

課題名	S-7-1 数値モデルと観測を総合した東アジア・半球規模のオゾン・エアロゾル汚染に関する研究
課題代表者名	金谷 有剛 (独立行政法人海洋研究開発機構 地球環境変動領域)
研究実施期間	平成21～25年度
累計予算額	344,079千円(うち25年度61,657千円) 予算額は、間接経費を含む。
本研究のキーワード	越境大気汚染、寄与率、PM <sub>2.5</sub> 、オゾン、ブラックカーボン、濃度変動、観測モデル統合、衛星観測、10年トレンド、気候影響

## 研究体制

- (1) 領域モデルによる東アジア広域汚染の解析 ((独) 海洋研究開発機構)
- (2) 大気汚染物質のソースレセプター解析と削減感受性評価 ((独) 国立環境研究所)
- (3) 化学気候モデルによる全球大気汚染と温暖化影響の評価 (名古屋大学)
- (4) 北東アジアにおけるモデル精緻化のためのオゾン・エアロゾル現場観測 ((独) 海洋研究開発機構、(独) 国立環境研究所)
- (5) 地上・衛星ライダーによるアジア域のエアロゾル解析 ((独) 国立環境研究所)
- (6) 受動型衛星観測による大気汚染物質の時空間分布の解析 (千葉大学)

## 研究概要

### 1. はじめに (研究背景等)

東アジアにおける大気汚染物質の排出量の増加は、我が国のオゾン(O<sub>3</sub>)・エアロゾル(特にPM<sub>2.5</sub>)の濃度増加をもたらし、注意報や注意喚起が発令され、人間の健康や農作物等に大きな影響を及ぼしつつある。また国際的には、大気汚染と気候変動を一体化して抑制しようといういわゆる共便益(コベネフィット)の考え方が大きく取りあげられるようになった。とくにO<sub>3</sub>やブラックカーボン(BC)などを短期寿命気候汚染物質(SLCPs)として捉え、その削減によってCO<sub>2</sub>削減ではまだ効果が期待できない中期未来の温暖化を緩和しようとするものである。このような問題に対して我が国としての戦略を確立して包括的に対処するためには、野外観測・面的な情報をもたらす衛星観測・物質輸送モデル等を総合して現状を把握し、表現が改善された最新のモデルを用いて、ソースレセプター(SR)関係など、政策に資する科学的知見を確立し、地域的大気環境管理による越境大気汚染軽減効果、及び地球温暖化緩和効果を考慮しながら大気汚染物質削減シナリオを検討し、国際的な合意形成に向けた方向性を整理することが強く求められている。

### 2. 研究開発目的

このような要請に応えるため、テーマ1では数値モデルと観測を総合し(図1)、アジア地域での観測を通じてモデルを精緻化すること、化学輸送モデルによりO<sub>3</sub>・PM<sub>2.5</sub>の東アジア域における越境汚染量、半球規模での大陸間輸送量、わが国における生成量を明らかにし、東アジア域からの寄与を定量化すること、我が国への越境汚染に直接関与する発生源地域を特定し、それらの地域における排出削減の我が国への感度を評価すること、削減により効率的な大気質改善をもたらす排出部門を把握すること、大気汚染物質削減の気候影響感度評価を行うことを目的とした。また、汚染の現状把握のため、福江島での重点観測や衛星観測をモデルと統合的に使い、O<sub>3</sub>・PM<sub>2.5</sub>、NO<sub>2</sub>、エアロゾル光学的厚さ(AOD)等の近年の変動傾向を取りまとめ、中国・韓国でも観測を実施し、PM<sub>2.5</sub>の化学組成を明らかにして対策立案を推進した。得られた

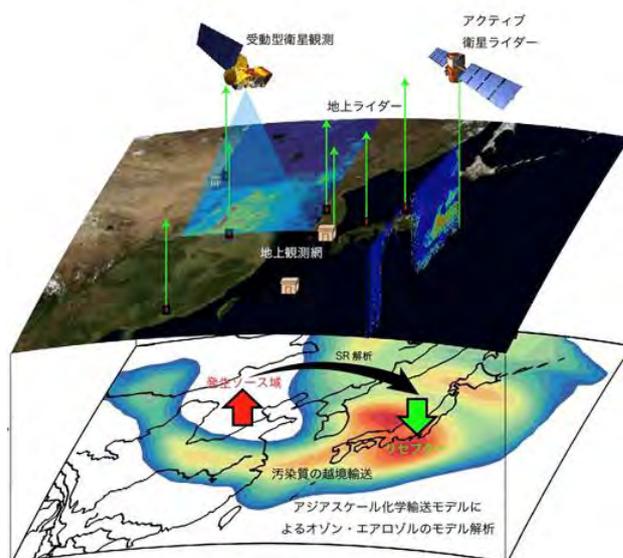


図1. 東アジア越境汚染の実態と本課題での研究アプローチ。

知見は、国内施策に貢献できるよう、また他機関・関係国へ働きかける際の科学的根拠として用いられるように整理し、テーマ3や環境省へ提供すると同時に、社会への情報発信を進め、PM<sub>2.5</sub>の越境大気汚染への高い関心に応えた。

### 3. 研究開発の方法

6サブテーマの役割と互いの関係を図2に示す。右上に示したように、政策に資する定量的な寄与率・必要削減量などの情報はサブテーマ(2)(一部は(1))からもたらされ、中間評価後は重点課題「ソースレセプター関係の定量化と削減効果の把握」として推進した。サブテーマ(2)で用いられる領域モデル・全球モデル自体を高度化するのがサブテーマ(1)(3)であり、その評価改善にサブテーマ(4)(5)(6)による観測データを用いる。観測知見を用いたモデル改善は信頼度の高いソースレセプター解析のために必須であり、中間評価以降重点課題「観測によるモデルの精緻化」として取り組んだ。さらにサブテーマ(3)は大気汚染物質の気候影響を評価し、汚染対策・温暖化対策の共便益性を削減戦略に取り込むための情報を整理し、サブテーマ(2)やテーマ3とともに重点課題「SLCPコベネを考慮した排出削減シナリオの構築」を推進した。

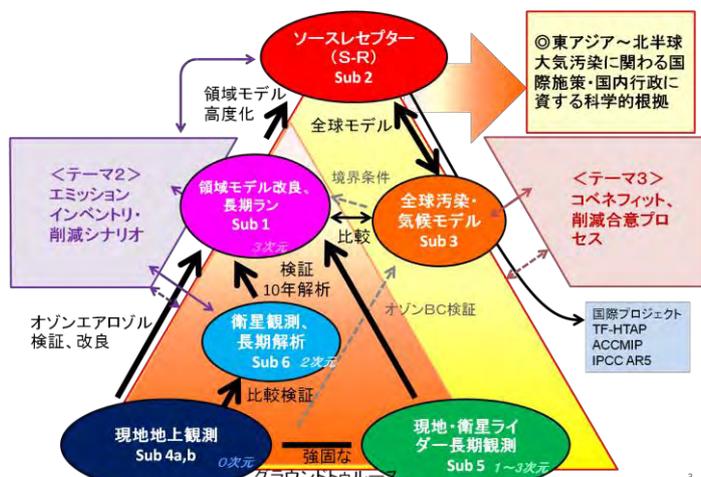


図2. S-7-1の6サブテーマの役割と連携。

重点課題「SLCPコベネを考慮した排出削減シナリオの構築」を推進した。

#### (1) 領域モデルによる東アジア広域汚染の解析

アジア領域化学輸送モデルWRF/CMAQ(水平グリッド間隔80km、鉛直37層)をver. 4.7.1に更新し、海塩粒子発生・バイオマス燃焼の表現などを改良した。排出インベントリは随時最新のもの(テーマ2によるREASver.2等)を用いた。サブテーマ(4)による福江島でのO<sub>3</sub>・PM<sub>2.5</sub>観測結果等を用いて評価し、モデルの信頼性を高めるとともに、観測と共通に見られる年々変動などの特徴を理解するための気象解析等を行った。PM<sub>2.5</sub>の化学組成の解析では、WRF-Chemモデル(水平グリッド間隔80km、鉛直37層)も併用し、土壌ダストの寄与も見積もった。東アジアにおける6領域(中国東北部・中北部・中南部・南部、朝鮮半島、日本)とその他を対象に人為起源排出量を仮想的に20%削減した感度実験を行い、2010年1年間の日本のPM<sub>2.5</sub>質量濃度に対する各発生源地域からの寄与率を、エミッション感度法により求めた。排出量と濃度間に線形関係を仮定し、感度を5倍した値を寄与とした。その寄与が全発生源からの寄与合計に占める割合として、相対的寄与を算出した。得られた感度を利用して、福江島でのPM<sub>2.5</sub>高濃度日数(日平均35μg/m<sup>3</sup>超)を抑えるのに必要な排出削減量を見積もった。中国の排出量の変化に対する東アジア地域のO<sub>3</sub>とPM<sub>2.5</sub>濃度の非線形性も評価した。その他、WRF/CMAQを用いた10年計算を行い、サブテーマ(5)(6)と共同で、AODやNO<sub>2</sub>カラム量の年々変動の検証や、鉛直分布の検証を行った。

#### (2) 大気汚染物質のソースレセプター解析と削減感受性評価

全球規模、アジア領域規模の化学輸送モデルCHASER(水平グリッド間隔約200-320km、鉛直32層)およびWRF/CMAQを用い、タグ付きトレーサー法やエミッション感度法に基づき、O<sub>3</sub>やPM<sub>2.5</sub>に関するソースレセプター解析と削減感受性を評価した。O<sub>3</sub>の起源地域の推定のために、CHASERを用いたタグ付きトレーサー法によって、大陸間の長距離輸送による寄与・アジア大陸内の寄与・国内寄与を、2000-2005年の平均値としてそれぞれ定量化した。その発展として、1980-2005年の期間におけるO<sub>3</sub>前駆物質の排出量変化を組み込んだタグ付きトレーサー法のモデル実験を行い、日本のO<sub>3</sub>増加トレンドに占める中国をソース領域とする寄与割合を算出した。また、同じくCHASERを用いたエミッション感度法による評価結果との比較を行った。更にサブテーマ(1)と連携し、CHASER, WRF/CMAQ, WRF-Chemの計3モデルを使用し、エミッション感度法に基づいて日本上空O<sub>3</sub>への中国発生源寄与を推定するモデル間相互比較も行い、寄与見積りへの不確かさの幅を把握した。次に、北九州や名古屋、大阪、新潟、さいたまを含むグリッドにおいて、日中8時間値75ppb超となる日数の改善のために、東アジア地域で必要となる排出量削減幅をWRF/CMAQモデルを用いて推定した。より詳細に効果的な発生源対策情報を取得すべく、O<sub>3</sub>およびPM<sub>2.5</sub>に関し、排出部門別のソースレセプター解析を行った。ソース領域は、中国2領域

(北部・南部：35°N付近で区分)及び朝鮮半島、日本の計4領域とし、それぞれ4セクター(家庭、産業、輸送、火力発電)からの人為起源排出量(REASv1.2)を削減して評価を行った。また、将来の大気質変化シミュレーションをWRF/CMAQを用いて行った。大気汚染物質排出量の将来(2030年)シナリオとしては、①現状政策(CLE)、②最大限削減(MFR)、③二酸化炭素換算濃度450ppm安定化(450ppm)、④二酸化炭素濃度450ppm安定化+東アジア大気汚染物質排出規制強化(450cntr)の4種を用いた。さらに、半球規模越境大気汚染タスクフォース(TF-HTAP)でのモデル間相互比較や、大気化学と気候変化に関するモデル間相互比較プロジェクト(ACCMIP)の実験もサブテーマ(3)と合同で行った。

### (3) 化学気候モデルによる全球大気汚染と温暖化影響の評価

化学・エアロゾル気候モデルCHASER-SPRINTARSの改良を行った。特に、有機エアロゾル2次生成に関わる前駆揮発性有機化合物(VOCs)や酸化化学反応の種類拡大、ダスト表面上での不均一反応による二酸化硫黄(SO<sub>2</sub>)の硫酸(SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>)への変換過程の導入、BCの大気中での被覆過程(変質過程)の表現など、全面的な精緻化が実施された。サブテーマ(4)で行われた福江でのO<sub>3</sub>・BC観測も比較・検証に用いた。その上で、CHASER-SPRINTARSモデルを用いた長期シミュレーションを実行し、BCの放射強制力を再評価した。その他のエアロゾル成分や各種気体毎にも放射強制力等を算出できるようにし、将来シナリオ(サブテーマ(2)の項参照)に基づいた計算結果から、各シナリオが大気汚染物質濃度や気候(放射強制力および気温)にどのような影響を与えるかについて解析し、取りまとめた。IPCC/ACCMIPプロジェクトの指定実験を実行し、BCやO<sub>3</sub>等の気候影響を取りまとめた。

### (4) 北東アジアにおけるモデル精緻化のためのオゾン・エアロゾル現場観測

日本西方を代表する福江島大気環境観測施設(32.75°N, 128.68°E)での通年観測(2009年2月~2014年3月)と集中観測(2009年5-6月)、中国江蘇省・如東(Rudong, 32.26°N, 121.37°E、2010年5-6月、中国科学院大気物理研究所と共同)及び韓国済州島(済州大気質研究センター、33.35°N, 126.39°E、高度約600m、2012年10-11月、韓国国立環境科学院と共同)での集中観測を実施し、東アジア広域大気汚染の実態を明らかにするとともに、領域モデル(サブテーマ(1))の比較検証解析を行った(図3)。福江の通年観測ではO<sub>3</sub>、CO、PM<sub>2.5</sub>、BCに加えMAX-DOAS法により対流圏NO<sub>2</sub>カラム濃度やAODを測定し、季節性や年々変動、高濃度日の出現頻度等を解析した。BC測定では、共存する散乱性成分の影響を受けにくい2種の装置(MAAP、東大近藤研開発のCOSMOS)を並行運転し比較検証を行った。3地点での集中観測では、ECOC(元素状・有機炭素)、硫酸・硝酸・アンモニウムイオン等のPM<sub>2.5</sub>の主要化学成分、NO<sub>x</sub>、NO<sub>y</sub>、揮発性有機化合物、O<sub>3</sub>等の光分解速度定数(J値)の計測も行った。済州島観測では、西端のGosan観測所(33.29°N, 126.16°E、72m)、漢拏山中腹の済州大学観測所(33.35°N, 126.45°E、高度約1100m)でも観測し、O<sub>3</sub>ゾンデ観測も加え、広域汚染の高度分布構造を捉えた。福江・如東での集中観測では、O<sub>3</sub>前駆物質濃度を観測値に拘束した光化学ボックスモデル計算を行い、O<sub>3</sub>生成速度と制限因子(NO<sub>x</sub>-/VOC-limited)解析を行った。如東観測では、5-6月に中国中東部一帯に広がる、冬小麦収穫後の農業残渣野外燃焼に由来する大気汚染の影響把握を狙った。冬小麦残渣を小規模に燃焼させ、排気に含まれるCO、CO<sub>2</sub>、BC、有機ガスを希釈ののちに連続計測する実験を行い、排出比を直接決定して、野外観測での値と比較した。



図3. 本課題での主な観測地点。青は解析に主に用いたライダー観測地点。紫はMAX-DOAS観測地点。

### (5) 地上・衛星ライダーによるアジア域のエアロゾル解析

国立環境研究所他による東アジアライダー網およびNASAのCALIPSO衛星搭載ライダーCALIOP(2006年に打上)による観測を用い、アジア域のエアロゾル変動を解析した。いずれも観測波長は532nm/1064nmで、532nmの偏光消滅度も計測した。新たに開発した改良型の解析法を用いて黄砂消散係数と球形粒子消散係数とを分離導出し、主に後者を解析対象とした。北京・沖縄辺戸岬・長崎・つくば(図3)でのデータを中心に、過去10年分の季節・経年変化や地域分布を解析した。MODISによる微小粒子AODも解析した。球形粒子消散係数を、領域モデルでの硫酸塩・有機物・黒色炭素による消散係数の和と比較した。モデルでの鉛直拡散の表現と高度分布が地表PM<sub>2.5</sub>濃度の決定要因として重要であるため、衛星ライダーデータから導出した「光学的スケールハイト」(地上から積算した消散係数がAODに対して1-1/e(約63%)に達した高度)を用い、WRM-CMAQモデル(サブテーマ(1))での値を比較検証した。モ

デルで計算された粒子組成の質量濃度を消散係数へ変換する際には光学モデルOPACを利用した。

#### (6) 受動型衛星観測による大気汚染物質の時空間分布の解析

エアロゾル・ガスについて、複数種の衛星データを用いた時空間分布の解析を行った。エアロゾルについては、1999～2013年に渡るMODISデータを解析に用いた。NO<sub>2</sub>については、GOME, SCIAMACHY, OMI, GOME-2の複数の衛星データ(対流圏NO<sub>2</sub>カラム濃度)を組み合わせて17年間の長期データセットを整備した。これらの衛星データを基準として、WRF/CMAQモデルの評価を2007年6月(衛星測器の劣化の影響が小さく、検証がなされた季節)に焦点を当てて行った(サブテーマ(1)と合同)。衛星の観測時刻である地方時9:30, 10:00, 13:45についてモデル内の月平均値を求め、衛星データと比較した。中国～日本にかけての12の診断領域を設け詳細に評価した。水平解像度(80, 40, 20, 10 km)を変えた計算だけでなく、鉛直層数等についての感度計算も行い、衛星データとの一致改善度を調べた。2000～2010年の11年間におけるWRF/CMAQ長期計算(水平解像度80 km、サブテーマ(1))でのトレンドを衛星データと比較することでモデルやテーマ2の排出インベントリ(REASv2)を検証した。その際、気象場の年々変動が小さい4-8月を選択した。用いた衛星のうち午後に観測がなされるOMIについては、領域モデル計算(サブテーマ(1))から得られた午前/午後の濃度比で補正してから取り扱った。

## 4. 結果及び考察

### (1) 領域モデルによる東アジア広域汚染の解析

WRF/CMAQモデルは、福江島観測(サブテーマ(4))でのO<sub>3</sub>やPM<sub>2.5</sub>の日々～季節変動、環境省のデータと合わせたときに見られた西高東低のPM<sub>2.5</sub>濃度減衰をよく再現した(図4)。2009-2013年に福江でのO<sub>3</sub>やPM<sub>2.5</sub>観測値は微減し、一見、排出量削減効果の表れかと期待されたが、この期間の排出量を一定としたシミュレーションで観測と整合する減少が再現されたことから、濃度減少は排出量の減少に由来したのではなく、むしろ気象場の変動によるものと結論付けた。PM<sub>2.5</sub>の化学組成のモデル再現性について、硫酸・硝酸・アンモニウムイオン、BCについては良好であった。しかしながら有機エアロゾルについては、モデル計算値は観測値の約1/5と低く、二次生成過程等の表現が不十分であることが示された。これは世界水準のモデルで共通に見られる傾向であり、今後、未知成分の同定や二次生成過程の表現法の確立を通じた改良が課題となる。なお、湿度35%を指標になされるPM<sub>2.5</sub>の連続観測値には、完全にとり切れていない水分が質量濃度に20%程度寄与している可能性があり、乾燥状態での各成分の再現性ではなくPM<sub>2.5</sub>の観測値のモデル再現を議論する際には、上述の有機物に加えて、水分の取り扱いも重要となることが示唆された。また、WRF/CMAQモデルで取り扱われていないダストについては、WRF-Chemモデルに基づいて、越境汚染の影響が大きい春季において月平均でPM<sub>2.5</sub>質量濃度に7-14%程度寄与があると推定された。このような観測・モデルの連携から得られた知見は、重点課題①の中心的な成果となった。

モデルの制約を念頭に、WRF/CMAQモデルを用いエミッション感度法によって2010年1年間の日本のPM<sub>2.5</sub>質量濃度に対する各発源地域からの寄与率を推定した(表1)。大陸に近い西日本では、中国からの寄与(主に中北部・中南部)が5割以上となり、越境大気汚染の寄与が

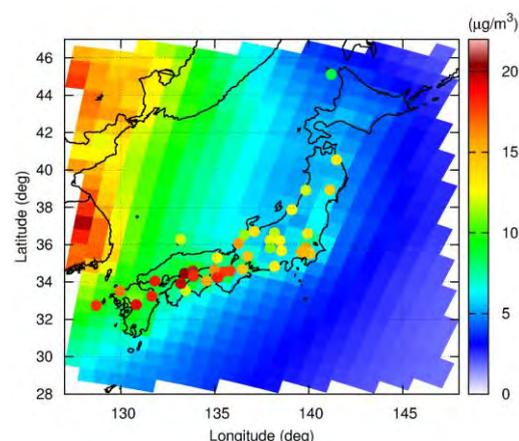


図4. 2010年のPM<sub>2.5</sub>年平均濃度の水平分布。点は観測値、背景はモデル結果。

表1. 日本各地域におけるPM<sub>2.5</sub>質量濃度に対する発源地域別の寄与(%)。2010年通年での値。

評価地域 発源地域	九州	中国	四国	近畿	北陸	関東
中国 (4地域合計)	61%	59%	59%	51%	55%	39%
朝鮮半島	10%	11%	8%	6%	5%	0%
日本	21%	25%	23%	36%	33%	51%

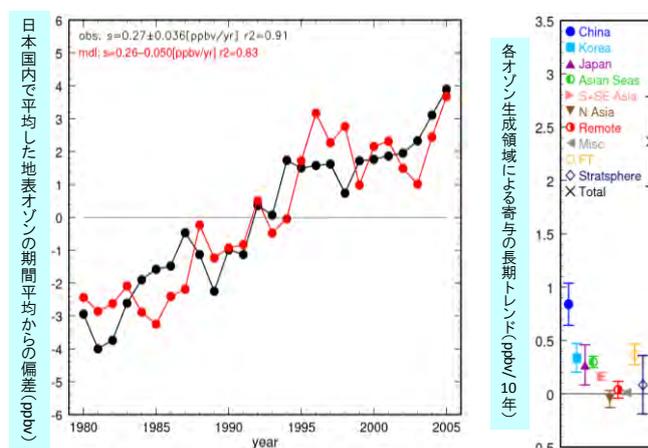


図5. (左)日本国内で平均した地表O<sub>3</sub>年平均値偏差の時系列。(右)O<sub>3</sub>生成領域ごとの寄与の長期トレンド。

非常に大きい。一方、関東では、国内の寄与割合が中国を上回った。高濃度日の寄与率もほぼ同様であった。中韓での排出量20%削減は、福江でのPM<sub>2.5</sub>高濃度日数の改善に資することがわかった。

## (2) 大気汚染物質のソースレセプター解析と削減感受性評価

CHASERを用いたタグ付きトレーサー法から、O<sub>3</sub>について、日本における中国からの越境の寄与率は影響の大きい春季において、平均で12%と算出された。PM<sub>2.5</sub>の中国寄与率より低い原因は、O<sub>3</sub>の方が大気中寿命が長く、より遠方（欧州等）からの影響も受けるため、またSO<sub>2</sub>などPM<sub>2.5</sub>前駆気体の発生量が中国で顕著に多いためと考えられる。国内O<sub>3</sub>の1980-2005年の長期上昇トレンド（2.4ppbv/10年）のうち、36%は中国上空での生成量増加によるもの（図5）と推定され、越境大気汚染の重要性が示された。また、こうした評価結果をエミッション感度法による評価と比較し、両者で評価結果は似通うものの、共通する部分は最大でも8割程度にとどまることを示した。CHASER, WRF/CMAQ, WRF-Chemの3種モデルによってエミッション感度法によって推定された、春季日本上空O<sub>3</sub>への中国発生源寄与は7-9%で、上述のタグ付きトレーサー法での値と合わせて寄与見積の幅を7-12%と把握できた。全球モデルの解析では、中国をレセプターとしてみた場合、東南アジアからのO<sub>3</sub>流入寄与も無視できないことを見出し、日中韓に東南アジアを加えた「東アジア」地域として、相互影響の多い、いわば利害関係地域を括ることができること（図6）を示して、国際協力の地域範囲設定に資する合理的な知見を提供した。

日本の代表的な都市（北九州など）におけるO<sub>3</sub>の日中8時間値75ppb超の日数など幾つかの指標を改善するためには、日中韓で30%程度の削減が必要との結果を得た。PM<sub>2.5</sub>の場合は寄与が大きい中国発生源に対し集中的に適切な対策がなされれば20%の削減でも濃度低減効果が大きいが、O<sub>3</sub>の場合は、寄与が世界に分散しているために、限られた地域で対策をとると、より大きな削減幅が必要となる。排出部門別（輸送、産業、発電、家庭）の観点からは、日本のO<sub>3</sub>高濃度（モデル内で日最高8時間平均値75ppb超過）日数改善には、日本における輸送・産業部門からの、また中国北部における産業・発電部門からの前駆物質排出量の削減の効果が大きいこと、PM<sub>2.5</sub>高濃度イベント数（モデル内で日平均濃度35μg/m<sup>3</sup>超過日数）の改善には、中国からの産業・発電部門からの排出量の削減の効果が大きいことが示された（図7）。さらに、中国北部での産業・発電部門からの排出量の削減は、日本でみられる以上の大気質改善効果を「中国自身にも」もたらすことを確認し、中国に対して十分な動機を与えながら改善を働きかけることも可能であるとの知見を得た。ただし、このような高度に寄与分解されたシミュレーションでは、排出インベントリの不確実性や、モデル表現に限界があることがわかっている有機物等の二次生成に対する部門毎の寄与の不確実性の影響が大きいので、ここでは参考として捉え、今後、複数のモデルや観測の寄与解析との整合性を評価すべきものである。

将来シナリオ実験では、CLEでは東アジアでO<sub>3</sub>、PM<sub>2.5</sub>の濃度は2030年に広域で増加するが、450cntrでは、都市部は別として広域ではNO<sub>x</sub>排出量の規制強化が東アジア地域のO<sub>3</sub>汚染改善に一定の効果をもたらすことが示された。PM<sub>2.5</sub>については、中国でのSO<sub>2</sub>排出量が減少する450ppmでもすでに華北平原において最大で約30%の減少が見られ、450cntrでは、日本の環境基準レベルは満たさないものの、更に大きなPM<sub>2.5</sub>の減少が期待される結果が示された。これらは重点課題②の中心的な成果となった。

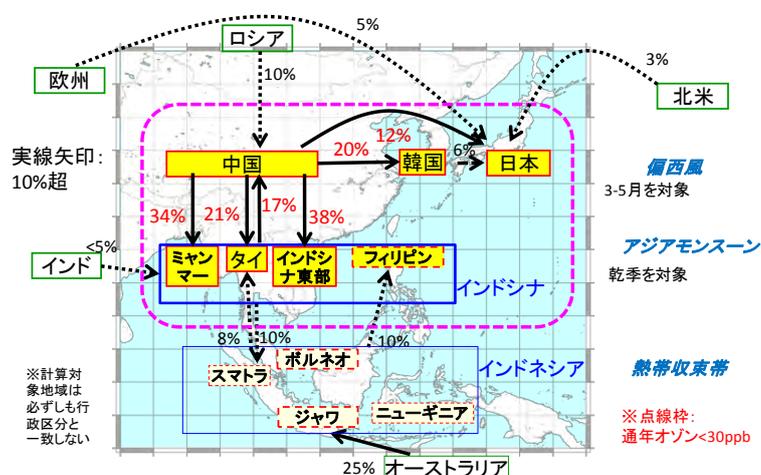


図6. 東アジア広域でみるO<sub>3</sub>の授受関係。

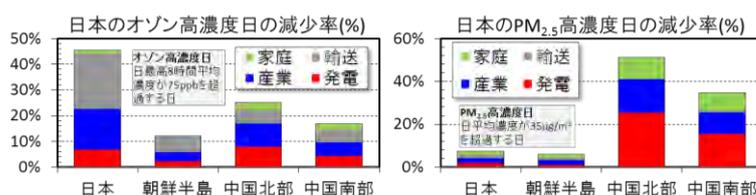


図7. 各領域・セクターの排出量を50%削減した場合の、日本におけるO<sub>3</sub>(左)PM<sub>2.5</sub>(右)の高濃度日数の減少率。

## (3) 化学気候モデルによる全球大気汚染と温暖化影響の評価

ベンゼン（人為起源）・イソプレン（植物起源）を前駆物質とする2次有機粒子生成過程が表現され、

イソプレンのOH酸化による寄与が57%にも上ることが示された。1850～2005年に渡る長期連続の過去変動再現シミュレーションが行われ、 $O_3$ ・エアロゾル濃度場は衛星を含む過去の観測とよく一致した。

BCの表現については、変質過程として、硫酸ガスだけでなく、揮発性炭化水素類（VOCs）の酸化に伴う有機成分も考慮し、これらの凝縮によるBC表面の被覆を陽に計算するスキームを導入し、さらに、降水除去過程などについても改良を行った結果、従来過小評価が著しかった南極・北極域についても、定量的にも観測に近いBCの濃度・季節性が計算された。また、サブテーマ（4）の福江島観測データを用い、一大発生源である中国の下流域でも、モデルは現実のBC濃度や季節性をよく再現できることが確認された（図8）。最終的に評価されたBCによる放射強制力の全球平均値は $0.56 W m^{-2}$ となり（図9）、本研究により不確かさが減少してもなお、BCは温暖化に有意に寄与する事実はゆるぎなく、その削減は温暖化の緩和に寄与しうることが示された。本モデルによる気候変動の予測には、温暖化をもたらす $CO_2$ 、 $O_3$ 、BCだけでなく、寒冷化を招く硫酸塩等の効果も含まれている。放射強制力に加え、各物質のもたらす気温変化や気候感度についても算出することで、例えば $CO_2$ による温暖化と $O_3$ やBC等による温暖化効果とを比較する際のメトリックとして用いることが可能になった。

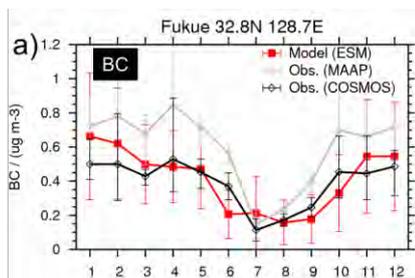


図8. 福江島におけるBCの季節変動。赤実線はCHASER-SPRINTARSモデル計算結果、黒実線は観測データ。

（鎖線）で評価すると、最大で $0.4^{\circ}C$ の気温上昇抑制効果が確認できた。したがって、実質的な温暖化抑制を期待するには、硫酸塩などの冷却性成分の濃度変動にも十分注意が必要である。なお大気汚染と温暖化影響の評価の内、SLCPコベネフィットアプローチの議論に直結した計算結果は、テーマ3サブテーマ（6）に提供した。

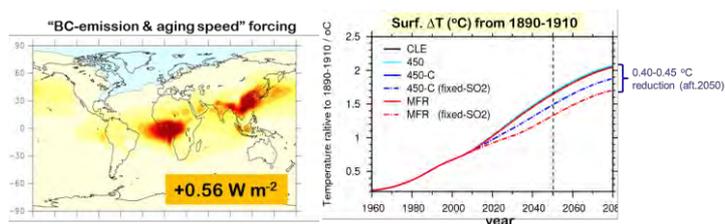


図9. (左) BCによる放射強制力（1850～2005年）の推定。(右) 各シナリオ（ $SO_2$ 排出量を2005年値に固定した場合も含む）での全球平均気温変化（1890～1910年からの差分）。

#### （4）北東アジアにおけるモデル精緻化のためのオゾン・エアロゾル現場観測

環境基準告示（2009年9月）直後の1年間、福江島における $PM_{2.5}$ では、日平均値が $35 \mu g/m^3$ を超える「高濃度日」が26日に上り（図10）、近くに汚染源のない離島でさえ、短期環境基準が満たされない問題を観測から見出し、速やかに報告した。気流場の解析やBCの共存から越境大気汚染の影響が強いと結論づけた。その後環境省データが充実し、非達成地域は西日本に広く見られることが明らかになってきた。しかし、越境大気汚染が支配的な環境で5年間の推移を見てとれるのは現時点で福江島しかない。福江島での $PM_{2.5}$ 高濃度日数（表2）は年間18～31日間で高止まり、環境基準を満たさない状況に変わりはない。福江島での $O_3$ についても、日平均濃度でさえ1時間値の環境基準である60ppbを上回る日数が過去5年度で32～47日/年も見られており（表2）、合わせて顕著な越境大気汚染問題として認識すべきことが観測から示された。「平均」濃度の長期解析では、福江島での $O_3$ 、 $PM_{2.5}$ の弱い減少傾向を5年間の観測から見出したが、サブテーマ（1）のモデル計算から、気象場の変動の影響が強く、排出量減少を示唆しないことがわかった。如東、済州島での $PM_{2.5}$ の化学組成は、福江島の場合（図11）と主成分の構成（硫酸・硝酸・アンモニウムイオン、BC、有機物）や割合の点で類似した。東アジアでの $PM_{2.5}$ モデル再現性には一定の目途が立つものの、さらなる向上のためには有機物濃度の表現の向上が目標となることが示された。そのほか、福江島に飛来する越境大気汚染気塊では、基本的に $O_3$ 生成制限因子は $NO_x$ であるが、韓国経由で飛来する場合にはVOCとなる場合もあり、国内での追加的な $O_3$ の生成を抑制するには、 $NO_x$ だけでなくVOCの削減も効果的であることが示された。

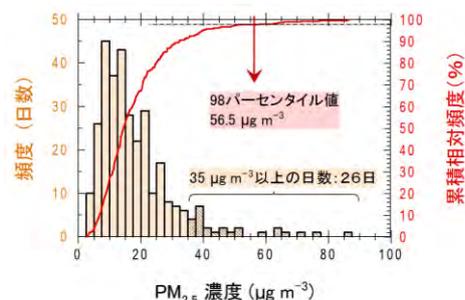


図10. 福江島における2009年9月9日から1年間の日平均 $PM_{2.5}$ 質量濃度のヒストグラムと累積相対頻度（%）。

2種の装置による福江でのBC計測データは非常に強く正相関し、他成分の干渉等を排除したBC連続測定法が確立された。しかしながら、50%程度のバイアス(MAAPが過大)が季節によらず見いだされた。この結果は中国での集中観測で得られた大小関係と整合的であり、校正の際に基準とした熱分離手法の違いに由来する可能性を指摘した。このことにより、従来400%にも上るとされたBC計測法の不確かさを約50%にまで狭めることができた。また、如東での観測結果と2006年泰山での集中観測結果とから、中国中東部ではBC粒子の大気中寿命が4.1-5.7日と見積もられ、従来知見(4.7-10日)より短いことを見出し、他の水溶性成分との内部混合によって除去が促進されている可能性が示唆された。さらに、 $\Delta BC/\Delta CO$ 比の計測から、冬小麦の収穫後の農業残渣野外燃焼からのBC発生量は従来想定約2倍に達する可能性が指摘された。これらのプロセス解明の成果も加え、

全球(サブテーマ(3))・領域(サブテーマ(1))モデルの改良を介して、排出インベントリREAS2(テーマ2)の不確かさは、ボトムアップで見積もられた幅(数倍)よりも十分に小さい可能性を見出した。如東ではバイオマス燃焼に由来する各種VOC成分の排出係数も決定した。具体的にはPMF因子解析と、トレーサーとなるアセトニトリルの増大を指標にして、バイオマス燃焼が強く影響したピークを同定することで、共存する都市大気汚染の影響を除去し、COとCO<sub>2</sub>の濃度比をもとに決定された有炎・無炎燃焼状態別に、排出係数を推定した。アセトニトリル、アセトアルデヒドなど含窒素・含酸素有機化合物は、無炎燃焼時に多く排出されることを見出した。実験室での小規模燃焼実験からも整合的な結果を得た。農作物のバイオマス残渣量と組み合わせて、中国における冬小麦の野焼きから排出されるVOC量は0.29 Tg/yr(他の農作物の野焼きにも同じ排出係数を適用すると全排出量は1.95 Tg/yr)と推計された。中国・韓国での国際共同観測を通じて、国際的な地域協力の基盤構築のために重要となる、地域科学者間の共通認識の醸成も達成した。

### (5) 地上・衛星ライダーによるアジア域のエアロゾル解析

2004-2011年の地上ライダーによる球形粒子AOD、CALIOPによるAOD、MODISによる微小粒子AODでは、北京・沖縄辺戸岬・つくばにおいて、2006-2007年にピークがみられ、上昇傾向がその後横ばい又は減少となる共通の傾向が示された。AODの値や季節性の観点で、CMAQの再現性は概ね良好であった。その後、2011-2013年12月までの観測結果を加え、10年間の球状粒子AOD変動を解析したところ、沖縄辺戸岬・長崎・つくばでは、減少傾向には歯止めがかかっていることを見出された(図12)。重要な前駆物質が二酸化硫黄から窒素酸化物へ変化した可能性も指摘された。とくに2008年以降の排出動向の把握を確定的なものにするには、排出インベントリの年次更新や、より長期の推移の確認が必要である。

PM<sub>2.5</sub>高濃度日のダスト寄与についても、球形粒子と黄砂を区別して消散係数を決定できるライダー観測の利点を活かして算出した。2010-2013年度に、日本の各地PM<sub>2.5</sub>観測から35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 超過地点割合が高かった上位30日において、全国12ライダーの平均値として評価した場合、気象庁での黄砂目視観測地点数が多かった日にはやはり黄砂の寄与が高かった。

エアロゾルスケールハイトについては、過去にライダーによるAODの比較評価に用いた鉛直14層の

表2. 福江島でのPM<sub>2.5</sub>高濃度日(日平均値が35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 超)の月別統計(グレーは有効測定日数が15日以下)。2013年1月も他の年と大差ない(太字)。O<sub>3</sub>日平均濃度が60ppbを超過した日数の年々変動も合わせて示す。

月年度	4	5	6	7	8	9	10	11	12	1	2	3	合計	O <sub>3</sub> 日平均値60ppb超過日数
2009	10	1	2	0	0	0	4	1	2	6	1	2	29日	34日
2010	0	5	0	1	4	0	1	5	3	0	7	2	28日	37日
2011	4	8	1	0	0	0	0	2	1	6	1	5	28日	32日
2012	1	4	0	0	0	0	0	2	0	<b>3</b>	1	7	18日	42日
2013	2	7	0	0	0	0	0	0	4	7	7	4	31日	47日

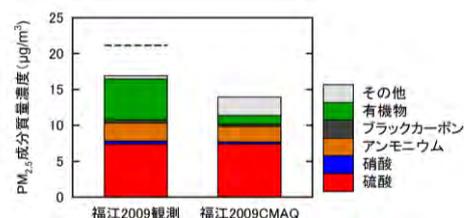


図11. 2009年春季、福江島での平均的なPM<sub>2.5</sub>化学組成。左が観測、右がモデル結果。観測の点線はPM<sub>2.5</sub>連続観測値。

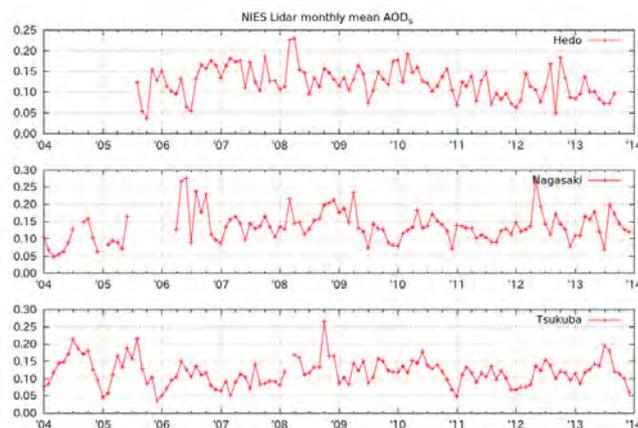


図12. 地上ライダー観測から得られた球形粒子光学的厚さの月平均値。上から辺戸岬、長崎、つくば。

RAMS/CMAQモデルでは、エアロゾルが観測よりも高高度にまで分布してしまうことを見出し、37層のモデルへの更新を促した。37層を採用した最新モデル結果との比較では、概して特に日本海や日本を含む領域において数値モデルと観測との一致度が良いが、夏期においてはモデルのスケールハイトがわずかに観測よりも高いため、鉛直解像度の改善がさらなるモデルの改良に繋がること示唆された。

### (6) 受動型衛星観測による大気汚染物質の時空間分布の解析

地上からのリモート観測(MAX-DOAS法)を用いた衛星データの定量的検証では、バイアスがSCIAMACHYでは7%、OMI:-7%、GOME-2では-20%と算出された。このバイアスを補正したのちに、3種の衛星データを基準として2007年6月についてサブテーマ(1)によるWRF/CMAQモデル計算結果を評価した。その結果、CEC(中国中東部)を含む9領域で日変化パターンがモデルと一致した。定量的には、中国上空でCMAQが対流圏NO<sub>2</sub>カラム濃度の日中の減少速度を過小評価する傾向があることが分かり、モデル中の化学プロセス・境界層の取り扱いなどを検証することがさらなるモデルの精緻化に重要であることを提案した。

この衛星データを基準とし、CMAQモデルの長期トレンドを評価した(図13)。12診断領域のうち、CEC、NCP(華北平原)、BEI(北京周辺)では衛星データに見られる年々変動パターンがCMAQで再現できていることが分かった。中国での急激な増加とは対照的に、日本では減少トレンド、韓国ではほぼ横ばいであった。定量的にはCMAQの計算値が過小となる傾向が認められたが、この差はCMAQの水平解像度を改善することで解消される。これらの結果は利用したREAS Ver. 2の排出インベントリの妥当性を支持するものである。このように、長期トレンドの観点からもモデル精緻化に資する知見が得られた。さらに本研究では、2013年までの衛星データを収集し、直近までのトレンド解析を実施した。2011年以降、CEC領域では対流圏NO<sub>2</sub>カラム濃度の増加の鈍化、或いは減少する傾向が見られた。また、2009-2013年においてはNO<sub>2</sub>とAODが同じ変動を示した。エアロゾルへの感度は硫酸化合物だけでなく窒素化合物も重要である可能性を示唆するかもしれない。その重要性によっては、今後のNO<sub>x</sub>規制はO<sub>3</sub>だけでなくエアロゾル(PM<sub>2.5</sub>)の減少にも寄与しうることが示唆された。

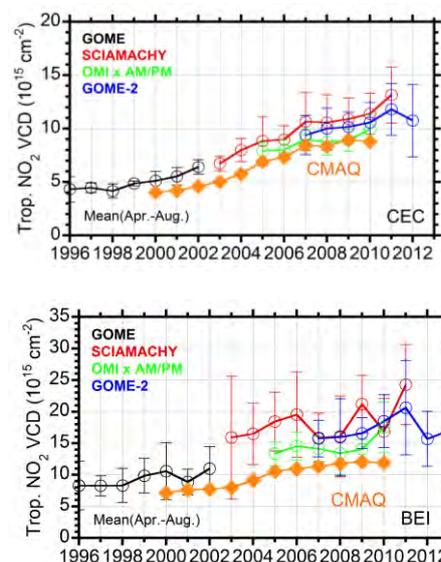


図13. 中国中東部(CEC)・北京(BEI)の各領域における対流圏NO<sub>2</sub>カラムの月平均値の長期トレンド。4-8月のデータを使用。衛星データは白抜き丸、CMAQの値は橙色丸。

## 5. 本研究により得られた主な成果

### (1) 科学的意義

本課題で確立した汚染寄与率算定手法は、物質収支や起源推定のための普遍的な方法論と言えるもので、寄与率の値を明らかにしたことに加えて、手法確立の価値も高い。現場・衛星観測と数値モデルを統合し、東アジアにおけるO<sub>3</sub>・PM<sub>2.5</sub>に関する広域大気汚染の実態や年々変動傾向を掴んだ。変動要因を排出量変動と気象場変動とに分離して解析した。2009-2013年にかけて、福江ではO<sub>3</sub>・PM<sub>2.5</sub>・BC濃度に弱い低減傾向が見られたが、主原因は気象場の変動で、排出量の低下ではないことが示された。衛星から観測された対流圏NO<sub>2</sub>には、中国中東部において、1996-2011年に有意な濃度上昇が見られ、気象場の年々変動の影響を上回る排出増の影響が示唆された。社会的に高い注目を浴びた中国での広域PM<sub>2.5</sub>汚染の時期(2013年1月)には日本への越境輸送は限定的で、PM<sub>2.5</sub>高濃度日数も例年の範囲内だったことを示した。PM<sub>2.5</sub>の組成毎のモデル再現性を日本・中国・韓国で行った集中観測について横断的に検討したところ、水溶成分やBCの再現性はよいものの、有機物の過小評価が著しい共通傾向が見出され、今後、観測による起源解明や揮発性などに着目した新たなモデル表現の開発が必要とわかった。また粗大粒子が主とされるダストも国内PM<sub>2.5</sub>に7-14%程度の寄与をもたらす可能性を見出した。

大気汚染物質排出量変化の影響をモデル評価する際に、水平・鉛直分解能を適切に設定するための指針が得られた。O<sub>3</sub>はNO<sub>x</sub>やNMVOCの発生量変化に対し非線形応答し、その応答性は空間解像度や季節にも依存するため、時空間平均値を扱う際に重要となる。衛星観測との比較の際にも、モデルにおける水平解像度の扱いを詳細に検討した。ライダーによるエアロゾル高度分布観測を指標に境界層厚さのモデル表現を検証し、37層の設定ではほぼ十分な鉛直分解能が得られることが分かった。

排出インベントリを改良するための観測知見も得られた。とくにバイオマス燃焼由来の有機物の発生量見積の適正化に貢献した。模擬燃焼実験からBC粒子の混合状態別の排出情報が得られ、大気中寿

命などに及ぼす影響が示唆された。化学気候モデルも改良され、化学種毎の温暖化影響を比較するためのメトリックも導入した。将来予測では、SLCPsが温暖化抑制と大気汚染低減の両面に寄与するためにはSO<sub>2</sub>排出量の動向や硫酸塩の挙動に注意が必要であることが分かった。温室効果気体として重要なメタンについても、排出量変動、化学消失変動の寄与を分離・定量化し、予測の精緻化が実現した。

## (2) 環境政策への貢献

### <行政が既に活用した成果>

- 環境省・光化学オキシダント調査検討会 報告書—今後の対策を見すえた調査検討のあり方について—(平成24年3月)にて、p. 143では衛星観測から示唆された中国からのNO<sub>x</sub>排出増(サブテーマ6)が、またp. 147では我が国のO<sub>3</sub>起源(生成地域別寄与)が取り上げられた(サブテーマ2)。
- 日中韓3カ国環境大臣会合(TEMM)光化学オキシダントに関する研究協力に関する「日中韓光化学オキシダント科学研究ワークショップ」第2~4回(平成21年12月、平成23年2月、11月)において、本課題の研究成果が最新の科学的知見として交換された。(サブテーマ2、4)
- 環境省・中央環境審議会・微小粒子状物質等専門委員会(平成26年3月12日)では、PM<sub>2.5</sub>対策の検討に際し、我が国地域別のPM<sub>2.5</sub>に対する越境大気汚染・国内汚染の寄与率を定量化した本課題の結果が参考資料として配付された。(サブテーマ1、4)
- 本研究において計算された地上ライダーによるエアロゾル消散係数が、環境省「黄砂による健康影響調査検討WG」において、人為汚染交絡因子の指標として利用され、また環境省「黄砂実態解明調査WG」において煙霧現象の解析を行う際に利用された。(サブテーマ5)
- 国際的なモデル間相互比較や、IPCC第5次報告書に向けたACCMIPやCCMIへ参加し、本課題のCHASER-SPRINTARSモデルによる実験結果もIPCC第5次報告書に採用された。(サブテーマ2、3)

### <行政が活用することが見込まれる成果>

O<sub>3</sub>・PM<sub>2.5</sub>に関する発生源寄与率と必要削減幅について、以下の情報を提供した。日本上空の春季O<sub>3</sub>の発生源別寄与では、日本起源22%、中国起源12%、欧米起源7%と多様。一方PM<sub>2.5</sub>では西日本・通年で中国寄与は5割以上と大きいが、関東では国内寄与が中国寄与を上回る。中国のうち中北部からの影響が重要。PM<sub>2.5</sub>の中国からの寄与率は大きいが、対策が確実に行われれば改善効果も大きい。日本での高濃度日数の効果的改善に必要な前駆物質排出削減幅の目安は、O<sub>3</sub>の場合で日中韓に対し30%、PM<sub>2.5</sub>の場合で中韓に対し20%。中国での発電・産業部門からの前駆物質排出削減は日本だけでなく、中国自国のO<sub>3</sub>・PM<sub>2.5</sub>高濃度対策にも効果的(初期結果)。また、O<sub>3</sub>の授受関係では日中韓だけでなく、中国と東南アジアとの間の関係も重要であり、国際協力の枠組みの地域設定の際に考慮すべき。

観測からの越境大気汚染実態に関する以下の情報を提供した。日本西方を代表する福江島では、越境大気汚染の影響を受け、O<sub>3</sub>に加えPM<sub>2.5</sub>の「高濃度」日数が多く、基準を満たせない状況であることを観測から見出した。2009-2013年度の間、状況は改善していない。前駆物質のNO<sub>2</sub>は中国中東部上空で過去15年で約3倍に濃度増加し、国内のO<sub>3</sub>「平均」濃度も2008年頃までは過去約20年に亘り上昇を見せた(光化学オキシダント調査検討会、2014)。一方、2009-2013年度のO<sub>3</sub>やPM<sub>2.5</sub>の「平均」濃度は、福江ではむしろ微減傾向にあったが、気象(風系や降水)の年々変動の影響が強いため、前駆物質の排出源強度が減少に転じたわけではない。中国如東・韓国済州島・福江でのPM<sub>2.5</sub>の化学組成では、硫酸・アンモニウムイオン・有機物が主となる共通の傾向がみられ、それらの削減対策の有効性は高い。改良型の化学気候モデルで再評価されたBCの直接放射強制力は全球平均で0.56W/m<sup>2</sup>となり、硫酸塩等の動向にも配慮すれば排出削減は温暖化緩和と大気汚染の改善に貢献する。

## 6. 研究成果の主な発表状況

### (1) 主な誌上発表

#### <査読付き論文> (全57件中)

- 1) T. NAGASHIMA, T. OHARA, K. SUDO, and H. AKIMOTO: Atmos. Chem. Phys., 10, 11305-11322 (2010).  
“The relative importance of various source regions on East Asian surface ozone”
- 2) 金谷有剛、竹谷文一、入江仁士、駒崎雄一、高島久洋、鶴野伊津志: 大気環境学会誌, 45(6), 289-292 (2010).  
「九州福江島における通年PM<sub>2.5</sub>質量濃度測定値の大気環境短期基準超過」
- 3) Y. HARA, I. UNO, A. SHIMIZU, N. SUGIMOTO, I. MATSUI, K. YUMIMOTO, J. KUROKAWA, T. OHARA and Z. LIU: Scientific Online Letters on the Atmosphere, 7, 121-124 (2011), doi:10.2151/sola.2011-031.  
“Seasonal Characteristics of Spherical Aerosol Distribution in Eastern Asia: Integrated

Analysis Using Ground/Space-Based Lidars and a Chemical Transport Model”

- 4) K. YAMAJI, I. UNO, and H. IRIE: Atmospheric Environment, 55, 475-482 (2012)  
 “Investigating the response of East Asian ozone to Chinese emission changes using a linear approach”
- 5) T. SEKIYA and K. SUDO: J. Geophys. Res., 117, doi: 10.1029/2012JD018054 (2012)  
 “Role of meteorological variability in global tropospheric ozone during 1970-2008”
- 6) H. IRIE, K. F. BOERSMA, Y. KANAYA, H. TAKASHIMA, X. PAN, and Z. F. WANG: Atmos. Meas. Tech., 5, 2403-2411 (2012)  
 “Quantitative bias estimates for tropospheric NO<sub>2</sub> columns retrieved from SCIAMACHY, OMI, and GOME-2 using a common standard for East Asia”

## (2) 主な口頭発表 (学会等) (全289件中)

- K. SUDO, A. WADA, T. TAKEMURA, Z. KLIMONT, J. KUROKAWA, H. AKIMOTO: IGAC/SPARC Chemistry-Climate Model Initiative Workshop, Boulder, May 14-16, 2013.  
 “Global Modeling and Projection of Short-lived Climate Pollutants”
- 清水厚, 山地一代: 日本気象学会2013年度春季大会, 東京都、2013年5月15-18日  
 「球形粒子の光学的スケールハイトを利用した化学輸送モデルとライダー観測におけるエアロゾル鉛直分布比較」
- Y. KANAYA: The 54th Annual Meeting of the Japan Society for Atmospheric Environment, Niigata, September 18-20, 2013.  
 “Current status of PM<sub>2.5</sub> pollution over Northeast Asia”
- 池田恒平, 山地一代, 金谷有剛, 竹谷文一, Pan Xiaole, 駒崎雄一, 黒川純一, 大原利真: 第54回大気環境学会年会, 新潟市, 2013年9月18-20日.  
 「日本のPM<sub>2.5</sub>質量濃度に対する発生源地域の感度解析」
- 永島達也, 秋元肇, 大原利真, 金谷有剛: 第19回大気化学討論会, 七尾市, 2013年11月6-8日.  
 「東アジアにおける地表オゾンのセクター別削減感受性評価」
- H. IRIE, K. YAMAJI, K. IKEDA, I. UNO, S. ITAHASHI, T. OHARA, J. KUROKAWA: AGU Fall Meeting 2013, San Francisco, December 9-13, 2013.  
 “An evaluation of the CMAQ reproducibility of satellite tropospheric NO<sub>2</sub> column observations at different local times over East Asia”
- H. TANIMOTO, S. KUDO, X. PAN, S. INOMATA, S. SAITO, Y. KANAYA, Z. WANG: AGU Fall Meeting 2013, San Francisco, December 9-13, 2013.  
 “Emissions of oxygenated volatile organic compounds from open crop burning in Yangtze River Delta region, China”

## 7. 研究者略歴

課題代表者: 金谷有剛、東京大学大学院理学系研究科修了、博士(理学)、  
 独立行政法人海洋研究開発機構 地球環境変動領域 大気組成研究チーム チームリーダー

研究分担者 (サブテマリーダーのみ)

- (1) 滝川 雅之、東京大学大学院理学系研究科修了、博士(理学)、独立行政法人海洋研究開発機構 地球環境変動領域 大気物質循環研究チーム チームリーダー
- (2) 永島 達也、東京大学大学院理学系研究科修了、博士(理学)、独立行政法人国立環境研究所地域環境研究センター大気環境モデリング研究室主任研究員
- (3) 須藤 健悟、東京大学大学院理学系研究科修了、博士(理学)、名古屋大学大学院環境学研究科地球環境科学専攻准教授
- (4) a) 金谷 有剛 (上記)  
 b) 谷本 浩志、東京大学大学院理学系研究科修了、博士(理学)、独立行政法人国立環境研究所地球環境研究センター、地球大気化学研究室 室長
- (5) 清水 厚、京都大学大学院理学研究科修了、博士(理学)、独立行政法人国立環境研究所地域環境研究センター広域大気環境研究室、主任研究員
- (6) 入江 仁士、名古屋大学大学院理学研究科修了、博士(理学)、千葉大学 環境リモートセンシング研究センター 特任准教授

## S-7 東アジアにおける広域大気汚染の解明と温暖化対策との共便益を考慮した大気環境管理の推進に関する総合的研究

### 1. 数値モデルと観測を統合した東アジア・半球規模のオゾン・エアロゾル汚染に関する研究

#### (1) 領域モデルによる東アジア広域汚染の解析

(独) 海洋研究開発機構 地球環境変動領域 滝川 雅之・池田 恒平・山地 一代<sup>1</sup>  
(<sup>1</sup>平成25年度より神戸大学)

<研究協力者>

九州大学 応用力学研究所 鶴野伊津志

平成21～25年度累計予算額：60,474千円  
(うち、平成25年度予算額：11,668千円)  
予算額は、間接経費を含む。

#### [要旨]

東アジア域での広域汚染における越境輸送などの影響評価のため、アジア領域スケール化学輸送モデルWRF/CMAQ(水平グリッド間隔80km、鉛直37層)を用いたモデル解析を行なった。使用する数値モデルについてはエアロゾル反応過程などに随時最新の知見を反映したものをを用いるとともに、海塩粒子発生・バイオマス燃焼の表現などについても独自に改良を加えた。排出インベントリについても随時最新のもの(最終的にはテーマ2で完成させたREASver.2)を用いた。またサブテーマ(4)で得られた福江島でのオゾン・PM<sub>2.5</sub>観測結果等を用いて評価し、モデルの信頼性を高めるとともに、観測と共通に見られる年々変動などの特徴を理解するための気象解析等を行った。PM<sub>2.5</sub>の化学組成の解析では、WRF-Chemモデル(水平グリッド間隔80km、鉛直34層)も併用し、土壌ダストの寄与も見積もった。東アジアにおける6領域(中国東北部・中北部・中南部・南部、朝鮮半島、日本)とその他を対象に人為起源排出量を仮想的に20%削減した感度実験を行い、2010年1年間の日本のPM<sub>2.5</sub>質量濃度に対する各発生源地域からの寄与率を、エミッション感度法により解析した。地表オゾンに対する排出量と濃度間の感度実験の結果を基に排出量を20%変化させた場合の地表付近濃度における感度を5倍した値を寄与と考えた。その上で、各発生源地域からの寄与が全発生源からの寄与合計に占める割合として、相対的寄与を算出した。得られた感度を利用して、福江島でのPM<sub>2.5</sub>高濃度日(日平均35μg/m<sup>3</sup>超)の発生を抑えるのに必要な排出削減量を見積もった。その他、WRF/CMAQを用いた長期間計算を行い、サブテーマ(5)(6)と共同で、AODやNO<sub>2</sub>カラム量の年々変動の検証や、鉛直分布のモデル検証を行った。

#### [キーワード]

PM<sub>2.5</sub>、対流圏オゾン、東アジア、越境汚染、発生源別寄与率

#### 1. はじめに

最近、わが国におけるオゾン濃度の全国的な上昇や中国・北京などにおけるPM<sub>2.5</sub>高濃度イベント

などが報じられ、大気環境に関する社会的な関心が改めて高まっている。とくに日本においては、これまで光化学オキシダント注意報が発令されたことが無く比較的清浄と考えられていた地方において近年初めて注意報が発令され、高濃度事象の広域化とも考えうる事象が見られている。この要因としては大陸からの越境汚染の影響が論じられているが、地表付近におけるオゾンの生成要因についてはそれ以外にも日本自身から放出される前駆物質による局地的生成、成層圏からの流入、ヨーロッパ、北米大陸などからの長距離輸送などが考えられる。このため、日本および東アジア域における大気環境改善に対する真に有効な対策を構築するためには、日本および東アジア域における各種発生要因の相対的寄与に対する定量的な科学的知見を確立することが急務である。

本研究では、アジア域を対象とした領域モデルを用いてオゾンおよびPM<sub>2.5</sub>の東アジア域における越境汚染量、わが国における生成量などを明らかにする。また最近10年程度の長期数値シミュレーションを行い、越境汚染量の年々変動の変化と収支解析を行う。他のサブテーマとの連携としては、全球化学輸送モデルによる計算結果を初期値もしくは側面境界条件として取り込むとともに、オゾン・エアロゾルおよび前駆体物質の地表観測や衛星・ライダー観測データを解析・同化することでモデルの精緻化を進める。

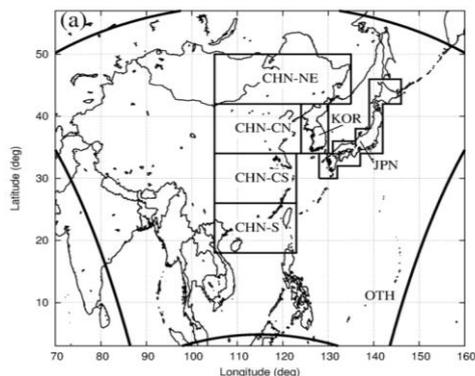
## 2. 研究開発目的

東アジアスケールでの広域大気汚染を定量的に明らかにし、越境汚染量および日本周辺におけるオゾン、PM<sub>2.5</sub>をはじめとする汚染物質の生成量を定量的に評価するためには、大気汚染物質を精度よく予測できる化学輸送モデルが不可欠である。近年の高性能並列計算機はCPUやメモリ、HDDの大規模化、高速化が急速に進んでおり、数値シミュレーションを行う際の解像度の向上および化学反応等の詳細化が可能となりつつある。本研究においては最新の気象モデルと化学輸送モデルを用いた高精度かつ高分解能のモデルシステムを構築し、東アジアスケールでの越境汚染の影響評価を行うとともに、日本および東アジア域における越境汚染に直接関与する発生源地域を特定し、それらの地域における排出量削減に関する科学的知見を得ることを目的とする。また数値モデルを用いた影響評価に関する信頼性を高めるため、中国をはじめとする東アジア地域における排出量変化に対する地表オゾン濃度、エアロゾル濃度の応答に関する評価を進めるとともに、他のサブテーマとも連携し、衛星観測、ライダー観測、地表観測等の多種観測とモデル結果との総合的解析を進め、モデルの精緻化を進める。

## 3. 研究開発方法

### (1) モデルの概要

本研究では、化学輸送モデルとして米国環境保護庁 (Environmental Protection Agency : EPA)が中心となって開発しているコミュニティモデルである Community Multi-scale Air Quality model (CMAQ) ver. 4.7.1<sup>1)</sup> を使用し、気象場は米国大気研究センター(National Center for Atmospheric Research : NCAR)などによるコミュニティ領域気象モデル Weather Research and Forecasting model (WRF) ver. 3.3.1<sup>2)</sup> を用いて計算した。モデル領域は、東経115°、北緯30°を中心としたランベルト座標系で投影され、97×77グリッドで構成される (図(1)-1)。モデルの水平解像度は80 km×80 kmで、鉛直方向には地表面から50 hPaまでを37層に分けた。WRFの計算の初期条件及び側面境界条件



図(1)-1. WRF/CMAQのモデル領域及び、発源地域別の寄与評価のための領域設定。

が考慮されている<sup>5)</sup>。海塩粒子は気象場に応じて、発生量がモデル内で算出される。粒子はAitkenモード、accumulationモード、coarseモードの3つの対数正規分布で表現されており<sup>6)</sup>、Aitkenモードとaccumulationモードの質量濃度の和をPM<sub>2.5</sub>濃度とした。成分としては、硫酸塩、硝酸塩、アンモニウム塩、ナトリウム塩、塩化物、元素状炭素、有機物、一次粒子のPM<sub>2.5</sub>から算出した。気体成分の側面境界濃度には全球化学気候モデルCHASER<sup>7)</sup>によって計算された1990年代後半の月平均値を与えた。

福江島での観測が開始された2009年から2013年10月までのおよそ5年間の計算を実施した。人為起源の排出量には、本研究課題のテーマ2サブテーマ(1)で開発されたREAS (Regional Emission Inventory in Asia) ver. 2.0<sup>8)</sup>の最も新しい対象年である2008年の月平均値をこの5年間に対して使用した。REASには発生源として燃料燃焼や産業プロセス、農業活動などが含まれており、化学物質としては、SO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub>、CO、非メタン揮発性有機化合物 (NMVOC)、PM<sub>10</sub>、PM<sub>2.5</sub>、ブラックカーボン (BC)、有機炭素 (OC)、NH<sub>3</sub>、CH<sub>4</sub>を取り扱っている。バイオマス燃焼による月平均排出量には、GFED (Global Fire Emission Database) ver. 3.1を使用した。2012年以降の計算については、RETRO (REanalysis of the TROpospheric chemical composition) の2000年の推計値を用いた。生物起源NMVOCの排出量には、MEGAN (Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature) ver. 2<sup>9)</sup>による2000年の月平均推計値を用いた。火山によるSO<sub>2</sub>排出量は、Streetsほか<sup>10)</sup>による2000年の推計値を基にした。ただし、この期間に噴火していた三宅島からの排出量に関しては、気象庁による観測値 (1000 トン/日)<sup>11)</sup>に修正して使用した。

## (2) 発源地域別寄与の算出方法

日本における2010年のPM<sub>2.5</sub>質量濃度への発源地域別の寄与をエミッション感度法により評価した。使用したWRF/CMAQの設定及び、エミッションは上述の長期計算と同様である。エミッション感度法では、ある対象とする地域における排出量を変化させる場合と、させない場合についてモデル実験を行い、濃度の差、すなわち感度から対象地域の寄与を算出する。本研究では、排出量を20%減らした感度実験により、各発生源からの寄与を評価した。また、排出量の変化のさせ方の違いによる影響を調べるために、排出量を20%増やした感度実験も実施して-20%の場合と比

には、米国国立気象局 (National Centers for Environmental Prediction : NCEP) による水平解像度1°×1°、6時間毎の全球客観解析データ (FNL (Final) Operational Global Analysis data, ds083.2) を使用し、領域内の水平風速と気温、比湿については3D grid nudgingを用いて同化した。CMAQの化学反応モジュールにはSAPRC-99 (Statewide Air Pollution Research Center, Version99<sup>3)</sup>) を、エアロゾル過程にはAERO5 (fifth generation CMAQ aerosol module) と呼ばれるモジュールを使用した。AERO5では、熱力学平衡モデルISORROPIA<sup>4)</sup>によって、無機成分のガス-粒子間の分配が計算される。二次有機エアロゾルについては、芳香族化合物やイソプレン、モノテルペン等からの生成

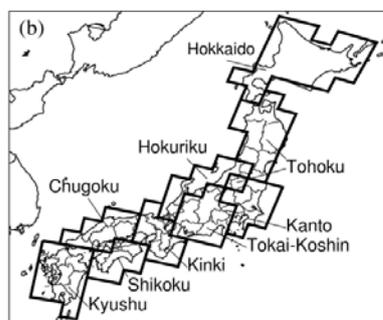
較した。さらに、寄与の大きい主要な発生源地域については、別の削減率（-50%）を用いた感度実験も実施して、排出量変化率の違いによる寄与評価の不確実性を検討した。

東アジアにおける発生源地域を、日本（JPN）と朝鮮半島（KOR）、中国北東部（CHN-NE, 105°E-135°E, 42°N-50°N）、中国中北部（CHN-CN, 105°E-124°E, 34°N-42°N）、中国中南部（CHN-CS, 105°E-123°E, 26°N-34°N）、中国南部（CHN-S, 105°E-123°E, 18°N-26°N）と、これら6領域以外の地域（OTH）の7つに分けて、それぞれからの寄与を評価した（図(1)-1）。各ソース領域における人為起源の一次粒子（EC, OC, PM<sub>2.5</sub>）及びPM<sub>2.5</sub>の前駆物質（SO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub>, NH<sub>3</sub>, NMVOC）の年間排出量を表(1)-1に示す。日本に影響を及ぼす発生源地域をより詳しく把握するために、中国については4つの領域に分けた。中国の中では、中北部（CHN-CN）と中南部（CHN-CS）からの排出量が卓越している。

表(1)-1. 各発生源地域からの年間排出量（Gg/年）。

Source Region	Area of Source Region (×10 <sup>4</sup> km <sup>2</sup> )	Annual Anthropogenic Emissions in Source Regions (Gg year <sup>-1</sup> )						
		PM <sub>2.5</sub>	EC	OC	NO <sub>x</sub>	SO <sub>2</sub>	NH <sub>3</sub>	NMVOC
JPN	92	68	27	11	2,430	869	480	2,616
KOR	44	175	36	44	1,537	795	346	2,276
CHN-NE	193	700	132	283	2,819	1,831	1,518	3,829
CHN-CN	143	3,875	589	1,014	10,194	13,352	4,129	17,029
CHN-CS	155	3,510	521	1,047	8,993	11,340	5,506	21,956
CHN-S	181	1046	201	518	4,005	4,353	2,448	10,943

7領域に対する感度実験では、人為起源の排出量のみを±20%変化させ、それ以外の発生源（バイオマス燃焼起源と生物起源、火山起源）の排出量はそのまます使用した。また、人為起源以外の発生源についても寄与を算出するために、バイオマス燃焼と植生起源、火山起源の3つの排出量を一括して±20%変化させた感度実験を行い、自然起源の寄与（NAT）として評価した。自然起源の感度実験については、発生源地域を分けずに、モデルの計算領域全体で排出量を増減させる。以上のように、8種類（人為起源7地域と自然起源）の発生源について、2通り（±20%）の計16ケースの感度実験と、すべての発生源の排出量をそのまま使用する標準実験を行い、標準実験の濃度と感度実験の濃度との差を各発生源の感度とした。そして、排出量と濃度間に線形関係を仮定し、感度を5倍した値を寄与とした。相対的寄与率は、各発生源の寄与を全発生源からの寄与の合計に占める割合として算出した。また、標準実験でのPM<sub>2.5</sub>濃度に占める値として、評価した場合とどの程度差があるか、すなわち非線形性がどの程度あるか見積もるために、全発生源からの寄与の合計と標準実験の濃度の比についても算出した。



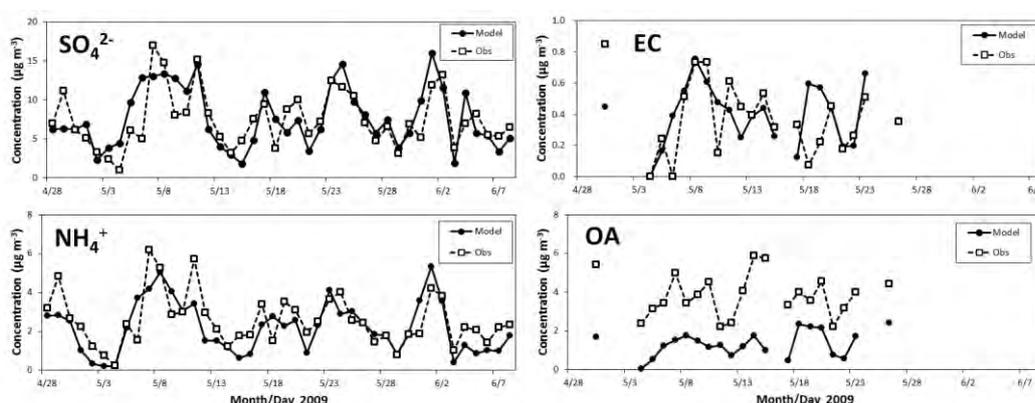
図(1)-2. 発生源地域別の寄与評価に用いたレセプター領域の設定。

寄与の評価は、日本を9地域に分けて行い（図(1)-2）、それぞれのレセプター領域内で平均したPM<sub>2.5</sub>濃度を基に算出した。2010年1月から12月までの1年間を解析期間とするが、モデルの計算は2009年12月1日から開始し、初めの1か月をスピニアップ期間とした。

#### 4. 結果及び考察

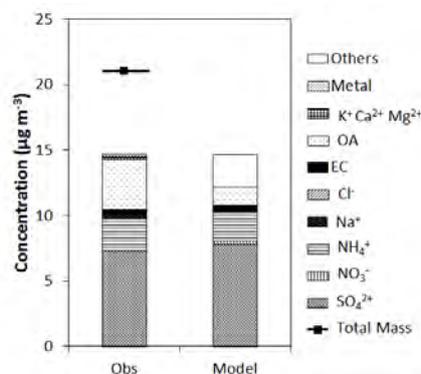
##### (1) 長崎県・福江島での2009年春季集中観測期間におけるPM<sub>2.5</sub>組成：観測とモデルの比較

領域化学輸送モデル (WRF/CMAQ) で計算されるPM<sub>2.5</sub>の各化学成分濃度の再現性を検証するために、長崎県福江島での2009年春季集中観測時に得られたPM<sub>2.5</sub>組成との比較を行った。図(1)-3は、モデルと観測による1日ごとの硫酸塩 (SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>)、アンモニウム (NH<sub>4</sub><sup>+</sup>)、元素状炭素 (EC)、有機エアロゾル (Organic Aerosol, OA) 濃度の時間変化を示す。なお、観測のOA濃度は、有機炭素 (OC) の値を2倍して算出している。モデルは各成分の濃度の時間変動を概ねよく再現できていることがわかる。SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>とNH<sub>4</sub><sup>+</sup>、ECに関しては、濃度の水準についても観測とよく一致していた。一方、OAについては、モデルによる過小評価が見られた。



図(1)-3. 福江におけるPM<sub>2.5</sub>各成分濃度の時間変動のモデル (実線) と観測値 (点線) の比較。

図(1)-4は、福江における春季集中観測期間で平均したPM<sub>2.5</sub>組成の観測値とモデルの比較を示す。PM<sub>2.5</sub>の主要な構成成分は、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>とNH<sub>4</sub><sup>+</sup>、EC、OAであり、自動測定機によるPM<sub>2.5</sub>総質量の平均濃度21.0 µg/m<sup>3</sup>の内、それぞれ35% (SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>)、12% (NH<sub>4</sub><sup>+</sup>)、2% (EC)、18% (OA) を占めていた。モデルはSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>とNH<sub>4</sub><sup>+</sup>、ECの平均濃度を±10%以内の誤差で再現していた。一方、OAに関しては、モデルが観測値を約65%過小評価しており、この過小評価分はPM<sub>2.5</sub>総質量の12%に相当していた。観測値において、イオン成分及びEC、OA濃度をすべて足し合わせた値とPM<sub>2.5</sub>総質量には3割程度の差が見られた。各イオン成分濃度と自動測定機の測定部でモニターしている相対湿度を基に、エアロゾル熱力学モデルE-AIM<sup>12)</sup> を用いて水分量を計算したところ、PM<sub>2.5</sub>総質量の約20%を占めることが示唆された<sup>13)</sup>。PM<sub>2.5</sub>の連続観測では湿度の影響をできるだけ抑えているものの残存している水分が寄与し、モデルとの差にも影響する可能性が考えられる。以上のように、福江における集中観測時に得られたデータとの比較から、モデルはPM<sub>2.5</sub>の主要な成分の時間変動や濃度水準 (OAを除く) を概ね良く再現できることが確認できた。



図(1)-4. 2009年春季の福江島におけるPM<sub>2.5</sub>の平均組成のモデルと観測値の比較。

## (2) 長崎県・福江島での 2009-2013 年におけるオゾン・PM<sub>2.5</sub> 等観測-モデル間比較

### 1) 地表オゾンの観測—モデル間比較

長崎県福江島大気環境観測施設（北緯 32.75 度、東経 128.68 度）における、2009-2013 年の間（約 5 年間）の通年観測と領域化学輸送モデル（WRF/CMAQ）計算による、オゾン、PM<sub>2.5</sub>、および、関連物質の濃度の比較を実施した。

福江島における、観測とモデルの年平均オゾン濃度を表(1)-2 に示す。観測による年平均オゾン濃度と比較して、モデル値は 7.4-13.5 ppbv 過大評価しており、また、1 年間の連続したデータが得られている 2011-2012 年に着目すると、モデル値（約 50-51 ppbv）が観測値（約 42-43 ppbv）を約 8 ppbv 上回る結果を示した。図(1)-5 は、2009 年 2 月から 2013 年 10 月の間に渡る、観測とモデルによる月平均オゾン濃度の季節変化を示している。図(1)-6 は、観測（右図）とモデル（左図）による各月平均オゾン濃度の年々変化を示している。観測、モデルともに、オゾンは春期と秋期に二山型の濃度ピークを有し、

表(1)-2. 福江島における年平均オゾン濃度 (ppbv)

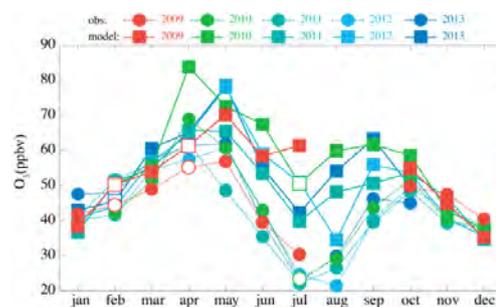
年	2009	2010	2011	2012	2013
観測	44.8*	45.5**	42.4	42.9	46.0***
モデル	58.2*	52.9**	50.1	51.2	55.7***

\*1月を除く、\*\*8-9月を除く、\*\*\*11-12月を除く。

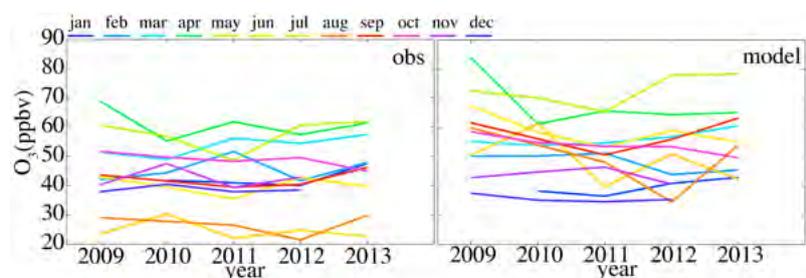
また、夏期に濃度が減少する特徴を示しており、WRF/CMAQ モデルは当該期間における福江島でのオゾン濃度の季節変動特性を定性的に再現していた。これは、過去に我々が解析した日本周辺地域のオゾンの季節変動特性<sup>14)</sup>と整合的である。観測については、月平均値でみると、4 月（2009、2011 年）、または、5 月（2010、2012、2013 年）に 57-69（2009 年 4 月） ppbv の春期（第一）濃度ピークに達し、7 月（2009、2011、2013 年）、もしくは、8 月（2012 年）に 21-23 ppbv の極小値をとる。その後、再びオゾン濃度は上昇し、9 月（2013 年）、もしくは、10 月（2009、2010、2011、2012 年）に秋期（第二）濃度ピーク（46-51 ppbv）に達する。

春先に見られる第一の濃度ピークに関しては、モデルは観測と同様に、4 月（2009、2011 年）、また

は、5 月（2010、2012、2013 年）に極大値（65-84 ppbv）をとるが、モデルはピーク時の濃度を 4-17 ppbv 過大評価することが判明した。夏期（特に、7-8 月）、モデルでは、若干のオゾン濃度の減少が確認できるものの、夏期に年間最小値をと



図(1)-5. 2009-2013年、福江島における観測（●）とモデル（■）の月平均オゾン濃度の季節変化。白抜きされたプロットは、1ヶ月の観測データ数が50%に満たないものである（2009年2月、2009年4月、2010年7月）。また、2009年1月、2010年8-9月、2013年11-12月のデータは含まれていない。



図(1)-6. 2009-2013年、福江島における観測（右）とモデル（左）の月平均オゾン濃度の年々変動。

るのは2012年8月、2013年7月のみで、その他の年に関しては、年間最小値は冬期（12月）に出現する。オゾン濃度の減少が確認できる7-8月について、観測値（21-30 ppbv）に対して、モデルが13-31（2010年7月） ppbv 過大評価することが判明した。秋期に見られる第二の濃度ピークに関しては、モデルは観測と同様に、9月（2009、2012、2013年）、もしくは、10月（2011年）に極大値（54-64ppbv）をとるが、第二の濃度ピークが出現する月が必ずしも観測と同じではなく、さらに、モデルがピーク時の濃度を5-17 ppbv 過大評価することが明らかになった。このように、本研究では、WRF/CMAQが、福江島における暖候期のオゾン濃度を過大評価する傾向にあった。加えて、暖候期（4-10月）の月平均オゾン濃度の年々変動について、観測では月平均オゾン濃度の最大値と最小値の差が7-14 ppbv であるのに対して、モデルの最大値と最小値の差は9-25 ppbv となり、モデルの年々変動が大きくなることが確認された。本研究では、主要な排出量データとしてREASv2の単一年（2008年）のものを利用しており、排出量の年々変動が考慮されていない。このため、モデルが暖候期のオゾン濃度の年々変動を過剰に表現する一因が気象モデル結果にあることが考えられた。

