

B-8 有機エアロゾルの地域規模・地球規模の気候影響に関する研究

(1) 有機エアロゾルの輸送と放射強制力に関する研究

① 南アジア-東南アジアのエアロゾル輸送・分布に関するモデル研究

独立行政法人国立環境研究所

大気圏環境研究領域 大気反応研究室

島山史郎

豊橋技術科学大学エコロジー工学系

北田敏広

平成14~16年度合計予算額 7,600千円

(うち、平成16年度予算額 2,497千円)

[要旨] エアロゾル粒子の地球温暖化に対する影響は主として冷却、そして、ある場合には加熱という二つの側面から現れる。この二つの影響を大気中の放射収支に対する直接効果および間接効果の2つの観点から検討した。粒子サイズや化学組成などのエアロゾル粒子の性質や雲マイクロ物理学および大気の動力学フィールドなどの間の複雑な関係のために、特に間接効果の正確な定量的評価が困難であり、また、そのシミュレーション結果は、大きな不確実性をともなう。本サブ課題では、アジア地域を覆うヘイズ（主に有機エアロゾルなどの含炭素エアロゾル）についての広域空間分布と輸送過程を解明することを目的として、人為、自然の種々のソースを持つエアロゾルの全球分布を予測するモデルを開発した。特に上記の不確実性を多少なりとも小さくするために、エアロゾル粒子を形成することのできる様々な化学種の間のソース-レセプター関係を明示的に記述することができるAGCTM(Aerosol Global scale Chemical Transport Model：全球エアロゾル化学輸送モデル)を開発している。このモデルを用いて、2001年2月20日～3月31日の米国NASAによるTRACE-Pキャンペーンの際のエアロゾルおよび他の化学種の輸送/化学/沈着の数値シミュレーションを行なった。AGCTMのパフォーマンスは、主として中国の様々な観測地点におけるTSP(全浮遊粒子)濃度と計算結果を比較することにより評価した。

[キーワード] 化学輸送モデル、BC、OC、バイオマス燃焼、TRACE-P観測

1. はじめに

エアロゾル粒子には、地球の温暖化に対して抑制の効果があると認識されているが、その定量的評価には、大きな不確定性がある。その一つの原因は、エアロゾル粒子の粒径・組成・混合状態の違いによる、(1)太陽放射に対する“直接効果”的違い、(2)凝結核としての作用（能力）の違いに基づく雲生成の違い（放射に対する“間接効果”）

にある。本研究は、上記の研究の基礎とす

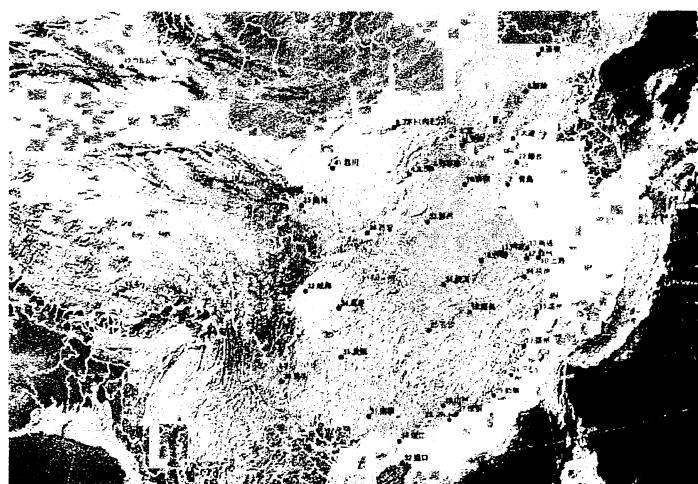


図1. 中国のTSP等観測点

るため、人為、自然の各種の排出源のこれらのエアロゾルの組成に対する寄与を、東アジアを中心対象に、全球スケールの中で明らかにすることを目的とする。

本報告では、特に、2001年2-4月にかけておこなわれたTRACE-P観測の期間に合わせて全球の化学輸送計算を行い全球エアロゾルモデル^{3,4,5)}のパフォーマンスを検討した。北京、上海、ウルムチ、ラサ、太原、西安、合肥、昆明、アモイ、ハルビンなど中国国内の多数の地上観測点でのTSP濃度と計算エアロゾル濃度を比較検討した。また、計算による組成推定を行った。人為の燃焼起源物質については、排出源に季節性を仮定した。

