

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成25年 5月 8日現在

機関番号：17102

研究種目：基盤研究（A）

研究期間：2009～2012

課題番号：21241003

研究課題名（和文） 対流圏物質輸送モデルへのデータ同化手法の導入と新展開

研究課題名（英文） Introduction of data assimilation method for chemical transport modeling over East Asia and its new development

研究代表者

鶴野 伊津志（UNO ITSUSHI）

九州大学・応用力学研究所・教授

研究者番号：70142099

研究成果の概要（和文）：

対流圏物質輸送モデル CMAQ と GEOS CHE を用いて、非線形反応系でも適用できる Higher Direct-Decouple Method-3D (HDDM) によるソース・リセプター解析と、発生や初期条件感度を最適化する Green 関数最適化手法を組み合わせた研究を行った。環境監視衛星データの NO₂、O₃、CO と HDDM 感度解析法を用いたアジア域の SO₂/SO₄、O₃ などのソース・リセプター解析と発生源逆推計を行った。更に、衛星計測結果を拘束条件としたグリーン関数感度解析法を用いて、アジア域の CO の排出量のインバース計算を行った。

研究成果の概要（英文）：

Chemical transport models (CTMs) of CMAQ and GEOS-CHEM were used to study the source-receptor analysis based on Higher Direct-Decouple Method-3D (HDDM) and modeled green function optimization method to optimize the emission strength and initial condition of CTM. Source-receptor analysis and emission inversion based on satellite trace gas observation and HDDM was used to study the impact of Chinese air pollutant emission to downwind countries. MOPITTO CO observation and green function optimization was used to estimate the year-by-year variation of Chinese CO emission intensity.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	10,700,000	3,210,000	13,910,000
2010年度	7,600,000	2,280,000	9,880,000
2011年度	6,100,000	1,830,000	7,930,000
2012年度	6,100,000	1,830,000	7,930,000
年度			
総計	3,0500,000	9,150,000	3,9650,000

研究分野：複合新領域

科研費の分科・細目：環境学・環境動態解析

キーワード：物質循環、データ同化、モデル解析

1. 研究開始当初の背景

地上観測や衛星データと最新のデータ同化手法を駆使して初期濃度、境界濃度の推定、発生源の逆推定（インバース）する研究は、

学問的に非常に進んだ知識が必要である。アジア域では悪化する環境問題の解決のために社会的な要求の強い一種の花形的な研究テーマであるが、衛星計測、発生源推定、物

質輸送モデルを統合化する研究は十分に行われていない。

申請者の研究グループは、衛星データの解析と平行して、4次元データ同化手法を用いたアジア域のCOや黄砂の初期濃度や境界・発生条件、計算手法の確立を行ってきた。先行研究で採用した4次元変分法(アジョイント法;以下4DVAR)によるデータ同化手法は、空間的・時間的変動を有する観測データという物理・化学法則にもとづく世界を、我々が持っている利用可能な最大限の知識を用いて、出来るだけ高精度で定量的・完全に記述するポテンシャルを有しており、O₃や黄砂のような非線形な化学反応過程を伴わない物質について衛星観測結果をデータ同化に適用する準備はほぼ整っている。

2. 研究の目的

直接分離解析法 DDM-3D(direct decouple method for 3D)+グリーン関数最適法などの、非線形反応形に適用可能で、反復計算が不要なデータ同化手法に焦点を絞り、これらの新しい手法を最新の領域気象結合化学輸送モデルWRF/Chemや、対流圏化学輸送モデルCMAQに実装し、アジア域を中心にした解析を行う。

具体的には、SCIAMACHY, GOME-2, Auro/OMI, AIRSなどの極軌道衛星からトップダウン的に得られるNO₂, CO, HCHO, O₃などのカラム濃度を、アジア域を対象に地球環境フロンティア研究センターと国立環境研が経済統計などからボトムアップで作成したEmission Inventory (REAS)を利用した化学物質輸送モデル結果と比較・解析し、両推定の整合性や不一致性を探る。続いて、衛星計測結果を拘束条件として、上述のデータ同化手法で排出量のインバース推定を行い、年間及び月毎の排出量の推計を試みる。

研究では、NO₂以外にもSO₂について同手法の実現可能性も調べる。ほぼリアルタイムに得られる衛星計測をもとに、経年的に変化する排出量推計の更新を物質輸送モデルと統合して進めることで、アジア域で急激に変化する大気環境問題に迅速に対応できるシミュレーション手法を確立する。