## 2) 福江島における暖候期オゾン濃度過大評価に関する検証

### a 気象場の予測誤差とその地表オゾン濃度推定に与える影響の評価解析

本研究では、福江島における暖候期のオゾン濃度の過大評価の原因を明らかにするために、領域気象モデル(WRF)の予測誤差に起因するオゾン濃度の予測誤差範囲の定量化を試みた。特に、WRFにより得られる気象場(解析値および予報値)の誤差が、暖候期におけるオゾン濃度予測へ与える影響量を調査する。領域気象場における予測誤差範囲の推定に際しては、局所アンサンブル変換カルマンフィルタ(LETKF: Local ensemble transform Kalman filter)をWRFに適用したWRF-LETKF<sup>15)</sup>を用いて同化実験を行った。

WRF-LETKFを用いた気象場の予報・解析サイクルにおける観測値として、全球における地表および高層気象観測データであるNCEP ADP Global Upper Air and Surface(ds337.0)を利用し、解析サイクルを6時間、アンサンブルメンバ数を20として、同化実験を実施した。表(1)-3には、WRF-LETKFにて作成した20メンバの領域気象予測値を利用した領域化学輸送モデル

(WRF-LETKF/CMAQ)の結果より求められた、福江島における、2009年6月8日-7月7日の1ヶ月における平均オゾン濃度、および、観測とモデル間の相関係数を示す。1ヶ月平均値に関しては、20メンバの平均値(アンサンブル平均値)は62.7 ppbvとなり、同期間の観測による平均オゾン濃度(42.4 ppbv)と比較して、約20 ppbvの過大評価を示した。アンサンブルメンバ間のばらつきは、1.3 ppbv(最大値:63.9 ppbv、最小値:62.6 ppbv)であり、モデルの過大評価(20 ppbv)に対しては、6%程度であった。領域モデルの境界濃度条件として与えられている全球モデルが、おおよそ10ppbv程度あることと対比して、この影響誤差(6%程度)は相対的に小さいと考えられる。観測、モデル間の相関係数は、メンバ平均がR=0.75(最大値:0.74、最小値:0.76)であ

表(1)-3. アンサンブルメンバの気象予測値に基づく福江島における月平均オゾン濃度(ppbv)

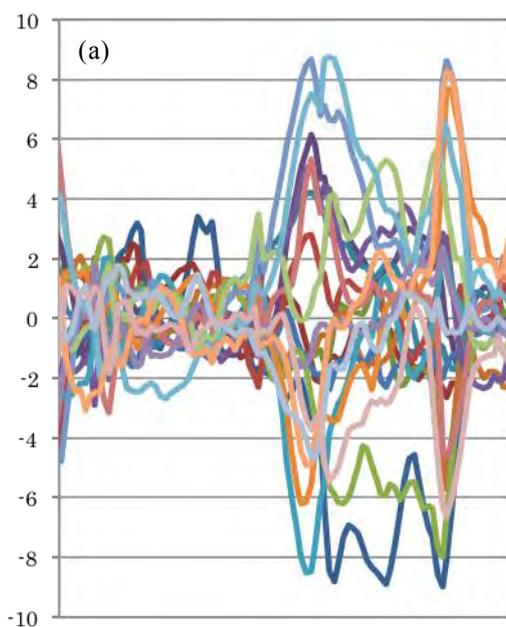
メンバ	01	02	03	04	05	06	07	08	09	10
Ave.* R**	62.8   0.75	62.7   0.75	62.6   0.74	63.6   0.76	63.1   0.75	63.2   0.75	63.5   0.75	63.0   0.75	62.7   0.74	63.0   0.76
メンバ	11	12	13	14	15	16	17	18	19	20
Ave.* R**	63.2   0.74	63.7   0.75	63.9   0.75	63.2   0.75	63.0   0.74	63.0   0.76	63.5   0.75	62.8   0.76	63.1   0.75	62.9   0.74

\*2009年6月8日-7月7日の一ヶ月間の平均濃度、\*\*観測、モデル間の相関係数。

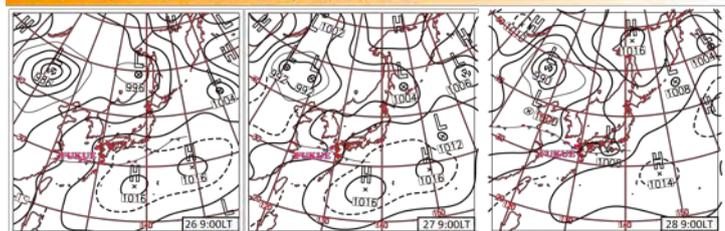
った。図(1)-7 (a) には、2009年6月24-28日における福江島のオゾン濃度の1時間値に関して、20メンバのアンサンブル平均値からの各メンバの差異 ( $\Delta O_3$ , ppbv) を示す。

6月24-25日の $\Delta O_3$ が概ね $\pm 2$  ppbvであるのに対して、6月26-27日の $\Delta O_3$ は $\pm 9$  ppbv程度と相対的に高い値を示していた。6月26-27日には福江島付近を前線が通過しており(図(1)-7 (b))、前線通過のタイミングを空間解像度80km程度の粗い領域気象モデルにて表現することは困難である。その結果、前線通過にともなう汚染気塊と清浄気塊の交換のタイミングのアンサンブルメンバ間のばらつきが増大したために、メンバ間に地表オゾンの濃度分布の明らかな差異が生じた(図(1)-7 (c), (d))と考えられる。福江島にてメンバ間のオゾン濃度差が最大20ppbv程度に達した、別の例(2009年6月23日)の地表オゾン分布を図(1)-8に示す。ここでは、主要なオゾン生成源地域である中国中東部のオゾン濃度のメンバ間差異が大きくなっており、上海周辺での100ppbvを超えるような高濃度領域の広がりにはメンバ間で顕著な差異がある。同様に日本の南海上における低濃度領域についてもメンバによっては20ppbvを下回る清浄な気塊が見られており、気象場が光化学的生成量および輸送量に影響を与えていることが分かる。福江島のオゾン濃度の月平均値に関しては、領域気象モデル(WRF)の予測誤差に起因する影響量(1.3 ppbv)は小さく、暖候期のオゾン濃度過大評価を説明するには至らなかった。一方、オゾン濃度の1時間値に対しては、WRFにおける気象場の予測誤差が、イベント時においては最大20ppbv程度の化学輸送モデルCMAQにおけるオゾン濃度の予測推定誤差を生じる一因である可能性が示唆された。

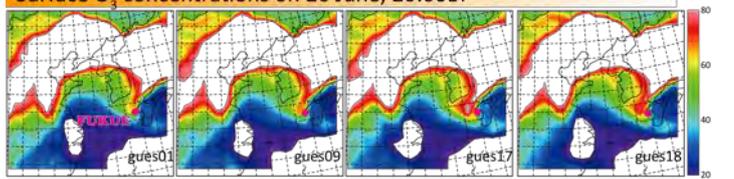
$\Delta O_3$ (ppbv)



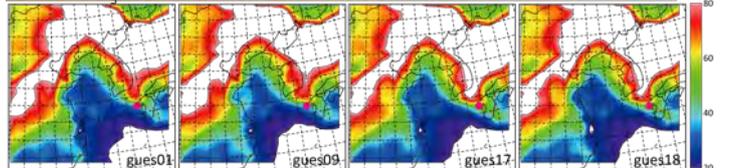
(b) Surface weather chart on 26, 27, 28, June



(c) Surface  $O_3$  concentrations on 26 June, 20:00LT



(d) Surface  $O_3$  concentrations on 27 June, 10:00LT



図(1)-7(a) 2009年6月24-28日福江島のオゾン濃度時間値に関する、WRF-LETKF/CMAQの20メンバのアンサンブル平均値と各メンバの差異 ( $\Delta O_3$ , ppbv)。(b) 2009年6月26、27、28日9:00(JST)の天気図。(c) 2009年6月26日20:00(JST)の地表オゾン分布図の例。(d) 2009年6月27日10:00(JST)の地表オゾン分布図の例。

## b 海洋上でのハロゲン化合物によるオゾン消失過程の地表オゾン濃度への影響評価

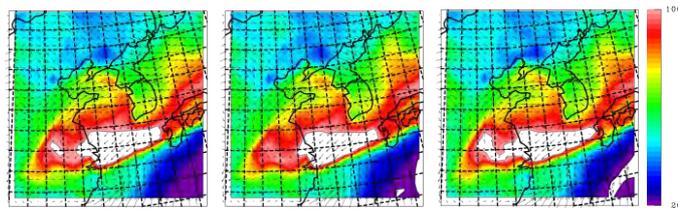
暖候期におけるオゾンの過大評価の原因を明らかにするために、従来のCMAQモデルでは扱われていなかった

た、海洋上での塩素や臭素などのハロゲン化合物によるオゾン消失量を考慮した実験を試みた。近年の研究では海洋上のハロゲンがオゾン消失過程に重要な役割を果たす結果<sup>16)</sup>が報告されているが、従来の化学輸送モデルでは考慮されていなかった。そこで、本研究では、ハロゲンによる海洋上での平均的なオゾン消失量<sup>17)</sup>を考慮したモデル実験を行なった。図(1)-9には、2009年6-8月の地表オゾンの月平均濃度分布について、従来のモデル(1)とハロゲンによる海洋上でのオゾン消失量を考慮したモデル(2)の比較を示している。ハロゲンによるオゾン消失量を考慮したモデルでは、朝鮮半島から日本周辺にかけての海上において、オゾン濃度の顕著な減少(最大: -5 ppbv)が確認できた。福江島の月平均オゾン濃度については、-1.6 ppbv(6月)、-1.3 ppbv(7月)、-1.2 ppbv(8月)のオゾン濃度の減少となっており、モデルによる同期間における過大評価傾向には海洋性気塊中での未解明のオゾン消滅プロセスが考慮されていないことがある程度寄与している可能性が示唆された。

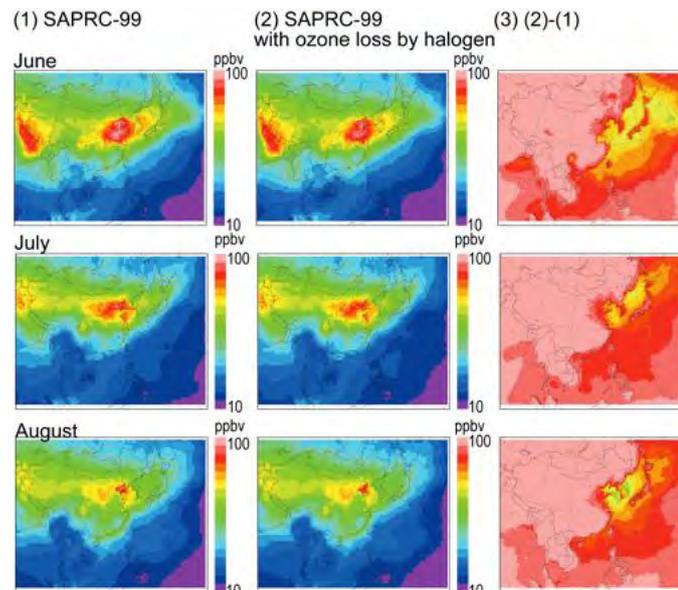
### 3) 福江島におけるPM<sub>2.5</sub>の観測—モデル間比較

福江島における観測(SHARP5030, Thermo)とモデルの年平均PM<sub>2.5</sub>質量濃度を表(1)-4に示す。観測による年平均PM<sub>2.5</sub>濃度と比較して、モデル値は5.6-7.7 μg/m<sup>3</sup>(約30-40%)過小評価しており、前章に記述されているモデルの過小評価傾向が、集中観測の特定期間に限定されることではないことが確認できた。図(1)-10は、2009年2月から2013年10月の間に渡る、観測とモデルによる月平均PM<sub>2.5</sub>質量濃度の季節変化を示している。観測、モデルともに、冬～春期と秋～冬期に濃度ピークを有し、また、夏期に濃度が減少する特徴を示しており、オゾンほど明瞭ではないが、ほぼオゾンと共通の二山型の季節変化を示すことがわかった。

観測については、月平均値でみると、3月(2012年)、4月(2009年)、5月(2010、2011、2013



図(1)-8. アンサンブル実験における2009年6月23日9:00(JST)の地表オゾン分布図。20メンバのうち、福江島でのメンバ間の差異がとくに大きいものを示す。



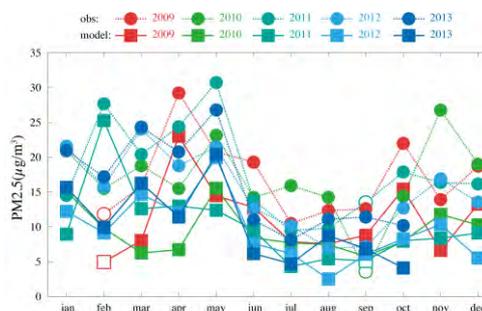
図(1)-9. 2009年6-8月地表オゾン濃度。(1)従来のモデル。(2)ハロゲンによる海洋上でのオゾン消失量を考慮したモデル。(3): (2)と(1)の差。

年)に23.2-30.7 (2011年5月)  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  の春期(第一)濃度ピークに達し、夏期、6月(2010年)、7月(2009、2011、2013年)、8月(2010、2012年)に6.9-14.2  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ の極小値をとる。その後、再びPM<sub>2.5</sub>濃度は上昇し、10月(2009、2011年)、もしくは、11月(2010、2012年)に秋期(第二)濃度ピーク(16.9-26.8  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )に達する。2011年を除く第一濃度ピークに関しては、モデルがピーク出現時期を捉えていたが、モデル値は14.7-23.0  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (観測値の61-78%)であった。2011年5月の濃度ピーク時には、モデルは観測濃度の4割(12.4  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )程度しか表現できなかった。6-9月に関しては、モデルはPM<sub>2.5</sub>の濃度の減少傾向をよく捉えており、7月(2009、2011、2013年)、8月(2010、2012年)に、2.5-7.8  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (観測値の36-75%)の極小値をとった。10月より、再びPM<sub>2.5</sub>濃度は上昇し、10、11月に出現する極大値に対して、4-7割程度(8-15.4  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )の濃度レベルを示していた。

表(1)-4. 福江島における年平均PM<sub>2.5</sub>質量濃度 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )

年	2009	2010	2011	2012	2013
観測	17.0*	16.8	17.9	15.1	16.2**
モデル	11.2*	9.4	10.2	9.5	10.4**

\*1月を除く、\*\*11-12月を除く。



図(1)-10. 2009-2013年、福江島における観測(●)とモデル(■)の月平均PM<sub>2.5</sub>質量濃度の季節変化。白抜きされたプロットは、1ヶ月の観測データ数が50%に満たないものである(2009年2月、2010年9月、2011年9月)。また、2009年1月、2013年11-12月のデータは含まれていない。

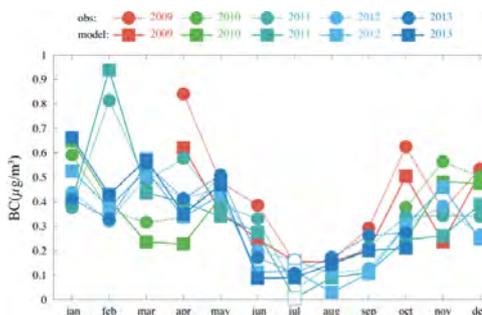
#### 4) 福江島におけるブラックカーボン (BC) の観測—モデル間比較

福江島における、観測(MAAP5012, Thermo)とモデルの年平均BC質量濃度を表(1)-5に示す。この期間の福江におけるBCの年平均質量濃度は、観測値が0.31-0.45  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、モデル値が0.30-0.39  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ で概ねよく一致していた。図(1)-11は、2009年4月から2013年10月の期間に渡る、観測とモデルによる月平均BC質量濃度の季節変化を示している。観測、モデルともに、冬~春期と秋~冬期に濃度ピークを有し、また、夏期に濃度が減少する特徴を示しており、PM<sub>2.5</sub>とほぼ同様な季節変動をしていた。観測・モデルの月平均濃度レベルは非常に良く対応していた。

表(1)-5. 福江島における年平均BC質量濃度 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )

年	2009	2010	2011	2012	2013
観測	0.43*	0.45**	0.37	0.31	0.32***
モデル	0.33*	0.39**	0.32	0.30	0.32***

\*1-3月を除く、\*\*7-9月を除く、\*\*\*11-12月を除く。観測値は、Kanaya et al.(2013)<sup>18)</sup>に基づき補正した値を利用。



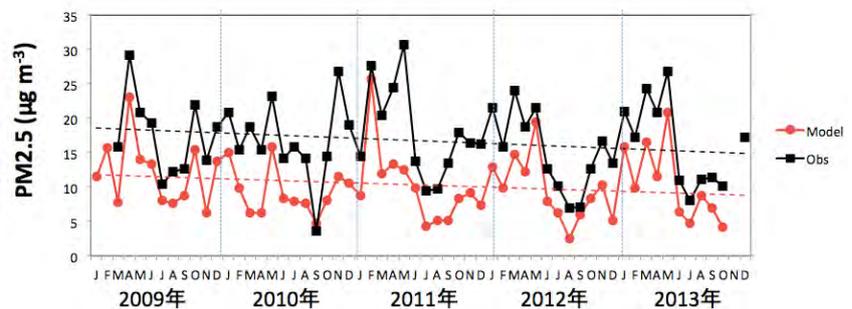
図(1)-11. 2009-2013年、福江島における観測(●)とモデル(■)の月平均BC質量濃度の季節変化。白抜きされたプロットは、1ヶ月の観測データ数が50%に満たないものである(2009年8月、2011年7月、2012年7月)。また、2009年1-3月、2013年11-12月のデータは含まれていない。

観測については、月平均値でみると、1月(2010年)、2月(2011年)、3月(2012、2013年)4月(2009年)に0.50-0.84  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ の極大値をとり、夏期、7月(2009、2011、2013年)、もしくは、8月(2012年)に0.04-0.15  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ の極小値をとる。その後、再びBC濃度は上昇し、2009年10月、2010

年11月に、各々0.62、0.56  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ の極大値に達した。他の年（2011、2012年）には、明瞭な秋のピークは見られなかった。モデルは若干過大となる時も見られたが、観測されたBCの季節変動や濃度レベルを非常に良く再現しており、冬～春期のピークは、観測と同時期に出現し、0.53-0.94  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ （観測値の74-115%）の極大値をとった。夏期の濃度の減少については、良く対応しており、0.01-0.16  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ の極小値を示した。また、秋のピークの出現に関しても、観測事象を良く捉えられており、モデル値は2009年10月に0.50  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、2010年11月に0.48  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ となった。PM<sub>2.5</sub>の成分であるBCに関して、観測・モデルの一致度は非常に高く、モデルがPM<sub>2.5</sub>を過小評価する原因が、他の成分、特に有機エアロゾルなど大気中で二次的に生成される物質がモデルで十分に表現できていないためであるとする前節の結論を支持する結果が得られた。

### 5) 最近5年間(2009-2013)の福江島におけるPM<sub>2.5</sub>濃度トレンド解析

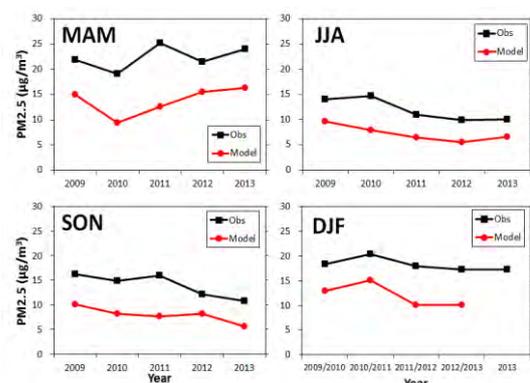
福江島での観測結果が利用できる2009年以降の5年間の長期計算を行い、近年のPM<sub>2.5</sub>濃度のトレンドについて解析を行なった。本計算の際には放出源分布としてREASv2を使用しているが、各種統計情報の取りまとめ等の都合上、2008年までのエミッションしか作成されていないため、気



図(1)-12. 長崎県福江島における2009～2013年のPM<sub>2.5</sub>濃度月平均値の観測値(黒四角)およびモデル計算値(赤丸)。単位は  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 。

象場のみ NCEP FNL の現業再解析データを用い、地表放出源は2008年で固定して実験を行った。このため、本解析は日本域におけるPM<sub>2.5</sub>トレンドに与える気象場の影響を主に評価するものである。図(1)-12に2009年から2013年にかけての月平均した地表濃度を示す。全期間を通じておよそ6  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 程度、観測値を過小評価する傾向にあるものの、モデルは過去5年間の濃度変化トレンドを定性的に再現していた。観測結果では1年あたり0.7  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 程度の減少トレンドが見られたが、一方モデル結果も一年あたり0.6  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 程度の減少トレンドを示していた。これらの結果は近年福江島で見られた減少トレンドのうちかなりの部分が気象場の変動で説明できることを示唆している。

図(1)-13は、福江島におけるPM<sub>2.5</sub>濃度の年々変動を季節平均別に分けて示している。春季(MAM)と冬季(DJF)に関しては、濃度は年々変動を示すものの最近5年間で減少傾向にはなっていない。一方、夏季(JJA)と秋季(SON)については、観測値とモデルの結果共に減少トレンドを示していた。すなわち、最近5年間(2009-2013年)に福江島で見られるPM<sub>2.5</sub>濃度の減少傾向は、夏季及び秋季の気象場の変動によって生じている可能性が高いことを示唆している。



図(1)-13. 福江島におけるPM<sub>2.5</sub>濃度の季節別の年々変動。

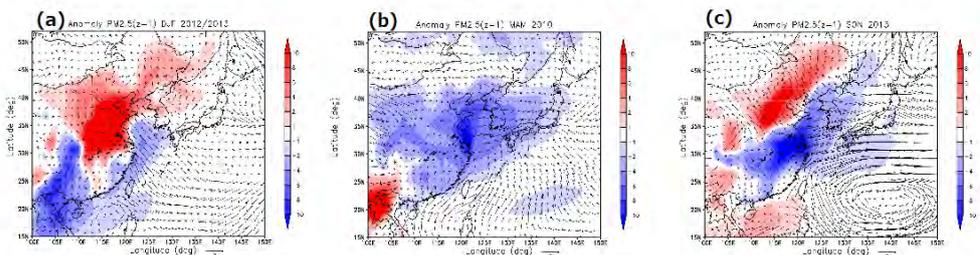
2013年1月には、中国の北京等で深刻なPM<sub>2.5</sub>汚染が発生し、日本でも越境大気汚染に対する懸念が高まる契機となった。これに対し、同じ時期の福江島におけるPM<sub>2.5</sub>濃度は、最近5年間の濃度水準と比べて同程度であり、特徴的な変化は見られなかった(図(1)-12)。

図(1)-14は、モデルによる季節別のPM<sub>2.5</sub>汚染気塊の拡がりをもとに、10 μg/m<sup>3</sup>、100 μg/m<sup>3</sup>の等値線によって各年について示している。2012/2013年冬季は中国において、100 μg/m<sup>3</sup>を超える高濃度領域が他の年と比べてかなり広範囲に広がっていた(図(1)-14(d))。一方、日本付近への汚染の拡がりとは他の年と同程度であった。気象場の偏差(5年平均値からのずれ)をみると、2012/2013年冬季は、黄海・東シナ海上では北西からの季節風が他の年と比べて弱くなっていた(図(1)-15(a))。大陸側の高濃度に対してそれが下流側に及ばなかった原因の一つとして、季節風によるPM<sub>2.5</sub>の輸送が他の年と比べて弱かったことが考えられた。

2010年の春季は、福江島だけでなく日本付近で全体的に濃度が低かった(図(1)-14(b)、図(1)-15(b))。地表付近の水平風速場の偏差を見ると、東風偏差となっており、大陸からの輸送量が少なくなることによって、汚染気塊の拡がり弱くなっていたことが示唆される(図(1)-15(b))。さらに、図には示さないが降水量に関しても、2010年春季は日本付近全体で正偏差(降水量が多かった)となっており、PM<sub>2.5</sub>が低濃度となっていたことと整合的であった。

2013年秋季は、低濃度偏差が黄海・東シナ海や西日本及び南の海上に広がっていた(図(1)-15(c))。地表付近の循環の偏差場を見ると、日本列島や周辺海域を含む広範囲にわたって強い東風偏差が卓越していた(図

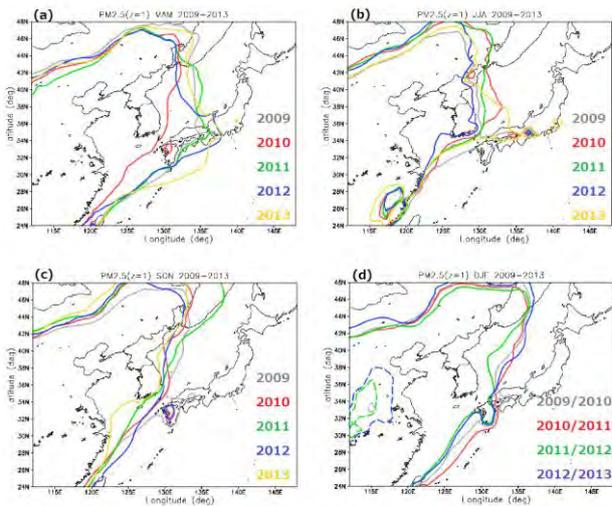
(1)-15(c))。この東風偏差によって、大陸から日本付近へのPM<sub>2.5</sub>輸送が減少し、福江で観測された2013年秋季の低濃度の要因となっていたことが示唆された。



図(1)-15. 地表PM<sub>2.5</sub>濃度(カラー)及び水平風速場(ベクトル)の2009-2013年5年平均値からの偏差。(a) 2012/2013年の冬季、(b) 2010年の春季、(c) 2013年の秋季を示す。

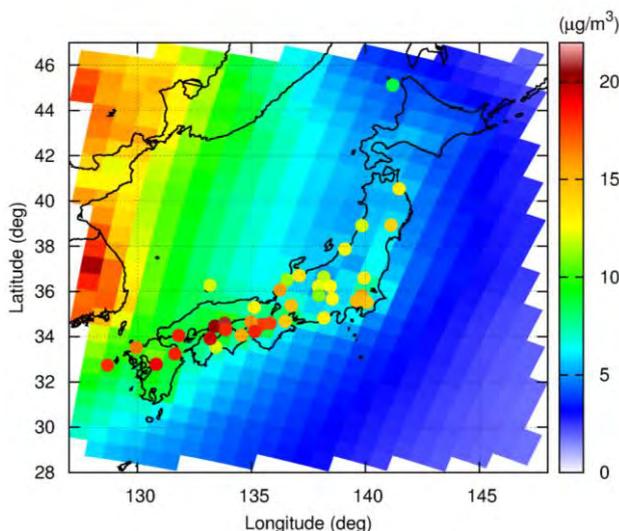
### (3) PM<sub>2.5</sub>のソースレセプター解析：東アジアの発生源地域別の寄与評価

#### 1) 日本域におけるPM<sub>2.5</sub>地表濃度のモデル再現性検証



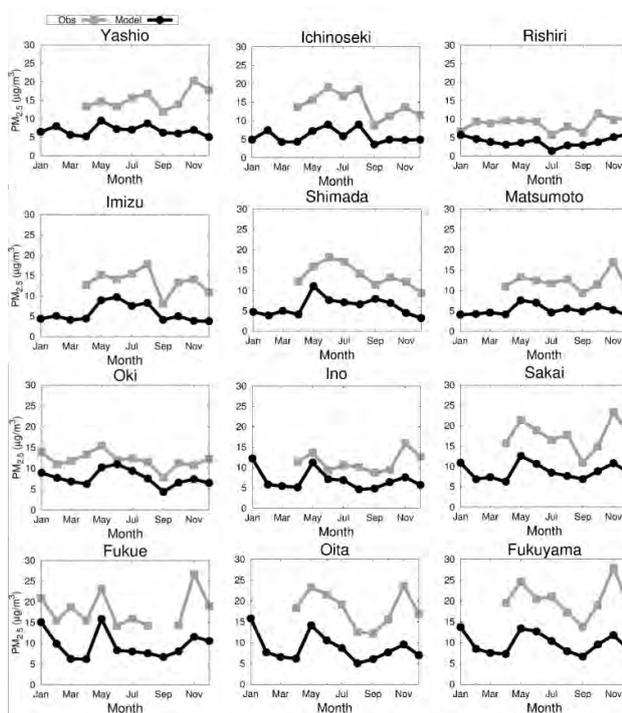
図(1)-14. モデルによる2009-2013年各年の地表PM<sub>2.5</sub>濃度の10 μg/m<sup>3</sup>(実線)及び100 μg/m<sup>3</sup>(破線)の等値線を季節別((a) 春季、(b) 夏季、(c) 秋季、(d) 冬季)に示す。

WRF/CMAQを用いて、東アジアの各発生源地域 (図(1)-1) から日本の2010年のPM<sub>2.5</sub>濃度に対する寄与を評価した。まず、福江以外における観測データを用いて日本域のPM<sub>2.5</sub>濃度についてモデルの再現性を検証した。使用した観測値は、2010年度の有効測定局と判定された一般環境大気測定局 (一般局) 34地点及び、東アジア酸性雨モニタリングネットワーク (EANET) が測定を行っている隠岐と利尻のデータである。なお、EANETでの観測には、環境省が定めている標準測定法<sup>19)</sup> との等価性が得られていない自動測定機 (TEOM (Tapered Element Oscillating Microbalance) 法) が使用されている<sup>20)</sup> ため、隠岐と利尻のデータは参考値である。図(1)-16は、観測とモデルによる2010年のPM<sub>2.5</sub>年平均濃度の水平分布を示す (一般局については2010年度の平均値を示す)。観測値は西高東低の濃度勾配を示す。すなわち、アジア大陸に近い日本の西側の方が一般にPM<sub>2.5</sub>濃度は高く、東へ向かうほど濃度が下がる傾向があり、モデルでも観測と同様の傾向が再現されていた。



図(1)-16. 2010年のPM<sub>2.5</sub>年平均濃度の水平分布。点は観測値を、背景のシェードはモデルの結果。

図(1)-17は、日本の各地域から選んだ代表的な12地点におけるPM<sub>2.5</sub>月平均濃度の季節変化を示す (一般局については、2010年1-3月は観測がまだ開始されていなかったため、4-12月の観測値を示している)。季節変動は地域によって差が見られる。九州～近畿地方では、5月と11月に濃度上昇を示し、9月に低くなる。関東地方では、春から夏にかけて濃度はわずかに上昇、もしくはほとんど変わらず、9月に一旦下がった後11月に再び高くなる。北陸や東北地方では夏季に最も濃度が高くなる。モデルは、こうした地域によって異なる季節変動パターンを概ね捉えることができていた。ただし定量的には、モデルは一般局における4-12月の平均濃度を35-59%過小評価していた。負のバイアスの大きさには、測定局の用途地域や地方別に見ても明確な傾向は見られなかった。また、遠隔地の観測点である福江 (-46%) や隠岐 (-36%) の年平均濃度も同程度の過小評価が見られた。



図(1)-17.モデル (黒線) と観測 (灰色線) による2010年のPM<sub>2.5</sub>月平均濃度の季節変化。

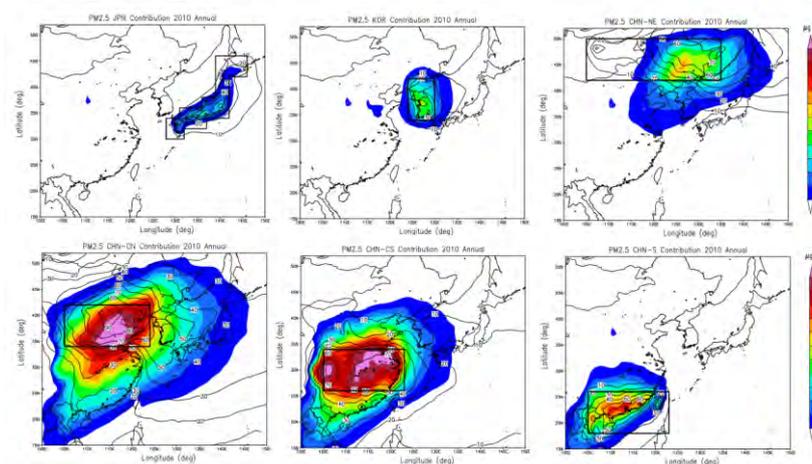
モデルによる過小評価の原因には、上述したようにOAの過小評価や観測値に残存している水分の影響が考えられる。他の原因としては、現在のモデルで取り扱っていない土壌粒子（黄砂）の影響も考えられる。しかし、福江において、長崎地方気象台で黄砂が観測された計11日を除いて年平均濃度を算出したところ、全期間の値との差は4%に過ぎなかった。黄砂の観測期間には人為起源のPM<sub>2.5</sub>も同時に輸送されてくる可能性を考えると、黄砂は年平均値に対する影響としては小さいことが示唆される。OAの過小評価などによるモデルの誤差は、発生源別寄与評価における不確実性の原因になるが、後で述べるように主要な結果に大きく影響するほどではない。

季節変化よりも短い時間スケールの濃度変動の再現性を検証するために、日平均濃度に対する相関係数 ( $R$ ) を算出した。一般局では、0.58-0.79 (約6割の測定局で0.70以上) となっており、モデルは濃度の日々変動についても比較的良く再現できていると考えられた。近傍に発生源がなく、越境輸送の影響をより受けやすい福江島 ( $R=0.68$ ) や隠岐 ( $R=0.80$ ) でも相関係数は良好であり、発源地域別の寄与を評価する上で重要な東アジアスケールの輸送をモデルが概ねよく再現しているものと考えられた。

## 2) PM<sub>2.5</sub>濃度に対する発源地域別の寄与

PM<sub>2.5</sub>年平均濃度に対する、東アジアにおける各発源地域からの寄与の水平分布を図(1)-18に示した。中国からの寄与は、東アジアの広域に拡がり、アジア大陸から黄海や東シナ海、日本海を越えて日本列島に到達していることがわかる。特に、中国中北部 (CHN-CN) の寄与は広い範囲を覆っており、日本全域に影響が及んでいる様子が伺える。中国中南部 (CNH-CS) は、主に西日本に対して重要な寄与をもっている。また、中国北東部 (CHN-NE) の寄与は北海道や東北地方に及んでいることが見てとれる。中国南部 (CHN-S) については、日本への寄与の拡がりはいずれも小さい。朝鮮半島 (KOR) からの寄与は九州・中国地方の一部を除くと日本への寄与は小さかった。一方、日本に関しては、寄与は自国内にとどまっており、発源地域として設定した領域を超えた拡がりは見られなかった。大陸からの影響は地理的に近い九州をはじめ西日本でより重要であり、観測値に見られる西高東低の濃度分布傾向が越境輸送の影響によって生じていることが、この結果から示唆される。

表(1)-6に、排出量を20%削減した感度実験から算出した2010年のPM<sub>2.5</sub>年平均濃度に対する発生源別の寄与率を示す。九州と中国、四国地方では、



図(1)-18. PM<sub>2.5</sub>年平均濃度に対する各発源地域からの寄与の水平分布。黒線で囲まれた領域がそれぞれのソース領域を示している。カラーで寄与の絶対値 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )、実線は相対的寄与率 (%) を示す。

九州と中国、四国地方では、

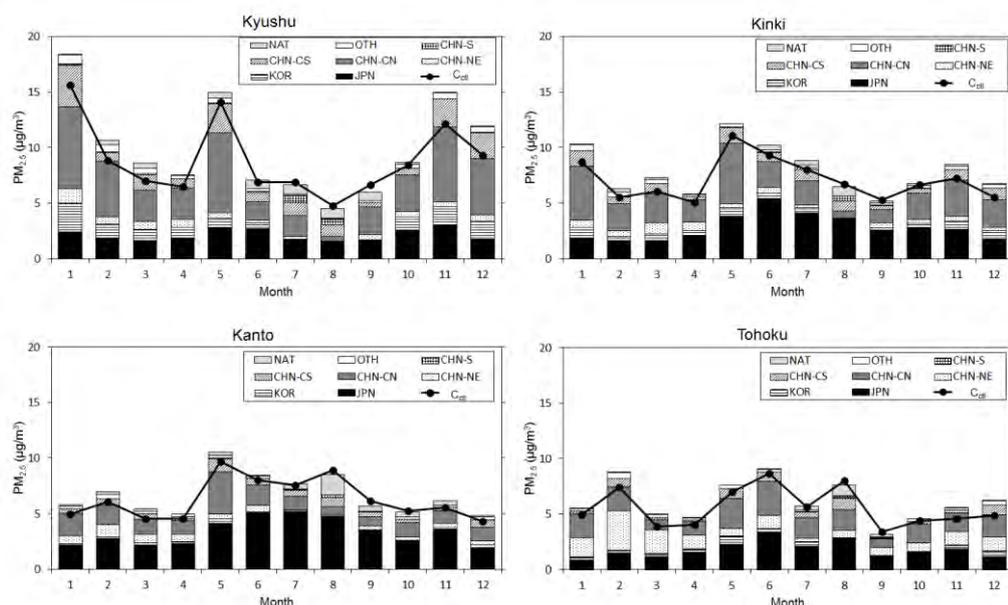
表(1)-6. 2010年の年平均PM<sub>2.5</sub>質量濃度に対する各発生源からの寄与率 (%)。

S/R	九州	中国	四国	近畿	北陸	東海甲信	関東	東北	北海道
JPN	21	25	23	36	33	46	51	30	19
KOR	10	11	8	6	6	3	0	4	4
CHN-NE	5	6	6	6	11	6	7	21	35
CHN-CN	39	39	39	33	32	28	23	30	29
CHN-CS	15	13	13	11	11	10	8	8	5
CHN-S	2	1	2	1	1	1	1	0	0
OTH	4	4	4	4	4	3	3	4	6
NAT	5	1	6	3	3	3	6	2	3

CHN-CNの寄与が最も大きく約40%を占め、次に、国内 (JPN) の寄与 (21-25%)、CHN-CS (13-15%) が続く。九州と中国地方に関しては、KORも10%程度の寄与を示す。近畿から東北地方にかけては、国内の寄与が最も大きく、30-50%を占める。これらの地域ではいずれもCHN-CNが2番目に寄与が大きく、近畿と北陸、東北地方については、国内の寄与に匹敵する高い値 (~30%) を示す。CHN-CNは東海甲信、関東ではそれぞれ28%、23%を占める。近畿では、CHN-CSからも11%の寄与がある。東北地方と北海道では、CHN-NEの寄与が大きく (21%と35%)、北海道ではCHN-NEの寄与が最も大きい。CHN-S及びその他の地域 (OTH) からの寄与は、いずれの地域でも小さい (それぞれ、2%以下と3-6%)。自然起源の寄与 (NAT) は、1-6%となっており、日本域では人為起源のPM<sub>2.5</sub>が卓越していることを示している。

各発源地域からの寄与を絶対値でみたところ、CHN-CNとCHN-CS、KORの寄与は九州で最も大きく、北海道 (本州の中では関東) で最も小さかった。例えばCHN-CNの寄与は、関東では九州より60%小さくなっており、日本の中でも地域差が大きいことが伺える。CHN-NEの寄与は北海道と東北地方で特に大きい値を示し、太平洋側で小さかった。

各地方での全発生源からの寄与の合計値は、標準実験の濃度の105-112%に相当しており、非線形の影響は10%程度と算出された。排出量を20%増やした感度実験に基づいた場合の寄与率や非線形



図(1)-19. 九州、近畿、関東、東北地方におけるPM<sub>2.5</sub>月平均濃度に対する各発生源からの寄与の季節変化。実線は標準実験のPM<sub>2.5</sub>月平均濃度を示す。

性も同程度であり、各地方における国外6領域の寄与率の合計値としての差は、2%以下と小さかった。感度実験に用いる排出量変化率の違いが寄与評価に及ぼす影響をさらに調べるために、主要な人為起源の発生源地域であるCHN-CN及びJPNに対して、排出量を50%削減した感度実験を行い、各地方への寄与は、感度実験と標準実験の濃度差の2倍として評価した。-20%の感度実験から算出された寄与との差はCHN-CNについては、 $\pm 0.01 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 以内であり、非常に小さかった。JPNの寄与についても-20%感度実験との差は、最大でも $-0.16 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (相対的寄与率では約2%に相当) と小さかった。これらの結果から、-50 - +20%の変化率においては、感度実験に適用する増減幅の違いに伴う寄与率に対する不確実性は数%以下であると考えられた。

排出量20%削減感度実験から算出した、九州、近畿、関東、東北地方におけるPM<sub>2.5</sub>月平均濃度に対する発生源別の寄与の季節変化を図(1)-19に示す。九州では夏季を除き越境輸送の月変動が大きく、各季節に、特にCHN-CNとCHN-CSからの寄与が高くなる月(1, 5, 11月)があり、月平均濃度がピークを示す月と一致している。近畿や関東では九州と比べて国外からの寄与の月々の変動は大きくないが、近畿でもこれらの月にCHN-CNからの寄与が大きくなり、関東では5月にやはりCHN-CNからの寄与の上昇が見られる。九州や近畿、関東では夏に国外からの寄与が減少する一方、東北地方では、CHN-CNが夏季に高い値を示す。国内の寄与は概ね夏季に高く、冬季に低くなる傾向があった。

### 3) 越境輸送の寄与

年平均濃度に対する越境輸送の寄与(日本以外の6領域からの寄与の合計値)は、九州で最も大きく、関東地方を除く各地域でも国内の寄与を上回っていた。茶谷ほか<sup>21)</sup>は、日本以外の人為起源排出量をゼロにした感度実験によって越境輸送量を算出しており、2005年度の年平均濃度に対する感度は大阪・兵庫圏、愛知・三重圏、首都圏でそれぞれ48%, 41%, 31%と報告されている。本研究の越境輸送の寄与率は、近畿、東海甲信、関東でそれぞれ61%, 51%, 43%となり、レセプター領域の設定が異なるので単純に比較はできないが、概ね近い値となっている。国外の人為起源発生源地域の中では、中国からの寄与が卓越しており、中国4地域の寄与率を合計すると各地方で39-69%となった。越境輸送の寄与は季節変化を示し、西日本では春季と秋季、冬季に大きくなり、関東地方では、春季に大きくなっていた。

中国は韓国に対しても重要な寄与を持ち、中国4地域の寄与率の合計値は年平均で63%と算出された。一方、朝鮮半島の寄与は34%で、日本から韓国への寄与は小さかった。また、中国中北部(CHN-CN)をレセプター領域とした場合、中国からの寄与が支配的であり、同じく年平均で4地域の合計が96%を占めた(日本や韓国から中国への寄与は非常に小さかった)。

モデルによる寄与評価の結果には、モデル中で過小評価されているOAや計算で取り扱っていない土壌粒子の影響が反映されていないことに留意する必要がある。OA、特に大気中での化学反応により二次的に生成される二次有機エアロゾル(Secondary Organic Aerosols, SOA)は、その生成過程や組成などの面で未解明な部分も多く、CMAQのSOAモジュールを含め、現状の化学輸送モデルで顕著に過小評価されることが多い<sup>5), 22)</sup>。モデルが人為起源のOAを過小評価している場合には、OA濃度に影響を及ぼしている発生源地域の寄与を少なく見積もっていることになる。一方、自然起源のOAを過小評価している場合には、人為起源の相対的寄与全体を過大評価していることになる。例えば、OAの過小評価分が福江島と各地方で同程度(PM<sub>2.5</sub>濃度の12%に相当)であるとして、

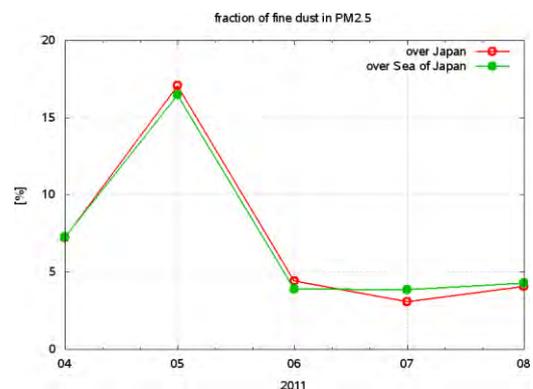
これがすべて国外の人為起源以外であったと仮定すると、43-78%と算出された越境輸送の寄与率は、38-70%になる。すなわち、OAの過小評価に伴う越境輸送の寄与率の不確実性は、全体として5-8%と見積もられ、結果に大きな影響を与えるほどではないが、不確実性の低減のためには今後モデルによるOAの再現性の向上が重要と言える。上述したように年平均濃度に対する黄砂の影響は小さいが、土壌粒子濃度の再現性向上も不確実性の低減に繋がる。ただし、PM<sub>2.5</sub>中の自然起源のOAや土壌粒子に伴うモデルの誤差は、基本的に人為起源同士（例えば、日本と中国）の発生源地域別寄与を比較する限りにおいては影響を及ぼさないことにも留意すべきである。

以上のように、OAの過小評価や土壌粒子によるモデルの誤差や感度実験における非線形性に伴う不確実性を検討した結果、寄与評価の主要な結果が大きく変わるような影響を及ぼすものではないと考えられた。年平均濃度に対する中国からの寄与率は、西日本（九州～近畿地方）で50-60%、関東地方では40%と見積もられ、東アジアスケールの越境輸送が環境基準の達成に対して重要な一因となっていることが示唆された。

#### （4）PM<sub>2.5</sub>濃度における自然起源エアロゾルの影響評価

モデルにおけるPM<sub>2.5</sub>過小評価傾向の要因としては黄砂などの自然起源エアロゾルの影響をモデルでは十分考慮できていないことが考えられることから、黄砂および海塩粒子等の巻き上げも含めたエアロゾルモデルを利用可能な領域化学輸送モデルであるWRF-Chemを用い、黄砂等のPM<sub>2.5</sub>濃度に与える影響について解析を行なった。これまで主に用いてきたCMAQモデルは詳細な化学反応等を考慮しているが、計算資源上の制約から気象場については6時間ごとの気象場を用いているため、地表風速等に強く依存する自然起源エアロゾルの巻き上げ等をモデル内で考慮するのは困難である。一方、WRF-Chemモデルは気象モデル

WRFにオンラインエアロゾルモジュールを組み込んだもので、各モデルタイムステップ(4分程度)での気象場をモデル内で計算するとともに、それら(風速、土壌水分等)を用いて土壌粒子エアロゾルの巻き上げフラックスを推定している。昨年度より行っているモデル間相互比較の結果から、オゾンおよびPM<sub>2.5</sub>のモデル間の差異についても検証を進めつつある。また本計算ではSORGAMエアロゾルモジュールを用いたが、粒径を3モードに分けたバルクモデルであることから、日本付近の観測結果から全体の14%がPM<sub>2.5</sub>に含まれると仮定した。大規模な黄砂イベントが日本各地で観測された2011年春季から夏季における計算結果を図(1)-20に示す。2011年5月3日



図(1)-20. 領域化学輸送モデルWRF-Chemを用いて計算された、日本周辺(赤)および日本海海上(緑)でのPM<sub>2.5</sub>における土壌性エアロゾルの割合。

から5日にかけて広域でダストイベントが観測されているが、モデル結果においても5月はPM<sub>2.5</sub>に含まれるダストの寄与率が高く、月平均でも17%程度と推定されている。また広域のダストイベント等が発生していたため、日本海海上においてもほぼ同程度の寄与率であった。太平洋から海洋性気塊が流入する夏季において寄与率は相対的に低下し、およそ4%程度であった。本結果から、越境汚染が卓越する春季においてダストのPM<sub>2.5</sub>に対する影響は月平均で7-14%と推定された。

## 5. 本研究により得られた成果

### (1) 科学的意義

これまで必ずしも十分理解されているとはいえなかった、越境汚染の影響や汚染気塊の起源別寄与率等について、最新の気象モデルおよび詳細なエアロゾル・気相化学反応過程を考慮した領域化学輸送モデルと時空間的に精度の高い入力データ(排出量など)を用いた詳細な解析を行った。領域化学輸送モデルにより計算された大気中濃度については、他のサブテーマとも連携し、長崎県福江島および中国での地表面観測やつくば等におけるライダーによる鉛直観測、衛星観測による広域観測などとも比較し、モデルが定性的に東アジア域における大気汚染物質の時空間変動等を再現していることを確認した。また福江島においてはモデル解析から集中観測期間中にイベント的な大陸起源汚染気塊の流入が示唆された。

越境汚染の寄与率についてモデル解析を行なったところ、九州で最も大きく、関東地方を除く各地域で国内の寄与よりも上回っていた。

### (2) 環境政策への貢献

#### <行政が既に活用した成果>

環境省「越境大気汚染・酸性雨対策検討会」における越境大気汚染・酸性雨長期モニタリング中間報告(平成24年6月)・報告書(平成26年3月)において、本研究で明らかにした東アジアにおけるオゾンやPM<sub>2.5</sub>のSR関係評価結果が引用された。環境省・中央環境審議会・微小粒子状物質等専門委員会(平成26年3月12日)では、PM<sub>2.5</sub>対策の検討に際し、モデルシミュレーションから導出した、我が国地域別のPM<sub>2.5</sub>に対する越境大気汚染・国内汚染の寄与率が参考資料として配付された。

#### <行政が活用することが見込まれる成果>

2009-2013年度のO<sub>3</sub>やPM<sub>2.5</sub>の「平均」濃度は、福江ではむしろ微減傾向にあった観測事実に関するモデル解析を実施し、この微減傾向の原因は、気象(風系や降水)の年々変動の影響が強いため、前駆物質の排出源強度が減少に転じたわけではないことを示した。このことから、オゾン、PM<sub>2.5</sub>の対策を継続的に、中長期的な視点で行うことが必要である。

## 6. 国際共同研究等の状況

[国際共同研究計画名] Model Inter-Comparison Study - Asia Phase III (MICS-Asia III)

[協力案件名] アジア地域を対象とした国際的な大気質モデルの相互比較実験の実施

[Leaders] Zifa Wang・Institute of Atmospheric Physics・China、Jung-Hun. Woo・Konkuk University・Korea、Greg Charmichael・Iowa University・US

[参加・連携状況] Model Intercomparison (Topic 1)にco-leaderとして参加

[国際的な位置づけ] MICS-Asiaは、アジア地域、欧米諸国の大気質モデル研究者が参加し、各国の研究者が保有する大気質モデル結果の相互比較を行ない、アジア地域の大気汚染状態に関する醸成をはかる。

## 7. 研究成果の発表状況

## (1) 誌上発表

## &lt;論文(査読あり)&gt;

- 1) J. LI, Z. WANG, H. AKIMOTO, J. TANG, and I. UNO: *Geophys. Res. Lett.*, 36(24), DOI: 10.1029/2009GL041123 (2009).  
“Modeling of the impacts of China's anthropogenic pollutants on the surface ozone summer maximum on the northern Tibetan Plateau”
- 2) K. YAMAJI, J. LI, I. UNO, Y. KANAYA, H. IRIE, M. TAKIGAWA, Y. KOMAZAKI, P. POCHANART, Y. LIU, M. TAKIGAWA, H. TANIMOTO, T. OHARA, X. YAN, Z. WANG, and H. AKIMOTO: *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10(15), 7353–7368 (2010).  
“Impact of open crop residual burning on air quality over Central Eastern China during the Mount Tai Experiment 2006 (MTX2006)”
- 3) J. LI, Z. WANG, X. WANG, K. YAMAJI, M. TAKIGAWA, Y. KANAYA, P. POCHANART, Y. LIU, H. IRIE, B. HU, H. TANIMOTO, and H. AKIMOTO: *Atmospheric Environment*, 45(10), 1817–1829 (2011).  
“Impacts of aerosols on summertime tropospheric photolysis frequencies and photochemistry over Central Eastern China”
- 4) PAN, X. L., Y. KANAYA, Z. F. WANG, Y. LIU, P. POCHANART, H. AKIMOTO, Y. L. SUN, H. B. DONG, J. LI, H. IRIE, and M. TAKIGAWA: *Atmos. Chem. Phys.* 11, 9735-9747 (2011).  
“Correlation of black carbon aerosol and carbon monoxide concentrations measured in the high-altitude environment of Mt. Huang in Eastern China”
- 5) K. YAMAJI, I. UNO, and H. IRIE: *Atmospheric Environment*, 55, 475–482 (2012).  
“Investigating the response of East Asian ozone to Chinese emission changes using a linear approach”
- 6) A. NAWAHDA, K. YAMASHITA, J. KUROKAWA, T. OHARA, and K. YAMAJI: *Water, Air, & Soil Pollution*, 223(6) 3445–3459 (2012).  
“Evaluation of premature mortality caused by exposure to PM<sub>2.5</sub> and ozone in East Asia: 2000, 2005, 2020”
- 7) H. IRIE, K. YAMAJI, K. IKEDA, I. UNO, S. ITAHASHI, T. OHARA, and J. KUROKAWA: *Atmospheric Chemistry and Physics Discussion*, 13, 14037–14067 (2013).  
“An evaluation of the CMAQ reproducibility of satellite tropospheric NO<sub>2</sub> column observations at different local times over East Asia”
- 8) A. NAWAHDA, K. YAMASHITA, J. KUROKAWA, T. OHARA, and K. YAMAJI: *Water, Air, & Soil Pollution*, 224(5), 1537–1555 (2013).  
“Evaluation of the Effect of Surface Ozone on Main Crops in East Asia: 2000, 2005, and 2020”
- 9) J. LI, Z. WANG, K. YAMAJI, M. TAKIGAWA, Y. KANAYA, F. TAKETANI, X. PAN, M. HU, F. MENG, and T. YANG: *SOLA*, 9, 40–44 (2013).  
“Uplifting of Asian Continental Pollution Plumes from the Boundary Layer to the Free

Atmosphere over the Northwestern Pacific Rim in Spring”

- 10) Y. KANAYA, H. AKIMOTO, Z. WANG, P. POCCHANART, K. KAWAMURA, Y. LIU, J. LI Y. KOMASAKI, H. IRIE, X. PAN, F. TAKETANI, K. YAMAJI, H. TANIMOTO, S. INOMATA, S. KATO, J. SUTHAWAREE, K. OKUZAWA, G. WANG, S. G. AGGARWAL, P. FU, T. WANG, J. GAO, Y. WANG, and G. ZHUANG: Atmospheric Chemistry and Physics, 13, 8265–8283 (2013).  
“Overview of the Mt. Tai Experiments (MTX2006) in Central East China in June 2006: studies of significant regional air pollution”
- 11) K. YAMAJI, K. IKEDA, H. IRIE, J. KUROKAWA, and T. OHARA: Journal of Air & Waste Management Association, 64(4), 436-444 (2014).  
“Influence of Model Grid Resolution on NO<sub>2</sub> Vertical Column Densities over East Asia”
- 12) K. IKEDA, K. YAMAJI, Y. KANAYA, F. TAKETANI, X. PAN, Y. KOMAZAKI, J. KUROKAWA and T. OHARA: Journal of Air & Waste Management Association, 64(4), 445–452 (2014).  
“Sensitivity Analysis of Source Regions to PM<sub>2.5</sub> Mass Concentration at Fukue Island, Japan”

#### <その他誌上発表（査読なし）>

- 1) 山地一代: エンジンテクノロジーレビュー（養賢堂）、2(6)、32-38 (2011).  
「広域大気における光化学オキシダント濃度の増加とアジア諸国の現状および越境大気汚染」

#### (2) 口頭発表（学会等）

- 1) 山地一代、滝川雅之、J. LI、鶴野伊津志、金谷有剛、P. Pochanart、駒崎雄一、秋元肇: 地球惑星科学連合 2009 年大会 (2009) .  
「華北平原の野焼きによる大気質への影響評価」
- 2) 山地一代、鶴野伊津志、金谷有剛、駒崎雄一、大原利真、秋元肇: 第 50 回大気環境学会年会 (2009) .  
「中国華北地方におけるバイオマスバーニングによる大気質への影響」
- 3) K. YAMAJI, J. LI, I. UNO, Y. KANAYA, and H. AKIMOTO: 8th Annual CMAS Conference, North Carolina, USA (2009)  
”Impact of open crop residual burning for air quality of central east China in 2006”
- 4) 山地一代、Li Jie、鶴野伊津志、滝川雅之、金谷有剛、駒崎雄一、大原利真、秋元肇: 日本気象学会 2009 年度秋季大会 (2009) .  
「領域物質輸送モデルを用いた Central East China 域における大気汚染物質の変動解析」
- 5) K. YAMAJI: International Workshop on Atmospheric Environment Modeling Research in East Asia, Dalian, China (2010)  
“Modeling study of impact of open crop residual burning emissions on air quality over Central Eastern China”
- 6) 山地一代、鶴野伊津志、Li Jie: 第 51 回大気環境学会年会 (2010) .  
「東アジア地域における広域大気汚染の発生源寄与解析」

- 7) K. YAMAJI, J. LI, Y. KANAYA, I. UNO, and H. AKIMOTO: 9th Annual CMAS Conference, North Carolina, USA (2010)  
“Numerical analysis of air pollutants at the west part of Japan during an intensive observational campaign in 2009”
- 8) 山地一代、Li Jie、鶴野伊津志、滝川雅之、金谷有剛、駒崎雄一、大原利眞、秋元肇: 日本気象学会 2010 年度秋季大会 (2010) .  
「領域物質輸送モデルを用いた長崎県福江島における大気汚染解」
- 9) K. YAMAJI: 2nd International Workshop on Atmospheric Modeling Research in East Asia, Hainan, China (2010)  
“Ozone chemical linearity due to emissions change over East Asia in regional chemical transport model”
- 10) K. YAMAJI, J. LI, I. UNO, Y. KANAYA, F. TAKETANI, H. TANIMOTO and S. INOMATA: Air Quality Modeling in Asia 2011 International Conference & Training, Seoul, Korea (2011)  
“Numerical analysis of air pollutants transportation/transformation processes over north east Asia based on WRF/CMAQ and observations”
- 11) 池田恒平、山地一代、滝川雅之: 日本気象学会2011年度秋季大会 (2011) .  
「領域気象モデルWRFにおける日本域の降水の再現性検証」
- 12) 山地一代、入江仁士、鶴野伊津志: 日本地球惑星科学連合2011年大会 (2011) .  
「東アジアにおける近年の排出量変化に対するオゾントレンドと線形性」
- 13) K. YAMAJI, J. LI, I. UNO, Y. KANAYA, F. TAKETANI, H. IRIE, H. TAKASHIMA, H. TANIMOTO, S. INOMATA, and JAMSTEC & NIES observational research team: 8th International Conference on Acid Deposition, Beijing, China (2011)  
“Modeling analysis for trans-boundary transport observed at Fukue island, a remote site in the East China Sea”
- 14) 山地一代、Jie Li、鶴野伊津志、金谷有剛、竹谷文一、駒崎雄一、谷本浩志、猪俣敏: 第52回大気環境学会年会 (2011) .  
「2009年福江島における大気物質濃度のモデル解析」
- 15) 山地一代、秋元肇、Jie Li、鶴野伊津志: 第52回大気環境学会年会 (2011) .  
「日本の遠隔観測地における広域的越境大気汚染のモデル解析」
- 16) K. YAMAJI: 3rd International Workshop on Atmospheric Modeling Research in East Asia, Chengdu, China (2011)  
“Investigating ozone chemical linearity to assess the response to Chinese emission changes over East Asia with a linear approach”
- 17) 山地一代、入江仁士、鶴野伊津志: 大気化学討論会 (2011) .  
「領域ネストモデルを用いた窒素酸化物の動態評価」
- 18) K. YAMAJI, J. LI, I. UNO, Y. KANAYA, F. TAKETANI, H. TANIMOTO, and S. INOMATA: 10th Annual CMAS Conference, North Carolina, USA (2011)  
“Evaluation of an air quality modeling system for atmospheric aerosols over Northeast Asia”
- 19) K. IKEDA, K. YAMAJI and M. TAKIGAWA: 92nd American Meteorological Society Annual

- Meeting, New Orleans, USA (2012)
- 20) “Examination of sensitivity of WRF precipitation over Japan to physical parameterizations and horizontal resolution.”
- 21) K. IKEDA, K. YAMAJI, J. KUROKAWA, T. OHARA, F. TAKETANI and Y. KANAYA: 3rd International Workshop on Emission Inventory in Asia, Kanagawa, Japan (2012)  
“Simulation of air pollutants in East Asia using regional emission inventory in Asia (REAS) version 2.”
- 22) 池田恒平、山地一代、金谷有剛、竹谷文一、X. PAN、駒崎雄一、黒川純一、大原利眞：第53回大気環境学会年会（2012）  
「2010年の福江島PM<sub>2.5</sub>濃度に対する発生源の感度解析」
- 23) 池田恒平、竹谷文一、山地一代、金谷有剛、黒川純一、大原利眞：第53回大気環境学会年会（2012）  
「2011年秋季福江島におけるPM<sub>2.5</sub>濃度及び成分のモデルの再現性」
- 24) 山地一代、池田恒平、金谷有剛、竹谷文一、駒崎雄一、Xiaole PAN、Li Jie、鶴野伊津志、黒川純一、入江仁士、高島久洋、大原利眞、谷本浩志、横内陽子：第53回大気環境学会年会（2012）  
「福江島でのオゾン・PM<sub>2.5</sub>、前駆物質の通年観測のモデル解析」
- 25) 池田恒平、山地一代、滝川雅之、竹谷文一、金谷有剛：日本気象学会2012年度秋季大会（2012）  
「黄海・東シナ海のSST解像度が春季の大気汚染物質の輸送・沈着に与える影響」
- 26) K. IKEDA, K. YAMAJI, Y. KANAYA, F. TAKETANI, X. PAN, Y. KOMAZAKI, J. KUROKAWA, and T. OHARA: 11th Annual CMAS Conference, North Carolina, USA (2012)  
“Sensitivity analysis of source regions to PM<sub>2.5</sub> concentrations at Fukue Island, Japan.”
- 27) K. YAMAJI, H. IRIE, J. KUROKAWA, and T. OHARA: 11th Annual CMAS Conference, North Carolina, USA (2012)  
“Influence of model grid resolution on NO<sub>2</sub> vertical column densities over east Asia”
- 28) K. IKEDA, K. YAMAJI, Y. KANAYA, F. TAKETANI, X. PAN, Y. KOMAZAKI, J. KUROKAWA and T. OHARA: European Geosciences Union General Assembly 2013, Vienna, Austria (2013)  
“Model analysis of seasonal variation of PM<sub>2.5</sub> across Japan and its regional-scale transport in East Asia.”
- 29) K. IKEDA, K. YAMAJI, Y. KANAYA, F. TAKETANI, X. PAN, Y. KOMAZAKI, J. KUROKAWA and T. OHARA: 12th International Conference on Atmospheric Sciences and Applications to Air Quality, Seoul, Korea (2013)  
“Regional-scale transport of PM<sub>2.5</sub> in East Asia: Implications to air quality over Japan.”
- 30) K. YAMAJI, K. IKEDA, M. TAKIGAWA, Y. KANAYA, and T. NAGASHIMA: 12th International Conference on Atmospheric Sciences and Applications to Air Quality, Seoul, Korea (2013)  
“Model inter-comparison for evaluation on source sensitivities of ozone and PM<sub>2.5</sub> over East Asia”
- 31) 池田恒平、山地一代、金谷有剛、竹谷文一、X. PAN、駒崎雄一、黒川純一、大原利眞：第54回大気環境学会年会（2013）  
「日本のPM<sub>2.5</sub>質量濃度に対する発源地域の感度解析」

32) 山地一代、池田恒平、滝川雅之、金谷有剛、Xiaole Pan、谷本浩志: 第54回大気環境学会年会 (2013) .

「福江島における暖候期オゾン濃度のモデル再現性に関する研究」

33) K. YAMAJI, K. IKEDA, M. TAKIGAWA, Y. KANAYA, T. NAGASHIMA: 4nd International Workshop on Atmospheric Modeling Research in East Asia, Kunming, China (2013)

“Model inter-comparison for evaluation on source sensitivities of PM<sub>2.5</sub> and ozone over East Asia”

34) K. YAMAJI, M.TAKIGAWA, and K. IKEDA: 12th Annual CMAS Conference, North Carolina, USA (2013)

“Models reproducibility of ozone concentrations over Japan in warm season”

### (3) 出願特許

特に記載すべき事項はない。

### (4) シンポジウム、セミナー等の開催（主催のもの）

特に記載すべき事項はない。

### (5) マスコミ等への公表・報道等

- 1) 朝日新聞 (2013年1月31日、大阪版、3面) 「北京、一部の工場停止 大気汚染 当局が緊急対策」
- 2) 朝日新聞 (2013年2月1日、大阪版、3面) 「大気汚染 北京混乱」
- 3) 毎日新聞 (2013年2月5日、全国版、3面) 「PM<sub>2.5</sub>って、どんな物質？」
- 4) 赤旗日曜版 (2013年3月10日、全国版、35面) 「深刻中国 PM<sub>2.5</sub>汚染 北京で基準の約30倍 日本に越境、複合大気汚染に」
- 5) NHK 週刊ニュース 深読み (2013年2月16日、PM<sub>2.5</sub>越境大気汚染の寄与率に関する成果について1分ほど紹介)
- 6) 読売新聞 (2013年7月1日、全国版) 「PM<sub>2.5</sub>対策 日中で協力」
- 7) 日本経済新聞 (2013年11月28日、全国版) 「PM<sub>2.5</sub>、国内でも発生 関東地方、「中国発」を上回る」
- 8) 毎日新聞 (2013年12月17日、全国版) 「濃度懸念高まる冬本番 PM<sub>2.5</sub>の発生源把握急務」
- 9) 読売新聞 (2014年1月6日、全国版) 「PM<sub>2.5</sub>高精度で分析 発生源の推定可能に」
- 10) 日本経済新聞 (2014年1月27日) 「ニッキの大疑問 PM<sub>2.5</sub>、どこから来るの？国内にも発生源 予測技術進む」
- 11) 日本テレビ 情報番組PON! (2014年3月6日) 「中国から飛来してくるPM<sub>2.5</sub>の割合について」 PM<sub>2.5</sub>の越境寄与率に関する試算について紹介
- 12) NHK BSニュース (2014年3月12日) 「PM<sub>2.5</sub>対策強化で提言取りまとめへ」 PM<sub>2.5</sub>の越境寄与率に関する試算について紹介

### (6) その他

特に記載すべき事項はない。

## 8. 引用文献

- 1) D. BYUN and K.L. SCHERE: Appl. Mech. Rev., 59, 51–77 (2006)  
“Review of the governing equations, computational algorithms, and other components of the Model-3 Community Multiscale Air Quality (CMAQ) modeling system”
- 2) W.C. SKAMAROK et al.: NCAR Technical Note, NCAR/TN–475+STR (2008)  
“A description of the Advanced Research WRF Version 3”
- 3) W.P.L CARTER: Report to the United States Environmental Protection Agency (2000)  
“Implementation of SAPRC-99 chemical mechanism into the Models-3 framework”
- 4) A. NENES et al.: Aqut. Geochem., 4, 123–152 (1998)  
“ISORROPIA: A new Thermodynamic Equilibrium Model for Multiphase Multicomponent Inorganic Aerosols”
- 5) A.G. CARLTON et al.: Environ. Sci. Technol. 44, 8553–8560 (2010)  
“Model representation of secondary organic aerosol in CMAQv4.7”
- 6) F.S. BINKOWSKI and S.J. ROSELLE: J. Geophys. Res. 108(D6), 4183, doi:10.1029/2001JD001409 (2003).  
“Model-3 Community Multiscale Air Quality (CMAQ) model aerosol component 1. Model description”
- 7) K. SUDO et al.: J. Geophys. Res. 107(D17), 4439, doi:10.1029/2001JD001113 (2002)  
“CHASER: A global chemical model of the troposphere 1. Model description”
- 8) J. KUROKAWA et al.: Atmos. Chem. Phys., 13, 10049–10123 (2013)  
“Emissions of air pollutants and green-house gases over Asian regions during 2000–2008: Regional Emission inventory in Asia (REAS) version 2”
- 9) A. GUENTHER et al.: Atmos. Chem. Phys., 6, 3181–3210 (2006)  
“Estimates of global terrestrial isoprene emissions using MEGAN (Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature)”
- 10) D.G. STREET et al.: J. Geophys. Res. 108(D21), 8809, doi:10.1029/2002JD003093 (2003)  
“An inventory of gaseous and primary aerosol emissions in Asia in the year 2000”
- 11) 気象庁: [http://www.seisvol.kishou.go.jp/tokyo/STOCK/monthly\\_v-act\\_doc/monthly\\_vact\\_2010.htm](http://www.seisvol.kishou.go.jp/tokyo/STOCK/monthly_v-act_doc/monthly_vact_2010.htm) (2010)  
「火山活動解説資料」
- 12) A.S. WEXLER and S.L. CLEGG: J. Geophys. Res., 107 (D14), 4207, doi:10.1029/2001JD000451 (2002) (<http://www.aim.env.uea.ac.uk/aim/aim.php>)  
“Atmospheric aerosol models for systems including the ions  $H^+$ ,  $NH_4^+$ ,  $Na^+$ ,  $SO_4^{2-}$ ,  $NO_3^-$ ,  $Cl^-$ ,  $Br^-$ , and  $H_2O$ ”
- 13) 金谷有剛, 竹谷文一, 入江仁士, 駒崎雄一, 高島久洋, 鶴野伊津志: 大気環境学会誌, 45, 289–292 (2010)  
「九州福江島における通年 $PM_{2.5}$ 質量濃度測定値の大気環境基準超過」

- 14) K. YAMAJI et al.: *Atmos. Environ.*, 40(10), 1856–1868 (2005)  
“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?”
- 15) T. MIYOSHI, and M. KUNII: *Pure and Appl. Geophys.*, 169, 321-333 (2012)  
“The Local Ensemble Transform Kalman Filter with the Weather Research and Forecasting Model: Experiments with Real Observations”
- 16) K. A. READ et al.: *Nature*, 453, 1232-1235 (2008)  
“Extensive halogen-mediated ozone destruction over the Atlantic Ocean”
- 17) S. SARWAR et al.: *Air Pollution Modeling and its Application XXIII*, 640, 470 (2014)  
“Impact of RACM2, halogen chemistry, and updated ozone deposition velocity on hemispheric ozone predictions”
- 18) Y. KANAYA et al.: *Aerosol Science and Technology*, 47(1), 1-10 (2013)  
“Comparison of Black Carbon Mass Concentrations Observed by Multi-Angle Absorption Photometer (MAAP) and Continuous Soot-Monitoring System (COSMOS) on Fukue Island and in Tokyo, Japan”
- 19) 環境省 : <http://www.env.go.jp/hourei/add/d009.pdf> (2009)  
「微小粒子状物質による大気汚染に係る環境基準について」
- 20) 環境省 : <http://www.env.go.jp/air/osen/pm/parallelexam/index.html> (2011)  
「微小粒子状物質 (PM<sub>2.5</sub>) の標準測定法と自動測定機の並行試験について」
- 21) 茶谷聡、森川多津子、中塚誠次、松永壮: *大気環境学会誌*, 46, 101–110 (2011)  
「3次元大気シミュレーションによる2005年度日本三大都市圏PM<sub>2.5</sub>濃度に対する国内発生源・越境輸送の感度解析」
- 22) M. HALLQUIST et al.: *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 5155–5236 (2009)  
“The formation, properties and impact of secondary organic aerosol: current and emerging issues”

## (2) 大気汚染物質のソースレセプター解析と削減感受性評価

(独) 国立環境研究所 地域環境研究センター	永島 達也
<研究協力者>	
(独) 国立環境研究所 地域環境研究センター	大原 利真
(独) 海洋研究開発機構 地球環境変動領域	滝川 雅之
名古屋大学大学院 環境学研究科	須藤 健悟
神戸大学大学院 海事科学研究科	山地 一代
(一財) 日本環境衛生センター アジア大気汚染研究センター	黒川 純一

平成21～25年度累計予算額：37,189千円

(うち、平成25年度予算額：5,146千円)

予算額は、間接経費を含む。

### [要旨]

本研究では、まず全球規模の大気化学輸送モデル(CTM: Chemical Transport Model)とタグ付きトレーサー法という評価手法を用いて地表オゾンのソースレセプター(SR)関係性を評価(2000年代前半対象)し、日本の春季では、自国(約22%)や近隣国(中国:約12%,朝鮮半島:約6%)からの寄与に加えて、成層圏や北米・欧州などの遠隔寄与も無視できず多様な領域から影響を受けていることや、夏季には自国や近隣国の寄与がより大きくなることなどを明らかにした。加えて、中国に対する東南アジア寄与なども定量的に評価した。同じ評価手法を長期(1980-2005年)に適用し、近年の日本における地表オゾン増加傾向に対する中国寄与が少なくとも36%程度であることを示した。また、これらの評価結果をエミッション感度法による評価と比較し、両者で評価結果は似通うものの、共通部分は最大でも8割程度にとどまることを示した。全球規模CTMと東アジア規模CTMによる地表オゾンSR関係性評価の違いについても解析を行い、前出の手法間による違いとも合わせて、春季の日本における中国寄与率の評価値には7.5-12%程度の幅があることを示した。次に、日本のオゾン汚染改善の基準として日最高8時間平均値(MDA8)が75ppb以下になることとした場合に必要となる前駆物質の排出削減率は日中韓で概ね30%との評価を得た。更に、大気汚染物質の排出部門(輸送、産業、火力発電、家庭)別に地表オゾンとPM<sub>2.5</sub>に対する削減効果を評価した。日本の地表オゾンについて、年平均濃度に関しては中国北部(輸送・産業)の削減効果が最も大きい。MDA8の75ppb超過日数に関しては、日本(輸送・産業)の効果が最も大きく、同様に日本の地表PM<sub>2.5</sub>日平均値が35μg/m<sup>3</sup>を超過する日数に関しては、中国北部・南部(発電・産業)の影響が圧倒的であることが分かった。排出量将来シナリオの評価では、450ppmシナリオをベースに、東アジアにおける大気汚染物質の排出削減を強化した450cntrシナリオにより、東アジア地域のオゾン汚染の改善に一定の効果が見られる一方、PM<sub>2.5</sub>汚染の改善には一層の排出削減が必要であると示唆された。

### [キーワード]

越境大気汚染、地表オゾン、PM<sub>2.5</sub>、ソースレセプター関係、削減感受性

## 1. はじめに

我が国では、高度経済成長に伴う公害の経験を通して、二酸化硫黄(SO<sub>2</sub>)や窒素酸化物(NO<sub>x</sub>)、揮発性有機化合物(VOC)、浮遊粒子状物質(SPM)など大気汚染物質に関する排出規制が進み、こうした物質の大気中濃度は、現状で環境基準値等を概ね下回る水準で推移している。ところが、光化学オキシダントの濃度は、その前駆物質であるNO<sub>x</sub>やVOCが減少しているにもかかわらず、1980年代半ば以降漸増を続けており、環境基準の達成率も極めて低い状況にある。近年でも2007年の5月上旬に、日本の広い範囲で注意報レベル(120ppb)を越えるオゾン濃度が観測され、これまで注意報が発令されたことがなかった幾つかの県においてはじめて注意報が発令されたことなどにより社会的な関心が高まった。更には、人間の健康に対する悪影響が特に懸念される微小粒子状物質(PM<sub>2.5</sub>)に関する環境基準が2009年に設定され国内における観測網の充実が図られると、減少傾向にはありながらも環境基準の達成率が十分でない状況が次第に明らかになり、そうした中、2013年1月中旬に発生した中国東北部におけるPM<sub>2.5</sub>高濃度汚染エピソードが契機となって、大気汚染への社会的な懸念が再び強まっている。このような近年における日本の大気汚染が、以前の公害時代における大気汚染と異なっているのは、その汚染源として国内の産業や自動車排気などの国内要因だけではなく、日本以外から海や大陸を越えて運ばれてくる越境大気汚染の関与が指摘されていることである。

そもそも、日本で観測される大気汚染物質には、国内で直接排出されたり排出された前駆物質から二次生成されたりしたものだけではなく、地球上の様々な領域で排出されたり二次生成されたりした後に大気の流れに乗って日本まで輸送されてきたものが含まれている。こうした様々な領域を起源とする大気汚染物質が、どれくらいの割合で混合されて日本における当該物質の濃度を形成しているのか、言い換えれば、日本という大気汚染の受容(レセプター)領域に対する、発生(ソース)領域ごとの寄与を推定することは、ソースレセプター関係(SR関係)の推定などと呼ばれており、大気汚染物質の発生源構成を理解する上で非常に重要である。その上で、影響が大きいソース領域における大気汚染物質排出量の削減が、どの程度の影響をレセプター領域にもたらしているのか、つまり排出削減量に対する感受性を評価することは、真に有効な大気汚染対策を立案する上で欠かせない情報を与える。経済発展が著しく、今後も大気汚染物質の排出量増加が見込まれる東アジアの東端(風下側)に位置し、それらの影響を大きく受けることが懸念される日本においては、大気汚染物質のSR関係や削減感受性の評価は喫緊の課題であり、またそうした評価研究の成果は我が国自身における大気汚染対策のためだけではなく、より広く東アジア全体での対策を考える上でも有用なものと考えられる。

## 2. 研究開発目的

本サブテーマでは、第一に東アジアにおける大気汚染物質のSR関係の評価を目的とする。中でも日本における環境基準達成率がとても低く、近年継続的な濃度上昇傾向が報告されている地表オゾンに焦点を当てた評価を行う。地表オゾンに関するSR関係は、半球規模越境大気汚染に関するタスクフォース(TF-HTAP)における評価活動(Keeting and Zuber, 2007)<sup>1)</sup>などを代表として、これまでも多くの評価が行われてきたが、従来の研究では大陸間の輸送に焦点の当てられる場合が多く、わが国でのオゾン汚染構造を的確に把握するためには不十分であった。本研究では、そうした状況を踏まえて、これまで詳しく調べられてこなかった東アジア内部の各領域間におけるオゾンのSR関係評価を行う。この評価には、計算コストの観点から大気化学輸送モデル(CTM :

Chemical Transport Model)を用いたタグ付きトレーサー法という手法を採用したが、一方、これまでに多くの研究で、同じくCTMを用いた手法であるエミッション感度法が用いられてきた。これまでこうした手法間の比較検討は余りなされていないため、評価手法の相違もたらすSR推定値の不確実性の検討も行う。また、以上では全球規模のCTMを用いるが、本研究では東アジアの大気汚染構造や削減感受性を更に詳細に評価する目的で東アジア規模のCTMを併用するため、そのようなモデルの空間規模の違いに起因するSR推定値の不確実性の検討も合わせて行うこととした。

