

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24年 6月 5日現在

機関番号：13901

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2009～2011

課題番号：21710008

研究課題名（和文）

全球化学輸送モデルによる大気汚染物質の長距離輸送とその変動メカニズムの解明

研究課題名（英文）

Study of long-range transport of air pollutants and its changing mechanism using a chemistry coupled climate model

研究代表者

須藤 健悟 (SUDO KENGO)

名古屋大学・環境学研究科・准教授

研究者番号：40371744

研究成果の概要（和文）：本研究では、全球化学輸送モデルとタグ・トレーサー手法を用い、各種汚染域からの汚染物質の寄与とその過去30年間の変動を検討した。本モデル計算では、地表におけるオゾンや黒色炭素（BC）などのエアロゾルの長期変動傾向は、主に人間活動によるエミッション増加の結果であると示唆されたが、オゾンについては、熱帯域や南半球において、温暖化による長期的な気候変動の影響も顕著であった。本研究では、タグ・トレーサー手法を応用し、このような温暖化や ENSO などによる短期気候変動によるオゾン場の変動を輸送と化学のそれぞれの過程に分離した。この結果、ENSO によるオゾン変動は、輸送パターンの変動が主因であり、温暖化等の長期的な気候変動については、化学過程の変動が主に影響していることが示された。BC についても、極域への輸送量増加について、南米・アフリカや欧州・北米からの長距離輸送量の変化について定量化した。また、領域大気質モデル（WRF-chem）を用いたアジア域大気質とアジア外からの汚染物質流入量変動の影響の過去再現計算も実施し、全球モデルによる計算結果との整合性などを検証した。

研究成果の概要（英文）： This study investigates long-range transport of air pollutants from major source regions and its changes during the past three decades, using a chemistry transport model with tagged tracers. Our model simulation suggests that long-term increases in ozone and aerosols including black carbon (BC) are largely attributed to the changes in anthropogenic emissions. Our study also reveals significant roles of long-term climate change as associated with the global warming in ozone changes in the tropics and southern hemisphere. In this study, changes in ozone distribution associated with climate change including ENSO are further analyzed by isolating impacts of transport and chemistry processes with a tagged tracer approach. Our results show that ozone changes associated with ENSO are mainly due to change in transport, while long-term ozone changes as with the recent warming are largely influenced by chemical processes. For BC in polar regions, we quantify individual contributions of increased long-range transport from South America, Africa, Europe, and North America. To validate the global model results, this study also investigates air quality in Asia and inflow of air pollutants to Asia using a regional air quality model (WRF-chem).

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	1,500,000	450,000	1,950,000
2010年度	1,100,000	330,000	1,430,000
2011年度	900,000	270,000	1,170,000
総計	3,500,000	1,050,000	4,550,000

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： 大気汚染 越境汚染 大気化学 化学輸送モデル エアロゾル

1. 研究開始当初の背景

本研究は、大気環境や気候に重要な影響を及ぼす大気汚染物質（気体・エアロゾル成分）の領域～全球規模の輸送過程に着目し、その変動要因を定量的に解明するものである。大気中の光化学オキシダント（オゾンなど）、粒子状物質（エアロゾル、PM）、および酸性物質は人体・植生・農作物に有害であり、大気汚染の主原因となっている。このような大気環境・大気質（Air Quality）の問題においては、都市内の汚染だけでなく、他の汚染領域からの長距離輸送の影響も重要である。わが国については、冬季から春季にかけて、近年急速に経済発展する中国域からの光化学オキシダントの輸送や黄砂の飛来が明らかにされており（Uno et al., 2004; Yamaji et al., 2006）、領域規模の越境汚染として問題化している。しかしながら、このような汚染物質の輸送は領域規模に留まらず、半球規模あるいは全球規模で大気質に影響を及ぼしていることが研究代表者らによる研究などから判明している（Akimoto, 2003; Sudo and Akimoto, 2007）。とくに冬季・春季には、オゾン・エアロゾルや前駆気体成分の大気中寿命が長く、大陸間～半球規模の影響が無視できない。一方、このような長距離輸送を介した汚染物質の半球～全球規模の広がりは大気質のみならず、気候影響という観点からも大変重要である。上述の光化学オキシダントの主成分であるオゾンは強力な温室効果気体であり、エアロゾル成分も太陽・地球放射の吸収・散乱、雲・降水過程への影響を介して気候を大きく左右する可能性がある（IPCC, 2007）。したがって、大気質および気候の変動を理解・予測するためには、各汚染領域からの長距離輸送過程の定量的理解が不可欠である。