2. 研究目的

我々はすでに、アジア地域を覆うヘイズ（主に有機エアロゾルなどの含炭素エアロゾル）についての広域空間分布と輸送過程を解明することを目的として、人為、自然の種々のソースを持つエアロゾルの全球分布を予測するモデルを開発した。本年度はこのモデルを用いて、2001年2-4月にかけておこなわれたTRACE-P観測の期間に合わせて全球の化学輸送計算と仮想的な粒子群の輸送計算を行った。粒子群の計算は、黄砂粒子の排出源、中国沿岸部の排出源を想定して、広がりを持ったこれらの排出地帯通過の気塊が流れ場のシアーよりどのように変形されるかをトレースすることを目的とした。

3. 研究方法

(1) 全球化学輸送計算

全球輸送計算は、2001年2月20日00Z—3月31日10Zまで行った。流れ場はECMWFの $2.5^{\circ} \times 2.5^{\circ}$ 、鉛直23層（上端10hPa）である。輸送化学種は30、化学反応（97化学反応；ラジカル種については定常状態近似を適用）、移流拡散、乾性・湿性沈着等を含む。タイムステップは輸送30分、化学反応12秒である。

(2) 排出源

①人為排出源

図2は年平均のNO_x排出源分布(EDGAR)を示す。人為排出量は燃料使用量が冬季に増えるため大き

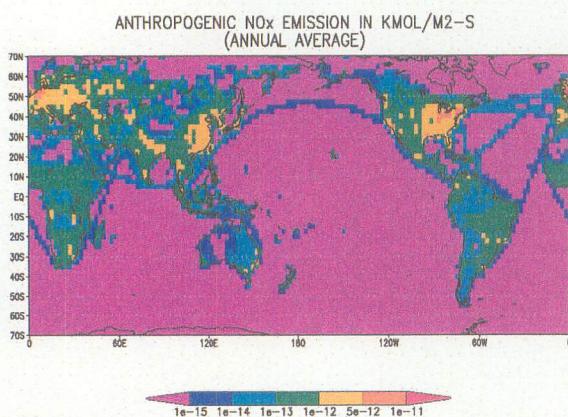


図2：燃焼によるNO_x排出量別指標（年平均を1で表す）

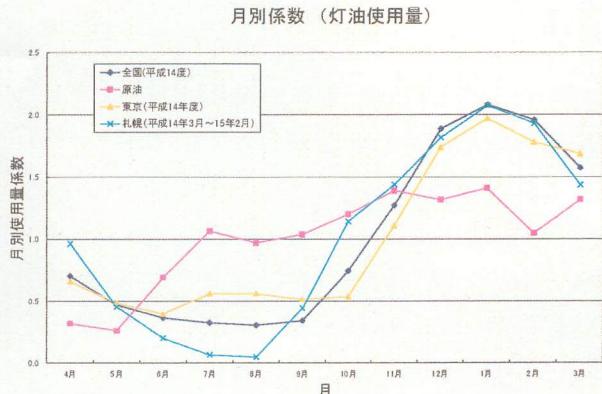


図3 日本における灯油等燃料使用量月 (EDGAR年平均) (kmol/m²/s)

な変動幅を示す。たとえば、図3は年平均月使用量を1とした場合の灯油等の月別変動の例を示す。冬季の係数としては、札幌、東京、全国平均等いずれも大差がないことが知られる。図4は2月の日平均気温(図4)とこれら燃料使用の月間変動を考慮して推定した2月の排出係数の例を示す。