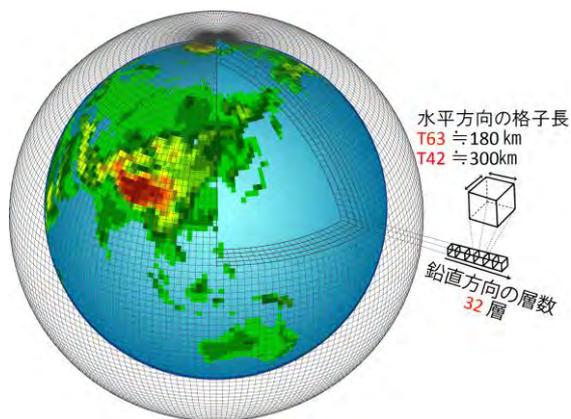
本サブテーマにおける研究目的の二番目は、東アジアにおける大気汚染物質の削減感受性評価である。具体的には、東アジアの大気環境を改善させるために、どのソース領域でどの程度の排出削減を行うのが効果的なのかを、東アジア規模のCTMを用いて評価する。評価対象としては地表オゾンとPM<sub>2.5</sub>を取り上げ、それぞれのソース領域における大気汚染物質の削減感受性を排出部門(セクター)別に評価することまでを目標とする。このような排出セクター別の削減感度評価は、東アジアに関してはまだ十分に行われておらず、効果的な大気汚染物質の排出削減を考える上で有効な情報と考えられる。また、こうした削減感受性の評価を踏まえて、大気汚染物質の排出に関する将来シナリオについてその大気汚染抑止効果を検討する。

最後に本サブテーマでは、上記研究の過程で用いられたCTM等を利用し、TF-HTAPが主導する対流圏オゾン等に関するSR関係評価のモデル間相互比較プロジェクトや、IPCCの第5次評価報告書に向けた気候変化予測実験で用いられる化学気候モデル(CCM: Chemistry Climate Model)の相互比較プロジェクト(ACCMIP)に参加してそれらの活動に貢献する。

### 3. 研究開発方法

#### (1) 東アジアの地表オゾンに関するSR関係の評価

##### 1) タグ付きトレーサー法を用いた地表オゾンのSR関係評価



図(2)-1 全球規模CTM CHASERの概要

まずは、東アジアにおける地表オゾンのSR関係を全球規模のCTMを用いて評価した。これは、対流圏オゾンの大気中における化学的な寿命と分布範囲を考慮すると、少なくとも半球規模の輸送は考慮する必要があるためである。また、SR関係の評価には計算コストの観点からタグ付きトレーサー法を採用した。

##### a. 全球規模CTM: CHASER

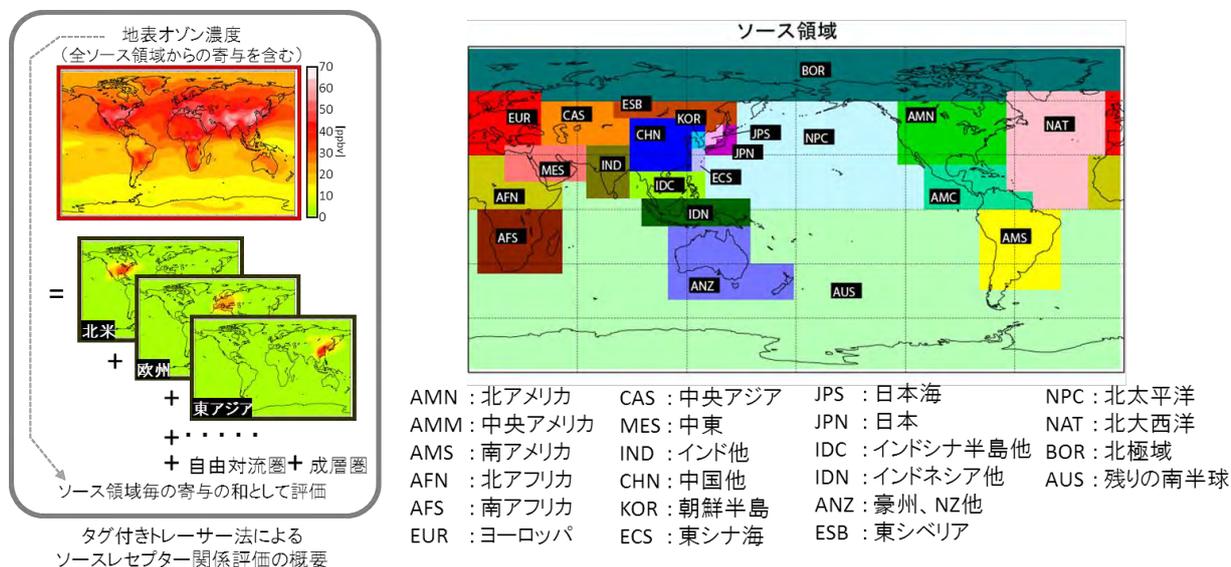
評価に用いた全球規模CTMは、CHASER(Sudo et al., 2002)<sup>2)</sup>(図(2)-1)である。このモデルは、全球気候モデルMIROCの大気大循環部分をベースとして、対流圏大気中で重要となる化学成分(53成分)の濃度とその分布変化の計算を主目的として

開発されたモデルであり、オゾン(O<sub>3</sub>)、水素酸化物(HO<sub>x</sub>)、NO<sub>x</sub>、メタン(CH<sub>4</sub>)、一酸化炭素(CO)、非メタンVOC(NMVOC)が関係する140個の光化学反応が考慮されている。これらの化学物質のうちNO<sub>x</sub>、CO、NMVOCなどの地表付近に発生源を持つ物質に関しては、人為起源(産業、輸送、発電、家庭など)あるいは自然起源(バイオマス燃焼、植物由来)の排出量を入力データとして与える。

化学成分分布の計算に必要な気温場(風速や気温)は、計算結果を実際の観測に近づけるため、気象の再解析データに同化して用いる。

## b. タグ付きトレーサー法

タグ付トレーサー法は、大気中の特定の領域(ソース領域)でのみ光化学的に生成される仮想的なオゾン(トレーサー)をCTM内に設定し、注目したいソース領域の数だけCTMの中で輸送させてその分布を計算し、計算された各トレーサーの濃度をもって対応するソース領域からの寄与と見なす手法である(Wang et al., 1998; Sudo and Akimoto, 2007)<sup>3),4)</sup>(図(2)-2 左)。つまり、オゾンの生成領域毎に寄与評価が出来る。タグ付きトレーサー法の利点は、複数のソース領域からの寄与を少ない回数(1ないし2回)のモデル計算で評価できるため、多数のソース領域からの寄与を少ない計算コストで評価できるという点である。本研究では、対流圏大気を水平方向に22領域、鉛直方向に境界層(PBL)と自由対流圏(FT)の2つの合計44領域に分割し、これに成層圏を加えた45領域に関してそれぞれの寄与を見積もった(図(2)-2 右)。



図(2)-2：タグ付きトレーサー法の概念図と計算に用いたソース領域の水平分割図。

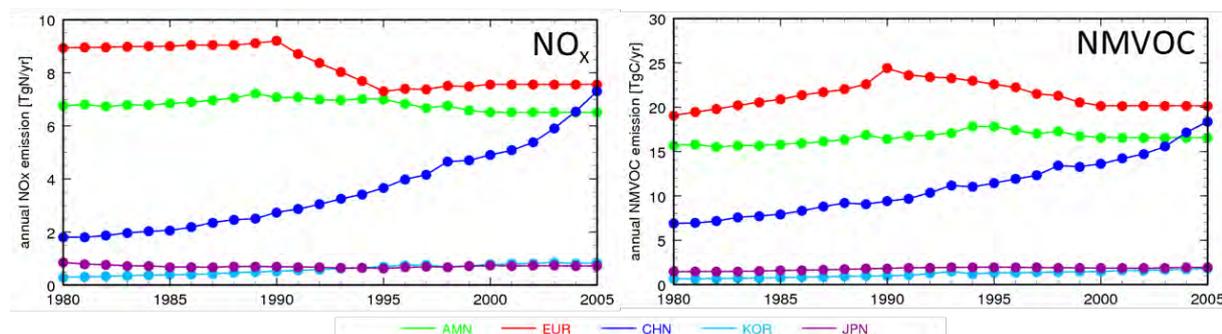
## c. 数値実験の設定

まずは、平均的な東アジアにおける地表オゾンのSR関係の評価するため、2000年代前半(2000年～2005年の6年間)を反映した各種外部条件を用意してCHASERによるタグ付きトレーサー実験を行った。この際に用いた外部条件を表(2)-1にまとめる。なお、EDGARv3.2 FT2000(2000年相当のデータ)およびRETRO(1960～2000年のデータ)に関しては、2000年の排出量を全計算期間に適用した。モデルの水平分解能は、T63(グリッド間隔約 $1.9^\circ \approx 200$  km)を採用した。

次に、SR関係の長期的な変化を評価するため、モデルに与える各種外部条件を1980年から2005年の26年間の長期にわたって変化させるタグ付きトレーサー実験を行った。長期実験であるため、計算コストを勘案してモデルの水平分解能をT42(グリッド間隔約 $2.8^\circ \approx 320$  km)と設定した。長期実験に用いた外部条件は表(2)-1に示したものとほぼ同様であるが、アジア以外の人為起源排出量は、2000年以前を、EDGAR-HYDE(1980,1990)、EDGARv3.2(1990,1995)を繋いで使用した。図(2)-3は、長期実験に用いた $\text{NO}_x$ とNMVOCの排出量の時系列である。領域別に示されており、特に中国における排出量(青線)が年を追うごとに増加していることが分かる。

表(2)-1：2000年代前半におけるSR関係評価実験に用いた外部条件。

気象データ			NCEP/NCAR 再解析	Kalnay et al. (1996) <sup>5)</sup>
大気汚染物質の排出量	人為起源	アジア	REASv1.2	Ohara et al. (2007) <sup>6)</sup>
		アジア以外	EDGARv3.2 FT2000	Olivier and Berdowski (2001) <sup>7)</sup>
	バイオマス燃焼 (世界全域)	RETRO	Schultz et al. (2008) <sup>8)</sup>	

図(2)-3: 地表オゾンSR関係の長期評価に用いたNO<sub>x</sub>(左)とNMVOC(右)の領域別排出量の時系列。

## 2) SR関係評価の不確実性の検討

次に、これまでに、タグ付きトレーサー法よりも計算コストが高いものの、導入の容易さから多くの研究でエミッション感度法(図(2)-4)を用いたSR関係の評価が行われてきた状況を踏まえて、1)で行った計算の一部について、エミッション感度法を用いたSR評価を同じ全球規模CTM(CHASER)を使って行い、タグ付きトレーサー法との比較を行った。更には、全球規模CTMを用いてエミッション感度法で評価した地表オゾンのSR関係と東アジア領域規模のCTMで評価した場合との比較も行い、東アジアの地表オゾンSR関係評価における、評価手法や使用モデルの違いに起因する不確実性を検討した。

### a. エミッション感度法とタグ付きトレーサー法の比較解析

エミッション感度法は、ある領域におけるオゾン前駆物質の排出量を減らす場合と減らさない場合の二通りのモデル実験を行い、その差からその領域の寄与を求める手法である(図(2)-4)。手法の性質上、エミッション感度法では注目するソース領域で“排出”された前駆物質から生成されたオゾン(生成場所は問わない)寄与が評価される一方、タグ付きトレーサー法では、(前駆物質の排出場所は問わず)注目するソース領域で“生成”されたオゾンの寄与が評価される。従って、両者による寄与評価値が同一になる必要は無いが、オゾンの化学的な生成が比較的速く進行する(特に汚染域では)ことを考えると、排出された領域内で生成されるオゾンの割合もある程度大きい(つまり両者はある程度一致している)と仮定することは不自然ではない。ただし、これまでその一致を調べた研究はほとんど無く、オゾンのSR関係評価における一つの不確定要因となっていた。



図(2)-4：エミッション感度法の概念図。

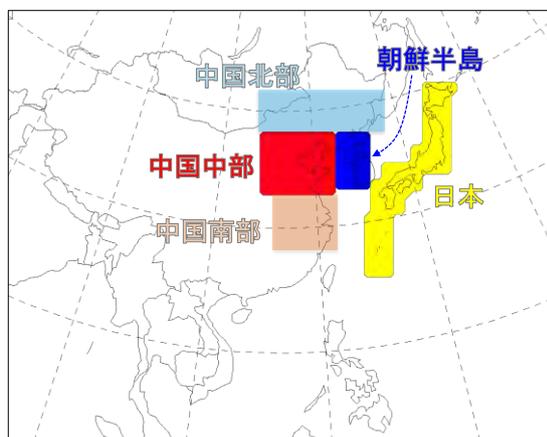
今回は、図(2)-2に示したソース領域のうち、遠隔域の代表として欧州(EUR)・北米(AMN)、近隣域の代表として中国(CHN)を取り上げ、それぞれの領域における大気汚染物質(NO<sub>x</sub>, CO, NMVOC, SO<sub>2</sub>)の排出量を削減した感度実験と削減しない標準実験を行ってその差から各領域の寄与を見積もり、これをタグ付きトレーサー法の結果と比較して両者の評価値がどの程度の一致を示すか調べた。実験は水平分解能T63を採用し、2000年相当の各種境界条件(表(2)-1参照)を用いて行った。

**b. 全球規模CTMと領域規模CTMによる地表オゾンSR関係評価の比較解析**

全球規模CTM CHASERに加えて、サブテーマ(1)と連携し、CMAQ (Byun and Schere, 2006)<sup>9)</sup>とWRF-Chem (Grell et al., 2005)<sup>10)</sup>の二つの東アジア規模CTMを用いてエミッション感度法を用いた地表オゾンのSR関係評価を行い結果を比較した。標準実験に加えて、中国東部を南北に3つに分けた領域(中国北部、中国中部、中国南部)、朝鮮半島、日本の5領域(図(2)-5)において人為起源排出量を20%削減する感度実験を行い、両実験の差(の5倍)をもって各ソース領域からの寄与とみなす。数値実験は、いずれのモデルでも2005年相当の各種外部条件(気象データとしてはNCEP/NCAR 再解析データ、大気汚染物質(NO<sub>x</sub>, CO, NMVOC, SO<sub>2</sub>)の人為起源排出量にはREASv1.2)を用いた(各モデルの設定詳細は表(2)-2 参照)。以下、本報告では特に断りの無い限り、“2005年相当の各種外部条件”とは上記の条件を指すこととする。

表(2)-2：各モデルの設定詳細

	CHASER	CMAQ	WRF-Chem
水平分解能	T63 ≒200km	80km	80km
鉛直層数	32	32	37
気体反応	140反応	RADM2	SAPRAC99
エアロゾル化学	硫酸塩のみ	SORGAM	AER05

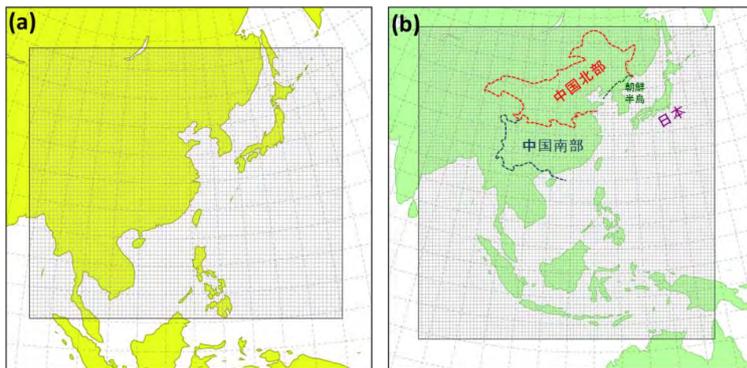


図(2)-5：東アジア領域規模CTMの計算範囲とソース領域の水平設定図。

**(2) 東アジアにおける大気汚染物質の削減感受性評価**

**1) 地表オゾンに関するソース領域毎の削減感受性評価**

東アジアにおける大気汚染物質の削減感受性評価として、まずは東アジア領域での人為起源大気汚染物質排出量の削減に対する、日本での地表オゾンの応答を評価した。国内外の3領域(日本、



図(2)-6 : CMAQの計算範囲(網掛け部分)。(a)が1)、(b)が2)で使用したもの。いずれも水平分解能は80km。また、2)において削減感受性の評価を行う4領域を合わせて示した。なお、1)では実際の国境に合わせて、3つの評価領域を設定した。

朝鮮半島、中国)それぞれ単独での削減(削減率は50%と100%の二通り)に加えて、中朝の組合せや3領域同時での削減を行った場合の日本国内における地表オゾンの変化を計算し、特に日最高8時間平均オゾン濃度を指標として、これが75ppbv以下になるために必要な排出削減量を評価した。計算には、東アジア規模CTMのCMAQを用い(図(2)-6a)、2005年相当の各種外部条件を与えて、オゾン汚染が顕著になる4月～8月を評価対象とした。

## 2) 大気汚染物質のソース領域毎及び排出部門毎の削減感受性評価

1)で行った評価を受けて削減感受性をより包括的かつ詳細に評価するため、国内外を4領域に分け(日本、朝鮮半島、中国北部、中国南部(北緯35°付近で南北に分離))、それぞれの領域における大気汚染物質の排出セクター(輸送、産業、火力発電、家庭)毎に削減感受性の評価を行った。領域とセクターの組合せ(4×4=16通り)に対して、大気汚染物質の排出量を50%および100%削減したモデル計算を行い、地表オゾンおよびPM<sub>2.5</sub>の年平均濃度と高濃度イベント頻度の二つの指標の変化を解析して、日本や中国でそれらの物質による大気汚染の改善に影響の大きい領域とセクターを評価した。計算には前項と同様に東アジア規模CTMのCMAQを用い(図(2)-6b)、2005年相当の各種外部条件を与えた通年評価を行った。なお本実験では、東南アジアも含めた解析の可能性も考えて1)よりも広い領域を計算範囲とした。

## 3) 大気汚染物質の排出量将来シナリオの評価

テーマ2(東アジアにおける排出インベントリの高精度化と大気汚染物質削減シナリオの策定)から提供を受けた複数の大気汚染物質の排出量将来シナリオに関して、東アジア規模CTMのCMAQを用いて東アジア大気質への影響を評価した。使用したモデルは上記2)で用いたものと同一である。大気汚染物質排出量の将来(2030年)シナリオとしては、①現状政策(CLE)、②最大限削減(MFR)(Cofala et al., 2006)<sup>11)</sup>、③二酸化炭素換算濃度450ppm安定化(450ppm)(IAE, 2009)<sup>12)</sup>、④二酸化炭素濃度450ppm安定化+東アジア大気汚染物質排出規制強化シナリオ(450cntr)の4種(表(2)-3)を用い、これに現状(2005年相当)再現のためのシナリオを加えた5シナリオに関して実験を行った。各将来シナリオにおける2030年の大気汚染物質排出量は、物質ごとに違いはあるものの、おおよそCLE > 450ppm > 450cntr > MFR という順で小さくなっており、VOCの減少が他の物質に比べて小さいこと、CLEシナリオではアジア域において将来排出増になることなどの特徴を持っている。

### (3) 国際モデル間比較プロジェクトに準拠した実験

サブテーマ（3）（“化学気候モデルによる全球大気汚染と温暖化影響の評価”）との連携の下、表(2)-3：評価した将来シナリオ。

将来シナリオ名	内容
CLE (Current Legislation) 現状政策型	現状(2002年時点)で決定されている排出量削減のための政策のみを考慮
MFR (Maximum Feasible Reduction) 最大限削減	現状で技術的に可能な排出量削減策を、採算などを度外視して採用する
450ppm 二酸化炭素換算濃度 450ppm 安定化	全球平均気温の上昇が2℃を超えないように、2020年までに温室効果ガスの排出量をピークアウトさせ、二酸化炭素換算の温室効果ガス濃度を450ppmに安定化。
450cntr 二酸化炭素濃度 450ppm 安定化+東アジア大気汚染物質排出規制強化シナリオ	上記450ppmシナリオをベースに、東アジアにおける大気汚染物質の排出削減を強化したもの。

TF-HTAPおよびACCMIPの各モデル相互比較プロジェクト仕様に準拠した実験を行った。本稿では、TF-HTAP実験に関して報告する(ACCMIP実験に関してはサブテーマ(3)の報告書を参照のこと)。TF-HTAP実験では、2000年を対象に、北米・欧州・東アジア・南アジアをそれぞれソース及びレセプター領域として、それら間のSR関係を評価する実験(エミッション感度法による)、2004年の夏に行われたICARTT観測キャンペーンを対象としてSR関係の評価を行う実験、将来の気候変化とオゾン前駆気体の排出量変化がオゾンのSR関係に及ぼす影響を評価する実験を行い(Dentener et al., 2011)<sup>13)</sup>データを提出した。

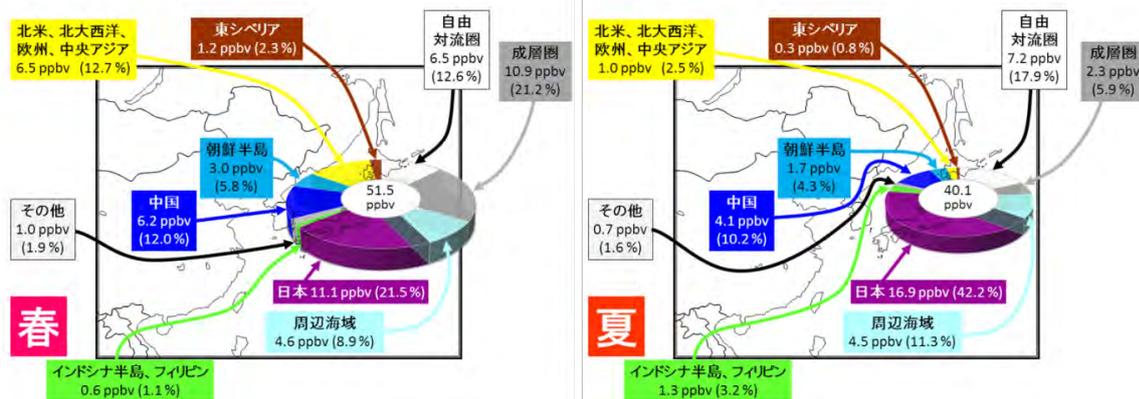
#### 4. 結果及び考察

##### (1) 東アジアの地表オゾンに関するSR関係の評価

###### 1) タグ付きトレーサー法を用いた地表オゾンのSR関係評価

まずは大きな傾向として、東アジアの地表オゾンに影響を与えるオゾンの生成領域が寒候期(10月～3月)と暖候期(4月～9月)で異なっており、寒候期では成層圏や北米・欧州などの遠隔地からの影響が半分以上を占め、暖候期では逆に東アジアや近隣領域からの影響が過半となる事が分かった。北海道と南西諸島を除く日本の中央部では、図(2)-7に示すように、春季に自国内で生成するオゾンの寄与割合が最も大きく約22%程度を占めており、同程度の寄与が成層圏から、そしてそれに続いて13%程度の寄与が自由対流圏および北米・欧州といった大陸を超えた遠隔領域からもたらされている。一方で、中国や朝鮮半島からの寄与はそれらに比べると小さい(それぞれ12%、6%程度)。ところが、夏季においては日本自身の寄与率がほぼ倍増する一方、成層圏や遠隔領域からの寄与は劇的に小さくなる。こうした変化に比べると東アジアからの寄与率の変化は小さく、夏季においても春季と同じ程度の寄与率を持つ。また、朝鮮半島に対する中国の寄与は春夏ともに20%程度で自領域に次いで大きかった。一方、中国に対する隣接領域(東南アジアや東シベリア)からの寄与率も季節によっては10%を超える程度にまで達することが分かった。日本における地表オゾンの1時間値に注目すると、1時間値が30ppbvを下回るような低オゾン階級と90ppbvを上回るような高オゾン階級では、図(2)-7に示した平均的SR関係とは異なり、高オゾン階級では日本自体の影響が50%を上回り、低オゾン階級では近隣の海域や自由対流圏の影響が大きくなる事が分

かった。これらの成果をNagashima et al. (2010)<sup>14</sup>やNakatani et al. (2012)<sup>15</sup>として発表した。



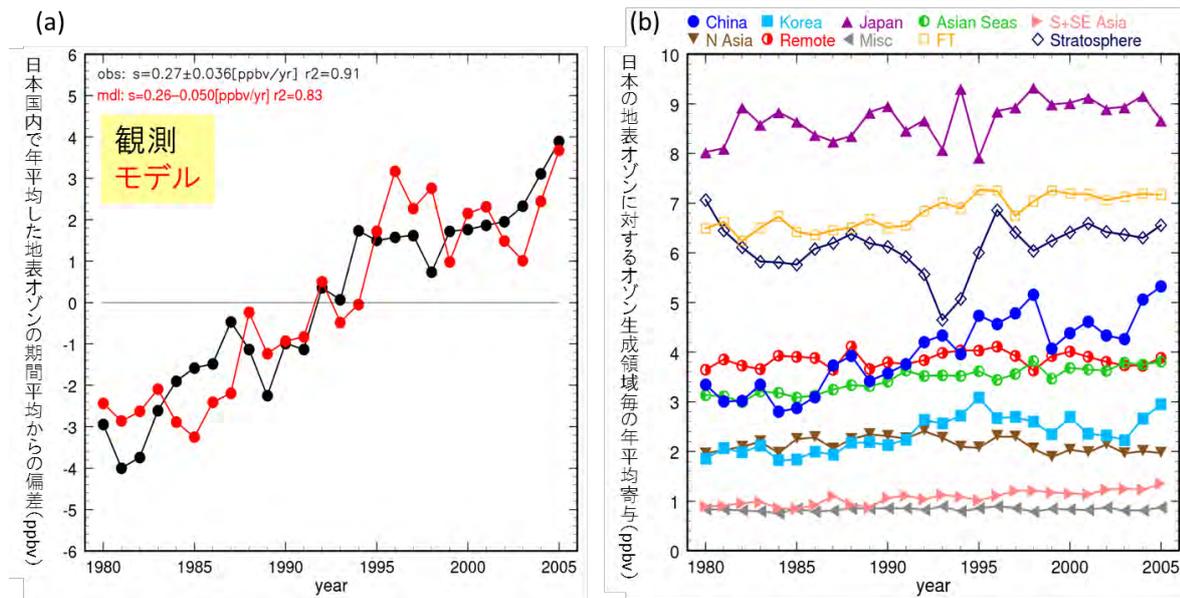
図(2)-7：日本中央部における地表オゾンのSR関係。(左)春季(3-5月)、(右)夏季(6-8月)。

## 2) 東アジアにおける地表オゾンSR関係の長期変化

CHASERによる26年計算(1980-2005年)では、近年日本で観測されている地表オゾンの増加傾向が非常に良く再現された(図(2)-8a：観測：0.27ppbv/年、モデル：0.26ppbv/年)。図(2)-8bに示した、日本の地表オゾンに対する各領域で生成されたオゾンによる寄与の年平均値時系列からは、図(2)-7と同様に、日本国内で生成されたオゾンの寄与率が最大であり、それに次いで成層圏、自由対流圏、遠隔領域(北米、欧州、中央アジア等)、中国で生成されたオゾンの寄与が大きいことが分かる。しかし、それぞれの寄与には経年変化が存在しており、特に中国で生成されたオゾンの寄与がこの期間中に著しく増加していることが分かる。これに次いで、朝鮮半島、日本、周辺海域、南・東南アジア、自由対流圏で生成されたオゾンの寄与に有意な増加が見られ、これらの領域からの寄与の増加によって、全増加トレンドの約97%を説明することができる。中でも中国寄与の増加トレンドは全増加トレンドの36%を占めている。実際には、タグ付きトレーサー法の性質上、中国で“排出”されたオゾン前駆物質の増加に帰すべき寄与はここで示した値より大きい可能性があるため、36%という数字は日本の地表オゾン増加トレンドに対する中国の排出起源の影響の下限値とみなすのが妥当と考えられる。いずれにせよ、この結果からは、日本のオゾン増加に対する越境汚染の重要性が分かる。

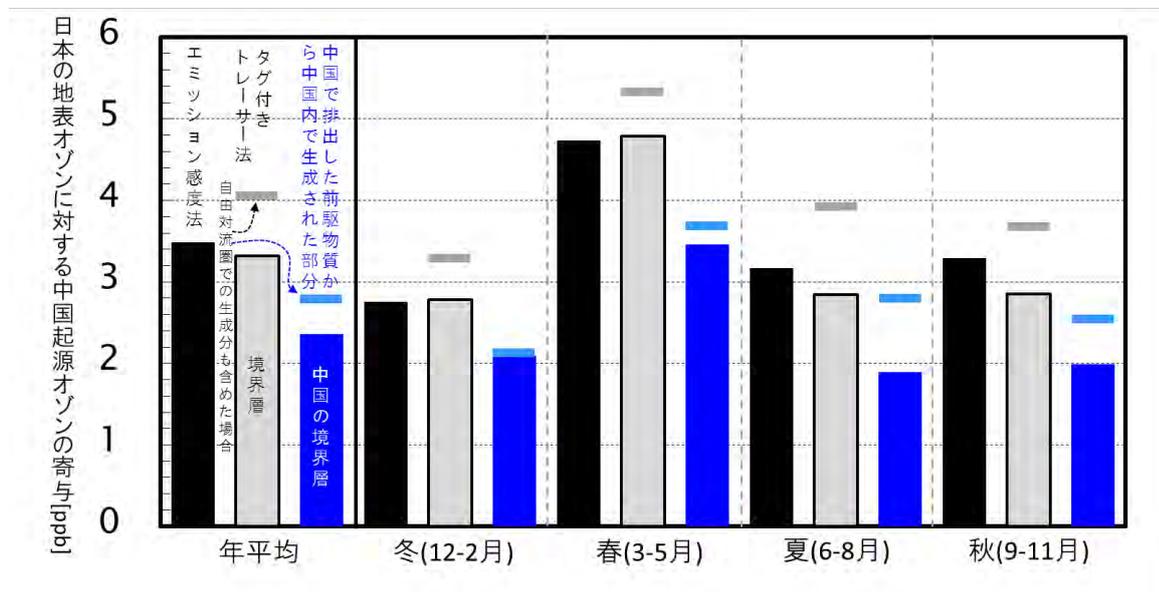
## 3) エミッション感度法とタグ付きトレーサー法の比較解析

両手法を使って評価された、中国、欧州、北米をソース領域とする地表オゾンへの寄与分は、全球の水平分布、濃度ともに類似した傾向を示すが(図略)、手法の違いから予想されるように、ソース領域付近ではタグ付きトレーサー法が寄与をより大きく見積もり、それ以外ではエミッション感度法の寄与評価値がやや大きい傾向にある。中国をソース領域とするオゾンの、日本の地表オゾンに対する寄与を両手法で見積もった結果が図(2)-9である。エミッション感度法で評価した寄与とタグ付きトレーサー法で中国のPBLで生成されたオゾンの寄与は、年平均・各季節平均共によく似た値を示す。夏季と秋季にエミッション感度法での評価値がタグ付きトレーサー法による評価値より少し大きくなるが、これは鉛直輸送の活発な暖候期にはFTで生成されるオゾンの寄与が大きくなることの反映と考えられる。同図に青棒で示した量は、エミッション感度法とタグ付きトレーサー法を併用して、中国で排出された前駆物質から中国のPBL内で生成されたオゾンの



図(2)-8: (a)日本国内で平均した地表オゾン年平均値偏差の時系列。(b)各オゾン生成領域の日本に寄与の年平均値時系列。

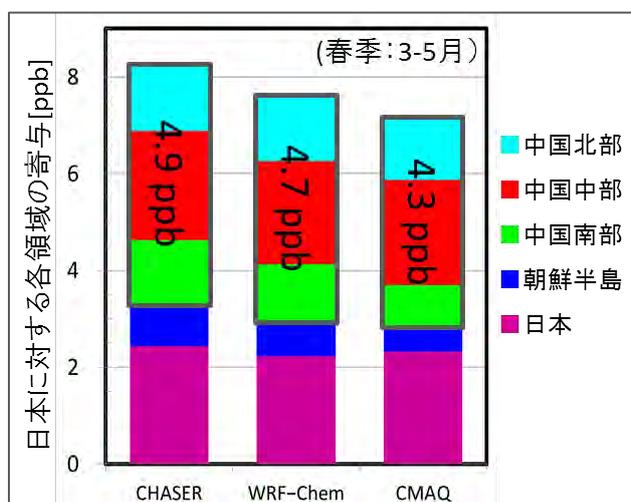
寄与を推定した値である。この値は、その定義から、図中の黒棒と灰色棒で表された量の共通部分とみなされるが、その割合は約66-80%となっている。つまり、両手法によって評価された中国をソース領域とするオゾンの日本に対する寄与の評価値自体の一致度は良いが、共通部分の構成比は最大で8割程度であり、特に夏季・秋季はその割合が低く(66-70%)なることが分かった。



図(2)-9：日本の地表オゾンに対する中国をソースとするオゾンの寄与[ppb]。黒棒はエミッション感度法(排出量削減率は100%)、灰色棒はタグ付きトレーサー法(中国のPBL内で生成されたオゾンの寄与。中国のFTで生成された寄与まで含めると灰色横棒)での評価。青棒はエミッション感度法による評価のうち、中国のPBL内で生成されたオゾンの推定値(中国のPBLに加えてFTで生成された寄与まで含めると水色横棒)。

#### 4) 全球規模CTMと領域規模CTMによる地表オゾンSR関係評価の比較解析

設定した5領域におけるオゾン前駆物質排出量の20%削減に対する地表オゾンの応答は、どのモデルでも夏季には排出削減領域付近で濃度減少となるが、減少量はCHASERに比べて領域モデルの方が大きい。また、減少の起こる範囲はCHASERに比べて領域モデルの方が東に広がる傾向がある。これは、領域モデルの方がCHASERに比べて高い高度域まで濃度の応答が起こり、それが上空の西風によって東側に拡がりやすいためと考えられる。これにより、夏季における日本の地表オゾンに対する各領域の影響、すなわちSR関係の評価値は、CHASERで評価した場合に比べて領域モデルで評価した場合の方が大きくなる。冬季では夏季とは逆に排出量の減少に対して、どのモデルでも排出減少領域付近で濃度増加となるが、CMAQでの増加量が他の2モデルに比べて顕著に大きくなる。一方、春季・秋季では、排出削減に対してどのモデルでも概して濃度減少となるが、CMAQ



図(2)-10：春季の日本における各領域からの寄与

では大都市付近での排出削減に対して濃度減少量が小さくなる傾向がある。特に長江デルタや朝鮮半島南部(=韓国)における排出削減に対して削減領域付近では濃度増大になる場合もあり、そうした影響は風下の日本にまで及んでいる。図(2)-10は、春季の日本に対する5領域の寄与をモデル別に示したものである。寄与の評価値は、標準実験の結果から排出量削減実験の結果を差し引いて5倍することで求めているため、春季において、排出量削減に対する濃度減少量が長江デルタや韓国で他のモデルよりも小さくなるCMAQでは、両地域を含む領域の寄与が小さく評価されている。

### (2) 東アジアにおける大気汚染物質の削減感受性評価

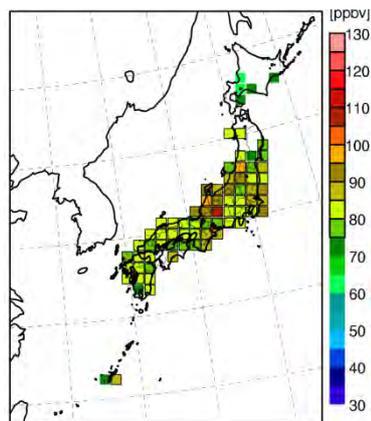
#### 1) 地表オゾンに関するソース領域毎の削減感受性評価

2005年4～8月を対象にしたモデル計算の1時間値出力をもとに日最高8時間平均値(MDA8)を求め、大気常時監視測定局(AEROS)データを用いた補正を施した後、米国環境保護庁(US-EPA)による環境基準の設定を参考にしてMDA8が75ppb以下になることをガイドラインとした場合に、東アジア3領域(日本、朝鮮半島、中国)で必要なオゾン前駆物質の削減率を評価した。図(2)-11は、計算期間中における各モデルグリッドでのMDA8の最大値を示しており、多くのグリッドで75ppbvを超過していることが分かる。こうした超過グリッドで平均したMDA8の平均値は84.3ppbvであり、排出量を削減した実験の結果から、この平均値が75ppbvを超えないためには3領域で同時に約32%の削減が必要との評価を得た。上記以外にも、表(2)-4に示した幾つかの指標に関して必要削減量の評価を行い、いずれにおいても3領域で概ね30%程度の削減が必要であるとの結果が得られた。

#### 2) 大気汚染物質のソース領域毎及び排出部門毎の削減感受性評価

日本の地表オゾンについて、年平均値とMDA8が75ppbを超過する日数の二つの指標が、各領域・

各セクターからの前駆物質排出量の削減でどのくらい変化するかを見積もったところ(図(2)-12



図(2)-11：MDA8最大値の分布区

表(2)-4：評価に用いた指標と3領域での必要削減率

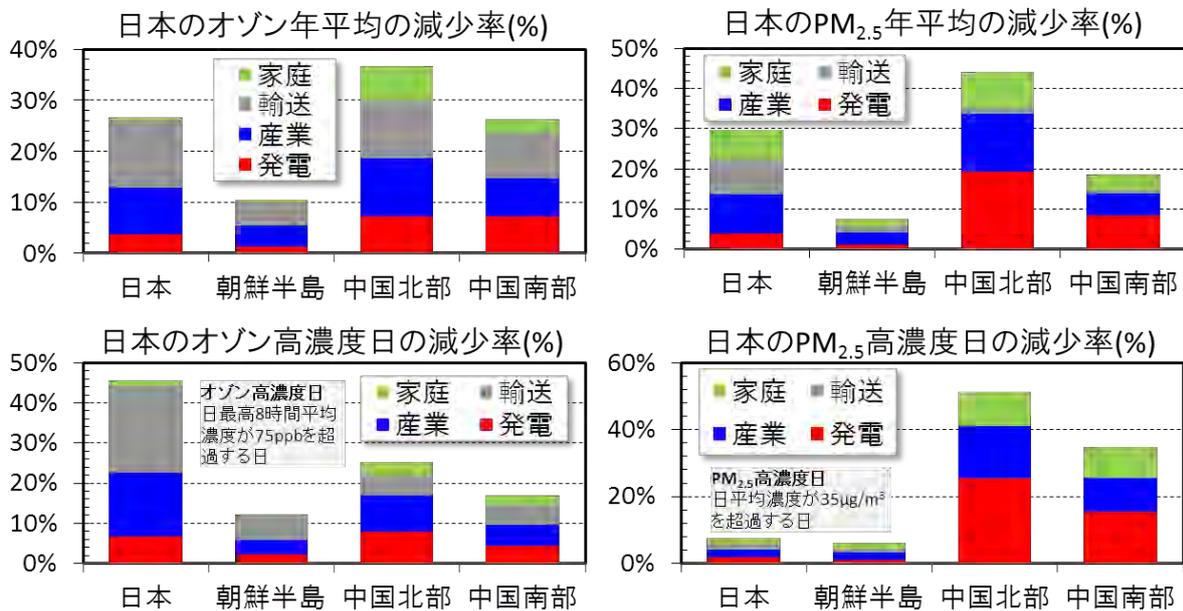
評価指標	必要削減率 (3領域同時)
MDA8最大値の75ppb超過グリッドの平均値が75ppbを超えないようにする	約32%
MDA8の95, 97, 99パーセンタイル値を75ppb以下にする	約15% (95パーセンタイル) 約22% (97パーセンタイル) 約36% (99パーセンタイル)
MDA8の75ppb超過日数を4日以下にする	約27%
代表的な都市（北九州、名古屋など）でMDA8が75ppbを超えた日の平均値が75ppbを超えないようにする	約21～28%

左上下)、両指標の間で影響の大きい(=感度の高い)領域・セクターに違いのあることが分かった。オゾンの年平均濃度に関しては、中国北部(輸送・産業)の影響が大きく、これに次いで日本(輸送・産業)、中国南部(輸送・産業)の影響が大きい。MDA8が75ppbを超過する日数に関しては、日本(輸送・産業)の影響が最も大きく、次いで中国北部(産業・発電)の影響が大きかった。同様に日本の地表PM<sub>2.5</sub>に関しては、年平均値と日平均値が35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超過する日数がどのように変化するかを見積もると(図(2)-12 右上下)、両指標の間で影響の大きい領域・セクターが異なっており、年平均値に関しては、中国北部(発電・産業)の影響が最も大きく、次いで日本(産業・輸送・家庭)の影響が大きくなっている一方、日平均値が35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超過する日数に関しては、中国北部・南部(発電・産業)の影響が圧倒的で、日本自身の影響よりも相当に大きいことが分かる。こうした年平均値と高濃度イベントの頻度との間で影響の大きい領域・セクターが異なるのは、それぞれの指標に影響を与える季節に違いのあることが原因の一つと考えられる(例えば、オゾンの年平均値であれば平均的な濃度が高い春季に影響の大きな領域・セクター、高濃度頻度であれば高濃度イベントが起りやすい夏季に影響の大きな領域・セクターに対する感度が高くなり易い)。また、こうした日本のオゾン・PM<sub>2.5</sub>汚染の改善に有効な中国の各セクターにおける排出量削減は、当然ながら中国自身における汚染の改善に対しても日本に対する以上に効果的であって、こうしたセクターへの対策は両国に共通の利益をもたらすことが示された。

### 3) 大気汚染物質の排出量将来シナリオの評価

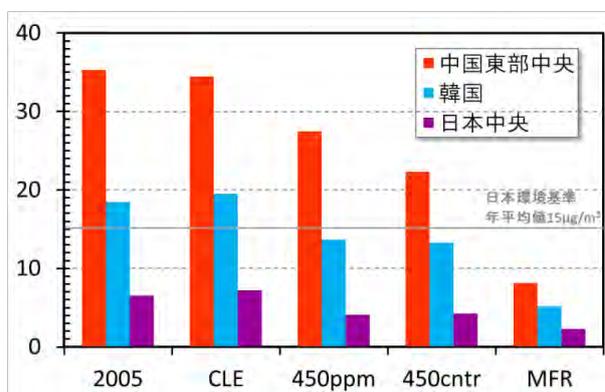
各シナリオで計算された、日本における2030年の地表オゾン年平均値を現状(2005年)と比較すると、東アジアの前駆物質が減少する450cntrとMFRシナリオでは、それぞれ約16%、6.5%の減少が起こるが、450ppmシナリオではほぼ変化がなく、中国やインドで前駆物質が増加するCLEシナリオでは約7%の増加となった。季節毎の応答もシナリオにより異なっていて、CLEシナリオでは暖候期に増加する一方、その他のシナリオでは暖候期を中心に減少する(MFRシナリオでは通年で減少する)。このような日本における地表オゾン濃度変化の季節依存性がシナリオにより異なる原因は、日本自身におけるNO<sub>x</sub>排出量の変化(いずれのシナリオでも減少)に伴うオゾン生成量の減少、逆に国内都市域ではNO<sub>x</sub>タイトレーション効果の低下によるオゾン増加、中国や朝鮮半島における

オゾン濃度変化のシナリオ依存性などが複合的に作用したものと考えられる。こうした季節による応答の違いは、各シナリオがオゾンの高濃度イベント頻度に与える影響にも表れており、CLE



図(2)-12: 各領域・セクターの排出量を50%削減した場合の、日本におけるオゾン(左)PM<sub>2.5</sub>(右)の年平均値(上)高濃度日数(下)の減少率(全削減量に対する割合)。

シナリオでは頻度が増え、450ppm、450cntr、MFRシナリオでは頻度が著しく減少する。中国や朝鮮半島におけるオゾン濃度の変化もシナリオによって異なり、朝鮮半島では日本に類似した変化を示すが、中国東部中央域(華北平原～長江デルタ)では、MFRシナリオを除き年平均オゾン濃度に大きな変化はない。ただし、中国東部中央でも、オゾン高濃度イベントの頻度は、450cntrシナリオで現状(2005年)に比べて半分以下になり、450cntrシナリオで想定されているNO<sub>x</sub>排出量の規制強化は東アジア地域のオゾン汚染の改善に一定の効果をもたらし得ることが示唆された。一方、PM<sub>2.5</sub>に関しては、各将来シナリオにおける東アジア領域での汚染物質排出量の減少度合いにほぼ従い、CLEシナリオではインド周辺を中心に増加するが、中国でのSO<sub>2</sub>排出量が減少する450ppmシナリオ

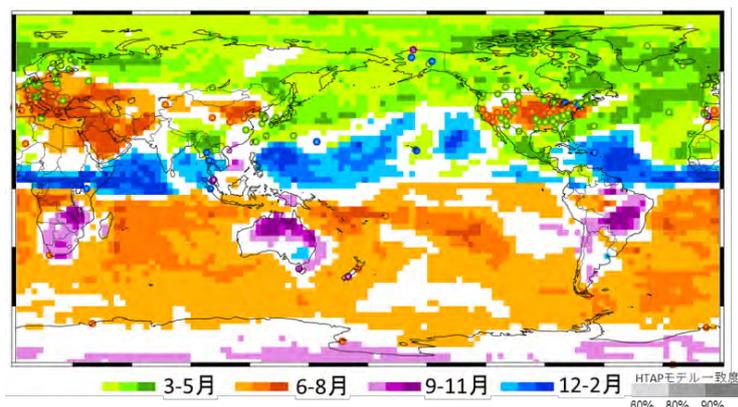


図(2)-13: 東アジアの3領域において各シナリオで計算された年平均地表PM<sub>2.5</sub>濃度。

では中国東部中央において最大で約30%程度減少し、更に減少量が多い450cntrシナリオ、MFRシナリオではより大きくPM<sub>2.5</sub>が減少した(図(2)-13)。日本、韓国においても傾向は同様である。ただし、中国東部中央での年平均PM<sub>2.5</sub>濃度は、汚染物質の排出規制が強化された450cntrシナリオであったとしても日本の環境基準(15 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )を超過しており、東アジア地域のPM<sub>2.5</sub>汚染の包括的な改善には一層の排出削減が必要であることが示唆された。

### (3) 国際モデル間比較プロジェクト(HF-HTAP)に準拠した実験

TF-HTAPによるモデル相互比較プロジェクト仕様に準拠した実験の結果は、他機関モデルの結果と共に解析が行われ、例えば、Jonson et al. (2010)<sup>16)</sup>では、オゾンゾンデ観測との比較を通して、モデルの観測に対するバイアスは寒候期に小さく光化学活性な暖候期に大きくなることや、遠隔領域に比べて汚染物質のソース域に近い方がモデルと観測の一致が良くなることなどが報告されている。一方、本サブテーマでは、TF-HTAPモデルによる地表オゾンの季節変化を地表オゾン観測データと比較し、モデルの一般的な傾向を調べた。図(2)-14は、TF-HTAPモデルのアンサンプル平均が濃度極大を持つ季節毎に色分けしたものであり、北半球中高緯度での春極大、欧州～中国



図(2)-14：濃度が極大となる季節の分布。緑(3-5月)、橙(6-8月)、紫(9-11月)、青(12-2月)で、色が濃いほど多くのモデルで共通する傾向を示す。丸印は観測による濃度極大の季節。

北部・北米東部の夏極大、熱帯域の冬極大などが多くのモデルに共通した傾向として見出された。これを観測データによる濃度極大季節と比較すると、日本周辺や北大西洋、北欧、北米西部では一致が見られる一方、欧州と北米東部では多くのCTMの夏極大に対して観測では春極大となっており、多くのCTMで今なお地表オゾンの季節進行が上手く表現できない地域のあることが分かった。

### (4) 今後の課題

#### 1) 東アジアの地表オゾンに関するSR関係の評価

表(2)-5に、本研究で推定された春季(3-5月)における、日本の地表オゾンに対する中国の寄与評価値をまとめた。それぞれにおいて中国領域の範囲や評価対象年が異なるため、直接的な比較は難しいが、同じソースレセプター領域の組合せに対して、評価手法の違いや計算の設定の違いで、SR関係の評価値に無視できない程度の差の生じることが分かった。しかしながら、差異を生む要因の解析はまだ十分ではなく、特に異なる評価手法間を用いた場合に差が生じる要因の解析は、これまでの地表オゾンに関するSR評価研究の解釈・理解を進める意味で重要であり、また、使用するモデルの空間スケールの違いに起因する差異の要因の解析は、今後より高い空間解像度でSR関係进行评估するような場合の基礎となる意味で重要だと考えられる。

表(2)-5：春季(3-5月)の日本に対する中国をソースとするオゾン寄与評価値のまとめ

モデル	評価手法	対象年	寄与評価値
CHASER	タグ付きトレーサー法(PBLのみ)	2000-05	12% (6.2ppb)
	タグ付きトレーサー法 (PBLのみ)	2000	9.6% (4.8ppb)
	エミッション感度法 (100%削減)	2000	9.4% (4.7ppb)
	エミッション感度法 (20%削減)	2005	8.6% (4.9ppb)
WRF-Chem	エミッション感度法 (20%削減)	2005	8.5% (4.7ppb)
CMAQ	エミッション感度法 (20%削減)	2005	7.5% (4.3ppb)

## 2) 東アジアにおける大気汚染物質の削減感受性評価

本研究により、春季における日本のオゾン汚染抑止には日中韓で30%程度の削減が有効との評価や、更に排出領域・セクター別の評価などを得ることができたが、これらの評価結果には、評価に用いた排出量データやCTM内の化学反応系にまつわる不確実な部分がまだ存在している。従って、本研究で得られた評価結果は、現時点では最新の成果ではあるものの、今後そうした不確実な部分が改善されていく中で再評価をしながらより確からしい評価になっていく性質のものと考えるのが妥当である。今後、不確実な部分を解消してゆくためには、最新の排出量データやCTMの利用に加えて、観測データを使用したバイアスの除去やデータ同化、他の研究機関(特に中国や韓国)による評価結果との比較などを進めていくことが肝要と考えられる。

## 5. 本研究により得られた成果

### (1) 科学的意義

東アジア内部を詳細に領域分けしたオゾンのSR関係の評価研究は本研究の実施以前はほとんど無く、結果として示された東アジアの地表オゾンに影響する領域の多様性と定量的な寄与割合は、TF-HTAPによる半球規模越境大気汚染に関する評価報告書(Dentener et al., 2011)<sup>13)</sup>にも引用され、東南アジアなど含めた東アジア地域のオゾン汚染構造の包括的な理解に大きく貢献した。また、東アジアの様々な地域で地表オゾンの増加が観測されている状況下、SR評価の長期実験を行ってオゾン汚染構造の長期変化を示したことは、単に各ソース領域のオゾン増加に対する寄与を示しただけでなく、増加を引き起こす物理的・化学的メカニズムの詳細理解に道を開くものである。地表オゾンのSR関係推定に関わる不確実性の要因を、手法の違いとモデルの違いに関して検討したことは、より確からしいSR関係の推定や推定結果の正しい解釈にとって確かな前進である。

本研究では、日本の大気質改善を進めるにあたって効果の高い領域や必要な削減量が評価されたが、その過程では、オゾンが前駆物質(NO<sub>x</sub>、NMVOC)の排出量変化に対して複雑に応答することや、同じ排出量変化を与えても使用するモデルによって応答が異なる場合があること、注目する指標によって感度の高い領域・セクターが異なることなどが明らかになった。このような知見は、今後大気汚染の変化を評価する場合にどのような実験設定やモデル、評価指標を用いるべきかの指針を与えるものと考えられる。また、大気化学モデリングの研究者・研究機関が多く参加する国際プロジェクトにおいてモデル計算データの集積に協力することは、各モデル共通の問題点を発見しそれに対処するための基盤を提供する意味で重要である。

### (2) 環境政策への貢献

#### <行政が既に活用した成果>

環境省の「越境大気汚染・酸性雨対策検討会」における長期モニタリング報告書(平成20~24年度)の作成過程において、本研究で明らかにした東アジアにおける地表オゾンのSR関係評価結果が引用され知見の取りまとめに活用された。また、日中韓環境省共催の「The 2nd Tripartite Workshop on Scientific Research of Photochemical Oxidant」(仁川・韓国、2009年12月1日)、東アジア酸性雨ネットワーク(EANET)の定期報告主執筆者会合(新潟、2010年6月29日)などにおいて研究成

果を紹介することにより、東アジアの広域大気汚染(特に地表オゾンの汚染構造)に関する知見をアジア地域の行政担当者や主導的な研究者に提供し、共通認識の醸成に資する貢献を行った。

#### <行政が活用することが見込まれる成果>

本研究で定量化が進んだ、東アジアにおける地表オゾンのSR関係および地表オゾンとPM<sub>2.5</sub>の削減感受性に関する情報は、今後の日本における大気質状況の更なる改善に向けた方策を考える上で基礎となる知見を提供したと考えられる。また、この知見は国内での活用のみならず、広く東アジア地域における大気汚染対策を検討する上での基礎の一部となり得るものであり、今後は他機関、他モデルを用いて行われた同様な定量評価結果と合わせて評価結果の不確実性を理解・低減させ、より確度の高い情報として活用されることが期待される。

## 6. 国際共同研究等の状況

### (1) TF-HTAPモデル相互比較

長距離越境大気汚染条約(CLR TAP)の下に設置された半球規模越境大気汚染に関するタスクフォース(TF-HTAP)(共同議長:Terry Keating・US-EPA・米国、Andre Zuber・European Commission・EU)が推進する、対流圏オゾンのSR関係評価に関するモデル間相互比較プロジェクトにCHASERの計算結果を一部提出し、2010年に発行された最終報告書(Dentener et al., 2011)<sup>13)</sup>にて他機関モデルとの比較結果や東アジアにおける地表オゾンのSR評価結果が引用された(例えば図4.17)。

### (2) ACCMIP

大気化学と気候に関するモデル相互比較プロジェクトACCMIP(Atmospheric Chemistry and Climate Model Inter-comparison Project)(共同議長:D. Shindell・NASA GISS・米国、J.-F. Lamarque・NCAR・米国)において、CHASERを用いた計算結果を提供し、他の参加モデル結果と合わせた解析結果が多数の学術論文として発表された他、それらの解析結果はIPCC(気候変動に関する政府間パネル)による第5次評価報告書(第1作業部会報告書)において多くの引用がなされた。

## 7. 研究成果の発表状況

### (1) 誌上発表

#### <論文(査読あり)>

- 1) T. NAGASHIMA, T. OHARA, K. SUDO, H. AKIMOTO: Atmos. Chem. Phys., 10, 11305–11322, doi:10.5194/acp-10-11305-20109077-9120 (2010)  
“The relative importance of various source regions on East Asian surface ozone”
- 2) A. NAKATANI, S. KONDO, S. HAYASHIDA, T. NAGASHIMA, K. SUDO, X. LIU, K. CHANCE, I. HIROTA: J. Meteor. Soc. Japan, 90, 207–222, doi:10.2151/jmsj.2012-204 (2012)  
“Enhanced mid-latitude tropospheric column ozone over East Asia: Coupled effects of stratospheric ozone intrusion and anthropogenic sources”
- 3) 大泉毅, 秋元肇, 金谷有剛, 永島達也, 櫻井達也, 大原利真, 佐藤啓市: 大気環境学会誌, 48, 181-187, (2013)  
「我が国の光化学オゾン汚染の8時間平均値による評価」
- 4) J.-F. LAMARQUE, (中略), T. NAGASHIMA, (中略), K. SUDO, (後略): Geosci. Model Dev., 6, 179-206, doi:10.5194/gmd-6-179-2013 (2013)

- “The Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project (ACCMIP) overview and description of models, simulations and climate diagnostics”
- 5) P. J. YOUNG, (中略), T. NAGASHIMA, (中略), K. SUDO, (後略): Atmos. Chem. Phys., 13, 2063-2090, doi:10.5194/acp-13-2063-2013 (2013)  
 “Pre-industrial to end 21st century projections of tropospheric ozone from the Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project (ACCMIP)”
- 6) A. VOULGARAKIS, (中略), T. NAGASHIMA, (中略), K. SUDO, (後略): Atmos. Chem. Phys., 13, 2563-2587, doi:10.5194/acp-13-2563-2013 (2013) “Analysis of present day and future OH and methane lifetime in the ACCMIP simulations”
- 7) Y. H. LEE, (中略), T. NAGASHIMA, (中略), K. SUDO, T. TAKEMURA, (後略): Atmos. Chem. Phys., 13, 2607-2634, doi:10.5194/acp-13-2607-2013 (2013)  
 “Evaluation of preindustrial to present-day black carbon and its albedo forcing from Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project (ACCMIP)”
- 8) D. T. SHINDELL, (中略), T. NAGASHIMA, (中略), K. SUDO, S. SZOPA, T. TAKEMURA, (後略): Atmos. Chem. Phys., 13, 2939-2974, doi:10.5194/acp-13-2939-2013 (2013)  
 “Radiative forcing in the ACCMIP historical and future climate simulations”
- 9) D. S. STEVENSON, (中略), K. SUDO, T. NAGASHIMA, (後略): Atmos. Chem. Phys., 13, 3063-3085, doi:10.5194/acp-13-3063-2013 (2013)  
 “Tropospheric ozone changes, radiative forcing and attribution to emissions in the Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project (ACCMIP)”
- 10) K. W. BOWMAN, (中略), T. NAGASHIMA, (中略), K. SUDO, (後略): Atmos. Chem. Phys., 13, 4057-4072, doi:10.5194/acp-13-4057-2013 (2013)  
 “Evaluation of ACCMIP outgoing longwave radiation from tropospheric ozone using TES satellite observations”
- 11) V. NAIK, (中略), T. NAGASHIMA, (中略), K. SUDO, (後略): Atmos. Chem. and Phys., 13, 5277-5298, doi:10.5194/acp-13-5277-2013 (2013)  
 “Preindustrial to present-day changes in tropospheric hydroxyl radical and methane lifetime from the Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project (ACCMIP)”

#### <その他誌上発表（査読なし）>

- 1) 永島達也：国立環境研究所ニュース、29(2)、9-11 (2010)  
 「大気汚染物質のソース・レセプター関係进行评估する」
- 2) 永島達也：国立環境研究所ニュース、31(5)、8-9 (2012)  
 「短寿命気候汚染物質：(Short-Lived Climate Pollutants: SLCPs)」

#### (2) 口頭発表（学会等）

- 1) T. NAGASHIMA, T. OHARA, K. SUDO, H. AKIMOTO: EANET Regional Scientific Work Shop on Acid Deposition in East Asia 2009, Tsukuba, Japan (2009)  
 “The relative importance of various source regions of ozone on East Asian surface ozone”

- 2) T. NAGASHIMA, T. OHARA, K. SUDO, H. AKIMOTO: Fourth Japan-China-Korea joint conference on meteorology, Tsukuba, Japan (2009)  
“Source attribution of surface ozone over East Asia with tracer tagging method”
- 3) 永島達也, 大原利眞, 須藤健悟, 秋元肇: 日本気象学会2009年秋季大会 (2009)  
「異なる手法を用いた東アジア対流圏オゾンの発生源別寄与推定の比較」
- 4) T. NAGASHIMA, T. OHARA, K. SUDO, H. AKIMOTO: The 2nd Tripartite Workshop on Scientific Research of Photochemical Oxidant, Incheon, Republic of Korea (2009)  
“Source attribution of surface ozone over East Asia with tracer tagging method”
- 5) T. NAGASHIMA, T. NOZAWA, T. HAYASAKA, K. KAWAMOTO: American Geophysical Union Fall Meeting 2009, San Francisco, USA (2009)  
“Solar Radiation and Cloud change in China Calculated in a 20th Century Simulation with a Climate Model”
- 6) T. NAGASHIMA, T. OHARA, K. SUDO, H. AKIMOTO: THU and NIES joint WS, Beijing, China (2010)  
“Source attribution of surface ozone over East Asia with tracer tagging method”
- 7) T. NAGASHIMA, T. OHARA, K. SUDO, H. AKIMOTO: International Workshop on Atmospheric Modeling Research in East Asia, Dalian, China (2010)  
“The relative importance of various source regions on East Asian surface ozone”
- 8) T. NAGASHIMA, T. OHARA, K. SUDO, H. AKIMOTO: EANET Periodic Report Lead Authors’ Meeting, Niigata, Japan (2010)  
“Source-receptor analysis of surface ozone in Southeast Asia”
- 9) 永島達也, 須藤健悟, 秋元肇, 黒川純一, 大原利眞: 第16回大気化学討論会 (2010)  
「東アジアの地表オゾンに対する発生源別寄与の長期変化」
- 10) 近藤沙綾子, 永島達也, 大原利眞, 須藤健悟, 秋元肇, 林田佐智子: 日本気象学会2010年秋季大会 (2010)  
「東アジアの対流圏オゾン気柱量に見られる高濃度帯 (E-TCO) の成因と季節変動の原因に関する研究」
- 11) T. NAGASHIMA, K. SUDO, H. AKIMOTO, J. KUROKAWA, T. OHARA: International Workshop on Atmospheric Modeling Research in East Asia, Hainan, China (2010)  
“Long term change in the relative contribution of various source regions on East Asian surface ozone”
- 12) T. NAGASHIMA, T. OHARA, K. SUDO, H. AKIMOTO: American Geophysical Union Fall Meeting 2010, San Francisco, USA (2010)  
“A Comparison of Different Methods in the Estimations of Source-Receptor Relationships for Tropospheric Ozone”
- 13) T. NAGASHIMA, K. SUDO, H. AKIMOTO, J. KUROKAWA, T. OHARA: Air Quality Modeling in Asia 2011 Conference, Seoul, Republic of Korea (2011)  
“Long term change in the relative contribution of various source regions on East Asian surface ozone”
- 14) 永島達也, 須藤健悟, 秋元肇, 黒川純一, 大原利眞: 日本気象学会2011年度春季大会 (2011)  
「東アジアの地表オゾンに対する発生源別寄与の長期変化」

- 15) T. NAGASHIMA, K. SUDO, H. AKIMOTO, J. KUROKAWA, T. OHARA: ACID RAIN 2011, Beijing, China (2011)  
“Long term change in the relative contribution of various source regions on East Asian surface ozone”
- 16) 永島達也, 須藤健悟, 秋元肇, 黒川純一, 大原利眞: 第52回大気環境学会年会 (2011)  
「日本の地表オゾンに対する発生源別寄与の長期変化」
- 17) T. NAGASHIMA, K. SUDO, H. AKIMOTO, J. KUROKAWA, T. OHARA: 3rd International Workshop on Atmospheric Modeling Research in East Asia, Chengdu, China (2011)  
“Source-Receptor analysis of surface ozone in Southeast Asia with tracer-tagging method”
- 18) 永島達也, 秋元肇, 大原利眞, 金谷有剛: 第17回大気化学討論会 (2011)  
「東アジア各地域における前駆物質削減に対する日本の地表オゾンの感度評価」
- 19) 永島達也: 日本気象学会2011年度秋季大会 (2011)  
「東アジア対流圏オゾンへの大陸間越境輸送の寄与推定-異なる手法を用いた推定結果の比較-」
- 20) T. NAGASHIMA, K. SUDO, H. AKIMOTO, J. KUROKAWA, T. OHARA: American Geophysical Union Fall Meeting 2011, San Francisco, USA (2011)  
“Long term change in relative contribution of various source regions on the surface ozone over Japan”
- 21) T. NAGASHIMA, H. AKIMOTO: IGAC/SPARC Global Chemistry-Climate Modeling and Evaluation Workshop, Davos, Switzerland (2012)  
“Seasonal variation of surface ozone in global chemical models: a comparison with observations”
- 22) 永島達也: 第53回大気環境学会年会酸性雨分科会 (2012)  
「広域大気汚染研究における大気化学モデル利用の現状と課題」
- 23) T. NAGASHIMA, M. NISHIZAWA, H. KAWASE, T. NOZAWA, K. SUDO, T. OHARA: The 12th International Global Atmospheric Chemistry (IGAC) Science Conference, Beijing, China (2012)  
“An estimation of future change in surface ozone over East Asia under RCPs scenarios”
- 24) 永島達也, 秋元肇, 黒川純一, 竹村俊彦, 須藤健悟, 大原利眞: 第18回大気化学討論会 (2012)  
「IIASA 参照シナリオによる東アジア大気質の将来変動評価」
- 25) T. NAGASHIMA, H. AKIMOTO: American Geophysical Union Fall Meeting 2012, San Francisco, USA (2012)  
“Seasonal variation of surface ozone in global chemical models: similarities among models and differences from observations”
- 26) T. NAGASHIMA, H. AKIMOTO, J. KUROKAWA, T. TAKEMURA, K. SUDO, T. OHARA, Z. KILIMONT: 4th International Workshop on Atmospheric Modeling Research in East Asia, Kunming, China (2013)  
“An estimation of future change in air quality based on IIASA reference scenarios”
- 27) K. YAMAJI, K. IKEDA, M. TAKIGAWA, Y. KANAYA, T. NAGASHIMA: 4th International Workshop on Atmospheric Modeling Research in East Asia, Kunming, China (2013)  
“Model inter-comparison for evaluation on source sensitivities of PM<sub>2.5</sub> and ozone over East Asia”
- 28) T. NAGASHIMA, H. AKIMOTO: Meeting of the Task Force on Hemispheric Transport of Air Pollution, Geneva, Switzerland (2013)  
“Global Model Validation of Surface Ozone by the WMO/GAW WDCGG”

- 29) T. NAGASHIMA, K. SUDO, H. AKIMOTO, J. KUROKAWA, T. OHARA: IGAC/SPARC Chemistry-Climate Model Initiative (CCMI) 2013 Science Workshop, Boulder, USA (2013)  
“Long term changes in relative contribution of various source regions on the surface ozone over Japan”
- 30) T. NAGASHIMA, T. OHARA, K. SUDO, H. AKIMOTO: Workshop on Atmospheric Composition and the Asian Summer Monsoon (ACAM), Kathmandu, Nepal (2013)  
“Source-Receptor analysis of surface ozone in Southeast Asia with global CTM”
- 31) 永島達也, 秋元肇, 黒川純一, 竹村俊彦, 須藤健悟, 大原利眞: 第54回大気環境学会年会 (2013)  
「IIASA参照シナリオによる東アジア大気質の将来変動評価」
- 32) 永島達也, 秋元肇, 大原利眞, 金谷有剛: 第19回大気化学討論会 (2013)  
「東アジアにおける地表オゾンのセクター別削減感受性評価」
- 33) T. NAGASHIMA, J. KUROKAWA, K. SUDO, T. OHARA, H. AKIMOTO: American Geophysical Union Fall Meeting 2013, San Francisco, USA (2013)  
“Change in the near future surface air quality over East Asia under different assumptions in the future emissions of SLCPs”
- 34) T. NAGASHIMA, H. AKIMOTO, T. OHARA, Y. KANAYA: 5th International Workshop on Atmospheric Modeling Research in East Asia, Xiamen, China (2014)  
“Source-receptor relationship of ground level ozone and PM<sub>2.5</sub> for different anthropogenic emission sectors in East Asia”
- 35) T. NAGASHIMA: Progress of S-7-1: Toward an Integrated Approach to Co-benefits in Asia: Building Bridges and Making Connections, Yokohama, Japan (2014)  
“Quantification of Ozone and Aerosol Pollution in East Asia and the Hemisphere Synthesizing Numerical Modeling and Observation”
- 36) 永島達也, 秋元肇, 黒川純一, 須藤健悟, 大原利眞: 山地森林域の生物・環境モニタリング第8回ワークショップ (2014)  
「東アジアの地表オゾンに関する将来シナリオ評価」

### (3) 出願特許

特に記載すべき事項はない。

### (4) シンポジウム、セミナー等の開催（主催のもの）

特に記載すべき事柄はない。

### (5) マスコミ等への公表・報道等

- 1) 月刊化学 (2013年3月号、化学同人、6頁、「越境大気汚染の実像に迫る」(著者: 金谷有剛))にて成果の一部が紹介される。
- 2) 日経サイエンス (2013年5月号、日経サイエンス、5頁、「越境大気汚染を正しく理解する」(著者: 金谷有剛))にて成果の一部が紹介される。

## (6) その他

特に記載すべき事項はない

## 8. 引用文献

- 1) T. J. KEATING, A. ZUBER (Eds.): Air Pollut. Stud. No. 16, U. N. Econ. Comm. for Europe (UNECE), Geneva, Switzerland (2007)  
“Hemispheric transport of air pollution 2007 interim report”
- 2) K. SUDO et al.: J. Geophys. Res., 107(D17), 4339, doi:10.1029/2001JD001113 (2002)  
“CHASER: A global chemical model of the troposphere: 1. Model description”
- 3) Y. WANG et al.: J. Geophys. Res., 103(D9), 10757–10767 (1998)  
“Global simulation of tropospheric O<sub>3</sub>-NO<sub>x</sub>-hydrocarbon chemistry: 3. Origin of tropospheric ozone and effects of nonmethane hydrocarbons”
- 4) K. SUDO, H. AKIMOTO: J. Geophys. Res., 112, D12302, doi:10.1029/2006JD007992 (2007)  
“Global source attribution of tropospheric ozone: Long-range transport from various source regions”
- 5) E. KALNAY et al.: Bull. Amer. Meteor. Soc., 77, 437–470 (1996)  
“The NCEP/NCAR 40-year reanalysis project”
- 6) T. OHARA et al.: Atmospheric Chemistry and Physics, 7, 4419-4444 (2007)  
“An Asian emission inventory of anthropogenic emission sources for the period 1980–2020”
- 7) J. G. J. OLIVIER et al. (eds.), A. A. Balkema Publishers/Swets & Zeitlinger Publishers, Lisse, The Netherlands, 33–78 (2001)  
“Global emissions sources and sinks”
- 8) M. G. SCHULTZ et al.: Global Biogeochem. Cycles, 22, GB2002, doi:10.1029/2007GB003031 (2008)  
“Global wildland fire emissions from 1960 to 2000”
- 9) D. W. BYUN, K. L. SCHERE: Applied Mechanics Reviews, 59, 51-77 (2006)  
“Review of the governing equations, computational algorithms, and other components of the Models-3 Community Multiscale Air Quality (CMAQ) modeling system”
- 10) G. A. GRELL et al.: Atmos. Environ., 39, 6957- 6975 (2005)  
“Fully coupled ”online” chemistry within the WRF model”
- 11) J. COFALA et al.: IR-06-023, International Institute for Applied Systems Analysis (IIASA), Laxenburg, Austria (2006)  
“Scenarios of world anthropogenic emissions of air pollutants and methane up to 2030”
- 12) IEA: OECD/International Energy Agency, Paris, France (2009)  
“World Energy Outlook 2009”
- 13) F. DENTENER et al. (Eds): Air Pollut. Stud. No. 17, UNECE, Geneva, Switzerland (2011)  
“Hemispheric Transport of Air Pollution 2010: Part A - Ozone and Particulate Matter”
- 14) T. NAGASHIMA et al.: Atmos. Chem. Phys., 10, 11305–11322, doi:10.5194/acp-10-11305-20109077-9120 (2010)  
“The relative importance of various source regions on East Asian surface ozone”

- 15) A. NAKATANI et al.: *J. Meteor. Soc. Japan*, 90, 207–222, doi:10.2151/jmsj.2012-204 (2012)  
“Enhanced mid-latitude tropospheric column ozone over East Asia: Coupled effects of stratospheric ozone intrusion and anthropogenic sources”
- 16) J. E. JONSON et al.: *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 5759-5783, doi:10.5194/acp-10-5759-2010 (2010)  
“A multi-model analysis of vertical ozone profiles”

### (3) 化学気候モデルによる全球大気汚染と温暖化影響の評価

名古屋大学 大学院環境学研究科

須藤 健悟

<研究協力者>

(独) 国立環境研究所

永島 達也

九州大学 応用力学研究所

竹村 俊彦

平成21～25年度累計予算額：22,861千円

(うち、平成25年度予算額：5,819千円)

予算額は、間接経費を含む。

#### [要旨]

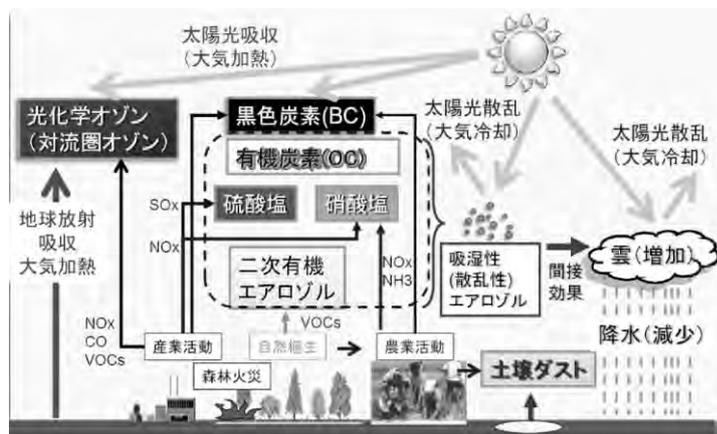
対流圏オゾンやブラックカーボン(BC)などの短寿命大気汚染物質(SLCPs)に着目し、これらの分布変動による、全球規模の大気汚染(大気質変動)および地球温暖化への影響について、化学気候モデルを用いた統一的な実験・評価を行った。さらに、各将来予測シナリオに従った実験を実施し、硫酸塩などの吸湿性エアロゾルも含め、総合的な気候影響評価を行い、気候変動政府間パネル(IPCC)の第5次報告書(IPCC,2013)に貢献した。本研究では、化学・エアロゾル気候モデル中の大気化学とエアロゾルの相互作用に関するスキーム改良・精緻化とその検証を行いながら(H21～24年度)、各SLCPs成分の放射強制力の推定・評価を実施した(H22～24年度)。この結果、オゾンやBCなどの加熱性SLCPsの放射強制力の定量的評価の精度が向上し、とくにBCについては、硫酸などの水溶性物質による被覆過程がBCの加熱効果に大きく影響しており、BCの排出単体でみた場合、BCは $\sim 0.7 \text{ W m}^{-2}$ の強い加熱を及ぼしている実態を明らかにした。本モデルを用い、IPCC第5次報告書に関連した化学気候モデルの相互比較プロジェクト(ACCMIPおよびCCMI)の実験にも参加し、各種放射強制力の推定精度向上に寄与した。また、国際応用システム分析研究所(IIASA)の各種排出シナリオに従い、2030年～2050年を対象とした近未来予測を実施し、大気汚染低減と温暖化の抑制・遅延の観点からそれぞれのシナリオを評価した(H23～H25年度)。この結果、SLCPsの排出削減によってオゾンやPM等による大気汚染の低減が、また加熱性SLCPs(オゾンおよびBC)の減少からは温暖化抑制効果がそれぞれ期待できることが定量的に示された。しかしながら、硫酸塩などの冷却性エアロゾルの減少によって、気候に正の影響(加熱)が及ぼされ、加熱性SLCPs減少による温暖化抑制効果を打ち消してしまう可能性があることを明らかにした。

#### [キーワード]

オゾン、エアロゾル、大気汚染、温暖化予測、化学気候モデル

#### 1. はじめに

気候変動には、二酸化炭素(CO<sub>2</sub>)などの長寿命の温室効果気体(GHG)以外にも、オゾンや浮遊粒子(エアロゾル)などの大気汚染物質も深く関与していることが最近の研究により明らかになりつつある(IPCC第4次、5次報告書<sup>1),2)</sup>)。対流圏のオゾン(O<sub>3</sub>)やエアロゾルは、大気汚



図(3)-1. 光化学オゾンやエアロゾルなどの大気汚染物質の発生と気候への影響。

だけでなく太陽放射も吸収する重要な温室効果気体である。同時に、エアロゾルも、産業、森林火災、および土地利用変化などの人間活動により、全球的な増加をみせている。黒色炭素(BC: Black Carbon)は、石炭燃焼やバイオマス燃焼(森林火災、野焼き、木炭燃焼)などから大気に直接放出され、太陽光を吸収し大気を加熱する効果を持つ。一方で、同様に大気に放出される有機炭素、および二酸化硫黄( $\text{SO}_2$ )や $\text{NO}_x$ などから大気中で生成される硫酸塩( $\text{SO}_4^{2-}$ )や硝酸塩( $\text{NO}_3^-$ )などの吸湿性エアロゾル成分は太陽光を散乱・反射させ、地球に対して冷却効果を及ぼしている(直接効果)。また、これらの吸湿性エアロゾルは、雲核として機能するため、汚染によるエアロゾルの増加は、雲量の増加、雲粒径の減少、および雲の長寿命化を起し、雲の地球規模での反射率(アルビード)を増加させ、さらなる地球冷却効果を与えている可能性がある(間接効果)(Hansen and Sato, 2001<sup>3)</sup>; Takemura et al., 2005<sup>4)</sup>)。特に東アジア域での影響に注目した場合、これらのエアロゾルが夏季アジアモンスーンの挙動に影響を与える可能性が最近の研究により示唆されている。例えば、Ramanathan et al (2005)<sup>5)</sup>や Lau et al. (2006)<sup>6)</sup>らのモデル研究が示すように、アジア域(主にインド)から排出されたブラックカーボンおよび土壌ダストがチベット高原とその周辺上で特徴的な加熱パターンを形成し、この領域でのモンスーン循環・降水の時空間的パターンに影響を与えている可能性がある。

以上のように、大気汚染の気候影響には、オゾン・黒色炭素による加熱効果と、吸湿性エアロゾル等による冷却効果の両側面がある。大気汚染物質それぞれの増加が及ぼす全球平均の放射強制力について、これまでの推定結果をまとめたものが図(3)-2である(IPCC-AR4<sup>1)</sup>)。対流圏オゾンの放射強制力には、各前駆気体の増加がそれぞれ寄与しており、合計では約 $0.35 \text{ W m}^{-2}$ である。大気中の黒色炭素エアロゾルの増加による加熱は約 $0.4 \text{ W m}^{-2}$ であり、全球平均では、対流圏オゾンの強制力と同程度である。また、黒色炭素は雪面上に沈着すると、雪面の反射率(アルビード)を減少させ、さらなる正の放射強制力( $\sim 0.1 \text{ W m}^{-2}$ )を与えることにも注意が必要である。一方、直接効果により冷却を及ぼすエアロゾルは、硫酸塩( $\sim -0.4 \text{ W m}^{-2}$ )および有機炭素( $\sim -0.2 \text{ W m}^{-2}$ )が大きく、硝酸塩や土地利用変化に伴う土壌ダストの増加も無視できない( $\sim -0.1 \text{ W m}^{-2}$ )。エアロゾル・雲間接効果は、 $0.5 \text{ W m}^{-2}$ 以上の強い冷却を引き起こしていると推定されている。なお、これらの見積もりには大きな不確実性が存在しており、モ

染の主要な成分であり、太陽放射および地球放射を吸収・散乱し、気候に重要な影響を与える(図(3)-1)。地表付近および対流圏のオゾンには、部分的には成層圏オゾンが沈降したものが含まれるが、大部分は産業や森林火災などに伴って排出される窒素酸化物( $\text{NO}_x$ )、一酸化炭素( $\text{CO}$ )、および揮発性有機化合物(VOC)から光化学反応により生成される光化学オゾンであり、大気汚染により全球規模で増加が確認されている。対流圏オゾンは地球放射

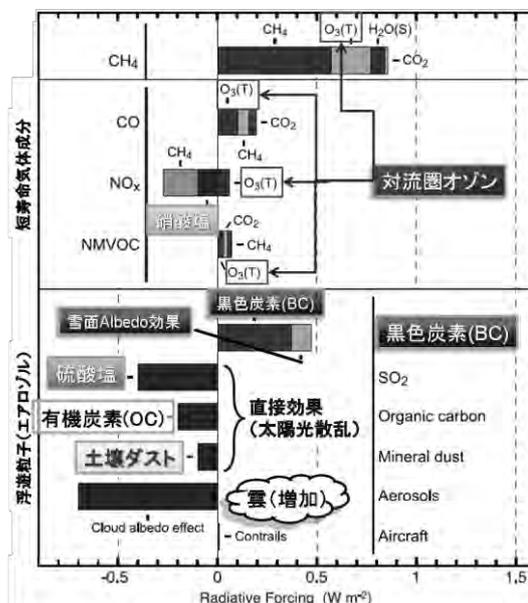
デル計算と観測とを融合したさらなる定量評価が必要である。

オゾンやエアロゾルなどの短寿命汚染物質の将来の気候変動への影響については、Shindell et al. (2008)<sup>7)</sup>などにより予測実験が行われている(図(3)-3)。しかしながら、図が示す通り、現状研究ではモデル間のバラツキが著しく、大気汚染の気候影響に関する統一的な理解に向けて、更に詳細なモデル開発・予測が必要である。また、このような予測実験は過去の変動要因および気候への影響過程の詳細な評価を前提・土台とすべきであり、またメタンとの相互作用の影響も無視すべきではない(Wild and Prather, 2000)<sup>8)</sup>。

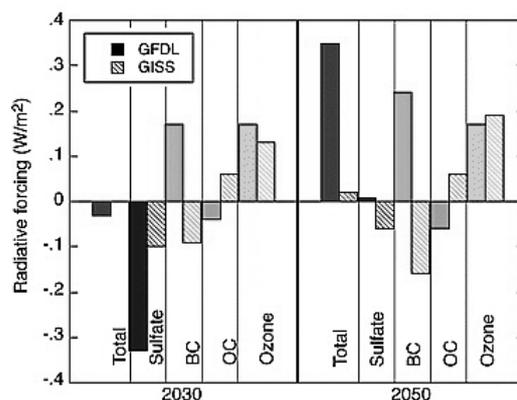
本研究では、化学気候モデルにおいて、大気汚染物質の変動が及ぼす、大気質および気候への影響について、全球的なモデル化・予測を行い、IPCC-AR5および関連プロジェクトを通じて政策決定に貢献する。本サブテーマでは、オゾン、BC、有機炭素、硫酸塩・硝酸塩、およびメタンなどの個別成分の役割にそれぞれ着目し、過去の変動プロセスの評価を行った上で、各シナリオに従った詳細な将来予測実験を実施し、大気質変動と温暖化影響について総合的な解析を行い、結果を整理する。

## 2. 研究開発目的

オゾンやエアロゾル等の大気汚染物質について、化学気候モデルCHASERとエアロゾル気候モデルSPRINTARSを用いて過去再現および将来予測実験を実施し、過去・将来の全球汚染物質分布を計算し、全球大気汚染および気候変動への影響を評価する。このため、まず、化学・エアロゾル気候モデル中で、二次有機エアロゾル(SOA)、硝酸塩、および黒色炭素(BC)等に纏わる大気化学とエアロゾルの相互作用の表現・スキームの開発・改良を行い、SLCPsの全球モデリングを精緻化する。開発・改良されたモデルを用い各種SLCPsの気候影響・放射強制力を個別に評価し、IPCC 第5次報告書に向けた気候予測実験に資する。また、テーマ2および3の研究成果により得られるコベネフィットを考慮した排出シナリオを参考にしながら、コベネフィットを考慮した大気汚染物質削減シナリオの温暖化防止効果を定量化・整理し、排出削減政策に向けた科学的知見を提供する。



図(3)-2. 各種大気汚染物質の増加(1750年から2000年の間)による全球平均の放射強制力( $W m^{-2}$ )<sup>1)</sup>。対流圏オゾンについては、各前駆気体( $CH_4$ 、 $NO_x$ 、 $CO$ 、 $VOC$ )それぞれの効果に分離して表示してある。



図(3)-3. IPCC SRESシナリオに従った各種大気汚染物質の変動による放射強制力の推定。(Shindell et al., 2008)<sup>7)</sup>。

### 3. 研究開発方法

#### (1) 化学・エアロゾル気候モデルの構築・改良

本サブテーマ研究では、全球化学・気候モデル CHASER (Sudo et al.,2002a,b<sup>9,10</sup>)、および全球エアロゾル・気候モデルSPRINTARS (Takemura et al.,2002<sup>12</sup>,2005<sup>4</sup>) を基本とした結合モデル研究を行う。本サブテーマでは、オゾンとエアロゾルおよび関連化学過程の変動を同時に評価することのできるモデルが必須であり、まず、このためのモデル開発・改良を行った。以下に化学・エアロゾル計算の結合・改良に関連する作業・研究について概説する。

#### 1) 化学モデルとエアロゾルモデルの結合

CHASERモデルおよびSPRINTARS モデルは、ともに東大・気候センター (CCSR)、国立環境研究所 (NIES)、および海洋研究開発機構・地球環境変動領域 (JAMSTEC/RIGC:旧FRCGC) で開発されている CCSR/NIES/FRCGC 気候モデル(MIROC)を土台としている。CHASERモデルでは、化学反応に加え、大規模移流輸送、積雲対流による鉛直輸送、人為・自然起源地表 emission、雷による NO<sub>x</sub> 生成、湿性/乾性沈着が考慮され、光化学過程では対流圏光化学の基本サイクル (O<sub>3</sub>-NO<sub>x</sub>-HO<sub>x</sub>-CO-CH<sub>4</sub>) と非メタン炭化水素(NMHCs)の酸化反応、および不均一反応が考慮されている (表(3)-1)。

表(3)-1. 化学気候モデルCHASERの概略。

基本モデル	CCSR/NIES/FRCGC GCM (5.7b/MIROC-4.0) : 気候モデル
空間解像度	水平 : T42(2.8°x2.8°), 鉛直 : 80 layers (地表~高度 80 km)
輸送過程	グリッドスケール (flux-form semi-Lagrangian)+積雲対流, 鉛直拡散
化学過程	56 化学種, 142 化学反応 (気相,液相,不均一*) (1)O <sub>3</sub> -HO <sub>x</sub> -NO <sub>x</sub> -CO-CH <sub>4</sub> , (2)非メタン炭化水素 (NMHCs) 酸化, (3)SO <sub>2</sub> , DMS 酸化 (硫酸塩エアロゾルシミュレーション) *不均一反応は N <sub>2</sub> O <sub>5</sub> , HO <sub>2</sub> , RO <sub>2</sub> 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 <sub>3</sub> , NO <sub>y</sub> については衛星データなどで prescribe)
光解離定数	GCM放射スキーム中の紫外光を用いオンラインで計算 ※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。
Emission (人為・自然)	産業・交通, 森林火災, 植生/土壌/海洋, 雷からの NO <sub>x</sub> (NO <sub>x</sub> , CO, CH <sub>4</sub> , C <sub>2</sub> H <sub>6</sub> , C <sub>2</sub> H <sub>4</sub> , C <sub>3</sub> H <sub>8</sub> , C <sub>3</sub> H <sub>6</sub> , アセトン, イソプレン, テルペン, メタノール,SO <sub>2</sub> , DMS, NH <sub>3</sub> )
Dry deposition (乾性沈着)	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]
Wet deposition (湿性沈着)	Rain-out (in-cloud), wash-out (below-cloud), ice-sedimentation Reevaporation & reemission processes considered.

