub>3</sub> 濃度は、それぞれ、手稲山と三郡山の測定結果に非常に近い結果となっており、日中の地上の O<sub>3</sub> 濃度には、混合層上部の O<sub>3</sub> 濃度が重要な因子となっていること示している。

これらの全国的な高濃度 O<sub>3</sub> 現象は、都市域に特有の光化学大気汚染では説明できない。これは、東アジアスケールの長距離輸送と成層圏 O<sub>3</sub> の沈降との関係で、シミュレーション結果とともに4で議論する。

### 3 モデルの概要

鶴野ら(1997)が東アジアスケールの長距離輸送・変質シミュレーションに用いたモデルを用いて、対流圏 O<sub>3</sub> のシミュレーションを行った。物質輸送・変質モデルは STEM (Sulfur Transport Eulerian Model; Carmichael et al., 1991)を修正したものである。このモデルは、気相・固相・液相

反応過程や乾性・湿性沈着過程を含むリージョナルないしはメソスケールの物質輸送・変質過程をシミュレートすることが可能な3次元のオイラー型モデルである。基本方程式は、次式で示される。

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_j} (v_j C_i) = \frac{\partial}{\partial x_j} \left( K_{ij} \frac{\partial C_i}{\partial x_j} \right) + R_i + E_i \quad (1)$$

ここで、 $C_i$  は  $i$  番目のガス成分濃度、 $v_j$  は  $j$  方向の風速、 $K_{ij}$  は乱流拡散係数、 $R_i$  は化学反応による変換率、 $E_i$  は発生源強度を示す。また、鉛直方向には地形に沿った地表からの距離をとった座標系を取っている。

気相反応スキームは Lurmann et al.(1986) を用いている。この反応スキームは 53 個の化学成分と 112 本の化学反応式で構成され、ガス状成分は、 $\text{NO}$ 、 $\text{NO}_2$ 、 $\text{O}_3$ 、 $\text{SO}_2$ 、 $\text{HNO}_3$ 、炭化水素類やラジカル類などを含む。Carmichael et al.(1991) では生物起源の炭化水素反応が拡張されている。

沈着過程で重要な乾性沈着速度は、海・平野・山岳別に、Wesely (1988) の乾性沈着モデルによって与えた。本研究と鶴野ら(1997)のモデル研究との大きな違いは、モデル上端での  $\text{O}_3$  濃度を渦位 (Potential Vorticity, PV) に比例させて与えたこと、海水面温度(SST)と 850hPa の気温に基づいて海上の混合層を診断的に与えたことの2点である。

図1に示す中国・朝鮮半島・日本列島を含む東経 110 度~150 度、北緯 20 度~50 度を計算領域とし、経緯度 1 度メッシュ (グリッド数: 東西方向 41, 南北方向 31) に分割した。モデルは鉛直方向に 10 レベルをとり、各格子点の高度は、200, 400, 700, 1000, 2000, 3000, 4000, 5000, 7000, 10000m とした。

東アジア地域における  $\text{SO}_2$  と  $\text{NO}_x$  の排出量は Akimoto and Narita (1994) による経緯度 1 度メッシュデータを用いた。非メタン炭化水素 (NMHC) 排出量は、経緯度 1/3 度メッシュの人口データをもとに Piccot et al.(1992) の国別成分別排出量を配分し、再度、経緯度 1 度メッシュデータに統合した。

気象データは、気象庁の全球客観解析データ GANAL (12 時間毎, 1.875 度格子) の風速、温度、露点温度、等圧面高度を空間・時間補間して、計算領域内のメッシュ点データとした。また、陸上には大気境界層の日変化を与え、海上は SST 解析値(NCAR)と 850hPa の気温をもとに安定・不安定の判定を行い、海上の混合層を設定した。また、鉛直風速  $w$  は連続の式により求めた。