3. 研究の方法

対流圏物質輸送モデルCMAQ (Community Multi-Scale Air Quality Model)を基本モデルとした。反応系はSAPRCを用いるがこのスキームは非常に非線形であり、通常の4次元変分法に基づくAdjoint法の適用は長期積分には困難を伴う。そのため、本研究では非線形でも比較的用意に適用できるHigher Direct-Decouple Method-3D (HDDM-3D)によるソース・リセプター解析と、発生や初期条件感度を最適化するGreen関数最適化手法を

組み合わせた研究を進めた。CMAQの他に、GEOS CHEM 全球化学輸送モデルも用いた。これは詳細な化学反応を含むモデルと、線型反応系にタグ輸送機構を加味したモデルが利用できる。計算領域は、東アジア域を対象としてCMAQは80km格子を設計し適用した。

データ同化に用いるために、環境監視衛星データの整備を進めた。OMI衛星からのNO₂, O₃, AIRSやMOPITTO衛星のCO, SCHIAMACHY/GOME-2衛星センサーからのNO₂, HCHOデータを整理した。これらの環境監視衛星で計測されたカラム濃度は、リトリーバルのアルゴリズムや観測頻度が異なる。そのため、まず、誤差の解析を行い、その結果をもとに季節変動・年間平均値の評価を行い、東アジア域でのNO_xやCO排出量のデータベース化と検証、問題点の整理を行い、最終的に2000-2010年までの経年変化の抽出を行った。

まず、衛星計測結果を拘束条件としたデータグリーン関数感度解析法を用いて、アジア域のCOの排出量のインバース計算を行った。計算期間は計算負荷を加味して、月単位に地上モニタリング結果などと検証し、月毎や季節毎の排出量の推計を行った。結果の解析をもとに、インバース推定期間を2000-2008年に拡張し、衛星データ同化による排出量(トップダウン推定)と、REASインベントリーのようなエネルギー統計積み上げ型のボトムアップ推定の差異を示し、両者の整合性の解析を行った。

続いて、HDDM感度解析法を用いたアジア域のSO₂/SO₄, O₃などのソース・リセプター解析と発生源逆推計を行った。

4. 研究成果

中国における一酸化炭素(CO)排出量に対して、グリーン関数法を応用した排出量逆推定を2005-2010年の6年間にわたって行った。拘束条件にはMOPITT衛星センサーで観測されたCOの鉛直プロファイルを、感度計算には全球化学輸送モデルGEOS-Chemのタグ付きシミュレーションを利用した。

得られた排出量に対して、逆推定に用いていない独立な地上観測データを用いた検証を行った。逆推定結果は冬・春季に見られた過小評価や相関係数などの各種統計値を改善し、得られた排出量が妥当であることを確認した。

逆推定結果を用いたモデル結果は、MOPITTによって観測されたCOの季節変動をよく再現した。特に、逆推定前は過小であった冬・春季における中国から東シナ海・日本列島への移流、春～秋季における中国中東部の高濃度COの再現性を大幅に改善していた。逆推定によって得られた中国におけるCO排出量は冬～春季で最大、夏季に最小となるダイナ

ミックな季節変動を見せた。春季は夏季に比べ50%以上も排出量が増加した。この季節変動の傾向は、他研究による推定量とも一致した。中国CO排出量は2005年よりそれぞれ、164.5、171.5、180.8、160.3、152.5、156.1 Tg/yearと逆推定された。2005 - 2007年と増加し、2007年をピークに2年連続で減少し、2010年は増加に転じた。これは北京オリンピックによる排ガス規制や世界的景気後退の影響を受けたためだと考えられる。本研究で得られた排出量は、先行研究で得られた推定量とも4%以内の差で一致した。