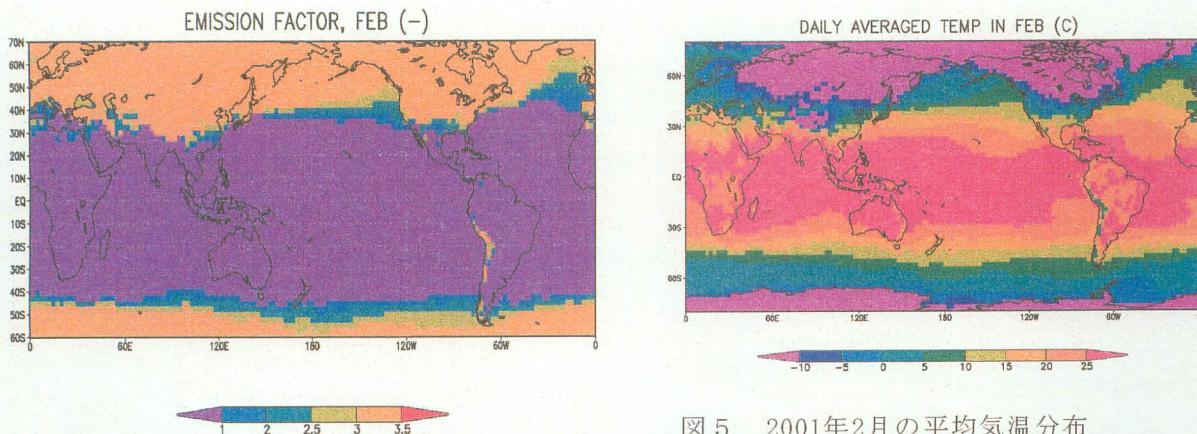


図4 2月の燃料使用指標分布

②バイオマス火災による排出源

衛星によるファイアスポットの観測データ(図6)を用いてバイオマス火災による大気化学物質の排出源分布を3日単位で推定した。格子面積あたりのファイアスポット数をカウントし、排出源強度分布を求めた。EDGARおよびGEIAの地球全体推定排出量をファイアスポット数密度に応じて分配した。

③土壤粒子の排出フラックスの推定

土壤粒子の排出フラックスについては、いくつかのモデルが提案されており¹⁾、いずれも摩擦速度、土壤の状態（土壤粒子の粒子径分布、土壤水分など）等が関与するファクターとして取り上げられている。ただ、大気輸送モデルにサブモジュールとして導入するとき、これらのファクターはモデルの格子長にも依存せざるを得ず、したがって、モジュールに含まれる係数は経験的（あるいは、結果を観測と適合させるための）パラメーターの要素を持たざるを得ない

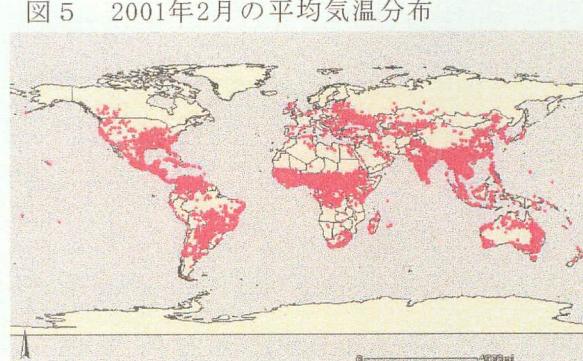


図6 Global fire map in Mar., 2001 by Web Fire Mapper.

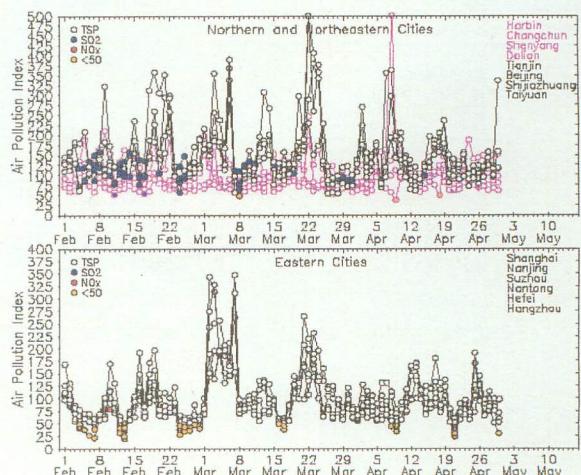


図7 北京等中国北部・東北部都市（上段）、上海等東部都市（下段）の2001年2月—5月大気汚染濃度変化 (Zhongguo Huanbaoju Wang, 2001- TRACE-P web siteより) .

と考えられる。常用される u_* に関する4乗モジュール、およびShao¹⁾に引用されている土壤フラックス観測データにフィットさせた3.75乗のモジュールをテストした。いずれも臨界摩擦速度は、仮に土壤によらず0.25 m/sと仮定した。

4. 結果と考察

(1) TRACE-P観測時の全球化学輸送計算：中国各地のエアロゾル濃度比較

① 2001年3月

中国域で、2001年3月に2度の高濃度エピソードのあったことが知られている。3月1-8日と同20-22日を中心とする数日である。図7は同期間の北京などの中国北部・東北部都市（上段）と上海などの東部都市（下段）の汚染物質濃度の変化であるが、この状況を明確に示す。ただし、3月20-22日を中心とした両地域の高濃度は、この間の流れ場（図8）からもわかるようにその理由が異なる。

