

平成 30 年 5 月 23 日現在

機関番号：17102

研究種目：基盤研究(S)

研究期間：2013～2017

課題番号：25220101

研究課題名(和文)多波長ライダーと化学輸送モデルを統合したエアロゾル5次元同化に関する先導的研究

研究課題名(英文)Five-dimensional data assimilation of aerosol based on integrated analysis of multi-wavelength lidar and chemical transport model

研究代表者

鵜野 伊津志(Uno, Itsushi)

九州大学・応用力学研究所・教授

研究者番号：70142099

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 153,800,000円

研究成果の概要(和文)：福岡、沖縄、富山の3地点に多波長ライダーを設置し、ライダー観測結果と地上・モデル解析を組み合わせたエアロゾル組成の分離アルゴリズムの精緻化を行った。グランドtruthのエアロゾル観測データをもとに従来にない詳細な分離アルゴリズムを検証し、問題点を精査した。精密な化学反応過程を含む化学輸送モデルでの比較・解析を行い、グリーン関数感度解析法等を組み合わせた排出量のインパース法を多成分同時同化モデルとして構築した。これを用いて日本を中心としたエアロゾル濃度成分の季節変動・空間分布の信頼性の高いエアロゾル再解析データセットを構築・ホームページ上に公開し、エアロゾル再解析結果は学術論文とし発表した。

研究成果の概要(英文)：Based on the multi-wave length Mie-Raman Lidar measurement at Fukuoka, Okinawa and Toyama, we examined the detailed retrieval algorithm of aerosol components (4 components). We clarified the retrieval problems based on the ground-truth aerosol observation at Fukuoka and made the retrieved 3D aerosol data set. Observation data were analyzed by chemical transport model including the detailed gas-aerosol chemical reactions. We developed the multi-aerosol components data assimilation system based on the Green-Function sensitives analysis. Developed data assimilation model was used to establish the aerosol concentration re-analysis data-base including the seasonal and spatial variations.

研究分野：環境気象学

キーワード：ライダー 化学輸送モデル PM2.5 アジア 同化モデリング 広域大気汚染

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

アジア域は世界で一番人為起源の大気汚染物質の排出の多い地域であり、風下に位置する我が国への越境汚染の影響が危惧されている。自然現象に起因する鉱物粒子(黄砂)や海塩粒子寄与も大きい。エアロゾルの大気中の寿命は長くても1-2週間程度で時間・空間的にも大きな変動を示す。本研究では、アジア域の主要な大気汚染物質の発生源からの流れを把握するために緯度帯・気候帯を代表する3地点に同じ機能を持つ多波長のラマン・ミー散乱ライダーを展開し、エアロゾル組成・空間分布を連続測定し、エアロゾルの組成を高精度でリトリバルするアルゴリズムを開発する。更に、ライダー計測や地上観測を拘束条件として、多成分同時同化化学輸送インバースモデルを構築し、高精度の人為起源エアロゾルの分布の再解析データベースを構築し、これをもとに、エアロゾルの環境影響評価の高精度化にも貢献することを目指す。

2. 研究の目的

観測・モデルの研究の両面から、研究統合によって整合性のあるエアロゾル再解析データベースを構築すべく、次の内容を進めた。

観測からは、多波長ライダーシステムを構築し、3波長(2チャンネルはラマン散乱付き)+2偏光消度計測を行う。2波長でのエアロゾル消散係数、3波長での後方散乱係数、2偏光消度の合計7つの情報が得られ、BC、黄砂、海塩、大気汚染粒子(硫酸塩+硝酸塩+OC)成分を分離して高度分布を含めて連続観測・リトリバルするライダーシステムを開発し多点観測を行う。リモートセンシングのランドツルースとして、偏光機能付きの光学粒子計測器(POPC)やエアロゾル化学成分連続自動分析装置(ACSA)を長期連続計測し、多成分エアロゾルの動態解析とライダーアルゴリズムの確立を目指す。