CHASERモデルで計算されたオゾンや各オゾン前駆気体の分布は各観測値と整合的であり、オゾン生成・消滅過程の表現の妥当性が確認されている (Sudo et al., 2002b<sup>10</sup>)。一方、SPRINTARSでは硫酸塩 (SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>)、黒色炭素・有機炭素 (BC・OC)、土壌ダスト、海塩の各種エアロゾルの全球分布をシミュレートし (表(3)-2)、これらの大気放射、雲・降水過程への影響を計算する。地表からの排出源 (エミッション) に関しては、二酸化硫黄(SO<sub>2</sub>)・BC・OCの化石燃料燃焼 (工業・交

通・発電など）、森林火災、農業、住宅（暖房・調理等）からの排出が考慮されている。土壌ダストの発生は、気候モデルの陸域モデル中で風速、植生タイプ、葉面積指数(LAI)、土壌水分などの関数として与えられる。エアロゾルの気候・気象場への影響は、大気放射に対する直接効果（加熱・冷却）と、雲・降水過程に対する間接効果（雲核増加、雲粒子長寿命化による雲量増加に伴う冷却）に大別されるが、SPRINTARSモデルでは、これらについて、各種パラメタリゼーションを使用して表現を行う（表(3)-3）。

表(3)-2. SPRINTARSモデル概略。

トレーサー	BC, OC, 硫酸塩、土壌ダスト、海塩、SO <sub>2</sub> 、DMS
エミッション	BC/OC: バイオマスバーニング、化石燃料燃焼、生物燃料燃焼、農業 ※二次有機OC生成については、テルペンemissionから単純化して考慮。 SO <sub>2</sub> : 化石燃料燃焼、バイオマスバーニング、火山 DMS: 海洋プランクトン ダスト: GCM陸域（植生）モデル中で計算。 海塩: 地表風速の関数として計算。
大気輸送	フラックスフォーム・セミラグラジアン法、Arakawa-Schubert積雲対流
硫黄化学	DMS + OH, SO <sub>2</sub> + OH, S(IV) + {O <sub>3</sub> /H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> } ※、OH, O <sub>3</sub> , H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> : CHASERモデル <sup>9)</sup> による出力。
沈着deposition	(降水) 湿性沈着、(地表) 乾性沈着、重力降下

表(3)-3. SPRINTARSモデルにおけるエアロゾル直接・間接効果の取り扱い。

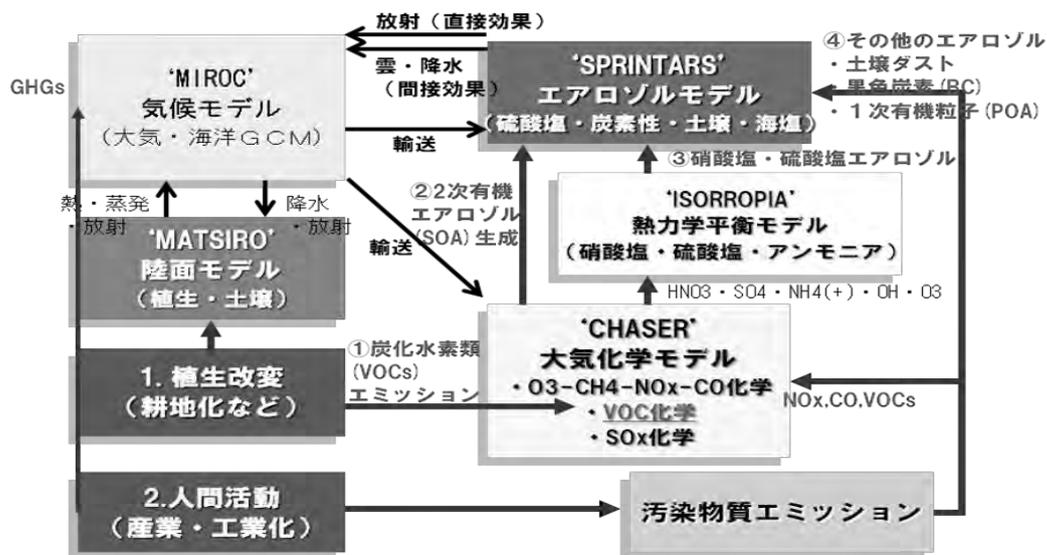
直接効果:	間接効果
<ul style="list-style-type: none"> <li>GCM放射スキームに結合。</li> <li>屈折率: 波長、各種エアロゾルの粒径分布、吸湿成長に応じて与える。</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>雲粒子数<math>N_c</math>: エアロゾル粒子数、粒径分布、鉛直流、曲率・溶質効果を考慮。</li> <li>雲粒有効半径:</li> </ul> $r = k \left( \frac{3}{4\pi\rho_w} \frac{\rho l}{N_c} \right)^{\frac{1}{3}} \quad \rho l: \text{雲水量}$ <ul style="list-style-type: none"> <li>降水生成率: <math>P = -\frac{dl}{dt} = \frac{\alpha \rho l^2}{\beta + \gamma \frac{N_c}{\rho l}}</math></li> </ul>

本研究では、CHASERとSPRINTARSの両モデルを結合し、エアロゾルとオゾン化学の同時計算を可能にした。図(3)-4に本研究で使用する化学・エアロゾル気候モデルの概略図を示す。なお、本化学・エアロゾル計算コンポーネントは、地球システム結合モデル(MIROC-ESM-CHEM)としても応用され、発展してきている<sup>13)</sup>。硫酸塩の生成過程の計算は、SPRINTARSでも行うことが可能であるが、大気化学場と有機的に連携したシミュレーションを実施するため、本研究ではCHASERの化学計算過程にて行う。本研究では、さらに、エアロゾル・サブモデル(硝酸塩・植物起源SOA生成)および成層圏化学過程の導入を行い、本モデル枠組みの精緻化を図った。

## 2) エアロゾル・サブモデルの導入

### a. 硝酸塩エアロゾル計算の導入

図(3)-4が示す通り、本研究では、硝酸塩エアロゾルの計算を導入するため、CHASER-SPRINTARS気候モデルにエアロゾル熱力学計算モジュールISORROPIA (Nenes et al., 1998<sup>14)</sup>) を実装した。硝酸塩は北米、欧州、中国などの汚染域で硫酸塩と同等の寄与を持っており、今後のNO<sub>x</sub>などの前

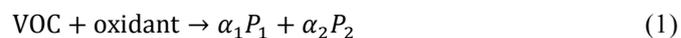


図(3)-4. CCSR/NIES/FRCGC気候モデルにおける、大気化学・エアロゾル計算の枠組み。

駆気体排出の変動（中国での増加など）に伴う分布変動が気候変動に影響することが考えられ、本研究のモデル計算においても適切に表現することが必要である。硝酸塩については、土壌ダストや海塩粒子も含んだ粗大モード（粒径1～50 $\mu\text{m}$ ）の成分も重要であるが、本研究では、ファインモード（粒径1 $\mu\text{m}$ 以下）に単体で存在する硝酸アンモニウム成分のみを気候影響の計算対象とする。CHASERによる硝酸塩および硫酸塩のシミュレーション結果は、欧州、北米、およびアジア域における地表観測ネットワーク(EMEPやEANETなど)で得られる時空間分布とも概ね整合的である。

#### b. 植物起源有機エアロゾル計算の導入

本研究では、さらに、植物起源の揮発性有機化合物（VOCs）からの2次的な有機エアロゾル生成の過程について、CHASERの化学計算とオンラインで連携した表現を導入した。VOCsからのSOA生成は、SOA反応生成スキーム(Kanakidou et al., 2005<sup>15</sup>)と同様の方法で計算し、本研究では、テルペン・イソプレン等のVOCsの酸化反応によるSOA生成（気相反応のみ）を考慮する。ここでは、前駆体として考慮するVOCs・化学反応の種類を拡大し、人為起源の有機エアロゾルの考慮も行えるようにした。本研究ではSOAの生成モデリングに2-product model<sup>16</sup>を採用した。2-product modelは各VOCsに対してOVOCsを2種の仮想的なOVOCsで代表させる方法で、パラメータの数が少なく計算が簡略であるのが特徴である。2-product modelにおける各VOCの酸化反応は以下のような式で表される。



ここで $P_1$ 、 $P_2$ はOVOC、オキシダント（oxidant）はOH、 $\text{O}_3$ 、および $\text{NO}_3$ を指す。上式の反応によって生成されたOVOCsの粒子化のプロセスについては、分配係数という各OVOCsにより異なるパラメータを用いることで熱力学的に各相の濃度を計算する（Pankow 1994a,b<sup>17,18</sup>）。本研究で考慮されるVOCsについては、植物起源VOCsはモノテルペン・イソプレンの2種、人為起源VOCsについてはベンゼン・トルエン・キシレンの3種である。VOCsのオキシダントとして働く物質は、モノテルペンはOH・ $\text{O}_3$ ・ $\text{NO}_3$ 、イソプレンはOH・ $\text{NO}_3$ 、芳香族化合物はOHのみを考慮するものとする。なお、モノテルペンについては本来ならば $\alpha$ ピネン、 $\beta$ ピネンなどそれぞれの化学特性を考慮して

パラメータを設定すべきであるが、本研究においては代表値として $\alpha$ ピネンのパラメータを使用している。同様にキシレンについても異性体を考慮せず、*m*-キシレンの値を代表として用いる。また、SOAの生成に際してNO<sub>x</sub>や湿度が与える影響や、液相で生成されるSOAは本実験では考慮されない。本モデルを用い、過去・現在を対象とした実験を行い、SOAの現状濃度および変動を診断した。SOAについては、現状では観測データが不足しているため、シミュレーションの系統的な検証は困難であるが、南米における観測（Artaxo et al., 2002<sup>19</sup>、Decesari et al., 2006<sup>20</sup>）や他のモデル研究（Heald et al., 2008<sup>21</sup>）と矛盾しないシミュレーション結果を得ている（北半球中緯度～高緯度の観測については、モデルは依然として過小評価傾向であり、都市域のSOA生成について、今後さらなるモデルの精緻化が必要と思われる）。

### 3) 成層圏化学反応過程の導入

本研究では、汚染物質としてのオゾン、すなわち対流圏におけるオゾンの分布変動に特に着目するが、対流圏のオゾンは、成層圏オゾン層の変動や気候変動に伴う成層圏オゾンの対流圏への降下量の変動に少なからず影響を受ける（Sudo et al., 2003<sup>22</sup>）。将来の対流圏オゾ変動を議論するに際にも、現状で予測される成層圏オゾンの回復が持つ役割は無視できない要因と考えられる。IPCC-AR5に向けた関連プロジェクトにおいても、オゾンについては、対流圏だけでなく成層圏と一体化した変動議論が求められつつある。このような状況を鑑み、対流圏化学中心であったCHASERに成層圏化学を導入し、成層圏と対流圏オゾンの同時評価を可能とした。

本研究では、成層圏オゾン化学も含めた議論を行うため、CHASERモデルに成層圏化学過程を導入する作業を行った。まず、本モデルに以下の化学種をトレーサーとして新たに導入した。

- |   |                   |                      |  |
|---|-------------------|----------------------|--|
| • ClO <sub>x</sub> = Cl + ClO + (ClO) <sub>2</sub> + OClO | • HOBr            | • CH <sub>3</sub> Br | • CFC11, CFC12, CFC113                 |
| • Cl <sub>2</sub>   | • HBr             | • H1211              | • HCFC22                               |
| • BrO <sub>x</sub> = Br + BrO                             | • Br <sub>2</sub> | • H1301              | • CH <sub>3</sub> Cl, CCl <sub>4</sub> |
| • ClONO <sub>2</sub> , BrONO <sub>2</sub>                 | • BrCl            | • OCS                | • CH <sub>3</sub> CCl <sub>3</sub>     |

このうち、CFCs, HCFCsなどのハロゲン前駆物質に関しては、年々ごとの地表濃度を与え、実験を行う。また、これらの化学種について、オゾン破壊に関する化学反応系（約50本）をモデルに新しく導入した。この際、成層圏における光解離過程の正確な表現を行うため、CHASERで使用されていた放射スキームを新version(MSTRN-X, Sekiguchi 2006)に更新した。さらに、極域におけるオゾンホール（オゾン破壊）を表現するため、Akiyoshi et al. (2004)<sup>23</sup>によるPSCs（極域成層圏雲）生成スキーム、およびPSCs上の不均一反応スキーム<sup>24</sup>も導入した。モデル最上層の高度はCHASERでは、40 kmであったが、本研究では、約80 kmとした。

### 4) BC被覆過程

大気に放出されたBC粒子は大気中において水溶性物質によって被覆されることで、疎水性から親水性に変化することが知られている。このようなBCの被覆による変質過程は、大気中でのBCの降水による除去効率などに影響するため、BCの全球分布および放射強制力を左右しうる。

本研究では、硫酸や有機ガス成分によるBC表面の被覆過程を表現するため、まず簡易的な変質スキーム<sup>25</sup>（Liu et al., 2011）の導入を行った。従来の方法では、北極域を含む北半球高緯度域で、観測されたBC濃度や季節性をうまく再現できていないことが確認されていた。本研究では、BCの

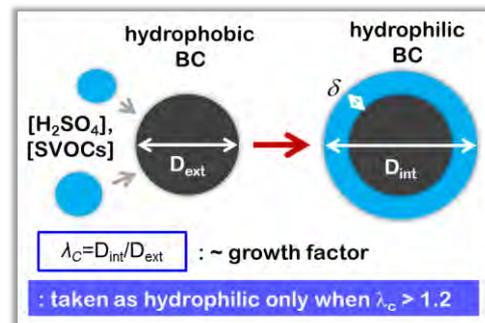
変質過程として、硫酸ガスだけでなく、揮発性炭化水素類（VOCs）の酸化に伴う有機成分も考慮し、これらの凝縮によるBC表面の被覆を陽に計算するスキームを開発・導入した（図(3)-5）。ここでは、BC表面の被覆の時定数  $k$  ( $s^{-1}$ ) は、以下で表現される。

$$k = \frac{1}{\tau} = 4\pi D_g \cdot \frac{R_{BC}([SVOCs]_g + [H_2SO_4]_g)}{4\pi R_{BC}^2 \delta \cdot \frac{\rho}{M} \cdot N_A} \quad (2)$$

$$[H_2SO_4]_g = \frac{k_1[OH][SO_2]}{\beta_1 + 4\pi D_g \cdot R_i} \quad (3)$$

$$[SVOCs]_g = \frac{P(SVOCs)}{\beta_2 + 4\pi D_g \cdot R_i} \quad (4)$$

$R_{BC}$ はBC粒子の半径、 $R_i$ は各エアロゾル粒子の半径を表し、 $D_g$ は分子拡散係数を表す。また、 $\beta_1$ 、 $\beta_2$ はそれぞれ、硫酸とSVOCsの均一核生成速度の速度定数 ( $s^{-1}$ ) である。本スキームでは、排出時点で外部混合BCの割合を80%と、従来よりも高めの値に設定し、大気中で非水溶性から水溶性に時間変化していく過程を表現する。現状では、BC表面を被覆する水溶性物質の厚み（～吸湿成長因子: growth factor）が元々のBCのサイズの20%となった時点で、水溶性の内部混合BCに変化したとみなす。このため、BCの変質速度は、水溶性成分の発生が多いほど、また、BC濃度が小さいほど、増加する傾向を持つ。このような被覆スキームの導入に加えて、BCの雪氷面上への沈着過程や、降水除去過程（CCN活性度）、およびBC排出の季節性などについても改良を行った。本研究では、被覆過程を含まない標準モデルと、上述のような新旧2種類のBC被覆スキームを導入したモデルによる実験を行い、それぞれの結果について、観測データを用いた評価を行った。

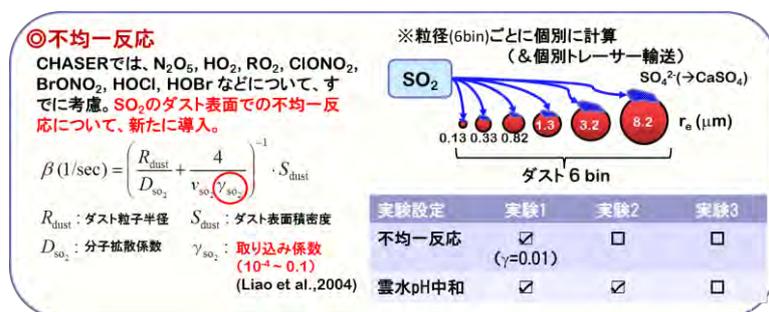


図(3)-5. 疎水性BC表面の水溶性物質による被覆過程と水溶性BCへの変化。

## 5) 土壌ダストと硫黄成分の相互作用の導入と評価実験

電子顕微鏡等による観測結果から、黄砂などのダスト表面上に硫酸成分が硫酸カルシウム( $CaSO_4$ )として存在していることが示され、ダスト表面上で $SO_2$ が不均一反応によって酸化される可能性があることが指摘されている<sup>25)</sup>。本研究では、このようなダスト表面の変質過程に着目し、ダスト表面上で

の不均一反応による二酸化硫黄 ( $SO_2$ ) の硫酸 ( $SO_4^{2-}$ ) への変換過程をモデルに導入し、ダストがおよぼす硫酸塩エアロゾルの全球分布に対する影響の評価を行った。まず、ダスト表面での $SO_2$ の不均一反応による硫酸塩の生成、および硫酸塩粒子のダスト表面への凝集過程をモデルに導入



図(3)-6.ダスト表面における $SO_2$ の不均一反応の導入と影響評価実験の設定。

し（図(3)-6）、硫酸成分がダスト表面を被覆することによる影響を数値実験により検討した

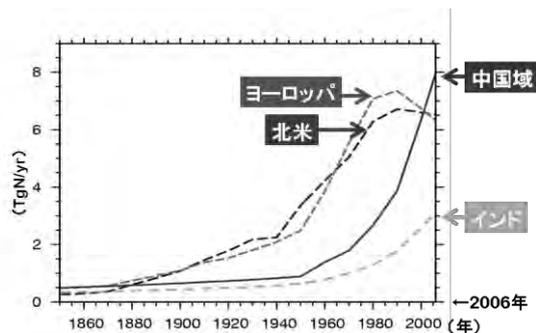
### （２）IPCC-AR5関連プロジェクトに向けた実験（ACCMIP）

精緻化された化学・エアロゾル気候モデルを用い、IPCC第5次報告書(IPCC-AR5) に向けたプロジェクト実験のための準備と初期計算を行った。まず、AC&C（Atmospheric chemistry and climate）のモデル間相互比較プロジェクト(ACCMIP)の実験を実施するため、IPCC-AR5に向けて構築されている RCP emission database (<http://www.iiasa.ac.at/web-apps/tnt/RcpDb>)のデータについて、サブテーマ（２）と連携し、前駆気体（NO<sub>x</sub>,CO,VOCs,SO<sub>2</sub>など）の排出量データの整備を行った。次に、本サブテーマで構築・改良された化学・エアロゾル気候モデル（MIROC大気海洋結合モデル版）を用い、<http://www.giss.nasa.gov/projects/accmip/specifications.html>の実験仕様に従って過去・将来の全球オゾン場およびエアロゾル場の再現・予測実験を実施し、サブテーマ（２）と連携し解析を行った。オゾンおよびBCの変動については個別に放射強制力の見積りも行った。また、AC&Cと同様に、HTAP/LRTAP（Hemispheric/Long-Range Transport of Air Pollution）プロジェクトの各種シナリオ感度実験 (<http://www.htap.org/>) についても、実験を行い、結果について整理を行った。

### （３）各種SLCPsの過去再現実験と気候応答実験

上述のIPCC-AR5関連実験と並行して、過去数十年間のオゾン変動およびエアロゾル変動について、モデル中の気象場を客観解析データに緩和（ナッジング）させ、できるだけ現実的な再現実験を行い、オゾン・エアロゾル成分の変動要因を詳細に解析し、将来予測実験の不確定性低減を試みた。特に対流圏オゾンと関連化学種に関し、CHASERを用い、1970～2008年を対象とした再現実験を実施し、再現結果についての初期的な解析を行った。まず、全球オゾン分布の再現実験に必要な入力データ（オゾン前駆気体・メタン排出、ハロゲン化学種濃度、海面水温分布等の過去データ）を整備した。前駆気体(NO<sub>x</sub>,CO,VOCs)やメタンの過去の排出については欧州のグループが RETRO(過去40年間)や EDGAR/HYDE(過去100年間)などのプロジェクトを通じてまとめたデータを取得し CHASER モデル用に加工した（図(3)-7）。

まず全てのオゾン変動要因を考慮した実験を行い、その結果に関して過去の観測データとの比較を行い評価した。特に各変動要因(大気汚染・ハロゲン量増加・気候変動)が顕著に共存する1980年以降のオゾン濃度トレンドについて、対流圏については地表・オゾンゾンデ観測および TORデータ（TOMS 衛星観測によるオゾン全量から成層圏オゾン量を差し引いて導出した対流圏オゾン量）、成層圏については TOMS 等の衛星観測の各データを用いて詳細に評価した。また、より最近(1995年以降)の対流圏関連物質(NO<sub>x</sub>やCO)の変動についても GOME、OMI、および MOPITT などの対流圏化学衛星データとの比較を行った。本実験では、対流圏化学過程について、オゾンだけでなく、重要な温室効果気体であるメタンについても解析対象とし、エミッション変動および気候変動（温暖化）の影響を見積もつ



図(3)-7. 各領域（北米、ヨーロッパ、中国域、インド域）における NO<sub>x</sub> エミッション（TgN/yr）の経年変化。

た。

過去の気候変動の原因や、今後の気候変動に対する各種変動要因の寄与を理解するためには、まず放射強制力を評価しておくことが重要である。本研究では、上述した過去のエミッションデータやIPCC第5次報告書（AR5）に向けて整備された化学・エアロゾル気候モデル（上述）とRCP過去エミッションデータ<sup>26)</sup>を用いて、各種短寿命成分の変動とその放射強制力（RF）を詳しく評価した。各種成分について、1850～2000年の変動分を対象に、CHASER-SPRINTARモデルによりRF評価実験を行った。エアロゾルやオゾン前駆気体の1850/2000年時の排出については、IPCC-AR5のRCPシナリオ実験の一環で作成された過去排出量データ<sup>26)</sup>などを使用した（気象場については2001～2008年の8年間を対象とし、この間の平均RFを算出）。また、須藤他（2010）<sup>27)</sup>と同様に、土地利用変化による植物起源VOCs発生量の変動とこれに伴う二次有機エアロゾル（SOA）の変動の影響もRFとして評価した（ここでのSOA変動計算には、上述のSOA生成スキームの精緻化を含むモデルで行った）。ここで用いた過去排出量データは上述（2）のACCMIP実験で共通して使用されているものであり、本研究で得られる各種放射強制力の評価は、ACCMIP実験の解釈としても大変有用であり、後の議論に使用する。

さらに、放射強制力に加え、各種短寿命物質の過去から現在までの変動に対する気候応答を求める実験も実施した。ここでは、放射強制力の評価に用いたものと同じの排出データを使用し、80年間の数値積分を行うことで、過去・現在の短寿命物質（オゾン・エアロゾル）の濃度変動に対する気候の応答を計算し、地表気温や降水量などの変動を解析し、CO<sub>2</sub>などの長寿命温室効果気体の変動に対する気候応答と比べて、どのような違い（或いは類似性）があるかについて評価した。結果の一部については、本推進費のS-7-3(6)と連携し、気候応答や感度の物質ごとの違いや地域性を詳しく検討した。

#### （4）近未来予測実験

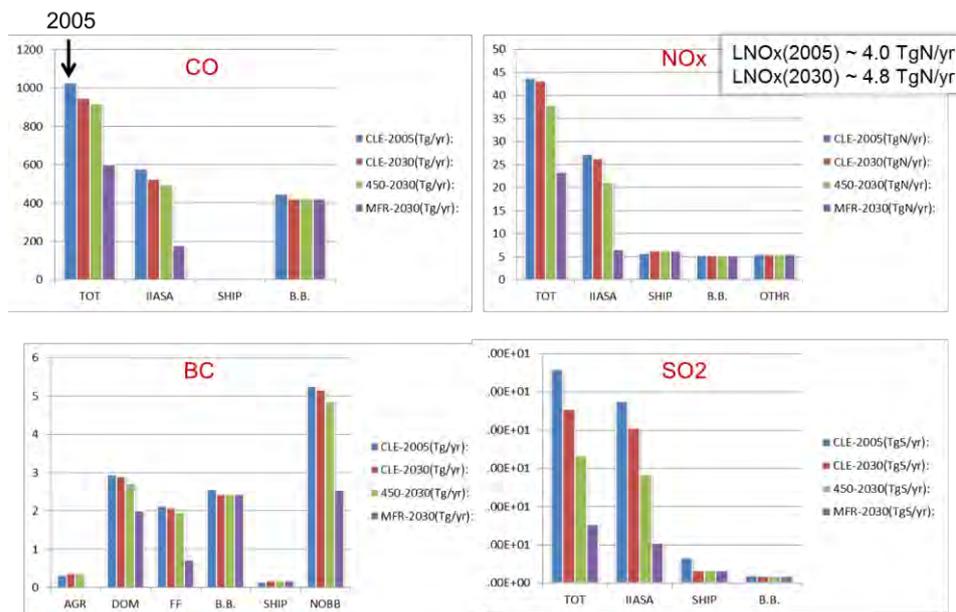
表(3)-4. 2005、2030年を対象としたIIASAの基本エミッション・シナリオ。

シナリオ	説明	備考
2005	2005年対象の標準シナリオ	
CLE	2030年対象(Current Legislation)	高エミッションケース
450	2030年対象(CO <sub>2</sub> 450ppm安定化シナリオ)	中エミッションケース
450C	2030年対象(CO <sub>2</sub> 450ppm安定化シナリオ)	450のエミッションについて、アジア域のNO <sub>x</sub> , VOCs, CH <sub>4</sub> エミッションをさらに50%削減
MFR	2030年対象(最大限削減シナリオ)	低エミッションケース

化学・エアロゾル気候モデルと国際応用システム分析研究所(IIASA)の各種排出シナリオを用いて、2030年を対象とした近未来予測を行い、大気環境および気候変動への影響について、シナリオごとに評価を行った。2030年時点の排出量については、CLEからMFRの高～低排出量の各ケースを想定している（表(3)-4）。中排出量には、CO<sub>2</sub>濃度を450ppmで安定化させるシナリオ（450）を使用した。アジア域で排出削減を強化したシナリオ(450C)も検討した。各シナリオについて、8年間の積分を実施し、オゾンとエアロゾルの直接効果については、最後の3年間を、メタンについては最後の年の計算結果を用いて放射強制力の評価を行った。CO<sub>2</sub>、N<sub>2</sub>O、CFCsなどのGHGs濃度は RCP4.5 シナリオを用いて与え、成層圏オゾン変動もCFCs濃度を反映させながら計算を行っ

た。また、海面水温や海氷の分布は、MIROC-ESM-CHEMモデルでRCP4.5シナリオにより事前に計算されたデータを用いて与えた。

図(3)-8に本研究で使用するIIASA各シナリオの全球排出総量を示す。どの物質についても、CLE、450、MFRの順で排出量が段階的に小さくなり、とくにMFRにおける排出削減が顕著である。モデルでは、雷によるNO<sub>x</sub>の生成も計算されているが、2005



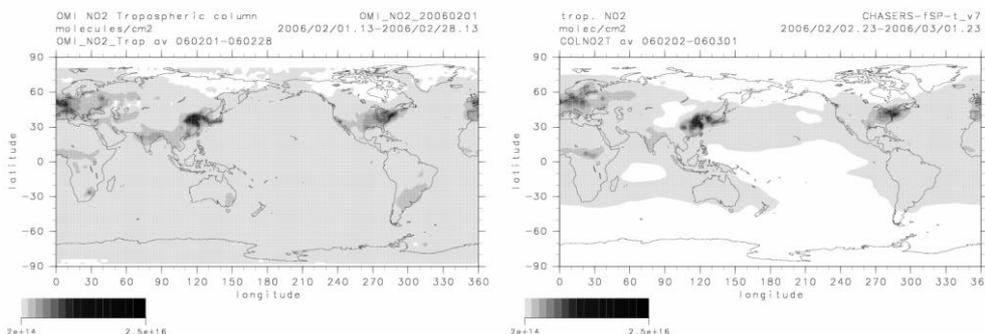
図(3)-8. IIASAの基本シナリオ(2005,CLE/450/MFR)によるCO、NO<sub>x</sub>、BC、SO<sub>2</sub>の全球エミッション量。

～2030年の温暖化影響によって積雲対流活動が活発化するため、2030年の雷によるNO<sub>x</sub>排出量は、2005年から 20% 程度増加している。IIASAシナリオを用いた実験としては、上述の近未来予測のほかに、アジア域排出削減に対する気候や大気環境の応答を評価する、感度実験も実施した。

#### 4. 結果及び考察

##### (1) 化学・エアロゾル計算の検証

図(3)-9はNO<sub>2</sub>の対流圏カラム分布について、CHASERの計算結果をOMI衛星観測データにより比較・評価した例である。衛

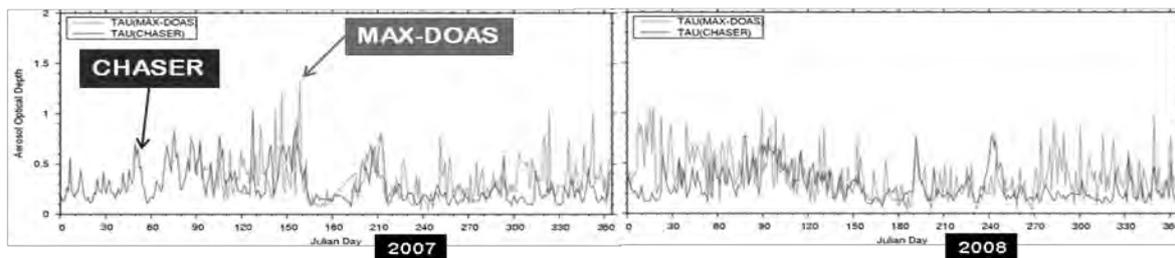


図(3)-9. OMI衛星観測によるNO<sub>2</sub>カラム分布(左)とCHASERモデルによるNO<sub>2</sub>カラム計算(右)。2006年2月を対象。

星データに見られる欧州、中国、北米におけるNO<sub>2</sub>ピークがモデルにより良く再現されていることがわかる。しかしながら、中国においては、20～30%の過小評価傾向が確認された。北アフリカにおいては、衛星、モデルともにNO<sub>2</sub>ピークを示しており、モデル中で森林火災による発生が妥当

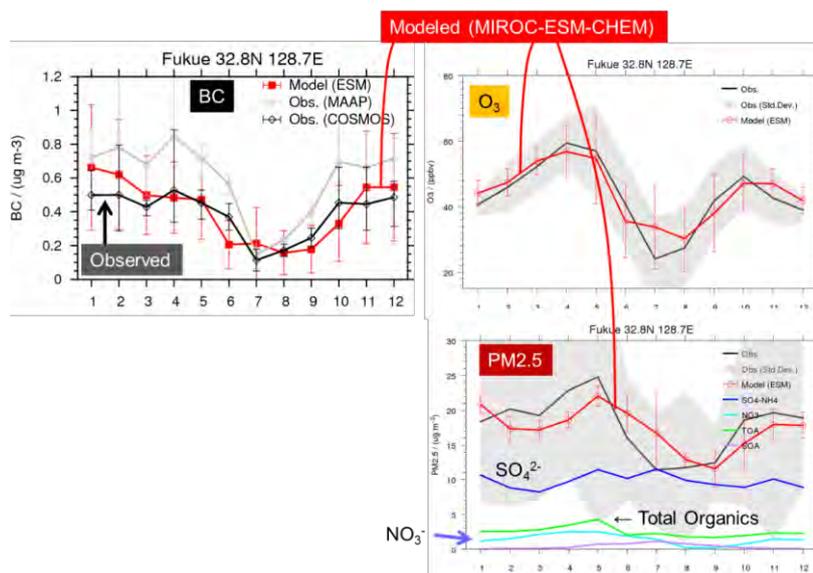
に表現されていることがわかる。OMI と GOME、両衛星データともに、CHASER による  $\text{NO}_2$  カラム分布は全球的には弱い過小評価傾向を持つことを示した。この他、オゾンや  $\text{CO}$  についても、GOME、OMI、TES、MOPITT各衛星データによる全球分布と詳細な比較を行い、CHASER化学計算は観測と定量的にも概ね整合的であること確認した。

エアロゾル光学パラメータについては、光学的厚さ (AOT) やliquid water path などの変数について、MODIS 衛星観測によるデータと比較を行った。この結果、本研究による AOT 計算は、衛星観測から得られる AOT 分布と定量的にも良く合致することが確認された。



図(3)-10. CHASERモデルおよびMAX-DOAS観測による沖縄・辺戸岬におけるエアロゾル光学的厚さの時系列 (2007-2008年)。

さらに、エアロゾル光学パラメータ (光学的厚さおよび消散係数) については、JAMSTECが実施している沖縄・辺戸岬におけるMAX-DOAS観測も利用して評価を行った (図(3)-10)。モデルの計算値はMAX-DOAS観測と概ね整合的であり、春季については、MAX-DOAS観測、CHASER



図(3)-11. CHASER・SPRINTARS (MIROC-ESM-CHEM) で計算された地表BC、 $\text{O}_3$ 、および $\text{PM}_{2.5}$  (赤実線) の検証。観測 (黒実線) : 長崎県・福江島での測定 (Kanaya et al.,2013<sup>28)</sup>)、モデルの $\text{PM}_{2.5}$ については、各種成分の寄与 (カラー実線) も示す。

ていることが確認された。

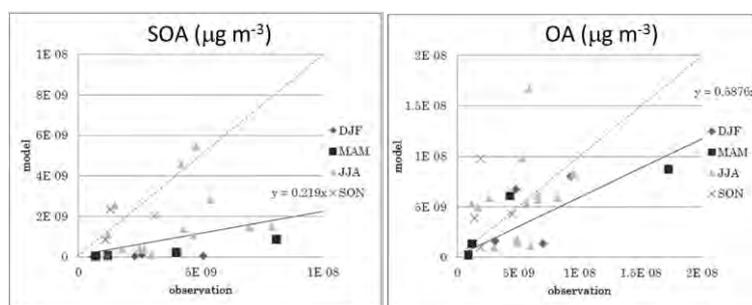
次に、長崎県福江島の観測<sup>28)</sup>で得られた地表BC、 $\text{O}_3$ 、 $\text{PM}_{2.5}$ とモデル結果との比較を示す。現状のモデルは、これらの濃度の季節変動を定量的にもよく捉えられていることがわかる。BCについ

た、モデルの計算値はMAX-DOAS観測と概ね整合的であり、春季については、MAX-DOAS観測、CHASERとともに、2008年よりも、2007年の方が高い光学的厚さを示し、日変動の振幅も大きい。また、モデルで計算される各種エアロゾルの寄与を確認すると、硫酸塩 ( $\text{SO}_4^{2-}$ ) の寄与が通年的に最も大きく、炭素性エアロゾル (BC+OC) は春季に硫酸塩と同程度の寄与を見せていた。また、ダストと硝酸塩 ( $\text{NO}_3$ ) は光学的厚さの全体的な時間変動に対して大きく寄与することはないが、2007年、2008年ともに、通年的に無視しえない寄与を持つ

では、これまでの研究・作業により導入されたBCの被覆過程（(3)項参照）が夏季の濃度極小に少なからず寄与していることも確認された。PM<sub>2.5</sub>については、硫酸塩（SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>）の寄与が支配的であるが、硝酸塩（NO<sub>3</sub>）や有機成分の寄与も重要であることが、モデル計算により示された。

この他、HIPPO（Hiapper Pole to Pole Observations）などの航空機観測データ、O<sub>3</sub>ゾンデ観測、および衛星観測によるデータを用いて系統的な評価を行った。この結果、現状のモデルは、加熱性SLCPsのうち、対流圏O<sub>3</sub>やBCの分布については、高度分布も含めて定量的にもよく再現することができているが（ただし、低緯度域・自由対流圏のBCには無視できない過大評価がみられた）、一酸化炭素（CO）やメタン（CH<sub>4</sub>）については、過小評価が目立つ結果となった。これは、現状モデル中で大気酸化能（OHラジカル）が過大評価されている可能性を示唆する結果である。

## （2）二次有機エアロゾルの計算と検証

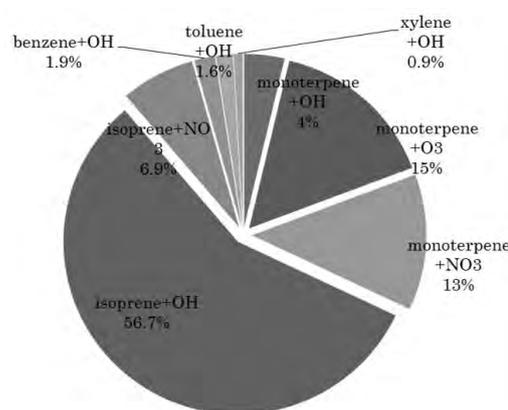


図(3)-12. CHASER-SPRINTARSモデルによる地表SOAおよび地表OAの観測との比較。

DJF、MAMに観測されたデータに関しては過小評価の傾向が強い。一方でPOAを含めたOA全体のプロットでは、相関係数は0.37で同様にバラつきがあるものの、SOAのプロットとは逆に、データによっては過大評価になっているものも多い。SOAの過小評価については本実験で考慮されていないVOCsエミッションによる生成や他の生成過程の存在といった要因が考えられるが、POAの排出に関しても何らかの不確実性がある可能性が示唆されたといえる。

図(3)-13は本研究で現在を対象に計算されたSOAの全球生成量の内訳(各生成反応別)を示す。本研究では、SOAの全球での生成量は25 Tg yr<sup>-1</sup>と計算され、これに対する寄与としては、植物起源イソプレンのOHによる酸化反応が約60%と最大であり、同様に植物起源のモノテルペンのO<sub>3</sub>およびNO<sub>3</sub>による酸化反応の寄与が、それぞれ15%、13%と続く。一方、人為起源VOCsの寄与は、トルエン・ベンゼン・キシレンなどの芳香族化合物の酸化によるものが主であり、全体では、5%程度の寄与を持っている。なお、本研究の解析から、人為起源VOCsは、その酸化により直接的にSOA生

図(3)-12は本研究で計算された地表における二次有機エアロゾル（SOA）および全有機エアロゾル（OA=POA+SOA）の濃度の観測との比較である。モデルの結果は、人為起源VOCsの効果を含む実験によるものであるが、依然として顕著なSOA過小評価傾向を通年的に示していることがわかる(相関係数は0.23)。特に



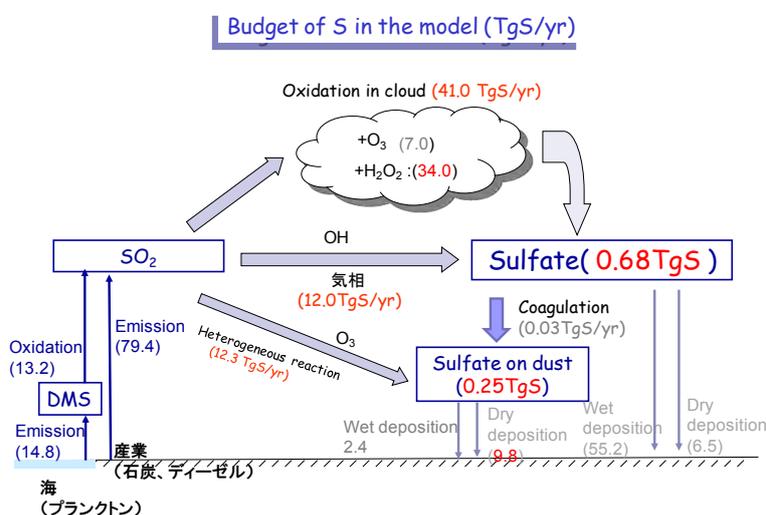
図(3)-13. CHASER-SPRINTARSモデルの標準実験により計算された全球SOA生成量（25 Tg yr<sup>-1</sup>）の内訳（2000年対象）。

成量を増加させるだけでなく、このSOA生成量の増加を通じて、植物起源SOAの生成量にも影響(+0.6%)を与えることが確認されている。

### (3) 土壌ダストと硫黄成分の相互作用

ダスト表面での過程に着目した実験では、ダスト上のSO<sub>2</sub>の不均一反応の導入により、輸送経路にあたる韓国や日本の日本海側の観測サイトの多くでSO<sub>2</sub>のモデル値と観測値との相関が向上することが確認された。不均一反応の取り込み係数 $\gamma$ を0.01とした実験では、SO<sub>2</sub>のダスト表面上の反応による時定数は、アフリカ北部から西アジアでJJAに最大となり、地表で1~2時間、高度3kmでは数時間~半日であった。ダスト表面上に被覆されている硫酸層の厚みは、年平均では東アジアで最大をとり、粒径0.13 $\mu\text{m}$ のダストにおいては、ダスト半径の80~120%程度の厚さが硫酸に覆われている。また、ダストの粒径に対して覆っている硫酸層の厚みの比(core/shell比)は、粒径が小さいダストほど大きくなっている。そして、ダスト表面上に存在する硫酸塩濃度と全硫酸濃度の比は、極域で特に大きくなっており(90%以上)、SONで最大となった。不均一反応は、ダスト表面のSO<sub>2</sub>の不均一反応の $\gamma$ が0.001および0.01のとき、外部混合の硫酸塩エアロゾル総量をそれぞれ0.02 TgS (2.4%)、0.15 TgS (18.1%) 減少させる効果が見られた。この外部混合の硫酸塩エアロゾルの減少は、 $\gamma=0.01$ のとき、直接効果及び間接効果の放射強制力をそれぞれ0.083(0.038~0.174)、0.127(0.054~0.327)W m<sup>-2</sup>減少させることに相当する。ダスト表面上での不均一反応による硫酸塩生成量は12 TgS/yearであり( $\gamma=0.01$ )、これはOHによる気相反応の硫酸塩生成量に匹敵する(図(3)-14)。また、 $\gamma=0.01$ のときダスト表面上の硫酸塩及び外部混合の硫酸塩の湿性沈着/乾性沈着の比は、0.22、7.6となり、ダスト表面上の硫酸塩は湿性沈着により除去されにくい特徴を持っていた。

さらに、液相中での硫酸とCaCO<sub>3</sub>との中和反応やダスト中の陽イオンによる酸性度の中和を考慮することで、観測された硫酸成分の湿性沈着量や降水pHの季節変動をより正確に再現することが確認された。また、いくつかの感度実験を行い、東アジアにおける液相中での硫酸生成速度への影響を定量化した。中和反応により、CaSO<sub>4</sub>が生成されることでSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>が除去され、pHが上がることによって、中国沿岸域では硫酸生成速度が大きくなった。ダストの中和反応及びダストの陽イオンの硫酸生成を促進させる効果の和は、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>の効果に匹敵することが示唆された。以上のように、ダストが硫酸塩粒子におよぼす影響は無視できないため、本研究での大気化学・エアロゾルモデルに予測計算などにおいても、上記の計算スキームを採用・導入した。

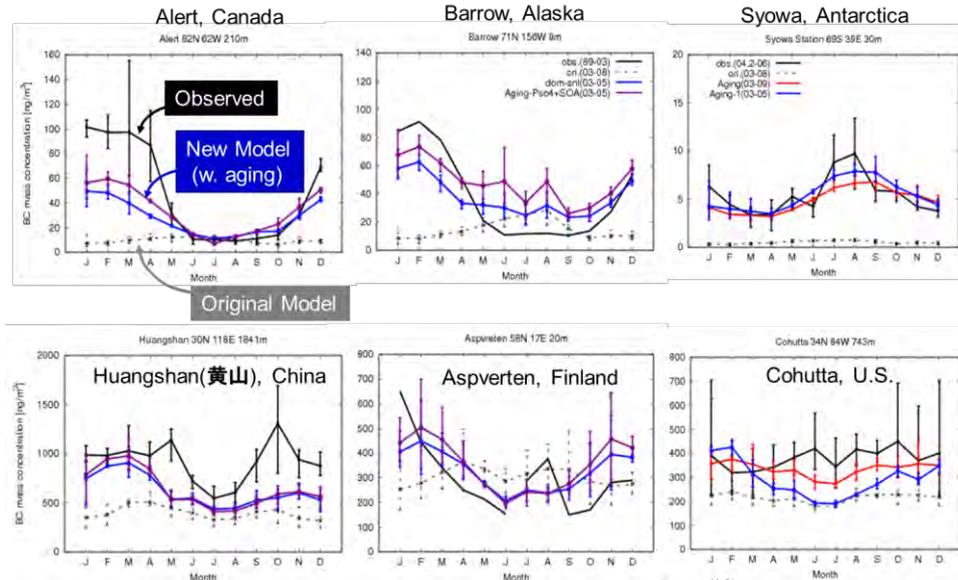


図(3)-14. 取り込み係数 $\gamma=0.01$ にした実験 (A3:  $\gamma=0.01$ ) における年平均の全球対流圏硫黄収支 (単位はTgS/yr)。

(4) BCシミュレーションの改良と放射強制力推定

1) BC 濃度計算の検証

図(3)-15に示すように、従来のモデルでBCが過小評価されていた、北極圏のアラスカ (Barrow)やカナダ (Alert) において、導入された被覆スキームによって観測に見られる冬季～春季極大・夏季極小の季節性が再現された。被覆過程を含まない



図(3)-15.地表BC濃度の季節性のモデル・観測比較。黒実線：観測、カラー線：被覆過程を導入した計算の結果、破線：被覆を考慮しない旧モデル結果。

標準モデル (破線) の結果は、夏季に極大となっていることを考えると、被覆過程がこのような遠隔地でのBC濃度季節性を生じさせている可能性が示唆される。冬季のBC濃度はやや過小評価傾向であるが、標準モデルによる結果と比較すると、定量的な再現性は大きく改善されたといえる。また、黄山 (中国) や米国のサイトなど、ソース・汚染域の近傍においても、若干の過小評価傾向は見られるが、標準モデルに比べて再現性が向上している。地表サイトでの観測との比較に加えて、航空機観測によるBC分布とも比較を行った結果、モデルは概ね整合的なBC分布を表現していることが確認されたが、とくに熱帯域では、標準モデル・改良モデルともにBC濃度を過大評価する傾向にあった。このため、本研究では、積雲対流の降水によるBCの沈着除去の効率を上昇させ、できるだけ観測に近いBC分布を表現するように調節を行った。

2) BCの全球収支

表(3)-5に、対流圏BCの全球収支を示す。被覆過程を含まない標準モデルでは、全球総量(Burden)は、191 Ggと計算されて

表(3)-5. 対流圏における BC の全球総量、寿命、変質の時定数 (年平均値) (ACCMIP は、参加モデルの平均値、括弧内は最少、最大値)

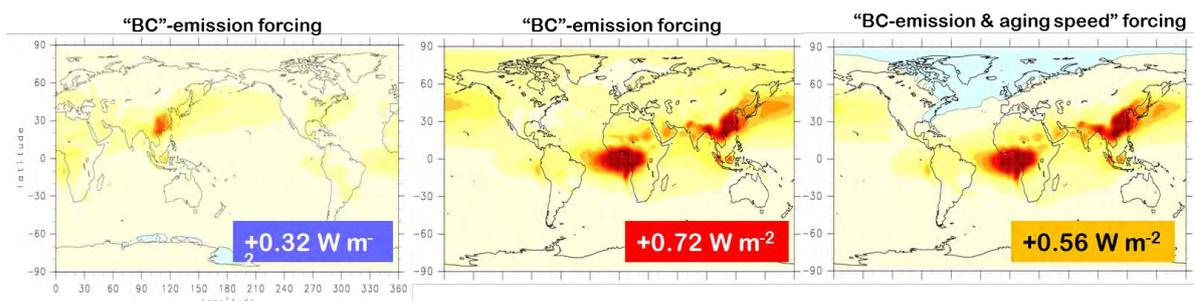
実験ID	Burden (Gg)	Lifetime (days)	$\tau_{aging}$ (days)
標準モデル	191	-	-
被覆スキーム1	267	12.4	4.6
被覆スキーム2	282	12.8	1.7
ACCMIPモデル平均	155	7.4	-
(Lee et al., 2012)	(82~315)	(3.9~15.2)	-

いたが、被覆過程の導入により、250 Gg以上に修正された。これは被覆過程の導入により、大気中で外部混合BCが比較的ゆっくりと水溶性粒子に変化していくため、大気中存在寿命が長くなったためである。実際、モデルで計算されたBCの大気中寿命について、IPCCのモデル間相互比較ブ

プロジェクトACCMPの結果と比べると、ACCMPでのモデル平均値 7.4日に対して、本研究の被覆スキームを含む実験では、12日程度であり、比較的長い存在寿命となっている。全球総量についても、本研究で計算された値 (267、または282 Gg) はACCMPのモデル平均の2倍弱となっているが、ACCMP参加モデルのバラつきの範囲である。また、多くのACCMP参加モデルが極域など遠隔地でのBC濃度を顕著に過小評価している事実<sup>29)</sup>を考慮すると、本研究で推定されたBC量は、従来と比較して、より現実的な値である可能性が高い。

### 3) BCの放射強制力の再評価

次に、BCの放射強制力について、再評価を行った。図(3)-16に、標準モデルおよび被覆過程を含む改良版モデルによる放射強制力 (1850~2005年) の推定結果を示す。ただし、改良版モデルの結果については、BCの光吸収係数 (複素屈折率の虚部) を最新研究<sup>30-31)</sup>で推奨されている値に更新した場合の放射強制力を示す。BCの排出量増加が及ぼす放射強制力は、標準モデルでは  $0.32 \text{ W m}^{-2}$  であるが、改良版モデルでは、 $0.72 \text{ W m}^{-2}$  となり、2倍以上の加熱となった。これは、上述の通り、遠隔地を含め、全対流圏BC濃度が大幅に上方修正されたことを反映したものである。改良版モデルで見積もられたこの放射強制力は、最新の先行研究<sup>30)</sup>やIPCCの報告書<sup>2)</sup>で示されている値に比較的近い。しかしながら、BCの被覆過程の速度の変化も加味し、大気中のBCの存在量変化についての放射強制力を計算すると、本研究では  $0.56 \text{ W m}^{-2}$  となる点に注意が必要である。1850~2005年の間に硫酸生成量が増加し、大気中のBCが水溶性物質へ変化する速度が速まったため、汚染域から遠隔地へのBC輸送量が減少し (降水で除去され易くなったため)、図(3)-16が示すとおり、とくに北半球高緯度では、負の放射強制力が計算されている。したがって、BCの放射強制力や気候影響を理解・予測するには、BC自体の排出量に着目するだけでは不十分であり、硫酸の前駆気体である  $\text{SO}_2$  の排出量や、 $\text{SO}_2$  の酸化を担うOH濃度の変化にも注意を払う必要があることが示唆された。

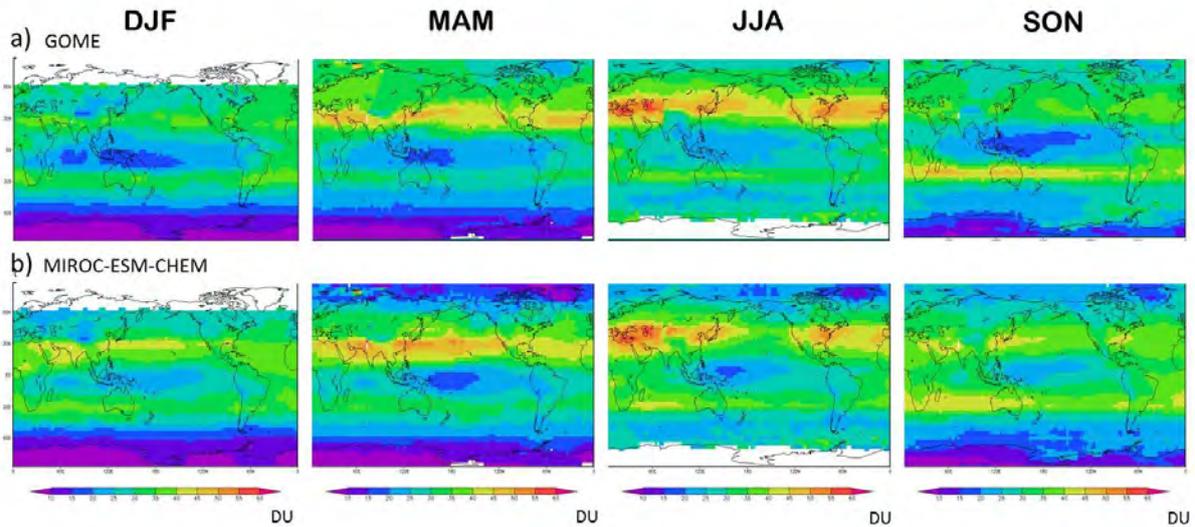


図(3)-16. BCによる放射強制力の推定。(左)標準モデル、(中)被覆過程導入モデルによる計算 (BC排出由来の放射強制力)、(右)同 (BC排出および被覆速度変化による放射強制力)。

### (5) ACCMIP実験

本研究では、IPCC 第5次報告書(AR5)の気候変動予測・評価実験 (ACCMIP実験) の一環として、成層圏・対流圏におけるオゾンを中心とする大気化学過程やエアロゾルの過去再現計算を実施した。図(3)-17に、CHASER-SPRINTARSモデルを用いてACCMIP実験用に計算された2000年付近の対流圏オゾン濃度場をGOME衛星観測によるデータと比較した。これによると、モデルは春季の中緯度帯に見られるオゾン濃度上昇、夏季の大陸上のオゾン生成に伴うオゾン極大、また南半球春季

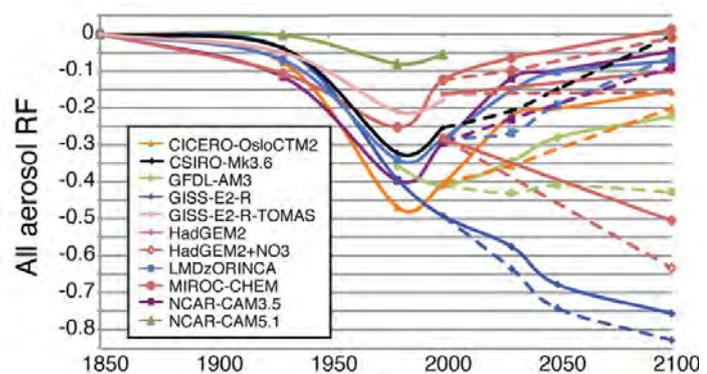
(SON)における森林火災起源のオゾンの中緯度帯への流れだしなどの特徴を定量的にも良く再現している。しかしながら、本研究のモデル計算は、北半球春季・夏季(MAM/JJA)においては、高緯度域（北極域）のオゾン量を有意に過小評価する傾向にある。これは、下部成層圏でのオゾン



図(3)-17. CHASER-SPRINTARSモデルにより計算された対流圏カラムオゾン(DU)の分布と衛星データ(GOME)との比較(各季節)。(a)2000年のGOME観測、(b)モデル計算(2000~2003年平均、GOMEの2000年を対象とした鉛直平均操作(averaging kernel)を適用)

過小に密接に関連しているとみられ、昨年度の作業で導入した成層圏化学(特にハロゲン化学)に何らかの問題点がある可能性もある。しかしながら、本研究で計算される対流圏オゾンの放射強制力は $0.41 \text{ W m}^{-2}$ であり、IPCC報告書<sup>1),2)</sup>で提案されている放射強制力の平均値に近い。

ACCMIP実験においては、エアロゾルについても、放射強制力を詳しく評価・検討している。計算されたエアロゾル光学変数(光学的厚さなど)は、衛星観測によるデータを用い詳細な検証を行った上で、放射強制力の時間発展を推定した(図(3)-18)。加熱性SLCPとして重要なBCについても、放射強制力の推定を行っているが、BCの濃度分布および放射強制力のモデル間のバラツキは依然として大きい。さらに、本ACCMIP実験結果を用いて、メタンや大気酸化能力(OHラジカル濃度)の変動についても詳細な解析を行っている<sup>32)</sup>。



図(3)-18. ACCMIP実験におけるエアロゾルの直接放射強制力の見積もり。本研究のモデル計算結果は、"MIROC-CHEM"として示されている。

## (6) 各種SLCPsの放射強制力と気候応答

本研究では、将来について排出量変動の気候影響を検討する前に、まず、過去から現在までの

SLCP変動が及ぼす気候影響を考察した。

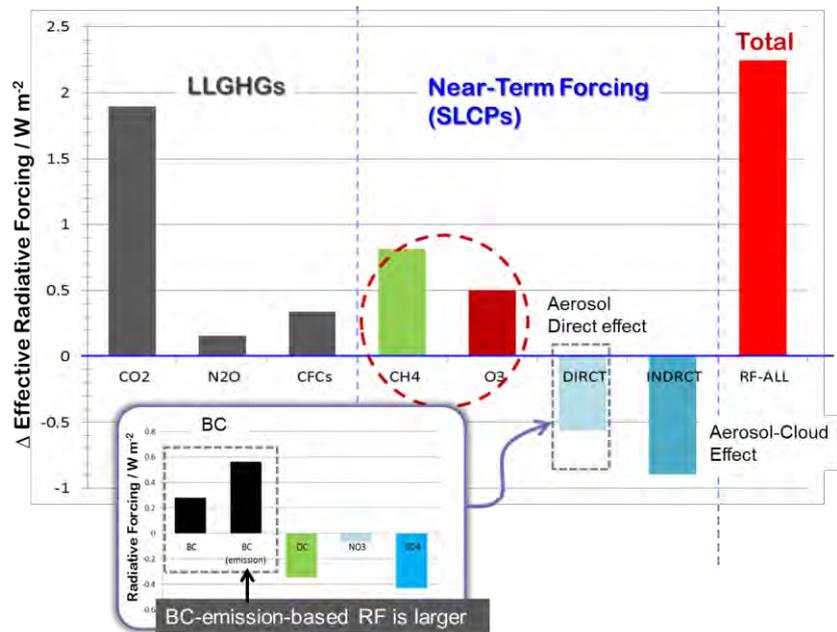
## 1) 放射強制力の推定・整理

図(3)-19は、本研究の最新モデルによる

1850-2005年の放射強制力の推定結果を示す（ここでは、IIASAの2005年対象の排出量データを用いた）。CO<sub>2</sub>などの長寿命の温室効果気体（LLGHGs）と同様に、加熱性SLCP（対流圏オゾン、メタン、BC）からの加熱が顕著である（ただし、BCについては、(4)－3))で述べたBCの光吸収係数の更新はここでは適用されていない）。これと同時に、

硫酸塩・硝酸塩や有機炭素による冷却も大きく、

LLGHGや加熱性SLCPによる正の放射強制力を大きく打ち消していることがわかる。合計（ネット）の放射強制力は、 $2.2 \text{ W m}^{-2}$  であり、これはIPCC第5次報告書<sup>2)</sup>での推定値とほぼ同一である。



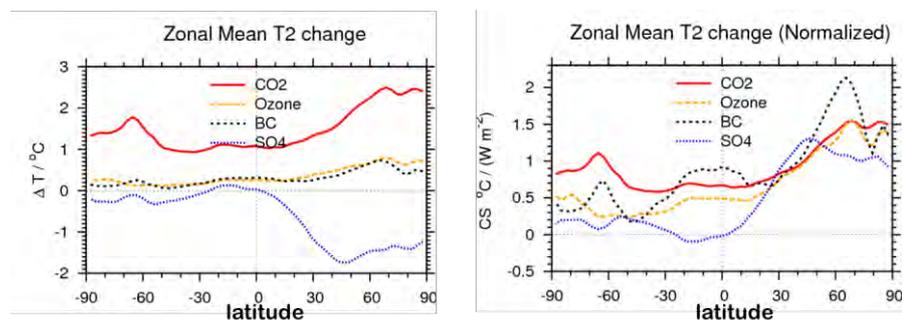
図(3)-19. 各種LLGHGsおよびSLCPsによる放射強制力（1850-2005年）の推定。放射強制力は有効放射強制力（ERF）として示す。

## 2) 気候応答の評価

大気中の物質による気候影響については、単位放射強制力あたりに及ぼされる気温変動や気温変動分布が種類ごとに異なりうる。とくに、LLGHGsとSLCPsでは、気候影響メカニズムが異なるため、同一の放射強制力であっても、引き起こされる気候変動には差異が生じる可能性が強い。そこで、本研究では、LLGHGsおよび各種SLCPsの変動に対する気候の応答・感度を精査した。本研究では、全球平均の地表気温変化はCO<sub>2</sub>、O<sub>3</sub>、BCの1850年から2005年までの増加により、それぞれ、 $+1.31^\circ\text{C}$ 、 $+0.31^\circ\text{C}$ 、 $+0.28^\circ\text{C}$ の昇温を示す

のに対し、硫酸塩では、 $-0.52^\circ\text{C}$ の冷却が計算された。気温変化の地理分布に着目した場合、CO<sub>2</sub>、O<sub>3</sub>、BCによる昇温は、主に北半球陸地上で最も大きい

が、硫酸塩による冷却



図(3)-20. CO<sub>2</sub>、オゾン（O<sub>3</sub>）、BC、および硫酸塩（SO<sub>4</sub>）の分布変動による東西平均地表気温の変化（左）と、単位放射強制力あたりの気候感度（右）。分布変動は産業革命以前から現在（～2000年）を対象とする。

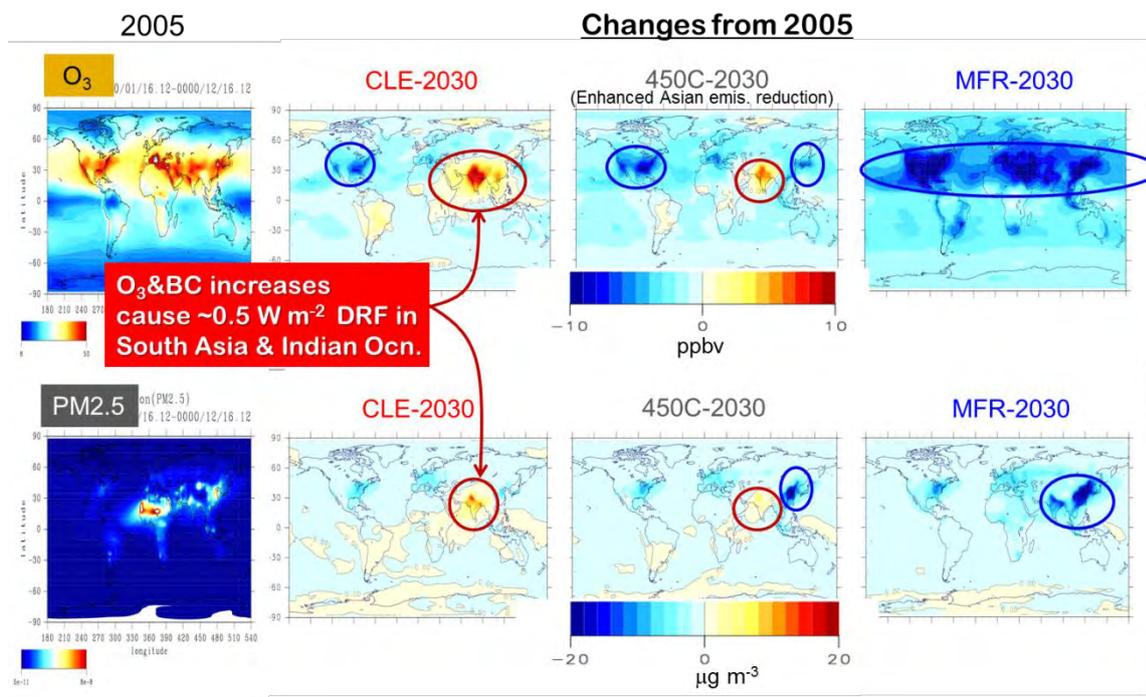
は、雲間接効果の寄与を含むため、太平洋・大西洋上の風下領域も含めてより広い領域で寒冷化が顕著であった。しかしながら、陸地上に限れば、硫酸塩の冷却効果の強さは $\text{CO}_2/\text{O}_3/\text{BC}$ による昇温とほぼ比例関係にあると言える。気温変化と気候感度について、東西平均の緯度分布を図(3)-20に示す。 $\text{O}_3$ と $\text{BC}$ でほぼ同様の昇温パターンが見られるのに対し、硫酸塩による冷却は $30^\circ\text{N}$ 以上で顕著であり、熱帯域～南半球では、ほとんど地表気温変化を生じていない。気候感度としては、北半球中高緯度では、 $\text{CO}_2/\text{O}_3/\text{BC}/\text{SO}_4$ ともに、 $1\text{--}1.5\text{ }^\circ\text{C}/(\text{W m}^{-2})$ の同程度の値を示すことが明らかになったが、 $\text{BC}$ については、雪氷面の融解効果を含むため $60^\circ\text{N}$ 付近で他の物質に比べて高めの値( $\sim 2\text{ }^\circ\text{C}/(\text{W m}^{-2})$ )を示している。本研究で得られた各SLCPsについての気候感度( $^\circ\text{C}/(\text{W m}^{-2})$ )を、将来予測実験で計算された放射強制力変化に適用し、気温変動の予測を行った(以下(7)項参照)。

### (7) SLCPsによる大気汚染・気候変動の近未来予測

本研究で改良された化学気候モデルを用い、最新のIIASAシナリオによる、SLCPs・メタン変動と気候影響の近未来予測実験を実施した。

#### 1) SLCPs濃度分布の変化

図(3)-21は、本実験で予測された地表のオゾンおよび $\text{PM}_{2.5}$ の濃度変化予測を示す。オゾンについては、現状維持シナリオ(CLE)の場合に北米で大きな濃度削減がみられるが、インドを中心とする南アジア域では、前駆気体排出量の増加に伴って顕著な濃度増加が予測されている。このような濃度変動構造は、中庸シナリオである450Cでも同様であるが、450Cの場合には、東アジア域で

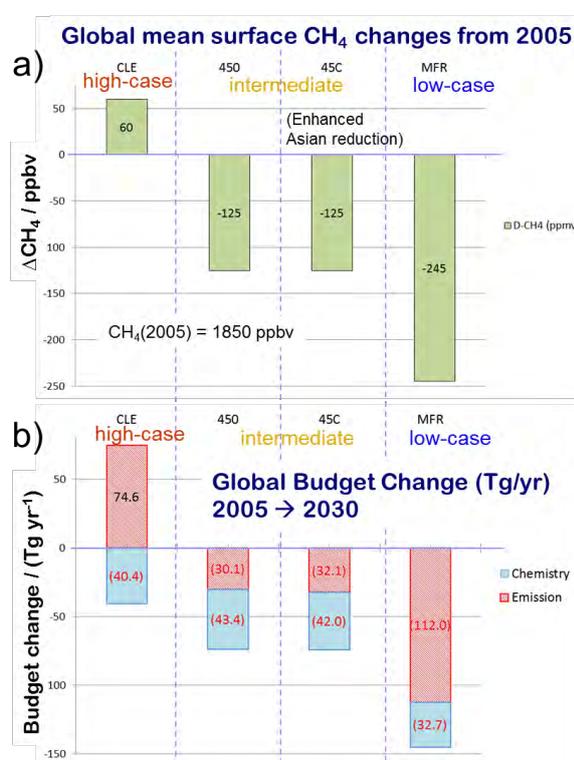


図(3)-21. IIASA最新シナリオ(CLE、450C、MFR)による2030年の地表におけるオゾン(上段)・ $\text{PM}_{2.5}$ (下段)の濃度変化予測。最左列は、2005年値を示し、右3列は、各シナリオにおける2005年～2030年間の濃度変化を示す。

の排出削減強化により、北米域と同等のオゾン濃度低減がみられる。MFRでは、北半球中緯度のソース付近の広域で、10 ppbv以上のオゾン濃度低減が確認される。PM<sub>2.5</sub>の場合にも、オゾンと同様に、CLEおよび450Cの両シナリオでは、南アジア域で濃度増加が見られるが、450Cでは、東アジア域で最大で20  $\mu\text{g m}^{-3}$ 程度の濃度低減が見られる。CLEシナリオに見られるような南アジア域でのO<sub>3</sub>およびPM<sub>2.5</sub>の濃度増加は自由対流圏でも確認され、本領域での放射強制力変化にも大きく寄与していることが判明した。中国域・年平均の濃度変化に注目すると、450中庸シナリオの場合に、年平均で5 $\mu\text{g m}^{-3}$ 程度の濃度低減が計算されたが、オゾンについては、増加（ $\sim 0.3$  ppbv）となった。このオゾン増加については、排出削減強化シナリオ（450C）を用いると2 ppbv以上の減少に改善され、当該領域での排出削減の重要性が示唆された。また、MFRでは、オゾンとPM<sub>2.5</sub>は、それぞれ -7.2 ppbv、11.2 $\mu\text{g m}^{-3}$ 削減できることも示された（全球排出削減による濃度削減の最大値）。

## 2) メタン濃度の変化

次に、本研究の近未来予測実験において、大気汚染物質の変動や気候変動がどのように全球メタン濃度に影響するか評価を行った。図(3)-22に、2030年代の全球メタン濃度と収支の変化（2005年値との差）をシナリオごとに示す。現状規制シナリオ（CLE）では、メタン濃度は2005年よりも増加するが、他のシナリオでは、100 ppb 以上のメタン減少となっている。全球収支の変化を確認すると、このようなメタン変化には、メタン自体の発存量の変化だけでなく、化学過程の変化によるメタン消失反応（ $\text{CH}_4 + \text{OH} \rightarrow$ ）の強化も大きく関与していることがわかった。化学過程の変化については、2030年時点での温暖化によって水蒸気が増加し、メタンの主要な化学的消失源であるOHラジカルの生成が強化されたことが大きく影響しているが、NO<sub>x</sub>/COなどの発存量変化によるOH量の変動も重要であると考えられる。したがって、メタンは比較的長寿命な物質であるが、近未来の濃度予測を行う場合でも、排出量だけでなく、大気汚染・温暖化とリンクした化学過程の変化も同時に考慮する必要があることが本研究により明らかになった。

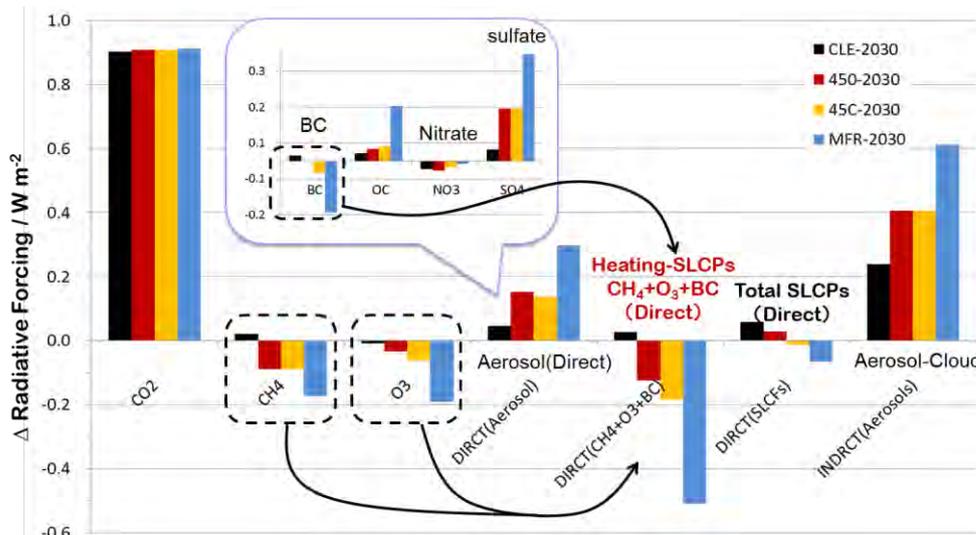


図(3)-22. IASA各シナリオ（CLE, 450, 45C, MFR）による2005～2030年の全球平均メタン濃度の変化（a）と全球収支の変化（b: 赤はCH<sub>4</sub>排出量変化、水色は化学的消失反応の変化）。

## 3) 放射強制力の変化

各シナリオによる2030年までの放射強制力変化を図(3)-23にまとめた。CLEでは、対流圏オゾン（O<sub>3</sub>）による放射強制力がやや減少するものの、メタンやBCの増加によって加熱性SLCP全体の影響としては加熱増加となっている。一方、450/450Cや、MFRなどの排出削減が想定されるシナリ