STEM による計算は、5 月 2 日 9 時 (日本時間) から 15 日 9 時までを対象とした。初期濃度は  $\text{O}_3$  以外をゼロとした。 $\text{O}_3$  の初期濃度分布は、表 2 に示すような濃度を南端と北端に与え、その間を線形内挿した。また、東側境界を除いた側方境界濃度は初期濃度に固定した。モデル上端のオゾン濃度の設定は成層圏から対流圏へのオゾンの沈降の効果を議論する上で重要である。オゾンゾンデを用いた高層観測は館野で 2 回 (5 月 7 日, 20 日)、札幌と鹿児島で 1 回 (5 月 20 日) のみで、図 1 に示したモデル領域の上部境界条件の設定には不十分である。対流圏上部から成層圏では  $\text{O}_3$  濃度と PV には高い相関が知られている (例えば、Ebel et al., 1991)。館野の  $\text{O}_3$  観測結果と ECMWF 全球客観解析データから算出した PV の高度 10 ~ 16 km の範囲では、

$$\text{O}_3 \text{ (ppb)} = 35 \text{ PV (} 10^{16} \text{ K m}^2 \text{ kg}^{-1} \text{ s}^{-1} \text{)} \quad (2)$$

なる関係が得られる。本研究では、この結果をもとに、モデル上端での PV を ECMWF データ

から時間・空間補間し、式(2)で  $O_3$  濃度に変換して、上部の境界濃度として毎時間与えた。この方法は基本的に Ebel et al.(1991)や Liu et al.(1996) と同一である。

モデル計算は、表3に示すように、モデル上端の  $O_3$  境界濃度を与え、成層圏から対流圏への  $O_3$  の輸送の効果を検討する輸送計算のみの TRANS、対流圏内での化学反応も加味した CHEM の2通りについて行った。

表2 モデル高度レベルと南端と北端での  $O_3$  の側方境界濃度

モデルレベル (m)	南端 $O_3$ (ppb)	北端 $O_3$ (ppb)
10000	35PV <sup>a)</sup>	35PV <sup>a)</sup>
7000	75	95
5000	65	90
4000	45	75
3000	30	65
2000	25	55
1000	20	55
700	15	55
400	15	50
200	15	40

<sup>a)</sup> PV( $10^{-6}$  K m<sup>2</sup> kg<sup>-1</sup> s<sup>-1</sup>)

表3 モデル実験の設定

名称	内容	上部境界条件 <sup>a)</sup>
CHEM	輸送+反応	$O_3 = 35$ PV
TRANS	輸送計算のみ	$O_3 = 35$ PV

<sup>a)</sup>  $O_3$  (ppb), PV( $10^{-6}$  K m<sup>2</sup> kg<sup>-1</sup> s<sup>-1</sup>)の単位

#### 4 結果と議論

##### (1) 観測とモデルの比較

図3には、モデル(CHEM, TRANS)と観測値との比較を示してある。ここで、モデル結果は、観測点の緯度・経度と標高に補間したものである。

図3に示した CHEM (実線)の結果は、観測(細かい実線及び点線)された濃度レベルや日々変化などの主要な特徴を再現している。

時間変化を詳細に見ると、雲仙と三郡山の  $O_3$  の変動は再現されているが、三郡山での6日~10日にかけての  $O_3$  の細かいピークは表現されない。これは、モデルの空間分解能の制約のためと考えられる。

八方尾根についても、モデル(CHEM)と観測値の変動は一致している。八甲田山も濃度レベルはよくシミュレートされているが、8日~9日の高原状のピークが再現されていない。ピーク出現時刻(観測は10日3時頃)が半日程度早いなどの不一致が見られるが、手稲山も八甲田山と



同様に濃度レベルは再現されており、モデル計算結果は観測の特徴を概ね再現している。

13日の雲仙と三郡山のCHEMは観測値を上回り、観測されたような濃度の"くぼみ"（図中に↓で示した）を再現できていない。この濃度の"くぼみ"は第2、3図に示されたように、12~13日にかけて九州地域には海洋性のO<sub>3</sub>の少ない気塊が侵入し、その後中国大陸の汚染質のため生成されたO<sub>3</sub>の豊富な気塊が低気圧（前線）の通過後に輸送されO<sub>3</sub>濃度の上昇をもたらしたためである。特に、濃度の上昇は図3(d)、(e)に示されるように前線の通過後に急激である。これは図5(c)~(f)に見られるように、中国大陸と台湾方面からの輸送された光化学O<sub>3</sub>の寄与が大きいためである。

化学反応を入れたCHEMの結果が、三郡山や雲仙で観測された急激なO<sub>3</sub>の上昇を再現しないのは、12時間間隔のGANALデータでは時間解像度が少ないことやモデルの空間分解能(水平100km)が不十分であるためと考えられる。