観測研究と平行して、最新のデータ同化手法を駆使し、地上観測やリモセン計測から初期・境界濃度の推定、発生源の逆推定する研究を進める。本研究では、精密な化学反応過程・黄砂発生過程を含む3次元化学輸送モデルを用いて、アジア域の汚染質授受のソース・リセプター関係の解析を行い、グリーン関数感度解析法等を発展させた排出量のインバース法の新たな開発を行い、観測結果と整合するインベントリを構築し、それを用いて東アジア域をカバーする広範囲のPM_{2.5}大気微粒子成分を中心とした地域分布・季節変動を明らかにする。

3. 研究の方法

モデルと観測を密にタイアップした研究の推進を重点的に進めた。特に、多波長ライダーや各種の地上観測から得られる濃度測定結果を利用して、多成分同時同化モデ

ルを構築し、日本を中心としたエアロゾルの季節変動・空間分布の信頼性の高いデータベースの作成を試みた。福岡の九州大学サイトには、地上のランドツルースとして活用できるエアロゾル観測データが得られているので、従来にない詳細な解析を可能である。モデルサイドでは、精密な化学反応過程・黄砂発生過程を含む3次元化学輸送モデルでの解析を行った。それを用いて、グリーン関数感度解析法や2次元変分法を組み合わせた排出量のインバース法の解析を進めた。3年目までの研究から黄砂や海塩と硝酸ガスの不均質反応過程が硝酸塩の越境輸送に重要であること、従来あまり重点が置かれていなかったNH₃排出量推定の重要性が示されたので、黄砂や海塩のモデル再現性にも研究の重点を置いた。

4. 研究成果

(1)福岡、沖縄、富山の3地点に多波長ライダーを設置し、エアロゾルの鉛直分布測定を実施した。ライダーの7チャンネル計測データは、地上観測・モデル解析を組み合わせたエアロゾル組成の分離アルゴリズムの検証を、まず2015年1月-4月のPM高濃度事例などを対象として行い、エアロゾル光学特性のキャラクタリゼーションやエアロゾル組成リトリバルアルゴリズム開発システムとその評価を示した(論文5,6)。

継続して蓄積した2014年9月-2015年10月のライダー観測結果からエアロゾル4種(散乱性エアロゾル、黄砂、海塩、黒色炭素)のアルゴリズム分離を行い、通年の地上観測・モデル解析データを用いた検証した。図1に各種エアロゾルの質量濃度の比較を示す。Pure BC model(黒実線)を使用した質量濃度は過大評価となり、BCに水溶性エアロゾルが皮膜形成するCore-Gray-Shell(CGS) model(緑実線)の導入が必要であることが明らかとなった。海塩については、ライダーは概ねその変動を捉えていた。しかし、黄砂時に海塩粒子が過大となる傾向が見られ、光学特性として黄砂が内部混合している場合には、現アルゴリズムでは黄砂を海塩粒子と誤判定する問題が明らかとなった。PM_{2.5}との比較結果から、ライダーは概ね微小粒子の変動を定量的によく捉えていることが確認でき、長期間にわたる多波長ミー・ラマンライダーを用いた東アジアにおける成分毎のエアロゾルリトリバルが実現できた(論文3, 5, 6, 8)。

(2)ライダー観測結果、エアロゾル化学成分連続自動分析装置(ACSA)、偏光式光学粒子計測器(POPC)の観測結果は、いずれもエアロゾルの混合過程の重要性を示した。ACSAで1時間毎に粒径別エアロゾル成分濃度を測定することにより、従来は不明であった黄砂や越境汚染イベントの急激な時間変化の実態を明らかにできた点は特記できる。