次に、HDDM (Higher-order Decoupled Direct Method)を東アジア域のソース・リセプター解析に初めて適用し、2007年春季の広域越境大気汚染の事例に応用した。従来、排出量変化に対する化学成分濃度の応答を評価するには、排出量を様々に変化させてその応答を見るBrute Force Method(BFM)が主流であったが、HDDMでは1回のモデル計算で排出量変化に対する化学成分濃度の非線形的な応答も含めて求められる。HDDMによる感度解析の結果に基づきO₃感度レジームを判定し、越境大気汚染時にはNO_x sensitive領域にあったことを示した。また、排出量変化に対する化学成分濃度の応答を評価するparametric scalingを用いて各感度レジームでO₃等値線図を作成し、近年の東アジア域のNO_x排出量の増大が越境大気汚染時のO₃濃度上昇の要因となったことを示した。さらに、Zero-out contribution(ZOC)を用いて非線形性も考慮した発生源寄与を解析し、越境大気汚染時には高濃度O₃の30%程度が中国の人為起源大気汚染物質由来として説明でき、特に中国華北平原(central eastern China; CEC)がその5割以上を占めていることを明らかとした。排出量をゼロとして発生源寄与を見積もる従来のゼロ・エミッション法と比較し、ゼロ・エミッション法はZOCよりも5%程度発生源寄与を過大評価することを示した。

季節的な発生源寄与の変化を調べるために、2007年1, 4, 7, 10月においてO₃濃度が高濃度となったエピソードを対象としてHDDM感度解析法を用い、発生源寄与の季節変動について評価した。O₃前駆気体の発生源領域として中国・韓国・日本の3国を設定した。これらの領域の人為起源のNO_xおよびVOC排出量のO₃濃度への感度をHDDM感度解析法により求め、ZOCに基づき発生源寄与を評価した。ZOCにより得られた発生源寄与をエピソード平均した6つのEANET観測地点について結果を検討した。その結果、春季には中国の寄与が卓越する結果が得られた。日本域におけるO₃濃度の季節変動は春と秋に2回ピークをもつことが知られているが、秋季については春季と異なり、日本の寄与も中国と同程度

に大きかった。光化学反応が進む夏季には、いずれの排出源もO₃濃度に大きく寄与していた。一方で冬季には発生源寄与はエピソードを通じて負の値を示した。冬季は日本域がVOC sensitive領域にあり、NO_x titrationが加速されてO₃濃度を下げる方向にはたらいことを明らかにし、採用したHDDM法の有効性を確認した。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 10 件)

- ① Itahashi, S., I.Uno and S.-B.Kim, 2013: Seasonal source contributions of tropospheric ozone over East Asia based on CMAQ/HDDM, *Atmospheric Environment*, 70, 204-217. (査読有)
- ② 鶴野伊津志, 弓本桂也, 大原利真, 黒川純一, 2013: タグ付きCO輸送モデルを用いたアジア域のソース・リセプター解析. 大気環境学会誌, 48, 123-132. (査読有)
- ③ 鶴野伊津志, 弓本桂也, 大原利真, 黒川純一, 2013: タグ付き輸送モデルによるアジア域のCO濃度と発生源寄与の長期解析. 大気環境学会誌, 48, 133-139. (査読有)
- ④ Itahashi, S., I.Uno and S.-T.Kim, 2012: Source Contribution of Sulfate Aerosol over East Asia estimated by CMAQ-DDM. *Environ. Sci. Technol.*, 46, 6733-6741, dx.doi.org/10.1021/es300887w. (査読有)
- ⑤ Itahashi, S., I.Uno, K.Yumimoto, H. Irie, K. Osada, K. Ogata, H. Fukushima, Z. Wang, and T. Ohara, 2012: Interannual variation in the fine-mode MODIS aerosol optical depth and its relationship to the changes in sulfur dioxide emissions in China between 2000 and 2010, *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 2631-2640, doi:10.5194/acp-12-2631-2012. (査読有)
- ⑥ 板橋秀一, 鶴野伊津志, S.-T. Kim, 2012: 感度解析手法 HDDM の東アジアスケールのソース・リセプター解析への応用. 大気環境学会誌, 47, 205-216. (査読有)
- ⑦ 弓本桂也, 鶴野伊津志, 2012: グリーン関数法を用いた一酸化炭素排出量の長期間逆推定. 大気環境学会誌, 47, 162-172. (査読有)
- ⑧ Yamaji, K., I.Uno, and H. Irie: Investigating the response of East Asian ozone to Chinese emission

changes using a linear approach, *Atmospheric Environment*, 55, 475-482, 2012. (査読有)

- ⑨ Itahashi, S., K. Yumimoto, I. Uno, K. Eguchi, T. Takemura, Y. Hara, A. Shimizu, N. Sugimoto and Z. Liu: Outflow Structure of Dust and Air Pollutants over springtime East Asia, *Geophys. Res. Lett.*, 37, L20806, doi:10.1029/2010GL044776. (査読有)
- ⑩ Kurokawa, J., Yumimoto, K., Uno, I., and Ohara, T., 2009: Adjoint inverse modeling of NO_x emissions over eastern China using satellite observations of NO₂ vertical column densities, *Atmos. Environ.*, 43, 1827-1944. (査読有)