## (2) 対流圏内の反応の寄与

図5には、5月8日~13日の、CHEMのz=1000mのO<sub>3</sub>濃度と反応の寄与率の分布を示す。ここで、反応の寄与率は、(CHEM-TRANS)/CHEMで計算している。

日本付近の高度1000mでのO<sub>3</sub>濃度は11日まで60ppbを越えている。また、90ppbを越える高濃度域が中部日本域（8日~10日）と北海道西部海上（9日）に見られ、中部日本域の高濃度域は図2に示された日本域の高気圧の位置と対応している。

対流圏内の化学反応の寄与は、8日~10日の日本域では10~30%程度である。中部日本域では30%を越えているが、9日の北海道西部海上の反応寄与は10%以下である。一方、台湾と中国大陸南部では反応寄与は40~60%に達しているが、O<sub>3</sub>濃度は、40~60ppbで、日本域に比較して低濃度である。

12日以降は、太平洋~東シナ海からの南西気流により海洋性の気流が侵入しO<sub>3</sub>濃度が低下する。11日~13日にかけては日本域での反応の寄与は10%程度となるが、13日後半からは東シナ海~西日本域で、反応の寄与が上昇し、30~40%に達する。これは中国大陸から長距離輸送された汚染質によると思われる。

表4には、図1に示した西日本域Wと北日本域Nの高度レベル毎の反応の寄与率(%)の日平均の変化を示す。

西日本域では5日~9日にかけて反応の寄与率が地上から高度700mの範囲で日毎に上昇し9日には23%に達する。反応の寄与は2000m以下の高度で大きく、2000m以上ではほぼ無視できる。これは、図2(d)~(f)に示したように高気圧性の時計回りの気流により大陸より輸送された汚染質と日本国内で排出された汚染質が日本上空にトラップされ、大気下層で光化学反応が進行しO<sub>3</sub>が生成したためと考えられる（図5(a)~(c)）。

これに対して北日本域では、反応の寄与が高度700m以下では10%台で推移するが、10日には22%に達する。これは図5(d)に示すように中部日本~西日本域の光化学O<sub>3</sub>が高気圧の西側を北方に輸送されたためである。