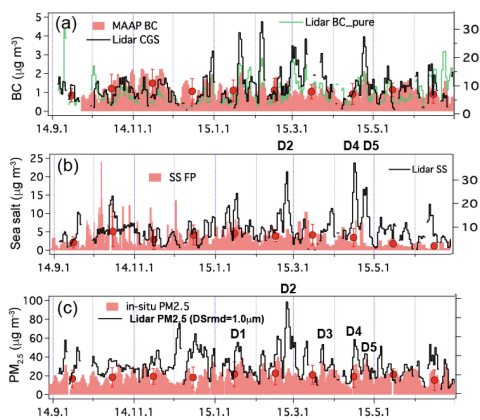


図1 (a)BC (右は BC_pure モデル), (b)海塩 (右はライダー), (c)PM_{2.5}の比較 (D は黄砂時)

黄砂時に、微小と粗大硝酸塩の増大が顕著なことを示し、硝酸塩の濃度変動を従来にない精度で明らかに出来た。モデルに黄砂表面での不均質反応系を導入した。黄砂表面の硝酸塩は中国大陸から黄海・東シナ海で急激に生成していた。中国大陸上のHNO₃は、海洋上で乾性沈着により除去され通常は越境しないと考えられるが、黄砂と共存する場合には日本域まで越境輸送されPM_{2.5}としても重要であることを観測とモデル解析から初めて示した(論文1,3,4,7,9)。

(3)九州大学筑紫キャンパスでの1時間の高時間分解のPM_{2.5}組成分析観測の2013年12月から2015年3月の1年4ヶ月を対象として、化学輸送モデルを用いたソース・リセプター解析(SR解析)を行った。東アジア地域の発生源地域を国・地域、中国の省ごとに15領域に分割し、各領域の人為起源排出量の削減感度計算を行った。これをもとに、福岡に到達する領域毎のエアロゾル成分寄与、季節変動などを解析した。モデル計算結果はPM_{2.5}濃度の時間変化、季節変化を概ね再現していた。福岡におけるPM_{2.5}濃度に対する人為起源の寄与の約75%は国外寄与である。影響の大きな地域としては北京、天津、河北省の相対寄与が20.7%、朝鮮半島の相対寄与が13.0%であり、中国の省ベースの寄与率までスケールダウンした影響解析は初めてである。季節ごとの特徴をみると、PM_{2.5}が高濃度となる冬季から春季にかけては約80%が国外寄与であり、朝鮮半島、および、北京周辺地域・中国東北部から中北部からの寄与が大きい(図2)。

研究開始時にはPM_{2.5}濃度の環境基準超過が大きな問題であったが、2013年から2016年に日本の年平均PM_{2.5}濃度は全国的に3から6µg/m³程度減少し、日平均基準の超過日数も激減した。この理由を中国での排出量・濃度の減少と化学輸送モデルによるSR解析で調べた。中国のPM_{2.5}濃度や衛星計測SO₂、NO₂濃度は年率約10%で減少した。これは排出量の減少によると考えられた。

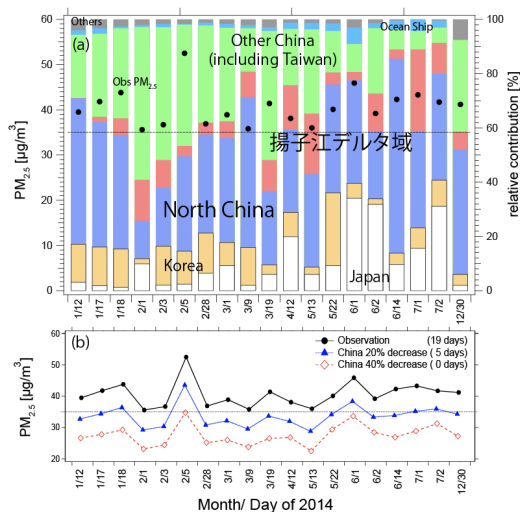


図2 福岡でのPM_{2.5}基準超過日のSR結果と排出削減効果の見積もり結果(論文11)