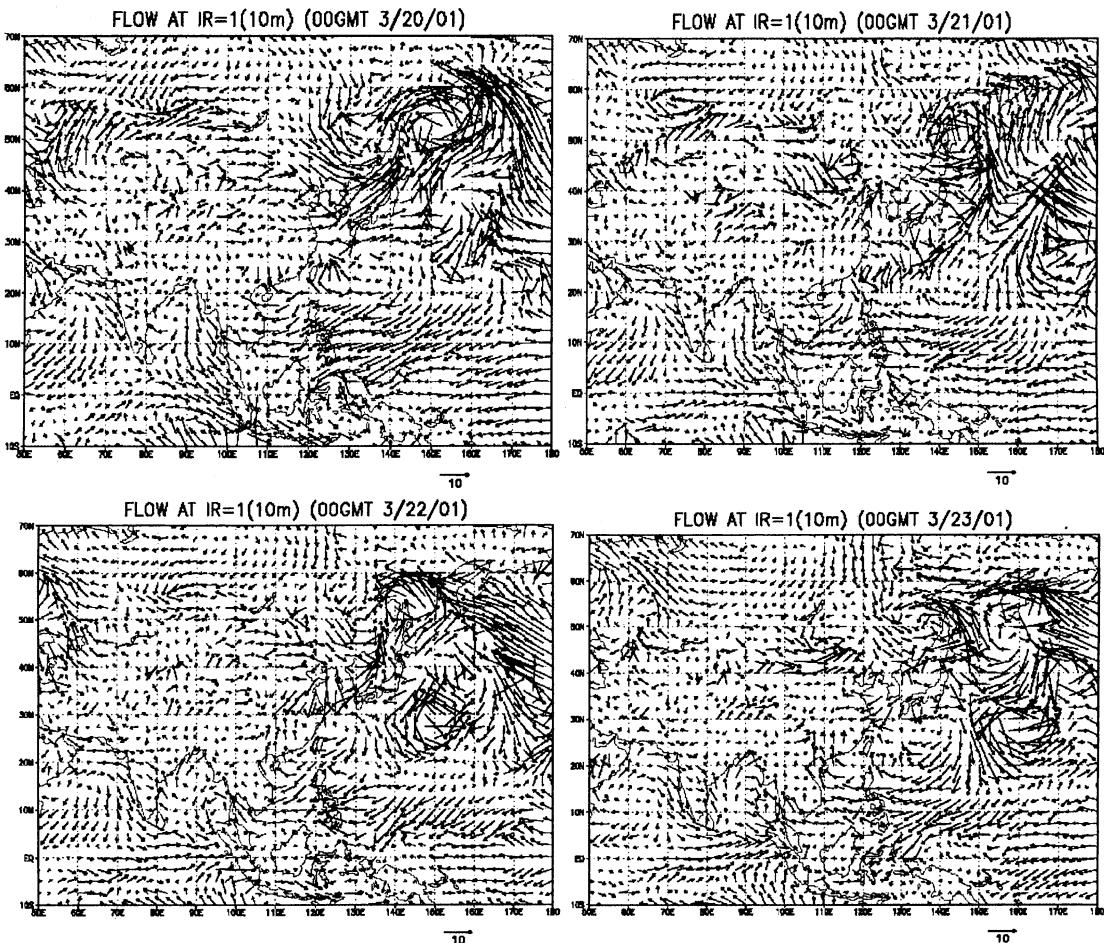


図8. 2001年3月20-23日の地上流れ場。

② 3月20日前後の高濃度因

上海付近では18-21日まで連続して気圧傾度が小さく（南に高、北に低気圧）、図7下段図の高濃度は、三日分の人為汚染物質の滞留により形成されたと考えられる。一方、すでに多くの報告があるように、北京等の北部の諸都市では、北方に中心を持つ強い低気圧に伴う強風から20日に

発生した土壤粒子の巻上げが主因となり高濃度となったと言える(図8)。

3月20日—23日までの流れ場は、50N, 130Eに中心を持つこの低気圧の東への移動と上海付近の弱風域を示している(図8)。

③全球化学計算と中国の観測点での比較

図9(a)、(b)はそれぞれ北京、上海での観測TSPと計算SPMの比較を示す。図中、ピンクないしライトブルーが観測のTSPを表し、ブラウン(SPMR)が土壤粒子を含めた全粒子の計算値を示す。また、All Anthropogenicが全粒子のうちの人為起源分を示す。北京については、ピークの時期はかなり良く追随しているがピーク時の絶対値が過大評価となっている。また、3月22-24日の高濃度時には逆に過少評価。超高濃度イベントのほとんどが、土壤粒子の寄与によることが推測される(図9(a))。すなわち、褐色と群青色の線の差が土壤粒子成分濃度を表す。