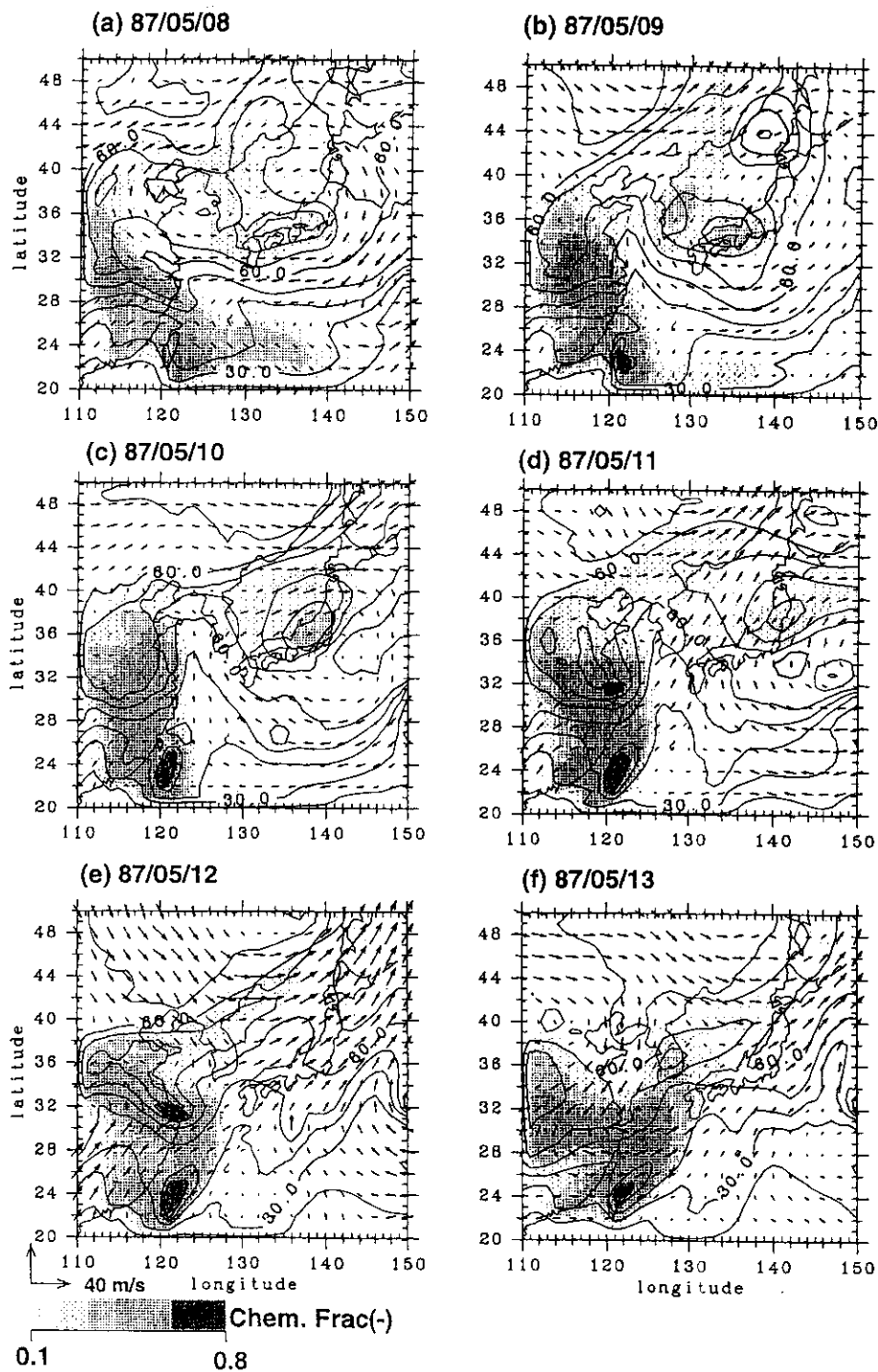


図5 5月8日~13日の、CHEMで計算された  $z=1000\text{m}$  の  $\text{O}_3$  濃度 (コンター; 10ppb 間隔) と反応の寄与率 (% ; トーン) の分布

(3)  $\text{O}_3$  と比湿の時空間変化と  $\text{O}_3$  鉛直輸送フラックス

図6には、CHEMによる札幌、八方尾根、雲仙と図1の太平洋上のB点での、 $\text{O}_3$  濃度と比湿  $q$  の5月3日~14日にかけての時空間変化を示す。

図から、 $\text{O}_3$  濃度と比湿  $q$  には明瞭な逆相関が見られ、(d)に示したB点を除いて上空から  $\text{O}_3$

表4 高度レベル毎の日平均の化学反応寄与率  
(図1の西日本域W/北日本域Nについての%)

Date	0-700m	700-2000m	2000-4000m	4000-7000m
3	4 / 0	0 / -1	-3 / -4	-1 / -1
4	12 / 8	5 / 4	-2 / -1	-1 / 0
5	18 / 13	10 / 7	-2 / 0	-2 / 0
6	17 / 13	8 / 7	-2 / -1	-2 / 0
7	19 / 12	10 / 6	-2 / -2	-2 / -1
8	22 / 12	11 / 6	-3 / -3	-1 / -1
9	23 / 15	12 / 9	-3 / -3	-2 / -2
10	15 / 22	4 / 14	-8 / -3	-5 / -3
11	0 / 15	-6 / 6	-11 / -9	-4 / -5
12	4 / 8	-2 / 1	-6 / -6	-4 / -2
13	12 / 6	6 / 0	-2 / -5	-4 / -3
14	19 / 3	13 / 0	1 / -3	-2 / -2

表5 図1の日本海Aと太平洋B地点を中心とした  
東西、南北5度の領域の  $z=7000$  mでのオゾンの日平均フラックス  
( $w \times O_3; \times 10^{11}$  molecule/cm<sup>2</sup>/sec)

日	日本海 A	太平洋 B
3	-31.86	7.01
4	-53.00	5.42
5	-5.53	3.36
6	-42.48	8.22
7	-15.40	6.72
8	-20.14	-0.20
9	-17.16	-6.14
10	-6.96	-6.32
11	13.21	2.06
12	16.98	-2.15
13	15.61	0.95
14	21.85	5.24

が沈降していくパターンが見られる(手稲, 八方尾根, 雲仙では 10km のレベルと繋がった  $O_3$  の変化が見える)。これは, 成層圏下部 / 対流圏上部からの乾燥した空気の沈降時にオゾン濃度が上昇することを示しており, 上空と地上の  $O_3$  には, 1日~2日の時間差がみられている。

