

C-051 アジア大陸からのエアロゾルとその前駆物質の輸送・変質プロセスの解明に関する研究  
 (5) 南アジア～東南アジア～中国～日本における輸送と化学変化に関するモデル研究

豊橋技術科学大学工学部

北田 敏廣

〈研究協力者〉 豊橋技術科学大学 倉田 学児 (現・京都大学地球環境学堂)

平成17～19年度合計予算額 4,772千円

(うち、平成19年度予算額 1,454千円)

※上記の合計予算額には、間接経費1,102千円を含む

[要旨] 東アジアを中心に広く東南アジア、南アジアを対象に大気汚染輸送/反応/沈着のシミュレーションを行い人為・自然発生源の寄与推定を行うことを目的とした。まず、開発した全球エアロゾルモデルを用いて、2001年2月～3月の全球シミュレーションを行い、中国各地の都市および日本の2都市(東京、大阪)について、2001年3月の1か月分の観測と計算の比較を行った。粒子状物質の総質量濃度だけでなく、その組成についても表示した。組成を直接比較するデータはないが、中国北部諸都市に対する土壌粒子の影響の相対的な割合、南部内陸都市でのバイオマス燃焼等を起源とする粒子の寄与、日本の都市でのエアロゾル組成の特徴などをモデルは概ね再現した。燃料使用に関する季節ファクターの良い推定がローカルな汚染にフォーカスするときに重要な課題であることを示した。ホームメイドの全球エアロゾルモデルの開発については、一定の成果を上げた。次に東南アジアのメガシティ・ジャカルタの大気汚染に焦点をあてて検討した。ジャカルタ(緯度6-7S)の気候は大きく乾季と雨季の2季に分かれ、その変わり目に1-2週間の移行期を持つ。乾季と雨季で総観規模の気象はまったく異なる。乾季は上空に安定した東風が吹くが、ジャワ島南部の東西に延びる高い山脈にはばまれ、山脈の北側に位置するジャカルタの高度1-2km以下ではこの一般風が弱く、継続的な晴天のため海陸風などの局地風が繰り返される。このなかでジャカルタの大気汚染は、夜間にジャワ海に運ばれた汚染物質が翌日海上で反応し生成したオゾン等を豊富に含む汚染気塊が上陸するという繰り返しが10日間にもわたることが分かった。この研究は東南アジア島嶼部のメガシティ・ジャカルタの大気汚染に関する初めてのまとまった報告である。なお、メソスケールのコミュニティ気象モデルとして広く用いられているMM5は、雨季についてその精度がかなり落ちることが気象観測値との比較により示された。

[キーワード] エアロゾル全球モデル、都市大気汚染、アジア、海陸風、オゾン

## 1. はじめに

本研究は東アジアを中心に広く東南アジア、南アジアを対象に大気汚染輸送/反応/沈着のシミュレーションを行うことによって地域の大気汚染(大気質)におよぼす人為・自然発生源の寄

与推定を行い、地域特性を把握すること、将来の大気環境の変化に備えることを目的とする。このため、まずエアロゾル輸送・生成・除去の全球モデルを開発、これを用いて南アジアー東南アジアー東アジア等アジア域に焦点をあてたシミュレーションの実行を行った。この地域は、エネルギー消費増に伴うエアロゾル排出・生成増が予想されるばかりでなく、農業起源等のバイオマス燃焼が毎年定期的に繰り返されている地帯であり、これらの排出源による濃度がバックグラウンドとして常に存在すると考えられる。本サブ課題ではアジア規模および地球規模のエアロゾル分布に対する各種の自然・人為起源排出の影響を定量的に把握し、人間活動の影響を相対的に捕らえた。

このことについて、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を行い、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 濃度および東京、大阪での SPM 濃度と計算エアロゾル濃度を比較検討することによって、開発した全球エアロゾルモデルのパフォーマンスを検討した。さらに、全粒子の濃度だけでなく、モデルによって得られたエアロゾル組成の提示も行った。炭素含有エアロゾル粒子について、有機炭素粒子と元素炭素粒子に分け、化石燃料燃焼、バイオマス火災、植生起源等の全球排出源の調査を行い IPCC (2001)<sup>10</sup> に述べられている情報と比較した。さらに、黄砂等の土壌粒子フラックスおよびそれによる排出量分布についても検討を行った。

次に、特に、赤道に近い東南アジアのメガシティ・ジャカルタの大気汚染に焦点をあてて検討した。赤道近くであるが、南半球に位置するジャカルタ（緯度6-7S）の気候は大きく乾季と雨季の2季に分かれ、その変わり目に1-2週間の移行期を持つ。乾季と雨季で総観規模の気象はまったく異なる。乾季は上空に安定した東風が吹くが、ジャワ島南部の東西に延びる高い山脈にはばまれ、山脈の北側に位置するジャカルタの高度1-2 km 以下ではこの一般風が弱く、継続的な晴天のため海陸風などの局地風が繰り返される。このなかでジャカルタの大気汚染は夜間にジャワ海に運ばれた汚染物質が翌日海上で反応し生成したオゾン等を豊富に含む汚染気塊が上陸するという繰り返しであることが分かった。中緯度の日本でも見られる現象ではあるが、日本の場合は高々2、3日であるのに対して、ジャカルタでは10日間にも渡って継続することが示唆された。夜間に広くジャワ海に汚染物質が流出し滞留するこの現象には、ジャワ島南部の山脈を越えて上空に吹く一般風と日中の海風・谷風が逆風向であることが関係している。すなわち、日中の海風・谷風の発達がこの山越えの一般風によって制限される。したがって、沿岸部で排出された汚染物質の内陸および上方への輸送が制限され、陸上の比較的浅い層（～500m）に蓄積する。夜間に一般風に後押しされた陸風によって、これらの蓄積汚染物質が海上に遠く広く流出することになる。この研究は東南アジア島嶼部のメガシティ・ジャカルタの大気汚染に関する初めてのまとまった報告である。なお、メソスケールのコミュニティ気象モデルとして広く用いられている MM5 は、雲・降水を伴う雨季の流れ場について、その精度がかなり落ちることが気象観測値との比較により示された。

## 2. 研究目的

東アジアを中心に東南アジア、南アジアを対象にエアロゾル輸送・生成・除去の全球モデルおよび地域大気汚染輸送/反応/沈着のシミュレーションを行い人為・自然発生源の寄与推定を行う。

この地域は、エネルギー消費増に伴うエアロゾル排出・生成増が予想されるばかりでなく、農業起源等のバイオマス燃焼が毎年定期的に繰り返されている地帯であり、これらの排出源による濃度がバックグラウンドとして常に存在すると考えられる。本サブ課題ではアジア規模および地球規模のエアロゾル分布に対する各種の自然・人為起源排出の影響を定量的に把握し、人間活動の影響を相対的に捕らえる。さらに、東南アジアのメガシティ・ジャカルタの大気汚染に焦点をあて、その背景となる乾季と雨季の局地風特性を明らかにすること、乾季の大気汚染特性を明らかにすることを目的とした。

### 3. 研究方法

#### (1) 全球化学輸送モデルによる東アジアー東南アジアの化学輸送シミュレーション

##### 1) 全球化学輸送モデル

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。これらは、地域規模モデル<sup>1,2)</sup>の反応式系の簡略版となっている。

球座標で記述された偏微分方程式系に対する数値解法<sup>3)</sup>は、輸送過程について LOD-FEM、化学反応については区分的擬解析解法である。タイムステップは輸送 30 分、化学反応 12 秒とした。当該モデルの部分球版は他のケースで用いられている<sup>4,5)</sup>。

##### 2) 排出源

###### a. 人為排出源

排出源分布は EDGAR のデータベースを中心に神成らの中国ソースを埋め込んだ。人為排出量は燃料使用量が冬季に増えるため大きな変動幅を示す。たとえば、図 1 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。これらの情報を基に 2 月の平均気温をベースにして季節排出係数を導入した。例えば、月別係数 MF=1 ( $T \geq 15C$ ), 1.2 ( $15 > T \geq 10C$ ), 1.6 ( $10 > T \geq 5C$ ), 2.5 ( $5C > T$ ) 等である。

###### b. 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 の月別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(後述 3 (4) 参照)。図 2 に一例として 2001 年 3 月 10-12 日の 3 日間のバイオマスファイアスポットの分布図を示す。

###### c. 土壌粒子の排出フラックスの推定

土壌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<sup>6)</sup>、いずれも摩擦速度、土壌の状態（土壌粒子の粒子径分布、土壌水分など）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と考えられる。常用される $u_*$ に関する4乗モジュール<sup>6)</sup>、およびShao<sup>7)</sup>に引用されている土壌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。粒子の巻き上げ対象となる土壌は、砂漠、いずれも臨界摩擦速度( $u_{*th}$ )は、仮に土壌によらず0.25 m/s と仮定した。摩擦速度( $u_*$ )が $u_* > u_{*th}$ であるとき、大気への土壌粒子フラックスを次式で与えた：

$$FLUX = 2.09 \times 10^{-6} (u_*)^{3.75} (1.0 - u_{*th} / u_*) \quad (kg/m^2/s) \quad (1)$$

土壌粒子を下記の4つのクラスに分け、(1)式で与えられる巻き上げ土壌粒子全体を各クラスの存在比を仮定して分配した（存在割合：小さい粒子から順に、0.1, 0.1, 0.1, 0.7）：  
 0.2~2.0, 2.0~3.6, 3.6~6.0, and 6.0~12.0 ( $\mu m$ ) 図3に土壌粒子フラックスのパラメーター設定の基になる土地被覆分類を示す。