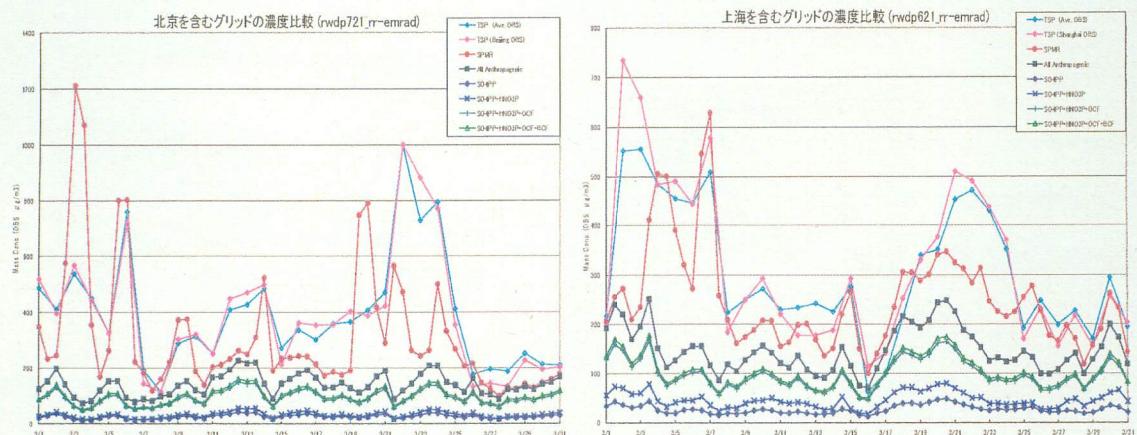


図9. 2001年3月1-31日の微小粒子状物質の観測値(TSP、ピンク及び水色)と計算値(全粒子；粒子径 $20\mu\text{m}$ 以下：褐色；濃青： $\text{SO}_4, \text{NO}_3, \text{BC}, \text{OC}$ 等の和)の比較：(a)北京、(b)上海.

一方、上海の場合は、3月3—7日の超高濃度には土壤粒子の寄与が大きいことが推測できるが、3月19—22日の高濃度にはむしろ人為起源粒子の影響が強く、イベント後半の23、24日になって土壤粒子さらに(図8(d)に現れている23日の流れ場から見て)海洋起源粒子の影響が推測される。

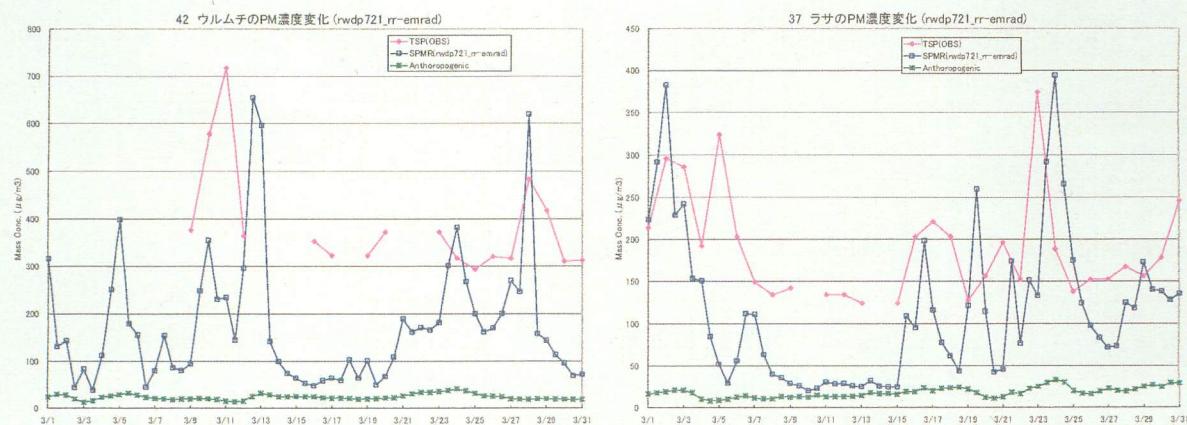


図10 TSP (Total Suspended Particulate) 観測値(ピンク及び水色)と計算値(青色：全粒子、うぐいす色： $\text{SO}_4, \text{NO}_3, \text{BC}, \text{OC}$ 等の寄与分)