オでは、メタン、オゾン、BCの減少から、加熱性SLCPとしては $0.1-0.5 \text{ W m}^{-2}$ の冷却が計算されている。しかしながら、450/450C、MFRなどの削減シナリオでは、硫酸塩などの冷却性エアロゾルの減少も同時に発生するため、上述の加熱性SLCPsの減少による冷却効果は大幅に打ち消されることとなった。



図(3)-23. IASA各シナリオによる2005～2030年の放射強制力変化 ( $\Delta RF$ )。

たとえば、排出最大限削減ケース (MFR) においては、加熱性SLCPsの減少により $0.5 \text{ W m}^{-2}$ 程度の顕著な冷却が期待できるものの、冷却性エアロゾルの変動も含めたトータルのSLCPsによる冷却効果としては、 $0.1 \text{ W m}^{-2}$ 以下に大幅に抑制される結果となった。

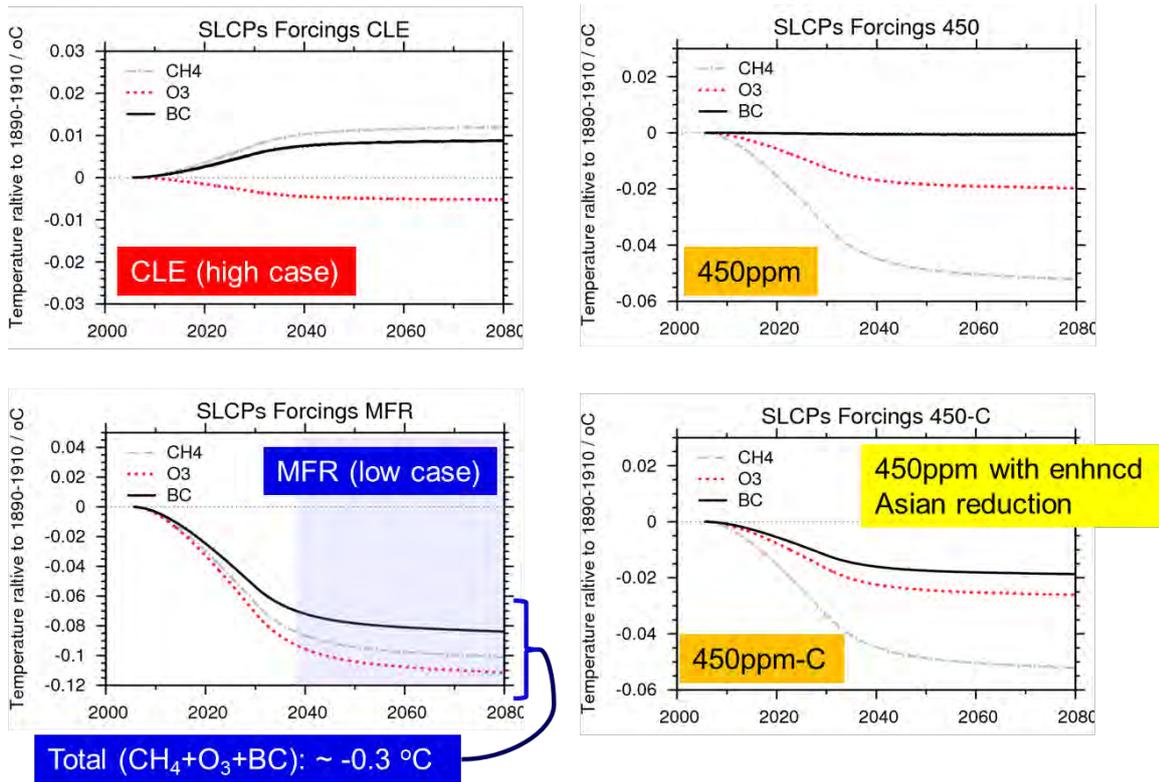
#### 4) 全球平均気温の変化

本研究では、上述の放射強制力変化に対して全球平均の気温がどのように応答するか、準経験的な方法で予測した。ここでは、2005年以降の気温変動 $\Delta T$ は、以下のように表される。

$$\Delta T(t) = \int_{2005}^t \Delta RF(t) \cdot \alpha \cdot f(t-t) \cdot dt \quad (5)$$

ここで、 $t$ は2005年以降の時間 (年) を示し、 $\alpha$ は各SLCPs種に対する気候感度 ( $^{\circ}\text{C}/(\text{W m}^{-2})$ ) を示す (本節2) 項参照)。また $f(t)$ は、気候の応答時間を示す経験的な応答関数である。放射強制力の時間変化 $\Delta RF(t)$ は2005年から2030年までの変化量 (本節3) 項参照) を線形で補間し与える。

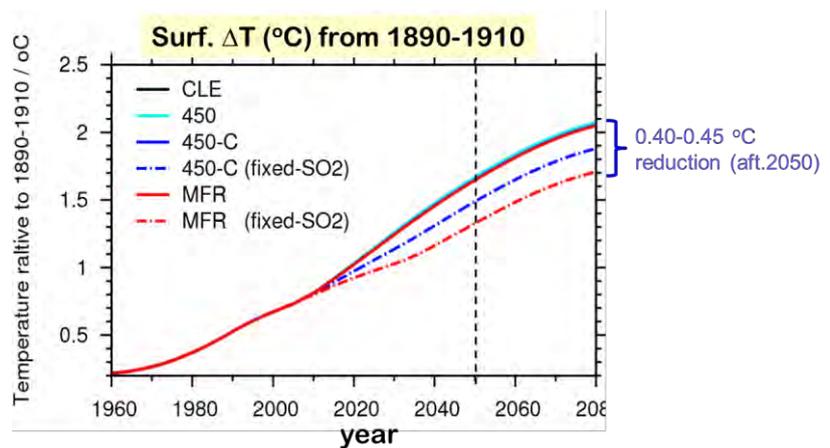
図(3)-24 に、2005年～2030年の加熱性SLCPs変動が及ぼす全球平均気温変動を、IASAシナリオごとに示す。現状維持では、メタンとBCの増加により若干の気温上昇 ( $\sim 0.01^{\circ}\text{C}$ ) が見られるが、その他のシナリオでは、基本的には、オゾン、BC、メタンの減少による降温が確認される。中庸シナリオについては、450では、BCの削減による降温は確認されないが、東アジア域で排出削減を強化した場合 (450C) では、 $\text{O}_3$ と同程度の降温が計算されている。また、最大限削減の場合 (MFR)、加熱性SLCPsの削減により、合計で $0.3^{\circ}\text{C}$ 程度の温暖化抑制効果が期待できることが予測された。次に、硫酸塩エアロゾルなどの冷却性SLCPsの変化も含めて、SLCPsが及ぼすトータルの気温変動を図(3)-25に示す。図中の実線が、異なったシナリオについての全球平均気温の時間変化を示すが、驚くべきことに、どのシナリオにしたがっても、気温変動パターンはほぼ同じものが計算されている。この結果は、前項で放射強制力の変化について記述したように、加熱性SLCPs削減の効果を、冷却性SLCPs削減による昇温が打ち消してしまうためである。そこで、試しに $\text{SO}_2$ の排出量 (放射強制力) を2005年値で固定して上の(5)式で気温変動を計算すると (破線)、最大で $0.4^{\circ}\text{C}$ 以上の温暖化抑制効果が期待できることがわかった。したがって、少なくとも全球平均の気温変動のみを



図(3)-24. 加熱性短寿命気候汚染物質（オゾン、BC、およびCH<sub>4</sub>）の変動が及ぼす全球平均気温変化（2005年時からの差分）の予測。IIASAの各シナリオに対する結果。

評価軸としてシナリオの効果を検討した場合、実質的な温暖化抑制を期待するには、硫酸塩などの冷却性SLCPsの濃度変動にも十分注意が必要であることが示唆される。SLCPsの削減による温暖化抑制については、BCやメタン等の加熱性SLCPsの削減によって温暖化を抑制・遅延させる方策が実際に検討されている。本研究の結果は、このような温暖化抑制を達成するには、現実的には冷却性のSLCPsの削減による昇温にも注意を払う必要があることを示しており、メタンについても、メタンの放出量変化のみならず、消失過程を担うOHラジカル濃度の変動に十分注意が必要であるという重要な示唆を含んでいる。

さらに、たとえ全球平均の気温変動が同一であっても、実際の気温変動や降水変動の空間分布は、シナリオ間で大きくことなっている可能



図(3)-25. 1960年から2030年のSLCPs変動が及ぼす全球平均の気温変化（°C）。2030年時点の排出量には、CLE,450, 450C, MFRを用いた。破線は、450CおよびMFRにおいて、SO<sub>2</sub>の排出量が2005年値に固定した場合（SO<sub>2</sub>削減を考慮しない）の気温変動を示す。

性があるので、全球平均での議論に加えて、少なくとも領域規模での気温・降水変動の評価も含めて、シナリオ効果の議論を行っていく必要がある。

## 5. 本研究により得られた成果

### (1) 科学的意義

大気汚染物質の変動による大気質と気候への全球影響の評価を目的とし、オゾン、黒色炭素(BC)やその他のエアロゾルの全球的な変動とその気候影響について、科学的な解明を進展させた。全球規模の大気汚染や温暖化影響評価に使用する大気化学・エアロゾル気候モデルについては、硝酸塩エアロゾル、二次有機エアロゾル、黒色炭素の変質過程、SO<sub>2</sub>のダストとの相互作用など、SLCPsや大気化学・エアロゾル相互作用に纏わる過程が新たに導入・改良され、観測データによる詳細な検証も含めて、予測シミュレーションが大幅に精緻化された。また、本化学・気候モデルを用い、各種SLCPsの放射強制力や気候影響・気候感度を個別に定量化するとともに、ACCMIPなどのモデル間相互比較実験にも参加し、IPCC第5次報告書<sup>2)</sup>にも大きく貢献した<sup>32)</sup>(紙上発表論文成果6)-13))。さらに、2030年をターゲットにした近未来予測により、温暖化抑制と大気汚染低減という2面から排出削減シナリオの評価を行い、各シナリオが及ぼす効果・供便益を定量的に示すことができた。また、温室効果気体として重要なメタンについても、メタンの発生量変動、化学消失過程変動の寄与をそれぞれ分離・定量化し、メタン濃度予測の精緻化を図り、新たな知見として提示することができた。以上のような研究結果は、今後の大気汚染・大気化学変動およびこれらの気候影響に関する定量的な理解・予測に大きく貢献する成果である。

### (2) 環境政策への貢献

#### <行政が既に活用した成果>

地球大気化学国際協同計画(IGAC)の国内委員会(日本学術会議・第3部)において、大気化学・エアロゾルと気候との相互作用研究に関する今後の見通し、およびワーキンググループ立ち上げに関して貢献した。国際的なモデル間相互比較や、IPCC第5次報告書に向けたACCMIPやCCMIへ参加し、本課題のCHASER-SPRINTARSモデルによる実験結果もIPCC第5次報告書に採用された。

#### <行政が活用することが見込まれる成果>

本研究で実施した、各種SLCPsの排出量変動がおよぼす全球規模の大気環境変動やこれが気候に与える影響についての近未来予測結果は、地球温暖化抑制や大気汚染低減などの政策を決定する上で、重要な参考情報となることを見込まれる。

## 6. 国際共同研究等の状況

本研究で用いている化学モデル CHASER およびエアロゾルモデルSPRINTARS を用いて、大気汚染の半球規模長距離輸送に関するプロジェクト(HTAP)に参加した(<http://aqm.jrc.it/HTAP/>)。さらに、IPCC-AR5のCMIP(気候モデル相互比較プロジェクト)に付随して行われているACCMIP実験(<http://htap.icg.fz-juelich.de/data/ACCMIP/>)にも参加し、数値実験およびモデル出力の提出を行い、結果の解析・議論に参加した。

## 7. 研究成果の発表状況

## (1) 誌上発表

## &lt;論文 (査読あり) &gt;

- 1) T. NAGASHIMA, T. OHARA, K. SUDO, and H. AKIMOTO: *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 11305-11322 (2010)  
“The relative importance of various source regions on East Asian surface ozone”
- 2) T. SEKIYA and K. SUDO: *Journal of Geophysical Research*, 117, doi: 10.1029/2012JD018054 (2012)  
“Role of meteorological variability in global tropospheric ozone during 1970–2008”
- 3) K. SUDO and Y. OGIHARA: *Eurozoru Kenkyu* 27(1), 51-61 (2012)  
“Global Modeling of Secondary Organic Aerosol in a Chemistry Coupled Climate Model”
- 4) A. NAKATANI, S. KONDO, S. HAYASHIDA, T. NAGASHIMA, K. SUDO, X. LIU, K. CHANCE, I. HIROTA: *J. Meteor. Soc. Japan*, 90, 207–222, doi:10.2151/jmsj.2012-204 (2012)  
“Enhanced mid-latitude tropospheric column ozone over East Asia: Coupled effects of stratospheric ozone intrusion and anthropogenic sources”
- 5) T. SEKIYA and K. SUDO: *Journal of Geophysical Research*, doi: 10.1002/2013JD020838 (2014)  
“Roles of transport and chemistry processes in global ozone change on interannual and multi-decadal time scales”
- 6) J.-F. LAMARQUE, (中略), T. NAGASHIMA, (中略), K. SUDO, (後略): *Geosci. Model Dev.*, 6, 179-206, doi:10.5194/gmd-6-179-2013 (2013)  
“The Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project (ACCMIP) overview and description of models, simulations and climate diagnostics”
- 7) P. J. YOUNG, (中略), T. NAGASHIMA, (中略), K. SUDO, (後略): *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 2063-2090, doi:10.5194/acp-13-2063-2013 (2013)  
“Pre-industrial to end 21st century projections of tropospheric ozone from the Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project (ACCMIP)”
- 8) A. VOULGARAKIS, (中略), T. NAGASHIMA, (中略), K. SUDO, (後略): *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 2563-2587, doi:10.5194/acp-13-2563-2013 (2013) “Analysis of present day and future OH and methane lifetime in the ACCMIP simulations”
- 9) Y. H. LEE, (中略), T. NAGASHIMA, (中略), K. SUDO, T. TAKEMURA, (後略): *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 2607-2634, doi:10.5194/acp-13-2607-2013 (2013)  
“Evaluation of preindustrial to present-day black carbon and its albedo forcing from Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project (ACCMIP)”
- 10) D. T. SHINDELL, (中略), T. NAGASHIMA, (中略), K. SUDO, S. SZOPA, T. TAKEMURA, (後略): *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 2939-2974, doi:10.5194/acp-13-2939-2013 (2013)  
“Radiative forcing in the ACCMIP historical and future climate simulations”
- 11) D. S. STEVENSON, (中略), K. SUDO, T. NAGASHIMA, (後略): *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 3063-3085, doi:10.5194/acp-13-3063-2013 (2013)  
“Tropospheric ozone changes, radiative forcing and attribution to emissions in the Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project (ACCMIP)”

- 12) K. W. BOWMAN, (中略), T. NAGASHIMA, (中略), K. SUDO, (後略): Atmos. Chem. Phys., 13, 4057-4072, doi:10.5194/acp-13-4057-2013 (2013)  
 “Evaluation of ACCMIP outgoing longwave radiation from tropospheric ozone using TES satellite observations”
- 13) V. NAIK, (中略), T. NAGASHIMA, (中略), K. SUDO, (後略): Atmos. Chem. and Phys., 13, 5277-5298, doi:10.5194/acp-13-5277-2013 (2013)  
 “Preindustrial to present-day changes in tropospheric hydroxyl radical and methane lifetime from the Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project (ACCMIP)”

<その他誌上発表（査読なし）>

- 1) 須藤健悟、大気環境学会誌、49, 2, A25-35 (2014)  
 「地球温暖化 —第4講 大気汚染と地球温暖化—」

(2) 口頭発表（学会等）

- 1) 須藤健悟、高田久美子、神沢博、安成哲三：JPGU2009年大会、千葉市（2009年）  
 「アジア域における大気化学・エアロゾル・陸域植生結合場の変動とその気候影響」
- 2) 須藤健悟：第15回大気化学討論会（2009年）  
 「対流圏光化学場の過去再現シミュレーション」
- 3) 須藤健悟：日本気象学会2009年秋季大会、福岡市（2009年）  
 「対流圏オゾン・メタンの過去再現シミュレーション：初期結果」
- 4) K. SUDO, K. TAKATA, T. TAKEMURA, H. KANZAWA, and T. YASUNARI : AGU Fall meeting (2009)  
 “Aerosol changes associated with land use change in Asia and their impacts on climate”
- 5) 須藤健悟:日本気象学会2010年度春季大会、東京都（2010年）  
 「全球メタン濃度の過去再現シミュレーション：気候変動の影響」
- 6) K. SUDO, K. TAKATA, H. KANZAWA, T. TAKEMURA, T. YASUNARI: JPGU 2010年大会, Chiba (2010)  
 “Simulation of aerosol changes in Asia with a chemistry-aerosol coupled climate model”
- 7) K. SUDO: International Workshop on “Impact of Asian Megacity Development on Local to Global Climate Change” (1st MOST-JST Project Meeting), Beijing, China (2010)  
 “Modeling the Climate Impacts of Global Air Pollution and Short-lived Climate Forcers”
- 8) 須藤健悟, Patra Prabir, 伊藤昭彦: 第16回大気化学討論会, 八王子市（2010年）  
 「化学気候モデルを用いた1970-2008年のメタン変動要因の解明」
- 9) K. SUDO: The 2nd Workshop on Climate and Environment between Nanjing University and Nagoya University, Nagoya (2010)  
 “Global air pollution and its interaction with climate”
- 10) K. SUDO, P. PATRA, A. ITO: AGU 2010 Fall Meeting, San Francisco (2010)  
 “Leveling-off of atmospheric methane caused by coupling of climate change and tropospheric chemistry”
- 11) 関谷高志, 須藤健悟：日本気象学会・2010年度秋季大会, 京都市（2010年）

- 「エルニーニョの時間発展に伴う全球対流圏オゾン分布の変動」
- 12) 茶谷聡, 須藤健悟: 第 16 回大気化学討論会, 八王子市 (2010 年)  
「1996~2005 年の国内地表面オゾンに対する東アジア外からの輸送の影響」
  - 13) 荻原由紀恵, 須藤健悟: 第 16 回大気化学討論会, 八王子市 (2010 年)  
「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」
  - 14) K. SUDO, T. TAKEMURA, and H. AKIMOTO: 3rd International Workshop on Atmospheric Modeling Research in East Asia (2011)  
“Evaluating past changes in short-lived climate forcers and their climate impacts with a chemistry-aerosol coupled climate model”
  - 15) K. SUDO, T. TAKEMURA, and H. AKIMOTO: The 8th International Conference on Acid Deposition (2011)  
“Evaluating past changes in atmospheric pollutants and their climate impacts with a chemistry-aerosol coupled climate model”
  - 16) K. SUDO, T. TAKEMURA, and H. AKIMOTO: International Union of Geodesy and Geophysics (IUGG) General Assembly (2011)  
“Modelling Short-Lived Climate Forcers: Climate Impacts and Interaction”
  - 17) 清水俊成, 須藤健悟: 日本気象学会2011年度秋季大会 (2011)  
”硫酸塩生成におけるダストの影響: 全球化学・エアロゾル輸送モデルの改良と検証”
  - 18) 須藤健悟, 竹村俊彦, 秋元肇: 第17回大気化学討論会 (2011)  
”化学・エアロゾル気候モデルを用いた短寿命気候影響物質 (SLCFs) の放射強制力と気候応答の評価”
  - 19) K. SUDO, H. ENDO, K. HARA, K. OSADA, and T. TAKEMURA: JPGU 2011年大会 (2011)  
“Simulating black carbon at Syowa station, Antarctic: long-range transport from various source regions”
  - 20) 須藤健悟, 竹村俊彦, 秋元肇: 日本気象学会2011年度春季大会 (2011)  
”化学・エアロゾル気候モデルを用いた短寿命気候影響物質 (SLCFs) の放射強制力の評価”
  - 21) K. SUDO, P. PATRA, A. ITO: IGAC/SPARC Global Chemistry-Climate Modeling and Evaluation Workshop, Davos, Switzerland (2012)  
“Reproducing past tropospheric O<sub>3</sub> and CH<sub>4</sub>: coupled impacts of climate change and chemistry”
  - 22) K. SUDO, A. WADA, T. TAKEMURA, Z. KLIMONT, J. KUROKAWA, H. AKIMOTO: 4th International Workshop on Atmospheric Modeling Research in East Asia, Kunming (2013)  
“Global modeling and projection of short-lived climate pollutants”
  - 23) 須藤健悟, 清水俊成, 竹村俊彦: 日本気象学会2012年度秋季大会, 札幌市 (2012年)  
「化学・エアロゾル気候モデルによる硫酸塩・ダスト粒子の結合シミュレーション」
  - 24) 須藤健悟: 第18回大気化学討論会, 朝倉市 (2012年)  
「HO<sub>2</sub>+NO反応におけるHNO<sub>3</sub>生成経路の対流圏化学場への影響」
  - 25) 須藤健悟: 第18回大気化学討論会, 朝倉市 (2012年)  
「化学・エアロゾル結合気候モデルの開発と全球における対流圏オゾン変動・起源推定に関する研究」

- 26) T. SEKIYA, K. SUDO, Quadrennial Ozone Symposium 2012, Toronto (2012)  
 “Role of climate variability in global tropospheric ozone during 1970-2008”
- 27) 関谷高志、須藤健悟：日本気象学会2012年春大会、つくば市（2012年）  
 「全球化学輸送モデルにおける上部対流圏オゾン分布の再現性評価：気象場、鉛直座標系、  
 解像度に対する感度実験」
- 28) 和田明久、須藤健悟：日本気象学会2012年度秋季大会（2012年）  
 「黒色炭素の全球分布と長距離輸送における支配要因の評価」
- 29) 川田大樹、関谷高志、須藤健悟：日本気象学会 2012 年度秋季大会、札幌市（2012 年）  
 「化学気候モデルを用いた 1991 年ピナツボ火山噴火に伴う硫酸エアロゾル時空間変動の評価」
- 30) K. SUDO and T. SEKIYA: WCRP Regional Workshop on Stratosphere-Troposphere Processes and  
 their Role in Climate Kyoto Japan (2013)  
 “Roles of Climate and Stratospheric Ozone Changes in Tropospheric Chemistry”
- 31) K. SUDO, A. WADA, T. TAKEMURA, Z. KLIMONT, J. KUROKAWA, H. AKIMOTO:  
 IGAC/SPARC Chemistry-Climate Model Initiative Workshop, Boulder, U.S. (2013)  
 “Global Modeling and Projection of Short-lived Climate Pollutants”
- 32) 須藤健悟、和田明久、竹村俊彦：地球惑星科学連合大会、千葉市（2013年）  
 「黒色炭素の変質と長距離輸送：化学・エアロゾル気候モデルを用いた全球シミュレーション」
- 33) K. SUDO, A. WADA, T. TAKEMURA, Z. KLIMONT, J. KUROKAWA, H. AKIMOTO:  
 International Workshop on “Inventory, Modeling and Climate Impacts of Greenhouse Gas emissions  
 (GHG’s) and Aerosols in the Asian Region”, Tsukuba (2013)  
 “Global modeling and projection of short-lived climate pollutants”
- 34) 須藤健悟、和田明久、竹村俊彦：第30回エアロゾル科学・技術研究討論会、京都市（2013年）  
 「化学輸送・気候モデルにおける大気化学とエアロゾルの相互作用」
- 35) 須藤健悟、竹村俊彦、Z. Klimont、永島達也、黒川純一、秋元肇：第19回大気化学討論会、七尾  
 市（2013年）  
 「IIASA最新シナリオを用いた全球大気汚染・気候変動の近未来予測」
- 36) K. SUDO, A. WADA, T. TAKEMURA, Z. KLIMONT, J. KUROKAWA, H. AKIMOTO: Fall Meeting  
 of American Geophysics Union, San Francisco, U.S. (2013)  
 “Global Modeling and Projection of Short-Lived Climate Pollutants in an Earth System Model:  
 Near-term projection with IIASA scenarios”
- 37) T. SEKIYA, and K. SUDO : SPARC 5th General Assembly, Queenstown, New Zealand (2014)  
 “ENSO variability and future change of ozone in troposphere and lower stratosphere”

### (3) 出願特許

特に記載すべき事項はない

### (4) シンポジウム、セミナー等の開催（主催のもの）

特に記載すべき事項はない

## (5) マスコミ等への公表・報道等

特に記載すべき事項はない

## (6) その他

1) 須藤健悟、平成24年度大気化学研究会奨励賞、「化学・エアロゾル結合気候モデルの開発と全球における対流圏オゾン変動・起源推定に関する研究」、2012年11月7日

## 8. 引用文献

- 1) IPCC (2007): Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change (J. T. Houghton, et al. (eds.)) (2007)  
“Climate Change 2007: The Scientific Basis”
- 2) IPCC (2013): Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change (T.F. Stocker et al. (eds.)) (2013)  
“Climate Change 2013: The Physical Science Basis”
- 3) J. HANSEN et al.: Proc. Natl. Acad. Sci., 98: 14778-14783, doi:10.1073/pnas.261553698 (2001)  
“Trends of measured climate forcing agents”
- 4) T. TAKEMURA et al.: J. Geophys. Res., 110, doi:10.1029/2004JD005029 (2005)  
“Simulation of climate response to aerosol direct and indirect effects with aerosol transport-radiation model”
- 5) V. RAMANATHAN et al.: Proc. Natl. Acad. Sci., 102:5326–5333 (2005)  
“Atmospheric brown clouds: impact on South Asian climate and hydrologic cycle”
- 6) K. M. LAU et al.: Climate Dynamics, doi:10.1007/s00382-006-0114-z. (2006)  
“Asian summer monsoon anomalies induced by aerosol direct forcing: the role of the Tibetan Plateau”
- 7) D. T. SHINDELL et al.: J. Geophys. Res., 113, D11109, doi:10.1029/2007JD009152 (2008)  
“Multimodel projections of climate change from short-lived emissions due to human activities”
- 8) O. WILD and M. J. PRATHER: J. Geophys. Res., 105(D20), 24, 647–24, 660 (2000)  
“Excitation of the primary tropospheric chemical mode in a global three-dimensional model”
- 9) K. SUDO et al.: J. Geophys. Res., 107, 10.1029/2001JD001113 (2002a)  
“CHASER: A global chemical model of the troposphere 1. Model description”
- 10) K. SUDO et al.: J. Geophys. Res., 107, 10.1029/2001/JD001114 (2002b)  
“CHASER: A global chemical model of the troposphere 2. Model results and evaluation”
- 11) K. SUDO and H. AKIMOTO: J. Geophys. Res., 112, D12302, doi:10.1029/2006JD007992 (2007)  
“Global source attribution of tropospheric ozone: Long-range transport from various source regions”
- 12) T. TAKEMURA et al.: Journal of Climate, 15, 4, 333-352 (2002)  
“Single-Scattering albedo and radiative forcing of various aerosol species with a global three-dimensional model”
- 13) S. WATANABE et al.: Geosci. Model Dev., 4, 845-872, doi:10.5194/gmd-4-845-2011 (2011)  
“MIROC-ESM 2010: model description and basic results of CMIP5-20c3m experiments”

- 14) A. NENES et al.: *Aquat. Geoch.*, 4, 123-152 (1998)  
“ISORROPIA: A new thermodynamic equilibrium model for multiphase multicomponent inorganic aerosols”
- 15) M. KANAKIDOU et al.: *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 1053–1123 (2005)  
“Organic aerosol and global climate modelling: a review”
- 16) J. R. ODUM et al.: *Environ. Sci. Technol.*, 30 (8), 2580-2585 (1996)  
“Gas/Particle Partitioning and Secondary Organic Aerosol Yields”
- 17) J. F. PANKOW: *Atmos. Environ.*, Volume 28, Issue 2, Pages 185-188 (1994a)  
“An absorption model of gas/particle partitioning of organic compounds in the atmosphere”
- 18) J. F. PANKOW: *Atmos. Environ.*, Volume 28, Issue 2, Pages 189-193 (1994b)  
“An absorption model of the gas/aerosol partitioning involved in the formation of secondary organic aerosol”
- 19) P. ARTAXO et al.: *J. Geophys. Res.*, 107(D20), 8081, doi:10.1029/2001JD000666 (2002)  
“Physical and chemical properties of aerosols in the wet and dry seasons in Rondonia, Amazonia”
- 20) S. M. DECESARI et al.: *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 375–402 (2006)  
“Characterization of the organic composition of aerosols from Rondonia, Brazil, during the LBA-SMOCC 2002 experiment and its representation through model compounds”
- 21) C. L. HEALD et al.: *J. Geophys. Res.*, 113, D05211, doi:10.1029/2007JD009092 (2008)  
“Predicted change in global secondary organic aerosol concentrations in response to future climate, emissions, and land use change”
- 22) K. SUDO et al.: *Geophysical Research Letters*, 30, 24,2256, doi:10.1029/2003GL018526 (2003)  
“Future changes in stratosphere-troposphere exchange and their impacts on future tropospheric ozone simulations”
- 23) H. AKIYOSHI et al.: *J. Geophys. Res.*, 109(D03), D03304, doi:10.1029/2003JD003632 (2004)  
“Ozone perturbations in the Arctic summer lower stratosphere as a reflection of NO<sub>x</sub> chemistry and wave activity”
- 24) T. NAGASHIMA et al.: *Geophysical Research Letters*, 29, No. 8, 10.1029/2001GL014026 (2001)  
“Future development of the ozone layer calculated by a general circulation model with fully interactive chemistry”
- 25) L. LI et al.: *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6, 2453–2464 (2006)  
“Kinetics and mechanism of heterogeneous oxidation of sulfur dioxide by ozone on surface of calcium carbonate”
- 26) J. F. LAMARQUE et al.: *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions* 10, 4963-5019 (2010)  
“Historical (1850-2000) gridded anthropogenic and biomass burning emissions of reactive gases and aerosols: Methodology and application”
- 27) 須藤健悟, 高田久美子, 竹村俊彦, 神沢博, 安成哲三 : 低温科学, 68, 129-136 (2010)  
「植生変化・エアロゾル複合効果がアジアの気候に及ぼす影響の評価」
- 28) Y. KANAYA et al.: *Aerosol Science and Technology*, 47, 1–10 (2013)  
“Comparison of Black Carbon Mass Concentrations Observed by Multi-Angle Absorption Photometer (MAAP) and Continuous Soot-Monitoring System (COSMOS) on Fukue Island and in

Tokyo, Japan”

- 29) Y.H. LEE et al.: *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 2607-2634, doi:10.5194/acp-13-2607-2013 (2013)  
“Evaluation of preindustrial to present-day black carbon and its albedo forcing from Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project (ACCMIP)”
- 30) T. C. BOND et al.: *J. Geophys. Res. Atmos.*, 118, 5380–5552, doi:10.1002/jgrd.50171 (2013)  
“Bounding the role of black carbon in the climate system: A scientific assessment”
- 31) T. C. BOND, and R. W. BERGSTROM: *Aerosol Sci. Tech.*, 40, 27–67 (2006)  
“Light absorption by carbonaceous particles: an investigative review”
- 32) S. KIRSCHKE et al.: *Nature Geosci.*, 6, 813–823, doi:10.1038/ngeo1955 (2013)  
“Three decades of global methane sources and sinks”

#### (4) 北東アジアにおけるモデル精緻化のためのオゾン・エアロゾル現場観測

##### a) オゾン・エアロゾルと関連物質の観測

##### b) 揮発性有機化合物と窒素酸化物の測定

(独) 海洋研究開発機構研究所 地球環境変動領域 金谷 有剛

(独) 国立環境研究所 地球環境研究センター 谷本 浩志

#### <研究協力者>

(独) 海洋研究開発機構 駒崎 雄一、入江 仁士<sup>1</sup>、竹谷 文一、高島 久洋<sup>2</sup>、Xiaole Pan、  
鵜野 伊津志<sup>3</sup>、山地 一代<sup>4</sup>

(<sup>1</sup>平成24年度より千葉大学、<sup>2</sup>平成24年度より福岡大学、<sup>3</sup>九州大学、<sup>4</sup>平成25年度より神戸大学)

(独) 国立環境研究所 猪俣 敏、工藤 慎治、齊藤 伸治

平成21～25年度累計予算額：153,648千円

(うち、平成25年度予算額：28,917千円)

予算額は、間接経費を含む。

#### [要旨]

福江島でのオゾン・PM<sub>2.5</sub>・ブラックカーボン等の5年に亘る通年観測、福江・如東（Rudong・中国）・済州島（韓国）におけるオゾン・エアロゾル・前駆物質等総合集中観測を行い、中国～日本に跨る広域汚染を観測から明らかにし、領域スケール化学輸送モデル・全球化学気候モデルを検証し高度化した。2009～2013年度、福江におけるオゾン・PM<sub>2.5</sub>の高濃度日数(日平均値60ppb超、35μg/m<sup>3</sup>超)はそれぞれ年間32-47日、18-31日と高止まりし、環境基準を超過している。月平均濃度でみると福江島でのオゾン・PM<sub>2.5</sub>はともに5年間で微減傾向を示したが、気象場の変動が主因であり、前駆物質排出の減少を示唆しない。PM<sub>2.5</sub>成分は、硫酸・硝酸・アンモニウムイオン・有機物が主であり、モデルは観測された有機物濃度の約5分の1しか再現しないが、その他成分の再現性は良好で、和として表現されるPM<sub>2.5</sub>質量濃度では、観測された季節性や短期変動を再現するなど一定の性能が確認された。ブラックカーボン（BC）濃度の計測法の信頼度を向上させるとともに、BCの生成・消失に関わるプロセス理解を進め、これまで不確かさの大きかった発生量や温暖化影響の見積幅を狭めることに貢献した。オゾンの生成速度や制限因子を解析し、春季の福江では通常NO<sub>x</sub>-limitedであるが、韓国方面から気塊が流入する際にはVOC-limitedにもなり得ることが示され、流入後の気塊に対しオゾンの追加的な生成を抑えるためには、国内NO<sub>x</sub>の放出を抑えることが最重要だが、VOCの放出削減も有意義であることが示唆された。如東では、華北平原一帯で5～6月に起こる大規模な農作物残渣野外燃焼の影響を観測から捉え、非メタン揮発性有機化合物(NMVOC)類の排出係数を明らかにし、排出インベントリの向上に資する結果を得た。中国における小麦（全穀物）の野焼きによるNMVOCsの放出は0.29 Tg(1.95Tg)にもなると考えられ、オゾン・PM<sub>2.5</sub>生成に多大な影響があると考えられた。農作物残渣の模擬燃焼実験から、BCやNMVOCの排出係数は、燃焼状態（有炎・無炎）の影響を強く受けることが分かった。

## [キーワード]

PM<sub>2.5</sub>, オゾン, 光化学生成, ブラックカーボン, 農業残渣野外燃焼

### 1. はじめに

21世紀に入り中国での経済発展は著しく、中国中東部は都市毎のサイズを大きく上回る500-1000km規模の面的な発生源の様相を呈し、大気汚染が深刻化している。大陸での汚染気塊の一部は西日本などへ越境流入し、日本で発生した汚染物質とも混合してアジア広域大気汚染を引き起こしている。健康被害をもたらすオゾン・PM<sub>2.5</sub>に関して、こうした広域大気汚染現象を把握し予測可能とするためには、前駆物質（一酸化炭素(CO)、非メタン揮発性有機化合物(NMVOC)、窒素酸化物(NO<sub>x</sub>)・一次成分（ブラックカーボン(BC)など）の排出、大気中輸送・大気化学反応による二次汚染成分（オゾン(O<sub>3</sub>)や硫酸塩(SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>)・硝酸塩(NO<sub>3</sub><sup>-</sup>)・有機エアロゾルなど）の生成、降水や乾性沈着による除去といったあらゆるプロセスを総合的に理解し、適切にモデル化する必要がある。オゾンの動態に関わるプロセスについては一定の理解度に達してはいるものの、前駆物質（特にVOC）の排出量や空間分布の情報が不足している。PM<sub>2.5</sub>については、存在量の把握や組成の理解自体が立ち遅れており、個別成分のモデル表現は極めて不十分であった。また、気候影響をもたらすBCの挙動解明も重要であるが、排出の実態や大気中寿命に関する不確かさは非常に大きい。とくにバイオマス燃焼からの排出量については、O<sub>3</sub>, PM<sub>2.5</sub>, BCいずれに対しても大きなインパクトを持つと考えられるが、アジアの現場情報が極めて限られており、アジア以外の地域の排出特性に基づいて推計されているのが現状である。とりわけNMVOCについては、振る舞いの異なる多成分が含まれ観測には高い技術が必要なこと、窒素酸化物(NO<sub>x</sub>)の排出推計改善に対して近年普及してきた衛星観測等に基づくトップダウン的な情報も限られることから、不確か性が高い。このような状況を改善すべく、観測によって必要な情報を取得してモデルシミュレーションを検証し高度化することが、モデル感度解析などに基づいて導き出される対策を信頼性の高いものにするためにも不可欠となっている。さらに、O<sub>3</sub>, PM<sub>2.5</sub>の高濃度発生頻度や平均濃度に関する年々変動・推移を観測から把握し、その要因の合理的解釈を進めることも重要である。とくに、2009年9月に新たに策定されたPM<sub>2.5</sub>環境基準の達成度を評価して、対策に結びつけることは重要である。

### 2. 研究開発目的

本サブテーマでは、九州地域～中国国内におけるオゾン・エアロゾル・前駆物質の集中観測を企画・実施し、中国～日本に跨る広域汚染を観測から明らかにする。具体的には、越境大気汚染の「入口」地域に位置し、日本西方を代表する福江島に拠点を設け、基本成分についての通年観測を継続実施し、大陸から日本への越境輸送に着目しながら高濃度現象の発生頻度や濃度平均値に関する季節性や



図(4)-1. 通年・集中観測を実施した福江・如東・済州島の位置。過去の中国観測点（嶗山、泰山、華山、黄山）、およびMAX-DOAS連続測定点（横須賀、光州、合肥、沖縄辺戸岬）も示す。

年々変動とそれらの要因を明らかにすること、日本・中国・韓国においてオゾン・エアロゾル・前駆物質の集中観測を企画・実施し、PM<sub>2.5</sub>の成分や、NO<sub>x</sub>, VOCなどの詳細情報を得て、起源や排出量を明らかにし、化学反応や輸送、消失に関するプロセスを解明すること、不確かさの大きいBCの観測法を向上させること、これらの観測情報によって、サブテーマ（1）や（3）と緊密に連携して領域スケール・全球スケール化学輸送モデルを精緻化することを目的とする。観測結果や気象データをもとに、汚染の主な発生地域や要因を解析し、排出比などのモデル高度化に資する情報をとりまとめるとともに、オゾンの生成速度や制限因子(NO<sub>x</sub>-limited, VOC-limited)を解析し、環境改善のための政策に資する情報も発信する。なかでも、オゾン前駆物質のうち特に野外観測による排出源の検証が少ないNMVOCsに注目し、大陸発生源近傍での観測を行うことで、バイオマス燃焼を含む各種発生源からのNMVOCsの排出係数や排出量などに関する情報を得て、排出インベントリの改良に貢献する。また実際に農作物の残渣を燃焼させる実験を行うことにより、排出係数の燃焼状態依存性を把握し、野外観測結果を検証する。

### 3. 研究開発方法

#### (1) 福江島等での通年観測と解析

表(4)-1. 3回の集中観測における測定項目。網掛けは福江での通年観測項目。

測定項目	福江集中観測(2009.4-6)	如東集中観測(2010.5-6)	済州島集中観測(*) (2012.10-11)
BC	COSMOS, MAAP (Thermo, model 5012)	COSMOS, MAAP (Thermo, model 5012)	Aethalometer
PM <sub>2.5</sub> mass concentration	SHARP (Thermo, model 5030)	SHARP (Thermo, model 5030)	Metone(BAM-1020)
O <sub>3</sub>	Dylec1150 (通年観測は Dylec 1100, Thermo 49C)	Thermo 49C	Thermo 49i
NO <sub>2</sub> , aerosol extinction etc.	MAX-DOAS	MAX-DOAS	MAX-DOAS
CO	Horiba APMA-360 (通年観測は Thermo 48C)	Thermo 48C	Aerolaser
EC/OC	Sunset semi-continuous ECOC analyzer (TOT)	Sunset semi-continuous ECOC analyzer (TOT)	Sunset semi-continuous ECOC analyzer (TOT)
Speciated PM2.5: SO <sub>4</sub> , NO <sub>3</sub> , Cl, NH <sub>4</sub> , Na, Ca, metals, organics	HV-525PM PM2.5 high-vol air sampler/ion chromatograph, ICP-AES, HPLC	HV-525PM PM2.5 high-vol air sampler/ion chromatograph, ICP-AES	URG Realtime AIM (Ambient Ion Monitor)
CO <sub>2</sub> , CH <sub>4</sub>	LICOR LI-7000 (CO <sub>2</sub> only)	Picarro G1301 analyzer	N/A
aerosol scattering coefficient and its RH dependence	Radianc Research, M903 and customized humidifier	Radianc Research, M903 and customized humidifier	TSI 3563
aerosol size distribution (90-3000nm)	PMS LAS-X II	RION KR12A (0.3,0.5,0.7,1,2,5um)	SMPS, APS
NO/NO <sub>2</sub> /NO <sub>y</sub>	improved Thermo42CTL, BLC/Molybdenum converters	Improved Thermo42CTL, BLC/Molybdenum converters	NIER Photolytic converter
NMHC <sub>s</sub> , oxygenated VOCs etc.	GC (courtesy of Dr. Yokouchi), PTR-MS	GC/FID/PID, GC/MS/FID, PTR-MS	GC (Canister based, NIER),
J values, spectral actinic flux	spectroradiometer (Metcon)	spectroradiometer (Metcon)	spectroradiometer (Metcon)

福江島大気環境観測施設(32.75°N, 128.68°E, 75m asl)において、O<sub>3</sub>、BC、PM<sub>2.5</sub>濃度等の連続測定(2009年2月～2014年3月)を継続した。O<sub>3</sub>はDylec社製Model1150およびThermo社49C(2010年10月以降)によって、PM<sub>2.5</sub>はThermo社製SHARP5030によって測定された。地上からのリモートセンシング分光MAX-DOAS (Multi-Axis-Differential Optical Absorption Spectroscopy, 複数仰角・差分吸収分光法)によるNO<sub>2</sub>等の測定も継続された。一酸化炭素(CO)の計測もThermo社48Cにより2010年10月より行った。福江でのBC測定では、共存する散乱性成分の影響を受けにくい2種の装置(東大近藤研開発のCOSMOS, MAAP)を並行運転し、比較検証を行った。これらの観測から季節性や年々変動、高濃度日の出現頻度等の解析も行い、モデルの検証を行った(S7-1-(1)およびS7-1-(3)の報告を参照)。福江のほか、沖縄辺戸岬(26.88°N, 128.25°E)、中国合肥(31.91°N, 117.16°E)、韓国光州(35.23°N, 126.84°E)などでもMAX-DOAS法によるNO<sub>2</sub>等の通年観測を2009～2014年3月の期間で行った。さらに、過去に行った中国山東省・泰山(36.26°N, 117.11°E, 2006年5月～2007年5月)や安徽省・黄山(30.16°N, 118.26°E, 1840m asl, 2006年6月～2009年5月)でのBC(Thermo社製MAAP)、CO(Thermo社48C)の同時計測結果についても解析を行った。

## (2)福江島・如東・済州島での集中観測

また、有人下で測定が可能となる成分等を含む総合的な集中観測を、福江(2009年4月29日～6月9日)、中国江蘇省如東(Rudong, 32.26°N, 121.37°E, 2010年5月15日～6月24日)、韓国済州島600m済州大気質研究センター(33.35°N, 126.39°E, 2012年10月9日～11月5日)にて実施した。如東観測点は、黄海のすぐ西側に位置し、上海からは北へ100km、Rudong市街からは15km南東に離れており、済州大気質研究センターも、市街地より南西方向へ30km程度離れており、いずれの地点も近傍の発生源の影響は少ない。集中観測では、オゾンと前駆物質等(NO/NO<sub>2</sub>/NO<sub>y</sub>、VOC、光解離速度値)、PM<sub>2.5</sub>質量濃度とECOC(元素状・有機炭素)、水溶性成分(硫酸・硝酸アンモニウムイオン等)を含むPM<sub>2.5</sub>の主要化学成分、サイズ分布、光学特性、関連トレーサー類を観測した(表(4)-1)。

福江・済州島での集中観測の主目的は、春季・秋季のオゾン・エアロゾル越境大気汚染を捉えることとし、済州島観測では、福江島での同時観測との対比により越境大気汚染の水平分布・輸送を検証すること、済州島西端のGosan観測所(33.29°N, 126.16°E, 72m)、漢拏山中腹に位置する高度約1100mの済州大学観測所(33.35°N, 126.45°E)にも装置を配置して、高度分布構造もとらえることを主目的とした。中国如東では、中国華中地域での排出源等の情報を得ることを目的とした。上海方面からの大都市影響の解析に加え、冬小麦収穫後のバイオマス野外燃焼の影響を発生源近傍でとらえ、解析した。2010年は例年より冬小麦の収穫期が2～3週間遅れたが、6月中旬に捉えることに成功した。泰山にて過去に同様の大規模燃焼の影響を発生源から200km程度離れた位置から捉えた際の情報との比較解析を行った。

如東観測ではVOCの計測を重点化し、複数の手法(日本から持ち込んだ機器類や中国科学院大気物理研究所の機器)による測定を行い、データの正確さを検証した。ガスクロマトグラフィ/水素炎イオン化型分析計/質量分析計(GC/FID/MS)の装置(model 6890GC/5973MSD, Hewlett Packard, USA)を使い、1～2時間の頻度でNMVOCsの濃度を計測した。実大気を100 mL/minの流量で10分間サンプリングし、前濃縮ユニット(GAS-30, DKK-TOA Co. Ltd, Japan)に導入した。大気サンプルから水蒸気を除去するためにナフィオンチューブを使用し、サンプル中のNMVOCsの吸着を最小限にするためにバルブと配管を80°Cで保つようにした。サンプル捕集チューブは50.0 mgの

Carboxen 1000と50.0 mgのCarbopack B、100.0 mgのCarbopack Cの3つのカーボン系吸着剤から構成され、-78℃に保たれる。その後、250℃まで急速に加熱することによりNMVOCsが捕集チューブから脱着する。その後、サンプルは液体窒素で-150℃まで冷却されたクライオフォーカスユニットで再度トラップされ、さらに250℃に加熱されることによって脱着され、FIDおよびMS検出器に接続されたキャピラリーカラムに導入される。GC温度は、最初は5分程40℃に保たれ、その後+5℃/minで200℃まで上がり、200℃に達すると10分ほど保たれる。C<sub>3</sub>-C<sub>5</sub>アルカンとアルケンはAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub> PLOTカラムで分離させFIDを使用して定量する。C<sub>5</sub>-C<sub>9</sub> NMVOCs（イソプレンと芳香族）は非極性カラム(HP-1: 60m×0.25μm ID×0.25μm)で分離され、四重極MSを使用し定量する。このGC/FID/MSのキャリブレーションは58種のNMVOC標準ガス（1ppmv）（PAMS-J58, Sumitomo Seika Chemicals Co. Ltd., Japan）を用いて、これを希釈して実大気濃度レベルで行った。NMVOCsの検出下限

（Signal/Noise=3）は約0.004ppbvである。C<sub>2</sub>成分（エタン、エチレン、エチン）の濃度データは装置の不具合で得られなかったため、中国科学院大気物理研究所のグループによって行われたGC/FID/PID（Photo-ionization detector）によるC<sub>2</sub>-C<sub>9</sub>アルカン、アルケン、芳香族の計測データを相補的に解析に用いた。

また、プロトン移動反応質量分析計（PTR-MS）（Ionicon Analytik GmbH, Austria）を用いたNMVOCsの連続計測も行った。実大気サンプルはベローズポンプ（Model BA-110SN, Iwaki Co. Ltd., Japan）で10 L/minの流量で採取された。ドリフトチューブは2.1 mbar、400V、105℃に調整され、電場強度はE/N=108 Td（Td=10<sup>-17</sup> cm<sup>2</sup>V/molecule）とし、NMVOCsのフラグメンテーションを最小限にとどめた。NMVOCsの感度変化をチェックするために標準ガスを1日に1度導入した。典型的な感度は、例えばイソプレンで5.24±0.06 ncps/ppbv（乾燥状態）であった（ここでncpsは10<sup>6</sup> cpsのH<sub>3</sub>O<sup>+</sup>カウントで標準化することを表す）。

いずれの集中観測でも、S7-1-(3)と連携したモデルの検証比較を実施した。福江での集中観測期間には国立環境研究所により行われたエアロゾル質量分析計によるエアロゾル成分データや自動連続GCによるNMHCsの情報も入手し、共同解析を行った。中国・韓国の観測は、中国科学院大気物理研究所・復旦大学、韓国国立環境研究院・済州大学と全面協力し、実現した。

オゾン生成速度、制限因子の解析法は以下のとおりである。オゾンとその前駆物質（NO<sub>x</sub>, 非メタン炭化水素(NMHCs)、酸化揮発性有機化合物類(OVOCs)、一酸化炭素、水蒸気等）の濃度、オゾン等の光分解速度定数（J値）の観測データを光化学ボックスモデルの入力データとして用い、OH、HO<sub>2</sub>、RO<sub>2</sub>ラジカル等の濃度を算出するとともに、HO<sub>2</sub>+NO、RO<sub>2</sub>+NOの反応速度等で決まる「その場(in situ)」オゾン生成速度を算出した。ボックスモデルではRegional Atmospheric Chemistry Mechanism (RACM)を対流圏化学反応メカニズムとして使用した。また、NO<sub>x</sub>, VOCを変化させる感度ランの結果を用いて、オゾン生成の制限因子(NO<sub>x</sub>-limited, VOC-limited)解析を行った。

### (3) 農作物残渣燃焼実験

燃焼実験の概略を図(4)-2に示す。燃焼チャンバー内に床から浮いた状態でセットされた金属製の網の上に農作物残渣の少量を置き、着火した。炎から約30 cmほど離れたところにサンプリングポートを用意した。サンプリングポートとしては3本のチューブを用い、1つは粒子測定用（導電性チューブ）、2つはガス用（テフロンチューブ）とした。ガス状成分としては、CO<sub>2</sub>、CO、NMVOCsを測定した。CO<sub>2</sub>は希釈をせずに直接CO<sub>2</sub>計（LI-7000, LI-COR）を用いて測定した。COについては、

高時間分解能CO計（Model5002, Aero Laser）を用いて1秒間隔で測定した。NMVOCsに関してはプロトン移動反応質量分析計（PTR-MS, PTR-MS 500, IONICON）を用いて約2秒間隔で、OVOCs、芳香族炭化水素を中心に測定した。CO、NMVOCsについては、ゼロ空気で22倍に希釈してからそれぞれの装置に導入した。粒子に関しては、個数密度をOPCで、黒色炭素（BC）および有機粒子の数密度を

SP2（Single Particle Soot Photometer）を用いて計測した。

実験には、麦わらとアブラナの2種類の試料を用いた（図(4)-3に写真）。麦わらに関しては、18の実験を行い、そのうち14回は乾燥した状態（dry）で、4回は水に湿らせた状態（wet）で燃焼させた。アブラナに関しては、6回の燃焼実験を行った。

本実験では、4種類の一次イオン（ $\text{H}_3\text{O}^+$ 、 $\text{NO}^+$ 、 $\text{O}_2^+$ 、 $\text{H}^+(\text{H}_2\text{O})_2$ ）に加え、28種類のNMVOCsを検出の対象とした。28種のNMVOCsのうち、ホルムアルデヒド（M31）、メタノール（M33）、アセトニトリル（M42）、アセトアルデヒド（M45）、ギ酸（M47）、アセトン（M59）、酢酸（M61）、イソプレン（M69）、メチルビニルケトン（M71）、メチルエチルケトン（M73）、ベンゼン（M79）、トルエン（M93）、*p*-キシレン（M107）、1,3,5-トリメチルベンゼン（M121）に関しては、標準ガスを用いて感度を決定したうえで濃度を求めた。それ以外の化合物に関しては、感度の理論値（ $9.1 \text{ ncps ppbv}^{-1}$ ）を用いて濃度を求めた。

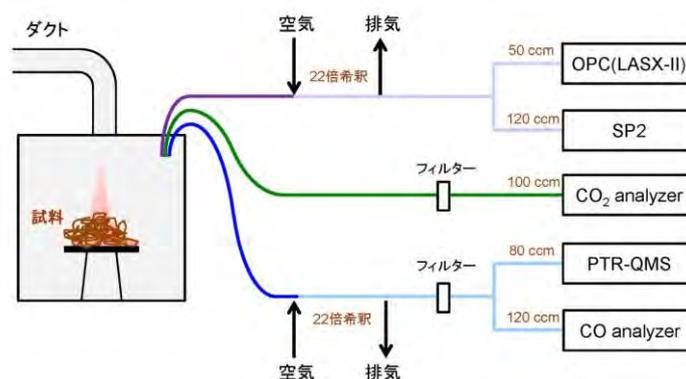
燃焼の状態は、有炎（flaming、炎を出して燃えている状態。完全燃焼に近い）と無炎（smoldering、煙が燻ぶって燃えている状態。不完全燃焼に近い）とその中間状態に大きく分けられる。燃焼状態の指標として、MCE（modified combustion efficiency,  $\Delta\text{CO}_2/(\Delta\text{CO}_2 + \Delta\text{CO})$ ）が用いられ、0.99付近が有炎、0.65~0.85が無炎とされている。実験では、MCEが0.8から1での燃焼状態を作ることができ、NMVOCsの放出量の燃焼状態依存について調べた。

## 4. 結果及び考察

### (1) 福江島等での通年観測

#### 1) $\text{PM}_{2.5}$ の環境基準超過とオゾン等の変動傾向（福江）

環境基準告示(2009年9月9日)以後の1年間に、福江島で観測された $\text{PM}_{2.5}$ 濃度について詳細な解析を行った（図(4)-4上）。年平均値は $17.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ であり、欠測の期間の値やゼロ点の不確かさを考慮すると長期基準(年平均値 $15 \mu\text{g}/\text{m}^3$ )を有意に超過しているとは結論されなかったが、日平均値の年間98パーセンタイル値を日平均値の代表値として選択し評価を行う短期基準では観測値（56.5



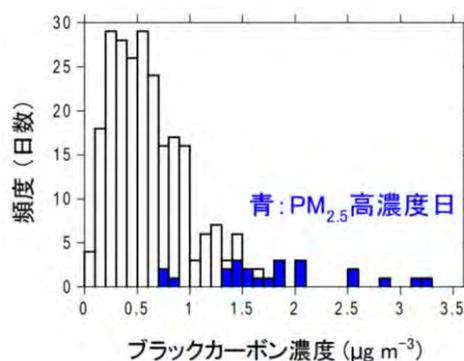
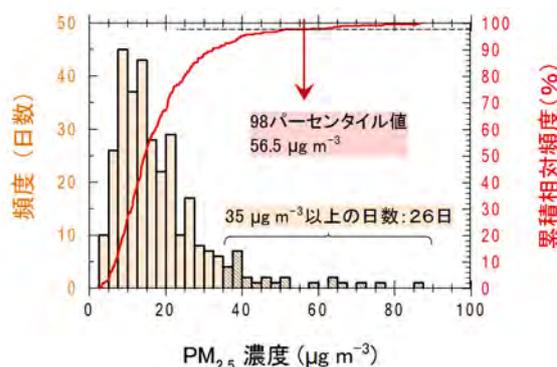
図(4)-2. 燃焼実験の概略図。



図(4)-3. 試料として用いた麦わら(左)、アブラナ(右)。

μg/m<sup>3</sup>が基準値(35 μg/m<sup>3</sup>)を大きく上回り、環境基準非達成であることが明らかとなった。換言すれば、35μg/m<sup>3</sup>を上回る日数は、環境基準では98パーセンタイルに含まれない上位2%分(年間365日で計算すれば7日未満)に収まらなければならないが、実際は年間で26日に達した。高濃度日の後方流跡線解析から、韓国～中国華北平原北部～華中付近から大陸を離れ福江島に気塊が到達するケースが多いことが示された。長崎で黄砂の影響が確認された日の前後に含まれない高濃度日も多く、また高濃度日にはBC濃度も高濃度で検出されたこと(図(4)-4下)から、越境大気汚染の影響も強いことが示唆された。

2010年度以降は、環境省モニタリングデータが充実化し、非達成地域は福江だけでなく西日本の広域に広がっていることが明らかになってきた。しかしながら、越境大気汚染が支配的に影響する環境で5年間の傾向を見てとれるのは現時点で福江島しかない。福江でのPM<sub>2.5</sub>高濃度日数は12月～5月に高く、年度ごとの集計では18～31日の間で高止まり(表(4)-2)、環境基準を満たさない状況に変わりはない。2013年1月、北京周辺で激甚な汚染が発生し、日本への影響についても急速に国民の関心事となった。本研究からも、福江島のデータを提示して、この月に日本で急増したわけではなく、越境汚染は例年程度であることなどを速やかに発信して(たとえば福江でのPM<sub>2.5</sub>高濃度日は3日のみ、表(4)-2の太字)、急に騒ぐのではなく10年スケールでの推移の監視が必要であることを主張した。オゾンについても、日平均濃度が1時間値の環境基準である60ppbを上回る日数が過去5年度で32-47日間も見られており、合わせて顕著な越境大気汚染問題として認識すべきことが観測から改めて示された。



図(4)-4. (上)福江島における2009年9月9日から1年間の日平均PM<sub>2.5</sub>質量濃度のヒストグラムと累積相対頻度(%)。(下)福江島におけるブラックカーボン濃度のヒストグラム。

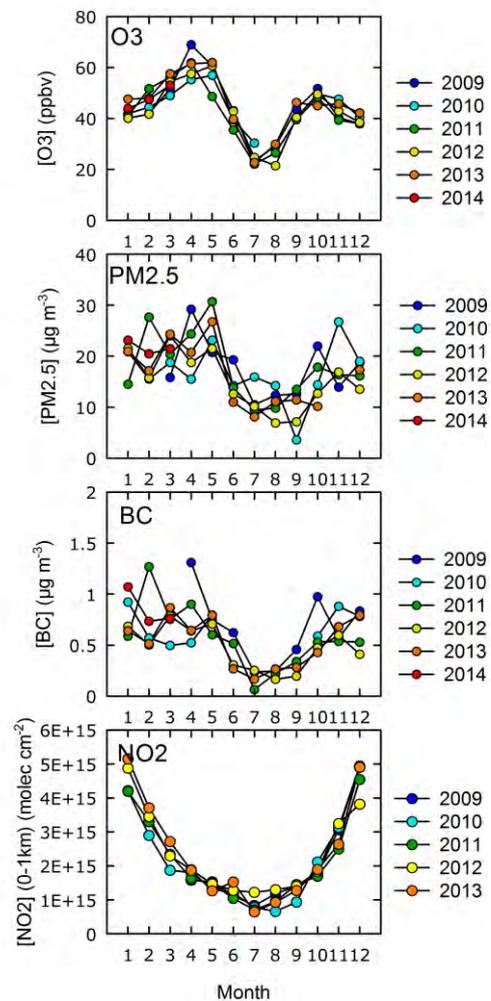
表(4)-2. 福江島(32.75°N, 128.68°E)においてPM<sub>2.5</sub>質量濃度日平均値が35μg/m<sup>3</sup>を超過した月別日数(グレーは有効測定日数が15日以下)。2013年1月の高濃度日数は他の年と変わらない(太字)。オゾン日平均濃度が60ppbを超過した日数の年々変動も合わせて示す。

年度	4	5	6	7	8	9	10	11	12	1	2	3	合計	オゾン日平均濃度60ppb超過日数合計
2009	10	1	2	0	0	0	4	1	2	6	1	2	29日	34日
2010	0	5	0	1	4	0	1	5	3	0	7	2	28日	37日
2011	4	8	1	0	0	0	0	2	1	6	1	5	28日	32日
2012	1	4	0	0	0	0	0	2	0	<b>3</b>	1	7	18日	42日
2013	2	7	0	0	0	0	0	0	4	7	7	4	31日	47日

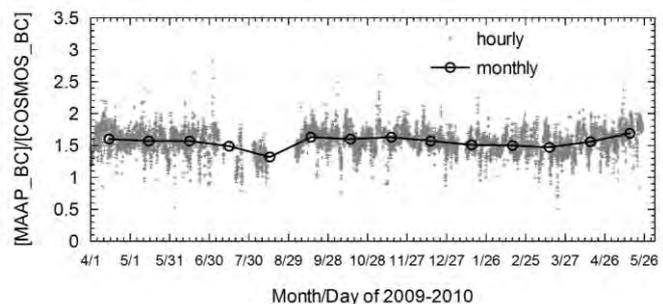
高濃度日数に加え、月平均濃度の5年間の推移についても解析を行った(図(4)-5)。O<sub>3</sub>、PM<sub>2.5</sub>、BC、NO<sub>2</sub>についていずれも太平洋からの清浄気塊が流入する夏季には濃度が極小となる傾向が共通すること、O<sub>3</sub>濃度は毎年滑らかに推移し春・秋に極大となること、PM<sub>2.5</sub>、BCは春秋に加えて冬も濃度が高く維持され、また、同じ月でも年々変動がO<sub>3</sub>より大きいことがわかった。NO<sub>2</sub>については、MAX-DOAS法から導出された高度0-1kmの部分カラム濃度で、12-1月に極大となることが示される。O<sub>3</sub>、PM<sub>2.5</sub>、BCには2009年3月から2013年12月にかけて、微減傾向を観測から見出した。一見、前駆物質の排出量削減効果の表れかと期待されたが、この期間の排出量を一定としたシミュレーションで観測と整合する減少が再現されたことから、減少の原因は排出源ではなく、むしろ気象場の変動によるものと結論付けた(図(1)-12)。

福江で観測されたO<sub>3</sub>、BC、PM<sub>2.5</sub>、NO<sub>2</sub>の季節変動については、サブテーマ(3)において改良された全球化学輸送・気候モデルMIROC-ESM-Chemの評価にも用いられた。図(3)-11に示されるように、O<sub>3</sub>、BC、PM<sub>2.5</sub>については濃度レベル・季節性ともに整合的な結果を得た。PM<sub>2.5</sub>については、有機物二次生成過程の改良に伴い、サブテーマ(1)の領域モデルよりも高濃度で表現されており、観測値と一致度が高まったものと考えられた。NO<sub>2</sub>については、沖縄辺戸岬と合わせて、清浄地点での対流圏鉛直カラム濃度の通年観測を用いた初めての検証となった。日変化を考慮した月平均値での比較では、夏季に一致度が高く、清浄大気中でのバックグラウンドNO<sub>x</sub>化学反応がモデル内で適切に表現されていることが示唆された。一方、冬季にはモデルの過小評価が顕著であり、モデルでこの場合に用いた2005年ベースの排出インベントリ(IIASA作成のもの)では、福江島の風上に位置する朝鮮半島などでのNO<sub>x</sub>排出量が、観測年(2009年以降)に対し過小評価されている可能性が指摘された。

## 2) ブラックカーボンの測定法：比較と信頼度向上



図(4)-5. 福江島におけるO<sub>3</sub>、PM<sub>2.5</sub>、BC、NO<sub>2</sub>の月平均値の推移。BC濃度はMAAPによる観測値を補正せずに表示している。



図(4)-6. 福江島における2種のBC計測装置による時間平均値の比の変動。

図(4)-6. 福江島における2種のBC計測装置による時間平均値の比の変動。

福江では2種の光学的な方法で測定されたブラックカーボン濃度は非常に強く正相関した(時間値に基づく月ごとの相関係数の二乗値は0.83-0.99)が、その比(MAAP\_BC/COSMOS\_BC比)は1.56と顕著であった。56%もの有意な系統差が見られたが、例外的な事象(黄砂の影響など)を除けば通年でほぼ一定であることを見出した(図(4)-6)。この結果は中国を含む集中観測などで得られた大小関係と整合的であり、校正の際に基準とした熱分離手法の違いに由来する可能性を指摘した。このことにより、従来400%にも上るとされたBC計測法の不確かさを約50%にまで狭めることができた。

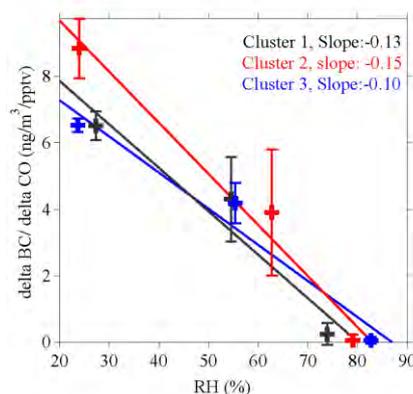
### 3) 中国・黄山での $\Delta BC/\Delta CO$ 比

中国・黄山における通年観測の解析からは、BC濃度は夏に極小値を示し、農業残渣の大規模燃焼が起こる5月と10月に極大を示す季節変化を示すこと、CO濃度は冬季に極大となることがわかった。BCの湿性沈着等による除去の影響が小さいと考えられる条件(過去2日に亘る後方流跡線上での相対湿度が40%未満)における $\Delta BC/\Delta CO$ 比は、気塊の起源地域ごとにやや異なり、北側(安徽・河南・山西・山東省)、東側(江蘇・浙江省)、南側(江西・福建省)でそれぞれ $6.5 \pm 0.4$ 、 $8.8 \pm 0.9$ 、 $6.5 \pm 0.2 \text{ ng m}^{-3} \text{ ppbv}^{-1}$ であった。バイオマス燃焼に強く影響された場合には $10.3 \pm 0.3$ 、 $11.6 \pm 0.5 \text{ ng m}^{-3} \text{ ppbv}^{-1}$ と高い値が記録された。いずれの気塊でも、 $\Delta BC/\Delta CO$ 比は相対湿度の上昇とともに減衰することが示され(図(4)-7)、BCは水溶成分との凝集による親水性の獲得後に高湿度条件において雲や降水過程によって除去されている可能性が示唆された。

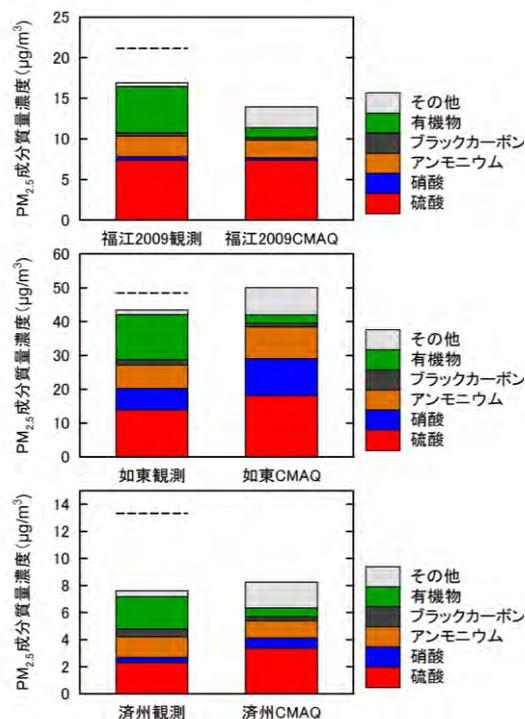
## (2) 福江島・如東・濟州島での国際共同集中観測

### 1) $PM_{2.5}$ の化学組成

各集中観測について、 $PM_{2.5}$ の化学組成を観測から明らかにした(図(4)-8左)。福江での有機物・硝酸塩はエアロゾル質量分析計(国立環境研究所)の値を用いている。BCには、福江・濟州島ではECOC計によるECの値、如東ではCOSMOSのBC値を採用した。如東・濟州島での有機物濃度はECOC計によるOCの値を1.6倍して用いた。福江・如東・濟州島いずれの地点でも、主成分は硫酸塩、硝酸塩、アンモニウム、有機物であり、BCは $PM_{2.5}$ に対する量と



図(4)-7. 中国・黄山における $\Delta BC/\Delta CO$ 比の相対湿度(RH)依存性。Cluster 1,2,3はそれぞれ気塊の起源地域(北側、東側、南側)に相当(本文参照)。



図(4)-8. 3地点での集中観測における $PM_{2.5}$ 成分ごとの質量濃度の平均値。破線は、観測された $PM_{2.5}$ 質量濃度の平均値。

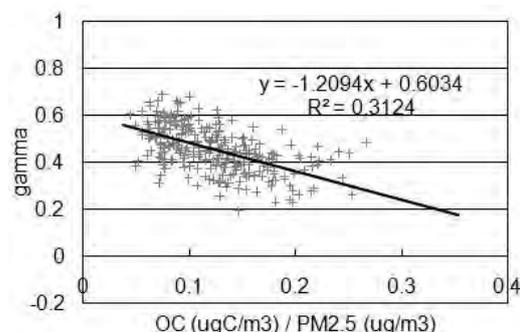
しては微量である。次に、PM<sub>2.5</sub>質量濃度（図(4)-8破線）と、個別成分の質量濃度の総和との一致度を確かめるマスクロージャー解析を行った。福江では、時間に対する変動傾向はよく一致したが、平均的に総重量濃度の28%が個別分析の総和で説明されないことがわかった。乾燥重量での比較を試みているものの、湿度40%以下でのSHARPモニターの値には水分が若干含まれている可能性が指摘される。これとは別に、各化学種成分濃度から、経験的な質量散乱係数を用いて推定した乾燥状態での散乱係数は、積分型ネフェロメータで測定された乾燥状態での値より25%程度低く、総質量の説明で不足している割合とほぼ対応したことから、マスクロージャーでの不足分には水分が関与している可能性が指摘された。如東では、PM<sub>2.5</sub>粒子の個別化学成分濃度の総和と総質量濃度は強く相関し、総質量濃度の約8～9割が乾燥状態の化学成分で説明され、水分を考慮するとほぼ100%説明されることがわかった。如東では、PM<sub>2.5</sub>粒子の個別化学成分濃度の総和と総質量濃度は強く相関し、総質量濃度の約8～9割が乾燥状態の化学成分で説明され、水分を考慮するとほぼ100%説明された。このことは、未知成分の寄与は小さく、モデルで既知の個別成分濃度の積み上げによってPM<sub>2.5</sub>総質量濃度を表現することができること、モデルでは既知の個別成分の表現能を高めることが重要であることを意味する。

続いて、観測された各成分濃度レベルをサブテーマ（1）での領域スケール化学輸送モデルWRF-CMAQ（図(4)-8右）の結果と比較した。硫酸塩・硝酸塩・アンモニウムやBCについては比較的一致度が高いが、有機物については、モデルが3～5倍の範囲で観測を過小評価する顕著な傾向が、3地点での観測に共通して見られた。このことは、1)存在が把握されている揮発性有機化合物について排出量を過小評価していること、2)存在が未把握な揮発性有機化合物や一次発生粒子が存在していること、3)大気中での有機粒子二次生成過程の表現がモデル内で適切でないこと、などに由来していると考えられた。3)については、Volatility-base set (VBS)など、揮発性の変化に基づいた有機物変質過程の表現により、一定の改善がみられることを定性的に把握したが、今後、モデルの改良と定量的な検証が必要な段階である。

## 2) 福江島でのエアロゾル散乱係数の湿度依存性

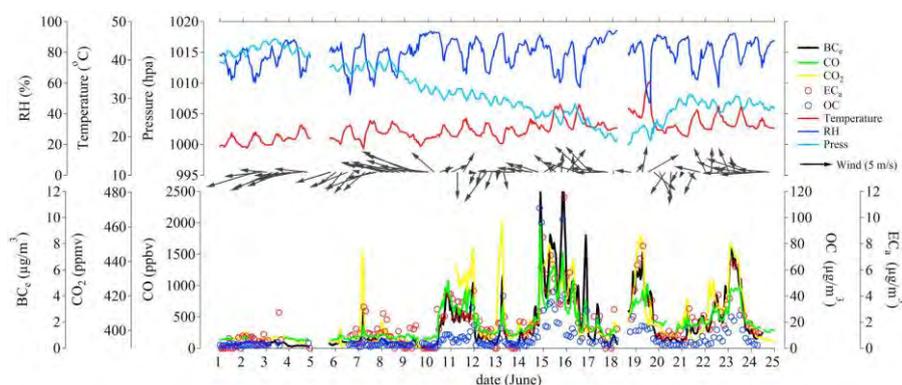
福江島では湿度変化させながらエアロゾル散乱係数測定を測定し、その吸湿成長度を評価した。乾燥条件（相対湿度：40%以下）でのエアロゾル散乱係数は、SHARPモニターで測定された乾燥条件でのPM<sub>2.5</sub>質量濃度と強く正相関することを確認し、この関係を利用し、散乱係数の相対湿度に対する依存性を評価する際には、散乱係数をPM<sub>2.5</sub>質量濃度(1分値)で割った質量散乱係数に対して解析することとし、湿度スキャンの時間内のPM<sub>2.5</sub>質量濃度変動の影響を打ち消した。相対湿度が40%以上・以下すべての条件において取得された質量散乱係数を相対湿度に対してプロットすると、湿度依存性が強い場合、弱い場合があることがわかった。この湿度依存性を、以下の数式で近似し、依存性パラメータ $\gamma$ を導出した。

$$b_{\text{scat}}(\text{RH}) = b_{\text{scat}}(\text{RH}=40\%) \times ((100-40)/(100-\text{RH}))^{\gamma} \quad (1)$$

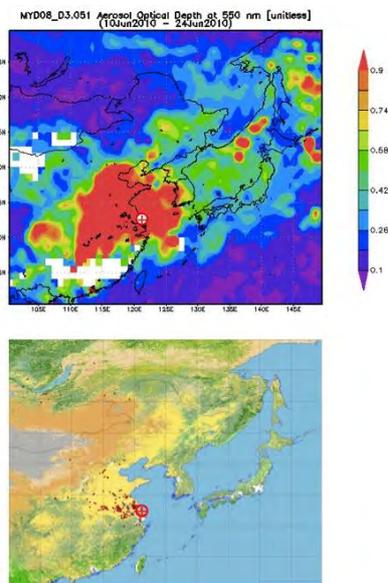


図(4)-9. 散乱係数の湿度依存性の強さの指標である $\gamma$ 値とPM<sub>2.5</sub>中有機炭素の割合との間に見られた逆相関関係。

この方法で導出された $\gamma$ 値は0.2-0.7の範囲で時間に対して変動し、エアロゾル中有機炭素の割合と逆相関することがわかった(図(4)-9)。すなわち、エアロゾル粒子の構成成分が硫酸塩など親水性の高い成分が支配的である場合と比較して、有機エアロゾルの比率が高まると親水性が低くなり、エアロゾルの吸湿成長が抑制され、結果として散乱係数の湿度依存性が弱くなる傾向が見られた。野外湿度条件では、乾燥条件と比較して、散乱係数は平均的に1.58倍に増大していたことがわかり、吸湿の効果は無視できないことがわかった。MAX-DOASやミーライダーによる消散係数の評価の際にはこの点を考慮することが不可欠である。また、エアロゾル気候モデルシミュレーションでは、散乱係数の湿度依存性に対する化学組成の効果を考慮すべきである。



図(4)-10. 如東で測定された気象データ、EC, OC, BC, CO, CO<sub>2</sub>濃度。



図(4)-11. MODISによって観測された  
(上) 2010年6月のエアロゾルの光学的厚さ、(下) 2010年6月16日のホットスポット。

(<http://webmodis.iis.u-tokyo.ac.jp/index.php>)

観測期間は、5月15日-28日の都市的な汚染が見られた期間(episode 1)、5月29日-6月9日の東風が卓越した清浄な期間(episode 2)、6月10日-24日の冬小麦収穫後のバイオマス野外燃焼の影響が見られた期間(episode 3)に大別されることがわかった。

図(4)-11は、2010年6月10日～24日におけるMODIS (Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer) センサで観測されたエアロゾルの(550nmの波長における)光学的厚さである。この中、観測サイトを含む揚子江デルタ地域が大量のエアロゾルに覆われている様子をはっきりと見てとれる。また、同じくMODISによる観測で検出されたホットスポットが穀物の農作地域(黄色の領域)にある



図(4)-12. 観測サイト付近の野焼きの様子。

### 3) 如東集中観測でのバイオマス燃焼等に注目した発生源解析

如東で測定された気象データ、EC、OC、BCやCO、CO<sub>2</sub>濃度時系列変動を図(4)-10に示す(5月については図(4)-13におけるOCの時系列も参照)。

ことから、これらのホットスポットは野焼きが原因であると推測された。図(4)-12は実際の野焼きの様子であるが、このような野焼きは小さな規模であり、特に曇りや大気汚染がひどい状態ではMODISなどのセンサー

宇宙から観測することが困難である。本研究で行った観測では、衛星観測では捉えられていない小規模なバイオマス燃焼も捉えているものと考えられる。

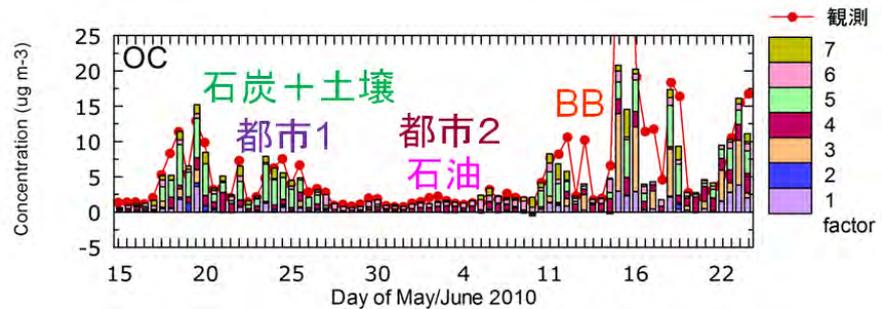
PM<sub>2.5</sub>の組成から発生源のタイプを推定するため、如東において

昼夜別に捕集したPM<sub>2.5</sub>フィルター捕集試料(74点)に関する、22分析項目(Cl<sup>-</sup>, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, Na<sup>+</sup>, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>, K<sup>+</sup>, Mg<sup>2+</sup>, Ca<sup>2+</sup>, Al, Ca, Cu, Fe, Mg, Mn, Ni, Pb, Sr, Zn, Ti, V, OC, EC)の結果を因子分析法の一種であるPositive Matrix Factorization (PMF)法にて解析した。その結果、各因子での支配的な成分の情報を頼りに、都市汚染起源(2種、factor 1、4)、土壌起源(factor 2)、バイオマス燃焼(factor 3)、石炭燃焼影響(factor 5)、石油燃焼影響(factor 6)、銅精錬(factor 7)が変動の主因子であることが推定され、どの因子がどの程度各成分の濃度に寄与しているか、時間変動の形で推定することができた。例として有機炭素エアロゾル(図(4)-13)では、