2. 研究の目的

本研究では、大気化学・エアロゾル・輸送過程と気候の同時シミュレーションが可能な化学・気候モデルにより、大気汚染物質分布の過去から現在までについての再現計算を行い、この間の汚染物質長距離輸送の変動に対して、(1) 汚染ソースの強度変化、(2) 気象場（循環場、水蒸気場など）の短期・長期変動による輸送場・経路の変化、および(3) 大気化学場の変化、の各要因がそれぞれどのように影響していたかを定量的に評価し、長距離輸送過程の複合的な変動メカニズムを明らかにする。

3. 研究の方法

本研究は、化学・気候モデル CHASER (Sudo et al., 2007) および、領域化学輸送（大気質）モデル WRF-Chem を用いた数値実験を軸として、大気汚染輸送過程の変動メカニズムを系統的に解明する。化学気候モデル CHASER (Sudo et al., 2002) の基本コンポーネントはオゾンやCO、NO_xなどの気体成分中心であるが、研究代表者らのこれまでの研究により、エアロゾル気候モデル SPRINTARS (Takemura et al., 2006) と結合し、エアロゾル計算も同時に行なうことができる。過去のエミッション変動については、基本的に EDGAR インベントリ (Olivier and Berdowski, 2001) を用いて入力データを作成し、他のインベントリ (RETRO, <http://retro.enes.org> 等) も併用し、全球的なエミッション変動を評価・検討した。

(1) まず、オゾン、CO、窒素酸化物 (NO_y)、硫黄酸化物 (SO_x)、黒色炭素エアロゾルなどの主要大気汚染物質に着目し、これらの全球分布および各領域からの輸送の変動（20世紀～現在）を(1)のタグ・トレーサー手法を併用した再現計算によりそれぞれ定量化する。特にヨーロッパ、北米、およびアジアなどの主要な領域を跨ぐ長距離輸送の経年変動に関しては、各種観測データも交えた詳細な評価を行なう。

(2) 次に、このような変動に対して、各汚染領域の工業化等に伴うエミッション増加などのソース強度の変動がどのような役割をしていたかを定量化する。さらに、この間の気候変動（年々変動および温暖化）が汚染物質の輸送経路や輸送過程中の化学反応にどのように影響していたかについても定量化を行ない、汚染物質長距離輸送の変動メカニズムについての総合的な理解を得る。

4. 研究成果

(1) 各種汚染物質の過去数十年の時系列変化：エミッション変動と温暖化の影響

まず、化学・気候モデル CHASER を用いて過去の大気汚染物質の再現計算を実施し、その評価・検証を行った。ここでは、1970-2005年を対象とした長期計算を対象とし、この間の気候変動（温暖化）の影響を分離検討するため、気象場を1970年代に固定した実験と、年々の気象場変動を考慮する実験を実施し

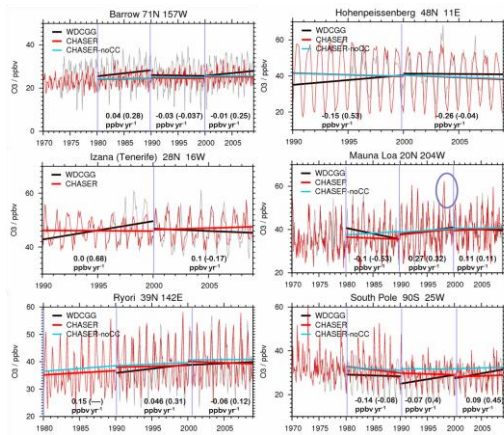


図 1. 観測 (WDCGG) とモデル計算 (CHASER) による各地点の地表オゾン濃度 (ppbv) の時系列変化。モデル計算結果については、気候変動を考慮する実験 (CHASER) と、考慮しない実験 (CHASER-noCC) からの結果を示す。