SR解析は、中国の濃度が20%低下した場合、福岡の年平均濃度が約12%減少することを示した。これは2014-2016年にかけての観測された減少量(約10%)と一致した。中国での排出減少率が継続すると1-2年の内にPM_{2.5}年平均基準を満たす地点が増加し、日本でのPM_{2.5}高濃度越境問題は急速に改善すること示した(図2)(論文9,11)。

(4)ライダー観測と化学輸送モデルを結びつける観測オペレータを開発した。観測オペレータでは、化学輸送モデルのシミュレーション結果から、多波長ラマンライダーと同じ、エアロゾル消散係数(2波長)、後方散乱係数(3波長)、2偏光解度の計7チャンネルの情報を再現する。従来のミー理論に基づく光学モデルを拡張させ、多波長ラマンライダーと地上のエアロゾル組成の同時観測によるエアロゾル種の分類に基づいて、光学モデルを改良し、現実的な観測オペレータの構築を行った。観測オペレータの改良、検証にはPOPCなど今までに蓄積した観測データを最大限に活用した。サンプリング計測や受動型センサー計測により得られたエアロゾル情報を用いて、開発したエアロゾル種分類推定アルゴリズムを用いて福岡、富山、沖縄の3地点でのデータ解析を行い、モデル同化に適したデータセットを構築した(論文12)。

(5) データ同化技術を導入したエアロゾル同化・予測システムを開発した。構築したシステムを大規模黄砂イベントに適用した。黄砂発生域と下流域の様々な観測データを用いた検証を行い、同化結果の妥当性を確認した。モデル結果と観測結果の精度を確認しながら、構築した同化システムを多成分同時同化システムに拡張し、MODIS衛星、地上ライダーとの比較も含めて、エアロゾ

ル排出量インバースの高精度研究を進展させた(論文8,9)。

(6)データ同化手法に2次元変分法を用い5年間の長期解析を行った。同化システムの詳細・同化予測実験の検証結果は Yumimoto et al. (2018)に示した。開発したエアロゾル同化・予測システムを用い、精度が高く欠損の無いエアロゾル4次元データセット(エアロゾル版再解析プロダクト)を構築した。作製期間は2011-2015年の5年間で、エアロゾルの情報が経度緯度約1度間隔の格子点上に6時間間隔のデジタルデータ(任意の場所・時刻のエアロゾル(PM_{2.5})濃度、エアロゾル光学的厚さ、沈着量など)を示した。再解析プロダクトの精度検証をNASAが全球に展開するAERONET観測ネットワークから得られたエアロゾル光学的厚さを用いて行った。その結果、再解析プロダクトは平均二乗誤差が0.08、相関係数が0.90と非常に高い精度を示した。これは、従来の同化を行わない数値シミュレーションの結果と比べて、それぞれ33.3%および18.4%改善していた。この研究成果は学術論文として国際誌に出版されており、欧州地球科学連合のHighlight articleに選出された。作成した再解析プロダクトは、ウェブページを通じて広く公開している(<https://www.riam.kyushu-u.ac.jp/taikai/CIAR/reanalysis.html>)。この結果は越境大気汚染といった大気質の様態解析、疫学研究等を通じた健康影響調査、気候影響の定量的な評価、数値モデルの境界条件、衛星観測データのリトリバルに必要な先見情報などへの利用が期待できるとともに、実際に使われ始めている(論文10)。

(7) 開発したGreen Function法感度解析法(5)および観測オペレータ(4)、化学輸送モデル(GEOS CHEM)(3)、多波長ラマンライダーのデータ(1)を用い、大気汚染排出量の逆推計を行った。データ同化による逆推計は2015年より開始した。排出量の先見情報には2010年のデータを用いた。図3上に2015年5月における同化によって得られた人為起源排出量を、先見情報に対する変化量の割合で示す。(2)で述べたように中国全土の排出量が減少していることと整合する結果が得られている。図3下に逆推計後の排出量で計算されたエアロゾル光学的厚さAODの変化を示す。排出量の減少を反映して中国本土でAODが大きく減少し、その風下の朝鮮半島、日本海や日本列島でもAODが減少していた。完成した同化システムによる逆推計はライダー観測の蓄積・スクリーニングと同期させ、新たな再解析結果の構築を進めている(論文12)。