札幌と八方尾根の比湿の変化は類似し, 上空 5km では 5月4日から乾燥した状態が継続している。これは, 図2に示した切離低気圧の存在と関係し, 北日本域には低温・低湿の空気が停滞したためと考えられる。しかし, 雲仙はそのような変化が見られず, 5日~6日にかけて比湿の

上昇が生じている。12日以降は、雲仙、八方尾根、札幌とも比湿の上昇と  $O_3$  濃度の減少が共通に見られている。

これに対して、太平洋上のB点は、他の3点と様子が異なっており、上部の  $O_3$  域と切り離されて対流圏中を高濃度の  $O_3$  が輸送されている。

表5には、図1の日本海Aと太平洋B地点を中心とした東西、南北  $5 \times 5$  度の領域の  $z=7000$  mでのオゾンの日平均鉛直フラックス ( $w \times O_3$ ;  $10^{11}$  molecule/cm<sup>2</sup>/sec)を示す。

まず、日本海側では、10日まで下向きの輸送が生じて、その後11日から上向きの輸送となる。日本海域で大きな下向きの輸送は図2に示されたジェット気流の蛇行・分岐が日本海・日本南岸で生じ、 $w < 0$ の領域が位置したためである。

ここで示された  $O_3$  輸送のフラックスの大きさは、Viczee et al.(1983)が春季の移動性低気圧通過後に生じた成層圏からの沈降時の飛行機観測で得た  $-5 \sim -6 \times 10^{12}$  molecule/cm<sup>2</sup>/secや、Ebel et al. (1991)がヨーロッパでの春季の対流圏界面 folding と切離低気圧の数値シミュレーションで  $z=9.5$  km で推定した値  $-1.2 \times 10^{12}$  molecule/cm<sup>2</sup>/sec と非常によいオーダーの一致を見ている。

これに対して、太平洋側では、日本海側よりも遅れて9日~12日にかけて下向きとなるが、その大きさは日本海側にくらべ1桁小さい。下向きフラックスは高気圧の前面で生じ、この時間遅れは、移動性高気圧の東進と関係している。

#### (4) 成層圏から対流圏への $O_3$ 輸送

前節までの議論は、観測された地上の高濃度の  $O_3$  に成層圏起源の  $O_3$  の割合が大きいことを示している。7日~10日にかけて朝鮮半島~日本海には図2に示したように切離低気圧が位置し、この切離低気圧の西側の上空