た。図 1 は、地表オゾンの計算結果について、各地点の観測データ (WDCGG) との比較を行った例である。観測にみられるオゾンの季節変動や経年傾向 (主に増加トレンド) がモデルにより定量的にもよく再現されている。また太平洋中部 (Mauna Loa; ハワイ) では、1997~1998 年にかけて、El Nino 現象に伴うオゾン濃度増大が観測されているが、これもモデルでよく捉えられていることが分かる。オゾン濃度の長期トレンド (ppbv yr⁻¹) については、温暖化を考慮した実験と、しない実験でそれほど顕著な違いは見られない。したがって、地表付近のオゾン濃度の長期変化傾向は主に、前駆汚染物質のエミッション増加の結果であると解釈されるのが妥当である。しかしながら、低緯度地域や南半球では、温暖化により 10% 程度の影響がみられる場合もあり、地域性に注意する必要がある。図 2 は、全球、北半球、南半球の地表オゾン濃度場に

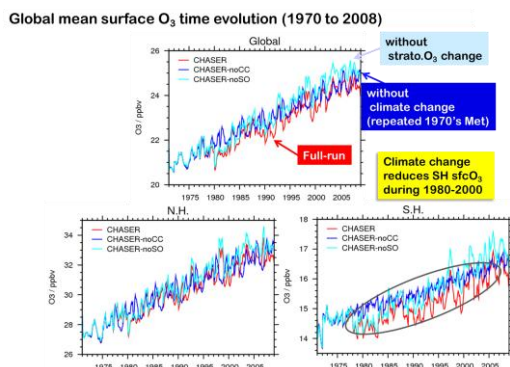


図 2. 全球 (Global)、北半球 (N.H.)、南半球 (S.H.) における地表オゾン濃度の時系列変化。全変動を考慮する実験 (CHASER) に加え、温暖化の影響を考慮しない実験 (CHASER-noCC) および、成層圏オゾン減少を考慮しない実験 (CHASER-noSO) の結果を示す。

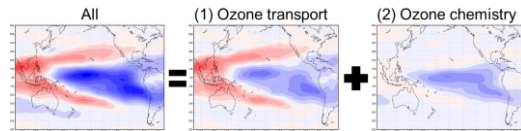


図 3. CHASER モデル内で計算された ENSO の正位相 (El Nino) 時の対流圏オゾンアノマリ (左) と、輸送場変動の寄与 (中)、および光化学過程変動の寄与 (右)。

ついて、モデル計算による時系列変化を示したものである。1980 年以降については、成層圏オゾン減少、温暖化ともに、南半球での影響が顕著である。北半球については、半球平均では顕著な温暖化影響はみられないが、実際には、海洋上で水蒸気増加によるオゾン減少、大陸上で気温上昇による光化学活発化によるオゾン増加などが計算されている。その他、黒色炭素 (BC) などのエアロゾル種についても同様な実験・評価を行ったが、エアロゾル種は概して、オゾンよりも大気中寿命が短く、複雑な化学過程を介さないため、長期トレンドに対する温暖化による影響は数%未満と限定的なものであった。

本研究では、温暖化影響が無視できないオゾンに着目し、気候変動がどのように対流圏内のオゾン濃度場に影響しているか、そのメカニズムを詳しく検討した。ここでは、タグ・トレーサー実験を応用し、オゾン場に対する温暖化影響を、オゾン自体の輸送パターンの変動と、温度変化や水蒸気変動に伴う光化学変動の二種類の寄与に分離した。この結果、特に重要な短期気候変動である ENSO については、輸送パターンの変動が主要な要因となっていることが分かった (図 3)。しかしながら、長期的な温暖化傾向に対する影響としては、特に下層のオゾン場に対しては、光化学が重要な役割を演じていることが計算により示された。