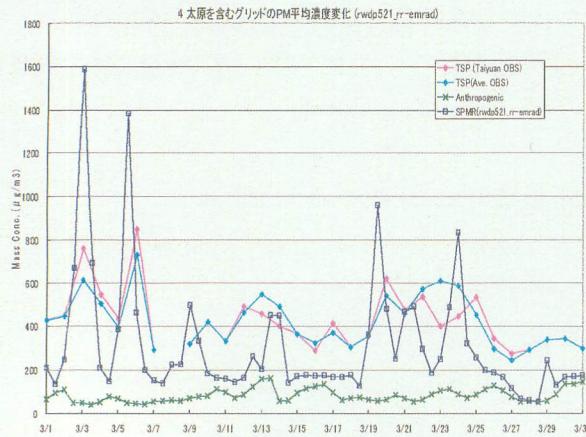


図 10(c) 太原(Taiyuan)

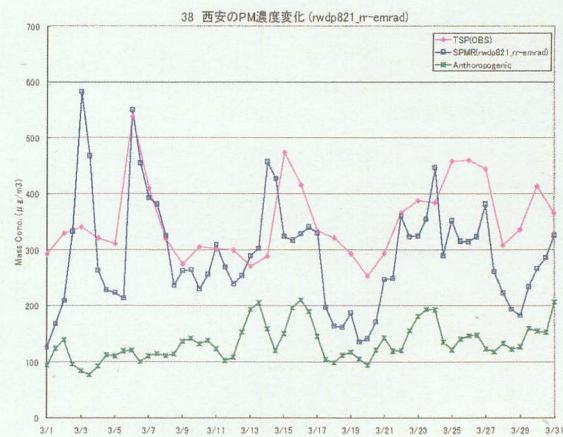


図 10(d) 西安

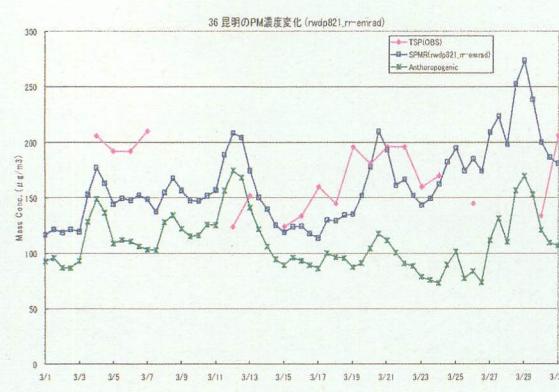


図 10(e) 昆明

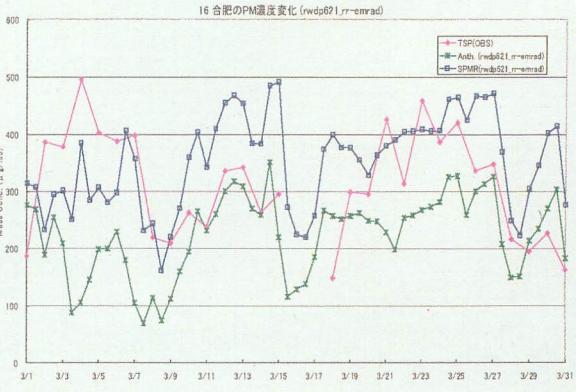


図 10(f) 合肥

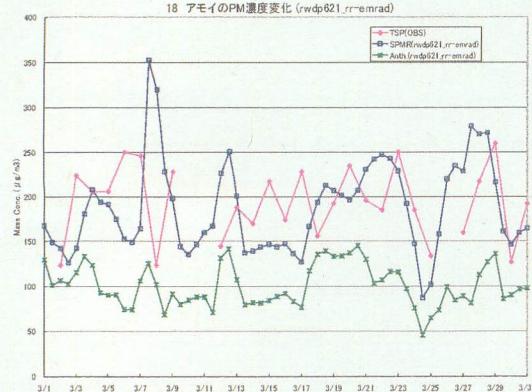


図 10(g) アモイ

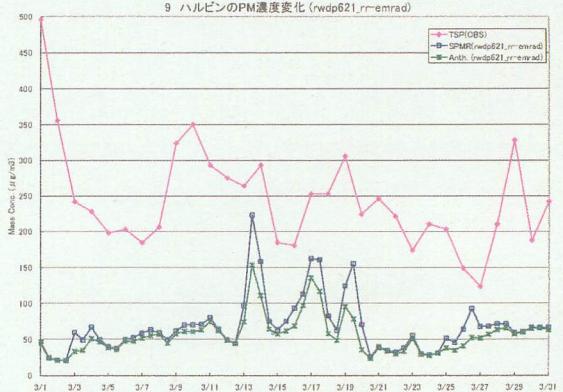


図 10(h) ハルビン

この後半部分のピーク値が観測に比べて、やや低く、海洋起源粒子のモデルへの導入の必要性を示唆する。

モデルのエアロゾル粒子分布の再現性を広域に見るために、図 10(a)-(h)に、西はウルムチ、ラサ、南は昆明、沿岸部のアモイ、土壤粒子の発生源に近い太原、西安、さらに北のハルビン等について、TSP観測値（ピンク及び水色）と計算全粒子（青色）および其の内のSO₄, NO₃, BC, OC等寄与分（ほぼ人為起源粒子；ただし、バイマス火災、火山排出、植生起源のOCを含む）を比較した。

これらの図から、（1）ウルムチ、ラサは欠測も多く、詳細な比較はできないが、ほぼ再現できている。（2）土壤粒子の排出源に近い太原は、ピーク等タイミングは良いが過大評価である。（3）西安は、ほぼ良い。（4）昆明は、3月後半のフェーズは大体良い。（5）合肥、アモイもほぼ観測値の時間変動に追随している。合肥は3月半ばでやや過大評価の傾向を示す。アモイも台湾海峡に面した沿岸都市であり、海洋起源粒子を考慮する必要がある。（6）ハルビンは過小評価である。計算結果は、土壤粒子がほとんどなくおおむね人為起源粒子であることを推定している。実際、ハルビンには黄砂がほとんど見られなかったことを中国のデータは示している。したがって、冬季の燃料使用の過小評価、ローカルなバイオマス燃焼等を考える必要があるかもしれない。

（2）全球エアロゾルモデルの総括

筆者の現況モデルについて、中国の地上観測を利用して広域の評価を行った。その結果、現状の格子長(2.5x2.5度)の下での全球モデルとしては、ほぼ妥当な結果をえたていると考える。一方、再現できているところ、そうでない所もかなり明確になった。今後、土壤粒子の粒径別発生比率の見直し、海洋起源粒子の導入、バイオマス燃焼等の検討が必要と考えられる。また、局所的には、ハルビン、長春、瀋陽等の中国東北部の再現性が良くなく検討を要する。

5. 本研究により得られた成果

以上、2001年3月のTRACE-P期間を対象に開発中のエアロゾル全球輸送/反応/沈着モデルのパフォーマンスを検討した。定性的には、満足できる結果と考えている。排出源の精度を高めて、さらにモデルの改良を図る。

6. 引用文献

- 1) Shao, Y. (2000) *Physics and Modelling of Wind Erosion*, Kluwer Academic Publishers, 393p.
- 2) Gillette, D.A., and R. Passi (1988). Modeling dust emission caused by wind erosion, *J. Geophys. Res.*, **93**, 14233-14242.
- 3) 北田敏廣 (1979) 大気汚染物質の光化学反応のモデル化とシミュレーションに関する研究、京都大学学位論文、407頁。
- 4) Kitada, T., and Nishizawa, M. (1998) Modeling study of the long range transport of acidic pollutants over East Asia and the west Pacific Ocean: Sensitivity of acid deposition to scavenging model parameters and emission source distribution. *J. Global Environment Engineering*, **4**, 1-29.