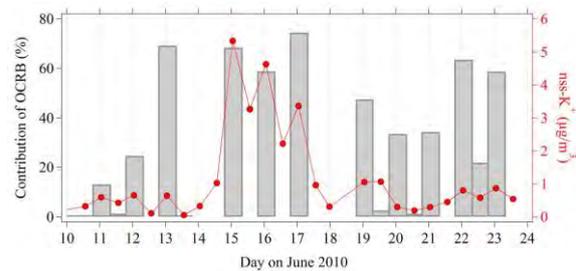
episode 1では石炭、土壌、都市汚染の影響が大きく、episode 2、3ではそれぞれ石油燃焼、バイオマス燃焼(BB)の寄与が大きいことが推定された。このような発生源別の濃度情報は、今後、有機エアロゾルの挙動のモデル表現を改善していく上で、1つの拘束条件を与えるものである。

図(4)-14は、ECの起源別寄与のうち、episode3の期間におけるバイオマス燃焼(図中ではOCRB、農業残渣野外燃焼と表記)の寄与率は、トレー

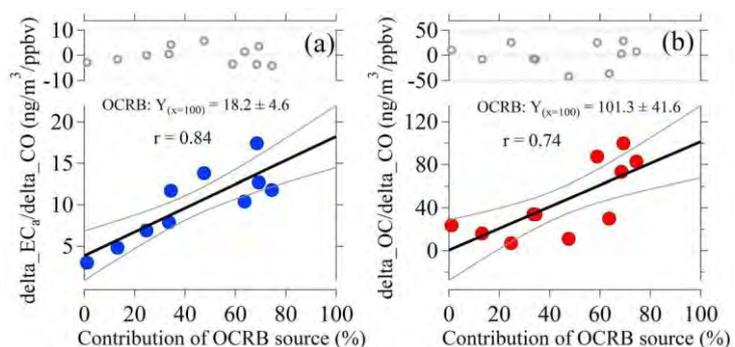
サーとなるPM<sub>2.5</sub>中のK<sup>+</sup>の濃度変動と良く対応していることを示す。また、ごく近傍でのバイオマス燃焼の影響を受けた期間でも、その寄与率は約70%で、他の都市汚染などの寄与を無視できないことも示唆された。そのため、OCRBからの炭素性エアロゾルの排出比( $\Delta BC/\Delta CO$ 比や $\Delta OC/\Delta CO$ 比)を推定するにあた



図(4)-13. 中国・如東集中観測におけるPM<sub>2.5</sub>中有機炭素濃度(赤丸)の時間変動と、PMF解析から示唆された発生源別寄与。



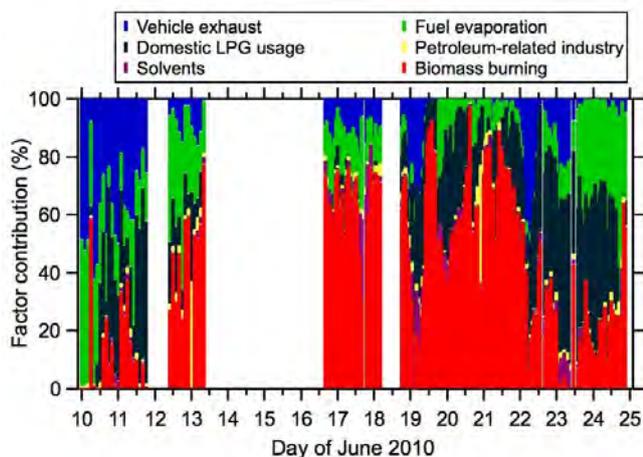
図(4)-14. PMF解析から示唆された如東でのEC濃度に対するOCRBの寄与率。非海塩性カリウムイオン濃度の変動も合わせて示す。



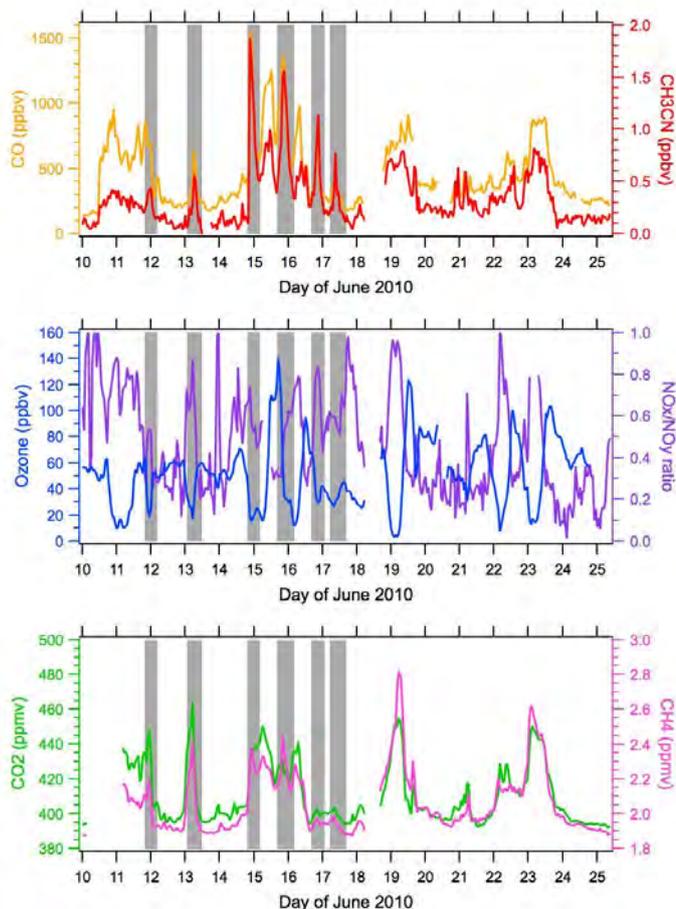
図(4)-15. (a) $\Delta BC/\Delta CO$ 比, (b) $\Delta OC/\Delta CO$ 比をPMF法によって推定されたOCRB寄与に対してプロットしたもの。

り、これらの比を、PMFから推定されたOCRBの寄与率に対してプロットし(図(4)-15)、100%に外挿した値を用いることとした。その結果、 $\Delta BC/\Delta CO$ 比や $\Delta OC/\Delta CO$ 比としてそれぞれ18.2、101.3  $\text{ng}/\text{m}^3/\text{ppbv}$ の値を得た。同様に都市汚染に対して得られた値(それぞれ3.0、23.7  $\text{ng}/\text{m}^3/\text{ppbv}$ )より大幅に大きく、OCRBは顕著な炭素性エアロゾルの排出源であることが示された。さらに、参照値としてよく使用されるAndreae and Merlet (2001)<sup>1)</sup>での $BC/CO$ 排出比 $9.4\text{ng}/\text{m}^3/\text{ppbv}$ を用いると、BCの排出量を約1/2に過小評価してしまう可能性が示唆された。

また、2006年に実施された中国山東省・泰山山頂(1534m)での観測において、約200km離れた地点で起こったバイオマス燃焼の影響がBC観測濃度を支配した時期のデータに着目し、発生源からの輸送時間を元に、BC粒子の大気中寿命を推定するための解析を行った。発生源からの輸送時間は、WRF-FLEXPARTモデルにより推定した。解析では、発生源からの輸送時間が長いほど、 $BC/CO$ 比が低減する傾向があることを見出し、指数関数的減衰曲線による回帰から、BC、OCの大気中寿命をそれぞれ4.1-5.7日、1.2-1.8日と推定した。BCの寿命は従来モデルで用いられてきた4.7-10日より短いものであり、(1)で述べた、黄山における $\Delta BC/\Delta CO$ 比の相対湿度に対する負の依存性の結果と合わせて、この地域では豊富に存在する硫酸塩などの水溶性成分との凝集によって、BC粒子が速やかに親水性を獲得している可能性が示唆された。このことは、S7-1-(3)において、BCの表現を改良する際に、大気中エイジング(水溶性成分との凝集)に



図(4)-16. 2010年6月の如東におけるPMF解析で得られた6ファクターの変動。



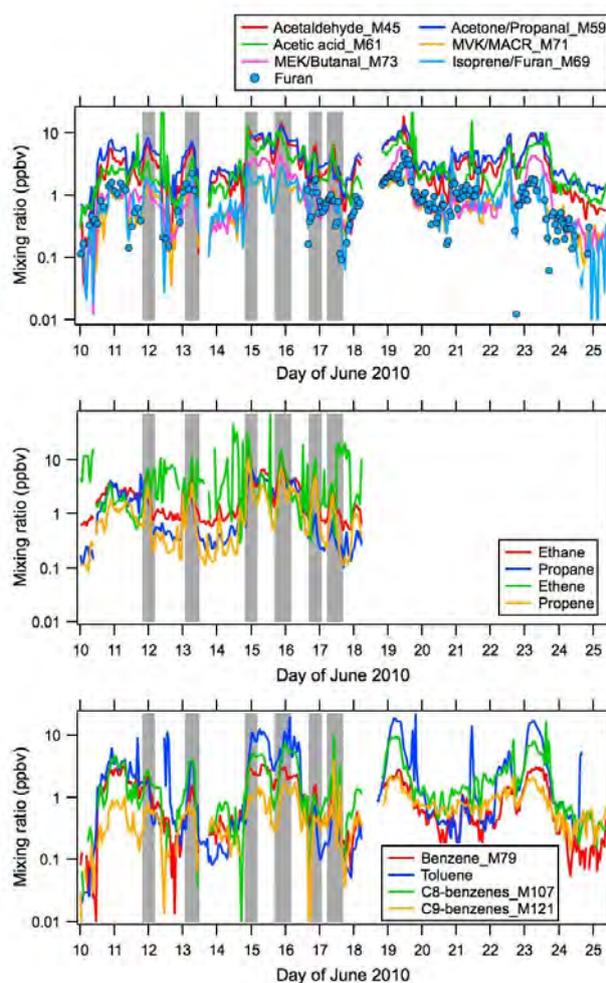
図(4)-17. 2010年6月の如東における(上)一酸化炭素とアセトニトリル、(中)オゾンと $NO_x/NO_y$ 比、(下)二酸化炭素とメタンの濃度変動。シェードの部分が野焼きのブルームに該当する。

よる親水性変化を新たに取り入れたことと整合的であり、その過程表現の適切さを支持する。

NM VOC起源の詳細解析においてもPMF解析を用いた。解析から得られたファクター（因子）は自動車排ガス、燃料蒸発、液化石油ガス（LPG）利用、石油産業、溶剤の使用、バイオマス燃焼の6つである。この6ファクターの経時的変化を図(4)-16に示す。バイオマス燃焼のファクターは平均して41%と、概して高い割合を示していた。LPGガス（24%）、燃料蒸発(17%)、自動車排ガス（13%）もまた多くの割合を占めたが、2010年6月13日から21日の間にかけて、バイオマス燃焼ファクターの割合が60～89%に及び、観測された大気が主にバイオマス燃焼の影響を受けていたことを示している。

図(4)-17（上段）に観測された一酸化炭素（CO）とアセトニトリル（CH<sub>3</sub>CN）の濃度変動を示す。COに加えて、CH<sub>3</sub>CNは植物の燃焼から放出されるため、バイオマス燃焼の良い指標となる。概して、COとCH<sub>3</sub>CNの濃度変化は非常に似ており、最大値がCOで1 ppmv以上、CH<sub>3</sub>CNで1 ppbv以上となっているような大きなピークが見られた。ここでは基本的に、COとCH<sub>3</sub>CNの濃度が同時に増加しているピークを選んで解析した。しかしながら、COとCH<sub>3</sub>CNが同時に増大しているにも関わらず、PMF解析によるバイオマス燃焼の割合が高くなかったケースがいくつかあった。例えば6月23日のプルーム21時間も続くような大きなイベントであったが、PMF解析によるとバイオマス燃焼に起因しておらず、主にLPGセクターと溶媒セクターに起因していた。実際にバイオマス燃焼はCH<sub>3</sub>CNの唯一の排出源ではなく、CH<sub>3</sub>CNは有機合成産業の重要な化学溶媒で、中国はその世界的な供給元であることも矛盾しない。収穫期は当局による野焼きの規制があり、特に上海万博が行われた2010年は特に規制が厳しかったことから、長時間に及ぶ野焼きが起こった可能性は低く、別起源と考えられた。

このような慎重な解析の結果、バイオマス燃焼によって影響を受けたプルームを合計で6つ同定した。いずれも半日以下（8～11時間）の短時間でのピークであり、これらは観測サイトの周囲の野焼きに起因していると推測できた。特に6月12日～18日の間は、煙の匂いや、積もった灰、焼け跡などから実際に野焼きの兆候を確認できた。これらのプルーム中ではオゾン濃度が減少しており（図(4)-17中段）、その濃度の減少は、



図(4)-18. 2010年6月の如東における（上）OVOC、（中）アルカンとアルケン、（下）芳香族炭化水素の濃度変動。シェードの部分が野焼きのプルームに該当する。

概して40 ppbv、最大では100 ppbvにもものぼった。NO<sub>x</sub>/NO<sub>y</sub>の比率はオゾンと逆で、プルーム中で増加していた。NO<sub>x</sub>/NO<sub>y</sub>比は平均では0.5以上、しばしば0.8にも高くなっていた。これは観測されたプルームが比較的新しいということを示している。CO<sub>2</sub>とCH<sub>4</sub>の濃度も（イベントによるが）概してかなりの増大を示した（図(4)-17下段）。

バイオマス燃焼の場合、概して燃焼源の位置が不明なために、放出後観測されるまでの時間を正確に知ることは困難である。ここでは、観測されたNO<sub>x</sub>とNO<sub>y</sub>の比と、仮定されたOHラジカル濃度、気相中におけるNO<sub>2</sub>+OHの化学反応速度定数を用いてその時間を推測した。観測された空気塊のエイジ（age、大気中に放出されてから観測されるまでの時間）は0.8~3.3時間の範囲であった。6つのプルームを空気塊のエイジで場合分けし、フレッシュプルーム（<2 時間）とエイジドプルーム（>3時間）とした。平均風速を2 m/sとすると、発生源はフレッシュプルームで9km以内、エイジドプルームで22km以内と推測できた。有炎燃焼の場合、MCEは0.99以上になり、無炎燃焼の場合、MCEは0.65-0.85で変化するが、0.8近くになることが多い。また、0.9近くのMCEは有炎燃焼と無炎燃焼の割合が等しい場合が多い。本研究で計算されたMCEは0.92~0.99の範囲であった。

図(4)-18にアセトアルデヒド、アセトン/プロパナル、酢酸、MVK/MACR、MEK/ブタナルとフランの濃度変化を示す。すべてのイベントにおいて、バイオマス燃焼放出からのOVOCsは著しく濃度上昇していた。

ここでは、各NMVOCsの排出係数(Emission Factor、EF)をカーボン（炭素原子）のマスバランス法で求めた。EFは、1 kgの試料を燃やした際、何gの各NMVOCsが放出されるかを示す値（EF<sub>i</sub>）で、単位はg/kgである。EF<sub>i</sub>を求める式は以下の通りである。

$$EF_i = F_c \times 1000(\text{g/kg}) \times \frac{MM_i(\text{g})}{12(\text{g})} \times \frac{C_i}{C_r} \quad (2)$$

F<sub>c</sub>が試料中の炭素の割合で、ここでは0.5を用いた。

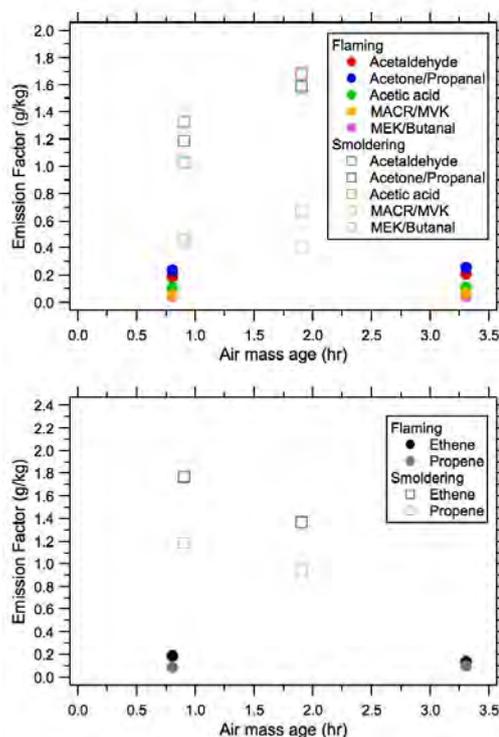
MM<sub>i</sub>は化学種*i*の分子量である。

C<sub>i</sub>/C<sub>r</sub>は以下の式で求められる。

$$\frac{C_i}{C_r} = \frac{\frac{\Delta C_i}{\Delta \text{CO}_2}}{\sum_{j=1}^n (NC_j \times \frac{\Delta C_j}{\Delta \text{CO}_2})} \quad (3)$$

ΔC<sub>i</sub>/ΔCO<sub>2</sub>がCO<sub>2</sub>に対する化学種*i*の放出量、NC<sub>j</sub>が化学種*j*の炭素数を表す。また、検出していないNMVOCsがあるが、[CO<sub>2</sub>+CO]の量に対して、数%と考えられるので、今回の見積もりで無視できるとして計算を行った。

表(4)-3に、今回フレッシュプルームのデータに基づいて導き出されたNMVOCsのEFを、今までの研究例とともに示した。CO<sub>2</sub>のEFは有炎(flaming)の方が無炎(smoldering)よりも高い。一方、無炎



図(4)-19. 各NMVOCsの排出係数のエアマスエイジ依存性。有炎と無炎の両方のケースで場合分けした。

表(4)-3. 農業残渣の野焼きからのNMVOCsの排出係数EF(g/kg)。

	Flaming	Smoldering	Akagi et al. (2011)	Yokelson et al. [2011]	Christian et al. [2003]	Andreae & Merlet (2001)	Yamaji et al. [2010]
<b>MCE</b>	0.992	0.930	---	0.925	0.811	---	---
<i>C<sub>1</sub> species</i>							
Carbon dioxide	1799 (2)	1613 (3)	1585 (100)	1664	1216	1515 (177)	1515
Carbon monoxide	9.0 (1.8)	77.9 (6.9)	102 (33)	86	180	92 (84)	92
Methane	4.57 (0.54)	9.65 (2.64)	5.82 (3.56)	5.01	9.59	2.7	2.7
<i>O&amp;N-VOCs</i>							
Acetonitrile	0.01 (0.00)	0.20 (0.03)	0.21 (0.06)	--	1.19	0.18	--
Acetaldehyde	{0.19}	1.51 (0.17)	1.24 (0.28)	--	7.05	0.65	1.03
Acetone	{0.24}	1.39 (0.20)	0.45 (0.07)	--	2.53	0.63	2.06
Propanal			--	--	--	0.08	--
Acetic acid	{0.11}	1.31 (0.27)	5.59 (2.55)	4.52	10.61	0.8	--
MACR	{0.06}	0.43 (0.02)	--	--	--	--	--
MVK			--	--	--	--	--
MEK			--	--	--	--	--
Butanal	{0.05}	0.57 (0.11)	--	--	--	--	--
Furan			0.11 (0.04)	--	0.62	0.5	--
Isoprene	{0.08}	0.53 (0.01)	0.38 (0.16)	--	2.14	0.05	--
<i>Alkanes</i>							
Ethane	0.11 (0.02)	1.20 (0.07)	0.91 (0.49)	0.91	--	0.97	0.87
Propane	0.05 (0.01)	0.42 (0.22)	0.28 (0.15)	0.282	--	0.52	0.41
<i>Alkenes</i>							
Ethene	{0.19}	1.57 (0.20)	1.46 (0.59)	1.16	2.84	1.4	1.40
Propene	{0.09}	1.06 (0.13)	0.68 (0.37)	0.496	1.52	1.0	0.85
<i>Aromatics</i>							
Benzene	0.09 (0.02)	0.53 (0.07)	0.15 (0.04)	--	0.87	0.14	0.24
Toluene	0.16 (0.04)	{0.33}	0.19 (0.06)	--	1.08	0.026	0.11
C <sub>8</sub> -benzenes	0.18 (0.05)	{0.68}	--	--	--	0.01-0.03	0.05
C <sub>9</sub> -benzenes	0.03 (0.02)	0.41 (0.15)	--	--	--	--	0.10
<b>Total NMVOCs</b>							15.70

におけるCOのEFは有炎と比べて9倍であった。無炎におけるCH<sub>4</sub>のEFは有炎と比べて2倍であった。CH<sub>3</sub>CNとOVOCsのEFは無炎時には5~10倍に増大しており、無炎時の低温燃焼がこれらのNMVOCs種を多く生成することを示していた。同様に、低分子アルカンとアルケン、芳香族も無炎状態において増加していた。無炎条件で導出されたEFの平均値は、レビュー論文の情報<sup>1),2)</sup>と比較的良く一致していた。アルカンとアルケンは非常に良く一致しており、アセトニトリル、アセトアルデヒドとフラン/イソプレンなどのOVOCsは、アルカンやアルケンよりいくらか劣るものの比較的良い一致を示した。MCEのデータがある報告例<sup>3),4)</sup>(メキシコでの観測: Yokelson et al., 2011; インドネシアでの観測: Christian et al., 2003)と本研究を比較すると、Yokelson et al. (2011)<sup>3)</sup>と本研究はMCEが0.92-0.93と似た値であることが分かる。それに対し、Christian et al. (2003)<sup>4)</sup>は、MCEが0.811と低い燃焼状態で、ほとんどのNMVOCsとCOにおいて、より高いEFの値を報告している。これらのことから、燃料となっている穀物の種類よりもむしろ燃焼状態がEFにとって重要な要素

であると推測できる。

本推進費プロジェクトの研究<sup>5)</sup>において、これまでCMAQ領域モデルでは中国の野焼き起源NMVOCs（トータル）の排出係数としてEF=15.70 g/kgの値を用いてきた。このEFをエタン、プロパン、ブタン、ペタン、その他アルカン、エチレン、プロペン、アルケン類2種、アセチレン、ベンゼン、トルエン、キシレン、その他芳香族、ホルムアルデヒド、その他アルデヒド、ケトン、ハロカーボン、その他NMVOCsといった19のNMVOCs成分に分配して種類別NMVOCsのEFを計算し、オゾンやエアロゾルの濃度計算に用いてきたが、ここで直接導出された種類別NMVOCsのEFが今後モデリングにとっても有用であることが示唆された。

酢酸については、報告によってEFの値が大きく異なっていた。酢酸のEFは、研究者・研究例によって1から10の値を示し、あまり良い一致が見られなかった。これには、酢酸を含むOVOCsが短時間の間で光化学的に生成したり失われたりすることが関係しているかもしれない。そこで、図(4)-19に各燃焼状態（有炎、無炎）におけるOVOCsのEFをエアマスエイジへの依存性として示した。無炎のプルームでは、アセトアルデヒド、アセトン/プロパナール、酢酸、MEK/ブタン

が、エアマスエイジの増加によって（つまり、バイオマス燃焼から放出されて時間が経つほど）増加しているのが明確に分かる。それに比べて、OHラジカルで酸化されて消失するアルケンのEFは時間が経つほど減少している。これらの結果は、できるだけ放出源に近いサイトでサンプリングしていても、算出されたEFはOVOCsの場合、若干過大評価され、アルケンの場合、過小評価されてしまうことを示している。エアマスエイジがゼロ（つまり、発生源）に外挿すると、アセトアルデヒド、アセトン/プロパナール、酢酸のEFは（単にフレッシュエアマスで計算するよりも）さらに低くなり、0.6-1.0の範囲となる。同様に、エタン、プロペンのEFはそれぞれ2.1と1.5となっている。また、有炎ではこういった依存性が見られないことから、有炎よりも無炎の方がプルーム中の酸化能が高いことが推測された。

表(4)-4. 中国における野焼きからのNMVOCsの年間放出量の推計値 (Tg/yr)。

	冬小麦	全穀物
<b>Biomass</b>	20.25 Tg	137.75 Tg
<b>C<sub>1</sub> species</b>		
Carbon dioxide	32.7	222.2
Carbon monoxide	1.6	10.7
Methane	0.20	1.33
<b>O&amp;N-VOCs</b>	<b>0.12</b>	<b>0.79</b>
Acetonitrile	(0.004)	(0.028)
Acetaldehyde	(0.003)	(0.207)
Acetone		
Propanal	(0.028)	(0.191)
Acetic acid	(0.027)	(0.180)
MACR		
MVK	(0.009)	(0.060)
MEK		
Butanal	(0.012)	(0.078)
Furan		
Isoprene	(0.011)	(0.073)
<b>Alkanes</b>	<b>0.03</b>	<b>0.22</b>
Ethane	(0.024)	(0.165)
Propane	(0.009)	(0.058)
<b>Alkenes</b>	<b>0.05</b>	<b>0.36</b>
Ethene	(0.032)	(0.217)
Propene	(0.022)	(0.146)
<b>Aromatics</b>	<b>0.08</b>	<b>0.55</b>
Benzene	(0.011)	(0.074)
Toluene	(0.032)	(0.217)
C <sub>8</sub> -benzenes	(0.029)	(0.199)
C <sub>7</sub> -benzenes	(0.008)	(0.056)
<b>Total NMVOCs</b>	<b>0.29</b>	<b>1.95</b>

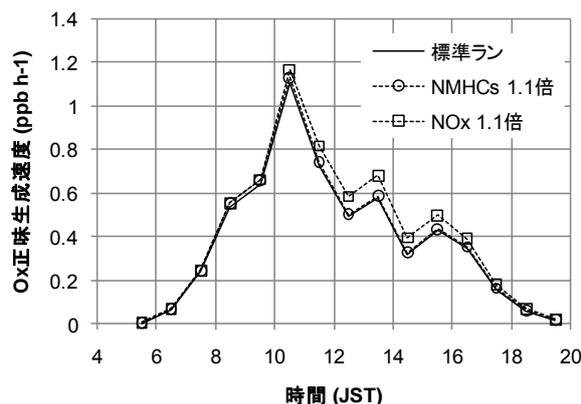
このように算出されたEFを利用して、中国における野焼きからのNMVOCs放出量を計算した。算出にあたっては無炎状態のEFを用いた。バイオマス量としては、米・小麦・トウモロコシ・キビ・モロコシ・ジャガイモ・大豆・綿・ピーナッツ・アブラナ・サトウキビ・テンサイなどの穀類や豆類のバイオマスを考慮した方法<sup>6)</sup>を用いた。例えば、江蘇省では、34%の穀物残留物がバイオ燃料に、24%は野焼きとして消費されると推測された。なお、中国全土の平均でみると、バイオ燃料と野焼きに使用されるのはそれぞれ大体25%ほどで、残りの50%は焼けずに残るとされている。このようにして求めた中国における種類別（あるいはカテゴリー別）のNMVOCs年間放出量を表(4)-4に示す。冬小麦の野焼きからの放出は、含酸素・窒素NMVOCsが0.12 Tg/yr、C<sub>2</sub>-C<sub>3</sub>アルカン・アルケンが0.08 Tg/yr、芳香族が0.08 Tg/yrで、総放出量は0.29 Tg/yrと算出された。米(25%)・小麦(15%)・トウモロコシ(40%)の3種で中国の穀物残留バイオマスの80%が占められるが、他の穀物でも同じEFを過程すると、放出量は含酸素・窒素NMVOCsが0.79 Tg/yr、C<sub>2</sub>-C<sub>3</sub>アルカン・アルケンが0.58 Tg/yr、芳香族が0.55 Tg/yr、総放出量は1.95 Tg/yrと算出される。前述したように、NMVOCs放出は穀物の種類だけでなく燃焼状態によって大きく左右されるので、この推測は大きくは外れていないと思われる。

#### 4) オゾン生成速度・制限因子解析（福江・如東）

福江でのオゾン生成速度・制限因子の解析では、期間(2009年5月1日～6月5日)平均でみると、OH、HO<sub>2</sub>濃度（計算値）の日中濃度極大値はそれぞれ $6.2 \times 10^6$  radicals cm<sup>-3</sup>、22 pptとなり、正味のオゾン生成速度(F-D(O<sub>x</sub>))、O<sub>x</sub>はオゾンとNO<sub>2</sub>の和)は10時台に1.1ppb h<sup>-1</sup>の極大を示し、朝～夕方まで積分すると一日に約6ppbのオゾンが生成することが示された

(図(4)-20)。同期間のオゾン濃度の平均日変化の振幅は約7ppbであり、その場のオゾン生成量とほぼ対応した。2日連続で光化学スモッグ注意報が九州北部に発令された2009年5月8日、9日には、福江でもオゾン濃度1時間

間値が97、105ppbに達したが、この2日間におけるその場オゾン生成量はそれぞれ17、4ppbであり、100ppb程度のオゾンの生成はその場の光化学では説明がつかず、上流で複数日かけて移流しながら生成してきたものであることが改めて示唆された。NO<sub>x</sub>、VOC濃度を10%増加させる感度ランをそれぞれ行い、F-D(O<sub>x</sub>)のNO<sub>x</sub>、VOC濃度依存性を検討したところ、通常はNO<sub>x</sub>濃度上昇がVOC濃度上昇よりオゾン生成を促進する効果が高いNO<sub>x</sub>-limitedであるが、540時間（＝36日間の日中5-20時）のうち42時間についてはVOC増加の方がよりオゾン生成を促進するVOC-limitedとなることが分かった。後方流跡線解析から、韓国方面から汚染気塊が速く流入する場合にVOC-limitedとなりやすい傾向があることが明らかになった。このことは、流入後の気塊に対しオゾンの追加的な生成を抑えるためには、国内NO<sub>x</sub>の放出を抑えることが最重要だが、VOCの放出削減も有意義であ



図(4)-20. 福江島春季のO<sub>x</sub>(オゾンとNO<sub>2</sub>の和)の正味生成速度。標準ラン、NMHCs, NO<sub>x</sub>をそれぞれ10%増加させたランでの平均日変化。

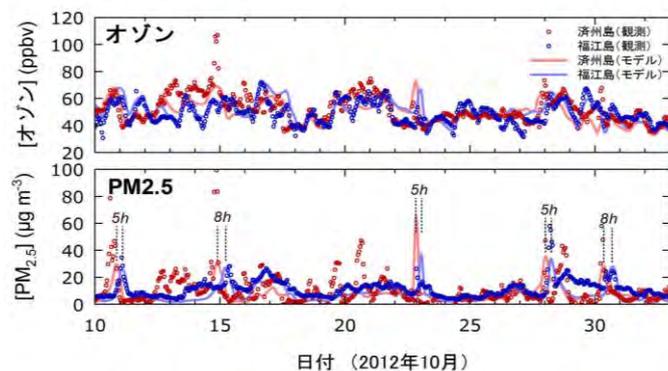
ることを示唆している。3次元化学輸送モデルでも、VOC-limitedの状況下でのオゾン生成速度を適切に表現するためには、今後、VOC濃度再現性について注意を払う必要があることも示唆された。

如東では、バイオマス燃焼の影響が支配的な期間には100ppbvを超過するオゾン濃度が観測された(図(4)-15)、この期間に着目したオゾン生成速度と制限因子の解析を行った。正味の生成速度は南風により高NO<sub>x</sub>濃度気塊がもたらされるときに高くなり、最大20ppb h<sup>-1</sup>の値に達することが示された。生成レジームとしては、典型的には午前中はVOC-limitedであり、午後にかけてNO<sub>x</sub>-limitedに転換することが示唆された。非メタン炭化水素等に適用されたPMF解析において見出された6種の発生源(溶剤使用、バイオマス野外燃焼、燃料蒸発、LPG使用、自動車、石油産業)について、感度実験によってオゾン生成へのインパクトを解析したところ、溶剤使用とバイオマス野外燃焼に由来する非メタン炭化水素がオゾン生成へ35%、23%寄与していることが示された。また、午後には自動車由来のNO<sub>x</sub>がオゾン生成を促進していることが示唆された。これらのことから、如東が代表する揚子江デルタ地域北部での高オゾン濃度によるリスクを削減するためには、自動車や溶剤使用・バイオマス野外燃焼による発生を抑えることが効果的であることが示唆された。

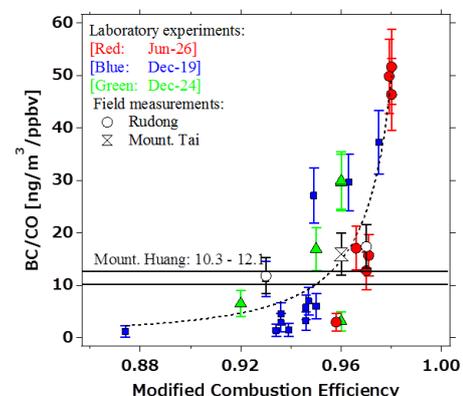
## 5) 済州島観測から得られた水平輸

### 送・鉛直分布に関する知見

観測期間の最初と最後に行った装置比較では、海洋研究開発機構・国立環境研究所・韓国国立環境科学院の3台のオゾン計、CO計の間に一定の関係が見られ、3地点にて濃度高度分布観測を行う上で信頼性を高めた。複数高度でのオゾン、CO、PM<sub>2.5</sub>の測定では、オゾンだけでなくCO、PM<sub>2.5</sub>も1100mで最大濃度を記録する場合が見られ、局所的な汚染ではなく広域な汚染が高高度で輸送されてくるケースを捉えることができた。このことは、ライダー観測でも同程度の高度に高濃度層が見られていることから確かめられた。図(4)-21は、済州島集中観測を行った2012年10月における、福江・済州島でのオゾン、PM<sub>2.5</sub>の濃度変化を示す。濃度の極大が出現する時間に着目すると、観測・モデル(S7-1-1)のWRF/CMAQを使用)ともに、済州島で濃度極大が起こったのち、5~8時間後に福江島で極大が起こる様子が分かる。気象場の解析から、寒冷前線の通過に合わせて、前線の背面付近に存在する高濃度汚染気塊が到来することが濃度極大を生む主な原因であることがわかった。このことから、大陸方面から日本へかけての物質輸送パターンについてはモデルが実態を



図(4)-21. 済州島集中観測の際のオゾン、PM<sub>2.5</sub>の濃度変化。福江島での結果、モデル(WRF/CMAQ)の値も合わせて表示している。



図(4)-22. バイオマス燃焼によるBC/CO排出比のMCEに対する依存性。

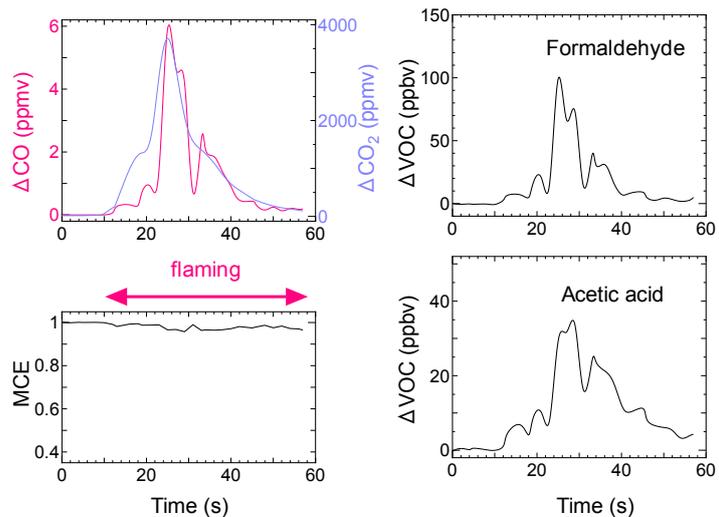
よく捉えていることがわかった。

### (3) 農作物残渣燃焼実験

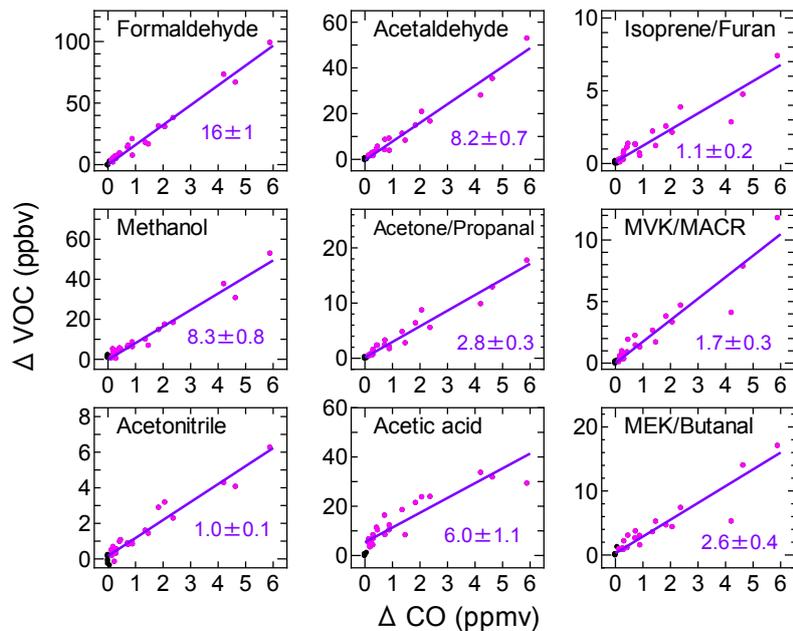
燃焼実験から得られたBC/CO比は燃焼効率の指標(MCE=CO<sub>2</sub>/(CO+CO<sub>2</sub>))に対して強く依存し、(2-50) ng m<sup>-3</sup> ppbv<sup>-1</sup>の非常に広い範囲の値をとり得ることが示唆された(図(4)-22)。泰山・如東や黄山で野外観測から測定された値は、(10-18) ng m<sup>-3</sup> ppbv<sup>-1</sup>であり、Andreae and Merlet(2001)<sup>1)</sup>での値(9.4)よりやや高いことを議論してきたものの、この差は燃焼効率平均値の小さな差によっても十分に説明がつくことがわかった。野外観測でも本実験のような大きな範囲の値をとり得るのかについては、今後の研究による検証が必要である。また、本実験では、SP2装置において単一粒子ごとにBCに由来する白熱光を測定すると同時に散乱光強度を測定しており、それらを組み合わせて解析することにより、BC濃度だけでなく、個別粒子の混合状態についても解析された。その結果、

大気中での光吸収効率に強く影響し、粒子自身の消失速度に影響するCore-Shell型の粒子の割合は、MCEに対して強い逆相関を示すことが明らかとなり、今後のBCのモデル表現や、気候影響の評価を改良するために必要な知見が得られた。

図(4)-23に、有炎状態が支配的であった実験でのCO、CO<sub>2</sub>、VOC濃度時間変化の結果を示す。測定されたΔCO<sub>2</sub>とΔCO(希釈内での濃度)(Δは大気バックグラウンドからの増加分を意味する)の時間変化を見ると、燃焼はおおよそ60秒で終わったことが分かる。ΔCO<sub>2</sub>とΔCOの値からその時間でのMCE(リアルタイムMCE)を求め、その時間変化の様子も示した。Flaming(有炎)と定義した



図(4)-23. 有炎状態が支配的だった燃焼実験時の時間変化の様子(麦わら、dry)。



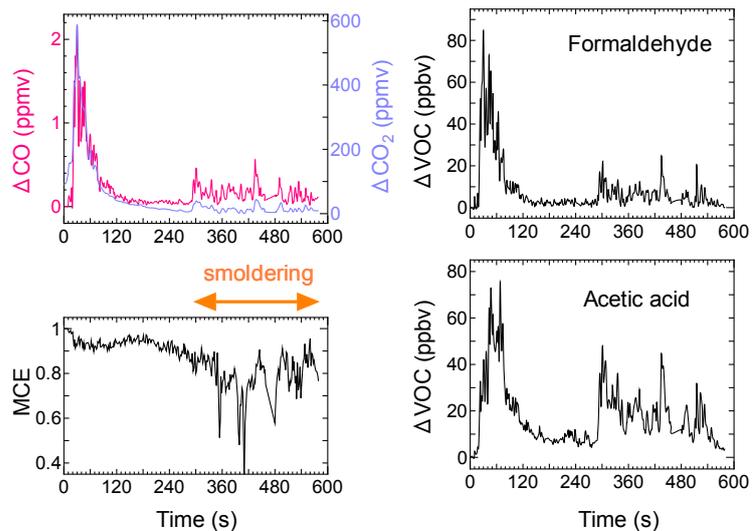
図(4)-24. 有炎状態におけるCOとVOCの相関の様子。

期間で、MCEは0.958から0.995の間の値を示し、平均 ( $\overline{MCE_t}$ ) は  $0.977 \pm 0.022$  (2標準偏差)であった。この時のPTR-MSで測定されたホルムアルデヒドと酢酸の時間変化の様子を示す(ただし、濃度は希釈内での濃度)。これらのNMVOCsの時間変化の様子は、COと良く似ている。

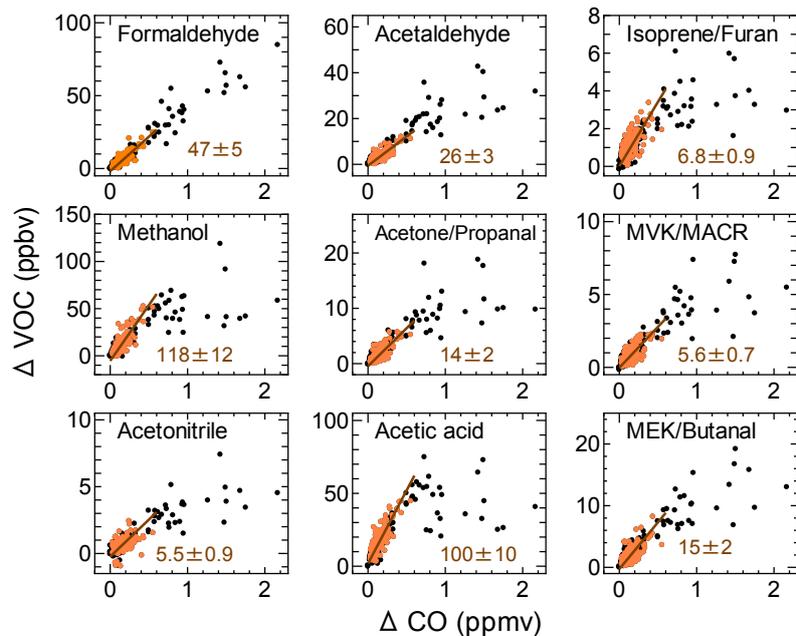
この時のいくつかのNMVOCsのCOとの相関を図(4)-24に示す。全てのNMVOCsに対して、きれいな直線関係が得られ、傾き

(ppbv/ppmv)は、ホルムアルデヒド ( $16 \pm 1$ )、メタノール ( $8.3 \pm 0.8$ )、アセトニトリル ( $1.0 \pm 0.1$ )、アセトアルデヒド ( $8.2 \pm 0.7$ )、アセトン/プロパナール ( $2.8 \pm 0.3$ )、酢酸 ( $6.0 \pm 1.1$ )、イソプレン/フラン ( $1.1 \pm 0.2$ )、MVK/MACR ( $1.7 \pm 0.3$ )、MEK/ブタナール ( $2.6 \pm 0.4$ )であり、これらの値が、COに対する各々のNMVOCsの放出比 (Emission Ratio, ER) となる。2010年の如東での観測で得られた値は、アセトニトリル ( $1.6 \pm 1.2$ )、アセトアルデヒド ( $17 \pm 9$ )、アセトン/プロパナール ( $13 \pm 8$ )、酢酸 ( $5.4 \pm 3.1$ )、イソプレン/フラン ( $4.4 \pm 2.8$ )、MVK/MACR ( $3.7 \pm 2.9$ )、MEK/ブタナール ( $2.6 \pm 0.9$ )で、酢酸、MEK/ブタナールを除き、実験の方が、観測よりも低い値を示した。

無炎状態が支配的であった実験での同様のプロットを図(4)-25と図(4)-26に示す。燃焼は約600秒間続き、最初に大きなCO<sub>2</sub>とCOの放出(20-120秒の間)があったが、有炎状態の時とは違い、リアルタイムMCEは0.9に近い値を示した。300秒後から再度COの放出が見られ、MCEは0.4-0.9の間で大きく変化した。ホルムアルデヒドの時間変化の様子がCOと良く似ているのに対し、酢酸の時



図(4)-25. 無炎状態が支配的だった燃焼実験時の時間変化の様子(麦わら、dry)。



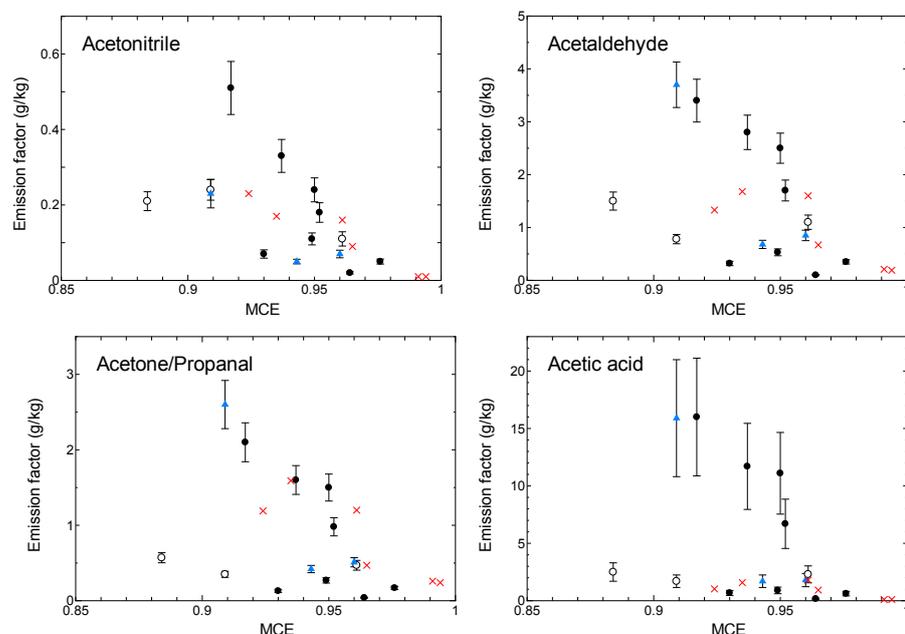
図(4)-26. 無炎状態におけるCOとVOCの相関の様子。オレンジの点が無炎状態と定義した期間のデータで、回帰解析はこれらのデータに対して行った。

間変化の様子を見ると、ピークの位置は良く似ているが、300秒後から燃焼時の排出が相対的に多くなっていることが見て取れる。この実験では、この後半の期間のデータに注目した（矢印で smoldering（無炎状態）と定義した期間を示している）。NMVOCSとCOの相関図で、300秒後から燃焼時のデータに色を付けて示しているが、ホルムアルデヒドは全期間で直線関係が見られているが、それ以外のNMVOCSでは、300秒後から燃焼時のデータが一番高い傾きを与えていることが見て取れる。つまり、無炎時は、COに対するNMVOCSの排出が多いことを表す。 $\overline{MCE}_t$  が  $0.789 \pm 0.193(2s)$  の時のNMVOCSのCOに対する放出比は、ホルムアルデヒド ( $47 \pm 5$ )、メタノール ( $118 \pm 12$ )、アセトニトリル ( $5.5 \pm 0.9$ )、アセトアルデヒド ( $26 \pm 3$ )、アセトン/プロパナール ( $14 \pm 2$ )、酢酸 ( $100 \pm 10$ )、イソプレン/フラン ( $6.8 \pm 0.9$ )、MVK/MACR ( $5.6 \pm 0.7$ )、MEK/ブタナール ( $15 \pm 2$ ) で、全てのNMVOCSで有炎状態の場合よりも大きな値を示した。また、前述の2010年如東での観測で得られた値と比べると、アセトン/プロパナール以外は、大きな値を示した。特に、メタノール（2006年の中国・泰山での観測で、 $20 \pm 3$ ）、酢酸は桁で違うほどの大きな放出が見られた。ただ、ベンゼンだけは他のNMVOCSとは違う傾向があった。ベンゼンのCOに対する放出比は、有炎時 ( $2.3 \pm 0.6$ ) でも無炎時 ( $2.4 \pm 0.9$ ) でもほとんど変わらなかった。

各々のNMVOCSについて排出係数（Emission Factor, EF）を求め、その燃焼効率依存性をプロットしたのが、図(4)-27である。黒丸が麦わらのdry状態での結果、白丸が麦わらのwet状態での結果、青三角がアブラナのdry状態での結果を示す。また、アセトニトリル、アセトアルデヒド、アセトン/プロパナール、酢酸、イソプレン/フラン、MVK/MACR、MEK/ブタナールには、2010年如東での観測値を×で示している。

まず、室内実験で得られた結果は、dryな試料に関しては、MCEが1から小さくなるに従って、高くなる傾向があり、麦わらとアブラナで有意な差はないことが確認できる。また、wetな試料では、NMVOCSの放

出が抑制されている傾向が出ている。2010年如東での観測で得られた値と比較すると、MCEが高いデータでは、観測結果は、室内実験のdry条件の結果よりも低めの値を示した。中でも、酢酸はほぼwet状態の試料での結果に近い値となった。このような、観測結果が室内



図(4)-27. 各NMVOCのEmission Factor（単位：g/kg）の燃焼効率（MCE）依存性。●：麦わら, dry；○：麦わら, wet；▲：アブラナ, dry；×：2010年Rudong観測値。

実験のdry条件の結果よりも低い傾向を示す原因として考えられるのは、フィールド観測では、若干湿ったまま燃焼させているバイオマス燃焼を捉えている可能性が考えられる。しかしながら、放出量が最も多いほうの酢酸の放出量がかなり低く観測された事実を考えると、ガスとして放出された酢酸が、粒子表面等の不均一反応で消失している可能性を示唆しているとも考えられる。実際、メタノール、酢酸に代表されるカルボン酸、ホルムアルデヒド・アセトアルデヒドに代表されるアルデヒドは、ヘンリー定数、適応係数、取りこみ係数が大きいことが知られており、今後、これらの化学特性を考慮したEFの評価が重要である。

## 5. 本研究により得られた成果

### (1) 科学的意義

数値モデリングとの連携によって、東アジアにおける $O_3 \cdot PM_{2.5}$ に関する広域大気汚染の実態や年々変動傾向を掴んだ。変動要因を排出量変動と気象場変動とに分離して解析した。2009-2013年にかけて、福江では $O_3 \cdot PM_{2.5} \cdot BC$ 濃度に弱い低減傾向が見られたが、主原因は気象場の変動で、排出量の低下ではないことが示された。社会的に高い注目を浴びた中国での広域 $PM_{2.5}$ 汚染の時期(2013年1月)には日本への越境輸送は限定的で、 $PM_{2.5}$ 高濃度日数も例年の範囲内だったことを示した。 $PM_{2.5}$ の組成に関するモデル再現性について、日本・中国・韓国で行った集中観測で共通して、水溶成分やBCの再現性はよいものの、有機物の過小評価が著しい傾向を見出した。今後、観測による起源解明や揮発性などに着目した新たなモデル表現の開発が必要であること見出した。

Volatility-base set (VBS)など、揮発性の変化に基づいた有機物変質過程の表現を試験的に試みたこと、 $PM_{2.5}$ の微量金属成分や水溶成分を総合的に用いたPMF解析から有機エアロゾルの起源を推定したことを踏まえ、今後、有機物の適切なモデリングと評価を進めるための指針が得られた。ブラックカーボン濃度の計測法の信頼度を向上させたこと、 $\Delta BC/\Delta CO$ 比の湿度依存性を見出したこと、孤立巨大発生源(バイオマス燃焼)からの影響を利用したBC粒子の寿命測定を通じて、これまで不確かさの大きかった発生量や温暖化影響の見積幅を狭めることに貢献した。エアロゾル中の有機物は、散乱係数の湿度依存性を弱める働きをもつことを定量的に明らかにしたことは、AODから地上 $PM_{2.5}$ 値(相対湿度35%で規定される)を推定する際に必要となる湿度依存性ファクターの記述を高精度化するためにも用いることができる情報である。

対流圏オゾンや二次有機エアロゾルの前駆物質の大きな発生源であり、アジアにおいて重要性が指摘されるバイオマス燃焼について、観測的困難さからこれまで知見が非常に限られていたNMVOCsの放出源について、中国国内での観測データの解析から正確な情報を得た。また、レーザーの濃度変動の解析と、PMF解析を併用することで、解析の精度を上げることに成功した。バイオマス燃焼の排出係数(EF)は、全球・領域化学輸送モデリングに直接組み込まれる排出インベントリの基礎情報であるが、ここで得られたEFの値は植物種よりもむしろ燃焼状態によって大きく左右されていることが分かった。中国における主な穀物である小麦の野焼きから少なくとも0.29 Tg/yrのNMVOCsが大気中に放出されていることが明らかになった。また、ほかの穀物の燃焼にも同じEFを仮定した場合、その量は1.95 Tg/yrになると推測された。模擬燃焼実験では、NMVOCsに加えBCについても、燃焼状態がEF値を大きく変え得るとの知見を得た。燃焼が有炎状態から無炎状態になるにしたがって、各NMVOCsのEFは増加する傾向を示した。中でも、メタノ

ール、酢酸に代表されるカルボン酸、アルデヒドで多い傾向が観測された。サンプルを湿らせるとCOに対するNMVOCsの排出はかなり抑制されることもわかり、実測された排出比との比較から、実際に野外で燃やされている穀物残渣の吸湿状態が推定された。

## (2) 環境政策への貢献

### <行政が既に活用した成果>

- 日中韓3カ国環境大臣会合(TEMU) 光化学オキシダントに関する研究協力に関する「日中韓光化学オキシダント科学研究ワークショップ」第2～4回(平成21年12月、平成23年2月、11月)において、本課題の研究成果が最新の科学的知見として交換されるとともに、泰山や如東で実施した国際共同観測は、今後めざすべき3カ国共同観測研究の雛型と捉えられている。
- 環境省・中央環境審議会・微小粒子状物質等専門委員会(平成26年3月12日)では、PM<sub>2.5</sub>対策の検討に際し、観測から見出した福江島でのPM<sub>2.5</sub>基準超過の情報や、モデルとの連携で導出した我が国地域別のPM<sub>2.5</sub>に対する越境大気汚染・国内汚染の寄与率が参考資料として配付された。

### <行政が活用することが見込まれる成果>

日本西方を代表する福江島では、越境大気汚染の影響を受け、PM<sub>2.5</sub>の「高濃度」日数が多く、基準を満たせない状況であることを観測から見出した。98パーセンタイルで評価を行うことから35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 超過日数は年間7日未満でなければならないが、2009-2013年度の間、状況は改善せず、18-31日が高止まりとなっている。O<sub>3</sub>も同様に高濃度日が多く、一時間値の環境基準である60ppbを「一日平均値」で計算しても上回ってしまう日が年間32-47日も見られる。前駆物質のNO<sub>2</sub>は中国中東部上空で過去15年で約3倍に濃度増加し、国内のO<sub>3</sub>「平均」濃度も2008年頃までの約20年間は上昇を見せた(光化学オキシダント調査検討会、2014)ものの、2009-2013年度のO<sub>3</sub>やPM<sub>2.5</sub>の「平均」濃度は、福江ではむしろ微減傾向にあった。しかしながらこの微減傾向の原因は、気象(風系や降水)の年々変動の影響が強いため、前駆物質の排出源強度が減少に転じたわけではないことが、サブテーマ(1)との連携で見出された。これらの「高濃度日の推移」と「平均濃度の推移」から、オゾン、PM<sub>2.5</sub>の対策を継続的に、中長期的な視点で行うことが必要である。中国如東・韓国済州島・福江でのPM<sub>2.5</sub>の化学組成では、硫酸・アンモニウムイオン・有機物が主となる共通の傾向がみられ、それらの削減対策の有効性は高いことが観測から示された。改良型の化学気候モデルを福江での観測等で再評価し、「BCの直接放射強制力は全球平均で0.56W/m<sup>2</sup>となり、硫酸塩等の動向にも配慮すれば排出削減は温暖化緩和と大気汚染の改善に貢献する」との結論を導くのに観測から貢献した。また、春季に福江・如東でオゾン生成速度・制限因子を解析したところ、福江で見られる100ppb程度の高濃度オゾンは、現地付近での生成速度では説明がつかず、大陸方面の上流で生成したものが流入したと考えるのが自然であること、通常はNO<sub>x</sub>濃度上昇がVOC濃度上昇よりオゾン生成を促進する効果が高いNO<sub>x</sub>-limitedであるが、韓国方面から汚染気塊が速く流入する場合にVOC-limitedとなりやすい傾向があることが明らかになった。このことは、流入後の気塊に対しオゾンの追加的な生成を抑えるためには、国内NO<sub>x</sub>の放出を抑えることが最重要だが、VOCの放出削減も有意義であることを示唆しており、VOC規制を全国的に進めることは意義があることを示した。如東での制限因子は典型的には午前中はVOC-limitedであり、午後にかけてNO<sub>x</sub>-limitedに転換することが示唆され、野焼きの影響が見られる5～6月の期間においては、溶剤

使用とバイオマス燃焼がオゾン生成へ大きく寄与していることが示された。また、午後には自動車由来のNO<sub>x</sub>がオゾン生成を促進していることが示唆された。これらのことから、如東が代表する揚子江デルタ地域北部での高オゾン濃度によるリスクを削減するためには、自動車や溶剤使用・バイオマス野外燃焼による発生を抑えることが効果的であることが示唆された。

## 6. 国際共同研究等の状況

中国科学院大気物理研究所・王自発教授との間で共同研究取り決めを結んでおり、如東での集中観測は全面的な共同研究として実施した。南京信息工程大学・朱彬教授、復旦大学・庄国順教授らとも協力した。済州島での集中観測は、韓国国立環境研究院のChang Limseok博士のグループとの共同研究として実施した。済州大学のKang Chang-Hee教授のグループとも協力した。合肥・光州でのMAX-DOAS観測は、中国科学院安徽光学精密機械研究所・劉文清所長、謝品華博士のグループ、韓国光州科学技術院・Kim Young-Joon所長のグループと共同研究取り決めを結び実施した。

## 7. 研究成果の発表状況

### (1) 誌上発表

<論文(査読あり)>

1) Y. KANAYA, P. POCHANART, Y. LIU, J. LI, H. TANIMOTO, S. KATO, J. SUTHAWAREE, S. INOMATA, F. TAKETANI, K. OKUZAWA, K. KAWAMURA, H. AKIMOTO, Z. WANG: Atmospheric Chemistry and Physics, 9, 7711-7723 (2009)

“Rates and regimes of photochemical ozone production over Central East China in June 2006: A box model analysis using comprehensive measurements of ozone precursors”

2) H. TANIMOTO, T. OHARA, and I. UNO: Geophys. Res. Lett., 36, L23802, doi:10.1029/2009GL041382 (2009)

“Asian anthropogenic emissions and decadal trends in springtime tropospheric ozone over Japan: 1998–2007”

3) H. IRIE, Y. KANAYA, H. TAKASHIMA, J. F. GLEASON, and Z. WANG: SOLA, 5, 117-120 (2009)

“Characterization of OMI tropospheric NO<sub>2</sub> measurements in East Asia based on a robust validation comparison”

4) S. INOMATA, H. TANIMOTO, S. KATO, J. SUTHAWAREE, Y. KANAYA, P. POCHANART, Y. LIU, and Z. WANG: Atmos. Chem. Phys., 10, 7085-7099, doi:10.5194/acp-10-7085-2010 (2010)

“PTR-MS measurements of non-methane volatile organic compounds during an intensive field campaign at the summit of Mount Tai, China, in June 2006”

5) K. YAMAJI, J. LI, I. UNO, Y. KANAYA, H. IRIE, M. TAKIGAWA, Y. KOMAZAKI, P. POCHANART, Y. LIU, H. TANIMOTO, Y. OHARA, X. YAN, Z. WANG, and H. AKIMOTO: Atmos. Chem. Phys., 10, 7353–7368 (2010)

“Impact of open crop residual burning on air quality over Central Eastern China during the Mount Tai Experiment 2006 (MTX2006)”

6) H. K. ROSCOE, (19名中略), H. IRIE, Y. KANAYA, (17名中略)、H. TAKASHIMA, (ほか10名): Atmos. Meas. Tech., 3, 1629-1646 (2010)

“Intercomparison of slant column measurements of NO<sub>2</sub> and O<sub>4</sub> by MAX-DOAS and zenith sky UV and visible spectrometers”

7) 金谷有剛、竹谷文一、入江仁士、駒崎雄一、高島久洋、鶴野伊津志: 大気環境学会誌、45(6), 289-292 (2010)

“九州福江島における通年PM<sub>2.5</sub>質量濃度測定値の大気環境短期基準超過”

8) J. LI, Z. WANG, X. WANG, K. YAMAJI, M. TAKIGAWA, Y. KANAYA, P. POCHANART, Y. LIU, H. IRIE, B. HU, H. TANIMOTO, and H. AKIMOTO: *Atmospheric Environment*, 45(10), 1817-1829 (2011)

“Impacts of aerosols on summertime tropospheric photolysis frequencies and photochemistry over Central Eastern China”

9) X. L. PAN, Y. KANAYA, Z. F. WANG, Y. LIU, P. POCHANART, H. AKIMOTO, Y. L. SUN, H. B. DONG, J. LI, H. IRIE, and M. TAKIGAWA: *Atmos. Chem. Phys.* 11, 9735-9747 (2011)

“Correlation of black carbon aerosol and carbon monoxide concentrations measured in the high-altitude environment of Mt. Huang in Eastern China”

10) H. NARA, H. TANIMOTO, Y. NOJIRI, H. MUKAI, T. MACHIDA, Y. TOHJIMA: *Atmos. Meas. Tech.*, 4, 2495-2507 (2011)

“Onboard measurement system of atmospheric carbon monoxide in the Pacific by voluntary observing ships”

11) H. IRIE, H. TAKASHIMA, Y. KANAYA, K. F. BOERSMA, L. GAST, F. WITTRICK, D. BRUNNER, Y. ZHOU, and M. VAN ROOZENDAEL: *Atmos. Meas. Tech.*, 4, 1027-1044 (2011)

“Eight-component retrievals from ground-based MAX-DOAS observations”

12) A. J. M. PETERS, (31名中略), H. IRIE, (1名中略), Y. KANAYA, (27名中略), H. TAKASHIMA, (9名中略): *Atmos. Meas. Tech.*, 5, 457-485 (2012).

“The Cabauw Intercomparison campaign for Nitrogen Dioxide measuring Instruments (CINDI): design, execution, and early results”

13) X. L. PAN, Y. KANAYA, Z. F. WANG, F. TAKETANI, H. TANIMOTO, H. IRIE, H. TAKASHIMA, and S. INOMATA: *J. Geophys. Res.*, 117, D22304, doi:10.1029/2012JD018357 (2012)

“Emission ratio of carbonaceous aerosols observed near crop residual burning sources in a rural area of the Yangtze River Delta Region, China”

14) X. L. PAN, Y. KANAYA, Z. F. WANG, Y. KOMAZAKI, F. TAKETANI, H. AKIMOTO, P. POCHANART, and Y. LIU: *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 12, 14363-14392 (2012)

“Estimation of lifetime of carbonaceous aerosol from open crop residue burning during Mount Tai Experiment 2006 (MTX2006)”

15) F. TAKETANI, Y. KANAYA, P. POCHANART, Y. LIU, J. LI, K. OKUZAWA, K. KAWAMURA, Z. WANG, and H. AKIMOTO: *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 11907-11916 (2012)

“Measurement of overall uptake coefficients for HO<sub>2</sub> radicals by aerosol particles sampled from ambient air at Mts. Tai and Mang (China)”

16) Y. KANAYA, F. TAKETANI, Y. KOMAZAKI, X. LIU, Y. KONDO, L. K. SAHU, H. IRIE, and H. TAKASHIMA: *Aerosol Sci. Technol.*, 47, 1-10 (2013)

“Comparison of Black Carbon Mass Concentrations Observed by Multi-Angle Absorption Photometer

- (MAAP) and Continuous Soot-Monitoring System (COSMOS) on Fukue Island and in Tokyo, Japan”
- 17) H. NARA, H. TANIMOTO, Y. TOHJIMA, H. MUKAI, Y. NOJIRI, K. KATSUMATA, and C. W. RELLA: *Atmos. Meas. Tech.*, 5, 2689-2701 (2012)
- “Effect of air composition (N<sub>2</sub>, O<sub>2</sub>, Ar, and H<sub>2</sub>O) on CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> measurement by wavelength-scanned cavity ring-down spectroscopy: calibration and measurement strategy”
- 18) H. IRIE, K. F. BOERSMA, Y. KANAYA, H. TAKASHIMA, X. PAN, and Z. F. WANG: *Atmos. Meas. Tech.*, 5, 2403-2411 (2012)
- “Quantitative bias estimates for tropospheric NO<sub>2</sub> columns retrieved from SCIAMACHY, OMI, and GOME-2 using a common standard for East Asia”
- 19) D.D. PARRISH, K.S. LAW, J. STAEHELIN, R. DERWENT, O. COOPER, H. TANIMOTO, A. VOLZ-THOMAS, S. GILGE, H.-E. SCHEEL, M. STEINBACHER, and E. CHAN: *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 11485-11504, 2012.
- “Long-term changes in lower tropospheric baseline ozone concentrations at northern mid-latitudes”
- 20) J. LI, Z. WANG, K. YAMAJI, M. TAKIGAWA, Y. KANAYA, F. TAKETANI, N. SUGIMOTO, X. PAN, M. HU, F. MENG, Y. SUN, and T. YANG: *SOLA*, 9, 40-44 (2013).
- “Uplifting of Asian continental pollution plumes from the boundary layer to the free atmosphere over the northwestern Pacific Rim in spring”
- 21) K. IKEDA, K. YAMAJI, Y. KANAYA, F. TAKETANI, X. PAN, Y. KOMAZAKI, J. KUROKAWA, T. OHARA: *Journal of the Air & Waste Management Association*, 64, 4, 445-452 (2014)
- “Sensitivity analysis of source regions to PM<sub>2.5</sub> concentrations at Fukue Island, Japan”
- 22) Y. KANAYA, H. AKIMOTO, Z. WANG, P. POCHANART, K. KAWAMURA, Y. LIU, J. LI, Y. KOMAZAKI, H. IRIE, X.-L. PAN, F. TAKETANI, K. YAMAJI, H. TANIMOTO, S. INOMATA, S. KATO, J. SUTHAWAREE, K. OKUZAWA, G. WANG, S. G. AGGARWAL, P. Q. FU, T. WANG, J. GAO, Y. WANG, and G. ZHUANG: *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 8265-8283 (2013)
- “Overview of the Mount Tai Experiment (MTX2006) in Central East China in June 2006: studies of significant regional air pollution”
- 23) Y. KANAYA, H. IRIE, H. TAKASHIMA, H. IWABUCHI, H. AKIMOTO, K. SUDO, M. GU, J. CHONG, Y.J. KIM, H. LEE, A. LI, F. SI, J. XU, P.-H. XIE, W.-Q. LIU, A. DZHOLA, O. POSTYLYAKOV, V. IVANOV, E. GRECHKO, S. TERPUGOVA, and M. PANCHENKO: *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 14, 2883-2934 (2014)
- “Long-term MAX-DOAS network observations of NO<sub>2</sub> in Russia and Asia (MADRAS) during 2007-2012: instrumentation, elucidation of climatology, and comparisons with OMI satellite observations and global model simulations”
- 24) F. TAKETANI, Y. KANAYA, and H. AKIMOTO: *Int. J. Chem. Kinet.*, 45, 560-565 (2013)
- “Kinetic studies of heterogeneous reaction of HO<sub>2</sub> radical by dicarboxylic acid particles”
- 25) H. MATSUI, M. KOIKE, Y. KONDO, N. OSHIMA, N. MOTEKI, Y. KANAYA, A. TAKAMI, M. IRWIN: *J. Geophys. Res.*, 118, 9948-9967 (2013)
- “Seasonal variations of Asian black carbon outflow to the Pacific: Contribution from anthropogenic sources in China and biomass burning sources in Siberia and Southeast Asia”

26) X. PAN, Y. KANAYA, Z. WANG, X. TANG, M. TAKIGAWA, F. TAKETANI, H. AKIMOTO: Environmental Science and Pollution Research, DOI 10.1007/s11356-013-2317-2 (2013)

“Using Bayesian optimization method and FLEXPART tracer model to evaluate CO emission in East China in springtime”

27) 鶴野伊津志, 弓本桂也, 原由香里, 板橋秀一, 金谷有剛, 杉本伸夫, 大原利眞: 大気環境学会誌、48(6), 274-280 (2013).

「何故2013年冬季の中国でPM<sub>2.5</sub>が高濃度になったか？」

28) 大泉毅, 秋元肇, 金谷有剛, 永島達也, 櫻井達也, 大原利眞, 佐藤啓市: 大気環境学会誌、48(4), 181-187 (2013).

「我が国の光化学オゾン汚染の8時間平均値による評価」

29) S. KUDO, H. TANIMOTO, S. INOMATA, S. SAITO, X. L. PAN, Y. KANAYA, F. TAKETANI, Z. WANG, H. CHEN, H. DONG, M. ZHANG, K. YAMAJI: J. Geophys. Res., 2013JD021044, in press, 2014.

“Emissions of nonmethane volatile organic compounds from open crop residue burning in Yangtze River Delta region, China”

30) D.D. PARRISH, J.-F. LAMARQUE, V. NAIK, L. HOROWITZ, D.T. SHINDELL, J. STAEHELIN, R. DERWENT, O.R. COOPER, H. TANIMOTO, A. VOLZ-THOMAS, S. GILGE, H.-E. SCHEEL, M. STEINBACHER, M. FRÖHLICH, J. Geophys. Res., 2013JD021435, in press, 2014.