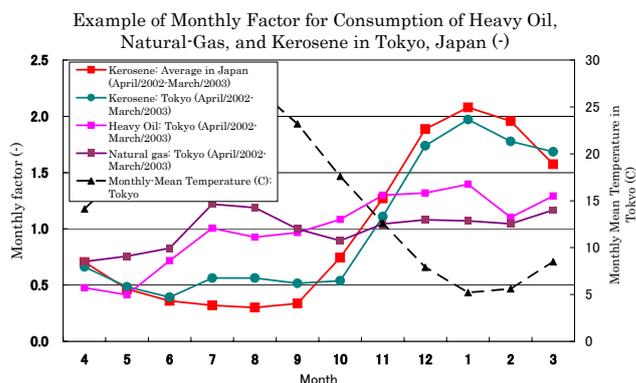


図1 燃料使用の月別係数 (MF) の一例：東京における重油、天然ガス、灯油使用。年平均の1ヶ月使用量に等しい場合の係数値を1とする。図には、月平均気温の年変化も示す。

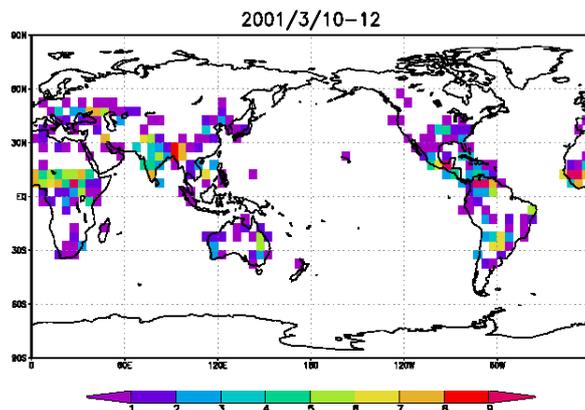


図2 衛星からみたバイオマスファイア・スポット密度（相対的強度）の分布例：2001年3月10-12日の3日間。3日単位で2001年3ヶ月分の分布を作成。

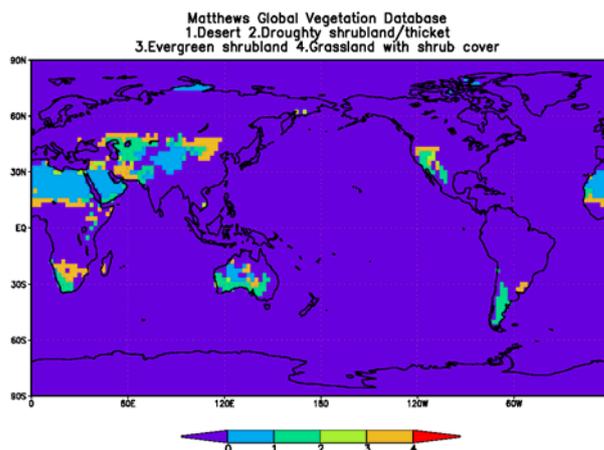


図 3 土壌粒子の巻き上げフラックスの推定に用いた土地利用分布

#### d. 炭素含有エアロゾル粒子の排出源

炭素を含むエアロゾル粒子を元素状炭素 (Elemental Carbon: ECまたはBlack Carbon: BC) と、有機炭素 (Organic Carbon: OC) に二分して考えた。BCについては、化石燃料燃焼とバイオマス燃焼を、OCについては、この二つに加えて植生からの直接排出 (排出後の化学反応によ

表 1. BC, OC の排出源

排出粒子	総排出量	対象年	参照	備考
化石燃料燃焼 BC	12.6	1985	GEIA (1994)	
	7.97*	1984	GEIA (1997)	Used for simulation.
	5.06	1984	Cooke et al. (1999)	< 1 $\mu$ m. Spatial distribution was used for simulation
	6.6(6-8)	2000	IPCC (2001)	
バイオマス燃焼 BC	5.98*	1987	GEIA (1997)	Used for simulation.
	5.7(5-9)	2000	IPCC (2001)	
化石燃料燃焼 OC	28.04*	1984	Cooke et al. (1999)	< 1 $\mu$ m; used for simulation with emission strength multiplied by 4 so that this can be close to OM emission by IPCC; i.e. 28.04.
	28(10-30)	2000	IPCC (2001)	OM (Organic Matter);
バイオマス燃焼 OC	59.8*	1987	GEIA (1997)	Estimated from BC=5.98 Tg/yr with the assumption of BC/OC=0.2; this number was again multiplied by 2 so that the resultant emission can be close to OM emission by IPCC; i.e., 59.8 Tg/yr.
	54(45-80)	2000	IPCC (2001)	OM
植物起源 OC	63.5*	1990	GEIA (1994)	Estimated from biogenic VOC (=terpenes)=127 Tg/yr with the assumption of OC/VOC=0.5; this emission is quite close to that by IPCC.
	56(0-90)	2000	IPCC 2001	Biogenic OM.

る粒子化も含めて排出) を考えた。粒子サイズは、細粒子 (2.5 $\mu$ m程度以下) を仮定している。

BC、OCの全球排出源分布について、Global Emissions Inventory Activity (GEIA)<sup>8)</sup>によって収集、開発、配布されている分布と、Cooke (1999)<sup>9)</sup>による分布を基本にした。各排出源からの全球規模の排出総量については、それぞれの物質(OC, BC)についてIPCC(2001)<sup>10)</sup>の推奨値にほぼ近くなるように定数倍した。表1に本研究で用いた排出量の概要を示す。表に示すように、例えば、植生起源のOCについては、GEIAによるテルペン類排出量の半分が粒子化すると仮定した。こう仮定すると植物起源のOC排出量として約63.5 Tg(organic matter)/yrを得るが、これはIPCCの推定値 56 Tg/yrに近い(表1参照)。

図4a, b に化石燃料燃焼によるBCと植物起源のOCの排出源強度を示す。

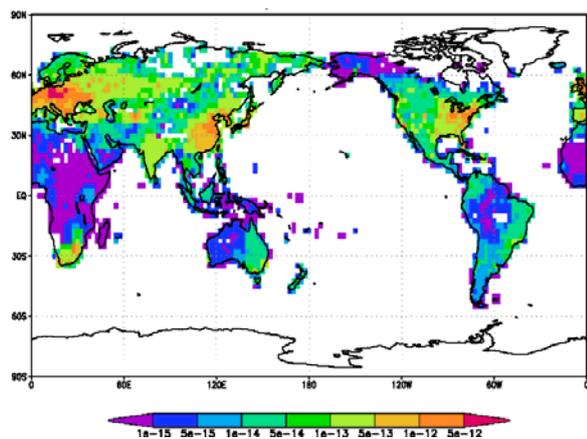


図4a 化石燃料燃焼によるBC排出源分布  
(単位:  $\text{kmol}/\text{m}^2/\text{s}$ ).

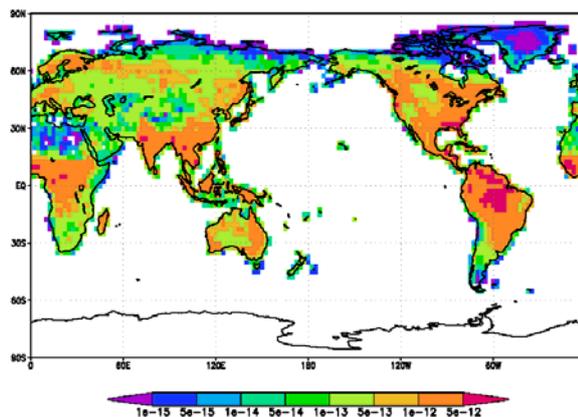


図4b 植生起源の有機炭素(OC)排出源分布  
(単位:  $\text{kmol}/\text{m}^2/\text{s}$ ).

なお、この東アジア域を対象にして、航空機観測による各種化学物質の濃度と排出源のモデル計算濃度の比較によって、よりもっともらしい排出源強度分布を推定する方法が試みられている<sup>11)</sup>。

## (2) 東南アジアのメガシティ・ジャカルタの大気汚染の輸送・反応・沈着シミュレーション

ジャワ島は南緯6~7°の赤道に近い南半球にあり、大きく雨季と乾季の二季に分かれる。図5に見られるように、雨季(図5a)にはジャワ島を通る総観規模流れの収束線があり北半球太平洋側の空気と南半球インド洋側の空気がぶつかる場となっている。一方、乾季(図5b)には、ジャワ島上空全域がオーストラリアに中心を持つ高気圧から吹き出す東風~南東風に覆われ晴天が継続するという特徴的な気候パターンを持ち、このような場にある1000万都市ジャカルタの大気汚染の特徴を調べた。

### 1) メソスケール気象モデル

NCARのメソスケール気象モデルMM5を用いて、乾季(2004年8月)と雨季(2001年3月)について数値シミュレーションを行いこの2季の局地風場の特性を明らかにする。MM5のシミュレーションに表2のモジュールを設定した。なお、計算のための領域設定は図6のようである。

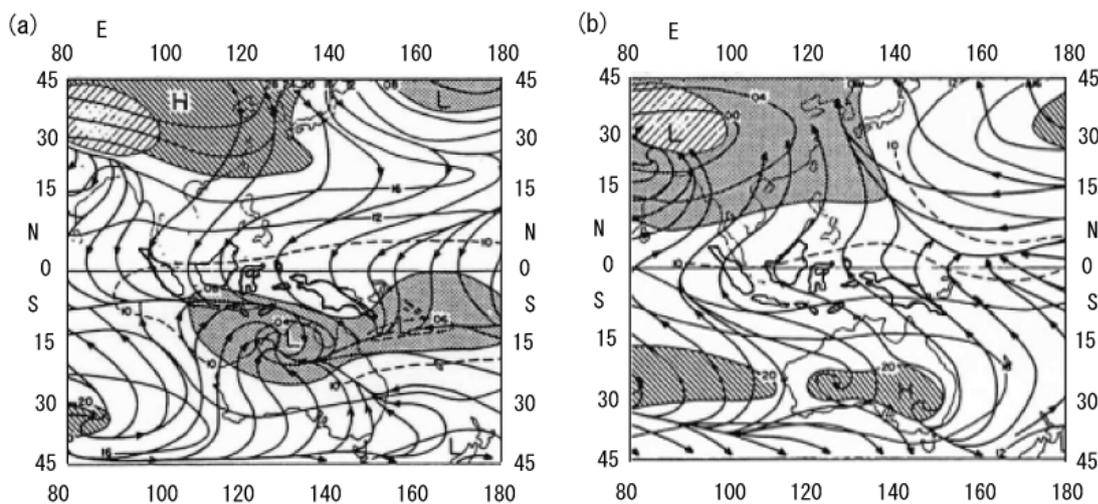


図5 表層流と海面レベルの気圧:(a) 1 月、(b) 7 月。1020mb 以上の気圧の地域は斜線で、1008mb 以下の地域はグレーで網掛け (Riel 1979<sup>12)</sup> より)

表 2. シミュレーションに用いた物理過程<sup>#</sup>.