- 5) Kitada, T., Nishizawa, M., Kurata, G., and Kondo, Y. (2001) Numerical simulation of the transport of biomass burning emissions in Southeast Asia –September and October, 1994. *J. Global Environment Engineering*, **7**, 79-99.

7. 国際共同研究等の状況

なし

8. 研究成果の発表状況

(1) 誌上発表（学術誌・書籍）

〈学術誌（査読あり）〉

- ① Anggara Kasih, G.A., and Kitada, T.: *Hydrological Processes*, **18**, 3037-3059 (2004).
"Numerical simulation of water quality response to nutrient loading and sediment resuspension in Mikawa Bay, Central Japan: Quantitative evaluation of the effects of nutrient reduction measures on algal blooms."
- ② Tokairin, T., and Kitada, T.: *J. Global Environ. Engineering*, **10**, 65-75 (2004).
Numerical simulation of air pollutant dispersion from double-decked road: effect of width ratio between ground and upper deck road.
- ③ Kurata, G., Kitada, T., Carmichael, G.R., Tang, Y., and Woo, J.-H.: *J. Global Environ. Engineering*, **10**, 39-51 (2004).
Estimation of the emission ratio of hydrocarbons from biomass burning by using backward trajectory analysis from airborne observation for East Asia.
- ④ Kurata, G., Carmichael, G.R., Streets, D.G., Kitada, T., Tang, Y., Woo, J.-H. and Thongboonchoo, N.: *Atmos. Environ.*, **38**, 6977-6987 (2004).
Relationships between emission sources and air mass characteristics in East Asia during the TRACE-P period.
- ⑤ Tokairin, T., and Kitada, T.: *Environ. Monitoring Assess.*, **105**, NO.1-3, 121-143 (2005).
Study on the effect of porous fence on air quality and traffic noise level around a double-decked road structure-Evaluation by numerical model-.