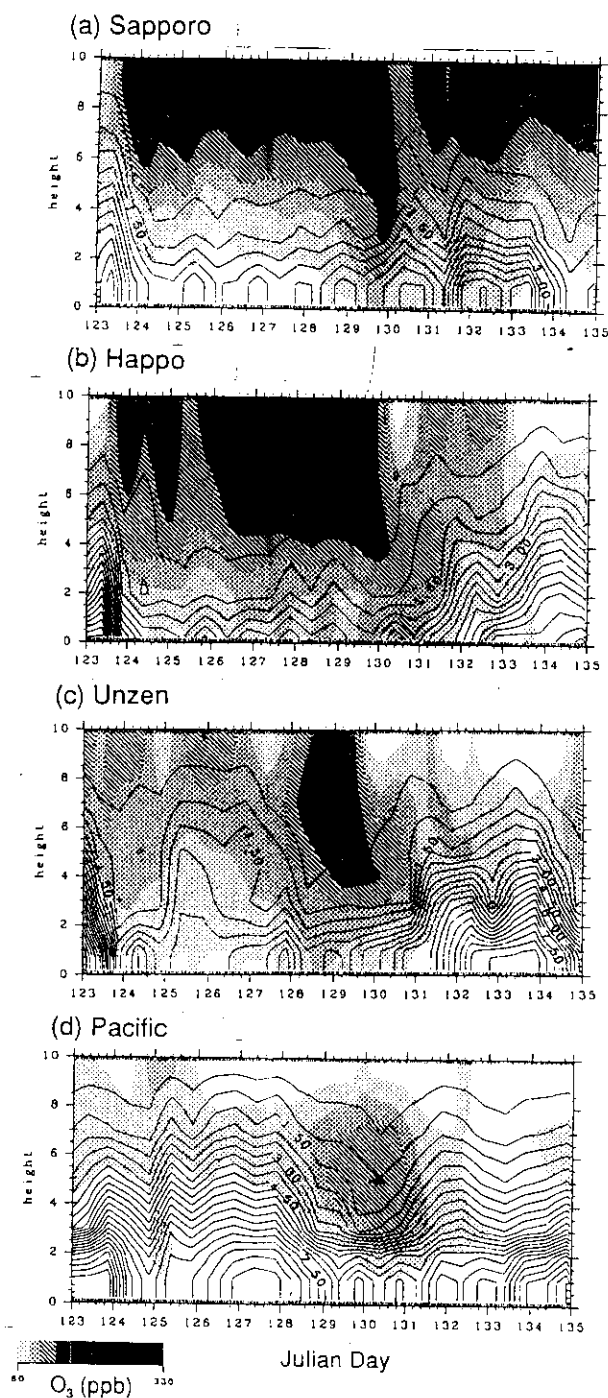


図6 CHEM で計算された札幌、八方尾根、雲仙と図1の太平洋上のB点での、 $O_3$  濃度(ppb; トーン表示)と比湿  $q$  (g/Kg; コンター表示)の5月3日~14日にかけての時空間変化。横軸は Julian day で 121 が5月1日に相当する。

の強い下降流が対流圏への輸送の重要な因子と考えられる。ここでは、北日本で観測された沈降プロセスを  $O_3$  分布、速度・温位場、トラジェクトリー解析の結果に基づき議論する。

図7には、5月7日21時から10日9時までの北緯43度の東西鉛直断面内の  $O_3$  濃度と流線、地上と  $z=10$  km の  $O_3$  濃度の水平分布、高度  $z=700$  m 面での流線を12時間間隔で示す。図示された、東西鉛直断面内の流線と  $O_3$  濃度の時間変化は図3に示した札幌（野幌，手稲山）での高