Domain	Grid size and number of grids	Subgrid scale cumulus convection	Boundary layer parameterization	Cloud micro-physics	Long wave radiation	Surface
1	27 km (61x61)	Grell	MRF	Mixed-phase (Reisner-1)	RRTM	5-layer
2	9 km (49x58)	None	MRF	Mixed-phase (Reisner-1)	RRTM	5-layer
3	3 km (79x85)	None	MRF	Mixed-phase (Reisner-1)	RRTM	5-layer

#ドメインについては図 6、物理過程については Dudhia et al.<sup>13)</sup>を参照；物理過程の概略、サブグリッド積雲対流モデル：Grell et al.<sup>16)</sup>、大気境界層：MRF(Medium Range Forecast-PBL; NCEP の境界層モデルで使用; Hong and Pan<sup>17)</sup>)、雲物理モデル:氷相を含む混合相モデル (雪のゆっくりした融解過程を許す; Reisner et al.<sup>18)</sup>、長波放射モデル: RRTM(H<sub>2</sub>O, CO<sub>2</sub>, O<sub>3</sub> を考慮、雲・降水との相互作用 ; Mlawer et al.<sup>19)</sup>)、土壌:5 層モデル。

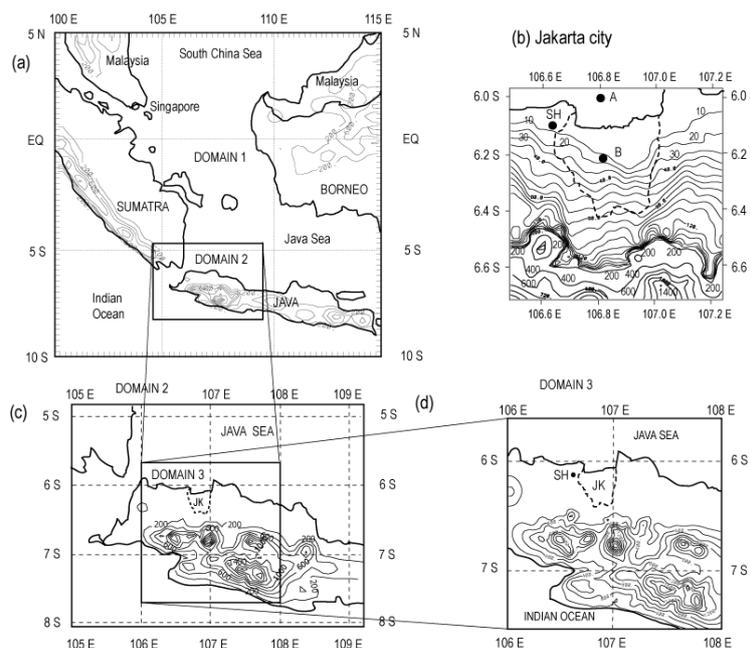


図6 西部インドネシア域のMM5シミュレーションのドメインシステム：(a)ドメイン1、(c)ドメイン2、(d)ドメイン3。図(b)はジャカルタ地域の地形図：SHは気象データを得たSukarno Hatta空港、A点とB点の気温変化は図6で議論する。1度は子午線方向には111.19kmであり、6°Sでの緯度方向には110.58kmである。

また、STEM II<sup>14)</sup>の北田研版<sup>1,2,15)</sup>を用い、乾季(2004年8月)について化学輸送計算を行った。このとき、同時期にパッシブサンプラーを用いて行ったNO<sub>2</sub>、SO<sub>2</sub>の日平均、週平均濃度分布との比較により化学輸送計算の当否を検討した。

#### 4. 結果・考察

(1) 全球化学輸送計算による中国および日本のエアロゾル濃度に対する各種排出源の寄与推定：TRACE-P 観測時

##### 1) 2001年3月の中国の大気汚染観測値

中国では、2001年3月に2度ないし3度の高濃度エピソードがあった。主として3月1-8日と20-22日を中心とする数日である。図7aは同期間の北京などの中国北部・東北部都市、図7bは上海などの東部都市の2001年2月～4月の汚染物質濃度の変化であり、このエピソードが示されている。いずれも土壌粒子(黄砂)が主因と考えられる。ただし、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)高気圧の支配下にあつて、このときの上海の高濃度は、3日分の人為汚染物質の滞留に基づく寄与が大きいと考えられる。一方、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日に発生した土壌粒子の巻上げが主因となり高濃度となった。図8a, bに示す3月19日と22日の地上天気図は、北京への土壌粒子の影響、上海の弱風域による汚染質の滞留・蓄積等上に述べた状況を支持している(図中、○が北京、□が上海を示す)。

さらに、図9 は人為の汚染物質を、また図10 は土壌粒子を模した仮想粒子の輸送シミュレーション結果（3月21日00Z時点）を表わすが、図9 と図10 の比較より、3月20-22日のピーク濃度について、上海付近は東部沿岸部の人為汚染源により、北京付近は土壌排出源と人為汚染源により主として影響を受けたことが推測できる。

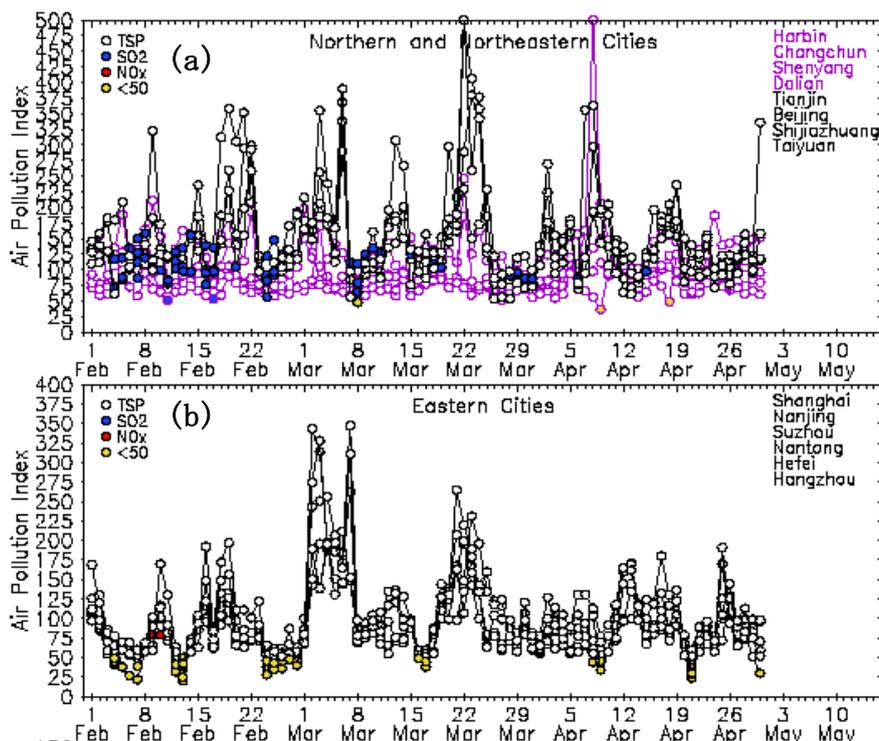


図7 大気汚染指数(API)の経月変化（2001年2月～4月）：(a) 北京を含む北部諸都市およびハルビンを含む北東部諸都市、(b) 上海を含む東部諸都市。

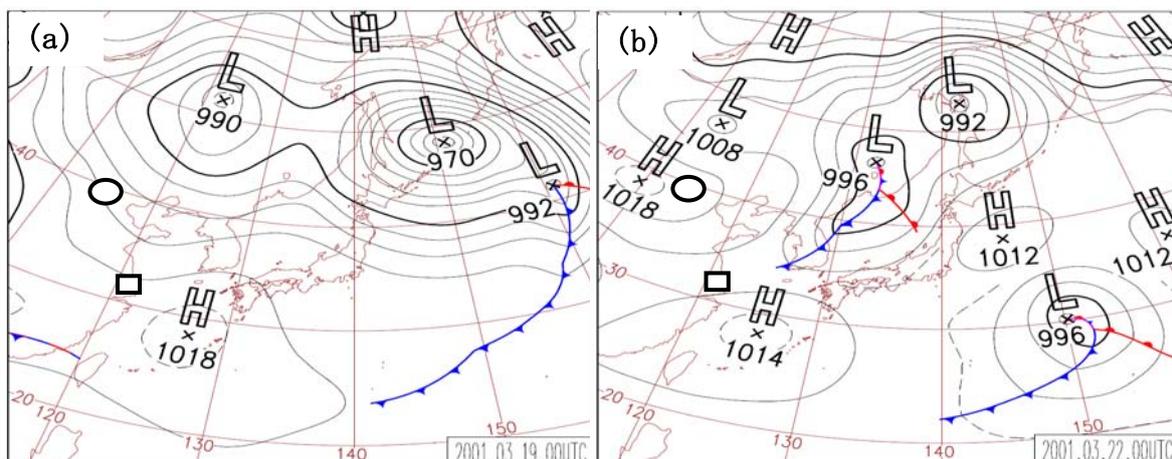


図8 2001年3月22日を中心とする中国諸都市の高PM濃度イベントの前（(a)3月19日）、および当日（(b)3月22日）の地上天気図：○北京、□上海。北京は3月21日に低気圧が通過（図8bで北緯45度、東経133度に中心を持つ低気圧）、これが運んできた黄砂粒子により3月22日に高濃度となる。上海は、この間、概ね高気圧の影響下で晴天弱風であった。