(2) 各ソース領域からの輸送の寄与の変動

つぎに、CHASER によるタグ・トレーサー計算を用い、各汚染 (ソース) 領域からの汚染物質の輸送量の変動を解析した。図 4 は、1980-2005 年を対象に、各種汚染域から日本へのオゾン輸送量の変動について解析した例である。長期的なオゾン増加傾向については、中国からの輸送の増加が特に大きな寄与を示している。朝鮮半島からの輸送や、日本国内でのオゾン増加も 0.5 ppbv 程度の寄与であり、無視できない。自由対流圏におけるオゾン生成の寄与には、欧州や北米からの長距離輸送の効果が大きく反映されているが、日本における長期的なオゾントレンドにも影響していることがわかる。中国からの輸送の増加は、日本に限らず、半球規模のオゾン濃度の長期トレンド (図 2) にも影響が大きい。

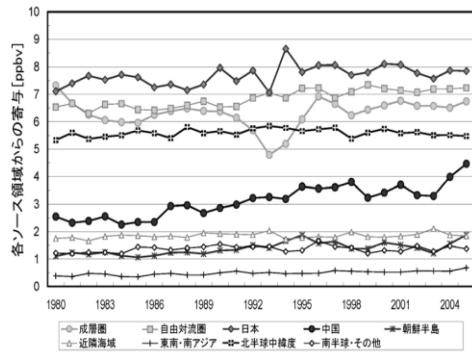


図4. 日本における年平均地表オゾン濃度に対する各領域からの輸送寄与 (ppbv) の変遷。

また、BCについても、同様にタグ・トレーサー計算を実施した。日本については、中国域からの輸送の寄与が70%以上と大きく、日本国内のエミッションの寄与も10-20%と顕著であった。BCについては、雪氷圏への沈着により、地表面のアルベド(反射率)低下を引き起こし、温暖化に正の影響を及ぼすと考えられるため、極域への長距離輸送が特に重要である。本研究で、各種汚染域から極域へのBCの輸送量の長期傾向を見積もったところ、南極域への輸送量増加としては、南米・アフリカの森林火災の影響と、南米の工業化によるエミッション増加が主因であることが示され、北極域については、北米・欧州のエミッション増加がBC輸送の主要な増加要因であり、中国でのエミッション増加や、シベリア～ロシアでの森林火災増加も無視できない寄与を及ぼしていることが示唆された。しかしながら、このようなBCの輸送量とその変動の評価には、BC表面が水溶性物質に被覆されるAging過程の扱いに大きく左右されることも示されており(水溶性物質の被覆により降水除去効率が增大するため)、極域での観測データを用いたさらなるモデル検証が必要である。

今後の課題として、このようなオゾン場の変動やエアロゾル変動がどのように気候変動(放射強制力)を引き起こすか、ソース領域ごとに評価・検討することが重要である。

(3) 領域大気質モデルを併用した汚染物質の長距離輸送の解析

本研究では、全球モデルによる汚染物質の長距離輸送変動の評価をさらに精緻化するため、より高解像度の領域大気質モデルを併用した実験も実施した。ここでは、WRF-chemモデルを用い、上述の全球モデル計算と同様に、過去のエミッション変動を考慮しながらアジア域の大気質の変動計算を実施した。結果の一例を図5に示す。図5は、日本における地表オゾン濃度の時系列変化をモデル計

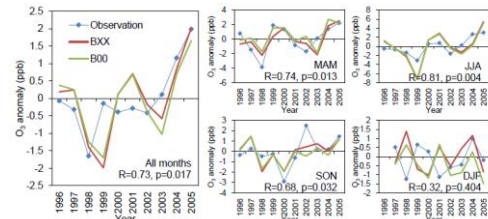


図5. 日本における地表オゾン濃度のアノマリー: 年平均(左図)と各季節平均(右図4枚)。観測(青点・青線)と、モデル計算結果(B00: 緑線、BXX: 赤線)について示す。B00は境界条件(アジアへの流入量)一定の実験、BXXは境界条件の年々変動を考慮する実験の結果。

算した例であり、アジア域への汚染物質の流入量を一定にした実験(B00)と、流入量の年々変動を考慮した実験(BXX)を比較する。汚染物質の流入量は、上述のCHASERの計算結果を用いて、アジア域・モデル領域の境界条件として設定した。まず、流入量の年々変動を考慮した実験は、観測にみられる長期変化傾向を定量的にもよく再現していることがわかる。また、アジア域への汚染物質流入量は、特に2000年以降の日本のオゾン増加傾向に対して大きな影響を及ぼしていることが示唆される。ここで、アジア域へのオゾン流入量の増加は、基本的に欧州や北米からの輸送の効果を反映したものであり、上述の全球モデルによる結果(図4)とも整合的である。