5. 主な発表論文等

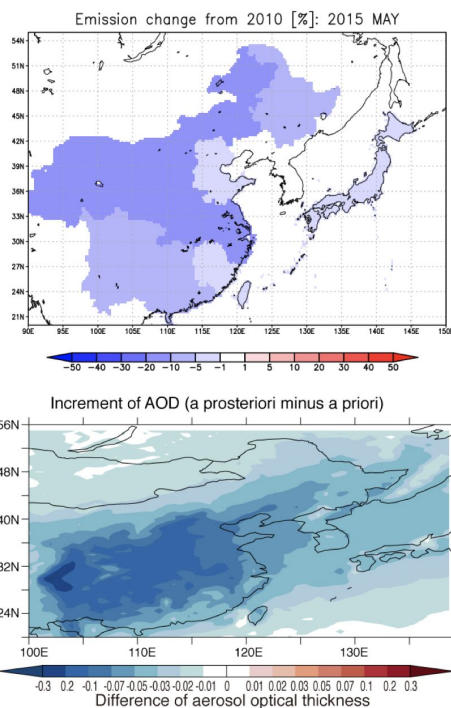


図3(上)同化で修正された2015年5月変化量(2010年に対する割合%) (下)同化前後のエアロゾル光学的厚さの差(論文12)

- [雑誌論文](計70件)(12)以外査読有り
- (1) Pan, X., I. Uno, Y. Hara, M. Kuribayashi, H. Kobayashi, N. Sugimoto, 他3名: Observation of the simultaneous transport of Asian mineral dust aerosols with anthropogenic pollutants using a POPC during a long-lasting dust event in late spring 2014, *Geophys. Res. Lett.*, doi:10.1002/2014GL062491, 2015.
 - (2) Sugimoto, N., T. Nishizawa, 他3名: Detection of internally mixed Asian dust with air pollution aerosols using a polarization optical particle counter and a polarization-sensitive two-wavelength lidar, *J. Quant. Spectroscopy & Radiative Transfer.* 150, 107-113. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jqsrt.2014.08.003>, 2015.
 - (3) Itahashi, S., H. Hayami, I. Uno, X.L. Pan, M. Uematsu: Importance of coarse-mode nitrate produced via sea salt as atmospheric input to east Asian oceans. *Geophys. Res. Lett.*, 43, doi:10.1002/2016GL068722, 2016.
 - (4) Pan, X.L., I. Uno, Y. Hara, K. Osada, S. Yamamoto, Z. Wang, N. Sugimoto 他2名: Polarization properties of aerosol particles over western Japan: classification, seasonal variation, and implications for air quality. *Atmos. Chem. Phys.*, 16, 9863-9873, doi:10.5194/acp-16-9863-2016.

(5) Hara, Y., Nishizawa, T., Sugimoto, N., Matsui, I., Pan, X.L., Kobayashi, H., Osada, K. and I.Uno: Optical properties of mixed aerosol layers over Japan derived with multi-wavelength Mie-Raman lidar system, *J. Quant. Spect. & Radiative Transfer*, **188**, 20-27, 2017.

(6) Nishizawa, T., N. Sugimoto, I. Matsui, A. Shimizu, Y. Hara, I., Uno, K.Yasunaga, 他 2 名 : Ground-based network observation using Mie-Raman lidars and multi-wavelength Raman lidars and algorithm to retrieve distributions of aerosol components, *J. Quant. Spect. & Radiative Transfer*, **188**, 79-93, 2017.