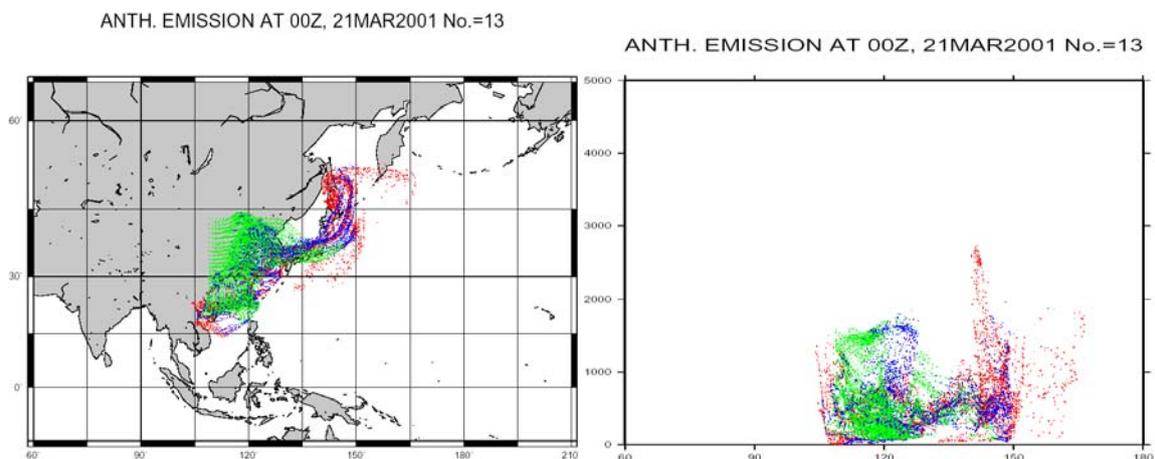


図9 中国の東部（北京を含む）の人為排出源から放出された仮想粒子群の輸送シミュレーション：2001年3月21日00Zの水平面および鉛直面への粒子群のプロジェクト。赤は18日、青は19日、緑は20日に、いずれも連続的に放出。

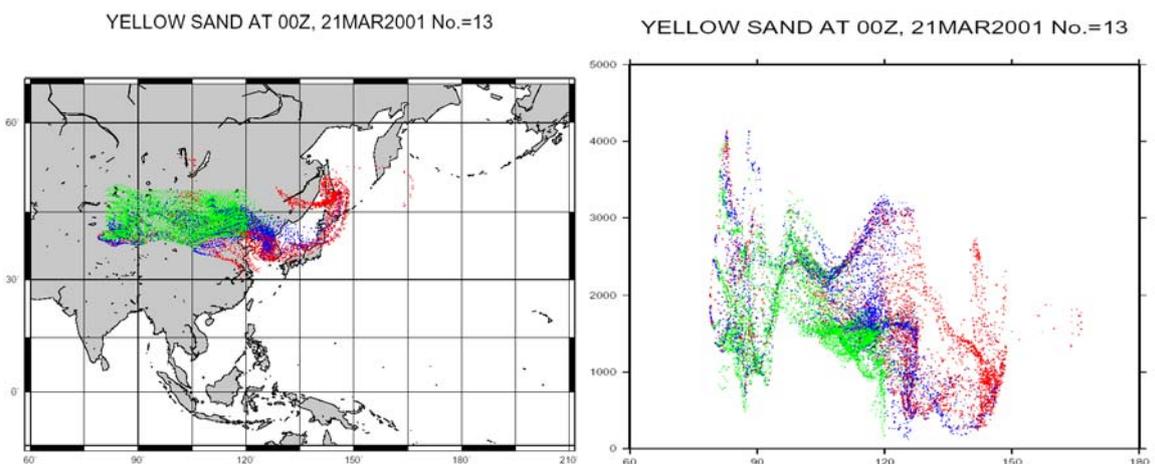


図10 図9におなじ。ただし、粒子源は黄砂発生源を想定。赤は18日、青は19日、緑は20日に、いずれも連続的に放出。

## 2) 全球化学計算と中国および日本の実測値との比較<sup>20)</sup>

全球モデルの1ヵ月半（2月20日—3月31日）にわたる計算により得られたエアロゾル濃度場と地上観測結果を比較した。中国の各都市の測定値はTSP（Total Suspended Particulate）濃度を表わし、日本の観測値 SPM（Suspended Particulate Matter）はPM10を意味する。本報の全球モデルでは土壌粒子の大きな方のサイズを $12\ \mu\text{m}$ としており、したがって、計算エアロゾル濃度はほぼPM10に対応する。

図11 は比較の対象とした中国各地の観測点の位置（都市）を示す。大都市域、南部沿岸都市、南部山岳都市、土壌粒子排出源地域、遠隔地としての日本等の地域特性を考慮して分類し、計算結果との比較対象地として選んだ。

図12a-j は、それぞれ北京、上海、合肥、アモイ、昆明、西安、ウルムチ、ラサ、東京、大阪での観測TSP（先述のように、東京、大阪はSPM≒ PM10）と計算 SPM の比較を示す。計算値をそれぞれの成分寄与を示す棒グラフで表している。土壌粒子は、計算では4つの粒径区分で表しているが、グラフでは、“ファイン（粒径2 μm 以下）”と“コース”の2分表示をしている。成分分類は、人為（化石燃料燃焼、2次生成）、バイオマス燃焼起源、自然植生起源、土壌粒子である。

北京(図12a)については、月前半のピークの時期はかなり良く追隨しているが、後半の3月22-24日の高濃度時には逆に過少評価で、かつピークの時期が少しずれている。超高濃度イベントのほとんどが、土壌粒子の寄与によると考えられるので（棒グラフの上部2つ分、すなわち、図12aの場合、ピンクと黄色が土壌粒子分を表す）、2.5 度という土地利用の解像度も含めて土壌モデルに伴う不確定性が重要な原因と考えられる。

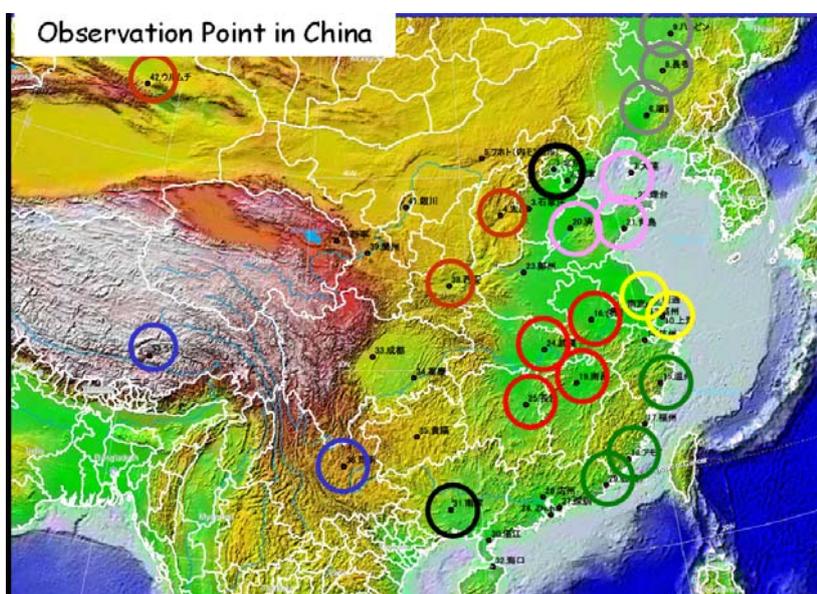


図11 中国のTSP (Total Suspended Particulate) 観測点。

上海(図12b)の場合、3月の最初のピークを除き、高濃度の時期には比較的良く追隨していると考え

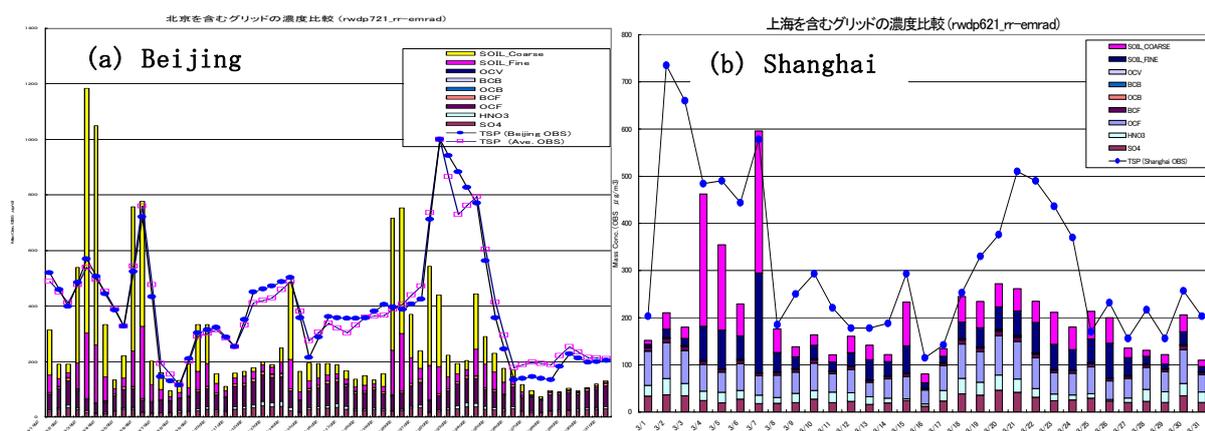


図12 観測値(TSP/PM10)と計算値 (SPM) の比較、期間2001年3月1日～31日：実線は観測値、棒グラフは計算値. (a) Beijing, (b) Shanghai, (c) Hefei, (d) Xiamen, (e) Kunming, (f) X'ian, (g) Urumuchi, (h) Lhasa, (i) Tokyo, (j) Osaka. 棒グラフは異なる化学成分を積み重ねて表示。PM10はTokyo, Osakaのみ。