〈学術誌（査読なし）〉

なし

〈書籍〉

なし

〈報告書類等〉

なし

(2) 口頭発表

- ① Kitada, T., Kurata, G., and Yamamoto, K. (2003). Development of AGCTM (Aerosol Global scale Chemical Transport Model): Emissions of carbonaceous aerosol and soil dust. *Proceedings of the 5-th Seminar of JSPS-MOE Core University Program on Urban Environment*, 73-80, Shanghai, China, Oct.30-31.
- ② Kurata, G., Kitada, T., Carmichael, G.R., Tang, Y., and Woo, J.H. (2003). The characterization of the airmass by the backward trajectory analysis - Focused on the hydrocarbon emission ratio from the biomass burning in Southeast asia. *Proceedings of the 5-th Seminar of JSPS-MOE Core University Program on Urban Environment*, 13-19, Shanghai, China, Oct.30-31.
- ③ Kurata, G., Kitada, T., Carmichael, G.R., Tang, Y., and Woo, J.H. (2003). Relationships between emission sources and airmass characteristics in East Asia derived by the backward trajectory analysis. *Seminar Proceedings on the Planning of Urban Energy System*, 105-113, Johor Bahru,

Malaysia, Sep.17-18.

- ④ Yamamoto, K., Kasahara, M., Kitada, T., and Kurata, K. (2003). New approaches for development of emission inventories of soil dust for transport models. *IUGG2003*, MC01/03P/D-15.
- ⑤ Kitada, T. (2004). Basics on transport processes of air-pollution and their modeling in the atmosphere. *Lecture at 13th Int. Hydrological Programme Training Course, UNESCO, Nagoya Univ.*, March 8.
- ⑥ Kitada, T. (2004). Comprehensive modeling of transport/chemistry/deposition, and its use for evaluation of the effects of air-pollutants on air quality, water quality, and ecology. *Lecture at 13th Int. Hydrological Programme Training Course, UNESCO, Nagoya Univ.*, March 13.
- ⑦ 倉田学児、北田敏廣、山本浩平、カーマイケル, G. R. タン, Y. (2003). 東アジアの排出量データと航空機観測データからの流跡線解析の比較、*第11回地球環境シンポジウム講演論文集*、土木学会、133-138.
- ⑧ 北田敏廣、白川夢、倉田学児、我谷薰、畠山史郎、山本浩平 (2003). エアロゾル全球モデルの開発と利用：EC, OC, 硫酸塩粒子の全球分布、*第44回大気環境学会年会講演要旨集*、416.
- ⑨ 倉田学児、北田敏廣 (2003). 流跡線解析による東南アジアの森林火災からの排出比の推定、*第44回大気環境学会年会講演要旨集*、443.
- ⑩ 北田敏廣、倉田学児、我谷薰、白川夢、稻垣亮太、畠山史郎 (2003). 燃焼起源EC, OCの全球分布の動的展開の推定、*第14回大気化学シンポジウム*、5-9.
- ⑪ A. Sofyan, T. Kitada, and G. Kurata (2004). Sea breeze and local flow circulation in Jakarta area at the end of rainy season: Implication for air pollution transport. *第45回大気環境学会年会講演要旨集*、416.
- ⑫ 北田敏廣 (2004) . 東アジアにおけるエアロゾルの輸送と変質、*45回大気環境学会年会講演要旨集*、104.

(3) 出願特許

なし

(4) 受賞等

なし

(5) 一般への公表・報道等

なし

9. 成果の政策的な寄与・貢献について

UNEP(国連環境計画)では、南アジア/東南アジアの上空にかかる密度の高いエアロゾル層(ABC)が地球規模の気候変動にも影響を与えることから、世界的な体制でこれを監視・研究することとし、体制を整えている。我が国でもこのプロジェクトに応分の寄与が期待されており、これに対応する体制を構築しつつある。本研究は我が国におけるABC研究の一つに位置づけられるものである。