“Long-term changes in lower tropospheric baseline ozone concentrations: Comparing chemistry-climate models and observations at northern mid-latitudes”

#### <その他誌上発表（査読なし）>

1) 金谷有剛、月刊誌「化学」（2013年3月号、p.23-28）

「越境大気汚染の実像に迫る」

2) 金谷有剛、月刊誌「日経サイエンス」（2013年5月号、p.35-39）

「越境大気汚染を正しく理解する」

#### （2）口頭発表（学会等）

1) Y. KANAYA: Regional Ozone and Aerosol Pollution in Central East China: IAMAS Assembly (MOCA-09), Montreal, Canada (2009)

“Integration of Field Observations with Modeling, Remote Sensing, and Laboratory Investigations”

2) H. TANIMOTO: IAMAS Assembly (MOCA-09), Montreal, Canada (2009)

“Increase in springtime tropospheric ozone at a mountainous site in Japan for the period 1998–2006”

3) 金谷有剛, 竹谷文一, P. POCHANART, Y. LIU, J. LI, 谷本浩志, 加藤俊吾, J. SUTHAWAREE, 猪俣敏, 奥沢和浩, 河村公隆, 秋元肇, Z. WANG: 第50回大気環境学会年会, 横浜市 (2009年)

「2006年6月中国・泰山山頂における光化学的オゾン生成：エアロゾル上HO<sub>2</sub>ラジカル消失の影響」

4) G.A. MORRIS, H. AKIMOTO, M. TAKIGAWA, J. HIROKAWA, F. HASEBE, M. FUJIWARA, K. MIYAGAWA, N. KROTKOV, J. WITTE, Y. KANAYA, N. KELLAMS, T. PIETRZAK: The 15th

Discussion Meeting on Atmospheric Chemistry, Tsukuba, Japan. (2009)

“An examination of the impact of air from China on summertime air quality in Japan before, during, and after the Beijing Olympics”

- 5) 猪俣敏, 谷本浩志, 加藤俊吾, J. SUTHAWAREE, 金谷有剛, P. POCHANART, 劉宇, 王自発: 第15回大気化学討論会, つくば市. (2009)

「2006年6月中国泰山山頂での集中観測におけるPTR-MSを用いたNMVOC測定」

- 6) Y. KOMAZAKI, Y. KANAYA, P. POCHANART, Y. LIU, H. AKIMOTO, Z. WANG: The 28th American Association for Aerosol Research (AAAR) Annual Conference, Minneapolis, USA. (2009)  
“Intercomparison of measurement methods for EC and BC at the summit of Taishan, China, in June 2006”

- 7) Y. KANAYA, P. POCHANART, Y. LIU, J. LI, K. YAMAJI, H. IRIE, H. TANIMOTO, S. INOMATA, S. KATO, J. SUTHAWAREE, F. TAKETANI, K. OKUZAWA, K. KAWAMURA, Y. KOMAZAKI, M. TAKIGAWA, H. AKIMOTO, Z. WANG: IGAC-SPARC Joint Workshop, Kyoto, Japan (2009)  
“Regional-scale photochemical ozone pollution in central east China in June: A highlight from MTX (Mount Tai Experiment) 2006 field campaign”

- 8) Y. KANAYA: The 2nd Tripartite Workshop on Scientific Research of Photochemical Oxidant, Incheon, Korea (2009)

“Observational analysis of tendency and production regimes of ozone in Japan”

- 9) H. TANIMOTO, H. MUKAI, S. HASHIMOTO: The 2nd Tripartite Workshop on Scientific Research of Photochemical Oxidant, Incheon, Korea (2009)  
“Ozone standard activities at NIES, Japan”

- 10) Y. KANAYA, Y. KONDO, H. SAKAMOTO, L. K. SAHU, F. TAKETANI, Y. KOMAZAKI, H. TAKASHIMA, H. IRIE, N. KANEYASU, T. TAKAMURA, A. TAKAMI, H. TANIMOTO: International Workshop “Frontiers of Black Carbon Studies”, Tokyo, Japan (2010)  
“Seasonal variations in BC concentrations and instrument comparisons at Fukue Island, Japan”

- 11) H. TANIMOTO, H., T. OHARA, AND I. UNO: EGU General Assembly 2010, Vienna (2010)  
“Decadal trend in springtime tropospheric ozone at a mountainous site in Japan: 1998-2007, EGU General Assembly 2010”

- 12) S. INOMATA, H. TANIMOTO, S. KATO, J. SUTHAWAREE, Y. KANAYA, P. POCHANART, Y. LIU, AND Z. WANG: EGU General Assembly 2010, Vienna (2010)  
“PTR-MS measurements of non-methane volatile organic compounds during an intensive field campaign at the summit of Mount Tai, China, in June 2006”

- 13) 金谷有剛, 竹谷文一, 入江仁士, 駒崎雄一, 高島久洋, 高見昭憲: 日本地球惑星科学連合大会 2010, 千葉市 (2010年)

「2009年春季福江島において測定されたエアロゾル散乱係数の湿度依存性と化学成分との関係」

- 14) H. TANIMOTO, T. OHARA, I. UNO: Symposium on Atmospheric Chemistry and Physics at Mountain Sites, Interlaken (2010)

“Decadal trend in springtime tropospheric ozone at a mountainous site in Japan: 1998-2007”

- 15) F. TAKETANI, Y. KANAYA, H. IRIE, H. TAKASHIMA, Y. KOMAZAKI, H. AKIMOTO, H. TANIMOTO: 11th Science Conference of the International Global Atmosphere Chemistry (IGAC) Project, Halifax (2010)

- “Measurement of chemical composition and optical properties of aerosol particles at Fukue Island at Japan in spring 2009”
- 16) H. TANIMOTO, T. OHARA, I. UNO: 12th Symposium of the International Commission on Atmospheric Chemistry and Global Pollution (CACGP) & 11th Science Conference of the International Global Atmosphere Chemistry (IGAC) Project, Halifax (2010)  
 “Decadal trends in tropospheric ozone over East Asian Pacific rim during 1998-2007: Comparison to European and North American records, and implications for emerging Asian emissions impacts”
- 17) X-L. PAN, Y. KANAYA, Z. F. WANG, P. POCHANART, Y. LIU, H. AKIMOTO: Symposium on Asian Dust/Aerosol and its Impact on Global Climate Change, Shanghai, China (2010)  
 “Diagnostic analysis of contribution of biomass burning on regional Carbon Oxide and Light Absorbing Carbon aerosol mass concentrations over rural tropospheric environment, East China”
- 18) 谷本浩志: 2010年度日本地球化学会第57回年会, 熊谷 (2010年)  
 「衛星観測を用いたアジアにおける大気化学研究」
- 19) X-L. PAN, Y. KANAYA, Z. F. WANG, P. POCHANART, Y. LIU, H. AKIMOTO: 日本気象学会秋季大会2010, 京都市 (2010年)  
 “Diagnostic analysis of contribution of biomass burning on regional Carbon Oxide and Black Carbon aerosol mass concentrations over rural tropospheric environment, East China”
- 20) 竹谷文一、金谷有剛、入江仁士、駒崎雄一、高島久洋、谷本浩志、猪俣敏: 第16回大気化学討論会、八王子市 (2010年)  
 「2009年春季福江島におけるPM<sub>2.5</sub>化学成分と光学特性の測定」
- 21) 金谷有剛、XIANYUN LIU, FIROZ MD. KHAN, 近藤 豊, LOKESH K. SAHU, 竹谷文一, 駒崎雄一, 入江仁士, 高島久洋: 第16回大気化学討論会、八王子市 (2010年)  
 「福江島と東京都心におけるブラックカーボン連続測定法(COSMOS, MAAP)の相互比較」
- 22) H. TANIMOTO, T. OHARA, I. UNO: American Geophysical Union 2010 Fall Meeting, San Francisco, December 2010.  
 “Decadal trends in tropospheric ozone over East Asian Pacific rim during 1998-2007: Implications for emerging Asian emissions impacts and comparison to European and North American records”
- 23) Y. KANAYA: Tripartite Workshop on Scientific Research of Photochemical Oxidant, Beijing (2011)  
 “Rates and regimes of photochemical ozone production as explored during intensive field campaigns in Tokyo and at the summit of Mt. Tai, China”
- 24) H. TANIMOTO, T. OHARA, I. UNO: 3rd Tripartite Workshop on Scientific Research of Photochemical Oxidant, Beijing, China (2011)  
 “Decadal trends in tropospheric ozone over East Asian Pacific rim during 1998-2007: Implications for emerging Asian emissions impacts and comparison to European and North American records”
- 25) H. TANIMOTO, T. OHARA, I. UNO: Tropospheric Ozone Changes Workshop, Toulouse (2011)  
 “Decadal trends in lower-tropospheric ozone over Japan during 1998-2008: Records at multiple sites and comparison to regional model simulations”
- 26) 金谷有剛、X. PAN, 竹谷文一, 入江仁士, 高島久洋, 駒崎雄一, 齋藤伸治, 猪俣敏, 谷本浩志, H. DONG, J. LI, X. WANG, H. CHEN, M. ZHANG, Q. WANG, G. ZHUANG, B. ZHU, Z. WANG: 日本地球惑星科学連合大会, 千葉市 (2011年)  
 “2010年春季中国江蘇省Rudongにおける大気成分総合集中観測: 目的と初期結果”

- 27) 竹谷文一、金谷有剛、X. PAN、高島久洋、入江仁士、駒崎雄一、齋藤伸治、猪俣敏、谷本浩志、H. DONG, J. LI, X. WANG, H. CHEN, M. ZHANG, Q. WANG, G. ZHUANG, B. ZHU, Z. WANG: 日本地球惑星科学連合大会、千葉市 (2011年)  
 “2010年春季における福江島および中国如東でのPM<sub>2.5</sub>濃度変動”
- 28) X-L. PAN, Y. KANAYA, Z. WANG: Japan Geoscience Union Meeting 2011, Chiba (2011)  
 “Correlation of Black carbon and Carbon monoxide during biomass burning and urban pollution dominant episodes in eastern China”
- 29) X-L. PAN, Y. KANAYA, Z. WANG: 8<sup>th</sup> international conference on Acid Rain Deposition, Beijing, China (2011)  
 “Correlation of black carbon aerosol and carbon monoxide concentrations measured at the ground-based and high mountain sites in eastern China”
- 30) Y. KANAYA, H. IRIE, H. TAKASHIMA, K. SUDO, H. IWABUCHI, H. AKIMOTO, M. GU, J. CHONG, Y.J. KIM, H. LEE, J. XU, A. LI, F. SI, P. XIE, W. LIU, A. DZHOLA, E. GRECHKO, M. SVIRIDENKOV, V. IVANOV, S. A. TERPUGOVA, M. V. PANCHENKO: 5<sup>th</sup> international DOAS workshop, Mainz, Germany (2011)  
 “MAX-DOAS network observations of NO<sub>2</sub> and aerosols over Japan, China, Korea, and Russia”
- 31) 竹谷文一、金谷有剛、X. PAN、高島久洋、入江仁士：第52回大気環境学会 長崎市 (2011年)  
 “2010年春季における福江島でのPM<sub>2.5</sub>濃度変動”
- 32) 金谷有剛、竹谷文一、入江仁士、駒崎雄一、高島久洋、谷本浩志、横内陽子、猪俣敏、野副晋：第52回大気環境学会年会 長崎市 (2011年)  
 “春季福江島に輸送される気塊でのオゾン生成：NO<sub>x</sub>, VOC制限因子解析”
- 33) 金谷有剛、竹谷文一、X. PAN、入江仁士、駒崎雄一、高島久洋、山地一代、P. POCHANART, Y. LIU、鶴野伊津志、須藤健悟、谷本浩志、猪俣敏、齋藤伸治、野副晋、横内陽子、秋元肇、H. DONG, J. LI, Z. WANG：第17回大気化学討論会、宇治市 (2011年)  
 “東アジア広域大気汚染観測からのモデル精緻化・重要排出源地域特定・政策への貢献（推進費S-7に関連して）”
- 34) 竹谷文一、金谷有剛、X. PAN、入江仁士、高島久洋、駒崎雄一、谷本浩志、猪俣敏、齋藤伸治、Z. WANG：第17回大気化学討論会、宇治市 (2011年)  
 “2010年春季の福江島および中国如東におけるPM<sub>2.5</sub>成分解析”
- 35) 秋元肇、金谷有剛、大原利眞、鈴木克徳：第17回大気化学討論会、宇治市 (2011年)  
 “東アジアにおける広域大気汚染と共便益を考慮した大気環境管理— 環境省S-7戦略推進費による大気化学に基づいた大気環境政策研究 —”
- 36) X-L. PAN, Y. KANAYA, Z. WANG: The 5<sup>th</sup> Korea-Japan-China Joint Conference on Meteorology, Busan, South Korea (2011)  
 “Correlation of Black carbon and Carbon monoxide for biomass burning and urban plumes at the summit of Mt. Huang and costal sites in eastern China”
- 37) Y. KANAYA: The 4<sup>th</sup> Tripartite Workshop on Scientific Research of Photochemical Oxidant, Tokyo (2011)  
 “MAX-DOAS network observations of NO<sub>2</sub> covering Japan, China and Korea”

- 38) H. TANIMOTO: The 4<sup>th</sup> Tripartite Workshop on Scientific Research of Photochemical Oxidant, Tokyo (2011)  
“Long-term monitoring of trace gases in Asia and Oceania using voluntary observing ships”
- 39) Y. KANAYA, L-S. CHANG, Z. WANG: The 4<sup>th</sup> Tripartite Workshop on Scientific Research of Photochemical Oxidant, Tokyo (2011)  
“Proposal for joint field campaign”
- 40) H. TANIMOTO: The 4<sup>th</sup> Tripartite Workshop on Scientific Research of Photochemical Oxidant, Tokyo (2011)  
“Proposal for ozone trend analysis in Northeast Asia”
- 41) X. PAN, Y. KANAYA, Z. WANG, H. IRIE, M. TAKIGAWA: AGU Fall Meeting 2011, San Francisco, USA (2011)  
“Correlation of carbonaceous aerosols observed at Mount sites”
- 42) Y. KANAYA, F. TAKETANI, H. IRIE, Y. KOMAZAKI, H. TAKASHIMA, X. PAN, A. TAKAMI, AND Z. WANG: AGU Fall Meeting 2011, San Francisco, USA (2011)  
“Dependence of aerosol scattering coefficients on relative humidity observed at two coastal sites on the East China Sea: Comparison to remote observations and influence of chemical composition”
- 43) Y. KANAYA, F. TAKETANI, X-L. PAN, Z-F. WANG, G. ZHUANG: The Fifth International Seminar on High-mountain and ground-level Air Quality Monitoring Technology and Simulation (HAMS-2012), Beijing, China (2012)  
“Positive Matrix Factorization (PMF) analysis of PM<sub>2.5</sub> composition observed at Rudong site”
- 44) H. IRIE, Y. KANAYA, H. TAKASHIMA, K. YAMAJI, X. PAN, AND Z. F. WANG: The Fifth International Seminar on High-mountain and ground-level Air Quality Monitoring Technology and Simulation (HAMS-2012), Beijing, China (2012)  
“MAX-DOAS observations during the Rudong campaign and relevant satellite data analysis”
- 45) Y. KANAYA, H. TANIMOTO, F. TAKETANI, X-L. PAN, H. IRIE, Y. KOMAZAKI, H. TAKASHIMA, Z-F. WANG: The Fifth International Seminar on High-mountain and ground-level Air Quality Monitoring Technology and Simulation (HAMS-2012), Beijing, China (2012)  
“BC comparison, RH dependence of aerosol scattering coefficient, and J value attenuation by aerosols at Rudong site”
- 46) X-L. PAN, Y. KANAYA, Z. WANG, F. TAKETANI, H. TAKASHIMA, H. IRIE, H. TANIMOTO, G. ZHUANG, B. ZHU, H.DONG, J. LI, B. GE, T. YANG, H. CHEN, B. WU: The Fifth International Seminar on High-mountain and ground-level Air Quality Monitoring Technology and Simulation (HAMS-2012), Beijing, China (2012)  
“Carbonaceous aerosol correlations impacts from Open Crop Residues Burning (OCRB) at rural areas of Eastern China”
- 47) F. TAKETANI, Y. KANAYA, X-L. PAN, H. TAKASHIMA, H. IRIE, Y. KOMAZAKI, S. SAITO, S.INOMATA, H. TANIMOTO, H. DONG, B. GE, J. LI, AND Z. WANG: The Fifth International Seminar on High-mountain and ground-level Air Quality Monitoring Technology and Simulation (HAMS-2012), Beijing, China (2012)

- “Measurement of chemical composition and optical properties of PM<sub>2.5</sub> at Rudong, China in May and June 2010”
- 48) H. TAKASHIMA, H. IRIE, Y. KANAYA: The Fifth International Seminar on High-mountain and ground-level Air Quality Monitoring Technology and Simulation (HAMS-2012), Beijing, China (2012)  
“NO<sub>2</sub> variation over Rudong, China, observed by OMI satellite sensor”
- 49) S. SAITO, H. TANIMOTO, S. INOMATA, Y. KANAYA, X-L. PAN, K. YAMAJI, Z. WANG, H. CHEN, M. ZHANG: The Fifth International Seminar on High-mountain and ground-level Air Quality Monitoring Technology and Simulation (HAMS-2012), Beijing, China (2012)  
“Non-methane volatile organic compounds at Rudong in summer 2010: Intercomparison of multiple techniques, measurements, and model analysis”
- 50) 金谷有剛、X. PAN、入江仁士、竹谷文一、高島久洋、Z. WANG : 日本地球惑星科学連合2012年大会、千葉市 (2012年)  
「対流圏オゾン光化学へのエアロゾル影響: 中国Rudong におけるオゾン等光解離速度定数(J 値)のエアロゾルによる低下」
- 51) 竹谷文一、池田恒平、金谷有剛 : 第53回大気環境学会年会、横浜市 (2012年)  
「SHARPモニターを用いたPM<sub>2.5</sub>成分分析の評価」
- 52) 金谷有剛、竹谷文一、駒崎雄一、X. PAN、入江仁士、高島久洋、谷本浩志 : 第53回大気環境学会年会、横浜市 (2012年)  
「福江島でのオゾン・前駆物質・PM<sub>2.5</sub>・ブラックカーボン通年観測(2009-2011)」
- 53) X. L. PAN, Y. KANAYA, Z. WANG: The 12th IGAC Open Science Conference, Beijing (2012)  
“Estimation of lifetime of carbonaceous aerosol from open biomass burning during Mount Tai Experiment 2006”
- 54) X. PAN, Y. KANAYA, Z. WANG, H. AKIMOTO, P. POCHANART: AGU Fall meeting 2012, San Francisco (2012)  
“Using Bayesian optimization method and FLEXPART model to evaluate CO emission in East China in springtime”
- 55) S. KUDO, S. SAITO, H. TANIMOTO, S. INOMATA, Y. KANAYA, K. YAMAJI, X. L. PAN, AND Z. WANG: AGU Fall meeting 2012, San Francisco (2012)  
“Measurements of volatile organic compounds in rural area of Yangtze River Delta region: Measurement comparison and source characterization”
- 56) D.D. PARRISH, K.S. LAW, J. STAEHELIN, R. DERWENT, O.R. COOPER, H. TANIMOTO, A. VOLZ-THOMAS, S. GILGE, H.-E. SCHEEL, M. STEINBACHER, E. CHAN: American Geophysical Union 2012 Fall Meeting, San Francisco (2012)  
“Earlier seasonal maximum in lower tropospheric ozone at northern mid-latitudes”
- 57) 金谷有剛 : 日本気象学会2013年度春季大会、東京都 (2013年)  
「エアロゾルの観測 : モデル評価に資する通年観測と先端的計測」
- 58) 金谷有剛、入江仁士、高島久洋、竹谷文一、駒崎雄一、X. PAN、谷本浩志、猪俣敏、横内陽子、中山智喜、松見豊 : 日本地球惑星科学連合大会2013、千葉市 (2013年)  
「福江島でのMAX-DOASによる NO<sub>2</sub>測定 : 地上現場観測との比較検証と長期変動傾向」

- 59) Y. KANAYA: International Workshop on Inventory, Modeling and Climate Impacts of Greenhouse Gas emissions (GHG's) and Aerosols in the Asian Region", Tsukuba (2013)  
 “Field observations of aerosols and related species in East Asia to constrain model simulations and emission inventory”
- 60) 金谷有剛: 第23回「化学工学物性定数の最近の動向」講演会 実用製造プロセスにおける最近の物性の進歩と課題,東京都(2013年)  
 「PM<sub>2.5</sub>大気汚染の実態とモデルシミュレーションの進展」
- 61) J. CHONG, Y. J. KIM, H. IRIE, Y. KANAYA, D. H. SHIN, K. C. KIM, K. Y. LEE, J. KIM, C. H. SONG: The 6th International DOAS workshop, Boulder (2013)  
 “Aerosol optical properties derived from MAX-DOAS observations in Gwangju during the DRAGONNE-Asia Campaign”
- 62) Y. KANAYA: The 54th Annual Meeting of the Japan Society for Atmospheric Environment, Niigata (2013)  
 “Current status of PM<sub>2.5</sub> pollution over Northeast Asia”
- 63) 谷本浩志, R. ZBINDEN: 第19回大気化学討論会, 七尾, 2013年11月6-8日  
 「地上・ゾンデ・航空機による対流圏オゾン観測データの整合性について」,
- 64) F. TAKETANI, Y. KANAYA, H. IRIE, H. TAKASHIMA, X. PAN, H. TANIMOTO, S. SHINJI, H. AKIMOTO, Z. WANG: AGU Fall Meeting 2013, San Francisco (2013)  
 “Measurement of chemical composition and optical properties of PM<sub>2.5</sub> at Rudong”
- 65) H. MATSUI, M. KOIKE, Y. KONDO, N. OSHIMA, N. MOTOKI, Y. KANAYA, A. TAKAMI, M. IRWIN: AGU Fall Meeting 2013, San Francisco (2013)  
 “Seasonal variations of Asian black carbon outflow to the Pacific: Contribution from anthropogenic sources in China and biomass burning sources in Siberia and Southeast Asia”
- 66) H. TANIMOTO, S. KUDO, X. PAN, S. INOMATA, S. SAITO, Y. KANAYA, Z. WANG: AGU Fall Meeting 2013, San Francisco (2013)  
 “Emissions of oxygenated volatile organic compounds from open crop burning in Yangtze River Delta region, China”
- 67) Y. KANAYA, H. IRIE, H. TAKASHIMA, H. IWABUCHI, H. AKIMOTO, K. SUDO, M. GU, J. CHONG, Y. J. KIM, H. LEE, A. LI, F. SI, J. XU, P-H. XIE, W-Q. LIU, A. DZHOLA, O. POSTYLYAKOV, V. IVANOV, M. SVIRIDENKOV, E. GRECHKO: AGU Fall Meeting 2013, San Francisco (2013)  
 “MAX-DOAS network observations of NO<sub>2</sub> in Asia and Russia during 2007-2012: Elucidation of NO<sub>2</sub> climatology and systematic evaluation of satellite observations from OMI”

### (3) 出願特許

特に記載すべき事項はない

### (4) シンポジウム、セミナー等の開催（主催のもの）

- 1) 金谷有剛：一般公開シンポジウム「越境大気汚染への挑戦 - 最新の知見と最近の動向 -」、東

京都、2011年10月28日 秋葉原UDX4階 ギャラリーNEXT2、参加者100名)

“越境大気汚染はどこまでわかったか”

2) 金谷有剛：一般公開シンポジウム「越境大気汚染への挑戦2013－国際協調による取組に向けて－」、東京都、2013年11月1日 ソラシティカンファレンスセンター、70名)

“日本のPM<sub>2.5</sub>はどこからくるか ～越境汚染の寄与をさぐる～”

YouTube にて配信<http://www.youtube.com/watch?v=yWJZDF0-YO0>

#### (5) マスコミ等への公表・報道等

- 1) 共同通信 (2009年5月20日、「春のオゾン濃度年々上昇 米基準なら超過日数増加」、ウェブ版)
- 2) 高知新聞 (2009年5月20日、「オゾン濃度 毎春上昇 中国の排出影響か」)
- 3) 佐賀新聞 (2009年5月20日、「大気オゾン濃度 年々春に上昇 中国からの影響か」)
- 4) 熊本日日新聞 (2009年5月21日、第5面に「光化学スモッグ原因 オゾンの大気中濃度 米国基準で悪化鮮明」)
- 5) 成果の記者発表、「九州の離島でも大気環境基準は満たせず－微小粒子状物質の基準告示から1年、越境大気汚染の影響－」、2010年11月10日(文部科学省)
- 6) 毎日新聞 (2010年11月10日朝刊、全国版、24面) 「大気汚染 五島列島で PM<sub>2.5</sub>基準超え 中国から越境か」
- 7) 読売新聞 (2010年11月10日朝刊、全国版、12面) 「五島列島 中国から越境汚染か」
- 8) 朝日新聞 (2010年11月16日朝刊、全国版、32面) 「海越える大気汚染 通年で日本に飛来」
- 9) フジサンケイビジネスアイ (2010年11月10日朝刊、全国版、9面) 「長崎の離島、大気汚染深刻」
- 10) 日刊工業新聞 (2010年11月10日朝刊、全国版、23面) 「長崎県福江島 大気環境基準満たせず」
- 11) 西日本新聞 (2010年11月10日朝刊、30面) 「福江の大気汚染深刻 原因物質は大陸から？」
- 12) 長崎新聞 (2010年11月10日朝刊、23面) 「福江の大気汚染 深刻 微小粒子状物質PM<sub>2.5</sub> 大陸方面から飛来か」
- 13) NHKニュース (2010年11月10日) 「五島で越境大気汚染深刻」
- 14) 月刊誌「WiLL」 (2012年6月号、p.244-251) 「福島より怖い中国の放射能」記事、中国の大気汚染関係のコメント掲載
- 15) 金谷有剛、対流圏オゾン光化学へのエアロゾル影響：中国Rudong におけるオゾン等光解離速度定数(J 値) のエアロゾルによる低下 (日本地球惑星科学連合2012年大会) について、連合大会運営委員会より、セッションハイライト論文に選ばれ、報道関係者に紹介された。  
[http://www.jpogu.org/meeting\\_2012/2012highlight.pdf](http://www.jpogu.org/meeting_2012/2012highlight.pdf)
- 16) 朝日新聞 (2013年1月31日、大阪版、3面) 「北京、一部の工場停止 大気汚染 当局が緊急対策」
- 17) 朝日新聞 (2013年2月1日、大阪版、3面) 「大気汚染 北京混乱」
- 18) 毎日新聞 (2013年2月5日、全国版、3面) 「PM<sub>2.5</sub>って、どんな物質？」
- 19) 赤旗日曜版 (2013年3月10日、全国版、35面) 「深刻中国 PM<sub>2.5</sub>汚染 北京で基準の約30倍 日本に越境、複合大気汚染に」
- 20) NHK 週刊ニュース 深読み (2013年2月16日、PM<sub>2.5</sub>越境大気汚染の寄与率に関する成果について1分ほど紹介)

- 21) 読売新聞 (2013年7月1日、全国版) 「PM<sub>2.5</sub>対策 日中で協力」
- 22) 日本経済新聞 (2013年11月28日、全国版) 「PM<sub>2.5</sub>、国内でも発生 関東地方、「中国発」を上回る」
- 23) 毎日新聞 (2013年12月17日、全国版) 「濃度懸念高まる冬本番 PM<sub>2.5</sub>の発生源把握急務」
- 24) International New York Times (2013年12月26日、“Worries in the Path of China's Air” in Green Column, 15面)
- 25) 読売新聞 (2014年1月6日、全国版) 「PM<sub>2.5</sub>高精度で分析 発生源の推定可能に」
- 26) 日本経済新聞 (2014年1月27日) 「ニッキの大疑問 PM<sub>2.5</sub>、どこから来るの? 国内にも発生源 予測技術進む」
- 27) 日本テレビ 情報番組PON! (2014年3月6日) 「中国から飛来してくるPM<sub>2.5</sub>の割合について」 PM<sub>2.5</sub>の越境寄与率に関する試算について紹介
- 28) NHK BSニュース (2014年3月12日) 「PM<sub>2.5</sub>対策強化で提言取りまとめへ」 PM<sub>2.5</sub>の越境寄与率に関する試算について紹介
- 29) 高知新聞 (2014年3月21日、朝刊) 「日中韓でPM<sub>2.5</sub>対策へ 実務者協議で汚染軽減協力」

#### (6) その他

- 1) 竹谷文一ほか、第52回大気環境学会年会ベストポスター賞、「2010年春季における福江島でのPM<sub>2.5</sub>濃度変動」、2011年9月15日
- 2) 竹谷文一、平成25年度大気化学研究会奨励賞、「レーザー誘起蛍光法を用いた化学反応過程の実験的解明および大気粒子計測装置の開発」、2013年11月7日

#### 8. 引用文献

- 1) M. O. ANDREAE, and P. MERLET: Global Biogeochem. Cycles, 15 (4), 955–966 (2001)  
“Emission of trace gases and aerosols from biomass burning”
- 2) S. K. AKAGI et al.: Atmos. Chem. Phys., 11, 4039–4072 (2011)  
“Emission factors for open and domestic biomass burning for use in atmospheric models”
- 3) R. J. YOKELSON et al.: Atmos. Chem. Phys., 11, 6787–6808 (2011)  
“Trace gas and particle emissions from open biomass burning in Mexico”
- 4) T. J. CHRISTIAN et al.: J. Geophys. Res., 108 (D23), 4719 (2003)  
“Comprehensive laboratory measurements of biomass-burning emissions: 1. Emissions from Indonesian, African, and other fuels”
- 5) K. YAMAJI et al.: Atmos. Chem. Phys., 10, 7353–7368 (2010)  
“Impact of open crop residual burning on air quality over Central Eastern China during the Mount Tai Experiment 2006 (MTX2006)”
- 6) X. YAN et al.: Atmos. Environ., 40, 5262–5273 (2006)  
“Bottom-up estimate of biomass burning in mainland China”

## (5) 地上・衛星ライダーによるアジア域のエアロゾル解析

(独) 国立環境研究所 地域環境研究センター 広域大気環境研究室 清水 厚

<研究協力者>

(独) 国立環境研究所 環境計測研究センター 遠隔計測研究室 原 由香里  
(平成21年度～23年度)

平成21～25年度累計予算額：54,169千円

(うち、平成25年度予算額：7,219千円)

予算額は、間接経費を含む。

### [要旨]

エアロゾルの広域分布を理解する上で不足している鉛直分布に関わる情報について、地上設置および衛星搭載ライダー（レーザーライダー）のデータを用いて解析を行った。まず、ライダー観測から得られる消散係数のうち、球形粒子によるものを抽出することにより、主に人為起源と推定される微小粒子の個数濃度との対応が見られることを示した。東アジア域における地上ライダーネットワークによる球形粒子消散係数鉛直分布から、その濃度・高度分布がモンスーンの遷移に伴い顕著に年周変化を示していることを明らかにした。更に、2004年以降、球形粒子消散係数の鉛直積分値（光学的厚さ）は2008年頃まで東アジア域で増加し、その後中国北部を除き減少する傾向が見られたが、2012年以降は明確な変化が見られなくなっていることを示した。また、化学輸送モデルにおけるエアロゾル鉛直分布の再現性を調査するため、光学的スケールハイトを利用したモデル内の感度実験および観測との比較を行った。まず、エアロゾルの光学的スケールハイトはモデルの鉛直分解能が不足している場合、大きくなる傾向が見られた。また、衛星搭載ライダーによる観測値と比較すると、分解能が比較的高いモデルでも夏季にスケールハイトが過大となる場合があることが分かった。この手法により、モデル構築時の鉛直分解能の妥当性にエアロゾル鉛直分布の観点からの評価が可能となった。これらとは別に、国内で地上PM<sub>2.5</sub>が広域に渡り上昇した日についてライダー観測結果から球形粒子と黄砂による地上付近の消散係数を比較したところ、PM<sub>2.5</sub>上昇イベントにおいて黄砂の寄与が無視できないものであることを明らかにした。

### [キーワード]

ライダー、球形粒子、消散係数、スケールハイト、中長期変動

## 1. はじめに

アジア域のエアロゾル分布が他の地域と比較して特徴的な点は、多様なエアロゾル種が同時に存在し複雑な空間分布が見られること、および近年の領域内の経済発展に伴い前駆物質の発生量が急増していることである。まず前者については、地表付近に分布する人為起源の1次・2次粒子、広い高度範囲に渡って存在する黄砂、および海上に分布する海塩が場所によっては同一の空気塊

において共存している。このためエアロゾルの環境・気候影響を論じる際にはこれらの要素毎に考察することが必須で、観測データとしてはそれらなるべく分離する必要がある。一方後者については同一観測手法による長期モニタリングによって大気中の粒子の濃度変動を明らかにすることで、人間活動による影響を知ることが出来る。このような前提に基づき、2001年以降国立環境研究所が展開してきたアジア域の地上ライダーネットワーク、および2006年にNASAにより打ち上げられた極軌道衛星CALIPSO搭載のライダーCALIOPのデータを主に利用し、他の衛星・地上観測データも援用しながら上記の問題について明らかにし、また数値モデル（化学輸送モデル）のエアロゾル鉛直分布がどのようなパラメータにより影響を受けるか、実際の観測がどの程度再現されているのかという点について検証を行った。

## 2. 研究開発目的

地上設置および衛星搭載ライダー（レーザーライダー）のデータから、黄砂以外の粒子の消散係数を導出し、それらの時空間変動・中長期変動について解析を行う。具体的には、観測ボリューム内の粒子の形状に関する情報（偏光解消度）を利用して球形粒子の消散係数を計算するアルゴリズムを開発し、その結果を国立環境研究所地上ライダーネットワークデータおよびNASAによるCALIPSO衛星搭載ライダーCALIOPのデータに適用し、アジア域各地域における球形粒子消散係数の季節内変動（濃度・高度分布）および光学的厚さ（球形粒子消散係数の鉛直積分量）に関する10年程度の中長期的な変動を明らかにする。さらに、エアロゾル鉛直分布の特徴的な量として光学的スケールハイト（Hayasaka et al., 2007）<sup>1)</sup>を利用して、実際の観測における値と化学輸送モデルによる値との比較を行う。モデル側では各種実験の結果を用い、観測との差のパラメータ依存性を調べる。さらに、日本国内の地上PM<sub>2.5</sub>上昇に対して黄砂・球形粒子それぞれがどのように寄与したのかについてもライダーを用いて推定する。

## 3. 研究開発方法

地上ライダー、CALIOPともライダーは1064nm/532nmの2波長レーザーを光源とし、532nmについては後方散乱光のうち偏波面が送信光のものと平行な成分および直交する成分とを独立に計測する3チャンネル構成となっている。それぞれのライダーに関する観測データと解析手法の詳細は次の通り。

### (1) 地上ライダー

1. 観測は、10Hzの繰り返しで5分連続(3000ショット)の積算を行う。これを1時間に4回自動的に取得する。距離分解能は6m。データ解析時にはこれを連続5点で足し込み30mの分解能として扱う。
2. 1064nmの減衰後方散乱係数を利用して各鉛直プロファイルの雲底高度を決定する。また雲底下については2波長比を利用して雨滴の検出も行う。
3. 晴天時には高度6km(ただし、SN比が低い場合にはそれから決定する6km以下の高度)、曇天時には雲底直下に境界を取って532nmについてFernald法<sup>2)</sup>によるインバージョン(減衰の補正・大気分子散乱の分離)を行う。最初に境界でエアロゾル消散係数を0として解いてから、途中に負の値が現れた場合に境界に有限の値を与えて再度解く。ライダー比(S1)は50srで固定した。分子による後方散乱係数にはCIRA86を利用する。

### (2) 衛星ライダーCALIOP

- 1.観測は20Hzで各ショット毎に30mまたは60mのレンジ分解能で後方散乱強度が記録される。NASAにおいて大気分子を用いたキャリブレーションが行われたLevel1BデータをFTPサイトから取得し、水平方向に3km(20ショット分)の積算を行う。
- 2.NASAによるLevel2データに含まれる雲・エアロゾル判定において雲が含まれないプロファイルについて、高度14.2kmを上端とし、532nmについて前方Fernald法によってインバージョンを行う。ライダー比(S1)は50srで固定した。
- 3.前方Fernald法の場合、途中で光学的に厚い層があると解が発散するのでそのようなプロファイルは以後の解析から除外する。また地上ライダーとの対比では、地上観測地点から100km以内で行われた観測を利用する。

以後(1)(2)共通

- 4.観測偏光解消度と、上記で得られたエアロゾル消散係数を利用して、エアロゾルのみの偏光解消度を導出する。
- 5.実際の大気中では粒子偏光解消度0%の球形粒子(主に二次生成粒子と海塩)と粒子偏光解消度35%の黄砂粒子とが外部混合していると仮定して、4.で求められた粒子偏光解消度から観測した空気塊に含まれる2種の粒子の割合を求め、これとエアロゾル消散係数との積を球形粒子消散係数・黄砂消散係数とする(Sugimoto et al., 2003<sup>3)</sup>)。

本研究では雲がある場合の推定手法について改善を測った。その結果得られた値については、地上付近で得られた値と、地上に設置した光学粒子計測器(OPC)や気象庁気象観測との対応を調べ、妥当性のチェックを行った。まずOPCについては、柴田科学GT-521(観測波長780nm)を国立環境研究所大気汚染質実験棟7階(高度約20m)に設置し、1時間に2回8粒経について計測を行った。この値を1時間平均し、ライダー消散係数の1時間平均値と比較する。気象庁観測との対比については、気象官署において随時記録される「大気現象」のうち黄砂・煙霧・もやについて気象庁HP「過去の気象データ検索」からダウンロードしたファイル中より抽出し、該当する大気現象が記録されていた時間帯全てのライダー消散係数について出現頻度を調べて対応を見た。

アジア域における球形粒子の時空間分布(季節毎の鉛直分布の変動)を示すため、球形粒子消散係数の月平均プロファイルを作成し、その鉛直積分量(AOD)やスケールハイト(Ha)を求めて年周変化を調べた。ここで、化学輸送モデルRAMS/CMAQによる球形粒子(硝酸塩・硫酸塩・有機炭素・黒色炭素の和)の3次元分布との対比を行う。RAMS/CMAQの結果は国立環境研究所地域環境研究センター大原利真センター長から提供された鉛直14層、水平80kmメッシュのモデル結果を利用した。人為起源前駆物質の排出源情報としてはREAS<sup>4)</sup>の2006年までのものを利用している。また、モデル内で計算される重量濃度から光学量への変換はMalm et al.(1994)<sup>5)</sup>の方法を利用した。さらに、2004年以降のAODの数年スケールの変動について、RAMS/CMAQによって求められた球形粒子によるAOD、空港における視程、MODISの微細粒子モードによるAODとの経年変動の比較を行った。視程は、消散係数の逆数と定義されるが、入手できるデータでは視程の上限が10kmまでしか記録されていないため、エアロゾルが薄い時期については解析から除外した。

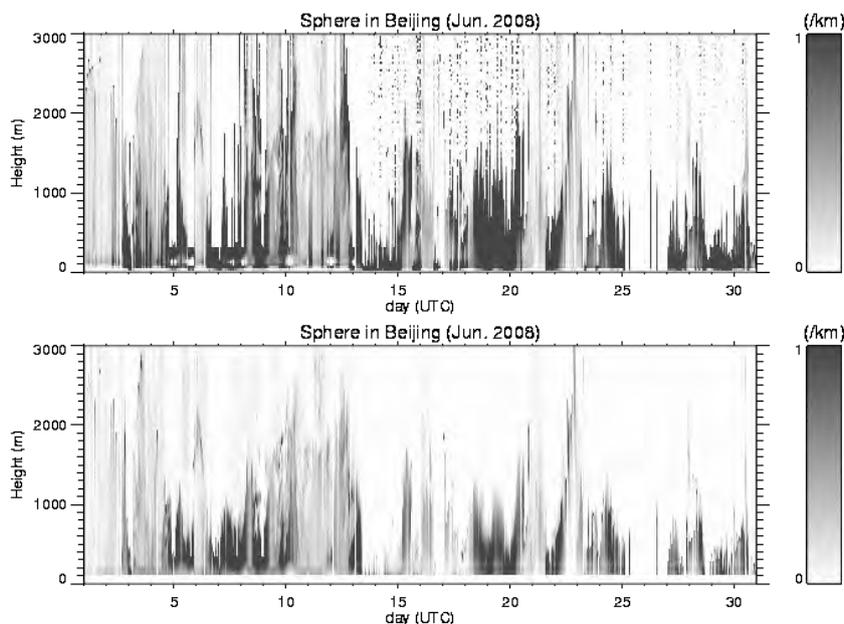
この他、化学輸送モデルの改良のために、WRF/CMAQによる各種実験の計算結果とCALIOPによる光学的スケールハイトとの比較を行い、モデル内のパラメータに依存した再現性のチェックを行った。ここでは、鉛直層数を37とした標準実験、そのままエアロゾル前駆物質の注入高度範囲を半分にしたもの、鉛直層数を14に減らしたものを対比に利用した。

さらに、地上PM<sub>2.5</sub>高濃度日の地上付近における2成分ライダー消散係数を解析し、これらの日において黄砂の寄与度合いを推定した。環境省が集約する大気常時監視データからPM<sub>2.5</sub>日平均値を計算し、この値が短期基準35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超過した地点数が全国の観測値点数に占める割合が高かった日を高濃度日と定義した。これらの日における、環境研ネットワークライダー12地点で平均した日平均の黄砂消散係数・球形粒子消散係数をその日の国内における黄砂の寄与・球形粒子の寄与とみなし、解析を行った。

#### 4. 結果及び考察

##### (1) 球形粒子消散係数の導出手法改善、他の観測との対比

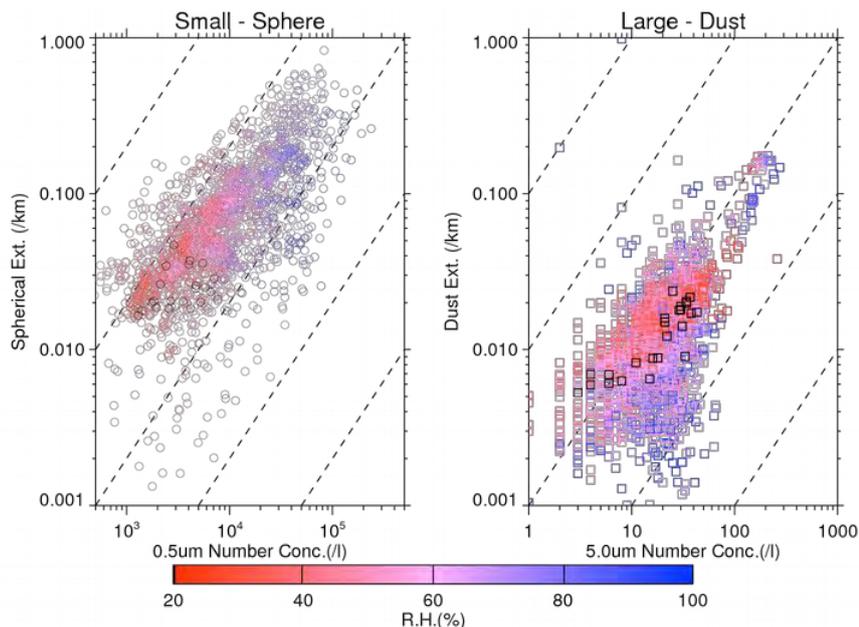
ライダーによる後方散乱強度から消散係数を導出し、そのうち黄砂消散係数を推定する手法は Shimizu et al.(2004)<sup>6)</sup>で既に確立されているが、本研究の主たる対象である人為汚染粒子が地上付近に存在し、雲がその上に見られることが多いため、地上ライダーの解析においてライダー方程式のインバージョンを行う際の計算手法をより厳密な方法へ改善した。本研究以前は雲底下では光学的に薄いという前提を置き、この領域における減衰後方散乱係数にライダー比S1を乗じたものを消散係数とみなしていた。しかしこの手法では厳密にはライダー方程式を満たす解が得られる訳ではなく、またレーザー出力の日内変動などがあった場合には推定精度が悪くなる。本研究では雲底下のエアロゾル消散係数の推定精度を向上させるため、雲低直下から下向きにFernald法を厳密に適用し、少なくともライダー方程式を厳密に満たすよう計算ルーチンを改良した。ただし、晴天時と比べると拘束条件（エアロゾル消散係数が負ではない）を与える高度領域が減るため、未だにキャリブレーションとして不十分な点が残っている点には留意が必要である。これは、気象条件によらず観測を行った際には低空に雲が現れ、上空まで散乱信号を捉えることが出来ない以上避けられない問題である。



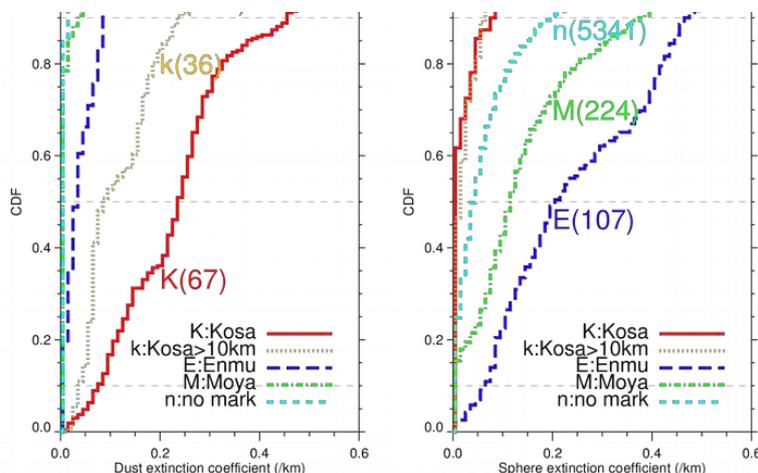
図(5)-1 2008年6月の北京における球形粒子消散係数時間高度断面図。上) 雲底下の推定手法改善前、下) 雲底下の推定手法改善後。上空が白く抜けている部分は、雲の上で地上ライダーでは観測不可能な領域であることを示している。

図(5)-1に、本研究におけるデータ処理改善の前後の球形粒子消散係数時間高度断面の変化例を示す。従来の処理方法では、上層に雲がある場合にその下のエアロゾル層の消散係数を過大に推定し、晴天時データとの時間方向の連続性が十分でなかったが、改善後は大きな不連続が見られなくなっている。

このようにして得られた球形粒子消散係数については、他の観測によって得ることが不可能なため、独立に得られる別の物理量との対比が必要である。本研究では、ライダー近傍に設置した光学式パーティクルカウンター(OPC)による粒子数との比較を行った。つくばのライダーで得られた地上120m付近の消散係数と、近傍(地上20m)に設置したOPCによる同時刻の0.5 $\mu$ m, 5.0 $\mu$ mの個数濃度との対応を示したものが図(5)-2である。またこの際、OPCに付属の温湿度センサによって取得された相対湿度によってデータを色分けした。これによると、球形粒子消散係数は微小粒子(0.5 $\mu$ m)個数との大まかな対応関係が見られる他、同一の消散係数に対しては高湿度時に個数濃度が大きい様子が見られる。これは、高湿度の場合の吸湿性粒子モード径の増大(光学モデルOPACによれば湿度50%から



図(5)-2：(左) OPC微小(0.5 $\mu$ m)粒子数(横軸)とライダー球形粒子消散係数(縦軸)との散布図。個々の点の色は下のカラーバーに示した相対湿度。右図はOPC粗大(5.0 $\mu$ m)粒子数とライダー非球形消散係数の対比で、黄砂粒子については相対湿度によらず粗大粒子-非球形粒子の関係が成り立つことを示している。

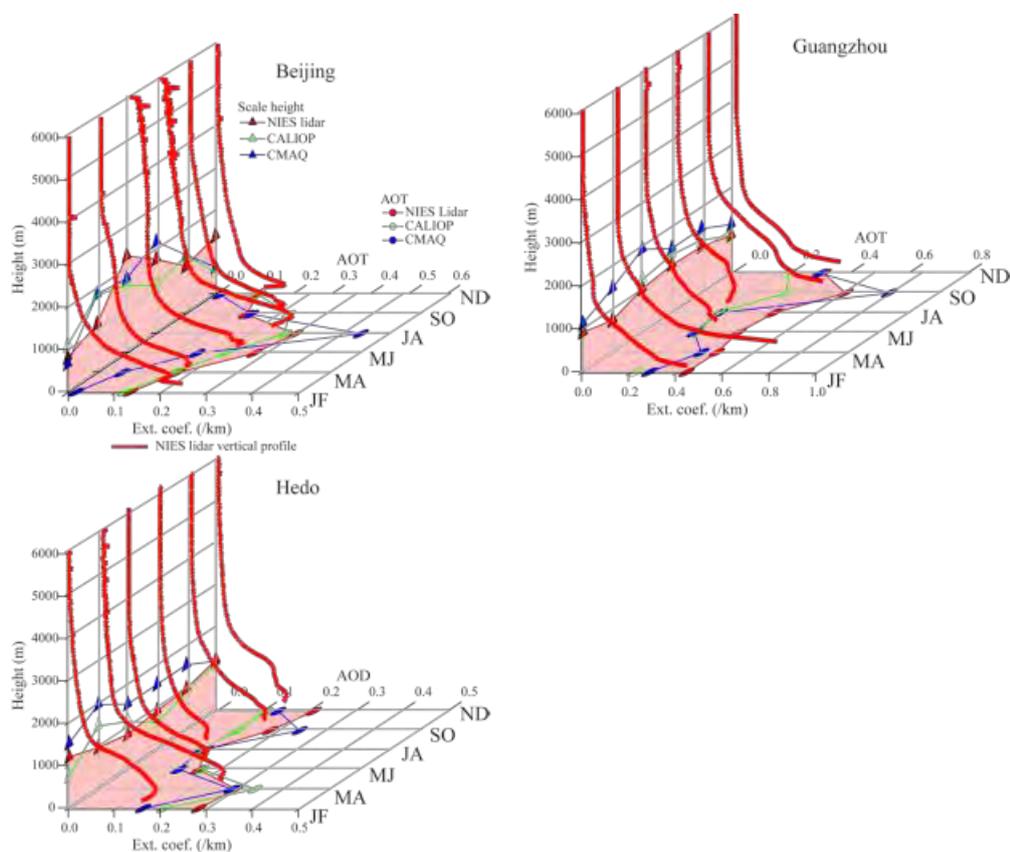


図(5)-3:長崎における各気象現象時における地上ライダー消散係数の累積頻度分布。左：黄砂消散係数、右：球形粒子消散係数。各気象現象のカッコ内は2011年の年間時間数。赤：視程10km未満の黄砂、黄：視程10km以上の黄砂、青：煙霧、緑：もや、水色：報告なしそれぞれの時間帯における統計。

これは、高湿度の場合の吸湿性粒子モード径の増大(光学モデルOPACによれば湿度50%から

99%でおよそ1.5倍)と粒子総表面積のバランスから、このモードが $0.5\mu\text{m}$ より小さいことを示している。即ち、モード径が増大する場合に同一消散係数を得るためには分布全体で個数濃度が減少する必要がある(複素屈折率が変化しない場合、総個数は $1/2.25$ となる必要がある)が、ピーク径よりも大きい側の粒径の一部では個数濃度が増える領域が存在する。この結果から、ライダーによる球形粒子消散係数が $0.5\mu\text{m}$ より小さい微小粒径の濃度を示していることが確認された。なお、黄砂は本研究の直接の対象から外れるが、湿度が低い場合において黄砂消散係数と $5.0\mu\text{m}$ 個数濃度との対応も明瞭であり、黄砂イベント時には大粒子を黄砂として識別できていることが確認された。

さらに、2成分(黄砂・球形粒子)消散係数と、日本の気象台における大気の見視観測結果との対応を調べた。図(5)-3は、長崎海洋気象台において2011年に黄砂・煙霧・もやが報告された時間帯の消散係数の頻度分布を累積度数として表示したものである。これによると、球形粒子消散係数が地上観測における煙霧の時間帯に最も上昇しており、そのメディアンは $0.2/\text{km}$ 程度となりもや観測時の倍程度であることが分かった。黄砂時には球形粒子消散係数は殆んど上昇しておらず、ライダーによって光学的に推定された球形粒子消散係数が黄砂に影響されずに微小粒子イベント



図(5)-4: 地上ライダーによる2ヶ月平均消散係数の鉛直プロファイル(赤線)と地上ライダー(赤)・衛星ライダー(緑)・CMAQ(青)による光学的厚さ(水平面内)および同じくスケールハイト(鉛直面内 $\Delta$ )。左上: 北京、右上: 広州、下: 辺戸岬。

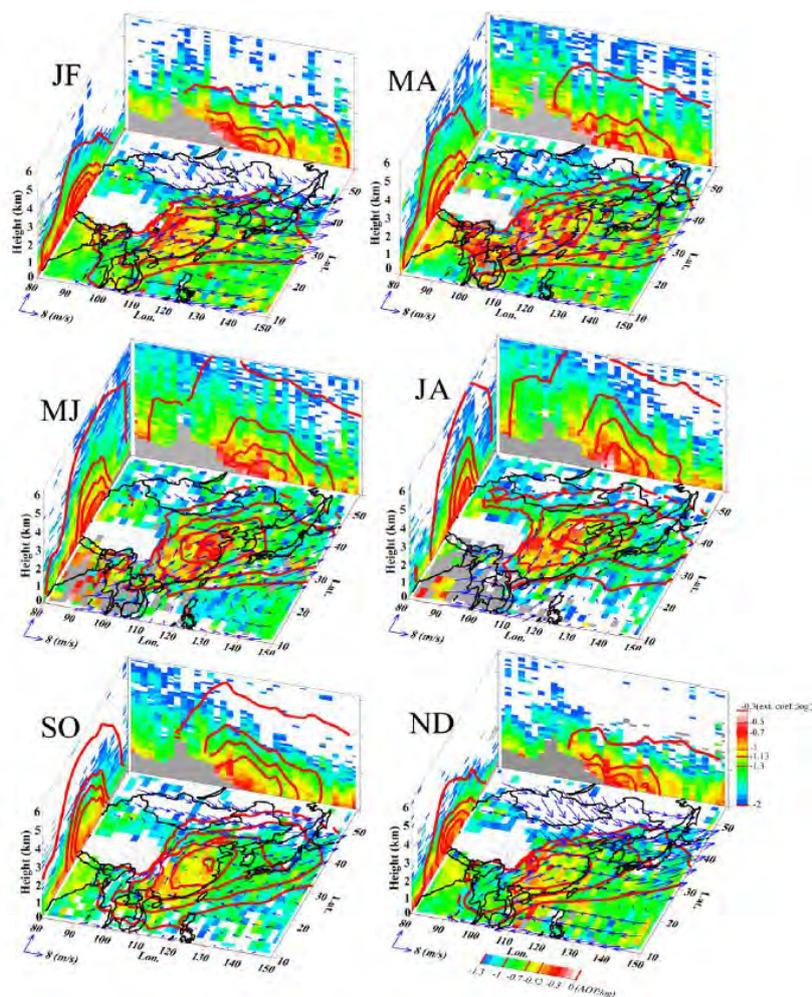
の際に上昇していることが確認された。なお、黄砂消散係数については視程 $10\text{km}$ 以下の黄砂発表

時に、0.25/km付近を中心に分布していることが分かる。ただし、煙霧発表時にもその他の時間帯に比べて黄砂消散係数が僅かに上昇しており、黄砂時に煙霧発表となっている可能性については更なる検討を要する。

## (2) 球形粒子消散係数の地域別季節内変動

ライダーによる球形粒子鉛直分布の2ヶ月平均値について、地上ネットワークライダー・衛星搭載ライダー・CALIOPの両者を利用して、東アジア域で特徴的な季節ごとの空間分布を抽出した。図(5)-4は、地上ライダーのうち大陸側地点として中国北京、海洋側地点として中国広州および沖縄辺戸岬における2ヶ月平均消散係数鉛直プロファイルの年周変化を示している。ここで、消散係数の鉛直積分量である光学的厚さ(AOD)および、光学的スケールハイト(地上から上方へ積算した消散係数がAODの $1-1/e(0.632)$ 倍となる高度、 $H_a$ )も同時に示した。利用したデータの期間は2006年7月から2008年12月までの2年半である。北京においては光学的厚さ・スケールハイトとも夏に極大となり、変動も大きい。一方、広州や辺戸岬では夏季には光学的厚さが減少するが、スケールハイトにはそれほど大きな年周変化見られない。これら

の季節的な特徴はアジアモンスーンの変動、すなわち冬季は大陸北部に存在する高気圧により北京周辺のスケールハイトが減少しエアロゾルも南方に流出する傾向にあること、夏季には太平洋側から汚染が少ない気流が入り込むことによって広州や辺戸岬ではエアロゾルが減少するのに対して大陸ではエアロゾルが滞留する他、高湿度により吸湿性粒子による消散が増大することなど



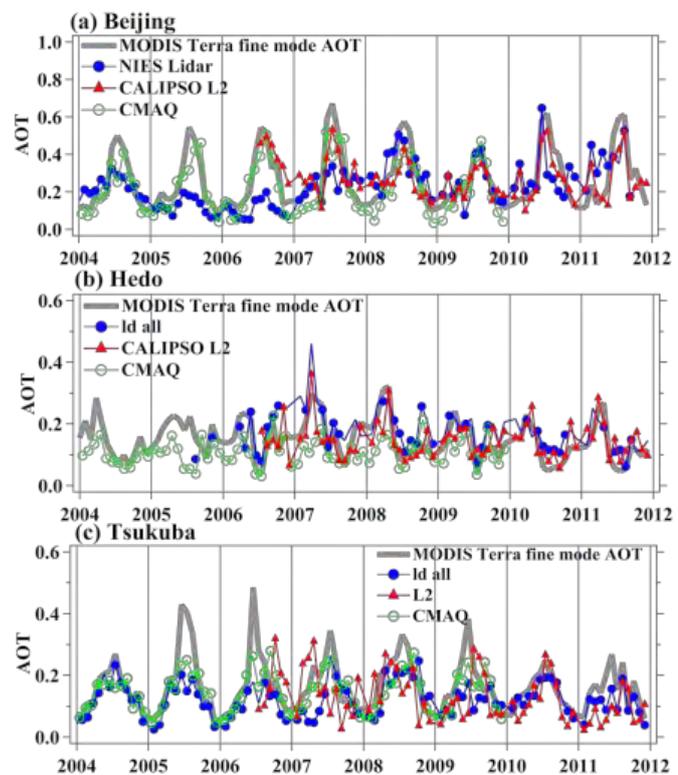
図(5)-5: 衛星ライダーCALIOP (カラー) およびRAMS/CMAQ (赤等値線) による2ヶ月平均の球形粒子AOD (地表面)、東経115度-125度平均の緯度高度分布 (南北断面)、北緯35度-40度平均の軽度高度分布 (東西断面)。ベクトルはRAMSによる最下層の水平風。左上から右へ1/2月平均、3/4月平均、5/6月平均、7/8月平均、9/10月平均、11/12月平均。

を反映していると考えられる。またスケールハイトについては北京の夏の極大が顕著である。大陸においては夏季の太陽放射による地表面加熱に伴って強い対流が発生し、鉛直混合が活発となって高高度まで地表由来のエアロゾルが輸送されていると解釈される。

さらに東シナ海など海上を含む広域での消散係数やAODの実態をCALIOPデータによって示したものが図(5)-5である。この図にはCALIOPから導かれた球形粒子AODの他、経度方向に平均した球形粒子消散係数の緯度高度断面、緯度方向に平均した球形粒子消散係数の経度高度断面、CMAQによるAOD, Ha、RAMSによる最下層の水平風ベクトルも示されている。図(5)-4における結果と同様に、冬季から春季にかけて偏西風によりユーラシア大陸から日本・太平洋方面へエアロゾルが流出している様子や、夏季に太平洋高気圧の勢力が強いため日本域ではエアロゾルが少ないことなどが見てとれるが、興味深いのは暖候期のCALIOPとCMAQの差である。外側の等値線（モデル）がカラー（ライダー観測）の薄い部分に見られ、モデル内でエアロゾル鉛直混合が観測結果よりも深い可能性を示唆している。一方、地表付近で見られるピークの位置は観測と計算でかなり近い領域に見られた。ただし東西のコントラストはモデルの方が顕著で、観測結果では東方海上まで消散係数が0.1程度の値を示す領域が広がっている。RAMS/CMAQでは自然発生の海塩について考慮されていないため、リモート領域の海上では低空の海塩が観測にのみ反映され、このような差異が生じるものと解釈している。

### (3) 球形粒子消散係数の中長期変動

前節でも利用したAODについて、2004年以降の経年変化を地上・衛星ライダーデータ・衛星イメージャ・化学輸送モデルを利用して求めた。図(5)-6に、北京・辺戸岬・つくばにおける2004年から2011年までの月平均AODの変動を示す。この8年間で一貫したトレンドは見られないが、2004年頃に比べて2008年頃には各地点AODが増大している。その後、辺戸やつくばにおいてはやや減少、北京においてはほぼ横ばいという特徴が見られる。変化の傾向自体は、観測手法・モデルによらずほぼ共通しているものの、北京の2006年以前については地上ライダーのAODがやや低く、レーザー出力不足により上空が十分観測されていないのが原因と見られる。これらの傾向は、季



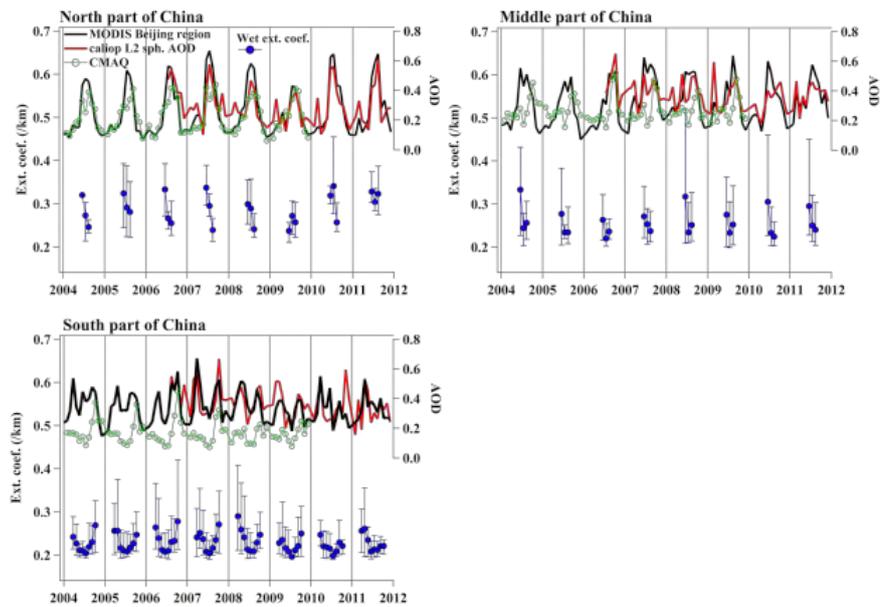
図(5)-6：北京（上）、沖縄辺戸岬（中）、つくば（下）における光学的厚さの月平均値時系列。青：地上ライダーによる球形粒子AOD、赤：CALIOPによる球形粒子AOD、灰色：MODISによる微小粒子AOD、緑：RAMS/CMAQによる球形粒子AOD。

節変化を加味した一次のトレンドモデルによる検定によっても有意とされた（原ほか、2012<sup>7)</sup>）。

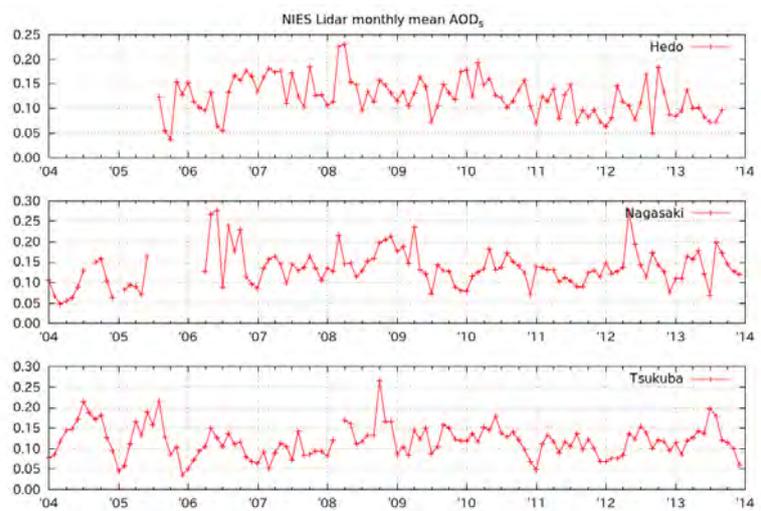
また、中国のライダー観測が行われていない都市について、空港の視程データから推定した地上付近の消散係数を利用して、中国北部・中部・南部における平均的な消散係数のトレンドを

CALIOP/MODIS/CMAQによるAODのトレンドと比較した(図(5)-7)。この結果からも、2008年ま

では各地域で消散係数が増加、その後は南部で減少・中部では横ばい・北部では引き続き増加という結果が得られた。ここでCMAQの2007年以降については、排出源情報が2006年のものに固定されている。すなわちこれ以降のモデル内のトレンドは、排出源が一定で気象要因によってのみ生じた場合の結果と解釈できる。観測から得られたトレンドの符号と、CMAQから得られたトレンドの符号との対応を見ると、2008年以前は両者が一致しているのに対して、以降ではそれらが一致しない（原ほか、2012）。すなわち、観測で一部領域に見られた減少トレンドは、排出源を固定したまま気象場を変えても再現されない。このことから、ここで見られた減少トレンドは排出源の変動、具体的には硫酸塩の前駆物質となる二酸化硫黄などの減少傾向を反映しているものと解釈することが出来る。なお地上ライダーデータについては更にその先の2013年末までの月平均値を調べた結果、風下域で見られた2008年以降の減少傾向は2012-2013年にははっきりしなくなることが分かった(図(5)-8)。モデルとの比較等、さらなる検討が必要ではある



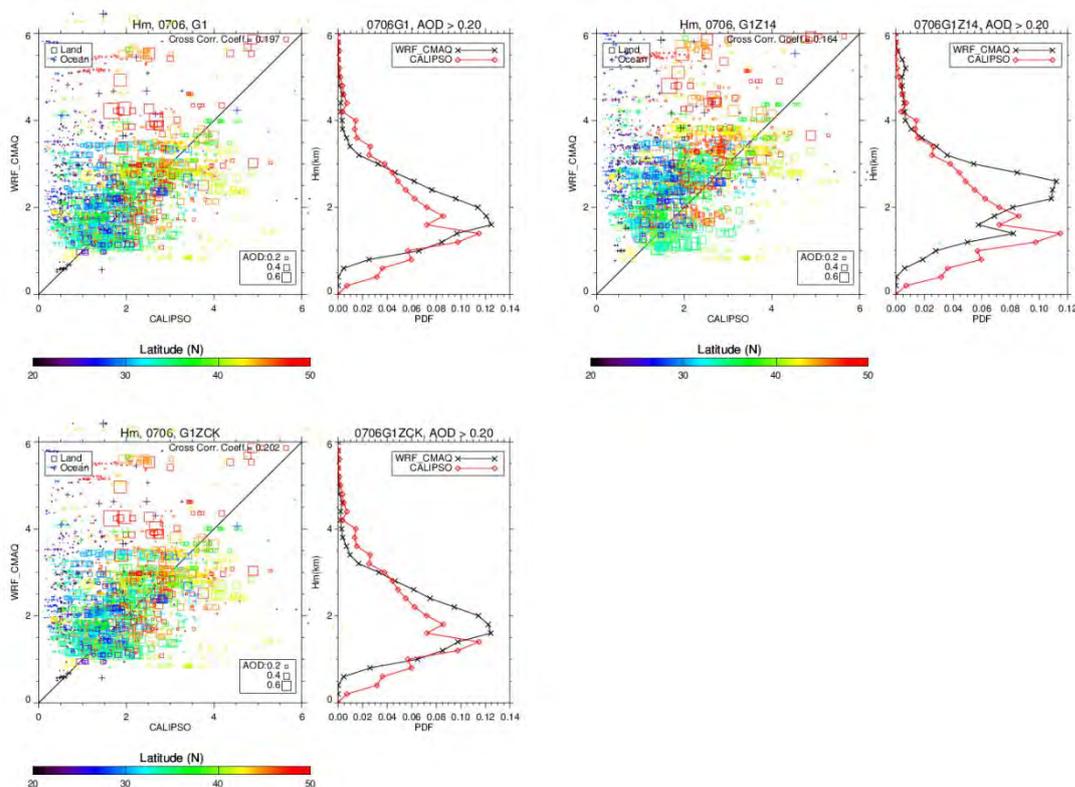
図(5)-7 : MODIS・CALIOP・RAMS/CMAQによるAOD（上段）と、空港視程から推定した消散係数（下段）の変動。中国北部（左上）・同中部（右上）・同南部（左下）における平均値。



図(5)-8 : 2013年末までの地上ライダーによる球形粒子AODの変動。上から辺戸岬、長崎、つくばにおける結果。

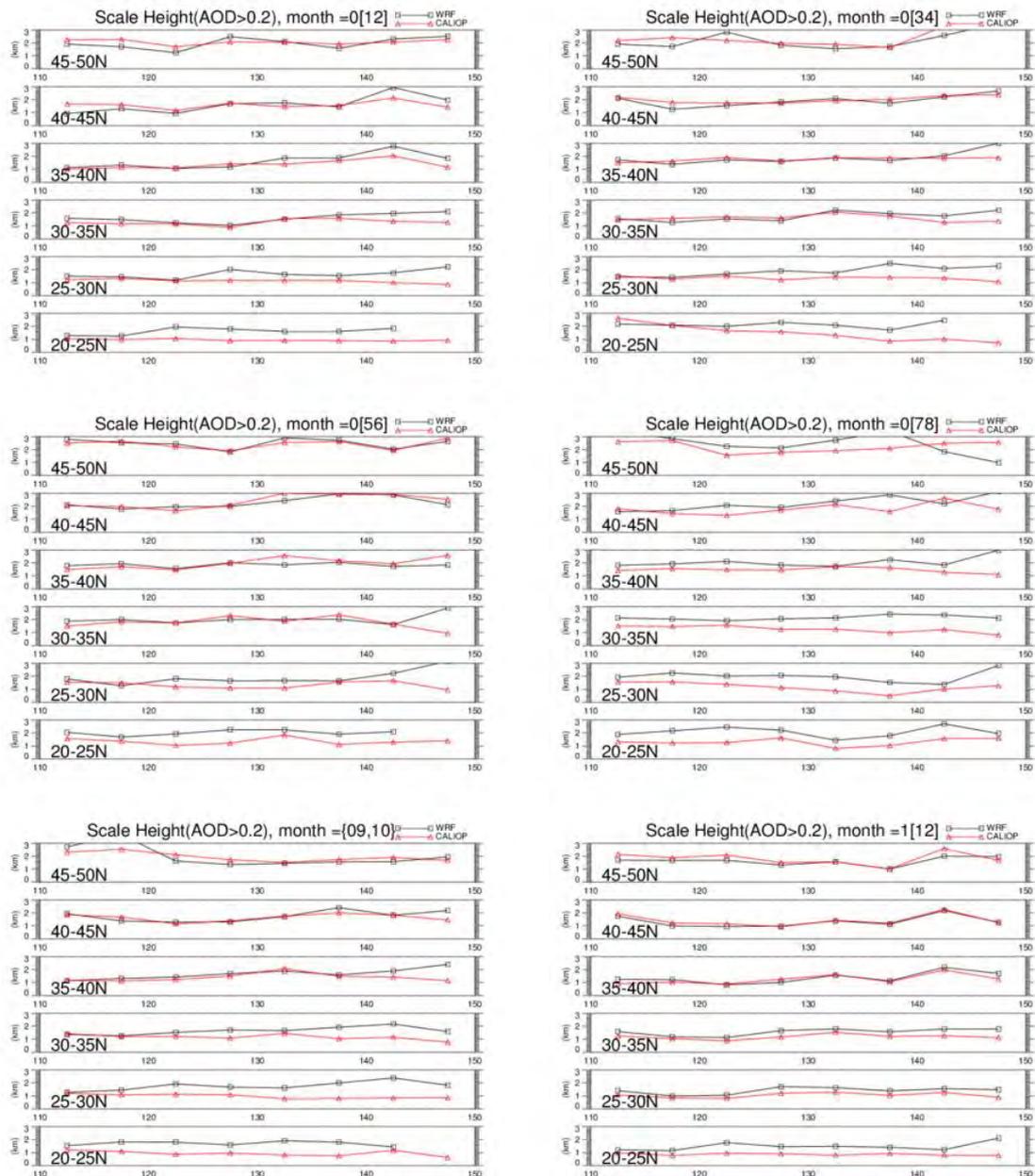
が、一旦減少したかに見えたAODが減少しなくなった理由としては、前駆物質の排出量バランスの変化（二酸化硫黄から窒素酸化物へ）など、気象要素以外の解釈についても検討が必要である。

#### (4) 光学的スケールハイトを利用した化学輸送モデルの検証



図(5)-9 : 2007年6月に関する、(左上)37層標準実験、(右上)鉛直低分解能14層実験、(左下)37層前駆物質下層注入実験における、観測(横軸)・モデル(縦軸)間スケールハイトの散布図(左)と、スケールハイト出現頻度分布図(右)。散布図では、シンボルの色が緯度、大きさが光学的厚さ(AOD)に対応している。四角と十字のシンボルはそれぞれ陸上、海上観測を示す。出現頻度分布図は、光学的厚さが0.2以上のケースについて赤線:観測、黒線:モデルとして示した。

化学輸送モデルにおけるエアロゾル分布の再現性に関して、サブテーマ(1)と連携して鉛直分解能などの観点から検討した。まず、WRF/CMAQにおいてa. 標準実験、b. 鉛直低分解能実験、c. 前駆物質低高度注入実験を行い、光学的スケールハイトHaの水平分布をCALIOP観測から求めた結果と対比させた。図(5)-9は、CALIOPで観測されたHa(各左図横軸)および対応する時刻におけるa.-c.の計算結果から得られたHa(同縦軸)との対応を示したものである。これによれば、同一の鉛直分解能において前駆物質の注入高度は結果にほとんど影響せず、分解能が低い場合においてモデル内のHaが実測よりも高いという傾向が見られた。これは12月を対象とした実験よりも6月を対象とした場合に顕著であった。これらの結果からは、前駆物質は境界層内の鉛直混合により速やかに上下に拡散されるため、その注入高度は二次生成エアロゾルの鉛直分布にはほとんど影響しないこと、境界層上端付近で鉛直分解能が不十分な場合は自由対流圏への過大な輸送が起



図(5)-10：衛星ライダーおよび数値モデルによる球形粒子エアロゾルスケールハイトの比較。赤が人工衛星搭載ライダーCALIOPによる観測結果、黒が化学輸送モデルWRF-CMAQによる計算結果。上段から下段にかけて北から南の緯度範囲、横軸は経度。左上から順に1/2月平均から11/12月平均まで。

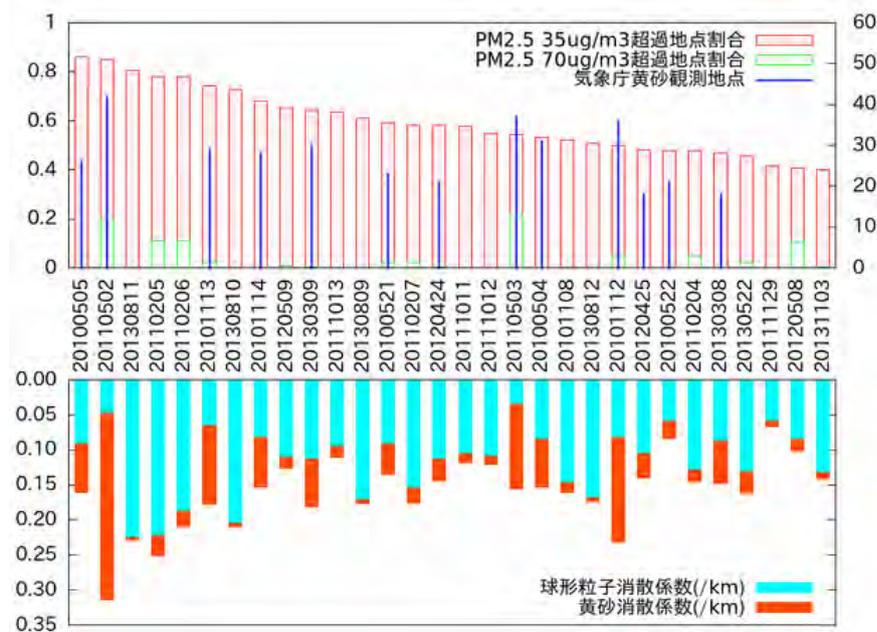
こりモデル内でHaが高くなること、特に夏季に背の高い混合層が存在するとその上端高度における分解能が冬季よりも下がるためにこの効果が明瞭なことが示された。

さらに、WRF/CMAQによる37層長期計算結果（2009年1月から2011年12月）を利用し、Haの計算・モデル対応関係について地域ごとの傾向を調べた。CALIOPによるHa、および同時刻における同地点のHaをモデルから取り出し、これらを緯度・経度5度ごとのグリッド内において2ヶ月ごと

に平均化し、地域・季節別の特徴を調べた。その結果をを図(5)-10に示す。まず寒候期から暖候期においては、北緯30度より北側では観測とモデルとの間でHaの一致度が高く、それより南側ではモデルのHaがやや高い。この経度範囲において、南側は海洋上のデータとなっており、モデル内で球形粒子の一種として扱う海塩の再現性が低い場合はモデルと観測との乖離が大きくなることが考えられる。これに対して、夏季には中緯度においてもモデルのHaがおしなべて大きく、特に領域の東側でその傾向が顕著である。先の低分解能実験の際に考察したように、夏季には境界層高度が高くなり、混合層のトップがモデルの鉛直分解能が減り始める領域に到達するものと考えられる。ここで過大な鉛直輸送が計算されると、エアロゾル発生域においてHaが大きくなる他、水平風の強い高度領域での水平輸送量が強くなり、結果的に下流域の上空に到達するエアロゾルが増えるために観測値に比べて下流域でもHaが過大となるものと考えられる。

### (5) 地上PM<sub>2.5</sub>高濃度に対する黄砂・球形粒子の寄与度推定

2013年以降、日本国内におけるPM<sub>2.5</sub>の高濃度現象が国民的注目を集め、その上昇要因についての解明が喫緊に求められるようになった。2009年の環境基準制定以降、自治体によるPM<sub>2.5</sub>測定網



図(5)-11：地上PM<sub>2.5</sub>日平均値が35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超過した地点の割合が高かった日について、その割合（上段赤）、70 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 超過地点割合（上段緑）、気象官署黄砂観測地点数（上段青線）、全国のライダーで平均した黄砂消散係数日平均値（下段オレンジ）および同じく球形粒子消散係数日平均値（下段水色）。

が充実したが、これは質量濃度を計測するものであり主要物質の特定などには向いていない。ライダーでは大気中の浮遊粒子について、消散係数の面から黄砂由来・球形粒子物質由来と分離を行うことが出来る。ここで、黄砂は主に粗大粒子として存在するため、重量に対する消散の割合は小さい。逆に、黄砂のうちの微小成分については相対的に消散が大きくなる<sup>8)</sup>の

で、ライダーによって2成分の消散係数を比較することにより、PM<sub>2.5</sub>における黄砂と球形粒子との割合をある程度推定することが出来る。

以下では、全国のPM<sub>2.5</sub>

計測地点において日平均値が短期基準の35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超過した地点の割合が高かった日（2010年度以降の上位30日）について調査した。ここで、当該日に全国61の気象官署のうち黄砂観測を発表し

た地点数も調査した。図(5)-11に、 $35\mu\text{g}/\text{m}^3$ 超過地点割合、黄砂観測値点数、2成分消散係数の日平均値を示す。30例中、13のケースでは気象官署において黄砂が観測されており、それらの日ではライダーによる消散係数（12ライダー平均）でも黄砂側が卓越するケースが含まれている。ここで注目すべきは、上位30日の中に連続した2日以上イベントが多数含まれている点である。つまりPM<sub>2.5</sub>は一旦広域的に上昇すると翌日以降にも高い値が維持される。そして、人為汚染粒子が黄砂に先行して流入することを考えると、黄砂関連イベントでPM<sub>2.5</sub>が数日に渡り上昇する場合、少なくともその2日目以降は実際に黄砂粒子の微小成分がPM<sub>2.5</sub>上昇に寄与している可能性が非常に高いことが示された。

## 5. 本研究により得られた成果

### (1) 科学的意義

地上ライダーネットワーク、衛星搭載ライダーCALIOPの後方散乱データから、偏光解消度を利用して532nmの球形粒子による消散係数を導出する手法を改善し、地上観測OPCとの対比によって球形粒子消散係数が $0.5\mu\text{m}$ 以下の微小粒子の量を表していることを示した。また、地上気象観測において煙霧が観測された時間帯に球形粒子消散係数が高いことを統計的に示した。東アジア域における球形粒子の3次元分布について、アジアモンスーンに対応した構造を伴った時空間変動が見られることを地上・衛星ライダーならびにRAMS/CMAQを利用して示した。すなわち、冬季には大陸の高気圧によってスケールハイトが減少、エアロゾルが流出するのに対して、夏季には太平洋の高気圧からの空気が日本域を覆い、大陸側では湿潤な環境でエアロゾルが光学的に厚くなる。さらに、2004年以降の球形粒子光学的厚さ(AOD)の中長期時系列から、2008年にかけて東アジア広域で増加傾向にあったAODがその後2011年に掛けて日本域や中国南部で減少傾向にあることを示した。ただしその後の2013年一杯までの観測では、減少傾向が続くというよりも横ばいと見られる結果が得られている。この理由については、発生源の質的な変化などを考慮する必要があると考えられる。化学輸送モデルの改善のために、モデルの鉛直分解能などに着目した解析を行った。鉛直分解能が不足している場合、モデル内で過大な鉛直輸送が生じ、エアロゾルが長距離輸送されてしまう可能性が示唆された。地上PM<sub>2.5</sub>高濃度日において、黄砂消散係数の上昇が見られるケースが2010年度以降の上位30日のうち半数程度存在したことを示した。

### (2) 環境政策への貢献

#### <行政が既に活用した成果>

本研究において改良を行った地上ネットワークライダーデータ処理システムによる球形粒子消散係数の計算結果は国立環境研究所WWWサイト内の環境GISからリアルタイムで発信しており、研究者および一般市民から大気汚染状況の把握のため利用されている。URLは <http://www-gis5.nies.go.jp/eastasia/DustLider.php>

また、10年間分の処理を行った球形粒子消散係数データの一部は、環境省「黄砂の健康影響に関する疫学研究等を行うワーキンググループ」委員である清水から同ワーキンググループへ提供している。これは、黄砂の疫学調査における交絡因子として人為汚染の程度を示すために用いられた。この他、環境省「黄砂実態解明調査WG」においても煙霧現象の解析を行う際に利用された。

### <行政が活用することが見込まれる成果>

環境省が主体となって構築するとされるPM<sub>2.5</sub>予報モデルにおいて、本研究により方向性が示されたエアロゾル鉛直分布再現性確認手法を通じてモデル鉛直分解能の妥当性を検証し、将来の観測データからモデルの再現性そのものを検証することが期待される。

## 6. 国際共同研究等の状況

ライダーネットワークの運用は、以前より韓国ソウル大、中国日中友好環境保全センター、中国科学院、モンゴル気象水文監督監視庁それぞれとの共同研究の枠内に位置付けられている。その一部は当初はADB-GEF黄砂対策プロジェクト内の国際連携として実施されたものであるが、ライダーは黄砂のみならず球形(人為汚染)粒子の観測も行えるため、当研究でも利用しているものである。

## 7. 研究成果の発表状況

### (1) 誌上発表

#### <論文(査読あり)>

- 1) Y. HARA, I. UNO, A. SHIMIZU, N. SUGIMOTO, I. MATSUI, K. YUMIMOTO, J. KUROKAWA, T. OHARA and Z. LIU: Scientific Online Letters on the Atmosphere, Vol. 7, 121-124, doi:10.2151/sola.2011-031 (2011)  
 “Seasonal Characteristics of Spherical Aerosol Distribution in Eastern Asia: Integrated Analysis Using Ground/Space-Based Lidars and a Chemical Transport Model”
- 2) 原由香里, 鶴野伊津志, 清水厚, 杉本伸夫, 松井一郎, 大原利眞, Zifa Wang, Soonchang Yoon: 天気, 59 (8), 701-707 (2012)  
 「東アジアにおける人為起源エアロゾルによる光学的厚さの近年のトレンドの解析」

### (2) 口頭発表(学会等)

- 1) Y. HARA, K. YUMIMOTO, I. UNO, A. SHIMIZU, T. OHARA, N. SUGIMOTO: Int. Symp. Atmos. Light Scattering Remote Sensing, Abstracts, 35-36 (2009)  
 “Seasonal variation of aerosols distribution in East Asia based on ground and space lidar observation and a chemical transport model”
- 2) A. SHIMIZU, N. SUGIMOTO, I. MATSUI: AOGS 6th Annu.Meet.2009, Abstracts (2009)  
 “Data production in NIES lidar network”
- 3) A. SHIMIZU, I. MATSUI, T. NISHIZAWA, N. SUGIMOTO: 4th Jpn.-China-Korea Jt.Conf.Meteorol., Abstracts, 87 (2009)  
 “A lidar network for cloud and aerosol observations in Asia”
- 4) 原由香里, 鶴野伊津志, 清水厚, 杉本伸夫: 第27回レーザセンシングシンポジウム, 同予稿集, 98-101 (2009)  
 「地上/衛星搭載ライダーと化学輸送モデルを用いた東アジア域における球形エアロゾル分布の季節変動に関する研究」
- 5) 原由香里, 鶴野伊津志, 清水厚, 杉本伸夫, 大原利眞: 日本気象学会 2009年度秋季大会, 同講

- 演予稿集, 372 (2009)  
「地上/衛星搭載ライダーと化学物質輸送モデルにより示された東アジア域における球形エアロゾル分布の季節変動」
- 6) Y. HARA, K. YUMIMOTO, I. UNO, A. SHIMIZU, N. SUGIMOTO, T. Ohara: AGU 2009 Fall Meet., Abstracts, A21A-0125 (2009)  
“Seasonal variation of spherical aerosols distribution in East Asia based on ground and space Lidar observation and a chemical transport model”
- 7) A. SHIMIZU, N. SUGIMOTO, I. MATSUI: 25th Int. Laser Radar Conf., St. Petersburg (2010)  
“Detailed description of data processing system for lidar network in East Asia”
- 8) Y. HARA, I. UNO, A. SHIMIZU, N. SUGIMOTO, I. MATSUI, J. KUROKAWA, T. OHARA, Z. LIU, Y. ZHANG, X. LIU, Z. WANG: 25th Int.Laser Radar Conf., St. Petersburg (2010)  
”An integrated analysis of spherical aerosol distribution in Eastern Asia based on ground/space-based Lidar and a chemical transport model”
- 9) 清水厚, 杉本伸夫, 松井一郎: 第28回レーザセンシングシンポジウム(2010)  
「ライダーによるダスト・球形粒子消散係数とOPCによるサイズ別粒子数との比較」
- 10) 清水厚, 杉本伸夫, 松井一郎: 第15回大気ライダー観測研究会 (2010)  
「偏光ライダーによる地上付近の2成分消散係数とOPC粒子数・SPM等との対応」
- 11) A. SHIMIZU, Y. HARA, N. SUGIMOTO, I. MATSUI: The 8th International Conference on Acid Deposition, Beijing China (2011)  
“Retrieval of spherical particles extinction coefficient from network lidar observation”
- 12) Y. HARA, A. SHIMIZU, I. UNO, N. SUGIMOTO, I. MATSUI, J. KUROKAWA, T. OHARA: The 8th International Conference on Acid Deposition, Beijing China (2011)  
“Spherical aerosols distribution and the long-term trend in eastern Asia derived from Lidar measurements, passive satellite remote sensing and a chemical transport mode”
- 13) 清水厚, 杉本伸夫, 松井一郎, 原由香里: 第29回レーザセンシングシンポジウム(2011)  
「ライダー観測による下層の消散係数と地上エアロゾル測定・大気現象との対応」
- 14) 原由香里, 清水厚, 鶴野 伊津志, 杉本伸夫, 松井一郎: 第29回レーザセンシングシンポジウム(2011)  
「ライダー/衛星観測と化学物質輸送モデルによる東アジア域における人為起源エアロゾルの長期トレンド解析」
- 15) 清水厚, 杉本伸夫, 松井一郎, 原由香里: 日本気象学会2011年度秋季大会  
「ライダーによる地上付近の2成分消散係数と黄砂・煙霧等大気現象との対応」
- 16) 清水厚, 山地一代: 第30回レーザセンシングシンポジウム(2012)  
「CALIPSOを利用した化学輸送モデルにおけるエアロゾル鉛直分布再現性の検証」
- 17) 清水厚, 山地一代: 日本気象学会2013年度春季大会, 同予稿集, 306 (2013)  
「球形粒子の光学的スケールハイトを利用した化学輸送モデルとライダー観測におけるエアロゾル鉛直分布比較」
- 18) A. SHIMIZU, N. SUGIMOTO, I. MATSUI, T. NISHIZAWA: The 3rd International Symposium on Atmospheric Light Scattering and Remote Sensing, Abstracts, 33 (2013)