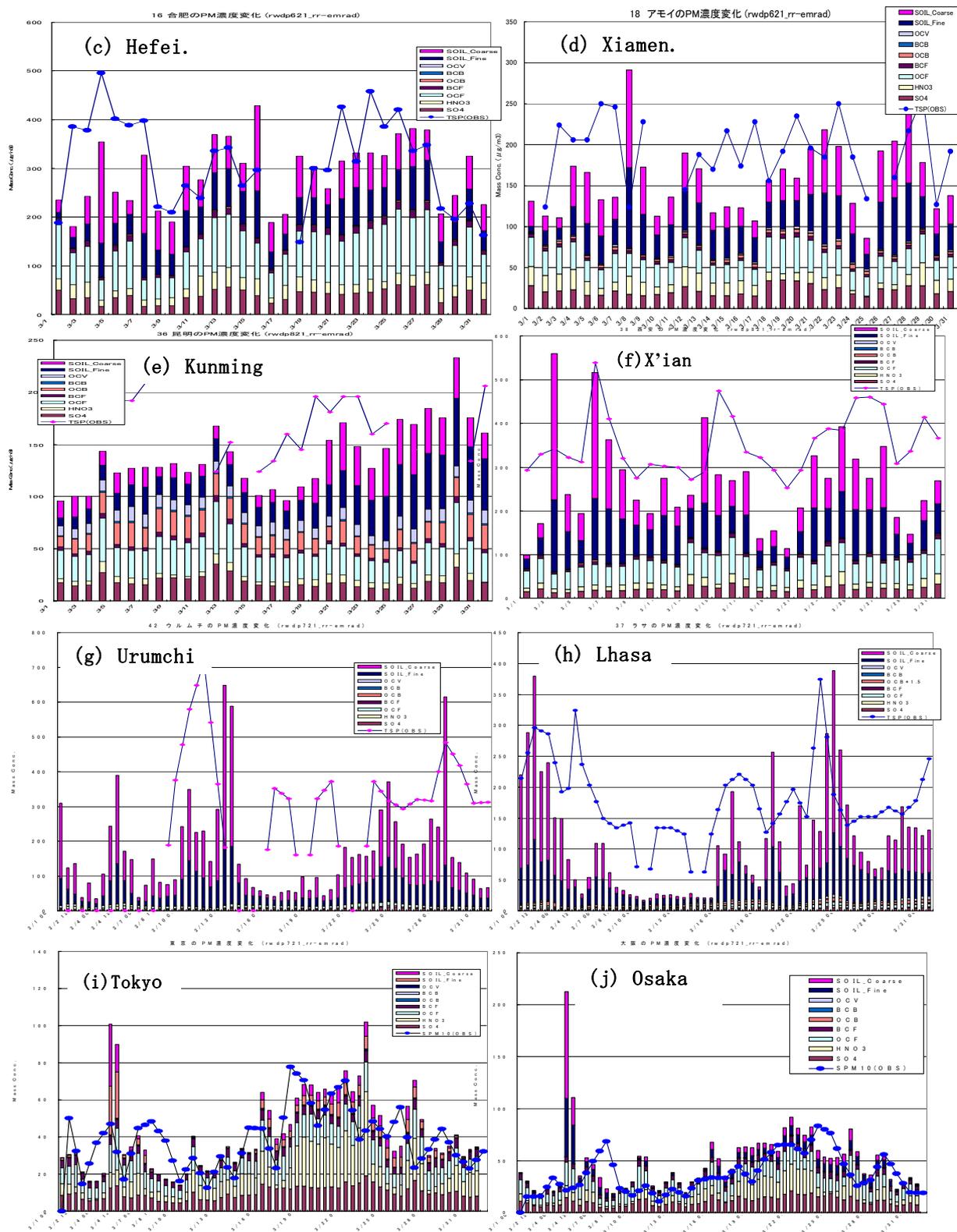


図12 続き。

えられるが、この場合も3月21-23日について過小評価となっている。この時期の流れ場(天気図；図8 参照)および観測 SO<sub>2</sub> 濃度とTSP濃度との対応により、土壌粒子のみならず高気圧支配の下で

の人為大気汚染物質の蓄積が主因と考えられる。3月22-24日の北京の高濃度と少し原因に違いがある。

合肥(図12c)は上海の西に位置する内陸の都市であり、3月のピーク濃度の出現時期は上海に近い。有機炭素粒子の寄与が総じて高く、計算値の約30%を占める。

上海より南の沿岸部の例として図12d にアモイ(台湾の対岸部)の結果を示す。アモイには上海や北京の観測に見られる月間の抜き出たピークはなく濃度レベルも北京、上海、合肥等に比べて低い。計算結果より、土壌粒子の影響は受けるものの、北の諸都市にくらべてその影響濃度は低いことが示されている。

日本のSPM濃度について、東京(図12i)と大阪(図12j)を取り上げた。観測値については、計算格子内の常時監視局データ100局を超えるデータの平均を用いている。東京、大阪いずれも、時折、高い土壌粒子の寄与が見られるが、総じてそれほど大きくなく、人為起源のイオン類、有機炭素、ブラックカーボン等がほとんどを占める。計算値と観測値の対応はほぼ良好といってよい。

本研究では、全球エアロゾルモデルの開発、計算と実測値の1ヶ月にわたる広範な比較によりモデル精度の向上を行った。特に、諸都市のバックグラウンド濃度を形成する長距離寄与分の推定を行った。粒子状物質の総質量濃度だけでなく、その組成についても表示した。組成を、直接比較するデータはないが、中国北部諸都市に対する土壌粒子の影響の相対的な割合、南部内陸都市でのバイオマス燃焼等を起源とする粒子の寄与、日本の都市でのエアロゾル組成の特徴などをモデルは概ね再現した。以上、まだ、不備な点があるが、ホームメイドの全球エアロゾルモデルの開発を行い一定の成果を得た。

## (2) 東南アジアのメガシティ・ジャカルタの大気汚染の輸送・反応・沈着シミュレーション

### 1) 乾季と雨季の局地風場の特性およびMM5パフォーマンス評価<sup>21)</sup>

図6の領域について、乾季(2004年8月6-11日)と雨季(2001年3月5-9日)について、MM5を用いた計算結果と観測値との比較を図13に示す。

図13a, bが乾季、13c, dが雨季に対応する。いずれもスカルノハッタ空港での気温、風速、風向観測値との比較である。また、乾季、雨季のいずれもMM5を駆動するのに必要な大規模気象場には同レベルのECMWFデータを用いている。この図が示すものは、(1) 気温の再現性は、風向・風速に比べて良い。(2) いずれの気象要素についても乾季の方が雨季に比べてはるかに再現性が良い。(3) したがって、降水を伴わない場合、MM5はおおむね良好な結果を与えると考えられる。

(4) 降水を伴う場合のMM5については、良好な観測データを基にした水蒸気分布、同地表面フラックスによる頻度の高い同化が必要と考えられる。図14の左側カラムが乾季(2004年8月9日)、同右側が雨季(2001年3月8日)の日中の流れ場の計算値と観測値(○で囲んだ→)の比較を示す。やはり、乾季がほぼ良好な計算値と観測値の対応を見せるのに対して、雨季(右側)は特に図中右側(ジャカルタ市東側)観測点での風の再現性が良くない。

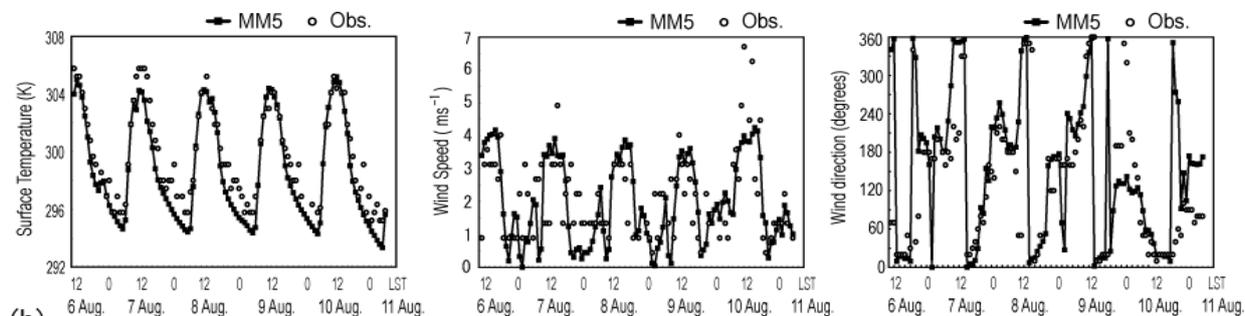
ジャワ島西部での乾季と雨季の海陸風の特徴をまとめると、乾季はほぼ毎日海陸風等の局地風が繰り返され、雨季には全日数の約30%に海風が出現することが分かった。