本研究では、このように領域モデルも併用した実験を実施し、全球モデルの計算結果を検証した。しかし、領域モデルによる計算結果は解像度が高く、アジアや日本国内における大気質とその変動を評価・検討する際に、非常に有用であるため、本研究成果を整理し、大気質変動解析としてさらに応用していくことが期待される。

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7件)

- ① 須藤健悟、高田久美子、竹村俊彦、神沢博・安成哲三(2010): 植生改変・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. 低温科学, 68, 129-136. [査読有]
- ② Sudo K. and Y. Ogiwara (2012) Global Modeling of Secondary Organic Aerosol in a Chemistry Coupled Climate Model, Eorozeru Kenkyu 27 (1), 51-61. [査読有]
- ③ K. Miyazaki, H. J. Eskes, and K. Sudo (2012) Global NOx emission estimates derived from an assimilation of OMI

- tropospheric NO₂ column, *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 2263-2288. [査読有]
- ④ Muntaseer Billah Ibn Azkar, M. A., S. Chatani, and K. Sudo (2012), Simulation of urban and regional air pollution in Bangladesh, *J. Geophys. Res.*, 117, D07303, doi:10.1029/2011JD016509. [査読有]
- ⑤ Watanabe, S., Hajima, T., Sudo, K., Nagashima, T., Takemura, T., Okajima, H., Nozawa, T., Kawase, H., Abe, M., Yokohata, T., Ise, T., Sato, H., Kato, E., Takata, K., Emori, S., and Kawamiya, M. (2011) MIROC-ESM 2010: model description and basic results of CMIP5-20c3m experiments, *Geosci. Model Dev.*, 4, 845-872, doi:10.5194/gmd-4-845-2011. [査読有]
- ⑥ Nagashima, T., T. Ohara, K. Sudo, and H. Akimoto (2010) The relative importance of various source regions on East Asian surface ozone *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 11305-11322. [査読有]
- ⑦ Chatani, S. and Sudo, K. (2010) Influence of the variation in inflow to East Asia on surface ozone over Japan during 1996-2005, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 10, 30823-30856, doi:10.5194/acpd-10-30823-2010. [査読有]
- [学会発表] (計 24 件)
- ① 須藤健悟、高田久美子、神沢博、安成哲三 ”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”, 日本地球惑星科学連合 2009 年大会, 千葉幕張メッセ (幕張国際会議場), 2009 年 5 月 21 日.
- ② 高瀬健太郎, 須藤健悟 ”衛星観測・化学輸送モデルによる全球対流圏 CO の解析”, 日本気象学会 2009 年度春季大会, つくば国際会議場, 2009 年 5 月 25 日.
- ③ 関谷高志, 須藤健悟 ”全球対流圏オゾン分布の変動要因: 気象場の変動が及ぼす影響の解析”, 日本気象学会 2009 年度春季大会, つくば国際会議場, 2009 年 5 月 25 日.
- ④ 須藤健悟 “対流圏光化学場の過去再現シミュレーション”, 第 14 回大気化学討論会, 2009 年 11 月 21 日.
- ⑤ 須藤健悟 ”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”, 日本気象学会 2009 年度秋季大会, アクロス福岡, 2009 年 11 月 26 日.
- ⑥ 高瀬健太郎, 須藤健悟 ”バイオマスバーニングが対流圏 CO の全球分布に与える影響に関する解析”, 日本気象学会 2009 年度秋季大会, アクロス福岡, 2009 年 11 月 26 日.
- ⑦ 詹博硯, 須藤健悟 ”火山起源 SO₂ 及び SO₄ の輸送経路および化学変化過程の再現”, 日本気象学会 2009 年度秋季大会, アクロス福岡, 2009 年 11 月 26 日.
- ⑧ 関谷高志, 須藤健悟 ”エルニーニョに伴う熱帯: 亜熱帯対流圏オゾンの変動”, 日本気象学会 2009 年度秋季大会, アクロス福岡, 2009 年 11 月 26 日.
- ⑨ Sudo, K., K. Takata., T. Takemura, H. Kanzawa, and T. Yasunari “Aerosol changes associated with land use change in Asia and their impacts on climate”, American Geophysical Union (AGU) 2009 Fall Meeting, San Francisco, 15 December 2009.
- ⑩ Sekiya, T. and K. Sudo “Meteorological impacts of El Niño on tropospheric ozone distribution during 1970-2006”, American Geophysical Union (AGU) 2009 Fall Meeting, San Francisco, 15 December 2009.
- ⑪ Kanzawa, H., K. Sudo, K. Takata, T. Yasunari “Aerosol changes associated with land use change in Asia and their impacts on climate” Workshop on Development of Asian Mega-cities and Impacts on Regional Climate, Academia Sinica, Taipei, Taiwan, 21 January 2010.
- ⑫ 須藤健悟: 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. 日本気象学会 2010 年度春季大会, 国立オリンピック記念青少年総合センター, 2010 年 5 月 25 日.
- ⑬ Sudo, K., K. Takata, H. Kanzawa, T. Takemura, T. Yasunari: Simulation of aerosol changes in Asia with a chemistry-aerosol coupled climate model. JPGU 2010 年度大会, Makuhari Chiba, Japan, 27 May 2010.
- ⑭ Sudo, K.: Modeling the Climate Impacts of Global Air Pollution and Short-lived Climate Forcers. International Workshop on “Impact of Asian Megacity Development on Local to Global Climate Change” (1st MOST-JST Project Meeting), Beijing Foreign Expert Hotel, Beijing, China, 10-12 October 2010.
- ⑮ 須藤健悟, Patra Prabir, 伊藤昭彦: 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. 大気化学討論会, 首都大学東京, 八王子, 2010 年 11 月 18 日.