[学会発表] (計 12 件)

- ① 板橋秀一・鶴野伊津志・Kim Soontae、感度解析手法 HDDM を用いた東アジア域光化学オゾンの発生源寄与の季節変動、第53回大気環境学会年会、2012年09月13日
- ② 鶴野伊津志、物質輸送モデルによるアジア域のソース・リセプター解析、日本地球化学会、2012年09月13日
- ③ 板橋秀一、鶴野伊津志、Soontae Kim、中国の SO₂ 排出量と東アジア域のエアロゾル光学的厚さの経年変化：(2) DDM-3D による発生源感度解析、大気環境学会年会、2011年09月16日
- ④ 板橋秀一、鶴野伊津志、弓本桂也、入江仁士、長田和雄、大原利眞、中国の SO₂ 排出量と東アジア域のエアロゾル光学的厚さの経年変化：(1) モデルの感度実験と衛星計測結果を用いた SO₂ 排出量の逆推定、大気環境学会年会、2011年09月16日
- ⑤ 鶴野伊津志、板橋秀一、原由香里、東アジア域のエアロゾル光学的厚さの経年変化 - リモートセンシングと化学輸送モデルの統合解析 -、大気環境学会年会、2011年09月14日
- ⑥ S. Itahashi, I. Uno, K. Yumimoto, H. Irie, H. Fukushima and Z. Wang, The Recent Trend of Aerosol Optical Thickness (AOD) over East Asia during 2000-2010, Acid Rain 2011 / The 8th International Conference on Acid Deposition, 2011年06月18日
- ⑦ Y. Hara, A. Shimizu, I. Uno, N. Sugimoto, I. Matsui, J. Kurokawa and T. Ohara, Spherical aerosols distribution and the long-term trend in eastern Asia derived from Lidar measurements, passive satellite remote sensing and a chemical transport model, Acid Rain 2011 / The 8th International Conference on Acid Deposition, 2011年06月17日
- ⑧ T. Ohara, J. Kurokawa and I. Uno, Recent trends of air pollutants emissions in East Asia: REAS 2.0, Acid Rain 2011 / The 8th International Conference on Acid Deposition, 2011年06月16日
- ⑨ 鶴野伊津志、東アジア域における越境輸送大気汚染とエアロゾル光学的厚さの経年変化、大気環境学会、2011年01月28日
- ⑩ S. Itahashi, I. Uno, K. Yamaji, A. Takami, K. Osada, H. Furutani, M. Uematsu, Numerical analysis of long-range transboundary pollution during the 2008 W-PASS field campaign at Cape Hedo, Okinawa, 2010 AGU Fall Meeting, 15 Dec., 2010
- ⑪ K. Yumimoto, I. Uno, K. Eguchi, T. Takemura, Z. Liu, A. Shimizu, N. Sugimoto, Elevated Large-Scale Dust Veil Originated in the Taklimakan Desert: Intercontinental transport and 3-dimensional structure captured by CALIPSO and regional and global models, International Symposium on Atmospheric Light Scattering and Remote Sensing, July 14, 2009
- ⑫ 板橋秀一、鶴野伊津志、弓本桂也、大原利眞、化学物質輸送モデル CMAQ と MODIS エアロゾルセンサーから得られた日本周辺域のエアロゾル光学的厚さの経年変化、第51回大気環境学会、2010年9月10日

6. 研究組織

(1) 研究代表者

鶴野 伊津志 (UNO ITSUSHI)
九州大学・応用力学研究所・教授
研究者番号：70142099

(2) 研究分担者

竹村 俊彦 (TAKEMURA TOSHIHIKO)
九州大学・応用力学研究所・准教授
研究者番号：90343326
(H21-22 年度)

広瀬 直毅 (HIROSE NAOKI)
九州大学・応用力学研究所・教授
研究者番号：70335983

山地 一代 (YAMAJI KAZUYO)
海洋研究開発機構・研究員
研究者番号：40399580

弓本 桂也 (YUMIMOTO KEIYA)
気象研究所・研究官
研究者番号：50607786

(H23-24 年度)

(3) 連携研究者

大原 利真 (OHARA TOSHIMASA)

国立環境研究所・地域環境研究センター長

研究者番号：80313930