### 2) 化学輸送計算

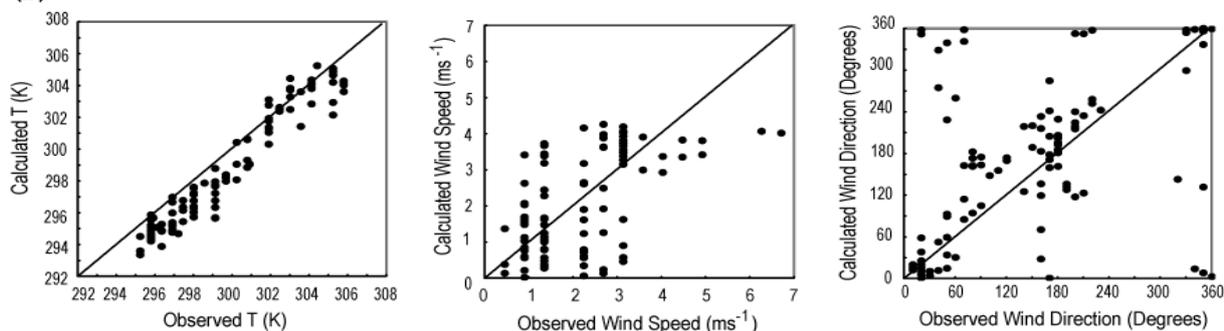
乾季の2004年8月7日-18日まで化学輸送計算を行った。先述のように降水はなく、ジャカルタ

付近では、連日、いわゆる海陸風場が展開したがこのような条件での大気汚染濃度分布とそのダ

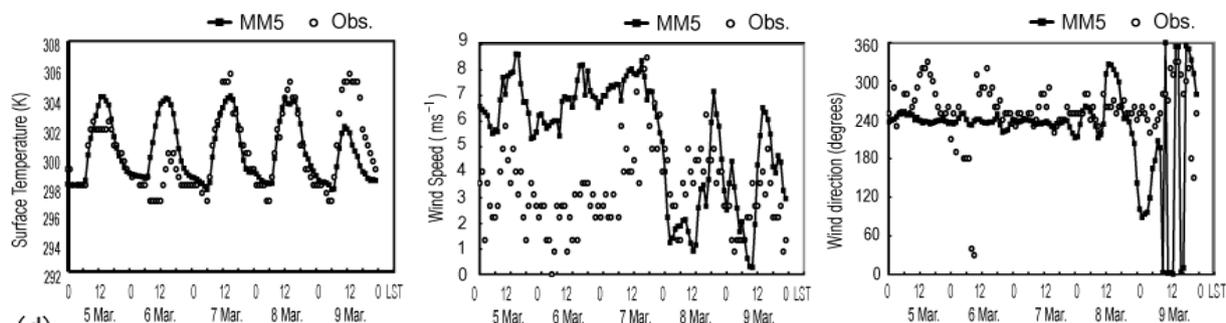
(a) In the dry season: 6–11 August 2004



(b)



(c) In the rainy season: 5–9 March 2001



(d)

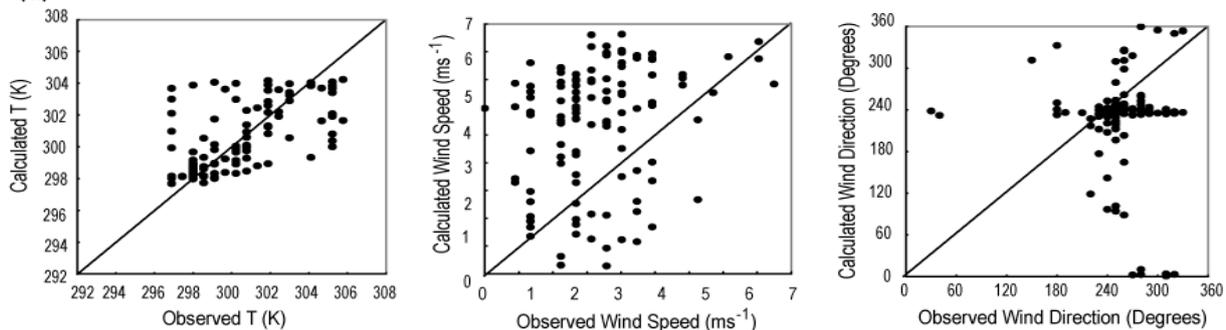


図13 Sukarno Hatta 空港における気温観測値および計算値の比較：(a)、(b)は乾季（2004年8月6-11日）。(c)、(d)は雨季（2001年3月5-9日）。(a)と(c)に気温、風向、風速が示されている。(b)と(d)は観測値と計算値のスクアットプロット。(a)と(c)では計算値が実線、観測値は○で示されている。



べた。図19が、ジャカルタの中心部を通る南北の断面内でのオゾンの8月9日0時から10日24時（11日0時）までの、ほぼ3時間ごとの変化を示す。ジャカルタ市域では、夜中から午前中にかけて低濃度が続き、午後、海上で反応生成したオゾンが海風と共にジャカルタにもどって来ることを示している。そして同じことが翌日も繰り返される。夜間に陸域で排出された前駆物質が陸風で海上に運ばれ、翌日もどって来る事を示唆する。実際、前駆物質であるNO<sub>2</sub>の同様の濃度図（図20）はこのことを示している。

図21は、ジャワ海沿岸部、ジャカルタ市中心部および海岸線から60km内陸に位置する

山麓等3点でのオゾン鉛直分布の2004年8月9日の日中の変化を示すが、特徴的であるのは、山越えの総観規模風の影響で海風の内陸への侵入が遅れ・制限されること、逆に夜間にジャワ海上にかなりの距離にわたって多量の前駆物質が流出することから、光化学反応によるオゾン生成がジャワ海沿岸部を中心に行われることを推測させることである。さらに、海風層の厚みが制限され、

8月9日のオゾンのN-S鉛直断面

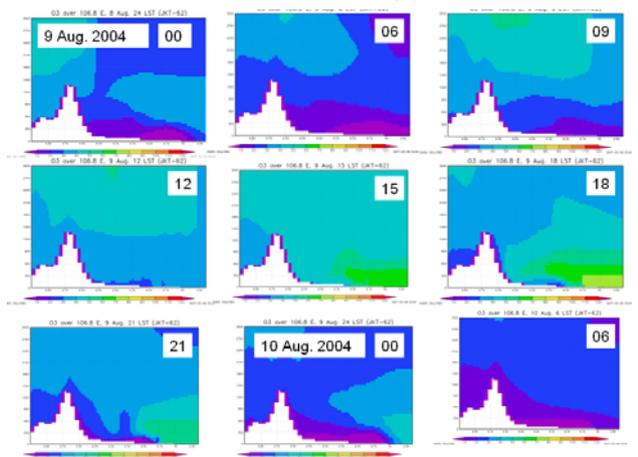


図19 ジャカルタ上空の8月9日0時～8月11日0時の間のオゾン計算値のN-S鉛直断面。横軸は、南緯6.8度（左目盛り数字）から、5.4度（右目盛り数字）までを、0.2度刻みで示す。縦軸は、高度0-3000mを300m刻みで示す。

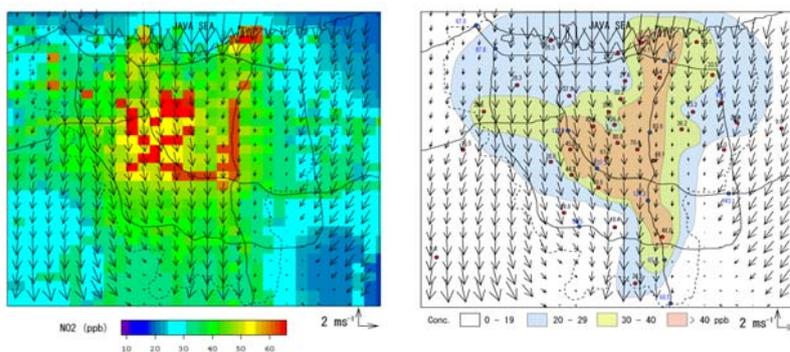


図17 NO<sub>2</sub>の1週間平均値の計算値(左)と実測値(右)。

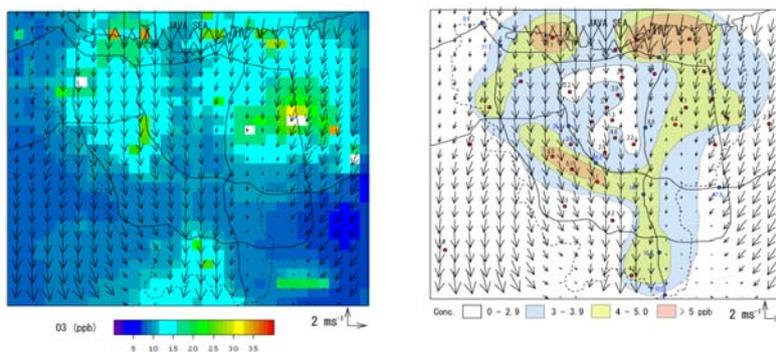
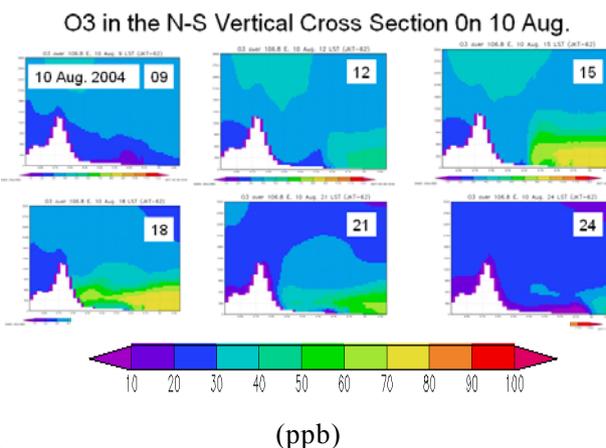