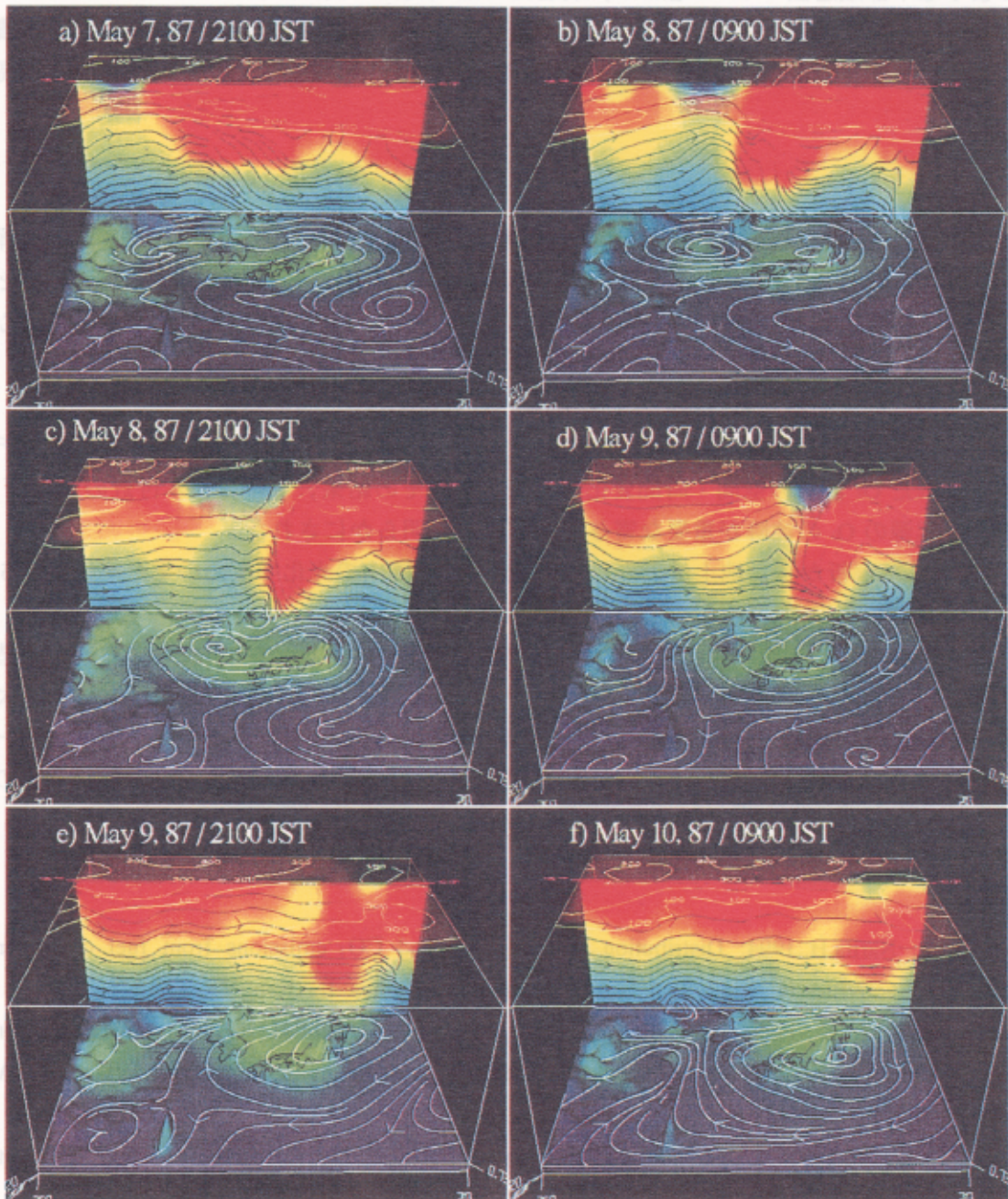


図7 5月7日21時から10日9時までのモデル (CHEM) の北緯43度の鉛直東西断面 ( $O_3$  濃度と流線; カラー表示), 地上  $O_3$  濃度 (カラー表示),  $z=10$  km の  $O_3$  濃度 (コンター; 100ppb 間隔) の水平分布,  $z=700$  m の水平面の流線を12時間間隔で示す。東経110~150度, 北緯20~50度を表示。



濃度  $O_3$  の出現を極めて鮮明に説明している。即ち、朝鮮半島付近でジェットの分岐に伴う北風ゾーンに見られる強い下降気流 (図 2 (d)参照) があらわれ、上空の  $O_3$  を対流圏内部に引き込む。その後、下降気流域は時間とともに東に移動し、その下部に  $O_3$  が輸送される。しかし、上空  $z=10$  km の高濃度  $O_3$  域は下降気流域よりも早く東進するため、10 日 9 時には北海道上空 10km で低濃度域がみられる (図 3 からこの時点では地上の  $O_3$  濃度は 100ppb 程度である)。

このような下部成層圏の  $O_3$  の増加は、成層圏の空気塊の対流圏の侵入によって地表  $O_3$  濃度にも影響を与える。しかしながら、地表の  $O_3$  濃度が上昇する頃には、下部成層圏の  $O_3$  の高濃度域は通り過ぎるので、TOMS でみるオゾン全量のピーク時期より 1, 2 日遅れて地上  $O_3$  の高まることになる。

## 5 まとめ

1987 年 5 月の日本域の高濃度  $O_3$  の観測結果を物質輸送モデルシミュレーションにより解析した。物質輸送・変質モデルは STEM (Sulfur Transport Eulerian Model; Carmichael et al., 1991) を修正したものを利用し、気象庁全球客観解析データを用いて 5 月 2 日~15 日までの日本域を中心とした東アジア域対流圏  $O_3$  のシミュレーションを行った。

解析の結果、以下の点が明らかにされた。

- 1) 観測データ、モデル結果、全球解析データはすべてコンシステントな結果を与え、モデル結果は観測された  $O_3$  濃度の空間・時間変化を再現した。その結果、春季の日本付近の高濃度  $O_3$  には、成層圏起源の  $O_3$  の沈降が重要な寄与を示すことが明らかにされた。
- 2) モデルの感度解析から、地上付近の  $O_3$  に対する対流圏内の光化学反応の寄与率は 10~25 % に過ぎず、成層圏起源の  $O_3$  が支配的であることがわかった。
- 3)  $O_3$  - 比湿  $q$  の時空間変化には逆相関がみられ、成層圏から対流圏への侵入の 3 次元構造が示された。上空 7000 m で下向きの輸送フラックス  $w \times O_3$  は日本海中部で最大  $10^{12}$  molecule/cm<sup>2</sup>/sec のオーダーを取った。四国南部の太平洋上ではそれよりも 1 桁小さなオーダーを取った。この大きさの差は、温位面の南北勾配と上空の下降気流の強さの違いによるものである。