- ⑩ Sudo, K.: Global air pollution and its interaction with climate. The 2nd Workshop on Climate and Environment between Nanjing University and Nagoya University, Nagoya University, 5-6 December 2010.
- ⑪ Sudo, K., P. Patra, A. Ito: Leveling-off of atmospheric methane caused by coupling of climate change and tropospheric chemistry. AGU 2010 Fall Meeting, San Francisco, 13-17 December 2010.
- ⑫ Sudo, K., T. Takemura, and H. Akimoto, "Evaluating past changes in short-lived climate forcers and their climate impacts with a chemistry-aerosol coupled climate model", 3rd International Workshop on Atmospheric Modeling Research in East Asia, Chengdu, Sichuan Province, China, September 24-25, 2011.
- ⑬ Sudo, K., T. Takemura, and H. Akimoto, "Evaluating past changes in atmospheric pollutants and their climate impacts with a chemistry-aerosol coupled climate model", The 8th International Conference on Acid Deposition, Acid Rain 2011, Beijing China, 16-18 June 2011.
- ⑭ Sudo, K., T. Takemura, and H. Akimoto, "Modelling Short-Lived Climate Forcers: Climate Impacts and Interaction", 2011 International Union of Geodesy and Geophysics (IUGG) General Assembly, Melbourne Australia, 28 Jun-07 July 2011.
- 21 清水俊成、須藤健悟、”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”、日本気象学会 2011 年度秋季大会、名古屋大学、名古屋、2011 年 11 月 16 日-18 日。
- 22 須藤健悟、竹村俊彦、秋元肇、”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”、第 17 回大気化学討論会、京都大学宇治キャンパス、京都、2011 年 10 月 18 日-20 日。
- 23 Kengo Sudo, Hiroya Endo, Keiichiro Hara, Kazuo Osada, and Toshihiko Takemura, "Simulating black carbon at Syowa station, Antarctic: long-range transport from various source regions", JPGU 2011 年度大会, Makuhari Chiba, Japan, 23th May, 2011.
- 24 須藤健悟、竹村俊彦、秋元肇 ”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”、日本気象学会 2011 年度春季大会、国立オリンピック記念青少年総合センター、2011 年 5 月 18 日-21 日。

6. 研究組織

(1) 研究代表者

須藤 健悟 (SUDO KENGO)

名古屋大学・環境学研究科・准教授

研究者番号：40371744