図18 SO<sub>2</sub>の1週間平均値の計算値(左)と実測値(右)。

8月10日のオゾンのN-S鉛直断面



ジャカルタ市での日中の高オゾン濃度層が500~600mと比較的薄いことが示唆されている。

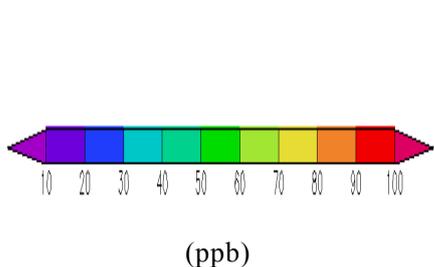


図20 8月9日1時から8月10日0時までのNO<sub>2</sub> 計算値のN-S 鉛直断面。縦軸、横軸は図19に同じ。

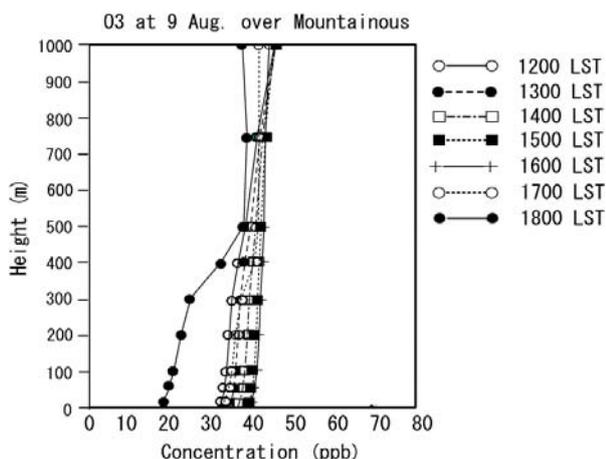
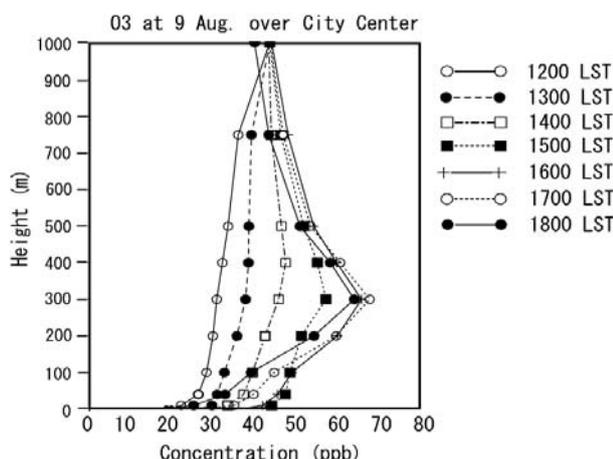
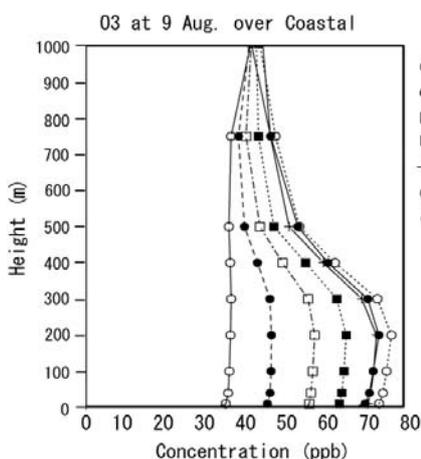
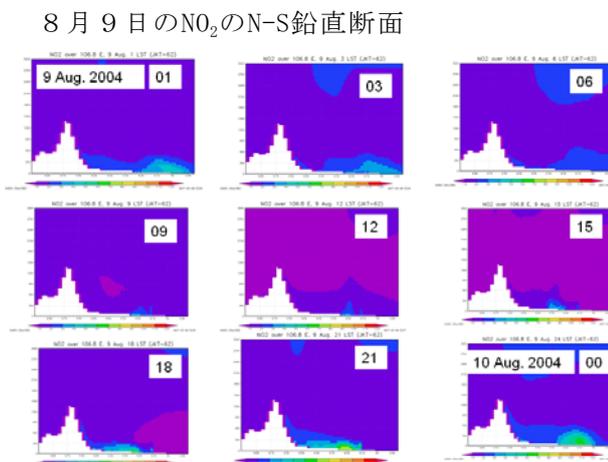


図21 オゾン鉛直分布の日変化（2001年8月9日）。図は、左上から右回りにジャワ海沿岸、ジャカルタ中心部、ジャワ海沿岸から60km内陸の山麓部。

5. 本研究により得られた成果

(1) 科学的意義

全球エアロゾルモデルの開発、計算と実測値の1ヶ月にわたる広範な比較によりモデルの開発と精度の向上を行った。これを用いて、諸都市のバックグラウンド濃度を形成する長距離寄与分の推定を行った。粒子状物質の総質量濃度だけでなく、その組成についても表示し、中国北部諸

都市に対する土壌粒子の影響の相対的な割合、南部内陸都市でのバイオマス燃焼等を起源とする粒子の寄与、日本の都市でのエアロゾル組成の特徴をモデルは概ね再現した。以上、不備な点もあるが、ホームメイドの全球エアロゾルモデルの開発を行い、大都市のバックグラウンド濃度予測のツールとして一定の成果を上げたと考える。

また、東南アジアの熱帯島嶼部のメガシティ・ジャカルタの大気汚染制御・大気環境についてはまとまった研究がほとんどなく、そのバックグラウンドとなる局地風場について系統的な数値計算に基づく研究もあまりなかったが、本研究によってかなり明らかになった。また、乾季の安定した総観気象場のもとで、日周期で起きる大気汚染の特徴を明らかにした。ある意味で、日本など中緯度で生じていることと違いはなかったわけであるが、大規模気象場の性質から、より長期的に同じことが繰り返されるのが特徴であることがわかった。

## (2) 地球環境政策への貢献

エアロゾルの全球輸送モデルについての研究は、ホームメイドの全球輸送/反応/沈着モデルを開発し、東アジア（特に、中国）の諸都市のエアロゾル濃度に対する土壌粒子、バイオマス火災、植生、火山など自然要因の寄与を推定する簡便なツールを作成したが、現在、雲南省昆明などの大気汚染と絡めてヒマラヤの周辺部で南アジアと東アジアを地球規模で結ぶこの地帯の大気化学物質輸送の共同研究を昆明理工大学の研究者等と共同で実施しつつある。

熱帯島嶼部のメガシティ・ジャカルタの大気汚染研究については、JICA は継続的にインドネシアの環境改善のために資金援助をしている。本研究の一部は、バンドン工科大学講師 Asep Sofyan 氏の豊橋技術科学大学での博士学位研究として行われ、2007年12月の学位取得後、氏はバンドン工科大学に復帰し、本研究の成果を活かし、コンサルティング・研究を通じてジャカルタおよびインドネシアの大気環境制御に活発に貢献している。これまでも、EMCやインドネシア環境省等で研究内容を講演し高い評価を受けており、ジャカルタおよびインドネシアの大気環境の改善に役立つと考えられる。

## 6. 引用文献

- 1) Kitada, T., et al. (2000). Production and transport of ozone in local flows over central Japan –Comparison of numerical calculation with airborne observation. *Air Pollution Modelling and Its Application XIII*, Kluwer Academic/Plenum Pub., 95-106.
- 2) Kitada, T., and Regmi, R.P. (2003). Dynamics of air pollution transport in late wintertime over Kathmandu valley, Nepal: As revealed with numerical simulation. *J. Applied Meteorology*, **42**, 1770-1798.
- 3) Kitada, T., et al. (1983): The locally-one-dimensional, finite element method (LOD-FEM) for atmospheric transport/chemistry calculations. *Numerical Methods in Engineering*, Pluralis, Paris, France, Vol. 1, 223-233.
- 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. *Journal of Global Environment Engineering, JSCE*, **4**, 1-29.