## 6 参考文献

- Akimoto, H. ; Narita, H., 1994: Distribution of  $SO_2$ ,  $NO_x$  and  $CO_2$  emissions from fuel combustion and industrial activities in Asia with  $1^\circ \times 1^\circ$  resolution, *Atmos. Environ.*, 28, 213-225.
- Carmichael, G.R., L.K. Peters and R.D. Saylor, 1991: The STEM-II regional acid deposition and photo-chemical oxidant model: I An overview of model development and applications, *Atmos. Environ.*, 25A, 2077-2090.
- Danielsen, E.F., 1968: Stratospheric-tropospheric exchange based on radioactivity, ozone and potential vorticity, *J. Atmos. Sci.*, 25, 502-518.
- Danielsen, E.F., 1980: Stratospheric source for unexpectedly large values of ozone measured over the Pacific ocean during Gametag August 1977, *J. Geophys. Res.*, 85, 401-412.
- Ebel, A., H. Hass, H.J. Jakobs, M. Laube, M. Memmesheimer, A. Oberreuter, H. Geiss and Y.-H. Kuo, 1991: Simulation of ozone intrusion caused by a tropopause fold and cut-off-low, *Atmos. Environ.*, 25A,

2131-2144.

- 早狩進, 梅原茂, 吉田毅, 溝口次夫, 1989: 八甲田山におけるバックグランドオゾンの挙動, 国立公害研究所特別研究報告 No. 123, 121-143.
- 栗田秀實, 内田英夫, 光本茂記, 植田洋匡, 溝口次夫, 1989: 中部山岳地域におけるバックグランドオゾン濃度, 国立公害研究所特別研究報告, No. 123, 145-163.
- Lurmann, F.W.; Lloyd, A.C.; Atkinson, R., 1986: A chemical mechanism for use in long-range transport/acid deposition computer modeling, *J. Geophys. Res.*, 91, 10905-10936.
- Murao, N. S. Ohta, N. Furuhashi and I. Mizoguchi, 1990: The causes of elevated concentrations of ozone in Sapporo, *Atmos. Environ.*, 24A, 1501-1507.
- Piccot, S.; Watson, S.D.; Jones, J.W., 1992: A global inventory of volatile organic compound emissions from anthropogenic sources, *J. Geophys. Res.*, 97, D9, 9897-9912.
- 鶴野伊津志, 大原利真, 森淳子, 宇都宮彬, 若松伸司, 村野健太郎, 1997: 東アジアスケールの長距離物質輸送・変質過程のシミュレーション, *大気環境学会誌*, 32, 267-285.
- 宇都宮彬, 岩本真二, 溝口次夫, 1989: 三郡山におけるバックグランドオゾンの挙動, 国立公害研究所特別研究報告 No. 123, 191-205, 1989.
- Viezee, W., W. Johnson and H. Singh, 1983: Stratospheric ozone in the lower troposphere -II. Assessment of the downward flux and ground-level impact, *Atmos. Environ.*, 17, 1979-1993.
- 若松伸司編, 1991: 雲物理過程を伴う列島規模大気汚染に関する研究, 国立環境研究所特別研究報告 SR-7-'91.
- Wakamatsu, S., I. Uno, H. Ueda, K. Uehara and H. Tateishi, 1989: Observational study of stratospheric ozone intrusions into the lower troposphere, *Atmos. Environ.*, 23, 1815-1826.
- Wesely, M.L., 1988: Improved parametrizations for surface resistance to gaseous dry deposition in regional scale model, EPA/6003-86/037 (PB86-218104).

[研究成果の発表状況]

(1) 論文発表

- ① 鶴野伊津志・菅田誠治: *天気*, 45, 425-439 (1998)  
「春季の対流圏下部のオゾン高濃度の数値解析—日本域の対流圏オゾンのシミュレーション—」
- ② 鶴野伊津志・若松伸司・植田洋匡・村野健太郎・酒巻史郎・栗田秀實・薩摩林光・寶来俊一: *大気環境学会誌*, 32, 404-424 (1997)  
「春季の移動性高気圧通過時の九州地域での二次汚染物質と火山性 SO<sub>2</sub> の挙動」
- ③ C. R. Carmichael, I. Uno, M. Phandles, Y. Zhang, Y. and Y. Sunwoo: *J. Geophys. Res.*, 103, 10649-10671, 1998.  
"Tropospheric ozone production and transport in the springtime in east Asia."