(7) Pan, X.L., I.Uno, Z.Wang, T. Nishizawa, N. Sugimoto 他 6 名 : Real-time observational evidence of changing Asian dust morphology with the mixing of heavy anthropogenic pollution, *Nature Scientific Reports*, **7**, article number SREP-16-35951-T, doi:10.1038/s41598-017-00444-w. 2017.

(8) Yumimoto, K., I. Uno, X.L. Pan, T. Nishizawa, S.-W. Kim and N. Sugimoto: Inverse Modeling of Asian Dust Emissions with POPC Observations: A TEMM Dust Sand Storm 2014 Case Study, *SOLA*, **13**, 31-35, doi:10.2151/sola.2017-006, 2017.

(9) Uno, I., K. Osada, K. Yumimoto 他 7 名: Seasonal variation of fine and coarse mode nitrate and related aerosols over East Asia: Synergetic observation and chemical transport model analysis, *Atmos. Chem. Phys.*, <https://doi.org/10.5194/acp-2017-447>, 2017.

(10) Yumimoto, K. 他 3 名: JRAero: the Japanese Reanalysis for Aerosol v1.0, *Geosci. Model Dev.*, **10**, 3225-3253, <https://doi.org/10.5194/gmd-10-3225-2017>, 2017.

(11) 鶴野伊津志、王哲、板橋秀一、弓本桂也、長田和雄、入江仁士、他 3 名: PM_{2.5} 越境汚染は終焉にむかっているか? 大気環境学会誌, **52**, 177-184 (2017).

(12) 弓本桂也、鶴野伊津志、西澤智明、王哲、原由香里、清水厚、杉本伸夫、松井一郎: 多波長ミー・ラマンライダー観測システムを用いた大気汚染排出量の最適化九州大学応用力学研究所所報, **154**, 18 - 25 (2018)(査読無).

〔学会発表〕(計 100 件)

〔その他〕

(1)ホームページ: <https://www.riam.kyushu-u.ac.jp/taikai/KibanS/index.html>

(2)2017 年 1 月 29 日午前、一般市民向け講演会「PM_{2.5}の長期観測・解析と健康影響調査」を開催した。

(3)九州大学広報部から研究成果のプレスリリースを 6 件行った。

6. 研究組織

(1)研究代表者

鶴野 伊津志 (Itsushi Uno)
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

岡本 創(Hajime Okamoto)
九州大学・応用力学研究所・教授
研究者番号: 10333783(平成 25 年度)

原 由香里(Yukari Hara)
九州大学・応用力学研究所・助教
研究者番号: 30462493
(平成 25-27 年度)

杉本 伸夫(Nobuo Sugimoto)
国立研究開発法人国立環境研究所
研究者番号: 90132852

入江 仁士(Hitoshi Irie)
千葉大学・環境リモートセンシング研究センター・准教授
研究者番号: 40392956

弓本 桂也(Keiya Yumimoto)
九州大学・応用力学研究所・准教授
研究者番号: 50607786

金谷 有剛(Yugo Kanaya)
国立研究開発法人海洋研究開発機構・地球環境観測研究開発センター・研究開発センター長代理
研究者番号: 60344305

長田 和雄(Kazuo Osada)
名古屋大学・環境学研究科・教授
研究者番号: 80252295
(平成 26 年度から)

安永 数明(Kazuaki Yasunaga)
富山大学・大学院理工学研究部・教授
研究者番号: 50421889
(平成 26 年度から)

(3)連携研究者

西澤 智明(Tomoaki Nishizawa)
国立研究開発法人国立環境研究所室長
研究者番号: 10462491

松井 一郎(Ichiro Matsui)
国立研究開発法人国立環境研究所・主任研究員
研究者番号: 30229398

大原 利真(Toshimasa Ohara)
国立研究開発法人国立環境研究所・企画部・フェロー
研究者番号: 80313930

板橋 秀一(Syuichi Itahashi)
(財)電力中央研究所主任研究員
研究者番号: 10714537