- 5) Kitada, T., et al. (2001): Numerical simulation of the transport of biomass burning emissions in Southeast Asia-September and October, 1994. *Journal of Global Environment Engineering*, **7**, 79-99.
- 6) Gillete, D., and Passi, R.(1988): Modeling dust emission caused by wind erosion. *J. Geophys. Res.*, **93**, 14233-14242
- 7) Shao, Y. (2000). *Physics and Modelling of Wind Erosion*, Kluwer Academic Publishers, 393p.
- 8) GEIA (Global Emission Inventory Activity) (2002). <http://weather.engin.umich.edu/geia/index.html>
- 9) Cooke, W. F., Liousse, C., Cachier, H., and Feichter, J. (1999). Construction of a  $1^\circ \times 1^\circ$  fossil fuel emission dataset for carbonaceous aerosol and implementation and radiative impact in the ECHAM-4 model. *J. Geophys. Res.*, **104**, 22137-22162.
- 10) IPCC (2001). *Climate Change 2001: The Scientific Basis*, Houghton, J.T., Ding, Y., Griggs, D.J., Noguer, M., van der Linden, P.J., Dai, X., Maskell, K., and Johnson, C.A. (eds.), Cambridge Univ. Press, NY, USA, 881p.
- 11) Kurata, G., et al. (2004). Relationship between Emission Sources and Airmass Characteristics in East Asia during TRACE-P Period, *Atmos. Environ.*, **38**, 6977-6987.
- 12) Riehl, H. (1979) *Climate and Weather in the Tropics*, Academic Press, 611p.
- 13) Dudhia, J. and Gill, D. (2005): *PSU/NCAR Mesoscale Modeling System Tutorial Class Notes and User's Guide: MM5 Modeling System Version 3*.
- 14) Carmichael, G.R., Peters, L.K., Kitada, T. (1986): *Atmos. Environ.*, **20**, 173.
- 15) Kitada, T., Lee, P.C.S., Ueda, H. (1993): *Atmos. Environ.* **27A**, 1061.
- 16) Grell, G.A. (1993) Prognostic evaluation of assumptions used by cumulus parameterizations. *Mon. Wea. Rev.*, **121**, 764-787.
- 17) Hong, S.Y., Pan, H.L. (1996) Nonlocal boundary layer vertical diffusion in a medium-range forecast model. *Mon. Wea. Rev.*, **124**, 2322-2339.
- 18) Reisner, J.R., Rasmussen, R.J., Bruintjes, R.T. (1998) Explicit forecasting of supercooled liquid water in winter storms using the MM5 mesoscale model. *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, **124B**, 1071-1107.
- 19) Mlawer, E.J., Taubman, S.J., Brown, P.D., Iacono, M.J., Clough, S.A. (1997) Radiative transfer for inhomogeneous atmosphere: RRTM, a validated correlated-k model for the longwave. *J. Geophys. Res.*, **102**, 16663-16682.
- 20) Kitada, T., Shirakawa, Y., Wagatani, K., Kurata, G., and Yamamoto, K. (2007) , *Developments in Environmental Science*, Vol. 6, C. Borrego and E. Renner (Eds.), Elsevier, 144-157.
- 21) Sofyan, A., Kitada, T., and Kurata, G. (2007) Difference of sea breeze in Jakarta between dry and wet seasons: Implication in NO<sub>2</sub> and SO<sub>2</sub> distributions in Jakarta, *Journal of Global Environment Engineering*, JSCE, **12**, 63-85.
- 22) Sofyan, A., Kitada, T., and Kurata, G. (2008) Numerical study of NO<sub>x</sub> and SO<sub>x</sub> dynamics under land/sea breezes in dry season in Jakarta, Indonesia. *Journal of Global Environment Engineering*, JSCE, **13**, 69-96.
- 23) Kitada, T., Sofyan, A., and Kurata, G. (2008) Numerical Simulation of air pollution transport under sea/land breeze situation in Jakarta, Indonesia in dry season, *Air Pollution Modelling and Its Application XIX*, 244-253, Springer, in press.

## 7. 国際共同研究等の状況

中国とは、JSPS-MOE の支援を受け京大 - 清華大学を拠点とした拠点大学学術交流「都市環境」のグループ2「大気汚染」で、清華大学環境科学工程系 Jiming Hao 教授、昆明理工大学 Ping Ning 教授らと共同研究を行っている。北田は、グループ2 の日本側グループリーダーを務めている。清華大学 Hao 教授は学術交流全体の中国側のコーディネーターであり、かつグループ2 の中国側リーダーでもある。

## 8. 研究成果の発表状況

### (1) 誌上発表

<論文（査読あり）>

- 1) Guttikunda, S. K., Tang, Y., Carmichael, G. R., Kurata, G., Pan, L., Streets, D. G., Woo, J.-H., Thongboonchoo, N., Fried, A.: *Journal of Geophysical Research*, **110**, doi:10.1029/2004JD004921 (2005) “Impacts of Asian megacity emissions on regional air quality during spring 2001”
- 2) Asep Sofyan, T. Kitada, and G. Kurata : *Journal of Global Environment Engineering*, Vol. 12, 63-85 (2007) “Difference of sea breeze in Jakarta between dry and wet seasons: Implication in NO<sub>2</sub> and SO<sub>2</sub> distributions in Jakarta”
- 3) T. Kitada, Y. Shirakawa, K. Wagatani, G. Kurata, and K. Yamamoto : *Developments in Environmental Science*, Vol. 6, 144-157 (2007) “Predicted aerosol concentrations over East Asia and evaluation of relative contribution of various sources with global chemical transport model”
- 4) Asep Sofyan, T. Kitada, and G. Kurata : *Journal of Global Environment Engineering*, Vol. 12, 63-85 (2007) “Difference of sea breeze in Jakarta between dry and wet seasons: Implication in NO<sub>2</sub> and SO<sub>2</sub> distributions in Jakarta”
- 5) Asep Sofyan, T. Kitada, and G. Kurata : *Journal of Global Environment Engineering*, Vol. 13, 69-96 (2008) “Numerical study of NO<sub>x</sub> and SO<sub>x</sub> dynamics under land/sea breezes in dry season in Jakarta, Indonesia”

<その他誌上発表（査読なし）>

- 1) Toshihiro Kitada : *Environmental Modeling and Radioecology*, pp.134-142, ISBN 978-4-9980604-9-9C3040(2007) “Meso-scale modeling of air pollution transport/chemistry/deposition and its application”
- 2) Toshihiro Kitada : *Effects of Pollutants on Atmospheric Environment*, Yutaka Ishizaka & Toshihiro Kitada (Eds.), Nagoya University/UNESCO; ISBN 4-9980619-5-X(2006) “Chapter 1: Basics on transport processes of air-pollutant and their modeling in the atmosphere pp.1 – 38 ; Chapter 8: Numerical models for transport of air-pollutants in the atmosphere; pp.151 – 203”
- 3) 北田敏廣: エアロゾルの大気環境影響、笠原三紀夫、東野 達編、京都大学出版会(2007) 「8.4 気候影響評価のためのエアロゾル分布モデルの開発, 327-335」

### (2) 口頭発表（学会）

- 1) Asep Sofyan, Kitada, T., and Kurata, G., (2005), Characteristics of local flow in Jakarta, Indonesia

- and its implication in air pollution transport, *8 th ASAAQ*, San Francisco, USA, April 27-29, 10 pages.
- 2) Kitada, T., Shirakawa, Y., Kurata, G., and Yamamoto, K., (2005), Relative contribution of fuel combustion, biomass-fire, biogenic hydrocarbon, and soil dust emissions on aerosol concentration in cities over East Asia: numerical simulation of AGCTM, *The 9th-10th Joint Seminar of JSPS-MOE Core University Program on Urban Environment*, Kunming, China, Oct 20-21, pp. 409-416
  - 3) Kurata, G., Kitada, T., (2005), Estimation of the contribution of long-range transport from East Asia to the urban pollution in Japan, *The 9th-10th Joint Seminar of JSPS-MOE Core University Program on Urban Environment*, Kunming, China, Oct 20-21, pp.403-408
  - 4) Kurata, G., Kitada, T., (2005), Estimation of the Contribution of Long Range Transport from East Asia to the Urban Pollution in Japan, *The 2nd Seminar of JSPS-VCC*, Kusatsu, Shiga, Japan, Sep. 22-23
  - 5) Kitada, T., (2006), Global chemical transport model for particulate matter: relative contribution of fuel combustion, biomass-fire, biogenic hydrocarbon, and soil dust emissions on aerosol concentration in cities in East Asia, *Proceedings of 8 th Workshop on the Transport of Air Pollutants in Asia*, IIASA, Laxenburg, Austria, Jan. 18-19, 5pages.
  - 6) Kurata, G., Kitada, T., (2006) , 6th International Symposium on Advanced Environmental Monitoring, “Estimation of the emission ratio of atmospheric pollutants from East Asia by using aircraft observation data and 3-D chemical transport model”
  - 7) Kitada, T., Shirakawa, Y., Wagatani, K., Kurata, G., Yamamoto, K.: Preprints, (2006) , NATO/CCMS International Technical Meeting on Air Pollution Modelling and its Application, “Predicted aerosol concentrations over East Asia and evaluation of relative contribution of various sources with global chemical transport model”
  - 8) Kitada, T., R. Suzuki, M. Sakai, and T. Shirai, (2007) , 13th seminar of JSPS-MOE core university program on urban environment, “A statistical analysis of the effect PM10 concentration on premature mortality rate in Nagoya, Japan”
  - 9) Kitada, T., Asep, Sofyan, G. Kurata, (2007), Planning of urban energy and environmental systems, “Numerical simulation of pollution transport under sea/land breeze situation in Jakarta, Indonesia in dry season,”
  - 10) Kurata, G., and T. Kitada, (2007), Planning of urban energy and environmental systems, “Evaluation of the contribution of ozone and its precursors from east Asian countries onto the urban air pollution in Japan”
  - 11) Kurata, G., and T. Kitada, (2007), The 10th International Conference on Atmospheric Sciences and Applications to Air Quality, “Performance evaluation of the chemical transport model for East Asia by using backward trajectory analysis”
  - 12) Kitada, T., Asep, Sofyan, and G. Kurata,, (2007), 29<sup>th</sup> NATO/SPS International Technical Meeting on Air Pollution Modelling and Its Application, “Numerical Simulation of air pollution transport under sea/land breeze situation in Jakarta, Indonesia in dry season”
  - 13) Kitada, T., (2008) , 9 th Workshop on the Transport of Air Pollutants in Asia, “An example of

meso-scale modeling of acidic snow over the Sea of Japan”

(3) 出願特許

なし

(4) シンポジウム、セミナーの開催（主催のもの）

なし

(5) マスコミ等への公表・報道等

なし

(6) その他

なし