“Lidar extinction coefficient compared with particle number concentration and subjective weather report”

### (3) 出願特許

特に記載すべき事項はない。

### (4) シンポジウム、セミナーの開催（主催のもの）

特に記載すべき事項はない。

### (5) マスコミ等への公表・報道等

特に記載すべき事項はない。

### (6) その他

第27回レーザセンシングシンポジウム 最優秀ポスター賞受賞(2009)

地上/衛星搭載ライダーと化学輸送モデルを用いた東アジア域における球形エアロゾル分布の季節変動に関する研究、原 由香里 ((独)国立環境研究所)、鶴野 伊津志 (九州大学応用力学研究所)、清水 厚、杉本 伸夫 ((独)国立環境研究所)

第29回レーザセンシングシンポジウム広野賞(2011)

原 由香里：対象論文「ライダー/衛星観測と化学物質輸送モデルによる東アジア域における人為起源エアロゾルの長期トレンド解析」

## 8. 引用文献

- 1) T. HAYASAKA et al.: Vertical distribution and optical properties of aerosols observed over Japan during the Atmospheric Brown Clouds–East Asia Regional Experiment 2005, *J. Geophys. Res.*, 112, D22S35, doi:10.1029/2006JD008086 (2007).
- 2) F. G. FERNALD, "Analysis of atmospheric lidar observations: some comments," *Appl. Opt.* 23, 652-653 (1984) <http://www.opticsinfobase.org/ao/abstract.cfm?URI=ao-23-5-652>
- 3) N. SUGIMOTO et al.: *Geophys. Res. Lett.*, 30, 1640, doi:10.1029/2002GL016349, 12 (2003)  
“Record heavy Asian dust in Beijing in 2002: Observations and model analysis of recent events”
- 4) W. C. MALM et al.: *J. Geophys. Res.*, 99(D1), 1347–1370, 93JD02916 (1994)  
“Spatial and seasonal trends in particle concentration and optical extinction in the United States”
- 5) T. OHARA et al.: *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 4419–4444 (2007)  
“Asian emission inventory for anthropogenic emission sources during the period 1980–2020”
- 6) A. SHIMIZU et al.: *J. Geophys. Res.*, 109, D19S17, doi:10.1029/2002JD003253 (2004)  
“Continuous observations of Asian dust and other aerosols by polarization lidars in China and Japan during ACE-Asia”
- 7)原由香里, 鶴野伊津志, 清水厚, 杉本伸夫, 松井一郎, 大原利真, Z. Wang, S. Yoon: *天気*, 59 (8), 701-707 (2012)

「東アジアにおける人為起源エアロゾルによる光学的厚さの近年のトレンドの解析」

8) N. SUGIMOTO et al.: SOLA 7A, 13-16 (2011)

“Comparison of Surface Observations and a Regional Dust Transport Model Assimilated with Lidar Network Data in Asian Dust Event of March 29 to April 2, 2007”

## (6) 受動型衛星観測による大気汚染物質の時空間分布の解析

千葉大学 環境リモートセンシング研究センター 入江 仁士

<研究協力者>

九州大学 応用力学研究所 鶴野 伊津志  
神戸大学大学院海事科学研究科 山地 一代

平成21～25年度累計予算額：15,738千円

(うち、平成25年度予算額：2,888千円)

予算額は、間接経費を含む。

### [要旨]

衛星観測は東アジアで顕在化している広域大気汚染の実態を把握するうえで極めて有効であるが、衛星の寿命のため、長期傾向を明らかにするには、異なる衛星観測データを複合的に利用し組み合わせる必要がある。また、気候変動研究においても重要な役割を果たしてきたエアロゾル衛星データと大気汚染ガスデータとの新たな複合利用は、今後のコベネフィットへの議論に資するポテンシャルを持つ。しかし、各種衛星データは十分に品質管理されているとは言い難く、こういった複合利用に向けた障壁となっている。本研究では、NASAの2つの衛星に搭載されたMODISセンサのエアロゾルデータに加え、GOME, SCIAMACHY, OMI, GOME-2といった複数種の衛星センサのNO<sub>2</sub>データも解析し、東アジア域での時空間分布を調べた。中国大陸下流に位置する黄海・韓国近海で2006-2010年に0.02/年でエアロゾルの光学的厚さ(AOD)が減少した傾向が見られ、中国での湿式排煙脱硫装置の普及に起因する人為起源SO<sub>2</sub>の排出量減少との関連が示唆された。他方、中国中東部でのNO<sub>2</sub>濃度は1996年以降、増加の一途をたどり、2007～2008年に極大となった。2008年秋にはリーマンショックのタイミングで一時的に減少に転じたが、その後、再び増加した。2011年以降は増加の鈍化、或いは減少の傾向が見られた。2009-2013年においてはNO<sub>2</sub>とAODが同じ変動を示した。エアロゾルの変動要因として硫黄酸化物だけでなく窒素酸化物も重要であるかもしれない。その重要性によっては、今後の中国国内のNO<sub>x</sub>規制はオゾンに加えエアロゾル(PM<sub>2.5</sub>)の減少にも寄与しうる。各種衛星観測データは地上観測データを用いて定量的に検証した。加えて、衛星観測の感度実験・誤差解析も実施した。その結果を踏まえ、衛星データを基準とした領域モデルの評価を実施した。モデルによる10年ラン計算は衛星データが示す年々の変動パターンを定量的に再現した。この結果はモデルで利用したエミッションインベントリー(REASv2)の妥当性を支持する。このように、長期トレンドの観点等からモデル精緻化に資する知見を得た。

### [キーワード]

受動型衛星観測、長期トレンド、大気汚染ガス、エアロゾル、複合利用

## 1. はじめに

東アジアでは急速なエネルギー需要の増大に起因して大気汚染が深刻化している。このような

背景の下、近年、エアロゾルだけでなくガス成分も含む各種大気汚染物質の観測が衛星から地球規模で行われている。衛星観測は広域大気汚染の実態を把握する上で極めて有効であるが、衛星の寿命のため、長期にわたった傾向を明らかにするためには異なる衛星観測データを複合的に組み合わせる必要がある。また、気候変動の研究でも重要な役割を果たしてきたエアロゾル衛星データと大気汚染ガスデータとの新たな複合利用は、今後のコベネフィットへの議論に資するポテンシャルを持つ。しかしながら、各種衛星データは十分に品質管理されているとは言い難く、こういった複合利用に向けた障壁となっている。

## 2. 研究開発目的

東アジア域における広域大気汚染の時空間分布の特徴を明らかにするために、各種受動型衛星センサの最新データを収集、複合的に解析する。エアロゾルについては、NASAの2つの衛星に搭載されたMODISのデータを利用した時空間分布解析を行う。NO<sub>2</sub>については、GOME、SCIAMACHY、OMI、GOME-2といった複数種の衛星センサのデータを解析する。各センサのデータから見られる特徴の違いを、場所・季節・空間分解能・観測時刻の観点から整理する。加えて、中国華中で実施された中国ルドン集中観測等で得られた地上観測データを用いて衛星データを定量的に比較検証するとともに、詳細な誤差解析を行う。得られた結果を踏まえ、近年の東アジア域におけるエアロゾル・NO<sub>2</sub>の時空間分布とその要因を考察する。詳細に検証・誤差解析された衛星データを利用することで、衛星データを基準としたモデル評価を試みる。複数の衛星観測データが異なる時刻で得られていることに着目し、モデルを日変化という従来とは異なる観点から評価する。さらには、モデルによる10年ラン計算を援用し、長期トレンドの観点からもモデル精緻化に資する知見を得る。

## 3. 研究開発方法

本研究では、エアロゾルの受動型衛星観測データとして、NASA LAADS (Level 1 and Atmosphere Archive and Distribution System) で提供しているTerraとAqua衛星に搭載されたMODISのデータを解析した。本研究期間中にデータがバージョンアップされたことを受け、最新のデータ(Collection 5.1)を収集するとともに、直近の2013年までの解析を行った。2000年以降のエアロゾル光学的厚さ(AOD)のトレンド解析を、中国中東部(30-40°N, 110-123°E)だけでなく他の様々な領域(例えば下流域にあたる黄海や韓国近海)についても実施した。

NO<sub>2</sub>については、高水平解像度のOMIデータの解析にまず着手し、その後、長期観測を継続する見通しのあるGOME-2や既に長期の観測データの蓄積のあるSCIAMACHYのデータの解析も含めた。さらには、1995-2003年に観測したGOMEのデータも追加解析した。これらの4種類の受動型衛星センサのデータとして、同じアルゴリズムで導出されているKNMI (オランダ王立気象研究所)のNO<sub>2</sub>プロダクト<sup>1)</sup>を利用することで、データ質が比較的一貫する形で長期トレンド解析が可能となった。表(6)-1に各NO<sub>2</sub>観測衛星センサの観測時刻と空間分解能をまとめた。

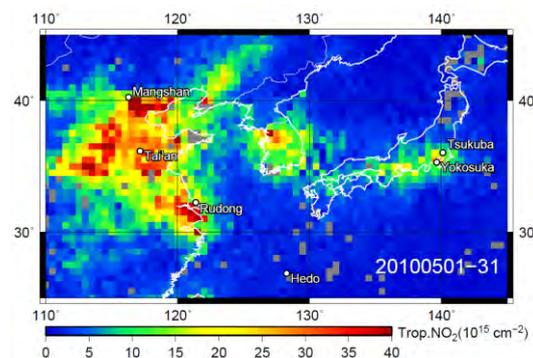
表(6)-1. 本研究で用いたNO<sub>2</sub>観測衛星センサの観測時刻と空間分解能

衛星センサ	およその観測時刻 (地方時)	空間分解能
GOME/ERS-2	10:30	320x40 km <sup>2</sup>
SCIAMACHY/ENVISAT	10:00	60x30 km <sup>2</sup>
OMI/Aura	13:45	13x24 km <sup>2</sup> (直下視)
GOME-2/MetOp-A	9:30	80x40 km <sup>2</sup>

各衛星データを共通の基準で評価するために、サブテーマ(4)で実施されたルドン集中観測等、これまで日本(横須賀、辺戸岬、つくば)や中国(泰安、蟒山、ルドン)の複数地点で実施したMAX-DOAS(多軸差分吸収分光法)地上観測によって得られた対流圏NO<sub>2</sub>カラムのデータセットを作成した。図(6)-1に示されているように、これは様々なNO<sub>2</sub>濃度レベルをカバーしているユニークなデータセットである。MAX-DOAS法で測定される太陽散乱光スペクトルのうち、460-490 nmの波長域のNO<sub>2</sub>とO<sub>4</sub>(酸素分子の衝突錯体)の吸収帯を使ってNO<sub>2</sub>の対流圏カラム濃度を衛星データとは独立にリトリバルした。MAX-DOASデータの時間分解能は30分、空間代表性は5-20 km程度であると見積もった。MAX-DOASと衛星観測の時間差が30分以内のときについてのみ比較を行った。衛星データの高精度なバイアス評価には、特に比較的短寿命のNO<sub>2</sub>については、MAX-DOASと衛星センサが同一場所を観測したかどうかには留意する必要がある。本研究では、その基準として両観測地点の距離(x)を緯度・経度で判定した。例えば、x=0.10度は距離が0.10度以内であったことを意味する。xを0.05度~1.00度まで変えて、最適な条件で検証比較できるよう工夫した。

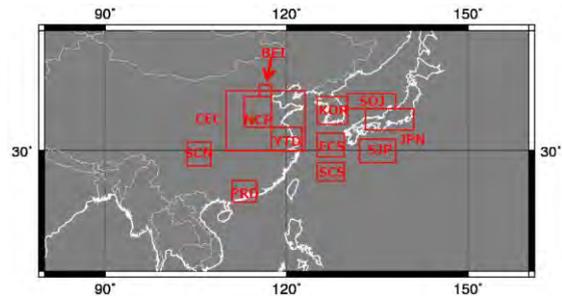
加えて、衛星観測のシミュレーションツールとして放射伝達モデル(JACOSPAR)<sup>2)</sup>を用い、波長ステップ0.1 nm、高度ステップ100 mという高分解能での詳細なヤコビアン(ボックスエアマスファクター)の計算を行った。地表面アルベドやエアロゾル等に対するボックスエアマスファクターの変化から地表近くの大気汚染物質に対する衛星観測の感度を解析的に調べた。

このように検証・感度解析された衛星データを用いて、本研究では、S7-1-(1)と連携し、マルチスケール大気質モデルCMAQ(ver. 4.7.1)の評価を行い、モデル精緻化に資する知見取得を試みた。CMAQを用いてNO<sub>2</sub>カラム濃度分布の計算を行うにあたり、気象場の計算には領域気象予測モデルWRF(ver. 3.3)を用いた。評価は、2007年6月に焦点を当てて実施した。高水平分解能を含む様々な条件でモデル計算を行う計算コストを抑えるために短期間の評価とした。2007年に着目した理由は、(1) GOME-2, SCIAMACHY, OMIが同時に観測した時期が2007-2012年であり、(2) 一般的に早い時期のほうが測器の劣化の可能性が小さい上、エミッションデータの信頼性も高いと考えられるからである。6月に焦点を当てた理由は、本研究で実施した衛星データとの検証比較が主に6月に得られた地上観測(MAX-DOAS)データで行われ、衛星データの誤差を精密に評価できたからである。また、CMAQや衛星観測のリトリバルで利用されている数値モデル(TM4)を含め、一般に、



図(6)-1. 衛星データの検証比較に用いたMAX-DOAS観測が行われた6地点が白丸で示されている。2010年5月のGOME-2の対流圏NO<sub>2</sub>カラムの月平均マップを色で示す。

モデルによる大気境界層のシミュレーションは十分な検証が実施されておらず、そのモデル間の違いが衛星データによるモデル評価の結果に顕著な影響を与えうる。境界層の厚さが比較的厚い6月の比較を行うことでその影響を最小化できると考えた。人為起源排出量データとしてはテーマ2で作成されたREAS Version 2のエミッションインベントリーデータ<sup>3)</sup>を利用した。計算は1時間ステップで行い、その結果を衛星の観測時刻である地方時9:30, 10:00, 13:45に内挿し、各時刻について月平均値を求め、衛星データとの比較を行った。評価は中国～日本にかけての12の診断領域について詳細に実施した(図(6)-2)。空間解像度(水平解像度:80, 40, 20, 10 km、鉛直総数:14, 37)を変えた感度実験だけでなく、エミッションに対する感度実験の結果も加味し、衛星データとの比較結果を考察した。中国については、中国中東部(CEC)、華北平原地域(NCP)、北京(BEI)といった異なる空間スケールの地域も含めた。



図(6)-2. 本研究で設定した12の診断領域。

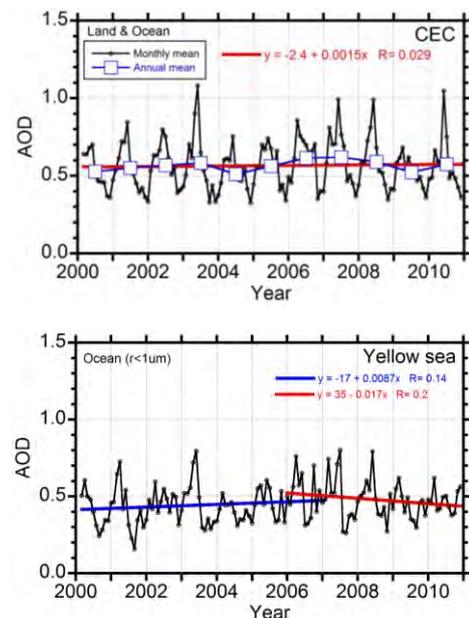
本研究ではまた、2000～2010年の11年間においてCMAQによる長期計算を実施した。水平解像度は80 kmに固定した。GOME, SCIAMACHY, OMI, GOME-2の複数の対流圏NO<sub>2</sub>カラム濃度の衛星データを組み合わせて長期データセットを作成した。

CMAQの長期計算の値と比較し、長期トレンドの観点からもモデル精緻化に資する知見の取得を試みた。また、MODISのエアロゾル光学的厚さ(AOD)のデータも2013年まで解析し、長期トレンドを考察した。

#### 4. 結果及び考察

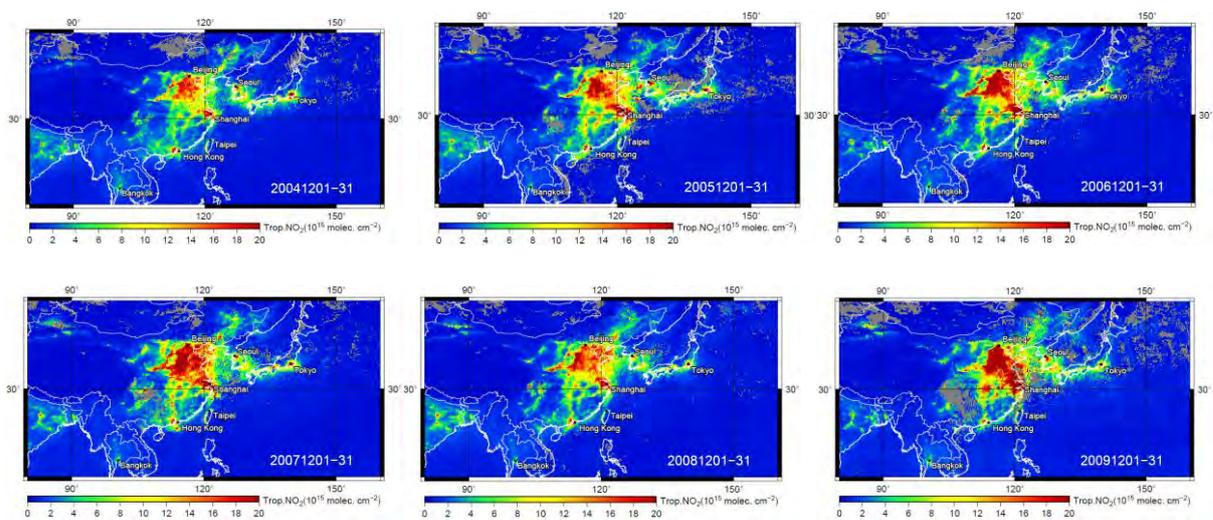
図6-(3)に中国中東部におけるMODISのAODデータの統計値の時系列を示す。中国中東部では2000-2010年の11年間、AODが年平均値で0.5-0.6と常に高い値で推移していたことが分かった(図6-(3))。季節変化は明瞭で、夏季に極大、冬季に極小を示した。夏季に極大となるのは、(1)海洋性の空気塊が卓越するために相対湿度が高くエアロゾルが成長しやすい条件にあること、(2)空気塊は華北平原の西に位置する山に阻まれ、同地域に滞留しやすいこと、(3)日射が強くエアロゾルが光化学的に生成されやすい条件にあること、(4)農業残余物の燃焼によるエアロゾルの直接的な放出が多いこと、(5)ダストの飛来量が比較的多いこと に起因していると考えられる。この11年間の年変化率は平均で約0.002/年と小さいことが計算された。

AODの変動と人間活動との関連を精密に解析するに



図(6)-3. (上)中国中東部におけるMODIS AODの月平均値(黒)および年平均値(青四角)。赤線は回帰直線。(下)黄海上空のAODの月平均値(黒)。2000-2006年と2006-2010年の回帰直線はそれぞれ青と赤で示されている。

は、人為起源AODを区別してMODISデータを解析する必要がある。その区別を行うために、本研究では粒径の情報が利用可能な海上のMODIS AODデータに着目し、そのデータの中で有効半径が $1\ \mu\text{m}$ 以下のケースを解析した。図(6)-3に中国中東部に隣接する黄海上空のAOD値の時系列プロットも示す。黄海上空では2000-2006年に約0.01/年で増加、その後、2010年までに約0.02/年の割合で減少したことが分かった。さらに下流に位置する韓国においても2006年以降に同様の割合で減少する傾向が確認された。AODへの硫黄酸化物の寄与が比較的大きくなる<sup>4)</sup>7-12月の平均値について年々変化を調べてみると、2003-2006年に増加、2006年以降はわずかに減少する傾向を示した。これは、年々の $\text{SO}_2$ エミッションの見積もり<sup>4)</sup>と定性的に一致した。このことは、2006-2009年のAODの減少の原因として中国国内における湿式排煙脱硫装置(Flue Gas Desulfurization)の普及による人為起源 $\text{SO}_2$ 排出量の減少を示唆する。

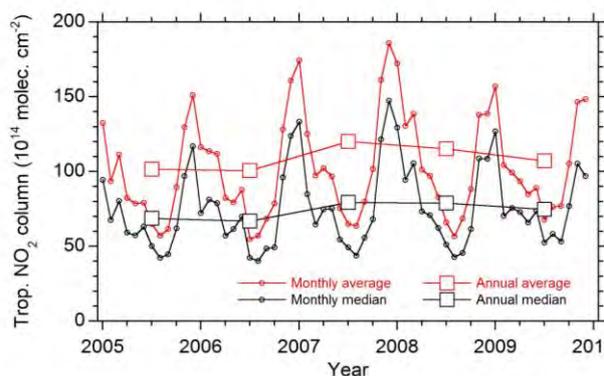


図(6)-4. 東アジアにおけるOMIが観測した対流圏 $\text{NO}_2$ カラムマップ。2004-2009年について、年ごとに12月の月平均値が $0.25$ 度グリッドで示されている。上段が2004-2006年、下段が2007-2009年のデータ。

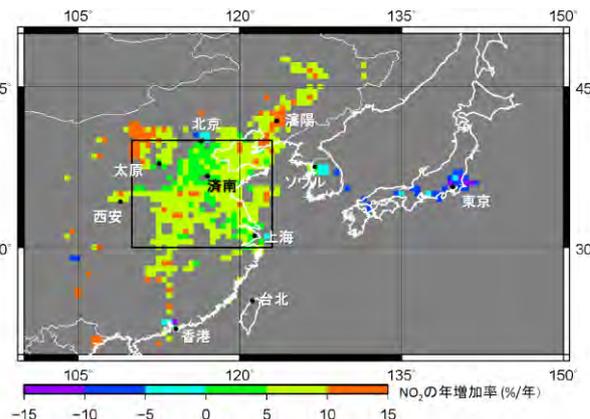
図(6)-4に東アジアにおけるOMIの対流圏 $\text{NO}_2$ カラム濃度データの空間分布を示す。2004-2009年について、カラム濃度が毎年極大となる冬（12月）の月平均値が年ごとに示されている。過去の研究<sup>5,6)</sup>と同様に、中国（特に中東部）において $\text{NO}_2$ の高濃度域( $>5 \times 10^{15}$  molecules  $\text{cm}^{-2}$ )が広範囲に広がっていたことが分かる。2004-2006年（図(6)-4上段）に比べて2007-2009年（図(6)-4下段）は $\text{NO}_2$ の濃度が平均的に高かった。また、2007年12月は2008年12月、2009年12月に比べて濃度が低かったことが分かった。

$\text{NO}_2$ の変化を定量化するために、中国中東部について、月平均値と年平均値を計算した（図(6)-5）。中央値も同様に計算したところ、平均値の方が系統的に高いことが分かった。極端に高濃度となっている都市域などが平均値を押し上げたためと考えられる。

1年間の中で、 $\text{NO}_2$ の寿命が長くなり、排出量も増加する冬季において、 $\text{NO}_2$ カラム濃度は極大となる明瞭な季節変化を毎年示した。2005-2008年について年々のトレンド解析を実施したところ、平均して年率5%の割合で増加したことが分かった。2007年12月には $190 \times 10^{14}$  molecules  $\text{cm}^{-2}$ まで達した。一方で、1996-2005年については、他の衛星センサ(GOME, SCIAMACHY)のデータから、



図(6)-5. 中国東部・華北平原(30-40°N, 110-123°E)におけるOMIの対流圏NO<sub>2</sub>カラム濃度の月平均値(赤丸)および年平均値(赤四角)。黒は中央値を示す。



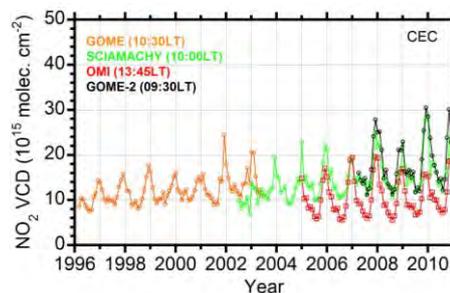
図(6)-6. 2005年から2008年までのNO<sub>2</sub>濃度の年々の増加率の地理的分布。緯度経度0.5度(およそ50 km)の格子毎に増加率が示されている。

中国中東部でNO<sub>2</sub>が増加し続けたことが分かっている<sup>5)</sup>。このように、2007年から2008年にかけて、同地域のNO<sub>2</sub>濃度レベルは1996年以降で極大値を記録したことになる。

しかしながら、先に述べたように、2008年12月の値は2007年12月に比べて小さかった。また、年平均値で見ても2009年は2008年よりも小さかった。2008年後半はリーマンショックに起因して世界的に経済の低迷が起きたタイミングであり、その影響でNO<sub>2</sub>の濃度が一時的に低下したことが示唆される。

次に、2005年から2008年までの増加率の地理的分布を詳細に調べた。緯度経度0.5度(およそ50 km)の格子毎に対流圏NO<sub>2</sub>カラムの増加率が図(6)-6に示されている。増加速度の空間分布はかなり不均一であり、中には年10~15%の速度で増加した地域(例えば瀋陽周辺)があることも分かった。これは、特定の大都市周辺だけでなく、その他の地域についても大気汚染対策が必要であることを示唆する。また、同期間、我が国では光化学的オキシダントの全国的な上昇が注目された反面、その原因であるNO<sub>2</sub>濃度は我が国では横ばい、もしくは減少する傾向を示した。このことは、我が国国内での対策のみならず国を超えた対策が急務であることを裏付ける。

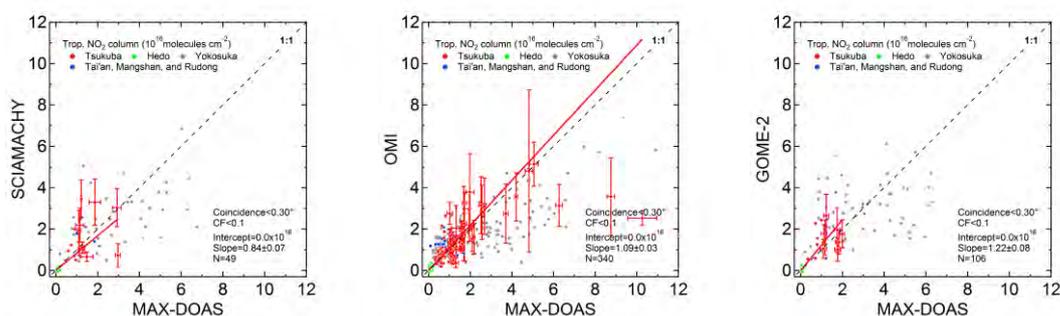
本研究では、さらなる発展的研究として、複数の衛星データ(OMI, SCIAMACHY, GOME-2)を利用したNO<sub>2</sub>の長期トレンド解析を行った。全ての衛星データについて、月平均値を同じ雲スクリーニング基準(雲被覆率<20%)で作成したが、衛星データの間には有意な差が残ることが分かった(図(6)-7)。観測時刻および空間分解能が類似しているSCIAMACHYとGOME-2の間の差は比較的小さかった。また、中国中東部では地方時13:45頃の観測値(OMI)は10:00頃の観測値(SCIAMACHYやGOME-2)に比べて系統的に小さいことが分かった。同様の傾向は、他の季節・領域でも見られた。これらの傾向は領域モデルからも支持された。このように、異なるセンサ間のNO<sub>2</sub>のデータの違いを、



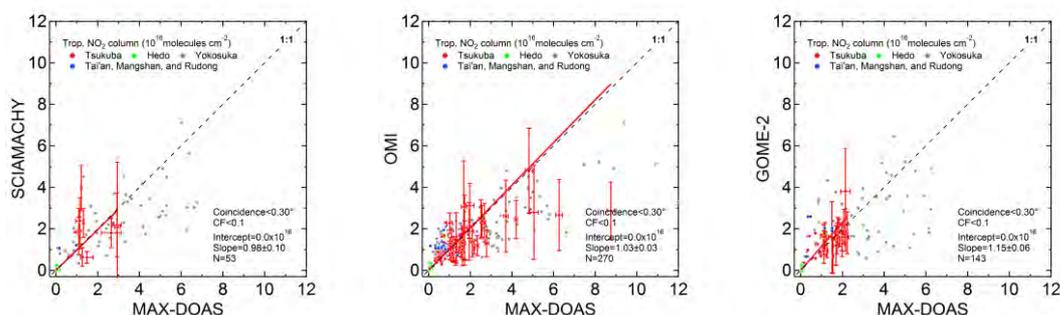
図(6)-7. 中国中東部における対流圏NO<sub>2</sub>カラムの月平均値の時系列。異なる衛星センサのデータが異なる色で示されている。

場所・季節・空間分解能・観測時刻の観点から系統的に整理することができた。

これらの異なる複数の衛星データを定量的に整合する形で複合利用するために、過去に行われた他のMAX-DOAS観測のデータ(例えば、Irie et al. (2009))<sup>7)</sup>に加え、サブテーマ(4)の中国ルドン観測データも含めた地上観測データセットを作成し、衛星データの検証を行った。図(6)-8と図(6)-9には、MAX-DOASによって観測された対流圏NO<sub>2</sub>カラムがversion 1と2のKNMIの衛星プロダクトと比較されている。両観測データとも観測毎に誤差が大きく異なるため、x-yの両方とも誤差で重み付けを行って回帰解析を行った。横須賀周辺ではNO<sub>2</sub>の時空間分布が非常に不均一であると考えられるため、横須賀のデータは除外した。

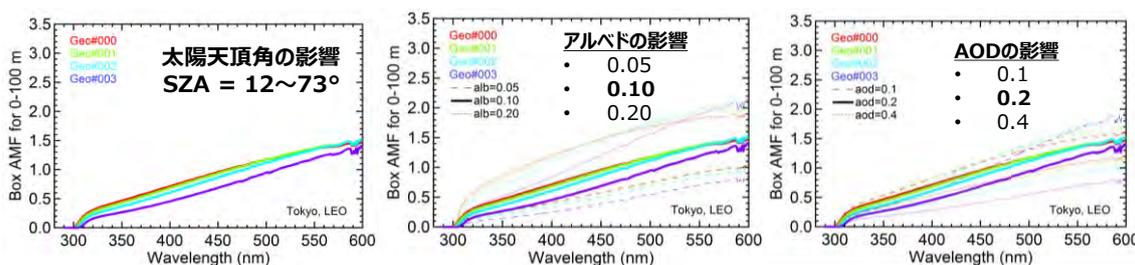


図(6)-8. 対流圏NO<sub>2</sub>の衛星データ(KNMIプロダクト, version 1)とMAX-DOASデータの相関関係。左からSCIAMACHY, OMI, GOME-2についての結果が示されている。衛星とMAX-DOASの観測点の距離が0.3°以内の条件で比較されている。各々の図において、つくば、沖縄辺戸岬、横須賀の結果が赤、緑、灰色で示されている。中国で行われた比較的短期のデータは赤で示されている。エラーバーはつくばのデータのみ付けている。回帰直線はx-y両方のデータの誤差を考慮して引かれたものである。横須賀のデータは空間的不均一性が明らかに高かったことから回帰解析からは除外されている。



図(6)-9. 図(6)-8と同様だがKNMIプロダクトversion 2についての結果。

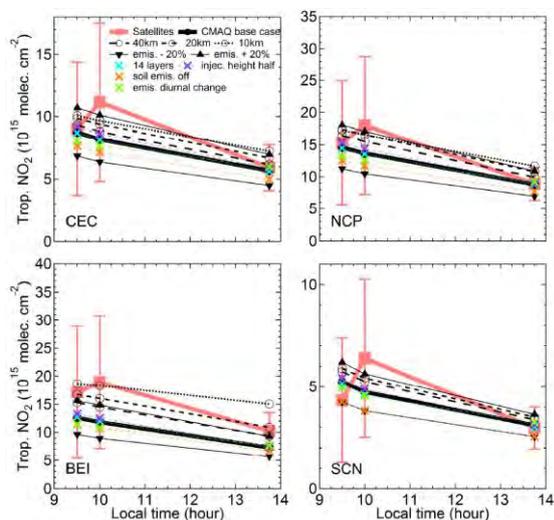
前述のとおり、両観測の緯度・経度の差(x)を変えて比較した。本研究では、x=0.05, 0.10, 0.15, 0.20, 0.25, 0.30, 0.35, 0.40, 0.45, 0.50, 0.60, 0.70, 0.80, 0.90, 1.00度の合計15種類の条件を調べた。図(6)-8と図(6)-9にはx=0.30度の条件におけるversion 1と2についての結果が示されている。リモートな辺戸岬における比較結果を見ると、衛星とMAX-DOASの対流圏NO<sub>2</sub>カラムは共に、期待されるよう



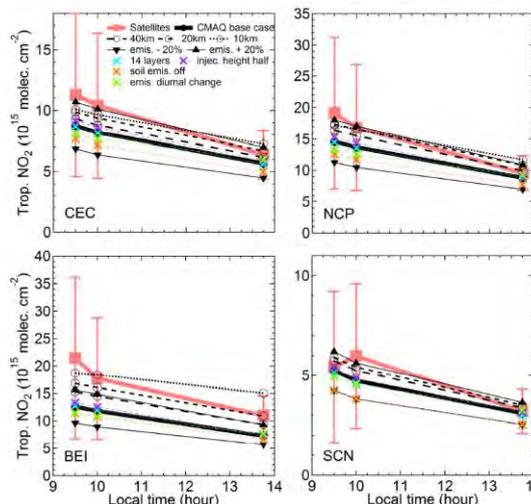
図(6)-10. 放射伝達モデルJACOSPARで計算された高度0-100 mの層内のボックスエアマスファクター。太陽天頂角は12~73度まで変化させ、太陽天頂角の小さい順に、赤、緑、水色、紫で結果が示されている。中央の図では地表アルベドを0.10とした結果が実線で、0.05および0.20とした結果が破線と点線でそれぞれ示されている。また、右図ではエアロゾル光学的厚さ(AOD)を0.2とした結果が実線で、0.1および0.4とした結果が破線と点線でそれぞれ示されている。

に低い値を示した。このことを踏まえ、回帰直線の傾きからのバイアス見積りの解釈を簡単にするために、y切片は0を通る制限を加えて回帰解析を行った。xの各条件について回帰直線の傾きとその標準偏差を計算した。例えば、 $x=0.3$ 度では、OMIのversion 1と2のプロダクトについて、MAX-DOASとの相関関係の傾きは、 $1.09 \pm 0.03$ と $1.03 \pm 0.03$ であった(図(6)-8と図(6)-9)。15種類の条件における結果を整理したところ、version 1に比べてversion 2プロダクトはMAX-DOASとの一致が改善されたことが分かった。version 2では放射伝達モデル計算を改良し、特に地表アルベド等の前提条件が高精度化されている。

こういった詳細な検証比較解析と並行して、放射伝達モデルJACOSPARを用いて、地表アルベドやエアロゾルの条件に対する衛星観測の感度実験・誤差解析を実施した。図(6)-10にJACOSPAR



図(6)-11. 2007年6月における中国中東部(CEC)、華北平原(NCP)、北京(BEI)、四川(SCN)の各領域における対流圏NO<sub>2</sub>カラム濃度の日変化。衛星データはピンクで示されている。黒い太線はCMAQベースラン(水平解像度80 km)、その他は各種感度計算の結果を示す。衛星データにはバイアスが無いと仮定されている。



図(6)-12. 図(6)-11と同様の図だが、本研究で再考された衛星データのバイアスが考慮されている。

で計算された高度0-100 mの層内のボックスエアマスファクターを示す。ボックスエアマスファクターはその層の光路長を層厚で規格化したもので、観測感度を良く表現する。太陽天頂角を変化させるとボックスエアマスファクターは変化するが、その変化は比較的小さいことがわかる。一方、地表面アルベドやエアロゾル光学的厚さを2倍変化させると、太陽天頂角による影響に比べて顕著にボックスエアマスファクターが変化することが分かった。この結果は上記の検証比較解析で得られたversion 1と2の結果とも定性的に一致し、地表面アルベドやエアロゾル等についての先見情報の確度を改善させることで衛星データ質が改善されることを裏付けるものである。

本研究ではモデル精緻化のための評価として、検証された対流圏NO<sub>2</sub>カラム濃度の衛星データとモデル(CMAQ)計算値との比較を行った。図(6)-11と図(6)-12には、

表(6)-2. 本研究で見積もられた衛星データのバイアス。

センサ	バイアス (Irie et al 2012)	バイアス (再考バージョン)
SCIAMACHY	-5±14%	+7±14%
OMI	-10±14%	-7±14%
GOME-2	+1±14%	-20±14%

CMAQベースラン(水平解像度80 km)による対流圏NO<sub>2</sub>カラム濃度の計算値が黒の太線で示されている。その他、様々な感度計算(水平解像度を改善した計算、鉛直数を14層に減らした計算、エミッションの注入高度を低くした計算、土壌NO<sub>x</sub>を考慮しなかった計算、エミッションの日変化を考慮した計算)も行った。それらの結果も図に示されている。異なる水平解像度での対流圏NO<sub>2</sub>カラム濃度の計算値を比較したところ、中国中東部において高解像度ほどNO<sub>2</sub>値が大きくなる傾向があることが分かった。他の領域でも同様の傾向が認められた。低解像度の計算ではNO<sub>x</sub>化学の非線形性<sup>8)</sup>が十分に考慮できていなかったためと考えられる。各図において、衛星データはピンクで示されている。図(6)-11では本研究で実施した衛星データの検証比較の結果に基づき(表6-(2))、衛星データにはバイアスが無いと仮定されている。その場合、CMAQと衛星データから見られる日変化パターンには違いが認められた。本研究で設定した12の診断領域(図(6)-2)のうち、中国中東部を含む10領域(CEC, NCP, BEI, SCN, YTD, JPN, KOR, ECS, SCS, SJP)で同様の日変化パターンの違いが確認された。CEC(中国中東部), NCP, BEIについては地理的に近い領域であるが、空間スケールが異なる。日変化パターンの差が見られる点については、どの空間スケールでも同様であることが分かった。

日変化パターンの違いは、本研究で実施した感度実験では本質的に解消されなかった。そこで、地上観測を用いた衛星観測データの定量的検証比較結果を統計的有意性の観点から再考したところ、SCIAMACHYには7%、OMIには-7%、GOME-2には-20%のバイアスがある可能性を見出した(表6-(2))。このバイアスを仮定したところ、中国中東部を含む9領域で日変化パターンが一致した(図(6)-12)。

さらに日変化の観点で定量的にモデル精緻化解析を行うために、次のように午前と午後の値を定義し、午前(AM値)と午後(PM値)の差に着目して、全ての診断領域について傾向を調べた。

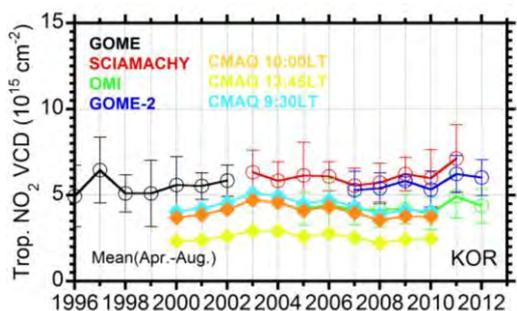
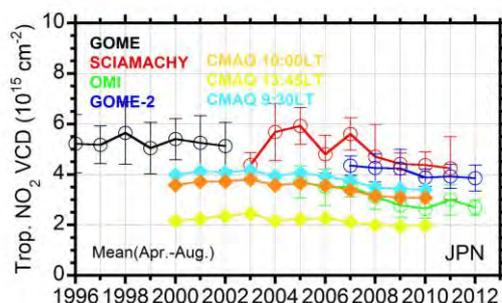
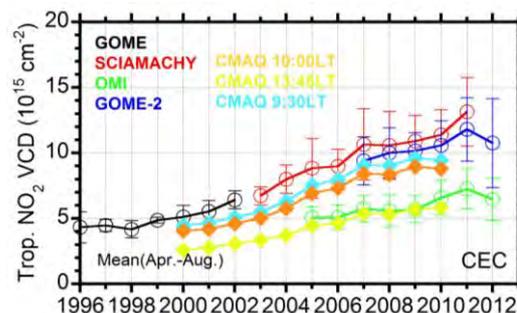
$$\text{AM値} = (\text{GOME-2 のNO}_2\text{値} + \text{SCIAMACHYのNO}_2\text{値}) / 2$$

$$\text{PM値} = \text{OMIのNO}_2\text{値}$$

9:30と10:00の衛星データ(GOME—2とSCIAMACHY)の差は想定するバイアスに強く依存するため、AM値は両データの平均値とした。AM値とPM値の差をCMAQモデル計算値と比較したところ、中国上空においてはCMAQは対流圏NO<sub>2</sub>カラム濃度の日中の減少速度を過小評価する傾向があることが分かった。CMAQの空間解像度・エミッションの影響等についての詳細な感度実験は午前から午後の減少量の改善は認められなかった(図(6)-12)。このことから、本研究で実施された他の項目として、モデル中の化学プロセス・境界層の取り扱いなどを検証することがさらなるモデルの精緻化に重要であることを提案した。

この衛星データを基準とした詳細なCMAQモデル評価の結果に基づいて、長期トレンドの観点からもCMAQモデルの評価を行った。1995年から利用可能なGOMEデータをSCIAMACHY・OMI・GOME-2のデータと組み合わせ、長期の衛星データを整備した。上記のCMAQの評価の結果に基づき、CMAQと衛星データの整合性が高い6月およびその前後2ヶ月のデータを解析した。図(6)-13には中国中東部および日本と韓国における比較結果が示されている。どの領域についても衛星データから見られる年々の変動パターンがCMAQで再現できていることが分かった。中国中東部では急激な増加、日本では減少、韓国ではほぼ横ばいの長期トレンドが認められた。定量的にはCMAQの計算値が過小となる傾向が認められたが、上記の議論から、この差はCMAQの水平解像度を改善することで解消される。これらの結果は利用したREAS Version 2のエミッションインベントリーデータの妥当性を支持するものである。このように、領域モデルによる長期ランの結果も利用して、長期トレンドの観点からもモデル精緻化に資する新しい知見を得ることができた。

さらに本研究では、2013年までの衛星データを収集し、直近までの期間におけるトレンド解析を実施した。2011年以降、CEC領域では対流圏NO<sub>2</sub>カラム濃度の増加の鈍化、或いは減少する傾向が見られた(図(6)-14)。また、2009-2013年においてはNO<sub>2</sub>とAODが同じ変動を示した。エアロゾルへの感度は硫酸酸化物だけでなく窒素酸化物も重要である可能性を示唆するかもしれない。その重要性によっては、今後のNO<sub>x</sub>規制はオゾンだけでなくエアロゾル(PM<sub>2.5</sub>)の減少にも寄与しうることが分かった。

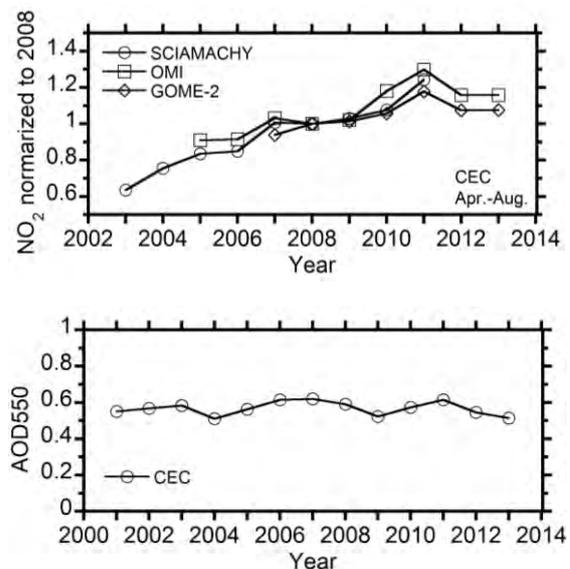


図(6)-13. 中国中東部(CEC)・日本(JPN)・韓国(KOR)における対流圏NO<sub>2</sub>カラムの月平均値の長期トレンド。4-8月のデータの平均値が年ごとに示されている。異なる時刻は異なる色で、衛星データは白抜き丸、CMAQの値は塗りつぶされた丸で示されている。

## 5. 本研究により得られた成果

### (1) 科学的意義

我が国における光化学オキシダント濃度が上昇している期間において、中国でのNO<sub>2</sub>濃度が増加していることを示したことで、我が国内での対策のみならず国を超えた対策が急務であることを裏付けることができた。また、東アジアにおけるNO<sub>2</sub>濃度・エアロゾルの時間変化と経済活動・排ガス規制との関連が示唆されたことで、今後の大気環境の高精度予測の難しさが浮き彫りになった。これを克服するために持続的な環境監視体制が不可欠であることを支持する科学的根拠を得た。我が国の対流圏化学衛星センサの開発は国際的に大きく後れをとっているが、本研究の成果はその技術的検討に道を開き、持続的な大気環境監視システム構築の実現を後押しすることが期待される。



図(6)-14. 中国中東部(CEC)における対流圏NO<sub>2</sub>カラムおよびエアロゾル光学的厚さの月平均値の長期トレンド。

### (2) 環境政策への貢献

#### <行政が既に活用した成果>

- (1) 環境省 光化学オキシダント調査検討会報告書 「—今後の対策を見すえた調査研究のあり方について—」(平成24年3月、光化学オキシダント調査検討会)に衛星データの解析結果が引用された。
- (2) 環境省「越境大気汚染・酸性雨対策検討会」における越境大気汚染・酸性雨長期モニタリング中間報告(平成24年6月)では、本研究で明らかにした衛星NO<sub>2</sub>カラム濃度と地上オゾン濃度の関連性が引用され知見の取りまとめに活用された。

#### <行政が活用することが見込まれる成果>

衛星データは国際的に見て客観性が高いものであり、東アジアの結果について先進的に解析を進めたことは、国際的議論において我が国の発言力を増大させる効果が期待される。同時に、他機関・関係国に対する働きかけの信頼性の高い科学的根拠を与える。本研究を通じて、大気汚染ガス等の衛星データ利用を促進し、アジア越境大気汚染及び大気汚染・温暖化共制御・共便益の議論に対する社会的関心を喚起し、国際的議論において我が国の発言力を増大させる社会的効果が期待される。こういった観点において、然るべきタイミングにおいて行政による利用が期待される。

## 6. 国際共同研究等の状況

- (1) 最新のOMIデータを検証するにあたり、我々のプロポーザルがNASAのAura Validation Data Centerに受理され、密接な連携の下で検証研究が実施できた。
- (2) KNMI（オランダ王立気象研究所）が主導して実施されたCINDI (Cabauw Intercomparison Campaign of Nitrogen Dioxide measuring Instruments)集中観測キャンペーンに参画し、衛星データや地上観測による衛星データ検証手法に関する世界第一線の議論を行えたことで本研究をスムーズに遂行できた。

## 7. 研究成果の発表状況

### (1) 誌上発表

#### <論文（査読あり）>

- 1) H. IRIE, Y. KANAYA, H. TAKASHIMA, J. F. GLEASON, and Z. WANG: SOLA, 5, 117-120, doi:10.2151, 2/sola.2009-030 (2009)  
“Characterization of OMI tropospheric NO<sub>2</sub> measurements in East Asia based on a robust validation comparison”
- 2) K. YAMAJI, J. LI, I. UNO, Y. KANAYA, Y. KOMAZAKI, P. POCHANART, Y. LIU, M. TAKIGAWA, T. OHARA, X. YAN, Z. WANG, and H. AKIMOTO: Atmos. Chem. Phys., 10, 7353-7368 (2010)  
“Impact of open crop residual burning on air quality over Central Eastern China during the Mount Tai Experiment 2006 (MTX2006)”
- 3) H. K. ROSCOE, (19名中略), H. IRIE, Y. KANAYA, (17名中略)、H. TAKASHIMA, (ほか10名) : Atmos. Meas. Tech., 3, 1629-1646 (2010)  
“Intercomparison of slant column measurements of NO<sub>2</sub> and O<sub>4</sub> by MAX-DOAS and zenith sky UV and visible spectrometers”
- 4) 金谷有剛、竹谷文一、入江仁士、駒崎雄一、高島久洋、鶴野伊津志: 大気環境学会誌、45(6), 289-292 (2010)  
“九州福江島における通年PM2.5質量濃度測定値の大気環境短期基準超過”
- 5) J. LI, Z. WANG, X. WANG, K. YAMAJI, M. TAKIGAWA, Y. KANAYA, P. POCHANART, Y. LIU, H. IRIE, B. HU, H. TANIMOTO, and H. AKIMOTO: Atmospheric Environment, 45(10), 1817-1829 (2011)  
“Impacts of aerosols on summertime tropospheric photolysis frequencies and photochemistry over Central Eastern China”
- 6) H. TAKASHIMA, H. IRIE, Y. KANAYA, and H. AKIMOTO: Atmospheric Environment, 45, 2593-2597 (2011)  
“Enhanced NO<sub>2</sub> at Okinawa Island, Japan caused by rapid air mass transport from China as observed by MAX-DOAS”
- 7) P. ZIEGER, E. WEINGARTNER, J. HENZING, M. MOERMAN, G. DE LEEUW, J. MIKKILÄ, M. EHN, T. PETÄJÄ, K. CLÉMER, M. VAN ROOZENDAEL, S. YILMAZ, U. FRIEB, H. IRIE, T. WAGNER, R. SHAIGANFAR, S. BEIRLE, A. APITULEY, K. WILSON, and U. BALTENSPERGER: Atmos. Chem. Phys., 11, 2603-2624 (2011)

- “Comparison of ambient aerosol extinction coefficients obtained from in-situ MAX-DOAS and LIDAR measurements at Cabauw”
- 8) H. IRIE, TAKASHIMA, Y. KANAYA, K. F. BOERSMA, L. GAST, F. WITTROCK, D. BRUNNER, Y. ZHOU, and M. VAN ROOZENDAEL: *Atmospheric Measurement Techniques*, 4, 1027-1044 (2011)  
 “Eight-component retrievals from ground-based MAX-DOAS observations”
- 9) H. LEE, H. IRIE, M. GU, J. KIM, AND J. HWANG: *Atmospheric Environment*, 45(32), 5760-5769 (2011)  
 “Remote sensing of tropospheric aerosol using UV MAX-DOAS during hazy conditions in winter: Utilization of O<sub>4</sub> absorption bands at wavelength intervals of 338-368 and 367-393 nm”
- 10) A. J. M. PETERS, (31名中略), H. IRIE, (1名中略), Y. KANAYA, (27名中略), H. TAKASHIMA,(9名中略): *Atmos. Meas. Tech.*, 5, 457-485 (2012). doi:10.5194/amtd-5-457-2012.  
 “The Cabauw Intercomparison campaign for Nitrogen Dioxide measuring Instruments (CINDI): design, execution, and early results”
- 11) S. ITAHASHI, I. UNO, K. YUMIMOTO, H. IRIE, K. OSADA, K. OGATA, H. FUKUSHIMA, Z. WANG, and T. OHARA: *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12, 2631-2640 (2012)  
 “Up/Down trend in the MODIS Aerosol Optical Depth and its relationship to the Sulfur Dioxide Emission Changes in China during 2000 and 2010”
- 12) H. IRIE, H. IWABUCHI, NOGUCHI, Y. KASAI, K. KITA, AND H. AKIMOTO, and T. OHARA: *Advances in Space Research*, 49, 1743-1749 (2012)  
 “Quantifying the relationship between the measurement precision and specifications of a UV/visible sensor on a geostationary satellite.
- 13) K. YAMAJI, I. UNO, and H. IRIE: *Atmospheric Environment*, 55, 475-482 (2012)  
 “Investigating the response of East Asian ozone to Chinese emission changes using a linear approach”
- 14) H. TAKASHIMA, H. IRIE, Y. KANAYA, and F. SYAMSUDIN: *Atmospheric Measurement Techniques*, 5, 2351-2360, doi:10.5194/amt-5-2351-2012 (2012)  
 “NO<sub>2</sub> observations over the western Pacific and Indian Ocean by MAX-DOAS on Kaiyo, a Japanese research vessel”
- 15) H. IRIE, K. F. BOERSMA, Y. KANAYA, H. TAKASHIMA, X. PAN, and Z. F. WANG: *Atmospheric Measurement Techniques*, 5, 2403-2411 (2012)  
 “Quantitative bias estimates for tropospheric NO<sub>2</sub> columns retrieved from SCIAMACHY, OMI, and GOME-2 using a common standard”
- 16) X. L. PAN, Y. KANAYA, Z. F. WANG, F. TAKETANI, H. TANIMOTO, H. IRIE, H. TAKASHIMA, and S. INOMATA: *Journal of Geophysical Research*, 117, D22304, doi:10.1029/2012JD018357 (2012)  
 “Emission ratio of carbonaceous aerosols observed near crop residual burning sources in a rural area of the Yangtze River Delta Region, China”
- 17) Y. KANAYA, F. TAKETANI, Y. KOMAZAKI, X. LIU, Y. KONDO, L. K. SAHU, H. IRIE, and H. TAKASHIMA: *Aerosol Science and Technology*, 47, 1-10 (2013)

- “Comparison of black carbon mass concentrations observed by multi-angle absorption photometer (MAAP) and continuous soot-monitoring system (COSMOS) on Fukue Island and in Tokyo, Japan”
- 18) H. IRIE, K. YAMAJI, K. IKEDA, I. UNO, S. ITAHASHI, T. OHARA, and J. KUROKAWA: Atmospheric Chemistry and Physics Discussion, 13, 14037-14067 (2013)
- “An evaluation of the CMAQ reproducibility of satellite tropospheric NO<sub>2</sub> column observations at different local times over East Asia”
- 19) 鶴野伊津志、板橋秀一、弓本桂也、入江仁士、黒川純一、大原利眞: 大気環境学会誌、48, 5, 223-233 (2013)
- 「東アジア域のNO<sub>x</sub>排出量の経年変化と窒素化合物の挙動のモデル解析」
- 20) K. YAMAJI, K. IKEDA, H. IRIE, J. KUROKAWA, and T. OHARA: Journal of the Air & Waste Management Association, 64(4), 436-444 (2014).
- “Influence of Model Grid Resolution on NO<sub>2</sub> Vertical Column Densities over East Asia”
- 21) Y. KANAYA, H. AKIMOTO, Z.-F. WANG, P. POCHANART, K. KAWAMURA, Y. LIU, J. LI, Y. KOMAZAKI, H. IRIE, X.-L. PAN, F. TAKETANI, K. YAMAJI, H. TANIMOTO, S. INOMATA, S. KATO, J. SUTHAWAREE, K. OKUZAWA, G. WANG, S. G. AGGARWAL, P. Q. FU, T. WANG, J. GAO, Y. WANG, and G. ZHUANG: Atmospheric Chemistry and Physics, 13, 8265-8283 (2013)
- “Overview of the Mt. Tai Experiments (MTX2006) in Central East China in June 2006: studies of significant regional air pollution”
- 26) Y. KANAYA, H. IRIE, H. TAKASHIMA, H. IWABUCHI, H. AKIMOTO, K. SUDO, M. GU, J. CHONG, Y. J. KIM, H. LEE, A. LI, F. SI, J. XU, P. -H. XIE, W. -Q. LIU, A. DZHOLA, O. POSTYLYAKOV, V. IVANOV, E. GRECHKO, M. SYRIDENKOV, S. TERPUGOYA, and M. PANCHENKO: Atmospheric Chemistry and Physics Discussion, 14, 2883-2934 (2014)
- “Long-term MAX-DOAS network observations of NO<sub>2</sub> in Russia and Asia (MADRAS) during 2007–2012: instrumentation, elucidation of climatology, and comparisons with OMI satellite observations and global model simulations”
- 27) S. ITAHASHI, I. UNO, H. IRIE, J. KUROKAWA, and T. OHARA: Atmospheric Chemistry and Physics, 14, 3623-3635 (2014)
- “Regional modeling of tropospheric NO<sub>2</sub> vertical column density over East Asia during the period 2000–2010: comparison with multisatellite observations”

#### <その他誌上発表（査読なし）>

特に記載すべき事項はない。

#### (2) 口頭発表（学会等）

- 1) 入江仁士、金谷有剛、高島久洋: 日本地球惑星科学連合大会(2009)
- 「東アジアでのOMIによる対流圏NO<sub>2</sub>観測の特徴—長期多地点での検証比較に基づいて—」
- 2) H. IRIE, Y. KANAYA, H. TAKASHIMA, J.F. GLEASON, and Z. WANG: Aura science team meeting (2009)
- “Characterization of OMI tropospheric NO<sub>2</sub> measurements in East Asia based on a robust validation

- comparison”
- 3) 入江仁士、金谷有剛、高島久洋、竹谷文一、LI JIE, 谷本浩志: 福江島地上データ検討会(2010)  
「MAX-DOASの8成分リトリバルの試みと衛星データ解析」
  - 4) H. IRIE: IPRC Minisymposium on Clouds, Chemistry and Climate (2010)  
“The need for satellite cloud product analysis to enhance collaboration between JAMSTEC and IPRC”
  - 5) H. IRIE, Y. KANAYA, H. TAKASHIMA, M. VAN ROOZENDAEL, F. WITTROCK, and A. PETERS: EGU General Assembly (2010)  
“Multi-component vertical profile retrievals for ground-based MAX-DOAS”
  - 6) 入江仁士、金谷有剛、高島久洋、竹谷文一、谷本浩志: 日本地球惑星科学連合大会(2010)  
「2009年春季福江島におけるMAX-DOASの8成分リトリバルの試み」
  - 7) H. IRIE, Y. KANAYA, H. TAKASHIMA, M. VAN ROOZENDAEL, and F. WITTROCK: ICACGP-IGAC-2010 (2010)  
“Multi-component vertical profile retrievals for ground-based MAX-DOAS”
  - 8) H. IRIE, H. IWABUCHI, K. NOGUCHI, Y. KASAI, K. KITA, and H. AKIMOTO: COSPAR (2010)  
“A simulation for UV-VIS observations of tropospheric composition from a geostationary satellite over Asia”
  - 9) K. NOGUCHI, A. RICHTER, A. HILBOLL, J. BURROWS, H. IRIE, S. HAYASHIDA, and Y. MORINO: COSPAR (2010)  
“A feasibility study for the monitoring of diurnal variations of the tropospheric NO<sub>2</sub> over Tokyo from a geostationary satellite”
  - 10) H. IRIE, H. IWABUCHI, K. NOGUCHI, Y. KASAI, K. KITA, and H. AKIMOTO: International GEMS Workshop: Requirements on Science and Instrument (2010)  
“A simulation for UV-VIS observations of tropospheric composition from a geostationary satellite over Asia”
  - 11) 入江仁士: 日本地球化学会(2010)  
「人工衛星による対流圏NO<sub>2</sub>・エアロゾルの観測—東アジアにおけるトレンド解析に着目して—」
  - 12) H. IRIE, H. TAKASHIMA, Y. KANAYA, K. F. BOERSMA, L. GAST, F. WITTROCK, D. BRUNNER, Y. ZHOU, and M. VAN ROOZENDAEL: the 3rd CINDI workshop (2010)  
“Eight-component retrievals from ground-based MAX-DOAS observations”
  - 13) H. IRIE, H. TAKASHIMA, Y. KANAYA, K. F. BOERSMA, L. GAST, F. WITTROCK, D. BRUNNER, Y. ZHOU, and M. VAN ROOZENDAEL: AGU Fall Meeting (2010)  
“The 8-component retrievals from ground-based MAX-DOAS observations”
  - 14) H. IRIE, H. IWABUCHI, K. NOGUCHI, Y. KASAI, K. KITA, and H. AKIMOTO: A Korea/Japan collaborative meeting (2010)  
“A simulation for UV-VIS observations of tropospheric composition from a geostationary satellite over Asia”
  - 15) H. IRIE: Rudong data workshop, Tokyo (2011)  
“MAX-DOAS observations during the Rudong campaign and relevant satellite data analysis”

- 16) 井上忠雄、大原利眞、黒川純一、入江仁士: 日本気象学会 (2011)  
「中国東部中央域における対流圏カラムNO<sub>2</sub>の週内変動」
- 17) 入江仁士、高島久洋、金谷有剛、F. BOERSMA, L. GAST, F. WITTROCK, D. BRUNNER, Y. ZHOU, M. VAN ROOZENDAEL: 日本地球惑星科学連合大会 (2011)  
「MAX-DOAS法による8成分導出手法の開発」
- 18) P. ZIEGER, P., E. WEINGARTNER, B. HENZING, G. DE LEEUW, J. MIKKILA, U. FRIESS, H. IRIE, T. WAGNER, A. APITULEY, U. BALTENSPERGER: IUGG (2011)  
“Comparison of ambient aerosol extinction coefficients obtained from in-situ, MAX-DOAS and LIDAR measurements in Cabauw (Netherlands)”
- 19) F. WITTROCK, H. IRIE, et al.: CINDI workshop (2011)  
“NO<sub>2</sub> inversion: Update”
- 20) U. FRIESS, H. IRIE, et al.: CINDI workshop (2011)  
“Aerosol inversion: Update”
- 21) K. NOGUCHI, K., A. RICHTER, J. P. BURROWS, H. IRIE, and K. KITA: DOAS workshop (2011)  
“The effect of the surface BRDF on the measurement of tropospheric NO<sub>2</sub> from a geostationary orbit”
- 22) H. IRIE, H. IWABUCHI, K. NOGUCHI, Y. KASAI, K. KITA, H. AKIMOTO: DOAS workshop (2011)  
“Quantifying the relationship between the measurement precision and specifications of a UV/visible sensor on a geostationary satellite”
- 23) H. IRIE, H. TAKASHIMA, Y. KANAYA, K. F. BOERSMA, L. GAST, F. WITTROCK, D. BRUNNER, Y. ZHOU, and M. VAN ROOZENDAEL: DOAS workshop (2011)  
“Eight-component retrievals from ground-based MAX-DOAS observations”
- 24) H. IRIE, K. NOGUCHI, H. IWABUCHI: GEMS workshop, Seoul (2011)  
“A feasibility study for GMAP-Asia and APOLLO UV-visible observations and its implications for GEMS”
- 25) 金谷有剛、竹谷文一、XIAOLE PAN、入江仁士、駒崎雄一、高島久洋、山地一代、PAKPONG POCHANART, YU LIU、鶴野伊津志、須藤健悟、谷本浩志、猪俣敏、齊藤伸治、野副晋、横内陽子、秋元肇、HUABIN DONG, JIE LI, ZIFA WANG: 第17回大気化学討論会 (2011)  
「東アジア広域大気汚染観測からのモデル精緻化・重要排出源地域特定・政策への貢献、大気化学討論会」
- 26) 入江仁士、K. F. BOERSMA、山地一代、鶴野伊津志、板橋秀一、金谷有剛、高島久洋、X. Pan、Z.F. Wang: 第17回大気化学討論会 (2011)  
「対流圏NO<sub>2</sub>衛星データの検証とそれに基づくCMAQモデル評価」
- 27) 入江仁士: 第17回大気化学討論会 (2011)  
「衛星・地上リモートセンシング観測の複合利用による大気汚染物質の時空間分布に関する研究 (大気化学研究会奨励賞受賞講演)」
- 28) 入江仁士、K. F. BOERSMA、金谷有剛、高島久洋、X. PAN、Z. F. WANG: 日本気象学会2011年度秋季大会 (2011)  
「共通の基準によるSCIAMACHY, OMI, GOME-2の対流圏NO<sub>2</sub>データのバイアス評価」

- 29) H. IRIE, K. F. BOERSMA, Y. KANAYA, H. TAKASHIMA, X. PAN, AND Z. F. WANG: 2011 AGU Fall Meeting (2011)  
 “First quantitative bias estimates for tropospheric NO<sub>2</sub> data from SCIAMACHY, OMI, and GOME-2 using a common standard”
- 30) H. TAKASHIMA, H. IRIE, and Y. KANAYA: The Fifth International Seminar on High-mountain Air Quality Monitoring Technology and Simulation (2012)  
 “NO<sub>2</sub> variation over Rudong, China, observed by OMI satellite sensor”
- 31) H. IRIE, Y. KANAYA, H. TAKASHIMA, K. YAMAJI, X. PAN, and Z. F. WANG: The Fifth International Seminar on High-mountain Air Quality Monitoring Technology and Simulation (2012)  
 “MAX-DOAS observations during the Rudong campaign and relevant satellite data analysis”
- 32) 野口克行、ANDREAS RICHTER、JOHN P. BURROWS、入江仁士、北和之：大気圏シンポジウム(2012)  
 「静止衛星観測における地表面BRDF（二方向反射率分布関数）の影響評価」
- 33) H. IRIE, K. NOGUCHI, and K. KITA: APOLLO team meeting (2012)  
 “Current status of discussion on the UV/Visible instrumentation and preliminary feasibility study”
- 34) H. IRIE: Workshop on Chemistry and Climate over Asia (2012)  
 “Study of spatial and temporal variations of air pollutants by synergistic use of satellite and ground-based observations”
- 35) 入江仁士, FOLKERT BOERSMA, 金谷有剛, 高島久洋, XIAOLE PAN, ZIFA WANG: 日本地球惑星科学連合大会 (2012)  
 「共通の基準によるSCIAMACHY, OMI, GOME-2の対流圏NO<sub>2</sub>データのバイアス評価」
- 36) H. IRIE, K. F. BOERSMA, Y. KANAYA, H. TAKASHIMA, X. PAN, and Z. F. WANG: 2012 Quadrennial Ozone Symposium (2012)  
 “First quantitative bias estimates for tropospheric NO<sub>2</sub> data from SCIAMACHY, OMI, and GOME-2 using a common standard”
- 37) 入江仁士: 第6回VL講習会 (2012)  
 「衛星および地上からの大気汚染ガスのリモートセンシング観測(紫外可視域)～エアロゾルと大気補正の観点から～」
- 38) 入江仁士, 山地一代, 池田恒平, 鶴野伊津志, 板橋秀一, 大原利真, 黒川純一: 日本気象学会 (2012)  
 「SCIAMACHY, OMI, GOME-2の対流圏NO<sub>2</sub>カラム濃度を複合利用したCMAQモデルの評価」
- 39) 笠井康子, 金谷有剛, 谷本浩志, 林田佐智子, 入江仁士, 野口克行, 斉藤尚子, 今須良一, 林洋司, 佐川英夫, 佐藤隆雄, 宮崎和幸, 北和之: 日本気象学会 (2012)  
 「国際宇宙ステーションからの大気環境観測ミッションAPOLLO提案」
- 40) H. IRIE: GEMS workshop (2012)  
 “A feasibility study for SO<sub>2</sub> detection from space - part of study for GMAP-Asia -”
- 41) 野口克行、A. RICHTER, J. P. BURROWS、入江仁士、北和: 地球電磁気・地球惑星圏学会 (2012)

- 「The effect of the surface BRDF on the measurement of tropospheric NO<sub>2</sub> from a geostationary orbit and ISS: evaluation of AMF」
- 42) 入江仁士, 山地一代, 池田恒平, 鶴野伊津志, 板橋秀一, 大原利眞, 黒川純一: 大気化学討論会 (2012)
- 「SCIAMACHY, OMI, GOME-2の対流圏NO<sub>2</sub>カラム濃度を複合利用したCMAQモデルの評価」
- 43) 神谷義一, 馬淵佑作, 櫛聖, 齋藤隼人, GERRY BAGTASA, 眞子直弘, 入江仁士, 久世宏明: 日本リモートセンシング学会 (2012)
- 「ミー散乱ライダーと天空光のスペクトル観測による対流圏エアロゾルの特性評価」
- 44) H. IRIE, K. F. BOERSMA, Y. KANAYA, H. TAKASHIMA, X. PAN, AND Z. F. WANG: 2012 AGU Fall Meeting (2012)
- “Quantitative bias estimates for tropospheric NO<sub>2</sub> columns retrieved from SCIAMACHY, OMI, and GOME-2 using a common standard for East Asia”
- 45) 野口克行, A. RICHTER, JOHN P. BURROWS, 入江仁士, 北和之: 大気圏シンポジウム(2013)
- 「静止衛星及び低軌道衛星による大気観測に向けた地表面BRDF (二方向反射率分布関数) の影響評価—エアマスファクターによる検討」
- 46) 入江仁士: 立山研究会 (2013)
- 「受動型リモートセンシングによる大気環境成分の時空間変動に関する研究」
- 47) Y. KAMIYA, Y. MABUCHI, S. HAJI, H. SAITO, G. BAGTASA, N. MANAGO, H. IRIE, AND H. KUZU: International Symposium on Remote Sensing (ISRS) 2013 (2013)
- “Characterization of tropospheric aerosols by means of Mie lidars and spectral observation of skylight”
- 48) 入江仁士, 山地一代, 池田恒平, 鶴野伊津志, 板橋秀一, 大原利眞, 黒川純一: 日本地球惑星科学連合大会(2013)
- 「東アジアにおける対流圏NO<sub>2</sub>カラム衛星データのCMAQによる再現性の評価: 日変化の観点から」
- 49) K. NOGUCHI, A. RICHTER, J. BURROWS, H. IRIE, AND K. KITA: Asia Oceania Geosciences Society (AOGS)(2013)
- “The Effect of Surface BRDF of Various Land Cover Types on the Measurement of Tropospheric NO<sub>2</sub> from a Geostationary Orbit”
- 50) H. IRIE: the 11th Chiba University Tenure Track Seminar (2013)
- “Study on spatiotemporal variations of air pollution by synergistic use of satellite and ground-based remote sensing”
- 51) F. WITTRICK, H. IRIE, et al.: the 6th International DOAS workshop (2013)
- “Measurements of NO<sub>2</sub> profiles with MAX-DOAS: Theoretical and practical case studies as part of the Cabauw Intercomparison campaign for Nitrogen Dioxide Measuring Instruments (CINDI)”
- 52) H. IRIE, K. YAMAJI, K. IKEDA, I. UNO, S. ITAHASHI, T. OHARA, and J. KUROKAWA: the 6th International DOAS workshop(2013)
- “An evaluation of the CMAQ reproducibility of satellite tropospheric NO<sub>2</sub> column observations at different local times over East Asia”

- 53) H. IRIE, K. YAMAJI, K. IKEDA, I. UNO, S. ITAHASHI, T. OHARA, and J. KUROKAWA:  
GEMS workshop (2013)  
“An evaluation of the CMAQ reproducibility of satellite tropospheric NO<sub>2</sub> column observations at different local times over East Asia”
- 54) 入江仁士, 山地一代, 池田恒平, 鶴野伊津志, 板橋秀一, 大原利眞, 黒川純一: 大気化学討論会 (2013)  
「GOME-2, SCIAMACHY, OMIの対流圏NO<sub>2</sub>カラム衛星データを複合利用したCMAQモデルの評価」
- 55) 陳誠、倪聞濤、入江仁士: 第19回大気化学討論会(2013)  
「千葉とつくばにおけるMAX-DOAS法によるホルムアルデヒドとグリオキサール濃度変動の観測」
- 56) 倪聞濤、入江仁士、陳誠: 第19回大気化学討論会(2013)  
「MAX-DOAS法による大気汚染物質の水平分布観測に向けた誤差評価」
- 57) 入江仁士, 山地一代, 池田恒平, 鶴野伊津志, 板橋秀一, 大原利眞, 黒川純一: 日本気象学会 (2013)  
「GOME-2, SCIAMACHY, OMIの対流圏NO<sub>2</sub>カラム衛星データを複合利用したCMAQモデルの評価」
- 58) H. IRIE, K. YAMAJI, K. IKEDA, I. UNO, S. ITAHASHI, T. OHARA, and J. KUROKAWA: 2013 AGU Fall Meeting (2013)  
“An evaluation of the CMAQ reproducibility of satellite tropospheric NO<sub>2</sub> column observations at different local times over East Asia”
- 59) F. TAKETANI, Y. KANAYA, H. IRIE, H. TAKASHIMA, X. PAN, H. TANIMOTO, S. SHINJI, H. AKIMOTO, and Z. WANG: 2013 AGU Fall Meeting(2013)  
“Measurement of chemical composition and optical properties of PM<sub>2.5</sub> at Rudong, China”
- 60) J. LIN, M. B. MCELROY, F. BOERSMA, C. NIELSON, Y. ZHAO, Y. LEI, Y. LIU, Q. ZHANG, Z. LIU, H. LIU, J. MAO, G. ZHUANG, M. ROOZENDAEL, R. MARTIN, P. WANG, R. J. SPURR, M. SNEEP, P. STAMMES, K. CLEMER, and H. IRIE: 2013 AGU Fall Meeting(2013)  
“Satellite-based emission constraints for nitrogen oxides: Capability and uncertainty”

### (3) 出願特許

特に記載すべき事項はない

### (4) シンポジウム、セミナー等の開催（主催のもの）

特に記載すべき事項はない

### (5) マスコミ等への公表・報道等

- 1) 毎日新聞（2009年8月8日、全国版）「NO<sub>2</sub>増 中国が原因 海洋機構 日本への流入確認」
- 2) 日経新聞（2009年8月8日、全国版）「中国のNO<sub>2</sub>濃度低下 衛星データから解析」
- 3) 産経新聞（2009年9月7日、全国版）

- 「中国NO<sub>2</sub>汚染 最高レベルに 07～08年対策急務 日本に越境も」
- 4) 熊本日日新聞 (2009年9月24日) 「中国上空のNO<sub>2</sub> 日本を越境汚染? 人工衛星データ解析」
  - 5) 三井住友ファイナンスグループ(SMFG)・環境情報誌「SAFE」 (平成25年7月)  
「PM<sub>2.5</sub>特集第一部 国境を越えて飛来する微小粒子状物質PM<sub>2.5</sub>の実態とその影響」
  - 6) 読売新聞 (平成25年8月14日、全国版、朝刊2面)  
「環境技術立国4 ローテクで対PM<sub>2.5</sub> NO<sub>x</sub>削減 中国で需要」

## (6) その他

- 1) 入江仁士、2011年度大気化学研究会奨励賞、2011年10月19日

## 8. 引用文献

- 1) K. F. BOERSMA et al.: J. Geophys. Res. 109 D04311, doi:10.1029/2003JD003962 (2004)  
“Error Analysis for Tropospheric NO<sub>2</sub> Retrieval from Space”
- 2) H. IRIE et al.: Advances in Space Research, 49, 1743-1749 (2012)  
“Quantifying the relationship between the measurement precision and specifications of a UV/visible sensor on a geostationary satellite”
- 3) J. KUROKAWA et al.: Atmos. Chem. Phys., 13, 11019–11058 (2013)  
“Emissions of air pollutants and greenhouse gases over Asian regions during 2000–2008: Regional Emission inventory in ASia (REAS) version 2”
- 4) Z. LU et al.: Atmos. Chem. Phys., 10, 6311-6331 (2010)  
“Sulfur dioxide emissions in China and sulfur trends in East Asia since 2000”
- 5) A. RICHTER, et al.: Nature, 437, 129-132 (2005)  
“Changes in tropospheric NO<sub>2</sub> levels observed from space by GOME and SCIAMACHY”
- 6) H. IRIE, et al.: Geophys. Res. Lett., 32(11), L11810, doi:10.1029/2005GL022770 (2005)  
“Evaluation of long-term tropospheric NO<sub>2</sub> data obtained by GOME over East Asia in 1996-2002”
- 7) H. IRIE et al.: SOLA, 5, 117-120, doi:10.2151, 2/sola.2009-030 (2009)  
“Characterization of OMI tropospheric NO<sub>2</sub> measurements in East Asia based on a robust validation comparison”
- 8) L. C. VALIN et al.: Atmos. Chem. Phys. 11, 11647–11655 (2011)  
“Effects of model resolution on the interpretation of satellite NO<sub>2</sub> observations”

## **Quantification of Ozone and Aerosol Pollution in East Asia and the Hemisphere Synthesizing Numerical Modeling and Observation**

Principal Investigator: Yugo KANAYA

Institution: Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology  
(JAMSTEC)  
3173-25 Showa-machi, Kanazawa-ku, Yokohama,  
Kanagawa 236-0001, Japan  
Tel: +81-45-778-5720 / Fax: +81-45-778-5496  
E-mail: yugo@jamstec.go.jp

Cooperated by: National Institute for Environmental Studies, Nagoya University, Chiba University

[Abstract]

**Key Words:** Regional air pollution, Source-Receptor relationship, PM<sub>2.5</sub>, Ozone, Black carbon, Concentration variation, Integration of observations and models, Satellite observations, Ten-year trend, Climate effect

As Asian economies have grown, trans-boundary air pollution regarding ozone and fine aerosol particles (PM<sub>2.5</sub>) has recently emerged as an important issue in Japan. To optimize countermeasures, we provide robust and quantitative Source-Receptor (SR) relationships based on state-of-the-art global/regional chemical transport model simulations. Springtime ozone over Japan was contributed from various source regions; 12% from China, 22% from Japan, and 7% from Europe/North America. PM<sub>2.5</sub> over western Japan was contributed from China by >50%, while that in Kanto region was most contributed by domestic emission. Typically 30% (20%) reduction in anthropogenic emission of precursors from Japan/China/Korea (China/Korea) would effectively reduce number of days with elevated concentrations of O<sub>3</sub> (PM<sub>2.5</sub>) over Japan, respectively. Preliminary results suggested that emission reduction in the power and industry sectors in China would effectively reduce ozone and PM<sub>2.5</sub> over Japan and China. The fact that China receives ozone export from Southeast Asia would need East Asia-wide efforts.

We used intensive and long-term observations of O<sub>3</sub>, PM<sub>2.5</sub>, and precursors conducted on Fukue Island (Japan), Rudong (China), and Jeju Island (Korea), Mie lidar observations of Aerosol Optical Depth (AOD) of spherical particles from NIES network and CALIPSO satellite, and NO<sub>2</sub> observations from multiple satellites to test and improve the model simulations described above. The observations also revealed the following recent tendencies: 1) exceedance of the PM<sub>2.5</sub> standard has continued since 2009 at Fukue Island, 2) ozone pollution continued at Fukue, with 34–47 days/year with high (>60 ppbv)

daily ozone concentrations, 3) tropospheric NO<sub>2</sub> abundance over Central East China increased by a factor of ~3 during the last 15 years with milder increases during the recent two years, and 4) AOD at selected locations in Japan and China had no clear long-term tendencies over the last 10 years, with fluctuations in shorter time scales. Interannual variability in the meteorological field was as important as emission changes in controlling the observed variations. Models reproduced concentration levels and variations of major water-soluble composition of PM<sub>2.5</sub>, while they underestimated organics by around a factor of 5 commonly for the three field campaigns, requiring better characterization in the field and process representation in the model.

The direct radiative forcing of atmospheric black carbon was re-evaluated to be 0.56 W m<sup>-2</sup> (as global average) by an improved chemistry-climate model (CHASER-SPRINTARS) with aging expression, having more consistency with up-to-date BC observations. Efforts of reducing BC emissions could mitigate global warming and air pollution simultaneously.